釜石鉾山産グランダイト系ザクロ石のラメラ組織について

On the lamellar texture of grandite garnet from the
Kamaishi mine, Iwate Prefecture, Japan

宮 下 敦 (Atsushi MIYASHITA)*
今 井 直 哉 (Naoya IMAI)**

Fine lamellar textures with chemical contrast are found in anisotropic grandite garnet from the skarn at the Kamaishi mine, Iwate Prefecture. The lamellae are characterized by enrichment of iron; i.e., the compositional difference between lamellae and matrix amounts to 5 to 10 mole % in andradite molecules. In the sections sliced normal to (110) faces of garnet, the development of lamellae showing orientation parallel to (111) nearly normal to the growth zoning parallel to (110) face. Furthermore, the fine compositional bands (parallel to (110) growth zoning) are observed cutting the (111) lamellae clearly.

The data cannot confirm that formation of lamellae normal to (110) occurs in subsolidus or not. However, the compositional band parallel to (110) is obviously results of subsolidus decomposition.

Keywords: Kamaishi mine, Skarn, Grandite garnet, Lamellar texture, Exsolution

I. はじめに

異方性を示すグランダイト系ザクロ石に、(110)面を横切る正八面体面の(111)と(111)方向にツイード様組織が認められることは和田ら(1978)によって初めて示された。この組織の成因については、離溶であるとする説(平井ら, 1983)と結晶成長時の組織であるとする説(Akizuki, 1984, 1989)とがあり、意見が対立している。

筆者らは、1980年以来、スカルン鉾物生成のカイネティクスからスカルンの生成条件の考察を進めてきた。釜石鉾山のスカルン中の光学的な異方性を示すグランダイト系ザクロ石について検討する過程で、主としてEPMAの後方散乱電子像(BEI)により、従来報告されていなかった微細な組織を見いだしたので報告する。

II. 釜石鉾山産ザクロ石

釜石鉾山は、土倉背斜の西翼に分布する鬼丸-長岩統

とそれを被う甲子層の石灰岩中に胚胎されたスカルン型銅鉄鉾床である。鉾床はいくつかの鉾体にわかれて分布し、北から日峰、大峰、新山8D、新山、天狗森の順に配列している。これらの鉾床のスカルン鉾物の交換平衡関係について検討したUchida(1986)は、スカルン生成の温度条件が北から南に向かって低下していることを見いだした。

釜石鉾山のスカルン中には、大量のグランダイト系ザクロ石が含まれる。これらのザクロ石は、古くから早期晶出のA型ザクロ石と後期晶出のB型ザクロ石の2種類に分類されている。A型ザクロ石が塊状で包有物に富み光学的等方性を示すのに対し、B型ザクロ石の産状は角レキ状スカルンを縫う脈状で、偏菱十二面体型のsector twinを呈し、光学的異方性を示す点特徴的である。Mariko and Nagai(1980)は、新山鉾床産のグランダイト系ザクロ石について検討し、A型とB型の光学性と組成の関係を調べ、前者が高温の無秩序相に、後者が低温の秩序相に相当すると考えた。特に、B型ザクロ石のバイレフリンゼンスが、グ

(平成5年9月22日受付, 平成6年4月26日受理)

* 成蹊高等学校, 〒180 武蔵野市吉祥寺北町3-10-13

** 早稲田大学理工学総合研究センター, 〒160 東京都新宿区大久保3-4-1

* Seikei High School, Musashinoshi 180, Japan.

** Advanced Research Center for Science and Engineering, Waseda University, Shinjuku, Tokyo. 160, Japan.

Fig. 1. Photomicrograph and the corresponding back-scattered electron images of the Tengumori garnet sliced parallel to (110), showing the tweed-like texture displayed by the chemical contrast of lamellae to matrix. (a), Photomicrograph under crossed polars; (b) and (c), back-scattered electron images; (c), corresponding to the enlarged field of (b). Specimen 2603.

