論 説
 Original Article

原油のバイオマーカー組成からみた国内根源岩の特徴 —秋田・山形地域の国内における位置づけ—*

早稲田 周^{*,†}・西田 英毅^{**}

(Received November 27, 2017 ; accepted January 23, 2018)

Source rock characteristics based on biomarker compositions of crude oils in Japan: Focused on the Akita and Yamagata Area

Amane Waseda and Hideki Nishita

Abstract : The factor analysis of biomarker composition on the marine oils from the Akita and Yamagata Basins, Japan, was conducted to clarify their source rock characteristics. Three major factors controlling source rock facies are interpreted to be lithologies (Factor 1: clastic vs. siliceous/calcareous), organic origins (Factor 2: variable contributions of land plants) and oxic/anoxic depositional conditions (Factor 3). The Akita and Yamagata oils are differentiated into six types by the score plot of the Factor 1 and 2. The areal distribution of the oil types revealed regional variation of source rock facies, such as the higher clastic input in the Yamagata basin than in the Akita basin, higher marine organic input in the west anticline series than the east series in the Yabase oil field area. The Factor 1 and 2 are mainly represented by oleanane/norhopane ratio and the relative abundance of C_{29} sterane among C_{27-29} steranes, respectively. Based on these two biomarker parameters, the source rock lithologies in the Sea of Japan side of the Tohoku District are interpreted to change from siliceous/calcareous in the Akita area to clastic in the southwest Niigata area. The source rocks of the oils from the Sagara area in the Pacific side of the main island are evaluated to have higher land plant contributions than those from the Sea of Japan side. The oils distributed in the coal-bearing basins extending from the central Hokkaido to the offshore Pacific side of the Tohoku District contain much higher amount of C_{29} sterane, suggesting their source rocks are coals or coaly shales.

Keywords : source rock facies, biomarker, crude oils in Japan, factor analysis, lithology, organic origin, marine oil, land plant

1. はじめに

原油のバイオマーカー組成は起源有機物、岩質、堆積場の酸化還元環境、熟成度、微生物分解、移動などの指標として広く使われている (Peters *et al.*, 2005 など)。国内油・ガス田地帯である秋田～新潟堆積盆においても原油のバイオマーカー組成から根源岩の地域的な違いが検討

されている。その結果、原油はすべて海成根源岩起源であるが、秋田堆積盆は新潟堆積盆に比べて、熟成度の低いものがあること (Sakata *et al.*, 1988 ; 坂田ほか, 1990)、陸源有機物の影響が小さいこと (坂田ほか, 1990 ; Chakhmakhchev *et al.*, 1996)、より還元的环境で堆積したこと (Chakhmakhchev *et al.*, 1996) が指摘されている。また、鈴木ほか (1995) は、秋田地域と新潟地域では原油のジーステラン組成が異なっていることを示し、この違いが両地域における根源岩の岩質 (粘土質頁岩と珪質頁岩) と密接に関連している可能性を指摘している。平井ほか (1995) は新潟堆積盆内での原油のバイオマーカー組成の地域的な違いを検討し、オレアナン/ノルホパンが 1 より小さい新津型と 1 より大きい頸城型に分類できることを示している。

本研究の目的は、日本国内に産する原油のバイオマーカー組成を横断的に比較検討し、その原油を生成した根源岩相の地域的な特徴を明らかにすることである。まず、秋

* 平成 28 年 3 月 17 日, 北海道大学 創成研究機構 JAPEx 寄附研究部門・石油技術協会 探鉱技術委員会共催 公開シンポジウム「新たな炭化水素資源と革新的地化学探査技術」で一部講演 This paper was partly presented at the public symposium co-hosted by Research Division of JAPEx Earth Energy Frontier, Creative Research Institution, Hokkaido University and JAPT Exploration Technology Committee, entitled "New Hydrocarbon Resources and Innovative Geochemical Exploration Technology" held in Sapporo, Japan on March 17, 2016.

** 石油資源開発技術本部 技術研究所 JAPEx Research Center, Technical Division, Japan Petroleum Exploration Co., Ltd.

† Corresponding author : E-Mail : amane.waseda@japex.co.jp

田・山形地域において、原油のバイオマーカー分析データの多変量統計解析（因子分析）を行い、根源岩相を規制する要因について考察する。因子分析は試料間の類似度・相違度の明確化やデータの変動要因の抽出に有効である。Schiefelbein *et al.* (1997) は、東南アジアの原油の分類に因子分析が有効であることを示している。また南大西洋縁辺の原油の対比にも地化学データの統計解析が有効に使われている (Schiefelbein *et al.*, 2000)

しかし、新規の試料を因子分析で評価するには、試料が増えるたびに、その試料のデータを含めて再解析をする必要が出てくる。また、過去の分析データについては必要な分析種目のデータが得られないこともある。したがって、新規試料のデータを簡便に評価するには、因子を代表するバイオマーカー指標の抽出が望まれる。本論文では、秋田原油の因子分析で得られた第1因子と第2因子を代表するバイオマーカー指標を抽出したあと、その指標を使って新潟、北海道、三陸沖および静岡・相良油田周辺の海成根源岩起源原油を秋田・山形地域の原油と比較することにより各地の根源岩の特徴を考察する。

また、秋田堆積盆の原油については、女川層および西黒沢層根源岩との対比を行う。秋田～新潟堆積盆の根源岩層については、有機炭素量やロックエバル分析などの根源岩分析やバイオマーカー・炭素同位体組成による対比から、中新統中部～上部の海成頁岩（秋田地域では女川層・西黒沢層、新潟地域では下部寺泊層・七谷層）が主要な根源岩層と考えられている（関口ほか, 1984；早稲田・重川, 1990；平井ほか, 1990；天然ガス鉱業会・大陸棚石油開発協会, 1992）。本論文では、原油および根源岩抽出物のバイオマーカー分析結果について因子分析を行い、原油と根源岩を対比する。

さらに、これらの国内原油の根源岩について、その形成年代を考察する。北海道の原油については、海成頁岩起源と非海成（石炭・炭質泥岩）起源があり、海成原油の根源岩は中新統頁岩、非海成原油の根源岩は古第三系石狩層群夾炭層と考えられている（西田ほか, 1997；Waseda and Nishita, 1998）。本論文では、原油のバイオマーカーおよび炭素同位体組成から、各地域の根源岩の年代を比較・検討する。

2. バイオマーカー分析法

根源岩試料については、粉碎済みの試料約 100 g から、ジクロロメタン・メタノール (93:7) 混合溶媒を用いたソックスレー抽出法により、40 時間かけて有機物を抽出した。得られた抽出物は室温にて乾燥し恒量とした。原油については軽質留分を分留除去して沸点 125℃以上の留分を分取した。

得られた根源岩抽出物および原油の重質留分について高速液体クロマトグラフ分析装置（横河電気㈱製 LC100 型）を使用して飽和炭化水素分画成分を分取し、ガスクロマトグラフィー質量分析計（HP5890A/5970B 型）にて分析した。分離カラムは HP ウルトラ 1（長さ 25 m, 内径 0.20 mm,

膜厚 0.33 μm）を用い、スプリットレス法により試料を注入した。昇温条件は、50℃で 1 分保持した後、50℃から 200℃まで 15℃ / 分、200℃から 300℃まで 2℃ / 分で昇温し、300℃で 10 分間保持した。イオン化電圧は 70 eV で、重質飽和炭化水素はスキャン法、ステラン、トリテルパンは選択イオンモニター法により分析した。

