タイ湾 Erawan ガス田における天然ガス中の炭酸ガスと窒素の起源

—炭素同位体組成による考察—

藤 原 昌 史*・佐々木 詔 雄**

(昭和62年 7 月10日受付, 62年12月 2 日受理)

An Isotopic Study on the Origin of Carbon Dioxide and Nitrogen in Natural Gases of the Erawan Gas Field, the Gulf of Thailand

By

Masashi FUJIWARA and Akio SASAKI

Abstract: In this paper, the origin of carbon dioxide and nitrogen in natural gases produced from the Erawan gas field is discussed on the basis of carbon isotopic data and several geological evidences. Maximum contents of carbon dioxide and nitrogen in natural gases recovered from three wells at the northwestern flank of this field, are 59.72 % and 21.38 %, respectively.

As a result of carbon isotopic studies of methane, ethane and carbon dioxide in 11 gas samples of those wells, natural gases are divided into two groups, such as group A and group B.

The group A is characterized by heavy methane (-30 to -33% PDB) on carbon isotopic composition, and by high contents of carbon dioxide and nitrogen. Gases of this group are a mixture of magmatic gases and organic-origin gases. The magmatic gases consisting of mainly carbon dioxide, nitrogen and heavy methane have migrated into the present reservoirs from the pre-Tertiary basement through the east-dipping faults cutting the basement.

The group B is characterized by normal contents of carbon dioxide and nitrogen, and by lighter methane (-38 to -41% PDB) on carbon isotopic composition. Gases of this group have been generated from the organic matters in the Tertiary sediments by thermal maturation.

1. はじめに

天然ガスは有機的成因と無機的成因のものに大別されている。有機的成因のガスは、堆積物中のケロジェンが生化学的ないし熱的作用で分解する過程で生成されたものであり、炭化水素を主成分とし、炭酸ガスや窒素などの不燃性ガスを随伴する。無機的成因のガスは、主に火山・地熱地帯や海嶺から噴出するマグマ起源のガスで、炭酸ガス、窒素および少量のメタンから成り、高い濃度の希ガス（ヘリウム、アルゴンなど）を含む。

油・ガス田から生産される天然ガス中には、高濃度の炭酸ガスや窒素を含む場合がある (DOBBIN, 1968; 加藤, 1976)。この天然ガス中の不燃性ガスの成因に関する研究は、炭化水素の成因についての研究に比べて著しく少ない。

RIGBY and SMITH (1984) は、豪州の Cooper 堆積盆地から産する天然ガスの成因を考察し、天然ガス中の炭酸ガスが花崗岩またはマグマに由来すると結論づけた。WEISMANN (1971) はテキサス州の Delaware-Val Verde 堆積盆地において、天然ガス中のメタン・炭酸ガス間の同位体平衡温度と炭酸ガス濃度が調和することを認め、高濃度の炭酸ガスが第三紀火成岩の进入到

* 東南アジア石油開発㈱

** 三井石油開発㈱

起因すると述べた。佐々木(1986)は、タイ湾の Platong ガス田における炭酸ガスの産状と地質的諸現象の関連性から炭酸ガスの成因と濃集機構を検討し、ケロジェンの熱分解説、マグマ起源のガスの上方移動説および鉱化溶液による炭化水素酸化説を考えた。

炭酸ガス、窒素および希ガスの濃集は、鉱物資源として有用であり、石油開発業界では炭酸ガスを原油の二次回収剤として利用している。しかし、天然ガス中に含まれる炭酸ガスや窒素は、パイプ・機器の腐蝕、ガス発熱量の低下や脱炭酸ガス装置の設置などで、その取り扱いに苦慮する場合が多い。

本論では、Erawan ガス田の坑井資料を基に炭酸ガスと窒素の時空間的分布と地質的現象の関係、および本ガス田北西部の探掘井から採取された天然ガスの炭素同位体組成とガス組成データを総合的に検討し、天然ガス中に含まれる炭酸ガスと窒素の起源を考察する。

2. 炭酸ガス・窒素の濃度とその分布形態

Erawan ガス田は、タイ湾の中央部に発達する第三系堆積盆地の一つ、パタニトラフの西縁部にあり、南北約30km、東西約8 km の地溝型背斜構造である(図1)。このガス田は、他の3つのガス田同様、多数の南北性の正断層によって構造の両翼部が切られている。

この地域における第三系の地質層序は、WOODLANDS and HAW (1976), ACHALABHUTI (1981) や佐々木(1985) などによって記述されているが、本論では LIAN and BRADLEY (1986) が設定した地質層序区分にしたがった。それによると、タイ湾のガス田の地質層序は、4つの地層区分(ユニット)に分けられ、下位より河川～デルタ性の環境下で堆積したI層(漸新世後期～中新世前期)、比較的連続性のよい砂岩や石炭の薄層を挟む浅海成堆積物のII層(中新世前期)、雑色～赤色頁岩で特徴づけられる陸成堆積物のIII層(中新世中期)とIII層を不整合に覆う浅海～潟成堆積物のIV層(中新世後期～現世)から成る。

Erawan ガス田の天然ガスは主に、深度1,200～2,750 m のI層からIII層中の砂岩に賦存し、その鉱床タイプは背斜、断層、層位封塞およびそれらの組み合わせトラップである(藤原ら, 1986)。

