

常磐炭田の天然ガスに関する地球化学的研究

牧 真一* 米谷 宏* 安藤 直行*

Geochemical Studies on Natural Gas from the Jōban Coal Field

By

Shin'ichi MAKI, Hiroshi YONETANI & Naoyuki ANDO

Abstract

Coal field gases, especially their minor constituents (helium, hydrogen, argon, carbon monoxide and heavy hydrocarbons) were investigated in the Jōban coal field. Systematic core-tests were also carried out for the samples from two boring sites in this field.

1) Methane and nitrogen are the two major components of the coal field gases and the sum of their contents generally exceeds 99 %. The change of methane concentration in the coal field gases may be mainly referred to the mixing state between the gases derived from the sedimentary rocks and from the coal seams.

2) Helium was rather homogeneously distributed throughout the field with a content of about 0.03 %, and might be originated from the basement rocks.

3) Hydrogen was found only in the gases from the Nakashio, Jōban, and Takai districts, and never detected in the superficial gases and the gases from the Nakoso district.

4) Carbon dioxide content was less than 0.2 % all over the region.

5) Carbon monoxide was not detected in the superficial gases but detected in the well-gases all over the region respectively.

6) Ethane was the only heavy hydrocarbon gas detected in this region, but propane and heavier hydrocarbons might be found if more sensitive analytical methods had been used.

7) The relation of nitrogen to argon was investigated.

8) The relations of nitrogen to argon and nitrogen to helium well represent the productivity of gases in the Jōban coal field.

9) The contents of organic matters in the cores from the Shirasaka formation of the Nakashio district are nearly equal to those of the ordinary shaly rocks of Japan, and from this fact it is considered that the main part of methane might be derived from coal seams and a part from the sedimentary rocks.

要 旨

炭田ガスの地球化学的研究の一端として、従来研究が不十分であった炭田ガス成分、特に微量ガス成分である重炭化水素、一酸化炭素、水素、ヘリウムおよびアルゴ

*技術部

ンに重点をおいた調査研究を行なった。また中塩・勿来両地区の坑井試料についてコア試験を行ない、炭層以外の地層中の有機物の分解によるメタン生成の可能性について検討を行なった。得られた結果の要点は次の通りである。

1. ヘリウム(He)は、遊離ガス中に0.01~0.04 vol. %

が含有され、常磐泉、走熊および勿来の各地区の坑口ガス中には均一に0.02~0.04 vol. %を含有している。

ガス中の窒素に対するヘリウムの割合は、上位の五安層より下位の浅層および石城層から産出するガスに大である。

2. 水素 (H_2) は、中塩および常磐の各地区の坑口ガス中には存在するが、勿来地区では、 $tr \sim 0.000$ vol. %でほとんど存在しない。

また常磐地区でも浅層ガス、地表ガス(ガス徴候地ガス)には水素は存在しない。勿来地区の共水性ガスにも水素は存在しない。

3. 炭酸ガス (CO_2) は、坑口ガス中には一例を除き、0.2 vol. %以下で、本邦における他の地域の炭田ガス中の炭酸ガス含有量と同様に少ない。

地表ガスでは、炭酸ガスは0.045~0.65 vol. %であって、坑口ガスの含有量と比較して一般に多い。

4. 一酸化炭素 (CO) は、石炭からの湧出ガス中には存在するが、坑口ガス、地表ガスには0.00 vol. %で存在が認められない。

5. 重炭化水素の内、エタン (C_2H_6) は、全地域に存在が認められたが、プロパン (C_3H_8) 以上の重炭化水素は、0.00 vol. %で存在が認められない。

6. ガス中の窒素アルゴン比 (N_2/Ar) は、窒素含有量の多い浅層ガス、地表ガス、共水性ガスに小さく、浅層および石城層から産出する坑口ガスに大である。

7. 中塩地区における試錐坑から得られた白坂層のコープ中の有機炭素量は、下位層の浅層石城層および勿来地区の試錐坑の浅層、石城層のコープから得られた量と比較して、多く、その値は本邦各地に散在する炭化水素鉱床地帯の堆積岩の値と同程度であることから、中塩地区においては、炭層以外の有機質をもった地層からメタンガス生成の可能性が考えられる。しかし勿来地区では、この白坂層が欠除していることから、この可能性はほとんどない。

1. 概 論

炭田ガスは、他の可燃性天然ガスの場合と同様に、有機物の分解によって生成され、その生成の時期は、有機物の石炭化過程の間であると考えられている。しかしその生成機構については、今後の研究によって究明されなければならない未解決の問題が多い。

有機物の石炭化過程の間で、生成されたガスは、石炭特有の物理・化学的性質(吸着ならびに収着)によって石炭中に内蔵される。

このようなガスは、地殻の変動や、人工的な採炭など

によって起こる圧力の変動で、地下水の移動とともに移動・集積される。この移動は、断層、地層の亀裂、孔隙率の大きな地層などを通して、より圧力の低い場所へ向かって行なわれる。したがって地表では、大気へのガスの放散が行なわれ、特に封塞不完全な断層、亀裂のある付近では、ガスの放散が顕著である。

地球化学的方法による地下資源探査技術の発展目標の一つは、地表における地化学的観測の実施によって得られる資料の解析から、目的とする地下資源の量ならびに分布状況を探知することにある。

天然ガスは、前記のように地下の鉱床から地表に向かって常に移動、拡散し、地表ではガスが放散されているので、この放散ガスなどを用いて直接その資源の在り方の一面を把握出来る可能性があり、比較的確実な探査面の資料を得ることが出来る。これがいわゆるガス鉱床の直接探鉱の原理である。

またガスは固体(石炭など)や液体(石油など)状態の物質と比較して、きわめて移動しやすく、存在状態や成分も変化しやすい。これに対応する条件の変化に関する充分な基礎資料が存在する場合には、逆にこの変化しやすいことを利用することが有効な調査法となり得ることが考えられる。このような見地から、筆者らは現在までの炭田ガス資料にさらに地表から行なう地化学調査の基礎資料を加える目的で常磐炭田の坑口ガス、地表ガスおよび共水性ガスについて、ガス質特に微量ガス成分である水素、ヘリウム、炭酸ガス、アルゴン、一酸化炭素および重炭化水素に重点をおいた調査研究を行なった。すなわち地質時代の差、地域差に対するガス質の検討、ガス地層中の移動、拡散による質的变化を調べ検討することを本調査の主なる研究項目とした。

またこの地域の炭田ガスは、前記のようにその大部分が炭層中の有機物から石炭化作用中に生成されたガスと考えられるが、その一部は炭層および炭層以外の地層で、石炭化作用以外の過程で生成されたガスが移動、集積されたとも考えられる。したがって鉱床成因に関連させて地層中の有機物を調べ、地層各部位のガス生成の可能性を検討することが必要と考える。このため今回の調査では、調査地域内に位置し、試料の提供を得た二坑井(古河鉱業中塩5号井、勿来ガス開発7号井)の各コープについて抽出成分および有機炭素量、有機窒素量を求め、炭層以外の地層からのメタン生成の可能性について検討を行なった。

この調査研究に多大の援助をいただいた平石炭支局技術課の各位、試料採取に協力された大日本炭礦株式会社、勿来ガス開発株式会社、常磐天然ガス株式会社、常

磐炭礦株式会社, 古河鋳業株式会社および日本水素工業株式会社の方々に感謝いたします。

2. 地形および地質

常磐炭田地域の地形・地質に関しては、これまで数多くの調査研究報告がなされている。今回は地球化学的研究を主目的としたので、特に地質に関する調査は行なわなかった。したがってこれまでに発表された調査結果から今回の研究に必要な地形・地質について概要を以下に述べる。

2.1 地形

この地域は、西は標高600~800mの阿武隈高原に、東

を太平洋に面する海岸線に画されているが、この両者が共にはほぼ南北に走っている。この中間の南北に長い地域に、標高おおむね150m以下の第三紀層からなる丘陵が分布している。

2.2 地質

この地域の基盤岩は、古生層の片岩を主とする緑色変成岩類と花崗岩類とから成り、双葉層群と総称される白堊系および第三紀漸新世の白水層群に不整合に被われている。

第三系は、下位から漸新世の堆積とされ炭田の主要な稼行炭層を最下部に持つ白水層群、次に中新世に属する湯長谷層群、白土層群、鮮新世に属する多賀層群にわかれ、その上位には第四紀層が分布している。

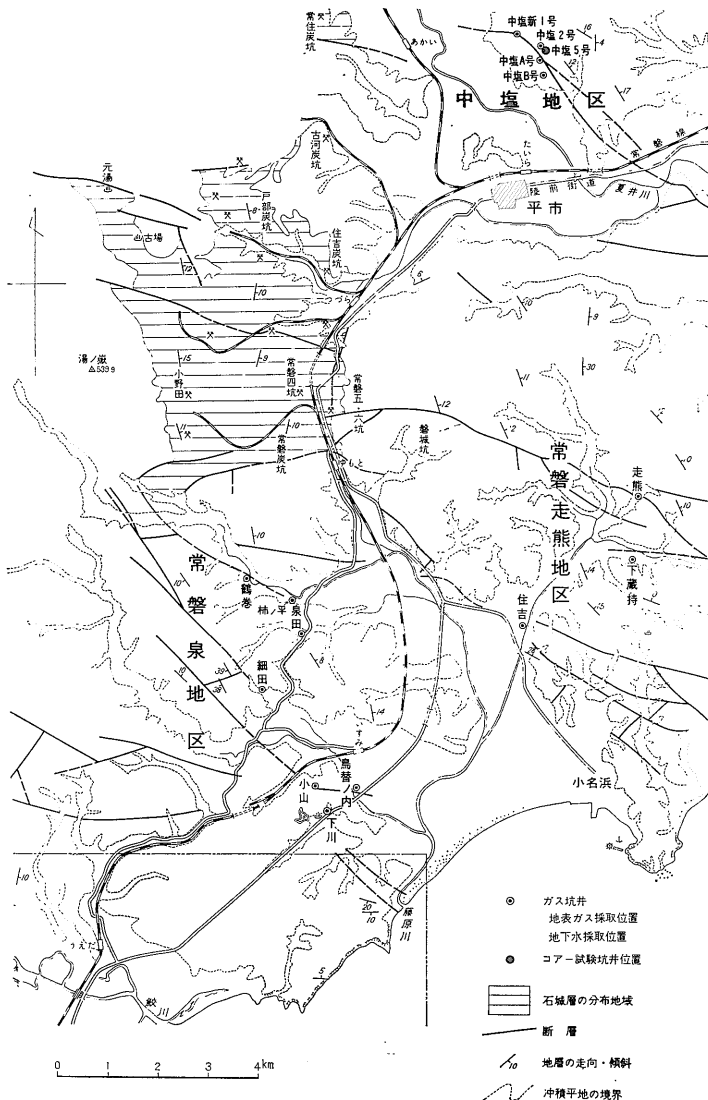
白水層群は、下位から砂岩、泥岩のくり返しの中に炭層を挟み、淡水~浅海性堆積相を示す石城夾炭層、海進が進んで浅海相の砂岩を主とする浅貝層、さらに進んだ海進相を示し、ほとんど無層理の泥岩から成る白坂層の3層を含む。

