由利原油・ガス田における炭化水素の生成・移動・集積

早 稲 田 周*・重 川 守*

(平成2年1月25日受付, 2年3月19日受理)

Generation, Migration and Accumulation of Hydrocarbons in the Yurihara Oil and Gas Field

By

Amane WASEDA and Mamoru OMOKAWA

Abstract: The subsurface structure in the northern part of the Yurihara oil and gas field is composed of east and west blocks by a high angle fault running north and south. Stable carbon isotope ratios of whole oils and biomarker compositions show no differences among crude oils from the various formations (the Lower-Tentokuji, Onnagawa and Nishikurosawa formations). This suggests that the all oils in the Yurihara field have same origin. Carbon isotopes of saturate and aromatic fractions indicate that the oils of east block are generated at higher maturity level than the oils of west block. The results of methane and ethane carbon isotopes of DST gases also suggest that the gases of east block is generated at higher maturity level than those of west block.

On average, the Onnagawa Formation has the highest potential for hydrocarbon generation based on the results of Rock-Eval and TOC analyses. However, within the Onnagawa Formation, the source rock potential varies considerably with depth, and only a part of the Onnagawa Formation has high potential for oil generation. Correlation of oil to source rock by carbon isotope ratios also suggests that the limited parts of the Onnagawa and Funakawa formations are the probable source for oils. Based on depth variation of the isotope, Rock-Eval and TOC data in each well, source rocks from the lowest part of the Funakawa Formation and the upper part of the Onnagawa Formation are best correlated to the oils in the Yurihara field.

From the study of maturity and subsurface structural history, we assume that the hydrocarbons were generated in the large syncline between the Yurihara and Innai structures and migrated to the Yurihara field across a growth reverse fault.

1. はじめに

由利原地域(図1)では昭和41年の由利原ST-1に始まり, これまでに約30坑の坑井が掘削されている。初期の探鉱開発の経過や由利原地域の地質については片平他(1977), 一関(1984)に述べられている。本地域ではこれまで, 下部天徳寺層の砂岩, 女川層の凝灰岩およびシルト質頁岩, 西黒沢層の酸性凝灰岩および玄武岩類

から嫁行対象となる油・ガス層が発見されている。船川層にも油・ガス徴が認められるが, 仕上げには至っていない。これらの層準の中で, 産出能力・埋蔵量の面から最も重要なのは西黒沢層の玄武岩貯留層である。由利原油・ガス田北部の西黒沢期玄武岩類上限の地下構造は, 東と西のブロックに分かれ両ブロックの間に南北方向の断層が推定されている(図1)。この貯留層は東ブロックで仕上げられており, 西ブロックでは油・ガス徴は有るものの仕上げには至っていない。

本研究では, この玄武岩貯留層が発見されている由利原油・ガス田北部地域を中心として, 由利原地域におけ

* 石油資源開発技術研究所

図1 由利原油・ガス田位置図および西黒沢期玄武岩類上限地下構造図と原油の炭素同位体組成

●：成功井 ○：廃坑井または掘削休止井

LTe：下部天徳寺層 On：女川層 AT：西黒沢層酸性凝灰岩 Ba：西黒沢層玄武岩

る炭化水素の生成・移動・集積について地球化学データから考察した。

2. 原油－原油対比

由利原地域の原油の炭素同位体組成は、産出した坑井の位置、産出層準にかかわらず $-22.2 \sim -21.8\%$ という狭い範囲に収れんしている(表1, 図1)。また、原油のバイオマーカー分析によれば、有機物の起源を示す指標として有効とされているステラン組成は産出層準・産出坑井の位置に関わらずほぼ同じ組成を示している(表1)。これらのことは原油の根源層が単一である可能

性が高いことを示している。

原油の同位体組成を決める主要要素は有機物の起源(堆積環境)と考えられている。SOFER(1984)は、世界中の原油の炭素同位体組成のデータから、原油を飽和炭化水素と芳香族炭化水素に分離し、それぞれの炭素同位体組成を比較することにより起源有機物の堆積環境を推定できることを示した。由利原油・ガス田の原油は、SOFERの図上で海洋起源有機物の相関線の近くにプロットされる(図2)。バイオマーカーの研究によれば、 C_{27} ステランは動植物プランクトンから、 C_{29} ステランは陸上高等植物から主として由来すると考えられている

