

岩石薄片のマイクロ蛍光 X 線マッピングによるカリ長石の判別

Identification of potassium feldspar in rock thin sections by micro-XRF mapping

伊地知 佑太¹⁾・山本 啓司^{1,2)*}

Yuta IJICHI¹⁾, Hiroshi YAMAMOTO^{1,2)*}

¹⁾ 鹿児島大学大学院理学部 地球環境科学科

²⁾ 鹿児島大学大学院理工学研究科理学専攻 地球科学プログラム

¹⁾ Faculty of Science, Kagoshima University, Kagoshima 890-0065

²⁾ Graduate School of Science and Engineering, Kagoshima University, Kagoshima 890-0065

* 責任著者 e-mail address: hyam@sci.kagoshima-u.ac.jp

Abstract: We propose a simple method for recognizing potassium feldspar in rock thin sections. A potassium feldspar-stained thin section of granodiorite was used to evaluate the suitability of this method. The modal amount of stained potassium feldspar is 35.7%, measured by point counting on a color photomicrograph of granodiorite with a 32 x 32 grid of points. X-ray element-concentration maps of an area covering the same 32 x 32 grid of points are obtained from a micro-XRF apparatus. A grayscale image is generated by the subtraction of a concentration map of Fe from a concentration map of K. The modal amount of bright areas (K-rich and Fe-poor) is 36.0%, measured by point counting on the grayscale image. The results indicate that the proportion of potassium feldspar is recognizable by micro-XRF element-concentration mapping. A 32 x 32 grid of points is set on a color photomicrograph of sandstone. X-ray element-concentration maps and a grayscale image are obtained by the same process as mentioned above. The modal amount of bright areas, indicating potassium feldspar, is 6.0%, measured by point counting on the grayscale image. There is no need of chemical treatment, mirror-finishing, and conductive coating on rock thin sections for micro-XRF element-concentration mapping. Thus, this technique is practically useful for modal analysis of granitic rocks and sandstone by point counting.

Keywords: potassium feldspar, point counting, granodiorite, sandstone

1. はじめに

岩石を分類・記載して、その成因を検討するには、構成鉱物のモード組成を把握する必要がある。たとえば碎屑性砂岩の場合には、肉眼による鑑定もしくは岩石薄片の偏光顕微鏡観察によって、石英、長石、岩片、および基質の相対的な量比を「定性的」に知ることができれば、おおよその分類が可能になる。完晶質の火成岩類の場合も同様である。モード組成を定量的に測定するには、伝統的に「ポイント

カウンティング」と呼ばれる手法が採用されてきた。これは、偏光顕微鏡の載物ステージに十字動装置を取り付けて、岩石薄片を直交 2 方向の格子状に一定の間隔で移動させながら、観察視野中心にある物を順次鑑定し、鑑定を行った格子点の総数が一定の数（通常は 500 から 1000 程度）に達したら、各鉱物種のカウント数を総数に対する数量比として算出する方法である。この数量比を各鉱物種が当該の岩石中に占めている容積比と見做すことができる。

この手法によるモード測定最大の難点は、測定結果の妥当性がポイントカウンティングを行う人の鉱物鑑定能力に依存することである。定量的データが必要な場面で個人の技術レベルや癖のような定量化しにくい不確定要素が入り込んでしまう。そこで、分析装置を使って岩石の薄片または研磨面の元素濃度のマッピングデータを取得し、それをコンピュータで画像解析して鉱物種ごとの数量比に変換する方法[たとえば, 1, 2, 3, 4, など]、あるいは、岩石薄片上に格子状に配置した分析点の定量（または半定量）分析値から各点の鉱物種を判別して数量比を算出する方法[たとえば, 5, 6 など]が提案されている。岩石薄片（または研磨した切断面）上で元素濃度値を取得できる装置には、走査型電子顕微鏡に併設されるエネルギー分散型 X 線分析装置（EDS）、電子プローブマイクロアナライザ（EPMA）、マイクロ蛍光 X 線分析装置（micro-XRF）などがあり、これらの分析装置は、理系分野を擁する多くの大学や各都道府県の工業試験施設などに設置されていて、岩石学的研究に利用可能である。しかし、現状では元素濃度の面的測定によってモード組成値が量産されて岩石学に恩恵をもたらしているようには思われない。

