有機物熟成度の予測*

関 口 嘉 一**・平 井 明 夫**

(昭和55年9月19日受理)

Estimation of Maturation Level of Organic Matter

By

Kaichi SEKIGUCHI and Akio HIRAI

Abstract: Many physical and chemical parameters to indicate the maturation levels of organic matters in sediments have been proposed up to the present time. Although it is desirable to measure directly the maturation levels of source rocks from synclinal area where petroleum is believed to be generated, rock samples from such synclinal areas are seldom obtained because exploratory wells are generally drilled on and around anticlinal crests. To estimate the maturation levels of sediments of which any parameters not measured, several investigators have proposed some time-to-temperature relationships in organic metamorphism. However, these are obtained mainly from the Paleozoic and Mesozoic sediments and therefore, not applicable directly to the oil bearing Neogene systems in Japan.

The authors, first, examined the interrelationships between time and temperature of carbonization on coals. The pyrolysis data showed that same value of vitrinite reflectance was provided by a doubling of the reaction rate for each 10°C rise in temperature. We, therefore, studied the time-to-temperature relation in reflectance values measured on some MITI well samples in the Nishi-Kambara area on the basis of a doubling of the reaction rate. The relation can be expressed by

$$\log R_0 = 0.0026 \cdot T_c + 0.088 \cdot \log t - 0.52$$

where T_c is the maximum paleo-temperature (°C) and t is the effective burial time (Ma) during which a specific rock has been within 14.4°C of its maximum temperature (T_c). The present maturation levels of the Nishiyama and Shiya formations might have been decided during the time from approximately 0.2-0.4 MaBP to the present. The maturation level of 0.5% reflectance in the area may be distributed in the temperature range between 95 and 110°C.

1. はじめに

炭化水素の根源有機物の熟成度指標として、これまでに多くの物理的、化学的変数が提案され、TISSOT & WELTE (1978) や HUNT (1979) がそれらを総括している。しかし、堆積盆の炭化水素、特に石油の存在性を評価する際にもっとも重要となる沈降域では、試錐の機会が少ないためにこれらの実測値が得難い。KARWEIL (1956), LOPATIN (1971), BOSTICK (1973), HOOD

et al. (1975), SHIBAOKA & BENNETT (1977) は、古地温を仮定した埋没史に基づいて有機物の熟成度予測法を提案した(図1a~e)。しかし、これらは主として中生代・古生代の堆積物を対象として考え出されたものであり、かつその背景にある有機物熟成の反応速度論に相違が認められる。したがって、日本の産油地帯の若い堆積物に直ちには適用できず、各手法の適否の検討はもちろん、日本の堆積盆に適用しうる技術の開発が望まれる。

藤田ら (1978)、藤田・関口 (1979) は、熟成度の予測技術の確立のために熟成度指標の1つであるビトリナイト反射率に着目し、石炭の熱分解実験や坑井にて実測された反射率と温度・時間の関係を検討した。本論はこ

*昭和55年5月29日、第45回石油技術協会定時総会、地質・探鉱シンポジウムにおける講演

**帝國石油株式会社研究所

図1 文献にみられる有機物熟成度推定のためのノモグラム

これらの研究の延長線上にあるが、まずこれまでに提唱されてきた各手法の考え方を整理し問題点を検討した。次いで実験データを踏まえて新潟西蒲原地域の基礎試錐井の検討から、熟成度予測のための数式を導びくとともにノモグラムを作成した。

2. 有機物熟成度と温度・時間との関係

2.1 反応速度定数に対する経験則

任意の反応系における反応達成率(Z)と反応速度定数(k)の関係は t を時間とすると

$$Z = kt \quad (1)$$

で表わされる。ここに Z は種々ある熟成度指標、すなわちビトリナイト反射率(R_o)、ケロジェンの元素組成比、抽出性炭化水素の有機炭素に対する量比、等々の物理的、化学的変量に置き換わる変数である。例えば $Z = f(R_o)$ といった関数型で示される。また、反応速度定数 k は温度 T に支配されるが、経験則として Arrhenius 則と温度係数を 2 とするものが知られている。

