

## 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

相原, 安津夫  
九州大学理学部

千々和, 一豊  
九州大学理学部

鮎沢, 潤  
福岡大学理学部

<https://doi.org/10.15017/4495634>

---

出版情報 : 九州大学理学部研究報告. 地質学. 15 (1), pp.119-129, 1987-03-15. 九州大学理学部  
バージョン :  
権利関係 :

## 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

相原安津夫・千々和一豊・鮎沢 潤\*

Preliminary geological study on optical anisotropy of coaly organic matter in sediments of late diagenetic (middle catagenetic) to low metamorphic stages.

Atsuo AIHARA, Kazutoyo CHIJIWA and Jun AIZAWA

### Abstract

Reflectance measurement of vitrinite in vegetal organic matter of coal or phytoclasts in sediments is considered as one of the best methods to indicate the rank of coalification or stage of organic metamorphism. The value increases with ascending diagenetic to burial and thermal metamorphic processes, and shows optical anisotropic property, bireflectance, at the stage over 1%.

Normal and unusual anisotropic samples mainly from Southwest Japan with some foreign ones for comparison are examined by microscopic method and by X-ray diffractometry. Extraordinarily high bireflectance appears in the samples that were affected by igneous intrusion, though their graphite crystalization was incomplete. Anisotropy caused by tectonic deformation under warm pleoageothermal condition is observed on coaly lamina in the Hyuga Group of mid- to high-catagenetic stage in the Shimanto Terrain of Kyushu. There is a remarkable difference in bireflectance of the same maximum reflectance value between natural and industrial coke, i.e. the former or natural graphitic substance shows stronger bireflectance than the latter. The cause of the difference is attributed to higher pressure condition over long period of reaction at the deeper part of the crust, which might cause natural graphite formation. Thus, the information obtained from the vitrinite reflectance measurement of the high rank coal or coaly matter in catagenetic to metamorphic zone will reveal the difference of the conditions.

### I. ま え お き

堆積岩起源の変成岩が、続成作用後の埋没変成作用を経た広域変成作用で形成されるという理解や概念は現在では一般化している。然し、両者の境界は人為的であって、研究者により、また、研究手法により、必ずしも一定はしていない。其の境界区分や、それぞれの領域の細分の試みは、従来から、主に、自生鉱物や変成鉱物の出現や組合せによる解析によっていたが、新たな取組として無水珪酸の変化による調査 (MIZUTANI, 1970) や、堆積岩中の植物由来固体有

機物の変化による解析 (BOSTICK, 1973; HOOD & CASTAÑO, 1974; TISSOT & WELTE, 1978 など) が行われた。ここでいう堆積岩中の固体有機物の代表的なものに石炭がある。

石炭は古くから燃料や工業原料の資源として扱われていたため、その質的な差異は炭質変化として注目されていた。しかし、それは、原物質が続成～変成的に変化したという考えが一般化する以前からであったため、石炭特有の変化である石炭化作用の結果もたらされた、として処理されていたように見受けられる。

堆積岩中のもう一つの重要な有機物質、すなわち、流体炭化水素 (可燃性天然ガス、石油) の大部分が堆積岩中に分散する生物起源有機物から続成的に形成さ

\*福岡大学理学部

昭和61年8月4日受理

れ、その変化の程度で性状に差が生じたとする石油成因のケロゲン根源説が提出されるに及んで、その形成過程と変化状況を、母岩中の石炭化植物片の石炭化作用進行の程度で探ろうとする試みが活発になった。ここに、従来石炭特有の変化とみなされていた石炭化作用が、それを挟む堆積物の続成～変成的変化と同時に進行していることが理解されだし、石炭化度が続成から変成に及ぶ変化の程度を細分し得る重要な指標として見直されるようになった。

石炭化作用の進行程度で石炭の性質が著しく規定されるため、石炭化度の研究は石炭地質学の重要な課題の一つとして古くから行われ、多くの知識と資料が蓄積されている。いま、堆積岩中の分散型固体有機物の変化をとらえて続成～変成的変化を研究しようとする立場でそれらを見直すと、その多くは有効に活用できる。しかし、石炭が物理的・化学的に性質の異なる複雑な高分子化合物の集合体であるので、原植物の特定部位が変化し特定 maceral について調査・解析した結果のみが高い精度で引用できるが、それ以外の資料は取扱いに注意が必要である。

今後新たに野外調査や室内研究を追加するにしても、特定 maceral を対象にできる手法が用いられなければならない。このような考えで、筆者らは、鏡下で macerals の判定と物理的特に光学的性質の変化が測定できる石炭顕微鏡的手法を重視して調査を進めてきた。とりわけ、続成末期からさらに石炭化作用の進んだ高石炭化度炭では光学的異方性が顕著になるが、それが地質的にどのような意味を持つかについて調査・検討を加えてきた。

本論の前半では、石炭や分散型石炭化植物片の続成～変成的変化と石炭化度との関係及び、その過程で生ずる光学的異方性についての従来の資料の概括を行い、幾らかの検討を加える。後半は、筆者らが石炭顕微鏡的手法を実際に野外調査で適用して得られた価の地質的意味を吟味・考察し、最後にそれらをまとめて結論とし、今後の問題を併記した。

基礎的な室内実験や、野外での地質現象との対応などについても、調査・研究が現在も進行中である。わが国でのこの分野の研究は未だ日が浅く研究者の数も少ないが、当地質教室における石炭顕微鏡的手法の導入とその教育・研究に尽くされた高橋良平先生が退官されるのを機会に、現状をまとめて、ここに小論とし、謝意を込め献呈致したい。なお、この研究は、対象も考え方も従来の石炭地質学が扱った炭田における地質諸現象だけにとどまらず、地質学の他分野や、地球科

学の関連分野などにも関係するため、研究過程で当教室の多くの関係者から貴重な助言を頂いている。また、本論をまとめる段階で文部省科学研究費補助金（課題番号60470051、代表研究者相原安津夫）の一部を当てることができた。併せて、ここに記して謝意を表したい。

