レーザー顕微鏡によるビトリナイト反射率の定量化

Quantitative analysis of the vitrinite reflectance using a laser scanning microscope

Abstract

橋本善孝* 池原（大森）琴絵*
清水以知子**

Yoshitaka Hashimoto*,
Kotoe Ikehara-Ohmori*
and Ichiko Shimizu **

2004年6月28日受付.

2004年10月12日受理.

* 高知大学理学部自然環境科学科

Institute of Natural Environmental Science,
Faculty of Science, Kochi University, Akebono-
cho 2-5-1, Kochi 780-8052, Japan

** 東京大学大学院理学系研究科地球惑星科学専攻

Institute of Earth and Planetary Science, Uni-
versity of Tokyo, Hongo 7-3-1, Tokyo 113-0033,
Japan

A new method for the study of the vitrinite reflectance using laser technology was tested. We used a laser scanning microscope (LSM) equipped with a green He-Ne laser source, because parallel and narrow laser beams with a single wavelength of 543 nm are available in the confocal LSM. The measurements are almost free from uncertainties in ordinary microscopic method related to the choice of the light source and filters, and manual settings of iris apertures. In addition to these optical advantages, the LSM enables us to make use of digital image processing in quantification of the intensity data. Using the LSM method, the vitrinite reflectance (R) was accurately determined for the samples taken from the Cretaceous Shimanto belt in Kii Peninsula and Kyushu, for which R ranges from c.a. 1 % to c.a. 6 %. The general trend of the reflectance data obtained by the LSM is consistent with that obtained by a conventional method, but the former exhibit relatively lower values than the latter.

Key words: reflectance, vitrinite, laser scanning microscope (LSM)

はじめに

堆積岩に含まれるビトリナイトの反射率は“過去の最高被熱”とよい相関をもつと考えられており、古地温の推定に用いられる (e.g., 平井, 1979; Tissot and Welte, 1984). ビトリナイトは植物起源の炭質物でも特に植物組織の材に由来するものが石炭化したもので、油田堆積盆や地熱地帯において、有機物熟成度評価や熱史解析、および古地温勾配・最高地温の推定などに用いられている (鈴木ほか, 1982; 千々和ほか, 1990). 近年では地上に露出している過去の付加体で盛んに応用されている (Mori and Taguchi, 1988; Matthew and Underwood, 1993; Sakaguchi, 1996; Ohmori et al., 1997). これはビトリナイト反射率によって、変成岩岩石学の手法で温度を決定することが難しい低変成度域 (約 100 ~ 300 °C) の最高被熱を推定することができるという特色によるものである。ビトリナイト反射率の測定は、これまでハロゲン・タングステンランプなどの光源を用いた光学顕微鏡によって行われてきた。測定には毎回、光源の光量を調整するための絞りや受光感度の調整を行う必要があるが、調整は測定者の“手加減”にまかされており、このような作業がデータの信頼性を大きく左右した。今回、走査型レーザー顕微鏡 (Laser Scanning Microscope, LSM) を用いることによってビトリナイト反射率を効率良く、また精度よく定量化することを試みた。

レーザー顕微鏡では、1) 入射光として単一波長のレーザー光源が用いられているため反射率が明確に定義できる、2) 平行でよく絞られたレーザービームを用いているため、散乱

光の影響を受けることなく微小領域の反射率を測定できる、3) 共焦点法によって合焦点位置を精密に決定できるなどの優れた光学的特性に加え、4) 反射強度をデジタル画像としてマッピングできるため、炭質物の組織と反射率の対応が明瞭となるという利点がある。

レーザー顕微鏡による反射率測定法

1. 測定原理

今回使用した LSM は走査型レーザー顕微鏡 FLUOVIEW FV500 (オリンパス光学工業株式会社製) であり、反射および透過像を同時に表示できる仕様となっている。入射光には、He-Ne レーザーによる緑 (波長 543 nm)、および 赤色光 (波長 633 nm) を選択することができる。今回は緑色レーザー光のみを用いた。光検出器には光電子増倍管が使われている。反射率の低いサンプルでも電流増倍率 (ゲイン) を上げれば高い受光強度を得ることができる。レーザー走査による反射像および透過像は最大 1024 × 1024 画素、各点 12 ビット階調 (4096 階調) のデジタル画像として得ることができる。各点の輝度情報は画像データとして格納されるので、これをコンピュータ上で処理することによって任意の領域の平均受光強度などを求めることができる。LSM の原理については清水・島田 (2001) を参照されたい。以下に LSM を用いた反射率測定手法について、順を追って述べる。