Erawan ガス田における天然ガス中の炭酸ガス濃度は、一般に深度の増大とともに増加し、深度1,500mで約5%, 2,800mで約20%である(図2)。しかし、探掘井 Well-1, 2, 3 号井(表1)や幾つかの生産井において、約2,000m以深の層準に、炭酸ガス濃度が30～69%に達するものもあり、深度に対して不規則な分布を示す。この炭酸ガス濃度の深度分布は、本ガス田北方約

図1 タイ湾のガス田位置図およびパタニトラフ概略図
数字は先第三系の基盤深度(メートル)

図2 Erawan ガス田における炭酸ガス濃度の深度分布

30km の Platong ガス田の分布(佐々木, 1986)と類似する。

図3に Erawan および Satun ガス田における天然ガス中の窒素濃度と深度の関係を示した。パタニトラフのほぼ中央部に位置する Satun ガス田の窒素濃度は、ガス層の深度にかかわらずほとんど1%以下と極めて低い。一方、Erawan ガス田における窒素濃度は、Satun ガス田のものと比べて全般に高く、5%以上の窒素を含むガス層が全体の約2割を占め、特に Well-1, 2, 3 号井では13.5～21.4%に達する。この高濃度の窒素を含むガ

表1 Erawan ガス田の探掘井 Well-1, 2, 3 号井における天然ガス組成

Sample No.	Well	Depth (m)	C ₁ (%)	C ₂	C ₃	iC ₄	nC ₄	C ₅ +	CO ₂	N ₂	WETNESS*
1	3	2187	69.20	2.70	1.39	0.31	0.27	0.32	11.82	13.99	0.07
2	3	2235	64.54	2.64	1.36	0.31	0.23	0.31	16.34	14.27	0.08
3	2	1854	74.75	8.99	4.36	1.09	0.82	0.74	7.99	1.26	0.21
4	2	2002	70.81	9.73	4.91	1.12	0.97	0.41	9.73	2.32	0.24
5	2	2239	51.31	6.89	3.21	0.74	0.69	0.70	30.72	5.74	0.24
6	2	2281	55.18	7.88	6.46	1.72	1.29	0.90	21.03	5.54	0.33
7	2	2494	56.72	2.24	0.76	0.11	0.12	0.13	18.54	21.38	0.06
8	1	2053	60.55	6.51	2.80	0.59	0.49	0.42	19.23	9.41	0.18
9	1	2344	63.31	8.80	4.46	1.01	0.93	0.88	15.01	5.60	0.25
10	1	2661	27.40	0.48	0.28	0.06	0.08	0.23	58.99	12.48	0.04
11	1	2680	25.84	0.43	0.24	0.05	0.07	0.16	59.72	13.49	0.04

* WETNESS=(C₂+...+C_n) / C₁

図3 Erawan および Satun ガス田における窒素濃度の深度分布

ス層は約2,000m以深の層準に限られ、炭酸ガス濃度の深度分布と調和的である。

Erawan ガス田におけるI層中の炭酸ガス濃度の水平的分布を図4に示した。なお、同一坑井のI層中に幾つかのガス層がある場合はその最大値を表示した。その濃度は、本ガス田の東部や南部ではほぼ20%未満であるが、北西部では極端に大きい値を示し、Well-1, 2, 3号井

図4 Erawan ガス田I層における炭酸ガス濃度の平面分布。

□印は生産プラットフォームを表わす。

周辺部では約60%に達する。一方、層序的に上位のII層中の炭酸ガス濃度は20%以下で、全体的にI層より低い値を示し、I層のように局所的な高濃度異常区域は認め

図5 Erawan ガス田 I 層における窒素濃度の平面分布

□印は生産プラットフォームを表す。

られない。このように、炭酸ガスに富むガス層は、本ガス田の北西部に集中し、層序的に最も古い I 層に限定されている。

Erawan ガス田における I 層中の窒素濃度の水平的分布(図5)は、炭酸ガスの濃度分布と同じ傾向を示し、ガス田の南部では2.5%未満と低い。それに対して、北西部では5%以上の窒素を含むガス層が多数賦存し、Well-2 号井では最大21%に達する。

Erawan ガス田には南北性の正断層が多数発達しており、炭化水素賦存層は、これらの断層によってブロック化されている。そこで、断層ブロックに投影された各坑井の坑跡図に各ガス層の空間的位置を表示し、各断層ブロック内の炭酸ガスおよび窒素の濃度変化と断層との相関性を検討した(図6)。炭酸ガスと窒素の濃度分布は、F-2 断層を境に東側の断層ブロック群(以下、中軸区域)と西側の断層ブロック群(以下、西部区域)に区分される。中軸区域に分布するガス層の炭酸ガスと窒素濃度は、それぞれ、19%と4.9%以下である。一方、西部区域の炭酸ガス濃度は30%を超すものが多く、特に

図6 Erawan ガス田西部における断層ブロックと炭酸ガス・窒素濃度との関係

図6の範囲は図4、5に示した。

□印は生産プラットフォームを表す。

Well-1 号井の深部では最大59.7%に及ぶ。また、西部区域の窒素濃度はほとんど5%以上の高い値を示し、Well-1, 2 号井の深部では13.5~21.4%に達する。

