

2010年度日本地球化学会賞受賞記念論文

## EPMA による Th-U-Pb 化学アイソクロン 年代測定法の開発と鉱物粒子年代測定への展開

鈴木 和博\*

(2011年4月4日受付, 2011年5月31日受理)

### Development of the Th-U-total Pb isochron method and its application to the subgrain dating of U- and Th-bearing accessory minerals

Kazuhiro SUZUKI\*

\* The Center for Chronological Research, Nagoya University  
Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8602, Japan

The wide utilization of radiometric ages for orogen analyses would not been possible without monazite and zircon that are sufficiently robust to preserve their original U and Th and accumulated radiogenic Pb even through overgrowth during high temperature geologic events. Monazite and zircon discriminate strongly against the daughter Pb during crystallization. The CHIME (chemical Th-U-total Pb isochron method) is a new approach to the dating of micrometer-sized domains in monazite and zircon grains on the basis of the precise EPMA analyses of Th, U and Pb. Although the EPMA dating inherits the classic Th-U-Pb chemical dating, the CHIME method provides a significant advantage by adopting the regression-based technique that has the ability to work with minerals containing substantial initial Pb. The age- and composition-mapping can identify two or more chronologically homogeneous domains that are separated by age gaps within a single grain. Critical comments include the chemical criteria that discriminate possibly concordant EPMA zircon and monazite analyses from discordant ones. The in-situ CHIME dating and mapping of zircon and monazite in polished thin sections coupled with compositional mapping of associate garnet has a great chronological potential for the analysis of the detailed sequence of geologic events. The improved CHIME method revealed that (1) the garnet granulite and the eclogite in the Hongseong area of the Gyeonggi Massif within the Korean Peninsula have different evolutionary histories as opposed to the current view of the formation by a single Permo-Triassic collision, (2) the widespread Permo-Triassic paragneiss in the massif are in fact an exotic metamorphic terrain thrust over the Proterozoic basement complex at ca. 240 Ma, and (3) Permo-Triassic overprints on the latter are attributable to contact metamorphism from the hot allochthon.

**Key words:** CHIME, Subgrain dating, Age mapping, Monazite, Zircon, EPMA

### 1. はじめに

CHIME 年代測定法 (Chemical Th-U-total Pb Iso-

chron Method) は、電子プローブマイクロアナライザ (EPMA) でモナザイトやジルコンといった鉱物粒子の微小領域に含まれる Th, U, Pb を定量して、粒子各部分の形成年代 (サブグレイン年代) を決定する地質年代測定法である (Suzuki and Adachi, 1991)。この方法は、通常の研磨薄片を使って、in

\* 名古屋大学年代測定総合研究センター  
〒464-8602 愛知県名古屋市千種区不老町

situ に3  $\mu\text{m}$  程度の高空間分解能な測定ができることや鉱物粒子の年代マッピングができることを特徴とする。CHIME 法の最初の論文 (Suzuki *et al.*, 1991) から20年になろうとしている。開発当時、20世紀限りの技術と予想した CHIME 法は、岩石組織と対応できる年代測定法として、今日でも利用され続けている。しかし、SIMS 等の高空間分解能化と in situ な測定技術は確実に進歩しているため、CHIME 法が役目を終える日はそれほど先ではないかもしれない。

CHIME 年代測定法については既に本誌 (鈴木ほか, 1999) を始めとして、多くの雑誌等 (鈴木, 2005, 2006, 2010) で紹介してきた。本稿では、CHIME 年代測定法を開発した背景、concordant と推定される EPMA 分析値の選別基準、年代マッピングについて解説し、最後に大陸衝突帯の延長と考えられているコリア半島の京畿地塊の年代解析に触れてみたい。

## 2. CHIME 年代測定法開発の背景

1980年代まで、日本の地質年代測定の主流は K-Ar 法と Rb-Sr アイソクロン法であった。一方、1970年代までの高温造山帯を取り扱う研究は花崗岩類を岩体 (マグマが定置して固結した単位) に区分して、その地質学的新旧関係を明らかにすることに力点を置いていた。高温変成帯の同構造時花崗岩と後構造時花崗岩には有意の年代差が期待されたが、閉止温度の低い K-Ar 法では年代差を検出できなかった。代わって、Rb-Sr 全岩アイソクロン法が花崗岩類の年代測定に適用された。しかし、アイソクロンを引くことができないか、あるいは得られた年代が地質学的新旧関係と調和しない花崗岩体が少なからずあった。これは、後に Sr 初生値の不均質に起因する (例えば Tsuboi and Suzuki, 2003) ことが確かめられたが、同時に Rb-Sr 全岩アイソクロン法には適用限界があることも明らかにした。

熱イベントが累積した造山帯の年代解析には閉止温度の高い鉱物の年代測定が必要である。世界的にみると古くからジルコンの U-Pb 系が利用されてきた。しかし、日本では U-Pb 年代測定法そのものが九州大学を除いて育たなかった。これは、法規制によって、核燃料物質であるウランの取り扱いが難しかったことが原因かもしれない。

ジルコンの U-Pb 年代測定にも重要な問題点が残っていた。その一つは inheritance (結晶中の古い年代のコア) であり、もう一つが discordance である。一

つの岩石中のジルコン粒子群は、系が閉じていれば、横軸に $^{207}\text{Pb}/^{235}\text{U}$ 、縦軸に $^{206}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ をとった図上の concordia と呼ぶ曲線上の一点を占める。データ点が concordia より下にプロットされて直線的に配列するのが discordia である (Wetherill, 1956; Tilton *et al.*, 1957など)。この現象は Pb の連続拡散 (Tilton, 1960 など)、熱イベントに伴う不連続拡散 (Wetherill, 1956など)、あるいは両方の原因の組合せ (Allègre *et al.*, 1974) で起きると考えられてきた。concordia と discordia の上方交点をジルコンの結晶年代、下方交点を変成年代とするのは不連続拡散モデルを採用した解釈である。

Schärer and Allègre (1982) は Pikes Peak batholith 産の1×0.3 mm 大のジルコン粒子を11個に分割して、各分割片の U-Pb 年代を測定した。このような微量試料の年代測定はバックグラウンドを1~2 pg 以下まで低くして初めて実現できるようになった。EPMA 年代測定を模索する立場からみると、Schärer and Allègre (1982) の重要な示唆はジルコン粒子の分割片には高Uでありながら concordant のものがあることである。同じ頃、Krogh (1982) は、ジルコン粒子の外側を空気研磨で削り取ることによって、concordant あるいは concordant に近い U-Pb 年代を得た。彼はジルコン粒子の外側の高U領域が discordance を生じるのであって、粒子の内側の領域は concordant であると考えた。

ジルコン粒子に concordant な領域が存在することが判ってから、サブグレイン年代測定法の研究が盛んになり、discordance の原因は殆ど顧みられなくなった。Suzuki (1987a) は、EPMA 分析でジルコン中の U と Th に対する Pb の過不足が Pb の濃度勾配に調和しないことを明らかにし、フィッシュトラックを通路にした Rn の移動が discordance の原因と考えた。このモデルに従うと、discordia の下方交点をフィッシュトラックが塞がった時期 (熱イベント) と見なすことができる。

Anderson and Hinthorne (1972) は ARL-SIMS を使って初めてジルコンのサブグレイン年代測定を試みた。当時の SIMS は $^{204}\text{Pb}$  を測定するだけの感度が無く、また Pb/U も測定できなかったため、実質は未補正の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  年代に過ぎなかった。しかし、彼らの研究 (Anderson and Hinthorne, 1973) から導かれる予測—Pb/U 比が一定の試料では二次イオンの Pb<sup>+</sup>/U<sup>+</sup> 比と UO<sup>+</sup>/U<sup>+</sup> 比が比例関係—が、後の SIMS

による標準試料を使った U-Pb 年代測定に大きく貢献している。この二次イオンの比例関係に基づき、珪酸塩鉱物やガラス標準物質を使って SIMS 年代測定を行ったのが Hinthorne *et al.* (1979) である。彼らの測定でも、SIMS の質量分解能が不十分なため、分子イオンの干渉補正が必要であった。Hinton and Long (1979) は質量分解能3200の AEI-SIMS で<sup>204</sup>Pb を測定したが、高質量分解能化のために感度が低下して1測定に数時間を要した。実用的な SIMS とするためには、高感度化と約5000以上の質量分解能を同時に実現する必要があった。オーストラリア国立大学の Compston 教授のグループは、大阪大学の松田久教授 (Matsuda, 1974) 考案のイオン光学系を採用して、1974年に高感度高質量分解能の SIMS の開発に着手し、1981年に SHRIMP (Sensitive High-Resolution Ion Micro-Probe) の運用を開始した。

世界がジルコンのサブグレイン年代測定を模索する中で、名古屋大学理学部地球科学教室 (現、環境学研究科地球環境科学専攻) の岩石学鉱床学講座と構造地質学講座も、造山帯の形成過程や堆積岩の後背地を解析するために、モナザイトやジルコンといった副成分鉱物の年代測定を目指した。我々の目指す年代測定法は、フィールド主軸の立場から、(1) 省時間、(2) 極力簡便、(3) 大量測定、(4) ミクロンスケールの高空間分解能でなければならなかった。しかし、技術的にも金銭的にもハードルが高くて目に見える進展がない中で、我々は SHRIMP を使った衝撃的な論文 (Compston *et al.*, 1984) を目にするようになった (この研究は1982年の第30回 The American Society for Mass Spectrometry 年会で報告)。SHRIMP の出現はジルコンの inheritance と discordance の問題を同時に解決したのである。この時点で、我々は馴染みのある EPMA を使った化学的な年代測定に方針を定めた。

### 3. 化学的年代測定の歴史

Th-U-Pb 系の同位体年代測定は Nier (1939) に始まる。しかし、Kulp *et al.* (1954) のレビューに収録された Th-U-Pb 同位体年代は28個に過ぎない。1950年までに報告された地質年代の多くは親核種と娘核種の量比を化学分析で測定する化学的年代測定で求められてきた。この方法では、対象とする鉱物が結晶時に親核種を大量に取り込み、且つ、娘核種とその同位体を殆ど取り込まないという結晶化学的な特徴を持つこ

とが重要である。マグマ分化末期のペグマタイトに産出する鉱物には、結晶時の Sr が無視できるくらい少なく、数%の Rb<sub>2</sub>O を含むものがある。Ahrens (1946) は lepidolite (Li-雲母) などの Rb/Sr 比を分光化学的に測定して Rb-Sr 年代を推定した。

