

花崗閃緑岩の黒雲母にみられるRb含有量の粒径依存

柳, 哮
九州大学理学部

浜本, 礼子
九州大学理学部

<https://doi.org/10.15017/4495631>

出版情報 : 九州大学理学部研究報告. 地質学. 15 (1), pp.83-88, 1987-03-15. 九州大学理学部
バージョン :
権利関係 :

花崗閃緑岩の黒雲母にみられるRb含有量の粒径依存

柳 哮・浜本 礼子

Grain-size dependent variation of Rb content in biotite from
granodiorites in North Kyushu

Takeru YANAGI and Reiko HAMAMOTO

Abstract

Two rock samples were collected, one from the Itoshima granodiorite and the other from the Haki granodiorite, to see a size-dependent variation of Rb and Sr contents, and a Rb-Sr radiometric age of biotite. To do this, biotite crystal grains separated from these rock samples were split into size fractions by sieving and then analyzed.

Biotite samples from the Itoshima and Haki granodiorites show the same size-dependent variation of Rb with a marked break at about 500 μ m (Fig. 1). Going from coarse to fine grains, Rb gently decreases first, then jumps up to high values at the break and again decreases smoothly. This break is interpreted to represent the injection of basic magma into a cooling granodiorite magma and the resultant heating of it. The size-dependent variation of Rb is assumed to come from a temperature-dependent variation of the partition coefficient of Rb between biotite and coexisting magma, because it is not likely for a magma to become gradually depleted in Rb during the crystallization.

Size fractions of the biotite sample from the Itoshima granodiorite define a single isochron which gives an age of 87.3 ± 0.5 Ma and an initial $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio of 0.70629 ± 0.00013 .

Size fractions of the biotite sample from the Haki granodiorite do not define a single isochron, but show a size-dependent variation of age (Table 2). The size fractions larger than 24 mesh give ages such as 93.4Ma and 92.2Ma. These ages may represent the result of integration of events occurred during the crystallization. The size fractions less than 32 mesh give the younger same age of 87.6 ± 0.4 Ma. This age may probably be close to the time of completion of the crystallization. The size fraction between 24 and 32 meshes gives a curiously young age of 82.6Ma.

はじめに

花崗岩など深成岩類の年代測定には、黒雲母などの鉱物を試料として用いる場合と、岩石そのものを試料として用いる場合とがある。いずれの場合も同じ年令が求まることを期待するが、一般には試料によって年令は異なることが多い。深成岩類の年代測定の例では、黒雲母の K-Ar 年令や、あるいは Rb-Sr 年令は、Rb-Sr法あるいは Sm-Nd 法による全岩アイソクロン年令より若いことが多い。また黒雲母の K-Ar 年令や Rb-Sr年令は、しばしば大きな分散を示すことがある。

黒雲母の K-Ar 年令や Rb-Sr 年令は一般に深成岩の生成年代を示すのではなく、深成岩が 200°C 前後の温度へ冷却してからの経過時間を示す (柳, 1983; DAMON, 1968; HART *et al.*, 1968) といわれているが、その冷却にかかわる過程は定かではない。そのため、深成岩の黒雲母の示す年令の意味、即ち地質学的状態は、今日まであいまいのままで残されてきている。したがって、年令と他の地質学的事象との関連を求めようとする場合、しばしば困難を生じる。例えば、中央構造線に沿う西南日本内帯の花崗岩類の黒雲母の K-Ar 年令は、北部九州から中部地方へ向って系統的に若くなる (SHIBATA *et al.*, 1978) が、その年令の

Table 1. Rb and Sr contents, and strontium isotopic ratios in biotite size-fractions from the Itoshima granodiorite.

