石炭化度のパラメーターに関するいくつかの問題点*

藤井 敬三**・東出 則昭***

(昭和55年9月19日受理)

Some Problems on Parameters of the Degree of Coalification

By

Keizo FUJII and Noriaki HIGASHIDE

Abstract: Parameters as coal rank of Eocene to Oligocene coal samples from Kushiro and Ishikari coal fields in Hokkaido were studied. It is shown that the sporinite fluorescence is superior than vitrinite reflectance as coal rank parameter on the basis of volatile matter content and calorific value.

This is based on the fact that chemical and physical properties of vitrinite is liable to be controlled by the difference of plant materials, paleogeography and diagenesis. On the other hand, spores and pollens were scattered without any connection to the location within the sedimentary basin of coal deposition in the limited area (from Kushiro to Ishikari coal fields) and in short geologic time (from Eocene to Oligocene).

In the course of coalification, the variation of distribution on *n*-alkane occurs at the reflectivity of 0.64-0.71%, the variation of *n*-alkanes content occurs at reflectivity of 0.63-0.64% and CPI value of different maceral changes over the reflectivity of 0.6%.

It is concluded that the diagenesis stage shifts the catagenesis stage over the reflectance from approximately 0.6-0.65%, this is different from the result of Tissot and Welte (1978).

1. ま え が き

石炭化作用の進行の段階に応じて、有機物の物理的、化学的性質は変化する。こうした変化が石炭化度、もしくは有機物の熟成度のパラメーターとして用いられているが、それらの原理は物理的性質、化学的性質および物理・化学的性質の変化にある。

物理的性質を利用するパラメーターとしては、花粉の色の変化 (GUTJAHR, 1966)、ビトリニットの反射率 (VASOEVICH *et al.*, 1969; TEICHMÜLLER, 1971; MCCARTNEY & TEICHMÜLLER, 1972など)、エクジニットの螢光性 (OTTENJANN *et al.*, 1974) などがある。化学的性質を利用するパラメーターとしては、H/C—O/C 原子数比ダイヤグラム法 (VAN KREVELEN, 1961;

TISSOT & WELTE, 1974), CPI 法 (BRAY & EVANS, 1961), NI 法 (PHILIPPI, 1965) などがある。また、物理・化学的性質を利用するものとして、IR スペクトル分析 (TISSOT & WELTE, 1974), 熱重量分析 (TISSOT & WELTE, 1974), ESR ケロゲン法 (PUSEY, 1973) などがある。

しかし、有機物の石炭化度を論ずる際の難しさは、一般にある種の鉱物の場合などのように一定の物理的、化学的性質をもつものが、温度・圧力・時間の変化とともに、その組成が変化していくのではないことにある。つまり、有機物質の場合でも、一定の物理的、化学的組成をもつ原材料物質が続成作用・変成作用のもとでその組成を変えていく場合には、それらの種々の変化を石炭化度のパラメーターとして用いることができる。したがって、有機物の熟成度を求める場合には、その対象の選定が重要である。

そこで、対象物の1つとして石炭が考えられる。石炭は

*昭和55年5月29日、第45回石油技術協会定時総会、地質・探鉱シンポジウムにおける講演

**地質調査所

***シェル石油株式会社

複雑な有機化合物からなるが、反射顕微鏡で観察すると種々の組織成分が識別され、これらの組織成分は特定の根源物質に由来し、ある許容範囲内で化学的、物理的性質は互いに異なっている。

ここでは、釧路・石狩両炭田の石炭を対象として、前述のいくつかのパラメーターの使用実例と組織成分の相異の及ぼす影響について検討してみた。

2. 石炭組織と石炭化度について

2.1 ビトリニット反射率について

ここで用いた試料は釧路炭田地域内の炭鉱から採取されたもので、すべて古第三系漸新世中・下部の浦幌層群に属する。試料採取した夾炭層は下位から春採層・天寧層・雄別層・双運層および尺別層である。

ここで取り扱っている亜歴青炭のような比較的低石炭化度炭の場合、反射率の変化は石炭化度の変化とほぼ1次式の関係にあるといわれてきた(CASTANO & SPARKS, 1974)が、実際の測定値の実験反射率値(1次式)に対するずれの比の標準偏差を求めたところ5.57%となった。

