

## 烏山粘土について

種村 光郎\* 村岡 誠\*\*

Résumé

### On the Karasuyama Clay

by

Mitsuo Tanemura & Makoto Muraoka

Karasuyama clay is found at Koisago, Oyamada-mura, Nasugun, Tochigi Prefecture, 14 km north of Karasuyama Station on Karasuyama Line. The bed was deposited as a member of Pliocene Ouchi-bed and widely crops out at the eastern part of the surveyed area. Two clay beds, 0-2.5 m apart, are known in this district, and thickness of the upper bed is 0-1.5 m and that of the lower one is 1.5 m. The clay of good quality is only found in the vicinity of Koisago, and those in other places show a tendency to have contained quartz grains in mixture.

The clay is chiefly composed of magnesian montmollironite and also contains a small amount of kaolin or allophane as accessories.

Washed clay is used for the raw material of pencil leads.

### 要 旨

烏山粘土の産地は、烏山線烏山駅の北方直距 14 km の栃木県那須郡大山田村小砂にあり、交通・運搬はきわめて便利である。

粘土層は漸新期の内層中に胚胎し、調査区域の東半部に広範囲に亘って露出しているが、良質粘土を産出するのは小砂附近に限られ、該地以南においては、粘土が砂粒に富む傾向を示している。粘土層の厚さは、所によって多少の相違を示しているが、小砂附近においては、上層粘土が 0~1.5 m 下層粘土が 1.5 m の厚さを示しており、相互に 0~2.5 m の間隔を隔てている。

粘土は黄白ないし黄褐色の塊状鉱として産出し、化学分析、熱分析、電子顕微鏡観察等による試験結果を総合すると、主成分鉱物はマグネシヤ、モンモリロナイトで副成分としてきわめて少量のカオリン鉱物またはアロヘン含有しているものと認められる。また随伴鉱物として相当量の石英粒を伴っているのが常である。

山元においてはこの粘土を採掘し、水簸を行った後、鉛筆の黒芯原料として、主として東京方面に販売している。

### 1. 緒 言

烏山粘土は栃木県那須郡大山田村<sup>こいさこ</sup>字小砂より産出し、

\* 鉱床部  
\*\* 元所員

昭和 9 年頃より現在に至るまで優良な鉛筆黒芯原料として利用されている。

黒芯原料として最も強く要望される要素は、粒度が小さく、かつ一定していることおよび低温度で焼締りが良好であることの 3 つであるが、この粘土は上記の要素を具備し、該原料として本邦唯一の品質良好なものといわれている。

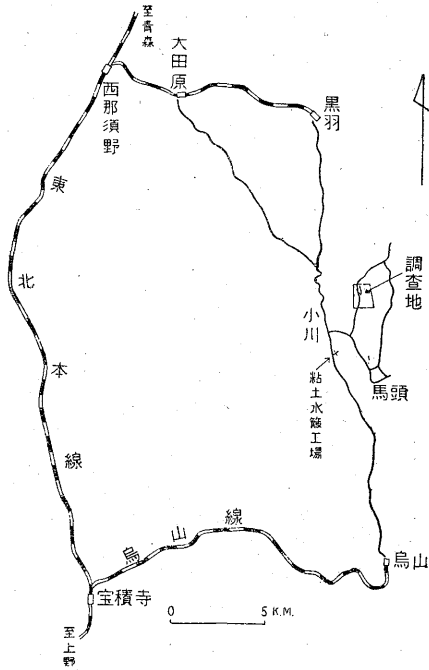
筆者等はカオリナイト粘土研究の一環として、昭和 26 年 10 月 5 日より 4 日間に亘り烏山粘土の調査に従事し、その後引き続き室内実験を行い、その結果を一応纏めたのでここに概要を報告する。

