

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 12 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540484

研究課題名(和文)泥岩残留ガスの続成変化

研究課題名(英文)Diagenetic change of residual gas in mudstones

研究代表者

鈴木 德行 (Suzuki, Noriyuki)

北海道大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：00144692

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：続成作用と変成作用における頁岩や泥質変成岩中の炭化水素ガスの濃度組成変化を解明した。頁岩と泥質変成岩試料は坑井MITI三島と四国地方の四万十帯、秩父帯、三波川変成帯の露頭から得た。残留メタン濃度は頁岩孔隙率約5%付近から増加し、メタンの保持残留が開始する。最も高濃度の残留メタンが認められたのはビトリナイト反射率(VR)2～3%(最大被熱温度200～250℃)である。変成作用の段階では残留メタン濃度は顕著に減少しており、メタンの石墨化を示唆する。VR=2～3%がシェールガス鉱床形成の主要な熟成段階である。四万十帯に認められるガス徴は付加体におけるシェールガス鉱床の形成を示唆している。

研究成果の概要(英文)：Concentration and compositional changes of hydrocarbon gases in shale rocks and metapelites during diagenesis and metamorphism were revealed by this study. The shale rocks and metapelites were collected from borehole MITI-Mishima and outcrops in Shimanto belt, Chichibu belt, and Sanbagawa metamorphic belt in Shikoku region. Concentration of residual methane begins to increase when shale rock porosity reaches about 5%, suggesting a significant retention of methane in shale rocks. The highest concentration of residual methane corresponds to maturity levels of vitrinite reflectance (VR)=2 to 3% (maximum heated temperature=200 to 250°C). Residual methane concentration significantly decreases in the stage of metamorphism suggesting the graphitization of methane. The maturity level of VR=2 to 3% is the main maturation stage for the formation of shale gas deposit. Several gas seepages observed in Shimanto belt suggest the formation of shale gas deposits in accretionary prism.

研究分野：石油天然ガス・堆積学

キーワード：シェールガス 残留ガス メタン 天然ガス 四万十帯 続成作用 変成作用

1. 研究開始当初の背景

在来型石油天然ガス鉱床は石油根源岩の熟成作用にともなって排出された炭化水素が堆積盆地を移動し貯留岩に集積して形成される。そのため、これまでは泥質堆積岩の埋没続成作用にともなって排出される炭化水素やその一次移動について研究が行われており、堆積岩中に残留する炭化水素についてはほとんど研究が行われていない。最近、泥質岩中に残留する炭化水素ガス（主にメタン）が起源となって地下深部にシェールガス鉱床を形成することが明らかになってきた。シェールガス鉱床の分布は在来型石油天然ガス鉱床の分布と異なっており、今後その産出地域がさらに拡大することが期待されている。

シェールガスは泥質岩中の微小間隙に閉じ込められたメタンがフラクチャーの形成によって放出されフラクチャーの間隙に貯留されたものである。このようなシェールガスが形成されるためには泥質岩が閉鎖されて十分に生成したメタンがトラップされる必要がある。堆積岩中での炭化水素や二酸化炭素の生成についてはこれまで数多くの研究があるが、続成過程で生成したメタンや二酸化炭素が泥質岩中にどのように残留していくのか未だ不明である。

北海道に分布する古第三紀の亜瀝青炭・瀝青炭にともなうコールベッドメタンの挙動や資源としての可能性を探ってきた（鈴木ほか，2011，石技誌）。そこで開発した石炭中に残留する無機・有機ガスの同時高感度分析法を予察的に資源エネルギー庁基礎試錐「三島」（1992年掘削）で得られた中新世泥岩に適用したところ、孔隙率の大きい泥岩では残留ガスをほとんど検出できなかったが、孔隙率の小さい泥岩試料（ $<10\%$ ）では多量の水素、メタン、二酸化炭素を検出した（鈴木ほか，2011，石技協会春季講演会）。日本の各種泥質岩について同様に、かつ系統的に分析することによって堆積盆地深部での炭化水素ガスの挙動を明らかにし、あわせて日本の泥質岩のシェールガス資源の可能性を探ることができるとの着想に至った。

