

平成21年 3 月31日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2006～2008

課題番号：18540449

研究課題名（和文） 真の続成作用評価のための、現地性化石花粉の分離、識別と有機熟成度測定

研究課題名（英文） Isolation and identification of autochthonous fossil pollen and measurement of their organic maturity to evaluate the real diagenesis

研究代表者

氏家 良博 (UJIIÉ YOSHIHIRO)

弘前大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号：50151858

研究成果の概要：基礎試錐で掘削された泥質岩及び地表に露出する泥質岩から化学的に取り出したマツ属、モミ属、トウヒ属の有翼型化石花粉単体の赤外吸収スペクトルを、赤外顕微鏡を接続したフーリエ変換赤外分光光度計で測定した。ビトリナイト反射率等の他の有機熟成指標との対応から混入したと推定される異地性化石を除くと、化石花粉のメチル基、カルボキシル基、芳香族の官能基の吸光度は、続成作用の進行に伴い規則的に減少することが判明した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	2,600,000	0	2,600,000
2007年度	500,000	150,000	650,000
2008年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	300,000	3,900,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・地質学

キーワード：続成作用、有機熟成、花粉化石、赤外吸収、化石有機物

1. 研究開始当初の背景

堆積岩が受けた続成作用の程度（石油探鉱では、有機熟成度という）を調べることは、石油探鉱、特に石油根源岩の評価にとって大変重要なことである。珪酸鉱物や沸石等を利用した無機物を対象とする評価法は一般的に定性的であり、石油探鉱等ではもっぱら定量的な評価が可能な有機物を利用した方法が取られている。

しかしながら、堆積岩に含まれている有機物（堆積性有機物）にはその堆積岩と同年代の現地性有機物のほかに、より古い年代の岩石から洗い出された誘導有機物（二次的有機

物）、さらにより新しい年代の汚染有機物が混入していることが多い。

これまで続成作用の程度を示す有機熟成指標として利用されてきた、元素組成（水素対炭素の原子比、酸素対炭素の原子比）、赤外吸収スペクトルにおける官能基の強度、Rock-Eval 熱分解での生成物の組成、電子スピン共鳴—ケロジェン法、プロトン核磁気共鳴のスピン—格子緩和時間は、岩石に含まれる堆積性有機物全体を一纏めにして分析してしまうために、誘導有機物や汚染有機物を除外した現地性有機物のみ有機熟成度を測定することは不可能である。

一方、堆積性有機物の中で特定の分析対象を分離してその有機熟成度を測定するものとしては、ビトリナイトの反射率、エグジナイトの蛍光、炭化水素の組成（ノルマル-アルカン、ステランとトリテルパンの構造異性体組成）、花粉や孢子の色調（熟変質指標）がある。これらの指標を利用すれば、分析値に二つ以上のピーク（bimodal）が存在することなどから、誘導有機物や汚染有機物の混入の可能性を判断することは可能であるが、どの有機物が現地性の有機物であるかを分析結果から特定することは困難であった。

2. 研究の目的

本研究では、顕微鏡下で化石の花粉単体を岩石試料から分離し、同じ花粉単体に対して画像処理による色調測定と赤外吸収という二つの分析を行い、両者の分析値から現地性有機物を識別し、その有機熟成度、すなわち真の有機熟成度（続成作用の程度）を明らかにしようというものである。

同じ一つの花化石に対し二つの分析法で測定し、その分析値を縦軸と横軸にとるダイアグラムにプロットすれば、現地性有機物、誘導有機物、汚染有機物の識別が可能になると推定される（下図）。このダイアグラム上では、続成作用に伴う一般的な有機熟成は、「有機熟成ライン」に沿って進行するが、誘導有機物や汚染有機物は異なる位置にプロットされる。

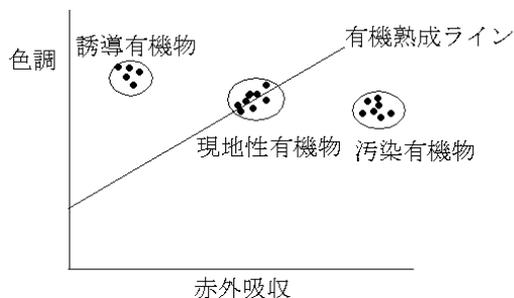


図 現地性有機物、誘導有機物、汚染有機物の識別（概念図）

3. 研究の方法

- (1) 現生のクロマツ花粉を 60℃ から 450℃ までの種々の温度で 24 時間加熱して人工的な有機熟成（有機熟成シミュレーション）を起こさせる。
- (2) 申請者らが考案した試料土台に加熱した後の花粉を載せて、赤外顕微鏡を接続したフーリエ変換赤外分光光度計で赤外吸収スペクトルを測定する。

