論 文
 Original Article

堆積盆シミュレーションによる女川層タイトオイルのポテンシャル評価

熊田 祐子^{*,†,‡}・秋久 國男^{*,‡,§}・高野 修^{*,**}・並川 貴俊^{**}

(Received March 13, 2018 ; accepted November 6, 2018)

Potential evaluation of Onnagawa tight oil by basin modeling

Yuko Kumada, Kunio Akihisa, Osamu Takano and Takatoshi Namikawa

Abstract : The Miocene Onnagawa Formation, lithologically similar to the Monterey Formation, mainly consists of siliceous rocks, which are known as the main source rock in the Akita area, northern Japan. In the Yurihara-Ayukawa conventional oil and gas field, the Onnagawa Formation forms traps in the depths, vicinity of the opal-CT/quartz phase transition zone. In this area, it is confirmed that opal-CT porcelanites take a role of seals and the migrated hydrocarbons accumulate within quartz porcelanites. However, in the matured basin center area, it is not confirmed that the generated hydrocarbons remain *in-situ* to form self-source tight oil reservoir, and the saturation has not been tested because of few wells drilled. In this study, we simulated the process of hydrocarbon generation, migration and accumulation using basin modeling technique.

Before applying the simulation, we performed laboratory measurement to analyze kinetics, helium porosity-permeability, and mercury injection capillary pressure. Siliceous rocks in the study area can be divided into two major facies, clay-rich porcelanite and clay-poor porcelanite. Based on the laboratory analysis results, we established the rock property models of each facies, and assigned them to the 3D facies model as the input data for basin modeling.

The simulation results demonstrate that the generated hydrocarbons within clay-rich facies could not be expelled because of low permeability, and remained *in-situ*. As most of TOC values of the Onnagawa Formation are less than 2%, the maximum oil saturation of clay-rich facies is approximately 20% even in the matured area. By contrast, highly permeable clay-poor facies is thought to work as carrier beds. The generated hydrocarbons within the clay-poor facies are thought to be migrated and accumulated in structural and stratigraphic traps within the Onnagawa Formation. The oil saturation is up to 70%, and clay-poor facies has a potential to be a main target as tight oil reservoir.

Keywords : tight oil, shale oil, shale gas, Onnagawa Formation, siliceous rock, clay-poor porcelanite, clay-rich porcelanite, basin modeling, laboratory analysis

1. はじめに

女川層は秋田地域の主要根源岩であるが、秋田県南部に位置する鮎川エリアでは同層の一部が貯留岩になっており、1990年代頃より女川層に挟在する凝灰岩やドレライトを対象とした開発が行われてきた(荒木・加藤, 1993)。探鉱活動において、同層の主体をなす珪質岩中でも炭化水素の胚胎が確認されていたが、生産に寄与している岩相を特定できないなどの理由から積極的に開発対象とはされてこなかった。しかし近年、北米でシェール開発が盛んに行われるようになった背景を受け、女川層珪質岩を

対象とした探鉱開発が行われ始めた。2012年には石油資源開発㈱により、鮎川エリアに位置する黒沢 AK-1 の珪質岩区間で酸処理試験が行われ、産出量の大幅増加に成功した(上辻ほか, 2013)。これにより、本邦国内においてもシェール開発への期待が高まっている。こうした背景から、(独)石油天然ガス・金属鉱物資源機構と石油資源開発㈱は、女川層を対象とした共同研究を開始した。その一環として、本研究では鮎川エリアを含む仁賀保重堆積盆(図1)において、三次元堆積盆シミュレーションを用いた女川層シェールオイル(以下、本論文ではより広義の“タイトオイル(伊原, 2013)”を使用することとする)のポテンシャル評価を実施した。これにより、特に小滝逆断層から北由利衝上断層群の間の熟成が進んだエリア(以下、堆積盆中央部; 図2)におけるファシスごとの炭化水素飽和率の違いを検討した。

* (独)石油天然ガス・金属鉱物資源機構 Japan Oil, Gas and Metals National Corporation

** 石油資源開発㈱ Japan Petroleum Exploration (JAPEX)

‡ 現所属：三井石油開発㈱ Mitsui Oil Exploration Co. Ltd

§ 現所属：オイルリサーチ Oil Research

† Corresponding author : E-Mail : yuko.kumada@moeco.com

図1 仁賀保重堆積盆における研究対象エリアと在来型油ガス田の分布

図2 仁賀保重堆積盆における研究対象エリアの深度構造図（女川層上限）

黄色系：構造高，青色系：構造低。A-B：図4・図15の断面位置。

2. 対象エリアの地質

2.1 石油システム

対象エリアには南北のトレンドを持った複数の逆断層が

図3 女川層珪質岩の石英帯のコア写真（鮎川エリア）

石油資源開発提供。

(A) 自然光で撮影。粘土鉱物含有量の違いから、数 cm オーダーで明色ポーセラナイトと暗色ポーセラナイトの互層が発達している。(B) 紫外光で撮影 (A と同様の区間)。浸透性の良い明色ポーセラナイトにのみ蛍光反応が見られる (コアの採取深度では未熟成)。

発達しており，由利原－鮎川油ガス田は北由利衝上断層群上盤に形成された緩やかな背斜部に位置している（図2）。由利原油ガス田では西黒沢層の玄武岩が，また鮎川油ガス田では女川層中のドレイトや凝灰岩が主要な貯留層となっている。さらにこれらの油ガス田では，女川層中のオパール CT/ 石英結成境界直下の石英帯において，オパール CT 帯を帽岩として比較的浸透性の良い珪質岩層準で炭化水素の胚胎が確認されている（図3；増井・辻，1990；Tsuiji *et al.*, 2011）。原油－根源岩対比から対象エリアの根源岩は女川層であり，由利原－鮎川エリアに炭化水素を供給した主要キッチンエリアは，熟成が進んだ北由利衝上断層群西方の向斜部であると考えられている（図2；早稲田・重川，1990）。さらに横井ほか（2013）により，鮎川エリアの女川層から得られた炭化水素の地化学分析から，熟成度が異なる“通常型”と“低熟成”の2つのグループの存在が明らかにされている。前者はドレイトや凝灰岩中に，後者は珪質岩中に胚胎する炭化水素に一般的なグループとされている。このことから横井ほか（2013）は，“通常型”炭化水素が北由利衝上断層群西方の向斜部から移動・集積したものであるのに対し，“低熟成”炭化水素は近傍からの移動ないし鮎川エリアで生成した現地性であるとした。そして鮎川エリアの“低熟成”炭化水素を，北由利衝上断層群西方の向斜部に存在するであろうタイトオイル本体の縁辺部と推測した。このように，既存油ガス田の石油システムは徐々に明らかにされつつあるが，堆積盆中央部では女川層に達する既存井が少ないため，ファシス分布および炭化水素の賦存に関しては確認されていない。

2.2 女川層珪質岩の岩相と根源岩能力

女川層は硬質部と軟質部からなるいわゆる硬軟互層を呈し，硬質部にはさらに明色部と暗色部の互層（通称白黒バ

ンド)が発達している(図3;増井・辻, 1990)。対象エリア東方の矢島町周辺では女川層が地表に露出しており、辻ほか(1991)は硬さや色調、碎屑物含有量などの違いに基づき、女川層珪質岩を8つの岩相に区分した。露頭試料の蛍光X線分析の結果、 SiO_2 と Al_2O_3 には負の相関関係が認められ、これら8つの岩相は生物源シリカと泥質碎屑物のさまざまな割合での混合物であるとされている(辻ほか, 1991)。岩相組み合わせは層準により異なり、一般的に厚さ数cm~数10cm、厚いものでは数mオーダーで互層を成している。この地域の女川層の全有機炭素(TOC: Total Organic Carbon)量は1~2%の範囲のものが多く、高いものでは4%を超える(辻ほか, 1991;早稲田ほか, 1991, 1995)。また女川層のケロジェンタイプは、一般的にタイプIIからタイプII-Sとされている(鈴木ほか, 1995;鈴木, 1998)。既存の露頭試料分析の結果、TOCと有機物の質(ロックエバル分析のS2/S3)は岩相ごとに異なる傾向が見られ、これらは碎屑物(粘土鉱物)量と正の相関があることが明らかにされている(辻ほか, 1991;早稲田ほか, 1991, 1995)。これは碎屑物により有機物が吸着・保存されたためであり、また生産性の上昇に伴い生物源シリカにより有機物が希釈されたためと考えられている(早稲田ほか, 1991, 1995)。しかしながら、対象エリアでは根源岩情報に乏しく、岩相と根源岩能力の関係性は明らかにされていない。

3. 評価手法

3.1 堆積盆シミュレーションを用いた根源岩評価

堆積盆シミュレーション(basin simulation, basin modeling)はさまざまな地質データに基づいて炭化水素の生成・移動・集積をシミュレーションするもので、従来からキッチンエリアの特定や在来型プロスペクトの抽出などを目的に利用されてきた手法である(立石・奥井, 1994;奥井, 1998;立石, 1998)。近年では在来型炭化水素のポテンシャル評価のみならず、北米を中心にシェール貯留層の総合的な評価にも用いられている(Jarvie *et al.*, 2007)。堆積盆シミュレーションでは、基本アルゴリズムに基づくいくつかの評価手法があるが(Okui & Waples, 1992;守屋ほか, 2007;森田ほか, 2010)、浸透率が低い根源岩中での炭化水素の生成・移動・集積を目的とする場合、ダルシー則に基づくシミュレーションが有効であると考えられる(奥井ほか, 1992;Okui and Waples, 1993;Okui, *et al.* 1998)。そこで本研究では、ダルシー則が組み込まれているSchlumberger社製の三次元堆積盆シミュレーションソフトウェア「PetroMod 3D」を使用した。PetroMod 3Dは地層の埋没履歴やそれに伴う熱履歴を復元し、設定した根源岩能力に基づいて炭化水素の生成を再現することができる。また、ダルシー則の他に複数のアルゴリズム(Invasion percolation法(Carruthers and Ringrose, 1998), Flowpath, Hybrid)が組み込まれており、評価エリアの地質や使用するグリッドモデルに適したアルゴリズムを選択し、3相流(油・ガス・水)の移動と炭化水素の集積を再

