

# 炭化水素ガスによる地下深部地熱環境の推定 —新たな地化学指標開発の試み—

野田 徹郎<sup>1)</sup>・東原 雅実<sup>2)</sup>・浅田 憲子<sup>2)</sup>

## 1. 研究の目標と進め方

地熱開発の歴史は、多様化とともにより大きいエネルギーを目指してきており、その端的な表れが「浅部」から「深部」への展開である。地熱開発創生期における比較的小規模な発電の場合は、必要とされる地熱流体の量も少なく済んだ。したがって、地熱兆候の見られる狭い範囲だけで簡単な調査を行い、比較的浅部(1,000 m 深程度)を対象とした開発で十分対応できた。この時代はほとんど調査らしい調査を行わず、地熱兆候地周辺において直接調査ボーリングを実施した。しかし浅部ではさほどの高温は得られず、また貯留層の広がりにも限界があるため大容量の発電は望めない。

電気事業審議会の長期電力需給見通しにおいて、地熱発電の位置付けは変わらず、西暦2000年には100万 kw の目標が掲げられている。地熱は外のエネルギーに比べてもクリーンであるし、投入したエネルギーに対する効率の上からも有利だとされる。昨今議論の喧しい地球環境問題、特に温室化問題に対応していくためには、温室効果ガス(CO<sub>2</sub>等)の排出の大部分を占めるエネルギー分野において、その排出規制を図ることが必要だとされており、温室効果ガスの排出の極めて少ない再生可能エネルギーである地熱開発への期待は大きい。これらの期待に応える即効策を求める動きの中で、必然的に供給量の増大を目指して深部の地熱資源開発が指向されてきている。

我が国の地熱資源の賦存量については、今までに多くの人が算定に取り組んでいる。宮崎ほか(1991)により容積法を用いて算定された資源量は、

浅部地熱系20,540 MW・30年、深部地熱系43,420 MW・30年であり、かなりの誤差も見込まれるが、オーダーとしてはほぼ正しい資源量であると思われる。

しかし既存データに基づく机上の作業では、深部地熱の可能性のある地域はリストアップされるものの、残念ながら地下の見えない世界という基本的な制約のため、熱構造や流体挙動についての実証データは十分でない。地下の地熱の様子については専門家の概念においてすら大きな違いがある。深部となればなおさらである。

深部地熱という難解な事象を解明するには、①なるべく多くの可能性のある研究手法を採用する必要がある、②なるべく数多くのデータを取得する必要がある、③なるべく浅部のデータを指標にして解明を進める必要がある、と考えられる。

これらの要件に照らして、ここに述べる「炭化水素ガスによる地下深部地熱環境の推定」の研究内容を概観すると、次のような特徴と長所を指摘できる。

①未解明な部分が多く残されているが、深部地熱を解明する可能性が期待できる分野である、②土壌ガスから地熱ガスに至る多様なメディアを対象とすることができる、③土壌ガス→温泉ガス→自然噴気→浅部地熱ガス→深部地熱ガス、と浅部から深部に段階的に有効性と相互関係を確認できる。

「炭化水素ガスによる地下深部地熱環境の推定」で研究目標にしているのは、次の三つである。

①化学温度計としての適用性の検証(貯留環境の推定)…炭化水素の組成や同位体組成が生成時の温度等の環境を反映するとの研究結果(例えば、Des

1) 地質調査所 企画室  
2) 三井金属資源開発株式会社

キーワード：炭化水素、深部地熱、葛根田、GC-MS



Marais et al. (1988))を検証する。

②年代学的な適用性の検討(貯留時間の推定)…地熱環境下における有機物の変質の進行に伴って炭化水素の化学組成が変化していくこと(例えば、ケロジェンの熱分解(Schoell, 1983など))を利用し、地熱流体の貯留時間や貯留部の熱履歴を推定する。

③炭化水素の起源論に資するデータの取得(ガスの起源の推定)…炭化水素の起源については、いまだに不明な点が多い。その解明に資するようなデータを取得する。併せて、地熱流体の生成に関与するガスの起源について考察する。

研究の年次展開としては、活性炭吸着法をはじめとする方法で次のような試料を採取・分析し、貯留環境、貯留時間、ガスの起源について可能性のある解析手法を適用する。

- 1993年度 自然噴気ガス
  - 1994年度 既存坑井試料
  - 1995年度 3,000 m 坑井試料+深度別試料
  - 1996年度 4,000 m 坑井試料+深度別試料
  - 1997年度 研究まとめ
- 次章では、深部地熱の研究に先立って実施してき

