沖縄島の粘土資源

藤井 紀之* 照屋 善義** 仲村 三雄** 宜野座 俊夫**

Clayey Mineral Resources in Okinawa-jima, Ryukyu Islands

Noriyuki Fujii, Zengi Teruya, Mitsuo Nakamura and Toshio Ginoza

Abstract

Reconnaissance field survey and preliminary laboratory investigation were carried out on clayey mineral resources in Okinawa-jima. The clay deposits are classified into hydrothermal, residual and sedimentary types in origin, and each of them shows characteristic mineral composition and heating properties respectively.

The hydrothermal clay deposits occur replacing some finegrain acid intrusives, which are rather small in size and very irregular in shape. The clays consist mostly of quartz and kaolin minerals, largely tubular halloysite, and show high refractory property.

The residual clay deposits occur in the highly weathered top parts of the Cretaceous-Palaeogene sericite-quartz schist, which have been preserved by the overlying middle Pleistocene Guga Formation. The clay recovered through washing is composed mainly of quartz, mica clay minerals and kaolin minerals, largely micro-grain kaolinite, and possesses rather high quality in heating colour and sintering effect.

The sedimentary clays are divided into the clayey-silt of the upper Miocene-lower Pleistocene Shimajiri Group and the bluish-grey and reddish-brown clays in the middle Pleistocene Guga Formation and other sediments. The former is very low in Refractoriness and used only for roofing-tile and others since it comprises dominant Fe-rich chlorite and mica clay minerals. The Guga Formation, probably, was deposited in several small basins, which were scattered on the island at that time. The Formation is characterized by dominant occurrence of gravel, sand and clay, and is accompanied by thin lignite seams in places. The clays generally consist of quartz, mica clay minerals and kaolin minerals, largely tubular halloysite, accompanied by mica-dioctahedral vermiculite interstratification occasionally. They vary from SK 10 to SK 27 in refractoriness, and commonly show high sintering effect. But some of them are inadequate for ceramic products because of their bloatable property. The clays in the Guga Formation are expected to be exploited as main ceramic raw materials in the island in future.

要 旨

沖縄島の粘土鉱床は、成因的に熱水性・風化残留性および堆積性の3つに大別され、それぞれ特徴的な組成・性状を有する.

熱水性粘土は,基盤の絹雲母石英片岩中に貫入した不 規則な形状の小規模な細粒酸性岩岩脈が,熱水作用によ り全体としてカオリン化したもので,主としてカオリン 鉱物(大部分ハロイサイト)と石英からなり、白色で耐 火度も高い.

風化残留性粘土は、中期更新世の呉我累層堆積当時の基盤岩(白亜一古第三系)表層の風化部が、被覆層によって削剝を免れたもので、厚さ1-3 m程度である.水ひによって採取した粘土は、母岩に由来する石英と雲母粘土鉱物の他にカオリン鉱物(細粒のカオリナイトが多い)を多く含み、焼成性状も良好である.

堆積性粘土としては、後期中新世―前期更新世の島尻 層群中の粘土質シルトと、中期更新世の呉我累層など新

^{*}鉱床部

^{**} 沖繩県工業試験場

期堆積層中の粘土がある。前者は緑泥石・雲母粘土鉱物を多く含み、耐火度も低く、瓦原料などに利用できる程度である。新期堆積層中の粘土には、赤褐色砂質のものと、呉我累層中の帯青灰白色粘土があり、特に後者は量的に豊富である。呉我累層は、当時各地に散在した湖沼などの堆積物で、粘土は通常石英・カオリン鉱物(メタハロイサイトが多い)・雲母粘土鉱物を主とし、特に雲母-バーミキュライト混合層鉱物を混えている。 堆積盆地の違いにより、耐火度・焼結性にかなりの変動があるが、将来沖縄の重要な窯業原料として開発が期待される。

1. はしがき

沖縄島の粘土質資源については,従来組織的な調査は ほとんど行われたことがなく、わずかに NEGISHI (1974) によって仲泊などのカオリン鉱物の研究がなされている に過ぎない.

筆者等は1974年9月,窯業原料としての粘土資源の実態を把握するため,短期間ではあったが沖縄島全島の概査を行い,その一部はすでに報告した(藤井,1975).この報告は,その後行った鉱物学的研究の結果を加え,粘土質資源の産状および鉱物組成を中心にとりまとめを行ったものである.

本研究は元来沖縄県からの申請にもとづいて行われたものであり、このような形で結果を公表することを許可して下さった沖縄県当局、特に沖縄県工業試験場長朝武士靖夫氏の御厚意に深謝の意を表する次第である。また地質調査所石油課長福田理博士からは、沖縄島の地質層序区分について、多くの有益な御教示を頂いた。この機会に厚くお礼を申上げる。

2. 従来の開発状況

沖縄の陶磁器は古い歴史を持ち、壺屋焼(または琉球焼)の名で広く知られている。その原料として用いられていたのは、前兼人の白土・古我地白土・部瀬名崎の水ひ粘土・喜名や山田の赤土などで、これらを適宜配合して坏土を作っていた。また釉薬の原料には珊瑚礁石灰岩・具志頭白土(ガラス質凝灰岩)、それに上記の部瀬名崎の粘土などが用いられている(照屋ほか、1974)(第1図)。これらの原料粘土の開発状況は、部瀬名崎を除けば微々たるもので、露頭を中心にごく小規模な採掘が行われているに過ぎない。

しかし、最近の道路建設や観光開発とも関連して、一部の原料には涸渇のおそれが生じて来たものもあり、このような背景から今回の調査が行われたものである.

3. 地質概説

沖縄島の地質に関する研究は古くから行われているが、総括的な報告としては賀田(1885), HANZAWA (1935) 及び FLINT et al. (1959) の研究がある。また近年 KONISHI (1963), 小西 (1965), 福田らによる一連の天然ガス鉱床の研究 (福田ほか、1967・1969・1970;沖縄天然ガス研究 グループ、1971;福田、1977 その他), ISHIBASHI (1969), KONISHI et al. (1973), 石橋 (1974), 橋本ほか (1976), 遅沢ほか (1977) などにより、基盤岩の構造や天然ガス鉱床を胚胎する上部新生界の研究が精力的に行われている。これらの研究を総括・編纂した地質図を第1図に示す。

沖縄島の地質は構造的には、本部累帯・国頭累帯および島尻累帯からなり、名帯の間はそれぞれ辺土―名護断層及び天願断層で境されている(小西、1965)。 またこの他、中期更新世以後の新期堆積岩類が全島に亘って散在・分布する. 以下、各累帯の地質について概説する.

3.1 本部累帯

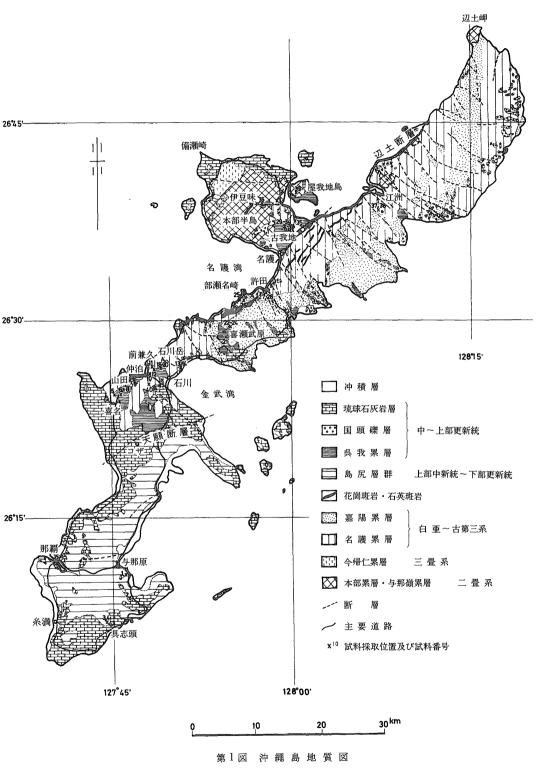
本部累帯に属する岩層は、大部分が本部半島に、一部は辺土岬先端に分布している.

Hanzawa (1935) は、本部半島中央部に分布する結晶質石灰岩から Neoschwagerina を見出し、現在の本部・国頭累帯に分布する古期岩類を二畳系のものと考えた。その後 FLINT et al. (1959) は、沖縄全島の調査結果から、これらの古期岩類を主として石灰岩からなる本部累層と非石灰質岩層からなる国頭層群(質田、1885)とに分け、国頭層群をさらに下位から嘉陽・名護・与那嶺の3累層に区分した。本部半島に分布するのは、このうち主として本部累層と与那嶺累層で、後者はチャート・千枚岩・粘板岩・石灰岩及び緑色岩からなるとしている。

しかし最近 Ishibashi (1969) によって、本部半島西部の与那嶺累層中からアンモナイト及び Halobia の化石が発見され、少なくも与那嶺累層の一部は上部三畳系に属することが明らかにされた。第1図では、三畳系であることが確定した部分だけを Ishibashi (1969) に従って今帰仁累層として区分した。しかし、本部・与那嶺累層とした部分にも中生層が存在する可能性があり、辺土岬先端の本部帯からも最近三畳紀の化石が発見されている(石橋、1974)。 なお拿帰仁累層と下部の与那嶺累層との間は衝上断層によって境されており、全体として南九州の神の瀬層群に対比されている(Ishibashi、1969)。

3.2 国頭累帯

本部半島を除く国頭地方のほぼ全域は国頭累帯に属している。国頭累帯を構成しているのは前述の嘉陽・名護



_ 3 _

両累層で, Konishi (1963) 及び Konishi et al. (1973) によって, 白亜紀一古第三紀に対比されている.

