

# 新潟県魚沼層群火山灰層の鉱物学・年代学

## － 特に SK030 中ジルコンの双晶構造の解析－

**Mineralogical and chronological study on volcanic ash layers of Uonuma Group - with special reference to analysis of twin structure in zircon from SK030 -**

新潟大学大学院自然科学研究科 博士後期課程

村松敏雄

はじめに

新潟県には第四紀更新世に形成された魚沼層群が厚く堆積している。1970年代に県内の第四紀層の研究を目的とした「魚沼丘陵団体研究会」による調査が行われてきた。魚沼層には多くの火山灰層（凝灰岩）が含まれており、その中に広い範囲に分布する特徴的な広域火山灰層が観察された。魚沼丘陵団体研究会の中に火山灰層の分布やと鉱物学的な研究を行う専門学的な重鉱物グループが形成され、その一員として火山灰層の研究に参加した。その中で、火山灰層の重鉱物分析と同時に火山灰層の形成年代の必要性から当時始まったばかりのフィッション・トラック (Fission Track) 法による放射年代 (F T年代) 測定にかかわった。はじめの頃は個人的な研究として手探り状態であったが、「日本フィッション・トラック研究会」に参加することにより年代学として研究をより進めることができた。この手法では火山灰層の中からジルコンを取り出す必要性から構成鉱物の結晶形態や光学的性質などの観察が行われた。とくにジルコンを中心に観察しその持つ結晶形態・色調などの特性に注目し、魚沼層群の火山灰層の対比にも応用された。また、魚沼層群にはジルコンを含む火山灰層が多くフィッション・トラック法 (F T法) による年代測定をおこない 1980年代にその成果が報告された。また、魚沼層群の多くの火山灰層中のジルコンを観察している中で「SK030」のジルコンに特徴的な形状を持った双晶ジルコンが見出した。さらに、SK030の重鉱物の中から火山灰層としては初めてであるモナズ石、ゼノタイム、コランダムが同時に見出され、双晶ジルコンと共に鉱物学的研究の対象になった。以上の経過から、本論文はジルコンを利用したフィッション・トラック年代測定法による年代学的研究及びその過程で得られたジルコンの双晶と稀少鉱物であるモナズ石などの新しい発見に伴う鉱物学的研究の二つの柱をもって構成することとする。第一部ではフィッション・トラック法による年代学的研究、第二部として、ジルコンの双晶の解明を主内容とし、稀産鉱物であるモナズ石、ゼノタイム、コランダムについての鉱物学的研究を展開する。

## I 部：魚沼層群火山灰層のフィッション・トラック年代学

### I-1. はじめに

### I-2. 魚沼層群の地質と火山灰層

### I-3. FT法とその手法

### I-4. 結果と考察

### I-5. まとめ

#### I-1. はじめに

新潟県には以前から石油の産出県として含石油層である第三紀層の調査が多く進められてきた(池辺他, 1940)。その中で石油を含まない魚沼層群の研究は十分進んでいなかった。しかし、戦後、世界的に人類考古学の関係から鮮新世－更新世問題の関心がたかまり、日本でも 1960 年代以降関西の研究者が中心となって大阪層群の研究が進められてきた(藤田ほか, 1951)。その関係で大阪層群の相当層として考えられていた新潟県下に広く分布する魚沼層群に注目が集められるようになった(新潟県第四紀団体研究グループ, 1969)。それ以降新潟県でも魚沼層群の調査が進み、その中で 1968 年に魚沼丘陵団体研究会が組織された。当時は魚沼層群の地質年代の決定には大型植物化石、有孔虫、花粉化石、古地磁気の測定などの研究を基に大阪層群との対比が行われていたが、絶対年代の研究はまだなされていなかった。そこで、筆者は当時としては新しく開発された年代測定法として Fission Track 法による絶対年代の研究に携わり、この手法による魚沼層群に含まれる火山灰層の年代測定をおこない、その結果魚沼層の形成年代のデータを得ることができた(村松, 1983)。当時、放射性同位元素を利用する年代測定は U-Pb 法、K-Ar 法、 $^{14}\text{C}$  法など以前から行われて数多くの測定値が報告されてきた。しかし、これらの測定方法にはいずれも大型で高価な装置や高度な専門的知識と処理技術を必要とされ大学や研究機関で行われることが一般的であり、多くの研究者には容易に年代測定が難しかった。また、これらの手法では、新潟県に広く分布する魚沼層群の堆積年代である第四紀更新世の比較的新しい数 10 万年～100

万年の年代測定には適さなかった。これらの難点を補う形での年代測定法としてF T法が1960年代に開発された(島, 1965)。筆者もこの手法が開発された当時から研究を始め魚沼層群をはじめさらに県内・外の第四紀から第三紀の凝灰岩・火山岩にまで対象をひろげF T年代測定を行ってきた(村松, 1989, 2008)。

## I-2. 魚沼層群の地質と火山灰層

新第三紀から第四紀にかけて海成堆積物が、沈降する堆積盆地に厚く堆積し主に県中央部に分布している(図1)。魚沼層群は地表に露出している面積でも約1000km<sup>2</sup>層に及ぶ広い範囲に分布し、地層の厚さでも約3000mに及び地下にも厚く分布している。魚沼層群を作る地層は主に海成層の泥岩と砂岩よりなり岩相の特徴から下位より最下部、下部、中部、上部累層に区分されている(図2)。魚沼層には約30枚近くの火山灰層が含まれており、各累層には連続性のある火山灰層も多く挟在される。魚沼層群の火山灰層にはパミスを含む酸性質の火山灰層が多くジルコンを含みF T法が可能な火山灰層も含まれている。またその中に20mに及ぶ厚い火山灰層もふくまれている。はじめに魚沼層火山灰層の研究が進んだ模式地となった小国町の芝ノ又川ルートでは、最初に命名された火山灰層SK010～SK130の13枚の中で、特にSK020, SK030, SK110,などは広範囲に分布する連続性のある広域火山灰層である(図3)。筆者はこのときの調査に参加し火山灰層のサンプリングを行いF T法による年代測定を行うこととした。

## I-3. F T法とその手法

フィッション・トラックはジルコンやアパタイトなどの鉱物中に含まれるウラン238の自発核分裂によって形成された自発核分裂飛跡(Spontaneous Fission Track)のことである。この飛跡(Track)は非常に小さくはじめは電子顕微鏡でしか見ることができなかったが(図4)、その後この飛跡を化学試薬でエッチング(腐食)して拡大し光学顕微鏡で観察されるようになり、一般の研究者でも安価で容易に年代測定の道が開かれた。ただ、年代を求めるには鉱物中のウラン238の含有量が必要になる。これには鉱物を実験用原子炉内に挿入して熱中性子線照を行いウラン235を誘発核分裂させてその結果生じるにより誘発核分裂飛跡(Induced Fission Track)を数えることによりウラン238の含有量を求める事



ができる。試料への熱中性子照射は原子炉が設置された大学や研究所で行なわれているが、委託照射で行えば比較的安価で実施できる。その結果、F T法での年代測定は、安価な薬品と簡単な実験施設で短期間に結果を出すことができる利点を持っている。

F T法では、ジルコンなど鉱物内の自発核分裂飛跡数、誘発核分裂飛跡数、原子炉内の熱中性子線量が分かると次の公式によってF T年代が求められる。

$$T = \phi \cdot \sigma / \lambda_F \times I(^{235}\text{U}) / I(^{238}\text{U}) \times \rho_s / \rho_i$$

ただし、上の式での各記号と数量は下に示した通り、

$\phi$  : 熱中性子線量,  $\sigma$  :  $^{235}\text{U}$ の核分裂断面積,  $\lambda_F$  :  $^{238}\text{U}$ の自発核分裂の壊変定数,  $I(^{235}\text{U}) / I(^{238}\text{U})$  :  $^{238}\text{U}$ と $^{235}\text{U}$ の同位体比,  $\rho_s$  : 自発核分裂飛跡密度,  $\rho_i$  : 誘発核分裂飛跡数、で $\sigma = 577 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ ,  $\lambda_F = 6.86 \times 10^{-17} / \text{y}$ ,  $I(^{238}\text{U}) / I(^{235}\text{U}) = 138$  以上の数値を公式に代入すると

$$T = 6.12 \times 10^{-8} \times \phi \times \rho_s / \rho_i$$

が求まる。当時は、この式に従ったポピュレーション法あるいはグレインバイグレイン法などの初歩的な手法によって年代測定が行われた。しかし、F T法の研究が進む過程で公式にある $\sigma$ ,  $\lambda_F$ などの定数値が不確定であることまた熱中性子線量の測定での誤差や飛跡の認定などによる個人的測定差が年代値の大きな誤差となり、F T法による年代測定に問題が指摘された。その点の問題解決方法としてゼータ ( $\zeta$ ) 法が導入された。この測定法は IUGS (国際地質学連合) による FT 年代の標準化に関する勧告 (Hurford, . 1990a, b) に従って、測定者による個人的手法の違いや K-Ar 法などの他の測定法との違いを明確に表すために有効であった。この手法は正式にゼータ較正法と呼ばれており、国際的な標準試料 (Fish Canyon Tuff (FCT)) とウラン含有量のわかっている標準ガラス (SRM962a) を原子炉で熱中性子照射を行い次の式から $\zeta$ 値を求める事になっている。

$$\zeta = (\exp(\lambda_f \cdot T_{\text{sm}}) - 1) / (\lambda_d (\rho_s / \rho_i) \cdot \rho_d) \quad \text{ここで各記号は,}$$

$\lambda_f$  :  $^{238}\text{U}$ の自発核分裂の全壊変定数,  $T_{\text{sm}}$  : 標準試料の年代値 (FCT: 27.8Ma),

$\rho_d$  : 標準ガラス (SRM962a) の誘発飛跡密度

このようにして得られた $\zeta$ 値は利用する原子炉や研究者個人の実験手法によって違って値を示すためF T法を行う研究者はすべて個人的に求める必要がある。すなわち $\zeta$ 値は測定者ごとの固有の

値である。ゼータ法では、前に示したゼータ値を求める式はから、近似的に鉱物の F T 年代を求める式は次のように簡素化される。

$$T = \zeta \cdot (\rho_s / \rho_i) \cdot \rho_d \text{ (Ma)}$$

で示される。この式では、 $\zeta$  値を決めておけば  $\rho_s$  と熱中性子照射後の  $\rho_i$  と  $\rho_d$  を求めれば F T 年代が求められることになり非常に簡素化されると同時に今までより正確な年代測定が行われるようになった。最近の F T 法では、必ず  $\zeta$  値を示すことになっており正確な  $\zeta$  値が求められている。IUGS による F T 年代の標準化に関する勧告では標準試料には少なくとも FCT 以外の BMT (Buluk Member Tuff: 16.2Ma) や TDR (Tardree Rhyolite: 58.7Ma) から取り出したジルコンを使用して同時に測定して  $\zeta$  値を出すことになっている。筆者は 3 試料を処理し、 $\zeta = 374.2$  を求めた (表 1)。F T 法による実験手法は開発された当時と比較してジルコンのエッチング試薬、温度管理や飛跡観察用顕微鏡及びデータ処理ソフトなど非常に能率的になった。実験手順は図 5 に示してある。F T 法では、造岩鉱物の中でウラン含有量が最も多いジルコンが利用されている。ジルコンは酸性質パミス凝灰岩 (火山灰層) や流紋岩に副造岩鉱物として見出される。試料からジルコンを摘出するため、まず比重が大きい性質を利用して重液を利用して重鉱物分析を行う。使用する重液には、以前プロモフォルム (CHBr<sub>3</sub> 比重 2.85) を使用していたが、この薬品には多少毒性に問題があり、その後無臭性で毒性のない SPT (ポリタングステン酸ナトリウム) を使用するようになった。得られた重鉱物を磁気分離器で非磁性鉱物として分離する。以前は輝石、角閃石など鉄含有鉱物との分離に強力な磁気分離器 (アイソダイナミックセパレーター) を利用したが最近では低価格なイリジウム磁石が利用されている。最後に残った非磁性鉱物の多くはジルコンやアパタイトなどである。魚沼層の火山灰層に含まれるジルコンは淡いピンク色を呈することが多く識別されやすい。得られたジルコンを実体顕微鏡で約 100 粒子ずつあらかじめ用意した 1 cm<sup>2</sup> テフロンシートに手選して並べる。次に、約 360℃ に調節したホットプレート上で埋め込みジルコンを固定させる (図 5)。その結果ジルコンの扱いが容易になりジルコンをエッチングや研磨が可能になる。

次にジルコンのエッチングが必要になってくる。以前の手法 (Re-etch 法) ではジルコンの自発核分裂飛跡は自然結晶面のエッチングで求め、誘発飛跡は同じジルコンの熱中性子照射後の再エッチングで求められていた。しかし、この手法では、同じ結晶面を 2 回エッチングするため結晶表面の腐食が進み大きな誤差を生じるため現在が全く使われていない。1980 年代からは、誘発飛跡密度を求める方法として白雲母結晶面に添付して熱中性子照射を行うディテクター法 (ED 法) が一般的になった。ただし、この方法には自然結晶面 (外部面) にディテクター (白雲母) を添付する場合 (ED-1 法 (図 6A)) と結晶面を約  $12\mu\text{m}$  以上研磨してできた内部面 (図 6B) にディテクター (白雲母) を添付して誘発飛跡を求める方法 (ED-2 法 (図 6C)) がある。計算によると ED-2 法の誘発飛跡密度は ED-1 法の誘発飛跡密度の 2 倍になることが知れている。実際にジルコンの結晶内での飛跡の長さは  $12\mu\text{m}$  であることが知られているが、実際に外部面を利用する ED-1 法での飛跡の長さを測定すると  $6\sim 12\mu\text{m}$  になるが、ED-2 法での飛跡の長さは  $6\mu\text{m}$  以下の短い長さになる。次に、F T 年代測定で最も重要なのはジルコンの自発飛跡エッチングと言われている。この実験には Greadow *et. al* (1980) の方法が一般的に使用されている。この方法ではジルコンの埋め込まれたテフロンシートをテフロンビーカーで  $225^{\circ}\text{C}$  に熱した NaOH-KOH (同モル) 共融液を 24~48 時間条件で行われている。このエッチングが正確に行われないと年代に大きな誤差が出るため、エッチング温度と時間を実験的に確かめる事が必要とされている。まず、結晶面のバルクエッチング速度を結晶軸方向別に求め、エッチングオーバーになる限界時間を求めた。次に、エッチング時間と飛跡密度の関係を確かめるため 24 時間間隔で自発飛跡数を求めた。その実験結果を表 2 及び図 7, 図 8 に示している。図 10 の写真に見られるようにエッチング時間の増加とともにジルコン結晶が小さくなり、c 軸方向が大きく a b 軸方向は非常に小さいことが分かった。それを数量的な求めるために、3 試料から 30 粒子のジルコンを選び 24 時間ごとの a b 軸、c 軸方向の結晶面の長さを測定し、120 時間 (5 日) 後の長さの差の平均値からエッチング速度を求めた。その結果 a b 軸方向では  $0.01\mu/\text{h}$ 、軸方向に  $0.3\mu/\text{h}$  となった (表 2)。このことは、自発飛跡が観察される a b 面で 48 時間エッチングで約  $1\mu$  程度バルクエッチングされることになり、自発飛跡の長さ ( $12\mu$ ) から考えると、それ以上のエッチングをしなければ結晶面下にあるトラックのことは考慮する必要が無いと思われる。ただ c 軸方向の自発飛跡のエッチングが a b 軸方向より時間がかかることと、c 軸方向

のエッチング速度が大きいかは今後の課題である。また、自発飛跡数はエッチング時間とともに増加することは分かっているが、最も適切なエッチング時間に関しては、図 7 の実験から分かるように 24 時間ではまだエッチング不足であり 48 時間近くが必要と思われる。以上のことより、適切なエッチング条件は温度 225℃, エッチング時間 48 時間が最も適切であると判断した。これ以降の実験は、これに従った(村松:2008)。次に試料への熱中性子照射が必要になってくる。熱中性子照射には東海村日本原子力研究所の実験用原子炉 JRR3 及び JJR4 を利用した。ジルコンが埋め込まれたテフロンシートに白雲母を添付してさらに熱中性子照射量を求めるための標準ガラス (SRM962a) に同じように白雲母を添付しメンディングテープで巻いた照射試料を指定されたカプセルに入れて気送管での熱中性子照射を行った。このとき、熱中性子照射の照射時間によって誘発飛跡数が変わるのであらかじめ照射時間を指定することができ、今回は 20 秒照射した。その結果、ジルコンと標準ガラスに含まれるウラン 235 は誘発核分裂を起こし、添付してある白雲母に転写される。ジルコンの誘発飛跡密度( $\rho_i$ )と標準ガラスの誘発飛跡密度( $\rho_d$ )は添付白雲母のエッチングによって求められる。白雲母のエッチング条件は、48%の HF 溶液、20℃ (常温) で約 20 分になっている(図 10.)。

以上の実験によってジルコンの自発飛跡密度( $\rho_g$ )、白雲母の誘発飛跡密度( $\rho_i$ )、標準ガラスの誘発飛跡密度( $\rho_d$ )を光学顕微鏡(1000 倍)観察によって求めた。このときの顕微鏡観察は能率的に行うため顕微鏡に接続した USB カメラを使いパソコン画面で行なわれた。得られたデータを F T 専用のソフト「Trackkey」や「TRA」を利用して F T 年代の計算やアイソクロン図、年代分布図など統計的な処理も同時に行った(図 11 )。

#### I-4. 結果と考察

##### ・魚沼層群火山灰層の F T 年代

F T 法による年代測定をはじめにおこなったのは三島郡小国町(当時)-芝ノ又川の魚沼層群の火山灰層であった。このルートでは SK010 から SK130 の 13 枚の火山灰層が確認されたが、その中でパミス質の 7 層準火山灰層にジルコンが多く含まれており F T 法の年代測定を求めることができた。その後、他のルートのサンプリングなどを行い追加の測定を行なった。その結果は図 12 に示されている。得られたデータは当時の植物化石や貝化石などとの関係で当時としては大きな違いが見られず妥当なデータ

と考えられた。当時の F T 法の手法はポピュレーション法と呼ばれジルコンを二つのグループに分け約 50 粒子を自発核分裂飛跡に残り 50 粒子を熱中性子照射し誘発飛跡密度を求め年代を出す方法であった(図 12)。ただ、当時の F T 測定法は IUGS による FT 年代の標準化に関する勧告以前の初歩的手法によって行われた年代測定であったため、その後、魚沼層群に関するナンノ化石や古地磁気及び火山灰層の他地域との詳しい対比などの研究により F T 年代値との不一致が指摘された。そこで、筆者は今まで採取した試料を新しいゼータ法で測定装置の改善をなど、精度を高めて再測定を行った。その結果のデータ表が図 13 に示してある。得られた年代は黒川 (1999b) が示した「日本列島における鮮新世～更新世前期のテフラの広域対比と年代」の年代にほぼ一致していることがわかった。また、魚沼地域以外の地域でも魚沼層相当層が分布し火山灰層の対比が行われてきた。そのなかで SK020, SK030, SK100, SK110 などの広域火山灰層が各地で見つかっている。それらの火山灰層の F T 年代測定をゼータ法で行った結果ほぼ同じような傾向が出ていることがわかった。例として新潟平野東部の新津丘陵では魚沼層上部から第三紀層のまでの地層とそれらに含有される火山灰層と火山岩が見られ、それらの F T 年代測定を行った(表 3)。その結果、HK10 が SK110 に、HK20 が SK100 に、椿谷川火山灰層に SK030 にそれぞれ対比されることがわかった。それに対し、それまでのデータと大きく違った例も見つかった。新潟市西蒲区角田山麓の峰山丘陵に分布する泥岩と砂岩よりなる地層は黒川 et al (2008) によると鮮新世中期西山期の堆積物とされてきた。その根拠として、巻町城山公園近くの露頭で見つかった火山灰層 (Jym) を中央油帯の Mym (約 3.5Ma) に対比していた。しかし、筆者がこの地域の数枚ある火山灰層の F T 年代を測定した結果すべて約 1.7Ma 前後の更新世後期の魚沼層中部累層に対比されることになる(表 5)。いままで、年代測定のためジルコンの色調を見てきたが魚沼層に含まれるジルコンはほとんどが無色か淡いピンク色が多いが鮮新世以降の古いジルコンの色調はもっと濃いピンク色が普通である。経験的なジルコンの色調から考えてもこれらの火山灰層は魚沼期のものと考えられる。もし、このことが事実としたら中央油帯の火山灰層の年代の再検討が必要になる可能性を秘めている。

県外でも魚沼層群相当層が見つかっている。筆者は関東平野西縁丘陵研究グループに協力し、加治～毛呂山丘陵に分布する火山灰層の F T 年代測定をおこなった(村松, 2008)。その結果を示した年代表及び柱状図を示している(図 6)。その結果、明らかに魚沼層相当層の地層であり、その内 MMC 火山灰

層は 1.8Ma を示し魚沼層中部層の SK110 の下位の Tsa（津池火山灰層）に対比されることがわかった。

この津池火山灰層は新潟市西方の新津丘陵の第四紀層中からも見つかっている（表 4）。

また、群馬県西部のタキガ沢の水上町に分布するタキガ沢火砕流堆積物や高崎市、安中市郊外に分布する火砕流堆積物の中に新潟の SK030 に対比される火山灰層が産出し、さらに関東平野の地下からボウリング試料からも見つかっている。この地域での SK030 は F T 年代でも 1.1Ma を示すことやジルコンの特性（双晶、モナズ石、ゼノタイムを含む）から考えても SK030 と同一の火山灰層に対比される。

#### ・第三系の F T 年代

魚沼期以外の第三系の火山灰層や火山岩類及び花崗岩について、多くの地域で F T 年代測定を行った。北部では、村上地域、中条町地域、南部では米山地域、安塚町菱ヶ岳周辺、六日町周辺、上越地域などの火山灰層、火山岩類の F T 年代を精力的に求め、研究報告としてまとめてきた（図 14）。それを基に全体の対比表を作成した（図 15）。

#### I-5. まとめ

魚沼層群の年代に関する課題を整理しこれを解決する方法としてF T年代法の意義を整理した。今までのF T法の変遷と進歩を改めてレビューした：F T法による年代測定は、ウランー鉛法などと比較して比較的低価格の実験機器で難しい専門的技術を必要とせず短い期間で年代が求められる利点を持っており、魚沼層群などの比較的新しい地質年代の年代測定に有効に適応され、今回報告した通りの多くの年代測定を可能となった。今回、特にゼータ法による新しい手法で魚沼層群の火山灰層のF T法による年代測定を行った結果、本文中に表としてまとめたとおりの結果がえられ、他の方法で求められた従来のデータとほぼ一致する結果が確認された。また、より広く県内外の関連地質体についてもフィッシュントラック年代を求め、最新のデータが得られた。よって今後、この手法は魚沼期より新しい後期更新世の年代測定にきわめて有効に使えることがわかった。

## <引用文献>

魚沼丘陵団体研究グループ (1983): 魚沼層群の地層. 地団研専報, 26, 5-22.

**Gleadow AJW, Hurford AJ and Quaife RD(1976) Fission Track dating of zircon improved etching techniques. Earth Planet Sci Lett, 33:273-276**

黒川勝己・大橋理香(1998): 新津丘陵の更新世前期火山灰層, 新潟大学教育人間科学部紀要, No1, 17-61

黒川勝己 (1990): 水底に堆積した珪長テフラの層相モデルとその形成機構, 地球科学, 44, 361-378.

黒川 勝己(2005) : テフラ学入門ー野外観察から地球環境史の復旧までー, 地学双書 36-, pp90-91. 地学研団体研究会. 東京

**Kurokawa, K. and Hirata, I. (1986): Grain-size characteristic of the Joetsu Ash (United I ), a subaqueous ash flow turbidite of early Pleistocene, central Japan. Me. science Fac. Educ., Niigata Univ. (Natural Sciences), 28, 15-24**

島 誠(1967): フィッション・トラックによる年代決定法, 第四紀研究, 6(4), 134-140

島 誠・矢吹英男(1970): フィッション・トラック法による第四紀産ジルコンの年代測定, 理研報告, 34, 59-62

正田浩司・菊池隆男・鈴木毅彦・竹越智・関東平野西縁丘陵団体研究グループ(2005) 関東平野西縁に分布する飯能礫層下部層のテフラ層序と広域対比. 地球科学, 59 : 339~356

高山俊昭, 佐藤時幸, 亀尾浩二, 後藤登美子 (1995): 第四系石灰質ナンノ化石層と鮮新統／更新統境界の年代. 第四紀研究, 34, 157-170



**Dunkel I (2002) TRACKKEY : a Windows program for calculation and graphical presentation of fission track data. Computers and Geosciences, 28(2):3-12**

檀原 徹 (1995): 第四紀テフラの高精度フィッション・トラック年代測定—ジルコンとガラスを用いた測定法の確立に向けて—, 第四紀研究, 34:221-237

日本の地質「中部地方 I」編集委員会(1998): 日本の地質 4 中部地方, pp. 123, 共立出版, 東京.

新潟平野団体研究グループ(1970): 新潟県刈羽郡小国町地域の魚沼層群—新潟県の第四系・その X II—, 新潟大学教育学部高田分校研究紀, 15, 263-301

新潟第四紀団体研究グループ(1969): 新潟県の第四系, 地団研専報, 「日本の第四系」, 117-171

藤田和夫・池辺展生・市原 実・小畠信夫・森島正夫・森下 晶(1951): 大阪層群とそれに関連する新世代層. 地球科学. 6, 13-24

**Hurford AJ(1990a): Standardization of Fission Track dating calibration :Recommendation by the Fission Track Working Group of the IUGS Subcommision on Geochronology. Chem Geol(Isot Geosci Sect)80,:171-178**

**Hurford AJ(1990b): International Union of Geological Science Subcommision on Geochronology Recommendation for the Standardization of Fission Track dating and reporting. Nucl Track Radiat Meas, 17:233-237**

**Fleisher. R.L, Price, P.B & Walker, R.M.(1964): Fission Track Age of Zircon. J. Geophys., 69, 4885-4888**

**Fleisher. R.L, Price, P.B and Walker, R.M.(1975): Nuclear Track in Solid: Principles and application. Univ. of Calif. Press, Berkely, p605**

長谷川美行・他(1976) 新津丘陵の地質, 新潟大学地鉱研究報告, 第 4 号, 111-118

村松敏雄 (1983): 魚沼層群のフィッション・トラック年代. 地団研専報, 26, 63-66.

村松敏雄(2008): 埼玉県加治〜毛呂山丘陵に分布する火山灰層の Fission Track 年代, フィッション・トラックニュースレター, 21, 23-26

村松敏雄(2007):新潟県新津丘陵に分布する凝灰岩及び火山岩のフィッション・  
トラック年代, フィッション・トラックニュースレター, 20, 44-

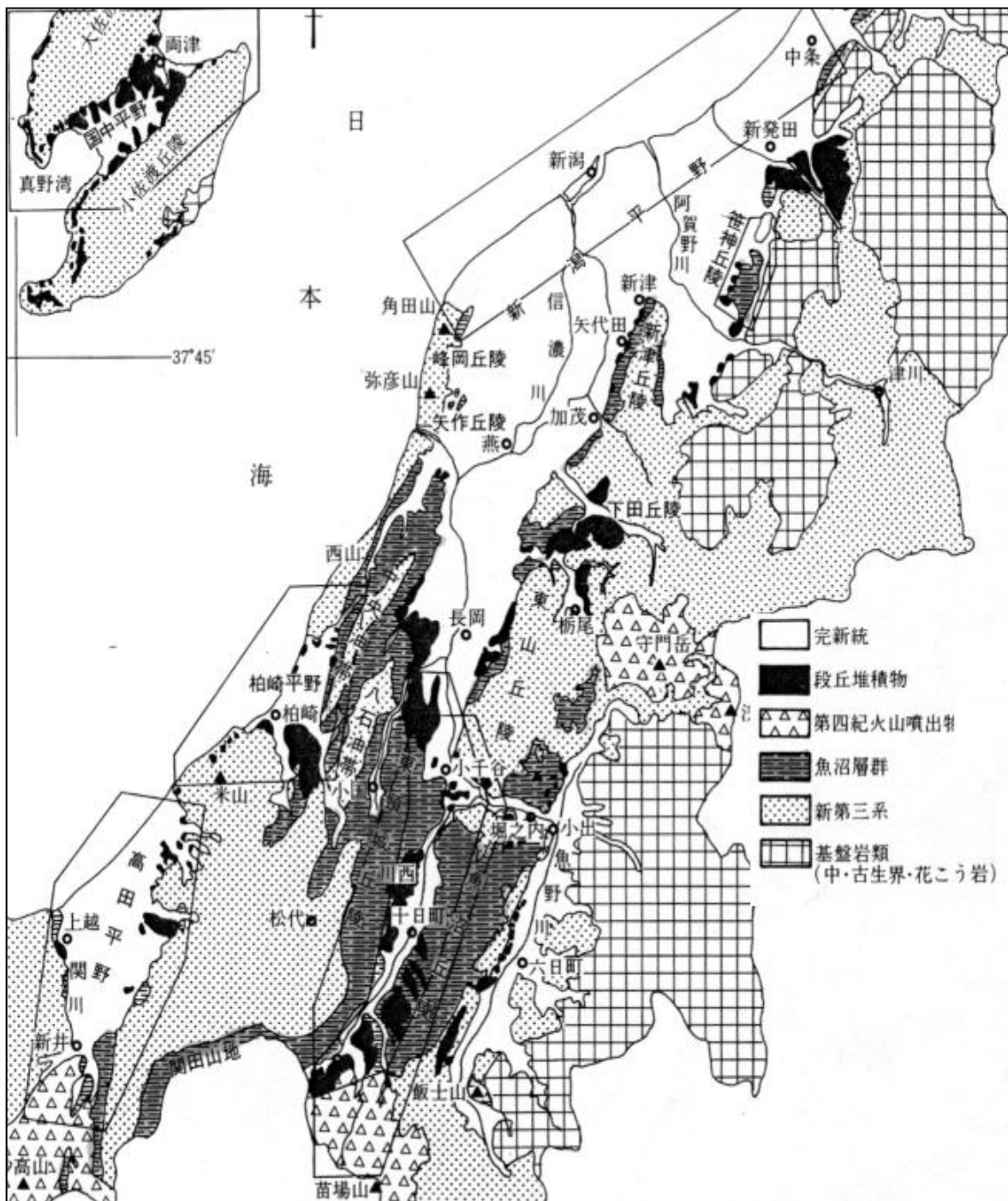


図1 日本海円盤地域の第四系・第三系の分布図(新潟県地質図,1977)を一部改訂・簡素化

# 新潟県標準地質序層 魚沼層群火山灰層序図

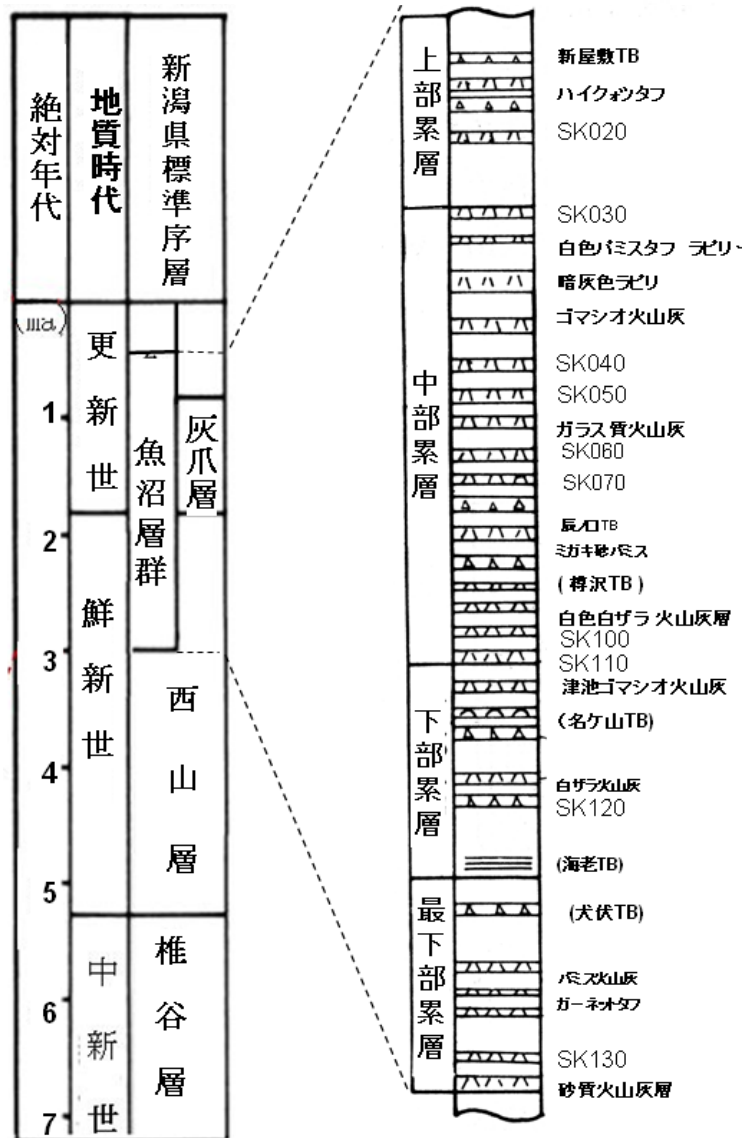


図2. 新潟地域標準地質序層図(右図)及び魚沼層群鍵層(火山灰層)序層図(左図)

