

正長石及び微斜長石マイクロパーサイ トの加熱均一化による solvus の決定

中 野 聰 志

Experimental determination of the solvus for the orthoclase-and microcline-microperthite by homogenizing natural specimens

Satoshi NAKANO

ABSTRACT

The writer determined the solvus for the microcline-and orthoclase-microperthite by homogenizing natural specimens and determining the chemical compositions of K-and Na-phase directly with X-ray microprobe analyser. In addition, the writer tried to determine the solvus by using X-ray Weissenberg method, but failed. This reason was considered.

The solvus determined in this study is most similar to the Margules solvi of Spencer O, N, and M, especially the solvus of Spencer O, determined by Luth(1974).

はじめに

アルカリ長石の solvus (固相線) を決定していくことが、アルカリ長石を含む色々な岩石の熱的歴史を説明するために必要とされている。この意味で、多くの研究者が古くから色々な方法を使ってさまざまな solvus を提出してきた。この結果かなりのことが判明してきたが、未だそれらが統一的に整理されるまでに至っていない。

従来の実験法を、次の二点から整理して考えることが出来る。即ち、一つは実験に供された試料に関して、他の一つはK相とNa相の組成を決定する方法に関してである。

試料については、一方では天然試料を加熱均一化した実験がある (Laves 1952, Tuttle & Bowen 1958, Smith & Mackenzie 1961, etc.)。

他方では、合成試料が solvus の決定に用いられてきた (Bowen & Tuttle 1950, Yoder 1957, etc.)。最近さかんに行われているアルカリイオン交換法による実験においても、出発物質として天然試料 (Bachinski & Müller 1971) と合成

試料 (Orville 1963, 1967, Luth & Tuttle 1966, Goldsmith & Newton 1974) の両方が用いられている。

組成を決定する方法に関しては、従来は、直接化学組成を求めることが難しかったので、間接的な組成推定法が用いられてきた。それは、格子定数あるいは格子体積と化学組成との対応関係を利用するものである。これらのうち、格子体積一組成の関係を使う場合は、一応信頼出来るものとされている。なお、格子定数は、粉末X線法と単結晶X線法との二つの方法によって求められる。単結晶法の場合には、Smith & Mackenzie (1958) は振動法を使い、Tatekawa et al (1974) はワイゼンベルグ法を使っている。

これまで、以上の方法が組み合わされて、さまざまな solvus が提出されてきた (Barth 1962, Luth 1974)。最近では、X線マイクロプロヴェアナライザー (以下、EPMAとする) さらには電子顕微鏡法によって直接化学組成を求めることが試みられている。今回、筆者は、天然のパーサイトの加熱均一化を行い、EPMAによって直接組成を求めることによって、又X線ワイゼ

ンベルグ法で従来通り間接的に組成を求めることにより、アルカリ長石の solvus の作製を試みたのでその結果を報告する。

実験方法

実験に用いた試料及び加熱法については、同じ実験をイオンの移動の面から論じた時に(中野1975)述べたので、ここでは簡単に留める。試料は、大津市南郷産の正長石マイクロパーサイト(以下、南郷パーサイトとする)と福島県石川産の微斜長石マイクロパーサイト(以下、石川パーサイトとする)であり、第1表に若干の性質を示した。加熱は、常圧下、電気炉で行い、加熱後水銀中で急冷した。250時間加熱は、それぞれ10時間、65時間、175時間加熱急冷を繰り返したものである。なお、今回扱った試料は、全て250時間加熱のものである。

第1表 パーサイトの性質

	ラメラの形態	組成	産状
南郷	vein状	Or ₇₄ Ab ₂₂ An ₄	花崗岩質ベグマタイト
石川	patch状	Or ₇₈ Ab ₁₈ An ₄	同上

実験結果

A. EPMAによる solvus の決定

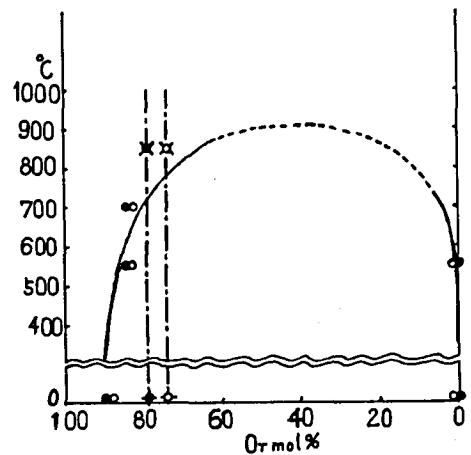
標準試料として、滋賀県花園産の月長石(Or₆₃ Ab₃₅ An₂)とカナダ・ラブラドル産のラブラドライト(Or₂ Ab₄₆ An₅₂)を用いた。使用したEPMAは、島津製作所EMX-SMである。実験条件は、加速電圧25KV、試料電流0.02μA、ビーム径約6μm、時定数1秒及び2秒である。Na相については、Tainosho & Banno(1974)の場合と同様に、濃度変化が激しいことから定量しなかった。しかし、両パーサイト共、天然試料及び550℃加熱試料においては、Na相はほぼ純粋なアルサイト相であることが判明した。以上のうち、K相についての定量結果が、第2表にOr成分のモル%で示してある。注意すべきことは、実験試料は顕著に部分的な濃度変化を示したことである。従って、第2表の値はある幅を持ったものの平均値であり、大体その幅はOr±3モル%程度である。