元素分析によるモード測定があまり普及しない原因として、次のような問題点が挙げられる。試料中に化学組成が類似する鉱物が混在していると、元素濃度値だけを頼りに判別することは困難である。天然の岩石には変質して化学組成が変化した鉱物粒子が含まれているので、元素濃度だけで判別すると鉱物種を誤認する可能性がある。さらに、化学組成が一定の範囲で変動する固溶体鉱物や、砂岩の基質（および基質から二次的に生じる物質）の取扱いが難しい。結局のところ、元素濃度値だけではモード測定を完結できず、偏光顕微鏡で補足的な観察を行う手間が生じる。分析装置に起因する問題も存在する。EDS または EPMA を用いる場合は、装置に持ち込むまでの前処理として測定対象試料の表面を鏡面研磨して導電性コーティングを施す必要がある。この前処理には、偏光顕微鏡観察用の岩石薄片を作成した上でさらに少なくとも数時間を要する。micro-XRF の場合は、一般的な方法で作成された岩石薄片をそのまま測定できる利点がある。しかし、機種にもよるが通常は原子番号 10 の Ne 以下の軽元素から得られる蛍光 X 線は信号強度が不十分で測定できないので、その検出限界に近い Na、Mg について十分な信号を得ようとすると、照射する X 線の出力を大きく、信号取得にかける時間を長くする必要があるのである。そのような設定で測定を行うと、検出される元素のピーク値とバックグラウンドの比率が悪化するとともに、Na、Mg と、より大きい原子番号の元素との濃度比の算出に複雑な補正計算を要することになる。元素濃度値による測定法に汎用性を求めると、考慮すべき条件が多くなるので手間がかかりすぎる。

一般に、岩石学的研究を行う上でモード組成の定量的測定が必要になり得るのは砂岩、深成岩類、および高変成度の変成岩類である。なかでも必要性が高いのは砂岩と花崗岩類である。測定対象を砂岩または花崗岩類に限れば、モード測定上の難点を「カリ長石の判別」に絞ることができる。砂岩（堆積環境が特殊であるものを除く）を分類し、その性状を比較検討する上で、判別すべき成分は石英、斜長石、カリ長石、岩片、および基質である。花崗岩類の場合は、石英、斜長石、カリ長石、黒雲母、白雲母、角閃石が判別できれば十分である。それらの主要な成分のうち偏光顕微鏡による鑑定が困難なのはカリ長石だけである。カリ長石は無色で屈折率が低く、石英または Na に富む斜長石との区別が難し

い。粗粒の花崗岩類なら屈折率と少し濁ったような印象が手がかかりになるものの、砂岩中のカリ長石の判別は極めて困難である。光学的鑑定が難しいカリ長石は、染色法によって着色させれば判別できる。薄片の表面をフッ化水素酸で腐食させた後にコバルト亜硝酸ナトリウムの飽和溶液に浸すとカリウム濃度の高い領域が黄色に染まる[7]。しかし、これらの薬品は強い毒性を有する危険物である。薄片の染色は手軽に行えるものではない。化学成分としてのKの定性的濃度は、EDSまたはmicro-XRFで容易に測定できる。これらの機器を用いて岩石薄片の元素濃度マップを取得し、Kを主成分とする鉱物の分布状態を画像で把握できれば、染色法によらなくてもカリ長石を容易に判別できるはずである。

本研究では、岩石薄片の偏光顕微鏡画像の観察とX線元素濃度マップを併用することにより、カリ長石の判別を試みる。X線元素濃度マップは鹿児島大学研究支援センター設置のmicro-XRF装置である「X線分析顕微鏡 (HORIBA XGT-5000、以降XGTと略称)」(^{11}Na から ^{92}U まで検出可)を用いて取得する。鏡面研磨や導電性コーティングなどの前処理は不要であり、一般的な手順で作成した岩石薄片をそのまま分析できる。まず、染色法によってカリ長石の分布が明らかになっている花崗閃緑岩の薄片を用いてカリ長石の区別が可能かどうかを検証し、次にその方法を砂岩の薄片に対して応用する。