2. 研究の目的

泥質岩中で生成した炭化水素ガスには排出されるものと残留するものがある。排出されたものは従来の天然ガス鉱床を、残留するものはシェールガス鉱床を形成する。本研究では、これまでほとんど研究されていない泥岩に残留する炭化水素ガスに注目し、砕屑性泥岩と珪質泥岩の埋没続成作用における残留炭化水素ガスの形成や濃度・組成・安定同位体比の変化を明らかにする。本研究によって堆積盆地深部での気体移動に関する新しい知見が得られ、シェールガス鉱床の分布について具体的に予測可能になることが期待

される。

3. 研究の方法

埋没続成段階の異なる一連の砕屑性泥岩と珪質泥岩を資源エネルギー庁基礎試錐「三島」、東北日本と北海道の日本海側新第三紀堆積盆地より採取する。これらの古地温、孔隙率、浸透率、内部微細構造、有機炭素濃度等を明らかにする。珪質泥岩についてはシリカ鉱物の自生鉱物相を明らかにする。泥質岩残留ガスの挙動を明らかにするため、泥質岩の粉碎過程で放出される気体の全気体組成、濃度、炭素・水素安定同位体比を測定する。以上のデータを基にして、残留炭化水素ガスの形成や濃度・組成変化と泥質岩の埋没続成段階の関係を砕屑性泥岩と珪質泥岩の場合にわけて考察し、比較検討する。

4. 研究成果

基礎試錐「三島」より得られたカッティングガス試料、コア試料と四国四万十帯、三波川帯より得た泥岩、泥質変成岩試料を用いて、試料粉碎時に放出される残留ガスの全ガス組成分析を行った。これらの試料を用いることによって最大被熱温度 $50 \sim 600$ の範囲（続成作用・変成作用の段階）における泥岩残留ガス組成の変化を検討することができた。その結果、泥岩孔隙率が 5% 以下になると残留メタンの濃度が増加し、 $2 \sim 3\%$ 以下になると C_1 の排出・移動がほとんど行われない。泥岩残留メタンの濃度が最も高まるのはビトリナイト反射率（VR） $= 2 \sim 3\%$ （最大被熱温度 $200 \sim 250$ ）の熟成段階である。VRが 3% 以上になると C_1 の存在度が減少する傾向が認められ、 C_1 のグラファイト化を示唆している。シェールガス鉱床は堆積層中に残留した C_1 によって形成されるので、残留メタンの濃度が最も高まる母岩の熟成段階とシェールガスポテンシャルは密接に関係している。四万十帯に代表される付加コンプレックスは日本に特徴的に認められる地質構造であり、広域的に分布している。残留メタン濃度が高まる $R_o=2 \sim 3\%$ の熟成段階にあるほか、地表に大規模に露出していること、圧縮場でのシール形成や閉鎖的なフラクチャーの形成が期待されることなど、シェールガス鉱床の成立が期待される。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計 6 件）

Hossain, Md. A., Suzuki, N., Matsumoto, K., Sakamoto, R., Takeda, N. (2014)

In-reservoir fractionation and the accumulation of oil and condensates in the Surma basin, NE Bangladesh. J. Petrol. Geo

1., 37, 269-286. 査読有. DOI:10.1111/jpg.12583

高橋幸士, 鈴木徳行, 齋藤裕之 (2014) 古第三紀石炭の炭化水素ガス排出タイミングを推定するための開放系・閉鎖系熱分解実験. 石技誌. 79, 353-354. 査読有. http://japt.org/shuppan/files/79-5_mokuji.pdf

Takahashi, K.U., Suzuki, N., Saito, H., (2014) Compositional and isotopic changes in expelled and residual gases during anhydrous closed system pyrolysis of hydrogen-rich Eocene subbituminous coal. *Int. J. Coal Geol.*, 127, 14-23. 査読有.