3. 秋田・山形地域における原油バイオマーカー指標による根源岩相の推定と原油と根源岩の対比

3.1 原油の因子分析による根源岩相の推定

秋田県および山形県において油・ガス田の坑井および基礎試錐「仁賀保」の産出テスト（石油公団, 1988）から採取した原油 60 試料、地表および海底から採取した油徴 6 試料の計 66 試料についてバイオマーカー分析を行った。試料の採取位置を図 1 に、分析結果を表 1 に示す。

有機物の起源推定や原油と根源岩の対比にはステランの C₂₇, C₂₈, C₂₉ の組成が最もよく使われている。しかし、秋田・山形地域の油・ガス田から採取された原油・油徴試料のステラン組成は三角図上で狭い範囲に入り、海洋藻類を主な

図 1 秋田・山形地域の原油・油徴試料採取位置
図 5, 7, 8 の地域区分も示す。

表 1 秋田・山形地域原油のバイオマーカー分析結果

試料名	産出層名	Pristane/ Phytane	ステラン					トリテルパン								因子スコア		
			C ₂₇ (%)	C ₂₈ (%)	C ₂₉ (%)	C ₂₉ S/(S+R)	Diaste./ Sterane	Ts/ (Ts+Tm)	Tricyc./ Hopane	Norhop./ Hopane	Olean./ Hopane	C ₃₅ /C ₃₄ Homoh.	C ₃₂ S/(S+R)	Olean./ Norhop.	因子 1	因子 2	因子 3	
八森 (混)	船川層	—	45.0	24.7	30.3	(0.65)	(1.44)	0.42	1.01	0.66	0.19	0.92	0.60	0.29	1.90	-0.99	0.81	
南能代	船川層	1.50	40.0	37.7	22.3	0.42	0.26	0.35	0.64	0.70	0.13	0.78	0.57	0.19	-0.95	0.85	-0.87	
富根油微	—	—	42.0	33.0	25.0	(0.45)	(0.22)	0.27	0.57	0.60	0.20	1.22	0.57	0.33	-0.30	-0.73	2.06	
浜口	船川層最下部?	0.96	42.0	35.0	24.0	0.48	0.25	0.33	0.70	0.65	0.13	0.92	0.59	0.20	-0.56	-0.53	1.04	
男鹿半島五里合安田沖海底油微	—	—	40.0	34.0	25.0	(0.52)	(0.33)	0.34	0.69	0.81	0.14	0.67	0.59	0.17	-0.63	-0.05	-1.09	
男鹿半島女川南方海底油微	—	—	43.0	32.0	25.0	(0.49)	(0.51)	0.44	0.65	0.74	0.16	0.91	0.60	0.22	0.35	-0.08	0.25	
男鹿中	上部天徳寺層	1.75	40.0	34.0	26.0	0.45	0.13	0.19	0.49	0.97	0.10	0.83	0.58	0.10	-2.14	-0.26	-0.36	
申川 a	船川層	1.35	41.1	35.0	23.9	0.47	0.23	0.29	0.72	0.75	0.13	0.77	0.58	0.18	-0.98	0.29	-0.22	
申川 b	船川層	1.51	42.0	33.1	24.9	0.48	0.30	0.33	0.61	0.72	0.14	0.85	0.59	0.19	-0.42	-0.07	0.04	
申川 c	船川層	1.63	42.5	32.5	25.0	0.49	0.32	0.36	0.64	0.65	0.13	0.64	0.59	0.20	0.20	0.29	-1.00	
橋本	—	1.54	41.7	34.2	24.2	0.46	0.21	0.22	0.63	0.86	0.12	0.68	0.60	0.14	-1.55	0.42	-0.48	
琴浜	—	—	36.0	37.1	26.8	(0.46)	(0.24)	0.25	0.63	0.75	0.14	0.81	0.59	0.19	-1.28	-1.11	-1.20	
福米沢	女川層	1.50	41.7	34.4	23.9	0.43	0.22	0.27	0.71	0.78	0.14	0.89	0.58	0.18	-1.16	0.51	0.30	
西大湯	船川層	1.35	43.6	33.0	23.5	0.50	0.28	0.26	0.92	0.79	0.17	0.93	0.61	0.21	-0.88	0.98	1.00	
福川	船川層	1.45	44.5	32.7	22.8	0.51	0.25	0.24	0.85	0.71	0.14	0.91	0.54	0.20	-0.87	1.17	1.20	
豊川	女川層	—	45.7	30.4	24.0	(0.66)	(2.09)	0.35	0.58	0.57	0.15	0.87	0.56	0.27	0.54	-0.01	1.23	
浦山	女川層	—	44.5	32.6	22.9	(0.54)	(0.66)	0.38	0.73	0.70	0.18	0.67	0.60	0.26	0.26	0.91	-0.26	
黒川合同	女川層	—	40.2	34.9	24.9	(0.45)	(0.31)	0.26	0.68	0.61	0.16	0.84	0.56	0.27	-0.52	-0.28	-0.03	
道川	女川層	—	—	—	—	(0.85)	—	0.33	0.70	0.65	0.17	0.91	0.56	0.26	-0.20	0.01	0.32	
濁川合同	船川層	—	39.9	35.8	24.3	0.42	0.26	0.32	0.68	0.69	0.15	0.78	0.56	0.22	-0.60	0.06	-0.67	
旭川合同(18坑)	船川層	1.56	40.0	32.4	27.6	0.54	0.48	0.36	0.72	0.64	0.18	0.78	0.57	0.28	0.50	-0.70	-0.97	
北秋田合同	女川層	1.66	42.1	34.5	23.4	0.48	0.29	0.34	0.84	0.65	0.19	0.79	0.57	0.29	-0.01	1.26	-0.66	
外旭川	女川層	1.50	42.4	34.1	23.5	0.41	0.20	0.30	0.58	0.62	0.16	0.90	0.58	0.25	-0.37	0.21	0.47	
高野合同	女川層	1.51	42.4	34.6	23.0	0.40	0.18	0.31	0.68	0.61	0.17	1.07	0.57	0.27	-0.45	0.57	1.11	
八橋合同(浅層)	桂根層	1.55	43.1	33.3	23.7	0.47	0.33	0.42	0.66	0.62	0.18	0.68	0.58	0.30	0.68	0.64	-0.88	
八橋合同(深層)	女川層	1.38	40.4	35.4	24.2	0.47	0.23	0.34	0.82	0.64	0.21	0.95	0.57	0.32	-0.11	0.30	0.03	
新屋合同	女川層	1.45	41.3	34.2	24.4	0.45	0.25	0.36	1.02	0.71	0.21	0.93	0.57	0.30	-0.01	0.97	-0.12	
仁井田	女川層	1.18	41.1	35.8	23.1	0.39	0.21	0.32	0.50	0.65	0.12	0.70	0.56	0.19	-0.71	-0.35	-0.19	
豊岩	女川層	1.16	40.5	34.7	24.8	0.36	0.20	0.34	0.44	0.61	0.12	0.82	0.54	0.20	-0.35	-1.21	0.22	
土崎沖混合	下部天徳寺, 女川層	1.34	43.5	33.4	23.1	0.43	0.30	0.37	0.80	0.74	0.21	0.79	0.60	0.29	0.05	0.82	0.04	
桂根混合	桂根層, 女川層	1.67	39.6	35.7	24.7	0.33	0.17	0.35	0.56	0.66	0.14	0.87	0.55	0.21	-0.47	0.05	-0.79	
北道川沖	—	1.50	41.1	36.5	22.4	0.38	0.23	0.32	0.67	0.70	0.15	0.75	0.57	0.22	-0.81	0.90	-0.66	
羽川	船川層	1.57	41.1	35.4	23.5	0.36	0.19	0.34	0.61	0.57	0.15	0.86	0.58	0.27	-0.15	0.37	-0.29	
田中	—	1.62	40.9	33.3	25.7	0.49	0.38	0.43	0.79	0.59	0.17	0.71	0.58	0.28	0.83	0.30	-1.46	
勝手	—	1.52	40.9	34.5	24.7	0.32	0.17	0.34	0.55	0.63	0.14	0.84	0.52	0.22	-0.26	-0.21	-0.26	
小友川油微	—	—	41.0	33.0	26.0	(0.53)	(0.37)	0.33	0.93	0.71	0.20	1.00	0.57	0.28	-0.06	0.05	0.39	
前郷油微	—	1.21	41.0	36.0	23.0	0.38	0.19	0.28	0.73	0.71	0.20	—	0.57	0.28	-0.80	0.24	0.29	
新子吉川	女川層	1.51	43.0	34.7	22.4	0.34	0.20	0.34	0.82	0.72	0.18	1.17	0.56	0.25	-0.66	1.25	1.41	
黒沢	西黒沢層	1.32	42.0	34.0	23.0	0.47	0.36	0.43	0.66	0.78	0.21	1.00	0.57	0.27	-0.05	0.35	0.52	
新鮎川	女川層	1.41	40.8	36.6	22.6	0.37	0.23	0.37	0.83	0.72	0.19	0.88	0.56	0.27	-0.51	1.09	-0.38	
由利原 a	西黒沢層	1.52	43.0	34.0	23.0	0.45	0.40	0.40	0.82	0.68	0.20	0.71	0.59	0.29	0.33	1.24	-0.79	
由利原 b	西黒沢層	1.47	43.0	33.0	24.0	0.45	0.37	0.42	0.57	0.65	0.18	—	0.57	0.28	0.48	0.11	0.03	
由利原 c	西黒沢層	1.29	45.0	34.0	22.0	0.50	0.43	0.44	0.83	0.65	0.21	—	0.58	0.32	0.52	1.27	0.43	
白雪川	船川層	1.33	41.0	36.0	23.0	0.51	0.39	0.31	0.81	0.76	0.25	—	0.62	0.33	-0.51	0.70	-0.15	
白雪川	女川層	1.24	39.0	36.0	24.0	0.50	0.37	0.32	0.69	0.74	0.23	—	0.60	0.31	-0.51	-0.24	-0.32	
白雪川南	船川層	1.28	40.0	35.0	25.0	0.49	0.48	0.39	0.69	0.69	0.20	0.69	0.61	0.29	0.20	-0.31	-1.15	
白雪川南	女川層	1.24	42.0	33.0	25.0	0.40	0.19	0.25	0.39	0.94	0.14	1.00	0.56	0.15	-1.64	-1.08	1.43	
子吉川河原 (猿倉油微)	—	—	—	—	—	—	—	0.35	0.44	0.67	0.19	0.90	0.56	0.28	-0.05	-0.64	0.29	
院内 (合同?)	—	0.99	40.0	36.0	24.0	0.54	0.42	0.33	0.71	0.60	0.24	0.85	0.58	0.40	0.05	-0.65	0.17	
院内	—	1.17	44.0	33.0	23.0	0.53	0.33	0.32	0.60	0.71	0.19	0.73	0.59	0.27	-0.17	0.04	0.50	
桂坂	—	1.35	40.0	35.0	25.0	0.42	0.34	0.33	0.52	0.56	0.18	1.06	0.59	0.33	-0.09	-0.92	0.75	
小滝 (合同?)	—	1.40	39.0	36.0	26.0	0.47	0.27	0.30	0.63	0.68	0.18	0.80	0.58	0.26	-0.49	-0.68	-0.79	
上浜 (合同?)	—	1.50	37.0	36.0	27.0	0.46	0.40	0.29	0.66	0.78	0.19	0.78	0.58	0.24	-0.74	-0.84	-1.45	
新象潟	船川層	1.06	37.0	35.0	28.0	0.47	0.25	0.35	0.52	0.76	0.17	—	0.53	0.22	-0.39	-2.31	-0.53	
新象潟	女川層	1.23	35.0	35.0	30.0	0.46	0.25	0.35	0.54	0.73	0.18	—	0.58	0.25	-0.12	-2.74	-1.27	
基礎試験(仁賀保)	女川層	1.20	41.0	26.0	34.0	0.34	0.15	0.24	0.27	0.74	0.23	0.93	0.53	0.31	-0.53	-2.03	1.05	
基礎試験(仁賀保)	青沢層	1.35	33.0	42.0	24.0	0.51	0.20	0.30	0.92	0.70	0.23	0.94	0.60	0.33	-0.21	0.63	0.48	
吹浦	—	1.67	40.4	35.6	24.1	0.49	0.32	0.38	0.73	0.67	0.19	0.81	0.59	0.28	-0.03	0.76	-1.14	
豊岡	草薙層	1.11	46.0	33.0	21.0	0.38	0.30	0.43	0.86	0.54	0.36	1.14	0.58	0.67	1.45	1.04	2.13	
鳥海原油	—	—	43.8	27.9	28.3	(0.47)	(1.58)	0.32	0.35	0.46	0.24	1.21	0.59	0.51	1.40	-2.46	2.53	
樽橋	—	—	48.7	28.4	22.9	(0.64)	(2.11)	0.44	0.60	0.50	0.28	1.03	0.60	0.56	1.98	0.41	2.17	
石名坂合同(14坑)	—	—	50.0	25.9	24.1	(0.66)	(2.09)	0.44	0.75	0.55	0.28	0.91	0.57	0.51	2.30	0.54	1.94	
砂越	—	1.67	43.6	32.5	23.8	0.52	0.60	0.56	1.29	0.58	0.39	0.77	0.62	0.67	2.75	2.37	-1.66	
新堀	—	1.48	39.2	36.1	24.7	0.44	0.35	0.45	0.82	0.63	0.29	0.87	0.55	0.46	0.88	0.33	-1.27	
余目販売用	—	1.56	43.3	32.3	24.3	0.49	0.44	0.47	1.05	0.57	0.31	0.90	0.60	0.54	1.78	1.28	-0.42	
新舟形	古口層	1.12	40.0	34.0	26.0	0.43	0.36	0.41	0.37	0.57	0.35	0.77	0.57	0.61	1.51	-1.96	-0.56	