## II. 高石炭化度領域の変成指標

### A. 従来資料の検討

堆積岩中の濃集型炭化水素の石炭と、分散型有機物の大部分は古植物に由来しており、それらは原則的に由来植物の種類や部位により、顕微鏡々下で形態的に macerals に分けられ得る。個々の maceral は物理的・化学的な性質に差異があり、かつ、それぞれ独自の経路を辿って続成的に変化し、それらの集合体である石炭の石炭化度が高まっている。高石炭化度領域とは、その続成の程度が進行した段階で、埋没変成の範囲にも及んでいる。

古植物が高密度で集積・埋没して変化した石炭層のうち、古くから最も多く調査・研究されているのが、出現頻度の最も高い陸植炭であった。そのため、従来の石炭の質的变化の調査は陸植炭の主成分である材由来の vitrinite の変化で主に捉えられていて、その分析値が炭質区分の名称や、基準として指標に用いられていた。

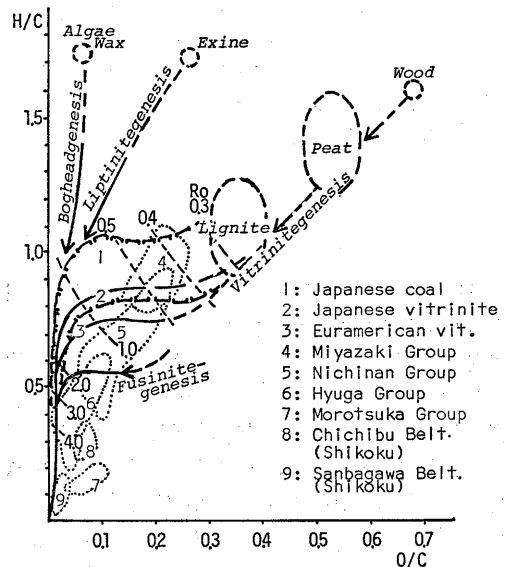


Fig. 1: Diagenetical and metamorphic changes in ultimate analytical data of vegetal organic matter in sediments.

従来の石炭の分析は vitrain を主とするとはいえ、複数の macerals の混合物を扱っていたことが多かったため、その構成比によって値の変動が起こる恐れが付きまとった。例えば、元素分析にしても、その結果を主要構成元素の原子数比の H/C : O/C で示す Van Krevelen のダイアグラム上に載せると、Fig. 1 のように maceral の判明しているものは明らかに異なるコール・バンドを示す。それらの混合物は同一統成度でも、混合比の差でコール・バンドの中で値が変化し得る。従って、macerals の構成比が判明してい

ない分析値からだけでは、石炭化作用の進行程度の判定は困難で、Fig. 1 のような従来資料の中で辛うじて相対的に推定が可能になるのにとどまる。図に示した 4-7 は九州四十万帯中の分散型石炭化植物片（牧ら 1980）、また 8,9 は四国の秩父・三波川両帯の石墨化炭化物（TAYA, 1981）の分析値である。石墨化が進むと、原物質が全て材に由来していたかどうかは、鏡下での判別が困難になる。

石炭化作用の進行度を或る程度示せる指標として、古くから工業分析の揮発分（または固定炭素）や元

Rank	Peat	Lignite	Sub-Bituminous	Bituminous	Semi-anthracite	Anthracite	Meta-anthracite	Semi-graphite	Graphite
Stage of Organic Metamorphism	Diagenetic		Catagenetic		Metagenetic		Metamorphic		
Rank Parameter	c: Ro		0.5		2.0		4.0		
	Opt. Fluoresc.		-----		-----		-----		
	C		-----		-----		-----		
	H		-----		-----		-----		
	V.M. Cal.		-----		-----		-----		
X-ray diff.	-----		-----		-----		-----		
Zoning by Minerals	Diagenesis		Burial Metamorphism		Regional Metamorphism				
	Diagenetic Zone		Anchi-metamorphic		Epi-metamorphic Z				

Fig. 2 : Applicable range of different parameters of organic metamorphism.

素分析の C% がよく用いられてきたが、これは陸植炭の主成分が vitrinite であるためであって、この macerals の混合比による変動を排除し、正確な石炭化度を求めようとすれば石炭顕微鏡的手法に頼らざるを得ない。石炭顕微鏡的手法による石炭化度の判定方法には、現在のところ、vitrinite の反射率（正確には telocollinite の油浸反射率で以下 Ro と略す）と liptinite の反射蛍光スペクトル解析法とがある。石炭化度進行に伴うそれらの値の変化、及び石炭の化学的・物理的性質の変化、並びに鉱物相の変化との対応については、既に総括してあるので（相原, 1979; 1987 など）、ここでは省略し、Fig. 2 に、幾つかの指標が有効に適用できる範囲を概括して示した。また、Ro の値の変化を Fig. 1 に付記した。

Fig. 2 に示したように、古植物の統成の程度が低くて、より生物的であると、蛍光物質が残るので反射蛍光法が適用できるが、最終的に C=100% の鉱物である石墨にまで変化すると、鉱物学的手法である X 線回

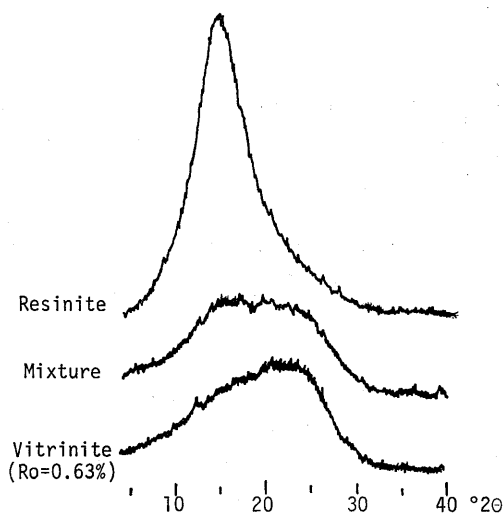


Fig. 3 : X-ray diffraction pattern of different macerals in a same low rank coal from Fukuoka city.

