



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	新生代石炭に由来した炭化水素ガスの生成・排出に伴う炭素・水素同位体分別に関する研究〔論文内容及び審査の要旨〕
Author(s)	高橋, 幸士
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第11806号
Issue Date	2015-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/58882
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Koji_Takahashi_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士（理 学） 氏 名 高橋 幸士

学 位 論 文 題 名

新生代石炭に由来した炭化水素ガスの生成・排出に伴う

炭素・水素同位体分別に関する研究

(Study on carbon and hydrogen isotopic fractionation associated with generation and
expulsion of hydrocarbon gases from Cenozoic coals)

熱分解起源炭化水素ガスの主成分であるメタン (C_1), エタン (C_2), プロパン (C_3) の安定炭素・水素同位体組成 ($\delta^{13}C \cdot \delta^2H$) は, 天然ガスの起源有機物やその熟成度を評価するための数少ない指標である. 特に炭化水素ガスの $\delta^{13}C$ 値は, 起源有機物の熟成度に伴って累進的に増加する. 貯留岩に集積した石炭起源炭化水素ガスの場合, 集積後の熱変質が無ければ, 炭化水素ガスの $\delta^{13}C$ 値は, 排出時における石炭層の平均的な熟成度を示している可能性が高い. しかしながら, 先行研究における石炭の熟成度 (ビトリナイト反射率 VR_r %) と炭化水素ガスの $\delta^{13}C$ 値の関係が, 新生代石炭起源炭化水素ガスの $\delta^{13}C$ 値とほとんど一致しない. これは, 先行研究における石炭の熟成度と炭化水素ガスの関係が, 木片を用いた開放系熱分解実験から求められているためと考えられる. 実際の石炭層における炭化水素ガスの生成と排出は, 開放系と閉鎖系の間で生じていると考えられる. また, 近年, 石炭からの C_1 排出に伴う炭素同位体分別の可能性が指摘されているが, 水素同位体分別に関する検証は報告されていない. また, 石炭からの C_2 以上の炭化水素ガス排出に伴う炭素・水素同位体分別に関する研究例もほとんど報告されていない. そこで本研究では, 勇払油ガス田の石油根源岩と考えられている新生代古第三系石狩層群夕張層から採取した亜瀝青炭を用いた熱分解実験を実施し, 石炭からの炭化水素ガス排出に伴う炭素・水素同位体分別を検証した. さらに, 採取した亜瀝青炭試料を用いた閉鎖系・準開放系熱分解実験の両方の結果に基づいて, 新生代石炭の熟成度と炭化水素ガスの $\delta^{13}C$ 値の関係を検討した. 本研究の結果, 石炭からの排出過程では, 気体成分の分子量に依存した吸着性の違いに伴って組成分別が生じることが示唆された. また, 石炭から C_1 が排出される過程では, 炭素・水素同位体分別が生じることが示唆された. 自然界におけるより厚い石炭層か

ら C_1 が排出される過程では、より大きな同位体分別が生じる可能性が示唆された。一方、石炭層からの C_2 と C_3 の排出過程における同位体分別は極めて小さいことが示唆された。本研究では、夕張亜瀝青炭の閉鎖系・準開放系の熱分解実験の両方の実験結果に基づき、新生代石炭の熟成度 (VR_r %) と炭化水素ガスの $\delta^{13}C$ 値の関係を示すダイアグラムを提案した。本ダイアグラムに基づくと、勇払油ガス田の天然ガスが排出された時の石炭層の平均的な熟成度は、 $VR_r = 1.3 \sim 1.4\%$ と推定された。この熟成度 (VR_r %) と勇払油ガス田の炭化水素生成域である北海道石狩平野南部の熱史と埋没史から、勇払油ガス田の天然ガスが排出されたときの石炭層の平均的な排出温度は、およそ $165 \sim 175^\circ C$ と推定された。北海道中央部において石炭層から炭化水素ガス排出が生じるには、石炭層が 6000m 近く埋没する必要があることが示唆された。本研究で得られた新生代石炭の熟成度 (VR_r %) と炭化水素ガスの $\delta^{13}C$ 値の関係を示すダイアグラムは、他の新生代石炭天然ガス中の炭化水素ガスの $\delta^{13}C$ 値データとよく調和していた。炭化水素ガスの $\delta^{13}C$ 値は、 C_2 と C_3 に比べて C_1 の $\delta^{13}C$ 値のばらつきが大きい傾向を示した。 C_1 に対して C_2 と C_3 の $\delta^{13}C$ 値は、微生物起源ガスの混合や移動に伴う同位体組成の変化が小さい。 $\delta^{13}C_2$ と $\delta^{13}C_3$ のダイアグラムを用いることにより、新生代石炭起源天然ガスの熟成度をより適切に評価出来ると考えられる。また、天然ガスの起源有機物の $\delta^{13}C$ 値を考慮することにより、さらに適切に新生代石炭起源天然ガスの熟成度を評価出来るものと考えられる。以上のことを考慮し、本研究で得られたダイアグラムを新生代の石炭・陸源有機物に由来するバングラデシュの Surma basin と、ニュージーランドの Taranaki basin の天然ガスデータに応用した結果、それぞれの天然ガスの熟成度は、 $VR_r = 0.8 \sim 1.2\%$, $VR_r = 1.1\%$ と推定された。これらの熟成度は、同地域における oil の熟成度とも調和的であった。本研究で得られた、新生代石炭の熟成度 (VR_r %) と炭化水素ガスの $\delta^{13}C$ 値の関係を示すダイアグラムは、新生代石炭に由来する天然ガスの熟成度評価に極めて有用であると考えられる。