ウラン鉱物も一般に初期鉛が少ない。ウランの放射能の発見から僅か10年後に、Boltwood (1907) は U の壊変定数を  $1 \times 10^{-10}/y$  とし、石炭紀から先カンブリア紀までのウラニナイト9試料の U と Pb を化学分析して410~2200 Ma の年代を得た。Holmes (1911) は U の壊変定数を  $1.22 \times 10^{-10}/y$  に改めて Boltwood (1907) の年代を再計算すると共に、新たにノルウェー産デボン紀のウラニナイトの U と Pb を化学分析 (17分析値) して370 Ma の年代を与えた。この時代、U の同位体や壊変系列の詳細はもとより、Th の壊変で Pb が生じることも知られていなかった。Holmes が化学的年代測定に Th の壊変を組み込んだのは1914年以降である。Holmes は主にウラニナイトを測定試料として年代を測定したが、1948年には Cornwall 産のモナザイトを年代測定した (Holmes and Smales, 1948)。ただし、モナザイトの化学的年代測定の先達は Sarkar (1941) であろう。Sarkar の測定したモナザイト (インド, Gaya 地域のペグマタイト産) は Th=10.55 wt.%, U=0.23 wt.%, Pb=0.49 wt.% で、年代は965 Ma であった。この年代は Gaya 地域のペグマタイトを生じた Satpure 造山運動の同位体年代 (1050-905 Ma; Lal *et al.*, 1976に収録) に良く一致している。

20世紀前半に実施された化学的年代測定の最後を飾ったのが Larsen らの Pb- $\alpha$  法 (Larsen *et al.*, 1952) である。この方法はジルコンの年代測定の重要性を指摘した点で意義がある。当時、質量分析計で Pb の同位体を測定するには mg オーダーの試料 (ジルコンに換算すると100 g 程度) が必要であったに違いない。通常の岩石から100 g のジルコンを分離するのは至難の業である。Larsen らは、Pb を分光化学法で定量し、 $\alpha$  線強度を U+Th 量に換算して、1 g 以下の量のジルコンで年代を測定した。Pb- $\alpha$  法のジルコン年代は、一般に、地質学的な関係と調和したので、ジルコン年代測定の必要性が一気に高まった。1954年に出版された Nuclear Geology の Table 9 に98個の Pb- $\alpha$  法が収録されているほどである。Pb- $\alpha$  法が同位体希釈法 (ID-TIMS) を使ったジルコンの年代測定 (Tilton *et al.*, 1955) を開花させたと言え

る。同時に、自らを含めた古典的な化学的年代測定法を葬り去った。

#### 4. CHIME 年代測定

CHIME 年代測定は、EPMA の微小領域分析を使って、化学的 Th-U-Pb 年代測定を發展させたものである。CHIME 法以前に、Cameron-Schimann (1978), Parslow *et al.* (1985), Bowles (1990) が EPMA を使ってウラニナイトの化学的年代測定を実施した。CHIME 年代測定は、より普遍的に産出するモナザイトやジルコンをターゲットにしたことで、視野を格段に広げた。しかし、その反面、EPMA 分析が一段と難しくなった。モナザイトやジルコンはウラニナイトより圧倒的に Th や U (結果として娘核種の Pb) が少ない。ジルコンの ThO<sub>2</sub> と UO<sub>2</sub> の含有量は最大でも 3 wt.% 程度、多くの場合は ThO<sub>2</sub> < 0.3 wt.%, UO<sub>2</sub> < 1.2 wt.% である (Fig. 1; Suzuki and Yogo, 1986)。1 億年前に結晶した UO<sub>2</sub> = 1 wt.% のジルコン中の PbO 量は 0.0134 wt.% に過ぎない。1 億年前の ThO<sub>2</sub> = 10

wt.% のモナザイトの PbO 量は 0.0421 wt.% である。EPMA には 0.005 wt.% 程度までの低濃度成分を定量分析する能力がある (Suzuki, 1987b) が、そのような低濃度領域の定量ではバックグラウンドも正確に測定することが重要となる (鈴木ほか, 1999; 鈴木, 2005; Suzuki and Kato, 2008)。バックグラウンドとピークの X 線強度を長時間 (800~1,000 s) 積算することにより、中新世のモナザイト (ThO<sub>2</sub> = 5~12 wt.%, UO<sub>2</sub> = 0.3~4 wt.%, PbO = 0.006~0.017 wt.%) でも ±10 % の確度で年代が決定できるようになってきた (Imayama and Suzuki, 2011)。

モナザイトやジルコンなどの EPMA 分析では、Pb の特性 X 線に対する Th・U の特性 X 線の干渉に加えて、希土類元素や Y の特性 X 線の干渉もある (Suzuki *et al.*, 1990; Suzuki and Adachi, 1991)。Pb の分析に M $\alpha$  線 (5.287 Å) を使うと Nb-L $\beta_{2,15}$  (5.238 Å), Th-M $\zeta_1$  (5.245 Å), Y-L $\gamma_{2,3}$  (5.283 Å), Nb-L $\beta_3$  (5.310 Å), Th-M $\zeta_2$  (5.331 Å) の 1 次線が干渉し、M $\beta$  線 (5.076 Å) を使うと U-M $\zeta_2$

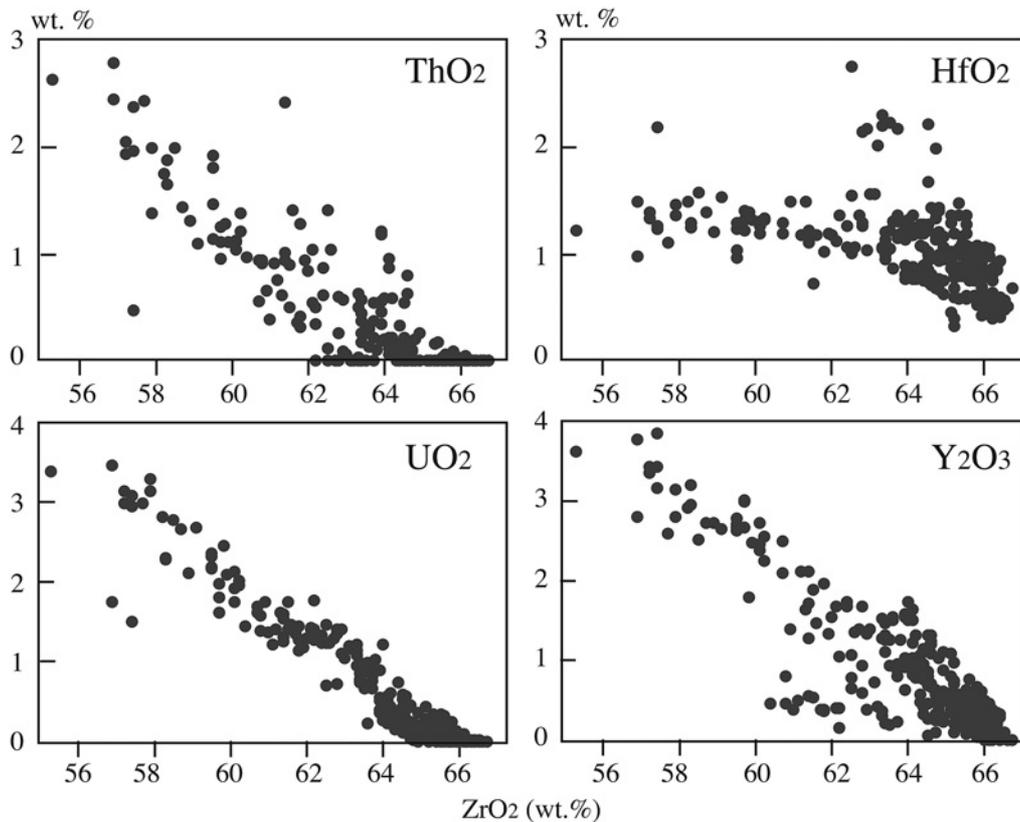


Fig. 1 Compositional variation of zircons in the Inagawa Granite, the Busetsu Granite, the Naegi Granite, the Inada Granite and the Hiroshima granite (data source: Suzuki and Yogo, 1986).

(5.050 Å), Nb-L $\gamma_1$  (5.036 Å) の1次線が干渉する。ピークの周辺には共存元素の1次線や高次線が存在する。鉍物ごとに分析に使用する特性 X 線の種類やバックグラウンドの測定位置を最適化して干渉補正を施す必要がある。更に、日本国内では U や Th の純物質の使用が困難であるため、PbM 線に対する U と Th の干渉補正と UM 線に対する Th の干渉補正を天然鉍物等の測定から見積もらざるを得ないという難しさもある。EPMA 測定のプロトコルは Suzuki and Kato (2008) に記載してある。

天然の Th は質量数232の核種を主とし、U は主に質量数235と238の核種からなる。これらの核種は放射壊変して Pb を蓄積する。鉍物中の全鉛は、壊変起源の鉛と初期鉛 (Pb<sub>i</sub>) の含量である。

$$\begin{aligned} \text{全 Pb} &= \text{Pb}_i + {}^{208}\text{Pb} + {}^{207}\text{Pb} + {}^{206}\text{Pb} \\ &= \text{Pb}_i + {}^{232}\text{Th} \{ \exp(\lambda_2 \tau) - 1 \} \\ &\quad + {}^{235}\text{U} \{ \exp(\lambda_5 \tau) - 1 \} \\ &\quad + {}^{238}\text{U} \{ \exp(\lambda_8 \tau) - 1 \} \end{aligned} \quad (1)$$

式中の  $\lambda$  は壊変定数 ( $\lambda_2 = 4.9475 \times 10^{-11}$ ,  $\lambda_5 = 9.8485 \times 10^{-10}$ ,  $\lambda_8 = 1.55125 \times 10^{-10}$ ; Steiger and Jäger, 1977) である。U の同位体比の現在値137.88 (Steiger and Jäger, 1977) を使って、(1) 式は

$$\begin{aligned} \text{全 Pb} &= \text{Pb}_i + \text{Th} \{ \exp(\lambda_2 \tau) - 1 \} \\ &\quad + \text{U} \left\{ \frac{\exp(\lambda_5 \tau) + 137.88 \exp(\lambda_8 \tau)}{138.88} - 1 \right\} \end{aligned} \quad (2)$$

と書き直せる。EPMA で Th, U, Pb を定量すると、(2) 式の Pb<sub>i</sub> と  $\tau$  が未知数として残る。CHIME 法では、同時に形成された領域の多数の測定点のデータを用いて、Pb<sub>i</sub> を一定と仮定 (厳密には、この仮定は成立しない) してアイソクロンを描く (Suzuki and Adachi, 1991)。アイソクロンを描くには、半減期が異なる Th と U の両方から生じる鉛を、あたかも Th あるいは U から生じたように換算する必要がある。まず、測定した ThO<sub>2</sub>, UO<sub>2</sub>, PbO の分析値のセットから、Pb<sub>i</sub>=0 として (2) 式の年代 ( $\tau$ ) を算出する。次に、この  $\tau$  を (3a) 式または (3b) 式に代入して、測定 ThO<sub>2</sub> と測定 UO<sub>2</sub> に相当する量の PbO を生じる仮想的 ThO<sub>2</sub>\* あるいは UO<sub>2</sub>\* を計算する。(3a) 式と (3b) 式の W<sub>Th</sub> と W<sub>U</sub> は ThO<sub>2</sub> と UO<sub>2</sub> の分子量である。

$$\begin{aligned} \text{ThO}_2^* &= \text{ThO}_2 + \frac{\text{UO}_2 \times W_{\text{Th}}}{W_{\text{U}} \{ \exp(\lambda_2 \tau) - 1 \}} \\ &\quad \left\{ \frac{\exp(\lambda_5 \tau) + 137.88 \exp(\lambda_8 \tau)}{138.88} - 1 \right\} \end{aligned} \quad (3a)$$

$$\begin{aligned} \text{UO}_2^* &= \text{UO}_2 + \\ &\quad \frac{\text{ThO}_2 \times W_{\text{U}} \times 138.88 \{ \exp(\lambda_2 \tau) - 1 \}}{W_{\text{Th}} \{ \exp(\lambda_5 \tau) + 137.88 \exp(\lambda_8 \tau) - 138.88 \}} \end{aligned} \quad (3b)$$

