

デグラディニットの石炭岩石学的位置づけと 化学的・物理的性質について

藤井敬三*・鈴木祐一郎**

Petrological study and physico-chemical properties of degradinite

Keizo FUJII* and Yuichiro SUZUKI**

Abstract

Degradinite is not classified as an independent maceral, but it is considered to be a variety of the vitrinite group (Stach et al., 1982).

Degradinite is finely dispersed and characterized by lower reflectivity, more colorful fluorescence, higher H/C atomic ratio, higher alkane content, higher calorific value, volatile matter content and maximum fluidity compared with other vitrinite macerals. It would be logical to classify degradinite as liptodetrinite in the exinite group of the vitrinite maceral group.

Key words: maceral, degradinite, liptodetrinite

1. まえがき

デグラディニットはビトリニットの根源である植物の木質部が微細に崩壊した物に由来すると考えられ、JISM8816ではマセラルとして規定されているが、国際分類ではマセラルとして認められていない (International Committee for Coal Petrology (ICCP), 1971). Stach et al. (1982) はデグラディニットをsubmaceralとして認めているが、その定義が曖昧であり、desmocolliniteと同じものとしてみなしているような表現を用いている。また、マセラルは原則として単一の石炭組織成分として規定されている。しかし、デグラディニットは複数の組織成分の集合体からなるために、原則として複数の組

織成分の量比で規定される microlithotype の一種として位置づけられるもので、マセラルでないとみなす人もいる (高橋, 1991)。

そこでこの小論で筆者らはデグラディニットをマセラルとみなして、その石炭岩石学的な位置づけと化学的・物理的性質を考察してみた。

2. 石炭試料と分析・測定

石炭試料は、三池炭鉱、高島炭鉱、池島炭鉱、幌内炭鉱、雄別炭鉱及び太平洋炭鉱で採取された。

三池炭鉱では、上部始新世の万田層群に属する勝立層中の厚さ172cmの第2上層炭より、約20cmの間隔で10個の試料を採取した。高島炭鉱では、上部

* 静岡大学教育学部地学教室

Institute of Geosciences, Faculty of Education, Shizuoka University, Shizuoka 422, Japan.

** 地質調査所

Geological Survey of Japan, Ibaraki 305, Japan.

始新世の高島層群に属する端島夾炭層中の厚さ190 cmの磐砥層より、5 cmの間隔で38個の連続柱状試料をとり、石炭組織分析を行い、そのうちから組織成分が適当にばらつくように11個の試料を用いた。池島炭鉱では、下部漸新世の伊王島層群に属する崎戸夾炭層中の厚さ160 cmの18尺層より高島炭鉱の場合と同様にして11個の試料を用いた。幌内炭鉱では、上部始新世の石狩層群に属する幾春別層中の厚さ95 cmの1番層より、15 cmの間隔で7個の試料を用いた。雄別炭鉱では、上部漸新世の浦幌層群に属する雄別層群の厚さ6 mの炭層が間に2 mの合盤をはさみ上層と本層とに分かれているが、それぞれより2個ずつ、計4個の試料を採取した。太平洋炭鉱では下部漸新世の浦幌層群に属する厚さ280 cmの春採夾炭層本層より高島炭鉱の場合と同様に10個の試料を用いた。

これら各炭層の埋没深度は三池炭鉱、高島炭鉱、池島炭鉱の場合で少なくとも2800 mに達すると推定され、幌内炭鉱では4000 m、雄別炭鉱及び太平洋炭鉱で2000 m以上と推定される(沢田, 1958; 水野, 1962a, 1962b; 下河原, 1963; Geological Survey of Japan, 1977; 嘉村, 1982)。

したがって、各炭層の層厚は6 m以下にすぎないので、各炭層における石炭試料間での埋没深度の差異による温度、圧力、地質学的時間などの物理・化学的条件の差異は無視でき、各炭層内の試料群は、同一石炭化度にあるとみなせる。

