

四国足摺岬閃長岩中の累帯黒雲母

教養部 今岡照喜

1. はじめに

一定組成の珪酸塩メルトから異なる化学組成の同一種鉱物が形成される原因は種々あるが、それらは二大別できる¹⁾。その一つは、結晶作用における物理・化学条件の相違によるものであって、例えば系全体の温度、全圧、水蒸気圧、酸素分圧あるいは化学組成などの相違で、もう一つは構造的過冷却、すなわち、結晶の成長速度とイオンの拡散速度との相互作用によるものである。前者の場合、鉱物の "stratigraphy" が成立し、特徴的なパターン (鍵層) が見られる場合には対比によって地質学的な事件の起きた時期 (例えば、マグマの上昇による圧力の低下時期) を推定することが可能であるが、後者の場合にはそれがむずかしい。

系全体が平衡を保つためには、結晶と液の両方で、濃度勾配をもたらしなくらい拡散が早くなければならない。このことは crystal interface の進行が拡散に対してゆっくりであることが必要である。濃度勾配は液体中では拡散速度を成長速度が上回った時、また、結晶中では液との反応速度が成長速度よりも遅い時に起こる。

一般に雲母族鉱物は他のマフィック鉱物と異なり累帯構造を有することが少なく、その報告例も少ない。それは雲母族鉱物は、拡散を起こしやすい層状珪酸塩構造のためであると言われている。今岡・村上²⁾ は四国足摺岬の中新世閃長岩中に複雑な累帯構造を有する黒雲母を見いだした。研究は進行中であるが、この小論では現在までに得られている累帯黒雲母の産状と化学組成に関するデータをまとめ、その生成条件について考察する。本稿は荒げずりの段階であり、諸賢のご批判を賜りたい。

2. 累帯黒雲母の産状

西南日本外帯には中期中新世のエピソード的な火成活動の産物である花崗岩類や火山岩類が分布している³⁾。四国足摺岬にもその一員である深成複合

岩体が分布している。この岩体は径約 8 km の小規模な岩体で、構成岩石はおもに花崗岩類、斑れい岩類および閃長岩類からなる⁴⁾。

累帯黒雲母は足摺岬に分布する深成岩類のうち、閃長岩類 (閃長岩・石英閃長岩・アルカリ花崗岩) およびペグマタイトにはごく普遍的に見いだされ、容量にして最大約 5% 含まれる。斑れい岩類と花崗岩類には含まれない。図 1 は本地域に産する深成岩類のモード組成を、累帯黒雲母を含む試料と含まない試料に分けて示したものである。この図より明らかのように、累帯黒雲母を含む試料はモード組成の上で I.U.G.S. Subcommission⁵⁾ によるアルカリ長石石英閃長岩、アルカリ長石閃長岩、閃長岩のフィールドにプロットされるもので、アルカリ長石をモードで約 70% 以上含む岩石に限られる。

閃長岩類を構成する主要なマフィック鉱物は、鉄かんらん石 (土)・単斜輝石 (土)・角閃石・黒雲母である。角閃石や黒雲母のような含水鉱物はカリ長石や石英よりも後で晶出しており、"dry" なマグマであったことを示す。副成分鉱物としては、イルメナイト・磁鉄鉱 (土)・スフェン・アラナイト・蛍石・ジルコン・アパタイト・ウラノトーライト・コロンバイト・パイロクロア・ラトラパイト・チェフキナイト⁶⁾ が見られる。

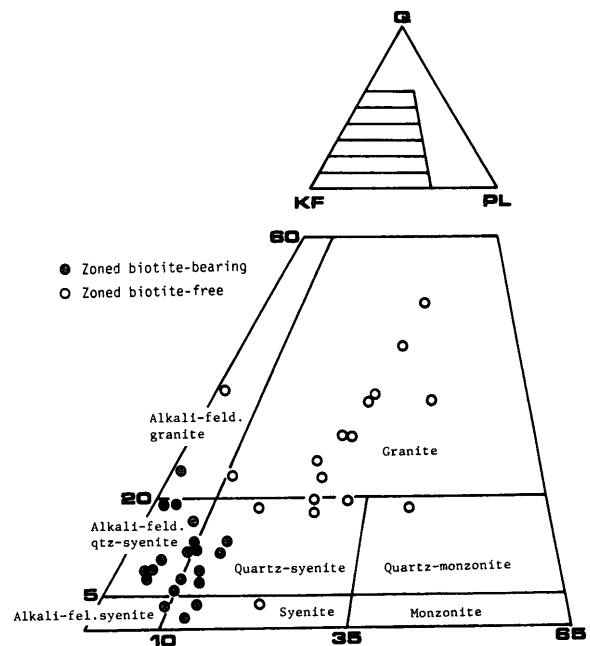


図 1 累帯黒雲母を含む試料と含まない試料の母岩のモード比

図2は累帯黒雲母の産状を示したものである。ほかの鉱物との関係を見ると、①角閃石を取り囲む(図2A)。したがって、累帯黒雲母は角閃石よりも後で晶出したものと推定される。②カリ長石と斜長石の間隙を充填して他形結晶として産する(図2B)。③スフェン・蛍石と密接な共生関係を示す。黒雲母の中央部は褐色(赤味)が強く、累帯構造をしていることが分かる。(図2C)。④カリ長石のパーサイトに沿って見られ、他形結晶を示す。この産状は長石がサブソルバスにおいて離溶した後に晶出したものであることを示す。⑤まわりをアルカリ長石と斜

