翻　訳

地質調査所月報, 第31巻 第5号, p.225-253, 1980　　549(460):551.78

イベリヤ山系三畳紀層の微細フラクション中の鉱物の鉱物学的成因的及び分布上の特徴*

I) Kaolinite 及び Dickite*

M. D. Ruiz Cruz and M. A. Caballero Lopez-Lendinez

志達　晃訳

序　論

イベリヤ山系の三畳紀層の微細なフラクションに関する鉱物学的研究は, 盆地南部の Keuper 統堆積物について Marfil により1969年に開始された.

Marfil, Alonso 及び Garcia (1971) は, 三畳紀下部層の膠結物質を研究し, 見出した種々の鉱物類の中に Kaolinite と Dickite とがあること, さらに Dickite の方は熱水条件下で続成作用中に形成されたものと推測している.

Caballero (1972) は, スペインの盆地4カ所の三畳紀層の微細なフラクションに関する鉱物学的研究によって, Kaoliniteが一般的にかなりよく出てくるものというよりは, むしろ存在量の豊富な鉱物であることを知った.

De la Peña(1972)は, イベリヤ山系の Muschelkalk 統を研究し, やはり Kaolinite を見出しているが, これは大きな量ではない.

Gabaldon 及び De la Peña (1973) は Molina de Aragon 地区で, 三畳紀下部層中の Kaolinite の存在に言及している.

本論文の研究は, イベリヤ山系に属する三畳紀の14の地層についての詳細な鉱物学的研究の一部をなすものである. Caballero (1972) によって行われた研究により, 粘度鉱物の時期的並びに空間的の分布と, その成因が源泉地域の地形上の進化や気候, 盆地の区画化並びにその地域に存在する各種イオンに密接に関連していることが明らかにされた. これらのすべての要素は, 盆地の進化が大半その場所自体の条件に基づくということと合致するものである. これらの事実は, イベリヤ山系の三畳紀層の微細なフラクションについて, 種々の粘土質鉱物間の, また粘土質と非粘土質鉱物間の, 並びに盆地の進化の時期及び場所を決定づけた条件に関する詳細な研究についての興味をそそるものである.

筆者等はこの第1回の報告に, Kaolinite 及び Dickite について得た調査結果と考察を述べる. 次回以降発表の分には, イベリア山系の三畳紀堆積物の微細なフラクションを構成する, 上記以外の鉱物の調査結果を述べる予定である.

実　験　結　果

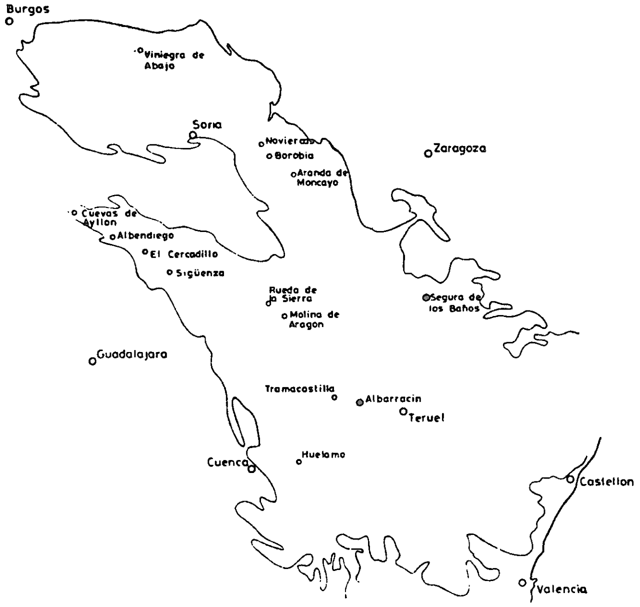
Kaoliniteは, イベリヤ山系の三畳紀層に非常によく出てくる鉱物である. 筆者等が調査した地層とその地理的な位置は第1図に示した. Kaoliniteが最も大量にあるのは Albarracin と Segura de los Baños である; 一方 Dickiteは, 三畳紀堆積物中にはあまり出てこない鉱物であるが, ここの地層ではかなり多く見出される; したがって, 原則的にこの地層に属するサンプルについて行った研究結果について述べよう.

第2図及び第3図においては, Albarracin 並びに Segura de los Baños のそれぞれ地層から得た泥質フラクションと粘土フラクションの, 岩質柱状図と総体的なサンプルの鉱物学的な多様性を示す. いずれの場合も, Kaolinite は2ミクロン以下のフラクション中に, かつ単位地層の下部に濃集し, Dickite はこれに反し, 泥質フラクション中に濃集するが, 層序的な位置は同じである.

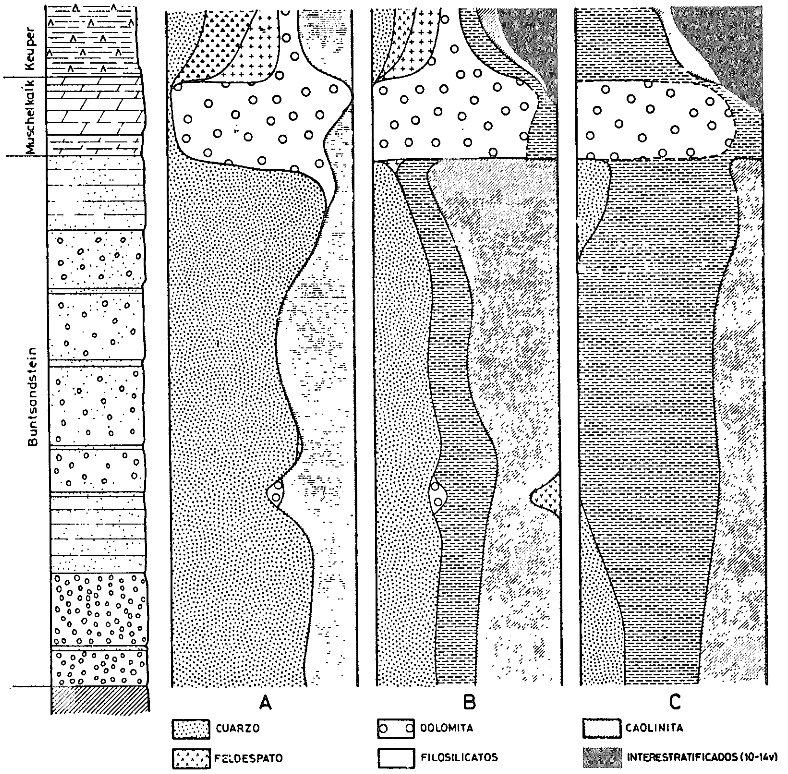
X線回折

第4図には, Segura de los Baños の地層に属するサンプルの, 2ミクロン以下のフラクションの定方位配列集合体について得られた回折のダイヤグラムを示す. その中に Kaoliniteの(001)の反射が7.1Åに, (002)が 3.5Å

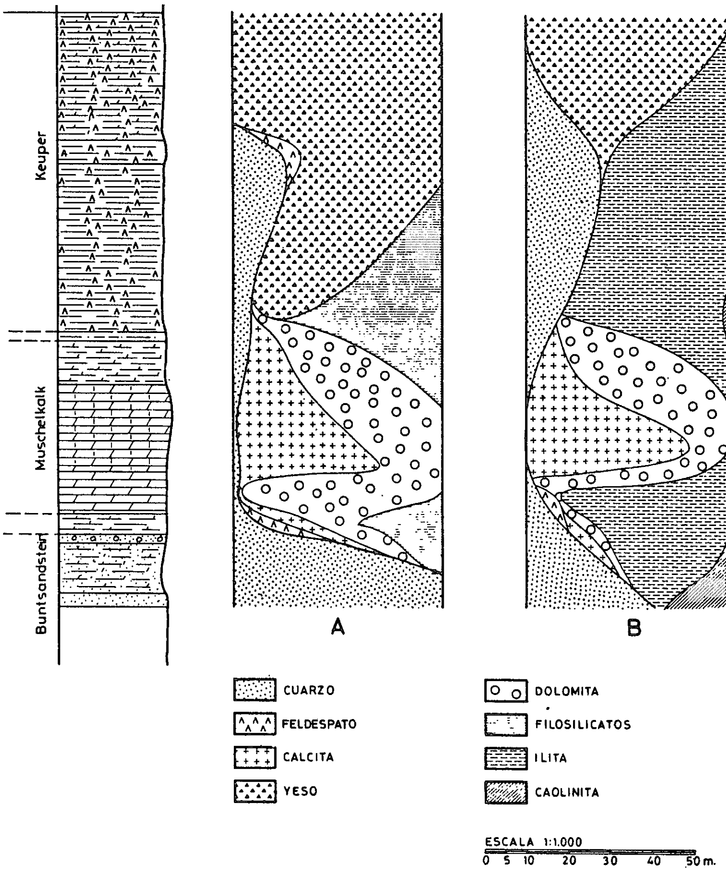
* Características mineralógicas, genéticas y distribución de los minerales de la fracción fina del Trias de la Cordillera Ibérica I) Caolinita y dickita: Boletín Geológico y Minero, vol. 87, p. 47-56.



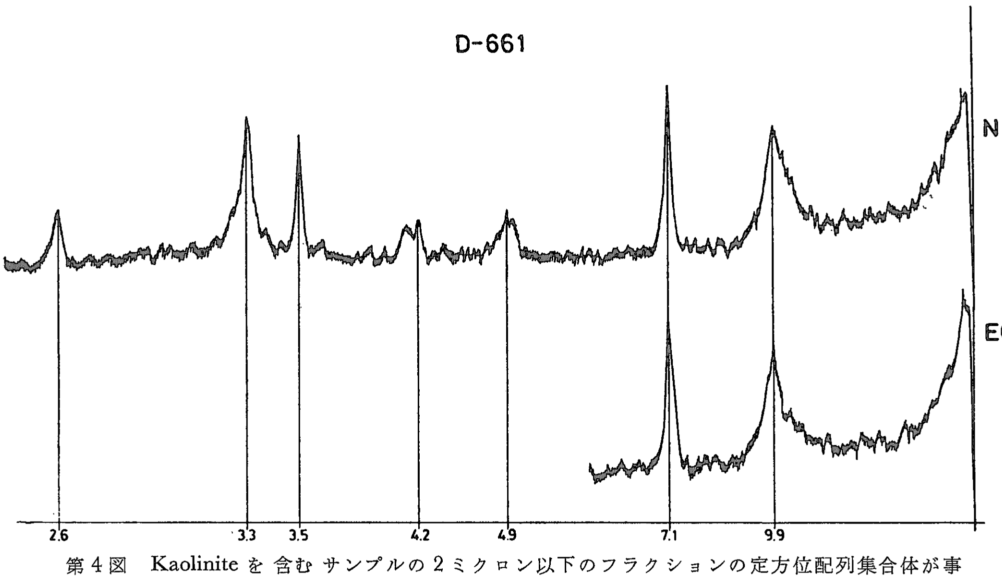
第1図 イベリヤ山系の要図と調査した地層の位置



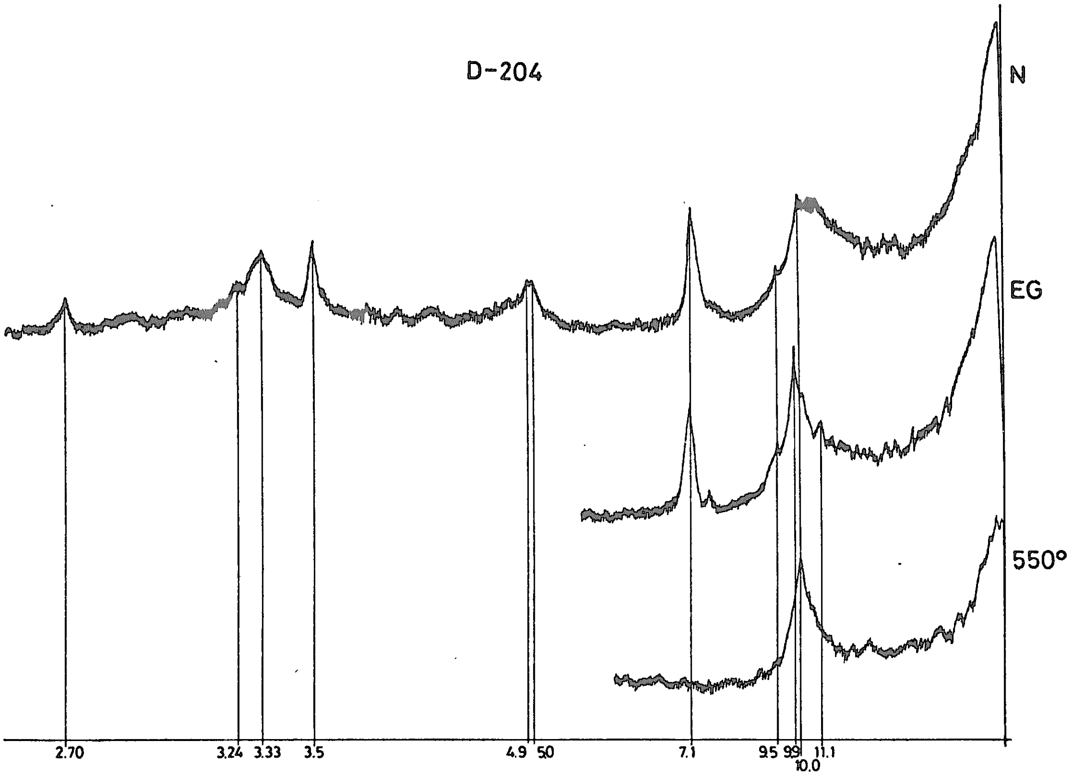
第2図 岩質柱状図及び総体的なサンプル(A), 泥質フラクションのサンプル(B)並びに粘土フラクションのサンプル(C)のそれぞれの鉱物学的組成の多様性. Albarracin の地層



第３図　岩質柱状図及び総体的なサンプル (A) 及び粘土フラクションのサンプル (B) のそれぞれの鉱物学的組成の多様性．Segura de los Baños の地層



第４図　Kaolinite を含むサンプルの２ミクロン以下のフラクションの定方位配列集合体が事前処理のないもの (N) とエチレングリコールで処理したもの (EG) について行われたＸ線回折のダイヤグラム．Segura de los Baños の地層



第 5 図 Kaolinite, 開放型 Illite 及び少量の Talc により構成されたサンプルの 2 ミクロン以下のフラクションの定方位配列集合体が事前処理のないもの (N), エチレングリコールで処理されたもの (EG) 及び 550℃ に加熱されたもの (550°) について行われたX線回折のダイヤグラム. Albarracin の地層

に, (130)が2.6Åに, それぞれ認められる; エチレングリコールで処理されたものにあっては, (001)のラインは強さについても対称についても全く変化がないことが認められる. このサンプルの中には, Kaolinite と共に Illite が入っていて, (001)の反射が9.9Åに, あまり尖らず小さい角度の側に開放的である.

第5図は, Albarracin の地層に属するサンプルの, 2ミクロン以下のフラクションの定方位配列集合体について得られた回折のダイヤグラムである. その中で, エチレングリコールによる処理によって Kaoliniteの(001)の反射が, 強さの点にも対称の点にも何等影響を受けていないことが認められる (第5図E G). その反対に, 熱処理は Kaolinite の格子を破壊し, その反射は消滅している (第5図550°). これらのサンプルには, Kaoliniteと共に結晶度の低い Illite と少量の Talc が含まれている.

