

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年6月14日現在

機関番号：10106

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2009～2012

課題番号：21254006

研究課題名（和文） バイカル湖表層メタンハイドレートの多相形成環境の解明

研究課題名（英文） Investigations on multi-phase gas hydrate formations in Lake Baikal

研究代表者

高橋 信夫 (TAKAHASHI NOBUO)

北見工業大学・工学部・教授

研究者番号：20108187

研究成果の概要（和文）：世界で唯一、湖底にメタンハイドレートを産する淡水湖「バイカル湖」は、ハイドレート包有ガスの組成、起源、ハイドレート結晶構造等が場所により異なるという、複雑な多様性を有していることが明らかになった。本研究以前には9箇所であったハイドレート生成域は、現在では26箇所に増えており、そのうち15箇所については、本研究の直接的成果である。また、メタン湧出・ハイドレート生成形態にも多様性が見られ、18箇所は泥火山起源、1箇所がポックマーク、7箇所がメタンシーブに起因すると考えられる。

研究成果の概要（英文）：Lake Baikal is the only fresh-water lake in the world where gas hydrates were discovered in the bottom sediments. Twenty-six areas were found for shallow gas hydrate formations near the lake bottom until now. Fifteen of them were found during the field operations of this study. A wide range of characteristic features on GH composition, gas origin, crystal structure and others have been revealed by this investigation. Shallow gas hydrates were retrieved from 18 mud volcano areas, one pockmark area and 7 methane seep areas.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	14,400,000	4,320,000	18,720,000
2010年度	7,300,000	2,190,000	9,490,000
2011年度	7,300,000	2,190,000	9,490,000
2012年度	7,300,000	2,190,000	9,490,000
年度			
総計	36,300,000	10,890,000	47,190,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：エネルギー学

キーワード：国際研究者交流、日本・ロシア・ベルギー、バイカル湖、メタンハイドレート、メタンシーブ、湖底堆積物、溶存ガス、間隙水化学

1. 研究開始当初の背景

バイカル湖掘削プロジェクト（BDP）が開始されると直ぐにBSR（湖底擬似反射面）が観測され、1997年にはBDP-97のコア掘削時に湖底下121m及び161mの深さからメタンハイドレートが採取された。これを契機とし

て、バイカル湖におけるガスハイドレート研究が開始されたが、新しい生成域は容易に発見されることはなく、2009年の本研究開始当初、バイカル湖で発見されたハイドレート生成域の総数はたった9箇所であった。しかし、ガス起源やハイドレート結晶構造等の多様

性については、我々を含めたロシアとの国際共同研究により、既に認識され始めていた。

2. 研究の目的

バイカル湖底表層ハイドレートは、メタン起源や結晶構造等が場所によって大きく変化し、複雑な多様性を示すことが観測されていた。この特性は、湖底下のガス供給源と供給路である湖底断層等の活動に依存するが、それらの要素は不変のものではなく短期的（例えば地震活動）および長期的（例えば気候変動）な環境変化により影響を受けると考えられた。本研究の実施期間（4年間）における当初の目標は、こうした環境変化に支配される表層ガスハイドレートの生成・分解活動を今後モニターしていくために必要な基盤を構築することにあった。バイカル湖底のメタンハイドレートについて、その分布形態、ガス組成およびガス起源について広域マップを作成して生成メカニズムを明らかにし、将来の環境モニタリングを可能にすることを目指した。

3. 研究の方法

バイカル湖におけるフィールド研究は、日本、ロシア、ベルギーの3カ国国際共同研究として行われた。ロシアはホスト国として調査船運用や堆積物コア採取作業を含むロジスティクスを担当し、研究面では堆積物コアの層序解析、微生物解析および間隙水化学解析等を担当した。ベルギーは、音響・音波探査による湖底の地形（泥火山等）解析、ガス湧出（メタンシープ）解析等を担当した。日本（本学）は、本研究で実施したハイドレート特性解析、ガス解析、堆積物力学特性解析および間隙水化学解析等を担当した。経費分担はコストシェアを基本として各国が分担テーマ実施に必要な分を持ち寄り、得られたすべてのデータおよび採取コアについては共有を原則とした。

