微小なビトリナイト粒子のための反射率測定装置の製作

How to make a geothermometer for high-resolution measurements of the reflectance of small vitrinite particles

坂口有人^{*1} 向吉秀樹^{*2}

Arito Sakaguchi^{*1} and Hideki Mukoyoshi^{*2}

2011年11月16日受付.

2012年1月12日受理.

^{*1} (独)海洋研究開発機構地球内部ダイナミクス領域
Institute for Research on Earth Evolution (IFREE), Japan
Agency for Marine-Earth Science and Technology (JAM-
STEC), 3173-25 Showa, Kanazawa ward, Yokohama
236-0001, Japan

^{*2} (株)マリン・ワーク・ジャパン OD 科学技術部 (高知海洋課)
783-8502 高知県南国市物部乙 200
独立行政法人海洋研究開発機構 高知コア研究所内
Department of OD Science Technical Support, Marine
Works Japan, LTD. 200 Otsu, Nankoku City, Kochi
783-8502, Japan

Corresponding author; A. Sakaguchi,
arito@jamstec.go.jp

Abstract: Vitrinite reflectance geothermometer was originally developed for use in oil exploration, but it has various applications; e.g., estimating the depth of burial in sedimentary basins, analysis of the thermal structure of accretionary complexes, and detecting evidence of frictional heat in fault rocks. However, use of the vitrinite reflectance geothermometer is not widespread. This paper describes a modified apparatus that was specifically designed to analyze small vitrinite particles in accretionary complexes and fault rocks. The original apparatus was designed to illuminate large coal samples over a wide field of view ($>100\ \mu\text{m}$), and measured reflectance with a high-voltage photomultiplier. A wide field of illumination is required for petrographic identification of vitrinite; however, reflections from other bright minerals around the small vitrinite particles generate a high level of background noise. The apparatus described here has a dual illumination system: a homogeneous beam illuminates a wide field of view to allow identification of vitrinite, and a concentrated spot beam of only $1.6\ \mu\text{m}$ diameter is used to measure reflectance. The spot illumination system measures reflectance with a semiconductor photodiode sensor. The avalanche-type photodiode has a sensor cooling system, provides high-resolution, low-noise reflectance measurements, and is simpler to use than the photomultiplier.

Keywords: vitrinite reflectance, microscope, fault rock

はじめに

石炭組織の主要構成物の一つであるビトリナイトは、温度に強く依存して反射率を増加させることから、油田や炭田地帯を中心に続成～低変成度領域の地質温度計として広く用いられ、その測定方法は JIS (M 8816) や ISO (7404-5) として標準化されている。最近ではこの手法を付加体の古地温推定 (e.g., Mori and Taguchi, 1988; Sakaguchi, 1996; Ohmori et al., 1997) などに応用されるようになってきた。断層研究分野では、地震エネルギーの大半を断層の摩擦熱が占めると考えられており (e.g., Kanamori and Rivera, 2006), 断層帯の鋭敏な地質温度計が求められてきた。ビトリナイト反射率は、堆積物摩擦溶融シュードタキライト (Ikesawa et al., 2003; Mukoyoshi et al., 2006) や岩石–流体相互作用による化学的変質 (e.g., Ishikawa et al., 2008) や流体包有物 (Ujiie et al., 2008) 等と比較して、より低温のイベントを検出できることから (O'Hara, 2004; Sakaguchi et al., 2007; Sakaguchi et al., 2011), 堆積岩中の断層研究において注目されている。しかしビトリナイト反射率の測定装置は、国内の研究機関に広く普及しているとは言えない状況である。しかも炭田の炭質評価分野で発達してきた従来の測定機は、約 $75\ \mu\text{m}$ (#200 メッシュ) 以上の大きなビトリナイト表面のうち測定に適した一部 ($\phi = 10\ \mu\text{m}$) を測定するように設計されており、細粒試料の測定には不向きであった。とりわけ泥岩基質のメランジュの古地温環境や断層の摩擦発熱量から地震エネルギーを推定するといった研究テーマには、より微小なビトリナイトの反射率測定機が求められる。そこで本論では、その製作方法の詳細を紹介し、この分野の発展に寄与したい。

