

博士 (理 学) イエッサリーナ スベトラーナ アイセフナ

学 位 論 文 題 名

GEOCHEMICAL STUDY OF SOME CRUDE OILS FROM THE PACIFIC SIDE OF JAPAN

(日本の太平洋側から得られた石油に関する地球化学的研究)

学位論文内容の要旨

Geochemical investigation of the crude oils and sedimentary rocks from sedimentary basins of the Pacific side of Japan, such as the Ishikari-Hidaka, the Offshore Joban, the Offshore Sanriku and the Kakegawa Basins, was performed to elucidate the origin of the oil in the Pacific side of Japan and to establish genetic correlations. The Pacific side of Japan has not been well explored for hydrocarbon potential in contrast to the major petroleum province of Japan located in the Japan Sea coast within the Akita and the Niigata basins. As hydrocarbon deposits in the Pacific side of Japan were discovered recently, few geochemical studies have been conducted previously on the oils and potential source rocks in these basins.

This study presents detailed geochemical characterizations of the oils and condensates from three major oil fields of the region, such as the Yufutsu oil- and gas field (the Ishikari-Hidaka Basin), the Iwaki-oki gas field (the Offshore Joban Basin) and the Sagara oil field (the Kakegawa Basin). The oils were analyzed for the saturate and aromatic fractions by Gas Chromatography-Mass Spectrometry. The results of the investigation revealed affinity of the oils in terms of the source input, thermal maturities and redox conditions of depositional environment. The oils are characterized by significant amount of higher plant biomarkers, high pristane/phytane ratios and low contents of organosulfur compounds. These geochemical characteristics imply that the oils are derived from siliciclastic source rocks containing significant terrestrial organic matter deposited in comparatively oxic depositional environment. Maturity levels of the oils evaluated based on abundant aromatics corresponds to 0.9-1.2% vitrinite reflectance, indicating generation of the oils during the late stage of the oil window from deeper and more mature source rocks. Immature signature of Sagara oils reflected in the sterane distribution is likely to be due to influence of contamination-migration, inferred from the presence of unsaturate oleanenes. Since Sagara oil is accumulated at shallow depth, it could extract immature biomarkers during migration.

Mature sediments in and around the Yufutsu, the Sagara and the Iwaki-oki fields according on the outcrops' and boreholes' data obtained in the previos studies have been found out to be represented by deeply buried Late Cretaseous to Paleogene strata. Organic matter in these sediments was determined to be dominated by terrestrial material. In the Ishikari-Hidaka, the Offshore Joban and the Offshore Sanriku basins the Late Cretaseous to Paleogene strata comprise abundant coal-bearing strata. The coal-bearing strata are the only organic-rich sediments in the basins and therefore have been proposed to be the sources of the hydrocarbons.

The present study provides support for the proposed exitence of genetic relationsip between Yufutsu oils and the Middle Eocene Ishikari Group. The rock extracts of sediments of the Ishikari Group collected from the outcrops exposed in Western Yubari Mountains showed exactly the same biomarker assemblage as the oils from Yufutsu. Biomarkers detected in the oils belong to different groups of angiosperm and gymnosperm origin; they include bicyclic sesquiterpanes, diterpanes, triterpanes, and their aromatized counterparts. Their abundance appeared to be higher in the oils from the nearby offshore wildcats rather than in the oils from the Yufutsu field, suggesting an enrichment in higher plant components. Differences in biomarker fingerprint could not be linked to the maturity effect, since the oils appeared to be of similar maturity levels. Influence of migration-fractionation as indicated by the unusually low occurrence of phenanthrenes compared to naphthalenes in the offshore oils could not explain observed differences in the biomarker distribution in a similar molecular range, (sesqui- and diterpanes). The differences in the biomarkers signatures between the oils from the Yufutsu field and the offshore wells are likely to be due to facies variations in source organic matter resulting in the quantity and quality of land plant input.

Higher plant biomarkers were detected in the Paleogene sediments of the MITI Sanriku-oki borehole, where oil and gas shows were found to be closely associated with Paleogene coal-bearing formations. The assemblage of biomarkers appeared to be very similar to that detected in the other sediments and oils analyzed in the present study. Good correlation between higher plant biomarker composition and playnological data obtained in the previous studies for MITI Sanriku-oki and carbon isotope data are in agreement with proposed origin of these compounds from angiosperm and gymnosperm sources.

