

海洋のメタン・ヨウ素循環の素過程の理解

尾　張　聡　子*

1. はじめに

海底堆積物の粒子間を満たす間隙水には，有機物分解やメタン生成，ガスハイドレートの形成・分解，断層活動に伴う流体移動など，海底下で生じるさまざまな現象が化学組成の変化として記録されている（Kastner & Gieskes, 1983; Kopf et al., 2000; Ussler & Paull, 1995; Tomaru et al., 2004; Kuhn et al., 2017）．筆者はこれまで，間隙水の地球化学分析を通じて，海底下におけるメタンやヨウ素，およびそれらを含む流体の挙動を明らかにする研究に取り組んできた．研究を始めた当初は，日本海東縁における表層型ガスハイドレートの分布や，その形成・分解に伴う間隙水の化学環境の変化に関する研究に取り組んでいた．当時は，柱状採泥や掘削によって得られた堆積物から間隙水を抽出し，その化学組成の鉛直分布を調べることで，海底下のガスハイドレートの分布や形成・分解過程を推定していた．

一方，日本海東縁のメタンガス湧出域における遠隔操作型無人潜水機（Remotely Operated Vehicle：ROV）を用いた海底観察では，海底から湧出するメタンガスの周囲にガスハイドレートが数秒程度で形成される様子や，数日間でメタン湧出の強度や位置が変化する様子が観察された（Owari et al., 2025）（図 1）．こうした観察から，海底表層のガスハイドレートやその周辺の化学環境は，従来想定されていた以上に短い時間スケールで変化している可能性が示唆された．しかし，従来の柱状採泥による調査では，このような短期的な変動を直接捉えることは難しい．この経験をきっかけに，筆者らは間隙水の化学組成を長期間にわたって連続的に観測し，ガスハイドレートの短期的な動態を明らかにする研究へと展開した（Owari et al., 2019, 2025）．

さらに，日本海東縁の表層型ガスハイドレートは，海底下から供給されるメタンによって形成されており，その供給経路としてガスチムニーと呼ばれる地質構造が重要な役割を果たしていることが明らかになってきた（松本他., 2009）．こうした深部からの流体供給を理解するためには，流体の移動だけでなく，その起源や履歴を明らかにする必要がある．そこで筆者は，海底下の化学環境が「いつ変化するのか」という時間変動の研究に加え，流体に含まれる物質が「どこから来たのか」「どのような時間スケールを経てきたのか」ということに興味を持ち，メタンのトレーサーとしても利用されてきた間隙水中に溶存するヨウ素およびその放射性同位体を用いた研究へと対象を広げてきた．

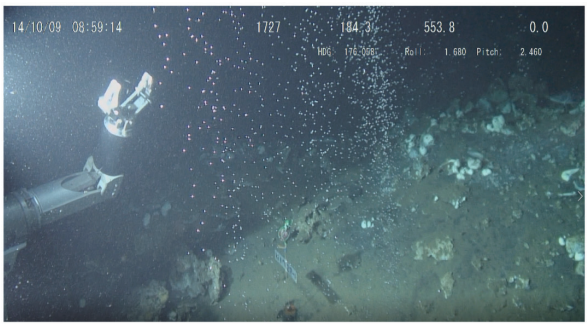


図 1：海底から湧出するメタンガス（Owari et al., 2025 より引用）

*東京海洋大学 学術研究院 海洋資源エネルギー学部門 助教

80 周年記念秋季講演会（令和 8 年 11 月 14 日）講演

本稿では，間隙水の地球化学分析を出発点として発展してきた筆者の研究のうち，「ガスハイドレートの短期的な不安定化の解明」と「放射性ヨウ素同位体を用いたヨウ素循環の解明と年代法の評価」について紹介する．

2.1. ガスハイドレートと浸透圧式長期連続採水器

ガスハイドレートは，低温・高圧条件下で水分子が形成する籠状構造にメタンなどのガス分子が取り込まれた氷状の固体物質であり，海底下や永久凍土域に分布する（図 2）．形成には低温・高圧条件と十分なメタン供給が必要であり，安定領域から外れると分解し，水とガスを放出する（図 3）．また，安定領域内でも，周囲の溶存メタン濃度が平衡濃度を下回ると溶解する．ガスハイドレートは海底下の重要なメタンリザバーであり，その形成・分解や溶解は海洋へのメタン供給を規制する．

ガスハイドレートの形成時には水分子が取り込まれ，塩類が間隙水中に濃縮される一方，分解・溶解時には低塩分水が放出される．このため，保存性成分である間隙水中の塩化物イオン（Cl^-）濃度は，ガスハイドレートの形成・分解を推定する指標として利用されてきた（Gieskes et al., 1991; Tomaru et al., 2004; Torres et al., 2004; Ussler & Paull, 1995）．

従来の柱状採泥は，採泥時点のスナップショットであり，化学組成の時間変化を捉えることが難しかったため，本研究では浸透圧式長期連続採水器（OsmoSampler）を導入した．この装置は，飽和食塩水と超純水の浸透圧差を利用して電源なしで間隙水を連続採取し，数百メートルのコイル内に試料を保存するものである（Jannasch et al., 2004）．これにより，同一地点における間隙水の長期的な時系列観測が可能となった．

