

変成領域における石炭化植物片の物理的変化の予察 ： 反射率と結晶度の対応

千々和，一豊
山口大学教育学部地学教室

亀田，奈美江
(株)沖ソフトウェア九州

石黒，洋志
上宇部中学校

相原，安津夫
九州大学理学部

<https://doi.org/10.15017/4494737>

出版情報：九州大学理学部研究報告．地球惑星科学．18（1），pp.47-64，1993-12-25．九州大学理学部
バージョン：
権利関係：

変成領域における石炭化植物片の物理的变化の予察

—反射率と結晶度の対応—

千々和一豊*・亀田奈美江**・石黒洋志***・相原安津夫

Preliminary study of change in physical properties of coalified and graphitized phytoclasts with grade of metamorphism—correspondence between the reflectance and the crystallinity—

Kazutoyo CHIJIWA*, Namie KAMEDA**, Hiroshi ISHIGURO*** and Atsuo AIHARA

Abstract

The reflectance of coalified phytoclast and the crystallinity of carbonaceous constituents from the Sanbagawa pelitic schists of the Asemi River area in central Shikoku and from thermally metamorphosed clastic rocks of the Miocene Susa Group in Yamaguchi Prefecture have been investigated, and compared with the metamorphic zones previously reported. The values of reflectance and crystallinity by the X-ray diffraction mutually increase with advancing of metamorphic temperature, and are very consistent with the mineral zones of each district. And thus, the reflectance is very useful as a rank parameter for the metamorphic grade of the host rock within both the contact and the regional metamorphic belts. However, the increasing modes of the reflectance and the crystallinity do not always correspond each other with progressing of metamorphism. This phenomenon is probably due to the fact that the crystallinity, namely, the degree of graphitization is caused not only by rock temperature but also by pressure, the duration of metamorphism, parent material and its rank, and by heating rate, in contrast with the reflectance being surely determined by the rock temperature and the effective heating time for thermal maturation of organic matter.

In the Asemi River area, the reflectance in the chlorite zone ranges from 4 to 6% \bar{R}_{max} , which supports that the greenschist facies begins beyond 4% \bar{R}_{max} . The boundaries between the chlorite zone and the garnet zone, and between the albite-biotite zone and the oligoclase-biotite zone correspond to around 6–7% and around 8% \bar{R}_{max} respectively. The crystallinity of carbonaceous materials within the higher grade part of garnet zone and the biotite zone nearly reaches that of the fully ordered graphite.

In the Susa area, the biotite isograd and the cordierite isograd correspond to the isorefectance line of 6% and 8% \bar{R}_{max} respectively. The regional organic metamorphism of higher rank and the concentric isorefectance surface in accordance with the distance from the Kohyama gabbroic body suggest that the thermal metamorphism by the gabbroic intrusion affected throughout the distribution area of the Susa Group.

* 山口大学教育学部地学教室 Department of Earth Science, Faculty of Education, Yamaguchi University

** (株)沖ソフトウェア九州 Oki Software Kyushu Co., Ltd.

*** 上宇部中学校 Kami-Ube Junior High School

I. はじめに

近年、広域低度変成帯および接触変成帯における変成作用の研究では、従来から行われてきた変成鉱物の共生に加え、鉱物相の特徴(鉱物間の元素分配係数・鉱物の組成および光学性)や炭素同位体を調べることで、変成条件や変成温度構造がより詳細に考究されるようになってきた(例えば、東野, 1990)。一方、堆積岩を起源とする変成岩(おもに泥質片岩や泥質ホルンフェルス)中の炭質物の化学組成や結晶構造が、変成度とともに連続的に変化し、炭質物は次第に理想的な石墨の結晶構造に近づくことが明らかにされている。このように炭質物の結晶度(石墨化度)は相対的な地質温度計になりうるため(QUINN & GLASS, 1958; FRENCH, 1964; GRIFFIN, 1967; IZAWA, 1968; LANDIS, 1971; GREW, 1974; DIESSEL & OFFLER, 1975)、変成帯における温度構造を探る目的で研究されている(例えば、DIESSEL *et al.*, 1978; ITAYA, 1981; TAGIRI, 1985; OKUYAMA-KUSUNOSE & ITAYA, 1987; 西村他, 1989)。変成岩中の炭質物が再結晶しながら無機炭質物である石墨へ変化する過程が石墨化作用であり、その進行程度が石墨化度で、専ら X 線回折法によって解析される。

そもそも地層中に固定された植物源有機物は、続成～埋没変成(～広域変成)作用の進行に伴って泥炭から瀝青炭を経て無煙炭(さらに石墨様物質)へと炭質が変化することが知られており、こうした基本的に炭素濃集へ向かう非可逆的な化学組成の変化の過程を石炭化作用と呼んでいる。炭質は石炭化作用の進行程度(石炭化度または有機変成度)で著しく規定されるため、石炭化度の研究は石炭岩石学の重要な課題の一つであった(相原, 1979a; 高橋, 1985)。石炭化作用は温度と有効被熱時間によって促進されると考えられており、堆積盆における石炭化度の解析によって、逆に炭質を規制した物理化学的条件およびその地学的背景を探ることが可能となる。こうした視点から、石炭岩石学・有機地球化学的手法を用いて、地層中に挟まれる植物源固体有機堆積岩である石炭や地層中に分散する石炭化植物片(phytoclast)(BOSTICK, 1971)およびケロジェンの有機変成度(熟成度)が解析され、堆積盆における石油発生帯の予測・評価が行われてきた。また、古地温環境を推定したり、さらに地質構造や層位古地理学的

問題を解決する手段としても有機変成作用の研究はますます応用分野をひろげている(STACH *et al.*, 1982; TISSOT & WELTE, 1984; TEICHMÜLLER, 1987)。

炭質物が有する光学的性質の一つである反射率(ピトリナイト反射率)は、有機変成の進行に従って、石炭化物質中の炭素成分の富化によって上昇するので、有機変成度を判定し、石炭化物質の物理・化学性を判断する恰好の指標とされてきた(相原, 1979b)。但し、反射率を有機変成度の指標に用いたこれまでの研究は、専ら炭田・油田地帯の非変成層を対象にして、続成～埋没変成領域の有機変成作用の解析に重点がおかれていた。一方、反射率は地質温度計としての意義を有することから、反射率の測定をこれまでほとんど試みられていない変成領域(広域・接触変成帯)の炭質物に適用することによって、変成鉱物の共生に基づいて提起されている変成分帯が炭質物の光学性という新たな指標によって再定義されるであろうし、鉱物共生や結晶度の解析からはそれ以上細かく議論できない変成帯での詳しい変成温度構造の解析も可能になると期待できる。また炭質物の光学性と結晶度の対応関係を明らかにすることは、地層中の有機物が無機物である石墨へと変化する過程(物性の変化)を考察する上で重要かつ興味深いテーマである。しかしながら、変成領域におけるこうした視点からの研究は極めて少なく、オーストラリアおよびニューギニアの広域変成岩を対象とした DIESSEL & OFFLER (1975) と DIESSEL *et al.* (1978) の研究および北上山地遠野接触変成帯を扱った OKUYAMA-KUSUNOSE & ITAYA (1987) の研究があるだけである。

本研究では、変成領域での炭質物の変化—石炭化作用と石墨化作用の関係—を明らかにするために、すでに変成分帯が確立されている二つの地域、すなわち広域変成帯の例として高圧型の三波川結晶片岩が露出する四国中央部の汗見川地域、接触変成帯の例として山口県北部の須佐地域を対象として、岩石中の炭質物の反射率の測定と X 線回折実験を行った。本研究の達成目標は、同一試料を用いて結晶度(石墨化度)と反射率を測定し両者の対応関係を調べ、さらに変成分帯との対応関係を明らかにすることにある。結晶度(石墨化度)と反射率との関係を調べるために、変成岩中の炭質物とは別に石炭試料の測定も併せて行い、これも

議論に加える。研究は現在も進行中であり、最終的な結論を得るまでには至っていないが、小論ではこれまでに得られた結果を中心に述べることにしたい。

本研究を行うにあたって、山口大学教養部西村祐二郎教授には、炭質物の分離法を御教示頂くとともに、研究当初より数々の有益な御助言を頂いた。九州大学理学部西山忠男助教授には、原稿の校閲とともに貴重な御意見を頂いた。高知大学理学部の中川昌治博士には汗見川試料の採集に際し御協力を頂いた。以上の方々に厚く感謝の意を表す。

II. 試料採集地の地質および変成作用の概要

A. 汗見川地域

汗見川は四国中央部にあって、広域変成帯である三波川帯を横切る形で北から南へ流れており、この川に沿って低変成度の緑泥石帯から最高変成度のオリゴクレス-黒雲母帯までの変成岩類が連続して露出している。調査地域には高圧中間群に属する変成相系列を示す三波川結晶片岩類のうち、泥質片岩・塩基性片岩・石英片岩からなる三縄層と上位の大生院層が分布し、一般的な走向はほぼ東西で、傾斜は北へ20~80°である(OTSUKI & BANNO, 1990)。

四国の三波川帯では泥質片岩の鉱物共生に基づいて、低変成度部から高変成度部へかけて緑泥石

帯・ざくろ石帯・曹長石-黒雲母帯・オリゴクレス-黒雲母帯に分帯されている(秀, 1961; 東野, 1975, 1990; BANNO *et al.*, 1978; ENAMI, 1983; HIGASHINO, 1990)。また緑泥石帯はパンペリー石を含まない変成度が高い亜帯とパンペリー石を含む変成度が低い亜帯に分帯されている(BANNO *et al.*, 1978)。汗見川地域では、見かけ上、下位にあたる調査地域南部に低変成度の緑泥石帯が分布し、北部へ行くに従って変成度は次第に高くなり、ざくろ石帯→曹長石-黒雲母帯→オリゴクレス-黒雲母帯となる。見かけ上、最上部にあたる調査地域北部では変成度が下がり、曹長石-黒雲母帯→ざくろ石帯となる(KURATA & BANNO, 1974; 東野, 1975; BANNO *et al.*, 1978; 古山他, 1985) (Fig. 2)。このような変成構造の解釈として、BANNO *et al.* (1978)は変成度の最も高いオリゴクレス-黒雲母帯に軸面をもつ大規模な横臥褶曲構造を想定したのに対し、HARA *et al.* (1990)と東野(1990)は鉱物帯の分布から推定される複雑な温度構造や変成度の極大がいくつかの層準に存在することを説明するためにナップ構造を主張している。

BANNO & SAKAI (1989)は、オリゴクレス-黒雲母帯の下底と曹長石-黒雲母帯の下底付近に僅かに不連続が認められるものの、全体として変成温度はほぼ連続的に変化すること、また緑泥石帯から曹長石-黒雲母帯への変成度の上昇はほぼ

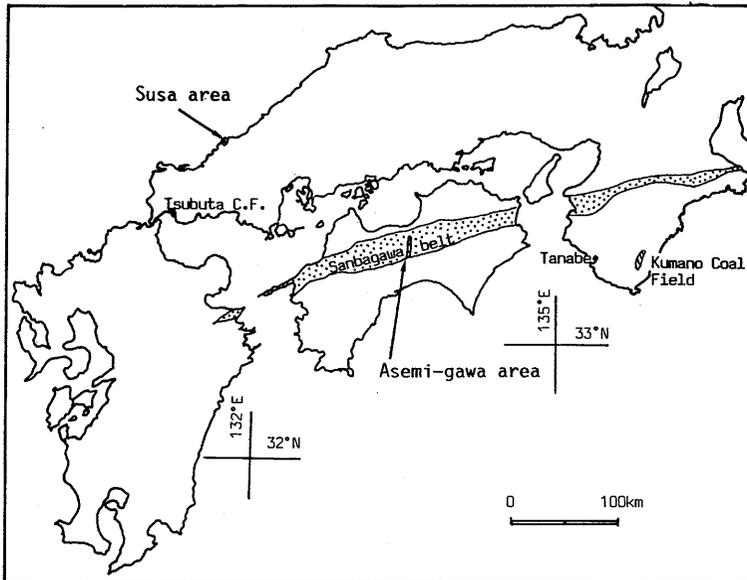


Fig. 1. Location map showing the investigated area.