サンプルの反射率 (R) を一定にしたとき、受光強度 (I) は光電子増倍管の電流増倍率 (P) と

$$\log I = b \log P + \log a \quad ; R = \text{一定} \quad (1)$$

Fig.1. A snap-shot of a computer display showing an image analysis window of the measurement software, used for the laser scanning microscope (LSM) FLUOVIEW (OLYMPUS co.). Reflectance in the squire area at the right-hand side bottom is measured ($10 \times 10 \mu\text{m}^2$). The intensities of the reflected light of a vitrinite in the squire are plotted as a 3D histogram.

の関係にある。ここで、 a 、 b は装置の特性によって決まる定数である。電流増倍率を一定にしたとき受光強度と反射率との間には線形関係が成り立つ：

$$I = A \times R + I_0 \quad ; P = \text{一定} \quad (2)$$

このとき、 $I' = I - I_0$ で、入射光が全くないときの受光強度 I_0 は暗電流を表わす。比例係数 A は P のみの関数で、(1)、(2)から

$$\log A = b \log P + \log m \quad (3)$$

の関係にあることがわかる。 m は定数。(2)、(3)から $I - P - R$ の関係は以下のように書ける：

$$R = (I - I_0) / mPb \quad (4)$$

上式から、 b 、 m 、 I_0 を決定することにより、3つのパラメータの関係を得ることができる。そこで次に反射率が既知の標準試料を用いて、上記の係数を決定し検量線を引いた。

2. 検量線の作成

反射率の標準試料として、カール・ツァイス社製のサファイアとシリコンカーバイド SiCを用いた。サファイアは波長 540 nm、560 nm の光源の下での反射率がともに 0.50 % であり、シリコンカーバイドは 540 nm の光源における反射率が 7.37 %、560 nm の光源における反射率が 7.32 % である。LSM における入射波長 543 nm (緑色光) は、標準試料で測られている波長の中間にあるので、反射率の値は 540 nm と 560 nm における値を内挿して求めた (サファイアは 0.50 %、シリコンカーバイドは 7.36 %)。測定は油浸法で行い、100 倍の油浸対物レンズ (MPlan Apo $\times 100$ Oil, 開口数 1.40) と油浸オイル (オリンパス光学工業 (株) 社製、屈折率 1.516) を使用した。レーザー出力は 1 mW であり、

ND フィルターで 20 % 減光して用いた。ND フィルターは入射光側にのみ作用し、減光率はレーザー強度が変わっても一定である。レーザーを安定的に出力するために、1 mW の強度を一定にし、ND フィルターで簡便に入射強度をコントロールすることができる。共焦点絞りの口径は $200 \mu\text{m}$ である。今回用いたシステムではレーザー光はレーザー発振源において平面偏光状態にあり、視野に対して垂直方向に偏光した状態で入射する。

測定範囲として $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ の矩形領域を選んだ。画素の幅 (xy ステップ) を約 $0.176 \mu\text{m}$ としているので、レーザー測点はこの領域中に約 3230 点ある。矩形範囲内のすべての測点のレーザー照射時間は合計約 0.5 秒である。理想的にはあらゆる測点で同程度の反射強度を示すことが期待されるが、実際には試料の傾きや凹凸によって若干明るさにムラが出る。このムラは、標準試料でも見られ、後述するピトリナイトの組織に起因するものではない。共焦点 LSM では焦点深度が非常に狭いため、少しの凹凸でも結果に大きな影響をおよぼす。そこで、今回は測定範囲内で反射輝度データ約 3230 点の標準偏差が輝度平均に対して 4 % 以内となる平滑な面のみを対象とした。この条件は試料測定の場合も同じである。受光強度は測定範囲内のすべての測点の輝度の平均値で定義した (Fig.1)。実際の検量線作成の作業は、 P を変化させながら光電子増倍管の受光強度 I を測定し、電流増倍率と受光強度の関係を求めることである。Fig.2 にその結果を示す。レーザー出力を変えても P を調整することによって、同様の結果が得られる。理想的にはシリコンカーバイドもサファイアも係数は同じ値を示すべきであるが、やや誤差が出る。 P を高くし受光感度を強くすると、いずれ反射強度が最大値 4095 をオーバーフローする。その時点で、 P の上限が決定される。上記の標準試料を実測したところ電流増倍率 P

Fig.2. Relationship between intensity (I) of reflected light and multiplication (P) of photo multiplier tube. The shaded area indicates the range of P where both SiC and saphire standard samples are measurable.