—: not detected

() 付きのデータ: 微生物分解作用の影響を受けていると推定されるため, 因子分析には不使用。

Diaste./Sterane: C₂₇ 13β,17α-diacholestane (20S+20R)/C₂₇ 5α, 14α, 17α-cholestane (20S+20R)C₂₇, C₂₈, C₂₉: 5α-20RTricyc.: C₂₈+C₂₉ Tricyclic terpene 22S+22R Hopane: 17α (H), 21β (H)-hopaneC₂₉ S/(S+R): 5α 20S/(20S+20R)

Norhop.: 17α (H), 21β (H)-30-norhopane

Homoh.: 17α (H), 21β (H) Homohopane 22S+22R

Olean.: 18α (H)-oleanane

C₃₂ S/(S+R): 17α (H), 21β (H) 22S/(22S+22R)

図2 原油の C_{27} , C_{28} , C_{29} ステランの相対組成
堆積環境の区分は Huang and Meinschein (1979) による。

起源とすることは分かるが、地域的な違いは認められない (図2)。ただし、さらに多くのバイオマーカー指標を加えて統計的に解析すれば、より詳細な根源岩相の地域的な差が現れる可能性がある。そこで、バイオマーカー・データを使った多変量解析 (因子分析) を行った。解析には汎用統計解析ソフト (StatSoft 社製 Statistica) を用いた。

