

水溶性天然ガス鉱床の地化学探鉱法

本島 公司

探鉱という面から 水溶性の天然ガス鉱床をながめて解説したものほとんど無いので 以下にわかりやすく述べてみよう。 水溶性のガス鉱床は 各種型態の天然ガス鉱床を理解するのに 基本型として利用でき またこの種鉱床に対する地化学探鉱の方法と技術は 油田ガス 炭田ガス 構造性ガスの探鉱に利用できる面が多い。

1. 水溶性天然ガス鉱床の地球化学的性質

1-1 水溶性天然ガス鉱床の一般的性質

地下水中に溶存する CH_4 を主にした天然ガスを おもな稼行対象とする鉱床が水溶性天然ガス鉱床である。地下水は 1気圧のもとにおいて 常温で約33mlの CH_4 を溶存する。地下水の圧力は 水層の深度が10m増すごとに 約1気圧増加するので 深度の大きい地層中にある地下水の気体溶解能力は相当に大きい。地下のガス層から出てきた流体が 地上でガスと水とに分離したときに そのガスと水の容積比をガス水比と呼んでいる。たとえば ガスを飽和している地下水の平均ガス水比 (m^3/kl) は 深度500mで1.25 1,000mで2.1 1,400mで2.7の如くである。

水溶性天然ガス鉱床の日本列島における分布は 北は北海道から 南の九州に至る各地にわたっている。おもなガス田を次に示す。(重要ガス田)

北海道・石狩平野 十勝平野 長万部付近
本州・山形盆地 新潟平野* 南関東地域* 富山平野
焼津付近 清水付近 諏訪湖付近 琵琶湖付近
九州・宮崎市付近

これらガス田の地質的特徴は 次のように要約される。

- (1) 地質時代……ガス層の時代は現世から中新世にわたるが そのうち主要なガス層は鮮新世～洪積世である
- (2) 堆積相……含ガス層は 汽水 淡水 海水の各層であるが 海成層に大きなガス田ができやすい わが国では炭酸塩岩石の多い地層中に成立する例はほとんどない
- (3) ガス層……未固結の砂礫層が最もよいガス層をつくる 中新世のガス層では 破砕帯の多孔部が主としてガス産出を支配する ガス産量は

$$Qg = R \times Qw$$

Qg ……坑井の産ガス量 (m^3/day)

R ……ガス水比

Qw ……産出水量 (kl/day)

であり R は深度の函数であるから Qg を大きくするには Qw を大きくする必要がある したがってガス層の滲透率は産ガス量を大きく支配する

- (4) ガス層の地質構造……多くはゆるい傾斜を示し 向斜盆地をつくる

1-2 水溶性天然ガス鉱床の地球化学的性質

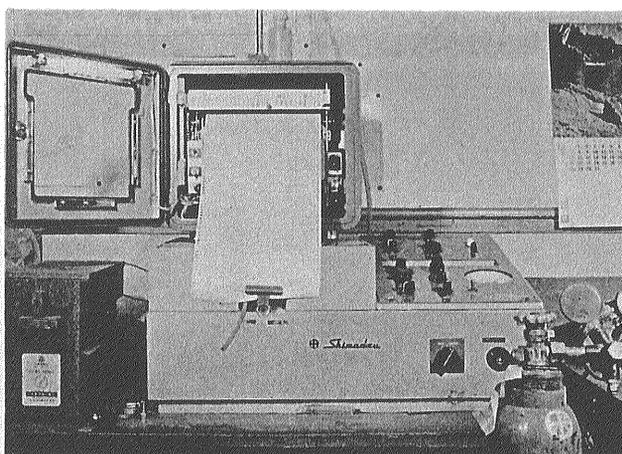
〔A〕 一般的性質

この型の鉱床では 天然ガスとその付随水との間にきわめて密接な関連が認められるので ここではこれら流体から見た鉱床の性質を述べよう。これら CH_4 ガスを持っている流体の性質を一口に表現すれば 有機物が還元的な場で分解した産物をもっていることである。流体間にみられる特徴は 次の通りである。