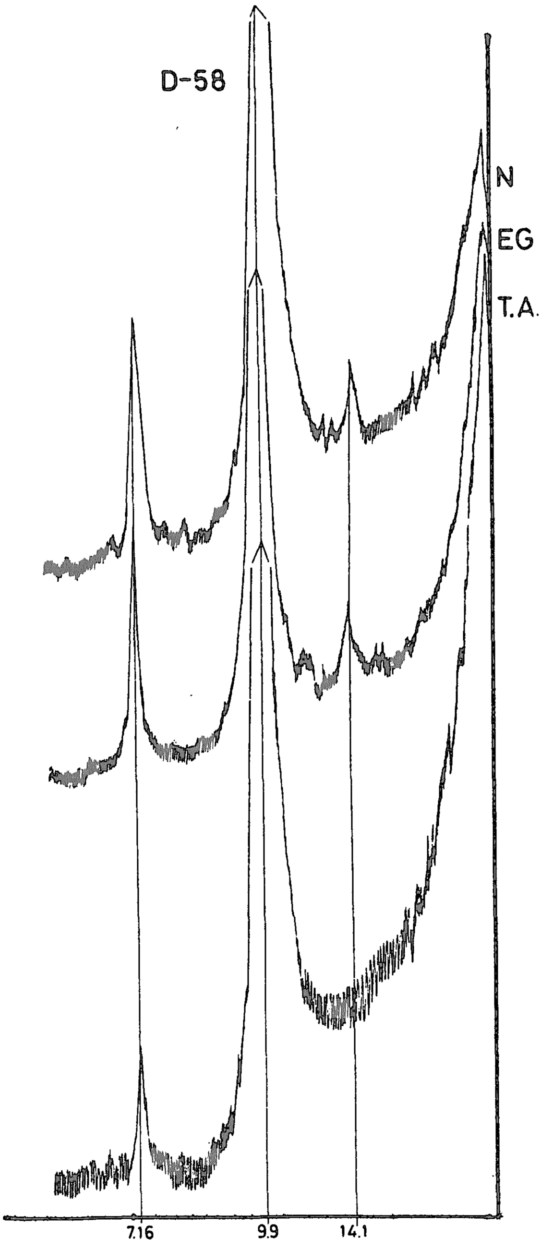
第6図は, 盆地の西北部にある El Cercadillo の地層に属するサンプルの, 2ミクロン以下の微細なフラクションの回折のダイヤグラムを示すものである; このダイヤグラムの中で, 酸処理 (第6図 TA) が Chlorite を破壊し回折のラインを消してしまっているが, その反面 Kaolinite の(001)の反射には何の影響も与えていないことが認められる.

Dickiteの同定は, フラクション中にこの鉱物が非常に濃集していることが調べられたサンプルの, 泥質フラクションに属する粉末の回折ダイヤグラムによって行われた.

第7図には, Albarracin の地層に属するサンプルの粉末の回折ダイヤグラムを示す; この中では Dickite の最も主要な反射が顕著である; これは 4.2Å, 3.9Å 及び 3.4Å に対する反射によって Kaoliniteから区別されるものであって, それらは両鉱物に共通のものではなく特有のものである. このサンプルの中には Dickite と共に Quartz と Micaが入っている.

示差熱分析

第8図は, Albarracin の地層のいくつかのサンプルについて行われた示差熱分析のダイヤグラムである. D-



第６図　Kaolinite, Illite 及び Chlorite により構成されたサンプルの２ミクロン以下のフラクションの定方位配列集合体が事前処理のないもの (N)，エチレングリコールで処理されたもの (EG) 及び酸による侵食を加えた後のもの (TA) について行われたＸ線回折のダイクグラム．El Cercadillo の地層

203 A と D-205 A のカーブは，Kaolinite と Illite とから成る２つのサンプルの粘土フラクションに対応するものである．最初の吸熱反応が590℃になっているが Illiteだけから成るサンプルに比べると，カーブが遥かに急である．これらのカーブの持つ特性は，Cole 及び Hosking (1957) が行った人工による Illite と Kaolinite との混合物から得られたデータに似ている．

D-203 L，D-207 L 及び D-208 L のカーブは，これらのサンプルの泥質フラクションのものである．Dickiteが基礎構成成分で，それに Kaolinite を伴うものである．100℃で吸熱反応がゆるやかにあらわれるが強さは小さい．他に２つの吸熱反応が600℃と670℃とにあらわれ，それぞれ Kaolinite 及び Dickite に対応して前者はゆるやかであるが，後者はカーブが相当急である．これと類似のカーブは，同じ鉱物組成のサンプルについて Smithson 及び Brown (1957) によって得られている．980℃では，特徴的な発熱反応がすべての Kandites (Holdridge 及び Vaughan, 1957) によって得られている．

顕微鏡観察

透過光線による顕微鏡観察を行い，砂岩の膠結物の一部をなしている Dickite が扇形の集合体をなすサンプルについて観察を行った．

電子顕微鏡による研究によれば，Dickiteの結晶は第９図に示すような２ミクロンよりは大きく粗い結晶の塊をなしている．図に見られるように，この Dickite の結晶形態は非常に特徴のあるものである．

討論及び結論

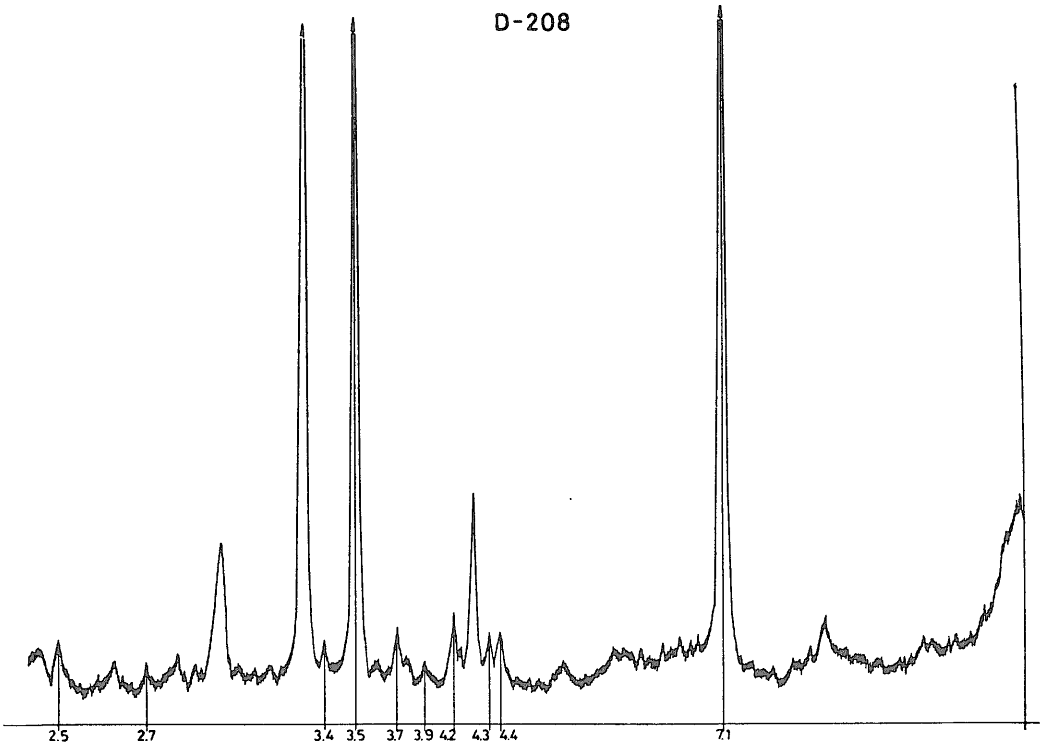
a）成　因

Kaolinite は三畳紀堆積物中にかなり前から見つかってはいたが，一般的にいって大したものではないと考えられていた．Caballero (1972) は少なくともスペインの三畳紀層の中には，不規則ではあるが考えられてきたよりは多量に Kaolinite が入っていると指摘している．実際，他では Kaolinite がおよそ30%位まで入っているのにイベリヤ盆地では Kaolinite が出てこないいくつもの地帯がある．

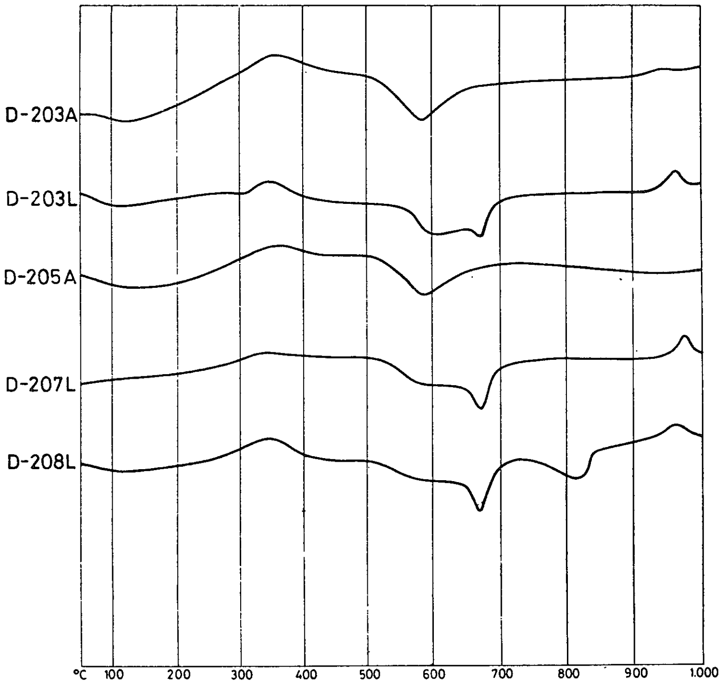
この堆積層の最後のタイプについては，Kaoliniteが主として砕屑状の特徴をもつ他の鉱物とまじって存在する．この事実は，たとえ時々上部のレベルに共出するにしても，砕屑物相，礫岩及び砂岩の下部地層にKaoliniteが存在することによって理由が強められるものである．

Kaolinite は，低い内陸において，強い洗滌と酸性pHの下で盆地に移動するという状況下に形成され，盆地の周縁部とそれより低い部分全体に濃集し，そこで大半が十分安定した鉱物として維持されるに至ったと想像する．

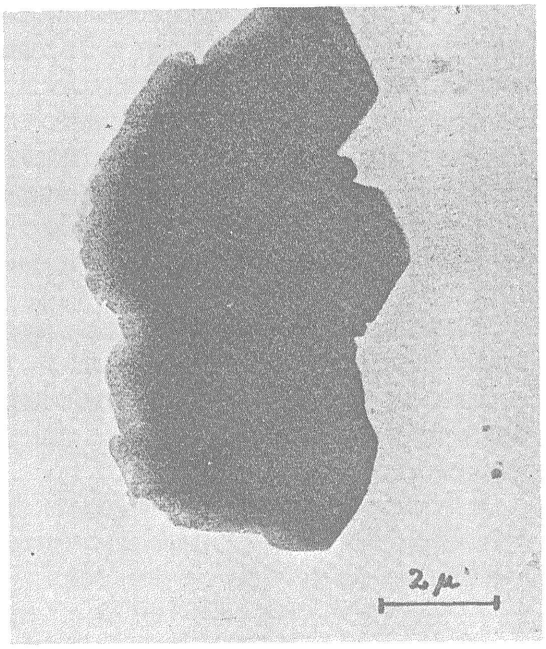
Dunoyer de Segonzac(1969)は，続成作用の行われる



第 7 図　Dickite, Illite 及び Quartz により構成されたサンプルの泥質フラクションについて行われた粉末の回折ダイヤグラム



第 8 図　Albarracin の地層の種々のサンプルについて行われた DTA のダイヤグラム．A：粘土フラクション，L：泥質フラクション



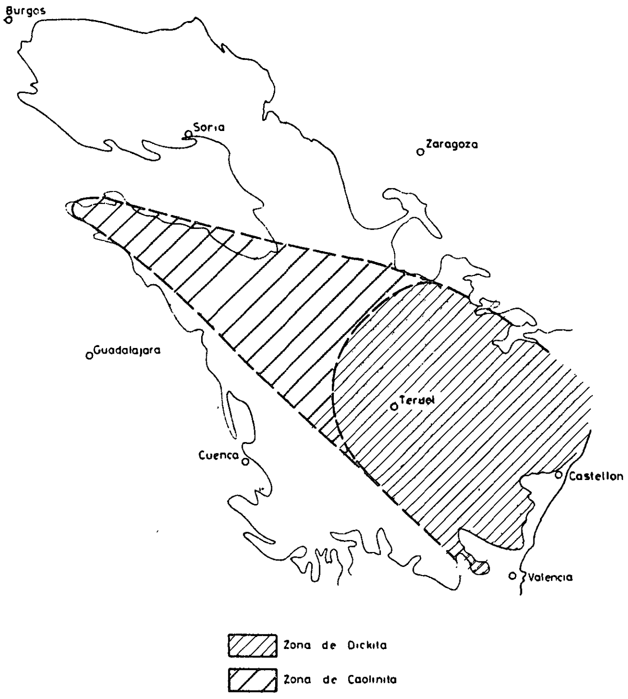
第9図　電子顕微鏡下に観察された Dickite の結晶の写真

場所で Kaolinite が変移して行く諸種の例を示している：よく知られる変移の例の1つは，アルカリ性溶液が温度が高いという条件の下で続成作用中 Kaolinite に作用して生ずるものである．この場合 Kaolinite は Illite の方に進化する．

続成作用中におこり得る変移の別のタイプには，Kaolinite から Dickiteへの流れがあって幾人もの研究者によって記載されている：Kulbicki (1954), Ferrero 及び Kubler (1964), Baylisis, Louchnan 及び Standard (1965), Dunoyer de Segonzac (1969) 等．

この盆地に出る Dickite は，少なくとも一部は，続成作用中に Kaolinite からの変移によるものであろう．続成作用中に酸性溶液が循環する余地があれば Kaolinite ができるであろう (Millot, 1964; Keller, 1968; Dunoyer de Segonzac 1969)． 砂というものは，このような循環にはかなり都合の良い要素となる．上記に示された起原による Kaolinite の大部分は，後日 Dickites であったことが証明されている (Cassan 及び Lucas, 1966; Ferrero 及び Kubler, 1964)．この場合の Dickite は板状，扇状等の大きな結晶に育つもので，砂岩の膠結物をなし，あるいは割れ目を膠結しているものである．

イベリヤ盆地では，Dickite は Kaoliniteとまじり合っ



第10図　イベリヤ山系の三畳紀層下部地域の Kaolinite と Dickite との分布概況

て既に示した地層の中に出てくる．この事実は，更に別のKaolinite-Dickite の変移すなわち新しい形成を思い起させるもので続成作用の間に若しかDickite の結晶の成長をたすけるような酸性溶液の循環があったとすれば，それは当然2つの過程があったものであろう．そうでないとすれば，変移が行われる以前に粘土及び泥質のフラクションの50%ないし60%が，その可能性は極めて小さいとは思うが，相続性の Kaolinite によって形成されたとしなければならないように思う．

b) 分 布

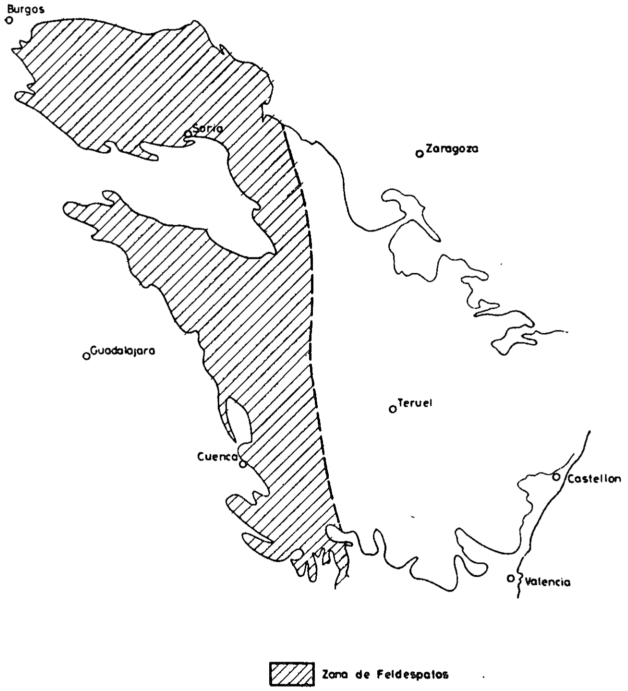
第10図は，三畳紀中のイベリヤ盆地の略図並びに Kaolinite 及び Dickiteの分布を示すものである．第11図は，同様の略図においてFeldsparの分布を示すものである．見られるとおり北西から南東に向ってそれらの鉱物の明らかな減少があることがわかり，それらが見当らない地層も存在する．Feldspar の量の少ない地域は明らかに Kaolinite の割合の最大のところに相当する．第10図においては，同様に Dickite の区域が Kaolinite の区域よりかなりせまいことは見られるとおりである．この地域は更にまた続成作用が最大の区域に相当する．

c) 結 論

イベリヤ山系の三畳紀層中に存在する Kaolinite は相続鉱物であって，ごくありふれたもので，かつある地層では非常に豊富な（粘土フラクションの30%におよぶことがある）ものである．とりわけ砕屑物相の地層の下底あたりに，2ミクロン以下のフラクション中に濃集されている．大陸性の変質によるという特徴を持つこの鉱物は，主として砕屑物からの鉱物として，周囲の大陸のカオリン化性気候の表示体として，その種の地層中に認められる．

