

岐阜県多治見・土岐地方の耐火粘土鉱床の研究

—第2報 大洞木節と神明カオリンの産状および2, 3の鉱物学的性質について—

藤井 紀之* 大森 貞子**

Study on the Fireclay Deposits in Tajimi and Toki Districts, Gifu Prefecture
—Geological Occurrences and Some Mineralogical Properties of Obora
Kibushi-clay and Shimmei Kaolin—

By

Noriyuki FUJII and Teiko OMORI

Abstract

The Pliocene Tokiguchi formation at Obora area, which deposited in a irregular-shaped swamp, includes a few kinds of fireclay. They are kibushi-clay, so-called kaolin and gaerome-clay.

Gaerome-clay distributes at only the northern part of this area, and is mainly composed of white clay and fine to coarse grain quartz accompanying a little residual feldspar. It is appeared that gaerome-clay is secondary sediment originating from weathered granitic rock.

The name "kaolin" means white-colored china clay being used as raw material for porcelain. The white clay beds occur intermittently at two specific horizons in the Tokiguchi formation. In some cases, it was observed that white clay grades into crystal tuff. Moreover, microscopic observation showed that arcuate shards of volcanic glass lie in isotropic matrix. These facts suggest that "kaolin" was formed diagenetically from volcanic ash.

In the Tokiguchi formation, a few kibushi-clay beds occur accompanying with lignite-seams. Kibushi-clay is soft and plastic underclay with coal fragments. The most workable bed of this clay is 1 to 3 meters in thickness and distributes over the most part of the basin excepting the northeastern part. And the uppermost bed is generally more sandy than others, and develops at only the northeastern and western parts of the basin.

About one hundred specimens of these clays were investigated by X-ray analysis, differential thermal analysis, electron micrographic observation, rapid chemical analysis etc. As results of these investigations, mineral compositions of these clays have been established. Especially, it is very notable that each of three kinds of fireclays is mainly composed of specific type of kaolin mineral respectively. Either of so-called kaolin and washed gaerome-clay largely consists of randomly interstratified halloysite-metahalloysite.

But the former includes lath shaped crystals 0.1 to 0.3 microns in length, and the latter globular crystals about 0.3 microns in diameter.

While most of kibushi-clay are composed mainly of disordered kaolinite and fine grain quartz accompanying montmorillonite and small amounts of illite. Most of kaolinite are of incompletely hexagonal plate 0.1 to 0.2 microns in diameter.

It is thought that kibushi-clay was derived from other source materials than that of "kaolin".

* 鉱床部

** 技術部

要 旨

大洞地区の夾粘土層(土岐口累層)は主として古生層を基盤とする複雑な形状の湖沼に堆積したもので、数枚の亜炭層を挟有し、これに伴って木節粘土層が発達している。また局部的ではあるが蛙目粘土も賦存している。その他、白色粘土の薄層がほぼ一定の層準に断続して分布し、“カオリン”として採掘されている。

これら各種の粘土は、産状、組成、カオリン鉱物の種類、耐火度などのどの点においても、それぞれ明瞭な特徴を持っている。

蛙目粘土は多量の石英粒および若干の長石を伴い、一部に凝灰岩が混在しているが大部分は風化された花崗岩が2次的に堆積したものと考えられる。粘土鉱物としてはメタハロイサイトに近いハロイサイトを主成分とする。“カオリン”は鏡下で火山ガラスの痕跡を認めたこと、一部で結晶凝灰岩と漸移することなどから、凝灰岩から変質、生成されたものと推定される。少量の石英を混じえるほかは大部分ハロイサイトとメタハロイサイトの不規則混合層からなる。耐火度もSK32~36で安定した性質を示す。木節粘土は上中下の3つの層準に賦存する。各層準とも、基盤の地形、堆積機構などと関連して、粘土層の発達は一様ではない。おもに disorder 型のカオリナイトと石英からなり、ほかにモンモリロナイトおよびイライトを伴う。耐火度はSK26から34までで一定しないが、SK31以上の良質のものは比較的少ない。なお埋蔵量としては、蛙目粘土約10万t，“カオリン”約8万t，木節粘土約220万tが予想される。

このように同じ地層中に挟在する各種の粘土の産状・性質および組成に明瞭な違いが認められることは、当然それぞれの形成過程の相違によるものと考えられる。

1. 緒 言

第1報(小名田木節の産状および組成について)に引続き、多治見市と土岐市の境界付近に当たる大洞・生田一帯に賦存する耐火粘土鉱床について報告する。

この地区では木節粘土が大量に採掘されているが、その他に“神明カオリン”の名で知られる白色粘土を産出する。また局部的ではあるが蛙目粘土も賦存している。

これらの資源はいずれも下部鮮新統の土岐口累層中に賦存している。このように性質の異なる粘土質資源が同一の地層のなかに存在することは、鉱床の堆積機構、粘土鉱物の起源などの基本的問題とも関連する興味深い現象である。ちなみにここでいう“カオリン”とは、白色磁器用に使われている粘土の通称で、鉱物としてのカ

オリンを意味するものではない。主成分としてカオリナイト・ハロイサイトなどのカオリン鉱物を含む点では木節などの耐火粘土と同じであるが、焼成呈色が白色であること、木節や蛙目に較べてやや可塑性が乏しく焼成収縮が小さいことなどが目立った特徴といわれている。

なお、この地区の木節粘土および“カオリン”に関する従来の研究としては、野沢和久(1955b)、杉村隆・福尾券一(1955)らの報告がある。

今回の調査に際しては、宇野沢昭技官^{注1)}の実測による5,000分の1地形図を使用した。さらに土岐口累層はほぼ水平に近い分布状態を示し構造を把握することが難かしいため、精密な水準測量によって賦存標高をも加味した柱状図を作製し、対比および構造の把握を行なった。また今回から一つの試みとして、現地において多数の試料の迅速化学分析を行ない、若干の興味ある結果を得た。

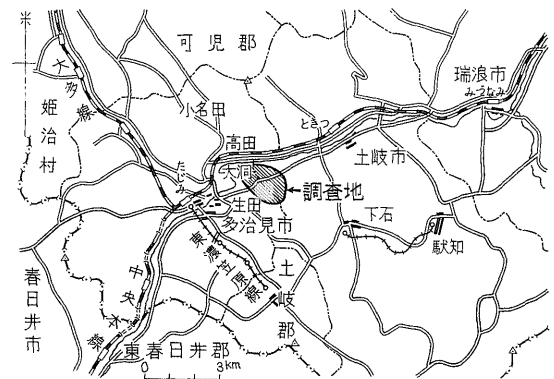
研究実施に当たって土岐津窯業原料協同組合および稲垣鉱業株式会社から多くの御協力を得た。また岐阜県陶磁器試験場からは、化学分析用に試験室を使用させていただくなど物心両面にわたって多大の御援助をいただいた。耐火度試験は東京窯業(株)多治見工場長富田剛守氏の御厚意によるものである。また電子顕微鏡観察には鉱床部五十嵐俊雄技官の御援助をいただいた。

とくに陶磁器試験場の太田転平・朽名重治両技師、土岐津原料組合の安藤盛三の3氏からは個人的にも多くの御配慮と御支援をいただいた。これらの方々および各機関に、この機会に深く謝意を表する次第である。

2. 調査地域

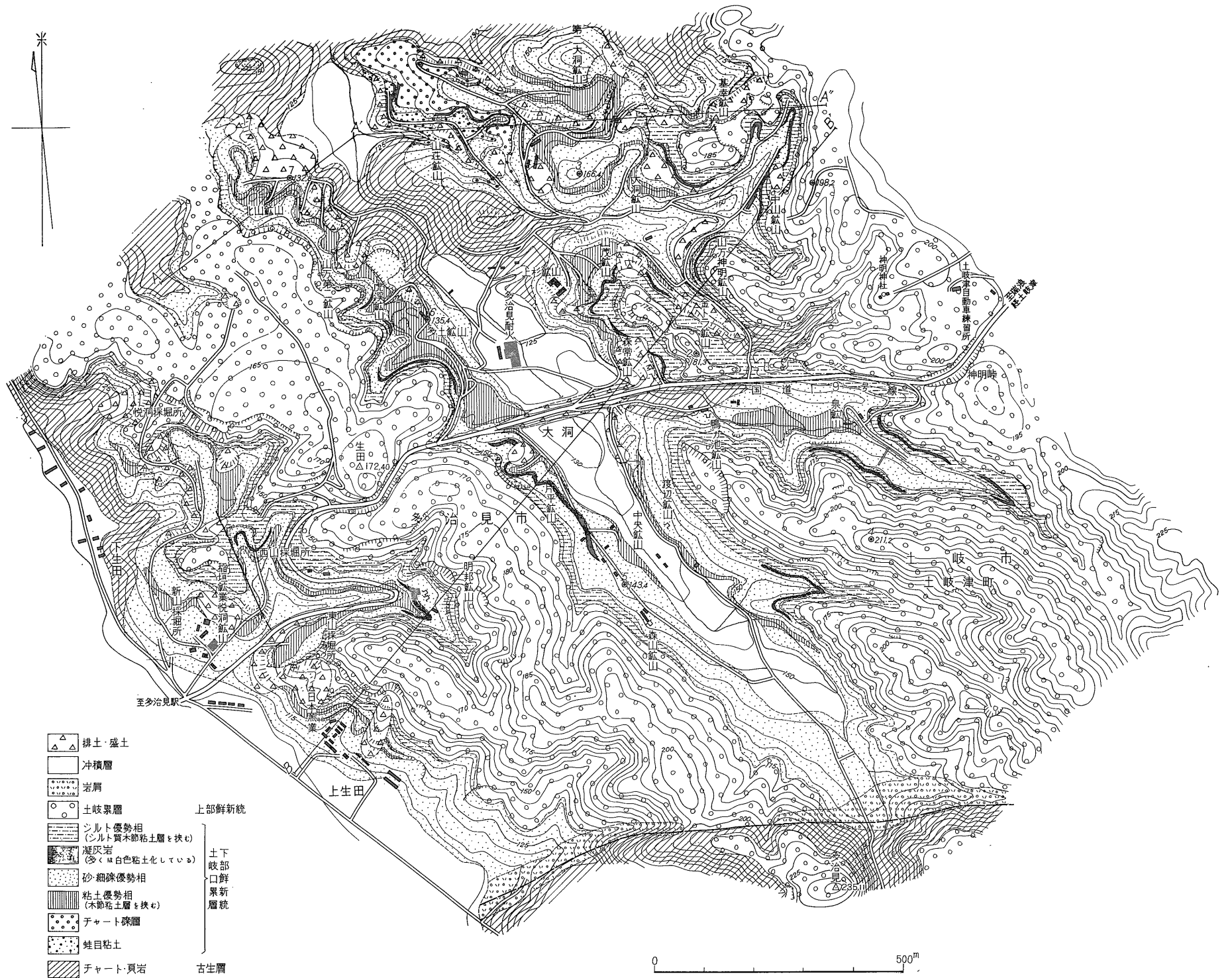
2.1 位置および交通

調査地域は多治見市の東部生田から土岐市の西端大洞



第1図 位置図

注1) 当時地形課，現在応用地質部



第2図 大洞付近地質図

へかけての一带で、東西約2km、南北約1.5kmの範囲である。調査地の中央を国道19号線が東西に縦断しており、中央線多治見駅および土岐市駅へはいずれもバスで10分程度という交通至便な所である(第1図)。

