

氏 名	上田 広和
学位の種類	博士（理学）
学位記番号	自博乙第4号
学位授与年月日	令和7年9月19日
学位授与の要件	学位規則第4条第2項
文部科学省報告番号	乙第358号
学位論文題目	下北半島の地熱系が泥質岩の有機物と岩石鉱物に与える変質に関する研究 (Study on the alteration processes of geothermal systems on the organic matter and rock/mineral composition of mudstones in the Shimokita Peninsula, Japan)
論文審査委員	主査 島根大学教授 入月 俊明 島根大学教授 亀井 淳志 島根大学教授 林 広樹 島根大学准教授 遠藤 俊祐 島根大学名誉教授 三瓶 良和

## 論文内容の要旨

泥岩と有機物の熱水変質については先行研究が少なく、その変質プロセスは明らかにされていない。多くの地熱地帯では溶岩や火砕物で地表を覆われることが多く、熱水変質作用を受けた泥岩露頭の分布は限られている。青森県下北半島北部域は東北日本を代表する地熱地帯であり、かつ有機物に富む泥岩が分布しそれらが熱水貯留層となっているため、泥岩有機物の変質過程を明らかにするには非常に適した地域である。下北半島の第四紀火山である燧岳の北東麓には熱水変質作用を受けた中～上部中新統薬研層下部層の珪質泥岩が局所的に露出する。本研究では、まず「連続変質露頭」において、高度変質過程を有機地球化学、無機地球化学および鉱物学的に詳細に調べた上で、その結果を同一層準で変質度の異なる「大赤川露頭」、「国道沿い露頭」の結果と比較して、異なる変質度の岩石鉱物と有機物の変化過程を明らかにした。これに加えて、変質プロセスを検証する目的で温泉湧出点近くの温泉沈殿物の有機物組成と、土壌ガス中の有機分子を分析した。

「連続変質露頭」では、泥岩は黒色から白色への連続的な変質を示した。全有機炭素(TOC)濃度は岩石色の変化に応じて0.00%から0.46%まで変化し、黒色で高く灰色～白色で低くなり、 $\text{SiO}_2$ 濃度と負の相関を示した。このことはTOC濃度が熱水変質による珪化に強く依存していることを示している。 $n$ -アルカンには、変質が進みTOC濃度が減少するにつれて奇数炭素優位性(CPI)の値が2.8まで増加するという特異な現象が見いだされた。この要因には、熱水変質温度の高い箇所ほど泥岩有機物の熱分解が強く起こり、短鎖のガス状炭化水素が主に生成され逸散したために、長鎖  $n$ -アルカンの未熟成成分組成がそのまま残ったことが考えられる。「連続変質露頭」の  $T_{\text{max}}$  値は異常に低い値を示し、アスファルテン成分が熱水に抽出され近辺に移動し沈殿したことが示

唆される。「連続変質露頭」,「大赤川露頭」,「国道沿い露頭」の順に燧岳から距離が離れ, TOC 濃度は燧岳に遠い方から 2.5%から 0.0%まで低下する傾向が明瞭に示された。炭化水素量の減少は特に顕著であった。「国道沿い露頭」では  $HI=400\text{mg/gTOC}$  程度の優秀な石油根源岩となっており, 中期～後期中新世頃に秋田県女川層珪質泥岩層相当層が太平洋側まで続いていたか, または基礎生産性の高い海盆が太平洋側に独立して形成されていた可能性がある。C/N 比と C/S 比は燧岳に近いほど変動幅が大きく有機物は熱分解し, アミノ基の分解, アスファルテンの生成, 堆積性黄鉄鉱の溶脱と再沈殿が生じたことが明らかになった。熱水流動は炭化水素の移動を促した。熱水による被熱温度は,「国道沿い露頭」で  $100\sim 110^{\circ}\text{C}$ ,「大赤川露頭」で  $200\sim 240^{\circ}\text{C}$ ,「連続変質露頭」で  $150\sim 250^{\circ}\text{C}$  と推定された。泥岩の変質プロセスを検証するために行った加熱実験では,  $100^{\circ}\text{C}$  以下の酸性熱水では泥岩有機物の減少は短期間にはほとんど進まないこと, 有機物の一部が遊離炭化水素に変化することが確認された。「大赤川露頭」はオパール CT/石英転移帯に相当し, 孔隙率が高いことが明らかになった。「連続変質露頭」では  $\text{SiO}_2$  濃度と孔隙率には相関があり, 珪化の進行と共に岩石密度は増加する。鉱物組成に基づけば,「連続変質露頭」は硫酸熱水による変質であり火山性揮発物質の寄与が高い。一方,「大赤川露頭」では加熱された地下水による変質で弱酸性～中性の熱水変質である。研究地域から採取した温泉水沈殿物には藻類やバクテリアなどの影響による現生生物有機物が検出されているが, *n*-アルカン組成は地熱貯留層の熱水性状を示唆している。土壌中の有機ガスは, テルペン等の現世有機物が主な起源であり, 泥岩が受けた熱水変質に関連する有機分子は検出されなかった。