表1 由利原油・ガス田 原油の炭素同位体組成, ステラン組成

坑井名	DST No.	地層名	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)			ステラン組成 ^{*2}			熟成度指標 ^{*3}
			原油全体	飽和	芳香族	%C ₂₇	%C ₂₈	%C ₂₉	20S/(20S+20R)
東ブロック									
東由利原 AK-1		西黒沢層	-21.80	-22.90	-21.79	41	34	25	0.46
東由利原 AK-3	1	西黒沢層	-22.06			44	34	22	0.50
北由利原 AK-1	3	西黒沢層	-21.84						
由利原 SK-8D	2	西黒沢層	-21.97	-22.72	-22.63	45	32	23	0.46
由利原 SK-9D		西黒沢層	-21.94	-22.68	-21.94	43	34	23	0.48
由利原 SK-10D	4	女川層	-21.91						
由利原 SK-12D	5	西黒沢層		-23.05	-22.18	42	34	24	0.46
由利原 SK-12D	4	西黒沢層		-22.89	-22.04	42	33	25	0.44
由利原 SK-14D	4	女川層		-23.01	-21.97	38	38	24	0.38
由利原 SK-14D	3	女川層		-23.15	-22.27	45	35	20	0.42
由利原 SK-14D	2	西黒沢層		-22.84	-22.21	39	34	26	0.42
由利原 SK-14D	1	西黒沢層		-22.84	-21.94	41	33	26	0.45
西ブロック									
由利原 SK-11D	8	下部天徳寺層	-22.16						
由利原 SK-11D	1	西黒沢層		-23.09	-23.72	40	34	26	0.43
由利原 SK-11D	4	西黒沢層	-22.04	-23.19	-23.69	47	33	20	0.45
由利原 西 SK-1D	3	下部天徳寺層		-23.93	-22.84	40	38	23	0.50
由利原 西 SK-1D	2	船川層		-24.54	-23.12	39	36	25	0.40
由利原 西 SK-1D	1	女川層		-23.76	-23.49	41	35	24	0.42

*1 DST No.のないものは生産原油を示す

*2 5 α 14 α 17 α 20R体ステランのC₂₇, C₂₈, C₂₉相対組成*3 20S/(20S+20R) 5 α 14 α 17 α C₂₉ステラン

空白: 未分析

図2 由利原油・ガス田 原油の芳香族炭化水素と飽和炭化水素の炭素同位体組成

LTe: 下部天徳寺層 Fu: 船川層 On: 女川層

Ni: 西黒沢層 w: 陸成有機物起源原油

nw: 海成有機物起源原油 (SOFER, 1984)

(鈴木・島田, 1982; HUANG and MEINSCHEN, 1979)。由利原油・ガス田原油のステラン組成比は, C₂₇ ステランが最も多く, C₂₉ ステランが最も少なくなっている(表1)。この結果は, 同位体分析の結果と同様に原油の根源岩が主として海洋の堆積物であることを示している。

ここで注目されるのは, 原油全体の $\delta^{13}\text{C}$ 値が $-22 \pm 0.2\text{‰}$ の狭い範囲に収められているのに対して, 飽和炭

化水素の $\delta^{13}\text{C}$ 値は $-22.6 \sim -24.6\text{‰}$, 芳香族炭化水素の $\delta^{13}\text{C}$ 値は $-21.7 \sim -23.8\text{‰}$ の範囲で分散していることである。産出層準による明瞭な差はないが, 産出坑井が東西どちらのブロックに位置するかで, 図2上の分布範囲が分かれる。この原因には, 原油の根源層が違う場合と, 根源層は同じでも原油の生成時期(熟成度)が違う場合の二通りが考えられる。原油全体の炭素同位体組成やバイオマーカーの起源有機物指標に差がないことから, 根源層の違いよりも原油生成時の熟成度が違った可能性の方が高いと思われる。西ブロックの原油は東ブロックの原油に比べて, 原油全体と飽和炭化水素・芳香族炭化水素の間の $\delta^{13}\text{C}$ 値の差が大きい。これは, 西ブロックの原油の方が, 飽和炭化水素, 芳香族炭化水素, 多環複合化合物の各成分間の同位体分別が原油生成時に大きかったことを示している。同位体分別は高温になるほど小さくなるので, 原油の根源層が同じと仮定すれば, 西ブロックの原油は東ブロックの原油よりも低温(低熟成度)で生成したと推定される。C₂₉ ステランの20R体から20S体へのエピ化の熟成度指標は0.38から0.50の間でばらつく(表1)。産出層準・地域・東西ブロックの間で明瞭な差はみられない。鈴木(1986)によれば, 日本の油田新第三系では $20\text{S}/(20\text{S}+20\text{R})=0.25$ (C₂₉ ステラン) が石油生成帯の敷居点と対応している。このことから, 由利原の原油は, 近年その存在が注目されている未熟成原油(田口, 1986)には入らないと考え

