

FTD (FISSION TRACK DATING) 法を用いる 石油熟成度評価法及び堆積盆解析

角 井 朝 昭 (燃料部)
Tomoaki Sumii

1. 石油地質学への FTD 法応用の目的別区分

石油地質学への FTD (Fission Track Dating) 法の応用目的は FT 年代値にどのような意味付けをするかという点から 以下の3つに大別される。

① 層序学 地質学上のイベントの時代 (numerical age) 決定に用いる。

測定対象鉱物を含む測定試料が 形成された年代を知ること (例えば ある火山岩の噴出年代をもとめる 火山灰層の形成年代を求めるといった) こそ 最も一般的な放射年代法の使用法だといえる。これは生層序学における示準化石の果たす役割と本質的に等しい。

各々の放射年代法には長所と短所があるが FTD 法を他の放射年代法と比べた場合 以下の点が石油地質と関連した層序学に應用する際の 長所として特徴づけられる。

*各 FTD 法の適用可能な時代は 測定鉱物中に含まれるウラン濃度によって限定される。ジルコンやアパタイトを用いる場合には 中世代の後期から 日本の油田地域の主体をなす新第三系にかけての試料が 最も測定に適したものとなる。

*条件が整えば (新しすぎるものには当てはまらない) 各粒子毎の年代が測定可能である。従って 噴出・堆積過程に混入した碎屑性物質の影響を除外することが可能である (図1)。

*ジルコンを測定対象鉱物として用いれば 風化変質による影響を受けにくい。従って 他の年代法では測定に適さないような試料も測定対象となりうる。

これらの特質から 日本に於いて FTD は おもにジルコンを測定対象鉱物とし 火山灰層の年代測定やグリーンタフの年代決定などに よく應用されてきた (文献 2, 3, 4, 5 など)。今後も層序学と関連した分野での年代決定法としての重要性を持ち続けると思われる。

② 碎屑物の後背地推定手段として用いる。

砂岩層などについての重鉱物分析を行えば 後背地についての様々な情報を得ることができる。重鉱物組成のかわりに 碎屑粒子の年代値構成を用いて 同じような考察を行おうというのが この方法である。

ある時代に形成された砂岩層中に含まれる碎屑性粒子

の年代は その時代に後背地に露出していた岩体についての情報を含む。これを用いれば 古地理 あるいは後背地に関する情報を引き出せる。連続柱状試料において 碎屑粒子の年代値構成に変化がみられた時には、後背地の変化 あるいは後背地における構造運動が推定されうる (図2, 文献6, 7)。このような応用例は 1980年代以降に始まったものであり 我が国のフィールドにおける応用例はない。

筆者は以上① ②を層序学的用法と 仮に分類する。これらは 測定鉱物が測定試料中に取り込まれた時点で持っていた年代値 および現在までの間に それに加算された年代値について考察するものである。①の場合 測定鉱物が測定試料中に取り込まれた時点では それまでに持っていた年代情報はリセットされており ②の場合には すでに何らかの年代情報を有していたことになる。この場合 現時点で有している年代値は それ以後の経過時間を加算したものである。

③ Chrono-thermometer: 時間記録装置のついた地質温度計 としてもちいる。

これに対して 第3番めに分類される方法は 少し発想法が異なる。FTD 法の閉鎖温度を利用して 一種の地質温度計 (Chrono-thermometer) として用いようというものである。これについては3項以下で詳説するが ①や②の場合と異なり 測定鉱物が測定試料中に取り込まれた時点で持っていた年代値 あるいはそれ以後の経過時間を扱うのではない という点が特徴となる。このような応用例は 1970年代末から現在に至るまで急激に増加しつつある。

2. FTD 法の応用分野の変化

1963年に FT 法による年代測定報告が初めて世に問われて以来 (文献8, 9) 一般に FTD の用例としては先に述べた①が主であった。

②と③の用法はそれに比べて応用例が格段に少ない。これらの応用例が増加したのは 1980年代に入って以後である。このような応用分野の分化は 年代法としての FTD 法の成熟を反映している。特に③については FT の熱的影響に対する基礎研究の蓄積が このような

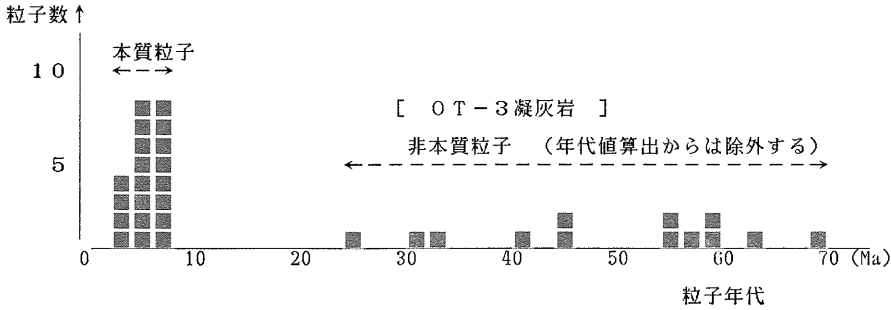


図 1 ED2 法でおこなった北陸新第三系の火山灰層中のジルコン測定例。2～8 Ma の間の年代値を有する粒子のみを本質粒子とした。20 Ma 以上の年代値を有する粒子は非本質粒子（火山灰層堆積時に混入した 碎屑粒子）として年代算出から除外した。火山灰試料などでこのような取り扱いが可能であることが FT 法の利点の一つである。角井 1986 より（一部改変）。

応用を可能にしたと考えられる。③のような応用例が開花するに至った状況については 第 5 項で述べる。

基礎研究の蓄積だけでなく 測定作業上のノウハウあるいは測定装置自身の性能などの 進歩による影響も大きい。以下に ちょっとした技術的ノウハウの獲得が 状況を激変させた例を紹介する。

各粒子について年代を求められることは FTD の優れた点の一つである。このおかげで火山灰層などの年代測定において 噴出・堆積過程に混入した碎屑性物質の影響を除外することができる。しかし 各粒子毎に年代値を求める方法が指向されたのは もともと粒子間のウラン濃度のばらつきによる影響に対処するためであった。

粒子間のウラン濃度のばらつきが ジルコンの FTD において 重要な問題であることは早くから指摘されていた。他の年代法では 通常 測定鉱物を 2 分し 一方を親元素の定量分析に用い 他方を娘元素の定量分析に用いる。ジルコンの FTD においても このような方法 (multi-grain 法 第 1 表参照) を用いることは可能

であるが この場合 ウラン濃度のばらつきに起因する系統誤差の影響をうけやすくなる。ジルコンの FTD において 各粒子毎で年代を算出する (single-grain 法) のは 年代法として一定の信頼度を保つために克服されるべき必要条件であった。

ジルコンの FTD において 各粒子の年代を求める方法が試みられたのは 1960 年代末から 1970 年代始めにさかのぼることができる。しかし 実験操作は複雑でありとても簡単に行えるといえるものではなかった。

ジルコンの FT エッチング条件は 強酸あるいは強アルカリを用い 摂氏 200 度から 500 度前後という苛酷なものであった。この条件に耐え得るマウント法が 1970 年代中ごろまで開発されなかったのが 実験操作の複雑さの主な原因であった。

1970 年代前半に single-grain 法として行われていた方法は Naeser (USGS) らのいわゆる 外部検出器 (external detector) 法 西村進 (当時は京大教養部) らのいわゆる re-etch 法などであった。

筆者が在籍した京大の実験室では おもに re-etch 法

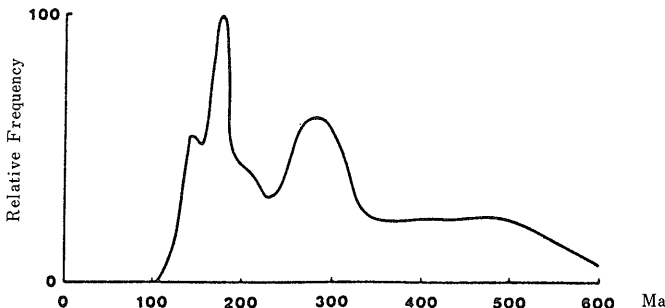


図 2

白亜紀砂岩層中の碎屑性ジルコン結晶の粒子年代スペクトラム。141, 175, 277 Ma などピークがみられる。年代値は ED1 法によるもの。これらの情報から古地理・後背地についての考察を行う。Hurford 他 1984 より（一部改変）。

