

西南日本内帯 広島県三原鉱山周辺の後期白亜紀花崗岩体のペグマタイトに含まれる
希元素鉱物の記載と年代測定の予察的研究

**Petrologic and geochronologic studies of rare earth minerals in a pegmatite in late Cretaceous
granitoid from the Mihara Mine area (Hiroshima Prefecture), Inner Zone of Southwest Japan
(preliminary study)**

佐藤桂^{1*}・皆川鉄雄²・加藤丈典¹・牧賢志³・岩野英樹⁴・平田岳史³・鈴木和博¹
Kei Sato^{1*}, Tetsuo Minakawa², Takenori Kato¹, Kenshi Maki³, Hideki Iwano⁴, Takafumi Hirata³,
Kazuhiro Suzuki¹

¹名古屋大学年代測定総合研究センター・²愛媛大学大学院理工学研究科・³京都大学大学院
理学研究科・⁴(株)京都フィッショングループ

¹Center for Chronological Research, Nagoya University, ²Graduate School of Science and Engineering,
Ehime University, ³Graduate School of Science, Kyoto University, ⁴Kyoto Fission-Track Co., Ltd.

*Corresponding author. E-mail: ksato@nendai.nagoya-u.ac.jp

Abstract

To discuss the distribution of trace elements and REEs within island arc crust, rare earth minerals from a pegmatite deposit within the late Cretaceous granitoid in the Mihara Mine area were described by combining EPMA and LA-ICP-MS analytical data. Micro textures of rare earth minerals and chemical characteristic of zircon that were influenced by hydrothermal metasomatism in the latest stage of plutonic magma process suggest the transfer of trace elements and REEs from primary monazite to other minerals.

キーワード：希元素鉱物；西南日本内帯；後期白亜紀花崗岩類；ペグマタイト；CHIME 年代測定

1. はじめに

地球全体をみたとき、マントルの上に浮いている大陸地殻は微量元素・希土類元素（とくに軽希土類元素）が濃集する場所である（図 1）。それ故、大陸地殻内部や縁辺部での微量元素・希土類元素の挙動・循環過程の解明は、地質学・岩石鉱物学・地球化学等の研究分野において、大陸の形成・進化史を紐解く上で重要である。また、これらの元素には、現代人の生活に欠かせない天然資源である希少金属としての希土類（レアアース）としての工業的価値もある。

花崗岩類は大陸地殻を構成する主要な岩石であるため、地殻内部での物質の輸送という点で深成岩マグマは重要な役割を果たしている。また、花崗岩類は放射性核種の壊変関係を利用した U, Th-Pb 系のサブグレイン年代測定〔二次イオン質量分析法 (SHRIMP 法), レーザーアブレーション試料導入法を組み合わせた高周波誘導結合プラズマ質量分析法 (LA-ICP-MS 法), トリウム-ウラン-全鉛量アイソクロン年代法 (CHIME 法)〕で用いるジルコンやモナズ石等の希元素鉱物を多く含むため、花崗岩類や関連するペグマタイトの記載岩石学的研究は地質年代学の推進に貢献する。

著者らは、大陸縁辺部での地殻内部の微量元素・希土類元素の挙動の解明を目指して、その足掛りとして西南日本内帯の後期白亜紀に形成した花崗岩体および岩体内部のペグマタイト鉱床の希元素鉱物の記載と地質年代測定を2012年度より新たに開始した。本稿では、その経過報告として、興味深い鉱物反応組織を抜粋して、希元素鉱物間の元素の移動の議論と併せて紹介する。