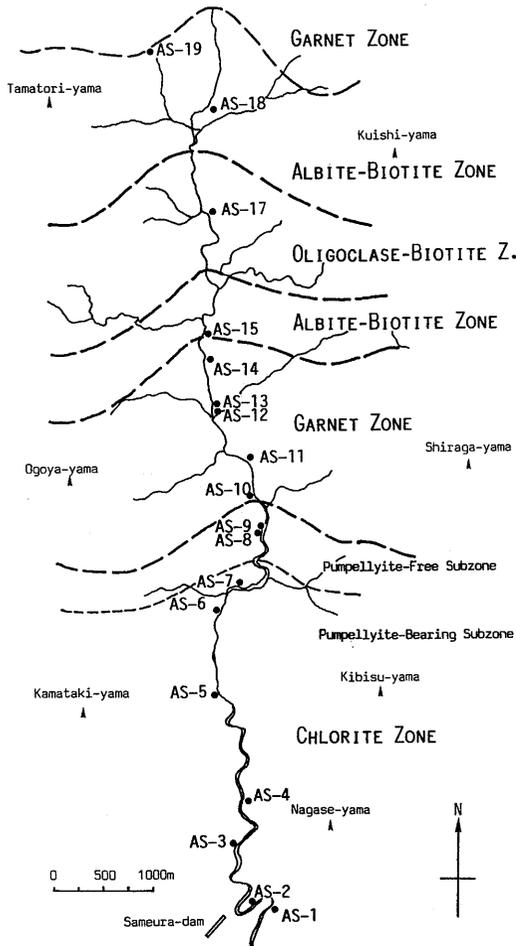


Fig. 2. Map showing the sampling sites along the Asemi River. Mineral zone boundary is after BANNO et al. (1978) and OTSUKI & BANNO (1990).

15°C/kmという低地温勾配条件下における圧力・温度の両方の上昇を反映したものであることを指摘し、曹長石-黒雲母帯でほぼ500°C, 10kb, オリゴクレス-黒雲母帯で600°C, 15kbの最高変成条件を想定している。

また、泥質片岩中の炭質物の石墨化度の変化は変成分帯と調理的であることも報告されている (ITAYA, 1981, 1983; TAGIRI, 1981, 1985)。

今回当地域において採集した試料は、いずれも泥質片岩で、Fig. 2に示すように緑泥石帯から9試料 (AS-1~AS-9)、ざくろ石帯から5試料 (AS-10~AS-14)、曹長石-黒雲母帯から3試料 (AS-15, 18, 19) およびオリゴクレス-黒雲母帯から1試料 (AS-17) の全部で18試料である。

試料の鏡下観察による鉱物共生を Table 1 に示す。試料数が十分でないが、ENAMI (1983) が報告した各変成分帯の鉱物共生とほぼ同様の結果を得た。

B. 須佐地域

山口県北部の阿武郡須佐町北東部から田万川町北西部にかけての高山 (標高532.8m) 周辺には、新第三紀中新世の須佐層群、山島累層 (今岡他 (1992) の山島火山岩)、高山斑れい岩体およびこれらに貫入する輝緑岩や安山岩が分布している (YAMAZAKI, 1967; 岡本・陶山, 1975; 西村・鈴木, 1979; 岡本他, 1983)。須佐層群や山島累層は高山斑れい岩によって接触変成作用を受けている (SUZUKI & NISHIMURA, 1983)。

須佐層群は白亜紀の阿武層群福賀累層の凝灰角礫岩および三原流紋岩 (村上, 1985) を不整合で覆い、礫岩・砂岩・頁岩からなる全層厚450-500 mの地層で、含有化石の内容から古瀬戸内地域の備北層群に対比されている (岡本他, 1983)。岩相により下位から上位へ、平島礫岩砂岩層 (岡本・陶山 (1975) の平島礫岩層と前地砂岩層を一括して新称する)・下部高山頁岩層・高山砂岩層および上部高山頁岩層に区分できる (Fig. 3 & 8)。

西村・鈴木 (1979) は須佐層群分布域の中で、泥質岩に黒雲母が出現し始める黒雲母アイソグラッドから斑れい岩体までを接触変成帯 (最大幅700m) とし、泥質岩起源の変成岩の鉱物組合せに基づいて、黒雲母帯・堇青石帯・斜方輝石帯の3帯を識別した。その結果、接触変成作用は低温部の緑色片岩相に始まり角閃岩相を経て、最高温度では輝石ホルンフェルス相まで達していると結論した。さらに接触変成帯より外側の地帯では、岩石組織的には接触変成作用の影響がほとんど認められないことを指摘し、この部分を緑泥石帯と仮称した。SUZUKI & NISHIMURA (1983) は斑れい岩体との接触部における最高変成温度として800~860°Cを報告している。

今回、接触変成作用における炭質物の石墨化作用と石炭化作用の関係を検討することに加え、当地域における接触変成作用の広がりをも明らかにするために、多くの層準・地域において試料採集に努めたが、須佐層群中には甚だ炭質物が少なく、実験に共することができたのは21試料にすぎない (Fig. 4)。その中で、SU-1からSU-5が珪化した頁岩で、SU-6からSU-21は地層中に含まれ

Table 1. Mineral paragenesis of the analysed pelitic schists from the Asemi River area.

Sample No.	Metamorphic Minerals																Grain Size	
	ch	ep	pu	ac	ba	gl	bi	mu	st	ga	ca	ab	qu	sp	le	op		others
AS-1	●							●			△	●	●			●		S
AS-2	●							●			●	●	●			●		S
AS-3	●							●				●	●			●		S
AS-4	●	△						●				●	●			△		S
AS-5	●							●			△	●	●			●		S
AS-7	●							●			●	●	●			△		S
AS-11	●							●		△		●	●	△		●	ap, tou	ML
AS-12	△							●		●		●	●	●		●		L
AS-13	●							●		●		●	●	△		●	ap	L
AS-14	●							●		△		●	●	△		●		L
AS-15	△	△					△	●		●		●	●	●		△		L
AS-17	△						●	●		●		●	●	△		●		L
AS-18							●	●		●		●	●	△		●	ap	L
AS-19				△			●	●		●		●	●	△		●		L

●:common △:scarce S:small ML:medium L:large
 ch:chlorite ep:epidote pu:pumpellyite ac:actinolite ba:barroisite gl:glaucophane
 bi:biotite mu:muscovite st:stilpnomelane ga:garnet ca:calcite ab:albite
 qu:quartz sp:sphene le:leucoxene op:opaque mineral ap:apatite tou:tourmaline

る石炭葉層と石炭化植物片試料である。SU-1 から SU-3 は堇青石帯 (SU-1 は斜方輝石帯との境界付近), SU-4 および SU-5 は黒雲母帯から、その他の試料は”接触変成帯”の外側(緑泥石帯)から採集したものである。

III. 研究方法

A. X線回折実験

炭質物は一般に堆積岩や泥質変成岩中に極微量しか含まれていないため、これまで多くの研究者によって効率的な分離・濃集の方法が試みられてきた (FRENCH, 1964; IZAWA, 1968; GREW, 1974; 藤貫他, 1974; ITAYA, 1981; TAGIRI, 1981)。今回は以下の方法を採用した。試料(泥質変成岩)を鉄鉢で100メッシュ以下に粉碎し、30~40g程度秤量する。この試料を75mlの遠沈管に移し、水浴器上で6N塩酸・37%フッ酸(2回)・6N塩酸・41%フッ酸・6N塩酸(2回)・41%フッ酸・6N塩酸(2回)の順に30分間ずつ酸処理を行い、各過程終了後遠心分離機を用いて浮選洗浄を2回行った後炭質物を濃集させる(フッ化物が残存する場合はさらに数回酸処理を繰り返す)。こうした酸処理と水洗だけでは、試料中に重鉱物が残存していることが多いため、さらに酸処理後の試料に蒸留水とエタノールを加え、遠心分離機で僅かに回転させて上澄みと沈下物に分け、さら

にこの上澄み液を別の遠沈管に移し任意の時間(試料によって異なる)放置した後、上澄み液中に残った炭質物を回収し測定用試料とした。こうして分離された炭質物試料にエタノールを少量加え、これをスライドガラスに均一の厚さになるように塗布して回折実験に供した。

測定はRigaku Geigerflex X線回折装置を用いて $2\theta = 15 \sim 35^\circ$ の範囲で行った。X線分析は、Cu-K α , 30kV, 15mA, 時定数2, カウントレンジ1000cps, スリット系 $1^\circ - 0.15\text{mm} - 1^\circ$, チャート速度1.0cm/min, 走査速度 $1^\circ/\text{min}$ で、グラフタイトのモノクロメータ付きの条件で測定を行った。この後石墨の(002)のピークが最大になるように電圧・電流・カウントレンジで調整を行った。外部標準としてスライドガラスに金属シリコンを塗布したものを用い、 $2\theta = 27 \sim 30^\circ$ の範囲で各炭質物試料の測定後に同一条件で測定を行い、金属シリコンの(111)の 2θ 値(ピークの高さの2/3における中点)を 28.442° として石墨の(002)の 2θ 値の補正を行った。石墨の見かけの間隔 d_{002} 値は、ITAYA (1981)の方法に従い、ピークの高さの1/2における中点の 2θ 値から計算により求めた。同時にピークの半幅(ピークの1/2の高さの幅)も求めた。