2.2 鉱業権

域内に存在する鉱業権(判明分のみ)は次のとおりである。

第1表 大洞地区の鉱業権

登録番号	鉱種名	鉱山名	鉱業権者
岐採登702号	耐火粘土	第二土岐津	土岐市土岐口財産区
“ 827号	“	渡 辺	渡辺助三郎
“ 834号	けい石・耐火粘土	第二大洞	長谷川基(他4)
“ 867号	耐火粘土	基 幸	長谷川幸一
“ 953号	耐火粘土	中 山	土岐市土岐口財産区
“ 819号 820号	けい石・耐火粘土	悦 洞	稲垣鉱業㈱
“ 828号	“	森 山	森本さかえ
岐租登 46号	耐火粘土	山 茂	山茂窯業㈱
“ 50号	“	上 杉	上杉末松
“ 58号	“	山万神明	虎沢茂樹
“ 72号	“	渡 辺	渡辺助三郎
“ 73号	“	中 央	佐藤岩雄
“ 84号	“	泉	加藤重男
“ 96号	“	大 洞	長谷川基
“ 78号	けい石・耐火粘土	多 土	金子大亮
“ 85号	“	虎 溪	虎沢岩夫

(鉱区一覧による)

2.3 開発状況

当地区の木節粘土は大洞木節または生田木節の名で知られていたが、盛んに採掘されるようになったのは戦後のことである。調査当時稼行していた鉱山数は主として“カオリン”を対象とするもの4、蛙目粘土を対象とするもの1、木節粘土をおもに採掘しているものは19に達する。このうち坑内掘を行なっているのは8鉱山で、他はすべて露天掘で採掘を行なっている。当時の毎月の生産量は、木節粘土等約6,000t、“カオリン”(3級以下の低品位のものも含む)約500tであった。そのおもな用途は耐火物、陶磁器、タイル等で、その他鑄型粘結剤としても大量に使用されている。

当地区は地理的な好条件に恵まれていることもあって、その後も順調に開発が進められ生産量も急増している。

3. 地 形

調査地は標高160~220mの丘陵からなり、中央に大洞と呼ばれる幅広い谷が南東から北西へ伸びている。丘陵の大部分は厚い砂礫層(土岐累層)からなり、頂面が比較的平坦なのは砂礫層の沖積面の跡と考えられる。頂面の標高は調査地の北西部でもっとも低く、東および南へ移行するにつれて高くなる傾向がある。これは砂礫層堆積後の傾動運動の影響と思われる。とりわけ調査地の南端には衝上断層が東西に走り、丘陵の頂面も階段状に高くなっている。

4. 地質概説

調査地域の地質を構成しているのは、主として古生層からなる基盤岩類とこれを覆う鮮新世の瀬戸層群である。その他南部にはEW性の断層に伴う岩層が局部的に分布している(第2図)。

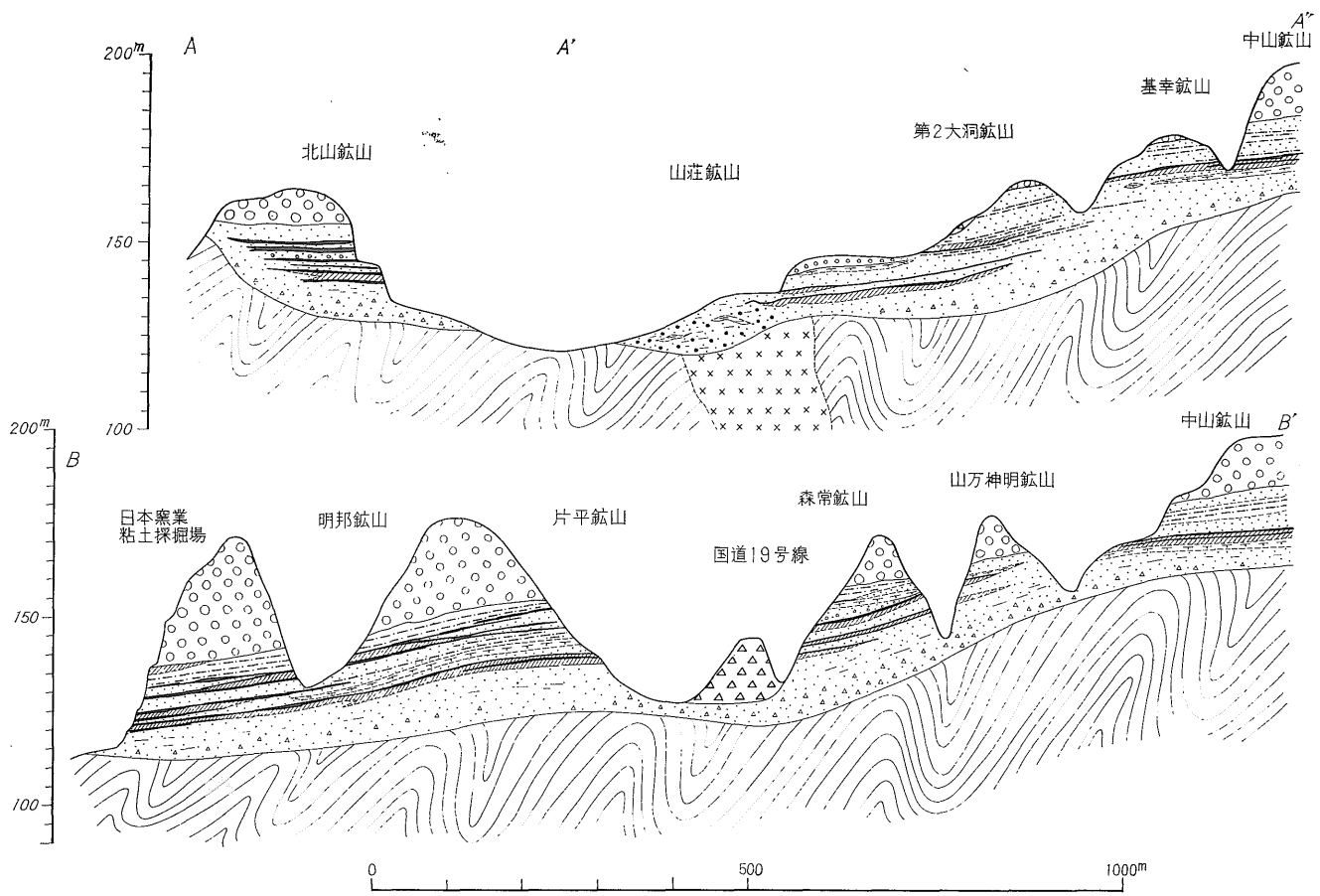
古生層は大部分がチャートで一部に黒色頁岩が分布する。正確な構造は不明であるが、走向はほぼEWに近くNまたはSに70°以上の傾斜を示すことが多い。また鮮新統に直接覆われている所では表層部が著しい変質を蒙り、チャートは脱色されて脆弱になり黒色頁岩は軟弱な黒色土に変わっている。これは小名田地区でもしばしば認められた現象で、鮮新統堆積当時の風化作用によるものと考えられる(藤井, 1967)。

なお北部の山荘鉱山周辺の古生層は、かなり顕著な熱変質を受けて粒状のチャートを生じ、一部には花崗岩質の細脈が貫いている。また付近の瀬戸層群中には、花崗岩類に由来すると思われる蛙目粘土が局部的に挟在している。これらの諸事実からみて、この付近には花崗岩類の小規模な岩株または岩脈が存在するのと考えられるのが妥当である。直接露出している部分がみだされていないので、その正確な岩相は不明である。

瀬戸層群は下部の土岐口累層(夾粘土層)と上部の土岐累層(砂礫層)とに分けられる。両者は全体としては非整合の関係にある。

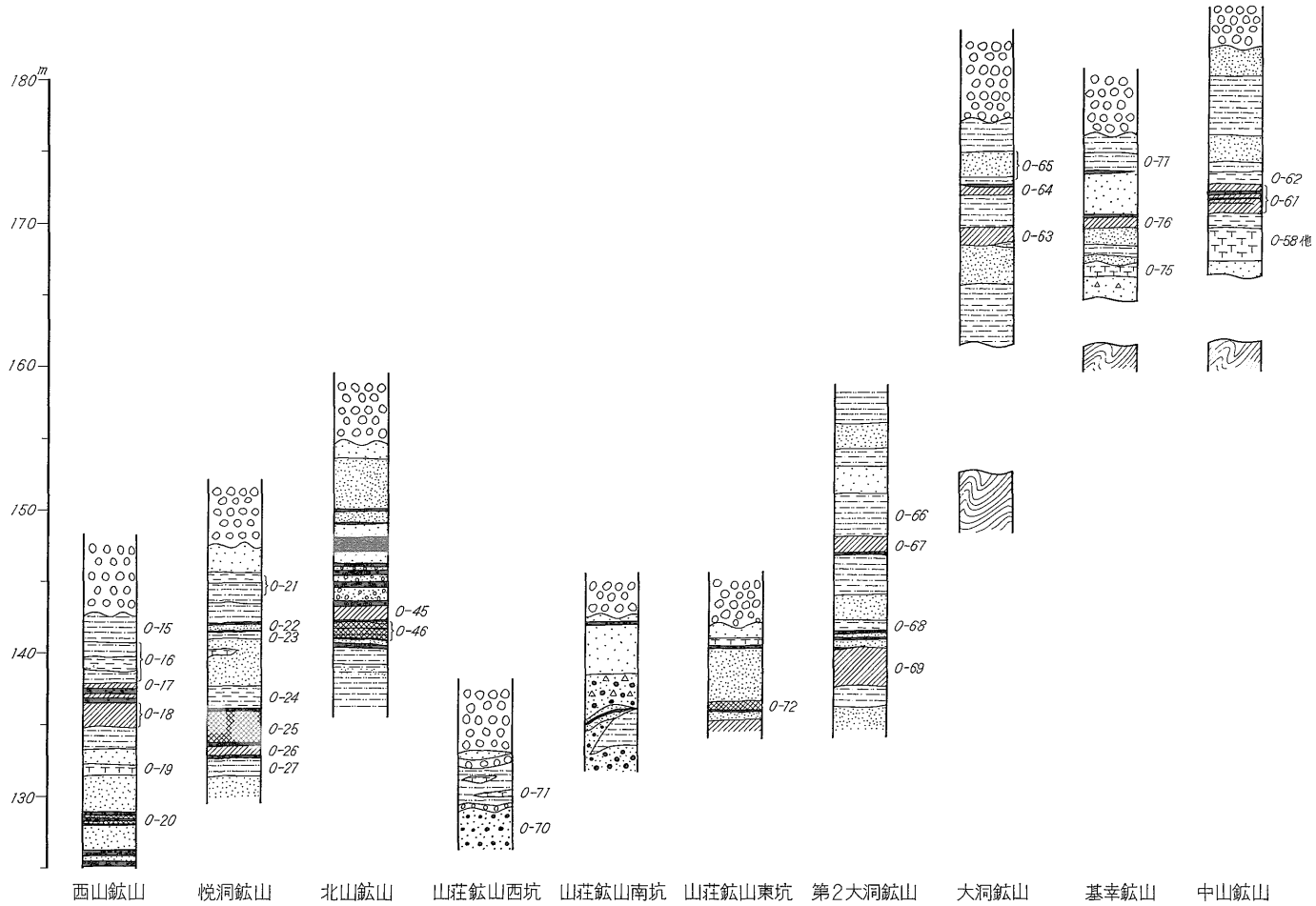
土岐口累層は、調査地の全域にわたって分布する。粘土・シルト・砂および細礫の頻繁な互層からなり、数枚の粗悪な亜炭層を挟有する。この亜炭層に伴ってしばしば木節粘土層が発達する。また局部的には蛙目粘土も賦存している。その他、おそらく凝灰岩から生じたと思われる白色粘土層がほぼ同一の層準に断続して分布している。全体の層厚は最大30m程度であるが、基盤の凹凸に支配されて膨縮が著しい(第3図)。