2. 岩石試料の概要

本研究で使用した岩石試料は、Fig. 1に示す場所で採取された花崗閃緑岩と砂岩である。花崗閃緑岩の試料は、大隅半島中央部の高隈山大笠柄岳の西方に分布する「高隈山花崗岩」の「新光寺タイプ」と呼ばれる岩体のものである[9]。鹿児島大学理学部の山本温彦博士(2010年当時)に、その花崗閃緑岩から作成した薄片を提供していただいた。この薄片のカリ長石は、前述の手法で染色されている。

Fig. 2aのやや濁った黄色からオレンジ色を帯びている部分がカリ長石である。新光寺タイプの花崗閃緑岩は、石英、斜長石、カリ長石、黒雲母を主成分とし、少量の電気石、緑泥石、不透明鉱物を含む。砂岩の薄片は北薩地域の四万十帯佐伯亜層群樋之谷層[10]から採取した試料から作成した(Fig. 2b)。米田・岩松(1987)[10]によると、樋之谷層は米ノ津川の上流域(出水市射場元)から田海川の東方(東郷町藤川)にかけて帯状に分布する白亜系(アルビアンからセノマニアン)の地層である。下位(南東側)に玄武岩質枕状溶岩、凝灰岩、泥岩優勢の海底地すべり堆積物が分布し、上位(北西側)に砂岩層が分布する。全体の層厚は1000 m以上とされている。上位の砂岩層は細粒から粗粒で、淘汰の悪い長石質ワッケを主体とし、黒色頁岩および長石質アレナ

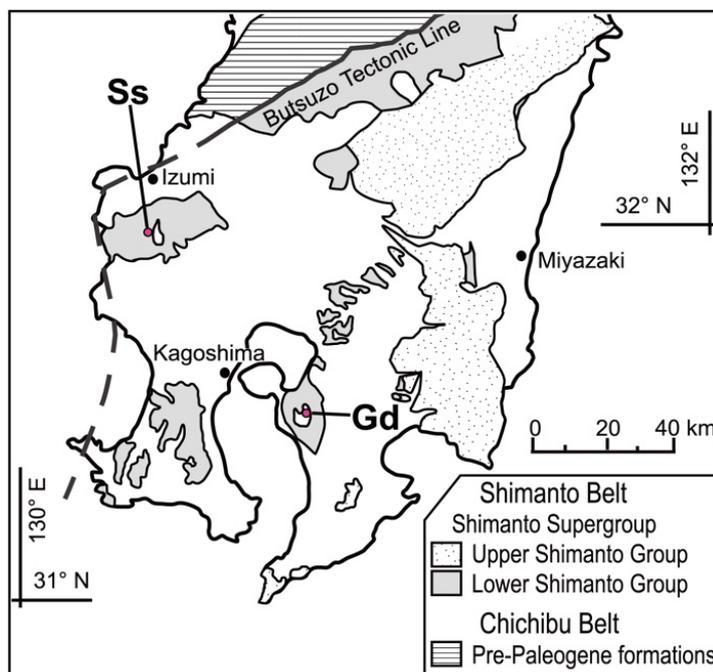


Fig. 1. Regional geological setting of southern Kyushu. Geologic boundaries are adapted and simplified from Teraoka (2004) [8]. Locations of samples used in this study are indicated by “Gd” for granodiorite and “Ss” for sandstone.

イトを含む。砂岩試料は細粒で石英、斜長石、カリ長石、岩片（チャート、泥岩、フェルシック火山岩類、マフィック火山岩類、花崗岩類）、を主成分とし、少量の黒雲母、白雲母、緑レン石、ジルコン、緑泥石、炭酸塩鉱物、および不透明鉱物を含む。

