

---

接触変成作用を受けた泥岩の有機地質学的及び  
鉱物学的研究

---

15540431

平成15年度～平成17年度科学研究費補助金  
(基盤研究(C)) 研究成果報告書

平成18年3月

研究代表者 氏家 良博

弘前大学理工学部教授

<はしがき>

この研究を行なうに当たっての研究組織、科学研究費補助金の交付決定額、研究成果に関する研究発表について、以下に記す。

研究組織

研究代表者 : 氏家 良博 (弘前大学理工学部教授)  
研究分担者 : 柴 正敏 (弘前大学理工学部教授)  
(研究協力者 : 相澤 武宏)

交付決定額 (配分額)

(金額単位:円)

	直接経費	間接経費	合計
平成15年度	1,600,000	0	1,600,000
平成16年度	1,000,000	0	1,000,000
平成17年度	900,000	0	900,000
総計	3,500,000	0	3,500,000

研究発表

(1) 学会誌等

氏家 良博、「地質現象と、花粉の明度 (stTAI) 及びビトリナイト反射率」、  
Researches in Organic Geochemistry, 19 巻、1-7 頁、平成 16 年 12

月 30 日。

相澤武宏・星居朗子・氏家良博、「堆積性有機物の有機熟成に対する接触変成作用の影響—青森県南津軽郡大鰐町に分布する中新統泥岩の場合—」、地球科学、59 巻、5 号、313—322 頁、平成 17 年 9 月 25 日。

(2) 口頭発表

相澤武宏・氏家良博・星居朗子、「中新統泥岩の接触変成作用による有機熟成—青森県大鰐町における 2 例について—」、石油技術協会平成 16 年度春季講演会、平成 16 年 6 月 17 日。

Ujiié, Yoshihiro, Relationship between statistical Thermal Alteration Index (stTAI) and vitrinite reflectance (Ro) influenced by various geological phenomena: diagenesis, unconformity, faulting and contact metamorphism. The Society for Organic Petrology (TSOP), 21st Annual Meeting: Organic Matter Down Under, 2004 年 9 月 28 日.

相澤武宏・氏家良博、「FTIR によるマツ花粉を用いた有機熟成指標確立への試み」、石油技術協会平成 17 年度春季講演会、平成 17 年 6 月 2 日。

相澤武宏・氏家良博、「FTIR によるマツ花粉粒子単体を対象とした有機熟成指標」、第 23 回有機地球化学シンポジウム、平成 17 年 7 月 28 日。

相澤武宏・星居朗子・氏家良博、「堆積性有機物に対する接触変成作用の影

響「青森県大鰐町に分布する中新統泥岩の場合」、日本地質学会第 112  
年学術大会、平成 17 年 9 月 19 日。

## <研究成果>

### はじめに

堆積物に含まれる有機物は、堆積物の埋没とそれに伴う続成作用の進行により、不可逆的な変化を起こす。この変化を有機熟成と呼び、その主要因は温度と時間である (Hood and Castaño 1974; Hood et al. 1975)。接触変成作用によって堆積岩が火成岩岩脈の貫入を受けると続成作用と同様の有機熟成が進行するが、その場合の主要因は温度である (Simoneit et al. 1978)。

本研究の目的は、青森県南津軽郡大鰐町<sup>おほいし</sup>の 2 ヶ所で観察された接触変成作用による堆積岩中の有機物の変化及び珪酸鋁物の変化を調べることである。具体的手法としては、有機物に関しては、含まれている量・組成・熟成度の変化を調べ、続成作用に伴う有機熟成と比較検討することである。有機物の含有量の変化は有機炭素含有量 (Co) から推定し、有機物の組成の変化はビジュアル・ケロジェン組成から推定した。有機熟成度は、ビトリナイト反射率 ( $R_0$ )、および花粉の明度を利用した新しい有機熟成指標である統計的熱変質指標 (statistical Thermal Alteration Index; 略称 stTAI) の 2 つの指標から推定した。また、珪酸鋁物の変化をみるために、X 線回折による分析を行った。

接触変成作用による有機物の熱変化、特に有機熟成度に関しては、元素分析、 $R_0$ 、生物指標有機化合物を利用して、数多くの研究が行われてきた (例えば、Simoneit et al. 1978、1984; Akiyama et al. 1979; Bostick and Pawlewicz 1984; Ujiie 1984, 1986)。しかし、stTAI を用いた研究は以前には行われていない。

### 試料

分析試料は、青森県南津軽郡大鰐町内の鱒岩<sup>まづいし</sup>および森山の 2 ヶ所で採取した。

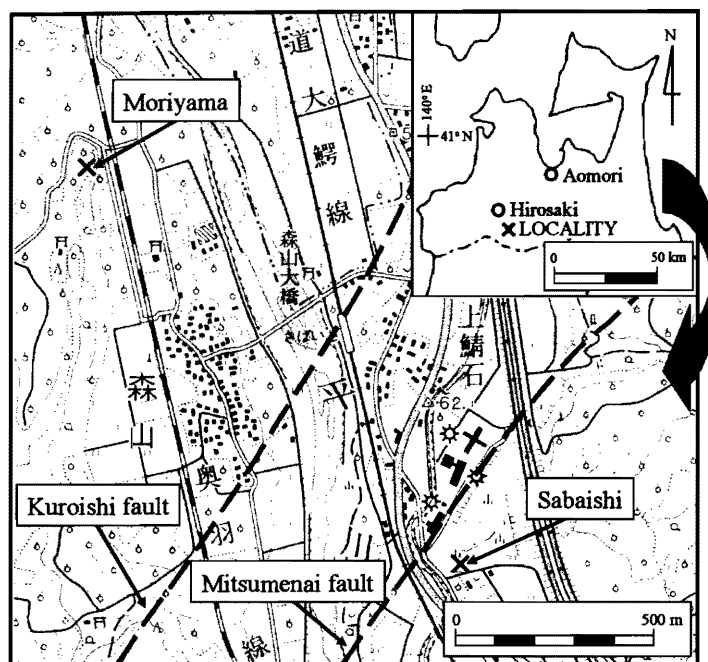


図1. 調査地域の位置図

大鰐町付近一帯には中期中新世の温湯層が広く分布している。温湯層は軽石凝灰岩の卓越する下部層とシルト岩の卓越する上部層とに区別され、局部的にシルト岩・頁岩をはさむ（村岡・長谷 1990）。今回分析した試料は鯖石および森山ともその下部層に相当する。温湯層は *Neodenticula kamschatica* (Zabelina) Akiba and Yanagisawa などの海棲珪藻化石を産出し、その地質時代は後期中新世とされている（小高ほか 1970）。岩井・甲田（1974）は本層を松木平層と命名している。