測定装置の概要

ビトリナイト反射率測定装置は、顕微鏡下において琢磨された石炭表面に落射光を入射し、そこからの反射光量を測定する。測定試料は岩石粉碎試料から石炭粒子のみを重液分離したものか、もしくは石炭を含む堆積岩の表面を琢磨したものである。前処理の詳細は JIS (M 8816) に記されているので、そちらを参照されたい。測定に必要なものは (1) 落射顕微鏡, (2) フォトセンサー, (3) 微小領域照明装置, (4) 電気信号読み取り装置, (5) 反射率標準試料の四点からなり、以下にその詳細を記す。

顕微鏡とフォトセンサー

いわゆる三眼式落射反射顕微鏡をベースに、カメラの焦点位置にフォトセンサーを設置する (Fig. 1)。対物レンズはカ

Fig. 1. Photograph of the vitrinite reflectance apparatus with a dual illumination system. The Köhler light source provides a broad field of illumination, and the critical light source (e.g., microscopic spot lighting unit, Lambda Vision Inc.) provides a spot beam.

バーガラスを使用しないタイプの油浸レンズ(40~60倍)を用いる。本論ではオリンパス社の落射用油浸対物レンズ(UPlan FLN 40x)を使用した。フォトセンサーは、反射率を0.01%の精度で測定でき、信号を定量的に1秒以内の応答で読み取り、 $546 \pm 5\text{nm}$ のフィルタを設け、測定視野 $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることがJIS(M 8816)およびISO(7404-5)で求められている。従来はフォトセンサーとして真空管型の光電子増倍管が使用されてきた。これは感度、S/N比ともにたいへん優れているが、高電圧電源などを含めて非常に高価なシステムになりがちであった。ビトリナイト反射率測定に必要な0.1~7.6%の反射率測定であれば、今や安価で取り扱いが容易なフォトダイオードに置き換えることが可能である。アバランシェ型のフォトダイオードと冷却素子およびプリアンプをモジュール化した製品が市販されており(例えば浜松フォトニクス社APDモジュールC4777-01等)、これを用いることで簡単にシステムを組むことができる。ただし使用する顕微鏡に合わせて接続アダプターを作成する必要がある。アダプターは、使用する三眼式顕微鏡のカメラ焦点位置と顕微鏡本体との距離に基づいて設計する。この焦点位置の計測にはスクリーンと視度調整装置環のあるルーペが有用である。通常の顕微鏡観察でピントが合っている状態で、三眼の光路上に視度調整済みのルーペを持っていき、スクリーン面上に対物レンズからの光を直接結像させる(Fig. 2)。顕微鏡本体から結像面までの距離は顕微鏡メーカーにより様々であるが、ここにフォトセンサーの受光面が来るようにアダ

Fig. 2. Schematic representation of the structure of the apparatus. The photodiode sensor (e.g., C4777-01, Hamamatsu Photonics Co. Ltd) measures reflectance at the imaging plane. The distance between the focal plane and body of the microscope (L) was measured using a loupe, and is the baseline length of the photo sensor adapter.

プターを設計する。アダプターにはピント調整と光軸修正のための上下水平数mmの微調整機構を持たせる。参考までに、Fig. 3にオリンパスBX51顕微鏡の場合のアダプター設計図を示す。また測定波長は $546 \pm 5\text{nm}$ であるため、アダプター内に透過率の高いバンドパス干渉フィルタを置く。

微小部照明装置

微小な領域でビトリナイト反射率を測定するためには、広域を照明したままその中の一部だけをスポット測光する方法と、最初から微小部のみを照明する方法がありうる。後者のいわばスポットライト方式は、断層岩のように同一視野中にビトリナイトと高輝度鉱物が混在する場合であっても、高輝度鉱物による散乱光ノイズを発生させることなく、ビトリナイト粒子のみを照明することができるため本論の目的に合致する。ただし顕微鏡の照明装置として広く用いられているケーラー照明光学系は、平行光線を試料に当てて広い範囲を均質に照明することができるが、回折の影響によりビームを細く絞ることが難しい(Fig. 4)。一方で、クリティカル照明光学系は光束を一点に収束させるため、スポットライトとしては優れているが、視野中心部のみを明るく照らすので、通常の顕微鏡観察には不向きである(Fig. 4)。クリティカル照明はレーザー共焦点顕微鏡などに使用されているが、昨今では半導体の検査用等の用途に標準的なシステム顕微鏡に取り付けられる照明装置も市販されるようになった(例えば、ラムダビジョン社の小穴反射計測照明ユニット等)。ビトリナイト反射率測定においては、産状観察に基づいて測光に相応しい場所を選んで測定するため、両方の特性が求められる。そこで本論では二つの照明系を搭載した。試料の観察にはケーラー式照明を用い、測定時には光路を切り替えてクリ

Fig. 3. Schematic representation of the photo sensor adapter for an Olympus BX51 microscope (top right) and details of its design (left).