湯長谷層群は、最下部にうすい炭層を持つことのある滝夾炭層、瀕海性堆積相を示す砂岩から成る五安層、その上位に海進の進んだ段階を示す頁岩・砂岩から成る水野谷層、半深海性の頁岩・泥岩・シルト岩を主とする亀ノ尾層、海退相を示し、砂岩からなる本谷層、三沢層から成っている。

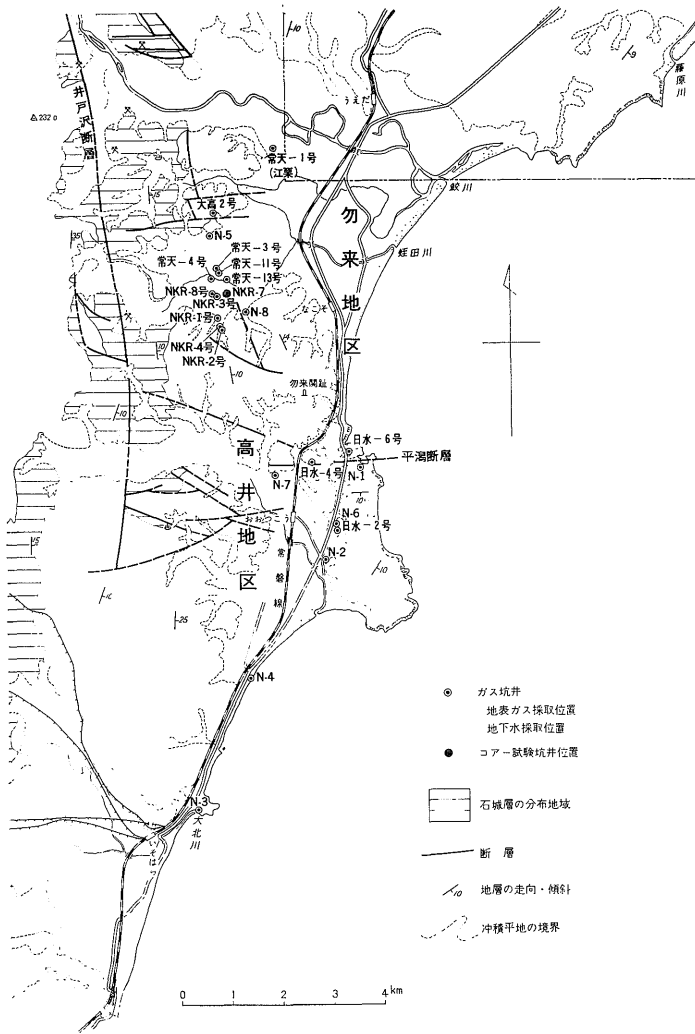
上に述べた以外の層群については、この地域のガスを考える上に副次的な重要度を持つにすぎないと考えられるのでここでは省略する。

2.3 地質構造

この地域の地質構造上の大きな特徴は、多賀層群以外の地層が、四つの主要な断層群により、北から富岡・双葉・石城北部・石城南部および多賀の五地塊に大別され、その中で互いにはほぼ似たゆるやかな盆地構造を形成することが多いと考えられることである。この構造は、現在の海域にまで連続していると考えられ、あるものを除けば、陸地ではその西翼をみることになり、外観上は、10~15°東に傾斜した



第1図 a 常磐炭田ガス調査 採ガス・採水地点図-1



第1図b 常磐炭田ガソ調査 探ガス・採水地点図-2

構造を持っている。なお今回の調査地域は、上記の石城北部および多賀地塊の二つに含まれる。

3. 試料採取

坑口ガス、地表ガス(ガス徴候地ガス)、共水性ガス、地下水の採取位置およびコア試験坑井位置をそれぞれ第1図、其の1、其の2に、また大日本炭礦坑内水採取位置を第2図に示した。

各試料の地域別採取個数は下記の通りである。

3.1 坑口ガス

勿来地区

- 勿来ガス開発株式会社 6坑井
- 常磐天然ガス株式会社 5坑井

高井地区

- 日本水素工業株式会社 2坑井

常磐泉地区

- 常磐炭礦株式会社 5坑井

常磐走熊地区

- 常磐炭礦株式会社 4坑井

中塩地区

- 古河鋳業株式会社 4坑井

3.2 地表ガス

- 勿来地区(N-5) 1カ所
- 常磐走熊地区(下倉持) 1カ所
- 高井地区(N-1, N-7) 2カ所
- 北茨城地区(N-3) 1カ所

3.3 共水性ガス

高井地区

- 日本水素工業株式会社 (日本水6号) 1カ所

3.4 地下水

- 勿来地区(N-8) 1カ所
- 高井・平瀧地区(N-1, N-2, N-6, 日本水6号) 4カ所
- 北茨城地区(N-3, N-4) 2カ所
- 大日本炭礦坑内水 4カ所

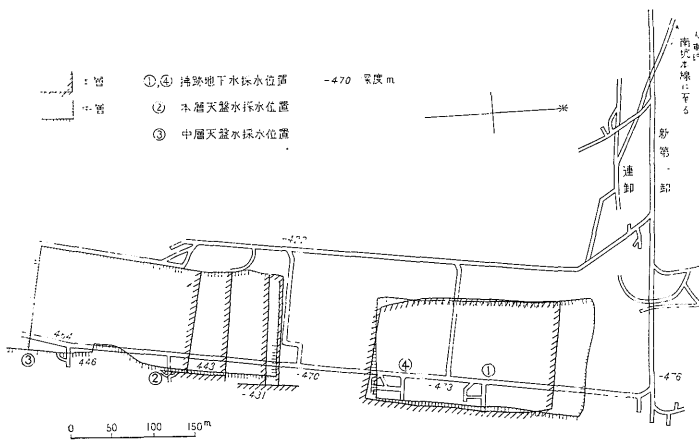
3.5 コア

勿来地区

- 勿来ガス開発株式会社 7号井11個

中塩地区

- 古河鋳業株式会社 中塩5号井7個



第2図 大日本炭礦勿来鋳業所坑内水採水位置図

第1表 常磐炭田ガス各坑井状況

地区名	坑井名	掘止深度 (m)	ガス湧出地層	最大ガス 湧出深度 (m)	現ガス量 (m ³ /日)	水 位 (m)	坑口密閉圧 ガス湧出当時 (kg/cm ²)	断層との関係
勿来地区	NKR-1号	376	石城砂岩層	108~130	7,000	-170	2.1	熊道断層肩より10m 内
"	NKR-2号	230	石城砂岩層	115~154	1,300	-159	2.5	" 70m
"	NKR-3号	223	浅貝層下部 石城砂岩上部	134	600	-150	2.5	" 60m
"	NKR-4号	178	浅貝層下部 石城層砂岩上部	127	1,700	-151	2.5	" 20m
"	NKR-8号	128	浅 貝 層	102	200	-100	2.5	熊道断層
"	大高一2号	180	岩 城 層	123	200	-104	4.9	"
"	常天一3号	74	浅 貝 層	72	700~800	-71	2.0	"
"	常天一4号	154	岩 城 層	117	1,200	-80~-90	2.0	"
"	常天一11号	74	浅 貝 層	74	1,500	-70		熊道断層 400m小断 層?
"	常天一13号	214	浅 貝 層	185	700	-110	2.0	熊道断層
"	常天江栗1号	200	亀 の 尾 層	83	2,200	-70?	湧出後2ヵ月 8.5	推定断層肩200~300 m
高井地区	日水-2号	409	浅 貝 層	406	50	-120~ -130	3.0	高井断層肩
"	日水-4号	446	浅 貝 層	402	20~30	-80~-90	2.0	平窪断層
"	日水-6号	161	水野谷層上部 掘さく中	—	2~3	自噴	—	"
常磐泉地区	鶴 卷	322	石城粗粒砂岩層	321	400	-308	0.41	寺方断層肩30m
"	柿ノ平	518	"	447	1,000	-307	1.42	寺方断層
"	泉 田	687	"	545	400	-170	2.15	泉田断層肩100m
"	細 田	396	石城頁岩層	358	7,000	-300	3.25	柳町断層肩270m
"	小山2号	630	石城粗粒砂岩層	427	3,400	-300	5.3	渡辺断層肩60m
"	鳥替の内	407	浅貝粗粒砂岩層	407	8,300	不明	11.0	" 120m
"	下 川	558	石城粗粒砂岩層	452	850	-400	8.3	
常磐走熊地区	走 熊	441	五安砂質頁岩層	405	2,000	-200	3.95	白坂断層肩80m
"	住 吉	805	五安中粒砂岩層 石城細粒砂岩層	423 648	400	-357	10.4	相川断層肩360m
中塩地区	中塩2号	569	石城砂岩層	360	2,400	—	1.75	平窪断層肩 100m
"	中塩5号	350	"	304	4,000	—	1.40	" 60m
"	中塩A号	150	五安砂岩層	132~135	700	—	0.3	" 90m
"	中塩B号	150	"	150	2,000	-70	0.55	平窪赤井両断層の中 間
"	中塩新1号	559	石城砂岩層	335	400	-350	0.5	平窪断層肩 45m

地質調査所月報 (第20巻 第6号)

第2表 常磐炭田地区炭田ガス分析表

(単位 %)

地区	坑井番号	He	H ₂	Ar	O ₂	N ₂	CH ₄	CO ₂	C ₂ H ₆	C ₃ H ₈	N ₂ /Ar	N ₂ /He
勿来	NKR — 1号	0.028	0.000	0.08	0.01	4.70	94.92	0.12	0.15	0.00	58.8	210
	NKR — 2号	0.026	0.000	0.05	tr.	4.56	95.04	0.17	0.16	0.00	91.0	175
	NKR — 3号	0.030	0.000	0.05	0.02	4.68	94.96	0.10	0.16	0.00	93.6	156
	NKR — 4号	0.026	tr.	0.07	tr.	5.14	94.60	0.20	0.17	0.00	73.2	198
	NKR — 8号	0.026	0.000	—	0.08	4.87	94.76	0.11	0.16	0.00	—	187
	大高 2号	0.001	0.000	0.08	0.04	4.63	95.17	0.07	0.01	0.00	58.0	4630
	常天江栗 1+2号	0.025	0.000	0.06	0.19	5.12	94.53	0.07	0.01	0.00	85.3	206
	常天 — 3号	0.026	0.000	0.05	0.03	4.66	95.06	0.09	0.09	0.00	93.1	178
	常天 — 4号	0.024	0.000	0.05	0.04	4.60	95.08	0.07	0.14	0.00	92.0	192
	常天 — 11号	0.025	0.000	0.06	0.07	4.59	95.11	0.07	0.08	0.00	76.0	183
	常天 — 13号	0.028	tr.	0.05	0.07	4.72	94.98	0.06	0.10	0.00	94.0	169
	*N-5(北郷一)	0.015	0.000	0.16	0.25	6.35	92.17	0.65	0.02	0.00	42.1	450
高井	日水 — 2号	0.028	0.253	0.04	0.01	4.10	95.42	0.15	0.01	0.00	102.5	146
	日水 — 4号	0.026	0.106	0.03	0.03	3.26	96.46	0.09	0.01	0.00	109	125
	⊗日水 — 6号	0.013	0.002	0.09	0.21	5.61	94.11	0.06	0.01	0.00	62.2	432
	○N-1(小松紋兵衛)	0.008	0.008	1.14	tr.	7.29	92.41	0.14	0.02	0.00	57.0	910
	○N-7(鈴木辰雄)	0.015	0.000	0.07	0.08	4.80	94.56	0.47	0.01	0.00	68.5	300
中塩	中塩 — 2号	0.043	0.005	0.29	0.03	15.60	83.98	0.03	0.02	0.00	54	360
	中塩 — A号	0.030	0.000	0.47	0.04	25.41	74.07	0.05	0.04	0.00	54	849
	中塩 — B号	0.022	tr.	0.29	0.04	14.50	85.04	0.07	0.04	0.00	50	660
	中塩新 1号	0.030	0.010	0.25	0.03	14.00	85.60	0.05	0.03	0.00	56	368
常磐泉	鶴 卷	0.032	0.030	0.19	0.03	10.51	89.00	0.11	0.08	0.00	55	330
	柿 / 平	0.035	0.002	0.12	0.03	8.25	91.53	0.09	0.09	0.00	69	236
	泉 田	0.036	0.008	0.09	0.03	7.11	92.08	0.59	0.07	0.00	79	197
	細 田	0.031	0.031	0.09	0.04	6.66	92.91	0.10	0.14	0.00	74	214
	小 山	0.022	0.011	0.08	0.03	5.53	94.11	0.12	0.10	0.00	69	251
	鳥 替 / 内	0.030	0.047	0.04	0.03	4.00	95.46	0.22	0.18	0.00	100	133
	下 川	0.013	0.381	0.07	0.04	7.15	92.14	1.06	0.21	0.00	102	548
常磐走熊	走 熊	0.031	0.007	0.10	0.03	7.30	92.30	0.13	0.04	0.00	73	396
	住 吉	0.030	0.035	0.08	0.06	7.69	91.78	0.31	0.02	0.00	96	256
	*下 蔵 持	0.018	0.000	0.09	0.03	6.49	92.88	0.45	0.02	0.00	72	360
北茨城	○N — 3	0.002	0.000	0.62	6.42	50.75	38.31	3.90	0.00	0.00	82	2537