土岐累層は土岐口累層を覆って広く分布する。径2~



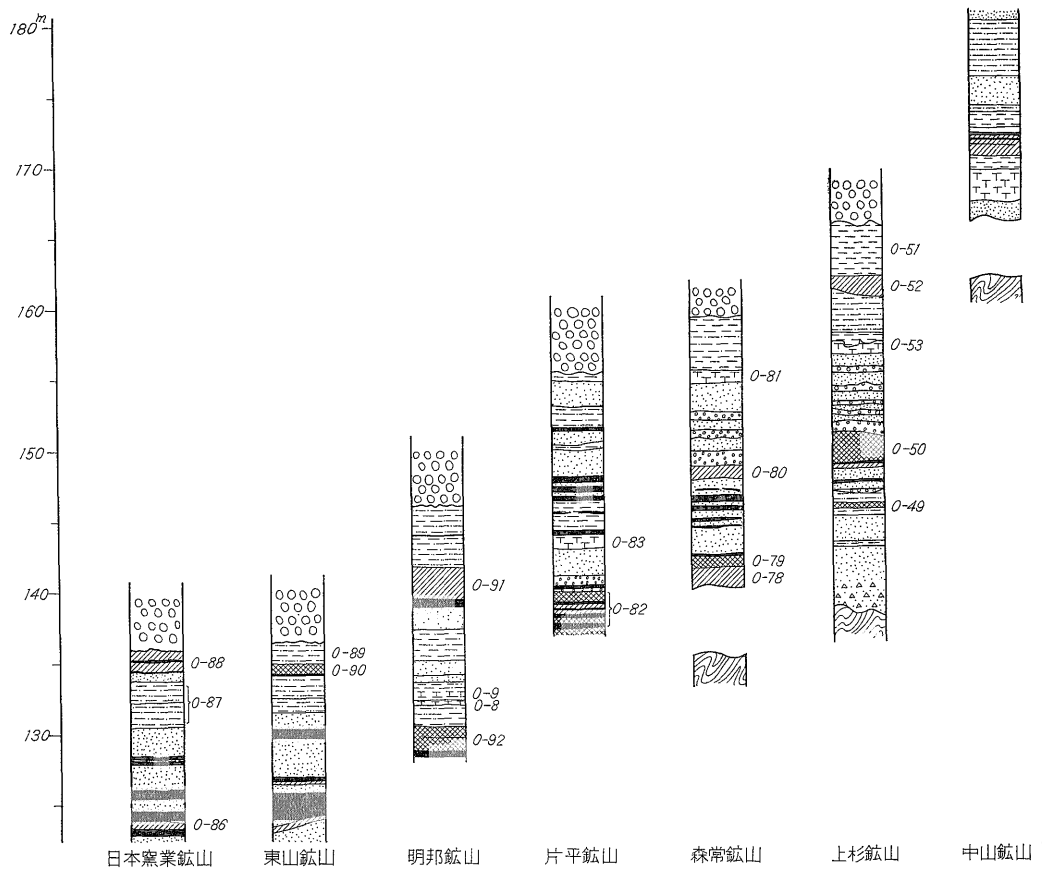
- 1. 排土・盛土 2. 土岐累層 3. 凝灰岩 (カオリン) 4. 粘土・シルト優勢相 5. 木節粘土・亜炭 6. 砂・細礫優勢相
- 7. チャート礫 8. 蛙目粘土 9. 花崗岩類 10. 古生層 (3~8土岐口累層)

第3図 大洞地区地質断面図

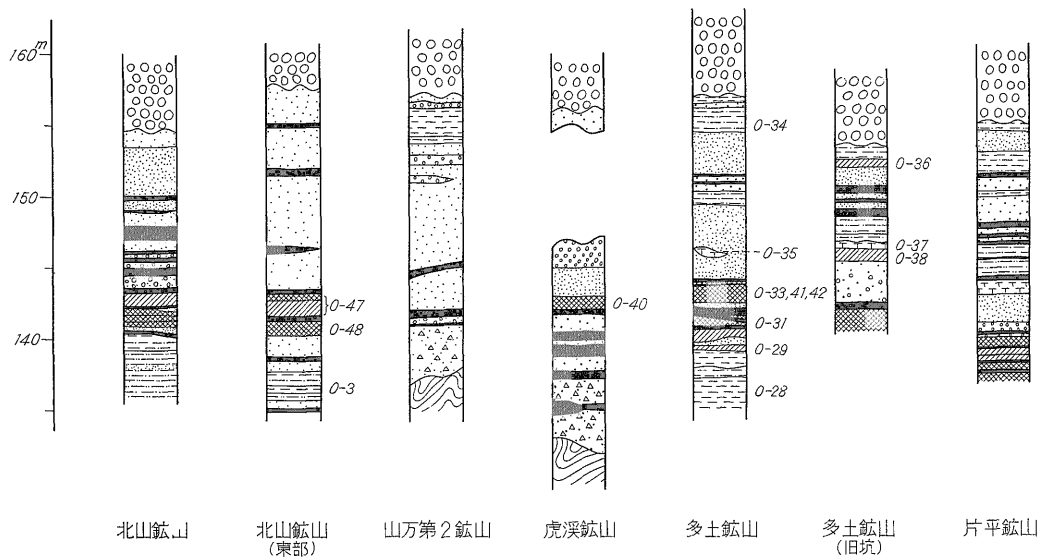


第4図 土岐口累層の地質柱状図(1)

凡例は第3図と同じ, 第5, 6図も同様



第5図 土岐口累層の地質柱状図(2)



第6図 土岐口累層の地質柱状図(3)

10cm 程度の円礫と石英質の砂からなり、無層理で厚さは最大45mに達する。礫は大部分はチャート・頁岩など古生層から由来したもので、一部に花崗岩・石英斑岩等の礫も含まれている。

瀬戸層群の一般走向はN45°W～NSで、SW～Wに5°内外の緩傾斜をなしている。しかし基盤の潜丘に接する所では、基盤の地形に対応して10°以上の傾斜を示すことも少なくない。

5. 耐火粘土鉱床

すでに述べたように、当地区には木節粘土・蛙目粘土および“カオリン”など数種類の耐火粘土を産出する。そしてこれらはすべて鮮新統下部の土岐口累層中に賦存している。また本累層中に挟在する粘土・シルト・シルト質砂などは、耐火性もあり（SK26～30）粘性に富むものも多いので、低級耐火物、窯用土、鋳型粘結剤などに利用され得るものが大部分である。したがって土岐口累層は粗粒の砂・礫の多い部分を除けば、大部分が鉱床と考えると差支えないと思われる。

5.1 鉱床の賦存状況

調査地域の土岐口累層は垂直的にも水平的にも岩相の変化が著しい。第4～6図は北部、中部および大洞の谷沿いに配列する一連の鉱山の柱状図を、それぞれの賦存標高に対応させて示したものである。以下これらの図にもとづいて、鉱床の賦存状況について記述する。

(1) 蛙目粘土

蛙目粘土が賦存するのは山荘鉱山だけで、しかも隣接する鉱山に較べると一段低い位置に賦存している（第4図）。厚さは精々数m程度で砂・シルトなどのレンズを挟み、しばしば偽層が発達している。

なお特徴的な現象として、蛙目粘土の少し上位の層準に凝灰岩の薄層とチャートの厚い礫層が発達する。礫は大部分は円礫であるが歪角礫程度のもも少なくない。径は2～10cmのものが多いが一部には30cm以上のものも認められる。確認された厚さは最大約8mで、膨縮が著しく分布範囲も蛙目粘土のそれとほぼ一致している。

(2) “カオリン”

“カオリン”として採掘されている白色粘土層は、土岐口累層のなかのほぼ一定の層準に挟在している。厚さは通常は20cm前後で、膨縮が著しくしばしば尖滅する。中山鉱山付近ではもっともよく発達し、若干砂を混じえたものも含めると厚さが2m以上に達する部分もある。

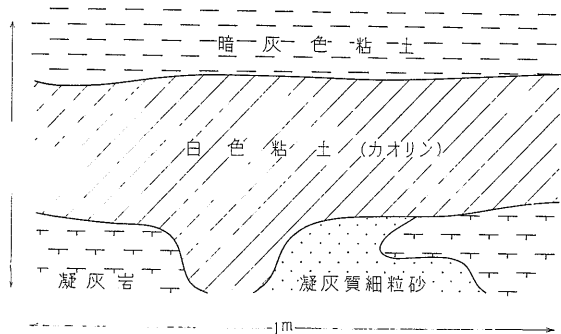
また調査地の中央部では比較的良好に連続して分布している（第5図）。

なお同質の粘土層は、前述のチャート質礫層の下位にも挟在している。これは10cm内外の薄層またはレンズで、分布範囲も限られている。したがって白色粘土の賦存する層準は少なくとも上下2つはあると考えられる（第4図）。

この白色粘土は、その色調、性質などの点で土岐口累層中の他の粘土とはまったく異質のものである。したがってその起源も単なる碎屑物とは考えられない。

一方調査地の中央にある片平鉱山では、白色粘土は認められずその層準には硬質の凝灰岩層が賦存している。また渡辺鉱山東方の谷では、白色粘土が結晶凝灰岩に漸移する状態が確認された（第7図）。

このような産状からみて白色粘土（“カオリン”）は細粒の凝灰岩から変質、生成されたものである可能性が強い。



第7図 凝灰岩とカオリンの漸移関係を示すスケッチ

(3) 木節粘土

木節粘土は大まかに分けて、上中下の3つの層準に挟在している。そのうち最下位のは調査地の北部（第2大洞鉱山付近）に局部的に賦存し、余り連続性はない。厚さは最大2.5mである（第4図）。

次に中位の層準に賦存するものは、この地区でもっとも主要な耐火粘土層である。中山鉱山付近を除く調査地のほぼ全域に分布する。厚さは最大3mに達するが、調査地の西部（西山鉱山・東山鉱山等）では急速に劣化している。この付近では亜炭層はむしろ厚く発達しており、木節粘土層の消長は亜炭層のそれとは必ずしも一致しないようである。この層準の木節粘土は、比較的粒度も細かく良質のものが多い。

最上位の木節粘土は、上位の“カオリン”層よりやや上の層準に賦存している。分布範囲はそれほど広くなく、

査地の北東部および南西部でよく発達し、中央から南東部へかけては急速に劣化する傾向がある。したがって中位の木節粘土層の発達傾向とは丁度逆になっている。この層準の木節粘土の最大の厚さは2.5mで、他の層準のものとは大差はない。しかし全体としてシルト質で、質的には若干低下する傾向が認められる。

(4) その他の粘土

各層準の木節粘土層を挟んで、しばしば粘土・シルトの層が発達する。多くは淡青色～青色で細粒の砂を混じえるものが多い。木節粘土ほどではないが粘性もあり、低品位の粘土として採掘されている。耐火粘土としての性質も低品位の木節粘土と大差はなく、一部にはSK34という高耐火度を示すものもある(第2大洞鉱山)。

5.2 夾粘土層の層序および地質構造

夾粘土層(土岐口累層)はほとんど水平に近い緩い傾斜で分布している。しかし精密に測量した結果では最大50mに近い水準差があることが明らかになった(第5図)。

もちろん水準差がそのまま構造を示すものではなく、前提として層準の正確な対比が必要である。

当地区の土岐口累層は水平的にも垂直的にもかなり激しい岩相の変化を伴っている。しかし“カオリン”・亜炭などを鍵層として、ほぼ全域にわたって対比することが可能である。とくに模式的な層序が見られるのは上杉鉱山で、下位から砂・細礫優勢層、亜炭・木節粘土優勢層、砂・細礫優勢層(“カオリン”層を伴う)、シルト・木節粘土優勢層となっている。この層序は部分的な消長はあるが、ほぼ全域に共通して認められる。ただし北部地区ではそれより下位の層準が現われており、中山鉱山付近では下半部が欠除している(第4～6図)。

また上位の土岐累層(砂礫層)との関係も柱状図に明瞭に示されている。すなわち土岐累層との境界面からカオリン層までの厚さの変化を追跡してみると、森常鉱山、基幸鉱山などでは隣接鉱山に較べて数mの層序が欠除している。しかし多くの場合その厚さは10m前後で、ほとんど一定している。したがって両者の関係は全体としては平行不整合とみるのが妥当である。この関係は小名田地区でも同様である(藤井, 1967)。

