

四国領家及び広島花崗岩ペグマタイト産褐簾石の化学的特徴

皆川鉄雄・船越謙生・森岡北水

Chemical properties of allanite from the Ryoke and Hiroshima granite pegmatites in Shikoku, Japan

Tetsuo Minakawa, Norihiro Funakoshi and Hokusui Morioka

Abstract

Allanite is one of the most common REE minerals in the Ryoke and Hiroshima granite pegmatites. It generally occurs as prismatic crystal up to 20cm in length to tabular masses in the contact zone of ferro-biotite and feldspar. The wide variation in chemical composition of allanite from the Ryoke and Hiroshima granite pegmatites are observed. Chemical analysis by EDS identified allanite-Ce, allanite-Y and allanite-Nd. In allanite from the Ryoke granite pegmatite, the major rare earth elements generally vary between 2 and 6 wt% Y_2O_3 , 4 and 5.5 wt% Ce_2O_3 , 3 and 6 wt% Nd_2O_3 , 1 and 2 wt% La_2O_3 , and in allanite from the Hiroshima granite pegmatite, 1 and 3 wt% Y_2O_3 , 5 and 7 wt% Ce_2O_3 , 2 and 3 wt% La_2O_3 , 2 and 5 wt% Nd_2O_3 . The contents of REE for allanite in granite and syenite are 0 and 1.5 wt% Y_2O_3 , 5 and 7 wt% Ce_2O_3 , 2 and 3 wt% La_2O_3 , 2 and 3 wt% Nd_2O_3 . In all allanite, the maximum Th content is 4.99 wt% ThO_2 , Ca contents vary between 4 and 10 wt%, Mn contents is 1 and 5 wt% MnO . Allanite in the Ryoke granite pegmatite are characterized by high contents of Y and Nd than those in the Hiroshima granite pegmatite and accessory allanite in syenite and granite. La and Ce are rich in accessory allanite from the Hiroshima granite pegmatite and Matuyama granite.

Secondary minerals such as rhabdophane-Nd, monazite-Nd, calkingsite-Ce, lanthanite-Nd, thorite, bastnäsite-Y, bastnäsite-Ce, synchysite-Ce, Fe-chlorite, halloysite and pyrite are found as white to dark green massive aggregates, crusts, veins and pseudomorphs after allanite. Those minerals are formed by weathering and hydrothermal alteration such as carbonatization, phospatization and hydrolysis.

は じ め に

花崗岩及び花崗岩質ペグマタイトを構成する主要希土類鉱物として知られる allanite は, $A_1A_2M_1M_2M_3(SiO_4)(O, OH)(OH, F)$ の化学式を持つ epidote 族鉱物であり, A_1 は Ca, A_2 サイトは Ce, La, Y, Nd などの REE によって占有されている。

Allanite-(Ce) が最も多く記載されているが, allanite-(La) や allanite-(Y) の産出も報告されており, allanite は複雑な REE 比を持つことが明らかになっている (Dana's new mineralogy, 1997)。Allanite は各種岩石, 鉱床の副成分鉱物として広く生成しており, これらの化学的特徴の検討は母岩の生成条件を解明する上で重要である。本邦産 allanite の鉱物学的検討は阿武隈花崗岩 (石原, 1896) や大文字山花崗岩 (Hiki, 1903) 中に副成分鉱物として含有されている自形結晶に対し初めて行

愛媛大学理学部地球科学教室

* 研究当時愛媛大学地球科学科学生

** 研究当時愛媛大学地球科学科前期博士課程

われた。その後、現在までペグマタイト産 allanite を中心に勢力的な研究が行われている。例えば、長島・長島 (1960) の allanite の産状についての記載や、Hasegawa (1957) の本邦の主要な花崗岩質ペグマタイト産 allanite の化学的特徴の総括、そして Hata (1939) の本邦産 allanite 変質物についての研究などが挙げられる。西南日本内帯花崗岩体中のペグマタイトにおいても allanite が普遍的に伴われる。四国の領家花崗岩の新期岩体や広島岩体には、allanite を多産した立岩、金山、坂口、馬刀瀉などのペグマタイト鉱床が知られている。これらの鉱床に産する allanite については南 (1926)、井川 (1937)、Hasegawa (1957)、Umegaki (1957)、皆川ら (1978, 1999) により検討がなされている。特に、皆川ら (1999) は四国の花崗岩質ペグマタイトに生成している希元素鉱物の総括を行い、

allanite には Ce タイプと Y タイプが存在することを明らかにし、Nd タイプに属すると思われる allanite の産出も報告した。また allanite の変質・分解によって生成した synchysite-(Ce) など様々な二次鉱物についても報告した。しかしながら記載的報告のみにとどまり、四国産 allanite の総括的な検討は行わなかった。そこで本研究では、領家及び広島花崗岩ペグマタイト産 allanite の化学的特徴および、allanite 由来の二次生成希元素鉱物について総括的な報告を行った。

四国の allanite 型ペグマタイト

Allanite はペグマタイトから最も普通に産する希元素鉱物である。四国の花崗岩質ペグマタイトにおいても多くの産地が知られている。Allanite は

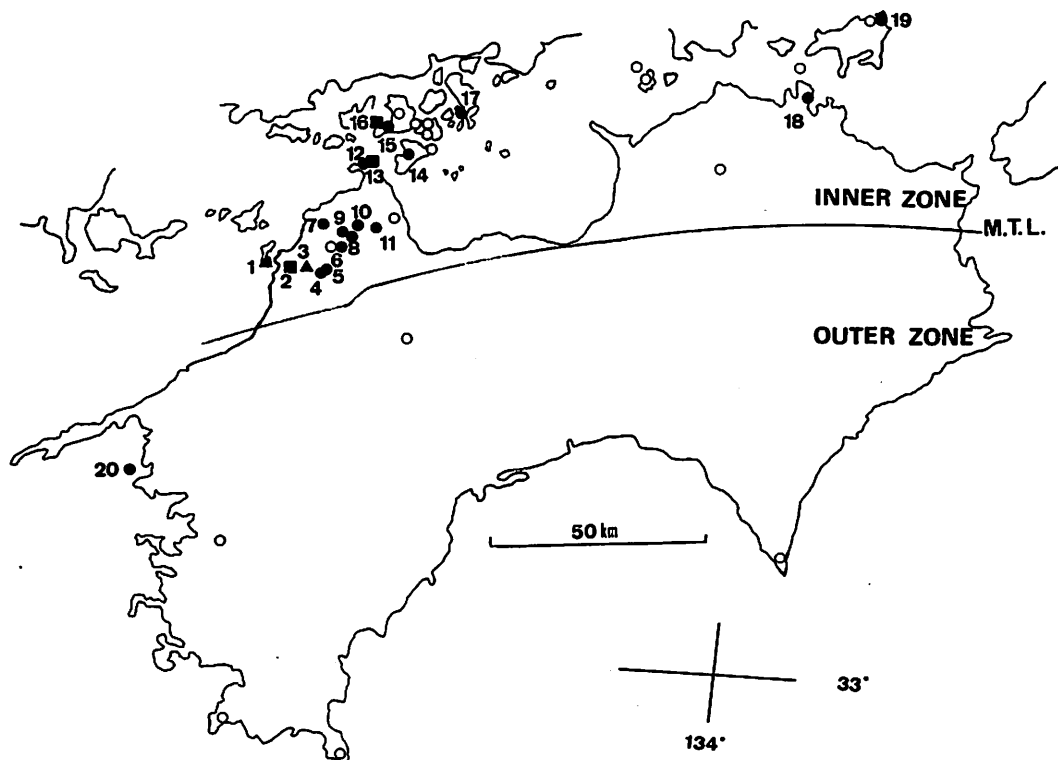


Fig. 1 Location map of allanite occurrences in Sikoku.