ティカル照明の光のみが入射するようにした (Fig. 1)。観察時には二つの照明系の落射プリズムを併用するので視野はやや暗めになるが、測定時にはケーラー照明は光路からはずれるので、分析には影響しない。微小部測定には十分に強い光量が必要であることから、本論では光源としてキセノンランプを使用した。従来のビトリナイト反射率測定装置がケーラー式照明装置のみを用いて概ね $100\ \mu\text{m}$ 以上のエリアを照明し、その中心部だけを測光していたのに対して、本論の

測定装置では $1.6\ \mu\text{m}$ の微小エリアのみを照明・測光できるようになった (Fig. 5)。なおフォトセンサーの受光面面積は非常に小さいので ($\phi = 3\ \text{mm}$) センサー側に絞りを設置していない。これらの工夫により測定対象以外からの散乱光を防ぐことが可能となり、微小なビトリナイトの反射率測定が可能となった。

なお測定にあたっては、クリティカル照明は焦点位置によって光束幅が変化するので、本システムの場合では合焦位

Fig. 4. The Köhler-type illumination system uses a parallel beam to homogeneously illuminate a wide field of view for vitrinite identification. The critical-type illumination system generates a concentrated spot beam for the measurement of reflectance.

置から $10\ \mu\text{m}$ 以内程度に保つ必要がある。これは通常の顕微鏡観察に慣れていれば難しくはない。また、光源としたキセノンランプは、ランプ温度が安定化するまで 30 分程度のウォーミングアップが必要であるが、直流安定化電源を有しているので、その後の経時変化は比較的小さい。本システムの場合は 6 時間の間に反射率にして 0.01% 以下の変動しか認められない。

電気信号の読み取り装置

センサーにより光量は電圧もしくは電流値に変換されるので、これを読み取る。ピトリナイト反射率の測定範囲 0.2~7.6% の反射率において、本論で用いた APD モジュールの場合は光量に正比例して数 10~数 100 mV (DC) の電圧と

Fig. 6. Linear relationship between reflectance and output voltage.

して出力される (Fig. 6)。この光量と信号強度との関係は光学系や環境に依存するが、反射率 0.01% の測定精度を実現するためには概ね 0.5~1.0 mV の読み取り精度があればよく、高精度テスターでも十分に使用できる。後述の反射率標準試料により反射率と信号強度との関係式を導くことで試料の反射率値を得ることができる。信号の読み取りにデータログシステム (例えば、ナショナルインスツルメンツ社の LabVIEW 等) を使用すれば、パソコン上に反射率に変換した値を表示させることもできる。

反射率標準試料

ここで扱う反射率 (R) は、屈折率 1.518 の油浸下において

Fig. 5. Comparison of the fields of illumination for a $60\times$ objective lens from (a) the original and (b) the modified apparatus.

Table 1. Reflectances of easily obtainable standard materials. Reflectance was measured on a polished surface mounted on black resin.

Material	Reflective index	Reflectance (%)
Spinel	1.73	0.42
Leucosapphire	1.77	0.59
Yttrium aluminum garnet (YAG)	1.84	0.92
Gadolinium gallium garnet (3G)	1.98	1.73
Silicon carbide	2.66	7.50

表面が琢磨された試料に直交方向から波長 546 nm の光を入射し、直交方向に戻ってきた光の量と定義される。そして試料の屈折率 (n) と反射率は次の関係がある。(ただし光学系における吸収量が十分に小さい場合)。

$$R = ((n-1.518)^2 + n^2) / ((n+1.518)^2 + n^2) \times 100$$

これは屈折率が既知(精度 ± 0.001)の光学材料を反射率標準試料として用いることができることを意味し、ISO (7404-5)では適当なものとして Table 1 の光学材料を例示している。これらの光学材料を黒色の樹脂に埋包し、表面を琢磨することで標準試料を作成することができる。反射率ゼロの矯正はセンサー前の光路を塞いで暗黒状態の電圧値を用いるか、ISO (7404-5)では黒い樹脂に直径 5 mm、深さ 5 mm の穴をインマージョンオイルで満たしたもの、もしくはインマージョンオイルよりも屈折率が小さい光学ガラスの使用を勧めている。測定値はランプの温度や測定環境の影響を受けるので、矯正作業は測定毎に行うのがよい。また使用する標準試料は、測定する試料の反射率に近く、かつそれを内挿するものが良い。本論のシステムでは適切に矯正された場合、標準試料からの反射率の誤差は 0.01% 以下である。