しかし、ビトリニットの反射率は炭田堆積盆の位置に関係し、その位置は石炭組織成分と密接に関連してくる(藤井ほか(1979a)の第2, 3図参照)。一般的にいてデグラディニットの含有量がますと、コリニットの反射率は低くなり、コリニットと思われても多少組織が残っている場合が多く、大きさも小型になる。特にデグラディニットが50%以上になるとコリニットがほとんどなくなり、正確に反射率を求めることが困難になる。堆積環境の面からデグラディニットの含有量は釧路炭田堆積盆の中心部に向うほど多くなる。太平洋炭砒での場合でも、炭田堆積盆の中央部のデグラディニットの多い所では、コリニットの反射率が低く、周辺部のデグラディニットの少ない所ではコリニットの反射率が高いことが報告されている(藤井ほか, 1979b)。これは古環境の相異によるコリニットを生成した原植物の差異や続成作用の差異が、反射率に反映されていると考えられる。したがって、同一石炭化度にあっても、反射率値に差異が生ずる。

2.2 スポリニット、レジニットの蛍光性について

蛍光特性のパラメーターとして、スポリニット、レジニットの個々の最大光度を示すときの波長の平均をもってそれぞれの蛍光波長($\lambda_{\max}$)とした。ビトリニットの反射率の場合と同様の手順で、無水・無灰基での発熱量・揮発分ダイアグラム上にプロットされた試料についてスポリニットの蛍光波長を記した(藤井ほか(1979a)の第4図参照)。ここでも、蛍光波長は石炭化度の変化と

ほぼ1次式の関係にあり、石炭化度がすすむにつれ蛍光波長は長波長にずれる(GIJZEL, 1973)ことを考慮して実験蛍光波長を求めた。実際の測定値の実験蛍光波長値に対するずれ比の標準偏差を計算したところ0.72%となった。つぎに、レジニットの蛍光性についても全く同様の手順で(藤井ほか(1979a)の第5図参照)標準偏差を求めたところ0.9%となった。

一般に、エクジニットグループの蛍光特性を左右する要因として、石炭化度のほかに、スポリニットでは原植物の差異、レジニットでは化学的性質の差異がそれぞれあげられる(GIJZEL, 1973)。しかし、蛍光特性のばらつきの少ないこと、反射率との相関がよいことから、ここでみられる蛍光特性の変化は石炭化度の変化による考えた方が合理的である。結局、エクジニットグループの蛍光性とビトリニットの反射率とを石炭化度のパラメーターとして比較した場合、上述の標準偏差から考えると、スポリニットの蛍光性がパラメーターとしてよりよいといえる。すなわち、狭い地域・時代に限定すれば、ほぼ一様な組成からなる花粉・胞子は堆積盆の位置に関係なく沈積するため、ビトリニットの場合のように、環境による原材料物質のばらつきが少ないためスポリニットの標準偏差がビトリニットよりも1桁小さくなるといえる。また、レジニットは化学的、物理的性質に差異があるので、蛍光性のばらつきが多くなり、石炭化度の指標になりにくいと考えられていた(GIJZEL, 1973)。しかし、ここでの結果から釧路炭田地域という狭い地域で、漸新世中・下部という狭い時代に限定すれば、レジニットの化学的、物理的性質が類似するため、その蛍光性のばらつきが少ないと考えられる。

さらに、このことを検討するために、石狩炭田空知地区の古第三紀始新世から漸新世中期にいたる石狩層群の石炭試料をも含めて、ビトリニットの反射率とスポリニットの蛍光性との関係を調べた。ここで、蛍光性のパラメーターとして最大光度波長($\lambda_{\max}$)のほかに、500nmと650nmにおける相対光度の比、Spectral Qaotinent(Qs)(GIJZEL, 1967)を用いた。反射率とスポリニットの $\lambda_{\max}$ およびQsとの関係は直線的である(東出ほか(1979)の第8, 9図参照)。結局、少なくとも釧路炭田地域から石狩炭田地域、始新世から漸新世という狭い範囲・時代に限れば、反射率と同様にスポリニットの蛍光性は石炭化度のパラメーターとして有効であることがいえる。