- ① ガスはおもに CH_4 CO_2 N_2 からなる ガスに N_2 が少いと CH_4 がふえ ガス水比が大きくなり 付随水中の全炭酸 HCO_3^- KMnO_4 消費量 NH_4^+ が多くなり 海成



地化学探鉱車(ジープ): フィールド調査用でこの車に小型ガスクロマトグラフ2台をのせる 屋根の上に 夜間の分析作業用のライトがみえる



小型ガスクロマトグラフ: 2台を地化学探鉱車に積み込み フィールドで活用する

- 層から成るガス層では Cl^- I^- Br^- B が多くなる
- ② ガス水比が小さく ガス中の N_2 が多いときには 付随水中に SO_4^{2-} NO_2^- NO_3^- などの酸化生成物がみられることがある
 - ③ ガス水比が高いとき しかもガス層が沖積～上部洪積世であれば ガス中の CO_2 は多く 水は酸性になる
 - ④ 淡水域に堆積した地層中に胚胎した鉱床では ガスの多い部分の地下水にPが多い

〔B〕 ガスの性質成分

ガスの組成は 坑口において1気圧下で分離したものを もって標示する。 今日 CH_4 C_2H_6 C_3H_8 Ar H_2S N_2 CO_2 He H_2 Ne および O_2 は 存在が確認されている。 しかし 経済的に利用されるガス産量を示すガスでは CH_4 がおおむね90%を越える。 日本のガス田では 地層の性質上 H_2S が少ない(最高 3.5%)

C_2H_6 C_3H_8 は海成層の場合に1%以下含有される程度である。 O_2 は普通0.1%ほど含まれる。 CO_2 は新しい時代のガスで最高30%ほど存在する。 N_2 の多いガスはガス水比の小さい所に産し 最高90%をこえる。 Ar はほとんど大気源であり He は堆積盆地の中心をはずれたところで 時に存在する。 H_2 は一部微生物の働きにより 一部無機的反応によって生ずるものと考えられる。

〔C〕 ガス付随水の性質成分

第四紀層中にある高ポテンシャル(ガス水比の高い)のガス層では 付随水の pH は普通 6.2~7.0 である すなわち この場合には水中の HCO_3^- などによるアルカリ化よりも CO_2 による酸性化が大きい。 HCO_3^- は 300~700mg/l 以上あることが望ましい。 海成層中にあるガス層の水は Cl^- を 2g/l 以上含有することが望ましいし I^-/Cl^- は重量比で 海水の値 0.003×10^{-3} よりもはるかに大きい 10^{-3} 桁であることが望ましい。

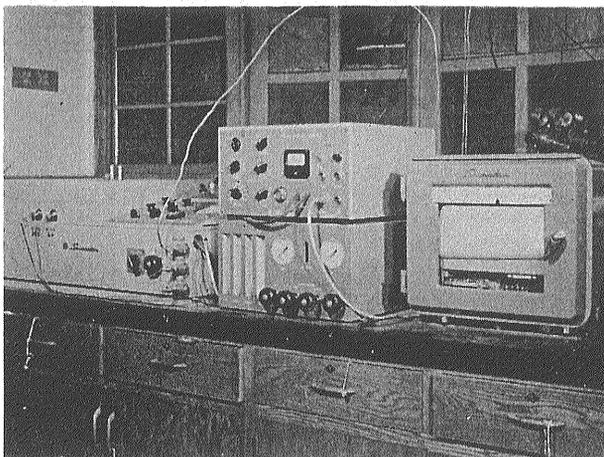
NH_4^+ は 少なくとも 3~5mg/l できれば 50mg/l に達するとよいガス水比を示すことが多い。 Fe^{2+} は

淡水成層で CO_2 に富んだ水に多いが 第三系のアルカリ性地下水にも数 mg/l 存在することがある。 新しい地層水では 多くは $\text{Ca}^{2+} < \text{Mg}^{2+}$ (海成:重量で)であり 鮮新世のやや下部でこの関係は逆転する。 Na^+ K^+ は海成層に多いが 地層が古くなると 順次 Ca^{2+} にその多くの割合いがとりかわられる傾向にある。 付随水はまた可溶性有機物をもつので KMnO_4 消費量は40~100mg/l に達する例が多い。 酸化還元電位はマイナスで 時に -100mV 以下になる。