鯖石の試料採取地点は採石場内であり、採石場付近では温湯層の凝灰質シルト岩が  $N67^{\circ} E20^{\circ} N$  の走向傾斜で広く分布し、そこに幅 17.5 m の安山岩岩脈が急角度で貫入している。温湯層は一般に淡褐色を呈するが、岩脈との接触面から約 1 m の範囲内では岩石が黒く変色している（Ujiié 1984, 1986）。

鯖石で温湯層に貫入した安山岩岩脈についての放射性同位体による年代測定は行われていないが、村岡・長谷（1990）によれば、この安山岩は三ッ森安山岩の一部とされ、その活動年代は鮮新世と推定されている。

鯖石の試料採取地点では、岩脈との接触面の走向は  $N68^{\circ} W$  で、傾斜は急角度であるが変化が大きい。岩脈との接触面から 0.0、0.5、1.5、2.5、3.5、5.0、10.0、および 40.0 m 離れた 8 地点から分析用試料を採取した。

流紋岩岩脈の貫入を受けた森山の試料採取地点は、鯖石の試料採取地点より北西に 1.4 km 離れている。両者の間には北北東-南南西方向の黒石断層および三ッ目内断層が走っていることが推定されている（村岡・長谷 1990）。森山付近では、温湯層は硬質塊状で灰～褐色を呈す。走向・傾斜を測定することはできなかったが、村岡・長谷（1990）によると、付近での走向はおよそ南北で、傾斜は  $22\sim 35^{\circ} W$  である。

森山で温湯層に貫入した流紋岩岩脈の層厚は不明である。村岡・長谷（1990）は、この流紋岩を尾關山凝灰岩として一括しているものの一部と考え、その絶対年代は 2.3～3.55 Ma としている。

森山の試料採取地点では、岩脈とシルト岩の接触面は鉛直に近く、走向は大概東西方向を示す。接触面を基準として 0.1、0.6、1.5、および 3.2 m 離れた 4 地点から分析用の試料を採集した。

## 分析方法

### 1. 有機物の分離・濃集

岩石試料から有機物を分離・濃集する方法は、氏家・佐藤（2002）に準拠して以下のように行い、無機物を化学的に除去した。0.3 mm～約 5 mm 大の大きさに砕いた岩石試料を 10～15 g 秤量しポリ瓶に入れ、それに 5N 塩酸 50 ml を加

え、常温で一晩放置する。翌日、上澄み液を捨て、炭酸塩鉱物の除去を行う。次に 10N 塩酸 25 ml と 46%フッ酸 25 ml の混合液を加え、約 75 °C の恒温振動水槽で、5~6 時間ゆっくりと振動させる。その後恒温振動水槽から取り出し、一晩放置したのち、上澄み液を捨て、珪酸塩鉱物の除去を行う。さらに塩酸とフッ酸の混合液による処理を再度行う。その後、上澄み液が中性になるまで蒸留水で洗浄を繰り返し、有機物の分離・濃集を行った。

## 2. 測定用試料の作成

### 反射率測定用ブリケット

岩石試料から分離・濃集した有機物試料を時計皿で自然乾燥させる。乾燥後粉末化した試料は、ビューラー社製の油圧手動埋込器シンプリメット 2 を用いて、樹脂に包埋する。油圧手動埋込器のモールドを約 150 °C まで加熱した後、試料をモールド内のラム底部に置き、その上にビューラー社製の透明樹脂 Transoptic Powder を静かに被せる。これらをジャッキで 14.5 MPa まで加圧した後、樹脂の成形不良を防ぐためガス抜きを 3~4 回行う。ガス抜き後、モールド内の圧力を再び 14.5 MPa に加圧し、そのまま 20 分間保持する。その後加熱を停止して 2 時間冷却し、モールドが 38 °C 以下になったら、モールド内の圧力を下げ、油圧手動埋込器からブリケットを取り出す。

ブリケットの測定面の研磨は粗研磨、中間研磨、最終研磨の 3 段階に分けて行う。粗研磨と中間研磨には、ビューラー社製の耐水研磨紙カービメットペーパーディスクの粒度 #320 と #600 を使い、研磨時間はそれぞれ 2~3 分とする。最終研磨には、ビューラー社製の研磨用バフ・マイクロクロスを使い、研磨剤としては粒度 0.05  $\mu\text{m}$  のバフ用酸化アルミ液体研磨剤ガンマポリッシングアルミナ No. 3 (B) を用いる。研磨に際しては、研磨傷が生じないように注意し、約



10 秒毎にブリケットの向きを  $90^\circ$  ずつ回転させる。研磨完了後の試料は研磨面を上にして、自然乾燥させる。反射率測定に際しては、24 時間以上真空デシケーター中にブリケットを置き、試料から十分に水分を除去した後に測定する。

#### 花粉の明度およびビジュアル・ケロジェン測定用試料

岩石より分離・濃集した有機物をカバーガラス上にむらなく広げ自然乾燥させる。次に  $100^\circ\text{C}$  に加熱したホットプレート上にスライドガラスおよび試料の載ったカバーガラスを載せ、封入剤となるメルク社製の Entellan neu を 1~2 滴滴下し、素早くスライドガラスとカバーガラスを重ね合わせプレパラートとする。

### 3. 測定方法

#### ビトリナイト反射率

反射率の測定は、平井 (1976) の方法に準拠する。顕微鏡はカールツァイス社製のルーチン用ハイグレード顕微鏡アキシオスコープを、 $R_0$  測定用装置はカールツァイス社製の顕微鏡光度計システム制御装置ミクロスコープフォトメーター 20 を使用する。顕微鏡の光源にはハロゲンランプを用い、カールツァイス社製の単色光用グリーンフィルターを通して、倍率 50 倍の対物レンズで測定する。浸油には、カールツァイス社製のイマージョンオイル 518C を使用し、標準試料としては、カールツァイス社製のサファイア 474254-8031 (反射率 = 0.25%) を使用する。

ブリケットに包埋された有機物粒子は、それぞれランダムな光学的方位を有しているため、本研究では平均ランダム反射率 (Hevia and Virgos 1977) を  $R_0$  として採用する。平均ランダム反射率は、非偏光下でステージを回転させることなく任意の位置での 100 点以上のビトリナイト粒子の反射率を測定し、その