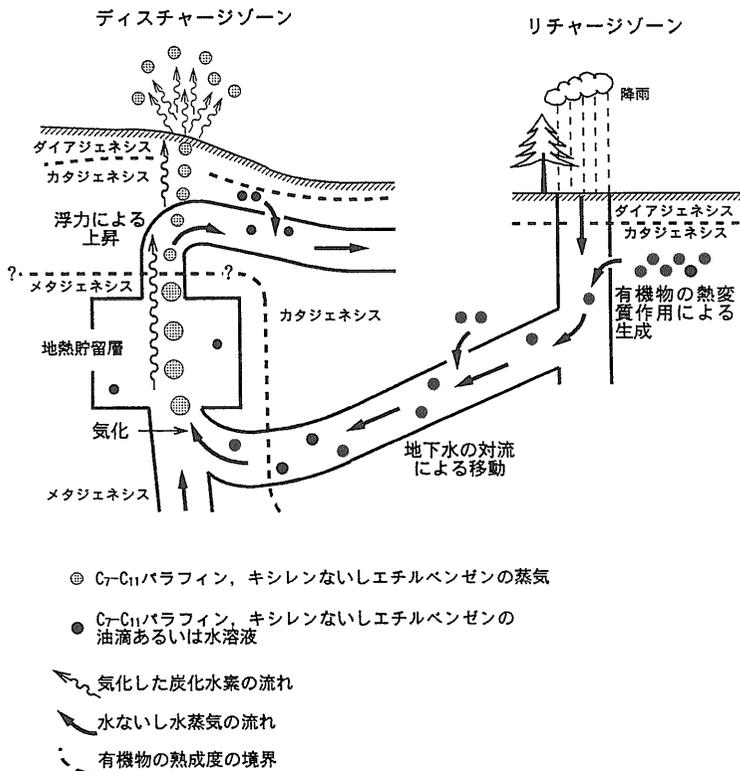
た土壌ガス中の炭化水素の研究内容、及び1993年度における自然噴気ガスの研究成果の一部を紹介する。

## 2. これまでの研究内容

### 2.1 土壌ガス中の炭化水素についての研究

秋田県澄川地区の地熱生産ゾーンを含むエリアで、活性炭吸着法(「フィンガープリント法」, Klusman and Voorhees, 1983)による土壌ガス調査(95測点)を実施した(野田ほか, 1992)。同地区で得られた活性炭吸着ガスのパイロリシス質量スペクトルは、出現する質量数の組み合わせとイオン強度の大きさを基に、四つのタイプに分類することができる。これらのタイプのうち高質量・高発散を特徴とするタイプⅣ(第1図)は、澄川地区の既知の地熱貯留ゾーンにまともって分布しており(第2図)、顕著な地熱活動に関係する炭化水素ガスが地表近くまで上昇していることを示している。

得られた質量スペクトルがどのようなガス種によるものかは、野田ほか(1992)の測定地点のうちの



第3図 地熱系における炭化水素の動きを示すモデル(東原, 1993c)  
パラフィンと芳香族炭化水素の動きが仮説として示されている。このほか、モノテルペンの動きも注目される。

3 測点で実施された土壌ガスのガスクロマトグラフ質量分析(以下 GC-MS 分析と略記)結果(東原・福田, 1992)である程度確認されている。タイプⅣの土壌ガスに顕著に含まれているガス種は、芳香族とモノテルペンである。また、澄川地区ではあまり顕著でないが、他の地熱地域の地熱貯留ゾーンではパラフィン(飽和鎖状炭化水素)も目立って検出されている(東原, 1993c)。これらのパラフィン、芳香族、モノテルペンがキーとなる炭化水素であり、それらの動きをたどることが深部地熱解明の糸口となると考えられる。地熱系におけるパラフィンと芳香族の動きについては東原(1993c)により仮説が示されている(第3図)。これにモノテルペンを加え、これらの炭化水素の地熱系での動きを明らかにしていくことが、今後の大きな課題である。