最初 Hanzawa (1935) や FLINT et al. (1959) はこの 両界層を二畳系下部と考えたが,その後 KONISHI (1963) は多くの古生物学的証拠からこれらが白亜系であり,しかも見掛上は下位にある嘉陽界層が名護界層より上位の 層準に当たることを明らかにした. さらにその後,嘉陽界層の一部から小型の Nummulites が発見された (KONISHI et al., 1973)ことにより,この考え方が基本的に正しいことが立証され,かつ国頭界帯の古期岩層が白亜系から古第三系にわたるものであることが,明らかになった.

名護累層は泥質千枚岩・同片岩・砂岩片岩・互層片岩・緑色片岩などの変成岩類からなる。また嘉陽累層は、砂岩・粘板岩・泥質千枚岩・砂岩片岩・礫岩片岩などからなり、砂質岩に富むのが特徴である。 両累層は複雑な褶曲構造を示し、かつ NE 性の褶曲軸に直交する多くの断層で切られ、きわめて錯綜した分布を示す。

上記の本部・国頭両累帯に分布する先新第三系には、石英斑岩・花崗斑岩などの酸性岩岩脈が随所において貫入している。Bowin and Reinolds (1975) が名護東南方の黒雲母石英安山岩について 40Ar-30 A 法で測定した結果では、12 mly という値が出ており、屋久島などの新第三紀花崗岩類とほぼ同時期の貫入岩である。これらの岩脈は、しばしば復火成作用による熱水変質を蒙っており、軟弱化あるいは粘土化している。

3.3 島 尻 累 帯

天願断層以南の沖縄島中・南部一帯は、大部分後期中新世一前期更新世(NATORI, 1976)の堆積にかかる海成の島尻層群からなり、後述する中一上部更新統に属する琉球石灰岩が、標高160 m 前後の八重瀬岳・与座岳などの丘陵を形成し、島尻層群を覆って広く分布している.

島尻層群については、数回に亘って天然ガス鉱床の調査が行われ、詳細な地質学的・地化学的研究の結果が報告されている(福田ほか、前出). それらによると、地表に分布しているのは島尻層群の上半部で、これは主として帯青暗灰色の厚い粘土質シルト層からなり、下部及び最上部にシルト質砂・細粒砂層を挟有する. また粗粒の安山岩質火山放出物の薄層が上半部全体に亘って挟在している. 島尻層群の全層厚は 2,000 m 以上で、SE-SSEに傾斜する単斜構造をなし、那覇東方では南落ちの軸傾斜を持つ顕著な半ドーム構造が認められる.

3.4 新期堆積岩類

上述の各岩層を不整合に覆って、中・上部更新統に属する堆積物が全島に亘って各地に散在・分布する.

最初 HANZAWA (1935) は、これらを北部の海岸沿い

に分布する国頭礫層と、主として中・南部に分布する琉球石灰岩層に区分した.次いで Flint et al. (1959) は、下位の呉我礫層(礫・砂・粘土からなり、一部に火山灰層を挾む)をこれから区別し、さらに半沢の琉球石灰岩層を下位から那覇・読谷・牧港の3 累層に分け、後2者を更新統と考えた。そして那覇累層については、さらに礫優勢相・石英質砂相・石灰質砂相・シルト相および知念砂層などに区分し、最下部の知念砂層と呉我礫層との関係から、全体として呉我礫層を下位におき鮮新統として一括した。しかし、最近のNatori (1976) の研究によれば、島尻層群の最上部は前期更新世に及んでおり、従ってこれを覆う那覇累層は、呉我礫層と共に中期更新世以降の堆積物と考えざるを得ない(第1図).

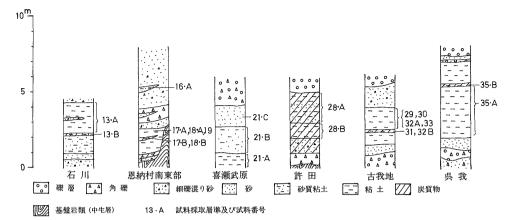
そして筆者らの調査結果では、これら新期の堆積岩のなかに、しばしば陶土として利用し得る帯青灰色粘土・シルト層が挟在している。これらの夾粘土層は、基盤岩の直上部に発達し、しばしば炭質物・有機物を含有する。しかもその分布範囲は比較的局地に限られており、湖沼などに堆積した陸成層である可能性が強い。また、常に基盤の結晶片岩・石英斑岩などの円礫・亜角礫を多く含む砂礫層に被覆されており、層序的にも顕著な共通性が認められる(第2図)。

これらの夾粘土層の分布地は、石川北部・中部、恩納村南東部(幸地原)、喜瀬武原、許知、古我地、 呉我および江州などで、FLINT et al. (1959) がそれぞれ呉我礫層 (呉我)、国頭礫層(石川北部)及び那覇累層中の礫優勢相(その他の各地、ただし江州を除く)として区分していたものに相当する。江州については、従来の地質図では全く記載がないが、明らかに同質と思われる夾粘土層が少なくも径2-300mの範囲に亘って分布しており、同じような未知の粘土層がほかにも分布している可能性が大きい。 なお後述するように、これらの粘土はいずれも、基盤の泥質岩などの風化生成物である雲母粘土鉱物とカオリン鉱物を主成分としており、鉱物組成の点でも明瞭な共通性がある。

第1図では,江州を除くこれらの夾粘土層を仮に呉我 累層として一括し,夾粘土層の分布が確認されていない 地区については従来通り那覇層(琉球石灰岩 に 含 ま れ る)及び国頭累層として示してある.しかし,これらの 中にも呉我累層に相当するものが存在する可 能 性 が あ り,新期堆積岩類の正確な対比は今後の研究の結果にま たねばならない.

4. 粘土質資源の分類及び産状

4.1 分 類



第2図 呉我累層柱状図

沖縄島に賦存する粘土質資源は、成因的には次のように区分することができる.

(1) 熱水性粘土

先新第三系中に貫入した細粒酸性岩の小岩脈が熱水変質作用によって粘土化したもの(前兼外・仲泊・石川西部)

(2) 風化残留性粘土

中生層の泥質岩が風化により粘土化したもの(部瀬名 崎・喜瀬武原の一部)

(3) 堆積性粘土

更新統の呉我累層中に挾在する帯青灰白色粘土(石川 北部及び中部・恩納村南東部・喜瀬武原・呉我南部・古 我地・江州など). またほぼ同時期の堆積物と思われる 赤褐色砂質粘土(喜名・山田など)および島尻層群の大 部分を占める帯青暗灰色粘土質シルト(馬天など).

これらはそれぞれ特徴的な鉱物組成・性質を有し、陶器だけでなくタイル・瓦原料などとしても今後の開発が期待されるものである。この他南部の具志頭では、島尻層群の最上部付近に挾在する磨き砂様の火山灰を長石に代る釉薬原料として採掘している。

粘土の産地および試料採取地点を第1図にあわせて示した.以下,各種粘土の代表的産状について述べる.

4.2 熱水性粘土

おもに恩納村から石川市へかけての一帯に白色のカオリン質粘土が点々と分布する.

現在採掘の対象とされているのは前兼人の白土で、耐火度も高く陶器原料として不可欠のものである。カオリン鉱床は絹雲母石英片岩中に不規則・小規模な脈状をなして賦存し、周縁の石英片岩も灰白色の粘土に変わっている(第3図)、カオリン脈の原岩はきわめて細粒・均質な酸性岩で、全体が一様にカオリン化されており、おそ

らく酸性岩貫入後の後火成活動により変質したものと考えられる.

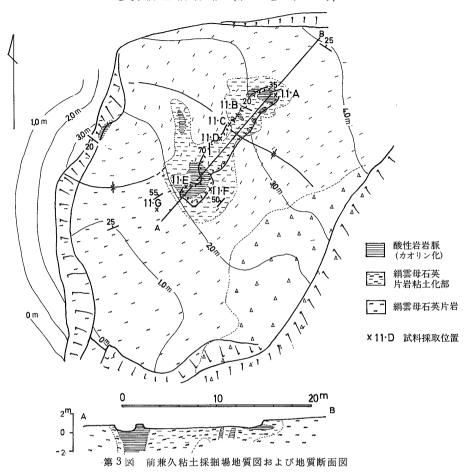
同様なカオリン粘土は、仲泊の高速道路工事の切割りや石川ゴルフ場南側の道路傍でも見出された。いずれも不規則な脈状をなし、膨縮が著しい。脈幅は最大 5 m程度である。Negishi (1974) の記載した仲泊のカオリンは、スケッチされた産状から見て、石川ゴルフ場南側の露頭のものと思われる。これは厚さ 1 m前後の緩傾斜のカオリン脈で、小さな断層に切られて約 2 m変位している

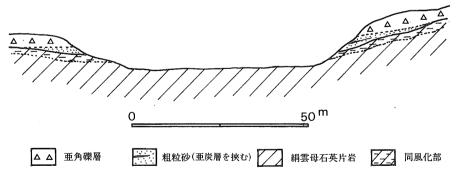
なお、酸性岩岩脈のすべてがカオリン化しているとは限らない. NEGISHI (1974) は、名嘉真(部瀬名崎南西)のハロイサイトについても報告しているが、これは花崗斑岩を原岩とするもので、未変質自形の黒雲母結晶が多く残っており、NEGISHI (1974) の考えるように単純な風化による生成物である可能性が大きい.

4.3 風化残留性粘土

沖縄島は亜熱帯性の気候下にあり、風化作用の影響は かなり著しい.特に琉球石灰岩地帯では、ラテライト質 の赤褐色土壌がしばしば発達している.しかし陶土とし て利用し得るものはまれなようである.