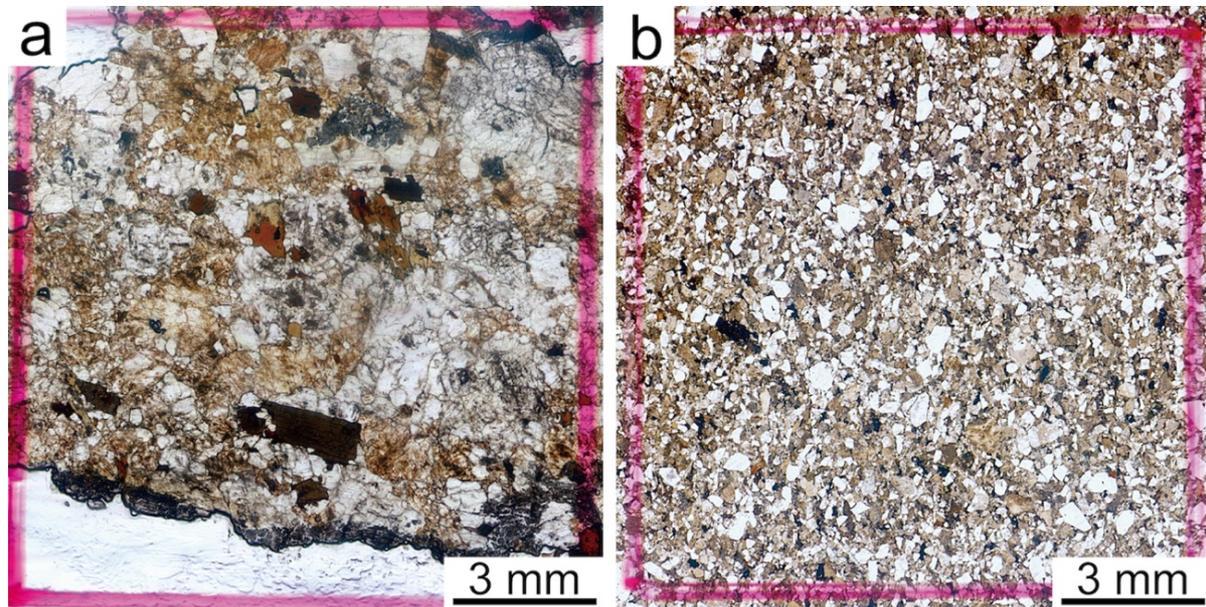


Fig. 2. (a) Photomicrograph of a dyed thin section of granodiorite taken by open polarized light. (b) Photomicrograph of a thin section of sandstone taken by open polarized light.

3. 元素濃度マッピング

カリ長石を染色した花崗閃緑岩の薄片について、一辺 12 mm の正方形の内側の約 1 cm 四方の範囲について、XTG で元素濃度マップを取得した。測定条件は、X 線管電圧 50 kV、電流値 1.0 mA、X 線ビーム径 100 μ m である。マッピングの設定は画像サイズ 512×512 ピクセル、スキャン時間 600 秒、積算回数は 3 回、測定元素は、Si、Al、Fe、Ca、Mg、K の 6 つである。この設定での測定に要する時間は 40 分程度である。結果を Fig. 3 に示す。XGT の仕様上、測定可能な元素は ^{11}Na 以上であるが、Na と Mg の蛍光 X 線はバックグラウンドのレベルであり、測定できていない。Al についても、測定範囲の濃度値の変化をマップとして評価するには不十分である。Si は測定できているが、試料中の多種類の構成鉱物において主要な成分であるから、ポイントカウントの参考にはなりにくい。K と Fe については、それぞれの濃度が高い領域が明確であり、高濃度領域を鉱物種に対応させることが可能である。

砂岩の薄片についても一辺 12 mm の正方形の内側の約 1 cm 四方の範囲について、XTG で元素濃度マップを取得した。測定条件は花崗閃緑岩の場合と同一である。砂岩薄片の元素濃度マップを取得した結果を Fig. 4 に示す。花崗閃緑岩の場合と同様に Na と Mg は測定できていない。Al も濃度マップとして利用するには不十分である。K と Fe については、それぞれの濃度が高い領域が明確であり、高濃度領域を鉱物種に対応させることが可能である。