4. 研究成果

(1) 総括

合計4回のフィールド調査により、バイカル湖北湖盆、中央湖盆、南湖盆のメタンシープおよび表層メタンハイドレートの生成分布（図1）を明らかにし、15箇所においては新たなハイドレート生成域を発見した。また、採取した湖底コアの現場および室内解析（ハイドレート試料解析およびガス解析、間隙水解析、堆積物解析）により、ハイドレート試料特性、ガスおよび間隙水特性、堆積物力学特性等を明らかにした。特に、ハイドレート包有ガスの組成・同位体解析およびラマン分

光・NMR解析等から、メタン及びエタン起源がバクテリア起源から熱分解起源まで幅広く分布していることを明らかにした。得られた成果は、現時点における「バイカル湖全域の表層メタンハイドレート生成分布」として、今後の調査研究計画およびモニタリング等のための基盤として用いられる。

(2) 2009年度：ロシア調査船ベレシャーギン号を用いて2009年9月3日～19日にバイカル湖中央湖盆および南湖盆においてフィールド調査を行った。これまでに得られた音波探査（サイドスキャンソナー探査、マルチビームプロファイラー探査、地震探査等）データを参照しつつ、音響探査を実施しながら、選定された表層ハイドレートの生成候補地点で重力コアラーによる掘削を行い、合計約48mの湖底堆積物表層コアを採取した。現場では、コア採取後直ちにコア層位が観察され、ヘッドスペース法によりガスサンプルが、スクウィーザーおよび遠心分離器を用いて間隙水サンプルが収集された。調査船に搬入したガスクロマトグラフを用いた現場解析からは、メタンハイドレート包有ガスおよび堆積物間隙水溶存ガスの組成が明らかになり、さらに数本の湖底コア解析からは、湖底表層部の溶存ガス濃度プロファイルが得られた。

(3) 2010年度：ロシア調査船ベレシャーギン号を用いて2010年9月14日～27日にバイカル湖中央湖盆および南湖盆においてフィールド調査を行った。これまでに得られた音波探査（サイドスキャンソナー探査、マルチビームプロファイラー探査、地震探査等）データを参照しつつ、音響探査を実施しながら、選定された表層ハイドレートの生成候補地点で重力コアラーによる掘削を行い、合計約158mの湖底堆積物表層コアを採取し、5つの新しいサイトからガスハイドレートを回収した。現場では、コア採取後直ちにコア層位が観察され、ヘッドスペース法によりガスサンプルが、スクウィーザーおよび遠心分離器を用いて間隙水サンプルが収集された。調査船に搬入したガスクロマトグラフを用いた現場解析からは、メタンハイドレート包有ガスおよび堆積物間隙水溶存ガスの組成が明らかになり、さらに数本の湖底コア解析からは、湖底表層部の溶存ガス濃度プロファイルが得られた。

(4) 2011年度：ロシア調査船ベレシャーギン号を用いて2011年6月19日～7月3日にバイカル湖中央湖盆および南湖盆においてフィールド調査を行った。これまでに得られた音波探査（サイドスキャンソナー探査、マルチビームプロファイラー探査、地震探査等）データを参照しつつ、音響探査を実施しながら、選定された表層ハイドレートの生成候補地点で重力コアラーによる掘削を行い、合計

約 194 m の湖底堆積物表層コアを採取し、5 つの新しいサイトからガスハイドレートを発見した。本調査中の採取コアのうち、ガスハイドレートを含むコアは、合計 11 本であった。現場では、コア採取後直ちにコア層位が観察され、ヘッドスペース法によりガスサンプルが、スクウィーザーおよび遠心分離器を用いて間隙水サンプルが収集された。調査船に搬入したガスクロマトグラフを用いた現場解析からは、メタンハイドレート包有ガスおよび堆積物間隙水溶存ガスの組成が明らかになり、さらに数本の湖底コア解析からは、湖底表層部の溶存ガス濃度プロファイルが得られた。

