島根大学地質学研究報告 10. 63~74ページ (1991年7月) Geol. Rept. Shimane Univ., 10. p. 63~74 (1991)

秋田地域に分布する新第三系のケロジェンのカイネティック特性

木幡 信弘*・中山 一夫*

Kinetic characteristics of kerogen from Neogene formations in the Akita area, Northeast Japan

By

Nobuhiro Kowata and Kazuo Nakayama

Abstract

It has been generally accepted that kerogen is the source matter of petroleum. Since Tissot and Welte(1978) had first presented the mathematical model based on kinetic characteristics of typical kerogen types (I, II, and II), efforts of quantitative basin modeling had directed to evaluate how much oil were generated from kerogen during geologic past. However, it seems that geochemical aspect of each sedimentary basin is characterized uniquely in relation to its sedimentary environment.

The authors have developed a new method in order to determine the kinetic parameters (Genetic Potential : Xo, Activation Energy : E, Frequency Factor : A) for kerogen degradation from Rock-Eval data.

The method has been applied to the Akita Neogene basin, Notheast Japan. The Neogene formations may be divided into two groups according to their geochemical characteristics. Following standard stratigraphy in the Akita basin, the Nishikurosawa and Onnagawa Formations have the higher initial potential of petroleum than that of the Funakawa and Tentokuji Formations. It is suggested that the characteristics differs depending on the preservation of source materials affected by the sedimentary environments, such as the presence of Oxigen Minimum Layer with relation to the basin configuration and ventilation of sea water.

The method proposed here should be utilized to increase an accuracy in the quantitative evaluation of hydrocarbon generation from source rocks. The geochemical information derived by this method could be also applied to the paleoenvironmental analysis in addition to the lithological and biostratigraphic informations.

はじめに

ケロンジェンからの石油生成に関する数値モデルが 一般的に使われるようになり,その入力となるケロ ジェンのカイネティックパラメータの重要性が最近増 大しつつある.

現在では未熟成の岩石サンプルを昇温速度をいろい ろ変化させて熱分解実験(= ロックエバル分析)を行 ない,生成される炭化水素量を測定することによっ て,それらのパラメータを逆算する方法が一般に用い られている.しかしながら,この方法には次のような 問題がある.

高温度,短時間で行なった室内熱分解実験に基づいたパラメータ値が,比較的低温で地質時代とい

^{*} 石油資源開発娛樂鉱部, Exploration Department, Japan Petroleum Exploration Co. Ltd., 17-22, Akasaka 2-chome, Minato-ku Tokyo, 107, Japan.

ら時間スケールの下で行なわれた熱分解(=石油の牛成)にもはたして有効であるかどうか?

2) 試料として用いられる未熟成の岩石はあまり埋没 を受けていない堆積盆周辺部に堆積したものが多 いのに対し,実際に石油が生成された場所は堆積 盆中心部の熟成域と推定される.それ故,堆積盆 の周辺部と中心部での堆積環境の違いがケロジェ ンの質に反映されている可能性がある.

一方,近年根源岩のロックエバル分析がルーチン化 され,これまでに種々の熟成レベルでの分析値が数多 く蓄積されている.筆者らは,これらの分析値を利用 してケロジェンの初生的な石油生成に関するカイネ ティックな持性(活性化エネルギーの分布)を推定す る方法の開発を試みた.

本稿では、これまでの石油生成モデルの流れを総括 し、台頭しつつある数値モデルの概要を述べるととも に、入力すべき地化学パラメータについて説明する. 次にロックエバル分析値を用いて、これら地化学パラ メータをどのように求めるかについて述べ、最後に秋 田地域の応用例について述べる.

石油生成モデル

堆積盆の石油地質学的評価の一部としてこれまで用 いられてきた石油生成モデルには次の2種があった.

- 石油/ガスの生成量を熟成度(例えばビトリナイト反射率など)の関数と考え、その関数係数を与える.
- 2) 石油/ガスが生成される反応をケロジェン量に対する一次反応系と考え、反応速度論に基づいた数学 モデルを用いる(Tissot モデル).