Well-1, 2 号井を通る東西地質断面(図7)に、炭酸ガスと窒素濃度の垂直変化を図示した。I 層最上部~II 層における炭酸ガスと窒素濃度は、中軸区域でそれぞれ20%, 3%以下と低い値を示す。一方、先第三系の基盤が比較的浅い西部区域において、炭酸ガスの濃度は深部のガス層ほど高くなる傾向を示す。同様の傾向は窒素でより顕著に表れている。したがって、炭酸ガスおよび窒素に富むガス層が西部区域の断層ブロックに集中する現象は、浅部にある基盤とそれを切る正断層に起因することを示唆している。

Platong と Erawan 両ガス田の炭酸ガス濃度分布状況を比較すると、幾つかの相違点が認められる。Platong ガス田において炭酸ガスを多量に含むガス層は、ガス田の西部に賦存し、南北方向に伸長なドーム状分布を示し、地質層と斜交する特異な形態をしている

(佐々木, 1986)。Erawan ガス田北西部に集中する高濃度の炭酸ガスを含むガス層は、層序的に最下位の I 層に限定されている。また、Platong ガス田の窒素濃度がほぼ 2% 以下と低く、炭酸ガス濃度と相関性を示さないのに対して、Erawan ガス田北西部の窒素濃度は深度とともに増加し、その高濃度区域は炭酸ガスの高濃度区域とはほぼ一致する。

このように、炭酸ガス濃集帯の層準の差異や窒素高濃度区域の有無は、Erawan と Platong 両ガス田で炭酸ガス・窒素の濃集機構が若干異なることを示唆する。

3. 地質的現象による起源の推定

多くの文献 (TISSOT and WELTE, 1978 など) で論じられているように、天然ガス中の炭酸ガスや窒素の生成機構は多様で、有機物の質・熟成度、堆積環境、火成・地熱活動や構造運動などが複雑に関係している。

佐々木 (1986) は、天然ガス中の炭酸ガス起源について 7 つの諸説を列挙し、Platong ガス田における地質的諸現象に基づいて、その成因の検討を行っている。また、窒素の起源は、一般に、有機物の微生物分解、タイプⅢケロジェンの熱分解、およびマグマの 3 つが考えられている (HUNT, 1979)。

本章では、特に Erawan ガス田北西部における高濃

度の炭酸ガスと窒素の生成要因について、これらの濃度分布状況と地質的特徴との相関性から推察する。

Platong と Erawan 両ガス田を比較すると、次のような地質的および構造的共通点が認められる。

- ① 第三系の岩相、堆積環境や埋没史が類似する。
- ② 第三系を貫く火成岩や厚い炭酸塩岩が認められない。
- ③ 両ガス田は堆積盆地の縁辺部に位置し、先第三系の基盤が比較的浅部に存在する。
- ④ 両ガス田は断層運動によって形成された地溝型構造で、ガス田西部に基盤を切る東傾斜の正断層が発達する。
- ⑤ 地層水的主要陰イオン成分は炭酸水素イオンである。
- ⑥ ガス賦存層は、約 120°C 以上の地層温度下にあり、ケロジェンの熟成帯に入っている。
- ⑦ 産出するガスは、コンデンセートを随伴する湿性ガスであり、広域かつ普遍的に低い濃度の炭酸ガスと窒素を含有する。

これらの共通点から Erawan ガス田の炭酸ガスと窒素の生成を推察すると、佐々木 (1986) が記述しているごとく、Erawan ガス田における比較的低濃度の炭酸ガスと窒素は、堆積初期に微生物によって有機物から生

図7 Erawan ガス田の東西地質断面図と炭酸ガス・窒素濃度との関係、ならびに炭素同位体組成によるガス層の分類
数字はモル%を表わす

化学的に生成されたものではなく、むしろ、埋没統成の過程で、木質～石炭質ケロジェンから熱的分解によって炭化水素とともに生成されたと考えるのが最も有力であろう。しかし、炭酸ガスや窒素濃度の変化が、いかなる物理的・化学的要因に支配されているのか明らかでない。例えば、これらのガスと地層水の化学的性質との関係や、高温・高圧下における溶解度などが検討されていないため、一義的にこれらのガスの生成を断定することは難しい。

しかしながら、前章で検討したように、Erawan ガス田北西部のⅠ層に賦存するガス層には、上記の有機成因説のみでは解決しがたい高濃度の炭酸ガスと窒素が含まれ、層序的に下位に向かって次第にその濃度が増す。こうした特徴を有するガス田北西部には、先第三系の基盤を切る東傾斜の正断層が多数存在する（図7）。これらの断層は、地下深部にあるマグマ起源のガスを上方移動させる通路の役割を果たしている（佐々木, 1986）。

一般に、堆積盆地の縁辺部にはマグマに起因する、比較的ヘリウム含有量の多い窒素系ガスや炭酸ガス系ガスが産出することが知られている（米谷, 1985など）。また、タイ国北部の地熱地帯において、 $\text{Na}^+ - \text{HCO}_3^-$ 型の温泉水とともに、炭酸ガス－窒素系ガスの産出が報告されている（HIRUKAWA *et al.*, 1987）。この地熱地帯の構造形態はタイ湾のガス田の基盤構造に似ている。

これらの地質的諸現象から推察すると、佐々木（1986）が述べたマグマ起源のガスの上方移動説は十分に考えられる地質モデルである。なお、佐々木（1986）が Platong ガス田の高濃度炭酸ガスの主成因とした鉍化溶液による炭化水素酸化説は、その根拠とした高比抵

