福岡県津屋崎付近の第三紀層中の沸石と粘土鉱物

ZEOLITES AND CLAY MINERALS IN THE TERTIARY SEDIMENTARY ROCKS IN TSUYAZAKI AREA, FUKUOKA PREFECTURE

中 牟 田 義 博 (Yoshihiro Nakamuta)*

Zeolites occur abundantly in the Tertiary sedimentary rocks distributed near Tsuyazaki, Fukuoka Prefecture. These zeolites and clay minerals associated with them were investigated mainly by x-ray diffraction.

The zeolites occurring in amygdaloids, veinlets and filling materials of conglomerate were identified as heulandite, stilbite and laumontite, and those replacing matrix and plagioclase grain in sandstone were heulandite and laumontite. Of the latter group, heulandite occurs throughout the whole stratigraphical horizon, but laumontite is recognized only in the lower horizon. This fact suggests that the sedimentary rocks have been suffered the alteration of heulandite-analcime subfacies of Seki (1968), and the degree of alteration is a little higher in the lower horizon.

Most of the clay minerals associated with zeolites are interstratified minerals of illite and montmorillonite and chlorite minerals. Kaolin mineral and celadonite are rarely found. The amounts of montmorillonite layers in the interstratified minerals of illite and montmorillonite are estimated by visual inspection to range from 40 to 90%. The chlorite minerals in the rocks in the upper horizon consist of $1b(\beta=90^\circ)$ FeMg-chlorite and interstratified mineral of chlorite and saponite in contrast with those in the lower horizon being FeMg-chlorite only. The interstratified mineral of chlorite and saponite contains 30-50% saponite layers.

1. はじめに

福岡県宗像郡津屋崎町北西の半島部には、古期深成岩類、第三系、および新期火山岩が露出しており(岡田・小島, 1963)、第三紀層中には沸石が著しく生じている。この沸石については岡本(1944)により、おもにその光学性と形態とから束沸石、輝沸石、濁沸石、菱沸石、および方沸石が記載されている。また、岡田・小島(1963)は本地域の地質についての報告の中で、本地域の沸石をX線回折により束沸石に同定している。一方、沸石に粘土鉱物を一般に伴うことが知られているが、本地域の堆積岩中の粘土鉱物についての研究はほとんどなされていない。

筆者はこれら第三紀層中の沸石および粘土鉱物について、主としてX線粉末法と偏光顕微鏡による研究を行った。その結果、肉眼的な結晶として認められる沸石は束沸石、輝沸石、および濁沸石であり、また堆積岩の基質や斜長石の砂粒を交代して、輝沸石と濁沸石が生じ

ていること、粘土鉱物は鉄を比較的多く含む緑泥石と緑泥石-サポナイト混合層鉱物、およびイライト-モンモリロナイト混合層鉱物を主とすることなどを知った。ここにその概要を報告する。

この研究をすすめるにあたり、九州大学白水晴雄教授、渡辺隆博士に終始御指導いただいた。化学分析では九州大学石橋澄博士、松枝大治氏に御指導いただいた。また、九州大学桃井斉助教授、青木義和氏には有意義な議論をしていただいた。ここに心から感謝の意を表する。

2. 位置および地質概要

調査地域は福岡市の北東約20kmの津屋崎町の北西に隣接する南北約3km、東西約1kmの半島である。第1図にその位置を示す。

本地域の地質学的な研究は竹原(1937)によって始めて行なわれ、その後、岡田・小島(1963)により詳しい研究がなされた。岡田・小島による層序と各層準の岩相

* 九州大学理学部地質学教室

(昭和51年3月2日受理)

第1図 調査地域（図中矢印）の位置図。

的特徴を第1表に示す。本地域では半島の南西端に北九州白亜紀花崗岩類に属する北崎花崗閃緑岩と平尾花崗閃緑岩が露出しており、それを不整合に覆い第三系が発達している。第三紀層は東～北東に傾斜しており、一般に南西から北東に行くほど上位の層準の地層が露出する。この第三紀層は整合的に重なる非海成の津屋崎層と海成の山鹿層とからなっている。前者は岩相により、I～V 亜層に、さらに各亜層は A～C の部層に分けられており、花粉化石から筑豊における大辻層群の遠賀層に対比されている（高橋，1962）。後者は貝化石から、筑豊における芦屋層群最下部の山鹿層に対比されている（岡田・小島，1963）。これらの第三系の上位には、かんらん石玄武岩がほとんど水平にのっている。