上述のような対比の結果として、土岐累層と土岐口累層との境界面の水準の変化は、鮮新世以降の構造運動をほぼ反映しているとみることができる。たとえば大洞の谷沿いの方向では両累層の境界面はほとんど同一の水準にある(第6図)。これに対し谷と斜交または直交する方向では西へ移行するにしたがって境界面の水準は次第に

低くなり、両端では40～50mの水準差を生じている(第4, 5図)。これは鮮新統の堆積後に、NW方向の軸を持ちNE側が隆起した傾動運動があったことを示している。ただし調査地の南東部には露天掘を行なっている鉱山がなく境界面の水準も充分には把握できなかったりで、正確な地質構造は不明である。

なお土岐口累層の分布範囲は、調査地南部ではE-W性の断層によって限られている。断層以南では上位の土岐累層が基盤を直接覆っているところからみて、この断層は土岐口累層の堆積当時すでに存在していたものと思われる。おそらくこの断層崖が堆積盆地の南縁を形成していたものであろう。断層運動は土岐累層堆積後も継続しており、それ以後の運動だけで40m以上の落差を生じている。この断層は南から北へ衝上したもののようで、断層の北側の土岐口累層は当然引ずりその他の影響を蒙ったと考えられる。

調査地の丘陵頂面が東および南へ移行するにつれて次第に高くなっているのは、これらの傾動および断層運動の結果と考えられる。

5.3 夾粘土層の堆積過程

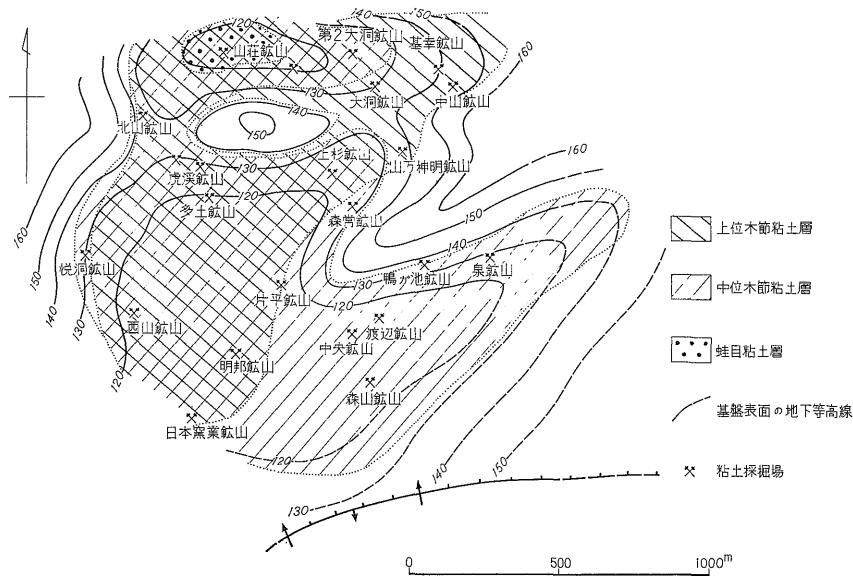
夾粘土層(土岐口累層)の層序および構造を基にして、その堆積過程について考察を行なった。

第8図は地表調査の結果にもとづいて推定した基盤構造について、上述の構造運動による変位を復元し、土岐口累層堆積当時の基盤地形を想定したものである。ただし南東部の基盤構造は土岐口累層の堆積相の変化などから推定した大まかなものであるため、調査地南端の断層運動の影響は無視し、全域について傾動運動に伴う変位の復元のみを行なった。

また堆積過程を明らかにするために、蛙目粘土、中位および上位の木節粘土の分布予想範囲を同図に示した。

この図からも明らかのように、土岐口累層はきわめて屈曲・凹凸に富んだ複雑な形状の湖沼に堆積したと考えられる。基盤の地形からみて大部分の堆積物は東および北東方から幾筋かの流路を経て運ばれたものであろう。なお北部に局部的な凹地を生じているのは、この付近の基盤が風化され易い花崗岩であるためと考えられる。

層序から見ても明らかのように、土岐口累層の堆積はまず北部の凹地における蛙目粘土の沈積からはじまった。このときの堆積盆地はごく小規模なものであったと推定される。また蛙目粘土よりやや上の層準にチャート質の円礫層が局部的に発達しているが、これは蛙目粘土堆積の後に急速に水面が上昇したことを示している。またほぼ同時期に近隣の地域で火山活動がはじまり凝灰岩の薄層が堆積した。このときの水面の上昇に伴って堆積



第8図 大洞盆地における耐火粘土層の堆積過程

盆地は全域に拡がり、中位の木節粘土層が堆積した。このときも北部地区だけ(第2大洞—北山鉱山の一帯)は東西に伸びる基盤の半島によって、中央の主盆地とは分断されていたと考えられる。なお主盆地も東から中央へ突出した半島によって複雑化しており、必ずしも木節粘土が一樣に堆積したとは考えられない。木節粘土がもっともよく発達している地域も、中央の上杉—多士—悦洞鉱山一帯と、南側の泉—渡辺—森山鉱山一帯との2つに分けられるようで、このような発達状況も基盤地形と関連が深いと思われる。

中位の木節粘土層の堆積後ふたたび水面の上昇があったものようで、細礫、粗粒砂などが全域にわたって堆積した。火山灰が降下し凝灰岩が沈積したのはその直後と考えられる。

引き続き上位の木節粘土層が堆積した訳であるが、その発達状況は場所によって著しく異なっている。すなわち北東部の中山鉱山付近と南西部の西山—明邦鉱山付近で厚く発達しているほかは、薄層が断続する程度である。これは粗粒物質が不均等に堆積したため、堆積盆地が一時的に分断され狭められたことによるものであろう。また南東部に上位の木節粘土層がまったく堆積しなかったのは、すでに粗粒物質によって堆積盆地がほとんど埋積されていたか、あるいは堆積途中に断層運動などと関連して基盤が上昇しこの地域だけが陸化したためのいずれかによるものと考えられる。

6. 粘土および粘土鉱物

6.1 試料の処理および研究の方法

耐火粘土の組成を調べるために、採取した多数の試料について顕微鏡観察、X線粉末回折、DTA、化学分析、耐火度測定を行なった。

(1) 試料の採取および処理

試料の採取位置および層準は第4～6図に示したとおりである。試料はすべて層面に直交する方向に溝を掘り、単層の平均的な組成のものになるように注意した。採取した試料は風乾の後粗砕し、4分法で約30gをとり40メッシュに磨砕の後それぞれの試験に供した。

(2) X線粉末回折その他

試料はいずれも少量を水で練り、スライドガラス上に沈殿させて半定方位試料として試験を行なった。またほとんど全部の試料を200℃で1時間加熱し、とくに低角度領域(2～15°・2θ)の回折パターンの変化を検討した。また示差熱天秤によっておもな試料の加熱変化を、電子顕微鏡によって粘土鉱物、とくにカオリン鉱物の形態を比較・検討し、これらを総合のうえ鉱物の同定を行なった。

(3) 化学分析

今回の調査から、とくに現地において主要成分 (SiO_2 , Al_2O_3 , Ig.loss) の迅速分析を行ない、組成の変化を追跡した。また分析結果とX線粉末回折の結果から、各粘土層のなかの鉱物分布の半定量的な検討を行なった。

分析に用いた試料は、さらに100メッシュ以下に細磨し、105~110°Cで乾燥して恒量としてから分析を行なった。Ig.lossの定量は一般に行なわれている方法によるので、とくに言及しない(大森, 1963)。

溶融 試料0.1gをニッケルルツボにとり、約3gのNaOHとともに加熱溶解する。冷却後温水で溶解し、メスフラスコに移して純水を加え250mlとする。これを乾燥汚紙で乾燥ピーカーに汚過し、汚液25mlを100mlメスフラスコおよびピーカーにそれぞれ分取する。

SiO_2 の定量 試料溶液25mlが入っているメスフラスコに希硫酸(3N)を加え、パニラトロフェノールを指示薬として中和し、さらに5ml過剰に加え純水で約90mlとする。これにモリブデン酸アンモニウム10%溶液5mlを加えた後純水で100mlとする。この溶液の黄色を、光電比色計で440mmのフィルターを用い、水を対照液として吸光度を測定する。これを予め SiO_2 標準溶液を用い同条件で作製した検量線で定量する。

Al_2O_3 の定量 試料溶液25mlを分取したピーカーへ1:1の塩酸および酢酸アンモニウムの25%溶液を加え、pH3~4に調整する。指示薬としてCu-PANを加え、加熱の後M/100 EDTAで滴定する。さらに加熱、滴定を繰返し30秒加熱しても桃色に戻らない点を終点とする。計算は次式により行なう。

$$\frac{0.0005098 \times 0.01\text{M} \cdot \text{EDTA 滴定量 (ml)}}{\text{試料量} \left(0.1\text{g} \times \frac{25}{250} \right)} \times 100 = \text{Al}_2\text{O}_3 (\%)$$

この方法による分析所要時間は10試料で約5時間である。 SiO_2 , Al_2O_3 , Ig.lossの合計が93%以上の試料については、標準偏差が SiO_2 , Al_2O_3 ともに $\pm 0.2\%$ であった。

6.2 外観および組織

当地区に産出する耐火粘土は、蛙目粘土・“カオリン”および木節粘土の3種があり、その他土岐口累層中に挟在する大部分の粘土やシルトもなんらかの形で利用されている。

蛙目粘土は風化した花崗岩が削剝され水底に沈積したと考えられるもので、運搬された距離はごく短かくほとんど淘汰されていない。多量の石英粒と若干の長石を混じえる灰白色の粘土で、水ひによる粘土の歩留りは約20%であった。なお蛙目粘土層の直上位に凝灰岩の薄層が

存在するところから、一部には凝灰岩源の粘土が混入している可能性もある。

“カオリン”はすでに述べたようにその産状からみて、凝灰岩などから変質・生成されたと考えられる粘土で、多くのものは白色を呈し主として色によって他の粘土と区別される。しかし一部には亜炭層に接し、淡褐色を帯びるものもあるのでこのような場合には木節粘土と見誤り易い。良質のものは微粒、緻密で、わずかに鈍い光沢がある。またやや粗粒と思われるものは割れ方が不規則で、断口はざらざらした感じを呈する。碎屑物質が混入し、淡青色の粘土・シルト等が不規則な形で含まれているものも少なくない。

木節粘土は黒褐色~暗褐色のものが大部分で、黒木節・鉛木節などの名称で呼ばれている。良質のものは微粒、緻密で少量の炭質物を含み、断口は滑らかで光沢がある。また断口に細かいしわのような凹凸が見られることが多い。触感では“カオリン”よりやや粗粒であるにもかかわらず粘性が強いことも、重要な特徴である。なお木節粘土のなかにはシルト質のものも多く、一般に粒度が粗くなるにつれて耐火度、粘性なども低下する傾向がある。

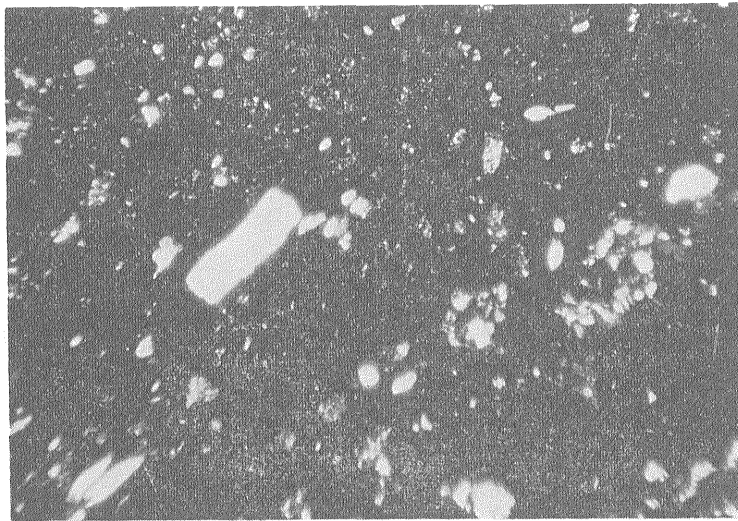
次に鏡下で観察した結果では、“カオリン”と木節粘土はそれぞれ特徴的な組織を持っていることが明らかになった。

