原 著 論 文

太平洋炭鉱におけるビトリニット反射率と石炭組織成分との
関係について

藤井敬三* ・ 山崎純夫**

正田浩司** ・ 佐々木実*

(昭和56年10月16日受理)

**The relationship between vitrinite reflectance and maceral component
at the Taiheiyō coal mine, Hokkaido, Japan**

By

Keizo FUJII, Sumio YAMAZAKI, Koji SHODA and Minoru SASAKI

Abstract The vertical and lateral changes of vitrinite reflectance, sporinite fluorescence and maceral content were studied concerning the Honso coal seam of the Harutori coal-bearing formation at the Taiheiyō coal mine. There is inverse correlation between vitrinite reflectance and degradinite content.

That is to say, concerning the lateral change of vitrinite reflectance, vitrinite reflectance shows low at the center of the coal basin where degradinite content is high, but it is gradually getting higher and higher toward the margin of the basin while degradinite content is getting lower and lower. Concerning the vertical change of vitrinite reflectance has also inverse correlation with degradinite content. That is to say, vitrinite reflectance shows high when degradinite content is low, while on the other hand vitrinite reflectance shows low when degradinite content is high.

Contrary to the case of vitrinite reflectance, sporinite fluorescence does not show any definite correlation with vitrinite reflectance and degradinite content respectively.

As a result, the lateral variation of maceral component is supposed to represent the difference of plant communities which are closely associated with physical and chemical properties of vitrinite producing effect on vitrinite reflectance. Near the margin of the original swamp of the coal basin, trees and shrub were rich in woody tissue which were transformed to be vitrinite showing high reflectance after undergoing coalification. On the other hand, near the center of the swamp reed plants poor in lignin were dominated, which were transformed to be vitrinite showing low reflectance.

On the other hand, nearly similar assemblage of spores and pollens were supposed to be distributed in swamp irrespective of depositional environment, because they mingled and spread while flying in the air. In spite of the fact that sporinite fluorescence depends upon types of spores and pollens, sporinite fluorescence shows nearly same within certain limited geologic time and area.

In that sense, sporinite fluorescence is more reliable parameter as coalification degree rather than vitrinite reflectance.

1. は し が き

有機物は、石炭化作用の進行に応じ、その物理的・化学的性質が変化する。しかし、有機物は、一般に、ある

種の鉱物の場合と異なり、違った物理的・化学的性質をもつ原材料物質の性質が温度・圧力・時間の変化とともに変化していく。したがって石炭化度を決めるために種々の性質の変化を利用している。これらのうちビトリニット反射率が石炭化度のもっとも標準的なパラメータとして一般化されている。

* 地質調査所燃料部

** 早稲田大学理工学部

すなわち、HOFFMAN and JENKNER (1932) が、石炭の石炭化度が進むにつれ、ビトリニット反射率が増すことを始めて指摘して以来、炭質と石炭化作用との関係を明らかにするために反射率をパラメーターとして用い、SEYLER (1952), HUNTJENS and KREVELEN (1954), BROADBENT and SHAW (1955), KÖTTER (1960), PATTEISKY and TEICHMÜLLER (1960), TEICHMÜLLER, M. and TEICHMÜLLER, R. (1967) らにより石炭化度のパラメーターとしてのビトリニット反射率の有効性が論じられてきた。

近年、石炭化作用と石油及び天然ガス生成との間に密接な関係があることが指摘され、埋没深度が増すとともに、ビトリニット反射率が高くなることが報告され (VASOYEVICH et al., 1969; TEICHMÜLLER, 1971; HACQUEBARD and DONALDSON, 1974; DOW, 1977; 相原, 1979 など多数), ビトリニット反射率は石油探査の際に欠くことのできないパラメーターの一つになっている。

