

# 石油・天然ガス鉱床の地球化学探鉱

## ①

本島公司

鉱床を地球化学的に探鉱する場合に 計画 実施 取りまとめの各段階で ふつうその対象にしている鉱床の成因についての多くの知識を必要とします。

石油と石油鉱床の成因説を 歴史的に調べますと 1930~1940年代までの主流は後期成因説であり 1952~1965年頃は早期成因説がこれにとってかわり 1965年頃から以降では 諸外国の多くの人達が後期成因説を主張するようになりました。

石油とその鉱床の後期成因説によると 石油は 水成岩の中にある不溶性の有機物すなわち kerogen (日本では古くから油母と訳しています) から 主として熱分解によって生成され それが浸透性の地層へむかって一次移動を行なった後に その地層内でふたたび二次移動をおこして 石油のプールをつくります。このように 石油の生成が地下のやや高温部ではじめておこるとされるために この説によると ケロゲンの種々の性質が熱によって変化され それがちょうど有機物の石炭化作用に対応した尺度によって 見当づけられることとなります。ケロゲンのいわゆる反射率による石油生成ステージの判定を用いた地球化学探鉱法などは まさに 石油と石油鉱床の後期成因説をとる人々の用いる方法の1つであって そのために利用される測定技術などは 石炭岩石学で普通に用いられている手法と非常によく類似しています。このように 石油・ガスとその鉱床の成因に関する研究が 地球化学探鉱の方法と技術を決定づける場合の多いことを まず指摘したいと思います。

石油・天然ガスとその鉱床の生成時期について 著者は 現在のところ折衷説をとっています。そのおもな理由は 日本の油田地帯で得た地球化学的資料が 折衷説によってもっとも良く説明できるからです。そのことについては 地球化学 6巻 1号 55~65頁 1974に掲載された著者等の論文に ややくわしく述べてあります。

## I. 一般的な説明

### 1. はじめに

地表または地表近くで行なわれる 石油と天然ガスの地球化学探鉱 (Geochemical Exploration, Geochemical Prospecting) は 地球物理探鉱ほど一般的ではありません。

しかし 地化学的探鉱法はアメリカとソ連の両国で広く用いられております。これら2国では 多くの新しい油田・ガス田の発見に対して 地化探 (地球化学探鉱) が寄与しています (A. H. DEBNAM の1969年論文参照)。

さらに 最近では石油に対する 海域(オフショア)の地化探が 成功裡に行なわれています。

地球化学的な坑井のロギング (検層) は 有効な また 実際的な地球化学的探鉱法の1つであって 坑井掘さく現場では普通に行なわれています。

石油と天然ガスに対する地化探は 1929年に LAUBMYER によってはじめて開発されました。ある地質家は 最新の高感度検出器を用いて炭化水素を測ったとしても 深い所にある石油・ガスのプールから地表近くまで検出できるほど多くの炭化水素は移動できない と信じています。たしかに化学者にとって大きな問題のなかの1つとして 深部の炭化水素プールと 地表近くの地球化学的異常分布とを結びつけるのに 十分な理論が今のところなさそうだ ということがあります。これらの研究ではソ連の SOKOLOV が長い間 地道な努力を重ねてきています。

LAUBMYER が微量の炭化水素を用いた地化探をはじめた初期に 彼は地表面に近いところの土壌の間隙を占める 土壌空気 (soil air, soil gas, free gas in soil) をとり その中の飽和炭化水素ガスを分析しました。この方法は遊離ガス法 (free-gas method) といわれるもので ソ連においてさらに発展し 現在でも用いられています。中央アジアの半沙漠ないし沙漠地域でこの方法が良い結果を与えているようです。しかし この遊離ガス法を採用すると 地下水面以下のところから 試料がとれないこととなります。このために 現在では遊離ガス法に対して 土壌試料法がとってかわっています。1935年にアメリカへ地化探が導入され その後間もなく HORVITZ は遊離ガス法の適用に大きな制限のあることを認めました。そこで彼は土壌試料を採取しそれからガスを抽出して分析しました。

地化探の研究が進むにつれて いろいろな事実が明るみに出てきました。たとえば 二次的な無機物の異常

分布 地下水中の炭化水素含有量の変化 炭化水素を喰べるバクテリアの異常分布 地表の土壌中のワックスの存在などが認められました。1969年にはメタンを酸化する4種のバクテリアとバクテリア活動によって多環芳香族炭化水素が酸化されることが発見されました。また1969年にはアメリカとカナダで石油のバクテリアによる探鉱に対してパテントが出されました。

## 2. 地球化学探鉱法の分類

ソ連の KARTSEV らは 1959年に英訳された石油・天然ガスの地化探法をまとめた単行本の中で 各種の地化探法を 次のように区別しています。

### A. 直接法

1. ガス（土壌中の遊離炭化水素ガス）
2. 土壌（土壌中に吸着された炭化水素ガス）
3. ビチューメン（土壌ワックス）
4. 水化学（水に溶解している炭化水素ガス）

### B. 間接法

1. 酸化還元電位
2. 土壌塩類（塩化物 炭酸塩 硫酸塩など）
3. 無機的水化学（水に溶解している塩類）
4. 微生物（バクテリア 特にメタンあるいはエタンを消費する種）
5. 地球植物（土壌がビチューメンを含むときに特別に生育する植物）

各種資料によると 直接探鉱法の方が 間接法よりも探鉱の成功率が高くなっています。

## 3. 地化探のいくつかのケース・ヒストリー

- 1) 1942年に アメリカの中央オクラホマ州にある West Edmond 油層の発見に 地化探が直接的貢献をしました。
- 2) 1945年に 山形県石名坂油田で行なった土壌遊離ガス法と土壌ワックス法（過酸化ナトリウム[Na<sub>2</sub>O<sub>2</sub>]溶液で土壌中のワックスを抽出し その量の多少によって褐色の着色度が異なることを用いた分析法による）による地化探資料によって その油田の南部延長がきわめて小さいことが明らかになりました。このために油田の南部に計画されていたさく井はとりやめになりました（地質調査所が実施）。
- 3) テキサス州の Hardy 油田では 地震探鉱の反射データに層位トラップの徴候が全くあらわれませんでした。しかし地化探で異常が見つかり その後のさく井によって この新油田が発見されました。
- 4) POMEYROL らの1961年の報告によると サハラ地域において 地球化学的探鉱法が 石油鉱床調査の予

