

氏名(本籍)	おお ば まさ ひろ 大庭雅寛(福岡県)
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	博甲第2856号
学位授与年月日	平成14年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	化学研究科
学位論文題目	Geochemical Studies on Kerogen Diagenesis by Thermal Analysis (熱分析法によるケロジェン続成変化に関する地球化学的研究)
主査	筑波大学教授 P h . D . 下山 晃
副査	筑波大学教授 理学博士 菊池 修
副査	筑波大学教授 理学博士 池田 龍一
副査	筑波大学教授 P h . D . 山本 泰彦

論文の内容の要旨

堆積岩中にはケロジェンとよばれる巨大で複雑な分子構造を持つ有機物が存在する。このケロジェンは堆積岩の続成作用により、主として石油炭化水素成分を放出するため石油の根源物質とされており、ケロジェンに関する研究は有機地球化学の分野では重要な課題とされている。

本論文は、第一章では、これまでに報告されたケロジェンに関する熱分解実験法を紹介し、それらの代表的で広く使用されているロックエバル法と昇温プログラムマイクロ熱分解法について、改良すべき点を指摘している。すなわち、これらの実験方法はケロジェンの熱分解により放出される多数の成分を分離できずただ1つの成分として取り扱うために、得られた活性化エネルギーと前指数因子をケロジェンバルクとしてしか算出できない欠点がある。この点を著者は指摘し、個々の分解成分の活性化エネルギーと前指数因子が測定できる装置を組立てる必要性を述べている。さらに、これらの活性化エネルギーと前指数因子から堆積岩の地温勾配と堆積速度の値を使用し、堆積岩の埋没深度に伴う分解成分の放出を個々の化合物について復元することを提案している。また、その復元による深度分布がこれまでに抽出成分として報告されている化合物の深度分布をどこまで再現できるかの評価を行うことの必要性を指摘している。

第二章では、熱分解装置(TG)とガスクロマトグラフ/質量分析計を結合したTG-GC/MSシステムを使用し、ケロジェン熱分解成分を明らかにするためとその特徴の解明を行った。その結果、分解成分としてC₆-C₂₈の直鎖アルカンをはじめとし249種におよぶ化合物を同定し、これらが石油に普遍的に含まれる化合物であることから、石油のケロジェン起源説を明らかにした。さらに、TG-MSシステムを使用し、ケロジェンからこれらの化合物が450℃で放出を始め、550℃で放出が終了することを明らかにし、堆積岩中では続成作用により石油成分がケロジェンから放出されることを指摘した。

第三章では、ケロジェンから放出されたベンゼン、ヘキサン、トルエン、フェノール、ヘプタン、インデンの6種について、TGでの異なる昇温速度から放出温度を測定し、放出時の活性化エネルギーと前指数因子を算出した。得られた活性化エネルギーは43.1-60.9kcal/molの値を示し、前指数因子は3.56x10¹⁰-1.21x10¹⁶s⁻¹の値を示した。これより、各成分の熱分解反応による反応速度が異なることを明らかにした。さらに、堆積岩中で石油生成が始まるとされている120℃での速度定数算出の結果では、インデン、ベンゼン、トルエン、フェノール、ヘキサン、ヘプタン、の順で放出されやすいことが判明した。

第四章では、新庄堆積盆地を例に取り、上記6種の活性化エネルギーと前指数因子を組入れ、さらに地温勾配と堆積速度を考慮した放出モデルの式を導き、これにより得られる放出された化合物の深度分布を算出・復元することを可能とした。この結果、最大放出温度は120℃あるいはやや高温側（より深い深度）側となり、実際に測定された抽出性有機物の深度分布と類似するかやや高温側である結果となった。これは堆積岩中には触媒作用をもつ粘土鉱物などが存在し、それらの効果が現れているためと解釈した。

審 査 の 結 果 の 要 旨

本研究は、熱分解装置（TG）とガスクロマトグラフ／質量分析計を結合したTG-GC/MSシステムを組立、これにより今までは不可能とされていたケロジェンからの個々の分解成分について活性化エネルギーと前指数因子を得ることを可能にした。さらに熱分解を反応速度論的に取り扱うことで、堆積盆地での化合物の深度分布の復元を可能とした。このような研究は有機地球化学の堆積岩での続成変化の解明に大きな貢献をなし、博士論文として十分に評価できるものである。

よって、著者は博士（理学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。