3. 試料および研究方法

本地域の西海岸南部の IC 部層や、IIA 部層、および

第1表 調査地域の層序と岩相（層序は岡田・小島（1963）による）

層 序			岩 相
沖 積 層 お よ び 洪 積 層			
か ん ら ん 石 玄 武 岩			
山 鹿 層			中～小礫礫岩で始まり、主部は塊状シルト岩質細粒砂岩よりなる
津 屋 崎 層	V	B	淡青緑色塊状の含軽石火山角礫岩ないし凝灰角礫岩で始まり、上位に数mの良く成層した角礫質層灰岩を累重する
		A	礫岩層を主とし、流紋岩質～石英安山岩質層灰岩を伴う
	IV	B	下部および上部は礫質粗粒砂岩、中部は炭質頁岩と礫質粗粒砂岩との互層よりなる
		A	灰黄色の流紋岩質～石英安山岩質凝灰岩・同層灰岩を主とし、中～小礫礫岩、紫赤色頁岩を挟む
	III		安山岩質～玄武岩質の著しい巨礫を含む塊状の火山円礫岩からなり、礫岩は全体として暗赤色を呈する
	II	C	紫赤色シルト岩を主とし、含巨礫、大～中礫礫岩、凝灰質頁岩を伴う
		B	礫質粗粒砂岩と帯緑色頁岩の互層を主とする
		A	塊状の礫質砂岩を主とする
	I	C	楔状粗粒砂岩を伴い、沸石および濃緑色の粘土によってこう結された含巨礫、中～大礫礫岩層
		B	紫赤色シルト岩を主とする
		A	楔状砂岩薄層を数枚挟在する大～中礫からなる基底礫岩層で全体的に緑色を呈する
花 崗 閃 緑 岩			

西海岸北部に露出する IVA 部層中位層には、粗粒砂岩、および礫岩のこう結物として橙赤色ないし白色の沸石が生じている。また、半島南西の曾根の鼻に露出する III 部層中には安山岩質ないし玄武岩質集塊岩の気孔中に沸石が生じている。その他、稲崎に露出する北崎花崗閃緑岩中には橙赤色の沸石細脈がみられ、津屋崎層中にはほぼ全層準にわたって白色の沸石細脈がみられる。これらの沸石については、色または形態が異なるものを hand picking により分けた後、X 線回折により同定を行なった。

一方、堆積岩を構成する沸石と粘土鉱物については、半島の西海岸に露出する各層準の地層から岩石試料を採集して検討を行なった。岩石試料数は 32 個である。第 2 図に試料採集位置を示す。これらの岩石を鉄鉢により 60 メッシュ以下に粉碎した後、その一部を X 線粉末法による沸石の同定に用い、残りについて超音波分散を行ない水によって粘土質部分 (2μ 以下) を濃集させた。得られた粘土試料については X 線分析 (薬品処理、加熱処理) の他、一部の試料では赤外吸収分析、示差熱分析、および化学分析を行ない粘土鉱物を同定した。ま

た、代表的な岩石の薄片を作り、沸石および粘土鉱物の産状を観察した。

4. 沸 石

実験の結果、本地域で肉眼的に認められる沸石は輝沸石、束沸石および濁沸石であり、それらは互に産状を異にしている。第 2 表にこれらの沸石の回折データを示す。また、肉眼的に沸石が認められないような堆積岩中にも長石の砂粒や基質を交代する輝沸石や濁沸石が見出された。これらの微粒の沸石は本地域の堆積岩の変質を直接に示すものと考えられる。以下に各沸石の産状と若干の性質について述べる。

(1) 輝沸石

輝沸石の回折パターンはクリノプテロール沸石の回折パターンと類似しており、両者の区別については Mumpton (1960) による詳しい研究がある。その結果によると、