平均をとるものである。ただし、ビトリナイト粒子の少ない試料については、反射率の測定数は 100 点以下となる。

### 統計的熱変質指標

stTAI の測定方法は、氏家 (1996) の方法に準拠する。生物顕微鏡に接続したテレビカメラで、プレパラート中に存在する花粉粒子をテレビモニターに映し出す。そのモニター上で花粉粒子の測定範囲を選定し、その部分の画像をコンピュータ内部のメモリー上に取り込み、イメージプロセッサを用いて、画素単位でその明度を測定する。顕微鏡はオリンパス社製システム生物顕微鏡 BHS-323、テレビカメラは池上通信機械製 IF-8500 型計測用テレビカメラ、イメージプロセッサはラトックシステムエンジニアリング製 Image Command 4198、コンピュータは NEC 製 PC-9821BP を使用する。顕微鏡の光源はハロゲンランプを用い、波長 400 nm の光の透過性が高い LBD-2 フィルターを通して、倍率 40 倍の対物レンズで測定する。

この装置で測定できる明度のスケールは、最も暗い 0 から最も明るい 255 までの 256 段階である。試料の測定に際しては、測定条件をできるだけ一定にするために、ステージ上のスライドに焦点を合わせた後、顕微鏡の光源を消灯した時の明度と、光源を点灯し焦点を合わせた後、スライドを除去して何もステージ上に置かずに測定した時の明度が、それぞれ 43 と 223 の値になるように光量を調整する。測定対象となる花粉は、マツ属、マキ属、モミ属およびトウヒ属の、特徴ある有翼型花粉で、その翼部で明度の測定を行う。それぞれの花粉粒子が示す明度の最頻値を積算し、測定した粒子数で除したものを、すなわち算術平均したものがその試料の stTAI である (氏家 1996; Ujiié 2001)。

### ビジュアル・ケロジェン

ビジュアル・ケロジェンの測定方法は、平井 (1980) および嶋崎 (1986) に

準拠する。測定には、生物顕微鏡にオートマティック・ポイントカウンターを設置し、50  $\mu\text{m}$  の間隔で 400 点観察し同定する。顕微鏡はオリンパス製のシステム生物顕微鏡 BHS-323 を、オートマティック・ポイントカウンターのメカニカルステージはジェームズ・スイフト社の 401C 型を、オートマティック・ポイントカウンターの計数装置はジェームズ・スイフト社の Model F415C 型を使用する。顕微鏡の光源は通常ハロゲンランプを用い、LBD-2 フィルターを通して、倍率 400 倍で測定する。

有機物は、顕微鏡下でその組織・形態から、石炭質-木質（実際には、木炭、半木炭、細粒石炭・木質の三つにさらに細分する）、草本質（花粉・孢子、草本質、樹脂の三つに細分する）、不定形質（綿毛状、細粒状、塊状、ワックス・オイル、水生微化石の五つに細分する）の 3 種類に分類し、その組成を測定する（嶋崎 1986）。

#### 有機炭素含有量

Co の測定は、Yamamuro and Kayanne (1995) の方法に準拠する。岩石試料をメノウ乳鉢で粉末にした後、約 10 mg 秤量し、白金製の分析用ボートに入れ、表面を薄くおおう程度に蒸留水を加える。12N HCl が 500 ml 入ったガラスデシケーター中に試料の入ったボートを入れ、室温で 24 時間放置し、塩酸から蒸発した塩化水素によって試料中の炭酸塩鉱物を除去する。その後、試料の入ったボートを 50  $^{\circ}\text{C}$  のオープンに入れ、3 時間以上加熱し、試料から HCl と水分を除去する。

Co の測定には、柳本製作所製 CHN コーダ MT-5 を使用した。キャリアガスには He を、助燃ガスには  $\text{O}_2$  を使用し、流量をそれぞれ 180 ml/min、20 ml/min に設定する。試料分解炉は 950  $^{\circ}\text{C}$ 、酸化炉は 850  $^{\circ}\text{C}$ 、還元炉は 550  $^{\circ}\text{C}$ 、ポンプ恒温槽は 55  $^{\circ}\text{C}$ 、検出器恒温槽は 100  $^{\circ}\text{C}$  にそれぞれ温度を設定する。ブリッジカレ

ント電流は H を 85 mA、C を 65 mA、N を 120 mA に設定する。標準試料には、p-nitroaniline (C=52.17%、H=4.38%、O=23.17%、N=20.28%) を使用する。本研究では 1 試料に対し 3 回くりかえし分析を行う。

### X 線回折

X 線回折による珪酸鉱物の同定は、理学電機 2103 型 X 線回折装置を用い、無方位の全岩粉末試料で行う。X 線発生装置の対陰極は Cu を用い、管電流は 15 mA、管電圧は 30 kV に設定する。ゴニオメータのフィルターには Ni を用い、発散スリットは  $1^{\circ}$ 、受光スリットは 0.15 mm、散乱防止スリットは  $1^{\circ}$  に設定し、走査速度は  $4^{\circ}/\text{min}$ 、走査範囲は  $3\sim 60^{\circ}$  にする。記録紙速度は 4 cm/min に設定し、フルスケールは 2000kcps とする。鉱物の同定には、Bayliss et al. (1981) のデータを用いる。

### 測定結果

#### 1. 有機炭素含有量

Co の測定結果を Table 1 に示す。Co は各試料それぞれ 3 回ずつ測定し、平均値を算出した。

鯖石では、40.0 m と 10.0 m の試料で 0.72% と同じ値を示す。10.0 m より近い試料では、岩脈に近づくにつれ 0.72% から 0.15% へと Co は 1.5 m まで減少するが、岩脈から 1.5 m 以内では、岩脈に近づくにつれ Co は 0.15% から 0.41% へと増大する。

森山では、3.2 m と 1.5 m の試料では 0.4% 前後、0.6 m と 0.1 m の試料では 0.19% を示し、0.6 m と 1.5 m の間で Co に大きな相違が認められる。

