

熊本県天草陶石鉱床における変質作用

富 樫 幸 雄*

Alteration Processes Responsible for the Formation of the Amakusa Pottery stone Deposit, Kumamoto Prefecture, Japan

Yukio TOGASHI

Abstract

The Amakusa pottery stone deposit, located in the Amakusa-Shimajima Island, Kumamoto Prefecture, is one of the largest pottery stone deposits in Japan. A total of 93,000 tons of pottery stone was mined from some twenty ore bodies of the deposit during 1973.

Ore bodies are distributed in several rhyolite dikes of probably Miocene age which have been intruded into the Upper Cretaceous and/or Paleogene sedimentary rocks. The dikes are 6 to 25 m wide and their maximum length reaches 7 km. Hydrothermal alteration subsequent to the emplacement of the dikes appears to have formed the pottery stone deposit.

Typical pottery ores from the deposit contain quartz, sericite and kaolinite as major constituents. Some ores consist of quartz and kaolinite (without sericite). Accessory minerals are calcite, siderite, pyrite, limonite and residual alkali feldspars. It is observed that the sericite-free ore occurs in the rhyolite dike rich in K-feldspar.

Sericite in the ore is usually 1M polytype, but the ore from one ore body (Tomioka) contains exclusively 2M sericite. Most of the sericite from this deposit has an irregularly-interstratified sericite-montmorillonite structure. Maximum content of the montmorillonite layers reaches 15 percent.

Detailed survey of a representative ore body (Dembē-Koba) of the deposit has revealed the presence of mineral zoning. Carbonatized zone, argillized zone, silicified zone and weakly-altered zone can be recognized successively from the center to the periphery of the dike. Outward migrating hydrothermal solutions that have ascended through the relatively porous core of the dike appear to be the cause of this zoning. Hydrothermal effects are largely confined within the dike. The compact chilled margin of the dike may have acted as a barrier to the hydrothermal solution.

Migration of chemical components calculated for the unit volume of the altered rocks from four different ore bodies shows the gain of H_2O + and losses of Na, K, Fe, Mg and Ca, with little changes of SiO_2 and Al. The maximum change of total base cations (Al^{3+} , Fe^{3+} , Fe^{2+} , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Na^+ , K^+) caused by the alteration is -6.0 gram equivalent per liter at the Dembē-Koba ore body. Calculation of the replacement ratio, $[H^+ \text{ gain} / (Mg^{2+} + Ca^{2+} + Na^+ + K^+) \text{ loss}]$ gram equiv. defined by HEMLEY and JONES (1964), suggests that the alteration processes in the Amakusa pottery stone deposit are characterized by hydrogen metasomatism.

*鉱床部

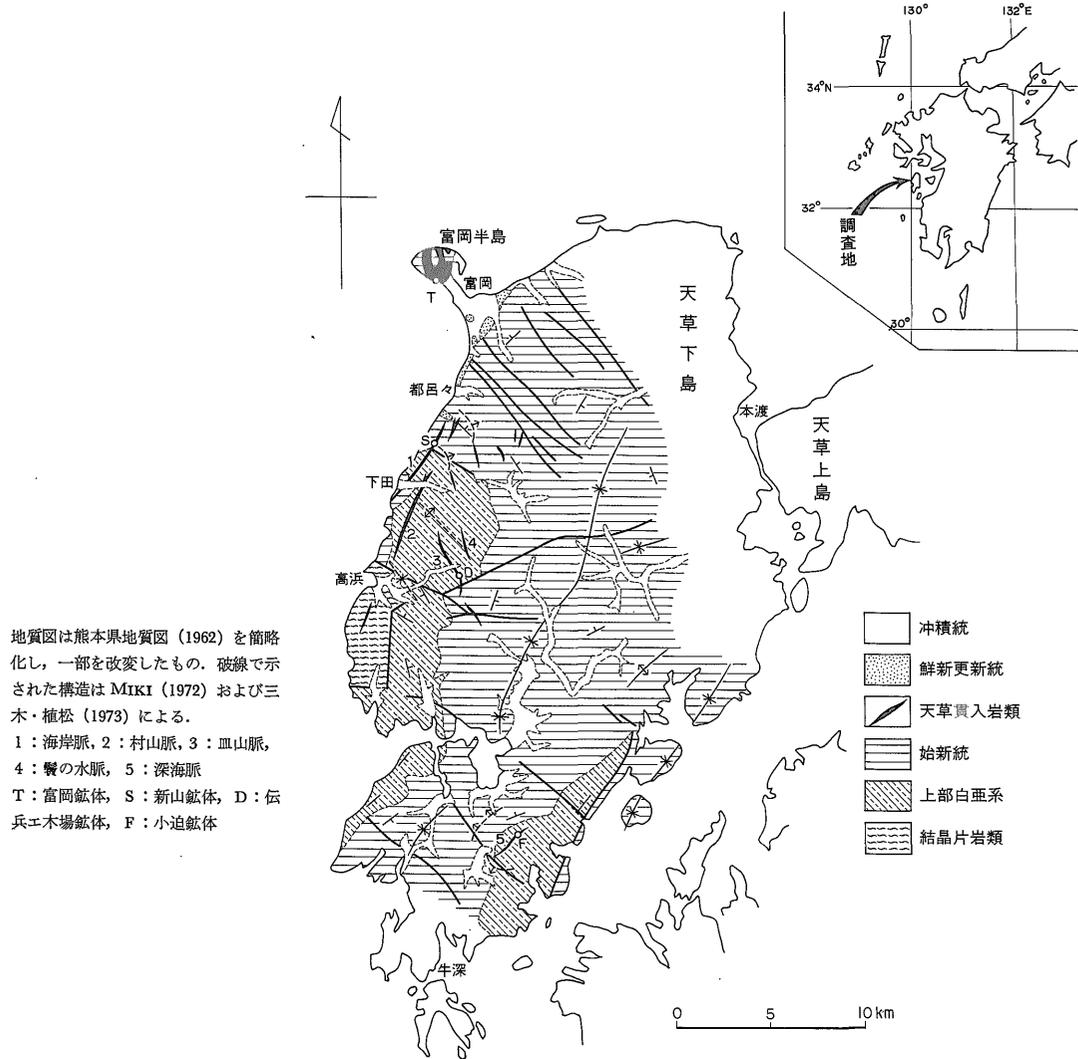
1. まえがき

熊本県に産する天草陶石は陶磁器原料としてわが国で最も古くから開発されたものの一つである。その生産量は年間約93,000トン(1973年,天草陶石工業組合調べ)で,全国生産量の約25%を占めており,有田焼をはじめとする白色高級磁器や大型高圧碇子の原料として欠くことのできないものとなっている。

天草陶石鉱床は熊本県天草下島西部および南部一帯に分布し,鉱床が賦存する流紋岩脈によって,皿山脈・海岸脈・村山脈・鬢の水脈・深海脈などの名称で呼ばれている(第1図)。この鉱床群はその経済的価値の高さのた

め,主に資源調査の目的で,これまでに何度か地質・鉱床調査が行われている(伊原,1921;納富,1930;大島,1947,1949;上野,1952)。それによると,天草陶石鉱床は上部白亜系または古第三系中に貫入した流紋岩脈が変質作用または風化作用により「陶石化」注1)した結果形成されたもので,その流紋岩は有色鉱物に乏しいリソイダイト質のものであったとされている。また,陶石に含まれる主要な鉱物は石英・セリサイト・カオリナイトで,

注1)「陶石」とは本来経済用語として用いられ,平凡社刊の地学事典(1970)では「陶磁器製造用原料となる岩石で,一般に石英と絹雲母とから構成され,単味で焼成して磁器状となるもの」と定義されている。この報文においては,「陶石化」作用とは,その意味での陶石鉱床の形成にあずかる地質的作用一般を示すものとする。



第1図 天草陶石鉱床の位置と分布

副次的に混合層粘土鉱物・方解石・菱鉄鉱・黄鉄鉱・褐鉄鉱などを含み、しばしば原岩の斜長石・カリ長石などの残留がみられる(武司・秦, 1947; 山田ほか, 1949; 上野, 1952; 中村ほか, 1957; 中村・松村, 1959; 金岡・加藤, 1972)。

しかしながら、上記の報文・論文類は従来から開発されている皿山脈・村山脈・海岸脈などに分布する鉱体についてのみ扱っており、近年開発が始まった深海脈と富岡鉱体について公表されたものは皆無である。また、陶石鉱床の形成過程を変質帯や変質鉱物の具体的な観察に基づいて考察する試みも、これまで全くなされていない。

そこで筆者は

- (1) 鉱床の原岩である流紋岩脈の岩質と変質鉱物の性質を、各鉱体あるいは岩脈について比較・検討すること。
- (2) 適当な鉱体を選んで、その周辺での変質帯と変質鉱物の分布を把握すること。
- (3) 変質過程での化学成分の移動量を各鉱体ごとに計算し、(2)の結果と合わせて変質帯の形成過程を考察し、さらに、天草陶石鉱床を形成した変質作用の一般的な性格を論じること。

を目的としてこの調査・研究を行った。

変質帯観察の対象としては、皿山脈に位置する伝兵エ木場鉱体を選んだ。この鉱体は天草陶石鉱床の中では最も開発の歴史が古いものの一つで、現在は露天式階段掘り(5段)により、年間7,447トン(1973年)の中～上質陶石を生産している。変質帯調査は簡易平板測量により1/500の地形図を作成しながら行った。

また、化学成分の挙動の検討に供した試料は、上述の伝兵エ木場鉱体のほか、新山鉱体(海岸脈)・小迫鉱体(深海脈)・富岡鉱体(富岡半島)から採集された。

2. 地質および鉱床概説

2.1 天草下島西部および南部の地質

陶石鉱床が分布する天草下島西部および南部一帯には結晶片岩類、白亜系・古第三系の堆積岩類、これらを貫く火成岩類、および第四系が分布する(納富, 1930; 熊本県, 1963; MIKI, 1972; 三木・植松, 1973)。

結晶片岩類は天草町高浜南方に分布し、白雲母片岩、緑泥石片岩、石英片岩などからなっている。植田・大貫(1968)によれば、この結晶片岩中の白雲母のK-Ar年令は81~86 m. y.である。また、都城(1965)はこの結晶片岩類に類似の変成岩類が西彼杵半島や長崎半島にも分布することから、以上の地域に天草下島を含め、九州

西端変成地域の名称をあたえている。

白亜系は頁岩・砂岩・礫岩などからなり、都呂^{とろろ}以南の西海岸沿いに分布するほか、深海付近の南海岸にも分布する。一般に、下位では頁岩・砂岩が優勢であるが、上位では礫岩に富んでいる(MIKI, 1972; 三木・植松, 1973)。この岩層は上部白亜系のヘトナイ統に対比されており、上記結晶片岩類とは断層で接している。古第三系は頁岩・砂岩・砂岩頁岩互層などからなり、主に、天草下島の中央部をほぼNNE-SWに走る向斜軸の近く分布する。下位および上位では頁岩、中位では砂岩が卓越し、礫岩は最下位に多い。また、中位の砂岩層中には炭層が挟在する。時代は始新統に対比されている。この岩層は上記の白亜系を傾斜不整合で覆い、両者の間には地質構造や、砂岩中の鉱物組成および岩片の含有量などに顕著な差のあることが知られている(MIKI, 1972; 三木・植松, 1973)。