測に大変有効です。

- 5) ROSAIR によるとオクラホマ州の Stround におけるガスの発見にも 地化探が寄与しています。
- 6) イスラエルの Kohav 油田は炭化水素の地球化学研究によって見つかりました。

地化探の成功率についての統計的資料には 次のようなものがあります。

1940年の資料……	成功率50%	失敗率50%
1960年の資料……	テキサス州のメキシコ湾岸地域では	20の異常に対して成功率が65%
1959年の資料……	Dallas の地化学調査所の例では	102の異常にさく井し 26油田を発見したのでその成功率は25.5%です。この場合に探鉱法としては直接的炭化水素法よりもむしろ間接法の無機物を分析する方法を採用しました。
1942~1953年間の資料……	ヒューストンの HORVITZ 事務所の	成功率は59%です。
1959年の資料……	ソ連の SOKOLOV らにより	ますとソ連における成功率は70%です。
1963年の資料……	ダラスの Rayflex 探鉱会社による	成功率は14/17
1942年の資料……	PIRSONによる数値は	
	ランダムさく井による成功率	5.75%
	地質	8.18%
	地球物理	14.9%
	地球化学	57.8%

## 4. 土壌中の遊離ガス法

地表近くの土壌をとる方法にはいろいろあります。土壌サンプルは 沸とう水 粉碎 キャリヤーガスなどで処理されて ガスが分離されます。含まれていた微量の遊離ガスは 土壌から分離されたのち たとえば高感度のガスクロマトグラフなどによって分析されます。

分析成分は CH<sub>4</sub> C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> C<sub>3</sub>H<sub>8</sub>……などの炭化水素ガスが中心になりますが このほかに CO<sub>2</sub> N<sub>2</sub> Ar H<sub>2</sub> などの各成分を定量しておきますと あとでデータを解析するときに 非常に役に立つ例が多いものです。

最近 極微量のヘリウム (He) を用いる 石油・ガスの探鉱法が 研究されています。カナダの地質調査所と Chemical Project Limited の共同で 研究が進められています。土壌中の遊離ガスを採取し それをとくにヘリウム分析用に改装した気体用質量分析計（ガスマス）で およそ 10ppb オーダーの感度によって He 分析をします。大気中のヘリウム含量はおおよそ 0.0005 vol.% で カナダでは 5,200ppb を標準にしています。土壌空気には 深部で発生し油・ガストラップを通過したヘリウムが flow flux として流れこみますので 地下

深部に炭化水素プールがあると その上の土壤空気中のヘリウム含有量が多くなるそうです。そこで He 含有量を 10ppb オーダーで定量して 異常分布 (true anomaly) を求め 石油・ガスを探鉱するのがその原理・方法・技術です。

遊離ガス中の He による金属鉱床の地化探もすでにソ連で1973年に公表されているし また中央アジアのタシケントでは1966年のタシケント地震が 地下水中の溶存 Ar He Rnなどの長期観測値によって 予測が可能であったもようであるので ヘリウムの地化探への利用範囲は 相当に広いものと思われます。

今注目されている 地熱の地化学探鉱法の1つとしても ぜひ研究してみたいものです。

### 5. 土 壤 法 (土壤中に吸着された炭化水素ガスによる方法)

この場合の土壤サンプルは 地下8~10フィートからとられるのが普通で 最小でも5フィート下でとるようにしています。探査の結果を良くするために 試料採取の深度は均一性を保つようにします。土壤に吸着される炭化水素ガスの量は サンプルの深度によって いろいろ異なります。サンプルは400°Cまで熱されても 含まれている炭化水素ガス量に大きな変化はないものとされています。うすい酸の溶液を用いて その濃度差による処理いわゆる differential attack は サンプルから極微量のガスを集めるのに有効です。

カナダにおいては およそ4,000m にある深層の石油プールが 地表近くの土壤に対して 炭化水素の異常分布をつくっています。このために 油層の深さは この方法に対する制限事項には入っていません。

1~2年前に出た ELLIS と HORVITZ の 吸着ガスによる地表地化探の適用性に関するアメリカ石油地質学会誌上 (AAPG Bulletin) の論争は 興味を引くものでした。ELLIS は地表近くには 現生の生物起源による重炭化水素ガス (C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, C<sub>3</sub>, C<sub>4</sub>……) があるから これらのガスを石油・ガス鉱床が地下深部にあることを示す いわゆる直接的指示成分 (Direct Indicator) として 用いることはできない と述べました。これに対して HORVITZ は実験データを示しながら ELLIS が示した C<sub>2</sub>, C<sub>3</sub>…… などは濃硫酸とうで処理すればなくなってしまいう不飽和炭化水素 (unsaturated hydrocarbons, オレフィン) であり 深部の炭化水素に由来する飽和炭化水素が たしかに土壤中に異常分布をしている と主張しました。著者は 現生の生物が不飽和炭化水素を多く生産する資料を知っていますし 前記した2人の主張は

いずれも正しい面をもっていていると思います。ソ連などで 土壤中の炭化水素や土壤微生物を 石油・ガスの地化探に有効に利用している様子を見ると HORVITZ の主張は さらに重みを加えるでしょう。