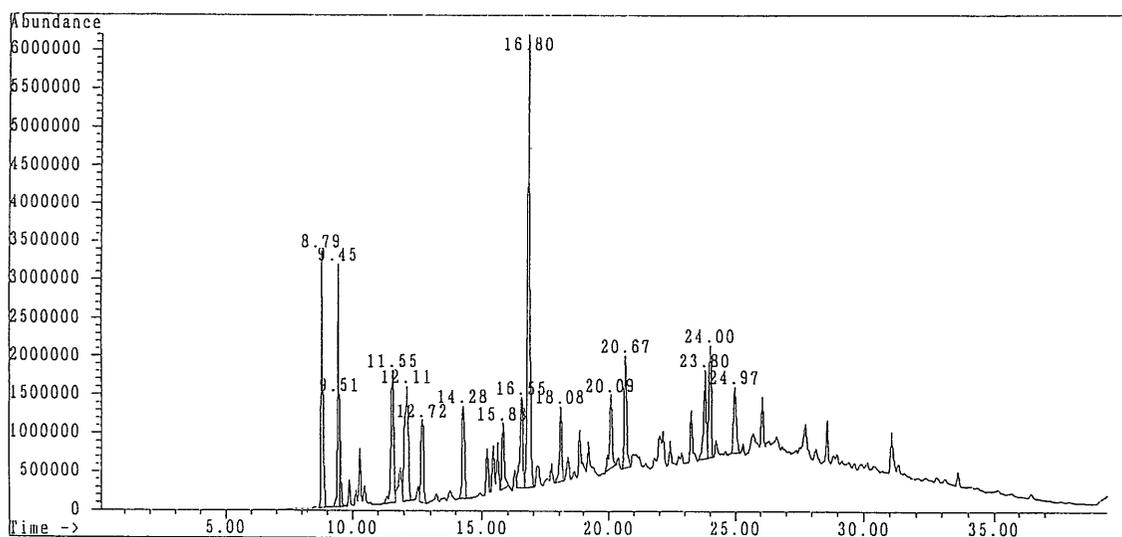
## 2.2 葛根田地域の噴気ガスについての予備調査

研究の初年度に当たる1993年度には、深部地熱調査のターゲットフィールドである葛根田地域で深部地熱関連炭化水素ガスに関する予備調査を実施した。予備調査は、深部地熱に関連する炭化水素ガスの本格調査に備え、サンプリング法と分析方法を検討することを目的としたもので、3カ所の自然噴気

地点(No. 3, 5, 8)で噴気中の炭化水素ガスを採取して分析を行った。

試料の採取は、噴気を冷却して凝縮させた後、非凝縮ガスを KOH 水溶液中にくぐらせて、吸収されずに残ったガス(「R ガス」)を吸着管に通すことにより行った。この装置は接続個所が多いため、噴気孔から吸着管までの間にガス漏れあるいは大気の混入の危険性があるのが難点である。使用した吸着管には2種類の吸着剤(すなわち、グラファイトカーボン系の Carbotrap 100 と 2,6-ジフェニル-p-フェニレンオキシド系の Tenax TA)を充填した。吸着ガス試料は、吸着管を通過させるガスの総量(ガス採取量)が500 cc と1,500 cc になるように2方式で採取し、ガス採取量の適量を見積もることとした。また、試料の分析は、熱脱離-クライオフォーカス付きの GC-MS 装置(ガスクロマトグラフ質量分析計)で実施した。

第4図に、炭化水素のガスクロマトグラム上の1例(噴気地点 No. 8—鳥越ノ滝すぐ北方—; ガス採取量=1,500 cc)を示す。クロマトグラム上でピークを示した各ガスについては質量分析を行い、その質量スペクトルパターンのライブラリー・サーチ結



第4図 葛根田地域 No. 8 地点の自然噴気ガスのガス採取量1,500 cc のときの炭化水素ガスクロマトグラム

縦軸：ピークアブダンス 横軸：保持時間(単位：分) 主なピークは保持時間の短い順に、8.79：2-メチルブタン、9.45：ペンタン、11.55：2-メチルペンタン、12.11：3-メチルペンタン、12.72：ヘキサン、14.28：メチルシクロペンタン、15.83：シクロヘキサン、16.55：ヘプタン、16.80：ベンゼン、18.08：メチルシクロヘキサン、20.09：オクタン、20.67：トルエン、23.80：エチルベンゼン、24.00：m, p-キシレン、24.97：o-キシレンと同定される。このほかに、C<sub>13</sub>までのパラフィンや C<sub>5</sub>以上の幾つかのオレフィンが同定されたが、モノテルペンは確認されていない。