が 220 ~ 245 の範囲でシリコンカーバイドとサファイアの両方が同時に測定可能な範囲 (0 ~ 4095 の受光強度値) に入ることがわかった。次に上記の結果から受光強度-電流増倍率-反射率の相関を決定し検量線を作成する (m の決定)。測定値を (3) 式に基づいてフィッティングした結果を Fig.3 に示す。横軸の電流増倍率は 2 つの標準試料を両方測定できる範囲で示している。以上により、 b 、 m を決定して、受光強度 I 、電流増倍率 P 、ビトリナイト反射率 R の 3 つのパラメータの関係を得ることができた。この検量線を使用することにより未知試料の反射率を、 I と P の値から求めることができる。

ビトリナイト反射率への応用

1. サンプル処理と測定方法

ビトリナイト反射率の測定方法は JIS 規格「石炭微細組織成分及び反射率測定法」(JIS M 8816-1992, 日本規格協会) で規定されている。サンプル作成法、ビトリナイト同定法は、ほぼこの JIS 規格によって行った。本研究では、野外から採取した握り拳大のサンプルを粉碎調粒し、粒径 150 μm 以上の粒子から重液を用いて炭質物を鉱物粒子および岩片から分離した。分離した炭質物粒子の中から、粒径が 1 ~ 2 mm の粒子を拾い出して樹脂に埋めた後、表面に炭質物の断面が現れるように鏡面研磨を施して測定用のサンプルを作成した。炭質物 (石炭) は、顕微鏡下での明度、光沢、形状などによって、大きく 3 つのマセラルと呼ぶ単位に分類されている。このうち、ビトリナイトグループは陸源性高等植物の材部を起源とするといわれ、石炭を構成する有機物の主要成分を占めており、ほとんど全ての石炭中に存在する。ビトリナイトグループにはテリナイト、コリナイト、デグラディナイ

Fig.3. Relationship between the constant A in Eq. (2) and P .

ト等のマセラルが含まれるが、いわゆるビトリナイト反射率は均質で細胞組織の認められないコリナイトの反射率である。測定においてはまず鏡下にて組織観察を行い、コリナイトを同定する必要がある。

JIS 規格では光源にハロゲン・タングステン電球を用いた顕微測光器を使用し、単色干渉フィルター (最大透過波長 $546 \pm 5 \text{ nm}$, 半価幅 30 nm 以下のもの) に通すと規定されている。今回用いた LSM による測定波長 (543 nm) もこの範囲の中にある。LSM によるビトリナイト反射率計測は、前節で述べた標準試料の測定法に準じて行った。比較のため、同一試料に対して JIS 規格に基づく従来の顕微測光器によっても反射率を計測した。

ビトリナイト反射率には若干の光学的異方性があるため、計測には平面偏光させた光を照射して、試料ステージを回転させ最大反射率を計測する方法と、ランダム偏光または円偏光で試料の方位も任意で計測する簡便法が用いられてきた。後者の反射率はランダム反射率と呼ばれている。JIS 規格では最大反射率を読む方法がとられている。LSM では前述のように入射光が平面偏光しているため、回転ステージを用いることにより最大反射率の計測を行うことが可能である。しかし実際上は、試料研磨面と回転ステージの平行性、および回転ステージと入射光の直交性が完全でないために、ステージを回転させた際に反射率異方性よりも試料面の傾きの影響が鋭敏に表れ、すべての測定点について最大反射率を正確に求めることは困難であった。従来の顕微測光器による計測でも同様の問題が生じているはずであるが、LSM ではレーザーの指向性により、試料面の傾きの影響がより顕著に現れたものと考えられる。そこで今回は試料は回転させず偏光方向も 1 方向に固定したまま反射率を測定した。比較のため従来の顕微測光器による測定においても入射光側に偏光板を挿入し、試料に対する偏光方向が LSM による測定時と同じになるように設定した。

Fig.4. (a) - (d) Photomicrographs of vitrinite showing the locations of measurement points in the case of sample KKY. In each sample, about 5 grains of vitrinite were selected and about 1~5 points in each grain were measured. (e) Close up of the measurement point 1 (LSM image). The intensity of reflected light is represented by pseudo-color.