2.3 蛍光スペクトルの波形変化について

釧路炭田地域の漸新世中・下部の試料と空知炭田地域の始新世から漸新世中・下部にいたる試料をもとにして、スポリニットの蛍光スペクトルの波形の変化を調べ

第1図 ノルマルパラフィンの分布パターンと CPI 値
反射率との関係図

た(第12図および東出ほか(1979)の第6図参照)。

反射率が0.5~0.65%まで、波形はピークが1つの山形を示し、ピークの位置は反射率が高くなるとともに長波長側に移動する。反射率0.65から0.75%にかけて、より長波長側に第2の小さいピークが現われて成長する。反射率0.8~0.85%では第2のピークの高さが第1のピークと等しくなる。反射率0.85%をこすと、第2のピークがより顕著になり、第1のピークは小さく残存するにすぎなくなる。

このようなスボリニットの蛍光スペクトルの波形の変化を油田地域についても研究する必要があると思われる。

3. ノルマルパラフィンについて

石炭化度の進行にともなうノルマルパラフィンの分布パターンの変化、ノルマルパラフィンの含有量の変化および CPI の変化に関して、組織成分の相異がそれらに及ぼす影響を検討した。すでに、釧路炭田地域において、同一石炭化度にある石炭でも組織成分の差異によりノルマルパラフィンの分布パターン、CPI が異なることは指摘されている(藤井ほか, 1979a)。なお、試料は釧路炭田、石狩炭田空知地区から採取されたものである。

3.1 ノルマルパラフィンの分布パターンの変化について

第1図で、同一の反射率値に対し2つの図形が描かれているが、太線の図形はコリニット、細い線はデグラディニットを相当量(5~44%)含む平均試料で、ともに同一炭層・地点から採取されたものである。この図では同一反射率をもつ組織成分の異なる試料間でのパターンの差異はあまり認められない。反射率の増加にともなうパターンの変化は顕著で、反射率0.58~0.64%までは C_{29} , C_{31} および C_{21} , C_{23} に明瞭なピークがあり、全体としてとげとげしい波形を示す。反射率0.71%以上ではピークの位置が C_{20-25} にあり、なだらかな山形の波形を呈する。

3.2 石炭化度の変化にともなう組織成分の差異によるノルマルパラフィンの含有量について

ここでのノルマルパラフィンの含有量とはガスクロマトグラフによる定量値をいう。反射率の増加にともなうコリニット中のノルマルパラフィンの含有量の変化は、反射率0.63~0.64%のところで含有量が急激に減少し、ついで反射率の増加とともに含有量も増加し、反射率0.78%でピークに達し、反射率0.84%をすぎるとふたたび急激に減少する(第2図)。

デグラディニットを相当量含む平均試料は、反射率0.5~0.6%の間でノルマルパラフィンの含有量にあまり

第2図 ノルマルパラフィンの含有量と反射率との関係図

黒丸印は純粋のコリニット，白丸印は平均試料で，数字はデグラディニットのマセラル総数に対するパーセンテージを示す。互いに線で結ばれた2つの試料は同一炭層，同一地点で採取されたものを意味する。

変化がみられないが，反射率0.63%のところで含有量が激減し，反射率0.63%より増加するにしたがって含有量も増加し，反射率0.73%でピークに達し，反射率の増加とともにふたたび含有量は減少する（第2図参照）。

3.3 石炭化度の変化にともなう組織成分の相異による CPI の変化について

石炭化度の進行にともなう CPI の変化は，デグラディニットを相当量含む平均試料と純粋のコリニットとではかなり異なる。反射率0.6%以下では，平均試料の CPI 値は同一地点，同一炭層で採取したコリニットの CPI 値よりも高い。反射率約0.6%をこえると平均試料の CPI

第3図 CPI 値と反射率との関係図

印，数字そのほかの表示は第5図と同じ。

値は急激に減少し，しかも同一地点，同一炭層に産するコリニットよりも低い CPI 値となる（第3図参照）。

ここで重要なことは，同一石炭化度にある石炭でも組織成分が異なれば CPI 値が異なることである。このことのほかの例としてつぎに三井石炭鉱業㈱の芦別鉱業所のある立入れでの反射率と CPI 値との関係についての

第4図 石炭・頁岩の CPI 値と反射率との関係図

SAMPLE LOCATION	NAME OF COAL BED	Ro, %	CPI VALUE	
			COAL	SHALE
BIBAI FORMATION	TORANOKAWA	0.78	1.3	1.6
	TORASHITA 2 SHAKU			1.4
	TORASHITA 3 JYAKU	0.84	1.3	1.4
WAKKANABE FORMATION	10 BAN	0.83	1.4	1.5
	9 BAN			1.3
	8 BAN	0.84	1.2	1.5
YUBARI FORMATION	F	0.85	1.2	
				1.3
				1.3
HOROKA-BETSU FORMATION	5 BAN JYO			1.2
	5 BAN	0.84	1.1	