# 魚沼層群火山灰層地域別序層図

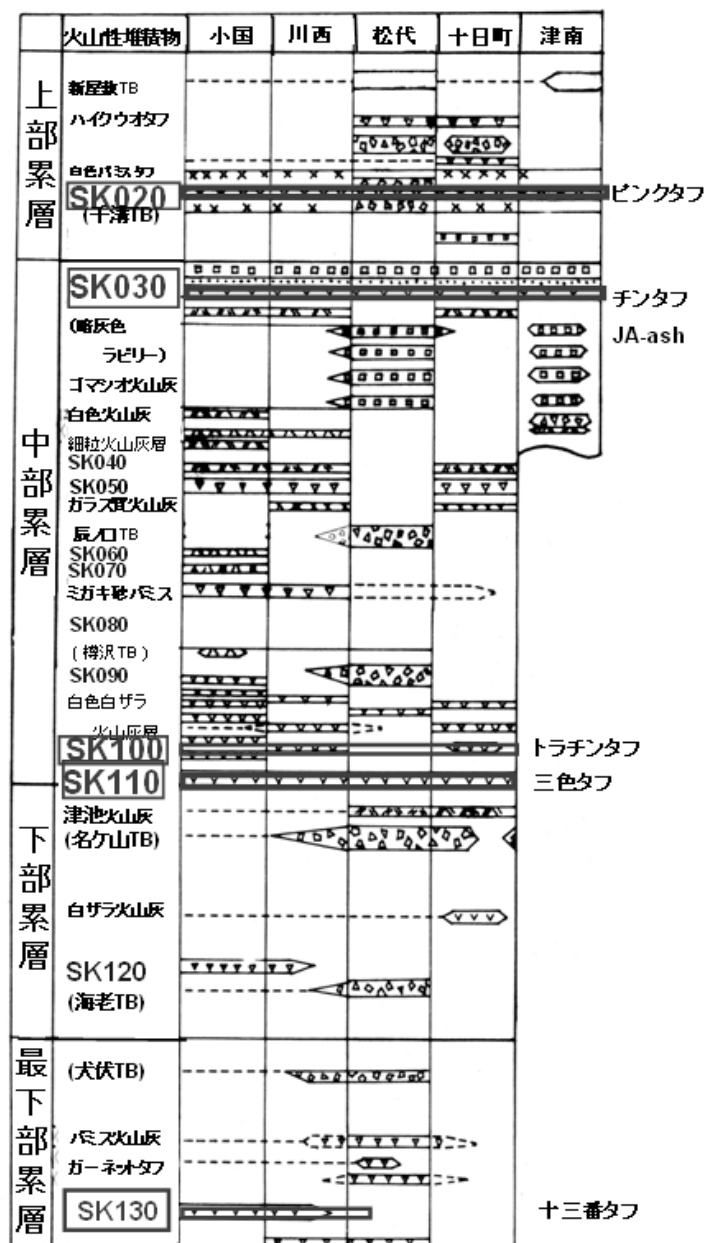


図3. 魚沼層群累層別・地域別の火山性堆積物。特に四角内の火山灰層は広域火山灰層である。

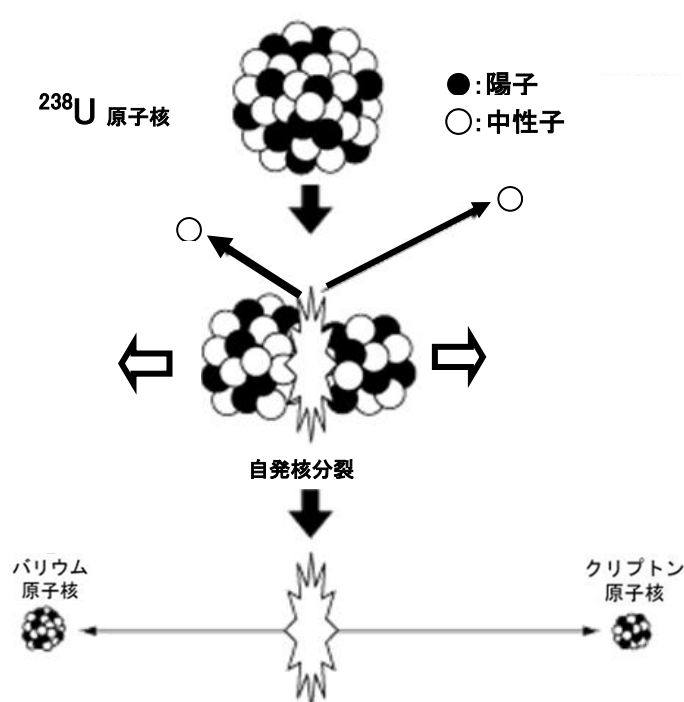
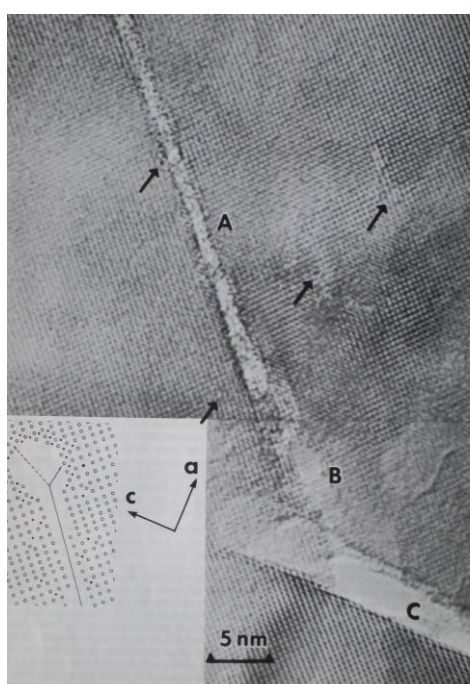


図4. 図の A,B,C はジルコンのフィッション・トラックの高分解能電子顕微鏡画像である。矢印は、点欠陥を示す。(Yada et al. 1997)) (倍率 2600 万倍)  
右の図は自発核分裂の模式図。

Zeta value calculation data for external crystal surface of zircon

No	sample name	Count Zircon	Fossil Track $\rho_s (N_s)$	Induced Track $\rho_i (N_i)$	Standard glass $\rho_d (N_d)$	$P(\chi^2)$ (%)	U (ppm)	r	Zeta ( $\pm 1\sigma$ )
1	BMT(01)	35	3.24(912)	0.50(1422)	6.87(3504)	29.2	85	0.64	373.5 $\pm$ 15.2
2	FCT(05)	40	25.0(3993)	2.26(3618)	6.87(3504)	37.6	412	1.10	369.9 $\pm$ 10.4
3	FCT(06)	45	26.9(3625)	2.45(3300)	6.87(3504)	40.4	432	1.09	373.4 $\pm$ 10.9
4	TDR(02)	35	31.3(3943)	1.38(1743)	6.87(3504)	18.8	239	2.26	379.8 $\pm$ 12.5

Weight mean zeta = 374.2 $\pm$ 12.2

Independent age used are; FCT(Fish Canyon Tuff)=27.8 $\pm$ 0.7 Ma), BMT(Buluk Member Tuff)=16.2 $\pm$ 0.2 Ma, TDR(Tardree rhyolite)=58.7 $\pm$ 1.1 Ma (Hurford and Green, 1983; Hurford and Watkins, 1987)

表 1. ゼータ値算出の算出表。FCT-2 試料, BMT-1 試料, TDR-1 試料の 4 試料より求めた。

## F・T法実験過程

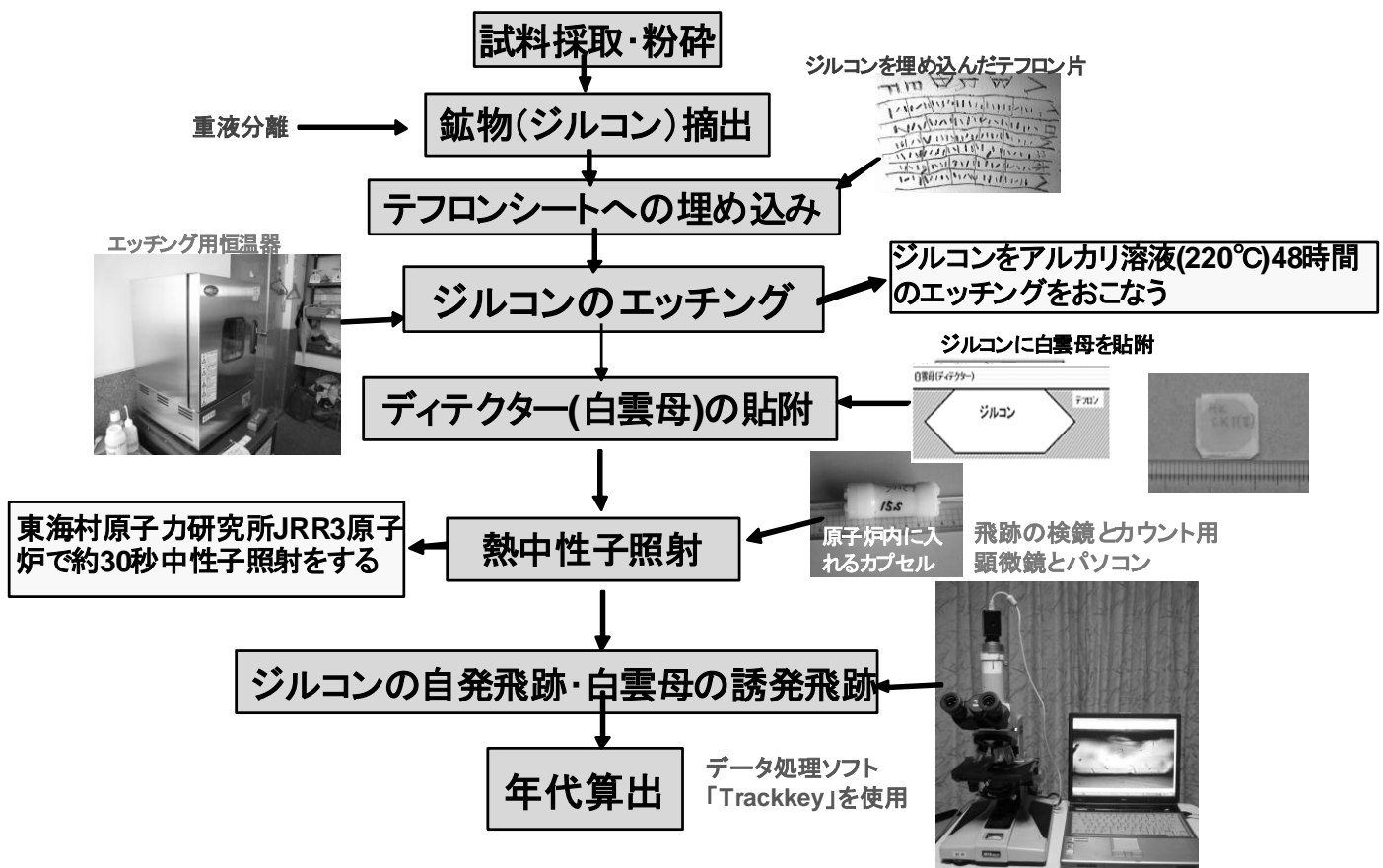


図5. F T年代の測定実験過程のフローチャート図。なお,ここでは熱中性子照射に白雲母を利用する ED-1 ゼータ法での実験過程を示している。

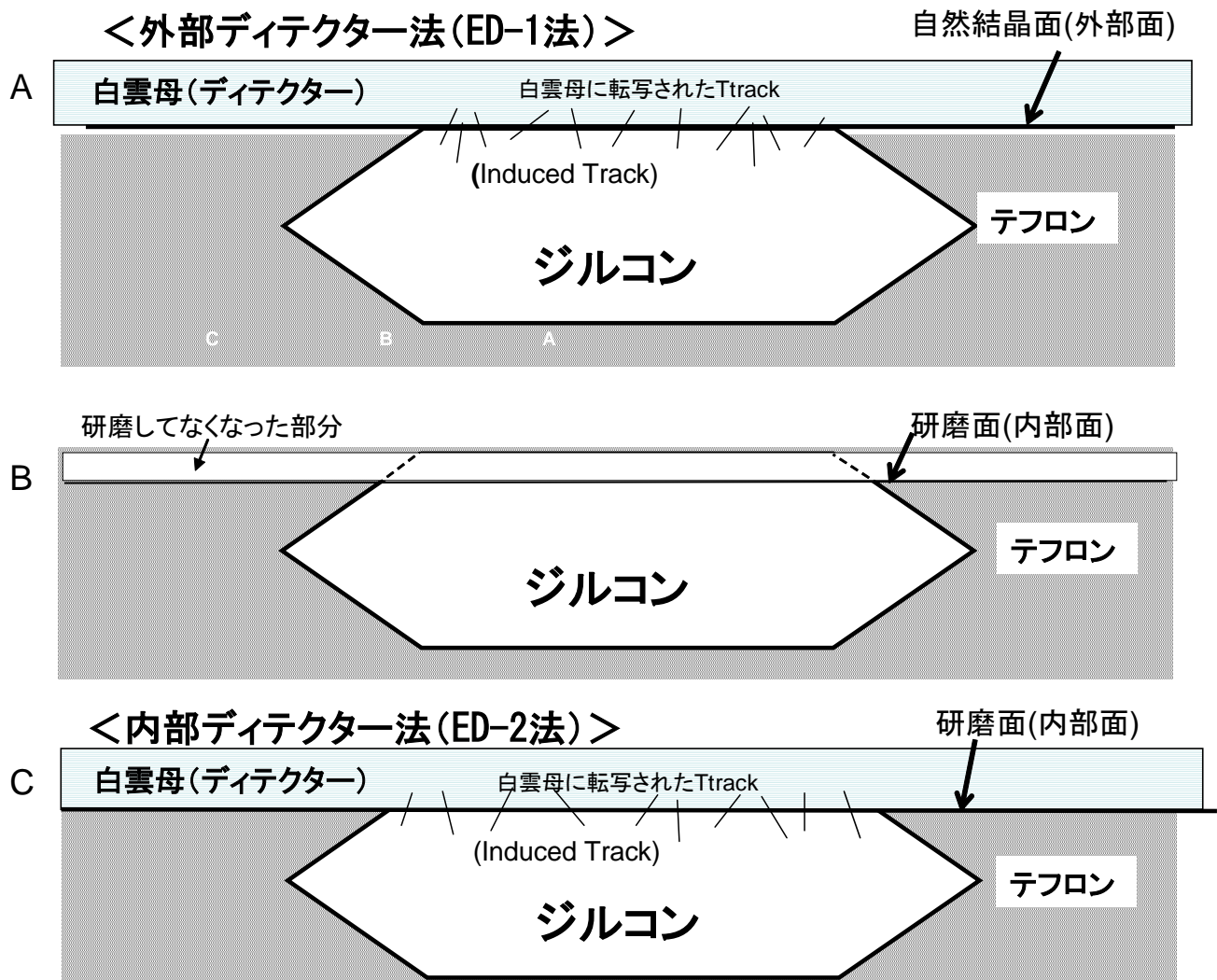


図6．外部ディテクター法による実験方法の模式図。Aはジルコンの自然結晶面に白云母を添付した図。Bはジルコンとテフロンを $1\mu\text{m}$ のダイヤモンドペーストで研磨した図。Cは研磨面に白云母を添付したときの模式図。

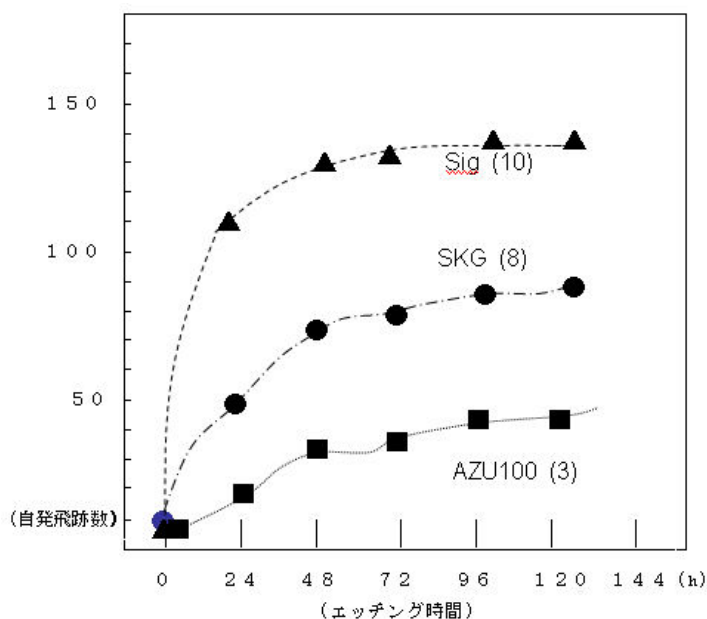


図7. エッチング時間と自発飛跡数の関係  
( )内の数字は処理したジルコン数。■は  
AZU 火山灰層,●は SKG 火山灰層,▲は SIG  
火山灰層をあらわしている。

Etching Time	a,b-axis	c-axis
	Average	Average
144 h	31.28 $\mu$	68.10 $\mu$
120	31.72	75.13
96	32.12	83.21
72	32.52	91.44
48	32.88	98.10
24	33.30	104.22
5 d- Etching	2.02 $\mu$	36.12 $\mu$
1 h- Etching	0.017 $\mu$	0.301 $\mu$

表2. ジルコンの結晶軸方向別の時間とエッチング速度を表している。

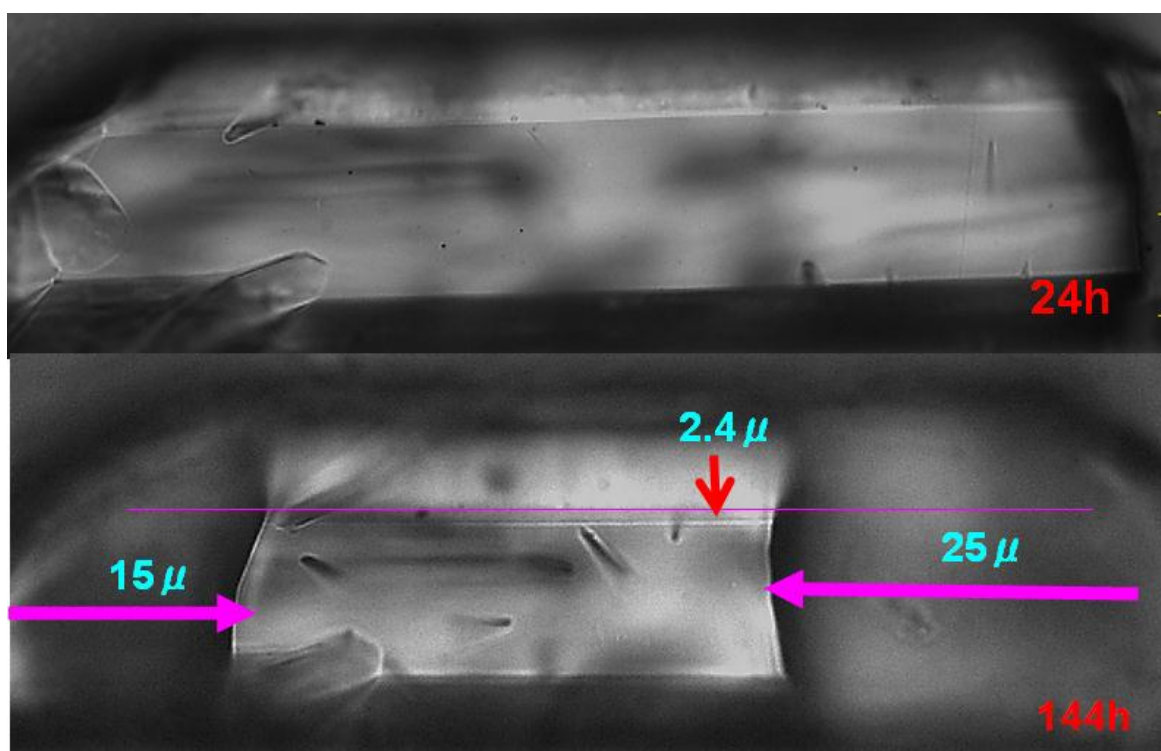


図8. ジルコン 120 時間のエッチング変化。上の写真は 24 時間後の変化。下の写真が 120 時間後の写真。C 軸方向がかなり溶けて無くなっているが A,B 方向は 2.4  $\mu$  m しか減っていない。このことは、ジルコンが c 軸方向の飛跡は発達しやすいことを示している。



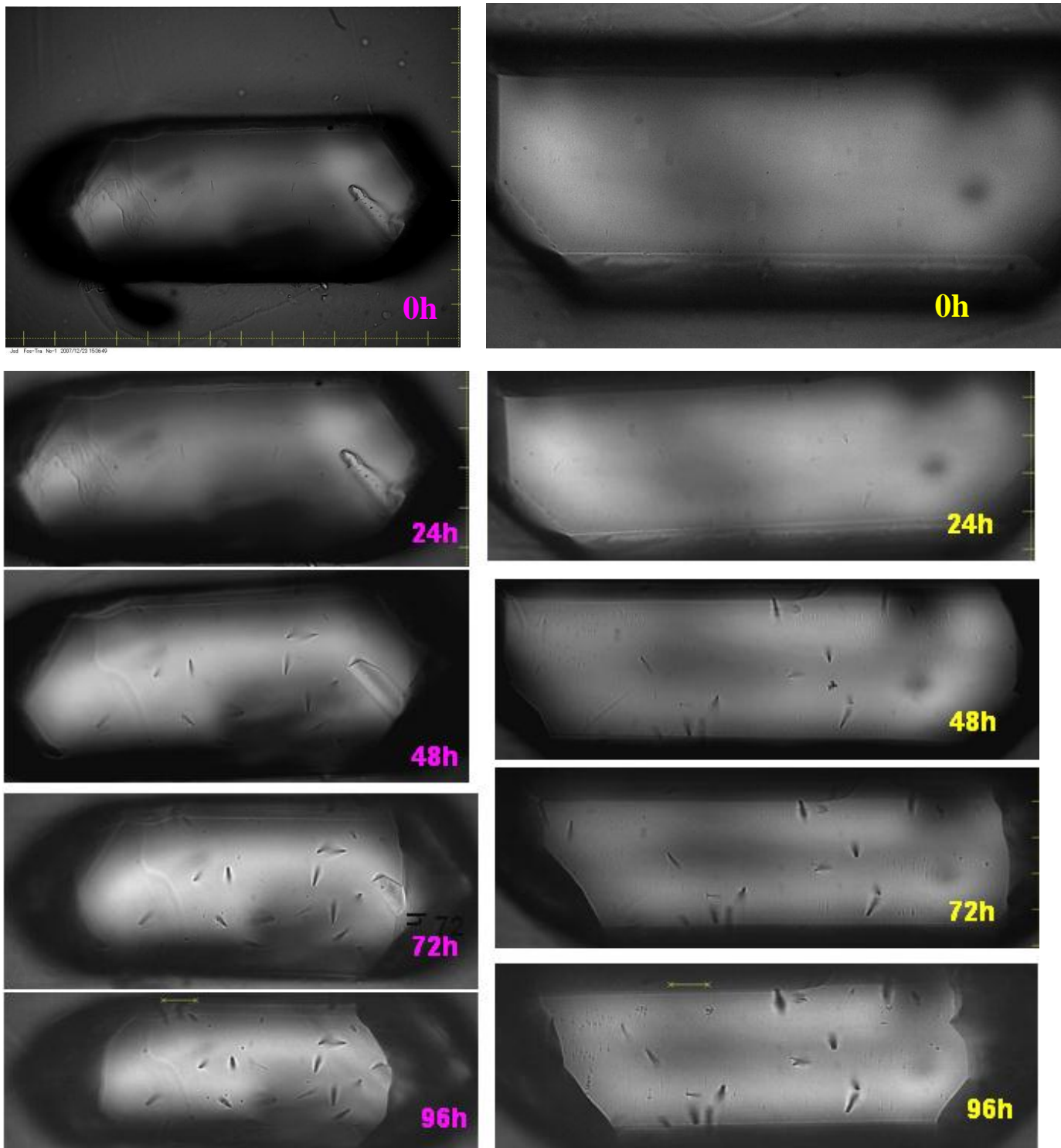


図9．4日間の連続エッチングによるジルコン表面の自発飛跡の変化・2試料のジルコンとも時間と共に自発飛跡が増えていくことがわかる。48時間以降は増減の変化がなくなる事より位が最適であることが分かる

- ・C軸方向のエッチングが大きいことが分かる

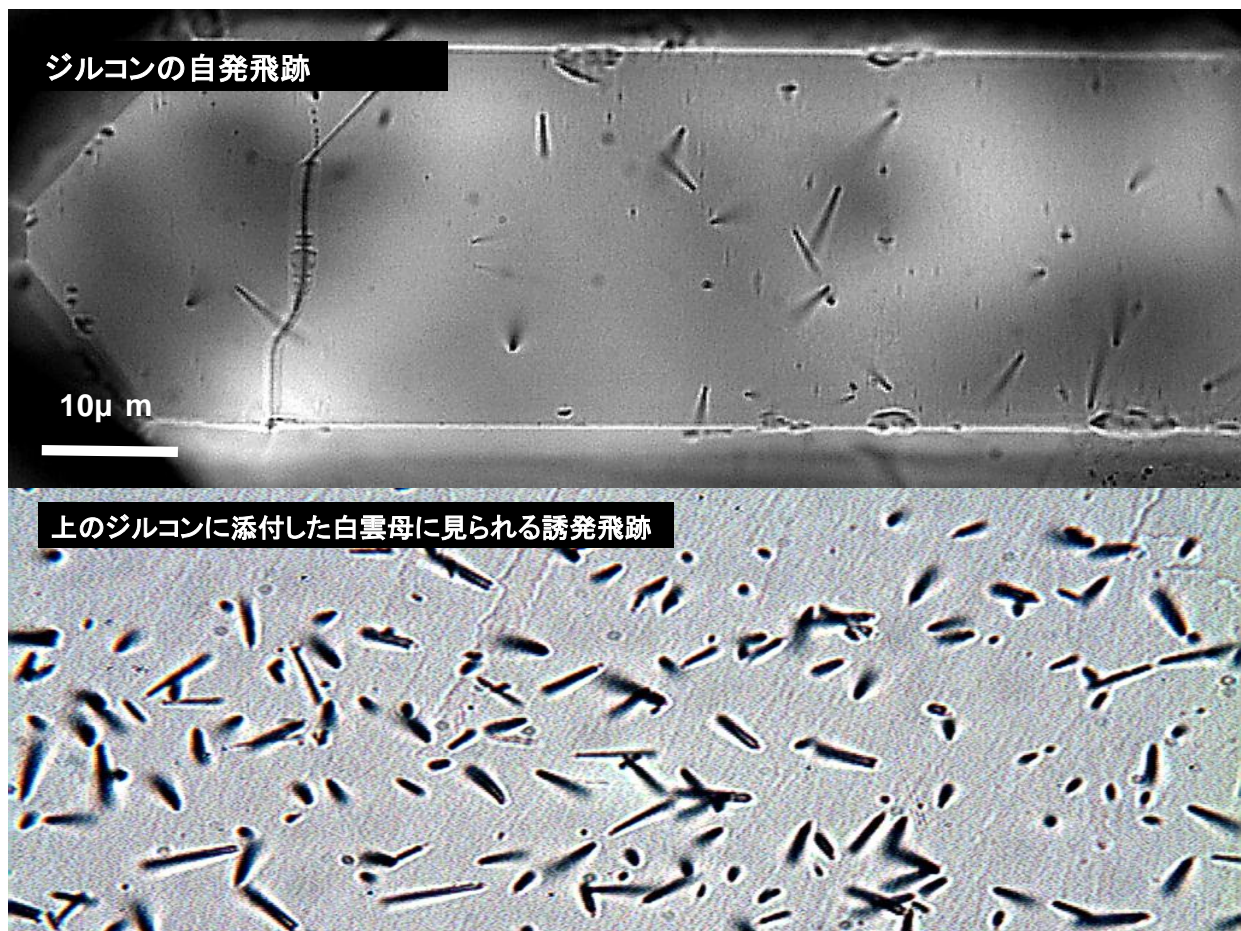
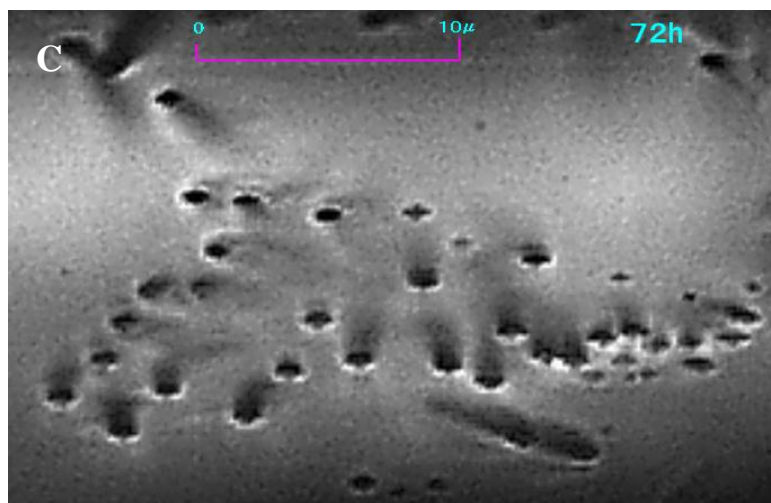
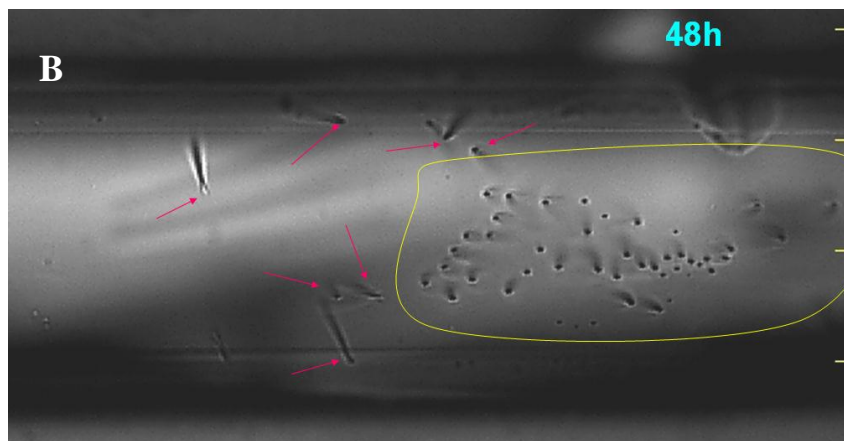
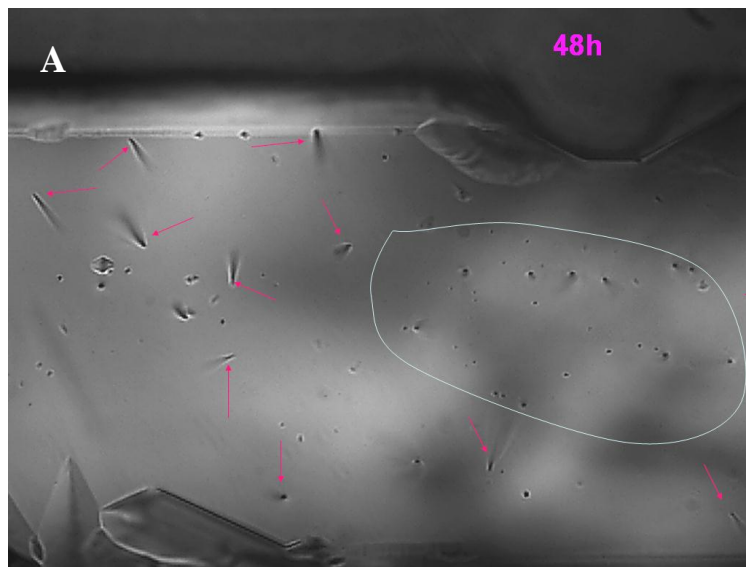


図 10. 上はジルコンの自発飛跡の画像。下は白雲母は上の試料に転写された誘発飛跡の画像。上の自発飛跡は  $^{238}\text{U}$  によるが、下の誘発飛跡は  $^{235}\text{U}$  によるものである。

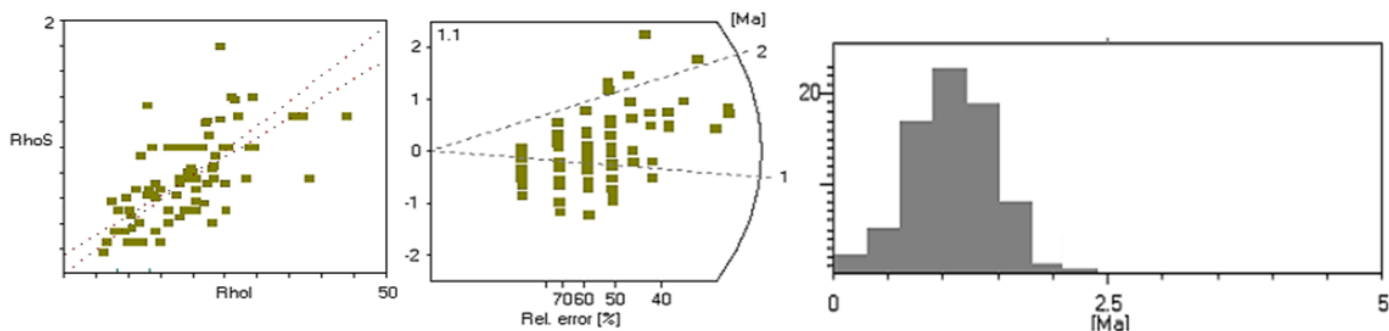


SK030 の双晶ジルコンとそれに添付し白雲母に見られる誘発飛跡。右の写真は両方を重ねた写真。



A,B,C はジルコンの長時間エッチングのときにあらわれるディソルケイション。赤い矢印は自発飛跡。右上の時間はエッチング時間。A,B の曲線で囲んだところにディソルケイションが集中している。C は B を拡大した写真。





十日町市田川SK030凝灰岩のF.T年代

sample-name	zircon	$\rho_s$ (Ns)	$\rho_i$ (Ni)	$\rho_d$ (Nd)	$PI(\chi^2)$	U content	F.T age(Ma)
SK030-tuff	85	0.75 (277)	1.86 (6871)	7.607 (3654)	37.9	316	$1.10 \pm 0.1$