第 2 表 沸石の X 線回折データ

1		2		3	
d (Å)	I/I	d (Å)	I/I	d (Å)	I/I
9.5	100	9.1	100	8.9	100
6.84	32	5.29	1	7.9	1
6.17	4	5.23	1	5.25	2
5.04	4	4.65	4	5.10	3
4.72	14	4.54	2	4.65	4
4.49	9	4.46	1>	4.46	3
4.16	29	4.27	3	4.36	1>
3.85	5	4.05	12	3.97	5
3.66	12	3.73	3	3.89	5
3.51	28	3.48	3	3.83	1
3.41	6	3.40	3	3.72	1
3.35	21	3.18	4	3.56	2
3.27	14	3.10	1	3.48	1
3.20	10	3.03	12	3.42	2
3.15	13	2.87	1>	3.33	1>
3.03	52	2.82	1>	3.16	2
2.87	9	2.77	3	3.12	3
2.84	3	2.71	1>	3.07	2
2.79	5	2.61	1>	2.97	13
2.63	1	2.56	1>	2.80	3
2.58	7	2.51	1>	2.73	3
2.52	5	2.48	1>	2.53	2
2.49	5	2.46	1>	2.49	
2.44	9	2.35	1>	2.46	
2.36	6	2.27	1>	2.44	1
2.28	8	2.23	1>	2.43	
2.21	3	2.20	1>	2.23	2
2.18	3	2.12	1>	2.02	1>
2.15	6	2.10	1>	1.96	1
2.09	9	2.06	1>	1.79	3
1.99	2	2.03	1>	1.77	1>
1.96	4	1.98	1>	1.73	1
1.91	10	1.89	1>		
1.87	11	1.82	6		
1.634	3				
1.623	4

第 2 図 岩石試料の採集位置図。

A: IIVB 部層; B: IVA 部層;
C: IIB 部層; D: IIA 部層;
E: IC 部層; F: IB 部層;
G: IA 部層; H: 北崎花崗閃緑岩。
図中の数字は試料番号を示す。

1: 白色透明の濁沸石 (曾根の鼻北の IA 部層中の細脈); 2: 白色束沸石 (曾根の鼻南の IIB 部層中に豆状集合をなす); 3: 橙赤色輝沸石 (IC 部層中の礫岩をこう結する)。

第2表に示した本地域の試料の回折データは輝沸石の特徴を示している。また、300°C、4時間の加熱により回折パターンが若干変化し、400°C、4時間の加熱により各回折線が非常に弱くなる。この加熱変化の特徴からも輝沸石と同定された。

本地域の輝沸石のうち、肉眼的に認められるものは粗粒砂岩～中粒砂岩をこう結したり、細粒砂岩ないし頁岩中に斑点状あるいは豆状集合をなし、また集塊岩中の気孔を充している。粗粒砂岩ないし礫岩をこう結するものは半島西海岸沿に露出する IC 部層から IIA 部層にかけてみられるが、これらの部層中に稜状に挟まれる中粒砂岩層ではこの輝沸石を欠いている。IVA 部層中位層中にも一部で同様な産状を示す輝沸石がみられる。IIA 部層と IVA 部層は粗粒砂岩であり、輝沸石が生じている砂粒の間は狭いのにに対し、IC 部層は礫岩であり、この中の輝沸石は 0.5～1 cm のすき間を持つ晶腺状になっている。そして、この晶腺状になった内側には一般に、白色ないし無色の束沸石や方解石を伴っている。このような輝沸石は橙赤色を呈しており、長さ 1 mm 程度の短柱状の結晶が認められる。曾根の鼻の北に露出する IIA 部層は細粒砂岩ないし頁岩よりなるが、この中には 7 mm 前後の大きさの豆状集合をなす輝沸石がみられる。この豆状集合の外形は不規則であり、その周囲は橙赤色を呈し、中心部は無色になっている。IVA 部層下部の流紋岩質～石英安山岩質の凝灰質頁岩中では、橙赤色の輝沸石が 1 mm 前後の斑点状をなしている。曾根の鼻の III 亜層は紫赤色を呈する安山岩質～玄武岩質の集塊岩よりなるが、この中の気孔を充して白色の結晶が生じている。以上の肉眼的に認められる輝沸石の他に、堆積岩の基質や長石の砂粒を交代して多量の輝沸石が生じており、このような産状を示すものは IC 部層から IVB 部層にわたってみられる。個々の検討岩石試料についての結果を第3表に示す。

(2) 束沸石

本地域で束沸石が生じているのは比較的狭く、IC 部層中に輝沸石に伴い、また、基盤岩である花崗閃緑岩中に細脈として認められる他には、曾根の鼻北の IIB 部層中の細粒砂岩中に 0.5 cm 大の豆状集合として、また III 亜層下部中に 1～2 mm 幅の細脈として産するのみである。IC 部層中の束沸石は前述のように晶腺状の輝沸石の内側に生じている。これらの中には長さ 2～3 mm の柱状ないし薄片状結晶が認められ、多くは束状集合をなしている。色は一般に無色であるが輝沸石に接する結晶は橙赤色を呈する場合もある。基盤岩中の束沸石を含む細脈は裾崎の北崎花崗閃緑岩中に頻繁に入っている。この細脈の幅は 0.5 cm から 6 cm の間でかなり膨縮が