現することができる(Hantschel and Kauerauf, 2009)。さらに温度と鉱物組成の関係から、熱履歴を復元する過程でシリカの相転移を再現する機能が備わっている(Isaacs, 1981)。対象エリアの女川層は珪質岩を主体とする複雑な岩相を呈しており、粘土鉱物の含有量や続成過程により岩石物性が大きく異なる(増井・辻, 1990;Tsuji *et al.*, 2011;辻ほか, 2013)。そこで本研究では、岩相・続成帯別に女川層珪質岩の岩石物性モデルを作成し、堆積盆シミュレーションでシリカの相転移を再現しながら、炭化水素の生成とダルシー則に基づく移動・集積をシミュレーションした。なお、シミュレーションで使用する珪質岩のカイネティックモデルや岩石物性モデルの作成にあたり、露頭およびコアから異なる岩相・続成帯ごとに試料を採取し、ラボ分析を実施した。

3.2 三次元ファシスモデルの作成

堆積盆シミュレーションのベースとなる三次元ファシスモデルを作成するため、検層解析データ(秋久ほか, 2014)と地質断面復元法を用いて、女川層の堆積環境を復元した(図4)。上述のとおり、対象エリアの女川層珪質岩は8つの岩相に区分されている(辻ほか, 1991)。堆積盆シミュレーションではダルシー則で重要となる浸透率の違いを反映させるため、物理検層解析で得られた粘土鉱物含有量の違いに基づき、これら8つの岩相を“clay-poor porcelanite”と“clay-rich porcelanite”の2つのファシスに大別した。珪質岩以外の岩相は、鉱物組成を基に凝灰岩とドレライトに区分した。また、対象エリアの女川層からは石灰質有孔虫化石が産出し、この地域の重要なマーカーとなっている(加藤・井上, 1997;加藤ほか 2008)。しかしながら、坑井によっては産出しない層準もあるため、本研究では検層レスポンスを基に女川層を4つのシーケンスに区分した。これらのシーケンス境界を同時間面とし、岩相判別を行った坑井で対比を行い、岩相の変化から堆積環境の変遷を考察した。図4に女川層の堆積モデルを示す。古地形の復元には、バランス断面法(Suppe, 1983)とバックストリップング法(Roberts *et al.*, 1993;Kusznir *et al.*, 1991)を組み合わせた地質構造解析ソフトウェア「Move」(Midland Valley 社製)を使用した。

続いて、Schlumberger社製の地質モデル構築ソフトウェア「Petrel」を用いて、三次元ファシスモデルを作成した。対象エリアには複数の地震探査データが存在するが、総じて解像度が低く、十分なファシス情報を得ることが不可能である。そのため、検層解析を行った既存井(秋久ほか, 2014)をコントロールとし、上記で復元した堆積環境を基に地球統計学的手法を用いてファシスを分布させ、グリッドモデルを作成した(図5)。各セルの面積はコントロール井の間隔を考慮して300m×300mとした。また、4つのシーケンスに対応する4枚のレイヤーを設定した。各レイヤーは露頭スケールと計算速度のバランスを考慮して、さらに4枚ずつのサブレイヤーに細区分し(下位より1~16までの計16枚)、Z方向の解像度を約25mとした。そのため、モデルでは露頭の岩相に比べて大幅にアップス

図4 女川層の堆積モデル

珪質岩ファシスの違いは主に陸源性碎屑物の供給量に依存するとしたモデル。下部層堆積時には珪藻が繁茂する環境となったが、脊梁地域に近い東部エリアでは時折碎屑物が供給され、clay-rich porcelanite が形成された（シーケンス 1）。中下部層堆積時になると、西黒沢期から続く海進によって clay-rich porcelanite の堆積エリアはさらに東方へと後退し、対象エリア全域で clay-poor porcelanite が形成された（シーケンス 2）。中上部層堆積時は引き続き珪藻が繁茂する環境であったが、脊梁地域では引張応力場から圧縮応力場へと反転した（吉田ほか，2005）。これに伴い徐々に供給され始めた陸源性碎屑物は、泥質なタービダイトとして対象エリア西方に供給され、clay-rich porcelanite が形成された（シーケンス 3）。上部層堆積時になると、脊梁地域の隆起に伴い対象エリア全体に碎屑物が供給され、clay-rich porcelanite の形成が優勢となり上位の船川層へ漸移していった（シーケンス 4）。断面のおおよその位置は図2参照。

図5 女川層の三次元ファシスモデル（ファシスシミュレーション具現像）

ファシスシミュレーション結果の具現像のうち、シーケンス Nog-1,-2,-3,-4 からそれぞれ代表例を抽出して表示。

ケールしている。

3.3 試料の分析手法

3.3.1 試料採取

珪質岩のカイネティックおよび岩石物性値に関するパラメータを得るため、辻ほか (1991) の岩相区分に従って、コアおよび露頭から岩相・統成帯別に試料を採取した (図6)。中でも女川層珪質岩は明色ポーセラナイト (H-W) および暗色ポーセラナイト (H-B) を主体とすることから、この2つの岩相を中心に試料採取を行った。ただし、女川層上部は明色頁岩 (E-W)、暗色頁岩 (E-B) および小角割れ頁岩 (F) を主体とするため (辻ほか, 1991)、これらの岩相から試料を採取した。なお粘土鉱物含有量の違いから、明色ポーセラナイト (H-W) は上記で作成した clay-poor porcelanite ファシスに、それ以外の岩相は全て clay-rich porcelanite ファシスに相当する。

3.3.2 カイネティック解析

カイネティック解析用の試料は、対象エリア東方に位置する未熟成エリアの露頭から18個を採取した (図6)。

これらをロックエバル分析装置 (Rock-Eval 6; Behar *et al.*, 2001) を用いてそれぞれ 5, 15, 25 (°C/min) の3つの昇温速度で加熱し、得られた温度-時間-生成量の関係から重回帰分析により活性化エネルギー分布を求めた。活性化エネルギー分布の計算には不連続モデル (discrete distribution model; Ungerer and Pelet, 1987; Burnham *et al.*, 1987 など) が使用されており、複雑な分解反応を近似できるように多数の活性化エネルギー ($E_{ai}, i=1 \sim n$) を含む平衡アレニウス一次反応モデルを想定している (秋久, 1979a, 1979b)。なお、アレニウス式中の頻度因子 ($A_i, i=1 \sim n$) も E_{ai} と伴に変動するが、各試料の活性化エネルギー分布の比較を重視して、Waples *et al.* (2002, 2010) に従い頻度因子を 1.0×10^{14} (1/s) に固定して上記の解析を行った。

3.3.3 岩石物性

岩石物性値測定用の試料は、露頭および鮎川エリア周辺坑井のコアから、石英帯で23個、オパールCT帯で16個を採取した。これらをプラグ状に成形し、自動浸透率測定

図6 分析用女川層試料 (表1, 2) の採取層準および位置

a) 由利本荘市矢島南方の子吉川鮎子川合流点付近。b) 由利本荘市徳沢付近。国土地理院2万5千分の1地形図「矢島」および「徳沢」を使用。

装置 (Core Measurement System : CMS-300) を用いて、不活性ガスをキャリアとして封圧下で孔隙率と浸透率を測定した。また岩石片試料を用いて水銀圧入法 (Purcell, 1949) により細孔径分布を測定した。さらに、いくつかのプラグコア試料を用いて、遠心分離法 (Slobod *et al.*, 1951) による不動水飽和率および残留油飽和率の測定を試みた。測定には鮎川エリアの地層水の塩分濃度に調整した塩水と、対象エリアの北方に位置する福米沢油田の油層条件下の粘性比 (油 / 水) に調節した粘度校正液を使用した (oil-brine 系)。遠心分離機の回転数を徐々に上げ、塩水で飽和させた試料を粘度校正液で置換し、不動水飽和率を測定した (drainage)。続いて同様の作業によりこれらの試料を塩水で再度置換し、残留油飽和率を測定した (imbibition)。またコアの経年劣化が進んでいることから、測定中に試料が破損することを避けるため、事前に回転数の目安を知る目的で drainage プロセスでのみ air-brine 系で簡易的に測定した。この時の塩水は oil-brine 系と同じものを使用した。

4. 分析結果とシミュレーションモデルの構築

4.1 珪質岩の根源岩能力

4.1.1 カイネティック解析結果

カイネティック解析で得られた活性化エネルギー分布を表 1 に示す。平均値を比較すると、同一層準内では岩相ごとに大きな違いは見られないが、層準ごとに見ると中部層の試料は総じて低い値を示している。上部層と中部層を比較すると、明色頁岩 (E-W)、暗色頁岩 (E-B) および小角割れ頁岩 (F) から成る上部層で約 53 kcal/mol であるのに対し、明色ポーセラナイト (H-W)、暗色ポーセラナイト (H-B) および珪質頁岩 (S) を主体とする中部層では 51 kcal/mol のものが多い (表 1, 図 7)。一方、同じ岩相からなる中部層と下部層を比較しても、サンプル数は少ないものの、下部層は 52 ~ 53.5 kcal/mol とやや高い値を示している (表 1, 図 7)。下部層から採取した試料は、熟成が進行したことにより活性化エネルギーの低い不安定な構造が消失し、平均値が高くなっている可能性も考えられる。しかし下部層の活性化エネルギー分布は、中部層よりも明らかに高いエリアにピークがあるため、両者のカイネティック特性は異なるものと考えられる (図 7)。カイネティック特性は、有機物の種類や堆積場の酸化還元環境などと関係があるとされている (鈴木ほか, 1995)。女川層を通して主要な一次生産者は珪藻であったとされており (山本ほか, 1999)、岩相ごとの活性化エネルギー分布に違いが見られないことから、部層オーダーでの活性化エネルギー分布の違いは起源有機物の違いではなく、酸化還元環境の違いを反映していると考えられる。鈴木 (1998) は女川層のバイオマーカー分析結果を基に、熱分解しやすい不安定な構造に富んだケロジェンの形成には還元的な水塊環境が関係しているとした。女川層中部は他層準に比べて還元的環境で堆積したとされていることから (辻ほか, 1991; 早稲田ほか, 1991, 1995)、中部層で最も低い活性化エネルギー