250時間加熱によって、850℃以上は、南郷、石川パーサイト共、一応一相であると考えられる。

以上の結果をもとに、南郷、石川両パーサイトについて、solvus を作製した。それが、第1図である。南郷、石川両パーサイトの solvus は、殆んど重なってしまうので、一本の solvus として作図した。この図での点線部分は、推定の部分である。

第2表 パーサイトのK相の組成(Orモル%)

	南郷	石川
natural	87	90
550℃	84	84
700℃	83	84
850℃	74	79
1000℃	-	79



第1図 白丸は南郷パーサイト } に対するものである。
 黒丸は石川パーサイト }
 ○●は湿式分析による試料全体の組成
 ○●は一相であることを示す。

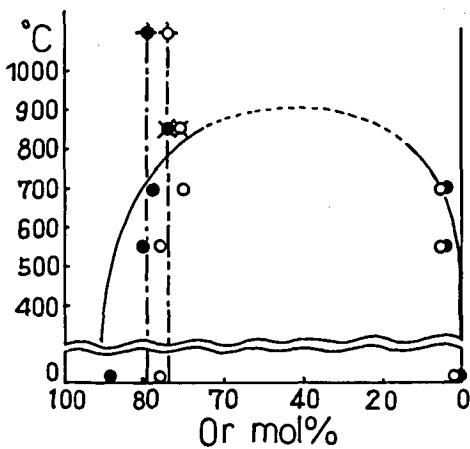
B. X線ワイゼンベルグ法による solvus の検討

天然試料及び各加熱試料について、X線ワイゼンベルグ写真を、b軸及びc軸を回転軸として撮影し、格子定数を算出した。南郷・石川パーサイトの各試料共、かなりdiffuseあるいはsplitした回折斑点を示したが、各回折斑点の中心を測

試料	温度	相	a(Å)	b(Å)	c(Å)	α	β	γ	V	Or (モル%)	EPMA値との差
南郷マイクロパーサイト	natural	K	8.54	12.92	7.20	90°01'	115°55'	89°55'	716	76	11
		Na	8.12	12.73	〃	93°55'	117°04'	87°56'	661	0	
	550°C	K	8.53	12.92	7.22	90°07'	115°58'	89°53'	716	76	8
		Na	8.12	12.71	〃	93°57'	116°53'	88°31'	668	4	
	700°C	K	8.53	12.90	7.20	90°22'	116°18'	89°56'	712	70	13
		Na	8.23	12.79	〃	93°56'	118°02'	88°31'	667	3	
	850°C		8.49	12.97	7.23	90°29'	116°11'	89°27'	713	71	3
	700°C*	K	8.51	12.92	7.21	90°39'	116°13'	89°39'	713	71	
		Na	8.10	12.73	〃	92°59'	117°30'	88°05'	666	2	
	850°C*		8.51	12.96	7.22	90°03'	116°33'	90°03'	713	71	
石川マイクロパーサイト	natural	K	8.55	12.96	7.22	90°41'	115°58'	87°21'	718	88	2
		Na	8.10	12.72	〃	94°07'	117°06'	87°52'	660	0	
	400°C**	K	8.52	12.96	7.23	90°51'	116°00'	88°19'	717	84	
		Na	8.18	12.72	〃	93°58'	117°39'	88°52'	665	3	
	500°C	K	8.50	12.96	7.20	90°27'	115°41'	88°14'	715	80	4
		Na	8.14	12.78	〃	95°24'	117°06'	86°33'	664	3	
	700°C	K	8.48	12.94	7.22	90°07'	115°46'	88°50'	714	78	1
		Na	8.14	12.71	〃	93°28'	116°41'	88°35'	664	3	
	850°C		8.48	12.95	7.22	90°30'	116°01'	88°04'	713	74	5