Table 1. 有機炭素、ビジュアル・ケロジェン、ビトリナイト反射率、花粉の明度の測定結果

distance from the dyke (m)	Organic carbon		Composition of visual kerogen			Vitrinite reflectance				Brightness of pollen				
	Mean Content (%)	Range (%)	coaly-woody (%)	herbaceous (%)	amorphous (%)	Mean reflectance (%)	95% confidence limit (%)	Range (%)	Number of readings	stfAI	95% confidence limit	Range	Number of readings	
Sabaiishi	0.0	0.41	0.39-0.44	1.0	3.5	95.5	0.97	na	0.97	1	158	2	157-159	2
	0.5	0.24	0.21-0.28	3.3	4.5	92.3	0.77	0.08	0.70-0.88	4	167	4	140-179	30
	1.5	0.15	0.13-0.20	6.0	3.5	90.5	0.81	na	0.81	1	165	6	157-172	5
	2.5	0.22	0.20-0.25	3.3	2.3	94.5	0.52	0.02	0.49-0.55	5	161	11	152-178	4
	3.5	0.24	0.23-0.24	2.5	3.0	94.5	0.47	0.02	0.40-0.55	30	165	12	151-176	4
	5.0	0.28	0.26-0.31	6.8	9.3	84.0	0.47	0.03	0.36-0.60	29	163	14	150-180	4
	10.0	0.72	0.69-0.74	10.0	7.0	83.0	0.40	0.01	0.28-0.46	30	179	2	177-181	3
	40.0	0.72	0.67-0.76	10.3	3.3	86.5	0.27	0.02	0.24-0.32	11	173	7	158-181	6
Moriyama	0.1	0.19	0.15-0.25	27.8	28.0	44.2	0.60	0.05	0.49-0.70	9	146	6	138-152	4
	0.6	0.19	0.15-0.24	18.5	18.0	63.5	0.30	0.03	0.21-0.37	12	160	6	152-171	6
	1.5	0.38	0.36-0.40	6.0	14.0	80.0	0.27	0.01	0.22-0.30	10	165	14	142-193	24
	3.2	0.42	0.40-0.46	13.8	18.2	68.0	0.33	0.05	0.21-0.42	8	150	8	141-157	4

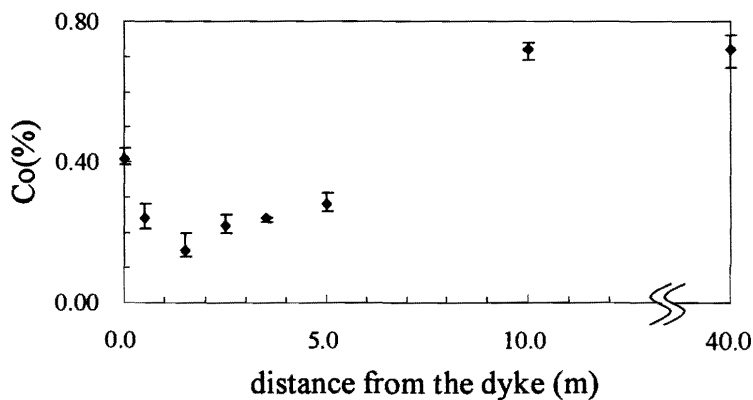


図 2. 鯖石地域での有機炭素量の変化。

縦の棒は測定値の範囲を示す。

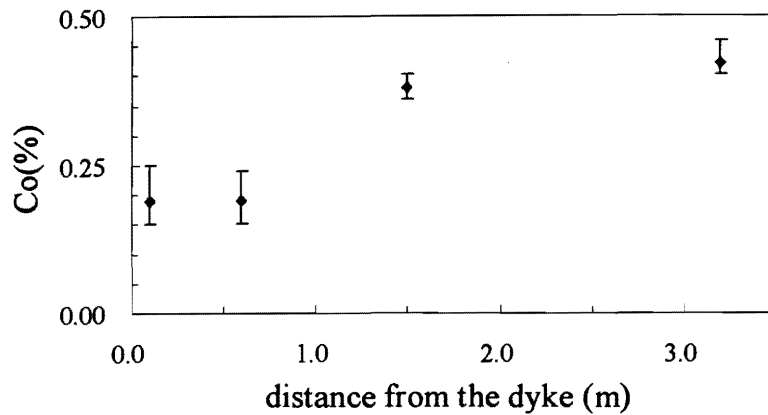


図 3. 森山地域の有機炭素量の変化。  
縦の棒は測定値の範囲を示す。

## 2. ビジュアル・ケロジェン組成

ビジュアル・ケロジェンの測定結果を Table 1 に示す。

ビジュアル・ケロジェン組成の変化をみると、鯖石では岩脈から 5.0 m と 3.5 m の試料の間で段差があり、岩脈に近い試料では不定形質ケロジェンの割合は 85% から 90% 以上へと増加し、草本質ケロジェンと石炭質-木質ケロジェンの割合はそれぞれ減少する。40.0~5.0 m および 3.5~0.0 m の試料ではそれぞれの範囲内で組成に大きな変化は認められない。また、1.5~0.0 m の試料では、多孔質で 5  $\mu$ m 以下の微細な不定形質ケロジェンが多く認められる。

森山では、岩脈からの距離が 1.5 m 以内では接触面に近づくとつれて不定形

質ケロジェンの割合が80%から44%へと減少し、草本質ケロジェンと石炭質-木質ケロジェンの割合はそれぞれ増加する。しかし、3.2 mの試料は1.5 mの試料より不定形質ケロジェンの割合が低く、草本質ケロジェンと石炭質-木質ケロジェンの割合が高い。

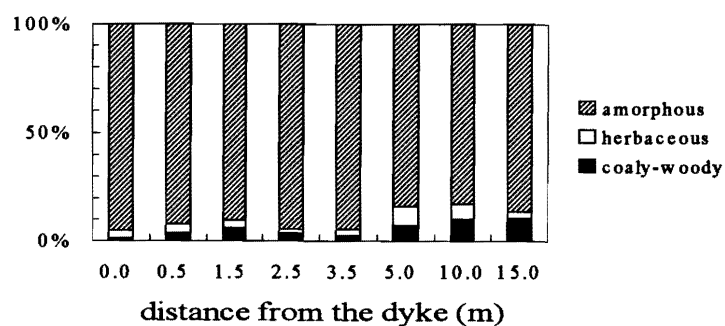


図4. 鯖石地域のビジュアル・ケロジェン組成

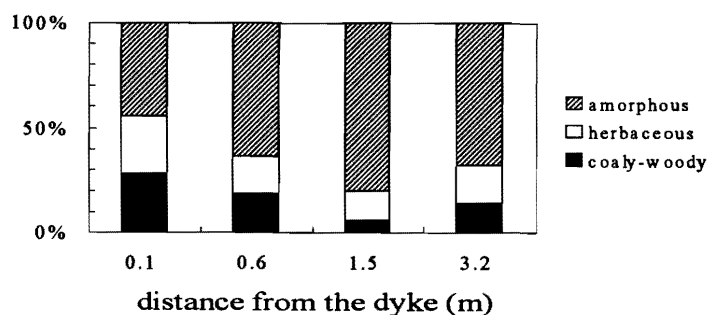


図5. 森山地域のビジュアル・ケロジェン組成

### 3. ビトリナイト反射率

$R_0$  の測定結果を Table 1 に示す。試料に含まれるビトリナイトの量はいずれの試料でも少なく、反射率を測定できたビトリナイト粒子は各試料で 1~30 個である。

