秋田縣黒川油田 R 144 号コアー試験について

本 島 公 司*

(昭和 30 年 7 月 26 日受理)

On the Core Analysis of R 144 Well in Kurokawa Oil Field, Akita Prefecture

By

Koji MOTOJIMA

Abstract: Chemical analysis was carried out for the core samples obtained from R 114 well in the Kurokawa oil field, in 1954.

Samples are following eight cores.

Tentokuji dark grey silt stone50 m, 100 m, 150 m in depth.

Funakawa black shale200 m, 250 m, 300 m in depth.

Onnagawa siliceous shale350 m in depth.

Andesite400 m in depth.

Specific gravity of wet core samples, water content, color of H₂O extraction, Cl⁻, HCO₃⁻, NH₄⁺, O₂ and N₂ consumption, SiO₂, TiO₂, Fe₂O₃, Al₂O₃, MgO, CaO, Ignition loss, +H₂O, -H₂O and organic matter were determined. In this core analysis, the most important fact is the correspondence of the boundaries of chemical characters, microbiofacies and lithofacies. The first boundary exists about 150-200 m in depth, and the crude oil exists at 150 and 400 m deep.

It is necessary to survey the whole area of oil-bearing Tertiary basin using the Two geochemical methods, namely analysing the oil field brines and the cores.

I. 緒 言

油田の総合的調査のなかで、最近特に注目しなければならない調査方法として、地球化学的なものがある。油田鹹水に関しては、古くから本邦においても少数例に対する分析が行われてきた。また油田地域の有機質岩石に関しては、高橋純一博士による一連の研究結果が公表されており、また石油母層の研究は最近資源科学研究所において活潑に行われるようになった。

地質調査所の石油課においては、従来主として共水性天然ガス鉱床の調査に際して、地質的方法と地球化学的方法とを併行的に行ってきたのであるが、これらの調査法を油田においても実施する計画をもっていた。たまたま、昭和 26~28 年の 3 カ年にわたって、北秋田油田の五城目から黒川・豊川に至る地域が、地表地質および古

生物調査の対象になったので、筆者は特に希望して、黒川油田の地表地質精査と地化学調査¹⁾に従事した。

黒川油田の地化学調査は、ポンプ採油井の坑口において、原油から分離した油田鹹水を試料として化学分析を行い、その得た結果を天然ガス鉱床に関する地化学的知識をもとにして、解釈する方法によつて行われた。しかしこの解釈の場合に本油田のように老朽化してしまつていて、地下にある流体の状況が開発の初期に比べて人工的に著しく擾乱されている恐れのあるものでは、現状における地下水中の化学成分の配列が、果して地質学的にどのような意義を持つかが問題になつてくる。

1 坑井によるコアー試験は、油田を立体的に解く場合に垂直方向に対して最も確実な資料を提供し、この点地域的な変化を主として調査しなければならなかつた前記の地化学調査と異なっている。そして、油田は地域的と垂直的の双方から、(すなわち立体的)に特長をつかまな

* 地質調査所石油課

ければならないことはいうまでもない。

昭和 28 年の暮に帝国石油株式会社では、黒川油田に対して水攻法による 2 次回収を計画し、新井をロータリー式によつて掘鑿することになったので、特に地質調査所から 50 m 間隔にコア試験用泥岩サンプルを採取することを依頼した。幸に会社のはからいによつて、8 個の試料が完全な状態のまま東京へ送られてきた。

これら 8 個の試料について行つた試験の結果をここに報告し、将来この種の地球化学的な調査を進める場合の基礎資料としたい希望である。

試料と黒川油田に関する各種データとを提供していただいた帝国石油株式会社の関係者、ならびに有機態窒素・有機態炭素・アンモニア態窒素・全炭酸に関する分析をしていただいた名古屋大学理学部地球科学教室の小穴研究室の各位に深謝の意を表する。

II. 黒川油田地質概略

黒川油田は秋田県南秋田郡に位置し、黒川村に帝石支所があり、現在も採油されている。奥羽本線大久保駅と支所との間にはトロッコを通じている。

黒川油田はほぼ南北に長軸をもつドーム構造を示し、出油区域は南北約 2,000 m、東西約 1,000 m におよぶ。構造の中心部(軸部)には天徳寺層が露出し、地下 100~200 m の深度で船川黒色頁岩層になる。この船川層は 150~160 m の層厚であつて、その下に女川珪質頁岩層があるが、この地域では女川層のなかに多数の厚い安山岩層が介在する。この安山岩はいわゆる荷背凝灰岩といわれるものに当り、そのなかの多孔質の部分が当油田の主油層に該当していて、その地下構造は帝国石油資料によれば第 1 図のように表わされている。

黒川油田は 1913 年から現在に至る間に、約 118 万 kl の原油を産出し、残存可採量は約 6 万 kl である。

III. R-144 号井の地質状況

R-144 号井は黒川油田の南部にある帝石支所の北方、約 100 m に位置する(第 1 図参照)。

第 1 図 秋田県黒川油田地下構造および R 144 号井位置図

第 2 図の電気検層図に示されるように(深度別地層名区分は帝石資料による)、天徳寺層に属する深度 165 m 以浅では、顕著な粗粒層は発達せず、165~325 m にある船川層では、凝灰質と思われる粗粒な地層が数層存在する。女川層に至ると、SP, ρ_R の両曲線の変化が激し