しかし、SIEVER (1957) は、同一の塊状石炭内でビトリニット反射率が異なることを述べ、その原因はビトリニットが異なった性質の植物に由来するため同一の化学組成をもたぬためとしている。また、BROWN et al. (1964) は、高揮発分ないし中揮発分の歴青炭に関して同一炭層内、つまり同一石炭化度にあっても少なくともビトリニットには A, B 型の 2 種類があり、A 型のものは層をなし、固有の植物組織をもっているのに対し、B 型のものは他のマセラルと共存し、デグラディニットと深く関係していると思われることをのべ、さらに、A 型のビトリニットは B 型のそれに比べ、反射率が高く、揮発分及び水素含有量ともに低いことを述べている。

さらに、McCARTNEY and TEICHMÜLLER (1972), HACQUEBARD and DONALDSON (1974) らにより、反射率が 0.7% 以下の低石炭化度の褐炭、亜歴青炭にあっては反射率のばらつきがはげしく、石炭化度のパラメーターとして反射率はよくないことが指摘されている。また、藤井ほか (1979) は太平洋炭鉱において春採夾炭層本層炭のビトリニット反射率の水平的変化を調べ、その変化を古環境の相違に基づく原植物の差異がビトリニットの物理・化学的性質に影響を及ぼしたためと推定した。

最近、HUTTON and COOK (1980) はアルギニットの含有量が増すとビトリニット反射率が減ずることをのべ、その原因としてアルギニット中のパラフィン系の成分がビトリニット中に拡散したためであろうと述べている。

このように、ビトリニット反射率が石炭化度のパラメーターとして有効であるかどうか詳しく検討する必要性

が生じてきている。一方、スポリニットの蛍光特性 (STACH et al., 1975; OTTENJANN et al., 1974) がビトリニット反射率に比べ石炭化度のパラメーターとして良好である結果が得られている (東出ほか, 1979; 藤井ほか, 1980)。ここではこうした考察をさらに進めるために、太平洋炭鉱において、同一炭層内におけるビトリニット反射率の水平的、特に垂直的变化について検討し、併せて、スポリニットの蛍光特性及び石炭組織成分の垂直的变化を調べ、石炭化度のパラメーターとしてのビトリニット反射率及びスポリニット蛍光特性の有効性を検討した。

2. 試料採取位置について

試料は北海道の太平洋炭鉱の古第三紀浦幌層群の春採夾炭層本層炭から採取された。春採夾炭層本層炭は、北西—南東方向の走向で、南西へ 4~5° のほぼ一様の同斜傾斜をなし、傾斜の変換点はみられず、最大層厚部が約 3 m で、3 km につき約 1 m の割合で周辺に向かって薄化する堆積盆を形成している。炭層内の諸性質の垂直的变化を知るためにこの堆積盆のほぼ中心部 (層厚は 290 cm) と周辺部 (層厚は 174 cm) の 2 地点から、それぞれ 4 cm ごとに柱状試料を得た。この結果、堆積のほぼ中心部 (試料採取地点 No. 1) で 72 個、周辺部 (試料採取地点 No. 2) で 44 個の試料が得られた (第 1 図参照)。ただし、炭質頁岩に近い粗黒炭は対象外とした。

馬淵 (1962), 岡崎 (1966), 佐藤 (1967) によれば、春採夾炭層本層炭の最大埋没深度は 2~3000 m と推定される。したがって、それぞれの採取地点での本層炭の層厚は 2~3 m にすぎないので、層間内における埋没深度の差異による温度・圧力・時間などの物理・化学的条件の差異は無視でき、層間内の各試料は同一石炭化度にあると考えて差支えない。

