白亜紀花崗岩類の風化にともなう化学組成および Sr・Nd 同位体比組成の変化*

The change of chemical and Sr, Nd isotopic compositions of
Cretaceous granitic rocks during weathering process*

柚原 雅樹 (Masaki YUHARA)**

宮崎 隆 (Takashi MIYAZAKI)***

高橋 俊郎 (Toshiro TAKAHASHI)***

加々美寛雄 (Hiroo KAGAMI)****

We analyzed the changes of mineral, chemical and isotopic compositions of weathered Cretaceous granitic rocks from the Gozu Granite in the Gozu mountain, Niigata Prefecture, Kise Granodiorite in the Ina mountain, Nagano Prefecture, and Aji Granite in the Aji Peninsula, Kagawa Prefecture. The analyzed samples are fresh and weathered rocks and "masa" (sand originated from weathered granitic rocks) collected from the same outcrops for each granite. The change of mineral compositions of weathered granitic rocks is mainly characterized by the appearance of hematite and the increase of alteration degree of mafic minerals. Chemical composition of weathered granitic rocks is characterized by the depletion of major and trace elements. In particular, CaO and Na₂O, which are partitioned mostly into plagioclase, and S are reduced extremely. Fe₂O₃/FeO ratios increase extremely with increasing weathering degree. Variations of total Fe and Cr contents during weathering are little. Rb/Sr ratios increase and Sr isotopic ratios change in progress of weathering. Nd isotopic compositions are almost maintained during weathering. The variation of Sr isotopic composition is generally caused by dissolution of minerals and isotope exchange.

Keywords: Effect of weathering, Cretaceous granitic rocks, Chemical composition, Sr and Nd isotopic compositions

I. はじめに

花崗岩類の風化過程による化学組成変化の解析は、花崗岩の元素移動そのものの理解だけでなく、花崗岩地域の地下水の溶存イオンの供給源の把握や、水-岩石相互作用の解析にも重要なデータを与えると考えられる。風化による花崗岩類の化学組成の変化は、大八木ら (1969), Garrels and Mackenzie (1971), 中川ら (1972), 陣内・向山 (1973), 三浦 (1973; 1975), 三浦・樋口 (1974), 木宮 (1975), 松倉ら (1983) などによって解析がなされているが、主成分元素を対象としたものがほとんどであり、微量元素組成まで

解析したものは少ない。さらに、近年盛んに進められている Sr および Nd 同位体を水文トレーサーとした地下水の溶存成分の起源や水-岩石反応過程の解析 (Notsu *et al.*, 1991; 佐藤・中野, 1994; 柚原ら, 1998; 1999a; 1999b; 川野ら, 2003 など) においても、風化による岩石の同位体比組成の変化の把握は不可欠である (柚原ら, 1999a; 1999b)。また、Rb-Sr 系は、Rb および Sr が相対的に移動しやすいため、熱水や地下水、海水などの影響を受けやすいとされ、逆に Sm-Nd 系は、希土類元素である Sm と Nd が岩石や鉱物の変質や二次的な加熱などに対して移動しにくいいため、これらの影響を受けにくいとされる (例えば, Faure, 1986;

(平成 16 年 3 月 25 日受付, 平成 16 年 7 月 23 日受理)

*地球惑星科学関連学会 2002 年合同大会にて発表

**福岡大学理学部地球圏科学科, 〒814-0180 福岡市城南区七隈 8-19-1

***海洋研究開発機構, 〒874-0903 別府市野口原

****新潟大学大学院自然科学研究科, 〒950-2181 新潟市五十嵐 2 の町 8050

**Department of Earth System Science, Fukuoka University, Fukuoka 814-0180, Japan E-mail: yuhara@fukuoka-u.ac.jp

***JAMSTEC, Beppu 874-0903, Japan

****Graduate School of Science and Technology, Niigata University, Niigata 950-2181, Japan

Fig. 1. Distribution of Cretaceous to Paleogene granitic rocks and locations of the Gozu Granite, Kise Granodiorite and Aji Granite. Gray area shows the distribution of granitic rocks. M.T.L., Median Tectonic Line; I.S.T.L., Itoigawa-Shizuoka Tectonic Line; T.T.L., Tanakura Tectonic Line.

Fig. 2. Photographs of the sampling locations of the Gozu Granite, Kise Granodiorite and Aji Granite.

Dickin, 1995; 兼岡, 1998)。したがって, Rb-Sr 系は岩石の風化・変質に弱く, Sm-Nd 系は強いといえるが, その程度についての検討はあまりなされていない。そこで, 風化過程におけるこれらの元素の移動, 同位体比組成の変化を明らかにするため, 白亜紀花崗岩類の五頭花崗岩, 吉瀬花崗閃緑岩, 庵治花崗岩 (Fig.1) について, 風化過程における鉱物組成の変化, 化学組成の変化, Sr-Nd 同位体比組成の変化を検討した。

II. 地質概説および採取試料

五頭花崗岩は, 新潟市の東方約 20 km に位置する五頭山

地の主体をなし, アダメロ岩, 斑状アダメロ岩, 狭義の花崗岩, 優白質花崗岩およびアプライトに区分される (Sasada, 1975) が, 中粒塊状の黒雲母アダメロ岩~斑状普通角閃石黒雲母アダメロ岩が岩体の大部分を占める。本花崗岩について, 93.6 ± 3.8 Ma の Rb-Sr 全岩アイソクロン年代 (Rezanov *et al.*, 1996), 93.7 ± 1.0 Ma の Rb-Sr 全岩-鉱物アイソクロン年代 (柚原ら, 1999b) が報告されている。本岩から, 同一露頭の新鮮風化核 (GOZ-19), 風化部 (GOZ-20), マサ土 (GOZ-21) を採取した (Fig. 2)。風化部は, 露頭表面をハンマーで削り取り採取した。マサ土は露頭下に堆積していたものを採取した。これらの採取方法