No.	Mesh	Mean ϕ μm	Rb ppm	Sr ppm	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$
#24	16 - 24	843	414.2	24.24	49.77	0.7678
#35	24 - 35	567	417.1	18.59	65.47	0.7878
#48	35 - 48	384	518.1	9.56	160.0	0.9055
#48	35 - 48	384	518.1	13.56	112.08	0.8429
#70	48 - 70	259	390.8	16.82	67.81	0.7888
#100	70 -100	171	197.5	20.12	25.52	0.7423

示している地質学的事象は何なのか、なぜその南に分布する和泉層群の地層と平行して年令が若くなるのかなど、年代学的にその内容を示すのは困難である。

鉱物はその形成史に従った記録をその内部にしばしば留めているが、それは EPMA などの分析器機を用いてはじめて詳しく解読されるようになった。イオンマイクロプローブは、ジルコンの中に鉛の散逸を免がれた小域の年代測定を可能にし (COMPSTON and WILLIAMS, 1984), ジルコンの U-Pb 年令の信頼性を大きく前進させた。これは、鉱物の中に保存されている組成分布を明らかにした結果である。

黒雲母の中に保存されている放射性源の同位体は熱によって比較的容易に移動する (HART *et al.*, 1968). そのため、黒雲母の中にはそれを含む岩体の熱史に応じた記録が保存されていると期待される。しかし、黒雲母に含まれるルビジウムの量は数 100ppm, ストロニウム量は数 ppm である。アルゴンにいたっては更に少ない。そのため、黒雲母の粒子内でのこれらの元素の分布を明らかにすることは容易なことではない。さらに同位体組成の分布を示すことは極めて困難である。

一試料の中での黒雲母の粒度分布は、結晶作用の過程を通じて生じたものであろう。黒雲母の結晶粒子からの元素の散逸の割合は、粒径によって異なるであろう。もしこのようなことが事実であれば、粒径による組成変化が期待され、それは組成の内部構造を反映しているはずである。放射壊変系に属する核種について、粒径による組成変化の確認は、組成分布を知る手掛りを与え、ひいては鉱物年令の示す意味を限定すると期待される。

この考え方に従って、ここではまず粒径依存の組成変化の確認を進めた。この研究に用いた費用の一部は、文部省科学研究費補助金 (課題番号60540523) に負っ

た。

試料および分析法

糸島花崗閃緑岩体と杷木花崗閃緑岩体から、各々1個の岩石試料を採取した。糸島花崗閃緑岩は、福岡県西部から佐賀県北東部にかけて分布する東西約25km、南北約15kmの片状構造を持つ優黒質の岩体で、その分布は変成岩の片理に平行である。杷木花崗閃緑岩は、福岡県朝倉郡杷木町一帯に露出する南北約10km、東西最大幅約3.5kmの北へ尖った形を示す均質な岩株状小岩体で、三郡変成岩類の構造に調和的に貫入している。

分析はこれらの岩石試料から分離した黒雲母について行った。黒雲母の分離・精製及び粒径による分別は柳 (1980) に示された方法に従った。ルビジウムとストロニウムの定量及びストロニウム同位体比の測定は、黒雲母の粒径別に行った。定量は同位体希釈法により、ストロニウムの同位体比は ^{84}Sr トレーサを加えた試料のストロニウム同位体組成から計算によって求めた。同位体比は $^{86}\text{Sr}/^{88}\text{Sr}=0.1194$ に規準化してあり、その誤差は0.0001と見積られる。

一般に、黒雲母は燐灰石などのストロニウムを多量に含む小鉱物を包有するが、それらの鉱物はしばしば黒雲母の結晶の中で偏在するために、ストロニウムの含有量と同位体比は分析の度に変動する。同位体比の測定と定量のための化学処理をそれぞれ独立に行った場合、この変動は年代の測定誤差として現われてくる。その大きさは測定誤差を大きく超えることがある。これを避けるために、定量と同位体比の測定を同一試料で行った。ストロニウムの定量と同位体比を同時に求めることによって、年令の誤差を1%以内におさえることができた。

Table 2. Rb and Sr contents, and strontium isotopic ratios in biotite size-fractions from the Haki granodiorite.

No.	Mesh	Mean ϕ μm	Rb ppm	Sr ppm	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	Age Ma
#16	12 - 16	1188	377.1	7.240	153.8	0.9105	93.4
#24	16 - 24	843	374.8	8.359	132.0	0.8793	92.2
#32	24 - 32	596	365.0	5.564	194.1	0.9343	82.6
#42	32 - 42	418	370.3	5.144	213.8	0.9737	87.9
#60	42 - 60	296	369.0	6.862	154.3	0.8976	87.2
#80	60 - 80	214	342.7	7.010	144.0	0.8859	87.7