正確な入力パラメータ値が得られるならば,後者の 数学モデルの方が生成量や生成時期などの予測におい て優れているが, Tissot and Welte (1978)が提唱した ケロジェンのタイプ別パラメータ値が,どれだけ一般 性があるか疑問であった.それ故に,前者の方法も簡 便法としてモデル化する際に取り入れられてきた

 (Welte and Yukler, 1981;中山, 1983; Nakayama, 1987).
 しかしながら,近年後者の入力パラメータの 推定法が確立され,数学モデルを用いるのが世界的趨勢となっている(Ungerer *et al.*, 1984; Nakayama and Lerche, 1987; Burhnam and Braun, 1989).
 その 推定法とは,未熟成の根源岩又はケロジェンサンプル を用い,何通りかに昇温速度を変えた熱分解実験を行い,その結果から入力パラメータを逆算するものであ る.

Tissot 型モデルと地化学パラメータ

Tissot and Welte (1978) は,石油の生成がケロジェ ンの熱分解過程であり, n個の一次反応系列が互いに 独立に並行して起こっているものと仮定した.そこで は,各系列について,

Ck_i = Xo_i exp [-k_i t] (1)
 が成り立つ,ここで Ck はケロジェンの濃度, Xo は初期ケロジェンの濃度, k はその時点における反応速度, t は時間, j は j 番目の反応系であることを示す.
 さらに, k_i は Arrhenius 式を用いて,

 $\mathbf{k}_{i} = \mathbf{A}_{i} \exp \left[-\mathbf{E}_{i} / (\mathbf{R} \mathbf{T})\right]$ (2)

と表わされる. ここで A_i は頻度定数 (Frequency Factor), E_i は活性化エネルギー (Activation Energy), Rはガス定数 (1.986 cal/mol), Tは絶対温度 (°K) を示す.

さて,時間 t までに j 番目の反応系で生成された炭 化水素量 Ch,は,

 $Ch_i = Xo_i - \langle Ck_i dt \rangle$

で表され、(1)、(2)式から、

 $Ch_i = Xo_i [1-exp \{-A_i exp (E_i/RT)t\} dt] (3)$ となる.これが,いわゆる Tissot タイプと呼ばれてい る石油生成の数値モデルの基礎である.尚,式の詳し い由来については, Tissot and Welte (1978) または Nakayama(in press)を参照されたい.ここで温度(T) は,時間の関数として与えられるので,(3)式におけ る未知のパラメータは各反応系列について,

ケロジェンの初期濃度(Genetic Potential) (Xo)

活性化エネルギー(Activation Energy) (E)

頻度定数 (Frequency Factor) (A)

の3つである.これらを石油生成モデルに必要なカイ ネティックパラメータと呼ぶ.

対象地域の温度履歴(埋没史と地温勾配)が既知で あれば,あるサンプルが過去に生成したであろう炭化 水素生成量(CH)は,Ch,を反応系列数だけ積算した ものになる(第1図).すなわち,

 $CH = \Sigma Ch_{i}$

 $= \sum [Xo_i [1-exp\{-A_i exp(-E_i/RT)t\}dt]]$

(4)

初期の Tissot のモデルでは、6つの反応系列が仮 定されているので、合計18の独立したパラメータ値を 与えなくてはならない、一般に仮定する反応系列数を nとすると、3nの未知パラメータが生じる. Tissot

64



第1図 Tissot 型数値モデルにおける石油生成反応の概念図.石油生成に関しては,ケロジェンをn 個に分割し,各々の系列で一次反応が並行して起こっていると仮定する.

and Welte (1978) では, ケロジェンを3つのタイプに 分けそれぞれのパラメータ値を提案し, パリベースン の白亜系やアルジェリアのサハラ砂漠地域のシルル系 の根源岩評価に応用している.

しかし, これらのパラメータ値が本邦の油ガス田に そのまま応用できるか疑問があった. 実際, 秋久 (1977a, 1977b, 1978)は同様の方法を用いて秋田地 域の未成熟ケロジェンからもっと低い活性化エネル ギーの分布を引き出している. このことから, 汎世界 的には堆積盆毎にパラメータ値は異なることが予想さ れるため, 堆積盆毎に何らかのキャリブレーションを 行う必要がある (Tissot and Welte, 1984). これらの カイネティックパラメータは, モデルの出力結果であ る生成量や時期の推定に大きく影響する点で重要であ る.