は、他岩体でも同じである。採取位置は、柚原ら (1999b) に示されている。

吉瀬花崗閃緑岩は、長野県駒ヶ根市吉瀬北方の吉瀬ダム周辺に分布する中粒塊状の普通角閃石含有黒雲母花崗閃緑岩～花崗岩である。本岩体の地質および岩石記載は、柚原ら (2004b) によって報告されている。本花崗閃緑岩について、67.0 および 67.9 Ma の K-Ar 普通角閃石年代 (Yuhara *et al.*, 2000b), 58.4～61.3 Ma の Rb-Sr 全岩-鋳物アイソクロン年代 (柚原ら, 2004b) が報告されている。柚原ら

(2004b) は、これらの年代は岩石の冷却年代であるため、本岩体の活動時期は少なくとも 75 Ma よりも古いと見積もった。本岩から、同一露頭の新鮮風化核 (TN-77), 風化部 (TN-75), マサ土 (TN-76) を採取した (Fig.2)。採取位置は、柚原ら (2004b) に示されている。

庵治花崗岩は、高松市東方の庵治半島と屋島に分布する細粒～中粒塊状の黒雲母花崗閃緑岩～花崗岩であり、庵治石と呼ばれる石材として採掘されている。本岩体は、細粒岩相、中粒岩相、中粒普通角閃石含有岩相に区分される

Fig. 3. Photomicrographs of the Gozu Granite. The weathered rocks and “masa” are hardened by Petropoxy 154. Bt, biotite; Pl, plagioclase; Qtz, quartz; Kfs, K-feldspar.

(Yuhara *et al.*, 2003)。本花崗岩について、 82.9 ± 8.0 Ma の Rb-Sr 全岩アイソクロン年代 (Yuhara *et al.*, 2003), 83.5 Ma の K-Ar 普通角閃石年代, 79.4~80.4 Ma の K-Ar 黒雲母年代 (Yuhara *et al.*, 2000b) が報告されている。本岩から、同一露頭の新鮮風化核 (SR-44), 風化部 (SR-45), マサ土 (SR-46) を採取した (Fig. 2)。ただし, SR-44 は同一露頭の数 m 離れた部分から採取した。本露頭は, 採石を中止した採石場にあり, 採取位置は Yuhara *et al.* (2003) に示されている。

III. 採取試料の岩石記載

1. 五頭花崗岩

風化核 (GOZ-19) は鏡下では半自形粒状組織を示し (Fig. 3), 主に斜長石, 石英, カリ長石および黒雲母からなり, 副成分鉱物として燐灰石, ジルコン, 磁鉄鉱を伴う。斜長石 (最大 5.2 mm) は半自形から他形で, 累帯構造を示し, 斜長石, 黒雲母を包有する。斜長石の中心部は, 一部セリサイト化している。斜長石とカリ長石の境界部には, ミルメカイトが認められる場合がある。石英 (最大 2.5

Fig. 4. Photomicrographs of the Kise Granodiorite. The weathered rocks and “masa” are hardened by Petropoxy 154. Bt, biotite; Pl, plagioclase; Qtz, quartz; Kfs, K-feldspar; Hbl, hornblende.

mm) は他形で、斜長石、黒雲母を包有し、弱い波動消光を示す。カリ長石 (最大 4 mm) は他形で、他鉱物間を充填し、時に大きく成長しポイキリティックに斜長石、石英、黒雲母を包有する。黒雲母 (最大 2 mm) は褐色、自形から他形で、一部緑泥石化している。磁鉄鉱の縁辺部が、赤鉄鉱化している場合がある。風化部 (GOZ-20) では、斜長石のセリサイト化の程度が増加する。黒雲母は赤褐色を呈し、劈開に沿って開口している場合が多い。これは、バーミキュライト化によると考えられる。また、カリ長石の変質も認められる。石英や斜長石の割れ目に沿って、赤鉄鉱が認め

られる。マサ土 (GOZ-21) では、ほとんどが単体もしくは破片状の鉱物粒となり、集合体 (岩石の組織を残している) のものはほとんど無い。各鉱物の大きさも、斜長石が最大 1.8 mm、石英が最大 1 mm、カリ長石が最大 1.1 mm、黒雲母が最大 1.8 mm と細粒化する。石英、斜長石の含有量が減少し、カリ長石量が増加する。斜長石のセリサイト化の程度は、GOZ-19 とほぼ同じである。黒雲母のバーミキュライト化も認められる。不透明鉱物の一部は赤鉄鉱化している。さらに、鉱物の割れ目も増加し、それに沿って赤鉄鉱が認められる。

Fig. 5. Photomicrographs of the Aji Granite. The weathered rocks and “masa” are hardened by Petropoxy 154. Bt, biotite; Pl, plagioclase; Qtz, quartz; Kfs, K-feldspar.

