

博士論文

珪長質メルトと鉱物間における Sr 安定同位体分別に関する研究

関西学院大学大学院

理工学研究科 化学専攻

博士課程後期課程

若杉 勇輝

2021年11月

目次

第 1 章 序論	1
第 2 章 東北日本只見川古期花崗岩類のマグマ源と形成年代	
2.1 背景.....	7
2.2 地質概説.....	16
2.3 分析手法.....	18
2.3.1 主成分および微量成分元素分析.....	18
2.3.2 Sr 同位体分析.....	20
2.3.3 U-Pb 同位体分析.....	22
2.4 結果.....	23
2.5 考察.....	26
2.5.1 全岩化学組成による只見川古期花崗岩類の比較.....	26
2.5.2 Rb-Sr 全岩および鉱物アイソクロンの検討.....	27
2.5.3 只見川古期花崗岩類の年代論.....	30
2.5.4 只見川古期花崗岩類の起源物質推定.....	32
2.6 総括.....	35
第 3 章 高知県足摺岬の第三紀複合火成岩類の岩石学的研究	
3.1 背景.....	59
3.2 地質概説.....	60

3.3	分析手法.....	61
3.3.1	主成分および微量成分元素分析.....	61
3.3.2	Sr 同位体分析.....	63
3.4	結果.....	65
3.5	考察.....	67
3.5.1	全岩化学組成による足摺岬複合火成岩類の比較.....	67
3.5.2	足摺岬複合火成岩類の起源物質推定.....	70
3.6	総括.....	72
第 4 章 マグマプロセスに伴う Sr 安定同位体組成の変動		
4.1	背景.....	89
4.2	分析手法.....	92
4.3	結果.....	94
4.4	考察.....	95
4.5	総括.....	98
第 5 章 レーザー掘削を用いた岩石の微小領域サンプリングと Rb-Sr 年代測定		
5.1	背景.....	109
5.2	分析手法.....	112
5.2.1	試料.....	112
5.2.2	マイクロサンプリング.....	112

5.2.3	試料の分解および ICP-MS による定量分析.....	114
5.2.4	Sr 同位体分析.....	114
5.3	結果と考察.....	115
5.4	総括.....	118

第 6 章 総括と展望

125

第1章 序論

岩石をはじめとした地球構成物質の安定同位体を用いた地球化学的研究は、水素 (H)、炭素 (C)、酸素 (O) などの軽元素から始まり、鉄 (Fe)、ニッケル (Ni) などの重元素まで幅広く行われている (例えば、Ohno and Hirata, 2007)。これら安定同位体の存在比である安定同位体比はそれらを含む物質の物理的・化学的過程に伴って変動する。同一元素における安定同位体比の変動は同位体間の質量差に起因する反応性の違いにより生じ、これを同位体分別と呼ぶ。ある条件における2つの物質間での同位体組成の偏りは同位体分別係数 (α) で表される。この同位体分別係数 (α) は、同位体分別が起こる際の物理過程における環境下での温度や原子の相対質量差、物質を構成する元素間の化学結合の強さなどに依存することが知られている (Bigeleisen and Mayer, 1947)。

本研究で着目する元素であるストロンチウム (Sr) は岩石をはじめ、海水、生体を構成する骨などの様々な環境物質中に普遍的に含まれる。Sr はアルカリ土類金属であり、 Sr^{2+} のイオン半径は Ca^{2+} のイオン半径の値と近い (Sr^{2+} : 1.13 Å; Ca^{2+} : 0.99 Å)、Ca と置換することで物質中に取り込まれる場合が多い。Sr は、質量数 84、86、87、88 の4つの天然の安定同位体が存在し、この内 ^{87}Sr は ^{87}Rb からの放射壊変起源同位体である。一般的に、放射壊変起源の ^{87}Sr は岩石の年代測定やマグマを形成した原岩や環境水の起源推定などに利用されている。岩石をはじめとした地球構成物質について Sr の放射壊変起源の同位体比 ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) と安定同位体比 ($^{88}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) から得られた情報を組

み合わせることができれば、対象物質の年代や起源物質に関する情報だけでなく、その物質が現在までに経験した物理過程の情報を得ることが期待できる。その先例として、海水や炭酸塩などの環境試料中の Sr 安定同位体組成 ($\delta^{88}\text{Sr}[\text{‰}] = [(^{88}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{sample}} / (^{88}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{SRM987}} - 1] \times 10^3$; SRM987 は Sr 同位体標準試料) の変動が報告されている (例えば、Ohno and Hirata, 2007; Wakaki et al., 2017)。Ohno and Hirata (2007) は、海水の $\delta^{88}\text{Sr}$ (約+0.40 ‰) と炭酸塩の $\delta^{88}\text{Sr}$ (約+0.29 ‰) を測定し、海水-炭酸塩間での Sr 安定同位体組成の変動幅は 0.1 ‰であると報告している。また、高温環境下で形成される火成岩において Sr の同位体組成の微小な変動が報告され、結晶分化の過程で Sr の同位体分別が起こった可能性が示唆されている (木村, 2010; Charlier et al., 2012)。火成岩における Sr の同位体分別の要因の 1 つとして斜長石の分別結晶作用が挙げられる。しかし、これらの研究では、岩石標準試料の全岩試料、斜長石のような Sr を濃集する鉱物などの特定の試料の分析に限られる。岩体レベルでの系統的な変動について検討した研究例はほとんどない。同位体分別は一連の物理過程で発生するため、起源が異なるなど試料相互の関連性が薄い試料は安定同位体組成の変動の厳密な議論には適さない。火成岩の安定同位体組成の変動を議論する場合、一連の火成活動における単一の起源マグマから分化し形成された岩体に着目する必要がある。

火成岩の Sr 安定同位体組成に関する研究の現時点での問題点として、その研究例の少なさと、各試料の背景となる起源マグマや形成・定置過程などの情報が不足している点が挙げられる。そのため、先行研究では、Sr の同位体分

別と各試料との関連性を十分に把握できていない。今のところ、各試料において局所的な同位体分別が起こっていることは判明しているが、火成活動のどの過程でどのような同位体分別が起こるかなどの体系的なメカニズムについても明らかになっていない。火成活動と一口にいても起源物質の溶融、マグマの上昇、結晶分化、マグマの固結など化学組成や同位体組成を変動させ得る過程が多々ある。また、これまでの Sr 安定同位体組成に関する研究では、これらの過程で起こった様々な Sr の同位体分別が複合した結果として試料の Sr 安定同位体組成をみている可能性もあるため、できる限り個々のマグマプロセスにおける分別過程を評価したい。そこで、本研究では個々の過程を区別して体系的な Sr の同位体分別メカニズムを理解するために、まず Sr の同位体分別の有力な要因として挙げられる結晶分化作用のみで形成された単純な火成岩体に対して Sr 安定同位体組成を分析した。ここでの単純な過程で形成された火成岩体とは、単一の起源マグマから結晶分化作用により形成され、二次的な風化や変質を経験していないことを意味する。このため、対象の岩体の基礎的な地球化学的調査を Sr 同位体分析と合わせて行い、まず岩体の成因について知る必要がある。単純な過程で形成された火成岩体の Sr 安定同位体組成を調べることで初めて結晶分化作用に伴う Sr の同位体分別について厳密な議論をすることができる。さらに、これらのデータから同位体分別係数 (α) を求めることで、後の別岩体での議論の際の基準とすることが期待される。

また、Sr の同位体分別の主要因は斜長石の分別結晶作用とされているが (木村, 2010; Charlier et al., 2012)、全岩試料とその鉱物試料の両方を分析して

いるわけではない。Sr の同位体分別の主要因を検討するためには、対応する全岩試料と鉱物試料の Sr 安定同位体組成のデータが必要となる。それに加えて、斜長石が Sr の同位体分別の主要因となるのが、結晶分化の進行度などの諸条件により変化しないかなど検証すべき項目が多く存在する。例えば、先行研究（木村, 2010; Charlier et al., 2012）では結晶分化の進行度（SiO₂ 量）が増加するとともに Sr 安定同位体組成（ $\delta^{88}\text{Sr}$ ）が低下しているが、斜長石の分別結晶作用が主要因とした場合、元々含んでいる Sr 量が異なる岩体でも同程度の Sr の同位体分別が起こるのかの疑問が残る。また、鉱物では、単一結晶内であっても中央部と周縁部で化学組成や同位体組成が異なることがある（例えば、Davidson et al., 2001）。従来から行われている手法である岩石粉碎後に鉱物分離して得た鉱物試料の場合、採取した鉱物試料がそれぞれ異なる化学組成や同位体組成をもっている場合でも均質化される。この問題を解決するためには鉱物試料の中心部と周縁部を選択的に採取する必要があり、マイクロサンプリング法を用いることが望ましい。現在のマイクロサンプリング法として、マイクロドリリング法やレーザー掘削法を用いた手法が挙げられる。マイクロドリリング法ではドリル径の大きさ（ $>100\ \mu\text{m}$ ）と掘削後の鉱物試料の回収率の低さが問題点として挙げられる。一方、レーザー掘削法ではレーザー装置と分析機器を連結した手法（LA-ICP-MS）が主に使われており、1 度の測定におけるサンプル採取量に制限がある。そこで、サンプリングと試料回収を両立した新手法の開発が必要となる。

本研究では、火成活動に伴う Sr の同位体分別過程の解明を主目的として研

究を行った。まず岩体レベルでの Sr の同位体分別を調べるために、福島県南西部に分布する只見川古期花崗岩類と高知県南西部に分布する足摺岬複合火成岩類を対象岩体として選別した。第2章では、只見川古期花崗岩類の全岩化学組成、ジルコンの U-Pb 年代と Rb-Sr 全岩および鉱物アイソクロン年代を測定し、岩体の形成史の解明と起源物質の推定を行った。第3章では、足摺岬複合火成岩類の全岩化学組成および Sr 同位体分析を行い、これら火成岩類の形成史の解明と起源物質の推定を行った。対象岩体とした只見川古期花崗岩類と足摺岬複合火成岩類の地質学的な調査により、各試料の Sr 安定同位体組成との紐づけを行えるようになった。これら地質学的調査を行った上で、第4章では只見川古期花崗岩類と足摺岬複合火成岩類の Sr 安定同位体組成に関して論じた。只見川古期花崗岩類では、結晶分化作用によって生じた Sr 安定同位体組成の変動を解析し、結晶分化作用に伴う Sr の同位体分別の基礎的なモデルを構築することを目指した。また、鉱物の Sr 安定同位体組成から火成岩を構成する各鉱物の Sr 同位体に対する選択性の検証を行った。足摺岬複合火成岩類では、只見川古期花崗岩類から得られた結晶分化作用による Sr の同位体分別モデルとの比較と結晶分化作用以外の Sr の同位体分別の要因について検討した。将来的には、本研究で対象とした鉱物だけでなく多種多様な鉱物の Sr 安定同位体組成に関する研究が必要となる。また、鉱物の Sr 安定同位体組成を分析する際に、各鉱物結晶間や鉱物粒界などの微小領域に着目することが考えられる。しかし、既存のマイクロサンプリング法では採取方法による制約で、対象元素を濃集した鉱物試料にしか使用できない。そのため、第5章では新た

に開発した幅広い鉍物試料に応用可能なマイクロサンプリング法について論じた。最後に、第6章ではこれら研究の総括と今後の研究への展望を述べた。

第2章 東北日本只見川古期花崗岩類のマグマ源と形成年代

2.1 背景

火成岩に記録されている同位体組成や全岩化学組成などの情報から、マグマの元となった起源物質やマグマの形成（溶融）メカニズム、マグマが固結するまでの物理過程（上昇、冷却など）を読み取ることができる。火成岩は液相であるマグマを経由するため、起源物質や形成過程の違いにより化学的多様性が生まれる。火成岩の研究をする上では、起源物質の化学組成や同位体組成が各物理過程でどのように変化したかを現在の火成岩から遡って読み解く必要がある。また、同位体組成を利用する方法の中でも、放射年代測定法は岩石の年代的な位置付けを知る上で重要である。

マグマには、固結後の岩石に含まれる鉱物中に流体包有物として含まれる岩石が溶融したマグマ以外の液体（液相）も存在している。この液相は、マグマとは物理的性質（密度、粘性など）、化学的性質が全く異なっているため、混じり合わないものである。ただし、液相はマグマが高温であるため、超臨界流体となっていた可能性もある（Paillat et al., 1992）。高温高圧で流体になると、水蒸気や二酸化炭素は、気体の拡散性と液体の溶融性を持ち、多様な成分を溶かし込んだ流動性の高い相として振る舞うことになる。マグマが冷却していくと、マグマの化学組成と物理条件に対応した鉱物が形成される。地表および地球内部での現象により、元素はそれぞれの化学的・物理的性質に沿った挙動を示す。温度低下に伴い、結晶は成長することによりその量を増やすとともに、晶出する結晶はマグマの組成の変化とともに別の結晶へと変化していく。マグ

マ溜まり中で起こるこの現象を結晶分化作用と呼ぶ。岩石の部分溶融作用によるマグマの発生やマグマの分別結晶の際に、イオン半径が大きい、もしくは価数が大きいことにより固相である鉱物中に陽イオンとして入りにくい元素はマグマに濃集する。このように鉱物中の陽イオンのサイトに合わない元素は不適合元素または液相濃集元素と呼ばれる。不適合元素には、イオン半径が大きいために固相に入りにくい LIL (Large Ion Lithophile) 元素と、イオン価が大きいために固相に入りにくい HFS (High Field Strength) 元素がある。また、マグマ中には気相も含まれており、気体は時間経過と共にマグマから抜けていく。液相や気相は固相内にはほとんど保存されないため、定量的に把握することは難しい。しかし、マグマ中に存在した液相や気相は、例えば火山の動的变化(マグマの上昇、膨張、亀裂形成、地震など)や噴火活動において重要な役割を果たしている。

火成岩の起源物質は、マグマの由来となる固体物質で、マントルや地殻下部に存在する既存の岩石となる。溶融は起源物質で一定の条件を満たした時に起こる。岩石の全岩化学組成の内、微量元素や同位体組成は、起源物質の特性を反映する場合がある。ところで、始原的な隕石であるコンドライト隕石は、太陽系の元素組成をよく保存している。中でも、CI コンドライトは太陽系の元素組成および同位体組成を最もよく保持していると考えられている。そのため、一般に CI コンドライトの元素組成を基準として、地球物質の元素組成および元素分別が議論される。

マントルの岩石は、地殻下部と比べて均質である。一方、地殻は履歴の違い

によって、多様性を持つ。マンツルの岩石はかんらん岩で構成されている。先述のようにマンツルは均質ではあるものの、多少の多様性は認識されている。海洋域で活動するマグマは、マンツルから由来したもので、マンツルの性質をそのまま反映している。海洋底玄武岩（mid-oceanic ridge basalt, MORB）は、中央海嶺で形成されプレート運動により、海洋底に広がり、やがて全海域を覆っていく。これが海洋プレートの形成原理である。一方、海山、海洋島の玄武岩（oceanic island basalt, OIB）は、局所的に発生し、その時間的スケールは継続的、もしくは単発の火山活動によるものである。MORB は、地球表面の 7 割を占める岩石であるにも関わらず、その化学組成が非常に一様であることが際立った特徴である。これは、恒常的に似た起源マンツルから、定常的な MORB マグマの供給がなされるメカニズムが存在することを示唆している。一方、OIB は、MORB とは明らかに化学的性質が異なる。MORB は、液相に入りやすい元素の少ない枯渴した（depleted）マンツルに由来している。OIB には、イオン半径が大きい元素（large ion lithophile element, LIL）や液相に入りやすい元素（incompatible element）に富む（enriched）。さらに、OIB は、微量元素などの比較検討から、岩石種が多様であり、一つの起源マンツルからは形成されないことが明らかになってきた。MORB と各地の OIB の同位体組成を調べることによって、起源物質（マンツル物質）の履歴や性質に違いがあることが報告されている（例えば、加々美・小出, 1987; 小出, 1992 など）。同位体的性質が異なるマンツル物質は、端成分マンツルとして区別されている。地球上の大部分の火成岩の多様性は、Sr、Nd 及び Pb 同位体組成から 5 つの端成

分マントルで説明できるとされている (White, 1985)。

放射年代測定法は、放射性核種の半減期が物理化学的条件によらず一定であることに基いており、天然に存在する放射性核種の壊変現象を用いている。放射壊変によって親核種が娘核種へ時間経過で壊変する際、壊変定数 (λ) を用いて、

$$N = N_0 e^{-\lambda t}$$

で表される。ここで、 N は親核種の数であり、 N_0 は時間 $t = 0$ の時の親核種の数である。また、ある時刻における娘核種の数 (D_t) は、

$$D_t = (e^{\lambda t} - 1) N_t + D_0$$

で表される。時刻 t は現在を意味、 D_t と N_t は測定することができる。この時、各元素の絶対量を求めるのは困難であるため、放射壊変に関与しない娘核種の安定同位体 D_s との比を測定する。測定対象物質の年代に応じて、異なる半減期の核種が使い分けられる。様々な手法により放射年代を得ることができるが、得られた年代値がどのような地球科学的現象に相当する年代を表しているかを理解することも重要である。試料の示す年代としては、岩石や鉱物の形成年代、二次的な影響を受けた年代、マグマの形成年代など様々である。これらを区別するには、試料や年代測定法、試料の産状などを総合的に検証する必要がある。

放射年代が示す年代とは、放射壊変を伴う生成物が鉱物などの閉鎖系に蓄積され始めた時に相当する。その際の温度を閉鎖温度と呼ぶ。閉鎖温度は対象とする鉱物、元素や同位体の種類により異なるので、利用する手法により得られる年代が異なる場合がある。花崗岩類におけるジルコンの U-Pb 年代はマグマ

からジルコンが晶出した時期すなわち岩体の固結年代を示すと考えられており、岩体の冷却年代を示すと考えられてきた K-Ar 年代や Rb-Sr 鉱物年代と合わせてその火成岩体の冷却史を議論するのに用いられる。

本研究の議論で用いる Rb-Sr 法、Sm-Nd 法、U-Th-Pb 法について以下に説明する。Rb-Sr 年代測定法において、Sr には質量数 84、86、87、88 の 4 つの安定同位体がある。 ^{87}Sr は安定同位体であるが、そのうちの一部は ^{87}Rb の放射性崩壊によって生成された放射壊変起源のものである (^{87}Rb の崩壊定数： $\lambda = 1.42 \times 10^{-11} \text{ yr}^{-1}$; Steiger and Jäger, 1977)。 ^{87}Rb から ^{87}Sr への崩壊現象は、Rb-Sr 同位体系が閉じた後の岩石や鉱物の形成年代や変成年代を決定するのに利用することができる。この方法において岩石の形成年代は、全岩や岩石の構成鉱物それぞれの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比および Rb と Sr 量を測定し、アイソクロンを作成することにより、その岩石の初生値 (SrI) とともにアイソクロンの傾き ($e^{-\lambda t}$) から決定することができる。全岩試料の測定値のみからなるアイソクロンは Rb-Sr 全岩アイソクロン、1 つの岩石から全岩試料とともにそれから分離した数種類の鉱物試料の測定値から作成したアイソクロンを Rb-Sr 全岩-鉱物アイソクロンと呼ぶ。Rb-Sr 全岩アイソクロン年代と Rb-Sr 全岩-鉱物アイソクロン年代は一致する場合もあるが、一般的に前者の方が古い年代を示す。これは前者の Rb-Sr 全岩アイソクロン年代が全岩試料ひいては岩体の形成・変質年代を示すため年代に幅があるのに対して、後者の Rb-Sr 全岩-鉱物アイソクロン年代は岩体内の 1 つの岩石から年代を求めているためである。また、Rb-Sr 全岩-鉱物アイソクロン年代では、各鉱物の Rb-Sr 系が閉鎖系となった時期をみている

ため、それらの鉱物をまとめた全岩試料よりも若い年代を示す可能性が高くなる。ところで、 Sr^{2+} は同じアルカリ土類金属元素である Ca^{2+} と似たイオン半径であり (Sr^{2+} : 1.13 Å; Ca^{2+} : 0.99 Å)、一方で Rb^+ は同じアルカリ土類金属元素である K^+ と似たイオン半径 (Rb^+ : 1.52 Å; K^+ : 1.37 Å) である。イオン半径が近く、同族の元素であることから、Sr は Ca と、Rb は K と似た地球化学的挙動を示す。同位体比測定において、その同位体の絶対量を測定することは困難であることから、Sr においては一般に $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の同位体比を測定する。

Sm-Nd 年代測定において、Sr 同位体と同様に、放射性元素の崩壊を利用し、岩石や鉱物の形成年代や変成年代を決定することができる。 ^{147}Sm が ^{143}Nd に放射壊変することを利用する。Sm や Nd は希土類元素 (REE) に分類される。REE はいずれも 3 価となり、表層での地球化学的挙動が似ている。そのため、試料間において Sm/Nd 比の変動幅は Rb/Sr 比ほど大きくない。また風化での移動が少ない元素であるため、Nd 同位体は Sr 同位体に比べて風化の影響をあまり受けず、岩石や鉱物を形成したマグマの情報や堆積物の供給源の情報をより良く保持している。地表の岩石において Sm/Nd 比は Rb/Sr 比より変動幅が小さくないが、マントルにおいて Sm/Nd 比は Rb/Sr 比よりも変動幅が大きい。そこで、Sm-Nd 法はマントル進化の議論によく用いられる。

U-Pb 系では、Rb-Sr 同位体系や Sm-Nd 同位体系などと異なり同一元素において複数の核種の壊変系列を利用し、2 つの異なる経路の放射壊変を年代測定に利用することができる。U には、 ^{235}U と ^{238}U の 2 つの同位体があり、それぞれ ^{207}Pb 、 ^{206}Pb に放射壊変する。このように、U-Pb 系は親核種と娘核種の両

方の元素が等しい2種類の壊変系列を持つ。U-Pb法は半減期が約45億年であるため、古い試料を対象に用いられる。UとPbは化学的性質が異なるので、試料間において化学的分別作用が強く働く。そのため、U/Pb比の大きい物質や小さい物質が生成され、その比にバリエーションができる。U-Pb法に適する条件として、親核種であるU、Thの含有量が多いことと初期Pb（放射壊変起源でないPb）の量が少ないことが挙げられる。U-Pb年代測定法では、しばしば測定対象となる鉱物である。ジルコンは $ZrSiO_4$ という化学組成を持ち鉱物で、UやThなどを濃集し初期Pbをほとんど含まないことから、U-Pb法に適している。ジルコンは化学的、物理的に安定な鉱物で風化変質などに強い耐久性があるため、変成作用や火成作用を受けた後も残存し原岩の形成年代を保存している場合が多い（例えば、Corfu et al., 2003）。ジルコン粒子が変成作用や火成作用を受けた場合、鉱物粒子が二次的に成長することにより、中央部と周縁部で異なる年代が得られる。そのためジルコンのU-Pb年代を求めることで、原岩の推定や地質学的イベントを制約することができる（例えば、Osanai et al., 2013）。ジルコンは鉱物粒子一つ一つが様々な地質学的情報を内包しているため、二次イオン質量分析法（SIMS）やレーザーアブレーション（LA）法と併用した誘導結合プラズマ質量分析法（LA-ICP-MS）のような固体試料の微小領域に対して有用な分析法が用いられる。ここで、UとPbの同位体比の関係から、縦軸に $^{206}Pb/^{238}U$ 比、横軸に $^{207}Pb/^{235}U$ 比をとると、コンコーディア（年代一致曲線）と呼ばれる曲線が描ける。二種類の壊変系から得られた年代が一致すればコンコーディア図上にプロットされるが、不一致になることも

ある。不一致年代を示すデータをプロットすると直線に分布することがあり、この直線はディスコーディア（年代不一致線）と呼ばれる。ディスコーディアを示す試料は岩石形成後に変成作用を受けたことにより U-Pb 系の閉鎖系が崩れた可能性が高い。このように U-Pb 系の閉鎖系が崩れている試料においてコンコーディアとディスコーディアを持つ意味を正しく解釈することができれば、試料の形成年代に加えて変成年代についての情報も得られる可能性がある。

本研究の対象である東北日本の只見川古期花崗岩類は白亜紀（50 – 130 Ma）に形成された。花崗岩類の露出地域は日本列島の全域に及んでおり、その地表露出面積は日本の全花崗岩類の 80%以上を占める。本州弧の白亜紀–古第三紀火成岩の活動時期は西南日本弧、東北日本弧それぞれで活動場が推移していることが報告されている（例えば、Kagami et al., 1992, 1999; 加々美, 2005）。西南日本弧では西側から東側に向かうにつれて 100 Ma から 65 Ma まで若くなる傾向を示している。また、東北日本弧では北東側から南西側に向かうにつれて 130 Ma から 60 Ma まで若くなる傾向を示している。活動時期について、西南日本弧は 100 Ma から 65 Ma まで連続的に推移しているのに対して、東北日本弧では 130 Ma から 60 Ma まで連続的に活動しておらず、110 – 100 Ma と 75 – 60 Ma に活発に活動していたことが報告されている。西南日本弧の活動場が中央構造線沿いに推移することと同様に、東北日本弧の活動場には棚倉構造線が密接に関係している（木下・伊藤, 1990; Nakajima et al., 1990）。棚倉構造線の西部は東北日本弧と西南日本弧の境界付近に相当し、これまでに述べたような東北日本弧の北東側から南西側に向かうにつれて 130 Ma から 60 Ma まで活動

時期の推移とは異なり、同一地域で複数の黒雲母の K-Ar 年代が報告されている (69 Ma: 河野・植田, 1966; 102.3 ± 2.2 Ma、 102.7 ± 2.2 Ma、 89.6 ± 1.9 Ma、 61.7 ± 1.4 Ma: 谷岡ほか, 2014)。本研究対象の只見川古期花崗岩類が分布する奥只見地域は棚倉構造線の西部に位置している (図 2-1)。この地域には、後期白亜紀-古第三紀の花崗岩類が足尾帯ジュラ紀コンプレックスに広く貫入している (高橋ほか, 2004)。この地域に分布する花崗岩類の地球化学的データは東北日本弧の火成岩の形成史を解明する上で重要であるとともに、これらの花崗岩類の起源を推定する上でも欠かせない。

只見川古期花崗岩類は後期白亜紀から古第三紀にかけて活動し、三地域 (帝釈山地、只見川流域、伊南川流域) に分布している (図 2-2)。各岩体における全岩化学組成が類似していることから、これらの花崗岩類は単一の起源マグマから形成されたと解釈されている (谷岡ほか, 2014)。只見川古期花崗岩類の黒雲母 K-Ar 年代は河野・植田 (1966)、谷岡ほか (2014) で報告されているが、100 Ma から 60 Ma までの幅がある。谷岡ほか (2014) は、これらの年代値の相違の原因として 1) 岩体固結後の火成活動による再加熱によって K-Ar 年代がリセットされた、2) 各岩体の起源マグマが異なる、という説を検討している。しかし、この年代の相違については年代情報が不十分であり、明確には分かっていない。只見川古期花崗岩類における K-Ar 年代の相違について検証するためには他の放射壊変系を用いた年代測定が必要である。本研究では、只見川古期花崗岩類の形成史を解明するためにジルコン U-Pb 年代、Rb-Sr 全岩および鉱物アイソクロン年代を測定した。また、各岩体の起源マグマを検討

するために、Sr 同位体分析を行い、Sr 同位体比初生値から只見川古期花崗岩類の起源を推定した。

2.2 地質概説

東北日本弧の火成活動は白亜紀から古第三紀に起こり、松木花崗岩（116 Ma; 河野・植田, 1966）、沢入花崗岩（93 Ma; Sudo et al., 1998）、中禅寺酸性火山岩類（70 – 60 Ma; 河野・植田, 1966）を含む足尾山地の火成岩類を形成している（矢内, 1972, 1973a, b）（図 2-1）。また、只見川古期花崗岩類は福島県南西部の奥只見地域に分布し、新第三紀の岩石と第四紀火山岩に覆われて分布域は制限されている。この地域の北部には、北上花崗岩（120 – 110 Ma : 例えば、Shibata and Miller, 1962; 河野・植田, 1965a; Nozawa, 1975）、阿武隈山地深成岩類（100 – 90 Ma : 例えば、河野・植田, 1965b; 柴田・内海, 1983）、朝日山地および足尾山地の花崗岩類（90 – 60 Ma : 例えば、河野・植田, 1966; Shibata and Nozawa, 1966）が南に向かうにつれて連続的に若い年代になるように分布している。また、奥只見地域の東部に位置する八溝山地には、古期岩体（約 105 Ma: 柴田ほか, 1973）と新期岩体（約 65 Ma: 河野・植田, 1966）がそれぞれ定置している。

只見川古期花崗岩類が分布する奥只見地域は、主に足尾帯ジュラ紀コンプレックスの石灰岩、粘板岩、砂岩で構成されている（野田ほか, 2014）（図 2-2）。これは奥只見地域の南部に位置する足尾山地に分布する地質と類似している。奥只見地域と足尾山地は主に古生代から中生代の足尾帯、白亜紀から古第三紀

の花崗岩類および酸性火山岩類、新第三紀の岩石、第四紀火山岩類で構成されている。只見川古期花崗岩類は後期白亜紀から古第三紀に活動していたとされている（茅原・小松, 1992; 山元ほか, 2000）。只見川古期花崗岩類の周辺には第三紀後期に活動した只見川新期花崗岩類も分布している。

本研究地域では、只見川古期花崗岩類は主に帝釈山地、只見川流域、伊南川流域の三地域に分布している（図 2-2）。帝釈山地の岩体は NE-SW 方向に約 10 km で幅約 5 km の規模で分布し、伊南川流域の岩体は NW-SE 方向に約 9 km で幅約 5 km の岩体と S-N 方向に約 6 km で幅約 3 km の岩体が連なって分布し、只見川流域の岩体は E-W 方向に約 14 km、S-N 方向に約 18 km の規模で分布している。

只見川古期花崗岩類は檜枝岐川花崗岩と只見川花崗岩の 2 種類の岩型に区別される。檜枝岐川花崗岩は帝釈山地の南西部と只見川流域の東部に小規模な岩株として分布し、只見川花崗岩に囲まれている。檜枝岐川花崗岩は中粒の石英モンゾ花崗岩-花崗岩で、主に石英、斜長石、カリ長石、黒雲母で構成されている。副成分鉱物としてジルコン、アパタイト、不透明鉱物を含む。只見川花崗岩は帝釈山地、只見川流域、伊南川流域に広く分布する。只見川花崗岩は粗粒の花崗岩-花崗閃緑岩で、主に石英、斜長石、カリ長石、黒雲母、角閃石で構成されている。副成分鉱物としてジルコン、アパタイト、不透明鉱物を含む（谷岡ほか, 2014）。また、帝釈山地の一部地域の只見川花崗岩中にアプライト脈がみられる。帝釈山地の只見川花崗岩には新第三紀の田代山流紋岩が貫入している（村山・河田, 1955; 山元ほか, 2000）。只見川流域の只見川古期花崗

岩類には後期白亜紀の酸性-中性岩脈が多数貫入している。檜枝岐川花崗岩は只見川花崗岩との境界部において只見川花崗岩から接触変成作用を被っている(村山・河田, 1955)。これは両花崗岩に年代差があることを示している。河野・植田(1966)は伊南川流域の只見川花崗岩から 69 Ma の黒雲母 K-Ar 年代(Steiger and Jäger (1977) の壊変定数を用いて再計算)を報告している。谷岡ほか(2014)は帝釈山地の檜枝岐川花崗岩と只見川花崗岩から 102.3 ± 2.2 Ma、 102.7 ± 2.2 Ma の黒雲母 K-Ar 年代をそれぞれ報告している。また、只見川流域と伊南川流域の只見川花崗岩から 89.6 ± 1.9 Ma、 61.7 ± 1.4 Ma の黒雲母 K-Ar 年代も報告している。

2.3 分析手法

2.3.1 主成分および微量成分元素分析

波長分散型蛍光 X 線分析装置(XRF、島津製作所 XRF-1800)を用いて只見川古期花崗岩類 59 試料の主成分 10 元素(Fe, Mn, Ti, Ca, K, P, Si, Al, Mg, Na)および微量成分 14 元素(Th, Pb, Ba, Nb, Zr, Y, Sr, Rb, Zn, Cu, Ni, Co, Cr, V)の定量分析を溶融ガラスビード法により行った。測定条件は、主成分元素分析は管電圧 40 kV、管電流 70 mA であり、微量成分元素分析は管電圧 40 kV、管電流 95 mA、いずれもロジウム管球を用いて行った。分析法は基本的に中崎ほか(2004)に従った。

主成分元素分析用ガラスビードについては、岩石粉末試料(110 °C、24 時間乾燥済) 0.7 g に融剤である四ホウ酸リチウム(無水)[タイプ II](和光純薬

工業、蛍光 X 線分析用) (110 °C、24 時間乾燥済) 6.0 g を混合し、蛍光 X 線分析用ガラスビード試料作製装置 (竹田理化工業 TR Auto-Bead-1000-S) で加熱 (1000 °C、18 分間を 2 回) して作製した。岩石粉末試料は、採取した岩石試料を洗浄・風乾し、ハンマーで粗砕きした後、瑪瑙の自動乳鉢 (日陶科学 AMM-140D) で粉碎し、さらにアルミナ乳鉢でパウダー状に粉碎して作製した。微量元素分析用ガラスビードについては、岩石粉末試料 (110 °C、24 時間乾燥済) 2.0 g に融剤である四ホウ酸リチウム (無水) [タイプ II] (和光純薬工業、蛍光 X 線分析用) (110 °C、24 時間乾燥済) 3.0 g を混合し、蛍光 X 線分析用ガラスビード試料作製装置 (竹田理化工業 TR Auto-Bead-1000-S) で加熱 (1000 °C、18 分間を 2 回) して作製した。

また電気炉 (ヤマト科学 FO100) を用いて只見川古期花崗岩類 59 試料に対して強熱減量試験を行い、強熱減量値 (LOI) を求めた。強熱減量試験については、岩石粉末試料 (110 °C、24 時間乾燥済) 0.5 g を電気炉 (ヤマト科学 FO100) で強熱 (1000 °C、2 時間) し、強熱前後の岩石粉末試料の質量を電子天秤で測定した。

誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS、Agilent Technologies 7500cx ICP-MS) を用いて只見川古期花崗岩類 39 試料の Sc、Pm を除く希土類元素 15 元素 (Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Ym, Yb, Lu) の定量分析を内標準検量線法により行った。内標準として In 標準溶液を用いた。微量成分元素測定に用いたガラスビードを粉末にして、125 mg 秤量した。これをテフロン容器に入れ、6 M 塩酸を 3 mL 加え 1 時間以上加熱還流し分解した後、乾固

させた。6 M 塩酸による分解を再度行い、乾固させた。6 M 塩酸 1 mL でこれを溶解し、超純水 3 mL を加えて遠心分離（3000 回転、10 分）した。上澄み液を別のテフロン容器に移し、沈殿に対して同様の操作を 2 回行い、得られた上澄み液を最初の上澄み液とあわせて乾固させた。これを 2.4 M 塩酸 3 mL で溶解し、遠心分離した後、陽イオン交換樹脂のカラムに通した。別のテフロン容器に希土類元素のフラクション 77 mL を回収し、乾固させた。これを 2%硝酸で溶解し、全量が 20 g になるまで 2%硝酸を加えた。これをさらに 2%硝酸で 10 倍希釈したものを測定試料とした。

2.3.2 Sr 同位体分析

表面電離型質量分析装置（TIMS、Thermo Fisher Scientific TRITON TI）を用いて只見川古期花崗岩類の全岩試料 25 試料、鉍物試料 19 試料（斜長石、カリ長石、黒雲母）の Sr 同位体組成分析を、誘導結合プラズマ質量分析装置（Agilent Technologies 7700x ICP-MS）を用いて只見川古期花崗岩類の全岩試料 25 試料、鉍物試料 19 試料（斜長石、カリ長石、黒雲母）の Rb、Sr の定量分析を In 内標準検量線法により行った。全岩化学組成分析および Sr 同位体組成分析は国立研究開発法人海洋研究開発機構高知コア研究所で行った。鉍物試料は、採取した岩石を粉碎し、60 メッシュの篩に通した。これを水簸し粘土鉍物を取り除き、ポリタングステン酸ナトリウム（SPT）重液を用いた比重分離により斜長石、カリ長石、黒雲母を単離した。

岩石粉末試料 40 mg（または鉍物粉末試料数 mg）にフッ化水素酸 1.0 mL、

濃硝酸 0.5 mL、過塩素酸 0.5 mL を加え、110 °C で 3 時間加熱還流させた。その後、110 °C で 12 時間加熱しほぼ乾固させ、180 °C で一日半加熱し完全に乾固させた。これに 6 M 硝酸 3 mL を加え、110 °C で 12 時間加熱しほぼ乾固させ、180 °C で一日半加熱し完全に乾固させた。これに 6 M 硝酸 2 mL を加え、110 °C で 12 時間加熱しほぼ乾固させ、180 °C で一日半加熱し完全に乾固させた。これを 3 M 硝酸 4 mL に溶解した。また酸分解した試料溶液から 100 μ L を分取し、In 内標準液 (0.15 M 硝酸と 0.015 M フッ化水素酸の混酸中に In 10 ppb 含有) 3 mL と混合して ICP-MS の定量分析用試料とした。

Sr 同位体比測定用試料としてナチュラル用試料 (スパイクを添加していない試料) とスパイク添加用試料 (スパイクを添加した試料) を調製した。ナチュラル用試料については、イオン交換樹脂 (Eichrom Technologies Sr Resin) を充填したカラムに 3 M 硝酸に溶解した試料溶液をローディングした。その後、6 M、3 M、0.05 M 硝酸を用いてマトリックス元素を除去し Sr のフラクションを回収した。また、スパイク用試料については、酸分解した試料溶液にダブルスパイク溶液を加えて、110 °C で加熱し乾固させた。その後、3 M 硝酸 0.5 mL に溶解し、イオン交換樹脂 (Eichrom Technologies Sr Resin) を充填したカラムに 3 M 硝酸に溶解した試料溶液をローディングした。その後、6 M、3 M、0.05 M 硝酸を用いてマトリックス元素を除去し Sr のフラクションを回収した。

回収したナチュラル用試料およびスパイク添加用試料の Sr フラクションを 110 °C で加熱し乾固させた。その後、濃硝酸 1 滴に溶解し再び乾固させ、硝酸溶液 1 μ L 中に Sr 約 300 ng が含まれるようにフラクションを 0.15 M 硝酸に溶

解した。0.15 M 硝酸に溶解した試料 1 μL および Ta 溶液 1 μL をタングステン (W) 製のシングルフィラメントに塗布した。これを加熱乾固させ、Sr 同位体比測定用試料とした。測定試料とともに Sr 同位体標準試料 (アメリカ国立標準技術研究所の NIST SRM987) についても測定した。ナチュラル試料の同位体比は exponential law (Russell et al., 1978) と $^{86}\text{Sr}/^{88}\text{Sr} = 0.1194$ (Steiger and Jäger, 1977) を用いて規格化した。

試薬は以下を使用した。フッ化水素酸 (38%)、過塩素酸 (68%)、硝酸 (68%) は TAMAPURE-AA-100 (多摩化学工業, 超高純度分析用) を、6 M、3 M、0.15 M、0.05 M 硝酸は、硝酸 (TAMAPURE-AA-100) を希釈したものを使用した。ダブルスパイク溶液は Sr (0.1251 ppm, $^{84}\text{Sr} = 74.75\%$, $^{86}\text{Sr} = 24.17\%$, $^{87}\text{Sr} = 0.360\%$, $^{88}\text{Sr} = 0.724\%$) を使用した。