2. 測定試料と比較方法

測定試料は白亜系四万十帯から採取したものを使用した。測定した試料は KKY7 (紀伊半島白亜系四万十帯日高川層群美山層), KKY29 (紀伊半島白亜系四万十帯日高川層群湯川層), KKY36 (紀伊半島白亜系四万十帯日高川層群美山層), QAZ6 (九州白亜系四万十帯佐伯層群利根川層), QSK7 (九州白亜系四万十帯佐伯層群堅田層) の5つで、すべて砂岩を用いた。予備的な計測により反射率が1%弱から6%程度となるものを選んだ。

従来の手法と LSM による結果との比較は以下のような方法で行った。まず、JIS 規格に従って作成された研磨試料の反射像写真を撮影し、コリナイト粒子を同定した。次に LSM による測定を行った。このとき、測定点を写真に記録、さらに偏光方向に対する試料の向きを記録する。この方法により、試料に対するビトリナイトの位置を把握し、測定点同士で従来の手法と LSM による反射率の比較が出来るようにする。反射像写真と測定点の例を Fig.4 に示す。比較する上で場所を特定しやすくするために、粒子の縁を測定した。粒子の縁は酸化を受け中心と異なる反射率を示す場合があるが、今回はそのような明瞭な違いは見られなかった。Fig.4.e は反射強度の分布をデジタル処理による疑似色で示しており、先述の傾斜によるムラはこのように見える。

ビトリナイト反射率データの誤差には、1つの計測点における測定精度 (機械誤差) の問題と、1つのビトリナイト粒子の中の不均質性の問題、および異なるビトリナイト粒子の間のばらつきが含まれている。しかしこれまで測定誤差と試料そのもののもつ不均質性とを分離し議論した研究はなかった。そこで今回はこの点を考慮するため、一つの試料につき約5粒子のビトリナイト粒子を対象とし、1粒子につき1~

5 測点を計測した。LSM による測定時には標準試料の場合と同様、1 測点につき $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ の矩形領域を走査し、その範囲内に含まれる約 3230 点の輝度データの平均値から反射率を求めた。この矩形領域における輝度データの標準偏差に反射率をかけたものを、各測定点における誤差とする。従来の手法による測定は、LSM による測定がひと通り終了した後に行った。このときは1 測点ごとに絞りを調整し、1つの反射率データを取得した。

なお、LSM による測定においてレーザーによるビトリナイトの劣化や破壊が起こらないかを確認するために、同一測定点における繰り返し測定を行った。測定は最も反射率が低く (熟成度が低く)、物理化学的なダメージを受けやすいと考えられる1 試料 (KKY29repeat) について行った。

3. 測定結果

LSM による測定結果と従来の手法による測定結果を Table 1 に示した。同一点の繰り返し測定 (Table 2) において、反射率の低下あるいは矩形領域内の標準偏差の増大などは見られなかった。よって、反射率1%程度よりも大きい試料についてはレーザービームによるビトリナイト研磨表面の劣化や破壊はほとんど起こらないと考えてよいだろう。ただし、より熟成度の低い試料 (反射率が0.3~0.6%程度の垂瀝青炭、褐炭など) を対象とするときには、あらためて検討する必要がある。

従来の顕微測光器では、測点ごとに絞り調整や焦点合わせをやりなおすため、各測点における測定条件が厳密に同じにはならないので、機械的誤差と試料の不均質性を分離して議論することは困難であった。これに対して LSM では測定領域の面積は一定であり、また合焦点位置で試料に傾きがないことを画面で確認しながら計測することができるので、同一条件での比較が可能である。各計測点の微小矩形領域の走査における誤差を Fig.5 のエラーバーで示す。これは主として電気的変動によるノイズや研磨状態の違い (試料面の微細な傷など) を反映しているものと考えられる。同一試料内の反射率のばらつきは各計測点の測定誤差より有意に大きい。また、同一ビトリナイト粒子の計測値はある程度クラスターをなしており (Table 1)、そのばらつきは各点の測定誤差の範囲か、それよりやや大きい程度である。したがって、同一試料内の異なるビトリナイト粒子の間の反射率の差は、粒子ごとの熟成度の違いによるか、もしくはビトリナイトの反射率異方性を反映しているものと考えられる。一般に、反射率の高いビトリナイトでは反射率の異方性も強くなることが知られている (相原ほか, 1987)。今回の測定で反射率が比較的高い QAZ6 および QSK7 において、他の試料よりもばらつきが大きかったのは、粒子ごとの光学異方性の方位の違いによるものかもしれない。

従来の方法と LSM による計測結果を同一測点どうしで比較すると、両者には直線的な相関が見られるものの、LSM によるデータの方が系統的に小さい値を示した (Fig.5)。両者の差はビトリナイト反射率が高くなるほど大きくなる傾向がある (Fig.6)。従来の手法によるビトリナイト反射率が1%前後のときは、その差は0.2%以下であるが、反射率が5.5

Table 1. Vitirinite reflectance measured by a conventional method and the LSM method.