以上の岩層を貫いて、花崗閃緑岩・流紋岩などの、酸性火成岩を主とした岩株および岩脈が分布している。とくに、富岡半島では、花崗閃緑岩の岩株を中心として、流紋岩・石英斑岩・玢岩・ランプロファイアー・安山岩・玄武岩などの岩脈が数多くみられる(高橋, 1965)。また、有色鉱物に乏しい流紋岩の岩脈が下田・高浜付近の西海岸一帯、および深海付近の南海岸に分布している。すでに述べたように、天草陶石鉱床はこれらの流紋岩脈内に胚胎されるものであるが、MIKI(1972)および三木・植松(1973)によって与えられた当地域の地質図によれば、これらの流紋岩脈のほとんどすべては白亜系の背斜構造あるいは半ドーム構造の分布地域付近にのみ貫入している。なお、柴田・富樫(1974)による富岡半島産の花崗閃緑岩中の黒雲母のK-Ar年令は19.0 m. y.で、新第三紀中新世中期(女川階)に相当する。上記流紋岩脈もその分布・産状からみて、この時期の一連の火成活動の産物と推定される。

第四系は山麓堆積物および沖積層からなっている。

以上に述べた地質の概略を第1図に示す。

2.2 陶石鉱床概説

第1図に示したように、天草陶石鉱床は主に天草下島西部に分布し、同島南部の一部にも分布する。鉱床の原岩はすでに述べた通り、主に白亜系の堆積岩中に貫入した流紋岩脈で、従来リソダイト質石英粗面岩と呼ばれていたものである。これらの岩脈のうち、熱水変質作用および風化作用により「陶石化」した部分が鉱床を形成している。

流紋岩脈は輪郭の不明瞭な富岡鉱体を例外として、一般に幅6~25mの明瞭な脈状を呈し、その延長は約7

km に及ぶ場合がある (上野, 1952). 岩脈の主なもの
は西海岸地域で4条 (海岸側より内陸へ, 海岸脈・村山脈
・皿山脈・鬘の水脈), 南海岸地域で1条 (深海脈) がそ
れぞれ認められるほか, 都呂々付近の内陸にも小規模な
いくつかの岩脈の貫入が認められる。

海岸脈は下田北方に位置し, 岩脈の幅は4~15m, 平
均7~8mである。方向はNNE—SSWで, 現在の海
岸線にほぼ並行し, ほとんど直立している。岩脈の延長
は約4kmであるが, 「陶石化」の程度が弱く, 稼行の
対象とならない部分が多い。清水落・新山・田の迫・浜
平など14の鉱体が分布し, 26,500t/年(1973年)の陶石
が生産されている。

村山脈は高浜北方から下田南方まで, 約6kmにわた
って分布し, 岩脈の幅は最大約13m, 平均約7mである。
その方向は海岸脈と同じくNNE—SSWで, 傾斜もほ
ぼ直立している。また, 「陶石化」の不十分な部分も多
く, 海岸脈と多くの類似点を持っている。この岩脈には
小田床・榎ノ木谷・山の小平・内山など9鉱体が分布
し, 29,200t/年(1973年)の陶石が生産されている。

皿山脈は高浜から約3km内陸の皿山付近に分布す
る。他の岩脈に比べて幅が広く, かつ膨縮に富み, 幅は
最大約25m, 平均約15mである。延長方向はNW—S
E, 傾斜は平均約45°NE (上野, 1952) であるが, とく
に南半部の伝兵エ木場・谷通両鉱体では変化に富んでい
る。岩脈の延長は約3kmであるが, 岩体のほぼ全体が
「陶石化」されている点が他のすべての岩脈と異なっ
ている。伊口山・剣迫・伝兵エ木場・合通など8鉱体が分
布し, 22,100t/年(1973年)の陶石が生産されている。

鬘の水脈は皿山脈からさらに約1km内陸に位置する
鬘の水山付近に分布する。その延長は1.7km, 脈幅は5
~7m, 方向はNNW—SSEで, ほぼ皿山脈に並行し, 傾
斜は35°NEで岩床状に貫入している (上野, 1952)。この
岩脈の「陶石化」の程度は不十分で, 通常天草陶石の
用途には耐え得ない。大鬘・小鬘など3鉱体が分布する
が, 1974年6月現在稼行されていない。

深海脈は南海岸地域で陶石鉱床を胚胎する唯一の流紋
岩脈で, 牛深市深海より同市・内の原にかけ, 約3km
にわたって分布している。岩脈の幅は8~15m, 平均約
12mで, その方向はNE—SW, 傾斜は20~40°NWと,
周囲の堆積岩の層理に調和的である。岩脈を切る断層付
近でのみ「陶石化」が進んでおり, 稼行の対象となら
ない部分が多い。小迫 (久恒)・内の原・古道など6鉱体
が分布し, 約7,000t/年(1973年, 推定)の陶石が生産
されている。

富岡鉱体は富岡半島白岩崎付近に位置しているが, 原

岩の流紋岩脈は古第三系を貫き, 花崗閃緑岩株による熱
変成をこうむっている (高橋, 1965) ことがわかるのみ
で, 岩体の明瞭な輪郭は不明である。その分布の様子か
らは一定の方向性を有しない塊状の形態を持つものと推
定される。鉱体は岩脈内に走るNNW—SSE性の断層
に沿って分布しているが, その「陶石化」の程度は弱
く, 通常天草陶石の用途には適さない。現在3,920t/
年(1973年)の低品位陶石が生産されている。

以上の各岩脈・鉱体に産する陶石は常に石英と粘土鉱
物を含み, かつ, しばしば長石類を伴うが, 粘土鉱物お
よび長石類の種類と量比は岩脈または鉱体により異な
る。すなわち, 海岸脈・村山脈・皿山脈・鬘の水脈に産
する陶石にはセリサイト, それより少量のカオリナサト
が普通に含まれるのに対し, 深海脈産のそれはほとんど
カオリナイトのみを含み, セリサイトは無視し得る程度
である。一方, 富岡鉱体産の陶石には主としてセリサイ
トが含まれ, カオリナイトおよびモンモリロナイトが断
層周辺の風化帯に限って分布する。また, 弱変質部に残
存する長石類についても, X線粉末回折によって知られ
る限り, 深海脈では斜長石よりもカリ長石が優勢である
のに対し, 他の岩脈・鉱体にはほとんどの場合, 斜長石
のみが含まれ, カリ長石はごくまれにしかみいだされな
い。また, これらの斜長石中のAnモル組成をBAMBAUER
et al. (1967)の方法により検討すると, 皿山脈 (伝兵エ
木場鉱体) ではAn (mol.%) = 3の曹長石, 富岡鉱体
ではAn (mol.%) = 13の灰曹長石, 他の岩脈では両者
の間の組成を有する曹長石または灰曹長石を, それぞれ
含んでいる。さらに, 深海脈に含まれるカリ長石の種類
はWRIGHT (1968)の方法では正長石あるいは高温サニ
ディンで, そのOr (wt.%) = 70~75である。

3. 伝兵エ木場鉱体

3.1 地質

伝兵エ木場鉱体とその周辺の地質 (第2および第3図
参照) は上部白亜系 (ヘトナイ統) に対比される堆積岩
類と, それを貫く流紋岩脈からなる。

3.1.1 上部白亜系

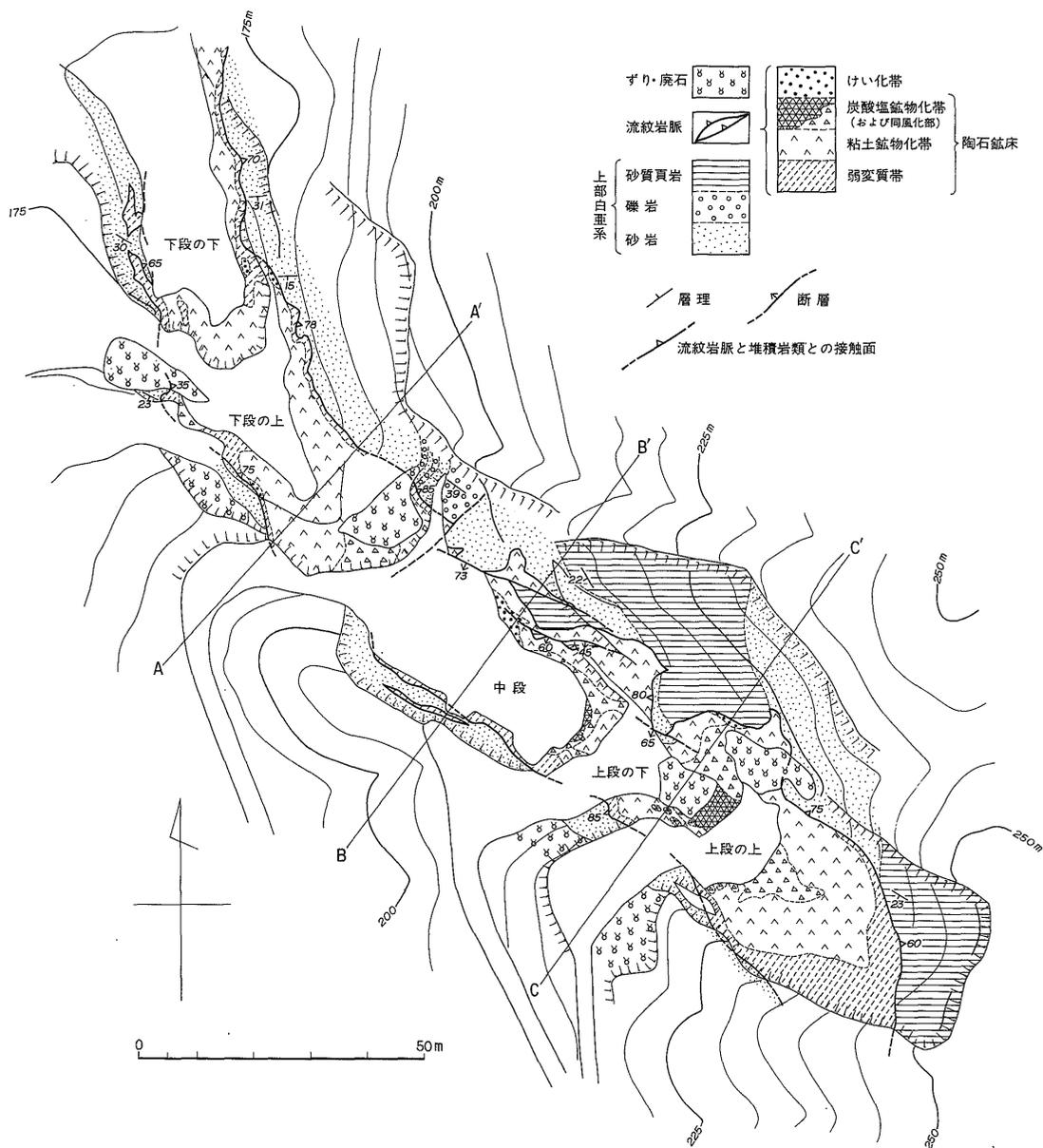
堆積岩類は一部に礫岩を挟む砂岩頁岩互層であるが,
鉱床付近では砂岩相が優勢である。MIKI (1972)によ
れば, これらはヘトナイ統最上部のG層またはH層に相
当するものである。鉱体付近で観察される走向はE—W
ないしNW—SEで, 傾斜は15~40°SまたはSWであ
る。

砂岩は中~粗粒, 灰~灰白色で, 緻密・堅硬である。

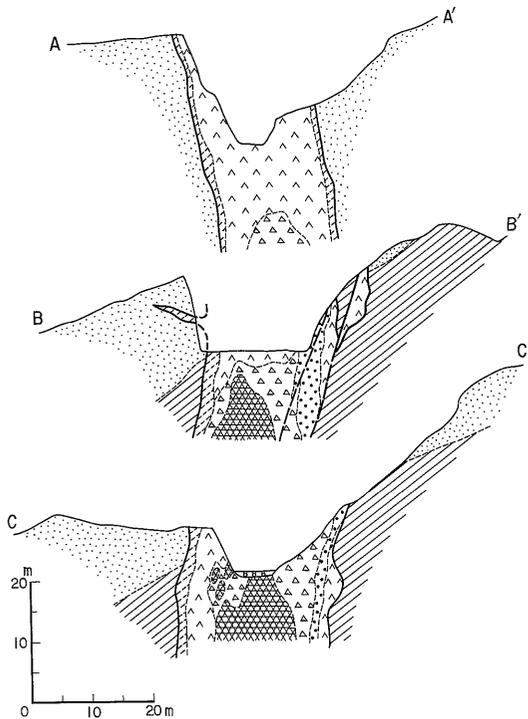
鏡下では円磨度の不良な最大径約 2 mm, 平均径約 0.5 mm の石英・カリ長石・斜長石の粒子を, より細粒の石英・長石および変質鉱物としてのセリサイトなどが埋めているのが観察される (Plate 19—1). 採掘場南部に分布する上位層では石英に富み, 同北部に分布する下位層では長石に富む傾向を示す. 頁岩は灰黒色, 砂質で, 砂岩と比較して軟質である. 層理は明瞭であることが多い. 礫岩はチャート・頁岩・砂岩・安山岩様火成岩の細

礫あるいは亜円礫を含む. 礫の平均径は約 3 cm で, 礫部が基質部より多い.