ここで得られた ThO<sub>2</sub>\* あるいは UO<sub>2</sub>\* とセットになっている PbO に X 線計測の誤差を組み込んでアイソクロン図を作成し、その勾配 (m) と切片 (Pb<sub>i</sub>) を求める。この勾配を (4a) 式または (4b) 式に代入して、年代の第1近似値 (T) を計算する。第2段階は、年代の第1近似値 (T) を (2) 式の  $\tau$  に代入して、各測定点の ThO<sub>2</sub>\* あるいは UO<sub>2</sub>\* を再換算する。そして第1段階と同じように、アイソクロンの m と Pb<sub>i</sub> を求めて年代の第2近似値を計算する。このプロセスを繰り返し、Pb<sub>i</sub> 補正した、より確かな年代 (T) を求める。PbO の分子量 (W<sub>Pb</sub>) は Th/U 比に応じて異なるが、(4a) 式では224, (4b) 式では222と簡略化してよい。

$$T = \frac{1}{\lambda_2} \ln \left( 1 + m \frac{W_{\text{Th}}}{W_{\text{Pb}}} \right) \quad (4a)$$

$$m \frac{W_{\text{U}}}{W_{\text{Pb}}} = \frac{\exp(\lambda_5 T) + 137.88 \exp(\lambda_8 T)}{138.88} - 1 \quad (4b)$$

鉍物粒子によっては、同時に形成された領域の Th や U の含有量がほぼ一定のことがある。また、同時に形成された領域が狭くて十分な数のデータセットが得られないこともある。このような場合にはアイソクロンが描けないので、Pb<sub>i</sub>=0 と仮定して (2) 式から算出した  $\tau$  (あるいはその統計値) に測定誤差を付けて『見かけ年代』とする。モナザイトの Pb<sub>i</sub> は Th や U の壊変で生じる Pb に比べて十分に小さいことが多い (Williams *et al.*, 1983; Corfu, 1988)。しかし、次の東清花崗岩体の例に見られるように、常に無視できる程に小さいという保証はない。

中国の吉林省南東部に位置する東清花崗岩体は含ザクロ石両雲母モンゾ花崗岩と含ザクロ石白雲母アルカリ長石花崗岩から構成されている。この花崗岩のモナザイト同位体 (Th-Pb) 年代は208 Ma (Fang, 1992)

であり、白雲母の K-Ar 年代 (156 Ma と 160 Ma, Fang, 1992), Rb-Sr 鉱物アイソクロン年代 ( $162 \pm 4$  Ma, Wu *et al.*, 2004), Sm-Nd 鉱物アイソクロン年代 ( $162 \pm 4$  Ma, Wu *et al.*, 2004) より明らかに古い。

モナザイト粒子は振動状および分域状に組成累帯している。しかし、年代的な不均質は見られない (Fig. 2a; Sun *et al.*, 2008)。従って、208 Ma の Th-Pb 年代は inherited domain との混合年代ではない。Fang (1992) の報告では  $^{204}\text{Pb}$  補正が不明であるので確かとは言えないが、初期鉛が存在するために Th-Pb 年代が古くなった可能性がある。

東清花崗岩体中のモナザイト PbO-ThO<sub>2</sub> プロットを Fig. 2b に示す。(Ca+Si)/(Th+U+Pb+S) 比と K<sub>2</sub>O < 0.02 で選別したデータ点のアイソクロンは  $159.0 \pm 4.8$  Ma であり、その Pb<sub>i</sub> 値は  $0.0030 \pm 0.0017$  wt.% である (Sun *et al.*, 2008)。そして、ThO<sub>2</sub> の少ない

スポットほど見かけ年代が古くなる傾向がある

(Fig. 2c)。これは東清花崗岩体のモナザイトが初期鉛を含んでいたことを示唆する。もし、初期鉛の存在だけで Th-Pb 年代が 208 Ma になったと仮定すると、ThO<sub>2</sub> = 1 wt.% でも初期  $^{208}\text{PbO}$  量は 20 ppm となる。これは、Pb<sub>i</sub> ( $30 \pm 17$  ppm) に比べて大きすぎるが、岩体を構成する岩石が 20~35 ppm の Pb を含むので非現実的な値ではない (Sun *et al.*, 2008)。初期鉛が少ないと考えられているモナザイトでもアイソクロンを計算して Pb<sub>i</sub> を吟味する必要がある。

## 5. Concordant な測定データの選別

Schärer and Allègre (1982) や Krogh (1982) の高精度 ID-TIMS 分析はジルコン粒子中に concordant な領域が存在し得ることを示したが、個々の EPMA 分析値が concordant か discordant かは判らない。

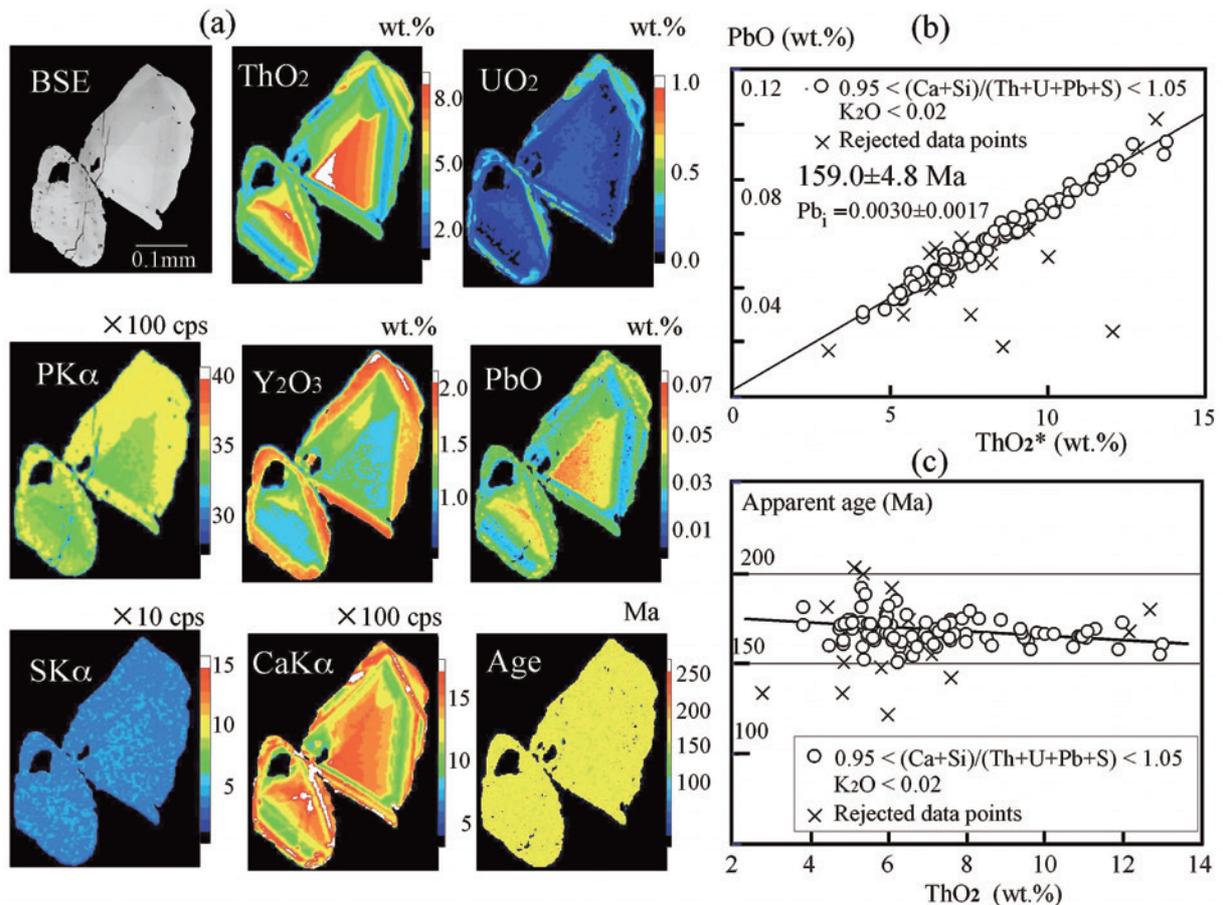


Fig. 2 (a) BSE image and compositional and age maps, (b) PbO vs. ThO<sub>2</sub>\* plot and (c) plot of apparent ages against the ThO<sub>2</sub> concentration of monazite in the garnet-bearing two-mica monzogranite from the Dongqing pluton in SE Jilin, China (Compiled from Figs. 4, 7 and 8 of Sun *et al.*, 2008).

discordant な分析値は化学組成が違っていることが期待できる。ジルコンのアルカリ, Ti, Al, Fe, Mn 含有量は EPMA の検出限界以下である (Suzuki and Yogo, 1986)。もし, Fe が検出されると, そのスポットには一般に磁硫鉄鋼や黄鉄鉱の微細包有物が存在する。Fe が検出されずに S のみが検出されたスポットには方鉛鉱の微細包有物が存在することが多い。K が検出された場合にはスポット近傍に K-含有鉍物が存在する。K-K $\alpha$  が U-M $\beta$  のピークやバックグラウンドに干渉するので U の定量値が不確かになる。

ジルコンの Ca 含有量は変化が大きい (Suzuki and Yogo, 1986) ので, 放射線損傷に関係する化学組成の変化の指標になる。中生代, 古生代, 原生代のジルコンの U 含有量と Ca 含有量の関係を Fig. 3a に示す。中生代のジルコンは U に富んでいても Ca 量が検出限界以下のことが多い。これに対して, 古生代や原生代のジルコンは U が少なくても Ca を含むものが多くなる。メタミクト化したジルコンの CaO 量は P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 量に比例する (Suzuki and Kato, 2008; Fig. 13) が, メタミクト化していない高 P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ジルコンは Ca を含ん

