

A. LONGINELLI e E. POLACCO MILANI

DISTRIBUZIONE DELLA RADIOATTIVITA' NEGLI ZIRCONI
DI ALCUNE ROCCE « GRANITICHE »
DELL'ARCIPELAGO TOSCANO

Riassunto. — E' stata studiata la distribuzione della radioattività negli zirconii inclusi in biotite di quattro rocce intrusive di tipo granitico. La tecnica usata è quella delle lastre ed emulsioni nucleari. Riportando in un grafico le attività specifiche misurate per classi di $0,5 \alpha/\text{cm}^2 \cdot \text{sec.}$ contro il numero di individui per ogni singola classe si ottengono degli istogrammi che nel caso delle rocce provenienti da Montecristo, Giglio e Gavorrano hanno un andamento nettamente bimodale. A tali dati se ne sommano altri dai quali risulta che, almeno nella granodiorite dell'isola d'Elba, l'attività degli zirconii inclusi in biotite è minore di quella degli zirconii inclusi in feldspato che è a sua volta minore di quella degli zirconii inclusi in quarzo. Per tentare di interpretare questi risultati si propongono due ipotesi: l'eventuale presenza di zirconii ereditati nel magma di anatessi e la possibilità di diverse generazioni di zirconii di dimensioni progressivamente minori e con contenuti crescenti di elementi radioattivi. Questa seconda ipotesi sembra interpretare con maggiore aderenza i dati ottenuti. Tuttavia il verificarsi di una di esse non esclude necessariamente l'altra.

Abstract. — The radioactivity of the zircons included in biotite has been studied by means of the nuclear plates method in three granodiorites from Montecristo, Giglio and Elba (M. Capanne) islands and a quartzmonzonite near Gavorrano (Grosseto). The results are given in the histograms of figs. 1, 2, 3 and 4. In the case of Montecristo, Giglio and Gavorrano the distribution of radioactivity is clearly bimodal. Moreover in the Elba granodiorite it has been found that the size of the zircons included in fundamental minerals is decreasing from biotite, to feldspars, to quartz while their specific activity increases in the same direction. To try to interpret these data two hypotheses are given:

1) It is possible that a group of zircons inherited from older rocks was present in the magma of anatexis which gave origin to these intrusions. This could explain only the bimodal distribution of the histograms in figs. 1, 2 and 3.

2) Zircons could be determined by successive steps of cristallization.

This hypothesis permits a good interpretation of the above data. A short discussion is given on the matter.

Il punto di partenza per questo studio fu l'osservazione di una serie di sezioni sottili preparate per la determinazione dell'età degli aloni pleocroici. Le rocce prese in esame erano:

Isola d'Elba - Granodiorite del Monte Capanne

Isola di Montecristo - Granodiorite

Isola del Giglio - Granodiorite

Gavorrano - Quarzomonzonite.

Fu rilevato che in seno alla stessa roccia e talvolta anche in seno al medesimo cristallo includente, si trovavano insieme zirconi che avevano determinato intensi aloni pleocroici e zirconi praticamente privi di aloni. Ciò poneva, seppure in termini molto generali, la questione di un'ampia variabilità del contenuto in uranio e torio degli zirconi di una medesima massa intrusiva. Iniziammo così una serie di misure tendenti a stabilire il « range » di variabilità e, allo scopo di limitare in prima istanza il campo di studio, prendemmo in esame i soli zirconi inclusi in biotite. La letteratura riporta numerosi dati relativi a varie proprietà degli zirconi (variazioni delle caratteristiche ottiche e morfologiche in particolare) dati elaborati principalmente allo scopo di ricercare elementi per una correlazione di tali caratteri alle caratteristiche petrogenetiche. Molto meno numerosi sono invece gli studi riguardanti l'attività degli zirconi anche se, in linea generale, sono noti i valori medi nei vari tipi di rocce ed i « range » di variabilità assoluta. Si è potuto così constatare che, se da un lato è notevolmente variabile il contenuto in uranio (da 30 ppm al 3% secondo HEINRICH (1958)), altrettanto può dirsi per il contenuto in torio senza che necessariamente esista una relazione di variabilità tra i due. Si passa così da valori del rapporto Th/U dell'ordine di 0,2-0,3 a valori largamente maggiori dell'unità. D'altro canto vari Autori hanno dimostrato (VON BUTTLAR e HOUTERMANS, 1951) (LARSEN et al., 1953) (SILVER e DEUTSCH, 1961, 1962) ecc. che il rapporto Th/U e la concentrazione assoluta di ciascuno di tali elementi possono variare ampiamente anche in seno allo stesso cristallo, sia esso appartenente a rocce granitiche od a rocce pegmatitiche. Per quanto riguarda la variabilità della radioattività degli zirconi in seno allo stesso ammasso intrusivo i dati sono ancora più scarsi.