つぎに炭層の諸性質の水平的変化を調べるため、藤井ほか (1979) が使用した試料に、新たに 7 個を加え、合計 31 個の試料を用いた (第 4 図参照)。

3. 諸分析結果について

蛍光特性の測定結果は 365 nm の励起された単色光をスポリニットに当てた時に発する蛍光の最大光度を示す時の波長、 $\lambda_{\max}$ を 30 個測定し、その平均値をもって表示した (東出ほか, 1979)。東出ほか (1979) によると、 $\lambda_{\max}$ の変化 12.3 nm が反射率 0.1% の変化に相当するので、この対応関係に基づいて、 $\lambda_{\max}$ と反射率のスケール幅が相対応するように図示した (第 2, 3 図参照)。石炭組織成分の分析結果はデグラディニットの含有量をもって表示した。この理由は、北海道内の他炭田の場合と同じ

第1図 春採夾炭層本層炭の等層厚線図
 図中のNo. 1 及びNo. 2 は柱状試料採取地点

く、当炭田の組織成分はコリニット、テリニット及びデグラディニットの合計が95%以上をしめ、スポリニット、レジニットなどエクジニット・グループの合計は3%以下であり、スクレロチニットなどのイナーチニット・グループは2%以下にすぎない。したがって組織成分の特徴はコリニット、テリニット及びデグラディニットで代表でき、また前2者の物理的・化学的性質はデグラディニットのそれと著しく異なり(藤井ほか, 1978), デグラディニットはケロジエンの type II の性質(藤井ほか, 1979)を示すので、デグラディニットの含有量をもって石炭組織成分の特徴を示すことにした。

1) ビトリニットの反射率とスポリニットの $\lambda_{\max}$ の垂直的变化について

No. 1 地点の試料では、第2図のごとく、ビトリニット反射率は0.553~0.663%まで変化し、平均値は0.62%で、標準偏差 σ は0.027%であった。一方スポリニットの $\lambda_{\max}$ は516.60~520.56 nmまで変化し、その平均値は518.90 nmで、反射率に換算し標準偏差を求めると0.0079%となった。

No. 2 地点では、第3図のごとくビトリニットの反射率は0.519%から0.697%まで変化し、平均値は0.65%で

標準偏差は0.038%であった。一方スポリニットの $\lambda_{\max}$ は513.60~520.0 nmまで変化し、平均値は517.30 nmで、その標準偏差は反射率に換算して0.0129%であった。

第2, 3図にみられるようなビトリニットの反射率及びスポリニットの $\lambda_{\max}$ の垂直的变化を堆積盆の埋没深度の変化に帰することはできない。何故ならば、わずか2~3 mの炭層内にあっては、反射率及び $\lambda_{\max}$ の値はそれぞれの地点での最大埋没深度に達した時の値を示すはずで、当然それぞれの地点での各試料の反射率及び $\lambda_{\max}$ の値は等しいはずである。

しかし、反射率及び $\lambda_{\max}$ の垂直的变化の原因を求めることは難しいが、ビトリニットの反射率の変化はビトリニットの化学的・物理的性質が一樣でないことを反映し、それを構成している原植物の木質部の非一様性によると考えられる(藤井・東出, 1980)。ただし、HUTTON and COOK (1980)によるとアルギニットの脂肪族炭化水素のビトリニットへの拡散によりビトリニットの反射率が低下するという考え方もあり、こうした考え方にしたとすると、デグラディニットはビトリニット(コリニット・テリニット)に比べ脂肪族炭化水素にとむので(藤

井・東出, 1980), デグラディニット中の脂肪族炭化水素がビトリニット中に拡散し, ビトリニットの反射率が低下することが考えられる。しかし, No. 1 と No. 2 の両地点において, 第5図と第6図とを比較すればわかるように同一デグラディニット含有量を示す試料のビトリニット反射率が異なり, デグラディニット含有量に対する反射率の変化の勾配も異なることから, こうした考え方に賛成し難いが, 今後の問題である。

スポリニットの $\lambda_{\max}$ の変化の原因はスポリニットを構成する花粉・胞子の種属のばらつきを反映していると考えられる (GIJZEL, 1973)。

ビトリニット反射率及びスポリニットの $\lambda_{\max}$ の垂直的变化の標準偏差を比べたかぎりでは, $\lambda_{\max}$ の標準偏差は反射率のその1/3にすぎないことから, 石炭化度のパ