折による結晶構造の解析が適するようになる。その間で  $R_o$  が適用できるが、高石炭化度領域では光学的異方性が発生する。低純性領域で  $R_o$  の測定は、材組織が残っているため変動巾が増すので適さない。同様に X線回折法をこの領域に導入すると、Fig. 3 のように、macerals の差が現れるので、これも適さない。本論では高石炭化度領域を対象にするので、 $R_o$  とその異方性とを主とし、これに X線回折結果も加えて考察する。

### B. 石炭化作用と石墨化作用

化学変化を伴う地質現象の反応は、主に、温度、圧力及び反応時間の主要因に規制される。石炭化反応の初期段階の続成的変化において、それら主要因がどのように反応生成物に影響するかについては、既に、筆者らの一人、相原 (1979) が日本列島新生界の地体構造と関連付けた概括を行っているので、ここでは省略する。然し、それ以上の高石炭化から石墨化反応においては、それ以下の場合とは事情が異なるということが次のようなことから推定できる。

人工石炭化反応実験では、温度・圧力・反応時間の主要因の変化に対応する反応生成物の変化が追えたが、これは低～中石炭化反応の場合であった。高石炭化領域の反応の考察に適用できるこのような実験は行われていない。しかし、工業分野におけるコークス製造関係や、黒鉛工業における人工黒鉛 (石墨) 化などの実験・試験中には、高温における石炭の挙動に関する示唆に富む資料を提供できるものがある。

人工黒鉛化実験 (例えば、持田1978, 稲垣1978) によれば、出発物質が難石墨化炭素材の低石炭化度炭の場合と、易石墨化炭素材の高石炭化度炭の場合とは、X線回折や超高圧電子顕微鏡で認められる結晶子成長開始温度が、それぞれ前者では  $2000^{\circ}\text{C}$ 、後者では  $1500^{\circ}\text{C}$  以上となっている。この実験では加圧されていないが、反応温度は地殻表層部における天然の温度条件に比べると、著しく高温である。このような高温は、天然で、広域、かつ、頻繁には発生したとは考え難い。

天然産の無煙炭や石墨を扱い、X線回折法による検討を行った IZAWA (1968) はその結果が変成分帯に適用できると指摘した。同様にして X線回折法を調査した LANDIS (1971) は、石墨状結晶の格子間隔  $d_{002}$  の変化に対応するおおまかな区分で変成分帯が可能であると示唆した。ITAYA (1981) は既に鈹物変成相の判明している四国の三波川・秩父両帯で、同様に

石墨の結晶度を解析し、両者の対応を可能にした。TAGIRI (1981) は変成岩中の炭質物の X線回折像から石墨化度を求め、変成帯細分の可能性を示した。

BONIJOLY & OBERLIN (1982) は、マシフ・サントラルの緑泥石相から藍晶石相に至る間の幾つかの変成度の異なる石墨試料を超高圧電子顕微鏡で解析して、結晶子の成長過程を追った。その結果、天然における石墨化には、埋没による石炭化反応を超えて、それら変成相の形成に必要な  $350^{\circ}\text{C} \cdot 3\text{Kb}$  から  $600^{\circ}\text{C} \cdot 6\text{Kb}$  の反応条下にもたらされねばならず、かつ石墨の結晶格子間隔の接近には構造的剪断力が欠かせなかったと考えた。

以上の諸研究を基にして天然の石墨化作用の内容をまとめると以下のようなようになる。まず、石炭化作用が充分進行して易石墨化炭素材化した高石炭化度炭が出発物質になる。さらに、高い温度・圧力条件下にもたらされて、始めて石墨化は進行し得たであろう。すなわち、有機物を原材料とした石墨化作用は、それ以前に必然的に石炭化作用を通過しなければならなかった、結晶化作用を伴う変化であると言えよう。本論では、天然における石墨化作用の解析までは行わないが、その一段階前の高石炭化領域の高熱条件下で生ずる石墨類似の高炭素物質についても一部扱う。

## III. 高石炭化度炭の光学的異方性

### A. 異方性とその研究

中～高石炭化度炭の落射偏光下における反射石炭顕微鏡像では、石炭化度の向上とともに、高揮発分の liptinite の色調・形態が薄れて次第に不明瞭になる。同時に vitrinite の  $R_o$  は上昇し、1%付近から次第に異方性が生まれてくる。油浸反射偏光下でステージを回転することにより、最大反射率 (以下  $R_{\text{max}}$  と略す) と最小反射率 (以下  $R_{\text{min}}$  と略す) が測定され、両者の差が光学的異方性 (以下  $R_{\text{bi}}$  と略す、 $R_{\text{bi}} = R_{\text{max}} - R_{\text{min}}$ ) として算出できる。ここに偏光を用いずに普通光で測定する反射率を平均反射率 ( $R_{\text{mean}}$ ) と呼ぶが、ステージを回転する必要がないので、微小の石炭化植物片での測定に適する。無煙炭～変無煙炭領域で異方性が著しく増して  $R_{\text{min}}$  が低下するが、 $R_{\text{mean}}$  は  $R_{\text{max}}$  同様に上昇する (相原ら 1987本巻, 参照)。

安定して石炭化作用の進行した石炭層から定方位試料を採取し、層理とこれに垂直な面とで  $R_o$  を測定すると、前者では異方性は認められず、後者の層理方向

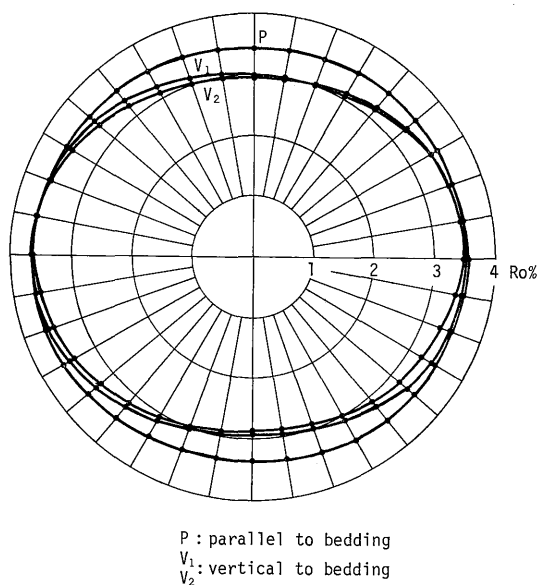


Fig. 4: Anisotropy of Kumano coal, Wakayama Pref.

