

近畿地方田上花崗岩の化学的特性 — 特に放射性元素と希土類元素の役割 —

石原舜三¹・中野聰志²・寺島 滋³

Shunso Ishihara, Satoshi Nakano and Shigeru Terashima (2005) Chemical characteristics of the Tanakami Granite, Kinki district - particularly important role of the radioactive and REE components -. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 56 (3/4), p.93 - 98, 2 figs., 2 tables.

Abstract: The late Cretaceous Tanakami Granite is composed of well fractionated biotite granite of the ilmenite-series having high silica and alkali contents (73.3-76.7% SiO₂; 8.0-8.9% Na₂O+K₂O), and high Rb/Sr ratios. The core of the pluton is coarse grained, containing high F and Li contents, but low at the margin, implying these volatile components were diffused out during the crystallization. The Granite is rich in rare-earth elements (REE), especially of HREE, and radioactive components. The magma is considered to have originated in reduced felsic materials, then fractionated and emplaced. The radioactive decay heat may have provided enough heat to generate hydrothermal fluid system and resulting the mica-clay mineralizations within the granitic body.

Keywords: Tanakami, late Cretaceous, biotite granite, mica-clay deposits, REE, U and Th

要 旨

滋賀県南部, 田上花崗岩体の代表的試料 6 個について主化学成分と微量成分とを明らかにし, 特に希土類元素と放射性元素の持つ意味について考察した. 田上花崗岩は珪長質 (73.3 ~ 76.7% SiO₂; 8.0 ~ 8.9% Na₂O+K₂O) であり, Rb/Sr 比は高くマグマ分化が進んでいる. アルミナ過剰度は 1.05 前後であり, I タイプに入る. 粗粒な中心相は F, Li などに富み, 細粒周縁相はこれら揮発性成分に乏しい. 田上花崗岩は全体的に希土類元素と放射性元素に富み, 特に重希土類元素に卓越し, フラットな希土類パターンを示す. その原因は, 原岩が還元的な珪長質物質であり, かつマグマ分化作用が進んだことに求められる. 雲母粘土化変質作用の熱源は花崗岩中の放射壊変熱であった可能性が指摘された.

1. まえがき

西南日本内帯の山陽帯の花崗岩類は発する放射能が岩体によって異なる. 早瀬 (1961) はこれら花崗岩類の構成鉱物が出す α 線量を研究し, その量が少ないパソリス状岩体と多いストック状岩体とに分類した. そして後者に属する岩体として中部地方の苗木, 瑞浪 (または土岐), 近畿地方の石樽, 田上山, 笠置, 中国地方の岡山, 尾道, 柳井などを挙げた. 早瀬 (1961) の放射線量の研究は, その後の U, Th 含有量の実測によって土

岐 - 苗木地域その他で確認された (石原ほか, 1969).

放射性鉱物に富む花崗岩類は, 花崗岩を母岩とするペグマタイトの煙水晶の存在, 放射性鉱物の種類やそのメタミクト状態を見ることで知ることができる. 小関・松原 (1961) は岐阜県苗木地区のペグマタイト中の主要放射性鉱物としてフェルグソナイト, ユークセン石, モナズ石, サマルスカイト, 恵那石を挙げ, 田上地区ではフェルグソナイト, モナズ石の他, 少量鉱物として褐簾石, ガドリナイト, ゼノタイム, イットロタンタライト, ジルコンを記載している.

以上の放射性鉱物は主成分として希土類元素を含んでいる. したがって母岩の花崗岩も希土類元素に富んでおり, 苗木花崗岩の希土類元素含有量は平均して 249 ppm (76.6% SiO₂, n=9, Ishihara and Wu, 2001) であり, 同じく珪長質なストックである山陰帯の平瀬花崗岩 (152 ppm, 74.9% SiO₂, n=12) よりもかなり高い. 田上花崗岩についても高い希土類元素含有量が予想されるが, この種の研究は行われていない. ここでは予察的な化学分析を行うとともに, 含まれる希土類元素や放射性元素の持つ意味について考察する.

