

学 位 論 文 題 名

Source Rock Prediction Based on Petroleum Biomarkers
and Their Compound-Specific Carbon Isotope Ratios

(石油バイオマーカーとその個別炭素同位体比に基づく石油根源岩予測)

学位論文内容の要旨

石油は生物起源の有機物に富む石油根源岩で生成されと考えられている。石油鉱床を発見するためには、石油の生成、移動、そして集積に至る鉱床の形成システム全体を理解することが大切であり、石油根源岩はシステムの起点として重要な位置を占めている。ある根源岩を実在するシステムの起点として認定するためには、バイオマーカーの組成と炭素同位体比を用いて原油と根源岩とを関連づける対比が行われる。バイオマーカーとは、原油や堆積岩に含まれ、生合成以外の方法では生成されにくい化学的に安定した炭素骨格を持つ有機化合物のことである。原油と根源岩との間でバイオマーカーの組成を比較して、それらの組成の一致をもって、その根源岩を原油の根源岩と判定する。近年、バイオマーカーの知見が蓄積され、根源岩のバイオマーカーと堆積盆地の地質背景との議論が深まるにともなって、原油のバイオマーカーがその根源岩に関する多くの情報を有することが明らかになってきた。例えば、特定の生物に由来するバイオマーカーは、根源岩に含まれる有機物の起源を考察する上で重要である。高分子のバイオマーカーには多数の立体異性体が存在しているが、それらの異性化反応が原油や根源岩の熟成度評価に応用されている。その一方で、根源岩の岩質、原油の移動距離、あるいは根源岩の石油生成能力などに関しては、バイオマーカーとの関係が十分に議論されているとは言い難い。そこで本研究は、原油に含まれるバイオマーカーの組成と個別成分の炭素同位体比に基づいて、その根源岩の岩質、特に粘土鉱物量と、根源岩の石油生成能力の予測を試みた。研究対象には、秋田堆積盆地の八橋原油と女川層根源岩を用いた。

ジアステランは、原油や根源岩に普通に認められるバイオマーカーである。ジアステランの濃度は、粘土鉱物の触媒作用、熟成作用、および根源岩の酸化還元堆積環境によって変化しており、粘土鉱物に富み、熟成度が高く、酸化的な環境で堆積した根源岩ほど高い。女川層根源岩では、まずジアステラン濃度に対する酸化還元堆積環境の影響が相対的に小さいことを示した。その上で、ジアステランの1つであるジアコレスタンの相対濃度と、エチルコレスタンの熟成度指標 $20S/(20S+20R)$ 比とによって、半定量的ながら根源岩の粘土鉱物含有率を推定するモデルを作成した。従来から、八橋原油は熟成度に比較してジアステランに乏しいことなどから、珪質な根源岩に由来すると指摘されてきた。本研究のモデルを適用すると、従来よりも具体的に、八橋原油の根源岩は粘土鉱物含有率が5%に満たない珪質な根源岩であると推定できた。このことから、八橋原油の根源岩は女川層に特徴的に見られる珪藻土やポーセラナイトを含むことが強く示唆された。このような岩質の根源岩は、主として八橋背斜周辺から東方において女川層下部層～中部層に分布する可能性が高い。本研究で得られ

た粘土鉱物含有率の半定量的評価モデルは、比較的熟成度が低い原油であり、かつ強い酸化あるいは還元的な環境では堆積しなかった根源岩に対して有効である。

女川層は珪藻化石を含んでいる。女川層根源岩には、バイオマーカーであるノルコレスタンが特徴的に認められており、日本海に栄養塩類に富む海水が進入したことで繁殖した珪藻が関与したと報告されている。基礎生産が上昇すると、一般に堆積物中の有機物濃度も上昇するので、ノルコレスタン濃度と堆積物の有機物濃度が相関する可能性がある。また、海水に溶存する二酸化炭素と海洋プランクトンとの間の同位体分別効果は、二酸化炭素プールの大きさが変わらなければ、海洋プランクトンの基礎生産の上昇にともなって縮小し、海洋プランクトンの炭素同位体比は相対的に重くなると考えられる。比較的炭素数が少ない直鎖状飽和炭化水素やバイオマーカーであるコレスタンは、珪藻からの寄与が大きい。これらの炭素同位体比も、堆積物の有機物濃度と関係することが期待される。女川層根源岩では、ノルコレスタン濃度や、炭素数が少ない直鎖状飽和炭化水素とコレスタンの炭素同位体比は、根源岩の有機物濃度、特に熱分解によって根源岩から発生する炭化水素の量や、その炭化水素量の全有機炭素量に対する割合と関係しており、有機物濃度が上昇するとノルコレスタン濃度が上昇するとともに、炭素同位体比が相対的に重くなる傾向を見いだした。これらの傾向に定量的な関係を突き止めるには至らなかったが、それらを八橋原油に適用すると、八橋原油の根源岩は優れた石油生成能力を有しており、全有機炭素量は1~6%、熱分解で発生する炭化水素の量は4~18mgHC/gRockであると推定できた。このような根源岩は、八橋油田周辺の女川層中部層付近に分布すると考えられる。

八橋原油の熟成度は、八橋背斜西方の沈降域に分布する女川層と船川層最下部層の熟成度に相当した。八橋原油の根源岩は藻類起源の有機物に富み、さらに陸上高等植物やバクテリア起源の有機物の影響も受けていることから、八橋背斜周辺に分布する女川層中部層に加え、八橋背斜西方の沈降域に分布する女川層も関与している可能性がある。八橋原油のバイオマーカーの組成とその炭素同位体比に基づいた予測結果を総合して、八橋原油の根源岩は主として八橋背斜西方に分布する女川層下部層であるが、八橋背斜西方の沈降域に分布する女川層~船川層最下部層も関与する可能性を明らかにした。