表 1 FDT 法の各手法の分類

手法名	測定面			アニーリング
	外部面	外部検出器	内部面	
Multi-grain 法				
Population P1	—	—	S, I	おこなう おこなう
Population P2	S, I	—	—	
Subtraction S1	—	—	S, S + I	—
Subtraction S2	S, S + I	—	—	
Single-grain法				
External Detector ED1	—	I	S	—
External Detector ED2	S	I	—	
Re-etch RE1	I	—	S	—
Re-etch RE2	S, I	—	—	
Re-polish RP1	—	—	S, S + I	—
Re-polish RP2	—	—	S, I	

S : 自発トラックの計数に用いる。
 I : 誘導トラックの計数に用いる。
 S + I : (自発トラック + 誘導トラック) の計数に用いる。
 — : この手法では用いない。

による測定が行われていた。後述するマウント法を導入する以前は、自発トラック計数時と誘導トラック計数時において個々の結晶粒（マウントされていない！）を鏡下で同定する作業が非常に困難であった。この作業はカードゲームにたとえて神経衰弱とよばれていたが、測定者にとってはまことにやっかいな作業であり、かなりの神経的消耗を伴うものであった。測定に用いる結晶は通常、径 0.1mm 程度のものであり、高解像度の顕微鏡を用いても、同定作業は容易なものではなかった（文献11, 12）。

Naeser の方法（文献13）も

- ① ジルコン結晶は、研磨時に固定した樹脂マウント材ごとエッチングする（樹脂マウント材は完全に溶解する）
- ② その後で試料鉱物を回収し、しかも、研磨面を露出させた状態でプラスチックなどに再マウントする
- ③ 再マウントしたものに、外部検出器を密着させて中性子照射する

表 2 主な年代測定法の閉鎖温度

年代法	測定鉱物	閉鎖温度 (°C)
FT	アバタイト	110 ± 15
FT	ジルコン	200 ± 30
K-Ar	黒雲母	270 ± 40
FT	スフェーン	290 ± 40
Rb-Sr	黒雲母	310 ± 40
Rb-Sr	マイクログクリン	340 ± 40
Rb-Sr	正長石	360 ± 40
K-Ar	ホルンブレンド	500 ± 75
K-Ar	全岩	400-600
Rb-Sr	全岩	岩体の形成時代を示す

FTD 法は測定試料の取り扱い方から multi-grain 法と single-grain 法に大別される。multi-grain 法では試料を二分し、一方を ρ_s （自発トラック密度）の測定に用い、他方を ρ_i （誘導トラック密度）の測定に用いる。single-grain 法の測定は、各粒子単位でおこなわれる。すなわち各粒子について、それぞれ ρ_s と ρ_i が測定される。この場合、FT 年代値は測定粒子すべての平均 ρ_s と平均 ρ_i から算出されるが、各粒子毎に年代値を算出することも可能である。Gleadow, 1981より（一部改変）。

という、きわめて面倒でロスの大いのものであった。

テフロンシートにジルコンをマウントし、そのまま研磨-エッチング-照射-測定する（研磨せずに、自然結晶面を用いる手順もある）手順が（図3参照）、一般的になったのは文献14以後である。これにより、ジルコンの FTD においてエッチング条件の細かい調整が可能になり、しかも作業手順が大幅に簡略化された。エッチング条件の細かい設定が可能になったことは、測定における実験操作上の誤差を減少させるための重要な要因でもある（図4）。このことを考えると、マウント法の開発という、一見小さな技術的進歩は、FTD 法において実に重要な進歩であった。

multi-grain 法に比べて作業手順が複雑になる single-grain 法を用いる主目的は、粒子間のウラン濃度のばらつきによる影響を除外することであった。しかし、各粒子毎の年代が測定可能になったことから、噴出・堆積過程に混入した碎屑性物質の影響を除外することができ

この表の値は冷却速度を 10°/My としたときのものである。閉鎖温度は冷却速度によって異なることに注意。これらを組み合わせるにより、上下数百度の範囲にわたる熱史を考察することができる。Nishimura and Mogi, 1986より（一部改変）。

るようになった。第1項で述べたFTD法の応用目的のうち第2のような例が出現するようになった背景にはこのような実験ノウハウの成立の影響が無視できない。

上に述べたのはちょっとした実験技術の進歩が測定値の信頼度向上にどれだけ関与するかという一例である。測定作業全般においてこのようなちょっとした諸々の実験ノウハウが蓄積されれば全体として測定値の信頼度に大きな影響を与えるようになる。FTD法においてもこのように塵も積もれば山になるの諺そのままの実験ノウハウの蓄積があり測定値の信頼度はそれにつれて格段に向上した。

測定装置自身の性能向上ももちろん測定値の精度向上を考えるうえできわめて重要な制限要因となる。1960年代 1970年代初頭に比べてFTD法の測定装置すなわち光学顕微鏡の解像能力は格段に向上した。測定値の信頼度(FT検出効率及びFT同定作業における確実さ)もそれに伴うだけ向上した。

これら諸々の成果が総合されて1970年代末以後年代法及び年代値の信頼度は飛躍的に進んだといえる。ただしこれらの進歩により報告される測定値の有効桁数が増加したわけではない。中期中新世試料の年代測定を例にとると測定値は10年前も現在も $10.2 \pm 1.5\text{Ma}$ (誤差は2 σ)というふうに通常は3桁まで報告されており見掛け上の変化はない。

ED1、ED2法の測定手順(概略)

1. 測定鉱物の分離
(バニング→重液分離→磁選→ハンドピック)
2. 試料の固定(樹脂やテフロンシートへ)
3. 研磨(ED1のみ)
4. 測定鉱物のエッチング
5. 自発トラック密度の測定→ ρ_s
6. 外部検出器(マスコバイト)の取り付け
7. 熱中性子照射
8. 外部検出器のエッチング
9. 誘導トラック密度の測定→ ρ_i
10. 照射線量の測定
=標準ガラスの誘導トラック密度の測定→ ρ_d
11. ρ_s 、 ρ_i 、 ρ_d よりFT年代値を求める。

図3 ED1, ED2法の測定手順(概略)。ED2法では測定鉱物の自然結晶面を用いるため研磨は行われない。外部検出器としてはウラン濃度の低い白雲母などが用いられる。結晶中のウラン濃度不均一による影響を避けるため ρ_i の測定領域は ρ_s 測定に用いた範囲に正確に対応させる。

報告値に付された誤差(計数誤差)についても同様である。計数誤差は計測されたトラック数から計算されたものである。計数誤差はカウント総数が増加すれば相対的に小さくなるが個々のカウント操作における信