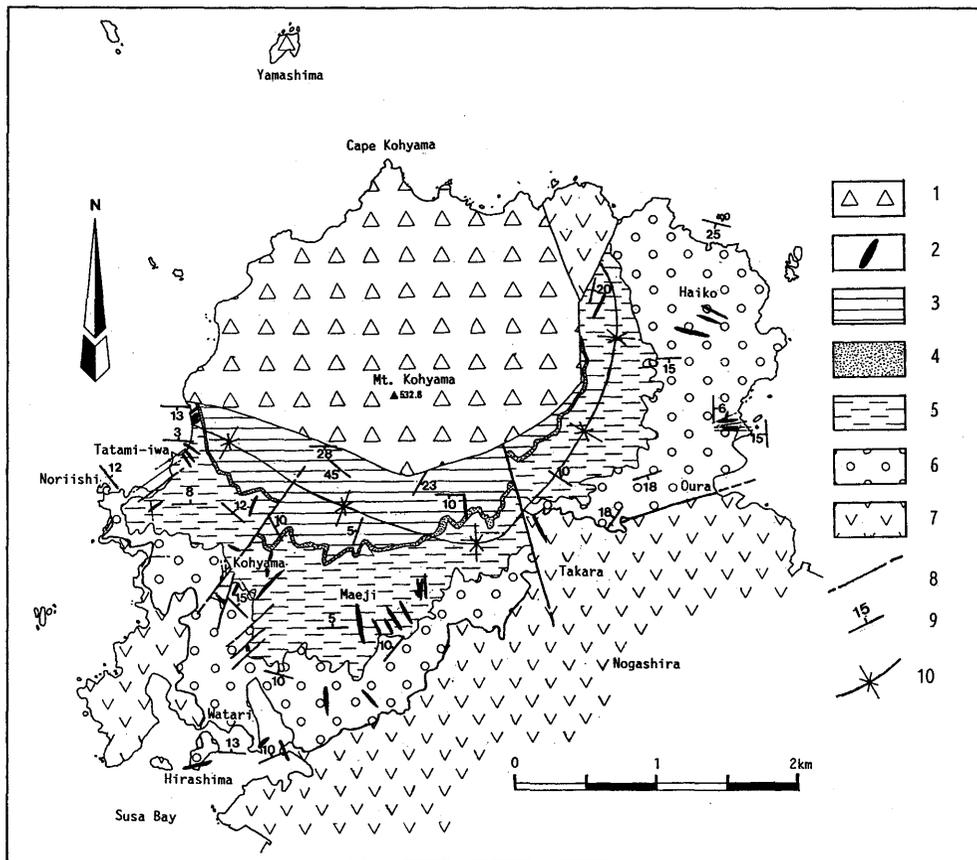


Fig. 3. Geologic map of the Susa area in the northern part of Yamaguchi Prefecture. 1 : Kohyama gabbro complex and Yamashima volcanic rocks, 2 : Diabase dyke and sill, 3 : Upper Kohyama Shale Member, 4 : Kohyama Sandstone Member, 5 : Lower Kohyama Shale Member, 6 : Hirashima Conglomerate-sandstone Member, 7 : Fukuga Formation of Abu Group and Mihara rhyolite, 8 : Fault, 9 : Strike and dip, 10 : Axis of syncline.

B. 反射率の測定

通常、堆積岩中に分散する石炭化植物片や炭質葉層を用いて反射率の測定を行う場合は、岩石試料を60(～100)メッシュ以上の大きさに粉碎調粒した後、重液分離の方法を用いて炭質物を濃集させるが、変成岩中に含まれる炭質物は極微量で、しかも極めて微細であるため、こうした粉碎・重液分離の方法や上記のような粉碎試料の酸処理による手段では測定可能な炭質物を得ることは極めて困難である。そこで今回は泥質変成岩の中でも特に黒色の部分を片理面(または層理面)に垂直に一辺2.5cm以内のチップに切断し、チップをそのまま樹脂に埋め込んでブリケットを作り(各試料につき2個)、それを耐水研磨紙およびアルミナ

懸濁液を用いて研磨・琢磨して測定に供した。須佐層群から採集した炭質葉層の試料は、比重1.7～1.75の塩化亜鉛溶液を用いた重液分離によって炭質物を濃集させた後、樹脂に埋め込んでブリケットを作成した。

反射率の測定は、反射率測定装置を備えたLeitz製Ortholux落射偏光顕微鏡を用いて油浸法で行った。測定にあたっては、鏡下において無組織な石炭化植物片を対象とし、ステージを一回転させた時の最大反射率を読み取り、その平均を試料の反射率(\bar{R}_{omax})とした。今回は60倍(通常は25倍)の対物レンズを使用したが、変成岩中の炭化植物片は極めて微細なため、ステージを回転させると測光点から外れる粒子が多く、正確に値を

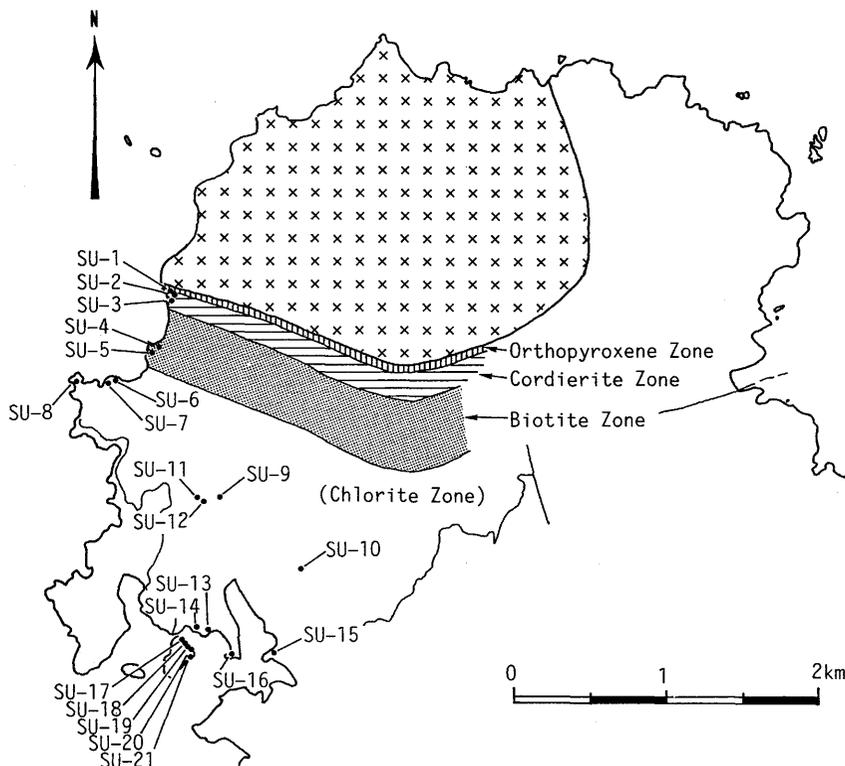


Fig. 4. Map showing the sampling sites in the Susa area. Mineral zone boundary is after NISHIMURA & SUZUKI (1979).

読み取ることができた粒子はごく少数であった。

IV. 結果

炭質物の X 線回折実験結果と反射率測定結果を汗見川地域、須佐地域に分けて述べる。

A. 汗見川地域

汗見川に沿って連続的に採集した泥質片岩18試料の炭質物の d_{002} 値、半価幅および反射率の値をまとめて Table 2 と Fig. 5 に、また代表的な X 線回折図を Fig. 6 に示す。

1. X 線回折結果

回折パターンは、 $2\theta = 24.42 \sim 26.54^\circ$ にピークを有するが、その強度は低変成度の緑泥石帯から最高変成度のオリゴクレス-黒雲母帯の試料にかけて連続的に増加する (Fig. 6)。パターンの形は大きく3つに区別できる。AS-1, AS-5, AS-6 のように低角度側に裾野が広がった非対称でブロードなピークをもつもの (Type 1), AS-10~AS-19 のようにバックグラウンドが水平に近くほぼ対称的な鋭いピークをもつもの (Type

3), AS-8 や AS-9 のように Type 1 と Type 3 の中間で中程度突出したややブロードなピークをもつもの (Type 2) である。LANDIS (1971) は、変成岩中の炭質物の (002) 面反射のピークの d 値と強度/半価幅比によって、低結晶度から高結晶度のものへ、graphite- d_3 ~graphite- d_1 と graphite に分けた。LANDIS (1971) は最高強度における 2θ またはピークの1/3の高さの midpoint の 2θ によって d_{002} 値を算出しているため、本研究の方法と異なっているが、回折パターンの特徴から Type 1 は graphite- d_2 に、Type 2 は graphite- d_1 に、Type 3 は graphite- d_1 および graphite にほぼ相当するといえる。

変成分帯より AS-1 から AS-17 にかけて次第に変成度が高くなると考えられるので、変成度が上昇するにつれて回折パターンが Type 1 の非対称なブロードなピークから Type 2 を経てよりシャープなピークをもつ Type 3 へ変化し、ピークの 2θ 値も次第に高角側へ移動することが理解される。これと対応して、 d_{002} の値も 3.636 Å から 3.356 Å へと減少し、ざくろ石帯の高変成度部

Table 2. Summary of X-ray and reflectance data in the Asemi River area.