で  $R_{max}$  が、また、これと垂直方向で  $R_{min}$  がそれぞれ測定される。この場合は光学的に一軸性である。Fig. 4 は筆者らの一人、千々和が熊野炭田の定方位試料について測定した結果を示したものであるが、高い古地熱環境での異方性が備わった例である。構造的変形を蒙った高石炭化度炭の各方位の  $R_o$  を測定した COOK ら (1972) や STONE & COOK (1977) などは、そこには光学的二軸性が生ずることを見出ししている。

野外地質現象と  $R_o$  の異方性に関しては、次のような調査・研究がある。スイス・アルプス外縁帯でアルプス造山運動による変形と弱変成を扱った FREY ら (1980) の調査のうち、堆積岩中の分散型石炭化植物片の  $R_o$  を測定した TEICHMÜLLER は、対象の石炭化物が微細であることが多いため、 $R_{mean}$  で全体的変化を描き出した。この場合、 $R_{max}$  と  $R_{min}$  とが測定できた試料で  $R_{mean}$  との関係を求め、 $R_{mean}$  の指標としての有意性を確認している。さらに、この値と illite の結晶度との相関性や、流体包有物との関係、及びそれから推定される構造変形の温度・圧力条件も論じている。

西独ミュンスターランドで降ろした構造試錐中の堆積岩中の分散型石炭化植物片の  $R_{max}$ ,  $R_{min}$ ,  $R_{mean}$  を測定した TEICHMÜLLER ら (1979) は深度とともに  $R_{max}$  が 1.5~8.5% と上昇する中で、特に剪断帯付近に  $R_{bi}$  が増すことに注目して、この部分の異方性は構造変形でもたらされたと考えた。STONE

& COOK (1977) はオーストラリア・シドニー炭田の炭坑中の断層付近の石炭の定方位試料で  $R_o$  の異方性を確認し、構造変形の影響が残されていることを指摘した。

HOWER & DAVIS (1974) は北米東部のペンシルバニア炭田の褶曲地帯で  $R_{max}$  が褶曲軸に平行に現れることを見出した。TING (1978) は定方位試料で  $R_{max}$  や  $R_{min}$  の方向を算出する方法を考案し、ペンシルバニア炭田の小向斜構造の炭層の定方位試料にこの方法を適用し、 $R_{min}$  が構造形成の側圧方向と一致することを示した (TING, 1981)。

一方、石炭を原料にした加工部門においても、石炭顕微鏡による原料や製品の検査や品質管理はじめ、調査・研究が行われている。それらの中から、原料の石炭化度とコークス化の温度を変えた室内実験 (CHANDRA & BOND, 1956; CHANDRA, 1965) および、石炭化度の異なる原料から造られた種々の構造のコークスについての光学的異方性測定結果 (露口ら, 1981) をまとめ Fig. 5 に示した。図には、天然の高石炭化度炭や熱変成炭の異方性を筆者ら及び文献からの引用を含めて示してある。

炭素材製造分野で、高石炭化度炭や石油ピッチなどを原料にして特殊コークス製造に関する加熱顕微鏡下での観察が多くの研究者により行われている。それによると、300°C 位から流動化が始まり、小形の球晶が発生して昇温とともに成長しつつその数を増すと、互いに融合して大型の変形球晶を経て、コークスに見られる、いわゆる葉片状構造状の流動方向に延びた配列が起きることが知られている。自由空間があるコークス炉内の高温での反応により、このようなコークス構造が造られることが解る。天然にも火成岩の進入により、このようなコークス構造が現れるが、稀に、球晶が見られることがある。Fig. 6 は和歌山県白浜温泉付近の田辺層群中の石炭化植物片に見出された球晶で、周辺の  $R_{max}$  は 3.4-3.5% であった。

## B. 異方性に伴う物性

堆積岩中の石炭化物質が高石炭化領域になると、光学的特性、特に異方性以外に新たな物理・化学的性質が備わってくる。例えば、化学的な変化として、石炭化の指標にしばしば用いられる炭素含有量は 85% 以上に増加して行くが、この C% の増加は、芳香族環化・重縮合と、環数の増加を伴っていることが構造解析から判明している。また、変無煙炭から低結晶度の石墨の間では、芳香族環集合体の層理に平行な成長と成層

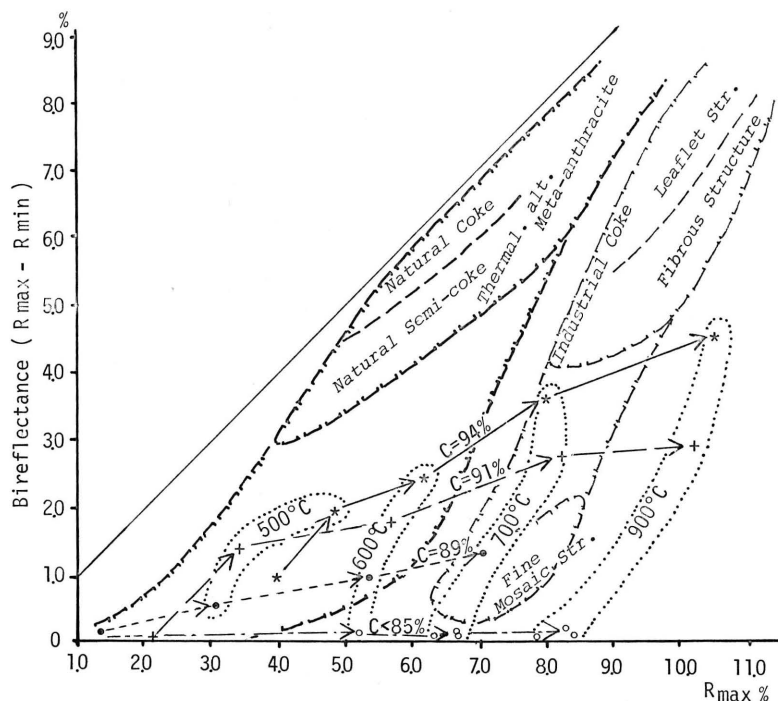
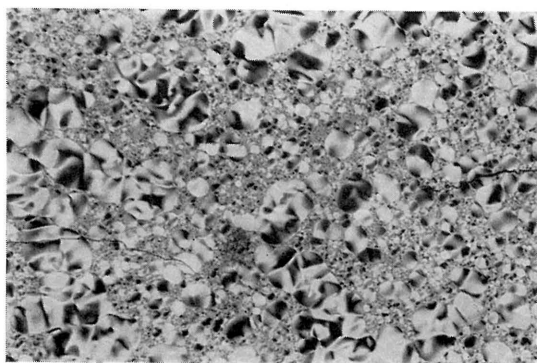