表2 由利原油・ガス田地域のロックエバル、有機炭素、ケロジェン炭素同位体組成（地層別平均値）

地 層 名	試料 の 個数	ロックエバル、有機炭素									炭素同位体組成	
		熟 成 度		タ イ プ			有 機 物 量				試料 の 個数	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)
		T max (°C)	P.I.	H.I. (mg/g)	O.I. (mg/g)	S_2/S_3	TOC (%)	S_1 (mg/g)	S_2 (mg/g)	S_3 (mg/g)		
笹岡層	12	359	0.28	31	91	0.3	0.47	0.04	0.13	0.42	10	-25.12
上部天徳寺層	22	391	0.23	80	210	0.9	0.73	0.23	0.57	0.97	11	-24.63
下部天徳寺層	102	404	0.35	135	70	2.5	1.10	1.24	1.51	0.76	45	-23.66
船川層	89	411	0.34	149	53	3.5	1.33	1.20	2.08	0.70	51	-23.43
女川層	101	420	0.24	369	53	9.9	1.58	1.72	5.68	0.71	53	-22.44
西黒沢層	71	432	0.48	165	169	2.1	0.54	0.86	0.79	0.67	10	-23.16

られる*)。

3. 根源岩の炭化水素生成能力

由利原地域の坑井から得られた根源岩試料（14坑井；397試料）の有機炭素分析、ロックエバル分析結果を表2に示す。有機炭素量は笹岡層から女川層に向かって増加し、下部天徳寺層、船川層、女川層は平均有機炭素量が1%を越え、良好な根源岩と判断される。中でも、女川層は平均有機炭素量が1.5%を越え、最も優秀である。笹岡層、上部天徳寺層、西黒沢層の平均有機炭素量は1%以下であり、他の3層準よりも劣っている。有機物のタイプ指標である S_2/S_3 も女川層が最も高い値を示し、質的に最も良好な根源岩と判断される。

このように、平均値的には女川層が最も油の生産能力が高いと考えられる。しかし、層内での変化を詳しくみると、地層内での層準・地域による有機物の量・タイプの変化が著しく、すべての女川層が高い根源岩能力を持っているわけではない。図3は根源岩の有機炭素量を地層ごとにヒストグラムで表したものである。上述したように、全体的には女川層の有機炭素量が多いが、船川層の一部も高い有機炭素量を示している。ロックエバルによる有機物のタイプ評価図（図4）でも、女川層に水素指数が高く原油生成指向の高い試料が多いが、やはり分散している。以上のように各層準内での試料ごとのばらつきは大きく、有機物の質・量は地層内で不均質であることがわかる。特に女川層は、一般に「硬質頁岩」の名で呼ばれる縞状層理を示す珪質頁岩として広域にわたって斉一な岩相をなす（藤岡、1972）とされているが、根源岩の炭化水素生成能力は女川層内でも岩質の変化を反

図3 由利原油・ガス田地域の有機炭素量地層別ヒストグラム

Sa: 笹岡層 UTe: 上部天徳寺層
LTe: 下部天徳寺層 Fu: 船川層
On: 女川層 Ni: 西黒沢層

映し、大きな違いがある。

4. 原油－根源岩対比

有機物の熱分解で炭化水素が生成する場合、生成物の炭素同位体組成は起源有機物のそれより小さくなる（SILVERMAN, 1971; SACKETT and MENEDEZ, 1972）。つまり、ケロジェンの熱分解で生成する原油の

*) ステラン熟成度指標 $(20\text{S} + 20\text{R})\text{C}_{29}$ ステラン) が低く未熟成原油とされているものには、モンテレー層原油（本指標=0.22; CURIALE *et al.*, 1985）、中国勝利油田原油（本指標=0.17; SHI *et al.*, 1982）などがある。

図4 由利原油・ガス田坑井試料のロックエバルによる有機物タイプ評価
(地層名略号は図3と同じ)

図5 由利原油・ガス田坑井試料の有機炭素量(TOC)～炭素同位体組成($\delta^{13}\text{C}$), 有機炭素量～ S_2/S_3 相関図

$\delta^{13}\text{C}$ 値は起源となったケロジェンの $\delta^{13}\text{C}$ 値より小さくなると考えられる。由利原の原油の $\delta^{13}\text{C}$ 値は約 -22‰ であるから、この原油を生成したケロジェンの $\delta^{13}\text{C}$ 値は -22‰ より重いと推定される。由利原地域坑井のケロジェンの $\delta^{13}\text{C}$ 値は有機炭素量とはあまり相関しないが、有機物タイプ(ロックエバルの S_2/S_3)とは正の相関

関係があり(図5)、有機物のタイプから見てもケロジェンの $\delta^{13}\text{C}$ 値が重いものほど質的に良好な根源岩であることがわかる。

図6はケロジェンの炭素同位体組成を地層ごとにヒストグラムで表したものである。由利原地域の坑井試料のケロジェンの炭素同位体組成は $-26\sim-20.5\text{‰}$ に分布し