鯖石では、 $R_0$  は岩脈に近づくほど 0.27% から 0.97% へと増加する傾向を示す。

森山では、岩脈に近い 0.1 m の試料の  $R_0$  の値のみが 0.60% と高く、他の試料では 0.30% 前後となっている。

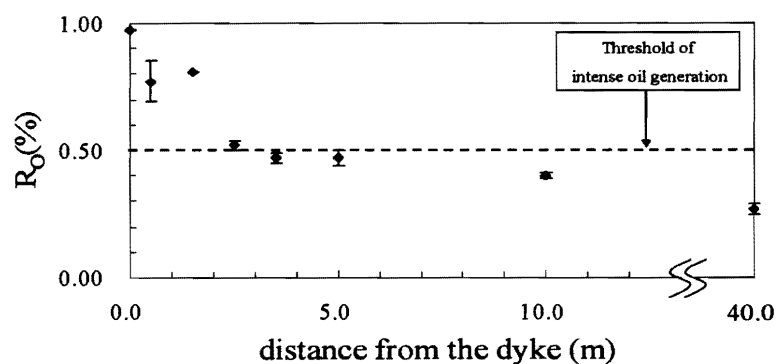


図 6. 鯖石地域のビトリナイト反射率の変化。

縦棒は 95% 信頼限界を示す。



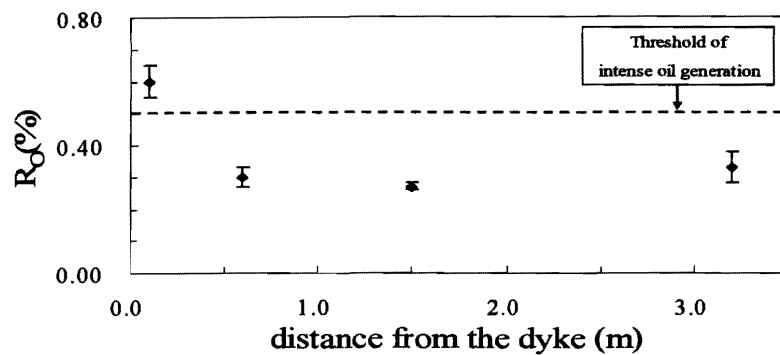


図7. 森山地域のビトリナイト反射率の変化。

縦棒は95%信頼限界を示す。

#### 4. 統計的熱変質指標

花粉明度の測定結果を Table 1 に示す。測定対象となる有翼型花粉の含有量は少なく、明度を測定できた花粉粒子は各試料で2~30個である。

鯖石では、接触面に近づくにつれて stTAI の値は180 から160へとわずかに減少する。

森山では、岩脈からの距離が1.5 m 以内では接触面に近づくにつれて stTAI の値は165 から146へと減少するが、3.2 m の試料は、0.6 m と1.5 m の試料よりもわずかに小さい。

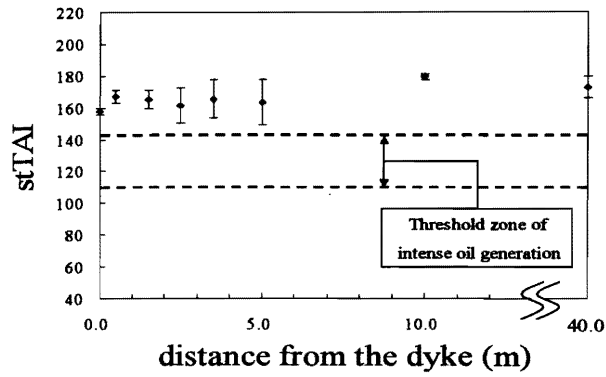


図 8. 鯖石地域の統計的熱変質指標の変化。

縦棒は 95%信頼限界を示す。

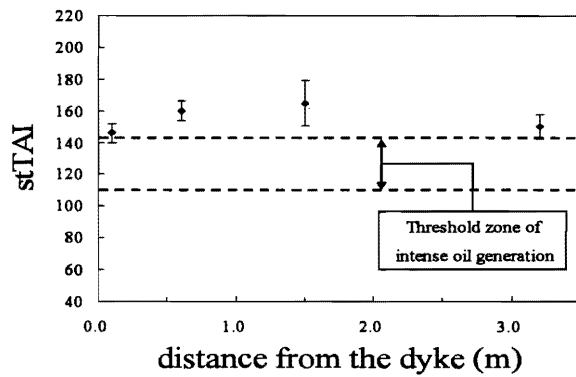


図 9. 森山地域の統計的熱変質指標の変化。

縦棒は 95%信頼限界を示す。

## 5. 珪酸鉱物の同定

岩石試料に含まれている珪酸鉱物は、鯖石試料では全て石英、森山試料ではオパールCTと石英である。森山の試料に含まれているオパールCTの(101)面の間隔を測定すると、岩脈との接触面からの距離に関わらず、全て  $4.11 \text{ \AA}$  ( $2\theta = 21.6^\circ$ ) で一定である。