Sample	Particle ID	Point No.	LSM				CONV	Difference		
			Intensity I (0-4095) *		Reflectance R (%)				Reflectance R (%)	$R(\text{LSM})-R(\text{CONV})$ (%)
			Mean	Std. Dev.	Mean	Std. Dev.				
KKY7	a	1	550.77	11.82	1.17	0.05	1.15	0.02		
		2	572.54	16.46	1.21	0.06	1.18	0.03		
	b	3	563.19	14.34	1.20	0.05	1.18	0.01		
		4	539.77	14.44	1.15	0.05	1.19	-0.05		
		5	577.80	16.49	1.23	0.06	1.19	0.03		
		6	568.68	30.57	1.21	0.09	1.20	0.00		
	c	7	621.28	15.49	1.32	0.06	1.19	0.12		
		8	624.31	29.07	1.32	0.08	1.23	0.09		
		9	569.41	24.22	1.21	0.07	1.22	-0.01		
		10	561.26	15.49	1.19	0.06	1.19	0.00		
	Average		574.90		1.22		1.19	0.03		
KKY29	d	1	478.82	14.98	1.02	0.05	1.03	-0.01		
		2	472.03	12.92	1.01	0.05	1.00	0.00		
	e	3	516.61	18.35	1.10	0.06	1.17	-0.07		
		4	527.94	18.32	1.12	0.06	1.17	-0.05		
	f	5	603.99	31.92	1.28	0.09	1.25	0.03		
		6	453.89	25.14	0.97	0.08	0.99	-0.02		
		7	463.55	37.83	0.99	0.10	0.98	0.01		
	Average		502.40		1.07		1.09	-0.02		
KK36	g	1	468.25	31.48	1.00	0.09	0.99	0.01		
		2	419.69	30.40	0.90	0.09	0.98	-0.09		
		3	476.83	24.71	1.02	0.08	1.05	-0.04		
	h	4	449.61	11.61	0.96	0.05	1.04	-0.08		
		5	450.29	18.60	0.96	0.06	1.03	-0.07		
	i	6	444.32	19.03	0.95	0.06	0.94	0.01		
		7	485.57	21.90	1.03	0.07	0.99	0.04		
	j	8	465.22	26.75	0.99	0.08	0.97	0.02		
	k	9	521.41	12.74	1.11	0.05	1.07	0.04		
		10	471.27	20.07	1.00	0.07	1.09	-0.09		
Average		465.25		0.99		1.02	-0.03			
QAZ6	l	1	1192.80	29.57	2.50	0.09	2.54	-0.04		
		2	1127.40	52.27	2.37	0.13	2.55	-0.19		
		3	1160.30	49.20	2.44	0.13	2.55	-0.12		
	m	4	1056.60	40.61	2.22	0.11	2.00	0.22		
		5	1029.30	43.75	2.16	0.11	2.18	-0.02		
	n	6	1481.90	51.05	3.11	0.13	3.57	-0.46		
	o	7	1171.50	35.45	2.46	0.10	2.66	-0.20		
		8	1135.10	35.38	2.38	0.10	2.48	-0.10		
	p	9	977.78	38.25	2.06	0.10	2.43	-0.38		
		10	1018.30	38.56	2.14	0.10	2.39	-0.25		
Average		1135.10		2.38		2.54	-0.15			
QSK7	q	1	2051.60	68.93	4.29	0.17	5.53	-1.24		
	r	2	2255.40	72.57	4.72	0.17	5.65	-0.93		
	s	3	2350.30	83.26	4.91	0.20	5.95	-1.04		
	t	4	2261.00	53.10	4.73	0.13	6.19	-1.46		
	u	5	2550.00	75.79	5.33	0.18	4.99	0.34		
	v	6	2123.90	87.16	4.44	0.21	5.46	-1.02		
	w	7	2195.00	65.50	4.59	0.16	5.45	-0.86		
	x	8	2020.10	44.12	4.23	0.12	4.77	-0.54		
	y	9	2256.50	64.42	4.72	0.16	5.41	-0.69		
	z	10	2288.00	75.53	4.78	0.18	6.24	-1.46		
	Average		2235.18		4.67		5.56	-0.89		

LSM :The measurements using a laser scanning microscope, CONV: The measurements using a conventional microscope

* at PMT $P=241$

Fig.5. Comparison of the values of vitrine reflectance determined by the LSM method (RLSM) and by a conventional method using an optical microscope (*RCONV*).

