

## 論文内容の要旨

### 論文題目 **Geological and Geochemical Studies on the Occurrence and Stability of Natural Gas Hydrates in Nankai Trough, Hydrate Ridge and Mackenzie Delta**

(南海トラフ、ハイドレートリッジおよびマッケンジーデルタにおける  
ガスハイドレートの産状と安定性に関する地質学的、地球化学的研究)

氏名 戸丸 仁

ガスハイドレートは、自然界では低温高压な条件を満たす海底や湖沼、永久凍土地域の堆積物中に広く分布している。天然のガスハイドレートにはしばしば大量の炭化水素ガスが包接されており、次世代の天然ガス資源として研究が行われている。また、ガスハイドレートの分解によって引き起こされる海底斜面の不安定化、メタンの放出に伴う環境変化、ガスの湧出現象や、それに伴う化学合成群集の発達など、地質学的研究も進められている。

天然のガスハイドレート量を見積もることは資源量評価としてだけでなく地質学的にも重要であるが、ガスハイドレート層の層厚、飽和率、分布など、正確に求められているデータが少なく、不明確な点が多い。ガスハイドレートの水平分布は反射法地震波探査などで広く調べられているが、空間的な分布は掘削などの直接的な調査を行う必要があるため、その事例は限られており、どのようにガスハイドレートが生成、発達したのかは明らかになっていない。

ガスハイドレートの分布や飽和率はガスハイドレート含有層から採取された間隙水が示す低塩濃度異常、同位体組成比の正の異常を用いて求めることができる。またこれらの値は地質環境やその変動を反映するため、ガスハイドレートの発達史を解明する手がかりとなる。本研究では特に南海トラフ、ハイドレートリッジ、マッケンジーデルタにおける堆積物間隙水の地化学分析をもとにガスハイドレートの空間的な分布、飽和率を決定し、その詳細な分布を規制する地質学的、地化学的な要因を解明することを目的としている。

南海トラフにおける堆積物間隙水の塩素イオン濃度は約 530mM、酸素同位体組成は約 0‰でほぼ一定であることから海水起源の間隙水が卓越しているといえる。ガスハイドレート生成時の塩の除去効果、同位体分別効果による、低塩素イオン濃度異常 (~100mM)、酸素同位体組成の正異常 (~5‰) は、特に砂岩層から採取された間隙水に見られることから、砂岩層にガスハイドレートが卓越していることがわかる。

また、酸素同位体組成はガスハイドレートが卓越する深度(170~270mbsf)で、塩素イオン濃度異常が見られない泥岩、シルト岩中でも約 1‰高くなる異常が見られる。これはダブル BSR の発達から示唆されるように、ガスハイドレート安定深度の上昇(安定領域の減少)によってガスハイドレートが分解し、構造化した水が残留したためであると考えられる。構造化した水の同位体組成はガスハイドレート時の状態を保つが、塩素イオンは自由に流通するので、周囲の間隙水と濃度が等しくなり、塩素イオン濃度と同位体組成の変動が一致しない。このことから少なくとも 170mbsf まで BSR が上昇し、ガスハイドレートが分解した後、再び現在の深度まで安定領域が低下し、現在見ているような集積体が発達したことが示唆される。また、これらの分析結果にもとづき、基準となる塩素イオン濃度、酸素同位体組成比(ベースライン)からの変動幅によって求められたガスハイドレートの飽和率は、BSR 直上の砂岩層(260 mbsf)では約 80%に達することが明らかになった。

オレゴン沖のハイドレトリッジはガスの湧出や塊状ガスハイドレートが海底面上に広がっていることで知られており、活発にガスハイドレートが生成している場であると考えられている。リッジの東側斜面のサイトでは、深度とともに最大で塩素イオン濃度は約 420mM、酸素同位体組成比は約-1‰、水素同位体組成比が約-10‰まで減少していることから、天水を起源とする水が卓越していると考えられる。また、リッジの頂部では酸素同位体組成比のみが深度とともに減少しており、斜面とは異なる水の起源や循環システムの発達が示唆される。

ハイドレトリッジでは深部の堆積物中に間隙充填型のガスハイドレートが発達していることが間隙水の地化学分析などから明らかになった。塩素イオン濃度の低下から求められる間隙充填型ガスハイドレートの飽和率は砂質層中で 10%以下であり、飽和率、分布深度ともに非常に限られているが、リッジ頂部から東側斜面にかけて BSR の分布に対応して広く分布している。一方、塊状ガスハイドレートはリッジ頂部のガスの湧出口やその周囲の透水性の高い砂質火山灰層の付近の、海底面から約 10mbsf までのごく浅い堆積物中に発達している。このことからガスの湧出そのものや透水性の高い層を移動した高濃度ガスの広がりが塊状ガスハイドレートの生成に重要な役割を果たしていると考えられる。

また、塊状ガスハイドレートには含まれる堆積物から採取された間隙水は通常観察される変化とは逆に塩素イオン濃度の上昇 (~1368mM)、同位体組成比 ( $\delta^{18}\text{O}$ : -0.75‰、 $\delta\text{D}$ : -5.6‰) の低下が確認された。これは、この深度で、高塩濃度、低同位体組成比の残留水の拡散する速度よりも、ガスハイドレート生成速度のほうが速い状況を示唆している。また、これらの同位体組成比は、塩素イオン濃度の上昇率から予想される値よりも大きい(変化率が小さい)。これはガスハイドレート生成速度が同位体分別効果の速度を上回っていたことを反映していると考えられる。

