

Online ISSN : 2186-490X

Print ISSN : 1346-4272

地質調査研究報告

地質調査研究報告

BULLETIN OF THE GEOLOGICAL SURVEY OF JAPAN

Vol. 67 No. 2 2016



Bulletin of the Geological Survey of Japan

Vol. 67, No. 2, P. 41-65

2016



国立研究開発法人

産業技術総合研究所 地質調査総合センター



平成28年

論文

- Geochemical variation of the Late Cretaceous-Paleogene granitoids across the Ehime-Hiroshima-Shimane transect, Japan
Shunso Ishihara and Tetsuji Ohno 41

概報

- SHRIMPによるジルコン U-Pb 年代測定：試料調製法及び標準試料測定結果
荒岡大輔・昆 慶明・江島輝美 59

表紙の写真

島根県 中東部の雲南市掛合町に見られる磁鉄鉱系花崗岩の風化露頭

花崗岩はカリウム長石がピンク～赤褐色を示すことが多い。好例は時代的に著しく古い先カンブリア紀花崗岩類に見られ、粗粒のカリ長石が帯色し全体が赤褐色に見える。その原因は、この岩石が主に磁鉄鉱系に属するために少量の磁鉄鉱を含み、それが若干の風化作用によって生じる粉状赤鉄鉱や褐鉄鉱によるものと考えられている。

しかし我が国では、磁鉄鉱を含まないチタン鉄鉱系に属する岡山市内の萬成花崗岩がピンク花崗岩としては著名であり、商業的に販売されている。国会議事堂も同系統の花崗岩で作られ、これは山陽帯の倉橋島納^{おきま}の産である。領家帯の花崗岩類は一般に白色である。我が国の花崗岩のカリ長石の色の原因については、まだ研究の余地がある。

写真は島根県雲南市掛合町波多において、1992年の国道建設時に見られた切り割面で、磁鉄鉱系に属するピンク花崗岩が著しい風化作用によって赤褐色化したものである。このような赤褐色化が著しい風化花崗岩露頭は山陽帯や領家帯では存在しない。

(写真・文：石原舜三)

Cover photograph

Outcrop of weathered magnetite-series granite in the Sanin belt, Shimane Prefecture

K-feldspars in granites are often pink to reddish brown in color, particularly those in Precambrian granites, which belong to the magnetite-series. Stain is considered to be caused by powdery hematite and limonite resulted from oxidation of primary magnetite in the granite.

In Japan, Mannari stone from Okayama City is well-known and commercially popular colored granite. Similar granite from Hiroshima Prefecture is used for the Diet Building of Japan. Occurring in the Sanyo ilmenite-series granite belt, they don't contain magnetite and are Late Cretaceous in age. On the other hand, granite intruded into the Ryoke metamorphic rocks has no pink coloration. Coloration of K-feldspar in granites from Japan needs to be carefully studied.

The picture above is strongly colored weathered granite of the magnetite series in the Sanin belt, middle Shimane Prefecture. The intense weathering of the magnetite-rich pink granite resulted in the reddish brown color of the outcrop, which cannot be seen in the Sanyo belt or Ryoke belt.

(Photograph and Caption by Shunso Ishihara)

Geochemical variation of the Late Cretaceous-Paleogene granitoids across the Ehime-Hiroshima-Shimane transect, Japan

Shunso Ishihara^{1,*} and Tetsuji Ohno²

Shunso Ishihara and Tetsuji Ohno (2016) Geochemical variation of the Late Cretaceous-Paleogene granitoids across the Ehime-Hiroshima-Shimane transect, Japan. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 67 (2), p. 41–58, 5 figs, 5 tables, 1 appendix.

Abstract: Geochemical and geomagnetic character of the Late Cretaceous-Paleogene granitic batholith was examined at N-S transect across the city of Hiroshima. The granitoids are mostly biotite granite in composition, but granodiorite predominates in the Takanawa Peninsula. Their magnetic susceptibility is the highest in the Sanin belt, but becomes lower of the ilmenite-series to the south and lowest in the southernmost Ryoke belt. The granitoids are most sodic in the Sanin belt and potassic in the Sanyo and Ryoke belts, which may reflect igneous and sedimentary source rocks, respectively. The alumina saturation index (A/CNK) is above 1.0, i.e., peraluminous, but never exceeding 1.1 for S-type granite. Rb and Pb replacing K are the least in the Sanin belt but the highest in the Ryoke and southern Sanyo belts. High-Sr granitoids and adakite of the northern Kyushu and the Kinki district were not found in the studied regions. Zircon saturation temperatures in the average of the studied granitoids are the highest of 753 °C in the Ryoke belt, because granodiorite predominates here.

Keywords: Granitoids, magnetite-/ilmenite-series, petrochemistry

1. Introduction

Granitic rocks occur most widely in the Inner Zone of Southwest Japan. When their radiometric ages became available, the granitoids were found to have older, Late Cretaceous in age (95-75 Ma, K-Ar) in its southern parts of the Sanyo and Ryoke belts, and younger, Paleogene age (60-50 Ma, K-Ar) in the Sanin belt toward north (e.g., Kawano and Ueda, 1966). Recent U-Pb ages on zircon indicate also younging ages from 98-95 Ma in the Ryoke belt, 92-86 Ma in the Sanyo belt, and to 64-33 Ma in the Sanin belt, mainly on the Matsuyama-Hiroshima-Shimane transect (Tani *et al.*, 2014). They were essentially different in the rock-forming oxide minerals; magnetite-bearing in the Sanin belt and magnetite-free in the Sanyo and Ryoke belts (Ishihara, 1971, 1979), and also on the contained mafic silicate minerals (Czamanske *et al.*, 1981) and apatite (Ishihara and Moriyama, 2016).

These granitoids intrude into the late Paleozoic and Jurassic metamorphic and sedimentary rocks, and the Late Cretaceous volcanic-sedimentary rocks. Exposures of the granitoids are

sporadic, no continuous outcrop from the Sanyo belt to the Sanin belt in general, but one at the Oasa township in the very northern of the Hiroshima Prefecture (Fig. 1). Therefore, the granitoid samples were collected there and dated by K-Ar method on the biotites, and found to have older than 80 Ma toward south and 64 to 38 Ma toward the north of Oasa township (Shibata and Ishihara, 1974), and cross-cut relationship was found at north of Oasa and studied by Higashimoto (1975).

Recently, U-Pb zircon age determination was performed on 92 granitoid samples across the eastern Chugoku District, about 120 km east of our studied region (Iida *et al.*, 2015). They emphasized a stepwise decreasing on the measured ages northward from 95 to 30 Ma, with a distinct time gap between 60 and 48 Ma, although no intrusive relationship between each body has been observed. Besides the ages, regional variations of Fe₂O₃/FeO ratio (Ishihara, 1971), magnetic susceptibility (Ishihara, 1979), $\delta^{18}\text{O}$ in quartz (Honma and Sakai, 1976) of the granitoids have been reported in the Chugoku District. There may be some other variations on the chemical compositions.

This paper intends to clarify the regional variations on

¹ AIST, Geological Survey of Japan, Research Institute of Geology and Geoinformation

² AIST, Geological Survey of Japan, Research Institute for Georesources and Environment

*Corresponding author: S. Ishihara, Central 7,1-1-1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305-8567, Japan. Email: s-ishihara@aist.go.jp

chemistry of these granitoids, and to consider the genetic background of these parameters. Locations of the analyzed samples are shown in Figure 1, and the sample locality and magnetic susceptibility data are described in Appendix 1.

2. Geological background of the studied area

The studied areas across the Late Cretaceous plutonic rocks of the western Shikoku and the Late Cretaceous to Paleogene ones of the central Chugoku districts are shown in Figure 1. The studied rocks are listed in Appendix 1, and their chemical compositions are given from south to north in Tables 1 to 5. The rocks are mostly granitic in composition; mafic plutonic rocks occur very locally at the tip of the Takanawa Peninsula and in the Kitahiroshima-cho to the north of Hiroshima city.

2.1 Ryoke belt granitoids

The southernmost part of the studied granitoids are those in the Takanawa Peninsula, which are considered to belong mostly to the Ryoke metamorphic and plutonic rocks (Hirokawa, 1965; Okamura, 1967), except for biotite granites around the northern tip where occurring together metasomatic syenites (Murakami, 1959) and rare metal-bearing pegmatites (Minagawa *et al.*, 1978, 2001; Sato *et al.*, 2014), both of which are characteristic of the Sanyo belt granitoids (e.g., Aoki and Hida, 1974). The Ryoke granitoids were once classified as “older” and “younger” (Miyahisa and Hiraoka, 1970) without any radiometric age data.

The plutonic rocks are composed of magnetite-free rocks of tonalite and granodiorite mostly with some amounts of granites and then a little gabbroid (Ochi, 1982). They are mineralogically magnetite-free I-type granitoids, but garnet-bearing two mica granites are present very locally to the northwest in the Yanai district of Yamaguchi Prefecture. In the Takanawa Peninsula, the alumina-saturation index (A/CNK, Table 1) is below the limit of S type of 1.1, thus I type. The magnetic susceptibilities as measured by Bison 3101 Model are very low, even on the low silica rocks (Appendix 1 and Table 1). Whole-rock $\delta^{18}\text{O}$ ratios of these granitoids are high as 10 to 11 ‰ regardless of the silica contents, and initial Sr ratio is 0.70773 with an Rb-Sr age of 92.6 ± 3.8 Ma (Honma *et al.*, 1983).

Recent U-Pb age dating on zircon indicates that the ages vary from 97.8 ± 1.1 Ma to 95.3 ± 1.1 Ma (Tani *et al.*, 2014, and unpublished data), which are the oldest among the studied granitoids of the whole region. The granitoids are older than similar granitoids exposed to the east in Kagawa Prefecture of the same Shikoku Island. Eleven plutonic rocks were studied chemically including two gabbroids and one syenite (Table 1).

2.2 Sanyo belt granitoids

To the north, there occur granitoids of the Sanyo belt, which are also called as Kure Granite around Kure city (Higashimoto *et al.*, 1985) and Hiroshima Granite around Hiroshima city. They are magnetite-free in the opaque minerals (i.e., ilmenite series) and are characterized by pink colored K-feldspar. U-Pb ages of zircon are 92.1 ± 0.8 and 92.3 ± 1.0 Ma at Kure and Kurahashijima (Tani *et al.*, 2014), where biotite granite mainly and lesser amount of granodiorite are exposed (Higashimoto *et al.*, 1985). The central part of the Hiroshima Granite around Hiroshima and Kabe regions to the north have slightly younger in the zircon U-Pb age of 87.3 ± 0.9 to 85.6 ± 1.0 Ma (Tani *et al.*, 2014). The rock assemblage is similar but contains xenolithic mass of gabbroids (sample nos. 73H72 and 73H89, Table 3).

The Hiroshima granites as a batholithic intrusion are composed of medium-grained hornblende-bearing biotite granite, medium- to coarse-grained biotite granite and fine-grained biotite granite, containing xenolithic gabbroids very locally. Oxygen isotopic ratios, $\delta^{18}\text{O}$ values of quartz of the granitoids, decrease north from 13 ‰ at the Ryoke metamorphic belt, to 9 ‰ around the Kabe area (Honma and Sakai, 1976). Small pegmatites often occur in the Seto Inland Sea region, which can contain rare metal minerals (Sato *et al.*, 2014), and productive amounts of Be-bearing minerals, such as phenacite hosted in the skarn body and danalite in the intruded alkaline granites at Mihara mine (Aoki and Hida, 1974).

Based on the sheet mapping results of 1:50,000 scale of Higashimoto *et al.* (1985), Takahashi *et al.* (1989) and Takahashi (1991), Takahashi (1993) emphasized in the Hiroshima city area that the main part is vertically zoned pluton, consisting of upper coarse-grained and lower medium-grained granites, although the SiO_2 contents vary only from 76 to 71%. The coarse-grained granite appear to be later than the medium-grained one, then fine-grained one is the youngest. These intrusive sequences have also been observed in the Kaitaichi Quadrangle (Takagi and Mizuno, 1999), although the age variation has not been given to the sequence. In the Daito-Yamasa region of the Sanin district, the marginal leucogranites gave older zircon ages of 65.3 and 64.2 Ma, while coarse-grained batholithic granite and granodiorite were dated at much younger ages of 59.7 Ma and 56.6 Ma, respectively (Ishihara and Tani, 2013). Thus, similar age determination is necessary in the Hiroshima region.

Hayashi (1995) found in the Togouchi-Yuu-Takehara region that the Hiroshima Granite is not a uniform body but accumulated layered bodies. Relatively mafic granites as granodiorite or hornblende-bearing granite occur above tabular body of biotite granites. He concluded that the Hiroshima granite as a whole tabular body dipping gently southward, intruded into the Late Cretaceous volcanic rocks after the rhyolitic eruption of the

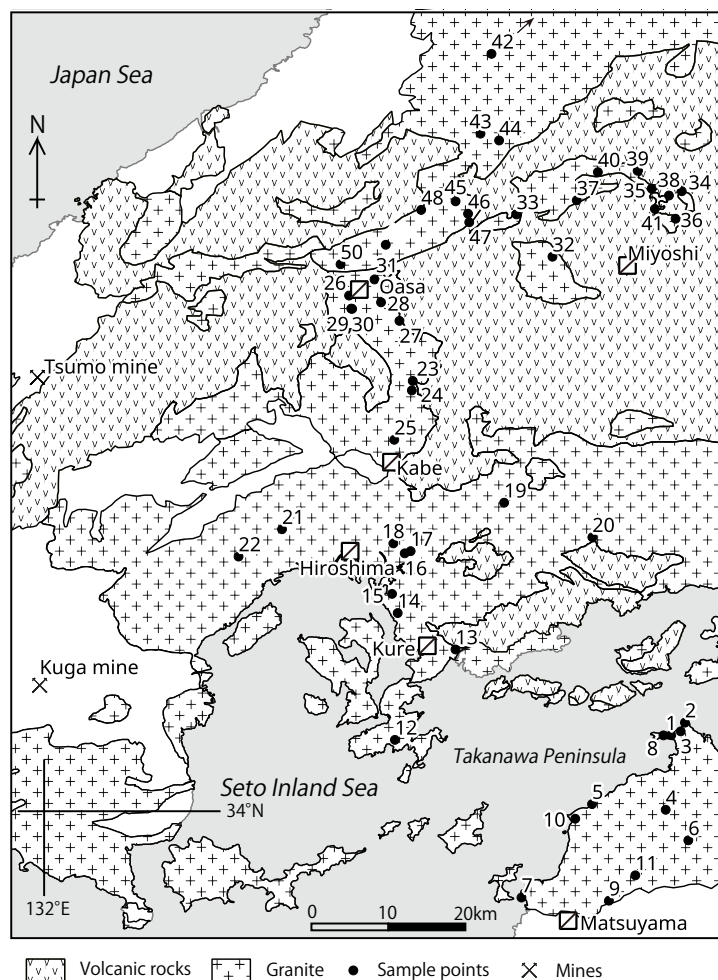


Fig. 1 Distribution of granitoids along the Hiroshima transect of central Chugoku District.

Takada Rhyolites.

To the north of Oasa township, similar granitoids are continuously exposed from the Sanyo belt (Hiroshima Pref.) to north of the Sanin belt (Shimane Pref.). Shibata and Ishihara (1974) determined the K-Ar ages on the biotites, and found the abrupt change from 80 to 38 Ma at north of the Oasa township, which were recalculated later by the new decay constant as 82 and 39 Ma, respectively (Sato *et al.*, 1992).

Higashimoto (1975) followed up the results and found that an E-W trending vertical boundary of the two granitoids at 700 m NE of Nobori community at northwest of Oasa township. Here, the southern coarse-grained granite, strictly monzogranite by his modal analyses, which belongs to the Hiroshima Granite with the Late Cretaceous age, was intruded by the northern aplitic-porphyritic granite, strictly syenogranite by modal analyses, of the Paleogene in age.

Rezanov *et al.* (1994) adopted a whole-rock Rb-Sr isochron dating method for the same area, and obtained 72.9 ± 2.8 Ma

of the internal isochron age on the Oasa Granite, which was strangely younger than K-Ar biotite age of 80.2 ± 3.2 Ma (Shibata and Ishihara, 1974). A further radiometric dating is needed.