### 6. 日本 で用いる有機物による方法

広域にわたって 石油・ガス資源の賦存を予測するために 日本では 有機物を含有する泥質岩を検討することが行なわれてきました。分析される成分は 調査の目的などによっても少し変わりますが 岩石中の有機炭素 有機溶ばいによる抽出性有機物 (ビチューメン) 炭化水素 (パラフィン ナフテン 芳香族) ヘテロ有機化合物 (O-N-S 化合物 アスファルトのようなもの) ポルフィリン ペリレン 不溶性有機物 (ケロゲン) などです。岩石試料には推定根源岩が多く用いられます。普通の分析法は 次のようです。

まず岩石試料をおよそ 100 メッシュの大きさの粉にする。ソックスレーの抽出装置で ベンゼン50% アセトン25% メタノール25%の混合溶液を用いて ビチューメンを抽出。抽出された有機物を乾かして秤量し Ext % として表現します。ついでビチューメンを液体クロマトグラフで 次のようにわけます。

活性アルミナあるいはシリカゲルを用い  
 ノルマル・ヘキサン留分……パラフィンとナフテン分 a %  
 ベンゼン留分……芳香族炭化水素 b %  
 ビリジン アセトン エタノール留分  
 ……O-N-S化合物 c %  
 アルミナ柱あるいはシリカゲル柱上の残留分  
 ……(100-a-b-c)%

ここで a+bは抽出物中の炭化水素量になりますが その数値は サンプルに対する重量で表現されて HyR ppm のようになります。

有機炭素は乾式あるいは湿式によって求められ Co であらわされます。石油化度 (degree of hydrocarbonization) は Ch/Co で求められます。ここで Ch は Ch……炭化水素の中の炭素量で 炭化水素量 × 0.86 として求められます。

HyR Co Ch/Co 抽出有機物の組成などを用いて炭化水素鉱床に関する地化学的予測が 次の例のように行なわれます。第1図は 日本における含油第三系の分布略図です。第2図はこれらの地区にある新第三系を産油量の多少によって区別し さらにそれら地層が示す有機地球化学的データをまとめたものです。この図から理解されることは 産油量の多い新潟の泥質岩では炭

第1表 産油の程度と新第三系泥質岩の有機物(柳下)

区 分	試料数	抽出量 %	クロマトによる分離					元素分析			岩石の炭化水素 ppm	石油化度
			パラフィン+ナフテン %	芳香族 %	ヘテロ化合物 %	アルミナ柱上の残査 %	P+Na+Ar %	全炭素 %	無機炭素 %	有機炭素 %		
産油地層	415	0.097	13.1	8.3	27.4	51.2	21.4	1.06	0.18	0.88	208	0.0208
少量の産油地層	153	0.065	9.2	9.3	33.8	47.7	18.5	0.72	0.08	0.64	120	0.0162
非産油地層	126	0.028	7.8	5.5	35.1	51.6	13.3	1.11	0.41	0.70	37	0.0046

化水素量が多く ヒストグラムの頂部は 100~200ppm にきますし さらに石油化度も大きくて そのピークは 0.02前後にあることです。石油を産出しない太平洋岸のガス田地域の地層は炭化水素量が 20~80ppm 程度でありかつ石油化度も 0.01以下になっています。第1表と対象するとよくわかります。

第3図は帝国石油の資料です。推定根源岩の質的判定は次のようにしています。量のことはIII部でふれます。

(1) 有機炭素量(図の Co %)

ソ連の RONOV の与えた尺度は次のようです。

非出油の場合 Co<0.5%

少量の出油 Co=0.51~1.6%

良好な出油 Co>1.61%

(2) 抽出炭化水素量(図の Hy ppm)

PHILIPPI は次の尺度を与えました。

非出油 Hy=0~50ppm

ごく少量出油 Hy=50~150ppm

少量出油 Hy=150~500ppm

良好な出油 Hy=500~1,500ppm

非常に良好な出油 Hy=1,500~5,000ppm

特別に良好な出油 Hy=5,000ppm以上

(3) 石油化度(図の Ch/Co)

新潟油田の泥岩では この値が 0.01~0.1 程度の場合に 良好な根源岩になるようです。

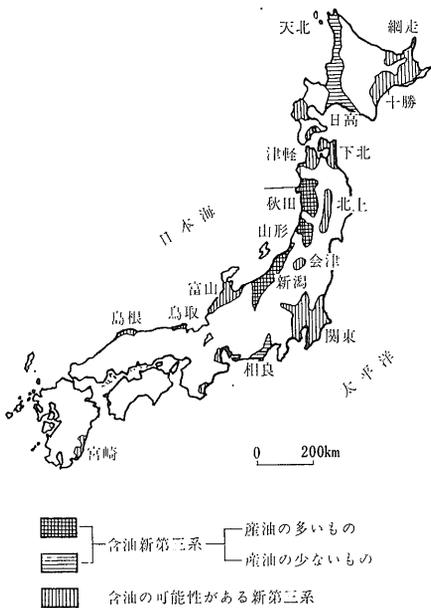
7. 水地球化学法

この方法は石油・ガスの探鉱に対して有効です。とくに最近 層位トラップ鉱床の地化探に際して この方法が見なおされています。

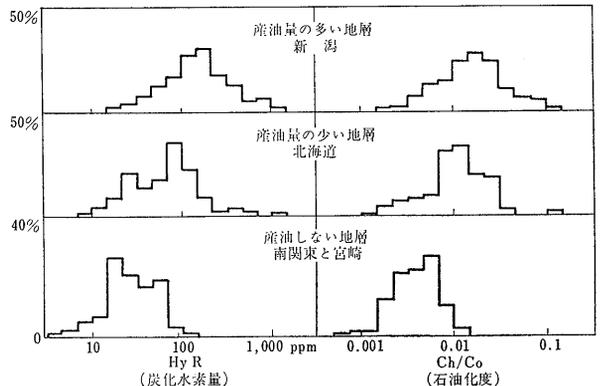
地化探のためには 地下水の質と 地下水の存在状態の関係を明らかにする必要があります。この関係を知るためには 次のような点が用いられます。