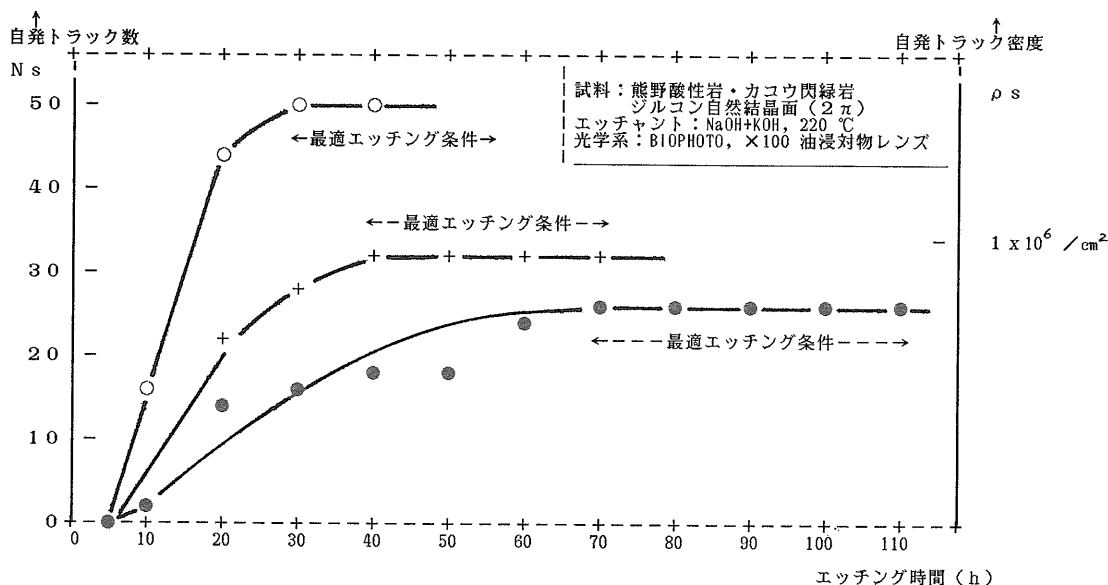


図4 ジルコン結晶の段階エッチング実験例。横軸にエッチング時間 縦軸に定面積あたりのトラック数をとった。飽和ステージに到達するのに要する時間が粒子によって著しく異なる。エッチング条件の最適化を粒子毎に行うことがデータの再現性を向上させるために必要であることがわかる。角井未公表データ。文献15参照。

頼度（検出効率や判定精度）を向上させたとしても 小さくはならない。したがって 年代値の信頼度の向上は表面には現われない。

測定技術の向上がもたらしたものは $10.2 \pm 1.5\text{Ma}$ という 同じように報告される数値における “数字にならない” 誤差部分の減少なのである。

測定装置についてさらに述べよう。第1項で第3のFTD法応用例と分類した地質温度計としての用例は最近急激に増加している。この背景には画像解析装置の実用化という状況を無視することができない。これについて考察するとともに 今後FTDの実験室環境及びFTD研究者の置かれる立場について考えてみよう。

FTDにおける検鏡作業は もし過度に行われた場合実験者の眼や精神衛生にとって けって好ましいものではない。筆者は一日のうち 8時間以上をFT検鏡作業に費やすという生活を一週間ほど続けたことがある。このような生活を続けていると 夢のなかにまでFTが現われて グリーンの視野（検鏡観察には 緑色のフィルタを用いていた）の中を飛びかき出すようになる。朝は何時間眠った後でも まだ眠り足りないような気分がし 作業終了後も酒のまわりかたが早くなる。とにかく疲れるのだ。

大量のデータ蓄積を要するような研究テーマだと 一連の測定作業に数週間 場合によっては数か月を要することもある。しかも そのような場合 作業内容の大半を単調な測定の繰り返しが占めることになる。筆者は かつてトラックの方向分析作業（鏡下で試料を観察しながら 写真上で投影角測定する）を行ったことがある。測定すべきトラック総数は わずか2,000だったから順調にいけば まる3日もあれば終了するはずだった。しかし このような作業を長時間連続して行えるものではない。作業が終了したのは1週間後で その間ずっと分度器に襲われる悪夢にうなされることとなった。

「画像解析装置を用いて 計測・計数作業すべてが完全自動化できれば どんなか楽になるのに！」…このような実験を続けていると心底からそう思う。画像解析装置の導入による完全自動化は FTD屋の十年来の悲願である（文献12）が この筆者らの夢が完全になえられるのは まだ少し先のことになりそうだ。

しかし トラック長測定作業に限定すれば 画像解析装置の利用がやっと実用化された（文献18）ことは大きな福音である。これでFTD屋の夢見も少しはよくなりそうだ。今度は画像解析装置が故障する夢に夜毎うなされるようになるかもしれないが…。

さて エッチングされたFTは 鉱物中にある線状の

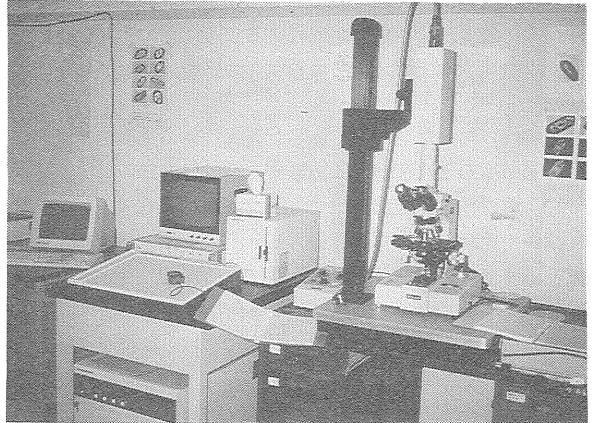


図5 画像解析装置と光学顕微鏡。京大地球科学部 FT 実験室。

空隙である。FTDの層序学的用法では 主としてその密度のみを情報として用いてきた。ところが第5項で紹介する AFTA(Apatite Fission Track Analysis: 石油熟成度評価 および堆積盆の熱史復元などの重要な tool として注目されている) ではトラック長分布の測定が重要な役割をしている。画像解析装置なしで 統計的に意味のある数に至るまでトラック長や方向を測定するのは容易ではない。画像解析装置の導入は 今後のFTD状況を激変させるだけの要因となるだろう。

他の年代測定法に比べて測定装置が簡単であることはFTD法の一つの利点であった（文献11, 12）。測定手順自身もさほどの熟練を要さないことも利点の一つに数えられていた。

日本においてFTDの実験室が異常に多い（1987年現在 K-Ar法の実験室の3倍以上はある）のは おもにこの二つを理由としているといっても過言ではない。また1970年代においては 上記のような “簡便なわりには信頼できる” 年代法として FTD法が地質学の業界において 一定の存在意義をみだしていたのも事実である。

しかし 昨今は状況がかなり変化してきた。他の年代法の精度向上に伴い FT年代値に要求される精度が格段に厳しくなってきたのだ。もちろん それに対応すべく FTD法の測定作業全般における技術も進歩した。このことは 年代法としては非常に健全な発展であると思うが 半面で これまでに蓄積してきた測定成果の価値を どんどんと目減りさせるという結果をもたらした。

年代値の信頼度を少しでも向上させるためには うんざりするほどの基礎実験の蓄積と不断の努力が必要である。そのため FTD研究者は基礎実験に明け暮れる

ことになる。技術革新に乗り遅れて“使い物にならなくなった”年代値をいつまでも生産し続けるわけにはいけないので、海外の実験室の最新動向にも常に注目していないといけない。

…ところが測定法が進歩すると過去における測定値の相対的価値が下落する。10年前に（傍からはいかにも簡便な方法と見えたかもしれないが）最善の努力を払って測定した報告値が今日からすると信頼度が不十分であるとして再測定を期待されるようになる。10年以上前に報告された“簡便なわりには信頼でき”た年代値のなかには、現在においては“もはや信頼度が低くて使い物にならない”ものになってしまったものも多い。

測定値の蓄積は測定者の財産である。測定者自身の手による精度向上の努力が測定者の財産を喰い潰していくというのは皮肉な構図である。かといって測定法の進歩を停止させて十年一日のごとき測定を繰り返していてもしょうがない。しょうがないからFTD研究者は基礎実験に明け暮れることになる…。—FTD屋の実情は楽なものではないのである。

このような状況において質のよい（その時点における最良の技術的裏付けをもった）年代値を生産し続けるのは容易なことではない。測定作業全般について測定者個人が深い理解を有していることが必要となる。従って「測定においてさほどの熟練を要さない」ことがFTD法の利点であるとはもはやいえなくなっている。

FT年代値に要求される精度は今後ますます厳しくなるだろう。それに対処するため画像処理装置が(AFTA以外にも)必要不可欠の装備となる日も遠からずやってくるだろう。そうなると装置が他の年代測定法に比べて格段に簡単でしかも安価であるともいえなくなるだろう。

以上のような状況を見ると“簡便だから”という理由からFTDを年代測定手段として選ぶ時代は終わりつつあるように思える。今後はFTDの年代法としての特質を生かした適用つまり“このような情報はFTDでしか得られない”といった応用のみを指すべきであろう。