～6 %では1 %程度におよぶ。同一試料内のデータのばらつき幅は従来の手法でも LSM による計測でも同程度であった。

考 察

従来の顕微測光器による手法では、1 回の反射強度の計測結果は有効数字 3 桁で示し、反射率は小数点以下 2 桁で表わしているが、その数値の信頼性についてはいくつかの人為的要素を考慮しなければならない。まず、光学系の絞りと受光感度との関係の問題が挙げられる。絞りと受光感度の調整は測定者の勘にまかされているため測定ごとに大きく変わる可能性がある。白熱灯の光は距離とともに広がっていくので確実に全反射成分を検出するために入射光をよく絞ることが求められるが、絞りは小さすぎてもいけない。反射光をバルクとして測定するため、光量が小さくなると全般的な精度が落ちるからである。測光視野絞り（測光面積）を変化させることによって、反射率の計測値に差が出るというデータもある（島, 1988）。焦点合わせにおける誤差も問題である。100 倍の対物レンズでは焦点深度が非常に小さいため、焦点がずれると反射強度に大きな影響が出るが、反射率測定時にはできるだけ均一で平坦なビトリナイトを選ぶことになるため、合焦点位置を探すのが難しくなる。一方、LSM では上記の問題が解決される。ビーム径の一定したレーザーを走査するため、絞りの大小によって個々の粒子に対する測定精度の差が生じることはない。指向性のよいレーザーを用いているため、試料面上の散乱光の影響を受けることも少なく、反射率としての信頼性が高い。また、共焦点法によって焦点位置を正確に決めることができる。試料面が水平からわずかに傾いている場合も、CRT 画面上でチェックすることができる。

Fig.6. The differences between the vitrine reflectance RLSM determined by the LSM method and *RCONV* determined by a conventional method, plotted against *RCONV*.

LSM を用いるメリットとしてはこのほかに、試料の観察と反射率測定を同時に行えるので計測がスムーズに行えること（従来の測光器ではレバーによる切り替えが必要）、実際に平滑な試料部位が選択されたかどうかを画面上で確かめながら計測できることが挙げられる。

LSM では反射光の強度が前述のように 12 ビット 4096 階調データとして格納される。仮に増倍率 P を調整して輝度スケールが試料の平均的な反射強度の 2 倍程度に設定したとすると、輝度情報の分解能は平均反射強度の $1/2000$ (0.05 %) 程度となる。一方、同一測点の矩形領域を走査した際の測定誤差は、平均反射強度の 0.2–0.4 % 程度となっている。強度マップ (Fig.1) をみると、測定値の変化には、表面状態の不均質性（研摩状態のちがひも含む）によるなだらかな変化とレーザー出力の変動によるノイズが含まれる。後者のランダムノイズはレーザーの走査速度を遅くする、または同一領域を何度も計測して平均をとることにより軽減することが可能である。以上のように LSM では、これまで評価することが困難であった反射率の S/N 比を定量的に評価でき、1 測点あたりのデータの信頼度が従来の方法よりも格段に高くなった。

ビトリナイト反射率は 1 枚の炭層中の測定値が 0.4–0.7 % の間で変化するという報告がある（藤井, 1986）。本研究に用いたサンプルでは、1 試料中のばらつきは反射率の増