表 1 未熟性露頭試料の活性化エネルギー分布

Sample name	Lithology	A (1/S)	Ea mean (kcal/mol)		Ea (kcal/mol)																													
			42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54	55	56	57	58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71	72	
Upper	Ug-01	E-W	1.00E+14	53.4	0.09	0.1	0.3	0.51	0.86	0.95	3.55	5.62	8.91	13.31	15.94	16.35	9.91	3.49	6.84	0.94	2.65	0.78	1.46	0.65	1.38	0.34	1.28	0	0.6	0.94	0	0	0	2.24
	Ug-02	F	1.00E+14	53.2	0.09	0.11	0.21	0.5	0.43	1.04	4.16	5.65	9.47	11.37	15.85	13.61	16.11	0.65	11.97	1.86	0.38	1.48	0	0.79	0.08	0.59	0.41	0	0.62	0.52	0	0	0	2.05
	Ug-03	E-B	1.00E+14	53.6		0.33	0	0.67	0.65	1.31	3.21	5.06	7.62	10.65	15.22	14.73	14.92	1.68	10.61	1.7	1.84	1.33	0.67	1.07	0.96	0.65	1.1	0.56	0.08	1.32	0	0	0	2.05
	Ug-04-1	E-W	1.00E+14	53.4	0.09	0.12	0.16	0.32	0.24	1.34	3.32	5.31	8.91	10.67	15.77	15.2	14.16	3.76	7.1	4.63	0.58	1.9	0	0.66	0.75	0.32	1.16	0.38	0	1.24	0	0	0	1.72
	Ug-04-2	F	1.00E+14	52.9		0.34	0	0.56	0.81	0.95	4.37	5.66	10.98	12.88	16.44	16.43	11.3	3.19	8.43	0	1.63	0.47	0.57	0.16	0.74	0	0.98	0	0.39	0.81	0	0	0	1.91
	Ug-05-1	H-B w/H-W lamina	1.00E+14	52.2	0.2	0.08	0.5	1.51	2.53	5.01	8.65	10.72	12.93	12.35	13.78	10.26	4.7	3.23	1.29	1.32	1.09	1.29	0.74	0.95	0.86	0.31	1.32	0	0.54	1.21	0	0	0	2.64
	Ug-05-2	H-W w/H-B lamina	1.00E+14	51.6	0.24	0.01	0.61	1.57	2.95	5.69	9.52	11.52	13.53	13.27	15.29	9.31	4.22	2.33	1.08	0.73	0.65	0.75	0.69	0.6	0.75	0.29	1.05	0	0.5	0.91	0	0	0	1.95
Middle	Ug-06	H-W	1.00E+14	51.5	0.18	0	0.58	1	3.23	4.88	9.33	10.59	14.86	12.8	15.7	9.26	6.84	3.66	0	1.17	0.23	0.75	0.25	0.45	0.47	0.11	0.76	0	0.36	0.74	0	0	0	1.8
	Ug-07	H-W	1.00E+14	51.2	0.3	0	0.77	1.95	3.34	6.44	9.56	13.13	15.76	17.37	13.29	6.75	1.54	1.33	0.39	1.06	0.18	0.94	0.16	0.68	0	0.85	0	0	1.11	0	0	0	3.09	
	Ug-08	S	1.00E+14	52.0	0.17	0	0.42	0.23	0.83	2.79	8.56	13.33	16.3	12.33	17.84	8.59	11.95	2.29	0.38	1	0	0.7	0.11	0.67	0	0.77	0.25	0	0.78	0.43	0	0	0	2.23
	Ug-09-1	H-B w/H-W lamina	1.00E+14	51.8	0.17	0	0.49	0.1	1.72	2.67	7.05	10.02	14.77	14.05	17.66	11.8	9.8	4.29	0	0.51	0.57	0.2	0.29	0.44	0	0.61	0.1	0	0.67	0.23	0	0	0	1.8
	Ug-09-2	H-W w/H-B lamina	1.00E+14	51.6	0.2	0	0.49	0.73	1.17	3.72	7.5	9.97	15.18	17.04	17.14	13.68	6.43	0	1.43	0.17	0.47	0.35	0.18	0.45	0	0.62	0	0	0.76	0.15	0	0	0	2.16
	On-01	H-B	1.00E+14	51.2	0.11	0	0.24	0.67	2.23	3.07	8.32	12.07	17.41	17.57	18.2	10.6	3.99	0	1.15	0.09	0.47	0.23	0.22	0.31	0	0.48	0.12	0	0.48	0.28	0	0	0	1.66
	On-01-1	H-B w/H-W lamina	1.00E+14	51.2	0.16	0	0.5	1.81	3.12	6.47	9.01	11.44	12.55	13.39	12.86	13.62	5.2	4.46	1.23	0	0.64	0.09	0.28	0.38	0.06	0.39	0.3	0	0.4	0.34	0	0	0	1.28
Lower	On-02-1	H-B w/H-W lamina	1.00E+14	51.4	0.15	0	0.3	1.49	2.05	5.23	7.67	10.79	13.07	14.3	14.03	14.65	7.17	3.74	1.51	0	0.47	0.29	0.1	0.37	0	0.41	0.1	0	0.6	0	0	0	0	1.5
	On-02-2	H-W w/H-B lamina	1.00E+14	52.1	0.11	0	0.24	0.73	1.78	3.81	6.74	7.84	11.15	11.52	14.67	13.19	13.82	1.26	8.98	0	0	0.08	0.9	0	0.45	0.32	0.45	0	0.4	0.4	0	0	0	1.15
	Ug-10	H-B	1.00E+14	52.0	0.11	0	0.24	0.45	0.62	1.74	5.56	8.47	13.23	14.42	17.81	17.74	10.98	4.65	0	0.24	0.5	0	0.29	0.24	0	0.46	0	0	0.57	0.09	0	0	0	1.58
	Ug-12	ffc H-W	1.00E+14	53.5	0.24	0.07	0.45	0.33	0.92	0	0.77	7.12	10.3	13.06	13.34	19.5	6.88	17.81	0	0	0.91	0.72	0	0.89	0	0.73	0.24	0	1.34	0	0	0	0	4.39

岩相区分は辻ほか (1991) に従った。E-W : 明色頁岩, E-B : 暗色頁岩, H-W : 明色ポーセラナイト, H-B : 暗色ポーセラナイト, S : 珪質頁岩, tic = tuffaceous.

図7 女川層珪質岩の活性化エネルギー分布

分布を示すことは既存研究とも整合的な結果である。

4.1.2 珪質岩のカイネティックモデル

堆積盆シミュレーションにおいて、カイネティック特性は炭化水素の生成量やそのタイミングを決める重要なパラメータの1つである。上記のロックエバル分析装置を用いて得たカイネティックパラメータはバルクの測定結果であり、油とガスに細分した多成分モデルを得るためには含水熱分解実験などが別途必要となる（鈴木，1998）。そのためシミュレーションでは、PetroModの既存のカイネティックモデルを使用した。解析により得られたカイネティックパラメータを基にPetroModで生成曲線を作成し、これといくつかの既存モデルとを比較した。その結果、女川層上部および下部のカイネティックはPepper and Corvi (1995)のOrganofacies B (Type II)に、女川層中部はOrganofacies A (Type II-S)に最も類似した。対象エリアのカイネティック特性は、部層オーダーでの酸化還元環境の違いを反映していると考えられることから、上記で設定した4枚のレイヤーごとにカイネティックモデルの分布図を作成した。対象エリアでは湧昇流の影響により堆積盆東部ほど熱分解しやすいケロジェンが分布するとされていることから（鈴木，1998）、Organofacies Aは女川層中部に相当するレイヤーのうち、北由利衝上断層群より東側のエリアにのみ限定的に使用し、その他のエリア・レイヤーには全てOrganofacies Bを使用した。

4.1.3 その他の根源岩能力の設定

堆積時のHI (Hydrogen Index) やTOCも、根源岩能力を決める重要なパラメータである。HIは未熟性と考えられる鮎川エリアの既存井のカッティングス分析結果を基に、レイヤーごとのヒストグラムを作成した。いずれの層準においても最頻値は400 mg/gTOC前後であり、対象エリア全体でType II ケロジェンを主体とすることから、全てのレイヤーにおいて一律400 mg/gTOCをHIの初期値として与えた。しかし、HIの値はおよそ100~600 mg/gTOCの間でバラつき（図8）、これは起源有機物の違いではなく、堆積過程における有機物の変質を反映していると考えられている（早稲田ほか，1991，1995）。シミュレーションでは未熟性試料の最頻値を用いたが、変質している可能性を考慮す

図8 HI-OI プロット

ると、初期値はより高い値である可能性が考えられる。

堆積時のTOCに関しては、既存井のカッティングス分析結果を用いて、レイヤーごとに分布図を作成した（図9）。ほとんどの坑井データは未熟性ないし低熟成エリアのものであるため、補正を行わずそのままの値を使用した。一方、熟成が進んでいる堆積盆中央部のデータは基礎試錐「仁賀保」のみであり（図9）、Peters *et al.* (2005)の式を用いて堆積時のTOCを計算した。しかし、計算された値は未熟性エリアで確認されているものよりかなり高く、対象エリア東部ほど生物生産性が高かったとされる既存研究結果とも一致しない（鈴木，1998）。この式はマスバランスのみを考慮したものであり、計算に使用した堆積時のHIの値の見積もりが適切でない可能性もあるため、あ