第3表 各岩石試料中の沸石と粘土鉱物

	Sample	Zeolite		Clay mineral			
		L	H	I	Ch	K	Ce
IVB	32			△	◎		
	31			◎	△		
	30		○	◎	△		
	29		○				
	28		○				
	27		○	◎	◎		
	26		○		◎		
	25		△		◎		
	24			○	◎		
	23				◎		
IVA	22		△	◎	◎		
	21			◎	◎		
	20		○	◎	◎		
	19		○		◎		
	18			◎	○		
	17			◎			
	16		○	◎	△		
	15		◎				
	14			◎	△		
	13		◎	◎	◎		
IIB	12			◎	◎		
	11			◎	◎		
IIA	10			◎	△		
	09	○	◎	◎	◎		
IC	08			◎			
	07	△	○	◎			○
	06	◎		◎			
IB	05		◎	◎	◎		
	04			◎	◎		
IA	03			◎	◎	○	
	02			◎	△		
	01			◎	◎		

L : 濁沸石 ; H : 輝沸石 ; I : イライト-モンモリロナイト混合層鉱物 ; Ch : 緑泥石鉱物 ; K : カオリン鉱物 ; Ce : セラドナイト ; ◎ : 多量 ; ○ : 中量 ; △ : 少量.

あるが、細脈が花崗閃緑岩と接する幅 1～2 mm の部分が束沸石であり、その内側は方解石からなることが多い。この束沸石は橙赤色を呈しており、形態は明らかではない。曾根の鼻の IIB 部層中に豆状集合をなすものは無色ないし白色を呈しており、また III 亜層下部中の細脈は無色透明ないし半透明で、リン片状の微晶よりなる。

(3) 濁沸石

本地域の濁沸石の回折データ(第2表の1)は濁沸石の一部脱水したレオンハーダイトと一致するが、両者は周囲の水の有無によって相互に容易に変化し得るものであり(Coombs, 1952)ここでは濁沸石として取り扱った。

本地域の濁沸石の多くは白色の 0.5 mm 前後の幅の細脈として産し、津屋崎層のほぼ全層準にわたって見出される。これらの濁沸石細脈は先に述べた輝沸石や束沸石によりこう結される砂岩ないし礫岩を切っている。しかし、IC 部層中の礫岩中では、少量の晶腺状の濁沸石が礫の間に輝沸石や束沸石とともに産出する。このよう

に脈幅が広がった部分では、濁沸石は柱状に結晶しており、長さ 2 mm、径 0.7 mm 大の結晶が認められ桃色を示すことがある。管根の奥の III 亜層の褐色凝灰質砂岩中には直径 1 cm の放射状集合をなす白色の濁沸石が認められ、砂岩と接する幅 1 mm 程度の部分に輝沸石を伴っている。また同層中の一部の礫の表面には厚さ 2 mm 程度の板状に白色半透明の濁沸石が輝沸石を伴っている。以上の他に、IC 部層と IIA 部層下部では堆積岩の基質や長石の砂粒を交代して生じている。個々の岩石試料についての検討結果を第 3 表に示す。

5. 粘土鉱物

同定された粘土鉱物の大部分はイライトーモンモリロナイト混合層鉱物と緑泥石鉱物である。その他に、一部の地層からセラドナイトとカオリン鉱物が認められた。各試料中の粘土鉱物組成を、その中に含まれる沸石とともに第 3 表に示す。

(1) イライトーモンモリロナイト混合層鉱物

イライトーモンモリロナイト混合層鉱物に同定された粘土鉱物は、定方位試料の X 線回折では 15 Å から 13 Å の間に強いブロードな反射を示し、全体のパターンはモンモリロナイトと類似している。しかし、回折線の現われる位置がモンモリロナイトからわずかにずれている点や、5 Å 付近の反射が他に比べて鋭くなっている点などがモンモリロナイトとやや異なっている。また、薬品処理および加熱処理後の回折パターンでも、回折線の位置および回折線の形にモンモリロナイトとの違いが認められる。IIA 部層中の灰色凝灰質頁岩より得られた試料 (試料 10) の回折パターンを第 3 図に示す。Visual inspection 法によると、モンモリロナイトとのこれらの相違は、本鉱物がモンモリロナイトとイライトとの混合層鉱物であるためと考えられるので、イライトーモンモリロナイト混合層鉱物に同定した。また、本鉱物は赤外吸収スペクトル (第 4 図) においても、イライトーモンモリロナイト混合層鉱物のパターンの特徴 (Oinuma and Hayashi, 1968) を示している。X 線回折パターンでは、底面反射以外に 4.5 Å, 2.57 Å, および 1.50 Å に強い反射が認められる。1.50 Å の反射は 2-8 面体型を示すものと考えられる。