- (1) 炭化水素鉱床の近くにおける地下水が含有する溶存ガスの種類とその量
- (2) 同じく その地下水が含む特別な化合物 たとえばナフテン酸などの 分布状況
- (3) とくに ヘリウム アルゴン ネオンその他不活性ガスの分布と鉱床の関係……第二バクーを中心とするヨーロッパ・ロシアにその研究例がある。
- (4) 地下水の酸化還元電位

次に CHILINGER の地下水分類を説明します。この



第1図 含油 第三系の分布



第2図 産油地層 非産油地層における抽出炭化水素量と石油化度(柳下による)

分類は1959年のものでやや古いけれども 石油・ガスの水理地化探の面では 基本的に大切なものと思われま

あつたように聞いていますが 確認されていません (地質調査所の研究)。

(1) Na—SO<sub>4</sub> 型

$\gamma$  を percent equivalent とすると この水は  $(\gamma \text{ Na} - \gamma \text{ Cl}) / \gamma \text{ SO}_4 < 1$  であらわされます。この水は 大気からよく遮断されてい

(4) Ca—Cl 型

$(\gamma \text{ Cl} - \gamma \text{ Na}) / \gamma \text{ Mg} > 1$  の水です。この水質型をもつた地下水は 閉じた系のも

(2) Na—HCO<sub>3</sub> 型

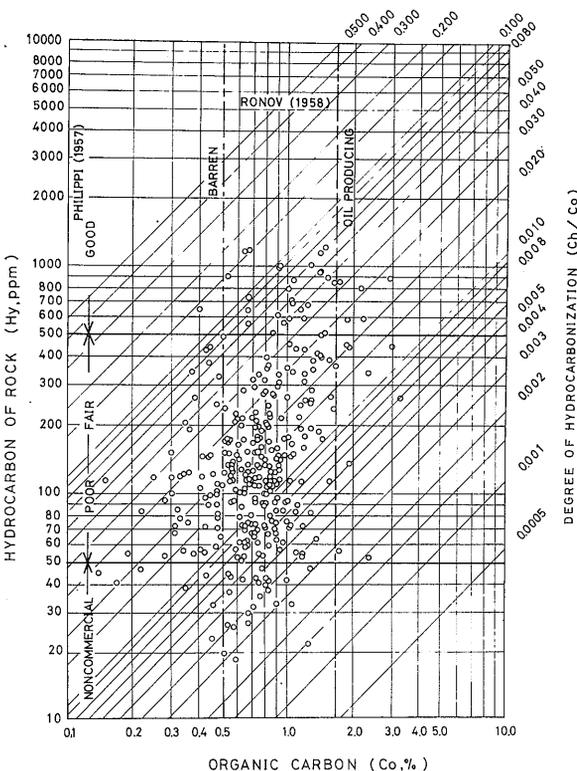
$(\gamma \text{ Na} - \gamma \text{ Cl}) / \gamma \text{ SO}_4 > 1$  の地下水です。この型の水は多量の HCO<sub>3</sub> と NaCl を含みますが SO<sub>4</sub> はきわめて少なく また H<sub>2</sub>S もナフテン酸も含

と見なされています。そこで この地下水は化石水の典型とされます。この水は日本の油田 炭田 ガス田で大変普通に見られます。ヨード ナフテン酸などを含むこの型の水は 石油

(3) Mg—Cl 型

$(\gamma \text{ Cl} - \gamma \text{ Na}) / \gamma \text{ Mg} < 1$  の地下水です。日本ではまだその産出が報告されてい

無機的水地球化学探鉱法は 日本で良く研究されました。有機物は C H O N S I Br などを含みそれが分解すると CH<sub>4</sub> C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> …… CO<sub>2</sub> → HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> NH<sub>4</sub><sup>+</sup> H<sub>2</sub>S I<sup>-</sup> Br<sup>-</sup> などを生じます。そのため炭化水素の集積部に近い地下水中における これら分解生成物の分布パターンは複雑かつ興味深いものとなります。さらに炭素と水素の安定同位体 (stable isotope) の研究が 炭化水素とその



第3図 新潟の泥岩の分析結果と根源岩の評価 (帝石資料)

炭素同位体の研究は 新潟ガス田 諏訪ガス田 東京ガス田 茂原ガス田 新潟油田 山形油田 秋田油田などで 行なわれました。また水素同位体の研究も新潟 諏訪 茂原の諸ガス田で行なわれました。

1971年の石油技術協会総会で 石油資源開発の技術研究所の須藤・浅川・工藤は 新潟の油・ガス田に対するベンゼン (C<sub>6</sub>H<sub>6</sub>) 法による 水理地化探の報告をしました。その結果は第2表に示されます。まず (A) の東新潟のガス層の端水部地下水では ベンゼンは

第2表 新潟油田の地下水中のベンゼン

(A) 東新潟地区における地下水中のベンゼン量 (石油資源 1967)

坑 井	油 層 深 度 (m)	地層水中のベンゼン (ppm)
N-ガス M-6-3	300 (ガス層)	tr
N-ガス M-6-2	444 (ガス層)	tr
N-ガス M-6-1	585 (ガス層)	tr
東新潟 NS-3	1,600 (油層)	29.5
東新潟 NS-16	2,900 (油層)	74.7

(B) 新胎内油田の地下水中のベンゼン量 (石油資源 1967)

坑 井	油 層 深 度 (m)	ベンゼン (ppm)
新胎内 NS-8D	1,962-1,987.5	70.0
	1,998.5-2,049.0	
新胎内 NS-14D	2,063-2,067	16.0
	2,069-2,072	
新胎内 NS-1D	2,032.7-2,046	9.0