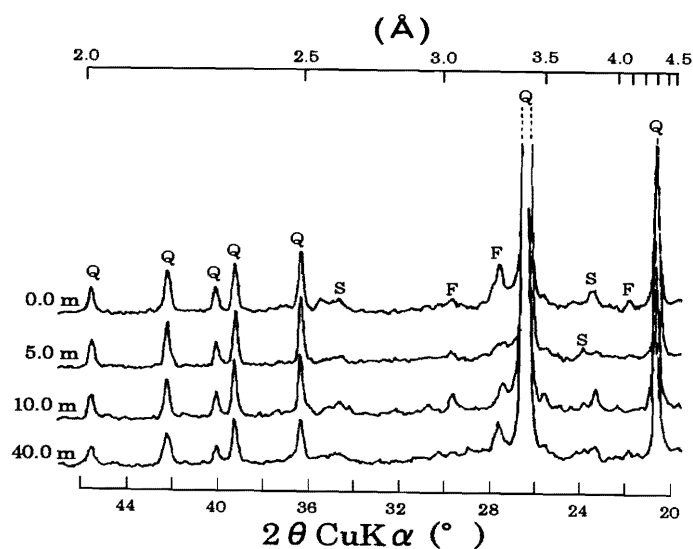


図10. 鯖石地域の試料のX線回折図。

F : 斜長石、Q : 石英、S : スメクタイト

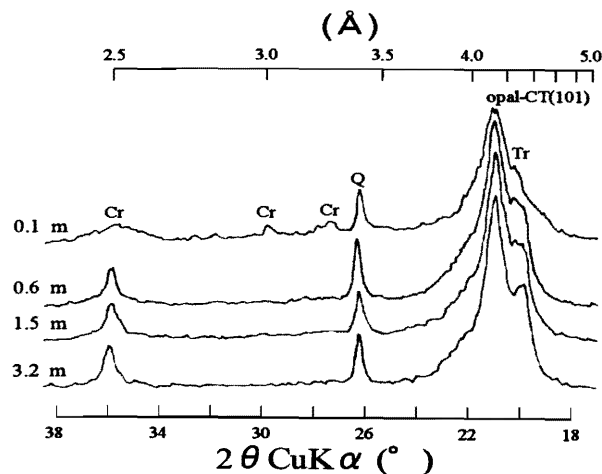


図 1 1. 鯖石地域の試料の X 線回折図。

Cr : クリソバライト、Q : 石英、

Tr : トリディマイト

## 考察

### 1. 堆積岩中の有機物に対する接触変成作用の影響

#### 有機物含有量の変化

堆積岩に含まれる有機物の量は Co の 1.16~1.26 倍である (Forsman and Hunt 1958) ので、堆積岩中の有機物含有量の変化は Co の変化に相関すると考えられる。岩脈からの距離が、鯖石では 10.0 m 以遠、森山では 1.5 m 以遠の試料で Co に大きな変化が認められない。したがって、鯖石では 10.0 m、森山では 1.5 m より遠い試料には、有機物含有量に対する接触変成作用の影響はほとんど無かったと考えられる。

鯖石の 10.0~1.5 m、および森山の 1.5~0.1 m の試料では、岩脈に近づくほ

ど Co が減少する。この事実は、岩脈に近い試料ほど熱の影響を強く受けて、有機物が熱分解され、その一部が気化・液化して岩石中から散逸したことが原因と推定される。東大西洋底で掘削されたコアにおける白亜系の黒色頁岩でも、貫入岩付近の岩石で Co の減少が報告され、同様の原因が考えられている (Simoneit et al. 1978)。しかし、鯖石の 1.5~0.0 m の試料では、逆に岩脈に近くなる程 Co は増大している。これらの変化については、次の「有機物組成の変化」の項で考察する。

#### 有機物組成の変化

ビジュアル・ケロジェン組成では、石油生成能力は不定形質ケロジェンが最も高く、石炭質-木質ケロジェンが最も低い (Tissot and Welte 1984)。今回分析した試料では鯖石および森山とも全て不定形質ケロジェンが 44~95.5% を示し最も高い割合の成分となっており、石油生成能力は高いと評価される。

早稲田ほか (1995) も鮎川油・ガス田で掘削された新鮎川 AK-1 号井で、貫入岩の熱の影響により、貫入岩付近では不定形質ケロジェンが選択的に熱分解して減少する事実を報告している。鯖石の 3.5~1.5 m、および森山の 1.5~0.1 m の試料では、同様に岩脈に近づくほど不定形質ケロジェンの量が減少する。これらの事実は、不定形質ケロジェンは石炭質-木質ケロジェンや草本質ケロジェンに比べ熱分解されやすいことを示唆している。

しかし、鯖石の 1.5~0.0 m の試料で不定形質ケロジェンの量が逆に増加している。Simoneit et al. (1984) によると、高圧下で有機物が急速に加熱されると、一度発生した液体成分が散逸せずケロジェンと再結合し、コークス状物質が形成されるといわれている。鯖石の 1.5~0.0 m の試料で Co が増加し、0.0 m と 0.5 m の試料で多孔質で 5  $\mu$ m 以下の微細な不定形質ケロジェンが多く観察されるのは、このような現象が起きたことが原因と推定される。

森山で鯖石と同様の有機物の変化が認められないのは、地層の埋没深度、岩脈の種類および厚さが異なり、鯖石ほど高圧にならなかったためと考えられる。例えば、岩脈を形成したマグマの温度の相違を考えると、一般的に、流紋岩質マグマの温度は安山岩質マグマの温度より低いとされている。溶岩の温度を測定した Cas and Wright (1987) によると、安山岩質溶岩は 950~1200 °C、流紋岩質溶岩は 700~900 °C とされている。

#### 有機熟成度の変化

$R_0$  の値は、鯖石では岩脈に近づくにつれ高くなる傾向を示し、森山では岩脈に一番近い 0.1 m の試料で最も大きな値を示す。この事実から岩脈に近い試料ほど有機熟成が進行していることがわかる。 $R_0$  における石油生成敷居点はケロジェンのタイプにより異なり、I 型ケロジェンで 0.7%、II 型で 0.5%、III 型で 0.5~0.7% を示す (Tissot and Welte 1984)。日本国内では有機熟成の進行にともない、 $R_0 = 0.5\%$  付近から炭化水素対有機炭素の比が増加する事実が基礎試錐などで認められており、一般に  $R_0 = 0.5\%$  が石油生成敷居点とされている (平井 1979)。今回の  $R_0$  の測定結果を石油生成敷居点と照らし合わせると、岩脈に近い鯖石の 2.5 m 以内の試料、および森山の 0.1 m の試料が石油生成敷居点を超えている。

花粉や孢子の色は、有機熟成の進行につれて黄色→橙色→褐色→黒色へと暗色化する (氏家、1996)。そのため、花粉の明度に基づく stTAI の値は一般に有機熟成の進行に伴い減少する (Ujiié 1996)。森山の 3.2 m の試料を例外とすると、鯖石および森山の試料で stTAI の値は岩脈に近づくにつれ減少傾向を示し、 $R_0$  と同様に、岩脈に近い試料ほど有機熟成が進行していることがわかる。森山の 3.2 m の試料で stTAI の値が低いのは、古い地層中に含まれていた花粉が再堆積して混入した可能性が考えられる。stTAI における石油生成敷居帯は 145~