第2図 No.1 地点におけるスポリニットの蛍光特性, ビトリニットの反射率及びデグラディニットの含有量の垂直的变化

第3図 No.2 地点におけるスポリニットの蛍光特性, ビトリニットの反射率及びデグラディニットの含有量の垂直的变化

ラメーターとしてスポリニットの $\lambda_{\max}$ の方がビトリニット反射率より優れていることがいえる。

2) ビトリニット反射率とスポリニットの $\lambda_{\max}$ の水平的変化について

ビトリニット反射率について, 本層炭の堆積盆の中心部では0.62%であるのに対し, 周辺部では0.66~0.60%であった (第4図参照)。一方, スポリニットの $\lambda_{\max}$ はわずか2点の測定にすぎないが, 堆積盆の中心部 (No. 1 地点) で518.90 nmであり, 周辺部 (No. 2 地点) で517.30 nm であった。

堆積盆の中心部 (No. 1 地点) と周辺部 (No. 2 地点) とでは, 反射率の差は0.029%である。 $\lambda_{\max}$ の差は1.6 nmにすぎなく, 反射率に換算すると0.01%に相当する。 $\lambda_{\max}$ の水平的変化は反射率のそれに比べて小さいことがわかる。

3) 石炭組織成分の水平的・垂直的变化について

第5図のごとく炭田堆積盆の中央部ではデグラディニットの含有量が多く, 周辺部にむかって含有量は減ずる。逆にいうと周辺部に向ってテリニット・コリニットが増加する。これらの関係は植生の差異を反映し, 堆積盆の中央部では堆積面が水面よりやや低い水浸状態の湿原で草本類が多く, 堆積盆の周辺部では堆積面が水面すれすれもしくはやや水面より高い湿潤ないし乾燥状態で樹木類が生育していたと推定される (佐々木, 1967 :

第4図 ビトリニット反射率の水平的変化（図中の黒丸印は平均試料採取地点を示す）

第5図 デグラディニット含有量の水平的変化

STACH et al., 1975: 藤井ほか, 1979)。すなわち、炭田堆積盆の中心部では木質部を形成する樹木類の発達が悪いのに対し、周辺部では木質部を形成する樹木類の発達がよく、この植生の差異がビトリニット反射率の差異に反映していると思われる。

つぎに、No. 1 及び No. 2 地点におけるデグラディニット含有量の垂直的变化（第2, 3 図参照）は、その含有量の多い時は湿原の拡大、逆に含有量の少ない時は湿原の縮少を反映していると考えられる。

4) ビトリニット反射率及び $\lambda_{\max}$ とデグラディニットとの関係について

No. 1 及び No. 2 地点での測定結果からビトリニット反射率及び $\lambda_{\max}$ とデグラディニット含有量との関係について考察した。

第6図 No. 1 地点におけるデグラディニット含有量とビトリニット反射率及びスポリニットの蛍光特性との関係図

まず、No. 1 地点で、ビトリニット反射率の変化とデグラディニットの変化との関係は第6図下部のごとく、反射率はデグラディニット含有量が増加するにしたがって低下する負の相関を示し、相関係数は -0.632 であっ

た。一方、 $\lambda_{\max}$ の変化とデグラディニット含有量の変化の関係は第6図上部のごとく、 $\lambda_{\max}$ はデグラディニット含有量にあまり関係なく、比較的一定した値をとり、相関係数を求めたところ 0.126 であった。

第7図 No. 2 地点におけるデグラディニット含有量とビトリニット反射率及びスポリニットの蛍光特性との関係図

No. 2 地点では、ビトリニット反射率とデグラディニット含有量との関係は、第7図のごとく、反射率値はNo. 1 地点の場合と同様にデグラディニット含有量が増加するにしたがって減少する負の相関を示し、相関係数を求めたところ -0.791 であった。一方、 $\lambda_{\max}$ とデグラディニット含有量との関係は、ほとんど相関関係が認められず、相関係数は 0.223 であった。