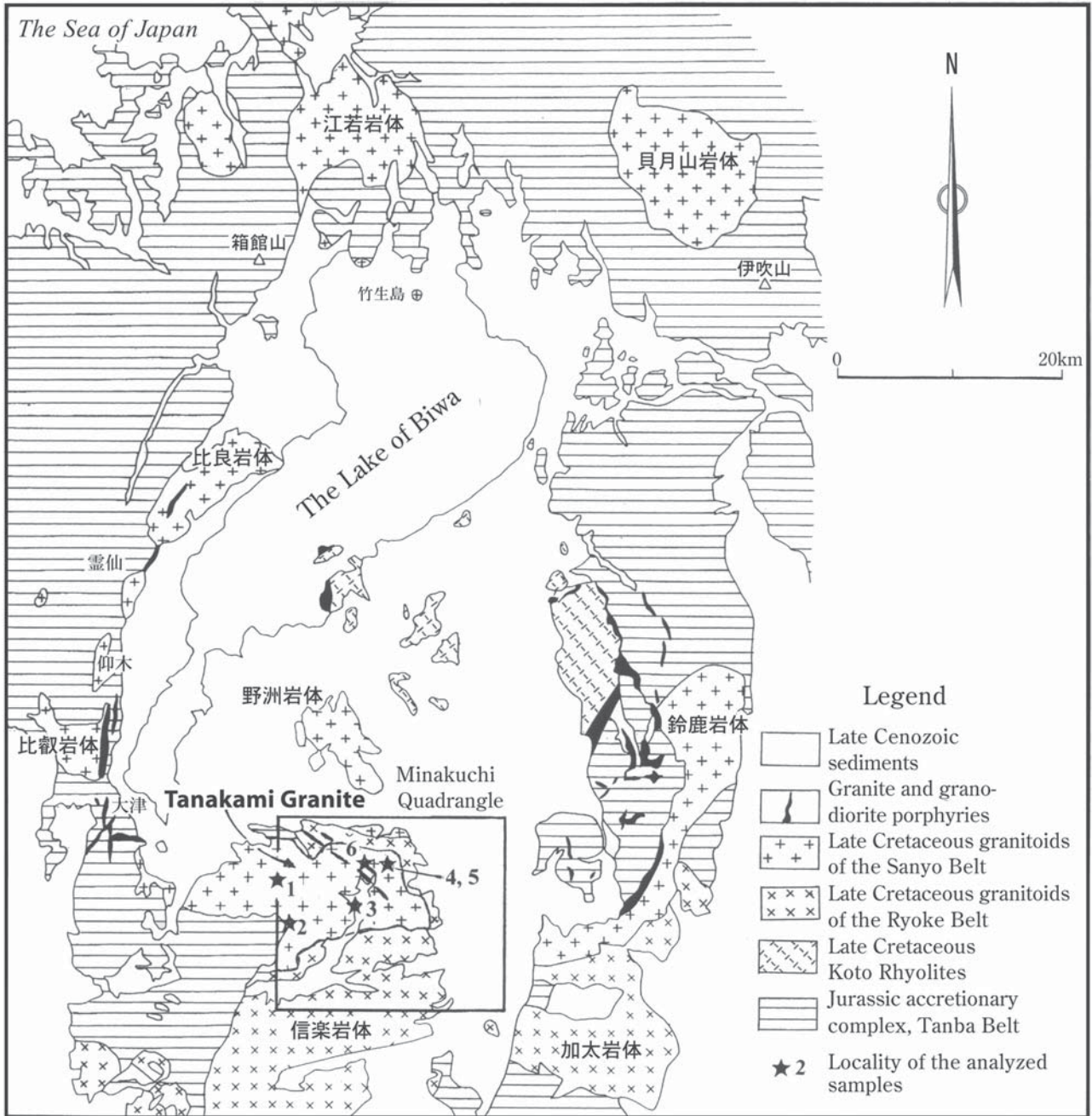
2. 地質概況

田上岩体を含む「水口」図幅については, 最近 5 万分の 1 地質図幅が出版された (中野ほか, 2003). それによると同図幅地域を含む琵琶湖周辺域の地質概況は丹波帯のジュラ紀付加体に後期白亜紀の花崗岩質マグ