DOI: 10.1016/j.coal.2014.02.009

Hossain, Md. A., Suzuki, N., Matsumoto, K., Sato, N., Takeda. (2013) Origin of crude oil and condensates from Surma basin, north-eastern Bangladesh. 石技誌. 78, 421-422. 査読有. http://japt.org/shuppan/files/78-5_Web_mokuji.pdf

Premarathne, D.M.U.A.K., Suzuki, N., Ratnayake, N.P., Kularathne, E.K.C.W. (2013) A petroleum system in the Gulf of Mannar Basin, offshore Sri Lanka. *Proc. 30th Tech. Sess. Geol. Soc. Sri Lanka*, 9-12. 査読有. http://www.researchgate.net/profile/Upul_Premarathne/publication/243963635_A_Petroleum_System_in_the_Gulf_of_Mannar_Basin_Offshore_Sri_Lanka/links/0046351d23cc17794b000000.pdf

鈴木徳行, 前本謙太, 星野太一 (2013) 続成作用・変成作用における泥岩残留炭化水素ガスの変化と四万十帯付加体のシェールガスポテンシャル. 石技誌. 78, 16-27. 査読有.

DOI: org/10.3720/japt.78.16

〔学会発表〕(計 33 件)

高橋幸士, 鈴木徳行, 齋藤裕之. 熱熟成に伴う石炭起源炭化水素ガスの水素同位体組成の変化. 第32回日本有機地球化学シンポジウム. 2014年11月6日~2014年11月8日. 「ニューウェルシティ湯河原 (静岡県熱海市)」

鈴木徳行. 地下深部の有機物起源の水素. 第32回日本有機地球化学シンポジウム. 2014年11月7日. 「ニューウェルシティ湯河原 (静岡県熱海市)」

朝比奈健太, 鈴木徳行. テルペン類の加水熱分解で生成するナフタレン類の特徴. 第32回日本有機地球化学シンポジウム. 2014年11月6日. 「ニューウェルシティ湯河原 (静岡県熱海市)」

Takahashi, K., Suzuki, N., Saito, H. Closed and semi-open system pyrolysis for estimating the timing of hydrocarbon gas expulsion from Paleogene coal. 31st TSOP ANNUAL MEETING. 2014年9月27日~2014年10月3

日. 「シドニー (オーストラリア)」

高橋幸士, 鈴木徳行, 齋藤裕之. 閉鎖系・準開放系熱分解実験による石炭起源ガスの排出温度推定. 日本地球化学会第61回年会. 2014年9月16日. 「富山大学五福キャンパス (富山県富山市)」

鈴木徳行, 星野太一, 齋藤裕之. 頁岩と泥質変成岩中の水素の同位体組成と起源. 日本地球化学会第61回年会. 2014年9月16日. 「富山大学五福キャンパス (富山県富山市)」

齋藤裕之, 鈴木徳行. 北海道新生代コールベッドメタンの炭素同位体組成.

日本地球化学会第61回年会. 2014年9月16日. 「富山大学五福キャンパス (富山県富山市)」

佐藤光, 鈴木徳行. 石狩層群泥質岩の高等植物ワックス水素同位体組成から見た始新世の海水準変動. 日本地質学会第121年学術大会. 2014年9月14日. 「鹿児島大学郡元キャンパス (鹿児島県鹿児島市)」

高橋幸士, 鈴木徳行, 齋藤裕之. 古第三紀石炭の炭化水素ガス排出タイミングを推定するための開放系・閉鎖系熱分解実験. 平成26年度石油技術協会春季講演会. 2014年6月5日. 「朱鷺メッセ (新潟県新潟市)」

Hossain, Md. A., 鈴木徳行, 齋藤裕之, 坂本亮, 武田信従. Carbon and hydrogen isotope compositions of individual *n*-alkanes in oil and condensate from the Surma basin, Bangladesh, showing source and evaporative fractionation. 平成26年度石油技術協会春季講演会. 2014年6月5日. 「朱鷺メッセ (新潟県新潟市)」