この盆地にあらわれる Dickite は，部分的には，続成作用中の Kaolinite からの変移に由来するものであろうが，しかしどちらかといえば，酸性ないし溶解性の液体循環下の強い続成作用の間，新しく形成された可能性の方が大きいと思う．

これらの鉱物の分布に関して，Kaoliniteの分布が，少なくとも部分的には Feldspar の分布についてみれば，Kaolinite の最も豊富な区域でそれが完全に欠除していることが証明されたことにより説明がつけられたことと思う．Dickiteの分布は，続成作用が最も強かった盆地南東部に濃集しているところから，続成作用に関係しているものである．



第11図 イベリヤ山系の三畳紀層下部地域の Feldspar の分布概況

II) Illite 及び Mica*

M. D. Ruiz Cruz and M. A. Caballero Lopez-Lendinez

序　論

イベリヤ山系三畳紀層の微細フラクションの，最初の鉱物学的研究は Marfil (1969) によって行われた．この著者は，盆地南部の Keuper 統を調査して，粘土質鉱物の結晶化が西から東に向かって増加していることに気付いた．Muscovite を相続鉱物として考える一方，Illite を，続成作用中 Muscovite 並びに他の粘土質鉱物からの変移による生成物と解釈するものである．

Marfil, Alonso 及び Garcia (1971) は，イベリヤ山系三畳紀下部層の膠結物を研究して，同じように相続鉱物としての Micas と Hydromicas とを見出している．

De la Peña (1972) は，同じこの盆地の Muschelkalk 統を調査し，粘土質フラクション中の Micas, Illite 及び Hydromicas を同定した．

Caballero (1972) は，上記盆地西部のある地層を調査して，Illite が下部層の主体をなす鉱物であるが，この層の上部に向うほど減少し反対に12Åと14Åの組織体が増加している．著者は Illite が相続鉱物であるとしている．

筆者等が調査した地層にあっては，この盆地においての位置は既報の通りであるが (Ruiz Cruz 及び Caballero, 1975), 10Åに出る鉱物すなわち Micas と Illitesとが研究対象としたサンプルの主体をなす微細フラクションの基本的な構成体である．三畳紀下部層においては，多くの地層に2ミクロン以下のフラクションが100%に及ぶものさえある．三畳紀中部から上部にわたっては，10Åの鉱物は調査したすべての地層にあらわれ，サンプルの多くは基本構成体としてほとんど常に14Åの1群の鉱物（Chlorite, Montmorillonite 及び混合層鉱物）とまじって出るのであるが，地層の上部に向かうにつれてその総量が増して行く．

実　験　結　果

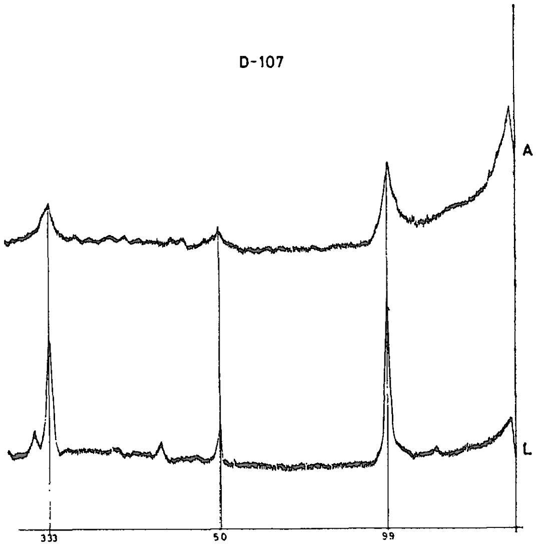
採集した微細フラクションの個々のサンプルについて行ったX線回折，示差熱分析，電子顕微鏡並びに偏光顕微鏡による観察に対する研究結果を次に示す．

X線回折

第1図に，この盆地の西部にある Albendiego の地層に属するサンプルの，粘土及び泥のフラクションの定方位配列集合体について行った回折のダイヤグラムを示す．

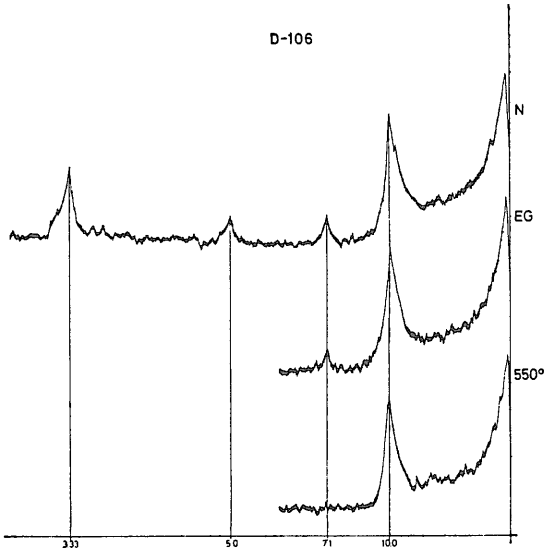
はじめの分には，Illite の最も強い反射が10.0，5.0及び3.3Åに見られる．ラインは大まかで鋸歯状である．次のダイヤグラムは泥質フラクションに相当するもので，前記と同じ反射を示すが，特徴はちがっている．ラインは尖っており，対称的であって，結晶度が高く結晶の大きさも大きいことを示している．この場合の回折のダイヤグラムは Mica に相当するものである．

第2図は，前記と同じ三畳紀下部層に相当するサンプルの，2ミクロン以下のフラクションの定方位配列集合体について，事前処理のないもの，エチレングリコールで処理したもの，550℃に加熱したものの，それぞれについて行った回折ダイヤグラムを示すものである．最初のダイヤグラム(N)において，10.0，5.0及び3.3Åのラインがあり，これは前記したサンプルのそれと類似するものである．この場合については，Illite が Kaoliniteを伴

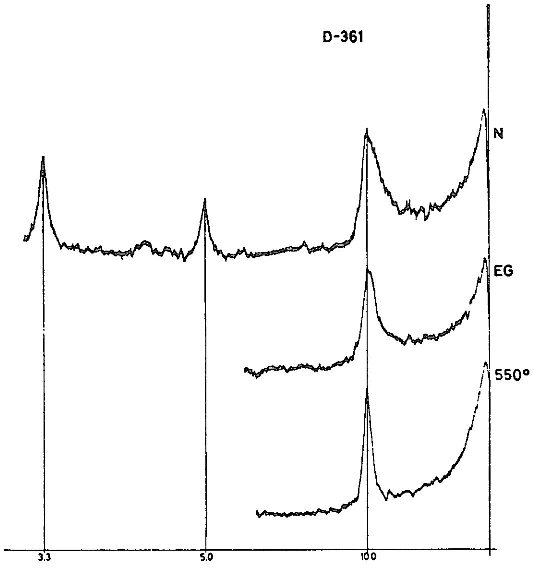


第1図　Albendiego の地層に属するサンプルの粘土及び泥のフラクションの定方位配列集合体について行ったX線回折のダイヤグラム

II) Ilita y Mica: Boletín Geológico y Minero, vol. 87, p. 177-184.



第2図　開放型 Illite (Iv) により形成されたサンプルの粘土フラクションの定方位配列集合体が事前処理のないもの (N)，エチレングリコールで処理したもの (EG)，550℃に加熱したもの (550°) について行われたX線回折のダイヤグラム．Albendiego の地層



第3図　開放型 Illite (Iv) を含むサンプルの2ミクロン以下のフラクションの定方位配列集合体が事前処理のないもの (N)，エチレングリコールで処理したもの (EG)，550℃に加熱したもの (550°) について行われたX線回折のダイヤグラム．Noviercas-Borobia の地層

っているもので，その最初の反射が7.1Åにあるのを認めることができる．Illite の10Åのラインは，定方位配列集合体をエチレングリコールで処理した後でも変化がなく，開放型で非対称的である．加熱処理後のものについても，どんなタイプの変化も認められない．この事実は，開放型の Illite の場合，すなわち他の鉱物の混合層の何枚かの層が含まれていることを確証するものである．その他の処理に対する10Åのラインの挙動は，混合層鉱物が Chloriteであることを確証するものと思う．これは Lucas (1962) により報告されている Icl に相当するものであろう．

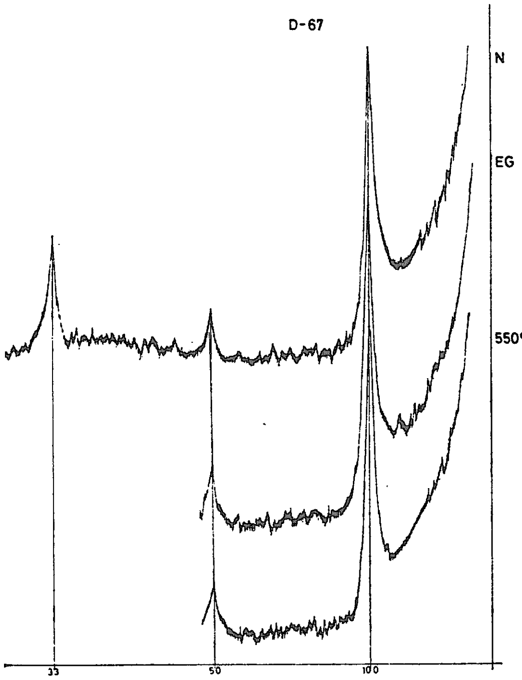
第3図は，盆地の中東部にある三畳紀下部に相当する Noviercas-Borobia層のサンプルの2ミクロン以下のフラクションの定方位配列集合体について行った回折のダイヤグラムを示すものである．そこに出る Illite のタイプは，今までに示した例のそれとは異なるものである．

事前処理のないもの(N)の回折ダイヤグラムにおいては，Illite は10Åに強い非対称的なラインを示しており，角度の小さい区域の側に開いているが，5.0及び3.3Åのラインよりはるかに不規則である．エチレングリコールで処理した後のもの(EG) は10Åのラインが若干変化してはいるが，やはり角度の小さい側に向かって開いた非対称がつづいている．熱処理したもの(550°)では，このラインが著しく尖り且つ完全な対称になっている．

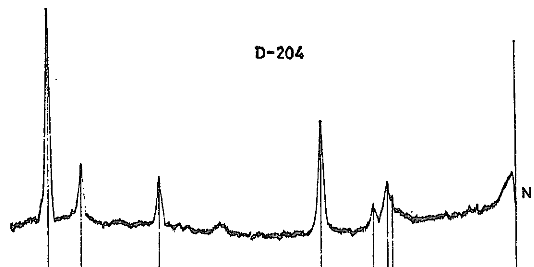
この開放型 Illite の場合については，熱には不安定であるが，エチレングリコールに対しては安定している．このタイプの Illite には，混合層の Vermiculite の薄層が含まれている．三畳紀下部のこの層のサンプルには，全範囲に混合層の (10i-14v) が存在し，この例はそれらの1つに当るものであるが，その中の Vermiculite の割合は至って小さい．

第4図は，三畳紀上部層に属するサンプルの定方位配列集合体について行った，回折のダイヤグラムである．このサンプルは，盆地西部の EL Cercadillo の地層のものである．

事前処理のないもの(N)の回折ダイヤグラムでは，10.0，5.0及び3.3Åに反射が認められるが，これはこのサンプルの2ミクロン以下のフラクションの，唯一の構成成分である Illite に相当するものである．これらのラインは，とりわけその中の第1のラインは，今までの例で観察されたものとはかなり異なり非常に鋭く且つ非常に対称的である．エチレングリコールで処理されたサンプル，ないしサンプルが 550℃ に加熱された後で行われた回折のダイヤグラムは，いずれも同一特性を示している．

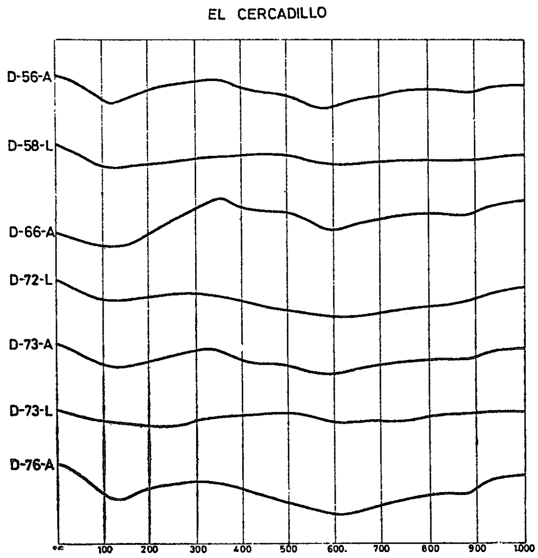


第４図　結晶度の高い Illite により構成されたサンプルの２ミクロン以下のフラクションの定方位配列集合体が事前処理のないもの (N), エチレングリコールで処理したもの (EG), 550℃ に加熱したもの (550°) について行われたＸ線回折のダイヤグラム．
El Cercadillo の地層



第５図　Dickite, Talc 及び開放型 Illite により形成されたサンプルの泥質フラクションの定方位配列集合体について行われたＸ線回折のダイヤグラム．Albarracin の地層

この盆地で見出した結晶度の高い Illite のあるタイプのものがある．Caballero (1972) はそのタイプの Illites に対し “Illite-mica” という名称を提案しているのであるが，これらの鉱物の大きさは電子顕微鏡で見たところ，従来の Illites に比べてかなり大きいものである．



第６図　Illite 及び Mica によって構成された EL Cercadillo の地層の種々のサンプルについて行われた DTA のダイヤグラム．
A: 粘土フラクション，L: 泥質フラクション

第５図は，盆地南部にある三畳紀下部に相当する Albarracin 層のサンプルの，泥質フラクションの定方位配列集合体について行われた回折のダイヤグラムである．

結晶の大きさは比較的大きいのであるが，結晶度はその割に高くはない．Mica の10Åのラインと共に，Dickite, Quartz 及び Talc のラインが認められる．Talc のラインは9.3Åにあらわれている．

示差熱分析

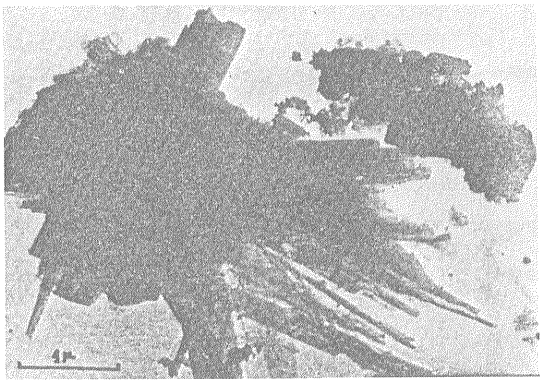
第６図に，El Cercadilloの地層のサンプルの示差熱分析による研究で得られた結果の若干を示す．