2.3.3 U-Pb 同位体分析

レーザーアブレーション (LA) 法により試料を導入し、誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS、Agilent Technologies 7700x ICP-MS) を用いて只見川古期花崗岩類 4 試料に含まれるジルコンの Pb、Th、U の同位体分析を行った。レーザーアブレーションによる試料導入には、ESI 社製 NWR213 装置を用いた。これら Pb、Th、U の同位体分析には名古屋大学大学院環境学研究科設置の装置を使用した。

採取した岩石を粉砕し、60 メッシュの篩に通した。これを水簸し粘土鉱物を取り除き、ポリタングステン酸ナトリウム (SPT) 重液により重鉱物を濃集

させた。これを実体顕微鏡下で手分離し、長径 150 – 250 μm 、短径 50 – 100 μm のジルコン結晶を得た。分離したジルコン結晶をエポキシ樹脂にマウントし、ダイヤモンドペーストにより表面を研磨した。これを測定試料とし SEM（走査電子顕微鏡）像および CL（カソードルミネッセンス）像の低真空観察を行った後、LA-ICP-MS による同位体分析を行った（TG36: 6 粒 6 スポット; TG43: 24 粒 24 スポット; TG20: 7 粒 7 スポット; TG29b: 16 粒 16 スポット）。レーザーアブレーション（LA）装置（Electro Scientific Industries NWR213）のレーザー径は 25 μm に設定した。また一次標準試料として 91500 ジルコン試料（1062.4 Ma; Wiedenbeck et al., 1995）を用い、二次標準試料として 91500 ジルコンで規格化した NIST SRM 610 ガラス標準試料（Horn and Blanckenburg, 2007）を用いた。分析法は高地ほか（2015）に従った。

2.4 結果

XRF により得られた主成分元素および微量成分元素組成を表 2-1 に示す。主成分元素および微量成分元素組成より各元素のハーカー図を作成した（図 2-3）。只見川古期花崗岩類の SiO_2 量は檜枝岐川花崗岩、只見川花崗岩、アプライトでそれぞれ 59.6 – 64.4 wt%、68.3 – 76.1 wt%、74.6 – 76.1 wt%の範囲を示した。ハーカー図において檜枝岐川花崗岩、只見川花崗岩、アプライトはほとんどの元素で単一のトレンドを示した。また、 SiO_2 量の増加に伴って TiO_2 、 Al_2O_3 、 FeO^* 、 MnO 、 MgO 、 CaO 、 P_2O_5 、V、Cr、Co、Cu、Zn、Sr、Zr、Ba は減少する傾向がみられた。また K_2O 、Ni、Rb、Pb、Th は増加する傾向がみら

れ、Na₂O、Y、Nbには傾向がみられなかった。

ICP-MSにより得られた希土類元素（REE）組成を表 2-2 に示す。このうち、希土類元素の定量値を CI コンドライト（Anders and Grevesse, 1989; Shinotsuka et al., 1995）で規格化した REE パターン図を図 2-4 に示す。只見川古期花崗岩類の REE パターン図（図 2-4）において軽希土類元素（LREE）に富み、重希土類元素（HREE）下がりの傾向を示した。花崗岩類を比較すると Eu 異常の程度に差異がみられ、只見川花崗岩、アプライトでは程度の異なる負の Eu 異常（ $Eu/Eu^* = 0.26 - 0.98$; $Eu^* = (Sm \times Gd)^{(1/2)}$ ）が認められた。

TIMSにより得られた Sr 同位体組成を表 2-3 に示す。結果から作図した Rb-Sr 全岩アイソクロン図を図 2-5 に示す。アイソクロンについてはプログラム ISOPLOT ver. 3.70（Ludwig, 2008）を用いて計算し、⁸⁷Rb/⁸⁶Sr 比の標準偏差（2σ）は 2%とした。只見川古期花崗岩類において全岩アイソクロンを計算した結果、帝釈山地における只見川古期花崗岩類から $SrI = 0.70534 \pm 0.00004$ 、 96.5 ± 1.5 Ma（2σ）（MSWD = 1.5, n = 16）の年代値を得た。この Rb-Sr 全岩アイソクロンは単一のトレンドを示し、年代は帝釈山地に分布する只見川花崗岩の黒雲母の K-Ar 年代（ 102.7 ± 2.2 Ma）と調和的である。

只見川古期花崗岩類 6 試料（TG1a, 5, 9e, 12, 13, 40）の Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代は 92.7 – 98.1 Ma を示した（表 2-4）。これらの年代値は Rb-Sr 全岩アイソクロン年代より若い。Rb-Sr 系において黒雲母は Rb/Sr 比が高く、鉱物自体が変質や風化に弱いため、鉱物アイソクロンを引く際にアイソクロンを乱す可能性が高い。そこで、Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代を求める際に黒雲母も含

めたものと除外したものの 2 種類を検討した (図 2-6, 7)。その結果、TG1a、TG12 については有意な差がなかったが、TG5、TG9e、TG13 については黒雲母を除去した場合のアイソクロンの MSWD が明らかに良くなった (黒雲母含有 Rb-Sr 鉱物アイソクロン: TG5, MSWD = 1.0; TG9e, MSWD = 12; TG13, MSWD = 5.8; 黒雲母除外 Rb-Sr 鉱物アイソクロン: TG5, MSWD = 0.1; TG9e, MSWD = 0.5; TG13, MSWD = 0.6; 表 2-4)。

U-Pb 同位体比測定の結果を表 2-5 に示す。この U-Pb 同位体比測定の結果よりプログラム ISOPLOT ver. 3.70 (Ludwig, 2008) を用いて計算し、各試料のコンコードィア図を作成した (図 2-8)。帝釈山地に分布する檜枝岐川花崗岩 (TG36) についてはジルコン 6 粒に対して 6 スポットを測定し、 101.1 ± 1.3 Ma (95% conf., MSWD = 5.9) の年代値を得た。また、帝釈山地に分布する只見川花崗岩 (TG43) についてはジルコン 24 粒に対して 24 スポットを測定し、 106.7 ± 0.6 Ma (95% conf., MSWD = 6.0) の年代値を得た。帝釈山地の 2 試料から得られた年代値は帝釈山地の檜枝岐川花崗岩と只見川花崗岩から得られた黒雲母の K-Ar 年代 (102.3 ± 2.2 Ma、 102.7 ± 2.2 Ma) と近い。只見川流域に分布する只見川花崗岩 (TG20; 谷岡ほか (2014) における TG20 と同一試料) についてはジルコン 7 粒に対して 7 スポットを測定し、 103.1 ± 1.5 Ma (95% conf., MSWD = 5.4) という帝釈山地の試料と近い年代値が得られた。また伊南川流域に分布する只見川花崗岩 (TG29b; 谷岡ほか (2014) における TG29 と同一試料) についてはジルコン 16 粒に対して 16 スポットを測定し、 62.2 ± 0.5 Ma (95% conf., MSWD = 0.65) の年代値を得た。伊南川流域に分布する只

見川花崗岩は他地域に分布する試料より若い年代値を示した。単離したジルコン結晶において包有物はほとんどみられず、CL 像ではオシラトリーゾーニングを示した。

2.5 考察

2.5.1 全岩化学組成による只見川古期花崗岩類の比較

SiO₂ 量は檜枝岐川花崗岩、只見川花崗岩、アプライトでそれぞれ 59.6 – 64.4 wt%、68.3 – 76.1 wt%、74.6 – 76.1 wt%の範囲を示し、ハーカー図（図 2-3）上で単一のトレンドを示した。これらの傾向は各岩体の檜枝岐川花崗岩と只見川花崗岩が単一の起源マグマから分化することによって形成された可能性を示唆している。また両花崗岩の SiO₂ 量の違いから、檜枝岐川花崗岩は未分化な岩石であり、只見川花崗岩が分化の進んだ岩石であることが考えられる。これは両花崗岩の貫入関係とも整合的である。また、この相違点以外は各岩体を比較しても有意な差はみられなかった。 $(\text{Na}_2\text{O} + \text{K}_2\text{O}) / \text{Al}_2\text{O}_3$ (mol 比) – SiO₂ および $(\text{CaO} + \text{MgO}) / \text{FeO}^*$ (wt% 比) – SiO₂ において高橋（1985）に基づき A タイプと I タイプの境界を検討すると、只見川古期花崗岩類はほとんどの試料が I タイプ花崗岩の領域にプロットされた。これら特徴から只見川古期花崗岩類は I タイプ花崗岩と考えられる。負の Eu 異常の度合いは結晶分化が進行するにつれて増加している。負の Eu 異常は Eu を濃集した斜長石が取り除かれることによって起こった可能性が高い。これは村山・河田（1955）が示した檜枝岐川花崗岩は只見川花崗岩との境界部において只見川花崗岩から接触変成作

用を被っているという両花崗岩の関係と整合的である。

REE パターン図 (図 2-4) では、両花崗岩の Eu 異常の程度に差異がみられ、さらに只見川花崗岩では程度の異なる負の Eu 異常 ($Eu/Eu^* = 0.26 - 0.98$; $Eu^* = (Sm \times Gd)^{1/2}$) が認められた。希土類元素はほとんどが 3 価で存在するが、Eu のみ 2 価と 3 価の両方の価数をとることができる。また、2 価の Eu は Ca とよく似た挙動をとる。そのため、斜長石の端成分であるアノーサイト ($CaO \cdot Al_2O_3 \cdot 2SiO_2$) 成分の Ca と置換して斜長石に濃集しやすい (Frey et al., 1978)。2 価の Eu がアノーサイト中の Ca と置換すると、Eu が斜長石に濃集する。Eu を取り込んだ斜長石が結晶分化の過程でマグマから取り除かれると、分化後のマグマが固結した岩石において相対的に Eu が他の REE と比較して減少する。この Eu の減少が REE パターン図上で負の Eu 異常として確認される。Eu 異常値とノルム計算により求めたアノーサイト量の相関をみると、結晶分化が進行しアノーサイト量が減少するにしたがって、岩石中の Eu 異常の程度が大きくなる傾向を示した。アノーサイト量と Eu 異常の間に相関がみられることから、只見川古期花崗岩類における負の Eu 異常は Eu を濃集した斜長石が分別により取り除かれたことで生じたと考えられる。また、REE パターン図 (図 2-4) における両花崗岩の差異は斜長石の分別の度合いが異なったために生じたことと考えられる。

2.5.2 Rb-Sr 全岩および鉱物アイソクロンの検討

帝釈山地の只見川花崗岩は 96.5 ± 1.5 Ma の Rb-Sr 全岩アイソクロン (図 2-5)

を形成した。この全岩アイソクロン上に帝釈山地の檜枝岐川花崗岩とアプライト試料も、2 試料 (TG2, 3) を除きプロットされた (図 2-5)。これは帝釈山地の檜枝岐川花崗岩と只見川花崗岩が単一の起源マグマから分化することによって形成された可能性を示唆している。全岩アイソクロンから外れた檜枝岐川花崗岩 (TG2, 3) は全岩化学組成、特に微量成分元素において他の試料と異なる傾向を示した。これらの 2 試料は他の試料と比較して V、Cr 含有量が低く、Sr、Ca 含有量が高い。全岩アイソクロンから外れた要因として、只見川花崗岩を形成したマグマが周囲の母岩、特に石灰岩を溶かし込んだことが挙げられる。これはチャート、苦鉄質火山岩、石灰岩で構成されている帝釈山地のジュラ紀付加コンプレックスに関する野外での観察結果と調和的である (山元ほか, 2000)。これらの試料は岩体の周縁部ではなく中心付近で採取しているものの、帝釈山地の露頭は岩体全体の上部にあたる可能性も考えられ、小規模な岩体が駒ヶ岳南西の堆積岩分布域に存在していること (山元ほか, 2000) も考慮すれば、これらの試料の起源マグマは、只見川花崗岩を形成したマグマが周囲の堆積岩を溶かし込んだマグマである可能性がある。

また、伊南川流域の只見川花崗岩試料 (TG29b) は帝釈山地の只見川花崗岩の Rb-Sr 全岩アイソクロン上にはプロットされず、異なる同位体組成を示した。この岩体間での同位体組成の相違は帝釈山地と伊南川流域の岩体がそれぞれ異なる起源を持つことを示唆している。

Rb-Sr 鉱物アイソクロンにおいて、TG1a、TG12 は黒雲母も含めたものと除外したものの 2 種類で有意な差がなかったが (表 2-4, 図 2-6)、TG5、TG9e、

TG13 は得られた年代値が大きく異なった (表 2-4, 図 2-7)。TG5、TG9e、TG13 は他の試料と比較しても SiO₂ 量が高く (71.4 wt%、76.1 wt%、72.9 wt%)、結晶分化末期の岩石だと考えられる。そのため、TG5、TG9e、TG13 の黒雲母は熱水の影響を受けて Rb-Sr 系が若返っている可能性が高い。また、黒雲母を除外した鉍物アイソクロン上から黒雲母のデータが有意に外れている (図 2-7)。黒雲母の Rb-Sr 系の閉鎖温度 (310 °C: Nishimura and Mogi, 1986) はカリ長石の Rb-Sr 系の閉鎖温度 (360 °C: Nishimura and Mogi, 1986) に近いが、鉍物アイソクロンから外れたのは黒雲母のみだった。この Rb-Sr 系の不均衡は緑泥石化のような黒雲母でのみ起こる現象に起因すると考えられる。上記の理由により、これらの 3 試料 (TG5, 9e, 13) に対しては黒雲母を除外した Rb-Sr 鉍物アイソクロンが約 300 °C までの冷却年代を推定するのに適すると考えられる。

そこで、TG5、TG9e、TG13 の Rb-Sr 鉍物アイソクロンに関しては黒雲母を除外した鉍物アイソクロンを採用した。TG1a、TG12 については黒雲母が熱水の影響を受けていなかったため、鉍物アイソクロンに差がみられなかったと考えられる。今回採用した帝釈山地に分布する檜枝岐川花崗岩と只見川花崗岩の Rb-Sr 鉍物アイソクロン年代は、TG1a: 97.3 ± 2.0 Ma (SrI = 0.70530 ± 0.00001 , MSWD = 1.3, 鉍物種: 斜長石、カリ長石、黒雲母)、TG12: 93.5 ± 2.8 Ma (SrI = 0.70537 ± 0.00016 , MSWD = 1.2, 鉍物種: カリ長石、黒雲母)、TG40: 97.1 ± 3.1 Ma (SrI = 0.70538 ± 0.00015 , MSWD = 3.0, 鉍物種: 斜長石、カリ長石)、TG5: 93.9 ± 2.7 Ma (SrI = 0.70533 ± 0.00001 , MSWD = 0.1, 鉍物種: 斜長石、カリ長

石)、TG9e: 98.1 ± 2.9 Ma (SrI = 0.70534 ± 0.00003 , MSWD = 0.5, 鉱物種: 斜長石、カリ長石)、TG13: 92.7 ± 2.7 Ma (SrI = 0.70545 ± 0.00004 , MSWD = 0.6, 鉱物種: 斜長石、カリ長石) となった (図 2-6, 7)。これらの Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代はいずれも帝釈山地の只見川花崗岩の Rb-Sr 全岩アイソクロン年代と誤差範囲で一致した。加えて、これらの Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代はジルコン U-Pb 年代とも調和的である。Rb-Sr 鉱物アイソクロンから計算した Sr 初生値 (SrI) の範囲は 0.7053 – 0.7055 である。これらの値は Rb-Sr 全岩アイソクロンから計算した SrI (0.70534) とほぼ一致した。

2.5.3 只見川古期花崗岩類の年代論

只見川古期花崗岩類に関する放射年代のデータ (河野・植田, 1966; 谷岡ほか, 2014; 本研究) を表 2-6 にまとめた。帝釈山地の放射年代はジルコン U-Pb 年代、黒雲母 K-Ar 年代、Rb-Sr 全岩および鉱物アイソクロン年代があり、岩型に関わらずいずれも約 100 Ma を示した (TG36, 43)。このことから、帝釈山地の只見川古期花崗岩類は約 100 Ma に固結したと考えられる。この Rb-Sr 年代の結果と全岩化学組成の結果から、帝釈山地の只見川古期花崗岩類が単一の起源マグマから形成され、岩体固結後二次的なイベントを被っていない可能性が高い。

一方、只見川流域の只見川花崗岩 (TG20) の U-Pb 年代 (103.1 ± 1.8 Ma) は黒雲母 K-Ar 年代 (89.6 ± 1.9 Ma) より古い。この年代差は年代値の誤差範囲よりも有意に大きい。只見川流域における U-Pb 年代 (103.1 ± 1.8 Ma) は帝

積山地における放射年代と一致する。この年代値の一致は帝積山地と同様に只見川流域の岩体も約 100 Ma に固結した可能性を示唆している。只見川流域の同一試料 (TG20) における U-Pb 年代と K-Ar 年代の年代差の原因として二次的な熱的事変による K-Ar 年代の若返りが考えられる。ジルコンの U-Pb 系の閉鎖温度 (900 °C; Cherniak and Watson, 2000) は黒雲母の K-Ar 系の閉鎖温度 (300 °C; Verschure et al., 1980) よりも高い。K-Ar 系の若返りの原因として岩体固結後に貫入した後期白亜紀の塩基性-中性の岩脈群による再加熱が考えられる。

また、伊南川流域の岩体における放射年代はジルコン U-Pb 年代と黒雲母 K-Ar 年代のいずれも約 60 Ma であった (TG29b)。この年代値は帝積山地と只見川流域の岩体における年代値 (約 100 Ma) と比較して有意に若い。この岩体間にみられる年代差の解釈として、1) 伊南川流域の岩体が若返り年代を示している、2) 伊南川流域の岩体の形成時期が他地域の岩体と異なる、という二つの可能性が挙げられる。1) の伊南川流域における放射年代が若返り年代である可能性については、黒雲母の K-Ar 系だけではなくジルコンの U-Pb 系までリセットするような強い熱的イベントがこの地域にあった可能性は考えにくいので除外できる。

伊南川流域の花崗岩の K-Ar 年代としては、69 Ma (河野・植田, 1966) の報告値もある。谷岡ほか (2014) が K-Ar 年代測定に用いた伊南川流域の只見川花崗岩 (TG29a) の黒雲母の K 含有量は 5.76 wt% であり、河野・植田 (1966) が K-Ar 年代測定に用いた伊南川流域の只見川花崗岩の黒雲母の K 含有量

(2.48 wt%) に比べて高いことから、谷岡ほか (2014) の K-Ar 年代値 (61.7 ± 1.4 Ma) は変質鉱物の影響を受けていない、またはその影響が小さいと解釈している。また、河野・植田 (1966) で報告された K-Ar 年代 (69 Ma) に関しては過剰 Ar によって年代値が古い年代を示したと考えられる。今回得られた U-Pb 年代 (62.2 ± 0.7 Ma) が谷岡ほか (2014) の変質鉱物の影響が小さい K-Ar 年代値 (61.7 ± 1.4 Ma) と一致することから、伊南川流域の岩体は約 60 Ma に形成されたと考えられる。伊南川流域の岩体が約 60 Ma に形成されたとすると、この岩体の形成年代は他の地域に分布する岩体とは明確に異なることになる。

以上のことから、帝釈山地、只見川流域、伊南川流域の三地域に分布する只見川古期花崗岩類は単一の起源マグマから同時期に形成された岩体ではなく、帝釈山地と只見川流域の岩体は約 100 Ma に形成され、伊南川流域の岩体は約 60 Ma に形成された別の岩体であると考えられる。

2.5.4 只見川古期花崗岩類の起源物質推定

本州弧に分布する火成岩類の Sr、Nd 同位体組成の空間分布に関する研究は盛んに行われている (例えば、Kagami et al., 1992, 1999, 2000; 加々美, 2005; 平原ほか, 2015)。西南日本弧の花崗岩類の Sr、Nd 同位体組成に関する研究では、マグマの起源物質の組成が北部の枯渇した組成 (低い SrI、高い Nd 初生値 (NdI)) から南部の富化した組成 (高い SrI、低い NdI) へ変化することが示唆されている (Kagami et al., 1992)。さらに、Kagami et al. (1992) はこれらの

花崗岩類の起源物質が地域ごとに異なり、Sr、Nd 同位体組成から北帯、南帯、遷移帯の3区分に分けられることを指摘している。東北日本弧の花崗岩類に関しても西南日本弧と同様に、Sr、Nd 同位体初生値が北東部の枯渇した組成（低い SrI、高い NdI）から南西部の富化した組成（高い SrI、低い NdI）へ変化することが示唆されている（加々美ほか, 1999, 2000; 加々美, 2005; 平原ほか, 2015）。また、平原ほか（2015）は東北日本弧（阿武隈山地、足尾山地、朝日山地）の花崗岩類の Sr、Nd 同位体組成が西南日本弧における同位体区分（北帯、南帯、遷移帯）にそれぞれ対応することを指摘している。足尾帯とその周辺の花崗岩類は西南日本の領家帯花崗岩類と比較して研究がなされている（矢内, 1972, 1973a, b）。また、東北日本の第四紀火山岩類に関する研究についても花崗岩類と同様にマグマの特徴が周辺の地殻物質と密接に関連していることが示唆されている（Kimura and Yoshida, 2006; Tatsumi et al., 2008; Takahashi et al., 2013）。これらの花崗岩類の同位体初生値の多様性の要因として、1) 地殻物質の混合量の違い（Shibata and Ishihara, 1979）、2) 起源物質である上部マントルの地域的不均質性（Terakado and Nakamura, 1984）、3) 沈み込む堆積物由来のスラブ成分によるマントル混染作用の違い（Takagi, 2004）、4) 上部マントル-下部地殻物質の寄与（加々美ほか, 1999）が挙げられている。

奥只見地域の東部に位置する八溝山地は、只見川古期花崗岩類と同様に古期岩体（約 105 Ma: 柴田ほか, 1973）と新期岩体（約 65 Ma: 河野・植田, 1966）の二種類が分布し、この八溝山地に分布する花崗岩類の形成年代は只見川古期花崗岩類の形成年代と一致する。帝釈山地に分布する只見川花崗岩類の全岩試

料のそれぞれの SrI は全岩 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比からジルコン U-Pb 年代の 100 Ma を用いて計算した。伊南川流域に分布する只見川花崗岩の SrI は全岩 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比 (TG29b; 0.722118) からジルコン U-Pb 年代の 60 Ma を用いて計算して 0.70894 が得られた。加々美ほか (2000) は八溝山地に分布する花崗岩類の Sr、Nd 同位体組成が古期岩体と新期岩体の間で顕著に異なることと、これらの花崗岩類が同位体組成の区分において遷移帯に属することを報告した。古期岩体は阿武隈山地の花崗岩類と同様に北帯に相当し、新期岩体は足尾山地の花崗岩類と同様に南帯に相当する。帝釈山地の只見川花崗岩の ϵ_{SrI} は +4.6 – +20.4 (表 2-3) の範囲を示し、これらの ϵ_{SrI} は Kagami et al. (1992) の北帯の値と一致する (図 2-9)。伊南川流域の只見川花崗岩 (60 Ma) の ϵ_{SrI} 値は +64.0 と高く、Kagami et al. (1992) の南帯と一致する。このように帝釈山地と伊南川流域の只見川花崗岩の ϵ_{SrI} 値はそれぞれ八溝山地の古期岩体と新期岩体の ϵ_{SrI} 値と似た傾向を示した。これらの結果から只見川古期花崗岩類の起源物質は岩体ごとに異なることが考えられる。また、上で述べた花崗岩類にみられる同位体初生値の不均質のうち、2) 起源物質である上部マントルの地域的不均質性、では今回の只見川花崗岩類の結果は説明できない。この説では広域的な起源物質である上部マントルの同位体組成の不均質が原因でそれらの起源物質から形成された花崗岩類の同位体比初生値に差異が生じるとしているが、只見川古期花崗岩類に関しては奥只見地域という同一地域に分布する各岩体において同位体比初生値の不均質がみられたため、2) とは別の要因で不均質が起こったと考えられる。他の 3 つの説、1) 地殻物質の混合量の違い、3) 沈み込む堆積物

由来のスラブ成分によるマントル混染作用の違い、4) 上部マントル-下部地殻物質の寄与) については、今回の Sr 同位体組成に加えて Nd 同位体組成を合わせて議論する必要がある。Sr、Nd 同位体組成を用いれば、起源物質の混合度合いなど、詳細な議論を行うことができるため、今後の課題といえる。

2.6 総括

帝釈山地に分布する只見川古期花崗岩類のジルコン U-Pb 年代は、檜枝岐川花崗岩 (TG36) が 101.1 ± 2.1 Ma、只見川花崗岩 (TG43) が 106.7 ± 0.6 Ma であり、帝釈山地に分布する只見川古期花崗岩類の Rb-Sr 全岩アイソクロン年代は 96.5 ± 1.5 Ma であった。ジルコン U-Pb 年代は、只見川流域の只見川花崗岩 (TG20) が 103.1 ± 1.8 Ma、伊南川流域の只見川花崗岩 (TG29b) が 62.2 ± 0.7 Ma であった。只見川古期花崗岩類の貫入年代は、各岩体の放射年代 (河野・植田, 1966; 谷岡ほか, 2014; 本研究) によると、帝釈山地と只見川流域では約 100 Ma、伊南川流域では約 60 Ma であった。只見川流域の黒雲母 K-Ar 年代 89.6 ± 1.9 Ma は、周辺の岩脈の貫入によって再加熱されて生じた若返りの年代と解釈した。また、伊南川流域に分布する岩体の放射年代 (約 60 Ma) は、若返り年代ではなく、伊南川流域に分布する岩体の形成年代であると考えられる。

また、帝釈山地に分布する檜枝岐川花崗岩と只見川花崗岩の Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代は 92.7 – 98.1 Ma であり、Rb-Sr 全岩アイソクロン年代 (96.5 ± 1.5 Ma) と一致している。このことは、帝釈山地に分布する檜枝岐川花崗岩と

只見川花崗岩が単一の起源マグマから分化して形成されたことを示している。

また、只見川古期花崗岩類の ϵ_{SrI} 値は、帝釈山地（100 Ma）では+ 4.6 – + 20.4、伊南川流域（60 Ma）では+ 64.0 となった。このことから、只見川古期花崗岩類は異なる年代と起源の岩体から構成されている。帝釈山地に分布する只見川古期花崗岩類の ϵ_{SrI} 値は、Kagami et al. (1992) の北帯の値と一致し、伊南川流域の値は南帯の値と一致している。只見川古期花崗岩を構成する2つの岩体は、形成年代が異なり、マグマ源も異なるが、年代によるマグマ源の変化の原因はまだ不明である。年代による火成岩のマグマ源の違いの原因を明らかにするためには、東北地方の只見川古期花崗岩類について、Nd、Pb、Hf などの複数の同位体のデータが必要である。更なる議論のためには、フィールドにおける地質調査とともに岩石・鉱物組織の詳細な顕微鏡観察が不可欠である。

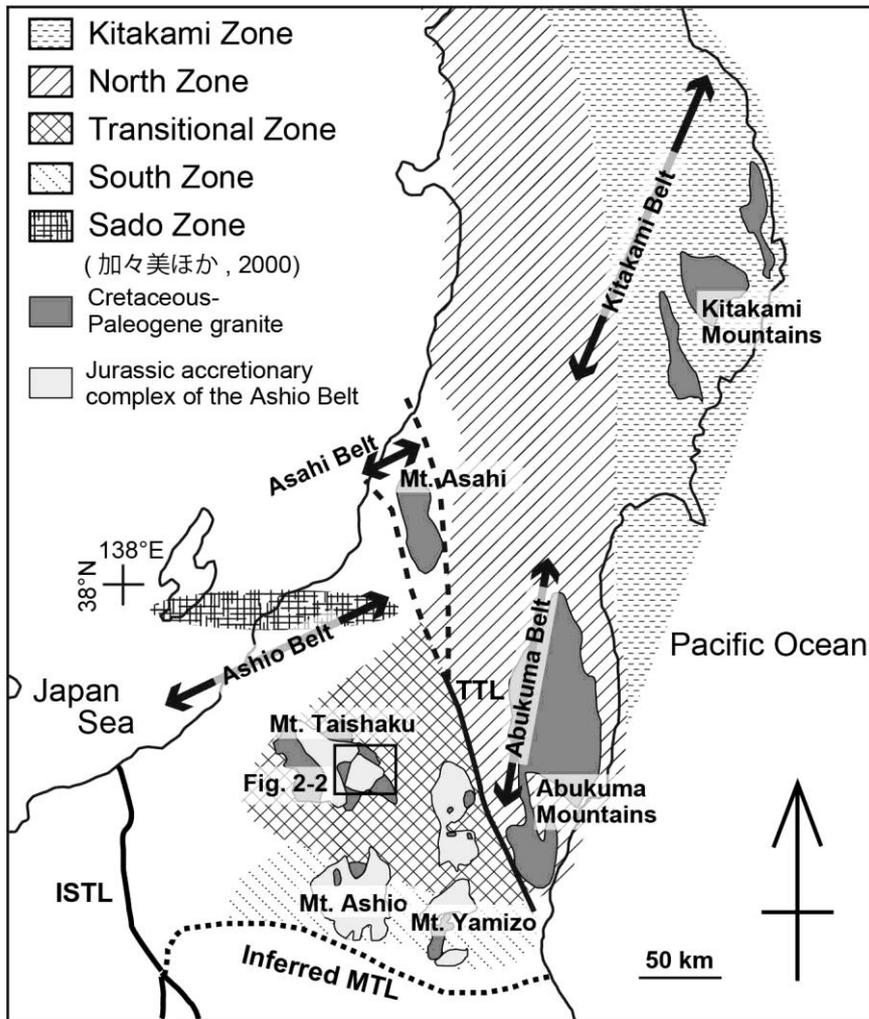


図 2-1 東北日本弧における白亜紀—古第三紀花崗岩類の分布. 同位体的区域 (北上帯, 北帯, 遷移帯, 南帯, 佐渡帯) は加々美ほか (2000) 参照. TTL, 棚倉構造線; MTL, 中央構造線; ISTL, 糸魚川—静岡構造線.

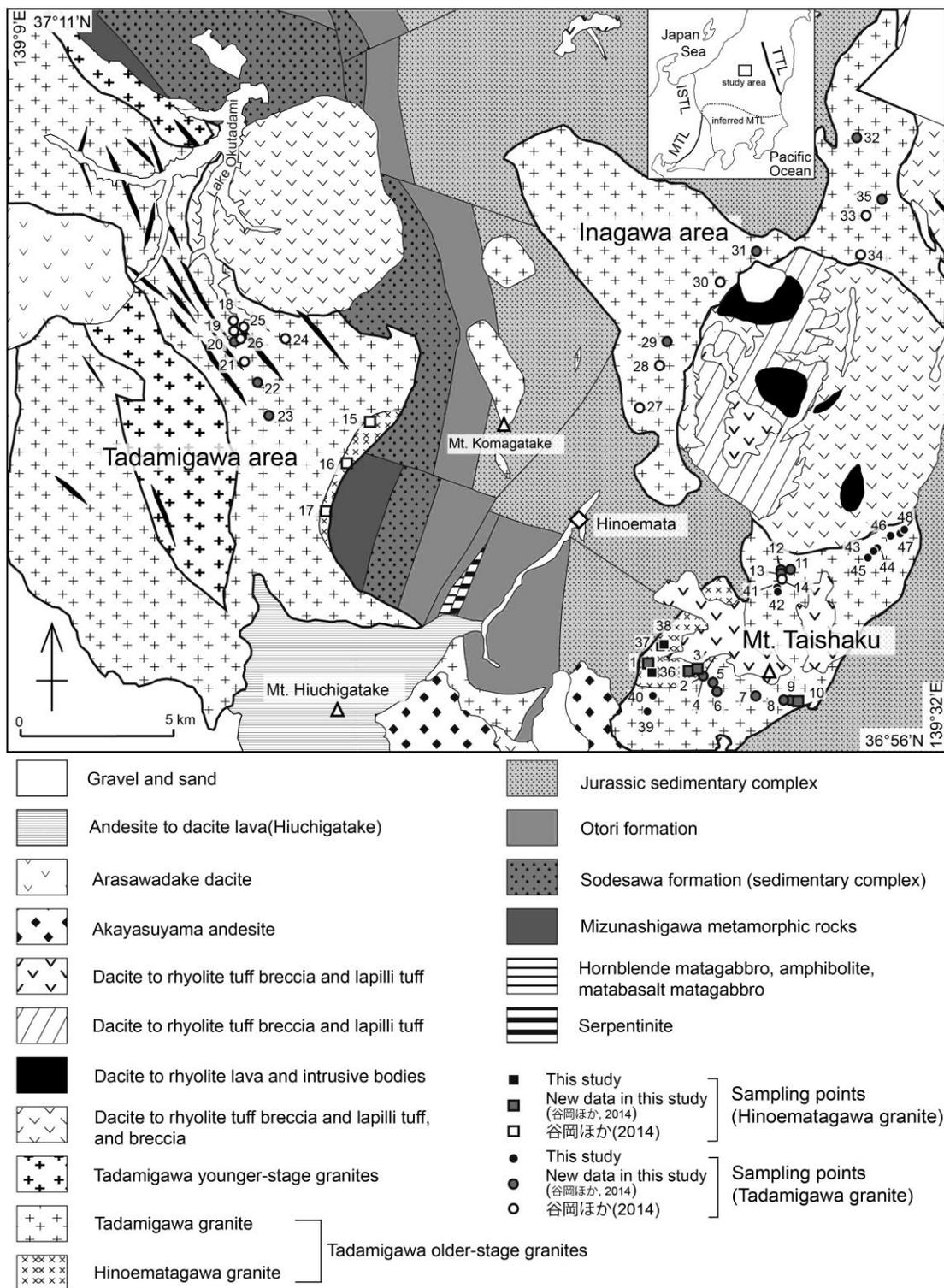


図 2-2 奥只見地域の地質図 (山元ほか, 2000; 谷岡ほか, 2014 の地質図を編集). 檜枝岐川花崗岩, 只見川花崗岩の採取地点はそれぞれ四角, 丸で示している. TTL, 棚倉構造線; MTL, 中央構造線; ISTL, 糸魚川-静岡構造線.

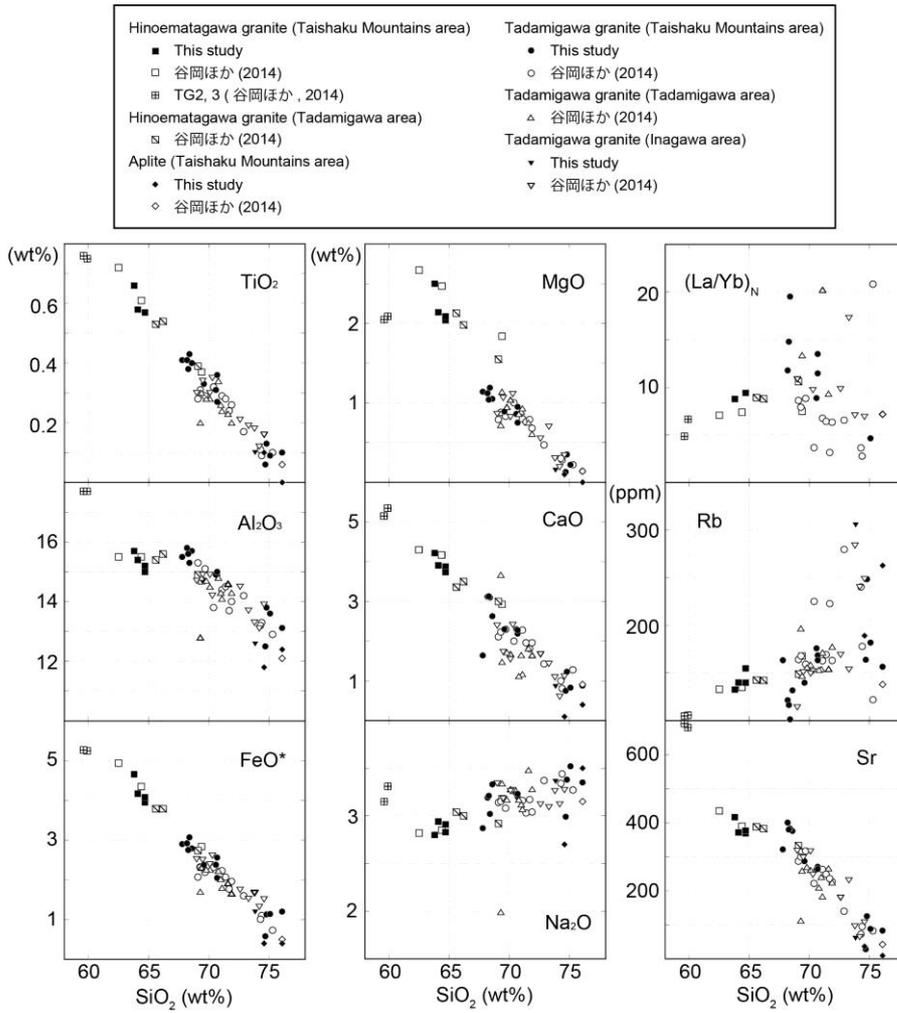


図 2-3 只見川古期花崗岩類の主成分および微量成分元素のハーカー図. 一部のデータは谷岡ほか (2014) にて報告.

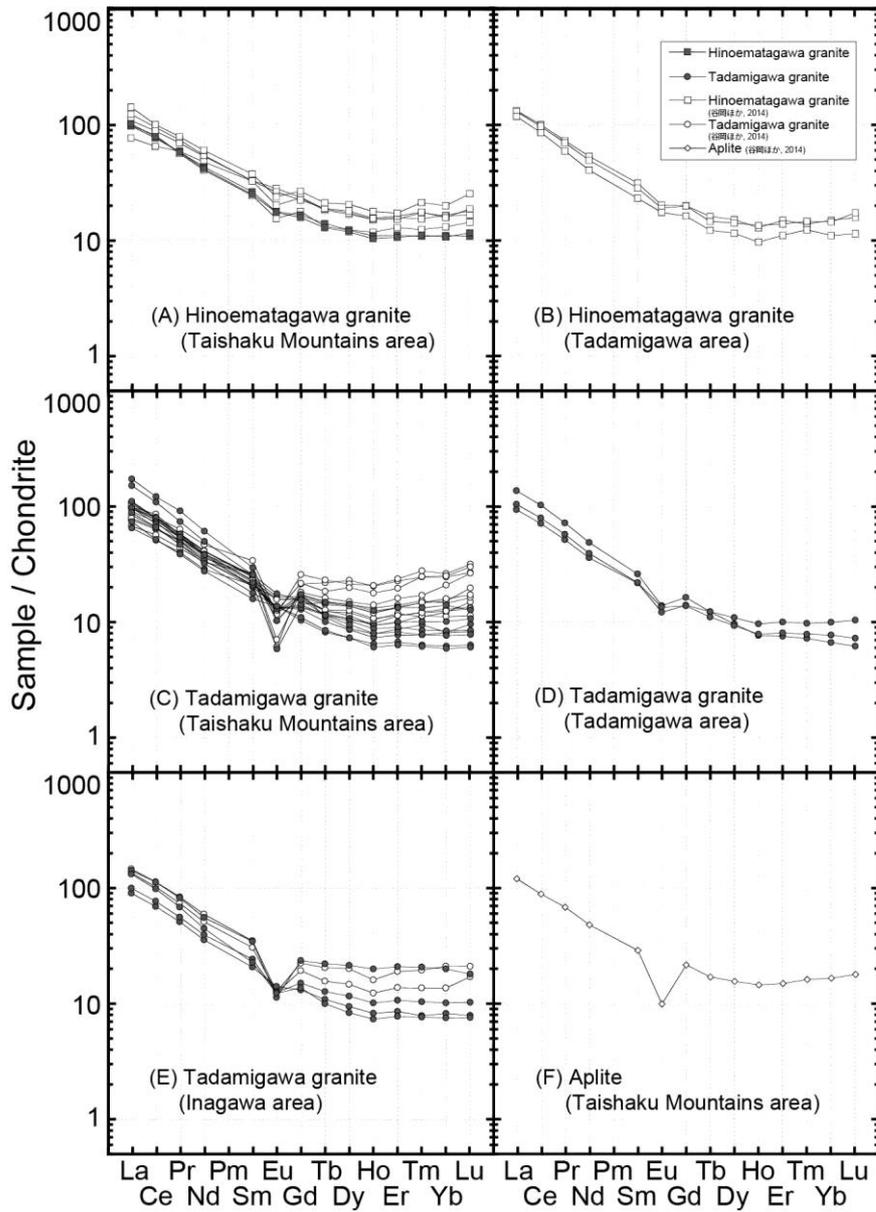


図 2-4 只見川古期花崗岩類の希土類元素(REE)パターン図. Anders and Grevesse (1989), Shinotsuka et al. (1995) の CI コンドライトのデータによって規格化している. (A) 帝釈山地に分布する檜枝岐川花崗岩, (B) 只見川流域に分布する檜枝岐川花崗岩, (C) 帝釈山地に分布する只見川花崗岩, (D) 只見川流域に分布する只見川花崗岩, (E) 伊南川流域に分布する只見川花崗岩, (F) 帝釈山地に分布するアプライト. 一部のデータは谷岡ほか (2014) にて報告.