¹産業技術総合研究所 (Geological Survey of Japan, AIST, Higashi 1-1-1, Tsukuba 305-8567, Japan)

²滋賀大学教育学部 (Faculty of Education, Shiga University, Hiratsu 2-5-1, Otsu 520-0862, Japan)

³地質情報研究部門 (Institute of Geology and Geoinformation, GSJ)



第1図 琵琶湖周辺域の白亜紀花崗岩類の分布と分析試料(1～6)の位置 (中野ほか, 2003 に加筆).

Fig. 1 Distribution of the late Cretaceous granitic rocks including the Tanakami Granite and the locality of the analyzed specimens (modified after Nakano *et al.*, 2003).

マが貫入、一部で噴出するもので、その後これらは第三紀・第四紀堆積岩類に覆われる(第1図)。花崗岩類の多くは独立岩体として分布し、田上・信楽・加太・鈴鹿・貝月山・江若・比良・比叡岩体と名付けられている。これらのうち、信楽及び加太花崗岩体は鉱物の弱い定方向配列を持ち、領家帯の新期花崗岩類に属するとされた(例えば周琵琶湖花崗岩団研グループ, 1982)。その他の岩体は主に塊状の黒雲母花崗岩からなり、山陽帯の花崗岩類に属するものである。また、田上・鈴

鹿・比良・比叡の諸岩体は同時期に形成された環状貫入岩体で、湖東流紋岩の活動期に巨大なコールドロンに伴って貫入した可能性が指摘されている(沢田ほか, 1994)。

田上花崗岩体は大津市から信楽町にかけて東西約20 km、南北6～15 kmで分布する。岩体の西側では中生界中に高角度で貫入している。また、岩体南部の信楽町長野付近では信楽花崗岩を東北東・西南西に貫き、その捕獲岩も見られる。黒雲母のK-Ar年代は、信楽町

田上花崗岩の化学的特性(石原ほか)

田代付近の2試料について73.3 ± 3.6 Ma と74.7 ± 1.5 Ma, 岩体東部の信楽花崗岩との境界に近い試料においてやや若い67.9 ± 1.4 Maが得られている(沢田・板谷, 1993). 一部に花崗斑岩と花崗閃緑岩の岩脈が分布する.

主な岩相は, 等粒状 - 弱斑状, 中 - 粗粒の黒雲母花崗岩であり, 一部にペグマタイトや不均質な周縁相を伴う. 石英は単独の粒状結晶が多く, アルカリ長石は正長石 - 微斜長石であり, 三斜度は岩体の周縁部でほぼゼロであるが, 内側に向かって急激に高くなっている(最大値0.8; 西村ほか, 1990).

田上花崗岩体は全て黒雲母花崗岩からなり, 水口図幅では次の4岩相に分類された(中野ほか, 2003).

Gt1 細粒相: 岩体西部と天井相のみのごく一部に産出.

Gt2 細 - 中粒斑状相. 不均質.

Gt3 中 - 粗粒等粒状相. 最も広く分布する.

Gt4 中 - 粗粒斑状粒相. 岩体の中心部, Gt3 に漸移.

これらの相互関係は漸移であり, 最末期に岩脈類が貫入する.