イライトーモンモリロナイト混合層鉱物は第 3 表に示したように、2, 3 の試料を除いてほとんどの試料中に含まれているが、IVA 部層中部から上部にかけて、その量が少なくなっている。また、イライトーモンモリロナイト混合層鉱物を含む 19 個の試料について visual inspection 法によりモンモリロナイト成分層のおよその割合を求めると 40% から 90% の値をとる。各試料につ

第 3 図 イライトーモンモリロナイト混合層鉱物 (試料 10) の各種処理後の定方位 X 線回折図。

UT: 無処理; EG: エチレングリコール処理; GI: グリセロール処理; 500: 500°C 1 時間加熱処理; C: 緑泥石; Q: 石英

いての結果を第 10 図に示し、成分層の割合の異なる 3 個の試料の X 線回折パターンを第 5 図に示す。同図より、X 線回折パターンは成分層の割合の変化にともない、モンモリロナイトに近いパターンを示す A から大きな相違を示す C まで、連続的に変化していることがわかる。顕微鏡下の観察によると、隠微晶質の石英とともに微細な結晶の集合をなし、おもに斜長石と火山岩片よりなる砂粒の間をうめている。

(2) 緑泥石鉱物

第 6 図に緑泥石鉱物を含む代表的な試料の X 線回折

第4図 イライトーモンモリロナイト混合層鉱物 (試料 10) の赤外吸収スペクトル。
Q: 石英による吸収。

図を示す。試料 09 (第6図のA) は定方位試料のX線回折により $14\text{ \AA}$, $7.1\text{ \AA}$, $4.72\text{ \AA}$, および $3.53\text{ \AA}$ に反射を示す。多くの場合, $14\text{ \AA}$ の反射はイライトーモンモリロナイト混合層鉱物の反射と重なるが, 第6図A-G に示したように, グリセロール処理によりイライトーモンモリロナイト混合層鉱物の回折線を移動させると, $14\text{ \AA}$ の反射が現れる。カオリン鉱物の混在の有無を調べるために塩酸処理を行なったが, 塩酸処理により $7.1\text{ \AA}$ と $3.53\text{ \AA}$ の反射は $14\text{ \AA}$ と $4.72\text{ \AA}$ の反射とともに消失するので, カオリン鉱物は混在していないと考えられる。また, 緑泥石の奇数次の反射 ($14\text{ \AA}$, $4.72\text{ \AA}$) は偶数次の反射 ($7\text{ \AA}$, $3.53\text{ \AA}$) に比べて弱く, 鉄を比較的多く含む緑泥石に同定される (Brindley and Gillery, 1956)。

B (試料 26) と C (試料 23) とは, 全体的な回折パターンは緑泥石のパターンとよく似ているが, $14\text{ \AA}$ の反射が特に強い。また, エチレングリコール処理を行なった場合, 回折線の位置がわずかに移動するので, これらの点についてさらに検討を行なった。第7, 8図に, 試料 23 と試料 26 の処理前と薬品処理, および加熱処理後の回折図を示す。薬品処理と加熱処理後の回折パターンでは, 処理前に見られた回折線とほとんど同じ位置に現れる底面反射に加えて, それとほとんど重なる別の底面反射が現れる。前者は緑泥石によるものであり, 後者は緑泥石ーサポナイト混合層鉱物によるものと考えられる (勝本・白水, 1973)。この回折パターンの変化を visual inspection による解釈とともに図に示した。緑泥石ーサポナイト混合層鉱物中の膨潤層は処理前には約 $15\text{ \AA}$ の厚さであるが, エチレングリコール処理後 $17\text{ \AA}$