### 2. 位置および交通

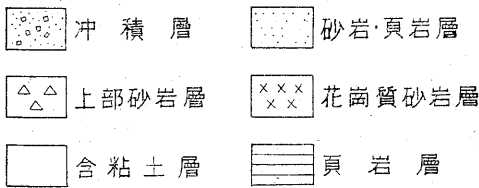
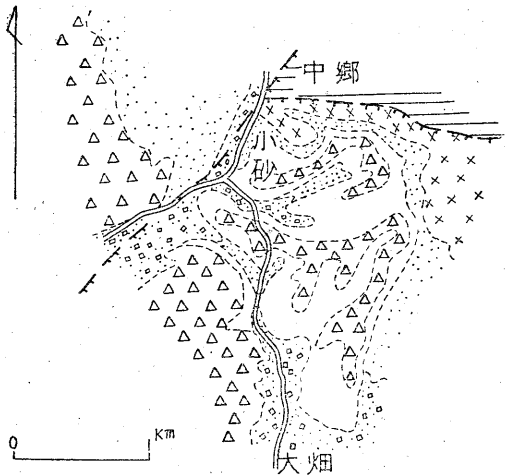
烏山粘土の産地は栃木県那須郡大山田村字小砂にあつて、烏山線烏山駅の北方直距 14 km の所にある。当地に至るには該駅より馬頭行きバスに乗り小川で下車すれば、それより鉱山現場まで徒歩約 3.5 km で達しうる。鉱石は採掘現場より直接トラックに積み、大山田村小川で水簸を行い、袋づめとし、黒羽駅経由で主として東京方面に出荷している。交通、運搬はいずれも便利である。

### 3. 地 質

鉱床附近は漸新期に属する内層よりなり、該層は走向 N 30~40°W、傾斜 15~20°S を示し、上部より次のような部層に分けられる。



第1図 鳥山粘土賦存位置図



第 2 図

上部砂岩層 70~80 m  
含粘土層 10~15 m

砂岩・頁岩層 70~80 m

花崗質砂岩層 20~30 m

大内層下部の頁岩層は濃緑色ないし紫色を呈する緻密な頁岩よりなり、走向  $N 70^{\circ} W$ 、傾斜  $20^{\circ} S$  を示している。花崗質砂岩層は灰白色を呈し、粒径は  $1 \sim 2 \text{ mm}$  程度で軟弱で、前記頁岩層とは断層で境されている。砂岩・頁岩層は下位の花崗質砂岩層が余り岩相の変化を示さないのに対し、著しく岩相の変化に富んでいて、北部では砂岩が多く、南部に行くに従い頁岩に移過する一般的傾向を示している。花崗質砂岩層とは整合関係を示している。含粘土層は北東部において最も良質な粘土層を挟有しているが、南部に行くに従い、全層厚が厚くなるとともに砂質になり、粘土層の発達は良好でない。また中郷を通る  $N 30^{\circ} E$  の方向に走る断層以西においては含粘土層はまったく認められない。良質粘土賦存区域は主として小砂附近に限られている。上部砂岩層は中郷を通る断層以東では含粘土層を、以西では砂岩・頁岩層を不整合に被覆して発達している。砂岩は凝灰質で一般に淡黄色ないし淡褐色を呈し、粒径  $1 \text{ mm}$  以下のやゝ硬質の砂岩である。この砂岩は芦野石と称せられ建築用石材として採掘利用されている。介在する頁岩は淡褐色を呈し、層理明瞭でやゝ軟弱である。

#### 4. 鉱床

鉱床の層厚を、北東部の小砂附近と南部の大畑附近とに区別して比較すると、北部においては全般的に薄く、南部においては厚い傾向が認められる。しかし、粘土の品質は北部では良質で、南部に行くに従い砂質となる。最も良好な発達を示す北東部小砂附近においては含粘土層を上位より次のように細分することができる。

- |      |          |         |
|------|----------|---------|
| 1 番層 | 砂質粘土層    | 1~4 m   |
| 2 番層 | 砂岩層      | 0.5~1 m |
| 3 番層 | 砂質粘土層    | 1~2 m   |
| 4 番層 | 黄白色粘土層   | 0~1.5 m |
| 5 番層 | 褐色含礫粘土層  | 0~2.0 m |
| 6 番層 | 青灰色含礫粘土層 | 0.5 m   |
| 7 番層 | 黄色粘土層    | 1.5 m   |
| 8 番層 | 淡褐色粘土層   | 0.8 m   |