以上の岩層は次に述べる流紋岩脈との接触部付近では変質作用をこうむり, 白色化している. しかし, その変質の程度は軽微なもので, 流紋岩脈に最も近く位置する長石質砂岩においてすら, 長石類がかなり新鮮なまま残存している (Plate 19—1).



第 2 図 伝兵エ木場鉱体地質・変質平面図



第 3 図 伝兵エ木場鉱体地質・変質断面図
凡例は第 2 図と同じ

3.1.2 流紋岩脈

流紋岩脈は当鉱体の原岩を構成するもので、上記堆積岩類中に NNW—SSE ないし NW—SE 方向に貫入している。傾斜は鉱体北部では 35~80°E、同南部では 85°W あるいは 60~70°E と一定しない。いずれにしても、皿山脈の一般的傾斜である 35~40° (上野, 1952) よりも急傾斜である。岩脈の幅は平均約 20m、採掘場中央部では最大 25m を示すが、南北に向かってややせままる傾向にある。

この岩脈は採掘場とその付近では全体に著しい変質作用をこうむっており、原岩の組織あるいは鉱物組成の判定が困難である。ただし、岩脈周縁部の幅 1~2m を占める急冷縁相の部分は岩脈中央部に比べ堅硬で、長石類 (鏡下および X 線回折では斜長石のみが確認される) もかなり多く残存している。

採掘場南端部より採集した急冷縁相試料を鏡下で観察すると、斑晶として石英および斜長石が認められ、石基は細粒の石英および長石からなっている。変質鉱物のセリサイトが斜長石斑晶の割れ目に沿って生じているほか、石基部にも多く分布している。斑晶の石英は融食型を呈し、その直径は 0.5~1.0mm である。また、斜長石斑晶は一般に長柱状をなし、長さは平均 0.7mm である (Plate

19—2)。この試料の斜長石は Cu K α 線による X 線粉末回折図では $2\theta(131) - 2\theta(1\bar{3}1) = 1.14^\circ$ となり、BAMBAUER et al. (1967) によれば An 含量約 3 mol.% の曹長石に相当する。ただし、この値が原岩に含まれていた斜長石の組成をそのまま表わしているかどうかは明らかでない。

3.1.3 断層および節理

断層は採掘場南半部において、岩脈に並行した走向 NW—SE、傾斜 45~85° SW の正断層が認められる。また、採掘場の中央部付近に、岩脈にほぼ直交した NE—SW 方向の断層 (傾斜は不明) の存在が推定される。

節理は、やや不明瞭な柱状節理が急冷縁相の内側にみられ、その方向は岩脈と堆積岩類の接触面にほぼ直立している。また、岩脈中央部には、岩脈の方向に直交し、ほとんど垂直の傾斜を示す板状節理様の割れ目がみられ、その周辺では「陶石化」の進んでいることが多い。

3.2 鉱床

伝兵エ木場鉱体は上述の流紋岩脈中に胚胎され、とくに「陶石化」作の進んだ部分が採掘の対象とされている。採掘場の延長は約 200m、幅は約 30m で、岩脈の分布位置にほぼ一致している。従来採掘の対象とならなかった部分は岩脈内のけい質の部分と、多量に長石または炭酸塩鉱物の残存する部分であったが、後者は近年になり、塩酸処理による品位の向上が工業的に可能となったため、現在ではけい質部を除く岩脈のほぼ全体が採掘の対象となっている。

3.3 鉱石の性質と分布

この鉱体から産する鉱石は他の天草陶石と同様に、耐火度・Fe₂O₃ 含量・焼成時の白色度・採掘時の塊の大きさ・特定の鉱物 (主に炭酸塩鉱物) の有無などにより、「1等」~「4等」・「変色」などに級別されている。ここでは、野外観察による色調を分類の基準とし、各々の性質の概略を述べる。

3.3.1 優白質良質鉱 (「2等」鉱)

この鉱体から産する最も良質の鉱石で、灰白~白色を呈し、やや軟質で、しばしばろう感を伴う。また、割れ目に褐鉄鉱をフィルム状に付着させることがあり、これを人工的に除去することにより、「1等」鉱あるいは「特等」鉱とすることができる。耐火度は SK26~27、Fe₂O₃ 含量は 0.8% 以下であることが要求される。後述する変質分帯の中の粘土鉱物化帯に相当し、その中のとくに優白質の部分である。鉱体北部の岩脈にはほぼ直交する急傾斜の板状節理付近に多く分布する。

3.3.2 黄褐色低品位鉱 (「3等」鉱および「4等」鉱)

野外では黄褐色または灰褐色を呈し、比較的低品位の鉱石である。全体として褐鉄鉱が微粒をなして付着する

場合が多く、とくに縞状に濃集したものは「シマ」鉱と呼ばれ、「4等」鉱に級別されている。耐火度はSK20~27とやや低く、 Fe_2O_3 含量は0.8%以上である。変質分帯としては、上述の優白質良質鉱の部分を除くすべての粘土鉱物化帯および弱変質帯に相当する。この鉱体において最も広い分布を示す鉱石である。

3.3.3 「変色」鉱

採掘時に地表へ露出した際は灰白色であるが、時間の経過とともに、黒褐色・黄褐色・赤褐色などに変色するためにこのような名称をつけられた低品位部である。この変色現象は、含まれる菱鉄鉱の風化分解に伴う褐鉄鉱の生成に起因すると考えられる。典型的な「変色」鉱の耐火度はSK18と低い。後述する変質分帯では炭酸塩鉱物化帯に相当する部分である。

3.4 変質帯の分布と産状

当鉱体に分布する変質岩の主要な構成鉱物は石英・セリサイト注2)・カオリナイトであるが、それらの相対的な量比は場所により変化し、比較的少量伴われる他の変質鉱物および残存鉱物の分布にも規則性が見られることがある。これらの鉱物組成の違いをもとに、筆者は当鉱体における変質帯を次の4つに分帯した。

炭酸塩鉱物化帯

粘土鉱物化帯

けい化帯

弱変質帯

これらの変質帯は流紋岩脈の中心部から周縁部へむけて上述の順序に累帯分布を示している(第2図、第3図)。ただし、各変質帯は一般に漸移関係にあり、炭酸塩鉱物化帯およびけい化帯の輪郭は肉眼的にも比較的明瞭であるのに対し、とくに、粘土鉱物化帯と弱変質帯との境は肉眼的には識別が不可能の場合が多い。

3.4.1 炭酸塩鉱物化帯

石英・セリサイト・カオリナイトのほかに炭酸塩鉱物(方解石および菱鉄鉱)を含む部分である。未風化部では灰白色であるが、風化部においては菱鉄鉱が分解して褐鉄鉱が生じ、黄褐色・黒褐色などの斑点が生じる。第2図および第3図ではこのような風化部もこの変質帯に含めて図示してある。

この変質帯は岩脈の深部に分布し、地表付近では風化部に漸移し、さらに粘土鉱物化帯あるいは弱変質帯に接している。

鏡下観察では、石基中のセリサイトが羽毛状に、約

注2) 後述するように、伝兵衛木場鉱体に産する白色の雲母質粘土鉱物は、正確には、ほとんどすべてセリサイト-モンモリロナイト不規則混合層鉱物である。しかし、この報文では簡単のため、特別の場合を除き、単にセリサイトと呼ぶことにする。

0.2 mm の長さで成長し、さらにその空隙を、菱鉄鉱と思われる炭酸塩鉱物が充填しているのが認められる(Plate 19—3)。

3.4.2 粘土鉱物化帯

主要な鉱物組成が石英・セリサイト・カオリナイトからなる部分で、当鉱体の地表部では最も広い分布を示す変質帯である。

この変質帯は、岩脈の外縁部へ向けては弱変質帯あるいはけい化帯に、岩脈の深部へ向けては炭酸塩鉱物化帯に、それぞれ漸移する。

鏡下観察によれば、斜長石は全く認められず、斑晶は石英のみからなり、石基部は微細な石英とそれらを埋めるセリサイトからなっている。セリサイトは石英粒を埋めて一様に分布する微粒状のもの(直径10 μ 以下)と、それより結晶粒が大きく、集合体として分布する葉片状のもの(長さ0.1~0.2 mm)とがみられる(Plate 20—1)。

なお、カオリナイトは長石斑晶を交代したと考えられる集合体(Plate 20—2)として認められ、それ以外の場合には鏡下観察によっては確認されない。

3.4.3 けい化帯

鉱物組成は石英・セリサイト・カオリナイトからなり、粘土鉱物化帯と変わらないが、けい化作用が顕著で、著しく堅硬な部分である。分布範囲は他の変質帯と比較して狭く、一般に岩脈と堆積岩との接触部付近に限られるが、岩脈の急冷縁相よりは内側に分布する場合が多い。ただし、採掘場中段北東側では周囲の砂質頁岩中にもけい化作用の及んでいる例がみられる。

鏡下観察では、石英・セリサイト(およびX線粉末回折によればカオリナイト)からなる変質流紋岩の割れ目を石英細脈が充填しているのが認められる(Plate 20—3)。

3.4.4 弱変質帯

鏡下観察あるいはX線粉末回折により石英・セリサイト・カオリナイトのほかに斜長石の存在が確認される部分で、斜長石は原岩からの残存物である。この変質帯は主に、堆積岩との接触部から1~2 mの部分占める岩脈の急冷縁相に分布するが、岩脈中央部にも分布する場合がある。

鏡下観察では、斜長石が数多く残存しているが、その外形は不明瞭となり、結晶全体に散在して多くのセリサイトが生成している(Plate 19—2)。

なお、流紋岩脈との接触面付近の堆積岩類も変質作用をこうむって灰白色化しており、セリサイトおよびカオリナイトが生成している。長石類を含む砂岩の場合は、長石類がかなり新鮮のまま残存している(Plate 19—1)

変質帯 変質鉱物	弱変質帯	けい化帯	粘土鉱物化帯	炭酸塩鉱物化帯
石英 (註)				
セリサイト				
カオリナイト				
方解石				
菱鉄鉱				
斜長石 (註)				