Fig. 5 : Relationship of bireflectance ( $R_{bi}$ ) and maximum reflectance ( $R_{max}$ ) of natural coaly matter and experimental products.



0.3 mm

Fig. 6 : Mesophase microcrystalline beads found in a coaly lamina near Shirahama Spa, Wakayama Pref.

化配列が進み、結晶が成長していることがX線回折像や超高压電子顕微鏡像の解析から解っている。

天然の高石炭化度炭や石墨化物に関するこのような知見から、異方性の増加と結晶構造の成長とが、確かに並行して生起しているとみなしてよさそうである。しかし、Fig. 5 に示したように、天然と人工の場合では、明らかに異方性の出現状況が異なる。これは、

異方性の発生機構を規制する温度・圧力・反応時間などの要因に、天然と人工では、差異があることを示している。

人工のコークスの製造では、目的に合った製品を造るため高流動性の原料炭を素材に選び、通常15~20時間で1100~1350°Cの加熱という急激な昇温を行う。その間、炉内で流動が起きるため、発生した球晶は、加圧されない比較的自由的な空間で互いに融合・成長し、流動方向に伸びた光学的異方性をもった葉片状構造を作る。高い反応温度のためC%は増加したので、 $R_{max}$  は著しく上昇するが、 $R_{min}$  まで高くならなかったと考えられる。

工業用のコークス炉のような設定された条件に対し、天然では、出発物質のコークス化性や熱的流動性の選択はなされず、コークス炉ほどの高い温度ではないが、熱源の規模とそれからの距離に応じた任意の温度で、かつ比較にならぬほどの長い任意の時間を掛けて、地下で反応は進行する。任意の温度のため  $R_{max}$  は余り高くはならなかったが、地下の密封状態で、発生した揮発分の飛散は抑制され緩徐な反応が進み、球晶は徐々に成長しつつ層理方向に配列されたであろう。このような、反応条件の差異が  $R_{bi}$  の差に現れたと考え

られる。

以上のように、光学的異方性の発生と石墨結晶化作用とが、天然の、通常の焼成・変成環境で、平行して発生し緩徐に進行した場合と、人工操作または天然の異常条件下で、急激に発生した場合とでは、両者の関係は同様ではなかったように見受けられる。この両極端の例の間には、起こり得る無数の条件が考えられるが、それぞれの条件で備わった特有な有機物の変化が掴めれば、その間での天然の反応条件の相対的、ないし定性的な差異を探り出せるのではないかと推察できる。

このような観点から、天然の石炭化物質の光学的異方性と、これに伴う変化について、野外地質現象と合

わせた予察を進める。

#### IV. 野外地質現象例

##### A. 接触熱変成

野外地質現象として明らかに二次的な熱が付加されたことが確認できるのは、火成岩の貫入部における変化である。貫入火成岩脈周辺での熱の影響が  $R_o$  の変化に現れる状況は、別報（相原ら、1987）に示したとおりである。

ここでは、正常炭と被熱炭の光学的異方性の差異を探るため、九州内帯諸炭田、熊野炭田周辺などでの正

Table 1

Reflectance and X-ray diffraction pattern of normal and thermally altered vitrinite

Locality	Reflectance of Vitrinite			X-ray diffraction pattern	
	$R_{o_{max}}$	$R_{bi}$	$R_{mean}$	$Lc_{(002)}$	$d_{002}$
1 Miike	0.76	0.14	0.72	12.1	3.73~3.85
2 Takashima	0.84	0.12	0.81	12.5	3.74~3.81
3 Asakura	0.86	0.12	0.83	13.2	3.72 3.76
4 Sasebo	0.96	0.13	0.92	17.8	3.59
5 Sasebo	1.46	0.29	1.33	21.2	3.53
6 Haidateyama	1.61	0.20	1.56	28.4	3.50
7 Tanabe	1.07	0.12	1.04	20.7	3.59
8 Tanabe	1.21	0.24	1.15	18.2	3.54
9 Tanabe	1.27	0.25	1.17	18.6	3.56
10 Tanabe	2.32	0.52	2.27	22.2	3.50
11 Amakusa	2.57	0.62	2.36	26.0	3.48
12 Ohmine	2.60	0.87	2.36	23.3	3.50
13 Kumano	0.87	0.18	0.83	12.3	3.71~3.76
14 Kumano	2.08	0.53	1.91	26.0	3.49
15 Kumano	2.50	0.54	2.44	27.6	3.47
16 Kumano	2.80	0.72	2.69	21.7	3.51
17 Kumano	2.97	0.80	2.77	21.2	3.45
18 Kumano	3.30			26.0	3.45
19 Kumano	3.62	1.11	3.29	21.7	3.47
20 Kumano	3.73	1.70	3.30	19.4	3.49
21 Kumano	3.75			20.2	3.47
22 Kumano	3.81	1.75	3.41	19.4	3.46
23 Kumano	4.03	4.45	3.33	26.0	3.42
24 Kumano	4.25	2.22	3.62	19.8	3.48
25 Kumano	4.54	3.16	3.71	20.2	3.49
26 Kumano	5.20	5.60	3.74	29.4	3.42
27 Gotou	4.37	1.80	3.71	20.2	3.46
28 Pennsylvania	5.21	2.60	4.40	33.7	3.42
29 Korea	6.28	4.38	4.92	19.0	3.50

$R_{o_{max}}$  and  $R_{mean}$  are average values of at least 100 readings measured on a polished particulate specimen.