Arrhenius 則は次式で示される。

$$k = A \exp(-E_a/RT_k) \quad (2)$$

ここで、 A は頻度因子、 E_a は見掛けの活性化エネルギー ($\text{J} \cdot \text{mol}^{-1}$) である。 R は気体定数で $8.314 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$

($=1.987\text{cal}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$), T_k は熱力学温度 (K) である注¹。(1), (2)式から Arrhenius 則に基づく反応達成率は(3)式で表わされる。

$$\log Z = -a/T_k + \log t + c \quad (3)$$

ただし, $a = (E_a/R) \log e$, $c = \log A$

温度係数“ n ”は反応温度が 10°C 上昇または下降すると速度定数 k が n 倍または $1/n$ に変化することを意味している。基準温度での速度定数を k_0 とすると, 反応温度が $\Delta T_c (^\circ\text{C})$ だけ異なるときの定数 k は次式で示される。

$$k = k_0 n^{\Delta T_c/10} \quad (4)$$

この場合の反応達成率は(1), (4)式から

$$\log Z = (\Delta T_c/10) \log n + \log t + \log k_0$$

k_0 を 0°C での定数とすると, 温度 T_c のとき

$$\log Z = a'/T_c + \log t + c' \quad (5)$$

ただし, $a' = 10^{-1} \cdot \log n$, $c' = \log k_0$

一般に $n = 2$ が経験則として知られている。

2.2 文献にみられる熟成度予測法の分類

2.2.1 Arrhenius 則に基づくもの

KARWEIL(1956)は, 石炭化が1次反応で $35\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ ($=8.4\text{kcal}\cdot\text{mol}^{-1}$) という一定の活性化エネルギーで Arrhenius 則に従って進行するものとして, 最大温度とその温度に滞留した時間から Z 値すなわち石炭ランクの指標である揮発分の量 (%VM) を求めている注²。相原 (1978) は KARWEIL ノモグラムの石炭ランクスケールに日本炭を対応させているが, 本報では言及しない。

BOSTICK (1973) は KARWEIL の %VM スケールをビトリナイト反射率 (% R_0) に変換し, かつノモグラムの座標軸を変えた。ある堆積物が堆積時(A)より徐々に埋没し, G'''' にて最大古地温を被り, 隆起(G''')後再埋没(G')を経て現在(F')に至っている場合, 仮りに堆積物が全地質時間に亘って G'''' の最大古地温を受けてきたとすると, 予測される最大熟成度はF点, すなわち $R_0=6.2\%$ で示される。実際には曲線で図示された埋没史であるから, 最大値に対する本来の熟成度の比率, $(AEF'G'G''G'''G''''\text{の面積})/(AEFG\text{の面積})$ から求める, としている。

HOOD *et al.* (1975) は堆積物が過去に受けた最大温度 ($T_{\max}$) とそれより 15°C 低い温度の間に滞留していた有効加熱時間 (effective heating time, t_{eff}) に基づいて LOM なる熟成度スケールを求めた。LOM は反射率と

1 以後, 温度を表わす記号として, 熱力学温度のときは T_k , セルシウス温度のときは T_c を用いる。

2 藤田 (1976) は KARWEIL ノモグラムを検討し, Z スケールが次式で表わされることを示した。

$$Z = 240 \cdot t \cdot \exp(-8400/RT_k)$$

ただし, t : Ma, R : $1.987\text{cal}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$

対応し $9 \sim 16$ は $0.69 \sim 2.55\%$ R_0 に相当する。上記2者と異なり活性化エネルギーは熟成の進行とともに $75 \sim 138\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ ($=18 \sim 33\text{kcal}\cdot\text{mol}^{-1}$) と大きくなり, 温度係数2の関係もほぼ満足している。