(3) 顕微鏡下での加熱花粉の画像をコンピュータに取り込んで、画像解析ソフトウェアで測定する。

(4) 赤外吸収と色調の測定結果を上図の様なダイアグラム上にプロットし、その近似直線を有機熟成ラインとする。

(5) 基礎試錐「本荘沖」、「由利沖中部」及び地表ルートから採取した岩石試料から化学的に有翼型花粉を取り出す。その花粉を試料土台に載せて、赤外顕微鏡を接続したフーリエ変換赤外分光光度計で赤外吸収スペクトルを測定する。

(6) 顕微鏡下での化石花粉の画像をコンピュータに取り込んで、画像解析ソフトウェアで化石花粉の色調を測定する。

(7) 赤外吸収測定で得られた各官能基の吸光度と色調との相関（左図）から異地性花粉を識別・除外し、残りの現地性花粉における官能基の続成変化を考察する。

(8) ビトリナイトの反射率等の他の有機熟成指標と、各種官能基の吸光度との相関を調べ、化石花粉単体の赤外吸収スペクトルが有効な有機熟成指標であることを公表する。

4. 研究成果

(1) 石炭試料から化石花粉を取り出し、1 個体（単体）の赤外吸収を測定した例（Akiyama et al., 1992）はあるが、一般の堆積岩から化石花粉単体を取り出して、その赤外吸収スペクトルを測定した例は国内外で初めてである。

(2) 化石花粉単体を対象として赤外吸収測定をするための、試料土台（下図）を考案し「堆積学研究」誌上で公表した。

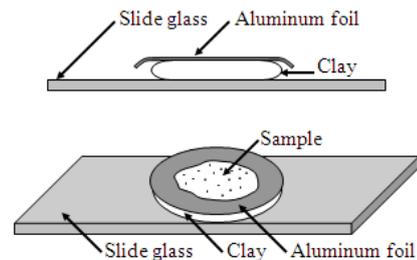


図 顕微フーリエ変換赤外吸収測定のための試料土台の概念図

(3) 現生クロマツの花粉群を対象にして臭化カリウム錠剤法で測定した赤外吸収スペクトルと、現生クロマツ花粉単体を対象にして顕微透過反射法で測定した赤外吸収スペクトルは良く類似し、赤外吸収の測定法による差は有機熟成指標としては無視できることを明らかにした。

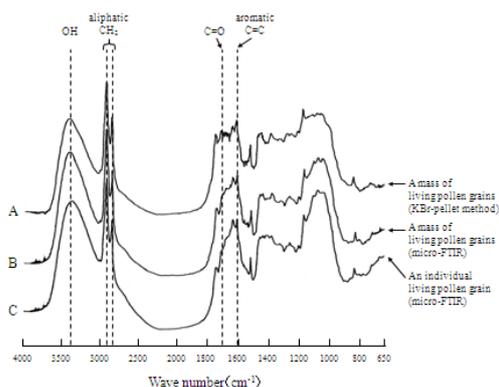


図 測定法を変えた時の現生クロマツ花粉の赤外吸収スペクトル

上図の赤外吸収スペクトル図の内、最上位の図が臭化カリウム錠剤法で花粉群を測定したもの、中央の図は花粉群を顕微透過反射法で測定したもの、最下位の図が顕微透過反射法で現生クロマツ花粉単体を測定したものである。

(4) 化石花粉のメチル基、カルボキシル基、芳香族の官能基の吸光度は、続成作用の進行に伴い減少傾向を示す。

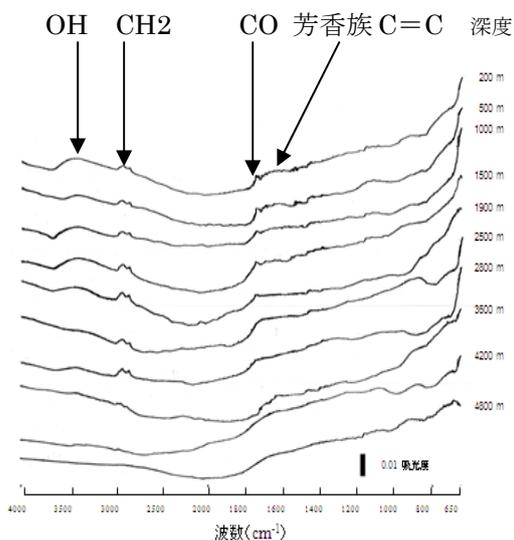


図 基礎試錐における化石花粉の赤外吸収スペクトルの変化 (未公表)