明らかに風化残留性の粘土に属するものには部瀬名崎の白土がある。これは長年壺屋焼の原料として利用されていたもので、すでに大部分採掘済となっている。採掘のおもな対象となっているのは、粗悪な亜炭を挾有する砂層およびその上に厚く発達する亜角礫層に覆われた絹雲母石英片岩の表層部に発達する厚さ1-3 mの風 化粘土化帯である(第4図)。周囲の地表に露出した片岩がほとんど粘土化されていないのに対し、砂・礫層に覆われた部分はかなりカオリン化されており、現世の風化作用によるものとは考え難い。産状から見て、砂・礫層堆





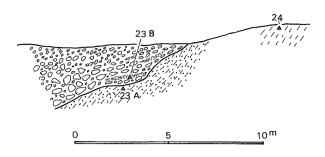
第4図 部瀬名崎粘土採掘場模式断面図

積前の風化岩の,削剝を免れた部分の上に砂・礫層が堆積し,これによって粘土化帯が保存されたものと推定される.同様な関係は,瀬戸・多治見地域の基盤花崗岩の風化部と,これを覆う陶土層との間に,しばしば見出される(Fujn, 1968). なお上記の砂・礫層は,更新統の呉我累層と対比される可能性が強い.

類似の風化残留性粘土は、喜瀬武原北方の溜池付近にも見出された(第5図). また部瀬名崎南西の名嘉 真付近でも、花崗斑岩の風化部を陶土として採掘したことがある (Necishi, 1974).

4.4 堆積性粘土

4.4.1 島尻層群の泥岩



○ 礫層 (シルト薄) ○ 砂質千枚岩 ○ 泥質千枚岩(風化部)

▲ 試料採取位置

第5図 喜瀬武原北方溜池付近の露頭のスケッチ

堆積性粘土として大量に賦存するものとしては、まず 島尻層群中の粘土質シルトがあげられる。これは主とし て瓦原料、一部は水がめ等の陶器原料として採掘されて おり、現在は与那原南方の馬天付近に大規模な採掘場が ある。このシルトは、後述するように、緑泥石と雲母粘 土鉱物を多く含み耐火度も低く、一般に陶土としては利 用し難い。

良質の陶土として質・量ともに今後の開発が期待されるのは、前述の呉我累層中の粘土層である. これは比較的よく淘汰された帯青灰白色粘土と、淘汰の悪い赤褐色砂質粘土とに大別できる.

4.4.2 赤褐色砂質粘土

沖縄島中部西海岸の喜名・山田付近では、古くからこの種の粘土を壺屋焼の原料として採掘している。いずれも基盤の白亜一古第三系の直上に賦存する砂・細礫混りの水酸化鉄に富む砂質粘土で、厚さも1-2m程度であり連続性も乏しい。 夾粘土層は厚い亜角礫層に広く覆われており、礫層堆積前に存在した小規模な凹地に堆積したものである。周辺には、同種の粘土が点々と露出しており、採掘規模もたぬき掘程度のごく小規模なものである。

4.4.3 带青灰白色粘土

今回の調査で最も注目された粘土で、将来沖縄の重要な窯業原料として開発が期待される.

すでに述べたように、夾粘土層(呉我累層)は白亜一古第三系などの基盤岩類の直上部に堆積したもので、常に厚い円礫または亜角礫を多く含む砂礫層によって被覆されている。厚さは5-10 m 程度で、各地に散在して分布しており、当時存在した小規模な湖沼などに堆積したものと考えられる(第2図). 現在ある程度採掘が進んでいるのは、石川中部および北部で、この他古我地・江州などで部分的に陶土として採掘されている.

代表的な例として、恩納村南東部における夾粘土層の産状を第6図に示した。この地区の夾粘土層は少なくも東西500m、南北100-200mの範囲に分布しており、北及び南側では基盤の名護累層を直接覆っている。粘土層の厚さは1-3m程度で、一部には有機物に富み暗灰色を呈する部分もある。

粘土層として比較的まとまっており、採掘条件もよい地区としては、上記の恩納村南東部の他、古我地及び江州の両地区があげられる。いずれも径200-300 m以上の分布範囲を持ち、粘土層の厚さは2 m内外である。

前述したような、局地的な夾粘土層の分布とこれを覆う厚い砂礫層の発達は、瀬戸・多治見付近の陶土層の産状と酷似しており、堆積性のカオリン質粘土鉱床として典型的な産状を示すものといえる(藤井、1969).

5. 粘土の鉱物組成

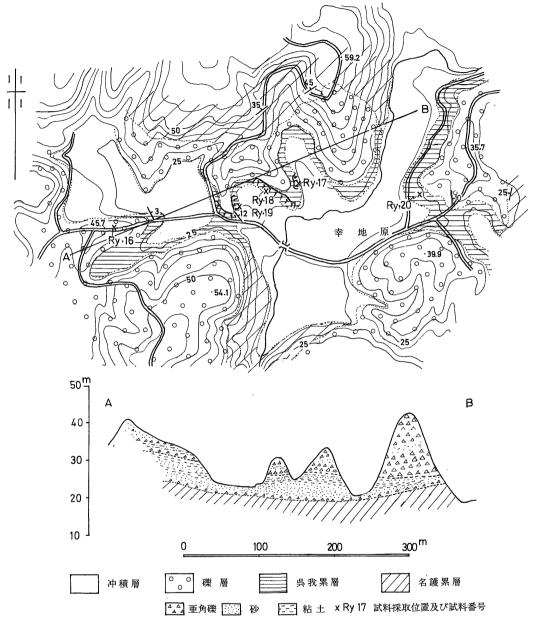
上述した各種の粘土試料約60個について、主としてX線粉末回折により鉱物組成の検討を行った. 試料の採取地点は第1図に、また正確な採取位置・層準は第2-6図に示してある.

5.1 試料の準備

採取した試料のうち、堆積性の粘土のように量的にまとまっており、そのまま利用できると思われるものについては、バルクのまま風乾・磨砕して各種試験に供した. しかし熱水性の粘土や風化残留性の粘土のように、挟雑物が多く粘土分を分離・採取する必要のあるものについては、次のような方法で水ひを行い、分離した粘土分を試験に用いた. この方法は蛙目粘土などの室内での水ひ試験に用いられているもので、通常の水ひ工程の結果に比較的よく一致するとされている.

〔水ひ試験の方法〕

1) 風乾試料100gを容量500ccのビーカー(A)にとり



第6図 恩納村南東部地質図および模式断面図

水200 cc を加える. さらに分散剤として珪酸ソーダ10% 溶液1ccを滴下し、よく撹拌して一昼夜放置する.

- 2) ビーカー(A)の懸濁液を十分撹拌した後, 懸濁部分 をビーカー(B)に移す. この懸濁液を少時間放置して比較 的粗粒の部分を沈殿させ、懸濁部分は再びビーカー(A)に 戻す.
- 3) ビーカー(A)の液を再びよく撹拌し、粘土分を懸濁 させてビーカー(B)に移す. (2), (3)の操作を3回繰返す.
- 4) ビーカー(A)には、最も粗粒の部分の他に少量の粘 土分が残っているので、 新たに水50 cc を加えて粘土分 を洗い出し、これをビーカー(B)に加える. この操作を3 回繰返し、ビーカー(A)に残った粗粒の砂を乾燥して秤量 する.
- 5) ビーカー(B)の懸濁液を約10分間 (本来は30分間) 放置し、中ないし細粒の砂を沈殿させて懸濁液をビーカ ー(C)に移す. 引続きビーカー(B)に新たに100 cc の水を加

え、同じ操作を繰返して残った粘土分をビーカー(G)に加える.この操作を2回繰返す.

6) ビーカー(B)に残った部分を乾燥秤量する.この部分が蛙目粘土から珪砂と粘土を分離した後に残るキラに相当する.ビーカー(C)の懸濁液は遠心分離器などにかけて粘土分を採収する.粘土分の量は,100gから砂とキラの量を差引いて計算すればよい.

上述の方法により約30個の試料について水ひ試験を行った。その代表的な結果を第1表に示す。ただ5)の過程の沈降時間を短くしたので、粘土分の割合はやや多くなっている。

5.2 X線粉末回折

準備した全試料について、X線回折により大よその鉱物組成を検討した.試料はすべてスライドガラス上で水で練った後沈殿・乾燥させ、半定方位試料として試験に供した.装置は理学電機製 Guigerflexを用い、 $2\theta:3-40°$ および 60-65° の範囲について走査を行った.走査条件は第7図に示す通りである.

次いでさらに詳細な同定を行うため、次の各種処理を 行い、回折パターンの変化を検討した.

- (1) エチレングリコール処理
- (2) 300℃および650℃加熱
- (3) 塩酸処理:緑泥石とカオリン鉱物は、いずれも 7 Å付近に反射を有するため、両者が混在する場合の同定が困難である。しかし一般の緑泥石は塩酸に 可 溶 な の で、この処理によって両者を識別することができる。処理に当たっては、少量の試料に約 $6\ N$ の塩酸を十分に加

え、湯煎上で1時間煮沸した後蒸溜水で洗った試料をスライドガラス上に塗布し、X線パターンの変化を調べた.

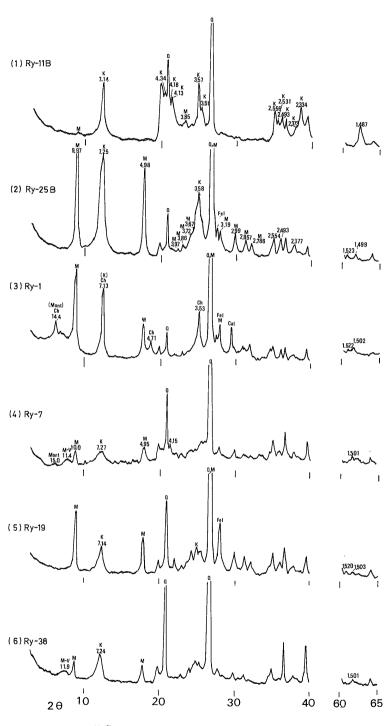
(4) 硝酸アンモン処理:緑泥石とバーミキュライトは,ともに14Å付近に底面反射を有するため,両者の識別が困難な場合がある.バーミキュライトは,300℃加熱により底面反射が10Å付近に移動するので,加熱処理によってもある程度識別は可能である.しかし,この変化は時間の経過に伴い復元する可能性があるので,通常硝酸アンモン処理が用いられる.一般にバーミキュライトは, $1 N O NH_4NO_3$ 中で約10分間煮沸することにより,14Åの反射が11Å付近に移動する(Walker,1961)ので,これにより緑泥石との識別が可能である.しかしA1(層間)バーミキュライトのように,層間のA1 イオンが容易に置換されない場合にはこのような面間隔の変化は起らない.その場合には,Kイオンによる置換が有効である(須藤,1974).