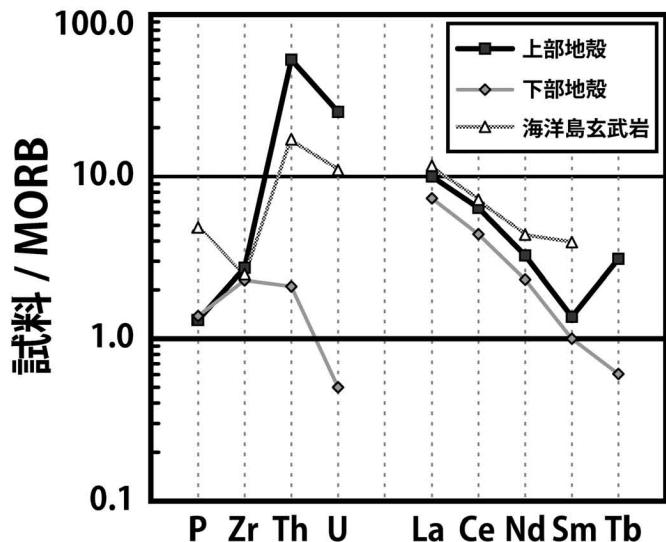


図1. 中央海嶺玄武岩 (MORB) で規格化した上部地殻、下部地殻、海洋島玄武岩の組成。使用した分析値の引用元 : Rollinson (1993)。

2. 地質概略

本研究では、フォッサマグナの糸魚川-静岡構造線の西側の、中央構造線よりも北側で東西約800kmに渡って広域的に分布する西南日本内帯の花崗岩類（図2挿図）を研究対象とした。内帯の山陽帶では、山陽地方や瀬戸内の芸予諸島等で広島花崗岩と呼ばれる後期白亜紀の花崗岩類がみられる。広島県南部から中部の広島花崗岩類に対する過去のK-Ar年代測定やRb-Sr年代測定では、凡そ78~89Maの地質年代が報告されている（柴田・石原, 1974; 東元ほか, 1985; Nakajima et al., 1990）。広島県三原鉱山（図2）では、広島花崗岩との接触部付近で石灰岩を交代した高温交代鉱床やモンゾニ岩がみられ、萤石鉱床やベリリウム鉱床が報告された（青木・肥田, 1974; 石原, 2005）。

3. 希元素鉱物の記載

本研究では、三原鉱山周辺のペグマタイトから採集された花崗岩質岩を記載した（図2）。記載した岩石からは、主な希元素鉱物として、モナズ石（理想式CePO₄；軽希土類元素・Y・Th等を多く含む）、ジルコン（ZrSiO₄）、褐レン石[Ca₂(Al,Fe,Ti)₃Si₃O₁₂(OH); R = Ce,Mn,La,Y,Th]、トル石(ThSiO₄)、燐灰石[Ca₅(PO₄)₃(F,Cl,OH)]が見出された。この岩石試料ではモナズ石は量的に非常に少なく、稀な例として自形性が弱いモナズ石の周囲にジルコン・トル石・褐レン石・燐灰石の集合体から成る鉱物反応組織が鏡下観察によって確認された。また、同じ岩石薄片から、粗粒で自形性が強い褐レン石も観察された。ゼノタイム(YPO₄)がジルコン中にみられる事があった（図3）。

ジルコンの組成分析のために、岩石を粉碎し、篩いと水洗によってジルコンを濃集させて岩石から分離し、回収した。ジルコンのサブグレインでのトリウム・ウラン濃度は、京都大学設置のフェムト秒レーザー（Cyber Laser 製）を組み合わせた二重収束型 ICP-MS（Nu Instruments 製 Nu AttoM）を用いて測定した。但し、標準試料にはジルコン 91500 を用いた。Th²³², U²³⁸ 等に対して、20 μm のレーザー径で、15 Hz で 6 秒間測定した。その結果、ジルコンには化学的な不均質がみられ、コア部分で 643~2764 ppm のトリウム・1244~5803 ppm のウラン、リム部分で 1556~4553 ppm のトリウム・4277~12141 ppm のウランが検出された（図 4）。

