

令和 6 年 5 月 29 日現在

機関番号：37111

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2023

課題番号：19K05358

研究課題名（和文）流体包有物に基づく北海道白亜系・古第三系新規ガス鉱床の高精度解析と開発への応用

研究課題名（英文）High accuracy analysis of new gas deposits from Cretaceous and Paleogene in Hokkaido on the basis of fluid inclusion and application to mining developments.

研究代表者

鮎沢 潤 (Aizawa, Jun)

福岡大学・理学部・助教

研究者番号：70184249

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,500,000円

研究成果の概要（和文）：鉱物を切り出した堆積岩試料の全炭素は10%に達し大部分が有機態である。炭質物と共存・共生する自生鉱物の流体包有物均質化温度範囲は約75-100℃であった。同一箇所でも垂直（埋没深度）方向に向かい温度の系統的な上昇は認められず、地点間での変化も大きいことから、白亜系・古第三系とも有機物の熟成に実効性をもつ被熱の時期は古第三紀以降の可能性が高い。包有物自体が微細に加え気相の占める容積も小さいものの、冷却実験の結果は炭化水素からなる気相の存在を示す。これらの知見より、メタン生成に必要な根源物質は普遍的に存在し、深部のほか浅所であっても局所的な被熱の影響を受けた層ではガスが生成していた可能性が高い。

研究成果の学術的意義や社会的意義

当地域では夾炭古第三系に伴うメタンガスが炭鉱の坑内で、古第三系の下位にくる白亜系露頭では石油の兆候が知られていたが、1960年代以降は陸上調査・研究が無いまま今に至る。本研究で質量%の桁の炭素（殆どが有機態炭素）を含む堆積岩試料を地表・坑内・ボーリング現場から得て、このうち堆積物が岩石化する過程で新たに生じた鉱物（自生鉱物）を検討した結果、岩石がおかれた温度は約75-100℃、鉱物中の流体包有物は有機物の分解過程で生じたメタンを含む事例もあることが判った。白亜系や古第三系に加え、ガス・石油の後からの移動次第では先白亜系と新第三系にも新たな燃料資源鉱床が存在する可能性が高いことが明らかになった。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this research is to estimate underdeveloped fuel deposits in Hokkaido, northeast Japan on the basis of paleotemperature from authigenic minerals that coexist with carbonaceous matter. Combined analysis both inorganic mineral and organic carbonaceous matter is useful not only to clarify past temperature under diagenetic condition but also to construct actual thermal history of sedimentary basins that closely related to generation of methane as well as petroleum. In addition to selected localities and horizons around the district, samples were collected from underground mining areas, borehole cores and cuttings. Obtained data indicate from ca 75 to 100℃, however, no stratigraphic increase with burial depth is observed. This indicates that organic maturation proceeds later stage of burial diagenesis with short duration. As most of carbon in host sedimentary rocks up to 10 wt% is not inorganic, appropriate thermal history as above may generate new fuel deposits.

研究分野：石炭地質学

キーワード：新規ガス鉱床 北海道 白亜系 古第三系 流体包有物

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

石炭鉱床でガスの発生は鉱山保安の観点から多くの研究が行われてきたが、それらは必ずしもガス鉱床としての開発を意図したものではなかった(例えば百石,1961など)。海外では石油根源有機物と石炭組織との関係に着目した石油鉱床の探鉱および開発が進められており、日本の炭田地帯でも地球・資源システム工学的な手法と情報に基づく新規燃料鉱床の探査・評価は期待されていた。

研究開始時点で話題となっていたシェールガス / シェールオイル鉱床はガス田・油田のみならず、既存の炭田や未探査のまま残る堆積岩地域までもが候補となる。流体炭化水素鉱床の新規探査と開発では、1) 岩石中に必要量の根源有機物が存在するか、2) 有機熟成に適した温度条件を満たすか、および 3) 炭化水素流体がトラップされる構造の有無が重要であるが、研究開始前の日本国内では、これら全てを包括する事例は見当たらない状況であった。北海道の白亜系・古第三系は地質および地質構造の概要が判明し、特に道東地域はガス・石油鉱床の伏在が指摘(北海道鉱業振興委員会,1990など)されながら地上では1960年代に3箇所の探査ボーリングが行われて以降、進展がないまま現在に至っている。