Sample No.	Scan Speed 1/1 (%/min)			Reflectance Measurement			
	2θ ($^{\circ}$)	d_{002} (Å)	1/2width (cm)	measured points	mean	Romax (%) max	min
AS-1	24.46	3.6361	6.9~7.0	8	4.18	4.90	3.80
AS-2	24.46	3.6361	7.2~7.3	10	4.41	4.70	4.20
AS-3	24.48	3.6332	7.4~7.5	10	4.38	4.85	4.00
AS-4	24.50	3.6302	7.3	8	5.58	6.90	4.75
AS-5	24.68	3.6042	5.8~5.9	10	5.94	6.90	4.70
AS-6	25.12	3.5420	4.4~4.5	0			
AS-7	24.42	3.6419	9.2~9.3	3	4.83	5.10	4.60
AS-8	25.98	3.4267	2.1	0			
AS-9	26.12	3.4112	1.8~1.9	0			
AS-10	26.40	3.3731	0.7~0.8	0			
AS-11	26.44	3.3681	0.6~0.7	0			
AS-12	26.52	3.3581	0.4~0.5	0			
AS-13	26.52	3.3581	0.3~0.4	1	7.40		
AS-14	26.52	3.3581	0.4~0.5	0			
AS-15	26.54	3.3556	0.3	0			
AS-17	26.54	3.3556	0.2~0.3	9	8.19	8.70	7.70
AS-18	26.54	3.3556	0.2~0.3	5	7.80	8.60	7.40
AS-19	26.53	3.3581	0.4~0.5	0			

よりオリゴクレス-黒雲母帯にかけては fully-ordered graphite の $3.354 \pm 0.001\text{Å}$ (Ceylonese graphite の例) (GREW, 1974) に限りなく近づく。 d_{002} の値が特に緑泥石帯よりざくろ石帯にかけて急激に減少する。以上の現象は変成度の上昇につれて炭質物の結晶度が連続的に増加することを物語っている。これらの結果は ITAYA

(1981) の結果と調和的であり、同氏のデータを再現したものとなった。

2. 反射率

反射率が測定可能な炭質物は経験的に少なくとも $0.01-0.015\text{mm}$ 以上の大きさを必要とするが、このような大きさの炭質物はいずれの試料にも極僅少で、特にざくろ石帯から黒雲母帯では一部の試料を除き皆無に近かった。また研磨の問題(岩石チップの研磨では傷が残りやすい)もあって結果的に反射率が測定できた試料は9試料にすぎない。しかも今回は測定が各試料につき2個のブリケットに限られたため、測定できた試料でも測光点は10ポイント以下であった。反射率の値は AS-1 の 4.18% から AS-17 の 8.19% の範囲にあり、石炭化度でいうと無煙炭 ($2.8-6\%$ *) から変無煙炭 [~半石墨] (6% 以上) のランクにあたる。全体的に変成度の上昇とともに反射率も増加している (Fig. 5)。

* 反射率 (Romax) による石炭化度の区分は国によって異なっている。例えば米国 ASTM では無煙炭と変無煙炭の境界を 6% としているの対し、ドイツ DIN では 4% である。今後断らない限り、石炭化度の区別は ASTM の基準に従うものとする。

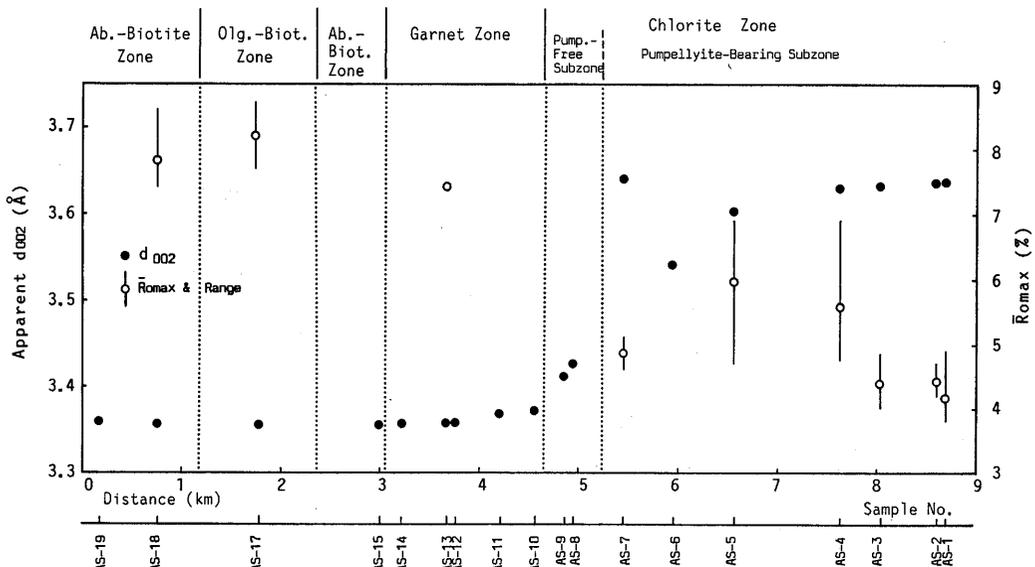


Fig. 5. The values of d_{002} of the carbonaceous material (bulk concentrates) and mean maximum reflectance (Romax) of coalified phytoclasts plotted along a line parallel to the Asemi River traverse.

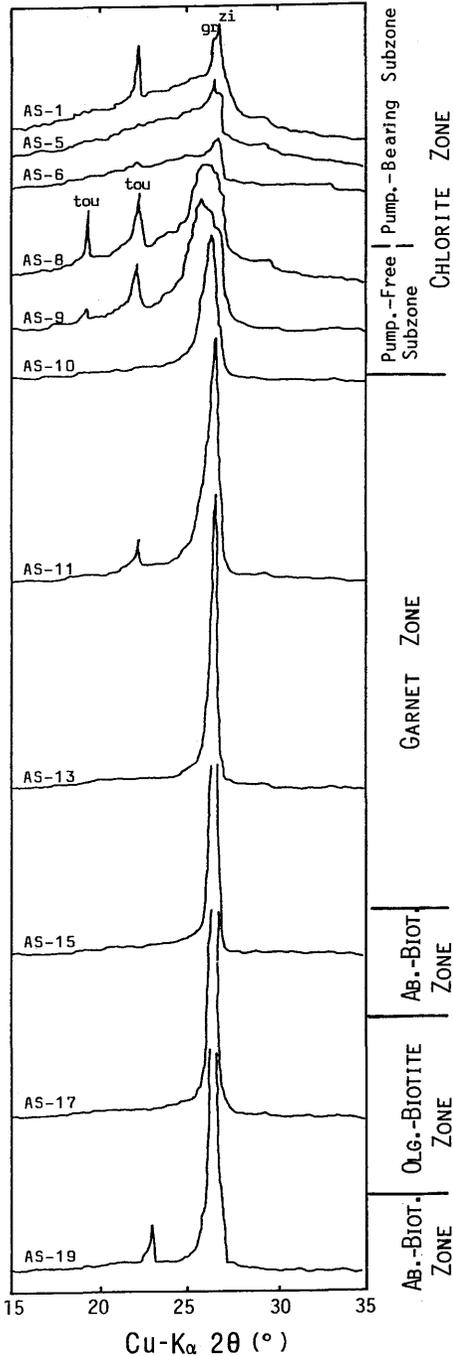


Fig. 6. Representative X-ray diffractograms from 15° to 35° 2θ of the carbonaceous material (bulk concentrates) chemically separated from the Sanbagawa pelitic schists along the Asemi River.
gr—graphite; zi—zircon; tou—tourmaline.

3. 変成分帯と結晶度および反射率の対応

反射率に関しては必ずしも十分なデータが得られたわけではないが、今回のデータからこれまで報告されている変成分帯との対応をしめすと以下の通りである。d₀₀₂値は緑泥石帯で3.642~3.411Å, ざくろ石帯で3.373~3.358Å, 曹長石-黒雲母帯で3.358~3.356Åの範囲にあり, オリゴクレス-黒雲母帯で3.356Åである。一方, 反射率の値は緑泥石帯で4%以上6%前後までの範囲にあることは確実であり, 今後さらに検討を加える必要があるが, 緑泥石帯とざくろ石帯との境界はおおよそ6~7%の間, 曹長石-黒雲母帯とオリゴクレス-黒雲母帯の境界は8%前後にあるものと考えられる。このように変成度の上昇とともに結晶度と反射率は連続的に増加することがわかる (Fig. 5)。但し, AS-7はこうした変化から大きく外れ, 前後の試料よりd₀₀₂値が大きく反射率が低くなっている。この原因については周辺の地質構造を含めて新たためて検討する必要がある。

B. 須佐地域

実験に供した試料は合計21試料であるが, その中で反射率の測定を行ったものは20試料, X線回折実験に供したものは14試料, 両方の測定ができたものは13試料である。炭質物のd₀₀₂値・半価幅および反射率の値をTable 3に, X線回折図をFig. 7に示す。

1. X線回折結果

接触変成帯 (西村・鈴木, 1979) から採集した珪化した頁岩 (粘板岩・泥質ホルンフェルス) 中には炭質物が極めて少なく, 前記の方法で各試料につき2回づつ炭質物の分離・濃集を行ったが十分な試料は得られなかった (Fig. 7のSU-4とSU-5)。接触変成帯の外側から採集した炭質物 (SU-6~SU-20) の回折パターンは, 2θ = 22.62~25.39°にピークを有し, ピークの強度はたいへん変化に富んでいる。高山斑れい岩体に比較的近い試料 (SU-6, SU-8, SU-11, SU-12) では対称に近い明瞭に突出したピークを示すのに対し, 岩体から離れた試料 (SU-13~SU-20) では中程度に突出したピークをもつものから, 低角度側に裾野が広がった非対称なブロードなピークを示すものまで様々である。一方, ばらつきはあるが全体的にみて(002)面反射の2θ

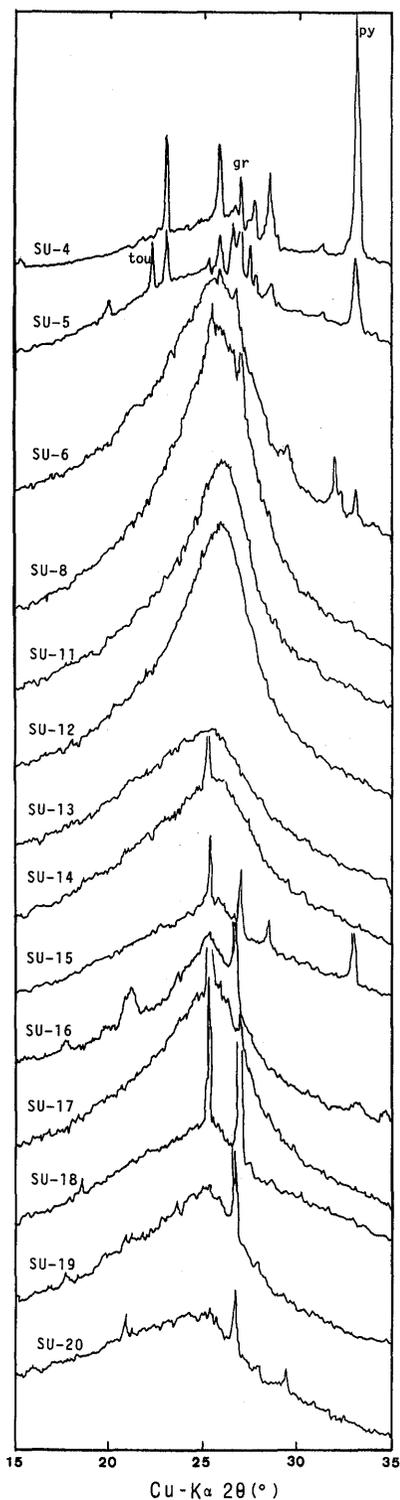


Fig. 7. X-ray diffractograms of coalified phytoclasts, and of the carbonaceous material (bulk concentrates) chemically separated from slates of the Miocene Susa Group.