3.1.1 因子分析の手順・方法

原油のバイオマーカー組成に影響する主要な要因には有機物起源および根源岩相の他に熟成度、微生物分解がある。今回は微妙な根源岩相の違いを検出することが目的であるため、Peters *et al.* (2005) などを参考にして根源岩相を主に反映するとされる以下の10指標を選択した。

プリスタン/フィタン, C_{27} ステラン%, C_{28} ステラン%, C_{29} ステラン%, ジアステラン/ステラン, $Ts/(Ts+Tm)$, トリサイクリックテルパン/ C_{30} ホパン, ノルホパン/ C_{30} ホパン, オレアナンの/ C_{30} ホパン, C_{35}/C_{34} ホモホパン

微生物分解作用の影響により測定不能の場合や測定値は得られても明らかに微生物分解作用の影響があると判断したデータは因子分析に使用せず、欠損値として全試料の平均値で代用した。

上記の指標のうち、 $Ts/(Ts+Tm)$ やジアステラン/ステランは根源岩相に加えて熟成度の影響を受けるといわれ

図3 根源岩相を主に示すとされるバイオマーカー10指標と熟成度2指標の計12指標による因子分析 (因子負荷図)

PRPH: プリスタン/フィタン, $C_{27}: C_{27}/(C_{27}+C_{28}+C_{29})$ ステラン, $C_{28}: C_{28}/(C_{27}+C_{28}+C_{29})$ ステラン, $C_{29}: C_{29}/(C_{27}+C_{28}+C_{29})$ ステラン, DIASTE: ジアステラン/ステラン, TRICYCL: トリサイクリックテルパン/ C_{30} ホパン, TSTM: $Ts/(Ts+Tm)$, OLEAN: オレアナンの/ C_{30} ホパン, NORHOP: C_{29} ノルホパン/ C_{30} ホパン, $C_{35}/C_{34}: C_{35}/C_{34}$ ホモホパン, STESR: C_{29} ステラン $20S/(20S+20R)$, TRISR: C_{32} トリテルパン $22S/(22S+22R)$

ている (Peters *et al.*, 2005)。そこで各指標に熟成度の影響があるかどうかを確かめるため、これらにステラン熟成指標 $C_{29} 20S/(20S+20R)$, トリテルパン熟成度指標 $C_{32} 22S/(22S+22R)$ を加えた12指標で予備的な因子分析を実施した。ステラン熟成指標 $C_{29} 20S/(20S+20R)$ については、微生物分解の影響を受けていると判断した試料を除いて、0.32から0.54の範囲で変動しており (表1)、地域的な変化については横井ほか (2013) で報告している。

熟成度指標を加えた12指標による因子分析結果 (因子負荷) を図3に示す。ステランとトリテルパンの熟成指標 (図3中のSTESRとTRISR) は、第一因子 (因子1) の負荷は0に近く、因子2に負の負荷を示している。したがって、第二因子 (因子2) は熟成度を反映していると推定される。ジアステラン/ステランはステラン、トリテルパンの熟成指標よりも強い負の負荷を因子2に示しており、根源岩相よりも熟成度の影響を強く受けている可能性が高い。Inaba *et al.* (2001) は、秋田県八橋油田の女川層および船川層泥岩のジアステラン量は粘土鉱物量とともに熟成度にも相関していることを示している。Chakhmakhchev *et al.* (1996) も、秋田～新潟原油の因子分析の結果からジアステラン量は熟成度に主に規制されていることを示している。一方、一般に熟成度の影響を受けるとされている $Ts/(Ts+Tm)$ は因子2に強い負荷を示しておらず、今回

用いた試料については熟成度の影響は小さいと判断した。この結果から、10 指標からジアステラン / ステランのみを除いた 9 指標で最終的な因子分析を行った。

3.1.2 因子分析結果と因子の解釈

9 指標 (プリスタン / フィタン, C_{27} ステラン%, C_{28} ステラン%, C_{29} ステラン%, $Ts/(Ts+Tm)$), トリサイクリックテルパン / C_{30} ホパン, ノルホパン / C_{30} ホパン, オレアナン / C_{30} ホパン, C_{35}/C_{34} ホモホパン) による因子分析の結果, 因子 1 (寄与率 32%), 因子 2 (同 17%), 因子 3 (同 15%) が抽出された。因子 1 と 2 の因子負荷図を図 4 上に, 因子 1 と 3 の因子負荷図を図 4 下に示す。

(1) 因子 1

因子 1 に強い正の負荷を示すのは $Ts/(Ts+Tm)$ とオレアナン / C_{30} ホパン, 負の負荷を示すのが C_{28} ステラン% とノルホパン / C_{30} ホパンである。オレアナンは陸上被子植物が主な起源とされるが, 原油中のオレアナン含有量は

陸上植物の寄与量には必ずしも相関しない。Murray *et al.* (1994) は, 炭素同位体組成から陸上植物の寄与は小さいと推定される海成根源岩起源の原油にオレアナンが多く含まれる場合があることを報告している。その原因として, 植物起源有機物と海水との接触がオレアナンの保存を促進することが指摘されている (Murray *et al.*, 1997)。また, $Ts/(Ts+Tm)$ は泥質岩で高く, 炭酸塩岩で低いことが分かっている (Price *et al.*, 1987)。

海成根源岩起源と考えられる原油においては C_{28}/C_{29} ステランが地質時代とともに増加していることから, C_{28} ステランは, ジュラ紀や白亜紀における珪藻や円石藻, 渦鞭毛藻を含む植物プランクトンの多様性の増大と関連している可能性がある (Grantham and Wakefield, 1988)。秋田地域原油の根源岩として考えられている女川層頁岩は全体的に珪質である (辻ほか, 1991; 渡部ほか, 1995; 早稲田ほか, 1995) ことから, C_{28} ステラン% は珪質であるほど高い可能性がある。また, ノルホパン / ホパンは炭酸塩根源岩や蒸発岩で高いといわれている (Clark and Philp, 1989)。以上の考察から因子 1 については岩質の違い [碎屑質 (粘土質) vs. 非碎屑質 (石灰質 / 珪質)] を主に反映していると解釈した。

(2) 因子 2

因子 2 に強い負荷を示す指標はトリサイクリックテルパン / C_{30} ホパンと C_{29} ステラン% である (図 4 上)。トリサイクリックテルパンは湖成および海成根源岩に広く含まれる (Peters *et al.*, 2005)。一方, C_{29} ステランの前駆体である C_{29} ステロールは現世の陸上植物や陸源有機物に多く含まれる (Huang and Meinschein, 1979)。したがって, 因子 2 は起源有機物の違い (海洋藻類 vs. 陸上植物) を主に反映していると解釈した。

(3) 因子 3

因子 1 と因子 2 に負荷がほぼ 0 で因子 3 に強い負荷を示すのは C_{35}/C_{34} ホモホパンである (図 4 下)。この指標は海洋堆積物の続成における酸化還元電位を反映し, この指標が高いほど還元的であったことを示す (Peters and Moldowan, 1991)。プリスタン / フィタン (Pr/Ph) も堆積場の酸化還元環境の指標として使われており, 酸化的環境ほどこの指標は高くなる (例えば Didyk *et al.*, 1978)。因子分析の結果では, 因子 3 に強くはないが負の負荷を示している。以上の結果から因子 3 は堆積場の酸化還元環境を反映していると解釈した。

Pr/Ph は因子 2 (有機物の起源) にも正の負荷を示している。一般に陸上植物起源の寄与が多いほど, 酸化的環境である可能性が高いため, Pr/Ph が高いほど陸上植物の寄与が大きくなると予想される。しかし, 因子分析の結果は逆になっている。この原因は不明であるが, プリスタンおよびフィタンには複数の起源が考えられている (Peters *et al.*, 2005) ことと関連しているかもしれない。