To the east of Oasa, several small granitic bodies occur in Aki-takata city and Miyoshi city region, which give K-Ar biotite ages of 72 Ma at Tokorogi on the Shikijiki Granite and 87 Ma of Miyoshi region (Kawano and Ueda, 1966). Matsuura (1989) added K-Ar biotite age of 84.7 ± 4.2 Ma for the Shikijiki granite, and Rezanov *et al.* (1994) reported a whole rock isochron age of 80.5 ± 3.9 Ma for the same intrusive body.

To further northeast, Takagi *et al.* (1989) identified the Rb-Sr whole-rock-mineral isochron ages of 80.4 ± 3.3 and 83.4 ± 4.4 Ma on the two granitic stocks of Mitsumori and Ikuridani granites, which constitute the basement for Miocene U-bearing sediments (Ishihara *et al.*, 1969). Takagi *et al.* (1989) considered the Mitsumori is typical magnetite-series while the Ikuridani is typical ilmenite-series granites. However, their data on the

Table 1 Chemical compositions of plutonic rocks of the Ryoke belt: Takanawa Peninsula, Ehime Prefecture.

Location	Ryoke belt: Takanawa Peninsula, Ehime Prefecture										
Filing no.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Sample no.	75 MY 10	75 MY 15	75 MY 14	75 MY 20	75 MY 6	75 MY 21	75 MY 4	75 MY 13	75 MY 2	75 MY 5	75 MY 1
SiO ₂	47.59	53.67	63.14	66.63	67.13	68.59	71.99	75.06	75.42	76.63	77.94
TiO ₂	0.32	1.23	0.22	0.59	0.64	0.47	0.26	0.09	0.20	0.09	0.07
Al ₂ O ₃	19.83	16.37	18.41	15.65	15.54	14.14	14.03	12.86	13.01	12.75	12.56
Fe ₂ O ₃ (T)	6.36	8.97	2.52	4.56	4.74	3.80	2.67	1.24	1.94	1.19	0.77
MnO	0.12	0.16	0.08	0.08	0.08	0.08	0.06	0.03	0.06	0.02	0.03
MgO	8.39	4.49	0.17	1.23	1.28	1.04	0.45	0.13	0.35	0.08	0.10
CaO	14.30	8.61	3.26	4.05	4.52	3.38	2.01	1.24	1.62	0.75	0.94
Na ₂ O	0.96	2.09	3.75	3.11	3.22	3.33	3.08	2.96	3.29	3.01	2.87
K ₂ O	0.23	1.43	8.07	3.11	2.51	2.97	3.98	4.81	4.45	4.85	5.50
P ₂ O ₅	0.05	0.17	0.05	0.16	0.14	0.14	0.06	0.03	0.07	<0.01	0.03
S	0.15	0.04	0.02	0.02	0.02	0.02	0.01	0.05	0.01	0.01	0.01
LOI	1.20	1.46	0.28	0.76	0.73	0.87	0.94	0.63	0.50	0.72	0.18
Total	99.35	98.66	99.96	99.94	100.50	98.81	99.53	99.08	100.90	100.10	101.00
Rb	<10	40	220	90	100	130	140	180	170	160	130
Sr	321	287	649	254	276	207	149	90	112	67	53
Ba	37	222	951	651	555	485	613	355	268	727	126
Zr	18	128	172	170	151	135	112	81	93	111	70
Hf	0.3	2.6	4	3.8	2.8	2.6	2.8	2.6	2.5	2.9	2.6
Ta	<0.3	<0.3	<0.3	1.3	<0.3	1.2	1.4	1.3	1.2	0.9	<0.3
Y	6	26	24	38	19	24	23	28	18	16	10
V	157	132	7	48	50	38	16	7	13	<5	<5
Cr	454	109	<0.5	12.6	11.2	6.8	1.4	<0.5	2.7	<0.5	<0.5
Co	35.3	25	2.8	8.4	8.2	6.7	4	<0.1	2.3	<0.1	1.4
Ni	55	23	4	11	5	9	1	3	2	2	1
Cu	58	23	5	3	3	3	4	27	2	2	1
Zn	34	82	62	69	71	53	56	41	45	38	15
Pb	<5	8	25	15	11	7	20	35	23	22	39
As	6	<1	<1	2	<1	<1	<1	19	<1	<1	<1
Mo	<2	<2	2	<2	<2	<2	3	12	<2	<2	<2
W	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
Sb	0.2	0.2	<0.1	0.2	<0.1	0.2	<0.1	0.3	0.2	0.3	0.1
Cs	1.2	2.8	2.7	3.1	3.2	4.7	5	3.4	8.6	4.1	3
Th	0.5	5.4	16.6	15.6	11.5	14.1	20.7	19.1	17.5	19.1	31.9
U	<0.1	0.8	2.2	3.1	1.8	3.2	4.5	4.7	6	2.9	7
Be	<1	1	2	2	2	2	2	2	2	2	1
Sc	35.4	33.7	6.32	11.9	9.47	9.28	7.36	2.66	3.48	4.21	1.46
La	2.72	18.6	49.3	39.4	33.5	31	36	25.8	20	22.4	13.3
Ce	6	40	89	74	59	55	64	48	39	31	27
Nd	<1	26	47	32	29	25	27	24	18	21	14
Sm	0.97	5.28	7.94	6.97	4.87	4.63	5.06	4.75	3.39	3.99	2.55
Eu	0.43	1.01	1.15	1.09	1.06	0.87	0.81	0.46	0.52	0.5	0.3
Tb	<0.1	0.7	0.7	1	<0.1	0.6	<0.1	0.7	<0.1	<0.1	0.6
Yb	0.65	2.49	2.08	3.35	1.63	2.49	2.46	2.95	2.21	1.88	1.31
Lu	0.09	0.38	0.32	0.5	0.27	0.38	0.41	0.48	0.39	0.31	0.21
A/CNK	0.71	0.79	0.88	0.99	0.96	0.95	1.08	1.04	0.99	1.10	1.01
ZrT(°C)	545	707	752	778	765	759	760	734	739	766	721

Table 2 Chemical compositions of plutonic rocks of the Sanyo belt: Hiroshima city south, Hiroshima Prefecture.

Location	Sanyo belt: Hiroshima city south, Hiroshima Prefecture										
Filing no.	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22
Sample no.	OSM1	76H 156	76H 153	76H 152	410072	410074	76H 151	76H 161	76H 158	73H77	73H98
SiO ₂	74.13	73.06	76.58	72.58	73.66	76.70	76.68	71.18	75.35	73.68	75.35
TiO ₂	0.19	0.20	0.08	0.25	0.20	0.03	0.02	0.29	0.10	0.21	0.12
Al ₂ O ₃	13.18	13.27	12.68	14.03	13.58	12.06	12.36	13.93	12.96	12.94	12.38
Fe ₂ O ₃ (T)	2.18	2.29	1.36	2.76	2.12	0.85	1.00	2.93	1.59	2.20	1.45
MnO	0.05	0.05	0.03	0.07	0.06	0.03	0.04	0.07	0.05	0.06	0.04
MgO	0.22	0.27	0.06	0.50	0.37	0.02	0.03	0.58	0.15	0.38	0.20
CaO	1.57	1.93	1.01	2.32	1.80	0.64	0.26	2.40	1.12	1.65	1.07
Na ₂ O	3.02	3.30	3.28	3.57	3.16	3.30	4.11	3.46	3.24	3.31	3.18
K ₂ O	4.52	3.76	4.44	3.47	4.26	4.66	4.25	3.06	4.45	4.12	4.64
P ₂ O ₅	0.05	0.05	0.02	0.07	0.06	0.01	0.02	0.07	0.02	0.05	0.02
S	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01
LOI	0.67	0.20	-0.06	0.48	0.26	0.20	0.64	0.46	0.28	0.59	0.49
Total	99.77	98.40	99.47	100.10	99.52	98.52	99.42	98.44	99.32	99.19	98.94
Rb	190	160	120	140	160	210	180	90	200	140	170
Sr	109	127	124	146	119	15	22	193	69	112	63
Ba	472	610	2346	423	506	38	50	718	349	478	402
Zr	124	111	88	156	102	63	65	125	86	115	85
Hf	5.1	4.6	3.2	4.1	2.6	4	3.7	5.1	3.5	3.5	3.1
Ta	1.6	1.5	<0.3	1.2	<0.3	<0.3	2	<0.3	1.3	1.4	1.2
Y	39	43	20	31	22	24	60	21	40	19	24
V	10	11	<5	23	16	<5	<5	28	7	17	9
Cr	<0.5	<0.5	1	3.3	7.6	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5
Co	12.1	1.8	1.4	3.9	12.3	9.3	1.5	5	2.2	2.8	2.1
Ni	3	3	1	2	3	2	1	2	1	2	2
Cu	3	1	<1	1	<1	<1	2	9	1	<1	<1
Zn	58	51	21	54	37	16	15	48	40	45	23
Pb	24	20	15	17	21	35	11	16	23	19	24
As	1	<1	<1	<1	<1	<1	2	<1	<1	<1	<1
Mo	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2
W	71	<1	<1	<1	56	64	1	<1	<1	1	<1
Sb	0.5	0.1	0.2	0.1	0.3	<0.1	0.4	<0.1	0.1	0.4	0.3
Cs	10.2	4.1	2.4	5.4	6.7	6.5	1.9	3.2	5	1.9	3.5
Th	16.9	18.1	14.4	16.8	15	17.5	24.1	11.3	16.8	24.1	20.7
U	5.4	4.6	2.7	4.3	4.2	4	6	2	3.9	6	6.5
Be	2	2	1	3	2	3	6	2	2	6	2
Sc	6.62	6.18	2.91	6.05	3.74	1.43	2.45	7.1	2.41	2.45	2.01
La	30.8	38.5	36.8	28.4	25.8	13.5	11	33.8	23.5	11	21.3
Ce	58	66	57	48	48	28	18	59	43	18	34
Nd	33	33	27	21	25	11	14	25	22	14	16
Sm	5.67	6.57	4.72	4.74	3.39	2.9	4.94	4.06	4.31	4.94	3.02
Eu	0.66	0.72	0.88	0.69	0.57	<0.05	0.12	0.94	0.42	0.12	0.34
Tb	<0.1	0.9	0.5	0.6	0.8	1	1	<0.1	0.6	1	<0.1
Yb	3.34	4.66	2.37	3.8	2.65	3.3	6.63	2.25	4.31	6.63	2.95
Lu	0.57	0.66	0.36	0.58	0.41	0.57	1.02	0.4	0.65	1.02	0.47
A/CNK	1.04	1.02	1.05	1.01	1.04	1.04	1.04	1.04	1.06	1.04	1.01
ZrT(°C)	743	755	742	781	750	716	742	765	741	719	736

High values of W and Co on the 16 and 17 samples are due to crushing device.

Table 3 Chemical compositions of plutonic rocks of the Sanyo belt: Hiroshima city north, Hiroshima Prefecture.

Sanyo belt: Hiroshima city north, Hiroshima Prefecture										
Location										
Filing no.	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32
Sample no.	73H 72	73H 89	73H 93	73H 86	73H67	73H 68	73H 83A	73H 83B	73H 88	73H 82
SiO ₂	52.39	61.32	73.16	73.74	75.39	75.09	75.80	77.53	72.91	77.32
TiO ₂	1.28	0.72	0.22	0.19	0.12	0.12	0.06	0.06	0.18	0.04
Al ₂ O ₃	18.56	15.45	13.54	14.24	13.30	13.78	12.32	12.66	14.10	12.23
Fe ₂ O ₃ (T)	10.90	6.30	2.45	2.24	1.82	1.61	1.13	1.11	2.03	1.02
MnO	0.19	0.11	0.07	0.07	0.06	0.06	0.05	0.05	0.07	0.04
MgO	3.76	3.03	0.46	0.34	0.23	0.21	0.10	0.09	0.37	0.05
CaO	8.86	6.34	2.13	1.91	1.36	1.42	0.83	0.82	1.66	0.57
Na ₂ O	2.93	3.12	3.50	3.68	3.43	3.68	3.22	3.35	3.45	3.27
K ₂ O	0.70	1.64	3.67	3.35	4.13	4.35	4.46	4.65	3.70	4.78
P ₂ O ₅	0.33	0.17	0.07	0.06	0.04	0.02	0.04	0.02	0.03	0.02
S	0.03	0.03	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.00
LOI	0.31	1.09	0.32	0.66	0.68	0.28	0.30	0.34	0.71	0.18
Total	100.20	99.28	99.59	100.50	100.60	100.60	98.29	100.69	99.21	99.52
Rb	20	50	130	100	110	140	180	140	150	200
Sr	437	391	146	191	114	121	51	69	162	23
Ba	212	381	417	587	560	582	260	545	635	94
Zr	68	150	99	95	90	106	73	85	126	78
Hf	1.7	3.2	3.3	4.2	3	4	3.8	3.3	5.1	3.9
Ta	0.7	<0.3	0.8	<0.3	<0.3	<0.3	1.6	1.3	1.1	<0.3
Y	19	17	26	22	20	21	25	16	27	28
V	196	138	21	13	11	10	5	9	19	<5
Cr	9.7	26.7	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	5.9	<0.5
Co	23.3	15.8	4	3.2	2.3	3	1.8	1.8	4.1	<0.1
Ni	6	17	2	2	2	2	<1	2	<1	2
Cu	12	22	<1	2	4	3	<1	2	<1	<1
Zn	109	75	45	39	38	28	21	18	41	17
Pb	<5	8	17	13	16	17	21	11	13	24
As	<1	<1	<1	<1	<1	1	<1	<1	2	<1
Mo	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	5	<2	<2
W	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
Sb	0.2	<0.1	0.3	<0.1	0.2	<0.1	<0.1	<0.1	0.2	<0.1
Cs	1	1.6	4.2	3.3	2.9	3.4	5.4	1.9	5.2	3.6
Th	1.7	4.6	15.8	9.9	14.7	15.1	15.9	11.3	17.9	20.7
U	<0.1	0.9	5.1	2.8	3.9	3.2	3.4	3.7	4.2	4.1
Be	<1	1	2	2	2	2	2	2	2	2
Sc	26.2	17.3	4.24	4.26	2.74	2.82	2.28	3.94	5.05	2.26
La	12.3	19.7	20.3	31.3	30.1	33.7	22.9	23.5	36.6	18.8
Ce	23	34	35	58	48	57	44	39	65	33
Nd	14	19	16	33	22	30	19	17	30	22
Sm	3.69	3.79	3.54	4.04	3.76	4.11	3.49	2.66	4.98	3.89
Eu	1.17	0.89	0.53	0.76	0.49	0.56	0.33	0.42	0.77	<0.05
Tb	<0.1	0.4	0.5	<0.1	0.6	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
Yb	1.88	1.68	2.84	2.2	2.22	2.46	2.68	2.29	3.74	3.27
Lu	0.28	0.24	0.42	0.35	0.34	0.41	0.48	0.38	0.68	0.56
A/CNK	0.86	0.84	1.00	1.08	1.06	1.03	1.06	1.08	1.03	1.06
ZrT(°C)	719	740	666	740	767	747	753	764	813	743

Table 4 Chemical compositions of plutonic rocks of the Miyoshi-Shobara cities, Hiroshima Prefecture.