表3 由利原SK-14D号井 On-1層(女川層)コア試料のロックエバル, 有機炭素, 炭素同位体分析結果

深 度 (m)	色	ロックエバル, 有機炭素									ケロジェン 炭素同位体組成
		熟 成 度		タ イ プ			有 機 物 量				$\delta^{13}\text{C}$ (‰)
		T max (°C)	P. I.	H. I. (mg/g)	O. I. (mg/g)	S ₂ /S ₃	TOC (%)	S ₁ (mg/g)	S ₂ (mg/g)	S ₃ (mg/g)	
1310.21	暗	426	0.25	357	22	16.3	1.23	1.48	4.39	0.27	-21.01
1310.20	明	414	0.45	361	25	14.4	1.63	4.91	5.89	0.41	-20.98
1313.15	暗	415	0.19	509	21	24.8	1.95	2.33	9.92	0.40	-21.20
1313.16	明	411	0.53	394	9	42.0	2.45	10.80	9.65	0.23	-21.32
1317.21	暗	405	0.16	481	36	13.3	1.83	1.71	8.81	0.66	-20.49
1317.20	明	417	0.54	369	13	28.9	2.04	8.75	7.52	0.26	-20.84
1317.80	暗	411	0.16	591	19	30.5	2.17	2.43	12.82	0.42	-21.15
1317.85	明	403	0.20	466	24	19.1	2.21	2.60	10.29	0.54	-20.91

P.I.: 生成指数 ($S_1/(S_1+S_2)$) TOC: 有機炭素量 H.I.: 水素指数 (S_2/TOC) O.I.: 酸素指数 (S_3/TOC)

図6 由利原油・ガス田地域のケロジェン炭素同位体組成地層別ヒストグラム

(地層名略号は図3と同じ)

ており、地層別にみると笹岡層から女川層にかけて次第に重くなっていることがわかる。西黒沢層は試料数が少なく、またデータがばらついているため、傾向が見いだせない。全体的には女川層のケロジェンが最も重い炭素同位体組成を示しているが、-22‰よりも重い $\delta^{13}\text{C}$ 値を持ち原油に対比され得るのは、下部天徳寺層と西黒沢層のそれぞれ1試料を除けば、女川層と船川層のごく一部の試料だけである。

それでは、女川層、船川層のなかでもどのような部分

図7 由利原SK-14D号井 女川層コアのロックエバルによるタイプ評価図

●: 暗色部 ○: 明色部

が根源岩として最も優秀なのであろうか。昭和60年度に掘削された由利原SK-14D号井では女川層中にガス層が発見された。このガス層はOn-1層と呼ばれている。On-1層で採取されたコアは、いわゆる硬質頁岩を主とし、全体として暗色部と明色部がリズミクな互層状を呈する。またラミナの発達 (mm オーダー) が部分的に見られる。有機物の量やタイプはその堆積物が受けたバイオターベーションの程度と強く相関する (PRATT, 1984; MERTZ, 1984)。ラミナの存在は、これらがバイオターベーションの起こらないような還元環境下の停滞水域で堆積したことを示しており、このような環境は優秀な石油根源岩層の形成に適している (DEMAISON and MOORE, 1980)。On-1層の試料8個の根源岩分析 (表3) によれば有機炭素量は1.2~2.5%で平均1.9%, ロックエバルによるタイプ分析結果 (表3, 図7) によれば水素指数が高く原油生成指向が強い根源岩である。ケロジェン炭素同位体組成は

図8 有機炭素量, S_2/S_3 , ケロジェン炭素同位体組成の深度変化
由利原SK-10D号井と東由利原AK-3号井(地層名略号は図3と同じ)

-20.49~-21.32‰で平均-20.99‰である。これらの値は、この部分が女川層の中でも最も優秀な根源岩の部類に入ることを示している。由利原油・ガス田の坑井ごとのケロジェン炭素同位体組成・有機炭素量・ロックエバルの S_2/S_3 の深度変化をみると、坑井ごとの違いは大きいものの、女川層のガス層(On-1層)相当層付近を中心とした女川層上部から船川層最下部に同位体組成、有機炭素量、 S_2/S_3 のピークがある坑井が多いことがわかった。代表的な例を図8に示す。このことから、由利原地域で原油に対比される根源岩は船川層最下部から女川層上部の層準に多いと考えられる。

5. ガスの起源・移動・集積

5.1 貯留層ガス

DSTテストガスのメタン炭素同位体組成(表4)を産出層準・地域による違いでみると、層準よりも地域による $\delta^{13}C_1$ 値の差が顕著である。つまり、断層の東と西では、ガスのメタン炭素同位体組成に全体的に差が見られ、東ブロックのガスの方が重い $\delta^{13}C_1$ 値を示す傾向がある。東ブロックで採取されたガスの産出層準は、西黒沢層玄武岩、女川層凝灰質砂岩、下部天徳寺層凝灰質砂岩で、その $\delta^{13}C_1$ 値は-36.1‰から-41.3‰である。一方、西ブロックでは、西黒沢層玄武岩、女川層凝灰岩、船川層凝灰岩、下部天徳寺層砂岩からガス試料が得られ