(5) 塩化カリ処理:後述する塩化マグネシウム処理とともに、モンモリロナイトとバーミキュライトの識別に用いられる.この両者は、いずれも14-15Å付近の底面反射を有し、しかもバーミキュライトの一部はエチレングリコール処理によって、モンモリロナイトと同様の膨潤性を示すため、識別が難しい.しかし塩化カリにより処理することにより、モンモリロナイトの底面反射は約12Åに、一般のバーミキュライトのそれは10-11Åに収縮するため、この方法はしばしば用いられている(WALKER, 1961).

なお前述の Al (層間) バーミキュライトの場合は,塩

	2P 1	及 1(及时此件5)水 0. 叫 款 h 未					
No	foy Hir July	\$ 12k 4≅	水	水 ひ 結 果(%)			
類 No. 採取	採 取 地	武 料 冶	砂	キ ラ	粘 土		
10	仲 泊	白色粘土	6.7	8.5	84. 7		
11 • A	前 兼 久	带褐灰白色粘土	1.2	2.6	96. 1		
11 • B	"	灰白色粘土(片岩破片を含む)	19.0	6.0	75.0		
11 • D	"	変質絹雲母石英片岩	27. 2	6.6	66.2		
40	石川ゴルフ場南	白色粘土	4.2	13.3	82.5		
24	喜 瀬 武 原	泥質千枚岩風化部	22.1	3.3	74.6		
25 • B	部 瀬 名 崎	絹雲母石英片岩風化部	63.8	4.8	31.4		
7	喜 名	赤褐色砂質粘土	19.8	8.9	71.3		
9	山 田	"	38.5	4.1	57.4		
13 • A	石 川 北 部	灰褐色砂質粘土	1.9	1.8	96.3		
19	恩納村南東部	灰褐~暗青色粘土	1.1	2.2	96.7		
25 • A	部瀬名崎	含亜炭砂質粘土	10.8	14.6	74.6		
	11 · A 11 · B 11 · D 40 24 25 · B 7 9 13 · A 19	No. 探取地 10 仲 泊 11・A 前 兼 久 11・B ″ 11・D ″ 40 石川ゴルフ場南 24 喜瀬武原 25・B 部瀬名崎 7 喜 名 9 山 田 13・A 石川北部 19 恩納村南東部	No. 探取地 試料名 10 仲 泊 白色粘土 11・A 前 兼 久 帯楊灰白色粘土 11・B ″ 灰白色粘土 (片岩破片を含む) 21・D ″ 変質絹雲母石英片岩 40 石川ゴルフ場南 白色粘土 24 喜 瀬 武 原 泥質千枚岩風化部 25・B 部 瀬 名 崎 絹雲母石英片岩風化部 7 喜 名 赤褐色砂質粘土 9 山 田 灰褐色砂質粘土 19 恩納村南東部 灰褐~暗青色粘土	No. 採取地 試料名 10 仲 泊 白色粘土 11・A 前 兼 久 帯楊灰白色粘土 1.2 11・B ″ 灰白色粘土(片岩破片を含む) 11・D ″ 変質網雲母石英片岩 40 石川ゴルフ場南 白色粘土 4.2 24 喜 瀬 武 原 泥質干枚岩風化部 25・B 部 瀬 名 崎 網雲母石英片岩風化部 63.8 7 喜 名 赤褐色砂質粘土 19.8 9 山 田 ″ 38.5 13・A 石 川 北 部 灰褐色砂質粘土 1.9 19 恩納村南東部 灰褐~暗青色粘土 1.1	No. 採取地 試料名 水 ひ 結果 10 仲 泊 白色粘土 6.7 8.5 11・A 前 兼 久 帯楊灰白色粘土 1.2 2.6 11・B		

第1表 代表的試料の水ひ試験結果



第7図 代表的試料のX線回折パターン

1. 試料名および採取地 (1)熱水性粘土 (水ひ):前兼久

- (2)風化残留性粘土(水ひ):部
- 瀬名崎
- (3)島尻層群の泥岩:馬天
- (4)赤褐色粘土:喜名
- (5)呉我累層の帯青灰白色粘土: 恩納村南東部
- (6)同上: 江州

X線走查条件

対陰極: Cu

フィルター: Ni

電圧: 30 kV

電流: 15 mA

Ratemeter: 8

Multiplier: 0.5

Time const.: 2 走査速度: 2°/min.

チャート速度:2 cm/min.

化カリと苛性カリの混合溶液中で約5時間煮沸することにより、AIイオンをKイオンで置換する方法(RROWN、1953)が用いられている。本研究においては、バーミキュライトあるいはその混合層と考えられる鉱物は、いずれも硝酸アンモン処理で明瞭な収縮を示したため、この方法による検討は行っていない。

(6) 塩化マグネシウム処理:モンモリロナイトとバーミキュライトの識別に最も有効なのは、試料を Mgcl 溶液 (1N) 中で処理し、さらにグリセロール処理したものについて底面反射の変化を調べる方法である. この場合バーミキュライトの反射は14.5Åを超えることがなく、モンモリロナイトのそれは17Å以上になるため、容易に両者を識別することができる (Walker, 1961).

5.3 示差熱分析および加熱重量変化

代表的な試料について,理学電機製示差熱 天 秤 に よ g ,DTA および TG の同時測定を行った.試料は全て 300~mg を用い,空気中で,10 $^{\circ}$ $^{\circ}$ $^{\circ}$ /min の加熱速度で測定した.代表的な DTA $^{\circ}$ $^{\circ}$

5.4 電子顕微鏡観察

産状および鉱物組成と関連させて、代表的な試料について電子顕微鏡による形態観察を行った。観察には日本電子製 JEM100 C型を用いた。そのうち、特に典型的なものを Plate に示す。

5.5 特徵的粘土鉱物

上述の方法によって同定された各種粘土鉱物のうち、 特徴的なものについてその性質を述べる.

5.5.1 カオリン鉱物

具志頭の火山灰を除く全ての試料について,カオリン 鉱物の存在が確認された.

特に熱水性粘土は、カオリン鉱物を主成分とするものが大部分であり、そのX線パターン(第7図—(1))にも20-22° および35-40° の領域の hkl 反射が明瞭に現れており、大部分カオリナイトからなるものと判定される(Brindley, 1961). Negishi (1974) も、石川ゴルフ場南の露頭から採取した試料について、明瞭な六角板状を示すカオリナイトの存在を報告している.

しかし、仲泊および前兼久の熱水性カオリン脈の試料について電子顕微鏡観察を行った結果は、いずれも長さ 0.1-1.0 μ の管状形態の明瞭なハロイサイトが卓越し、径0.1 μ 以下の微粒の板状カオリナイトを少量伴うものであることが明らかにされた(Plate 1). 元来、カオリナイトとハロイサイト,特にメタハロイサイトが混在する場合、X線回折だけでその量比を知ることは難しく、カオリナイトが20%前後含まれていればX線パターンに

はカオリナイトの特徴が明瞭に現れることが知られている (Brindley et al., 1966). この場合も、電子顕微鏡写真ではカオリナイトの量はごくわずかであるが、これは試料の作り方の関係もあるので、若干量混在するカオリナイトの性質がX線パターンに現れたと考えるのが妥当であろう. 10Åの反射が全く見られないことから考えて、これらの熱水性粘土は管状のメタハロイサイトを主成分とし、少量のカオリナイトを含むものと判断される.

なお、管状の形態を有しながらX線的にはカオリナイト同様の規則的な積層の特徴を示すハロイサイトの存在も予想されている($SAUZA\ SANTOS\ et\ al.$ 、1966)が、現在のところそのような鉱物の報告はなされていない(長沢、1977).

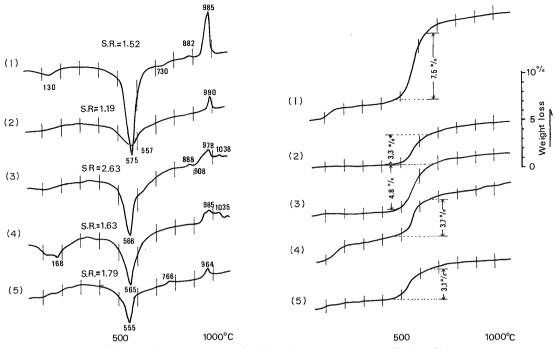
カオリン鉱物は、風化残留性粘土および呉我累層中の 帯青灰白色粘土にも普遍的に見出される (第7図-(2), (4)--(6)), 特に風化残留性粘土 (第7図--(2)) の場合は, 7.2Å付近の底面反射が 2θ: 20° 付近の hkl 反射に比べ て著しく強調されており、カオリナイトが多く含まれて いることを示している (BRINDLEY et al., 1966) 電子顕 微鏡写真でも、微粒の板状カオリナイトが多 く 認 め ら れ、少量の管状ハロイサイトを含む (Plate 2-1) ことに より、この結果が裏付けられる。一方呉我累層中の粘土 は、いずれも7Å付近の底面反射が相対的に小さく、か つ低角度方向に不規則な散乱を伴っている(第7図-(4)-(6)) ことから、ハロイサイトを多く含むことが推定でき る. 電子顕微鏡観察によっても同様な結果が得られた (Plate 2-2). なお, ハロイサイトはすべて 7 Å付近に 底面反射を有するもので、大部分がメタハロイサイトと 同定される.