長石で取り囲まれたミアロリティック空隙に産するもので、繊維状(ひげ状)結晶と共存している(図2D)。六角の自形柱状結晶をしており、カラー・ゾーニングが明らかである。図2Eは、同じくミアロリティック空隙に産する結晶であるが、ほぼC軸に垂直に切った結晶とC軸に平行に切った結晶が近くに産出している。このような産状から累帯黒雲母結晶はC軸方向に伸長した六角棒状の晶癖をもつものと推定される。⑥中央部に濃緑色の緑泥石(pseudothringite, daphnite)があり、その周りにepitaxial overgrowthした累帯黒雲母が見られることが

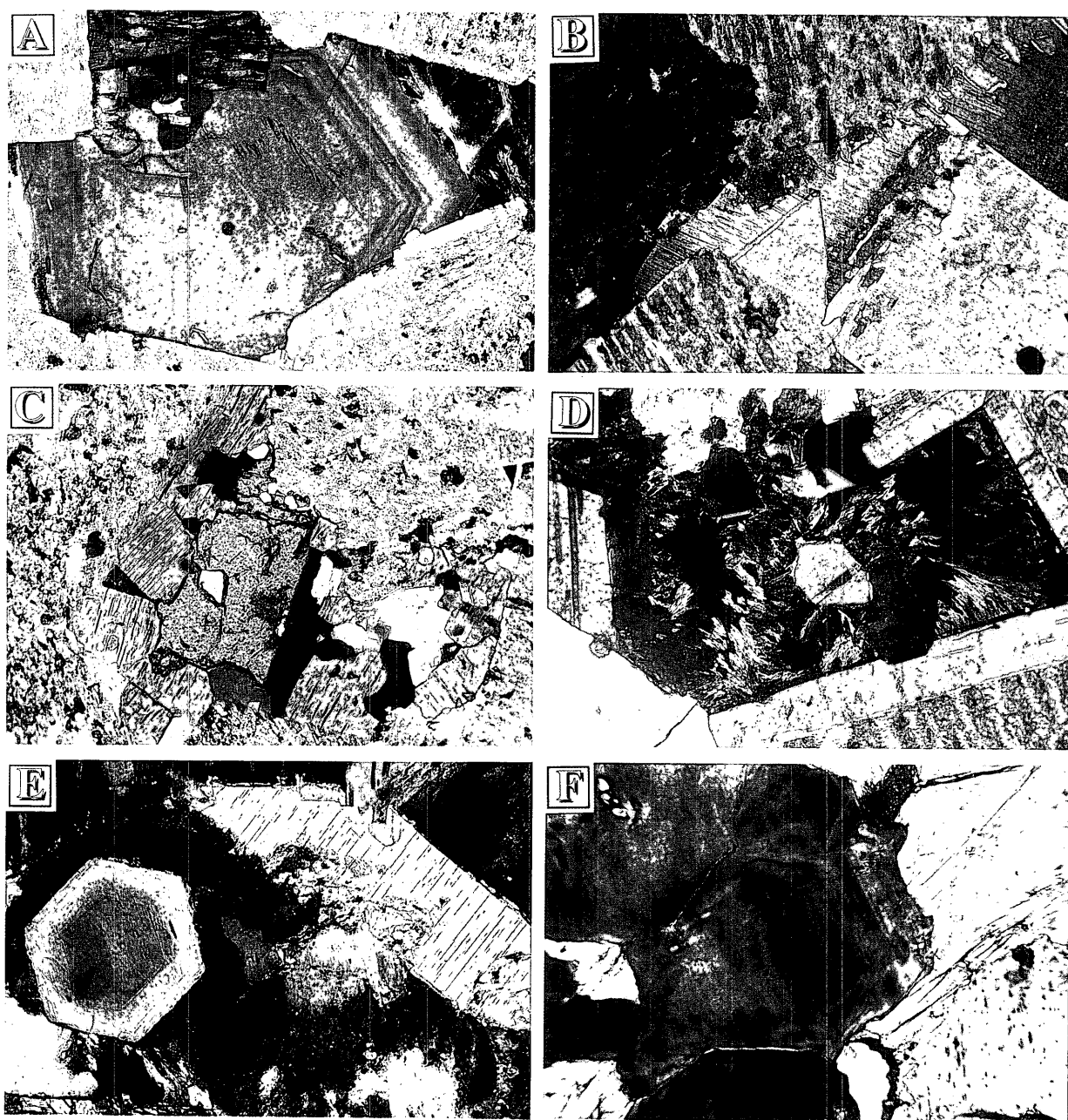


図2 累帯黒雲母の産状