(5) 2012 年度：ロシア調査船ベレシヤーギン号を用いて 2012 年 7 月 14 日～28 日にバイカル湖北湖盆、中央湖盆および南湖盆においてフィールド調査を行った。これまでに得られた音波探査（サイドスキャンソナー探査、マルチビームプロファイラー探査、地震探査等）データを参照しつつ、音響探査を実施しながら、選定された表層ハイドレートの生成候補地点等で重力コアラー、ベントスコアラ、グラブ等による試料採取を行った。合計約 158 m 長の湖底堆積物表層コアを採取し、5 つの新しいサイトからガスハイドレートを回収した。本調査中の採取コアのうち、ガスハイドレートを含むコアは、合計 17 本であった。現場では、コア採取後直ちにコア層位が観察され、ヘッドスペース法によりガスサンプルが、スクウィーザーおよび遠心分離器を用いて間隙水サンプルが収集された。調査船に搬入したガスクロマトグラフを用いた

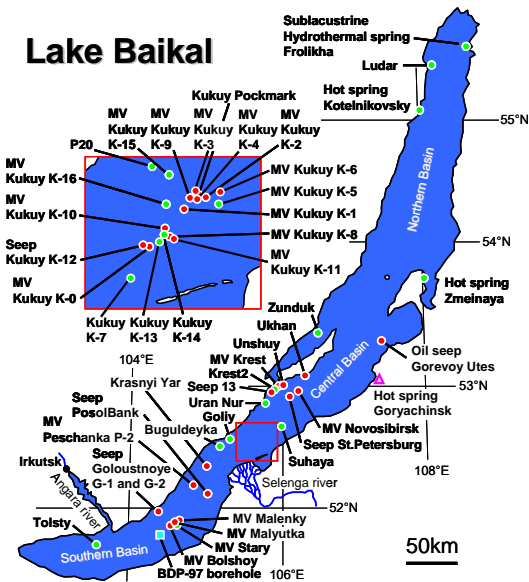


図 1 バイカル湖におけるメタンシープ（緑丸）と表層ハイドレート（赤丸）生成域分布

現場解析からは、メタンハイドレート包有ガスおよび堆積物間隙水溶存ガスの組成が明らかになり、北湖盆の湖岸温泉水からも溶存ガス濃度が得られた。

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 18 件)

- ① Kida, Masato; Sakagami, Hiroto; Takahashi, Nobuo; Nagao, Jiro (2013): Chemical Shift Changes and Line Narrowing in ¹³C NMR Spectra of Hydrocarbon Clathrate Hydrates, J. Phys. A, J. Phys. Chem. A, 117 (20), 4108–4114, DOI: 10.1021/jp312130c, 査読有
- ② O. Khlystov, M. De Batist, H. Shoji, A. Hachikubo, S. Nishio, L. Naudts, J. Poort, A. Khabuev, O. Belousov, A. Manakov, G. Kalmychkov (2013) : Gas hydrate of Lake Baikal: Discovery and varieties. Journal of Asian Earth Sciences, 62, 162-166. doi.org/10.1016/j.jseaes, 査読有
- ③ 山下 聡, 出羽 寛信, 八久保晶弘, 南尚嗣, 片岡沙都紀, 川口 貴之, 坂上 寛敏, 高橋 信夫, 庄子 仁 (2012) : 表層型ガスハイドレート賦存海底・湖底地盤から採取した堆積土の土質特性 一 間隙水溶存ガスの気泡化に伴う堆積土の試料乱れ評価一, 地盤工学ジャーナル Vol.7, No.4, 503-516, 査読有
- ④ Sakagami, H., N. Takahashi, A. Hachikubo, H. Minami, S. Yamashita, H. Shoji, O. Khlystov, G. Kalmychkov, M. Grachev, M. De Batist(2012): Molecular and isotopic composition of hydrate-bound and dissolved gases in the southern basin of Lake Baikal, based on an improved headspace gas method, Geo-Marine Letters, 32(5-6), 465-472, doi:10.1007/s00367-012-0294-y, 査読有
- ⑤ Hachikubo, A., O. Khlystov, M. Kida, H. Sakagami, H. Minami, S. Yamashita, N. Takahashi, H. Shoji, G. Kalmychkov, J. Poort(2012): Raman spectroscopic and calorimetric observations on natural gas hydrates obtained from southern and central Lake Baikal, Geo-Marine Letters, 32(5-6), 419-426, doi: 10.1007/s00367-012-0285-z, 査読有
- ⑥ Poort, J., O. M. Khlystov, L. Naudts, A. D. Duchkov, H. Shoji, S. Nishio, M. De Batist, A. Hachikubo, M. Kida, H. Minami, A. Y. Manakov, M. V. Kulikova, A. A. Krylov(2012): Low thermal anomalies associated with double structure gas hydrates in K-2 mud volcano, Lake Baikal, Geo-Marine Letters, 32(5-6), 407-417,