Abbiamo pensato quindi che potesse risultare utile portare un contributo in questo campo osservando la distribuzione della radioattività negli zirconi inclusi in biotite ed appartenenti a rocce grosso modo coeve (o la cui messa in posto non è comunque avvenuta con rilevanti inter-

valli di tempo) e concentrate in una zona di estensione relativamente modesta. Si è inoltre tentato di mettere in evidenza una eventuale relazione tra dimensioni dei cristalli e radioattività.

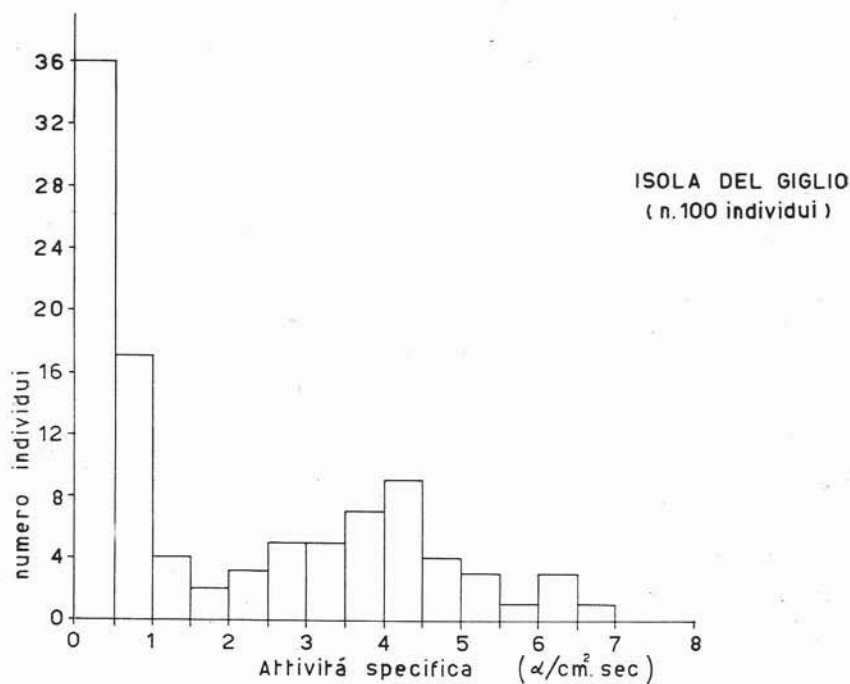


Fig. 1.

Le rocce prese in esame sono già state studiate dal punto di vista petrografico-mineralogico in una serie di lavori di diversi Autori (MITTEMPERGER, 1954) (COCCO, 1959) (MARINELLI, 1959, 1961) per cui non riteniamo necessario riportare notizie in proposito rimandando alle note citate. Nel complesso, per le quattro rocce prese in esame, è stata misurata la radioattività di oltre ottocento individui cristallini.

