

Origin and generation process of natural gas :  
New approach from chemical and isotopic  
compositions of inert and light hydrocarbon  
gases

長谷川, 英尚

<https://hdl.handle.net/2324/1485071>

---

出版情報 : 九州大学, 2014, 博士 (理学), 論文博士  
バージョン :  
権利関係 : やむを得ない事由により本文ファイル非公開 (3)

氏 名 : 長谷川 英尚

論文題名 : Origin and generation process of natural gas: New approach from chemical and isotopic compositions of inert and light hydrocarbon gases

(天然ガスの起源と生成過程—不活性気体と軽炭化水素の化学および同位体組成からの新アプローチ—)

区 分 : 乙

### 論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、日本全国の天然ガスの主成分であるメタン ( $\text{CH}_4$ ) ガスとそれに共存する不活性ガス ( $\text{He}$ ,  $\text{Ne}$ ,  $\text{Ar}$ ,  $\text{N}_2$ ) および軽炭化水素ガス (エタン ( $\text{C}_2\text{H}_6$ ), プロパン ( $\text{C}_3\text{H}_8$ )) の化学および同位体組成の分布関係に基づき、従来の天然ガスの有機説 (堆積有機物の微生物分解ガスと熱分解ガスの2分類) と無機説 (熱分解ガスへのマグマ起源  $\text{CH}_4$  の混入説) の再検討による新たな起源分類と生成プロセスを提案したものである。

第1章 (序章) には、従来の天然ガス研究の現状と問題点および本研究を行うに至った経緯と目的が述べられている。第2章に、本研究で用いた実験手法を纏めている。

第3章では、本研究の端緒となった石油基礎試錐第7次5か年計画の現状と結果を紹介し、従来定説であった天然ガスの地層間での移動・集積現象について、再検討することの必要性を論じている。さらに、無機説で日本のグリーンタフ地域 (秋田・新潟) の天然ガスにマグマ起源の  $\text{CH}_4$  が含まれる論拠となった  $^3\text{He}/^4\text{He}$  比と  $\text{CH}_4$  の炭素同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ ) の関係が、その証拠となり得ないことを明らかにし、新たなアプローチ法の必要性を述べている。

第4章では、北海道、秋田、新潟、千葉および宮崎地域の企業生産井から得られた全国の天然ガスと東北日本のマグマ起源気体の  $\text{N}_2/\text{Ar}$  比と  $\text{He}/\text{Ar}$  比の分布関係およびグリーンタフ地域の天然ガスの同位体比 ( $\text{CH}_4$  の  $\delta^{13}\text{C}$  値,  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  および窒素同位体比 ( $\delta^{15}\text{N}$  値)) の比較による新たな視点から、グリーンタフ地域の天然ガスには、マグマ起源の  $\text{CH}_4$  が含まれないことを結論付けている。さらに、これらの不活性気体の組成と同位体比の差異が、天然ガスが生産された地層中の有機物の熟成度や地層の賦存環境に対応することを明らかにし、これまで定説であった天然ガスが移動・集積した気体ではなく、その地層内で生成した現地性気体である可能性を議論している。

第5章では、全国の天然ガスの新たな  $\text{CH}_4$  の  $\delta^{13}\text{C}$  値と  $\text{N}_2/\text{Ar}$  比の関係図を提案し、 $\delta^{13}\text{C}$  値の上昇に伴う  $\text{N}_2/\text{Ar}$  比の上昇パターンの変化と  $\text{N}_2$  の  $\delta^{15}\text{N}$  値の関係を明らかにしている。その結果に基づき、従来の“熱分解天然ガス”を、堆積有機物が全分解した時の高い  $\delta^{15}\text{N}$  値 (4~7‰) をもつ“高温熱分解ガス”とそれ以外の“低温熱分解ガス”の2つに分類し、その境界を  $\text{CH}_4$  の  $\delta^{13}\text{C}$  値を指標として約-40‰とすることを提案している。

第6章では、世界的な海洋堆積物の  $\delta^{15}\text{N}$  値の表層及び深度分布とその変動メカニズムを、過去50万年間のペルー沖堆積物中の石灰質ナンノプランクトン群集と  $\delta^{15}\text{N}$  値の変動関係に基づき議論している。この海域の堆積物の  $\delta^{15}\text{N}$  値は、3‰から7‰の領域を変動しており、この  $\delta^{15}\text{N}$  値の変動が、気候変動に伴って引き起こされた海洋透光帯の栄養塩濃度と植物プランクトンによるその消

費メカニズムの変動に起因する汎世界的な現象であることを解明し、天然ガス中の高  $\delta^{15}\text{N}$  値を持つ  $\text{N}_2$  の存在が、高温熱分解天然ガスを分類する指標となることを裏付けている。

第7章では、日本全国の天然ガスの軽炭化水素ガスの  $\text{CH}_4$  (C1),  $\text{C}_2\text{H}_6$  (C2) および  $\text{C}_3\text{H}_8$  (C3) の C1/(C2+C3)比と  $\text{CH}_4$  の  $\delta^{13}\text{C}$  値の関係図を作成し、 $\delta^{13}\text{C}$  値の上昇に伴い C1/(C2+C3)比が、急激に低下し始める  $\delta^{13}\text{C}$  値 (-60‰付近) を微生物分解ガスと低温熱分解ガスの境界値とすることを議論している。

第8章では、天然ガスの移動・集積説とその中で用いられてきた C1/(C2+C3)比と  $\delta^{13}\text{C}$  値の混合ラインの問題点を議論し、新たに本研究で提案した He/Ar 比と  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  比の関係図に基づき、天然ガスが従来の地層間の移動・集積ガスではなく、生産された地層中で生成した現地性ガスであることを裏付けている。

第9章(終章)では、日本の天然ガスは、その起源として有機説のみを考慮し、堆積有機物の微生物分解および低温と高温の熱分解で発生した微生物分解ガス、低温熱分解ガスおよび高温熱分解ガスの3つに分類できること、および各々の境界を  $\text{CH}_4$  の  $\delta^{13}\text{C}$  値の-60‰と-40‰とする新たな分類指標を提案できることを結論付けている。