第4図 伝兵エ木場鉱体における変質帯の鉱物組成

(註) 石英には原岩中にすでに含まれていたものと変質作用によって生じたものの2通りの起源が考えられ、また、斜長石は原岩中に含まれていたものが残存していると考えられる。しかし、全体の石英の中から変質起源のもののみを取出すことはいまのところ不可能であり、また、斜長石は変質分帯の際の指標となる鉱物なので、両者ともX線粉末パターン上に現われるおおよその量比をそのまま表わした。

ので、上述の定義では、この部分も弱変質帯に相当すると思われる。しかし、その分布範囲を明確に把握することは困難であり、また、こうむった変質作用の程度も流紋岩脈における場合よりもはるかに低いので、第2図および第3図においては、堆積岩類の分布域での分帯は行っていない。

以上に述べた各変質帯と鉱物組成との関係を第4図に示す。

3.5 変質鉱物

当鉱体を形成した変質作用に伴う鉱物としては、セリサイト・カオリナイト・石英・炭酸塩鉱物などがあり、風化作用によって形成されたと考えられるものに褐鉄鉱がある。これらのうち、セリサイト・カオリナイト・炭酸塩鉱物について、X線粉末回折のほか、示差熱分析および熱重量分析を行って、その性質を検討した。

3.5.1 セリサイト(セリサイトーモンモリロナイト不規則混合層鉱物)

セリサイトは当鉱体において見出される変質鉱物の中で最も量の多いものである。しかし、そのX線粉末パターンにおける第1次底面反射ピーク(10Å)と第2次底面反射ピーク(5Å)の半価幅の変化の割合を検討すると(SHIROZU and HIGASHI, 1972)、ほとんどすべてが、若干の膨潤層を含むセリサイトーモンモリロナイト不規則混合層鉱物であることがわかる。この方法によって、膨潤層のおおよその含有率を検討した結果、当鉱体産セリサイトの多くには5%前後の膨潤層が含まれ、中には12~15%もの膨潤層を含むものも明らかになった。これを他の鉱体の場合と比較すると、小鬘(鬘の水脈)・伊口山(皿山脈)・内山(村山脈)各鉱体には、ときに5%程度の膨潤層を含むものもみられるが、浜平

(海岸脈)・新山(海岸脈)・富岡(富岡半島)各鉱体ではまれであり、さらに、小田床(村山脈)鉱体ではほとんどすべてが膨潤層を含まないセリサイトである。すなわち、検討した8つの鉱体の中で伝兵エ木場鉱体は膨潤層を含むセリサイトを最も多く産し、また、含まれる膨潤層の量比も最も大きい。

このことは示差熱分析曲線(第5図)および熱重量曲線(第6図)においても示されている。すなわち、示差熱分析曲線においては、どの試料にも100℃前後において吸熱ピークが認められ、この反応は0.5~1.0%の減量を伴う。X線粉末回折の結果も考え合わせると、この反応はセリサイトーモンモリロナイト混合層鉱物中に含まれるモンモリロナイト層からの脱水によるものと考えられる。

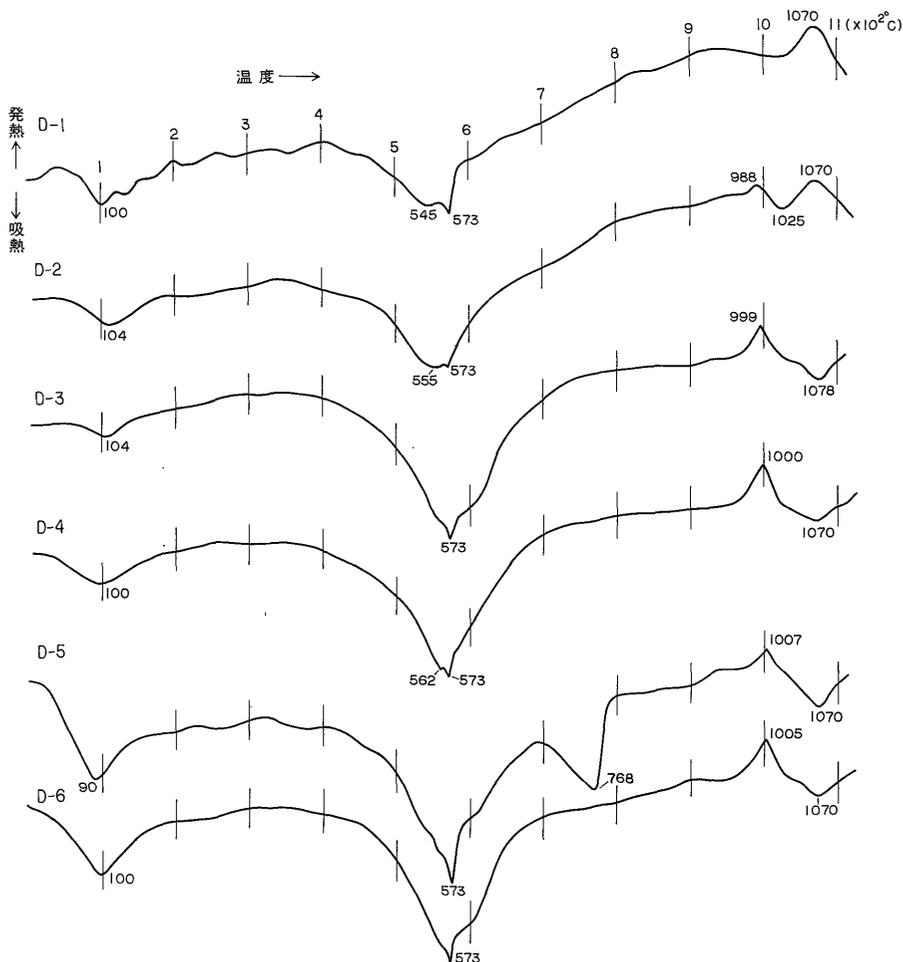
また、セリサイトのポリタイプをX線粉末回折パターンから判定すると(YODER and EUGSTER, 1955)、当鉱体産のものは、岩脈周辺の堆積岩中に生成したものも含め、すべて1Mである。他の鉱体産の試料についても、富岡鉱体が例外的に2Mのセリサイトを産するのみで、その他の鉱体(X線的には検出できない深海脈を除く)ではいずれも1Mのもののみがみられる。

3.5.2 カオリナイト

カオリナイトは当鉱体でセリサイトに次いで多い変質鉱物ではあるが、含有率は低く、変質帯のX線粉末回折パターンにおいて約7Åおよび約3.5Åの底面反射が識別されるのみである。従って、鉱物種の同定は困難であるが、示差熱分析曲線における約550℃の顕著な吸熱ピークはナクライトあるいはディッカイトよりは低温、メタハロイサイトよりは高温に位置するので、おそらくカオリナイトであろう。

3.5.3 炭酸塩鉱物(方解石・菱鉄鉱)

いわゆる「変色」鉱体に含まれる炭酸塩鉱物は、方解石と、より少量の菱鉄鉱であることがX線粉末回折によって知られる。未風化の「変色」鉱(D-5)の示差熱分析曲線(第5図)には減量を伴う非対称形の吸熱ピークが768℃に認められる。WEBB and KRÜGER (1970)によれば、方解石は860~1010℃、菱鉄鉱は550℃付近に、それぞれ特徴的な吸熱ピークを有するが、上記のピークはそのいずれにも当てはまらない。鏡下観察・X線粉末回折により他の鉱物の存在が全く認められないので、方解石の分解ピークである可能性が最も大きい。しかし、通常の方解石の吸熱ピークの位置と比較して、大幅に低温側にずれる理由は今のところ不明である。菱鉄鉱のピークはその温度から推定して、カオリナイトの吸熱ピークと重複しているものと考えられる。



第5図 伝兵エ木場鉱体産変質岩の示差熱分析曲線

使用装置：理学電機(株)製自動記録式大型示差熱天秤装置。

測定条件：試料重量 0.30g, 試料粒度-325メッシュ, D.T.A 感度 $\pm 25\mu V$, 昇温速度 $10^\circ C/min.$, 熱電対 Pt-Pt-Rh (13%), 標準試料 $\alpha-Al_2O_3$, 試料容器 Pt アンプル (8φ×15mm), 雰囲気 空気, チャート速度 18cm/hr.

各試料の相当する変質帯：D-1, D-2 弱変質帯, D-3 粘土鉱物化帯(最良質陶石), D-4 粘土鉱物化帯風化部(「シマ」), D-5 炭酸塩鉱物化帯(「変色」), D-6 炭酸塩鉱物化帯風化部。

3.6 化学組成

3.6.1 化学分析結果

流紋岩を原岩とする変質岩のうち、変質作用および風化作用の種々の段階を示す6個の試料について行った化学分析結果を、みかけ比重・耐火度とともに第1表に示す。なお、同じ試料の示差熱分析曲線および熱重量分析曲線はすでに、それぞれ第5図および第6図に示した。