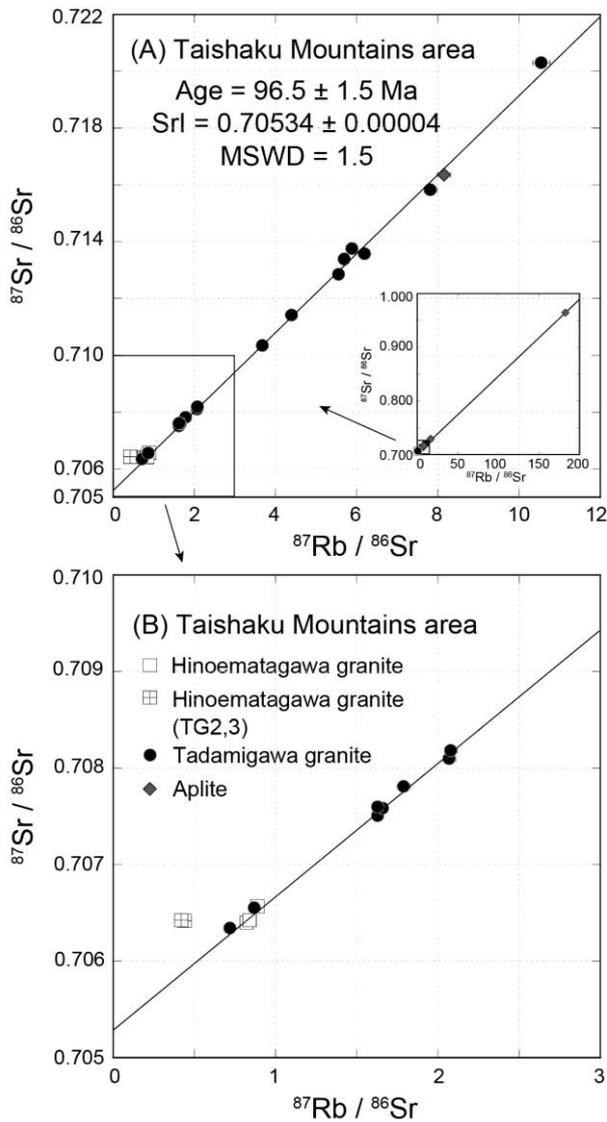


図 2-5 (A) 帝釈山地に分布する只見川古期花崗岩類の全岩試料の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ vs $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図. 全岩アイソクロンは只見川花崗岩の全岩試料 16 試料から計算した (檜枝岐川花崗岩, アプライト試料は全岩アイソクロンの計算に使用していない). (B) A の拡大図.

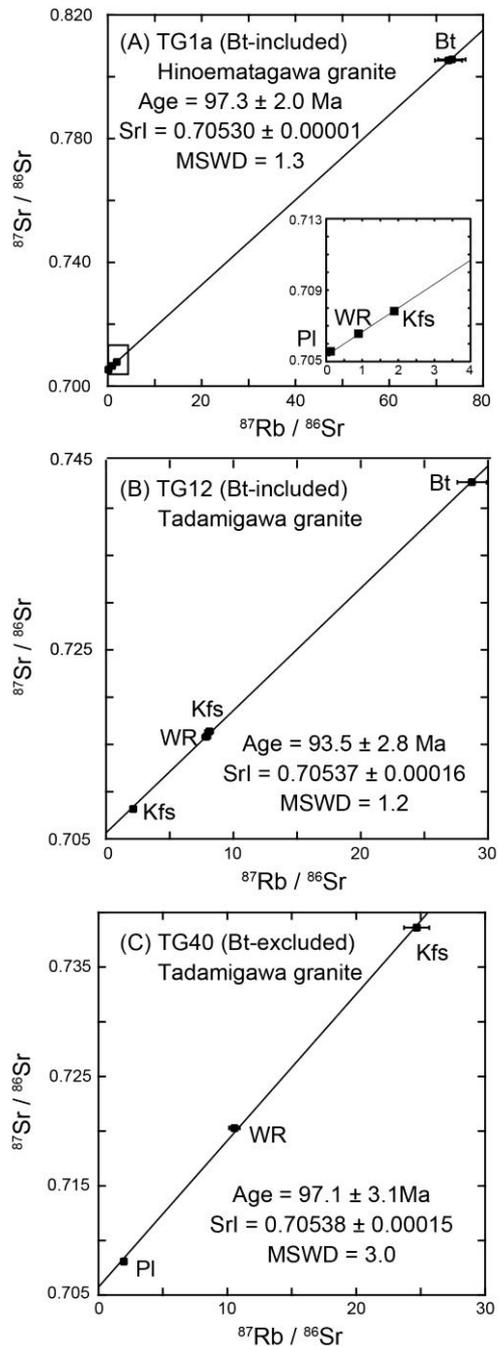


図 2-6 帝釈山地に分布する只見川古期花崗岩類の鉱物試料の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ vs $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図. (A) 檜枝岐川花崗岩 (TG1a), (B) 只見川花崗岩 (TG12), (C) 只見川花崗岩 (TG40). (A, B) の Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代は黒雲母試料を含めたデータから計算した. Pl, 斜長石; Kfs, カリ長石; Bt, 黒雲母; WR, 全岩.

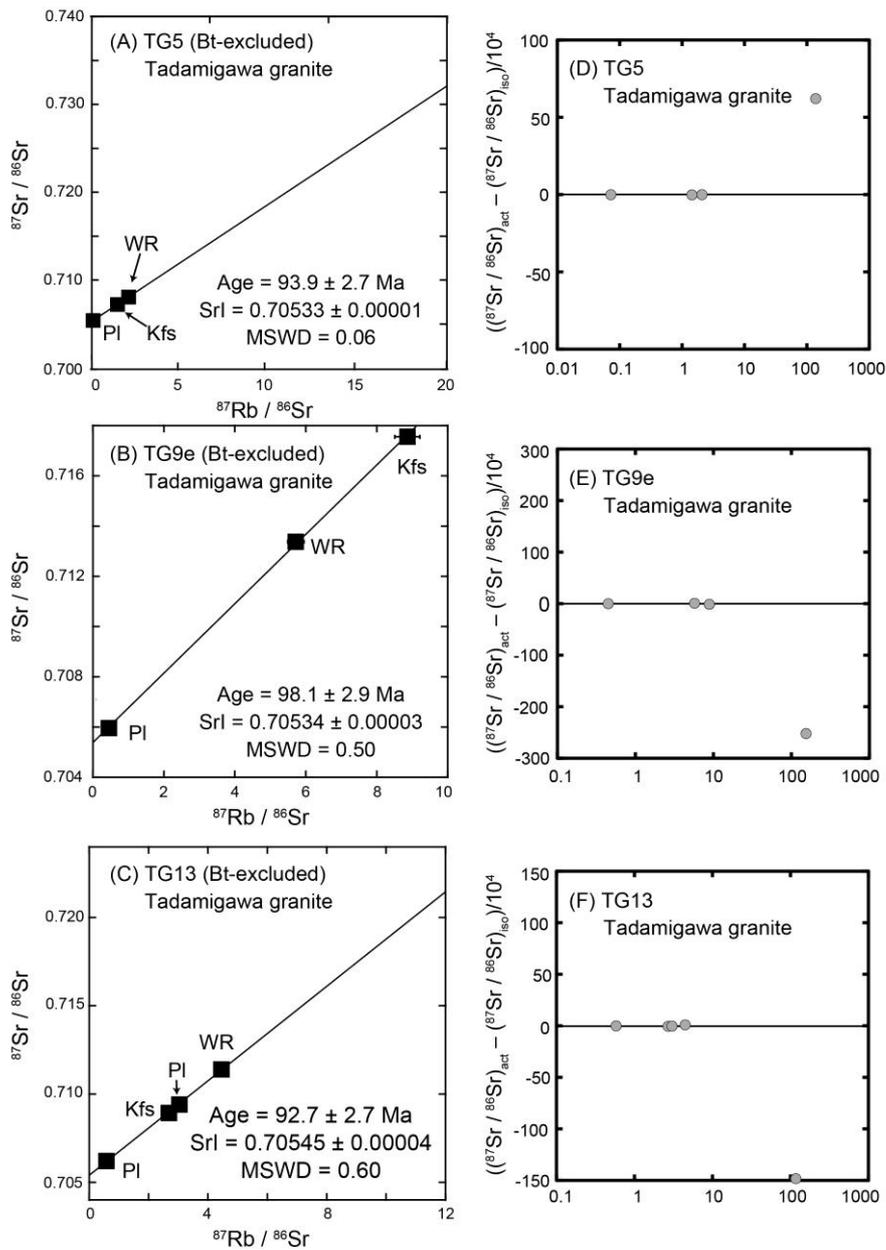


図 2-7 (A – C) 帝釈山地に分布する只見川古期花崗岩類 (TG5, 9e, 13) の鉍物試料の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ vs $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図. Rb-Sr 鉍物アイソクロン年代は黒雲母試料を除いたデータから計算した. (D – F) $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 比 (実測値) に対してプロットした黒雲母を除いたアイソクロンからの鉍物データの偏差. 偏差は $|(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{act}} - (^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{iso}}| / 10^4$, として計算した. ここで, $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{act}}$: $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比 (実測値), $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{iso}}$: 鉍物の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 比から得られたアイソクロン上での $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比. Pl, 斜長石; Kfs, カリ長石; Bt, 黒雲母; WR, 全岩.

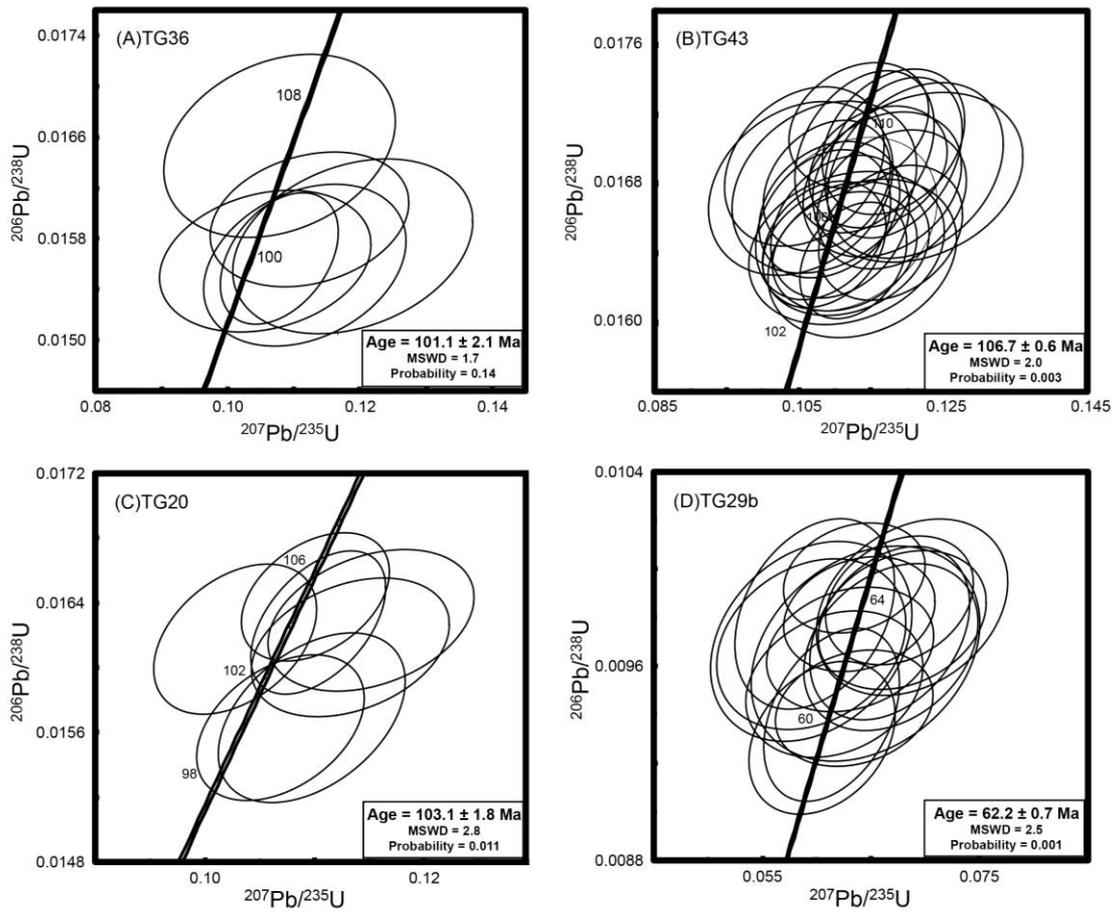


図 2-8 只見川古期花崗岩類のジルコンから求めたコンコードィア図. (A) 帝釈山地に分布する檜枝岐川花崗岩 (TG36), (B) 帝釈山地に分布する只見川花崗岩 (TG43), (C) 只見川流域に分布する檜枝岐川花崗岩 (TG20), (D) 伊南川流域に分布する只見川花崗岩 (TG29b) .

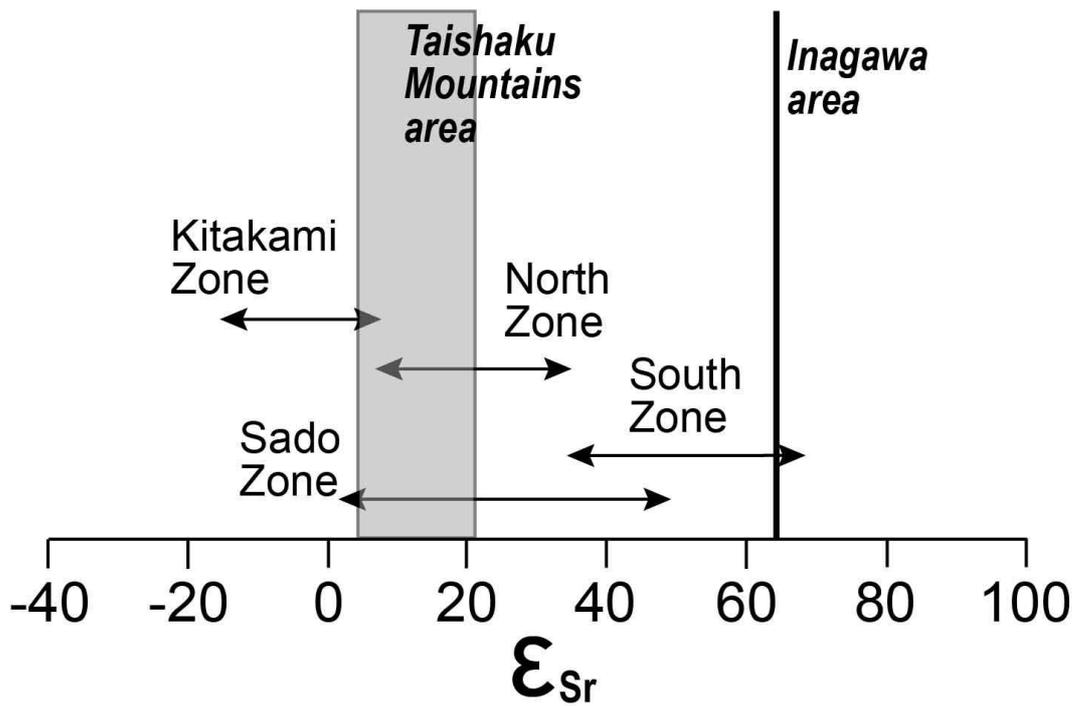


図 2-9 ϵ_{Sr} 図. 北上帯, 北帯, 南帯, 佐渡帯の範囲は Kagami et al. (1992), 加々美ほか (1999), 加々美ほか (2000), 加々美 (2005) 参照. 網掛け部分は帝釈山地に分布する只見川古期花崗岩類の ϵ_{Sr} の範囲を示している. 直線は伊南川流域に分布する只見川古期花崗岩類の ϵ_{Sr} を示している.

表 2-1 只見川古期花崗岩類の主成分および微量成分元素組成

	Taishaku Mountains area											
	Hinoematagawa granite									Tadamigawa granite		
	TG 1a*	TG 1b*	TG 2*	TG 3*	TG 10*	TG 36	TG 37a	TG 37b	TG 38	TG 4a*	TG 4b*	TG 5*
(wt%)												
SiO ₂	64.4	69.4	59.9	59.6	62.5	63.8	64.1	64.7	64.7	69.7	71.1	71.4
TiO ₂	0.61	0.37	0.75	0.76	0.72	0.66	0.58	0.57	0.57	0.29	0.29	0.28
Al ₂ O ₃	15.55	14.73	17.71	17.70	15.51	15.68	15.41	15.21	15.02	15.13	14.40	14.54
FeO*	4.35	2.84	5.25	5.27	4.94	4.66	4.17	3.95	4.08	2.19	2.23	2.07
MnO	0.10	0.09	0.14	0.14	0.12	0.12	0.10	0.10	0.10	0.07	0.08	0.07
MgO	2.47	1.84	2.09	2.05	2.67	2.50	2.14	2.04	2.09	0.83	0.80	0.76
CaO	4.17	2.93	5.35	5.15	4.30	4.22	3.91	3.88	3.74	2.30	2.28	1.96
Na ₂ O	2.85	3.18	3.31	3.15	2.82	2.80	2.94	2.91	2.83	3.08	3.16	3.03
K ₂ O	3.78	4.01	2.69	2.62	3.55	3.82	3.92	3.86	3.87	4.65	4.05	4.54
P ₂ O ₅	0.20	0.12	0.31	0.31	0.23	0.21	0.19	0.19	0.19	0.10	0.09	0.09
LOI	0.78	0.41	0.86	1.31	0.62	1.02	0.64	0.59	0.76	0.35	0.34	0.44
total	99.3	99.9	98.3	98.1	98.0	99.5	98.1	98.0	98.0	98.7	98.8	99.2
(ppm)												
V	95.0	56.1	55.9	57.9	111	105	92.6	88.3	92.0	40.0	38.7	37.1
Cr	36.0	97.6	10.6	8.6	44.0	33.5	29.6	26.1	30.7	7.8	6.6	8.3
Co	18.6	11.4	22.1	22.6	24.3	19.5	16.1	16.4	17.2	7.4	7.5	6.7
Ni	6.8	20.4	2.2	1.2	6.0	5.4	7.1	7.2	5.0	4.7	5.3	4.7
Cu	5.6	2.0	1.4	4.0	3.3	1.4	4.5	1.2	2.7	0.5	n.d.	1.6
Zn	60.6	54.0	81.8	80.5	72.1	63.1	57.3	57.7	56.1	43.2	44.0	40.1
Rb	135	168	106	105	133	133	140	155	140	159	163	169
Sr	390	314	680	691	435	417	372	369	377	317	263	249
Y	24.0	23.0	22.1	25.3	25.8	23.1	22.6	22.1	22.2	19.9	24.0	20.7
Zr	163	129	169	143	162	161	137	142	142	130	142	119
Nb	16.2	10.4	14.3	20.9	14.9	5.1	4.7	5.1	4.2	9.8	11.9	10.5
Ba	445	556	484	451	450	476	412	413	416	617	386	441
Pb	18.5	20.5	11.8	17.6	12.8	17.6	16.0	18.6	18.2	24.1	22.9	23.2
Th	11.9	15.6	10.4	6.6	10.1	13.7	13.2	12.9	15.9	14.6	13.3	12.6

FeO*, 全鉄を FeO で表している. n.d., 検出限界.

*, 谷岡ほか (2014) のデータ.

表 2-1 (続き 1)

	Taishaku Mountains area												
	Tadamigawa granite												
	TG 6*	TG 7*	TG 8*	TG 9b*	TG 9c	TG 11*	TG 12*	TG 13*	TG 14a*	TG 14b*	TG 39a	TG 39b	TG 40
(wt%)													
SiO ₂	71.9	69.1	69.3	75.3	76.1	74.4	74.3	72.9	70.4	71.7	70.7	70.6	74.7
TiO ₂	0.26	0.28	0.31	0.10	0.10	0.09	0.11	0.17	0.32	0.24	0.27	0.31	0.06
Al ₂ O ₃	13.99	15.32	14.91	12.86	13.12	13.27	13.19	14.22	13.81	13.67	14.92	14.86	12.52
FeO*	1.96	2.07	2.32	0.73	1.20	1.10	1.01	1.60	2.31	1.77	2.05	2.38	0.58
MnO	0.06	0.07	0.08	0.03	0.04	0.04	0.07	0.10	0.09	0.08	0.07	0.09	0.01
MgO	0.68	0.79	0.88	0.22	0.14	0.28	0.30	0.47	1.00	0.79	0.75	0.86	0.13
CaO	1.96	2.11	2.23	1.28	0.88	0.81	1.00	1.43	2.00	1.81	2.19	2.30	0.75
Na ₂ O	3.04	3.14	3.15	3.27	3.35	3.44	3.34	3.37	3.26	3.17	3.20	3.23	2.99
K ₂ O	4.41	4.83	4.43	4.21	4.76	4.56	4.36	4.31	3.97	4.37	4.63	4.25	4.91
P ₂ O ₅	0.08	0.09	0.10	0.02	0.02	0.03	0.03	0.06	0.10	0.08	0.09	0.10	0.01
LOI	0.33	0.58	0.49	0.38	0.46	0.70	0.54	0.51	0.76	0.54	0.41	0.30	0.36
total	98.6	98.4	98.2	98.4	100.2	98.7	98.2	99.1	98.1	98.2	99.3	99.2	97.0
(ppm)													
V	37.5	42.5	40.7	18.9	15.8	22.8	21.4	29.8	33.5	39.7	36.2	41.0	15.6
Cr	5.2	5.0	7.6	1.3	2.0	2.1	1.2	1.7	10.1	14.2	6.8	8.6	0.9
Co	6.1	6.6	8.1	2.1	3.4	3.5	3.9	6.4	6.9	10.2	6.5	7.8	2.3
Ni	4.2	4.0	4.1	4.2	4.3	5.0	4.8	5.0	7.2	8.8	4.6	4.5	4.9
Cu	n.d.	n.d.	n.d.	0.3	n.d.	0.8	0.4	n.d.	n.d.	n.d.	0.6	n.d.	0.3
Zn	37.0	37.1	42.0	17.4	19.5	23.2	26.7	40.5	38.8	48.0	39.3	44.2	7.5
Rb	163	164	168	122	156	178	240	280	225	223	168	176	164
Sr	227	287	300	82.5	82.8	95.2	72.7	140	222	236	270	263	28.3
Y	24.4	19.9	21.2	20.7	18.5	33.2	29.5	27.1	31.5	32.8	20.4	23.8	22.4
Zr	124	130	136	84.6	115	85.8	84.5	106	102	135	120	137	55.8
Nb	10.4	12.6	9.7	6.0	2.3	9.3	8.7	14.5	10.2	12.9	3.5	5.5	2.2
Ba	356	510	489	182	160	362	149	326	383	389	491	470	53.6
Pb	21.3	21.2	20.1	20.6	26.0	28.2	29.0	26.8	27.1	26.6	24.5	26.1	30.5
Th	12.8	12.7	12.5	16.8	19.8	12.2	21.1	24.3	18.4	17.2	12.2	15.2	22.4

表 2-1 (続き 2)

	Taishaku Mountains area											
	Tadamigawa granite									Aplite		
	TG 41	TG 42	TG 43	TG 44	TG 45	TG 46a	TG 46b	TG 47	TG 48	TG 9a*	TG 9c	TG 9d
(wt%)												
SiO ₂	74.8	75.1	70.7	68.6	69.6	68.4	67.8	68.2	68.3	76.1	76.1	74.6
TiO ₂	0.13	0.09	0.36	0.40	0.33	0.43	0.41	0.41	0.38	0.06	0.04	0.05
Al ₂ O ₃	13.78	13.62	14.99	15.72	14.66	15.33	15.47	15.82	15.64	12.12	12.45	11.76
FeO*	1.13	1.14	2.56	2.79	2.38	3.07	2.90	2.92	2.75	0.50	0.42	0.43
MnO	0.08	0.05	0.07	0.08	0.06	0.07	0.06	0.08	0.07	0.02	0.02	0.01
MgO	0.35	0.22	0.95	1.05	0.89	1.19	1.14	1.12	1.04	0.14	0.02	0.09
CaO	1.23	0.83	2.28	2.63	2.30	3.10	1.64	3.12	3.13	0.91	0.45	0.05
Na ₂ O	3.38	3.52	3.23	3.33	3.17	3.02	2.87	3.19	3.21	3.15	3.55	2.67
K ₂ O	4.41	4.48	4.21	3.71	3.79	3.51	4.66	3.87	3.96	4.35	5.33	5.86
P ₂ O ₅	0.04	0.03	0.12	0.13	0.11	0.15	0.14	0.14	0.13	0.01	0.01	0.01
LOI	0.38	0.77	0.64	1.27	0.54	1.96	2.49	0.86	0.98	0.28	0.21	0.22
total	99.7	99.8	100.1	99.7	97.8	100.3	99.6	99.7	99.6	97.7	98.6	95.8
(ppm)												
V	21.3	19.7	43.9	52.3	42.9	51.9	54.8	51.1	51.3	19.0	14.6	15.8
Cr	2.3	3.8	10.2	8.2	10.2	10.3	10.9	13.1	9.5	0.2	3.3	3.3
Co	4.6	3.5	9.2	8.8	7.8	9.2	10.8	9.0	7.9	1.8	3.1	2.5
Ni	5.4	5.0	5.4	4.6	5.7	4.4	4.7	4.8	3.6	6.2	4.5	4.6
Cu	n.d.	n.d.	0.9	5.7	n.d.	1.2	n.d.	2.2	n.d.	n.d.	n.d.	0.2
Zn	35.4	25.1	46.9	47.0	44.5	51.8	44.3	47.8	51.4	11.3	14.9	9.3
Rb	248	182	163	132	140	101	163	121	116	138	263	189
Sr	126	87.7	264	376	287	383	322	401	380	42.4	9.7	36.6
Y	27.8	33.7	22.4	21.8	20.8	18.9	19.9	20.2	18.6	15.7	32.3	15.3
Zr	80.8	78.1	142	170	137	171	162	153	149	38.0	83.6	27.6
Nb	4.3	4.7	5.0	5.1	4.7	4.5	4.0	4.1	3.3	7.3	9.0	n.d.
Ba	265	383	374	545	413	567	711	640	669	21.6	9.0	n.d.
Pb	32.7	29.4	20.8	18.4	21.3	15.0	19.8	17.3	17.7	26.8	49.5	32.0
Th	24.7	9.5	14.5	11.8	23.3	12.7	10.3	9.7	10.1	12.2	34.4	9.8

表 2-1 (続き 3)

	Tadamigawa area											
	Hinoematagawa granite			Tadamigawa granite								
	TG 15*	TG 16*	TG 17*	TG 18*	TG 19*	TG 20*	TG 21*	TG 22*	TG 23*	TG 24*	TG 25*	TG 26*
(wt%)												
SiO ₂	66.2	65.6	69.1	71.0	69.3	71.6	70.1	71.1	69.4	70.8	71.9	69.8
TiO ₂	0.54	0.53	0.39	0.26	0.20	0.23	0.28	0.24	0.30	0.34	0.20	0.28
Al ₂ O ₃	15.60	15.38	14.90	14.26	12.75	14.61	14.54	14.14	14.76	14.78	14.32	14.69
FeO*	3.79	3.79	2.74	2.02	1.70	1.92	2.26	1.80	2.31	2.23	1.66	2.26
MnO	0.10	0.09	0.07	0.08	0.16	0.07	0.07	0.05	0.07	0.06	0.06	0.08
MgO	1.98	2.13	1.55	0.89	0.72	0.75	1.04	0.93	1.14	0.86	0.61	0.95
CaO	3.50	3.36	3.00	1.65	3.67	1.82	1.68	1.17	1.48	1.12	1.65	1.72
Na ₂ O	3.00	3.04	2.92	3.12	1.99	3.48	3.28	3.07	3.34	3.17	3.28	3.17
K ₂ O	3.83	4.00	4.14	4.17	4.42	3.99	4.22	4.93	4.17	3.92	4.38	4.22
P ₂ O ₅	0.18	0.17	0.12	0.11	0.08	0.09	0.11	0.08	0.11	0.12	0.08	0.10
LOI	0.70	0.69	0.34	0.90	4.11	0.67	0.80	1.00	0.97	1.37	0.54	0.91
total	99.4	98.7	99.3	98.5	99.1	99.2	98.4	98.5	98.0	98.7	98.6	98.2
(ppm)												
V	80.1	77.0	60.4	28.9	25.7	28.7	33.5	27.2	30.8	30.4	24.7	32.7
Cr	27.8	26.5	21.9	3.0	5.1	4.2	3.4	8.1	6.0	6.5	2.5	6.4
Co	15.3	15.8	10.3	6.3	5.2	6.1	7.4	5.9	7.3	7.4	5.4	7.1
Ni	6.5	6.5	5.4	4.5	2.1	4.4	4.2	5.7	5.3	5.1	4.4	3.1
Cu	3.6	2.0	1.4	n.d.	0.3	1.4	0.1	n.d.	n.d.	0.8	0.1	0.9
Zn	58.3	62.2	40.3	79.1	38.3	42.9	48.2	48.6	49.3	51.2	30.4	57.4
Rb	142	142	149	154	197	154	159	172	147	153	178	156
Sr	383	388	333	241	113	266	261	184	259	210	225	270
Y	23.1	22.4	21.0	23.5	22.4	25.1	23.1	21.8	21.7	25.0	24.0	21.1
Zr	161	147	120	124	89.6	126	131	153	147	161	114	122
Nb	12.3	16.0	8.7	5.0	3.9	5.2	5.1	5.7	4.8	6.1	3.7	5.0
Ba	484	439	359	482	449	481	552	630	586	616	489	564
Pb	19.3	18.4	16.2	23.0	23.3	24.7	24.3	27.9	21.4	22.6	26.2	22.7
Th	14.1	14.1	19.9	24.1	21.3	18.3	16.6	18.2	12.6	26.4	16.9	20.1

表 2-1 (続き 4)

	Inagawa area									
	Tadamigawa granite									
	TG 27*	TG 28*	TG 29a*	TG 29b	TG 30*	TG 31*	TG 32*	TG 33*	TG 34*	TG 35*
(wt%)										
SiO ₂	72.6	74.6	73.8	73.8	74.2	69.0	70.3	69.5	70.1	73.3
TiO ₂	0.21	0.16	0.18	0.10	0.12	0.30	0.35	0.34	0.30	0.19
Al ₂ O ₃	14.55	13.94	13.34	12.58	13.11	14.75	14.23	14.90	14.94	13.68
FeO*	1.75	1.51	1.67	1.19	1.32	2.52	2.61	2.50	2.39	1.52
MnO	0.07	0.03	0.04	0.04	0.03	0.08	0.08	0.07	0.07	0.04
MgO	0.55	0.34	0.30	0.15	0.19	0.86	2.41	1.06	0.82	0.70
CaO	1.67	1.11	1.09	0.86	0.60	2.39	1.11	1.73	1.54	1.43
Na ₂ O	3.12	3.27	3.26	3.36	3.12	3.34	3.27	3.18	3.26	3.09
K ₂ O	4.55	5.12	4.76	4.73	5.16	3.79	3.64	4.21	4.30	4.18
P ₂ O ₅	0.08	0.03	0.04	0.02	0.02	0.12	0.11	0.11	0.12	0.06
LOI	1.56	0.46	0.44	0.34	0.60	1.26	0.48	1.16	1.39	0.86
total	100.7	100.6	98.9	97.2	98.5	98.4	98.6	98.8	99.2	99.1
(ppm)										
V	26.4	20.3	18.8	14.4	13.9	32.0	37.4	41.0	27.0	29.6
Cr	2.7	n.d.	1.4	4.8	n.d.	4.5	8.7	9.4	4.5	4.5
Co	5.8	5.5	6.8	5.5	5.1	7.1	9.2	8.3	8.0	4.7
Ni	5.3	4.3	3.6	6.2	4.0	3.3	4.9	4.7	3.8	5.1
Cu	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	1.6	n.d.	n.d.	n.d.	5.0
Zn	43.7	18.2	24.8	20.3	18.5	49.0	49.8	48.5	49.4	27.2
Rb	169	249	284	305	240	114	152	151	149	153
Sr	180	107	95.8	60.4	64.0	317	247	297	316	231
Y	25.3	30.6	43.8	49.3	33.5	21.1	26.3	21.1	21.5	21.3
Zr	118	158	164	103	123	141	147	141	144	91.5
Nb	10.1	7.8	7.3	4.4	5.0	5.3	6.6	6.1	5.2	2.7
Ba	471	646	574	303	519	548	381	431	570	387
Pb	28.1	14.6	18.9	22.9	17.2	20.8	17.0	21.7	20.9	18.8
Th	15.5	16.8	26.3	23.8	17.0	12.0	19.9	12.3	12.8	19.2

表 2-2 只見川古期花崗岩類の希土類元素 (REE) 組成

	Taishaku Mountains area											
	Hinoematagawa granite							Tadamigawa granite				
	TG 1a*	TG 1b*	TG 2*	TG 3*	TG 10*	TG 36	TG 38	TG 4a*	TG 4b*	TG 5*	TG 6*	
(ppm)												
Y	20.6	16.3	18.5	20.6	22.6	18.4	17.4	14.3	16.7	13.8	18.7	
La	29.0	23.3	25.7	18.2	33.4	22.7	23.7	25.2	23.0	19.6	22.5	
Ce	57.7	49.4	53.6	39.5	60.9	45.9	47.2	47.7	51.5	39.6	46.2	
Pr	6.64	5.07	6.25	5.30	7.08	5.16	5.15	5.14	5.00	4.15	4.84	
Nd	24.9	18.6	24.3	21.8	27.4	19.5	18.8	18.7	18.4	15.3	17.7	
Sm	4.87	3.64	4.90	4.85	5.58	3.88	3.68	3.57	3.65	3.12	3.33	
Eu	1.14	0.88	1.59	1.49	1.35	0.99	0.98	0.92	0.69	0.75	0.67	
Gd	4.63	3.54	4.71	4.45	5.29	3.25	3.10	3.29	3.41	2.66	3.25	
Tb	0.67	0.49	0.69	0.69	0.78	0.51	0.47	0.45	0.55	0.43	0.52	
Dy	4.14	3.03	4.27	4.42	5.05	3.00	2.89	2.93	3.43	2.58	3.33	
Ho	0.85	0.67	0.85	0.88	1.00	0.61	0.58	0.58	0.74	0.54	0.67	
Er	2.53	2.08	2.46	2.61	2.77	1.76	1.69	1.89	2.23	1.80	2.15	
Tm	0.38	0.30	0.43	0.43	0.52	0.26	0.27	0.27	0.37	0.30	0.36	
Yb	2.72	2.16	2.68	2.59	3.28	1.79	1.74	1.98	2.36	2.12	2.47	
Lu	0.44	0.35	0.41	0.46	0.62	0.26	0.28	0.36	0.40	0.33	0.48	
La _N /Sm _N	3.74	4.00	3.28	2.35	3.76	3.66	4.03	4.42	3.95	3.93	4.24	
Gd _N /Yb _N	1.41	1.36	1.45	1.42	1.33	1.50	1.47	1.37	1.19	1.04	1.09	
La _N /Yb _N	7.38	7.46	6.63	4.85	7.05	8.76	9.40	8.81	6.74	6.40	6.31	
Eu/Eu*	0.73	0.74	1.01	0.97	0.76	0.85	0.88	0.82	0.60	0.79	0.62	
ΣREE	141	113	133	108	155	110	111	113	116	93	108	

N, Anders and Grevesse (1989) , Shinotsuka et al. (1995) の CI コンドライトの組成で規格化した値.

Eu* = (Sm × Gd) ^{1/2} .

*, 谷岡ほか (2014) のデータ.