地表ガス { ○ガス徴候地ガス
*露頭ガス
⊗共水性ガス

NKR 勿来ガス開発
常天 常磐天然ガス
日水 日本水素
平塩 古河鉱業
常磐泉および走熊地区 常磐炭鉱

4. 分析結果

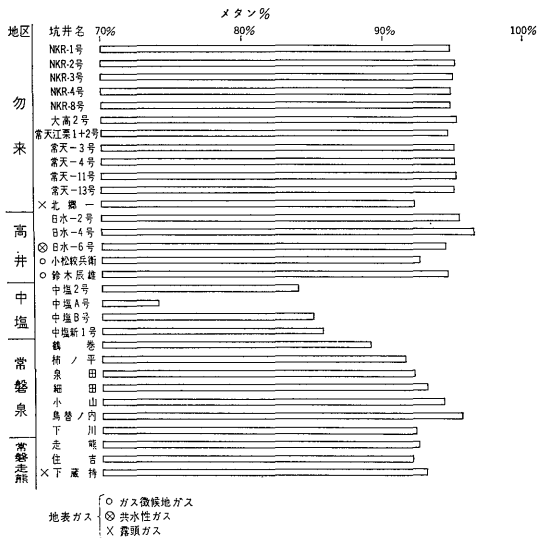
4.1 炭田ガス

炭田ガス組成については、各所で分析が行なわれ報告されている。しかし微量成分についてはきわめて不十分であった。近年質量分析計、ガスクロマトグラフなどのガス分析器機が長足の進歩をとげ、これらの器機により比較的簡単に、しかも正確にガス成分を測定することが可能となった。筆者の一人米谷宏(1963)は、従来天然ガス、特に水溶性天然ガス中の微量成分の研究を行っており、種々の興味ある結果を得ている。今回の調査研究は、前記したように、ガス組成特に微量成分について、その地域的分布、地質条件による変化、産状の差異による変化および成分相互の関係などの地球化学的考察を行ない、今後の地化学調査(探鉱を含む)の基礎資料とすることが主目的である。

各測定試料に対応する地質条件と産状については、既存の調査資料ならびに平石炭支局の「容量法の適用上必要な諸係数調査資料」(1959)を参考にした。測定試料に対する関係係数調査資料を第1表に示した。また採取試料のガスクロマトグラフによる分析値を第2表に一括表示した(分析者 米谷)。

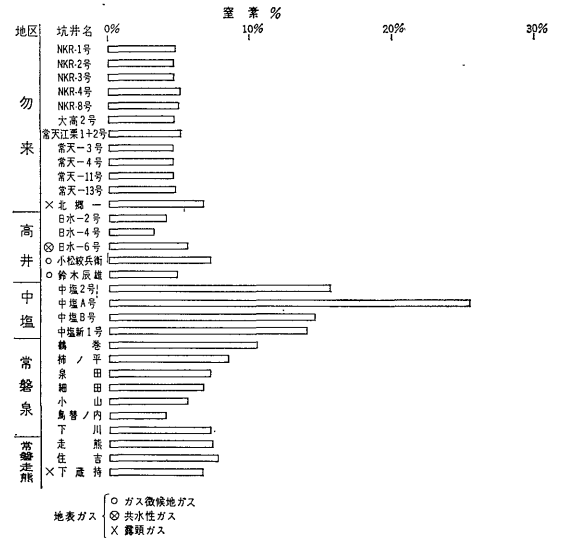
4.1.1 メタン、窒素および酸素

メタンは、メタン vol.% 分布図(第3図)に示されるように、炭田ガスの主成分であって、そのガス中に占める割合は、74~96 vol.% で、大部分は90 vol.% 以上である。地域別にみると、メタン90 vol.% 以下は、中塩地区から産出するガスのみで、この地区のガスは石城層から産



第3図 常磐炭田ガス中のメタンvol.%分布図

出す中塩新1号、中塩2号の試料においても85 vol.%前後と少ない。上位の五安層から産出する中塩A号のガスのメタンは74.07 vol.% と特に少ない。勿来および高井地区のガスは、すべて95 vol.%前後でもっとも多く、ついで常磐泉地区、同走熊地区の順にメタン濃度が減少している。坑口ガス、地表ガスおよび共水性ガスの間には特にメタン濃度の差異は認められない。



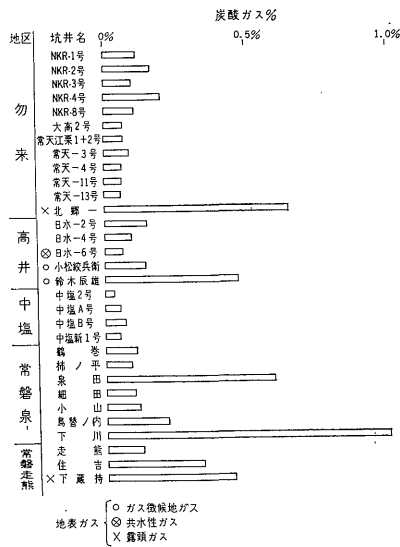
第4図 常磐炭田ガス中の窒素vol.%分布図

窒素ガスは、窒素 vol.% 分布図(第4図)で示すように、炭田ガスを構成する成分の中で、メタンに次ぐ主成分である。すなわちメタンと窒素とで99 vol.% 以上を占めるので、炭田ガスは実質的にはメタンと窒素の2成分型と考えてよい。

酸素は一般に少なく、北部中塩地区および常磐地区では0.02~0.06%とほぼ一定した値を示す。しかし南部の勿来地区および高井地区ではtr.~0.19 vol.%とかなり変化し、北部に比較して多いものがある。酸素は、地層中の本来のガス成分として存在する他に坑井状況、試料採取の方法などによって二次的に試料中に混入する場合がある。例えば高井6号井の0.21 vol.% は共水性ガスについて得られたものであり、常磐天然ガス株式会社の1+2号井の数値は遠距離輸送のガスを採取したためでいずれも二次的な原因によるものと思われる。

4.1.2 炭酸ガス

炭田ガス中の炭酸ガスは、水溶性ガスに比較して一般に少ないのが特徴である。常磐炭田ガスも炭酸ガス vol.% 分布図(第5図)にみられるように少なく、0.02~0.65 vol.% の範囲である(常磐地区下川坑井1.00%は、特異な値で、他のガス成分も他の坑口ガスと異なってい

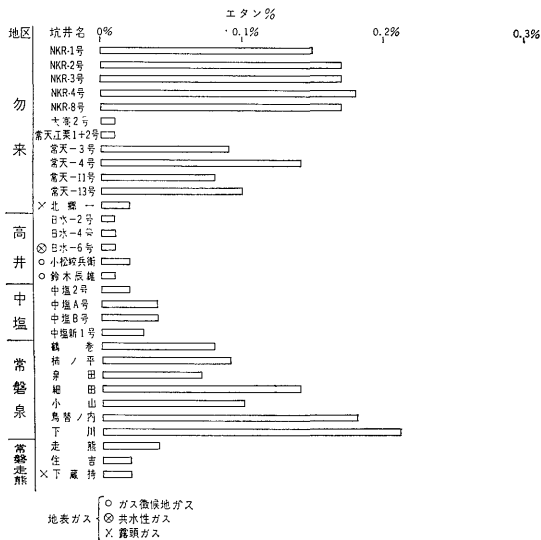


第5図 常磐炭田ガス中の炭酸ガスvol.%分布図

る)。中でも中塩地区の坑口ガスは0.03~0.07vol.%とほとんど一定し、調査地域内では最小値を示す。次いで勿来地区坑口ガスの0.06~0.20vol.%である。地表ガスならびに共水性ガスの炭酸ガスは、0.45~0.65vol.%と坑口ガスに比較してやや多い。

4.1.3 重炭化水素 (エタン, プロパン)

従来炭田ガス中の重炭化水素類の存否が問題とされていたが、近年の研究結果によるとエタン, プロパンの存在が明らかとなった。北海道炭礦技術会の資料(1957)によると、北海道赤平炭礦の炭田ガス中には質量分析に



第6図 常磐炭田ガス中のエタンvol.%分布図

注1) 塩化ナトリウム液による置換法によって石炭から湧出したガス。

よって数%のエタンの存在が確認されている。常磐炭田ガスでは、エタン vol.%分布図(第6図)に示すように、エタンはすべての試料中に存在する。高含有試料は、鳥替の内(0.18vol.%), 下川(0.21vol.%)および勿来地区のもの(0.15~0.17vol.%)で、最小含有地域は高井地区の0.01vol.%である。

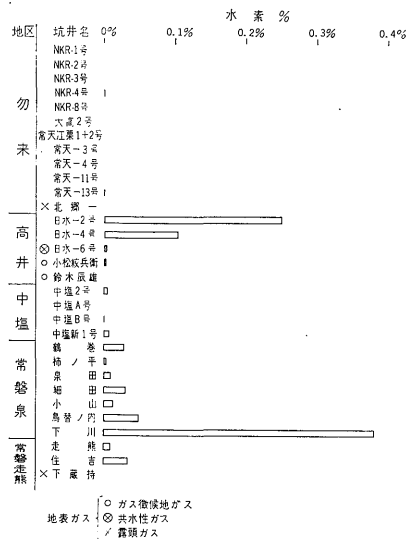
プロパンは、本研究に使用したガスクロマトグラフの検出限度0.01vol.%では存在が認められない。