学位論文審査の要旨

主 査	教 授	鈴 木 徳 行
副 査	助教授	山 本 正 伸
副 査	講 師	沢 田 健
副 査	講 師	渡 邊 剛

学 位 論 文 題 名

GEOCHEMICAL STUDY OF SOME CRUDE OILS FROM THE PACIFIC SIDE OF JAPAN

(日本の太平洋側から得られた石油に関する地球化学的研究)

我が国の石油、天然ガスは秋田地域、新潟地域など、主に日本海側に産していたが、1980年代の終わりから1990年代にかけて、福島県磐城沖、北海道苫小牧市勇払、青森県八戸沖（石油公団 基礎試錐「三陸沖」）に相次いで油田、ガス田が発見された。これを契機に、21世紀になり日本海側で盛んに行われていた石油探鉱が我が国の太平洋側でも盛んに行われるようになった。しかしながら、以上の油田はいずれも開発している会社が異なっていることもあり、これまで同じ基準に基づいて太平洋側に産する石油、天然ガスの共通性や相違について検討されることがなかった。本博士論文は最近発見された太平洋側の原油に、1870年代に既に発見されていた静岡県相良油田の原油を加え、日本の太平洋側に産出する油ガスの起源と成因について比較研究したものである。本博士論文ではこれらの原油に含まれる芳香族炭化水素に特に注目し、太平洋側に産する石油・天然ガスの起源有機物や熟成度（根源岩からの石油排出のタイミング）について多くの新しい知見を得ている。

太平洋側に産する石油は共通していずれも陸上高等植物に由来する有機物を多く含んでいること、また、プリスタン／フィタン比が2以上であること、有機硫黄化合物に乏しいことなどから、これらの石油は、陸起源有機物が十分に到達し得る、比較的酸化的な堆積環境で形成された碎屑性の石油根源岩に由来していることを明らかにした。アルキルナフタレンやアルキルフェナントレンに基づいた芳香族炭化水素の熟成指標（メチル基のシフト）から、これらの石油はビトリナイト反射率にして0.9～1.2%の熟成度にあることが明らかになった。これはこれらの石油炭化水素が従来考えられていたよりも高い熟成度に達し

ており、湿性ガス帯において根源岩から石油炭化水素の排出が行われたことを示している。この熟成度は前弧堆積盆では古地温にして約 150°C, 埋没深度にして約 5,000m に対応している。相良原油はこれまで比較的低い熟成度にあるものとされてきたが、本論文では相良原油のオレアノイドには不安定な不飽和炭化水素が有意に認められることを初めて示した。このことから相良原油は深部から浅部へ移動中に未熟成な堆積岩に由来する不安定な有機物を取り込んだものと考え、これまで行われてきた同原油の熟成度評価は再検討が必要だとしている。陸上高等植物由来の有機物は一般にステロイド炭化水素に乏しいことが知られている。しかしながら、これまでの研究では陸上植物に乏しいステロイドに基づいて有機物タイプや熟成度が評価されてきており、本研究の成果はこれまでの公表されてきた研究結果に再考を促している。結果として、著者は日本の太平洋側に見られる石油は二環セスキテルペノイド、ジテルペノイド、オレアノイドなどの芳香族炭化水素を共通して豊富に含んでおり、主に後期白亜紀から古第三紀のアジア大陸縁辺域において形成された陸源有機物に富む湿原性、デルタ性、浅海性の石油根源岩に由来したものと結論した。

本研究は堆積岩に含まれる陸上植物バイオマーカーの炭素同位体比に関する研究でも優れた成果を得ている。基礎試錐「三陸沖」から得た後期白亜紀から古第三紀の高等植物に富む泥質岩について、陸上高等植物バイオマーカーの組成を明らかに、これらが太平洋側に産出する原油のものとよく類似していることを示した。また、裸子植物バイオマーカーと被子植物バイオマーカーの分子レベル炭素同位体比を測定し、現在の植物に認められるのと同様に、地質時代の試料でも裸子植物バイオマーカーの炭素同位体比は $-22\sim-24\%$ 、被子植物バイオマーカーの炭素同位体比は $-25\sim-28\%$ の範囲にあることを示した。同時に、陸源有機物に富む堆積岩に特有なペリレンの炭素同位体比を測定し、これが $-24\sim-26\%$ の範囲にあることを初めて明らかにした。これまでペリレンの起源については異論があったが、本論文により初めてペリレンが主に被子植物に由来している可能性が高いことが示された。

以上のように、著者は北海道大学博士（理学）の学位を授与されるのに十分値するものと認める。