マッケンジーデルタでは永久凍土 (0~890m)、およびその下の堆積物中 (890~1108m)

にガスハイドレートが分布しており、本調査では永久凍土の下のガスハイドレート層から採取された間隙水の地化学分析を行った。ガスハイドレートを含まない層の間隙水の塩素イオン濃度や酸素・水素同位体組成比（ベースライン）はガスハイドレートの安定領域浅部では低く（Cl<sup>-</sup>:300mM、 $\delta$  18O:-16‰、 $\delta$  D:-110‰）、深部に向かって増加している（Cl<sup>-</sup>:560mM、 $\delta$  18O:-8‰、 $\delta$  D:-80‰）。これは河川水起源の低塩素イオン濃度、低同位体組成比の地層水が永久凍土やガスハイドレートの生成に伴って残留水を作るとともに、BGHS 以深の透水性の高い地層中を流入してきた高塩素イオン濃度、高同位体組成比の海水起源の水と混合しているためであると考えられることができる。

また、ガスハイドレートを含まない初生的な間隙水の酸素・水素同位体組成のベースラインの変動は少なくとも 6 個のブロックに分けることができた。それぞれのブロック内で深度とともに同位体組成が重くなる傾向が見られ、ブロック間の境界では不連続である。このような不連続な変動は、その境界が過去の BGHS を示しており、BGHS の上ではガスハイドレートの生成による組成変化が、下では流入してきた海水との混合が起き、間隙水の組成が不連続になっているためである。

間隙水中の塩素イオン濃度の低下と同位体組成比の増加は砂岩層で顕著に見られた。これはガスハイドレート生成時の塩除去効果と同位体分別効果によるものであり、砂岩層にガスハイドレートが濃集していることを表す。マッケンジーデルタでは間隙充填型のガスハイドレートが砂岩層に発達しており、その飽和率は最大で 90%に達し、全深度に渡って非常に高い飽和率を示す。

間隙水の低塩素イオン濃度異常から、1m<sup>2</sup> の柱状の堆積体に含まれるガスハイドレート量は南海トラフで合計 9.5 m<sup>3</sup> (SMI~BSR)、そのうち 7.8m<sup>3</sup> が砂岩層に発達している。マッケンジーデルタではガスハイドレート量の合計は 37.3 m<sup>3</sup> (890~1108m) であり、そのうち 32m<sup>3</sup> が砂岩層に発達している。また、ハイドレトリッジでは非抵抗測定から海底面~10mbsf に塊状ガスハイドレートが 5.1 m<sup>3</sup>、間隙水の塩素イオン濃度異常から 10~112mbsf (BSR) に間隙充填型ガスハイドレートが 1.2 m<sup>3</sup> 存在していることが明らかになった。これらの計算から、間隙充填型のガスハイドレートは間隙の大きな砂岩に特に濃集すること、塊状ガスハイドレートの分布は浅部に偏っており、その量も間隙充填型に比べて少ないことがわかる。

南海トラフではダブル BSR の発達、および、塩素イオン濃度と酸素同位体組成比の不一致から、隆起、または底層水の温度上昇によって BSR が上昇し、ガスハイドレートが分解したことが明らかになっている。BSR の上昇によるガスハイドレートの分解は放出されたガスが再び安定領域に上昇移動することによって、ガスの濃度を高める効果があり、ガスハイドレートの飽和率の分布を不均質にする。

マッケンジーデルタでは酸素・水素同位体組成比の深部へ向かっての上昇が階段状であり、その変化が過去の BGHS の深化に対応している。永久凍土地域では温度変化だけでな

く、氷床の発達に圧力条件を支配するので、ガスハイドレートは複雑に生成・分解を繰り返す。それに伴って、ガスを集積、放出するため、分布、飽和率を不均質にする。また、階段状の同位体組成比の変化は、過去のガスハイドレート安定領域の下限を示す、という点で南海トラフに見られるダブル BSR と同様にその発達史を地質学的に記録しているとみなせる。

BGHS の深部、または浅部への移動に伴うガスハイドレートの生成・分解はガスの移動・再集積の原因となる。そのため一旦ガスハイドレートが堆積した後の安定条件の変化はガスハイドレートの分布と量の分布を不均質にする主要な原因といえる。

また、ガスハイドレート飽和率が砂岩中よりも、泥岩やシルト岩中で小さいことが、これらの地域で共通して見られる。これは間隙の小さな堆積物ではキャピラリー効果によってガスハイドレートが生成しにくくなっているためである。逆に、間隙の大きな堆積物は透水性が高いため、ガスを含む流体の積極的な移動経路としてガスの濃度を高めていると考えられ、このような堆積物の分布がガスハイドレートの分布そのものにも強く影響するといえる。

塊状ガスハイドレート中のメタン量は、その層準の間隙水に溶存しているメタン量よりも 30 倍以上になることが計算で求められた。ハイドレトリッジでの塊状ガスハイドレートの生成速度が間隙水の移動速度を上回っていることから、大量のガスがバブルとして供給されること、もしくはガスを含む流体が非常に速い速度で移動し、脱ガスを繰り返すことが、塊状ガスハイドレートの発達には不可欠であると考えられる。そのため、そのガスを供給する流体、ガスの通路としての間隙の大きな堆積物や断層面の分布が、ガスハイドレートの産状、分布を規制しているといえる。プレート収束帯においてしばしば塊状のガスハイドレートが見られるのは、ガスの通路の形成と関係していると考えられる。