でいない (Suzuki and Yogo, 1986)。これは, ジルコンのゼノタイム (YPO<sub>4</sub>) 成分が Ca 磷酸塩に置換されたことを示唆するので, Ca の存在は開放系の証拠になる。Geisler and Schlicher (2000) はジルコンの CaO < 0.2 wt.% の領域は concordant と考えたが, 実際には CaO がもっと少なくとも discordant ことがある。Kusiak *et al.* (2010) は CaO < 0.03 wt.% と K<sub>2</sub>O < 0.03 wt.% の条件をパスしたデータの CHME 年代 (347.8 ± 18.6 Ma) が SHRIMP 年代 (341.6 ± 2.8 Ma) に調和すると報告した。一般に, CaO < 0.03 ~ 0.05 wt.%, K<sub>2</sub>O < 0.03 wt.% (U-M $\beta$  の干渉下における検出限界) と検出限界以下の S という 3 条件をパスしたデータ点は一本のアイソクロンを形成する (Fig. 3b)。

モナザイトも化学組成から concordant な分析値か discordant な分析値かを選別する。孫・鈴木 (2004) と鈴木 (2005) は K と S を含む分析値を discordant と考えた。しかし, モナザイトは S を含むことがある (Cressey *et al.*, 1999; Jercinovic and Williams, 2005; Suzuki and Kato, 2008) ので, S の検出を dis-

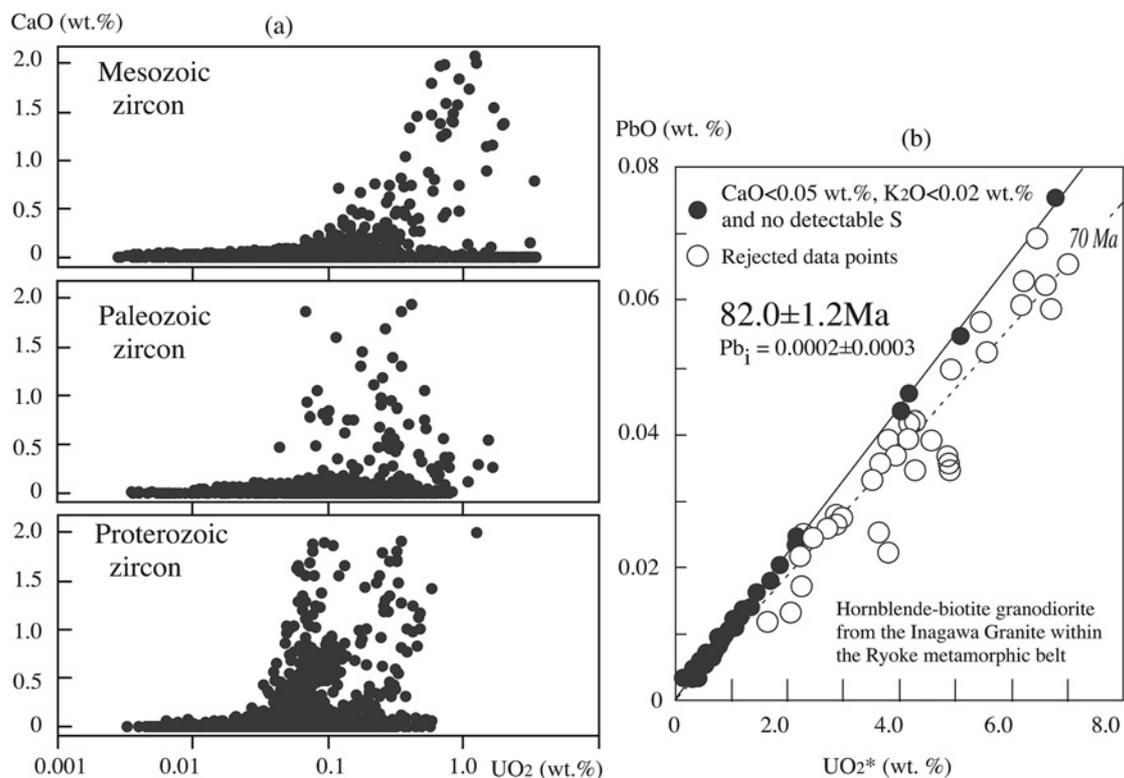


Fig. 3 (a) Plot of CaO against the UO<sub>2</sub> concentration of Mesozoic, Paleozoic and Proterozoic zircon and (b) PbO vs. ThO<sub>2</sub>\* plot of zircon in the Inagawa Granite from the Ryoke metamorphic belt.

cordantの指標にするのは間違いであった。モナザイトにはハロゲン (Andreoli *et al.*, 1995) や Sr (Chakhouradian and Mitchell, 1998) を含むものも知られているが、普通の火成岩や変成岩に産出するものは REEPO<sub>4</sub> (monazite), (Th, U) Ca(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> (brabandite), (Th, U) SiO<sub>4</sub> (huttonite), CaSO<sub>4</sub> の4端成分からできていると近似してよい。この場合、モナザイトの (Ca+Si)/(Th+U+S) は1 (実際には Th と U が Pb に放射壊変しているので (Ca+Si)/(Th+U+Pb+S) = 1 になることが期待できる。CaSO<sub>4</sub> 端成分を含むモナザイトの (Ca+Si)/(Th+U+Pb+S) は S 濃度にかかわらず分析誤差の範囲内で1である (Fig. 4a; 1から大きく外れたデータ点の見かけ年代は同位体年代あるいは地質学的に期待される年代と異なることが多い)。Fig. 4b は8000個以上のモナザイト分析値の (Ca+Si)/(Th+U+Pb+S) と ThO<sub>2</sub> の関係である。大部分の分析値は  $0.95 < (Ca+Si)/(Th+U+Pb+S) < 1.05$  であるが、この範囲を外れたデータも多い。(Ca+Si)/(Th+U+Pb+S) が1から外れたスポットは、電子線の照射痕が大きくなっていることが多いので、メタミクト化していると考えられる。モナザイトの場合は  $0.95 < (Ca+Si)/(Th+U$

+Pb+S) < 1.05 と K<sub>2</sub>O < 0.03 wt.% の条件にパスしたデータ点が concordant である可能性が高い。

## 6. 年代マッピング

年代マッピング (例えば Fig. 2a) は鉱物粒子内の年代分布を2次元表示する分析法であり、EPMA 年代測定の特徴である (試行は Suzuki and Adachi, 1994; 実用的な高密度図を作成して age mapping と命名したのは Williams *et al.*, 1999)。分析範囲を X 軸と Y 軸方向に規則的に分割し、その各ピクセルを一つの分析点とする。そして、ピクセルの大きさ (通常1~2 μm) に合わせたプローブを照射し、Th, U, Pb とこれらに干渉する元素の特性 X 線強度を一定時間測定する。通常の EPMA 元素マッピングでは各ピクセルの計測時間がミリ秒のオーダーであるのに対して、Th, U, Pb の定量が必要な年代マッピングでは各ピクセルの計測時間が5~数10秒と長くなり、またバックグラウンドの補正も必要となる。妥当な時間内に若いモナザイトやジルコンを年代マッピングするために、Pb の X 線強度を複数の分光器で測定したり、目的鉱物以外の領域をスキップしたりする工夫が施されている (Suzuki and Kato, 2008)。

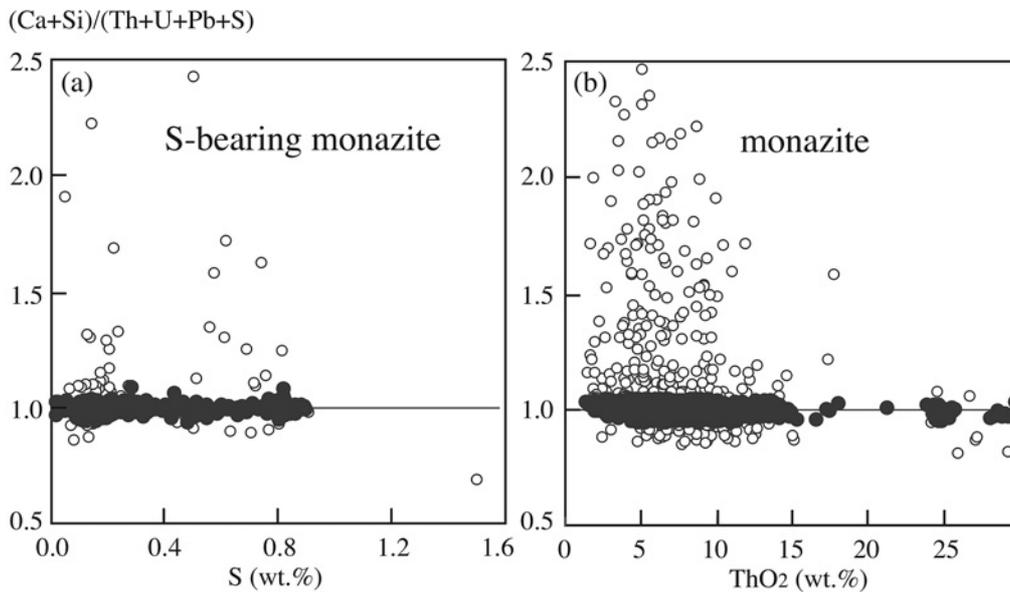


Fig. 4 (a) Plots of the (Ca+Si)/(Th+U+Pb+S) atomic ratio against the S concentration for S-bearing monazite as old as ca. 1600 Ma from a variety of rocks (modified from Fig. 11 of Suzuki and Kato, 2008) and (b) plots of the (Ca+Si)/(Th+U+Pb+S) atomic ratio against the ThO<sub>2</sub> concentration for over 8000 monazite analyses. Solid circle represents data point with an age that accord with the geological estimation and open circle represents data point with a geologically unacceptable age.