- doi:10.1007/s00367-012-0292-0, 査読有
- ⑦ Masato Kida, Akira Hori, Hirotohi Sakagami, Satoshi Takeya, Yasushi Kamata, Nobuo Takahashi, Takao Ebinuma, and Hideo Narita (2011): ^{13}C Chemical Shifts of Propane Molecules Encaged in Structure II Clathrate Hydrate, *J. Phys. Chem. A*, 115(5), pp. 643–647, DOI: 10.1021/jp106115d, 査読有
- ⑧ M. Kida, Y. Jin, N. Takahashi, J. Nagao, and H. Narita (2010): Dissociation Behavior of Methane-Ethane Mixed Gas Hydrate Coexisting Structures I and II, *J. Phys. Chem. A*, 114(35), pp. 9456–9461, DOI: 10.1021/jp1055667, 査読有
- ⑨ Hachikubo, A., O. Khlystov, A. Krylov, H. Sakagami, H. Minami, Y. Nunokawa, S. Yamashita, N. Takahashi, H. Shoji, S. Nishio, M. Kida, T. Ebinuma, G. Kalmychkov and J. Poort (2010): Molecular and isotopic characteristics of gas hydrate-bound hydrocarbons in southern and central Lake Baikal. *Geo-Marine Letters*, DOI 10.1007/s00367-010-0203-1, 査読有
- ⑩ Krylov, A. A., O. M. Khlystov, A. Hachikubo, H. Minami, Y. Nunokawa, H. Shoji, T. I. Zemskaya, L. Naudts, T. V. Pogodaeva, M. Kida, G. V. Kalmychkov and J. Poort (2010): Isotopic composition of dissolved inorganic carbon in the subsurface sediments of gas hydrate-bearing mud volcanoes, Lake Baikal: Implications for methane and carbonate origin. *Geo-Marine Letters*, DOI: 10.1007/s00367-010-0190-2, 査読有
- ⑪ 木田 真人、坂上 寛敏、高橋 信夫、鎌田 慈、大山 裕之、竹谷 敏、海老沼 孝郎、成田 英夫 (2009): メタンを含む混合ガスハイドレートのゲスト分子のケージ占有性とガス組成の関係、*雪氷*, 71(5), 329-339, 査読有
- ⑫ 八久保 晶弘、木田 真人、奥田 充、坂上 寛敏、庄子 仁 (2009) :メタン・エタンからなる混合ガスハイドレートの解離熱、*雪氷*, 71巻5号、341–351、 査読有
- ⑬ Masato Kida, Kiyofumi Suzuki, Taro Kawamura, Hiroyuki Oyama, Jiro Nagao, Takao Ebinuma, Hideo Narita, Hiroyuki Suzuki, Hirotohi Sakagami and Nobuo Takahashi (2009): Characteristics of Natural Gas Hydrates Occurring in Pore-Spaces of Marine Sediments Collected from the Eastern Nankai Trough, off Japan, *Energy Fuels*, 23(11), 5580-5586, DOI:10.1021/ef900612f, 査読有
- ⑭ Hachikubo, A., O. Khlystov, A. Manakov, M. Kida, A. Krylov, H. Sakagami, H. Minami, N. Takahashi, H. Shoji, G. Kalmychkov, J. Poort (2009): Model of formation of double structure gas hydrates in Lake Baikal based on isotopic data. *Geophysical Research Letters*., 36, L18504, doi:10.1029/2009GL039805, 査読有
- ⑮ Kida, M., A. Hachikubo, H. Sakagami, H. Minami, A. Krylov, S. Yamashita, N. Takahashi, H. Shoji, O. Khlystov, J. Poort and H. Narita (2009): Natural gas hydrates with locally different cage occupancies and hydration numbers in Lake Baikal. *Geochemistry Geophysics Geosystems (G3)*, 10(5), Q05003, doi:10.1029/2009GC002473. ISSN:1525-2027, 査読有
- ⑯ 八久保晶弘、小関貴弘、坂上寛敏、南 尚嗣、山下 聡、高橋信夫、庄子 仁、O. Khlystov, J. Poort (2009) : バイカル湖天然ガスハイドレートのゲストガス同位体比、*月刊地球*, 31(9)、486-492、 査読無
- ⑰ 八久保晶弘、小関貴弘、中畑良紹、坂上 寛敏、南 尚嗣、庄子 仁、O. Khlystov (2009) : ガスハイドレート生成時のゲストガス同位体分別～バイカル湖の天然ガスハイドレートの例～、*北海道の雪氷*、第28号、61-64、 査読無
- ⑱ 庄子 仁、南 尚嗣、八久保晶弘 (2009) : メタンハイドレート、*雪氷研究の系譜－北海道の雪氷から世界の雪氷圏まで－*、日本雪氷学会北海道支部、191–194、 査読無
- [学会発表] (計 11 件)
- ① バイカル湖天然ガスハイドレートのゲストガスの多様性、八久保晶弘、巽和也、坂上寛敏、南尚嗣、山下聡、高橋信夫、庄子仁、O. Khlystov、G. Kalmychkov、M. De Batist、雪氷研究大会 (2011・長岡) JSSI & JSSE Joint Conference on Snow and Ice Research – 2011/Nagaoka、2011年9月19日～23日、長岡市、ハイブ長岡
- ② バイカル湖南湖盆・中央湖盆の天然ガスハイドレートの水和数、朝倉武士、八久保晶弘、坂上寛敏、南尚嗣、山下聡、高橋信夫、庄子仁、O. Khlystov、M. De Batist、雪氷研究大会 (2011・長岡) JSSI & JSSE Joint Conference on Snow and Ice Research – 2011/Nagaoka、2011年9月19日～23日、長岡市、ハイブ長岡
- ③ バイカル湖南湖盆・中央湖盆の天然ガス