●: allanite pegmatite, ○: none allanite pegmatite, ▲: allanite bearing granite, ■: allanite bearing syenite.

Table 1 Localities of allanite bearing granite, syenite and pegmatite in Shikoku

Granite: Matsuyama granite

興居島 Gogoshima(1), 道後 Dogo(3), 東川 Higashikawa, 米野々 Komenono

Syenite

太山寺 Taisanji, 山西 Yamanishi(2): edenite syenite, 森上 Moriage(13):
andradite hastingsite syenite, 口総 Kuchisubo(16): hastingsite syenite

Pegmatite

Ryoke granitic P.: 庄 Sho(7), 高縄山 Takanawasan(6), 米野々 Komenono(8),
立岩 Tateiwa (9), 玉川 Tamagawa(10), 金山 Kanayama(18)

Hiroshima granitic P.: 馬刀渦 Mategata(12), 大頭山 Otoyama(14), 伯方島
Hagatajima, 野々江 Nonoe(15), 生名島 Ikinajima(17), 福田 Fukuda(19)

Yuyama granitic P.: 湧ヶ淵 Wakegafuchi, 宿野々 Syukunono(4), 石手川ダ
ム Ishitegawa(5)

Kasamatsuyama granitic P.: 河之内 Kawanouchi(11)

Gneiss : 大島 Oshima(20)

Numbers are shown in Fig. 1

領家および広島花崗岩体中に胚胎されているペグマタイトあるいは花崗岩や閃長岩中の副成分鉱物として見出される。現在までに知られている allanite 産地を Fig. 1 及び Table 1 に示している。Allanite は領家花崗岩ペグマタイトから多産し、これらは allanite 型に分類される (図中の●)。広島花崗岩ペグマタイトからも多産するが、四国北縁部、即ち広島花崗岩中心部に近いペグマタイトでは allanite の産出量が少なくなる傾向があり、逆に zircon, fergusonite-Y, gadolinite-Yなどを多産する。このような伯方島北浦、浜鉾床や広島友浦鉾床などは複酸化物型ペグマタイトに分類される (図中の○)。

領家花崗岩はトータル岩質の古期岩体と花崗岩～花崗閃緑岩質の新期岩体に分けられており、これらは愛媛県高縄半島から芸予諸島にかけて、また香川県領家帯のほぼ全域に分布している (岡村, 1967, 宮久・平岡, 1970, 越智, 1982, Saito, 1962, 沓掛, 1979)。ペグマタイトは新期岩体中に派生しており、その多くが allanite 型ペグマタイトである。高縄半島では松山型花崗岩～花崗閃緑岩、北条型花崗岩中に多く見られ、立岩、庄、米野々 (宝)、高縄山、玉川などのペグマタイト鉾床がこれに当たる。

香川県においては志度花崗岩中の金山鉾床が allanite 型ペグマタイトとして知られている。領家花崗岩体のペグマタイトの中で最も allanite を多産した立岩鉾床 (宮久・野間, 1960) は、文象帯、巨晶帯が発達し、Fe-mica に富む。Feldspar による分類では albite ペグマタイトである。玉川鉾床 (宮久・野間, 1960) は高縄半島では最大規模のペグマタイトであるが Fe-mica は少なく、赤褐色の K-feldspar に富む。高縄山は脈状型の小規模鉾床であり oligoclase 型に属する。米野々、金山鉾床は Fe-mica に富む albite - K-feldspar 型ペグマタイトである。特に金山鉾床はズリから径30cmに達する Fe-mica 巨晶が採集される。

広島花崗岩中には領家岩体に比べてより多くのペグマタイト鉾床が発達しているが、allanite が確認されていない鉾床も多い。現在までに馬刀渦 (白岩)、河ノ内、大頭山、伯方島、生名島、大三島野々江、小豆島福田において allanite が見出されている。また松山市東方の領家花崗岩体中に転在する広島型花崗岩相当の優白色の湯山型花崗岩や笠松山花崗岩中にも小規模な allanite ペグマタイトが発達している (宿野々、石手川ダム付近)。いずれのペグマ