2.2. 上越沖ガスハイドレートの短期的な不安定化の解明

筆者らは，日本海東縁の上越沖に位置する海鷹海脚および鳥ヶ首海脚において，長期連続採水器（OsmoSampler）を用いた間隙水観測を実施した（Owari et al., 2019, 2025）．両海脚では，海底表層にガスハイドレートが分布し，活発なメタンガス湧出が確認されている（図 1）．海鷹海脚では，メタン湧出地点の海底下 30 cm から間隙水を連

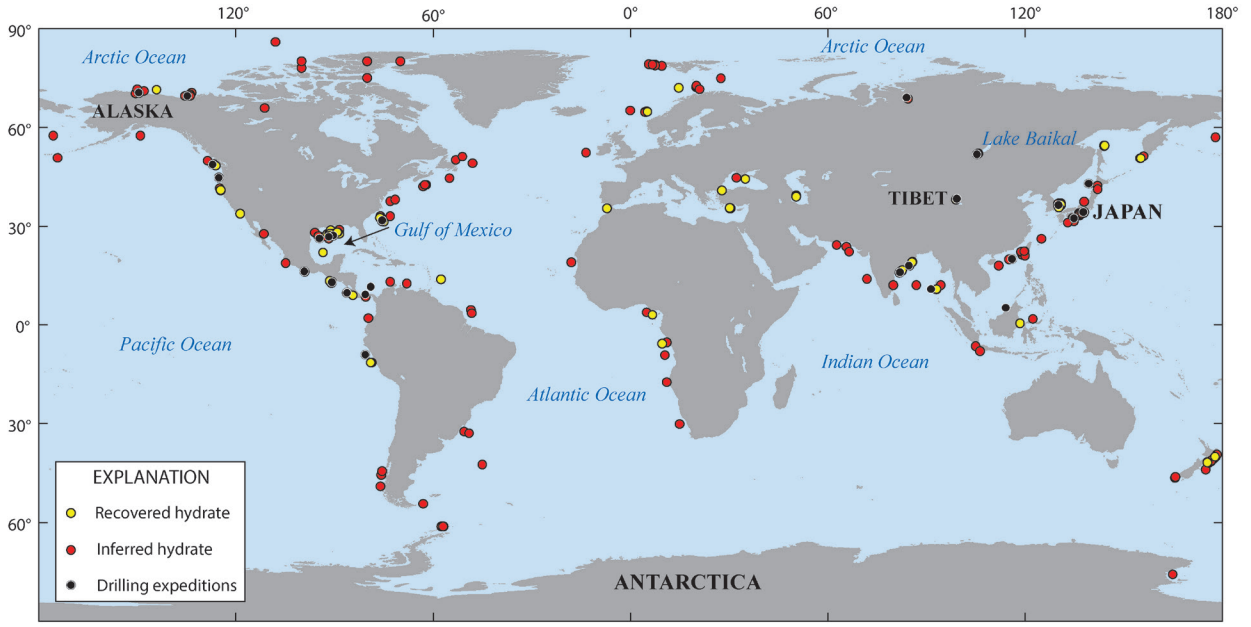


図 2：世界のガスハイドレート分布．各点は，ガスハイドレートが回収された場所（黄丸），地震探査データに基づきガスハイドレートの存在が推定される場所（赤丸），永久凍土や深海環境において掘削調査によりガスハイドレートの回収に至った場所（黒丸）を示す．（USGS より引用）