粘土質フラクションのサンプル D-56A, D-66A, D-73A 及び D-76A は，Illiteが構成成分の主体をなすものであるが，この鉱物に対して行われたダイヤグラムのあらわれ方については，Muñoz 及びAlexandre (1957)の解釈がある．最初の吸熱反応は130℃あたりに幅広で限界がはっきりしない形であらわれ，また同じ性質の別の吸熱反応が600℃にあらわれており，最後に800°から900℃の範囲に軽い吸熱-発熱の段が見られる．

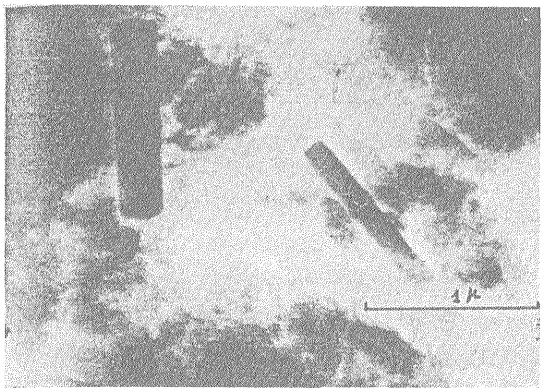
泥質フラクションの D-58L, D-72L 及び D-73L について行われたダイヤグラムでは大部分がMicas に対するものであるが，Muñoz 及びAlexandre (1957)によって特徴のあらわれ方が紹介されている．

電子顕微鏡観察

一般に Illite の粒子は輪郭がぼやけて見えその大きさ



第７図　電子顕微鏡下で観察された Mica の結晶から Illite への変移



第８図　電子顕微鏡下で観察されたある Illites の様相

は調べたサンプルの２ミクロン以下のフラクションの中におさまり，非常に小さいものであった．結晶の大きさが増したときには結晶度が高くなっており，泥質フラクションにおいては Mica の結晶が完全に発達しているものをよく見掛ける．

この盆地のある場所，とりわけ南部と南東部では，Mica と Illite との結晶のくずれたものにしばしば出会う．そのような状態の１つを第７図に示した．そこでは伸びた Illite の結晶が，元の結晶から，とりわけ主な２方向に従って発達している．

盆地内の別の場所，とりわけ北西部においては，上記したこのタイプの変移が進んでいて，その場合大きさの等しい Illite の柱状結晶が非常によくあらわれる（第８図）．

討論及び結論

10Å の鉱物すなわち Illite と Micas とは，たしかに三畳紀の堆積物中に広く分布するものである．筆者等が研究したこの盆地では，すべての地層に，とりわけ三畳紀下部に相当するサンプルの多くに，その 100％が微細なフラクションで形成されているものがあった．

Illite は Kaolinite と共に，大陸からの相続性フラクションの主体をなしている．この Illite は，大陸の Micas と Chlorites との分解した終末をあらわしている．Illite の量は三畳紀下部の終りに非常に大きいが，それは土壌生成作用が三畳紀上部においてよりも弱かった（運搬と沈積とが同時に速く行われた）し，そこで Illite が強いデグラデーション（degradation）によって Vermiculite または Montmorillonite に進化することがなかったからである．

この盆地では，特性の異なる種々のタイプの Illites を同定することができた．それは空間的な位置，時間的な位置次第で結晶度の高い Illites から非常に開放性の Illites まで，また Montmorillonite ないし Vermiculite の薄層を混合層として含むものであったりする．結晶度の高い相続性 Illites は，盆地の周縁ないしある区域では地層の底部に見出される．このような一連の関係は，Sigüenza 地域で見ることができる．そこでは三畳紀下部層で Illites が高い結晶度を持ち，Chlorite と Kaolinite を伴って現出する．そこから西へ数 km のところで，Keuper 統の中に Illites が著しく分解の進んだもので Montmorillonite 及び Vermiculite の薄層を含むものが認められる．

他の地域，とりわけ盆地の南部では，この一連の関係が反対になっている．すなわち三畳紀下部層の Illites と Micas が非常に分解していて，特に変移の進みによって地層の上部に向うにつれ，結晶度がはっきりと高くなっている．

堆積盆地では，Illites 並びに Micas は様々な過程の変移を蒙むることになるであろう：続成作用が Illite の粒子のアグラデーション（Aggradation）をおこさせるであろうことは受入れられている事柄である（Dunoyer de Segonzac, 1969）．このアグラデーションは電子顕微鏡によって明らかにすることができ，結晶の形態上の変化や輪郭ないし透明度の変化も観察することができる．

同様に，電子顕微鏡下の有様から Illites の起原を推論する様々の意図がはかられた．Kotelnikov (1965) は様々な形態に対する解釈につとめ，大きさの等しい薄層は相続性 Illites に相当するものであり，一方リボン状でとうもろこしの花苞をのばしたようなものは，他の鉱物からの変移によるか，または新しく生成された Illites をあらわすものと考えている．

Marfil, Alonso 及び Garcia (1971) は，電子顕微鏡下に観察した柱状の晶癖をもつ結晶は Illites と Micas

とが堆積盆地の中で Hydromicas に変移したものと解釈する．

CABALLERO (1972) は，Illite に上記と類似の変移を観察したが，これを堆積盆地で行われたとは考えず，大陸からの相続性生成物であるとしている．

GUVEN (1972)は，Mica の双晶をなす薄層は Micas が柱状の Illitesに変移した全面的な可能性を示すものであるといっている．その変移は Micas の(110)による分離を意味するもののようである．この変移は，水の過剰とカリウムの不足とに由来するものであろうとしている．HUFF (1972) は同じ事実を，Illites からカリウムが抽出されるためと見ている．

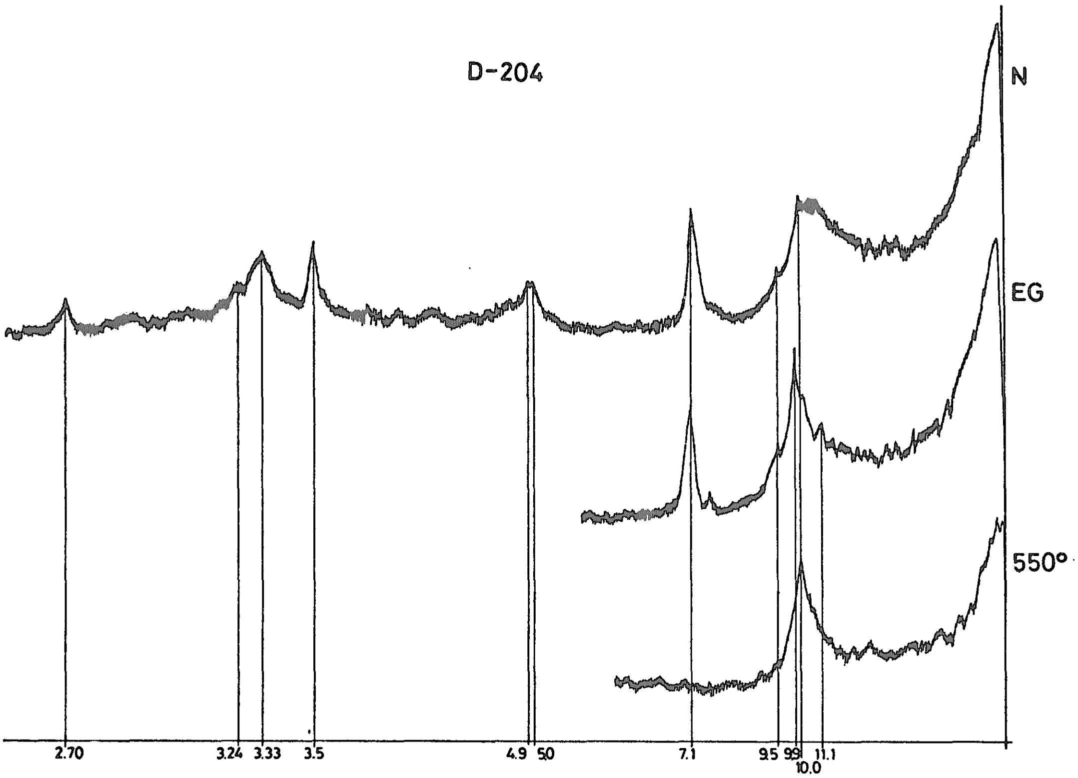
X線でも同じように Illite の結晶度の変化を観察することができる．10Åのピークの尖り加減と対称とがこの進化をあらわすものである．

このタイプの変移が，岩質の影響を著しく受けることについては考慮に入れておく必要がある：一般に砂岩は Illites を粘土の場合よりも結晶度の高いものにするが，それは砕屑性の Illite の結晶度はその大きさが大きいほど高められ，また続成作用中の熱水溶液によるアグラデーションは，すき間の多い媒体の場合ほど容易であろうからである．

続成作用と関係のない，別のタイプの変移は，Illite の粒子が堆積の中ほどに達した頃におこる．すなわち，この中ほどには化学的なある種の特徴ないしイオンのある濃集状態があるからである．盆地の影響は，Illite の網状組織を変えて再組織し，真正のMicas に変化させるに至るものであろう．この変換は盆地の中において上の方へ，並びに中央の方へと行われるであろう．

いずれのタイプの変移も，MILLOT (1964) によって“若返り”と名付けられた．この盆地で相続性の Illites が部分的に分解した網状組織は，はじめにカリウム・イオンが，マグネシウム・イオンも含めて，網状組織に癒着したものである．いずれの場合も，そのメカニズムは同一である．この盆地において調査した地層は多数に亘り，とりわけその中央部と南部とに多いのであるが，三畳紀下部層には開放型の Illitesが存在し，それらは結晶度の非常に高い Illites に進化して行くものであり特に Keuper 統にその例が多い．

上記したばかりであるが，その2つの変移のタイプの



第9図　第5図に示されたのと同じサンプルの粘土フラクションについて行われたX線回折のダイヤグラム

外に，所謂“強くはげしいアグラデーション”に注意しておく必要がある．この過程については，LUCAS (1962) が三畳紀盆地のものに関して報告しているところであるが，調査した地層の上部に向うにつれ Illitesの比率は減少し，同時に14Åの，すなわち Chlorites と混合層組織の鉱物が増加するという．この著者は，混合層鉱物も，Chlorite も，相続性の Illitesが盆地内で変移した生成物であろうとし，混合層鉱物はその中間段階であろうとする．

分解された Illite → 開放型 Illite→

(14c-14m) irr. →(14c-14m) reg. →Chlorite

この現象の原因は，多分盆地内においてマグネシウムの量が著しく増加することによるものであろう．

この盆地において筆者等が調査したところでは，地層内の高いところに Montmorillonite と Vermiculite とが存在すること，混合層鉱物の特徴並びに源泉地域の進化から，供給物質は三畳紀層全部に沿って同じというわけではなかったことを示していることにより，Illite から Chlorite へと導いたこのタイプのはげしいアグラデーションというものが，もしそういうことが起ったとしても大した重要性はなく，混合層鉱物の何らかの中間段階を通ずる

Montmorillonite → Chlorite 並びに

Vermiculite → Chlorite

という一連の変移の方が，遥かにひきつけるものと思う．

Illite の変移の最後のタイプは，この盆地で観察することができる．締成作用はこの盆地全体を通じて全く同じ影響を及ぼしているという訳ではなく，特に盆地の南部並びに南東部ではそれを感じさせる．とはいえ，この地層群の Illite の結晶度は高いものではなく，非常に開放性の Illitesがよく出てくるものである．この地層群においては，Illite は Dickite 及び Talc と共出する．Illite は酸性ないし稀薄な液体の循環の下での続成作用には不安定であるらしい．これらのサンプルはX線下にラインが非常に開放型（第9図）であることを示し，電子顕微鏡下の観察では多くの柱状結晶を認めるが，大きさの揃ったものは少ない．

結　論

以上に説明したすべてのデータから一連の結論に導くことができよう：三畳紀下部の時代に大陸から供給された主なものは Micas と Illites とであって，この盆地全体に亘って一様に分配された．結晶度の良いものは盆地の南西縁にある．三畳紀中部及び上部の時代になると，他の鉱物すなわち Chlorite と混合層鉱物 とのために Illite の量は減少するが，しかし調査した地層のすべてに亘ってその存在は認められている．

これらの鉱物は，三畳紀下部層のサンプル多数について，粘土フラクションの1％を構成するものである．泥質フラクションにあっては，寸法と結晶度が大きい．相続性鉱物としては著しい多様性があるもので，Illites としては，結晶の非常に良いものから，混合層として Vermiculite 又は Montmorillonite の薄層を含むものまである．

調査した盆地において，ほぼ一般的といえる事実は，Illite の結晶度の上昇が地層の上部に進むほど認められることである．相続性の Illitesの“若返り”の過程についていえば時の流れるに伴い，イオンの濃集が次第に増大するにつれて行われるものである．

変移の別の過程として，続成作用の地域に行われるものがあり，Illite-Dickite の共出がそこでは認められる．Illite は酸性ないし稀薄な液体循環下の続成作用には不安定らしい．これらのサンプルは，X線によれば Illites が非常に開放型であるし，電子顕微鏡観察によれば，大量の柱状結晶が認められるが大きさの揃ったものは少ない．

III) Chlorite, Montmorillonite 及び Vermiculite*

M. D. Ruiz Cruz and M. A. Caballero Lopez-Lendinez

序　論

Lucas (1962) がフランスとモロッコとの三畳紀層について研究して以来，Chlorite は三畳紀堆積物の最も特徴的な構成鉱物の1つとして明らかにされた．この著者はその研究に際し，層位学的見地と共に成因的見地からも検討し，三畳紀層の Chlorites の大部分は，堆積中に行われる変移によって生成されたものであるという結論に達した．

同様に Caballero (1972) は，調査したスペインのいくつかの盆地でかなり大量の Chloriteに出会い，この鉱物の種々の起原について詳しく解説している．

イベリヤ山系の三畳紀層に関して Marfil (1969)は，Keuper 統の Chloritesの大半を新たに形成されたもの，または他の砕屑性 Chlorites ないし Micas が再結晶した結果と解釈する． Chlorite のタイプとしては Pennine-Clinochlore に相当するものと考えている．

Alonso 及びMarfil (1970)は，Keuper 統の Chlorites について電子顕微鏡による形態学的研究を発表しているが，Chlorite の多数の結晶が斜方の晶癖を持つことを見出し，Keuper 統の Chlorite は Clinochlore タイプであり，堆積過程でマグネシウムの多い Chamositeに変移するものと推定している．

Marfil, Alonso 及び Garcia (1971) は，三畳紀下部層の膠結物質を研究して，NontroniteタイプのMontmorillonite 及びまたは “Hydro-micas” の存在にふれている．

De la Peña (1972) は，イベリヤ山系の Muschelkalk 統を調査し，粘土フラクションの中に Montmorillonite と，少量の Chlorite を見定めている．そうしてこの Chlorite の方は，新しく形成された鉱物と推定している．

Caballero(1972)は，この盆地に関する一連の研究において，Chlorite と Montmorillonite とが地層の上部になるほど増加することを見出している．

筆者等の調査した地層においては一まえの報告 (Ruiz Cruz 及び Caballero, 1975) に詳述してある——14Å の鉱物 (Chlorite, Montmorillonite 及び Vermiculite) は，三畳紀下部層にあっては時たまあらわれるだけである．三畳紀中部層のある層から，ないし三畳紀上部層の別の層から，これらの鉱物は漸次増加して行き，Chlorite は三畳紀層の最上部で含まれる割合が最高となるのであるが，Vermiculite と Montmorilloniteとはその分布が不規則である．

*III) Clorita, Montmorillonita y Vermiculita: Boletín Geológico y Minero, vol. 87, p. 284–291.