果に基づいてガス種を同定した。

吸着ガスのGC-MS分析結果の評価は次のようである。

①ガス採取量は500 ccで十分であり、数多くの炭化水素が同定できる。

②C<sub>5</sub>~C<sub>13</sub>のパラフィン及びベンゼン等の芳香族が主要成分をなし、C<sub>5</sub>以上の幾つかのオレフィン(鎖状不飽和炭化水素)及びシクロパラフィンを少量伴っている。C<sub>5</sub>未満程度の軽い炭化水素は、吸着管にあまり捕集されなかったものと思われる。また、C<sub>5</sub>以上の炭化水素化学組成の特徴は、他地域の地熱ガスのもの(東原(1993a, 1993b)の総説参照)におおむね類似している。

また課題として次の点が考えられる。

①ガス採取量1,500 ccのそれぞれのピークが必ずしも採取量500 ccの相当するピークの3倍になっておらず、ピーク間の比(炭化水素の存在比)も一定でない場合がある。原因の検討が必要である。

②澄川地区の土壌ガス中に多量に検出されたモノテルペン(東原・福田, 1992)が、葛根田地域のRガス中には検出されていない。仮に、葛根田地域の噴気ガスにモノテルペンが含まれていたとしても、沸

点が比較的高いモノテルペンが、採取時の冷却により凝縮してしまった可能性が考えられる。今回は分析対象としなかったが、凝縮水にはモノテルペン以外にもいろいろな炭化水素が含まれている可能性がある。凝縮水も分析する必要がある。

今回の予備調査では、上記の作業とは別に、上記作業で用いた装置において吸着管を通過したガスのガスクロマトグラフ分析を行った。なお、吸着管には上記作業で用いたものとは異なる吸着剤(Supelco carbotrap 200)を充填した。また装置の構造上、吸着管を通過していないガスが一部混入している可能性がある。

第1表に分析結果を示す。測定地点は、噴気地点NO. 3(葛根田地熱発電所すぐ西方)である。これを見ると、O<sub>2</sub>やN<sub>2</sub>含量から分かるように、相当空気が混入しているが、かなりの種類の炭化水素も検出される。O<sub>2</sub>を指標として空気に対する補正を行うと、第1表のように既存データ(著者未公表資料)に近い値になる。これを基に算出した炭化水素(C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>)の相互比は、他の地熱ガスのもの(東原(1993a, 1993b)の総説を参照)に類似している。

以上のことから、課題として次の点が考えられる。

①本サンプリング法では空気の混入があるので、例えばGiggenbach (1975)の方法を用いるなど、方法自体を再検討する必要がある。

②吸着剤の吸着性(特に、C<sub>5</sub>程度のものに対する)について、吸着可能化学種、吸着容量、最適採取流量、吸着剤の組み合わせをチェックする必要がある。

第1表 葛根田地域No. 3地点の自然噴気のRガス分析結果

- (1) 今回の分析結果(分析: 猪狩俊一郎)
- (2) (1)のO<sub>2</sub>が全て大気起源として補正した値
- (3) 既存データ(未公表資料)

	(1)	(2)	(3)
O <sub>2</sub>	17.8%	0%	2.9%
N <sub>2</sub>	70.7	31.4	48.8
Ar	0.96	1.23	
H <sub>2</sub>	3.6	26.1	20.6
CO <sub>2</sub>	0.075	0.34	
CH <sub>4</sub>	5.5	39.8	27.7
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	980ppm	7,090ppm	
C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	350	2,530	
i-C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	70	510	
n-C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	100	720	
neo-C <sub>5</sub> H <sub>12</sub>	0.9	7	
i-C <sub>5</sub> H <sub>12</sub>	70	510	
n-C <sub>5</sub> H <sub>12</sub>	30	220	

### 3. 可能性のある解析法

地熱系には一般に知られているメタン以外に、C<sub>2</sub>以上の多くの種類の炭化水素が含まれることが明らかになってきている(東原, 1993a, 1993b)。そのような炭化水素を手掛かりに、本研究で目標としている貯留環境、貯留時間、ガスの起源に関して、適用の可能性が期待される研究成果がいくつか公表されている。ここではそれらのうち代表的な研究成果を紹介する。

地下温度をはじめとする貯留環境については、次のような研究成果がある。Capaccioni et al. (1993)

は、いろいろな炭化水素の炭素原子当たりの生成自由エネルギーと温度の関係を求めている。それによると一般に炭化水素は高温になるほど不安定になる。また、パラフィン、芳香族、単体の順に温度上昇に対し不安定化する傾向が大きい。同じ種類の炭化水素(例えばパラフィン)では鎖の短い炭化水素(例えばメタン)の方が相対的に安定である。