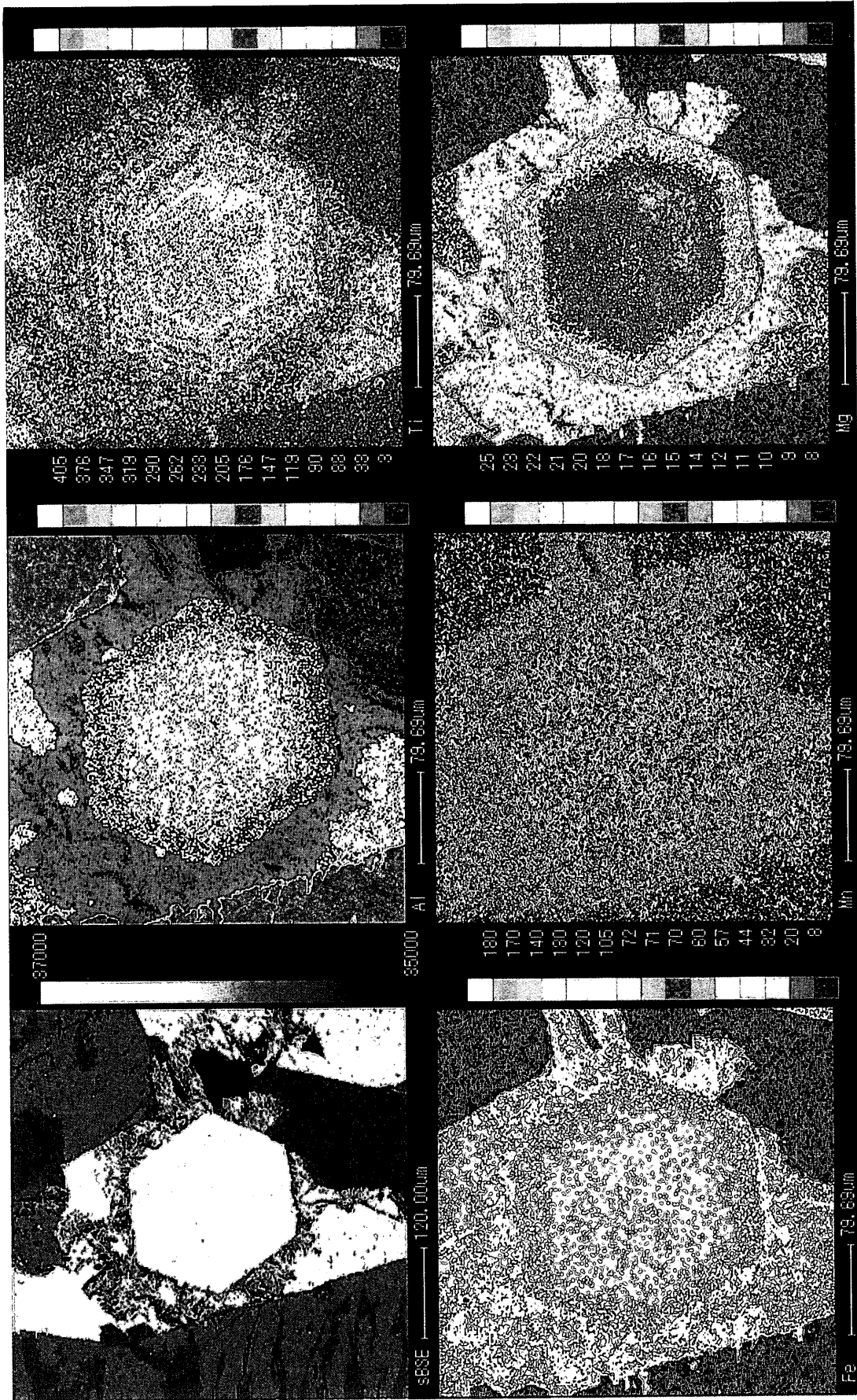


図3 累帯黒雲母のカラーマッピング

ある(図省略)。これはきわめて緑の色調が強いので Fe^{3+} が多いのであろう。黒雲母というよりは、レピドメレーンという方が適当であろう。類似の雲母はペグマタイト中にも認められる。⑦ ペグマタイト中に産する結晶。足摺岬には小規模な鉄かんらん石ペグマタイトが産出し、その中に褐色のコアと緑色のリムの発達した雲母が見られる(図2 F)。⑧ 石英の間隙充填結晶として産する。

以上の産状から、足摺岬の累帯黒雲母はマグマ期の末期から気相に富んだペグマタイト的な環境で晶出したものと推定される。ミアロリット空隙中の結晶は気相晶出の可能性もある。