2.2.2 温度係数2に基づくもの

LOPATIN (1971) は Arrhenius 式と天然の石炭化現象で観察された活性化エネルギーの検討から, $50 \sim 250^\circ\text{C}$ の温度範囲での石炭化の反応速度変化が温度係数2で近似されることを示した。KARWEIL ノモグラムは最大温度とその温度での時間効果のみを対象としているが, 石炭の受けた全熱履歴を考慮すべきとして “temperature-time index, τ ” を提起した。 τ は $\tau = \sum_{i=1}^{18} \gamma_i D_i$ で定義される。ここに, D_i は $50 \sim 230^\circ\text{C}$ 間の 10°C 間隔の温度帯に滞留した時間 (Ma, million years) で, γ_i は $100 \sim 110^\circ\text{C}$ における反応温度を基準としたときの各温度帯での速度比である。すなわち τ は, 石炭の根源物質が堆積してから現在に至るまでに受けた温度と時間の相乗効果の積分値と同等の値を得るまで $100 \sim 110^\circ\text{C}$ で反応させた, と仮定した場合の所要時間に相当する。

SHIBAOKA & BENNETT (1977) は対象とする地層が堆積後1000万年ごとに滞留した平均温度 (T_c) を段階的に求め, 各温度帯における熟成の進行に対する温度・時間効果を積分して熟成度を推定している。ちなみに彼らのノモグラムを, 時間を t (Ma) として $R_0=0.4 \sim 1.0\%$ で数式化すると

$$\log R_0 = 0.0045 T_c + 0.149 \log t - 0.87 \quad (6)$$

となる。この手法は藤田・関口 (1979) によって裏日本堆積盆に応用されており, 本論の主題もそこにあるので詳細は後節にて触れる。

3. 熟成度の上昇反応における見掛けの活性化エネルギー

図1の各ノモグラムの熟成度(反射率)と温度・時間

図2 各ノモグラムの Arrhenius 型プロット

の関係を Arrhenius 型プロットに統一すると (図2), Arrhenius 則に基づくものは等反射率線が直線になるが, 温度係数則は曲線になる^{注1)}。すなわち, 後者は温度が高くなるほど等反射率線の見掛けの活性化エネルギーが大きくなることを示している。図2によると, 各ノモグラムの等反射率線と温度・時間の関係が一致しないのが明瞭である。すべて野外研究から得られたもので, 時間と温度一特に古地温の設定に仮定が入っている。つまり, ある反射率 (実測値) をもたらした埋没史の復元の困難さを示唆している。

図において, 勾配の差は見掛けの活性化エネルギーの差を示しており, 特に KARWEIL (BOSTICK) のは他の3者に比べかなり急である。KARWEIL は $35\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ ($=8.4\text{kcal}\cdot\text{mol}^{-1}$) と一定値にしたが, HOOD らは反射率 $0.7\sim 2.0\%$ で $75\sim 126\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ ($=18\sim 30\text{kcal}\cdot\text{mol}^{-1}$) を得ている。また, SHIBAOKA らは未報告であるが, ノモグラムから $0.7\sim 2.0\%$ で約 $84\sim 121\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ ($=20\sim 29\text{kcal}\cdot\text{mol}^{-1}$), LOPATIN は約 $67\sim 80\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ ($=16\sim 19\text{kcal}\cdot\text{mol}^{-1}$) と算出された^{注2)}。いずれも熟成の進行に伴って大きくなっている。

HOOD *et al.* も述べている如く, 彼らが検討した時間と温度範囲では, Arrhenius 則に基づく等反射率線 (等 LOM 線) は温度係数2の条件をほぼ満足している。しかし, これを若い堆積盆の時間にまで延長するとその誤差は大きくなる。

以上述べた各相違点は埋没史の復元精度の問題があるにせよ, 基本的には反射率上昇時の見掛けの活性化エネルギーに対する考え方の違いによっている。したがって

- 1) 反射率の上昇をもたらす化学反応の活性化エネルギーは KARWEIL のごとく一定なのか, あるいは反射率の上昇に伴って大きくなるのか?
 - 2) ある一定の反射率をもたらす反応の温度と時間の関係は温度係数2を満足するのか?
- といった問題点が挙げられる。