図9 TOC 分布図 (例：シーケンス 4 相当レイヤー)
□はデータを使用した坑井位置。

まり現実的な値ではないと考えられる。また、コア観察および検層解析の結果から、基礎試錐「仁賀保」では時折泥質なタービダイトが流入するような環境が示唆されており (図4)、堆積盆中央部の代表的な値ではない可能性も考えられる。これらを考慮し、基礎試錐「仁賀保」では現在の値を参考に各レイヤーにおいて対象エリア東部よりもやや低い値を与え、中部層相当のレイヤーで全体的に値が高くなるような分布図を作成した (図9)。堆積盆中央部の根源岩データは少なく、性状の予測は今後の課題である。

4.2 続成境界における珪質岩の岩石物性

4.2.1 分析結果

分析結果を表2に示す。先行研究 (増井・辻, 1990; Tsuji *et al.*, 2011; 辻ほか, 2013) で指摘されているとおり、オパール CT/ 石英の続成境界面を境に岩石物性が急激に変化し、その挙動は岩相によって異なるという結果が得られた (図10)。明色ポーセラナイト (H-W) を主体とする試料では、孔隙率は深度に伴って徐々に減少していくが (図10A)、浸透率は石英帯に入ると急激に大きくなる (図10B)。これは増井・辻 (1990) でも指摘されているように、シリカの相転移による結晶構造の変化に伴い細孔径分布が急激に大きくなったためと考えられる (図10C)。また水銀圧入法により得られた代表的な試料の細孔径分布を図11に示す。石英帯の明色ポーセラナイト (Qtz H-W) は、オパール CT 帯の明色ポーセラナイト (Opal-CT H-W) に比べて、分布のピークが一桁ほど大きいことが分かる。また、シール能力の指標となるエントリー圧を見ても、石英帯の明色ポーセラナイト (H-W) を主体とする試料のみ明らかに低い値を示している (図10D)。これらの試料では蛍光反応も確認されており、この岩相のみ貯留岩になり得ること示している (表2, 図3)。一方、暗色ポーセラナイト (H-B) を主体とする試料は、プラグに成型できなかったことから石英帯の浸透率を測定できなかった。しかし、オパール CT 帯と石英帯で細孔径分布にほとんど変化がないことから (図10C, 図11)、明色ポーセラナイト (H-W) のような続成境界における浸透率の急激な変化はないものと考えられる。粘土鉱物含有量が高い珪質岩では、石英に相転移する際に新たに形成された孔隙中に粘土鉱物が出現する可能性が高く、それが細孔径を小さくするとされており (辻ほか, 2013)、これが両続成帯で細孔径分布に差が出なかった原因と考えられる。

4.2.2 岩石物性モデル

上記の結果を基に、堆積盆シミュレーション用にファシスごとの岩石物性モデルを作成した。特に clay-poor

図10 オパール CT/ 石英続成境界における岩石物性の変化

表 2 水銀ポロシメータおよび CMS-300 の分析結果

Sample name	MD (m)	Lithology	Flourescence	Silica phase	Mercury Injection Porosimeter				CMS-300				Remarks	
					Modal pattern	Bulk density (g/cm ³)	MPD (nm)	Hg porosity (%)	Entry pressure (psi)	CMS porosity (%)		CMS permeability (mD)		
Ug-04-1	-	E-W	-	Opal-CT	Bimodal	1.49	17.29	34.56		35.37			4.80E-03	
Ug-04-2	-	F	-	Opal-CT	Unimodal	1.61	15.11	30.73						
Ug-05-1	-	H-B w/H-W lamina	-	Opal-CT						29.66			4.19E-01	crack
Ug-05-2	-	H-W w/H-B lamina	-	Opal-CT						28.43			1.13E-01	
Ug-06	-	H-W	-	Opal-CT	Unimodal	1.47	18.55	39.47		27.23			3.28E-02	
Ug-07	-	H-W	-	Opal-CT	Bimodal	1.55	25.81	33.64		35.1			5.97E-03	
Ug-08	-	S	-	Opal-CT	Unimodal	1.93	25.2	18.84						
Ug-09-1	-	H-B w/H-W lamina	-	Opal-CT						28.35			2.65E-03	
Ug-09-2	-	H-W w/H-B lamina	-	Opal-CT	Unimodal	1.31	39.55	43.2		40.82			3.47E-02	
On-01	-	H-B	-	Opal-CT	Unimodal	0.93	25.76	33.22		33.32			2.67E-03	
On-02-3	-	H-W	-	Opal-CT	Bimodal	1.27	20.43	44.56		45.66			5.46E-03	weathered
Ug-11	-	tic H-W	-	Quartz	Unimodal	1.94	201.8	25.8						
Ug-12	-	tic H-W	-	Quartz	Unimodal	1.5	63.32	14.93						
On-02-1	-	H-B w/H-W lamina	-	Quartz	Bimodal	1.57	118.3	9.3		14.97			1.16E-01	crack (crack?)
On-02-2	-	H-W w/H-B lamina	-	Quartz	Unimodal	2.02	280.7	23.74		22.38			3.13E-01	
Gg-03	-	clastic H-W	-	Quartz	Unimodal	1.78	128.6	32.44		29.94			5.42E-02	
SKG-01	1183.12	H-B	N	Opal-CT	Unimodal	1.53	24.7	34.46	616.44	42.01	40.85	40.87	3.22E-02	2.91E-02
SKG-02	1184.95	H-W	N	Opal-CT						47.54	46.64	46.43	4.48E-02	4.99E-02
SKG-03	1185.31	H-W	N	Opal-CT						43.41	42.93	42.87	4.36E-02	3.49E-02
SKG-04	1186.07	H-W	N	Opal-CT	Unimodal	1.1	36	49.22	507.68	43.11	42.44	42.32	3.60E-02	4.73E-02
SKG-05	1186.20	H-B	N	Opal-CT	Unimodal	1.61	19.8	30.12	678.38					
KA-01	1468.45	H-W w/H-B&tic lamina	Y	Quartz	Bimodal	2.08	85.5	18.41	130.95	18.88	18.71	18.64	5.12E+00	3.96E+00
KA-02	1475.98	H-B w/H-W lamina	N	Quartz	Unimodal	2.01	24	20.99	903.62					(crack?)
KA-03	1477.46	H-W w/tic lamina (ii=2)	Y	Quartz						30.31	30.04	29.82	8.13E-01	7.87E-01
KA-04	1480.50	H-B w/H-W lamina	N	Quartz	Unimodal	1.77	44	27.63	677.57					
KA-05	1484.9	H-W w/tic lamina	Y	Quartz	Bimodal	1.73	153	30.59	53.64	32.49	31.94	31.55	4.49E+00	3.44E+00
KA-08	1491.4	H-W w/H-B lamina	Y	Quartz	Unimodal	1.73	406.1	32.09	130.43	30.44	30.25	30.15	1.27E+00	1.14E+00
MA-01	1446.4	H-W w/H-B lamina	Y	Quartz	Unimodal	1.74	272.1	29.91	284.75	28.35	28.04	27.89	2.63E-01	2.50E-01
MA-02	1446.60	H-W	Y	Quartz	Unimodal	1.54	377.5	36.79	119.43					
MA-03	1446.63	H-B w/H-W lamina	Y	Quartz	Unimodal	1.99	117.9	18.78	618.73					
MA-04	1446.66	H-W	Y	Quartz	Unimodal	1.5	367.1	37.16	130.56	39.58	39.3	39.01	7.69E+00	4.10E+00
MA-05	1450.15	H-W w/H-B lamina	N	Quartz	Unimodal	1.61	329.8	33.4	119.5	31.14	30.3	30.06	9.81E-01	8.92E-01
AYK-06	1904.49	H-W w/H-B lamina	Y	Quartz	Unimodal	1.75	239.1	30.37	213.99	29.08	28.76	28.59	2.77E-01	2.44E-01
AYK-07	1904.57	H-B	Y	Quartz	Unimodal	2.21	22.4	13.93	904.03					
AYK-09	1907.35	H-W	Y	Quartz						37.29	36.79	36.49	2.61E+00	1.94E+00
AYK-10	1907.49	H-W	Y	Quartz						37.85	37.54	37.27	1.09E+00	1.07E+00
AYK-11	1910.7	H-W	Y	Quartz	Unimodal	1.5	310	40.51	119.14	40.5	40.21	39.97	1.43E+00	1.39E+00
NKH-01	3210.36	H-B w/H-W lamina (Chart)	N	Quartz	Unimodal	2.46	(6.2)	(1.9)	(15778)	1.93	1.66	1.61	1.21E-01	1.13E-01
NKH-02	3212	H-W (Chart)	N	Quartz	Unimodal	2.29	(6.4)	(4.0)	(15778)	1.73	2.15	2.34	1.92E-03	1.18E-03

Clastic H-W : 明色砕屑質ボーセーラナイト, ii = ichno fabric index, その他の岩相は表1 参照。 MPD = median pore-throat diameter.

Clastic H-W : 明色砕屑質ポーセラナイト, ii = ichno fabric index, その他の岩相は表 1 参照。MPD = median pore-throat diameter.