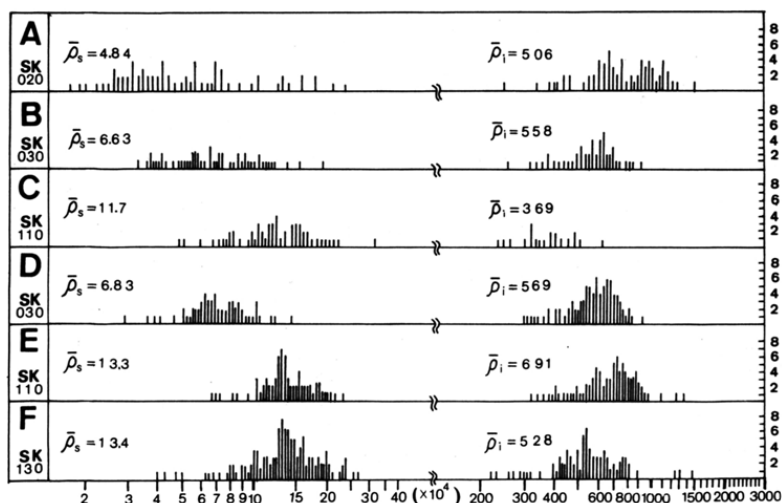
$\rho_s$ : 自発飛跡密度 ( $10^5/\text{cm}^2$ ), Ns: 自発飛跡総数,  $\rho_i$ : 誘発飛跡密度 ( $10^6/\text{cm}^2$ ), Ni: 誘発飛跡総数,  $\xi = 374.2$

$\rho_d$ : 962a誘発飛跡密度 ( $10^4/\text{cm}^2$ ), Nd: 962a誘発飛跡総数,  $PI(\chi^2)$ : カイ2乗検定, U含有量: ppm

$T = 1.15 \pm 0.1 \text{ Ma}$

図 11. FT 処理ソフト Trackkey による SK030 のデータ処理の一例。

層序	柱状図	試料番号	凝灰岩層名	FT 年代(MY)
上部	[柱状図]	no		
		1	SK・010 (サンドイッチタフ) SK・020	$0.7 \pm 0.07$
中部	[柱状図]	2	SK・030 (チンタフ) SK・040 SK・050 SK・060	$1.3 \pm 0.1$
		3	SK・070 (コマノタフ) SK・080 SK・090	$1.6 \pm 0.2$
		4	SK・100 (トラチンタフ)	$1.9 \pm 0.2$
		5	SK・110 (三色タフ)	$2.0 \pm 0.2$
		6	SK・120 (灰タフ)	$2.5 \pm 0.3$
最下部	[柱状図]	7	SK・130 (13-タフ)	$2.9 \pm 0.3$



ポピュレーション法による年代測定—ジルコンを二つのグループに分け約 50 粒子を自発核分裂飛跡に残り 50 粒子を熱中性子照射し誘発飛跡密度を求め片代を出す方法。

図 12. 魚沼層群火山灰層の F T 年代柱状図  
小国町芝ノ又川からの試料を処理して得られ  
データ(村松,1983)

## 魚沼層群火山灰層の)Fission-Track年代

番号	試料名	ジルコン	自発飛跡密度 $\rho_s$ (Ns)	誘発飛跡密度 $\rho_i$ (Ni)	標準添加962a) $\rho_d$ (Nd)	PI (%)	ウラン含有量 (ppm)	FT年代 誤差:1 $\sigma$ (Ma)
1	Irajima	20	0.87(51)	4.53(2662)	9.40(2890)	10	470	0.71 $\pm$ 0.1
2	SK020(Pk-tf)	80	0.27(71)	12.20(3069)	9.40(2890)	27	235	0.80 $\pm$ 0.1
3	Og(Oginojou-tf)	60	0.27(52)	9.59(1848)	7.21(3606)	28	210	0.90 $\pm$ 0.1
4	SK030(JA-tf)	85	0.75(277)	18.61(6871)	7.67(3654)	39	316	1.15 $\pm$ 0.2
5	SK100(Tra-tf)	53	0.94(297)	16.20(5112)	6.87(3502)	29	307	1.55 $\pm$ 0.2
6	SK110(Sansiki-tf)	55	1.52(345)	2.391(5462)	6.87(3502)	31	500	1.63 $\pm$ 0.2
7	TsA(Tuiki-tf)	56	1.59(387)	23.71(5759)	6.87(3650)	38	432	1.72 $\pm$ 0.2
8	SK130(No13-tf)	45	1.65(111)	17.10(1145)	7.35(3860)	43	178	2.20 $\pm$ 0.2

$\rho_s$ : 自発飛跡密度 ( $10^5/\text{cm}^2$ ),  $N_s$ : 自発飛跡総数,  $\rho_i$ : 誘発飛跡密度 ( $10^6/\text{cm}^2$ ),  $N_i$ : 誘発飛跡総数  $\rho_d$ : 962a誘発飛跡密度 ( $10^4/\text{cm}^2$ ),  $N_d$ : 962a誘発飛跡総数,  $P(\chi^2)$ : カイ2乗検定 Zeta値:374.2(村松:2004)

## 魚沼層以降の若いロームのFission-Track年代

番号	試料名	ジルコン数	自発飛跡密度 $\rho_s$ (Ns)	誘発飛跡密度 $\rho_i$ (Ni)	標準添加62a) $\rho_d$ (Nd)	PI (%)	ウラン量 (ppm)	FT年代 誤差:1 $\sigma$ (Ma)
1	庵地(沼沢)ローム	68	0.10(34)	16.4(5552)	6.87(3504)	23	310	0.15 $\pm$ 0.03
2	谷上(T3)ローム	75	0.15(49)	21.6(7806)	9.40(2890)	31	410	0.35 $\pm$ 0.04
3	下田・大平タフ	73	2.07(55)	12.9(4788)	7.50(3520)	28	265	0.60 $\pm$ 0.08

表3. ゼータ法による中越地域に分布する魚沼層群中火山灰層及び魚沼層以降の若いローム層の FT 年代の一覧表と柱状図。柱状図は得られたデータと試料名を示した。

age	TF-Name	FT-age (ma)
50	庵地(沼沢)	0.15
	谷上(T3)	0.35
	下田・大平	0.60
100	Irajima	0.71
	SK020	0.80
	Og	0.90
150	SK030	1.15
	SK100	1.55
	SK110	1.63
200	TsA	1.72
	SK130	2.20

角田山麓峯岡丘陵周辺の火山灰層のFT年代

	試料名	FT年代 (Ma)
1	Mqs(仁箇堤)	1.78±0.1
2	Jyw(城山公園崖)	1.80±0.1
3	Adc(安達功平.)	1.71±0.1

角田山麓峯岡丘陵周辺の火山灰層については、黒川(2008)によって図のような対比表が報告されているが、FT年代測定によれば、1.7Ma前後の魚沼層期の年代がでた。今までは3.5Maと予想されていた。

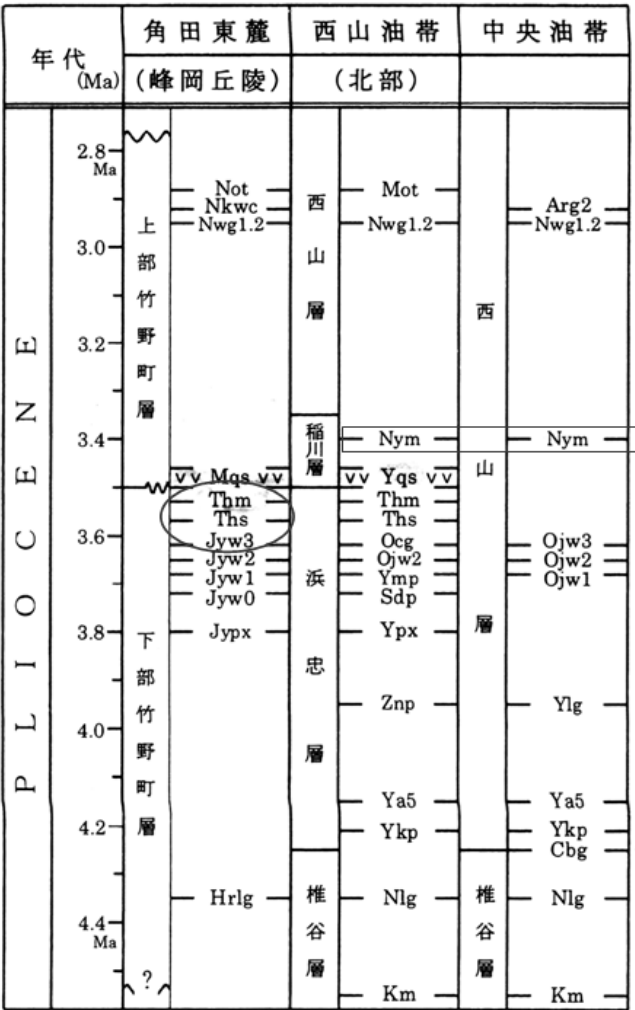


表5 角田山麓—峯岡丘陵の火山灰層 FT 年代一覧。  
処理した試料中のジルコンの色は無色透明のものが多かった。このことからこの地層は魚沼層期のものと思われる。右の図は角田山山麓峯岡丘陵と西山地域の鮮新統の火山灰層との対比表

番号	試料名	ジルコン結晶数	手法	自発飛跡密度 $\rho_s$ (Ns)	誘発飛跡密度 $\rho_i$ (Ni)	標準ガラス(962a) $\rho_d$ (Nd)	Pt (%)	ウラン含量 (ppm)	FT年代 (Ma)
1	Mqs(仁箇堤)	41	ED1	3.00(559)	2.24(4177)	7.11(2940)	18.4	397	1.78±0.1
2	Jyw(城山公園崖)	43	ED2	1.62(274)	2.38(4054)	7.11(2940)	30.9	404	1.80±0.1
3	Adc(安達功平.)	80	ED2	1.10(305)	1.64(4534)	6.87(3254)	31.5	312	1.71±0.1

$\rho_s$ : 自発飛跡密度 ( $10^6/cm^2$ ), Ns: 自発飛跡総数,  $\rho_i$ : 誘発飛跡密度 ( $10^6/cm^2$ )  
 $\rho_d$ : 962a誘発飛跡密度 ( $10^4/cm^2$ ), Nd: 962a誘発飛跡総数, P( $\chi^2$ ): カイ2乗検定




$\rho s$ : 自発飛跡密度 ( $10^5/\text{cm}^2$ )       $Ns$ : 自発飛跡総数       $\rho i$ : 誘発飛跡密度 ( $10^6/\text{cm}^2$ )       $Ni$ : 誘発飛跡総数  
 $\rho d$ : 962a 誘発飛跡密度 ( $10^4/\text{cm}^2$ )       $Nd$ : 962a 誘発飛跡総数       $P(\chi^2)$ : カイ2乗検定結果

時代		地層名	凝灰岩名 FT年代 (Ma)		
第四紀	更新世	白根層	庵地凝灰岩	0.15	
		後期 蒲ヶ沢層 (段丘堆積層)			
	更新世	中期 金山層 (矢代田層)	秋葉山凝灰岩	0.61	
		前期 茗荷谷層 (熊沼層上部)	榑谷川凝灰岩	1.22	
	紀世	中期	皆川層	HK20 凝灰岩	1.49
			(灰爪層)	FK10 凝灰岩	1.63
				菅沢凝灰岩	1.71
	新第三紀	新世	平層 (西山層)	TSA	1.71
			金津層 (椎谷層)	高々沢凝灰岩	3.00
				金津凝灰岩	4.98
中新世		土場層	大沢流紋岩	7.41	
		流紋岩質岩石	白玉滝Dacite	8.92	
	高井山層	護摩堂山Dacite	11.4		
第三紀	新世	火山岩類			
		護摩堂山層 火山岩類			

表 4. 新津丘陵における火山灰層及び火山岩累の F T 年代を示した一覽表。右の図は新津丘陵の地質序層と F T 年代。

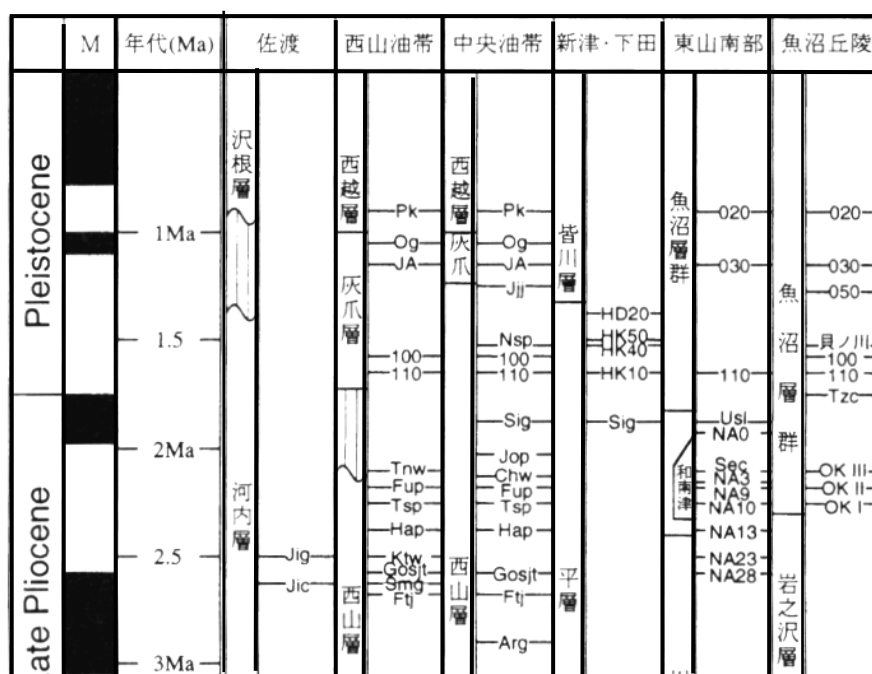


図 13. 中越地域－佐渡地域の火山灰層の対比図（「日本列島における鮮新世～更新世前期のテフラの広域対比と年代」黒川,1999）

加治～毛呂山丘陵－火山灰層のF T年代実験結果一覧表

N o	試料名	Zircon 数	自発核分裂飛跡 $\rho_s$ (Ns)	誘発核分裂飛跡 $\rho_i$ (Ni)	標準ガラス $\rho_d$ (Nd)	r	P( $\chi^2$ ) (%)	U含有量 (ppm)	F.T年代 (Ma) ( $\pm 1\sigma$ )
1	E1	55	1.25(365)	2.65(7717)	9.27(4164)	0.83	21.7	361	1.64 $\pm$ 0.10
2	MMC	64	0.77(186)	1.05(2546)	6.87(3504)	0.83	24.3	192	1.88 $\pm$ 0.15
3	Syari02	56	1.32(344)	1.78(4643)	6.87(3504)	0.77	24.6	320	1.90 $\pm$ 0.12
4	Syari01	57	1.59(362)	2.14(4855)	6.87(3504)	0.86	19.3	378	1.92 $\pm$ 0.12
5	Jousedai(Sig)	51	2.60(478)	2.57(4722)	6.87(3504)	0.66	15.9	460	2.60 $\pm$ 0.15
6	Syukuyagawa	50	2.36(531)	2.23(5015)	6.87(3504)	0.84	21.2	400	2.72 $\pm$ 0.15

$\rho_s$ : 自発飛跡密度 ( $10^5/\text{cm}^2$ )    Ns: 自発飛跡総数     $\rho_i$ : 誘発飛跡密度 ( $10^6/\text{cm}^2$ )    Ni: 誘発飛跡総数  
 $\rho_d$ : 962a 誘発飛跡密度 ( $10^4/\text{cm}^2$ )    Nd: 962a 誘発飛跡総数, P( $\chi^2$ ): カイ2乗検定結果    r:  $\rho_s$ - $\rho_i$  相関係数

age	Magneto- stratigraphy	Boso Peninsula	Tama Hill	Niigata Area	Kaji-Moroyama Hill	This Study
					tf name	F.T age
Ma	Brunhes					(Ma)
-1	Jaramillo	O7	Og			
		Kd16	HM			
		Kd25	HU2	SK110		
		Kd38	Tzc		Bussi	E1 1.64
-2	Olduvai	Kd39	KO			MMC 1.88
						Syari 1.91
						(2.50)
-3	Gauss			Ftj	Hannou	Joseidai 2.60
				Arg-2		Syukuya 2.72
-4	Gilbert	An130	Nym			
		An85	Znp			

年代 (Ma)	狭山丘陵	試料名	測定結果 (Ma)
中 期	芋窪層		
1 新 世	狭山層	E1	1.64
		MMC	1.88
		Syari	1.91
2 鮮 新 世		Joseidai	2.60
		Syukuy	2.72
3 後 新 世			
4 前 期			

表6. 埼玉県加治～毛呂山丘陵に分布している火山灰層のF T年代実験結果一覧表。及び下図、右は得られた年代値をこの地域の層序図に示したもの。左は新潟、房総地域との対比表



( 学術論文 )

1. 村松敏雄(1983):魚沼層群に含まれる凝灰岩のフィッシュ・トラック年代, 地団研専報 No26, 63-66
2. 高野 修・村松敏雄・小林巖雄(1989):新潟県東頸城地域北部の中新・鮮新統の層序と年代, 石油技術協会誌, vol. 54, 269-280
3. 野村正弘・村松敏雄・小林巖雄(1993):新潟県魚沼丘陵北部の第三系及び更新統の層序と年代, 地球科学, vol. 47, 31-51
4. 村松敏雄(1993):高出力原子炉(東海原研 JRR-4)でのF・T年代測定, フィッシュ・トラック ニュースレター, 6, 29-32
5. 村松敏雄(1995):新潟県魚沼層群中の0g 火山灰(OGPK)のF T年代, フィッシュ・トラック ニュースレター, 8, 58-60
6. 村松敏雄(2007):新津丘陵に分布する凝灰岩のフィッシュ・トラック年代, フィッシュ・トラック ニュースレター20, 44-47
7. 村松敏雄(2008):埼玉県加治-毛呂山に見られる凝灰岩のFission Track 年代 フィッシュ・トラックニュースレター, 23-26

( 学術報告 )

8. 村松敏雄(1976):魚沼層群中凝灰岩のフィッシュ・トラック法による絶対年代測定, 松崎康一教授追悼論文集, 41-45
9. 村松敏雄(1986):フィッシュ・トラック法による絶対年代測定法, 新潟県立教育センター研究報告, vol. 102, 47-50
10. 村松敏雄(1987):村上市に分布する凝灰岩・流紋岩の絶対年代の測定, 新潟県立教育センター研究報告, vol. 108, 31-34
11. 村松敏雄(1988):ジルコンを利用した凝灰岩の対比, 新潟県立教育センター研究報告, vol. 112, 49-53
12. 村松敏雄(1989):ジルコンの形状による火成岩の生成温度, 新潟県立教育センター研究報告, vol. 121, 47-50
13. 村松敏雄(1990):新潟市新津丘陵に分布する凝灰岩及び火山岩の絶対年代, 新潟県立教育センター研究報告, vol. 128, 57-63
14. 村松敏雄(1988):米山周辺に分布する凝灰岩のフィッシュ・トラック年代, 新潟県地学教育研究会誌, vol. 22, 70-75
15. 村松敏雄(1989):上越地域の新第三系～第四系のフィッシュ・トラック年代, 新潟県地学教育研究会誌, vol. 52, 41-45
16. 村松敏雄・柳沢浩一(1990):東頸城郡安塚町菱ヶ岳北西部の第三系, 新潟県地学教育研究会誌 vol. 24, 41-50
17. 村松敏雄・林 正栄(1991):六日町西方地域の第三系～第四系のフィッシュ・トラック年代, 新潟県地学教育研究会誌 vol. 25, 99-104
18. 村松敏雄・佐藤貞治(1998):朴坂山流紋岩及び凝灰岩のフィッシュ・トラック年代, 新潟県地学教育研究会誌 vol. 31, 92-96

<新潟大学内地留学関係>

19. 村松敏雄(1985):新潟県下に分布する新第三系のフィッシュ・トラック年代研究業績報告書 1-20

図 14. 1970 年度以来の研究成果を学術論文及び学術報告として発表した一覧表。

( ' 80年代までに測定した県内の凝灰岩、火山岩、花崗岩のF.T年代)

( ' 90 村松 )

Ma	地域	魚沼・小国	長岡東山	寺泊・出雲崎	津南	村上・岩船	柏崎・	松之山	上越	十日町・小出
時代		西今津	津川						山形(寒河江)	
2	洪積世	SK020 ビン 0.7 SK030 砂 1.3 SK100 トラチ 1.9 SK110 ガンショク 2.0 SK130 13℃ 2.9	魚沼 乙吉SK030 1.3 柿川砂 1.8 浦瀬砂 2.5 釜沢安山岩 2.7 濁沢 柿川砂 2.8 柿川砂 3.3 蓮平 柿川砂 4.2 柿川砂 5.2	灰爪 Zr 砂 1.3 Iz 砂 1.9 西山 Hgm 砂 2.6 Ngm 砂 3.2 浜忠 Sd 砂 5.0 Zn 砂 5.4 Km 砂 6.4 Nd 砂 7.4 寺 Nz 砂 8.4 泊 Ra 砂 11.8	谷上D-A 0.35 馬甲Dacite 0.9 中条川 2.1 越見川 2.1 天水山 2.7	駒の間 奇島 砂 1.1 駒ノ間 砂 2.3 阿相島 砂 2.9 阿相島 砂 3.2 竹ヶ鼻 竹ヶ鼻 砂 4.0 阿相島 砂 4.1 聖ヶ鼻 砂 4.5 聖ヶ鼻 砂 4.6 大清水 蛇岩 砂 4.5 原の町 砂 4.6	奈良立 深坂砂 2.7 牛ヶ鼻 砂 2.9 岩室上 砂 3.2 東川 板山 砂 4.1 上岡 砂 4.3 小貫 砂 4.8 須川 木和田原 砂 6.2 松之山 砂 8.4	居多 根屋敷 砂 1.4 居他 T1 砂 1.6 谷浜 大菅 砂 3.2 仙納 砂 3.5 仙納 砂 3.6 綱子 砂 4.8 能生谷 大洞 砂 6.3 金谷 砂 7.1 本郷 十八才 砂 10.2 間沢 八木沢 砂 12.3 水沢 石倉 砂 17.4 大井沢 根子沢 砂 21.0 北小国 北小国 砂 23.6	魚沼 辻ノ又 砂 2.3 中越 小和北 砂 2.5 上海老池 砂 73.1 頸城 ---	
4	鮮新世	八王子	濁沢 蓮平 椎谷 寺	浜忠						
6										
8	後期	塩坪 砂 9.3	鍋山Dacite 9.1	寺						
10	中期					間島 砂 10.0				
12										
14	新期	漆窪 戸中 砂 13.8 中野 砂 14.4 甲石 砂 15.8	天満 花立 砂 13.5 御神楽Lipal 4.5 福取山 砂 15.9 本尊岩Lipal 6.0 鹿瀬 鹿瀬 砂 17.8 三川 三川 砂 19.4			七谷 下の沢 砂 12.9 朝日層Lipal 4.1 鳴海04 砂 16.0 鳴海01 砂 18.1 北小国 葡萄砂 21.4 猿田川 砂 22.5 村上城 臥牛山 砂 23.3				
16										
18	前期									
20										
22	世期									
80	白亜紀		草水Granit 82.0							

図 15. 1980 年度までにジルコンを利用して測定した県内・外の火山灰層・火山岩・花崗岩などの F T 年代をまとめた対比表



## Ⅱ 部：新潟県魚沼層群 SK030 火山灰層中のジルコン, モナズ石 ゼノタイム, コランダム, の鉱物学的研究：特にジルコンの 双晶について

I はじめに

II 試料と実験方法

III 結果

IV 考察

V まとめ

VI 引用文献

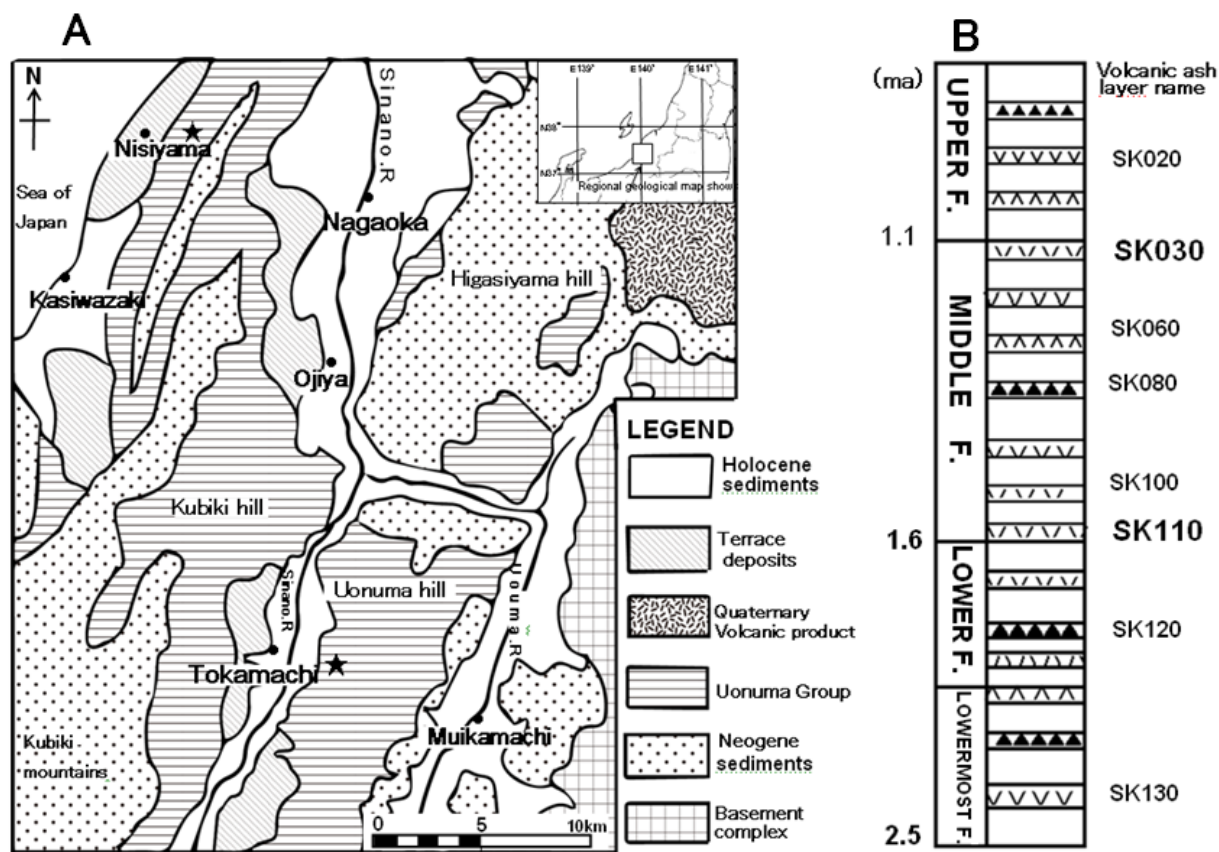
## I. はじめに

ジルコンは花崗岩などの酸性火成岩や変成岩などに副成分鉱物として微量ながら広く産出する (Poldervaart, 1955)。ジルコンは微量成分としてウランを含むことから火成岩の U-Pb 法による放射年代測定に適した鉱物でもある (Jackson *et al.*, 2004)。さらに、そのジルコンに含まれる微量元素組成は、火成岩を形成するマグマの性質や起源情報を教えてくれる重要な鉱物である (Sawka, 1988)。また、ジルコンは変成岩にも含まれることがあり、形状や内部構造の違いから変成岩の形成環境を示すとされている (林・赤井, 2011)。ジルコンは主に酸性のマグマの中から自形の結晶として晶出する。ジルコンの結晶形態は Dana (1892) や Poldervaart (1955) をはじめ多くの研究者により研究され、火成岩の対比や分類に応用されてきた。しかし、ジルコンの結晶は多様な形態をしており結晶面や形態の表し方で混乱していたが、それを定性的に総合してまとめたのは Pupin and Turco (1972) と Pupin (1980) である。また、Pupin (1980) はジルコンの結晶形態が形成時のマグマの化学成分や温度の違いにより多様性を示すとした。また、林 (1990)、能美ら (1997) はジルコンの結晶面の長さや巾を指数化し定量的に記載することによりジルコンの結晶形態の違いを示した。これらの研究により、ジルコンの形態が岩石学的な特徴を示す重要なインディケーターと考えられ、火成岩の詳細な分類や比較などの研究に応用されるようになってきている (Ohhira, 1994)。また、ジルコンは風化に強く、変質することなく堆積岩に含まれることもあり、さらにマグマから直接供給された火山灰が堆積して形成された凝灰岩に含まれていることから、結晶形態の研究によりそれを含む地層の鍵層として堆積学的にも重要な鉱物である (高橋・林, 1991)。さらに、ジルコンの結晶形態の研究が進むなかで稀な存在と考えられているジルコンの双晶もいくつか報告されている (Bragg and Claringbull, 1965. Jocelyn and Pidgen, 1974)。しかし、ジルコンの双晶はなお稀で、個体数が非常に少なく詳しい研究は多くない。その

後, Ainat *et al.* (1988)による双晶形態の報告もあった。しかし, 双晶において重要な意味を持つ双晶面について, 古くは Dana(1892), Ford(1932), Idding(1911), Jocelyn and Pidgeon (1974)による(101)面とする考え, また Winchell(1951), Deer *et al.*, (1961)による(111)面との記載, Berry and Mason(1959)の教科書での(112)面などが提唱され, 記載されているがなお定説の確定には至っていない状況である。筆者らの一人(T.M)は新潟県第四紀堆積物である魚沼層中のSK030 火山灰層中から多くの双晶ジルコンを見出し偏光光学顕微鏡による観察を通し, 双晶の形態による分類を試み予報的に報告した(村松, 2008)。本論文ではこのジルコン双晶をさらに走査型電子顕微鏡(SEM), カソードルミネッセンス(CL), 高分解能透過型電子顕微鏡(HRTEM)を用いた観察から, 双晶の内部構造, 形態および双晶面などについて従来にはない新しい知見が得られたのでここに報告する。

## II. 試料と実験方法

新潟県には新第三紀から第四紀にかけて海成堆積物が, 沈降する堆積盆地に厚く堆積し, その中で更新世前期から後期にかけて形成された地層を魚沼層群と呼び主に県中央部の中越地域に分布している(Fig. 1)。魚沼層群は層厚約 3000 mに及ぶ泥岩, 砂岩を主体とした海成層よりなり, 最下部, 下部, 中部, 上部累層に区分されている(Fig. 1)。魚沼層には約 20 枚の火山灰層が含まれており, その中で上から 5 番目の火山灰層で, 中部の最上部に位置し, 全体の層厚が最高 20 m 近くある厚い火山灰層が SK030 である。SK030 は下部より白ザラ部(層厚約 2 m), 黒ズナ部, 雑色パミスよりなり, そのうち白ザラ部のみが連続性があり, 特徴的なガラス質パミス火山灰層で上越火山灰層と呼ばれている(魚沼丘陵団体研究グループ, 1983)。この火山灰層は陸上の火山噴出物が水域に流れ込んで形成された「アッシュフロー・タービダイト」と考えられている(Kurokawa and Hirata, 1986)。本論文で SK030 はすべて



**Fig. 1.** Sampling sites.

A: Geological map of central Niigata area indicating distribution of the Uonuma formation.

Sampling sites are shown as stars.

B: Volcanic ash layer horizons in columnar section of the Uonuma formation.