田上花崗岩体には長石鉱床が多く分布する特徴がある. これは変質花崗岩, アプライト質花崗岩, 交代性長石に分類される(須藤, 2001). これらは黒雲母が少ない花崗岩やアプライト質花崗岩, あるいは花崗岩固結末期のアルバイト化でモンゾニ岩 - 閃長岩化した部分が, 固結後の熱水変質作用で苦鉄成分が溶脱して雲母粘土化し, 鉱床に変貌したものである.

3. 田上花崗岩の化学的性質

分析試料は次の6個であり, 下記の産地から採集した(第1図も参照).

TKM01(Gt4) 中(〜粗)粒斑状黒雲母花崗岩: 大津市大同川ダムサイト河床.

TKM02(Gt3) (中〜)粗粒黒雲母花崗岩: 大津市三筋の滝の横道路.

TKM03(Gt3) 粗粒黒雲母花崗岩: 第2名神信楽インター工事現場(甲賀市信楽町宮町).

TKM04(Gt2) 細粒斑状黒雲母花崗岩: 湖南市甲西町甲賀カントリー入口.

TKM05(Gt2) 細粒斑状黒雲母花崗岩: 甲西町甲賀カントリー奥.

TKM06(Gt2) 粗粒斑状黒雲母花崗岩(天井相): 甲西町妙感寺南南西800 m.

これらのうちTKM02と03とが最も典型的な粗粒黒雲母花崗岩であり, TKM01はやや斑状である. これらは岩体の中心相を表していると考えられる. 一方, TKM04と05とは不均質な斑状細粒相であり, 浅成相様である. TKM06は微ペグマタイト組織を持ち, 明らかに天井相である. 化学分析結果を第1, 2表に示す. これらの花崗岩類の化学成分を第1表の偏光XRFの値

第1表 偏光XRFによる田上花崗岩の分析値(分析者: B. W. Chappell).
F と Li は Terashima (1971; 1974) による.

Table 1 Major and trace element contents of the Tanakami Granite. F and Li data after Terashima (1971, 1974).

Sample no.	TKM01	TKM02	TKM03	TKM04	TKM05	TKM06
SiO ₂ (%)	73.25	76.36	74.87	76.36	75.35	76.73
TiO ₂	0.16	0.02	0.07	0.05	0.03	0.03
Al ₂ O ₃	13.60	12.95	13.32	12.51	12.99	12.53
Fe ₂ O ₃	2.28	0.82	1.26	1.08	0.64	0.85
MnO	0.06	0.04	0.04	0.03	0.01	0.03
MgO	0.25	0.02	0.07	0.08	0.02	0.03
CaO	1.36	0.46	0.94	0.69	0.28	0.42
Na ₂ O	3.78	4.21	3.55	3.33	3.64	3.66
K ₂ O	4.23	4.54	5.12	4.62	5.23	4.82
P ₂ O ₅	0.07	0.01	0.02	0.02	0.02	0.02
S	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03
H ₂ O ⁺	0.62	0.32	0.50	1.04	1.55	0.79
H ₂ O ⁻	0.13	0.06	0.02	0.22	0.23	0.10
CO ₂	0.12	0.08	0.12	0.09	0.10	0.10
Total	99.93	99.91	99.92	100.14	100.11	100.13
F (ppm)	1120	1550	730	830	480	590
Li	60	87	36	18	10	17
Rb	214	326	169	250	340	294
Cs	7	16	1	3	4	5
Sr	107	6	70	37	6	21
Ba	413	19	332	150	18	35
Zr	125	51	88	72	61	64
Hf	6	6	5	6	8	6
Nb	12.4	11.8	8.3	9.7	24.3	7.9
Ta	3	5	4	4	6	4
Y	63	75	39	65	110	78
La	18	15	21	27	29	15
Ce	43	39	50	36	30	36
V	5	<2	<2	<2	<2	<2
Cr	3.2	2	5.7	6.2	1.7	4.1
Co	7.8	5.3	4.3	4.8	2.4	5.7
Ni	<0.7	<0.7	1.30	<0.7	3.40	0.70
Cu	<0.4	<0.4	<0.4	3.90	0.60	<0.4
Zn	43	21	31	36	16	18
Pb	25	30	29	30	35	40
Ga	17.9	19.1	16.0	15.2	20.8	15.9
Ge	2.0	2.2	1.4	1.8	2.6	2.0
As	<0.5	<0.5	<0.5	0.3	<0.6	<0.6
Se	0.2	0.3	0.5	<0.1	0.2	0.2
Mo	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	0.30
W	3	3	3	3	19	3
Sn	5	6	1	2	1	2
Tl	2	3	3	2	2	2
Bi	<0.3	1	1	0	1	<0.3
Th	18.4	22.9	16.9	25.6	28.8	23.1
U	4.7	1.8	2.3	3.7	3.9	5.9
ASI	1.02	1.02	1.02	1.07	1.07	1.04
K ₂ O/Na ₂ O	1.12	1.08	1.44	1.37	1.44	1.32
Rb/Sr	2.0	52.6	2.4	6.8	55.7	14.2