図 11 岩相・続成帯と細孔径分布の違い
実線は累積孔隙率，破線は log 微分細孔容積を示す。

図 12 孔隙率および浸透率の測定値とモデル

検層解析で得られた圧密曲線から，対象エリアの女川層珪質岩の孔隙率は最低でも 5% 以上となった。孔隙率 5% 以下の 2 試料はチャート化しており，低浸透率のため正しく測定できていない可能性が高い。辻ほか (2013) では，石英チャートの孔隙率は 10% 未満としている。

porcelanite はオパール CT/ 石英続成境界面を境に岩石物性が急激に変化することから，オパール CT 帯と石英帯で独立した 2 つのモデルを作成した。一方，clay-rich porcelanite は続成帯にかかわらず 1 つのモデルとした。図 12 に浸透率のモデルを示す。孔隙率が 20% 以下となるような深部の試料がないため，PetroMod の泥岩の岩石物性モデル (折れ線) をベースに，測定値でキャリブレーションしたものを使用した。またいずれの続成段階においても，粘土鉱物が多い珪質岩ほどより機械的圧密が進むとされていることから (Tada and Iijima, 1983)，埋没が進行しても clay-rich porcelanite と clay-poor porcelanite の浸透率の差は維持されると仮定した (図 12)。測定を行っていない凝灰

岩や他層準のファシスの岩石物性に関しては，それぞれのファシスに対応する PetroMod の既存モデルを使用した。

4.2.3 シリカの相転移と岩石物性モデルの切り替え

オパール CT 帯から石英帯の岩石物性モデルへの切り替えには温度を使用した。シリカの相変化は温度と埋没深度に依存しており，特に最大埋没時の温度を強く反映しているとされている (Murata and Nakata, 1974; Murata and Larson, 1975; Iijima and Tada, 1981; Isaacs, 1981)。そこで，検層解析からオパール CT/ 石英の続成境界深度が分かっているいくつかの坑井 (図 2) で一次元シミュレーションを行い，続成境界深度が過去に受けた最大温度を求めた。その結果，由利原一鮎川エリアでは約 70℃ の熱を受けた際に石英帯へ相転移したと考えられるため，三次元シミュレーションでは熱履歴を計算する過程で 70℃ に達すると，オパール CT 帯から石英帯の岩石物性モデルに切り替えてシミュレーションするよう設定した。

シミュレーションでは，設定した圧密曲線を基に各時代の孔隙率が算出され，孔隙率に対する各岩石物性モデル (孔隙率-浸透率，孔隙率-毛管圧など) に従って物性値が割り当てられる。それらを基に流体の三次元移動を再現し，計算された有効圧力を基に再び孔隙率が計算され，この過程をイタレーションしている。例えば clay-poor porcelanite モデルでは，地層温度が 70℃ に達すると石英帯の圧密曲線に切り替えて孔隙率を算出し，同時に石英帯の孔隙率-浸透率モデルに従って浸透率が計算される (図 12)。珪質岩の圧密曲線は，検層解析 (秋久ほか，2014) により算出された孔隙率を基に作成した。女川層同様，珪質岩を主体とするモンテレー層では，シリカの続成境界を境に孔隙率が急激に減少することが知られている (Isaacs, 1981; Isaacs & Petersen, 1987)。しかし検層解析の結果，対象エリアではオパール CT/ 石英続成境界における孔隙率の変化は漸移的であることから，両続成帯の圧密曲線は連続的であるとした。これは女川層を対象とした既存研究結果とも整合的であり (Tada & Iijima, 1983; Tsuji *et al.*, 2011)，分析結果とも一致している (図 10A)。

4.3 不動水飽和率と残留油飽和率

4.3.1 分析結果

本パラメータの測定中に試料が破損したため，oil-brine 系で測定したもののうち，データが得られたのは石英帯の明色ポーセラナイト (H-W) を主体とする AYK-11 の 1 試料のみであった。しかし，同試料も破損を避けるため，十分な圧力 (回転数) をかけて測定することができなかった。AYK-11 の不動水飽和率は 28%，残留油飽和率は 24% となった。図 13 に drainage プロセスにおける毛管圧と水飽和率の関係を示す。AYK-11 は測定時の圧力不足により不動水飽和率に達していないが，カーブの傾向から不動水飽和率は 28% 以下と考えられる。一方，air-brine 系で測定した KA-05 と KA-08 の不動飽和率は，それぞれ 48% と 30% となった (図 13)。両サンプルともに明色ポーセラナイト (H-W) を主体とするが (表 2)，凝灰岩のラミナが発達する KA-05 の方が不動水飽和率は高く，細かい岩相

図 13 Drainage プロセスにおける毛管圧曲線

いずれの試料も蛍光反応が確認されており、未熟性の鮎川エリアにおいて貯留岩となっている。

の違いにより異なる結果が得られた。

4.3.2 シミュレーションにおける代表値

遠心分離法では使用する流体の組み合わせにより、不動水飽和率が異なるとされている (Sabatier, 1994)。そのため、油が主体である女川層のシミュレーションにおいては、oil-brine 系で測定したデータを使用することが望ましい。しかし使用できるデータが限られていることから、air-brine 系で測定した不動水飽和率を使用することとした。露頭観察の結果、明色ポーセラナイト (H-W) は通常、塊状ないし粘土鉱物のラミナが発達するとされていることから (辻ほか, 1991)、シミュレーションでは KA-08 を代表値とし、clay-poor porcelanite (石英帯) の不動水飽和率を一律 30% とした。遠心分離法は比較的短期間で毛管圧と各流体の飽和限界を測定することができるが、試料内の濡れ相の不均質性に伴う末端効果や、測定中の流体の蒸発、低浸透率試料の測定の不確実性といった欠点がある (Sabatier, 1994; Huang and Honarpour, 1998; Newsham, *et al.*, 2004)。本研究では測定した試料数が少なくデータの信頼性が低いことに加え、細かい岩相の違いにより不動水飽和率が異なることから、代表となる値の妥当性を検証するためには今後より多くの試料で測定を行う必要がある。また浸透率が低い石英帯の clay-rich porcelanite や、オパール CT 帯の clay-poor porcelanite および clay-rich porcelanite に相当する試料も測定値がないことから、Okui *et al.* (1998) を参考に、これらのファシスの不動水飽和率を全て 75% とした。なお水銀圧入法からも不動水飽和率を求めることができるが、他の手法に比べて値が低くなる傾向があるとされているため (Newsham *et al.*, 2004)、考察には使用していない。

残留油飽和率に関しては、AYK-11 の 24% しかデータを得られなかった。十分な回転数 (圧力) をかけて測定した

場合、残留油飽和率はさらに低くなると予測されることから、シミュレーションでは全てのファシスにおいて暫定的に 10% を使用することとした。しかし後述のとおり、残留油飽和率を 1% としたモデルが実際の油ガス田の事例と最も整合的であることから、これをベースモデル (モデル 1) とし、残留油飽和率を 10% としたモデル (モデル 2) と結果を比較した。堆積盆シミュレーションにおいて、残留油飽和率は炭化水素の排出のタイミングを支配する重要なパラメータの 1 つであり (奥井ほか, 1992; Okui *et al.*, 1998)、孔隙率に対して設定した残留油飽和率に達するまで油の有効浸透率はゼロとして計算される。

4.4 モデルの境界条件と断層の設定

対象エリアは前期-中期中新世にかけて日本海の拡大に伴って形成されたリフト堆積盆であり (土谷, 1984; 新妻ほか, 1986; 佐藤, 1986 など)、リフト火成活動は 16 - 14Ma で最も活発であったとされている (倉沢・今田, 1986; 土谷, 1992)。そこで McKenzie Model (McKenzie, 1978) に従い、地殻熱流量は 16Ma に向けて増加し、それ以降は徐々に減少するモデルを想定した。まず複数の坑井 (図 2) で一次元シミュレーションを行い、ビットリナイト反射率と温度データをキャリブレーションに用いて熱史を復元した。続いてこれらの地殻熱流量モデルを基に、断層ブロックなどを考慮した各時代の地殻熱流量分布図を作成し、三次元シミュレーションに使用した。なお、海底面温度は Wygrala (1989) を基にした PetroMod のデータベースを使用し、各時代の古水深に対応した値を設定した。古水深はカッティングスやログレスポンスから推測される堆積環境に一般的な値を、対象エリア全体に一律で与えた。熱履歴の考察や主要な入力パラメータについては熊田ほか (2014, 2015) も参照されたい。

三次元シミュレーションでは主要断層である小滝逆断層、北由利衝上断層、矢島逆断層の 3 本を設定した (断層位置は図 2 参照)。特に由利原-鮎川油ガス田を形成する炭化水素の大部分は、断層をパスとしてキッチンエリアから移動してきたものである (早稲田・重川, 1990; 横井ほか, 2013)。しかしながらソフトウェアの制約上、同一の根源岩レイヤー内を断層パスのみで移動するような複雑なモデルを再現できなかった (断層以外にも一部レイヤーを伝って移動する)。そのため、由利原-鮎川エリアの炭化水素の集積量については正確な議論ができない。

5. シミュレーション結果と考察

5.1 熟成度と炭化水素生成のタイミング

図 14A に三次元堆積盆シミュレーションで求めた女川層下限の現在の熟成度を示す。堆積盆中央部では広い範囲で中期~後期油生成帯 (R_o : 0.7 ~ 1.3%) に入っているが、由利原-鮎川エリアの構造翼部でもすでに初期油生成帯 (R_o : 0.55 ~ 0.7%) に入る結果となった。横井ほか (2013) を引用すれば、前者は“通常型”炭化水素の、後者は“低熟成”炭化水素のキッチンエリアに相当すると考えられる。また対象エリアでは、地層温度が約 80°C ~ 90°C に達する

図 14 女川層の現在の熟成度と炭化水素の累計生成量

(A) 女川層下限の現在のピトリナイト反射率, (B) 現在までに生成した油の総量, (C) 現在までに生成したガスの総量。(B) と (C) は最も生成量が多い女川層中下部のレイヤーを表示している (9/16 layer)。

図 15 ファシスと油飽和率 (モデル 1)

(A) ファシスモデル, (B) 女川層の現在の油飽和率, (C) 高熟成エリアのファシスと油飽和率, (D) 低熟成エリアのファシスと油飽和率。(B) ~ (D) はモデル 1 (残留油飽和率 1%) を使用した三次元堆積盆シミュレーション結果の断面表示。女川層中の生成・移動・集積結果を評価しやすくするため、女川層以外の層準には根源岩能力を設定していない。