白ザラ部をあらわしている。SK030 は県内に広く分布し魚沼層の SK100 や SK110 などと同じように広域火山灰層のひとつである。SK030 の形成年代については、フィッシュ・トラック法(村松 1983), ナンノプランクトン(高山ら, 1995)などにより 1.1~1.3 Ma が報告され更新世前期のものとされている。実験に用いた試料は魚沼層が最も厚く堆積している十日町市田川と中央油帯に位置する柏崎市西山町灰爪に露出している SK030 から採取した (Fig. 1 中の★印)。試料の処理方法は、篩で水洗し粒子の大きい鉱物とパミスを取り除き、重液分離法で軽鉱物などを取り除き、得られた重鉱物

を実体顕微鏡下で手選してジルコンをできるだけ多く集めた。ジルコンは 50～200  $\mu\text{m}$  の大きさがあり，無色透明な長，短柱状と扁平状の自形結晶であった。結晶形が明瞭なジルコンを無作為に 200 粒子選び，スライドガラスに並べ，グリセリンで固定した。このジルコンを生物顕微鏡及び偏光顕微鏡で個々に検鏡した。次に，これらの試料に炭素蒸着を行い，走査電子顕微鏡 (SEM-JEOL5600) で個々の粒子の形状を細部にわたり観察した。さらに同じ試料 (スライドガラス) に 10 mm 四方のテフロン片を乗せ，約 300  $^{\circ}\text{C}$  に加熱されたホットプレート上でジルコンを封じ込めた。そのテフロン片をダイヤモンドペースト (1  $\mu\text{m}$  粒子) で約 10～20  $\mu\text{m}$  まで研磨しジルコンの内部面を露出させた。その後テフロン片を再度炭素蒸着し，SEM に取り付けられたカソード・ルミネセンス (CL) 装置 (OXFORD LINK ISIS 310) で CL 画像を観察しその成長パターンを検討した。その他，研磨された鉱物を個々に走査型電子顕微鏡／エネルギー分散型 X 線分析装置 (SEM-EDS) で含有元素を調べジルコン以外の鉱物の識別を行った。また，ジルコンの構成元素を調べるため波長分散型電子線微小部分分析装置 (WDS) (SIMAZU-8750) で分析を行い，さらに希土類元素など微量元素の含有量をレーザーアブレーション ICP 質量分析装置 (LA-ICP-MS) (Agilent 7500a) による分析を行った。このときのスタンダード試料として SRM612 を使用した。また，双晶ジルコンの結晶構造解析のために高分解能透過型電子顕微鏡 (JEM2010) による解析をおこなった。なお，電子顕微鏡用試料は双晶面が垂直で明瞭に見えるジルコン結晶を薄片より切り取り，単孔メッシュで挟み，イオン研磨により薄膜化し，加圧電圧 200kV で観察した。

### III. 結果

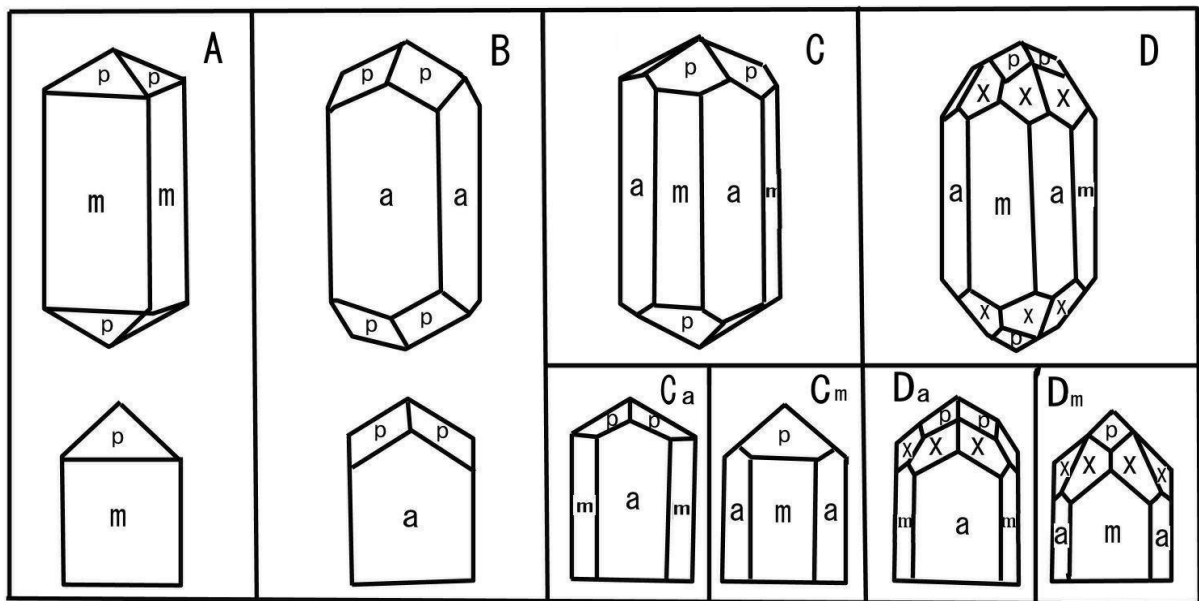
#### 1. SK030 の構成鉱物



SK030はほとんどが粗粒から中粒の白色ガラス質パミスからなっている。細粒部の構成物は斜長石や石英など軽鉱物からなり, その中に堇青石が僅かに含まれること及びカミングトン閃石についても産出が報告された(黒川, 1990)。重鉱物の含有量は少なく全体の1~2%しか含まれていないが, 粗粒~中粒部ではさらに少なく, 1%以下である。重鉱物の種類では, 粗粒部と細粒部で違いが見られ, 粗粒部では黒雲母, 角閃石, 斜方輝石, 磁鉄鉱などからなるが, 細粒部では黒雲母, カミングトン閃石, 磁鉄鉱などからなっている。また, 極細粒部の重鉱物の中にジルコンやモナザイト, ゼノタイム及びコランダムなどが微量含まれていることを今回見出した。

## 2. ジルコンの結晶形態

ジルコンの結晶は通常多くの結晶面を持つ柱状形態が一般的である。ジルコンは正方晶系で、格子定数は、 $a=b=6.604\text{ \AA}$ ,  $c=5.979\text{ \AA}$  である。その典型的な結晶形態では



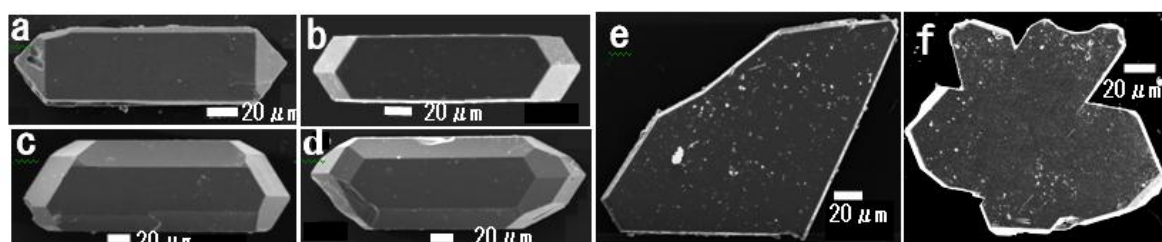
**Fig. 2.** Morphological varieties of zircon crystals. The figures are modified from Pupin (1980) and main four types are shown. Ca and Cm are subtypes of C. Da and Dm are subtypes of D.

柱面であるm面{110}, a面{100}と, 錐面であるp面{101}, x面{211}を持つ長柱状の結晶である (Fig. 2-D)。ジルコンの形状の分類はPupin(1980)により詳しく示されている。Pupin(1980)はジルコンの形成時のマグマ温度や化学成分の違いから, ジルコン結晶の柱面及び錐面の変化として8段階に分けその組み合わせから64通りに分類した。

Tuff name	A Type	B Type	C Type		D Type	
			Ca	Cm	Da	Dm
SK030	0	90	4	0	6	0
SK110	4	2	2	2	45	43

**Table 1.** Frequency distribution of occurrence of morphological types of zircon. Summation of each type is totally 100.

現在はこの分類方法が広く使われている。Pupin の結晶形態分類を参考にすると魚沼層の火山灰層で多く観察されるジルコンの形状はFigure 2に示すように4グループに分類できる。無作為に取り出した100粒子のジルコンの形状頻度を調べた結果をTable 1に示してある。それによるとSK030のジルコンはa面が発達しm面が全く見られないBタイプがほとんどであった。比較検討のためSK030の下位にある火山灰層SK110も同じように調べた結果, Dタイプが多いことがわかった。また, 表に示されていないが魚沼層に含まれる火山灰層中のジルコンの形状の多くはA, C, Dタイプである。SK030のジルコンにはこのような柱状結晶の他に扁平状の双晶ジルコンが見られるこ



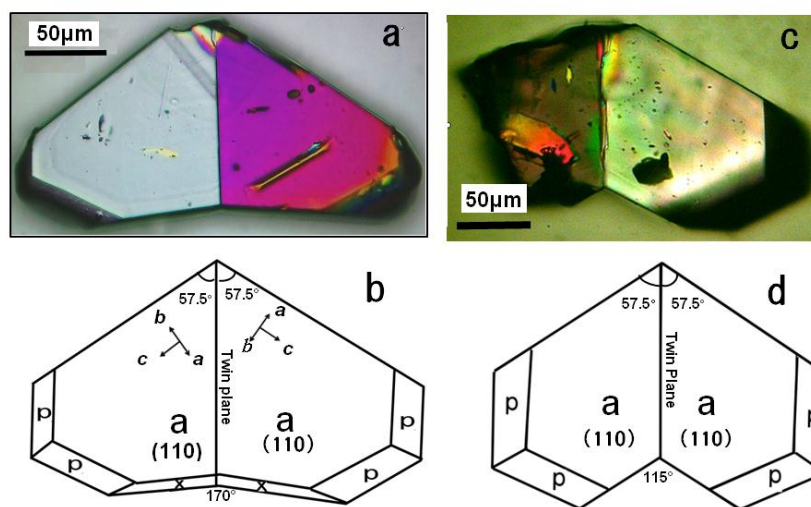
**Fig. 3.** Scanning electron microscopic images of zircon crystals.

a:A-type zircon, b:B-type zircon. c:C-type zircon. d:D-type zircon. e~f:flat form zircon.

とがわかった (Fig. 3-e, f)。扁平な形状を示すジルコン双晶は上で述べたBタイプ結晶のなかでa面(110)が大きく発達し扁平状になっていると見ることができる。次に、ジルコンの結晶500粒子を無作為に摘出して柱状結晶、扁平な双晶結晶の割合や形態の観察を行った。その結果、長柱状結晶、扁平な双晶結晶の割合はそれぞれ41%、59%となり、ジルコンの半分近くが双晶であることがわかった。また、双晶ジルコンについて、100粒子をえらんで厚さを求めたが、ほとんどの粒子は20~30  $\mu\text{m}$ であり、扁平の度合いを表す比は(厚さ/短径及び厚さ/長径) 0.15~0.25であった。

### 3. ジルコン双晶の形態上のタイプ分け

観察されたジルコンの双晶については結晶形態的に大きく二つに分類される。一つは、扁平状で同じサイズの二つのジルコンが扇状に双晶面を結合面としている接触双



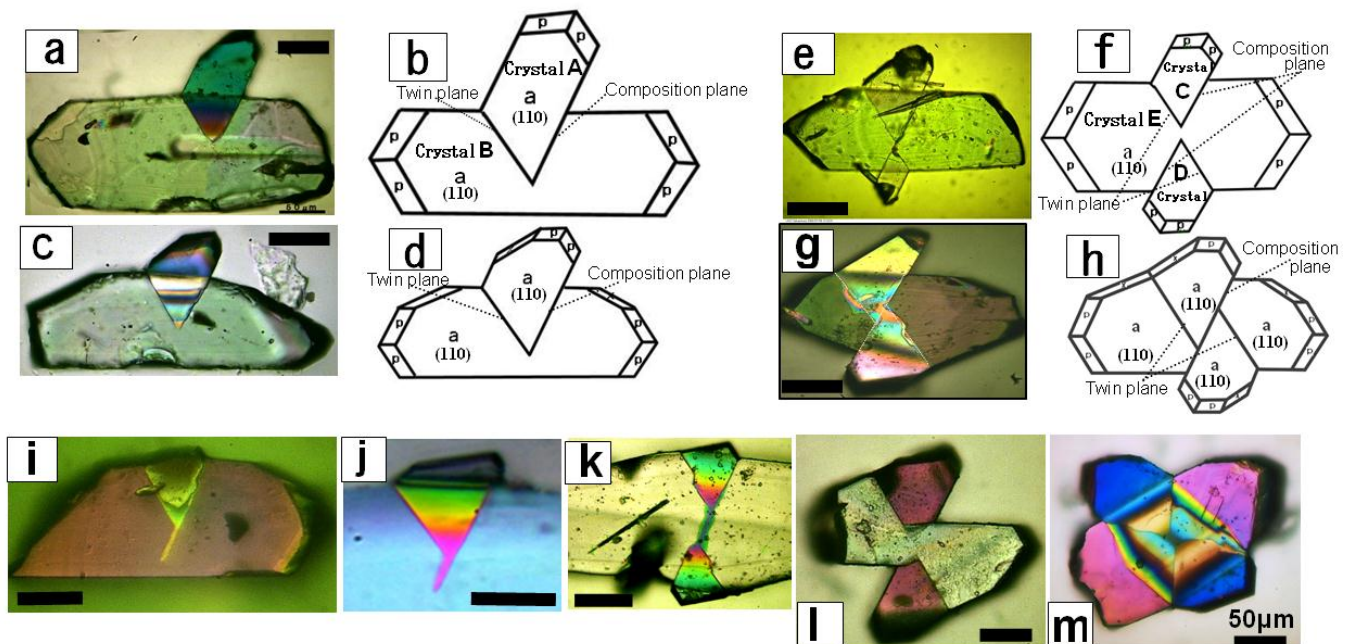
**Fig. 4.** Twinned zircon crystals under polarizing microscope (crossed nicols). **a:**

Fan- I type zircon, **b:** Explanation of crystal of **a**. **c:** Fan- II type zircon. **d:** Explanation of crystal of **b**.

晶である。このジルコンの接触双晶では見かけ上結晶が互いに一定の角度で結合する。これを扇型接触双晶と呼ぶ(Fig.4)。扇型双晶は、柱面であるa面が扁平状に大きく発達し左右二つの結晶が結合し扇状になっている。もう一つは扁平なジルコンに別の結晶がクサビ状に入った貫入双晶である。このような双晶をここではクサビ型貫入双晶

と呼ぶ(Fig. 5)。クサビ型貫入双晶には貫入する結晶がひとつのものと二方向から複数貫入するものがみられる(Fig. 5)。

扇型接触双晶；扇型接触双晶では Fig. 4 b-d の模式図に示したように、柱面である  $a$  面  $\{110\}$  が大きく発達した扁平な二つの結晶が  $\{112\}$  面を双晶面として扇状の形態なしている。このとき両者の  $c$  軸のなす角は  $115^\circ$  であり、 $c$  軸と双晶面の



**Fig. 5.** Twinned zircon crystals under polarizing microscope (crossed nicols). All scale bars represent  $50 \mu\text{m}$ .

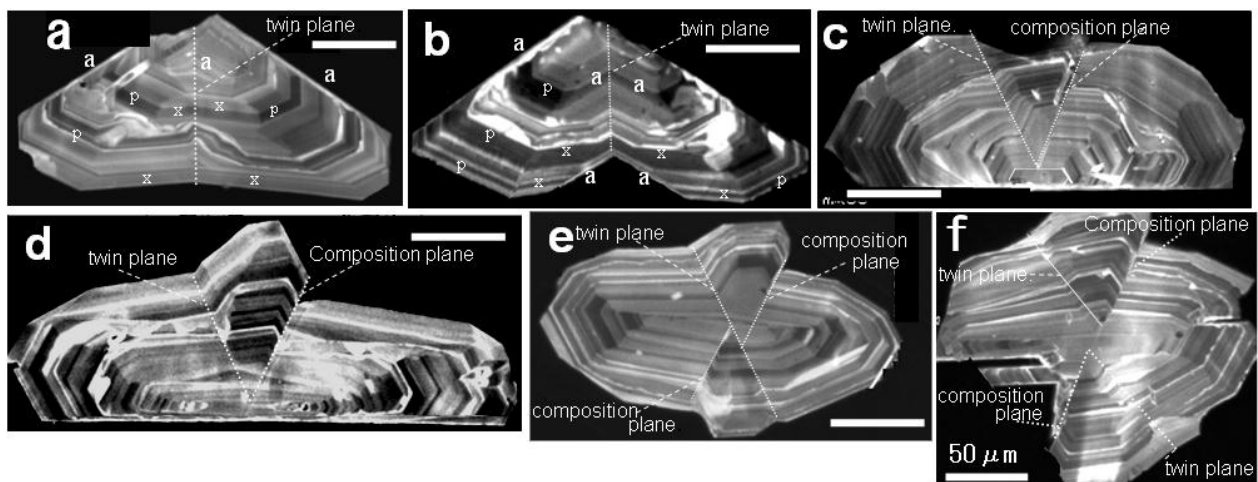
**a** and **c**: Penetration twin of the wedge type I type zircon. **b** and **d**: Explanation of the twinning of **a** and **c**, respectively. **e** and **g**: the wedge II type type zircon twin. **f** and **h**: Explanation of the twinning **e** and **g**, respectively. **i** ~ **m**: Polarizing microscope photographs indicating the characteristic feature of zircon twinning of a wedge type. **i** and **j**: Tail like shape associated to wedge I type. **k**: Two penetrating zircon crystals. They are vertically connected. **l** and **m**: Morphologies of penetration twin of zircon. They are varieties of wedge II type twinning.

角度は  $57.5^\circ$  になっている。扇型接触双晶は錘面の  $\{110\}$  及び  $\{211\}$  面の発達の違

いから扇Ⅰ型接触双晶 (Fig. 4a, b) と扇Ⅱ型接触双晶に分類できる (Fig. 4c, d)。両者の違いは、双晶凹入角の角度が扇型Ⅰ接触双晶では  $115^\circ$  に対して扇Ⅱ型接触双晶では  $170^\circ$  である。この違いは、扇型Ⅱ型接触双晶に x 面がないことに対応する。ジルコンの双晶は模式的な形状をしているものは少なく左右の結晶のサイズに違いがあったり、片方の結晶の p 面及び x 面が消えているものあり、Ⅰ、Ⅱのどちらのものか区別が付きにくいものも少なからずある。今回検鏡した接触双晶ジルコンの約 30% が扇型接触双晶であったが、そのうち約 90 % が扇Ⅰ型接触で、扇Ⅱ型接触双晶は約 10% である。

クサビ型貫入双晶；ジルコンの双晶で一番多いのがクサビ型貫入双晶である。これらが、全体の約 60% を占めている。クサビ型貫入双晶は、扇型接触双晶と同じように多様な形態をしているが、形状の違いから二つに分類できる。ジルコン結晶の柱面 (a 面) にクサビ状の結晶が一つ入り込んで双晶になっているタイプを「クサビⅠ型貫入双晶 (Fig. 5 a-d)」同じように結晶が二つ入り込んでいる双晶を「クサビⅡ型貫入双晶」とした (Fig. 5 e-h)。クサビⅠ型貫入双晶は、双晶のもとになる結晶 (結晶 B) に側面から別の結晶 (結晶 A) が結晶軸 (c 軸) の角度を  $115^\circ$  を保ちながらクサビ状に貫入した双晶になっている。このとき、結晶 A, B は二つの面で接触するが結晶 A の底面と結晶 B との接触面が双晶面となっている。また、もう一つの面は結晶 A では a 面 ( $1\bar{1}0$ ) で結晶 B とは不連続な面を形成している。このとき結晶 A の接合面の延長した方向に直線状の突起が観察されることがある (Fig. 5 i, j)。結晶 B は扁平で薄く、厚さが約  $10\sim 15\ \mu\text{m}$  であり、厚さ  $20\sim 30\ \mu\text{m}$  の結晶の中に板状に挟まれたようになっている。また、クサビ型貫入双晶の貫入している部分を偏光顕微鏡で観察すると干渉色の変化が見られる。このことは、貫入双晶の接合部に厚さの変化があると推定される。クサビⅠ型貫入双晶はクサビ型貫入双晶のなかで約 70% を占めている。クサビⅡ型貫入双晶は、二つの結晶 C と結晶 D が二つの方から貫入して

いる。その内の一つの結晶 C と主結晶 E はクサビ I 型貫入双晶と同じように 2 箇所  
で接触面を持っているが、それぞれ双晶面と接合面となっている (Fig. 5 e,f)。また、  
結晶 D と主結晶 E との関係は結晶 C を  $180^\circ$  回転させたときの状態と同じようにな  
っている。この二つの結晶 C,D にはクサビ I 型貫入双晶と同じように先端部に干渉  
色の連続的変化がみられる。また、一部の結晶では貫入した結晶の a 面に沿って両  
方が細く線で結ばれたり、あるいは帯状に結合したように見られるものもある  
(Fig. 5k)。クサビ II 型貫入双晶の中に特徴的な形状を示す双晶も見つかっている  
(Fig. 5l, m)。クサビ型貫入双晶では I 型と II 型の識別は容易であるが、II 型に見  
られる個体の連続的変化が多く特徴的な形態の要因と考えられる。



**Fig. 6.** Cathod luminescence images of twinned zircon.

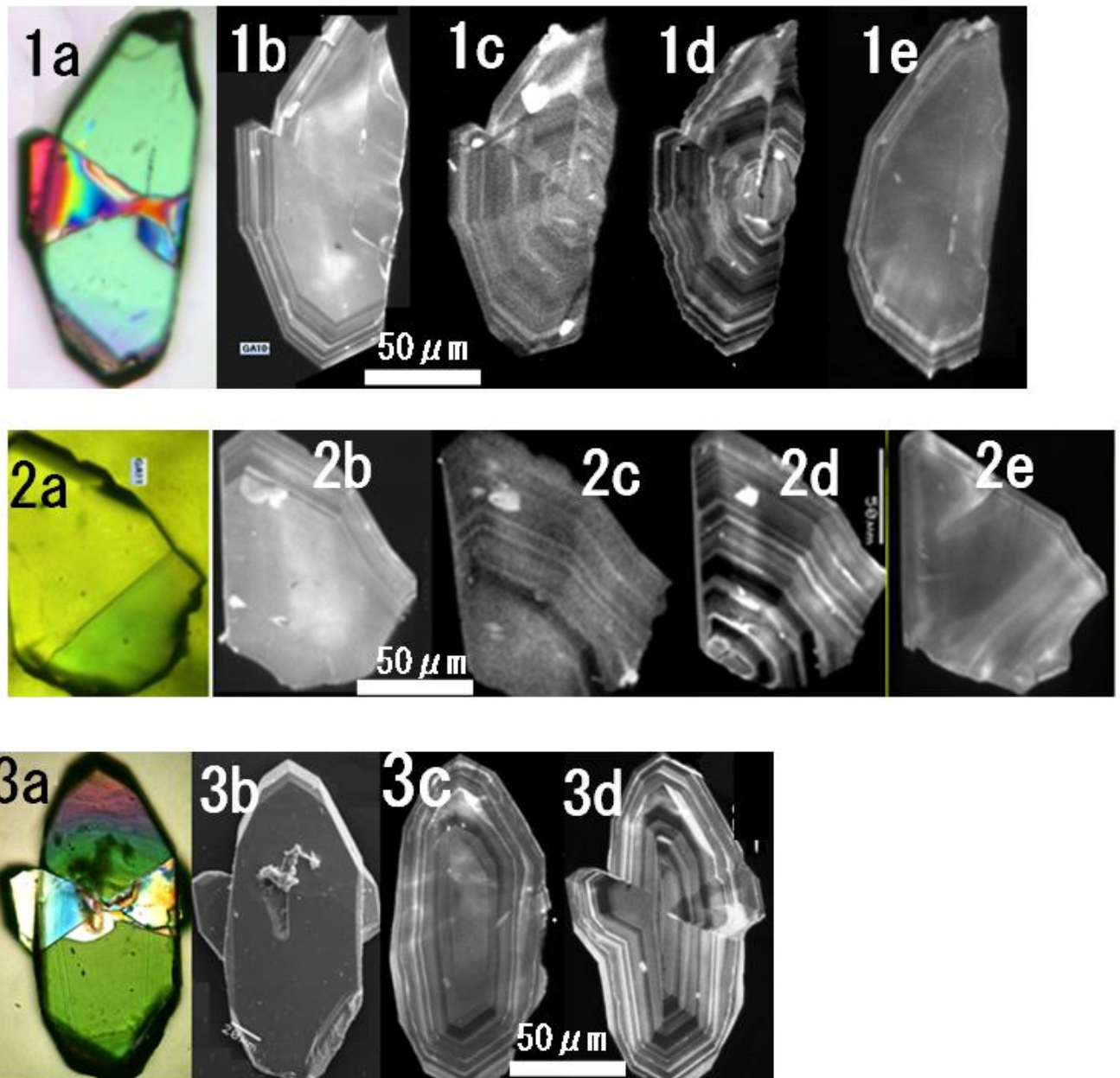
**a:** Fan I type of twin crystals. **b:** Fan II type of twin crystals, **c** and **d:** Wedge I type of twin crystals. **e** and **f:** Wedge II type of twin crystal. All scale bars represent 50  $\mu$  m.

#### 4. 双晶の CL による観察

扇 I 型接触双晶 (Fig. 6a) 及び 扇 II 型接触双晶 (Fig. 6b) を偏光顕微鏡で観察す



ると二つの結晶が直線的な双晶面を境に接合しているように見えるが、CL像では、両結晶中で連続する縞模様がみられ左右両方の結晶が同時に成長したことがわかる。クサビ I 型貫入双晶 (Fig. 6c-d) では、扇型接触双晶と同じように累帯構造が双



**Fig. 7. Polarized microscope and scanning electron microscope images of zircon crystals polished upper surface and sections with distances of 5, 10 and 15  $\mu\text{m}$  from the upper surface.**

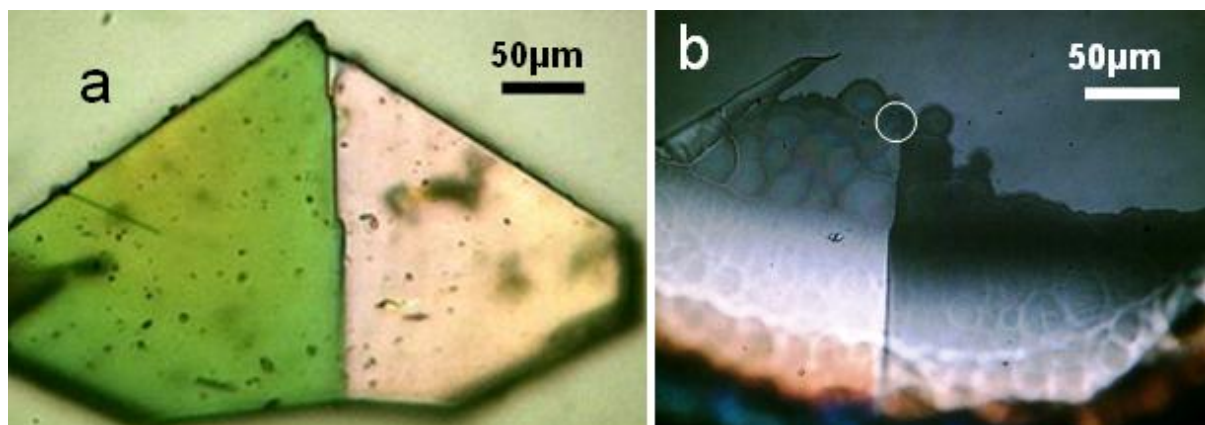
**1a, 2a and 3a :** Polarized microscope images. **1a~1e,2a~2e,3a~3d:** Continuous series of CL image of polished twin zircon crystal. **3b:** SEM images.

晶面をはさんで連続しているが接合面では不連続になりわずかなズレが生じている。底面である a 面 (110) では累帯構造の間隔が極端に狭くなっており縞模様を見出すことができない状態である。クサビⅡ型貫入双晶 (Fig. 6 e, f) では、貫入した二つの結晶がコア部分から形成されるため累帯構造は外側に広がっている。このとき上下に見える両結晶はクサビⅠ型貫入双晶と同じように累帯構造が双晶面をはさんで連続している。しかし、接合面では不連続になりわずかのずれを生じている。このとき、二結晶の双晶面が直線状につながっているものも観察される (Fig. 6e)。また、Figure 6 から結晶面である a, p, x 面の変化が読み取ることができる。双晶のコア部では a, p 面が観察されるが成長と共に x 面が発達する様子が見られる。扇Ⅰ型接触双晶 (Fig. 6a) ではリム部では底辺部に a 面が消失して x 面だけになっているが、扇Ⅱ型接触双晶 (Fig. 6b) では a 面が残り x 面の発達はいささか小さい。次に、扇型接触双晶およびクサビ型貫入双晶ジルコンの内部の成長組織を詳しく調べるために、結晶表面からコアまで 5  $\mu\text{m}$  ごとに研磨し順次 SEM-CL で観察した (Fig. 7)。先ず扇Ⅰ型接触双晶で研磨しないときの CL 観察では累帯構造が見られなかった (Fig. 7-2b)。次に、研磨面が表面から浅い部分では累帯構造は結晶周辺部に認められる程度 (Fig. 7 2c) であるが、研磨深度がコアに近くなるにしたがって累帯構造が明瞭となりコアからリムまでの累帯構造全体がみられた (Fig. 7 2d)。さらに研磨を進め、背面近くになるとまた累帯構造が見えなくなった (Fig. 7 2e)。クサビⅠ型貫入双晶でも同じように表面から背面までの変化が見られた (Fig. 7 1b, 1e, 3b)。Figure 3c, 3d はクサビⅡ型貫入双晶の表面近くの CL 画像である。クサビ型貫入双晶では結晶内部に貫入双晶を形成する結晶が、中心で収束する。

## 5. HRTEM による双晶構造解析

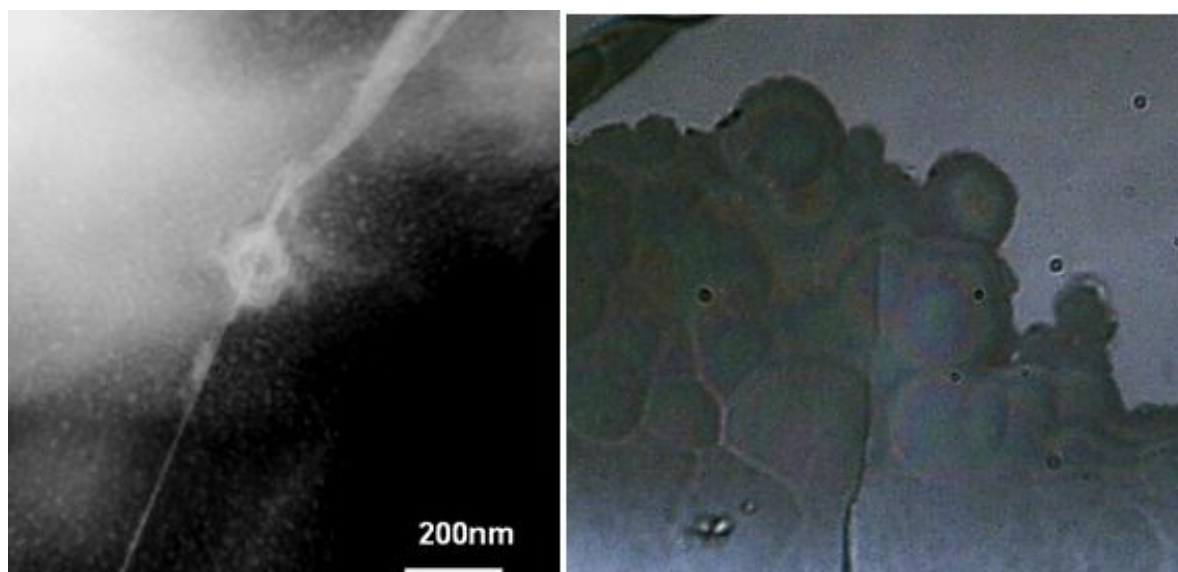


扇型接触双晶をイオン研磨し,最も薄くなった部分を高分解能電子顕微鏡で詳しく観察した。低倍率の電顕像では,双晶面が直線的に示されるが,湾曲したり乱れて

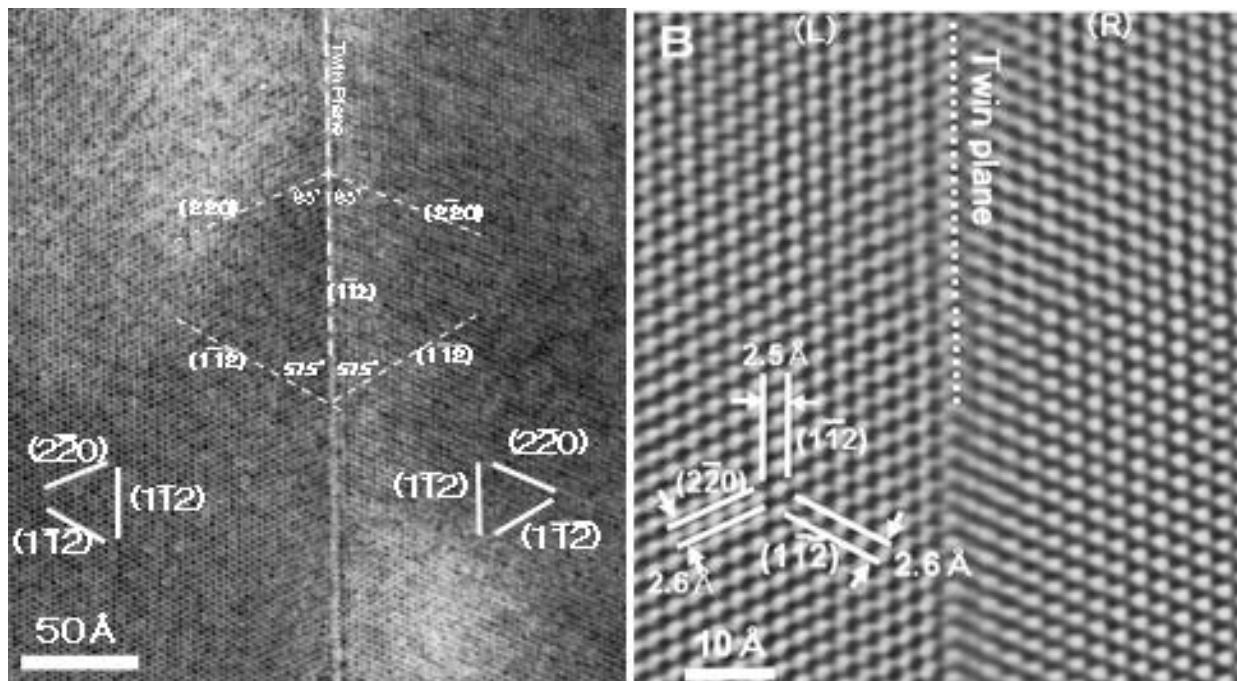


**Fig.8.** **a:** Fan I type twin crystal used TEM observation. **b:**Thinned specimen of **a** for TEM observation. Circle in the figure indicates the observed position by TEM.