Sb below 0.5 ppm; Cd below 0.2 ppm

に基づいて概観すると, 試料は非常に珪質であり(73.3 ~ 76.7 % SiO₂), アルカリに富んでいる(7.95 ~ 8.87%). アルミナ過剰度(A/CNK)はほぼ一定(1.02 ~ 1.07)で, Iタイプ(<1.1)の範疇にある. 全鉄(Fe₂O₃=2.28 ~ 0.64 %), マグネシウム, カルシウムなどは中心相でやや多く周縁相で少ない傾向がある.

第2表 ICP-MSによる田上花崗岩の微量成分(分析者:Act. Lab).

Table 2 Trace elements contents of the Tanakami Granite as determined by ICP-MS.

No.	TKM01	TKM02	TKM03	TKM04	TKM05	TKM06
Rb	219	334	172	250	355	319
Cs	8.4	16.4	2.8	2.6	2.3	5.6
Sr	101	4	63	33	5	19
Ba	415	20	330	144	16	37
Zr	145	62	101	85	72	85
Hf	4.6	3.1	3.6	3.8	4.6	4.2
Nb	13.7	13.3	9.9	10.7	25.0	10.3
Ta	2.0	2.4	0.9	2.2	4.5	1.8
La	24.0	15.7	24.2	24.4	23.0	16.4
Ce	49.7	38.1	52.0	36.7	25.3	38.7
Pr	5.68	4.82	6.08	5.65	7.49	5.13
Nd	22.6	21.8	24.8	22.0	35.0	23.0
Sm	6.28	7.72	6.39	5.99	13.5	7.33
Eu	0.574	0.040	0.360	0.247	0.114	0.085
LREE	108.834	88.180	113.830	94.987	104.404	90.645
Gd	7.35	9.35	6.45	6.91	16.1	8.92
Tb	1.60	1.95	1.15	1.44	3.24	2.00
Dy	10.0	11.8	6.72	9.54	19.8	13.1
Ho	2.06	2.37	1.32	2.00	3.83	2.73
Er	6.93	7.84	4.24	7.03	12.5	9.38
Tm	1.14	1.32	0.674	1.18	2.05	1.56
Yb	7.12	8.15	3.91	7.47	12.4	9.42
Lu	1.11	1.29	0.624	1.18	1.89	1.46
Y	66.6	77.9	40.3	66.3	114	84.3
HREE	103.91	121.97	65.388	103.05	185.81	132.87
Pb	19	24	26	20	25	39
Ga	18	19	16	15	21	17
Ge	2.4	2.9	1.9	2.2	3.2	3.1
Sn	4	6	1	2	-1	2
W	-0.5	-0.5	-0.5	-0.5	17.0	-0.5
Tl	1.8	2.9	1.5	1.9	2.6	2.6
Th	20.5	24.2	18.0	29.0	30.1	25.1
U	5.3	3.6	3.1	4.3	4.1	6.0
Zr/Hf	31.3	20	27.9	22.5	15.4	20.2
La/Yb	3.4	1.9	6.2	3.3	1.9	1.7
Th/U	3.9	6.7	5.8	6.7	7.4	4.2
L/HREE	1.04	0.72	0.63	0.92	0.56	0.68
Tot. REE	212.7	210.2	179.2	198.0	290.2	223.5