表 2-2 (続き 1)

	Taishaku Mountains area										
	Tadamigawa granite										
	TG 7*	TG 8*	TG 9b	TG 11*	TG 12*	TG 13*	TG 14a*	TG 14b*	TG 39a	TG 39b	TG 42
(ppm)											
Y	13.8	15.0	13.3	28.0	20.6	16.4	26.5	25.2	12.9	16.4	22.9
La	22.6	23.1	40.2	15.8	17.8	24.4	22.4	18.4	25.8	21.2	15.2
Ce	45.7	47.6	72.8	34.1	38.0	48.1	48.2	38.8	47.7	44.1	30.7
Pr	4.77	4.89	8.09	3.88	4.43	5.18	5.62	4.47	5.13	4.41	3.56
Nd	16.7	17.7	27.5	14.9	16.1	18.5	21.0	17.4	17.4	15.3	12.9
Sm	3.06	3.39	4.34	3.84	3.82	3.73	4.98	3.83	2.96	2.99	3.09
Eu	0.89	0.88	0.58	0.34	0.40	0.58	0.65	0.71	0.76	0.73	0.33
Gd	3.04	3.15	3.42	4.20	3.56	3.37	5.06	4.25	2.54	2.63	2.81
Tb	0.46	0.46	0.40	0.79	0.59	0.53	0.84	0.67	0.37	0.42	0.54
Dy	2.77	3.06	2.15	5.56	3.65	3.35	5.19	4.81	2.10	2.62	3.49
Ho	0.52	0.60	0.44	1.14	0.78	0.67	1.15	0.99	0.41	0.52	0.70
Er	1.58	1.82	1.39	3.59	2.55	2.12	3.75	3.11	1.23	1.60	2.12
Tm	0.27	0.29	0.23	0.59	0.41	0.36	0.67	0.60	0.19	0.25	0.32
Yb	1.82	2.02	1.34	3.98	3.40	2.58	4.25	4.07	1.32	1.66	2.28
Lu	0.28	0.32	0.24	0.65	0.64	0.42	0.77	0.73	0.20	0.26	0.31
La _N /Sm _N	4.63	4.27	5.81	2.58	2.92	4.10	2.82	3.02	5.46	4.45	3.09
Gd _N /Yb _N	1.38	1.29	2.12	0.87	0.87	1.08	0.98	0.86	1.59	1.31	1.02
La _N /Yb _N	8.61	7.89	20.8	2.76	3.63	6.53	3.65	3.14	13.5	8.86	4.62
Eu/Eu*	0.89	0.82	0.46	0.26	0.33	0.49	0.39	0.53	0.84	0.79	0.34
ΣREE	104	109	163	93	96	114	125	103	108	99	78

表 2-2 (続き 2)

	Taishaku Mountains area					Tadamigawa area		
	Tadamigawa granite				Aplite	Hinoematagawa granite		
	TG 43	TG 46a	TG 47	TG 48	TG 9a*	TG 15*	TG 16*	TG 17*
(ppm)								
Y	14.8	13.0	11.7	10.7	12.6	17.8	17.5	14.0
La	22.7	35.3	17.3	20.7	27.9	30.8	30.2	27.5
Ce	42.5	65.3	31.1	39.7	52.8	60.0	57.9	51.3
Pr	4.81	6.55	3.44	4.16	6.03	6.46	6.20	5.26
Nd	17.2	22.5	12.5	14.5	21.6	24.0	22.2	18.3
Sm	3.24	3.76	2.34	2.63	4.22	4.59	4.17	3.41
Eu	0.73	0.99	0.77	0.77	0.56	1.13	1.06	0.98
Gd	2.79	3.07	2.04	2.17	4.23	3.93	3.90	3.19
Tb	0.42	0.42	0.30	0.31	0.62	0.58	0.53	0.45
Dy	2.49	2.32	1.78	1.78	3.77	3.68	3.45	2.80
Ho	0.49	0.45	0.36	0.34	0.81	0.72	0.75	0.54
Er	1.45	1.31	1.08	1.02	2.37	2.38	2.21	1.76
Tm	0.21	0.19	0.15	0.15	0.39	0.34	0.35	0.30
Yb	1.38	1.25	1.02	0.97	2.69	2.43	2.35	1.80
Lu	0.21	0.19	0.16	0.15	0.43	0.38	0.42	0.28
La _N /Sm _N	4.39	5.87	4.62	4.92	4.14	4.20	4.55	5.05
Gd _N /Yb _N	1.68	2.03	1.66	1.85	1.30	1.34	1.37	1.47
La _N /Yb _N	11.4	19.5	11.8	14.8	7.17	8.77	8.90	10.6
Eu/Eu*	0.74	0.88	1.07	0.98	0.40	0.81	0.80	0.90
ΣREE	101	144	74	89	128	141	136	118

表 2-2 (続き 3)

	Tadamigawa area			Inagawa area					
	Tadamigawa granite			Tadamigawa granite					
	TG 20	TG 22	TG 23	TG 27*	TG 28*	TG 29a	TG 31	TG 32	TG 35
(ppm)									
Y	16.7	12.9	13.6	17.3	23.0	34.8	13.7	17.4	12.8
La	21.9	31.8	24.3	31.4	34.0	23.9	21.0	23.2	30.7
Ce	42.7	61.5	47.6	61.5	67.7	67.2	41.5	46.0	58.7
Pr	4.57	6.37	5.09	6.54	7.43	7.28	4.52	4.96	6.04
Nd	16.2	22.0	17.8	23.0	26.7	25.0	16.1	17.8	20.1
Sm	3.20	3.83	3.23	4.49	5.14	5.06	3.04	3.56	3.34
Eu	0.68	0.78	0.75	0.70	0.71	0.64	0.79	0.70	0.69
Gd	2.76	3.22	2.72	3.79	4.40	4.63	2.58	2.96	2.70
Tb	0.45	0.45	0.40	0.57	0.74	0.80	0.40	0.46	0.36
Dy	2.66	2.35	2.27	3.58	4.86	5.20	2.30	2.82	2.03
Ho	0.54	0.43	0.44	0.69	0.89	1.11	0.46	0.57	0.41
Er	1.60	1.21	1.29	2.19	3.02	3.32	1.36	1.70	1.24
Tm	0.24	0.18	0.19	0.33	0.47	0.50	0.19	0.25	0.19
Yb	1.63	1.09	1.26	2.22	3.43	3.24	1.34	1.65	1.23
Lu	0.25	0.15	0.18	0.42	0.51	0.44	0.19	0.25	0.18
La _N /Sm _N	4.28	5.20	4.72	4.38	4.15	4.08	4.32	4.08	5.76
Gd _N /Yb _N	1.40	2.44	1.78	1.41	1.06	1.18	1.59	1.48	1.82
La _N /Yb _N	9.32	20.2	13.4	9.80	6.88	7.04	10.8	9.70	17.3
Eu/Eu*	0.70	0.67	0.77	0.51	0.45	0.40	0.85	0.66	0.70
ΣREE	99	135	108	141	160	157	96	107	128

表 2-3 只見川古期花崗岩類の全岩および鉱物試料の Rb, Sr データ

Area	Rock type	Sample	Rb (ppm)*	Sr (ppm)*	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	(2 σ)	ϵ_{Sr} (100 Ma)	ϵ_{Sr} (60 Ma)	
Hinoematagawa granite		TG1a	127	410	0.89	0.706567	(2)	+ 13.0		
		-Pl	25.6	890	0.08	0.705410	(2)			
		-Kfs	260	399	1.89	0.707828	(3)			
		-Bt1	450	18.1	71.9	0.805330	(2)			
		-Bt2	460	18.3	72.7	0.805608	(4)			
		TG2	92.5	605	0.44	0.706417	(2)	+ 20.0		
		TG3	90.2	626	0.42	0.706425	(3)	+ 20.4		
		TG10	110	389	0.82	0.706402	(2)	+ 12.2		
		TG36	123	420	0.84	0.706425	(2)	+ 12.1		
	Taishaku Mountains area		TG4b	138	221	1.79	0.707809	(2)	+ 12.4	
			TG5	171	239	2.07	0.708096	(2)	+ 10.9	
			-Pl	13.9	557	0.07	0.705422	(2)		
			-Kfs	255	514	1.44	0.707235	(2)		
			-Bt	657	13.8	138	0.895373	(3)		
			TG6	135	187	2.08	0.708180	(2)	+ 12.0	
			TG7	154	278	1.63	0.707504	(2)	+ 11.4	
			TG8	114	198	1.66	0.707583	(2)	+ 12.0	
			TG9b	232	121	5.56	0.712845	(2)	+ 8.0	
			TG9e	155	78.4	5.70	0.713384	(5)	+ 12.7	
		-Pl	22	142	0.45	0.705960	(2)			
		-Kfs	314	103	8.86	0.717562	(2)			
		-Bt	688	12.9	154	0.895297	(2)			
		TG11	158	77.1	5.89	0.713753	(2)	+ 14.3		
		TG12	244	89.7	7.82	0.715821	(2)	+ 4.6		
		-Kfs1	366	131	8.09	0.716374	(3)			
		-Kfs2	348	474	2.13	0.708180	(2)			
		-Bt	550	55.5	28.7	0.742753	(2)			
		TG13	268	174	4.40	0.711409	(2)	+ 11.0		
		-Pl1	87.3	435	0.58	0.706220	(2)			
	-Pl2	280	267	3.03	0.709422	(2)				
	-Kfs	401	432	2.68	0.708943	(2)				
	-Bt	1020	25.3	117	0.844316	(2)				
	TG40	164	44.9	10.5	0.720297	(3)	+ 13.1			
	-Pl	41.2	60.7	1.96	0.708081	(2)				
	-Kfs	416	48.9	24.7	0.738619	(2)				
	TG41	128	100	3.68	0.710340	(2)	+ 10.2			
	TG42	175	81.8	6.20	0.713567	(2)	+ 5.2			
	TG43	151	266	1.63	0.707596	(2)	+ 12.8			
	TG46a	94.4	377	0.72	0.706342	(2)	+ 13.2			
	TG48	119	392	0.87	0.706551	(2)	+ 13.2			
	Aplite	TG9a	147	52.3	8.15	0.716355	(2)	+ 5.4		
		TG9c	255	4.3	183	0.964546	(3)	+ 11.1		
		TG9d	194	33.7	16.6	0.728982	(2)	+ 13.8		
Inagawa area	Tadamigawa granite	TG29b	299	55.9	15.5	0.722118	(4)		+ 64.0	

*, ICP-MS によるデータ. Pl, 斜長石; Kfs, カリ長石; Bt, 黒雲母. 誤差は下 1 桁を示している.

$\epsilon_{\text{Sr}} = [(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{sample}} / (^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{UR}} - 1] \times 10^4$; UR, standard uniform reservoir.

表 2-4 帝釈山地に分布する只見川古期花崗岩類の黒雲母包含, 除外 Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代

Rock type	Sample	Bt-included			Bt-excluded		
		Age (Ma)	SrI (2 σ)	MSWD	Age (Ma)	SrI (2 σ)	MSWD
Hinoematagawa granite	TG1a	97.3 \pm 2.0	0.70530 (1)	1.3	95 \pm 41	0.70532 (59)	3.9
	TG12	93.5 \pm 2.8	0.70537 (16)	1.2	95.2 \pm 3.8	0.70530 (19)	0.7
Tadamigawa granite	TG40*				97.1 \pm 3.1	0.70538 (15)	3.0
	TG5	95.0 \pm 2.2	0.70532 (1)	1.0	93.9 \pm 2.7	0.70533 (1)	0.1
	TG9e	86.9 \pm 7.7	0.7061 (18)	12	98.1 \pm 2.9	0.70534 (3)	0.5
	TG13	84.4 \pm 5.3	0.70576 (43)	5.8	92.7 \pm 2.7	0.70545 (4)	0.6

*, 黒雲母試料は未測定.

Bt-included, 黒雲母包含 Rb-Sr 鉱物アイソクロン; Bt-excluded, 黒雲母除外 Rb-Sr 鉱物アイソクロン.
誤差は下 1 桁 (または下 2 桁) を示している.

表 2-5 LA-ICP-MS によるジルコン結晶の U-Pb データ

Sample	Spot No.	Th/U	Isotopic ratios			Age (Ma)	
			$^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ (2σ)	$^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ (2σ)	$^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ (2σ)	$^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ (2σ)	$^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ (2σ)
TG36	1	1.01	0.0500 ± 0.0031	0.0156 ± 0.0004	0.108 ± 0.007	100.1 ± 2.7	104.0 ± 7.0
	2	0.49	0.0548 ± 0.0065	0.0157 ± 0.0006	0.119 ± 0.015	100.7 ± 3.6	114.1 ± 14.2
	3	0.50	0.0473 ± 0.0060	0.0165 ± 0.0006	0.108 ± 0.014	105.7 ± 3.8	104.0 ± 13.8
	4	0.52	0.0519 ± 0.0055	0.0156 ± 0.0005	0.112 ± 0.012	99.7 ± 3.3	107.5 ± 12.0
	5	0.52	0.0511 ± 0.0054	0.0160 ± 0.0004	0.112 ± 0.012	102.0 ± 2.8	108.1 ± 11.8
	6	0.50	0.0491 ± 0.0059	0.0156 ± 0.0005	0.106 ± 0.013	99.9 ± 2.9	102.0 ± 12.6
					Average	101.1 ± 2.1	105.8 ± 4.3
TG43	1	0.37	0.0487 ± 0.0032	0.0170 ± 0.0004	0.114 ± 0.008	108.6 ± 2.4	109.7 ± 7.6
	2	0.31	0.0521 ± 0.0041	0.0169 ± 0.0004	0.121 ± 0.010	107.9 ± 2.6	116.1 ± 9.5
	3	0.64	0.0506 ± 0.0031	0.0170 ± 0.0004	0.118 ± 0.008	108.4 ± 2.4	113.4 ± 7.4
	4	0.37	0.0470 ± 0.0030	0.0168 ± 0.0003	0.109 ± 0.007	107.3 ± 2.0	104.9 ± 6.9
	5	0.44	0.0512 ± 0.0035	0.0167 ± 0.0003	0.118 ± 0.008	106.8 ± 2.1	113.1 ± 8.1
	6	0.30	0.0503 ± 0.0037	0.0168 ± 0.0003	0.117 ± 0.009	107.4 ± 2.2	112.0 ± 8.6
	7	0.36	0.0517 ± 0.0034	0.0165 ± 0.0003	0.118 ± 0.008	105.6 ± 2.0	113.0 ± 7.8
	8	0.37	0.0493 ± 0.0041	0.0164 ± 0.0003	0.112 ± 0.009	105.0 ± 2.0	107.4 ± 9.1
	9	0.47	0.0492 ± 0.0035	0.0164 ± 0.0003	0.111 ± 0.008	104.9 ± 1.8	107.2 ± 7.9
	10	0.56	0.0493 ± 0.0048	0.0164 ± 0.0004	0.112 ± 0.011	105.1 ± 2.3	107.4 ± 10.7
	11	0.77	0.0485 ± 0.0033	0.0166 ± 0.0003	0.111 ± 0.008	105.8 ± 2.2	106.6 ± 7.6
	12	0.43	0.0503 ± 0.0033	0.0170 ± 0.0003	0.118 ± 0.008	108.9 ± 2.2	113.4 ± 7.7
	13	0.36	0.0469 ± 0.0044	0.0168 ± 0.0004	0.109 ± 0.010	107.3 ± 2.6	104.6 ± 10.1
	14	0.38	0.0455 ± 0.0044	0.0168 ± 0.0004	0.105 ± 0.010	107.2 ± 2.6	101.6 ± 10.1
	15	0.34	0.0454 ± 0.0037	0.0169 ± 0.0004	0.106 ± 0.009	108.0 ± 2.4	102.1 ± 8.7
	16	0.36	0.0523 ± 0.0050	0.0168 ± 0.0004	0.121 ± 0.012	107.6 ± 2.6	116.4 ± 11.4
	17	0.36	0.0504 ± 0.0046	0.0164 ± 0.0004	0.114 ± 0.011	104.7 ± 2.4	109.4 ± 10.3
	18	0.59	0.0499 ± 0.0026	0.0164 ± 0.0003	0.113 ± 0.006	104.6 ± 1.8	108.3 ± 5.8
	19	0.49	0.0478 ± 0.0030	0.0165 ± 0.0003	0.109 ± 0.007	105.2 ± 1.9	104.6 ± 6.7
	20	0.38	0.0476 ± 0.0033	0.0167 ± 0.0003	0.109 ± 0.008	106.5 ± 2.1	105.3 ± 7.7
	21	0.50	0.0480 ± 0.0032	0.0171 ± 0.0003	0.113 ± 0.008	109.6 ± 1.9	109.0 ± 7.6
	22	0.50	0.0498 ± 0.0032	0.0169 ± 0.0003	0.116 ± 0.008	108.0 ± 1.8	111.4 ± 7.5
	23	0.36	0.0475 ± 0.0032	0.0166 ± 0.0004	0.108 ± 0.008	105.9 ± 2.3	104.5 ± 7.4
	24	0.40	0.0488 ± 0.0043	0.0166 ± 0.0004	0.112 ± 0.010	105.9 ± 2.6	107.4 ± 9.9
					Average	106.7 ± 0.6	108.6 ± 1.6
TG20	1	0.77	0.0486 ± 0.0022	0.0164 ± 0.0003	0.110 ± 0.006	105.1 ± 2.1	106.0 ± 5.3
	2	0.28	0.0509 ± 0.0031	0.0161 ± 0.0003	0.113 ± 0.007	103.1 ± 2.2	109.0 ± 7.1
	3	0.47	0.0513 ± 0.0032	0.0163 ± 0.0004	0.115 ± 0.008	104.2 ± 2.3	110.7 ± 7.4
	4	0.26	0.0507 ± 0.0029	0.0157 ± 0.0004	0.110 ± 0.007	100.4 ± 2.7	105.7 ± 6.7
	5	0.34	0.0492 ± 0.0020	0.0163 ± 0.0004	0.110 ± 0.005	104.1 ± 2.3	106.3 ± 4.8
	6	0.51	0.0496 ± 0.0027	0.0156 ± 0.0004	0.107 ± 0.006	100.0 ± 2.4	103.1 ± 6.0
	7	0.53	0.0461 ± 0.0025	0.0162 ± 0.0004	0.103 ± 0.006	103.4 ± 2.4	99.3 ± 5.9
					Average	103.1 ± 1.8	105.4 ± 3.2
TG29b	1	0.31	0.0474 ± 0.0037	0.0094 ± 0.0003	0.061 ± 0.005	60.3 ± 1.9	60.5 ± 5.0
	2	0.35	0.0485 ± 0.0062	0.0097 ± 0.0004	0.065 ± 0.009	61.9 ± 2.3	63.5 ± 8.5
	3	0.32	0.0442 ± 0.0042	0.0098 ± 0.0003	0.060 ± 0.006	63.0 ± 2.1	59.0 ± 5.9
	4	0.33	0.0469 ± 0.0049	0.0095 ± 0.0002	0.062 ± 0.007	61.1 ± 1.6	60.7 ± 6.6
	5	0.28	0.0497 ± 0.0039	0.0099 ± 0.0002	0.068 ± 0.006	63.3 ± 1.4	66.5 ± 5.5
	6	0.77	0.0503 ± 0.0045	0.0098 ± 0.0002	0.068 ± 0.006	62.8 ± 1.5	66.7 ± 6.2
	7	0.22	0.0497 ± 0.0042	0.0097 ± 0.0003	0.067 ± 0.006	62.5 ± 1.9	65.6 ± 5.9
	8	0.51	0.0445 ± 0.0052	0.0097 ± 0.0003	0.060 ± 0.007	62.2 ± 1.8	58.7 ± 7.0
	9	0.27	0.0501 ± 0.0047	0.0097 ± 0.0003	0.067 ± 0.007	62.1 ± 1.8	65.7 ± 6.4
	10	0.25	0.0472 ± 0.0041	0.0093 ± 0.0003	0.061 ± 0.006	59.7 ± 1.7	59.6 ± 5.4
	11	0.36	0.0507 ± 0.0051	0.0098 ± 0.0003	0.069 ± 0.007	63.1 ± 1.9	67.5 ± 7.1
	12	0.34	0.0445 ± 0.0055	0.0097 ± 0.0003	0.060 ± 0.008	62.2 ± 2.2	58.7 ± 7.5
	13	0.28	0.0473 ± 0.0046	0.0097 ± 0.0002	0.063 ± 0.006	62.0 ± 1.3	62.1 ± 6.2
	14	0.29	0.0473 ± 0.0041	0.0098 ± 0.0002	0.064 ± 0.006	63.0 ± 1.2	62.9 ± 5.6
	15	0.26	0.0488 ± 0.0044	0.0094 ± 0.0002	0.063 ± 0.006	60.5 ± 1.3	62.5 ± 5.8
	16	0.29	0.0462 ± 0.0038	0.0100 ± 0.0002	0.063 ± 0.005	63.9 ± 1.2	62.5 ± 5.2
					Average	62.2 ± 0.7	62.6 ± 1.5

表 2-6 只見川古期花崗岩類の地質学的年代

Area	Rock type	Sample	Geochronological data (Ma)			
			K-Ar (Bt)	U-Pb (Zrn)	Rb-Sr (WR)	Rb-Sr (M)
Taishaku Mountains area	Hinoematagawa granite	TG1a	102.3 ± 2.2*			97.3 ± 2.0
		TG36		101.1 ± 2.1		
	Tadamigawa granite	TG5	102.7 ± 2.2*			95.0 ± 2.2
		TG43		106.7 ± 0.6		
					96.5 ± 1.5	
		TG12				95.2 ± 3.8
		TG40				97.1 ± 3.1
		TG9e				98.1 ± 2.9
		TG13				92.7 ± 2.7
Tadamigawa area	Tadamigawa granite	TG20	89.6 ± 1.9*	103.1 ± 1.8		
Inagawa area	Tadamigawa granite	TG29	61.7 ± 1.4* 69**	62.2 ± 0.7		

*, 谷岡ほか (2014) のデータ. **, 河野・植田 (1966) からの引用.

K-Ar (Bt), 黒雲母 K-Ar 年代; U-Pb (Zrn), ジルコン ^{238}U - ^{206}Pb 年代; Rb-Sr (WR), Rb-Sr 全岩アイソクロン年代; Rb-Sr (M), Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代. 各年代値の誤差は 2σ を示している.

第3章 高知県足摺岬の第三紀複合火成岩類の岩石学的研究

3.1 背景

花崗岩の全岩化学組成を中心とした化学的特徴から、I、S、M、A タイプという分類がよく使われる (Chappell and White, 1974; Loiselle and Wones, 1979)。花崗岩マグマの起源物質が、I タイプは火成岩 (Igneous rock)、S タイプは堆積岩 (Sedimentary rock) であるという成因的な意味を持つ。また、M タイプはマントル物質由来、A タイプは非造山帯 (Anorogenic) に関係すると考えられている。地球上の花崗岩類は、I、S タイプが圧倒的大部分で、M、A タイプは量的には少ない。

A タイプ花崗岩は大陸内リフトなどの非造山帯環境に特徴的にみられる花崗岩類である。岩質はややアルカリ岩的で K_2O に富み、 K_2O / Na_2O 比、 $Fe / (Fe+Mg)$ 比が高く、 CaO と Al_2O_3 に乏しい (Loiselle and Wones, 1979)。不適合元素では、Zr、Nb、Y、Ga、希土類元素 (REE)、および F、Cl などのハロゲン元素に富む。また、アルカリ系列の閃長岩などと密接に産する場合がある。A タイプ花崗岩は、一般にホットスポットや大陸リフトのような引張応力場、または造山運動終了後の造山帯地域のような非圧縮応力場や引張応力場の下で活動がみられる。日本列島では、四国西部の足摺岬複合火成岩類で産する。足摺岬には、A タイプ花崗岩が産することに加えて、ラパキビ花崗岩という特徴的な花崗岩が産することが知られている。ラパキビ花崗岩は、数 cm のオボイド状のカリ長石を斜長石の殻が取り囲む特殊な組織がみられる花崗岩である。

中新世 (10 – 20 Ma) 前期の日本は、ユーラシア大陸の東縁部に位置してい

た。中新世後期に、背弧海盆として日本海が拡大して弧状列島となった。中新世の花崗岩の内、西南日本外帯には屋久島、四国の足摺岬、紀伊半島の熊野など各地に様々な規模で花崗岩類が露出している。多くは火山深成複合岩体で火山岩が主体の岩体も少なくない。これら外帯花崗岩の大きな特徴は、全て中新世の非常に限られた期間に形成されたもので、U-Pb 年代の範囲は 13 – 15 Ma である。足摺岬に分布する火成岩類は、A タイプ的組成という特徴的な性質をもち、活動時期も日本海拡大期という日本列島のテクトニクスの中でも特異的な時期の岩石である。そこで本研究では、足摺岬複合火成岩類の形成史を解明するために全岩化学組成分析および Sr 同位体分析を行った。

3.2 地質概説

高知県南西部の足摺岬周辺には 12 km² 程度の足摺岬複合火成岩類が分布している。足摺岬複合火成岩類は西南日本外帯に属する古第三紀の清水層群に貫入する形で定置している (図 3-1)。清水層群は頁岩と砂質頁岩との互層で構成され、火成岩体に接する部分では熱変成を受けホルンフェルス化している (村上ほか, 1983)。野外での調査で、清水層群との境界である岩体外縁部以外の火成岩体内において清水層群の砂岩・泥岩が捕獲岩として多数みられた。足摺岬複合火成岩類は貫入時期の古いものから順に第I期から第V期まで区分され、南部の沿岸部には第 II 期閃長岩およびアルカリ花崗岩、北部には第 IV 期黒雲母花崗岩、第 II 期と第 IV 期に挟まれる形で第I期斑れい岩および第 III 期閃長岩・花崗岩の互層がそれぞれ分布している (村上ほか, 1983)。また、

第V期岩脈群については複数箇所第 II 期の岩相に貫入している。足摺岬複合火成岩類は多様な岩相により構成されているが、共通してアルカリ元素に富んでいるという特徴がみられる（例えば、村上ほか, 1983; Ishihara and Hoshino, 2013）。第I期火成岩類は大部分が斑れい岩で、これら斑れい岩にはしばしば第 III 期深成岩が貫入している。第 II 期火成岩類にはアルカリ花崗岩と閃長岩がみられ、アルカリ花崗岩が閃長岩に貫入する形で定置している。第 III 期火成岩類はアルカリ花崗岩と花崗閃緑岩で構成され、第 III 期に属する花崗閃緑岩中にはラパキビ長石がみられる場合がある。第 IV 期火成岩類は粗粒—中粒の黒雲母花崗岩である。また、Shinjoe et al. (2010) はジルコンの U-Pb 年代測定を行い、南部沿岸の閃長岩において 13.12 ± 0.09 Ma、北部の花崗岩において 12.95 ± 0.06 Ma の年代値を報告している。これら年代値から各岩相の貫入が短期間に次々に起こったと考えられている。本研究では足摺岬複合火成岩類（第 I 期斑れい岩およびドレライト、第 II 期閃長岩およびアルカリ花崗岩、第 III 期アルカリ花崗岩および花崗閃緑岩、第 IV 期黒雲母花崗岩、第 V 期流紋岩およびアルカリドレライト）および清水層群の堆積岩類を対象とした。また、試料採取地点については図 3-1 に示す。

3.3 分析手法

3.3.1 主成分および微量成分元素分析

波長分散型蛍光 X 線分析装置（XRF、島津製作所 XRF-1800）を用いて足摺岬複合火成岩類（第 I 期 4 試料、第 II 期 10 試料、第 III 期 11 試料、第 IV 期

13 試料、第 V 期 6 試料) および清水層群 (7 試料) 51 試料の主成分 10 元素 (Fe, Mn, Ti, Ca, K, P, Si, Al, Mg, Na) および微量成分 14 元素 (Th, Pb, Ba, Nb, Zr, Y, Sr, Rb, Zn, Cu, Ni, Co, Cr, V) の定量分析を熔融ガラスビード法により行った。測定条件は、主成分元素分析は管電圧 40 kV、管電流 70 mA であり、微量成分元素分析は管電圧 40 kV、管電流 95 mA、いずれもロジウム管球を用いて行った。分析法は基本的に中崎ほか (2004) に従った。

主成分元素分析用ガラスビードについては、岩石粉末試料 (110 °C、24 時間乾燥済) 0.7 g に融剤である四ホウ酸リチウム (無水) [タイプ II] (和光純薬工業、蛍光 X 線分析用) (110 °C、24 時間乾燥済) 6.0 g を混合し、蛍光 X 線分析用ガラスビード試料作製装置 (竹田理化工業 TR Auto-Bead-1000-S) で加熱 (1000 °C、18 分間を 2 回) して作製した。岩石粉末試料は、採取した岩石試料を洗浄・風乾し、ハンマーで粗砕きした後、瑪瑙の自動乳鉢 (日陶科学 AMM-140D) で粉碎し、さらにアルミナ乳鉢でパウダー状に粉碎して作製した。微量元素分析用ガラスビードについては、岩石粉末試料 (110 °C、24 時間乾燥済) 2.0 g に融剤である四ホウ酸リチウム (無水) [タイプ II] (和光純薬工業、蛍光 X 線分析用) (110 °C、24 時間乾燥済) 3.0 g を混合し、蛍光 X 線分析用ガラスビード試料作製装置 (竹田理化工業 TR Auto-Bead-1000-S) で加熱 (1000 °C、18 分間を 2 回) して作製した。

また電気炉 (ヤマト科学 FO100) を用いて足摺岬複合火成岩類 (第 I 期 4 試料、第 II 期 10 試料、第 III 期 11 試料、第 IV 期 13 試料、第 V 期 6 試料) および清水層群 (7 試料) 51 試料に対して強熱減量試験を行い、強熱減量値 (LOI)

を求めた。強熱減量試験については、岩石粉末試料（110 °C、24 時間乾燥済）0.5 g を電気炉（ヤマト科学 FO100）で強熱（1000 °C、2 時間）し、強熱前後の岩石粉末試料の質量を電子天秤で測定した。

3.3.2 Sr 同位体分析

表面電離型質量分析装置（TIMS、Thermo Fisher Scientific TRITON TI）を用いて足摺岬複合火成岩類（第 I 期 4 試料、第 II 期 10 試料、第 III 期 11 試料、第 IV 期 13 試料、第 V 期 4 試料）および清水層群（1 試料）43 試料の Sr 同位体組成分析および誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS、Agilent Technologies 7700x ICP-MS）を用いて足摺岬複合火成岩類（第 I 期 4 試料、第 II 期 10 試料、第 III 期 11 試料、第 IV 期 13 試料、第 V 期 4 試料）および清水層群（7 試料）49 試料の 17 元素（Rb, Sr, Y, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu）の定量分析を In 内標準検量線法により行った。全岩化学組成分析および Sr 同位体組成分析は国立研究開発法人海洋研究開発機構高知コア研究所で行った。

岩石粉末試料 40 mg にフッ化水素酸 1.0 mL、濃硝酸 0.5 mL、過塩素酸 0.5 mL を加え、110 °C で 3 時間加熱還流させた。その後、110 °C で 12 時間加熱しほぼ乾固させ、180 °C で一日半加熱し完全に乾固させた。これに 6 M 硝酸 3 mL を加え、110 °C で 12 時間加熱しほぼ乾固させ、180 °C で一日半加熱し完全に乾固させた。これに 6 M 硝酸 2 mL を加え、110 °C で 12 時間加熱しほぼ乾固させ、180 °C で一日半加熱し完全に乾固させた。これを 3 M 硝酸 4 mL に

溶解した。また酸分解した試料溶液から 100 μL を分取し、In 内標準液 (0.15 M 硝酸と 0.015 M フッ化水素酸の混酸中に In 10 ppb 含有) 3 mL と混合して ICP-MS の定量分析用試料とした。

Sr 同位体比測定用試料としてナチュラル用試料 (スパイクを添加していない試料) とスパイク添加用試料 (スパイクを添加した試料) を調製した。ナチュラル用試料については、イオン交換樹脂 (Eichrom Technologies Sr Resin) を充填したカラムに 3 M 硝酸に溶解した試料溶液をローディングした。その後、6 M、3 M、0.05 M 硝酸を用いてマトリックス元素を除去し Sr のフラクションを回収した。また、スパイク用試料については、酸分解した試料溶液にダブルスパイク溶液を加えて、110 $^{\circ}\text{C}$ で加熱し乾固させた。その後、3 M 硝酸 0.5 mL に溶解し、イオン交換樹脂 (Eichrom Technologies Sr Resin) を充填したカラムに 3 M 硝酸に溶解した試料溶液をローディングした。その後、6 M、3 M、0.05 M 硝酸を用いてマトリックス元素を除去し Sr のフラクションを回収した。

回収したナチュラル用試料およびスパイク添加用試料の Sr フラクションを 110 $^{\circ}\text{C}$ で加熱し乾固させた。その後、濃硝酸 1 滴に溶解し再び乾固させ、硝酸溶液 1 μL 中に Sr 約 300 ng が含まれるようにフラクションを 0.15 M 硝酸に溶解した。0.15 M 硝酸に溶解した試料 1 μL および Ta 溶液 1 μL をタングステン (W) 製のシングルフィラメントに塗布した。これを加熱乾固させ、Sr 同位体比測定用試料とした。測定試料とともに Sr 同位体標準試料 (アメリカ国立標準技術研究所の NIST SRM987) についても測定した。ナチュラル試料の同位体比は exponential law (Russell et al., 1978) と $^{86}\text{Sr}/^{88}\text{Sr} = 0.1194$ (Steiger and

Jäger, 1977) を用いて規格化した。

試薬は以下を使用した。フッ化水素酸 (38%)、過塩素酸 (68%)、硝酸 (68%) は TAMAPURE-AA-100 (多摩化学工業, 超高純度分析用) を、6 M、3 M、0.15 M、0.05 M 硝酸は、硝酸 (TAMAPURE-AA-100) を希釈したものをを使用した。ダブルスパイク溶液は Sr (0.1251 ppm, $^{84}\text{Sr} = 74.75\%$, $^{86}\text{Sr} = 24.17\%$, $^{87}\text{Sr} = 0.360\%$, $^{88}\text{Sr} = 0.724\%$) をを使用した。

3.4 結果

XRF により得られた主成分元素および微量成分元素組成を表 3-1 に示す。主成分元素組成より各元素のハーカー図を作成した (図 3-2)。足摺岬複合火成岩類の SiO_2 量は第 I 期斑れい岩およびドレライトで 49.0 – 52.1 wt%、第 II 期閃長岩およびアルカリ花崗岩で 61.5 – 72.9 wt%、第 III 期アルカリ花崗岩および花崗閃緑岩で 59.8 – 77.1 wt%、第 IV 期黒雲母花崗岩で 72.6 – 79.2 wt%、第 V 期流紋岩およびアルカリドレライトで 57.4 – 78.0 wt%、清水層群で 62.9 – 74.3 wt% の範囲を示した。また、全体的な傾向として SiO_2 量の増加に伴って TiO_2 、 FeO^* 、 MnO 、 MgO 、 CaO 、 P_2O_5 、V、Cr、Co、Zn、Sr、Ba は減少する傾向がみられた。Y、Th は増加する傾向がみられ、 Al_2O_3 、Ni、Cu、Rb、Zr、Nb、Pb は一定の値を示した。また、 Na_2O 、 K_2O には相関がみられなかった。特異な組成としては、第 I 期斑れい岩は、Cu、Ni、Cr に富み、第 I 期ドレライトは Co に富む。第 IV 期黒雲母花崗岩の 1 試料 (AZ02a) は Rb 濃度が高かった。また第 V 期流紋岩は Zn、Y、Zr、Nb、Pb に富み、第 V 期ドレライトは Co に富

む。火成岩類全体の特徴としてアルカリおよび不適合元素に富む組成を示した。花崗閃緑岩はハーカー図（図 3-2）より他の花崗岩類と比較して MgO、P₂O₅、Sr、V について異なる傾向を示した。

ICP-MS により得られた希土類元素（REE）組成を表 3-2 に示す。このうち、REE の定量値を CI コンドライト（Anders and Grevesse, 1989; Shinotsuka et al., 1995）で規格化した REE パターン図を図 3-3 に示す。足摺岬複合火成岩類は全体的に REE に富む組成を示す。特に、流紋岩 1 試料（AZ01a）において総 REE 量（ Σ REE）が 1160 ppm を示し、REE を非常に濃集している。足摺岬複合火成岩類は REE パターン図（図 3-3）において特に軽希土類元素（LREE）に富み、重希土類元素（HREE）下がりの傾向を示した。また HREE では平坦な傾向を示した。ほとんどの火成岩類で程度の異なる負の Eu 異常（ $\text{Eu}/\text{Eu}^* = 0.06 - 0.91$; $\text{Eu}^* = (\text{Sm} \times \text{Gd})^{(1/2)}$ ）が認められたが、斑れい岩およびドレライトの一部では Eu 異常は認められなかった。閃長岩のうち 2 試料（AZ05a, b）において負の Eu 異常と負の Ce 異常がみられた。また清水層群の堆積岩の REE 含有量は、火成岩と比較すると全体的に低い。清水層群の堆積岩の REE パターン図（図 3-3）ではいずれの試料も正、負どちらかの Eu 異常を示した。

TIMS により得られた Sr 同位体組成を表 3-3 に示す。結果から作図した Rb-Sr 全岩アイソクロン図を図 3-4 に示す。アイソクロンについてはプログラム ISOPLOT ver. 3.70（Ludwig, 2008）を用いて計算し、⁸⁷Rb/⁸⁶Sr 比の標準偏差（2 σ ）は 2%とした。足摺岬複合火成岩類において Rb-Sr 全岩アイソクロンを計算した結果、足摺岬複合火成岩類から $\text{SrI} = 0.7050 \pm 0.0018$ 、 $12.8 \pm 1.3 \text{ Ma}$

(2 σ) (MSWD = 6382, n = 42) の年代値を得た。

3.5 考察

3.5.1 全岩化学組成による足摺岬複合火成岩類の比較

主成分元素元素のハーカー図 (図 3-2) 上において、足摺岬複合火成岩類は複数の傾向を示したことから、単一のマグマから結晶分化に伴って複数の岩型が形成された岩体ではなく、複数の起源マグマから分化して形成された岩体だと考えられる。また、REE パターン図 (図 3-3) における Eu 異常の有無を考慮すると、斑れい岩およびドレライト、花崗閃緑岩、花崗岩類、流紋岩は異なる起源マグマをもつ可能性が示唆される。さらに、全体的に不適合元素に富んでいることは、起源物質から部分溶融によって発生したマグマが小規模であった可能性がある。SiO₂ - K₂O 図 (図 3-2) 上で Peccerillo and Taylor (1976) のデータに基づいて非アルカリ岩系とアルカリ岩系の分類を行うと、ショショナイトー高カリウム岩系の領域にプロットされ、足摺岬複合火成岩類はアルカリ岩系に属する。また、(Na₂O + K₂O) / Al₂O₃ (mol 比) - SiO₂ および (CaO + MgO) / FeO* (wt%比) - SiO₂ 図 (図 3-2) 上に高橋 (1985) に基づいて A タイプと I タイプの境界を示すと、足摺岬複合火成岩類のほとんどの試料は、A タイプの領域にプロットされた。この分類結果と不適合元素 (Zr や REE) の濃集から、足摺岬複合火成岩類は A タイプ花崗岩だと考えられる。

足摺岬複合火成岩類は全体的に不適合元素に富む組成を示すが、流紋岩は特に不適合元素を濃集し特異な組成を示した。この流紋岩にみられる特異な組成

は、流紋岩が貫入する際に周囲のアルカリに富んだ花崗岩類を溶かし込むこと
によって不適合元素を濃集したことにより生じたと考えられる。また斑れい岩
の起源推定において、Ishihara and Chappell (2007) は斑れい岩の起源マグマで
ある苦鉄質マグマはより深所で Mg に富み、大陸地殻最下部のような比較的浅
所で Fe に富むマグマが得られる傾向があると指摘している。足摺岬複合火成
岩類にみられる斑れい岩は、Fe/Mg 比が高いことから大陸地殻最下部のような
比較的浅所で発生したマグマを起源として形成された岩相だと考えられる。

足摺岬複合火成岩類の REE パターン図 (図 3-3) において HREE が一定ま
たは右上がりの傾向を示すものがみられた。花崗岩類の REE パターン図は通
常右下がりの傾向を示す。しかし、HREE を濃集した鉱物を含む試料では、
HREE の寄与により相対的に HREE 側が上昇するパターンを示す。REE パタ
ーン図において一定または右上がりの傾向を示したことから、ジルコンやざく
ろ石などの HREE を濃集しやすい鉱物が含まれていることが考えられる。寺
岡ほか (1999) により四万十帯の付加体において碎屑性のざくろ石がみられ
ることが報告されていることから、マグマが付加体の堆積岩中に含まれる碎屑
性のざくろ石を取り込んだことによって重希土類元素が増加し、REE パター
ン図 (図 3-3) において HREE が一定または右上がりの傾向を示したと考えら
れる。

足摺岬複合火成岩類の REE パターン図 (図 3-3) にみられた Eu 異常の有無
は、起源マグマが異なることを表していると考えられる。Eu は他の REE と異
なり 3 価だけでなく 2 価としても挙動する。2 価の Eu は Ca とよく似た化学的