“カオリン”には十字ニール下でほぼ等方性に近い基地のなかに、不規則な形状のカオリン鉱物の聚晶、細粒の石英が散点しているものが多い。

しかし単ニール下では、不規則な形状の火山ガラスの跡がしばしば認められる。なかには円環状の組織が密集し、あたかも気泡のような観を呈する部分もある。しかしその中は微粒の物質で充填されており、おそらくある種の火山ガラスの痕跡ではないかと考えられる(第9図)。またカオリン鉱物の聚晶のなかには、羽毛状のパッチが平行に配列し、一見雲母を伸長方向とは直角の方向に細長く裁断したような形態を示すものがしばしば認められる(第10図)。従来このような仮晶が記載された例は2, 3あるが、堆積後にカオリン鉱物の自生作用があったことを示すと考える考えが強い(HINGKLEY, 1965)。筆者はこの仮晶が石英その他の粗粒物質の多い部分に集中すること、仮晶が成長する条件はまったく同一と考えられるのに、仮晶の分布、大きさ(0.1~0.5mm)が一定していないこと、仮晶の存在する所にカオリン鉱物を成長させる要素、たとえば有機物などはまったく認められないことなどの理由から、むしろ黒雲母の破片がカオリン化したものである可能性が強いと考えている。黒雲母



第9図 粗粒カオリン中に散在する円環状組織 (おそらく一種の火山ガラスの痕跡と思われる)
単ニコール ×110



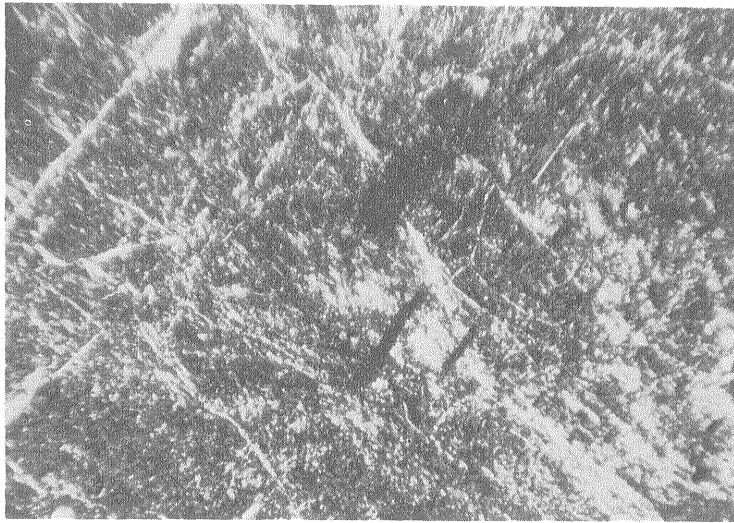
第10図 カオリン (0-4; 中山鉱山) のなかに見られるカオリン鉱物の聚晶
+ニコール ×110

が風化を受けてカオリン化したものが、類似の形状を示すこともすでに報告されている (光田, 1961)。

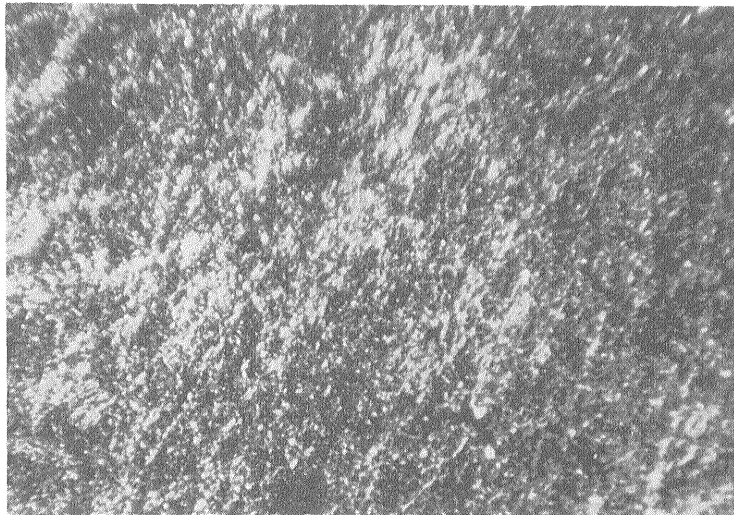
上述のような観察結果は、“カオリン”が凝灰岩から変質、生成されたとする推定を裏付けるものであり、黒雲母の破片が含まれていたことはそれが酸性の火山活動に由来するものであることを示している。これと同様の結論はすでに野沢 (1955b) が示している。

一方木節粘土の組織は“カオリン”のそれとはまったく異なり、カオリナイトの定方位集合体が樹枝状、せん

い状、網目状などの組織を形成しているのが特徴である (第11, 12図)。この組織は単ニコール下で淡褐色を呈する部分に発達しており、有機物の存在と関係が深いことを示している。小名田木節でも同様な組織が観察された (藤井, 1967)。このような組織は各地の木節粘土にしばしば認められるもので、概して石英の少ない良質の木節粘土に多いとされている (末野・岩生, 1958)。なおシルト質の木節粘土およびその他の淡青色粘土などの場合には、複屈折の低い基底に微粒の石英・雲母様鉱物が散点



第11図 木節粘土の網目状組織 (0-42; 多土鉾山)
+ニコル ×110



第12図 木節粘土のせんい組織 (0-94; 森山鉾山)
+ニコル ×110

するものが多く、上述のような組織の発達は認められない。また北崎・荒木 (1955), 野沢 (1955 b) らが報告した火山ガラスはみいだし得なかった。

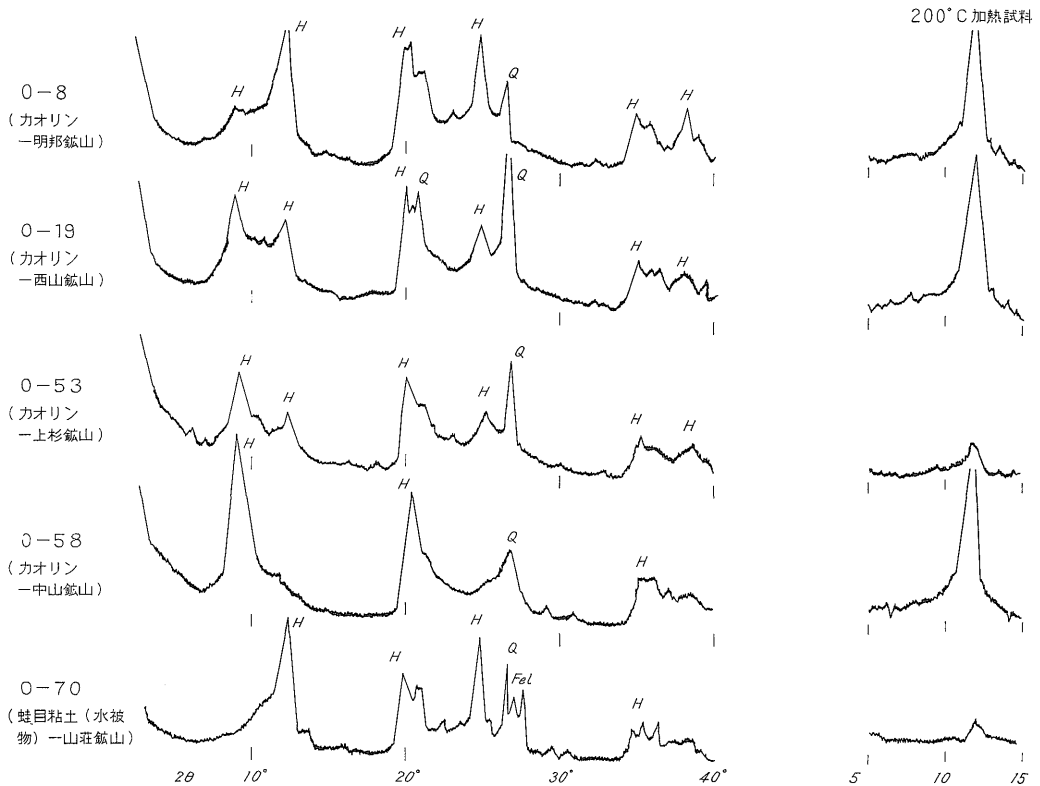
6.3 粘土鉱物

採取した多数の試料について、主としてX線によって鉱物組成を調べた後、代表的試料9箇を選び (カオリン : 4, 蛙目粘土 : 1, 木節粘土 : 4), とくにカオリン鉱物の性質に関する検討を行なった。その結果蛙目粘土, “カオリン” および木節粘土に含まれるカオリン鉱物

は、それぞれ異なる構造を有することが明らかになった。

(1) X線粉末回折 (第13, 14図)

X線回折で明らかになったのはカオリン鉱物の底面反射の違いである。すなわち“カオリン”の場合強度の違いはあるが、 10\AA および 7.2\AA に明瞭な反射があり、その中間に巾広い散乱が認められる。しかし 200°C で乾燥した結果では 10\AA の反射はまったく消滅し 7.2\AA のピー



H: ハロイサイト (メタハロイサイトを含む) Q: 石英 Fel: 長石
 第13図 “カオリン” および蛙目粘土のX線回折パターン
 走査条件は第14図と同じ

クだけが残った。このことは脱水によって底面の面間隔が収縮したことを示しており、“カオリン”はいずれもハロイサイトとメタハロイサイトの不規則混合物からなることが明らかになった。両者の混合の比率にはかなり違いがあるようで、それは10Åと7.2Åの反射の強度差に示されている。なお4試料とも少量の石英を含むほかには、不純物は認められない。とくに0-19の試料は亜炭層に直接伴うにもかかわらず、組成鉱物で他の試料との相違が認められなかつたことは注目してよい。

蛙目粘土(水化物)の場合には7.2Åのピークがあるだけで10Åの反射は存在しない。しかし7.2Åのピークに続いて低角度方向に顕著な非対称性散乱があり、200°C乾燥の後にはこの散乱が消失する。したがって蛙目粘土を構成するおもな粘土鉱物はやはりハロイサイトであるが、比較的脱水量が大きく大部分がメタハロイサイトに近いものであると考えられる。またその他に少量の石英と長石のピークが認められる。

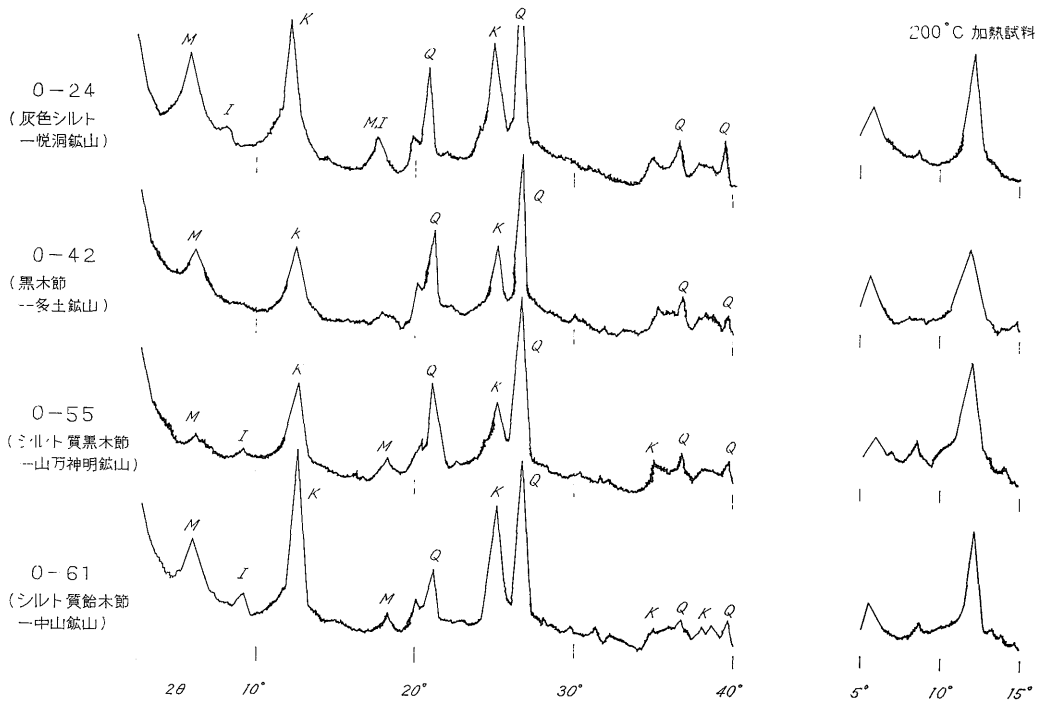
最後に木節粘土の場合には、ハロイサイトはまったく

認められていない。第14図に示した回折パターンでも明らかのように、10Å付近に小さな反射が認められるものもあるが、この反射は200°C乾燥によって消失することがない。したがって10Åの反射はイライトの存在を示すものである。またどの試料のパターンにもモンモリロナイトの存在を示す15Åの反射が現われている。カオリン鉱物については、001面の反射(7.2Å)が020面のそれ(4.5Å)に比べて著しく強調されていること、2Å35~40°の領域に何本かの反射が認められることなどから、disorder型のカオリナイトである可能性が強い。とくに0-42の回折パターンには35~40°の領域に、カオリナイト特有の2組の3重線が明瞭に現われている。