以上のことから石油探査の際に、反射率を単に石炭化度のパラメーターとして用いるばかりでなく、古環境を指示するパラメーターとしても考えることができる。すなわち、石炭化度としての反射率の変化の一般的傾向に比べ、ある深度間で比較的低い反射率を示す場合、その間の古環境としてケロジェンの type II (藤井ほか, 1980), あるいは type I (HUTTON and COOK, 1980) が豊富に存在する可能性を暗示する。

4. 結 論

ビトリニット反射率の有効性を検討するため、太平洋

炭鉱の春採夾炭層本層炭についてビトリニット反射率、スポリニットの蛍光特性及び石炭組織成分の水平的、垂直的变化を検討した。

ビトリニット反射率は、デグラディニット含有量と深い関係をもち、水平的にみると炭田堆積盆の中心部ではビトリニット反射率が低く、デグラディニット含有量が高い。一方、堆積盆の周辺部にむかってビトリニット反射率が高く、デグラディニット含有量が低くなる。しかしスポリニットの蛍光特性は堆積盆の中心部と周辺部においてあまり差異が認められない。

つぎに、炭田堆積盆の中心部と周辺部との2地点において、炭層内のビトリニット反射率、スポリニットの蛍光特性及び石炭組織成分の垂直的变化については、ビトリニット反射率と石炭組織成分とはよく調和し、デグラディニット含有量が低いとビトリニット反射率は高い値を示し、デグラディニット含有量が高いと逆に反射率は低い値を示す。

スポリニットの蛍光特性はビトリニット反射率及び石炭組織成分とほとんど相関関係がない。この原因として、スポリニットを構成する花粉や孢子は空気中に飛散し、埋積するため古環境には支配されないと考えられる。スポリニットの蛍光特性を決定する要因として、石炭化度によるものと花粉・孢子の種属の違いによるものがあるが、太平洋炭鉱のように狭い地域、春採夾炭層という短い地質時代にあっては花粉・孢子の種属は比較的類似しているため、結果として地域的なスポリニットの蛍光特性の差異は少ないと結論できる。このことは少なくとも、比較的狭い範囲、限られた地質時代間において、スポリニットの蛍光特性はビトリニット反射率に比べ、石炭化度のよいパラメーターとなりうることを暗示している(東出ほか, 1979)。

最後に、石油の探査に際し、反射率が平均的なトレンドに比べ低い値を示す場合、原地性の有機物はtype IIのケロジェンに酷似すると考えられるデグラディニット(藤井ほか, 1979), またはtype Iのケロジェンに属するアルギニット(HUTTON and COOK, 1980)が豊富に存在することを暗示する。こうした意味から、反射率を単に石炭化度のパラメーターとしてのみ評価せず、ケロジェンのtype予測に役立つパラメーターとして見直す必要があろう。