これらのうち稼行の対象となる粘土層は4番層および7番層であるが、これ以外の各層も所により稼行の対象となしうる場合である。含粘土層中には偽層の発達が著しく、時に4番層と5番層は欠除し、直接3番層が6番層を被覆している場合もある。またこれと反対に含礫砂質粘土層を挟有するような場合もある。7番層は他の粘土層に比較し、安定した状態にある。以上いずれの粘土層においても粘板岩の小岩片を含んでおり、その含有量は

各場所により非常に異なり一定していない。またこの岩片は地層の層理に平行し縞状の配列を示している。

5. 組成鉱物

4番層・7番層および8番層中より産する粘土につき化学分析・示差熱分析・顕微鏡観察ならびに電子顕微鏡観察を行い組成鉱物を究明した。

5.1 化学分析

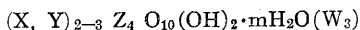
採集した原土はいずれも黄白色ないし黄褐色の塊状鉱で、粘土鉱物以外に相当量の石英粒および他の岩石片が混在しているので、夾雑物を除去するために水簸を実施し、顕微鏡で観察してほとんど石英および他の岩石片が認められなくなるまで反復実施したものを試料とした。4番層よりの水簸物(No. 1), 7番層よりの水簸物(No. 2)および8番層よりの水簸物(No. 3)の3種につき化学分析を行い、第1表に示すような結果を得た。第1表

第 1 表

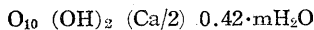
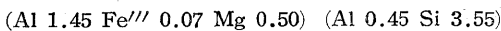
	No. 1		No. 2		No. 3	
	Wt %	Mol. prop	Wt %	Mol. prop	Wt %	Mol. prop
SiO <sub>2</sub>	46.52	.775	45.20	.753	47.32	.788
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	21.15	.207	22.17	.218	24.94	.244
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.30	.008	2.03	.013	6.73	.043
CaO	2.63	.046	1.72	.030	3.31	.059
MgO	4.04	.110	5.6	.140	4.23	.105
Ig. loss	24.05	1.336	22.43	1.246	16.13	.896
Total	99.69		99.17		102.66	

分析：筆者

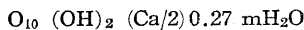
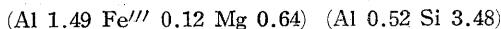
の分析値は各試料がいずれもマグネシヤ・モンモリロナイトに属することを示しているが、その中No. 3ではSiO<sub>2</sub>およびAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の量が、他の試料よりやゝ高くなっている。これについての詳細は後述するが、明らかに純粋なモンモリロナイトの化学成分とはいへない。すなわち C. S. Ross および S. B. Hendricks (1945) の方式を利用して上記の化学成分より各分子比を算出し、モンモリロナイト類の分子式



にあてはめると、No. 1は



No. 2は

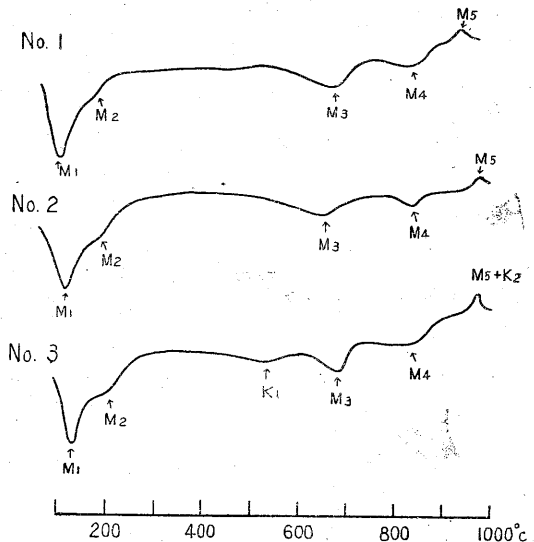


となり、鉄を少量含んだマグネシヤモンモリロナイトに相当することが判るのであるが、上記試料ではX, Y項の係数が2~3の間にあり、Z項の係数が4となるにもかかわらず、試料No. 3ではX, Y項の係数は3より、Z項の係数は4より大となり、モンモリロナイトにカオリン鉱物あるいはアロヘン等を混じているものと考え