実　験　結　果

続いて，サンプルの2ミクロン以下のフラクション及び2ないし20ミクロンのものも含めて，X線回折，示差熱分析，並びに電子顕微鏡観察による研究結果の要約を示す．

X線回折

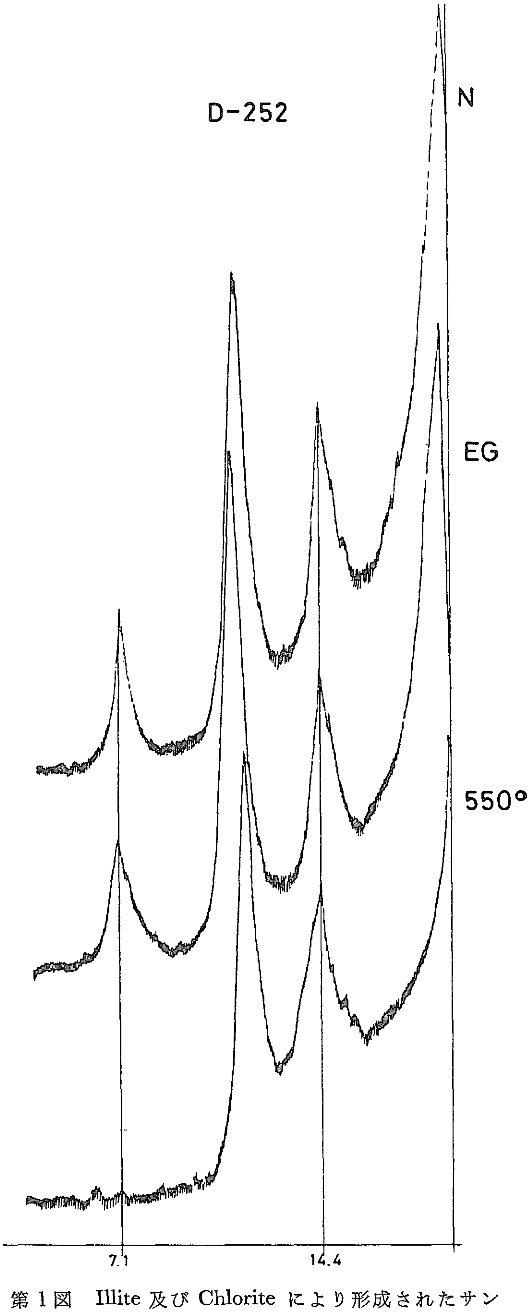
Chlorite は，X線回折のダイヤグラムにおいて，一般的に成因が異なり場所が異なれば，それらに対応して異なる様相を示している．

盆地の西部に最も多く，また一般に三畳紀下部層に多い例であるが—Chloritesの大部分は相続性である—14Å のラインは鋸歯状で且つ弱く，Chlorite が出てくる割合は非常に低いものである．7Åのラインは，ダイヤグラムにあらわれる大部分のものが，普通含まれる割合のより大きい Kaolinite によっておおいかくされている．

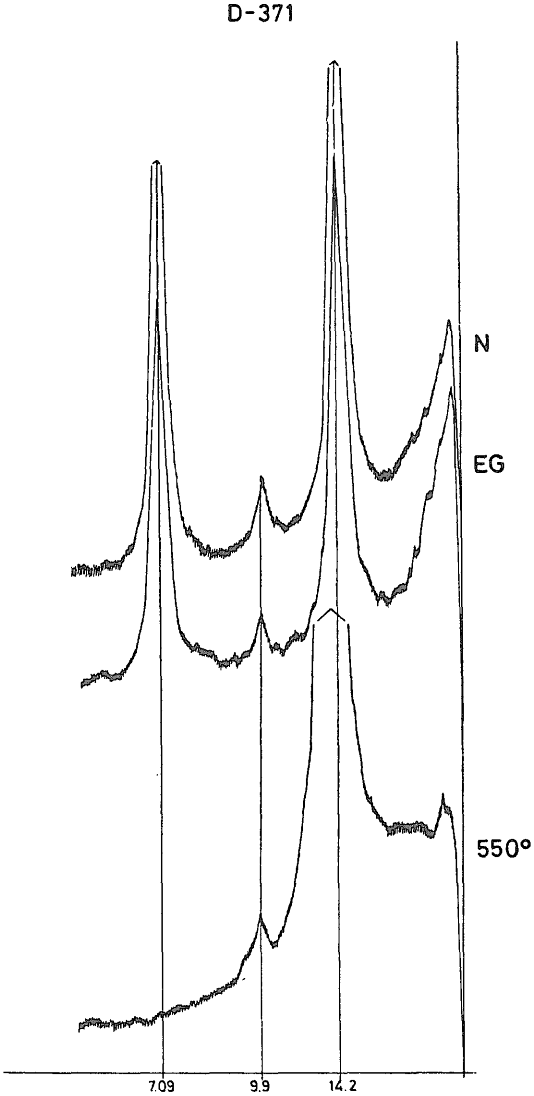
三畳紀上部層にあっては，とりわけ盆地の中央部一帯では Chloriteがひろく分布しており，ダイヤグラムには様々の特徴が認められる．第1図は， Tramacastilla の Keuper 統から採った粘土フラクションのサンプルについて実施したX線回折のダイヤグラムを示す．

事前処理をしなかったサンプル(N)について行ったダイヤグラムは，14.4と7.1Åにラインがあって，少しばかり非対称で，角度の小さい方に開放であるが，とりわけ最初のダイヤグラムにその傾向がある．エチレングリコールで処理したあとのもの (EG) については，そのラインにとりたてて変わったところはない．550℃ に加熱したあと行ったダイヤグラム (550°) にあっては，7.1Å のラインが消滅しており，且つ14.4Åのラインは新たな非対称になって今度は角度の大きい側に開放である．このようなラインの挙動は， Chlorite が少しばかり Vermiculite か Montmorillonite の薄層を混合層として含むことをあらわしている．

このほか，加熱処理後の14Åのラインの収縮は，ラインの対称の変化ばかりではなく，混合層として入る薄層



第1図 Illite 及び Chlorite により形成されたサンプルの粘土フラクションの定方位配列集合体が，事前処理のないもの（N），エチレングリコールで処理したもの（EG），550℃に加熱したもの（550°）について行われたX線回折のダイヤグラム．



第2図 主に極めて結晶度の高い Chloriteにより構成されたサンプルの粘土フラクションの定方位配列集合体が，事前処理のないもの（N），エチレングリコールで処理したもの（EG），550℃に加熱したもの（550°）について行われたX線回折のダイヤグラム．

の数が多い場合，空間組織の軽い変位をおこさせるものでもある．

第2図は，盆地の北東に当る Noviercas-Borobia の地層に属するサンプルの，粘土フラクションについて行ったダイヤグラムを示すものである．このサンプルは Keuper 統の底部から採取した．

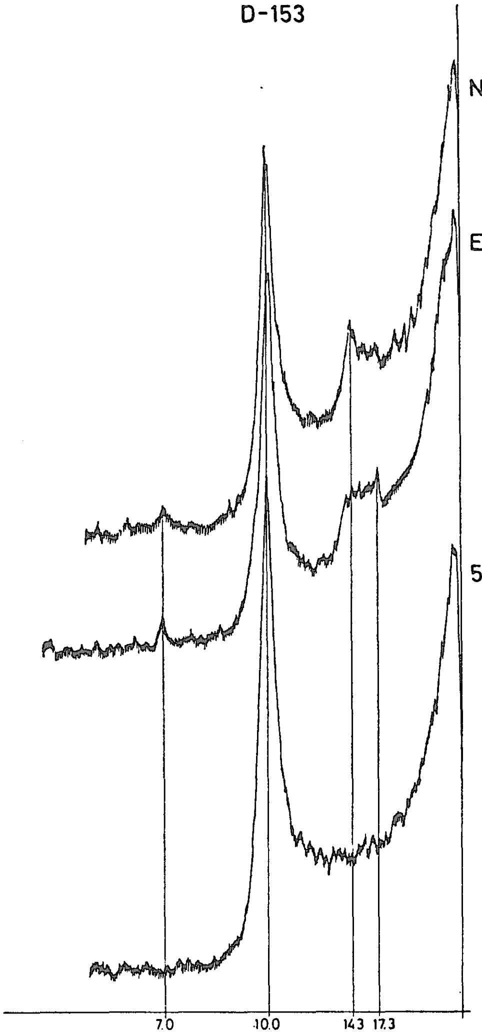
最初のダイヤグラム（N）は，Chlorite の（001）及び（002）の反射が，14.2と7 Åで高い対称を示している．エチレングリコールで処理したものは，2つのラインがい

ずれも変化なくその強さも対称も保持されている．加熱後のもので得られたダイヤグラムにおいては，14.2Åのライン1つだけであって，その強さは著しく上っているが，7Åのラインは消滅してしまっている．

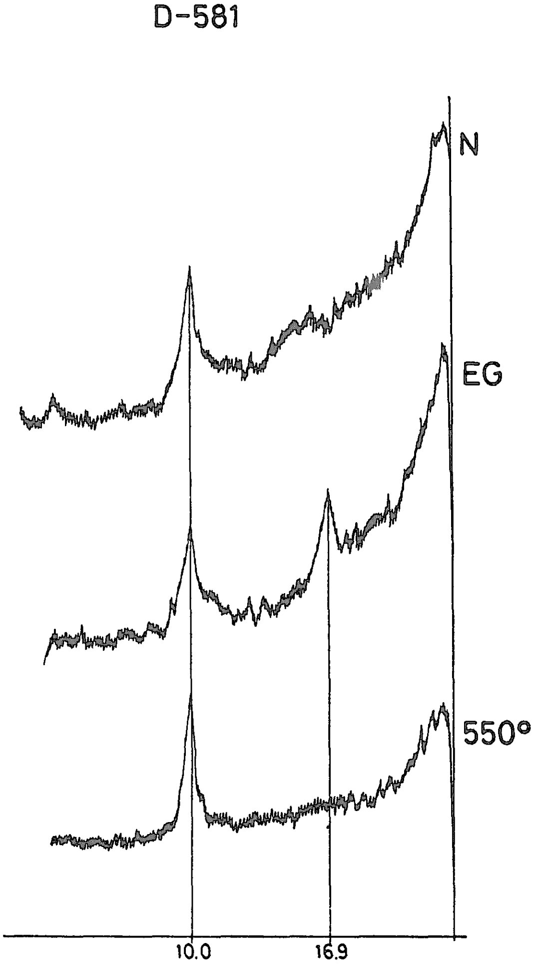
この結晶度の高いChloriteが出る場合というのは，盆地の中でもただこの地域だけである．

Vermiculite と Montmorillonite とは，普通三畳紀の上部層に出るが，その割合は僅かであって，それだけが構成鉱物としてあらわれるという訳のものではなく，Chlorite 並びにこの種の全範囲に亘る混合層鉱物としばしば互いにまじり合って出てくる．

第3図においては，盆地北西部の Cuevas de Ayllonの地層に属する Keuper 統のサンプルの，泥質フラクションについて行われた回折のダイヤグラムを示す．基本的構成物である Illite のラインの外に，この正常な定方位配列集合体において，14.3Åのラインが認められるが，多数の鋸歯状のぎざぎざを伴い，かつ角度の小さい方に開放性である．サンプルをエチレングリコールで処理した後のダイヤグラムには，14.2から17.3Åにわたる1つ



第3図　Mica, Vermiculite, Montmorillonite及び混合層鉱物（14m–14v）により構成されたサンプルの泥質フラクションの定方位配列集合体が，事前処理のないもの（N），エチレングリコールで処理したもの（EG），550℃に加熱したもの（550°）について行われたX線回折のダイヤグラム．



第4図　Illite 及び Montmorilloniteにより構成されたサンプルの粘土フラクションの定方位配列集合体が，事前処理のないもの（N），エチレングリコールで処理したもの（EG），550℃に加熱したもの（550°）について行われたX線回折のダイヤグラム．

のバンドがあらわれる．熱処理後には，すべてのラインは10Åまでとんで，このライン自体は強さが著しく高くあらわれる．

この場合の14.3Åに出る最初のラインは， Vermiculite, Montmorillonite 及び1群の (14m-14v)の中間混合層鉱物構成体を含むものである．

盆地の中央部 (Molina de Aragon) のみであるが，三畳紀下部層のいくつかのサンプルの中に，14Åの鉱物としては Montmorillonite のみが出るという例がある．第4図は，そのようなサンプルの1つについて，2ミクロン以下のフラクションの回折のダイヤグラムを示すものである．

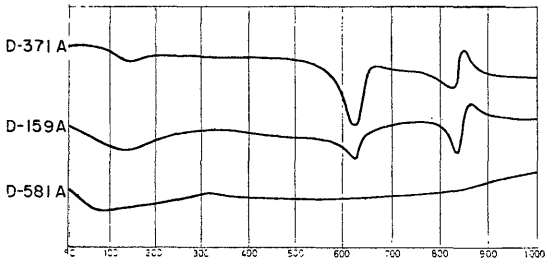
そのダイヤグラムの最初のもの(N)にあっては，15Åあたりに小さな最高が認められるが，はっきりしたラインは全然示していない．エチレングリコールで処理した後，16.9Åに完全で個性的なラインがあらわれるが，熱処理後には10Åまでとんで，かつそのラインは非常に尖った形になっている．

示差熱分析

示差熱分析 (DTA) による研究を通じて得られた結果を解明するに当り，この盆地のいくつかの地点で採取したサンプルに対応する1群のダイヤグラムを選び出した (第5図)．

その中の最初の分，D-371 A は第2図にX線回折のダイヤグラムを示したそのサンプルについて行ったものである．その曲線は，成分がほとんど全く Chloriteのみによることを表わしている．弱い吸熱反応が 150℃にあらわれ，次に非常に強い吸熱反応が 630℃に，さらに第3の吸熱反応が 830℃に，そうしてそのあと発熱反応の影響が850℃にあらわれている．

第2のダイヤグラム，D-159 A は Cuevas de Ayllon の地層に属する Keuper 統のサンプルである粘土フラクションについて行われたもので，そのピークは前記のサンプルのものに似ているがそれとの著しい差異は，630℃の吸熱反応の強さの減少で，その原因は Chloriteに混合層として入る Montmorillonite の薄層の割合が増加していることによる．

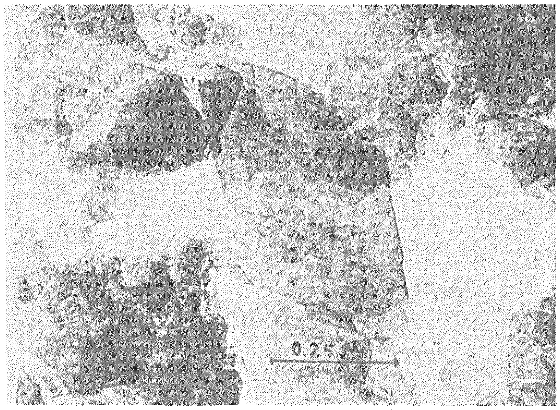


第5図　この盆地のいくつかの地点で採集され，Chlorite (D-371A), Chloriteが Montmorillonite の薄層を混合層として伴うもの (D-159A)及び Illite とMontmorillonite (D-581 A) によりそれぞれ構成されたサンプルについて行われたDTA のダイヤグラム．

