九州天草の泥質岩の粘土鉱物組成と アルカリ含有量

三 木 孝*

(昭和52年7月21日受理)

Clay Mineral Assemblages and Na_2O - K_2O Contents in Argillaceous Rocks distributed in Amakusa, Kyushu

By
Takashi MIKI

Abstract: Clay mineral assemblages and Na_2O - K_2O contents in 30 samples of fine-grained sedimentary rocks collected in Amakusa, western Kyushu, were examined. The analyzed results were supplemented by sedimentary petrographical data of sandstones already published.

Detailed examination of clay minerals with microscope and X-ray diffractometer indicates that the present clay mineral assemblages which characterize each formations have been primarily controlled with the kinds of source rocks and thereafter modified by their diagenetical alterations.

Na_2O contents are almost uniform in the whole formations. K_2O contents are mutually related to the change of illite contents, and finely represent the feature of formations. Na_2O and K_2O contents in the rocks of formations formed in large and stable basins fall in the narrow area on the graph, while those deposited in unstable basins widely scatter.

Clay mineralogical and chemical studies of sedimentary rocks will help the further detailed sedimentological investigation of rocks in future study.

1. ま え が き

堆積岩の供給源岩, 生成環境, 続成変化などを研究するに当っては, 従来から行なわれてきたように岩相, 化石, 重鉱物組成などによる検討に加えて, 粘土鉱物組成や化学組成など鉱物学的, 地球化学的手法によるアプローチもまたきわめて重要であることはいうまでもない。このような堆積岩の地球化学的研究は比較的近年になって活発に行なわれるようになり, 裏日本含油新第三系(加藤・阿部, 1956), 北海道含炭古第三系(小林・生沼, 1960; 生沼・小林, 1961), 中国・四国地方泥質岩(稲積, 1971 a, 1971 b, 1975), 本州各地の古生層(原村, 1961 a, 1961 b, 1962)などを対象とした研究成果が報告されている。しかしながら, 九州においてはこの種の研究は現

在まで余り行なわれておらず, したがって議論の素材となるべき基礎データも十分には揃っていない。筆者はかねてから, 堆積岩の地球化学的研究を進めており, 九州における特徴的な地層である古第三系紫赤色岩についての検討結果をすでに報告した(三木・松枝; 1974, 1977)が今回は, 通常の黒色泥質岩を材料として, その粘土鉱物組成とアルカリ含有量とを検討した。研究材料として, 西九州天草の白亜系, 古第三系, 第四系の泥質岩を使用したのは, 後に述べるように, 堆積環境や供給源岩の変化に富む試料が得られること, また従来の研究によって種々の地質的情報がすでにかかなりの程度まで知られていること(例えば松下, 1949; 波多江, 1960; MIKI, 1975)などの利点があるためである。今回の検討結果からは, 試料数も少ないので, まだ断定的な結論を導くまでには至っていないが, 今後継続する研究の第1報として本論をまとめた。

* 九州大学理学部地質学教室

2. 試 料

今回の研究に使用した試料の分布は第1図および第2図に示した。合計30個の試料のうち3個は試錐試料、他は地表試料である。地表試料の採取に当っては、断層、火成岩による熱影響などのない個所を選び、できるだけ同じ粒度の新鮮な部分を取るよう努め、また、その地域、地層に一般的な黒色頁岩を選ぶようにしたが、佐伊津層試料には凝灰質岩が含まれ、また赤崎層試料は紫赤色頁岩である。

天草地域の地質系統は、結晶片岩を主とする古生界、これを貫く先白亜紀花崗閃緑岩、これらと不整合および一部断層で接する白亜系、これを不整合に被う含炭古第三系、およびこれらの地層と不整合関係をもって累重する第四系とからなる。さらに部分的ではあるが数種の新第三紀火成岩類も存在する。白亜系は姫ノ浦層群と呼ばれ、上島に分布する下部亜層群と下島に発達する上部亜層群とに2分される(田代・野田, 1973)が、いずれも *Ammonite*, *Inoceramus* などを含む海成層である。古第三系は赤崎層に始まり白岳層(福連木層)、教良木層(志