Table 2. Repetition test for KKY 29

Sample	repeat time (n)	LSM				CONV	Difference
		Intensity I (0-4095) *		Reflectance R (%)		Reflectance R (%)	$R(\text{LSM}) - R(\text{CONV})$ (%)
		Mean	Std. Dev.	Mean	Std. Dev.		
KKY29 repeat	1	420.59	12.869	0.90	0.05	1.00	-0.10
	2	420.37	12.846	0.90	0.05	1.00	-0.10
	3	419.14	13.037	0.90	0.05	1.00	-0.10
	4	420.91	12.636	0.90	0.05	1.00	-0.10
	5	417.23	13.811	0.89	0.05	1.00	-0.11
	6	421	13.863	0.90	0.05	1.00	-0.10
	7	421.15	13.837	0.90	0.05	1.00	-0.10
	8	420.28	13.886	0.90	0.05	1.00	-0.10
	9	420.11	13.819	0.90	0.05	1.00	-0.10
	10	420.57	13.927	0.90	0.05	1.00	-0.10
	11	419.61	14.672	0.90	0.05	1.00	-0.10
	12	420.63	14.806	0.90	0.05	1.00	-0.10
	13	422.03	14.064	0.90	0.05	1.00	-0.10
	14	419.93	13.726	0.90	0.05	1.00	-0.10
	15	421.55	13.878	0.90	0.05	1.00	-0.10
	16	420.29	14.322	0.90	0.05	1.00	-0.10
	17	422.1	14.053	0.90	0.05	1.00	-0.10
	18	422.1	13.873	0.90	0.05	1.00	-0.10
	19	420.35	14.113	0.90	0.05	1.00	-0.10
	20	422.15	14.477	0.90	0.05	1.00	-0.10
Average		420.60		0.90		1.00	-0.10

LSM :The measurements using a laser scanning microscope, CONV: The measurements using a conventional microscope

* at PMT $P=241$

大とともに大きくなり、最大で1 % 程度である (Table 1)。LSM による計測結果と従来の手法による計測値の差も、おおむねこのばらつきの範囲内にある。ただし、LSM による計測値は従来の方法で行ったものより全般的に低めに出る傾向が認められた。同一測定点どうしの比較でも、いくつかの例外はあるが LSM の方が小さい値をとる傾向が確かめられた。計測値は標準試料の反射率によって校正されているので、受光器の感度などでは説明がつかず、ビトリナイトの反射強度が標準試料に比して相対的に低くなる理由を考えなければならぬ。今回の試料ではレーザー光の繰り返し照射でも試料ダメージがみられなかったこと、すべての点において LSM による計測を行った後に従来の方法で計測していること、両者の差異は炭質物の熟成の度合いの低い (反射率の低い) 試料よりも、よく熟成した (反射率の高い) 試料において、より顕著であったことから、レーザーによる劣化が系統的な差異を生じた原因とは考えられない。ひとつの可能性としては、ビトリナイト反射率の波長分散の影響が考えられる。従来の顕微測光器の中心波長と LSM のレーザー波長は殆ど変わらないが、前者の分光フィルターの透過波長にはある程度の幅があるので、もし反射率に波長依存性があれば見かけの反射率にバイアスがかかることになる。もうひとつの可能性は、システムによる偏光性能の違いである。今回はいずれも入射光を偏光させた状態で計測しているが、光源・偏光フィルター・光路に用いられるミラーの種類により偏光性は微妙に変化し、理想的な平面偏光状態からのずれを生じる。その影響は反射率異方性の大きい試料ほど顕著に現れるであろう。

う。今回みられた傾向のちがいが LSM に一般的な性質であるかも含め、原因の解明のためには反射率分散や偏光性についてのより厳密な検証が必要であり、今後の課題としたい。

ま と め

本研究では、走査型レーザー顕微鏡を用いた反射率の画像計測ルーチンを立ち上げ、この手法をビトリナイト試料へ応用した。新手法では、従来の光学顕微鏡による計測における絞りや受光強度の調整、焦点合わせにおける不確実性が解消され、ビトリナイト反射率を高い精度で測定することができた。これに伴って、同一試料に含まれるビトリナイト粒子間の反射率の違いや、同じビトリナイト粒子の内部の不均質性まで議論できるようになった。ただし今回の計測では、従来の手法で計測されたビトリナイト反射率と比較して LSM による計測結果の方が系統的にやや低い値を示しており、その原因を解明することが今後の課題として残っている。

本研究で扱った付加体試料のビトリナイト反射率は約 1 ~ 6 % であり、この範囲においてはレーザーによる試料の劣化はないことが確認された。しかし将来、より低い反射率のビトリナイトに応用する際には、レーザー光のエネルギーによる損傷が起こらないか再度検証する必要がある。場合によってはもっと微弱なレーザー光線を用いなければならないかもしれない。一方、反射率の高いビトリナイトにでは一般に反射率異方性が強くなるので、異方性を正確に評価することが課題となる。LSM ではレーザー光のアライメントが少しでも狂うと測定に大きな影響があるので計測中に試料の平行性