微量成分ではルビジウムに富み(169~340 ppm Rb), ストロニウムに乏しい(6~107 ppm Sr). Rb/Sr比は大きく変化する. バリウム量(18~413 ppm Ba)もばらつくが, 周縁相で少ない傾向がある. フッ素は中心相で高く, 1,550 ppm Fであり, これは本邦花崗岩で最も高い値である(石原・寺島, 1977). 周縁相では

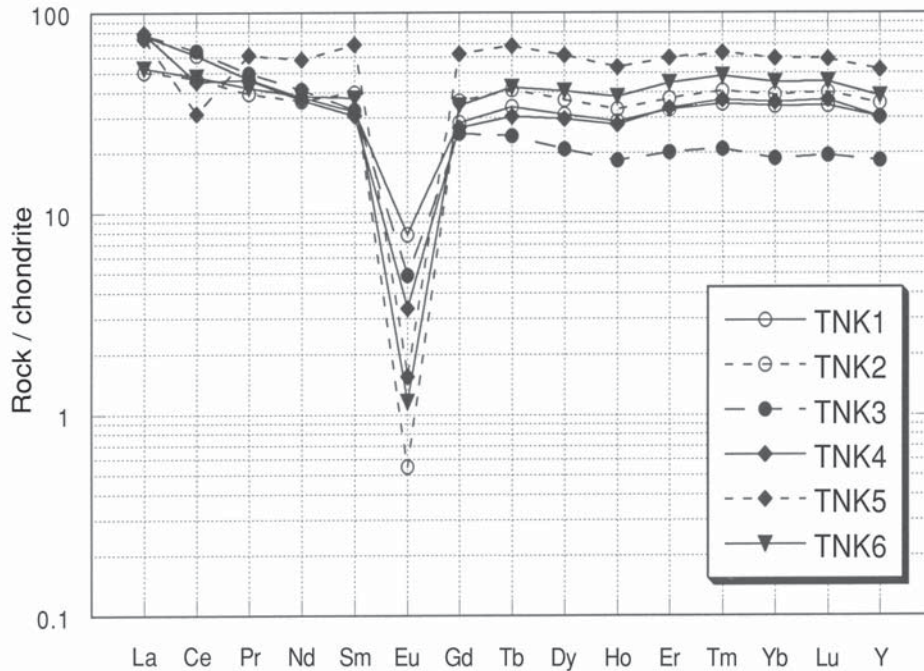
480 ppm Fに低下する. リチウムも同様に中心相で高く(87~36 ppm Li), 周縁相で低い傾向(18~10 ppm Li)を示す. スズは中心相で高く(1~6 ppm Sn), 周縁相で少ない傾向(1~2 ppm Sn)がある. タングステンは周縁相の1個で高い(19 ppm W).

希土類元素を第2表を基に概観すると, その含有量は高く, 179~290 ppmであり, 特に重希土類に富んでおり, イットリウムは40~114 ppm Yに達する. したがって, コンドライト規格パターンはフラットな形を示す(第2図). フラットで最も重希土類元素に富むものは, TKM5試料であり, これはRb/Sr比が最も高い(55.7, 第1表). 最も乏しいものはTKM3試料であり, そのRb/Sr比は低い(2.4). ユーロピウムの負異常もRb/Sr比に関連し, 負異常が最も大きいTKM2試料はRb/Sr比が高く(52.6), 最も小さいTKM1試料は, 低い同比(2.0)を持つ.