Tecnica usata

La tecnica delle misure è quella ben nota delle lastre nucleari e delle emulsioni nucleari « in gel form » colate su sezioni sottili scoperte delle rocce. Tale tecnica, messa inizialmente a punto per altri

scopi, è stata applicata ormai da molti anni allo studio della distribuzione della radioattività in sezioni sottili o lucide di rocce (BARANOV e KRETSCHMER, 1935) (CURIE, 1946) (HEE, 1948) (YAGODA, 1949) (PIC-

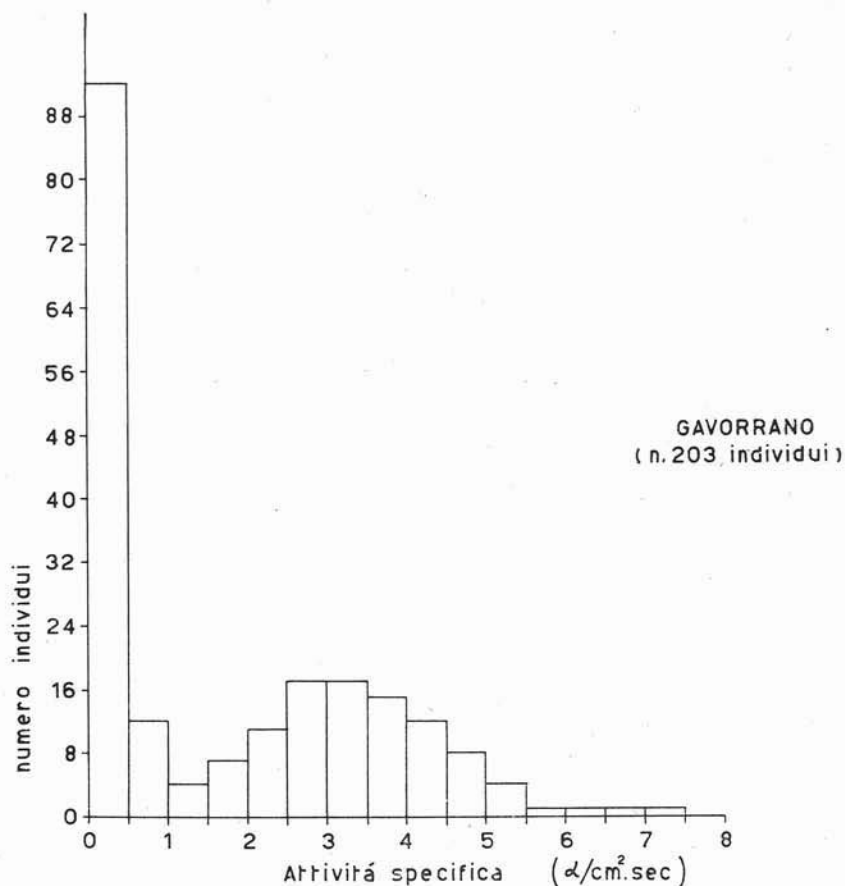


Fig. 2.

ciotto, 1949, 1952) ecc. Anche in questo caso non riteniamo entrare in particolari rimandando a tale scopo alla vasta letteratura sull'argomento. Per il presente studio sono state utilizzate lastre nucleari Ilford C2 ed Ilford K2 di 50 μ di spessore ed emulsioni « in gel form » dello stesso tipo. Le sezioni usate erano di circa 25-30 μ di spessore.

Risultati ottenuti

Non si è ritenuto necessario, specialmente per ragioni di spazio, riportare uno per uno tutti i dati ottenuti. La distribuzione della radioattività degli zirconi misurati è riportata graficamente nelle figg. 1, 2, 3 e 4. In ascissa sono date le attività specifiche per classi di $0,5 \alpha/\text{cm}^2 \cdot \text{sec.}$. In ordinata è riportato il numero degli individui per ogni singola classe. Il conteggio delle particelle α e la misura della superficie esposta (effettuata per mezzo di un reticolo oculare tarato) sono stati particolarmente accurati. L'errore medio complessivo per ogni singolo valore, comprendente l'errore di conteggio, quello della misura della superficie e la fluttuazione statistica nell'emissione α in relazione ai tempi di esposizione può essere valutato inferiore a $\pm 10\%$.