べる（第4図参照）。まず反射率は埋没深度が増してもあまり変化がないようにみえるが，このことは前述の堆積環境の相違による反射率値のばらつきが原因していると思われる。しかし，石炭の平均試料および頁岩の CPI 値は埋没深度に応じ減少する。しかも，頁岩中には純粋のコリニットが多く含まれているため，石炭の平均試料の CPI 値に比べ頁岩の CPI 値は常に高い。

このように同一の CPI 値をもつからといって，同一石炭化度を示すものではないことに注意を要する。

4. H/C—O/C ダイアグラムについて

ここでは釧路・石狩炭田の石炭について，H/C—O/C 原子数比ダイアグラム上に，同一地点，同一炭層で採取した平均試料と純粋のコリニットの分析結果を互いに線で結んで示したのが第5図である。これから同一反射率値の方向は，Tissot & Welte (1980) の同ダイアグ

第5図 H/C-O/C 原子数比ダイアグラム上での反射率の分布図

互いに線で結ばれた2つの試料は同一炭層、同一地点で採取されたものを意味する。小数字は反射率、破線上の大数字は TISSOT and WELTE (1978) による。Ha: 春採層, Yu: 雄別層, Te: 天寧層, Sa: 尺別層, Ic: 幾春別層, マセラル (A, V, E) の化学組成変化は VAN KREVELEN (1961) により, ケロジェン(I, II, III) のそれは TISSOT and WELTE (1978) による。

ラム上での反射率0.5%および1.0%の方向とはほぼ調和的であるといえる。

TISSOT & WELTE (1978) によると, H/C-O/C ダイアグラム上でのケロジェンの化学変化と反射率との関係について, ダイアジェネシスからカタジェネシスへ移行するのは, 石炭化度でいえば反射率0.5%に相当する。

しかし, 釧路・石狩炭田の石炭の場合, 反射率約0.6%の位置が TISSOT & WELTE (1978) の反射率0.5%の位置とはほぼ一致する。したがって, ここで問題となるのは, ダイアジェネシスとカタジェネシスとの境界部が何%の反射率値になるかということである。

前述したノルマルパラフィンの解析結果では, その分布パターンの変化が反射率0.64~0.71%間で生じ, 含有量は反射率約0.63%のところで大きく変化している。また, 化学的にエクジニットの性質に近いデグラディニット (藤井ほか, 1978b) を相当量含有する平均試料の CPI 値は, 反射率約0.6%を境として著しく変化する。

これらのことから, ダイアジェネシスからカタジェネシスへの変化は, 反射率おおよそ0.6~0.65%間で生ずると考えられる。すなわち, 釧路・石狩炭田の石炭の場

合, TISSOT & WELTE (1978) の場合と比べ, O/C 原子数比が小さくならないにもかかわらず反射率は高くなっている。この原因については将来の問題としたいが, 日本炭の化学・物理的性質の特殊性を反映していると思われる。しかし, 反射率1.0%の線は釧路・石狩炭田の石炭の結果と TISSOT & WELTE (1978) の結果とはほぼ一致する。

5. 熱重量分析について

石炭化度の変化にともなう熱重量変化を検討するために, 釧路炭田の石炭および石狩炭田の石炭の温度上昇にともなう熱重量減の変化を反射率の増加にしたがって図示した (第6図)。

第6図 熱重量減図

T ナンバーは釧路炭田産, MS および MA ナンバーは石狩炭田空知地域産の試料を意味する。

結果として, 700°Cにおける重量の減少と反射率の増加とは非常に調和的である。しかし, 温度に対する重量減のパターンが釧路炭田の石炭と石狩炭田の石炭の場合とで著しく異なる。特に, 実線で示されたコリニットの分析結果を両炭田について比べると, 300~500°C間において石狩炭田の石炭中のコリニットの重量減が著しいのに対し, 釧路炭田のそれは100°Cから700°Cまではほぼ一定した重量減を示している。一方, 釧路炭田の石炭で