3. 累帯黒雲母の化学組成

(1) 黒雲母のカラーマッピング

累帯構造のパターンを理解するために、1結晶粒子内の化学組成変化について検討した(図3)。カラーマッピングには山口大学機器分析センターに設置の島津製 EPMA V6 を使用した。図3の黒雲母試料はほぼC軸に垂直に切った結晶である。各元素について検討する。Tiについて見ると、全体的にはコアで高く、リムで低い。とくにリムではその上に細かな反復累帯構造がオーバープリントされている。図4は累帯黒雲母の周辺部を拡大したものである。顕微鏡下では褐色の部分と黄色の部分が見られる。Tiはこの図のように著しい反復累帯構造を示し、褐色(赤味)の色調が強い部分はTiに富む。ひとつひとつのゾーンの波長(幅)や濃度が異なる。しかもその濃度は、場所によって異なり不規則である。Alはコアで高く、リムで低い(図3)。Mgは大局的に見るとコアで低く、リムで高い。Feはコアからリムに向かって徐々に減少している。したがって、mg値がコアからリムに向かって増加する逆累帯構造をしている。MgはTiと逆相関を示し、結晶周辺部ではこれに反復累帯構造が加わる。Mnはコアとリムで顕著な違いが認められない。

TiやMgは一結晶内に比較的明瞭な境界が認められるが、FeやAlの場合は徐々に外側に向かって減少している。このような元素の濃度分布パターンの違いは、各元素の拡散速度のちがいを表しているであろう。

(2) 黒雲母の色と化学組成の関係

図5には鏡下でカラーゾーニングが明瞭に識別される結晶の模式的なスケッチを示す。この試料はほぼC軸に垂直に切った結晶で、結晶はAゾーンを中心に同心円の累帯構造をしており、中心より結晶成長していったようにみえる。もしそうであるならばこれは growth banding といえる。カラーゾーニングに対応した組成のゾーニングが見られる。各種元素のEPMAによるスキヤニング・プロファイルを図6に示す。Al, Mgは増加と減少を繰り返している。各元素はA~Hに向かって単純な増加と減少を示さず、むしろそのパターンはオシラトリーであるといえる。そしてその波長はTiでみる限り10~20ミクロンである。各元素のうち、Tiが最もカラーゾーニングに対応している。例えば、Eゾーンは褐色の色調が強いが、そこでは最もTiに富んでいる。さらに淡褐色のゾーン(F, H)は淡緑色のゾーン(G)よりもTiに富む。この結果はHayama⁷⁾による黒雲母の色