挙動をするため、斜長石の端成分であるアノーサイト ($\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$) に含まれる Ca と置換して結晶へ濃集しやすい (Frey et al., 1978)。この Eu の性質から、2 価の Eu が斜長石に濃集し、結晶分化の過程で Eu を取り込んだ斜長石がマグマから取り除かれる場合がある。この場合、分化後のマグマが固結した岩石には負の Eu 異常がみられる。また Eu を取り込んだ斜長石を含む岩石は他の REE より相対的に多くの Eu を含むため、正の Eu 異常を示す。ここで花崗岩が斑れい岩と同一のマグマから結晶分化して形成したのであれば、Eu に枯渇する前に形成された斑れい岩に正の Eu 異常がみられる可能性が高い。足摺岬複合火成岩類の斑れい岩には正の Eu 異常がみられないことから、斑れい岩と花崗岩類が単一のマグマから結晶分化によって形成された可能性は低いと考えられる。これはハーカー図上で複数のトレンドを示したことと調和的である。

REE パターン図 (図 3-3) で閃長岩に Eu、Ce ともに負の異常を示すものがみられた (AZ05a, b)。負の Ce 異常がみられた試料は、他の試料と比較すると目視でも風化の度合いが大きいことが確認できた。Ce は他の REE と異なり 3 価以外に不溶性の 4 価で存在する場合がある。風化により REE を濃集した鉱物から希土類元素が溶け出す際に、不溶性の 4 価の Ce は溶け出さずに残留する (Middelburg et al., 1988)。このときの風化した岩石は Ce 以外の希土類元素が溶出することによって減少し、相対的に Ce が高くなり、REE パターン図において正の Ce 異常がみられる。ここで溶出した Ce 以外の希土類元素がより下部にある岩石に風化変質作用の際に取り込まれ、その岩石がもつ希土類元素

濃度よりも Ce を除いて高くなる。そのため、負の Ce 異常がみられた試料 (AZ05a, b) は風化変質作用により Ce 以外の希土類元素が付加されることで形成されたと考えられる。

ラパキビ花崗岩 (AZ13 以外の花崗閃緑岩) は、ハーカー図 (図 3-2) より他の花崗岩類と MgO、P₂O₅、Sr、V について異なる組成をもつことがわかった。これら元素に着目すると、いずれも斑れい岩において高い含有量を示した元素である。足摺岬に産するラパキビ花崗岩は同時期に貫入したマグマが混合することによって形成されたと考えられている (村上・今岡, 1985)。ラパキビ花崗岩の化学組成は花崗岩類の化学組成と近いが、花崗岩類中の含有量の低い MgO、P₂O₅、Sr、V において斑れい岩の寄与が大きいため、ラパキビ花崗岩の組成の違いが明瞭にみられたと考えられる。よって、斑れい岩と花崗岩類それぞれの起源マグマが混交することによって形成された可能性がある。

3.5.2 足摺岬複合火成岩類の起源物質推定

Rb-Sr 全岩アイソクロン図から得られた年代値 (12.8 ± 1.3 Ma) は先行研究 (Shinjoe et al., 2010) のジルコンの U-Pb 年代 (13.12 ± 0.09 Ma) と近い得られた Rb-Sr 全岩アイソクロンの MSWD (= 6382) の値が非常に高いが、Rb-Sr アイソクロンでは $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 比 (= 586: AZ02a) が高い試料に制約されるため、アイソクロンを引くことができる。他の試料が $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 比 100 以下の低いところに密集しばらついたため、より顕著に MSWD の値が高くなった。先行研究の年代値 (13.12 ± 0.09 Ma) から今回得られた Rb-Sr 全岩アイソクロンは

意味を持つと考えられる。今回得られた Rb-Sr 全岩アイソクロンから足摺岬複合火成岩類の年代値は 13 Ma とし、それぞれの試料の SrI を計算で求めた (表 3-3)。図 3-5 では SrI を 0.69、0.70、0.71、0.72 と仮定し 13 Ma のアイソクロンを引き対比した。SrI の異なる起源マグマが複数ある想定すると、アイソクロン周辺のばらつきが説明できる。マグマ混合の論拠として、SrI - 1/Sr 図が使われる。SrI - 1/Sr 図 (図 3-6) をみると、ほとんどの試料が Rb-Sr 全岩アイソクロンから得られる SrI (= 0.7050) に集中している様子が見られ、SrI (= 0.7050) より著しく低い試料と高い試料がある。SrI < 0.7050 の試料は第 II 期 1 試料 (AZ14) と第 IV 期 2 試料 (AZ09a, c) で、閃長岩などが産する小規模の岩脈の試料である。これらの試料はいずれも主となる岩体とは異なる海岸沿いの局所的に産する岩脈試料のため、元々の起源マグマが異なる可能性が高い。また、SrI > 0.7050 の試料は堆積岩試料や第 II 期、第 IV 期、第 V 期の中でも塩基性の試料だった。周辺に分布する四万十帯の堆積岩の SrI は 0.716 と報告されており (Jomori et al., 2013)、起源マグマが他の花崗岩類より周辺の堆積岩を溶かし込んだことにより形成された可能性が高い。これらの火成岩試料は周辺の堆積岩由来の苦鉄質岩石で、花崗岩体とは起源マグマが異なる可能性もある。野外の産状では、苦鉄質岩と珪長質岩の境界はシャープな箇所と混ざり合っている箇所が各地でみられているため、苦鉄質岩と珪長質岩の起源マグマがそれぞれ異なる可能性がある。また、Rb-Sr 全岩アイソクロンにおけるばらつきは、周辺の堆積岩を溶かし込んだ割合が変化することにより、SrI の異なる各岩体や岩脈が複数形成されたためと考えられる。以上のことから、足摺岬複

合火成岩類は複数の起源マグマがほぼ同時期に多発的に貫入することで形成された岩体であるといえる。

3.6 総括

本研究では、全岩化学組成から足摺岬複合火成岩類は複数の起源マグマから形成された可能性があること、全体的にアルカリ元素や不適合元素に富む組成を示し、Aタイプ的な特徴を示すことが分かった。足摺岬に分布するラパキビ花崗岩は、斑れい岩と花崗岩類それぞれの起源マグマが混成することによって形成された可能性がある。また、Rb-Sr全岩アイソクロンから 12.8 ± 1.3 Maの年代値が得られた。これは、先行研究 (Shinjoe et al., 2010) のジルコンの U-Pb年代と調和的である。SrI - 1/Sr 図 (図 3-6) をみると、周辺の堆積岩を溶かし込んだ割合が異なる岩体や岩脈の起源マグマが形成されたことにより、足摺岬複合火成岩類の多様な産状となったといえる。以上のことから、足摺岬複合火成岩類は複数の起源マグマがほぼ同時期に多発的に貫入することで形成された岩体であるといえる。

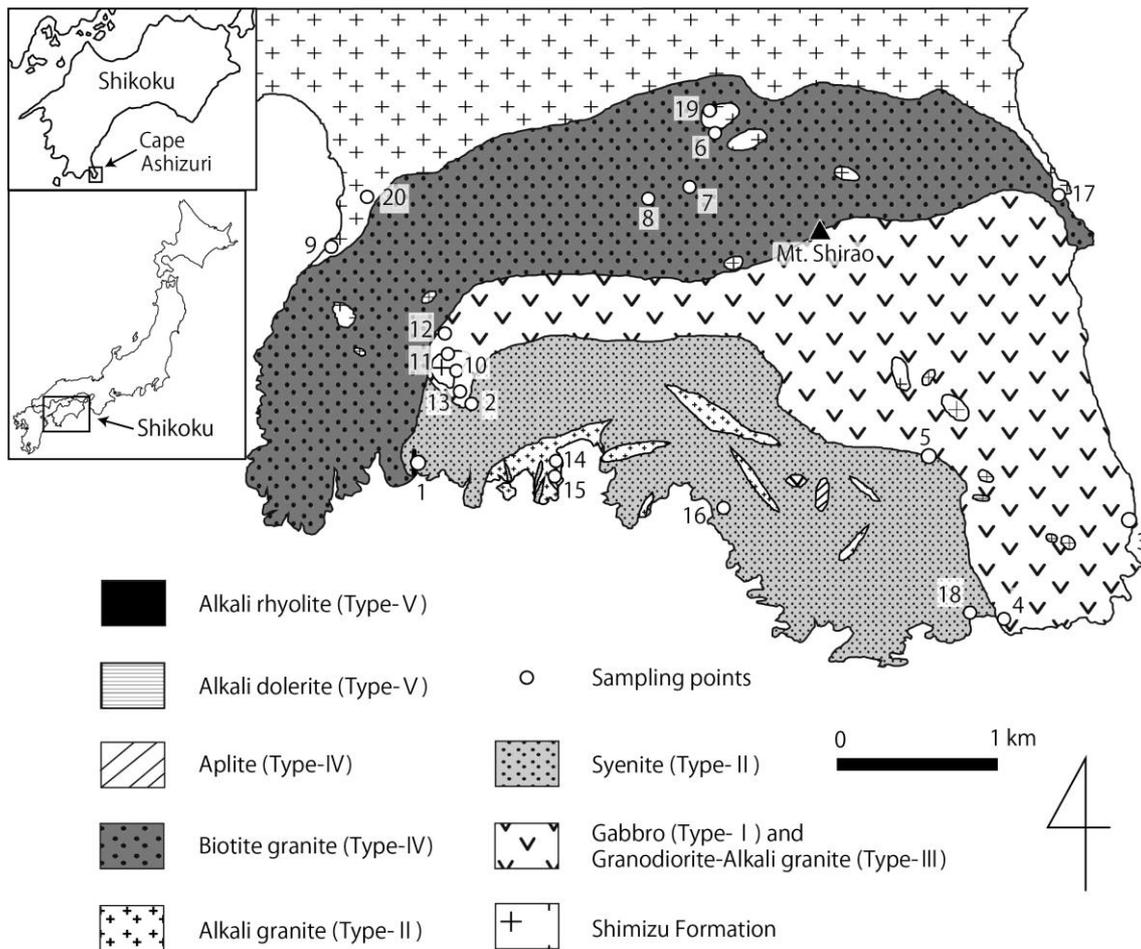


図 3-1 足摺岬の地質図 (Ishihara and Hoshino (2013) の地質図を編集) . 数字は試料番号を示している.

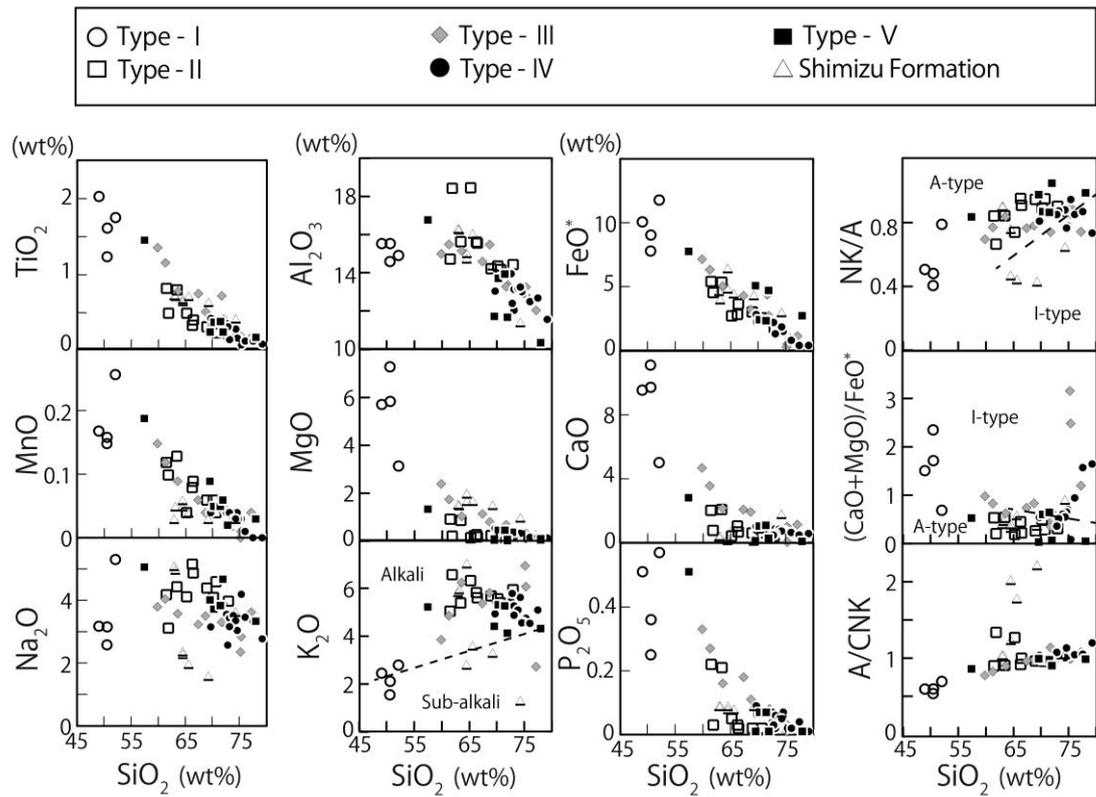


図3-2 足摺岬複合火成岩類の主成分元素のハーカー図. A/CNK, NK/A は mol 比, (CaO + MgO) /FeO*は wt%比を示している. 図中のアルカリ岩系, 非アルカリ岩系の境界線は Peccerillo and Taylor (1976), A, I タイプの境界線は高橋 (1985) に基づいている.

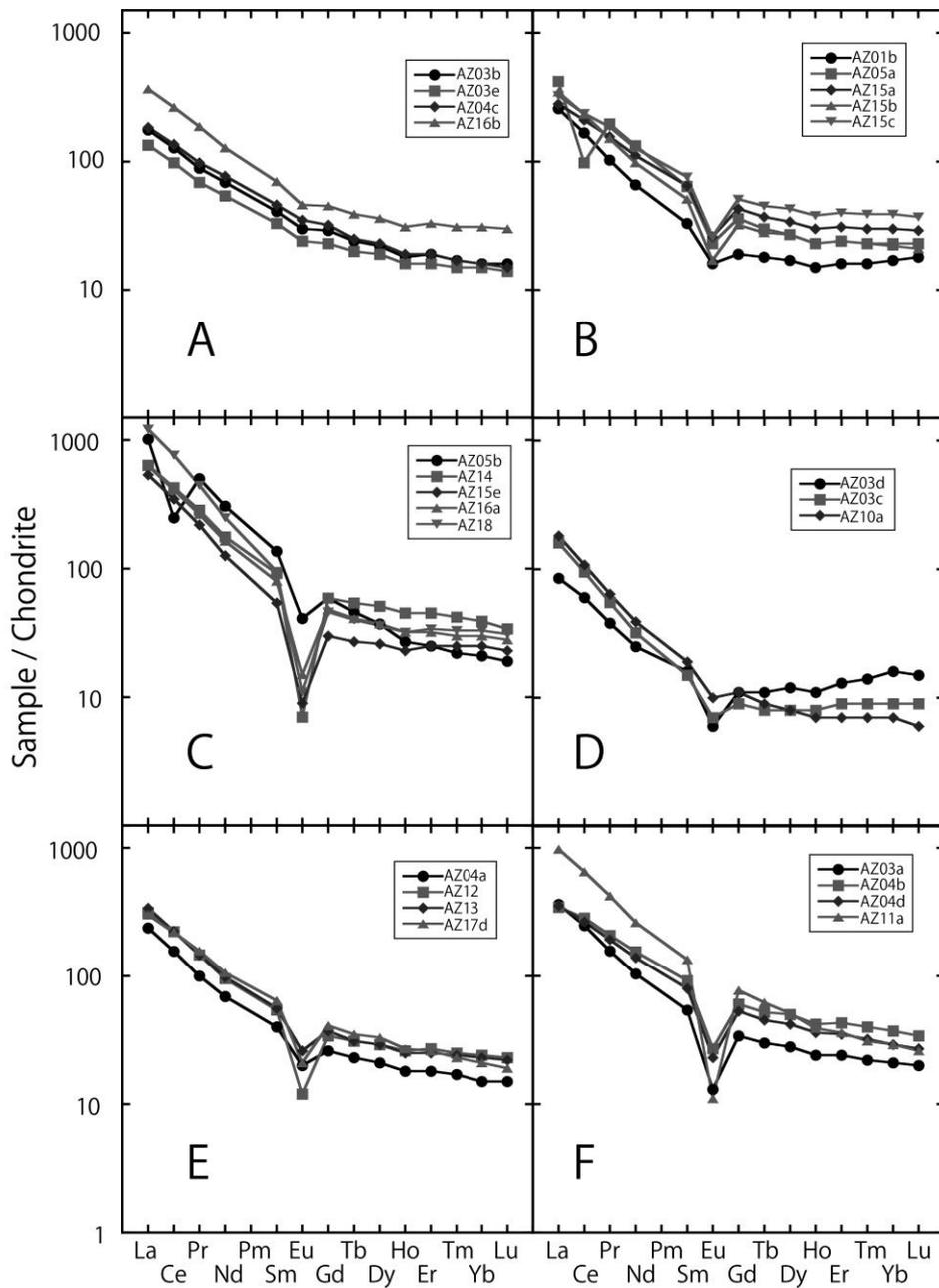


図 3-3 足摺岬複合火成岩類の希土類元素(REE)パターン図. Anders and Grevesse (1989), Shinotsuka et al. (1995) の CI コンドライトのデータによって規格化している. (A) 第 I 期, (B, C) 第 II 期, (D-F) 第 III 期, (G-I) 第 IV 期, (J) 第 V 期, (K, L) 清水層群.

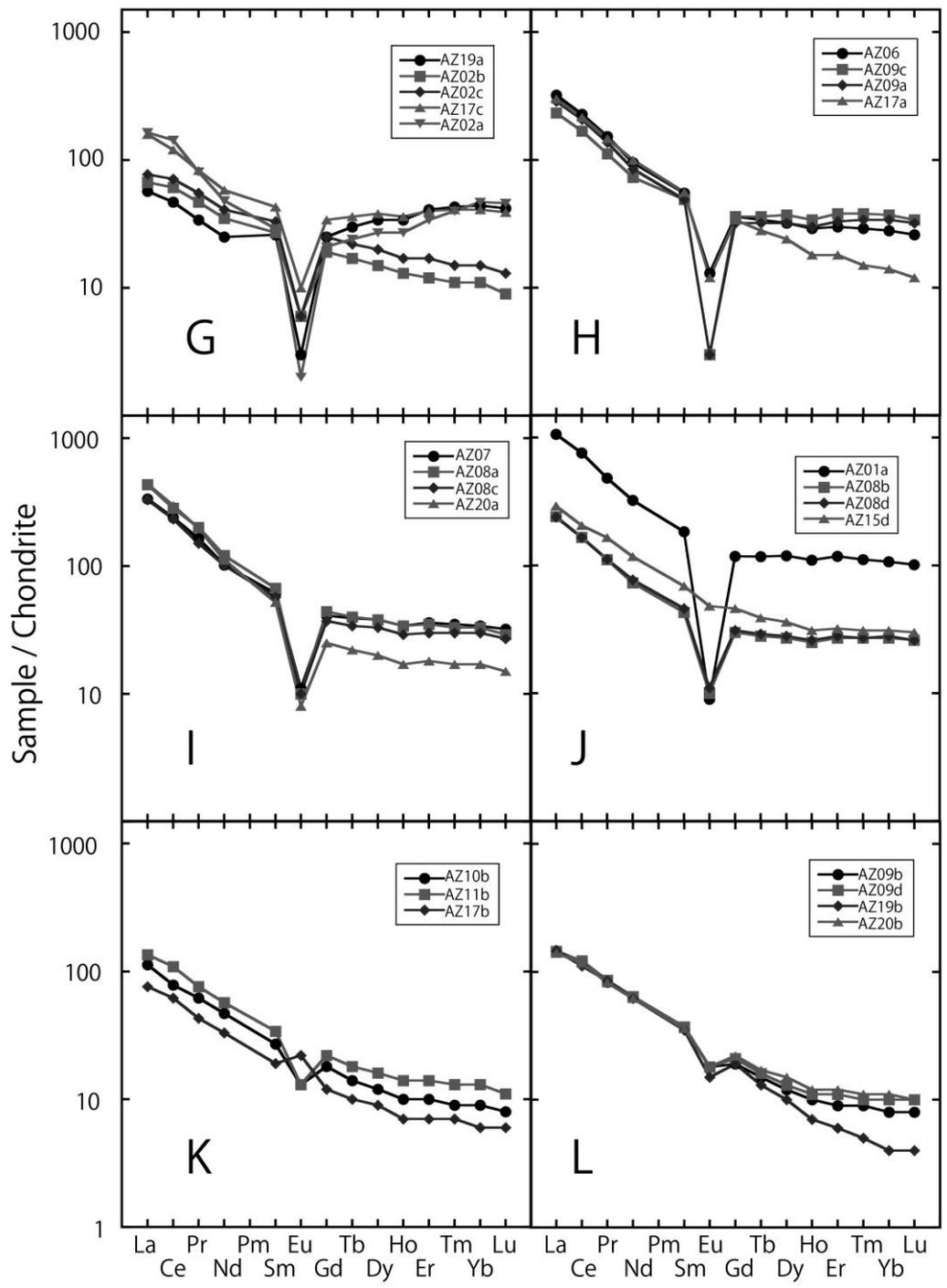


図 3-3 (続き)

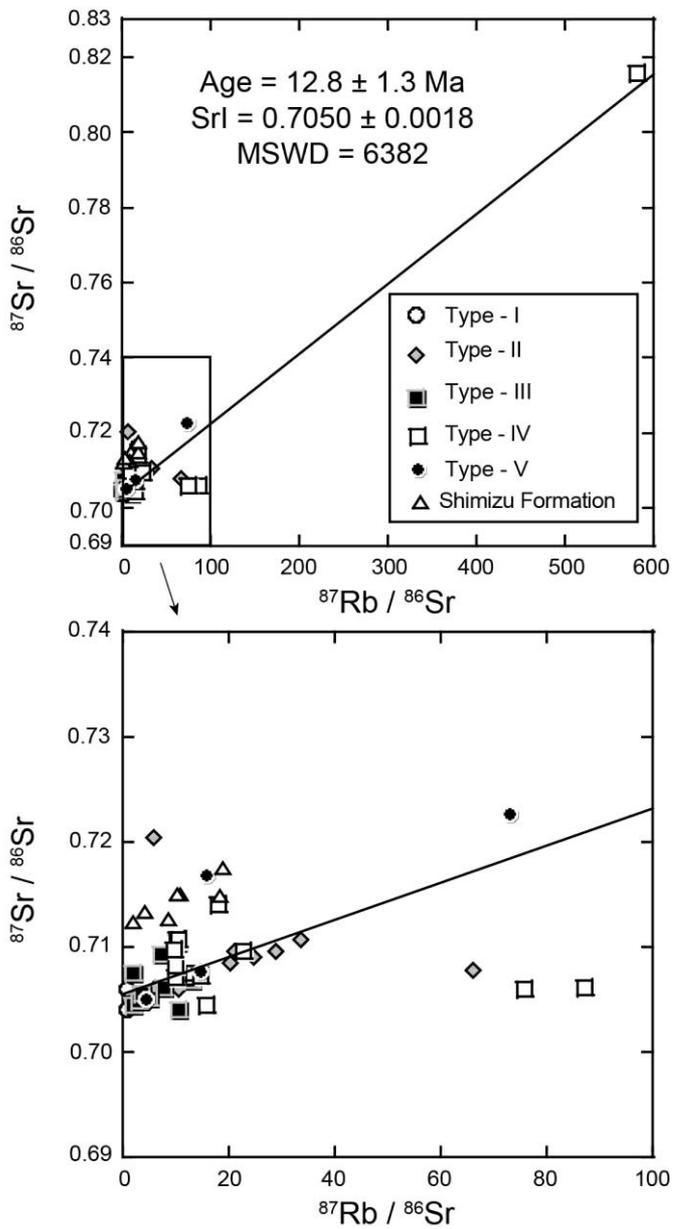


図 3-4 足摺岬複合火成岩類の全岩試料の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ vs $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図.

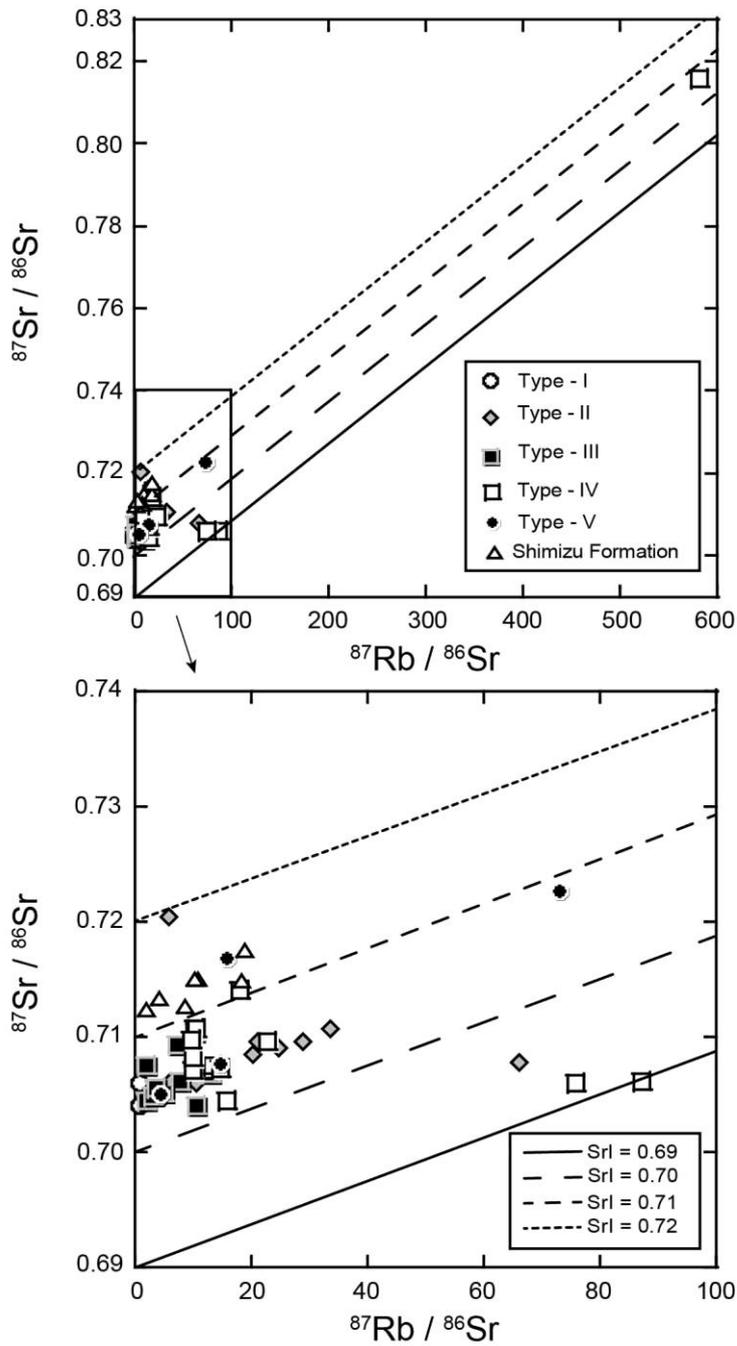


図 3-5 足摺岬複合火成岩類の全岩試料の $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ vs $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 図 (仮想アイソクロンを追加したもの) . SrI をそれぞれ 0.69, 0.70, 0.71, 0.72 と仮定した時のアイソクロンを引いた. また、これらのアイソクロンは年代値を 13 Ma としている.

表 3-1 足摺岬複合火成岩類の主成分および微量成分元素組成

	Type-I				Type-II									
	Gb	Gb	Gb	D	Sy	Sy	Sy	Sy	A-Gr	Sy	A-Gr	Sy	Sy	Sy
	AZ 03b	AZ 03e	AZ 04c	AZ 16b	AZ 01b	AZ 05a	AZ 05b	AZ 14	AZ 15a	AZ 15b	AZ 15c	AZ 15e	AZ 16a	AZ 18
(wt%)														
SiO ₂	50.6	50.5	49.0	52.1	66.4	61.8	65.2	70.6	61.5	70.2	63.4	72.9	66.3	68.9
TiO ₂	1.60	1.22	2.02	1.74	0.38	0.47	0.47	0.21	0.80	0.33	0.78	0.19	0.31	0.29
Al ₂ O ₃	15.5	14.6	15.5	14.9	15.6	18.4	18.4	14.2	14.7	14.3	15.6	14.4	15.6	14.2
FeO*	9.04	7.79	10.1	11.8	3.64	4.54	2.71	2.55	5.40	2.43	5.35	1.77	2.83	3.02
MnO	0.16	0.15	0.17	0.26	0.09	0.10	0.04	0.04	0.12	0.06	0.13	0.02	0.08	0.06
MgO	5.82	7.27	5.69	3.11	0.14	0.17	0.10	0.11	0.88	0.29	0.83	0.14	0.23	0.19
CaO	9.73	11.1	9.55	5.02	0.67	0.77	0.42	0.62	2.03	0.93	2.08	0.41	1.05	0.61
Na ₂ O	3.16	2.59	3.18	5.31	4.88	3.12	4.12	4.60	4.19	4.10	4.44	3.98	5.16	4.40
K ₂ O	2.11	1.54	2.45	2.79	5.61	6.58	6.33	5.40	5.05	5.57	5.39	5.95	5.83	5.69
P ₂ O ₅	0.36	0.25	0.51	0.57	0.02	0.03	0.05	0.02	0.22	0.07	0.21	0.03	0.03	0.02
LOI	0.63	1.19	0.96	0.85	0.97	2.62	2.01	0.56	1.14	0.41	0.35	0.53	0.33	0.30
total	98.7	98.2	99.1	98.4	98.4	98.7	99.9	98.9	96.0	98.7	98.6	100.4	97.7	97.7
(ppm)														
V	231	218	245	91.3	1.7	0.8	n.d.	9.1	32.7	16.4	30.7	15.2	8.2	10.6
Cr	18.2	59.1	19.7	25.0	n.d.	0.2	n.d.	n.d.	1.8	n.d.	2.6	n.d.	n.d.	n.d.
Co	52.3	39.7	60.6	131	14.4	19.5	9.0	9.8	28.4	8.4	26.0	6.4	10.1	11.6
Ni	35.6	64.4	32.6	16.3	2.0	2.2	3.3	4.4	4.6	4.2	3.3	4.8	3.4	3.3
Cu	56.8	90.7	56.1	n.d.	0.3	n.d.	0.1	0.7	1.3	n.d.	1.1	n.d.	n.d.	n.d.
Zn	70.2	70.0	84.3	212	69.1	59.8	37.7	50.8	86.1	42.9	81.5	24.6	59.7	45.5
Rb	114	94	121	422	272	277	245	297	287	255	270	289	261	266
Sr	389	357	425	207	26.6	32.0	34.7	17.1	123	69.9	122.0	40.2	72.3	37.3
Y	23.2	21.9	23.1	40.2	27.0	32.4	36.0	64.1	45.7	39.3	52.5	37.8	47.7	52.6
Zr	145	114	201	218	171	461	378	517	494	469	484	378	530	820
Nb	41.2	29.6	51.1	102	90.8	121	95.9	119	88.2	73.9	110	56.1	149	93.7
Ba	657	487	804	1136	421	418	546	314	932	533	960	486	707	455
Pb	5.5	9.9	5.5	11.7	11.1	4.8	5.5	9.0	5.8	8.4	10.4	5.0	11.1	3.5
Th	7.5	7.9	1.7	4.2	25.4	32.6	30.2	44.8	26.4	33.8	27.5	48.1	61.6	99.6

FeO*, 全鉄を FeO で表している. n.d., 検出限界.

Gb, 斑れい岩; D, ドレライト; Sy, 閃長岩; A-Gr, アルカリ花崗岩; Gd, 花崗閃緑岩; B-Gr, 黒雲花崗岩; Ry, 流紋岩; A-D, アルカリドレライト; S, 堆積岩.

表 3-1 (続き 1)

	Type-III										Type-IV			
	A-Gr	A-Gr	A-Gr	Gd	Gd	Gd	A-Gr	A-Gr	A-Gr	Gd	Gd	B-Gr	B-Gr	B-Gr
	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ
	03a	03c	03d	04a	04b	04d	10a	11a	12	13	17d	02a	02b	02c
(wt%)														
SiO ₂	72.0	75.3	75.2	68.7	61.3	63.6	77.1	71.7	72.0	59.8	67.4	75.3	74.8	74.5
TiO ₂	0.39	0.16	0.05	0.49	1.14	0.76	0.15	0.70	0.36	1.34	0.73	0.05	0.14	0.14
Al ₂ O ₃	13.4	13.2	12.7	15.5	15.5	15.2	12.0	13.3	14.1	15.0	14.6	12.8	12.9	13.0
FeO*	2.66	0.51	0.25	3.20	6.32	5.04	1.13	4.37	2.72	7.15	4.28	1.14	1.39	1.50
MnO	0.04	0.01	n.d.	0.04	0.12	0.09	0.04	0.05	0.05	0.15	0.06	0.03	0.03	0.04
MgO	0.50	0.28	0.14	0.76	1.71	1.00	0.21	0.64	0.39	2.36	1.10	0.05	0.23	0.23
CaO	1.17	1.00	0.66	1.92	3.56	2.17	1.14	0.92	0.95	4.68	2.07	0.04	0.75	0.75
Na ₂ O	3.31	2.85	2.36	3.51	4.05	3.58	3.63	3.31	3.90	3.80	3.24	4.20	3.08	3.05
K ₂ O	5.40	6.08	6.95	5.82	4.86	6.25	2.72	4.04	5.38	3.85	5.37	4.75	4.59	4.56
P ₂ O ₅	0.08	0.03	0.01	0.11	0.27	0.16	0.02	0.07	0.07	0.33	0.18	0.02	0.07	0.07
LOI	1.36	0.33	0.47	0.43	0.23	0.66	0.68	0.67	0.50	1.06	0.13	0.23	0.93	0.80
total	100.3	99.8	98.7	100.4	99.0	98.4	98.9	99.7	100.4	99.5	99.1	98.6	98.9	98.7
(ppm)														
V	30.6	21.7	15.3	40.1	98.2	44.4	13.5	18.0	24.6	138	56.6	17.0	16.5	15.4
Cr	0.1	1.0	2.2	2.0	n.d.	n.d.	1.3	n.d.	1.5	9.3	7.5	0.5	3.3	5.6
Co	9.3	2.5	2.7	11.1	27.8	19.3	3.2	20.3	10.0	37.4	16.6	10.7	4.6	4.7
Ni	5.1	5.3	5.5	5.2	4.3	4.1	6.5	5.7	4.0	7.0	6.1	6.3	5.1	6.4
Cu	0.7	0.3	5.2	6.8	7.5	4.4	1.3	n.d.	n.d.	4.9	12.4	0.0	0.6	1.0
Zn	30.4	15.5	3.9	34.4	60.9	56.5	21.1	90.5	38.8	66.3	46.5	23.0	28.8	31.6
Rb	234	196	314	197	151	179	127	269	270	183	197	956	205	205
Sr	78.7	115.6	83.5	146	198	147	50.5	64.3	58.8	237	137	8.4	54.9	54.5
Y	38.5	19.6	24.3	27.6	48.8	41.5	28.0	92.1	41.9	34.3	37.8	75.4	37.7	39.1
Zr	248	130	43.2	308	368	451	213	708	280	211	330	153	100	102
Nb	40.4	12.4	12.6	33.1	95.8	81.1	44.9	177.9	65.3	69.4	45.4	130	2.3	2.1
Ba	542	484	389	724	842	836	236	466	490	798	855	94	357	365
Pb	6.0	6.4	8.2	7.5	11.2	12.4	10.9	10.0	8.2	7.4	11.1	5.7	26.0	25.5
Th	22.4	47.5	17.6	20.9	11.8	18.5	86.9	122.7	34.9	24.8	8.8	48.9	8.1	10.2

表 3-1 (続き 2)

	Type-IV										Type-V			
	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	Ry	Ry	Ry	A-D
	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ
	06	07	08a	08c	09a	09c	17a	17c	19a	20a	01a	01c	01d	08b
(wt%)														
SiO ₂	72.6	73.1	73.9	74.3	73.1	76.0	69.7	77.4	79.2	72.8	78.0	71.9	69.5	70.3
TiO ₂	0.33	0.29	0.27	0.26	0.12	0.10	0.40	0.10	0.06	0.29	0.15	0.22	0.22	0.35
Al ₂ O ₃	13.9	13.1	13.2	13.2	12.0	12.5	13.0	12.7	11.6	12.4	10.3	11.7	11.7	13.7
FeO*	2.31	2.25	1.88	1.85	1.31	0.80	2.82	0.40	0.40	2.20	2.72	4.71	5.08	2.41
MnO	0.04	0.04	0.03	0.03	0.02	0.01	0.04	n.d.	0.00	0.02	0.03	0.06	0.09	0.05
MgO	0.42	0.37	0.30	0.29	0.12	0.12	0.50	0.15	0.09	0.33	0.06	0.03	0.05	0.42
CaO	0.95	0.87	0.85	0.73	0.56	0.64	1.03	0.48	0.57	0.47	0.08	0.28	0.12	1.04
Na ₂ O	3.56	3.44	3.52	3.36	3.17	3.47	3.16	3.33	2.78	2.58	3.34	4.68	4.02	3.73
K ₂ O	5.47	5.27	5.10	5.63	4.88	4.54	4.94	5.10	3.61	5.79	4.32	4.13	4.42	5.32
P ₂ O ₅	0.07	0.06	0.05	0.05	0.02	0.02	0.09	0.04	0.01	0.03	0.01	0.01	0.01	0.07
LOI	0.21	0.28	0.21	0.45	0.58	0.39	0.73	0.50	0.79	0.64	1.39	0.18	1.09	0.77
total	99.9	99.1	99.3	100.2	95.9	98.6	96.4	100.2	99.0	97.5	100.4	97.9	96.3	98.1
(ppm)														
V	25.5	21.0	18.6	20.2	13.8	14.5	29.1	14.6	13.9	18.2	8.9	7.7	5.3	28.1
Cr	0.3	0.0	n.d.	3.1	n.d.	n.d.	3.6	0.7	2.4	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	1.7
Co	8.1	8.3	7.2	6.5	4.9	3.4	9.9	2.3	2.2	9.7	15.2	30.5	46.6	10.5
Ni	4.8	5.1	5.7	5.0	5.3	5.3	6.0	6.0	15.7	5.3	6.0	2.7	2.8	4.8
Cu	0.5	0.0	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	8.4	3.1	1.1	n.d.	n.d.	n.d.	0.4
Zn	102.6	39.0	37.6	29.8	20.1	19.9	37.4	12.3	23.6	30.5	176	294	201.8	57.8
Rb	250	273	281	287	281	253	238	184	160	337	461	469	680	357
Sr	70.5	52.8	49.6	52.4	7.8	14.5	63.3	36.4	16.6	38.8	10.6	17.4	15.9	61.3
Y	45.0	50.2	58.0	47.0	56.5	62.3	42.6	57.7	69.5	31.1	143	144	138.8	47.2
Zr	248	224	200	190	185	145	302	123	141	222	1611	1296	1907	254
Nb	42.6	45.2	39.7	38.3	48.7	48.3	49.4	47.0	55.1	38.6	519	447	517.1	46.3
Ba	572	478	448	446	150	132	561	444	83	448	86	162	n.d.	461
Pb	9.2	10.3	8.7	8.3	11.3	15.5	10.2	5.1	14.4	5.6	53.3	10.1	28.0	10.9
Th	24.8	30.9	36.0	39.0	58.4	49.5	28.9	25.6	44.1	40.7	73.3	91.3	112.1	38.9