第2図 黒川 R 144 号井電検図

く、多量の安山岩質の岩石の発達がある。

コアーに原油が附着していたのは、150 m と 400 m のものである。前者は天徳寺層の泥岩の割目に、後者は多孔質安山岩の druse に、重質原油が多量に附着している。

コアー中の微化石については、当所の石和田靖章技官によれば、深度 150 m までと 200 m との間で群集が不連続に変わる。50~150 m は地表地質調査におけるいわゆる“天徳寺下部の NF 帯”に当るが、若干の石灰質有孔虫が混入している点、typical ではない。この混入群員はほとんど暖流系沿岸の浅海棲〔open coast の ($N_1 \sim N_2$)〕の種であるという。200~250 m には僅少の砂質殻有孔虫を含み、他の微化石とともにいわゆる“black shale assemblage”の特徴を有しているとのことである。

珪藻化石は 50~150 m のコアーには非常に多く、200 m 以下にはきわめてまれである。

IV. コアーの岩石学的記載

試験に用いた 8 個のコアーについて、以下簡単に記載する。それぞれの供試コアーは地層別に特徴を示し、岩石的にも明らかに区別しうことは、次に示すとおりである。

深度 50 m のコアー

a) 肉眼観察……灰色細粒淤泥岩、塊状、風乾試料は軽い。経 0.1~1 mm の白点があり、0.2×2 mm 位の黒色短冊状の鉱物もある。

b) 顕微鏡観察……微かに一定方向に鉱物が配列する(第 3 図・第 4 図参照)。黄鉄鉱は小さい丸状その他不定形を示す。緑泥石が少量あり、珪藻化石は非常に多い。白雲母もきわめて少量あつて、石英は角状ないし亜角状を示し、珪藻を黄鉄鉱で置換したものもある。粘土質部はやや褐色を呈し、玻璃質は全くみられない。

深度 100 m のコアー

a) 肉眼観察……わずかに褐色を帯びた灰色を呈し、風乾試料は軽い。細粒淤泥岩で、なかに経 0.1 mm 位の白色斑点が極めて多い。

b) 顕微鏡観察……緑泥石(緑色、多色性

弱、複屈折は石英より小) がやや多い。黄鉄鉱も多量に点在する。石英は角ないし亜角状を示し、水酸化鉄らしい褐色部もある。珪藻はきわめて多く、破片でないものもあり、黄鉄鉱が珪藻を充填したり交代したりしている(第5図・第6図参照)。

深度 150 m のコアー

a) 肉眼観察……原油の附着した暗灰色の細粒ないし粗粒淤泥岩で、部分的に砂質である。直径 0.1 mm 位の白色斑点が極めて多く、風乾試料は軽い。

b) 顕微鏡観察(第7図・第8図参照), ……コアーにみられる地層の bedding 方向に対して平行に褐色の部分があるが、これは原油が滲透しているものと思われる。その間隔と幅は、それぞれ(0.5×4 mm 幅)×(0.1×2 cm 長さ)位までまちまちである。この部分には、石英粒が集まっていることもあるが、必ずしも粗粒部だけに褐色の線があるとは限らない。磁鉄鉱と思われる角状の鉱物がある。珪藻がきわめて多く、そのなかを黒色の鉄化合物で充填されたものもある。粒度は石英粒も含めて、50~100 m コアーよりやや細かい。わずかに緑泥石化した黒雲母の極めて小さい破片がある。

深度 200 m のコアー

a) 肉眼観察……黒色頁岩でやや重い。150 mm 以浅の岩石より非常に脂ぎつた感じが強く、なかに白色の径 0.2~0.5 mm の斑点が少数みられる。恐らく放散虫化石であろう。

b) 顕微鏡観察……珪藻はまれで、しかも保存が不完全、また黄鉄鉱で充填されたり、珪藻全体が緑色を呈するものがある。黄鉄鉱も点在するが、割合に小さい。石英は小さく、数も少ない。長径 0.2 mm という放散虫の大型化石がみられる(第9図・第10図参照)。

深度 250 m のコアー

a) 肉眼観察……硬質かつわずかに褐色を帯びた黒色頁岩で、200 m 以浅の岩石と異なつて、白色の微小斑点が認められない。

b) 顕微鏡観察(第11図・第12図参照), ……黄鉄鉱の斑点は円型を呈し、割合小型である。これらは局部的に集中しない。珪藻は認められない。石英粒は小さく、数も多くない。

深度 300 m のコアー

a) 肉眼観察……重く、脂ぎつた感じのする暗灰色のいわゆる黒色頁岩で、直径 0.1 mm 前後の白色斑点が多い。

b) 顕微鏡観察(第13図・第14図参照) ……写真に示した薄片は、地層に直角方向の断面に近いものであるが、鉱物は一定方向にあまり顕著には並ばない。黄鉄鉱の黒点は小型、円形で数も多くない。炭酸塩鉱物が少量

に存在し、また短冊状の長石の小片がある。石英粒はきわめて小さい。

深度 350 m のコアー

a) 肉眼観察……板状にはげ、割ると角片になり、チャリチャリと音がする。暗灰色の珪質頁岩で硬い。直径 0.1 mm 位の白色斑点がある。

b) 顕微鏡観察……鉱物は一定方向にきれいに配列する(第15図・第16図参照)。珪藻はわずかに存在する。珪藻は黒色の点で充填されることなく、わずかに緑色を呈する。黒点も(黄鉄鉱が主)点在する。石英は細かく、角状である。