いる部分も認められる(Fig. 8)。さらに倍率を上げ双晶構造の高分解能電子顕微鏡像を Fig.9A,B に示してある。Fig.9 Bは Fig.9 Aを拡大し、画像処理(ImageJ)をして鮮明化した画像である。この画像では双晶構造が明瞭に解像されており、中央に双晶面が見られる。左右の格子構造からは 3 方向の格子面が観察される。これらの面は Fig.10 に示してある電子回折パターン(A)及びその逆格子回折パターン(B)からそれぞれ双晶面に平行な $\{112\}$ 面, 双晶面に  $65^\circ$ 傾斜した $\{220\}$ 面と反対方向に双晶面に



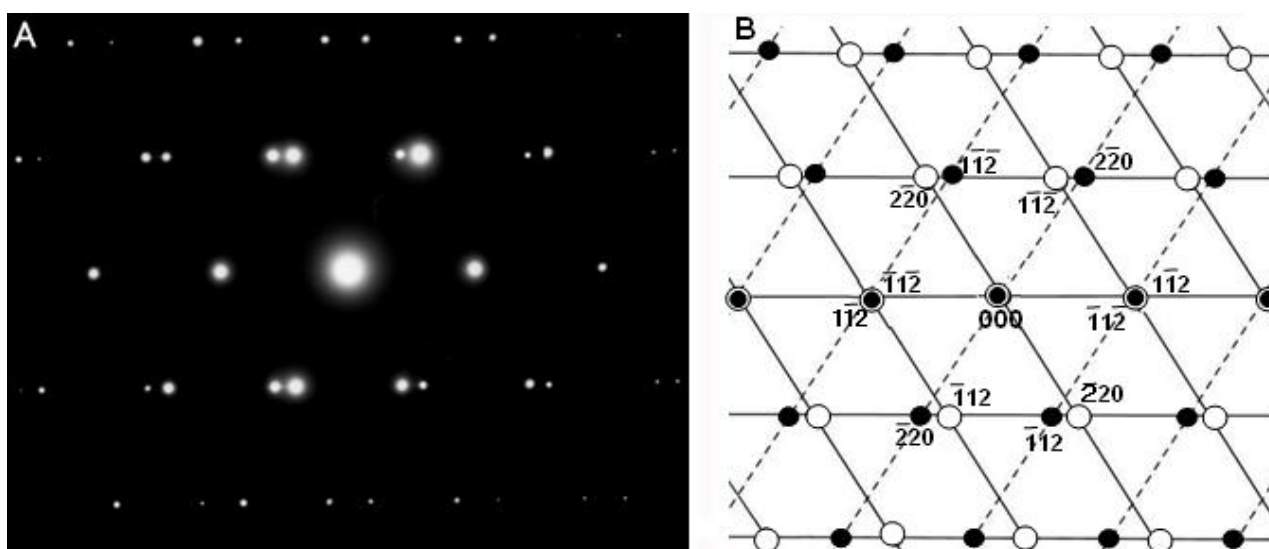
**Fig. 9.** TEM image of twin boundary observed in low magnification



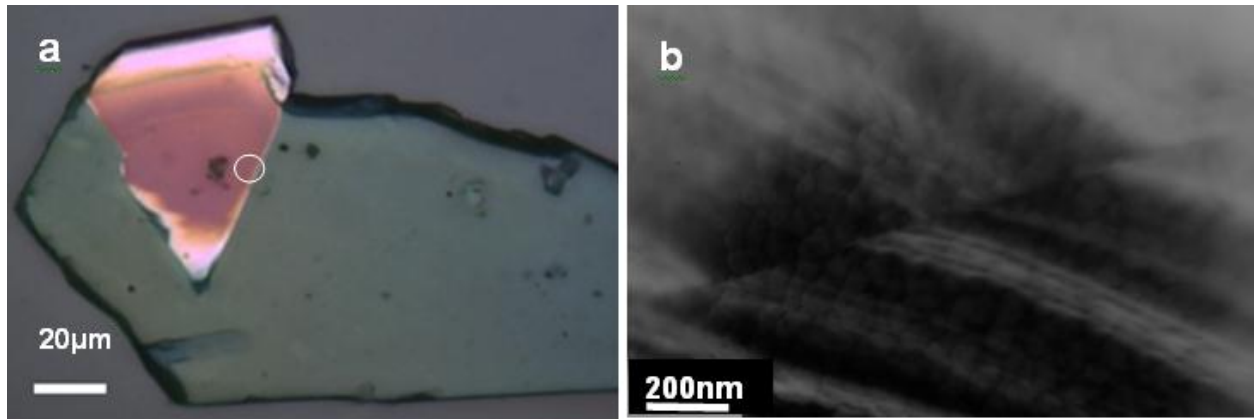
**Fig. 10.** HRTEM image of twinning zircon along  $[110]$  zone axis.

**a:** Intermediate magnification image. **b:** HRTEM image of twinning of zircon along  $[110]$  zone axis. Twinning plane is  $(112)$  plane.

57.5°傾斜した $\{112\}$ 面である。これらの格子像から Figure10 に示してある電子回折パ



**Fig. 11.** Electron diffraction pattern of the twinned zircon (A) and corresponding reciprocal lattice (B)



**Fig. 12.** Discontinuity in the opposite contact plane of twinning plane in penetration twin of Wedge II type.

**a:**Light Microscope image of twin crystal.Circle indicates the position for TEM observation.

**b:**Low magnification TEM image of discontinuity in contact plain of zircon twin of wedge I type.

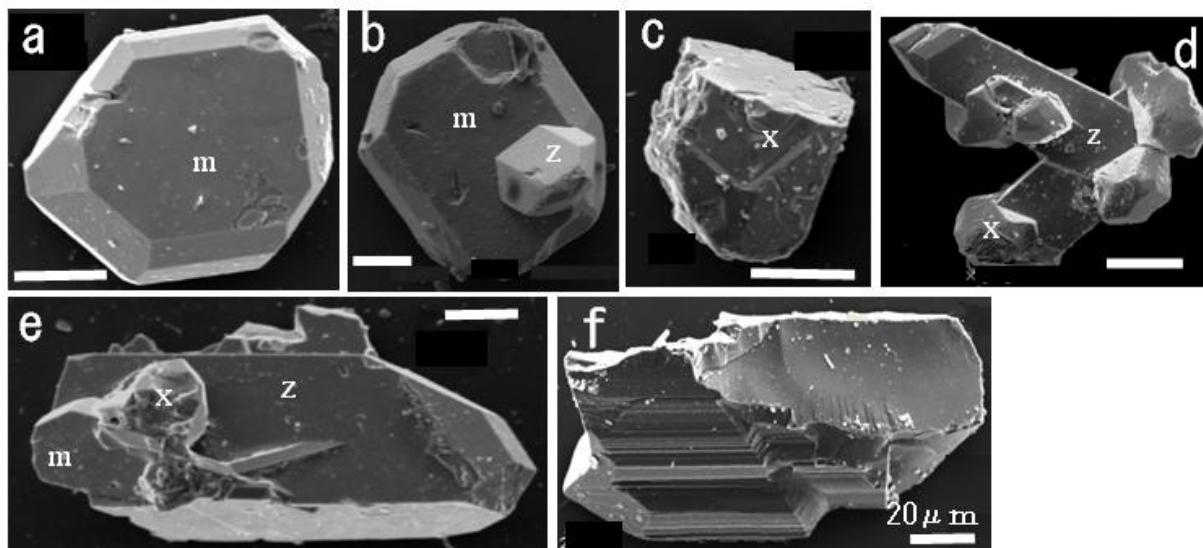
ターン及びその逆格子解析した図で、双晶二個体に対応する様子が示されている。

高分解電顕像の画像で三方向の格子面のそれぞれの間隔は、 $d(11\bar{2})=2.5\text{ \AA}$ 、 $d(11\bar{2})=2.6\text{ \AA}$ 、 $d(2\bar{2}0)=2.5\text{ \AA}$  と解析される。Figure 11 はクサビ I 型で、双晶面ではない

がもう一方の接触面の TEM 画像である。双晶面と異なり等厚干渉縞が不連続になっている様子が観察された。

## 6. モナズ石、ゼノタイム、コランダムとの共生

双晶ジルコンの他に放射性鉱物のモナズ石、ゼノタイム、またコランダムなどの希少鉱物が今回見出された。モナズ石は約  $100\text{ }\mu\text{m}$  の大きさを持つ自形結晶である (Fig. 14a), モナズ石の化学成分は  $(\text{Ce})\text{PO}_4$  で希土類元素を多く含む鉱物である。モナズ石の結晶は単斜晶系で、ジルコン ( $\text{ZrSiO}_4$ ) の結晶構造 (正方晶系) に類似して両者が絡み合う形態をもち共生関係を示す。このとき、モナズ石がジルコンを取り込む場合 (Fig. 14b) と逆にジルコンがモナズ石を取り込む場合もある。SK030 にはモナザ



**Fig.13.** SEM images of monazite, xenotime and corundum.

**a:**Single crystal of monazite.      **b:** Monazite(m) attaching to zircon crystal(z). **c:** Xenotime crystal.      **d:** Xenotime crystals closely attaching to zircon. Granular shape are characteristic .  
**e:**Zircon crystal with monazite(m) and xenotime(x).      **f:**corundum crystal

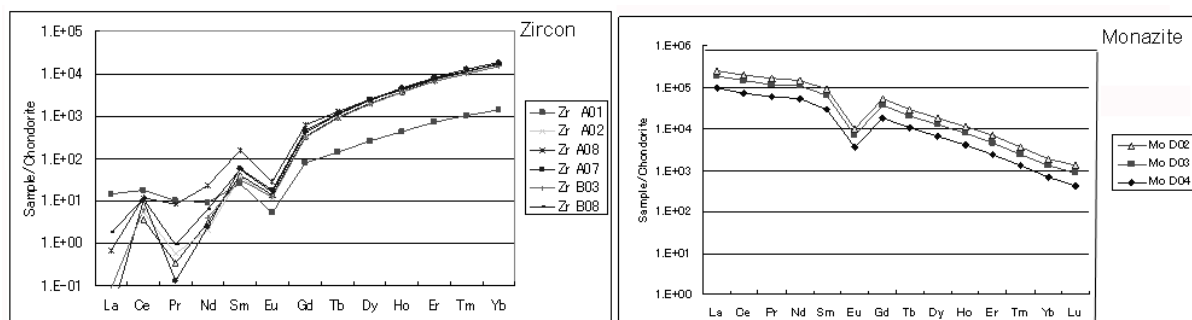
イトを比較的多く含み, 数量的にはジルコンの約 10%近く産出している。同じようにゼノタイムは化学成分が  $\text{YPO}_4$  であり, 形状がジルコンと同じ正方晶系で, ジルコンに取り込まれることが多い。また, ゼノタイムは Fig. 14d に見られるように顆粒状で双晶ジルコンに付着しているのがよく観察される。ゼノタイムは自形で単独に結晶する場合は少なく  $50\mu\text{m}$  程度の微小結晶として観察される (Fig. 14c)。また, モナズ石とゼノタイムの両方を取り込んだジルコンも見つかった (Fig. 14e)。このことはジルコン, モナズ石, ゼノタイムは全く同じ時期に晶出して互いに共生関係にあると考えられる。また,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の成分を持ったコランダム (Fig. 14f) がみついているが自



形を示すものが少ない。このように, SK030 には双晶ジルコンやモナズ石, ゼノタイム, コランダムなどの特徴的鉱物が含まれる。

## 7. ジルコンの化学組成と微量元素

ジルコンの化学成分の検討を行った。ジルコンには U, Th をはじめ希土類元素などの微量元素を含んでいる。とくに希土類元素に関しては形成マグマの情報を示すとされる。SK030 に含まれているジルコン(7 粒子) とモナズ石(3 粒子)の分析を LA-ICP-MASS で行った。結果はコンドライト規格化による希土類元素パターンとして Fig. 15 に示してある。さらに, ジルコン, モナズ石を EPMA で, ゼノタイムとコランダムを SEM-EDS で化学分析を行いその結果が Table. 2 に示してある。ジルコンについて得られたデータから見ると希土類元素パターンでは今まで報告されているものに類似していることが確認される (Hoskin, 2003)。ただ, 今回のデータの中で, 一粒子(A01)が他の粒子と異なったパターンを示しているが, これは双晶でない単結晶粒子であった。このことは, 双晶と非双晶との違いが化学成分に関係しているか, さらなる詳細な分析が必要である。次に, モナズ石については 3 粒子とも同じ傾向を示しているが, 他地域での比較では同じ傾向を示している (Zayats and Kuts, 1964)。また, Table. 2 に示した各鉱物の化学成分は今まで多く報告されているものとほぼ同じ結果が得られた。



**Fig.14.** C1-Chondrite normalized REE pattern of monazite and zircon.

zircon				monazite			xenotime		corundum	
sp.no.	Z-01	Z-02	Z-08	sp.no.	M-03	M-08	sp.no.	X-17	sp.no.	C-11
(wt.%)										
SiO <sub>2</sub>	28.27	28.42	26.96	SiO <sub>2</sub>	1.70	1.36	SiO <sub>2</sub>	1.17	SiO <sub>2</sub>	0.11
ZrO <sub>2</sub>	69.05	67.32	66.59	P <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	28.88	24.27	P <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	27.61	P <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.12
HfO <sub>2</sub>	1.57	1.78	2.79	YO <sub>2</sub>	7.69	5.75	YO <sub>2</sub>	63.43	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	98.28
YO <sub>2</sub>	0.18	0.38	1.35	CeO <sub>2</sub>	27.97	31.54	CeO <sub>2</sub>	0.03	Na <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.49
ScO <sub>2</sub>	nd	0.16	0.18	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	11.44	13.51	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.94	K <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.43
Yb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	nd	0.38	0.54	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5.96	7.16	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.13	CaO	0.21
Er <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	nd	0.25	0.34	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.12	5.36	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.80	MgO	0.24
P <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.27	1.04	1.04	Pr <sub>6</sub> O <sub>11</sub>	4.03	4.85	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.12	FeO	0.12
Na <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.34	0.49	0.23	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.35	2.65	Yb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.30	TiO <sub>2</sub>	0.10
CaO	0.17	0.24	0.11	Dy <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.83	3.03	HfO <sub>2</sub>	0.88	*	*
UO <sub>2</sub>	nd	0.01	0.02	ThO <sub>2</sub>	2.01	1.42	*	*	*	*
Total	99.85	100.47	100.15		99.98	100.90		99.41		100.10

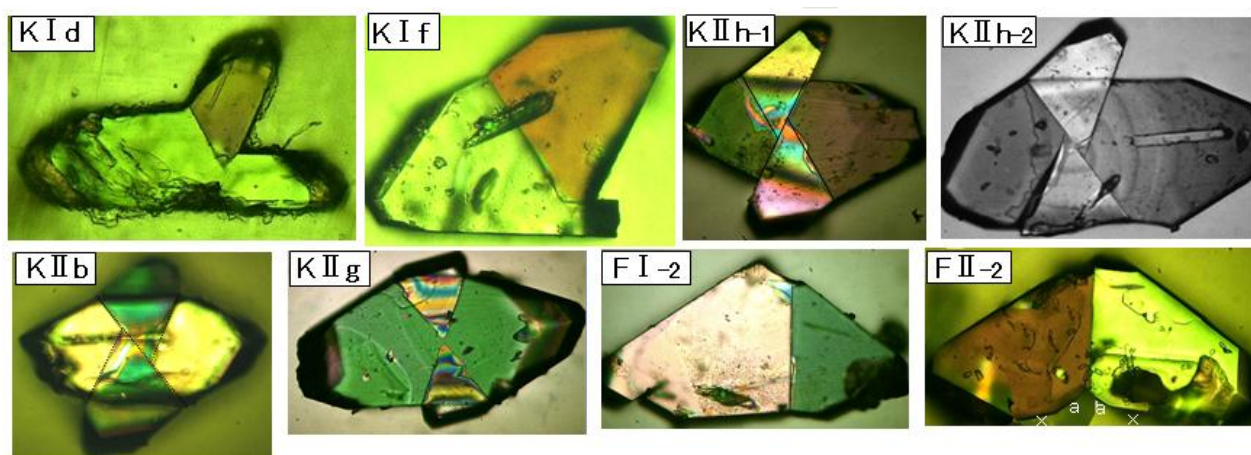
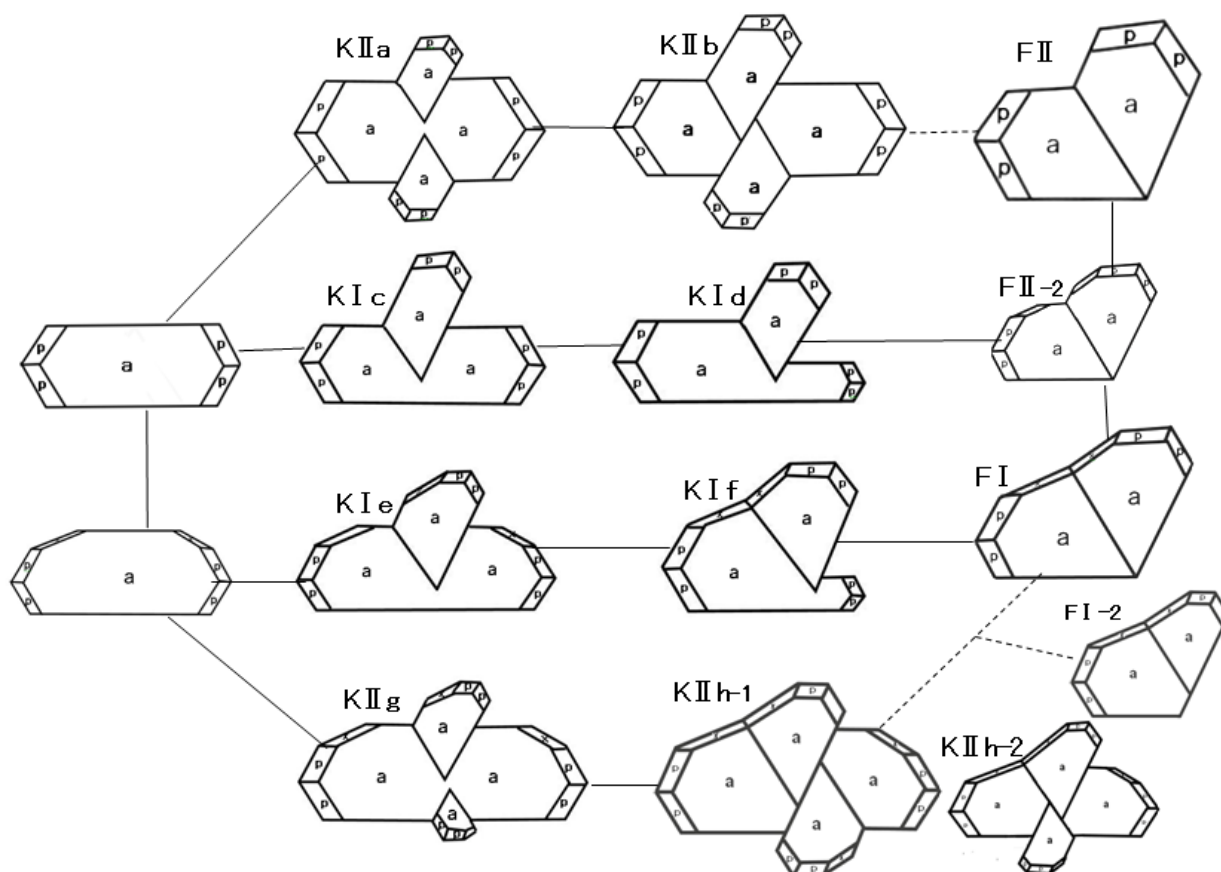
**Table.2.** Chemical compositions of zircon, monazite, xenotime and corundum.

Zircon and monazite compositions by EPMA. Xenotime and corundum compositions by

### Ⅲ. 考察

#### 1. ジルコン双晶の形態的多様性とその分類

ジルコンの双晶は結晶形態からは扇型接触双晶とクサビ型貫入双晶に大別されたが、実際に観察された多様な双晶ジルコンの形態は、模式的に示すと **Figure13**



**Fig. 15.** Systematic morphological varieties and relations of the twin crystals in zircon.

K-I is Wedge I type, K-II is Wedge type II twin crystal. O-I and O-II show fan I type and fan II type twin crystals, respectively.

のようになる。しかし、これ以外に、双晶面の位置がずれたり結晶面の発達の悪い双晶も多くさらに多様な形態をしている。扇型接触双晶では形態的に扇Ⅱ型接触双晶から扇Ⅰ型接触双晶へ連続的に変化していると考えられる。それは扇Ⅰ型の成長過程において底面で大きく成長する  $x$  面が形成される前に  $a$  面が残る中間型が多く観察される例もみられることから明らかである(Fig.13 FⅡ-2)。また双晶面のずれた扇型接触双晶(Fig.13 FⅠ-2)は貫入した二つ結晶の接合面が直線的接しているクサビⅡ型貫入双晶 (Fig.13 KⅡh-1) の一部がわかれて形成されたと考えられる (Fig.13 FⅠ2)。他にクサビⅡ型貫入双晶には双晶面が直線的に接しているものも観察されている (Fig.13 KⅡh-2)。また、クサビⅠ型貫入双晶では、Figure 13KⅠd, Figure 13KⅠfに見られるような主結晶の片方の結晶が小さくなり、最終的にはそれが消滅すると扇型接触双晶へ形態的に移行していると考えられる。クサビ型貫入双晶では双晶の成長が結晶の中心部から起こる。このとき二つの貫入結晶が離れたものから両方がつながるものへ、形態的には連続的に変化するが、そのうち先述した接合面の発達したものが扇型接触双晶へと連続的であると考えられる。また、クサビ型双晶では結晶面に  $x$  面の発達の有無で、Figure13に見られるような違いが示される。最終的にこれらジルコンにみられる双晶の形態的多様性全体についての連続的変化を模式的に表すと Figure13 のようになる。

## 2. ジルコン双晶面

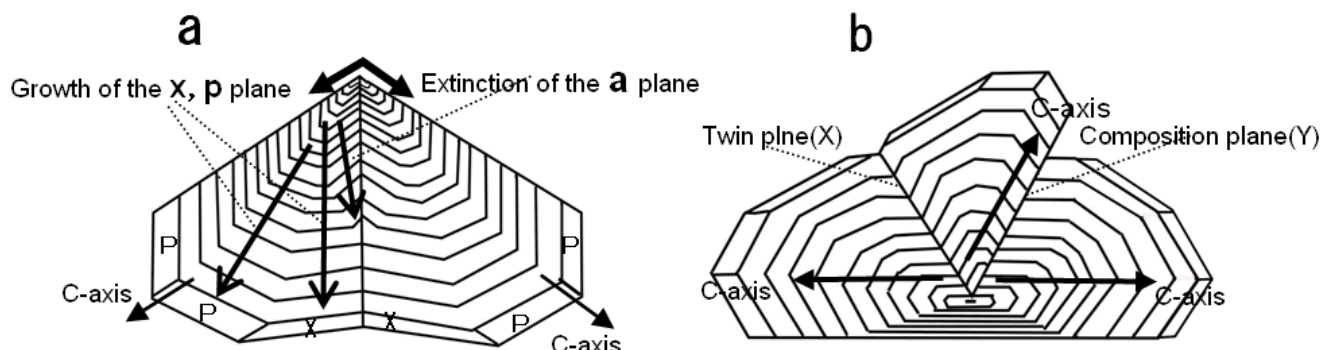
本研究でジルコンの双晶面が HRTEM 像及び電子回折パターンによる解析により  $\{112\}$ であることが明らかになった。Figure 9での格子像は  $d_{112}=2.52\text{\AA}$  であり、従来言われてきた(101)面,(111)面に対する  $d_{101}=4.43\text{\AA}$ ,  $d_{111}=3.75\text{\AA}$  とは、明らかに異なり、構造的には双晶面が  $\{112\}$ である事が確証された。これまで双晶面に関しては、形態に基づき Dana(1892),Ford(1932), Iddings(1911),Jocelyn and Pidgeon (1974)による



{101}面とする考え、また Winchell(1951),Deer et al.,(1961)による{111}面との記載があった。また、Berry and Mason(1959)の教科書での{112}面などが提唱され、記載されてもいるが、構造的には確定的にもとらえられていなかった。今回、結晶形態だけでなく結晶構造的な解析により双晶面が{112}面であることを明らかにした意義は大きい。

### 3. 双晶構造と成長過程

扇型接触双晶の累帯構造の解析をもとに双晶の成長過程を考察すると、その模式的成長過程は Figure 14a のように示されるが、その理由を以下に順を追って記す。まず双晶の先端に位置するところに、おそらくジルコン成分に過飽和な環境で双晶結晶核が形成される。その後、互いに  $115^\circ$  をなす角度で二つの  $c$  軸方向に扁平状の結晶が成長していく (Fig. 14a)。CL 画像 (Fig. 6a,b) から明らかなように始めは錘面である  $p$  面の  $c$  軸方向への成長速度が大きい、柱面である  $a$  面の成長速度は小さい。 $p$  面の成長が続くと  $a$  面は徐々に小さくなり最後に消滅する。代わりに錘面である  $x$  面が  $117^\circ$  の角度であらわれて徐々に成長していく。その結果  $x$  面が大きく発達し底辺が平坦に見える扇 I 型接触双晶が形成される (Fig. 14a)。これに対して、扇 II 型接触双晶は  $a$  面と  $p$  面だけが発達し  $x$  面をともしない双晶である (Fig. 6b)。扇型接触双晶は形態的に扁平になっているが、このような特徴は水晶の日本式双晶の形態・特徴と類似していると見ることができる。これらの特徴は双晶の成長の速さについての様々な議論 (砂川, 2003. Sunagawa and Yasuda, 1983) を参照にすると電顕観察では現在の所ほとんどディスロケーションは見つからず、一般的には凹入角効果が強く働いていると解釈できる。次に、クサビ型貫入双晶の形成過程は、コアにあたる中心から結晶成長が始まり、柱面の  $a$  面と錘面の  $p$  面だけをもつ結晶が形成される。この結晶がある大きさまで成長した段階で柱面の一点に扇型接触双晶と同じように双晶結晶核が形成され、 $115^\circ$  の角度をなす二つの  $c$  軸方向に  $p$  面と  $a$  面



**Fig. 16.** Schematic growth process of the zircon twins.

**a:** Schematic sketch showing growth process of the fan I type twin crystal of Fig.6a.

**b:** Schematic sketch indicating the growth process of the wedge I type twin crystal of Fig.6c. In figures, arrows indicate the growth direction of the crystal faces.

Dashed lines indicate weak relationship.

からなる扁平状の結晶が成長していく。これがクサビ I 型双晶である (Fig.14b)。この双晶の生成過程の一例として, Figure 6c,d の CL 画像に観察される。また, クサビ I 型の中に主結晶と貫入結晶との間に接合面としてずれがみられる (Fig.6c,d)。これは, 接合面を境にして貫入結晶の  $c$  軸方向の結晶速度が主結晶の  $c$  軸に対して直角方向の結晶速度より大きいため不連続面のずれが生じるためと考えられる。なお, クサビ I 型双晶の接合面は TEM 画像でも等厚干渉縞として観察されており (Fig.11b), 接合面は主結晶の  $c$  軸に対して  $65^\circ$  傾斜しているが, 貫入した結晶では  $a$  面(110)であり, 結晶間は構造的連続はない。クサビ II 型貫入双晶は I 型と同じように中心核から成長した結晶が対になっている。これは主結晶に対し, 両方向にクサビ I 型と同じようにクサビ状に成長したものと考えられる。クサビ II 型双

晶には、主結晶のなかで二つの双晶結晶の位置が大きく離れるもの、双晶面で重なるものなど様々なタイプが見られる (Fig.6 参照)。クサビⅡ型には他に特徴的な形態的をもつ複雑な特徴的な双晶もあるが、形成過程は同じようであると考えられる。

#### 4. ジルコン及びモナズ石、ゼノタイム、コランダムの微量元素の意義

本研究でジルコンの他にモナズ石、ゼノタイム及びコランダムが見出された。モナズ石は一般的に花崗岩や閃長岩質岩石に含まれペグマタイト質岩石では大きな結晶サイズで日本や Norway, Madagascar, India などの産地例が報告されている。また、Swiss Alps で、モナズ石が變成岩中の石英脈からの例もある (Deer, *et al.* 1962)。Murata *et al.* (1959) はモナズ石とゼノタイムがペグマタイト中に共生し、さらにペグマタイトの中心から外側へ両者の割合が変化することを報告している。しかし火山岩から中の報告例はまだない。ゼノタイムはモナズ石と同じように酸性深成岩やペグマタイト中に見出され、ジルコンと一緒に産出することが多い。コランダムは同じように花崗岩や閃長岩質岩石に見出され、Ontario の Bancroft 地域や Mandras の Coimbatore 地域で産出している (Moyd, 1949)。コランダムは Al の多いマグマから産出するが、Ontario 地域のコランダムは熱水溶液の反応によって形成されたものも報告されている。これらの鉱物は一般に深成岩類に含まれ、火山岩や火山灰の中に入ることは非常に希である。ただ、火山灰中に含まれたコランダムが一例だけ報告されている (立石・沢田, 2008)。今回の SK030 のような火山灰層にモナズ石、ゼノタイム、コランダムが同時に含まれることはこれまでに報告された例はない。しかもこれらの鉱物とジルコンが共生関係であることは、これらの鉱物を含む火山灰の起源とされるマグマに起因していて、とくにジルコン、モナズ石、ゼノタイムが同時に晶出したことを示している点が重要である。これらの鉱物を含む岩石に花崗岩のような酸性岩が多いという事は SK030 の起源となるマグマも類似成分が推定される。また、ジルコン

を含む火成岩類は酸性質マグマから供給されることが知られてる。SK030 に含まれるジルコン及びモナズ石に含まれる希土類元素を分析しコンドライトでした規格化した希土類元素パターンを調べた結果、ジルコンでは右上がり、Ce の正の異常、Eu の負異常を示した (Fig.12)。この傾向は珪長質火成岩のジルコンに見られる一般的特徴 (Hoskin *et.al.*, 2003; 折橋他. 2007)) に非常に類似している。このことは、SK030 の起源となるマグマが酸性質の成分に類似していると推定される。またモナズ石の希土類元素パターンは Eu の負異常と右下がりの特徴が見られ、これも花崗岩に含まれるモナズ石と同じパターンを示している (Hoshino, 2009)。また、Pupin (1980) が分類したジルコンの結晶形態によると SK030 ジルコンは(110)型で約 600°C で形成されたと推定できることから同様のことが推定される。SK030 には双晶ジルコンの他に、他の火山灰層に見られない堇青石、モナズ石、ゼノタイム、コランダムなどを含むことより、供給マグマは特異なものと予想される。ただ、今回分析した SK030 ジルコンの中に双晶でない単結晶 A01 のジルコンだけが希土類元素パターンが双晶を形成するジルコンと異なる結果を示した。ただこの一粒子だけがなぜ違う傾向を示したか、またジルコンに含まれる微量元素が双晶形成に関係するかどうかについては今後の検討課題である。以上より、SK030 に含まれるこれらの鉱物がセットで含まれるということは、この火山灰層が地域的に有力な鍵層になることを示している。

#### IV. まとめ

- (1) SK030 ジルコンには特徴的な双晶結晶が観察された。双晶は形態的に扇状接触双晶とクサビ状貫入双晶の二つに分類される。さらにこれらは扇 I 接触双晶、扇 II 型接触双晶及びクサビ I 型貫入双晶、クサビ II 型貫入双晶の 2 つに細分できた。さらに、複雑な形態のものも存在し、それらは扇状接触双晶とクサビ状貫入双晶の間型としてとらえられた。
- (2) 扇状接触双晶およびクサビ状貫入双晶の累帯構造解析により、多様な双晶形態に

いたる成長過程を CL 画像解析をもとに解析した。

- (3) これらの双晶をなすジルコンの双晶面は従来報告のない{112}面であることを高分解能電顕像と電子回折パターンの解析をもとに明らかにした。
- (4) SK030 は双晶ジルコン、モナズ石、ゼノタイム、コランダムなど他の火山灰層では、ほとんど見られない希少鉱物を含んでいることがわかった。とくに、ジルコン、モナズ石、ゼノタイム、コランダムは同時晶出しており地域的には、この火山灰層が有力な鍵層にもなることを示している。

#### 引用文献

- Alinat, M., Pupin, J.P. and Turco, G. (1988): La macle papillon , cas particulier de la macle engrenou du zircons . *Bull, Mineralogie*, 111, 173-178.
- Berry , L.G. and Mason, B. (1959): *Mineralogy*, W.H. pp. 612. Freeman and Co., San Francisco.
- Bragg, L. and Claringbull, G.F. (1965): *Crystal Structure of Minerals*, pp. 241, G. Bell & Sons, London
- Buerger, M.J. (1945): The genesis of twin crystals, *Amer. Miner.*, 30, 469-482
- Corfu, F., Hanel, J.M., Hoskin, P.W.O. and Kinny, P. (2003): Atlas of zircon textures. *Rev. Mineral.*, 53, pp. 500.
- Dana, E.S. (1892): *The System of Mineralogy*, sixth ed. John Wiley and Sons, New York. *The System of Mineralogy*, sixth ed. pp. 1134. John Wiley and Sons, New York.
- Ford, E. (1932): *A textbook of Mineralogy*, pp. 851. John Wiley and Sons, New York.

Deer,W.A., Howie, R.A. and Zussman, J. (1962) : Rock-Forming Minerals, 5, pp.371, Logmans,London.

林 正男 (1990): ジルコンの結晶形態と地球科学への応用. 地質雑, 96,117-123

林 宏樹 (2011): 高知県足摺岬環状複合岩体のジルコンにおける特異な内部組織と微量元素組成. 岩鉱, 40, 1-12.

Hintze,C. (1915): Handbuch der mineralogy. Verlag von Veit & Comp., Leipzig

Hoskin, W.O. and Schaltegger, U.(2003): The composition of zircon and igneous and Metamorphic petrogenesis. Reviews in Mineralogy, 53, 27-62.

Iddings, J. P. (1911): Rock minerals :their chemical and physical characters and their determination in the thin sections, pp. 445. John Wiley & Sons. New York.

Jocelyn J. and R.T.Pidgeon. (1974): Example of twinning parallel growth in zircon fromSome Precambrian granites, *Mineralogical Magazine*, 39, 587-594

Jackson, S.E.,Pearson, N.J.,Griffin,W.L. and Belousova,E.A. (2004): The applicationLaser application-inductively coupled plasma-mass spectrometry to in situ U-Pb zircon beochronology .*Chem.Geol.*, 211.37-69.

黒川勝己 (1990): 水底に堆積した珪長テフラの層相モデルとその形成機構, 地球科学, 44, 361-378.

Kurokawa,K. and Hirata,I.(1986):Grain-size characteristic of the Joetsu Ash (United I ),a subaqueous ash flowturbidite of early Pleistocene, central Japan.Me. Fac.Educ., Niigata Univ. (Natural Sciences), 28,15-24

村松敏雄(2008): 魚沼層群の広域テフラ(SK030)に見られるジルコンの特異な双晶について. フィッション・トラックニュースレター, 22, 64-68.