ケロジェンのカイネティック特性推定法

通常の室内熱分解実験では,高温下で実際にケロ ジェンから生成される炭化水素量を測定する.一般 に,Tissot型石油生成数値モデルでは頻度定数,活性 化エネルギー,生成ポテンシャルの3つのパラメータ が必要である.室内実験によって異なる熟成レベルを 人工的に作り出し,そのときの生成量を測定すれば, これらのパラメータ値を逆算することができる. Tissot によれば,この反応系列数(n)は6であった が,近年では12,20,あるいは90というように数多く する傾向にある.理論上は3n以上の測定値があれ ば,最小二乗法によって3n個の未知数,つまりパラ メータ値を求めることができる.しかし,nが多くな るに従い,計算時間は約2乗に比例して多くなる.

ここでは,基礎地化学から次のような制限を採用 し,未知のパラメータ数の減少を図った.

- 1) 反応系全体の初期濃度(Xo)の分布は正規分布で ある.
- 活性化エネルギー値(E)は,35-70 kcal/molの 範囲に限定する.
- 3) 頻度定数(A)はE値によらず一定とする. (3.16×10²⁷ /my)

このように,活性化エネルギーの分布を規制することにより,ケロジェンの熱力学特性を分布の平均値 (Eave)と標準偏差(σ),それに生成ポテンシャルの 総量(ΣX_{0})のみで表現できる.

一方,初生状態における ΣXo_i が同一と見做すこと のできる種々のレベルの HI 値(そのレベルにおける 残存生成ポテンシャル)を持つサンプル群を考える と,その差 ΣXo_i – HI は,岩石がその熟成度に達する までに生成したであろう炭化水素の量,すなわち室内 実験における測定生成量と同等である.

このようにパラメータ群の単純化を図ったうえで, 熱分解実験の生成量測定値の代替として(ΣXo_i -HI) 値を用いることによって,既に熟成が進んだサンプ ル群の堆積直後のケロジェンの未知パラメータを推定 することができる.いわば自然状態で地質的時間をか けた熱分解実験の結果を用いた解析である.計算の手 順としては,未知パラメータである ΣXo_i やEave, σ を直接求めることはできないので,次のような試行錯 誤法を用いる.

はじめに未知のパラメータの第一次近似値を仮定 し、与えられた地史の下で熟成させ残存炭化水素量 (HI_{catc})を計算する.すなわち各々のサンプルと同じ 深度条件で同様の計算を行ない、HI_{catc} 値と HI 値と の平均二乗残差 (Mean Square Residual=MSR)を求 める.以上の手順を未知パラメータの値を変えて試



第2図 検討地域位置図

地質時代		層 序	柱状図	岩相	底生有孔虫化石带	隆 沈起 降	海 海 退 進
	Ŧ	西目層		砂、礫を主とレシルトを挟む	Cribroelphidium yabei	١	1
Ma 1.8 -	新世	笹岡層		灰色砂質シルト岩および観~中粒砂岩よりなる	Uvigerina subperegrina		
		上部天德寺層		反色~緯灰色シルト岩を主とし、 時に砂岩、凝灰岩を挟む			
	鮮	下都王德去屬		₩灰色シルト岩〜シルト質泥岩を主とし、 中下部では線〜中粒砂岩、砂質果灰岩を 多く狭む			
	刺世						
6.3 -		船川層~	暗灰色泥岩からなり、砂岩、兼灰岩まれに 泥灰岩を鉄む	Miliammina echigoensis			
14.0 15.0	中新	女川屠		補灰色硬質頁岩を主とし、砂質〜シルト質兼反 岩、砂岩、泥灰岩を狭む	Spirosigmoilinella compressa		
			~				
	Ψ	西黒沢厝	Ba one one of the second secon	最上部は灰色〜褐灰色凝灰質泥岩からなり、シ ルト質〜泥質凝灰岩を狭む 上部は淡緑灰色浮石質〜泥質酸性凝灰岩から なる 中下部は暗線灰色玄武岩溶岩および同質火砕岩 からなり、所によりドレライトの貫入岩が発達 する	Hopkinsina morimachiensis		
			+++ × × × Do + × × × × + × × × × + × × × × × × × × ×		-		

第3図 検討地域の模式層序

み,最小の MSR を示すパラメータの組み合わせを探 し出す.このようなカイネテック特性を共通とする一 群のケロジェンを含む岩相単位をここでは地化学相と 定義することにする (Nakayama, in press).