4. 石炭の熱分解実験

ここでは藤田ら (1978) の石炭の熱分解実験を補足, 再検討した結果を述べる。

試料として山形県西田川炭田中山炭 礫の褐炭 ($R_0=0.26\%$) と北海道羽幌の築別炭 ($R_0=0.45\%$) を用いた^{注3)}。調整した恒湿試料を窒素気流中にて定温加熱し,

石炭の炭化過程にみられる重量変化と加熱炭の反射率を測定した。加熱装置は数秒で所定の温度 ($333\sim 753\text{K}$ ($60\sim 480^\circ\text{C}$)) の得られる真空理工 (鋼製赤外線急熱天秤) を, また窒素ガスは純度99.9%の市販物を用いた。反射率測定については平井 (1979) を参照されたい。

図3 中山炭の定温・定時間加熱によるビトリナイト反射率の変化

図4 ビトリナイト反射率およびクロジェンの H/C 原子比と温度・時間の関係

●: ISHIWATARI *et al.* による測定点と H/C 原子比 E_a : 単位は $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$

中山炭を一定温度で10分ないし100分間加熱すると, $\log R_0$ と $1/T_k$ は $0.4\sim 0.5\%$ R_0 以上ではほぼ直線関係になる (図3)。これを $\log t-1/T_k$ 座標に変換すると図4の等反射率線 (実線) が得られ, その勾配から計算される見掛けの活性化エネルギー (E_a) は R_0 の増大とともに大きくなる。また, 加熱時間10分と100分との時間比と等反射率値をもたらす温度差をみると, 温度係数2の条件をほぼ満足している^{注3)}。

PETERS *et al.* (1977) はクロジェンの熱分解による色の变化から, 半定量的に活性化エネルギーを推定した。藤田ら (1978) はその H/C 原子比を数値解析し, $\text{H/C}=1.1$ と 0.6 の温度と時間の関係が石炭の実験結果と

この場合, 10分加熱を基準にすると, 100分では等反射率をもたらす温度が 33.2°C 低いと温度係数2を満足する。

1 LOPATIN に関しては, 各反射率値に対応する t 値 ($100\sim 110^\circ\text{C}$ の一定温度で加熱した場合に要する時間) を求め, 他の温度領域へは温度係数 "2" に基づいて描いた。

2 SHIBAOKA らと LOPATIN は温度係数則に基づいた活性化エネルギーは高温部ほど大きくなるが, 平均的値で示した。

3 中山炭礫の褐炭は株式会社テルナイトの, また築別炭は石炭技術研究所のご好意による。記して謝意を表します。

一致することを示した(図4の点線)。

室内実験では、短時間に自然現象と同じ段階の結果を得るため反応温度を高くするのが常である。したがって、地質断面中の温度領域では観られない現象の起こる可能性がある。圧力も同様である。よって実験結果が地質現象に適用し得るか否かが問題となる。

図5 ケロジェンの熱分解生成物—ノルマルアルカン—量とケロジェンの H/C 原子比, およびビトリナイト反射率の関係

ISHIWATARI *et al.* (1976) によるケロジェンの熱分解で生成したノルマルアルカンの量とケロジェンの原子比の関係を図4より得た反射率と比較すると、反射率0.4~0.5%からアルカンが増大し、約1.0%でピークに、1.2%ではほとんどゼロになる(図5)。これは自然界でわれわれが経験する現象と非常によく一致している(例えば平井, 1979, 図8)。

図6 石炭の熱分解における残量(y , 無灰基)と反射率の関係

M: 水分, VM: 揮発分, FC: 固定炭素

石炭の熱分解の初期に水分が抜け、次いで揮発分が逸散すると仮定した場合、反射率の上昇は大部分揮発分の減少に支配される(図6)。加熱炭の揮発分(d. a. f., 計算値)と反射率の関係は、TEICHMÜLLER (1971) の天然炭のそれと良く一致している(図7)。

以上の結果は、自然界の有機物熟成度の予測に対し、実験から得た知見が適用し得ることを示唆している。ただし、見掛けの活性化エネルギーが反射率の上昇とともに

図7 加熱炭と天然炭にみられる揮発分と反射率の関係
●: 加熱炭, ○: TEICHMÜLLER (1971)