と炭化水素の生成が開始する結果となった。前述のとおり、オパール CT 帯から石英帯へ相転移する際の温度は約 70℃ であり、続成境界面直下の石英帯において最も貯留岩性状が良くなる (図 10)。既存坑井で測定された温度データから、対象エリアの地温勾配は 4.0 ~ 4.8℃ /100 m であることから、続成境界面 (貯留層上限) の約 200 m 下位の同一層準内において、炭化水素の生成が開始することになる。炭化水素の生成開始時期は、堆積盆中央部で下部天徳寺層堆積初期から、由利原—鮎川エリア周辺で笹岡層堆積初期からとなった。油は堆積盆中央部の広い範囲で生成しているが (図 14B)、ガスは北由利衝上断層群の下盤エリアが主な生成場所である (図 14C)。

5.2 ファシスと炭化水素の賦存タイプ

炭化水素の賦存タイプはファシスによって異なる結果が得られた。図 15A と図 15B にそれぞれ、図 2 の A-B 断面におけるファシスモデルと女川層の現在の油飽和率を示す。さらに図 15C と図 15D にそれぞれ、高熟成エリアと低熟成エリアにおけるファシスごとの油飽和率を示す。低熟成エリアでは比較的浸透率が高い clay-poor porcelanite や凝灰岩がキャリアベッドとなり、構造ないし層位トラップが成立している場所では同ファシス中に炭化水素が集積した (図 15D)。

同様に高熟成エリアにおいても、clay-poor porcelanite や凝灰岩がキャリアベッドとなり、トラップが成立している場所では同ファシス中に炭化水素が移動・集積した (図 15C)。そのため clay-poor porcelanite 中で生成された炭化水素のほとんどが移動し、その場に残らなかった。一方 clay-rich porcelanite は浸透率が低いいため、隣接するセルにキャリアとなるファシスが存在しない限り、生成された炭化水素は排出されることなくその場に取り残された (図 15C)。

しかしこれらの結果は、clay-poor porcelanite の浸透率が、孔隙率 20% 以下の領域においても比較的高いと仮定したことに起因している (図 12)。そのため、埋没に伴い clay-poor porcelanite の浸透率が clay-rich porcelanite と同様の浸透率まで急激に低下するような場合、clay-poor porcelanite もキャリアベッドとして機能しない可能性がある。浸透率の設定は高熟成エリアの移動・集積結果を左右する重要なパラメータであるため、今後他のケースでも検証する必要がある。しかしながら、対象エリアの検層解析より、女川層珪質岩は一般的な泥岩と比較して機械的圧密が緩やかであるという結果が得られている (秋久ほか, 2014)。カイネティック解析の結果、女川層ケロジェンは炭化水素の生成が早いタイプ (タイプ II ~ II-S) であるため、比較的高い孔隙率のまま炭化水素の生成が開始する。シミュレーションの結果、clay-poor porcelanite から炭化水素の排出が開始する際の孔隙率は 15% 前後であり、このような孔隙率の範囲では、両ファシスの浸透率の差はある程度保たれている可能性が高い (図 12)。

5.3 ファシスと炭化水素飽和率

上述のとおり、clay-rich porcelanite 中には生成された炭

化水素が残留したが、その飽和率は 20% 以下という結果となった (図 15BC, 図 16)。対象エリアのケロジェンは炭化水素の生成が早いタイプではあるものの、ほとんどのエリアで TOC は 2% 以下と低い (図 9)。そのため生成量自体が少なく、熟成が進んだエリアでも炭化水素飽和率が低い可能性が示された。TOC が比較的高いエリアであっても、深度 2,500 m 以深 (ビトリナイト反射率で約 0.8% 以上) でないと、同ファシス中の炭化水素飽和率は 20% に達しない。

一方 clay-poor porcelanite では、生成された炭化水素のほとんどが移動するため、熟成が進んだエリアの炭化水素飽和率は数% となったが、集積先では平均で約 50% (最大で 70%) となった (図 15BD, 図 16)。前述のとおり浸透率の設定によっては、同ファシスも clay-poor porcelanite 同様、キャリアベッドにならない可能性がある。シミュレーションでは clay-rich porcelanite と同様の根源岩能力を与えているため、排出が起こらない場合は、同ファシスの炭化水素飽和率も 20% 以下である。

堆積盆シミュレーションにおいて、根源岩から炭化水素の排出が起こらない場合、その炭化水素飽和率は設定した根源岩能力に依存する。特に堆積時の HI や TOC に関しては、今後さまざまなケースでシミュレーションを行い、炭化水素飽和率の違いを比較する必要がある。また、対象エリア東方の露頭では、比較的粘土鉱物含有量が高い珪質頁岩 (S) で高い TOC を示す傾向があり、この岩相の TOC の平均値は 2.8% である (辻ほか, 1991; 早稲田ほか, 1991, 1995)。堆積盆中央部において、このようなポテンシャルの高い岩相が多く分布していれば、残存する炭化水素飽和率はより高くなると考えられる。本研究では、浸透率の違いを反映させる目的で珪質岩を 2 つのファシスに大別したが、ファシスごとのより詳細な炭化水素飽和率の違いを検証するためには、珪質岩をさらに細分化したファシスモデルを再構築し、ファシスごとに異なる根源岩能力を与えたモデルでシミュレーションを行うことが望ましい。しかしその場合、坑井データがないエリアのファシスモデルの妥当性や、根源岩能力の地域的変化の推測が大きな課題となる。

5.4 残留油飽和率と移動集積結果

前述のとおり、現在の由利原—鮎川エリアの構造翼部は初期油生成帯 (Ro: 0.55 ~ 0.7%) に入っている (図 14A)。未熟性の鮎川エリアに位置する既存坑井において、“低熟成”炭化水素の胚胎が確認されていることは (横井ほか, 2013)、周辺の低熟成エリアにおいて炭化水素の排出が起きていることを示している。残留油飽和率の値を変えてシミュレーションを行った結果、残留油飽和率が 1% 以下のとき、由利原—鮎川周辺の低熟成エリアで生成された炭化水素の排出が開始した。

図 16 に、残留油飽和率 1% を使用したモデル (モデル 1) の現在の炭化水素賦存エリアを示す。図 16A と図 16B はそれぞれ、clay-poor porcelanite と clay-rich porcelanite が卓越するレイヤーを表示している。前述のとおり、低浸

透率の clay-rich porcelanite では、隣接するセルにキャリアベッドがない限り、設定した残留油飽和率を越えても排出が起こらない。そのため、小滝逆断層下盤や北由利衝上断層群下盤の熟成が進んだエリアに炭化水素が残留した（図 16B）。一方 clay-poor porcelanite からは、熟成帯に入っているほとんどのエリアで炭化水素の排出が開始し、院内や桂坂といった堆積盆中央部の集積構造があるエリアに炭化水素が移動・集積した（図 16A）。

図 17 に残留油飽和率 10%を使用したモデル（モデル 2）の現在の炭化水素賦存エリアを示す。モデル 1 と同様、clay-rich porcelanite 中で生成された炭化水素の多くは排出されないため、炭化水素の賦存エリアは両モデルで同じような分布となった（図 16B, 図 17B）。一方 clay-poor porcelanite については、炭化水素の排出エリアが小滝逆断層下盤エリアの一部と北由利衝上断層群下盤エリアに限定された（図 17A）。モデル 1 と比べ排出のタイミングが遅

図 16 現在の炭化水素賦存エリア（モデル 1）

(A) は“clay-poor porcelanite”が卓越する女川層中下部のレイヤー（9/16 layer）を、(B) は“clay-rich porcelanite”が卓越する女川層最上部のレイヤー（1/16 layer）をそれぞれ表示。残留油飽和率 1% を使用。

図 17 現在の炭化水素賦存エリア（モデル 2）

(A) は“clay-poor porcelanite”が卓越する女川層中下部のレイヤー（9/16 layer）を、(B) は“clay-rich porcelanite”が卓越する女川層最上部のレイヤー（1/16 layer）をそれぞれ表示。残留油飽和率 10% を使用。その他の設定はモデル 1 と同じ。

いことに加え、排出量が減少したことで熟成度が低いエリアの炭化水素飽和率（相対浸透率）が上がり、集積構造のないエリアに移動途中の炭化水素が残留した。実際のフィールドでは、院内や桂坂エリアにおいて、天徳寺層（桂根相）や船川層の一部を貯留岩として油田が成立している（藤岡，1964）。これらは主に仁賀保衝上断層群の下盤エリアで生成された炭化水素が、断層を伝って上位層に移動してきたものであると考えられるが、モデル2ではこれらのエリアから炭化水素の排出が起らない。また、由利原・鮎川周辺の低熟成エリアからも排出が起らないため、現実的なモデルではないと考えられる。

根源岩中で炭化水素の生成が開始し、生成量の増加に伴い炭化水素飽和率が上昇していく過程は drainage プロセスである。drainage プロセスでは通常、imbibition プロセスで得られる残留油飽和率よりも低い値で油の流動が可能とされている（Okui and Waples, 1993；Okui *et al.*, 1998）。そのため、imbibition プロセスから推測した残留油飽和率を使用したモデル2では排出エリアや排出量が制限され、実際の油ガス田の事例（藤岡，1964；横井ほか，2013）と整合的な結果が得られなかったと考えられる。また堆積盆シミュレーションでは、流体の移動は基本的にダルシー則に基づいているが（Durand, 1983, 1988；Ungerer, 1990），この他に根源岩から炭化水素が排出されるメカニズムとして、異常高圧の発達によるフラクチャリング（du Rouchet, 1981；Hunt, 1990），石油生成に伴い発生する生成圧力（Momper, 1978），有機物ネットワークの形成による拡散（Ungerer *et al.*, 1987）などが提唱されており、実際はこれら複数のメカニズムが関与していると考えられている（奥井，2013）。そのため立石（1998）でも指摘されているとおり、堆積盆シミュレーションにおいてはさまざまなケースでシミュレーションを行い、実際のフィールドの状況と比較しながら試行錯誤を重ねる必要がある。