深度 400 m のコアー

a) 肉眼観察……わずかに緑色を帯びた灰色の安山岩。長石の斑晶があつて、その大きさは1×2 mm 位のものもある。多孔質であり、その孔径は最大 5 mm に達し、孔は互に連絡せず、そこに原油を保有する。原油はやや褐色味がかつた黒色を呈し重い。

b) 顕微鏡観察……porphyritic structure を示し、斑晶は斜長石と輝石であり、石基は斜長石・磁鉄鉱・玻璃からなる(第17図・第18図参照)。輝石のまわりには炭酸塩鉱物がついているものもある。斜長石は twin して、なかに磁鉄鉱を包有物としているものもあり、また斜長石の周辺部は炭酸塩鉱物(方解石)化したものもある。石基は斜長石の twin した部分が多く、方解石脈がこれを貫ぬく。

V. コアー試験法

鑿井機のコアーパレルから取り出されたコアーは、現場において泥水部分を除かれ、直ちにパラフィンによって完全に密閉されて空気から遮断される。このパラフィンシールの試料の上に、さらにブラックテープを完全に巻きつけてブリキ製の筒(茶筒位の大きさ)に入れて送られてきた。

東京の実験室においては、筒から取り出したコアー試料をさらに小刀で削り、試料に関する肉眼的な記載をして、泥水の滲入していない泥岩の部分を試体とする。以下簡単に試験方法を記載する。

①比重(Sp.)……秤量瓶法により、含水試料について求める。

②含水率(Wc および Wc')……湿っている試料を 105°C の電気乾燥器中で乾かした減量を、水分として算出する。

すなわち、 W ……秤野瓶の重さ(g)

W_w …… W +秤量瓶に満した水の重さ(g)

W_s …… W +含水試料(g)

W_{ws} …… W_s +それに満した水の重さ(g)

第 1 表 秋 田 県 黒 川 油 田

コア 採取 深 度 m	岩 相	比重	含水率		水による抽出試験						酸素消費量	105°C で乾燥 後の岩 石の色	蒸溜 水と 接触 した 時の pH
			W/t %	Vol. %	稀 釈 率	泥と水 の分離 の度合*	水色	Cl ⁻ mg/l	HCO ₃ ⁻ mg/l	NH ₄ ⁺ mg/l			
50	greenish-grey fine~very fine silt	1.744	29.7	51.7	6.05	---	無色	3260	2910	85.3	① 2.72 cc/5 gr/11 days 以上 ② 1.90 cc/5 gr/22 h ③ 0.63 cc/5 gr/1 h	淡灰	
100	dark grey massive very fine silt~ silty clay	1.722	28.7	49.4	4.48	--	"	12500	不測	82.2	① 2.38 cc/5 gr/11 days 以上 ② 0.72 cc/5 gr/7 hr	同上	
150	dark grey claystone with oil	1.613	32.9	53.2	5.56	-	"	12600	2610	59.5	① 2.63 cc/5 gr/11 days 以上 ② 0.71 cc/5 gr/22 h	淡褐灰	
200	black shale	1.815	21.3	38.6	8.05	--	"	11400	不測	191	① 2.05 cc/5 gr/11 days 以上	淡褐灰	
250	black shale	1.818	23.2	42.2	7.47	+++	"	7540	2600	177	① 2.11 cc/5 gr/11 days 以上 ② 1.95 cc/5 gr/7 h	灰	9.2
300	black hard shale	1.862	21.9	47.8	5.58	--	"	9360	不測	173	① 2.23 cc/5 gr/11 days 以上	やや 暗灰	
350	dark grey very hard shale	1.792	23.5	42.2	5.25	+	"	9180	2340	162	① 2.13 cc/5 gr/11 days ② 0.90 cc/5 gr/23 h	同上	
400	porous oil- bearing ande- site												

* --- ドロドロで分離の悪いもの - サラサラのもの ++ 完全に分離
 -- ややドロドロ + 分離するもの

W_a・・・W+乾燥試料(g)

とすれば、

$$Sp. = \frac{W_s - W}{W_w \times (W_s - W) - W_{ws}}$$

$$W_e = \frac{(W_s - W_d)}{(W_s - W)} \times 100 \quad \text{wt \%}$$

$$W_e' = W_e \times sp. \quad \text{Vol. \%}$$

となる。水による抽出試験はまず含水試料 100 g 前後
 をとり、蒸溜水 100~150 cc 前後を加えて、水中で完全
 に試料を破壊する。この場合に得た泥水を遠心分離し、
 以下の試験に供する。

③水色・・・遠心分離で 2,000~3,000 r.p.m×ca 30 min.
 の分離を行って得た抽出水の色を調べる。

④Cl⁻・・・抽出水がきれいな時は、直ちにモール氏法で
 滴定する。コロイドによる濁度が大きい時は、1 滴の
 Conc. H₂SO₄ を加えて遠心分離によつてコロイドを
 除き、さらに CaCO₃ 粉末によつて H₂SO₄ を中和し
 て、モール氏による²⁾。

⑤HCO₃⁻・・・メチルオレンジアルカリ度から仮に算出
 する。

⑥NH₄⁺・・・抽出水を空気蒸溜によつて分析する。

⑦稀釈率(R)・・・上述した④~⑥は蒸溜水による抽出水
 に対する値であるから、次の稀釈率を乗ずれば、泥岩
 間隙水に対する一応の Cl⁻, HCO₃⁻, NH₄⁺ 量を算出
 できる。

V・・・抽出する時加えた蒸溜水の量 (g または cc)