に増加する、という傾向はHOOD らやSHIBAOKA らと同じとはいえ、その絶対値は2~3倍になっている。また、実験データが温度係数2をほぼ満足しても、文献にみられる地質時代の反射率とはその関係にない。したがって、反射率上昇の化学反応論には、まだ今後課題が残されている、といえる。

しかしながら、天然炭の石炭化における見掛けの活性化エネルギーが $35 \sim 126 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ ($= 8.4 \sim 30 \text{ kcal} \cdot \text{mol}^{-1}$) とかなりの幅で見積られていること(LOPATIN, 1971)、実験から熟成の進行とともに活性化エネルギーが大きくなる可能性、ならびに等反射率に至る温度と時間の関係が温度係数2をほぼ満足するのが示唆されたこと、等々を考え合えると、地質断面中で測定された反射率が温度係数2で変化すると仮定しても、比較的限られた温度・時間の範囲では、有機物熟成度を予測するのに大きな矛盾は生じないと考えられる。以上を踏まえて、本論ではSHIBAOKA & BENNETT (1977) 方式に準じた。

5. 温度係数“2”に基づくノモグラムの基本理論

5.1 図式による解説

図8の左側に示したごとく、現在から t (Ma)前に堆積した有機物が、堆積時Aより現在温度 $T_{\text{max}}(^{\circ}\text{C})$ のB点までABなる直線状に埋没した場合を考える。

図8 温度係数“2”に基づくノモグラムの概念図

今、 t (Ma)なる時間の埋没史を微小間隔 Δt で区切ると、各時間ごとに有機物が被った平均温度 $T_1, T_2, \dots, T_i, \dots, T_n$ (最終温度 $T_{\max}$) が求まる注。各温度帯に有機物が滞留していたときの熟成度、つまり反応達成率の上昇分 ΔZ は(5)式より導かれる

$$\log \Delta Z_i = a' T_i + \log \Delta t + c' \quad (7)$$

よるので、各温度帯ごとの上昇分を最終温度 T_n まで積分すれば、B点での反応達成率 Z_n が求まる。

つまり、図8の右側において最初 T_1 なる温度で Δt 時間だけ反応が進むことにより、反応達成率が $Z_1 (= \Delta Z_1)$ になったとする(①の点まで進む)。このとき Z_1 すなわち ΔZ_1 は(7)式で定義される。同様に、次の温度 T_2 でも Δt 時間反応が進むが、この場合、反応の開始点(反応に先立ち、有機物がすでに保持している反応達成率)は①点になる。①と②で結ばれるラインは同一の反応達成率 Z_1 を示すもので、このラインの勾配は温度係数2によって決定される。すなわち、温度 T_1 で Z_1 に至るのに t_1 だけ時間を要したから、堆積直後より T_2 なる温度で反応が進んだと仮定した場合、 Z_1 に至るまでに要する時間 t_1' は、(1)、(4)式より求まる

$$t_1' = t_1 2^{-(T_2 - T_1)/10} \quad (8)$$

による。 T_2 と t_1' とにより決定された点②は T_2 なる温度帯での反応開始点となり、さらに Δt 時間反応が進んで②の達成率 $Z_2 (= \Delta Z_1 + \Delta Z_2)$ が得られる。ここで時間座標の t_2 は

$$t_2 = t_1' + \Delta t \quad (9)$$

SHIBAOKA & BENNETT (1977) は Δt を1,000万年にしているが、この時間刻みでは日本の堆積盆は検討できない。また、温度はセルシウスであるが、記号を T_c とすると以下が煩雑になるため、ここでは T を用いた。

で定義されるから、②は T_2 と t_2 で決定される。これらの手順を最終温度 T_n にまで延長すると、温度 T_n と時間 t_n で点⑩が求まる。この⑩は堆積時から現在に至るまでの反応達成率の積分点である。