表 3-1 (続き 3)

	Type-V		Shimizu Formation						
	A-D	A-D	S	S	S	S	S	S	S
	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ
	08d	15d	09b	09d	10b	11b	17b	19b	20b
(wt%)									
SiO ₂	71.4	57.4	63.1	62.9	69.2	64.5	74.3	64.5	65.6
TiO ₂	0.36	1.44	0.70	0.71	0.62	0.66	0.40	0.63	0.70
Al ₂ O ₃	13.9	16.8	16.3	16.3	14.4	14.7	11.4	15.0	16.1
FeO*	2.33	7.76	4.01	4.67	4.34	6.45	3.01	4.86	4.47
MnO	0.05	0.19	0.05	0.03	0.03	0.06	0.03	0.05	0.04
MgO	0.42	1.30	1.47	1.50	1.48	1.96	0.95	1.65	1.65
CaO	1.09	2.82	0.43	0.40	0.14	0.17	1.80	0.32	0.99
Na ₂ O	3.84	5.07	4.98	5.10	1.60	2.38	3.64	2.30	1.98
K ₂ O	5.27	5.23	5.97	5.85	3.31	2.81	1.30	7.06	3.61
P ₂ O ₅	0.07	0.51	0.09	0.09	0.09	0.08	0.07	0.09	0.08
LOI	0.85	0.63	0.20	0.13	2.30	2.45	0.34	0.95	2.62
total	99.7	99.1	97.3	97.7	97.5	96.3	97.2	97.4	97.8
(ppm)									
V	26.7	24.7	96.1	97.1	93.7	119.6	60.2	97.4	109.6
Cr	2.6	n.d.	80.5	84.8	70.9	83.2	45.6	71.1	84.0
Co	10.0	52.1	24.5	29.1	16.4	28.8	8.8	38.8	18.5
Ni	5.8	n.d.	30.6	33.6	23.1	40.4	16.6	27.3	29.9
Cu	1.4	1.0	3.1	1.6	18.3	18.8	31.7	11.9	19.6
Zn	65.7	124	70.3	72.9	26.4	49.9	67.8	113.4	45.5
Rb	336	339	410	377	161	154	124	556	154
Sr	62.4	199	104	100	26.3	46.4	157.9	78.6	97.7
Y	45.8	39.6	27.6	26.3	25.2	25.6	23.3	25.2	26.5
Zr	254	264	166	168	177	164	262	166	175
Nb	48.6	90.5	5.1	5.8	5.5	6.6	2.7	5.0	6.8
Ba	409	2615	533	509	590	471	259	538	546
Pb	7.9	14.3	32.5	43.5	6.0	6.5	10.1	29.4	17.3
Th	37.8	11.2	9.0	7.7	7.4	11.2	4.9	8.9	10.1

表 3-2 足摺岬複合火成岩類の希土類元素 (REE) 組成

	Type-I				Type-II										
	Gb	Gb	Gb	D	Sy	Sy	Sy	Sy	A-Gr	Sy	A-Gr	Sy	Sy	Sy	
	AZ 03b	AZ 03e	AZ 04c	AZ 16b	AZ 01b	AZ 05a	AZ 05b	AZ 14	AZ 15a	AZ 15b	AZ 15c	AZ 15e	AZ 16a	AZ 18	
(ppm)															
Y	27.7	23.5	29.1	49.5	21.9	35.3	39.3	61.6	46.4	33.9	57.9	33.6	45.5	46.7	
La	41.6	31.4	43.5	86.0	60.5	98.7	238	149	65.9	81.3	76.7	126	148	286	
Ce	77.2	59.0	82.3	159	101	59.3	150	258	127	141	143	209	246	461	
Pr	7.93	6.11	8.72	16.6	9.22	17.5	44.6	25.4	13.9	13.5	16.5	19.5	23.6	39.6	
Nd	31.2	24.4	34.7	57.7	29.8	60.0	138	80.3	50.6	44.3	57.7	57.0	73.9	113	
Sm	6.08	4.92	6.73	10.3	4.79	9.42	20.0	13.5	9.62	7.50	11.2	7.89	11.8	14.0	
Eu	1.67	1.34	1.97	2.57	0.91	1.28	2.29	0.41	1.41	0.94	1.42	0.50	0.80	0.61	
Gd	5.62	4.59	6.28	8.94	3.83	7.13	11.6	11.5	8.53	6.27	10.1	5.93	9.41	9.13	
Tb	0.85	0.72	0.91	1.41	0.64	1.07	1.67	1.95	1.35	1.03	1.63	0.97	1.48	1.46	
Dy	5.27	4.54	5.55	8.66	4.13	6.52	8.87	12.4	8.34	6.44	10.5	6.20	8.91	8.85	
Ho	1.03	0.88	1.06	1.74	0.83	1.28	1.49	2.48	1.66	1.28	2.12	1.26	1.75	1.77	
Er	2.95	2.61	3.02	5.25	2.56	3.75	3.90	7.20	4.94	3.81	6.34	3.91	5.02	5.42	
Tm	0.41	0.37	0.41	0.75	0.39	0.55	0.53	1.01	0.72	0.56	0.94	0.60	0.72	0.81	
Yb	2.63	2.48	2.64	5.02	2.80	3.69	3.41	6.39	4.90	3.63	6.35	4.03	4.79	5.36	
Lu	0.38	0.34	0.38	0.73	0.43	0.55	0.46	0.83	0.70	0.51	0.89	0.55	0.69	0.76	
La _N /Sm _N	4.30	4.00	4.05	5.25	7.92	6.57	7.46	6.94	4.29	6.80	4.30	10.0	7.87	12.8	
Gd _N /Yb _N	1.77	1.53	1.97	1.47	1.13	1.60	2.82	1.49	1.44	1.43	1.31	1.21	1.62	1.41	
La _N /Yb _N	11.0	8.76	11.4	11.9	15.0	18.5	48.4	16.2	9.31	15.5	8.36	21.7	21.3	36.9	
Eu/Eu*	0.85	0.84	0.91	0.80	0.62	0.46	0.42	0.10	0.47	0.41	0.41	0.22	0.23	0.15	
ΣREE	213	167	227	415	244	306	665	632	346	346	403	477	582	995	

N, Anders and Grevesse (1989), Shinotsuka et al. (1995) の CI コンドライトの組成で規格化した値.

Eu* = (Sm × Gd) ^{1/2} .

Gb, 斑れい岩; D, ドレライト; Sy, 閃長岩; A-Gr, アルカリ花崗岩; Gd, 花崗閃緑岩; B-Gr, 黒雲花崗岩; Ry, 流紋岩; A-D, アルカリドレライト; S, 堆積岩.

表 3-2 (続き 1)

	Type-III											Type-IV		
	A-Gr	A-Gr	A-Gr	Gd	Gd	Gd	A-Gr	A-Gr	A-Gr	Gd	Gd	B-Gr	B-Gr	B-Gr
	AZ 03a	AZ 03c	AZ 03d	AZ 04a	AZ 04b	AZ 04d	AZ 10a	AZ 11a	AZ 12	AZ 13	AZ 17d	AZ 02a	AZ 02b	AZ 02c
(ppm)														
Y	36.1	11.6	18.4	25.3	63.6	49.8	9.94	57.8	38.9	37.6	39.1	55.5	17.7	24.8
La	85.5	37.5	19.9	55.8	80.8	83.3	42.7	230	73.7	79.6	70.7	36.3	15.6	18.0
Ce	149	57.4	36.0	93.9	172	161	65.2	393	134	135	133	82.7	36.6	42.8
Pr	14.0	4.86	3.35	8.95	18.6	17.2	5.68	37.6	13.1	13.1	14.0	7.14	4.15	4.87
Nd	47.0	14.4	11.4	31.4	70.3	62.9	17.8	119	42.9	44.2	47.8	21.3	15.7	18.7
Sm	7.99	2.20	2.38	5.81	13.5	11.8	2.85	19.7	7.99	8.17	9.35	4.23	4.00	4.91
Eu	0.70	0.41	0.31	1.11	1.53	1.28	0.56	0.60	0.64	1.44	1.15	0.11	0.32	0.34
Gd	6.61	1.79	2.20	5.19	11.8	10.3	2.19	15.13	6.78	7.25	8.09	4.12	3.66	4.83
Tb	1.08	0.30	0.41	0.83	1.90	1.64	0.33	2.25	1.14	1.14	1.28	0.86	0.63	0.80
Dy	6.79	1.95	2.91	5.20	12.1	10.2	1.97	12.4	7.16	6.98	7.89	6.55	3.65	4.92
Ho	1.32	0.42	0.63	1.01	2.34	1.99	0.37	2.17	1.43	1.39	1.49	1.54	0.70	0.95
Er	3.81	1.36	2.11	2.92	6.91	5.61	1.10	5.76	4.22	4.00	4.14	5.65	1.93	2.73
Tm	0.53	0.21	0.35	0.40	0.96	0.77	0.16	0.76	0.61	0.57	0.55	1.02	0.28	0.37
Yb	3.46	1.52	2.56	2.50	6.07	4.72	1.10	4.66	3.94	3.69	3.37	8.07	1.74	2.41
Lu	0.48	0.22	0.36	0.35	0.84	0.66	0.15	0.62	0.56	0.52	0.46	1.24	0.23	0.31
La _N /Sm _N	6.71	10.7	5.22	6.02	3.76	4.44	9.40	7.30	5.78	6.10	4.74	5.38	2.45	2.29
Gd _N /Yb _N	1.58	0.97	0.71	1.72	1.61	1.81	1.64	2.68	1.42	1.62	1.98	0.42	1.74	1.66
La _N /Yb _N	17.1	17.0	5.38	15.4	9.22	12.2	26.8	34.1	13.0	14.9	14.5	3.11	6.21	5.17
Eu/Eu*	0.29	0.62	0.41	0.62	0.36	0.35	0.66	0.10	0.27	0.57	0.40	0.08	0.26	0.21
ΣREE	365	136	103	241	463	423	152	901	338	344	342	236	107	132

表 3-2 (続き 2)

	Type-IV										Type-V			
	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	B-Gr	Ry	Ry	Ry	A-D
	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ	AZ
	06	07	08a	08c	09a	09c	17a	17c	19a	20a	01a	08b	08d	15d
(ppm)														
Y	42.1	51.4	54.4	45.0	43.9	50.4	27.7	49.0	47.9	24.1	132	40.5	40.9	46.4
La	75.5	78.6	102	77.1	67.6	54.7	70.4	37.4	13.4	103	249	56.7	56.0	68.2
Ce	138	144	171	140	125	101	130	72.5	28.1	180	458	100	100	124
Pr	13.7	14.6	17.9	13.4	12.2	10.0	13.1	7.44	2.99	17.5	43.0	9.86	10.0	14.7
Nd	43.1	46.0	54.7	45.5	38.6	33.0	45.2	26.3	11.1	50.5	146	32.8	35.0	53.1
Sm	8.11	9.02	9.82	8.31	7.15	7.22	8.24	6.29	3.79	7.61	27.1	6.37	6.72	10.1
Eu	0.70	0.59	0.57	0.57	0.16	0.15	0.69	0.53	0.19	0.45	0.49	0.57	0.59	2.60
Gd	7.13	8.14	8.65	7.18	6.32	7.02	6.78	6.65	4.93	4.98	23.1	5.91	6.16	9.12
Tb	1.23	1.40	1.46	1.23	1.15	1.31	1.01	1.30	1.08	0.80	4.24	1.00	1.05	1.42
Dy	7.87	9.17	9.23	7.93	7.75	8.96	5.75	9.28	8.33	4.86	29.0	6.57	6.90	8.72
Ho	1.59	1.87	1.87	1.60	1.67	1.90	1.03	1.98	1.89	0.94	6.10	1.38	1.44	1.73
Er	4.70	5.66	5.53	4.82	5.30	6.02	2.83	6.36	6.48	2.81	18.8	4.23	4.39	5.09
Tm	0.69	0.84	0.81	0.72	0.82	0.92	0.37	0.98	1.03	0.42	2.67	0.65	0.66	0.74
Yb	4.55	5.51	5.30	4.80	5.50	6.08	2.28	6.69	7.09	2.69	17.4	4.34	4.49	5.10
Lu	0.63	0.78	0.72	0.66	0.78	0.83	0.30	0.94	1.02	0.37	2.46	0.64	0.63	0.72
La _N /Sm _N	5.83	5.46	6.51	5.82	5.93	4.75	5.36	3.73	2.22	8.46	5.77	5.57	5.22	4.22
Gd _N /Yb _N	1.30	1.22	1.35	1.24	0.95	0.95	2.46	0.82	0.57	1.53	1.10	1.13	1.14	1.48
La _N /Yb _N	11.5	9.88	13.3	11.1	8.52	6.23	21.4	3.88	1.31	26.5	9.92	9.04	8.64	9.27
Eu/Eu*	0.28	0.21	0.19	0.22	0.07	0.06	0.27	0.25	0.14	0.21	0.06	0.29	0.28	0.83
ΣREE	349	378	444	359	324	290	315	234	139	401	1160	272	275	352

表 3-2 (続き 3)

	Shimizu Formation						
	S	S	S	S	S	S	S
	AZ 09b	AZ 09d	AZ 10b	AZ 11b	AZ 17b	AZ 19b	AZ 20b
(ppm)							
Y	14.9	14.8	14.3	19.1	10.7	8.59	17.1
La	34.4	34.1	26.5	31.6	17.7	34.5	32.9
Ce	73.0	73.4	46.9	65.7	37.4	67.0	70.7
Pr	7.42	7.63	5.55	6.74	3.84	7.53	7.32
Nd	28.5	29.1	21.2	25.8	14.7	28.1	27.9
Sm	5.38	5.51	4.00	4.99	2.84	5.11	5.34
Eu	0.99	1.00	0.73	0.69	1.22	0.82	1.01
Gd	3.83	4.08	3.49	4.25	2.44	3.68	4.25
Tb	0.53	0.57	0.50	0.64	0.36	0.49	0.60
Dy	2.99	3.16	2.97	3.89	2.13	2.42	3.56
Ho	0.54	0.60	0.57	0.76	0.41	0.40	0.68
Er	1.50	1.72	1.61	2.23	1.16	0.92	1.94
Tm	0.21	0.24	0.22	0.32	0.16	0.12	0.26
Yb	1.37	1.57	1.49	2.08	1.05	0.67	1.72
Lu	0.19	0.23	0.19	0.28	0.14	0.09	0.23
La _N /Sm _N	4.01	3.88	4.15	3.97	3.91	4.23	3.86
Gd _N /Yb _N	2.30	2.15	1.93	1.69	1.93	4.52	2.04
La _N /Yb _N	17.3	15.1	12.3	10.5	11.7	35.5	13.2
Eu/Eu*	0.63	0.62	0.59	0.45	1.37	0.56	0.63
ΣREE	176	178	130	169	96.3	160	176

表 3-3 足摺岬複合火成岩類の全岩試料の Rb, Sr データ

Type	Rock type	Sample	Rb (ppm)*	Sr (ppm)*	⁸⁷ Rb/ ⁸⁶ Sr	⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	(2σ)	SrI (13 Ma)
Type I	Gb	AZ03b	108	407	0.76	0.704042	(2)	0.7039
	Gb	AZ03e	92.9	358	0.75	0.706041	(2)	0.7059
	Gb	AZ04c	110	439	0.72	0.704004	(2)	0.7039
	D	AZ16b	313	203	4.53	0.704795	(2)	0.7040
Type II	Sy	AZ01b	247	21.3	33.8	0.710724	(2)	0.7045
	Sy	AZ05a	247	24.6	29.0	0.709583	(2)	0.7042
	Sy	AZ05b	239	28.0	24.7	0.709033	(3)	0.7045
	Sy	AZ14	260	11.5	66.2	0.707785	(3)	0.6956
	A-Gr	AZ15a	239	114	6.13	0.706092	(2)	0.7050
	Sy	AZ15b	237	66.1	10.5	0.706777	(2)	0.7048
	A-Gr	AZ15c	231	113	5.97	0.720487	(2)	0.7194
	Sy	AZ15e	266	37.0	21.0	0.709594	(3)	0.7057
	Sy	AZ16a	233	64.8	10.6	0.706027	(4)	0.7041
	Sy	AZ18	247	33.3	20.4	0.708447	(4)	0.7047
Type III	A-Gr	AZ03a	220	80.7	7.91	0.706162	(2)	0.7047
	A-Gr	AZ03c	197	112	5.11	0.705083	(2)	0.7041
	A-Gr	AZ03d	346	93.2	10.7	0.704056	(2)	0.7021
	Gd	AZ04a	183	144	3.70	0.705322	(2)	0.7046
	Gd	AZ04b	137	206	1.92	0.704411	(2)	0.7041
	Gd	AZ04d	156	143	3.17	0.704808	(2)	0.7042
	A-Gr	AZ10a	123	49.6	7.13	0.709294	(19)	0.7080
	A-Gr	AZ11a	234	66.6	10.2	0.710438	(5)	0.7086
	A-Gr	AZ12	250	55.5	13.0	0.706873	(2)	0.7045
	Gd	AZ13	159	234	1.96	0.707448	(3)	0.7071
Gd	AZ17d	178	136	3.60	0.705501	(2)	0.7048	
Type IV	B-Gr	AZ02a	819	4.1	586	0.815631	(3)	0.7081
	B-Gr	AZ02b	181	50.5	10.4	0.710709	(2)	0.7088
	B-Gr	AZ02c	183	50.7	10.5	0.710652	(2)	0.7087
	B-Gr	AZ06	229	66.3	9.97	0.707101	(2)	0.7053
	B-Gr	AZ07	249	53.9	13.3	0.707442	(2)	0.7050
	B-Gr	AZ08a	261	48.0	15.7	0.704430	(2)	0.7015
	B-Gr	AZ08c	279	54.0	14.8	0.707218	(12)	0.7045
	B-Gr	AZ09a	263	8.7	87.2	0.706095	(4)	0.6900
	B-Gr	AZ09c	246	9.4	75.9	0.706039	(3)	0.6920
	B-Gr	AZ17a	211	61.4	10.0	0.708135	(2)	0.7063
	B-Gr	AZ17c	186	52.2	9.83	0.709764	(2)	0.7079
	B-Gr	AZ19a	162	24.7	18.0	0.714063	(3)	0.7107
	B-Gr	AZ20a	311	37.6	22.7	0.709592	(3)	0.7054
Type V	Ry	AZ01a	400	15.8	73.1	0.722600	(2)	0.7091
	A-D	AZ08b	321	58.5	15.8	0.716797	(2)	0.7139
	A-D	AZ08d	312	60.8	14.8	0.707659	(6)	0.7049
	A-D	AZ15d	277	187	4.33	0.704992	(2)	0.7042
Shimizu Formation	S	AZ11b	121	39.9	8.75	0.712666	(8)	

*、ICP-MS によるデータ。

Gb, 斑れい岩; D, ドレライト; Sy, 閃長岩; A-Gr, アルカリ花崗岩; Gd, 花崗閃緑岩; B-Gr, 黒雲花崗岩; Ry, 流紋岩; A-D, アルカリドレライト; S, 堆積岩。

誤差は下 1 桁 (または下 2 桁) を示している。

第4章 マグマプロセスに伴う Sr 安定同位体組成の変動

4.1 背景

天然において元素の同位体比は様々な要因で変動している。同位体比の変動には、時間経過で起こるものと物質循環に伴って起こるものがある。時間経過で起こる変動は、放射性同位体が放射壊変することによって生じる。物質循環に伴って起こる変動は、同位体間の質量差に起因する反応性の違い（同位体効果）によって生じ、同位体分別作用と呼ばれる。同位体分別により変動した安定同位体比は放射壊変と異なり時間経過には依存せず物質循環の痕跡として残るため、安定同位体比の変動を指標とすることで、自然界における現象や起源の推定を行うことができる。

元素の同位体比を質量分析計で測定すると、検出される同位体比は測定試料の真の値から系統的に変動した同位体比となる。この質量分析計内での同位体比の変動は質量差別効果と呼ばれ、質量分析計に試料が導入されてから検出されるまでの行程で起こる。重元素の同位体分別を研究する場合、質量差別効果による同位体比の変動の方が注目している同位体比の変動幅よりも大きくなる可能性がある。Sr を例に挙げると、質量差別効果は質量差 1 に対して 2 – 3% 程度と無視できないほど大きい (Ohno and Hirata, 2007)。そのため、測定に用いる質量分析計の分析精度とともに、質量差別効果を補正する手法が要求される。質量差別効果を補正する方法として、Dodson (1963) で提唱されたダブルスパイク法が挙げられる。本研究では Hamelin et al. (1985) の行列による解法を用いた。

一般的に安定同位体比の変動は微小であるため、同位体比は δ 表記で表され、同位体標準物質からの相対的な変動値を指標として議論が行われる。

$$\delta [\text{‰}] = \left(\frac{R_{\text{sample}}}{R_{\text{standard}}} - 1 \right) \times 1000 \quad (1)$$

ここで、 R_{sample} は試料の同位体比、 R_{standard} は標準物質の同位体比である。同位体分別の要因の一つである化学平衡反応における同位体効果は、同位体間の相対質量差に比例し反応温度の二乗に逆比例することが明らかになっている (Bigeleisen and Mayer, 1947)。重元素と比較して軽元素における同位体効果が大きいことから、安定同位体地球化学の分野では H、C、O などの軽元素が主な研究対象となってきた (例えば、Ishihara and Matsuhisa, 2004)。Ishihara and Matsuhisa (2004) は白亜紀火成岩類の $\delta^{18}\text{O}$ を報告しており、酸素同位体比が花崗岩類の起源推定において有益なトレーサーとして機能することを示した。最近の質量分析計の進歩により従来では検出できなかった重元素の安定同位体比の変動が測定できるようになってきた (例えば、Heimann et al., 2008; Tanimizu et al., 2011)。Heimann et al. (2008) は、 SiO_2 量が 70 wt% 以上の酸性岩において Fe の安定同位体比が有意に変動していることを指摘した。このことから、火成岩を形成するような高温環境下において重元素の同位体分別が起こることが示された。

重元素のうち Sr の安定同位体組成 ($\delta^{88}\text{Sr}[\text{‰}] = [({}^{88}\text{Sr}/{}^{86}\text{Sr})_{\text{sample}} / ({}^{88}\text{Sr}/{}^{86}\text{Sr})_{\text{SRM987}} - 1] \times 10^3$; SRM987 は Sr 同位体標準試料) に関する研究が地球化学的試料 (海水や岩石) を対象として行われた (例えば、Ohno and Hirata, 2007; Wakaki et al., 2013)。Wakaki et al. (2013) は SiO_2 量の少ない岩石 (玄武岩、安

山岩)では高い $\delta^{88}\text{Sr}$ 値を示し、 SiO_2 量の多い岩石(花崗岩、流紋岩)では低い $\delta^{88}\text{Sr}$ 値を示すことを報告した。しかしながら、これらの研究の Sr 安定同位体組成は異なる火成岩体から採取した試料についてのデータであるため、マグマが生成されてから固結するまでの一連のマグマプロセスに伴う同位体分別を説明することはできない。また木村(2010)は、単一花崗岩体における $\delta^{88}\text{Sr}$ 値の変動から、マグマの結晶分化の過程において同位体分別が起こることを指摘し、斜長石が Sr の同位体分別の要因である可能性についても言及している。しかし、木村(2010)が測定した試料の SiO_2 量の範囲は 74.7 – 77.5 wt%と狭く、結晶分化に伴う $\delta^{88}\text{Sr}$ の変化をとらえられているか疑問が残る。マグマプロセスに伴う Sr の同位体分別メカニズムをより詳細に理解するためには、 SiO_2 量の組成範囲が広く、単一の起源マグマから複雑な過程を経ずに進化することで形成された火成岩体についての研究が必要となる。この条件を満たす火成岩体として、福島県南西部に分布する只見川古期花崗岩類に着目した。只見川古期花崗岩類については、谷岡ほか(2014)において SiO_2 量は 59.6 – 76.1 wt%の範囲を示し、単一のマグマ起源である可能性が報告されている。以上のことから、只見川古期花崗岩類はマグマプロセスに伴う Sr の同位体分別メカニズムについて検討するモデル岩体として適していると考えられる。また Sr の同位体分別メカニズムについて深く理解するためには、マグマ混合などの複雑なマグマプロセスに伴う Sr 安定同位体組成の変動についても検討が必要である。複雑なマグマプロセスを経験している火成岩体として、高知県南西部に分布する足摺岬複合火成岩類に着目した。足摺岬複合火成岩類には只見川古期花崗岩類と異なり、A タイ

プ花崗岩をはじめとする多種の火成岩が小規模の岩体として分布している。この複雑な岩体に対して Sr 安定同位体をトレーサーとして応用することにより、岩体の成因について新たな知見を得られる可能性がある。

4.2 分析手法

表面電離型質量分析装置 (TIMS、Thermo Fisher Scientific TRITON TI) を用いて只見川古期花崗岩類の全岩試料 24 試料、鉱物試料 23 試料 (斜長石、カリ長石、黒雲母、アパタイト) と足摺岬複合火成岩類 (第 I 期 4 試料、第 II 期 10 試料、第 III 期 11 試料、第 IV 期 13 試料、第 V 期 4 試料) および清水層群 (1 試料) 43 試料の Sr 同位体組成分析を行った。Sr 同位体組成分析は国立研究開発法人海洋研究開発機構高知コア研究所で行った。鉱物試料は、採取した岩石を粉砕し、60 メッシュの篩に通した。これを水簸し粘土鉱物を取り除き、ポリタングステン酸ナトリウム (SPT) 重液を用いた比重分離により斜長石、カリ長石、黒雲母を単離した。アパタイトは、ポリタングステン酸ナトリウム (SPT) 重液を用いた比重分離により重鉱物を分離し、リーチングにより溶解した後、試料とした。

岩石粉末試料 40 mg (または鉱物粉末試料数 mg) にフッ化水素酸 1.0 mL、濃硝酸 0.5 mL、過塩素酸 0.5 mL を加え、110 °C で 3 時間加熱還流させた。その後、110 °C で 12 時間加熱しほぼ乾固させ、180 °C で一日半加熱し完全に乾固させた。これに 6 M 硝酸 3 mL を加え、110 °C で 12 時間加熱しほぼ乾固させ、180 °C で一日半加熱し完全に乾固させた。これに 6 M 硝酸 2 mL を加え、

110 °C で 12 時間加熱しほぼ乾固させ、180 °C で一日半加熱し完全に乾固させた。これを 3 M 硝酸 4 mL に溶解した。また酸分解した試料溶液から 100 µL を分取し、In 内標準液 (0.15 M 硝酸と 0.015 M フッ化水素酸の混酸中に In 10 ppb 含有) 3 mL と混合して ICP-MS の定量分析用試料とした。アパタイト試料は、3 M 硝酸 3 mL を加え、遠心分離した後、上澄みを回収した。残渣には 3 M 硝酸 1 mL を加えて再度遠心分離した後、上澄みを回収した。この操作を 2 回繰り返した後、上澄みを蒸発乾固した。これを 3 M 硝酸 4 mL に溶解した。また、他の試料と同様に、酸分解した試料溶液から 100 µL を分取し、In 内標準液 (0.15 M 硝酸と 0.015 M フッ化水素酸の混酸中に In 10 ppb 含有) 3 mL と混合して ICP-MS の定量分析用試料とした。

Sr 同位体比測定用試料としてナチュラル用試料 (スパイクを添加していない試料) とスパイク添加用試料 (スパイクを添加した試料) を調製した。ナチュラル用試料については、イオン交換樹脂 (Eichrom Technologies Sr Resin) を充填したカラムに 3 M 硝酸に溶解した試料溶液をローディングした。その後、6 M、3 M、0.05 M 硝酸を用いてマトリックス元素を除去し Sr のフラクションを回収した。また、スパイク用試料については、酸分解した試料溶液にダブルスパイク溶液を加えて、110 °C で加熱し乾固させた。その後、3 M 硝酸 0.5 mL に溶解し、イオン交換樹脂 (Eichrom Technologies Sr Resin) を充填したカラムに 3 M 硝酸に溶解した試料溶液をローディングした。その後、6 M、3 M、0.05 M 硝酸を用いてマトリックス元素を除去し Sr のフラクションを回収した。

回収したナチュラル用試料およびスパイク添加用試料の Sr フラクションを

110 °C で加熱し乾固させた。その後、濃硝酸 1 滴に溶解し再び乾固させ、硝酸溶液 1 μL 中に Sr 約 300 ng が含まれるようにフラクションを 0.15 M 硝酸に溶解した。0.15 M 硝酸に溶解した試料 1 μL および Ta 溶液 1 μL をタングステン (W) 製のシングルフィラメントに塗布した。これを加熱乾固させ、Sr 同位体比測定用試料とした。測定試料とともに Sr 同位体標準試料 (アメリカ国立標準技術研究所の NIST SRM987) についても測定した。ナチュラル試料の同位体比は exponential law (Russell et al., 1978) と $^{86}\text{Sr}/^{88}\text{Sr} = 0.1194$ (Steiger and Jäger, 1977) を用いて規格化した。

試薬は以下を使用した。フッ化水素酸 (38%)、過塩素酸 (68%)、硝酸 (68%) は TAMAPURE-AA-100 (多摩化学工業, 超高純度分析用) を、6 M、3 M、0.15 M、0.05 M 硝酸は、硝酸 (TAMAPURE-AA-100) を希釈したものを使用した。ダブルスパイク溶液は Sr (0.1251 ppm , $^{84}\text{Sr} = 74.75\%$, $^{86}\text{Sr} = 24.17\%$, $^{87}\text{Sr} = 0.360\%$, $^{88}\text{Sr} = 0.724\%$) を使用した。

4.3 結果

TIMS により得られた只見川古期花崗岩類および足摺岬複合火成岩類の全岩 Sr 安定同位体組成を表 4-1、2 に示す。また、只見川古期花崗岩類の鉱物 Sr 安定同位体組成を表 4-3 に示す。只見川古期花崗岩類の Sr 安定同位体組成は $\delta^{88}\text{Sr} = -0.74 - +0.27 \text{ ‰}$ の範囲を示した。また、足摺岬複合火成岩類では $\delta^{88}\text{Sr} = -1.09 - +1.34 \text{ ‰}$ の範囲を示し、只見川古期花崗岩類の $\delta^{88}\text{Sr}$ 値と比較して大きな変動が見られた。

只見川古期花崗岩類の斜長石は+0.28 – +0.33 ‰の高い $\delta^{88}\text{Sr}$ 値と -0.71 – +0.05 ‰の低い $\delta^{88}\text{Sr}$ 値を示し、1 試料を除き、常に全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ 値より高かった。カリ長石は-0.77 – -0.04 ‰の低い $\delta^{88}\text{Sr}$ 値と+0.15 – +0.23 ‰の高い $\delta^{88}\text{Sr}$ 値を示し、全岩の $\text{SiO}_2 < 72 \text{ wt\%}$ の試料では全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ 値より低かったが、 $\text{SiO}_2 > 72 \text{ wt\%}$ の試料では全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ 値より低い試料と高い試料に分かれ、傾向は見られなかった。黒雲母は+0.11 – +0.19 ‰の $\delta^{88}\text{Sr}$ 値を示した。アパタイトは+0.42 – +0.89 ‰と高い $\delta^{88}\text{Sr}$ 値を示し、常に全岩より高い $\delta^{88}\text{Sr}$ 値を示した。全岩の $\text{SiO}_2 < 72 \text{ wt\%}$ の試料の斜長石、カリ長石、黒雲母、アパタイトの $\delta^{88}\text{Sr}$ 値は全岩の SiO_2 量の増加に対してほぼ一定である。 $\text{SiO}_2 > 72 \text{ wt\%}$ の試料において、全岩の SiO_2 量の増加とともに斜長石とアパタイトの $\delta^{88}\text{Sr}$ 値は低くなるが、カリ長石の $\delta^{88}\text{Sr}$ 値は高くなる場合と低くなる場合があり、黒雲母の $\delta^{88}\text{Sr}$ 値はほぼ一定の値であった。結果から作図した $\delta^{88}\text{Sr}$ 相関図を図 4-1、2、3 に示す。

4.4 考察

$\delta^{88}\text{Sr}$ 値は SiO_2 量の増加に伴って系統的に減少していることから、結晶分化の過程で Sr の同位体分別が起こっていると考えられる。また、 $\delta^{88}\text{Sr}$ 値が Sr 量の減少に伴って系統的に減少することから、結晶分化が進行しメルト中から Sr が取り除かれていく過程で、より重い同位体 (^{88}Sr) が選択的に取り除かれたと考えられる。さらに、アノーサイト量の減少と Eu 異常の度合いの増大にしたがって、 $\delta^{88}\text{Sr}$ 値が減少する傾向を示した。これら傾向は、斜長石の分別

結晶作用が Sr の同位体分別に影響していることを示唆している。これらのことから、マグマの結晶分化の過程において斜長石により重い同位体 (^{88}Sr) が選択的に取り込まれ、それがメルトから取り除かれることによって分化の進んだ花崗岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ 値が減少したと考えられる。また、他の鉱物については、アパタイトの $\delta^{88}\text{Sr}$ は斜長石と同様に全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ より常に高く、 ^{88}Sr が選択的に取り込まれるとみられるが、火成岩中でのアパタイトと斜長石の存在量の違いを考えると、火成岩における Sr の同位体分別を支配しているのは斜長石であるといえる。また、本研究で分析したアパタイト試料はリーチング法により得られた鉱物試料のため、他の鉱物試料からの Sr が混入している可能性があり、アパタイト試料の化学組成などのデータを取り扱う際には注意が必要である。本研究で得られたアパタイト試料の $\delta^{88}\text{Sr}$ は他の鉱物試料と比較しても非常に高く、アパタイトが重い同位体 (^{88}Sr) が選択的に取り込んでいることは明らかである。カリ長石と黒雲母の $\delta^{88}\text{Sr}$ は、全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ より低いものが多いが、斜長石とアパタイトのように明確な傾向はみられなかった。これらの傾向から、1) 結晶分化作用の進行に伴い、鉱物晶出時の各鉱物種特有の比率で Sr を取り込む、2) 岩石の固結時や結晶分化の末期には通常 of 鉱物晶出時とは異なるメカニズムで粒界での Sr の取り込みが行われている、という 2 種類の分別メカニズムが存在する可能性がある。

全岩における Sr の同位体分別がレイリー分別過程に従うとした場合の Sr の同位体分別係数 (α) を検討した。マグマから斜長石中の Sr 同位体が分別する過程を考えると、Sr 量の対数値と $\delta^{88}\text{Sr}$ の相関直線の傾きから、レイリー分別

過程における同位体分別係数 α_{Rayleigh} を見積もることができる。これに基づき、本岩体において横軸に $\ln\text{Sr}$ 、縦軸に $\delta^{88}\text{Sr}$ を取った図は $\delta^{88}\text{Sr}$ 値が+0.21 – +0.26 ‰の試料で直線性を示した (図 4-4)。この直線性は只見川古期花崗岩類における Sr の同位体分別がレイリー分別過程に従うことを示しており、その傾きから同位体分別係数 α_{Rayleigh} は 1.00003 が得られた。しかし、アプライトを含む分化末期の試料 ($\delta^{88}\text{Sr} < +0.21$ ‰) における同位体分別はレイリー分別過程の直線から外れた。

全岩における Sr の同位体分別は斜長石の分別が関係していると考えられるため、斜長石の Sr 安定同位体組成から斜長石–メルト間の Sr の同位体分別係数 $\alpha^{88}\text{Sr}_{\text{Plagioclase-Melt}}$ を見積もった。ここで、メルトは全岩を反映するとして、 $\Delta^{88}\text{Sr}_{\text{Plagioclase-Melt}}$ を求め、数学的近似により $\alpha^{88}\text{Sr}_{\text{Plagioclase-Melt}} \approx 1.00005 - 1.00010$ が算出された。 $\alpha^{88}\text{Sr}_{\text{Rayleigh}}$ と $\alpha^{88}\text{Sr}_{\text{Plagioclase-Melt}}$ を比較すると、 $\alpha^{88}\text{Sr}_{\text{Rayleigh}} = 1.00003$ と $\alpha^{88}\text{Sr}_{\text{Plagioclase-Melt}} \approx 1.00005 - 1.00010$ はほぼ一致している。そのため、 $\delta^{88}\text{Sr}$ 値が+0.21 – +0.26 ‰の試料における Sr の同位体分別は斜長石の分別結晶作用で説明できる。一般的に、化学平衡反応において同位体分別の大きさに関連づけられる同位体分別係数 (α) は Bigeleisen-Mayer の式 (Bigeleisen and Mayer, 1947) で表され、その温度依存性が示されている。アプライトを含む分化末期の試料は温度と熱水反応の 2 つの要因からより大きな同位体分別を示したと考えられる。

足摺岬複合火成岩類の $\delta^{88}\text{Sr}$ 値は-1.09 – +1.34 ‰の範囲を示し、只見川古期花崗岩類の $\delta^{88}\text{Sr}$ 値と比較して非常に広い組成範囲を示した。 $\delta^{88}\text{Sr}$ 値は SiO_2

量の増加に伴って系統的に減少していることから、結晶分化の過程で Sr の同位体分別が起こっていると考えられる。Sr やアノーサイト量と $\delta^{88}\text{Sr}$ 値の相関図（図 4-2）において一連の傾向がみられることから、斜長石の分別結晶により Sr の同位体分別が生じたと考えられる。特に低い $\delta^{88}\text{Sr}$ ($= -1.09 \text{ ‰}$) 値を示した試料（AZ03d）は斑れい岩との境界付近で採取した花崗岩試料であり、この試料は結晶分化の最終段階に形成されたことにより同位体分別の度合いが大きくなったと考えられる。

また、特に高い $\delta^{88}\text{Sr}$ ($>+1.05 \text{ ‰}$) 値をもつ試料（AZ15d, 16b）はいずれも塩基性の岩脈であり、他の塩基性火成岩が示す傾向（ $\delta^{88}\text{Sr} = +0.1 - +0.4 \text{ ‰}$ ）とは異なる挙動を示した。この結果は SiO_2 量の低い塩基性火成岩においても Sr の同位体分別が起こる可能性とともに、Sr の同位体分別が起こる要因が斜長石中への重い Sr 同位体の濃集以外にも存在する可能性を示している。特に高い $\delta^{88}\text{Sr}$ ($>+1.05 \text{ ‰}$) 値をもつ試料（AZ15d, 16b）は SiO_2 量が低いため（57.4 wt%, 52.1 wt%）、Sr の同位体分別の要因として、起源物質の熔融時や起源マグマの上昇に伴う温度圧力が変化する時などが挙げられる。これら試料については、鉱物組成などの詳細な研究を行い Sr の同位体分別の原因を追求することが必要である。

4.5 総括

只見川古期花崗岩類の全岩試料において $\text{SiO}_2 > 72 \text{ wt\%}$ の岩石の $\delta^{88}\text{Sr}$ は約 1 ‰に及ぶ同位体変動を示した。アノーサイトと $\delta^{88}\text{Sr}$ の相関関係から結晶分

化過程における斜長石の分別結晶作用が原因として考えられる。これは、鉍物 Sr 安定同位体分析において、斜長石の $\delta^{88}\text{Sr}$ は全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ よりも常に高く、斜長石には ^{88}Sr が選択的に取り込まれることと調和的である。また、他の鉍物については、アパタイトの $\delta^{88}\text{Sr}$ は斜長石と同様に全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ より常に高く、 ^{88}Sr が選択的に取り込まれるとみられるが、火成岩中でのアパタイトと斜長石との存在量の違いを考えると火成岩における Sr の同位体分別を支配しているのは斜長石であるといえる。カリ長石と黒雲母の $\delta^{88}\text{Sr}$ は、全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ より低いものが多いが、斜長石とアパタイトのように明確な傾向はみられなかった。これらの傾向から、鉍物晶出時の各鉍物種特有の比率で Sr を取り込み、岩石の固結時には鉍物晶出時とは異なるメカニズムで粒界での Sr の取り込みが行われている可能性がある。今後、各鉍物結晶間や鉍物粒界などの微小領域の Sr 安定同位体組成を研究することが望まれる。また、斜長石の $\delta^{88}\text{Sr}$ を用いて計算された $\alpha^{88}\text{Sr}_{\text{Plagioclase-Melt}}$ は $\text{SiO}_2 < 72 \text{ wt.}\%$ の岩石から計算される $\alpha^{88}\text{Sr}_{\text{Rayleigh}}$ とほぼ一致することから、 $\text{SiO}_2 < 72 \text{ wt}\%$ の全岩における Sr の同位体分別は斜長石の分別結晶作用で説明できる。ただし、 $\text{SiO}_2 > 72 \text{ wt}\%$ の全岩における Sr の同位体分別は斜長石の分別だけでなく、温度低下や熱水反応などの複雑な要因に起因する可能性が高い。これらの結果は、 $\text{SiO}_2 < 72 \text{ wt}\%$ の只見川古期花崗岩類は斜長石の分別結晶作用に伴う Sr の同位体分別の基礎的なモデルを示している。また、足摺岬複合火成岩類の全岩試料では、只見川古期花崗岩類の $\delta^{88}\text{Sr}$ と比較すると、基本的に同一の傾向を示した。しかし、足摺岬複合火成岩類の塩基性岩脈試料が特に高い $\delta^{88}\text{Sr}$ ($> +1.05 \text{ ‰}$) 値をもつことから、

SiO₂ 量の低い塩基性火成岩においても Sr の同位体分別が起こる可能性とともに、Sr の同位体分別が起こる要因が斜長石中への重い Sr 同位体の濃集以外にも存在する可能性が示唆された。また、鉍物の Sr 安定同位体組成を研究する際に、各鉍物結晶間や鉍物粒界などの微小領域に着目する必要がある、次章で述べる本研究で開発した微小領域における鉍物のマイクロサンプリング法は将来的に各鉍物結晶間や鉍物粒界などの微小領域の鉍物の Sr 安定同位体組成を研究する際の応用に期待できる。

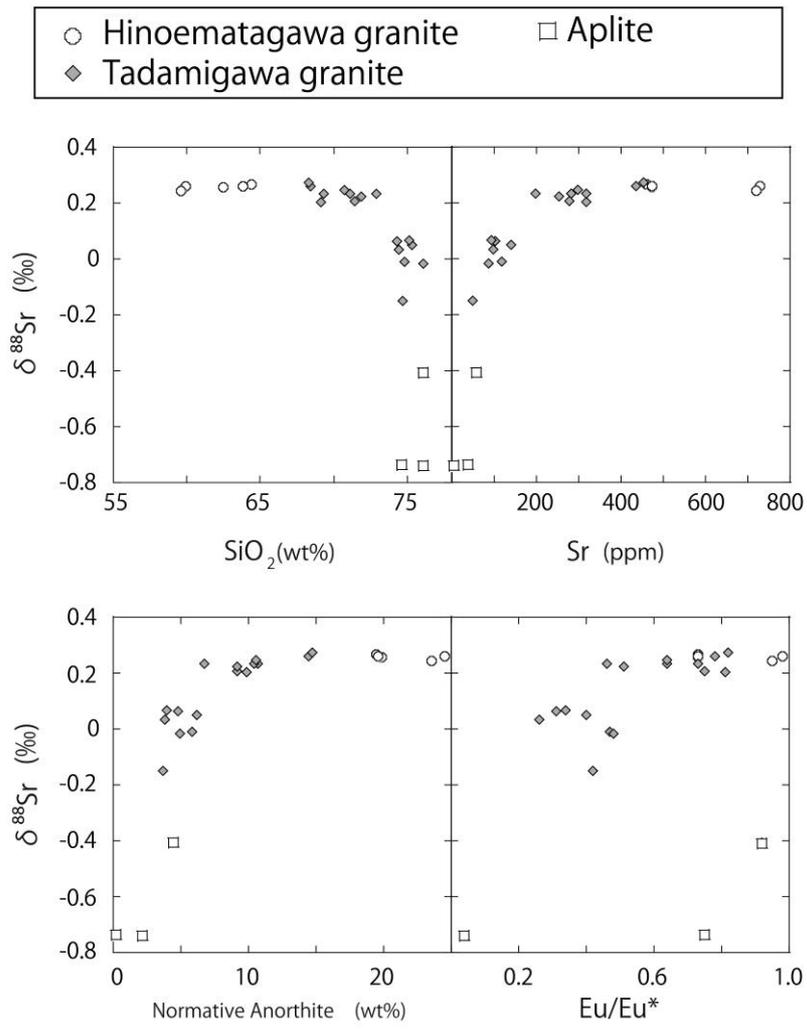


図 4-1 只見川古期花崗岩類の全岩 $\delta^{88}\text{Sr}$ vs SiO_2 , Sr, normative anorthite, Eu 異常値.