試料の採取位置は第7図に示す通りで、次の産状を呈する。

D-1 (AM1-33)：岩脈北東側の堆積岩との接触部における急冷縁相。当鉱体では変質作用の影響が

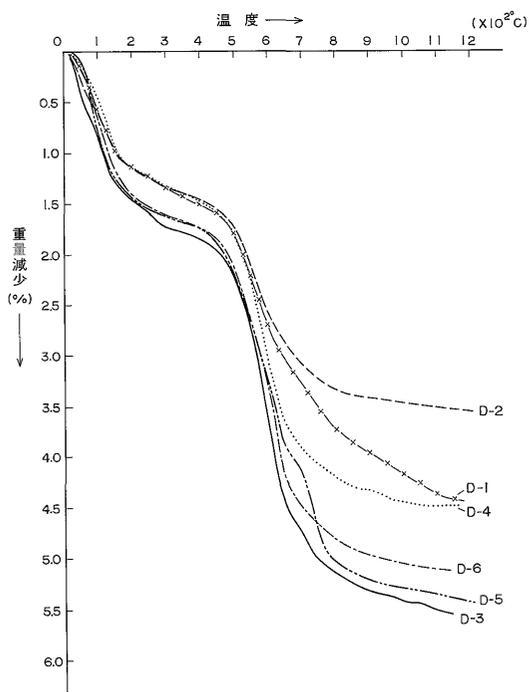
最も小さい部分で、多量の斜長石が残存する。弱変質帯に属する。

D-2 (AM1-19B)：岩脈南西側の堆積岩との接触部における急冷縁相で、わずかに斜長石の残存がみられる。弱変質帯に属する。

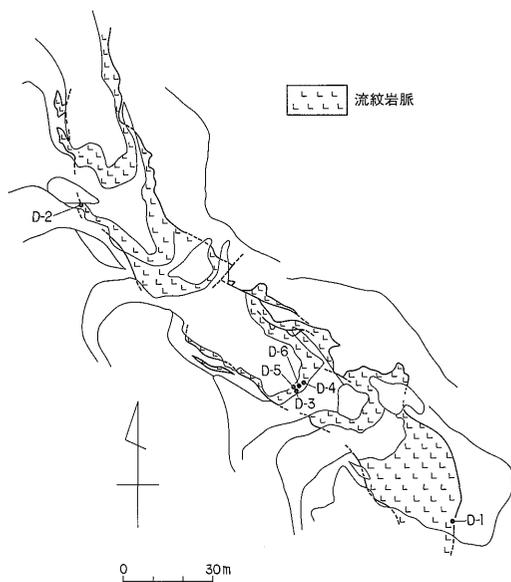
D-3 (AM1-27)：当鉱体に産する最も良質の鉱石。粘土鉱物化帯に属する。

D-4 (AM1-26C)：縞状に微粒の褐鉄鉱濃集部を伴い「シマ」鉱と呼ばれる低品位鉱。粘土鉱物化帯の風化部。

D-5 (AM1-28)：未風化の「変色」鉱。炭酸塩



第6図 伝兵エ木場鉛体産変質岩の熱重量分析曲線
 使用装置・測定条件および試料は第5図の示差熱分析と同じ(同時測定)。ただし、重量感度は±25mg。



第7図 化学分析試料採取位置図

第1表 伝兵エ木場鉛体産変質岩の化学組成・みかけ比重・耐火度

試料番号	D-1	D-2	D-3	D-4	D-5	D-6
	AM1-33	AM1-19B	AM1-27	AM1-26C	AM1-28	AM1-26A
SiO ₂	wt. % 75.58	wt. % 76.88	wt. % 77.94	wt. % 76.78	wt. % 74.98	wt. % 77.15
TiO ₂	0.02	0.03	0.04	0.02	0.02	0.03
Al ₂ O ₃	15.69	14.50	13.97	14.60	15.05	15.08
Fe ₂ O ₃	0.32	0.42	0.06	0.90	0.08	0.34
FeO	0.22	0.63	0.16	0.20	0.57	0.38
MnO	0.01	—	—	—	—	—
MgO	0.09	0.25	0.14	0.08	0.12	0.17
CaO	0.08	0.01	0.14	0.13	1.18	0.14
Na ₂ O	2.68	1.35	1.25	1.10	1.07	0.90
K ₂ O	2.71	2.31	2.75	2.21	2.24	2.40
S	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.03
CO ₂	<0.01	0.01	0.02	0.01	1.03	0.12
H ₂ O+	2.23	3.04	3.09	3.37	3.25	2.92
H ₂ O-	0.24	0.26	0.18	0.26	0.14	0.18
Total	99.89	99.68	99.75	99.66	99.74	99.84
みかけ比重	2.66	2.42	2.47	2.35	2.35	2.35
耐火度 (SK)	16	17	27+	27	18+	26+

(化学分析：東京石炭鉱物研究所 耐火度試験：上田陶石合資会社)

鉱物化帯に属する。

D-6 (AM1-26A) : 斑点状に褐鉄鉱の集合体を伴い、わずかながら炭酸塩鉱物も残存する炭酸塩鉱物化帯の風化部。

最も原岩に近い組成を有すると考えられる試料D-1と、最も「陶石化」の進んだ試料D-3との組成を比べると、D-3において $\text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ の増加および $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot \text{Na}_2\text{O}$ の減少が認められ、 K_2O は大きな変化を示さない。

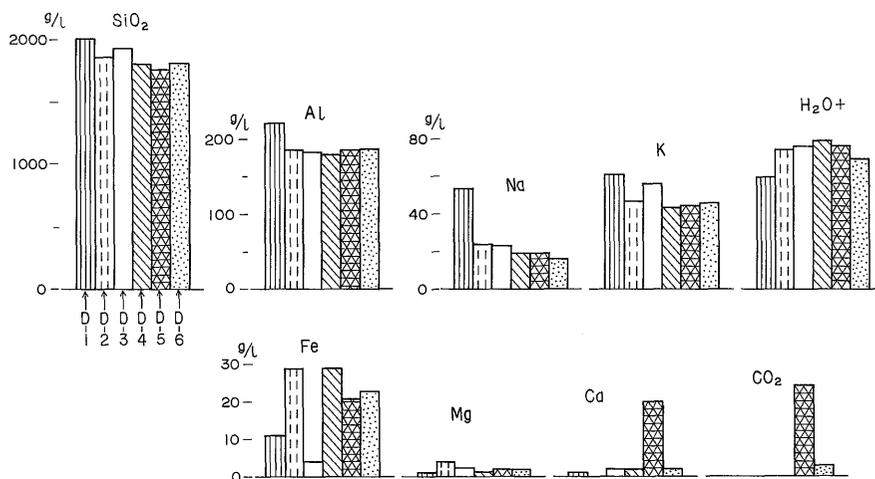
3.6.2 化学成分の増減

重量百分率で表わされた第1表の結果は変質作用に伴う化学成分変化の大体その傾向を示すが、各化学成分の増減をより定量的にみるために、各試料のみかけ比重をそれぞれの化学分析値にかけ合わせて、単位体積当たりの各成分の量 (g/l) を計算した。もちろんこの場合、変質作用による原岩の体積変化は無視できるほど小さかったとの仮定が入っている。この結果を第2表A欄および第8図に示した。また、すべての試料の原岩は同一のものであったと仮定し、原岩に最も近い組成を有すると考えられるD-1を基準とした場合の各試料における諸

第2表 伝兵エ木場鉱体産変質岩の単位容積当たり化学成分量 (A欄), および最も変質程度の低い弱変質岩 (D-1) を基準とした際の主な化学成分の増減率 (B欄)

(単位: A欄 g/l; B欄%)

試料番号	D-1		D-2		D-3		D-4		D-5		D-6	
	A	B	A	B	A	B	A	B	A	B	A	B
SiO_2	2,010	-	1,860	-7.5	1,925	-4.2	1,804	-10.2	1,762	-12.3	1,813	-9.8
Ti	1	-	1	-	1	-	0	-	0	-	1	-
Al	221	-	186	-15.8	183	-17.2	181	-18.1	187	-15.4	187	-15.4
Fe	11	-	19	+73	4	-64	19	+73	11	0	13	+18
Mn	0	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Mg	1	-	4	+300	2	+100	1	0	2	+100	2	+100
Ca	1	-	0	-100	2	+100	2	+100	20	+1,900	2	+100
Na	53	-	24	-55	23	-57	19	-64	19	-64	16	-70
K	60	-	46	-23	56	+7	43	-28	44	-27	46	-23
S	1	-	0	-	0	-	0	-	0	-	1	-
CO_2	0	-	0	-	0	-	0	-	24	-	3	-
$\text{H}_2\text{O}+$	59	-	74	+25	76	+29	79	+34	76	+29	69	+17
$\text{H}_2\text{O}-$	6	-	6	-	4	-	6	-	3	-	4	-



第8図 伝兵エ木場鉱体産変質岩の単位容積当たり化学成分量

成分の増減率を第2表B欄に示した。

D-1と他の試料とを比較すると、明らかな増加を示すものは H_2O+ のみで、 $SiO_2 \cdot Al \cdot Na \cdot K$ などは減少の傾向を示している。ただし、 SiO_2 については、後に述べるように、ある程度D-1中に2次的に付加された可能性があるため、第2表に示された減少率は過大評価されている可能性が大きい。しかし、それを度外視してもなお、 SiO_2 はAlとともに、D-1中の存在量に対する変化の比率の最も小さい成分の一つである。また、アルカリ金属の中ではNaがKよりも減少率が大きい。他の成分については、その絶対量が小さいので正確な挙動は把握しにくい。大よそ、 $Mg \cdot Ca$ および CO_2 は増加の傾向、 H_2O- は減少の傾向を示す一方、Feは変化が激しく一定の傾向を示さず、TiおよびSはほとんど変化しない。風化作用による影響については、D-4はD-3の、D-6はD-5の、それぞれ風化部であるという野外の産状をもとに各々を比較すると、Feは増加し、 $Ca \cdot Na \cdot CO_2$ が減少するなどの一般的な傾向を認めることができる。

3.7 変質帯の形成過程

K_2O -または $Na_2O-SiO_2-Al_2O_3-H_2O$ 系においては、アルカリ長石・アルカリ雲母・カオリナイトなどの安定領域は、一定の圧力と過剰の石英の存在下では、溶液中の $Na^+, K^+/H^+$ 比と温度とによって決定される (HEMLEY and JONES, 1964)。すなわち、アルカリ長石は高温、かつ、高い $Na^+, K^+/H^+$ 比の場合に、カオリナイトは低温、かつ、低い $Na^+, K^+/H^+$ 比の場合に、アルカリ雲母は $Na^+, K^+/H^+$ 比が前2者の中間の場合に、それぞれ安定である。

炭酸塩鉱物化帯を除けば、当鉱体の各変質帯を構成する鉱物組み合わせは石英-カオリナイト-セリサイト-アルカリ長石とみることができるので、変質帯の形成過程をHEMLEY and JONES (1964)の実験結果にもとづいて考察してみよう。

変質岩の分布が、ほぼ流紋岩脈の中に限られることや、岩脈内での各変質帯の分布の様子(第3図)などから判断して、変質作用は流紋岩脈の貫入をもたらした火成活動と一連のものである可能性が大きい。おそらく、流紋岩脈の貫入と固結に続いて、岩脈内部を上昇してきた熱水溶液は、岩脈と堆積岩との接触部に形成されていた急冷縁相の緻密な組織に妨げられて、岩脈の外部へ放出されることが少なく、主に岩脈内部を通過・上昇したものと考えられる。

また、この溶液中の $Na^+, K^+/H^+$ 比はアルカリ長石が安定に存在するためには低すぎ、従って、主に岩脈の内

側の部分で、すでに形成されていたアルカリ長石をカオリナイトあるいはセリサイトに変質させていったであろう。この反応は固相の容積の減少・溶液中へのけい酸分の放出・溶液の $Na^+, K^+/H^+$ 比の増大などをもたらしたと考えられる (HEMLEY and JONES, 1964; MEYER and HEMLEY, 1967)。その結果、岩脈内側の孔隙率は増大し、一方、溶液は自身の $Na^+, K^+/H^+$ 比を増加させながら岩脈の周縁部へ移動していったと考えられる。しかし、そこでは、急冷縁相の小さな孔隙率や溶液自身の $Na^+, K^+/H^+$ 比の高さに妨げられて十分な反応を行うことができず、多くの長石類が分解されずに残存することになったであろう。カオリナイトを伴わず、セリサイトのみを粘土鉱物として含む部分が、まれにはあるが、当鉱体の急冷縁相部の弱変質帯にのみ認められることは、この部分に達した熱水溶液がすでに、カオリナイトが安定に存在し得ないほどの高い K^+/H^+ 比を有していたことを暗示する。そして、溶液中に溶解していたけい酸分は、おそらく、温度の低下によって (HOLLAND, 1967) その場に沈殿し、けい化帯が形成されたのであろう。

一方、岩脈内部では変質作用の進行に伴ってさらに孔隙率は大きくなり、その結果形成された空間にセリサイトが大きく成長した (Plate 19-3 および Plate 20-1)。さらに、変質作用の最後の段階で、残された孔隙を埋めて方解石あるいは菱鉄鉱が形成されたものと考えられる (Plate 19-3)。

4. 他の鉱体における変質岩の化学組成

伝兵エ木場鉱体以外の鉱体における変質作用と風化作用についても、3.6.2において行ったと同様の、化学分析値とみかけ比重をもとにした化学成分の挙動に関する検討を行った。対象とした鉱体は新山(海岸脈)・小迫(深海脈)・富岡(富岡半島)の3鉱体で、試料数は計17個である。試料の種類およびX線粉末回折によって知られた大よその鉱物組成を第3表に示す。また、これら試料の化学分析値・みかけ比重・耐火度を第4表に、単位容積当たりの化学成分量を第5表に、それぞれ示した。

新山鉱体では、化学成分量の基準とした試料S-1中に、ある程度の方解石が含まれているために、Caおよび CO_2 の増減量は事実を正確に反映しているかどうかは疑問である。しかし、それ以外の成分については、Na・Kの減少と H_2O+ の増加が顕著であるほか、Feの減少傾向がみられる。Alはわずかに増加傾向にあるが、ほとんど変化がないといつてよい。