岐山層)、砥石層、一町田層を経て坂瀬川層に終る、全層厚2,000mに達する含炭層である(MIKI, 1975)。赤崎層は陸成層と考えられる特徴を示す地層であり(三木・松枝, 1974)、その上には福連木層～志岐山層と海成層が発達するが、その後には石炭層を含む砥石層が形成される。砥石層はごく一部には海成貝化石の産出をみることもあるが、炭層の発達状況からみて、西側に物質供給陸地をひかえた陸水域ないしは内湾に形成された淡水～汽水成層とみることができる。一町田層、坂瀬川層は含有化石からみて明らかに公海性の堆積物からなる。天草地域にかなりの面積を占めて分布する第四系は、佐伊津層その他の更新統(大塚, 1970)であり、これらは含有される花粉、珪藻化石などから淡水成層であると考えられている。

これらの堆積岩の供給源岩については重・軽鉱物組成の面から検討が行われており、白亜系は酸性～中性火成岩を主とし、一部変成岩を起源とするものであり、古第三系赤崎層は大部分結晶片岩、福連木層～坂瀬川層は古期の砂岩、頁岩などを起源とするものと推定されている(三木・松枝, 1974; MIKI, 1975)。また佐伊津層は

第1図 試料採取位置図

第2図 柱状図

火山噴山物と砂岩、頁岩などの堆積岩を源岩とするものである（大塚，1970）。

3. 分析方法ならびに結果

3.1. 顕微鏡による検討

粘土鉱物、アルカリ含有量の検討に先立ち、同一試料の薄片について偏光顕微鏡による検討を行なった。そのうち半数の15試料については、主要構成々分を鏡下で積分器を用いて定量した。その結果は第1表に示す通りで、直径 50μ 以上の粒子については、石英、長石、岩片を区別している。なお、粗粒のイライトやクロライトはその他（others）に、また細粒の粒子は基質（matrix）に入れた。主要構成鉱物の特徴は次のようである。石英は直径 50μ 程度の碎屑粒として存在するものが多いが、さらに細粒となり、基質を構成するものも多い。円磨度は sub-angular~sub-rounded で、新鮮である。長石として一括したものの中には、カリ長石、斜長石の両方が含まれるが、量的には後者の方が多い。粗粒の碎屑粒として認められるものは石英と同様 sub-angular~sub-rounded 程度に円磨されており、部分的にイライト化していることがある。イライト、クロライトなどの粘土鉱物は碎屑粒として存在するものも多いが、特にイライトには、長石の劈開に沿って生じたり、基質中に形成されるなど、明らかに後成的に生じているものもかなり認められる。碎屑性のイライトは多くは葉片状を呈する。

本地域の白亜系~第四系の各地層群は、従来の資料から、それぞれ供給源岩を異にする姫ノ浦層群、赤崎層、白岳層~坂瀬川層、佐伊津層の4グループに分けられることはすでに述べたが、これらの源岩組成を本文中では、便宜的にそれぞれ A, B, C, D 型と呼ぶことにする。このような源岩組成の識別は、主として砂岩、礫岩など粗粒岩の堆積岩岩石学的な研究結果に基づくものである。この結果を、砂岩、礫岩に近接して累重するとはいえ、泥質岩に直ちに適用することにはなお問題が残るかも知れない。しかし今回用いた試料では、各地層中の砂岩と頁岩との間で供給源岩、すなわち後背地の地質状況が頻繁に変化したことを示す積極的な証拠はまったく

第1表 主要構成々分組成表

Sample No.	Formation	Modal Percentages of Major Constituents				
		Quartz	Feldspar	Rock Fragments	Matrix	Others
K-1	Sakasegawa	11.0	11.2	14.9	50.3	12.6
K-2	Sakasegawa	13.5	9.1	24.3	47.9	5.2
K-3	Sakasegawa	9.9	6.8	11.2	64.3	7.8
K-6	Kyōragi	9.0	3.4	10.2	66.6	10.8
K-10	Akasaki	4.0	5.5	9.3	79.8	1.4
S-1	Saitsu	3.5	1.8	7.5	71.8	15.4
S-3	Saitsu	4.4	3.2	9.1	68.8	14.5
S-4	Sakasegawa	16.4	9.7	14.7	53.3	5.9
S-6	Sakasegawa	7.5	6.0	14.0	60.2	12.3
S-8	Sakasegawa	8.4	3.8	9.1	73.2	5.5
S-10	Toishi	7.5	3.9	10.3	60.8	17.5
S-11	Shikiyama	19.9	7.9	17.7	45.3	9.2
S-15	Shikiyama	4.4	2.8	5.6	75.1	12.1
S-16	Shikiyama	16.2	5.7	16.3	45.8	16.0
S-18	Himenoura	5.5	6.5	24.2	54.5	9.3