値は岩体から遠ざかるに従ってより低角度側に変移しており、これと対応して d_{002} 値も岩体に近い試料 (SU-6, SU-8, SU-11, SU-12) の $3.505 \sim 3.571 \text{ \AA}$ から、岩体から離れた試料 (SU-13~SU-20) の $3.603 \sim 3.926 \text{ \AA}$ へと増加している。このように、回折パターンの変化と呼応して、結晶度は高山斑れい岩体に近づくほど上昇していると言える。炭質物の見かけの面間隔 d_{002} 値の減少は、石墨化作用の進行に対応し、主として変成温度の上昇に起因するといわれているので (例えば, LANDIS, 1971; GREW, 1974; ITAYA, 1981; TAGIRI, 1985), 今回は接触変成帯の中における結晶度の変化を調べることができなかったが、恐らく同帯の中でも斑れい岩体に向かって結晶度が上昇していくものと予想される。

2. 反射率

今回反射率を測定した20試料のうち、鏡下において風化の影響が認められた SU-13・SU-14・SU-21のデータを除いて議論すると、反射率の値は、1.58~9.30%の範囲にあり、石炭化度では (中揮発分~) 低揮発分瀝青炭 (1.6%前後~2.2%) から変無煙炭 (~半石墨) の領域にあたり、当地域の石炭化作用は著しく進んでいることがわかる。地形図の中に反射率の値をプロットして、地表での反射率の変化を等反射率線 (面) を記して検討してみると、Fig. 8 から明らかなように反射率は斑れい岩体に向かって急激に上昇しており、等反射率線 (面) は斑れい岩体を中心に同岩体を取り巻くように分布する。須佐層群は、地質図 (Fig. 3) に示すように高山斑れい岩類との境界付近に斑れい岩体の貫入・上昇によるひきずりによってできたと思われる向斜軸が存在するが、全般的に同岩体に向かって $10 \sim 20^\circ$ の角度で傾斜する地質構造をもっており、同岩体に向かって反射率が上昇するということは、地表試料に関しては層序的に上位層が下位層より石炭化作用が進行していることを意味する。このことは地表調査によって得られた地質柱状図の上に等反射率線を示した Fig. 9 から了解される。

Hilt の法則として知られているように、地層中

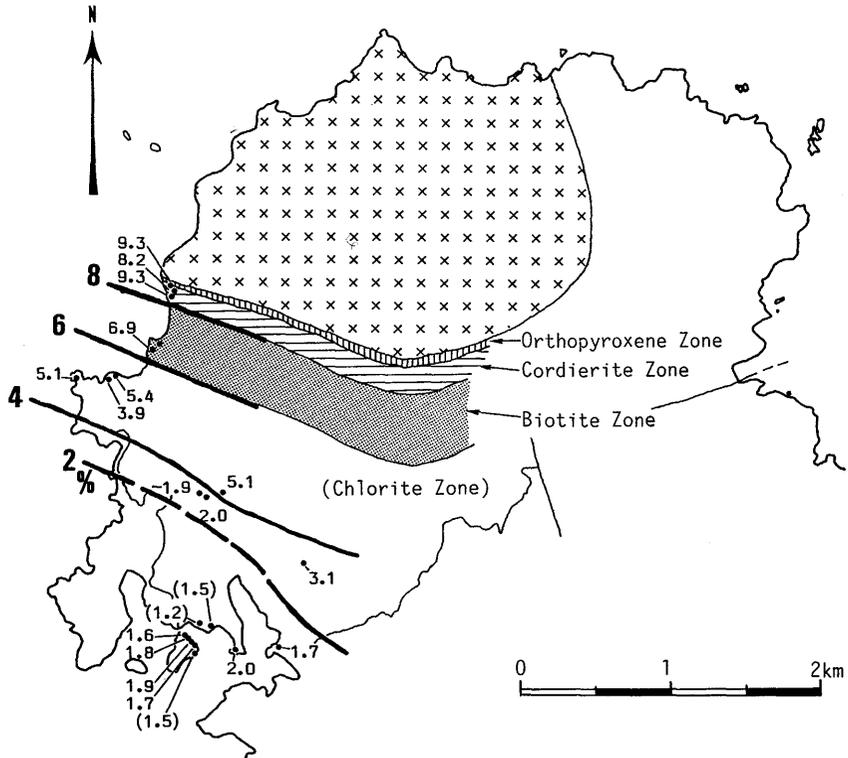


Fig. 8. Map showing isorefectance surface in the Susa area. Numerals indicate mean maximum reflectance (R_{max} in %).

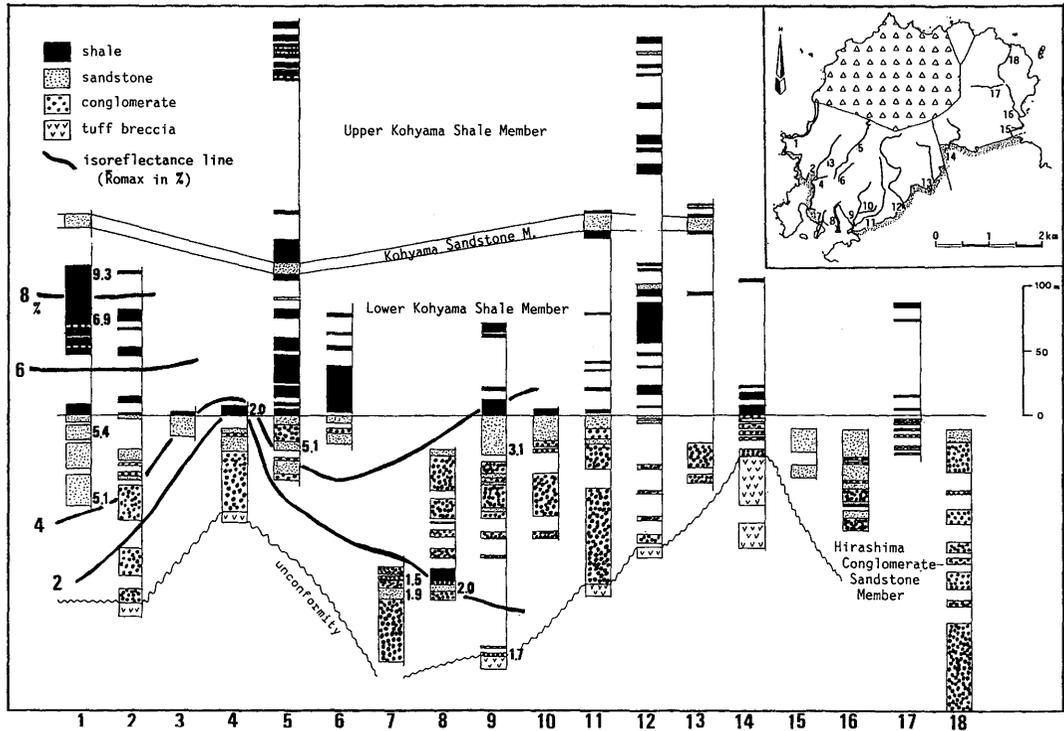


Fig. 9. Geologic columnar sections of the Susa Group, along with the variation of mean maximum reflectance (R_{max} in %) of coalified phytoclasts.

の炭質物は、堆積盆の沈降と埋積の過程の中で進行する続成作用とそれに引き続く埋没変成作用によって、より深く埋没した下位層準ほど一般的に石炭化作用は進行している。但し、堆積盆心が移動する堆積盆の縁辺部にあつては、層序的に下位層が上位層より必ずしも深く埋没しない場合があり、むしろ下位層の方が上位層より石炭化作用が遅れた現象が認められることもある (AIHARA, 1978; 相原他, 1987a)。地表において広域的に採集した試料で石炭化度の層位的変化を調べる場合には、このように層位に対する石炭化度の見かけの逆転現象に出会う可能性がある。但し、そうした堆積盆においても、ボーリング試料では深度と石炭化作用の本来の関係は維持されている場合が多い。

須佐層群の場合は比較的狭い地域で試料採集を行っているので、上位層準にむかって石炭化作用が進行する現象は、下位層準が上位層準に対して埋没深度が浅かったと考えるよりは、むしろ斑れい岩体からの熱の影響によって本来のパターンが改編されたと考える方が妥当である。斑れい岩体から離れるに従って連続的に反射率が低下することや、層厚約500mの須佐層群の基底部が既に(中揮発分〜)低揮発分瀝青炭段階にあること、須佐層群を覆う新期の堆積物は現在確認されるところでは段丘堆積物だけであつて、周囲の地質状況からみて埋没深度がそれほど期待できないこと等を考えると、著しく進んだ石炭化作用は斑れい岩体の熱変成によると考えることができる。岩体からの熱の影響は“接触変成帯”のみならず須佐層群全体に及んでいると判断される。

3. 変成分帯と結晶度および反射率の対応

今回は、“接触変成帯”内における結晶度の変化は調べられなかった。反射率と変成分帯の対応は Fig. 8から明らかなように、接触変成帯の低温部にあたる黒雲母帯の下限の線(黒雲母アイソグラッド)は、石炭化度でいうと変無煙炭段階の下限である6%の等反射率線にほぼ一致し、堇青石帯と黒雲母帯の境界は8%の等反射率線にほぼ対応していると言える。等反射率線の分布から明らかなように、反射率は変成鉱物の共生ではほとんど熱変成が認められない接触変成帯より外側の地帯においても、熱変成状況を把握する手段として極めて有効であることが指摘できる。

一方、SU-11とSU-12はそれぞれの反射率が

Table 3. Summary of X-ray and reflectance data in the Susa area.

The reflectance value in parenthesis indicates referential one because of weathering.