も、破線で示されるデグラディニットを相当量含む平均試料では、300~500°C間における重量減が大きく、石狩炭田の石炭中のコリニットと同様のパターンを示す。また、石狩炭田の石炭の場合は平均試料とコリニットとの熱重量減パターンにはほとんど差異がみられない。

これらの差異を検討するために、H/C—O/C原子数比ダイヤグラムを用いた。

第7図 H/C—O/C 原子数比ダイヤグラム上でのマセラル、クロジェンおよびデグラディニット混合物の関係図

印・略語は第5図と同じ、ただし、Wkは若鍋層を意味する。数字はデグラディニットのマセラル総数に対するパーセンテージを意味する。

第7図中の釧路炭田産の試料のうち4つについて元素分析を行ない、石狩炭田空知地域産の試料はすべて元素分析を行ない、第7図のVAN KREVELEN (1961)のH/C—O/Cダイヤグラムに投影した。

この結果、釧路炭田の石炭中のコリニットは、VAN KREVELEN (1961)のビトリニットグループの下部もしくは下位にプロットされ、デグラディニットを35~40%含む平均試料はビトリニットグループよりやや上位にプロットされる。

石狩炭田の石炭については、純粋のコリニットでもほとんどがビトリニットグループより上位にプロットされる。つまり、石狩炭田の石炭中のコリニットは、化学的にデグラディニットを混在したようなビトリニットであることを暗示している。したがって、石狩炭田の石炭中のコリニットの熱重量減のパターンと釧路炭田のデグラディニットを35~40%含む平均試料の熱重量減パターンとがよく合致するものと思われる。

このことは示差熱分析でも裏づけられ、第8図中の釧路炭田の石炭中のコリニットの分析結果は実線で示されるように、420°C位に発熱ピークがみられるのに対し、石狩炭田の石炭中のコリニットでは300~400°C間中に発熱

第8図 示差熱分析図
サンプル記号は第6図と同じ

ピークがみられる。ところが、釧路炭田の石炭のデグラディニットを35~40%含む平均試料の発熱ピークは破線で示されるように300~400°C間に発熱ピークがみられる。

つまり、石狩炭田の石炭中のコリニットは釧路炭田の石炭中にあるようなコリニットと根拠物質が異なり、化学的にデグラディニットを35~40%含むようなコリニットに由来すると考えられる。

6. 結 論

釧路・石狩両炭田地域の始新世から漸新世にわたる炭層の試料に関し、揮発分・発熱量ダイヤグラムをもとにして、石炭化度のパラメーターとしてビトリニットの反射率とスポリニットの螢光性とを比較してみると、後者の方がすぐれている。これはビトリニットの化学的、物理的性質が古環境や原植物の差異、統成作用の差異に支配されやすいことによる。一方、スポリニットの場合、狭い地域（釧路・石狩炭田地域）、短い時代（始新世—漸新世）に限定すると、原植物の差異が少なく、花粉

・胞子が堆積盆の位置に関係なく沈積するためである。

つぎに、石炭化度の進行に伴うノルマルパラフィンの分布パターンの変化、含有量の変化および CPI 値の変化に関しては、分布パターンの変化は反射率 0.64~0.71% のところで生じ、含有量の変化は反射率 0.63~0.64% のところで急激に変化し、CPI 値は組織成分が異なる場合、反射率 0.6% をこえると異なる値を示す。

これまでのべてきた石炭化度のパラメーターのうち、ビトリニットの反射率、スポリニットの蛍光性、CPI 値などの変化を石炭のランクに対応させてまとめたのが第 9 図である。

第 9 図 石炭化度の各パラメーターの相互関係図

同一試料について、H/C—O/C ダイアグラムにおいて、ダイアジェネシスからカタジェネシスへの移行は TISSOT & WELTE (1978) の場合と異なり、反射率 0.6~0.65% のところで生ずると考えられる。熱重量分析については重量減が石炭化度の進行と調和的である。また、重量減のパターンおよび示差熱分析は原材料物質の evolution path の推定に役立つと思われる。

なお、本稿をまとめるにあたりご教示をいただいた地質調査所福田理石油課長、星野一男博士、佐々木実博士、米谷宏技官、試料作成に関し多大なご助力をいただいた後藤進氏に深く感謝の意を表する。また、本研究に使用した試料の採取には、太平洋炭鉱株式会社釧路鉱業所、三井石炭鉱業株式会社芦別鉱業所・砂川鉱業所の各位のご高配にあずかった。