対して ガス層の 9~16ppm と きわだった量的対応を示しています。地下水中のベンゼンによる地化探はどうやら有望のようです。

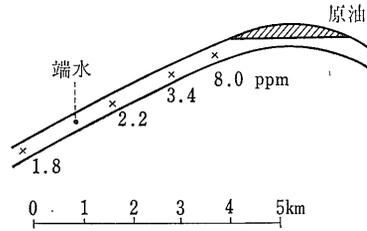
ここで 同じく地下水中のベンゼン量と 原油トラップの位置との関係を明らかにした カナダの油田の例を第4図にあげます。この例ではトラップからの距離によって 地下水中のベンゼンが 8~2ppm 間で規則正しく変化しています。地下水中のナフテン酸についての同様な研究が アメリカなどでみられます。

### 8. 塩類による探査法

石油・ガスプールの上にある土壌にはある種の塩類が集まっていることは古くから明らかにされてきました。これらの塩類を用いて 地化探を行なうことは アメリカ ソ連などのほかに イスラエルなどからも報告されています。

イスラエルのヘブライ大学に在る ISRAEL ZAK 教授の話によると 同国では この塩類法で油田を発見したようです。アメリカのケンタッキー地質調査所の A. C. JOHNSON も 1972年に石油・ガスの無機地球化学探査についての研究結果を出しています。さらに F. E. ARMSTRONG と R. J. HEEMSTRA は1972年の Oil and Gas Journal 誌上で放射能による石油探査を発表した際に 無機塩類による地化探に言及しています。

無機塩類を使う地化探は いわゆる間接法になります。堆積盆地では地層の圧密につれて 地層水が 10<sup>-8</sup>ft/sec 程度の速さで 地下から地表へ移動します。この地下



第4図 端水におけるベンゼン (ppm 単位) の分析 カナダのアルバーター州の例 (W. M. ZARRELLA, 1963)

水は周期律表の第4周期の金属すなわち K Ca Ti V Cr Mn Fe Co Ni Zn などイオン状で動かし 中程度のモビリティの金属は 地表の土壌中へ沈積します。A<sub>1</sub>層でとった土壌試料は ppm ないし ppb 単位で 蛍光法で分析されます。さて 異常の出現の型ですが 油・ガスプールの直上部には いわゆる煙突(chimney) 状の浸透性が低い部分ができるため プールの端部で地下水流が最大となり そこに異常が出るようです。いわゆる鉱体部をとりまく暈(うん)状……halo : ハイロー……の異常分布ができることになります。ケンタッキー州の調査事例も公表されています。

石油・ガスプールの端部においては 不飽和炭化水素(オレフィン)の上方への移動が 常に行なわれているようです。このオレフィンとはたとえばエチレン C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> やプロピレン C<sub>3</sub>H<sub>6</sub> のようなものですが 金属と結びついて錯体(さくたい Complex)をつくります。これは安定ですので 地下から地上へと動いてゆきます。そのためにプールの端部の土壌には U Th Mn その他のピークが出ます。なお chimney は CH<sub>4</sub> や He を通しますから プール頂上には これらのピークが出ます。しかし CH<sub>4</sub> や He に比較して 体が大きく やや吸着性の強い C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> (エタン) C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> (プロパン) C<sub>4</sub> C<sub>6</sub> などの 重炭化水素ガスは chimney を通過しにくいので プールの端部において ピークをもった異常分布を示します。その関係は 第5図にみられます。

ソ連と中国においては 広域の石油・ガス地化探にさいして I/Cl と Br/Cl の値を用います。サンプルは泥質岩で この数値によって 地層の堆積環境を推定して探査します。中国の有名な油田 大慶(ターチン)は 東北にあり 年産油量は数100万トンと推測されていて 昭和49年には 日本へもその原油が200万トンばかり輸入される予定になっています。この油田の堆積層の厚さは 地質科学 1974年第1期誌上における中国科学院地質研究所の発表をみますと およそ5,000m です。この5,000m には海成層はほとんどなく とくに主産油層の中生層は非海成層からなっています。それは大き

な内陸湖の堆積物で 堆積時の気候によって湖水の塩分濃度に大差が見られます。あまりに湖水の塩分が増えると 細胞への浸透圧の関係で水中生物の生産力がおちますので 湖底堆積物中の有機炭素の補給がへります。このような堆積物は炭化水素の良好な根源岩にはなりません。塩分がうすい時の堆積物が良い根源岩になります。このような塩分の変化は堆積物中への Br 量として記録されます。

ハロゲン族の元素 F Cl I Br のうち Br はもっともあとまで堆積岩中へ残ります。Cl はもっとも早く天水などによって洗い去られ (flushing という) ます。そこで地表サンプルの Br/Cl 値は その堆積岩の堆積時の水の塩分濃度を推測するために役立つのです。

中国の多くの油田では このように塩分濃度の低かった時の堆積層中に油層が発見されています。

日本でも 堆積岩中のヨードを 中性子放射化分析で定量し ヨード量と炭化水素の広域地化探との関係进行研究しています(群馬大学 地質調査所など)。しかも非常に興味ある資料も得られています。何分にもヨードの定量法がむづかしいところに この研究の困難さがあります。

### 9. 酸化還元電位法

この方法は Redox potential 法 あるいは ORD 法などとよばれていて 1935年に V. E. LEVENSON がはじめて石油探鉱に試みたそうです。この方法で測定するの