2. 吉瀬花崗閃緑岩

風化核 (TN-77) は鏡下では半自形粒状組織を示し (Fig. 4), 主に斜長石, 石英, カリ長石, 黒雲母とごく少量の普通角閃石からなり, 副成分鉱物として, 褐れん石, 燐灰石, ジルコン, チタン鉄鉱を伴う。斜長石 (最大 3.5 mm) は累帯構造を示し, 自形から他形で, 斜長石, 石英, 黒雲母を包有する。斜長石とカリ長石の境界部には, ミルメカイトが認められる場合がある。斜長石の中心部は, 一部セリサイト化している。石英 (最大 3.8 mm) は他形で, 斜長石, 黒雲母, 普通角閃石, 褐れん石を包有し, 波動消光を示す。カリ長石は他形で, 他鉱物間を充填し, 時に大きく成長しポイキリティックに斜長石, 石英, 黒雲母, 普通角閃石を包有する。黒雲母 (最大 2.3 mm) は赤褐色, 自形か

ら他形で, 一部緑泥石化している。普通角閃石 (最大 2 mm) は青緑色, 半自形から他形で, 一部緑泥石化している。風化部 (TN-75) では, カリ長石の量は半減する。斜長石のセリサイト化の程度は変化しない。黒雲母は赤褐色を呈し, 劈開に沿って開口している場合があり, これもパーミキュライト化によると考えられる。普通角閃石は劈開に沿って変質し, 赤褐色を呈する場合が多い。石英や斜長石の割れ目に沿って, 赤鉄鉱が認められる。マサ土 (TN-76) では, 岩石の組織を残す集合体も認められるが, 多くは単体もしくは破片状の鉱物粒である。石英の量が若干減少し, 黒雲母量が増加する。各鉱物の粒径は若干減少する。斜長石のセリサイト化の程度は増加し, 黒雲母のパーミキュライト化も認められる。チタン鉄鉱の一部は赤鉄鉱化している。

Table 1. Whole-rock chemical compositions of the Gozu Granite, Kise Granodiorite and Aji Granite

Sample No.	Gozu Granite			Kise Granodiorite			Aji Granite		
	GOZ-19	GOZ-20	GOZ-21	TN-77* ³	TN-75	TN-76	SR-44	SR-45	SR-46
	fresh	weathered	masa	fresh	weathered	masa	fresh	weathered	masa
SiO ₂ (wt.%)	71.94* ¹	72.49* ¹	71.80* ¹	69.62	69.80	68.68	68.50* ²	69.96	70.89
TiO ₂	0.22* ¹	0.22* ¹	0.28* ¹	0.41	0.44	0.52	0.38* ²	0.35	0.36
Al ₂ O ₃	14.35* ¹	14.00* ¹	13.73* ¹	14.99	14.78	14.97	15.37* ²	14.61	14.27
Fe ₂ O ₃	0.37	1.51	1.92	0.13	2.59	3.41	0.60* ²	0.78	2.05
FeO	1.47	0.39	0.43	2.68	0.63	0.46	2.48* ²	1.75	0.64
MnO	0.06* ¹	0.06* ¹	0.07* ¹	0.06	0.06	0.07	0.07* ²	0.05	0.05
MgO	0.69* ¹	0.57* ¹	0.72* ¹	0.81	0.76	0.90	0.79* ²	0.66	0.63
CaO	1.92* ¹	1.01* ¹	1.01* ¹	3.34	2.84	2.72	3.35* ²	2.73	2.39
Na ₂ O	3.16* ¹	2.46*	2.35* ¹	3.52	3.31	3.20	3.97* ²	3.58	3.40
K ₂ O	4.34* ¹	4.02* ¹	4.34* ¹	2.80	2.79	2.82	2.13* ²	2.94	2.47
P ₂ O ₅	0.07* ¹	0.03* ¹	0.04* ¹	0.11	0.12	0.13	0.12* ²	0.09	0.06
L.O.I.	0.77* ¹	2.25* ¹	2.32* ¹	0.99	1.38	1.93	0.72	0.82	1.58
Total	99.36	99.01	99.01	99.46	99.50	99.81	98.48	98.32	98.79
Fe ₂ O ₃ /FeO	0.25	3.87	4.47	0.05	4.11	7.41	0.24	0.45	3.20
A.D.F.(%)	100.00	63.77	66.06	100.00	67.58	61.07	100.00	94.27	69.84
Ba(ppm)	672* ¹	536* ¹	524* ¹	634	668	818	545* ²	825	618
Co	100	67	68	88	69	58	116	113	75
Cr	8* ¹	9* ¹	10* ¹	7	9	9	7* ²	7	6
Cu	19	17	9	<4	<4	<4	<4* ²	<4	5
Ga	15	15	15	18	18	19	21	18	18
Nb	9* ¹	7* ¹	9* ¹	9	10	11	13* ²	9	10
Ni	n.d.	n.d.	n.d.	<4	4	5	4* ²	4	4
Pb	19	18	21	18	19	20	16	18	16
Rb**	153* ¹	147* ¹	170* ¹	73.7	72.3	93.5	72.6* ²	70.7	65.7
S	209	20	21	16	8	8	<3	3	<3
Sr**	274* ¹	174* ¹	161* ¹	359	353	327	379* ²	360	317
Th	16	17	16	5	4	6	7	4	5
V	28* ¹	21* ¹	27* ¹	26	23	28	19* ²	15	15
Y	22* ¹	16* ¹	18* ¹	18	17	19	21* ²	15	16
Zn	30	30	40	60	65	79	78* ²	62	58
Zr	134* ¹	113* ¹	107* ¹	167	172	187	192* ²	158	187

L.O.I., loss on ignition; n.d., not detected.

**determined by isotope dilution.

*¹Yuhara *et al.* (1999b); *²Yuhara *et al.* (2004b); *³Yuhara *et al.* (2003).