3.1.3 各原油試料の根源岩相

各原油試料における因子 1 と因子 2 のスコアを表 1 と図 5 に示す。因子 1 の違いにより, 0.85 以上を示す山形堆積

図 4 秋田・山形地域における原油の因子分析結果 (因子負荷図)

上図: 因子 1 と因子 2, 下図: 因子 1 と因子 3, 指標の略号は図 3 と同じ。

盆と0.85以下を示す秋田堆積盆の原油に分かれる。山形堆積盆の原油は秋田堆積盆に比べて碎屑質な根源岩から生成し、秋田堆積盆の原油はより珪質 / 石灰質な根源岩から生成したと推定される。

秋田堆積盆の原油は、因子2に強い負の負荷を示す仁賀保地域のいくつかの試料や山形原油と同様な領域にプロットされる北秋田地域の八森油田を除いて、比較的狭い領域に入る。しかし、詳細にみると地域的な違いが認められる。因子1を三分割、因子2を二分割して6種類に分類したところ地域による特徴がみられた(図5, 6)。分割値(因子1の0と0.85, 因子2の0.1)は地域的な違いが出るように試行錯誤で決定した。各地域における原油を生成した根源岩の特徴は以下のようにまとめられる。

- (1) 秋田地域は山形地域よりも珪質 / 石灰質である。
- (2) 湖西は北秋田, 男鹿に比べて海洋有機物に富む。
- (3) 八橋周辺では、西側の背斜系列が東側の背斜系列に比べて海洋有機物に富む根源岩から生成したと推定される。この地域の根源岩分布域は東西両系列の間の向斜部と西系列の西側の向斜部が考えられる。西側の向斜部の根源岩は両系列の間の向斜部の根源岩よりも海洋有機物に富み、西系列のみに油を供給した可能性がある。
- (4) 鮎川・由利原地域と仁賀保地域では、東側の鮎川・由利原地域の方が海洋有機物に富む。この位置関係は、前述の八橋周辺とは逆である。この理由は明確ではないが、根源岩堆積時の海底地形の違いや水深の違いなどにより海洋藻類と陸上植物の寄与率が変化した可能性が考えられる。
- (5) 鮎川地域は山形地域よりも珪質 / 石灰質である。

3.2 因子分析による原油と根源岩(女川層, 西黒沢層)の対比

秋田堆積盆の原油の根源岩層としては、女川層が有機物の量・質ともに最も優秀である(早稲田・重川, 1990)。しかし、その下位の西黒沢層泥岩も地域によっては高い根源岩能力を示す(天然ガス鉱業会・大陸棚石油開発協会, 1992)。そこで、鮎川・由利原地域坑井の女川層および西黒沢層コアの根源岩抽出物についてバイオマーカーの因子分析結果に基づき、原油との対比を行った。前節の原油の因子分析に使った9指標のうち、原油に比べて根源岩抽出物では欠損値が多いプリスタン / フィタンと C_{35}/C_{34} ホモホパンを除いた7指標により因子分析を行った。

因子負荷図を図7の左上に示す。因子1はノルホパン / C_{30} ホパンが大きな正の負荷を示し、 $Ts/(Ts + Tm)$ およびオレアナン / C_{30} ホパンが負の負荷を示す。この結果は、正負が逆であることと C_{28} ステラン%が負荷を示さないことを除いて原油のみの因子分析の因子1と同じ傾向である。3.1.2項で考察した各指標の特徴から、ここでの因子1は石灰質か碎屑質かを示す因子と解釈した。因子2は C_{27} ステラン%, C_{28} ステラン%が大きな正と負の負荷を示す。 C_{27} ステランの前駆体である C_{27} ステロールは現世の海洋プランクトンに多く含まれる(Huang and Meinschein,

図5 秋田・山形地域における原油の因子分析結果(因子1と因子2のスコア・プロット)

図6 秋田・山形地域における原油の因子分析結果からみた根源岩の分類結果

1979)。前述したように C_{28} ステランは珪藻の寄与を示す指標と考えられる。したがって、藻類における珪藻の寄与の大きさが主な因子と解釈した。

各試料の因子スコアを図7に示す。根源岩は西黒沢層と女川層で異なる因子負荷を示し、西黒沢層は女川層に比べて珪藻以外の藻類からの寄与が大きく、より石灰質であると解釈できる。秋田地域の原油は女川層根源岩と図7における分布範囲がほぼ重なり、両者は対比されるが、西黒沢層には対比されない。また、山形地域の原油は秋田地域より碎屑質な根源岩から生成したと推定される。この結果は前項でみた原油のみの因子分析の結果と一致している。

3.3 原油因子分析の因子1と因子2を代表する指標の抽出

秋田・山形原油の因子分析では、因子1は根源岩の岩質の違い（碎屑質 vs. 珪質 / 石灰質）を反映すると解釈した。因子1に正および負の強い負荷を示す指標はオレアナ / C_{30} ホパンとノルホパン / C_{30} ホパンである。両指標は因子2（海洋藻類 vs. 陸上植物）と因子3（還元的 vs. 酸化的）にはほとんど負荷を示さない（図4）。オレアナ / C_{30} ホパンが、因子2に負荷を示さないことは、その起源とされる陸上被子植物の寄与率を反映していないことを示す。以上の考察から因子1に正の負荷を示すオレアナ / C_{30} ホ

図7 鮎川・由利原油・ガス田の女川層および西黒沢層コア試料と原油の因子分析による原油－根源岩対比

パンと負の負荷を示すノルホパン / C_{30} ホパンの比（オレアナ / ノルホパン）は、海成根源岩の岩質の違いを表す指標として広く使える可能性がある。

同様に、因子2については、 C_{29} ステラン%が最も強い負荷を示しており、因子1および3に対する負荷は小さい（図4）。トリサイクリックテルパン / C_{30} ホパンも C_{29} ステラン%に次いで因子2に高い負荷を示しており因子1および3に対する負荷も小さいが、熟成度の影響が比較的強い（図3）。したがって、 C_{29} ステラン%が起源有機物の違い（海洋藻類 vs. 陸上植物）を表す指標として最も有効と考えられる。

秋田・山形原油について横軸にオレアナ / ノルホパン、縦軸に C_{29} ステラン%を取った結果を図8に示す。データは因子スコア・プロットの結果（図5）と同様な分布を示すことから、この二成分図が海成根源岩の分類に有効と考えられる。

4. 新潟、北海道～常磐沖、静岡地域における原油バイオマーカーによる根源岩相の推定

4.1 新潟地域

新潟地域の27坑井から採取した原油のバイオマーカー分析データを表2に示す。オレアナ / ノルホパンと C_{29} ステラン%の関係を図9に示す。オレアナ / ノルホパンは平井ほか（1995）で頸城型原油と新津型原油の分類に使われた指標であり、この比が1より高いものを頸城型、1より低い原油を新津型としている。今回の分析結果では、岩船沖油・ガス田、東新潟ガス田、見附油田、吉井ガス田の原油は新津型に分類される（図9）。一方、藤川ガス田、

図8 秋田・山形地域における原油のノルホパン / オレアナと C_{29} ステラン%の関係

図5との比較の関係から C_{29} ステラン%は軸を反転（上ほど低い値に）して示している。

雲出ガス田、片貝ガス田の原油は 8 試料中 6 試料のオレアナ／ノルホパンが 1 以上で頸城型と判断される。残り 2 試料は 0.8 から 1 の間を示しており、今回の分析結果では、頸城型と新津型の境界は 0.8 付近が適当と考えられる。