抗、高密度の泥岩や低塩分濃度の地層水などの異常が認められないため、Erawan ガス田では考えられない。

4. 炭素同位体組成による起源の推定

4.1 炭素同位体組成の特徴

Erawan ガス田北西部の Well-1, 2, 3 号井のガス層から採取されたメタン、エタンおよび炭酸ガスの炭素同位体組成（ $\delta^{13}\text{C}$ ）の測定結果^{註1}を表2に示した。これらのガス層は深度1,854～2,680 m 間にあり、Ⅱ層の試料3を除いて、すべてⅠ層に賦存する。また、ガス層の層序的位置はⅡ層の基底を基準面とした相対深度で表示した（図8の左半分）。

メタンの $\delta^{13}\text{C}$ ^{註2} は-30.5‰から-41.3‰と幅広い範囲にあり、相対深度に対して不規則な分布をしている。しかし、これらの値は破線で示したごとく、メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値が-30.5～-33.1‰のグループAと-38.4～-41.3‰のグループBに大別される。なお、試料10は後述するようにグループAとBの両方の特性を有するため、グループABとした。グループAおよびB内におけるメタンの $\delta^{13}\text{C}$ は、それぞれ熟成の進んだ下位の層準に向かって次第に重くなるという一般的傾向（STAHL, 1975）を示す。しかし、グループAとBの相関性は相対深度に対して不連続であり、2つの異なるトレンドを持つ。例えば、Well-2 号井の試料3～6におけるメタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値は下位の層準に向かって次第に重くなるが、試料6と7間の $\delta^{13}\text{C}$ 値の変化は急激で、深度差がわずか213mであるのに5.4‰と大きい。

註1: Core Lab. 社による

$$\text{註2: } \delta^{13}\text{C} = \frac{(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{試料}} - (^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{標準}}}{(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{標準}}} \times 1,000 \text{ [‰]}$$

表2 Erawan ガス田の Well-1, 2, 3 号井における天然ガス中のメタン、エタン、炭酸ガスの炭素同位体組成とそれらの偏差

Sample No.	Well	$\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ (‰)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{C}_2\text{H}_6}$ (‰)	$\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ (‰)	$\Delta \delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4 - \text{C}_2\text{H}_6}$ (‰)	$\Delta \delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2 - \text{CH}_4}$ (‰)	GROUP
1	3	-32.9	-29.4	-9.1	3.5	23.8	A
2	3	-33.1	-29.4	-8.5	3.7	24.6	A
3	2	-41.3	-29.1	-10.6	12.2	30.7	B
4	2	-40.8	-30.0	-10.5	10.8	30.3	B
5	2	-39.0	-28.8	-7.0	10.2	32.0	B
6	2	-38.4	-29.8	-8.1	8.6	30.3	B
7	2	-33.0	-29.5	-10.0	3.5	23.0	A
8	1	-38.5	-29.0	-7.4	9.5	31.1	B
9	1	-31.4	-26.2	-7.1	5.2	24.3	A
10	1	-38.1	-29.0	-11.6	9.1	26.5	AB
11	1	-30.5	-27.8	-7.0	2.7	23.5	A

図8 Erawan ガス田の Well-1, 2, 3 号井で採取された天然ガスの炭素同位体組成とその偏差。

エタンの $\delta^{13}\text{C}$ は $-26.2 \sim -30.0\%$ と比較的狭い範囲にあり、試料9 (-26.2%) を除くと、相対深度に対して直線的に変化し、層序的に下位のエタンほど重い。

炭酸ガスの $\delta^{13}\text{C}$ は $-7.0 \sim -11.6\%$ の範囲にあるが、メタンやエタンのように相対深度と相関しない。

つまり、エタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値は深度とともに一様に変化するのに対し、メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値は漸移せず、急激に変化する。こうした特徴は、これらのガスが同一の起源を有するものではなく、何か異なった起源のガスが混入したことを示唆している。そこで、メタンおよび炭酸ガスの $\delta^{13}\text{C}$ 値から、これらのガスの生成機構を検討した。

図9は起源の判明しているメタンと炭酸ガスの炭素同位体組成の頻度分布図である。微生物によって生化学的に生成されたガスは、イタリアのポー堆積盆地のガス田 (MATTAVELLI, *et al.*, 1983) 南関東の水溶性ガス田 (NAKAI, 1960) と Deep Sea Drilling Project の浅層ガス (GALIMOV, *et al.*, 1983, 1985, 1985) の例、有機物の熱分解によるガスは豪州のクーパ堆積盆地^{註3} (RIGBY and SMITH, 1984), 台湾 (STAHL & TANG, 1971), 日本 (坂田ら, 1986), イタリア (MATTAVELLI, *et al.*, 1983), 米国 (ZARTMAN and WASSERBURG, 1961), ソ連 (PANKINA, *et al.*, 1979) の例, そしてマグマから由来したとされる地熱地帯のガスはハワイ島のワイラケ (BOTTINGA, 1969) の例を示した。

生化学的メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値は、ほぼ $-50\% \sim -90\%$ の