2. 研究の目的

(1) 堆積岩に伴われる鉱物の流体包有物に着目した古地温の評価：北海道の白亜系分布域では地表でガス兆や油兆を示す露頭が、坑内掘炭鉱ではメタンガスの開放が知られている。このような場で得た堆積岩に自生鉱物が胚胎される場合、鉱物中の流体包有物均質化温度測定によって古地温を直接的に精度よく求める。

(2) 流体包有物を構成する流体相の識別：均質化温度測定と並行で、気相が炭化水素・二酸化炭素・窒素のいずれかの判定を行い、自生鉱物が形成した時点で根源物質から放出される低級炭化水素に着目した有機熟成進行度の把握を行う。

(3) 既存情報との統合による鉱床ポテンシャル評価：これまで有機熟成・無機続成の温度目盛が空白であった領域・地域に具体的な古地温条件を導入し、堆積盆熱履歴を提示することでガス鉱床ポテンシャルの評価に繋げる。

3. 研究の方法

(1) 試料の収集：研究目的を達成するためには地層名と層準が明確で相応の有機炭素を含み、自生鉱物と有機物が共存・共生する堆積岩が必要である。これまで収集した試料に加え、候補地内の鉱山・採石場・博物館等に収蔵保管されている標本、新規に行われたボーリングのコアやカッティングス試料の供与を受けることで効率的なデータ収集をはかる。なお道東地域に分布する根室層群は白亜紀から古第三紀にわたる堆積岩層であるが、以下では「白亜系」と表記する。

(2) 試料の処理と測定：母岩の全炭素・有機炭素・炭素 / 窒素比測定、粘土・沸石鉱物の分離と同定、自生鉱物の顕微鏡観察・切り出し・両面琢磨片の調製・流体包有物測定などからなる。先行研究(Aizawa,2000など)以降の新技术や素材を活用して工夫改良を進め、試料処理の効率化を図った。

(3) データ解析・論文投稿・アウトリーチ：得られたデータの解析、地域地質および当該領域の先行研究との比較検討(特に従来問題となっていた点の解釈、例えば藤井ほか(1979)など)、ガス・石油鉱床ポテンシャル評価、論文作成と投稿、アウトリーチ活動からなる。

4. 研究成果

(1) 試料の母岩は細粒碎屑堆積岩で、全炭素の含有率は数 wt%から最大で 10wt%に達する。特殊な岩石の事例として石炭があり、この場合の全炭素は 80wt%を超える。炭素の一部はカルサイト・シデライト等の鉱物からなる無機態だが大部分は有機態として存在し、ガスや石油を形成するうえで不可欠な根源物質は母岩中に現在も普遍的に認められた。なお、有機炭素に対する窒素の割合(C/N比)は古第三系で高く(C/N = 12)白亜系で低いが、後者は変動の幅が大きく時に古第三系試料の上限値に近接する例もみられた。これは白亜系試料に含まれる有機態炭素の起源が多様、すなわち海成と陸成の混在を意味する。

(2) 堆積岩の続成(有機物の場合は「熟成」に対応)度をみると、無機物は白亜系・古第三系ともにクリノプタイロライト・モルデナイト・ヒューランダイトからなる沸石鉱物、スメクタイト・

イライト-スメクタイト混合層鉱物よりなる粘土鉱物（他に自生ではない雲母族粘土鉱物と多量のカオリナイトがあるが除去）が認められた。有機物の熟成度を示すビトリニット反射率（Ro%）は白亜系・古第三系ともに0.43-0.56Ro%であった。無機および有機熟成度は地域間での差が大きく、常に下位層準ほど（あるいは白亜系で）高い訳ではない。特徴的な事例は古第三系から不整合面を貫き白亜系へ至るボーリングのコア試料で、白亜系の熟成度は古第三系と同程度か、むしろ低い層準も見い出された。これらの指標は堆積岩がダイヤジェネシス段階にあり、初期のガス生成が起こる領域にあることを示している。