平井ほか（1995）は、頸城型と新津型はステラン C_{27} 、 C_{28} 、 C_{29} の三角ダイアグラム上で 2 つには分かれられないものの頸城型は新津型に比べて C_{29} ステランに富む傾向が認められることから、頸城型は新津型よりも相対的に陸源有機物の供給が大きい根源岩から生成した油であるとしている。今回の分析結果でもステラン C_{27} 、 C_{28} 、 C_{29} の三角ダイアグラム上で同様な分布が認められる（図 2）。また、図 9 の新潟地域原油では、新津型（オレアナ／ノルホパン < 0.8）の C_{29} ステラン％は 20.8 ～ 28.1、頸城型（オレアナ／ノルホパン > 0.8）が 26.4 ～ 32.0 を示し、新津型が頸城型よりも海洋藻類の寄与が全般的に高く、オレアナ／ノルホパンと C_{29} ステラン％の間には正の相関関係が認められる。一方、前述したように秋田・山形原油の因子分析の結果ではオレアナ／ノルホパンは有機物の起源よりも岩質を反映していると考えられ、オレアナ／ノル

ホパンと C_{29} ステラン％の間には相関関係が認められない（図 8、9）。山形地域の原油は新潟地域の新津型原油とほぼ同じオレアナ／ノルホパンおよび C_{29} ステラン％を示している。秋田地域の原油は新潟の新津型原油よりもオレアナ／ノルホパンがさらに低く、珪質／石灰質な根源岩から生成したと解釈される（図 9）。新潟地域の頸城型原油では、秋田・山形地域よりも海洋藻類起源有機物の寄与が低く、より碎屑質な根源岩になることによって、秋田・山形地域では認められなかったオレアナ／ノルホパンに対する有機物起源の影響（海洋藻類に対する陸上植物起源の寄与の増加）が顕著になり、新潟地域全体においてオレアナ／ノルホパンと C_{29} ステラン％との間に相関関係が現れてきたと推定される。

加藤ほか（2017）は、東山油田周辺における原油についてオレアナ／ノルホパンから大面油田、見附油田、東山油田は新津型、西長岡油・ガス田は頸城型であることを示している。今回の結果と平井ほか（1995）、加藤ほか（2017）の結果をまとめて、新潟堆積盆における新津型と頸城型原油の分布を図 10 に示す。新潟地域の北東側が新津型、南

表 2 新潟地域原油のバイオマーカー分析結果

試料名	産出層名	Pristane/ Phytane	ステラン				トリテルパン						
			C_{27} (%)	C_{28} (%)	C_{29} (%)	C_{29} S/(S+R)	Ts/ (Ts+Tm)	Tricyc./ Hopane	Norhop./ Hopane	Olean./ Hopane	C_{35}/C_{34} Homoh.	C_{32} S/(S+R)	Olean./ Norhop.
岩船沖 a	西山層	2.99	38.2	36.9	24.9	0.48	0.29	0.84	0.59	0.23	—	0.57	0.39
岩船沖 b	西山層	1.76	39.4	33.5	27.1	0.46	0.35	0.74	0.59	0.27	0.73	0.61	0.47
岩船沖 c	西山層	1.45	39.5	33.9	26.6	0.47	0.37	0.79	0.55	0.27	0.78	0.62	0.49
岩船沖 d	西山層	1.47	39.5	33.0	27.5	0.47	0.36	0.79	0.57	0.27	0.91	0.61	0.47
岩船沖 e	西山層	1.46	43.9	33.9	22.2	0.50	0.41	0.91	0.51	0.29	0.76	0.60	0.57
岩船沖 f	西山層	1.46	40.9	34.5	24.7	0.51	0.35	0.73	0.52	0.26	0.76	0.59	0.50
東新潟 a	椎谷層	1.67	39.8	34.5	25.7	0.50	0.40	0.70	0.58	0.25	0.84	0.59	0.43
東新潟 b	椎谷層	1.52	38.1	36.1	25.8	0.51	0.42	0.67	0.60	0.26	0.63	0.59	0.44
東新潟 c	椎谷層	1.36	40.2	33.4	26.5	0.49	0.39	0.50	0.51	0.23	0.86	0.58	0.45
東新潟 d	椎谷層	1.96	48.6	30.7	20.8	0.46	0.46	1.11	0.71	0.27	0.76	0.59	0.38
東新潟 e	椎谷層	2.00	46.6	30.5	22.9	0.46	0.46	1.06	0.66	0.27	0.68	0.57	0.41
東新潟 f	椎谷層	2.57	45.1	31.8	23.0	0.48	0.47	0.90	0.63	0.24	0.72	0.54	0.39
見附 a	椎谷層	1.43	37.1	35.8	27.2	0.34	0.45	0.34	0.49	0.28	0.78	0.57	0.57
見附 b	下部寺泊層	0.95	42.9	34.8	22.3	0.35	0.49	0.47	0.58	0.24	0.75	0.56	0.41
見附 c	七谷層	2.02	36.8	35.1	28.1	0.44	0.51	0.45	0.47	0.31	0.74	0.57	0.65
見附 d	七谷層	1.51	37.6	35.8	26.6	0.46	0.50	0.45	0.44	0.30	0.77	0.56	0.67
藤川 a	椎谷層	4.08	44.8	27.5	27.7	0.51	0.58	0.57	0.57	0.48	0.80	0.59	0.85
藤川 b	上部寺泊層	2.50	38.6	29.5	32.0	0.57	0.59	0.29	0.45	0.63	0.54	0.56	1.39
雲出 a	西山層	2.03	44.3	29.4	26.4	0.55	0.58	0.50	0.46	0.52	0.57	0.60	1.14
雲出 b	西山層	1.15	37.4	34.2	28.4	0.50	0.61	0.43	0.48	0.58	0.49	0.58	1.21
吉井 a	七谷層	1.79	46.4	28.1	25.4	0.47	0.55	0.71	0.78	0.36	1.18	0.61	0.46
吉井 b	七谷層	0.53	47.6	30.9	21.5	0.49	0.47	0.60	0.72	0.30	0.85	0.59	0.42
吉井 c	七谷層	0.79	44.8	31.3	23.9	0.52	0.57	0.79	0.65	0.46	0.81	0.61	0.71
片貝 a	上部寺泊層	1.31	41.3	32.0	26.7	0.51	0.61	0.50	0.48	0.68	0.56	0.60	1.43
片貝 b	下部寺泊層	1.49	40.0	32.5	27.5	0.57	0.59	0.64	0.56	0.67	0.50	0.60	1.20
片貝 c	下部寺泊層	1.96	34.9	34.9	30.2	0.54	0.48	0.34	0.52	0.58	0.70	0.58	1.13
片貝 d	下部寺泊層	1.07	36.1	33.6	30.4	0.53	0.56	0.37	0.46	0.43	0.74	0.57	0.93
— : not detected			Tricyc.: $C_{28} + C_{29}$ Tricyclic terpane 22S+22R				Hopane: 17 α (H), 21 β (H) -hopane						
C_{27} , C_{28} , C_{29} : 5 α -20R			Norhop.: 17 α (H), 21 β (H) -30-norhopane				Homoh.: 17 α (H), 21 β (H) Homohopane 22S+22R						
C_{29} S/(S+R): 5 α 20S/(20S+20R)			Olean.: 18 α (H) -oleanane				C_{32} S/(S+R): 17 α (H), 21 β (H) 22S/(22S+22R)						