秋田地域の地化学相

地質概説

由利地域から由利原地域に至る地域が検討地域であ り(第2図),本地域には下位より西黒沢層,女川層, 船川層,下部天徳寺層,上部天徳寺層,笹岡層,西目 層が発達している(第3図).岩相及び微化石調査か ら,海進は西黒沢期に始まり,女川期にピークを迎 え,船川期中~後期から海退に転じたと推定される. 下部天徳寺期にはいわゆる出羽変動とあいまって一部 隆起・陸化し,それ以後海退が継続する.西黒沢階の 堆積環境は暖海流が支配するやや深海の環境にあり, 層厚も比較的安定している.女川階〜船川階下部は岩

層が広域に亘り泥質で安定しており,層厚変化も少な く,比較的冷温な海流の支配下にある深海の環境と推 定される.これ以後は浅海化し,タービダイト相など の発達が見られ,層厚変化が顕著となる.

坑井データ及び地震探鉱記録から,船川階下部以降 時代と共に層厚変化が顕著となり,堆積盆の分化が進 行するが,堆積の中心は全般的に内陸側から西方沖合 いに移動し,形態的には西方に開いた海へ変化して いったとされている(天然ガス鉱業会ほか,1982).

各累層のカイネティック特性と定量評価

熟成過程を溯るためには、その試料が現在まで経て きた熱変質の程度を知る必要がある、根源岩の熟成度 指標として様々な方法があるが、本稿では熟成過程を 時間と温度の関数として扱い、その程度を数値化した TTI (Time-Temperature Index) を用いて各累層のカ イネティック特性を求める、尚、種々の熟成レベルに あるそれぞれの試料の TTI 値を求めるために、次の ような時間,温度のパラメータを与えた.時間パラ メータは下位よりグリーンタフ上限,女川層基底, Spirosigmoilinella compressa 带上限、下部天徳寺層, 上部天徳寺層基底の5層準を選んだ(第3図).尚, Spirosigmoilinella Compressa 帯は、東北日本日本海側 の新第三系では広域的に発達し、船川層下部を特徴づ ける底生有孔虫帯であり、対比上大きな意味を持つた めマーカーの1つに加えた.温度パラメータは,地表 温度を15℃に固定し,各抗井の物理検層時に得られる 坑底温度データから3.5~4.2℃/100mの地温勾配を与 えた.また,過去において著しい地温勾配の変化がな かったものと仮定した.

第4図に上記パラメータから求められる TTI 値と ロックエバル分析により得られた HI 値をプロットし たものである.この図では HI 値の違いから,西黒沢 層および女川層と船川層および天徳寺層の2つのグ ループに分けることができ,前者の方が根源岩として (あるいは,炭化水素生成能力の点で)定性的に優れ ていることがわかる.



第4図 TTI 値とロックエバル分析から得られる水素指数(HI) 値のプロット

H R	TOC	Xo	Eave	σ	MSR
糸眉	(%)	(mg/gTOC)	(kcal/mol)	(kcal/mol)	(x10 ⁻² mg/gTOC)
天徳寺層	0.86	140	43	12.5	0.70
船川層	0.96	190	50	3.5	0.98
女川層	1.43	540	47	11.0	2.34
西黒沢層	0.99	510	51	9.5	1.85

第1表 累層毎の平均有機炭素量とカイネティックパラメータ



第5図 簡略化したサーチによって求めた3種のパ ラメータの最適値(女川層の例)(a) 生成 ポテンシャル,(b) 活性化エネルギー平均 値(Ea),テスト,(c) 活性化エネルギー 分布の標準偏差(σ)

前述の推定法を用いて,各累層の観測値に対するカ イネティックパラメータ(Xo, Ea, σ)の最適値を計 算した.第1表には各累層の平均有機炭素量と求めら れたカイネティクパラメータの最適値,さらにそれを 用いた場合の観測値との残差(MSR)を示す.また, 第5図には最適値サーチの例として女川層での結果を



示すが,他の各累層についてもこの例と同じ様な傾向 を示す.第6図にはこれらのカイネティックパラメー タから求まる活性化エネルギー分布を示す.尚,この 図の中で活性化エネルギー分布が正規分布を示してい ないものがあるが,これは分布範囲の制限(35-70kcal/mol)というモデルの条件によるものである.