- ハイドレートの解離熱、大村聖弥、八久保晶弘、坂上寛敏、南尚嗣、山下聡、高橋信夫、庄子仁、O. Khlystov、M. De Batist、雪氷研究大会（2011・長岡）JSSI & JSSE Joint Conference on Snow and Ice Research - 2011/Nagaoka、2011年9月19日～23日、長岡市、ハイブ長岡
- ④ Minami, H., Pogodaeva, T., Sakagami, H., Hachikubo, A., Krylov, A., Harada, D., Saito C., Tatsumi K., Hyakutake, K., Yamashita, S., Nishio, S., Takahashi, N., Shoji, H., Khlystov, O., Zenskaya, T., Grachev, M., Naudts, L., H., Poort, J. Traces of original gas hydrate-forming fluid observed in subsurface gas hydrates retrieved from Lake Baikal, Russia. 10th International Conference on Gas in Marine Sediments, Limnological Institute SB RAS, Listvyanka (Lake Baikal), Russia, 6-12 September, 2010
- ⑤ Sakagami, H., Takahashi, N., Hachikubo, A., Minami, H., Yamashita, S., Shoji, H., Khlystov, O., Kalmychkov, G., Grachev, M., De Batist, M. On board measurement of hydrate-bound and sediment gases at Lake Baikal. 10th International Conference on Gas in Marine Sediments, Limnological Institute SB RAS, Listvyanka (Lake Baikal), Russia, 6-12 September, 2010
- ⑥ Hachikubo, A., Khlystov, O., Sakagami, H., Minami, H., Yamashita, S., Takahashi, N., Shoji, H., Kalmychkov, G., Poort, J. Crystallographic properties of natural gas hydrate in the southern and central Lake Baikal. 10th International Conference on Gas in Marine Sediments, Limnological Institute SB RAS, Listvyanka (Lake Baikal), Russia, 6-12 September, 2010
- ⑦ 斉藤 千裕、原田 大資、鈴木 健二、八久保 晶弘、坂上 寛敏、南 尚嗣、山下 聡、高橋 信夫、庄子 仁、O. Khlystov、M. Grachev : バイカル湖南湖盆メタンハイドレート含有湖底表層堆積物コア間隙水及びハイドレート水の化学分析、2010年化学系学協会北海道支部 冬季研究発表会（2010年1月26-27日、北大）
- ⑧ 八久保晶弘、山崎拓哉、奥田 充、坂上寛敏、南 尚嗣、山下 聡、高橋信夫、庄子 仁、Y. K. Jin, A. Obzhairov, O. Khlystov : オホーツク海・バイカル湖天然ガスハイドレートのガス組成不均一性、第32回極域気水圏シンポジウム、2009年11月17日～18日、国立極地研究所(立川市)
- ⑨ 山崎拓哉、八久保晶弘、奥田 充、坂上寛敏、南 尚嗣、山下 聡、高橋信夫、庄子 仁、Oleg Khlystov : ラマン分光法による天然および人工ガスハイドレートの結晶構造推定の試み、雪氷研究大会(2009・札幌)、JSSI & JSSE Joint Conference on Snow and Ice Research - 2009/Sapporo、2009年9月29日～10月3日、札幌、北海道大学学術交流会館