鉱物の割れ目に沿って、赤鉄鉱が認められる。

3. 庵治花崗岩

風化核 (SR-44) は中粒岩相に分類され (Yuhara *et al.*, 2003), 鏡下では半自形粒状組織を示し (Fig. 5), 主に斜長石, 石英, カリ長石, 黒雲母からなり, 副成分鉱物として燐灰石, ジルコン, チタン鉄鉱を含む。斜長石 (最大 3 mm) は自形から他形で, 弱い累帯構造を示し, 黒雲母を包有する。斜長石の中心部は, 一部セリサイト化している。斜長石とカリ長石の境界部には, ミルメカイトが認められる場合がある。石英 (最大 1.5 mm) は他形で, 斜長石, 黒雲母を包有し, 波動消光を示す。カリ長石 (最大 10 mm) は他形で, 他鉱物間を充填し, 時に大きく成長しポイキリティックに斜長石, 石英, 黒雲母を包有する。黒雲母 (最大 2 mm) は褐色, 半自形から他形で, 一部緑泥石化している。風化部 (SR-45) では, 斜長石のセリサイト化の程度は変化しない。黒雲母は赤褐色を呈する。鉱物の割れ目に沿って, 赤鉄鉱が認められる。マサ土 (SR-46) では, ほとんどが単体もしくは破片状の鉱物粒で, 岩石の組織を残す集合体は少ない。石英量が増加し, カリ長石量が減少する。斜長石のセリサイト化の程度は若干増加し, パーミキュライト化した黒雲母も多く含まれる。石英, 斜長石, 黒雲母の最大粒径は変化しないが, カリ長石の最大粒径は 2 mm と, 大幅に減少する。

IV. 岩石の化学組成

採取した試料について, 主成分および微量元素の測定を行った。主成分および微量元素の測定には, 福岡大学理学部の蛍光 X 線分析装置 (ZSX100e) を用いた。試料調製および測定方法は, 柚原・田口 (2003a; 2003b), 柚原ら (2004a) に従った。FeO は, 過マンガン酸カリウム溶液により滴定した。測定結果を Table 1 に示す。五頭花崗岩については, 柚原ら (1999b) で報告されていない元素について測定を行った。

Sr・Nd 同位体比は, 新潟大学理学部の MAT-262 型質量分析計と同大学院自然科学研究科の MAT-261 型質量分析計を用いて測定した。測定方法は, Miyazaki and Shuto (1998) に従った。 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比および $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ 比は $^{86}\text{Sr}/^{88}\text{Sr}=0.1194$, $^{146}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}=0.7219$ でそれぞれ規格化した。Sr・Nd 抽出におけるブランクは, Rb が 0.25 ng, Sr が 0.52 ng で, Sm が 0.025 ng, Nd が 0.22 ng であった。各試料の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比および $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ 比は, 同じ測定期間中に測定した Sr 同位体比標準試料 NBS-987 の Sr 同位体比および JB-1a の Nd 同位体比を, それぞれ 0.710241 (柚原, 1994; 柚原・加々美, 1995) と 0.512784 に補正した値である。JB-1a の 0.512784 という値は, USGS の標準試料の BCR-1 の 0.512638 に相当する (Kagami *et al.*, 1989)。Rb, Sr, Sm, Nd の定量は, ^{87}Rb - ^{84}Sr ミックススパイクおよび ^{149}Sm - ^{150}Nd ミックススパイクを用いた同位体希釈法により測定した。Sr および Nd 同位体比組成の再現性については, Miyazaki and Shuto (1998), Yuhara *et al.* (2000a) に示されている。 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比および $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ 比の再現性は, 0.002% 以下, 0.004% 以下であり, $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 比および $^{147}\text{Sm}/^{144}\text{Nd}$ 比の再現性は, 0.8% 以下, 4.0% 以下である。測定結果を Table 2 に示す。

V. 考察

1. 風化による構成鉱物の変化

新鮮な岩石では, 一部の斜長石のセリサイト化と, 一部の黒雲母の緑泥石化が認められる程度である。風化岩では, 鉱物の割れ目や磁鉄鉱, チタン鉄鉱の縁辺部に赤鉄鉱が出現する。斜長石のセリサイト化の程度が増す場合と, そうでない場合がある。また, 黒雲母のパーミキュライト化も若干認められる。マサ土では, 構成鉱物の粒径が減少し, 赤鉄鉱の出現頻度と黒雲母のパーミキュライト化の程度は共通して増加するが, 構成鉱物の量比は岩体ごとに異なる (Table 3)。すなわち, 五頭花崗岩では, 石英, 斜長石

Table 2. Rb, Sr, Sm and Nd concentrations and isotopic data of the Gozu Granite, Kise Granodiorite and Aji Granite