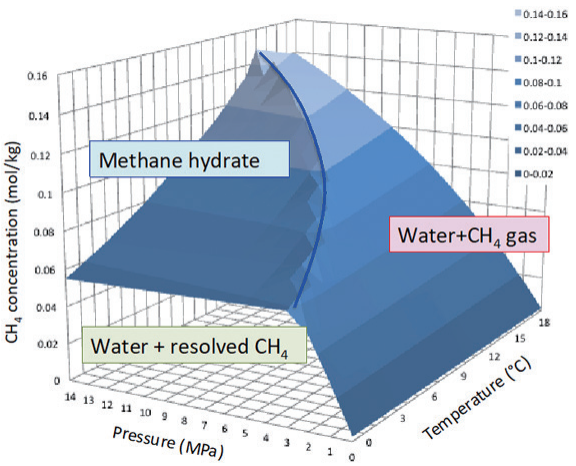


図 3：圧力・温度・メタン濃度に依存するメタンハイドレートの安定領域を示した三次元相図．（MH21-S R&D consortium webpage より引用）

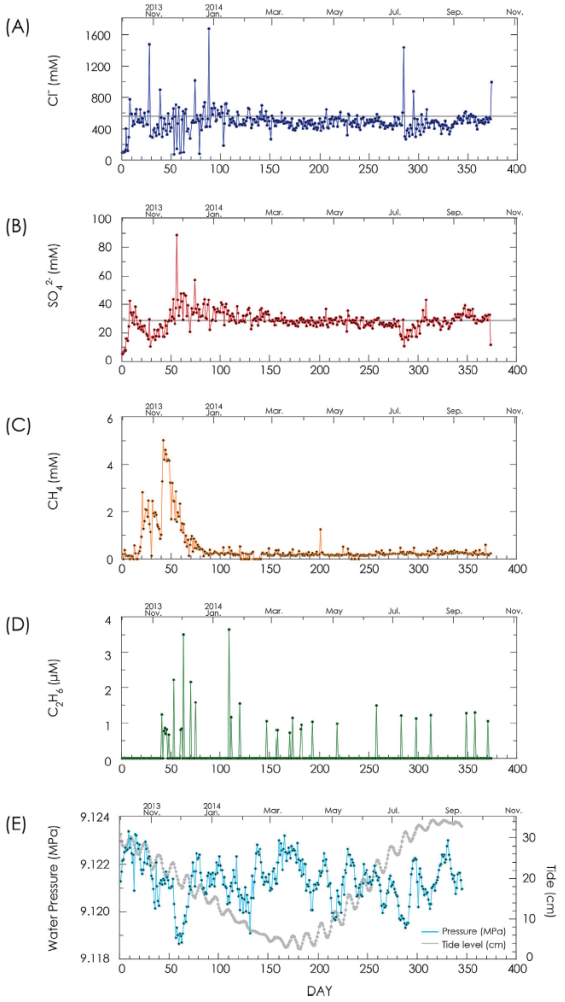


図 4：海鷹海脚メタン湧出サイトにて，約 1 年間連続採水した間隙水の化学分析結果．（A）塩化物イオン濃度，（B）硫酸イオン濃度，（C）メタン濃度，（D）エタン濃度，（E）CTD によって取得された原位置水圧と周辺域の潮位変化．（Owari et al., 2019 より引用）

続採取し，Cl^-，SO_4^{2-}，CH_4 および C_2H_6 濃度の時間変化を調べた．その結果，Cl^- と SO_4^{2-} 濃度には，3～5 日程度の短周期変動に加え，数週間から数十日スケールの変動が認められた（図 4 A, B）．特に観測開始から約 90 日間は変動が大きく，Cl^- 濃度は最大 1,675 mM と海水の約 3 倍に達し，ガスハイドレートの形成・成長に伴う高塩分水が生成されたと考えられる．一方，151～284 日目には両成分が海水よりやや低い濃度で安定し，ガスハイドレートの溶解が優勢になったことが示唆された．こうした形成・溶解には，メタン供給量の変化が関与していると考えられる．CH_4 濃度は観測初期に最大約 5 mM まで上昇した後，90 日目頃までに約 0.2 mM へ低下した（図 4 C）．活発なメタン供給によりガスハイドレートの形成が促進された一方，成長したガスハイドレートが堆積物中のガス移動経路を閉塞させ，メタン供給が減少し，ガスハイドレートの溶解が促進されたと解釈された．

さらに，海底水圧には大潮・小潮に対応する 13～15 日周期の変動が認められ，水圧は約 9.119～9.123 MPa の範囲で変化した（図 4 E）．C_2H_6 や CH_4 濃度の一時的な上昇は水圧の低下のタイミングと対応し（図 4 C，D），わずかな水圧変動がガスの移動やガスハイドレートの溶解を引き起こし，ガスハイドレートから供給されたメタンおよびエタンが間隙水中の濃度上昇を引き起こしたと考えられる．また，水圧データには Cl^- や SO_4^{2-} 濃度と類似した 3～5 日周期の変動も認められ，数日から数週間スケールの水圧変動がガスハイドレートの短期的な不安定化をもたらし，成長・溶解を繰り返す可能性が示された．

一方，鳥ヶ首海脚でも海底下 30 cm から約 1 年間の間隙水採取を実施したが，回収試料量は想定の約 4 分の 1 であった（Owari et al., 2025）．回収時には装置内部にガスハイドレートが確認され（図 5），採水経路の閉塞によって採水量が減少したと考えられる．採水速度が一定でなかったため正確な採水時期は特定できなかったものの，

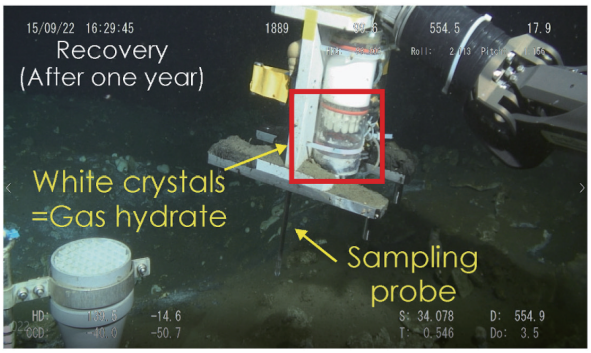


図 5：OsmoSampler のポンプ内に形成されたガスハイドレート（Owari et al., 2025 より引用）

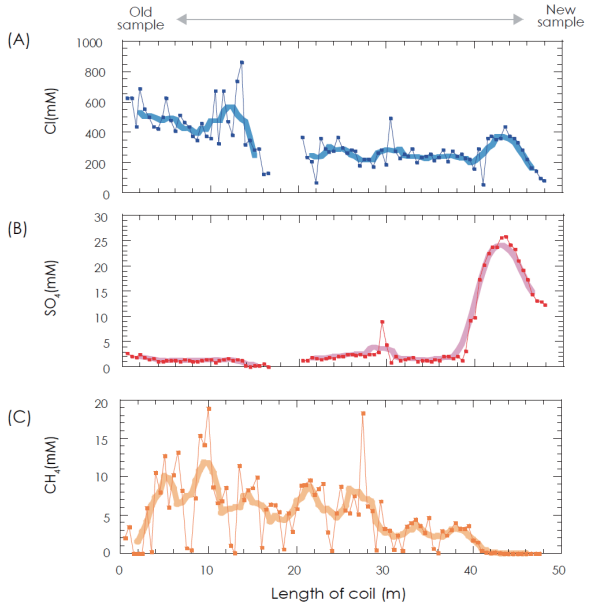


図 6：鳥ヶ首海脚メタン湧出サイトにて，約 1 年間連続採水した間隙水の化学分析結果．（A）塩化物イオン濃度，（B）硫酸イオン濃度，（C）メタン濃度．各グラフの太線は，移動平均値．（Owari et al., 2025 を一部改変）