第3表 新山・小迫・富岡各鉱体産変質岩の鉱物組成

鉱体名	鉱物名		Q	S	K	Pl	Kf	C	M
	試料番号	岩質							
新山 (海岸脈)	S-1	弱変質岩	◎	△		○			
	"-2	粘土鉱物化急冷縁相	◎	○	△				
	"-3	優白質陶石	◎	○	△				
	"-4	「シマ」鉱	◎	△	○				△
	"-5	「変色」鉱	◎	○	△				×
小迫 (深海脈)	F-1	弱変質岩	◎	×	△	△	○		
	"-2	弱変質岩の風化部	◎	×	△	○	△		×
	"-3	「シマ」鉱	◎	×	○		△		
	"-4	優白質陶石 (F1等) 鉱	◎	×	○		×		
	"-5	陶石 (F2等) 鉱	◎		○				×
	"-6	けい化岩	◎	×	○				
富岡 (富岡半島)	T-1	弱変質岩	◎	△		○			
	"-2	優白質陶石	◎	△		○			
	"-3	断層から3m離れた風化岩	◎	△		○			
	"-4	断層から2m離れた風化岩	◎	△	×	○			
	"-5	断層から1m離れた風化岩	◎	△	○		×		
	"-6	地表部の風化岩	◎	×	△	○	△		

◎非常に多い, ○多い, △少ない, ×非常に少ない
 Q: 石英, S: セリサイト, K: カオリナイト, Pl: 斜長石,
 Kf: カリ長石, C: 方解石, M: モンモロロナイト

小迫鉱体は深海脈に分布する他の鉱体と同様に, 原岩にカリ長石が多く含まれることと, 変質鉱物としての粘土鉱物がほとんどすべてカオリナイトからなることの2つの点で, 他の岩脈に分布する鉱体と異なっている。このような特徴は化学成分の増減にも顕著に表われており, 変質岩におけるアルカリ金属, とくにKの大幅な減少とH₂O+の増加が認められる。他の成分については, Fe・Mg・Caなどに減少の傾向がみられるが, Alは変化の幅が最も小さい。

富岡鉱体の変質岩は多少とも風化を受けたものが多く, それによる影響が重なっている可能性があるが, 他鉱体の場合と比較して化学成分の変化にとくに大きな差異はみとめられない。

以上の3鉱体および前節で述べた伝兵衛木場鉱体について, 各鉱体で最も変質程度の小さい弱変質岩を基準とした際の, 最も「陶石化」の進んだ変質岩(富岡鉱体で

は風化岩)における主な化学成分の変化の割合を第9図に示す。すべての鉱体に共通して認められる特徴は, 変質作用あるいは風化作用に伴うアルカリ金属・Fe・アルカリ土金属などの減少とH₂O+の増加である。アルカリ金属の中でもKよりもNaが一般に減少の程度が大きい。一方, SiO₂およびAlもある程度の変化を示すが, その比率は他の成分に比べてはるかに小さい。このように, 変質作用あるいは風化作用に伴って顕著に増加する成分はH₂O+のみで, 他の成分はすべて, 減少するか, あるいはほとんど増減を示さない。ただし, 第9図には示されないが, 変質作用の局部的な過程(炭酸塩鉱物化)においてはCaやCO₂のように大幅な増加を示す成分もある(第8図)。

5. 天草陶石鉱床における変質作用の性格

変質作用の過程での各元素の挙動を検討する場合には原子量の小さい水素の役割が過小評価されるのを防ぐために, 各元素をイオン形とした場合のグラム当量に換算して比較することが必要である(HEMLEY and JONES, 1964; MEYER and HEMLEY, 1967)。前記の4鉱体の22試料について得られた単位容積当たりのH⁺および主な金属陽イオンのグラム当量値(g. eq./l)とその変化を第6表に示した。ただし, 実際の含有量を示すのは各鉱体において最も変質程度の小さい試料のみにとどめ(A欄)他の試料についてはA欄の値を基準とした場合の増減量のみを示す(B欄)。

各鉱体で最も「陶石化」の進んだ試料(富岡鉱体では最も風化作用の影響が大きい試料)における主な金属陽イオン(Al³⁺, Fe³⁺, Fe²⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, Na⁺, K⁺)の変化量の総和は

{	伝兵衛木場鉱体 (D-3):	-6.0 g. eq./l
	新山鉱体 (S-3):	-4.1 "
	小迫鉱体 (F-4):	-4.5 "
	富岡鉱体 (T-5):	-1.6 "

である。ただし, 基準とした各鉱体の弱変質岩はいずれも若干の変質作用をこうむっているので, 全変質過程を通じての変化量はこれを多少上回るものと考えられる。MEYER and HEMLEY (1967)によれば, 酸性火成岩を原岩とする多くのカオリナイト化あるいはセリサイト化変質帯における上記の主な金属陽イオンの変化量の総和は-3~-8 g. eq./lであり, 富岡鉱体を除く各鉱体での溶脱量はその範囲内に入ることが確かめられた。

また, 変質過程におけるH⁺の増加量(g. eq. 単位)とアルカリ土金属イオンおよびアルカリ金属イオンの減少量の総和(g. eq. 単位)との比, すなわち

第4表 新山・小迫・富岡各鉱体産変質岩の

鉱体名 試料番号	新 山 (海岸脈)					小 迫		
	S-1	S-2	S-3	S-4	S-5	F-1	F-2	F-3
	AM3-61	AM3-59	AM3-60A	AM3-62	AM3-60B	AM2-16C	AM2-29	AM2-20B
	wt. %	wt. %	wt. %	wt. %	wt. %	wt. %	wt. %	wt. %
SiO ₂	72.89	77.88	78.37	72.22	76.83	72.50	72.40	73.72
TiO ₂	0.03	0.05	0.03	0.03	0.04	0.05	0.03	0.06
Al ₂ O ₃	14.95	15.15	15.15	15.30	15.31	15.93	16.40	16.39
Fe ₂ O ₃	0.16	0.24	0.12	0.68	0.16	0.48	0.64	0.64
FeO	0.79	0.32	0.22	0.29	0.47	0.57	0.14	0.11
MnO	0.04	0.01	<0.01	0.02	0.03	0.01	0.01	<0.01
MgO	0.05	0.05	0.04	0.07	0.10	0.17	0.09	0.01
CaO	1.71	0.11	0.13	2.87	0.48	0.34	0.28	0.17
Na ₂ O	2.90	0.52	0.69	0.64	0.62	1.69	2.74	1.17
K ₂ O	3.41	2.37	2.21	1.26	2.38	4.60	4.70	3.79
S	0.05	0.01	0.10	0.02	0.05	0.08	0.01	0.01
CO ₂	1.36	<0.01	<0.01	2.09	0.39	0.12	<0.01	<0.01
H ₂ O+	1.32	2.83	2.78	4.26	2.89	2.71	2.08	3.30
H ₂ O-	0.18	0.26	0.18	0.14	0.10	0.48	0.34	0.34
Total	99.84	99.80	100.02	99.89	99.85	99.73	99.86	99.71
みかけ比重	2.55	2.53	2.55	2.50	2.57	2.36	2.21	2.37
耐火度 (SK)	13	20+	26	20	20	26>	26>	—

(化学分析: 東京石炭鉱物研究所; 耐火度試験: 木山陶石鉱業所 (新山・富岡), 東京通産局 (小迫))

第5表 新山・小迫・富岡各鉱体産変質岩の単位容積当たり化学成分量

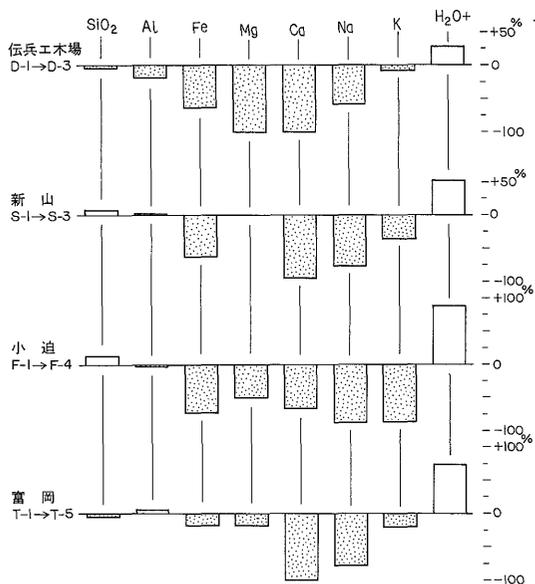
(単位: g/l)

鉱体名 試料番号	新 山 (海岸脈)					小 迫 (深海脈)						富 岡 (富岡半島)注				
	S-1	S-2	S-3	S-4	S-5	F-1	F-2	F-3	F-4	F-5	F-6	T-1	T-2	T-3	T-4	T-5
SiO ₂	1,859	1,970	1,998	1,806	1,975	1,711	1,600	1,747	1,938	1,868	2,073	1,878	1,829	1,856	1,727	1,786
Ti	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	2	0	1	1	1
Al	202	203	204	203	208	199	191	205	195	204	193	209	207	201	207	222
Fe	19	10	7	17	12	18	12	13	5	4	6	17	11	18	14	14
Mn	1	0	0	1	1	0	0	0	0	0	0	—	—	—	—	—
Mg	1	1	1	1	2	2	1	0	1	0	0	6	2	6	7	5
Ca	31	2	2	51	9	6	4	3	2	1	2	1	4	1	4	0
Na	55	10	13	12	12	30	45	21	4	4	6	74	65	71	45	16
K	72	50	46	27	51	90	86	75	12	9	9	70	72	72	69	56
S	1	0	3	1	1	2	0	0	1	0	0	0	1	1	0	0
CO ₂	35	0	0	52	10	3	0	0	0	0	1	0	0	1	1	0
H ₂ O+	34	72	71	107	74	64	46	78	121	128	118	61	33	43	89	106
H ₂ O-	5	7	5	4	3	11	8	8	4	7	5	6	4	4	7	4

(注) 富岡鉱体産 T-6 (第4表) については、みかけ比重の測定が不可能のため省いた。

化学組成・みかけ比重・耐火度

(深 海 脈)			富 岡 (富 岡 半 島)					
F-4	F-5	F-6	T-1	T-2	T-3	T-4	T-5	T-6
AM2-17A	AM2-24	AM2-30	AM1-66B	AM1-72A	AM1-71C	AM1-71B	AM1-71A	AM1-80
wt. %	wt. %	wt. %	wt. %	wt. %	wt. %	wt. %	wt. %	wt. %
78.45	77.20	79.73	73.09	74.36	73.96	71.95	73.18	70.55
0.03	0.05	0.04	0.10	0.02	0.06	0.05	0.04	0.06
14.88	15.91	14.05	15.38	15.93	15.15	16.30	17.19	18.39
0.16	0.12	0.24	0.70	0.32	0.62	0.46	0.36	0.58
0.11	0.14	0.07	0.20	0.25	0.34	0.34	0.43	0.09
<0.01	<0.01	<0.01	—	<0.01	—	—	—	—
0.04	0.01	0.01	0.37	0.14	0.41	0.44	0.38	0.17
0.14	0.06	0.11	0.08	0.21	0.04	0.20	<0.01	0.14
0.21	0.21	0.32	3.90	3.55	3.82	2.49	0.86	2.11
0.57	0.47	0.42	3.28	3.54	3.45	3.44	2.80	3.34
0.04	<0.01	<0.01	<0.01	0.03	0.02	0.01	<0.01	0.01
<0.01	0.02	0.02	<0.01	0.02	0.03	0.04	<0.01	0.01
4.90	5.28	4.52	2.39	1.34	1.70	3.70	4.36	4.13
0.18	0.28	0.20	0.24	0.16	0.16	0.30	0.16	0.38
99.71	99.75	99.73	99.73	99.87	99.76	99.72	99.76	99.96
2.47	2.42	2.60	2.57	2.46	2.51	2.40	2.44	—
30	—	30	8—	10	9—	10—	13	13