実際の地熱系での地下温度と炭化水素組成の関係は、Nehring et al. (1982)や Des Marais et al. (1988)により調べられている。Des Marais et al. (1988)は、セロプリエト(Cerro Prieto)の地熱系での温度と、メタンに対する $C_2 \sim C_4$ の炭化水素及びベンゼンの存在比の関係を調べ、これと褐炭の熱分解実験結果を比較している。ベンゼン以外のパラフィンは、炭素の鎖が長くなるほど減り、また高温になるほど少なくなることが、フィールドデータでも分解実験の結果からも示される。この結果は前述のCapaccioni et al. (1993)の示した関係とも調和的である。また Kiyosu et al. (1992)は同じような表示方のダイアグラムを用い、酸素フラグメンティを支配する鉱物相の組み合わせによっても、炭化水素の存在比のパターンが違うことを示している。

温度環境に関しては、同位体化学も有力なアプローチである。James (1983)は、メタンと $C_{30}$ までのパラフィン間における $^{13}C/^{12}C$ の同位体分別係数と温度の関係を求めている。炭素の鎖が長いほど同位体分別係数は大きい、その関係を維持しながら絶対温度の逆数の2乗に比例して一定の割合で同位体分別係数は減じる。

猪狩(1992)は、この同位体比と温度の関係を積極的にとらえ、エタンの $\delta^{13}C$ (値が大きくなるほど高温である)と低分子のいろいろなパラフィンの異性体存在比と温度の関係や、低温と高温での異性体生成過程の違いを論じている。また Lyon and Hulston (1984)は二酸化炭素とメタンの $\delta^{13}C$ と同位体平衡温度の関係を示し、幾つかの地熱フィールドで適用が試みられている(Lyon, 1990. Lyon and Gigenbach, 1992)。

貯留時間に関しては、Capaccioni et al. (1993)が、炭化水素のn-アルカン(パラフィン)、アルケン(オレフィン)、芳香族の3つのグループの相互比と火山や地熱活動の発達の程度の間を論じている。すなわち炭化水素の組成は、3成分ダイアグラ

ム上で、活動初期にはn-アルカンの頂点付近に分布するが、活動が活発になると芳香族の方に次第にシフトし、さらに活発になると向きを変えてアルケンの頂点に近づく。

石油や天然ガスに関しては、熟成するまでに要する時間はよく調べられている。例えばRice(1983)は、炭化水素の熟成度を温度や時間に対して定性的に示している。

炭化水素ガスの起源を示す代表的な解析法の一つは、一つの軸にメタンの炭素同位体を取り、もう一つの軸にメタンとメタン以外のパラフィンとの比を取ったダイアグラムである(Bernard, 1978)。ダイアグラム上での位置の違いから、熱分解、マグマ性、バイオジェニックと起源の異なる炭化水素が区別される。この関係を適用した例として、天然ガスに関しては坂田ほか(1986)、地熱系に関しては Kiyosu et al. (1992)などがある。

また、貯留岩の違いによっても、炭化水素組成や同位体比は異なる。Rice (1983)は、メタンの炭素同位体比と $C_1/C_1-C_5$ の関係が、海成堆積物と非海成堆積物では違うことを示している。Shigeno et al. (1992)も海成堆積岩質の基盤中に深部貯留層が発達する場合には、 $C_2H_6/CH_4$ が高いと述べている。

#### 4. む す び

地熱系にかかわる炭化水素は、一般に極めて希薄であり、また物性をかなり異にする多様なガス種が含まれている。幸いに今日の化学分析技術の進歩により、化学分析作業自体には支障はなさそうである。しかし、サンプリング法にはいっそう工夫が必要である。今後まずサンプリング法に検討と改良を加え、分析した炭化水素について前章で紹介した解析を応用することにより、地下深部の地熱環境を推定する有用な指標が得られるものと期待される。

#### 謝辞

地質調査所地殻化学部の猪狩俊一郎氏には、Rガスの分析を行っていただいた。地質調査所北海道支所茂野 博氏、同地殻熱部高橋正明氏にはガスのサンプリング法についてコメントをいただき装置の一部を貸与いただいた。名古屋大学理学部清棲保弘

氏(現富山大学理学部)には、サンプリング器材の一部を貸与いただいたほか、サンプリング作業について御助言いただいた。三井金属資源開発(株)には、葛根田地域の予備調査にあたって、種々御協力をいただいた。深く感謝するところである。