3. 閉鎖温度と Chrono-thermometer

放射年代法が求める年代値とは何だろうか？それは測定試料が閉鎖温度以下に冷却されて以後の時間である。閉鎖温度とは同位体年代法においては放射性崩壊によって生じる娘元素を系内に閉じ込めておけるようになる温度を意味する。晶出後ずっと閉鎖温度以上の環境下に置かれたものが閉鎖温度以下に冷却されると

その時点からの年代値が記録されるようになる。

閉鎖温度は個々の放射年代法あるいは試料鉱物の種類や化学組成などによっても異なる。また、厳密にいうと冷却速度によっても違ってくる。

生成（あるいは晶出）後急冷されるような状況においては試料生成時と閉鎖温度通過時は同時と考えて差し支えない。このような場合試料鉱物は試料生成年代の記録者として取り扱われる（文献16）。

ある試料鉱物が試料中に取り込まれて以後、何らかの影響により閉鎖温度以上に加熱されるという地質イベントがあったとする。このときそれまでの持っていた年代値は消去（リセット）され閉鎖温度以下に冷却された後に新たに記録が蓄えられ始める。

さて閉鎖温度以上からそれ以下に冷却された後に採集した試料を分析する場合を考えよう。この試料を測定することにより得られる情報は「閉鎖温度以下に冷却されて以後の経過時間」だけでなく「閉鎖温度」に関する情報も含む。つまり「一番最近に摂氏〇〇度だったのは何百万年前か？」という情報が得られるのである。

時間についての情報以外に温度についての情報も得られることからこれらはChrono-thermometerといわれる。閉鎖温度に左右される放射年代法はすべてChrono-thermometerとしての機能を持っている。ここで試料鉱物は試料の生成年代（あるいは晶出年代）ではなく温度上昇、温度下降を伴う地質イベントの外的記録者として振る舞うことに注意されたい。

FTD法において時間情報を担うのはウラン238が自発核分裂した際に生じる分裂片の軌跡（トラック）である。この軌跡は試料の温度がある温度よりも高いと記録されない。また一度記録された分裂片の軌跡も加熱されると消去されてしまう。FTD法において閉鎖温度とは軌跡が記録されるようになる温度を意味する（文献18）。

なお時間情報を消去する温度以外の外的要素としては圧力が考えられる。FTDにおいては雲母類で偏圧が影響することが知られている他は一般に圧力の影響は無視できることが確認されている（文献12, 19）。

4. Chrono-thermometer としての FTD 研究例

先にも述べたように閉鎖温度は放射年代法測定鉱物種などによって異なる。したがって対象とすべき地質イベントに伴う温度によって用いるべき放射年代法を使い分ける必要がある。また閉鎖温度の異なるい

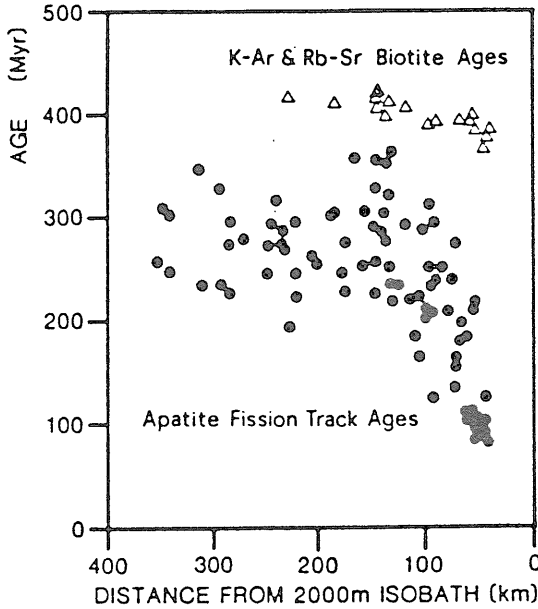


図 6 南東オーストラリアの古生代カコウ岩類の放射年代値分布：白三角は黒雲母の Rb-Sr 法または K-Ar 法年代値で 岩体の形成年代に近接した値であると考えられる。黒丸はアパタイト FT 年代である。大陸縁からの距離（横軸）130km までが 80-100Ma の間におこったタスマニア海の生成に伴う熱イベントの影響が及んだ範囲である。Moore 他 1986より。

くつかの放射年代法を組み合わせることにより 複雑な事例も解明できる。

Chrono-thermometer としての FTD の特徴を あえて挙げるとすると三点に集約される。つまり

1. アパタイト FTD 法の閉鎖温度が 他の放射年代法と比べて低いこと。従って 低温域の熱履歴についての考察が可能なこと。
2. 年代情報が熱（即ち温度）のみに依存すること。
3. トラック長解析を行えば 閉鎖温度周辺において詳細な応用が可能なこと。

である。これらについては 5 項で詳説する。

1980 年代になって以降 Chrono-thermometer として FTD を用いる研究例は増加している。資源探査への応用例に限定すると 代表的なものとして

1. 鉱床探査・地熱資源評価
 2. 石油熟成度評価 堆積盆解析
- などがあげられる。以下に簡単に紹介しよう。
- ① 鉱床探査・地熱資源評価

Chrono-thermometer で知ることのできるの は 過去の（あるいは過去から現在まで継続した）昇温-冷却を伴う地質事象の 温度及び時間情報である。したがって 火成作用や熱水作用に関連した成因を持つ鉱床の探査や地熱資源の探査は Chrono-thermometer を用いる重要なフィールドの一つであるといえよう。

金属鉱床探査に FTD を用いた例としては文献20がある。あくまでもテストケースではあるが FT 法を用いた地表マッピング調査が 潜頭鉱床の探査に有効であ

ることを示したのは注目に値する。同様な発想での（つまり比較的短期間における昇温イベントの記録計として）より大きなスケールでの応用例としては 文献21が挙げられる。この研究は広域にわたるマッピング測定により 大陸地殻分裂時における温度上昇量・熱的影響の及んだ範囲について考察したものである（図6）。

一種類の Chrono-thermometer だけを用いる場合には 用いた温度計の閉鎖温度と その通過についての時代情報（摂氏〇〇度だったのは何百万年前か？）しか得られない。しかし 閉鎖温度の異なる Chrono-thermometer をいくつか組み合わせれば より広い温度幅についての熱史考察が可能となる。つまり「*度だったのは何百万年前で +度だったのは何百万年前で…〇度だったのは何百万年前なのか？」が分かるのである。

文献17は K-Ar 法や Rb-Sr 法と各種の FTD 法を組み合わせることにより 摂氏500度から100度の温度範囲における熱史（冷却史）を考察した例である。この研究では 地熱資源としての花崗岩体冷却史が考察の対象とされているが このようなアプローチは アップリフトを伴う大規模な構造発達史の解析法としても極めて有効である（文献22 図7）。

② 石油熟成度評価 堆積盆解析

アパタイトを測定対象鉱物とした FTD の閉鎖温度は 100℃ 前後であるといわれている。すなわち アパタイトの FT 年代は 試料がこの温度環境に置かれたときにリセットする（年代値が0になる）。この現象を用い