第9図 天草陶石鉱床の主な鉱体における変質過程 (富岡の場合は風化過程をも含む) での主要な化学成分の変化の割合

矢印の左側は各鉱体で最も変質程度の弱い変質岩を表わし、矢印の右側は各鉱体で最も変質程度の強い変質岩 (富岡では風化岩) で、この図での検討の対象となった試料を表わす。

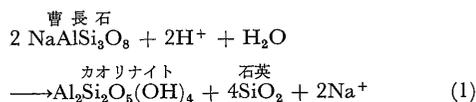
$$\left[\frac{H^+ \text{ gain}}{(Mg^{2+} + Ca^{2+} + Na^+ + K^+) \text{ loss}} \right]_{g.cq.}$$

は交代比 (HEMLEY and JONES, 1964) と呼ばれ、上に述べたものと同じ試料について、

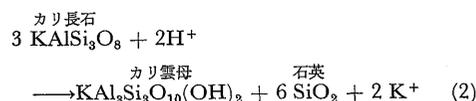
- 伝兵エ木場鉱体 (D-3): 1.4
- 新山鉱体 (S-3): 1.1
- 小迫鉱体 (F-4): 1.8
- 富岡鉱体 (T-5): 1.7

である。

すなわち、この値は



および



のいずれか、あるいは両方の反応によって決定される。

反応(1)の場合は、曹長石中の Na⁺が熱水溶液中の H⁺が交代してカオリナイトが生成される際、カオリナイト中にとりこまれた H⁺と、熱水溶液中に放出された Na⁺と

第6表 天草陶石鉱床のいくつかの鉱体における弱変質岩中の主な金属陽イオンおよび水素イオンにおける変化 (B欄)

鉱体名 試料番号	伝兵エ木場 (皿山脈)						新山 (海岸脈)			
	D-1	D-2	D-3	D-4	D-5	D-6	S-1	S-2	S-3	S-4
	A	B	B	B	B	B	A	B	B	B
Al ³⁺	24.5	-3.9	-4.2	-4.3	-3.7	-3.7	22.4	+0.1	+0.3	+0.1
Fe ³⁺	0.3	+0.1	-0.3	+0.5	-0.2	0	0.2	0	-0.1	+0.4
Fe ²⁺	0.2	+0.2	-0.1	-0.1	+0.2	-0.1	0.6	-0.4	-0.4	-0.4
Mg ²⁺	0.1	+0.2	0	0	0	+0.1	0.0	0	0	+0.1
Ca ²⁺	0.1	-0.1	0	0	+0.9	0	1.6	-1.5	-1.5	+1.0
Na ⁺	2.3	-1.2	-1.3	-1.5	-1.5	-1.6	2.4	-2.0	-1.8	-1.9
K ⁺	1.5	-0.3	0.1	-0.4	-0.4	-0.3	1.8	-0.5	-0.6	-1.1
H ⁺	6.5	+1.6	+1.9	+2.2	+1.9	+1.1	3.7	+4.2	+4.1	+8.1
Sum: Al ³⁺ , Fe ³⁺ , Fe ²⁺ , Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , Na ⁺ , K ⁺		-5.0	-6.0	-5.8	-4.7	-5.4		-4.3	-4.1	-1.8
Sum: Mg ²⁺ , Ca ²⁺ , Na ⁺ , K ⁺		-1.4	-1.4	-1.9	-1.0	-1.8		-4.0	-3.9	-1.9
交代比		1.1	1.4	1.2	1.9	0.6		1.1	1.1	4.3

のグラム当量比は 4 : 2 = 2 である。同様に、反応(2)では、カリ雲母中にとりこまれた H⁺ と、熱水溶液中に放出された K⁺ とのグラム当量比は 2 : 2 = 1 である。

上述の各鉱体では、主にカオリナイトのみが生成した小迫・富岡 (風化部) 両鉱体では 2 に近い交代比が得られ、一方、セリサイトとカオリナイトの双方を変質鉱物として含む伝兵エ木場・新山両鉱体では 1 と 2 の中間または 1 に近い値を示している。このことから、天草陶石鉱床を形成した熱水変質作用は、一部の風化作用も含め、主に H⁺ と金属陽イオン (主としてアルカリ金属イオンおよびアルカリ土金属イオン) との交代作用、すなわち、水素交代作用 (HEMLEY and JONES, 1964) によって性格づけられると考えられる。

6. 結 論

天草陶石鉱床の原岩を構成する流紋岩脈の形態と岩質、および主な変質鉱物とその性質についてまとめてみると第7表のごとくである。皿山脈・村山脈・海岸脈・鬘の水脈はほぼ共通した性質を有しているが、深海脈はカリ長石を多く含み、変質作用による粘土鉱物が主にカオリナイトであるという点で特徴があり、一方、富岡鉱体が胚胎される岩脈は、その形態が塊状であること、斜長石の An 成分 (mol.%) が最も大きいこと、セリサイトのポリタイプが 2M であることなどが他の岩脈と異なっている。

皿山脈伝兵エ木場鉱体における変質帯を、構成鉱物種

第7表 天草陶石鉱床の原岩を構成する流紋岩脈の岩質と変質鉱物

岩脈名	主に調査した 鉱体名	優勢な長 石の種類	斜長石の An mol. % (平均)	主な変質粘土鉱物	炭酸塩 鉱物の 有無	セリサイトの主 なポリタイプ	セリサイトに 含まれる膨潤 層の比率
皿山脈	伝兵エ木場	斜長石	3 (注) (6)	セリサイト >カオリナイト	有	1M	5~15%
村山脈	小田床・内山	"	7 (5)	"	"	"	0~5
海岸脈	浜平・新山	"	11 (9)	"	"	"	0
深海脈	小 迫	カリ長石	—	カオリナイト	無	—	—
鬘の水脈	小 鬘	斜長石	7 (2)	セリサイト >カオリナイト	"	1M	0~5
富岡半島	富 岡	"	13 (8)	セリサイト (風化帯 ではカオリナイト)	"	2M	0

(注) () 内は測定した試料の個数

熊本県天草陶石鉱床における変質作用 (富樫幸雄)

オンの単位容積当たりグラム当量数 (A欄), および各鉱体ごとにそれと比較した他の変質岩に

(単位: g.eq./l)

S-5	小 迫 (深海脈)						富 岡 (富岡半島)				
	F-1	F-2	F-3	F-4	F-5	F-6	T-1	T-2	T-3	T-4	T-5
B	A	B	B	B	B	B	A	B	B	B	B
+0.7	22.1	-0.8	+0.7	-0.5	+0.5	-0.6	23.2	-0.2	-0.9	-0.2	-1.6
0	0.4	+0.1	+0.2	-0.2	-0.3	-0.2	0.7	-0.4	-0.1	-0.3	-0.4
-0.3	0.4	-0.3	-0.3	-0.3	-0.3	-0.3	0.1	+0.1	+0.2	+0.1	+0.2
+0.1	0.2	-0.1	-0.2	-0.2	-0.2	-0.2	0.5	-0.4	0	0	-0.1
-1.2	0.3	-0.1	-0.2	-0.2	-0.3	-0.2	0.1	+0.1	-0.1	+0.1	-0.1
-1.9	1.3	+0.7	-0.4	-1.1	-1.1	-1.0	3.2	-0.4	-0.1	-1.3	-2.5
-0.5	2.3	-0.3	-0.4	-2.0	-2.1	-2.1	1.8	0	0	0	-0.3
+4.4	7.0	-1.9	+1.6	+6.3	+7.1	+6.0	6.7	-3.1	-2.0	+3.1	+5.1
-3.1		-0.6	-0.6	-4.5	-3.8	-4.6		-1.3	-1.0	-1.6	-1.6
-3.5		+0.4	-1.2	-3.5	-3.7	-3.5		-0.7	-0.2	-1.2	-3.0
1.3			1.3	1.8	1.9	1.7				2.6	1.7

とその量比にもとづき、岩脈の内側から外側へ、炭酸塩鉱物化帯→粘土鉱物化帯→けい化帯→弱変質帯の順に分帯した。これらの変質帯は低い Na⁺, K⁺/H⁺比の熱水溶液による一連の変質過程を経て形成されたと考えられ、その空間的位置を決定した主な原因は岩脈の内部と急冷縁相部における孔隙率の差であろうと考えられる。熱水溶液の起源は明らかでないが、熱水溶液の温度低下に伴って形成されたと考えられるけい化帯が主に岩脈の急冷縁相部あるいは岩脈と堆積岩類との境界部に沿って分布することや、周囲の堆積岩への変質作用の影響が非常に小さいことなどから推定して、岩脈を形成した火成活動に関連して岩脈内部を上昇してきたものと考えられる。

伝兵衛木場・新山 (海岸脈)・小迫 (深海脈)・富岡 (富岡半島) の 4 鉱体からの試料について、変質作用あるいは風化作用に伴う単位容積当たりの化学成分量の変化を検討した結果、H₂O⁺ の増加とアルカリ金属・Fe・アルカリ土金属の減少が共通して認められた。アルカリ金属の中でも Na の減少が K のそれよりも一般に顕著であり、一方、Al および SiO₂ は変化の割合が最も小さい。

単位容積当たりの主な金属陽イオンの減少量の総和を各イオンのグラム当量に換算した値は伝兵衛木場鉱体において最も大きく、-6.0 g. eq. / l である。この値の絶対値は小迫、新山、富岡の順に小さい。また、グラム当量単位の H⁺ の増加量と、アルカリおよびアルカリ土金属イオンの減少量の総和の比 (交代比, HEMLEY and JONES, 1964) は主にカオリナイトのみを含む変質帯 (小迫および

富岡) では 2 に近く、セリサイト・カオリナイトの双方を含む変質帯 (伝兵衛木場および新山) では 1 に近い。これは、天草陶石鉱床の形成にあずかった変質作用が主に水素交代作用 (HEMLEY and JONES 1964; MEYER and HEMLEY, 1967) の性格を持っていたことを示すと考えられる。