謝 辞

本稿執筆にあたり、有益な助言と討議をいただいた地質調査所佐藤燃料部長、また、実験・測定に協力を惜しまれなかった同所後藤技官に深く感謝する。

文 献

- 相原安津夫(1979): 北海道第三系・上部白亜系の有機変成と石油の熟成。石油技協誌, **44**, 124-133.
- BROADBENT, S.R. and SHAW, A.J.(1955): Reflectance of coal. *Fuel*, **34**, 385-403.
- BROWN, H.R., COOK, A.C. and TAYLOR, G.H.(1964): Variations in the properties of vitrinite in isometa-morphic coal. *Fuel*, **43**, 111-124.
- DOW, W.G. (1977): Kerogen studies and geological interpretations. *Journ. Geochem. Explor.* **7**, 79-99.
- 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, **84**, 539-547.
- ・——・曾我部正敏(1979): 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について。地調月報, **30**, 587-607.
- ・東出則昭(1980): 石炭化度のパラメーターに関するいくつかの問題点。石油技協誌, **45**, 345-352.
- GIJZEL, P. VAN(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), 69-71., CNRS, Paris.
- HACQUEBARD, P.A. and DONALDSON, J.R. (1974): Rank studies of coals in the Rocky Mountains and Inner Foothills Belt. *Geol. Soc. Amer., Spec. Paper*, no. 153, 75-94.
- 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。石油技協誌, **44**, 183-189.
- HOFFMANN, E. and JENKNER, A. (1932): Die Inkohlung und ihre Erkennung im Mikrobild. *Gluckauf*, **68**, 81-88.
- HUNTJENS, F.J. and VAN KREVELLEN, D.W. (1954): Chemical and physical property of coal II—Reflectance. *Fuel*, **33**, 88-103.
- HUTTON, A.C. and COOK, A.C. (1980): Influence of alginite on the reflectance of vitrinite from Joadja, NSW, and some other coals and oil shales containing alginite. *Fuel*, **59**, 711-714.
- KÖTTER, K. (1960): Die mikroskopische Reflexionsmessung mit dem Photomultiplier und ihre Anwendung auf die Kohlenuntersuchung. *Brennst. Chemie*, **41**,

- 263-272.
- 馬淵精一(1962): 釧路炭田古第三系に関する堆積並びに造構造史的考察. 42p., 北海道鉱業振興協会, 北海道.
- MCCARTNEY, J.T. and TEICHMÜLLER, M. (1972): Classification of coals according to degree of coalification by reflectance of the vitrinite component. *Fuel*, **51**, 64-68.
- 岡崎由夫(1966): 釧路の地質. 326p., 釧路叢書, 第7巻.
- OTTENJANN, K., TEICHMÜLLER, M. and WOLF, M. (1974): Spektrale Fluoreszenz-messungen an Sporiniten mit Aufsicht-auregung, eine mikroskopische Methode zur Bestimmung des inkohlungsgrades gering inkohlter Kohlen. *Fortsch. Geol. Rheind. Westf.*, **24**, 1-36.
- PATEISKY, K. und TEICHMÜLLER, M. (1960): Inkohlungs-verlauf, Inkohlungs-mastäbe und Klassifikation der Kohlen auf Grund von Vitrinit-analysis. *Brennst. Chemie*, **41**, 79-84.
- 佐々木 実(1967): 石炭組織からみた常磐炭田における炭質の相違と炭層の生成. 燃協誌, **46**, 864-871.
- 佐藤 茂(1967): 釧路炭田地質構造発達史. 佐々保雄教授還暦記念論文集, 441-451.
- SEYLER, C.A. (1952): Characteristic petrological components of coal. *Fuel*, **31**, 159-170.
- SIEVER, P. (1957): Variation in coal reflectance. *Circ. 111. Geol. Surv.*, no. 241, 1-11.
- STACH, E., MACKOWSKY, M.-Th., TEICHMÜLLER, M., TAYLOR, G.H., CHANDRA, D. and TEICHMÜLLER, R. (1975): *Coal petrology*. 428p., Gebrüder Borntraeger, Berlin, Stuttgart.
- TEICHMÜLLER, M. and TEICHMÜLLER, R. (1967): Diagenesis of coal(Coalification). In LARSEN, G. and CHILINGAR, G.V. (eds): *Diagenesis in sediments*, 391-415, Elsevier, Amsterdam-London-New York.
- (1971): Anwendung kohlenpetrographischer Methoden bei Erdöl und Erdgasprospektion. *Erdöl und Kohle*, **24**, 67-76.
- VASSOYEVICH, N.B., KORCHAGINA, Y.I., LOPATIN, N.Y. and CHERNYSHEV, V.V. (1969): Principal phase of oil formation. *Internat. Geol. Review*, 1970, **12**, 1276-1296.