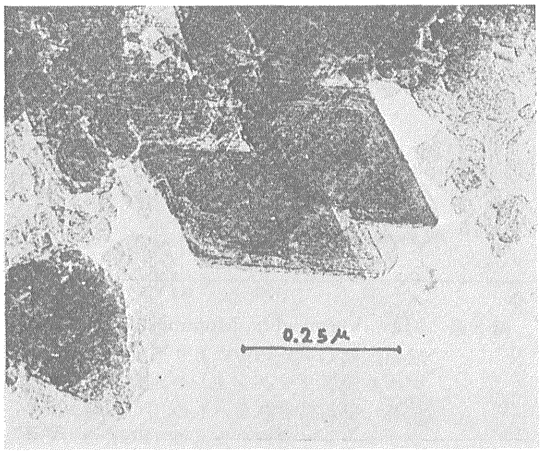
Vermiculite と Montmorillonite とはこの盆地にあまり出てこないものであるが，示差熱分析の曲線ではほっきりとした区別をつけ難い．ダイヤグラムD-581Aは第4図のX線回折のサンプルと同じものについて行ったものである． Montmorillonite の割合が20%を超えているにもかかわらず，曲線は Illite の曲線の特徴を示している．

電子顕微鏡観察

Montmorillonite も Vermiculite も電子顕微鏡で同定することが困難である．あれはあらわれるものが少ない



第6図　電子顕微鏡で観察された結晶度の高い Chlorite



第7図　電子顕微鏡で観察された Chloriteが Montmorillonite の薄層を混合層として伴うもの

ことと，それらの結晶の大きさが小さいことによる．はるかに目立つのは Chloriteの結晶であって，とりわけ斜方ないし六方の晶癖が完全なものがあらわれる場合である．

このような Chloriteの様相は第6図及び第7図に示すとおりである．前者は結晶度の高い Chloriteに当るもので，これについては既にX線回折と示差熱分析による研究の項で述べたところである（第2図及び第5図）．後者はこれに反して，Chlorite が混合層として Montmorillonite の薄層を含むものに相応するものであるが，しかしその電子顕微鏡下の様相は前者に極めてよく似ている．

討論及び結論

イベリヤ山系の三畳紀層には，Chlorite は非常によく出てくる鉱物であり，とりわけ地層中の特定の領域に著しいが，しかし類似の盆地を研究するに当っては Lucas (1962) 及び Caballero (1972) によって得られた結果を考慮に入れれば，期待されるほど多いものではない．

この盆地で見る Chloriteは，次の2つの過程すなわち相続あるいは変移のいずれかを通じてできたものである．

調査した盆地のある地域，とりわけ三畳紀下部層には Kaolinite-Illite-Chlorite の共出が認められる．Illite も Chlorite もそれぞれのラインは開放型で，対称性が小さい．このような共出はとりわけ盆地の周縁に近い地帯によく認められるが，そこでは続成作用の結果は著しいものではない．

相続性と考えるべきこの種の Chlorites は強い砕屑性のレベルによくあらわれ，Illiteに富むが，一面 Chlorite の比率は大抵非常に低いものである．問題は大陸においての Biotite 並びにその他の鉄苦土質珪酸塩のデグラデーションによる生成物のことである．

相続性の Chlorites が一多くの場合，大部分はその割合が小さいものであるにしても一Mg^{2-} イオンの非常に多い媒体と共に，盆地に到達してから変移（“若返り”）を受けるであろうと推測することは無理ではないと思う．すなわち，大陸から出る分解したChloritesが，Mg^{2-} イオンを捕えることにより，結晶度の高い真正の Chlorites に変移して行くということである．このような Chloritesが，結晶度の高い Illites と同様に，この盆地の地層の上部ないし中央部の方にあるというわけである．

“変移してできた” Chlorites は，相続性 Chlorites からばかりでなく，むしろしばしばVermiculite, Montmorillonite または混合層鉱物といった別の鉱物に由来するのであろう．

Montmorillonite は一般的に三畳紀の地層にはあまり出てこない鉱物であって，特にイベリヤ盆地においてはそうである．そのうえに，出るとすれば三畳紀の上部層に限られるというのがよくある事実である．

その上下の関係位置からみても，また共出する鉱物からしても，ほとんどの場合これが相続性鉱物であろうと推測することは理屈に合うと考える：

Buntsandstein統の終りには，大陸は侵食され平らになってしまって地表水は大きなエネルギーを持たなくなり，土壌成因的な作用は十分にかつ深く，デグラデーション現象は高いレベルまで進むであろうし，三畳紀下部層に沿ってよくおこるように，たとえば分解した Illites や混合層鉱物特に（10 m-14 v）タイプの大部分といった生成物が，盆地に到達する前に Montmorillonite の姿になったと考えるべきである．Mica質タイプの鉱物から変移したものは，多分 Montmorillonites の大部分の源泉であろう（Tardy, Paquet 及び Millot, 1970）

この種の変移は次のようであろう：

Illite→（10 i-14 v）→Vermiculite→（14 m-14 v）→Montmorillonite

Biotite→Chlorite→（14 c-14 v）→Vermiculite→Montmorillonite

あるいは

Illite→（10 i-14 m）→Montmorillonite

Biotite→Chlorite→（14 c-14 m）→Montmorillonite

事実，既に述べたとおり，Montmorillonite は単独では出ないばかりでなく，大抵の場合混合層鉱物や Vermiculite を伴って出てくるものである．

Dunoyer de Segonzac (1969) は，Montmorilloniteが深くなれば消滅することを，続成作用の結果であると説明している．この著者は，Montmorillonite がそれ自体不安定のため変移を受け，それがアルカリ・イオンによる脱水及び吸着をおこさせることとなり，混合層鉱物 (10i-14 m) になって行き，更には最終的に Illite にまでみちびかれることになると推測している．

続成作用の早期には，半ば地化学的にきまることであるが，Montmorillonite はそのままでいるかあるいは Chlorite ないし Kaolinite の方に変化して行き，続成作用が進んだ段階では Illite の方に変化するということを Caillere 及び Henin (1949) の論文が示している．

筆者等の調査した盆地の場合には，このタイプの変移が起ったようには思えない；　その理由は既に述べたところによって，三畳紀層全体に沿って沈積した Montmorillonite の源泉地地域の気候並びに地形の進化に関連

してそうは考えていない．

この盆地で Montmorillonite が受ける変移は，とりわけ沈積環境の状況変化に原因がある．大陸から出た Montmorillonite はK^+イオンまたは Mg^{2+} イオンを捕えることにより，中間段階の一連の混合層鉱物を通じて Illite または Chloriteの方に進化して行くにちがいない．

第1の例は変移の最も容易な場合で：

Montmorillonite→（10 i–14 m）→Illite

第2の例は：

Montmorillonite ↗(14c–14v) ↘(14c–14m)ir. →(14c–14m) reg.

→Chlorite

これら2つの変移は，当然ながら同時に起り得る．

このタイプの変移（"強いアグラデーション"）は，とりわけ三畳紀上部層において起りやすい．中間段階の混合層鉱物は，アグラデーションの最終状態の鉱物と同じく，Keuper統には非常に豊富であるが，Muschelkalk 統にあってはそれどころか，ある範囲に漸くあらわれはじめるという有様である．

Montmorillonite はまた，堆積盆地で新たに形成されることがあり得る．Montmorillonite のこのタイプの例については，いく人もの人達によって記載されている：MILLOT (1964), FONTES・FRITZ・GAUTHIER 及び KULBICKI (1967), MORGENSTEIN (1967), BONATTI 及び JOENSUU (1968), MOBERLY・KIMURA 及び MCKOY (1968), CABALLERO (1972), 等

盆地のある地区においては，Mg^{2+} イオンと珪酸との濃集が，アルカリ性 pH と共に，マグネシャを含む Montmorillonites ができるのに適当な状態にあることがある．この Montmorillonites はそれだけができることもあろうし，Attapulgite 及び Sepiolite を伴ってくることも多いであろう．そのようなイオン濃集やアルカリ性の条件は盆地の中央部によく起ってくることである．Rueda de la Sierra の例はそのような1つであって，Montmorillonite は Buntsandstein統の時期に新たに形成され得たものである．この地層面にイオンの濃集は，全般的には高くはなかったとはいえ，盆地のこの区域に且つこの時期に，2つの入口に局限された北西から南東にのびる深い溝があったことを考慮にいれる必要がある．この区域は閉じこめられていて，必要なイオン濃集は十分であったであろう．

Montmorillonite の新たな形成はまた，DUNOYER DE SEGONZAC (1969) によれば，新しい堆積物の内部において，続成作用の早期にあり得るもので，新しい堆積物の続成途中では通常アルカリ性であるという．

Vermiculiteは調査した地層にあっては，常に僅かしか認められず，かつ Montmorillonite または混合層鉱物とまじってあらわれる．

Vermiculite は通常各地層の上部限界に認められ，そのことは Montmorillonite の大部分が，大陸性の変質がそれを生成するのに十分な時期すなわち三畳紀上部期においての相続鉱物であろうとするのと同じと思う．とはいえ，このことはそれまでの時期に，この盆地にある程度の Vermiculite が到達していたかもしれないということを否定するものではない．

実際，Montmorillonite の形成に至る前に，大陸性の Micas がデグラデーションの過程で，Vermiculiteになるかもしれない．従って既に Buntsandstein 統の時期に砕屑性供給物の中にこの鉱物が若干あったかもしれないと思う．

この盆地での Vermiculite の変移の過程は，特に Keuper統に沿って起り，この鉱物の進化に当っては限られた範囲の構成体になって行くものである．調査したいくつかの地層の中では，次のような一連の関係を観察することができる．

Vermiculite—（14 c-14 v）—Chlorite v—Chlorite

多くの場合，この種の変移は Montmorillonite のうける変移と同時であって，混合層鉱物（14 m-14 v）はよく（14 c-14 m）を伴うもので，Montmorillonite が見られないという場合は，上記したつながりがもう1歩進んだ状態であろう．

結　論

1. Chlorite は相続鉱物として，三畳紀下部層の盆地周縁区域のみに，Illite 及び Kaoliniteを共出してあらわれるが，常に少量である．通常2ミクロン以下のフラクション中に濃集している．

2. Montmorillonite は三畳紀の最後の段階で，大陸での分解作用がこの鉱物をつくり出すのに十分な場合にのみ相続する．

3. Vermiculiteは三畳紀上部層にあって，Montmorillonite と同様の状況下に，ときたま見出されるだけである．これら2種の鉱物は，2ミクロン以下のフラクション中に濃集している．

4. この盆地に出る Chlorites の大部分は，分解の進んだ鉱物すなわち Chlorites, Illites, Montmorillonites, Vermiculites 及び混合層鉱物の変移による生成分である．

5. このタイプによる Chlorites は，とりわけ泥質フラクション中に濃集し，一方2ミクロン以下のフラクション中には混合層鉱物が優勢である．

これらの Chlorites をX線で研究したところでは，大抵なにがしかの Montmorillonite の薄層を含むものである．それにもかかわらず，電子顕微鏡下でそれらは斜方及び六方の形を示している．

6. Montmorilloniteの新たな形成には，局部的にイオンの十分な濃集とアルカリ性 pH を必要とするのであるが，Molina de Aragon地区では盆地の区画化が起ってそれが促進された．Montmorillonite は，大量の Calciteと共に砂岩のレベルで形成される．

IV) 混 合 層 鉱 物*

M. D. Ruiz Cruz and M. A. Caballero Lopez-Lendinez

序　論

三畳紀層の微細なフラクションの，鉱物学的に最も興味のある様相の一つは，疑いもなく，そこにあらわれる混合層鉱物の大きな多様性である．

イベリヤ山系の三畳紀層中にある混合層鉱物の存在は，今日までのところ，行われたいくつかの研究が局部的のため，大部分について気付かれないで来た．Marfil (1969) は，この盆地の南部地域の Keuper 統中に，混合層鉱物の1種 Corrensiteタイプが存在することを指摘した．Caballero (1972) は同様に，盆地の西部地域に Keuper 統中の混合層鉱物 (14c-14m) を見出している．

三畳紀の14の地層について行われたこの研究によって，いくつかのタイプの混合層鉱物を明らかにすることができたが，一般的に場所についても時代についても，その分布はあまり一様ではない：三畳紀下部には，盆地のある区域に単に局部的な形で混合層鉱物 (10i-14v) と (10i-14m) があらわれるが極めて稀である．三畳紀中部からは，盆地のある区域に (14c-14m) タイプの混合層鉱物があらわれはじめ，三畳紀上部の方に次第に多くなって行き且つ分布が規則的になって行く．三畳紀上部になれば，更に混合層鉱物 (14c-14i) が非常によくあらわれ，またそれと類似の層準に，たとえわずかの事例ではあるが，(14 m-14 v) と同定される混合層鉱物が出てくる．なお，盆地の西部地域だけに限られるが，三畳紀層の全体に沿って，16Åあたりに一連のラインが出るような混合層の一連の構成体が認められる．

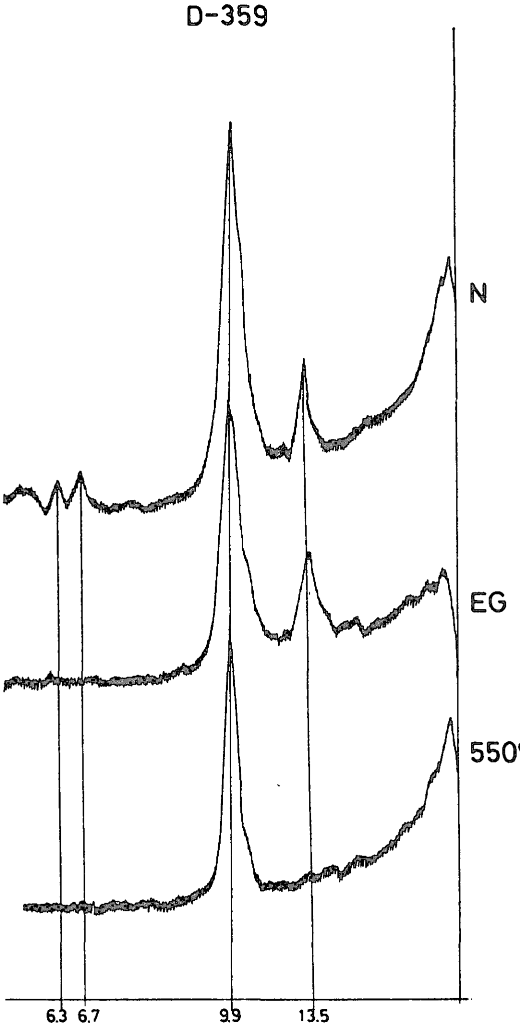
実　験　結　果

混合層鉱物の様々なタイプの同定は，さきに言及したが，基本的にはX線回折による研究を通じて行われる．また，これらの鉱物の大半は，その含まれ方が非常に少ない場合を別にして，示差熱分析 (DTA) による研究によってもまた特性を知ることができ，時たま電子顕微鏡による同定が行われる場合もある．

X線回折

混合層鉱物 (10i-14v)

この混合層鉱物は，調査した盆地の中のある区域に大量にあらわれる．これは，いずれにしても不規則な混合層鉱物であって，最初のラインが13Åか11.5Å付近にあらわれ，時々ではあるが同じ1つのサンプルのうちにその2つがあらわれるというものである．その他の反射は，6.7Å，6.3Å，6Å，5.7Å……によく認められる．



第1図　Illite 及び (10i-14v)により形成されたサンプルの粘土フラクションの定方位配列集合体が，事前処理のないもの (N)，エチレングリコールで処理されたもの (EG)，550°C に加熱されたもの (550°) について行われたX線回折のダイヤグラム．Noviercasの地層

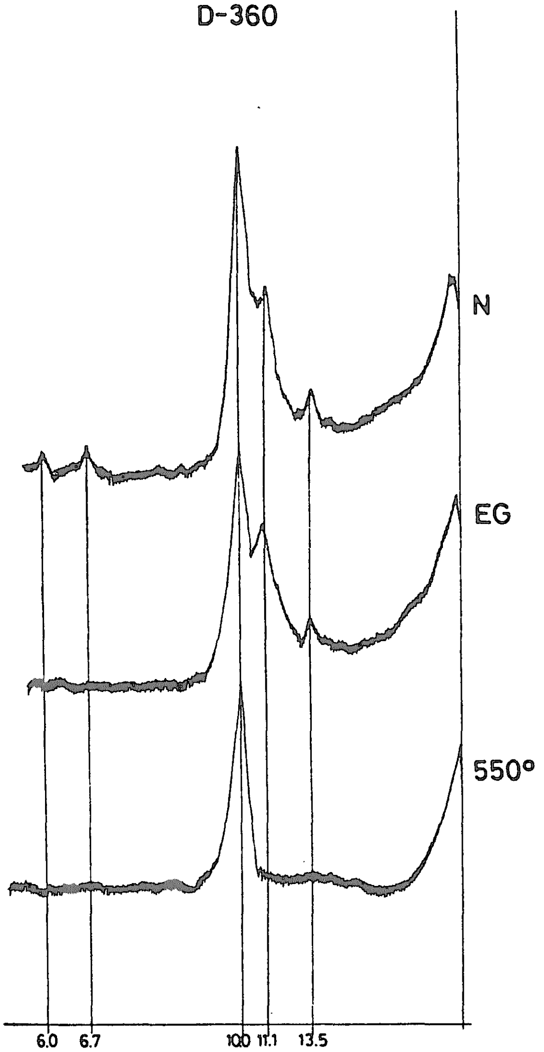
*IV)　Minerales interestratificados: Boletín Geológico y Minero, vol. 87, p. 409–417.