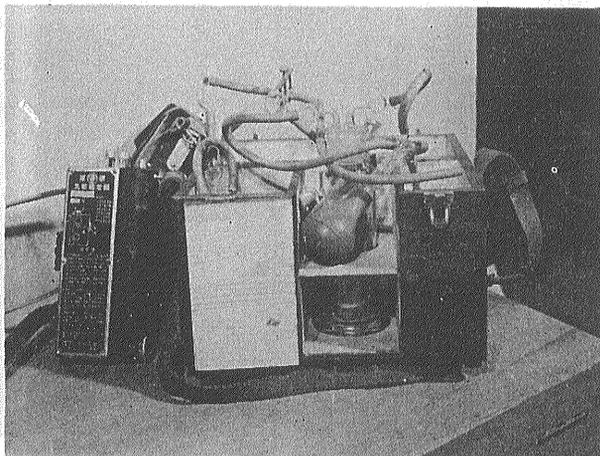
NO_2^- はガス田の縁辺部にみられ NO_3^- はガス田周辺の伏流水のさす酸化帯に多く SO_4^{2-} も酸化帯に多いが NO_2^- よりもやや還元的地域にまで分布する。 水中溶存酸素は 酸化帯で最高の5~7ml/lに達し ガス田の縁辺部で最少の0.0~0.2ml/lであるが ガス田の中心部では0.2~0.5ml/lとやや増加する。 溶存窒素は溶存酸素の最少部で最も多くなる。 溶存 Ar は大気源の N_2 との関連において増減する。

1-3 ガス鉱床の成因的説明

ガス鉱床の成立には ①地層中に有機物が多量にあること ②それからガスが生成したこと ③できたガスが地下に保持されること ④ガスが動きやすい地層部分に存在すること が必要条件である まず①については日本のガス田をつくる泥岩中には有機炭素として 普通0.5~2%ほど存在する ②については 主として $\text{Org.C} \rightarrow \text{CO}_2 + \text{CH}_4$ $\text{Org.N} \rightarrow \text{N}_2 + \text{NH}_4^+$ の反応がおこる。 そして 若い地層では free CO_2 に富んだガスが発生するが やがて $\text{CO}_2 \rightarrow \text{HCO}_3^-$ に移行する。 ③と④とは相反する条件である場合がある。 地層が古くなると CH_4 の地上への累計逸散が多くなるので ガス水比が低下することが多い。 また 天水の地下への浸入によるガス層の破壊がおこる。 ガス鉱床は生成と破壊のバランスの上に成立していることを感じとることができる。



高感度ガスクロマトグラフ: 研究室用で 炭化水素について極微量まで測定する 地下水法の地化学探鉱 コア中の微量ガスの定量などに活用する



水中溶存メタン測定器: 理研製の光学的干渉を利用した CH_4 % 測定器が主部をなし 10数年前に 元地質調査所員下河原遠哉氏が考案した 調査にたいへん用いられた

2. 地化学探鉱法と技術

2-1 フィールド調査

調査地へ赴く前に文献によって地質地形気象などをあらかじめ下調べする。予想鉱床地域付近の地質時代地層の堆積環境岩相地質構造産出化石温泉湧泉火成岩などを知ったならば交通状況気象状況などを考慮に入れて調査費人員日数使用器械を決める。調査現場では地質家と地球化学家との協同が望ましい。調査地内に調査基地になる簡単な実験室をもうけそこで分析や試薬補給などをする。

測点には地下と直結する既存の坑井湧泉温泉などをできるだけ活用する。これらが存在しない時には簡単な作孔装置で深さ10m前後の孔をつくりそこからガスと水の分析用試料をとる。測点でおこなう測定調査事項には次のような項目がある：

測点位置 天候 周囲の状況 坑井深度 口径 ケーシングの材料 掘さく方法 坑井年齢または作井年月 水止状況 坑井地質 ストレーナーの位置 水位 試料採取法 気温 水温 ガス量 水量 ガス水比 水の外観 味 臭 その他