Location	Miyoshi-Shobara cities, Hiroshima Prefecture								
Filing no.	33	34	35	36	37	38	39	40	41
Sample no.	74H 119	67S 15	67S 31	67S 26	67S 39	67S 21	67S 25	67S 32	67S27
SiO ₂	73.37	52.12	67.73	69.10	69.44	73.12	73.13	76.86	79.33
TiO ₂	0.23	1.14	0.46	0.33	0.30	0.25	0.17	0.03	0.05
Al ₂ O ₃	14.36	17.12	15.88	14.77	15.05	14.43	14.89	12.46	11.96
Fe ₂ O ₃ (T)	2.42	9.82	4.20	3.21	2.97	2.48	1.62	0.66	0.87
MnO	0.06	0.17	0.09	0.09	0.08	0.08	0.04	0.03	0.04
MgO	0.42	4.16	1.52	2.89	0.74	0.48	0.30	0.03	0.03
CaO	1.95	7.63	4.01	4.01	2.51	1.94	2.18	0.56	0.13
Na ₂ O	3.72	2.94	3.44	3.44	3.84	4.12	4.09	3.70	3.47
K ₂ O	3.89	0.80	2.64	2.64	3.34	3.23	2.96	4.79	4.62
P ₂ O ₅	0.05	0.24	0.09	0.09	0.10	0.07	0.05	0.01	<0.01
S	0.02	0.03	0.03	0.02	0.02	0.01	0.04	0.00	0.02
LOI	0.71	2.11	2.11	0.71	0.89	0.48	0.66	0.12	0.32
Total	99.21	98.29	102.20	100.51	98.45	99.26	100.70	99.25	100.80
Rb	130	< 10	80	100	140	100	40	300	130
Sr	150	362	278	223	242	184	230	15	18
Ba	402	145	444	566	435	568	720	35	242
Zr	89	67	100	164	117	140	87	75	81
Hf	4	2.5	2.9	4.5	4	4.9	2.7	4.4	4.7
Ta	1.4	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	2.8	<0.3
Y	24	23	15	24	21	31	15	60	40
V	17	271	87	30	35	17	15	<5	<5
Cr	<0.5	35.6	25	37.4	17.4	23.8	26.7	23.7	20.9
Co	3.3	26.7	9.2	5.3	5.4	3.3	2.2	<0.1	1.7
Ni	2	11	13	12	6	6	9	6	7
Cu	11	51	8	2	2	1	8	4	2
Zn	40	94	47	64	35	52	31	25	37
Pb	13	< 5	6	11	9	10	10	37	21
As	<1	<1	<1	1	1	<1	<1	2	2
Mo	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2
W	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
Sb	<0.1	0.3	0.2	0.4	<0.1	<0.1	<0.1	0.2	0.2
Cs	3.3	4.1	2.4	5.5	3.5	2.9	1.9	4.4	3.2
Th	13.6	2.6	7.3	9.4	10.5	9.2	5.6	24.3	14.6
U	3.7	<0.1	1.7	2.6	3.2	3	1.2	6.4	4.5
Be	2	<1	1	2	2	2	2	3	2
Sc	4.83	37.5	12	7.32	5.66	7.71	3.18	2.34	2.94
La	22.2	11.1	19.3	31.9	31.7	33.4	16.7	11	13.7
Ce	43	23	35	51	49	63	25	25	32
Nd	20	17	7	25	22	41	11	7	18
Sm	3.91	4.05	2.67	4.73	3.93	5.99	2.42	4.45	4.29
Eu	0.62	1.33	0.85	0.91	0.82	1.02	0.93	0.15	< 0.05
Tb	<0.1	0.8	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	0.4	<0.1	<0.1
Yb	3.13	2.49	1.65	2.23	2.31	3.92	1.5	6.75	4.52
Lu	0.51	0.42	0.26	0.34	0.41	0.69	0.24	1.02	0.73
A/CNK	1.11	0.87	1.00	1.03	1.04	1.05	1.07	1.01	1.09
ZrI(°C)	815	673	724	673	737	784	756	775	738

Table 5 Chemical compositions of plutonic rocks of the Sanin belt: Southern Shimane Prefecture.

Sanin belt: Southern Shimane Prefecture									
Location									
Filing no.	42	43	44	45	46	47	48	49	50
Sample no.	73H 51	73H 60	73H 61	73H 64	73H 63	73H 62	73H 65	73H 87	73H 66
SiO ₂	70.67	70.92	71.59	75.25	75.55	75.92	76.69	76.91	77.23
TiO ₂	0.41	0.49	0.38	0.12	0.19	0.16	0.13	0.16	0.16
Al ₂ O ₃	14.74	14.82	13.68	12.78	13.13	12.28	12.60	12.72	12.82
Fe ₂ O ₃ (T)	2.99	3.00	2.45	1.52	0.95	1.17	1.63	0.99	1.03
MnO	0.07	0.09	0.07	0.04	0.03	0.02	0.04	0.04	0.03
MgO	1.13	0.68	0.62	0.13	0.31	0.22	0.18	0.18	0.21
CaO	2.80	1.97	1.66	0.94	1.40	0.76	0.94	0.90	0.67
Na ₂ O	3.90	4.52	4.16	3.87	3.95	3.63	3.78	3.94	3.75
K ₂ O	3.09	2.99	3.25	3.74	3.09	3.97	3.88	3.67	4.16
P ₂ O ₅	0.13	0.15	0.09	0.03	0.03	0.03	0.03	0.03	0.02
S	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
LOI	0.32	0.62	0.66	0.20	0.24	0.28	0.04	0.26	0.34
Total	100.30	98.59	98.59	99.64	98.86	98.45	99.96	99.80	100.43
Rb	90	110	90	140	70	110	120	120	190
Sr	344	203	156	67	165	73	68	95	52
Ba	547	447	465	568	550	523	601	516	267
Zr	121	227	219	120	93	86	117	87	69
Hf	3.7	7.8	8.3	5.1	3.9	3.2	5.7	3.2	3.6
Ta	<0.3	1.8	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	1.2	1.8	1.3
Y	13	31	29	32	11	15	35	14	25
V	54	37	28	7	12	10	7	9	6
Cr	11.3	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	5.5
Co	6.4	4.1	3.4	2.4	2.7	1.4	1.8	2.4	1.3
Ni	7	3	10	1	2	1	1	2	2
Cu	4	6	20	2	6	13	2	4	1
Zn	39	41	48	32	16	16	36	24	22
Pb	11	9	14	12	10	11	12	18	21
As	<1	<1	<1	3	<1	<1	<1	2	<1
Mo	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2
W	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1
Sb	<0.1	0.2	<0.1	0.2	<0.1	<0.1	0.3	0.3	0.3
Cs	3	2.3	2.9	3	0.8	1.9	3.3	2.3	4.9
Th	9.1	8.6	8.7	14.6	8.5	10.4	14.2	10.1	14.6
U	2.1	3	2.5	4	2.1	2.6	3.4	3	4.4
Be	1	2	2	2	1	2	2	2	2
Sc	6.44	8.41	6.46	8.12	3.11	3.99	8.21	3.67	2.18
La	25.3	26.4	25.6	30.9	22.3	21.9	37.2	21.6	22.8
Ce	46	53	50	62	35	40	68	37	40
Nd	17	27	24	30	16	16	33	11	16
Sm	2.97	5.35	4.9	5.85	2.03	2.52	6.11	2.44	3.33
Eu	0.76	1.31	1.01	0.74	0.48	0.3	0.79	0.42	0.31
Tb	<0.1	0.9	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	1
Yb	1.37	3.75	3.76	4.91	1.31	1.99	3.86	1.94	2.79
Lu	0.27	0.64	0.7	0.81	0.23	0.35	0.68	0.36	0.49
A/CNK	0.99	1.04	1.02	1.05	1.06	1.05	1.04	1.05	1.05
ZrT(°C)	726	741	755	745	765	767	746	741	741

magnetic susceptibility in Figure 3 indicate that the Ikuridani ilmenite-series granite has validity, but the Mitsumori granite has roughly 50 % of magnetite-free values, not typical magnetite-series.

Their age is also not Paleogene but Late Cretaceous. K-Ar age on biotite of the Mitsumori Granite revealed a Late Cretaceous age of 81.8 ± 4.1 Ma (Matsuura, 1998), and the zircon U-Pb age is slightly older but still in the Late Cretaceous age of 86.2 ± 0.7 Ma (Tani *et al.*, 2014). Thus it is considered to belong to a part of Sanyo belt granitic activities in this paper.

2.3 Sanin belt granitoids

The Sanin belt granitoids of Paleogene age are classified into three groups, as (i) early, (ii) middle and (iii) late intrusive rocks in the Akana Quadrangle Series by Matsuura (1990). The main Paleogene granitoids, elongating ENE direction by a size of 8 and 29 km at ENE of the Oasa township area, are called Asuna Granites, and are divided into the marginal granophyre and the central granite porphyry by Rezanov *et al.* (1994). They give the internal isochron ages of 40.4 ± 2.9 Ma and 28.9 ± 5.8 Ma, respectively.

The age discrepancy is much larger than one can think of the cooling of the marginal to the main phases of the crystallization. The errors are also so large; thus further chronological study, especially on zircon, is definitely needed. One zircon dating in our study showed 39.8 ± 0.6 Ma at north of Akana (Tani *et al.*, 2014). Besides, small dioritic bodies are associated with these biotite granites (Matsuura, 1990).

Along the Tottori-Okayama transect toward the east of our study area, the largest age gap was recognized at 40-60 Ma (Iida *et al.*, 2015), which could separate the granitic activities of the Sanyo and Sanin belts.

3. Result of analyses and discussion on the north-south chemical variation

The studied rocks are listed in Appendix 1, and their chemical compositions are given from south to north in Tables 1 to 5. Chemical analyses were carried out at Activation Laboratories Ltd. (Actlabs, Toronto, Canada) using Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (ICP-MS). Magnetic susceptibilities were measured using Bison 3101 Model susceptibility meter (Bison Instruments Inc., Chanhassen, Minnesota, USA).

The studied rocks are mostly monzogranite in the feldspars and quartz ratios, except for the Takanawa Peninsula in the Ryoke belt where quartz diorite-granodiorite occurs an affair amount. The granitoids are extremely low in the magnetic susceptibility, χ -values below 100×10^{-6} Am²/kg, belonging to the ilmenite-series, both in the Ryoke belt and the southernmost Sanyo

belt. The magnetic susceptibility increases gradually toward the north, then, sporadic magnetite-series values appearing in the ilmenite-series granitic terrane in the northern Sanyo belt (Appendix 1).

Granitoids of the Sanyo belt around the Hiroshima city north region are mostly granitic in composition (see also Takahashi, 1993), and contains locally xenolithic gabbroids including quartz dioritic rocks in the limited places, whose magnetic susceptibility goes up to 731×10^{-6} Am²/kg (e.g., 73H72, Appendix 1); the values are still low as 1/5th of that of typical magnetite-series gabbroids in the Zakka magnetite-placer mine area of the Sanin belt (see, Fig. 8 of Ishihara, 1979). The surrounding granites show the values of the ilmenite-series.

Chemical components of the studied rocks with SiO₂ contents higher than 66 % (granodiorite-granitic composition), are plotted against the silica contents, and are shown from south to north in Figures 2 to 5. The most distinct character is seen in the alkali ratio. Na₂O contents, for example, are least in those of the Ryoke belt and increase gradually toward north, then the highest in those of the Sanin belt (Fig. 2C). On the contrary, K₂O contents are highest in those of the Ryoke belt and are least in those of the Sanin belt (Fig. 2D). Na₂O-rich character was also observed in granitoids of the Shirakawa region of the Chubu District (Ishihara and Tani, 2004), which is an eastern extension area of the Sanin belt.

Na₂O is the main constituent of plagioclase, and also contained in some amounts of the K-feldspar in igneous rocks. Therefore, Na₂O-rich magma must have originated in igneous source rocks containing plagioclase, while K₂O-rich granitoids of the Ryoke belt should be affected by sedimentary source rocks of mainly pelitic in composition. In the Japanese eugeosynclinal sediments, the pelitic rocks are generally K₂O > Na₂O but psammitic rocks are Na₂O > K₂O (Ishihara *et al.*, 1985). Contribution of the sedimentary rocks on the granitoids of the Ryoke and southern Sanyo belts were proved by relatively high oxygen-isotopic ratios on the mineral and whole rock values on these granitoids (Honma and Sakai, 1976; Ishihara and Matsuhisa, 2001).

Among mafic components, MgO and TiO₂ are enriched in the granitoids of the Sanin belt (Fig. 2A and Fig. 3B), reflecting Mg-rich compositions of the mafic silicates (Czamanske *et al.*, 1981) and abundant titanite occurring as accessory mineral (e.g., 0.9 vol.% in the Kawai mingling rock, Ishihara, 1971), yet no distinct difference observed on the total iron as Fe₂O₃ (Fig. 3C) and MnO (Fig. 3D). Minor element of Zn (Fig. 5B) is associated with these mafic rock-forming minerals, yet not reflecting on the regional zonal variations.

Both Rb (Fig. 4A) and Pb (Fig. 5A) contents increase with increasing SiO₂ content, because the silica contents are positively correlated with the K₂O contents, and Rb and Pb tend to replace

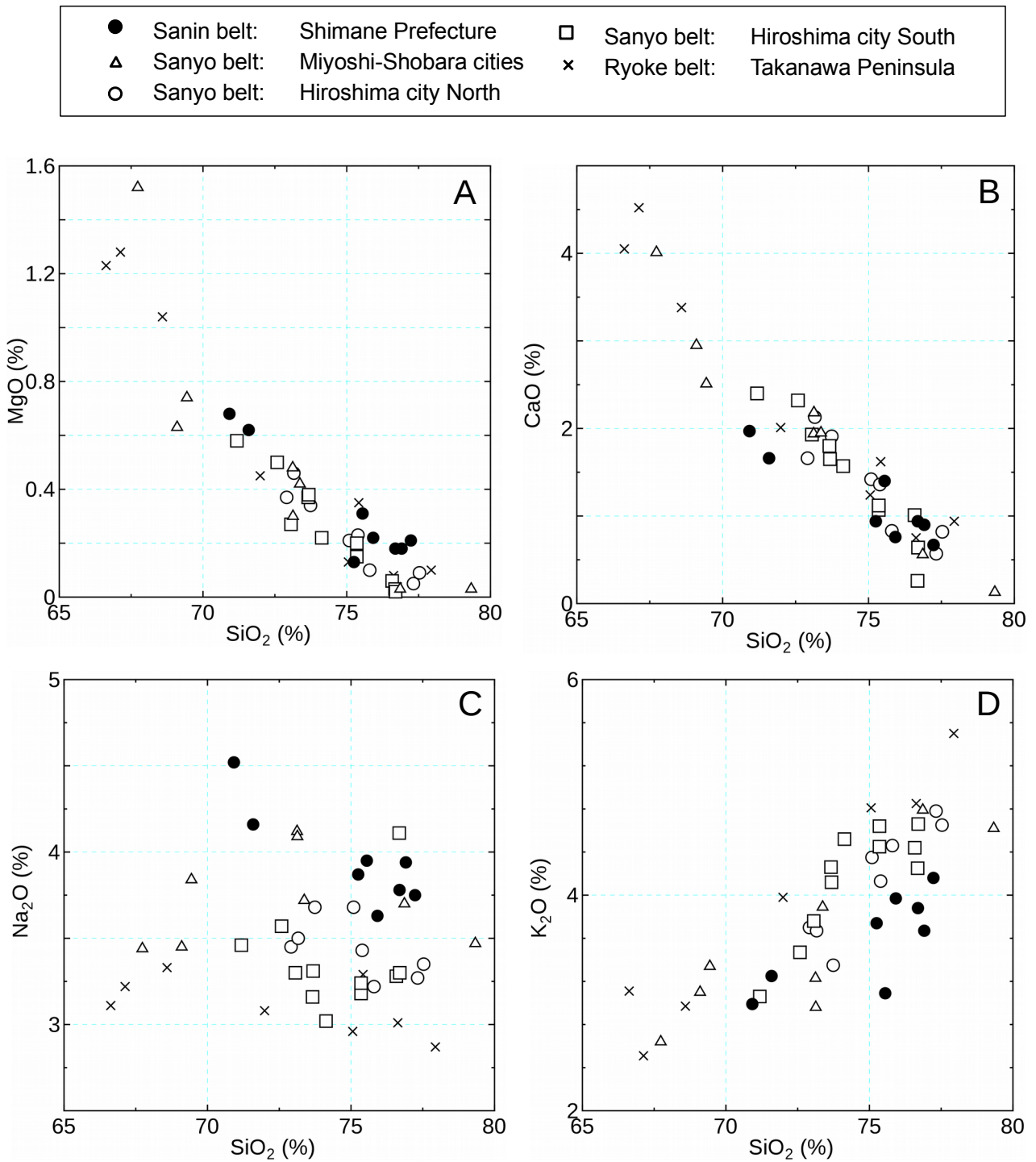


Fig. 2 Contents of MgO, CaO, Na₂O and K₂O plotted against SiO₂ of the granitoids along the Hiroshima city transect.

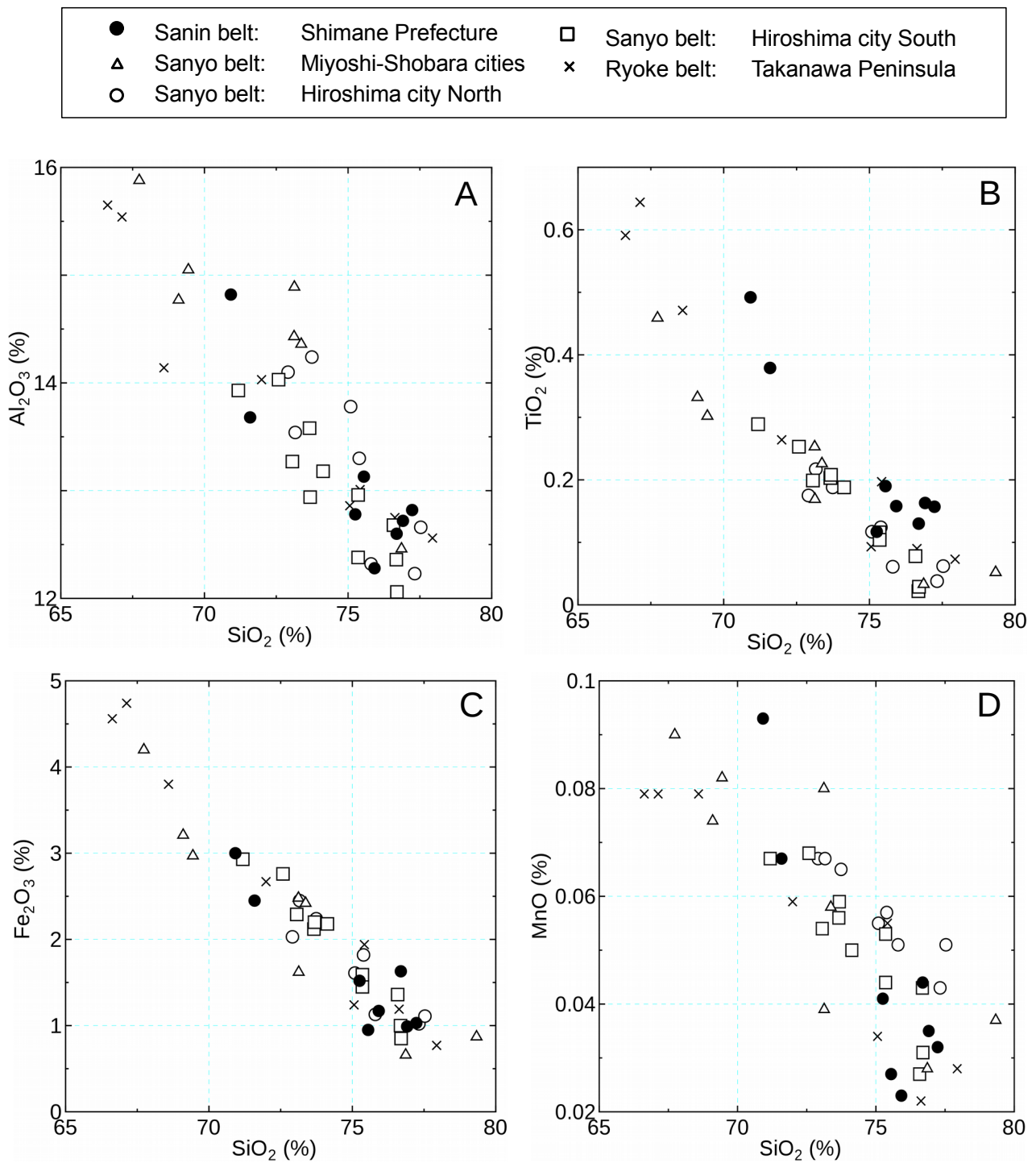


Fig. 3 Contents of Al_2O_3 , TiO_2 , Fe_2O_3 and MnO plotted against SiO_2 of the granitoids along the Hiroshima city transect.

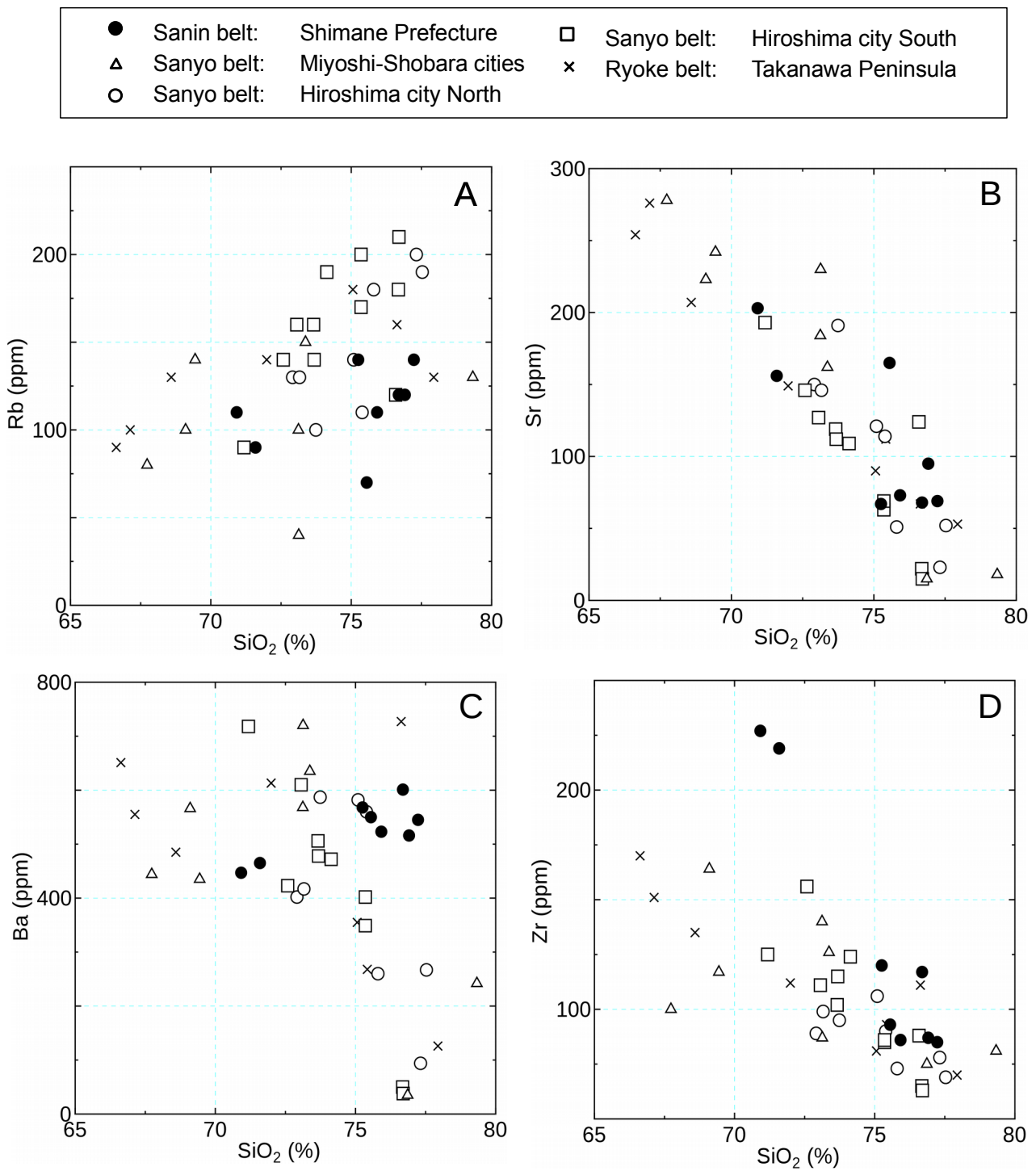


Fig. 4 Contents of Rb, Sr, Ba and Zr plotted against SiO₂ of the granitoids along the Hiroshima city transect.

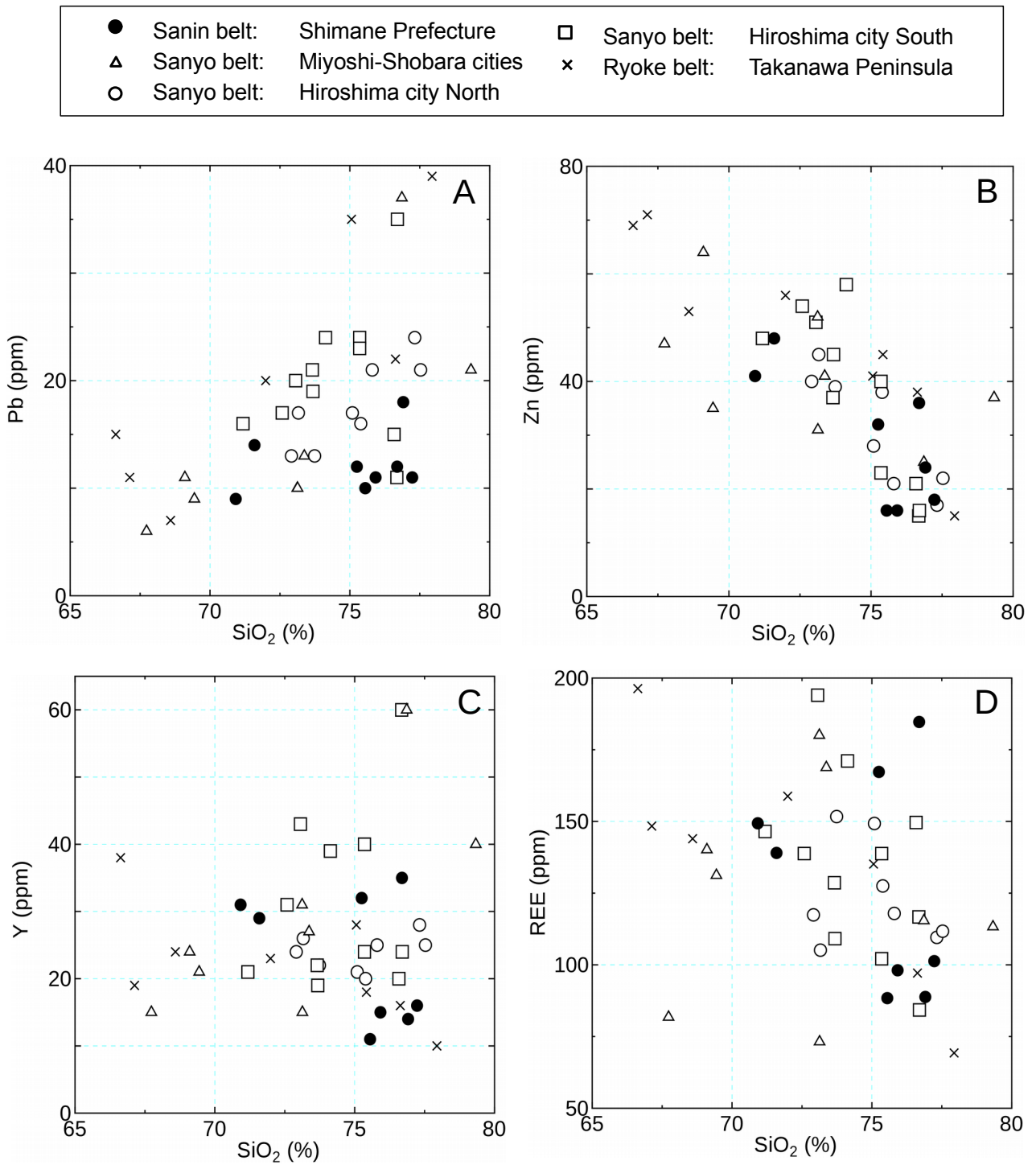


Fig. 5 Contents of Pb, Zn, Y and REE plotted against SiO₂ of the granitoids along the Hiroshima city transect.

K-position of the K-feldspar. However, the amounts are different in each zone, being low in the Sanin belt, but high in the Ryoke belt and the Sanyo belt of Hiroshima south. Enrichment of Rb and Pb in the granitoids of the Sanyo belt right next to the Ryoke belt has also been recognized at the Chubu transect, which are due to degree of magmatic fractionation (Ishihara and Terashima, 1977).

Sr contents are generally lower than 300 ppm in the studied granitoids and go down to 15 ppm. The contents are positively correlated with CaO contents. Y contents range generally from 40 to 15 ppm in the granodiorite and granite compositions, giving rise to low Sr/Y ratio of <1 to 27 in the studied granitoids (Tables 1 to 5), which are non-adakitic character. However, adakitic rocks were reported toward the east and the west, such as the Kinki district of the Sanyo belt (e.g., Tamba Granitoids; Kiji *et al.*, 2000) and Ryoke belt (Katsuragi Granitoids; Nishioka, 2008), also in the northern part of the Kyushu District (Izawa *et al.*, 1990; Yada and Owada, 2003; Kamei, 2004). Ba may have the same trend as the Sr plotted, but the figure is somewhat erratic (Fig. 4C).

Zr contents are high in the granitoids of the Sanin belt (Fig. 4D). Zircon saturation temperatures of Watson and Harrison (1983), listed in Tables 1 to 5, however, are highest in the Ryoke zone (753°C, n=9) because granodiorite is much abundant here. Granitic rocks in the other zones, all in monzogranitic composition, have the average temperatures of 741-749°C as follows :

Sanin belt : 747 °C (n=9)

Sanyo belt : Miyoshi-Shobara : 741 °C (n=7)

Sanyo belt : Hiroshima north : 749 °C (n=8)

Sanyo belt : Hiroshima south : 745 °C (n=11)

Ryoke belt : Takanawa Peninsula : 753°C (n=9), 744 °C (n=5, granite only)

Alumina saturation index (A/CNK) was calculated and listed in Tables 1 to 5. It is above 1.0 in the monzogranitic composition, i.e., defined as peraluminous, but never exceeds 1.1, which is the value necessary to define as S-type granitoids. Thus, all the plutonic rocks studied belong to I type.

4. Concluding remarks

The late Cretaceous-Paleogene granitoids were studied to examine the N-S geochemical variations across the city of Hiroshima. The studied granitoids are most felsic part among the Japanese granitic terranes, being mostly monzogranitic, although the Ryoke granitoids are composed of both granodiorite and monzogranite. The magnetic susceptibility is the least in the Ryoke belt, and increases northwards, but typical magnetite-series values appear in those of the Sanin belt, implying the

oxygen fugacity of the granitic magmas increased northwards.

The initial Sr ratios decrease from 0.7082 of the Ryoke belt to 0.7050 of the Sanin belt (Shibata and Ishihara, 1979). The whole-rock oxygen isotopic ratios also decrease from 10.3-11.3 ‰ on the Takanawa Peninsula, northward to 6-8 ‰ in the Daito-Minari area of the Sanin District (Ishihara and Matsuhisa, 2001). These observations indicate that older sedimentary and igneous rocks contained in the source rocks of the granitic magmas in the Ryoke and Sanyo belts, while only igneous source rocks were involved in those of the Sanin belt.

Among major chemistry, the Na₂O contents are clearly high in the Sanin belt, and K₂O contents tend to be enriched in the Ryoke belt. The Na₂O/K₂O ratio, therefore, increases northwards that reflect the difference in the source rocks. High Sr granitoids and adakitic rocks (Martin *et al.*, 2005; Moyen, 2009) were not found in the studied region, but reported in the northern Kyushu granitic region, and in the Kinki District of the Sanyo and Ryoke granitic belts (Kiji *et al.*, 2000; Nishioka, 2008), which have been located toward west and east of our studied region.

Acknowledgement

The authors acknowledge greatly Dr. H. Matsuura of the Geological Survey of Japan, for his careful reviewing of the original manuscript and constructive comments, and also to Dr. Y. Takahashi for his useful advice.

References

- Aoki, Y. and Hida, N. (1974) Geology and genesis of beryllium ore deposit, Mihara mine, Hiroshima Prefecture, Japan. *Mining Geol.*, **24**, 201–211 (in Japanese with English abstract).
- Czamanske, G.K., Ishihara, S. and Atkins, S.A. (1981) Chemistry of rock-forming minerals of the Cretaceous-Paleogene batholith in southwestern Japan and implications for magma genesis. *Jour. Geophys. Res.*, **86**, no. B11, 10431–10469.
- Hayashi, T. (1995) Geological petrological studies on the Hiroshima Granite in the Togouchi-Yuu-Takehara district, Southwest Japan. *Bull. Fac. Sci. Educ., Hiroshima Univ., Part II*, **17**, 95–150.
- Higashimoto, S. (1975) On the Hiroshima and the San-in granites of the O-asa area, central Chugoku mountain-land. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **26**, 513–518 (in Japanese with English abstract).
- Higashimoto, S., Matsuura, H., Mizuno, K. and Kawada, K. (1985) *Geology of the Kure district*. With Geological Sheet Map at 1:50,000, Geol. Surv. Japan, 93 p. (in Japanese with English abstract 6 p.).

- Hirokawa, O. (1965) Explanatory text of the geological map of Japan, Scale 1:50,000, *Imabari-Seibu*. Geol. Surv. Japan, 26 p. (in Japanese with English abstract 6 p.).
- Honma, H. and Sakai, H. (1976) Zonal distribution of oxygen isotope ratios in the Hiroshima granite complex, Southwest Japan. *Lithos*, **3**, 173–178.
- Honma, H., Kagami, H. and Okamoto, Y. (1983) Oxygen and strontium isotopic ratios of the Ryoke and Hiroshima-type granitoids at Takanawa Peninsula, Shikoku. *Magma*, no. 67, 115–121 (in Japanese).
- Iida, K., Iwamori, K., Orihashi, Y., Park, T., Jwa, Y. J., Kwon, S. T., Danhara, T. and Iwano, H. (2015) Tectonic reconstruction of the batholith formation based on the spatiotemporal distribution of Cretaceous-Paleogene granitic rocks in southwestern Japan. *Island Arc*, **24**, 205–220.
- Ishihara, S. (1971) Modal and chemical composition of the granitic rocks related to the major molybdenum and tungsten deposits in the Inner Zone of Southwest Japan. *Jour. Geol. Soc. Japan*, **77**, 441–452.
- Ishihara, S. (1979) Lateral variation of magnetic susceptibility of the Japanese granitoids. *Jour. Geol. Soc. Japan*, **85**, 509–523.
- Ishihara, S. and Matsuhisa, Y. (2001) Oxygen isotopic constraints on the geneses of the Cretaceous-Paleogene granitoids in the Inner Zone of Southwest Japan. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **53**, 421–438.
- Ishihara, S. and Moriyama, T. (2016) Apatite composition of representative magnetite-series and ilmenite-series granitoids in Japan. *Resource Geol.*, **66**, 55–62.
- Ishihara, S. and Tani, K. (2004) Magma mingling/mixing vs. magmatic fractionation: Geneses of the Shirakawa Mo-mineralized granitoids, central Japan. *Resource Geol.*, **54**, 373–382.
- Ishihara, S. and Tani, K. (2013) Zircon age of granitoids hosting molybdenite-quartz vein deposits in the central Sanin Belt, Southwest Japan. *Shigenchisus (Resource Geology)*, **63**, 11–14 (in Japanese with English abstract).
- Ishihara, S. and Terashima, S. (1977) Chemical variation of the Cretaceous granitoids across southwestern Japan. –Shirakawa-Toki-Ryoke transect–. *Jour. Geol. Soc. Japan*, **83**, 1–18.
- Ishihara, S., Komura, K. and Murakami, T. (1969) Source rocks of Miocene bedded-type uraniferous deposits in northern Miyoshi District and genesis of uranium anomalies at Myoga, Shobara city, Hiroshima Prefecture, Japan. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **20**, 161–172 (in Japanese with English abstract).
- Ishihara, S., Teraoka, Y., Terashima, S. and Sakamaki, Y. (1985) Chemical variation of Paleozoic-Cenozoic sandstone and shale across the western Shikoku district, Southwest Japan. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **36**, 85–102.
- Izawa, E., Karakida, Y., Shimada, N. and Takahashi, M. (1990) Is the high-Sr granitoid indicative for thick continental crust? *Earth Monthly*, **12**, 436–439 (in Japanese).
- Kamei, A. (2004) An adakitic pluton on Kyushu Island, southwest Japan arc. *Jour. Asian Earth Sci.*, **24**, 43–58.
- Kawano, Y. and Ueda, Y. (1966) K-A dating on the igneous rocks in Japan (V). –Granitic rocks in southwestern Japan–. *Jour. Miner. Petrol. Sci.*, **56**, 191–211 (in Japanese with English abstract).
- Kiji, M., Ozawa, H. and Murata, M. (2000) Cretaceous adakitic Tamba granitoids in northern Kyoto, San'yo belt, Southwest Japan. *Jour. Mineral. Petrol. Sci.*, **29**, 136–149 (in Japanese with English abstract).
- Martin, H., Smithies, R.H., Rapp, R., Moyen, J.-F. and Champion, D. (2005) An overview of adakite, tonalite-trondhjemite-granodiorite (TTG), and sanukitoid: relationships and some implications for crustal evolution. *Lithos*, **79**, 1–24.
- Matsuura, H. (1989) Radiometric ages of Late Cretaceous to Paleogene igneous rocks in the central San-in region, Southwest Japan. *Bull. Geol. Surv. Japan*, **40**, 479–495 (in Japanese with English abstract).
- Matsuura, H. (1990) *Geology of the Akana district*. With Geological Sheet Map at 1: 50,000, 73 p. (in Japanese with English abstract 5 p.).
- Matsuura, H. (1998) K-Ar ages of the Mimuro and Mitsumori Granites, Chugoku district, Southwest Japan. *Jour. Miner. Petrol. Sci.*, **93**, 182–185 (in Japanese with English abstract).
- Minagawa, T., Momoi, H. and Noto, S. (1978) Rare element minerals from pegmatites in the Ryoke Belt, western Shikoku, Japan. *Mem. Ehime Univ. Sci. Ser. D (Earth Sci.)*, **VIII**, 3–11 (in Japanese with English abstract).
- Minagawa, T., Funakoshi, N. and Morioka, H. (2001) Chemical properties of allanite from the Ryoke and Hiroshima granite pegmatites in Shikoku, Japan. *Mem. Fac. Sci., Ehime Univ.*, **7**, 1–13 (in Japanese with English abstract).
- Miyahisa, M. and Hiraoka, T. (1970) Geological relations of granitic rocks bodies in the Ryoke belt, western Shikoku, Japan. *Mem. Ehime Univ. Sci. Ser. D*, **VI**, no. 3, 21–34 (in Japanese with English abstract).
- Moyen, J.-F. (2009) High Sr/Y and La/Yb ratios: The meaning of “adakitic signature”. *Lithos*, **112**, 556–574.
- Murakami, N. (1959) Metasomatic syenites occurring in granitic rocks of southwestern Japan. *Sci. Rept. Yamaguchi Univ.* **10**, 73–90.
- Nishioka, Y. (2008) Large-scale Adakitic igneous activity of Late Cretaceous found to the Katsuragi Tonalite in the Ryoke Belt. Abstract of the 115th annual meeting of the

- Geological Society of Japan, 131.
- Ochi, S. (1982) The Ryoke granitic rocks in the Takanawa Peninsula, Shikoku, Japan. *Jour. Geol. Soc. Japan*, **88**, 511–522 (in Japanese with English abstract).
- Okamura, Y. (1967) Ryoke granitic rocks of the western part of Setonaikai, Southwest Japan. *Professor Hidekazu Shibata Memorial Volume*, 53–62 (in Japanese with English abstract).
- Rezanov, A. I., Kagami, H. and Iizumi, S. (1994) Rb-Sr isochron ages of Cretaceous-Paleogene granitoid rocks in the central part of the Chugoku district, Southwest Japan. *Jour. Geol. Soc. Japan*, **100**, 651–657.
- Sato, K., Ishihara, S. and Shibata, K. (1992) Granitoid map of Japan; 1992. Scale 1:3,000,000. In *Geological Atlas of Japan*, 2nd ed., Geol. Surv. Japan.
- Sato, K., Minakawa, T., Kato, T., Maki, K., Iwano, H., Hirata, T., Hayashi, S. and Suzuki, K. (2014) Behavior of rare elements in Late Cretaceous pegmatites from the Setouchi Province, Inner Zone of southwest Japan. *Jour. Miner. Petrol. Sci.*, **109**, 28–33.
- Shibata, K. and Ishihara, S. (1974) K-Ar ages of biotites across the central part of the Hiroshima Granite. *Jour. Geol. Soc. Japan*, **80**, 431–433 (in Japanese with English abstract).
- Shibata, K. and Ishihara, S. (1979) Initial $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios of plutonic rocks from Japan. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **70**, 381–390.
- Takagi, T. and Mizuno, K. (1999) *Geology of the Kaitaichi district*. With geological sheet map at 1:50,000. Geol. Surv. Japan, 49 p. (in Japanese with English abstract 4 p.).
- Takagi, T., Kagami, H. and Iizumi, S. (1989) Petrography and geochemistry of two contrasting I-type granites, the Mitsumori and Ikuridani Granites, San'in belt, Southwest Japan. *Jour. Geol. Soc. Japan*, **95**, 905–918.
- Takahashi, Y. (1991) *Geology of the Hiroshima District*. With Geological Sheet map at 1:50,000. Geol. Surv. Japan, 41 p. (in Japanese with English abstract 3 p.).
- Takahashi, Y. (1993) Hiroshima Granite—Enormous vertically zoned pluton. *Jour. Miner. Petrol. Sci.*, **88**, 20–27 (in Japanese with English abstract 4 p.).
- Takahashi, Y., Makimoto, H., Wakita, K. and Sakai, A. (1989) *Geology of the Tsuda district*. With Geological Sheet Map at 1:50,000, 56 p. (in Japanese with English abstract).
- Tani, K., Horie, K., Dunkley, D. and Ishihara, S. (2014) Pulsed granitic crust formation revealed by comprehensive SHRIMP zircon dating of the SW Japan granitoids. Abstract of Japan Geosci. Union Meeting, Yokohama, 2014.
- Watson, E. B. and Harrison, T. M. (1983) Zircon saturation revisited: temperature and composition effects in a variety of crustal magma types. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **64**, 295–304.
- Yada, J. and Owada, M. (2003) Genetic relationship between the Cretaceous high-Sr tonalite (Itoshima mass) and trochjemitite (Fukae mass) in the central part of Saga Prefecture, northwest Kyushu: Implication for magmatic differentiation. *Jour. Geol. Soc. Japan*, **109**, 518–532 (in Japanese with English abstract).

Received December 8, 2015

Accepted May 9, 2016

Appendix 1 Locality and magnetic susceptibility of the analyzed specimens.

Filing & Sample nos.	Locality	Rock name	χ value (10^{-6} Am ² /kg)
Ryoke belt: Takanawa Peninsula, Ehime Prefecture			
1. 75MY10	Imabari-shi, Namikata-cho, Mategata	Fine-grained gabbroid	$\chi=30$
2. 75MY15	ditto, Daikaku-bana	Medium diorite	$\chi=19$
3. 75MY14	ditto, Morigami	Very coarse syenite	$\chi=12$
4. 75MY20	Matsuyama-shi, Kikuma-cho, Shimojo-Ogawa	Very coarse granodiorite, foliated	$\chi=15$
5. 75MY6	ditto, Tanojiri-Iwadouji coast	Very coarse granodiorite, foliated	$\chi=16$
6. 75MY21	Ochi-gun, Tamakawa-cho, Shimokiji	Very coarse granodiorite, foliated	$\chi=18$
7. 75MY4	Matsuyama-shi, Takahama coast	Medium, bt granite	$\chi=19$
8. 75MY13	Imabari-shi, Namikata-cho, Shiraiwa pegmatite mine	Medium, bt granite	$\chi=20$
9. 75MY2	Matsuyama-shi east, Shukunono	Coarse, bt granite	$\chi=14$
10. 75MY5	Matsuyama-shi, Hojyo, coast at Kuriizaka	Aplitic granite	$\chi=15$
11. 75MY1	Matsuyama-shi far east, Fujinono	Fine, bt leucogranite	$\chi=13$
Sanyo belt: Hiroshima city south, Hiroshima Prefecture			
12. OSM01	Kure-shi, Kurahashi-jima, Osame	Medium bt granite	$\chi=18$
13. 76H156	Kure shi, Hiro-machi	Coarse, hb-bt granite	$\chi=20$
14. 76H153	Kure Line, Koyaura station	Ditto, pink Kf granite	$\chi=96$
15. 76H152	Kure Line, 2.3 km to Saka station	Very coarse, hb-bt granite	$\chi=22$
16. 410072	Aki-gun, Fuchu-cho, road to Mt. Gosaso	Fine bt granite, pink Kf	$\chi=57$
17. 410074	Aki-gun, Fuchu-cho, road to Mt. Gosaso	Fine bt granite, very fresh	$\chi=24$
18. 76H151	Hiroshima-shi, Iwahana, old quarry	Fine aplitic granite	$\chi=19$
19. 76H161	Higashi Hiroshima-shi, Shiwa-higashi	Coarse hb-bt granite	$\chi=99$
20. 76H158	Higashi Hiroshima-shi, Akitsu tunnel	Very coarse bt granite	$\chi=58$
21. 73H77	Hiroshima-shi, Saiki-ku, Itsukaichi-cho, Jiro-Goro-taki, 1 km from electric power stn.	Fine, pink Kf granite	$\chi=18$
22. 73H98	Hiroshima-shi, Saiki-ku, Saiki-cho, Sakai-Sekizai	Fine bt granite	$\chi=77$
Sanyo belt: Hiroshima city north, Hiroshima Prefecture			
23. 73H72	Yamagata-gun, Kitahiroshima-cho, Kokitsugi	Fine ol-px gabbro	$\chi=731$
24. 73H89	ditto, Honji-Urihara, Nakano-Sekizai	Medium diorite, "Aomikage"	$\chi=489$
25. 73H93	Hiroshima-shi, Asakita-ku, Kabe-cho, Nabara-dum waste	Coarse hb-bt granite	$\chi=75$
26. 73H86	Yamagata-gun, Kitahiroshima-cho, Oasa, Ikadatsu	Medium aplitic granite	$\chi=132$
27. 73H67	ditto, Kitahiroshima-cho, Kawato	Fine bt granite, marginal phase	$\chi=25$
28. 73H68	ditto, Kitahiroshima-cho, Choja	Coarse bt granite	$\chi=93$
29. 73H83A	ditto, ditto, Oasa, Yokogawa	Medium bt granite	$\chi=140$
30. 73H83B	The same locality as 73H83A	Fine aplitic granite	$\chi=85$
31. 73H88	Yamagata-gun, Kitahiroshima-cho, Oasa, Kami Narutaki	Fine bt granite	$\chi=71$
32. 73H82	ditto, ditto, Toyohira, Shirohara	Aplitic granite	$\chi=137$
Sanyo belt: Miyoshi-Shobara cities, Hiroshima Prefecture			
33. 74H119	Miyoshi-shi, Sakugi-cho, Karako	Hb-bearing bt granite	$\chi=160$
34. 67S15	Shobara-shi, Kuchiwa-cho, Miyauchi	Fine px-hb qz gabbro	$\chi=1,166$
35. 67S31	ditto, Kimita-cho, Terahara	Medium hb-bt granodiorite	$\chi=792$
36. 67S26	ditto, Kimita-cho, Morihara	Fine granite porphyry	$\chi=69$
37. 67S39	ditto, Funo-cho, Nakamura	Medium hb-bt granodiorite	$\chi=387$
38. 67S21	ditto, Kuchiwa-cho, 700 m W of Yoshiki	Medium hb-bt granodiorite	$\chi=283$
39. 67S25	ditto, Kuchiwa-cho, Ashihara	Medium hb-bt granodiorite	$\chi=17$
40. 67S32	ditto, Kimita-cho, Nakanohara	Fine, bt granite	$\chi=19$
41. 67S27	ditto, Kimita-cho, Fujikane N, Irigimi body	Fine porphyritic aplite	$\chi=14$
Sanin belt: Shimane Pref. and Northernmost Hiroshima Prefecture			
42. 73H51	Utsunomiya-shi, Takeya-cho, Nakatani	Bt-hb granodiorite	$\chi=698$
43. 73H60	Ochi-gun, Misato-cho, Tunnel waste	Medium bt granite	$\chi=235$
44. 73H61	Ochi-gun, Misato-cho, Oura	Medium bt granite	$\chi=160$
45. 73H64	Ochi-gun, Onan-cho, near H63	Fine bt granite	$\chi=85$
46. 73H63	Ochi-gun, Onan-cho, below bridge	Aplitic granite	$\chi=215$
47. 73H62	ditto, Onan-cho, Asuna north 1.2 km	Aplitic granite	$\chi=362$
48. 73H65	Ochi-gun, Onan-cho, Danbara	Green bt granite	$\chi=642$
49. 73H87	Ochi-gun, Onan-cho, Kobayashi	Fine aplitic granite	$\chi=193$
50. 73H66	Yamagata-gun, Kita-Hiroshima-cho, Oasa north	Fine porphyritic granite	$\chi=316$