4.2 北海道～三陸沖～常磐沖

厚田・茨戸油田原油のステラン C_{27} , C_{28} , C_{29} 組成は秋田・

4.3 静岡・相良油田周辺

静岡県相良油田は本邦太平洋岸唯一の油田である。産油層は、中新統相良層群最下部時ヶ谷層の砂礫岩である（天然ガス鉱業会・大陸棚石油開発協会，1992）。相良油田の原油については，2002年に海洋科学技術センター（現：海洋研究開発機構）および静岡大学が共同で掘削した「相良学術ボーリング」と相良油田の旧坑井から採取された原油6試料（相良原油）についてバイオマーカー分析データが報告されている（Kato *et al.*, 2006）。ステラン

C₂₇, C₂₈, C₂₉ 炭素数分布は秋田～新潟原油に近い組成を示し、海成根源岩から生成したことを示す (図 2)。ただし、秋田～新潟原油および北海道の海成原油のほとんどのステラン C₂₈/C₂₉ が 1 以上であるのに対して、相良油田周辺原油は 1 以下となっている。海成根源岩起源原油のステラン C₂₈/C₂₉ は地質時代が新しくなるほど高くなる傾向がある (Grantham and Wakefield, 1988)。このことは、相良油田周辺原油は秋田～新潟原油よりも時代的に古い根源岩から生成した可能性が高いことを示す。根源岩の年代については、次章で炭素同位体組成からさらに考察する。

オレオナン / ノルホパンは 1.3 ～ 1.5 を示し、新潟の頸城型原油と同様に比較的碎屑質な根源岩から生成されたと推定される (図 9)。C₂₉ ステラン % からみた起源有機物は、他の地域に比べて最も陸上植物の寄与が大きいことを示す (図 9)。また、プリスタン / フィタンは新潟地域原油よりも高い値を示し、より酸化的環境で根源岩が堆積したことを示す (Kato *et al.*, 2006)。Yessalina *et al.* (2006) は、相良原油について植物起源バイオマーカーを多く含むことなどから、沿岸から河川 - デルタ成の碎屑質根源岩から生成したと推定している。

5. 原油の炭素同位体組成からみた根源岩の年代

原油の炭素同位体組成はその原油を生成した根源岩の炭素同位体組成と密接に関連している。根源岩の炭素同位体組成は地質年代が新しくなるにしたがって値が重くなる傾向がある。Andrusevich *et al.* (1998) は、過去 6 億年間

を 13 の区間に分け、根源岩の年代や堆積環境が地質・地化学データから推定されている原油 514 試料の飽和炭化水素の炭素同位体組成を測定した。その結果、海洋泥岩、炭酸塩岩、石炭などの有機物相にはほぼ関係なく、時代による $\delta^{13}\text{C}$ 値の変化が認められ、カンブリア紀 / オルドビス紀、三疊紀 / ジュラ紀、古第三紀 / 新第三紀の境界で $\delta^{13}\text{C}$ 値が正にシフトしていることが分かった (図 11)。このシフトの原因は必ずしも明らかではないが、有機質の膜から石灰質の殻、珪酸質の殻というように植物プランクトンの殻のタイプの進化との関連が指摘されている (Andrusevich *et al.*, 1998)。

秋田～新潟の原油の飽和炭化水素 $\delta^{13}\text{C}$ 値は -23.9 ～ -21.6‰ で (早稲田, 1993) 新第三紀原油の組成範囲に入る (図 11)。また、前述したように海成頁岩起源と考えられる北海道の厚田・茨戸油田原油の飽和炭化水素 $\delta^{13}\text{C}$ 値は -23.4 と -22.8‰ (Waseda and Nishita, 1998) で秋田～新潟原油の組成範囲に入り、同時代 (中新統) の根源岩から生成したことを支持する。一方、勇払油・ガス田、平取油田、軽舞油田などの北海道道央部の夾炭層起源の原油の飽和炭化水素 $\delta^{13}\text{C}$ 値は -27.8 ～ -26.4‰ を示す (Waseda and Nishita, 1998)。この値は古第三紀原油の組成範囲に入っており、石狩層群夾炭層が根源岩であることを支持する。同様にステラン組成から陸上植物起源と推定される基礎試錐「三陸沖」の原油は -26.3 ～ -26.0‰ の飽和炭化水素 $\delta^{13}\text{C}$ 値を示し (石油公団, 2000)、やはり古第三系夾炭層が根源岩の可能性が高いことを示す。

図 11 原油の飽和炭化水素・炭素同位体組成の地質年代における変化と国内原油の炭素同位体の組成範囲

() 内: 試料の個数。北海道原油については Waseda and Nishita (1998) から油徴・温泉井・炭田からの試料を除いた石油坑井からのデータのみを使用。

相良油田周辺地域の原油の飽和炭化水素 $\delta^{13}\text{C}$ は -25.8 ~ -25.1% を示し (Kato *et al.*, 2006), 古第三系根源岩を示唆する。また, 同じ古第三系でも基礎試錐「三陸沖」の根源岩よりも飽和炭化水素 $\delta^{13}\text{C}$ は重く, より若い年代の根源岩である可能性を示唆する。前述したようにステラン $\text{C}_{28}/\text{C}_{29}$ から相良地域の原油は秋田~新潟原油よりも時代的に古い根源岩から生成した可能性が高いと示唆されることと, この結果は整合的である。上田ほか (2007) はバイオマーカー組成などと石油生成シミュレーションにより古第三系三倉層群から相良地域の原油が生成したと推定している。また, 加藤ほか (2009) は, 油・ガスの地化学性状や石油地質から総合的に検討した結果, 相良原油は古第三系瀬戸川層群から生成したと推定している。これらの結果も炭素同位体組成による結果と整合的である。

6. ま と め

秋田・山形地域の原油のバイオマーカー組成から根源岩相を反映するバイオマーカー指標を選び因子分析を実施した。その結果, 因子 1 は珪質 (珪質 / 石灰質 vs. 碎屑質), 因子 2 は起源有機物 (海洋藻類 vs. 陸上植物), 因子 3 は堆積場の酸化還元環境を反映すると解釈した。因子 1 と因子 2 のクロスプロットにより根源岩相を 6 種類に分類したところ, 地域や背斜系列により根源岩相に以下の違いが認められた。

- (1) 秋田地域は山形地域よりも珪質 / 石灰質である。
- (2) 湖西は北秋田, 男鹿に比べて海洋有機物に富む。
- (3) 八橋周辺では, 西側の背斜系列が東側の背斜系列に比べて海洋有機物に富む。
- (4) 鮎川・由利原地域は仁賀保地域に比べて海洋有機物に富む。
- (5) 鮎川地域は由利原地域よりも珪質 / 石灰質である。

因子 1 を代表するノルホパン / オレアナン, 因子 2 を代表する C_{29} ステラン% で新潟地域, 北海道地域, 静岡・相良油田周辺地域の海成原油の根源岩相を評価し, 以下の結果を得た。

- (1) 秋田地域が最も珪質 / 石灰質である。秋田<山形・新潟 (新津型)・北海道 (厚田・茨戸) <新潟 (頸城型)・相良油田周辺の順に碎屑質な根源岩に変化する。
- (2) 新潟 (頸城型) は, 秋田・山形・新潟 (新津型) に比べて陸上植物の影響が強い傾向がある。相良原油はさらに陸上植物の影響が強い。

北海道道央部の古第三系石狩層群夾炭層分布域には, C_{29} ステランに富む陸上植物起源の油・ガス田が分布する。古第三系および白亜系夾炭層堆積盆は北海道道央から三陸沖~常磐沖まで広く分布しており, 夾炭層中の石炭・炭質泥岩がこれらの地域の石油根源岩となっていると考えられる。原油の炭素同位体組成から相良原油の根源岩は古第三系と推定される。