註3: RIGBY らによると、メタンは有機物の熱分解、炭酸ガスは花崗岩ないしマグマに由来するとしている。

図9 起源の異なる天然ガス中のメタン・炭酸ガスの炭素同位体組成とその頻度分布

* RIGBY and SMITH (1984) によると、Cooper 盆地の炭酸ガスは基盤の花崗岩またはマグマに由来する。

広い範囲にあり、地熱地帯の値は $-20 \sim -30\%$ と比較的狭い範囲にある。また有機物の熱分解の $\delta^{13}\text{C}$ 値は両者の中間領域に位置している。Erawan ガス田におけるメタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値 ($-30.5 \sim -41.3\%$) は有機物の熱分解の範囲にあり、明らかに生化学メタンの同位体組成と異なる。しかし、地熱地帯にみられるマグマ起源のメタンが付加した可能性は、その領域の一部が重複することから、全面的に否定できない。

炭酸ガスの $\delta^{13}\text{C}$ 値は $+10 \sim -26\%$ の範囲にあるが、起源による差異は不明瞭である。ワイラケ火山以外のマ

図10 Well-1, 2, 3号井における天然ガスのガス組成とメタンの炭素同位体組成との関係 (BERNARD *et al.* のダイアグラム).

1~11の数字は表1, 2の試料番号を示す。

グマ起源のガスの同位体組成値は、ハワイのキラウエア火山の“parent magma”で $-3.0 \sim -3.6\text{‰}$ (GERLAH and THOMAS, 1986), 南豪州の炭酸ガス井で $+3.7 \sim -4.3\text{‰}$ (CHIVAS *et al.*, 1987), イエローストンなどの地熱地帯では $+11.4 \sim -1.4\text{‰}$ の範囲内 (BOTTINGA, 1969) にあり、一般に重い炭素同位体組成が卓越する。有機物の熱分解によって生成された炭酸ガスの $\delta^{13}\text{C}$ 値は、ほぼ $+2 \sim -24\text{‰}$ の範囲で、マグマ起源のガスよりもやや軽い傾向がある。生化学起源の炭酸ガスの $\delta^{13}\text{C}$ 値は、熱分解起源のものとほぼ同じ領域を示す。Erawan ガス田の炭酸ガスの $\delta^{13}\text{C}$ 値 ($-7.0 \sim -11.6\text{‰}$) は、有機物の熱分解や生化学作用によって生成された炭酸ガスに近い値を示しているように見えるが、この頻度分布のみからその起源を推定することは困難である。

4.2 メタンの成因

メタンと炭酸ガスの $\delta^{13}\text{C}$ 値から天然ガスの起源を推定する場合、一般に他の地化学データと組み合わせて考察される。

BERNARD (1978) は、天然ガス中に含まれるメタン~プロパンのガス組成とメタンの炭素同位体組成の関係から炭化水素の成因を推定する方法を提唱した (図10)。Erawan ガス田の天然ガスは、すべて熱分解ガスの領域に入るが試料10を除いて、グループAとBに分けられる。グループBの炭化水素が軽いメタン ($\delta^{13}\text{C}$ 約 -40‰) と湿性ガスの多いガスから成るのに対して、グループAの炭化水素は重いメタン ($\delta^{13}\text{C}$ 約 -32‰) と比較的乾性なガスで特徴づけられる。

ここで、注目されることはグループAとBのガス組成、 $C_1/(C_2+C_3)$ 値においても、メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値と

図11 Well-1, 2, 3号井における天然ガス中のメタンとエタンの炭素同位体組成の関係 (SCHOELL のダイアグラム)。

図左下のMagmatic Gasは $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ と $\delta^{13}\text{C}_{\text{C}_2\text{H}_6}$ の関係ではなく、 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ の頻度分布 (図9)を示す。また、1~11の数字は表1, 2の試料番号を示す。

T: associated gases, TT (m): nonassociated dry gases from sapropelic liptinitic organic matter, TT (h): nonassociated dry gases from humic organic matter, M: mixed gases

同様に漸移的に変化せず、不連続的な点である。言い換えると、このガス組成の不連続性は何らかの条件がこれら2つのグループ間で異なることを示し、たとえば多量のメタンがグループAに混入したとも考えられる。

SCHOELL (1983) が提唱したメタンとエタンの炭素同位体組成のダイアグラム上に Erawan ガス田の値を表示した (図11)。Well-1, 2, 3号井の炭化水素は、SCHOELL の不定形質有機物から生成した乾性ガスの領域 TT (m) に入る。このダイアグラム上で特徴的な点は、エタンの値が $-27.8 \sim -30\text{‰}$ の狭い範囲に収斂している註4) に対して、メタンの値が不連続な A・B 2つ

註4: ただし、試料9は -26.2‰ と若干重い値を示す。

グループに分かれ、両者の間に約8‰の差を有することである。

この同位体組成の特徴を解釈するとき、次の地質モデルが想定できる。

- ① グループAとBのガスは、異なる根源有機物から生成され、それぞれ個別の貯留層に移動・集積した。
- ② グループBのガスは、約-32‰のグループAに“軽い”メタンの生化学的ガスが混入して形成された。
- ③ グループAのガスは、約-40‰のグループBに“重い”メタンを含むマグマ起源のガスが混入して形成された。