Sample No.	Scan Speed 1/1 (°/min)			Reflectance Measurement			
	2θ (°)	d ₀₀₂ (Å)	1/2width (°2θ)	measured points	mean	Romax max	min
SU-1				6	9.30	9.50	8.90
SU-2				1	8.20		
SU-3				3	9.27	9.40	9.00
SU-4	25.13	3.5406		0			
SU-5	25.12	3.5420		11	6.86	7.60	6.20
SU-6	24.91	3.5714	6.0	50	5.39	6.73	4.40
SU-7				50	3.90	4.72	3.50
SU-8	25.23	3.5268	5.2	50	5.05	5.90	3.86
SU-9				50	5.06	6.09	4.30
SU-10				66	3.05	3.45	2.70
SU-11	25.39	3.5050	4.7	50	1.85	2.17	1.59
SU-12	25.35	3.5104	5.0	50	1.99	2.23	1.64
SU-13	24.00	3.7047	7.9	2	(1.49)	1.50	1.48
SU-14	24.57	3.6201	7.1	5	(1.23)	1.30	1.19
SU-15	24.69	3.6027	7.9	50	1.72	2.41	1.32
SU-16	24.42	3.6419	5.2	50	1.99	2.12	1.86
SU-17	24.33	3.6552	6.6	50	1.58	1.72	1.42
SU-18	24.04	3.6986	7.9	50	1.83	2.13	1.40
SU-19	23.80	3.7354	7.2	14	1.89	1.96	1.80
SU-20	22.62	3.9275	9.4	7	1.66	1.87	1.50
SU-21				2	(1.52)	1.52	1.51

1.85%と1.99%で低揮発分瀝青炭段階にあるが、無煙炭段階にあるSU-6およびSU-8(それぞれ反射率は5.39%と5.05%)と結晶度を比較すると(Table 3 & Fig. 7)同程度かむしろ良い結果となった。このことは、炭質物の結晶度と反射率がこれまで述べてきたように、基本的には高山斑れい岩体に近づくに従って共に上昇する傾向にはあるものの、比較的低温の有機変成の領域においても、試料によっては石墨化が著しく進行する場合があることを示している。

V. 考察

A. 変成領域における変成度指標としての炭質物の反射率

地層中に含まれる複雑な高分子有機化合物である石炭化物質(石炭および石炭化植物片)は、化学的性質を異にする多数のマセラル(鏡下において識別される単位成分)から構成されている。個々のマセラルは石炭化作用の進行においてそれぞれ異なる変化を遂げるために、石炭化度やその変化を議論する場合には、マセラルの単位で調査を行う必要がある(相原, 1979a)。このような視点から、これまで石炭岩石学の分野では、鏡下で

判定されるマセラルの一つであるビトリナイト(輝炭)の反射率が、固体有機物の変成度(熟成度)の指標として用いられてきた。これはビトリナイトが石炭化物質中に普遍的に存在し且つ測定においては小量でよいなどの都合な面をもって、いることにもよるが、根本的にはビトリナイトの反射率がおもに地温の上昇に伴う石炭化作用の進行に伴って起こる変化-官能基酸素・脂肪族側鎖・脂環化合物の離脱と芳香族環化・重縮合の結果としておこる炭素成分の富化に関連して、ほぼ連続的に増大することによる(杉村・紫波, 1967; STACH *et al.*, 1982; TISSOT & WELTE, 1984)。

変成岩中に含まれる炭質物には有機物である石炭化植物片と結晶質炭素である石墨およびその中間的物質が混在しており(DIESSEL & OFFLER, 1975; DISSSEL *et al.*, 1978; OKUYAMA-KUSUNOSE & ITAYA, 1987; 奥山, 1987), その中で石炭化植物片は石炭中のビトリナイトと組織的になんら差異はない。従って、石炭化植物片の変成度を低度変成領域から高度変成領域での石炭化作用の進行程度として検討することが可能である。

今回反射率の測定を変成岩中の石炭化植物片に適用し、既に報告されている変成分帯と比較検討した結果は、前述したように、広域変成帯の汗見川地域および接触変成作用を受けた須佐地域のデータとも、反射率の値は変成温度の上昇とともに上昇しており、変成分帯と極めて調和的な分布を示すことが明らかとなった。また、須佐地域のように鉱物共生ではそれ以上とらえられない”接触変成帯”より外側の地帯での詳細な温度構造の把握にも有効であることがわかった。

四国三波川帯では、ぶどう石-パンペリー石相、藍閃石片相および緑色片岩相、緑簾石角閃岩相という累進相系列が認められており(都城・久城, 1977), 今回明らかになったように緑泥石帯からざくろ石帯にかけての試料が少なくとも4%以上の反射率をもって、低度変成作用(“緑色片岩相”)が反射率4%(ドイツ DIN では変無煙炭の下限, 米国 ASTM では無煙炭段階)を越えて始まるとするこれまでの報告(DIESSEL & OFFLER, 1975; STACH *et al.*, 1982; TISSOT & WELTE, 1984)を支持している。

B. 結晶度 (d₀₀₂) と反射率の対応

汗見川および須佐地域の炭質物で、結晶度と反

Table 4. Summary of X-ray and reflectance data of coals from the Kumano, Tanabe, and Tsubuta areas.

Sample No.	Locality	Scan Speed 1/1 (°/min)			Reflectance Measurement		
		2θ (°)	d ₀₀₂ (Å)	1/2width (cm)	measured points	Romax (%) mean	S.D.
80081301	Tanabe	23.58	3.7697	7.1~7.2	14	1.00	0.062
80081001	Tanabe	24.38	3.6478	6.3~6.4	75	1.28	0.048
78101202	Kumano	24.40	3.6449	6.3~6.4	100	1.62	0.191
80080802	Tanabe	24.52	3.6273	5.3~5.4	60	2.06	0.057
80073005	Tanabe	24.42	3.6419	5.0~5.1	100	2.38	0.062
80082504	Tanabe	24.64	3.6099	4.7~4.8	100	2.60	0.070
82073012	Kumano	24.84	3.5813	4.6~4.7	100	2.80	0.090
78101702	Kumano	24.62	3.6278	5.0~5.1	100	2.98	0.126
83082204	Kumano	25.02	3.5560	4.8~4.9	100	3.20	0.362
82082802	Kumano	24.98	3.5616	4.8~4.9	100	3.48	0.136
80081704	Kumano	24.64	3.6099	5.0~5.1	100	3.72	0.134
7805201t	Kumano	24.86	3.5785	5.0~5.1	100	3.92	0.222
7805151t	Kumano	24.98	3.5616	4.8~4.9	100	4.14	0.226
7805251t	Kumano	24.69	3.6027	5.0~5.1	100	4.20	0.152
79042308	Kumano	24.76	3.5927	5.0~5.1	100	4.37	0.163
7805191t	Kumano	24.76	3.5927	5.2~5.3	100	4.40	0.150
7805141t	Kumano	24.90	3.5728	5.0~5.1	100	4.51	0.231
7805161t	Kumano	24.90	3.5728	4.9~5.0	100	4.64	0.180
780516A	Kumano	24.94	3.5672	5.0~5.1	100	4.79	0.270
89101302	Tsubuta	24.48	3.6332	5.9~6.0	50	5.24	0.456
89102802	Tsubuta	24.86	3.5785	5.8~5.9	50	5.41	0.433

射率の両方の測定ができた試料を用いて、見かけの面間隔 d₀₀₂の値と反射率の関係を Fig. 10 に示す。同図には比較のために中揮発分瀝青炭から無煙炭段階にある計21個の石炭試料*のデータ (Table 4) もプロットしている。これまで述べてきたように両地域とも、d₀₀₂値と反射率は共に変成分帯と調和しながら、変成温度の上昇に応じて連続的に変化することがわかったが、このことは Fig. 10 においても了解される。但し、有機変成の進行における反射率の増加に対する結晶度の上昇の割合は全領域を通して一定ではない。すなわち、相対的に低温条件下にある瀝青炭段階(反射率2%以下)では反射率に対するd₀₀₂値は大きくばらつき、両者は必ずしも対応しているとは言えない(この理由については後述する)。これに対し、反射率が2~6%の半無煙炭~無煙炭段階では、d₀₀₂値の変化に対する反射率の変化の割合が大きい。さらに高温条件下の反射率6~7%の変無煙炭段階では有機変成が進むにつれて、結晶度と反射率は強い相関をもって共に著しく増加する傾向にある。そして反射率が7%を越えるあたり

* 試料は山口県南部の津布田炭田(三置紀美祿層群)、紀伊半島の中新統田辺層群および熊野層群から採集した石炭および石炭レンズである。

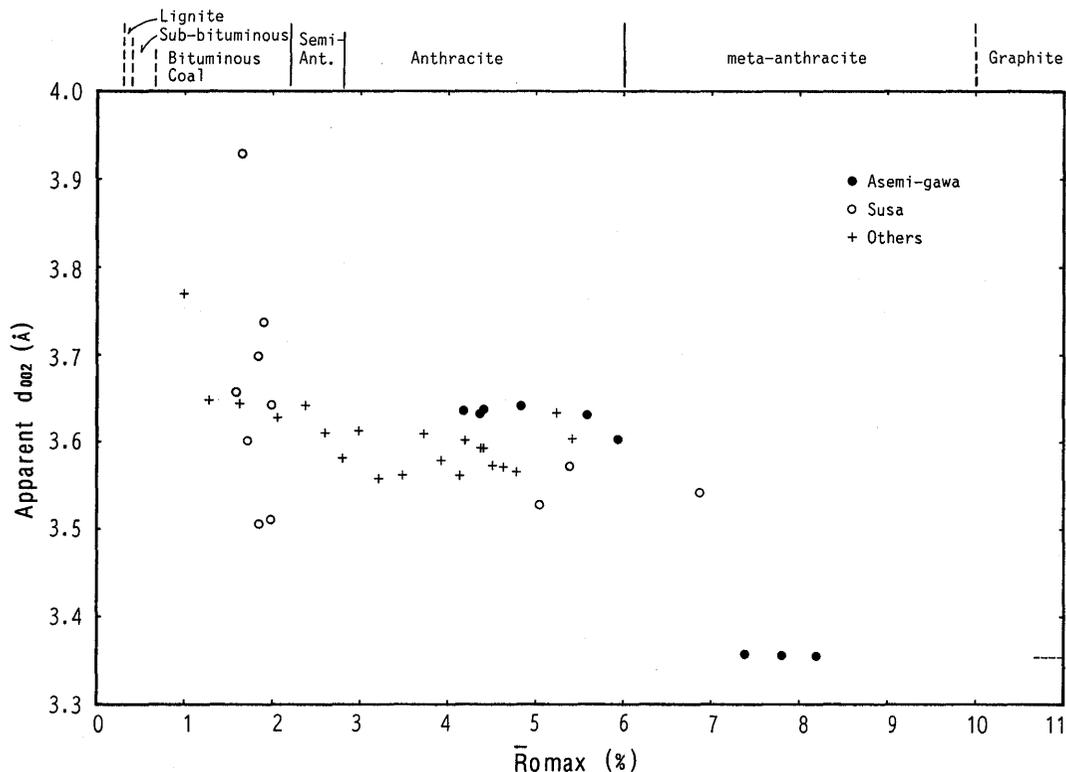


Fig. 10. Relationship between d_{002} and mean maximum reflectance of organic constituents in high pressure pelitic schist along the Asemi River, in contact metamorphosed clastic rocks of the Susa area, and of coals from the Kumano, Tanabe, and Tsubuta areas. In the upper margin, the rank of coal (ASTM) based on the mean maximum reflectance is shown.