4. 元素濃度マップによるカリ長石の判別

花崗閃緑岩薄片の元素濃度マップからカリ長石の分布状態を判別できるかどうかを検証し、その結果を砂岩薄片に応用することを試みる。

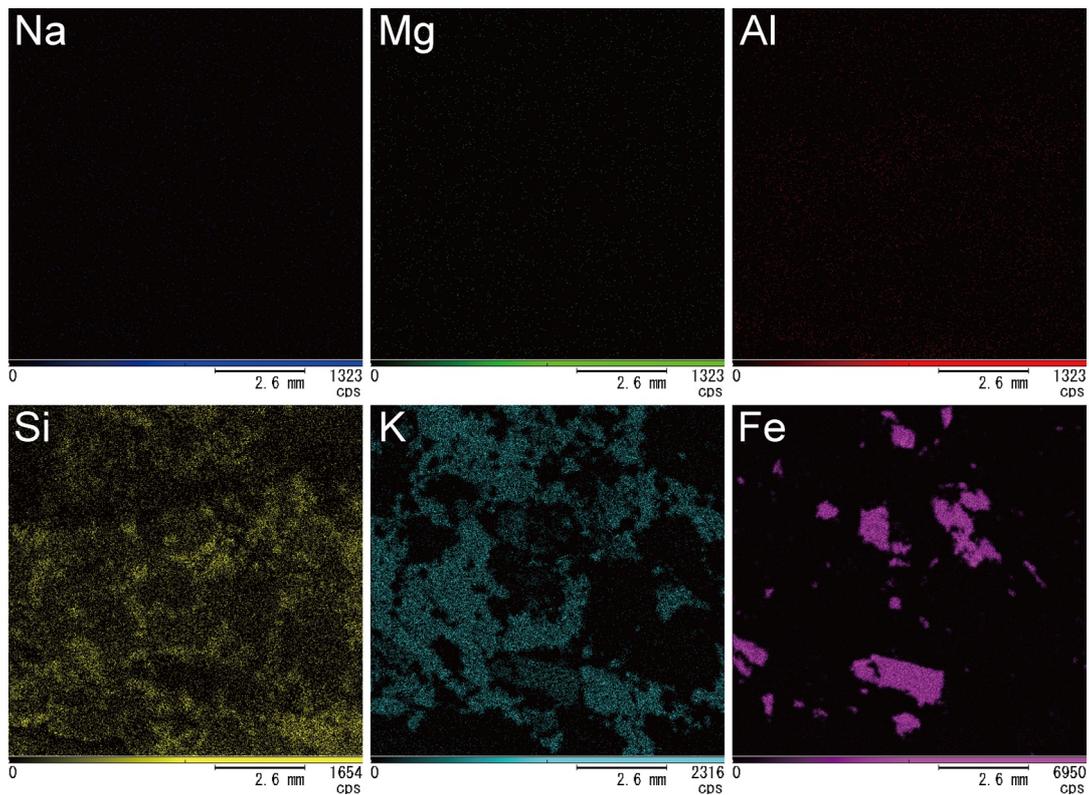


Fig. 3. X-ray element-concentration maps for Na, Mg, Al, Si, K, and Fe of a dyed thin section of granodiorite.

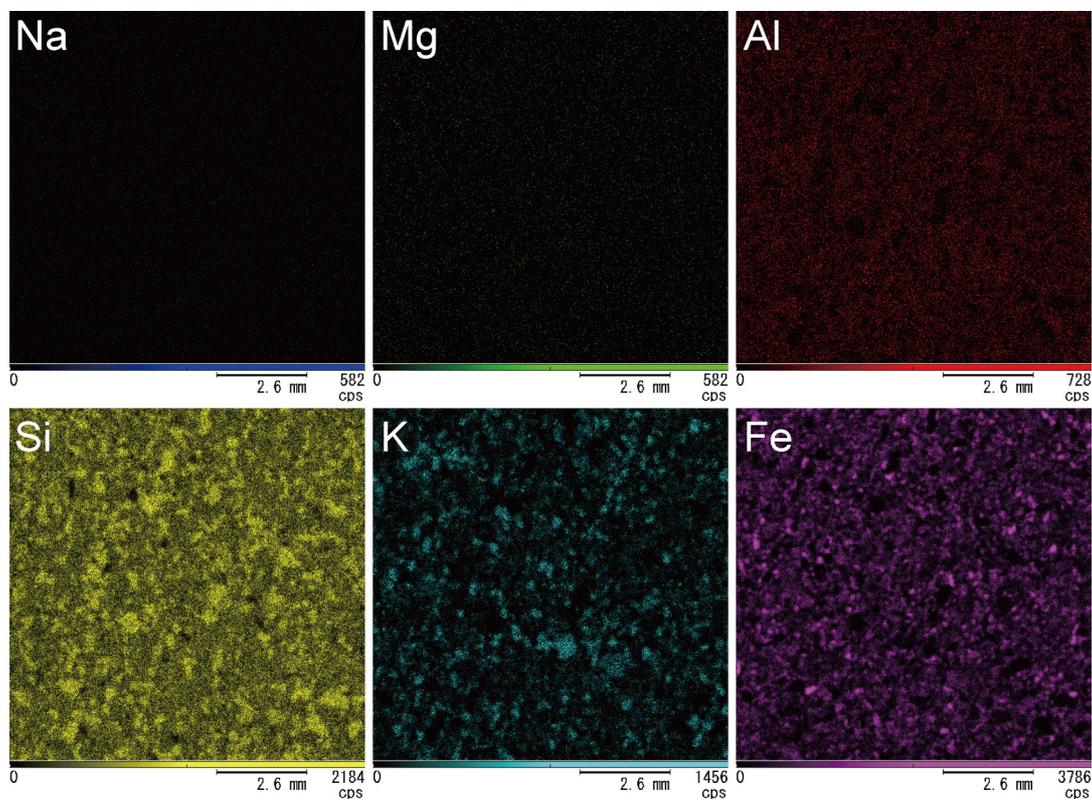


Fig. 4. X-ray element-concentration maps for Na, Mg, Al, Si, K, and Fe of a thin section of sandstone.

4. 1. 花崗閃緑岩

カリ長石を染色した薄片の元素濃度マップの範囲に丁度重なる範囲の偏光顕微鏡画像に 32 行 32 列の格子を重ねて配置し、カリ長石が染色されているところに当たる格子点の数をカウントした (Fig. 5a)。染色されている部分の面積比は 35.7% (350 点) であった。ただし、全格子点 1024 のうち試料が欠損している部分に掛かる 44 の格子点を除いた 980 点を面積比の計算上の分母としている。

元素濃度マッピングを行なった領域には、カリウム含有鉱物としてカリ長石 (正長石) と黒雲母が存在することがわかっている。K の濃度マップと偏光顕微鏡画像を比較すると、K の濃度マップでは、カリ長石と黒雲母の両方の分布領域が着色しているため、カリ長石だけの分布域を抽出できていない。Fe は、黒雲母には含まれるがカリ長石にはほとんど存在しないことを利用し、XGT の画像演算機能を用いて K の濃度マップから Fe の濃度マップのデータを減算したグレースケール画像を生成した (Fig. 5b)。グレースケール画像上に偏光顕微鏡画像に設定したものと同一 32 行 32 列の格子を配置し、輝度が高い領域にある格子点の数をカウントした。カウントするのに要した時間は 10 分を少し超える程度である。全 980 点中 353 点が該当し、面積比は 36.0% であった。これは染色法による面積比とほぼ一致する。XGT で取得した K の濃度マップから Fe の濃度マップのデータを減算したグレースケール画像はカリ長石の判別に有効である。