bt: biotite, hb: hornblende, Kf: alkali feldspar, ol: olivine, px: pyroxene

西南日本内帯，広島付近を横断する後期白亜紀—古第三紀花崗岩類の地球化学的性質の南北変化

石原舜三・大野哲二

要 旨

標記地域の花崗岩類分布域は南から領家帯・山陽帯・山陰帯に分けられる。領家帯では花崗岩のほか花崗閃緑岩が分布するが、山陽帯と山陰帯では少量の斑れい岩-閃緑岩を伴うものの主体は花崗岩である。全岩帯磁率は山陰帯で最も高く、南方に低くチタン鉄鉱系の値となり、領家帯で最少となる。ジルコン U-Pb 年代は、領家帯が最も古く 97.8~95.3 Ma、山陽帯が 92.3~85.6 Ma、山陰帯が 39.8~33.5 Ma である。化学組成上は $\text{Na}_2\text{O}/\text{K}_2\text{O}$ が山陰帯の花崗岩類で最も大きく、領家帯の岩石で最も小さい。これは火成岩起源で同比が大きく堆積岩起源で同比が小さい起源物質の性質を反映しているものと思われる。アルミナ飽和指数は 1.0 は超えるが、1.1 を超える S タイプは存在しない。カリ長石の K を置換する Rb と Pb は山陰帯で最も乏しく、領家帯とその北縁の山陽帯で富んでいる。この傾向は $\delta^{18}\text{O}$ の傾向と同様であって、そのマグマの生成に堆積岩地殻物質が関与したことを示している。

SHRIMP によるジルコン U-Pb 年代測定: 試料調製法及び標準試料測定結果

荒岡大輔^{1,*}・昆 慶明¹・江島輝美¹

Daisuke Araoka, Yoshiaki Kon and Terumi Ejima (2016) Zircon U-Pb dating by SHRIMP: sample preparation procedure and result of reference material measurements. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol.67 (2), p.59-65, 3 figs, 1 table.

Abstract: U-Pb zircon dating is a useful method for determining precise ages of solidification of igneous rocks within a wide range of geological time scale. Thus, we set up SHRIMP (Sensitive High Resolution Ion MicroProbe) U-Pb zircon dating method and sample preparation procedure for SHRIMP analysis in a laboratory of the Geological Survey of Japan, AIST. First, zircons in the samples were separated effectively using SHLFRAG Lab (high voltage pulse power fragmentation), heavy liquid, and so on. The separated zircons were mounted on resin followed by polishing, Au-coating, and cathodoluminescence observation. Then, SHRIMP U-Pb ages of zircon reference materials (R33, OG1, and 91500) with Paleozoic to Eoarchean Era were determined. All dating results were corresponding to the reference ages within the analytical error, indicating that accurate SHRIMP U-Pb zircon dating could be established in AIST.

Keywords: SHRIMP, U-Pb dating, zircon

要 旨

ジルコンのU-Pb年代測定法は、火成岩の固化年代を幅広い年代で高精度に決定できる手法として有用である。そこで本研究では、高感度・高解像度イオンマイクロプローブSHRIMPを用いたジルコンのU-Pb年代測定法、およびSHRIMP測定用の試料調製法を産業技術総合研究所にて立ち上げた。まず、高電圧パルス選択性粉砕装置SELFrag Labや重液等を用いて岩石試料からジルコンを効率的に単離した。その後、単離したジルコンを樹脂封入し、鏡面研磨、洗浄、金蒸着、カソードルミネッセンス像の観察を行うことで、SHRIMP測定用の試料調製手順を確立させた。また、古生代から原太古代にかけての年代値をもつジルコン標準試料3種(R33, OG1, 91500)について、SHRIMPによるU-Pb年代測定を行った。全ての測定結果が先行研究の年代値と誤差範囲内で一致していたことから、産業技術総合研究所のSHRIMPにおいて正確なU-Pb年代測定法を確立できた。

1. はじめに

産業技術総合研究所地質調査総合センター地圏資源環境研究部門鉱物資源研究グループでは、金属・非金属鉱床の資源ポテンシャル評価および成因解明に関する研究を進めている。鉱化年代や鉱床タイプを決定する上

で、放射年代測定による絶対年代や鉱物・鉱液の同位体情報は有益である。そのため、本グループは2013年に二次イオン質量分析計である高感度・高解像度イオンマイクロプローブSHRIMP (Sensitive High Resolution Ion MicroProbeの略)を導入し、2014年に検出部のアップグレード(マルチコレクター化)を行った。この装置は、酸素やセシウム等の一次イオンを試料表面に照射し、発生した二次イオンを質量分析することで、試料の局所領域(〜20 μm)での元素・同位体分析を可能にしている。

SHRIMPはオーストラリア国立大学で1970年代後半から開発が始められ(Clement *et al.*, 1977)、その後Australian Scientific Instruments Ltdにより市販されている。現在は世界中で20台ほどが稼働している装置であり(堀江, 2012)、日本では広島大学に1台、極地研究所に2台、そして産業技術総合研究所に1台導入されている。SHRIMPによる代表的な成果としては、例えばカナダ北西部の片麻岩において39.6億年という当時世界最古の岩石を発見したり(Bowring *et al.*, 1989)、富山県黒部市宇奈月の花崗岩から「日本最古の砂粒」を発見するなど(Horie *et al.*, 2010)、主にジルコン粒子のU-Pb年代測定で威力を発揮している。また、近年はジルコン以外にも燐灰石やモナズ石などのU-Pb年代測定や、鉱物中の酸素同位体比などの安定同位体分析も行われている(堀江, 2012)。

SHRIMPを用いた当グループの研究目標は、鉱石への

¹産業技術総合研究所 地質調査総合センター 地圏資源環境研究部門 (AIST, Geological Survey of Japan, Research Institute for Geo-Resources and Environment)

*Corresponding author: D. Araoka, Central 7, 1-1-1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305-8567, Japan. Email: d-araoka@aist.go.jp

局所軽元素同位体分析法を確立することであるが、その前段階として、SHRIMPの一般的な応用法であるジルコンのU-Pb法による放射年代測定に取り組んだ。また当グループでは合わせて、岩石試料からのジルコンの単離や、ジルコンを樹脂で封入したSHRIMP測定用試料調製法についての研究を進めてきた。そこで本論文では、測定用試料の調製方法について述べると共に、現状でのSHRIMPによるジルコン標準試料の測定結果を報告する。

2. ジルコンの U-Pb 年代測定法の概要

U-Pb年代測定法は、天然に存在するウラン(^{238}U および ^{235}U)が最終的に安定な鉛(^{206}Pb および ^{207}Pb)に放射壊変する性質を利用した放射年代測定法であり、鉱物中の $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ や $^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ から年代値が算出できる。火成岩の放射年代測定法は、角閃石や黒雲母のK-Ar法やAr-Ar法、ジルコンや燐灰石のフィッシュトラック(FT)法やU-Pb法など、様々な手法が挙げられる(兼岡, 1998)。これらの年代測定法は、閉鎖温度や適用年代範囲が異なるため、目的に応じた年代測定法を選ぶ必要がある。近年では、以下の利点を持つジルコンのU-Pb法が、火成岩の固化年代を決定する適切な年代測定法として広く認知されてきている。

閉鎖温度：ジルコンのU-Pb系の閉鎖温度は900℃以上であり(Cherniak and Watson, 2001)、斑レイ岩のソリダス温度(おおよそ900℃以下; Vielzeuf and Schmidt, 2001)や花崗岩のソリダス温度(約600℃; Johannes, 1984)に比べて高い。したがって、これら火成岩の固化年代を決定するにはU-Pb法が最適である。一方、火成岩の冷却年代を決定するためには、より低温の閉鎖温度をもつK-Ar法やAr-Ar法、FT法が有用となる。近年では、単一のジルコン粒子に対し、U-Pb法とFT法の両者を行うダブルデーティング法(例えば、伊藤ほか, 2010; 岩野ほか, 2012)により、花崗岩の固化-冷却過程の解明が進んでいる。

適用年代範囲： ^{238}U はウラン系列により半減期約45億年で ^{206}Pb へ、 ^{235}U はアクチニウム系列により半減期約7億年で ^{207}Pb へそれぞれ放射壊変する。そのため、U-Pb年代測定法の適用範囲は、地球が形成された46億年前から100万年前程度と幅広く、地球科学的に極めて有用である。また、 ^{238}U は ^{206}Pb へ、 ^{235}U は ^{207}Pb へそれぞれの半減期で放射壊変するため、ジルコン中の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ はU-Pb系の閉鎖からの経過年代によって一意に決定される。一般に、化学的挙動の近い同位体比の測定は元素比に比べて高精度であるため、特に5億年よりも古いジルコンについては $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ より計算されるPb-Pb年代によって精度良く年代が決定できる。さらに近年では、高感度の分析装置を用いて、かつU-Th放射非平衡補正計算を行うことにより、100万年よりも若いジルコンに対

しても年代決定が可能となってきた(Sakata *et al.*, 2014)。

初期鉛：U-Pb年代の算出に際しては、晶出時に結晶中に取り込まれた初期鉛の同位体比が必要になり、例えばアイソクロン法により複数の分析点から初期鉛の同位体比を評価する必要がある。しかし、多くの火成ジルコンは晶出時に取り込まれる鉛は無視できる量であるため、初期鉛の影響は少なく、1つの分析から1つの年代値が算出可能である。

複数のU-Pb年代の調和性(コンコーダンス)：測定により得られた $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ 、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ より個々に計算されたU-PbおよびPb-Pb年代は、全て同一の年代値であることが期待される。一方、ジルコン晶出後の変成・変質作用により鉛が失われた場合、これらの年代値が不一致となる。したがって、U-PbおよびPb-Pb年代が一致しないジルコンを除外して計算することで、変成・変質作用による影響の少ない年代値を得ることが可能である。

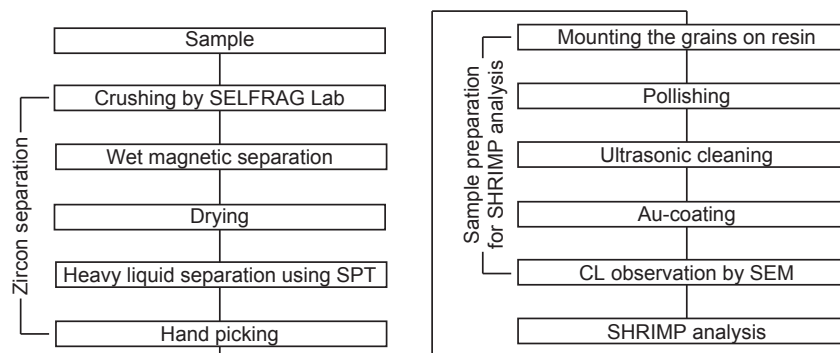
3. 試料調製法

3.1 岩石試料からのジルコンの単離

SHRIMPによるジルコンのU-Pb年代測定のために、まずは岩石試料からのジルコンの単離作業が必要となる(第1図の左の工程)。一般に、粉碎、水篩、磁選、重液分離、ハンドピック等により、ジルコン粒子が単離できる(第1図の左の工程)。檀原ほか(1992)では、ポリタングステン酸ナトリウム水溶液(SPT)を用いた重鉱物分離工程が詳細に記述されており、本稿で紹介する手法も多くの部分でこれに倣っている。

まず、試料の過粉碎と片葉粒子形成を抑制し、ジルコン回収率を向上させるため、高電圧パルス選択性粉碎装置SELFRAG Lab (SELFRAG社製)による岩石粉碎を行った。この装置は、水中に沈めた岩石試料に高電圧パルスを繰り返し照射し、試料の選択的粉碎が可能である。そのため、通常の振動ミルを用いた粉碎法に比べ目的鉱物の単体分離度が高く、鉱物分離過程での回収率の向上が期待できる。また、目的鉱物の過粉碎を防ぐため、試料は金属メッシュ上で粉碎し、メッシュの目開き(200 μm)以下まで粉碎されメッシュ下に溜まった試料を回収した。

次に、SELFRAG Labから回収した試料に対し湿式磁力選別を行った。ステンレス製の碗の裏側からネオジム磁石を近づけ、試料スラリーを碗内で回し、スラリー内から磁性鉱物を選択的に取り除いた。作業は、磁石に吸引される磁性鉱物がなくなるまで繰り返した。回収した試料には、赤外線乾燥用電球(イエスランプ 100V 500W E26)2個を用いて照射し、迅速な乾燥を行った。乾燥した非磁性鉱物から、飽和SPTを用いて重鉱物の分離を行った後、実体鏡下でジルコン粒子を手選により回収した。



第1図 SHRIMP測定用の試料調製フローチャート。

Fig. 1 A flowchart of sample preparation for SHRIMP analysis.

3.2 SHRIMP測定用の樹脂封入試料調製

単離したジルコンは、樹脂封入後に鏡面研磨、洗浄、金蒸着を行い、カソードルミネッセンス(CL)像の観察を経てSHRIMPによるU-Pb年代測定を行う(第1図の右の工程)。まず、ガラス板に両面テープを張付け、その中心部に単離したジルコン粒子およびジルコン標準試料を並べた。両面テープは、表面の平滑性に優れた特殊ポリイミドフィルムであるカプトン®(デュボン社製)を使用した。円筒型の樹脂型(内径1インチ, 30 mm, または35 mm)を両面テープに貼付け、2液混合型樹脂であるエポフィックス(Struers社製)を注ぎ、約3°Cの冷蔵庫内にて1晩放置した後、40°Cのオープン内で加熱・固化した。

樹脂の試料面出しには粒度6 μmのダイヤモンドペーストを用い、琢磨布はMD-Mol(Struers社製)を使用した。樹脂の試料面の鏡面研磨には粒度3 μm および1 μmのダイヤモンドペーストを用い、琢磨布はMD-Dur(Struers社製)を使用した。その後、沸点40~60°Cの石油ベンジン(メルクミリポア社製)、PCC-54合成洗剤(Thermo Scientific社製)、超純水の順に超音波洗浄を行い、試料表面に付着する鉛を除去した。

鏡面研磨後には試料表面の導電性を高めるため、抵抗加熱式真空蒸着器SVC-700TMSG(サンヨー電子社製)を用いて試料表面への金蒸着を行った。蒸着膜厚計SQM-160(INFICON社製)を用いて膜厚をモニターしながら、蒸着膜厚をCL像観察用に際しては70 Åに、SHRIMP測定用に際しては350 Åにそれぞれ設定して金蒸着を行った。また、CL像観察には走査型電子顕微鏡JSM-6610LV(JEOL社製)に搭載のCL検出器miniCL(Gatan社製)を用いた。

4. SHRIMP IIeによるU-Pb年代測定法

本グループ設置のSHRIMP IIeは最初の市販品であるSHRIMP IIの後継であり、各種電子機器や真空系などの

ハード面や測定オペレーションなどのソフトウェア面共に改良されているが、イオン光学系の基本構造はほぼ同じである。なお、SHRIMPの基本構造や特性は原著論文や過去の解説を参照されたい(Clement *et al.*, 1977; 日高・佐野, 1997; 堀江, 2012; Matsuda, 1974)。