コイル先端から約 40 m までの区間では Cl^- 濃度が 50〜900 mM の範囲で変動し，海鷹海脚同様，ガスハイドレートの形成・溶解が繰り返されたことが示唆された（図 6 A）．さらに，約 40〜44 m の区間では Cl^- と SO_4^{2-} 濃度が急増し海水値とほぼ同様の値を示し，CH_4 濃度はほぼ 0 mM まで低下した（図 6 A–C）．これは採水地点が途中から，海水成分が卓越する化学環境に変化したことを示唆している．実際に，回収時の ROV 観察では，設置時には存在しなかった局所的な陥没地形と，その斜面に露出するガスハイドレートが確認され（図 7 A，B），ガスハイドレートの浮力によって周囲の堆積物が崩壊・移動し，海底地形の変化に伴って海水が OsmoSampler の採水口付近に浸入したと考えられる．

以上の結果から，海底表層のガスハイドレートは，安定した温度・圧力条件下でも，メタン供給量や水圧の変化，ガス移動経路の閉塞などによって，数日から数週間という短い時間スケールで成長・溶解を繰り返す動的な状態にあることが示された．また，その成長に伴う堆積物の崩壊も，海底下のメタンを海水中へ放出する要因となりうる．これらの成果は，従来の柱状採泥では捉えられなかったガスハイドレートの短期的な不安定化を明らかにし，海洋メタン循環の理解に新たな時間軸を提示するものである．

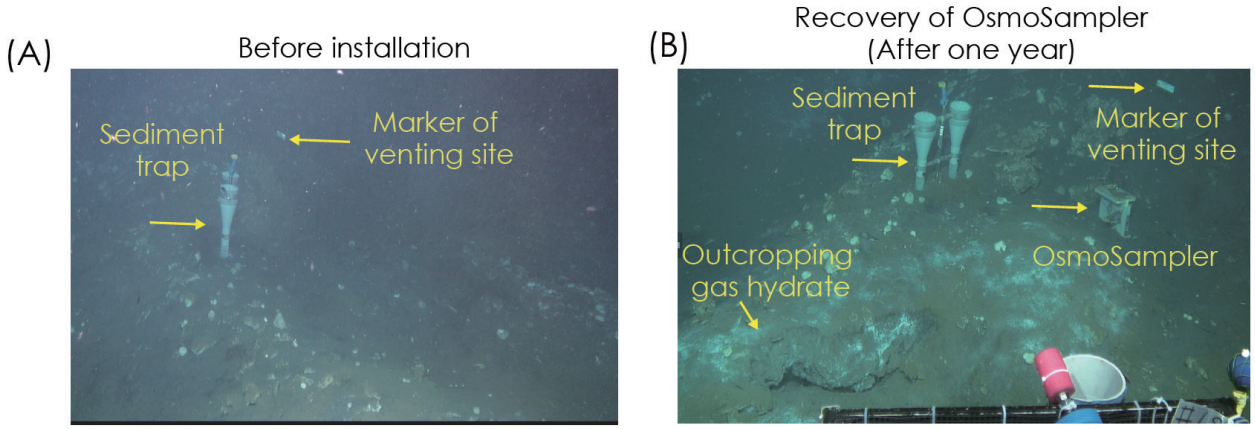


図 7：（A）OsmoSampler 設置前の海底面の様子と，（B）OsmoSampler 回収時の海底面の様子．写真下部側で海底面が崩壊しガスハイドレートが露出している．（Owari et al., 2025 より引用）

3.1. ヨウ素を利用した間隙水地球化学と年代法

筆者が間隙水研究で対象としてきたもう一つの元素がヨウ素である．ヨウ素は強い生物親和性を持ち，海水中の有機物に取り込まれて海底に堆積した後，有機物の分解に伴って間隙水中へ移行する．そのため，特に有機物に富む堆積物やメタン湧出域などでは，間隙水中のヨウ素濃度が海水よりも数十から数千倍高くなる．また，有機物分解に伴ってメタンが生成されることや，拡散係数が近いことから，ヨウ素とメタンは間隙水中で類似した分布を示すため，ヨウ素はメタンの起源や移動を推定するトレーサーとして利用されてきた（Fehn et al., 2003; Lerman, 1979; Lu, Hensen, et al., 2008; Lu, Tomaru, et al., 2008; Tomaru et al., 2004）．

天然のヨウ素には，安定同位体 ^{127}I のほか，極微量の放射性同位体 ^{129}I が存在する．^{129}I は宇宙線による大気中のキセノンの核反応や，地殻中のウランなどの自発核分裂によってほぼ一定の割合で生成され続け，海水に移行する．自然起源 ^{129}I の供給と放射壊変などによる除去が長期的にほぼ均衡し，海水中の ^{129}I/^{127}I 比は地質時代を通しておおむね一定であったと考えられており，その初期値は約 1500×10^{-15} と見積もられている（Broecker et al., 1982; Fehn et al., 2007; Moran et al., 1998）．^{129}I の 1570 万年という半減期を利用して，数百万年から数千万年スケールで流体やメタンの起源年代を推定する指標としてプレート沈み込み帯などでも利用されてきた（Fehn et al., 2003; Lu, Tomaru, et al., 2008; Tomaru et al., 2004）．