Sample No.	Rb(ppm)	Sr(ppm)	$^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}(2\sigma)$	Sm(ppm)	Nd(ppm)	$^{147}\text{Sm}/^{144}\text{Nd}$	$^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}(2\sigma)$
GOZ-19	153 ^{*1}	274 ^{*1}	1.615 ^{*1}	0.70734(1) ^{*1}	3.62	21.0	0.1041	0.512528(11)
GOZ-20	147 ^{*1}	174 ^{*1}	2.448 ^{*1}	0.70796(1) ^{*1}	2.37	12.1	0.1178	0.512532(11)
GOZ-21	170 ^{*1}	161 ^{*1}	3.067 ^{*1}	0.70832(1) ^{*1}	3.14	17.2	0.1104	0.512538(17)
GOZ-01	160 ^{*1}	169 ^{*1}	2.727 ^{*1}	0.70884(1) ^{*1}	2.21	15.1	0.08877	0.512530(12)
GOZ-01Bt.	671 ^{*1}	5.19 ^{*1}	393.8 ^{*1}	1.23006(5) ^{*1}	3.50	8.68	0.2440	0.512585(18)
GOZ-01Kfs.	401 ^{*1}	218 ^{*1}	5.321 ^{*1}	0.71213(1) ^{*1}	0.561	4.56	0.07451	0.512531(14)
GOZ-01Pl.	15.3 ^{*1}	144 ^{*1}	0.3075 ^{*1}	0.70556(1) ^{*1}	1.16	9.75	0.07208	0.512511(16)
TN-77 ¹⁾	73.7 ^{*2}	359 ^{*2}	0.5935 ^{*2}	0.70899(1) ^{*2}	4.20 ^{*2}	20.8 ^{*2}	0.1220 ^{*2}	0.512317(23) ^{*2}
TN-75	72.3	353	0.5947	0.70879(1)	4.87	28.2	0.1046	0.512286(14)
TN-76	93.5	327	0.8275	0.70855(1)	3.89	18.8	0.1251	0.512287(15)
SR-44	72.6 ^{*3}	371 ^{*3}	0.5548 ^{*3}	0.70831(1) ^{*3}	4.49 ^{*3}	22.9 ^{*3}	0.1185 ^{*3}	0.512303(14) ^{*3}
SR-45	70.7	360	0.5689	0.70828(1)	3.66	20.0	0.1104	0.512289(13)
SR-46	65.7	317	0.5990	0.70811(1)	3.89	23.2	0.1016	0.512292(14)

Bt., biotite; Pl., plagioclase; Kfs., K-feldspar.

^{*1}Yuhara *et al.* (1999b); ^{*2}Yuhara *et al.* (2004b); ^{*3}Yuhara *et al.* (2003).

Table 3. Modal compositions of the Gozu Granite, Kise Granodiorite and Aji Granite

Sample No.	Qtz.	Pl.	Kfs.	Bt.	Hbl.	Hem.	Minor
Gozu Gr.							
GOZ-19	33.2	35.7	22.5	8.3	-	-	Mag., Ap., Zrn.
GOZ-20	35.1	31.0	27.3	6.2	-	0.2	Mag., Ap., Zrn.
GOZ-21	29.0	31.1	27.6	12.0	-	0.2	Mag., Ap., Zrn.
Kise Gd.							
TN-77	30.0	38.4	18.1	12.4	0.8	-	Ilm., Ap., Aln., Zrn.
TN-75	39.0	39.6	10.0	10.4	0.7	0.03	Ilm., Ap., Zrn.
TN-76	29.5	42.0	10.5	17.0	0.7	0.2	Ilm., Ap., Zrn.
Aji Gr.							
SR-44	25.4	46.3	16.1	11.3	-	-	Ilm., Ap., Zrn.
SR-45	27.7	43.6	18.4	9.2	-	0.03	Ilm., Ap., Zrn.
SR-46	37.9	41.6	7.1	12.8	-	0.2	Ilm., Ap., Aln., Zrn.

Gr., granite; Gd., granodiorite.

Qtz., quartz; Pl., plagioclase; Kfs., K-feldspar; Bt., biotite; Hbl., hornblende; Hem., hematite, Mag., magnetite; Ap., apatite; Aln., allanite; Zrn., zircon; Ilm., ilmenite.

含有量の減少とカリ長石、黒雲母量の増加、吉瀬花崗閃緑岩では黒雲母量の増加、庵治花崗岩ではカリ長石量の減少と石英量の増加である。また、吉瀬花崗閃緑岩では、普通角閃石の変質の程度も増加する。したがって、新鮮な岩石から風化岩、そしてマサ土への鉱物組成の変化は、赤鉄鉱の出現頻度と苦鉄質鉱物の変質の程度の増加で特徴づけられる。さらに、風化岩からマサ土へは、構成鉱物の量比の変化も生じる。新鮮な岩石から風化岩での構成鉱物の量比の変化は一般に見られないと考えられるが、吉瀬花崗閃緑岩でのカリ長石量の減少は岩相変化によると考えられる。

2. 風化による化学組成の変化

TiO₂ は一般に化学風化作用において最も移動しにくい成分であるため、TiO₂ 量を基準として、各元素の変化量を検討した。五頭花崗岩では、風化核からマサ土に向かい、CaO, Na₂O, P₂O₅, Ba, Sr, Y, Zr の極端な減少、SiO₂, Al₂O₃, MgO, K₂O, Nb, Rb, V の減少が認められる。これに対し、全 Fe (Fe₂O₃*), MnO, Cr はほとんど変化しない (Fig. 6; 柚原ら, 1999b)。今回新たに測定した元素では、Co, Cu, S, Sm の極端な減少と、Ga, Nd, Th の減少が認められ、Pb, Zn はほとんど変化しない (Fig. 6)。吉瀬花崗閃緑岩では、風化核からマサ土に向かい、CaO, Na₂O, Co, Nd, S の極端な減少、SiO₂, Al₂O₃, K₂O, Ga, Sm, Sr, V, Y の減少が認められる。全 Fe, MnO, MgO, P₂O₅, Ba, Nb, Pb, Rb, Zn, Zr の変化量は少ない (Fig. 7)。これに対し、Ni は極端に増加する。さらに Cr は風化岩でのみ増加し、Th は減少する。庵治花崗岩では、新鮮な岩石からマサ土に向かい、P₂O₅, Co, Sm, Sr, Th の極端な減少、MnO, CaO, Nb, Sr, V, Y, Zn の減少が認められる。これに対し、SiO₂, Al₂O₃, 全 Fe, MgO, Na₂O, Cr, Ga, Nd, Ni, Rb, Zr の変化量は少なく、K₂O, Ba, Pb は増加する (Fig. 8)。さらに、Fe₂O₃/FeO 比は、すべての花崗岩類で、風化核からマサ土に向かい、大幅に上昇する (Table 1)。これは不透明鉱物を含めた苦鉄質鉱物の酸化によると考えられ、鏡下観察による、赤鉄鉱の出現と含有量の増加、黒雲