文 献

- BRAY, E.E. and EVANS, E.D. (1961): Distribution of *n*-paraffins as a clue to recognition of source beds, *Geochim. et Cosmochim. Acta.*, vol. 22, pp. 2-15.
- CASTANO, J.R. and SPARKS, D.M. (1974): Interpretation of vitrinite reflectance measurements in sedimentary rocks and determination of burial history using vitrinite reflectance and authigenic minerals, *Geol. Soc. Amer. Special Pap.*, no. 153, pp. 31-52.
- 藤井敬三・佐々木実・後藤進・東出則昭 (1978): 釧路炭田地域における低石炭化度炭の炭質と石炭組織・ビトリニット反射率との関係, 地質学雑誌, vol. 84, pp. 539-547.
- ・米谷 宏・曾我部正敏・佐々木実・東出則昭 (1979a): 釧路炭田地域における亜歴青炭の石炭岩石学的研究について—釧路沖における石油探査の基礎データとして, 石技誌, vol. 44, pp. 134-143.
- 藤井敬三・佐々木 実・後藤進・曾我部正敏 (1979b): 太平洋炭鉱における炭質の側方変化と炭層の層厚変化との関係, 地調月報, vol. 30, pp. 587-607.
- GIJZEL, P. VAN (1967): Autofluorescence of fossil pollen and spores with special reference to age determination and coalification, *Leid. Geol. Med.*, vol. 40, pp. 263-317.
- , (1973): Polychromatic UV-fluorescence microphotometry of fresh and fossil plant substances, with special reference to the location and identification of dispersed organic material in rocks, *Petrographic Organique et Potential Petrolier* (Ed. by B. ALPERN), pp. 69-71., CNRS, Paris.
- GUTJAHR, C.C.M. (1966): Carbonization of pollen grains and spores and their application. *Leid. Geol. Med.*, vol. 38, pp. 1-30.
- 東出則昭・藤井敬三・佐々木実 (1979): 釧路炭田地域と石狩炭田空知地区におけるビトリニット反射率とエクジニット蛍光特性との関係, 石技誌, vol. 44, pp. 183-189.
- Krevelen, D.W. VAN (1961): *Coal*, 514p., Elsevier, Amsterdam.
- MCCARTNEY, J.T. and TEICHMÜLLER, M. (1972): Classification of coals according to degree of coalification by reflectance of the vitrinite component, *Fuel*, vol. 51, pp. 64-68.
- OTTENJANN, K., TEICHMÜLLER, M. and WOLF, M. (1974): Spektrale Fluoreszenz-Messungen an Sporin-

- iten mit Auflicht-Anregung, eine mikropische Methode zur Bestimmung des Inkohlungsgrades gering inkohlter Kohlen, *Fort. Geol. Rheind. Westf.*, vol. 24, pp. 1-36.
- PHILIPPI, G.T. (1965): On the depth, time and mechanism of petroleum generation, *Geochim. et Cosmochim. Acta*, vol. 29, pp. 1021-1049.
- PUSEY, W.C. (1973): How to evaluate potential gas and oil source rock. *World Oil*, vol. 176, pp. 71-75.
- STACH, E., MACKOWSKY, M.-TH, TEICHMÜLLER, M., TAYLOR, G.H., CHANDRA, D. and TEICHMÜLLER, R. (1975): *Coal Petrology*, 428p., Gebruder Borntraeger, Berlin, Stuttgart.
- TISSOT, B., DURAND, B., ESPITALIE, J. and COMBAZ, A. (1974): Influence of nature and diagenesis of organic matter in formation of petroleum, *Amer. Assoc. Petro. Geol. Bull.*, vol. 58, pp. 499-506.
- and WELTE, D.H. (1978): *Petroleum formation and occurrence*, 538p. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York.
- TEICHMÜLLER, M. (1971): Anwendung kohlenpetrographischer Methoden bei der Erdöl- und Erdgasprospekten. *Erdöl u. Kohle*, vol. 24, pp. 69-76.
- VASSOEVICH, N.B., KORCHAGINA, YU. I., LOPATIN, N.V. and CHERNYSHEV, V.V. (1969): Principal phase of oil formation, *Moscov. Univ. Vestnik*. vol. 6, pp. 3-27., *Internat. Geol. Review*, vol. 12, pp. 1276-1296 (1970).