を精密に保つ工夫が不可欠である。これには「あおり角」の微調整ができる試料ステージの使用や、1/4 波長板と偏光板を組み合わせて入射光側の偏光方向を回転させるシステムを用いることが有効であろう。このように、LSM による手法をビトリナイト反射率測定に汎用的に用いるためにはまだいくつかの課題を残しているが、付加体に典型的な温度範囲の測定ルーチンとしては、現 LSM システムでも十分対応が可能である。

謝 辞 オリンパスプロマーケティングの伊藤正明氏にはレーザー顕微鏡に関するサポートをいただくとともに、様々な便宜をはかっていただいた。石油資源開発株の武田信従氏には2回の詳細な査読をしていただき、有益な助言と思慮深いご指摘をいただいた。本研究は平成9—11年度文部省科学研究費補助金基盤研究B(2)「レーザー偏光顕微鏡の開発と計量岩石組織学への応用」(研究代表者: 清水 以知子, 課題番号 09440173)の一部を用いて行われた。

文 献

相原安津夫・千々和一豊・鮎沢 潤, 1987, 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。九州大理研究報告, 地質学, 高橋良平教授記念号, 勘米良亀教授記念号, 山口勝教授記念号, **15**, 119-129。
藤井敬三, 1986, 石炭組織成分とその液化特性。北村信教授退官記念地

質学論文集, 57-63。

平井明夫, 1979, ビトリナイト反射率。石技誌, **44**, 190-195。

木村英雄ほか, 石炭微細組織成分および反射率測定法。日本規格協会, 21p。

Matthew, M. L., and Underwood, M. B., 1993, Vitrinite reflectance and estimates of paleotemperature within the Upper Shimanto Group, Muroto Peninsula, Shikoku, Japan. Geological Society of America Special Paper, **273**, 25-43。

Mori, K., and Taguchi, K., 1988, Examination of the low-grade metamorphism in the Shimanto belt by vitrinite reflectance. *Modern Geology*, **12**, 325-339。

Ohmori, K., Taira, A., Tokuyama, H., Sakaguchi, A., Okamura, M., and Aihara, A., 1997, Paleothermal structure of the Shimanto accretionary prism, Shikoku, Japan: Role of an out-of-sequence thrust. *Geology*, **25**, 327-330。

Sakaguchi, A., 1996, High paleogeothermal gradient with ridge subduction beneath the Cretaceous Shimanto accretionary prism, southwest Japan. *Geology*, **24**, 795-798。

島 敏史, 1988, 反射率一定量測定 1。荻木浅彦 編, 鉱石顕微鏡。テラ学術図書出版, 東京, 93-109。

清水以知子・島田耕史, 2002, レーザー偏光顕微鏡の開発と計量岩石組織学への応用。地質雑, **108**, 306-317。

鈴木舜一・小田幸人・南部松夫, 1982, 紀州鉾山付近における中新統のビトリナイトの熱変質。鉾山地質, **32**, 55-65。

Tissot, B. P., and D. H. Welte, 1984, Petroleum Formation and Occurrence, 2nd ed., Springer-Verlag, New York, 538 p。

千々和一豊・熊丸浩昭・白石和美・原田耕一郎, 1990, 山口県夾炭三畳紀の有機変成一大嶺・津布田炭田の石炭化度変成。日本地質学会西日本支部報, **94**, 15。

(要 旨)

橋本善孝・池原（大森）琴絵・清水以知子, 2004, レーザー顕微鏡によるビトリナイト反射率の定量化。地質雑, **110**, 771—778 (Hashimoto, Y., Ohmori-Ikehara, K. and Shimizu, I., 2004, Quantitative analysis of the vitrinite reflectance using a laser scanning microscope. *Jour. Geol. Soc. Japan.* **110**, 771—778)

走査型レーザー顕微鏡 (LSM) を用いた画像計測により堆積岩中のビトリナイト反射率を決定した。LSM では単波長で平行性のよいレーザー光線を用いているため、光源および単色フィルターの種類や絞り調整によらない客観的データを得ることができる。このような光学的な特徴に加えて、LSM では反射光の輝度分布をデジタルイメージとして処理することができるという利点もある。今回は LSM によって紀伊半島と九州の白亜系四万十帯から採取された試料を解析し、ビトリナイト反射率を精密に決定することに成功した。LSM のデータと従来の手法で調べた結果は同じトレンドを示すが、前者は後者に比べて相対的にやや低い値を示した。