以上の過程で、(7)式で定義される ΔZ_i やその積分値 Z_i は、(7)式の c' (すなわち(5)式の c') が確定していないので求められない。しかしながら(8)と(9)式を繰り返す作図により決定される。最終点⑩、つまり対象層準の現在の熟成度を示すビトリナイト反射率が既知であれば、 Z_n を反射率に置き換えることができる。すなわち、 Z は反射率と関数関係にあり、反射率と温度・時間の関係を導くための媒介変数である。したがって、異なる層準の⑩を数多く求め反射率の実測値と変換すれば、熟成度予測のためのノモグラムが作成できる。

5.2 t_n の極限值

前項の作図で求めたのは最終点の座標 (T_n, t_n) であったが、その手順は煩雑である。しかし、 $n \rightarrow \infty$ としたときの T_n の極限は $T_{\max}$ になるから、 t_n の極限值が求められれば作図による必要が無くなる。そこでまず単純な例として、対象層準の埋没史 ($T-t$) すなわち図8のA→Bが直線で近似される場合を考えると、(8)、(9)式の実アルゴリズムにより次式が得られる。

$$t_n = \Delta t (1 + 2^{-\Delta T/10} + \dots + 2^{-(n-1)\Delta T/10}) \quad (10)$$

右辺の () 内を変形すると

$$\begin{aligned} t_n &= \Delta t (1 - 2^{-\Delta T/10})^{-1} (1 - 2^{-n\Delta T/10}) \\ &= \Delta t \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{(\Delta T/\Delta t) \ln 2}{10} \Delta t\right) \right\}^{-1} \\ &\quad \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{\ln 2}{10} n \Delta T\right) \right\} \end{aligned} \quad (11)$$

ここで $\Delta T/\Delta t$ (°C/Ma) は埋没過程での増温率で、定数

として扱える。したがって、(11)式において $\Delta t \rightarrow 0$ (すなわち $n \rightarrow \infty$) とすると

$$\lim_{\Delta t \rightarrow 0} t_n = \frac{10}{\ln 2} \left(\frac{\Delta t}{\Delta T} \right) \left\{ 1 - \exp \left(-\frac{\ln 2}{10} T_{\max} \right) \right\} \quad (12)$$

われわれが対象とする層準は一般に50°C以上の温度帯に位置するので、(12)式の指数項は無視できる。また、この極限値は図8右側のB'点(温度は $T_{\max}$)の時間 $t_{r\max}$ を意味しており、結局次式が得られる。

$$t_{r\max} = \frac{10}{\ln 2} \left(\frac{\Delta t}{\Delta T} \right) = 14.4 \left(\frac{\Delta t}{\Delta T} \right) \quad (13)$$

作図から求めた⑥点と数式によるB'点は同一の反応達成率ライン上にあり、 $\Delta t \rightarrow 0$ とすることにより⑥がB'まで収斂したことになる。

5.3 $t_{r\max}$ について

(13)式において $\Delta T = 14.4^\circ\text{C}$ とすると $t_{r\max} = \Delta t$ となる。この Δt は現在温度が $T_{\max}$ である堆積物(点B)が $T_{\max}$ より14.4°C低かった時代(点C)から現在点まで埋没するのに要した時間である。つまり、現在の熟成度はこの温度範囲とそこに滞留していた $t_{r\max}$ 時間内に決定されたといえる。したがって、それ以前の埋没史(A→C)における熟成度の上昇に対する温度・時間効果は無視できる。

HOOD *et al.* (1975) は熟成度を決定する有効被熱時間(t_{eff})として対象層準が最大古地温から15°C以内に滞留していた時間を設定したが、この温度範囲は筆者らが数式から求めた値と非常によく一致している。

また、図8ではA→Bなる単純な埋没史を考えたが、実際にはいかなる埋没史一例えば埋没・隆起・再埋没一を経ようと、有機物が過去に被った最大古地温の14.4°C以内に滞留していた時間を求めれば、その熟成度が予測できる。さらに、埋没史から過去の任意の時点での古地温と $t_{r\max}$ を推定すれば、熟成度の復元も可能となる。