に, グリセロール処理後 $17.8\text{ \AA}$ に膨潤し, 250°C での加熱により $9.6\text{ \AA}$ に縮むものであると考えられ, モンモリロナイトに類似した性質を示しており, また, 後述のように3-8面体型と考えられるのでサポナイトと呼ぶことにした。サポナイト層の割合は試料 23, 26 とともに, visual inspection によると, 薬品処理後の回折図からは50%前後, 加熱処理後の回折図からは30%前後と推定される。以上のように試料 23 と 26 は緑泥石と緑泥石ーサポナイト混合層鉱物との混合物であり, 赤外吸収スペクトルと示差熱分析曲線も, 緑泥石と緑泥石ーサポナイト混合層鉱物との混合物と解釈される。したがって, 両試料ともその中に含まれる緑泥石および混合層鉱物の性質はよく似ていると考えられるが, 試料 23 では26に比べて $14\text{ \AA}$ の反射が強く, 両者は底面反射の相対強度においてかなりの相違が認められる。この点を, $14\text{ \AA}$, $7\text{ \AA}$, $4.7\text{ \AA}$ の反射の相対強度の三角ダイアグラム (Oinuma *et al.*, 1972) にプロットし, Shirozu (1974) による黒鉱鉱床に伴う緑泥石鉱物のデータと比較した (第9図)。試料 23, 26 とともに $4.7\text{ \AA}$ の反射が弱く, これは後述の化学分析結果と相まって, 両試料の含鉄量が比較的多いためと考えられる。また, 試料 23 と 26 のプロット位置を比較すると, 後者は鉄・マグネシウム質緑泥石の領域に比較的近く, 前者ははかり離れている。この点は試料 23 が試料 26 に比して緑泥石ーサポナイト混合層鉱物を多く含むためと考えられる。試料 26 の不定方位試料では, hkl 反射が $4.60\text{ \AA}$, $2.66\text{ \AA}$, $2.50\text{ \AA}$, $2.13\text{ \AA}$, $1.544\text{ \AA}$ に現れ, この中, $2.50\text{ \AA}$ と $1.544\text{ \AA}$ の反射が比較的に強い。このような hkl 反射は緑泥石の $1b$ ($\beta=90^\circ$) 型のポリタイプの特徴である (Brown and Bailey, 1962)。

第5図 成分層の割合がそれぞれ異なる イライトーモンモリロナイト 混合層鉱物の 定方位X線回折図

Visual inspection 法によると A (試料 31), B (試料 02), C (試料 10) 中のモンモリロナイト層の割合はそれぞれ 90%, 70%, 40% である。図中の破線は回折線を中心を示し、数字はその d 値 (Å) を示す。C: 緑泥石; F: 長石; Q: 石英。

試料 23 は hkl 反射が $4.60 \text{ \AA}$, $2.64 \text{ \AA}$, $2.50 \text{ \AA}$, $2.44 \text{ \AA}$, $2.40 \text{ \AA}$, $1.540 \text{ \AA}$ に現れるが、緑泥石のポリタイプでは説明できない。前者の $1.544 \text{ \AA}$, 後者の $1.540 \text{ \AA}$ の反射は、両者が 3-8 面体型であることを示すと考えられる。

試料 23 と 26 の化学分析値を第 4 表に示す。分析試料中には緑泥石鉱物以外にごく少量の石英と長石を不純物として含んでいる。この分析値はこれらの緑泥石鉱物が

第6図 各種緑泥石鉱物の定方位X線回折

A: 試料 09; A-G: 試料 09 のグリセロール処理; B: 試料 26; C: 試料 23; I: イライトーモンモリロナイト混合層鉱物。

鉄を多く含むことを示している。

緑泥石鉱物は、2, 3 の試料を除いて、イライトーモンモリロナイト混合層鉱物とともにほとんどの岩石試料中に含まれているので、緑泥石ーサポナイト混合層鉱物の有無を調べるために、緑泥石鉱物を含む 24 試料について、エチレングリコール処理を行ない緑泥石鉱物の回折線の移動を調べた。これは緑泥石による底面反射と緑泥石ーサポナイト混合層鉱物による底面反射が近接しているために、両者の回折線が重なったものを 1 つの回折線

第7図 緑泥石鉱物(試料 23)の各種処理後の定方位 X線回折図

UT: 無処理; EG: エチレングリコール処理; GI: グリセロール処理, 250: 250°C 1時間加熱処理。各回折ピーク中の実線は緑泥石の回折線の中心を示し、破線は緑泥石サポナイト混合層鉱物の回折線の中心を示す。

として取扱うものであるが、エチレングリコール処理により回折線が移動すれば、緑泥石-サポナイト混合層鉱物を含むと考えることができる。用いた回折線は 7.1 Å と 3.5 Å の反射で、エチレングリコール処理による回折

第8図 緑泥石鉱物(試料 26)の各種処理後の定方位 X線回折図
記号は第7図に同じ。

線の移動の大きさを表わす値として、両回折線間の距離の増加 ($d2\theta$) を採用した。エチレングリコール処理により、7.1 Å の回折線は低角度側に、3.5 Å の回折線は高角度側に移動するので、この距離の増加は両回折線の移動の和に相当する。結果を第10図に示す。この図でわかるように、下位の層準の岩石中の緑泥石鉱物の $d2\theta$ は零であり、これらが緑泥石のみよりなるのに対し、上位の層準の岩石中には緑泥石-サポナイト混合層鉱物を