Table 1: Measured data of Vitrinite reflectance and X-ray diffraction analysis.



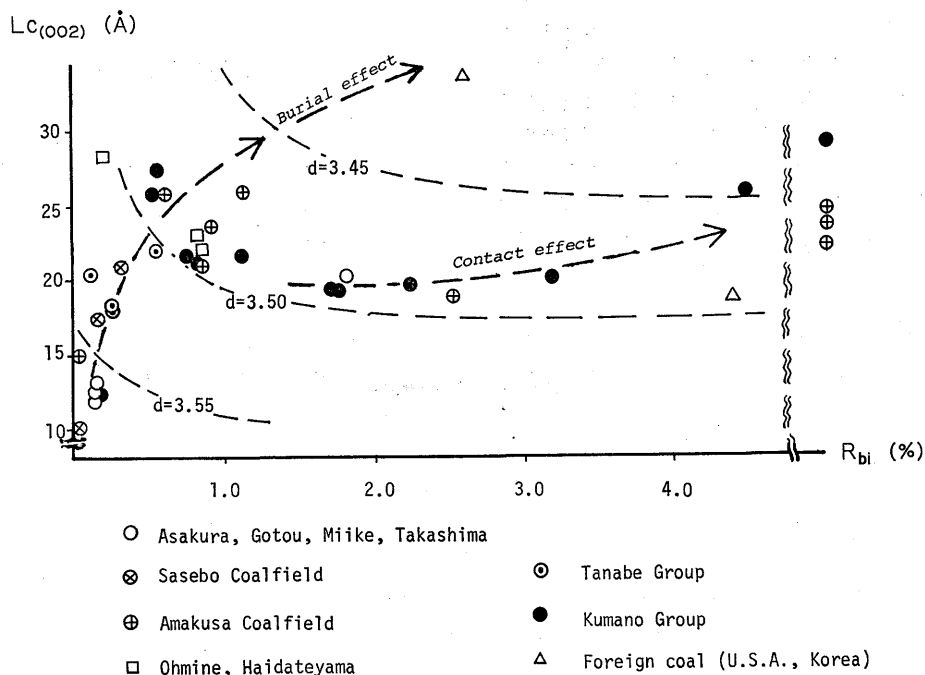


Fig. 7: Relationship of optical anisotropy ( $R_{bi}$ ) and its graphitic texture  $L_c(002)$ .

常石炭化炭と被熱効果の大であるとみなされたもの、及び比較のための国内外の幾つかの例について反射率を測定した。その結果と、同試料のX線回折解析結果の  $L_c(002)$ ,  $d_{002}$  を合わせて第1表にまとめて示した。

高  $R_{bi}$  試料での石墨結晶化、特に結晶成長状況との関係を明らかにするため、 $L_c(002)$  と  $R_{bi}$  との関係を Fig. 7 に示した。一般的には  $C\%$  の上昇と共に  $R_{max}$  も上昇し  $L_c(002)$  も増加する。すなわち、 $R_{max}$  の上昇は  $R_{bi}$  の増加を伴うので、図では左下から右上に向いた矢印の示方向に変化は進行する。右横の矢印の方向は結晶の成長が余り進まなくても、著しく異方性が生じた例で、天草、熊野、大嶺及び韓国(三陟炭)に見られる。後者ではそれぞれの周辺の地質状況から判断して、貫入火成岩からの二次的な熱の影響があったと考えて差し支えない。

### B. 高統成～埋没変成炭

わが国で最も分布の広い新生代炭田の中で高石炭化度炭を捜すと、統成過程で著しい熱を受けた場合が多いことが解る。そのため、長期間にわたる穏やかな地熱環境で統成的に石炭化反応が進行した高石炭化度炭を、国内に求めることは極めて困難である。三疊紀炭

や古生代の石炭化植物片も産出するが、被熱履歴が明確でない現状では、必ずしも、この調査のための適切な材料にはならない。

この調査の対象になる高石炭化度炭は、大陸型の安定した古生界炭田で深く埋没された層準から求めなければならない。表記した米国炭は、北米東部ペンシルバニア炭田のもので、ここでは石炭化度の層位の変化が古くから認められており、埋没による統成的変化が残されていると見られる。

第1表と Fig. 7 から解るように、このペンシルバニア炭は  $L_c(002)$ ,  $d_{002}$  とともに順調に変化しているようであり、 $R_o$  も標準的な値であると見れる。これを韓国炭(前出)と比較すると、同じ古生代炭ではあるが、後者での二次的被熱の影響が大であることが解る。

### C. 構造変形炭

九州外帯の非夾炭堆積物中には、しばしば分散型石炭化植物片が含まれており、その中には、内帯の夾炭新生界と同時代のものもある。それらは内外両帯の石炭化作用の機構を比較・検討するうえで貴重な材料を提供している。特に四万十帯の最近の層序・構造の解析、地質時代の判定が著しく進歩した(坂井1978; 坂井・勸米良, 1981; 勸米良ら, 1983) ので、それらの

成果に合わせた有機変成度の調査が可能になった。調査結果、 $R_o$  による有機変成分帯とその変化形態が判明し、先中新統が高石炭化度領域に達していることが解った(相原ら, 1983, 1984; AIHARA, 1985)。