は水素電極と 岩石・土壌・水などの天然物質との間に生じる電位差です。その関係は

$Eh = 0.029 \log (H^+) / (H_2) \dots 18^\circ C$  において……となるそうです。

炭化水素は堆積岩領域における還元的生産物ですから炭化水素の存在によって Eh 値は減少します。

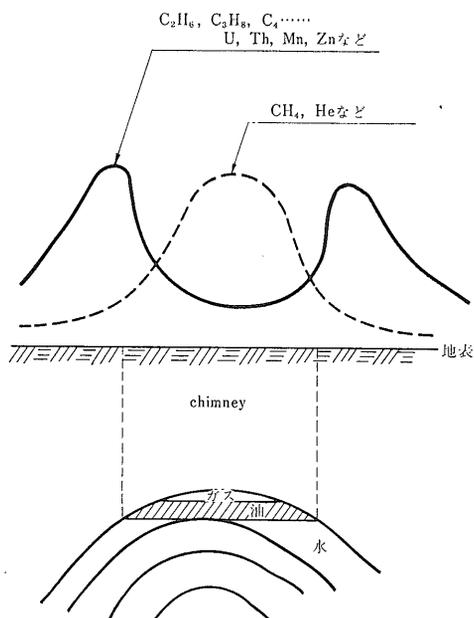
1973年に テキサス大学の S. J. PINSON は World Oil 誌上で 石油の直接探鉱法について やや詳細な論説を行ないました。石油・ガスプールの上にある堆積岩は比較的多量の分散した炭化水素をもっていて 比較的低い酸化還元電位 (Eh) 値を与えます。すなわち さきにも述べた還元的な chimney ができます。油・ガスプールを根源として「燃料電池」ができて チムニーの内側では上から下へ 外側ではその逆方向へ 電流が流れます。これが electrotelluric (ET) current すなわち地電流です。この ET 電流を地上で測って 地下のプールを探査することが 試みられました。そのためには 種々な方法がありますが その中の1つに酸化還元電位の測定法が加えられています。

Redox potential (Eh) mapping では 地面近くを通気ゾーンの下で測ります。Eh 法は1958年にソ連で提唱された探査法であって 地域的なひろがりでは地電流法空中磁気調査 電磁気による解析などで確認をうけます。Eh 法は 陸上では観測孔をつくるのにお金がかかりますが 海と海岸なら適用しやすいようです。アメリカでは テキサス ルイジアナの5カ所から成功した調査例が出ているそうです。将来の発展が期待されている調査法といえます。

### 10. 沿海の地化探法

さきほど述べた 酸化還元電位法が 海域の地化探法として適用性のあることは 最近注目されているようです。テキサス大学の Earl INGERSON の1970年の報告によりますと 1969年に石油の地化探は以前にも増して広範囲に用いられています。また 少なくとも4つの石油のメジャーが メキシコ湾で海域地化探を行ないました。さらに海域地化探の成功例が北海とアフリカのガボン沖から報告されました。

中部アフリカ西岸のガボンの沖では 1969年にフランスチームが海域地化探を実施しています。既知の産油構造を含めた海域で 20の現世堆積物のコア試料が採られました。海域ではすでに構造中に1坑が掘さくされています。最大4.60mに達する堆積物のコア試料に対して  $CH_4 \sim C_4H_{10}$  の軽い炭化水素が分析されました。分析値を統計的に処理したところ バックグラウンド値



第5図 石油・ガスプールと地表における各種異常分布 (本島原図)

として処理しきれない 高濃度の炭化水素があることが明らかになりました。これらの異常は地下の石油の集積に関係するものです。

フランス・チームの報告書は 次の結論をえています。

1. 陸上で用いる地化探技術を 海域へ拡張して使用できる。
2. 探鉱目的に 海底堆積物を使える。

海洋における石油・ガス地化探で注目されるもう1つの方法が 1971年に D. R. SCHINK によって報告されています。それは 海の底層水を連続的に採取してその中に含まれている炭化水素を分析する方法です。全炭化水素量が連続的に求められます。溶存している軽い炭化水素の95%以上が きれいにされた空気によってとり出されます。エタン プロパンおよびイソブタンが集められます。分析感度は公海における natural level を測るのに充分なものをういます。この方法も多くの成功例をあげているようにきいています。

## II. 日本における石油・ガス鉱床に対する地化探の概要

日本で 石油・ガス鉱床に対してはじめて地化探を試みたのは1940年です。その用いられた方法は 土壌の遊離ガス法です。適用されたフィールドは静岡県相良油田 山形県飽海(あくみ)油田 その他5~6カ所です。土壌遊離ガスをとるためには まずオーガーで10m以深の試料採取孔をつくり それから水置換によって大きなガラスびんにガスサンプルをとります。土壌ガス中の  $\text{CO}_2$  と  $\text{CH}_4$  は 0.01vol.% の感度で分析されました(地質調査所の研究)。

この分析のために用いた装置は 横河電機で製作したもので 日本独自で開発したものです。その原理は 簡単な  $\text{KOH}$  溶液に  $\text{CO}_2$  が吸収されると その吸収量に応じて溶液の電気伝導度に変化するところにあります。このために サンプル中の  $\text{CH}_4$  は あらかじめ燃焼させて  $\text{CO}_2$  に転化された後に 定量されます。

この研究は歴史的に大事な点をもっています。それはこの地化探が 日本の地化探に対するはじめてのインパクトだからです(朝倉書店 天然ガスに写真あり)。

第二次世界大戦が終わった後 1944~1954年頃にかけてこの土壌遊離ガス法は川崎ガス田 清水ガス田 焼津ガス田 二本木周辺(新潟県)などで用いられました。この方法の延長とも言えますが 地下から地表へと移動して来る  $\text{CO}_2$  ガスを ここに述べたと同じ方式によってつかまえて 地質構造の調査を実施した例があります。

たとえば長野県松代町の沖積層におおわれた新第三系中の断層追跡は 地質調査所で行なわれ 良い結果が得られました。また国内のいくつかの地熱地帯の構造調査にも soil air 中の  $\text{CO}_2$  の追跡が有効のようです。もっとも最近では  $\text{CO}_2$  の現場分析には光学干渉計(感度は同じく0.01%程度)が 分析室の操作にはガスクロマトグラフィーが多く用いられていて 分析の速度を昔にくらべて いちじるしく大きくしています。

戦後の水溶性天然ガス鉱床調査には 地化探が大変有効に用いられました。この種の天然ガスは 諸外国では湿地ガス(marsh gas)とよばれているのですが この種のガスは地下水と密接な関係をもっています。ここで用いられる地化探は おもに「地下水法」とよばれるもので その方法の開発は 天然ガスの存在状態とガスに付随して産出する地下水の地化学的性質との間にある関係に注目することから行なわれました。この方法は地質調査所がとくに力をいれて研究したものです。