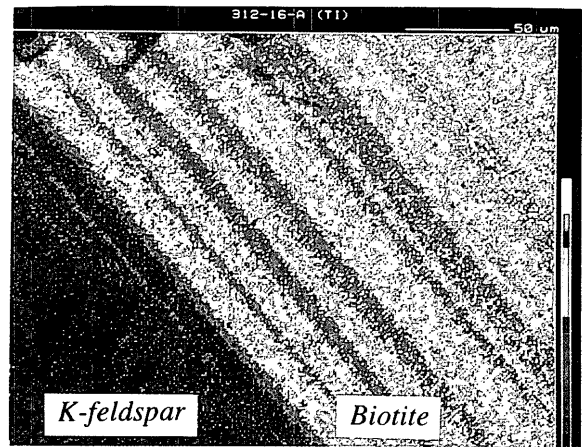


図4 累帯黒雲母周辺部のTiの反復累帯構造

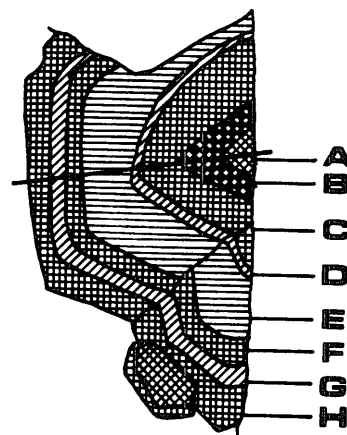


図5 鏡下でカラーゾーニングが明瞭に識別される結晶の模式的なスケッチ

と化学組成との関係に調和的である。

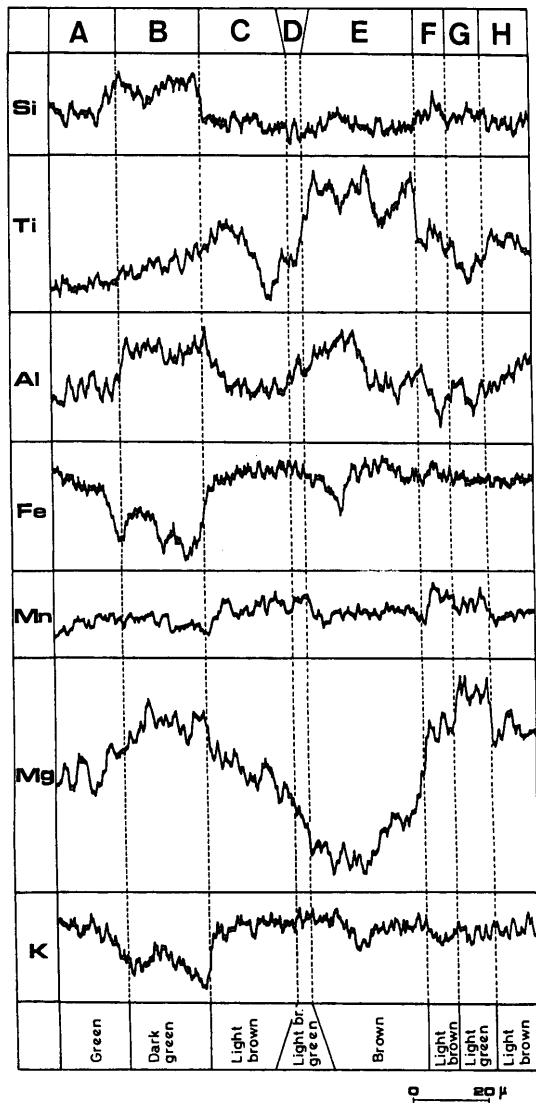


図6 スケッチ (図5) の実線に沿った各元素の
スキャンニング・プロファイル

(3) 黒雲母の産状による化学組成の違い

石英閃長岩中の黒雲母を例として、以下の三者の化学組成について比較検討を行った。鏡下で黒雲母は、① 累帯構造の著しいもの (表1, ZB-01, ZB-02, ZB-03), ② 光学的には均質で、間隙充填的に産するもの (図7; 表1, IF-01, IF-02), ③ 光学的には均質で、角閃石や黒雲母の集合体をなすもの (図8; 表1, AG-01, AG-02), に区別される。これら三者は同一薄片中被見られる。①の黒雲母は鏡下でその軸色が1粒子内でもY≒Z=濃緑色~緑色~緑褐色~褐色の範囲で変化し、2~3層の単純なものから、数10層のものまで変化に富む。晶癖も自形のもの

のから他形のものまで見られる。②の黒雲母は他形で間隙充填的に産する。光学的には均質であるが、EPMAで検討すると、化学的には不均質である。場所によってTi量に変化が見られる。①の試料と比較し、ややFeO*に乏しく、MgOに富む。③の黒雲母は

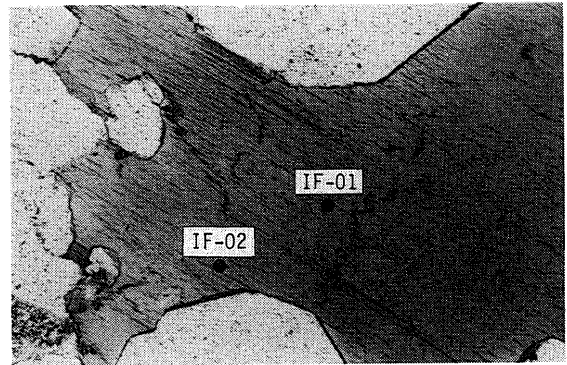


図7 間隙充填的に産する黒雲母

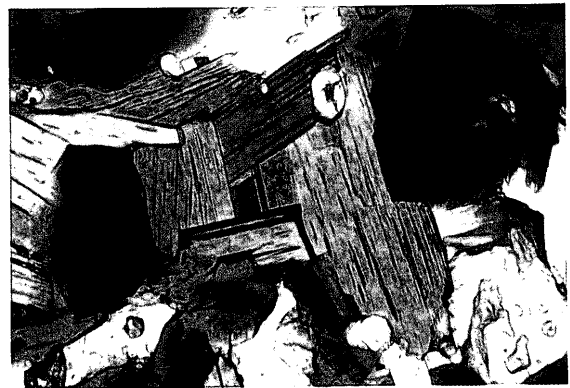


図8 黒雲母集合体

表1 黒雲母の産状による化学組成のちがい

	ZB-01	ZB-02	ZB-03	IF-01	IF-02	AG-01	AG-02
SiO ₂	37.54	37.82	35.83	35.68	37.00	35.96	36.03
TiO ₂	0.03	0.01	0.75	0.67	0.13	3.40	3.52
Al ₂ O ₃	9.15	8.66	9.81	9.54	9.45	10.36	9.78
FeO*	40.24	40.12	39.75	39.72	39.70	34.22	34.23
MnO	1.09	1.10	0.89	0.78	0.86	0.48	0.40
MgO	0.55	0.58	0.57	1.11	0.95	3.69	3.51
CaO	0.05	0.02	0.05	0.00	0.00	0.00	0.02
Na ₂ O	0.07	0.08	0.05	0.02	0.05	0.09	0.12
K ₂ O	7.13	7.89	7.28	7.77	7.85	7.98	7.89
Total	95.85	96.29	94.99	95.28	95.99	96.18	95.51

* Total Fe as FeO

しばしば角閃石とも集合体をなす。一般に褐色の多色性を示す。①や②の黒雲母に比較し、③の黒雲母はTiO₂, Al₂O₃, MgOに富み、FeOに乏しい(表1)。黒雲母のMg値は集合体をなすもの→光学的に均質なもの→累帯構造の顕著なもの順に減少する。このような一枚の薄片中における結晶粒子内あるいは結晶粒子間における化学組成上の不均質性は、マグマからの結晶作用において平衡が達成されなかったか、あるいはサブソリダスでの再平衡が達成されなかったことを示している。