海水中のヨウ素が有機物に取り込まれて堆積し，海洋のヨウ素リザバーから隔離されると，^{129}I は放射壊変によって減少する．このため，海洋堆積物系において，ヨウ素の供給・混合がない閉鎖系を仮定すれば，現在の ^{129}I/^{127}I 比と初期値からヨウ素年代を次式で算出できる（戸丸他., 2009）．

$$R_{sample}=R_0 e^{-\lambda 129 t}$$

ここで，R_{sample} は試料中の ^{129}I/^{127}I，R_0 は ^{129}I/^{127}I の初期値（1500×10^{-15}），λ^{129} は ^{129}I の壊変定数（4.41×10^{-8} yr^{-1}），t はヨウ素が海水から隔離されてからの時間を示す．このヨウ素年代は間隙水自体の滞留時間ではなく，主にヨウ素を取り込んだ有機物の起源年代を反映し，メタンの起源年代の推定にも利用できる．^{129}I は半減期が長く，加速器質量分析法の測定下限による制約はあるものの，約 80 Ma までの年代推定に適用できるとされている（Fehn et al., 2000; Lu, Hensen, et al., 2008）．

沈み込み帯の海溝軸陸側では，ヨウ素年代が堆積物年代よりも著しく古い例が報告されており，海溝軸陸側の深部かつ古い付加体堆積物に由来する古いヨウ素の供給や混合が示唆されている（Tomaru et al., 2004）．このような環境では，間隙水中のヨウ素がその場の堆積物に由来するとは限らず，測定された ^{129}I/^{127}I 比は異なる年代のヨウ素の混合を反映する．そのため，ヨウ素年代を特定の地質学的事象の絶対年代として解釈することは難しい．さらに，^{129}I を利用した年代法には，海水や地下水系において，異なる ^{129}I/^{127}I 比の初期値が提案されたことで（Matsuzaki et al., 2020; Ohta et al., 2024），海底下堆積物の間隙水についても，従来の初期値を用いた年代推定の妥当性を検証する必要があった．

筆者はこれらの課題を検討するため，沈み込みに伴う堆積物の変形や断層の発達が進む前の，海溝軸海側に位置する沈み込み前の堆積物（Subduction input）に着目した．Subduction input では，沈み込みに伴う複雑な断層系が未発達で，流体の移動や混合の影響が比較的小さいと考えられる．間隙水中のヨウ素年代と堆積物年代を比較し，両者の一致・不一致とその要因を検討することで，ヨウ素年代法の適用条件を検証するとともに，ヨウ素同位体比を用いた深部流体の供給源や移動過程の解明を目指した．

3.2. 放射性ヨウ素同位体を用いたヨウ素循環の解明と年代法の検証

この研究に取り組む機会となったのが，国際深海科学掘削計画（IODP）第 362 次航海（Exp. 362）によるスマトラ島沖沈み込み帯の掘削である（McNeill et al., 2017; Owari et al., 2024）．スマトラ沖では，インド・オーストラリアプレートがスンダプレートの下に沈み込んでおり，2004 年のスマトラ島沖地震をはじめとする巨大地震が繰り返し発生している．

IODP Exp.362 では，沈み込み前のインド洋プレート上に堆積した厚い堆積物を対象として，Site U1480 および U1481 で掘削が行われた．これらの掘削地点は海溝軸の海側に位置しており，沈み込みに伴う圧縮や断層活動の影響を受けていない堆積物の間隙水について，その化学的特徴を調べることができる．筆者は，これらの掘削地点から採取された間隙水試料を用い，ヨウ素濃度と $^{129}I/^{127}I$ 比を測定した．船上で測定された TOC およびメタン濃度の深度分布も併せて示す（図 8 A ～ D）．

間隙水中のヨウ素濃度は深度とともに増加し，Site U1480 の最深部（約 1400 mbsf）では海水の約 270 倍に相当する約 100 μM に達した（図 8 A）．また，800 mbsf 以深の $^{129}I/^{127}I$ 比は約 400～500×10^{-15} に収束した（図 8 C）．ヨウ素濃度の深度分布が拡散による混合を反映し，最深部では濃度が約 100 μM に近づくこと，さらにその下位には堆積物が存在しないことから，基盤岩側から供給される流体の端成分を I＝約 100 μM，$^{129}I/^{127}I$＝約 400～500×10^{-15} と推定した（図 8 C）．一方，堆積物年代は深度とともに大きく変化し，特に約 1300 mbsf には 17.4～58.1 Ma の堆積休止期間（hiatus）が存在する（図 9）．もしもヨウ素がその場の堆積物中の有機物から供給されていれば，$^{129}I/^{127}I$ 比にも堆積物年代と同様に大きな変動が見られるはずであるが，800 mbsf 以深で観察された $^{129}I/^{127}I$ 比はほぼ一定であった．つまり，深部のヨウ素は，その場の堆積物から供給されているのではなく，異地性の起源を持つ供給源に支配されている可能性が高い（図 9）．また，ヨウ素濃度が基盤岩直上で最大となる一方，基盤岩を構成する玄武岩はヨウ素濃度が低いことから，スンダ海溝より陸側に沈み込んだ古い堆積物に由来するヨウ素に富む流体が，基盤岩に沿って海溝軸海側へ供給されている可能性が示された．これらの結