地化探の場合の いわゆる指示元素とも言われるべきものには  $\text{Cl}$   $\text{SO}_4$   $\text{H}_2\text{S}$   $\text{CO}_2$   $\text{NH}_4$   $\text{NO}_2$   $\text{NO}_3$   $\text{HCO}_3$  pH  $\text{Fe}^{2+}$   $\text{Fe}^{3+}$   $\text{Mn}$   $\text{I}$   $\text{Br}$   $\text{Ca}$   $\text{Mg}$   $\text{Na}$   $\text{K}$   $\text{KMnO}_4$  消費量 溶存酸素 溶存 $\text{N}_2$  溶存 $\text{CH}_4$  溶存  $\text{Ar}$   $\text{Eh}$   $\text{He}$  などがあります。調査の対象になった天然ガス鉱床は 新第三紀以降の新しい地層の中にあります。後に述べますが ガスの多くは低温で また低圧で 生物の影響を受けながら生成されたものと思われれます。諸外国の人達は この種の炭化水素ガスを biogenic gas あるいは unmatuated gas などとよんでいます。

いっぽう 有機地球化学的探鉱法が 石油・ガス鉱床の探鉱に用いられています。その原理はアメリカから導入されましたが 日本の技術者は多くの新しい改良を加えてきました。この方法は資源科学研究所 東北大学 地質調査所 石油資源開発会社 帝国石油 北海道立地下資源調査所などで研究・実施されました。

その内容の1部はすでにI部の6で説明したとおりです。試料には有機物を含む泥質岩が主に用いられ それからピチューメンを有機溶媒によって ソックスレー装置または超音波装置で抽出し カラムクロマトでそれらを分別定量します。

推定根岩源の定性的価値判断には 有機炭素 炭化水素 石油化度を用います。

太平洋岸の地層については 相良 宮崎 沖繩などを含めて 徐々に資料が加わっています。また山陰の島根地方の新第三系の資料はきわめて少ないが 日本周辺

第3表 新第三紀泥岩の有機物

(A) 島根半島付近の第三紀泥岩の有機物

地層名	有機炭素 %	ビチューメン ppm	炭化水素 ppm	石油化度
松江層	0.76	1,173	178	0.0201
古江層	0.50	555	155	0.0267
牛切層	0.64	830	151	0.0203
成相寺層	0.66	1,119	318	0.0414
古浦層	0.24	300	67	0.0240
平均	0.63	826	209	0.0287

(牧・永田 1972)

(B) 新潟・宮崎・沖縄の第三系泥岩の有機物

地域名	有機炭素 %	ビチューメン ppm	炭化水素 ppm	石油化度
新潟	0.73~1.10	570~1,360	87~423	0.0087~0.0357
〃 平均	0.86	970	208	0.0208
宮崎	0.27~0.77	271~ 511	76~127	0.0123~0.0353
〃 平均	0.48	343	117	0.0210
沖縄	0.39~0.60	272~ 374	49~ 93	0.0077~0.0168
〃 平均	0.55	330	70	0.0110

(帝石；地調などの資料)

の海域油田が問題になっている時でもありその一部をここに示します(第3表)。また比較のために新潟 宮崎 沖縄の資料もつけ加えました。

島根県の鰐淵鉱山は坑内から石油とガスを産します。その層位は秋田の女川層に相当する成相寺層で 有機炭素も多く ビチューメンは1,000ppmをこえ 石油化度は0.04をこえます。石油根源岩としての島根の新第三系を 第3表によって 質的に見直してみたいと思います。ここでもう一度第1図 第2図 第1表 第3図を復習すれば よく理解願えると思います。

石油根源岩の判断のために 石油資源開発と東北大学では 泥岩から抽出・分離した n-パラフィンの C.P.I. (Carbon preference index) を 1968年以来測定しています。また 対応する原油の CPI も測っています。この CPI という値は n-パラフィンの奇数炭素数をもつ分と 偶数炭素数をもつ分の量比から計算した値です。現世堆積物の場合に CPI は大きく 原油はほぼ 1 さらに熟成した炭化水素を含む泥岩でももちろん 1 に近い値です。これらのことについては 後のⅢ部で 通産省の基礎試験の資料を中心にして説明します。

地表近くで行なう地化探の1つに 土壤に吸着されているガス成分を用いる方法のあることはすでにⅠ部で

述べました。吸着ガスによる方法は わが国では石油資源開発会社が実施しました。新潟 山形 北海道などで実施された際の測点数は 数100に達しています。測点では はじめに数m以浅の井戸をほることで 土壤サンプルがとられます。地下水位の低いところでは土壤遊離ガスも同じ井戸からとったようです。土壤サンプルは加熱されて 吸着されたガスを放出します。分析はおもに炭化水素ガスを対象にして ガスクロマトグラフィにより高感度で行なわれます。化学成分の異常分布は  $CH_4/NH_4$   $C_2H_6$   $C_3H_8$   $C_4H_{10}$   $C_5H_{12}$  などについて求められます。しかしながら 得られた結果の解釈は なかなかむづかしいようです。わが国では人間活動による汚染が この方法による探鉱の適用性をいちじるしく小さくしています。

掘さく中の井戸もとて 掘さく泥水とカッピングに含まれるガスを連続的に測定する地化探は おそらくもっとも普及度が高く もっとも効力をあげているものと思います。炭化水素ガス類の分析のために ホットワイヤー型の検出器がつくられ そこへ通す電流の調節によって  $CH_4$   $C_2H_4$ …… $H_2$ などを区別して 分析表示します。  $N_2$  ガスの分析値は 諸外国のフィールドでは注意して扱うべきものの1つでしょう。

地球化学的ロギング(Geochemical logging)は それ自体で1つの大きな領域をもっていて 日本の石油資源開発などでは 年間数万メートルの仕事をしているようです。