定量は、特性 X 線の強度を測定して検量線法で濃度に変換する (Goncalves *et al.*, 2005) こともあるが、スポット分析と同様に定量補正計算した方がよい (Suzuki and Kato, 2008)。各ピクセルのバックグラウンドは、通常、バックグラウンド検量線を使って Th と U の X 線計数から計算する。このバックグラウンド検量線は、マッピングに先立って、当該鉍物粒子をスポット分析して作成する。若い鉍物粒子の僅かな年代差をマッピングで識別するためには各ピクセルのバックグラウンドも実測することがある。鈴木 (2006) は特性 X 線のピークとバックグラウンドの両方を測定して、モナザイトの約 100 Ma のコアと約 80 Ma のリム

を年代マップで識別した (この年代マップのカラー表示は Suzuki and Kato (2008) の Fig. 14 に再掲載してある)。鈴木 (2006) の年代マップの測定には約 150 時間を要したが、複数の分光器の使用や目的鉍物外の領域のスキップなどの分析法の改良により、現在では同等のものが 50 時間程度で測定できるようになっている。古生代より古くて年代差の大きいモナザイト粒子なら数時間~15 時間でマッピングできる。

### 7. 造山帯年代測定への展開

코리아半島南部は北より京畿 (Gyeonggi) 地塊, 沃川 (Okcheon) 帯, 嶺南 (Yeongnam) 地塊, 慶尚

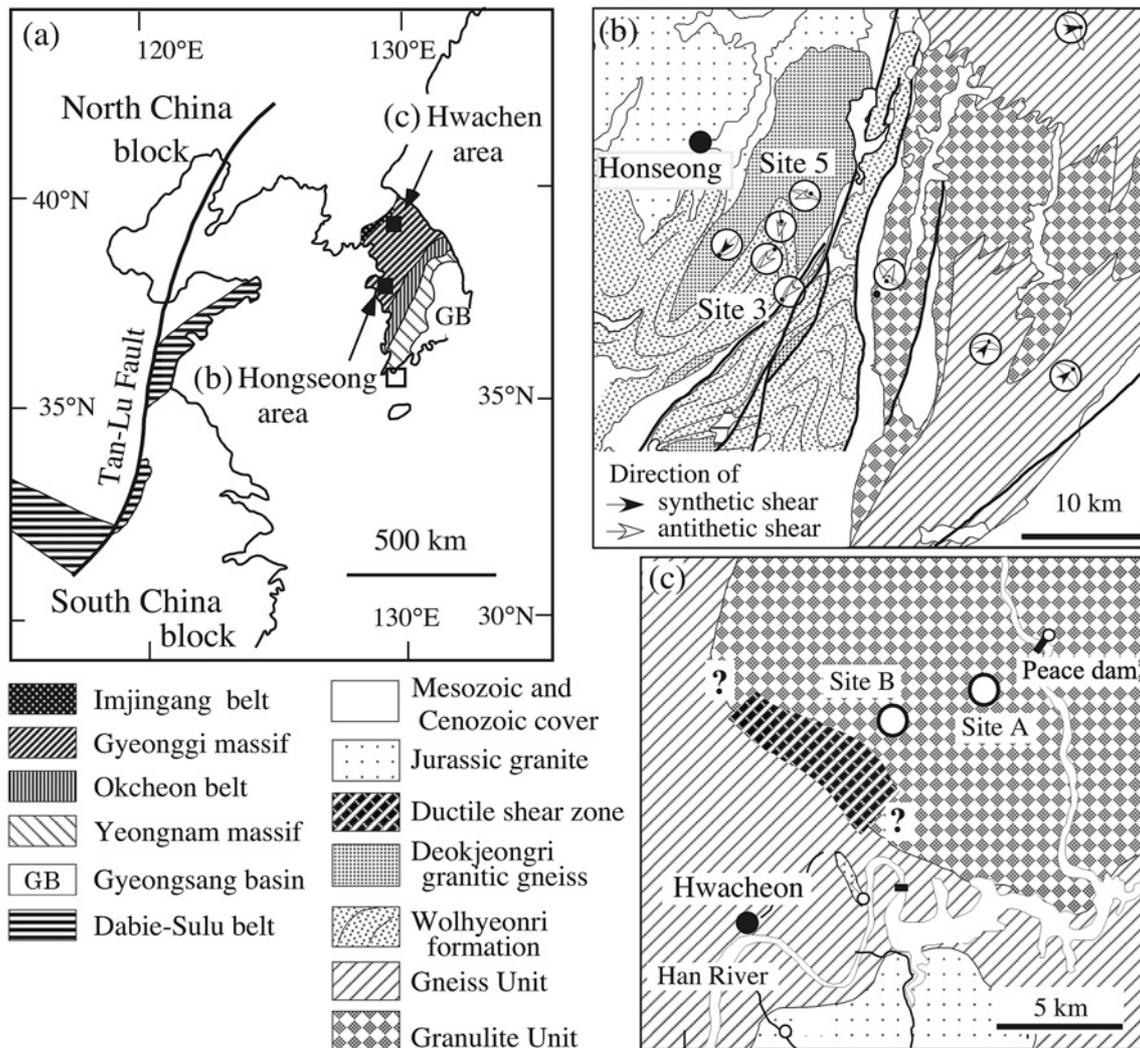


Fig. 5 (a) Simplified tectonic map of the Korean Peninsula and adjacent areas, (b) schematic geologic map of the Hongseong area with stereographic projection of foliation and lineation (simplified from Fig. 2 of Suzuki *et al.*, 2010) and (c) schematic geologic map of the Hwacheon area (simplified from Fig. 1b of Suzuki, 2009).

(Gyeongsang) 盆地の構造区に区分されている (Fig. 5a)。このうち京畿地塊と嶺南地塊は中生代花崗岩類の貫入を受けた始生代～原生代の変成岩で構成されていると考えられてきた。しかし, Cho *et al.* (1996) はモナザイトの CHIME 年代測定で京畿地塊にペルム-三畳紀の変成岩が存在することを初めて指摘した。2000年までに, 京畿地塊のほぼ全域の堆積岩原片麻岩からペルム-三畳紀の CHIME モナザイト年代が測定されたが, その年代は日の目をみるものがなかった。その後, Oh *et al.* (2005) が京畿地塊西南部の洪城 (Honseong) 地域からペルム-三畳紀 (225~257 Ma) の含オンファス輝石ザクロ石角閃岩 (飛鳳 (Bibong) エクロジャイト) を発見したことで状況が一変した。京畿地塊全体をペルム-三畳紀の変成帯として, 山東半島の蘇魯 (Sulu) 衝突帯の

東方延長 (Fig. 5a) と考える研究者が多くなったのである。しかし, ペルム-三畳紀変成作用は片麻岩ユニットのみに認められ, 構造的に下位にあるグラニュライトユニットの全体には及んでいない (Suzuki, 2009)。この事実は蘇魯衝突帯を京畿地塊まで延長することに疑問を投げかける。

洪城地域の地質図を Fig. 5b に示す。図中の Site 3 が飛鳳エクロジャイトの産出地で, Site 5 が飛鳳エクロジャイトと同じ変成帯の高温部に比定される白銅 (Baekdong) グラニュライトの産出地である。飛鳳エクロジャイトと白銅グラニュライトは, それぞれ, Wolhyeonri formation と Deokjeongri Granitic Gneiss の一部と考えられている。地質図の東側に分布するペルム-三畳紀 ( $249 \pm 20$  Ma) の片麻岩ユニットと原生代 ( $1.85 \pm 0.06$  Ga) のグラニュライトユニッ

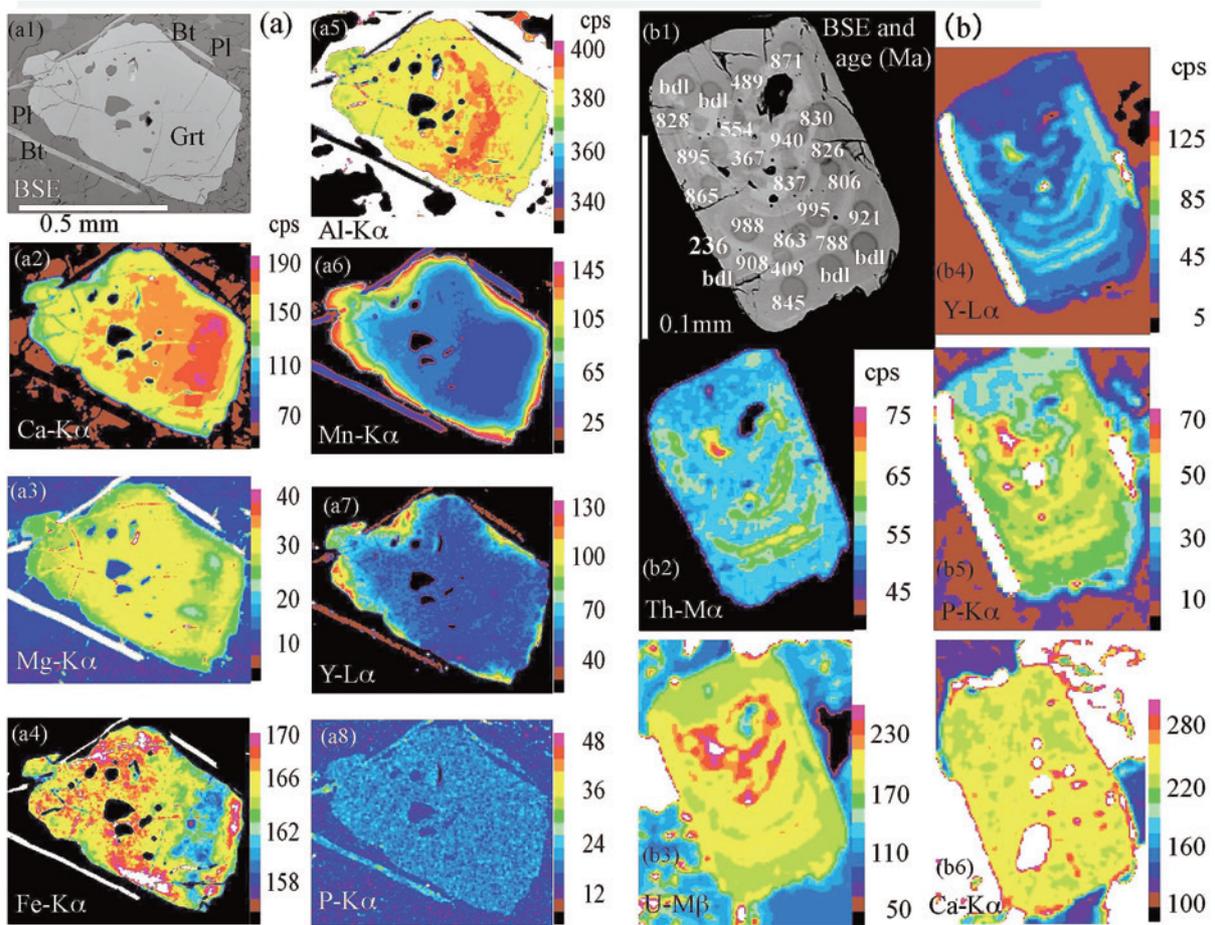


Fig. 6 BSE image and X-ray intensity maps of a garnet grain (a) and a zircon grain (b) in the garnet granulite from Baekdong in the Hongseong area of the Gyeonggi Massif, South Korea (compiled from Figs. 4 and 5 of Suzuki *et al.*, 2010). bdl: the PbO content below the detection limit.