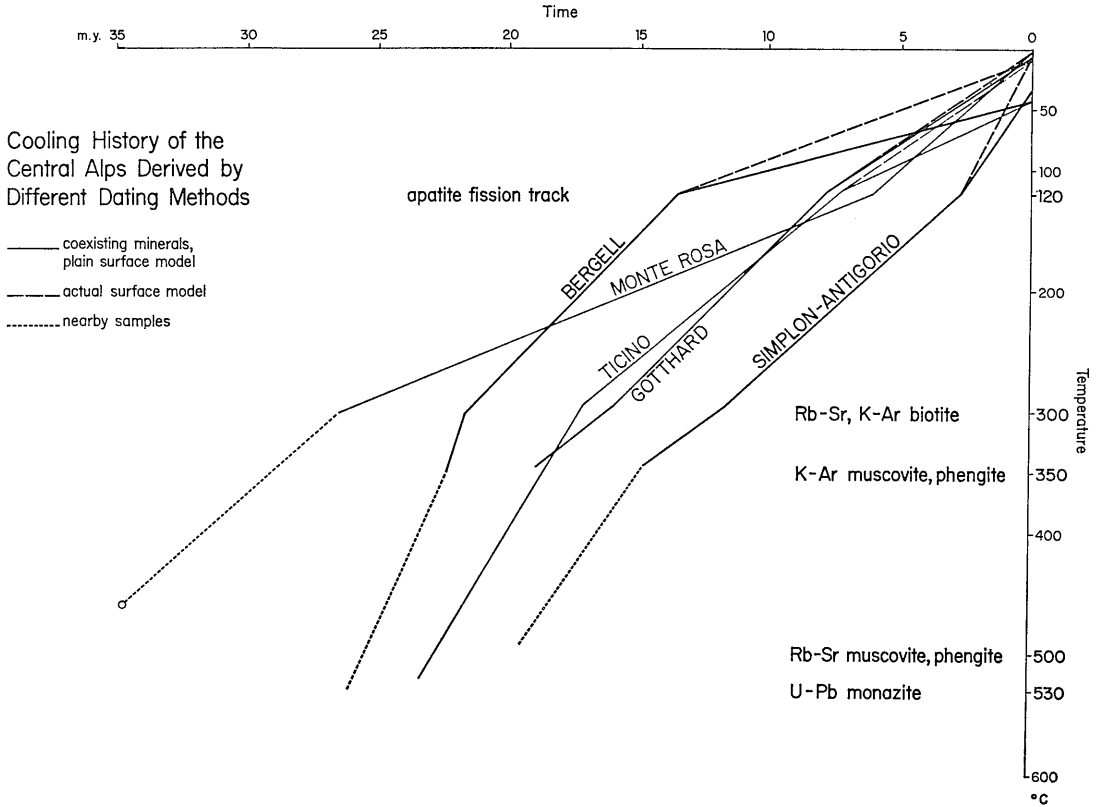


図7 閉鎖温度の異なる放射年代法をいくつか組み合わせて中央アルプスの冷却史を考察した例。温度勾配を仮定すればこのグラフは上昇史を表わしていることにもなる。表2参照。Wagner 他 1977より。

ば低温変成領域あるいは統成作用領域における熱史の解明が可能である。また石油が熟成する温度もこの温度幅にほぼ一致する。従ってアパタイトのFTD法はビトリナイト反射率やコドントの色指数などと同様に石油熟成度を評価するためのパラメータとして利用できる。

碎屑粒子として堆積物中に含まれるアパタイト結晶をChrono-thermometerとしてこのような目的に用いようというのがこの方法の概要である(文献23)。次項ではこれについて詳しく述べる。

5. AFTA (Apatite Fission Track Analysis)

*AFTAの歴史と現状

先に述べたようにアパタイトを測定対象鉱物としたFTDの閉鎖温度は100°C前後(冷却速度によって異なる)であるといわれている。ただしここでいう閉鎖温度は地質学的時間(数万年あるいは数百万年)での話である(図8参照)。以下の議論はすべて地質学的時間に

ついてのものである。

アパタイトのFT年代は試料がこの温度環境に置かれたときにリセットする(トラックが消去され年代値が0になる)。試料がもしこの温度まで加熱されたのち(あるいは晶出以後ずっとこの温度以上であったものが)冷却されたとしよう。この場合この試料中のアパタイトが持っているFT年代情報は試料が閉鎖温度以下に冷却されて以後の経過時間を意味する。

別の例を考えてみよう。試料中のアパタイトのFT年代値がゼロであったとする。この場合この試料は採集時までアパタイトの閉鎖温度以上の環境下にあったことになる。逆にアパタイトが測定試料中に取り込まれた時点以前から蓄えてきた年代値をそのまま保持しているならばこの試料はアパタイトの閉鎖温度以上には加熱されたことがないはずである。この原理を用いればアパタイトFTD法は100°C前後に感度をもった地質温度計として利用することができる。

具体的な例について考えてみよう。100Maの年代

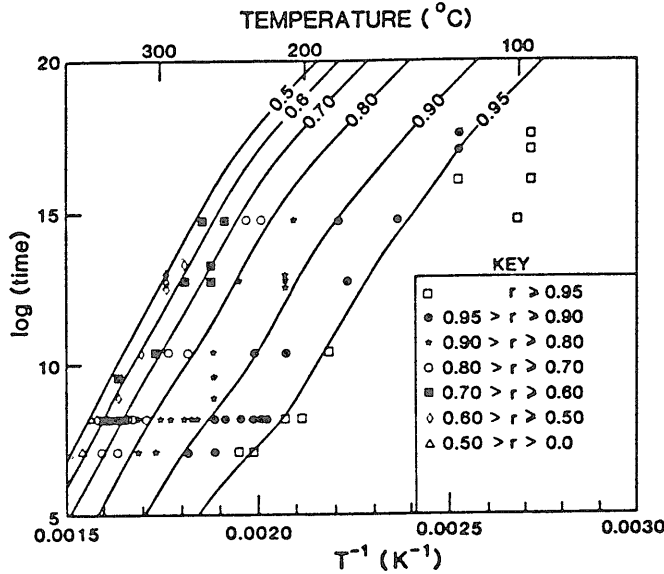


図 8

アパタイト FT のアニーリング (加熱) 実験結果から求めた 同程度のアニーリング量 (トラック長の減少率から評価する) に要する 温度-時間条件の関係. アニーリングにより トラック長は短縮するが これにより見掛けのトラック密度が減少し 従って見掛けの FT 年代が減少する. 図11参照. Laslett 他 1987より.

値を有する火山岩体由来する砕屑粒子が 10Ma に堆積した砂岩に含まれる場合を想定しよう. この砂岩をサンプリングし 砕屑アパタイト結晶の年代値を測定したとする.

測定値が 100Ma の年代値を示せば この砂岩試料は堆積後 10My の間ずっと閉鎖温度以下の環境下にあったはずである. 年代値が 0 であったとすると この砂岩試料は採集された時点現在で閉鎖温度以上の環境下にあったことになる. 年代値が 5 Ma であったとすると この砂岩試料は採集された時点現在では 閉鎖温度以下の環境下にあるが 五百万年前には閉鎖温度以上の環境下であり その後冷却されたということになる. ただし 閉鎖温度付近では 見掛けの FT 年代が複雑に変化するため 最後の事例については他の熱史パターンを反映している可能性もある. この場合 トラック長分布解析による より詳細な検討が必要となる.

AFTA (Apatite Fission Track Analysis) の石油地質に特に関連した先駆的研究としては 文献23が挙げられる. 筆者は彼らの この論文を高い歴史的価値を持ったものとして評価する.

この研究において特記すべき事柄は 2 点ある. 一つめは 石油地質学の分野において AFTA (すなわちアパタイト FTD 法及びトラック長分布解析法) が極めて有益な手段であることを実例を以て示したことである. 二つめは特にトラック長分布解析法に関する事項である. それまでの AFTA 研究では トラック長分布は定性的な取り扱いしかされていなかった. Gleadow らの研究では トラック長分布解析法は 閉鎖温度周辺で

の準定量的な熱史解析手段まで高められている. これらについて順を追って説明しよう.

第 4 項でも述べたように 摂氏 100 度付近の温度は石油の熟成帯付近に相当する. ボーリング試料を用いて 堆積岩中に砕屑物として取り込まれた アパタイトの FT 年代の垂直方向変化を連続的に測定すれば 石油の熟成帯付近で試料の年代がリセットされているのが確認されるはずである. 逆に アパタイトの見掛けの FT 年代は石油の熟成度評価の良好な指標となるはずである.

でも ホントにそんなに巧いくものだろうか? どんなに確からしい理論も 現実の証拠なしでは なかなか信用してもらえないのは世の常である. 実例 先例のない新手法を導入するのは容易なことではない. アパタイト FTD の地質温度計としての 他の分野への有用性は実証済みであった. では 堆積盆における古地温解析法と AFTA の応用は これらの応用例とどの点が異なっていただろうか?