このロギングの資料の解析法は いろいろありますが 工藤・浅川(1970)の石油技誌での解説が理解し易いと思います。たとえば次のようです。

- ①  $CH_4/C_2H_6$  の値が油・ガスの産出可能性を決める。  $C_1/C_2$  が 2~15の時は石油 15~65の時はガス 15~65で低い位置に来る時は ガスの多い油 またはごく軽い油である。 2以下あるいは65以上では産油 産ガスは望めない。
- ② 片対数方眼紙の縦軸に すなわち対数目盛側に1~400程度の数値をとり 横軸に  $C_1/C_2$   $C_1/C_3$   $C_1/C_4$   $C_1/C_5$ などの炭化水素比をとる。  $C_1/C_2$ ~ $C_1/C_5$ のプロットを結んだ線の傾斜は 油層が炭化水素を産出するか あるいは炭化水素と水の両者を産出するかの区別を示唆する。 すなわち正の傾斜(右上がり)は 炭化水素のみの産出を表わし 負の傾斜は水を伴う場合を示す。 また一般にち密な浸透率が低い場合は 正の急傾斜を示す。 以上は Baroid 社の評価法です。

最近のマスターログの例を 第6図に示します。この図からガス 油 と水の各層が示すロギング上の特

長的一端がうかがえます。

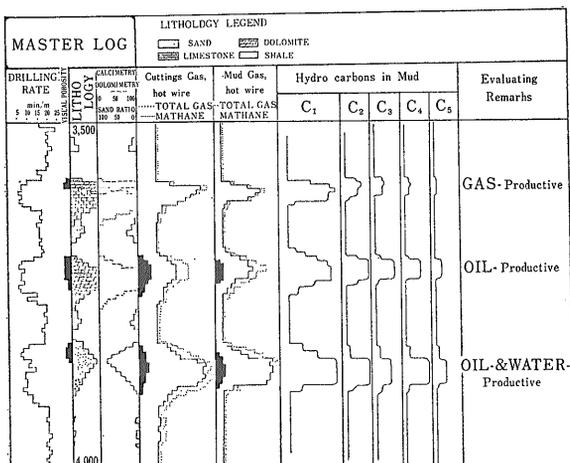
W. H. FERTL (1973) によりますと 泥水ガス・ロギングには次の項目が関連します。

- ① 稼行できる貯留層の直上にガスが多い。
- ② スワップ効果によって一時的に坑内へガスが流入することもある。
- ③ 泥水の循環をとめたあとでガスが多い。
- ④ 深井戸では CH<sub>4</sub> 以外に CO<sub>2</sub> H<sub>2</sub>S に注目すること。
- ⑤ 泥水の添加物から H<sub>2</sub>S CO<sub>2</sub> H<sub>2</sub> の発生がある。
- ⑥ 褐炭を含む地層で高い値が出る。
- ⑦ 炭化水素を多く含有する地下水のところで高い値になる。
- ⑧ 火山地帯の浅部でガス異常がでる。
- ⑨ 深部の泥火山 シェール・ディアピールで高い値になる。
- ⑩ 断層によって深部からチャンネル・ガス CO<sub>2</sub> N<sub>2</sub>が供給される。
- ⑪ さく井作業による高熱で炭化水素が生成する。

以上の諸項目を考えた上で泥水ガスの記録が解釈されます。なおさく井による高熱でオレフィンが生成した例は埼玉県春日部で 地質調査所の人達が報告しています。

石油・ガス鉱床に対するバクテリア探鉱は 日本でも研究されたことがありますが その効用についてはまだまだあまりはっきりしていないようです。

石炭に対する地化探は わが国では行なわれておりません。先にも少しふれましたが 地質構造についての地球化学的研究は 将来性のあるものと思います。指示成分としては土壌ガス中の CO<sub>2</sub> CH<sub>4</sub> Rnが用いられます。また浅層地下水では溶存している Cl<sup>-</sup> CO<sub>2</sub> HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> と He が有効で これらは地質調査所で良い結果をえています。



第6図 最近のマスターログ例 (石油資源 1970)

調査地としては群馬県磯部炭酸ガス田 長野県松代町岩手県松川地熱地帯 沖縄県沖縄本島南部のガス田 などがあげられます。

最後に日本において地化探の役割が大きかったフィルド例をあげます。このことは 地化探の話をするときに国内外の方々からよくたずねられます。

① 新潟県平木田ガス田

石油資源が土壌の吸着ガス法で地化探を実施し ガスプールと地上のアノマリーの間に見るべきよい関係がえられました。新第三系のフィルド

② 北海道長万部油・ガス田

地質調査所が水地球化学探鉱を行ない 新しいガス層と油層の発見にこうけんしました。新第三系のフィルド

③ 静岡県清水ガス田

第四系の下へ賦存する海成中新統の中にある水溶性のガス鉱床で 貯留層は第三系中の西から東へつきあげる逆断層の断層破砕帯です。したがって第三系中の断層を地上から追跡するのが大事になります。この目的に沿って はじめ地表近くでラドン (Rn) 探鉱を実施し さらにその後 地表近くで土壌間隙水中の溶存メタンによる地化探を実施しました。Rn も CH<sub>4</sub> も大変良い結果を出してくれましたので 当時会社において開発にしていた著者は非常にたすかりました。これらの調査は京都大学と地質調査所によって 行なわれました。

④ 静岡県焼津ガス田

清水とほぼ同じ地質条件にあり また同じ調査がおこなわれました。良い結果が得られました。

⑤ 山形県石名坂油田

すでに説明しましたが 土壌の遊離ガス法と過酸化ナトリウム法による地化探の結果によって 南方延長のさく井を中止しました。昭和20年のことで地質調査所が野外作業を行ないました。

⑥ 坑井の地化学ロギング

大変有効に用いられています。(つづく)

(筆者は 技術部)