

## メタン湧水域における生物地球化学過程に関する研究

○宮嶋佑典  
(産業技術総合研究所)

メタンは有機物分解の最終産物であり、天然ガスの主成分かつ温室効果ガスでもある。メタンの地球史を通じた動態を理解することは、地下深部の炭素循環や燃料資源の生成過程、気候変動要因の解明、そして人類社会の持続に向けた将来予測のために重要である。私はこれまでメタン湧水域の堆積物・岩石の同位体シグナルの解読を通じて、海底下のメタンの生成と酸化、移動に関連した生物活動や元素循環を明らかにする研究を行ってきた。そのために、古生物学に始まり有機地球化学、同位体地球化学・年代学、微生物学にわたる研究手法を取り入れてきた。

### 炭酸塩内有機分子の炭素同位体比を用いたメタンの起源解明

メタン湧水域の堆積物中では、微生物(嫌氣的メタン酸化アーキア)のはたらきによってメタンが酸化されるのに伴いアルカリ度が上昇し、炭酸カルシウムが沈殿する。この炭酸塩はしばしば数センチメートルからメートル規模の岩体へ成長し、現世の海底だけでなく過去のメタン湧出の証拠として様々な年代の地層に保存されている。私は、メタン湧水成の炭酸塩岩には、過去に湧出していたメタンの同位体組成や生成過程(起源)を読み解く手がかりが記録されていると考えた。この着想のもと、日本海沿岸地域の油・ガス田の根源岩・貯留岩に相当する中新統～更新統を対象に、メタン湧水成の炭酸塩岩の探索と採取を行い、それらに含まれる有機分子(微生物由来の脂質およびメタンそのもの)の炭素同位体比を分析した。まず、嫌氣的メタン酸化アーキアに由来する脂質バイオマーカーを抽出し、その分子レベル炭素同位体比を用いてメタンの同位体比を推定した(Miyajima et al., 2020 *J. Asian Earth Sci.*)。また、炭酸塩岩に残留したメタンやエタン、プロパンを抽出し、それらの炭素同位体比を詳細に解析した。その結果、炭酸塩岩には地層の埋没による二次的な熟成だけではなく、微生物によって生成したオリジナルなメタンが保存されている可能性を新たに示した(Miyajima et al., 2018 *Chem. Geol.*)。

### 炭酸塩ウラン-鉛年代測定法の適用によるメタン湧出タイミングの決定

メタン湧水成炭酸塩岩の形成年代は、周囲の地層との関係が不明などの理由により相対的な年代しかわからないケースが多く、それらに含まれる化石生物の進化やメタン湧出の地質学・地球化学的な意義を議論する妨げとなっていた。近年、レーザーアブレーション-ICP質量分析計(LA-ICP-MS)を用いた炭酸塩鉱物(カルサイト)のウラン-鉛年代測定法が急速に発達し、標準物質の提案・合成(Miyajima et al., 2021 *Geostand. Geoanal. Res.*など)や様々な地質試料への適用が進められている。私はこの手法をメタ

ン湧水成炭酸塩岩に世界で初めて適用し、北海道の上部白亜系蝦夷層群分布域の各地で産出する炭酸塩岩の年代測定を行った。その結果、白亜紀後期当時の本地域における付加体形成期と、炭酸塩の形成年代、つまりメタンの湧出タイミングがおおむね一致していることを明らかにした (Miyajima et al., 2023a *Chem. Geol.*)。

### 微量金属の同位体比を用いた含メタン流体の起源解明

海底下深部の流体には、岩石との温度に依存した相互作用により、海水の平均的な値とは異なる濃度・同位体比をもつ金属が含まれる。現世のメタン湧水や泥火山ではメタンとともに、このような深部起源の流体がリチウム安定同位体比などを用いて検出されており、海底下深部の生物地球化学過程を知る貴重な手がかりとなっている。深部流体の元素・同位体組成が炭酸塩岩にも記録されているかどうかは、ストロンチウム・ネオジムなど限定的な元素についてのみ明らかにされていた。先述した蝦夷層群の炭酸塩岩に含まれるストロンチウム・ネオジムの放射性起源同位体比を分析し、ウラン-鉛年代測定の結果と組み合わせることで、蝦夷層群の堆積物やその基盤をなす塩基性岩を起源とする流体が、付加体形成期に上昇し、メタンを湧出させていたと推定した (Miyajima et al., 2023a *Chem. Geol.*)。また、メタンハイドレート分布する現世日本海および黒海のメタン湧水域で採取された炭酸塩岩を対象に、リチウムの安定同位体比を新たに分析した。その結果、炭酸塩岩は海水よりも明らかに軽いリチウム同位体  ${}^6\text{Li}$  に富む流体の同位体比を反映しており、流体の起源は海底下 250 m 以深で少なくとも 26°C 以上の温度を経験していることを解明した。また、起源流体の深度と同位体比を仮定し、上昇過程で被る同位体分別の程度が移流速度によってどのように異なるかシミュレーションを行い、炭酸塩岩のリチウム同位体比を再現しうる流速を推定した。以上の結果から、メタン湧水成炭酸塩岩のリチウム同位体比が、深部流体の起源や流速の指標となることを示した (Miyajima et al., 2023b *Geochim. Cosmochim. Acta*)。

現在私は、海底下の水・堆積物試料に直接アクセス可能な研究環境を生かし、メタンの生成や酸化を行う微生物の活性評価や (Miyajima et al., 2024 *Environ. Sci. Technol.*)、それらの制御因子の解明に取り組んでいる。特に、培養試験を用いてメタン生成アーキアが起こす必須金属 (ニッケル) の同位体分別について研究しており、将来的にはこれを地下環境の水・堆積物や岩石試料へ応用し、必須金属の動態と微生物活動の関係を明らかにしていきたい。本研究の一部は、経済産業省のメタンハイドレート研究開発事業の一部として実施した。

A study of biogeochemical processes in methane seep environments

\*Y. Miyajima (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology)