# 西南日本外帯の堆積岩中のホウ素含有量

## 新正裕尚

Boron content of the sedimentary rocks in the Outer Zone of southwest Japan.

Hironao Shinjoe

#### Abstract

Boron contents analyzed by prompt gamma-ray analysis for 19 sedimentary rocks from Late Cretaceous Shimanto belt and Miocene Kumano Formation in the Outer Zone of southwest Japan are reported. Samples were obtained from Uwajima region close to the Uwajima granodiorite body in southwest Shikoku and Kumano region close to the Kumano Acidic Rocks in southeastern Kii peninsula. Boron contents of sandstone and shale range 13–113 ppm and 19–302 ppm, respectively. Most of samples show negative correlation between  $SiO_2$  and boron contents reflecting the mode of clay minerals in the samples. Three shale samples from Uwajima region show rather high boron content (>240 ppm). Boron content of these samples might be affected by contact metamorphism of Uwajima granodiorite body which includes tourmaline rich lithologies.

はじめに

西南日本の海溝寄り地域には、中新世中期の火成岩が広く分布する。それらは島弧伸長方 向に約800 km,島弧横断方向に最大150 kmもの分布域を持つ。これらの火成活動の放射 年代はおよそ10~16 Maの範囲に分散するがその多くは13~15 Maに集中し、日本海の拡 大とそれにともなう西南日本弧の時計回り回転、さらに拡大直後の高温の四国海盆スラブの 沈み込みという一連の出来事に関連して起こった火成活動であると見られる(Kimura et al., 2005:新正ほか、2007 など)。したがってこれらの火成活動の全容を明らかにすることは、 西南日本の中新世の地史解明につながるのみならず、岩石学の観点からは高温の海洋プレー ト沈み込みに伴う火成活動の解明という意義がある。

これらの火成活動は海溝から遠い側から瀬戸内火山岩類,外帯花こう岩類,外縁帯の火成 岩類に区分される。外帯花こう岩類にはマグマの起源物質として堆積岩類が主要に関与した とみられるSタイプ花こう岩に区分されるものが大量に存在する(中田・高橋,1979など)。 また,瀬戸内火山岩類の流紋岩の一部は沈み込んだ堆積物がマントル深度で融解したものと 推定されている(Shimoda and Tatsumi, 1999;新正ほか,2007)。

さらに、瀬戸内火山岩類にはマントル由来の高 Mg 安山岩および玄武岩が産出する。沈み 込み帯におけるマントル由来のマグマ成因を考える上で、スラブ由来の物質の付加の評価が 一つの大きな論点である。島弧下マントルに付加された物質がスラブ由来の流体であるのか、 スラブが融解したメルトであるのかについて多くの議論が行なわれている。瀬戸内火山岩類 の高 Mg 安山岩マグマの成因についても大量の水の存在のもとでのかんらん岩の部分融解と いう考えから、近年ではスラブ融解によるメルトとマントルかんらん岩の反応によるマグマ 成因が唱えられるようになった(例えば Tatusmi, 2006)。さらにスラブ由来の超臨界流体の 付加により高 Mg 安山岩と玄武岩の共存を説明する説も提案されている(Kawamoto et al, 2012)。ホウ素は沈み込むプレート上の堆積物、変成玄武岩ともに豊富に含まれ、流体相に より移動しやすい性質をもつので、スラブ由来成分の検出に好適とされてきた。たとえば、 ホウ素含有量にもとづくスラブ由来成分の検討例として、東北日本弧のフロント上火山 (Sano et al, 2001)や九州のフィリピン海プレートの沈み込みにより形成された火山 (Miyoshi et al, 2008)、南米チリ弧のフロント上火山(Shinjoe et al, 2013)の研究がある。

このように西南日本の海溝寄り地域の中新世中期の火成岩類の成因理解のためには海溝か ら沈み込む堆積岩類の組成の評価が重要である。その目的で,外帯域の火成岩体周辺の堆積 岩を採取して化学組成の分析を進めてきた(たとえば新正,1995)。今回,特にそのホウ素 含有量を即発ガンマ線分析で19試料について求めたので,結果を報告する。

#### 試料の概要

先に述べたように,西南日本の海溝寄り地域の珪長質火成岩体の成因を議論する目的で, 外帯域の珪長質岩体周辺の堆積岩類の試料を採取した。今回は四国西南部の宇和島花こう閃 緑岩体(寺岡ほか,1986; Shinjoe,1997)周辺に分布する後期白亜紀の四万十帯の堆積岩お よび,紀伊半島南東部に分布する熊野酸性岩類(荒牧,1965)周辺に分布する,後期白亜紀 四万十帯の堆積岩および中新世熊野層群の堆積岩を分析対象とした。宇和島岩体周辺の堆積 岩類については新正(1995)において38試料について蛍光X線分析による主成分,微量元 素組成が報告されている。そのなかから,頁岩7試料,砂岩7試料を選んだ。紀伊半島南部 の熊野酸性岩周辺の白亜紀四万十帯の頁岩1試料,砂岩2試料,中新世熊野層群の頁岩,砂





-119-



Figure 1b Localities of samples of Kumano region. Distribution of the Kumano Acidic Rocks is modified from Sumii et al. (1998).

岩各1 試料について分析を行なった。

宇和島岩体周辺の四万十帯は寺岡ほか(1986)により宇和島地塊とよばれ詳細な地層区分 がなされている。試料は主にサントニアンの寄松層~水源地層から採取したもので,一部は セノマニアン~チューロニアンの小倉層,コニアシアンの古城山層から得られた。熊野酸性 岩類の北方から得られた四万十帯の堆積岩はカンパニアン~マーストリヒチアンの的矢層群 に属するものである(西岡ほか,2010)。熊野層群は前期中新世後期~中期中新世初期の前 弧海盆堆積物である。四万十帯の堆積岩類を不整合で覆い,熊野酸性岩類に貫入される。熊 野層群の南部は下位から下里累層,敷屋累層,三津野累層に区分されており(久富,1981), 今回の試料は下里累層~敷屋累層より得られたものである。

宇和島岩体の分析試料の採取位置を Fig. 1a に, 熊野酸性岩類周辺の分析試料の採取位置 を Fig. 1b にそれぞれ示した。

#### 分析

宇和島花こう閃緑岩体周辺の試料については新正(1995)に記した方法で粉末試料を作成 した。熊野酸性岩周辺の試料については、粗割後に鉄乳鉢、メノウ自動乳鉢で粉末試料を作 成した。熊野酸性岩周辺の試料については東京大学地震研究所の蛍光 X 線分析装置(Phillips PW2400)により3倍希釈のガラスビードを用いて主成分、微量元素組成を分析した。分析 方法は谷ほか(2002)による。

ホウ素含有量は日本原子力研究開発機構原子力科学研究所の研究炉 JRR-3の熱中性子 ビームラインに設置された即発ガンマ線分析装置を用いて測定した。粉末試料を110 ℃で1 日以上乾燥した後,約0.7 グラムを分取して加圧整形したペレット(直径約12 mm,厚さ2 ~3 mm)を作成し,FEPフィルムに融封したものを測定用試料とした。産業技術総合研 究所地質調査総合センターの地球化学標準試料 JB-1a,JB-2を標準試料として未知試料と あわせて測定した。分析方法の詳細は Sano et al. (1999)に従った。

#### 結果と議論

熊野酸性岩周辺の4試料についての蛍光X線分析の結果をTable 1に示した。また即発 ガンマ線分析によるホウ素含有量の分析結果をTable 2に示した。

ホウ素含有量は13~302 ppm のきわめて大きな分散をもつ。Fig. 2 にホウ素含有量をヒ ストグラムで示した。頁岩 9 試料の平均は172 ppm で砂岩 10 試料のそれは40 ppm である。 実際に同一地点で採取された頁岩,砂岩の組が2つあるが(宇和島地域の0602,2609 地点), いずれも頁岩の方が3 倍程度の含有量を示す。新正(1995)では全岩の主成分元素組成につ

Sample rock type formation	KUMA3silt shale Shimanto	KUMA3ss sandstone Shimanto	KUMA5ss sandstone Shimanto	KUMA11 shale Kumano	KUMA12ss sandstone Kumano
	25 52	01.00	50.00	25.00	
SiO <sub>2</sub>	65.76	81.66	73.88	67.03	71.58
$TiO_2$	0.53	0.23	0.34	0.66	0.35
$Al_2O_3$	15.18	8.20	11.28	14.18	10.21
$\mathrm{Fe}_{2}\mathrm{O}_{3}^{*}$	4.35	2.00	4.34	5.59	2.89
MnO	0.04	0.02	0.09	0.05	0.12
MgO	1.14	0.39	0.89	1.80	1.26
CaO	0.71	0.47	2.14	2.50	2.37
$Na_2O$	4.53	2.55	2.60	2.01	2.65
$K_2O$	4.64	1.46	1.57	2.72	2.03
$P_2O_5$	0.10	0.06	0.09	0.11	0.09
total	96.97	97.02	97.22	96.64	93.55
Sc	10.5	3.7	7.9	12.1	7.1
V	75.3	26.2	41.4	107.4	40.1
Cr	35.2	15.2	26.0	60.6	75.4
Со	8.6	3.0	5.8	9.1	5.7
Ni	15.6	4.4	8.4	26.6	21.5
Cu	51.8	44.7	42.6		47.7
Zn	81.6	27.1	45.5	93.5	45.0
Ga	19.7	8.5	13.7	20.8	10.8
Rb	193.4	43.6	64.8	118.3	65.6
Sr	146.6	129.0	249.9	209.6	165.2
Y	28.9	15.5	20.0	23.8	14.4
Zr	173.9	107.6	131.2	154	101.3
Nb	12.2	5.3	7.1	11.8	5.4
Ba	634.0	413.6	482.2	553	498.5
Pb	25.0	11.5	15.5	11.9	9.9
Th	10.8	6.9	6.9	9.3	7.1

 
 Table 1
 Bulk rock compositions of sedimentary rocks near the Kumano Acidic Rocks in Kii Peninsula obtained by XRF analysis.

\*Total Fe as Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Sample No.	B (ppm)	Rock Type	Group
0201	246	Shale	Shimanto (Uwajima)
0204	205	Shale	Shimanto (Uwajima)
0602ms	302	Shale	Shimanto(Uwajima)
0602ss	113	Sandstone	Shimanto(Uwajima)
0607A	188	Shale	Shimanto(Uwajima)
0610	14	Sandstone	Shimanto (Uwajima)
2601	72	Sandstone	Shimanto (Uwajima)
2608	47	Sandstone	Shimanto (Uwajima)
2609ms	148	Shale	Shimanto(Uwajima)
2609ss	42	Sandstone	Shimanto(Uwajima)
2610	24	Sandstone	Shimanto(Uwajima)
2611	22	Sandstone	Shimanto(Uwajima)
2612	90	Shale	Shimanto(Uwajima)
2901	275	Shale	Shimanto(Uwajima)
KUMA3silt	19	Shale	Shimanto (Kumano)
KUMA3ss	13	Sandstone	Shimanto (Kumano)
KUMA5ss	15	Sandstone	Shimanto (Kumano)
KUMA11	76	Shale	Kumano Formation
KUMA12ss	44	Sandstone	Kumano Formation

 Table 2
 Boron content of the sedimentary rock in the Outer Zone of southwest Japan

いて、SiO<sub>2</sub>量に対してTiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO, K<sub>2</sub>Oが良い負の相関を持つことを示し, 堆積物中に含まれる粘土鉱物や苦鉄質鉱物のモードと関連しているものと解釈した。そこで Fig. 3 に, SiO<sub>2</sub>量とホウ素含有量の関係を示した。なおSiO<sub>2</sub>量は酸化物の総計が100% に なるように換算している。ホウ素についても多くの試料はSiO<sub>2</sub>量に対しておおむね負の相 関を持つ。これはホウ素が sheet silicate に多く含まれることから,先述した堆積物のSiO<sub>2</sub> 量が粘土鉱物等のモードと負の相関を持つという解釈と整合的である。

また、Fig. 3 に網掛けで示した 3 試料については、全体の分布から、かなりホウ素含有量 が高い位置に外れる。多くの海洋堆積物のホウ素含有量は 40 ~ 180 ppm 程度の範囲に入る ものが多い (Leeman and Sisson, 1996)。これらの頁岩 3 試料は 240 ppm を超える高いホ ウ素含有量を示す。これらの試料は比較的宇和島花こう閃緑岩体から近い場所から採取され ており、接触変成作用の影響を受けている。宇和島花こう閃緑岩体には電気石にきわめて富 む花こう岩 (Shinjoe, 1997) などホウ素に富む流体相が存在したことを示唆する観察がある。 従ってこれらの試料については、接触変成作用の影響とりわけ流体相による元素移動の影響 を受け、単純に堆積時およびその後の続成作用による組成を反映しない可能性がある。これ らの試料は、新正 (1995) が主成分元素について示した SiO<sub>2</sub> 量と TiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO, K<sub>2</sub>O 量の間にみられるトレンドからは外れない。従ってホウ素のような流体相で移



Figure 2 Histogram of the boron content of the sedimentary rocks in the Outer Zone of southwest Japan.

動しやすい元素を評価する際には接触変成作用の影響に注意を払う必要があるものと考えら れる。

謝辞 即発ガンマ線分析にかんしては、東京大学大学院工学系研究科原子力専攻・共同利用管理本 部の原子力機構共同利用研究制度の援助を受けた。即発ガンマ線の測定に際しては、大学開放研究 室の澤幡浩之氏、石本光憲氏、原子力機構の松江秀明氏、関谷裕二氏からご助力をいただいた。照 射試料の準備に際しては立正大学の福岡孝昭氏からご助力をいただいた。蛍光X線分析については 東京大学地震研究所の共同研究プログラムからの援助を受けた。分析に際しては同所の折橋裕二氏 からご助力をいただいた。研究のとりまとめに関して、東京経済大学個人研究助成費(12-17)か らの援助を受けた。以上記して厚く御礼申し上げます。



**Figure 3** Plot of SiO<sub>2</sub>versus B of the sedimentary rocks in the Outer Zone of southwest Japan. Three shale samples show rather high B content (hatched area).

### 文 献

荒牧重雄・羽田忍(1965)熊野酸性岩の中部および南部の地質.地質学雑誌, 71, 494-512.

久富邦彦(1981)紀伊半島東南部の熊野層群の地質と堆積.地質学雑誌 87, 157-174.

- Kawamoto. T., Kanzaki, M., Mibe, K., Matsukage, K.N., Ono, S. (2012) Separation of supercritical slab-fluids to form aqueous fluid and melt components in subduction zone magmatism. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, **109**, 18695–18700.
- Kimura, J., Stern, R.J., and Yoshida, T. (2005) Reinitiation of subduction and magmatic responses in SW Japan during Neogene time. *Geological Society of America Bulletin*, **117**, 969–986.
- Leeman, W.P. and Sisson, V.B. (1996) Geochemistry of Boron and its implications for crustal and mantle processes. *Reviews in Mineralogy*, **33**, 645–707.
- Miyoshi, M., Fukuoka, T., Sano, T., and Hasenaka, T. (2008) Subduction influence of Philippine Sea plate on the mantle beneath northern Kyushu, SW Japan: an examination of Boron

西南日本外帯の堆積岩中のホウ素含有量

contents in basaltic rock. Journal of Volcanology and Geothermal Research, 171, 73-87.

- 中田節也・高橋正樹(1979)西南日本外帯・瀬戸内区における中新世の中性~珪長質マグマの化学 組成広域的変化. 地質学雑誌, 85, 571-582.
- 西岡芳晴・中江訓・竹内圭史・坂野靖行・水野清秀・尾崎正紀・中島礼・実松健造・名和一成・駒 沢正夫(2010)20万分の1地質図幅「伊勢」,産業技術総合研究所地質調査総合センター.
- Sano, T., Fukuoka, T., Hasenaka, T., Yonezawa, C., Matsue,H., and Sawahata, H. (1999) Accurate and efficient determination of boron content in volcanic rocks by neutron induced prompt γ -ray analysis. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 239, 613-617.
- Sano, T., Hasenaka, T., Shimaoka, A., Yonezawa, C., and Fukuoka, T. (2001) Boron contents of Japan Trench sediments and Iwate basaltic lavas, northeast Japan arc: estimation of sediment-derived fluid contribution in mantle wedge. *Earth and Planetary Science Letters*, 186, 199-213.
- Shimoda, G., and Tatsumi, Y. (1999) Generation of rhyolite magmas by melting of subducting sediments in Shodo-Shima island, Southwest Japan, and its bearing on the origin of high-Mg andesites. *Island Arc*, 8, 383–392.
- 新正裕尚(1995)四国西南部,四万十帯北帯の頁岩・砂岩の全岩化学組成.堆積学研究,41, 33-38.
- Shinjoe, H. (1997) Origin of the granodiorite in the forearc region of southwest Japan: Melting of the Shimanto accretionary prism. *Chemical Geology*, **134**, 237–255.
- 新正裕尚・折橋裕二・和田穣隆・角井朝昭・中井俊一(2007)紀伊半島中新世珪長質火成岩類の全 岩組成の広域的変化. 地質学雑誌, 113, 310-325.
- Shinjoe, H., Orihashi, Y., Naranjo, J.A., Hirata, D., Hasenaka, T., Fukuoka, T., Sano, T., and Anma, R. (2013) Boron and other trace element constraints on the slab-derived component in Quaternary volcanic rocks from the Southern Volcanic Zone of the Andes. *Geochemical Journal*, 47, 185-199.
- 角井朝昭・内海茂・新正裕尚・下田玄(1998) K-Ar法による熊野酸性火成岩類の年代の再検討. 地 質学雑誌, 104, 387-394.
- 谷健一郎・折橋裕二・中田節也(2002) ガラスビードを用いた蛍光X線分析装置による珪酸塩岩石 の主・微量成分分析:3倍・6倍・11倍希釈ガラスビード法の分析精度の評価.東京大学地震研 究所技術報告,8,26-36.
- Tatsumi, Y. (2006) High-Mg andesites in the Setouchi Volcanic Belt, Southwestern Japan: Analogy to Archean magmatism and continental crust formation? *Annual Review of Earth* and Planetary Sciences, 34, 467-499.
- 寺岡易司,池田幸雄,鹿島愛彦(1986) 宇和島地域の地質,地域地質研究報告(5万分の1地質図幅), 地質調査所, 91p.