から、炭質物は理想的な石墨の結晶構造に近づくため、 d_{002} 値はほぼ一定値をとるようになる。こうした結晶度と反射率の複雑な対応関係の解釈として、相原他(1987)が指摘しているように、地層中有機物の変成過程においては石墨化と石炭化がそれぞれ独自の進行をたどることがその背景にあるものと考えられる。

ところで、結晶度と反射率の対応において、同一反射率に対する d_{002} 値のばらつきがかなりの程度認められるが、これには以下で述べるようないくつかの要因が関係している。

前述したように瀝青炭段階でのばらつきは、そもそも瀝青炭段階以下の低ランクの炭質物が非晶質な炭素よりなるために(LANDIS, 1971)、X線回折パターンが不明瞭であり、技術的にピークの 2θ より d_{002} を正確に求めることが難しいことがおもな原因である。これまで、X線回折によって石炭を対象に結晶度と石炭化度の関係を検討した研究(例えば、QUINN & GLASS, 1958; MENTSER

et al., 1962; GRIFFIN, 1967; LANDIS, 1971; 三木, 1977)や、X線回折法を熱変成炭に適用して炭化作用を検討した研究(例えば、浅野, 1960; 浅野・田中, 1962, 1963; 浅野他, 1965 a, 1965 b; 田中, 1967)によって、石炭化物質の回折パターンや結晶度が石炭化度を判定する指標として、また低度変成作用の変成度の指標として有効であることが報告されている。今回の研究でも回折パターンの特徴からおおまかな炭質区分は可能であるといえるが、 d_{002} 値による石炭化度の区分は困難である。

ばらつきの第2の要因として、結晶度と反射率は同一炭質物粒子を対象として測定されたものではないことが考えられる。すなわち、反射率は石炭化物質中のビトリナイト(様)粒子を対象として測定されるのに対し、実験技術上X線回折は岩石中のバルク炭質物を対象としなければならず、結晶度にはバルク炭質物を構成する様々なマセラルや結晶度の異なる炭質物等の量的関係が反映され

ている(三木, 1983; 相原他, 1987b; OKUYAMA-KUSUNOSE & ITAYA, 1987; 奥山, 1987). 炭質物の中には加熱により石墨構造を形成し易いもの(易黒鉛化性炭素)とそうでないもの(難黒鉛化性炭素)があり, マセラルグループの中でピトリナイトおよびリプチナイトは加熱により軟化溶解するため前者に近く, イナーチナイトは熱的に溶解しないので後者に属す(木村他, 1970). こうした化学的性質を異にするマセラルがバルク炭質物に含まれることを考えると, 結晶度に及ぼすバルク炭質物の組成の影響は決して無視できない.

一方, 石炭化作用と石墨化作用を支配する地質的要因の違いも, 結晶度と反射率のばらつき背景にあると考えられる. これまでの研究では, 石炭化作用はおもに温度と有効被熱時間に応じて進行し, 圧力は石炭化物質の結晶構造(特に光学異方性)に影響を与えるものの化学反応を逆に遅らせると考えられてきた(STACH, *et al.*, 1982; TEICHMÜLLER, 1987). これに対し, 石墨化作用は変成温度(LANDIS, 1971; TAGIRI, 1981; 田切, 1986)・時間(OKUYAMA-KUSUNOSE & ITAYA, 1987; 奥山, 1987)・圧力(DIESSEL *et al.*, 1978; 藤貫他, 1974)や原材料(組織成分)の違い(DIESSEL *et al.*, 1978; OKUYAMA-KUSUNOSE & ITAYA, 1987)にも影響される(三木, 1983). さらに石炭の乾留に関する研究から, 黒鉛化(石墨化)作用は原材料の石炭化度や加熱速度によっても制御される(木村他, 1970). このように石炭化作用と石墨化作用を支配する要因は必ずしも同じではない. 従って炭質物の結晶化が始まる半無煙炭段階以降の結晶度と反射率の対応関係(ばらつき)には, むしろ変成条件の違いそのものが反映されている可能性が高い. 今回のデータからは広域変成帯と接触変成帯における変成条件の違いが, 結晶度と反射率の対応にどの様に現われるかという点を詳しく議論できないが, 今後, 両者の関係が単一組織の粒子(マセラル)を対象にして精度良く調べられるようになれば, 炭質物の物理的性質より変成条件の特徴をさらに詳しく考察できるものと思われる.

VI. まとめ

高知県汗見川地域の三波川帯の泥質片岩および接触変成作用を受けた山口県北部の中新統須佐層群の中の炭質物を使って, X線回折実験と反射

率の測定を行い, 変成分帯との対応を調べたところ, 以下の点が明らかとなった.

1) 炭質物中の石炭化植物片の反射率は変成領域の変成度の指標として, また鉱物共生ではそれ以上とらえられない詳細な温度構造の把握にも極めて有効である.

2) 炭質物の結晶度と反射率は, 変成温度の上昇とともに上昇し, 既に報告されている変成分帯と極めて調和的な分布を示す. 但し, 反射率の増加に対する結晶度の上昇の割合は, 変成領域を通じて一定ではない.

3) 汗見川地域では, 緑泥石帯で反射率が4~6%前後の範囲にあり, 緑泥石帯とざくろ石帯の境界はおおよそ6~7%の間, 曹長石-黒雲母帯とオリゴクレス-黒雲母帯の境界は8%前後にあるものと考えられる. 結晶度はざくろ石帯の高変成度部からオリゴクレス-黒雲母帯にかけてfully-ordered graphiteに極めて近い.

4) 須佐地域では, 黒雲母アイソグラッドおよび堇青石アイソグラッドは, それぞれ6%および8%の等反射率線にほぼ対応する. 反射率の解析の結果, 高山斑れい岩体による熱変成は接触変成帯(西村・鈴木, 1979)を越えて須佐層群全体に及んでいることが判明した.

今回の研究は, 限られた試料を用いて変成領域の炭質物の結晶度(石墨化作用)と反射率(石炭化作用)の対応を予察したにすぎない. 今後はさらに精度のよいデータを増やすことによって, 今回得られた結果の肉付けを行って行きたいと考えている.

文 献

- AIHARA, A (1978): Coalification pattern and its implication to geologic development of the Ishikari coalfield, Japan. *Mem. Fac. Sci., Kyushu Univ.*, [D], 24, (1), 33-46.
- 相原安津夫 (1979 a): 石炭のダイヤゼネシスと石炭化作用. *地球科学*, 33, (1), 43-58.
- (1979 b): 石炭鉱床形成の地球化学. 佐々木昭・石原舜三・関陽太郎編, *地球の資源/地表の開発*, *地球科学* 14, 岩波書店, 68-82.
- ・立石勝・前田純二・古賀義人・吉村辰朗・笠山浩昭・鮎沢潤・鶴田勝也・山田琢哉・森昭宏 (1987a): 北部九州第三紀炭田の続成・埋没被熱の石炭化度調査による解析. *九大理研報*, [地質], 15, (1), 103-118.
- ・千々和一豊・鮎沢潤 (1987b): 続成~低変成