(4) 花崗岩類、斑れい岩類中の黒雲母との比較

図9,10はTiO₂-FeO*図, Al₂O₃-TiO₂図に足摺岬のペグマタイト、閃長岩類、花崗岩類、斑れい岩およびアルカリ・ドレライト中の黒雲母およびナイジェリアのYounger Granite (アルカリ花崗岩)⁸⁾中の黒雲母をそれぞれプロットしたものである。両図から明らかのように、足摺岬閃長岩中の黒雲母は斑れい岩や花崗岩中のそれに比較すると、著しくFeO*に富み(最大41%), MgO (0.4 - 3.7%), TiO₂ (0.01 - 3.8%), Al₂O₃ (7.8 - 11.3%) に乏しい。このような黒雲母は従来記載されている本邦産黒雲母のうちで最もFeに富むものであろう。ペグマタイト中の黒雲母は著し

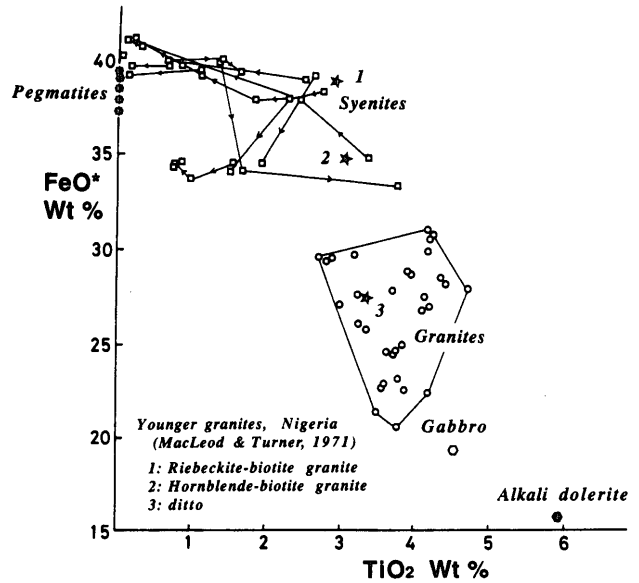


図9 黒雲母の-TiO₂-FeO*図

くTiO₂, Al₂O₃に乏しく、FeO*に富み、一部の閃長岩中のものに類似する。閃長岩中の黒雲母はmg値が小さく、純粋なアナイトに近い組成を有する。これらは MacLeod and Turner⁸⁾により記載されたナイジェリア産のリーベック閃石-アルベゾン閃石-黒