ウランは3.1~6.0 ppm U, トリウムは18~30 ppm Thであって, 共に本邦の花崗岩類にあっては高い値である(石原ほか, 1969参照). カリウム含有量も高いため(4.23~5.23 % K₂O, 第1表), この花崗岩類の発熱量をRoy and Blackwell (1968)により求めると, 中心相で $5.96 \sim 7.51 \times 10^{-23}$ cal/cm³sec, 周縁相で $8.56 \sim 8.91 \times 10^{-23}$ cal/cm³secが得られる. 因に, 中部地方領家中核帯の放射性成分の平均値は, 1.7ppm U, 9.5 ppm Th, 2.25 %K (n=27, 石原ほか, 1969)であり, 発熱量として 3.21×10^{-23} cal/cm³secが求められる. 香川県下の領家帯の花崗岩類もほぼ同様な平均発熱量(3.13×10^{-23} cal/cm³sec, n=16, Ishihara, 2003)を持つ. 田上花崗岩体はこれらよりも2倍以上の大きい発熱量を持つと言える.

4. 考 察

田上花崗岩は高いシリカ及びアルカリ含有量を持ち, 苦鉄成分量に乏しくチタン鉄鉱系に属するので, 還元的な珪長物質を原岩としたマグマに由来するものと考えられる. それが全般的に高いRb/Sr比で示されるように, マグマ上昇の途中で更に分化し, 黒雲母花崗岩として上部地殻に貫入・固結したものである. 固結過程で周縁部マグマは相対的に急冷して細粒相・斑状相を形成した, フッ素・リチウムなどの揮発性成分はこの過程でベグマタイトや更に上方の被貫入岩類に移動した. 中心部はこれら揮発性成分を保持して徐冷し, 粗粒相を形成した. 田上花崗岩体を象徴する重希土類元素に富む特性は, Rb/Sr比が高いマグマ分化作用が進んだ岩相で顕著である. 珪長質な起源物質に加えて山陽帯花崗岩類の中で特に進んだ分化作用がこのような希土類元素や放射性元素に富む特異な花崗岩体を作ったものと考えられる.



第2図 田上花崗岩の希土類元素の存在量 (コンドライト規格).

Fig. 2 Chondrite normalized REE pattern of the Tanakami Granite.

田上岩体の今一つの特徴は雲母粘土鉱床を広範囲に伴うことである。これは既述のように優白質花崗岩やアプライト質花崗岩、あるいは花崗岩固結末期のアルバイト化変質でモンゾニ岩・閃長岩化した部分が、固結後の熱水変質作用で苦鉄成分が溶脱して雲母粘土化し、鉱床に変貌したものである。その成因に対し、須藤(2001)は母岩より後期の細粒花崗岩から熱の供給を受けて生じた熱水変質作用に起因するモデルを提唱した。

アルバイト化やアルカリ長石化は山陽帯や領家帯北縁部の花崗岩類にしばしば認められ(村上, 1956; 中野ほか, 2001; 西村・中野, 2002), 岡山県南西部に特に多い。これらはマグマ期に続く高温熱水期に生じたものと考えられている。岡山県山手鉱山ではそれが更に熱水変質を受けて、田上地域と同様に粘土鉱床化した(石原・岡野, 1994)。このような鉱床は中部地方の領家帯には知られていない。

田上岩体や山手鉱山周辺の花崗岩類には、熱源となりうるより後期の花崗岩類は確認されていない。これらの地域に共通する性質は、放射性元素を多く含む優白質花崗岩類が卓越することである。筆者らは母岩そのものが持つ放射性元素の崩壊熱が、花崗岩の隆起に伴う循環地表水を熱することによって熱水変質機構が発達し、脱鉄化・雲母粘土化をもたらした可能性を指摘しておきたい。それを証明する一つの方法として雲母粘土化変質時期の正確な時代決定が望まれる。