(3) 堆積岩試料が過去におかれた古地温を母岩から分離した自生カルサイトの流体包有物均質化温度を基に推定すると、白亜系・古第三系ともに75-100 °Cであった。温度値の頻度分布をみると高温側（89-100 °C）は出現数が少なく主峰部が低温側へ集中する問題が残り、解釈には注意が必要であるものの、前項で示した熟成・熟成の温度条件を反映しているといえよう。古地温は熟成・熟成指標と同様に、先に堆積し埋没深度も大きい白亜系で高い値が現れる訳ではなく、温度自体は古第三系と大差がない。流体包有物から得られるもうひとつの情報は気相の化学種である。流体包有物が微細に加えて液相に対する気相の容積が小さい問題は残るものの、冷却実験の結果は気相が窒素や二酸化炭素ではなくメタン等の低級炭化水素からなる可能性が高いことを示している。海外では自生シリカ鉱物中に液相が石油からなる流体包有物の産出が報じられており、本研究でも試料選別時・研磨琢磨工程・顕微鏡観察の各段階で注意を払ったが明らかな石油包有物は認められなかった。

(4) 白亜系は古第三系よりも早期に堆積を開始し、より深部へ埋没しているにもかかわらず、有機熟成指標・無機熟成指標・古地温のいずれも白亜系と古第三系の間で顕著な差が認められなかった。これは対象地域で有機物の熟成が実質的に進行したのは古第三系の埋没が最大に達して以降、恐らくは数My程度の間であることを意味している。堆積盆の熱履歴が他地域に比べて特異な経緯をとる原因に関して今後の検討が必要であるが、例えば、「白亜系」の堆積は古第三紀暁新世まで引き延ばしている化石証拠（成瀬ほか, 2000, Okada et al., 1987 など）、一旦は埋没した海成層が短期間のうちに隆起へ転じ地表で古第三系が堆積したこと、堆積以降の全期間を通じて単位深度あたりの温度上昇率（古地温勾配）は小さいまま持続、などが影響している可能性が考えられる。

(5) 前項までの結果を総合すると、当地域でガス・石油の根源物質として必要な有機炭素は堆積岩中に%オーダーの量が存在する。有機熟成および無機熟成指標はガスの生成が始まるダイヤジェネシス段階に、温度条件として75-100 °C（少なくとも75-89 °C）に置かれたことから全域にわたってガスが、古地温がこれより高い地域・層準では石油の生成も起きていると考えて差し支えない。有機物から生成したガスは断裂系や岩石構成粒子の間隙を伝わって移動・消失する場合もあり（Tamamura et al., 2022）、これが1960年代までに道東の陸上地域で行われたボーリングで鉱床捕捉に至らなかった原因の可能性が高い。一方でガスや石油が基盤岩や新第三系へ移動・貯留する事例もあり、本研究で比較対象試料として用いた襟裳岬沖の日高トラフボーリングでも新第三系の複数層準から油兆が認められている。

(6) 間接的な成果として、最終年度末に釧路市立博物館で一般市民・学校教育および社会教育関係者・資源系企業の技術者・自治体職員および議員を対象にエネルギー資源研究の概要と意義を題材とするアウトリーチ講演を実施した。市民の関心は高く予定時間を超えて質疑があった。回収した質問票に対する回答は同館ホームページで公開されている。

<引用文献>

Aizawa, J., Thermal history of selected sedimentary basins in an island arc. In Glikson and Mastalerz ed., *Organic Matter and Mineralisation*. Kluwer Academic Publishers, 2000, 400-420.

藤井敬三・米谷 宏・曾我部正敏・佐々木 実・東出則昭, 釧路炭田地域における亜瀝青炭の石炭岩石学的研究について-釧路沖における石油探査の基礎データとして-. 石技誌, **44**, 1979, 134-143.

北海道鉱業振興委員会, 北海道の石油・天然ガス資源 - その探査と開発. 北海道ガス鉱業会, 1990, 157p.

百石 浩, 北海道における炭田ガス賦存について (1). 炭鉱技術, **16**, 1961, 231-235.

成瀬 元・前田晴良・重田康成, 北海道東部根室層群から新たに産出した後期白亜紀軟体動物化石とK/T境界の層準について. 地質雑, **106**, 2000, 161-164.

Okada, H., Yamada, M., Matuoka, H., Murota, T. and Isobe, T., Calcareous nannofossils and biostratigraphy of the Upper Cretaceous and lower Paleogene Nemuro Group, eastern Hokkaido, Japan. *Jour. Geol. Soc. Japan*, **93**, 1987, 329-348.