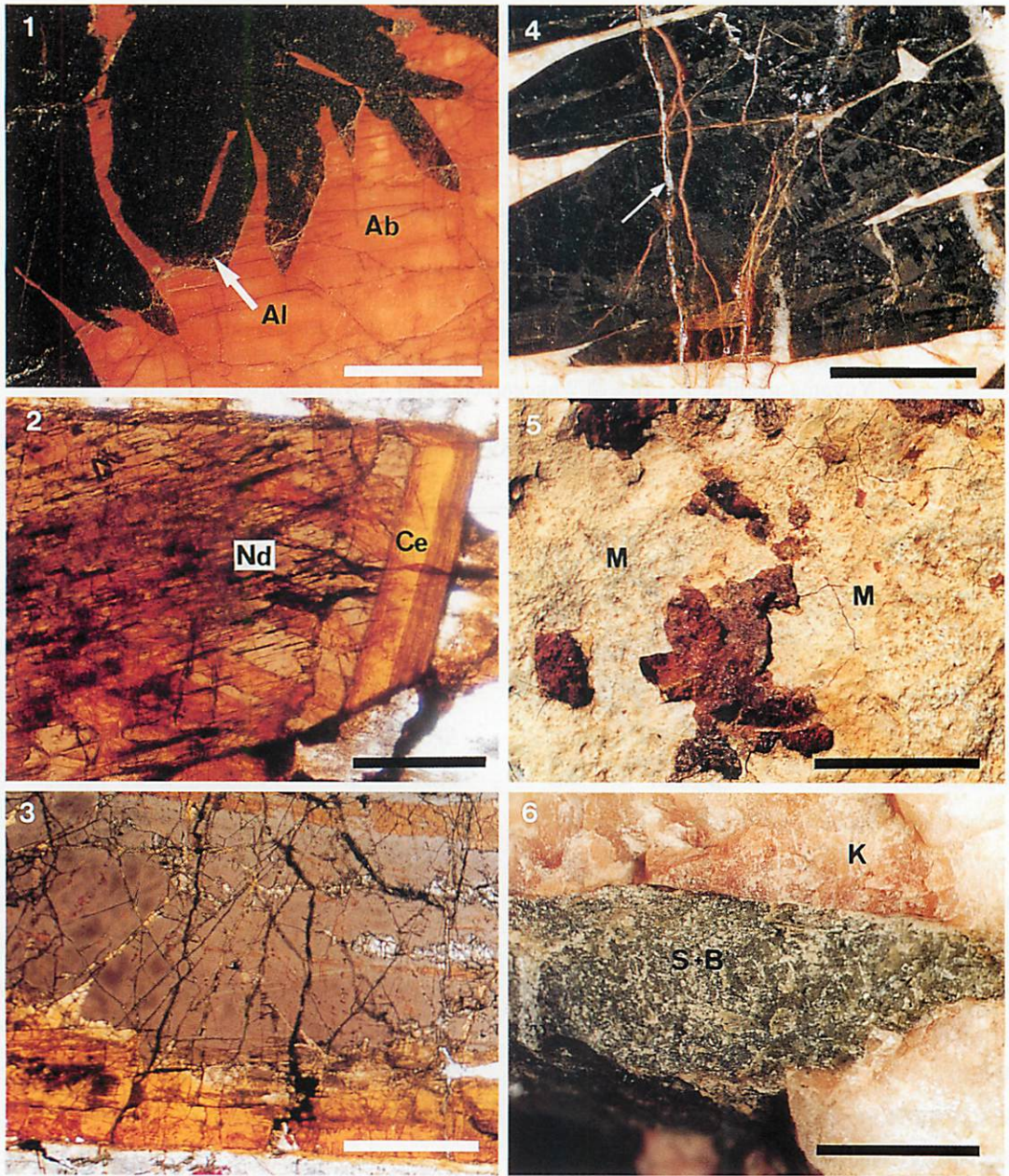


Fig. 2 Allanite and altered minerals after allanite from the Ryoike and Hiroshima granite pegmatite.

1 : Allanite-(Y) + Allanite-(Ce) from Tateiwa, Al:allanite, Ab:albite, scale bar is 5mm, 2 : Microphotograph (open Nicol) of allanite-(Nd) and allanite-(Ce) from Tateiwa, Nd: allanite-(Nd) and Ce: allanite-(Ce), scale bar is 0.4mm, 3 : Allanite-(Ce) from Mategata, scale bar is 1mm, 4 : Bastnäsite-(Ce) vein (→) cutting allanite from Siraishi, scale bar is 5mm, 5 : Monazite-(Nd) crust coating altered allanite from Kanayama, scale bar is 5mm, M: monazite-(Nd), 6 : Pseudomorphs {bastnäsite-(Ce) + syncysite-(Ce) + halloysite + pyrite} after allanite from Fukuda, scale bar is 4mm, S+B:syncysite-(Ce) + bastnäsite-(Ce), K: K-feldspar.

タイトも albite - K-feldspar 型である。Allanite を最も多産したのは馬刀潟白岩鉱床であり、mica と

feldspar の境界部に生成している。

Allanite の産状

Allanite は Fe-mica (Fe-chlorite 化) に富む部分に、あるいは長石、石英の境界部の周囲にハローションを与え、黒褐色の数cm大から最大径20cmに達する塊状～柱状結晶をなし生成している (Fig.2-1,4)。鏡下では淡褐色～黒褐色の強い多色性 (Fig.2-2,-3) が認められる。鉄の酸化により結晶表面近く、あるいは内部まで多色性の変化 (褐色→濃褐色) が観察されることが多い (Fig.2-2,-3)。風化・変質の著しい allanite は酸化鉄を遊離し褐色土壌化している場合が多く、この現象は金山産や馬刀湯産 allanite にしばしば認められる。Fig.3-1に褐色土壌化した変質部の X-ray powder pattern を示しているが、主要回折値 (14.1Å, 7.2Å, 3.56Å) および強度から判断して Fe-chlorite (chamosite?) 化していると推定される。また allanite は様々な変質作用 (炭酸塩化、磷酸塩化、加水分解) を受け二次生希土類鉱物へ変化している場合がある。この場合二次鉱物の産状として脈状、皮殻状、仮晶の3タイプの産状に分けられる (Fig.2-4,5,6)。

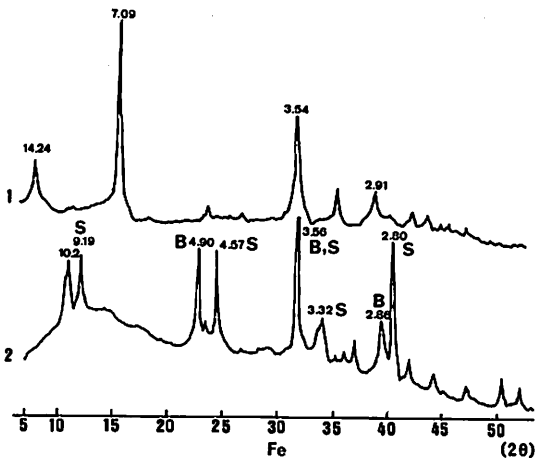


Fig. 3 X-ray powder diffraction patterns of altered allanite.

1: Brown massive aggregate, chamosite?, after allanite from Mategata.
2: Pseudomorph (bastnäsit-Ce + syncysit-Ce + halloysit + pyrite) after allanite from Fukuda, S:syncysit-(Ce), B:bastnäsit-(Ce).

花崗岩や閃長岩中には副成分鉱物として長さ数mm以下の allanite が普遍的に含まれる。特に松山型花崗岩 (興居島, 道後, 東川, 米野々) あるいは角閃石閃長岩 (山西, 大三島口総), 高縄半島最先端の領家古期の斑紋岩体を貫く閃長岩質 pegmatite (森上) 中にやや大きな結晶が認められる。

Allanite の化学的特徴

EDS 分析 (JSM5400, ZAF法) により得られた分析結果の代表例をTable2,3,4に示している。また, Fig.4-1に道後産 allanite-(Ce), Fig.4-2に立岩産 allanite-(Nd), Fig.4-3に立岩産 allanite-(Y), Fig.

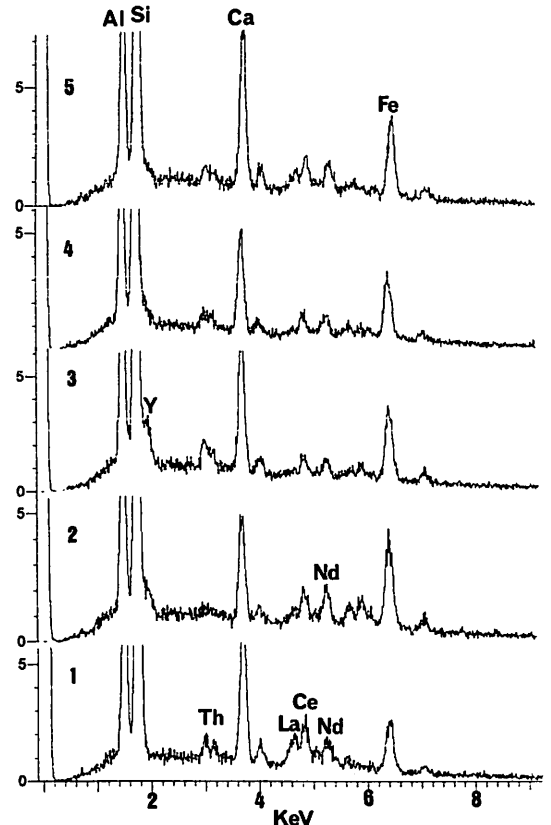


Fig. 4 EDS patterns of allanite.