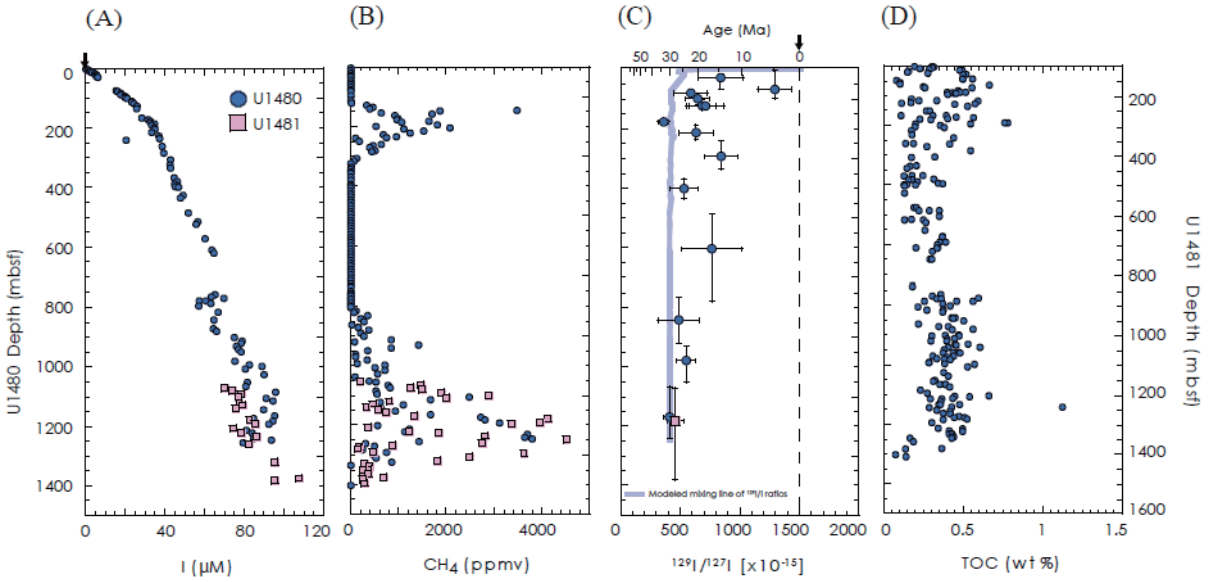


図 8：Site U1480 および U1481 における間隙水および堆積物の地球化学的深度プロファイル．矢印が付いているグラフは各濃度の海水値を示す．（A）ヨウ素濃度，（B）メタン濃度，（C）$^{129}I/^{127}I$ と年代換算値．太線は，深部流体（I＝100 μM，$^{129}I/^{127}I$＝400～500×10^{-15}）と海水（I＝0.4 μM，$^{129}I/^{127}I$＝1500×10^{-15}）の二成分混合モデルを示す．（D）全有機炭素量（TOC）．（Owari et al., 2024 を一部改変）

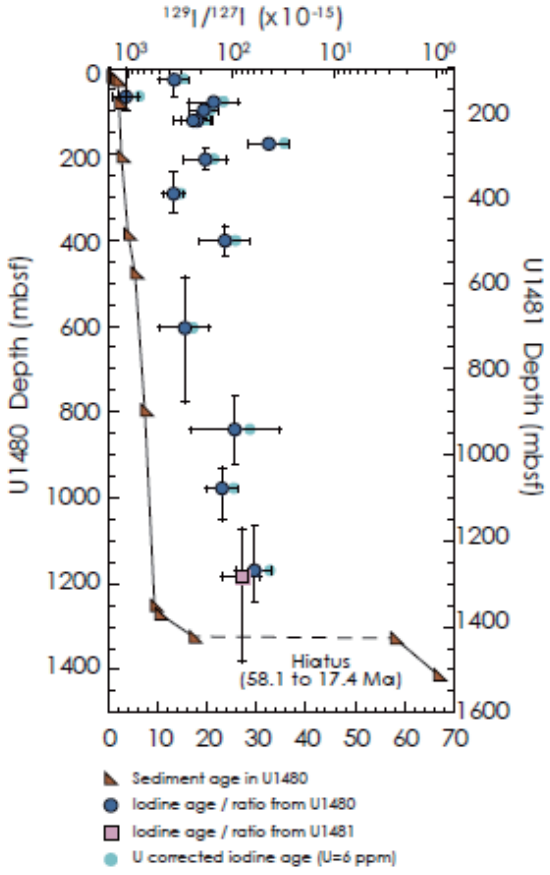


図 9： Site U1480 および U1481 における $^{129}I/^{127}I$ 比，ヨウ素年代および堆積物年代の深度分布．三角のシンボルは堆積物年代，実線の丸と四角はそれぞれ Site U1480 と 1481 の間隙水中のヨウ素同位体比とヨウ素年代を示す．丸（線なし）はウラン（U）の自発核分裂による ^{129}I 生成量を加味して算出したヨウ素年代を示す．（Owari et al., 2024 を一部改変）

果は，海溝軸を横断する大規模なヨウ素の移動・循環が海底下で生じている可能性を示唆している．また，$^{129}I/^{127}I$ 比を絶対年代に換算しなくても，ヨウ素の相対的な年代差を示す指標として利用することで，異なる起源の流体の識別や海底下深部における流体移動経路の推定に役立つことを示している．