本研究では、ゲル浸透クロマトグラフィを応用して、原油に含まれる微量バイオマーカー（ステランとトリテルパン）の個別炭素同位体比を測定することに成功した。原油には根源岩にかかわる情報が数多く潜在する。これらの情報を明らかにすることは、根源岩からの直接的な知見を欠く場合にも、原油からその根源岩を的確に予測して、石油鉱床の発見機会を増やすことにつながる。本研究は、このような目標に向けた試みの中で、原油の微量バイオマーカーに対する個別炭素同位体比の測定手法、ならびに原油から根源岩の粘土鉱物量と石油生成能力を定量的に予測する可能性を示したものである。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 小 泉 格
副 査 教 授 岡 田 尚 武
副 査 助 教 授 鈴 木 徳 行

学 位 論 文 題 名

Source Rock Prediction Based on Petroleum Biomarkers and Their Compound-Specific Carbon Isotope Ratios

(石油バイオマーカーとその個別炭素同位体比に基づく石油根源岩予測)

石油は生物起源の有機物に富む石油根源岩で生成され则认为られている。石油鉱床を発見するためには、石油の生成、移動、そして集積に至る石油鉱床形成のシステム全体を理解することが不可欠である。石油炭化水素を生成した根源岩は石油システムの起点に位置しており、その時空的配置や石油炭化水素生成ポテンシャルの評価は最も基本的な資源探査の作業の一つである。根源岩を特定する場合には、原油と根源岩の両者に含まれる各種有機化合物の組成とそれらの炭素同位体比を用いて、両者を関連づける原油－根源岩対比が一般に行われている。しかし、たとえば海外の鉱区を評価する場合など、実際に石油が産出していることがわかっていても、堆積岩試料を十分に入手することが困難な場合が多い。このような場合、原油試料だけから鉱区の石油ポテンシャル、根源岩タイプ、根源岩の地質年代などを適切に評価することが求められる。原油に含まれる各種有機化合物のみから、石油システムに関するあらゆる情報を獲得する技術は、現在、石油資源探査の先端的地球化学技術の一つとなっており、世界各国でその開発が競われている。

本論文は、日本の代表的な石油鉱床である秋田県八橋油田をモデルケースにし、原油に含まれるバイオマーカーとその分子レベル炭素同位体比に基づいて、根源岩の石油生成ポテンシャルと岩質（碎屑性粘土鉱物の割合）を実際的に評価するための新しい地球化学的方法を確立させ、同油田の石油システムをさらに具体的に理解することに大きく貢献したものである。

著者は、八橋油田の女川層根源岩では、バイオマーカーの一種であるジアステランの相対的存在度が主に根源岩の埋没に伴う被熱温度と粘土鉱物含有率に大きく依存していることを見出した。これは、埋没続成過程でのジアステランの形成に粘土鉱物の触媒作用が本質的に重要な役割を担っているためである。

著者は、このようなジステランの形成に注目し、ジステランの一つであるジコレスタン類の相対濃度とエチルコレスタンの立体異性体組成（古地温指標）に基づいた、根源岩の粘土鉱物含有率を推定するための半定量的ダイアグラムを世界で初めて提案した。このダイアグラムを八橋原油に適用した結果、八橋油田の根源岩は粘土鉱物含有率が5%未満の珪質な根源岩であり、八橋背斜西方に分布する女川層下部～中部層に相当することを突き止めた。また、有機物濃度や石油生成ポテンシャルが高い女川層根源岩は、珪藻のバイオマーカーであるノルコレスタン濃度が高く、動植物プランクトンに由来するコレスタンの分子レベル炭素同位体比がより重くなる傾向を見出した。これは、八橋原油の根源岩が高い基礎生産性によって特徴づけられた海域で形成されたことを示している。著者は、ノルコレスタン濃度やコレスタンの分子レベル炭素同位体比と有機炭素濃度や石油生成ポテンシャルの関係を示すダイアグラムをこれも世界で初めて提案した。これを八橋原油に適用し、八橋油田の根源岩が優れた石油生成能力を有しており、全有機炭素量は1～6%、炭化水素生成ポテンシャルは4～18mgHC/g Rockであると推定した。このような優秀な根源岩は八橋油田周辺に分布する女川層中部の堆積層に相当している。以上のことから、八橋油田の根源岩は主として八橋背斜西方に分布する女川層下部層であるが、八橋背斜西方の沈降域に分布する女川層～船川層最下部層も関与していることを解明し、これまで考えられていた根源岩の分布をさらに具体的に特定することに成功した。

以上のように、本論文は、原油バイオマーカーとその個別炭素同位体比に基づいて、根源岩の岩質と石油生成ポテンシャルを推定するための半定量的ダイアグラムを世界で初めて考案し、新しい地球化学技術の確立に大きく貢献した。さらに、これらの方法を八橋油田に適用した結果、同油田の実効根源岩の分布がさらに具体的に特定され、同油田の開発に有用な新しい多くの知見を得ている。また、本論文では原油に含まれる微量なバイオマーカー（ステラン、トリテルパン）の単離にゲル浸透クロマトグラフィを適用し、それらの分子レベル炭素同位体比の測定に世界で初めて成功した。

よって著者は、北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格があるものと認める。