第5図を見ると,活性化エネルギーの分布を規定す るσが、Xo と Eave に比べ最適値サーチの精度が低 いことがわかる.これは第4図に示す女川層の例から 明らかなように, 観測点のばらつきが大きく, 様々な 活性化エネルギーを持つ有機物が存在するためと考え られる. 第4図に示した最適値ラインは熟成過程での 炭化水素生成率(カーブの傾き)に急激な傾きの変化 がなく、常に一定の炭化水素を生成し続けるような活 性化エネルギーの分布(σ値の大きな分布)を示して いる.もし,ある熟成レベルで炭化水素生成率が大き くなる(急激にΗΙ値が小さくなる)のであれば、そ の活性化エネルギーで熱分解する有機物の頻度が高く なり, σの値が小さくなると考えられる. すなわち. この例においては観測点の熟成度が限られている(特 に熱履歴時間が短い)ため、本来の生成率の変化を見 落としている可能性がある.

活性化エネルギーの平均値(Eave)は,全般に 50kcal/mol前後であるが,天徳寺層ではやや小さな値 である(第1表).これは推定されるケロジェンの初 期濃度(Xo)が小さく,標準偏差(σ)が大きいこと から,同じ地化学相と同定される観測点のばらつき具 合に依存しているためと考えられる.すなわち,天徳 寺層に関しては生成ポテンシャルを異にするいくつか の地化学層が混合している可能性がある.以上のよう な問題を解決するために,岩相変化を考慮に入れた細 かい地化学相の同定が必要であると考えられる.

地表に露出する未熟成の女川層の試料について, 昇 温速度を変えた室内分解実験から求めた活性化エネル ギー値は40~60kcal/mol を分布範囲とする正規分布 を示し,その平均値(Eave)は50kcal/mol である(第 7図).この値は第1表の女川層の活性化エネルギー の平均値(Eave)とほぼ一致しており,ロックエバル 分析値を用いるカイネティックパラメータ推定法の妥 当性を示唆している.

平井(1982)は秋田地域のビジュアル・ケロジェン 分析を行い,西黒沢層から下部天徳寺層までは不定形 質ケロジェンの比率が80~90%と高く,根源岩として それほど差異がないと評価している.しかしながら, 第1表のように西黒沢層および女川層は,船川層およ び天徳寺層に比べ約3倍の初生的な石油生成能力 (Xo)を持つことが明らかとなった.この見解の相違 は簡単には議論できないが,有機物のタイプを視覚的 に同定するということと,岩石中の熱分解実験による 生成物の量を測定し,それに対し評価を行うという方 法の違いに起因すると考えられる.

一般に熱成過程で生成される炭化水素量は、
 [生成量] = V× {[初期生成能力] - [残存能力]}
 と表すことができる.ここで、Vはある熟成レベルにある根源岩の有効容積を示す.この式の中で既知であるのは残存能力(HI値)だけである.



第7図 未熟成サンプルの室内実験によって求めた女川層ケロジェンの活性化エネルギー分布図



ABSØLUTE GENERATIØN BY TISSØT MØDEL MG/G×TØC

ONNAGAWA FM

ABSØLUTE GENERATIØN BY TISSØT MØDEL MG/G×TØC

FUNAKAWA FM



70



第9図 有機物が堆積物中に保存される環境図(Demaison et al., 1983 より)

第8図は前述の2つのグループを代表して,女川層 と船川層のカイネテックパラメータを入力し,埋没深 度に対する炭化水素生成量を示したものである.この シミュレーションでは地温勾配を3.5℃/100mとし, ガスは活性化エネルギーが55kcal/mol で油のクラッ キングのみから生成すると仮定した.

油の生成は両累層ともに約4,000mの埋没深度で最 大になるが、その時の相対生成量は女川層においては 初生的な生成能力のほぼ半分であるのに対し、船川層 では約75%に達している.しかし、その絶対生成量に ついては、女川層が約 260mg/gTOC であるのに対 し、船川層は約 100mg/gTOC であり、根源岩として の定量的な能力に明瞭な差が認められる.この結果は 女川層の石油根源岩としてポテンシャルが高いという 従来の評価と整合的であり、初生状態での炭化水素生 成ポテンシャルと熟成過程での生成量を定量的に評価 できた点で有意義である.さらに根源岩の有機炭素量 と熟成に達した地層の体積が分かれば、堆積盆で生成 されたであろう全炭化水素量を推定することも可能で ある.