ま と め

市販されているパーツと若干の製作部品を落射反射顕微鏡に取り付けることにより、微小なビトリナイト粒子の反射率測定機を作ることができる。とりわけ高輝度鉱物が混在する堆積岩や断層岩の古温度分析に優れており、本論によってこれまで陸源性有機物に乏しく大きなビトリナイトでの測定が困難であった付加体地域においても古地温を推定できるようになり、また、断層の摩擦発熱量の推定など新しい研究への応用が期待される。

謝 辞

産業総合研究所鈴木佑一郎氏には親切かつ的確な査読をして頂いた。本研究には科学研究補助金の一部が使われた。ここに記して感謝する。

引 用 文 献

Ikesawa, A., Sakaguchi, A. and Kimura, G., 2003, Pseudotachylite from an ancient accretionary complex: Evidence for

melt generation during seismic slip along a master decollement? *Geology*, **31**, 637–640.

Ishikawa, T., Tanimizu, M., Nagaishi, K., Matsuoka, J., Tadaï, O., Sakaguchi, M., Hirono, T., Mishima, T., Tanikawa, W., Lin, W., Kikuta, H., Soh, W. and Song, S., 2008. Coseismic fluid-rock interactions at high temperatures in the Chelungpu fault. *Nature Geosci.*, **1**, 679–683.

International Organization for Standardization, 1994, Methods for the petrographic analysis of bituminous coal and anthracite -Part 5: Method of determining microscopically the reflectance of vitrinite, ISO 7404-5.

Japanese Industrial Standards Committee, 1992, Solid mineral fuels-Methods of microscopical measurement for the macerals and reflectance, JIS M 8816.

Kanamori, H. and Rivera, L., 2006, *Energy partitioning during an earthquake*, Earthquakes: Radiated Energy and the Physics of Faulting, Geophysical Monograph Series (170). Amer. Geophys. Union, Washington, DC, pp. 3–13.

Mori, K., Taguchi, K., 1988, Examination of the low-grade metamorphism in the Shimanto Belt by vitrinite reflectance, *Modern Geol.*, **12**, 325–339.

Mukoyoshi, H., Sakaguchi, A., Otsuki, K., Hirono, T. and Soh, W., 2006, Co-seismic frictional melting along an out-of-sequence thrust in the Shimanto accretionary complex. Implications on the tsunamigenic potential of splay faults in modern subduction zones, *Earth and Planet. Sci. Lett.*, **245**, 330–343.

O'Hara, K., 2004, Paleo-stress estimates on ancient seismogenic faults based on frictional heating of coal. *Geophys. Res. Lett.*, **31**, L03601; doi:10.1029/2003GL018890.

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 geothermal gradient with ridge subduction beneath Cretaceous Shimanto accretionary prism, southwest Japan. *Geology*, **24**, 795–798.

Sakaguchi, A., Yanagihara, A., Ujiie, K., Tanaka, H. and Kamayama, H., 2007, Thermal maturity of a fold-thrust belt based on vitrinite reflectance analysis in the western foothills complex, western Taiwan. *Tectonophysics*, **443**, 220–232.

Sakaguchi, A., Chester, F., Curewitz, D., Fabbri, O., Goldsby, D., Kimura, G., Li, C., Masaki, Y., Sreaton, E. J., Tsutsumi, A., Ujiie, K. and Yamaguchi, A., 2011, Seismic slip propagation to the updip end of plate boundary subduction interface faults: Vitrinite reflectance geothermometry on Integrated Ocean Drilling Program NanTro SEIZE cores. *Geology*, **39**, 395–398.

Ujiie, K., Yamaguchi, A. and Taguchi, S., 2008, Stretching of fluid inclusions in calcite as an indicator of frictional heating on faults. *Geology*, **36**, 111–114.