トは、西側の Wolhyeonri formation や Deokjeongri Granitic Gneiss と異なり、エクロジャイト相に達する超高压変成作用を受けた証拠がない。また、剪断センスも東側が top-to-the-SE で、西側の top-to-the-SW と異なっている。

白銅ザクロ石グラニューライトのザクロ石の累帯構造を Fig. 6a に示す。最も Ca に富む ( $Alm_{62.4}Sps_{1.8}Prp_{1.1}Grs_{31.4}Adr_{3.3}$ ) 領域 (Fig. 6a2) がエクロジャイト期、それを取り巻く Mg に富む領域 (Fig. 6a3) が変成作用ピークのグラニューライト期に成長した部分である。ザクロ石の周辺部は後退変成作用で斜長石と黒雲母に分解し、その際に解放された Mn と Y が結晶内部に拡散して逆累帯 (Fig. 6a6 と Fig. 6a7) を生じている。後退的に生じた斜長石がゼノタイムの微細粒子 (Fig. 6a7 と Fig. 6a8 の下部) を伴っているため、ザクロ石の分解時に effective bulk がゼノタイムに飽和したと考えられる。ザクロ石に隣接したジルコンの年

代と組成累帯を Fig. 6b に示す。この粒子のコアは花崗岩ジルコンに特徴的な振動状の組成累帯をしているので、コアの  $824 \pm 29$  Ma (788~988 Ma) の年代は原岩の形成年代と解釈できる。コアの左側と右側に Y (Fig. 6b4) と P (Fig. 6b5) が濃集する。このゼノタイム成分に富むリムはザクロ石が分解する時に斜長石に伴うゼノタイムと共に生じたものである。したがって、その年代 (236 Ma; Fig. 6b1 の左側) は累進変成作用の時期ではなく、後退変成作用の時期に対応する。

白銅ザクロ石グラニューライトのザクロ石が成長した累進変成作用の時期はアラナイトに記録されている。アラナイトの粒子は BSE 像で明るい高 Th コアと暗い低 Th リムから構成される (Fig. 7a)。低 Th リムのスポット分析値には Y 含有量が高 Th コアより少ないものと多いものがあり、粒子の縁に位置している高 Y スポットが若い見かけ年代 (200~300 Ma) を持つ

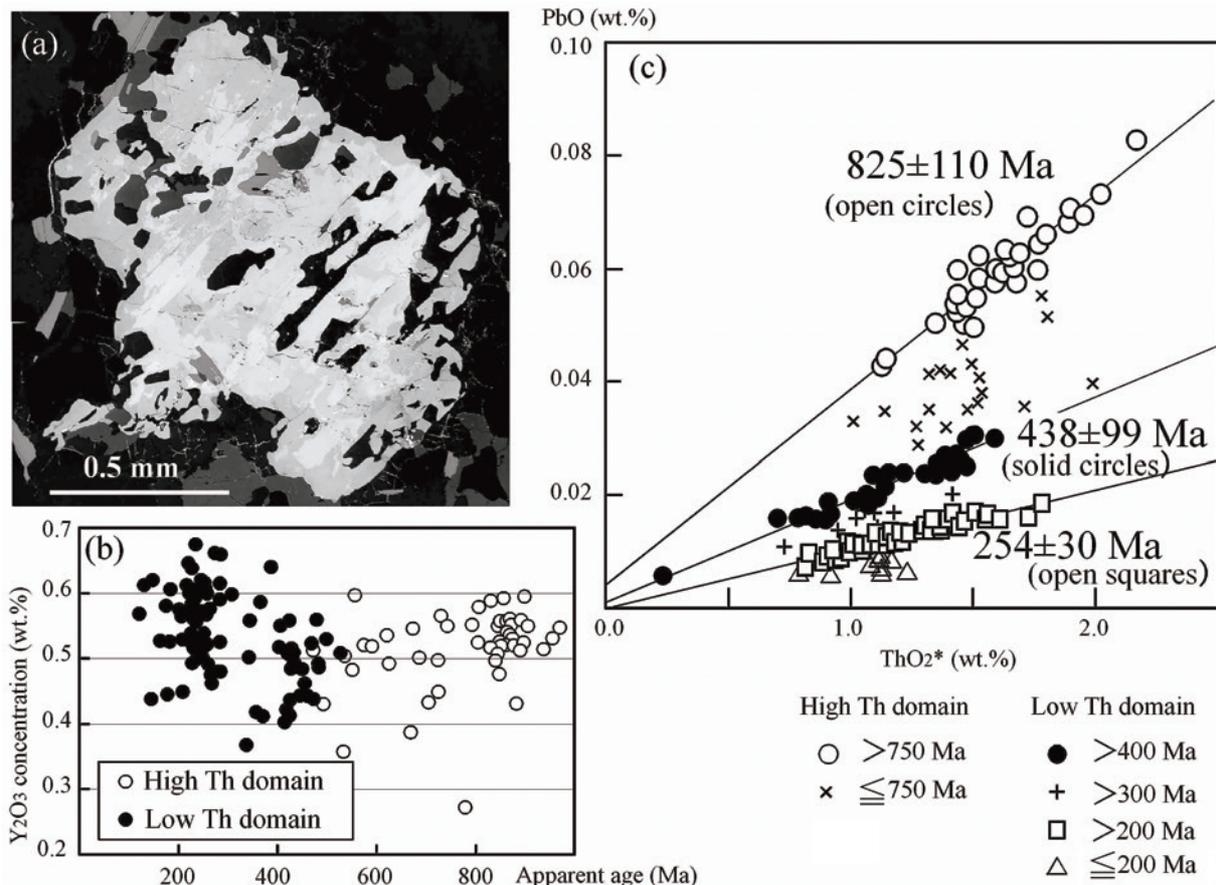


Fig. 7 (a) BSE image, (b) plot of Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> concentration against apparent ages and (c) PbO vs. ThO<sub>2</sub>\* plot of porphyroblastic allanite in the garnet granulite from Baekdong (taken from Fig. 8 of Suzuki *et al.*, 2010).

(Fig. 7b)。高 Th コアの年代 ( $825 \pm 110$  Ma; Fig. 7c) は、ジルコンの振動状累帯部の年代と一致し、原岩の形成時期である。ザクロ石には Y 選択性があるので、ゼノタイム等の Y の貯蔵相が無い岩石では、ザクロ石の量が増加するほど effective bulk の Y 濃度が低くなって、同時に成長する鉱物に Y 減少の累帯が生じる (例えば Pyle *et al.*, 2001)。従って、アラナイトの低 Th リム上の Y が少ないスポットの年代 ( $438 \pm 99$  Ma; Fig. 7c) が累進変成作用の時期と見なすことができる。リムの高 Y スポットの年代 ( $254 \pm 30$  Ma) はジルコンが記録する後退変成作用の年代 (236 Ma 前後) と一致する。このように白銅ザクロ石グラニュライトの形成史は、ペルム-三畳紀の累進変成で生じた飛鳳エクロジヤイトと異なる。従って、両者を一連

の変成岩と考えて蘇魯衝突帯に対比することには無理がある (Suzuki *et al.*, 2010)。

ペルム-三畳紀の片麻岩ユニットと原生代のグラニュライトユニットの関係を京畿地塊北東部の華川地域 (Fig. 5a) で検討した (Suzuki, 2009)。この地域の片麻岩ユニットの変成年代は  $240 \pm 16 \sim 251 \pm 7$  Ma (Cho *et al.*, 1996; Suzuki, 2009) である。片麻岩ユニットとグラニュライトユニットの境界は幅 1~2 km に渡って著しく塑性変形 (マイロナイト化) し (Fig. 5c), 塑性変形した岩石自体が変成を被っている。

塑性変形帯から約 5 km 離れた (Fig. 5c の Site A) 花崗岩質グラニュライトはザクロ石-珪線石-黒雲母-カリ長石-斜長石-石英の鉱物共生を持つ。副成分鉱物

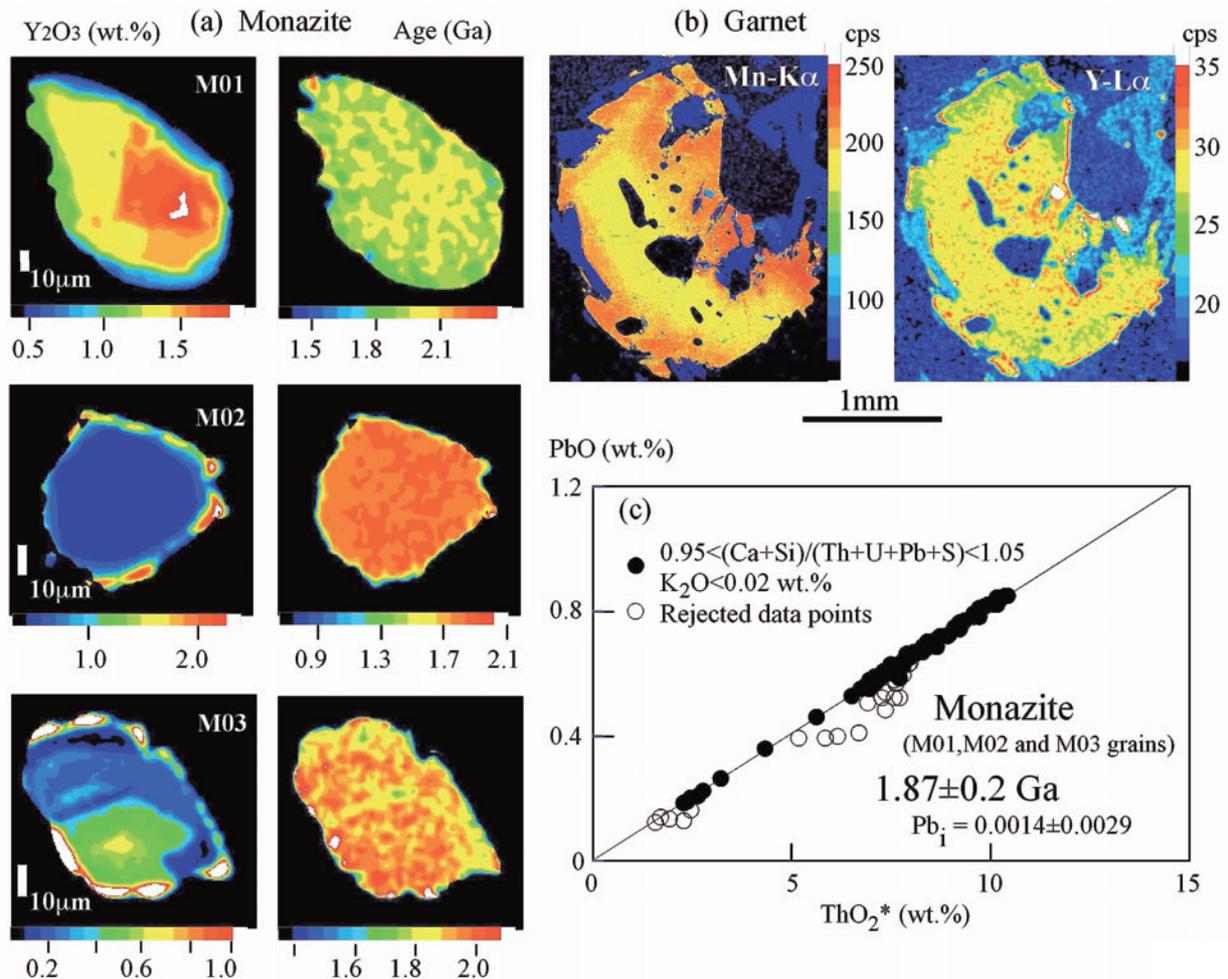


Fig. 8 (a) Y-compositional and age maps of monazite grain, (b) Mn-K $\alpha$  and Y-L $\alpha$  intensity maps of a porphyroblastic garnet grains and (c) PbO vs. ThO<sub>2</sub>\* plot of monazite in a granulite sample distant from the ductile shear zone in the Hwacheon area of the Gyeonggi Massif, South Korea (compiled from Figs. 3, 4 and 5 of Suzuki, 2009).