各炭鉱の石炭試料について石炭組織分析、工業分析、ビトリニット反射率、スポリニット蛍光性測定を行った。池島炭鉱の試料については前記分析及び測定の外に元素分析、NMRによる芳香族炭素分率(fa)及びギーセラー流動度を求めた。なお、筆者らがデグラディニットとしたものは2ミクロン以下の暗灰色の微細な組織の集合体で、木質部や藻類などの破片よりなると思われるが、励起した蛍光を落射すると2次蛍光を発する。2ミクロン以上より10ミクロン程度の葉片状で、2次蛍光を殆ど発しない灰色のコリニットをdesmocolliniteとみなした。

各石炭試料のJISM8816による石炭組織分析の結果では、97%以上がビトリニット・グループからなり、エクジニット・グループ及びイナーチニット・

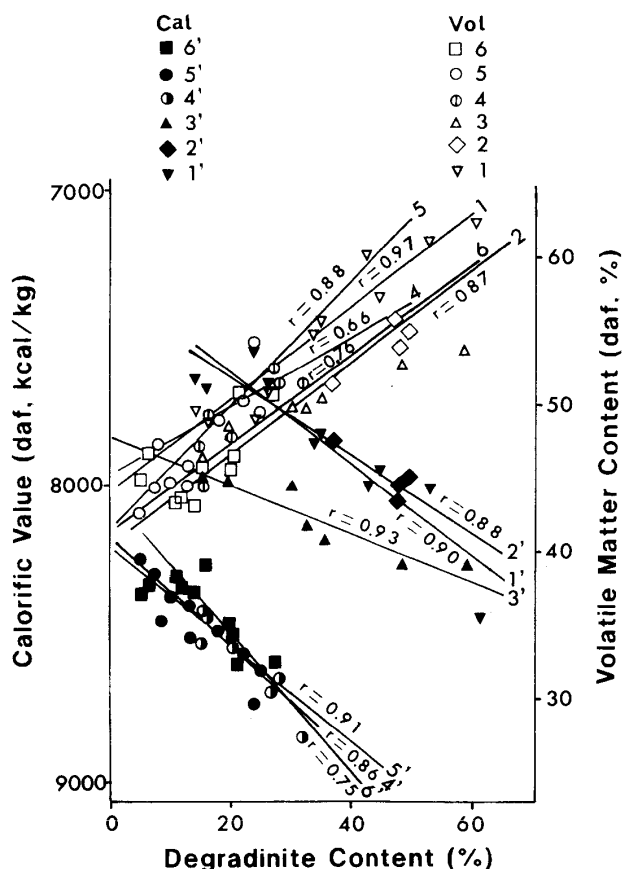
グループは3%以下しか含まれていない。したがって、これら石炭試料の物理的・化学的性質はビトリニット・グループのマセラルの性質とそれらの含有量とで決まるといえる。ビトリニット・グループに属するマセラルはテリニット、コリニット(International Committee for Coal Petrology (ICCP) (1971) 及び Stach et al. (1982) による telocollinite, gelocollinite, desmocollinite 及び corpocolliniteを一括したもの)及びデグラディニットからなる。デグラディニットの含有量は60%にも及ぶが、顕微鏡下の視野において100%デグラディニットからなる試料は見あたらなかった。なお、反射率測定は一つの研磨試料についてtelocolliniteの反射率を測定し、その平均値をもってその試料の反射率値とした。スポリニット蛍光性は、365 nmの励起光線の照射により発したスポリニットの蛍光を Ottenjann et al. (1974) の手順に従って、400 nmより700 nmまで分光し、各分光光度の最大光度を示す時の最大光度波長(λ_{max})を測定した。