Suzuki, N., Saito, H., Maemoto, Hoshino, T., Takahashi, K.U. Change of residual gas in shale and metamorphic rocks during diagenesis and metamorphism. 2013, 26th International Meeting on Organic Geochemistry, Tenerife. 2013年9月16日~2013年9月20日. 「コスタアデヘ(スペイン)」

Saito, H., Suzuki, N. Biogenic coalbed methane from Miocene crop coals, Hokkaido, Japan. 26th International Meeting on Organic Geochemistry, Tenerife. 2013年9月16日~2013年9月20日. 「コスタアデヘ(スペイン)」

Takahashi, K., Suzuki, N., Saito, H. Isotopic and compositional changes of expelled and residual gases during laboratory maturation of Eocene sub-bituminous coal. International Conference on Gas Geochemistry 2013. 2013年9月2日~9月6日. 「パトラス(ギリシャ)」

朝比奈健太, 鈴木徳行. セスキテルペ

ンの加水熱分解に由来するナフタレン類の特徴. 日本地球化学会第60回年会 2013年9月11日~9月13日. 「筑波大学(茨城県つくば市)」

高橋幸士, 鈴木徳行, 齋藤裕之. 新生代石炭から排出される熱分解起源炭化水素ガスの同位体組成の変化. 第31回日本有機地球化学シンポジウム. 2013年8月19日~8月20日. 「倉敷市芸文館(岡山県倉敷市)」

佐藤光, 鈴木徳行. 陸成堆積物の高等植物ワックス水素同位体比から見た始新世海水準変動. 第31回日本有機地球化学シンポジウム. 2013年8月19日~8月20日. 「倉敷市芸文館(岡山県倉敷市)」

齋藤裕之, 鈴木徳行. 北海道新生代露頭炭のコールベッドガスの地球化学的特徴. 第31回日本有機地球化学シンポジウム. 2013年8月19日~8月20日. 「倉敷市芸文館(岡山県倉敷市)」

星野太一, 鈴木徳行, 齋藤裕之. 地下深部での泥岩残留メタン・水素の炭素水素同位体組成の変化. 第31回日本有機地球化学シンポジウム. 2013年8月19日~8月20日. 「倉敷市芸文館(岡山県倉敷市)」

角勇樹, 鈴木徳行. 石狩層群幌加別層の有機地球化学的特徴と始新世の巨大湖沼. 第31回日本有機地球化学シンポジウム. 2013年8月19日~8月20日. 「倉敷市芸文館(岡山県倉敷市)」

朝比奈健太, 鈴木徳行. 化石燃料や堆積岩中のナフタレン類の起源と生成機構. 日本化学会北海道支部2013年夏季研究発表会. 2013年7月20日. 「北見工業大学(北海道北見市)」

- ⑳ Wicaksono, A.B., Suzuki, N., Saito, H., Takahashi, K., Sosrowidjojo, I.B. Origin of desorbed coalbed gas from middle to late Miocene coals in Kutei Basin, Indonesia. 平成25年度石油技術協会春季講演会. 2013年6月26日~6月28日. 「国立オリンピック記念青少年総合センター(東京都渋谷区)」

- ㉑ Premarathne, U. Source rock potential of some Mesozoic sediments from Gulf of Mannar Basin, offshore Sri Lanka. 平成25年度石油技術協会春季講演会. 2013年6月26日~6月28日. 「国立オリンピック記念青少年総合センター(東京都渋谷区)」

- ㉒ Murwani, R.T., Suzuki, N., Sosrowidjojo, I.B. The diversity of *n*-alkane distribution and possible migration fractionation of oils in Kutei Basin, Indonesia. 平成25年度石油技術協会春季講演会. 2013年6月26日~6月28日. 「国立オリンピック記念青少年総合センター(東京都渋谷区)」