4.1.4 一酸化炭素

佐々木実・永田松三の研究(地質調査所未発表資料)によると常磐炭からの湧出ガス(注1)中には、すべての試料に一酸化炭素が存在する。また荒木春視(1958)の報告によると石炭層放出ガス中にもすべて一酸化炭素が存在する。これに対し、今回の研究では坑口ガス、地表ガスおよび共水性ガスのいずれにも一酸化炭素は0.01vol.%の検出限界で存在が認められない。

4.1.5 水素

水素は、重炭化水素と同様に炭田ガス中での存否が検討されていた。本研究では水素vol.%分布図(第7図)



第7図 常磐炭田ガス中の水素vol.%分布図

にみられるように、地表ガス、浅層ガスおよび勿来地区のガス中には tr.~0.000%とほとんど存在しない。一方下位層の浅貝層、石城層から産出する常磐地区、高井地区および中塩地区の坑口ガス中には0.002~0.384vol.%の範囲で水素が存在する。高井地区の日本4号、日本2号の各坑井では0.106vol.%, 0.253vol.%ととくに水素が多い。この坑井はいずれも休止坑井であるため、水素の大部分は坑井の中の鉄パイプと還元性地下水との二次的な反応により生成されたものと考えられる。

4.1.6 ヘリウム

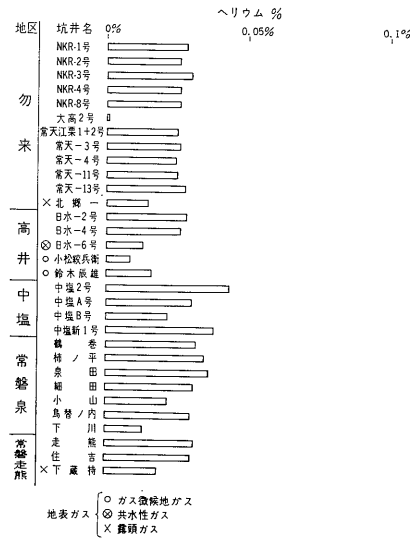
ヘリウムは、天然ガス中の成分では特異な成分であって、メタンのように有機物の分解によって生成されたものとは異なり、ウラン、トリウムの崩壊によって生成されるものとされ、その原物質を異にする。常磐地域では、ヘリウムの生成の場は先白堊紀の基盤岩が考えられる。

ヘリウムは、ヘリウムvol.%分布図(第8図)にみられるように、坑口ガスでは0.013~0.043vol.%の範囲で分布している。この分布図によるとヘリウムは中塩地区および常磐地区に多く、勿来・高井地区と南部に減少している。

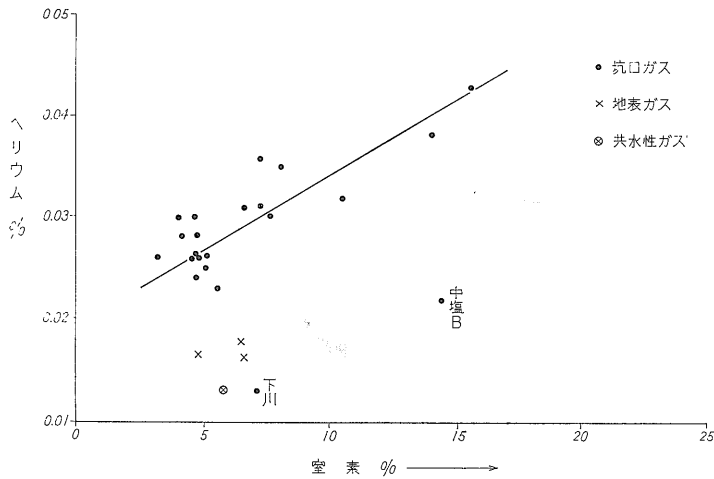
ヘリウムと窒素との関係を第9図に示した。この図によると坑口ガスでは窒素量の増加とともにヘリウム量も増加する傾向がみられるが、しかし窒素に対するヘリウムの割合は逆に減少している。

4.1.7 アルゴン、窒素アルゴン比 (N₂/Ar)

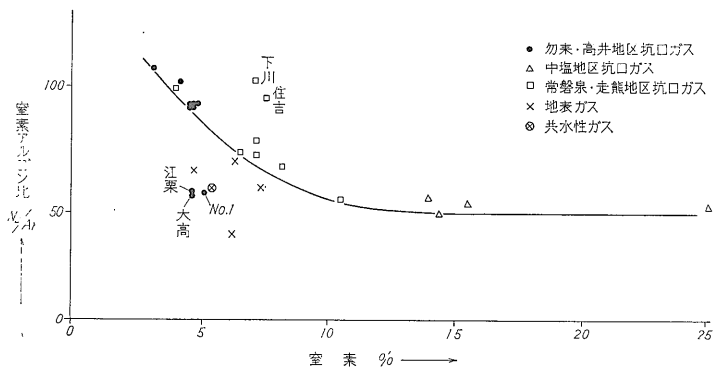
アルゴンは、大気中では窒素84に対してアルゴン1の



第8図 常磐炭田ガス中のヘリウムvol.%分布図



第9図 常磐炭田ガス中のヘリウム%と窒素%の関係図



第10図 常磐炭田ガス中の窒素%と窒素アルゴン比の関係図

割合である。(N₂/Ar=84)天然ガス中のアルゴンは、その絶対量について論ずるよりも窒素アルゴン比について考察することが重要である。

常磐炭田ガス中の窒素アルゴン比は、42.1~109の間であって、北部の中塩、常磐泉および走熊の各地区の坑口ガスでは窒素の多いガスに窒素アルゴン比が小さい。第10図に窒素%と窒素アルゴン比の関係を図示した。窒素10vol.%を超えるガスの窒素アルゴン比は60~50の値

今回調査した地下水の内、ガスと共存する産状を呈している試料は、N-1, N-3, N-7および日水6号井の4例のみである。この他に採取した地下水は、鉱泉水(N-6)ならびに過去にガスが認められたと云われているN-8などがある。これらの地下水の成分のうち、水溶性天然ガスととくに関係の深いpH, Cl⁻, HCO₃⁻、遊離CO₂, NH₄⁺-N, Ca²⁺, Mg²⁺, SO₄²⁻について分析を行なった。これらの値を第3表に示す。

第3表 平瀧断層、北茨城市付近地下水および大日本炭礦坑内水分析表

番号	所在地	深度(m)	ガス量(m ³ /日)	水量(kl/日)	pH	Cl ⁻ (mg/l)	HCO ₃ ⁻ (mg/l)	freeCO ₂ (mg/l)	NH ₄ ⁺ -N(mg/l)	Ca ²⁺ (mg/l)	Mg ²⁺ (mg/l)	SO ₄ ²⁻ (mg/l)
N-1	平瀧町 小松紋兵衛	100	0.5	水位 -1.8m	8.8	12.8	478	CO ₂ 24.8	0.79	3.2	0.09	tr.
N-2	北茨城市常陽運送株式会社	7-8	ガス徴	水位 -1.2m	8.1	61.3	554	0.55	1.55	10.2	tr.	54.3
N-3	磯原町 山海館	約 80	0.5		7.9	167	277	12.1	1.53	35.9	4.5	10
N-4	北茨城市 国道6号道路脇探炭井跡				8.6	27.2	289	CO ₂ 12.4	1.58	18.2	3.8	8
N-5	勿来市 大高 北郷一	0	0.5~1.0		—	—	—	—	—	—	—	—
N-6	大津町 石尊鉱泉	約 10	なし	水位 -4 m	7.2	17.4	446	253	1.74	93.3	10.7	76.3
N-7	北茨城市栗野 鈴木辰雄		0.5~1.0	-0.5m	7.6	21.2	143	253	1.30	67.2	26.7	11
N-8	勿来市窪田 蛭田留次郎		なし	-2 m	7.4	200	207	133	2.66	262	17.9	12
日水6号	北茨城市日本水素K.K.坑井	161	2~3	3~5	8.2	306	756	CO ₂ 31.0	1.36	12.4	0.85	tr.
NK-1	勿来市大日本炭礦K.K.払跡	坑口から 473	なし	—	6.8	9990	138	63.7	0.54	1680	87.2	471
NK-2	本層天盤水	436	滴下水		7.0	8010	80.7	8.8	5.66	965	62.3	18
NK-3	中層	446	滴下水		7.4	9710	80.7	11.0	4.25	1534	105	7
NK-4	払跡	470	滴下水		6.8	10850	109	41.8	6.17	2385	252	1260

である。しかし勿来地区では窒素%には関係なく57~10₉の間に散らばっている。前記の傾向からはずれずるものとして、窒素%に対して窒素アルゴン比の大きいものは、常磐泉地区の下川坑井および、常磐走熊地区の住吉坑井から産出する各ガスであり、窒素%に対して窒素アルゴン比の小さいものは、勿来地区の勿来開発1号井、大高2号井、常磐天然江栗1+2号井、日水6号井から産出する各坑口ガスおよび地表ガスである。

4.2 地下水

地下水による地化学調査を行なった地域は、地下水試料が比較的採取しやすい平瀧地区ならびに北茨城地区である。この調査の主眼点は、ガスが水に溶けているいわゆる水溶性ガスが主であるのか、水溶性ガスとすれば、ガスは成因的に共存する地下水と密接な関連を持っているのか、あるいは炭層から発生したガスが炭層と成因的に関連を持たない地下水と単に共存した状態であるのか、ガスの生成場所とガスおよび地下水の存在場所とが異っているのか、を調べることである。

採取した試料のうちで、とくに注意しなければならぬものは、日水6号井とN-1の2試料である。日水6号井の試料は、掘削途上(深度161m)の側管から自噴するガスおよび地下水であって、この地域で得られた自噴する共水性ガスに関する唯一のものである。N-1は水溶性ガス鉱床周辺におけるガス徴候と同一の産状を過去数十年にわたって示していると云われている。

以上は地表から採取した地下水であるが、これらの試料と比較検討するために、勿来市出蔵の大日本炭礦坑内水試料を採取分析した。また石和田靖章・牧野登喜男・東野徳夫らによって勿来地区のガス坑井から採取された地下水の分析値^{注2)}を参照した。

これらの地下水を説明上、次のように分類し、仮称する。

- 本調査で地表から採取した地下水 試料群 A
- 大日本炭礦坑内水 試料群 B
- 勿来地区ガス坑井地下水 試料群 C

4.2.1 pH

- 試料群A…… 7.2~8.8 中性からアルカリ性
- 試料群B…… 6.8~7.4 中性

注2) 地質調査所未発表資料

試料群C…… 8.0以上 アルカリ性

4.2.2. Cl⁻

Cl⁻は、試料群Aでは12.8~306mg/lの間で変化し、N-3、日水6号井およびN-8のCl⁻がそれぞれ167mg/l、306mg/l および 200mg/l とやや多いが、他はすべて62mg/l 以下で少ない。