3. デグラディニットの諸性質の考察

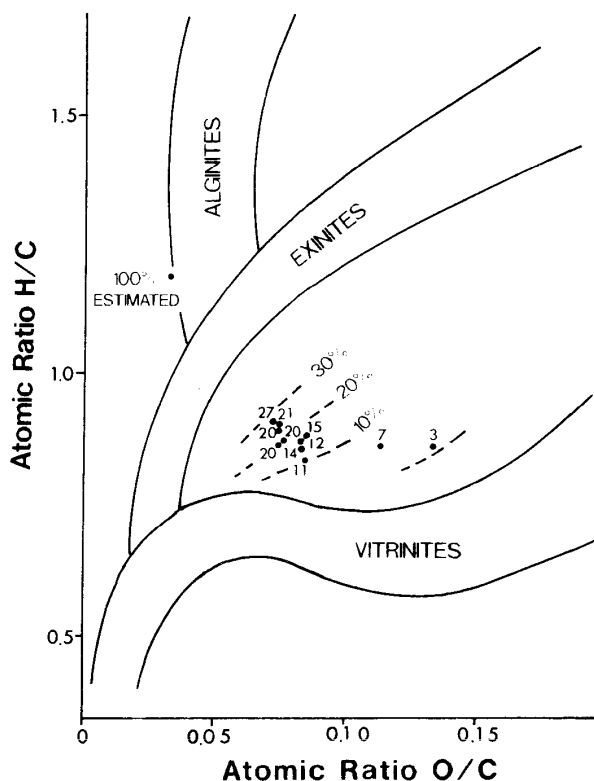
3・1 デグラディニットと発熱量・揮発分との関係

第1図の左側の縦軸と横軸はデグラディニットと発熱量との関係を示す図であり、右側の縦軸と横軸は揮発分とデグラディニットとの関係を示す。凡例の1より6の数字は揮発分を、1'より6'の数字は発熱量をそれぞれ指示し、1は太平洋炭鉱、2は雄別炭鉱、3は幌内炭鉱、4は三池炭鉱、5は高島炭鉱、6は池島炭鉱の試料を意味する。rは相関係数を意味する(以下の図において共通する)。

まずデグラディニットと発熱量との関係を見ると、各炭鉱の試料群についてデグラディニット含有量が増加するにつれ、発熱量が増加し、その相関係数も高いことが分かる。つぎにデグラディニットと揮発分との関係を見るとデグラディニット含有量が増加するにつれ、揮発分が増加することが分かる。また、第5図の各炭鉱の試料群間での反射率値の変化を参考にすると、試料群間の発熱量は石炭化度に関係し、試料群の反射率の上昇とともに試料群の発熱量が増



第1図 デグラディニット含有量と発熱量・揮発分との関係図



第2図 H/C-O/C原子数比ダイヤグラム上へのデグラディニット含有量をプロットした図

加する。しかし、試料群の揮発分は石炭化度に殆ど関係しないことが分かる。この図からみられる限り揮発分の変動幅はデグラディニットの含有量に大きく関係している。

3・2 デグラディニットの化学的性質

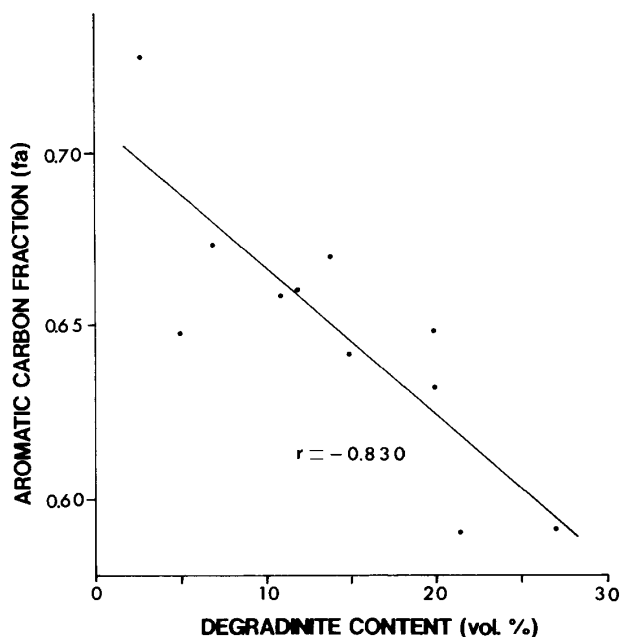
3・2・1 H/C-O/C原子数比ダイヤグラム (van Krevelen, 1961)

第2図は池島炭鉱の試料の元素分析の結果をH/C-O/C原子数比ダイヤグラム上にプロットしたもので、数字はデグラディニット含有量(%)を示す。この図から、デグラディニット含有量が増加するにつれ、O/C原子数比が減少し、H/C原子数比が少しずつ増加するという傾向がよみとれる。デグラディニットは微細な粒子の集合体からなるため、通常、International Committee for Coal Petyrology (ICCP) (1971) と Stach et al. (1982)