この用法においては測定対象試料が堆積岩であることを用いる Chrono-thermometer が 砕屑物として試料中に取り込まれたものである点が 従来の AFTA の用法と異なっていた. これは Chrono-thermometer の適用原理とは直接関係する点ではない. しかし このような用法においても AFTA が有効であることは やはり実例をもって証明される必要があった.

Gleadow らは実際にオーストラリア南東の 2 堆積盆におけるボーリング試料を解析し 現在の地温などとの間に 彼らの予想どおりの FT 年代値変化を見いだし

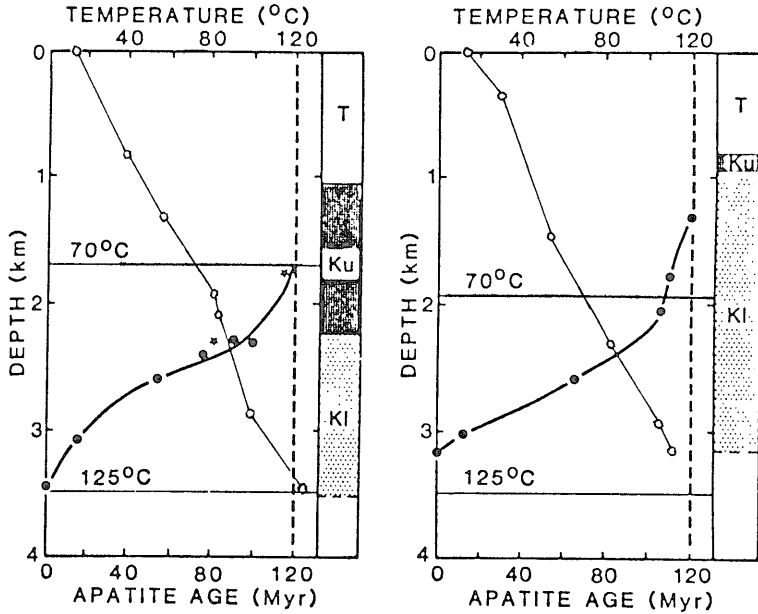


図9 Otway 堆積盆(南東オーストラリア)の2つの坑井 Flaxman's-1 (左)と Eumeralla-1 (右)のアパタイト FT 年代値(黒丸と黒星 ただし黒星は近傍の他坑井試料の分析値)と現在の温度(白丸). 碎屑アパタイト結晶はもともと 約120Maの FT 年代値を有していたと考えられる. Flaxman's-1では現在地温70~125°Cのアニーリング帯で見掛けの FT 年代値が次第に減少している. これに対し Eumeralla-1では現在地温70°C以下の浅部においても FT 年代の異常が見られる. また見掛けの FT 年代値の変化パターンも Flaxman's-1とはことなる. これは Eumeralla-1では過去において現在よりも地温の高かった時期があったためであると解釈される. Gleadow 他 1983より.

た. アパタイトの FT 年代が 堆積岩の熱史を解析するための手段として有効であることが 初めて実証されたのである(図9).

石油生成過程において 石油熟成は熱史の反映であるから AFTA は石油熟成度の指標としても有効であるはずである. 他の地質温度計・熟成度パラメータとの関係を見てみよう. 既存の石油熟成度評価指数として最も一般的に用いられているのは ビトリナイト反射率(R_0)である. 図10は地温—石油・ガスの熟成帯に対して 2つのパラメータ —ビトリナイト反射率(R_0)—アパタイト FT Chrono-thermometer 感度域の関連を示したものである. これらの2つのパラメータ間には 顕著な相関が見られることがわかる.

これら二つのパラメータは 共に時間と温度を変数とした関数の 一種の積分値(つまり 熱史全体の反映)を意味する. 図から読み取れるように AFTA と R_0 では感度域は完全に平行とはならない. このことは 時間と温度の関与の仕方が 両者において微妙に異なることを示している. したがって これらのパラメータを相補的に用いれば 石油熟成温度近傍における詳細な熱史が明らかになるだろう.

石油熟成度評価パラメータは 熱史全体を反映する積分的な数値であると述べた. AFTA は温度計としての側面以外に年代法としての側面を持っている. したがって 事例によっては熱史における何らかの時間情報を得ることもできる.

石油地質の分野における Chrono-thermometer とし

1988年2月号

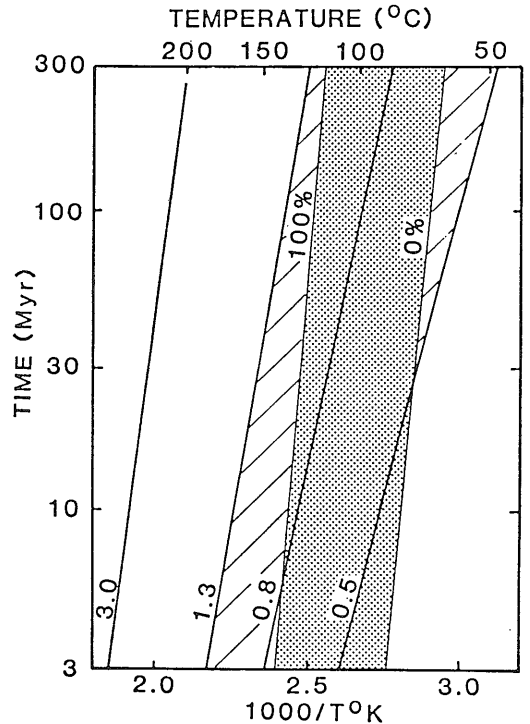


図10 時間—温度条件と ビトリナイト反射率変化 アパタイト FT のアニーリング帯の関係. アパタイト FT のアニーリング帯(0%から100%(FT 年代が完全にリセットされる条件)まで)と $R_0=0.5\sim 1.3$ の石油熟成帯(斜線で示す)は ほぼ一致している. Gleadow 他 1983より(一部改変).

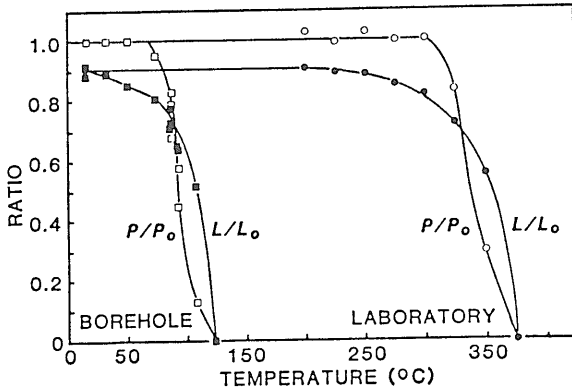


図 11

ボーリング試料(左)と室内実験(右 1時間の定温連続加熱)におけるトラック長の減少と見掛けの FT 密度の変化. ρ :トラック密度. ρ_0 :初期のトラック密度. L :平均トラック長. L_0 :新鮮な誘導トラックの平均トラック長. なお FT 密度の減少率は見掛けの FT 年代値減少率に一致する. Gleadow 他 1983より.

ての現実的一步を AFTA は かくして踏み出したのである. 後は個別のフィールドにおいて実際に応用例を積み重ねていくだけである.

次にトラック長分布測定について述べるが その前に AFTA の応用史・技術発展史を振り返ってみよう.

低温変成領域 あるいは続成作用領域における熱史の解明のための有効な手段として AFTA が利用できることは 1970 年代の初頭にはすでに指摘されていた(文献 24). その後 低温度領域の Chrono-thermometer として 構造地質分野への応用例も少なくはなかった.

自然界において何らかの二次的熱影響(たとえば 火成岩脈の貫入など)を被った試料では トラック長が短くなることは この頃にはすでに気付かれていた. また 加熱実験(不完全なアニーリング)をうけた試料において トラック長分布が短くなることも早くから気付かれていた. ただし 短縮量を用いて準定量的な議論を行うだけの下地はまだ形成されていなかった.

AFTA の Chrono-thermometer としての応用例が増加するとともに アパタイトのアニーリングについての基礎的実験結果が 主として Gleadow 一派(メルボルン大学 FT 研究グループ)によって蓄積されていた. およそ思いつかぎりといつてよいほどの多様な加熱実験が行われた. トラック長分布に対する熱の影響についてもやはり詳細な実験が行われた.