ざるを得ない。

5.2 示差熱分析

試料 No. 1, No. 2 および No. 3 の3種の示差熱分析結果は第3図に示す通りである。



第 3 図

No. 1, No. 2 の実験結果ではモンモリロナイトの特徴ある5つ (M<sub>1</sub>, M<sub>2</sub>, M<sub>3</sub>, M<sub>4</sub> および M<sub>5</sub>) の吸熱ならびに発熱の peak を示している。No. 3 では上記2試料に認められる M<sub>1</sub>~M<sub>4</sub> の吸熱 peak 以外に 550°C にモンモリロナイトには認められない吸熱 peak (K<sub>1</sub>) が認められ、これはおそらくはカオリン鉱物の混入に起因するものであろう。また 980~990°C にモンモリロナイトの M<sub>5</sub> の発熱 peak よりやゝ大きい peak が認められ、これはおそらくモンモリロナイトの発熱 peak とカオリン鉱物の発熱 peak とが重なったものであろう。この混合 peak の温度は両者の割合により変化を生ずる(これについては別に発表の予定)。

No. 1 および No. 2 の示差熱分析曲線の形には著しい差異は認められないが、M<sub>2</sub> の吸熱 peak では後者がやゝ大きく、これは含有されるカルシウムの量に比例して変化している。また M<sub>5</sub> の発熱 peak ではモンモリロナイト中のマグネシウムの量の多い後者の方が発熱温度が高くなっている。

以上の結果をまとめると、No. 1 および No. 2 は比較的純粋なモンモリロナイトであることが判り、これは化学分析結果とも一致する。また No. 3 はモンモリロナイトに少量のカオリン鉱物を混じているものと考えられ、これもまた化学分析の結果を肯定している。

5.3 顕微鏡観察

化学分析を行つた試料の屈折率の測定を行うためさらに次のような方法を行つた。すなわち試料各 50g を50

ccの蒸留水中に分散させると同時に塩化ナトリウムを多量に加え、蒸気浴上で熱して、充分かきまぜた後、24時間放置し、上層液のみをサイホンで取り遠心分離機を使用して濃集し、液中より試料部分を取り出し、ガラス板上で25~30°Cで乾燥し、乾燥物を細かくリボン状に細分したものを測定用試料とした。このようにして作製された試料では細かいモンモリロナイトの結晶片は、同じ方位をとって配列して、1つの大きいモンモリロナイトの膜をつくる(C.S. Ross および S.B. Hendricks)。

以上のようにして得られた試料の屈折率を測定した結果、次に示すような数値が得られた。

試料番号	No. 1	No. 2	No. 3
<i>a</i>	1.486	1.503	1.511
<i>r</i>	1.517	1.534	1.538
<i>r-a</i>	0.029	0.031	0.027

試料はいずれも純粋に近く、異種鉱物として含有されているものはきわめて少ない。また夾雑物の粒子はきわめて微細なために鉱物名を明らかにすることはできなかつた。

試料 No. 1 および No. 2 はモンモリロナイトに相当するが、No. 3 ではバイデライトに近い値を示している。しかし示差熱分析の結果ではモンモリロナイトとともにカオリン鉱物をきわめて少量含有することが推定されるので、屈折率がやゝ高い値を示すのもこれらに由来するものと考えられる。

#### 5.4 電子顕微鏡観察

電子顕微鏡によつて観察した試料はいずれも薄い不定形の外形を示すが、時に薄い矩形に近い結晶を示す鉱物が認められ、前者はモンモリロナイトで後者はカオリン鉱物と考えられる。