6. タイトオイルとしての女川層のポテンシャル

Jarvie (2012) は根源岩能力や岩相を基に、シェールオイルシステムをタイトシェール（Barnett, Antelope, Tuscaloosa など）、ハイブリッドシェール（Bakken, Eagle Ford, Niobrara など）、フラクチャー型シェール（Monterey, Bakken, Pierre など）の3つに区分した。またシェールオイルの商業的開発のためには、熟成度にかかわらず十分な油飽和率が必要であり、特にハイブリッドシェールは挟在する炭酸塩岩や砂岩などの non-source が生産に大きく寄与しているとされている（Jarvie, 2012, 2014）。上述のとおり、女川層はキャリアベッドとなるファシスと、根源岩能力を持つ低浸透率のファシスが互層を成しており、Jarvie (2012) のハイブリッドシェールに相当する（ただし女川層はキャリアベッドも根源岩能力を有している）。シミュレーションの結果、堆積盆中央部においても比較的浸透率の良い clay-poor porcelanite 中に炭化水素が移動・集積している可能性が示された。特に院内、仁賀保、桂坂、白雪川などの集積構造を有するエリアでは高い炭化水素飽和率

が期待できることから、タイトオイルとして有望であると考えられる（図2，図16A）。一方、集積構造がないエリアでは clay-rich porcelanite 中にしか炭化水素が残留していない可能性が高く、低浸透率であることに加えて炭化水素飽和率も低いため、開発対象となる可能性は低い（図16B）。しかし同ファシスの炭化水素飽和率は、レイヤーごとに仮定した根源岩能力に基づくものである。十分な量の炭化水素が生成していれば、特に熟成が進んだ仁賀保や白雪川エリアにおいて、同ファシスもターゲットとなり得る可能性があるため、タイトオイルとしてのポテンシャルはより高いものとなるであろう。

7. ま と め

- 1) 秋田堆積盆仁賀保亜堆積盆の女川層の珪質岩を対象として、地下構造図と坑井データに基づく三次元構造モデルを構築し、4つの堆積シーケンス区分と clay-rich porcelanite, clay-poor porcelanite および凝灰岩を基本区分とするファシスモデルを構築した。これをもとに、根源岩能力にかかわるカイネティックと続成境界による岩石物性変化データをパラメータとし、ファシスごとの炭化水素賦存タイプと不動水飽和率と残留油飽和率の違いも考慮したうえで、石油生成・移動・集積プロセスの三次元堆積盆シミュレーションを行った。
- 2) その結果、堆積盆中央沈降部および由利原・鮎川エリアの両者ともに油熟成帯に入ること、clay-poor porcelanite や凝灰岩ファシスはキャリアベッドとして機能し、構造やトラップへ炭化水素が移動して集積すること、対して浸透率の低い clay-rich porcelanite ファシス中には炭化水素が残留することが明らかになった。熟成がより進んだ堆積盆中央沈降部においても、構造のみならずファシスの分布状況により層位トラップが成立する箇所では炭化水素が移動集積している可能性が示される。
- 3) 堆積盆内全体の炭化水素の移動集積状況は、残留油飽和率の設定によって大きく異なり、残留油飽和率を1%とした場合、10%の場合に比べて clay-poor porcelanite を通して移動・修正する油の量が増加し、堆積盆中央沈降部においても集油構造に移動集積する。
- 4) 根源岩を対象とした炭化水素の移動・集積シミュレーションはこれまで研究事例が少ないという点から、本研究は、新しいアプローチによる堆積盆シミュレーション手法とタイトオイルポテンシャル評価事例を提示するものであるといえる。一方で、データが希薄なエリアの根源岩性状の分布予測や、岩石物性モデルの構築については、今後の課題として残っている。本研究事例が、今後のシェール評価のための一助となることを期待したい。

謝 辞

本研究は(独)石油天然ガス・金属鉱物資源機構の「女川

タイトオイル共同研究」の成果に基づいており、同機構および共同研究先である石油資源開発㈱から公表の許可をいただいた。また、研究を進めるにあたり石油資源開発㈱からは多くのデータと貴重な知見を惜しみなくご提供いただいた。2名の査読者の方々には多岐にわたる建設的なご指摘をいただき、これにより本稿は大きく改善された。心より感謝申し上げます。

引用文献

- 秋久國男, 1979a: 石油根源岩に関する反応速度論的研究 (第4報) ケロジェンの低温熱分解に伴う石油状成分の生成. 石技誌, **44**(2), 78–85.
- 秋久國男, 1979b: 石油根源岩に関する反応速度論的研究 (第5報) 石油根源岩の反応速度論的評価. 石技誌, **44**(2), 86–93.
- 秋久國男・並川貴俊・熊田祐子・関根孝太郎・天羽美紀, 2014: 鮎川一由利原油ガス田および周辺エリアの女川タイトオイルポテンシャルーその (2) 試料分析および検層データによる調査. (独)石油天然ガス・金属鉱物資源機構平成25年度石油開発技術本部年報, 57–58.
- 荒木直也・加藤 進, 1993: 鮎川油・ガス田の発見. 石技誌, **58**(2), 119–127.
- Behar, F., Beaumont, V. and De B., Pentead, H. L., 2001: Rock-Eval 6 technology: Performances and developments. *Oil & Gas Sci. Technol.*, **56**, 111–134.
- Burnham, A. K., Braun, R. L., Gregg, H. R. and Samoun, A. M., 1987: Comparison of methods for measuring kerogen pyrolysis rates and fitting kinetic parameters. *Energy Fuels*, **1**, 452–458.
- Carruthers, D. and Ringrose, P., 1998: Secondary oil migration: oil-rock contact volumes, flow behavior and rates. In Parnell, J., ed., 1998. *Dating and duration of fluid flow and fluid-rock interaction*. Geol. Soc. London, Spec. Publ., no. 144, 205–220.
- Durand, B., 1983: Present trends in organic geochemistry in research on migration of hydrocarbons. *Advances in Organic Geochemistry 1981*. Wiley & Sons, 117–128.
- Durand, B., 1988: Understanding of HC migration in sedimentary basins (present state of knowledge). *Organic Geochemistry*, **13**, 445–459.
- 藤岡一男, 1964: 秋田油田の天然ガスについて. 石技誌, **29**(4), 153–161.
- Hantschel, T. and Kauerauf, A. I., 2009: *Fundamentals of basin modeling*. Springer.
- Huang, D. D. and Honarpour, M. M., 1998: Capillary end effects in coreflood calculations. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, **19**, 103–117.
- Hunt, J. M., 1990: Generation and migration of petroleum from abnormally pressured fluid compartments. *AAPG Bull.*, **74**, 1–12.
- 伊原 賢, 2013: タイトオイルとは何か. JOGMEC 石油天然ガス資源情報.
- Iijima, A. and Tada, R., 1981: Silica diagenesis of Neogene diatomaceous and volcanoclastic sediments in northern Japan. *Sedimentology*, **28**, 185–200.
- Isaacs, C. M., 1981: Porosity reduction during diagenesis of the Monterey Formation, Santa Barbara coastal area, California. In Garrison, R. E., et al. ed., *The Monterey Formation and related siliceous rocks of California*. Los Angeles, Pacific Section, SEPM, 257–271.
- Isaacs, C. M. and Petersen, N. F., 1987: Petroleum in the Miocene Monterey Formation, California. In Hein, J. R., ed., *Siliceous sedimentary rock-hosted ores and petroleum*. New York, Van Nostrand Reinhold, 83–116.
- Jarvie, D. M., 2012: Shale resource systems for oil and gas: Part 2 – Shale oil resource systems. In Breyer, J. ed., *Shale reservoirs – Giant resource for the 21st century*. AAPG Mem., no. 97, 89–119.
- Jarvie, D. M., 2014: Components and processes affecting producibility and commerciality of shale resource systems. *Geologica Acta*, **12**(4), 307–325.
- Jarvie, D. M., Hill, R. J., Ruble, T. E. and Pollastro, R. M., 2007: Unconventional shale-gas systems: The Mississippian Barnett Shale of north-central Texas as one model for thermogenic shale-gas assessment. *AAPG Bull.*, **91**(4), 475–499.
- 甲斐邦男・前川恵輔, 2009: 北海道幌延地域の新第三系珪藻質泥岩中の地下水の酸素・水素同位体比と塩化物イオン濃度. 石技誌, **74**(1), 96–106.
- 上辻良平・熊野裕介・横井 悟, 2013: 女川層タイトオイル開発に向けたフラクチャー型珪質頁岩油層への酸処理試験. 石技誌, **78**(6), 491–495.
- 加藤 進・檀原 徹・小田 浩, 2008: 秋田県鮎川一由利原地域の中新統のフィッシュン・トラック年代. 石技誌, **73**(5), 397–406.
- 加藤 進・井上洋子, 1997: 秋田県鮎川一由利原地域の女川層の有孔虫化石. 瑞浪市化石博物館研究報告, no. 24, 39–49.
- 熊田祐子・高野 修・並川貴俊・秋久國男, 2014: 鮎川一由利原油ガス田および周辺エリアの女川タイトオイルポテンシャルーその (3) 地質および油ガス生成モデリングによる調査. (独)石油天然ガス・金属鉱物資源機構平成25年度石油開発技術本部年報, 59–60.
- 熊田祐子・高野 修・秋久國男, 2015: 女川タイトオイルポテンシャル評価ーその (3) ベースンモデリングによる広域ポテンシャル評価. (独)石油天然ガス・金属鉱物資源機構平成26年度石油開発技術本部年報, 83–85.
- 倉沢 一・今田 正, 1986: 東北日本第三紀火山岩類のストロンチウム同位体比ー日本海拡大との関連ー. 地質雑, **92**(3), 205–217.
- Kusznir, N. J., Marsden, G. and Egan, S. S., 1991: A flexural cantilever simple-shear/pure-shear model of continental