一方，浅部（0〜400 mbsf）では $^{129}I/^{127}I$ 比が大きく変動し，深部流体と海水（I＝0.4 μM，$^{129}I/^{127}I$ ＝1500×10^{-15}）との二成分混合モデルだけでは比の変動を説明できなかった（図 8 C）．この深度にはベンガル・ニコバル海底扇状地に由来する厚い砂層が発達しており，砂層は透水性が高いため，この砂層を通じた水平方向の流体移動によって，異なる起源のヨウ素が供給された可能性が考えられる．

さらに，Site U1480 の約 200 mbsf および約 1200 mbsf ではメタン濃度の増加が認められ，TOC の深度分布と併せて検討した結果，有機物分解に伴うメタン生成が 2 つの深度で起きていることが示唆された（図 8B，D）．また，約 200 mbsf ではヨウ素濃度の深度勾配が変化しており，有機物分解によってヨウ素が間隙水中へ付加していると考えられる（図 8 A）．約 70 mbsf では，初期 $^{129}I/^{127}I$ 比を 1500×10^{-15} として算出したヨウ素年代と堆積物年代がほぼ一致した（図 9）．これは，その場の堆積物に含まれる有機物から間隙水へヨウ素が供給されたことを支持する結果である．このように，外部からのヨウ素供給や混合の影響が小さく，現地性のヨウ素が主体となる環境では，初期 $^{129}I/^{127}I$ 比として 1500×10^{-15} を用いることで，ヨウ素の起源年代を推定する絶対年代法として ^{129}I を利用できる可能性が示された．

4. まとめと今後の展望

筆者はこれまで，間隙水の地球化学分析を通じて，直接観察することが難しい海底下の物質循環や流体移動の解明に取り組んできた．ガスハイドレートの研究では，長期連続採水によって，従来の柱状採泥では捉えられなかった数日から数か月スケールの化学環境の変動を明らかにし，メタン供給量や水圧の変化，さらにはガスハイドレート自身によるメタンの移動経路の遮断などの要因によって，ガスハイドレートが短期的に形成・溶解を繰り返し，海底下におけるメタンの蓄積と放出を変動させる可能性を示した．

ヨウ素の研究では，長寿命放射性同位体 ^{129}I を用いて，間隙水中のヨウ素の起源年代と供給源を推定し，沈み込んだ古い堆積物に由来するヨウ素が，基盤岩に沿って海溝軸海側へ供給される可能性を示した．さらに，$^{129}I/^{127}I$ 比が異なる起源のヨウ素の識別や流体移動経路の推定に有効であるこ

とを明らかにするとともに，ヨウ素の起源年代を推定する絶対年代法としての適用可能性を示した．

これらの研究は，数日から数か月という短期的な変動と，数百万年から数千万年という長期的な履歴を対象としているが，いずれも間隙水の化学情報を手掛かりに，海底下における物質の起源や生成・蓄積・移動・放出に関わる素過程を明らかにするものである．現在は，これまで培ってきた分析・観測手法を，日本海だけでなく，アマゾン沖，バルト海，東京湾，南極周辺海域などへ展開している．今後も間隙水を中心とした地球化学分析を通じて，海底下で生じるさまざまな現象やその背景にある物質循環の仕組みを明らかにしていきたい．

5. 謝辞

第 10 回海洋化学奨励賞（U40）の選考委員の皆様ならびに，本賞にご推薦くださった下島公紀先生，海洋調査および地球科学の基礎をご指導くださった戸丸仁先生，松本良先生に心より感謝申し上げます．筆者の研究は，国際深海科学掘削計画（IODP）をはじめとする国際共同研究プロジェクトや，国内の海洋調査研究船による調査を通じて進めることができました．これまでの調査航海において研究を支えてくださった乗船研究者，船員，技術者ならびに運航・研究支援に携わられたすべての皆様に，この場を借りて厚く御礼申し上げます．また，長期間の乗船調査や海外での研究生活を含め，これまでの研究活動を支えてくれた家族に，心より感謝いたします．

6. 引用

Broecker, W. S., Peng, T.-H. (1982). *Tracers in the Sea*. Lamont-Doherty Geological Observatory, Columbia University Palisades, New York.

Fehn, U., Snyder, G., & Egeberg, P. K. (2000). Dating of Pore Waters with 129I: Relevance for the Origin of Marine Gas Hydrates. *Science, 289* (5488), 2332–2335. https://doi.org/10.1126/science.289.5488.2332

Fehn, U., Snyder, G. T., Matsumoto, R., Muramatsu, Y., & Tomaru, H. (2003). Iodine dating of pore waters associated with gas hydrates in the Nankai area, Japan. *Geology, 31* (6), 521. https://doi.org/10.1130/0091-7613(2003)031%3C0521:IDOPWA%3E2.0.CO;2

Fehn, U., Snyder, G. T., & Muramatsu, Y. (2007). Iodine as a tracer of organic material: 129I results from gas hydrate systems and fore arc fluids. *Journal of Geochemical Exploration, 95* (1–3), 66–80. https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2007.05.005

Gieskes, J., Gamo, T., & Brumsack, H. (1991). *Chemical Methods for Interstitial Water Analysis aboard JOIDES Resolution:* Ocean Drilling Program. https://doi.org/10.2973/odp.tn.15.1991