ロッシュラー-アンドラダイト固溶体の中間組成で極大となり、端成分で0となる組成依存性を持つことは、この異方性が6配位席のAlとFeの秩序-無秩序置換に依存している (Takeuchi and Haga, 1976) ことを示すものとして注目された。

釜石鉱山でのA型とB型の分布を見ると、北側の日峰鉱床ではほとんどA型であるのに対し、より南の鉱床でB型の量が増え、天狗森ではB型のみとなっており、北から南に向かって秩序相の量比が増し、鉱床学的な検討と矛盾がない。

III. スカルンの記載

1. 天狗森鉱床産B型ザクロ石

試料は、天狗森鉱床南鉱体の810 mLの単斜輝石-ザクロ石スカルンから採取した。ザクロ石は、角礫状の単斜輝石スカルンの間隙を埋める幅5~10 mmの網状脈として産する。肉眼では淡桃色を呈する径3~5 mmの集合体であり、鏡下では偏菱十二面体型のsector twinを成し、大きな光学的異方性を示す。共存鉱物に

は、単斜輝石(Di-Hdの中間組成)、方解石、アクチノ閃石が認められる。

2. 新山鉱床産B型ザクロ石

試料は、新山鉱床4D-7D鉱体の500 mLから採取したもので、Mariko and Nagai (1980) に詳しい記載が成されている。ザクロ石は、角礫状の単斜輝石スカルンの間隙を埋める網状脈として産し、肉眼では暗紫色を呈する。

IV. 分析方法

後方散乱電子像(BEI)は、日本電子JXA-733型EPMAを用い、照射電流0.1 nA(PCD上)、加速電圧15 kVで観察した。最も状態の良い場合分解能は1 μmに達し、Feで数mol%の組成差まで観察することができる。

ザクロ石の化学組成の分析は、日本電子T-200・SEMにLink systemを装着したものをを用いた。

Fig. 2. Photomicrograph and the corresponding back-scattered electron images of the Tengumori garnet sliced normal to (110), showing the chemical contrast of lamellae to matrix. (a), Photomicrograph under crossed polars; (b) and (c), back-scattered electron images; (b), clockwise rotation of (a). The field of (c) is indicated by rectangle in (b). Specimen 2603.

V. 後方散乱電子像

1. 天狗森鉱床産ザクロ石

天狗森鉱床産のB型ザクロ石は、鏡下(クロスニコル下)で、(110)に平行な面ではツイード状の組織が、(110)面を切る方向では累帯構造に直交する方向に干渉色の縞状の変化が、それぞれ認められる。このような組織は、天狗森鉱床産のザクロ石では頻繁に認められる。

これをBEIで観察すると、マトリクスよりアンドラダイト端成分に富んだラメラとして観察される(Fig. 1)。ラメラは光学的に観察されるものよりさらに細かく、幅数μm、長さ10~20μmものが、数μm間隔で配列している。

薄片中で(110)に垂直な粒について観察すると、ラメラは組成累帯をほぼ垂直に切る方向に発達する(Fig. 2)。組成累帯の生成とラメラの生成の前後関係

が示す組織は認められない。

このラメラは、その特徴からみて、和田ら(1978)の観察したものと同じものであると考えられる。以下ではこのラメラを“ラメラA”と呼ぶ。

2. 新山鉱床産ザクロ石

新山鉱床産のB型ザクロ石では、光学的な組織は天狗森のものほど顕著ではなく、(110)面に垂直な面で弱い干渉色の変動が認められる程度である。

同じ面をBEIで観察すると、天狗森のものより広く幅数10μmに達する“ラメラA”が認められる(Fig. 3b)。“ラメラA”は天狗森と同様にマトリクスよりもアンドラダイト端成分に富んでいる。その方向性は、(110)に直交する方向に近いものが多いが、やや傾いている場合もある。1つのラメラについて詳しく観察すると、内部にはマトリクスの組成累帯から連続した組成変動が認められる。

さらにそれに重ねて、(110)とほぼ平行またはやや

Fig. 3. Photomicrograph and the corresponding back-scattered electron images of the Shinyama garnet sliced normal to (110), showing the chemical contrast of lamellae to matrix. The fine band parallel to oscillatory zoning is also observed.

(a), Photomicrograph under crossed polars.

(b), (c) and (d), back-scattered electron images;

(b), counterclockwise rotation of (a).

The field of (c) is indicated by rectangle in (b), and white arrow represents chemical contrast in "lamellae A".

The field of (d) corresponds to near the right edge in (c) and the white arrow shows "fine lamellae B" subparallel to growth zoning.

Specimen 50-19.