村松敏雄 (1983): 魚沼層群のフィッション・トラック年代. 地団研専報, 26,63-66.

- 能美洋介, 弘原海清, 升本慎二 (1997): ジルコン結晶形態図の数値表現. 情報質, 8,149-155.
- 折橋祐二, 岩野英樹, 平田岳史, 壇原 徹, 新正裕尚 (2007): 西南日本外帯, 熊野酸性岩類に含まれる赤色・無色・灰濁色ジルコンの U-Pb 年代および微量元素組成と珪長質マグマの成因. 地質雑, 113,366-383
- Ohhira,H. (1994): Genetic relation between magmatic differentiation and zircon of the Hanawa pulton. *Jour.Mineral.Petrol.Econ.Geon.*, 87. 86-101.
- Poldervaart,A. (1955): Zircon in igneous rock. *Amer.Journ.Sci.*, 253 ,433-461.
- Pupin, J,P, and Turco, G. (1972): Une typologic originale du zircon accessoire. *Bull.Soc FrMineral Cristallogr.* 95. 348-359.
- Pupin, J.P. (1980): Zircon and granite petrology. *Contrib. Mineral.Petrol.*, 73, 206-220.
- Pupin, J.P. (1985): Magmatic zoning of Hercynian Granitoids in France based Zircon. *Typology.Scheitz Mineral,Petrogr.Mitt.*, 65 29-56.
- Sawka W.N.(1988); REE and trace element variation in accessory mineral and hornblende from the stronglyZoned McMurry Meadows Pluton,California Tras Roy Soc Edinburgh :*Earth Sci* ,79,157-168.
- Sunagawa I. and Yasuda T.(1983): Apparent re-entrant corner effect upon the morphologies of twinned crystals ; A case study quartz twinned low, J. Crystal Grwth , 65, 43-49
- 砂川一郎 (2003): 結晶-成長.形.完全性, pp.304 , 共立出版, 東京.
- 高山俊昭, 佐藤時幸, 亀尾浩二,後藤登美子 (1995): 第四系石灰質ナンノ化石序層と鮮新統／更新統境界の年代. 第四紀研究, 34, 157-170
- 高橋雅紀, 林 正男(1991): ジルコンの結晶形態による関東地方の中新世凝灰岩の分類と対比. 地質雑, 97, 451-459.

魚沼丘陵団体研究グループ (1983): 魚沼層群の地層. 地団研専報, 26, 5-22.

Winchell, H. (1951): **Elements of Optical Mineralogy**. 1, pp.551 , John Wiley & Sons, London.

Zayats, A.P.and Kuts,V,P. (1964): Rare earth elements in the accessory minerals of gneisses in theUkrainian crystalline shield. *Geochem Intl.* 1 .1126-1128.



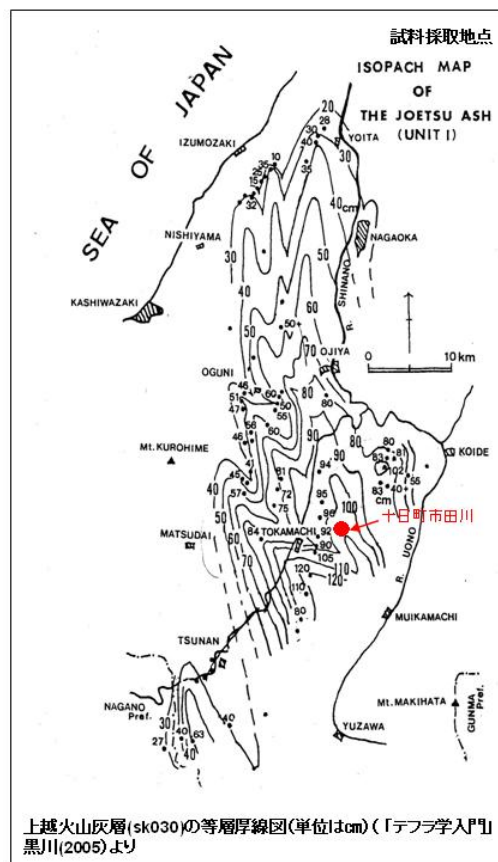
# Appendix

**(Information related to the paper)**

## ・十日町市田川「SK030」の露頭



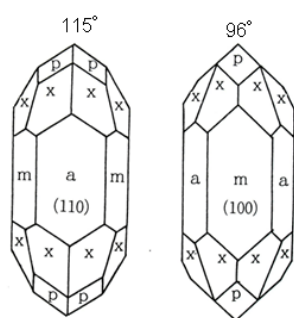
露頭写真中央部の厚さ  
1.5m の火山灰層が白ザラ  
部で「上越火山灰層」と呼  
ばれている。



SK030 パミス層拡大写真



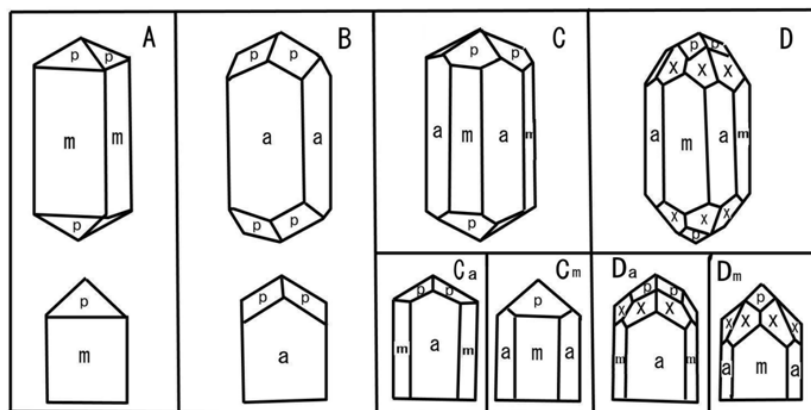
## ・ 魚沼層群の3 火山灰層中のジルコンの結晶形態関係図



〈Ideal crystal of the zircon〉

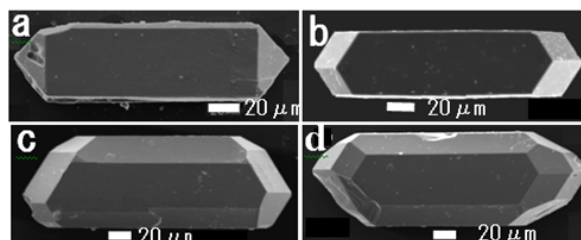
Zircon: Tetragonal system

Unit cell  $a, b = 6.61 \text{ \AA}$   $c = 5.99 \text{ \AA}$



Morphological varieties of zircon crystals. The figures are modified from Pupin(1980) and main four types are shown. Ca and Cm are subtypes of C. Da and Dm are subtypes of D.

Tuff-name	A type	B type	C type		D type	
			Ca	Cm	Da	Dm
Irajima	72	5	6	12	2	3
SK030	0	90	4	0	6	0
SK110	4	4	2	2	45	43



Frequency distribution of occurrence of morphological types of zircon. Summation of each type is totally 100 (1995. Muramatsu).

SEM images of zircon crystals.

## ・ 魚沼層群の代表的広域火山灰層の鉱物組成

Ash Layer Name	Sampling Locality	Grain Size	Light Mineral composition					Heavy Mineral composition								
			Gl	Pl	Qz	Cd	H.M	Bi	Hb	oxHb	Cm	OPX	CPX	All	Zrn	Io
SK030	Tokamachi	f.	82	14	3	1	*	79	13	1	3	2				2
		m.	59	34	6	1	*	50	6	1	12	1				30
		f.	59	33	6	*	2	75	4	4	2	2			1	13
		v.f.	52	44	1	*	3	9	9	11	9	10			2	50
	Shibanomata	f.	66	25	7	*	2	46	6	26	1	1			1	21
		v. f.	42	55	1	*	3	18	7	31	1	1			1	47

Ash Layer Name	Sampling Locality	Grain Size	Light Mineral composition					Heavy Mineral composition							
			Gl	Pl	Qz	Cd	H.M	Bi	Hb	oxHb	OPX	CPX	All	Zrn	Io
SK100	Shibanomata	c.						57	1		34				8
		m.						67	1		26				6
		f.	78	16	1		5	75	2		17		1	1	4
		v.f.	52	44	1		3	23	2	4	29		10	1	30

Ash Layer Name	Sampling Locality	Grain Size	Light Mineral composition					Heavy Mineral composition							
			Gl	Pl	Qz	Cd	H.M	Bi	Hb	oxHb	OPX	CPX	All	Zrn	Io
SK110	Shibanomata	c.						85			12				3
		m.						97			3				6
		f.	91	6			3	50	2		15			1	32
		v.f.	87	11			2	5	7		8			3	77

m.: medium, f.: fine, v.f.: very fine, Gl: volcanic glass, Pl: Plagioclase, Qz: Quartz, Cd: Cordirite

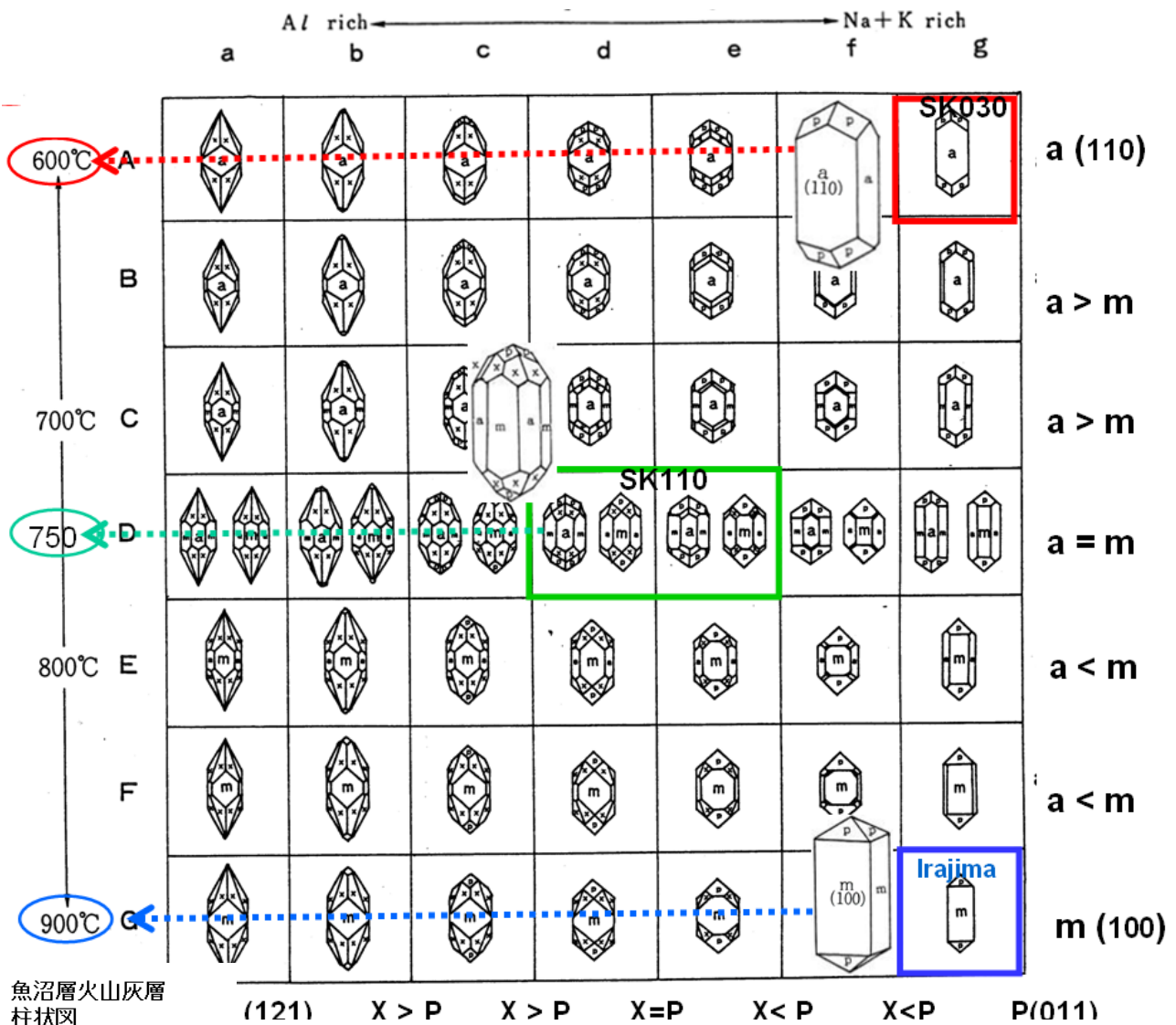
Bi: Biotite, Hb: Hornblende, oxHb: Oxhornblende, Cm: Cummingtonite, OpX: Orthopyroxene, Cpx: Clinopyroxene

Zrn: zircon, Ap: Apatite, Io: Ilmenite, All: Allanite

(黒川(1983)参照)



・ 魚沼層の3火山灰層中ジルコンの結晶形態図と形成温度



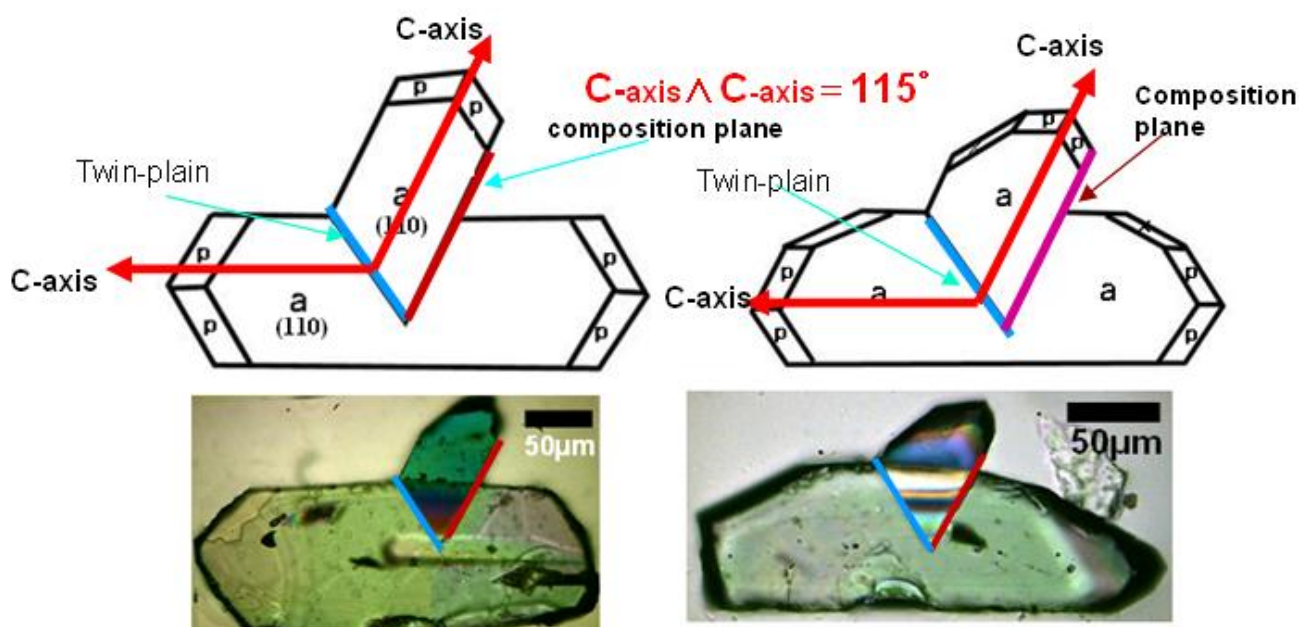
魚沼層火山灰層  
柱状図

Age (ma)	Tuff Name
100	Irajima
100	SK030
200	SK110

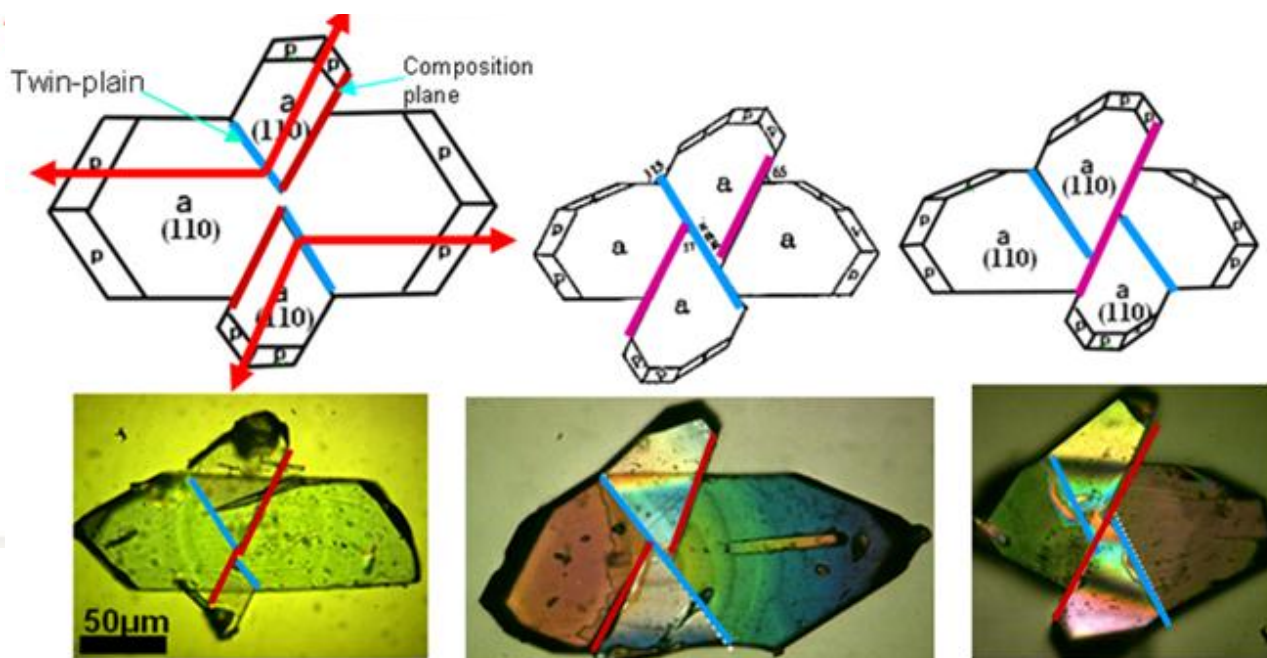
マグマの温度と化学成分による形状の変化(Pupin(1980)に一部加筆)

Pupin(1980)によるとジルコンの結晶形態はマグマの温度と化学成分によって違うことが指摘された。このことは逆に形態が分かると形成マグマの温度が推定されることを意味している。

## ・ ジルコンのクサビ I 型貫入双晶



## ・ クサビ II 型貫入双晶



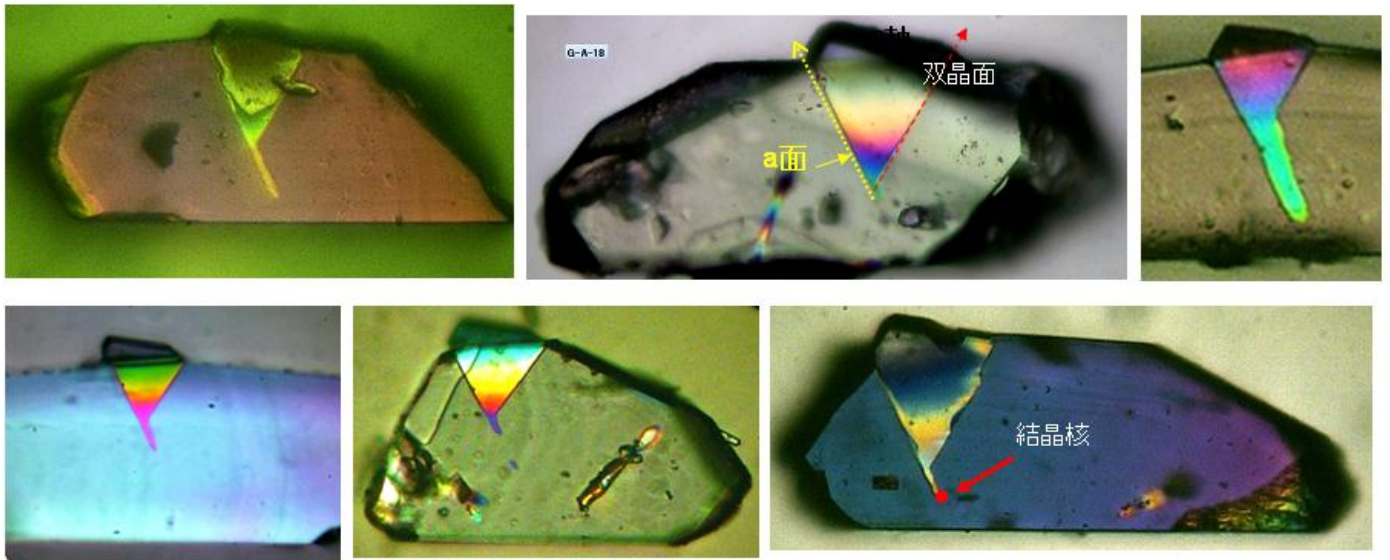
### クサビ型貫入双晶 (WedgeTwin)

一つの結晶に別の結晶がc軸が互いに  $115^\circ$  の状態でクサビ状に貫入したように見える双晶である。・クサビ型双晶には貫入した結晶が一つのものクサビ I 型と二つのものクサビ II 型がある

## ・クサビ型貫入双晶にみられる特異な形態

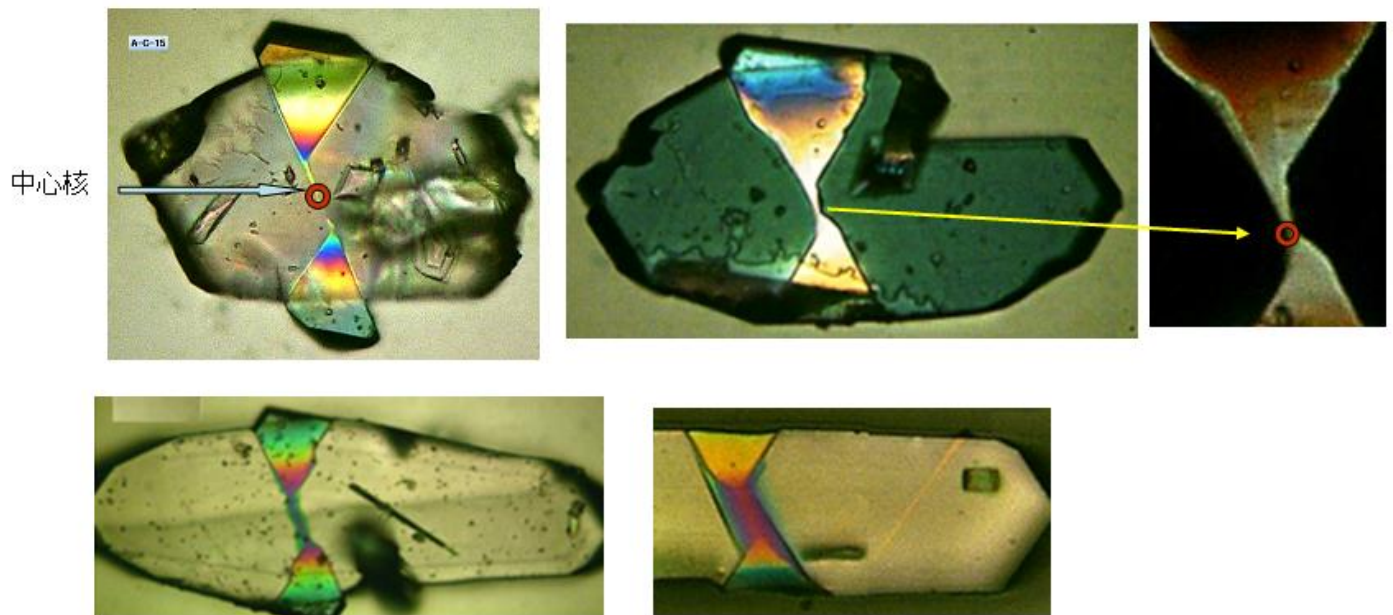
### クサビⅠ型双晶に見られる「尾」

- ・「尾」は挿入している結晶のC軸方向でa面{110}である結晶面に伸びている。
- ・尾の先端は干渉色からみて非常に細くなっている。おそらく先端に結晶核があると思われる。



### クサビⅡ型双晶での「尾」ー尾がつながっているー

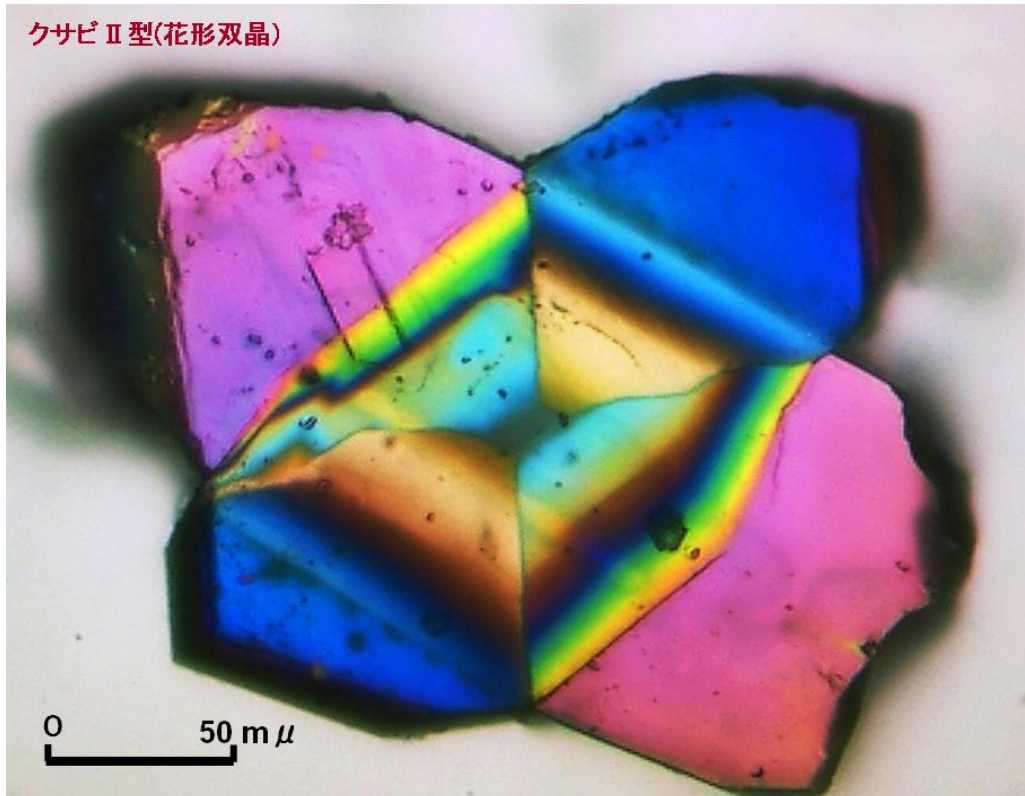
- ・挿入している両方の結晶は結晶核を中心に両方向（c軸）に成長し、線対称の関係にあると考えられる。





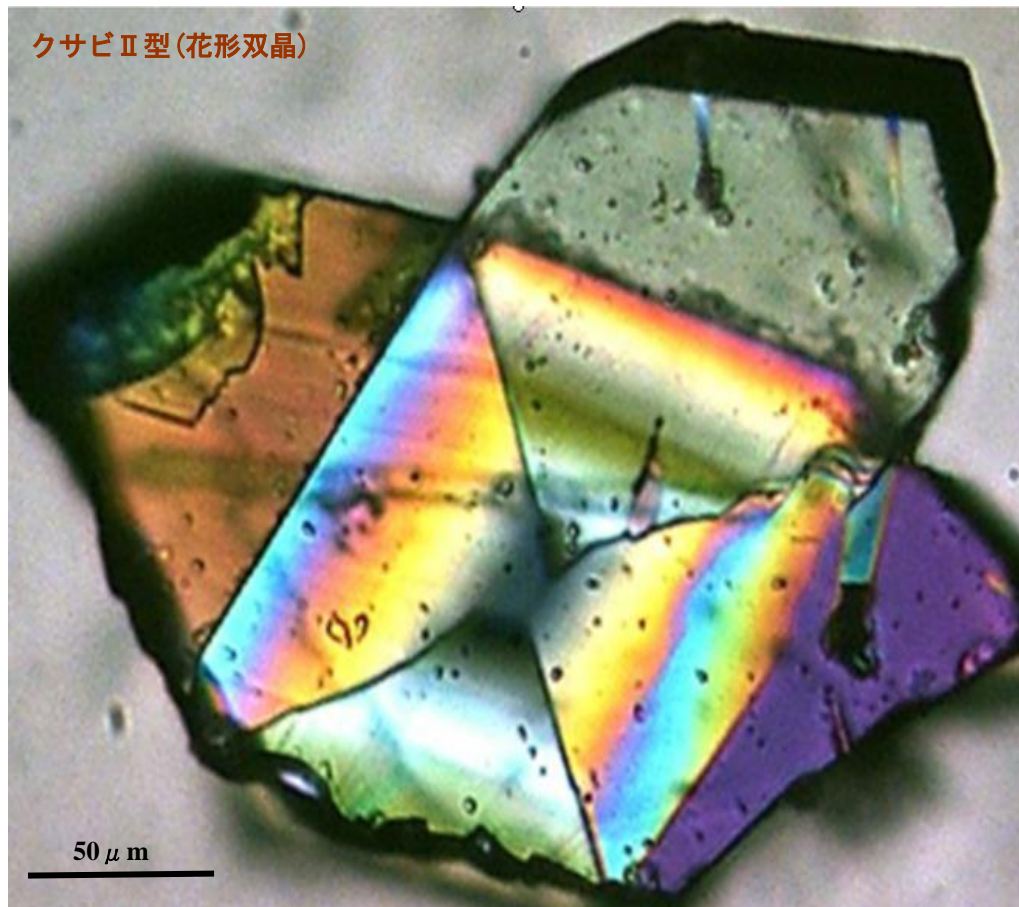
・ 特異な形態のクサビⅡ型貫入双晶

クサビⅡ型(花形双晶)



中心部で干渉色が黒っぽく見えるのは中心部ほど薄くなっていると  
考えられる。

クサビⅡ型(花形双晶)

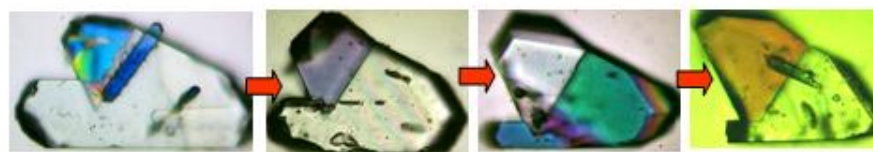


## ・クサビ型貫入双晶の形態的变化

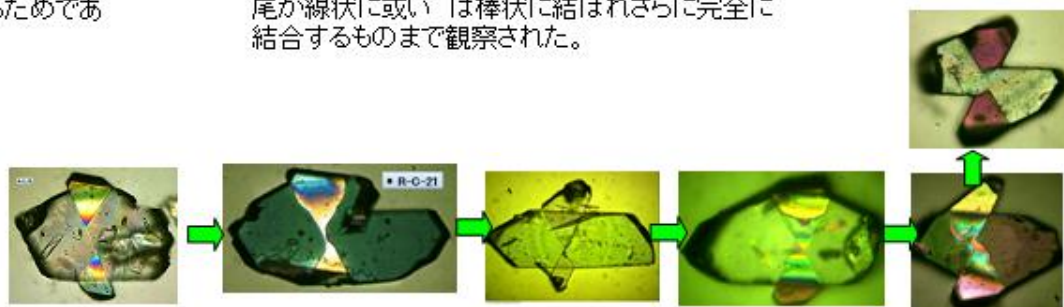
・クサビⅠ型 貫入した結晶が片面に大きく成長し扇状双晶に近いものへと連続的に変化が観察されてる

・クサビⅠ型及びⅡ型はそれぞれ貫入の仕方からいろいろな形状をしている。

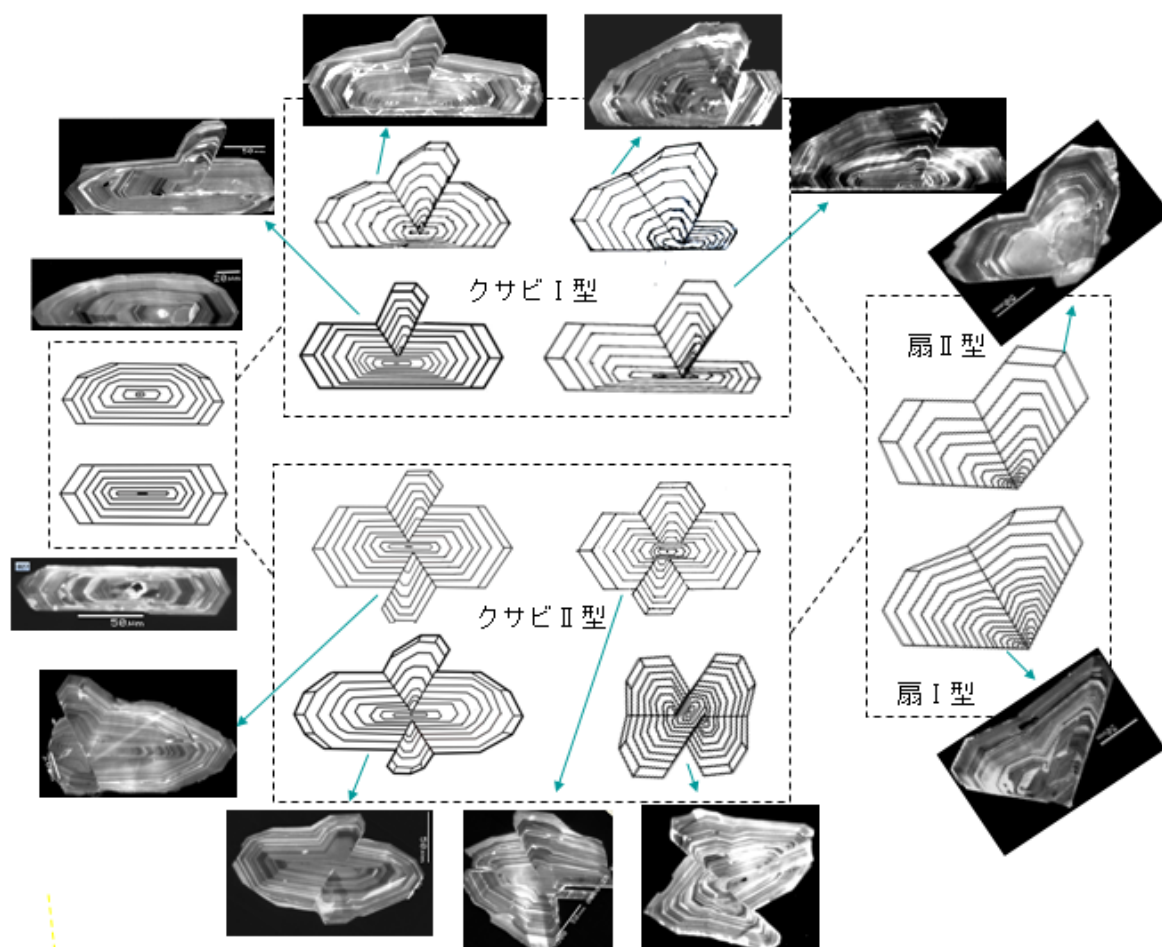
・中には両方がつながる前にパイプ状に結ばれているものも観察される。・これらいろいろな双晶が見られるのは連続的に変化をしているためであると考えられる