しかし、DTA 曲線では上述のような結果は必ずしも明瞭ではない。DTA 曲線におけるカオリナイトとハロイサイトの相違は、 $500-600^{\circ}$ の吸熱ピークの対称性に最もよく現れるとされており、このピークの 低温 側と高温側の傾斜比(Slope Ratio-tangent の比)が、ハロイサイトでは2.5-3.8であるのに対しカオリナイトは0.78-2.39で、これが同定の一つの基準とされている(BRAMAO et al.、1952)。しかし、今回研究の対象とした 試料では、最もカオリナイトが多いと推定された風化残留性粘土が傾斜比2.63であるのに、ハロイサイトを主成分とする粘土はいずれも2.0以下の傾斜比を示した(第8図).このような結果は雲母粘土鉱物混入の影響とも考えられるが、DTA 曲線の解釈に当たってさらに慎重な検討が必要なことを示している。

5.5.2 雲母粘土鉱物

熱水性粘土の一部(母岩の絹雲母片岩の変質物が混在





(1)熱水性粘土 (Ry-11・A), (2)熱水性粘土 (Ry-11・D), (3)風化残留性粘土 (Ry-25・B), (4)堆積性粘土 (Ry-23・B)・雲母・バーミキュライト混合層を含むもの, (5)堆積性粘土 (Ry-38)

第8図 代表的試料の DTA・TG 曲線

しない純粋なカオリン質粘土)を除く全ての試料について、雲母粘土鉱物の存在が確認された。 $60-65^\circ$ の(06、33)の反射から見て、いずれも dioctahedral 型のものであり、また $20-35^\circ$ 領域の hkl 反射のパターンから、2M と 1 M型が混在するものが多いと判定される(第7図—(2)、(5))。なおエチレングリコール処理の結果では、10 Aの底面反射は0-0. 1 A 高角度側へ移動しており、少量ながら膨潤層を含むものがあることを示している(下田、1977)。

5.5.3 雲母―バーミキュライト混合層鉱物

呉我累層中の粘土試料に、しばしば11-12Åの幅広い反射を示すものが見出された(第7図—(4)、(6))が、これは雲母—バーミキュライトの混合層鉱物と考えられる。その典型的なものは、喜瀬武原北方の溜池の傍の露頭から採取されたもので(第5図)、 礫層中の夾みのシルト質粘土からは明瞭な規則型の、また基盤の泥質千枚岩の風化部からは不規則型の混合層鉱物が見出された。

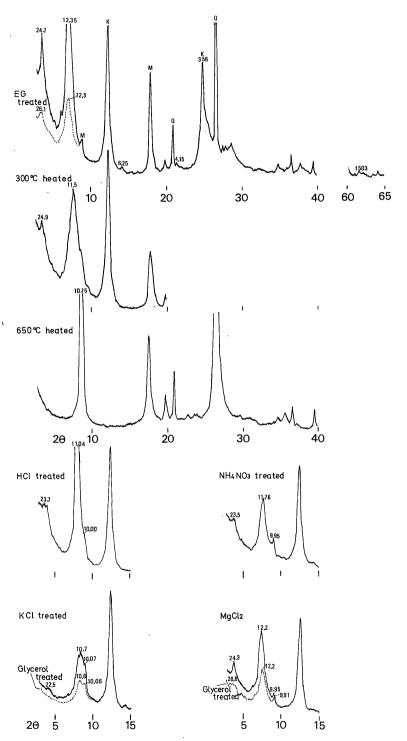
規則型の混合層鉱物は、24.7Åの明瞭な長周期反射を示し、以下12.35、6.25、4.15、3.56Åの底面反射が現れている。第9図に、未処理試料(水ひ物)のX線パターンと各種処理による底面反射の変化を総括して示した。

この図から明らかなように、この鉱物はエチレングリコール処理により若干の膨潤を示すが、300℃加熱後も長周期反射が残っており、塩化カリ処理によって一次反射は22.5Å、二次反射は10.7Åにそれぞれ収縮する。これらの変化は、混合層の構成層の一つがモンモリロナイトではなくバーミキュライトであることを明瞭に示している。また硝酸アンモン処理により不完全ながら収縮を示し、塩酸処理後もパターンに若干の変化はあるが底面反射が明瞭に残存していることから、緑泥石の存在も否定される。さらに650℃加熱で底面反射はすべて10Åに統一されることから、基本的には雲母型の層構造を有することが推定できる。以上の結果から、本鉱物は、雲母ーバーミキュライト規則型混合層と同定された。

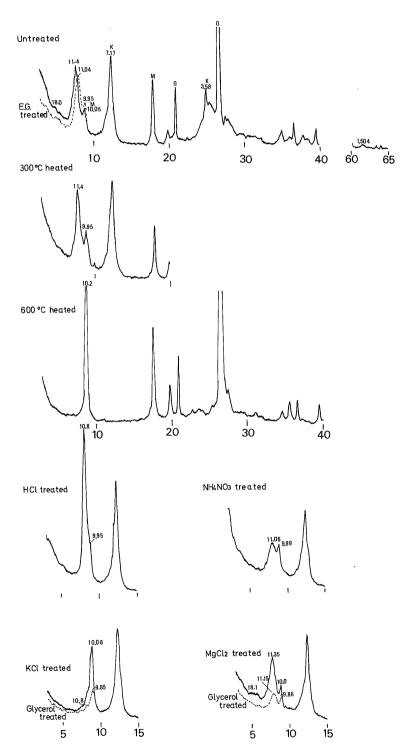
このバーミキュライトは dioctahedral 型であり,硝酸アンモン処理による収縮が不完全な所から,層間陽イオンとして一部 Al を有するものと推定される.

従来黒雲母とバーミキュライト (trioctahedral 型) の混合層鉱物については、幾つかの報告 が ある (下田, 1971など)が、dioctahedral 型の雲母―バーミキュライト混合層の記載は比較的少なく(長沢、1973)、最近金原・大久保(1976)によって、四国結晶片岩地帯の地辷り粘土中から2M型セリサイト―バーミキュライト様膨

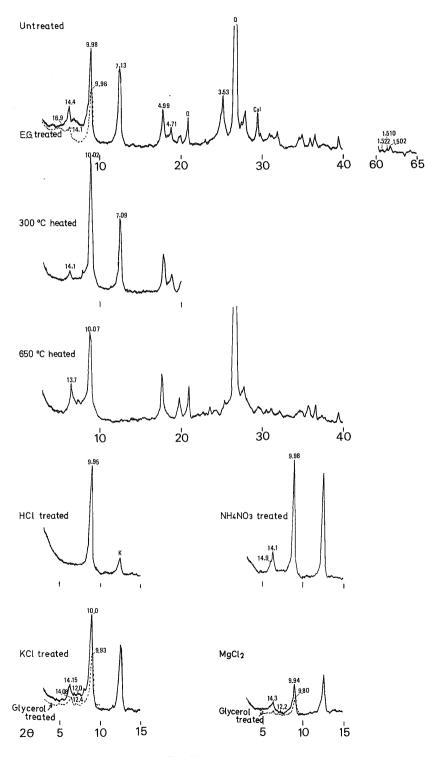




第9図 各種処理によるX線パターンの変化



第10図 泥質干枚岩風化物 (水ひ) (Ry-24) の各種処理によるX線パターンの変化



第11図 島尻層群中の泥岩 (Ry-1) の各種処理によるX線パターンの変化

潤層の混合層鉱物が報告された程度である. しかし地辷り粘土中からイライト/Al バーミキュライト混合層が報告された例は他にもあり(矢島ほか,1975), 絹雲母片岩からの風化生成物として当然産出が予想されるものである.

次に、不規則型混合層鉱物の典型的なものは基盤の泥質千枚岩の風化部で見出された。第10図はX線パターンの各種処理による変化を総括したもので、未処理試料では11.4Åに幅広い反射を示す点で前述の規則型のパターンと大きく異なっている。しかし各種処理によるパターンの変化には顕著な共通性があり、規則型と同じ構成層を持つ不規則型混合層と考えるのが妥当である。詳細な結晶解析は行っていないが、底面反射の位置から見て30

%前後のバーミキュライト層を含む混合層と推定される (MacEvan et al., 1961).

なお,この2つの試料は,その他にカオリン鉱物・石 英を多く含み,少量の雲母粘土鉱物を伴う点でも明瞭な 共通性がある.

前述のように,呉我累層中の粘土には11Å前後の幅広い反射を示すものがしばしば見出される(第7図—(4),(6)). 上述の結果から見て,これらも同じ雲母—バーミキュライト不規則混合層鉱物と考えて差支えないであろう. Aoki(1974)も,名護湾中の海底堆積物から A1 バーミキュライトの存在を報告しているが,基盤の絹雲母片岩の風化生成物としてこの種の鉱物がかなり広範囲に亘って賦存することが予想される.