これに対して、試料群Bの坑内水のCl⁻は、8010~10,850mg/lと多く、海水のCl⁻濃度の約半分である。試

料群Cのガス井地下水のCl⁻は、1600~3100mg/lで試料群Aと試料群Bの中間の値を示している。

4.2.3 HCO₃⁻

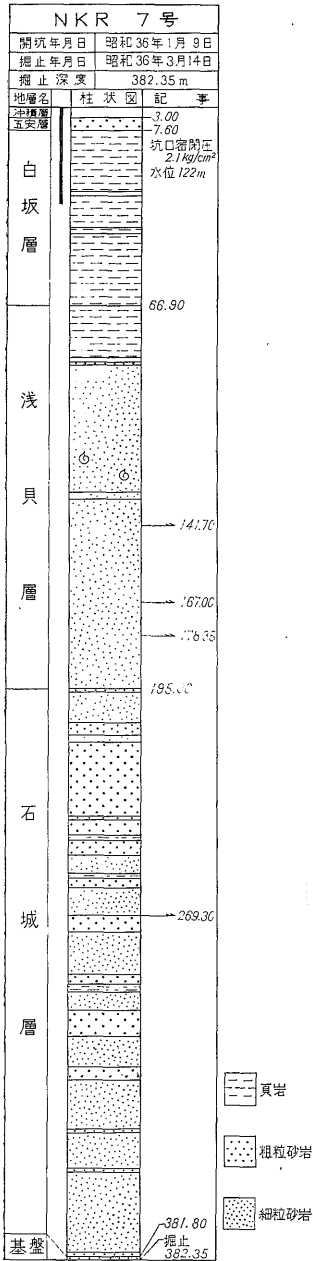
試料群A…… 143~756mg/l

試料群B…… 80~138mg/l

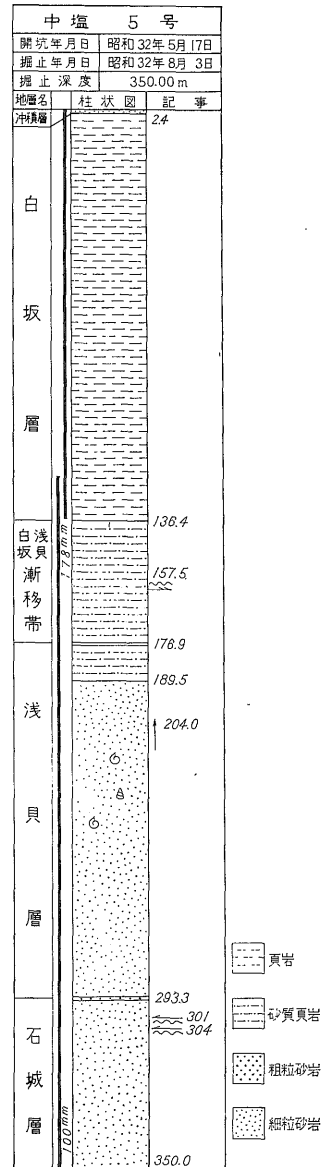
試料群C…… 38~305mg/l

試料群Aは、試料群B、Cと比較してやや多く、本邦の水溶性天然ガス鉱床地帯のガス付随水の値と比較して少なくない。

4.2.4 NH₄⁺-N



第11図 勿来ガス開発7号井柱状図



第12図 古河鉱業中塩5号井柱状図

試料群 A 0.79~2.66mg/l
 試料群 B 0.54~6.17mg/l 弘跡地下水
 (NK-1)の0.54mg/lを除くと
 4.25~6.17mg/l

4.2.5 Ca²⁺およびMg²⁺

試料群 A...Ca²⁺ 3.2~262mg/l
 " ...Mg²⁺ 0.09~26.9mg/l
 試料群 B...Ca²⁺ 965~2385mg/l
 " ...Mg²⁺ 62.3~252mg/l
 試料群 C...Ca²⁺ 15.8~164.1mg/l
 " ...Mg²⁺ 0.7~38.4mg/l

試料群A, BおよびCのいずれの値も, 本邦の一般の地下水と比較してCa²⁺が多く, Mg²⁺が少ない。このような傾向は, 炭田地域の地下水の特性であって, 北海道夕張炭田および庶路炭田の地下水についても, 本島公司らと筆者牧(1959, 1962)によって同様の結果を得ている。

4.2.6 SO₄²⁻

SO₄²⁻は, 試料群AのN-6 およびN-2の各坑井からの地下水が76.3mg/lおよび54.3mg/lと多いのに対して, ガスを共存するN-1および日水6号井からの地下水には痕跡程度と少ない。試料群Bでは, 弘跡地下水が481mg/lおよび1260mg/lときわめて多いが, 炭層天盤から採取した地下水は7~18mg/lと比較的少ない。試料群CのSO₄²⁻は, ほとんど含有されていない。

4.3 コアー

勿来ガス開発7号井および古河鉱業中塩5号井の柱状図を第11図および第12図に示した。

4.3.1 抽出試験

第4表 勿来ガス開発7号井コアー抽出試験分析表

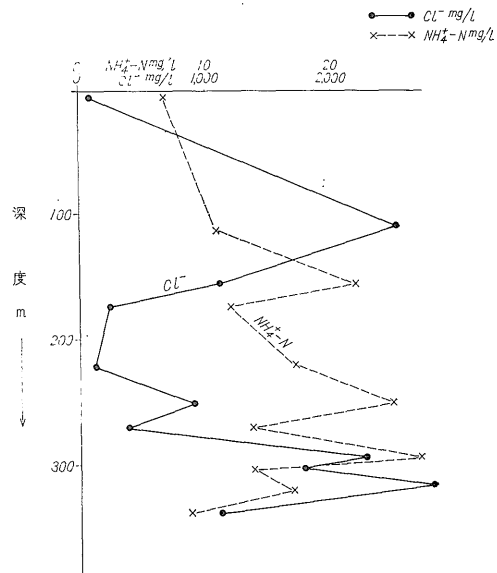
番号	深度 (m)	Dilution Ratio	pH	Cl ⁻ (mg/l)	NH ₄ ⁺ -N (mg/l)
1	8.1	4.3	9.0	80	6.47
2	117.1	7.8	8.3	2500	10.4
3	158	11.1	8.3	1070	21.8
4	175	14.4	9.2	240	11.7
5	221	16.7	8.6	111	16.7
6	252	9.9	8.0	893	24.4
7	270	16.7	9.2	355	13.3
8	295	14.5	8.8	2220	26.7
9	304	13.5	8.9	1740	13.5
10	318	14.9	6.2	2780	16.7
11	339	7.3	8.8	1090	8.15

注3) 牧真一・比留川貴・米谷宏: 勿来市熊道試掘井コアー試験 (未発表資料)

勿来ガス開発7号井および古河鉱業中塩5号井の各坑井から得られたコアーについて, 抽出試験法によるコアー試験を行ない, Cl⁻, NH₄⁺-Nの分析結果を第4表および第5表に, またこれらの値の深度別垂直分布を第13図および第14図に示した。

勿来ガス開発7号井

間隙水のCl⁻は, 第13図でみられるように, 複雑な垂直分布を示し, 深度8.1m(浅貝層の最上部)および深度221mでは, それぞれ80mg/lおよび111mg/lときわめて少ない。また深度221m前後すなわち175~270mの間のCl⁻は1000mg/l以下であるが, その他の深度のものは1070mg/l~2780mg/lである。深度8.1mのCl⁻は地表水の影響が考えられるが, 深度221mのCl⁻の111mg/lは, 地表水の直接の影響は考えられない。勿来市窪田付近では, 深度200m付近にCl⁻の少ない地下水が分布していることが筆者らの調査した付近の坑井調査資料^{注3)}地質調査所勿来市熊道試掘井コアー試験からも推察される。



第13図 勿来ガス開発7号井コアー抽出試験Cl⁻, NH₄⁺-N垂直分布図

深度175~270m以外の深度では, Cl-1070~2780mg/lであるが, この値は前記のこの地区のガス井地下水(試料群C)のCl-3000mg/l前後と比較してやや少ないが近い値を示している。

間隙水中のNH₄⁺-Nは, 第13図に示すように, 下位の地層ではCl⁻の分布と巨視的に同一の傾向を示している。このNH₄⁺-Nの値は本邦における水溶性天然ガス鉱床地帯のコアー中のNH₄⁺-Nの値と比較すると1桁低い。

第5表 古河鉱業中塩5号井コア抽出試験分析表

番号	深度 (m)	Dilution Ratio	pH	Cl ⁻ (mg/l)	NH ₄ ⁺ -N (mg/l)
1	110	22.1	4.8	273	108.5
3	170	9.4	2.4	394	60.0
4	197.7	10.8	7.6	273	12.1
5	256	14.2	8.0	377	10.5
6	317.5	20.0	4.2	999	23.9
7	350	15.9	8.4	265	0.99

古河鉱業中塩5号井

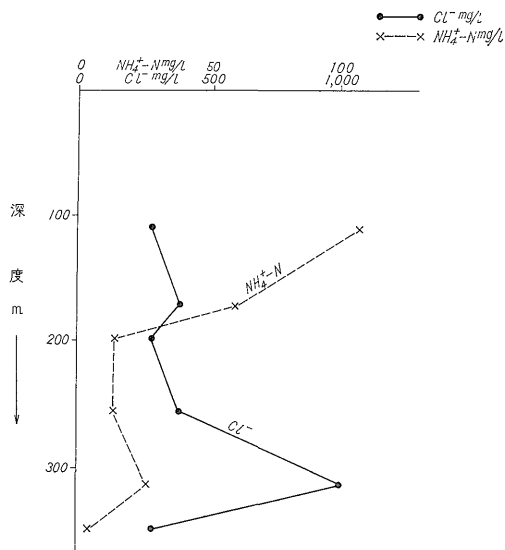
間隙水中のCl⁻は、深度317.5mの999mg/lを除けば、400mg/l以下であって、勿来ガス開発7号井のCl⁻と比較して少ない。

間隙水中のNH₄⁺-Nは、上位の白坂層の深度110mと170mがそれぞれ108.5mg/lおよび60.0mg/lとやや多い。しかし下位の浅貝層および石城層の197m以深では、10.8~20.0mg/lであって、勿来ガス開発7号井の値と同程度に少ない。

4.3.2 有機炭素、有機窒素および有機炭素有機窒素比

堆積物中の有機物は、炭化水素の原物質であり、有機物の量と質は、その堆積物の炭化水素生成能力の有無ならびにその能力の大きさを判定するもっとも重要な因子である。この有機物の量と質を調べる1つの方法として古くから土壌学などの方面で有機炭素量、炭素窒素比(あるいは炭素率)の変化を調べることが行われてきた。

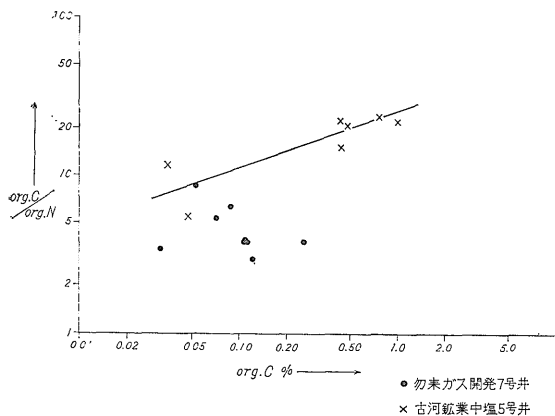
P.D. TRASK (1932), S. A. WAKSMAN ら多くの研究者は、炭化水素とくに石油の成因を研究する目的で、現世の海成堆積物中の有機物の炭素と窒素の関係を調べ報告している。これらの多くの人々によって得られた資料からG. ARRHENIUS (1950) およびR. G. BADER (1955) は堆積物の有機物の炭素と窒素の間には、logarithmic lineationの関係があることを報告している。また本邦では田口一雄 (1960) が、海成油母岩および堆積岩について調べ、同様にlogarithmic lineationの関係にあることを報告し、筆者の1人牧 (1963) は、新潟ガス田の試掘コア