ており、その $\delta^{13}C_1$ 値は、-44.4‰から-48.4‰である。各ブロック内での層準による $\delta^{13}C_1$ 値の変化をみると、東ブロックでは、下部天徳寺層のガスが他の下位の層準のガスより軽い $\delta^{13}C_1$ 値を示す他は、層準による明確な違いは見られない。一方、西ブロックの由利原西SK-1D号井では、上位の層準ほど $\delta^{13}C_1$ 値が軽くなる傾向がみられる。

一般に油・ガス田中の天然ガスの起源は堆積初期にバクテリアの活動により生成したものや埋没後の熟成作用によるケロジェンの熱分解により生成したものの二つに大きく分けられる(BERNARD, 1978; SCHOELL, 1983; 早稲田・重川, 1988a)。図9は炭化水素組成とメタンの炭素同位体組成による天然ガスの起源分類図である。この分類図によれば、由利原油・ガス田のガスはすべて熱分解ガスの範囲に入る。しかしその中でも東ブロックのガスに比べて西ブロックのガスは混合ガスの領域に近い範囲に分布している。

エタン炭素同位体組成($\delta^{13}C_2$)も、東西のブロックで異なる値を示している(表4)。東ブロックの3坑井で西黒沢層玄武岩中から採取されたガスの $\delta^{13}C_2$ 値は-25.3~-25.8‰である。一方西ブロックの由利原西SK-1D号井では、女川層のガスが-29.5‰、船川層のガスが-29.4‰、下部天徳寺層のガスが-29.3‰である。メタン炭素同位体組成は産出層準が浅いほど軽いのに対し

表4 由利原油・ガス田 ガス炭素同位体組成分析結果

坑井名	*1 DST No.	地層名	同位体組成(%)		ガス組成			
			$\delta^{13}C_1$	$\delta^{13}C_2$	$C_1(\%)$	$C_2(\%)$	ウェットネス(%) ^{*2}	$C_1/(C_2+C_3)$
東ブロック								
東由利原 AK-1		西黒沢層	-39.0		74.1	7.1	13.7	7.2
東由利原 AK-2		下部天徳寺層	-41.3		90.7	4.2	6.1	17.0
由利原 SK-8D		西黒沢層	-38.7	-25.8	76.9	13.0	21.3	4.1
由利原 SK-9D		西黒沢層	-36.1	-25.3	78.5	11.8	19.8	4.5
由利原 SK-12D	6	西黒沢層	-38.8	-25.8	79.9	8.7	17.8	5.6
由利原 SK-12D	5	西黒沢層	-38.3		79.9	9.6	17.4	5.5
由利原 SK-12D	4	西黒沢層	-38.5	-25.5	77.4	11.0	20.1	4.8
由利原 SK-14D	4	女川層	-37.7	-25.3	82.3	6.2	9.8	10.0
西ブロック								
由利原 SK-11D	2	西黒沢層	-44.8		80.4	9.4	16.4	5.7
由利原 SK-11D	1	西黒沢層	-44.4		68.2	10.7	22.4	4.0
由利原西 SK-1D	3	下部天徳寺層	-48.4	-29.3	70.6	4.7	9.9	11.0
由利原西 SK-1D	2	船川層	-46.7	-29.4	33.6	1.6	6.7	16.0
由利原西 SK-1D	1	女川層	-44.5	-29.5	45.6	5.8	17.2	5.4
院内・桂坂油田								
		下部天徳寺～ 船川層	-46.0	-28.2	89.5	3.3	4.6	24.0
小滝・上浜油田(1)								
		船川～女川層	-47.9	-29.1	78.1	1.6	2.8	39.0
小滝・上浜油田(2)								
		船川～女川層	-48.1	-29.3	75.8	1.3	1.9	54.0

*1 DST No.のないものは生産ガスを示す

*2 $C_2 \sim C_4 / C_1 \sim C_4$ 図9 天然ガスの起源分類図(BERNARD, 1978を修正)にプロットした由利原油・ガス田天然ガスのメタン炭素同位体組成($\delta^{13}C_1$)と炭化水素組成($C_1/(C_2+C_3)$)

でエタン同位体組成は産出層準による組成の変化がほとんどない。 $\delta^{13}C_1$ 値と $\delta^{13}C_2$ 値によるガスの起源分類図(図10)によれば西ブロックのガスは混合ガスの領域に、東ブロックのガスは熱分解ガスと混合ガスの境界付近にプロットされる。エタン炭素同位体組成の違いは、根源となったケロジェンの同位体組成の違いと、生成時の熟