1: Allanite-(Ce) from Matsuyama granite,
2: Allanite-(Nd) from Takeiwa pegmatite,
3: Allanite-(Y) from Tateiwa pegmatite,
4: Allanite-(Ce) from Tateiwa pegmatite,
5: Allanite-(Ce) from Mategata.

4-4に米野々産 allanite-(Ce), Fig.4-5に馬刀湯産 allanite-(Ce) の EDS パターンを示している。Allanite は各鉱床において複雑な化学組成を有し、希土類による分類では allanite-(Ce), allanite-(Y), allanite-(Nd) の3種類に分類できることが明らか

になった。しかしながら allanite-(La) は確認出来なかった。いずれのサンプルも BEI 像観察により結晶内において組成不均質性が認められるが、偏光顕微鏡下で観察される光学的なゾーニングは鉄の酸化によることが多いため、BEI 像によって観察される組成変化の明暗とは必ずしも一致しない場合がある (Fig. 5)。

1. 領家花崗岩ベグマタイト産 allanite の

化学的特徴

立岩鉱山産 allanite (Table 2-1,-2,-3,-4) は、allanite-(Ce) が最も多い種として見出されるが、一般に Y および Nd に富んでおり、La が少ない特徴を持つ。さらに $Y > Ce > Nd > La$ の量比を持つ allanite-(Y), あるいは $Nd > Y > Ce$ の量比を持つ allanite-(Nd) が認められた。これらは結晶内で組成不均一性をなす領域の一部として認められる。希

Table 2 Chemical compositions of allanite from the Ryoike granite pegmatites.

	Tateiwa				Sho	Takara	Takanawa
	1	2	3	4	5	6	7
SiO ₂	30.11	30.02	30.35	31.56	31.75	30.95	31.82
TiO ₂	0.00	0.04	0.01	0.00	0.00	0.23	0.34
Al ₂ O ₃	13.58	14.18	14.31	16.12	15.72	13.75	14.66
FeO	12.08	13.99	15.24	12.92	14.15	16.33	14.41
MnO	5.51	1.92	4.27	1.55	1.27	1.52	1.18
CaO	4.08	9.15	6.32	6.97	10.63	9.54	9.15
MgO	0.55	0.02	1.76	0.38	1.95	1.72	1.48
Na ₂ O	0.03	0.10	0.02	0.64	0.88	0.21	0.94
ThO ₂	1.53	4.96	0.96	2.99	0.23	2.34	1.89
Y ₂ O ₃	4.67	4.88	3.20	2.18	3.18	3.01	4.31
Ce ₂ O ₃	4.64	4.35	5.15	4.81	4.45	5.35	4.72
La ₂ O ₃	2.13	1.22	2.06	2.15	1.76	1.87	1.67
Pr ₂ O ₃	0.91	1.04	0.64	0.53	0.51	0.59	1.11
Nd ₂ O ₃	4.60	3.43	6.24	3.15	4.62	4.01	3.82
Sm ₂ O ₃	2.66	0.58	2.12	1.03	1.82	2.23	3.04
Gd ₂ O ₃	3.21	0.88	3.21	2.31	1.46	3.02	2.19
Dy ₂ O ₃	1.12	1.87	1.17	1.16	0.06	0.00	0.89
Er ₂ O ₃	1.77	0.00	1.12	0.90	1.40	1.12	0.23
Yb ₂ O ₃	1.00	1.08	0.04	0.07	0.37	0.33	0.06
Total	94.20	93.71	98.19	91.42	96.21	98.12	97.91

Total Fe as FeO, Total Mn as MnO

1: allanite-(Y), 2: thorian allanite-(Y),
3: allanite-(Nd), 4: allanite-(Ce)
5: allanite-(Ce), 6: allanite-(Ce),
7: Neodian allanite-(Ce)

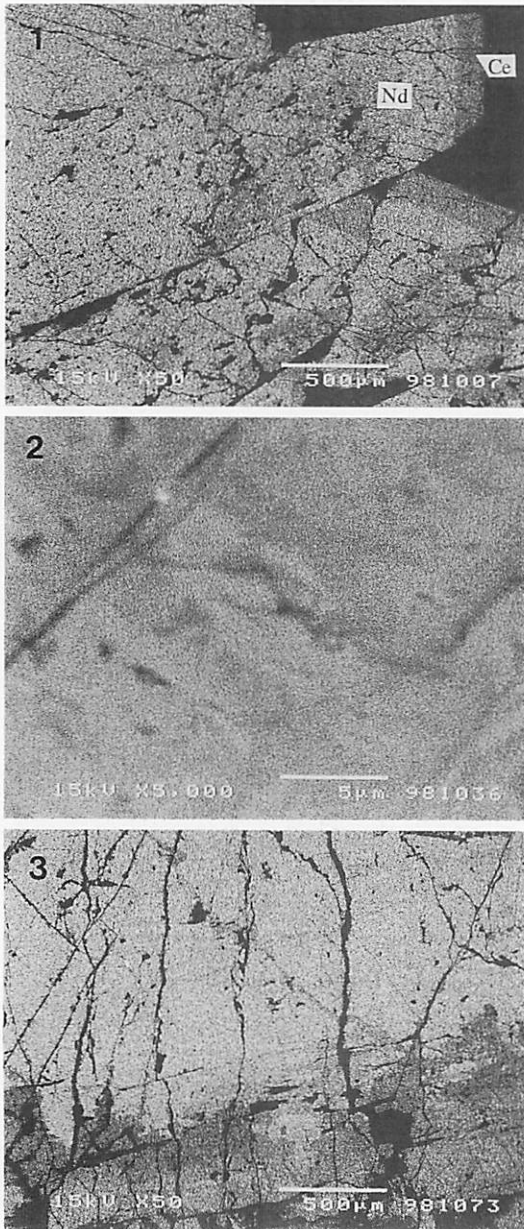


Fig. 5 Back scattered electron images of allanite.
1: Allanite-(Nd) and allanite-(Ce) from Tateiwa pegmatite
2: Allanite-(Y) from Tateiwa pegmatite.
3: Allanite-(Ce) from Tateiwa pegmatite.

Table 3 Chemical compositions of allanite from the Ryoke granite pegmatites, Matsuyama granite, Daimonji granite and syenite.