SHRIMPによるU-Pb年代測定手法や測定条件はWilliams(1998)や日高・佐野(1997)などによって詳細に述べられているため、ここではSHRIMPに特有な条件などについて簡潔に記載する。U-Pb年代測定の場合には、デュオプラズマトロン内に約300 mTorrで高純度酸素ガスをリークさせ、アーク放電させて酸素イオンを発生させる。酸素イオンの中でもO₂⁻イオンのみをWienフィルターマグネットによって一次イオンとして選別し、一次イオン調整カラムにて一次イオンを収束させた後、あらかじめ試料チャンバー内にセットした測定試料に照射した。試料表面に照射される一次イオンのスポット径は、Köhlerアパーチャーにより可変であるが、今回の測定ではおよそ20 μmに設定した。生成された二次イオンを約10 kVで加速し、四重極レンズ等による二次イオン調整カラムにおいて収束させた。その後、収束された二次イオンは静電場アナライザー(ESA)およびマグネットを通過してエネルギー幅や質量数が調整され、最終的にファラデーカップおよびイオンマルチプライヤーによって検出した。

未知試料の測定の際には、試料表面をラスタリングして清浄な分析面を出した後に、設定した核種(⁹⁰Zr₂¹⁶O, ²⁰⁴Pb, ²⁰⁶Pb, ²⁰⁷Pb, ²⁰⁸Pb, ²³⁸U, ²³²Th¹⁶O, ²³⁸U¹⁶O)を測定した。また、未知試料の濃度の定量および年代値の算出は、同じ樹脂に埋め込まれた濃度および年代既知の試料を測定し参照することで行った。なお、U-Pb年代を求める際には、²⁰⁶Pb/²³⁸Uの存在比と二次イオンの強度比(²⁰⁶Pb⁺/²³⁸U⁺)の間に成り立つ以下の関係式を用いる。

$$\left(\frac{{}^{206}\text{Pb}}{{}^{238}\text{U}}\right)_{\text{未知試料}} / \left(\frac{{}^{206}\text{Pb}}{{}^{238}\text{U}}\right)_{\text{標準試料}} = \left(\frac{{}^{206}\text{Pb}^+}{{}^{238}\text{U}^+}\right)_{\text{未知試料}} / \left(\frac{{}^{206}\text{Pb}^+}{{}^{238}\text{U}^+}\right)_{\text{標準試料}}$$

ここで、SHRIMPなどの二次イオン質量分析によるU-Pb年代測定特有の注意点として、スパッタリングの際の二次イオン発生効率の違いに伴って、 $^{206}\text{Pb}^+ / ^{238}\text{U}^+$ が分析点によって大きく異なってしまうことが挙げられる。しかし、Compston *et al.* (1984)によって、 $^{206}\text{Pb}^+ / ^{238}\text{U}^+$ の変動が $^{238}\text{U}^{16}\text{O}^+ / ^{238}\text{U}^+$ の関数として近似できることが経験的に見いだされている。そこで、標準試料を複数回測定し $^{206}\text{Pb}^+ / ^{238}\text{U}^+$ と $^{238}\text{U}^{16}\text{O}^+ / ^{238}\text{U}^+$ との関係式を得た後、未知試料の $^{206}\text{Pb}^+ / ^{238}\text{U}^+$ と $^{238}\text{U}^{16}\text{O}^+ / ^{238}\text{U}^+$ を測定することで、未知試料の $^{206}\text{Pb} / ^{238}\text{U}$ の存在比を正確に求めることができる(Williams, 1998)。一方、Pb-Pb年代については測定値($^{207}\text{Pb}^+ / ^{206}\text{Pb}^+$)が鉛同士の二次イオン強度比であるため、スパッタリング時の分別が少ないことから、 $^{207}\text{Pb}^+ / ^{206}\text{Pb}^+$ の測定値をそのまま用いて年代値を算出可能である。

5. 標準試料のU-Pb年代測定結果

設定した測定条件におけるU-Pb年代測定結果の確度・精度を検証するため、年代既知のジルコン標準試料3種(R33, OG1, 91500)を未知試料として繰り返し測定を行った。未知試料のウラン濃度の定量には、ウラン濃度が238 ppmで均質なジルコン標準試料であるSL13を用いた。測定時の参照試料には、別の年代既知のジルコン標準試料であるTEMORA 1またはTEMORA 2を用いた。測定結果からのU-Pb・Pb-Pb年代値の算出にはSQUID 2(Ludwig, 2009)を用いた。また、年代結果の加重平均値の算出およびコンコーディア図の作成にはIsoplot 3(Ludwig, 2003)を使用した。標準試料のU-Pb・Pb-Pb年代値は、 ^{204}Pb で補正した値を採用し、コンコーディア線から外れた値は除外して年代の加重平均値を計算した。ここで、ジルコン標準試料R33, OG1, 91500, SL13, TEMORA 1・2はそれぞれ、アメリカ・バーモント州ブランイントリー複合岩体中のモンゾ閃緑岩のジルコン(Black *et al.*, 2004)、オーストラリア西部マウントエドガー複合岩体中の石英閃緑岩のジルコン(Stern *et al.*, 2009)、カナダ・オンタリオ州クール湖で採取されたジルコン単結晶(Wiedenbeck *et al.*, 1995; Wiedenbeck *et al.*, 2004)、 $^{206}\text{Pb} / ^{238}\text{U}$ 値および感度調整用に広く用いられているスリランカ産のジルコン巨晶(Compston *et al.*, 1992; Roddick and van Breemen, 1994; Lee *et al.*, 1997)、オーストラリア西部ラクラン造山帯 Middledale Gabbroic Diorite貫入岩体中のジルコンである(Black *et al.*, 2003; Black *et al.*, 2004)。また、年代値にはそれぞれ419.3 Ma(Black *et al.*, 2004)、3465 Ma(Stern *et al.*, 2009)、1065 Ma(Wiedenbeck *et al.*, 1995)、572 Ma(Compston *et al.*, 1992; Roddick and van Breemen, 1994; Lee *et al.*, 1997)、416.75 Ma(TEMORA 1: Black *et al.*, 2003)および416.78 Ma(TEMORA 2: Black *et al.*, 2004)が提唱されている。

標準試料のU-Pb・Pb-Pb年代測定結果は第1表の通り

となり、3種類の標準試料とも測定結果はすべて先行研究の年代値の誤差範囲内となった。また、各測定回における個々の年代値もすべて先行研究の年代値の誤差範囲内であった(第2図)。さらに、各測定回におけるコンコーディア図では、個々の測定結果が全てコンコーディア線における先行研究の年代値部分にプロットされることから、U-Pb年代、Pb-Pb年代共に正確な年代値が算出できていることが確かめられた(第3図)。よって、本手法により古生代から原太古代にかけての幅広い年代範囲で正確な測定が行えていることが確かめられた。一方で、SHRIMPによる先行研究結果と比較して測定精度は劣っており、今後は試料の表面状態や装置のチューニング方法などの改善による精度向上が課題となっている。また、本研究で測定した標準試料は全て古生代以前の年代値をもつジルコンであるため、今後はOD-3(年代値: 33.0 Ma; Iwano *et al.*, 2013)などの比較的若い年代値をもつジルコン標準試料に対しても検討が必要であろう。

6. まとめと展望

産業技術総合研究所に導入されたSHRIMPを用いて、ジルコンのU-Pb年代測定法の立ち上げた。合わせて、岩石試料からのジルコンの単離や、SHRIMP測定用の樹脂封入試料調製法を立ち上げた。ジルコン標準試料3種のU-Pb年代測定の結果、古生代から原太古代にかけての幅広い年代範囲で正確な測定が行えることが確かめられた。今後、これらの試料調製法および測定条件によって効率的なU-Pb年代測定が可能となるが、年代測定精度の向上や、より若い年代範囲での測定方法などさらなる検討が必要である。また、本装置はマルチコレクター化によって高精度での局所安定同位体分析も可能であるため、今後は安定同位体用標準試料の作成も含めた分析法の確立を行っていく予定である。

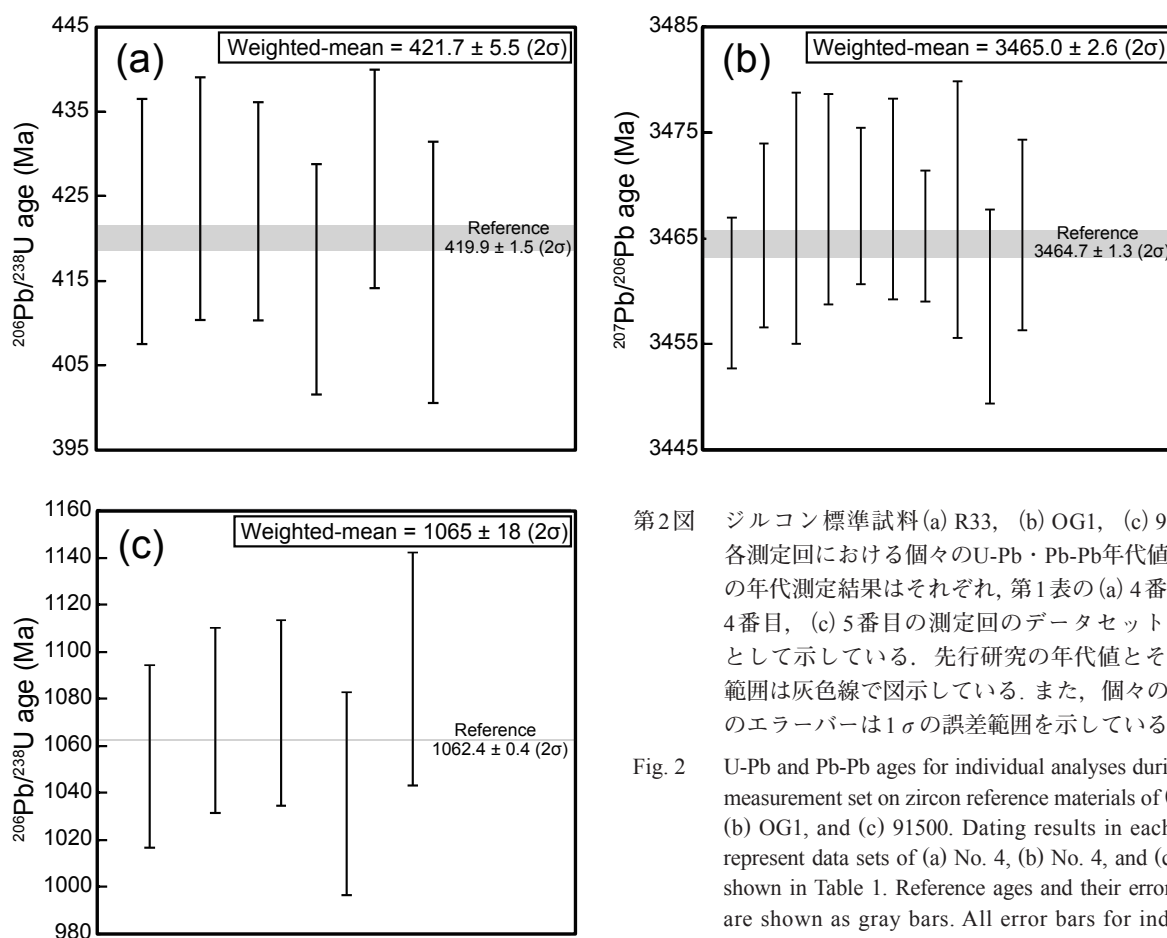
謝辞: Charles Magee Jr.氏, Ian S. Williams氏, およびJohn Hyder氏をはじめとするAustralian Scientific Instruments Ltd.のメンバーには、SHRIMPのセットアップをはじめ、分析手法や装置のメンテナンスに関する各種レクチャーをしていただきました。地質情報研究部門資源テクニクス研究グループの下田 玄博士および地圏資源環境研究部門鉱物資源研究グループの高木哲一博士には、SHRIMPのセットアップに関してご助力いただきました。地質情報基盤センター地質試料調製グループの皆様には、樹脂封入試料の作製に関して技術指導をいただきました。編集担当委員の地質情報研究部門海洋環境地質研究グループの鈴木 淳博士、および匿名の査読者からは、本稿を改善するための有益な指摘をいただきました。本研究を行うにあたり、地圏資源環境研究部門による平成26年度研究力強化のための競争グラント(課題名: SHRIMP

第1表 SHRIMPによるジルコン標準試料のU-Pb・Pb-Pb年代測定結果

Table 1 Result of U-Pb and Pb-Pb dating of zircon reference materials by SHRIMP.

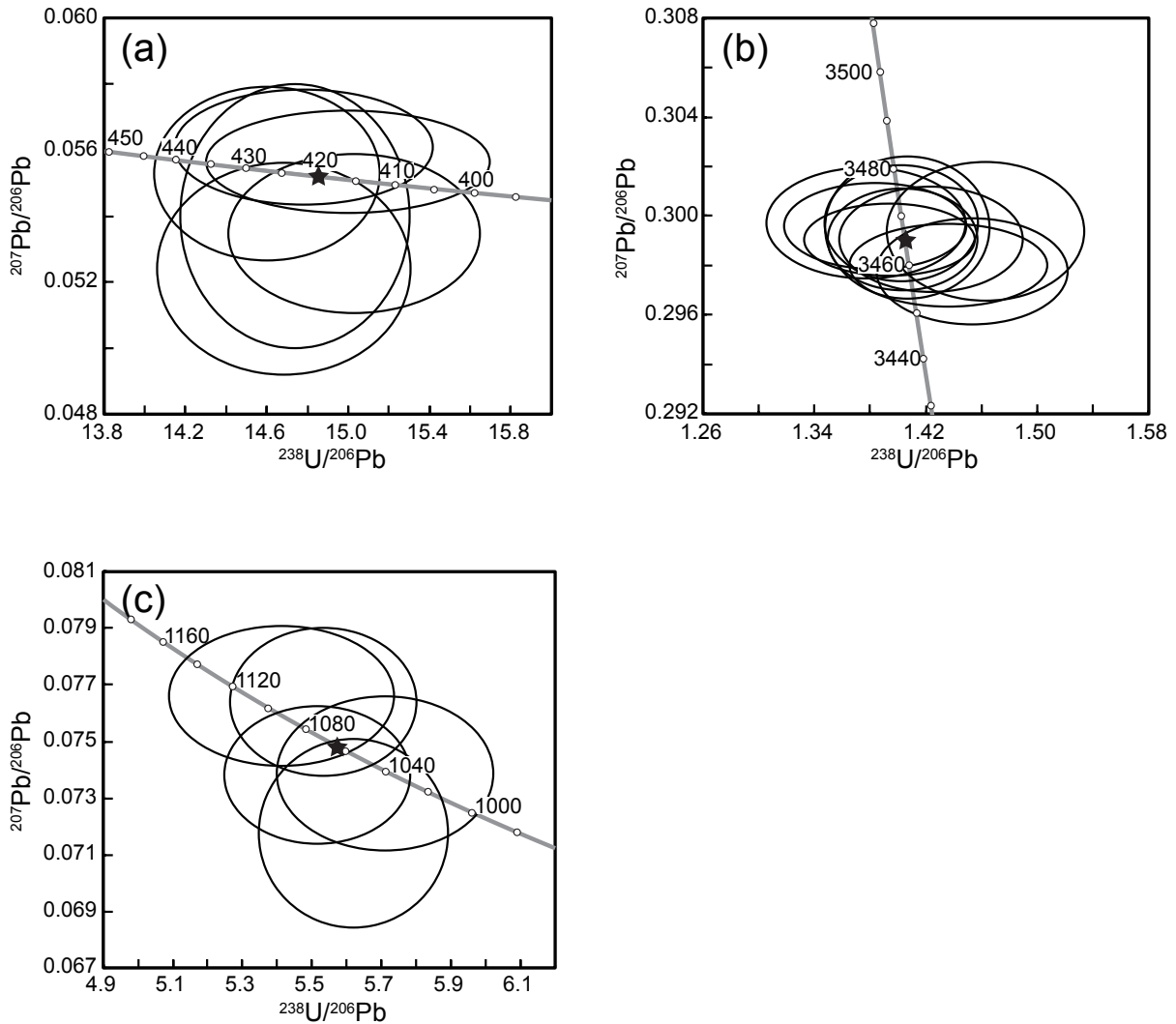
Data set	R33		OG1		91500	
	Weighted-mean $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U} \pm 2\sigma$ age	Number of spots	Weighted-mean $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb} \pm 2\sigma$ age	Number of spots	Weighted-mean $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U} \pm 2\sigma$ age	Number of spots
This study						
1	417.0 ± 3.3 Ma	21				
2	417.9 ± 3.8 Ma	16	3466.7 ± 1.7 Ma	30		
3			3468.2 ± 3.1 Ma	4		
4	421.7 ± 5.5 Ma	6	3465.0 ± 2.6 Ma	10		
5	420.8 ± 9.7 Ma	3			1065 ± 18 Ma	5
6	415.9 ± 5.8 Ma	10	3464.7 ± 4.5 Ma	9		
7			3464.6 ± 2.5 Ma	9		
Reference ^a	419.9 ± 1.5 Ma	–	3464.7 ± 1.3 Ma	–	1062.4 ± 0.4 Ma	–

^aReferences are as follows: R33, Black *et al.* (2004); OG1, Stern *et al.* (2009); 91500, Wiedenbeck *et al.* (1995). Ages on R33 and OG1 were determined by SHRIMP; age on 91500 was determined by Isotope Dilution-Thermal Ionisation Mass Spectrometry (ID-TIMS).