によるビトリニットに属する細い telocollinite, telinite, desmocollinite, とエクジニット及びビナーチニットと共存し、デグラディニットのみを単離することは難しい。そこで、この図上でのデグラディニット含有量の増加にともなうH/C-O/C原子数比の変化より、デグラディニットが100%になるとした場合のH/C, O/C原子数比を推定し、プロットしたのが100%estimatedと書いた黒丸印である。したがって、デグラディニット単体の化学的性質はエクジニット・グループのものと同様であると予想される。このことは、藤井ほか (1982a, 1982b) により太平洋炭鉱及び高島炭鉱において同様の結果が得られている。

3・2・2 芳香族炭素指数 (fa)

池島炭鉱の試料を用いて、デグラディニットの化学的性質を調べる目的で、¹³C-NMRスペクトル分析により、芳香族の全炭素量に対する割合、芳香族



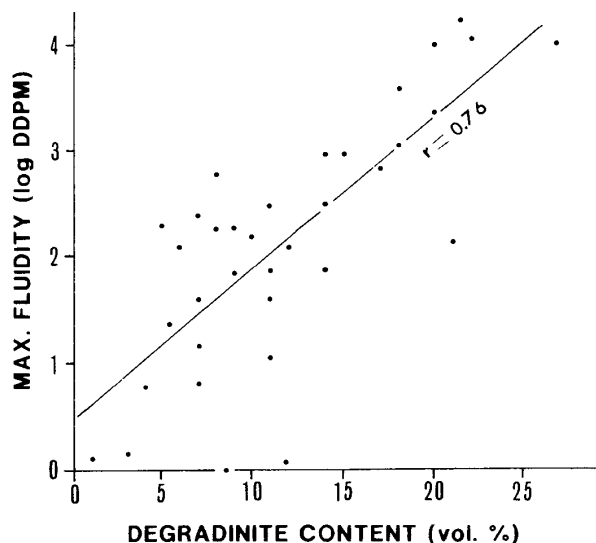
第3図 デグラディニット含有量と芳香族指数との関係図

指数 (fa) を求め、デグラディニットとの関係を調べたのが第3図である (Fujii et al., 1984). 第3図よりデグラディニット含有量が増加するにつれ、faは減少する。つまり、デグラディニットは脂肪族炭化水素に富むことを意味し、デグラディニット含有量の増加にともなって、H/C原子数比が増加することと調和的である。

3・3 デグラディニットと流動性

第4図は池島炭鉱の試料を用いてデグラディニット含有量とギーセラー最高流動度との関係を調べた図である。この図より、デグラディニット含有量が増加するにつれ、最高流動度は指数関数的に増加することが分かる。この関係は三池炭鉱、高島炭鉱、幌内炭鉱においても藤井・鈴木 (1988) によって同様の結果が得られている。

このことは、流動性の大きさは石炭中に含有される低分子物の量に比例し、低分子物の熱安定性が低いからあるいは比較的高温まで熱安定性が高いかといった性状によるもので、一般に揮発分の量が多いこと、蛍光を発する物質の多いことと調和的である。