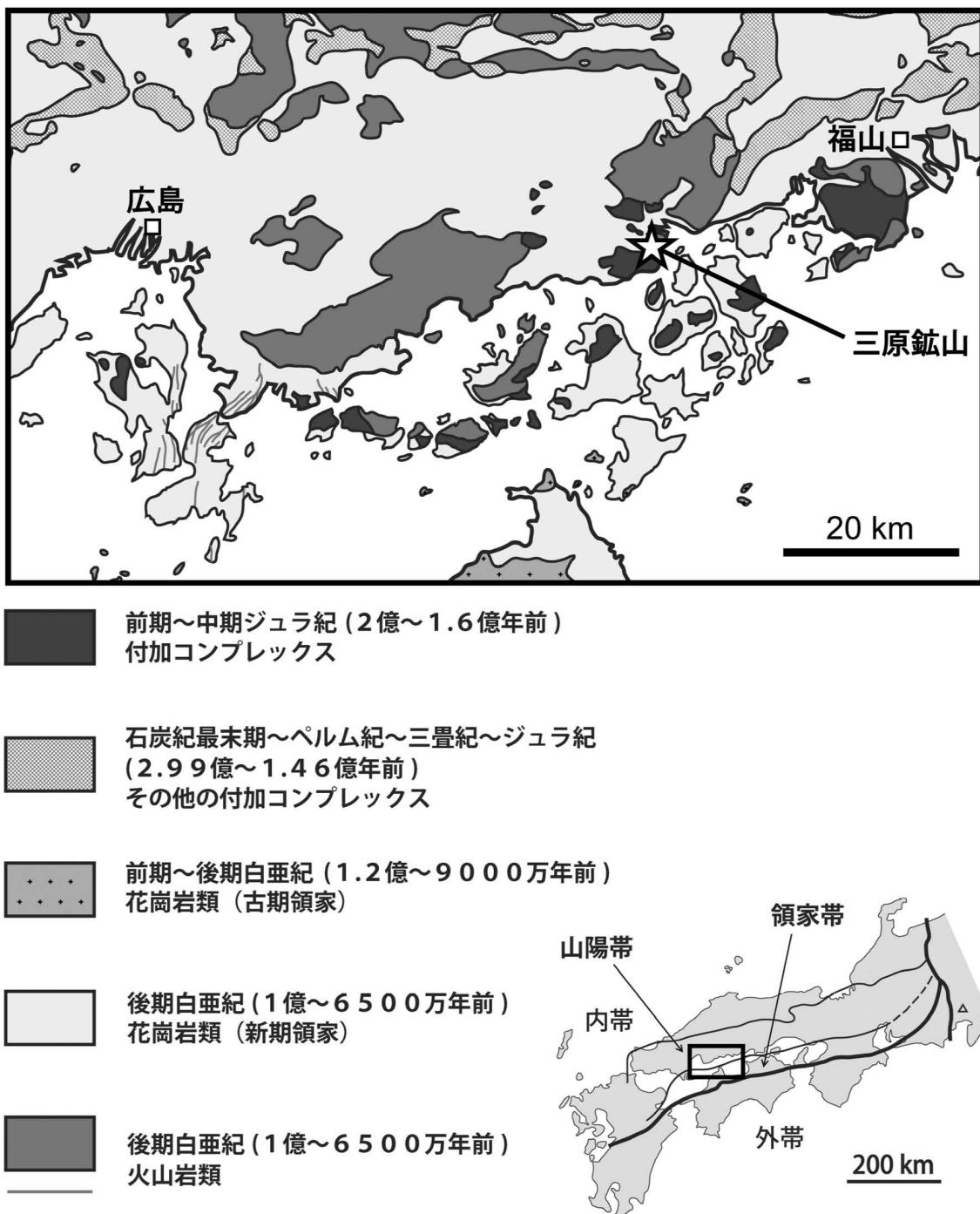


図 2. 広島県南部・芸予諸島の地質図（産業技術総合研究所地質調査総合センター, 2011）と岩石試料の採集場所。[挿図：西南日本内帯の花崗岩類の分布域（石原・村上, 2006）]

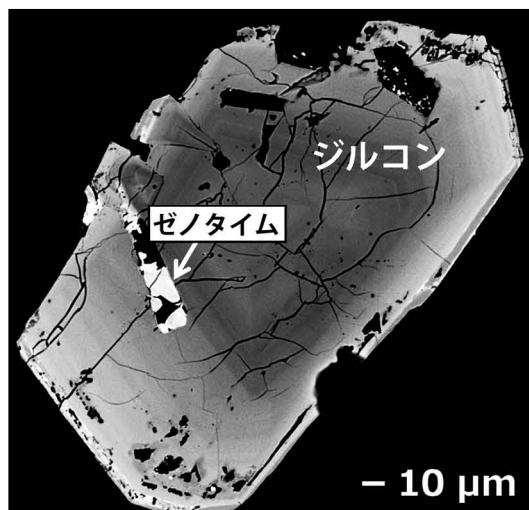


図 3. 本研究で鉱物分離によって抽出した化学的に不均質なジルコンの反射電子像.

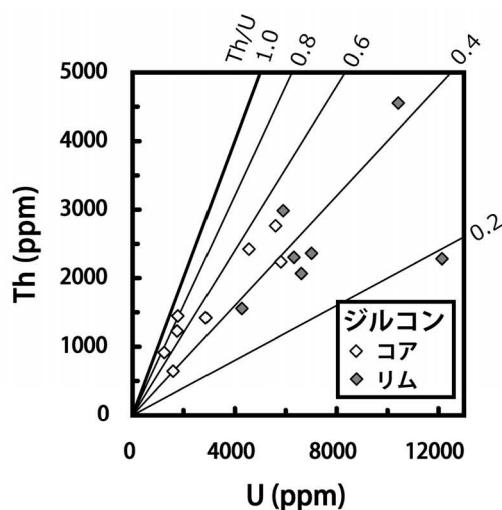


図 4. 本研究で鉱物分離によって抽出したジルコンのコア部分とリム部分のトリウム・ウラン濃度.