110 の範囲である (Ujiié 2001)。今回の stTAI の測定結果を石油生成敷居帯と照らし合わせると、全試料が石油生成敷居帯に進入せずに未熟成帯にとどまる。

$R_0$  および stTAI の測定結果は、岩脈に近い試料ほど貫入岩による熱の影響を受け、有機熟成が進行することを示す。しかし、石油生成段階との対応をみると、 $R_0$  の方が stTAI よりもより高い有機熟成度を示す。

## 2. 接触変成作用および続成作用による有機熟成の比較

筆者の一人、氏家は、東北日本新第三系の泥質根源岩における  $R_0$  と stTAI の関係を明らかにし、 $R_0$  対 stTAI ダイアグラム上での続成作用による有機熟成経路を示した (Ujiié 2001)。 $R_0$  対 stTAI ダイアグラム上に本研究の結果をプロットすると、森山の 0.6~3.2 m の試料の値は続成作用による熟成経路と重なるが、大部分の試料は熟成経路の上側に外れ、続成作用による熟成経路とは一致しない。 $R_0$  が大きく変化するのに対し、stTAI は 140~180 で大きくしかも系統的な変化を示さないことから、 $R_0$  は stTAI よりも温度に対して敏感な指標であると推定される。続成作用と接触変成作用における時間と温度のスケールを考えると、続成作用では比較的低い温度ときわめて長い時間の影響を受けて有機熟成が進行するが、接触変成作用では非常に短い時間に高温で有機熟成が進行する。続成作用と接触変成作用における時間と温度のスケールの相違が、 $R_0$  と stTAI の値の変化にも相違をもたらしたと推定される。

## 3. 珪酸鉱物に対する接触変成作用の影響

一般に、続成作用の進行につれて、珪酸鉱物はより安定なものへと変化する。すなわち、堆積物中で 50 °C 付近からオパール A はオパール CT に変化し、更に 80 °C 程度でオパール CT は石英に変わるといわれている (水谷 1978; 吉村

2001)。さらにオパールCTの段階では、その(101)面間隔が続成作用の進行につれて4.11 Åから4.05 Åへと減少する(水谷 1978; 鹿野 1983)。このような変化は地表試料でも報告されている(氏家・細谷 1985; 神宮・氏家 1990)。

本研究では、鯖石の試料が全て石英段階を示し、森山の試料ではオパールCTと石英の両者が共存する。オパールCTと石英の共存は、続成作用下でのオパールCT帯の中に古い地層中の石英が再堆積して混入したことを示唆する。したがって、森山の試料では、続成作用で形成された自生鉱物としての珪酸鉱物は全てオパールCTである。しかし、オパールCTの(101)面間隔は全試料で4.11 Åとなり、岩脈からの距離による変化は認められない。本研究で取り扱った試料に限ると、鯖石試料内および森山試料内では各々接触変成作用の差別的影響は珪酸鉱物に及んでいない。

#### 4. 有機熟成度および珪酸鉱物からみた「鯖石試料」と「森山試料」の比較

鯖石と森山の試料を有機熟成度で比較すると、岩脈からの距離が遠く、接触変成作用の影響をほとんど受けていないと推定される鯖石の40.0 mと森山の1.5 mの試料では、 $R_0$ は0.27%、stTAIは170前後とともに近い値を示し、接触変成作用の影響を取り除いた有機熟成度はほぼ同じであったと推定される。

鯖石と森山の試料全体を珪酸鉱物で比較すると、前者は石英帯に、後者はオパールCT帯に属している。この事実は、珪酸鉱物に対する続成作用の影響の相違が両者間で認められ、前者が後者より深く埋没していたことを示唆する。このことは「有機物組成の変化」の項で述べた、鯖石の岩脈付近が高压下にさらされる一方、森山ではそのような高压の証拠が存在しないという推定とよく調和するものである。

このように接触変成作用の影響を除外した場合の両地域は、有機熟成ではほ



ば同じ段階を示すが、珪酸鉱物では鯖石が森山より高い埋没続成段階を示している。鯖石と森山の試料採取地点の間には黒石断層と三ツ目内断層の存在が推定されており、これらの断層を境にして現在は西側が東側より 330 m 沈降している (村岡・長谷 1990)。すなわち、断層活動により鯖石地域の温湯層は森山地域の温湯層より 330 m 深く埋没したが、その後の隆起・削剥により両者は現在地表に露出している。これらの断層は鮮新世の三ツ森安山岩を切っている (村岡・長谷 1990) ので、活動時期は鮮新世以降である。R<sub>0</sub> などの有機熟成は一般に百万年単位の時間で進行する (例えば、Sweeney and Burnham 1990; Huang 1996) が、珪酸鉱物の組成変化は温度依存性がきわめて高く 1000 時間以内で十分に起こることが判明している (例えば、Mizutani 1967; Kano and Taguchi 1982)。しかし本研究では、有機熟成度は断層活動後の両地域における温湯層の続成段階を示し、珪酸鉱物は断層活動前の埋没深度の相違を反映している。この原因としては、断層活動前の地温勾配が高く、熟成が急速に進行したためと推定している。

## 結論

青森県大鰐町の 2 ヶ所において、堆積岩中の有機物の含有量・組成・熟成度に対する接触変成作用の影響を調べた。有機物の含有量・組成・熟成度全てにおいて、岩脈に近いほど接触変成作用による有機熟成が進行し、熱の影響を強く受けている。

一般の傾向とはずれ、鯖石の 1.5~0.0 m の試料で、岩脈に近づくにつれて Co および不定形質ケロジェンの割合が増加するのは、有機物が高压下で加熱され、一度発生した液体成分が散逸せずに、ケロジェンと再結合してコークス状物質を形成したことが原因であると推定される。

$R_0$  対 stTAI ダイアグラムでは、接触変成作用による有機熟成は、続成作用による有機熟成経路とは異なる経路で進行する。この熟成経路の相違は、続成作用と接触変成作用における時間と温度のスケールの相違、および  $R_0$  が stTAI よりも温度に対して敏感であることにより生じると推定される。