それらの中には 「トラック長の測定精度は いかによれば向上するか?」とか 「トラック長の短縮は 見掛けの FT 年代値にどう影響するか?」とか 「測定値を取り扱う際の統計的諸問題」などといった きわめて基礎的な項目も含まれていた. 彼らは トラック長の測定に画像解析装置を用いることにも成功しているがこれは以上のような基礎的研究の蓄積に負うところが大きい(文献18).

1970年代末から 彼らのグループが行ってきた一連の

基礎的実験に注がれた多大なエネルギーには 圧倒される. なお 彼らの数々の基礎実験の成果は 文献18, 21, 25, 26などに集積されている.

そろそろ本題に戻ろう. そもそも なぜトラック長分布が熱史解析に役立つのだろうか? それは 「FT はどのようにして消去されるか あるいは どのようにして消えていくか?」 ということと密接な関係がある.

第3項でエッチングされる前の FT は 加熱によって消去されると述べた. また FT が完全に消滅してしまう温度をもって FTD の閉鎖温度と呼んだ. 改めて思い出してほしい. FT は結晶中に含まれる 10~20 μm 前後の長さをもった一種の痕跡であった. 消滅の過程において個々の FT は(厳密にいうとエッチング可能領域は) いわば ローソク型の消滅過程—徐々に短くなっていき ついには無に至る—をたどるのである. 温度条件の変化に伴って 短縮の一時的な停滞や短縮速度の変化は起こり得るが 一度減じた長さは決して回復しない. 火の消えたローソクでは長さの減少は停止しているが ひとたび減じた長さが絶対に回復しないことは トラック長短縮のプロセスによく似ている.

神社などにいくと 参拜者が灯明を供えるための燭台(台というよりは棚といったほうがよいかもしれない)がある. そこにならんだ何十本のローソクは社務所で買ったもので もともと同じ長さだったはずである. ある時点で燭台を観察すれば ゆらゆらと炎を揺らす数十本のローソクの長さには かなりのばらつきがあるはずだ. 一本・一本の使いさしのローソクの長さは そのローソクそのものの燃焼時間を反映している. しかしその燭台上のすべてのローソクの長さの分布を調べればこの数十分間に参拝した人の増減や 総数を推理することもできるのではないだろうか.

トラック長分布から 熱史を復元する(あるいは推理する)といったほうが実情に即しているかもしれない 過程もこ

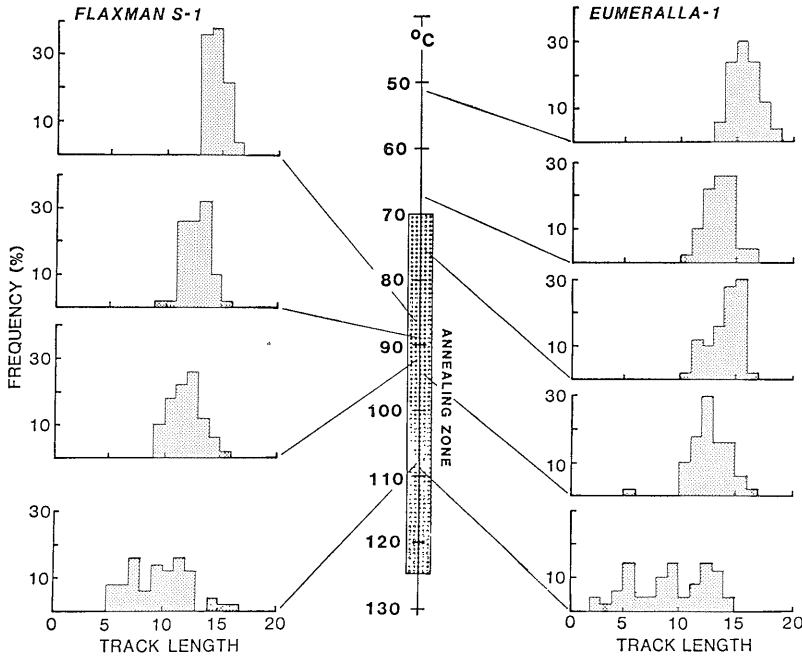


図 12

2つの坑井(図9参照)についてのトラック長分布解析。Eumeralla-1ではFlaxman's 1に比べて全般にトラック長分布幅が広く短いものの比率が高くなっている。また現在地温がアニーリング帯(70~125°C)に達していない層準においてもトラック長の短縮傾向が見られる。これは過去において現在よりも地温の高かった時期があったためであると解釈される。Gleadow 他 1983より(一部改変)。

れと同じような操作を行うことになる。

- ・一定の割合でトラックが追加されること
- ・新しく加わった時点でトラックは一定の長さを持つこと
- ・個々のトラックが一定の決まりに従って長さを減じていくこと
- ・閉鎖温度周辺から冷却されればトラックの短縮も停止

するが一度短縮化した量は回復しないこと… が問題を解く鍵となっている。

トラック長分布解析において問題とするのはあくまでも長さ分布の全体像である。言い方を変えると試料の熱史を現わすのは個々のトラック長ではない。個々のトラック長が現わすのはそのトラックの熱史であり試料の熱史の断片なのである。その断片的情報が

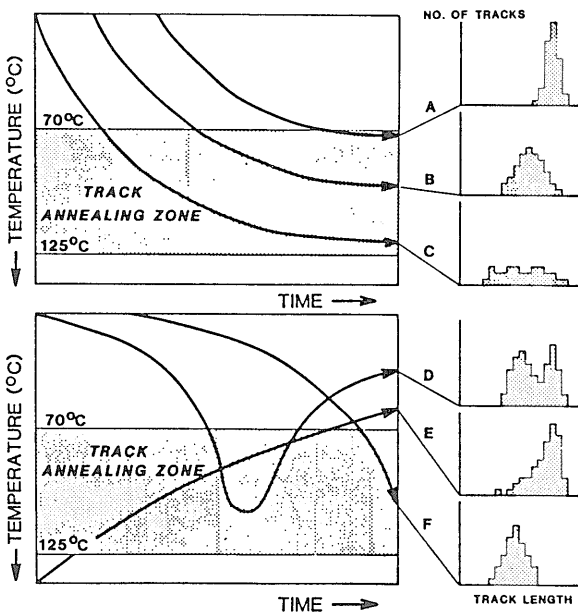


図 13

さまざまな熱史に応じたトラック長頻度分布例。A B Cは徐々に埋没深度が増大していった(徐々に昇温されていった)ときのトラック長分布の変化を示す。Dは過去に急熱イベントを経験した場合。Eは閉鎖温度以上の環境から徐冷された場合。Fは最近になって急熱された場合である。特にBとDとFの相異に注意。これらの熱史パターンを識別できることはAFTAの最大の特徴の一つである。Gleadow 他 1983より(一部改変)。

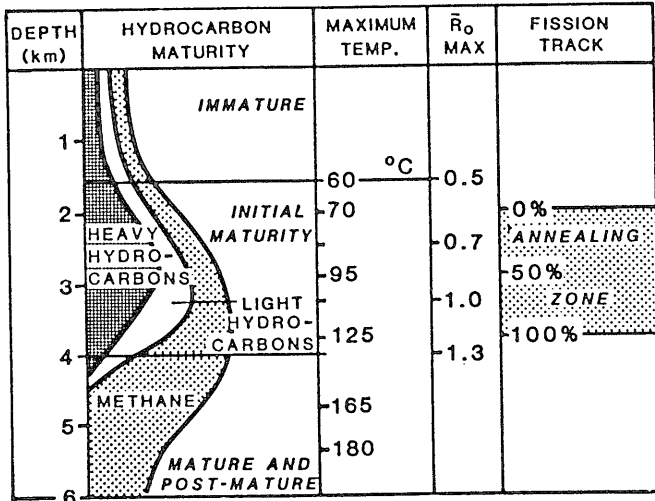


Fig. 1 — The relationship between the fission track annealing zone in apatite, temperature and hydrocarbon maturity (modified after Kanstler et al., 1978).