母や普通角閃石の酸化の程度の増加と調和的である。S 含有量は、ほぼ検出限界以下の庵治花崗岩を除くと、新鮮な岩石から風化岩にかけて急激に減少し、風化岩からマサ土にかけて若干減少する。S は、硫化鉱物として含まれていると考えられるが、これらの鉱物の分解によって、硫酸イオンとして放出されたと考えられる。また、化学的風化作用の進行度の指標である絶対的化学的新鮮度 (ADF: degree of the absolute chemical freshness) (三浦, 1973) は、風化の進行に伴い減少するとされるが、風化核からマサ土に向かい減少する (Table 1)。

以上の検討から、新鮮な岩石からマサ土への化学組成の変化は、大部分の主成分および微量元素の減少によって特徴づけられるが、その中でも、CaO, Na₂O など斜長石に多く分配される元素と S の減少量は大きい。さらに、Fe₂O₃/FeO 比が極端に増加する。これに対し、全 Fe, MnO, Cr の変化幅は小さい。

3. 風化による Sr・Nd 同位体比組成の変化

新鮮な岩石からマサ土に向かい ⁸⁷Rb/⁸⁶Sr 比は、いずれの岩体でも増加する傾向にある (Table 2)。Sr 同位体比は、五頭花崗岩では増加するが、吉瀬花崗閃緑岩と庵治花崗岩では減少する傾向にある。五頭花崗岩における Sr 同位体比および ⁸⁷Rb/⁸⁶Sr 比の増加は、鏡下観察から、低い Sr 同位体比と ⁸⁷Rb/⁸⁶Sr 比を持つ斜長石の減少やセリサイト化と高い Sr 同位体比と ⁸⁷Rb/⁸⁶Sr 比を持つカリ長石と黒雲母の増加によると考えられるが、これらの構成鉱物の増減によって全岩の Sr 同位体比組成が変化する場合、Rb-Sr 全岩アイソクロン (庵治花崗岩においては、Rb-Sr 全岩アイソクロンとほぼ一致すると考えられる) 上での組成変化が推定される。しかし、対象とした花崗岩の同位体比組成の変化は、これらとは斜交する (Fig. 9)。したがって、構成鉱物の増減によって、これらの Sr 同位体比組成の変化を説明することはできない。また、風化の過程で閉鎖系が保持され、外部からの元素の供給が無い場合にも、アイソク

Fig. 6. Variation of chemical compositions of the Gozu Granite during weathering.

Fig. 7. Variation of chemical compositions of the Kise Granodiorite during weathering.

Fig. 8. Variation of chemical compositions of the Aji Granite during weathering.

Fig. 9. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ vs $^{86}\text{Rb}/^{87}\text{Sr}$ diagrams of the Gozu Granite, Kise Granodiorite and Aji Granite. Broken line, whole-rock and mineral isochron; solid line, whole-rock isochron. Dotted area is range of natural water in the Sasakami Hills and Gozu mountain. SrI, initial Sr isotopic ratio.

ロン上での組成変化が推定される (Stille and Shields, 1997) が、これらの花崗岩類で閉鎖系が保持されているとは考えられない。累帯構造を示す斜長石の中で、Ca や Sr に富むアノーサイト部は、風化の初期に溶解しやすいため、Sr が過剰に溶脱し、Rb が残る結果となる。そのため、全岩の Sr 同位体比組成は、アイソクロンよりも傾斜の小さい変化傾向を示す (Stille and Shields, 1997)。五頭山地ならびに笹神丘陵に湧出する温泉水と湧水は、五頭花崗岩の変化傾向の延長上もしくはそれよりも Sr 同位体比の高い部分にプロットされ (Fig. 9)、これらの湧水の Sr が斜長石起源であることに矛盾しない。したがって、五頭花崗岩の Sr 同位体比組成の変化は、主に不均質な溶解に依存していると考えられる。一方、吉瀬花崗閃緑岩と庵治花崗岩においても $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 比は増加するが、Sr 同位体比は逆に減少する (Fig. 9)。これらの変化傾向は、Rb-Sr 全岩-鉱物アイソクロンや全岩アイソクロンとは大きく斜交する。黒雲母は溶解

Fig. 10. $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ vs $^{147}\text{Sm}/^{144}\text{Nd}$ diagrams of the Gozu Granite, Kise Granodiorite and Aji Granite. Symbols are the same as those in Figure 9.