Discussione dei risultati e conclusioni

Dai grafici riportati si rileva immediatamente un differente andamento tra gli istogrammi relativi a Montecristo, Giglio e Gavorrano da una parte e quello relativo all'isola d'Elba dall'altra.

In quest'ultimo caso, anche se non è possibile parlare di distribuzione gaussiana intorno ad un valore modale, si ha comunque un addensamento dei dati intorno al valore 1. Negli altri tre casi si può invece considerare la distribuzione dei dati come bimodale se non anche (per quanto riguarda la granodiorite di Montecristo) trimodale. Una distribuzione di questo tipo si accorda piuttosto difficilmente con i concetti classici circa l'evoluzione della cristallizzazione in un magma fuso. Per interpretare un tale fatto due diverse possibilità possono venir prese in esame:

1) i due diversi gruppi di valori rilevabili nelle rocce intrusive di Montecristo, Giglio e Gavorrano possono venire attribuiti uno ai cristalli di zirconio formati normalmente in seno alla massa magmatica all'atto della cristallizzazione, l'altro ad una certa quantità di cristalli ereditati e provenienti dai materiali che sono stati coinvolti nel processo di anatessi che ha dato origine ai magmi in questione. Questa ipotesi potrebbe venir sostenuta dal fatto che le rocce intrusive in esame sono state considerate dagli Autori che le hanno studiate come tipiche rocce da magmi di anatessi;

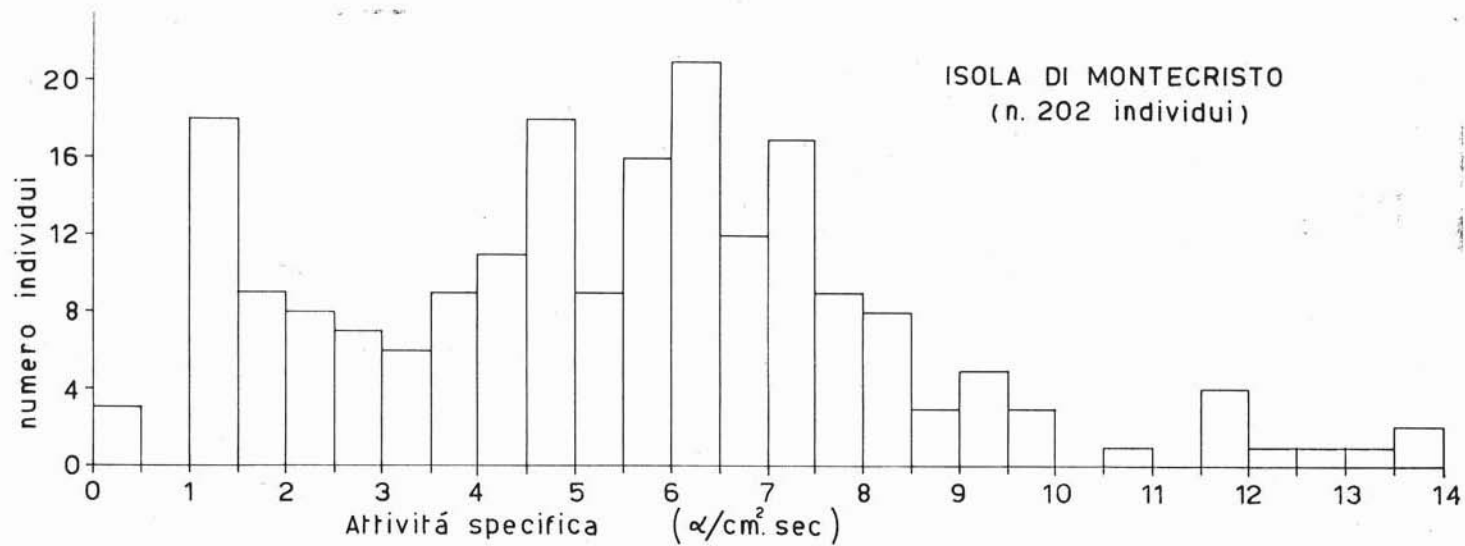


Fig. 3.