#### 文 献

- Bernard, B. B. (1978): Ph. D. Dissertation, Texas A and M Univ.
- Capaccioni, B., Martini, M., Mangani, F., Giannini, L., Nappi, G. and Prati, F. (1993): Light hydrocarbons in gas-emissions from volcanic areas and geothermal fields. *Geochem. J.*, 27, 7-18.
- Des Marais, D. J., Stallard, M. L., Nehring, N. L. and Truesdell, A. H. (1988): Carbon isotope geochemistry of hydrocarbons in the Cerro Prieto geothermal field, Baja California Norte, Mexico. *Chem. Geol.*, 71, 159-167.
- Giggenbach, W. F. (1975): A simple method for the collection and analysis of volcanic gas samples. *Bull. Volcanol.*, 39, Special Issue, 132-145.
- 東原雅実(1993a): 地熱流体中に存在する C<sub>2</sub> 以上の炭化水素について。地熱, 30, 60-66.
- 東原雅実(1993b): 地熱流体中に存在する C<sub>2</sub> 以上の炭化水素について(補遺)—火口湖のケース—。地熱, 30, 144-145.
- 東原雅実(1993c): 福島県奥会津地熱地域における炭化水素の分布—異常帯の分布状況とその成因を説明する作業仮説—。日本地熱学会誌, 15, 231-252.
- 東原雅実・福田宗弘(1992): 秋田県澄川地域における炭化水素の分布。地熱, 29, 147-162.
- 猪狩俊一郎(1992): 日本の天然ガスの炭化水素組成と炭素同位体比の関係。Res. Org. Geochem., 8, 35-39.
- James, A. T. (1983): Correlation of Natural Gas by Use of Carbon Isotopic Distribution Between Hydrocarbon Components. *Am. Assoc. Petrol. Geol. Bull.*, 67, 1176-1191.
- Kiyosu, Y., Asada, N. and Yoshida, Y. (1992): Origin of light hydrocarbon gases from the Matsukawa geothermal area in Japan. *Chem. Geol.*, 94, 321-329.
- Klusman, R. W. and Voorhees, K. J. (1983): A new development in petroleum exploration technology. *Mines Magazine*, 73, 6-10.
- Lyon, G. L. (1990): Carbon and hydrogen isotopic composition of methane from Northland and West Waikato. 1989 NZ Oil Expl. Conf. Proc., Ministry of Commerce, Wellington.
- Lyon, G. L. and Giggenbach, W. F. (1992): The isotope geochemistry of hot spring gases and waters from Coromandel and Hauraki. Proc. 14th NZ Geotherm. Workshop 1992, 57-62.
- Lyon, G. L. and Hulston, J. R. (1984): Carbon and hydrogen isotopic compositions of New Zealand geothermal gases, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 48, 1161-1171.
- 宮崎芳徳・津 宏治・浦井 稔・高倉伸一・大久保泰邦・小川克郎(1991): 全国規模地熱資源評価の研究。地質調査所報告, No. 275, 17-43.
- Nehring, N. L., Des Marais, D. J. and Truesdell, A. H. (1982): Thermal decomposition of hydrocarbons in the Cerro Prieto, Mexico, geothermal reservoir. *Geotherm. Resour. Coun. Trans.*, 6, 305-307.
- 野田徹郎・高橋正明・茂野 博(1992): フィンガープリント法の地熱探査法としての有効性について—秋田県澄川地区での調査例—。地熱, 29, 129-146.
- Rice, D. D. (1983): Relation of Natural Gas Composition to Thermal Maturity and Source Rock Type in San Juan Basin, Northwestern New Mexico and Southwestern Colorado. *Am. Assoc. Petrol. Geol. Bull.*, 67, 1199-1218.
- 坂田 将・高橋 誠・星野一男(1986): 深部火山岩中の天然ガスの成因に関する地球化学的考察。石油技術協会誌, 51, 228-237.
- Scoell, M. (1983): Genetic characterization of natural gases. *Am. Assoc. Geol. Bull.*, 67, 2225-2238.
- Shigeno, H., Takahashi, M. and Noda, T. (1992): Inactive gas ratios of geothermal gases from the Sengan field, Northeast Japan, and their implications in origins of hydrothermal systems. Proceedings 7th Internat. Symp. on Water-Rock Interaction, Park City, Utah 1992, 1353-1356.

---

NODA Tetsuro, HIGASHIHARA Masami and ASADA Noriko (1994): Implication of hydrocarbon chemistry in geothermal fluid relating to deep geothermal condition.

---

<受付: 1993年12月8日>