第4図 デグラディニット含有量と最高流動度との関係図

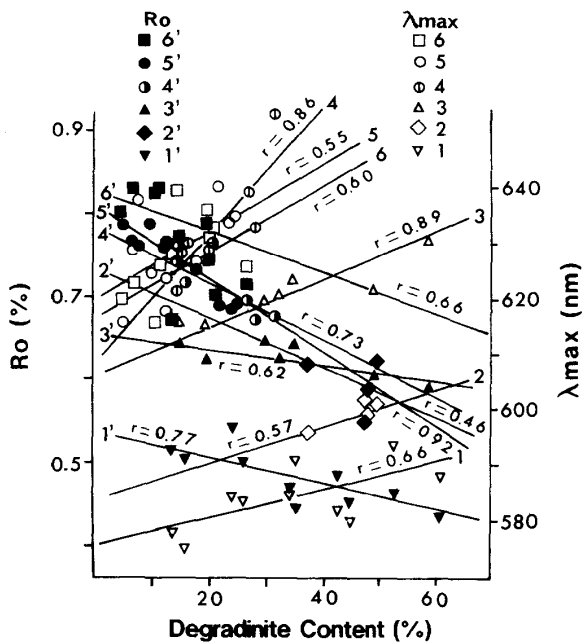
3・4 ビトリニット反射率とスポリニット蛍光性への影響

各石炭試料群は同一石炭化度にあるのでビトリニット反射率 (R_o) とスポリニットの最大蛍光波長値 (λ_{max}) はそれぞれ同じ値を示す筈である。第5図は各炭鉱群での R_o 及び λ_{max} とデグラディニット含有量との関係を示したもので、図の凡例の数字は第1図と同様である。図よりデグラディニット含有量が増加するにつれ、 R_o は減少し、 λ_{max} は長波長にシフトする。この原因については別に機会に述べる。

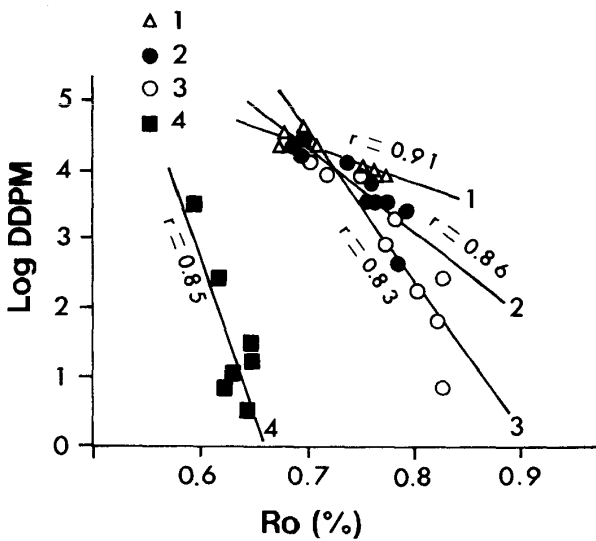
このように同一石炭化度にある試料群であるにもかかわらず、 R_o と λ_{max} との関係はデグラディニット含有量に従って変化することが分かる。

3・5 ビトリニット反射率と最高流動度との関係への影響

最高流動度はビトリニット反射率とエクジニット量とに深く関係し、中ないし高揮発分れき青炭では反射率よりも、エクジニット含有量の多い石炭の方が流動性は高い (奥山ほか, 1970). エクジニットと同様の化学的性質を有するデグラディニットを含



第5図 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蛍光性との関係



第6図 ビトリニット反射率と最高流動度との関係図

における最高流動度とビトリニット反射率との関係を示す図で、凡例の1は三池炭鉱、2は高島炭鉱、3は池島炭鉱、4は幌内炭鉱を意味する。同一石炭化度にある試料群にあってはビトリニット反射率が増加するにつれ、デグラディニット含有量が減少するので、最高流動度は指数関数的に減少する。デグラディニットはこれまでビトリニット・グループのマセラルとみなされてきたが、3・1で述べたようにデグラディニットがエクジニット・グループのマセラルとみなさなくてはならないので、従来の最高流動度の推定法は補正されねばならない。

4. 結 論

デグラディニットは他のマセラルの基質をなすので、デグラディニットを単離することは困難である。そこでデグラディニット含有量の変化と石炭の化学的・物理的性質の変化との相関を調べることにより、デグラディニットの化学的・物理的性質を考察した。

H/C-O/C原子数比ダイヤグラム上で推定されるデグラディニットの化学的性質はエクジニットと同一視できる。デグラディニットの顕微鏡的性質は2次蛍光を発する微細な粒子からなり、Stach et al. (1982) のマセラルの記載で当てはまるのはエクジニットのliptodetriniteである。恐らく少なくともいくつかの微細な粒子はアルギニットに由来すると思われるが、根源物質を特定することは困難である。NMR分析によりデグラディニットは脂肪族炭化水素に富むことが分かり、結果としてデグラディニット含有量が増すにつれ、発熱量、揮発分、流動性が増すことがいえる。また、デグラディニット含有量が増加するにつれて、Roは減少し、λmaxは長波長にずれる。このように、デグラディニットはある一定の物理的・化学的性質を有していること及び物理的・化学的性質に与える一定の影響より、少なくともビトリニット・グループに属する異種のマセラルの混合物という従来の考え方には賛成できない。最後に、デグラディニットは日本特有のマセラルではなく、中国の撫順炭田、インドネシアのスマトラの第三紀炭田などにごく普通に存在する。文献によるとニュージーランドの第三紀炭田、オースト

