

# 安定炭素同位体組成を用いた新生代石炭起源炭化水素ガスの生成に関する研究

高橋 幸士

北海道大学大学院 理学院自然史科学専攻 博士後期課程 3年

(現 名古屋大学大学院環境学研究科 博士研究員)

## [研究背景と目的]

天然ガスの主成分である炭化水素ガスは、現代社会の代表的なエネルギー資源である。天然ガスは、主に堆積盆地において地下深部に埋没した岩石中の有機物の熱クラッキング（熱熟成）に伴って生じた炭化水素ガス（熱分解起源炭化水素ガス）が集積したものである。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、天然ガスの起源となった有機物タイプ (海成有機物 or 陸源有機物など) 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、起源有機物の熟成に伴って累進的に増加する。貯留岩に集積した天然ガスが石炭層に由来する場合、集積後の熱変質が無ければ、炭化水素ガスの  $\delta^{13}C$  値は、天然ガス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。この熟成度は、地下深部における熟成が進行した石炭層の存在や、熟成に伴って生成された炭化水素ガス量を考察する上で極めて重要であり、油ガス田の資源量評価や探鉱において必要不可欠な情報である。

約 6500 万年前～現在までの新生代と呼ばれる地質時代は、全球的に石炭層の形成が進行した時代の一つである。新生代の石炭は、先新生代の石炭に比べて水素分や脂肪族構造に富み、炭化水素生成ポテンシャルが高い。東アジアには、新生代の石炭層や陸源有機物に由来した大規模な油ガス田が数多く形成されている (例えば、勇払油ガス田など)。しかしながら、新生代石炭起源炭化水素ガスの  $\delta^{13}C$  値は、先行研究における石炭の熟成度指標 (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、石炭ではなく、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。また、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。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から採取した未熟成な亜瀝青炭の閉鎖系・準開放系熱分解実験を行い、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。

## [結果と考察]

熱分解実験に伴う石炭の熟成度 ( $VR_r$ ) は、 $VR_r = 0.53 \sim 1.8\%$  の範囲を示し、実際の自然界における石炭からの天然ガス排出が生じる段階まで熟成が進行していた。準開放系熱分解実験で生成する炭化水素ガスの  $\delta^{13}C$  値は、同じ  $VR_r$  (%) で比較すると、閉鎖系熱分解実験で生成する炭化水素ガスの  $\delta^{13}C$  値よりも大きな傾向を示し、 $VR_r$  (%) の増加に伴い両者の違いがさらに大きくなる傾向を示した。これは、準開放系熱分解実験では、低熟成度で生成された  $^{12}C$  に富む  $C_1 \sim C_3$  や、炭化水素ガスの前駆物質である揮発性の炭化水素が反応系外に除かれるためと考えられる。堆積盆地では、続成作用の初期段階において岩石の孔隙率や浸透率が高く、水の排出も盛んであるため、おおよそ開放系に近い状況下で炭化水素ガスが排出されていることが考えられる。さらに続成作用が進行し、孔隙率や浸透率が低下すると、石炭層中に保持される炭化水素ガスが増加し、次第に閉鎖系に近い状況下で炭化水素ガスの生成と排出が生じるものと考えられる。このことから、堆積盆地で石炭層から排出された炭化水素ガスの  $\delta^{13}C$  値は、本研究で行った準開放系と閉鎖系熱分解実験からそれぞれ見積もられた炭化水素ガス  $\delta^{13}C$  値の逐次変化と  $VR_r$  (%) の関係の間に位置することが予想される。

本研究では、夕張亜瀝青炭の閉鎖系・準開放系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に比べて、新生代石炭に由来した実際の天然ガス中の炭化水素ガスの  $\delta^{13}C$  値データとも良く調和していた。ただし、 $C_1$  の  $\delta^{13}C$  値は、熟成度だけでなく、微生物活動に由来した  $\delta^{13}C$  値の小さい  $C_1$  ( $< -50\text{‰}$ ) の混合や、石炭からの排出や移動に伴う同位体分別の影響を受けやすい。一方、 $C_2$  と  $C_3$  の場合は、微生物起源ガスの混合や、ガスの排出や移動に伴う同位体分別の影響が極めて小さい。起源有機物の  $\delta^{13}C$  値や、微生物分解などの知見を加えながら、 $\delta^{13}C_2$  と  $\delta^{13}C_3$  のダイアグラムを用いることにより、新生代石炭からの炭化水素ガス排出タイミングをより適切に評価出来るものと考えられる。以上のことを考慮し、本研究では、我が国の勇払油ガス田、バングラデシュの Surma basin、ニュージーランドの Taranaki basin における新生代石炭起源天然ガスの熟成度評価を行った。その結果、それぞれの天然ガスの熟成度は、 $VR_r = 1.3 \sim 1.4\%$ 、 $VR_r = 0.8 \sim 1.2\%$ 、 $VR_r = 1.1\%$  と推定され、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や資源量評価に極めて有用であると考えられる。