Well-1, 2, 3号井近傍では、有機物のタイプや熟成度などの石油根源岩調査が行われていないため、メタンおよびエタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値に与えるケロジェンの質的違いや熟成度の影響度を詳細に検討することはできない。しかし、佐々木(1986)が記述しているように、タイ湾のガス田における第三系の堆積環境や岩相は広域的に類似し、有機物の量やタイプとよく対応する。そして、I～III層の有機物は主に木質・石炭質ケロジェンから成り、熟成帯($R_o=0.5\sim1.2\%$)にある。

前述したように、エタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値が層序的に下位に向かって漸移的に重くなることは、エタンがある範囲内の熟成状況下でほぼ同一の有機物から生成されたことを支持する。ほぼ同一の有機物から熱分解によってメタンとエタンが同時に生成されたとすれば、エタン同様、メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値も下位の層準に向かって漸移的に変化し、ある範囲内に入るはずである。しかしながら、メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値は層序に対して連続的に変化せず、また、グループA, B間のメタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値には、熟成度だけでは説明しにくい偏差(約 $\delta^{13}\text{C}=8\%$)があることから、モデル①は考えにくい。

生化学的メタンの混入モデル②は、メタンの $\delta^{13}\text{C}$ 値とガス組成のダイアグラム(図10)や現在の地層温度分布等から判断して、ほとんど無視してよいだろう。

モデル③は、地下深部に存在する同位体組成的に非常に重いメタン(約 $\delta^{13}\text{C}=-20\sim-30\%$)が断層・破砕帯・フラクチャーなどの断裂系を通して上方移動し、有機物の熱分解によって生成されたBグループのガス($\delta^{13}\text{C}=-40\%$)と混じりあった結果、両者のほぼ中間の $\delta^{13}\text{C}$ 値(約-32‰)を示すグループAのガスが形成されたという解釈である。前章で詳しく記述したように、Erawanガス田西部には基盤を切る東傾斜の正断層がある。この断層は、マグマ起源のガスが上方移動する通路の役割をはたしていると考えられている(佐々木、

1986)ので、このマグマ起源のメタンの上方移動・混入説は、炭酸ガスおよび窒素の濃集帯の分布と矛盾しない。

4.3 同位体平衡温度

BOTTINGA (1969) および JAMES (1983) は共存するメタンと炭酸ガス、およびメタンとエタンの炭素同位体組成の偏差から、これらのガスが同位体平衡に達する時の温度(同位体平衡温度)を推定できると述べた。MacDONALD (1983) が引用しているように、西テキサスの Delaware-Val Verde 堆積盆地における Ellenburger 層中の炭酸ガス濃度 (HOLMUQUEST, 1964) は $\text{CO}_2\text{-CH}_4$ 系に基づく同位体平衡温度とよく対応し、第三紀火成岩の貫入による炭酸ガス生成説を支持した。

そこで、Erawan ガス田から採取された天然ガス中の $\text{CO}_2\text{-CH}_4$ 系および $\text{CH}_4\text{-C}_2\text{H}_6$ 系における炭素同位体組成の偏差($\Delta\delta^{13}\text{C}$)を基に、ガスの成因を検討した。これらの天然ガスは、 $\Delta\delta^{13}\text{C}$ が $\text{CO}_2\text{-CH}_4$ 系で約24‰、 $\text{CH}_4\text{-C}_2\text{H}_6$ 系で約4‰のグループAと $\text{CO}_2\text{-CH}_4$ 系で約31‰、 $\text{CH}_4\text{-C}_2\text{H}_6$ 系で約10‰のグループBに分類される(図8の右半分)。この分類は、前述の BERNARD や SCHOELL のダイアグラム(図10, 11)による区分とよく一致する。

共存するメタン・エタン・炭酸ガスが同一の根源物質から同じ平衡温度状態で生成されたと仮定し、 $\text{CO}_2\text{-CH}_4$ 系および $\text{CH}_4\text{-C}_2\text{H}_6$ 系からそれぞれの同位体平衡温度を求めた(図12)。さらに、古地温勾配が現在の地温勾配 $4.92^\circ\text{C}/100\text{m}$ と同じであったと仮定して、両グループのガス生成時の埋没深度を計算する^{註5}と次のような値となる。

註5: 地表温度を 26.7°C とする。

図12 Well-1, 2, 3号井における天然ガス中の炭素同位体組成の偏差から求めた平衡温度

	CO ₂ -CH ₄ 系	CH ₄ -C ₂ H ₆
グループ A	310~325℃ (5,800~6,100m)	230~385℃ (4,100~7,300m)
グループ B	215~235℃ (3,800~4,200m)	70~130℃ (900~2,100m)

ガスの系によって異なる同位体平衡温度を生じる原因は明らかでないものの、この結果は、これらの両グループのガスが物質収支のない理想状態で生成・保存されたものではないことを示しているとも考えられる。

グループ A のガス層は、現在深度 2,187~2,680m に賦存し、その地層温度は 134℃~159℃である。もし、上記の理想状態が継続されたとすれば、グループ A のガスは平均約 310℃ に達する地下深部で生成された後、2,000~5,000m 上方移動したことになる。しかし、グループ A の天然ガスにはコンデンセートなどの高級炭化水素を随伴する。現在の有機地化学的知見に基づく、コンデンセートを含む天然ガスが 310℃ 以上の高温帯（過熱成帯）で生成されたと考えられない。言い換えると、グループ A のガスは有機物の熱分解ガスに、同位体組成的に重いマグマ起源のガスが付加されたと推定される。その結果、 $\delta^{13}\text{C}$ 値が相対的に小さくなり、各系から求められた同位体平衡温度は見掛け上高くなったと解釈できる。