第14図 古河鉱業中塩5号井コア抽出試験Cl⁻,NH₄⁺-N垂直分布図

第6表 勿来ガス開発7号井コア中の炭素、窒素分析表

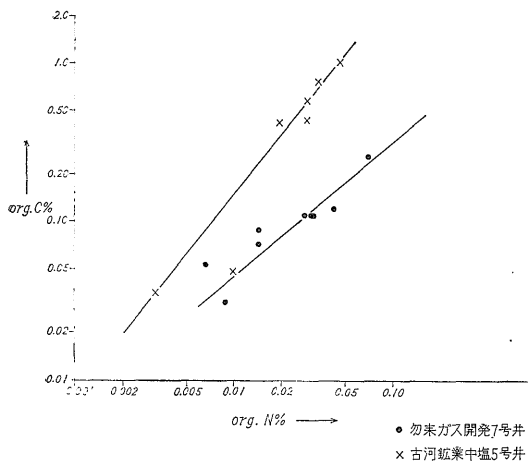
番号	深度 (m)	含水率 (%)	全炭素 (%) (t.c.)	無機炭素 (%)	有機炭素 (%) (org.C)	全窒素 (%) (t.N)	無機窒素 (%)	有機窒素 (org.N) (%)	t.C/t.N	org.C/org.N	備考
1	8.1	4.92	0.12 ₈	0.01 ₀	0.11 ₈	0.030 ₇	0.000 ₂	0.030 ₅	4.2	3.9	
2	117.7	5.30	0.34 ₁	0.07 ₇	0.26 ₄	0.068 ₈	0.000 ₂	0.068 ₆	4.9	3.9	
3	158	3.68	0.14 ₄	0.01 ₈	0.12 ₆	0.043 ₀	0.000 ₉	0.042 ₁	3.4	3.0	
4	175	1.25	0.08 ₂	0.01 ₀	0.07 ₂	0.016 ₄	0.002 ₁	0.014 ₃	5.7	5.1	
5	221	1.39	0.13 ₅	0.02 ₁	0.11 ₄	0.031 ₀	0.000 ₉	0.030 ₁	4.4	3.8	
6	252	2.40	0.15 ₁	0.04 ₀	0.11 ₁	0.029 ₆	0.001 ₁	0.028 ₅	5.1	3.9	
7	270	2.94	0.10 ₈	0.05 ₄	0.05 ₄	0.007 ₃	0.001 ₂	0.006 ₃	14.8	8.6	
8	295	1.16	0.09 ₂	0.00 ₃	0.08 ₉	0.014 ₈	0.000 ₇	0.014 ₁	6.2	6.3	
9	304	1.46	0.05 ₁	—	—	0.008 ₁	0.000 ₉	0.007 ₂	6.3		
10	318	1.97	0.05 ₈	0.02 ₇	0.03 ₁	0.009 ₄	0.000 ₆	0.008 ₈	6.2	3.5	
11	本層ハサミ		11.8			0.18 ₃			64.5		大日本炭礦
12	本層下盤		6.21	0.02 ₄	6.1 ₉	0.14 ₉			41.7		K.K.
13	本層上盤		6.71	0.06 ₄	6.6 ₄	0.085 ₇			78.3		"
14	本層石炭		48.0			0.44			109		"
15	中層石炭		47.3			0.38			125		"



第15図 勿来ガス開発7号井および古河鉱業中塩5号井コア中の有機炭素量 (org.C%)と有機炭素有機窒素比 (org.C/org.N) 関係図

第7表 古河鉱業中塩5号井コア中の炭素、窒素分析表

番号	深度 (m)	含水率 (%)	全炭素 (%) (t.C.)	無機炭素 (%)	有機炭素 (%) (org.C)	全窒素 (%) (t.N.)	無機窒素 (%)	有機窒素 (%) (org.N)	tC/tN	org.C/org.N
1	110	4.53	1.06	0.023	1.04	0.047 ₄	0.001 ₄	0.046 ₀	22.2	22.8
2	159.8	4.07	0.630	0.035	0.59 ₅	0.029 ₅	0.000 ₉	0.028 ₆	21.4	20.8
3	170	3.49	0.864	0.087	0.77 ₇	0.033 ₉	0.001 ₂	0.032 ₇	25.4	23.8
4	197.7	3.27	0.432	0.00	0.43 ₂	0.018 ₂	0.000 ₈	0.019 ₄	23.7	22.2
5	256	2.78	0.090	0.041	0.04 ₉	0.009 ₆	0.000 ₆	0.009 ₀	9.4	5.4
6	317	5.04	0.578	0.125	0.45 ₃	0.030 ₃	0.001 ₀	0.029 ₃	19.0	15.5
7	350	1.27	0.111	0.074	0.03 ₇	0.003 ₂	0.000 ₂	0.003 ₀	34.6	12.2



第16図 勿来ガス開発7号井および古河鉱業中塩5号井コア中の有機炭素量 (org.C)と有機窒素量 (org.N) 関係図

一について調べ、同様の関係を認め報告した。

本調査では、勿来ガス開発7号井および古河鉱業中塩5号井の各コアについて、有機炭素量、有機窒素量および有機炭素有機窒素比を調べ、それぞれの値を第6表

および第7表に示した。

勿来ガス開発7号井

この坑井のコア中の有機炭素量は、0.031~0.214% であって、大部分は0.1% 前後あるいはそれ以下ときわめて少ない。有機窒素量は、0.0063~0.0686%である。したがって有機炭素有機窒素比は3.0~8.6の範囲である。有機炭素量と有機炭素有機窒素比の関係を第15図に示した。この図から有機炭素量の少ない勿来ガス開発7号井のコアについては有機炭素量と有機炭素有機窒素比の間には関係が認められない。しかし有機炭素量と有機窒素量の間には、第16図に示すように logarithmic lineationの関係が認められる。

古河鉱業中塩5号井

この坑井のコア中の有機炭素量は0.037~1.04%で

あって、深度256mおよび350mの値を除くと他の深度の有機炭素量は0.43%以上であって、本邦の炭化水素鉱床地帯の堆積岩の有機炭素量と同程度である。

有機炭素量と有機炭素有機窒素比の関係図第15図から、中塩5号井コアでは、有機炭素量の増加とともに僅かに有機炭素有機窒素比の増加の傾向がある。しかし有機炭素量0.4%以上の有機炭素有機窒素比は、20.8~23.8とほぼ一定した値を示している。

有機炭素量と有機窒素量の間には、第16図に示すように勿来ガス開発7号井コアと同様に logarithmic lineationの関係が認められる。

5. 結果の考察

5.1 炭田ガス組成

5.1.1 メタンおよび窒素

メタンは炭田ガスの主成分であって、ガス中のメタンの占める割合の変化を究明することは、炭田ガスの地球化学的研究を行なう場合、本質的な問題と考える。しかし現在、炭田ガスの生成機構について不明の点が多く、この問題を解明することは困難である。

筆者の一人牧(1959, 1962, 1963)は、水溶性天然ガス鉱床の天然ガスと水溶性有機物および堆積岩の有機物のおおのの炭素と窒素を分析し、有機物の分解過程について考察を行なった。この結果、堆積岩の有機炭素が分解し、メタンと無機炭素が生成する場合、分解が進むと無機炭素と比較してメタンの生成の割合が増加の方向に進む。これに対して有機窒素は、窒素ガスと無機窒素化合物を生成し、分解が進むと窒素ガスと比較して無機窒素化合物の生成の割合が増加の方向に進むことを報告した。

炭田ガスについても、水溶性ガスの場合と同様なことが考えられる。荒木春視(1959)は、石炭の炭化度とメタン濃度との関係について報告し、亜歴青炭から歴青炭の間では、炭化度の高い方が炭層ガス量も多く、ガス中のメタンの占める割合も大であると述べている。

さて常磐炭田ガス中のメタンについてみると、北部の中塩地区の坑口ガスは、他の地区のものと比較して、ガス中に占めるメタンの割合は特に少なく、74~85%である。この原因を究明するため、中塩地区と他地区のガスの生成環境の相違、ガス中の他の成分との相互関係などについて検討を行なう。

1. 石炭の炭化度について

前述したように、炭田ガス中のメタン量は、炭化度と関係があるとされている。常磐地域の石炭の炭化度について見るとJ.I.S.の石炭化度分類法によれば、中塩地区の石炭の炭化度がEの段階であるのに対し、勿来地区の石炭の炭化度はF₁の段階とされ、炭化度では逆に中塩地区の方が進んでいる。したがって炭化度の相違によっては中塩地区のガス中のメタンの占める割合の少ない理由を説明することは出来ない。鈴木舜一(1962)も、常磐炭田ガス鉱床の分布、規模と炭化度との間にはほとんど関係はないと報告している。

2. 浅層ガス混入の可能性について

中塩地区の五安層のガスは、平窪断層上り側ブロックの石城層および浅貝層から上方ないし側方に移動したと考えられている。しかし筆者らの分析した中塩地区の白坂層および白坂・浅貝漸移帯のコア中の有機物量は、本邦の炭化水素鉱床地帯の堆積岩の有機物量と比較して少ない。この白坂層ならびに上位層の有機物および炭化度の低い石炭、炭質物から生成されるガスは、前述の有機物の分解過程の考察から、分解が進んでいる石城層の炭層ガスよりもガス中に占めるメタンの割合は少ないと考える。このような組成のガスが炭層ガスに混入、貯溜された場合には、ガス中のメタンの割合は減少する。

また中塩地区の坑口ガス中の窒素アルゴン比は、他地区の坑口ガスの値と比較して小さく50~56で、本邦の水溶性天然ガスの値と同程度であることも、炭層上位の地層中の有機物から生成されたガスが炭層ガスに混入した可能性があることを示している。

可燃性天然ガス中の窒素は、有機物の分解によって生成される窒素の他に、大気に由来するものおよび基盤岩から逸出して来たものなどが含まれている。本邦の水溶性天然ガス中の窒素は、窒素アルゴン比の関係から筆者の一人、米谷(1963)、杉崎隆一(1964)、筆者の一人牧(1962)によって、窒素の大部分が大気源であると報告されている(杉崎隆一は、窒素ガスの約70%、牧は60~80%と推定した)。

堆積岩中の有機物の分解によって生成されるメタン量が少ない場合には、堆積時の大気の影響が大きく、ガス中の大気に由来する窒素の割合は増加する。中塩地区の浅層ガスは、有機物からのメタンの生成量が比較的少ないと考えられ、大気に由来する窒素のガス中に占める割合が大であると考えられる。