第9図 緑泥石鉱物 (試料番号 23 と 26) の 14.7 Å, 7.0 Å, 4.7 Å の底面反射の相対強度を示す三角ダイヤグラム
A, B, C は Shirozu (1974) による黒緑泥石に伴う緑泥石鉱物の領域。A: Mg 緑泥石; B: Mg 緑泥石-サポナイト混合層鉱物; C: Fe-Mg 質緑泥石

第4表 緑泥石鉱物 (緑泥石と緑泥石-サポナイト混合層鉱物の混合物) の化学分析値

	23	26
SiO ₂	32.02	32.00
TiO ₂	0.48	0.57
Al ₂ O ₃	16.26	17.17
Fe ₂ O ₃	12.77	7.03
FeO	7.81	15.20
MnO	0.45	0.45
MgO	10.86	11.36
CaO	0.05	0.03
Na ₂ O	0.61	0.76
K ₂ O	0.26	0.31
H ₂ O ⁺	9.79	9.63
H ₂ O ⁻	9.21	4.98
Total	100.57	99.49

23: 試料 23 (IVA 部層の黄灰色凝灰質細粒砂岩の主として砂粒の間に生成); 26: 試料 26 (IVB 部層の緑灰色凝灰質砂岩の主として砂粒の間に生成)。分析試料中にはいずれも不純物として少量の石英と長石を含む。

含むことがわかる。

顕微鏡下での観察によると、緑泥石鉱物はおもに斜長石と火山岩片よりなる砂粒の間の石基部に生じており、一部では、斜長石や火山岩片を交代している。多くの場合、不規則な外形を持った微細な結晶の集合をなすが、一部では、砂粒の表面から砂粒の間隙の方向に伸びた板状結晶の並行集合をなしている。

(3) その他の粘土鉱物

第10図 堆積岩の各層準を構成する主な粘土鉱物と沸石

Ill/Mont: イライト-モンモリロナイト混合層鉱物、横線はモンモリロナイト成分層の割合を示す; Chl Min: 緑泥石鉱物、横線はエチレンジアミン処理による回折線の移動の大きさ $\Delta 2\theta$ (Cu K α 線を用いた場合) を示す; H: 輝沸石; L: 濁沸石。

今回検討を行なった岩石を構成する粘土鉱物のほとんどは、イライト-モンモリロナイト混合層鉱物と緑泥石鉱物からなっている。しかし、その他に、IB 部層の紫赤色頁岩からイライト-モンモリロナイト混合層鉱物に伴ってカオリン鉱物が、また IC 部層中の礫の変質部にセラドナイトが認められた。

カオリン鉱物は、7.2 Å と 3.56 Å の底面反射を示す。この値は緑泥石の 002, 004 の反射の d 値よりやや大きい。また、1.7% の塩酸で 30 分処理を行なった後でも、底面反射の変化は認められない。

IC 部層は直径 5 cm 前後の礫を含む礫岩であるが、その中の一部の礫の周囲は幅 1~2 cm にわたって変質しており、この変質部分に 1 mm 前後の斑点状をなす青緑色のセラドナイトが認められる。セラドナイトについては、hand picking により分離したものを X 線回折と赤外吸収分析を行なって同定した。本鉱物は X 線回折により、9.9 Å, 4.96 Å, 3.30 Å, および 1.98 Å に底面反射を示し、それぞれの反射の相対強度は、100, 10, 47, および 8 である。

6. 考察およびまとめ

堆積岩中に含まれる沸石と粘土鉱物を柱状図にまとめると第10図のようになる。濁沸石が含まれるのは下位の層準に限られており、上位の層準では輝沸石のみが含まれる。また、緑泥石鉱物は、下位の層準では緑泥石のみからなるのに対し、上位の層準では緑泥石と緑泥石—サポナイト混合層鉱物とからなっている。イライト—モンモリロナイト混合層鉱物中のモンモリロナイト成分層の割合は全体的に大きく、沸石や緑泥石鉱物に見られるような上下で異なる傾向は認められない。以上の結果より、本地域の堆積岩は変質を被ったことが明らかである。その変質の程度は、沸石では、輝沸石が優勢であり、輝沸石—方沸石亜相（関，1968）に相当すると考えられ、緑泥石鉱物では、 I_b ($\beta=90^\circ$) 型緑泥石と緑泥石—サポナイト混合層鉱物によって特徴づけられ、雲母粘土鉱物では、膨潤度の多いイライト—モンモリロナイト混合層鉱物によって特徴づけられている。また、層準の変化に伴い沸石と緑泥石鉱物に変化が認められ、下位の層準が上位の層準に比べ変質の程度が高いことを示している。本地域の堆積岩中の肉眼的に認められる沸石、特に輝沸石と束沸石はこの変質作用に伴い地下水等の作用によって生成したものと推測される。また、濁沸石の細脈は輝沸石、束沸石の生成後に出来たものと考えられる。以下に今回の研究で得られた結果をまとめると次のようになる。