分 析 結 果

糸島花崗閃緑岩の黒雲母についての分析結果を Table 1 に、杷木花崗閃緑岩の黒雲母についての分析結果を Table 2 に示した。Table 1 の黒雲母は磷灰石などの包有鉱物を含むもので、これらの黒雲母には包有鉱物を除く作業を加えていない。包有鉱物が含まれているため、黒雲母のストロンチウム含有量は多い。糸島花崗閃緑岩は角閃石を比較的に多く含むが、この角閃石を黒雲母から完全に除去することはできなかった。そのため、ストロンチウムの量は極くわずかではあるが押し上げられているものと思われる。しかし、これらの混入物のルビジウム含有量は極めて少ないために、ルビジウムの定量値に及ぼす影響は極めて少ない。杷木花崗閃緑岩の黒雲母 (Table 2) からは、柳 (1980) の方法によって包有鉱物を除いた。包有鉱物の除去は完全とは言えないが、算出された年令への影響はないものと考えられる。

Table 1 のストロンチウムの含有量の変動は、包有鉱物の量に大きく依存したものである。Table 1 の #48 黒雲母については 2 回の定量を行った。その結果は 9.6ppm と 13.6ppm で、試料内の変動が大きいことを示している。粒径が大きくなると、1 回の分析に使用する粒子数が少なくなり、分析毎の変動は大きくなる。

Table 2 のストロンチウム含有量は、後に示すルビジウムとは逆の粒径依存を示している。ストロンチウムの定量値に対する残留包有鉱物の寄与は厳密には評価できないが、かなり小さいものと思われる。

糸島花崗閃緑岩の黒雲母と杷木花崗閃緑岩の黒雲母は、ともにルビジウムについて同形の粒径依存の変化を示す (Fig. 1)。#42 以下の粒径の黒雲母のルビジウム含有量は、粒径が小さくなるに従って減少する。減少の様子は両黒雲母試料について類似し、また平滑で

ある。更に両黒雲母試料ともに粒径約 500 μm 付近に不連続点を持つ。粒径が小さくなるにもなって、この不連続点でルビジウムは 417ppm から 518ppm へ、あるいは 365ppm から 370ppm へ急増する。このルビジウムの粒径依存の変化は、柳 (1980) によって初めて報告されたものと同様のものである。

糸島花崗閃緑岩の黒雲母のアイソクロン図を Fig. 2 に示した。糸島花崗閃緑岩の黒雲母は 1 つのアイソクロンを定義し、これには粒径依存の同位体組成の変化は認められなかった。黒雲母と、YANAGI (1975) の糸島花崗閃緑岩 (IG80301) の全岩 ($^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}=0.385$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}=0.70674$) とを結ぶアイソクロンは $87.3 \pm 0.5\text{Ma}$ の年令と 0.70629 ± 0.00013 のストロンチウム同位体比の初期値を与えた。

杷木花崗閃緑岩の黒雲母は、Table 2 や Fig. 3 に示すように明らかな粒径依存の年令変化を示した。全岩 ($^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}=0.816$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}=0.70751$) と各粒径別の黒雲母とを結ぶアイソクロンは、粒径の大きい部分では古い年令 (93.4Ma, 92.2Ma) を与えるが、#42~#80 の小さな粒径のものでは $87.6 \pm 0.6\text{Ma}$ という年令で一致している。#32 の黒雲母は、82.6Ma と最小値を与えた。#42~#80 の黒雲母の平均値 87.6Ma は糸島花崗閃緑岩の黒雲母の年令 $87.3 \pm 0.5\text{Ma}$ と一致する。

考 察

ルビジウムの含有量が黒雲母の粒径が小さくなるとともに少なくなる事実は、杷木、糸島の両花崗閃緑岩体の試料について認められた。一般にルビジウムは、花崗質岩体の中では、閃緑岩質の優黒部に少なく、花崗質の優白部やペグマタイトに多い。この一般的傾向は糸島・杷木両花崗閃緑岩体についても認めることができる。これをマグマの分別結晶作用によるものとみなすと、花崗質マグマのルビジウム含有量は、分別