この他、浅層ガスが混入する条件として考えられることは、中塩地区の坑井の坑口密閉圧が第1表でわかるようにとくに低く、0.3~1.75kg/cm²となっていることである。このことはこの地区が地質的に封塞状態が悪く、大気、地表水の影響を受けやすく、同時にまた浅層ガスと炭層ガスの関連も容易であることが考えられる。

以上中塩地区のガス中のメタンの占める割合が他地区のものに比較して少ない原因について考察を行なったが、浅層ガス混入による原因がもっとも大きな因子と考えられる。

5.1.2 炭酸ガス

本邦の炭田ガス中の炭酸ガスは、他の可燃性天然ガスの場合と比較して一般に少ない傾向がみられる。常磐炭田の坑口ガスも下川坑井を除くと0.1~0.2vol.%のものが大部分である。

炭田ガス中の炭酸ガスの占める割合が少ない原因として、炭田ガスはきわめて強い還元環境のもとで生成されたためと考える。調査地域内の地表ガスおよび共水性ガス中の炭酸ガスが坑口ガスと比較して多い原因は、炭酸塩を多く含有する浅層地下水に接しているか溶存しているためであろう。

5.1.3 エタンおよびプロパン

エタンはすべての坑口ガス、地表ガスおよび共水性ガスに存在が認められた。しかしプロパンは、0.01vol.%の検出限界で存在が認められない。前述の地質調査所、佐々木実・永田松三の常磐炭田ガス調査研究による石炭

の湧出ガス中には、エタンは0.05~0.06vol.%ですべての試料に存在し、プロパンは12試料中7試料に0.02~0.05vol.%で存在している。このことから分析感度を上げることによって炭田ガス中にもプロパンの存在が予想される。

第6図のエタンvol.%分布図によると、ガス中のエタン%は、勿来および常磐泉の各地区の坑口ガスに比較的多く、高井、中塩、常磐走熊の各坑口ガスおよび地表ガスに少ない。

V.P.Kozlov (1960) はドンパス炭について、重炭化水素と石炭化作用との関連を報告し、石炭を構成する有機物が特定の変成段階に限って重炭化水素を発生し、しかもその存在は、おそらく進行している有機物の変成作用の全段階を通じて温度が厳しく支配するとしている。常磐炭田ガスでは、ガス中のエタン%の多い常磐泉地区および勿来地区の炭鉱坑内温度が30°Cを越え、炭層の温度は相当高温であることが予想される。他地区に比較してこれらの地区のガスが、エタン%が比較的多い原因として、V.P.Kozlovが述べている温度が関係している可能性が考えられる。

ガス中のエタン%の少ない中塩地区の坑口ガスは、前述したように石城層の炭層ガス以外のエタン%の少ない浅層ガス混入の可能性がある。また常磐走熊地区の坑口ガスの採取層は五安層であり、坑口ガスのメタン%などからガスの大部分は石城層の炭層ガスとも考えられるが、五安層ならびにその周辺の地層からのガスの混入も充分考えられる。比較的多いエタン%の多い勿来地区の坑口ガスでも、ガスを産出する地域の中心部からそれている位置にある常天江栗1+2号、大高2号の各坑井からのガスは、エタン%が少ない。高井地区の坑口ガスはいずれも休止坑井から採取したものであり、他の試料は地表ガスであるので、高井地区から産出するガスがもともとエタンが少ないガスであるかどうかということは不明である。

以上からガス中にエタンの占める割合の多いガスは、石城層の石炭層から産出するガスで、しかも炭層温度の高い地域から産出するものであり、炭質と温度が重要な因子と考えられる。

5.1.4 一酸化炭素

常磐炭田ガスの坑口ガス、地表ガスおよび共水性ガスのいずれも一酸化炭素は、0.01vol.%の検出限界で存在が認められない。しかし前述の佐々木実・永田松三による常磐炭の湧出ガスおよび荒木春視の石炭層放出ガス中にはすべて一酸化炭素の存在が認められている。湧出ガスおよび放出ガスは一時的に酸化状態になり生成された

とも考えられる。Van KREVELEN, D.W. (1950)によると、石炭の炭化度が進み、demethanationの段階になると、H/C—O/C diagramでは、O/C比がきわめて小さな値となり、強還元状態となるので、このような状態では、一酸化炭素の生成はなかったものと考えられる。

5.1.5 水素

常磐炭田ガス中の水素は、常磐泉、走熊、高井の各地区および中塩地区の石城層から産出する坑口ガス中に存在が認められるが、勿来地区と中塩地区の五安層から産出する坑口ガスおよび各地区の地表ガス(ただし高井地区のN-1の地表ガスは例外)中にはtr.~0.000vol.%で、ほとんど認められない。

炭田ガス中の水素は、調査の結果、次のようなことが考えられる。

1. ガス中に水素が存在しないのは、拡散による消失。
2. ガス中の水素は、温泉の影響ならびに温泉ガスの水素によるもの。
3. 炭質の相違による水素の生成の有無。

1の項については、水素の存在しないガスは、すべて深度250m以浅の比較的浅所から産出するガスと勿来地区のように、この地域のガスの帽岩の役割をしている白坂層の欠除している地域から産出するガスである。このことから、水素の拡散による消失が一応考えられる。しかし、水素に次いで拡散速度の早いヘリウムが各地域のガスに比較的均一に存在するので封塞状態が不完全であるということだけで水素の消失を理解することは困難である。

2の項については、常磐泉地区では、温泉の影響が明らかであり、温度の影響による水素の生成および温泉ガスの水素が考えられるが、中塩地区および北茨城市以南の常磐炭田南部地域における温泉の影響のない炭層ガスの水素の存在を説明することは出来ない。

3の項については、前にメタンの項で述べたように中塩地区における石炭の炭化度Eの段階と勿来地区における石炭の炭化度F₁の段階の間に水素の生成のある・なしの境があることになるが、常磐炭田南部地域の石炭の炭化度F₁およびF₁以下の段階の石炭層からのガス中にも水素の存在が認められるので、炭質の相違(ここでは炭化度の相違で代表させた)によっても説明出来ない。

その他、硫酸還元バクテリアの作用による水素の消失なども考えられるが資料が不足で不明である。

以上のことから、炭田ガス中の水素の存在については今後の研究調査によって明らかにしなければならない問題と思われる。

5.1.6 ヘリウム

ヘリウムは前述したように、ウラン、トリウム崩壊生成物である、その生成量は、ウラン、トリウムの量と崩壊時間の函数である。杉崎隆一(1968)は、新潟および南関東ガス田の堆積岩について考察を行ない、堆積岩中のウラン、トリウムからのヘリウムの生成量はきわめて微量であると報告している。地質調査所では、昭和40年、ヘリウム産出機構究明の目的で、常磐南部高萩市高戸に基盤に達する深度745mの試錐調査を行なった。この試錐コアの内、石城層の3つのコアについて、ウランおよびトリウムを測定し、ウラン0.0~1.7ppm、トリウム0.0~8ppmを得た。^{注4)}この値は杉崎隆一の南関東ガス田の梅ヶ瀬層~大原層の堆積岩の平均値ウラン6.1ppm、トリウム17ppmと比較しても低く、常磐地区のヘリウムの生成の場は、基盤岩の先白堊紀の岩石に求めなければならない。

前記の試錐結果から、常磐炭田ガス中のヘリウムは、基盤岩からヘリウム2~3vol.%を含有する窒素型ガスが逸出し、上位の炭田ガスに混入したと推定される。したがって、ヘリウムのガス中に占める割合は、その地区の炭田ガスの賦存量によって左右される。中塩地区の石城層から産出する中塩新1号および2号井の坑口ガス中のヘリウム含有量が、それぞれ0.048vol.%および0.038vol.%と比較的多いことは、この地区のガスの賦存量が他の地区のガスに比較して少ないことによると推察される。

ガス中の窒素に対するヘリウムの割合は、上位の五安層より下位の浅貝層および石城層から産出するガスに大であることは、基盤岩からヘリウムが供給されることによって理解される(上位層のガスは大気の影響が大である)。

5.1.7 窒素アルゴン比

天然ガス中の窒素アルゴン比については、先に柴田賢(1961)が本邦各地から産出するガスの質量分析結果から、天然ガスの生成時代の古いものに、ガス中の窒素アルゴン比が大であることを報告している。筆者の一人米谷(1963)は、本邦における現世から第三紀鮮新世までの水溶性天然ガスについて、また杉崎隆一(1963)は、南関東ガス田の水溶性天然ガス中の窒素アルゴン比について考察を行ない、水溶性天然ガス中の窒素アルゴン比は、そのガスが生成した地層の堆積当時の水に大気が溶存した場合の窒素アルゴン比に近いことを報告している。

常磐炭田ガス中の窒素アルゴン比は、中塩地区の坑口ガスと地表ガスおよび共水性ガスが42~72の値を示し、

本邦の水溶性天然ガスの値に等しい。しかし他の地区の石城層からのガスの窒素アルゴン比は55~109で大部分は73~109と大きい。

窒素%と窒素アルゴン比の関係を第10図に示した。この図によると窒素%の大きなものに窒素アルゴン比は小さい。また地表ガスは、概して同一窒素%の、坑口ガスと比較して窒素アルゴン比は小さい。窒素アルゴン比が窒素%の多いガスに小さいことは、ガスの生成時代の差のほか、ガス母層におけるガス生成量に関係し、ガス生成量の大きな場合は、大気の影響が少なく、有機物の分解による窒素および基盤岩からの窒素アルゴン比の大きなガスの影響がより大であると考えられる。一方ガス生成量の少ない場合は、大気の影響が大であるため、窒素アルゴン比は、一般に大気値84と大気が地下水に溶存した場合の値34の間にある。

中塩地区の坑口ガスの窒素アルゴン比の小さな原因は、前述したように浅層ガスが混入したとすると理解される。

5.1.8 窒素、アルゴンおよびヘリウムの関係

常磐炭田ガス中の窒素とアルゴンおよびヘリウムは、第9図、第10図に示すように相互に関係があることがわかる。第17図に窒素アルゴン比と窒素ヘリウム比の関係を示した。この図によると、窒素アルゴン比が大きいほど窒素ヘリウム比が小さくなるA群およびB群と、窒素アルゴン比は変わらず、窒素ヘリウム比のみ変化するC群とに分かれる。

A群に属するガス

常磐泉地区、勿来地区、高井地区の各坑口ガスおよび勿来地区の地表ガスの一部。

B群に属するガス

常磐走熊地区のガス、中塩地区の石城層からのガスおよび高井地区の共水性ガス。

C群に属するガス

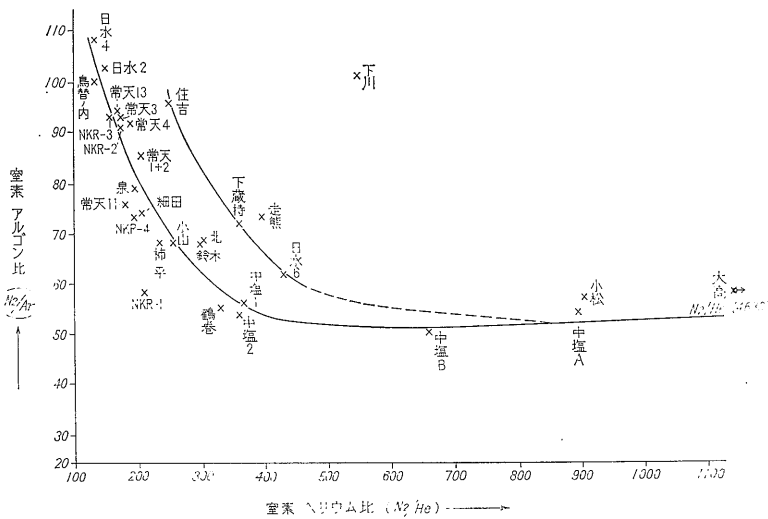
中塩地区の五安層からのガス、高井地区の地表ガス。

今回の調査試料の内、A、BおよびCの各群に入らない試料は、下川の坑口ガスのみである。このガスは炭酸ガスおよび水素の値も異常であって、炭田ガスとしては特異な組成を示している。