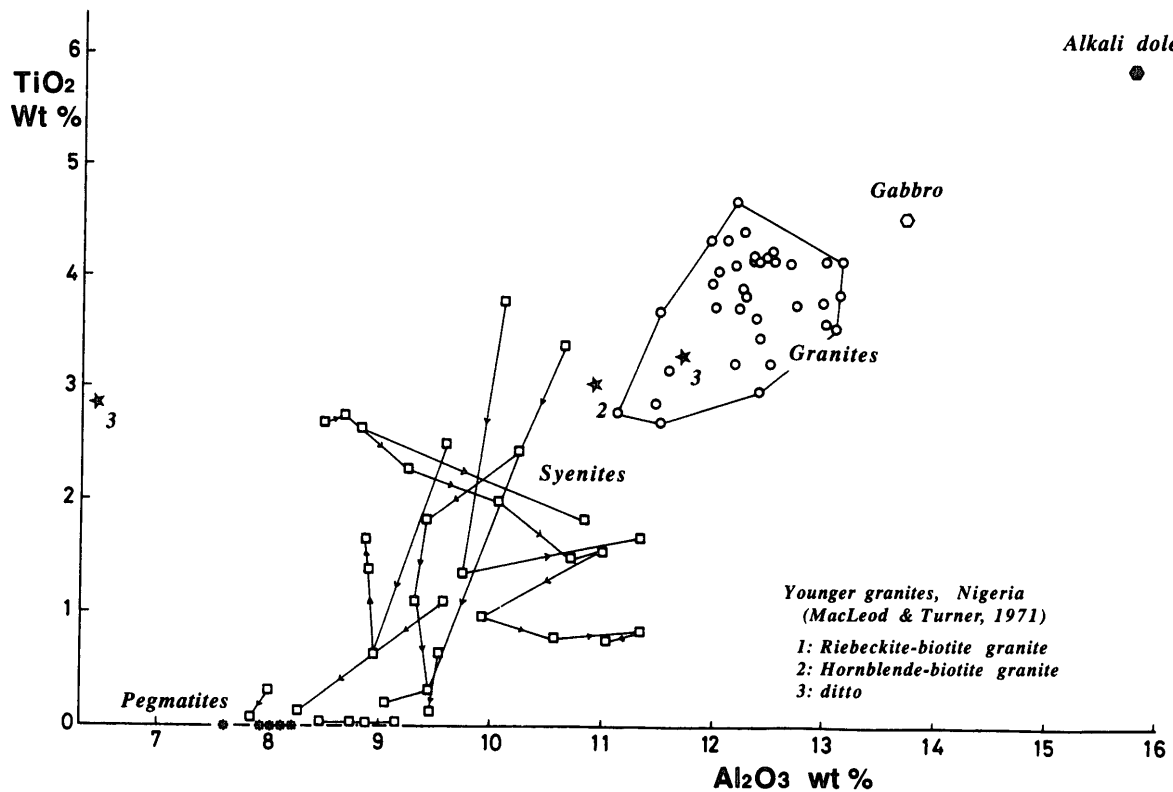


図10 黒雲母のAl₂O₃-O₂図

雲母花崗岩中のアナイトに似ている。アルカリ・ドレライトは最もTiO₂, Al₂O₃に富み, FeO*に乏しい。

アルカリ・ドレライト, 斑れい岩, 花崗岩類, 閃長岩類は両図で明瞭に区別され, 岩石タイプ間の差異は, 結晶粒子内あるいは産状による違いをはるかに凌駕している。

4. 考察

(1) 黒雲母のTiに関する累帯構造の起源

既述した累帯黒雲母には各元素において組成変化が認められるが, この項では, とくにTiに焦点をあてて考察する。黒雲母中のTi含有量については, 多くの研究者によって論じられているが, それらは大きく, ①温度依存性, ②共存するTi鉱物, すなわち磁鉄鉱, スフェン, イルメナイトによる影響, ③結晶の成長速度⁹⁾に区分される。①の温度依存性については, Carmichael¹⁰⁾やGuidotti *et al.*¹¹⁾などが述べているように, 温度が低い方がTiO₂が低くなると考えられている。実験的にもフロゴサイト中のTiの溶解度が確かめられている¹²⁾。

今回の検討は同じ岩石中での比較であるので, 等化学性と考え, ②の影響は無視して考える。黒雲母のカラー・ゾーニングでは, 図2のようなブラウン・コアとグリーン・リムというパターンが一般的であることが明らかとなり, Ti含有量は中心部が高く, 周辺部で低い(図3)。組成的には黒雲母集合体をなす黒雲母は累帯黒雲母のコアに, ペグマタイト中の黒雲母は累帯黒雲母のリムに類似しており, それぞれ対比可能である。このような大局的な"stratigraphy"の成立, システマティックな変化は③の結晶成長などその場のカイネチックスより, 物理・化学条件, すなわち, 温度依存性によって説明されよう。すなわち, ブラウン・コアからグリーン・リムへの変化は温度低下を反映していると考えられる。さらに同じ岩石中の産状を異にする黒雲母については, 産状とTi含有量から判断して, 温度低下に伴って, 黒雲母クロットをなす自形黒雲母→光学的に均質で, 間隙充填的に産する他形黒雲母→累帯構造を有する黒雲母の順に晶出したものと考えられる。また閃長岩の中の累帯黒雲母やペグマタイト中の黒雲母は花崗岩類中のものに比較し, より低温で結晶作用を行ったものと推定される。

一方で, 黒雲母結晶のグリーン・リムにみられる反復累帯構造において, ひとつひとつのゾーンの波長(幅)や濃度が異なり, しかもその濃度は, 場所によって異なり不規則であることが記載された。このような累帯構造の成因については, 結晶成長場のカイネティックスの立場から別途検討する必要がある。

(2) 累帯構造形成の背景: 岩石の化学組成の影響

最後にこのような累帯構造や結晶粒子間における化学組成の相違が形成された背景について考察してみよう。足摺岬の閃長岩類はアルカリ, 特にK₂O, Rb, U, Th, Zr, Y, LREE等のインコンパティブル元素に富み, 閃長岩類は全岩組成の上でwo-normativeで, (Na+K)/Al>0.9を示し, peralkalineに近い性質を示す⁴⁾。このようにアルカリに富むことが相平衡や結晶作用に与える影響については, 多くの実験が知られている。例えば, Luth¹³⁾によれば, peralkaline haplogranite systemにおけるexcess alkaliの影響の重要性は, ①リキダスおよびソリダスの温度が類似のNa:K:Si比を有するhaplogranite systemに比較して下げられる。②excess alkaliの存在は珪酸塩メルト中にH₂Oの溶解度を大きく増進させる。そしてついには珪酸塩メルトがH₂Oで過飽和になり気相と連続する。③アルカリは珪酸塩メルト中に連続的に溶かし込むことができる。これは珪酸塩メルト中にAl₂O₃が少し入っただけで飽和するのと対照的である。

さらに足摺岬の火成岩類は日本列島の他地域の花崗岩類に比較し, 著しく高いフッ素含有によって特徴づけられる¹⁴⁾。累帯黒雲母を含む試料についてみると, 優黒質閃長岩で589~1900ppm, 閃長岩および石英閃長岩で1560~2480ppm, アルカリ花崗岩で1010~4390ppm含有される。haplogranite (NaAlSi₃O₈-KAlSi₃O₈-SiO₂) systemにおけるFの影響は, ①最低融点を下げる, ②最低融点をアルバイト側にシフトさせることが知られている¹⁵⁾。著しくアルカリ, フッ素に富み, シリカに不飽和な岩石の化学的環境は, 黒雲母の結晶作用の温度を著しく低下させたであろう。