2) una distribuzione bimodale o plurimodale potrebbe indicare il verificarsi di generazioni diverse di zirconi succedutesi nel tempo con diverse caratteristiche di composizione per quanto riguarda i contenuti in uranio e torio.

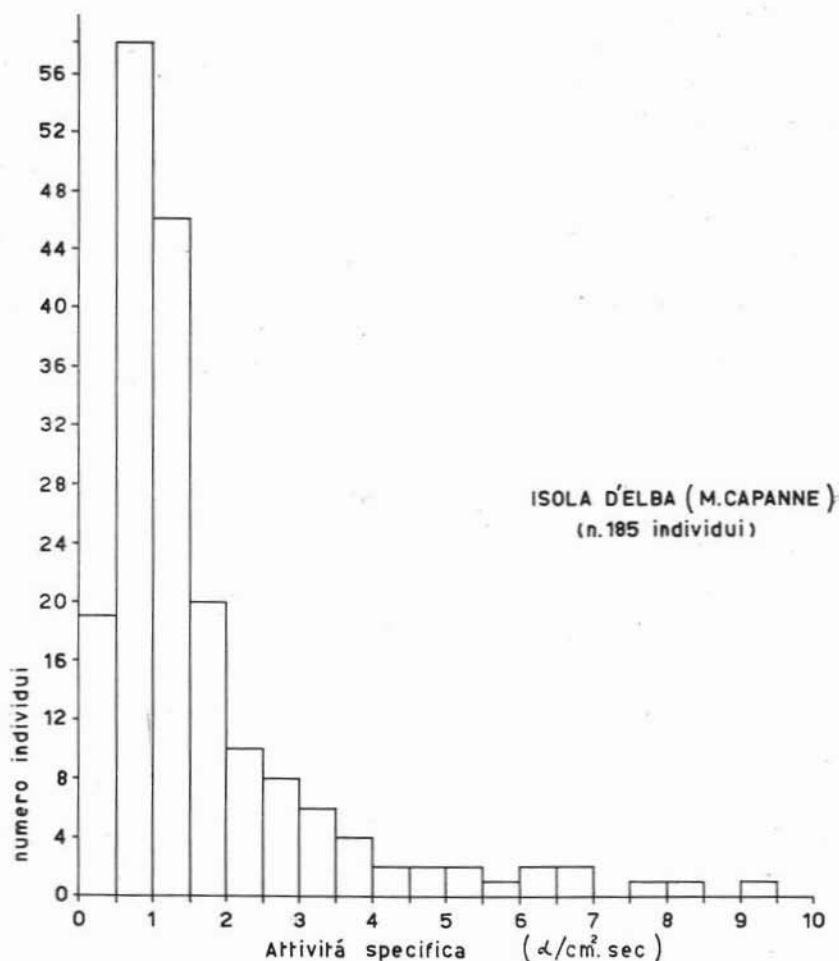


Fig. 4.

Un'ipotesi di questo tipo non è nuova ed è già stata sostenuta almeno per alcuni casi (GOTTFRIED et al., 1959) (SILVER, 1963 a, 1963 b).