第2表 代表的粘土

類	別	No. ○…水ひ試料	試 料 名	採取地
快 熱	く性 粘土	10 O 11 • AO 11 • BO 11 • DO 40 O	白 色 粘 土 帯褐灰白色粘土 灰白色粘土(片岩破片を含む) 変質絹雲母石英片岩 白 色 粘 土	仲泊ハイウェー切割り 前兼久採掘場 " " 石川ゴルフ場南
風化	残留性粘土	12 O 24 O 25 • B O	絹雲母石英片岩風化部 泥質干枚岩風化部 絹雲母石英片岩風化部	前兼久北東方 喜瀬武原北方 部瀬名崎採掘跡
	島尻層群	1 4	暗灰色粘土質シルト 白色磨き砂様火山灰	与那原町馬天 具 志 頭
堆	赤褐色粘土 (吳我累層?)	7 0 9 0	赤褐色砂質粘土 "	喜名国道横 山田採掘場跡
積		13 • A 13 • B	灰褐色砂質粘土 シルト質粘土	石川北部採掘場
,	呉	17 • A 17 • B 19	″ 暗青色有機質粘土 灰褐一暗青色粘土	恩納村南東部 """
性	我.	25 · B \bigcirc 25 · A \bigcirc	シルト質砂 合亜炭砂質粘土	喜瀬武原北方 部瀬名崎採掘場跡
粘	累	28 • A 28 • B 31	// 木節様粘土 淡青色粘土	許田ハイウェー切割り//古 我 地
土	層	33 35 • A	次有已作工	口 · 坟 · 地 · / / / / / / / / / / / / / / / / /
		35 • B 37 38	木節様粘土 淡青色粘土 "	江 州

^{1) ◎…}極めて多, ⑨…多, ○…中, △…少, ×…微量

²⁾ Q…石英,K…カオリン鉱物,M…雲母粘土鉱物,M-V…雲母・バーミキュライト混合層,Ch…緑泥石,Mont…モンモリロナイト,Amor…

5.5.4 緑 泥 石

緑泥石が普遍的に見出されたのは、島尻層群中の海成粘土質シルト層である。筆者の一人藤井は、福田 理らと島尻層群中の天然ガス鉱床の調査を行った際、このシルトの鉱物組成を広範囲に亘って研究し、いずれも緑泥石・雲母粘土鉱物が主成分であり、緑泥石の一部は風化により膨潤性鉱物となっていることを指摘した(福田ほか、1970)。

第11図は,与那原南方の馬天粘土採掘場で採取した試料についてX線分析を行った結果を示したものであるが,単純な緑泥石には見られない複雑な変化を示している

すなわち、14.4Åの底面反射はエチレングリコール処

理で著しく小さくなり、低角度側に幅広い散乱を生じたことから、膨潤性鉱物の存在が推定できる。しかし、この反射は硝酸アンモン処理でほとんど変化がなく、塩化カリ処理では14Åと12Åの幅広い反射に分岐した。この変化は、膨潤層鉱物としてバーミキュライトよりもモンモリロナイトが含まれている可能性が大きいことを示している。また、塩酸処理の結果7Åの小さな反射が残ることから、少量のカオリン鉱物(電子顕微鏡下では管状のハロイサイトが見出された)が含まれていることが分る。このカオリン鉱物の影響を考慮しても、緑泥石の14Å反射は7Å反射に比べ著しく強度が小さく、これからFe に富む緑泥石と同定される(OINUMA et al., 1972)。

なおこの試料は、14Å反射の前後に幅広い不鮮明な反

試料の鉱物組成

	Í	拡	物	糸	H.	成	
Q	K	М	M-V	Ch	Mont	Amor	Others
0	0					Δ	
•	•					Δ	
Δ	•	×				×	
•	0	0					
0	0					△?	
	0	Δ					
•	•	Δ	0				
•	•	0					
0	×	0		0	×		
×						0	Fel ×
•	Δ	×	×		×		Hb ×
0	Δ	×					
•	×		Δ		1	\triangle ?	
•	×	×	×			Δ	
•	Δ	Δ				×	
•	Δ	Δ				×	バーミキュライ ト…× Fel △
•	Δ	0					Fel △
•	•	×	•				
0	Δ	Δ				×	
0	Δ	Δ				\triangle	
0	Δ	Δ				×	
•	Δ	×					Fel ×
•	Δ	×					
•	Δ	×	ı	×			Fel ×
•	Δ	×		×	×		Fel ×
•	Δ	×	×			×	
®	Δ	×	×				

非晶質物質, Fel···長石, Hb···角閃石.

射を伴っており、混合層鉱物の存在が予想されるが、今回は詳しく同定するには至らなかった.

5.6 各種粘土の鉱物組成

上述のような検討の結果から判定した各種粘土の鉱物 組成を第2表に総括した.

この表からも明らかなように、粘土の種類により鉱物 組成に次のような共通的特徴が見出された.

(1) 熱水性粘土

主として石英とカオリン鉱物(大部分メタハロイサイト)からなり、一部は雲母粘土鉱物を混える。 雲母粘土鉱物は、母岩の絹雲母片岩の一部がとりこまれたものである。 また、X線パターンから若干量の非晶質物質を含むことが予想される。 非晶質物質様のものは、電子顕微鏡写真にも観察できる (Plate 1).

(2) 風化残留性粘土

主として石英・カオリン鉱物(カオリナイトに富む) および雲母粘土鉱物からなる。一部喜瀬武原で採取した 試料からは、相当量の雲母―バーミキュライト混合層鉱 物が見出された。

- (3) 堆積性粘土(その1)—島尻層群中の粘土質シルト石英・雲母粘土鉱物および Fe に富む緑泥石を主成分とする. 緑泥石は風化作用の影響により,一部モンモリロナイト様鉱物に変わっている. また少量のカオリン鉱物 (メタハロイサイト) も見出された.
 - (4) 堆積性粘土 (その2) —新期堆積層の赤褐色砂質 粘土

石英が最も多く、粘土鉱物としては少量のカオリン鉱物、雲母粘土鉱物を含む. 一部に雲母―バーミキュライト混合層鉱物、モンモリロナイトも見出された.

(5) 堆積性粘土 (その3) ―呉我累層中の帯青灰白色 粘土

石英・カオリン鉱物(メタハロイサイトを主とする)・雲母粘土鉱物からなり、時に雲母―バーミキュライト混合層鉱物・非晶質物質を含んでいる。また呉我で採取した試料からは、少量の緑泥石が見出された。これは基盤の緑色岩などからもたらされたものと考えられ、堆積盆地によって鉱物組成に若干の差があることを示している

6. 化学組成および焼成試験結果

採取した試料について、代表的なものに関しては化学分析を、また全試料について耐火度測定および焼成試験を行った、焼成試験は JIS・R・2205に定められた方法により、850℃および 1200℃における見掛け気孔率・吸水率・見掛け比重を測定し、 また自然乾燥状態・850℃・1200℃・1300℃における収縮率を測定した。これらの結果を、第 3 表および第 4 表に総括する。なお、焼成色はすべて酸化雰囲気における焼成試験の結果である。

これらの試験結果から次のようなことが明らかになった.

(1) 熱水性粘土

耐火度が最も高く、焼成色も白色に近い、良質のもの

第3表 代 表 的 試

					第3表	代 表	的 試
Word Flat	N.T.	試 料 名	malan tol.				化
類別	No.	○…水 ひ 粘 土	産 地	SiO ₂	${ m TiO_2}$	$\mathrm{Al_2O_3}$	Fe ₂ O ₃
able to tale state. I	10	白色粘土 〇	仲泊工事現場	62.09	0.47	23. 87	0.46
熱水性粘土	40	<i>"</i>	石川ゴルフ場西	60. 92	0.53	24. 49	1.01
風化残留性	24	泥質千枚岩風化部 〇	喜瀬武原北	64. 77	0.55	21.04	2. 98
粘 土	25 • B	石英片岩風化部 〇	部 瀬 名 崎	58.00	0.01	26.05	1.75
	1	帯青暗灰色粘土質シルト	与那原町馬天	57.43	0.45	15.49	5. 78
堆	7	赤褐色砂質粘土 〇	喜名(旧掘場)	60.66	0.45	19. 43	5. 78
_	13 • B	帯微褐灰色粘土	石川北部掘場	68.40	0.66	16. 33	3.09
積	17 • A	"	恩納村南東部	65.85	0.55	18. 25	3.48
性	17 • B	暗青色有機質粘土	"	66. 53	0.44	17.72	2.08
粘	28 • A	シルト質木節様粘土	許田新道横	49.62	0.20	18.04	5. 97
	31	带青灰白色粘土	古 我 地	62.84	0.55	18. 27	3. 14
土	35 • A	"	呉 我 南	62.02	0.48	17.50	4.99
	37	"	江 州	68.06	0.53	17. 36	1.73
釉薬用白土	4	白色磨き砂様火山灰	具 志 頭	71,01	0.13	11.82	1.55

分析…照屋善義

は、カオリン鉱物を60%前後含んでおり、焼 結 性 も よい、また周縁部の絹雲母石英片岩の変質物を 含 む も の も、 S K 26程度の耐火度があり、焼成色も白色でかつ低 温においてよく焼結する特徴がある.

(2) 風化残留性粘土

現在採掘している部瀬名崎の粘土は、耐火度もかなり 高く、焼成色・焼結性においても良質の陶磁器原料とい える. これに類似する性質を持つのは喜瀬武原北方の泥 質千枚岩の風化粘土で,焼成色ではむしろ白色度が高い.

また前兼久北東方で採取した絹雲母石英片岩の弱風化部も、焼成色は赤褐色が強いが SK 20程度の耐火度を示した.

(3) 堆積性粘土 (その1) ―島尻層群中の粘土質シル

耐火度はきわめて低く焼成色も赤褐色で、従来通り瓦・雑陶器原料として使用できる程度である。しかし、低温においてよく焼結する性質がある。

(4) 堆積性粘土 (その2) 一新期堆積層の赤褐色粘土 現在壺屋焼の主原料の一つとして使用されている粘土 で、焼成色は褐色が強いがある程度耐火度もある. しか し、焼結性はそれほど良くなく、一部には発泡するもの も見出された.

(5) 堆積性粘土 (その3) ―呉我累層中の帯青灰白色 **+

一部陶磁器原料に使用されているが、全体として未開 発の粘土である.組成の面ではかなり変動があり、耐火 度もSK10-27と変化が著しい. 一般に焼結性はよく,焼成色は褐灰色ないし赤褐色である.

このような性状の違いは、各堆積盆地の後背地の地質 と関係があることが予想される。最も耐火度が高いのは 江州の粘土で、焼成色も若干褐色を帯びる程度である。 石川・恩納村南東部・古我地などの粘土も、中程度の耐 火度があり一般に焼結性もよい。

しかし、許田・呉我などで採取した試料は発泡性を示すものが多く、これらは陶磁器原料としては利用できない. 古我地・恩納村南東部の粘土のなかにも一部発泡性のものがあり、これらはいずれも有機質に富む粘土である。

7. 総 括

今回の調査・研究で明らかになった結果を総括すると 次のようである.