- lithosphere extension. application to the Jeanne d'Arc Basin and Viking Graben. In: Roberts, A. M., Yielding, G., Freeman, B., eds., *The Geometry of Normal Faults*. Geol. Soc., London, Spec. Publ., **56**, 41–60.
- 増井泰裕・辻 隆司, 1990: 由利原油・ガス田周辺の女川層珪質頁岩の石油地質(その1)(要旨). 石技誌, **55**(4), 285.
- McKenzie, D., 1978: Some remarks on the development of sedimentary basins. *Earth and Planetary Sci. Lett.*, **40**, 25–32.
- Momper, J. A., 1978: Oil migration limitations suggested by geological and geochemical considerations, *AAPG Course Note Series*, 8, B1-B60.
- 森田澄人・後藤秀作・松林 修・棚橋 学, 2010: 数値シミュレーションによる CO₂ 地中貯留ポテンシャルの試み—マレー半島東方沖マレー堆積盆におけるケーススタディー. 地質調査研究報告, **61**(7), 245–270.
- 守屋俊治・山根照真・齋藤雄一・加藤 進・中山一夫, 2007: 岩船沖油・ガス田のタービダイト砂岩への炭化水素移動・集積モデル. 石技誌, **72**(1), 89–97.
- Murata, K. J. and Larson, R. R., 1975: Diagenesis of Miocene siliceous shales, Temblor Range, California. *U.S. Geol. Surv. Jour. Res.*, **3**, 553–566.
- Murata, K. J. and Nakata, J. K., 1974: Cristobalitic stage in the diagenesis of diatomaceous shale. *Science*, **184**, 567–568.
- Newsham, K. E., Rushing, J. A., Lasswell, P. M., Cox, J. C. and Blasingame, T. A., 2004: A comparative study of laboratory techniques for measuring capillary pressure in tight gas sands. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. Houston, Texas.
- 新妻信明・吉井敏勉・土谷信之, 1986: 日本海拡大の実証にむけて. 科学, **56**, 493–495.
- 奥井明彦, 1998: ベースンモデリングによる石油システム評価. 石技誌, **63**(1), 78–91.
- 奥井明彦, 2013: シェールロックにおける油ガスの生成と移動, 現在の理解. 石技誌, **78**(1), 5–15.
- Okui, A. and Waples, D.W., 1992: The influence of oil expulsion efficiency on the type of hydrocarbon accumulating in traps. *9th Offshore South East Asia Conference and Exhibition, preprints*, 685–698.
- Okui, A. and Waples, D.W., 1993: Relative permeabilities and hydrocarbon expulsion from source rocks. In Dore, A. G. et al., eds., *Basin Modeling: Advances and Applications*, NPF Spec. Publ., no. 3, 293–301.
- 奥井明彦・Waples, D. W.・武田信従, 1992: 根源岩からの油・ガス排出現象における「油飽和率」と「相対浸透率」の重要性. *Researches in Organic Geochemistry*, **8**, 51–55.
- Okui, A., Siebert, R. M. and Matsubayashi, H., 1998: Simulation of oil expulsion by 1D and 2D modeling-saturation threshold and relative permeabilities of source rock. In Iliffe, J. and Dueppenbecker, S. eds., *Basin Modeling: Practice and Progress*, Geol. Soc. Spec. Publ., no. 141, 45–72.
- Pepper, A. S. and Corvi, P. J., 1995: Simple kinetic models of petroleum formation. Part I. Oil and gas generation from kerogen. *Mar. Petrol. Geol.*, **12**(3), 291–319.
- Peters, K. E., Walters, C. C. and Moldowan, J. M., 2005: The Biomarker Guide, volume 1 and 2. Cambridge University Press, second edition.
- Purcell, W. R., 1949: Capillary pressure-their measurement using mercury and calculation of permeability therefrom. *Trans. AIME*, **186**, 39–48.
- Roberts, A. M., Yielding, G., Kusznir, N. J., Walker, I. and Dorn-Lopez, D., 1993: Mesozoic extension in the North Sea. Constraints from flexural back-stripping, forward modeling and fault populations. In Parker, J. R., eds., *Petroleum Geology of Northwest Europe. Proceeding of the 4th Conference*. The Geological Society, London, 1123–1136.
- du Rouche, J., 1981: Stress field, A key to oil migration. *AAPG Bull.*, **64**, 74–85.
- Sabatier, L., 1994: Comparative study of drainage capillary pressure measurements using different techniques and for different fluid systems. SCA paper 9424.
- 佐藤比呂志, 1986: 東北地方中部地域(坂田—古川間)の新生代地質構造発達史(第I部・第II部). 東北大地質古生物研報, **88**, **89**, 1–32, 1–45.
- Slobod, R. L., Chambers, A. and Prehn, W. L., 1951: Use of centrifuge for determining connate water, residual oil, and capillary pressure curves of small core samples. *Jour. Petrol. Technol.*, **3**(4), 127–134.
- Suppe, J., 1983: Geometry and kinematics of fault-bend folding. *Am. Jour. Sci.*, **283**, 684–721.
- 鈴木徳行, 1998: 石油生成モデリング技術と熱史評価技術の進歩. 石技誌, **63**(1), 30–43.
- 鈴木徳行・三瓶良和・松林英樹, 1995: 秋田, 新潟地域における根源岩の有機地球化学的相違. 石技誌, **60**(1), 62–75.
- Tada, R. and Iijima, A., 1983: Petrology and diagenetic changes of Neogene siliceous rocks in northern Japan. *Jour. Sediment. Petrol.*, **53**, 911–930.
- 立石猛雄, 1998: 炭化水素の生成・排出シミュレーション—北部北海およびオーストラリア北西大陸棚の例—. 石技誌, **63**(1), 65–77.
- 立石猛雄・奥井明彦, 1994: ノルウェー領北海における油・ガスの生成と排出—プレント層群石英炭層の寄与について—. *Researches in Organic Geochemistry*, **9**, 69–75.
- 土谷信之, 1984: 秋田・山形油田第三系堆積盆地形成期の火山活動. 地質調査所月報, **35**, 438–439.
- 土谷信之, 1992: 中新世背弧リフティングと青沢玄武岩. 地球科学, **46**(1), 29–37.
- 辻 隆司・増井泰裕・早稲田周・井上洋子・栗田裕司・甲

- 斐邦男, 1991: 秋田県矢島町周辺の女川層の岩相区分と堆積環境, およびその根源岩特性. 石油資源開発株式会社 技術研究所研究報告, no. 7, 45-99.
- Tsuji, T., Masui, Y. and Yokoi, S., 2011: New hydrocarbon trap models for the diagenetic transformation of opal-CT to quartz in Neogene siliceous rocks. *AAPG Bull.*, **95**, 449-477.
- 辻 隆司・早稲田 周・横井 悟, 2013: 珪質岩(珪藻質堆積物)の続成作用と炭化水素の移動・集積. 地学雑誌, **122**(1), 69-89.
- Ungerer, P., 1990: State of the art research in kinetic modelling of oil formation and expulsion. *Organic Geochemistry*, **16**, 1-25.
- Ungerer, P., Doligez, B., Chenet, P. Y., Burrus, J., Bessis, F., Lafargue, E., Giroir, G., Heum, O. and Eggen, S., 1987: A 2-D model of basin scale petroleum migration by two-phase fluid flow application to some case studies., *In Migration of Hydrocarbons in Sedimentary Basins*, Technip, 415-456.
- Ungerer, P. and Pelet, R., 1987: Extrapolation of the kinetics of oil and gas formation from laboratory experiments to sedimentary basins. *Nature*, **327**, 52-54.
- Waples, D. W., Leonard, J. E., Coskey, R., Safwat, S. and Nagdy, R., 2010: A new method for obtaining personalized kinetics from archived Rock-Eval data, applied to the Bakken Formation, Williston Basin. *Abstract, AAPG Annual Convention*, Calgary.
- Waples, D. W., Vera, A. and Pacheco, J., 2002: A new method for kinetic analysis of source rocks; development and application as a thermal and organic facies indicator in the Tithonian of the Gulf of Campeche, Mexico. *Abstracts, 8th Latin American Congress on Organic Geochemistry*, Cartagena, 296-298.
- 早稲田周・重川 守, 1990: 由利原油・ガス田における炭化水素の生成・移動・集積. 石油資源開発株式会社技術研究所研究報告, no. 6, 1-16.
- 早稲田周・辻 隆司・栗田裕司, 1991: 女川層珪質岩における有機物の保存. 石油資源開発株式会社技術研究所研究報告, no. 7, 101-112.
- 早稲田周・辻 隆司・梶原義照・西田秀毅, 1995: 女川層の有機物相と堆積環境ーモンテレー層との比較ー. 石技誌, **60**(1), 49-61.
- Wygrala, B. P., 1989: *Integrated study of an oil field in the southern Po basin*, northern Italy. PhD thesis, University of Cologne, Germany.
- 山本正伸・渡部芳夫・渡辺真人, 1999: 東北日本新第三系石油根源岩の堆積と古海洋環境変動. 地質調査所月報, **50**(5), 361-376.
- 横井 悟・早稲田周・辻 隆司, 2013: 秋田地域における女川層タイトオイルの可能性. 石技誌, **78**(1), 68-78.
- 吉田武義・中島淳一・長谷川昭・佐藤比呂志・長橋良隆・木村純一・田中明子・Prima, O. D. A.・大口健志, 2005: 後期新生代, 東北本州弧における火成活動史と地殻・マントル構造. 第四紀研究, **44**, 195-216.