第1図は，Buntsandstein 統の Noviercasの地層のサンプルの粘土フラクションに対応するものであるが，定方位配列集合体を，事前処理のないもの(N)，エチレングリコールで処理されたもの(EG)及び550℃に加熱されたもの（550°）について行われた回折のダイヤグラムである．この場合，13.5Åにあらわれた最初のラインは，エチレングリコールによる処理の後には変化はなかったが，熱処理の後には消滅している．

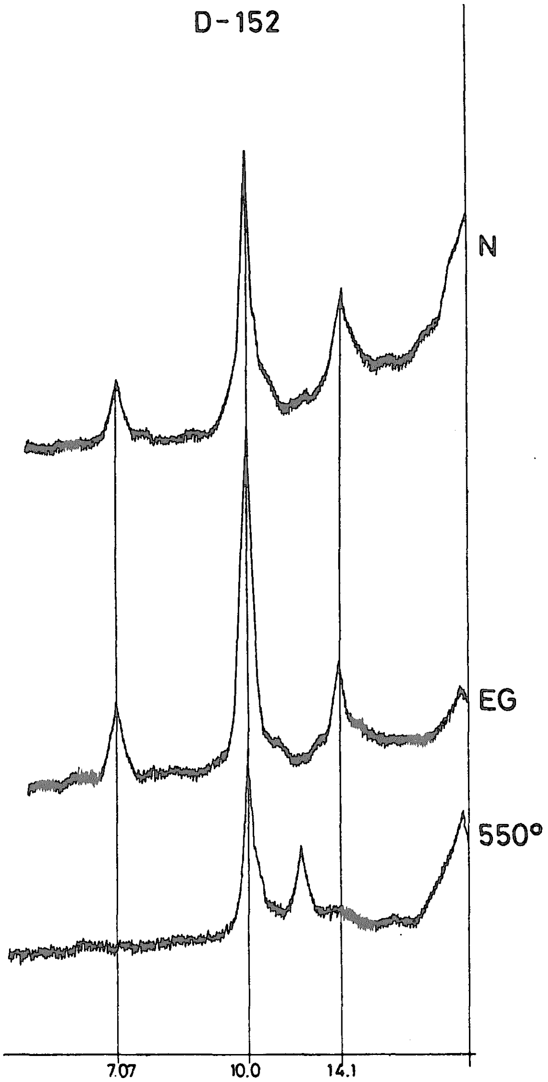
第2図は，上記と同じ条件で，同じ Noviercas の地層に属するサンプルについて行った結果のダイヤグラムである．この場合は，13.5Åと11.1Åとにラインが出ているが，種々の処理に対するラインの挙動は似たようなものである．

混合層鉱物（10i-14m）

この混合層鉱物は，調査したサンプルの中で時々あらわれた程度で，非常に大量存在する（10i-14v）と常にまじり合っていることが認められている．13Å付近の最初のラインは，エチレングリコールで処理した後には，



第2図　Illite 及び(10i–14v)により形成されたサンプルの粘土フラクションの定方位配列集合体が，事前処理のないもの(N)，エチレングリコールで処理されたもの(EG)，550℃に加熱されたもの(550°)について行われたX線回折のダイヤグラム．Noviercas の地層



第3図　Mica 及び(14c–14v)を含むサンプルの泥質フラクションの定方位配列集合体が，事前処理のないもの(N)，エチレングリコールで処理されたもの(EG)，550℃に加熱されたもの(550°)について行われたX線回折のダイヤグラム．Cuevas de Ayllon の地層

2つの小規模の最高点を13Åと14.2Åとにもつ1つのバンドとなってあらわれる．熱処理によってこれらのラインは消滅し，すぐ10Åまでとぶことになる．

混合層鉱物 (14c-14v)

調査したいくつかの地層の中に，この鉱物は非常によく見られたが，しかし三畳紀上部層だけに限られている．

事前処理のないサンプル(N)について行われたダイヤグラムに出た14Å付近のラインは，エチレングリコールで処理したものにおいて，7Åの反射と同様全く変化はなかった．その反対に，熱処理によるものは，最初のラインが角度の小さい方に変位する．そのずれ方は一方の鉱物に対する他の種類の薄層の入る比率次第である．調べたサンプル中のあるものについて，最初の反射の認められる普通の混合層鉱物が最初の反射を熱処理後のダイヤグラムで観察することができる．

第3図においては1つの例を示したが，初めの2つのダイヤグラムの14.1Åの線が3番目のダイヤグラムで12.9Åに下っており，そのことはChloriteの薄層がVermiculiteのそれよりも比率が大きいことを示している．

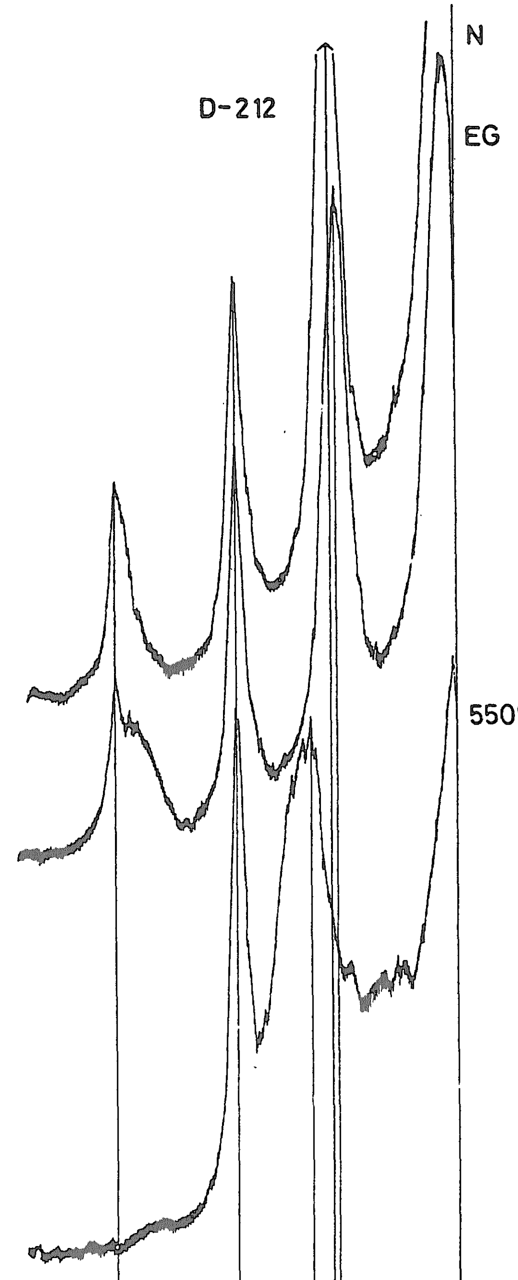
混合層鉱物 (14c-14m)

これは研究した地層の中では，そのあらわれ方がKeuper統の中とかまたMuschelkalk統の上部のある範囲に限られているという点はあるにしても，最もよくあらわれる混合層鉱物である．これは多くの場合，粘土フラクションのうちでも，その大きな部分を構成する成分であり，且つまた泥質フラクションの中にあっても大きな割合を占めるものであるが，Illiteその他の混合層鉱物を伴って出るものである．

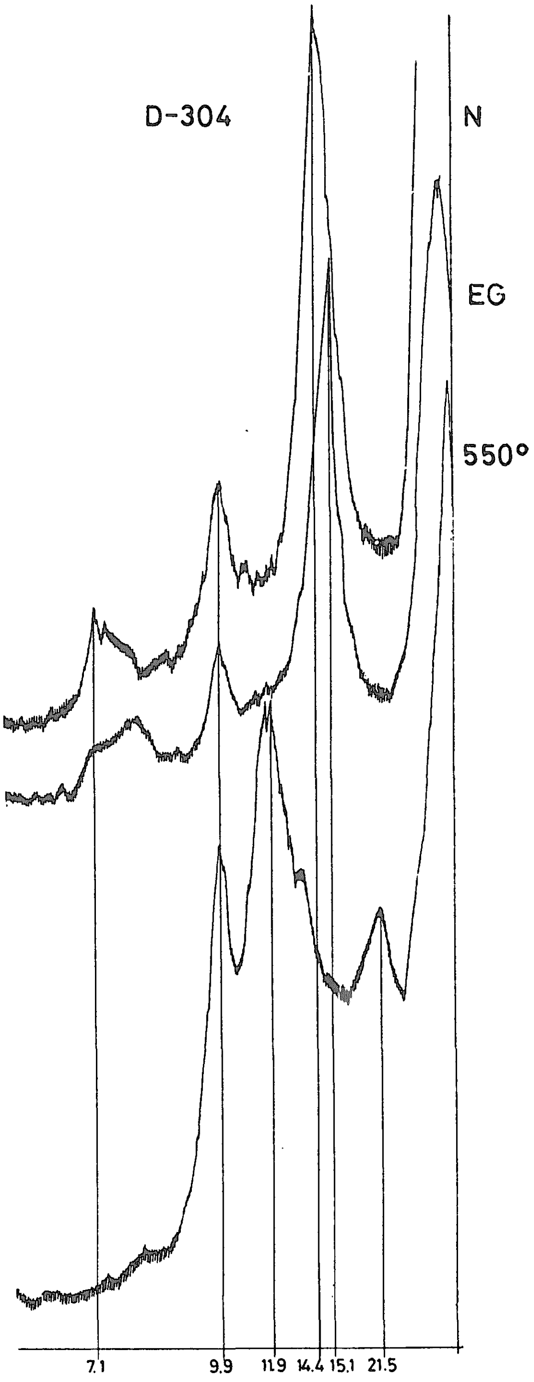
処理なしのサンプルについて行ったX線回折のダイヤグラムでは，14.4Å及び7.1Åのラインがあらわれ，エチレングリコールでサンプルを処理したものは，15.7Å付近で角度の小さい方に転位するが，熱処理の後，角度の大きい方，12Åないし13Å付近に転位する．これらの場合の大半は，第4図に見られるように混合層鉱物は反射の最初のものは見えないが，Corrensiteに近いものである．他の場合，熱処理のあとでは，21.5Å（第5図）付近に最初の反射が認められる．

混合層鉱物 (14m-14v)

この混合層鉱物は，研究したサンプルの中ではあまり出て来なかったし，その量も僅かである．サンプルはVermiculite, Montmorillonite のいずれか，またはその両方との混合物である．最初のラインは，14Åのところで普通非常に幅の広い形を示すが，サンプルをエチレングリコールで処理したあとでは，14Åと17Åとにバンド



第4図　(14c–14m) 及び Illite により形成されたサンプルの粘土フラクションの定方位配列集合体が，事前処理のないもの (N)，エチレングリコールで処理されたもの (EG)，550℃に加熱されたもの (550°) について行われたX線回折のダイヤグラム．
Albarracin の地層



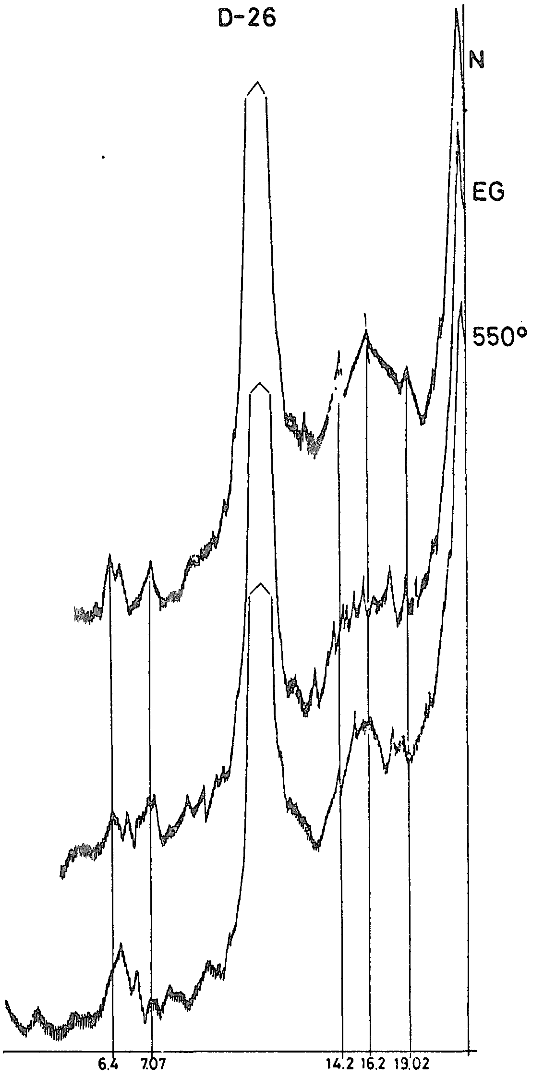
第５図　Illite 及び (14c–14m) により構成されたサンプルの粘土フラクションの定方位配列集合体が，事前処理のないもの (N)，エチレングリコールで処理されたもの (EG)，550℃に加熱されたもの (550°) について行われたＸ線回折のダイヤグラム．(550°) のダイヤグラムには混合層鉱物の第１級の反射が認められる．

を示し，熱処理後のものでは，10Å まで下って角度が小さくあらわれる．

混合層鉱物，16Å のもの

この鉱物は盆地の三畳紀層全体に沿って，西部地域の地層だけに出る (SIGUENZA 及び CERCADILLO)．

第６図では，Siguenza の地層に相応するサンプルの例を示す．この図では，処理なしのサンプルでは19Å，16.2Å，14.2Å の線が認められる．また６Å，７Å の範



第６図　種々の処理に対する16Å の混合層鉱物の挙動を観察し得るサンプルの粘土フラクションの定方位配列集合体が，事前処理のないもの (N)，エチレングリコールで処理されたもの (EG)，550℃に加熱されたもの (550°) について行われたＸ線回折のダイヤグラム．Siguenza の地層

囲にもラインが認められる．そのほか10Åに，構成成分の主体をなす Illite の線が見られる．エチレングリコールによる処理のあとには，前記のラインに対して，14Åから19Åにかけて多数のピークがあらわれて混乱しているのが認められる．550℃に加熱した後では，線は新たに再組織される傾向があって，16Åあたりに最大があり，14.2Åはそのまま維持しているものである．14Åと7Åのラインは Chlorite のもので，19Å，16.2Å，6.6Å，6.4Å等のラインは多分異なる2つ以上のタイプの薄層が作る混合層構成体に相当するものと思う．