- (1) 沖縄島に産出する粘土質資源は,成因的に熱水性・風化残留性および堆積性の3つに区分され,それぞれ特徴的な組成・性質を有する.
- (2) 熱水性粘土は、基盤の白亜一古第三系中に貫入した不規則な脈状の細粒酸性岩が熱水変質を受けて生成されたもので、大部分カオリン鉱物(メタハロイサイトを主とする)と石英からなり、耐火度が高く質的には最も安定している。変質作用は周囲の絹雲母石英片岩にも及んでおり、この部分は雲母粘土鉱物を含み耐火度も若干低下するが、低温でよく焼結する特徴がある。前兼久・

料の化学成分

学	ÿ	組	成	(wt %)				
MnO	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	P_2O_5	$-\mathrm{H_2O}$	Ig. loss	Total
0.01	tr	0.35	0.05	1.15	0.04	2. 20	9.57	100. 26
tr	tr	0.29	0.17	1.35	tr	4.46	7.85	101.07
tr	tr	0.27	0.07	3.00	0.01	1.05	7. 28	101.02
tr	tr	0.68	0.19	4. 92	tr	0.83	7. 09	99. 52
0.08	3.23	2.54	0.94	3. 10	0.07	1.74	9.01	99.86
0.02	tr	0.70	0.08	2.53	0.01	1.65	7. 92	99.23
0.01	tr	0.59	0.09	1.70	0.04	1.93	6.58	99.42
0.02	tr	0.68	0.90	3.43	0.02	0. 70	5. 25	99.13
0.02	tr	1.00	1.25	3.51	0.12	0.45	4.68	97.80
0.03	tr	1.07	0.62	3.49	0.11	6. 11	14.89	100. 15
0.01	0.04	0.96	0.58	2.43	0.01	2. 52	8.00	99.35
0.09	0.31	1.65	0.30	2.25	0.23	2. 18	7. 71	99.71
tr	tr	0.58	0.06	2.11	tr	1.56	5. 55	97.54
0.06	0. 78	0.43	3.92	3.40	tr	0.91	5. 92	99.93

第4表 代表的粘土試

akazi	mi.	No.	耐火度	 溶倒温度	収	縮	率(%)
類	別	○…水ひ試料	(SK)	(℃)	乾燥	850℃	1200℃	1300℃
		10 🔾	34	1, 750	1.2	1.4	4.0	5.4
		. 11 • A O	34	1,750	7.9	90	11.4	11.4
熱	水 性 粘 土	11 ⋅ B ⊖	34+	, 	. 5.9	6.0	10.8	11.8
		11 • D O	26	1,580	1.3	2.2	10.4	12.0
		40 🔾	33	1, 730	7.7	7.0	12.3	14.8
		12 🔾	20+	1,544	1.4	3.0	13. 3	12.5
風亻	化 残 留 性 粘 土	24 🔾	27	1,610	2.8	2.2	16.5	14.0
		25 ⋅ B ○	28+		2.1	1.5	14.8	17.5
	, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	1	4 a	1, 163	5.8	5.0	16.0	溶
	島尻層群	4	5 a	1, 184			溶	溶
	赤褐色粘土	7 0	17	1,479	4.2	4.0	12.6	12.0
堆	(呉我累層?)	9 🔾	15	1,436	6.7	6.6	15.4	15.4
址		13 • A	15+	1,440	2.3	1.0	9.5	11.8
		13 • B	19	1, 520	6.3	5.5	15. 3	14.0
馩	帯	17 • A	18	1,500	2.3	1.5	12.5	12.0
	青	17 • B	12—	1, 342	0.8	_	8.8	3.8
性	灰	19	15+	1,450	1.3	0.8	13.0	9.0
132	白	23 • B 🔾	26+		3.6	3.8	15.5	15.0
	色	25 • A 🔾	18+		5.3	4.2	20.8	17.3
粘	粘	28 • A	10+	1, 306	4.2	3.8	6.8	7.8
	土	28 • B	10+	1, 313	3.9	3.5	8.3	9.8
	吳	31	14	1,414	6.6	6.8	14. 0	⊚ 14.0
土	(呉我累層)	33	15+	1, 443	7.4	8.8	17.0	15.0
	層	35 • A	12-	1, 342	7.0	7.8	11.3	10. 5
		35 • B	14	1,414	5.6	6.5	16. 3	⊚ 16.0
		37	26	1,580	3.7	3.5	11.5	11.8
		38	27+		1.2	0.5	8.8	10.5

⁽¹⁾ 焼成試験方法は JIS R 2205 による

仲泊・石川南部などに分布するが、いずれも連続性に乏 しく量的には大きな期待は持てない.

(3) 風化残留性粘土

中期更新世の呉我累層堆積当時に形成された基盤の泥質片岩の風化部が、被覆層によって削剝を免れたもので、現在部瀬名崎で採掘中である.水ひによって採取した粘土は、石英・カオリン鉱物(細粒カオリナイトが多い)および雲母粘土鉱物からなり、焼成試験の結果も良好であった.類似した性状を示す粘土は、喜瀬武原北方の泥質千枚岩の風化部でも見出された.この型の粘土は比較的産出が限られているが、成因から考えてなお探査の余地はあると思われる.

(4) 堆積性粘土

この型の粘土は、後期中新世一前期更新世の島尻層群中の粘土質シルトと、中期更新世の呉我累層中の帯青灰白色粘土およびほぼ同時期の新期堆積層中の赤褐色砂質粘土に大別される.

島尻層群中のシルトは量的には莫大なものであるが, 緑泥石と雲母粘土鉱物を多く含み,耐火度も低く,瓦や 雑陶器などに利用し得る程度である.

また赤褐色粘土は、喜名・山田などで現在小規模に採掘されているが、焼結性にかなりむらがある. 需要量が 少ないので、量的な問題は少ないと考えられる.

今回の調査で最も注目されたのは、呉我累層中の帯青

^{(2) ●…}発泡したもの, ⑥…やや多孔質のもの

料の焼成試験結果

見掛け気	孔率 (%)	吸水	图 (%)	見掛り	ナ 比 重	色	**************************************	調
850℃	1200℃	850℃	1200℃	850℃	1200℃	風 乾	850℃ 焼成	1200℃焼成
51.9	50.2	41.0	37.7	2.6	2.6	白 色	白 色	白 色
46.2	42.7	32.2	27.3	2.6	2.7	帯微褐灰色	带微褐灰色	灰白色
52. 2	44.2	41.2	29.9	2.6	2.6	灰 白 色	"	帯微褐白色
47.7	14.5	34.9	6.9	2.6	2.8	"	白 色	灰白色
46. 1	38. 2	32. 5	23. 1	2.6	2.6	帯微褐灰色	帯微褐灰色	帯微褐灰色
	9.7		4. 3		2.4	褐 色	褐 灰 色	赤褐色
_	0.6		0.2		2.3	白 色	白 色	白 色
	2.5		1.1	_	2.3	带褐白色	带褐灰白色	帯微褐白色
38. 1	0.9	23.5	0.5	2.6	1.7	暗灰色	暗褐灰色	暗赤褐色
52.4	_	45.2	_	2.4		灰自色	带微褐灰色	
43.4	18. 9	28.6	8.9	2.6	2.6	褐 色	褐 色	赤褐色
41.0	10. 7	25. 8	4.8	2.6	2.4	褐 灰 色	"	"
_	21.2		10.5	_	2.5	帯褐灰色	褐 色	褐 色
35.9	2.0	21.5	0.8	2.6	2.3	"	"	褐 灰 色
42.8	0.5	29.0	0. 2	2.5	2.3	帯微褐灰色	帯褐灰色	带褐灰色
41.4	2.3	27. 1	1.1	2.6	2.0	暗 灰 色	"	"
44. 1	0.5	30. 7	0.2	2.5	2.3	灰白色	"	褐 色
46.7	0.7	33.5	0.3	2.6	2.3	"	帯微褐白色	帯微褐灰色
56.8	0.0	51.5	0.0	2.5	2.1	带褐灰色	赤褐色	赤褐色
49.5	30.8	35.6	23.0	2.7	1.9	灰白色	帯微褐灰色	"
49.3	35.6	36.0	29.4	2.7	1.8	"	"	"
39. 1	5.6	25. 2	2.7	2.5	2.1	"	"	带褐灰色
39.9	0.0	25. 3	0.0	2.6	2.3	帯微褐灰色	"	赤褐色
32.2	10.3	18.6	5.7	2.5	2.0	灰白色	褐 色	褐 灰 色
41.3	1.2	27.0	0.5	2.6	2.3	褐 灰 色	"	"
38.9	7.8	24. 3	3.5	2.6	2.4	帯微褐灰色	帯微褐灰色	带褐灰色
40.3	18.8	25.9	9.1	2.6	2.5	暗 灰 色	"	帯微褐灰色

⁽³⁾ 焼成試験…仲村三雄・宜野座俊夫

灰白色粘土である. 呉我累層は当時散在した湖沼などに 堆積したと考えられる陸成層で,厚さ1-3 mの粘土層 を挾有する. 主要な分布地は,石川東部・北部・恩納村 南東部・呉我・古我地・江州などで,粘土の組成・性状 は堆積盆地により若干の変動がある.

主成分鉱物は、石英・カオリン鉱物(メタハロイサイトが多い)・雲母粘土鉱物で、時に雲母―バーミキュライト混合層鉱物を含んでいる。耐火度および焼成試験の結果比較的良質と考えられるのは、石川・恩納村南東部・古我地及び江州の粘土で、特に江州の粘土は耐火度が高い。また量的にまとまっているのは、恩納村南東部・古我地および江州の鉱床で、これらは陶磁器だけでなく

タイルその他の窯業原料としても今後の開発が期待される.

8. 今後の問題点

今後早急に解決されねばならない問題として、呉我累層を含む新期堆積層の対比の問題がある。従来の呉我礫層・那覇累層、国頭礫層という区分に疑問があることはすでに述べた通りであり、今後は統一的な観点から新期堆積層の調査・研究を行うことにより、粘土層が堆積した各堆積盆地の形状・各地の夾粘土層の正確な層序の把握および対比がなされる必要があろう。特に北部の国頭地方については、江州のように今まで記載されていない

粘土層が他にも分布する可能性があり、全域に亘る組織 的な調査が望まれる.