5. おわりに

四国足摺岬の閃長岩中に本邦で最もFeに富み, 累

帯構造を有する黒雲母を記載した。含水鉱物が間隙充填的に産することや長石がハイパーソルバスの性質を示すことを考え併せると、マグマ進化の早期においてはメルトは"dry"であったものと推定される。"dry"なマグマにおいては fO_2 もまた低く、磁鉄鉱やイルメナイトの結晶作用を遅らせ、著しく高いFe/Mg比の黒雲母が晶出した。またアルカリやフッ素に富み、シリカに不飽和な岩石の化学的環境においては、ソリダスが下げられ、黒雲母は著しく低い温度で結晶作用を行ったであろう。すなわち、マグマ期後期からペグマタイト期へ連続するような、気相に富んだ、低温条件で晶出した。このような低温条件下では拡散が起こりにくく、リセットが十分に行われることなく累帯構造が残ったものと考えられる。グリーン・リムにおけるTiの反復累帯構造の成因としては Allègre *et al.*¹⁶⁾ の主張する結晶成長場のカイネティクス¹⁸⁾ が重要と考えている。今後、電顕による観察なども進めて行く予定である。

謝辞 山口大学機器分析センターの飯石一明センター長には、本報告を発表する機会を与えていただいた。EPMA V6の使用にあたっては森福洋二技官には技術指導をいただき、永尾隆志助教授には便宜を図っていただいた。また図4は広島大学理学部の早坂康隆氏に撮影していただいた。以上の方々に感謝の意を表します。

参考文献

- 1) Sibley, D. F., Vogel, T. A., Walker, B. M. and Byerly, G. (1976) ; The origin of oscillatory zoning in plagioclase: A diffusion and growth controlled model. *Am. Jour. Sci.*, 276, 275-284.
- 2) 今岡照喜・村上允英 (1981) ; 高知県足摺岬閃長岩中より見出された zoned biotite. 三鉱学会講演要旨, 151.
- 3) 高橋正樹 (1986) ; 日本海拡大前後の"島弧" マグマ活動. *科学*, 56, 103-111.
- 4) 村上允英・今岡照喜・魚住誠司 (1989) ; 高知県足摺岬の環状複合岩体とその形成機構. *地団研専報*, No. 36, 115-142.
- 5) I.U.G.S. Subcommission (1973) ; Plutonic rocks. Classification and nomenclature recommended by the IUGS Subcommission on the Systematics of Igneous Rocks. *Geotimes*, Oct., 26-30.
- 6) Imaoka, T. and Nakashima, K. (1994) ; Chevkinite in syenites from Cape Ashizuri, Shikoku Island, Japan. *N. Jb. Miner. Mh., H. 8.*, 358-366.
- 7) Hayama, Y. (1959) ; Some considerations on the color of biotite and its relation to metamorphism. *Jour. Geol. Soc. Japan*, 65, 21-30.
- 8) MacLeod, W. N. and Turner, D. C. (1971) ; The Younger Granites. In MacLeod, W. N. et al., eds, *The Geology of the Jos Plateau*. *Bull. Geol. Surv. Nigeria*, no. 32, 48-90.
- 9) Baronnet, A. and Velde, B. (1977) ; Iron content of synthetic phlogopite as a function of growth rate. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 37, 150-153.
- 10) Carmichael, I. S. E. (1967) ; The mineralogy and petrology of the volcanic rocks from the Leucite Hills, Wyoming. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 15, 24-66.
- 11) Guidotti, C. C., Cheney, J.T. and Guggenheim, S. (1977) ; Distribution of titanium between coexisting muscovite and biotite in pelitic schists from northwestern Maine. *Am. Mineral.*, 62, 438-448.
- 12) Robert, J.L. (1975) ; An experimental study of phlogopite solid solutions in the system K_2O - MgO - Al_2O_3 - SiO_2 . Solubility of titanium in phlogopite solid solution. *Geol. Soc. Am. Abst. with Programs*, 6-7, 844-845.
- 13) Luth, W.C. (1976) ; Granitic Rocks. In Bailey, D. K. and Macdonald, R. eds, *The Evolution of the Crystalline Rocks*, 335-417.
- 14) 村上允英・蟹沢聰史・石川賢一 (1983) ; 高知県足摺岬産第三紀火成岩類の高フッ素含有量. *岩鉱*, 78, 497-504.
- 15) Manning, D.A.C. (1981) ; The effect of fluorine on liquidus phase relationships in the system Qz-Ab-Or with excess water at 1 kb. *Contrib. Mineral. Petrol.*, 76, 206-215.
- 16) Allegre, C. J., Provost, A. and Jaupart, C. (1981) ; Oscillatory zoning: a pathological case of crystal growth. *Nature*, 294, 223-228.