図10 天然ガスの起源分類図(SCHOELL, 1983を修正)にプロットした由利原油・ガス田天然ガスのメタン炭素同位体組成($\delta^{13}C_1$)とエタン炭素同位体組成($\delta^{13}C_2$)

成度の違いの二つの要因が考えられるが、原油の同位体組成が東西のブロックではほとんど差がないことを考えると、4‰という差は主に根源岩の熟成度の違い(ガス生成時期の違い)によるものと思われる。つまり、根源層を同じと仮定すれば東ブロックの方が西ブロックよりも高い熟成度で生成したと推定される。この結果は、原油の飽和炭化水素と芳香族炭化水素の炭素同位体組成から推定された結果と一致する。

西ブロックの産出層準によるメタン炭素同位体組成の差は、 $\delta^{13}\text{C}_1$ 値の重いケロジェン熱分解ガスと $\delta^{13}\text{C}_1$ 値の軽いバクテリアガスの混合割合の違いと解釈できる。つまり、深度の浅い層準のガスはバクテリアガスを多く含んでいると考えられる。

西ブロックのガスは、メタン炭素同位体組成、エタン炭素同位体組成ともに向斜部を挟んで本地域の西方にある院内・桂坂油田および小滝・上浜油田の天然ガスに近い値を示しており（図9、10）、両者が同じ根源層から生成した可能性を示唆している。

5.2 ヘッドスペースガス

ヘッドスペースガスのメタン炭素同位体組成（ $\delta^{13}\text{C}_1$ ）の深度変化パターンからは炭化水素の起源・移動・集積に関する有力な情報が得られる（STAHL, 1979; REITSEMA *et al.*, 1981; 早稲田・重川, 1988b）。由利原油・ガス田の坑井におけるヘッドスペースガス中の $\delta^{13}\text{C}_1$ 値の深度変化パターンには、DST ガスと同様に、東ブロックの坑井と西ブロックの坑井では違いが見られ

る。東ブロックの由利原 SK-12D 号井では、女川層と西黒沢層の境界付近を境としてその上下ではメタン炭素同位体組成が大きく変化している。 $\delta^{13}\text{C}_1$ 値は境界より上部では、-60‰前後であるが、下部では-40‰よりも重い（図11）。ガスの起源は、境界上部では $\delta^{13}\text{C}_1$ 値の軽いバクテリアガスが主体であるのに対して、下部では $\delta^{13}\text{C}_1$ の重いケロジェンの熱分解起源ガスが主体と考えられる。一方、西ブロックの由利原西 SK-1D 号井では $\delta^{13}\text{C}_1$ 値が上部天徳寺層から下部天徳寺層にかけて徐々に変化しており、船川層から玄武岩層上部にかけてほぼ一定の値を示している（図11）。

このような東西ブロックでのヘッドスペースガス $\delta^{13}\text{C}_1$ 値の深度変化パターンの違いは西黒沢層最上部～女川層最下部の泥岩層の有無に対応しているようにみえる。由利原 SK-12D 号井では泥岩層が存在するが由利原西 SK-1D 号井ではこの泥岩層が欠如している（図11）。東ブロックではこれまで、北由利原 AK-1、東由利原 AK-1、由利原 SK-8D、由利原 SK-9D、由利原

図11 ヘッドスペースガスのメタン炭素同位体組成の深度変化

由利原西 SK-1D 号井と由利原 SK-12D 号井

Ni-Mst: 西黒沢層泥岩 Ni-AT: 西黒沢層酸性凝灰岩 Ni-Ba: 西黒沢層玄武岩
(その他の地層名略号は図3と同じ)

図12 ヘッドスペースガスのメタン炭素同位体組成の深度変化
南由利原 AK-1 号井と由利原 SK-13D 号井（地層名略号は図11と同じ）

SK-12D の 5 坑井で玄武岩貯留層が仕上げられており、これらいずれの坑井にもこの泥岩層が存在する。一方、これらの坑井よりも構造上位に掘削された由利原 SK-13D, 南由利原 AK-1 号井ではこの泥岩層が欠如しており、稼行対象となるような油・ガス層は発見されなかった。由利原 SK-13D 号井と南由利原 AK-1 号井のヘッドスペースガス分析結果（図12）でも、メタン炭素同位体組成の深度変化に由利原 SK-12D 号井でみられたような西黒沢層と女川層の境界付近でのギャップはみられない。両坑井とも浅部の $\delta^{13}C_1$ 値の軽いバクテリア起源ガスから、下部天徳層中部で $\delta^{13}C_1$ 値が -40% 前後の熱分解ガスに変化している。これは深部のガスがシールされずに上方へ移動・拡散していることを示しているものと思われる。以上の結果から、この泥岩層が玄武岩貯留層の帽岩として重要な働きをしているものと考えられる。