	Kanayama Sakaguchi Fukuda.				Dogo Daimonji Moriage		
	1	2	3	4	5	6	7
SiO ₂	30.56	30.79	32.55	31.85	32.63	32.66	32.67
Al ₂ O ₃	16.00	13.91	17.49	16.05	15.97	13.91	15.83
FeO	14.73	15.17	10.30	10.62	11.55	12.48	13.73
MnO	1.26	4.52	0.90	1.44	0.34	0.16	0.34
CaO	9.09	5.79	7.51	7.48	11.77	10.09	10.10
MgO	1.86	2.41	1.35	1.27	0.61	2.02	0.75
Na ₂ O	0.68	0.47	0.38	0.53	0.20	0.90	0.78
ThO ₂	2.19	1.01	3.66	2.53	2.98	1.89	2.35
Y ₂ O ₃	2.73	5.25	2.56	2.79	0.01	0.65	1.17
Ce ₂ O ₃	4.05	4.69	4.80	4.86	6.58	6.13	6.68
La ₂ O ₃	2.13	2.20	1.96	1.89	2.34	2.55	2.83
Pr ₂ O ₃	0.07	1.97	0.00	0.21	-	0.58	0.21
Nd ₂ O ₃	3.61	5.56	3.32	3.13	2.05	4.34	4.29
Sm ₂ O ₃	1.85	1.94	1.43	2.51	1.73	1.69	2.83
Gd ₂ O ₃	2.23	1.41	3.01	3.51	1.56	2.97	1.37
Dy ₂ O ₃	1.07	0.03	0.07	1.22	0.64	0.42	0.54
Er ₂ O ₃	0.06	0.00	0.13	-	0.00	0.25	0.64
Total	94.17	97.12	91.42	91.89	90.96	93.69	97.11

*Fukuda.:Fukudayama, Total Fe as FeO, Total Mn as MnO
1,3,4,5:allanite-(Ce), 2,6,7:Neodian allanite-(Ce)

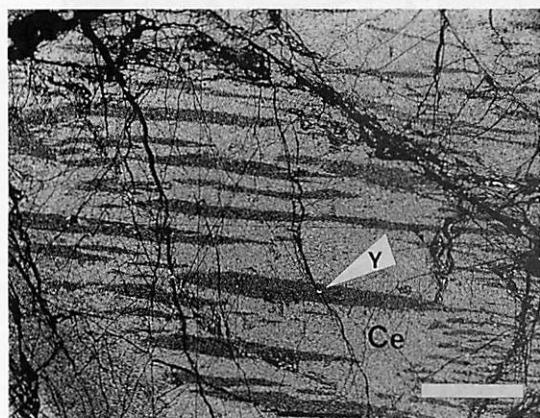


Fig. 6 Back scattered electron image of allanite-Y from Tateiwa pegmatite.
Y:allanite-(Y), Ce: yttrian allanite-(Ce), scale bar is 100 μ m.

には allanite-(Ce) 中にラメラ状を示す allanite-(Y) が認められる (Fig.6)。庄鉱床産 allanite (Table 2-5) においても Ce タイプが多く観察されるが、やはり全体に Y, Nd に富む傾向が強い。米野々 (Table 2-6), 高縄山 (Table 2-7), 金山鉱床

産 allanite (Table 3-1,-2) も同様の化学的特徴を有し、組成変化が著しく Nd, Y タイプも確認されている。四国以外の領家花崗岩体ペグマタイトの代表的産地である坂口 (白石) (Table 3-3), 福田山 (Table 3-4) はいずれも Ce タイプであり、Y 種は見出されていないが一般に Nd に富む傾向がある。Allanite 中の Th 固溶量は一定しないが、金山鉱床, 4.92wt%, 米野々, 3.99wt%, 坂口では 6 wt% に達する。CaO 値はペグマタイト鉱床によって異なり 4~10wt% の値をとるが、一般に低い Ca 値をとることが多く、REE/Ca 値は大きい。Mn 置換量は全体にやや高く MnO として 5 wt% を越える場合が多い。

2. 広島花崗岩ペグマタイト産 allanite の化学的特徴

馬刀湯 (白岩) 鉱床産 allanite (Table 4-2,-3) は Ce に富み Y に乏しい。Nd は固溶量の変化が大きく結晶内において不均質性を示し、ほぼ Ce=Nd

Table 4 Chemical compositions of allanite from the Hirosima granite pegmatites and Yuyama granite (Hirosima type) pegmatites

	Syukunono		Mategata		Ishitegawa Otoyama Senogawa	
	1	2	3	4	5	6
SiO ₂	31.34	30.86	31.44	31.49	32.76	30.42
TiO ₂	0.44	0.21	0.15	0.00	0.00	0.76
Al ₂ O ₃	12.64	13.79	14.26	14.80	13.80	8.45
FeO	13.44	14.17	12.35	15.76	11.44	17.03
MnO	1.89	1.24	1.19	4.80	3.28	0.89
CaO	8.77	10.56	9.84	3.41	4.24	9.41
MgO	1.75	1.90	0.85	0.62	2.94	2.61
Na ₂ O	0.00	0.81	0.02	0.00	1.19	0.85
ThO ₂	1.08	2.90	0.15	1.51	2.18	0.76
Y ₂ O ₃	1.68	1.51	1.98	2.34	1.92	2.55
Ce ₂ O ₃	6.78	6.37	5.03	7.98	5.54	7.52
La ₂ O ₃	2.36	2.22	2.10	1.98	1.89	3.01
Pr ₂ O ₃	1.33	0.09	1.50	1.60	0.44	1.02
Nd ₂ O ₃	4.08	2.51	5.02	6.13	4.41	4.61
Sm ₂ O ₃	2.14	1.93	2.00	-	2.76	0.63
Gd ₂ O ₃	3.12	2.56	2.12	0.92	2.71	0.81
Dy ₂ O ₃	1.16	1.95	0.79	0.15	0.58	0.33
Er ₂ O ₃	0.42	0.45	1.11	0.00	0.20	0.09
Yb ₂ O ₃	0.01	0.49	1.19	0.00	0.00	0.26
Total	94.43	96.52	93.09	93.55	92.28	92.01

Total Fe as FeO, Total Mn as MnO
1, 2, 5, 6: allanite-(Ce), 3, 4.: Neodian allanite-(Ce)

種も見出される。MnO も 1 wt% と小さい値を持っている。宿野々産 allanite (Table 4-1) は $Ce \gg Y, Nd$ 、大頭山産 allanite (Table 4-5) は $Ce > Nd > Y$ の量比が観察される。石手川ダム (Table 4-4)、広島県瀬野川鉱床産 allanite (Table 4-6) も、馬刀潟鉱床と同じ化学的性質を有し、いずれも Y 固溶量は少なく $Ce > Nd > La \geq Y$ の量比を示す化学的特徴を持っている。Th の含有量はほぼ 2 wt% 以下である。CaO は 10wt% 近くに達し REE/Ca 値は以外に小さい。ただし、大頭山産は 4 wt% と低い。MnO も大頭山を除き低い値を持つ。

3. 阿武隈花崗岩ペグマタイト産 allanite の化学的特徴

今回検討した阿武隈花崗岩ペグマタイト鉱床は口太山、塩沢、曲木、上乙茂の 4 鉱床である。いずれの鉱床も $Ce > Nd > La > Y$ であり、Y 含有量はほぼ 2 wt% 以下であり、領家、広島岩体のペグマタイト産と比べて、著しく低い値を持っている。CaO は 6 wt% 以下と小さく REE/Ca 値は大きい。Mn 固溶量は平均して高く、最大 MnO 6 wt% (塩沢) に達する。

4. 松山花崗岩、閃長岩中の副成分鉱物として含まれる allanite

Table 3-5 に道後の旧花崗岩採石場跡から得た allanite 試料の分析値を示している。Y はほとんど固溶されておらず $Ce \gg Nd > La > Y$ であり、やや La