熱力学特性の環境解析ツールとしての可能性

秋田地域では、下位の累層(西黒沢層および女川 層)と、上位の累層(船川層および天徳寺層)との間 でカイネティックパラメータに違いが認められる.

一般に,有機体の発生・棲息する環境(木の循環と 水深に関係)とその有機体の死後,堆積物中に保存さ れる場所の環境(第9図)との間には密接な関係があ り,有機物の存在を考えた場合,以下のことが重要で あると言われている(Demaison et al., 1983).

- 酸化作用(Oxidizing agents)
 酸素極小帯(Oxygen minimum layer)の存在と堆 積場の関係
- 準積速度(Sedimentation rate)
 堆積の表面上が底水へ接する時間
- 3 有機物質の型(Type of organic material)
 酸化やバクテリアの分解(Biodegradation)に対 する強度

石油生成ポテンシャルは有機物の質と量に依存して いるが,上記の3つの要因のうち,①および③は有機 物の質に,①および②は有機物の量に強い影響を及ぼ



VENTILATED OPEN OCEAN

第10図 堆積盆における水中の溶存酸素量と有機物相との関係(Demaison et, al., 1983 より)

す.したがって,根源岩となり得る地層が堆積する条件として①の影響が特に大きいと思われる.このことから,水の循環系の中で酸素極小帯がどのような場所 に形成されたのかをその当時の古地理を考慮にいれて 考える必要がある.

Demaison et al. (1983) は,概念的な堆積盆における水中の溶存酸素量と有機物相との関係を示している(第10図).この概念図を見ると,堆積盆の形態や海水の循環清浄(Ventilation)が酸素極小帯を規定し,石油生成能力(例えば TOC や HI 値)を大きく左右す

る有機物相の分布に違いを生じさせていることがわか る.このモデルによれば,還元型シルド盆地(Anoxic Silled Basin)や還元型外洋(Anoxic Open Ocean)で 酸素極小帯が存在する場所では油指向型(oil prone) の有機物が優勢であるが,循環型シルド盆地(Ventilated Silled Basin)や循環型外洋(Ventilated Open Ocean)ではガス指向型(gas prone)ないし非生成型 (non source)の有機物しか堆積しない.

ここで各累層の TOC および前述の方法から求めた Xo から推定される環境と, Demaison et al. (1983)の モデルの対応を考えると,西黒沢階および女川階が還 元型に,船川階および下部天鳥寺階が循環型に相当す ると考えられる.また,堆積盆の形態と岩相を考慮を すれば,西黒沢階および女川階がシルド盆地に,船川 階および下部天徳寺階が外洋に相当すると考えられ る.

本応用例からも明らかなように, 堆積環境は有機物 の質, ひいてはそのカイネティックパラメータに重大 な影響を及ぼしていると考えられる.したがって, こ の方法から得られるデータは, 定量的な根源岩評価と しての利用に加え, 岩相や微化石による堆積環境解析 を支援するツールとしての利用も可能であることを示 唆している.

まとめ

通常のロックエバル分析値として蓄積されている水 素指数(HT 値)を用いて、ケロジェンの熱力学特性 を共通とする一群の岩相単位(地化学相)に区分し, その特性を Tissot 型の炭化水素牛成数値モデルの入 力パラメータである Σ Xo_i, Ea, σ で表すことが可能で ある.秋田地域の,西黒沢層および女川層と,船川層 および天徳寺層で有機物の堆積当時のカイネティック 特性が異なるという結果を得た、これは堆積環境の違 いを反映した初生的な有機物の違いに起因すると考え られ、秋田地域に分布する新第三系の岩相や微化石か ら推定されることと整合的である. すなわち, このよ うな情報は単に累層の石油ポテンシャルを評価するに とどまらず、堆積時の古環境の推定に役立つ可能性が ある.今後さらにロックエバルデータを蓄積し,層準 ごと,地域ごとに地層のカイネティック特性を検討す る必要がある.