第2図 ジルコン標準試料(a) R33, (b) OG1, (c) 91500の各測定回における個々のU-Pb・Pb-Pb年代値. 各図の年代測定結果はそれぞれ, 第1表の(a) 4番目, (b) 4番目, (c) 5番目の測定回のデータセットを代表として示している. 先行研究の年代値とその誤差範囲は灰色線で図示している. また, 個々の年代値のエラーバーは1σの誤差範囲を示している..

Fig. 2 U-Pb and Pb-Pb ages for individual analyses during each measurement set on zircon reference materials of (a) R33, (b) OG1, and (c) 91500. Dating results in each figure represent data sets of (a) No. 4, (b) No. 4, and (c) No. 5 shown in Table 1. Reference ages and their error ranges are shown as gray bars. All error bars for individual analyses represent ± 1 σ precision.



第3図 ジルコン標準試料 (a) R33, (b) OG1, (c) 91500 の $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ – $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ コンコーディア図. 各図の年代測定結果はそれぞれ、第1表の (a) 4番目, (b) 4番目, (c) 5番目の測定回のデータセットを代表として示している. 灰色線は $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ および $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ から計算される年代値が一致する線 (コンコーディア線) であり, その年代値を併記している. 星形の点は, コンコーディア線における先行研究の年代値部分を表す. 全ての楕円は 1σ の誤差範囲を示している.

Fig. 3 $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ – $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ concordia diagrams for zircon reference materials of (a) R33, (b) OG1, and (c) 91500. Dating results in each figure represent data sets of (a) No. 4, (b) No. 4, and (c) No. 5 shown in Table 1. Gray lines mean concordia curves determined by $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ and $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ ages. Reference ages on concordia curves are shown as black stars. All ellipses for individual analyses represent $\pm 1\sigma$ precision.

による局所マルチ同位体分析技術の開発)を使用しました. ここに深く感謝いたします.

文献

Black, L. P., Kamo, S. L., Allen, C. M., Aleinikoff, J. N., Davis, D. W., Korsch, R. J. and Foudoulis, C. (2003) TEMORA 1: a new zircon standard for Phanerozoic U-Pb geochronology. *Chem. Geol.*, **200**, 155–170.

Black, L. P., Kamo, S. L., Allen, C. M., Davis, D. W., Aleinikoff, J. N., Velley, J. W., Mundil, R., Campbell, I. H., Korsch, R. J., Williams, I. S. and Foudoulis, C. (2004) Improved $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ microprobe geochronology by the monitoring of a trace-element-related matrix effect; SHRIMP, ID-TIMS, ELA-ICP-MS and oxygen isotope documentation for a series of zircon standards. *Chem. Geol.*, **205**, 115–140.

Bowring, S. A., Williams, I. S. and Compton, W. (1989)

- 3.96 Ga gneisses from the Slave province, Northwest Territories, Canada. *Geology*, **17**, 971–975.
- Cherniak, D. J. and Watson. (2001) Pb diffusion in zircon. *Chem. Geol.*, **172**, 5–24.
- Clement, S., Compston, W. and Newstead, G. (1977) The design of a large, high resolution ion microprobe. *Proc. Int. Conf. on SIMS*.
- Compston, W., Williams, I. S. and Meyer, C. (1984) U-Pb geochronology of zircons from lunar breccia 73217 using a sensitive high mass resolution ion microprobe. *J. Geophys. Res. Suppl.*, **89**, B525–B534.
- Compston, W., Williams, I. S., Kirschvink, J. L., Zichao, Z. and Guogan, M. (1992) Zircon U-Pb ages for the Early Cambrian time-scale. *J. Geol. Soc.*, **149**, 171–184.
- 檀原 徹・岩野英樹・糟谷正雄・山下 透・角井朝昭 (1992) 無毒な重液SPT (ポリタングステン酸ナトリウム) とその利用. *地質ニュース*, **455**, 31–36.
- 日高 洋・佐野有司 (1997) 高感度・高分解能イオンマイクロプローブ (SHRIMP) を用いた地球惑星科学. *地球化学*, **31**, 1–16.
- 堀江憲路 (2012) 高感度高分解能イオンマイクロプローブ (SHRIMP II) を用いたU-Pb同位体年代分析. *フィッシュン・トラック ニュースレター*, **25**, 32–34.
- Horie, K., Yamashita, M., Hayasaka, Y., Katoh, Y., Tsutsumi, Y., Katsube, A., Hidaka, H., Kim, H. and Cho, M. (2010) Eoarchean-Paleoproterozoic zircon inheritance in Japanese Permo-Triassic granites (Unazuki area, Hida Metamorphic Complex): Unearthing more old crust identifying source terranes. *Precambrian Res.*, **183**, 145–157.
- 伊藤久敏・田村明弘・森下知晃・荒井章司 (2010) 野島断層およびその周辺の花崗岩質岩から得られたジルコンのU-PbおよびFT年代— LA-ICP-MSによるU-Pb年代測定法の新たな展望—. *地質学雑誌*, **116**, 544–551.
- 岩野英樹・折橋裕二・檀原 徹・平田岳史・小笠原正継 (2012) 同一ジルコン結晶を用いたフィッシュン・トラックとU-Pbダブル年代測定法の評価—島根県川本花崗岩閃緑岩中の均質ジルコンを用いて—. *地質学雑誌*, **118**, 365–375.
- Iwano, H., Orihashi, Y., Hirata, T., Ogasawara, M., Danhara, T., Horie, K., Hasebe, N., Sueoka, S., Tamura, A., Hayasaka, Y., Katsube, A., Ito, H., Tani, K., Kimura, J., Chang, Q., Kouchi, Y., Haruta, Y. and Yamamoto K. (2013) An inter-laboratory evaluation of OD-3 zircon for use as a secondary U-Pb dating standard. *Isl. Arc*, **22**, 382–394.
- Johannes, W. (1984) Beginning of melting in the granite system Qz-Or-Ab-An-H₂O. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **86**, 264–273.
- 兼岡一郎 (1998) 年代測定概論. 東京大学出版会, 東京, 315p.
- Lee, J. K. W., Williams, I. S. and Ellis, D. J. (1997) Pb, U and Th diffusion in natural zircon. *Nature*, **390**, 159–162.
- Ludwig, K. (2003) User's manual for Isoplot 3.00. *Berkeley Geochron. Ctr. Spec. Pub.*, **4**, 70p.
- Ludwig, K. (2009) SQUID 2: a user's manual, rev. 12 Apr. 2009. *Berkeley Geochron. Ctr. Spec. Pub.*, **5**, 110p.
- Matsuda, H. (1974) Double focusing mass spectrometers of second order. *Int. J. Mass Spect. Ion Phys.*, **14**, 219–233.
- Roddick, J. C. and van Breemen, O. (1994) U-Pb dating: A comparison of ion microprobe and single grain conventional analyses. *Radiogenic Age and Isotope Studies: Report 8; Geological Survey of Canada Current Research, 1994-F*, 1–9.
- Sakata, S., Hattori, K., Iwano, H., Yokoyama, T. D., Danhara, T. and Hirata, T. (2014) Determination of U-Pb Ages for Young Zircons using Laser Ablation-ICP-Mass Spectrometry Coupled with an Ion Detection Attenuator Device. *Geostand. Geoanal. Res.*, **38**, 409–420.
- Stern, R. A., Bodorkos, S., Kamo, S. L., Hickman, A. H. and Corfu, F. (2009) Measurements of SIMS instrumental mass fractionation of Pb isotopes during zircon dating. *Geostand. Geoanal. Res.*, **33**, 145–168.
- Vielzeuf, D. and Schmidt, M. W. (2001) Melting relations in hydrous systems revisited: application to metapelites, metagreywackes and metabasalts. *Contrib. Mineral. Petrol.*, **141**, 251–267.
- Wiedenbeck, M., Alle, P., Corfu, F., Griffin, W. L., Meier, M., Oberl, F., Quadt, A. V., Roddick, J. C. and Spiegel, W. (1995) Three natural zircon standards for U-Th-Pb, Lu-Hf, trace element and REE analyses. *Geostand. Newslett.*, **19**, 1–23.
- Wiedenbeck, M., Hanchar, J. M., Peck, W. H., Sylvester, P., Valley, J., Whitehouse, M., Kronz, A., Morishita, Y., Nasdala, L., Fiebig, J., Franchi, I., Girard, J. P., Greenwood, R. C., Hinton, R., Kita, N., Mason, P. R. D., Norman, M., Ogasawara, M., Piccoli, P. M., Rhede, D., Satoh, H., Schulz-Dobrick, B., Skår, Ø., Spicuzza, M. J., Terada, K., Tindle, A., Togashi, S., Vennemann, T., Xie, Q. and Zheng, Y. F. (2004) Further characterisation of the 91500 zircon crystal. *Geostand. Geoanal. Res.*, **28**, 9–39.
- Williams, I. S. (1998) U-Th-Pb geochronology by ion microprobe. In McKibben, M. A., Shanks III, W. C. and Ridley, W. I., eds., *Applications of microanalytical techniques to understanding mineralizing processes*, Rev. Econ. Geol., **7**, 1–35.

(受 付 : 2016年2月17日 ; 受 理 : 2016年5月9日)

地質調査総合センター研究資料集

- 618 地質標本館 2015 夏の特別展ジオパークで見る日本の地質 渡辺 真人
- 619 地質標本館での地中熱利用ヒートポンプシステムおよびその性能評価試験
工事での作業風景 澤井 祐紀
- 620 第 12 回水文学的・地球化学的手法による地震予知研究についての日台国
際ワークショップ予稿集 謝 正倫・小泉 尚嗣・松本 則夫
編
- 621 第 13 回水文学的・地球化学的手法による地震予知研究についての日台国
際ワークショップ予稿集 小泉 尚嗣・松本 則夫・謝 正倫
編
- 622 地質標本館 2015 夏の特別展ジオパークで見る日本の地質(ポスターデータ) 渡辺 真人
- 623 産総研による貞観地震の復元 澤井 祐紀
- 624 蛍光 X 線分析装置(地質調査総合センター鉱物資源研究グループ設置)に
よる岩石化学分析の精度と測定限界 森田 沙綾香・高木 哲一・昆 慶明・
荒岡 大輔
- 625 北海道厚岸町における湿原堆積物の説明 澤井 祐紀・田村 明子・黒坂 朗子
- 626 富士火山山頂部におけるテフラ層序記載 山元 孝広・石塚 吉浩・高田 亮・
中野 俊
- 627 福岡県柳川市における産業技術総合研究所ボーリングの柱状図 松浦 浩久
- 629 吸気フィルタの火山灰目詰試験 山元 孝広・古川 竜太・奥山 一
博
- 630 西暦 869 年貞観地震の復元 田村 明子・澤井 祐紀・黒坂 朗
子

地質調査総合センターの最新出版物

5 万分の 1 地質図幅	鴻巣・川俣・冠山・茂原・母島列島
20 万分の 1 地質図幅	横須賀 (第 2 版)・大分 (第 2 版)・松山 (第 2 版)
200 万分の 1 地質編集図	No. 4 日本地質図 (第 5 版) No. 11 日本の火山 (第 3 版)
特殊地質図	No. 40 関東平野中央部の地下地質情報とその応用
海洋地質図	No. 85 沖縄島北部周辺海域海洋地質図 (1:20 万) No. 86 室蘭沖表層堆積図 (1:20 万) No. 87 金華山沖表層堆積図 (1:20 万)
鉱物資源図	No. 7 南西諸島 (1:50 万)
構造図	No. 14 全国主要活断層活動確率地図
火山地質図	No. 18 蔵王火山地質図 (1:2.5 万) No. 19 九重火山地質図 (1:2.5 万)
水文環境図	No. 9 富士山
空中磁気図	No. 46 養老断層地域高分解能空中磁気異常図 No. 47 富士火山地域高分解能空中磁気異常図
重力図	No. 30 徳島地域重力図 (ブーゲー異常) No. 31 京都地域重力図 (ブーゲー異常) S3 甲府地域重力構造図 (ブーゲー異常)
海外地球科学図	アジア地質図 (1:500 万) 中央アジア鉱物資源図 (1:300 万) アジア鉱物資源図 (1:500 万)
海陸シームレス地質図	S-4 海陸シームレス地質情報集「石狩低地帯南部沿岸域」
燃料資源図	FR-3 燃料資源地質図「関東地方」
土壌評価図	E-6 表層土壌評価基本図「茨城県地域」
数値地質図	G-16 20 万分の 1 日本シームレス地質図 DVD 版 G-17 九州地質ガイド GT-4 全国地熱ポテンシャルマップ S-2 海陸シームレス地質情報集「新潟沿岸域」 S-3 海陸シームレス地質情報集「福岡沿岸域」 V-3 口永良部島火山地質データベース P-2 日本重力データベース DVD 版 G20-1 20 万分の 1 数値地質図幅集「北海道北部」第 2 版 G20-2 20 万分の 1 数値地質図幅集「北海道南部」第 2 版
その他	日本の熱水系アトラス 海と陸の地球化学図 関東の地球化学図

地質調査研究報告編集委員会

委員長	鈴木淳
副委員長	田中明子
委員	石塚治
	清水徹
	昆慶明
	高倉伸一
	大谷竜明
	長森英明
	内野隆之
	高橋浩
	工藤崇
	板木拓也
	森尻理恵
	加瀬治

事務局

国立研究開発法人 産業技術総合研究所
地質調査総合センター
地質情報基盤センター 出版室
<https://www.gsj.jp/inquiries.html>

Bulletin of the Geological Survey of Japan Editorial Board

Chief Editor: Atsushi Suzuki
Deputy Chief Editor: Akiko Tanaka
Editors: Osamu Ishizuka
Toru Shimizu
Yoshiaki Kon
Shinichi Takakura
Ryu Ohtani
Hideaki Nagamori
Takayuki Uchino
Yutaka Takahashi
Takashi Kudo
Takuya Itaki
Rie Morijiri
Osamu Kase

Secretariat Office

National Institute of Advanced Industrial Science and Technology
Geological Survey of Japan
Geoinformation Service Center Publication Office
<https://www.gsj.jp/en/>

地質調査研究報告 第67巻 第2号
平成28年6月20日 発行

国立研究開発法人 産業技術総合研究所
地質調査総合センター

〒305-8567
茨城県つくば市東1-1-1 中央第7

Bulletin of the Geological Survey of Japan
Vol.67 No.2 Issue June 20, 2016

Geological Survey of Japan, AIST

AIST Tsukuba Central 7, 1-1-1, Higashi,
Tsukuba, Ibaraki 305-8567 Japan

BULLETIN OF THE GEOLOGICAL SURVEY OF JAPAN

Vol. 67 No. 2 2016

CONTENTS

- Geochemical variation of the Late Cretaceous-Paleogene granitoids across the Ehime-Hiroshima-Shimane transect, Japan
Shunso Ishihara and Tetsuji Ohno 41
- Zircon U-Pb dating by SHRIMP: sample preparation procedure and result of reference material measurements
Daisuke Araoka, Yoshiaki Kon and Terumi Ejima 59