6. 新潟堆積盆における熟成度予測

6.1 基礎試錐下五十嵐の反射率と温度・時間の関係

新潟堆積盆西蒲原地域の基礎試錐下五十嵐・吉田・升潟・月潟の反射率を前述の手法で検討し、熟成度予測のためのノモグラムを作成した。(T, t)座標を決定するに当り、古地温勾配は暫定的に現在値とし、絶対年代はMAIYA *et al.* (1976) によった。西蒲原地域を対象としたのは、現在がほぼ最大埋没深度と見做せるので地質断面の復元による誤差が少ない、と考えられたからである。

図9は下五十嵐から得られたノモグラムで、その反射率と温度(T :°C)・時間(t :Ma)の関係は

図9 新潟堆積盆西蒲原地域から得たノモグラム(基礎試錐下五十嵐に基づく)

$$\log R_0 = 0.0026 T_c + 0.088 \log t - 0.52 \quad (14)$$

で示される。埋没史から $T_{\max}$ と $t_{r\max}$ を求めて(14)式に代入すれば、反射率 R_0 が算出される。

下五十嵐とHOODらおよびSHIBAOKAらの各ノモグラムを比較すると、下五十嵐の0.7と1.0%はHOODらとはほぼ一致するが、SHIBAOKAらとは1.0を別として0.7と0.5%とがかなり異なる(図10)。この違いはおの

図10 下五十嵐, HOOD *et al.* および SHIBAOKA & BENNETT のノモグラム比較のための Arrhenius 型プロット

おのの対象とした地質断面の古地温の見積り誤差によるものと解釈される。しかしながら、前述の $t_{r\max}$ の考察から、HOODらの信頼性が高いと考えられること、およびそれと下五十嵐とが地質時代の異なる層準を対象としているにもかかわらず、かなりよく一致している(図10)ことからして、下五十嵐の反射率と温度・時間の関係((14)式)は国内の若い堆積盆に対する1つの基準となろう。

6.2 西蒲原地域の熟成度

検討井によると、西山層・椎谷層の増温率($\Delta T/\Delta t$)は約40~80°C/Maであった。したがって(13)式より、

t_{rmax} は0.36~0.18Ma である。つまり、これらの層準の有機物熟成度は約40~20万年前から現在に至る間の温度によって決定されたといえる(図9の点描の領域)。すなわち、西蒲原地域一特に埋没史が単調な地域では現在温度が最高温度と仮定できるので、直ちに熟成度が予測できる。例えば150°Cであれば $R_0=0.65\%$ となる。しかし、基礎試錐升湯や月湯では現在温度から予測される反射率に対して実測値は約0.1%高目であった。これは下五十嵐を基準にすると、相対的に古地温が約30°C高かった場合に相当している。これら両井の最深部には火成岩類が発達しているため、それによる熱の影響の差が現われていると解釈される。

また、著量の石油系炭化水素の生成開始点を示すビトリナイト反射率値は、地質断面中では約0.5%といわれてきた。西蒲原地域ではその値を決定した有効時間からすると、現在の地温が約95~110°Cの温度帯に位置することがわかる(図9)。

7. ま と め

有機物の熟成度一特にビトリナイト反射率の上昇に対する化学反応速度論の基礎として、Arrhenius 則と温度係数“2”の2つの経験則がある。前者を適用して熟成度を予測するには、反射率上昇の化学反応機構が解明されなければならないが、本論で考察したごとく現時点では非常に困難である。そこで筆者らは、実験からも得られた平均的溫度係数“2”でもって反射率が上昇すると仮定して、新湯堆積盆西蒲原地域の4本の基礎試錐井を検討した。

1) ビトリナイト反射率は、最大古地温(T_{max})とそれより14.4°C低い温度($T_{max}-14.4$)に挟まれた温度帯に滞留していた時間(t_{rmax})により決定される。この温度範囲は Hood *et al.* (1975) が別法で得た15°Cとよく一致している。