6. 炭化水素の移動・集積

ロックエパルの T_{max} 値（表2）、ビトリナイト反射率による熟成度評価によれば、一般に熟成の敷居値と考えられている T_{max} で $435^{\circ}C$ 、 R_0 で 0.5% を越える試料は

西黒沢層においてもほとんどなく、本地域の根源岩は原油生成の熟成に達していないと判断される。このことから、由利原油・ガス田に貯留している原油は周辺地域から移動してきたものと推定される。由利原構造と、この西の院内構造の間には南北に伸びる大規模な向斜構造が存在しており、女川層の根源岩が十分な熟成を受けていると考えられる。逆に本構造の東側の向斜は基盤が浅くなっており（図13）、ここで掘削された矢島 AK-1 号井のビトリナイト反射率（西黒沢層で 0.36% ）をみても由利原構造よりもさらに根源岩の熟成度が低いと考えられる。さらに、本地域の西側には、北由利断層群の延長と考えられる大規模な逆断層がのびており、玄武岩層と女川層が接していると解釈されているため、女川層あるいは船川層最下部で生成した炭化水素が西黒沢層の玄武岩層に側方移動することができる。図13 は、現在の地下構造図をもとにした由利原油・ガス田北部を通る東西の復元堆積断面図である。由利原油・ガス田北部の構造発達史は、この図から次のように推定される。船川期から上部天徳寺期には現在の西ブロックの位置に高まりを形成し、東ブロックの高まりは笹岡期に形成される。また、由利原構造の西側の断層は船川期に萌芽し、下部天

図13 由利原油・ガス田北部を通る東西の復元断面図と炭化水素の生成・移動・集積 (地層名略号は図3と同じ)

徳時期以降、成長断層として発展し向斜部の女川層は西黒沢層に接するようになる。

以上の発達史モデルに推定を交えて、以下のような炭化水素の生成・移動モデルを考えた。由利原構造と院内構造の間において船川層下部から女川層上部で熟成初期(下部天徳寺期?)に生成した炭化水素は断層を介して西黒沢層上部に入り、由利原構造では東ブロックよりも先に高まりを形成していた西ブロックに移動した。しかし、ここでは帽岩が発達しておらず、炭化水素は貯留されずに上方へ移動・拡散した。その後さらに熟成が進み、また断層の落差が大きくなって、笹岡期には東ブロックの高まりが形成された。断層落差の増大にともなう、西黒沢層中の、より深い層準に移動した炭化水素は、新たに形成された東ブロックの高まりに入り、西黒沢層最上部～女川層最下部の泥岩層にシールされて玄武岩貯留層を形成した。

7. まとめ

本研究の結果は以下のようにまとめられる。

- (1) 由利原地域の原油全体の炭素同位体組成、バイオマーカー組成は層準・地域にかかわらず、いずれの原油もほぼ同じ値を示した。この結果から、これら原油は極めて類似の組成を有する根源岩(同一根源層?)から生成したと推定される。
- (2) 原油の飽和・芳香族各成分の炭素同位体組成は断層を境とした東西のブロックで異なる。この違いは、東ブロックの原油の方が西ブロックの原油よりも高い熟成度で生成したことを示すものと考えられる。
- (3) 根源岩の炭化水素生成能力は全体には有機物の量・質ともに女川層が最も優れているが、女川層内での有機物の量・タイプの変化は著しく、原油の生成能力が高いと判断されるのはその一部である。
- (4) ケロジェンと原油の炭素同位体組成による対比から、由利原の原油に対比される根源岩は女川層と船川層の一部であることが示された。
- (5) 各坑井ごとのケロジェン炭素同位体組成、有機物の量、タイプの深度変化から、由利原地域で炭化水素に対比される根源岩は、船川層最下部から女川層上部にかけての層準に多いと考えられる。
- (6) DST ガスの炭素同位体組成から、ガス生成時の熟成度は東ブロックのガスの方が高かったと推定される。これは、(2)で述べた原油の結果と一致する。
- (7) ヘッドスペースガス分析の結果から、東ブロックの玄武岩層に貯留されている炭化水素は西黒沢層最上部～女川層最下部の泥岩層にシールされており、この泥岩層がないところでは炭化水素が上方へ移動していることが推定された。
- (8) ロックエバルの T_{max} 値、ビトリナイト反射率のデータによる熟成度評価によれば、由利原地域の根源岩は原油生成の熟成に達していない。このことから、由利原油・ガス田に貯留している原油は周辺地域から移動してきたものと考えられる。本地域周辺の地下構造を考えると、炭化水素は由利原構造と院内構造の間に南北に伸びる大規模な向斜構造で熟成に達した船川層最下部から女川層上部の根源岩から生成し、断層を介して由利原構造に移動してきたと推定される。