その他石英は各試料とも、かなり含まれているようである。

(2) 示差熱分析および加熱重量変化測定

各試料の熱的性質を明らかにするために、理学電機株式会社示差熱天秤によって、示差熱分析および加熱重量変化



K:カオリナイト I:イライト M:モンモリロナイト鉱物 Q:石英
 [X線走査条件] 対陰極:Cu フィルター:Ni 電圧:30 kV 電流:15mA
 Rate meter:8 Mult:1 Time Const:4 走査速度:2°/min チャート速度:2cm/min

第14図 木節粘土および雑粘土のX線回折パターン

の測定を行なった。示差熱分析の結果は第15図に示すとおりである。

これからも明らかのように、耐火粘土の種類とDTA曲線の間には明瞭な対応が認められる。

すなわち“カオリン”の場合には典型的なハロイサイトの吸熱、発熱ピークが現われている。しかし120°C前後の吸熱ピークの大きさは各試料ごとになんかなり異なっている。これはハロイサイトの層間水の脱水の程度が異なるためで、ピークの大小はこの温度領域における減量とほぼ比例している。そしてそれはまたX線パターンに現われたハロイサイトとメタハロイサイトとの混合の比率ともよく対応している。

次に蛙目粘土の場合も明瞭なハロイサイトの曲線が得られた。ただX線では10Åの反射がなかったにもかかわらず120°C前後で5%の減量があったことは興味深い。

木節粘土のDTA曲線の特徴は、カオリン鉱物特有のピークのほかに、200°C付近に小さな吸熱、400°C前後に鈍い発熱、990°C付近に小さな発熱が見られることである。そのため100~200°Cの吸熱および950~980°Cの発熱が2重のピークとなっている。400°C前後の発熱は有

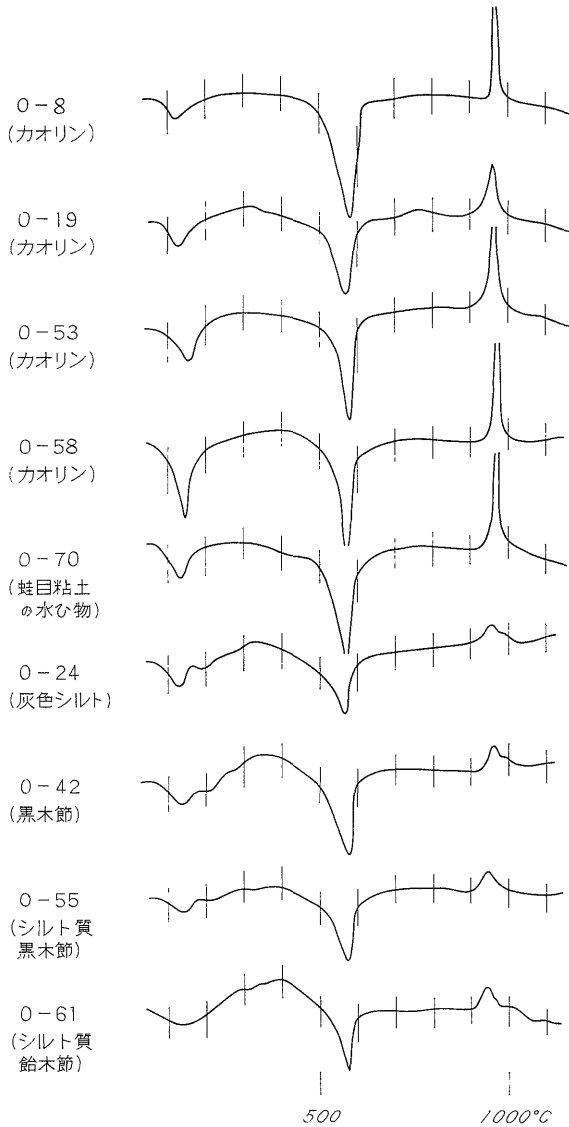
機物の燃焼によるものと考えられる。またモンモリロナイトを多く含むもの(O-24, 42)ほど、2重の吸熱、発熱が明瞭になるところからみて、これらはモンモリロナイトに特有の反応と考えるのが妥当である。なお“カオリン”に較べると570°C付近の吸熱、970°C付近の発熱がいずれも小さく、かつやや低い温度で現われている。加熱による減量も10~12%で、“カオリン”より大分少なくなっている。

(3) 電子顕微鏡による観察

上述のように“カオリン”、蛙目粘土・木節粘土のそれぞれに含まれるカオリン鉱物には、かなり明瞭な違いがある。電子顕微鏡による観察の結果でも、耐火粘土の種類に対応して明瞭な相違が認められた。

“カオリン”の結晶は長径0.1~0.3μの長柱状の形態を有し、それが平行に集合して木片状を呈するものが多い。一部には六角板状に近いものも認められるが、大部分は形態からもハロイサイトと考えられるものである(第16, 17図)。

蛙目粘土の場合には同じハロイサイトでも球状の団塊



第15図 各種粘土のDTA曲線
 使用器械 理学電機(株)製差熱天秤
 測定条件 試料重量…0.300g
 昇温速度…10°C/min
 熱電対…Pt-Pt-Rh
 最高温度…1180°C
 DTA感度…±50μV
 重量感度…±50mg

が大部分で、粒径も0.3μ程度のものが多い。また少量ながら管状の結晶も認められる。球状の結晶はハロイサイトのなかでも結晶度が低いとされており、火山ガラスなどから生成されたものに多い。したがって当地区の蛙目粘土には凝灰岩源のものが混っている可能性もある。(第18図)。

木節粘土には管状または薄片状のハロイサイトはまったく認められない。大部分は板状で不完全な六角形を示す。径は0.1μ前後である。結晶の形態からみても disorder型のカオリナイトと考えるのがもっとも妥当である(第19図)。

6.4 粘土の鉱物組成

前節に述べたような方法、とくにX線回折をおもな手段として、採取した全試料約100個の鉱物組成を検討した。その結果は化学組成などとともに第2表に示すとおりである。ただしすべての試料について熱試験、電子顕微鏡試験を行なうには至らなかったため、カオリン鉱物の同定はおもに200°C乾燥処理による10Åの反射の変化、定方位配列を作り易い性質の有無(底面反射と020面反射の比から判断される)などを基準として行なった。その結果“カオリン”とその他の粘土ではカオリン鉱物の種類が明瞭に異なっており、ほとんど例外はないことが明らかになった(蛙目粘土の試料は1筒だけなのでこの表から除外した)。なお組成鉱物の量はおもに主要な反射の強度と化学組成から大まかに認定したものである。この表から“カオリン”、木節粘土およびその他の粘土における鉱物の分布状況をまとめたのが第20図である。この図では横軸にそれぞれの鉱物の存在頻度を取り、縦軸にX線パターンから認定した大よその含有量の平均を現わした。

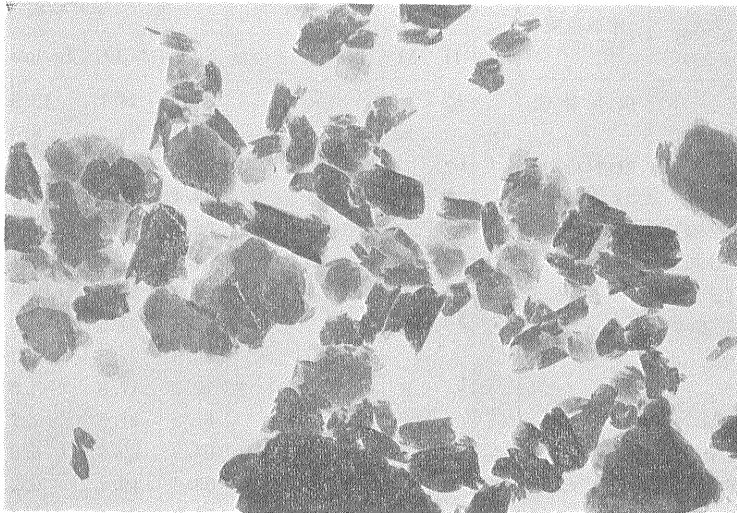
これからも明らかなように、同一の地層のなかに挟在するにもかかわらず“カオリン”にはハロイサイト以外の粘土鉱物が含まれることはきわめて少ない。一方木節およびその他の雑粘土にはカオリナイト・石英のほか、モンモリロナイトとイライトが含まれている。しかしどちらかといえば木節粘土には雑粘土よりもモンモリロナイトを伴う場合が多く、イライトの含有量は逆にやや低くなっている。

木節粘土は亜炭層に伴って賦存しており、弱酸性の有機酸の影響を受け易いので、モンモリロナイトが自生鉱物であるとは考え難い。野沢(1955a)のいうように、中新統の凝灰岩層中のモンモリロナイトが運搬、堆積されたと考えるのが妥当であろう。また他の粘土に比べてモンモリロナイトが濃集しているのは、微細な懸濁物質が酸性の環境下で凝集、沈殿したためと考えられる。なお賦存する層準、場所によって、木節粘土の鉱物組成が著しく異なるという傾向は認められなかった。ただ北部地区の蛙目粘土および最下位の木節粘土層にはモンモリロナイトはほとんど含まれていない。これは堆積盆地が広がる以前に堆積した層準にあたり、したがって供給された物質にも差があったことによるものであ