2) 基礎試錐下五十嵐から得た反射率と温度・時間のノモグラム(図9)および関係式(14式)は、古地温勾配や堆積速度に関する仮定が入っているが、国内堆積盆の熟成度予測には一応の基準になるであろう。また、より古い時代の堆積物にはHood *et al.* のノモグラムが適用していると考えられる。ただし、ノモグラムや関係式の精度向上のため、さらにデータを補充しかつ七谷層準にまで拡張した検討が必要である。

3) 西蒲原地域の西山~椎谷層の現在の熟成度は、その増温率からみて約20~40万年前から現在に至るまでの温度効果により決定された、と考えられる。

泥岩孔隙率の埋没による変化を考慮しても、増温率は最高15%位低くなるだけである。つまり t_{rmax} は最高で約20%大きくなるが、評価される熟成度は大差ない。

4) 著量の石油系炭化水素の生成開始点を示すビトリナイト反射率は坑井データから約0.5%といわれてきたが、今回、実験からも同じ値を得た。西蒲原地域では反射率0.5%を決定した有効時間あるいは増温率からすると、約95~110°Cの温度帯に位置している。

有機物熟成度の予測は増温率に大きく影響を受ける。増温率は堆積物の絶対年代と古地温に決定されるので、予測技術の精度向上には正確な年代と古地温による埋没地史が重要になる。

謝 辞

本稿を草するに当たり、公表を許可していただいた帝国石油(株)常務取締役荒川洋一氏ならびに同技術研究所長中山兼光博士に深く感謝する。また同研究所藤田嘉彦博士には本研究に関するアイデアを初めとしてご指導、ご鞭撻をいただいた。金塚栄・清水進の諸兄を初めとする同社技術研究所の諸氏には実験・測定に、また日頃の討論に協力を惜しまれなかった。以上の諸氏のご好意に対し記して心から謝意を表する。

引 用 文 献

- 相原安津夫(1978): 不整合, 127-129, 東海大海洋研.
 BOSTICK, N.H. (1973): *7th Cong. Internat. Strat. Geol. Carbonif.*, Krefeld, 1971, *Compte Rendu*, no. 2, pp. 183-193.
 藤田嘉彦(1976): 帝国石油(株)技研報告, vol. 28, no. 1, pp. 17-33.
 —, 平井明夫, 関口嘉一, 清水 進(1978): 石技誌, vol. 43, p. 247.
 —, 関口嘉一(1979): 石技誌, vol. 44, pp. 221-222.
 平井明夫(1979): 石技誌, vol. 44, pp. 190-195.
 HOOD, A., GUTJAHR, C.C.M. and HEACOCK, R.L. (1975): *A.A.P.G. Bull.*, vol. 59, pp. 986-996.
 HUNT, J.M. (1979): *Petroleum Geochemistry and Geology*, pp. 320-348, pp. 454-469, W.H. Freeman and Company.
 ISHIWATARI, R., ISHIWATARI, M., KAPLAN, I.R. and ROHRBACK, B.G. (1976): *Nature*, vol. 264, pp. 347-349.
 KARWEIL, J. (1956): *Z. deutsch. geol. Ges.*, vol. 107, pp. 132-139.
 LOPATIN, N.V. (1971): *Akad. Nauk SSSR Izv. Ser. Geol.*, no. 3, pp. 95-106 (in Russian), English transl. by N.H. BOSTICK, Illinois State Geol. Survey, 1972.
 MAIYA, S., SAITO, T. and SATO, T. (1976): *in Progress in Micropaleontology*, pp. 395-422.

- PETERS, K.E., ISHIWATARI, R. and KAPLAN, I.R. (1977): *A.A.P.G. Bull.*, vol. 61, pp. 504-510.
- SHIBAOKA, M. and BENNETT, A.J.R. (1977): *Aust. Petrol. Explor. Assn. J.*, vol. 17, pp. 1-6.
- TEICHMÜLLER, M. (1971): *Erdöl und Kohle. Erdgas. Petrochemie vereinigt mit Brennstoff-Chemie*, vol. 24 pp. 69-76.
- TISSOT, B.P. and WELTE, D.H. (1978): *Petroleum Formation and Occurrence*, pp. 449-470, Springer-Verlag.