謝辞: 試料採取にあたりご協力戴いた多賀 優(草津

東高)と澤田一彦(滋賀大附属中)の両氏に心から御礼申し上げる。また地殻発熱量の文献について教わった産業技術総合研究所笹田政克博士に感謝する。

文 献

- 早瀬一 (1961) 花崗岩中のウランの存在状態. ウラン: その資源と鉱物, 朝倉書店, 190-199.
- Ishihara, S. (2003) Chemical contrast of the late Cretaceous granitoids of the Sanyo and Ryoke Belts, southwest Japan: Okayama-Kagawa transect. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **54**, 95-116.
- 石原舜三・寺島 滋 (1977) ベースメタル・スズ鉱床探査指標としての花崗岩類中の塩素・フッ素含有量. *鉱山地質*, **27**, 191-199.
- 石原舜三・岡野武雄 (1994) 花崗岩系列と非金属鉱物資源. *地質ニュース*, no. 484, 13-24.
- Ishihara, S. and Wu, C-Y. (2001) Genesis of Late Cretaceous-Paleogene granitoids with contrasting chemical trends in the Chubu District, central Japan. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **52**, 471-491.
- 石原舜三・関根節郎・望月常一・大場きみじ (1969) 花崗岩類中のウラン及びトリウム量とその地質学的意義. *地質調査所報告*, no. 232, 179-220.
- 小関幸治・松原秀樹 (1961) 含ウラン・ペグマタイト鉱床. 日本におけるウランの産状. その1. *地質調査所報告*, no. 190, 13-26.

- 村上允英 (1956) 山口県稔小野地域の閃長岩質岩 (I, II). 岩鉱, **40**, 149-154, 191-195.
- 中野聰志・川辺孝幸・原山 智・水野清秀・高木哲一・小村良二・木村克巳 (2003) 水口地域の地質. 地域地質研究報告 (5万分の1 地質図幅). 地質調査総合センター, 83 p.
- 中野聰志・沢田順弘・牧野州明・細川栄子・谷村友紀 (2001) 琵琶湖西岸比良山地花崗岩中変質脈の産状と特徴. 日本岩石鉱物鉱床学会2001年年会 (秋田大学) 要旨, 192.
- 西村貞浩・中野聰志 (2002) 滋賀県野洲花崗岩体中の熱水変質岩. 滋賀大教育紀要 (自然), **52**, 21-35.
- 西村貞浩・中野聰志・富田克敏・牧野州明 (1990) 田上・信楽花崗岩中のアルカリ長石の三斜度. 地質雑, **96**, 133-142.
- Roy, R. F. and Blackwell, D. D. (1968) Heat generation of plutonic rocks and continental heat flow provinces. *Earth Planet. Sci. Let.*, **5**, 1-12.
- 沢田順弘・板谷徹丸 (1993) 琵琶湖南部, 後期白亜紀環状花崗岩質岩体のK-Ar年代—巨大コールドロンにおける冷却史. 地質雑, **99**, 975-990.
- 沢田順弘・加々美寛雄・松本一郎・杉井完治・中野聰志・琵琶湖花崗岩団体研究グループ (1994) 琵琶湖南部白亜紀環状花崗岩質岩体と湖東コールドロン. 地質雑, **100**, 217-233.
- 須藤定久 (2001) 滋賀県南郷～信楽地区の長石質資源—鉱床の分布とその地質・鉱床学的意味—. 地質ニュース, no. 559, 41-49.
- Terashima, S. (1971) Determination of cobalt, chromium, copper, lithium, lead, strontium and zinc in silicates by atomic absorption spectrophotometry. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **22**, 245-249.
- Terashima, S. (1974) Spectrophotometric determination of chlorine and fluorine in the standard silicate rocks. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **25**, 175-179.

(受付: 2005年2月7日; 受理: 2005年2月24日)