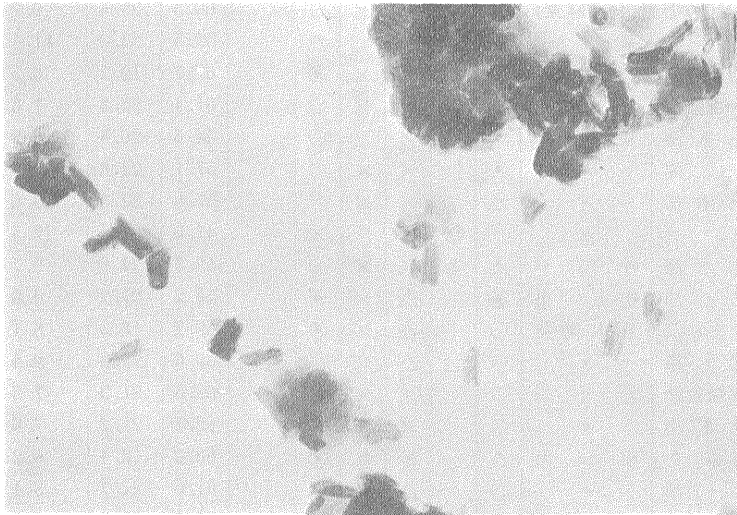
第2表 大洞地区産各種粘土の鉱物組成・化学組成・耐火度

No.	試料名	採取位置 (鉱山名)	鉱物組成					化学組成				耐火度 (S K)	
			K	H	M	I	Q	その他	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Ig. loss		Total
1	淡青色シルト	悦洞南方	○			×	◎		69.9	16.4	5.1	91.4	27
3	淡青色シルト	北山	○				◎		74.8	14.0	4.7	93.5	27
4	カオリン(1級)	中山		◎			×		48.4	36.6	14.1	99.1	36以上
5	"(3級)	"		○		△	◎		75.6	11.7	3.7	91.0	27+
6	帯紫暗灰色粘土	森常東方	○		△	×	○		56.3	24.6	8.3	89.2	28
7	淡青色粘土	新山	◎			×	○		52.6	26.7	9.5	88.8	29.5
8	カオリン(1級)	明邦		◎			×		47.5	34.2	13.5	95.2	36以上
9	"(3級)	"		◎			△		47.5	32.0	11.8	91.3	35
11	白色粘土	生田 (調査地外)	○			×	◎		66.0	21.8	7.4	95.2	32
12	"	"	◎		×	×	◎		56.9	28.4	9.6	94.9	34+
13	餡木節	"	◎			×	○	ギブサ イト×	56.9	26.7	10.2	93.8	34
15	帯褐淡青色シルト	西山	○		×	×	◎		69.2	15.9	5.5	90.6	26-
16	帯青灰色シルト	"	○		△	×	◎		72.3	16.9	5.6	94.8	26+
17	餡木節	"	◎		○	×	○		57.9	25.5	9.9	93.3	30
18	シルト質餡木節	"	◎		△	×	◎		62.1	23.3	8.8	94.2	29
19	淡褐色カオリン	"		◎			△		53.0	30.2	12.1	95.3	35-
20	黒木節	"	○		△	×	◎		63.2	21.1	8.6	92.9	28.5
21	暗灰色粘土・シルト	悦洞	○		△	×	◎		63.2	21.4	7.2	91.8	26+
23	灰色シルト	"	○		○	×	◎		63.4	21.5	6.1	91.0	27-
24	"	"	○		△	×	◎		67.4	20.1	6.4	93.9	28+
25	黒木節	"	◎		△	×	○		54.9	27.4	9.5	91.8	32
27	淡褐色シルト質細粒砂	"	○		△	×	◎		67.6	19.3	6.8	93.7	27
28	淡青色粘土	多土	○		×	×	◎		63.8	23.2	7.8	94.8	30
29	シルト質餡木節	"	○		△		◎		64.5	21.6	7.8	93.9	30
31	黒木節	"	○		△	×	○	ギブサ イト×	60.5	21.2	9.8	91.5	30+
33	"	"	○		○		○	ギブサ イト×	61.9	21.7	9.6	93.2	29+
35	カオリン	"		◎			△		53.6	30.3	11.2	95.1	35+
36	シルト質餡木節	多土旧坑	△	?	×	×	◎		73.3	16.0	8.7	98.0	27
37	カオリン	"		◎			×		45.5	34.1	13.5	93.1	35.5
38	シルト質餡木節	"	△		△	×	◎		73.8	16.4	5.5	95.7	27+
40	黒木節	虎溪	○		△		◎		65.4	21.1	8.5	95.0	30
41	"	多土坑内	○		△	×	○		61.4	23.2	10.2	94.8	29+
42	"	"	○		△		◎		64.3	22.3	8.8	95.4	29+
44	淡青色シルト	"	○			×	◎		68.3	20.6	6.8	95.7	28.5
45	シルト質餡木節	北山	△		×		◎		74.8	15.6	6.2	96.6	27
46	黒木節	"	○		△	×	◎		64.6	19.7	8.9	93.2	29+
47	シルト質餡木節	"(東部)	△		△		◎		69.7	17.5	6.6	93.8	27.5
48	黒木節	"(東部)	○		△	×	○		60.3	23.0	9.8	93.1	29+
49	黒木節	上杉	◎		×	×	×		49.3	29.0	16.1	94.4	31.4
50	餡木節	"	○		△	×	◎		64.6	18.9	7.1	90.6	29+
51	青灰色粘土	"	△		×	×	○	12Å min.	61.0	21.2	7.5	89.7	27
52	シルト質黒木節	"	○		△	×	○	13Å min.	56.4	25.6	10.8	92.8	29
53	カオリン	"		◎	×		×		48.0	33.8	13.0	94.8	35-

No.	試料名	採取位置 (鉱山名)	鉱物組成					化学組成				耐火度 (S K)		
			K	H	M	I	Q	その他	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Ig. loss		Total	
54	カオリン	山万神明		◎				×		47.1	34.7	13.5	95.3	34.5
55	シルト質黒木節	"	◎		×	×	○			59.3	24.2	8.4	91.9	29-
56	カオリン(3級)	中山(坑内)		△			×	◎		71.9	16.4	5.6	93.9	28.5
57	"(1級)	"(")		◎				×		48.4	35.1	13.5	97.0	36以上
58	"(2級)	"(")		◎						45.1	38.0	14.8	97.9	36以上
59	"(3級)	"(")		◎				○		54.4	28.3	11.1	93.8	34+
60	"(2級)	"(")		◎				×		45.9	35.3	14.2	95.4	36以上
61	シルト質餛木節	"	◎		△	×	○			57.8	24.3	9.9	92.0	30
62	淡青色シルト	"	○			△	○			58.8	22.7	8.2	89.7	27.5
63	餛木節	大洞	○		×	×	◎			70.3	17.8	5.8	93.9	28
64	シルト質餛木節	"	○		×	×	○			61.3	21.5	7.7	90.5	28
65	淡青色シルト質細粒砂	"	△		×	×	◎			64.3	20.3	6.9	91.5	28
66	淡青色シルト砂互層	第2大洞	○			△	◎			68.0	19.2	6.2	93.4	27
67	シルト質餛木節	"	○	?	×	×	○			54.2	24.1	10.7	89.0	28
68	帯黄色粘土	"	◎		×	×	×			49.7	30.9	11.8	92.4	34
69	シルト質餛木節	"	◎		×	×	△			53.5	27.1	11.2	91.8	33
72	黒木節	山荘(東)	○			×	○			60.3	25.6	9.7	95.6	29
75	カオリン	基幸		◎				△		53.5	30.3	11.1	94.9	34
76	シルト質餛木節	"	○		×	×	◎			67.7	19.5	6.3	93.5	27
77	暗灰色シルト・細粒砂	"	○	?		×	○			61.4	22.3	7.6	91.3	26
78	シルト質黒木節	森常	◎		×	×	○			54.6	26.5	10.2	91.3	30
79	黒木節	"	◎		×	×	○			57.1	24.8	8.8	90.7	30
80	シルト質黒木節	"	△		×	×	○			57.6	22.3	9.6	89.5	29
81	カオリン	"		◎				×		47.8	32.4	12.5	92.7	35+
82	シルト質黒木節	片平	△	?	×	×	○			55.3	24.9	9.7	89.9	29
84	餛木節	中央	◎		△	×	◎			55.2	27.2	9.9	92.3	30
85	"	日本窯業	○		△	×	◎			69.2	18.3	6.1	93.6	29
86	シルト質黒木節	"	○		△	×	○			60.6	22.8	9.4	92.8	29.5
87	灰色シルト質細粒砂	"	○		×	×	◎			62.6	21.3	7.3	91.2	26.5
88	シルト質餛木節	"	○		×	×	◎			62.7	21.2	7.8	91.7	27.5
89	淡青色シルト	東山	△		×	×	◎			68.0	18.4	6.2	92.6	27+
90	黒木節	"	○		△	×	○			61.0	21.7	8.4	91.1	28
91	青粘土	明邦	△	?	×	×	◎			62.7	19.3	6.8	88.8	19.5
92	餛木節	"	○		△	×	○			56.4	24.6	9.3	90.3	27.5
93	"	森山(坑内)	◎		△	×	△			52.7	31.3	10.6	94.6	31
94	"	"(")	◎		△	×	△			53.6	28.0	10.5	92.1	30+
97	カオリン(粗粒 tuff を含む)	渡辺鉱山東方谷		◎				×		45.1	35.2	13.8	94.1	34.5
98	シルト質青粘土	"	△		△	△	○	11Å min.		59.2	20.7	7.7	87.6	20
99	シルト質黒木節	"(試掘井)	◎		△	×	△			52.5	29.0	10.8	92.3	30
100	黒木節	渡辺(坑内)	◎				×			46.8	32.3	12.8	91.9	34
101	シルト質黒木節	泉(坑内)	◎		△	×	○			54.2	26.4	9.5	90.1	30
102	黒木節	"(")	◎		△	×	×			47.9	32.1	13.0	93.0	34
103	"	鴨ヶ池	○		△	×	○			57.2	25.1	9.7	92.0	30
104	餛木節	第2神明	○		△	×	○			57.6	24.1	9.7	91.4	28-



第 16 図 カオリン (0-8; 明邦鉱山) の電子顕微鏡写真



第 17 図 カオリン (0-19; 西山鉱山) の電子顕微鏡写真

ろう。

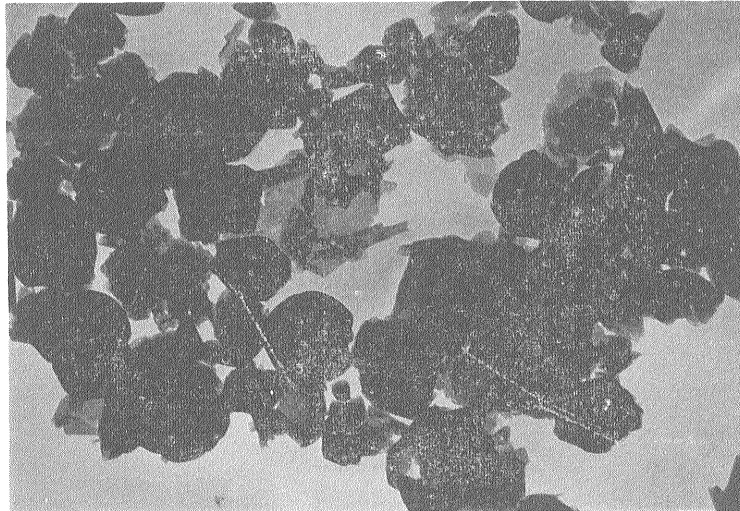
6.5 化学組成および耐火度

化学分析および耐火度試験の結果は第 2 表に示すとおりである。さらに $\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$ の相関と耐火度との関係を第 21 図に示した。

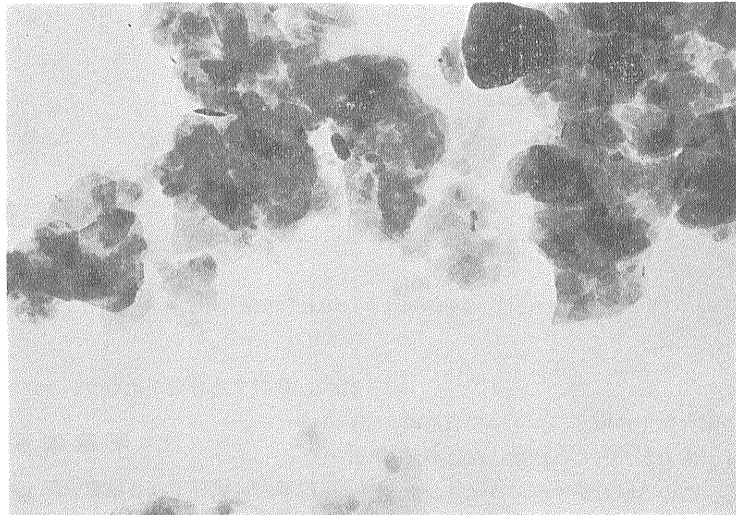
これから次のようなことが明らかになった。すなわち“カオリン”には耐火度の高いものが多い。おおよそ Al_2O_3 が 28% 以上あれば、すべて S K 34~36 の耐火度を有する。これに対し木節粘土の場合には S K 31 以上のものは数例あるに過ぎない。そしてそれはおおむね Al_2O_3