Tali Autori mettono in luce una relazione che esisterebbe tra dimensioni dei cristalli di zirconio, loro età relativa e contenuti in uranio, torio e hafnio. I cristalli di dimensioni più minute dovrebbero essere in generale i più tardivi e risulterebbero pure sensibilmente arricchiti nei tre elementi citati rispetto ai cristalli primi formati. A questo proposito MARINELLI (1959) aveva già osservato come nella granodiorite elbana si verificasse un fenomeno non facilmente interpretabile. I contenuti specifici di zirconio risultavano largamente maggiori nella biotite che negli altri minerali fondamentali (feldspati e quarzo) mentre le attività specifiche medie degli zirconi risultavano sensibilmente maggiori per gli inclusi in quarzo e feldspato che per gli inclusi in biotite. Abbiamo effettuato alcune misure dello stesso tipo su un altro campione di granodiorite del M. Capanne per poter disporre di un maggiore numero di dati ed anche perché tale fenomeno è particolarmente interessante tenendo conto che solo nella granodiorite dell'Elba l'andamento della distribuzione della radioattività negli zirconi inclusi in biotite non è bimodale. I dati ottenuti sono i seguenti (i valori tra parentesi sono quelli ottenuti dal MARINELLI che vengono riportati per comodità di confronto):

superficie totale di roccia esaminata cm^2 12,8.

Zirconi in biotite

- n. 52 per una superficie complessiva di cm^2 $5,07 \cdot 10^{-4}$
- superficie media di ogni zirconio μ^2 975 (μ^2 910)
- intervallo delle attività specifiche misurate 0,46-3,92 $\alpha/\text{cm}^2 \cdot \text{sec.}$
(0,73-3,64)
- attività specifica media 1,65 $\alpha/\text{cm}^2 \cdot \text{sec.}$ (1,96)

Zirconi in feldspato

- n. 50 per una superficie complessiva di cm^2 $4,59 \cdot 10^{-4}$
- superficie media di ogni zirconio μ^2 918 (μ^2 870)
- intervallo delle attività specifiche misurate 0,82-6,00 $\alpha/\text{cm}^2 \cdot \text{sec.}$
(1,09-5,04)
- attività specifica media 2,55 $\alpha/\text{cm}^2 \cdot \text{sec.}$ (2,42)

Zirconio in quarzo

- n. 39 per una superficie complessiva di cm^2 $3,00 \cdot 10^{-4}$
- superficie media di ogni zircone μ^2 770 (μ^2 630)
- intervallo delle attività specifiche misurate 1,90-6,15 $\alpha/\text{cm}^2 \cdot \text{sec.}$ (2,43-5,84)
- attività specifica media 3,55 $\alpha/\text{cm}^2 \cdot \text{sec.}$ (3,99).

Questi risultati sono in ottimo accordo con quelli ottenuti da MARINELLI e confermano il verificarsi del fatto citato. Una constatazione di questo tipo, unita a quanto precedentemente osservato costituisce un notevole punto a favore dell'ipotesi numero due. Infatti, se la cristallizzazione degli zirconio in un processo intrusivo avvenisse in una sola fase iniziale, la distribuzione dei medesimi nei minerali fondamentali dovrebbe essere statistica. Non si vede come potrebbe aver luogo un'inclusione « preferenziale » da parte di un minerale con selezione sia per quanto riguarda le dimensioni, sia per quanto riguarda la concentrazione di elementi radioattivi. Inoltre, secondo quanto rilevato da MARINELLI, il contenuto specifico di zircone nella biotite è poco meno di quattro volte maggiore di quello degli altri minerali fondamentali della roccia. Anche per questo dato è valida l'osservazione precedente.