有する日本炭の場合は最高流動度はデグラディニット含有量と密接に関係し、さらに第5図よりデグラディニット含有量がビトリニット反射率と関係するので、結果的に最高流動度はビトリニット反射率と関係することになる。第6図は、各炭鉱の試料群に

ラリアの中生代の炭田などにありそうであるが、炭田の規模が小さいために商品炭とならないため問題とならないのが実状のように思われる。

文 献

- 藤井敬三・山崎純夫・正田浩司・佐々木実 (1982a), 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. 石油技協誌, 47, 1-8.
- 藤井敬三・三木啓司・佐々木実・正田浩司 (1982b), デグラディニットの炭質に及ぼす影響. 燃料協会60周年研究発表前刷集, 89-92.
- FUJII, K., SHODA, K. and MIKI, K. (1984), The effect of degradinite on coal properties and its conversion at Ikeshima coal mine. 3rd Cir. Pacific Ener. Min. Res. Conf., Transactions, 483-486.
- 藤井敬三・鈴木祐一郎 (1988), 炭質評価のパラメーターとしてのビトリニット反射率とスポリニット蛍光性との比較. 地調月報, 39, 191-198.
- Geological Survey of Japan (1977), Geology and Mineral Resources of Japan (3rd ed.) ed. by TANAKA, K. and NOZAWA, T., 430p.
- International Committee for Coal Petrology (ICCP) (1971), International Handbook of Coal Petrography. Centre National de Recherche Scientifique, Paris
- 嘉村 豊 (1982), 西彼杵炭田の生成発達に関する地質学的研究. 鉱山地質, 32, 323-338.
- 水野篤行 (1962a), 西日本地域における古第三系および下部新第三系の古生物年代学的研究. 第1報, 西彼杵半島周辺の古第三系の層序と貝化石群について, 地質学雑, 68, 640-648.
- 水野篤行 (1962b), 西日本地域における古第三系および下部新第三系の古生物年代学的研究. 第2報, 西彼杵半島の古第三系の対比と古生物年代的区分について. 地質学雑, 68, 687-693.
- 奥山泰男, 宮津 隆, 杉浦秀彦, 熊谷光照 (1970), 顕微鏡による原料炭のコークス化性の検討. 燃協誌, 49, 736-743.
- OTTENJANN, K., TEICHMÜLLER, M. and WOLF, M. (1974), Spektrale Fluoreszenz-Messungen an Sporiniten mit Auflicht-Auregung, eine mikroskopische Methode zur Bestimmung des Inkohlungsgrades gering inkohlter Kohlen. Forsch. Geol. Rheind. Welf., 24, 1-36.
- 沢田秀穂 (1958), 北松炭田地質図説明書. 日本炭田図 II, 130p, 地質調査所.
- 下河原寿男 (1963), 夕張炭田の形成とその地質構造の発展, 5, 243p, 石炭地質研究.
- STACH, E., MACKOWSKY, M. -Th., TEICHMÜLLER, M., TAYLOR, G. H., CHANDRA, D. and TEICHMÜLLER, R. (1982), Coal Petrology, 3rd ed., 535p, Gebruder Borntraeger, Berlin, Stuttgart.
- 高橋良平 (1991), 私本石炭組織学のひとこま. 応用石炭論文集, 11, 2-4.
- TISSOT, B. P. and WELTE, D. H. (1978), Petroleum formation and occurrence. 538p, Springer-Verlag Berlin Heiderberg New York.
- van KREVELEN, D. W. (1961), Coal. 514p, Elsevier, Amsterdam-London-New York.