S・・・抽出に用いた含水試料の重さ (g)

とすれば、

$$R = \frac{V + (S \times W_e)}{S \times W_e}$$

が求める稀釈率である。

⑧泥と水の分離の度合・・・蒸溜水抽出で遠心分離器にか
 けた時、分管上部の抽出水の状況を表わす。

⑨酸素消費量(diss. O₂)・・・含水試料 5 g をとり、当所
 の水道水を約 300~350 cc 加えて、ビン中に密閉し、
 あらかじめビン中に入れてあるゴムを巻いた金属の重
 りとともに廻転して試料をくだき、長時間常温の実験
 室に保存し、水中の酸素の減少を測定し酸素消費量と
 した。

⑩窒素消費量(diss. N₂)・・・水中溶存 N₂ の減少を、O₂
 の減少と同様にして求めた。なお、diss. O₂ と diss.
 N₂ の測定は、名大式の CO₂ ガス泡を carrier とす

第 3 図 暗灰色頁岩(天徳寺層), 深度 50 m

第 4 図 暗灰色頁岩(天徳寺層), 深度 50 m

第 5 図 暗灰色頁岩(天徳寺層), 深度 100 m

第 6 図 暗灰色頁岩
(天徳寺層), 深度 100 m, cross. niko.

第 7 図 暗灰色頁岩(天徳寺層), 深度 150 m

0.4 mm
縮尺

第 8 図 暗灰色頁岩
(天徳寺層), 深度 150 m, cross. niko.

第 9 図 黑色頁岩(舟川層), 深度 200 m

第 10 図 黑色頁岩(舟川層), 深度 200 m

第 11 図 黑色頁岩(舟川層), 深度 250 m

0.4 mm
縮 尺

第 15 図 珪質頁岩(女川層), 深度 350 m

第 12 図 黑色頁岩(舟川層), 深度 250 m, cross. niko.

第 16 図 珪質頁岩(女川層), 深度 350 m

第 13 図 黑色頁岩(舟川層), 深度 300 m

第 17 図 安山岩(女川層中), 深度 400 m

第 14 図 黑色頁岩(舟川層), 深度 300 m

第 18 図 安山岩(女川層中), 深度 400 m

R-144 コア試験表

[1954年分析]

窒素消費量	試料を 11日水 中にお いた時 の dis. O ₂ cc/g	有機** 窒素 mg/g	有機** 炭素 mg/g	** org. c/ org. N (mg/g)	SiO ₂ [×] %	TiO ₂ [×] %	Al ₂ O ₃ [×] %	Fe ₂ O ₃ [×] %	MgO [×] %	CaO [×] %	Ig loss [×] %	+H ₂ O [×] %	-H ₂ O [×] %
①0.43 cc/5 gr/11 days ②0.72 cc/5 gr/22 h ③0.77 cc/5 gr/1 h	0.24	0.410	5.79	14.15	55.88	0.42	14.40	4.27	1.11	0.47	8.90	6.50	7.40
①0.58 cc/5 gr/11 days ②0.49 cc/5 gr/7 h	0.35	0.106	15.74	157.5	59.12	0.37	12.79	3.83	1.25	0.73	9.92	5.88	8.56
①0.95 cc/5 gr/11 days ②2.60 cc/5 gr/22 h	0.31	0.813	18.54	22.9	61.82	0.32	9.62	3.02	1.01	0.90	11.84	3.96	8.76
①0.34 cc/5 gr/11 days	0.50	1.042	17.82	17.1	63.67	0.26	8.18	2.70	0.95	0.91	8.58	5.15	12.60
①0.35 cc/5 gr/11 days ②0.49 cc/5 gr/7 h	0.52	1.048	18.94	18.1	62.46	0.32	8.86	3.14	0.87	0.90	9.38	4.28	11.48
①0.30 cc/5 gr/11 days	0.42	0.517	16.00	30.94	63.29	0.30	8.64	2.80	1.14	0.60	7.98	3.83	11.96
①0.06 cc/5 gr/11 days ②0.67 cc/5 gr/23 h	0.46	1.034	13.85	13.4	67.21	0.32	8.56	2.86	1.15	0.56	9.00	4.78	8.40
					37.98	0.74	18.72	10.11	2.96	9.82	12.10	3.77	4.98

×印 化学課川野技官分析, 昭和29年

**印 名古屋大学 理学部地球科学教室 小穴研究室で分析

る水中溶存ガス測定装置によつた。なお放置した水中の diss. gas 中には CH₄ 等の混入がなく, CO₂ と O₂ と N₂ の成3分系として定量した。

⑩試料を11日間水中においた時の diss. O₂ ……の程度まで完全に diss. O₂ を減少させる力が試料にあるかを知るために, 常温で放置した⑨⑩の実験から算出した。

⑫SiO₂, TiO₂, Al₂O₃, Fe₂O₃, MgO, CaO, Ig. loss, +H₂O, -H₂O ……大気中で乾燥したコア試験料に対して, 常法による岩石の化学分析から求めた。この分析は化学課川野昌樹技官によつて行われた。

⑬有機物 ……名古屋大学理学部地球科学教室小穴研究室の分析結果によつた。

最後に酸素と窒素消費量の測定について1つ付け加える。この分析は昭和29年4月下旬から5月上旬にかけて行つたもので, 当時の気温は日中で16~19°Cであつた。当所の実験室は地下にあるので, 比較的気温の変化は小さい利点がある。用いた水道水の温度は14.1°C, 溶存ガスは diss. O₂=7.78 cc/l, diss. N₂=16.0 cc/l であつた。diss. O₂ は直ちにコア試験料に消費されるから,