一方、グループ B の同位体平衡温度は、CO₂-CH₄ 系と CH₄-C₂H₆ 系によってかなり開きがあるものの、現在の地温勾配から計算された第三系基盤付近の地層温度より低い。すなわち、グループ B の天然ガスは、I~III 層のいずれかの層準において、有機物の熱分解によって生成されたと解釈するのが妥当であろう。

Well-1, 2 号井を通る地質断面図（図 7）に、メタン・

エタン・炭酸ガスの炭素同位体組成の特徴から分類されたグループ A および B のガス層を表示した。この図で示されるように、マグマ起源のガスを含むと推定されるグループ A のガス層は、有機物の熱分解によって生成したと考えられるグループ B のガス層より下位の層準に位置する。その境界は地質層序と斜交し、基盤の形状と調和する。また、グループ A の天然ガスにはマグマ起源のガスの混入を支持する高濃度の窒素を含んでいる。

5. ま と め

Erawan ガス田において、天然ガスの炭素同位体組成・ガス組成の地化学的手法と地質層序・構造等の地質的諸現象を基に、炭酸ガス・窒素の成因とその濃集機構を考察した。

その結果、天然ガス中に含まれるそれらの不燃性ガスは主に次の 2 つの地質的要因によって生成されたと考えられ、図 13 のような天然ガスの集積モデルが想定される。

- ① 有機物（タイプ III ケロジェン）の熱分解……………モデル 1
- ② マグマ起源のガス（無機生成ガス）の上方移動……………モデル 2

佐々木（1986）がすでに論じているように、タイ湾のガス田に広域かつ、普遍的に含まれる低濃度の炭酸ガス・窒素は、堆積物中の有機物、主に木質・石炭質ケロジェンの熱分解によって、炭化水素とともに生成され、貯留砂岩層に移動・集積した（モデル 1 註 6）。この有機物の熱分解によって生成された天然ガスは、Erawan ガス田において炭素同位体組成値から分類されたグループ B の天然ガスに相当する。グループ B のガスは、 $\delta^{13}\text{C}$ = 約 -40‰ のメタンとエタン以上の高級炭化水素を多く含有し、平均的な炭酸ガスと窒素濃度で特徴づけられる。

これに対して、グループ A の天然ガスは、 $\delta^{13}\text{C}$ = 約 -32‰ の重いメタン、高温の同位体平衡温度および比較的高濃度の炭酸ガス・窒素の存在で特徴づけられ、Erawan 北西部の I 層に集中し、基盤を切る断層ブロックに偏在する。この特異なガスは、貯留層に有機物の熱分解によって生成されたガスが移動・集積した後（モデル 1）、同位体組成的に重いメタンと炭酸ガス・窒素から成るマグマ起源のガスが先第三系基盤を切る断層等を通して、地下深部から貯留層に上方移動・混入したものと解釈される（モデル 2）。

天然ガスの起源を推定する場合、地球化学的手法の一つとして、希ガス（ヘリウム、ネオン、アルゴンなど）

註 6：本論のモデル 1、2 はそれぞれ佐々木（1986）のモデル C、A に対応する。

図13 Erawan ガス田における炭酸ガス・窒素の起源と天然ガスの集積モデル

の組成やその同位体組成を調べる手法がよく用いられている (たとえば坂田ら, 1985)。今後、タイ湾ガス田の天然ガスの成因をより明確にするため、この希ガスやケロジェンの炭素同位体組成分析等を実施し、有機物根源岩の性質・熟成度の差による天然ガス組成への影響度や根源岩とガス層との対比等、総合的な検討を行う必要がある。

謝 辞

本研究に際して、資料検討の機会を与えられ、その結果の公表を許可された UNOCAL THAILAND 社 Dr. H.M. LIAN と Mr. K. BRADLEY、三井石油開発(株)専務取締役石原壽二氏、並びに東南アジア石油開発(株)常務取締役牧野登喜男氏に衷心より謝意を表します。また、東南アジア石油開発(株)の稲葉直子氏には整図やタイプをしていただいた。