4. CHIME 年代測定

本研究では、名古屋大学年代測定総合研究センターに設置されている電子プローブマイクロアナライザ (EPMA; 日本電子製 JCXA-733) を用いて、前述の自形性の弱いモナズ石の CHIME 年代測定も行なった。CHIME 法は、鉱物試料表面のトリウム・ウランの総量と全鉛量からアイソクロン年代を求める年代測定法であるが、この手法で正確な年代（即ち、誤差の小さい年代）を求めるためには年代測定の対象となる鉱物が化学的に不均質である必要がある。しかし、本研究で分析したモナズ石は化学的に比較的均質であったため（図 5）、アイソクロンを引かず、平均値を計算することで年代を求めた。その結果、 81.7 ± 6.4 Ma (2 sigma, $N = 23$) の後期白亜紀年代が得られた。尚、モナズ石のトリウムとウランの濃度の平均値は、それぞれ 100241 ppm と 3582 ppm であった ($\text{Th}/\text{U} = 28.0$).

著者らは芸予諸島 大三島のペグマタイトに含まれるモナズ石の CHIME 年代測定 [アイソクロン年代: 83.4 ± 6.6 Ma (2 sigma, $N = 51$) ; 図 6] も行なっており（佐藤ほか, 2012），三原鉱山と大三島のモナズ石の形成年代は誤差の範囲内で一致した。

5. 議論

本研究で記載した希元素鉱物の幾つかは、深成岩マグマ過程の最末期の熱水変質による生成物であると考えられる。前述の自形性が弱いモナズ石と周囲のジルコン+トール石+褐レン石+燐灰石の集合体から成る鉱物反応組織は、初期のステージ ($= 81.7 \pm 6.4$ Ma) でモナズ石が形成し、二次的な熱水変質のステージで他の希元素鉱物が形成した（あるいは、結晶の周縁部が再成長した）事を示唆する。同じ薄片上に粗粒の褐レン石がみられる観察事実もモナズ石の分解を支持する。従って、モナズ石の分解によって、図 7 に示されるようなトリウム・ウラン・リン・セリウム・その他の軽希土類元素等の移動が起こったと考えられる。

LA-ICP-MS 分析ではジルコン 91500 標準試料が使用されたため、厳密には標準試料の不均質性を考慮する必要があるが (Wiedenbeck et al., 1995)，ジルコンの組成変化の傾向としては、コア部分か

らリム部分に向かってトリウムとウランの濃度が増加する事が確認された。とくにウラン濃度が顕著に増えていた。その結果として、リム部分の Th/U 比が減少した（コア付近で 0.39~0.81、リム付近で 0.19~0.51；図 4）。この化学分析結果は、前項と同じく、モナズ石が分解したため鉱物間（あるいは、鉱物一流体間？）の元素分配係数に依存してジルコンのリム部分により多くのウランが供給された事を示唆する。

ここで紹介した記載結果は希元素鉱物間の物理・化学反応を示す一例であり、今後、より多くの記載や年代測定を行ない、結果を統括して議論を行なう必要がある。尚、本稿で紹介した内容は、平成 24 年度名古屋大学年代測定総合研究センターの新研究創成経費を使用して行なった研究の成果である。

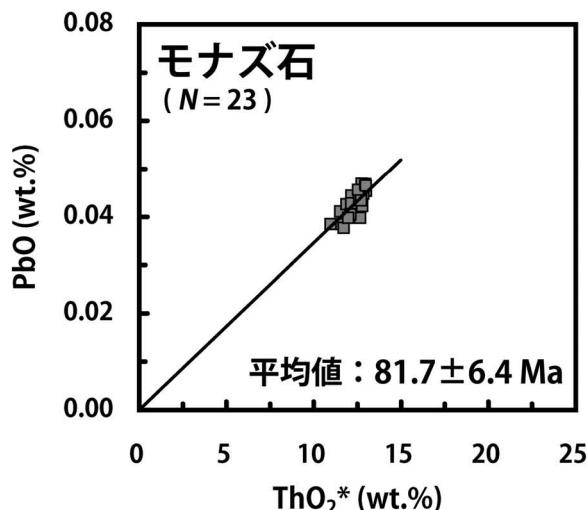


図 5. 本研究で CHIME 年代測定を行なった三原鉱山のモナズ石のトリウムとウランの総量 (ThO_2^*) と全鉛量 (PbO)。比較的均質な組成であるため、アイソクロン年代を求めず、平均値を計算した。