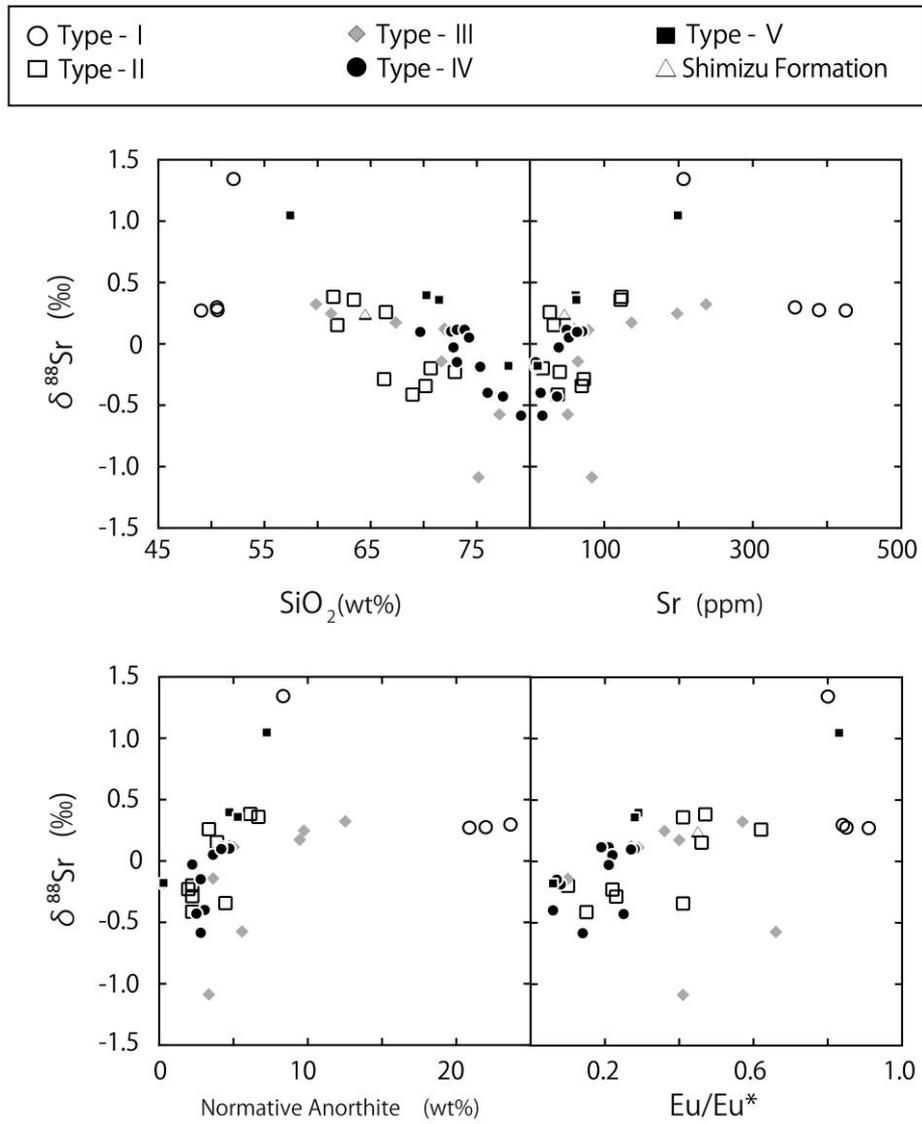


図 4-2 足摺岬複合火成岩類の全岩 $\delta^{88}\text{Sr}$ vs SiO_2 , Sr, normative anorthite, Eu 異常値.

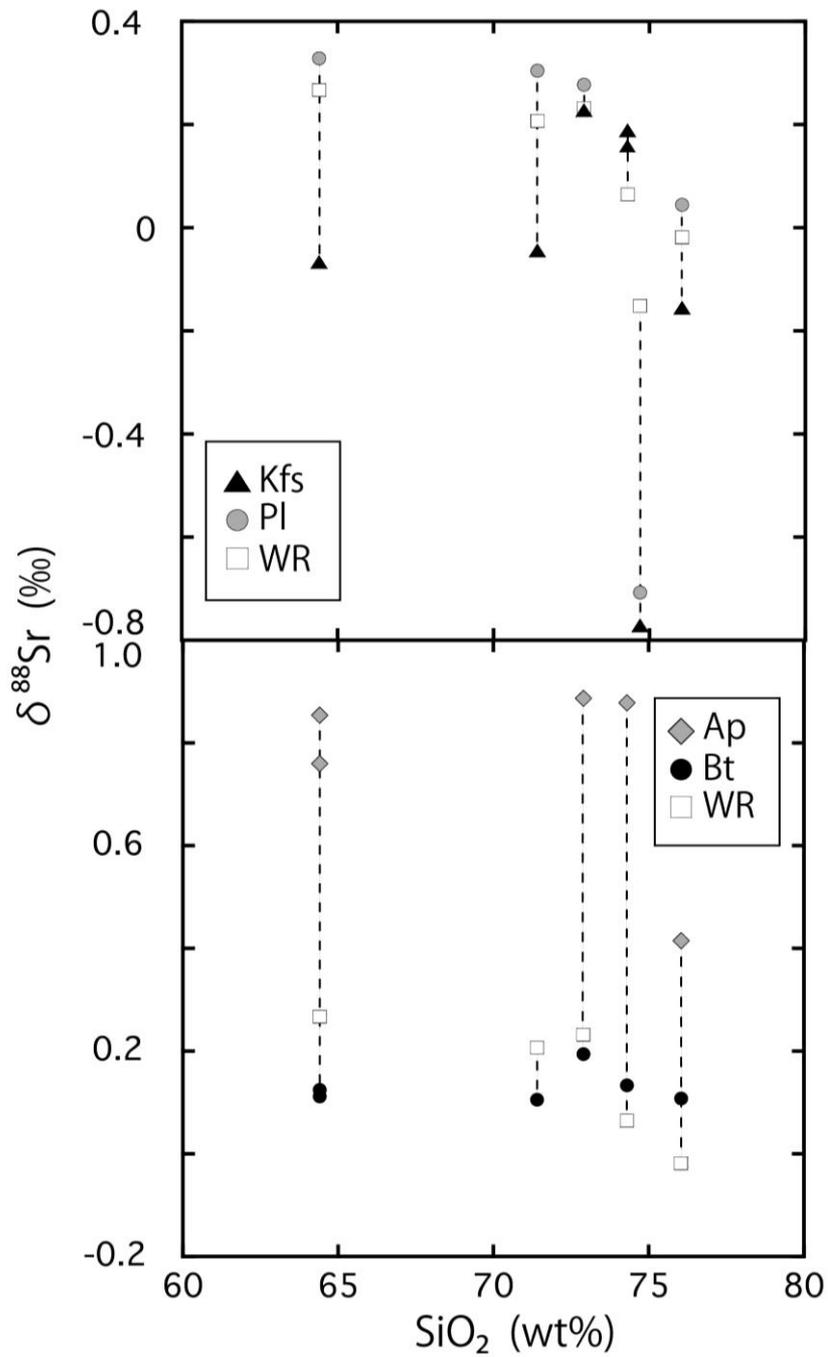


図 4-3 只見川古期花崗岩類の全岩および鉱物 $\delta^{88}\text{Sr}$ vs 全岩 SiO_2 . 各試料の全岩試料と全岩試料から分離した鉱物試料を全岩試料の SiO_2 量の位置にプロットした.

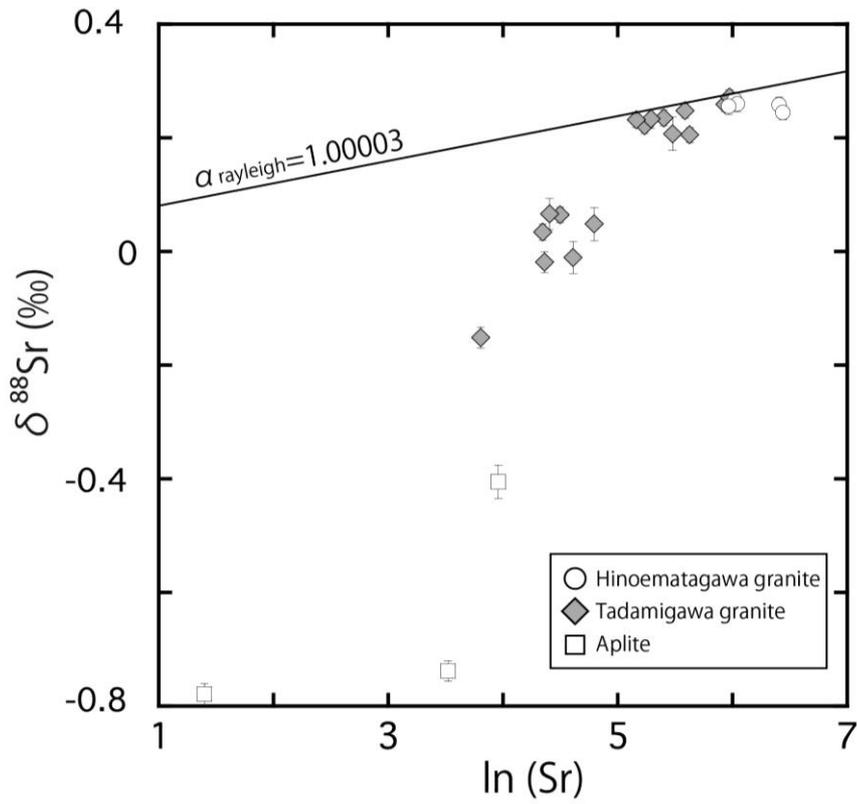


図 4-4 只見川古期花崗岩類の全岩 $\delta^{88}\text{Sr}$ vs $\ln(\text{Sr})$ 図. 実線はレイリー過程で求めた同位体分別係数 α_{rayleigh} .

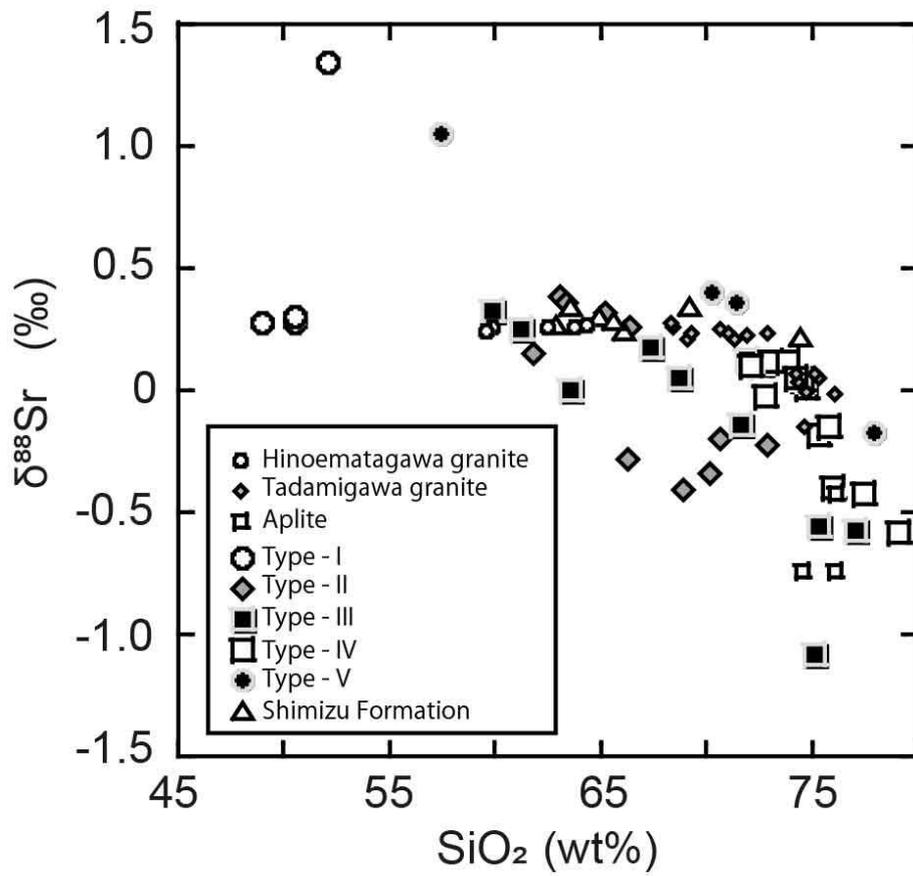


図 4-5 全岩 $\delta^{88}\text{Sr}$ vs SiO_2 図 (只見川古期花崗岩類, 足摺岬複合火成岩類) .

表 4-1 只見川古期花崗岩類の全岩 $\delta^{88}\text{Sr}$

Area	Rock type	Sample	SiO ₂ (wt%)**	Eu/Eu*	An (wt%)	$\delta^{88}\text{Sr}$ (‰)	(2 σ)
Taishaku Mountains area	Hinoematagawa granite	TG1a	64.4	0.73	19.4	+ 0.27	(1)
		TG2	59.9	0.98	24.5	+ 0.26	(1)
		TG3	59.6	0.95	23.5	+ 0.25	(1)
		TG10	62.5	0.73	19.9	+ 0.26	(1)
		TG36	63.8	0.73	19.6	+ 0.26	(1)
	Tadamigawa granite	TG4b	71.1	0.64	10.7	+ 0.24	(1)
		TG5	71.4	0.75	9.1	+ 0.21	(3)
		TG6	71.9	0.51	9.2	+ 0.22	(1)
		TG7	69.1	0.81	9.9	+ 0.21	(1)
		TG8	69.3	0.73	10.4	+ 0.23	(2)
		TG9b	75.3	0.40	6.2	+ 0.05	(3)
		TG9e	76.1	0.48	4.9	- 0.01	(2)
		TG11	74.4	0.26	3.8	+ 0.03	(1)
		TG12	74.3	0.31	4.8	+ 0.07	(1)
		TG13	72.9	0.46	6.7	+ 0.23	(1)
		TG40	74.7	0.42	3.7	- 0.15	(2)
		TG41	74.8	0.47	5.9	- 0.01	(3)
		TG42	75.1	0.34	3.9	+ 0.07	(3)
		TG43	70.7	0.64	10.6	+ 0.25	(1)
		TG46a	68.4	0.78	14.4	+ 0.26	(1)
TG48	68.3	0.82	14.7	+ 0.27	(1)		
Aplite	TG9a	76.1	0.92	4.4	- 0.41	(3)	
	TG9c	76.1	0.05	2.2	- 0.74	(2)	
	TG9d	74.6	0.75	0.2	- 0.74	(2)	

Eu* = (Sm × Gd) ^{1/2} . **, XRF によるデータ.

誤差は下 1 桁を示している.

表 4-2 足摺岬複合火成岩類の全岩 $\delta^{88}\text{Sr}$

Type	Rock type	Sample	SiO ₂ (wt%)**	Eu/Eu*	An (wt%)	$\delta^{88}\text{Sr}$ (‰)	(2 σ)
Type I	Gb	AZ03b	50.6	0.85	22.0	+ 0.28	(3)
	Gb	AZ03e	50.5	0.84	23.6	+ 0.30	(3)
	Gb	AZ04c	49.0	0.91	20.9	+ 0.27	(3)
	D	AZ16b	52.1	0.80	8.3	+ 1.34	(2)
Type II	Sy	AZ01b	66.4	0.62	3.3	+ 0.26	(3)
	Sy	AZ05a	61.8	0.46	3.9	+ 0.15	(3)
	Sy	AZ05b	65.2	0.42	1.9	+ 0.31	(2)
	Sy	AZ14	70.6	0.10	2.2	- 0.20	(2)
	A-Gr	AZ15a	61.5	0.47	6.1	+ 0.39	(2)
	Sy	AZ15b	70.2	0.41	4.5	- 0.34	(2)
	A-Gr	AZ15c	63.4	0.41	6.7	+ 0.36	(2)
	Sy	AZ15e	72.9	0.22	1.9	- 0.23	(2)
	Sy	AZ16a	66.3	0.23	2.2	- 0.29	(5)
	Sy	AZ18	68.9	0.15	2.2	- 0.41	(2)
Type III	A-Gr	AZ03a	72.0	0.29	5.0	+ 0.11	(3)
	A-Gr	AZ03c	75.3	0.62	5.0	- 0.56	(2)
	A-Gr	AZ03d	75.2	0.41	3.3	- 1.09	(3)
	Gd	AZ04a	68.7	0.62	8.6	+ 0.05	(2)
	Gd	AZ04b	61.3	0.36	9.7	+ 0.25	(3)
	Gd	AZ04d	63.6	0.35	7.0	0.00	(2)
	A-Gr	AZ10a	77.1	0.66	5.6	- 0.57	(2)
	A-Gr	AZ11a	71.7	0.10	3.6	- 0.14	(2)
	A-Gr	AZ12	72.0	0.27	4.7	+ 0.13	(2)
	Gd	AZ13	59.8	0.57	12.5	+ 0.32	(2)
	Gd	AZ17d	67.4	0.40	9.5	+ 0.18	(2)
Type IV	B-Gr	AZ02a	75.3	0.08	0.3	- 0.19	(3)
	B-Gr	AZ02b	74.8	0.26	3.6	+ 0.01	(2)
	B-Gr	AZ02c	74.5	0.21	3.6	+ 0.04	(2)
	B-Gr	AZ06	72.6	0.28	4.7	+ 0.10	(2)
	B-Gr	AZ07	73.1	0.21	4.2	+ 0.12	(2)
	B-Gr	AZ08a	73.9	0.19	4.2	+ 0.12	(2)
	B-Gr	AZ08c	74.3	0.22	3.6	+ 0.05	(2)
	B-Gr	AZ09a	73.1	0.07	2.8	- 0.15	(2)
	B-Gr	AZ09c	76.0	0.06	3.1	- 0.40	(2)
	B-Gr	AZ17a	69.7	0.27	4.2	+ 0.10	(2)
	B-Gr	AZ17c	77.4	0.25	2.5	- 0.43	(2)
	B-Gr	AZ19a	79.2	0.14	2.8	- 0.58	(2)
	B-Gr	AZ20a	72.8	0.21	2.2	- 0.03	(2)
Type V	Ry	AZ01a	78.0	0.06	0.3	- 0.18	(3)
	A-D	AZ08b	70.3	0.29	4.7	+ 0.40	(2)
	A-D	AZ08d	71.4	0.28	5.3	+ 0.36	(2)
	A-D	AZ15d	57.4	0.83	7.2	+ 1.05	(2)
Shimizu Formation	S	AZ11b	64.5	0.45		+ 0.24	(2)

Eu* = (Sm × Gd) ^ (1/2) . **, XRF によるデータ.

Gb, 斑レイ岩; D, ドレライト; Sy, 閃長岩; A-Gr, アルカリ花崗岩; Gd, 花崗閃緑岩; B-Gr, 黒雲花崗岩; Ry, 流紋岩; A-D, アルカリドレライト; S, 堆積岩.

誤差は下 1 桁を示している.

表 4-3 只見川古期花崗岩類の鉱物 $\delta^{88}\text{Sr}$

Area	Rock type	Sample	Sr (ppm)*	$\delta^{88}\text{Sr}$ (‰)	(2 σ)
Taishaku Mountains area	Hinoematagawa granite	TG1a	410	+ 0.27	(1)
		-Pl	890	+ 0.33	(3)
		-Kfs	399	- 0.07	(3)
		-Bt1	18.1	+ 0.11	(3)
		-Bt2	18.3	+ 0.13	(3)
		-Ap1		+ 0.76	(3)
		-Ap2		+ 0.85	(2)
	Tadamigawa granite	TG5	239	+ 0.21	(3)
		-Pl	557	+ 0.30	(3)
		-Kfs	514	- 0.04	(3)
		-Bt	13.8	+ 0.11	(3)
		TG9e	78.4	- 0.02	(2)
		-Pl	142	+ 0.05	(3)
		-Kfs	103	- 0.15	(3)
		-Bt	12.9	+ 0.11	(2)
		-Ap		+ 0.41	(2)
		TG12	89.7	+ 0.07	(1)
		-Kfs1	131	+ 0.15	(3)
		-Kfs2	474	+ 0.19	(3)
		-Bt	55.5	+ 0.13	(3)
		-Ap		+ 0.88	(2)
TG13	174	+ 0.23	(3)		
-Pl1	435	+ 0.28	(3)		
-Kfs	432	+ 0.23	(3)		
-Bt	25.3	+ 0.19	(2)		
-Ap		+ 0.89	(2)		
TG40	44.9	- 0.15	(2)		
-Pl	60.7	- 0.71	(3)		
-Kfs	48.9	- 0.77	(3)		

*, ICP-MS によるデータ.

Pl, 斜長石; Kfs, カリ長石; Bt, 黒雲母; Ap, アパタイト; WR, 全岩.
誤差は下 1 桁を示している.

第 5 章 レーザー掘削を用いた岩石の微小領域サンプリング法と Rb-Sr 年代測定

5.1 背景

火成岩を構成する鉱物結晶は、結晶成長の過程で様々な環境情報を記録しているため、鉱物結晶の局所領域を分析することは重要である。鉱物結晶の局所領域を分析するためには、高い空間分解能を持つ試料採取法と高精度の分析が不可欠である。鉱物や岩石の微小領域から鉱物試料を採取する方法として、マイクロドリリング法やレーザーアブレーション (LA) 法が挙げられる。これらはいずれも、鉱物サンプルのスポット分析に適した試料作製法である。LA 法は、レーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析法 (LA-ICP-MS) など、レーザーによる試料掘削後に直ちに分析装置に試料を導入して分析を行う方法として広く用いられている。この方法は、例えばジルコンの Hf 同位体分析のように、対象元素が濃縮された鉱物試料の定量・同位体分析に有効である。しかし、この方法による一般的な鉱物の同位体分析は高い精度が要求されるため、難しいとされてきた。また、マイクロドリリング法では、サンプリングに 1 mm 以上のスポット径が必要となるが、LA 法では数 μm から数十 μm のスポット径で採取することが可能である。

Rb-Sr 同位体系は、火成岩の年代測定や岩石学の解析に広く用いられている (例えば、Kagami et al., 1992; 平原ほか, 2015)。Sr には質量数 84、86、87、88 の 4 つの安定同位体がある。 ^{87}Sr は安定同位体であるが、そのうちのいくつかは ^{87}Rb の放射性崩壊によって生成される放射起源のものである (^{87}Rb の崩壊

定数: $\lambda = 1.42 \times 10^{-11} \text{ yr}^{-1}$; Steiger and Jäger, 1977)。 ^{87}Rb から ^{87}Sr への崩壊は、Rb-Sr 同位体系が閉じた後の岩石や鉱物の形成年代や変成年代を決定するのに利用できる。 ^{87}Sr の絶対量を測定することは困難であるため、Rb-Sr 同位体系では一般的には $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の同位体比を測定する。マグマから鉱物が結晶化する際、基本的に晶出したマグマの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比を持ち、これを Sr 同位体比初生値 (SrI) と呼ぶ。Rb の含有量は鉱物ごとに異なるため、現在においては鉱物ごとに $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比が異なることになる。鉱物の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比と $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 比を図にプロットすると、それらが同じマグマ起源である場合には、アイソクロンと呼ばれる直線を描き、その傾きから、岩石や鉱物の形成年代を推定することができる。放射年代測定では、同じ起源マグマをもつ試料から得られた同位体比を用いてアイソクロンを作成する。Rb-Sr 全岩アイソクロンや Rb-Sr 鉱物アイソクロンは、一般に様々な Rb/Sr 比と固有の SrI をもつ岩体内の岩石や鉱物から得られる。LA-ICP-MS による ^{87}Sr の直接測定は、局所的な Sr 同位体比の測定に適しているが、ほとんどの地質試料では ^{87}Rb が同重体干渉を起こすため、 ^{87}Sr の測定は困難である。そのため、Sr の同位体比を測定する場合は、サンプリング後に Rb と Sr の化学分離を行う必要がある。

単一鉱物粒のスポット分析では、岩石試料の岩石学的に詳細な情報が得られる。Davidson et al. (2001) は、鉱物の層ごとの Sr 同位体組成の変化は、マグマの外部供給や組成の異なるマグマの混合によるものである可能性を指摘している。これまでの岩石試料の Sr 同位体研究の多くは、単一または複数の鉱物全体を対象としている。しかし、このような場合には、単一の鉱物粒の中で

も選択的なサンプリングを行う必要がある。花崗岩質の岩石は一般に、斜長石、カリ長石、石英、黒雲母、角閃石からなり、アパタイトやジルコンなどの微量の副成分鉱物が含まれている。構成鉱物の中でも斜長石とアパタイトは一般に Sr に富み、カリ長石と黒雲母は Rb に富む。斜長石やアパタイトのような Sr に富む鉱物については、レーザーアブレーションによる単一鉱物粒子の局所的な Sr 同位体比測定が行われているが（例えば、Davidson et al., 2001, 2007; Bizzarro et al., 2003）、その他の Sr に乏しい鉱物の局所的な同位体分析は、大量の試料を必要とし、ブランク補正が必要となるため、現実的ではない。そこで、レーザーアブレーションと試料採取を組み合わせた手法として、液中レーザーアブレーション法が開発された（Kabashin and Meunier, 2003; Okabayashi et al., 2011）。この手法では、純水の中に試料を入れ、水中でレーザーを照射する。レーザー掘削された試料粒子は、周囲の純水に蓄積されるため、高い回収率が得られる。この技術により、鉱物中の微量元素の測定が可能になった。しかし、この手法では、レーザーで掘削された粒子が液体中に蓄積するため、純水が懸濁状態になって掘削の効率が低下するという欠点がある。本研究では、レーザー掘削された粒子を LA 装置の外部に用意された液体にトラップする方法を提案する。この方法では、レーザー掘削した試料粒子の外部トラップ装置を用いて、一度に多量のサンプリングを行うことができる。また、この新手法は従来の LA 装置を用いた方法であり、サンプリングのための特別な装置を必要としないという利点がある。さらに、レーザー掘削により採取した鉱物試料に Sr 同位体分析を行い、Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代を得ることができるかの

検証も行う。

5.2 分析手法

5.2.1 試料

本研究では、東北日本弧に分布する只見川古期花崗岩類の花崗岩試料を用いた。只見川古期花崗岩類は、檜枝岐川花崗岩と只見川花崗岩の2種類の岩石に分けられる。只見川花崗岩は檜枝岐川花崗岩から分化したことが報告されている（谷岡ほか, 2014）。帝釈山地に分布する只見川古期花崗岩類の放射年代は、檜枝岐川花崗岩の Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代 97.3 ± 2.0 Ma、只見川花崗岩の Rb-Sr 全岩アイソクロン年代 96.5 ± 1.5 Ma、只見川花崗岩の Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代 93 – 98 Ma を示している（第2章, 表 2-6）。本研究では、岩石スラブ試料から、斜長石（中央部、周縁部）、カリ長石、黒雲母をサンプリングした。事前に国立研究開発法人海洋研究開発機構高知コア研究所設置の走査型電子顕微鏡（JSM-7600F）により岩石スラブ試料の SEM-BSE 像および CL 像の低真空観察を行った。SEM-BSE 像において、斜長石には累帯構造が、カリ長石にはパーサイト構造が観察された。SEM 観察に基づき、斜長石の中央部と周縁部から選択的に試料を採取した。

5.2.2 マイクロサンプリング

花崗岩試料中の鉱物のマイクロサンプリングには、名古屋大学のレーザーアブレーション（LA）装置（NWR213、エレクトロサイエンティフィック・

インダストリーズ社製) を用いた。レーザー光源には Nd-YAG レーザー (波長 213 nm) を用いた。LA 装置の典型的な動作条件は、エネルギー密度 4.72 J/cm²、キャリアガス (He) の流量 80 mL/min、スポット径 25 μm であった。実験の際、レーザーのスポット径について最適な径を検討した。25 μm 以下のスポット径では繰り返し同一量を掘削することができなかった。25 μm 以上 (<100 μm) のスポット径では 1 回当たりの鉱物の採取量が増えた。しかし、斜長石の周縁部 (SEM 像から周縁部 50 μm 程度) など微小部位を掘削する際に、他の鉱物を巻き込まずに掘削することが困難だった。結晶や粒界の不純物を混入させないため、本研究でのスポット径は 25 μm に統一した。LA 装置の動作条件の詳細は、高地ほか (2015) に記載されている。

岩石スラブ試料をレーザーアブレーション装置のチャンバー内にセットし、レーザービームを鉱物表面に照射した。レーザーショットによってアブレーションされた粒子は、ヘリウムキャリアガスを流して 20 mL のパーフルオロアルコキシアルカン (PFA) バイアルに集めた。この際タイゴンチューブの先端にポリプロピレン (PP) 製のピペットチップを取り付け、バイアル内の純水に浸した。レーザー掘削した試料粒子は超純水の入ったバイアルに回収された (図 5-1)。岩石スラブ試料の SEM-BSE 像および CL 像の低真空観察により、スラブ表面では、斜長石 (中央部、周縁部)、カリ長石、黒雲母を確認した。サンプリングは、SEM-BSE 像と実際のスラブ表面を比較して、各鉱物を同定した後に行った。ラスタ照射モード (指定した領域内を走査してレーザー照射する方式) では、数 mm の大きさの対象鉱物を掘削した。0.1 mm 以下の小

さな鉱物や、斜長石の周縁部は、サンプル量を増やすために複数の結晶を掘削して採取した。ブランク試料は、20 mL バイアルに入れた超純水にヘリウムガスを流し、50 分間レーザーを照射しないで得た。

5.2.3 試料の分解および ICP-MS による定量分析

マイクロサンプリングした試料を回収した溶液を乾燥させた後、PFA バイアルにフッ化水素酸 0.3 mL、濃硝酸 0.2 mL の混合試薬を加えて分解し、完全に乾燥させた。次に、3M 硝酸 1.0 mL に溶解した。溶解した試料溶液を Sr 同位体分析用と定量分析用に分取した。ストロンチウム (Sr) は、Sr Spec 樹脂 (Eichrom Technologies Inc.) を用いた抽出クロマトグラフィーにより、Sr 同位体分析用の留分から分離した。定量分析用の試料溶液は、In 内標準液 (0.15 M 硝酸と 0.015 M フッ化水素酸の混酸中に In 10 ppb 含有) と混合してから、誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS、Agilent Technologies 7700x ICP-MS) による只見川古期花崗岩類の鉱物試料 4 試料 (斜長石 (中央部、周縁部)、カリ長石、黒雲母) およびブランク試料 1 試料の 8 元素 (Na, Mg, Al, K, Ca, Fe, Rb, Sr) の定量分析を In 内標準検量線法により行った。

5.2.4 Sr 同位体分析

国立研究開発法人海洋研究開発機構高知コア研究所設置の表面電離型質量分析装置 (TIMS、Thermo Fisher Scientific TRITON TI) を用いて、只見川古期花崗岩類の鉱物試料 4 試料 (斜長石 (中央部、周縁部)、カリ長石、黒雲母)

およびブランク試料 1 試料の Sr 同位体分析を行った。Sr フラクシオンは、Ta アクチベーター付きのタングステン (W) シングルフィラメントにローディングした。 ^{84}Sr 、 ^{85}Rb 、 ^{86}Sr 、 ^{87}Sr 、 ^{88}Sr のイオンビームは、標準的な $10^{11} \Omega$ の抵抗器を備えた 5 つのファラデーカップ検出器で測定した。測定はスタティック・マルチ・コレクション・モードで行った。ファラデーカップ検出器のバックグラウンドノイズは、測定の前に 6000 秒間測定した。測定中、 ^{88}Sr のイオンビーム強度は、Sr 量が 1 ng 以上の試料では 3 V (3×10^{-11} A)、Sr 量が 1 ng 未満の試料では 1 V (1×10^{-11} A) に設定した。イオンビームの積分時間は 8.4 秒で、Sr フラクシオンがなくなるまで繰り返した。各試料の測定中の平均 ^{88}Sr 強度と測定時間を表 5-1 にまとめた。測定中の同位体比は、指数法則を用いた内部標準化により補正し、 $^{86}\text{Sr}/^{88}\text{Sr} = 0.1194$ とした。 ^{87}Sr に対する ^{87}Rb の同重体干渉は、 $^{87}\text{Rb}/^{85}\text{Rb} = 0.3856$ で補正した。NIST SRM987 標準試薬は、 ^{88}Sr イオンビーム強度 4 V、16.8 秒の積分を 140 サイクル行って、分析中に繰り返し測定した。NIST SRM987 の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の平均値は 0.710259 ± 0.000010 (2SD, $n = 20$) であった。サンプルの $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の二次補正は、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}_{\text{SRM987}} = 0.710258$ を用いて行った (Wakaki et al., 2017)。Rb-Sr 鉱物アイソクロンは、ISOPLOT ver. 3.70 の回帰プログラムを用いて計算した (Ludwig, 2008)。この計算では、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ の 4% の誤差と、 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ の各分析誤差を用いた。

5.3 結果と考察

レーザー掘削により採取した鉱物の化学組成の結果を表 5-2 に示す。火成岩

に含まれる斜長石は、一般的に累帯構造を呈する。この累帯構造は、結晶化の過程におけるマグマの組成変化を反映している。斜長石の周縁部と中央部の鉱物組成は異なる（斜長石（周縁部）： $\text{Ab}_{50}\text{Or}_{18}\text{An}_{32}$ 、斜長石（中央部）： $\text{Ab}_{50}\text{Or}_5\text{An}_{45}$ ）。また、長石試料と黒雲母試料は長石に含まれる Fe や Mg、黒雲母に含まれる Na や Ca などのそれぞれの鉱物における不純物をほとんど含んでいない。これらの鉱物試料の化学組成は、この方法で鉱物試料を選択的に採取できることを示している。