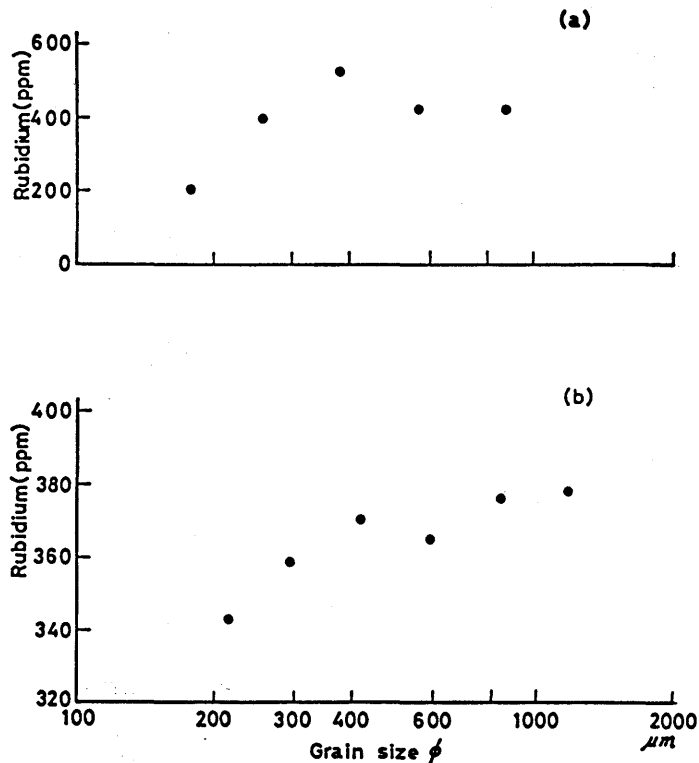


Fig. 1. Grain-size dependent variations of Rb content in biotite. (a) Biotite sample from the Ito-shima granodiorite. (b) Biotite sample from the Haki granodiorite.

結晶作用に伴って増加すると考えられる。

花崗閃緑岩を構成する鉱物の中で、ルビジウムの鉱物-マグマ間分配係数が1を超える値を持つものは黒雲母のみである (YANAGI, 1975)。その分配係数が、仮に大き目の値4であったとしても、マグマから結晶しつつある物質の中で黒雲母の占める割合が約25%以上ない限り、全結晶-マグマ間の分配係数は1を超えられず、そのため結晶作用によってマグマの中にルビジウムは増加する。より現実的には、黒雲母の分配係数は3前後と推定され (YANAGI, 1975)、また花崗閃緑岩質マグマと共存する結晶質物質に占める黒雲母の割合も15%以下と推定される。この時の全結晶-マグマ間の分配係数は0.6以下と見積られ、ルビジウムはマグマの結晶作用に伴って確実に増加する。粒径のより小さい黒雲母は、マグマの結晶作用のより後期に晶出したものとみることができよう。そのような後期のマグマにはルビジウムが濃縮していると期待される。そのため、小粒径の黒雲母にルビジウムが少ない事実をマグマの分別結晶作用に伴う組成変化に帰すことは

できない。結晶作用はマグマの冷却に伴って進行するものであれば、黒雲母の結晶が小さくなるにつれて含まれるルビジウムが少なくなる現象は、むしろ温度低下に伴う黒雲母-マグマ間の分配係数の変化によるものかも知れない。そうであれば、粒径500μmにみられるルビジウムの不連続な増加は、冷却を続けるマグマの温度の急上昇と解釈されなければならない。

山田 (1986) は、糸島花崗閃緑岩の中にみられる流動変形を受けた塩基性岩脈、その分裂片とみられる不定形の塊状塩基性岩、更には分散した楕円体状の塩基性包有物が塩基性マグマの固化物であることを示し、冷却の途上にあった糸島花崗閃緑岩マグマに大量の塩基性マグマの注入があったとした。黒雲母の粒径に対するルビジウム含有量の不連続な変化は、このような塩基性マグマの注入によるのかも知れない。糸島花崗閃緑岩にみられる塩基性包有物と同様のものが把木花崗閃緑岩にも認められる。