No. 3 中には円い外形を示す鉱物と、最大長さ 0.2 μ、幅 0.1 μ 程度の短冊状を呈する鉱物とが認められる。前者はアロヘーンで後者はエンデライトもしくはハロイサイトと推定される(図版1)。

以上の結果を総合すれば、烏山粘土の組成鉱物はマグネシヤモンモリロナイトを主成分鉱物とし、きわめて少量のエンデライトあるいはハロイサイトおよびアロヘーンを含有する粘土で、工場水鏡製品にはこのほか石英を含有する粘土であると結論される。

#### 6. 結 語

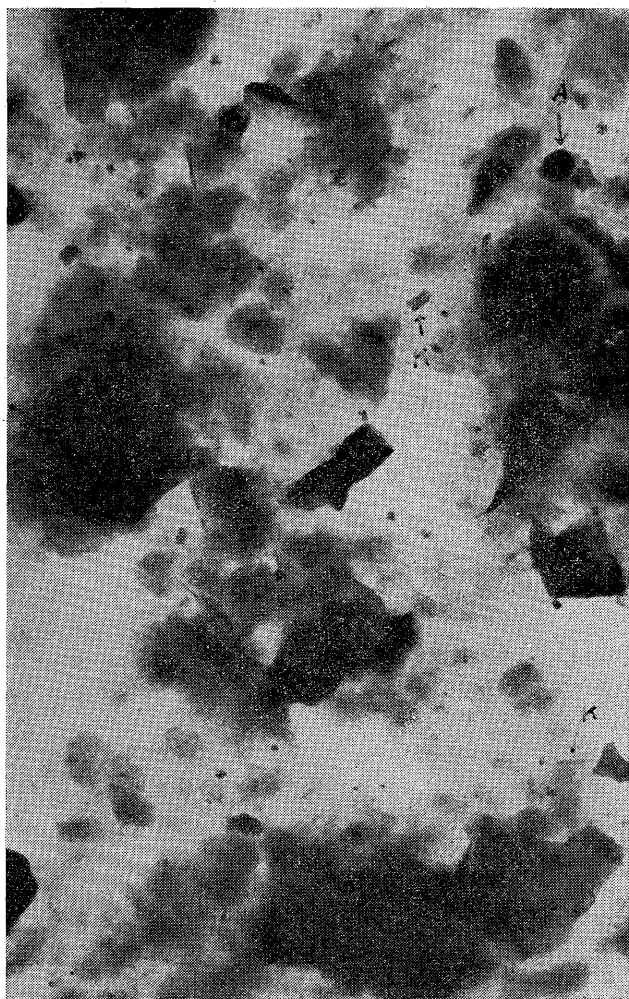
烏山粘土が鉛筆の黒芯原料として非常に優良であることは、相当以前より知られていたのであるが、今回の調査によつて、その主成分鉱物がマグネシヤモンモリロナイトで、ほかに少量のカオリン鉱物またはアロヘーンを随伴していることが判つた。これは、化学分析、示差熱分析、偏光顕微鏡および電子顕微鏡観察等、いずれの試験についても同じ結果が得られたものである。

今回行つた各種の試験は、単に烏山粘土の研究という意味ばかりでなく、各種の粘土類の成因を究明するための一段階としての研究という意義をも持つている。すなわち各種の試験を詳細に行つた結果初めてほゞ予期したような成果を収めたのであるが、特に示差熱分析の結果は将来粘土の生成を究明する上に重大な手掛りを与えるものと思われる。

(昭和26年10月調査)

#### 参 考 文 献

- 1) Ross, C.S. and Hendricks, S. B.: U.S. Geol. Surv., Prof. Papers, 205-B, 23, 1945
- 2) Ross, C. S. and Hendricks, S. B.: Journ. Amer. Ceram. Soc., 28, 173, 1945
- 3) 須藤俊男: 粘土鉱物, 岩波全書, 178, 1953



図版1 試料 No. 3 A: Allophane K: Kaolin 1 μ