なお採取した地下水に対する測点現場における分析は次のように行なう。

pH および RpH……比色法

HCO₃⁻……メチルオレンジを指示薬として HCl の規定液で滴定によりメチルオレンジアルカリ度から求め HCO₃⁻ の mg/l で標示する

free CO₂……フェノールフタレインを指示薬として Na₂CO₃ の規定液で滴定によりフェノールフタレイン酸度から求め CO₂ の mg/l で示す

CO₃²⁻……フェノールフタレインアルカリ度から求め mg/l で示す

total CO₂……HCO₃⁻ と free CO₂ (pH<8.3) または HCO₃⁻ と CO₃²⁻ (pH>8.3) から計算で求め mg/l または ml/l で示す

Cl⁻……K₂CrO₄ を指示薬として AgNO₃ の規定液で滴定し(Mohr 法) mg/l で示す

Redox potential (酸化還元電位)……携帯用の pH メーターで測り 水素電極を基準にした mV で示す

NH₄⁺……ネスラー (Nessler) 試薬で測定し mg/l で示す
NO₃⁻ NO₂⁻……G. R (Giess-Romijn) 試薬で測定し mg/l で示す

Fe²⁺ および **Fe³⁺**……ロダン法または α α' チピリヂル法で求め mg/l で示す

P……モリブデン青を発色させて 比色し mg/l で示す

SO₄²⁻……BaCl₂ 液を用いて BaSO₄ の白色沈殿をつくり比濁法で求め mg/l で示す

diss. O₂ (水中溶存酸素)……CO₂ 泡によって CH₄+N₂+Ar+O₂ を追い出し ピログロールのアルカリ性液に吸収させて 容積的に求め ml/l で示す

diss. CH₄+N₂+Ar……上へのべた残ガス ml/l で示す
diss. CH₄……空気で追い出し その中の CH₄ を光学干渉計で測る ml/l で示す

調査地に設けた実験室では おおむね 次の分析をする

Ca²⁺ および **Mg²⁺**……EDTA による滴定法で求め mg/l で示す

KMnO₄ cons. (過マンガン酸カリウム消費量)……酸性またはアルカリ性にして 逆滴定で求め mg/l で示す

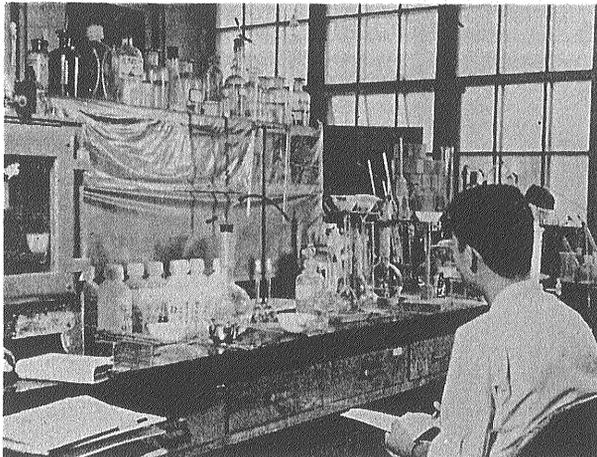
NH₄⁺……強アルカリ性下で空気蒸溜し H₂SO₄ に吸収させてネスラー試薬で発色させ 比色する mg/l で示す
ガス中の **CH₄** **CO₂** **O₂** および残 (**N₂**)……オルザット法で求め 容積%で示す

なお 次の成分は研究室で測定することが多い

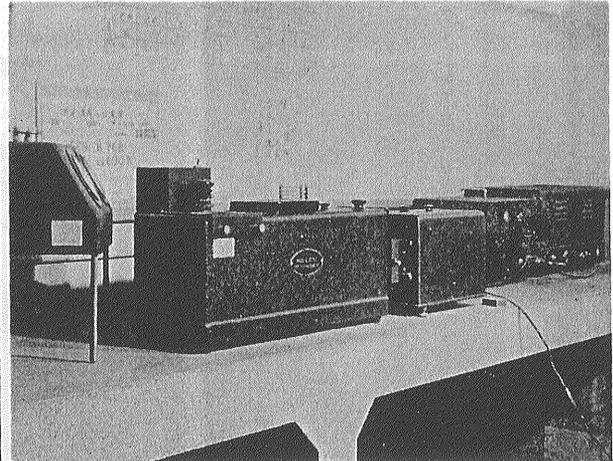
ガス中の **He** **H₂** **O₂** **N₂** **CH₄**……ガスクロマトグラフ (国産) で求める 現在地質調査所で分析している条件は 充填材 molecular sieve 5 A カラム長 2.25m 温度 40°C キャリヤー Ar 125mA かけて流量は 35 ml/min である 試量は 5ml vol.% で示す
ガス中の **CO₂** **C₂H₆** **C₃H₈**……充填材 DMF (3.75m)+ Triisobutylene (0.75m) 温度 0°C キャリヤー He 200mA 流量 30ml/min でガスクロマトグラフで分析し vol.% で示す 試料は 5 ml