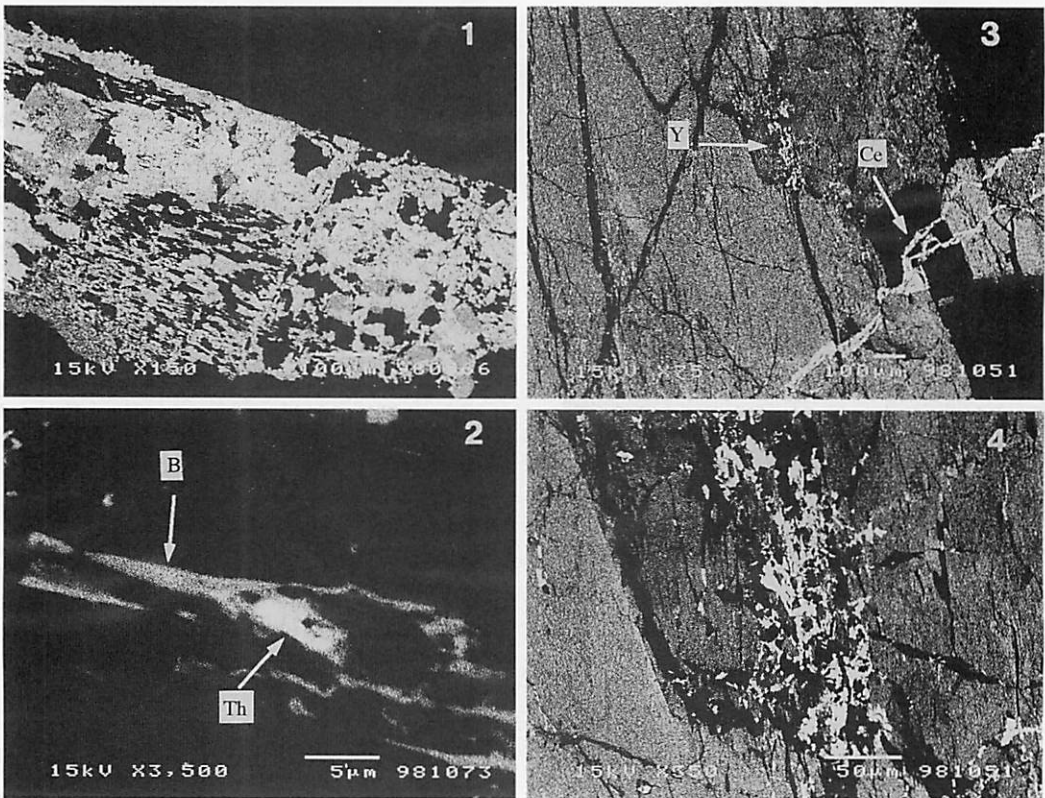


Fig. 7 Back scattered electron image of pseudomorphs after allanite and vein minerals cutting altered allanite.

- 1: Syncysite-(Ce) + bastnäsite-(Ce) + pyrite from Fukuda,
- 2: Bastnäsite-(Ce) + thorite in serisite vein cutting allanite from Shiraishi in Osaka,
- 3: Bastnäsite-(Ce) and bastnäsite-(Y)? from Shiraishi in Osaka,
- 4: Bastnäsite-(Y)? from Shiraishi in Osaka.

に富む特徴を持つ。CaO は多く10wt%を越える。MnO はほとんど固溶されていない。Th は3 wt% 近く含まれる。比較のため京都府大文字山産花崗岩中の allanite の分析値をTable 3-6に示しているがほぼ一致している。閃長岩中の allanite 分析例として森上産の値をTable 3-7に示しているが、花崗岩中の allanite とほぼ同様の組成を持つ。

Allanite 結晶を交代する二次生成希元素鉱物

Allanite の一部は炭酸塩化、磷酸塩化し、あるいは加水分解し、二次生希土類鉱物の生成が認めら

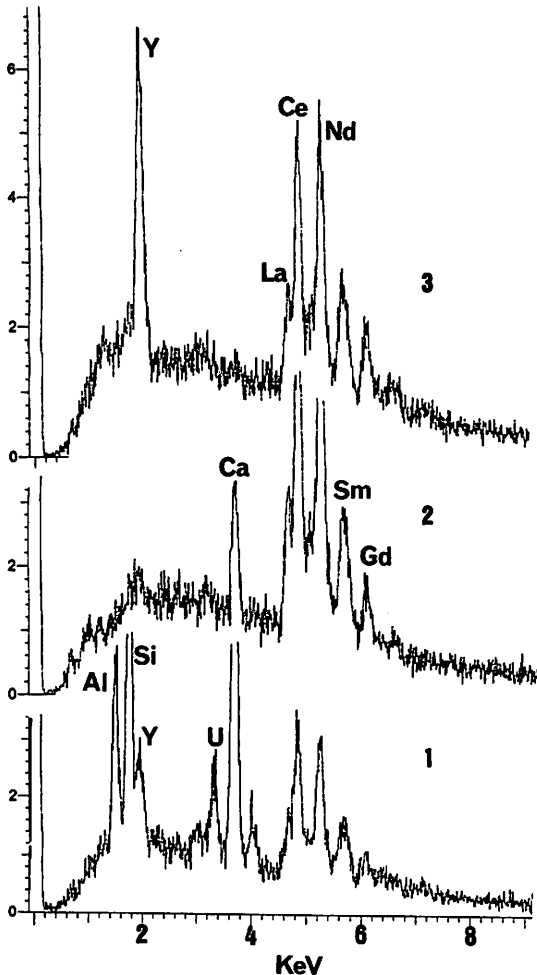


Fig. 8 EDS patterns of altered allanite from Shiraish in Osaka.

1: allanite matrix, 2: bastnäsite-(Ce),
3: bastnäsite-(Y)?

れる。産状は allanite を交代する仮晶、あるいは allanite を覆う crust, また allanite を貫く細脈の3タイプである。脈状鉱物は allanite 結晶の弱線に沿って割れ目充填脈として派生している (Fig.2-4, Fig.7-2,3)。白色～淡褐色、緻密質～土状であるが、鱗片状組織として観察されることがある。これまでに金山鉾山産 Nd rich calkinsite-Ce (皆川, 1985) および lanthanite-Nd (皆川, 1985), 立岩鉾山, 宿野々産 thorite (皆川ら, 1999) が報告されている。今回、大阪府坂口白石鉾山産 allanite から脈状の bastnäsite-Ce, bastnäsite-Y 組成を持つ鉱物を見出した。この BEI 像をFig.7-3,-4に、EDS パターンをFig.8-2,3に示している。分析値から得られた bastnäsite-Y の希土類元素比は $Y_{0.34}Ce_{0.30}Nd_{0.22}Sm_{0.06}Dy_{0.04}Ho_{0.03}$, bastnäsite-Ce は $Y_{0.04}$