その水が若干温度の上昇に会しても, total dis. gas として考えた場合に, diss. N₂ から遊離 N₂ ガスを生ずることがない。このことは試験表で明瞭ではあるが, 一応大切なことである。

VI. 試験結果について

共水性天然ガスの試験調査に際して, 鉾床が海成であつても淡水成であつても, コア試験が非常に重要な資料を提供していることは, 南関東ガス田・新潟ガス田・長万部ガス田 (以上海成第三紀層が主な含ガス層となつて) や, 諏訪湖ガス田・石狩平野ガス田 (以上淡水性ガス田) などの試験結果によつても明らかである。

この度得られた数値を, 共水性ガス鉾床に対する従来のコア試験結果の整理法と同様に図表に示すと, 第1表と第20図が得られる。以下順次その数値について説明する。

比重 (Sp.) 400 m から得た安山岩を除くと, 含水試料の比重は1.613と1.862との間にある。比重の大小によつて, 60~150 m (小比重) と, 200~350 m (大比重) とに分けうる。50 m から150 m間は順次深度に応じて比重が減少し, 深度150 m で1.63という最小値を示す。

これらはいずれも天徳寺層に属する珪藻の多い淤泥岩であつて、化石珪藻の岩石中で占める部分が、大きく比重を左右しているように思われる。200~300 m 間にある黒色頁岩の比重は大差なく 1.8 台を示しており、350 m の珪質頁岩も 1.792 であまり大きな値を示さない。

含水率 第 19 図上では、容量百分率で表わしておいた。概略値は 52~21 vol. % の間にあり、その傾向は浅部に大で、深部に小さいという一般的傾向を示している。含水率も 150 m 以浅(天徳寺層)と、200 m 以深(船川・女川層)層との間に大差があつて、前者では 49~53 vol. % で大きく、後者にあつては 39~48 vol. % と小さい。含水率と比重との間は決して簡単な相関関係を示さない。この点は筆者が扱った長野県岡谷市²⁾ 附近の第四紀堆積岩のコアと、性格を異にするように見うけられる。その原因には、種々の事項が考えられるが、最も大きなものは、膠状物質が新旧両岩石中でその質を変化していることに起因するものであろう。

後述する風乾試料に対して測定した H_2O+ , H_2O- , Ignition loss 等も、一応この項と関係は深い。

水色 共水性天然ガス鉱床においては、水溶性の有機物質に主な原因があると推定される褐色系の着色が、広々にしてガス附随水中にみられる。この着色性はもちろん水中に溶けている C や N の量と相関する場合が多いが、水の水素イオン濃度および溶解塩類の多少にも関係する。この着色の源をなす溶解物質は、強電解質の存在において沈澱する。

さて当油田の供試体については、間隙水中の Cl^- 量は 3,000~12,600 mg/l であつて、これを蒸留水によつて稀釈率 4.5~8.1 に稀釈したが、この場合における抽出水は無色である。水溶性の着色性有機物質は、概略的には地質時代の古い岩石中には少ない事実があり、この点主として第三紀鮮新世以後の水成岩中に存在する溶解性天然ガス鉱床と当油田鉱床との差は予期されたところである。

Cl^- 泥岩の間隙水は、蒸留水による稀釈抽出分析法によつて、その性質の概略を察知できる。 NH_4^+ , HCO_3^- 等泥岩そのものとの吸着等の原因によつて分析が複雑になるものと異なつて、 Cl^- に関しては、その化学的不活性なため割合により分析値がえられる。 Cl^- は深度 50 m における 3,260 mg/l を最小値とし、100~150 m においては最大値である 12,500~12,600 mg/l を示すが、以下においてはややその数値が小さく 11,500~7,500 mg/l となる。

HCO_3^- コア全部に対してこの分析値を求めずに 1 点おきに 4 測定値を得た。50 m における 2,910 mg/l を最大として、順次深度を増す方向に 2,600~2,300

第 20 図 コアの酸素消費量の時間的变化を表わす推定図

mg/l と減少する。

NH_4^+ 明らかに 2 群にかたまつた数値を示している。まず深度 50~150 m 間の 85~60 mg/l と、200~350 m における 190~160 mg/l とである。このいずれの群も深度を増す方向に NH_4^+ を減少する傾向が明瞭である。

酸素消費量 第 1 表に掲げた測定値から、第 20 図に示すような関係を得た。酸素消費量に関する実験を、この度行つたと同じ条件の下で実施したものに、川崎市鶴見の地下 20 m から得た粘土に対する実験結果⁴⁾ がある。これを第 20 図上に示すと、点線の関係がえられる。黒川油田のコア試料についても、この曲線に類似の性格があると考えられる測定結果が得られたので、酸素消費量を cc/g/20 時間にひきなおすために、図の 20 時間の所で、曲線の示す値を求めてみた。

今これを示せば、

深度	50 m コア	O_2 消費	1.6 cc/g/20 hr
"	100	"	1.2 "
"	150	"	0.7 "
"	250	"	3.7 "
"	350	"	0.8 "

となり、天徳寺層のコアでは、順次深度を増加するにつれて、酸素消費量が減少したが、これに対して 250 m の黒色頁岩では 3.7 cc/g/20 hr と最大の値を示した。350 m の珪質頁岩ではほとんど 150 m のコアにおける値と等しかつた。250 m の異常点がなければ、順次深度を増すにつれて、0.7~0.8 cc/g/20 hr 位におちつくものかと考えられるのであるが、この 250 m における値は他の資料から再検討を要すると思われる。