27% 以上の領域にある。また耐火度の高いものはすべて中位の木節粘土で、上位の木節粘土は一般に品位が劣るようである。

なお SiO_2 と Al_2O_3 がすべて石英とカオリナイトの形で存在すると仮定し、石英+カオリナイトが 90% および 100% のときの $\text{SiO}_2 \cdot \text{Al}_2\text{O}_3$ の関係を示す線を描いてみると、大部分の試料はこの 2 本の線で囲まれた領域にプロットされる。そしてこの領域に入る試料はすべて (ただし Al_2O_3 13% 以上) S K 26 以上の耐火度を有する。しかしこの領域外では Al_2O_3 が 20% 以上でも S K 26 に達しな



第18図 蛙目粘土水ひ物 (0-70; 山荘鉱山) の電子顕微鏡写真



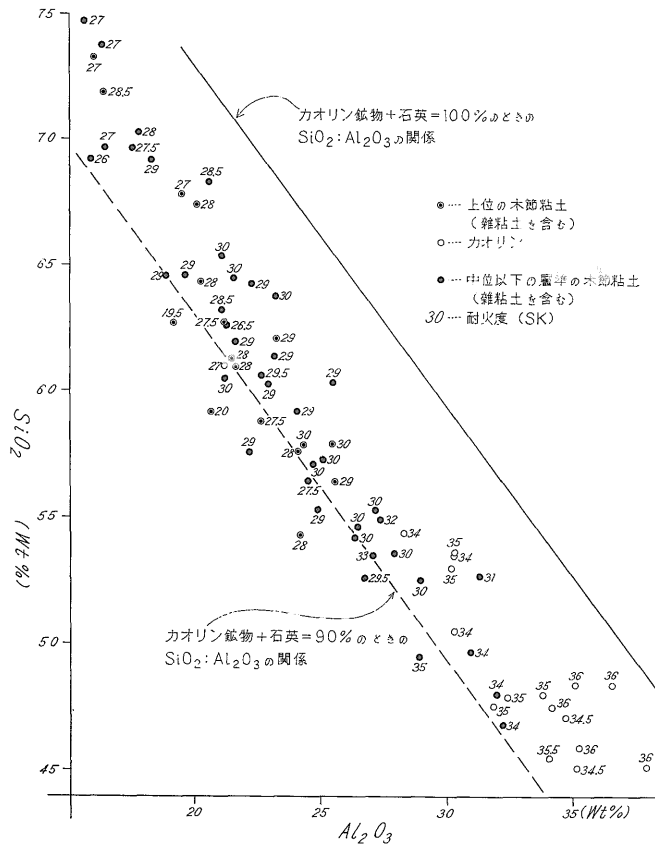
第19図 木節粘土 (0-42; 多土鉱山) の電子顕微鏡写真

	カオリナイト			ハロイサイト			モンモリロナイト 鉱物			イライト			石英		
	25	50	75%	25	50	75%	25	50	75%	25	50	75%	25	50	75%
“カオリン” (17)				■	■	■									
木節粘土 (44)	■	■	■				■	■	■	■	■	■			
雑粘土 (20)	■	■	■				■	■	■	■	■	■	■	■	■

第20図 大洞地区産各種粘土の鉱物組成

塗色した部分の高さはX線と化学分析の結果から推定したおよその含有量の平均を示す

() 内の数字は試料の数を示す



第21図 層準別の粘土の化学組成と耐火度との関係

いことがある。

したがって当地区の耐火粘土の場合、 Al_2O_3 の含有量は耐火度に重要な関係があるが、とくに問題になるのは27%以上の領域である。この Al_2O_3 がすべてカオリン鉱物に含まれると仮定すると、カオリン鉱物の含有量は約68%である。したがってカオリン鉱物がおおよそ70%以上含まれている場合は耐火度がSK31以上になる確率はきわめて高くなるといえよう。

一方カオリン鉱物の含有量が70%以下の場合は石英とカオリン鉱物以外の挟雑物が10%以下でさえあれば耐火度は常にSK26~30の範囲内にあり、 SiO_2 または Al_2O_3 との相関はまったく認められない。

なお「カオリン」が、同じような組成の木節粘土より高い耐火度を示すのは、モンモリロナイトなどの挟雑物をほとんど含まないためと考えられる。木節粘土の場合にも、もしモンモリロナイトなどが少なければ石英量が若干多くなっても耐火度が高いということは当然起こり得る訳で、今後は鉱物組成の異なる他地域の耐火粘土と

比較、検討する必要がある。

7. 埋蔵鉱量

当地域内に賦存する各種耐火粘土の埋蔵量について次のような過程で計算を行なった。木節粘土は各層準別、地域別に賦存範囲を想定し、求積器によって賦存面積を求めた。層厚も同様に層準別、地域別に平均値を求め、比重はすべて2.2とした。こうして得られた結果に安全率として50%をかけて、埋蔵鉱量とした。カオリンについても同様である。ただ地域別、層準別の鉱量を明示することは、若干差支を生ずると思われるので、一応層準別鉱量の合計を公表するととどめた。これは品位は無関係でSK26以上のものすべてを含む予想鉱量である。

蛙目粘土…約10万t (粘土は約20%)

カオリン…約8万t

木節粘土 (中位層および下位層) ……約180万t

木節粘土 (上位層) ……約40万t

このほかにも雑粘土でSK26以上のものが相当量賦存

していると予想されるので、これらを含めた埋蔵量はかなり大きなものとなろう。

8. 結 言

上述のような調査、研究の結果として、もっとも注目されるのは、“カオリン”、蛙目粘土および木節粘土の3種類の粘土が、地質的産状、鉱物組成、カオリン鉱物の種類、化学組成、耐火度などのどの点においても、それぞれきわ立った特徴を有することが明らかになったことである。すなわち、

- (1) 蛙目粘土は、土岐口累層の堆積初期に北部地区に局部的に沈積したもので、粘土のほかにも多量の石英粒および若干の長石を混じえている。風化を受けた花崗岩が2次的に堆積して生成されたと考えられるが、凝灰岩源の粘土を混じえる可能性もある。水ひによる粘土の歩留りは20%前後である。

粘土鉱物としてはハロイサイトを主成分とするが、脱水の程度がやや大でメタハロイサイトに近いものが大部分である。結晶は径 0.3μ 前後の球状の形態を有し、ハロイサイトのなかでも結晶度が低い部類に属する。

- (2) “カオリン”は土岐口累層中の上下2つの層準に薄層をなして賦存している。とくに上位の層準のものは断続しながらも、ほぼ全域に亘って追跡することができる。大部分は白色を呈し微粒、緻密で鈍い光沢がある。粗粒の結晶凝灰岩と漸移することがあり、かつ鏡下で多量の火山ガラスの痕跡がみいだされたことなどから、火山灰が沈積後の続成作用によってカオリン化したものと考えられる。

主としてハロイサイトからなり、微量の石英と火山ガラスを混じえるのが普通である。一部には碎屑物が混入し、例外的にモンモリロナイトを含むこともある。ハロイサイトの層間水の脱水程度は一様でなく、ハロイサイトとメタハロイサイトの不規則混合層を形成している。長径 $0.1\sim 0.3\mu$ の長柱状の結晶が平行に集合して木片状の形態を示す場合が多い。一部の挾雑物の多いものを除けば Al_2O_3 の含有量は常に28%以上で、耐火度もS K32~36できわめて安定している。

- (3) 木節粘土は上下中3つの層準に分かれて賦存している。なかでも中位の木節粘土は北東部を除く全域にわたってよく連続する。しかし基盤の地形、堆積機構などと関連して、発達状況は一様ではない。

おもに disorder 型のカオリナイトと石英からなり、他にモンモリロナイトおよびイライトを随伴する。カオリナイトは不完全な六角板状を呈し、径は 0.1μ 前

後の微細なものが多い。また鏡下の観察によるとカオリナイトの定方位集合体が樹枝状、網目状、せんい状などの組織を形成しているのも大きな特徴の一つである。

耐火度はS K26から34までで一定しないが、S K31以上の良質なものは比較的少なく、 Al_2O_3 27%以上のものに限られる。なお木節以外の粘土・シルトでもS K26~30程度のものはかなり多い。鉱物組成も木節と似ているが、モンモリロナイトの存在頻度は小さくなる傾向がある。

このように同一地層のなかに挟在しながら、それぞれの産状、組成および性質が明瞭に異なっていることは、当然これらの粘土の起源および形成過程の違いによるものと考えられる。とくにカオリン鉱物の種類、形態に著しい相違が認められたことは、それぞれの粘土の成因を解明するうえで重要な手掛りになると思われる。

かつて北崎および荒木 (1954)、赤嶺 (1954)、野沢 (1955b)らには、木節粘土は白粘土 (“カオリン”) と同じく火山灰に由来するものであると推論した。しかしすでに詳しく述べたように両者の鉱物組成は明瞭に異なっており、これが同じ原物質から生じたとはまったく考えられない。“カオリン”のなかには亜炭層に接して賦存し、淡褐色を呈するものもあるが、鉱物組成では他の“カオリン”と変わるところはない。したがって堆積後の環境の違いだけで、木節粘土と“カオリン”の相違、とくにカオリン鉱物の違いを説明することはできない。

大洞地区だけの研究結果から木節粘土の成因を論ずることは難しいが、その原物質は火山灰ではなく、大部分が基盤岩の碎屑物であろう。カオリナイト・モンモリロナイトなどの粘土鉱物が、堆積前にすでに形成されていたものか、また形成されていたとすればそれはどのような過程によるものか、これらの問題は今後の課題である。

参 考 文 献

- 1) 赤嶺秀雄 (1954) : 瀬戸市を中心とする陶土地帯の地質, 資源研彙報, no. 34.
- 2) BRAWN, G., ed. (1961): The X-ray Identification and Cristal Structures of Clay Minerals. *Min. Socie. London.*
- 3) 藤井紀之・大森貞子 (1964) : 岐阜県神明カオリンと大洞木節の産状および性質, 第8回粘土科学討論会演旨
- 4) 藤井紀之 (1967) : 岐阜県多治見・土岐地方の耐火粘土鉱床の研究〔第1報〕——小名田木節の

- 産状と組成について——, 地質調月報, vol. 18, no. 10
- 5) HINCKLEY, D. N. (1965): Mineralogical and Chemical Variations in the Kaolin Deposits of the Coastal Plain of Georgia and South Carolina. *Am. Min.*, vol. 50, Nov.~Dec.
- 6) 北崎梅春・荒木春視 (1952) : 愛知岐阜県下の窯業資源の研究 (その 1) —— 白土と木節粘土 ——, 資源研彙報, no. 34
- 7) 清野信雄・石井清彦 (1927) : 7 万 5 千分の 1 地質図「多治見」, 同地質説明書, 地質調査所
- 8) 松沢 勲・他編 (1962) : 美濃炭田可児地区地質図, 東海北陸亜炭鉱業対策委員会
- 9) 光田 武 (1961) : 黒雲母の仮晶をなすカオリナイトの研究, 粘土科学の進歩, 第 3 集
- 10) 野沢和久 (1955 a) : 愛知・岐阜県下の窯業資源の研究(7)——木節粘土中の montmorillonite について——, 資源研彙報, no. 39
- 11) 野沢和久 (1955 b) : 愛知・岐阜県下の窯業用粘土の生成に関する若干の考察, 地質雑, vol. 61, no. 719
- 12) 大森貞子 (1963) : 粘土の迅速分析法 (けい酸, アルミナ, 強熱減量について), 分析化学, vol. 12, no. 2
- 13) 末野悌六・岩生周一編 (1958) : 粘土とその利用, 朝倉書店
- 14) SUGIMURA, T. and FUKUO, K. (1955): Properties of the Sinmei Kaolin, 名工大学報, vol. 7.