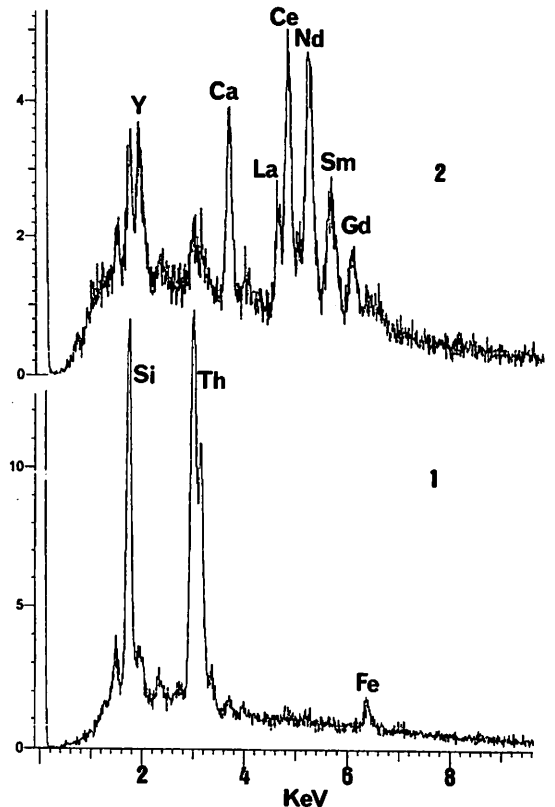


Fig. 9 EDS patterns of thorite and bastnäsite-(Ce) in Osaka.

1: thorite, 2: bastnäsite-(Ce)

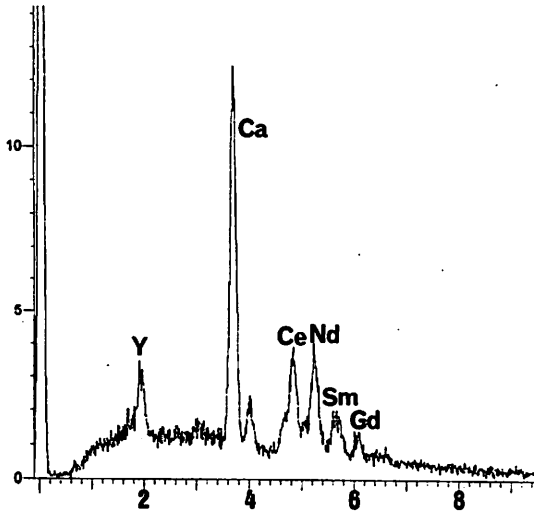


Fig.10 EDS pattern of Synchysite-Ce from Fukuda in Shodoshima.

$Ce_{0.57}Nd_{0.37}$ であり、高いNd値を持っている。またFig.7-2に同鉱山産 allanite に派生した illite 中に生成した bastnäsit-Ce 及び thorite の BEI 像、そして EDS パターンをFig.9-1,-2に示している。このような産状の thorite は立岩、大頭山、宿野々などのペグマタイトからも見出されている。Allanite を交代し、仮晶をなす二次鉱物として皆川ら (1999) は synchysite-Ce や bastnäsit-Ce (Fig.2-6, Fig.7-1) を報告している。これらは小豆島福田のペグマタイト産 allanite を交代し、pyrite の結晶を伴う暗緑色緻密質の数種類からなる微細鉱物集合体をなす。この部分の X-ray powder diffraction data をFig.3-2に示しているが、同定された構成鉱物は synchysite-Ce, bastnäsit-Ce, pyrite, kaolinite である。EDS パターンをFig.10に示している。Synchysite-Ce の実験式は $Ca_{1.08}Y_{0.13}Ce_{0.26}La_{0.07}Nd_{0.19}Sm_{0.07}Eu_{0.03}Gd_{0.07}Dy_{0.03}Er_{0.01}Th_{0.07}Zr_{0.93}O_{2.5}$ である (皆川ら, 1999)。同様の産状をなす allanite 由来の synchysite-Ce は北村・上原 (2000) によっても福岡県真崎ペグマタイトから報告されている。褐鉄鉱化した allanite の表面を覆って白色皮殻状二次鉱

物が生成している (Fig.1-5)。これまでに、立岩鉱山産 rhabdophane-Nd (皆川, 1988)、金山鉱山産, monazite-Nd (皆川, 1999) が現在までに確認されている。

考 察

四国を中心に花崗岩質ペグマタイトおよび花崗岩に由来する allanite の化学的検討を行った。Allanite は各岩体および結晶内において組成不均一性を示す。主要希土類元素である Ce-Nd-Y の組成比を示したダイアグラムをFig.11に示している。

Allanite の組成は Ce 領域から Y 領域に広がっており、わずかではあるが Nd 領域にもプロットされ、allanite-Ce, allanite-Y, allanite-Nd の存在が確認された。Allanite の Ce-Nd-Y の組成領域は母岩であるペグマタイトが生じている花崗岩体によって大きく異なる結果を得た。即ち、領家花崗岩ペグマタイト産 allanite の組成は図のほぼ中心領域の Y-Ce

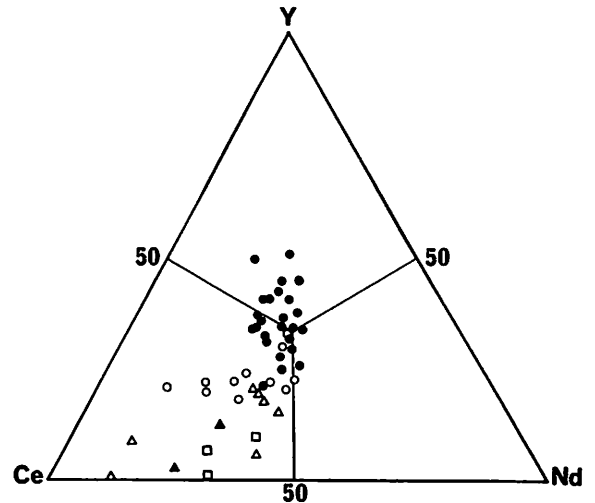


Fig.11 Y-Ce-Nd diagram for allanite from granite pegmatite, granite and syenite.

●: from Ryoke granite pegmatite, ○: from Hiroshima granite pegmatite, △: from Abukuma granite pegmatite, □: from Matsuyama granite, ▲: from syenite.