の初期段階で ^{87}Sr を放出する (Stille and Shields, 1997) とされ、これにより黒雲母の Sr 同位体比は大幅に減少すると考えられる。これにともない、全岩の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比も減少すると考えられる。しかしながら、岩石の Sr 同位体比が初生値程度まで低くなることは考えられない。風化帯に涵養する地下水の供給源は、雨水であると考えられる。雨水の Sr 同位体比は、変化に富む (中野, 1993; 柚原・渡部, 1999) が、比較的海水の Sr 同位体比 (0.70915~0.70917; 柚原・渡部, 1999) に近く、 $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 比は 2 より小さい場合が多い。この雨水に、花崗岩類を被覆する地層や土壌中の Sr が溶解して、地下水の Sr 同位体比が低くなる可能性もある。したがって、斜長石のセリサイト化などのような変質鉱物の生成の際に、そのような同位体比組成を持つ地下水との同位体交換を行うことにより、風化岩の同位体比組成が変化した可能性が高い。これらのことから、吉瀬花崗閃緑岩と庵治花崗岩の Sr 同位体比組成の変化は、斜長石の不均質溶解、黒雲母の溶解による ^{87}Sr の放出、さらには涵養する地下水との同位体交換によって生じたと考えられる。詳細な解析のためには、各岩体の構成鉱物の Sr 同位体比組成の変

化をとらえることと、各地域 (特に伊那山地と庵治半島) に涵養する地下水の Sr 同位体比組成の分析が必要であろう。

Sr 同位体比が大幅に変化するのに対し, Nd 同位体比はほとんど変化しない (Fig. 10)。さらに, $^{147}\text{Sm}/^{144}\text{Nd}$ 比の変化幅も非常に狭い。これらの花崗岩の構成鉱物の $^{147}\text{Sm}/^{144}\text{Nd}$ 比の変化幅はやや広いといえるが, Nd 同位体比の変化幅は狭い。Sm や Nd は, 構成鉱物の変質でも移動しにくいと、地下水中のこれらの元素濃度は非常に低いと考えられる。したがって, 風化による Nd 同位体比組成の変化は, 構成鉱物の増減と溶解に依存すると推測される。構成鉱物の Nd 同位体比組成の変化幅が狭いため, 全岩の Nd 同位体比組成の変化は小さいものの, その変化傾向は岩体ごとに異なる。Sm や Nd は, 副成分鉱物に濃集する傾向があるため, それらの鉱物の含有量の変化が影響を与えている可能性が高い。分析の対象とした花崗岩類の活動時期は, 94~75 Ma であり (Rezanov *et al.*, 1996; Yuhara *et al.*, 2003; 柚原ら, 2004b), この程度の年代の場合, 構成鉱物の Sr 同位体比組成のバリエーション (特に, 斜長石と黒雲母の差) は大きい, Nd 同位体比組成はほとんど開かない。さらに, 涵養する地下水への溶解度は, Rb, Sr は高く, Sm, Nd は低い。このため, Rb-Sr 系と Sm-Nd 系では異なる結果が出たと考えられる。

VI. ま と め

1. 新鮮な岩石から風化岩, そしてマサ土への鉱物組成の変化は, 赤鉄鉱の出現頻度と苦鉄質鉱物の変質の程度の増加で特徴づけられる。さらに, 風化岩からマサ土へは, 構成鉱物の細粒化と量比の変化も認められる。

2. 新鮮な岩石からマサ土への化学組成の変化は, 大部分の主成分および微量元素の減少によって特徴づけられるが, その中でも, CaO, Na₂O など, 斜長石に多く分配される元素と S の減少量は大きい。さらに, Fe₂O₃/FeO 比が極端に増加する。これに対し, FeO*, Cr の変化幅は比較的小さい。

3. 風化の進行にともない, $^{87}\text{Rb}/^{86}\text{Sr}$ 比は増加する傾向にある。しかし, Sr 同位体比は花崗岩によって変化傾向が異なる。これは, 斜長石の不均質な溶解, 黒雲母の溶解, 地下水との同位体交換などによると考えられる。これに対し, Nd 同位体比はほとんど変化しない。白亜紀花崗岩類の場合, 構成鉱物の Nd 同位体比のバリエーションは小さい。さらに, Sm や Nd は地下水への溶解度も低い。このため, Nd 同位体比がほとんど変化しなかったと考えられる。

謝 辞 野外調査の際には, 長野県駒ヶ根市の佐野 栄氏にお世話になった。さらに, 産業技術総合研究所 深部地質環境研究センターの高木哲一博士ならびに匿名の査読者には, 数多くの有益な議論と原稿の改善に関するご教示をいただいた。以上の方々に心から感謝いたします。