糸島花崗閃緑岩からの黒雲母には、粒径依存の年令変化は認められなかった。黒雲母は燐灰石などの包有

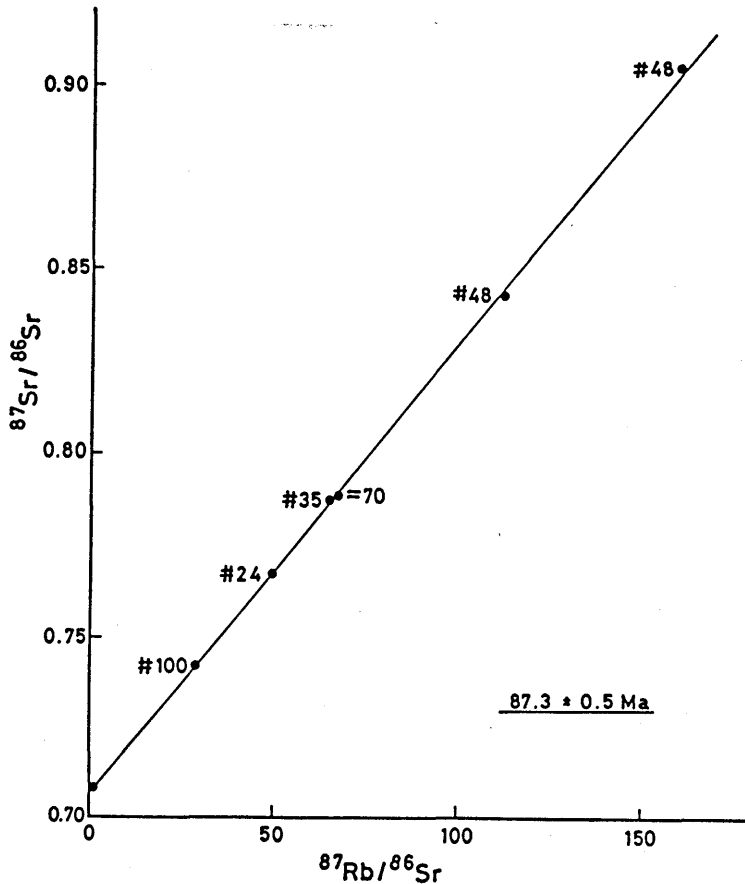


Fig. 2. Isochron plot for size fractions of biotite crystals from the Itoshima granodiorite. Number refers to the size of biotite crystals.

鉍物を含むが、その年令に及ぼす効果を今後検討しなければならない。

杷木花崗閃緑岩からの黒雲母には、Table 2や Fig. 3に示すように粒径と年令の間に系統的關係が認められた。柳 (1980) は、同一岩体からの試料について認めることができなかった。柳 (1980) では黒雲母から包有鉍物が徹底的に除かれている。この操作があるいは黒雲母の組成に影響したのかも知れない。今回の測定においては、Sr の定量と同位体比の測定を同時に行い、試料の不均一性にもとづく誤差を除いた。これが今回の系統変化の確認に効果があったと考えられる。

粒径の小さい黒雲母結晶は、マグマの結晶作用の後期に結晶したものと考えることができよう。逆に、1つの岩石試料の中で粒径の最も大きい結晶は、マグマの結晶作用の初期から末期に至る期間成長を続けたとみることができよう。黒雲母に含まれるルビジウムの

粒径依存の変化にみられる不連続によって、結晶作用の期間は2つに区分される。不連続は塩基性マグマの注入によると推定した。粒径500μm以上の大きさの黒雲母結晶は、この両期間を通して成長を続けたとみることができよう。あるいは、塩基性マグマ注入時の温度上昇によって、結晶の一部は融解したかも知れない。結晶の中心にはマグマの初期の記録が、一部には融解時の記録が、周辺部には結晶作用の末期の記録が収録されているとみられ、これら全てが積分された結果として分析値ができていとみなければならない。このため、径500μm以上の黒雲母の分析結果の解釈は容易ではない。

粒径が500μm以下の黒雲母の年令は一定で、87.6±0.4Maである。恐らく結晶作用の後期を示す値であろう。この年令が糸島花崗閃緑岩からの黒雲母の年令と一致することも興味深い。