## 論文審査結果の要旨

陸上における火山周辺の熱水地帯では, 地熱資源開発・自然環境保全・地質災害防止などのために泥岩有機物および岩石鉱物への熱水の影響を総合して明らかにする必要があるが, この分野は特に研究が進んでいなかった。申請者の博士論文の成果では, それが初めて系統的に明らかにされ, その根幹となる成果は2編の査読付き論文で公表された。審査の結果, 以下の具体的な成果を認定し, 総合して博士の学位を授与するのに相応しいと判断された。

(1) 下北半島は日本を代表する地熱地帯の一つであり, 有機物に富む中新統珪質泥岩が熱水貯留層となっているため研究対象地として最適であることを示し, 系統的で説得力のある成果が得られ, 普遍性を含むモデルの提案がなされた。

(2) 熱水活動によって泥岩の有機炭素濃度が原岩の 2.5%から 0%まで減少し炭化水素量も二けた以上低下することを示し, このことは熱水による有機物の分解と溶脱が極限まで起こっていることを示した。これらは熱水変質の新たな尺度提案としても評価される。

(3) 熱水変質する前の葉研層珪質泥岩は, 有機物濃度および炭化水素ポテンシャルともに非常に高く, 中期～後期中新世の東北日本背弧海盆の女川層泥岩と同等であり, それが太平洋側で初めて見いだされた。

(4) 対象地域の熱水は2つのタイプがあることが示された。一つは浅部起源の温度  $200\sim 240^{\circ}\text{C}$  の弱酸性～中性熱水で泥岩有機物を中程度（原岩の 5 割～7 割）まで分解させ粘土鉱物を溶脱させて孔隙率を増加させ強度の弱い岩石を生成させるもの, もう一つは深部起源の温度  $150\sim 250^{\circ}\text{C}$  の硫酸酸性熱水で粘土鉱物を石英に置換するとともに泥岩有機物を大きく分解・減少させ（原岩の 8 割以上）, 非常に緻密で堅固な白色珪質岩を生成させるものである。泥岩中の堆積性黄鉄鉱由来のイオウも溶脱・濃集させ, 大きく偏在させていくことが明らかとなった。ただし, 室内での熱水加熱実験結果は,  $100^{\circ}\text{C}$  程度の低い温度の酸性熱水は短期間では泥岩有機物をまったく減少させないことを示した。

(5) 以上のような熱水変質過程では、泥岩中の炭化水素が激減するとともに残された  $n$ -アルカンの奇数優位性は高くなり（奇数炭素優位性 CPI 値が 2.8 まで増加）、これは通常の堆積盆地の続成作用とは逆の傾向を示すことがはじめて見いだされた。これらもまた熱水変質の指標となることが示された。

(6) 温泉沈殿物は、地下泥岩の有機物を抽出し移動させて地表に情報を運んでくるメッセンジャーのような役割も果たすことが示された。ただし、期待された熱水ガス成分のうちの炭化水素は濃度が低すぎて検知が困難なレベルであることが分かった。

以上のように、申請者は、地質学、有機地球化学、岩石学、鉱物学の幅広い手法を駆使し、陸域における泥岩の熱水変質過程を系統的に明らかにして概念的モデルの提唱も行った。これらの成果は、今後の日本や世界の陸域における地熱資源開発・自然環境保全・地質災害対策などに広く応用されていくものと期待される。博士論文・口頭発表からは、知識・技術・研究遂行能力等が十分であることを認定することができ、博士の学位を授与するに相応しいと判断される。