謝 辞

経済産業省資源エネルギー庁および独立行政法人石油天

然ガス・金属鉱物資源機構, 国際石油開発帝石株式会社, 三菱ガス化学株式会社, JX 石油開発株式会社, 石油資源開発株式会社には本稿の公表を許可していただきました。査読者からは有益なご意見, ご指摘をいただきました。これらの方々に厚く感謝します。

引 用 文 献

- Andruevich, V. E., Engel, M. H., Zumberge, J. E. and Brothers, L. A., 1998 : Secular, episodic changes in stable carbon isotope composition of crude oils. *Chemical Geology*, **152**, 59–72.
- Chakhmakhchev, A., Suzuki, N., Suzuki, M. and Takayama, K., 1996 : Biomarker distributions in oils from the Akita and Niigata basins, Japan. *Chemical Geology*, **133**, 1–14.
- Clark, J. P. and Philp, R. P., 1989 : Geochemical characterization of evaporite and carbonate depositional environments and correlation of associated crude oils in the Black Creek Basin, Alberta. *Canadian Petroleum Geologists Bulletin*, **37**, 401–16.
- Didyk, B. M., Simoneit, B. R. T., Brassell, S. C. and Eglinton, G., 1978 : Organic geochemical indicators of palaeoenvironmental conditions of sedimentation. *Nature*, **272**, 216–222.
- Grantham, P. J. and Wakefield, L. L., 1988 : Variations in the sterane carbon number distributions of marine source rock derived crude oils through geological time. *Organic Geochemistry*, **12**, 61–73.
- 平井明夫・佐藤時幸・高島 司, 1990 : 八橋油田における油の根源岩と生成・移動・集積. 石技誌, **55**(1), 37–47.
- 平井明夫・岡田静子・若松屋伸一・宮本泰行・八戸和巳, 1995 : 有機地球化学的にみた新潟地域における原油とその根源岩の関係. 石技誌, **60**(1), 87–97.
- Huang, W.-Y. and Meinschein, W. G., 1979 : Sterols as ecological indicators. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **43**, 739–745.
- 飯島 東, 1992 : 日本海の開口と第三紀堆積盆の変遷. 石技誌, **57**(2), 171–179.
- Inaba, T., Suzuki, N., Hirai, A., Sekiguchi, K. and Watanabe T., 2001 : Source rock lithology prediction based on oil diacholestane abundance in the siliceous-clastic Akita sedimentary basin, Japan. *Organic Geochemistry*, **32**, 877–890.
- 岩田尊夫・平井明夫・稲場土誌典・平野真史, 2002 : 常磐沖堆積盆における石油システム. 石技誌, **67**(1), 62–71.
- Kato, S., Waseda, A. and Nishita, H., 2006 : Geochemical characteristics of crude oils from the Sagara oil field, Shizuoka Prefecture, Japan. *Island Arc*, **15**, 304–312.
- 加藤 進・早稲田 周・西田英毅・岩野裕継, 2009 : 静岡県相良地域におけるガスの地球化学. 石技誌, **74**(5), 462–471.
- 加藤 進・西田英毅・星 一良, 2017 : 東山油田周辺における原油の地球化学と移動・集積. 石技誌, **82**(3), 171–180.

- Murray, A. P., Summons, R. E., Boreham, C. J. and Dowling, L. M., 1994 : Biomarker and n-alkane isotope profiles for Tertiary oils: relationship to source rock depositional setting. *Organic Geochemistry*, **22**, 521–542.
- Murray, A. P., Sosrowidjojo, I. B., Alexander, R., Kagi, R.I., Norgate, C. M., and Summons, R. E., 1997 : Oleananes in oils and sediments: evidence of marine influence during early diagenesis? *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **61**, 1261–76.
- 西田英毅・早稲田 周・岩野裕継・加藤恵悦, 1997 : 北海道原油の地化学的特徴. 石油資源開発株式会社技術研究所研究報告, **12**, 25–31.
- 大澤正博・中西 敏・棚橋 学・小田 浩, 2002 : 三陸～日高沖前弧堆積盆の地質構造・構造発達史とガス鉱床ポテンシャル. 石技誌, **67**(1), 38–51.
- Peters, K. E. and Moldowan, J. M., 1991 : Effects of source, thermal maturity, and biodegradation on the distribution and isomerization of homohopanes in petroleum. *Organic Geochemistry*, **17**, 47–61.
- Peters, K. E., Walters, C. C. and Moldowan, J. M., 2005 : *The Biomarker Guide. Second Edition*. Cambridge University Press, 1155p.
- Price, P. L., O'Sullivan, T. and Alexander, R., 1987 : The nature and occurrence of oil in Seram, Indonesia. In *Proceedings of the Indonesian Petroleum Association 16th Annual Convention*, 141–173.
- Sakata, S., Suzuki, N. and Kaneko, N., 1988 : A biomarker study of petroleum from the Neogene Tertiary sedimentary basins in northeast Japan. *Geochemical J.*, **22**, 89–105.
- 坂田 将・金子信行・鈴木徳行, 1990 : 東北日本の堆積盆地における油のバイオマーカー. 石技誌, **55**(1), 48–53.
- Schiefelbein, C. F., Zumberg, J. E. and Brown, S. W., 1997 : *Petroleum systems in the Far East*. In *Proceedings of the Petroleum Systems of SE Asia and Australasia Conference*, Indonesian Petroleum Association, 101–113.
- Schiefelbein, C. F., Zumberge, J. E., Cameron, N. R. and Brown, S. W., 2000 : Geochemical comparison of crude oil along South Atlantic margins. In: M. R. Mello and B. J. Katz, eds.: *Petroleum Systems of South Atlantic Margins*, AAPG Memoir **73**, 15–26.
- 関口嘉一・重川 守・平井明夫・宮本泰行, 1984 : 地化学的見地からみた長岡・柏崎地域のグリーンタフ油・ガス鉱床の形成. 石技誌, **49**(1), 56–64.
- 石油公団, 1988 : 昭和 62 年度国内石油・天然ガス基礎調査基礎試錐「仁賀保」調査報告書.
- 石油公団, 2000 : 平成 10 年度国内石油・天然ガス基礎調査基礎試錐「三陸沖」調査報告書.
- 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.
- 鈴木宇耕, 1979 : 東北裏日本海域の石油地質. 石技誌, **44**(5), 291–307.
- 天然ガス鉱業会・大陸棚石油開発協会, 1992 : 日本の石油・天然ガス資源. 520p.
- 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報告, **7**, 45–99.
- 上田広和・三瓶良和・日浦祐樹・石橋正敏, 2007 : 静岡県掛川一相良油田地域における古～新第三系前弧堆積盆地の根源岩と石油システム. 石技誌, **72**(4), 333–346.
- 早稲田 周, 1993 : 東北日本原油の炭素・水素同位体組成と熟成度. 石技誌, **58**(3), 199–208.
- Waseda, A. and Nishita, H., 1998 : Geochemical characteristics of terrestrial- and marine-sourced oils in Hokkaido, Japan. *Organic Geochemistry*, **28**, 27–41.
- 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. 石技誌, **55**(4), 233–244.
- 早稲田 周・辻 隆司・梶原義照・西田英毅, 1995 : 女川層の有機物相と堆積環境—モンテレー層との比較—. 石技誌, **60**(1), 49–61.
- 渡部芳夫・山本正伸・渡辺真人, 1995 : 無機地球化学組成から見た女川珪藻質根源岩相の堆積物組成と古海洋環境. 石技誌, **60**(1), 15–26.
- Yessalina, S., Suzuki, N. and Saito H., 2006 : Geochemical characteristics of Tertiary Sagara oil from an active forearc basin, Shizuoka, Japan. *Island Arc*, **15**, 292–303.
- 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.