(5) ビトリナイトの反射率、統計的熱変質指標等の他の有機熟成指標と、化石花粉の各種官能基の吸光度の相関は高く (下表)、化石花粉単体の赤外吸収スペクトルは有効な有機熟成指標である。

		官能基の吸光度			
		CH2	C=O	芳香族 C=C	OH
現生加熱 試料	stTAI	0.80	0.83	0.55	0.80
	地表ル 一ト	Ro	0.12	0.17	0.13
基礎試錐「由 利沖中部」	stTAI	0.76	0.56	0.28	0.57
	Ro	0.75	0.58	0.24	0.63
基礎試錐 「本荘沖」	stTAI	0.70	0.49	0.35	0.60
	Ro	0.56	0.29	0.12	0.64

表 現生クロマツの加熱試料及び地質試料における赤外吸収の官能基と熱変質指標 (stTAI)、ビトリナイト反射率 (Ro) との相関係数 (R^2)

(6) 本研究の成果が公表されれば、石油根源岩の有機熟成度を推定する新たな方法として花粉単体の赤外吸収が受け入れられ、より正確な石油探鉱に寄与すると期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2件)

① 相澤武宏、菅原雅、荒田勇輝、大村亜希子、氏家良博、「有機熟成シミュレーションとしての現生花粉の加熱実験における、大気と窒素の加熱雰囲気の影響」、*Researches in Organic Geochemistry*, 25 巻、頁未定、2009、査読有 (受理済み)

② 相澤武宏、氏家良博、「有機熟成度を推定するための化石花粉の粒子単体を対象とした赤外吸収スペクトルの測定法」、*堆積学研究*, 67 巻、19-25、2008、査読有

〔学会発表〕(計 8 件)

- ①Aizawa, T., Ohbuchi, T. and Ujiié, Y., 「Infrared spectrum of an individual fossil pollen grain measured as an organic maturation index.」、International Conference on Coal and Organic Petrology、2008 年 9 月 22 日、Prince Philip Auditorium, Oviedo, Spain.
- ②相澤武宏、氏家良博、「化石有翼型花粉粒子単体の赤外吸収スペクトルの熟成変化」、2008 年 6 月 12 日、石油技術協会平成 20 年度春季講演会、朱鷺メッセ 新潟コンベンションセンター
- ③氏家良博、「有機物からみた続成作用」、2008 年 4 月 27 日、日本堆積学会 2008 年弘前大会、弘前大学
- ④相澤武宏、氏家良博、「マツ花粉の単体を対象とした赤外吸収スペクトルの測定法」、2007 年 9 月 10 日、日本地質学会第 114 年学術大会、北海道大学
- ⑤数田文代、大淵寿弥、氏家良博、「有機熟成に伴う化石花粉及び現生クロマツ花粉の色調変化」、2007 年 6 月 7 日、石油技術協会平成 19 年度春季講演会、国立オリンピック記念青少年総合センター、東京
- ⑥相澤武宏、大淵寿弥、氏家良博、「試錐試料における花粉の色調と赤外吸収スペクトルの変化」、2007 年 6 月 7 日、石油技術協会平成 19 年度春季講演会、国立オリンピック記念青少年総合センター、東京
- ⑦Aizawa T. and Ujiié Y., 「A parameter for organic maturation based on a FTIR spectrum of one pollen grain of Pinus」、2006 年 9 月 17 日、The Society for Organic Petrology (TSOP), 23rd Annual Meeting., Xijiao Hotel, Beijing, China.
- ⑧相澤武宏、氏家良博、「花粉粒子単体を対象とした FTIR による有機熟成指標」、2006 年 6 月 1 日、石油技術協会平成 18 年度春季講演会、仙台市戦災復興記念館

6. 研究組織

(1) 研究代表者

氏家 良博 (UJIIIE YOSHIHIRO)
弘前大学・大学院理工学研究科・教授
研究者番号：50151858

(2) 研究分担者
なし

(3) 連携研究者
なし