謝 辞

本稿の公表を許可された石油資源開発(株)に厚く感謝します。石油資源開発(株)常務取締役片平忠實博士、同社探鉱部部長荒木直也氏、同社技術研究所所長浅川忠博士に

は粗稿を読んでいただき、有益な助言をいただきました。本稿をまとめるにあたり、同社技術研究所国安稔氏には未公表の資料を提供していただきました。また、同社探鉱部佐賀肇氏、技術研究所辻隆司氏には多大のご助言をいただきました。以上の方々に心から感謝します。

文 献

- BERNARD, B. B., 1978: Light Hydrocarbons in marine sediments. Ph. D. Dissertation, Texas A & M University, 144pp.
- CURIALE, J. A., CAMERON, D. and DAVIS, D. V., 1985: Biological marker distribution and significance in oils and rocks of the Monterey Formation, California. *Geochem. Cosmochem. Acta*, **49**, 271-288.
- DEMAISON, G. and MOORE, G. T., 1980: Anoxic environments and oil source bed genesis. *AAPG Bull.*, **64**, 1179-1209.
- 藤岡一男, 1972: 日本海の生成期について. 石技誌, **37**, 233-244.
- HUANG, W. Y. and MEINSCHEN W. G., 1979: Sterols as ecological indicators. *Geochem. Cosmochem. Acta*, **43**, 739-745.
- 一関久夫, 1984: 由利原油・ガス田の探鉱開発について. 石技誌, **49**, 226-233.
- 片平忠実・猪間明俊・保泉忠夫・甲田弘, 1977: 秋田県由利原台地の石油探鉱. 藤岡一男教授退官記念論文集, 63-81.
- MERTZ, K. A. Jr, 1984: Diagenetic aspects, Sandholdt Member, Miocene Monterey Formation, Santa Lucia Mountains, California: Implications for depositional and burial environments. In Garrison, R. E., Kastner, M. and Zenger, D. H. ed.: Dolomites of the Monterey Formation and other organic-rich unit: Pacific section, S. E. P. M., 41-73.
- PRATT, M., 1984: Influence of paleoenvironmental factors of organic matter in Middle Cretaceous Greenhorn Formation, Pueblo, Colorado. *AAPG Bull.*, **68**, 1146-1159.
- REITSEMA, R. J., KALTENBACK, A. J. and LINDBERG, F. A., 1981: Source and migration of hydrocarbons indicated by carbon isotopic ratios. *AAPG Bull.*, **65**, 1536-1542.
- SACKETT, W. M. and MENEDEZ, R., 1972: Carbon isotope study of the hydrocarbons and kerogen in the Aquitaine Basin, southwest France. Adv. in Org. Geochem. 1971, 523-533.
- SCHOELL, 1983: Genetic characterization of natural gases. *AAPG Bull.*, **67**, 2225-2238.
- SHI Jiyang, MACKENZIE, A. S., ALEXANDER, R., EGLINTON, G., WOLFF, G. A. and MAXWELL, J. R., 1982: A biological marker investigation of petroleum and shales from the Shengli oil field, the People's Republic of China. *Chemical Geology*, **35**, 1-31.
- SILVERMAN, S. R., 1971: Influence of petroleum origin and transformation on its distribution and redistribution in sedimentary rocks. *8th World Petroleum Congress Proceedings*, **2**, 47-54.
- SOFER, Z., 1984: Stable carbon isotope compositions of crude oil: application to source depositional environment and petroleum alteration. *AAPG Bull.*, **68**, 31-49.
- STAHL, W. J., 1979: Carbon isotopes in petroleum geochemistry. In JAGER, E. and HUNZIKER, J. C. ed.: Lectures in Isotope Geology, 274-282, Springer-Verlag.
- 鈴木徳行, 1986: バイオマーカー (ステラン, トリテルパン) の石油地化学的意義. 田口一雄教授退官記念論文集「石油鉱床学の諸問題」, 241-253.
- 鈴木徳行, 島田昱郎, 1982: 堆積岩中のステロイド炭化水素 (5α - C_{27} , C_{28} , C_{29} ステラン) - とくに古環境との関係について -. 島根大学紀要, **16**, 125-142.
- 田口一雄, 1986: 石油鉱床新論 - 最近における石油地化学の進展と石油成因論の新展開 -. 田口一雄教授退官記念論文集「石油鉱床学の諸問題」, 1-36.
- 早稲田周・重川守, 1988a: 本邦油・ガス田地帯における天然ガスの起源に関する地球化学的考察. 石技誌, **53**, 213-222.
- 早稲田周・重川守, 1988b: ヘッドスペースガス分析からみた天然ガスの生成・移動・集積. 石技誌, **53**, 337-347.