・クサビⅡ型 両方向からc軸方向に伸びる尾が線状に或いは棒状に結ばれさらに完全に結合するものまで観察された。



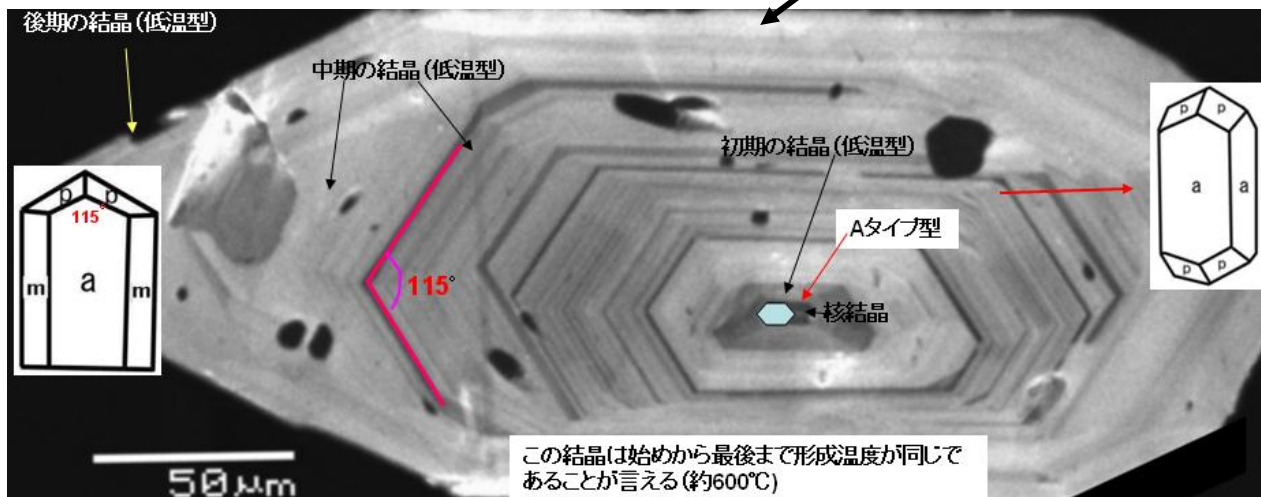
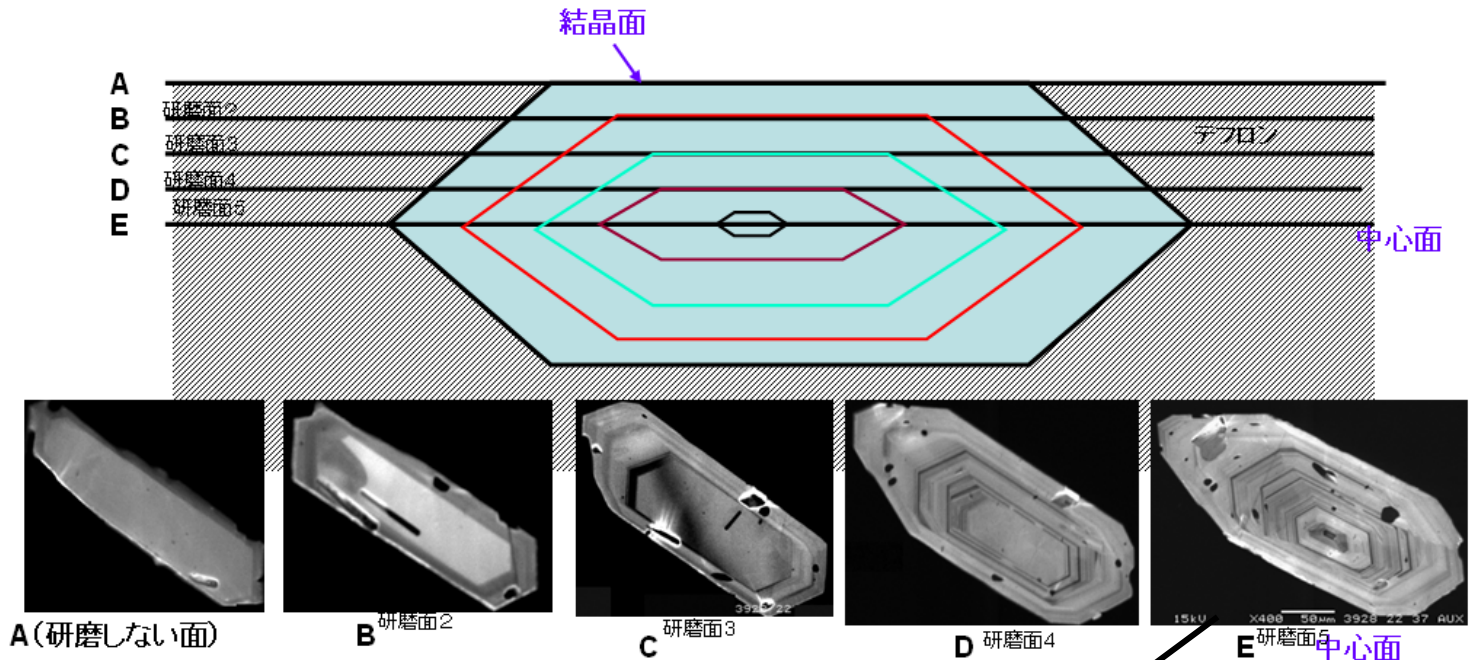
## ・ジルコンの内部形態の連続的变化図



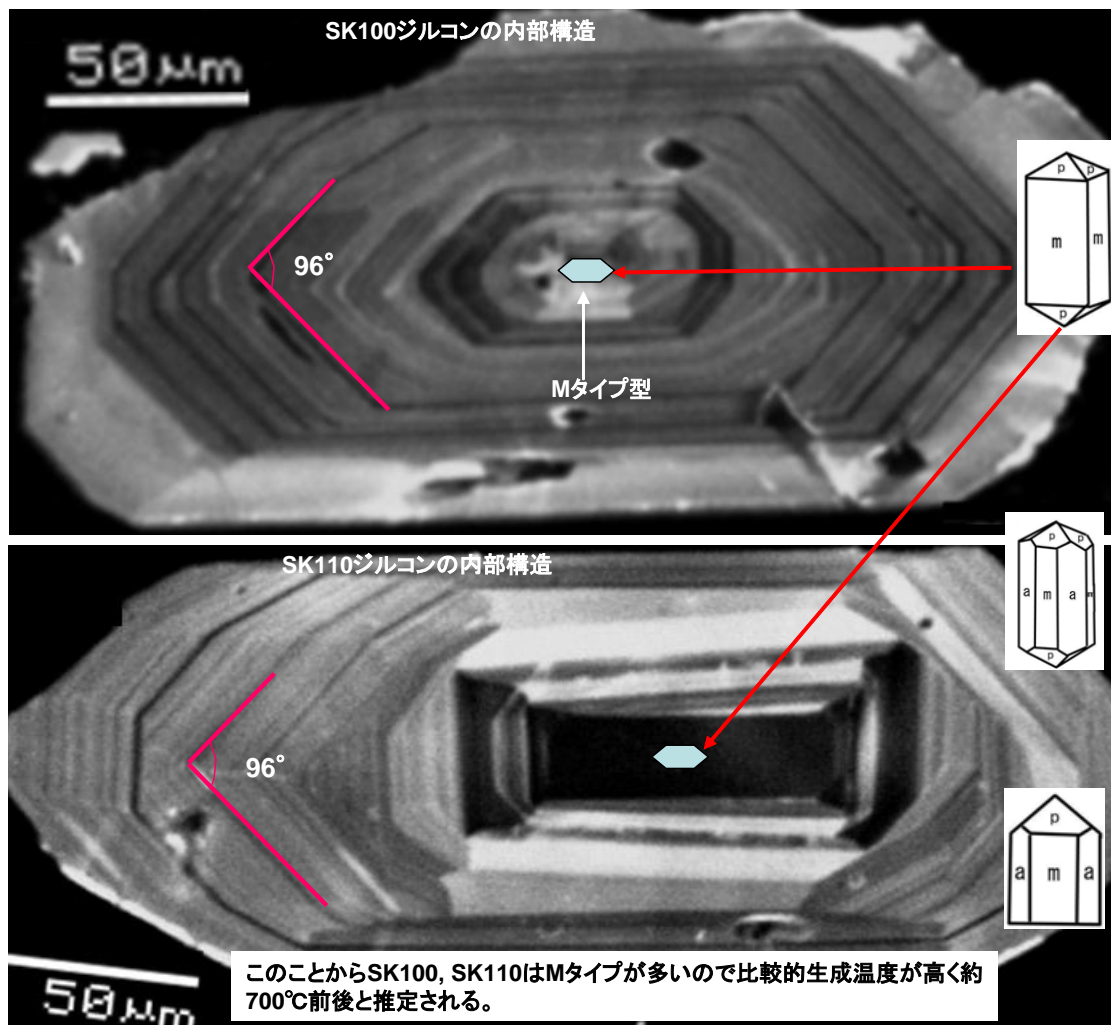


## ・ 低温タイプのジルコンの内部構造 (研磨面の CL 観察)

テフロンに埋め込んだ長柱状ジルコンを約 $5\mu\text{m}$ の厚さで研磨を繰り返し連続的**CL画像の観察**を行った。その結果, 内部の深さによって累帯構造が変化していることがわかった。



- ・ 高温タイプのジルコンの内部構造（SK100, SK110 のジルコン）

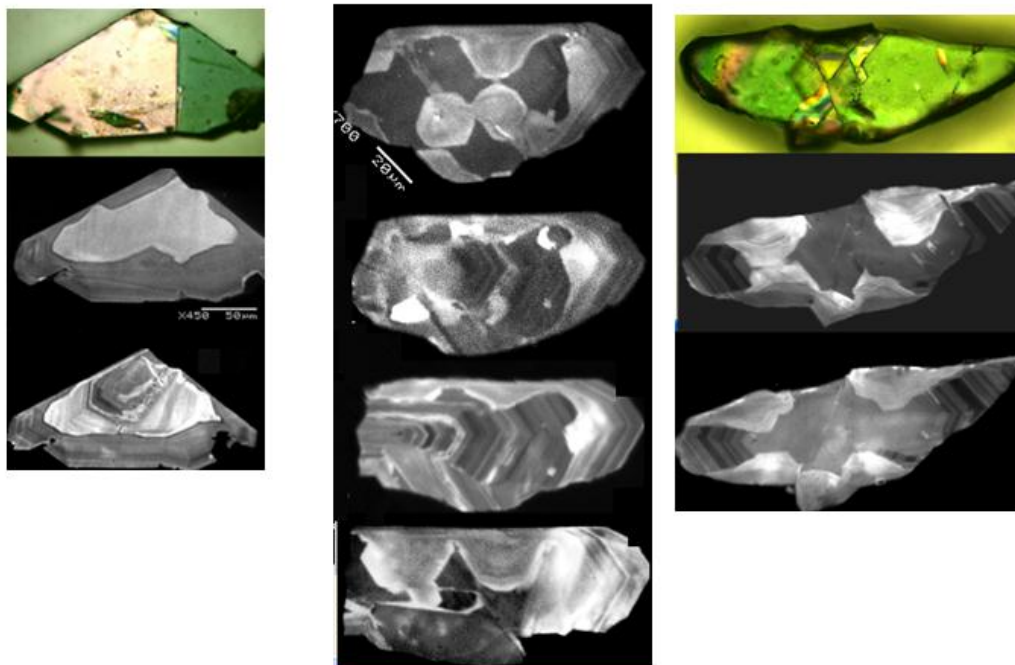


両方のジルコンは共にM面の発達した比較的高温時に形されたことが分かる

## ・ 特異な内部構造をした双晶ジルコン

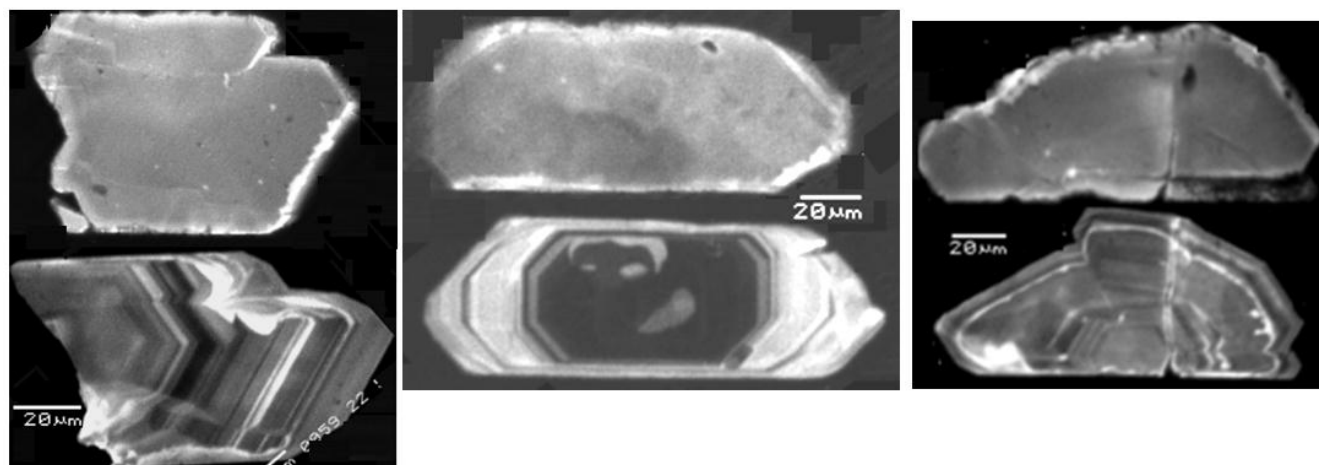
双晶の表面には累帯構造を持たない白色や黒色の層があるが、一部の双晶には平面でなく凹凸の構造をもった結晶が連続的な研磨により認められる。

双晶が先端部の中央から成長し、最後に表層部が形成されるそのとき双晶を包む結晶の表面が凹凸になり最後は平面の表層部で覆われる。



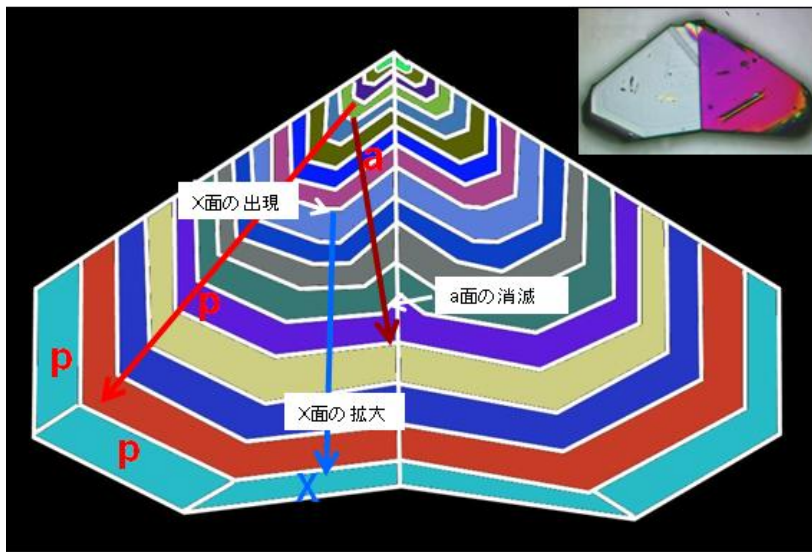
## ・ ジルコンの表層部と内部構造

双晶ジルコンの内部をCLの連続的観察により立体的な構造がわかってきた。ジルコンを全く研磨しないで表面をCLで観察すると全く累帯構造が見られない層(表層部)がある。次に表面を研磨しCLで観察すると累帯構造を示す内部構造の一部が顕れてくる。

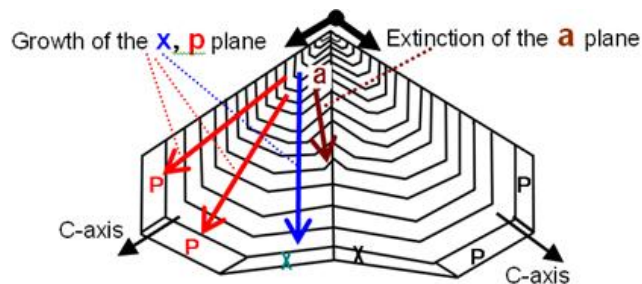




## ・扇型接触双晶（Ⅰ型）の形成過程

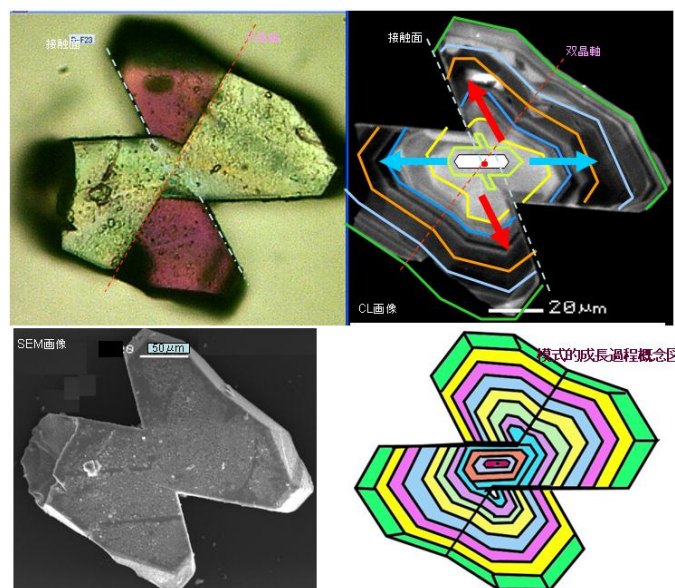


まず双晶の先端に位置するところにおそらく過飽和環境で双晶結晶核が形成される。その後、 $115^\circ$ をなす角度で二つの方向に結晶が成長し、c 軸方向に扁平状の結晶としてのび成長していく。始めは錘面として p 面からなる扇Ⅱ型であったが、その後 x 面が成長して扇Ⅰ型の結晶が形成される。

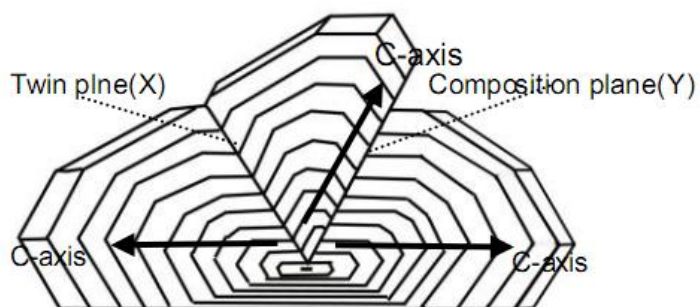
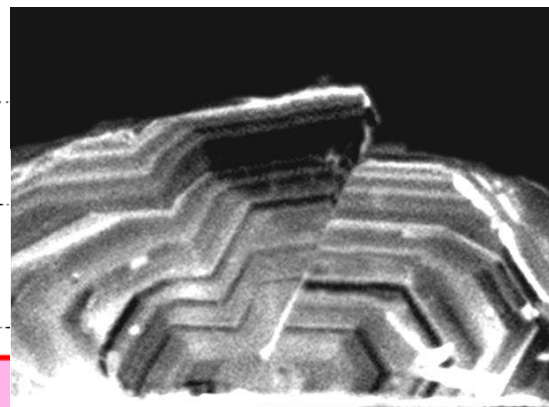
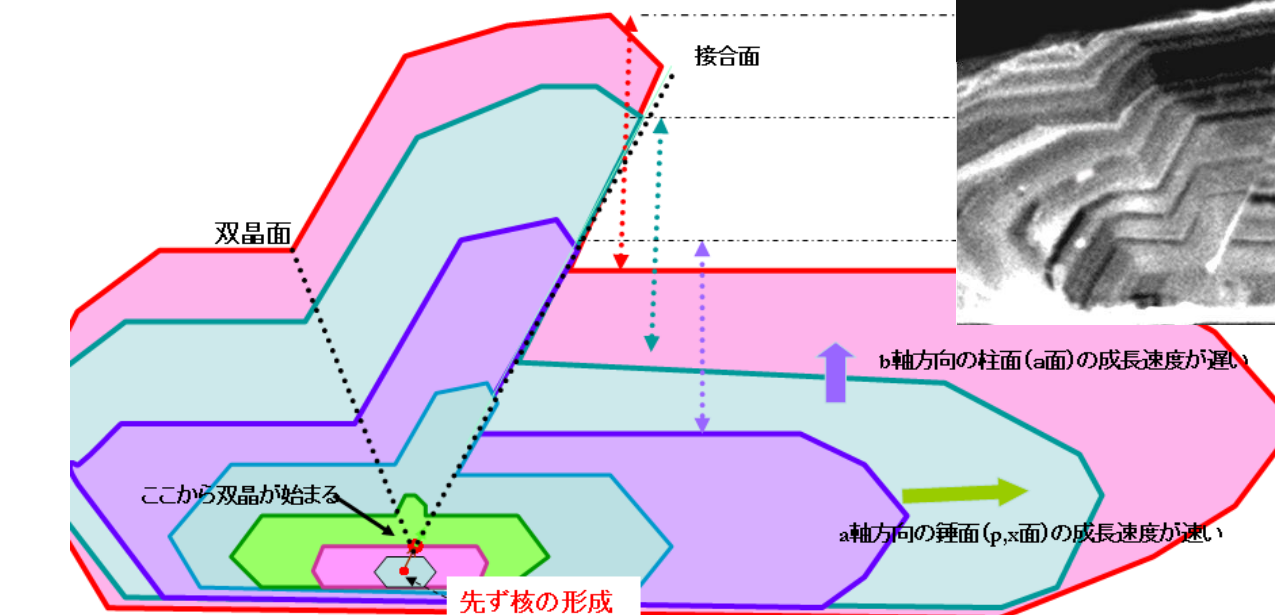


成長とともに p 面が大きくなり、x 面が発生・成長するが、a 面は途中で消えてしまう。

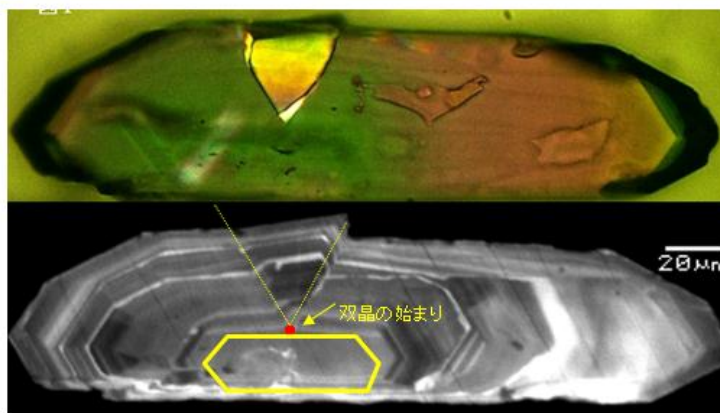
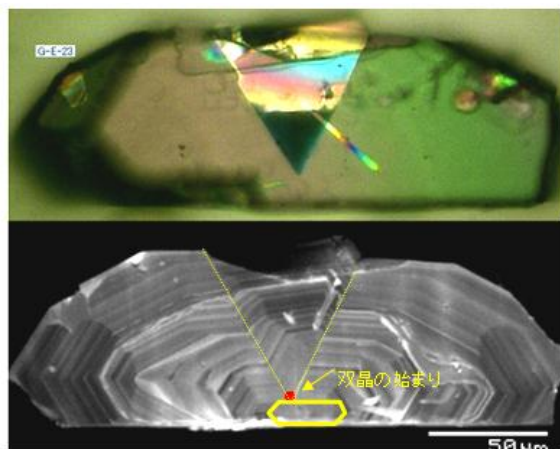
## ・蝶型クサビⅡ型貫入双晶の成長過程



## ・クサビ I 型貫入双晶の形成過程



クサビ型貫入双晶はコアにあたる中心の双晶核から結晶成長が始まり、この結晶がある大きさまで成長した段階で柱面の一点に双晶結晶核ができ主結晶に対して  $115^\circ$  傾いた方向に双晶として成長していく。これがクサビ I 型双晶である。

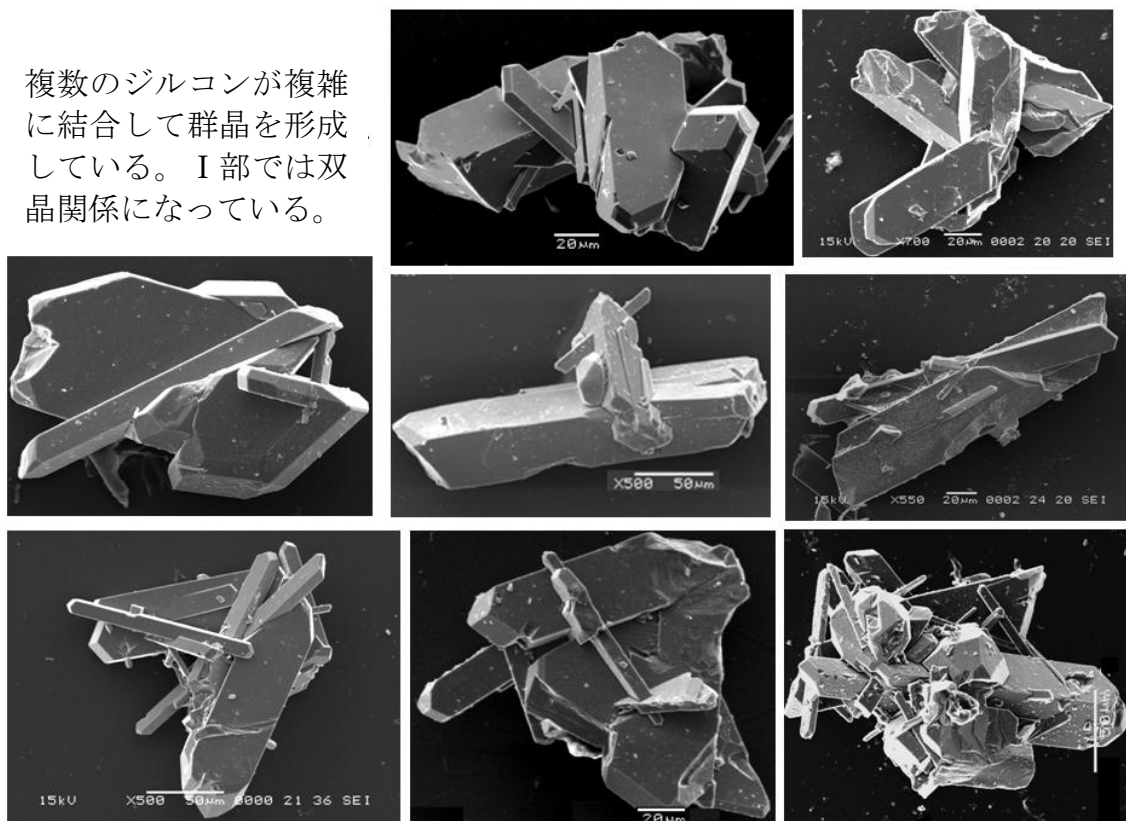


クサビ I 型貫入双晶の形成過程。上の写真は偏光顕微鏡画像,下の画像は CL 画像。



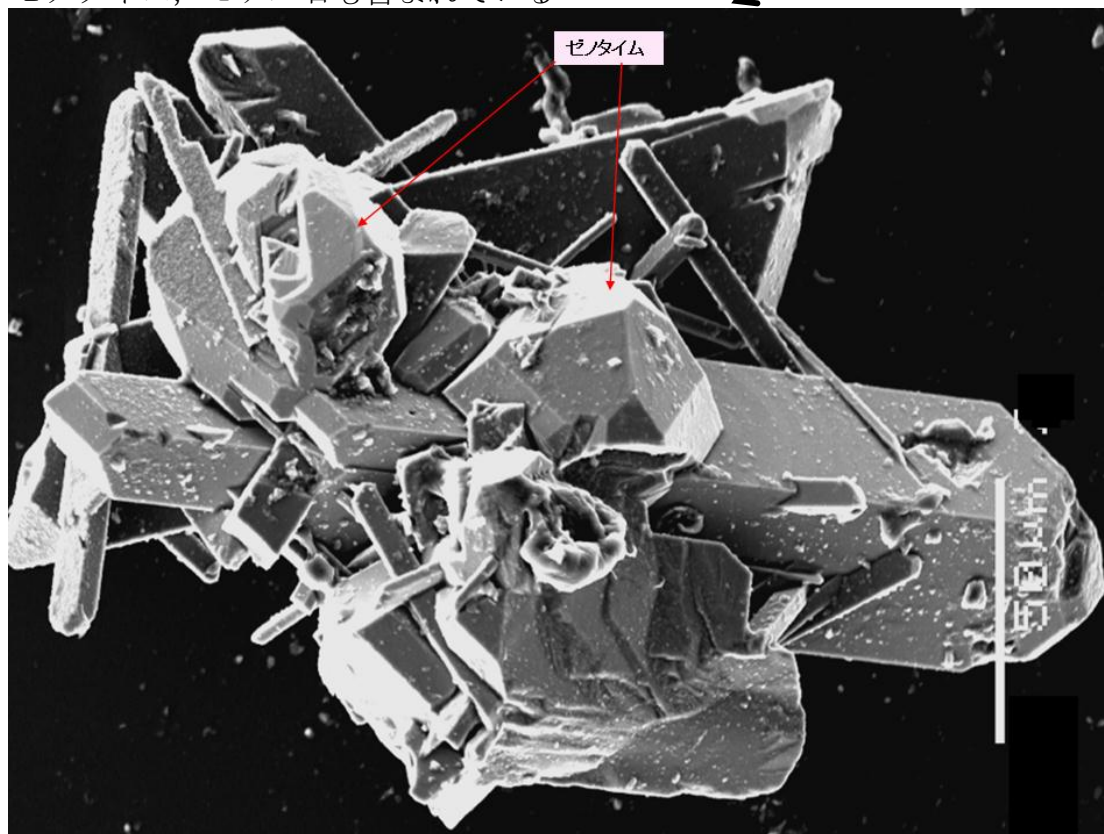
## ・ ジルコンの多結晶の集合体

複数のジルコンが複雑に結合して群晶を形成している。I 部では双晶関係になっている。



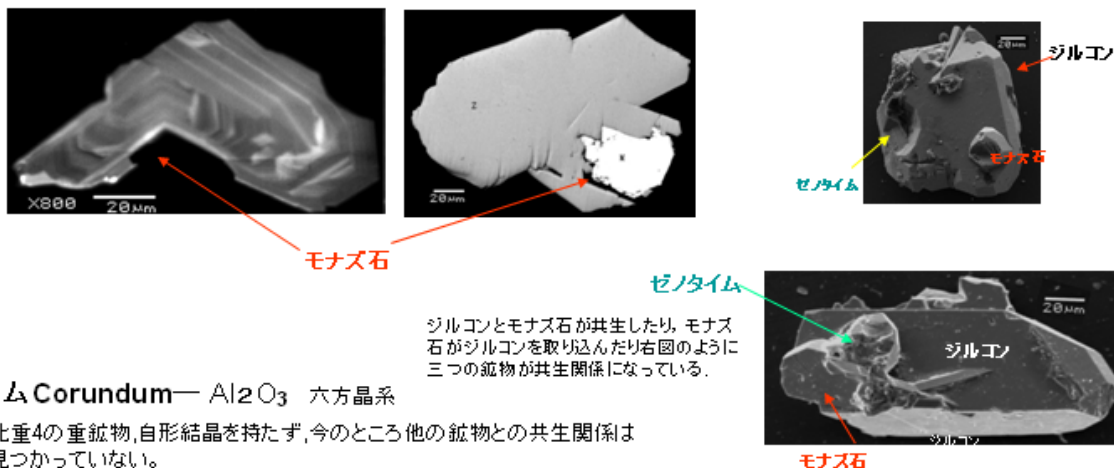
ゼノタイム，モナズ石も含まれている

拡大



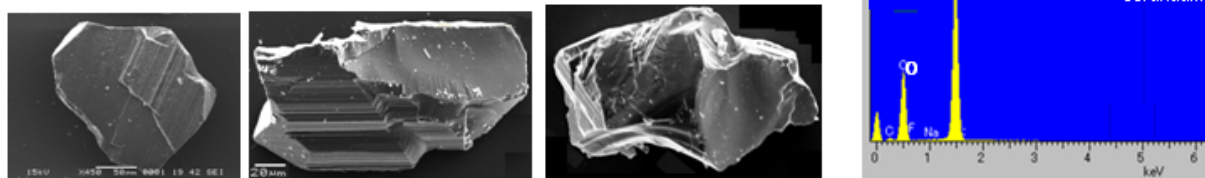
## ・ジルコン、ゼノタイム、コランダム の共生関係

ジルコンがゼノタイムを取り込む他にモナズ石を取り込んだり、逆にモナズ石の中にジルコンが入り込む場合も観察されている。このことによりジルコン、モナズ石、ゼノタイムは同一マグマより晶出したことが推察される。他にコランダムが見つかった。自形の結晶をしていないが同時期に晶出されたと考えられる。