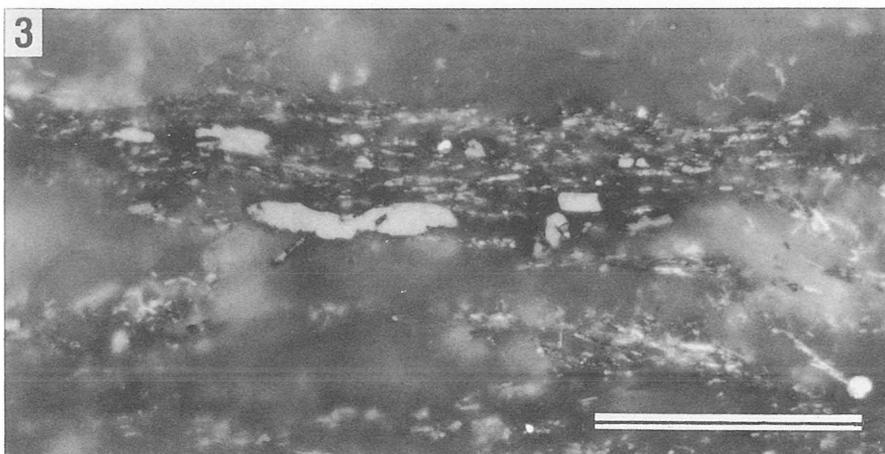
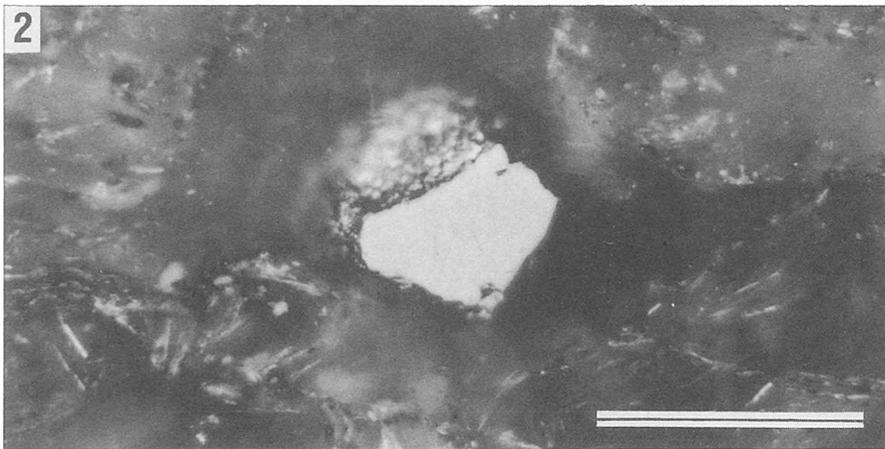
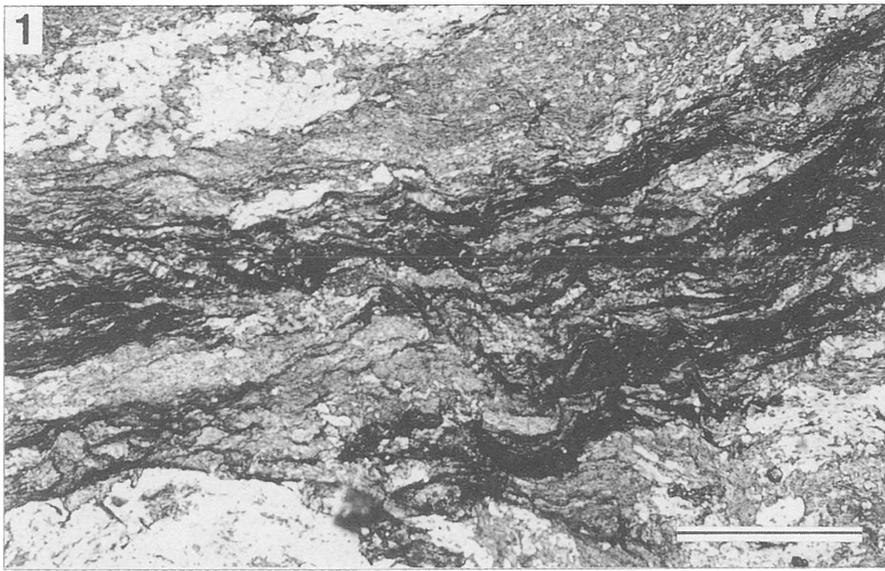
- 堆積岩中の石炭化物の光学的異方性に関する地質学的問題の予察. 九大理研報, [地質], **15**, (1), 119-129.
- 浅野五郎 (1960): 筑豊炭田大峰炭鉱の熱変成炭の物理的および化学的性質, 九鉱誌, **28**, (6), 253-267.
- ・田中信也 (1962): 筑豊炭田, 田川地域における無煙炭の産状と性質 (その2). 九鉱誌, **30**, (5), 159-178.
- ・—— (1963): 天草炭田の熱変成炭 (その2). 九鉱誌, **31**, (12), 475-490.
- ・——・田中博美・久永紀夫 (1965a): 長崎県高島炭鉱の熱変成炭の顕微鏡的並に X 線の研究. 鉱山地質, **15**, (72), 109-119.
- ・——・竹本義明・山村政彦 (1965b): 筑豊燧石の物理的および化学的性質. 九鉱誌, **33**, (1), 1-15.
- BANNO, S., HIGASHINO, T., OTSUKI, M., ITAYA, T. and NAKAJIMA, T. (1978): Thermal structure of the Sanbagawa metamorphic belt in central Shikoku. *J. Phys. Earth*, **26**, Suppl., 345-356.
- and SAKAI, C. (1989): Geology and metamorphic evolution of the Sanbagawa metamorphic belt, Japan. *Geol. Soc. Spec. Pub.*, **43**, 519-532.
- BOSTICK, N. H. (1971): Thermal alteration of clastic organic particles as an indicator of contact and burial metamorphism in sedimentary rocks. *Geoscience and Man*, **3**, 83-92.
- DIESSEL, C. F. K. and OFFLER, R. (1975): Change in physical properties of coalified and graphitised phytoclasts with grade of metamorphism. *N. Jb. Miner. Mh.*, **1**, 11-26.
- , BROTHERS, R. N. and BLACK, P. M. (1978): Coalification and graphitization in high-pressure schists in New Caledonia. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **68**, 63-78.
- ENAMI, M. (1983): Petrology of pelitic schists in the oligoclase-biotite zone of the Sanbagawa metamorphic terrane, Japan: phase equilibria in the highest grade zone of a high-pressure intermediate type of metamorphic belt. *J. metamorphic Geol.*, **1**, 141-161.
- FRENCH, B. M. (1964): Graphitization of organic material in a progressively metamorphosed Precambrian iron formation. *Science*, **146**, 917-918.
- 藤貫正・片田正人・鈴木孝太郎 (1974): 南部北上山地二疊紀登米スレート中の炭素質物質. 地質雑, **80**, 619-625.
- 古山清・原郁夫・秀敬 (1985): 四国中央部別子橋地域三波川帯の地質構造. 吉田博直先生退官記念論文集, 386-394.
- GREW, E. S. (1974): Carbonaceous material in some metamorphic rocks of New England and other areas. *J. Geol.*, **82**, 50-73.
- GRIFFIN, G. M. (1967): X-ray diffraction techniques applicable to studies of diagenesis and low rank metamorphism in humic sediments. *Jour. Sed. Petrol.*, **37**, (4), 1006-1011.
- HARA, I., SHIOTA, T., HIDE, K., OKAMOTO, K., TAKE-DA, K., HAYASAKA, Y. & SAKURAI, Y. (1990): Nappe structure of the Sambagawa belt. *J. metamorphic Geol.*, **8**, 441-456.
- 秀敬 (1961): 別子白滝地方三波川結晶片岩の地質構造と変成作用. 広島大学地学研究報告, **9**, 1-82.
- 東野登志男 (1975): 四国中央部白髪山地方三波川変成帯の黒雲母帯. 地質雑, **81**, 653-670.
- (1990): 四国中央部三波川変成帯の変成分帯. 地質雑, **96**, 703-713.
- HIGASHINO, T. (1990): The higher grade metamorphic zonation of the Sambagawa metamorphic belt in central Shikoku, Japan. *J. metamorphic Geol.*, **8**, 413-423.
- 今岡照喜・西村祐二郎・中島和夫・斎藤和男 (1992): 山陰西部山島火山岩 K-Ar 年代と岩石学的特徴. 日本地質学会西日本支部会報, (101), 7.
- ITAYA, T. (1981): Carbonaceous material in pelitic schists of the Sanbagawa metamorphic belt in central Shikoku, Japan. *Lithos*, **14**, 215-224.
- (1983): X-ray analyses of carbonaceous materials from the Sanbagawa metamorphic rocks, Shikoku. *Bull. Hiruzen Res. Inst. Okayama Univ.*, **8**, 1-14.
- IZAWA, E. (1968): Carbonaceous matter in some metamorphic rocks in Japan. *Jour. Geol. Soc. Japan*, **74**, (8), 427-432.
- 木村英雄・真田雄三・菅原幸子・古田毅・本田英昌・杉村秀彦・熊谷光照 (1970): 炭素質物質の軟化熔融時における異方性構造の生成. 燃協誌, **49**, 752-765.
- KURATA, H. and BANNO, S. (1974): Low-grade progressive metamorphism of pelitic schists from Sazare Area, Sanbagawa metamorphic terrain in central Shikoku, Japan. *J. Petrol.*, **15**, 361-382.
- LANDIS, C. A. (1971): Graphitization of dispersed carbonaceous material in metamorphic rocks. *Contr. Mineral. Petrol.*, **30**, 34-45.
- MENTSER, M., O'DONNELL, H. J. and ERGUN, S. (1962): X-ray scattering intensities of anthracites and meta-anthracites. *Fuel*, **41**, 153-161.
- 三木孝 (1977): 九州第三紀炭のグラファイト化について. 地質雑, **83**, (9), 575-581.
- (1983): 堆積岩中の炭素質物質のグラファイト化. 総合研究 A「堆積岩の続成作用に関する研究」, 111-120.
- 都城秋穂・久城育夫 (1977): 岩石学Ⅲ. 245 p., 共立出版, 東京.

- 村上充英 (1985) : 中国地方西部における中生代後期～古第三紀火成活動史. 地質雑, **91**, (10), 723-742.
- 西村祐二郎・鈴木盛久 (1979) : 須佐-高山地域の接触変成岩類. 山口県教育委員会, 名勝及び天然記念物「須佐湾」緊急調査報告書, 1-24.
- ・板谷徹丸・磯崎行雄・亀谷敦 (1989) : 西南日本内帯220Ma 高圧変成岩の源岩年代と変成履歴—山口県錦町地域の例—. 地質学論集, (33), 143-166.
- 岡本和夫・陶山義仁 (1975) : 須佐層群. 山口県の地質, 山口博物館, 189-195.
- ・——・松田逸子・西本庸子・掛川克義 (1983) : 山口県北東部の中新世須佐層群. 瑞浪市化石博物館研究報告, **10**, 85-102.
- 奥山 (楠瀬) 康子 (1987) : 「炭質物」の変身—石墨化作用の岩石学. 地質ニュース, (392), 56-63.
- OKUYAMA-KUSUNOSE, Y. and ITAYA, T. (1987) : Metamorphism of carbonaceous material in the Tono contact aureole, Kitakami Mountains, Japan. *J. metamorphic Geol.*, **5**, 121-139.
- OTSUKI, M. and BANNO, S. (1990) : Prograde and retrograde metamorphism of hematite-bearing basic schists in the Sanbagawa belt in central Shikoku. *J. metamorphic Geol.*, **8**, 425-439.
- QUINN, A. W. and GLASS, H. D. (1958) : Rank of coal and metamorphic grade of rocks of the Narragansett basin of Rhode Island. *Econ. Geol.*, **53**, 563-576.
- STACH, E., MACKOWSKY, M., TEICHMÜLLER, M and R., TAYLOR, G. H. and CHANDRA, D. (1982) : *Stach's textbook of coal petrology* (3rd ed.). 535p., Gebrüder Borntraeger, Berlin.
- 杉村秀彦・紫波正史 (1967) : 石炭の炭化初期段階に関する研究 (X)—石炭の反射率—. 燃協誌, **46**, 911-918.
- SUZUKI, M. and NISHIMURA, Y. (1983) : Contact metamorphic effect on basaltic rocks by the Koyama gabbro complex, Susa area, Southwest Japan. *Jour. Sci. Hiroshima Univ.*, [C], **8**, (2), 149-163.
- TAGIRI, M. (1981) : A measurement of the graphitizing-degree by the X-ray powder diffractometer. *J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol.*, **76**, 345-352.
- (1985) : A comparison of graphitizing-degree and metamorphic zones of the Sanbagawa metamorphic belt in central Shikoku. *J. Japan. Assoc. Min. Petr. Econ. Geol.*, **80**, 503-506.
- 田切美智雄 (1986) : グラファイトの岩石化学—炭質物の再結晶—. 月刊地球, **8**, (1), 39-45.
- 高橋良平 (1985) : 石炭岩石学の他分野への貢献. 地学雑誌, **94**, (7), 620-628.
- 田中信也 (1967) : 天草下島志岐炭鉱の熱変成炭の研究 (その3). 九鉱誌, **35**, (5), 227-237.
- TEICHMÜLLER, M. (1987) : Recent advances in coalification studies and their application to geology. In : SCOTT, A. C. ed., *Coal and coal-bearing strata : recent advances*, *Geol. Soc. Spec. Pub.*, **32**, 127-169.
- TISSOT, B. P. and WELTE, D. H. (1984) : *Petroleum formation and occurrence* (2nd ed.). 699p., Springer-Verlag, Berlin.
- YAMAZAKI, T. (1967) : Petrology of the Koyama calc-alkaline intrusive complex, Yamaguchi Prefecture, Japan. *Sci. Rep. Tohoku Univ.*, [3], **10**, (1), 99-150.

第1 図版説明 Plate 1

Occurrence of organic constituents in the Sanbagawa pelitic schist from the Asemi River area.

1. Photomicrograph of pelitic schist taken on thin section by a transmitted light polarizing microscope. Carbonaceous materials occur like thin streaks (black) parallel to schistosity. Sample No. AS-1. Open nicols. Scale bar is 0.5 mm long.
Photomicrographs 2 and 3 taken on polished surface by an incident-light polarizing microscope equipped with an oil immersion objective.
2. Isolated coalified phytoclast surrounded by transparent minerals (quartz). Large fragment like this, capable of reflectance measurement, is very scarce in pelitic schist from the Asemi River area. Sample No. AS-2. Open nicols. Scale bar is 0.05mm long.
3. Discontinuous elongate streaks or fragments of very small coalified phytoclast are unevenly distributed in thin band composed mainly of chlorite and clay minerals parallel to schistosity. Unfortunately, such small fragments are not capable of measurement of reflectance. Sample No. AS-3. Open nicols. Scale bar is 0.05mm long.



千々和・亀田・石黒・相原：変成領域における石炭化植物片の物理的変化の予察