第17図に示すA群に属するガスで、窒素アルゴン比が高く、窒素ヘリウム比の小さなガスは、大気の影響が少なくhigh potentialなガスで、窒素アルゴン比が小さく、窒素ヘリウム比が大きくなるほどガス生成のpotentialが低くなることを意味している。

B群に属するガスは、同一の窒素アルゴン比のA群に

注4) 地質調査所化学課 望月常一・大場きみじ分析



第17図 常磐炭田ガス中の窒素アルゴン比 (N₂/Ar) と窒素ヘリウム比 (N₂/He) 関係図

属するガスと比較すると窒素ヘリウム比が大きいことから、大気の影響がA群より大きくガスの potential は低いことを意味する。

C群に属するガスは、AおよびB群に属するガスに比して、上位層の新しいガスであって、大気の影響がより大きく、いわゆる開いた系に属する地層中で生成されたガスで、low potential なガスであることを示している。

窒素アルゴン比と窒素ヘリウム比の関係は、常磐炭田ガスのガス賦存状態を端的に示している。

5.2 地下水

平瀧断層付近ならびにこれに隣接する北茨城市北部のガス徴候井および鉱泉井からの地下水と炭田ガスの関連性について考察する。

採取した地下水は(試料群A)、HCO₃⁻が143~756 mg/lと多いが、NH₄⁺-Nは0.79~2.66mg/lとガス付随水に比較して少ない。Ca²⁺およびMg²⁺は本邦の一般地下水と比較してCa²⁺が多く、Mg²⁺が少ない。この傾向は炭田地域の地下水の特徴である。SO₄²⁻は現在遊離ガスをともなうN-1および日本水6号井からの地下水中には痕跡程度であるが、その他のものは数mg/l~数十mg/lを含有している。

以上の結果から、地表地下水の内、ガス付随水の水質と思われるものはN-1、日本水6号井からの地下水のみで、これらもガス鉱床周辺部のガス徴候地域の地下水の水質である。一方これらの遊離ガスの組成をみると、ヘリウムおよびエタンなどを含有している。浅層の新しい時代に生成されるガスにはこれらの成分は認め難い

で、大部分は下位の炭層ガスに由来すると考える。しかもガス中の窒素アルゴン比は、坑口ガスに比較して小さく、炭酸ガスも比較的多いことから、炭層ガスが成因的にガスの生成に関連のない地下水に溶存し、ふたたび遊離したものと考えられる。

以上は水質および遊離ガス組成と炭田ガスの関連性について考察したが、産状的にもガス徴候地は、断層付近に位置していることから、炭層ガスが断層を通じて地表に逸出したと考えられる。

調査した地表地下水は、水質と産状から、成因的にガスの生成と関連のない地下水であって、地下水を伴うガスは、いわゆる共水性ガスである。

参考のために採取した大日本炭礦坑内水は、天盤水と払跡地下水の各2カ所であるが、酸化、還元の状態による成分の変化が明らかにみることが出来る。すなわちCl⁻はいずれも8010~10850mg/lとほぼ等しいが、SO₄²⁻は天盤から採取した地下水が7mg/lおよび18mg/lと少ないのに対し、払跡地下水は、471mg/lおよび1260mg/lときわめて多い。

また天盤水の溶存ガス中のメタンは、4.92ml/lおよび1.06ml/lであった。この天盤水は、福久茂^{注5)}によると石炭層の上部にあって、炭層ガスの帽岩および貯留的役割をしていると述べているが、筆者らも同意見で、採炭などの人為的条件により減圧され、溶存されていたガスは消失、移動したものであろう。

5.3 コア

常磐炭田地域のガスの大部分は、炭層ガスであることは疑う余地はないが、その一部が炭層以外の地層で生成

注5) 大日本炭礦株式会社 企画室長

されたものである可能性の有無を検討する必要がある。

この目的で、北部中塩地区の代表として中塩5号井のコア、また南部勿来地区の代表として勿来ガス開発7号井のコアを選んで、それぞれ抽出試験による間隙水中の Cl^- および NH_4^+-N 、コア中の有機炭素および有機窒素を調べた。

抽出試験による間隙水中の Cl^- および NH_4^+-N の分析結果によると、 Cl^- は中塩地区よりも勿来地区にやや多い。これは中塩5号井が平窪断層付近に位置していることから、地表水の影響が大であることに原因していると思われる。勿来地区の深度175~250mの浅貝層下部と石城層上部の間の Cl^- の少ない地下水は、おそらく断層による地表水の混入であろう。間隙水の NH_4^+-N は、中塩地区の白坂層、白坂・浅貝漸移帯および浅貝層上部から採取したコアでは60~108.5mg/lとやや多い。この値は、天然ガス鉱床地帯の母層と考えられる堆積岩の間隙水中の NH_4^+-N の値と比較すると少なく、ガス鉱床周辺の low potential 地域の値に相当する。その他の深度の NH_4^+-N の値は、すべて30mg/l前後で、ガス鉱床の母層としては少ない。

コア中の有機物の炭素と窒素の関係は、第16図でわかるように中塩5号井と勿来ガス開発7号井では、別の直線の関係があり、有機物の量ならびに組成の間に差異がある。

コア中の有機炭素量は、勿来ガス開発7号井のコアでは0.1%前後と少ない。中塩5号井のコアでは0.037~1.04%で深度110~177mのものでは0.4%以上と比較的多い。また有機炭素量の多いものは有機炭素有機窒素比も21.4~25.4と高い。

炭化水素鉱床地帯の堆積岩中の有機物は、一般に同一地域では炭素量の多いものに炭素窒素比が増加する傾向が認められる。この傾向は、勿来地区のものでは認められないが、僅かに中塩地区のものでは認められる。しかし炭素窒素比21.4~25.4の値は、現世堆積物の有機物の炭素窒素比(6~14)より高く、このような炭素窒素比の高い値を示す場合は、有機物の量との間に一定の関係を示さない場合がある。これは田口一雄(1960)によって指摘された elemental carbon^{注6)}に原因しているかもしれない。

以上、勿来地区および中塩地区から採取したコアの間隙水中の NH_4^+-N 量、およびコアの有機炭素量の値から、勿来地区では炭層以外の地層ではガスの生成の可能性はほとんど考えられないが、中塩地区では、浅貝層上部から上位の地層がガス母層としての条件を具備し

ていると考えられ、これらの地層でガスを生成する可能性が充分考えられる。

6. 結 論

炭田ガスの組成、特に微量成分である重炭化水素、一酸化炭素、水素、ヘリウムおよびアルゴンなどの地球化学的考察を行ない、各成分の特性を把握することが出来、今後の地表から行なう地化学調査の重要な資料を得た。また窒素、ヘリウムおよびアルゴンの関係は、常磐炭田ガス鉱床の特性をよく現わしている。今後はガス成分の同位元素などの研究によってより有効な資料を得ることが必要と考える。

中塩地区のガスは、ガス組成ならびにコア中の有機物などの値を検討の結果、ガスの一部は、炭層以外の地層中の有機物質から生成され、炭層ガスに混入している可能性が考えられる。

(昭和36年2月~3月調査)

文 献

- 荒木春視(1958, 1959) : 坑内ガスの研究, I. II. III. IV, 九州鉱山学会誌, I. vol.26, no.12, p.21—30, II. vol.27, no.10, p.24—32, III. vol. 27, no.11, p. 1—11, IV. vol.27, no.12, p. 8—11
- ARRHENIUS, G. (1950) : Carbon and nitrogen in sub-aquatic sediments, *Geochim. et Cosmochim. Acta*, vol.1, p.15—21.
- BADER, R.G. (1955) : Carbon and nitrogen relation in surface and subsurface marine sediments, *Geochim. et Cosmochim. Acta*, vol.7, p.205—211.
- 北海道炭礦技術会(1957) : 赤平礦のガス抜, 北海道炭礦技術会, 資料, 第6号
- 常磐地区天然ガス開発技術研究会(1962) : 常磐地区の天然ガス開発, 第1輯
- Козлов, В.П. (1960) : О тяжелых углеводородах в газах углей Донбасса, Геология нефти и газа, No.6, (大橋加一訳, 地質調査所月報, vol.12, no.8, p.91—93).
- 牧 真一(1959) : 泥炭および泥炭地下水の有機物について, 地質調月報, vol.10, no.7, p.49—64
- 牧 真一・比留川貴(1962) : 諏訪湖天然ガス田ガス付随水中の有機物について, 地質調月報, vol.13, no.4, p.11—20
- 牧 真一(1963) : 新潟ガス田の有機物について, 地質調月報, vol.14, no.5, p.35—50

注6) 懸浮物質および炭質物質の炭素

- 本島公司・牧 真一・牧野登喜男・伊藤司郎・柴田賢
(1962) : 北海道庶路地域の炭田ガスについて, 地質調報告, no.193
- 本島公司・牧野登喜男・牧 真一 (1959) : 北海道石狩炭田夕張地区炭田ガス予察報告, 地質調月報, vol.10, no.2, p.37—48
- 柴田 賢 (1961) : 質量分析計による天然ガスの分析, 地質調月報, vol.12, no.3, p.23—29
- SUGISAKI Ryuichi (1964) : Genetic Relation of Various Types of Natural Gas Deposits in Japan, *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geologists*, vol. 48, no.1, p.85—101.
- 杉崎隆一・大鹿正樹・浜里 博 (1963) : 本邦天然ガス田, 油田における堆積岩の放射性元素含量と天然ガス中の希ガスの起源, 日化誌, vol.84, no. 3, p.236—241
- 鈴木舜一 (1962) : 常磐炭田の天然ガス鉱床, 鉱山地質, vol. 12, no. 5.
- 田口一雄 (1960) : 秋田・山形県境付近の海成油母岩の C/N比ならびに堆積岩の C/N 比に関する 2, 3 の考察, 石油技術協会誌, vol.25, no. 3, p.105—113
- 平石炭支局 (1959) : 容量法の適用上必要な諸係数調査資料
- TRASK, P. D. (1932) : *Origin and Environment of Source Sediments of Petroleum*, Gulf Publishing Company, Houston, Texas.
- Van KREVELLEN, D. W. (1950) : Graphical statistical method for the study of structure and reaction processes of coal, *Fuel* 29, p.269—284.
- WAKSMAN, S.A. (1933) : On the Distribution of Organic Matter in the Sea Bottom and Chemical Nature and Origin of Marine Humus, *Soil Science*, vol. 36, p.125—147.
- 米谷 宏 (1963) : 本邦水溶性天然ガスの微量成分, 地質調月報, vol.14, no.11, p.56—72