なお、鶴見の粘土は第四紀層に属する強内湾性堆積物であるが、酸素消費の量とその時間的消費量は、今回の黒川油田から得た第三紀海成層の頁岩で測つたものと大差ないことがわかった。

乾燥後の岩石の色 105°C の電気乾燥器中で完全に水分を除去した場合の岩石の色は、浅部の岩石にやや色が薄く、深部のものに色の濃い灰色系統を呈するようである。150~200 m の岩石はやや褐色を帯びるが、これは必ずしも岩石中の鉄分の多少によるものでないことは、後述する Fe_2O_3 量から読みとれる。

岩石の pH 蒸溜水と長時間接触させ（もちろんガラス器具のなかで）た場合の pH を仮に岩石の pH とすると、250 m の黒色頁岩では 9.2 を示してアルカリ性であった。

窒素消費量 11 日放置した場合には 0.06~0.95 cc/5g であつたが、その数値は天徳寺層に属する 150 m までは 0.43~0.95 cc/5 g と、順次深度とともに大きくなつていて、酸素消費量と逆であるのは面白い。200~300 m までは船川層に属する黒色頁岩であつて、0.34~0.30 cc/5g/11 day とほぼ 0.3 cc 台を示す。350 m の珪質頁岩では 0.06 cc/5g/11 day で最小を示す。こはを一括すると、

天徳寺層	0.4~1 cc/5g/11 day	…深部への増加
船川層	0.35~0.3	…ほぼ変化なし
女川層	0.06	…きわめて小となり
		全般には深部へ減少する。

酸素消費量の大きかつた 250 m のコアで、窒素消費量がきわめて小さいということがないので、この両者の間には全深度を通じての逆相関はないものとみられる。

以上は 11 日放置した場合の値であるが、7 時間ないし 23 時間の放置においては、かえつて 11 日放置における窒素消費量よりも大きい値が得られることは注目される。丁度第 20 図に示した酸素消費曲線と逆である。短時間における窒素消費量は地層の上下を通じて顕著な差はみられない。

水中容存酸素消費の限界 第 1 表の欄に示した“試料を 11 日水中においた場合の溶存酸素”がこれに当る。酸素消費量と時間との関係を示している第 20 図上において畧らかなように、11 日放置した場合には、明らかに試料は水中の酸素を極限まで消費していると考えられる。この極限は表示のように、50 m 層で 24 cc/l という最小値を示すが、以下ややこの数値は大きく、天徳寺層に属する 150 m 以浅では 0.35 cc/l が最大である。黒色頁岩と珪質頁岩ではこの数値がやや大きく、0.42~0.52 cc/l 間にある。他の化学的性質と同様に、深度 150

m と 200 m の間に境界がある。天然ガス附随水中の diss. O_2 が、ポテンシャルの高いガス田においては、大略 0.7~0.5 cc/l 前後となることと比較する場合に注目される。

有機窒素(org.N) 名大理学部小穴研究室における測定によれば、最小 0.106 mg/g から最大 1.048 mg/g までの間にある。200~350 m 間の黒色頁岩と珪質頁岩に多い傾向にあるが、上下層との関連性をみると、100 m と 300 m にやや小さい値が示されている。

風乾資料に対する $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ は、名大の測定によると、

コア—深度	50 m	0.499 mg/g
”	100	0.237 ”
”	150	0.370 ”
”	200	0.388 ”
”	250	0.294 ”
”	300	0.192 ”
”	350	0.179 ”

となつていて、蒸溜水で蒸出して測定した NH_4^+ の分布傾向とは非常に異なる。最大の相違点は、深度 150~200 m 間に、顕著な不連続がみられないことである。やや下方に値を減ずることは同様な傾向であつた。

有機炭素(org.C) 小穴研究室の測定によると、org.C は深度 50 m で 5.79 mg/g という最小値を示し、以下 14~19 mg/g 程度の値がえられている。50~150 m 間は下部へ増加し、350 m の珪質頁岩でやや減少をみせる。org.C/org.N の数値は、多くは 13~31 の間にあるが、100 m のコアだけは 158 という異常値が測定されている。

Cl^- の分布状況から、地表水の影響を相当強くうけていると考えられる 50 m コアにおける有機物は、org.N が 0.41 mg/g で、org.C が 5.79 mg/g、その比は 14.15 で、やや N の減少よりも C の減少が目立つ感じがする。ただ珪質頁岩において、比較的に org.N が多くて C が少ない値がえられているので、今後風化作用による有機物の質的变化は、特に天然ガス鉱床の成因と結びつけた場合にも、きわめて重要である。

SiO_2 浅部は珪藻質であるが、 SiO_2 が少ない。安山岩を除いて、50 m のコアが 58.9 % で最も少なく、200 m まで順次増加する。250 m の珪質頁岩では 67.21 % で、非常に大きな値を示す。概観すると

天徳寺層	58.9~61.8 %
船川層	62.5~63.7 %
女川層	67 %

ということになる。安山岩では約 38 % である。

TiO_2 水成岩中の TiO_2 は、浅部に多く深部にやや少

ない。最高は 50 m コアーの 0.42 % であり、以下 200 m まで順次減少する。250~350 m 間は 0.30~0.32 % であらんど一定値を示している。