Jannasch, H. W., Wheat, C. G., Plant, J. N., Kastner, M., & Stakes, D. S. (2004). Continuous chemical monitoring with osmotically pumped water samplers: OsmoSampler design and applications. *Limnology and Oceanography: Methods, 2* (4), 102–113. https://doi.org/10.4319/lom.2004.2.102

Kastner, M., & Gieskes, J. M. (1983). Chapter 13 Opal-A to Opal-Ct Transformation: A Kinetic Study. In *Developments in Sedimentology* (Vol. 36, pp. 211–227). Elsevier. https://doi.org/10.1016/S0070-4571 (08) 70092-X

Kopf, A., Deyhle, A., & Zuleger, E. (2000). Evidence for deep fluid circulation and gas hydrate dissociation using boron and boron isotopes of pore fluids in forearc sediments from Costa Rica (ODP Leg 170). *Marine Geology, 167* (1–2), 1–28. https://doi.org/10.1016/S0025-3227(00)00026-8

Kuhn, G., Hillenbrand, C.-D., Kasten, S., Smith, J. A., Nitsche, F. O., Frederichs, T., Wiers, S., Ehrmann, W., Klages, J. P., & Mogollón, J. M. (2017). Evidence for a palaeo-subglacial lake on the Antarctic continental shelf. *Nature Communications*, *8* (1), 15591. https://doi.org/10.1038/ncomms15591

Lerman, A. (1979). *Geochemical processes. Water and sediment environments.*

Lu, Z., Hensen, C., Fehn, U., & Wallmann, K. (2008). Halogen and ^{129}I systematics in gas hydrate fields at the northern Cascadia margin (IODP Expedition 311) : Insights from numerical modeling. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, *9* (10), 2008GC002156. https://doi.org/10.1029/2008GC002156

Lu, Z., Tomaru, H., & Fehn, U. (2008). Iodine ages of pore waters at Hydrate Ridge (ODP Leg 204), Cascadia Margin: Implications for sources of methane in gas hydrates. *Earth and Planetary Science Letters*, *267* (3–4), 654–665. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2007.12.015

松本良，奥田義久，蛭田明宏，戸丸仁，竹内瑛一，山王梨紗, … & 小林武志. （2009）. 日本海東縁，上越海盆の高メタンフラックス域におけるメタンハイドレートの成長と崩壊. 地学雑誌，118（1），43–71.

Matsuzaki, H., Miyake, Y., Nakashoji, K., Tokuyama, H., Tsuchiya, Y. S., Kusuno, H., & Toya, M. (2020). Current status of MALT AMS facility: A report of updated performance and recent achievement. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, *463*, 55–63.

McNeill, L., Dugan, B., & Petronotis, K. (2017). Sumatra subduction zone. *Proceedings of the International Ocean Discovery Program*, *362*.

Moran, J. E., Fehn, U., & Teng, R. T. (1998). Variations in 129I/127I ratios in recent marine sediments: Evidence for a fossil organic component. *Chemical Geology*, *152* (1–2), 193–203.

Ohta, T., Hasegawa, T., Jiang, W., Yang, G. M., Lu, Z.-T., & Mahara, Y. (2024). Feasibility of 129I groundwater dating calibrated by both 81Kr and 4He for the assessment of deep geological repositories in Japan. *Scientific Reports*, *14* (1), 15688.

Owari, S., Tomaru, H., & Matsumoto, R. (2019). Long-term, continuous OsmoSampler results for interstitial waters from an active gas venting site at a shallow gas hydrate field, Umitaka Spur, eastern margin of the Japan Sea. *Applied Geochemistry*, *104*, 25–32. https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2019.03.011

Owari, S., Tomaru, H., & Matsumoto, R. (2025). Long-term use of an osmotically pumped fluid sampler at the Torigakubi Spur in the Japan Sea, an active venting field associated with gas hydrates. *Applied Geochemistry*, *194*, 106578. https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2025.106578

Owari, S., Tomaru, H., & Matsuzaki, H. (2024). Distribution of Stable and Radioactive Iodine Dissolved in Interstitial Waters Within the Subduction Input Sediment Offshore Sumatra Subduction Zone. *Island Arc*, *33* (1), e12542.

Tomaru, H., Matsumoto, R., Lu, H., & Uchida, T. (2004). Geochemical Process of Gas Hydrate Formation in the Nankai Trough Based on Chloride and Isotopic Anomalies in Interstitial Water. *Resource Geology*, *54* (1), 45–51. https://doi.org/10.1111/j.1751-3928.2004.tb00186.x

Torres, M. E., Wallmann, K., Tréhu, A. M.,

Bohrmann, G., Borowski, W. S., & Tomaru, H. (2004). Gas hydrate growth, methane transport, and chloride enrichment at the southern summit of Hydrate Ridge, Cascadia margin off Oregon. *Earth and Planetary Science Letters*, *226* (1–2), 225–241. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2004.07.029

Ussler, W., & Paull, C. K. (1995). Effects of ion exclusion and isotopic fractionation on pore water geochemistry during gas hydrate formation and decomposition. *Geo-Marine Letters*, *15* (1), 37–44. https://doi.org/10.1007/BF01204496

戸丸仁，南尚嗣，庄子仁，蛭田明宏，松本良，& 陸尊礼．（2009）．オホーツク海および日本海に胚胎する表層型ガスハイドレート鉱床における間隙水のハロゲンと放射性ヨウ素同位体（129I）の地球化学．*地学雑誌*，*118*（1），111–127.