Tamura, S., Murakami, T., Ueno, A., Tamazawa, S., Kiyama, T., Inomata, H., Matsumoto, H., Uchida, K., Suzuki, Y., Aizawa, J. and Kaneko, K., High ^{13}C values of methane in residual gas from a secondary biogenic methane reservoir as a possible indicator of thermogenic gas preserved in closed pores: A case study of the Kushiro Coal Mine, Japan. *Int. J. Coal Geol.*, **251**, 2022, 1-11.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 7件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Tamamura, S., Murakami, T., Ueno, A., Tamazawa, S., Kiyama, T., Inomata, H., Matsumoto, H., Uchida, K., Suzuki, Y., Aizawa, J. & Kaneko, K.	4. 巻 251
2. 論文標題 High ^{13}C values of methane in residual gas from a secondary biogenic methane reservoir as a possible indicator of thermogenic gas preserved in closed pores	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 International Journal of Coal Geology	6. 最初と最後の頁 1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.coal.2022.103926	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 吉村和久・木村颯・鮎沢潤	4. 巻 47
2. 論文標題 強アルカリ性水の水質形成とその水から沈殿する炭酸塩の特徴	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 日本洞窟学会誌	6. 最初と最後の頁 1-13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 鮎沢潤	4. 巻 号外74
2. 論文標題 秋芳洞の石灰岩・鍾乳石に対する照明植生の浸潤	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 月刊地球	6. 最初と最後の頁 27-32
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 石原与四郎・鮎沢潤・村上崇史	4. 巻 号外74
2. 論文標題 秋吉台・秋芳洞の地形と地質	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 月刊地球	6. 最初と最後の頁 42-48
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 鮎沢潤・木村颯・横田角光・横山英揮・吉村和久	4. 巻 46
2. 論文標題 広島県神石高原町幻の鍾乳洞で初めてみだされたハイドロマグネサイトの鉱物学的重要性	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 洞窟学雑誌	6. 最初と最後の頁 17-29
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tamamura, S., Murakami, T., Ueno, A., Tamazawa, S., Kiyama, T., Inomata, H., Matsumoto, H., Uchida, K., Suzuki, Y., Aizawa, J. and Kaneko, K.	4. 巻 251
2. 論文標題 High ¹³ C values of methane in residual gas from a secondary biogenic methane reservoir as a possible indicator of thermogenic gas preserved in closed pores	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 International Journal of Coal Geology	6. 最初と最後の頁 1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tamamura, S.・Murakami, T.・Ueno, A.・Tamazawa, S.・Kiyama, T.・Inomata, H.・Matsumoto, H.・Uchida, K.・Suzuki, Y.・Aizawa, J.	4. 巻 229
2. 論文標題 Formation of coalbed methane and water-dissolved gas in Kushiro Coal Mine, Japan, based on isotopic composition of gas, groundwater, and calcite.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Coal Geology	6. 最初と最後の頁 1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.coal.2020.103577	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kimura, H., Yokota, K., Aizawa, J.・Kan, H.・Yoshimura, K.	4. 巻 44
2. 論文標題 Depositional environment of agagonite speleothem in Maboroshi-no-Shonyudo, Taishaku, Hiroshima Prefecture, Japan	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Speleological Society of Japan	6. 最初と最後の頁 21-36
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 木村棟浩・川野良信・鮎沢潤・柚原雅樹	4. 巻 22
2. 論文標題 埼玉県比企丘陵、中新世堆積岩類の地球化学的研究	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 地球環境研究	6. 最初と最後の頁 25～33
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 松本裕之・内田景己・鈴木良明・伊東義博・玉村修司・金子勝比古・鮎沢潤
2. 発表標題 釧路地方の岩層メタンガスについて 第7報
3. 学会等名 資源・素材関係学協会合同秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松本裕之・内田景己・鈴木良明・伊東義博・玉村修司・金子勝比古・鮎沢潤
2. 発表標題 釧路地方の岩層メタンガスについて 第7報
3. 学会等名 資源・素材学会北海道支部
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松本裕之・市原義久・鈴木良明・伊東義博・板倉賢一・山中真也・鮎沢潤
2. 発表標題 釧路コールマインの払い趾充てん炭酸塩鉱物化 第2報
3. 学会等名 資源・素材学会2023
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------