第3表 X線ワイゼンベルグ法による格子定数及び組成の加熱変化
誤差については天然試料のものが中野(1975)に示してある。

* 1000時間加熱である
** 85時間加熱である) 残りはいずれも250時間加熱



第2図 白丸は南郷パーサイト } に対するものである
黒丸は石川パーサイト }
○●は湿式分析による試料全体の組成
○●は一相であることを示す。

定点として測定を行った。Na相のcパラメーターについては、K相と同じとして計算した。この結果が、第3表に示してある。この表中のOrモル%は、南郷パーサイトについてはWright & Stewart (1968) が求めた正長石系列の、石川パーサイトについては、Orville (1967) が求めた微斜長石系列の格子体積一組成の関係を利用して求めたものである。右端の欄には、EPMAで求めた値からこの値を引いた差を示したが、かなりの差が認められた。しかも、この方法では、南郷・石川パーサイト共、未だパーサイトが均一化していない700°C加熱の段階で、K相が既にパーサイト全体の組成(湿式法とEPMA法とによって一致した値—第1図)になってしまったため、solvusは作り得なかった。第2図は、第3表の値を図示したものであるが、図中

の solvus は、第 1 図の EPMA によって求めた solvus である。

考察とまとめ

A.

第 1 図に示した南郷・石川パーサイトに共通した solvus より、次のことが明らかになった。

- solvus 曲線の形は左右非対称であり、しかも、Ab 側の翼は端まで広がっている。この点は従来の solvus と同様である。
- solvus の頂点の位置は決定できなかったが、ほぼ 900°C 付近と推定できる。
- Müller (1971) は、試料の Si-Al の ordering の度合により solvus が異なり、ordering の高いものほど頂点が高く両翼の広がった solvus を持つとした。しかし、この結果から、南郷と石川パーサイトの間についてはそれは認められない。
- 今回の solvus は、Tuttle & Bowen (1958) が Spencer O, N, M (crypto ~ micropertthite) の試料を使い、加熱均一化法と粉末法によって求めた実験データから、Luth (1974) が決定した Margules solvus 特に Spencer O のそれと良く類似している (第 3 図)。

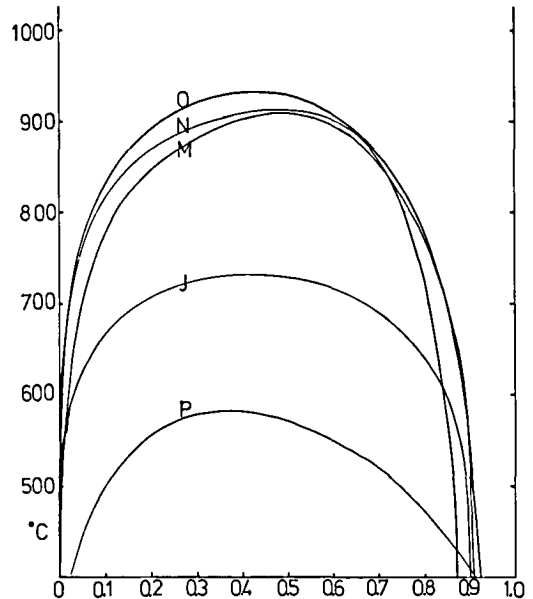
Bachinski & Müller (1971) が決定した微斜長石一低温曹長石系の solvus (第 4 図) と比較すると、彼等の solvus は南郷・石川パーサイトの solvus の内側に位置し、特に Or 側において違いが顕著である。

これから考えると、組成の決定法 (B. で論ずる様に問題はあがあるが) よりも、実験試料の選択、加熱法の選択が、作製された solvus の形を大きく支配すると推察出来る。

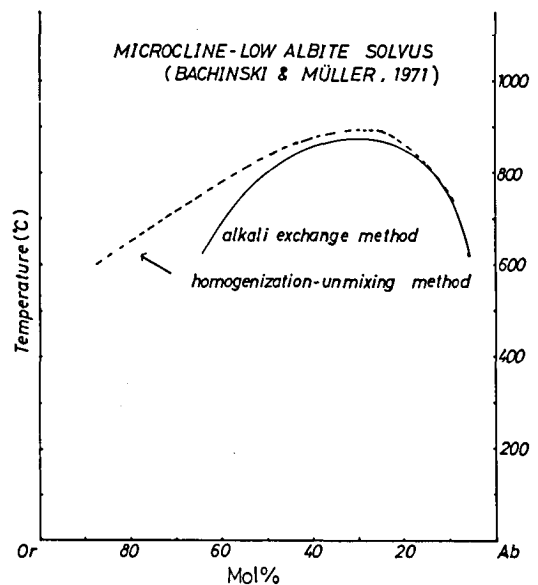
B. EPMA 法と X 線ワイゼンベルグ法による結果の違い

EPMA 法と X 線ワイゼンベルグ法による組成のズレ、特に X 線法によって solvus が作製出来なかった原因として、次のことを考え得る。

- 南郷・石川両パーサイト共、既に述べた様に、その回折斑点に diffuseness や splitness が見られ sharp な回折斑点でないため、測定誤差が大きい。一般的に考えると、南郷パーサイトの K 相の α 角・ γ 角は加熱しても 90° であるはずだが、多少ずれているのは、このためとも考えられ