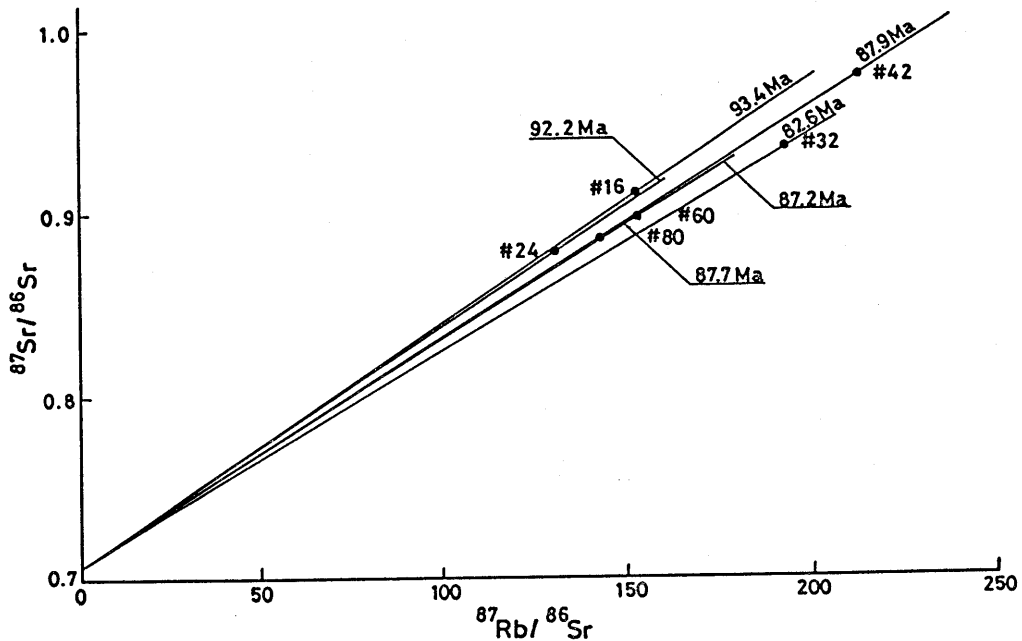


Fig. 3. Isochron plot for size fractions of biotite crystals from the Haki granodiorite. Number refers to the size of biotite crystals. Isochrons were drawn between each size fraction and the whole rock.

結 語

黒雲母のルビジウム含有量が、結晶の粒径に依存して変化することがわかった。ルビジウム含有量は、黒雲母の結晶が小さい程少ない。黒雲母年令の粒径依存について、今後更に測定を重ね、種々の例について検討する必要がある。黒雲母に含まれる燐灰石は、 ^{87}Rb の壊変によって黒雲母の中に生じた ^{87}Sr の一部をとらえていることがある。拡散によって移動したものらしい。燐灰石の多少、その分布も黒雲母年令のばらつきに寄与している。その効果も今後検討を進めなければならない。

引 用 文 献

- COMPSTON, W. and I.S. WILLIAMS (1984): U-Pb geochronology of zircon from lunar breccia 73217 using a sensitive high mass-resolution ion microprobe. *Jour. Geophys. Res.*, **89**, Suppl. B525-534.
- DAMON, P.F. (1968): Potassium-argon dating of igneous and metamorphic rocks with applications to the Basin ranges of Arizona and Sonora. In E.I. HAMILTON and R.M. FARQUHAR (eds.), *Radiometric Dating for Geologists*, Interscience, London, 1-71.
- HART, S.R., G.L. DAVIS, R.H. STEIGER and G.R. TILTON (1968): A comparison of the isotopic mineral age variations and petrologic changes induced by contact metamorphism. In E.I. HAMILTON and R.M. FARQUHAR (eds.), *Radiometric Dating for Geologists*, Interscience, London, 73-110.
- SHIBATA, K., T. MATSUMOTO, T. YANAGI and R. HAMAMOTO (1978): Isotopic ages and stratigraphic control of Mesozoic igneous rocks in Japan. In G.V. COHEE, M.F. GLAESSNER and H.D. HEDBERG (eds.), *Contribution to the Geological Time Scale*, Amer. Assoc. Petrol. Geol., 143-164.
- YANAGI, T. (1975): Rubidium-strontium model of formation of the continental crust and the granite at the island arc. *Mem. Fac. Sci., Kyushu Univ.*, [D], **22**, (2), 37-98.
- 柳 哮 (1980): 花崗岩の黒雲母の Rb-Sr 年令、粒径と包有鉱物。九大理研報, **13**, (2), 155-162.
- (1983): 花崗岩の年代測定について、首藤次男、相原安津夫・坂井卓・佐野弘好編、島弧と大陸との関連からみた九州の構造発達史, 61-65.
- 山田尚一郎 (1986): 糸島花崗閃緑岩中の火成岩および変成岩捕獲岩類の岩石学的研究。九大修論(手記)。