- ㉓ Hossain, Md. A., Suzuki, N., Matsu-

moto, K., Sato, N., Takeda. Origin of crude oil and condensates from Surma basin, north-eastern Bangladesh. 平成25年度石油技術協会春季講演会. 2013年6月26日~6月28日. 「国立オリンピック記念青少年総合センター(東京都渋谷区)」

- ㉔ 齋藤裕之, 鈴木徳行. 北海道中新世露頭炭中の微生物起源コールベッドメタン. 日本地球化学会第59回年会. 2012年9月11日~9月13日. 「九州大学箱崎キャンパス(福岡県福岡市)」

- ㉕ 鈴木徳行. 四万十帯と秩父帯のシェールガスポテンシャル. 日本地質学会第119年学術大会. 2012年9月15日~9月17日. 「大阪府立大学中百舌鳥キャンパス(大阪府堺市)」

- ㉖ 鈴木徳行, 星野太一, 前本謙太, 高橋幸士, 齋藤裕之. 地下深部でのCH₄, CO₂, H₂の組成変化. 第30回日本有機地球化学シンポジウム. 2012年8月22日~8月23日. 「東北大学(宮城県仙台市)」

- ㉗ 星野太一, 鈴木徳行, 齋藤裕之, 高橋幸士. 北海道, 東北日本の泥岩・珪質泥岩に含まれる残留ガスの続成変化. 日本堆積学会2012年札幌大会. 2012年6月15日~6月18日. 「北海道大学(北海道札幌市)」

- ㉘ 前本謙太, 鈴木徳行, 齋藤裕之, 高橋幸士, 島田昌英. 四国に分布する高熟成泥岩・低度泥質変成岩中の残留ガス組成. 日本堆積学会2012年札幌大会. 2012年6月15日~6月18日. 「北海道大学(北海道札幌市)」

- ㉙ 角勇樹, 鈴木徳行, 長谷川精, 井上武. 北海道中央部に分布する幌加別層の堆積環境からみた始新世の巨大湖沼. 日本堆積学会2012年札幌大会. 2012年6月15日~6月18日. 「北海道大学(北海道札幌市)」

- ㉚ 井上武, 鈴木徳行, 長谷川精, 齋藤裕之. 北海道始新世非海成堆積物にみられる陸源有機物の分別運搬堆積作用. 日本堆積学会2012年札幌大会. 2012年6月15日~6月18日. 「北海道大学(北海道札幌市)」

- ㉛ 長谷川精, 安藤寿男, 長谷川卓, 太田亨, 山本正伸, 長谷部徳子, 村田崇行, LiG., Ichinnorov N., 鈴木徳行, 入野智久, 池田昌之, Heimhofer, U.

- モンゴル南東部白亜系湖成層の鉱物・堆積有機物組成から見る湖水位および湖生物生産の変動: OAE1a-1b期における陸域気候変動復元に向けて(概報). 日本堆積学会2012年札幌大会. 2012年6月15日~6月18日. 「北海道大学(北海道札幌市)」

- ㉜ 齋藤裕之, 鈴木徳行. 北海道留萌炭田に露出する中新世石炭層から得られた微生物起源コールベッドメタン. 平成24年度石油技術協会春季講演会. 2012年

6月5日～6月8日.「秋田ビューホテル(秋
田県秋田市)」

〔図書〕(計 1 件)

鈴木徳行 (2012)「地球と宇宙の化学事
典」, 石油 (の地球化学), 日本地球化学
会編, 朝倉書店, p.307-308 .〔産業財産
権〕

出願状況 (計 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
国内外の別 :

取得状況 (計 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
取得年月日 :
国内外の別 :

〔その他〕

ホームページ等
N.SUZUKI 's Homepage
<http://www.hucc.hokudai.ac.jp/~k15507/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鈴木 徳行 (Noriyuki Suzuki)
北海道大学 大学院理学研究院・教授
研究者番号 : 00144692

(2) 研究分担者

()

研究者番号 :

(3) 連携研究者

()

研究者番号 :