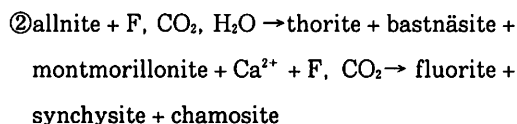
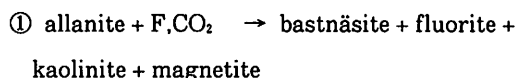
領域に広がっており、わずかではあるが Nd 領域にもプロットされる。広島花崗岩ペグマタイト産 allanite はほぼ Ce 領域にプロットされ、Ce-Nd-Y 比において Y の占める割合は30mol%以下とほぼ一定であり、Ce-Nd 比が変化している。本邦を代表する阿武隈花崗岩体ペグマタイト産 allanite は、広島花崗岩とほぼ同じ Ce 領域にプロットされるが、より低い Y 値を持っている。領家花崗岩（松山型）中に副成分鉱物（造岩鉱物）として少量見出される allanite は Ce に富む。Y 置換量は僅かであり Y/Ce+Y+Nd 値は極端に低く0.1を越えることはない。今回検討した四国の花崗岩からの allanite 中の Fe/Fe+Al は0.2~0.5と変化するが、いずれも Fe>Al であり epidote の REE 置換体に相当する。褐色の多色性が強く Fe^{3+}/Fe^{2+} の値はかなり高いと考えられる。

領家花崗岩と広島花崗岩は共通のマグマ起源と考えられている（宮久・平岡, 1970, 越智, 1982, 本間・加々美, 1982, 本間・岡野, 1996）。今回検討したペグマタイトの大半は分帯の発達した塊状組織を持ち周囲の花崗岩から分化したと推定される。希土類元素は領家花崗岩ペグマタイトにおいて Y 値が高く、分化岩体と考えられる広島岩体では高い Ce 値で特徴づけられる。領家花崗岩ペグマタイトの母岩である松山型花崗岩中に生じている allanite は Y に乏しく Ce, La に富む結果を得たが、この希土類の分配の特徴は Vainstein et al. (1956) によって報告されている結果と良く一致する。

四国産 allanite の変質・分解によって生成した二次鉱物は仮晶、脈、皮殻状をなして見出される。これまでに rhabdophane-Nd（皆川, 1988）、monazite-Nd（皆川, 1999）、Nd rich calkinsite-Ce（皆川, 1985）、lanthanite-Nd（1985）、thorite（皆川ら, 1999）、bastnäsite-Ce（皆川ら, 1999）、synchysite-Ce（皆川ら, 1999）が報告されており、今回、大阪府坂口の領家花崗岩中のペグマタイトか

らではあるが、bastnäsite-Y の可能性が高い鉱物が確認された。これらの化学組成はホストである allanite の化学的特徴に強い影響を受けている。

Allanite の変質物やその生成反応については多くの研究がなされている。Mineyev et al. (1973) や Littlejohn, (a1981, b1981) らによって bastnäsite や synchysite, thorite の生成過程について研究がなされており、下記のような反応式 (①, ②) を与えている。



今回検討した allanite の変質作用も同様の反応結果よると推定される。また立岩鉱床における rhabdophane-Nd などの磷酸塩鉱物の生成において、燐の供給源となった初生磷酸塩鉱物を確認していないが、雲母中に微量含まれている apatite（皆川, 1999）の分解による可能性が高い。

お わ り に

本研究により本邦産 allanite には Ce, Y, Nd に富む 3 タイプ存在し、また各花崗岩体のペグマタイトごとに異なった化学的特徴を持つことが明らかになった。La-allanite は認められなかったが、外帯花崗岩や阿武隈花崗岩中のペグマタイトから見出される可能性が高い。Allanite の変質物は炭酸塩、磷酸塩、含水珪酸塩鉱物として生成しているが、複雑な共生関係をなすことが多く、今後さらに詳細な検討を要する。

謝 辞

本研究を行うに当たり、小豆島福田産試料の提供

を受けた愛媛石の会の十倉秀樹氏、また大阪府坂口産試料を提供頂いた愛媛石の会の藤田正夫氏及び、調査に同行して頂いた野戸繁利氏、佐々木基氏、そして薄片作成において御協力頂いた赤松博美技官、これらの方々に心から感謝致します。

文 献

- 井川正雄（1937）東洋産含希元素鉍石の化学的研究（其三十）愛媛県大山産及び滋賀県比良谷産褐簾石に就て。日化誌, 58, 1261-1266.
- Hiki, T. (1903) On the Allanite Crystal from Hiei Mountain. 京大理工紀要, 1, 72-74.
- 本間弘次・岡野修（1996）変動帯（領家帯）花崗岩の形成過程:特に酸素及びストロンチウム 同位体の挙動について。酒井均教授退官記念号, 月刊地球, 99-106.
- 本間弘次・加々美寛雄（1982）四国北西部の領家帯に分布する花崗岩類の Sr 同位体比による研究.昭和56年度科学研究費補助金,総合研究A「領家帯の岩石学的研究」研究成果報告書. 97-104.
- 石原新太郎（1896）阿武隈花崗岩中の褐簾石。地質雑, 4, 56-60.
- 北村卓・上原誠一郎（2000）福岡県真崎pegmatiteの希元素鉍物.日本鉍物学会2000年度年会, 102.
- 沓掛俊夫・端山好和・本間浩次・政岡邦夫・宮川邦彦・仲井豊・山田哲雄・吉田勝（1979）小豆島および讃岐東部の領家帯。地質学論集, 17, 47-68.
- Littlejohn, A. L. (a1981) Alteration products of accessory allanite in radioactive granites from the Canadian Shield. Papers Geol. Surv. Canada, 81-1B, 95-104.
- Littlejohn, A. L. (b1981) Alteration products of accessory allanite in radioactive granites from the Canadian Shield : reply Papers Geol. Surv. Canada, 81-1D, 93-94.
- 皆川鉄雄・桃井齊・野戸繁利（1978）：四国西部領家帯のpegmatite産希元素鉍物。愛媛大学紀要自然科学D（地学）, 8, 1-11.
- 皆川鉄雄（1985）香川県金山鉍山産calkinsite. 36, 611-64.
- 皆川鉄雄（1988）愛媛県立岩鉍山産ラブドフェン（Nd）。佐藤信次教授退官記念論集. 101-105.
- 皆川鉄雄・野戸繁利（1999）四国産希元素鉍物，特に領家および広島花崗岩に伴われるpegmatite産希元素鉍物について. 5, 1-32.
- 南英一（1926）東洋産含希元素鉍石の化学的研究（其七）波方村褐簾石の分析。日化誌, 48, 570-571.
- 宮久三千年・野間泰二（1959）愛媛県中部（玉川・立岩地区）のpegmatite鉍床。愛媛県商工観光課. 1-9.
- 宮久三千年（1959）愛媛県の放射性鉍物資源に関する地質学的諸問題。愛媛県商工観光課. 1-12.
- 宮久三千年・平岡卓郎（1970）四国西部花崗岩類の相互関係。愛媛大学紀要自然科学D地学, 6, 59-72.
- 長島乙吉・長島弘三（1960）日本希元素鉍物。日本鉍物趣味の会
- 越智秀二（1982）四国高縄半島の領家花崗岩類。地質雑, 88, 511-522.
- Saito, M. (1962) The Geology of Kagawa and Northern Ehime Prefectures, Shikoku, Japan. Mem. Fac. Agri. Kagawa Univ., 10, 1-74.
- Umegaki, Y., Soeda, A. and Habara, T. (1957) Über die pegmatitische Mineralien, die in sudwestlichen Gegenden von Japan gefunden worden sind. Nr2. Einige Pegmatitlagerstätten in Onsen und Ochi Bezirken, Ehime Präfektur. Jour. sci. Hiroshima Univ., Ser. C. 2-1, 29-52.
- Vainstein, E. E., Tugainov, A. I. and Turanskaya, N. V. (1956) On the regularity of

distribution of rare earths in certain minerals.

Geochemistry. Publ. Acad. Sci., USSR, no. 2,
36-56.