Del resto alcuni dei dati disponibili nella letteratura sull'argomento avvalorano la possibilità del succedersi di generazioni diverse di zirconio in seno ad una massa magmatica in via di consolidamento. Il rinvenimento sia in rocce granitiche che in pegmatiti (LARSEN et al., 1953) (DEUTSCH e SILVER, 1961) di zirconio che presentano numerose zonature concentriche nelle quali variano in maniera sensibile i tenori in uranio e torio può essere una ulteriore conferma del fatto che i cristalli di questo minerale non si sono formati in un solo, relativamente breve, intervallo di tempo, ma la cristallizzazione è proseguita per tappe, forse anche intervallata da parziali ridissoluzioni. Che gli zirconio più tardivi (come dovrebbero essere quelli inclusi in quarzo) risultino i più ricchi in uranio e torio è poi in perfetto accordo col fatto che normalmente questi elementi risultano più abbondanti nelle fasi tardive anche se possono venir trovati, in fase magmatica, in quantità abbastanza rilevanti negli accessori di prima deposizione.

Le possibilità di « soluzioni solide » fra un teorico composto « $USiO_4$ », $ThSiO_4$ e $ZrSiO_4$ sono state messe in evidenza da MUMPTON e ROY (1961) studiando sperimentalmente gli equilibri chimici anche a temperature relativamente modeste ($1350^\circ C$). E' risultato che 4 ± 2 moli per cento di « $USiO_4$ » possono entrare nello zircone a questa temperatura. La possibilità di « soluzioni solide » $ThSiO_4 - ZrSiO_4$ è minore ma non molto diversa. Ciò rende accettabile la formazione tardiva di zirconi a temperature relativamente basse e con contenuti piuttosto elevati in uranio e torio. Questo fatto è del resto rilevabile in natura. La presenza in rocce pegmatitiche di cristalli di zircone con contenuti generalmente piuttosto elevati di elementi radioattivi conferma la validità delle esperienze di laboratorio degli Autori sopra citati. Per tentare un'interpretazione di un processo di questo tipo potrebbe risultare valida l'ipotesi affacciata a questo proposito da MARINELLI. Successivamente alla prima fase di cristallizzazione dei minerali accessori, la diminuzione di pressione determinatasi conseguentemente alla diminuzione di temperatura, e forse anche la variazione della concentrazione dei singoli costituenti, potrebbero provocare l'instabilità degli zirconi già cristallizzati con conseguente ridissoluzione. A tale ridissoluzione verrebbero sottratti quei cristalli eventualmente già inclusi in biotite. Si può aggiungere che, successivamente, potrebbe giocare sensibilmente a favore di ulteriori fasi di cristallizzazione la accresciuta concentrazione dei singoli costituenti nelle fasi tardive di consolidamento.

Collegando il differente andamento degli istogrammi riportati alle dimensioni dei relativi stock intrusivi si potrebbe forse anche stabilire una relazione tra masse di magmi intrusi, conseguenti differenze nei processi di raffreddamento e consolidamento e diverso andamento della distribuzione della radioattività negli zirconi. Non si tratta che di un'ipotesi e del resto non è questa la sede per una discussione approfondita di tali complessi fenomeni. Rimane il fatto che solo con tale ipotesi è possibile dare un'interpretazione plausibile dei risultati esposti in questa nota.

Si deve rilevare che, in ogni caso, il verificarsi di un fatto del genere non escluderebbe l'attendibilità dell'ipotesi numero uno. Pur realizzandosi infatti fasi successive di cristallizzazione degli zirconi sarebbe sempre possibile la presenza, in un magma di anatessi, di zirconi

ereditati e non completamente rifusi che andassero ad aggiungersi a quelli determinati dalla prima fase di cristallizzazione. In tal caso sembrerebbe più plausibile attribuire a zirconi ereditati quelli dei gruppi a minore attività.

Nel caso degli zirconi inclusi in biotite va rilevato che un tentativo di stabilire una relazione tra attività specifica e dimensioni dei cristalli non ha dato esito positivo. Nelle rocce esaminate si ha una distribuzione attività-dimensioni del tutto casuale senza il minimo accenno ad un andamento preferenziale.

Un ampliamento dello studio eseguito agli zirconi inclusi negli altri minerali fondamentali di ognuna delle rocce esaminate potrebbe risultare chiarificatore dei problemi esposti.