鉱物試料中の Rb 含有量は 40 pg から 2 ng、Sr 含有量は 50 pg から 2 ng であった。採取した試料の重量は、主成分元素の組成の結果（表 5-2）から推定した。推定した鉱物試料の重量は、斜長石（周縁部）は 1 μg 、斜長石（中央部）は 2 μg 、カリ長石は 5 μg 、黒雲母は 2 μg となった。ブランク試料の Rb、Sr 含有量はそれぞれ 29 pg、34 pg であった（表 5-2）。斜長石（周縁部）中の Rb 含有量（34 pg）はブランク試料中の Rb 含有量（29 pg）と変わらず、ブランクの寄与が大きい。長石（斜長石およびカリ長石）試料の Sr 含有量は 0.2 – 2 ng であり、ブランク試料の含有量（34 pg）よりも非常に多い。採取した試料量は Sr 同位体比測定に十分なものである。黒雲母試料の Sr 含有量は 48 pg で、ブランク試料の Sr 含有量よりもわずかに多い程度だった。黒雲母試料の Sr 含有量に対するブランクの寄与も同様に大きかった。しかし、黒雲母の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比は Rb-Sr 鉱物アイソクロンの計算に使用するのに十分な精度で得られた（ 0.806130 ± 0.000077 , 表 5-1）。

また、ブランク試料の Rb および Sr 含有量（Rb, 29 pg; Sr, 34 pg）は、鉱物

試料の Rb および Sr 含有量と比較して無視できない値であった（斜長石（中央部、周縁部）の Rb 量: 50 pg, 34 pg; 黒雲母の Sr 量: 48 pg）。空白補正值は、各鉱物試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比および $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 比を空白試料で補正したものである（表 5-1）。本研究で得られた Rb-Sr 鉱物アイソクロン図を図 5-2、3 に示す。図 5-2 上の灰色の記号は未補正の試料、白抜き記号は補正した試料を示す。鉱物のアイソクロンは、5 試料（補正した鉱物試料と全岩試料）から算出した。ここで、全岩試料は第 2 章で報告したデータを使用した。鉱物試料の空白補正值、特に斜長石（周縁部）の値は、予測されたアイソクロンからわずかにずれている（図 5-2）。これは、鉱物試料のサンプリング時間よりも空白試料のサンプリング時間が長く（50 分間）、空白試料の Rb および Sr 含有量が本来の値よりも高くなっているためである。これは、空白試料の Rb、Sr 含有量が過剰に補正されている可能性を示している。空白の寄与をどこまで補正するかが重要である。また、空白の Rb と Sr が、それぞれ試薬や大気中からの汚染によるものかを検証する必要がある。

本研究の鉱物試料は、アイソクロン図において単一の傾向を示した（図 5-2）。この Rb-Sr 鉱物アイソクロンから、 $\text{SrI} = 0.70549 \pm 0.00072$ 、 $103.3 \pm 6.8 \text{ Ma}$ (2σ) ($\text{MSWD} = 321$, $n = 5$) の年代が得られた（図 5-2）。この年代は、檜枝岐川花崗岩試料の鉱物アイソクロン年代（TG1a, $97.3 \pm 2.0 \text{ Ma}$, 図 5-3）と誤差の範囲内で一致する。しかし、今回得られた Rb-Sr 鉱物アイソクロンの精度は低い ($\text{MSWD} = 321$)。この Rb-Sr 鉱物アイソクロンの精度の低さの原因に関しては、採取した鉱物試料量の少なさが挙げられる。従来の鉱物分離法では

鉍物試料を数 mg 程度採取し分析を行うが、本研究のサンプリング法では数 μg の試料量で同位体分析を行った。このような極微量の試料量にも関わらず、本研究で得られた Rb-Sr 鉍物アイソクロン年代が従来の鉍物分離法で得られた Rb-Sr 鉍物アイソクロン年代と誤差範囲内で一致したことは、本方法の有用性を示唆する。また、黒雲母のような測定対象元素である Sr に乏しい試料において、Rb-Sr 鉍物アイソクロンに使用できる精度で Sr 同位体分析を行うことができた。これは従来のマイクロサンプリング法では達成できなかった成果といえる。この新しいサンプリング方法によって、選択的に鉍物試料を採取することと意味のある Rb-Sr 鉍物アイソクロン年代を得ることに成功した。

5.4 総括

本研究では、レーザー掘削を用いた岩石の微小領域サンプリング法を開発した。本研究のサンプリング法は、粉碎した全岩試料から鉍物分離を行う従来の方法よりも選択的に鉍物を分離・採取することができ、マイクロドリリング法のような従来のマイクロサンプリング法では測定が困難であった鉍物に対して Sr 同位体分析を行うことを可能とした。また、本手法で得られた鉍物試料の Sr 同位体分析を行い、意味のある Rb-Sr 鉍物アイソクロン年代を得ることに成功した。本研究では Sr 同位体比測定のみに着目したが、他の微量元素の化学分析や同位体比測定にも広く応用できると期待される。対象となる鉍物は幅広く Sr 同位体分析における黒雲母のように対象元素をほとんど含まない鉍物の分析を行うことも可能となる。また、本サンプリング法は採取のみで分析

装置とは独立しているため、採取後の鉍物試料の前処理や分析の選択肢が多く、様々な化学分析や同位体分析に応用できる。

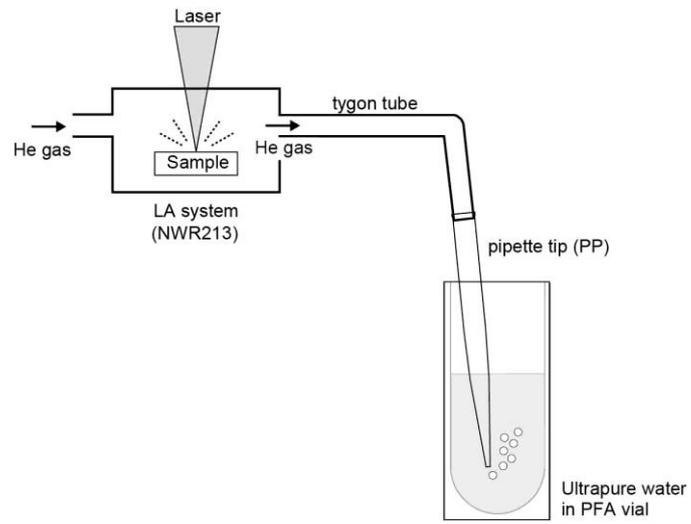


図 5-1 LA 装置を用いた新しいサンプリング法の模式図.

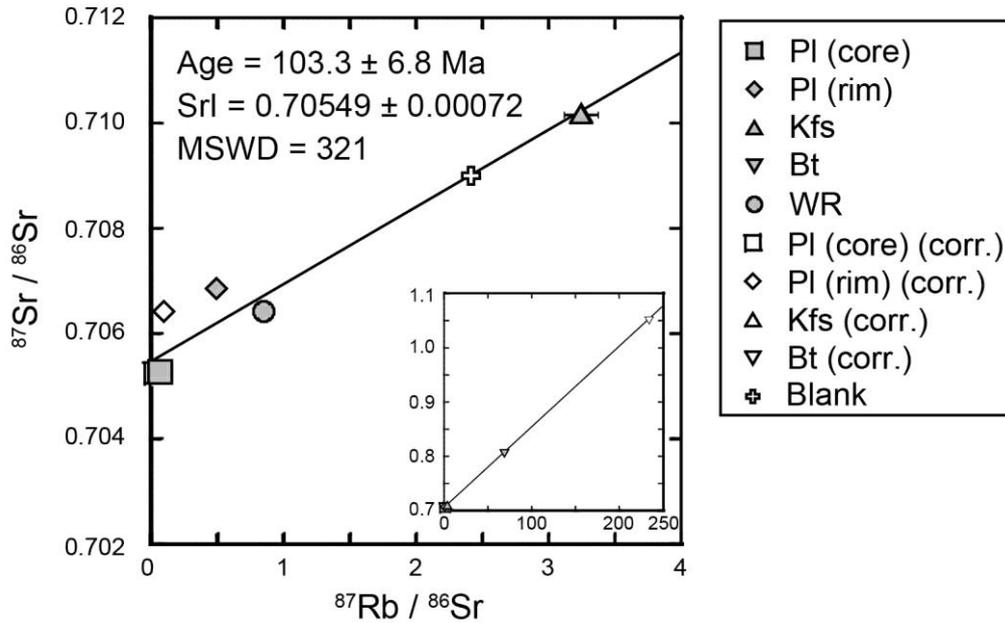


図 5-2 只見川古期花崗岩類の Rb-Sr 鉱物アイソクロン図 (TG36) . 灰色の記号は補正前の鉱物試料, 白抜き記号は補正後の鉱物試料を示している. 図中の Rb-Sr 鉱物アイソクロンは全岩試料と補正前の鉱物試料を合わせた 5 試料から計算した. $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}_{\text{corr.}}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}_{\text{corr.}}$ はそれぞれブランク試料の同位体比から補正した $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ である. 全岩試料のデータは第 2 章の表 2-3 を参照. PI (rim), 斜長石 (周縁部) ; PI (core), 斜長石 (中央部) ; Kfs, カリ長石; Bt, 黒雲母; WR, 全岩; corr., ブランク試料の同位体比から補正した $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ を使用している.

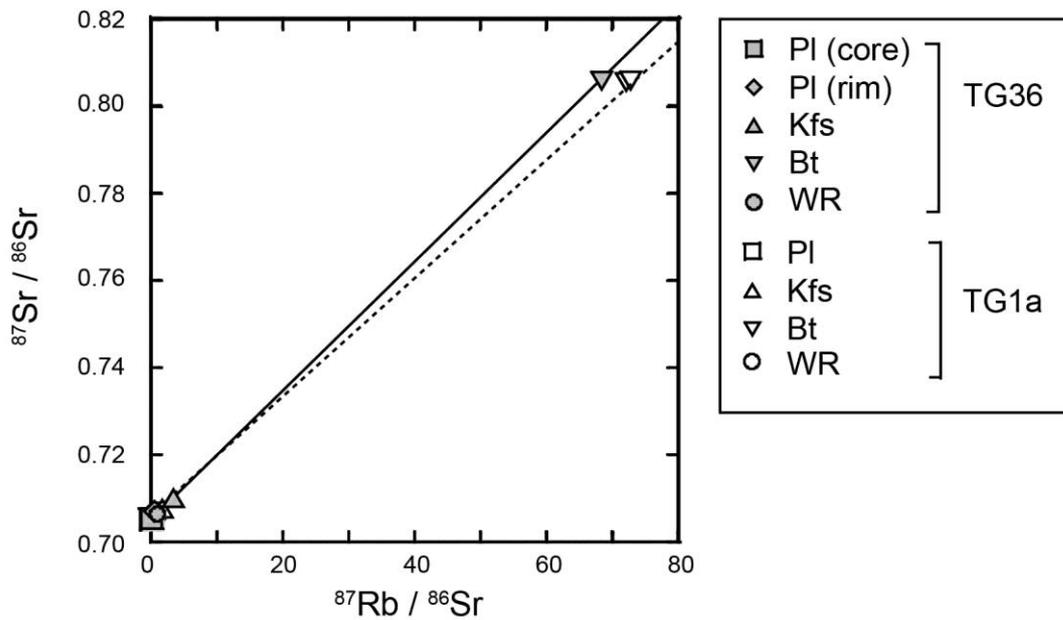


図 5-3 只見川古期花崗岩類の Rb-Sr 鉱物アイソクロンの比較. 実線は本研究のレーザー掘削により採取した鉱物試料から作成した Rb-Sr 鉱物アイソクロン (TG36). 点線は従来の鉱物分離法により採取した鉱物試料から作成した Rb-Sr 鉱物アイソクロン (TG1a, 第 2 章の図 2-6 (A) 参照). Pl (rim), 斜長石 (周縁部); Pl (core), 斜長石 (中央部); Kfs, カリ長石; Bt, 黒雲母; WR, 全岩.

表 5-1 TIMS による各鉱物の Rb, Sr データ

Sample	Average ^{88}Sr intensity [V]	Measurement length [s]	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	2σ	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}_{\text{corr.}}$	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}_{\text{corr.}}$
Pl (core)	2.85	1133	0.062	0.705300	(12)	0.027	0.705245
Pl (rim)	0.75	680	0.51	0.706861	(42)	0.093	0.706397
Kfs	2.38	1468	3.24	0.710153	(13)	3.25	0.710181
Bt	0.46	436	68.6	0.806130	(77)	234	1.050021
Blank	0.23	688	2.41	0.708999	(126)		

Pl (rim), 斜長石 (周縁部); Pl (core), 斜長石 (中央部); Kfs, カリ長石; Bt, 黒雲母.

$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}_{\text{corr.}}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}_{\text{corr.}}$ はそれぞれブランク試料の同位体比による補正を行った値である.

誤差は下 2 桁 (または下 3 桁) を示している.

表 5-2 ICP-MS による各鉱物の化学組成

Sample	Rb (ng)	Sr (ng)	Na (ng)	Mg (ng)	Al (ng)	K (ng)	Ca (ng)	Fe (ng)
Pl (core)	0.0504	2.35	92.0	5.41	254	15.4	137	6.41
Pl (rim)	0.0338	0.193	46.5	7.75	45.8	27.4	48.4	6.49
Kfs	1.65	1.47	110	4.80	534	588	36.7	3.58
Bt	1.14	0.0481	n.d.	164	132	182	18.9	233
Blank	0.0287	0.0344	n.d.	4.90	3.35	7.35	13.4	3.71

Pl (rim), 斜長石 (周縁部) ; Pl (core), 斜長石 (中央部) ; Kfs, カリ長石; Bt, 黒雲母.
n.d., 検出限界.

第 6 章 総括と展望

本研究では、火成活動に伴う Sr の同位体分別過程の解明を主目的として研究を行った。まず対象岩体の地質学的・地球化学的調査研究を行った。只見川古期花崗岩類の調査により、帝釈山地に分布する只見川古期花崗岩類が火成岩における Sr の同位体分別を研究する上で理想的な岩体であることが判明した。加えて、これまで不明瞭であった只見川古期花崗岩類の三地域（帝釈山地、只見川流域、伊南川流域）の形成史を解明した。三地域に分布する只見川古期花崗岩類は単一の起源マグマから同時期に形成された岩体ではなく、帝釈山地と只見川流域の岩体が約 100 Ma に形成され、伊南川流域の岩体が約 60 Ma に形成された、異なる岩体であることが判明した。また、足摺岬複合火成岩類の調査により、足摺岬複合火成岩類は複数の起源マグマから形成され、A タイプ的な特異な組成を示すことが判明した。さらに、これらの複数の起源マグマはそれぞれ異なった割合で周辺の堆積岩を溶かし込むことによって形成されたと考えられる。

只見川古期花崗岩類では、結晶分化作用による Sr の同位体分別の研究を行い、Sr の同位体分別の基礎的なモデルを構築することを目指した。また、鉱物の Sr 安定同位体組成から火成岩を構成する各鉱物の Sr 同位体に対する選択性の検証を行った。只見川古期花崗岩類の全岩試料において $\text{SiO}_2 > 72 \text{ wt}\%$ の岩石の $\delta^{88}\text{Sr}$ は約 1 ‰ に及ぶ同位体変動を示した。この同位体分別では、アノーサイトと $\delta^{88}\text{Sr}$ の相関関係から結晶分化過程における斜長石の分別結晶作用が原因として考えられる。これは、鉱物の Sr 同位体分析において、斜長石の

$\delta^{88}\text{Sr}$ は全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ よりも常に高く、斜長石には ^{88}Sr が選択的に取り込まれることと調和的である。また、他の鉱物については、アパタイトの $\delta^{88}\text{Sr}$ は斜長石と同様に全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ より常に高く、 ^{88}Sr が選択的に取り込まれるとみられるが、火成岩中での斜長石との存在量の違いを考えると火成岩における Sr の同位体分別を支配しているのは斜長石であるといえる。カリ長石と黒雲母の $\delta^{88}\text{Sr}$ は、全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ より低いものが多いが、斜長石とアパタイトのように明確な傾向はみられなかった。これらの傾向から、鉱物は晶出時に各鉱物種特有の同位体比で Sr を取り込み、岩石の固結時には鉱物晶出時とは異なるメカニズムで粒界での Sr の取り込みが行われている可能性がある。そこで、各鉱物結晶間や鉱物粒界などの微小領域の Sr 安定同位体組成を研究することが望まれる。また、斜長石の $\delta^{88}\text{Sr}$ を用いて計算された同位体分別係数 $\alpha^{88}\text{Sr}_{\text{Plagioclase-Melt}}$ は $\text{SiO}_2 < 72 \text{ wt\%}$ の岩石から計算されるレイリー過程における Sr の同位体分別係数 $\alpha^{88}\text{Sr}_{\text{Rayleigh}}$ とほぼ一致することから、 $\text{SiO}_2 < 72 \text{ wt\%}$ の全岩における同位体分別は斜長石の分別結晶作用で説明できる。ただし、 $\text{SiO}_2 > 72 \text{ wt\%}$ の全岩における同位体分別は斜長石の分別結晶作用だけでなく、温度低下や熱水反応などの複雑な要因に起因する可能性が高い。これらの結果から、 $\text{SiO}_2 < 72 \text{ wt\%}$ の只見川古期花崗岩類は斜長石の分別に伴う Sr の同位体分別の基礎的なモデル岩体といえる。

また、足摺岬複合火成岩類では、只見川古期花崗岩類から得られた Sr の同位体分別モデルとの比較と結晶分化作用以外の Sr の同位体分別の要因について、検討を行った。足摺岬複合火成岩類の全岩試料では、只見川古期花崗岩類

の全岩の $\delta^{88}\text{Sr}$ と比較すると、基本的に同一の傾向を示した。しかし、足摺岬複合火成岩類の塩基性岩脈試料が特に高い $\delta^{88}\text{Sr}$ ($>+1.05\%$) 値をもつことから、 SiO_2 量の低い塩基性火成岩においても Sr の同位体分別が起こる可能性とともに、Sr の同位体分別が起こる要因が斜長石中への重い Sr 同位体の濃集以外にも存在する可能性を示唆する。只見川古期花崗岩類の結晶分化末期の試料でみられた Sr 安定同位体組成の急激な減少と同様に、結晶分化初期または起源マグマ形成時には Sr の同位体分別の要因が複雑化している可能性がある。

また、将来的に鉍物の Sr 安定同位体組成を研究する際に、各鉍物結晶間や鉍物粒界などの微小領域に着目することが考えられるため、微小領域における鉍物のマイクロサンプリング法の開発も行った。本研究で開発した微小領域における鉍物のマイクロサンプリング法は将来的に各鉍物結晶間や鉍物粒界などの微小領域の鉍物の Sr 安定同位体組成を研究する際の応用に期待できる。

本研究により、火成活動に伴う Sr の同位体分別過程に関して、先行研究では報告されていないような幅広い Sr 安定同位体組成のデータが得られた。次に、これまで Sr の同位体分別の要因として考えられていた斜長石の分別結晶作用以外にも Sr の同位体分別を起こす要因が存在する可能性を提示することができた。この可能性を提示できた理由として、Sr 安定同位体組成の分析と並行して、対象岩体や各試料の地質学的調査を行ったことにより、議論の際に各試料の選別・評価を正確に行えたことによるところが大きい。本研究で得られた結果からも、今後の研究では Sr 安定同位体組成だけではなく、各試料の背景となる起源マグマや形成・定置過程を詳細に検討する必要があるといえる。

今後の展望としては、1) 足摺岬複合火成岩類に対する更なる地質学的調査と特異な Sr 安定同位体組成 ($\delta^{88}\text{Sr}>+1.05\%$) をもつ岩脈試料の微小領域サンプリング並びに Sr 安定同位体組成分析を行うこと、2) 他の火成岩体の Sr 安定同位体組成を調査し、只見川古期花崗岩類で得られたモデルを適応すること、3) 本研究で得られた Sr 安定同位体組成と Sr 以外の重元素の安定同位体組成との組み合わせるによる検証をすること、などが挙げられる。1) に関しては、今回得られた足摺岬複合火成岩類の特異な Sr 安定同位体組成 ($\delta^{88}\text{Sr}>+1.05\%$) がこれまで考えられていた結晶分化作用に伴う Sr の同位体分別では説明できないため、追加のサンプリングや分析が必要となる。また、これまでも火山岩の Sr 安定同位体組成は報告されているが、本研究のような特異な Sr 安定同位体組成ははじめて報告された。そこで、足摺岬複合火成岩類の岩脈試料が特殊なのか、あるいは岩脈試料の Sr 安定同位体組成が特殊なのかを検証する必要がある。2) に関しては、Sr 安定同位体組成の研究例が少ないため、研究例を増やす必要がある。それが Sr 安定同位体組成の応用にも繋がるだろう。本研究によって Sr の同位体分別の要因として、斜長石の分別結晶作用以外に新たに結晶分化末期の熱水反応が挙げられたため、対象岩体としては、熱水変成作用を経験した岩体が望ましい。3) に関しては、Sr 以外の重元素の安定同位体組成と組み合わせることによって、試料が経験した物理的・化学的過程をさらに制約することが期待される。Sr は環境試料中に普遍的に含まれるため、他の元素と比較しても対象試料を問わず幅広く応用できるだろう。本研究によって結晶分化作用に伴う Sr の同位体分別の基礎的なモデルが構築されたため、

火成岩の Sr 安定同位体組成は、火成活動に伴う他の重元素の同位体分別メカニズムを研究する際やマグマプロセスを理解する上での 1 つのトレーサーとすることができる。

謝辞

本論文の作成にあたり、関西学院大学・壺井基裕教授には野外調査も含め、多大なるご指導、助言を頂いた。

国立研究開発法人海洋研究開発機構高知コア研究所・若木重行博士には Sr 同位体比測定において様々なご指導を頂いた。

名古屋大学・山本鋼志教授、浅原良浩博士、清水美早氏には、ジルコン U-Pb 年代測定に際しご協力頂いた。

また、南雅代教授を始め名古屋大学年代測定研究部の方々には、論文執筆に際し議論して頂いた。

谷岡裕大氏を始め 2013 – 2018 年度の壺井研究室のメンバーには、日々の生活から研究に至るまで様々な場面でご助力を頂いた。特に、谷岡裕大氏、一野亘生氏には、只見川古期花崗岩類の野外調査から分析まで多大なるご助力を頂いた。

最後に、調査・実験にご協力頂いた全ての方々にお礼を申し上げるとともに、サポートして頂いた友人・家族にも感謝いたします。

引用文献

- Anders, E. and Grevesse, N., 1989, Abundances of the elements: meteoric and solar. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **53**, 197 – 214.
- Bigeleisen, J. and Mayer, M. G., 1947, Calculation of equilibrium constants for isotopic exchange reactions. *Jour. Chem. Phys.*, **15**, 261 – 269.
- Bizzarro, M., Simonetti, A., Stevenson, R. K. and Kurszlaukis, S., 2003, In situ $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ investigation of igneous apatites and carbonates using laser-ablation MC-ICP-MS. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **67**, 289 – 302.
- Chappell, B. W. and White, A. J. R., 1974, Two contrasting granite types. *Pac. Geol.*, **8**, 173 – 174.
- Charlier, B.L. A., Nowell, G. M., Parkinson, I. J., Kelley, S. P., Pearson, D. G. and Burton, K. W., 2012, High temperature strontium stable isotope behavior in the early solar system and planetary bodies. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **329**, 31 – 40.
- Cherniak, D. J. and Watson, E. B., 2000, Pb diffusion in zircon. *Chem. Geol.*, **172**, 5 – 24.
- 茅原一也・小松正幸, 1992, 八海山地域の地質. 地域地質研究報告 (5 万分の 1 地質図幅), 地質調査所, 107p.
- Corfu, F., Hanchar, J. M., Hoskin, P. W. O. and Kinny, P., 2003, Atlas of zircon textures. *Rev. Mineral. Geochem.*, **53**, 469 – 500.
- Davidson, J., Tepley III, F., Palacz, Z. and Meffan-Main, S., 2001, Magma recharge, contamination and residence times revealed by in situ laser ablation isotopic

- analysis of feldspar in volcanic rocks. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **184**, 427 – 442.
- Davidson, J. P., Morgan, D. J., Charlier, B. L. A., Harlou, R. and Hora, J. M., 2007, Microsampling and isotopic analysis of igneous rocks: implications for the study of magmatic systems. *Annu. Rev. Earth Planet. Sci.*, **35**, 273 – 311.
- Dodson, M. H., 1963, A theoretical study of the use of internal standards for precise isotopic analysis by the surface ionization technique: Part I-General first-order algebraic solutions. *Jour. Sci. Instrum.*, **40**, 289 – 295.
- Frey, F. A., Chappell, B. W. and Roy, S. D., 1978, Fractionation of rare earth elements in the Tuolumne intrusive series, Sierra Nevada Batholith, California. *Geology*, **6**, 239 – 242.
- Hamelin, B., Manhès, G., Albarede, F. and Allegre, C. J., 1985, Precise lead isotope measurements by the double spike technique: a reconsideration, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **49**, 173 – 182.
- Heimann, A., Brian, L. B. and Clark, M. J., 2008, The role of volatile exsolution and subsolidus fluid/rock interactions in producing high $^{56}\text{Fe}/^{54}\text{Fe}$ ratios in siliceous igneous rocks. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **72**, 4279 – 4296.
- 平原由香・仙田量子・高橋俊郎・土谷信高・加々島慎一・吉田武義・常青・宮崎隆・ヴァグラロフステファノフボグダン・木村純一, 2015, 東北日本弧に分布する白亜紀～古第三紀の花崗岩類の Sr・Nd・Hf 同位体組成の空間分布. *岩鉱*, **44**, 91 – 111.
- Horn, I. and Blanckenburg, F. V., 2007, Investigation on elemental and isotopic

- fractionation during 196 nm femtosecond laser ablation multiple collector inductively coupled plasma mass spectrometry. *Spectrochim. Acta*, **B62**, 410 – 422.
- Ishihara, S. and Chappell, B. W., 2007, Chemical compositions of the late Cretaceous Ryoke granitoids of the Chubu District, central Japan – Revisited. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **58**, 323 – 350.
- Ishihara, S. and Hoshino, M., 2013, Zircon and REE-rich alkaline plutonic rocks intruded into the accretionary prism at the Cape Ashizuri, Shikoku Island, Japan. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **64**(1/2), 1 – 24.
- Ishihara, S. and Matsuhisa, Y., 2004, Oxygen isotopic constraints on the geneses of the Cretaceous granitoids in the Kitakami and Abukuma terrains, Northeast Japan. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **55**, 57 – 66.
- Jomori, Y., Minami, M., Ohta, A., Takeuchi, M. and Imai, N., 2013, Spatial distribution of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios of stream sediments in Shikoku Island and the Kii Peninsula, Southwest Japan. *Geochem. Jour.*, **47**, 321 – 335.
- Kabashin, A. V. and Meunier, M., 2003, Synthesis of colloidal nanoparticles during femtosecond laser ablation of gold in water. *J. Appl. Phys.*, **94**, 7941 – 7943.
- 加々美寛雄, 2005, 本州弧に分布する白亜紀～古第三紀花崗岩の活動と起源物質. *地質学雑誌*, **111**, 441 – 457.
- 加々美寛雄・小出良幸, 1987, マントルの進化—Nd 同位体比による検討—. *地球科学*, **41**, 1 – 22.

- Kagami, H., Iizumi, S., Tainosho, Y. and Owada, M., 1992, Spatial variations of Sr and Nd isotope ratios of Cretaceous-Paleogene granitoid rocks, Southwest Japan Arc. *Contrib. Mineral. Petrol.* **112**, 165 – 177.
- 加々美寛雄・川野良信・井川寿之・石岡純・加々島慎一・志村俊昭・周藤賢治・飯泉滋・今岡照喜・大和田正明・小山内康人・田結庄良昭・田中久雄・土谷信高・柚原雅樹, 2000, 本州弧, 後期白亜紀～古第三紀珪長質火成岩の ϵSr ・ ϵNd 初生値の広域的変異. 月刊地球, **30**, 185 – 190.
- 加々美寛雄・川野良信・井川寿之・石岡純・加々島慎一・柚原雅樹・周藤賢治・飯泉滋・今岡照喜・大和田正明・小山内康人・田結庄良昭, 1999, 本州弧白亜紀～第三紀火成活動の時空変遷と下部地殻—Rb-Sr 全岩アイソクロン年代と Sr, Nd 同位体比初生値からの検討—. 地質学論集, **53**, 1 – 19.
- 河野義礼・植田良夫, 1965a, 本邦産火成岩の K-Ar dating (II) —北上山地の花崗岩類—. 岩鉱, **53**, 143 – 154.
- 河野義礼・植田良夫, 1965b, 本邦産火成岩の K-Ar dating (III) —阿武隈山地の花崗岩類—. 岩鉱, **54**, 162 – 172.
- 河野義礼・植田良夫, 1966, 本邦産火成岩の K-Ar dating (IV) —東北日本の花崗岩類—. 岩鉱, **56**, 41 – 55.
- Kimura, J.-I. and Yoshida, T., 2006, Contributions of slab fluid, mantle wedge and crust to the origin of quaternary lavas in the NE Japan arc. *Jour. Petrol.* **47**, 2185 – 2232.
- 木村祐美子, 2010, 単一花崗岩体におけるストロンチウム放射起源および安定

- 同位体の挙動. 関西学院大学理工学研究科修士論文.
- 木下修・伊藤英文, 1990, 中生代火成岩年代の地域変化に基づいた西南日本と東北日本の復元. 地質学雑誌, **96**, 821 – 838.
- 小出良幸, 1992, マントルの同位体的多様性—マントル進化へのアプローチ—. 地学雑誌, **101**, 159 – 192.
- 高地吉一・折橋裕二・小原北士・藤本辰弥・春田泰宏・山本鋼志, 2015, 213 nm Nd: YAG レーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析計を用いたジルコンの U-Pb 年代測定: Pb/U 分別補正に NIST SRM 610 を用いるための分析条件最適化. 地球化学, **49**, 19 – 35.
- Loiselle, M. and Wones, D., 1979, Mineralogy and geochemical Characteristics and origin of anorogenic granites. *Geological Society of America Abstracts with Programs*, 468.
- Ludwig, K. R., 2008, Isoplot 3.70: Geochronological Toolkit for Microsoft Excel. *Berkeley Geochronological Center Special Publication*, **4**, 77p.
- Middelburg, J. J., Van der Weijden, C. H. and Woittiez, J. R. W., 1988, Chemical processes affecting the mobility of major, minor and trace elements during weathering of granitic rocks. *Chem. Geol.*, **68**, 253 – 273.
- 村上允英・蟹沢聡史・増田康之, 1983, 高知県足摺岬第三紀火成岩類の高フッ素含有量. 岩鉱, **78**, 497 – 504.
- 村上允英・今岡照喜, 1985, 高知県足摺岬のラパキビ花崗岩. 地質雑, **91**, 179 – 194.

- 村山正郎・河田清雄, 1955, 燧岳. 5万分の1地質図幅説明書, 地質調査所, 27p.
- Nakajima, T., Shirahase, T. and Shibata, K. 1990, Along-arc lateral variation of Rb-Sr and K-Ar ages of Cretaceous granitic rocks in Southwest Japan. *Contrib. Mineral. Petrol.* **104(4)**, 381 – 389.
- 中崎峰子・壺井基裕・金川和世・加藤丈典・鈴木和博, 2004, X線分析装置 XRF-1800による岩石の定量化学分析. 名古屋大学博物館報告, **20**, 79 – 91.
- Nishimura, S. and Mogi, T., 1986, The interpretation of discordant ages of some granitic bodies. *Jour. Geotherm. Res. Soc. Japan*, **8(3)**, 145 – 164.
- 野田篤・壺井基裕・栗原敏之・内野隆之, 2014, 新潟・福島県境付近に分布するペルム系とジュラ系. 日本地質学会学術大会講演要旨 2014, R5-P-2.
- Nozawa, T., 1975, Granite and associated rocks. In Yoshida, T., ed., *An outline of the Geology of Japan (3rd. ed.)*, Geol. Surv. Japan, 24 – 30.
- Ohno, T. and Hirata, T., 2007, Simultaneous determination of mass-dependent isotopic fractionation and radiogenic isotope variation of Strontium in geochemical samples by multiple collector-ICP-Mass spectrometry. *Anal. Sci.*, **23**, 1275 – 1280.
- Okabayashi, S., Yokoyama, T. D., Kon, Y., Yamamoto, S., Yokoyama, T. and Hirata, T., 2011, Evaluation of Laser Ablation in Liquid (LAL) technique as a new sampling technique for elemental and isotopic analysis using ICP-mass spectrometry. *J. Anal. At. Spectrom.*, **26**, 1393 – 1400.
- Osanai, Y., Nogi, Y., Baba, S., Nakano, N., Adachi, T., Hokada, T., Toyoshima, T.,

- Owada, M., Satish-Kumar, M., Kamei, A. and Kitano, I., 2013, Geologic evolution of the Sør Rondane Mountains, East Antarctica: Collision tectonics proposed based on metamorphic processes and magnetic anomalies. *Precam. Res.*, **234**, 8 – 29.
- Paillat, O., Stephen, C. E. and William, L. B., 1992, The solubility of water in NaAlSi₃O₈ melts: a re-examination of Ab-H₂O phase relationships and critical behaviour at high pressures. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **112**, 490 – 500.
- Peccerillo, A. and Taylor, S. R., 1976, Geochemistry of Eocene calc-alkaline volcanic rocks of the Kastamonu area, northern Turkey. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **58**, 63 – 81.
- Russell, W. A., Papanastassiou, D. A. and Tombrello, T. A., 1978, Ca isotope fractionation on the Earth and other solar system materials. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, 1075 – 1090.
- Shibata, K. and Ishihara, S., 1979, Initial ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr ratios of plutonic rocks from Japan. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **70(4)**, 381 – 390.
- Shibata, K. and Miller, J. A., 1962, Potassium-Argon ages of granitic rocks from the Kitakami highlands. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **13(8)**, 709–711.
- Shibata, K. and Nozawa, T., 1966, K-Ar ages of the Nihonkoku gneiss, northeast Japan. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **39**, 759 – 781.
- 柴田賢・内海茂, 1983, 南部阿武隈山地花崗岩類の角閃石 K-Ar 年代. 岩鉱, **78**, 405 – 410.

- 柴田賢・蜂須紀夫・内海茂, 1973, 八溝山地の花崗岩類の K-Ar 年代, 地質調査所月報, **24**, 513 – 518.
- Shinjoe, H., Orihashi, Y. and Sumii, T., 2010, U-Pb zircon ages of syenitic and granitic rocks in the Ashizuri igneous complex, southwestern Shikoku: Constraint for the origin of forearc alkaline magmatism. *Geochem. Jour.*, **44**, 275 – 283.
- Shinotsuka, K., Hidaka, H. and Ebihara, M., 1995, Detailed abundances of rare earth elements, thorium and uranium in chondritic meteorites: An ICP-MS study. *Meteoritics* **30(6)**, 694 – 699.
- Steiger, R. and Jäger, E., 1977, Subcommittee on geochronology: convention on the use of decay constants in geo- and cosmochemistry. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **36**, 359 – 362.
- Sudo, M., Uto, K., Anno, K., Ishizuka, O. and Uchiumi, S., 1998, SORI93 biotite: A new mineral standard for K-Ar dating. *Geochem. Jour.*, **32**, 49 – 58.
- Takagi, T., 2004, Origin of magnetite-and ilmenite-series granitic rocks in the Japan arc. *Amer. Jour. Sci.*, **304(2)**, 169 – 202.
- 高橋正樹, 1985, 花崗岩系列の提唱と発展. 地質学論集. **25**, 225 – 244.
- Takahashi, T., Hirahara, Y., Miyazaki, T., Senda, R., Chang, Q., Kimura, J.-I. and Tatsumi, Y., 2013, Primary magmas at the volcanic front of the NE Japan arc: coeval eruption of crustal low-K tholeiitic and mantle-derived medium-K calc-alkaline basalts at Azuma volcano. *Jour. Petrol.*, **54**, 103 – 148.

- 高橋浩・豊島剛志・志村俊昭・原英俊・竹内圭史・酒井彰・中野俊, 2004, 須原地域の地質. 地域地質研究報告 (5 万分の 1 地質図幅), 地質調査所, 80p.
- 谷岡裕大・若杉勇輝・壺井基裕, 2014, 福島県南西部只見川古期花崗岩類の全岩化学組成および K-Ar 年代. 岩石鉱物科学, **43**, 215 – 227.
- Tanimizu, M., Araki, Y., Asaoka, S. and Takahashi, Y., 2011, Determination of natural isotopic variation in antimony using inductively coupled plasma mass spectrometry for an uncertainty estimation of the standard atomic weight of antimony. *Geochem. Jour.*, **45**, 27 – 32.
- Tatsumi, Y., Takahashi, T., Hirahara, Y., Chang, Q., Miyazaki, T., Kimura, J.-I., Ban, M. and Sakayori, A., 2008, New insights into andesite genesis: the role of mantle-derived calc-alkalic and crust-derived tholeiitic melts in magma differentiation beneath Zao volcano, NE Japan. *Jour. Petrol.*, **49**, 1971 – 2008.
- Terakado, Y. and Nakamura, N., 1984, Nd and Sr isotopic variations in acidic rocks from Japan: significance of upper-mantle heterogeneity. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **87**, 407 – 417.
- 寺岡易司・奥村公男・鈴木盛久・川上久美, 1999, 四万十帯層群の碎屑性堆積物. 地質調査所月報, **50(9)**, 559 – 590.
- Verschure, R. H., Andriessen, P. A. M., Boelrijk, N. A. I. M., Hebeda, E. H. and Maijer, C., 1980, On the thermal stability of Rb-Sr and K-Ar biotite systems: evidence from coexisting Sveconorwegian (ca 870 Ma) and Caledonian (ca 400 Ma) biotites in SW Norway. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **74**, 245 – 252.

- Wakaki, S., Obata, H., Tazoe, H. and Ishikawa, T., 2017, Precise and accurate analysis of deep and surface seawater Sr stable isotopic composition by double-spike thermal ionization mass spectrometry. *Geochem. J.*, **51**, 227 – 239.
- Wakaki, S., Tanimizu, M., Ishikawa, T. and Tanaka, T., 2013, Stable isotopic fractionation of Sr and Eu among igneous rocks. *Mineral. Mag.*, **77**, 2438.
- White, W. M., 1985, Sources of oceanic basalts: Radiogenic isotopic evidence. *Geology*, **13**, 115 – 118.
- Wiedenbeck, M., Allé, P., Corfu, F., Griffin, W. L., Meier, M., Oberli, F., Quadt, A. V., Roddick, J. C. and Spiegel, W., 1995, Three natural zircon standards for U-Th-Pb, Lu-Hf, trace element and REE analyses. *Geost. Newsl.*, **19**, 1 – 23.
- 山元孝広・滝沢文教・高橋浩・久保和也・駒澤正夫・広島俊男・須藤定久,
2000, 20 万分の 1 地質図幅「日光」, 地質調査所.
- 矢内桂三, 1972, 足尾山地北部の後期中生代酸性火成岩類, その 1. 地質. 岩鉱, **67**, 193 – 202.
- 矢内桂三, 1973a, 足尾山地北部の後期中生代酸性火成岩類, その 2. 岩石並びに造岩鉱物の記載とその考察. 岩鉱, **68**, 6 – 29.
- 矢内桂三, 1973b, 足尾山地北部の後期中生代酸性火成岩類, その 3. 形成機構と成因的考察. 岩鉱, **68**, 78 – 86.