引用文献

- Dickin, A.P. (1995): Radiogenic isotope geology (2nd Ed.). pp. 490, Cambridge University Press, Cambridge.
- Faure, G. (1986): Principles of isotope geology. pp. 589, John Wiley & Sons, Inc., New York, Chichester, Brisbane, Toronto and Singapore.
- Garrels, R.M. and Mackenzie, F.T. (1971): Evolution of sedimentary rocks. pp. 397, W.W. Norton & Company, Inc..
- 陣内和彦, 向山 広 (1973): 花こう岩の風化による諸性質の変化—特に工業原料としての利用を目的として—, 鉱山地質, **23**, 411-423.
- Kagami, H., Yokose, H. and Honma H. (1989): $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ ratios of GSJ rock reference samples; JB-1a, JA-1 and JG-1a. *Geochem. J.*, **23**, 209-214.
- 兼岡一郎 (1998): 年代測定概論. pp. 315, 東京大学出版会, 東京.
- 川野良信 (1994): パーソナルコンピュータを用いた Rb-Sr, Sm-Nd アイソクロン計算プログラム. 情報地質, **5**, 13-19.
- 川野良信, 柚原雅樹, 西 奈保子 (2003): 佐賀県産温泉水の Sr 同位体分析 その 2 — Sr 同位体比と化学組成の関係 —. 佐賀大学文化教育学部研究論文集, **8**, 165-174.
- 木宮一邦 (1975): 花こう岩類の物理的・化学的指標としての引張強度 — 花こう岩の風化・第 1 報 —. 地質雑, **81**, 349-364.
- 松倉公憲, 前門 晃, 八田珠郎, 谷津栄寿 (1983): 稲田型花こう岩の風化による諸性質の変化. 地形, **4**, 65-80.
- 三浦 清 (1973): 深成岩類の風化に関する研究—第 1 報 新第三紀末の赤色風化作用による江津深成岩体の風化—. 応用地質, **14**, 87-102.
- 三浦 清, 樋口和之 (1974): 深成岩類の風化に関する研究—第 2 報 鳥取県日野閃緑岩体の赤色風化—. 応用地質, **15**, 23-34.
- 三浦 清 (1975): 大東花こう閃緑岩の赤色風化—深成岩類の風化に関する研究 (第 3 報)—. 応用地質, **16**, 90-97.
- Miyazaki, T. and Shuto, K. (1998): Sr and Nd isotope of twelve GSJ rock reference samples using MAT262 mass spectrometer. *Geochem. J.*, **32**, 345-350.
- 中川善兵衛, 小坂丈予, 浦部和順, 山田久夫 (1972): 岩手県千厩地方における石英閃緑岩の風化について. 岩鉱, **67**, 283-290.
- 中野孝教 (1993): 水文トレーサーとしての Sr 同位体. ハイドロロジー, **23**, 67-82.
- Notsu, K., Wakita, H. and Nakamura, Y. (1991): Strontium isotopic composition of hot spring and mineral spring waters, Japan. *Appl. Geochem.*, **6**, 543-551.
- 大八木規夫, 内田哲男, 鈴木宏芳 (1969): 加茂・大東地方花こう閃緑岩地帯における風化帯の粘土鉱物 (第 1 報)—風化生成粘土鉱物とその生成系列—. 国立防災科学技術センター研究報告, **2**, 21-44.
- Rezanov, A., Shuto, K. and Iizumi, S. (1996): A Rb-Sr whole rock isochron age of the Gozu Granite, Niigata Prefecture, central Japan. *J. Geol. Soc. Japan.*, **102**, 828-831.
- Sasada, M. (1975): Petrological study of the Gozu granitic mass, Niigata Pref., central Japan. *J. Geol. Soc. Japan.*, **81**, 407-422.
- 佐藤 努, 中野孝教 (1994): ストロンチウム同位体を用いた地熱流体母岩の推定—奥鬼怒川温泉地域における研究例—. 地質ニュース, **474**, 23-26.
- Stille, P. and Shields, G. (1997): radiogenic isotope geochemistry of sedimentary and aquatic system. pp. 217,

- Springer-Verlag, Berlin.
- 柚原雅樹 (1994): 伊那地方領家帯における太田切花崗岩の貫入時期と領家変形—変成作用: Rb-Sr 全岩アイソクロン年代による検討. 岩鉱, **89**, 269-284.
- 柚原雅樹, 加々美寛雄 (1995): 勝間石英閃緑岩体の冷却史. 地質雑, **101**, 434-442.
- 柚原雅樹, 渡部直喜, 加々美寛雄, 中沢健太, 中川 勉 (1998): 天然水試料の Sr 同位体分析. 新潟大学積雪地域災害研究センター研究年報, no. 20, 56-61.
- 柚原雅樹, 川野良信, 西 奈保子 (1999a): 佐賀県産温泉水の Sr 同位体分析. 佐賀大学文化教育学部研究論文集, **4**, 147-156.
- 柚原雅樹, 渡部直喜, 中川 勉, 厨川亮子, 高橋俊郎 (1999b): 五頭山地および笹神丘陵の天然水および岩石の Sr 同位体比組成. 新潟大学積雪地域災害研究センター研究年報, no. 21, 83-95.
- 柚原雅樹, 渡部直喜 (1999): 新潟における降水の Sr および酸素同位体比. 新潟大学積雪地域災害研究センター研究年報, no. 21, 119-124.
- Yuhara, M., Hamamoto, T., Kondo, H., Ikawa, T., Kagami, H. and Shuto, K. (2000a): Rb, Sr, Sm and Nd concentrations of GSJ, KIGAM and BCR-1 rock reference samples analyzed by isotope dilution method. *Sci. Rep., Niigata Univ., Ser. E (Geology)*, no. 15, 23-34.
- Yuhara, M., Kagami, H. and Nagao, K. (2000b): Geochronological characterization and petrogenesis of granitic rocks in the Ryoke belt, Southwest Japan Arc: constraints from K-Ar, Rb-Sr and Sm-Nd systematics. *Island Arc*, **9**, 64-80.
- Yuhara, M., Miyazaki, T., Kagami, H. and Yuhara, M. (2003): Rb-Sr and K-Ar geochronology and petrogenesis of the Aji Granite in the eastern Sanuki district, Ryoke Belt, southwest Japan. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, **98**, 19-30.
- 柚原雅樹, 田口幸洋 (2003a): 蛍光 X 線分析装置 ZSX100e による珪酸塩岩石の主成分および微量元素の定量分析. 福岡大学理学集報, **33**, 25-34.
- 柚原雅樹, 田口幸洋 (2003b): ガラスビード法による珪酸塩岩石の Co および S の蛍光 X 線分析. 福岡大学理学集報, **33**, 77-81.
- 柚原雅樹, 古川直道, 田口幸洋 (2004a): 粉末ペレット法による珪酸塩・炭酸塩岩石の微量元素の蛍光 X 線分析. 福岡大学理学集報, **34**, 43-49.
- 柚原雅樹, 宮崎 隆, 加々美寛雄 (2004b): 伊那領家帯, 吉瀬花崗閃緑岩の年代学的, 同位体岩石学的研究. 福岡大学理学集報, **34**, 51-65.