C.N.E.N. - Laboratorio di Geologia Nucleare, Via S. Maria, 22 - Pisa.

LAVORI CITATI

- BARANOV V. I., KRETSCHMER S. I., 1935 - Utilisation des plaques à couche épaisse pour la recherche de la répartition des éléments radioactifs dans les objets naturels. *Comptes Rendus Acad. Sci. URSS*, 1, 543-549.
- BUTTLAR H. von, HOUTERMANS F. G., 1951 - Photographische messung des U- und Th-Gehaltes nach Aufplagemethode. *Geochim. et Cosmochim. Acta*, 2, 43-61.
- COCCO G., 1959 - Considerazioni geochimico-petrografiche sulla granodiorite della isola del Giglio. *Atti Soc. Tosc. Sc. Nat.*, ser. A, 66, 273-336.
- CURIE I., 1946 - Sur la possibilité d'étudier la radioactivité des roches par l'observation des trajectoires des rayons α dans l'émulsion photographique. *J. Phys. Ra.*, 7, 313-319.
- DEUTSCH S., SILVER L. T., 1961 - An experimental investigation of discordant isotopic ages in zircon. *Varenna Summer Course on Nucl. Geol. 1960*, 346-359.
- GOTTFRIED D., JAFFE H. W., SENFTLE F. E., 1959 - Evaluation of the lead-alpha (Larsen) method for determining ages of igneous rocks. *Geol. Survey Bull.*, 1097-A.
- HEB A., 1948 - Recherches sur la radioactivité d'un granite des Vosges par la méthode photographique. *Ann. Geoph.*, IV, 3, 242-252.
- HEINRICH E. W., 1958 - Mineralogy and geology of radioactive raw materials. *Mac Graw-Hill Book Comp.*, N. Y.
- LARSEN E. S. Jr., WARING C. L., BERMAN J., 1953 - Zoned zircon from Oklahoma. *American Mineral.*, 38, 1118-1125.
- MARINELLI G., 1959 - Le intrusioni terziarie dell'isola d'Elba. *Atti Soc. Tosc. Sc. Nat.*, ser. A, 66, 50-253.

- MARINELLI G., 1961 - L'intrusione terziaria di Gavorrano. *Atti Soc. Tosc. Sc. Nat.*, ser. A, 68, 117-194.
- MITTEMPERGER M., 1954 - L'isola di Montecristo. *Atti Soc. Tosc. Sc. Nat.*, ser. A, 61, 167.
- MUMPTON F. A., ROY R., 1961 - Hydrothermal stability studies of the zircon-thorite group. *Geochim. et Cosmochim. Acta*, 21, 217-238.
- PICCIOTTO E. E., 1949 - L'étude de la radioactivité des roches par la méthode photographique. *Bull. Soc. belge Géol., Paléont. Hydrol.*, 58, 75-90.
- PICCIOTTO E. E., 1952 - Utilisation des émulsions liquides dans l'étude de la radioactivité des roches. *Bull. Centre Phys. Nucl., Univ. Libre Bruxelles*, n. 33.
- SILVER L. T., 1963a - The relation between radioactivity and discordance in zircons. *Proc. Conf. 1962, Woods Hole, Mass., NAS-NRC*, 1075, 34-42.
- SILVER L. T., 1963b - The use of cogenetic uranium-lead isotope systems in zircons in geochronology. *Rad. Dating, Proc. Symp. Athens 1962, I.A.E.A., Vienna*, 279-287.
- SILVER L. T., DEUTSCH S., 1961 - Uranium-lead method in zircons. *Ann. N. Y. Acad. Sc.*, 91, 166-180.
- SILVER L. T., DEUTSCH S., 1962 - Uranium-lead isotopic variations in zircons: a case study. *Journ. Geol.*, 71, 721-758.
- YAGODA H., 1949 - Radioactive measurements with nuclear emulsions. *John Wiley and Sons Inc.*, N. Y.