参 考 文 献

- ACHALABHUTI, Charan, 1981: Natural Gas Deposits of Gulf of Thailand, in M.T. HALBOUY, ed; Energy Resources of Pacific Region, 155-166, A.A.P.G. Studies in Geology, no. 12.
- BERNARD, B. B., 1978: Light hydrocarbons in marine sediments, Ph. D. Dissertation, Texas A and M Univ.
- BOTTINGA, Y., 1969: Calculated fractionation factors for carbon and hydrogen isotope exchange in the system calcite-carbon dioxide-graphite-methane-hydrogen-water vapor, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **33**, 49-64.
- CHIVAS, A. R., BARNES, I., EVANS, W. C., LUPTON, J.E. and STONE, J.O., 1987: Liquid carbon dioxide of magmatic origin and its role in volcanic eruptions, *NATURE*, **326** (9), 587-589.
- DOBBIN, C.E., 1968: Geology of Natural Gases Rich in Helium, Nitrogen, Carbon Dioxide and Hydrogen Sulfide, In B. W. BEEBE, ed; Natural Gases of North America, A.A.P.G. Memoir 9, 1957-1969.
- 藤原 昌史, 前田純二, 安原 清, 1986: 三次元反射地震探査法における含ガス砂岩層の解析, 石枝誌, **51** (1), 67-75.
- GALIMOV, E.M. and KVENVOLDEN, K.A., 1983: Concentrations and carbon isotopic compositions of CH₄ and CO₂ in gas from sediments of the Blake Outer Ridge, Deep Sea Drilling Project leg 76, In Initial Reports of DSDP (Vol. **76**, P. 403), U. S. Government Printing Office, Washington, 403-407.
- GALIMOV, E.M. and SHABAYEVA, I.Y., 1985: Carbon isotope composition of CH₄ and CO₂ in sediments of the Guatemala Trench (DSDP leg 84), *International Geology Review*, **27** (6), 651-658.
- GALIMOV, E.M. and SIMONEIT, B.R.T., 1985: Geochemistry of interstitial gases in sedimentary deposits of the Gulf of California, Deep Sea Drilling Project leg 64, *Geokhimiya*, **1985** (6), 850-857.
- GERLACH, T.M. and THOMAS, D.M., 1986: Carbon and sulphur isotopic composition of Kirauea parental magma, *NATURE*, **319** (6), 480-483.
- HIRUKAWA, T., JARACH, W., TANGOOL, W. and TAKASHIMA, I., 1987: Preliminary study on the geochemical character of major geothermal field in the northern Thailand. *Bull. Geol. Survey of Japan* **38** (1), 21-32.
- HOLMQUEST, H.J., 1964: Deep Pays in Delaware and Val Verde Basins, In A. YOUNG and J.E. GALLEY, ed; Fluids in Subsurface Environments, A.A.P.G. Memoir 4, 257-279.
- HUNT, J.M., 1979: Petroleum Geochemistry and Geology, W.H. Freeman and Company, 150-185.
- JAMES, A.T., 1983: Correlation of natural gas by use of carbon isotopic distribution between hydrocarbon components, A.A.P.G., **67** (7), 1176-1191.
- 加藤正和, 1976: 天然ガス中の炭酸ガスの起源, 石油の開発, **9** (2), 31-39.
- LIAN, H.M. and BRADLEY, K., 1986: Exploration and Development of Natural Gas, Pattani Basin, Gulf of Thailand, Circum-Pacific Conference (in Singapore)
- MATTAVELLI, L., RICCHIUTO, T., GRIGNANI, D. and SCHOELL, M., 1983: Geochemistry and habitat of natural gases in Po Basin, Northern Italy. A.A.P.G., **67** (2), 2239-2254.
- MacDONALD, G.J., 1983: The many origins of natural gas, *Journal of Petroleum Geology*, **5** (4), 341-362.
- NAKAI, N., 1960: Carbon isotope fractionation

- of natural gas, *J. Earth Sci., Nagoya Univ.*, 8, 174-180.
- PANKINA, R.G., *et al*, 1979: Origin of CO₂ in petroleum gases (from isotopic composition of carbon), *Internat. Geology Rev.*, 21 (5), 535-539.
- RIGBY, D. and SMITH, J.W., 1984: An isotopic study of gases and hydrocarbons in the Cooper Basin, *THE APEA JOURNAL*, 24 (1), 222-229.
- 坂田 将・高橋 誠・星野一男, 1986: 深部火山岩中の天然ガス起源の成因に関する地球化学的考察, 石技誌, 51 (3), 228-237.
- 佐々木 詔雄, 1985: タイにおける石油開発の現状“非産油国から石油自給国へ”, 石油の開発と備蓄, 18 (2), 20-76.
- 佐々木 詔雄, 1986: タイ沖ガス田における炭酸ガス起源の地質学的予察, 石技誌, 51 (3), 218-227.
- SCHOELL, M., 1983: Genetic characterization of natural gases, *A.A.P.G.*, 67 (12), 2225-2238.
- STAHL, W.J. and TANG, C.H., 1971: Carbon isotope measurement of methane, higher hydrocarbons, and carbon dioxide of natural gases from Northwestern Taiwan, *Petroleum Geology of Taiwan*, 8, 77-91.
- STAHL, W.J., 1975: Carbon isotopes in petroleum geochemistry, In E. JAGER and J. C. HUNZIKER, ed; *Lecture in Isotope Geology*, Springer-Verlag, 274-282.
- TISSOT, B.P. and WELTE, D.H., 1978: *Petroleum Formation and Occurrence*, Springer-Verlag, 185-201.
- WEISMANN, T., 1971: Stable carbon isotope investigation of natural gases from Sacramento and Delaware-Val Verde basins-possible igneous origins., *Paper Presented at 45th. Annual Meeting of American Association of Petroleum Geologists*, Houston, Texas, March 19-31.
- WOODLAND, M.A. and HAW, D., 1976: Tertiary stratigraphy and sedimentation in the Gulf of Thailand. Offshore South East Asia Conference, Paper 7.
- 米谷 宏, 1985: わが国における天然ガスの地球化学的研究, 地調月報, 36 (1), 19-46.
- ZARTMAN, R.E. and WASSERBURG, G.J., 1961: Helium, Argon, and Carbon in Some Natural Gases, *Journal of Geophysical Research*, 66 (1), 277-306.