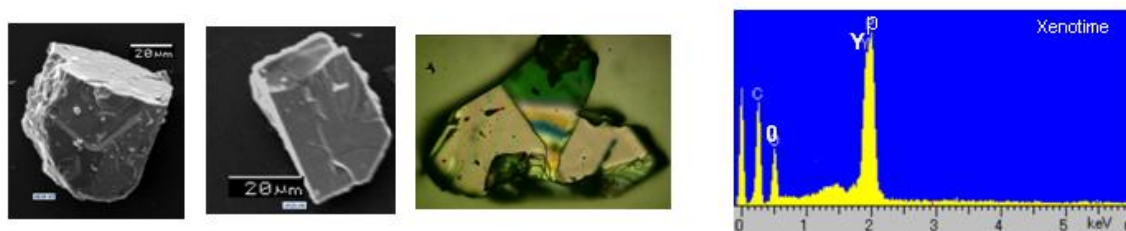
### コランダム Corundum — $\text{Al}_2\text{O}_3$ 六方晶系

比重4の重鉱物、自形結晶を持たず、今のところ他の鉱物との共生関係は見つかっていない。



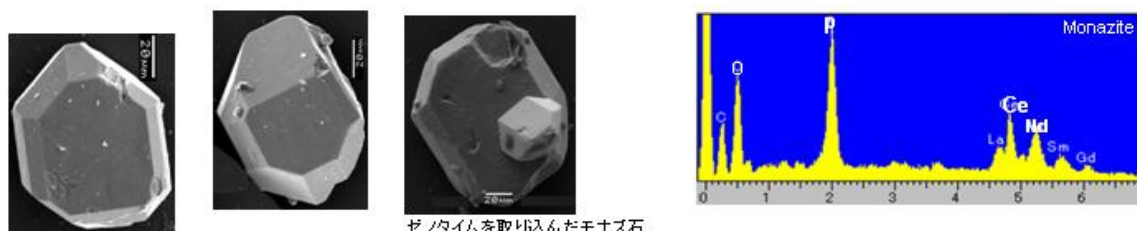
### ゼノタイム (Xenotime) — 化学式: $\text{YPO}_4$ , 斜方晶系

ゼノタイムは化学成分、結晶構造がジルコンに似ているためジルコンに入り込んで共生関係で産することが多い。SK030ではジルコンに取り込まれることが多いが、単独自形粒子として産することがある。ゼノタイム (比重4.8) やジルコン(4.7), モナズ石(5.0)は重い鉱物のためともに重鉱物として産出される。



### モナズ石 (Monazite) — 化学式: $(\text{Ce}, \text{La}, \text{Nd})\text{PO}_4$ , 単斜晶系

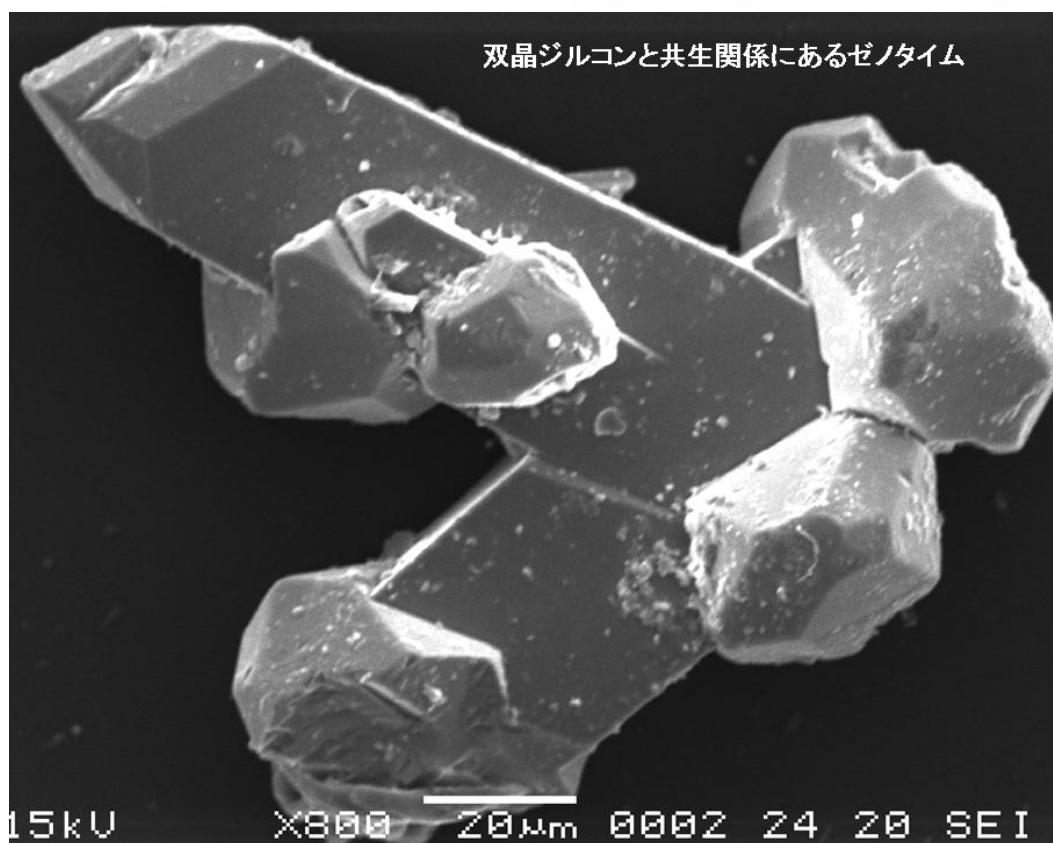
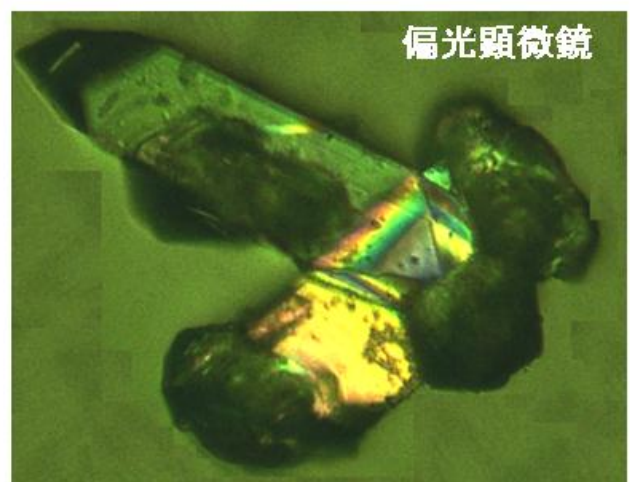
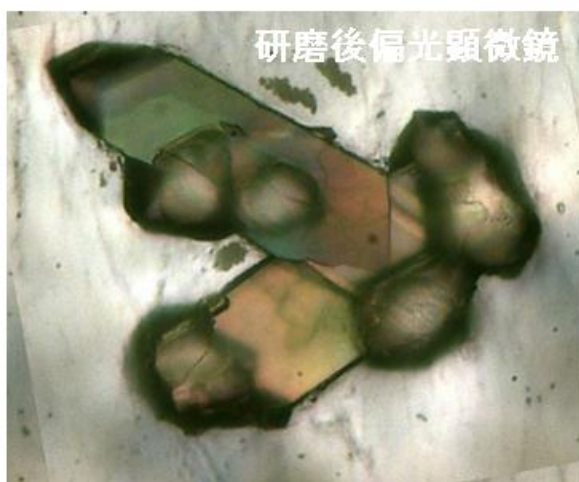
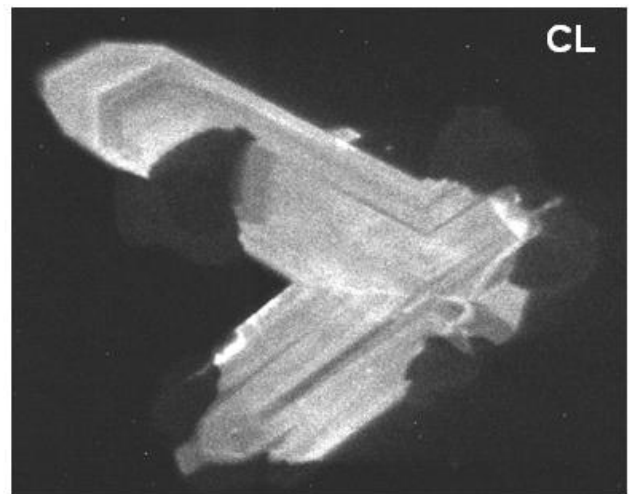
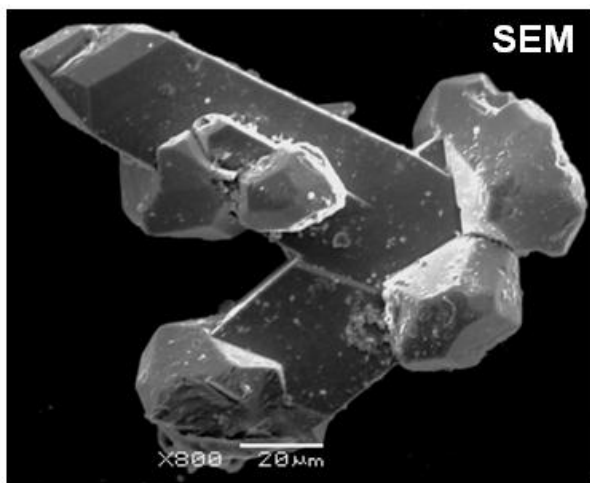
モナズ石はジルコンと結晶構造がわずかに異なるため、単独の自形結晶として見いだされる。希にジルコンやゼノタイムと共生関係になっている結晶も見いだされた。



ゼノタイムを取り込んだモナズ石



・ ジルコンとゼノタイムの共生関係を示す画像





## ・ジルコン、モナズ石、ゼノタイム、コランダム化学組成分析

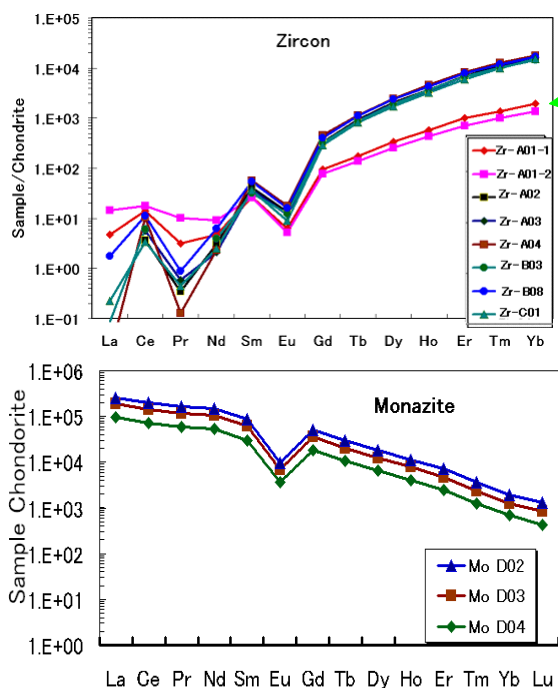
zircon				monazite			xenotime		corundum	
sp.no.	Z-01	Z-02	Z-08	sp.no.	M-03	M-08	sp.no.	X-17	sp.no.	C-11
(wt.%)										
		(ZrSiO <sub>4</sub> )								
SiO <sub>2</sub>	28.27	28.42	26.96	SiO <sub>2</sub>	1.70	1.36	SiO <sub>2</sub>	1.17	SiO <sub>2</sub>	0.11
ZrO <sub>2</sub>	69.05	67.32	66.59	P <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	28.88	24.27	P <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	27.61	P <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.12
HfO <sub>2</sub>	1.57	1.78	2.79	YO <sub>2</sub>	7.69	5.75	YO <sub>2</sub>	63.43	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	98.28
YO <sub>2</sub>	0.18	0.38	1.35	CeO <sub>2</sub>	27.97	31.54	CeO <sub>2</sub>	0.03	Na <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.49
ScO <sub>2</sub>	nd	0.16	0.18	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	11.44	13.51	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.94	K <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.43
Yb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	nd	0.38	0.54	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5.96	7.16	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.13	CaO	0.21
Er <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	nd	0.25	0.34	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.12	5.36	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.80	MgO	0.24
P <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.27	1.04	1.04	Pr <sub>6</sub> O <sub>11</sub>	4.03	4.85	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.12	FeO	0.12
Na <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.34	0.49	0.23	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.35	2.65	Yb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.30	TiO <sub>2</sub>	0.10
CaO	0.17	0.24	0.11	Dy <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.83	3.03	HfO <sub>2</sub>	0.88	*	*
UO <sub>2</sub>	nd	0.01	0.02	ThO <sub>2</sub>	2.01	1.42	*	*	*	*
Total	99.85	100.47	100.15		99.98	100.90		99.41		100.10

ジルコン、モナズ石はEPMAで、ゼノタイム、コランダムはSEM-EDSで分析した。

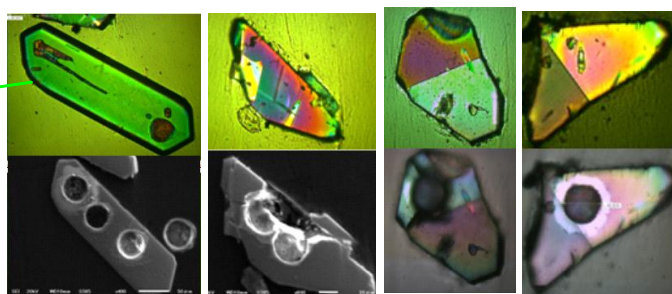
## ・ジルコン及びモナズ石の微量元素分析

(希土類元素など微量元素の含有量をICP質量分析装置(LA-ICP-MS)による分析を行った)

### ・SK030のジルコン(7粒子)及びモナズ石(3粒子)のREEパターン分析を行った

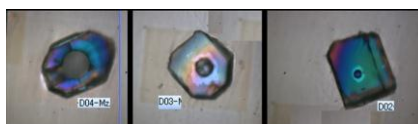
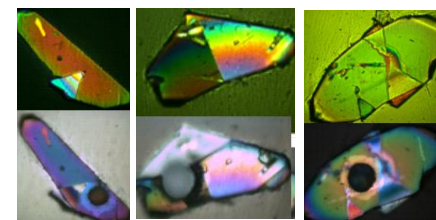


ジルコン、モナズ石のコンドライトで規格化したREEパターン



分析したジルコン、モナズ石。

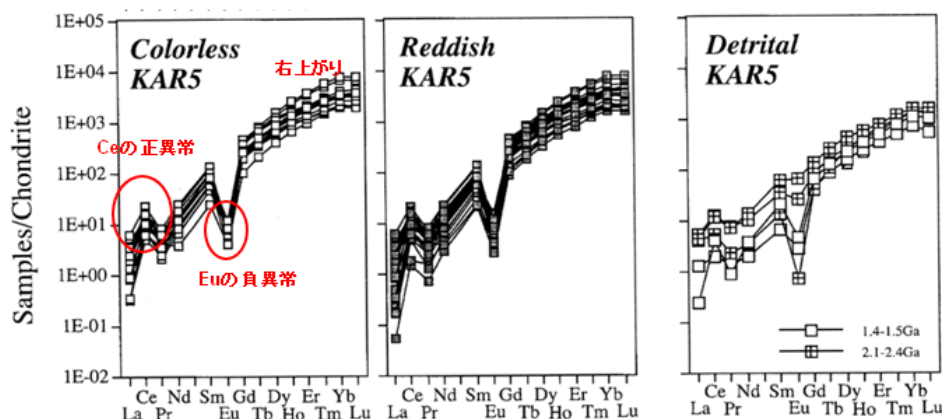
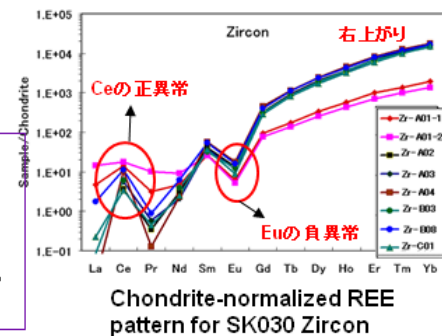
セットになっている画像で上はレーザー照射前、下は照射後の偏光顕微鏡画。ジルコンでA01は長柱状ジルコンで他は双晶ジルコン。



下の3枚の写真はモナズ石のレーザー照射後の画像

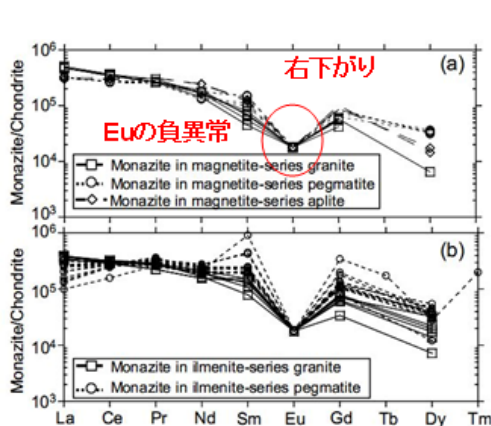
## ・SK030 ジルコン及びモナズ石のコンドライトでも規格そた REE パターン図

- ・**ジルコン**のコンドライトで規格化したREEパターンが**右上がり**で顕著な**Ceの正異常**と**Euの負異常**をしめす。これは、**珪長質火成岩類**のジルコンのに見られる特徴である。
- ・図の中の**A01-1,2**だけが他の双晶ジルコンと異なった分布が見られるが、この原因が双晶と非双晶の違いかどうか今のところ不明である。



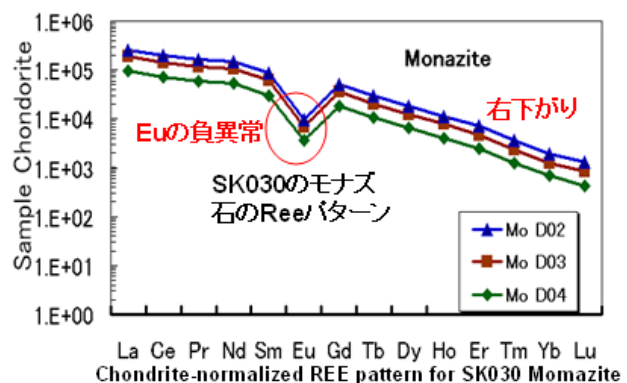
紀伊半島熊野酸性岩類に含まれるジルコンのコンドライトで規格化したREEパターン図(Orihashi.et.al(2007))

## ・SK030に含まれるモナズ石のコンドライトで規格化したREEパターン



The chondrite-normalized REE patterns of monazites: (a) monazite in magnetite-series granitic rocks; (b) monazite in ilmenite-series granitic rocks.

( Hoshino(2009)による日本国内の花崗岩のモナズ石の希土類分析より)



モナズ石のコンドライトで規格化したREEパターンでジルコンとは反対に右下がりが見られる。さらに**Euの負異常**をしめす。これも、**珪長質火成岩類**のモナズ石のに見られる特徴である。

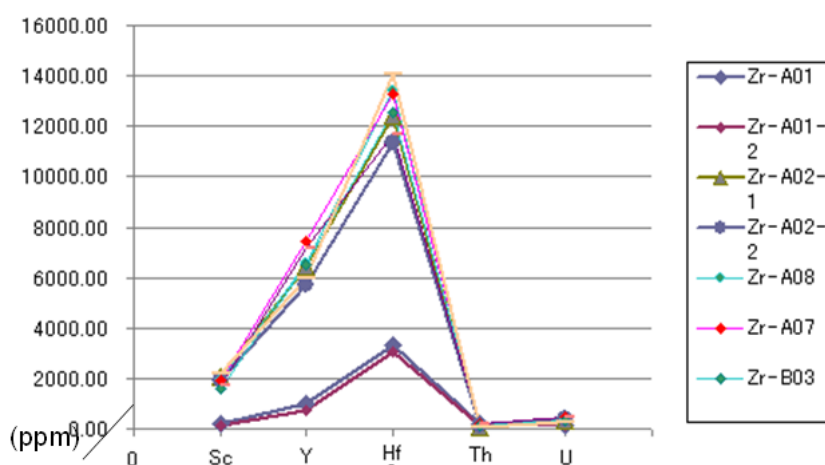
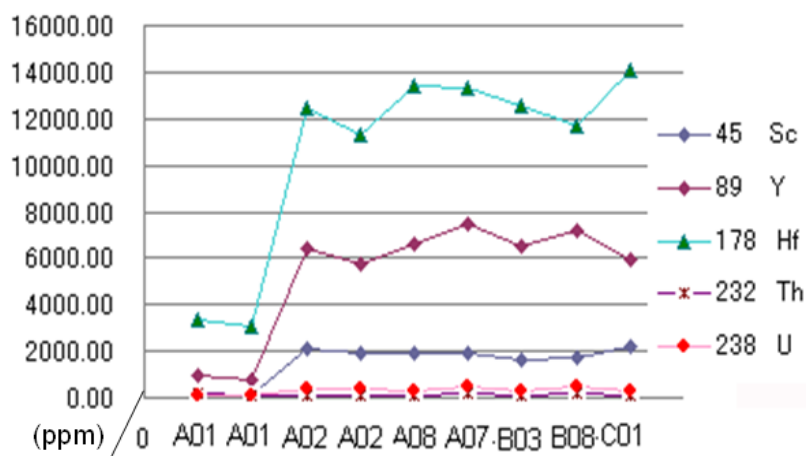
・SK030を供給する火山岩はジルコンの希土類元素分析とPupim(1980)が示す形状から約600°Cの酸性質マグマと予想される。SK030には双晶ジルコンの他に、他の火山灰層に見られない堇青石、モナズ石、ゼノタイム、コランダムなどを含むことより、供給マグマは特異なものと予想される。

・ジルコンに含まれる希元素 (Sc, Y, Hf, Th, U) の含有量 (単位は ppm)

サンプル名	Zr-A01	Zr-A01-2	Zr-A02-1	Zr-A02-2	Zr-A08	Zr-A07	Zr-B03	Zr-B08	Zr-C01
45 Sc	190.09	138.41	2076.10	1940.07	1919.31	1893.61	1591.70	1755.85	2172.93
89 Y	987.97	733.61	6454.90	5735.75	6586.74	7460.84	6512.20	7157.99	5971.26
178 Hf	3324.34	3086.92	12440.62	11324.60	13386.85	13285.59	12519.34	11664.43	14076.50
232 Th	183.43	140.85	93.33	139.64	115.96	219.16	138.12	203.28	82.32
238 U	136.75	111.73	335.66	422.91	327.90	471.92	322.56	435.63	288.51
Th/U	1.34	1.26	0.28	0.33	0.35	0.46	0.43	0.47	0.29

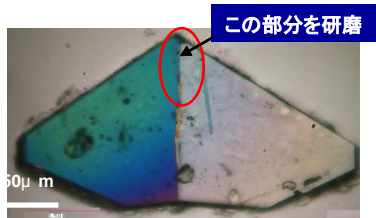
Th/Uの比が0.09以上であれば火成岩起源とされる。(Rubotto and Hermann,2003) 紀伊半島熊野酸性岩類に含まれるジルコンのTh/Uが0.36((Orihashi.et.al,2007)とされており, SK030のジルコンのデータとほぼ一致している。)

希元素 (Sc, Y, Hf, Th, U) の含有量とジルコン各資料との関係図 (上の図は各元素の含有量の多い順を示し, 下の図は元素別の多い順を示している。図中 2 試料が大きく異なることが分かる。)

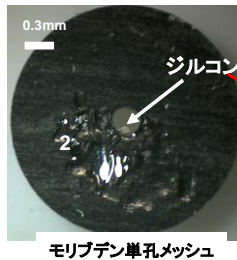


## ・双晶ジルコンの高分解能電子顕微鏡による双晶面の解析

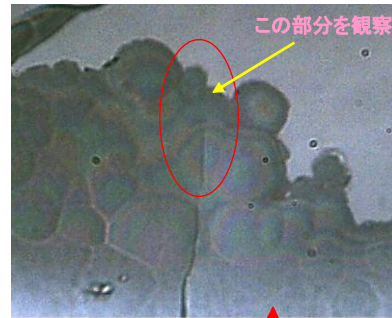
双晶ジルコンの双晶構造を調べるため双晶重鉍物をモリブデン単孔メッシュ2枚に挟みイオン研磨機で非常に薄くしHRTEMで観察し原子配列から双晶構造を調べた。



扇型双晶の先端部をイオン研磨する



モリブデン単孔メッシュ

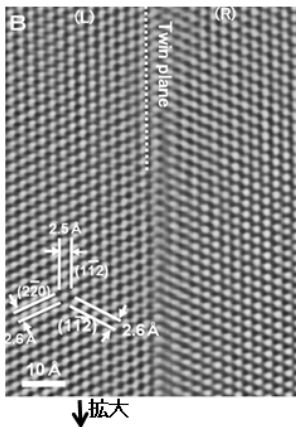


双晶ジルコンをイオン研磨機で両面から研磨し数 $\mu\text{m}$ 迄非常に薄くしHRTEMで観察した。双晶面は直線にならず少し曲がっている。

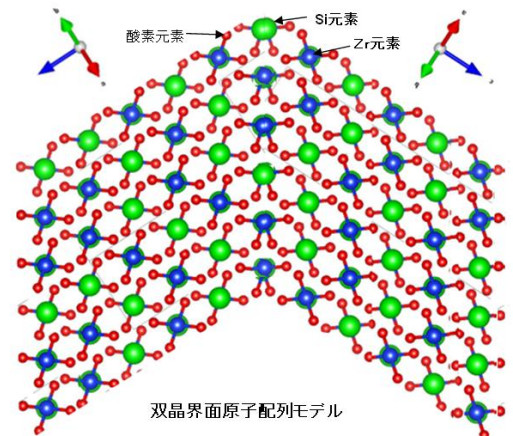
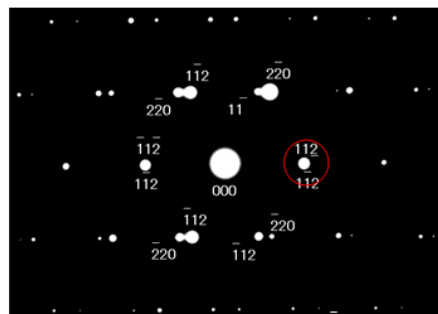


約2時間づつイオン研磨していく

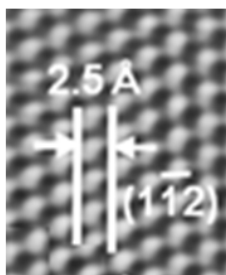
## ・双晶面の決定



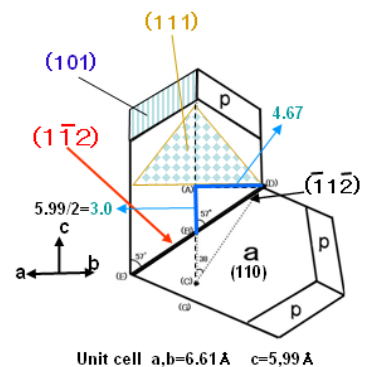
↓拡大



双晶界面原子配列モデル



HRTEM画像と電子回折パターン及び逆格子解析の分析によると、格子像で $d_{112}=2.52\text{Å}$ であり、従来言われてきた(101)面、(111)面に対する $d_{101}=4.43\text{Å}$ 、 $d_{111}=3.75\text{Å}$ とは明らかに異なり、結晶構造的には双晶面が $(1\bar{1}2)$ である事が確認された。また結晶形態学からの同じ事が言える。



Unit cell  $a, b=6.61\text{Å}$   $c=5.99\text{Å}$



## ・ SK030 の供給源（他地域との対比）

・水上町武尊山北側山麓の**タキガ沢**には、武尊火山の活動によって形成された湖に堆積した厚いタキガ沢層が見られる。その中部に厚さ2mの火山灰層があり新潟のSK030の類似している。さらに**高崎市石原町**、**安中市野殿**の火山灰層と同じ物とみられている。これらの火砕流堆積物はSK030に類似しており、重鉱物を調べた結果SK030と全く同じ鉱物（堇青石、カミングトン閃石、双晶ジルコン、モナズ石、ゼノタイム、コランダムなど）が見つかり、**SK030相当層**と考えられる。



時代	層序	柱状図	鍵層	層厚
第四紀更新世	香妻		CA	5m
	U-M層			
	上部			20m
	野殿中部		クレンザー軽石質火山灰層	← 40万年前の火山灰層
	下部		火砕流堆積物の礫を含む泥流	← 30m
	最下部		根小屋ヌカタノ軽石	5m+
後期中新世	板鼻果層		館凝灰岩	100m+

高崎市地域の地質柱状図(1998:中村ほか)

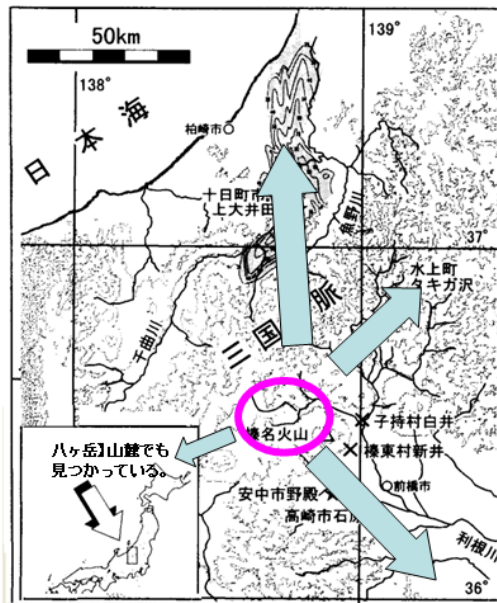


タキガ沢にある SK030 相当層の堇青石火砕流堆積層の露頭写真



同層のパミス質火山灰層の拡大露頭写真

## ・ SK030 の供給火山源の推定

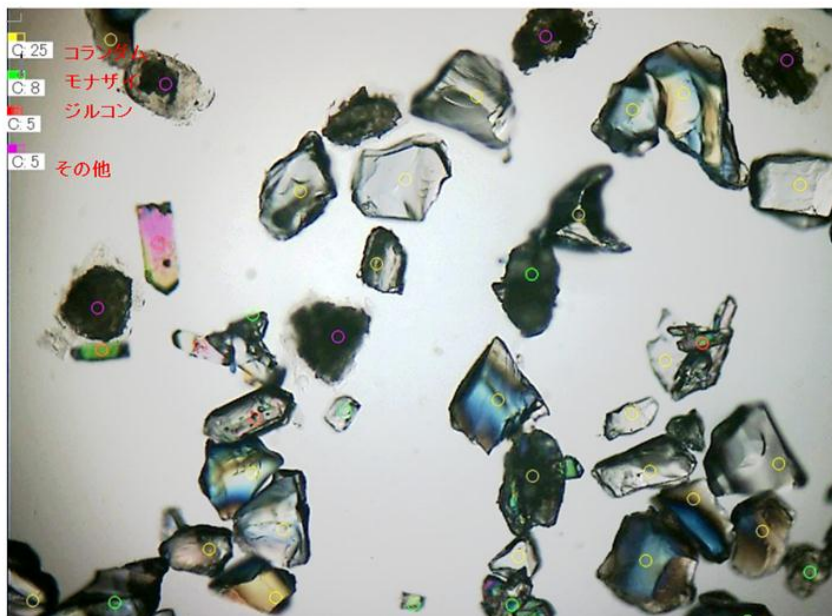


タキガ沢、高崎市石原町、安中市野殿の3箇所からSK030と同じ鉱物が見つかりSK030と対比される。

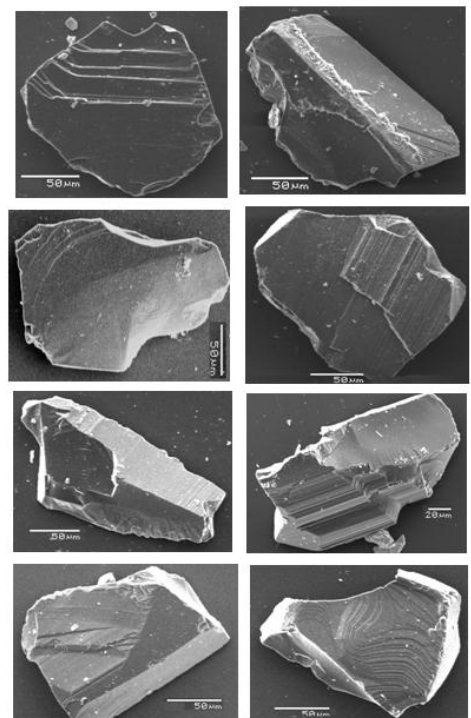
堇青石、カミングトン閃石の他にジルコンの双晶やモナズ石、ゼノタイムとの共生関係などの特性やコランダムを多く含むことなどすべてが共通しており同一の火山灰層であることが確かめられた。

新潟のSK030と群馬の含堇青石火砕流堆積物は、現在榛名山付近を起源とする約110万年前の陸上火山による大規模火砕流による火山噴出物であることが考えられる。

タキガ沢からコランダムが異状に多く見出された



重鉱物試料をスライドガラス上に適量にまいて鉱物の種類別にカウント。コランダムが多いことがわかる



コランダムのSEM画像