(1) 津屋崎町付近の第三紀層、およびその基盤岩である花崗閃緑岩中に肉眼的に認められる沸石は輝沸石、束沸石、および濁沸石である。また、堆積岩の基質や長石の砂粒を交代して濁沸石および輝沸石が生じており、この沸石は本地域の堆積岩が関（1968）による輝沸石—方沸石亜層の程度の変質作用を被ったことを示している。

(2) 半島の西海岸に露出する各層準の地層から採集した岩石を構成する粘土鉱物は、イライト—モンモリロナイト混合層鉱物と緑泥石鉱物を主とし、一部の地層からカオリン鉱物、およびセラドナイトが認められた。

イライト—モンモリロナイト混合層鉱物は visual inspection 法によると、モンモリロナイト成分層を40%から90%含むものであり、その割合は試料によって変化している。

緑泥石鉱物は鉄を比較的多く含む緑泥石と緑泥石—サポナイト混合層鉱物よりなる。緑泥石—サポナイト混合層鉱物中のサポナイト層の割合は50%ないし30%と推定される。なお、試料によって緑泥石と緑泥石—サポ

イト混合層鉱物との割合は種々であり、緑泥石の割合が大きい試料では、緑泥石の I_b ($\beta=90^\circ$) 型のポリタイプを示す。

(3) 堆積岩中に含まれる沸石と粘土鉱物を柱状図にまとめると第10図のようになり、層準の変化に伴い沸石と緑泥石鉱物に変化が認められ、下位の層準が上位の層準に比べ変質の程度が高かったことを示している。

引用文献

- Brindley, G.W. and Gillery, F.H. (1956), X-ray identification of chlorite species, *Amer. Mineral.*, **41**, 161-186.
- Brown, B.E. and Bailey, S.W. (1962), Chlorite polytypism: I. Regular and semirandom one-layer structures, *Amer. Mineral.*, **47**, 819-850.
- Coombs, D.S. (1952), Cell size, optical properties and chemical composition of laumontite and leonhardite, *Amer. Mineral.*, **37**, 812-830.
- Harada, Z. (1936), Chemische Analyseresultate von japanischen Mineralien, *J. Fac. Sci., Hokkaido Univ.*, Ser. IV, **3**, 223-362.
- 勝本憲夫, 白水晴雄 (1973), 島根県 隠岐 鉢山の 石膏 鉱床に伴う 緑泥石 鉱物, 九大理研報, **11**, 231-241.
- Mumpton, F.A. (1960), Clinoptilolite redefined, *Amer. Mineral.*, **45**, 351-369.
- Oinuma, K. and Hayashi, H. (1968), Infrared spectra of clay minerals, *J. Toyo Univ., Gen. Educ.*, No. 9, 57-98.
- Oinuma, K., Shimoda, S. and Sudo, T. (1972), Triangular diagrams for surveying chemical compositions of chlorites, *J. Toyo Univ., Gen. Educ.*, No. 15, 1-33.
- 岡田博有, 小島郁生 (1963), 福岡市北方, 津屋崎町付近の古第三系, 九大理研報, **7**, 75-83.
- 岡本要八郎 (1944), 福岡県 鉱物誌, 1-208, 日本鉱物趣味の会, 京都.
- 関陽太郎 (1968), グリーンタフ地域の変質作用についての一考察, 岩鉱, **59**, 118-123.
- Shirozu, H. (1974), Clay minerals in altered wall rocks of the Kuroko-type deposits, *Mining Geology Spec. Issue*, No. 6, 303-310.
- 高橋 清 (1962), 津屋崎古第三紀層にみられる花粉群とその地質学的意義, 九州鉱山学会誌, **30**, 378-382.
- 竹原平一 (1937), 福岡県宗像郡津屋崎付近の地質, 九州帝大工学集報, **12**, 263-276.