斜交して数 μm の細かい帯状の組成変動が認められる。以下では、この組成変動を“ラメラ B”という。“ラメラ B”が“ラメラ A”と交差する場合には前者が後者を切り、“ラメラ B”は (110) に平行な成長時の組成累帯とは異なる組織であることがわかる (Fig. 3d の白矢印)。この際、“ラメラ A”と“ラメラ B”の交点からは、マトリクスよりアンドラダイト成分に富んだ細かい針状の組織が (110) と平行に伸びることがあり、“ラメラ B”の生成により“ラメラ A”の外形が変形されている。

VI. EPMA による分析

これらのザクロ石について、EPMA の EDS モードにより、その組成を検討した (Table 1)。ザクロ石の組成は、グロッシュラー-アンドラダイト固溶体の中間成分に近く、Mg と Mn はいずれも 1% 以下である。天狗森鉱床産の B 型ザクロ石ではやや Ti 成分 (～1%) に富む傾向がある。

“ラメラ A”はマトリクスより Fe に富み、その差は天狗森鉱床産で 4 wt% 前後、新山鉱床産で 2 wt% 前

後で、これは Fe の mol 比でそれぞれ 0.10, 0.05 に相当する (Fig. 4)。“ラメラ B”は、組織が細かいため、分析することはできなかった。

VII. 考 察

“ラメラ A”の組織を最も早く報告した和田ら (1978) は、この組織を離溶によるものと解釈した。Hirai *et al.* (1982a, b) は Adelaide 鉱山 (Nevada) の光学的異方性を示すグランダイト系ザクロ石について、その組成とプリセッション・カメラによる検討を行い、“ラメラ A”とマトリクス間の組成差と格子常数の差を確認した。平井ら (1983) は、これらの組織が準安定条件下のもとで秩序構造が生じることによる離溶現象であるという解釈を与えた。

これに対して、Akizuki (1984, 1989) および Akizuki *et al.* (1984) は、ザクロ石の表面の微細組織と光学性について検討し、光学的なラメラ組織が結晶成長時の表面組織と対応していることを示した。このことからこの組織は離溶ではなく、表面の各分域においてそれぞれ秩序度が異なるような結晶成長をしたためである

Table 1. Chemical compositions of lamellae and the adjacent matrix in grandite garnets from the Kamaishi mine

Sample No.	Shinyama 50-19		Tengumori 2603	
	matrix	lamella	matrix	lamella
weight %				
SiO ₂	37.31	37.15	37.12	36.75
TiO ₂	0.08	0.00	1.08	1.06
Al ₂ O ₃	10.54	9.27	12.14	9.74
Fe ₂ O ₃	16.96	19.45	13.96	17.02
MnO	0.86	0.50	0.62	0.64
MgO	0.10	0.15	0.14	0.00
CaO	34.05	33.66	34.11	34.15
Total	99.90	100.18	99.17	99.35
Number of cations on the basis of 12 oxygens				
Si	2.99	2.99	2.96	2.97
Al	0.01	0.01	0.04	0.03
ΣZ-cations	3.00	3.00	3.00	3.00
Ti	0.01	0.00	0.07	0.06
Al	0.98	0.87	1.11	0.89
Fe ³⁺	1.01	1.13	0.83	1.03
ΣY-cations	2.00	2.00	2.01	1.98
Fe ²⁺	0.01	0.05	0.01	0.00
Mn	0.06	0.03	0.04	0.04
Mg	0.01	0.02	0.02	0.00
Ca	2.92	2.90	2.92	2.95
ΣZ-cations	3.00	3.00	2.99	2.99
Mole %				
Alm.	0.36	1.63	0.32	0.00
Sps.	1.94	1.13	1.40	1.46
Pyr.	0.40	0.60	0.56	0.00
And.	50.82	56.47	44.71	55.14
Gro.	46.48	40.16	53.02	43.40

と考えた。この場合、グランダイト系ザクロ石は不混和領域を持つ必要はなくなる。

今回の検討から推定される“ラメラ A”の組織の 3 次元構造を Fig. 5 に示す。“ラメラ A”とマトリクス間には明かな組成差があるから、この組織は結晶中の各部分での秩序度の差だけでは説明ができず、成長時の組織であるとするれば、cellular growth などの結晶成長を考えなくてはならないだろう。また、“ラメラ A”を切る (110) に平行な方向の“ラメラ B”については、“ラメラ A”が成長時のものであるとしても、離溶で生じた組織であると考えられる。和田ら (1978) や平井ら (1983) のように、“ラメラ A”が離溶によるものとするれば、この系は固相下で 2 段階の離溶を示すことになり、

Fig. 4. Sketch of back-scattered electron image and the linear-scanning profiles by AlK α -radiations and FeK α -radiations along the line A-A', showing the inverse relationship in concentrations between aluminum and iron. The field of sketch corresponds to Fig. 3(c).