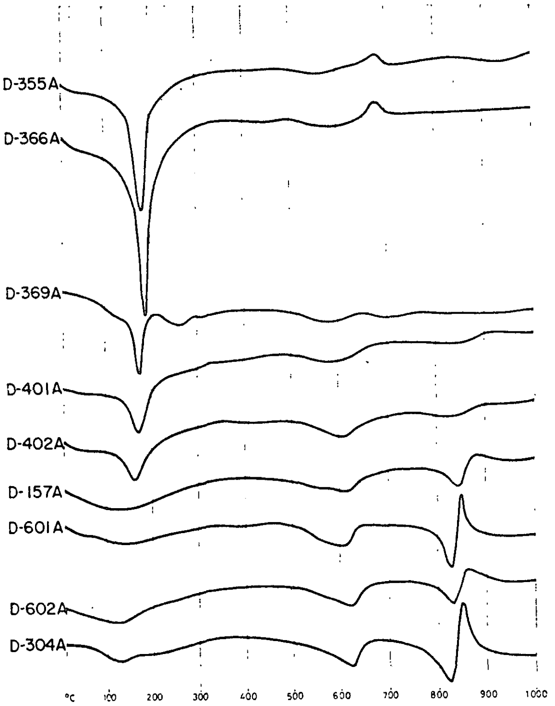
示差熱分析による研究

示差熱分析による研究は，X線回折を通じて同定された混合層鉱物の特性を明らかにすることを可能にした．いくつかのサンプルのうちで，特に（10i-14v）（14c-14m）及び（14c-14v）の比率が非常に高い場合について，第7図ではそのようなダイヤグラムのうちで最も特徴的のものを示す．

D-355A，D-366A 及び D-369A のカーブは，Noviercas の地層の種々のサンプルの Illite と混合層鉱物（10i-14v）によって構成される粘土フラクションに相当するものである．初めの2つの検査で最も重要なことは，190℃に非常に深い吸熱反応があって，これは Vermiculite の水の逸失に相当し（Walker 及び Cole, 1957）別に小さな発熱反応が680℃にあることである．D-369A のダイヤグラムは上記に似た様相をもっているがしかし低い温度のところ，100℃と300℃の間に3つの吸熱反応が認められる．発熱反応は 670℃にあるが，この場合非常に弱いものである．

D-401A と D-402A のダイヤグラムは，三畳紀上部層の Aranda de Moncayo の地層の2つのサンプルの粘土フラクションのものである．これは Illite と混合層鉱物の（14c-14v）並びに（14c-14m）から成るものである．これらのカーブに関して最も特徴的なことは，最初の吸熱反応が180-190℃にあり，対称的で尖った角度をなし，Vermiculite の特性を示していることである．第2の吸熱反応は600℃に非常に幅の広い形であらわれ，また870℃に吸熱発熱反応の浅い段が認められる．

残りのカーブは，最も主要な構成鉱物が混合層鉱物の（14c-14m）であるサンプルに相当するものである．D-157Aのダイヤグラムは，三畳紀上部の Cuevas de Ayllon の地層の粘土フラクションのサンプルのものである．D-601A 及び D-602A のダイヤグラムも，三畳紀上部の Molina de Aragon で採取したサンプルのものである．D-304A は Huelamo の Keuper統の粘土フラクションのサンプルについて行われたダイヤグラムである．これら

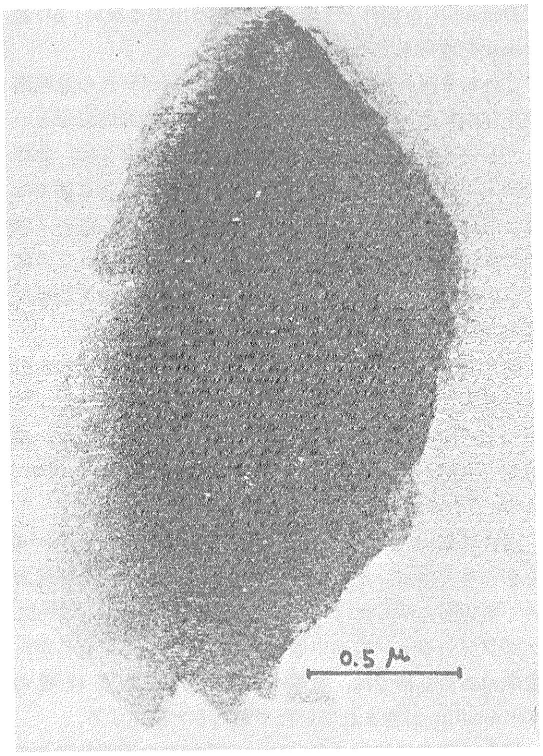


第7図　盆地のいくつかの地点のサンプルの粘土フラクションについて行われ，それぞれに様々な混合層鉱物の特質をあらわす DTA のダイヤグラム．
カーブ　D-355A, D-366A, D-369A:（10i-10v）
カーブ　D-401A, D-402A:（14c-14v），（14c-14m）
カーブ　D-157A, D-601A, D-602A, D-304A:（14c-14m）

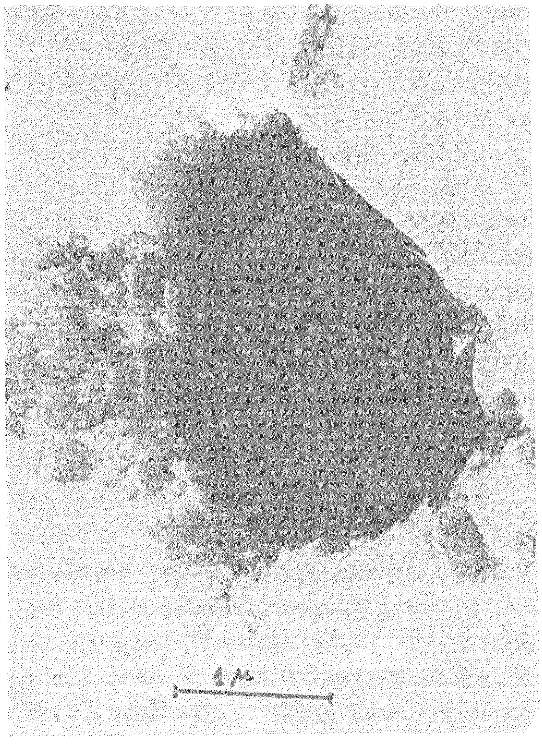
のいずれも，最初の吸熱反応が 130℃で非常に幅の広い形であらわれ，第2の吸熱反応が 630℃で顕著にあらわれ，最後に830℃でまた別の吸熱反応があって，870℃の発熱反応につながっている．これらのカーブは，Cole 及び Hosking（1957）が Chlorite-Chlorite 固定タイプの混合層鉱物に関して示した特性と非常に似ており，Caballero（1972）が Chlorite-Montmorillonite の混合層鉱物について提供されたものとも似ている．900℃に加熱したサンプルの粉末の回折ダイヤグラムを作ったが，最終の発熱反応が Enstatite の形成によるものであることを明らかにしている．

電子顕微鏡観察による研究

電子顕微鏡による研究では，種々の混合層鉱物の主体をなす Mica を区別することはできなかった．特に（10i-14v）の混合層鉱物はどのサンプルにも非常に多量で何れも類似の様相を示すためである．それにもかかわら



第8図　電子顕微鏡下の混合層鉱物(14c–14m)の様相．Huelamo の地層



第9図　電子顕微鏡下の混合層鉱物(14c–14m)の様相．Aranda de Moncayo の地層

ず，Huelamo 及び Aranda de Moncayo の地層にそれぞれ対応する第8図及び第9図に示すように，混合層鉱物の（14c-14m）の2つの様相について同定することができた．この混合層鉱物の結晶の大きさは通常随伴する Chlorite の大きさに比べて非常に大きい．第9図では混合層鉱物の結晶の境界に存在する斜方形を見ることができる．

討論及び結論

イベリヤ山系の三畳紀層には混合層鉱物が非常に豊富に存在し，その多様性は場所についても時代についても，あるものにとってはそこの起源があり，他のあるものにとっては三畳紀層に沿う堆積の環境に関してその特徴がある等，また盆地内のある地点から他の地点にと，そのあとをたどるのは比較的容易である．

相　続

調査した盆地に存在する混合層鉱物の大部分は，大陸のデグラデーションによる生成物として，源泉地域からの相続物と推測することができる．このように Vermiculite 及び Montmorilloniteの形成に至った (Ruiz Cruz 及び Caballero, 1975) デグラデーションは，同時に混合層鉱物構成体の理由づけ（Camez, 1962; Reynolds, 1971; その他）を与えるものである．

三畳紀下部の時代の大部分，盆地内には開放型の Illites が時には混合層鉱物（10i-14v）を伴って届いたであろう．この混合層鉱物は，大陸のMicas がデグラデーションの中間過程をあらわしているように思う．その Micas は後日 Vermiculite になって行くものである．

時が流れ大陸が進化するにつれて，多分盆地には更に分解の進んだもの，すなわち Montmorillonite と Vermiculite が一連の混合層中間鉱物：(10i-14m) (14c-14m) (14c-14v) 及び (14m-14v) を伴って到着したことであろう．このように多様な相続は，盆地の周縁地帯に保存されている．そこではこれらの相続鉱物は，中央部よりは低いイオン集中により，これ以上分解できない鉱物への進化ができなかったものである．それが Cueva de Ayllon の地層の例である．

変　移

上記のような相続性のいずれの混合層鉱物も堆積盆地に届くと共に，とりわけ陽イオンの負荷をもつ水の作用を受けて，一連の変化をこうむることになるであろう．

混合層鉱物（10i-14v）と（10i-14m）は，Buntsand-

stein統の中に限って認められるが，その大部分が相続性の起原によるものである．その上部に上記のものが欠除するのは，少なくとも次のようなタイプの変移をこうむった故であろう．

(10i-14v) →Illite

(10i-14m) →Illite

相続性起原の混合層鉱物（14m-14v）（14c-14m）及び（14c-14v）は盆地の周縁地帯に認められる．これらの地層に存在する一連の関係は，重要な変移が起ったかどうかを推論することはできない．反射に盆地の内部地帯においては，これらの鉱物が地層の上部に向うにつれ下記のような進化を見ることができる．

(14m-14v) → (14c-14m)

(14c-14m) → (14c-14m) reg.→Chlorite

(14c-14v) →Chlorite

分　布

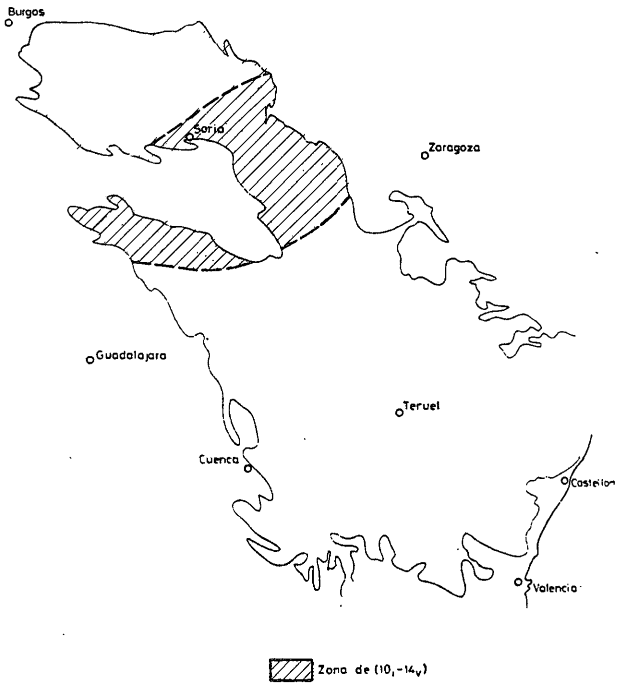
三畳紀下部層において Illite に伴って混合層鉱物(10i-14v) と，これより少ないが (10i-14m) が認められる．盆地においてのこれらの鉱物の分布状況は第10図に示した．上記の鉱物は盆地の東部地帯（Noviercas-Borobia と Aranda de Moncayo の地層）に大量に現出するが，特に前者は西部地帯，Albendiegoにおいてよく見られる．見られるとおり，これらの混合層鉱物の存在は，Sierra de la Demanda を例外とする（そこでは出てこない）が，盆地の北部地帯までである．

これら2種の混合層鉱物，特に（10i-14v）の盆地南部及び南東部への消滅については，その相続性起源ということで的確に説明できるであろう．このように，北西部は Kaolinite と (10i-14v) に一致するが，北東部では混合層鉱物が非常に多くて Kaolinite は存在しない．盆地の南部及び南東部でそれらが欠除することは，この鉱物が砕屑性の集積を形成しなかったということで簡単に理由づけができるであろう．

混合層鉱物，特に（14c-14m）の三畳紀上部時代の分布は盆地全体を通じて至って単調である．とはいえ，地層の上部に向うほど，ある規則性の傾向が認められ，盆地の中央部一帯と南西部（Molina de Aragon, Albarracin, Tramacastilla, etc.）にそれは特に著しい．

混合層鉱物（14c-14v）は通常(14c-14m)及び Chlorite とまじって出る．この鉱物の盆地内の分布は，大体において第10図に示した（10i-14v）の分布と一致している．アグラデーションの途中過程では Chloriteができるが，盆地のこの地帯では，盆地への供給物中にある程度の Vermiculite が含まれていたであろうと推定する．

16Åの混合層鉱物の存在は，三畳紀の全期間を通じてあらわれるが，盆地の北西周縁だけに限られる．このよ



第10図　混合層鉱物(10i-14v) の分布を示すイベリヤ山系の要図

うな，場所に関する限界というものは，盆地内でこの地帯でだけの相続という点から，この鉱物に対する砕屑性起原を示唆するものである．

結　論

イベリヤ山系の三畳紀層にあらわれる混合層鉱物に関して推定できた最も重要な結論並びに分布状況は次の通りである：

1.　イベリヤ山系の三畳紀層中に同定された混合層鉱物は：(10i-14v) (10i-14m) (14c-14v) (14c-14m) 及び (14m-14v) である．この外にも混合層鉱物が，16Åにあらわれるが，今までのところ同定できないでいる．

2.　これらの鉱物の起源は多分：大陸からの相続性，または堆積物が盆地の中で変移したもの．

3.　上記したような相続による混合層鉱物の相互間において，最も豊富に存在するのは (10i-14v) であるが，これは三畳紀下部の砕屑性の相のみに伴うものである．同じ状況下に僅かではあるが，(10i-14m) も認められる．両鉱物共2ミクロン以下のフラクションとして濃集する．

盆地の北西周縁部に，この外相続による (14m-14v) (14c-14v) (14c-14m) 及び16Åの混合層鉱物がある．

4.　ここに存在する混合層鉱物の大部分，とりわけ (14c-14m) と (14c-14v) は，本質的に Montmorillonite 及び Vermiculite という相続鉱物の盆地内での変移生成物である．これらの変移は最終的に Chloriteに至る．その過程は地帯によっては三畳紀中部にはじまるが，それが真に重要となるのは，三畳紀上部になってからである．

5.　第10図に示した (10i-14v) (10i-14m)及び (14c-14v) の限界は，多分盆地全体に亘る堆積物の性質の相異によるものであろう．このことはまた，盆地北西部に存在する16Åにあらわれる混合層鉱物の限界の理由ともなるものであろう．

6.　(14c-14m) の分布はかなり一様である：変移生成物とりわけ Montmorillonite はイオン濃集が十分なときに成長がはじまるものである．