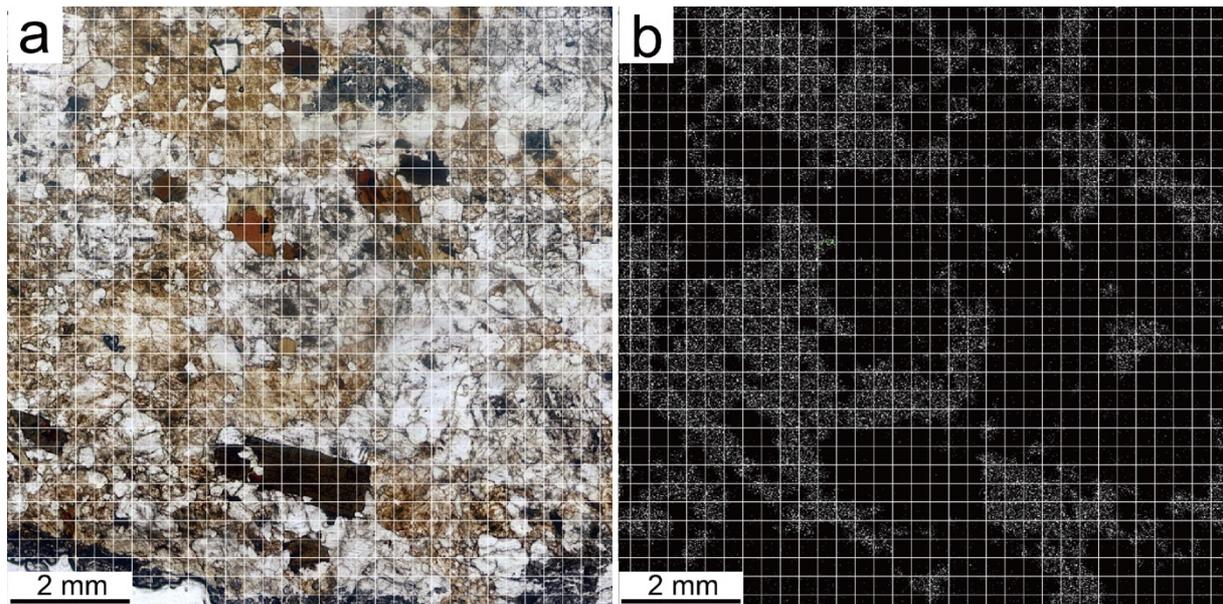


Fig. 5. (a) Photomicrograph of a stained thin section of granodiorite with a 32 x 32 grid. (b) A grayscale image generated by the subtraction of X-ray element-concentration maps (Fe from K).

4. 2. 砂岩

花崗閃緑岩のカリ長石を元素濃度マップからカウントした手順を砂岩の薄片に適用する。元素濃度マップの範囲に丁度重なる範囲の偏光顕微鏡画像に 32 行 32 列の格子を重ねて配置する (Fig. 6a)。K の濃度マップから Fe の濃度マップのデータを減算したグレースケール画像上に偏光顕微鏡画像に設定したものと同一 32 行 32 列の格子を配置し、輝度が高い領域にある格子点の数をカウントした (Fig. 6b)。カウントするのに要した時間は数分程度である。全 1024 点中 61 点が該当し、面積比は 6.0% であった。砂岩には白雲母が含まれることがあり、K の濃度マップから Fe の濃度マップのデータを減算したグレースケール画像には白雲母 (Fe をほとんど含まない) が混在している可能性がある。花崗岩

類の場合も同様である。しかし、白雲母とカリ長石は偏光顕微鏡の画像から極めて容易に判別できる。前述の 353 (花崗閃緑岩) および 61 (砂岩) の格子点下には白雲母は存在しない。

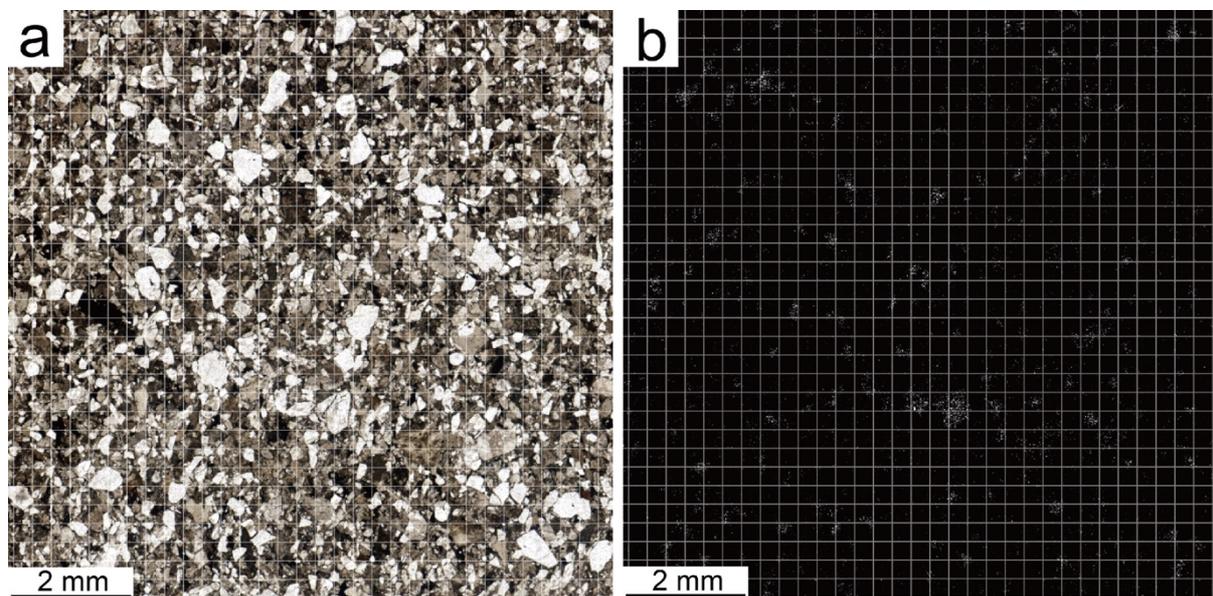


Fig. 6. (a) Photomicrograph of a thin section of sandstone with a 32 x 32 grid. (b) A grayscale image generated by the subtraction of X-ray element-concentration maps (Fe from K).