自生の珪酸鋁物の変化を調べると、鯖石では全ての試料で石英、森山では全ての試料でオパール CT となり、オパール CT の (101) 面間隔も変化しておらず、接触変成作用による影響は認められない。鯖石と森山の試料全体を珪酸鋁物で比較すると、鯖石は石英帯、森山はオパール CT 帯を示し、前者がより深く埋没していたと考えられ、鯖石の岩脈付近が高压下にさらされていたという推定を支持する。

接触変成作用の影響を取り除くと、両地域は、有機熟成ではほぼ同じ段階を示すが、珪酸鋁物では鯖石が森山より高い埋没続成段階を示している。黒石断層および三ツ目内断層を境にして森山側の地層が鯖石側の地層より 330 m 沈降していることから、有機物は断層活動後の、珪酸鋁物は断層活動前の埋没続成段階を示していると推定される。

## 文献

- Akiyama M, Hirata S and Ujiié Y (1979) Thermal alteration of kerogen by basalt dykes intruded in the Oligocene Poronai Formation, Hokkaido, Japan. Journal Faculty Science, Hokkaido University, 19, 149-156.
- Bayliss P, Berry LG, Mrose EM and Smith DK (1981) Selected powder diffraction data for minerals. Data book, Supplement 1.
- Bostick NH and Pawlewicz MJ (1984) Paleotemperatures based on vitrinite reflectance of shales and limestones in igneous dike aureoles in the upper Cretaceous Pierre shale, Walsenburg, Colorado. Rocky Mountain

- Association of Geologists (Denver) , 387-392.
- Cas RAF and Wright JV (1987) Volcanic successions. Allen and Unwin, 19
- Forsman JP and Hunt JM (1958) Insoluble organic matter (kerogen) in sedimentary rocks of marine origin. AAPG, 747-778.
- Hevia V and Virgos JM (1977) The rank and anisotropy of anthracites: the indicating surface of reflectivity in uniaxial and biaxial substances. J Microscopy, 109 : 23-28.
- 平井明夫 (1976) ビトリナイト反射率 (その1) —反射率の測定法—. 帝国石油技術研究報告、 28 : 101-141。
- 平井明夫 (1979) ビトリナイト反射率。 石油技術協会誌、 44 : 190-195。
- 平井明夫 (1980) ケロジェンタイプの識別法。 帝国石油技術研究報告、 32 : 35-59。
- Hood A and Castaño JR (1974) Organic metamorphism : its relationship to petroleum generation and application to studies of authigenic minerals. U N ESCAP, CCCP, Techn Bull, 8 : 85-118.
- Hood A, Gutjahr CCM and Heacock RL (1975) Organic metamorphism and the generation of petroleum. AAPG, 59 : 986-996.
- Huang WL (1996) Experimental study vitrinite maturation : effects of temperature, time, pressure, water, and hydrogen index . Organic Geochemistry, 24 : 233-241.
- 岩井武彦・甲田光明 (1974) 土地分類基本調査 黒石。 青森県、 22-37。
- 神宮 宏・氏家良博 (1990) 津軽盆地西南部に分布する新第三系の続成作用、 地質雑、 96 : 421-435。
- 鹿野和彦 (1983) オパール CT の d (101) 面間隔—堆積物の熱史の指標—。 堆

積岩の続成作用に関する研究、 137-142。

Kano K and Taguchi K (1982) Experimental study on the ordering of opal-CT.  
Geochemical Journal, 16 : 33-41.

小高民夫・中川久雄・野田浩司・岩井武彦・早坂祥三 (1970) 黒石地域の地質  
について。青森県商工部、 29-38。

Mizutani S (1967) Kinetic aspects of diagenesis of silica in sediments.  
The Journal of Earth Sciences Nagoya University, 15 : 99-111.

水谷伸治郎 (1978) 珪質堆積岩の続成作用初期にみられる珪酸鉱物の変化。地  
質学論集、 15 : 81-90。

村岡洋文・長谷紘和 (1990) 黒石地域の地質。地質調査所、 29 : 13-29。

嶋崎統五 (1986) 石油探鉱におけるビジュアル・ケロジェン分析法とその応用。  
田口一雄教授退官記念論文集「石油鉱床学の諸問題」、 269-302。

Simoneit BRT, Brenner S, Peters KE and Kalplan IR (1978) Thermal alteration  
of Cretaceous black shale by basaltic intrusions in the eastern Atlantic.  
Nature, 273 : 501-504.

Simoneit B R T, Philp R P, Jenden P D, and Galimov E M (1984) Organic  
geochemistry of Deep Sea Drilling Project sediments from the Gulf of  
California—Hydrothermal effects on unconsolidated diatom ooze. Organic  
Geochemistry. 7 : 173-205.

Sweeney JJ and Burnham AK (1990) Evaluation of a simple model of vitrinite  
reflectance based on chemical kinetics. AAPG Bulletin, 10 : 1559-1570

Tissot B and Welte DH (1984) Petroleum formation and occurrence (2nd ed) .  
Springer-Verlag, 515-699.

Ujiié Y (1984) Thermal alteration of kerogen as an indicator of contact

metamorphism to sedimentary rocks;  $^1\text{H-NMR } T_1$  and elemental composition.

Geochemical Journal, 18 : 163-166.

Ujiié Y (1986) Contact-metamorphic effect on parameters for kerogen maturation. Organic Geochemistry, 6 : 375-378.

氏家良博 (1996) 定量化された新しい有機熟成指標。石油技術協会誌、61 : 434-442。

Ujiié Y (2001) Brightness of pollen as an indicator of thermal alteration by means of a computer-driven image processor : statistical thermal alteration index (stTAI) . Organic Geochemistry, 32 : 1-15.

氏家良博・細谷直樹 (1985) 青森県五所川原市東部に分布する中新統に含まれるケロジェンと珪酸鉱物の続成変化。地球科学、39 : 282-292。

氏家良博・佐藤修一郎 (2002) 不整合による有機熟成指標  $R_0$  と stTAI の影響—基礎試錐「三陸沖」を例として—。石油技術協会誌、67 : 567-575。

早稲田周・梶原義照・西田英毅 (1995) 石油根源岩の熟成における貫入岩の影響—鮎川油・ガス田女川層の例—。Organic Geochemistry, 10 : 1-5。

Yamamuro M and Kayanne H (1995) Rapid direct determination of organic carbon and nitrogen in carbonate-bearing sediments with a Yanaco MT-5 CHN analyzer. Limnology and Oceanography, 40 : 1001-1005.

吉村尚久 (2001) 粘土鉱物と変質作用。地学団体研究会、178-179。