文 献

- Aoki, S. (1974) Clay mineral compositions in Recent marine sediments around Nanseishoto islands, south of Kyushu, Japan. *Jour. Geol. Soc. Japan*, vol. 80, p. 57–63.
- Bowin, C. and Reynolds, P. H. (1975) Radiometric ages from Ryukyu arc region and an ⁴⁰Ar/³⁹Ar age from biotite dacite on Okinawa. *Earth. Plan. Sci. Let.*, vol. 27, p. 363–370.
- Bramao, L., Cady, J. D. Hendricks, S. B. and Swerdlow, M. (1952) Characterization of kaolin minerals. *Soil Sci.*, vol. 73, p. 273– 287.
- Brindley, G. W. (1961) Kaolin, serpentine and kindred minerals. Brown, G. ed. *The X-ray identification and crystal structure of clay minerals*, Miner. Soc., London, p. 51–131.
- ———, SAUZA SANTOS, P. de and SAUZA SANTOS, H. de (1966) Mineralogical studies of kaolinite-halloysite clays: Part I, Identification problems. Am. Miner., vol. 48, p. 897–910.
- Brown, G. (1953) The dioctahedral analogue of vermiculite. *Clay Miner. Bull.*, vol. 2, p. 64–71.
- FLINT, D. E., SAPLIS, R. A. and CORWIN, G. (1959) Military geology of Okinawa, Vol. V, Geology. U.S. Army Pacific Off., 88 p.
- Fujii, N. (1968) Genesis of the fireclay deposits in the Tajimi-Toki district, Gifu Pref., central Japan. Rep. Geol. Surv. Japan, no. 230, 54 р.
- 藤井紀之(1969) 本邦の耐火粘土資源. セラミックス, vol. 4, p. 23-32.
- -----(1975) 沖縄の陶土を訪ねて. 地質ニュース, no. 251, p. 34-49.
- 福田 理(1977) 沖縄の天然ガスおよび附随関連資源、木崎甲子郎編、琉球列島の地質学研究、第2巻、p. 121-132.
- ーーー ほか14名 (1967) 第 3 次沖縄天然ガス調査 の記録 (その1,2). 地質ニュース, no. 157, p. 14-31, no. 158, p. 16-22.

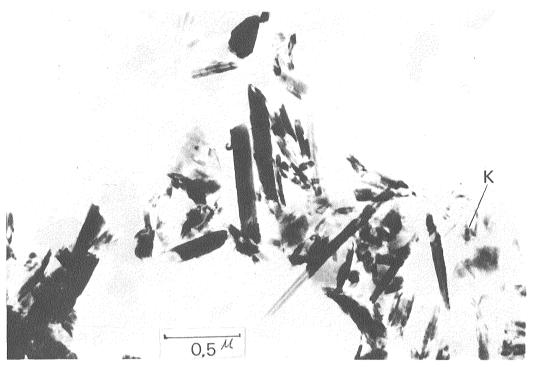
- ほか12名(1969)第4次沖縄天然ガス資源 調査・研究概報、地調月報、vol. 20, p. 101-124.
- 橋本修一・箕浦幸治・吉田和郎・中川久夫 (1976) 沖縄本島北部の地質. 木崎甲子郎編, 琉球 列島の地質学研究, 第1巻, p. 9-20.
- Hanzawa, S. (1935) Topography and geology of the Ryukyu islands. *Sci. Rep. Tohoku Univ.*, 2nd Series, vol. 17, p. 1–61.
- Ishibashi, T. (1969) Stratigraphy of the Triassic formation in Okinawa-jima, Ryukyu. *Mem. Fac. Sci. Kyushu Univ.*, Ser. D, vol. 8, p. 569–602.
- 石橋 毅(1974) 沖縄島辺土岬の三畳系. 地質雑, vol. 80, p. 329-330.
- 賀田貞一(1885) 沖縄宮古八重山紀行. 東京地学協会報告, no. 5, p. 3-48.
- 金原啓司・大久保太治(1976) 2 M型セリサイトより生成した地辷り土中のセリサイト/膨潤層規則型混合層鉱物. 粘土科学, vol. 16, p. 1-9.
- Konishi, K. (1963) Pre-Miocene basement complex of Okinawa and tectonic belts of the Ryukyu Islands. *Sci. Rep. Kanazawa Univ.*, vol. 8, p. 569–602.
- 小西健二(1965) 琉球列島の構造区分. 地質雑, vol. 71, p. 437-457.
- Konishi, K., Ishibashi, T. and Tsuruyama, K. (1973) Find of Nummlites and orthoquartzitic pebbles from the Eocene turbidites in Shimajiri belt, Okinawa. *Sci. Rep. Kanazawa Univ.*, vol. 18, no. 1, p. 43–53.
- MAGEVAN, D. M. C., Ruiz Amil, A. and Brown, G. (1961) Interstratified clay minerals. Brown, G. ed. *The X-ray identification and crystal structure of clay minerals*, Miner. Soci., London, p. 393–445.
- 長沢敬之助(1973) 混合層鉱物の産状. 粘土科学, vol. 13, p. 15-22.
- ----(1977) カオリナイトとハロイサイトをめ ぐる 2, 3 の問題. 鉱物雑, vol. 13, 特別 号, p. 3-16.

- NATORI, H. (1976) Planktonic foraminiferal biostratigraphy and datum planes in the late Cenozoic sedimentary sequence in Okinawa-jima, Japan. *Progress in micropaleontology*, Micropaleontology Press, Am. Musium Natur. Hist., p. 214–243.
- Negishi, T. (1974) On some kaolin minerals found in the Okinawa island. 岩鉱, vol. 69, p. 9-17.
- OINUMA, K., SHIMODA, S. and SUDO, T. (1972)

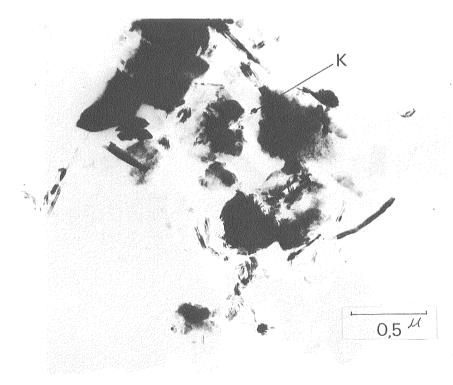
 Trianglar diagrams in use of a survey of crystal chemistry of chlorites. *Proc. Intern. Clay Conf. Madrid*, p. 123–130.
- 沖縄天然ガス研究グループ(1971) 沖縄における天 然ガス資源調査の経緯と成果. 石油技協誌, vol. 36, p. 153-169.
- 遅沢壮一・橋本修一・吉田和郎・箕浦幸治・中川久 夫(1977) 沖縄本島北部の地質(中間報告) II. 木崎甲子郎編,琉球列島の地質学研究, 第2巻, p. 35-40.
- SAUZA SANTOS, P. de, SAUZA SANTOS, H. de and Brindley, G. W. (1966) Mineralogical

- studies of kaolinite-halloysite clays: Part IV, A platy mineral with structural swelling and shrinking characteristics. *Am. Miner.*, vol. 51, p. 1640–1648.
- 下田 右(1971) 茨城県常陸太田市長谷鉱山産の黒雲母とバーミキュライトの混合層鉱物. 粘土科学, vol. 11, p. 174-187.
- ----(1977) 雲母粘土鉱物の化学組成と結晶構造. 鉱物雑, vol. 13, 特別号, p. 27-37.
- 照屋善義・仲村三雄・宣野座俊夫(1974) 沖縄県陶 器窯業実態報告書.沖縄県工業試験場資料, 18 p.
- Walker, G. F. (1961) Vermiculite minerals. Brown, G. ed. *The X-ray identification and crystal structure of clay minerals*, Miner. Soci., London, p. 297–324.
- 矢島澄策・石原健作・吉田幸男・鈴木 滋(1975) 長崎県西彼杵郡三重村地辷り地の粘土につ いて、地辷り, vol. 12, p. 4-12.

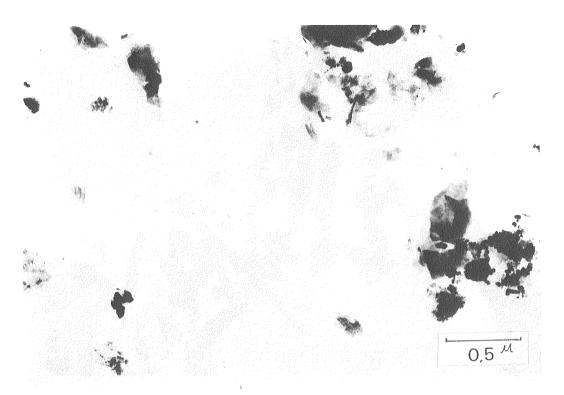
(受付:1978年6月28日;受理:1978年8月10日)



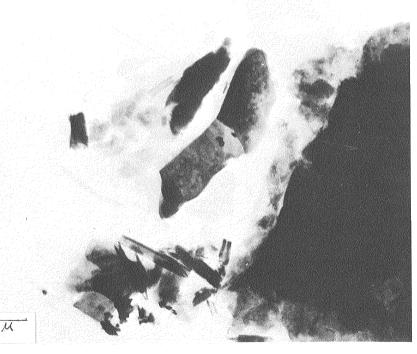
1. 前兼久産熱水性粘土の電子顕微鏡写真 (l1・B) K:カオリナイト



2. 仲泊産熱水性粘土 (10) の電子顕微鏡写真 K:カオリナイト



1. 部瀬名崎産風化残留性粘土 (Ry-25・B) の電子顕微鏡写真



2. 江州産灰白色粘土 (Ry-38) の電子顕微鏡写真