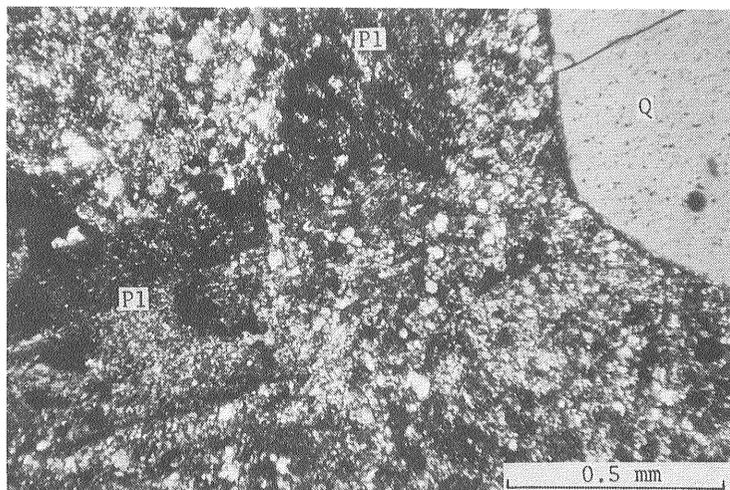
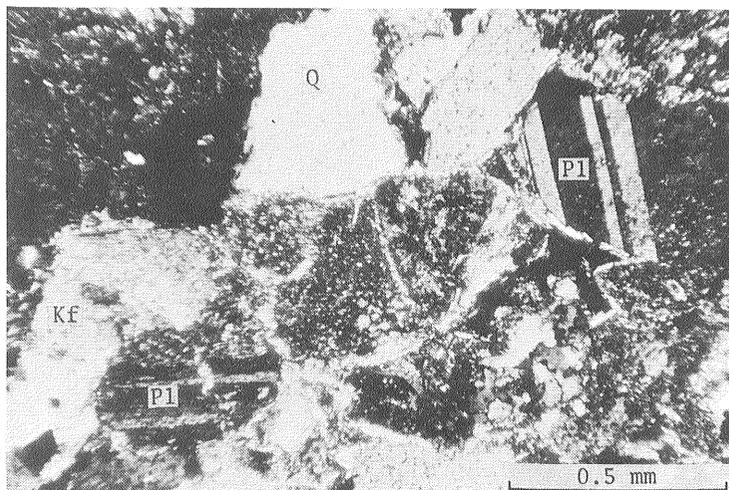
謝辞 この報文をまとめるにあたり、現地においては、上田陶石合資会社社長上田亨吉氏および同社上田松太郎氏に多大な御協力をいただいたほか、天草陶石工業組合所属の各社から種々の御便宜をいただいた。また、福岡通産局坪内和正氏および地質調査所九州出張所長高井保明氏には現地の開発状況などについて有益な助言をいただいた。さらに、地質調査所鉱床部藤井紀之・須藤定久の両氏および同部鉱物研究課・鉱床研究課の諸兄から多くの有益な助言を受けた。以上の方々に厚く御礼を申し述べる。

文 献

- BAMBAUER, H. U., CORLETT, M., EBERHARD, E. and VISWANATHAN, K. (1967): Diagrams for the determination of plagioclases using X-ray power methods. *Schweiz. Mineral. Petrol. Mitteil.*, vol. 47, p. 333-349.
- HEMLEY, J. J. and JONES, W. R. (1964): Chemical aspects of hydrothermal alteration with emphasis on hydrogen metasomatism.

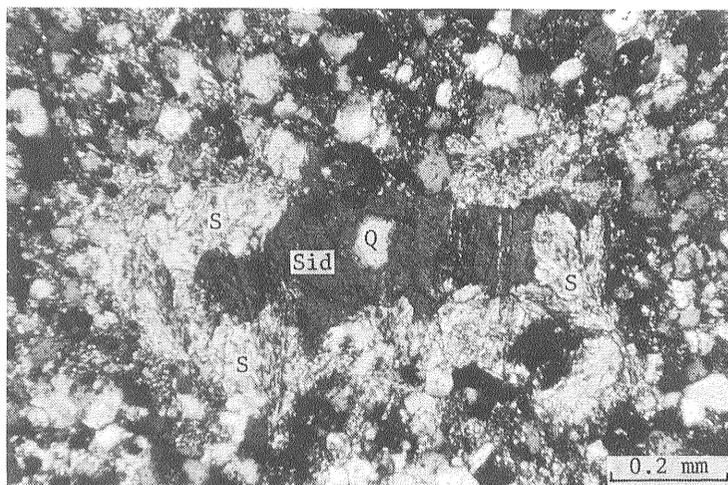
- Econ. Geol.*, vol. 59, p. 538-569.
- HOLLAND, H. D. (1967): Gangue minerals in hydrothermal deposits. In *Geochemistry of hydrothermal ore deposits*, ed. H. L. BARNES, Holt, Rinehart and Winston Inc., N.Y., p. 382-436.
- 伊原敬之助 (1921) : 熊本県天草下島陶石調査報文。工原報, no. 5.
- 金岡繁人・加藤悦三 (1972) : 陶石中の混合層粘土について (昭和46年度日本鉱物学会年会演旨)。鉱物雑, vol. 10, p. 370.
- 熊本県 (1963) : 20万分の1熊本県地質図および同説明書, 35p.
- MEYER, C. and HEMLEY, J. J. (1967): Wall rock alteration. In *Geochemistry of hydrothermal ore deposits*, ed. H.L. BARNES, Holt, Rinehart and Winston Inc., N.Y., p. 166-235.
- MIKI, T. (1972): Cretaceous-Tertiary unconformity in the western part of Amakusa-Shimoshima. *Mem. Fac. Sci., Kyushu Univ., Ser. D, Geol.*, vol. 21, p. 217-237.
- 三木 孝・植松幹雄 (1973) : 天草炭田下島南部地域の夾炭古第三紀層と上部白亜紀層。鉱山地質, Vol. 23, p. 227-236.
- 都城秋穂 (1965) : 変成岩と変成帯。458p., 岩波書店, 東京。
- 中村小四郎・松村英雄 (1959) : 天草陶石の顕微鏡的研究 (その2), 鑿ノ水山陶石について。熊本大学工学部研究報告, vol. 8, p. 131-138.
- ・—————・田中圭吾・岡部 博 (1957) : 天草陶石の顕微鏡的研究。熊本大学工学部研究報告, vol. 6, p. 104-112.
- 納富重雄 (1930) : 7万5千万の1地質図幅「天草」および同説明書, 90p., 地質調査所。
- 大島敬義 (1947) : 熊本県天草郡天草陶石鉱床。窯業原料, 第1集, 学術図書, p. 58-69.
- (1949) : 天草陶石の鉱床概説。窯業原料, 第2集, 学術図書, p. 215.
- 柴田 賢・富樫幸雄 (1974) : 天草下島西部に分布する酸性火成岩類のK-Ar年令。地質調月 (準備中)。
- SHIROZU, H. and HIGASHI, S. (1972): X-ray examination of sericite minerals associated with the Kuroko deposits. *Clay Sci.*, vol. 4, p. 137-147.
- 高橋良平 (1965) : 熊本県天草郡, 下島, 富岡半島の地質。九州大学理学部紀要, vol. 8, p. 73-81.
- 武司秀夫・秦 孝明 (1947) : 天草陶石中の絹雲母質鉱物の研究。窯協誌, vol. 55, p. 115-117.
- 植田良夫・大貫 仁 (1968) : 本邦変成岩のK-Ar dating(1)—九州八代片麻岩類木山並びに彼岸変成岩類—。岩鉱, vol. 60, p. 159-166.
- 上野三義 (1952) : 熊本県天草陶石鉱床調査報告。地質調月, vol. 3, p. 405-420.
- WEBB, T. L. and KRÜGER, L. E. (1970): Carbonates. In *Differential thermal analysis, I*, ed. R. C. MACKENZIE, Academic Press, London, p. 303-341.
- WRIGHT, T. L. (1968): X-ray and optical study of alkali-feldspar: II. An X-ray method for determining the composition and structural state from measurement of 2θ values for three reflections. *Amer. Mineral.*, vol. 53, p. 88-104.
- 山田久夫・野口長次・武司秀夫・萬沢和福 (1949) : 天草陶石中の雲母質粘土鉱物のX線粉末写真。窯業原料, 第2集, 学術図書, p. 223-225.
- YODER, H. S. Jr. and EUGSTER, H. P. (1955): Synthetic and natural muscovites. *Geochim. Cosmochim. Acta*, vol. 8, p. 225-280.

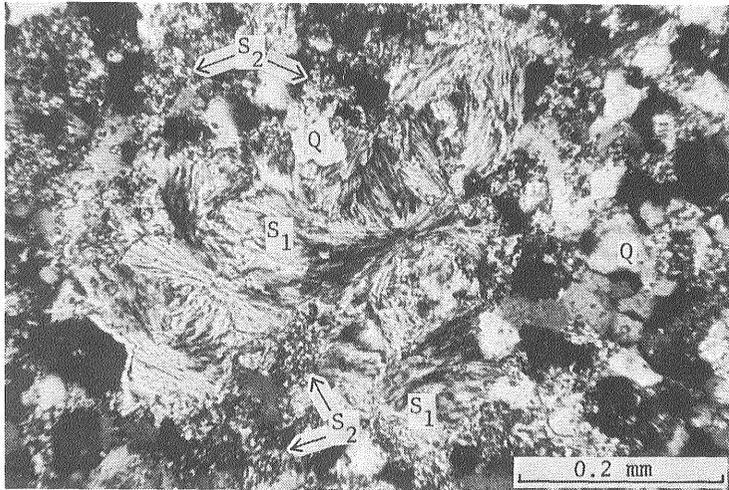
1 弱い変質作用をこうむった
砂岩（上部白亜系）
Q：石英，Pl：斜長石，Kf：
カリ長石（直交ニコル）



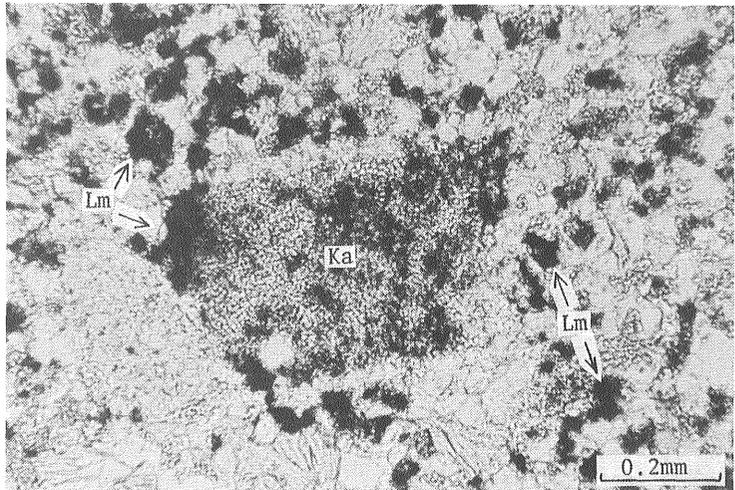
2 流紋岩脈の急冷縁相（弱変
質帯）
Q：石英，Pl：セリサイト化
した斜長石（直交ニコル）

3 「変色」鉱中の葉片状セリ
サイト結晶と菱鉄鉱（炭酸塩
鉱物化帯）
Q：石英，S：セリサイト，
Sid：菱鉄鉱（直交ニコル）

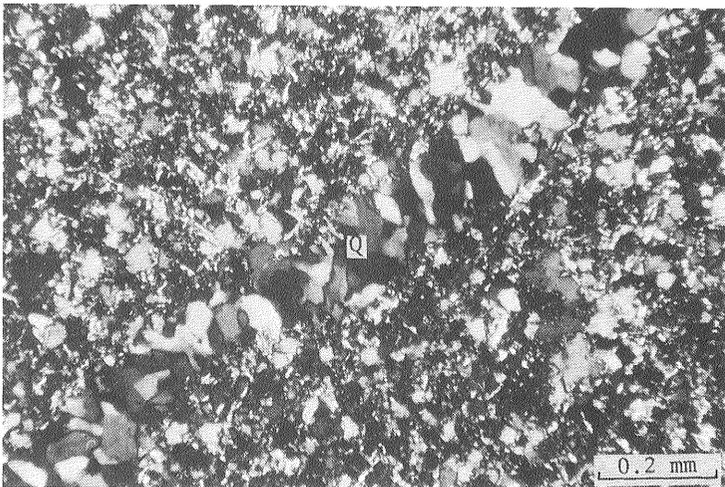




1 優白質良質鉱中の葉片状セリサイトと粒状セリサイト (粘土鉱物化帯)
 S₁: 葉片状セリサイト, S₂: 粒状セリサイト, Q: 石英 (直交ニコル)



2 「シマ」鉱中のカオリナイト集合体 (粘土鉱物化帯)
 Ka: カオリナイト, Lm: 褐鉄鉱 (単ニコル)



3 変質した流紋岩の割れ目を埋める石英細脈 (けい化帯)
 Q: 石英 (直交ニコル)