図 14

深度 炭化水素熟成 温度 ビトリナイト 反射率 アパタイト FT のアニーリング帯の関係。アパタイト FT のアニーリング帯 (トラック長・見掛けの FT 年代の減少がおこる温度帯) は石油の熟成帯にほぼ一致することがわかる。Gleadow 他 1983より。

トラック長分布という形で総合されると 試料の熟史が浮かび上がってくるのである。

ビトリナイト反射率や コノドントの色指数なども試料の熟史を反映したパラメータではあるが どちらの場合も積分的な熟史しか情報として含まない。トラック長解析においては その試料の熟成度 つまり熟史の積分量以外にも細かい熟史が読み取れることが特徴となる。これは個々のトラック長が個別に熟史についての断片の情報を持っていることによるのである。

これについて連続柱状試料を用いて行った解析例を試みよう。図12は トラック長分布から 現在よりも過去の方がより高い熟環境にあった (大きい温度勾配・あるいは大きい埋積深度下にあったことを意味する) ことを推論したものである。このように トラック長分布を解析することにより 他の方法では検知できないような情報を引き出すことができるのである。

AFTA は単なる石油熟成度評価手段ではなく 堆積盆評価 特に熟史解析の強力な手段となることがお分かりいただけるだろう。

※AFTA 今後の展望

以上 述べてきたように AFTA を石油地質学に応用する場合

① 熟成度評価手段として

あるいは

② 堆積盆評価 特に熟史解析の手段として

位置付けられる。手法として一応の実用化がなされた

のは数年前であるが まだテストケースとしての応用が多い。今後 日本においても応用例は増加すると考えられる。

ただし AFTA は“簡便なわりには信頼できる”ものでは決してない。信頼度の高い測定値を生産するためには 実験室においてある程度の基礎実験の蓄積は必要であろうし 最新技術についての理解を持ち続けることも必要である。画像処理装置は AFTA を本格的に始めるにあたっての必要装備であるが これとて購入したその日から機嫌よく働いてくれるものではない。導入にあたってはある程度の覚悟が必要であろう。

今後は 石油熟成度パラメータとしての応用がまず一般化するだろうと予想される。測定作業における手間は ビトリナイト反射率測定と大差ないので 実験環境がひとたび整えば 測定値を量産することは十分に可能である。この場合 ビトリナイト反射率が現在利用されているのと同様に あるいはビトリナイト反射率と相補的に使われるようになるだろう。

石油資源量評価の一環としての堆積盆評価 特に熟史解析は今後ますます重要視されると思われる。このような作業は多種多様 しかも膨大なデータの総合化から出発するものである。AFTA は 続成過程における時間についての情報をもたらすという特性を持つ。データの総合化作業の中において 一つのキーポイントになるのではないだろうか。

日本のフィールドに応用する場合 例えば “ある油田地域における石油根源岩層である上部中新統は 鮮新

世末に最も深く埋積され 石油熟成深度に達した。その後 広域地殻変動にもなって地温差約30度に相当するだけ隆起・削剝され 現在に至っている。” などという堆積盆の熟史を復元するための強力な武器となろう。

謝 辞 京都大学地質学鉱物学教室の田上高広博士と 京都フィッショントラックK.K.の檀原徹氏は 本稿を通読して貴重な議論をして下さった。また 地調燃料部の諸兄にも御意見を賜わった。記して感謝します。

6. 文 献 (1.~26.)

1. 角井朝昭 (1986) : 富山県八尾地域新第三系の FT 年代測定. NOM (大阪微化石研究会誌) 14, 51-61
2. 西村 進 笹嶋貞雄 (1973) : フィッション・トラック法による本邦新第三系の年代測定. 地質学論集 8, 161-171
3. 西村 進 (1975) : テフクロロジーへの フィッション・トラック法の適用. 九十九地学 (京都大学 教養部 地学報告) 10, 1-8
4. 雁沢好博 (1982) : フィッション・トラック法によるグリーン・タフ変動の年代区分 その1—佐渡地域—. 地質学雑誌 88, 943-956
5. 雁沢好博 (1983) : フィッション・トラック法によるグリーン・タフ変動の年代区分 その2—富山県太美山地域—. 地質学雑誌 89, 271-286
6. Hurford A. J., Fitch F. J., and Clarke A. (1984) : Resolution of the age structure of the detrital zircon population of two lower Cretaceous sandstones from the Weald of England by fission track dating, Geological Magazine, 121, 269-277
7. Kowallis B. J., Heaton J. S. and Bringham (1986) : Fission-track dating of volcanically derived sedimentary rock. Geology, 14, 19-22
8. Fleischer R. L., Price P. B., Symes E. M., and Miller D. S. (1963) : Fission track ages and track annealing behavior of some micas. Science, 143, 349-351
9. Price P. B., and Walker R. M. (1963) : Fossil tracks of charged particles in mica and the age of minerals, J. G. R., 68, 4847-4862
10. Gleadow A. J. W., (1981) : Fission track dating : what are the real alternatives? Nucl. tracks, 5, 3-14
11. 西村 進 池田 隆 (1973) : フィッション・トラック法の地学への応用. 九十九地学 (京都大学 教養部 地学報告) 8, 1-14
12. 西村 進 (1977) : フィッション・トラック年代法の問題点. 九十九地学 (京都大学 教養部 地学報告) 12, 1-10
13. Naeser C. W., (1976) : Fission Track Dating, USGS Open File Report, 76-190
14. Gleadow A. J. W., Hurford A. J. and Quaife R. D. (1976) : Fission Track Dating of Zircon : improved etching techniques. E. P. S. L., 33, 273-276
15. Sumii T., Tagami T. and Nishimura S. : (1987) Anisotropic etching character of spontaneous fission tracks in zircon, Nucl tracks (印刷中)
16. Dodson M. H. (1973) : Closure Temperature in cooling geochronological and petrological systems. Contr. and Petrol., 40, 259-274
17. Nishimura S. and Mogi T. (1986) : The interpretation of Discordant Ages of Some Granitic Bodies. 日本地熱学会誌 8, 145-164
18. Green P. F., Duddy I. R., Gleadow A. J. W., Tingate P. R., and Laslett G. M. (1986) : Thermal annealing of fission tracks in apatite, 1. A Qualitative description. Chem. Geol. (Isot. Geosci. Sect.), 59, 237-253
19. Fleisher R. L., Price P. B. and Walker R. M. (1965) : Effects of Temperature, Pressure, and Ionization of the Formation and Stability of Fission Track in minerals and Glasses. J. G. R., 70, 1497-1502
20. Naeser C. W. (1985) : Fission-Track dating applied to mineral exploration. Nucl. Tracks, 10, 422
21. Moore M. E., Gleadow A. J. W. and Lovering J. F. (1986) : Thermal evolution of rifted continental margins ; new evidence from fission tracks in basement apatites from southeastern Australia. E. P. S. L., 78, 255-270
22. Wagner G. A., Reimer G. M. and Jaeger E. (1977) : Cooling ages derived by apatite fission-track, mica Rb-Sr and K-Ar dating ; The uplift and cooling history of the Central Alps. Memorie dell' Istituto di Geologia e Mineralogia dell' Universita di Padova
23. Gleadow A. J. W. and Duddy I. R. (1983) : Fission Track Analysis ; A new tool for the evaluation of thermal histories and hydrocarbon potential. Aust. Petrol. Explo. Assoc. J., 23, 93-102
24. Wagner G. A., and Reimer G. M. (1972) : Fission track tectonics ; The tectonic interpretation of fission track apatite ages. E. P. S. L., 14, 263-268
25. Laslett G. M., Green P. F., Duddy I. R. and Gleadow A. J. W. (1987) : Thermal annealing of fission tracks in apatite, 2. A Quantitative description. Chem. Geol. (Isot. Geosci. Sect.), 65, 1-13.
26. Gleadow A. J. W., Duddy I. R., Green P. F., and Hegarty K. A. (1986) : Fission track lengths in the apatite annealing zone and the interpretation of mixed ages. E. P. S. L., 78, 245-254