日向層群にはしばしば石炭化葉層が見られ、高石炭化度領域にあることが判明したのでこれを対象に、定方位試料による光学的異方性の方向を TING (1978) の方法に従って算出した(榎田, 1986)。未だ測定数が少ないため、確実度はやや劣るが、 $R_{min}$  の方向が構造変形に加わった側圧方向と平行である傾向が見出された。これは諸外国における、主に古生界を対象にした幾つかの解析例と同傾向であって、この手法が、わが国新生界にも適用可能なことを示している。資料密度の高い新生界の構造形成における高炭化物の挙動を探るうえでも、また、それらの変化と、現在の各種地球物理学的情報とを結ぶ一手段としても、今後調査が行われねばならないであろう。

#### D. 考察

試料の調査・測定結果とそれら地域の地質状況を合わせ、さらに従来諸研究結果も参考にして、高石炭化度領域の光学的異方性が示唆する地質的意味について考察を加える。

天然と人工とのコークスで、Fig. 5に示したような、 $R_{max}$  と  $R_{bi}$  との関係での両者の差異は、先に指摘したように、規制要因としての反応時間と封圧との差が挙げられる。しかし、両要因がそれぞれ定量的にどのように関与したかは、現在の資料だけでは結論付けられない。野外調査で構造が異なることが確認できる同じ被熱履歴を持つ同時代の高石炭化度炭田で、変形の異なる試料間の測定値の比較ができれば、幾分具体的な差を見出すことが可能になると予測される。

しかし、現在の資料からだけでも、天然の高石炭化度炭について、幾つかの推定は可能である。例えば、Fig. 5からも解るように、同  $R_{max}$  でも  $R_{bi}$  が高い場合には、まず石炭化反応が一次的に進行した瀝青炭が造られ、次にこれを出発物質としたさらに高い二次的被熱が起きるような、段階的変化があったと推定できる。この場合、同じ  $R_{bi}$  でも、石炭化作用が相対的に進行していれば  $R_{max}$  は高くなると考えてよいであろう。

天然の高石炭化度炭が二次的被熱により  $R_o$  が上昇し  $R_{bi}$  が増している場合でも、 $d_{002}$  が大で  $L_c(002)$  が小さいものがあることは、高石炭化度領域でも常に石墨状結晶が成長したとは限らないことを示している。

そのことは、石墨の結晶化には、石炭化度の上昇のうえに、更に別の条件が必要なることを示唆している。すなわち、まず一次的な石炭化反応が進行して芳香族環数が増した高石炭化度炭ができた後、それまでの石炭化反応を進めたよりもさらに高い反応条件下にもたらされたに違いない。この二次的条件下で芳香族集合体を整列させ  $L_c(002)$  の増加を計り、 $d_{002}$  を減少させて接近させて結晶が成長し易い状態にさせたうえで石墨結晶化作用を進めるのには、高温下の圧密が有利であったと考えられる。このことは、BONJOLY & OBERLIN (1982) が超高压電子顕微鏡像の解析から導いた推論と同主旨である。

### V. ま と め

#### A. 要約結言

以上の資料と考察結果をまとめて結論とすると次のようになる。

石炭及び堆積岩中の分散型石炭化植物片の石炭化度判定には、石炭顕微鏡的手法によることが好ましい。しかし、高石炭化度領域で光学的異方性が現れるので、その地質的意味を吟味せねばならない。

相対的に高い被熱により、 $R_{max}$  は増加する傾向がある。 $R_{bi}$  が増す段階で、さらに高い再被熱を蒙ると  $R_{bi}$  はさらに増加する。その状況を  $R_{max} : R_{bi}$  ダイアグラムに示すと、高温での被熱履歴の概要を探ることができる。

安定した続成的変化の延長での高石炭化作用が進行すると、 $R_{max}$  は層理面と平行方向、 $R_{min}$  はその垂直方向に現れる。 $R_{max}$  増加の過程で構造変形を蒙ると、その変形をもたらした圧力方向に  $R_{min}$  が現れ、光学的二軸性になる。この性質を利用して、古地温環境と構造運動の関係を解析する資料が得られる。

$R_{max}$  がほぼ 3-6% の範囲で X 線回折像が得られる場合は、石墨結晶度の解析を光学的異方性の調査と並行することにより、被熱履歴の内容が検討できるようになるであろう。

$R_{max}$  が 6% 以上の天然高炭素物質の変化は、それまでの石炭化作用における温度・圧力条件下での挙動とは異なり、石墨化作用も加わる。従って、石炭化反応と石墨結晶成長反応とは異なる変化として考えるべきである。

#### B. 今後の問題

堆積岩の続成～変成的変化の調査で、石炭及び分散

型石炭化植物片を対象に、石炭顕微鏡的手法が有効に用いることができる。しかし、高石炭化度領域で発生するRoの光学的異方性については、現在も調査・研究が進行中の段階であるので、未解決の問題が多い。

高石炭化領域の反応要因解明の実験は条件の設定が難しいので、従来からも行われていないし、おそらく今後も暫くは行われないうであろう。従って、現段階では、コークス化、黒鉛化の試験・調査結果などを参考に、自然現象との対応可能な条件を捜して考察を続けねばならない。特に、石墨結晶化と構造変形炭の異方性との関係は、野外地質現象の解析とも合わせて、今後続ける必要がある。

本論で触れた四万十帯の構造変形と石炭化物の光学的異方性との関係は、今後、この地域の地質現象の解析と合わせて進めねばならない。野外地質現象との対応で、関係する諸情報と合わせ考察することにより、問題解決の端緒が見出せると期待できる。