としてジルコンとモナザイトが存在するが、ゼノタイムやアラナイトは存在しない。モナザイトはザクロ石に包有された粒子と基質に存在する粒子で Y の累帯様式が異なる。前者ではコアからリムへ Y 含有量が減少し (Fig. 8a の M 01), 後者ではリムで Y が増加する (Fig. 8a の M 02 と M 03)。ザクロ石は周辺部分が後退的に分解 (黒雲母に置換) され, そこで解放された Mn と Y が結晶内部に拡散して逆累帯を生じている (Fig. 8b)。Y の分布関係から, ザクロ石に包有される M 01 粒子は先ザクロ石期からザクロ石成長期 (グラニュライト相変成作用のピーク), 基質の M 02 粒子はザクロ石成長期から後退的な分解期に生じたことがわかる。また, 基質の M 03 粒子は先ザクロ石期から後退的な分解期までの全期間に渡って成長したモナザイトである。このように個々のモナザイト粒子内で成長の時期が異なっているが, 年代累帯は認められない (Fig. 8a)。そして3粒子のスポット分析の全データが PbO-ThO<sub>2</sub> 図上で一直線に配列して 1.87 ± 0.02 Ma のアイソクロンを与える (Fig. 8c)。これは, 花崗岩質グラニュライトが, 約 1.87 Ga 前に, 昇温から冷却までの期間が CHIME 年代測定の時間分

解能 (40 my) 以下というグラニュライト相の変死作用で生じ, それ以降は構成鉍物を改変するような熱イベントを受けていないことを意味する。

塑性変形帯に近い (Fig. 5c の Site B) 花崗岩質グラニュライトでは, Mg-ザクロ石のポーフィロクラストの周辺が堇青石 (過半はピナイト化) で置換され (Fig. 9a と Fig. 9b), 塑性変形した基質が再結晶している (Fig. 9c)。この組織は塑性変形が終わってからグラニュライト相より低圧の後退変成作用を受けたことを示す。ザクロ石ポーフィロクラストに包有されたモナザイトは, Fig. 8a の M 01 粒子と同様, 累進期からピーク期に相当する Y 累帯 (Fig. 9a1) と 1.86 ± 0.04 Ga の一様な年代 (Fig. 9a2) をもつ。堇青石 (ピナイト) 中の粒子は低 Y のコアと高 Y のリムからなり (Fig. 9b1), 1.86 ± 0.03 Ga のコア年代と 246 ± 16 Ma のリム年代を示す (Fig. 9b2)。基質のモナザイトも低 Y のコアと高 Y のリム (Fig. 9c1) からなるが, コアとリムに年代差が無く 245 ± 11 Ma である (Fig. 9c2)。岩石の組織は, 堇青石中のモナザイト粒子の高 Y リムが塑性変形後の後退変成作用 (ザクロ石が堇青石に置換された時) で生じたことを示して

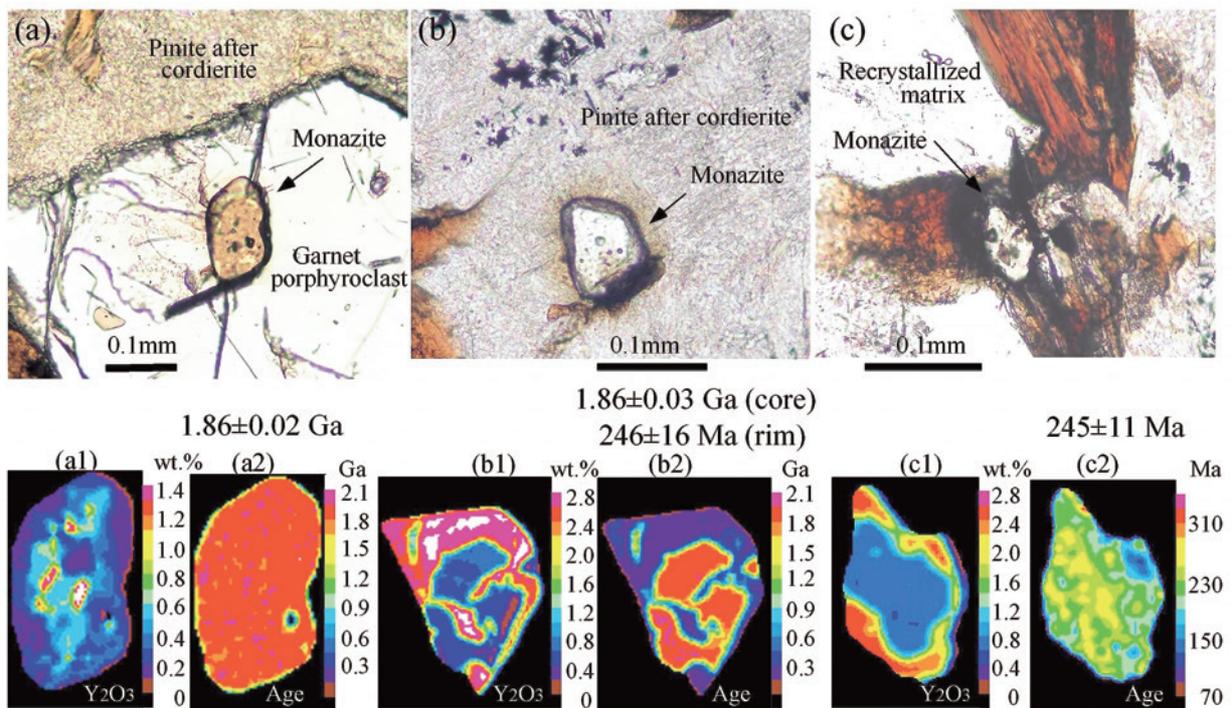


Fig. 9 Photomicrographs and Y-compositional and age maps of monazite grains in porphyroclastic garnet (a), pinite after cordierite around porphyroclastic garnet (b) and recrystallized matrix (c) of a sheared granulite near the ductile sheared zone between the gneiss and granulite units in the Gyeonggi Massif.

いる。高Yリムの年代 ( $246 \pm 16$  Ma; Fig. 9b2) は基質の再結晶したモナザイト粒子の年代 ( $245 \pm 11$  Ma; Fig. 9c2) に一致する。塑性変形帯近傍のグラニュライトユニットは構成鉱物の改変を引き起こすようなペルム-三畳紀の変成作用を受けている。

片麻岩ユニットから離れたグラニュライトユニットにはペルム-三畳紀の熱イベントが認められないので、両者は断層で接するまで別個の地質体であったと推定される。Suzuki (2009) は、境界の塑性変形 (断層) 帯がホルンフェルス様に再結晶して  $239 \pm 11 \sim 247 \pm 16$  Ma のモナザイトを生じていることに着目して、(1) 片麻岩ユニットはグラニュライトユニットに衝上したペルム-三畳紀変成岩からなる高温のナップであり、(2) その熱で塑性変形帯やその近傍のグラニュライトユニットが接触変成した、と解釈した。異地性の片麻岩ユニットの形成場所や衝上のメカニズムなど京畿地塊の地質は更なる検討が必要であるが、*in situ* な CHIME 年代測定と年代マッピングが京畿地塊の新たな姿を描き出しつつある。

## 8. おわりに

今日、EPMA は多くの地球科学関係の研究機関でごく普通の分析装置として使用されている。これを利用した CHIME 法により、閉止温度が高くて普遍的に産出するモナザイトやジルコンのサブグレイン年代測定のハードルが格段に低くなった。CHIME は共同研究者の足立守博士の命名である。この名称には「最新の装置 = 最先端の研究」と考えがちな自分への警鐘が込められている。CHIME 年代には多くの地球惑星科学的な取り扱いに耐え得る精度がある。また、大量測定にも対応できる迅速な年代測定法である。冒頭で述べたように、通常の研磨薄片上での *in situ* な高空間分解能測定と鉱物粒子の年代マッピングが CHIME 年代測定の最大の特徴である。岩石組織と対応づけたサブグレイン年代測定は造山帯の解析研究にパラダイムシフトをもたらしたと信じている。

## 謝 辞

CHIME 年代測定は足立守博士や田中剛博士との共同研究の産物である。その開発と展開を実施するにあたって、石岡孝吉先生、諏訪兼位先生、仲井豊先生、故 都築芳郎先生、杉崎隆一先生、柴田賢先生、水谷伸治郎先生、柳哮先生、崔焯讚博士、榎並正樹博士、加藤丈典博士をはじめ、ここに書き尽くすことができ

ないほどの多くの先生、先輩、同僚や卒業生の指導、協力と助言をいただいた。故酒井榮吾先生にお目にかかる度に耳にしたジルコンというキーワードが CHIME 法の原点であった。高橋嘉夫博士と小木曾哲博士には草稿の懇切な校閲をいただいた。ここに記して感謝いたします。

## 引用文献

- Ahrens, L. H. (1946) Determination of the age of minerals by means of the radioactivity of rubidium. *Nature*, **157**, 269.
- Allègre, C. J., Albared, F., Grünenfelder, M. and Köppel, V. (1974)  $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ - $^{235}\text{U}/^{207}\text{Pb}$  zircon chronology in Alpine and non-Alpine environment. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, **43**, 163-194.
- Andersen, C. A. and Hinthorne, J. R. (1972) U, Th, Pb and REE abundances and  $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  ages of individual minerals in returned lunar material by ion microprobe mass analysis. *Earth and Planetary Science Letters*, **14**, 195-200.
- Andersen, C. A. and Hinthorne, J. R. (1973) Thermodynamic approach to the quantitative interpretations of sputtered ion mass spectra. *Analytical Chemistry*, **45**, 1421-1438.
- Andreoli, M. A., Smith, C. B., Watkeys, M., Moore, J. M., Ashwal, L. D. and Hart, R. J. (1995) The geology of the Steenkampskraal monazite deposit, South Africa: Implications for REE-Th-Cu mineralization in Charnokite-granulite Terranes. *Economic Geology*, **89**, 994-1016.
- Boltwood, B. B. (1907) Ultimate disintegration products of the radioactive elements; Part II. Disintegration products of uranium. *American Journal of Science*, **23**, 78-88.
- Bowles, J. F. (1990) Age dating of individual grains of uraninite in rocks from electron microprobe analyses. *Chemical Geology*, **83**, 47-53.
- Cameron-Schimann, M. (1978) Electron microprobe study of uranium minerals and its application to some Canadian deposits. *PhD Thesis of the University of Alberta*, pp. 343.
- Chakhouradian, A. R. and Mitchell, R. M. (1998) Lueshite, pyrochlore and monazite-(Ce) from apatite-dolomite carbonatite, LesnayaVaraka complex, Kola Peninsula, Russia. *Mineralogical Magazine*, **62**, 769-782.
- Cho, D. K., Suzuki, K., Adachi, M. and Chwae, U. (1996) CHIME age determination of monazite in metamorphic rocks and granite from Gyeonggi Massif, Korea. *Journal of Earth and Planetary Sciences, Nagoya University*, **43**, 43-65.
- 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. *Journal of Geophysical Research, Supplement*, p B525-B534.
- Corfu, F. (1988) Differential response of U-Pb systems in co-existing accessory minerals, Winnipeg River Sub-province, Canadian Shield: implications for Archean crustal growth and stabilization. *Contributions to Miner-*