2-2 試掘調査

若い地層にあっては ガス層に接近して存在する泥岩の間隙水は ガス層中の流体と 近似の化学組成であり 間隙水の系統的分析を行なうことによって ガスの賦存



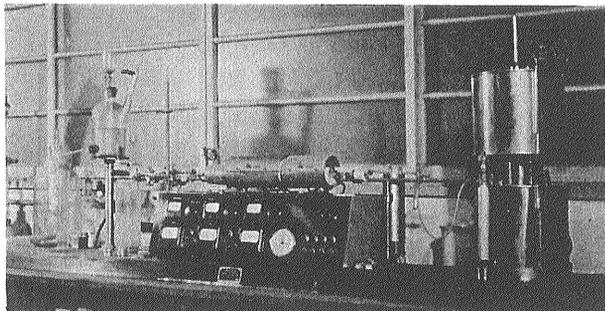
地下水の分析：一般分析によって Cl⁻ free CO₂ HCO₃⁻ KMnO₄ cons. NH₄⁺ Ca²⁺ Mg²⁺ SO₄²⁻ Fe²⁺ Fe³⁺ B pH RpH などを求める



フレイムホトメーター：地下水中の Na⁺ K⁺ を定量する

ガスの存在度合と流体の性質

地下水の組成	ガスの無い地域	ガスの少い地域	ガスの多い地域
PH { 第四紀層 第三紀層	≒ 7	≒ 7	< 7 > 7
free CO ₂ 第四紀層 (mg/l)	+ (<50)	++ (50~100)	++++ (>100)
HCO ₃ ⁻ (mg/l)	+ (<100)	++ (100~200)	++++ (>200)
NH ₄ ⁺ (mg/l)	~+ (<1)	++ (1~2)	++++ (>2)
NO ₃ ⁻	++	+	-
NO ₂ ⁻	-	+	-
SO ₄ ²⁻	+++	+	-
P 淡水成層 (mg/l)	-	+	+++ (>0.3)
KMnO ₄ cons. (mg/l)	+	++	++++ (>50)
Fe ²⁺	~+	+	+++
diss. O ₂ (ml/l)	++++ (2~8)	+(0.0~0.2)	++ (0.2~0.5)
diss. N ₂ (ml/l)	14~16	≒ 20	1~5
diss. CH ₄ (ml/l)	0.0	~10	>20
diss. Ar	+++	++	+
H ₂ S	-	+++	+
Cl ⁻ 海成層 (g/l)	+ (<2)	++ (2~5)	+++ (>5)
I ⁻ "	+	++	++++
I ⁻ /Cl ⁻ "	+	++	++++
ガスの組成	ガスの無い地域	ガスの少い地域	ガスの多い地域
CH ₄ (Vol.%)	-	+	++++ (>80)
N ₂	+++++	++	+ (<5)
CO ₂ { 第四紀層 (Vol.%) 第三紀層	+	++	++++ (>10)
N ₂ /Ar	+	++	+++
He/N ₂	+	++	+
H ₂	?	?	?
CnHm	?	+	++