安山岩ではやや多く、0.74 % となつている。

Al₂O₃ 浅部に多い。50 m コアーは 14.4 % を示すが 200 m まで規則的に減少し、以下ほとんど一定で 8.6~8.9 % を示す。Ti O₂ の増減の状況ときわめてよく似ている。

安山岩では 18.7 % となつている。

Fe₂O₃ この増減状況は前述した TiO₂, Al₂O₃ にきわめてよく類似する。最大値は 50 m コアーにおける 4.27 % で、200 m の 2.7 % まで順次減少する。250~350 m の間は 2.9~3.1 % を示す。

安山岩では 10 % 土でやや多い。

MgO, CaO MgO は水成岩コアーでは、0.87~1.25 % と少なく、200~250 m においてやや小さな値を示すほか顕著な特長がみられない。安山岩中にあつては 2.96 % と大分多い。

CaO は水成岩中に 0.47~0.91 % あるが、その深度方向に対する分布は 50~150 m までやや増加する傾向にある。安山岩では 9.82 % もあつてきわめて多い。300 m のコアーには顕微鏡下で炭酸塩鉱物が認められたが、CaO, MgO は他のコアーと大差のないことがわかる(後述のように全炭酸は 300 m で最小である)。

灼熱減量 (Ig.loss) 水成岩のコアーでは、7.98~11.84 % を示す。50~150 m 間では 8.90~11.84 % と増加し、200 m 以下では 8~9.4 % 程度で大差がなく、明らかに 2 群に分けられるようである。安山岩では 12.10 % とやや多い。

+H₂O 50 m コアーに最も多く、6.50 % を示すが 150 m までは漸次減少して 3.96 % となる。200 m から 300 m の間では、200 m の 5.15 % を最大として同様に 3.83 % まで漸減し、350 m では 4.78 % とやや大きい。このように +H₂O に関しては、地層別に下部に向かつて幾つかのサイクルをくり返している模様なので注目される。

安山岩では 3.77 % で船川層以下とよく似た値である。

-H₂O 50~150 m でやや少なく(7.4~8.8 %), 200~300 m では最も大きな 11.5~12.6 % を示すが、350 m では 8.4 % に減ずる。これも明らかに地層別の特徴がうかがえる。

その他 第 19 図の左に示した含水率と、右に示された -H₂O は深度方向に対する数値の傾向が全く異なる。すなわち、含水率の大きい 50~150 m 間にかえつて -H₂O が小さく、含水率のやや少ない 200~300 m 間に -H₂O が大きい値を示す。すなわち、水には風乾によ

つて除去される水と、風乾ではとられないが、110°C に熱すると除去される水と、+H₂O との 3 態があることがわかる。そしてこの場合には、50~150 m (天徳寺層) に簡単に除去され易い水分が多く、200~300 m (船川層) にそれよりやや除去されにくい水があることを示している。

[Ig.loss-H₂O⊕]は、有機物や炭酸塩鉱物等に起因する減量を示している。もしも炭酸塩鉱物の大部分が Ca, Mg, Fe 等と結合しているとすれば、その量は CaO, MgO, Fe₂O₃ によつてうかがえる訳である。第 19 図でも見られるように、これら 3 種の含量は、安山岩における 1 例を除くすれば、(150 m, 250 m コアーにやや CaO が多いが)、大差がない。従つて [Ig.loss-H₂O⊕]は泥岩の有する大略の有機物量を示すことになり、概観すれば 50~150 m 間は深度方向にやや増加し、200 m 以下では 4~4.5 % 前後におちつく。ただ、150 m コアーの [Ig.loss-H₂O⊕]が異常に大きいのは、全炭酸(tot.CO₂)が次の如く、非常に大きいことにも起因する。

コアー深度	tot. CO ₂ * mg/g
50 m	0.75 "
100 m	0.88 "
150 m	3.70 "
200 m	0.88 "
250 m	0.61 "
300 m	0.33 "
350 m	0.76 "

*名大・理・小穴研究室の測定

すなわち (Ig.loss-H₂O⊕-tot. CO₂) は、コアー中の有機物量とよく相関していることがわかる。

VII. 試験結果に関する考察

以上のコアー試験結果を通じて特に気づくことは、深度 150~200 m の附近において、微化石・物理性・化学性の著しい不連続が存在することである。また 300 m と 350 m の間でも、上述のものに較べるとはるかに弱いが、各種性質の不連続がよみとれる。第 19 図をみて、150~200 m と 300~350 m 間に不連続を示している化学成分を以下に示してみよう。

	+++ 顕著な不連続	+ 不連続
	150~200 m	300~350 m
NH ₄ ⁺	+++	
比重	+++	
含水率	++	
NH ₄ ⁺ /Cl ⁻	+++	

TiO ₂	+	
SiO ₂	+	+
Fe ₂ O ₃	+	
Al ₂ O ₃	+	
-H ₂ O	++	++
+H ₂ O	+	
Ig.loss	+	
(Ig.loss-H ₂ O ⁺)	+	

このように、天徳寺層・船川層・女川層といわれる岩相、微化石相等によって区分された主として初生的状況を示すものと（岩相については地質時代が若いのでこういえると思う）、地層堆積の過去から現在にわたる化学変化の集積である現在の地化学的測定結果との間に、非常に密接な関連性がよみとれることは重要である。

原油の地層中における現在の集積状況は、その鉱床周辺における地質の化学的、物理的性質に関連することは明らかである。この度の調査では丁度この性質の増界附近に原油の集中がみられているが、このことは偶然にそうなったものかどうかはわからない。