- ⑩ 中畑良紹、八久保晶弘、小関貴弘、坂上寛敏、南 尚嗣、山下 聡、高橋信夫、庄子 仁、Oleg Khlystov : バイカル湖Goloustnoye Flareの天然ガスハイドレートのゲストガス同位体比、雪氷研究大会(2009・札幌)、JSSI & JSSE Joint Conference on Snow and Ice Research - 2009/Sapporo、2009年9月29日～10月3日、札幌、北海道大学学術交流会館
- ⑪ 遠藤晃人、八久保晶弘、奥田 充、坂上寛敏、南 尚嗣、山下 聡、高橋信夫、庄子 仁、Oleg Khlystov : バイカル湖天然ガスハイドレートの解離時の解離ガス組成の経時変化、雪氷研究大会(2009・札幌)、JSSI & JSSE Joint Conference on Snow and Ice Research - 2009/Sapporo、2009年9月29日～10月3日、札幌、北海道大学学術交流会館
- [図書] (計4件)
- ① Minami, H., H. Shoji, O. Khlystov, M. DeBatist, N. Takahashi and M. Grachev (2013): Operation Report of Multi-phase Gas Hydrate Project 2012 (MHP-12), R/V G. U. Vereshchagin Cruise VER-12-03. New Energy Resources Research Center, Kitami Institute of Technology, Kitami, 226p.
- ② Shoji, H., O. Khlystov, M. DeBatist, N. Takahashi and M. Grachev (2012): Operation Report of Multi-phase Gas Hydrate Project 2011 (MHP-11), R/V G. U. Vereshchagin Cruise VER-11-01. New Energy Resources Research Center, Kitami Institute of Technology, Kitami, 226p.
- ③ Shoji, H., O. Khlystov, M. DeBatist, N. Takahashi and M. Grachev (2011): Operation Report of Multi-phase Gas Hydrate Project 2010 (MHP-10), R/V G. U. Vereshchagin Cruise VER-10-03. New Energy Resources Research Center, Kitami Institute of Technology, Kitami, 50p.
- ④ Shoji, H., O. Khlystov, M. DeBatist, N. Takahashi and M. Grachev (2010): Operation report of multi-phase gas hydrate

project 2009 (MHP-09), R/V G. U.
Vereshchagin cruise. New Energy
Resources Research Center, Kitami Institute
of Technology, Kitami, 84p.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 信夫 (TAKAHASHI NOBUO)
北見工業大学・工学部・教授
研究者番号：20108187

(2) 連携研究者

庄子 仁 (SHOJI HITOSHI)
北見工業大学・工学部・教授
研究者番号：50201562

山下 聡 (YAMASHITA SATOSHI)
北見工業大学・工学部・教授
研究者番号：00174673

南 尚嗣 (MINAMI HIROTSUGU)
北見工業大学・工学部・教授
研究者番号：40241426

八久保 晶弘 (HACHIKUBO AKIHIRO)
北見工業大学・工学部・准教授
研究者番号：50312450

坂上 寛敏 (SAKAGAMI HIROTOSHI)
北見工業大学・工学部・助教
研究者番号：70271757