固相下でのこの系の相関係が複雑であることを示す証拠となる。“ラメラ A”とマトリクスとの組成差が小さく、かつグランダイト系固溶体のいろいろな組成で出現すること、およびザクロ石の異方性が秩序—無秩序転移に伴うものであることを考えると、生成のメカニズムは後者の可能性が強いことを示唆しているものと考えられる。

尚、釜石鉱山産の B 型ザクロ石は粒径が小さく、しばしばアンドラダイト端成分に極めて近い組成の over growth が認められることがしばしばあり、Aki-zuki (1984, 1989) および Akizuki *et al.* (1984) が示したような表面組織と内部組織の対応については検討できなかった。粒径が大きく好適な標本が発見でき

Fig. 5. Schematic drawing of three-dimensional picture, showing the cell-like microstructure displayed by lamellae in grandite garnet. Dotted plane represents (110) parallel to crystal face (110).

ば、“ラメラ A”が結晶成長時の組織であるかどうかは判定がつくため、今後の研究が期待される。

釜石鉱山のスカルンに含まれるザクロ石には、本報告のように平衡な系では扱うことができない複雑な組織を示すものがあることが示された。今後、スカルン鉱物の化学組成や鉱物組み合わせからその生成条件を考える場合には、非平衡の状態を考慮した動的な扱いが必要であると考えられる。

謝 辞 本研究は、早稲田大学の永井保弘氏(現：三菱マテリアル株式会社)の観察が端緒となった。また、永井氏には新山鉱床産ザクロ石の標本を提供して頂いた。早稲田大学鞠子正教授、筑波大学平井寿子博士には、研究を進めるにあたって種々のご討論を頂いた。東北大学秋月瑞彦教授には本論文について丁寧なご指導を頂いた。国立科学博物館横山一巳博士には

EDSの使用に当たってお世話になった。標本の処理およびBEIの観察に際しては、早稲田大学木之内嗣朗氏と力田正一氏に協力して頂いた。

釜石鉱山の調査にあたっては、新釜石鉱山(株) 探査課の方々にお世話になった。以上の方々に感謝いたします。

引用文献

- Akizuki, M. (1984), Origin of optical variation in grossular-andradite garnet. *Amer. Mineral.* **69**, 328-338.
- Akizuki, M. (1989), Growth structure and crystal symmetry of grossular garnets from the Jeffrey mine, Asbestos, Quebec, Canada. *Amer. Mineral.*, **74**, 859-864.
- Akizuki, M., Nakai, H. and Suzuki, T. (1984), Origin of iridescence in grandite garnet. *Amer. Mineral.*, **69**, 869-901.
- Hirai, H. and Nakazawa, H. (1982a), Origin of iridescence in garnet: An optical interference study. *Phys. Chem. Minerals*, **8**, 25-28.
- 平井寿子, 中沢弘基(1983), グランダイトガーネットの融溶と低対称相との関係. 日本鉱物学会年会講演要旨集, D-II, 99.
- Hirai, H., Sueno, S. and Nakazawa, H. (1982b), A lamellar texture with chemical contrast in grandite garnet from Nevada. *Amer. Mineral.*, **67**, 1242-1247.
- Mariko, T. and Nagai, Y. (1980), Birefringence and composition of grandite garnet from Shinyama ore deposit at the Kamaishi mine, Iwate Prefecture, Japan. *Miner. J.*, **10**, 181-191.
- Takeuchi, Y. and Haga, N. (1976), Optical anomaly and structure of silicate garnets. *Proc. Japan Acad.*, **52**, 228-231.
- Uchida, E. (1986), Relation between zonal arrangement of skarns and temperatures of formation at the Kamaishi mine, North eastern Japan. *Mining. Geol.*, **36**, 195-208.
- 和田信之, 広渡文利, 高野幸雄(1978), 光学異常を呈するザクロ石の光学性・双晶点群および化学組成. 鉱物学雑誌, **13**, 380-398.