謝 辞

試料の公表を許可された石油資源開発㈱に厚く感謝 する.本稿を草するにあたり,石油資源開発㈱常務取 締役片平忠實博士,同社探鉱部長荒木直也氏並びに同 社探鉱部主査加藤進博士には有益な助言を賜った.ま た,同社探鉱部および技術研究所の諸氏には有意義な 討論をして頂いた.以上の方々に心から感謝する.

参考文献

秋久国男ら,1977a:石油根源岩に関する反応熱力学 的研究(第1報)Kerogenの低温熱分解実験に伴う bitumenの生成.石技誌,42(3),179-188.

- 秋久国男,1977b:石油根源岩に関する反応熱力学的 研究(第2報) Kerogen の低温熱分解実験に伴う O-N-S 複合化合物の生成.石技誌,42(6), 363-369.
- 秋久国男,1978:石油根源岩に関する反応熱力学的研究(第3報)反応速度論的石油根源岩評価法に関す る考察-特に O-N-S 復合化合物について-.石 技誌,43(1),1-8.
- Burham, A. K. and Braun, R. L., 1989 : A detailed kinetic and thermodynamic model of petroleum formation, destruction, and expulsion, Lawrence Livermore National Laboratory Reprint UCRL997-76.
- Demaison, G. J. and Holck, A. J. J., 1983 : Predictive Source Bed Stratigraphy : An Application of the Organic Facies Concept to Basin Evaluation 11th World Petroleum Congress
- 平井明夫, 1982:秋田・新潟地域の根質岩の有機物 相. Res. Org, Geochem., 3, 46-49.
- Ikebe, Y. and Maiys, S., 1981 : Neogene of Japan - Its biostratigraphy and ehronology -, IGCP -114. National Working Group of Japan, Shizuoka Japan, 68-75.
- Nakayama, K., 1987 : Hydrocarbon expulsion model and its application to Niigata Area, Japan, AAPG Bull., 71, 810-821.
- Nakayama, K. and Lerche, I., 1987 : Basin analysis by model simulation-Effects of geologic parameters on 1-D and 2-D fluid flow systems with application to an oil field : Gulf Coast Association or Geological Society Transaction, **37**, 175-184.
- Nakayama, K., 1990 : Determination of kinetic parameters for kerogen degradation from Rock-Eval data (abstract), AAPG. Bull., **74**, 692.
- Nakayama K., in press : Geochemical facies derived from routine pyrolysis data, -Application to the Peace River Arch area, Alberta, Canada-, in Dore A. G. ed., Basin Modeling ; Advances and Applications, Norwegian Petroleum Society.
- 天然ガス鉱業会ほか,1982:日本の石油・天然ガス資 源.101-148.
- Tissot B. P. and Welte D. H., 1978 : Petroleum Formation and Occurrences. Springer-Verlag, New York, 538p.

- Tissot B. P. and Welte D. H., 1984 : Petroleum Formation and Occurrences. (2nd Edition), Springer-Verlag, New York, 699p.
- Ungerer, P., Bessis F., Chenet, P. Y., Durand, B., Nogaret, E., Chiarelli, A., Oudin, J. L., and Perrin, J. F. : Geological and geochemical models in oil exploration ; principles and pracitcal examples, in

Demaison, G., and Murris, R. J., eds., Petroleum geochemistry and basin evaluation, American Association of Petroleum Geologists Memoir **35**, 53-77.

Welte, D. H. and Yukler, A., 1981 : Petroleum origin and accumulation in basin evolution-A quantitative model-., AAPG. Bull., 65, 1387-1396.

この研究論文の筆頭著者である木幡信弘氏は、この論文を島根大学地質学研究報告に投稿中、平成3年 8月26日不慮の病のためご逝去されました.享年31歳の若さでした.この論文は木幡さんの遺稿となりま す.木幡さんは昭和58年3月,島根大学を卒業し、石油資源株式会社に入社されました.石油資源開発業 界での元気な活躍ぶりは、よく知れわたっておりました.ケロジェンの石油生成カイネティクスに関係 した先駆的な本論文からも、木幡さんのめざましい活躍ぶりを伺い知ることができます.本論文が多くの 人々を刺激し、木幡さんのめざしたことが更に発展させられることを願ってやみません.ここに、謹んで 哀悼の意を表し、心からのご冥福をお祈りいたします.

島根大学地質学研究報告第10号 編集委員会