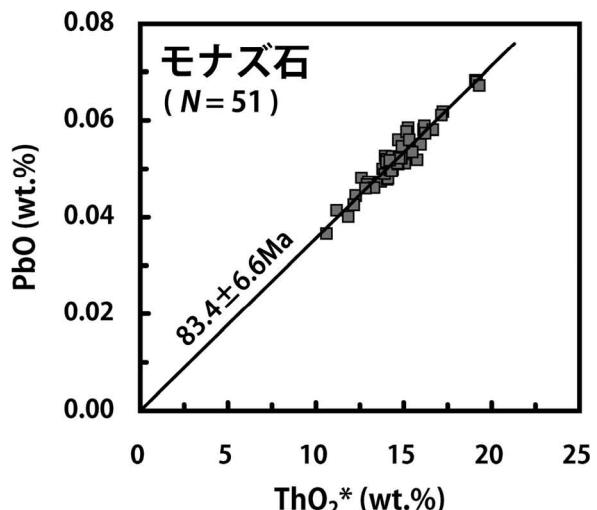


図 6. 芸予諸島 大三島のペグマタイトに含まれるモナズ石の CHIME 年代測定の結果。

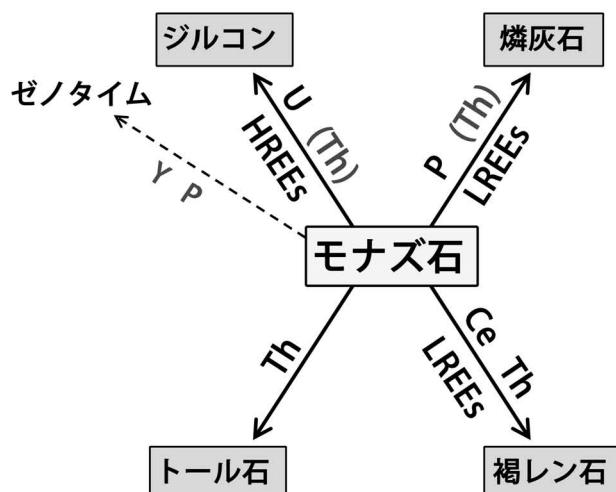


図 7. モナズ石の分解による他の希元素鉱物への元素の移動の関係。

引用文献

- 青木義和, 肥田昇 (1974) 広島県三原鉱山のベリリウム鉱床の地質と鉱床の成因. 鉱山地質, 24, 201-211.
- 東元定雄, 松浦浩久, 水野清秀, 河田清雄 (1985) 吾地域の地質, 地域地質研究報告 5 万分の 1 図幅.
- 石原舜三 (2005) 岐阜県平岩ほたる石鉱床の地質と日本のほたる石鉱床区における重要性. 地質調査研究報告, 56, 167-176.
- 石原舜三, 村上浩康 (2006) 西南日本花崗岩類のレアアース特性: 足摺岬の新第三紀深成岩類と山陽帶の後期白亜紀花崗岩類. 地質調査研究報告, 57, 89-103.
- Nakajima, T., Shirahase, T., Shibata, K. (1990) Along-arc lateral variation of Rb-Sr and K-Ar ages of Cretaceous granitic rocks in Southwest Japan. Contributions to Mineralogy and Petrology, 104, 381-389.
- Rollinson, H. (1993) Using Geochemical Data: Evaluation, Presentation, Interpretation.
- 産業技術総合研究所地質調査総合センター (編) (2011) 20 万分の 1 日本シームレス地質図データベース (2011 年 6 月 29 日版).
- 佐藤桂, 皆川鉄雄, 加藤丈典, 平田岳史, 鈴木和博 (2012) 芸予諸島東部 大三島鉱山および周辺地域の山陽帶花崗岩類のモナズ石の CHIME 年代測定. 日本鉱物科学会 2012 年年会.
- 柴田賢, 石原舜三 (1974) 広島花崗岩中央部の黒雲母 K-Ar 年代の南北変化. 地質学雑誌, 80, 431-433.
- Wiedenbeck, M., Allé, P., Corfu, F., Griffin, W.L., Meier, M., Oberli, F., Von Quadt, A., Roddick, J.C., Spiegel, W. (1995) Three natural zircon standards for U-Th-Pb, Lu-Hf, trace element and REE analyses. Geostandards Newsletter, 19, 1-23.

日本語要旨

島弧地殻内部の微量元素・希土類元素の分配関係を議論するために, EPMA 分析と LA-ICP-MS 分析を行ない, 西南日本内帯 広島県三原鉱山周辺の後期白亜紀の花崗岩体内部のペグマタイト鉱床の希元素鉱物を記載した. 深成岩マグマ過程の最末期に熱水変質の影響を受けた希元素鉱物の反応組織やジルコンの化学的特徴は, 初期に形成したモナズ石が分解し, 微量元素・希土類元素が他の希元素鉱物に供給された事を示唆する.