- ology and Petrology*, **98**, 312–325.
- Cressey, G., Wall, F. and Cressey, B. A. (1999) Differential REE uptake by sector growth of monazite. *Mineralogical Magazine*, **63**, 813–828.
- Fang, W. -C. (1992) The granitoids and their mineralizations in Jilin Province. *Jilin Publishing House of Science and Technology, Changchun*, p. 271.
- Geisler, T. and Schleicher, H. (2000) Improved U-Th-total Pb dating of zircons by electron microprobe using a simple new background modeling procedure and Ca as a chemical criterion of fluid-induced U-Th-Pb discordance in zircon. *Chemical Geology*, **163**, 269–285.
- Goncalves, P., Williams, M. L. and Jercinovic, M. J. (2005) Electron-microprobe age mapping of monazite. *The American Mineralogist*, **90**, 578–585.
- Hinthorne, J. R., Andersen, C. A., Conrad, R. L. and Lovering, J. F. (1979) Single-grain  $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  and U/Pb age determinations with a 10- $\mu\text{m}$  spatial resolution using the ion microprobe mass analyzer (IMMA). *Chemical Geology*, **25**, 271–303.
- Hinton, R. W. and Long, J. V. P. (1979) High-resolution ion microprobe measurement of lead isotopes: variations within single zircons from Kac Seul, northwestern Ontario. *Earth and Planetary Science Letters*, **45**, 309–325.
- Holmes, A. (1911) The association of lead with uranium in rock-minerals and its application to the measurement of geological time. *Proceedings of the Royal Society, Series A*, **85**, 248–256.
- Holmes, A. and Smales, A. A. (1948) Monazite from Bodmin Moor, Cornwall: a study in geochronology. *Proceedings of the Royal Society of Edinburgh (B)*, **63**, 115–129.
- Imayama, T. and Suzuki, K. (2011) High-precision CHIME monazite age from leucogranite in the far-eastern Nepal Himalaya (forecast). *Summaries of Researches using AMS at Nagoya University (XXII)*, 55–64.
- Jercinovic, M. J. and Williams, M. L. (2005) Analytical perils (and progress) in electron microprobe trace element analysis applied to geochronology: background acquisition, interferences, and beam irradiation effects. *The American Mineralogist*, **90**, 526–546.
- Krogh, T. E. (1982) Improved accuracy of U-Pb zircon ages by the creation of more concordant systems using an air abrasion technique. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **46**, 637–649.
- Kulp, J. L., Bate, G. L. and Broecker, W. S. (1954) Present status of the lead method of age determination. *American Journal of Science*, **252**, 345–365.
- Kusiak, M. A., Dunkley, D. J., Suzuki, K., Kachlík, V., Kedzior, A., Lekki, I. and Opluštil, S. (2010) Chemical (non-isotopic) and isotopic dating of Phanerozoic zircon-A case study of durbachite from the Trebíč Pluton, Bohemian Massif. *Gondwana Research*, **17**, 153–161.
- Lal, N., Saini, H. S., Nagpaul, K. K. and Sharma, K. K. (1976) Tectonic and cooling history of the Bihar Mica Belt, India, as revealed by fission-track analysis. *Tectonophysics*, **34**, 163–180.
- Larsen, E. S., Keevil, N. B. and Harrison, H. C. (1952) Method for determining the age of igneous rocks using the accessory minerals. *Bulletin of the Geological Society of America*, **63**, 1045–1052.
- Matsuda, H. (1974) Double focusing mass spectrometers of second order. *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Physics*, **14**, 219–233.
- Nier, O. A. (1939) The isotopic composition of radiogenic leads and the measurement of geological time, II. *Physical Reviews*, **55**, 153–163.
- Oh, C. W., Kim, S. W., Choi, S. G., Zhai, M., Guo, J. and Sajeev, K. (2005) First finding of eclogite facies metamorphism event in South Korea and its correlation with the Dabie-Sulu Collision Belt in China. *Journal of Geology*, **113**, 226–232.
- Parslow, G. R., Brandstatter, F., Kurat, G. and Thomas, D. J. (1985) Chemical ages and mobility of U and Th in anatectites of the Cree Lake zone, Saskatchewan. *Canadian Mineralogist*, **23**, 543–551.
- Pyle, J. M., Spear, F. S., Rudnick, R. L. and McDonough, W. F. (2001) Monazite-xenotime-garnet equilibrium in metapelites and a new monazite-garnet thermometer. *Journal of Petrology*, **42**, 2083–2107.
- Sarkar, T. C. (1941) The lead ratio of a crystal of monazite from the Gaya District, Bihar. *Proceedings of the Indian Academy of Sciences*, **13**, 245–248.
- Schärer, U. and Allègre, C. J. (1982) Uranium-lead system in fragments of a single zircon grain. *Nature*, **295**, 585–587.
- Steiger, R. H. and Jäger, E. (1977) Subcommission on geochronology: convention on the use of decay constants in geo- and cosmochronology. *Earth Planetary Science Letters*, **36**, 359–362.
- 孫徳有・鈴木和博 (2004) 中国吉林省, 荒溝山地域に分布する花崗岩の CHIME 年代測定. 名古屋大学博物館報告, **20**号, 15–23.
- Sun, D.-Y., Suzukiki, K., Kajizuka, I., Kamikubo, H., Lu, X.-P. and Wu, F.-Y. (2008) CHIME dating of monazite from the Dongqing pluton in SE Jilin, China. *Journal of Earth and Planetary Sciences, Nagoya University*, **55**, 23–37.
- Suzuki, K. (1987a) Discordant distribution of U and Pb in zircon of Naegi granite: a possible indication of Rn migration through radiation damage. *Geochemical Journal*, **21**, 173–182.
- Suzuki, K. (1987b) Grain-boundary enrichment of incompatible elements in some mantle peridotites. *Chemical Geology*, **63**, 319–334.
- 鈴木和博 (2005) 電子プローブマイクロアナライザを用いた CHIME 年代測定. 地質学雑誌, **111**, 509–526.
- 鈴木和博 (2006) EPMA による鉱物の年代測定. ぶんせき, 2006年4号, 152–159.
- Suzuki, K. (2009) CHIME dating and age mapping of monazite in granulites and paragneisses from the Hwacheon

- area, Korea: implications for correlations with Chinese cratons. *Geosciences Journal*, **13**, 275–292.
- 鈴木和博 (2010) EPMA. 日本地球化学会監修. 田中剛・吉田尚弘共編 地球化学講座8 地球化学実験法, pp. 230–237, 培風館, 東京.
- Suzuki, K. and Adachi, M. (1991) Precambrian provenance and Silurian metamorphism of the Tsubonosawa paragneiss in the South Kitakami terrane, Northeast Japan, revealed by the chemical Th-U-total Pb isochron ages of monazite, zircon and xenotime. *Geochemical Journal*, **25**, 357–376.
- Suzuki, K. and Adachi, M. (1994) Middle Precambrian detrital monazite and zircon from the Hida gneiss in the Okidogo Island, Japan: their origin and implication for the correlation of the basement gneiss of Southwest Japan and Korea. *Tectonophysics*, **235**, 277–292.
- Suzuki, K. and Kato, T. (2008) CHIME dating of monazite, xenotime, zircon and polycrase: protocol, pitfalls and chemical criterion of possibly discordant age data. *Gondwana Research*, **14**, 569–586.
- Suzuki, K. and Yogo, S. (1986) Microprobe analyses of zircons in some granitic rocks with special reference to the distribution of uranium. *Bulletin of the Nagoya University Museum*, **2**, 27–53.
- Suzuki, K., Adachi, M. and Yamamoto, K. (1990) Possible effects of grain-boundary REE on the REE distribution in felsic melts derived by partial melting. *Geochemical Journal*, **24**, 57–74.
- Suzuki, K., Adachi, M. and Tanaka, T. (1991) Middle Precambrian provenance of Jurassic sandstone in the Mino Terrane, central Japan: Th-U-total Pb evidence from an electron microprobe monazite study. *Sedimentary Geology*, **75**, 141–147.
- 鈴木和博・足立守・加藤丈典・與語節生 (1999) CHIME 年代測定法とその造山帯形成過程解析への応用. 地球化学, **33**, 1–22.
- Suzuki, K., Chwae, U., Dunkley, D. J., Kim, S.-W., Kajizuka, I. and Minami, M. (2010) CHIME geochronology of granitic gneiss from Baekdong in the Hongseong area of the Gyeonggi Massif, South Korea. *Journal of Earth and Planetary Sciences, Nagoya University*, **57**, 19–41.
- Tilton, G. R. (1960) Volume diffusion as a mechanism for discordant lead ages. *Journal of Geophysical Research*, **65**, 2933–2945.
- Tilton, G. R., Patterson, C., Brown, H., Inghram, M., Hayden, R., Hess, D. and Larsen, E. (1955) Isotopic composition and distribution of lead, uranium and thorium in a Precambrian granite. *Geological Society of America Bulletin*, **66**, 1131–1148.
- Tilton, G. R., Davis, G. L., Wetherill, G. W. and Aldrich, L. T. (1957) Isotopic ages of zircon from granites and pegmatites. *Transactions of the American Geophysical Union*, **38**, 360–371.
- Tsuboi, M. and Suzuki, K. (2003) Heterogeneity of initial  $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$  ratios within a single pluton: evidence from apatite strontium isotopic study. *Chemical Geology*, **199**, 189–197.
- Wetherill, G. W. (1956) Discordant uranium-lead ages, 1. *Transactions of the American Geophysical Union*, **37**, 320–326.
- Williams, I. S., Compston, W. and Chappell, B. W. (1983) Zircon and monazite U-Pb systems and histories of I-type magmas, Berridale Batholith, Australia. *Journal of Petrology*, **24**, 76–97.
- Williams, M. L., Jercinovic, M. J. and Terry, M. P. (1999) Age mapping and dating of monazite on the electron microprobe: deconvoluting multistage tectonic histories. *Geology*, **27**, 1023–1026.
- Wu, F.-Y., Sun, D.-Y., Jahn, B.-M. and Wilde, S. (2004) A Jurassic garnet-bearing granitic pluton from NE China showing tetrad REE patterns. *Journal of Asian Earth Sciences*, **23**, 731–744.