万能元素分析器：岩石中のC Nなどを分析し ガス母層の判定を行なう
湿式炭素定量装置：ガス母層の研究のために 泥岩などの有機炭素を求める

Cl⁻…蒸留水中で試料をくだけ 遠心分離し モール法で求める その値に次のRを乗ずる mg/l で示す

稀釈率(R)…加えた蒸留水量(a ml)と間隙水量(b ml)から R=(a+b)/b で求める

pH…遠心分離液に対して比色測定

HCO₃⁻…遠心分離液のメタルオレンジアルカリ度から出してRを乗ずる mg/l で示す

KMnO₄ cons. SO₄²⁻ NO₂⁻…遠心分離液について求めRを乗ずる

なお 時に泥岩中の有機炭素と炭化水素類を測定してガス母層の検討を行なうことがある。さらに 泥岩中の主成分 微量成分を求め 堆積環境判定の立場から 広くガス田の探査を実施することもある。

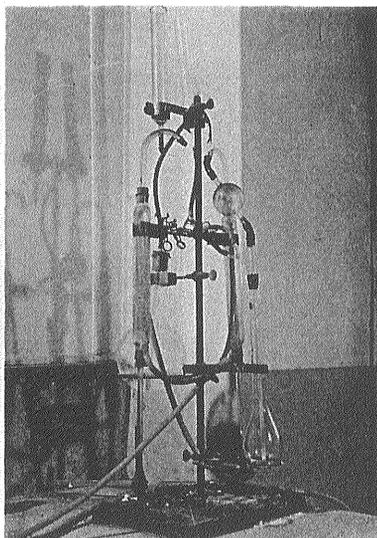
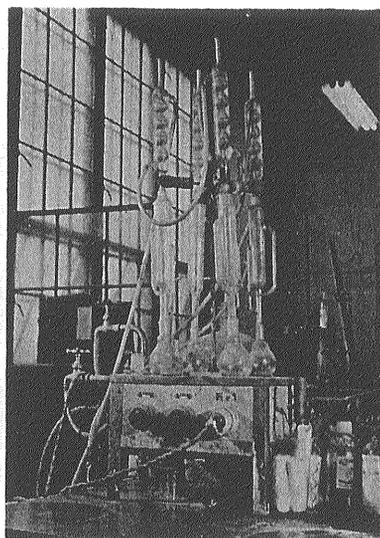
2-3 解析法

地化学探鉱で得た測定値は 鉱床の成因と関連させた解析をおこなうことが必要である。すでに一部1-2 1-3で述べたように 地下におけるガスの存在の多少によって 鉱床における流体には 左上の表に示すような地化学的性質が認められる。

したがって もしも調査地域の地層が鮮新世以降の若い年代のものから成り かつ海成である場合に 地下水中に Cl⁻ HCO₃⁻ I⁻ NH₄⁺ 有機炭素などが濃集して

の度合(普通ガスポテンシャルティとよんでいる)を推定することができる。そのためボーリングコア中の泥岩試料を用いて間隙水の質を求めることが行なわれる。試料の採取間隔は 地質条件に対応させて 5~50mほどにする。測定法は次のようである。

比重…比重瓶をピクノメーターにして測る
含水率…105°Cにおける乾燥減量から算出し vol. % またはwt% で示す



左
ソックスレー抽出装置：泥岩中の炭化水素類を研究するとき まずこの装置によって それらを有機溶媒中へ抽出する
液体クロマトグラフ：ソックスレー装置で抽出した有機物を この方法によって アロマトイック系炭化水素 パラフィン・ナフテン系炭化水素 O-S-N 化合物および残渣に三分する

右
キールダール分析装置：泥岩中のN量を求めガス母層の研究を行なう

いれば 一般にその地層水は多くのメタンガスを含有することがわかる。 既成の坑井が存在しない推定ガス田に対しては 試錐コアに対する化学分析による判定が有効である。 泥岩の間隙水が 深部に Cl⁻を増し 2～3g/l をこえる場合には その泥岩にはさまれる滲透性地層が ガスの稼行層になることが多い。 ガス鉱床は重力的に天水によって破壊されるので 湖成の小さな堆積盆中の堆積物中に成立する鉱床は 多くの場合上下にガス量が少なくなり いわゆる ハンモック状を示す。

地化学探鉱では 化学成分の分布状況によって ガスポテンシャル (1-1 $Q_g=R \times Q_w$ の R) を推定することを目標にする。 そして産ガスに関係深い揚水可能な量 (Q_w) は 坑井の電気検層の資料などからおもに 推定する。 産ガス井における坑井仕上げは 地化学的資料と地層の物理的資料の双方から決定される。