5. 結論

岩石薄片中のカリ長石の分布を画像化し、ポイントカウンティングの際のカリ長石の判別を利用することを目的に研究を行なった。染色法によってカリ長石の分布が明らかになっている花崗閃緑岩の薄片のカラー画像に 1024 の格子点を設定し、着色しているところにある格子点の数をカウントして得られたカリ長石のモードは 35.7%であった。同じ薄片の同じ領域から micro-XRF を用いて元素濃度マップを取得し、K のマップから Fe のマップのデータを減算したグレースケール画像の輝度が高い領域をカリ長石の分布域とみなし、そこに位置する格子点の数をカウントして得たモードは 36.0%であった。これらのモード値がほぼ一致することから、micro-XRF の元素濃度マップからカリ長石の分布を画像化できることがわかった。砂岩の薄片のカラー画像に 1024 の格子点を設定し、micro-XRF を用いて全ての格子点を含む領域を測定した。K のマップから Fe のマップのデータを減算したグレースケール画像の輝度が高い領域に当たる格子点の数をカウントして得たモードは 6.0%であった。この値は寺岡 (2004) [8] が提示している、カリ長石を染色した薄片を用いたポイントカウンティングで計測された佐伯亜層群の砂岩のモード組成のカリ長石含有量 (0 から 20%) の範囲内である。

micro-XRF による測定には一般的な手順で作成した岩石薄片をそのまま使用できる。鏡面研磨などの前処理は不要なので、EDS または EPMA で測定する場合よりも簡便である。光学的鑑定が難しいカリ長石をできるだけ少ない手間で識別するには、micro-XRF で取得した K の濃度マップから Fe の濃度マップのデータを減算したグレースケール画像が有効であることがわかった。

謝辞

鹿児島大学研究支援センター機器分析施設の久保臣悟氏には、XGT の使用について多大なご協力をいただいたことを、ここに記して謝意を表します。

参考文献

- [1] 戸上昭司・高野雅夫・道林克禎・村上雅美・熊澤峰夫, 鉱物学雑誌 27 (1998) 203-212.
- [2] 道林克禎・戸上昭司・足立佳子・内山尚和, 走査型 X 線分析顕微鏡画像の解析による層状斑れい岩の鉱物分布マップの作成, 静岡大学地球科学研究報告 29 (2002) 103-112.
- [3] 石橋正祐紀・湯口貴史, 花崗岩類中の鉱物分布および鉱物組合せとその量比 (モード組成) の新たな評価手法の構築: 走査型 X 線分析顕微鏡で取得した元素分布図を用いた画像解析, 応用地質 58 (2017) 80-93.
- [4] Willis, K. V., Srogi, L., Lutz, T., Monson, F. C., Pollock, M, Phase Composition Maps integrate mineral compositions with rock textures from the micro-meter to the thin section scale, Computers and Geosciences 109 (2017) 162-177.
- [5] 松本啓作・平島崇男, 走査型電子顕微鏡を用いたモード測定, 岩石鉱物科学 35 (2006) 97-108.
- [6] Schulz, B., Sandmann, D., Sabine Gilbricht, S., SEM-Based Automated Mineralogy and Its Application in Geo- and Material Sciences, Minerals 10 (2020) 1004 doi:10.3390/min10111004.
- [7] 砕屑性堆積物研究会, 堆積物の研究法 -礫岩・砂岩・泥岩-, 地学双書 24, 地学団体研究会 (1983) p377.
- [8] 寺岡易司, 九州の四万十累層群, 地質ニュース No. 599 (2004) 40-48.
- [9] Yamamoto, M., Potassium feldspars from the Takakumayama granite, Kagoshima Prefecture, Japan, Rep. Fac. Sci., Kagoshima Univ. (Earth Sci., Biol.) 8 (1975) 15-26.
- [10] 米田茂夫・岩松 暉, 鹿児島県北薩地域の四万十累層群の層序と地質構造, 地質学雑誌, 93 (1987) 881-895.