## 文 献

- 相原安津夫 (1979) : 石炭鉱床形成の地球化学, 岩波講座・地球科学, 14, 68-81., 岩波書店
- ・坂井卓 (1983) : 九州四万十帯耳川流域の地質構造と有機変成の形態. 地質学会90年会演旨, 375.
- ・坂井 卓・西 弘嗣・舛場 敬 (1984) 九州四十帯第三系有機変成. 地質学会91年会演旨, 101.
- ・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 (1987) : 北部九州第三紀炭田の統成・埋没被熱の石炭化度調査による解析. 九大研報 (本号)
- AIHARA, A. (1985) : Paleogeothermal influence on organic metamorphism in the Neotectonics of the Japanese Islands. *23rd IASPEI Abstr.* 1, 311.
- AIZAWA, J. (1986) : Characterization of coalification from geological viewpoint. Mas. Thesis, Dept. Geol., Kyushu Univ.
- BONIJOLY, M. & OBERLIN, M. & A. (1982) : A possible mechanism for natural graphite formation. *Int. Jour. Coal Geology*, 1, (4), 283-312.
- BOSTICK, N. (1973) : Time as a factor in thermal metamorphism of phytoclasts (coaly particles). *Compt. Rendu.*, 2, 183-193.
- CHANDRA, D. (1965) : Use of reflectance in evaluating temperature of carbonized or thermally altered coals. *Fuel*, 44, 171-176.
- CHANDRA, D. & BOND, R. L. (1965) : The reflectance of carbonized coal. *Proc. ICCP*, 2, 47-51.
- 千々和一豊・高橋良平・相原安津夫 (1981) : 熊野・田辺両層群中の炭質物の産状と石炭化度変化. 地質学会88年会演旨, 236.
- (1985) : ビトリナイト地質温度計を用いて推定される紀伊半島南東部15~14 Maの古熱流量. 地質学会93年会演旨, 174.
- COOK, A. C., MURCHISON, D. H., & SCOTT, E. (1972) : Optically biaxial anthracitic vitrinite. *Fuel*, 51, 180-184.
- FREY, M., TEICHMÜLLER, M. & R., MULLIS, J., KUNJI, B., BREITSCHMID, A., GRUNER, U., & SCHWEITZER, B. (1980) : Very low grade metamorphism in external part of central Alps: illite crystallinity, coal rank and fluid inclusion data. *Ecol. Geol. Helvet.* 73, (1), 173-203.
- GOODAZI, F. & MURCHISON, D. G. (1972) : Optical properties of carbonized vitrinite. *Fuel*, 51, 322-328.
- HOOD, A. & CSATAÑO, J. R. (1974) : Organic metamorphism: its relationship to petroleum generation and application to studies of authigenic minerals. *U. N. Techn. Bull.* 8, 85-118.
- HOWER, J. C., & DAVIS, A. (1980) : Vitrinite reflectance anisotropy as a tectonic fabric element. *Geology*, 9, (4), 165-168.
- 稲垣道夫 (1978) : 炭素材の微細構造, 石炭の高度利用の基礎研究に関する現状調査, 93-114, 石炭技研.
- ITAYA, T. (1981) : Carbonaceous material in pelitic schists of the Sanbagawa metamorphic belt in central Shikoku, Japan. *Lithos*, 14, 215-224.
- IZAWA, E. (1968) : Carbonaceous matter in some metamorphic rock in Japan. *Jour. Geol. Soc. Japan*, 74, (8), 427-432.
- 勘米良亀齡・坂井 卓・辻 隆司・西 弘嗣 (1983) 日南山地南・東部要地の地質・90地質学会巡検案内書, 23~36.
- KWECINSKA, B. (1980) : Mineralogy of graphite. Prace mineral, 67, *Polska Akad. Nauk. Krakow*, 87p.
- LANDIS, C. A. (1971) : Graphitization of dispersed carbonaceous minerals in metamorphic rocks. *Contr. Mineral. Petrol.* 30, 34-45.
- 牧 真一・永田松三・福田 理・古川俊太郎 (1980) : 宮崎県下の宮崎層群及び四万十帯層群堆積岩の有機物について, 地調月報, 31 (1), 1-24.
- MIZUTANI, S. (1970) : Silica minerals in the early stage of diagenesis. *Sedimentology*, 15, 419-436.
- 靱田 学 (1986) : 宮崎県北部四万十帯諸塚・日向両層群中の炭質物の光学性解析とその地質学的考察・九大地質修論, 手記.
- 持田 勲 (1978) 黒鉛原料としての石炭. 石炭の高度利用の基礎研究に関する現状調査. 75-80, 石炭技研.
- MURCHISON, D. G. (1978) : Optical properties of

- carbonized vitrinite. In KARR, C. (ed.) *Analytical methods for coal and coal products*, 2, 415-464.
- RAGOT, J. P. (1977) : *Contribution a l'etude de l'evolution des substances carbonees dans les formation geologiques*. Diss. Univ. P. Sabatier, Toulouse, 150p.
- 坂井 卓 (1978) : 宮崎県五ヶ瀬川中流域の四万十層群の地質構造と層序・九大理研報, [地質] 13, 27-38.
- ・勘米良亀齡 (1981) : 宮崎県北部四万十帯の層序ならびに緑色岩の層序・構造的位序・九大理研報, [地質] 14, 31-48.
- STONE, I. J. & COOK, A. C. (1977) : The influence of some tectonic structures upon vitrinite reflectance. *Jour. Geol.*, 87, 497-508.
- TAGIRI, M. (1981) : A measurement of the graphitizing-degree by the X-ray powder diffractometer. *Jour. Japan. min. Econ. Geol.*, 76, 345-352.
- TEICHMÜLLER, M. & R. (1979) : Diagenesis of coal (coalification). In LARSEN, G. & CHILINGAR, G. V. (eds.), *Diagenesis in sedimentary rocks*, 207-246, Elsevier.
- TING, J. F. C. (1978) : New techniques for measuring maximum reflectance of vitrinite and dispersed vitrinite in sediments. *Fuel*, 57, 717-721.
- (1981) : Uniaxial and biaxial vitrinite reflectance models and their relationship to paleotectonics. In BROOKS, J. (ed.), *Organic maturation studies and fossil fuel exploration*. 329-392, Academic Press.
- TISSOT, B. P. & WELTE, D. H. (1978) : *Petroleum formation and occurrence*. p. 538, Springer-Ferlag.
- 露口高夫・山路正広・殿浦孝幸 (1981) : コークスの反射率について. コークス・サーキュラー, 30(1) 16-23.
- ・——— (1981) : コークスの反射率について, コークスの bireflectance と石炭性状. コークス・サーキュラー, 30(4), 252-257.