なお一言するならば 水溶性天然ガス鉱床に対する地化学探鉱法は 油田ガス 炭田ガスおよびその類似型態のガスの鉱床探査にも有効性がある。

2-4 地化学探鉱の実施例

地質調査所では 1948年から日本各地の水溶性天然ガス鉱床の地化学探鉱を実施したが そのおもな地域は次のようである。

〔A〕フィールド調査

- 十勝平野 石狩平野 長万部町 網走市 青森市 津軽平野 盛岡市 能代市 象潟町 秋田市 横手市 仙合一石巻 会津平野 猪苗代湖付近 常盤地域 新潟平野 山形盆地 庄内平野 水戸市 霞ヶ浦付近 磯部町 東京都 千葉県下 神奈川県下 埼玉県下 諏訪湖付近 野尻湖付近 小諸市 清水市 焼津市 掛川市 浜名湖北岸地域 名古屋市西方 三方湖付近 福井平野 河北潟付近 富山平野 大阪市 松江市～出雲市 土佐中村市 佐賀平野 大分市 宮崎市～日南市 加久藤盆地 国分市付近 熊本平野

〔B〕試掘調査

- 石狩平野 網走市 長万部町 新潟平野 水戸市 東京都 千葉県 埼玉県 神奈川県 諏訪湖付近 野尻湖付近 富山平野 箴川平野

(筆者は技術部 地球化学課長)

読者の質問箱

質問 所有鉱区内のマンガン鉱の調査を依頼したいのです 地質調査所ではかかる調査の依頼を受けると聞いておりますが その制度のあらましを教えてください (栃木県 某氏)

解答 調査の依頼者は まず調査の参考資料持参の上 来所説明し 相談の結果 受託業務申請書2通を通商産業大臣宛のものを地質調査所へ提出して頂きます。 提出申請書につき審議し受理されますと 依頼調査承諾の通知が申請者のもとに送付されます。 またその調査に関し派遣される調査員およびその人数・調査日数・受託料が正式に決定され 所定の受託料を日本銀行または最寄の日銀代理店へ納入するようにとの通知が申請者に送付されます。 納入領収書を地質調査所に提示すれば 間もなく貴地に向けて調査員を派遣することになります。 その期日は申請書提出後 だいたい1ヵ月半くらい後になりますが 予算関係でおくれることもあります。 調査結果は地質調査所長名のある報告書として 申請者のもとに送付致します

調査の参考資料としては 所有鉱区記入の5万分の1地形図・鉱区図・鉱床の分布図・鉱石およびそれに関係ある岩石試料・坑内図などをそろえれば好都合です。 その他参考となる資料があればなお一層好都合です。

受託業務申請書には 目的・個所・期間・鉱業権者又は鉱業代理人の同意者の各項を記入します。 申請書記入については地質調査所と相談の上進められるがよいと思います。 ただ申請者が鉱業権者または鉱業代理人でない時に限り 鉱業権者又は鉱業代理人の同意者の項が使用され 同意者の住所・氏名・捺印が必要です。

受託料はだいたい調査員の出張旅費の1.5倍と手数料との合

計です。 調査員の出張旅費は旅費規定によるものです。 この場合は地質鉱床調査の場合ですから 手数料は調査員の人数に関係なく 1件1日付170円の割です。

採取試料の化学分析結果を希望されるならば それは受託料に含まれず 地質調査所の依頼化学分析の規定に従います。 定量分析であれば 1個1成分に付1,200円の割です。

その他 調査に要する費用については 申請書提出の際によく相談の上決めたいと思います。 以上はだいたい地質鉱床の受託業務の場合について大要を紹介したものです。 このほかに物理探鉱・試錐などの場合があることを付け加えておきます。 (地質相談所)

受託業務申請書	
一、目	的

二、箇	所

三、期	間

四、	鉱業権者又は 鉱業代理人の同意者

上記に依り技術官派遣方願度く申請致します。	
昭和 年 月 日	
申請者住所氏名	
通商産業大臣	
図	
殿	