第 3 図 Luth (1974) より一部引用
O, N, M, J, P はそれぞれ Spencer O, N, M, J, P の試料名である。
なお、横軸は Or 成分のモル分率である。



第 4 図 Bachinski & Müller (1971) の
第 3 図及び第 4 図より引用

る。この場合に限らず、パーサイトの各相の格子定数を測定するのは、X 線単結晶法が唯一の方法ではあるが、その反射が微細構造を反映するため、その結果の扱いには検討の余地がある。

b. Orville (1967), Wright & Stewart (1968) による格子体積一組成の関係図は、粉末試料を使ったアルカリオン交換法によって求められている。従って、今回のデータがうまくこれらに適合するかどうか問題がある。

以上の互いに関連したaとbの問題は、今後に残された課題である。

おわりに、本研究に際し、終始御指導御討論いただいた本学立川正久教授に心から御礼を申し上げます。また、EPMAの使用に際し、便宜をはかっていただき御指導いただいた京都工芸繊維大学吉田直次郎博士、EPMA使用の御手伝いをしていただいた八戸啓氏及び試料作製に御協力いただいた本学八里正三氏に深く感謝し御礼を申し上げます。

参 考 文 献

- (1) Bachinski, S.W. and Müller, G.; Experimental determinations of the microcline-low albite solvus, *Jour. Geol.*, 12, 329 (1971)
- (2) Barth, T.F.W.; Feldspar solid solution, *Chem. Erde*, 22, 31 (1962)
- (3) Goldsmith, J.R. and R.C. Newton; An experimental determination of the alkali feldspar solvus, *The feldspars* (1974)
- (4) Luth, W.C.; Analysis of experimental data on alkali feldspars, *The feldspars* (1974)
- (5) Luth, W.C. & O.F. Tuttle; The alkali feldspar solvus in the system $\text{Na}_2\text{O}-\text{K}_2\text{O}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2-\text{H}_2\text{O}$, *Amer. Mineral.*, 51, 1359 (1966)
- (6) Müller, G.; Der einfluss der Al, Si-Verteilung auf die Mischungslücke der Alkalifeldspate, *Contr. Min. Petrol.*, 34, 73 (1971)
- (7) Nakano, S.; Diffusion of K, Na and Ca ions in microperthite on heating, *Mineral. Jour.* 12, No. 3, 165 (1975) (in Japanese)
- (8) Orville, P.M.; Alkali ion exchange between vapor and feldspar phases, *Amer. Jour. Sci.*, 261, 201 (1963)
- (9) Orville, P.M.; Unit-cell parameters of the microcline-low albite and sanidine-high albite solid solution series, *Amer. Mineral.*, 52, 55 (1967)
- (10) Smith, J.V. & W.S. Mackenzie; Alkali feldspars: IV, *Amer. Mineral.*, 43, 872 (1958)
- (11) Smith, J.V. & W.S. Mackenzie; Atomic, chemical and physical factors that control the stability of alkali feldspars., *Internat. Min. Assoc.* 1960, Inst. "Lucas Mallada" VIII, Madrid, 39 (1961)
- (12) Tainosho, Y. & S. Banno; Diffusion concentration gradient in an orthoclase from a granodiorite of the Ibaragi granitic complex, *Jour. Geol. Soc. Japan*, 80, 115 (1974)
- (13) Tatekawa, M. and Nakano, S.; On the solvus of the orthoclase cryptoperthite having sodium phase twinning according to albite law, *Memoirs Geol. Soc. Japan*, No. 11, 123 (1974)
- (14) Tuttle, O.F. & N.L. Bowen; Origin of granite in the light of experimental studies in the system $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8 - \text{KAlSi}_3\text{O}_8 - \text{H}_2\text{O}$, *Geol. Soc. Amer. Mem.*, 74, 153 (1958)
- (15) Wright, T.L. & D.B. Stewart; X-ray and optical study of alkali feldspar: I, *Amer. Mineral.*, 53, 38 (1968)