NH₄⁺/Cl⁻ は 200 m 以深でその数値が大きく、150 m 以浅では極めてその数値が小さくなる。一方油田鹹水中の NA₄⁺/Cl⁻ は文献 1) にみられるように、150 m 附近の浅油層から得た値の方が、400 m 級の深油層について得た値よりも大きい。このように、コアーに対する NH₄⁺/Cl⁻ と、鹹水に対するそれとが相反する関係を示す事実については、十分に説明するだけの実験を行わなかった。

油田から得たコアーについて測定した有機物の量と油座との関係については、古く高橋純一博士による研究⁵⁾も公表されているが、この度の試験においては特に有機物だけに重点をおくことなく、有機無機物質の化学分析と、岩石の顕微鏡下の観察、微化石に関する試験も併行的に行ってみたものである。流体たるガス・油・鹹水に関する追跡を、比較的变化し難い泥岩を用いて行うことの第 1 歩としてのこの作業は、一応各種の新しい事実を示してくれた。

天徳寺層は淤泥岩であつて、当油田における脊斜軸部に露出し、その部分の陸化は、現在われわれがよく扱う共水性天然ガス鉱床で問題とする地質年代からすれば（もちろん絶対年度が最も良いが）、比較的古いとはいいいながら、あれだけ密な細粒岩中においてさえ、なおかつ深度 50 m コアーにおける Cl⁻ は 3,260 mg/l しかなく 100 m コアーで 12,500 mg/l と急増することは、おどろくべき事実である。この Cl⁻ の減少は、雨水による稀釈現象に原因すると考えられるので、淤泥岩に対する雨水の侵入は意外に大きく、従つてもしも地下深部におい

て高圧の天然ガス（ガスの分子は水のそれよりはるかに小さい）が存在するなら、これを保護する帽岩（Cap Rock）は、よほど浸透率の小さいものでなければならず、この点は共水性ガス鉱床における深度方向に対するガス水比の問題等と関連させて、充分に考慮しなければならない。また油田における高圧遊離ガスは、この試験結果から推定すれば、共水性ガスの場合に較べてより閉塞された単位で存在するものと考えるべきであろう。

天然ガス田におけるコアー試験では、Cl⁻ は附随水中のものより約 10~20 % 少なく測定されるのが一般であつた。この度のコアー分析でも、大体そのような数字であろうことは、文献 1) と比較して明らかである。ただ岩石の diagenesis が進み、脱膠作用が明らかになるにつれて、コアーに関する Cl⁻ の測定値と、その鹹水中の Cl⁻ の量との間に差がでてくるように感ぜられる。

堆積面に対して重直方向に掘鑿して得たこれらのコアーは、主として泥岩だけを試験したものである。この泥岩が重畳する水成岩全体をどの位代表するのであるかは、今後さらに細かくコアー採取をして研究しなければならない。しかし従来のガス田に対するコアー試験結果やガスや地下水を通じて把握される炭化水素鉱床の一般的性質から、少なくとも Cl⁻、NH₄⁺ 等々は、50 m 間隙の測定値でもその深度方向に関する分布の傾向を論ずることは有意義であり、岩石を構成する化学成分もまた、地化学的に分散系に属するものにあつては、もちろん同様と考えられる。

VIII. 結 言

油田を地化学的に解明して、その実態把握から新しい調査方法を案出しようとする一連の調査・研究のうち、黒川油田が昭和 28 年度の調査にひき続いて研究の対象になつた。

このコアー試験を通じて、最も大切な事実として注目されるのは、岩相・微化石相等と現在の地層に現われる化学性とは、きわめて密接に関連していることである。原油も丁度これら性質の不連続になる境界附近にあつて、このことは仮に偶然であるとしても注目されることである。

油田に関する立体的な地下水法地化学調査を進めつゝある地域で、この度行つたような泥岩を主とした垂直的なデーターを集め、さらに 1 出油区だけでなく、含油第三紀層の堆積盆地全般に関する地化学的実態を把握する方向に向かつて努力する必要がある。これらの研究・調査は、出油地域に対する地化学調査結集を、中間の非出油地域のデーターで結びつけてゆく調査方法が現実的であろう。

地質調査所では、現在まで油田地帯に対する地化学調査は次の地域について行っている。

- ① 新潟油田予察(西山・牧・新津油田)
- ② 秋田県黒川油田
- ③ 秋田県八橋油田
- ④ 秋田県黒川油田コア試験
- ⑤ 長野県野尻湖畔コア試験

今後これらの結果を検討するとともに、前述の構想で調査・研究を進めたい。特に油田関係者全般からの支援を願う次第である。(30-6-16記)

参考文献

- 1) 本島公司・石和田靖章・牧真一・川野昌樹： 秋田

県黒川油田地化学調査報告，未発表，地質調査所月報掲載予定。

- 2) 岩崎岩次： 分析化学概説，学術図書発行，昭和28年9月，この CaCO_3 による中和法はコア試験には非常に有効である。
- 3) 本島公司・加来一郎外 3 名： 長野県岡谷市天然ガス試験井調査報告，未発表，地質調査所月報掲載予定。
- 4) 本島公司・牧野登喜男： 窒息死の原因となつた鶴見における粘土の酸素消費について，石油技術協会第20回総会個人講演要旨，石油技術協会誌，Vol. 20, No. 3, 昭和30年。
- 5) 高橋純一： 石油鉱床新論，丸善，大正3年。