第3図 顕微鏡写真

0 0.3mm

f: 長石, q: 石英, i: イライト

1. 試料K-1, 長石(白色部)は変質してイライト(灰白色部)化が進んでいる。基質部は自生のイライト
2. 試料S-11, 碎屑性のイライトが含まれる
いずれも平行ニコル

第4図 石英—長石—岩片3成分図

ないので、ここでは、上記のA～D型の源岩組成が泥質岩にも当てはまるものと仮定して考察を進めた。参考までに、通常の砂岩組成を示す場合と同じ方法で、第1表から計算した石英、長石、岩片の3成分比をそれぞれ端成分とする3角図にプロットした(第4図)。この3成分比は、泥質岩中の粗粒部分の比であって、全体の12.8～46.9%の体積部分の比でしかない。しかしながら、この3成分の比は、各泥質岩層に近接した砂岩層について得られた結果(MIKI, 1972, 1975)と特に矛盾する傾向はないので、上記の源岩の違いは少なくとも今回用いた泥質岩についても当てはまると考えてよいであろう。

3.2. 粘土鉱物組成

粘土鉱物の同定は以下の方法に従って行なった。軽く粉碎した試料から4分法によって約10gを選別し、超音波処理(50 kHz, 15分)によって粒子の分散を行なった。ついで、水ひ法により粒径 2μ 以下の粘土分を採集した。こうして得られた試料をスライドガラス上に塗布して定方位試料とし、X線分析に使用した。さらに塩酸処理、

第5図 代表的試料のX線パターン

第2表 粘土鉱物組成

		montmorillonite	chlorite	chlorite-montmorillonite mixed layer	illite-montmorillonite mixed layer	illite	kaolin	type of source rocks
Saitsu-F.	S-1	+++						D
	S-2			++		++	-	
	S-3							
	S-4		++		+++	++		C
	S-5		+++	++	+++	+++		
	S-6		+++		+++	+++		
	S-7		+++		+++	+++		
	S-8		+++	++	+++	+		
	K-1		++		+++	-		
	K-2		+		++	-		
Toishi-F.	S-9				++	+++		C
	S-10		+		+++	+++	-	
	S-11		++		+++	++		
	S-12		+++		++	+++		
	S-13		+++		++	+++		
	S-14		+++		++	+++		
	S-15		++		+++	+++		
	S-16		++		+++	+++		
	S-17		+++		+++	+++		
	K-4		+++		++	+++		
Akasaka-F.	K-7		+++		-	+		B
	K-8		++		-	+		
	K-9		++		-	+		
	K-10		+++		-	++		
	K-11		+++		-	+		
Himenoura-G.	S-18		++			++		A
	S-19		+++			++		

+++ : abundant, ++ : common, + : less, - : present

れるだけであり、クロライト-モンモリロナイト混合層鉱物も佐伊津層と坂瀬川層上部に存在するだけである。これに対してイライトおよびイライト-モンモリロナイト混合層鉱物は全層にわたってほぼ普遍的に分布するが、特に志岐山層中に多量に認められる。カオリンは部分的にきわめて少量認められるに過ぎない。クロライトは坂瀬川層から姫ノ浦層群まで多量に含まれるが、これらはすべて7 Å付近の反射強度が14 Åおよび3.5 Å付近のものより強いことから、Fe クロライトおよび FeMg クロライトに相当する。

各粘土鉱物の相対的量比を地層別に整理して表わしたのが第2表である。この表で明らかのように、各層は上記6種の粘土鉱物の組み合わせと量比によってきわめて明瞭に特徴付けられる。すなわち、佐伊津層はモンモリロナイトだけから成る試料と、クロライト-モンモリロナイト混合層鉱物、イライトおよび少量のカオリンから成る試料とに分けられる。坂瀬川層は、イライトおよびこれよりも量的に勝るイライト-モンモリロナイト混合層鉱物とクロライト、クロライト-モンモリロナイト混合層鉱物とからなる。砥石層はイライト-モンモリロナイト混合層鉱物とイライトを多量に含む。また、少量ではあるがカオリンも含まれる。志岐山層にクロライトが多いことは他の層と同様であるが、イライト-モンモリロナイト混合層鉱物に比べてイライトの量が増加する。赤崎層はクロライトは多量に含むが、イライトを余り含まないのが特徴で、また少量ながらカオリンの存在が認められる。姫ノ浦層群はクロライトとイライトを多量に含む。

3.3. アルカリ含有量

粘土鉱物の検討に用いた30個の泥質岩試料について Na_2O 、 K_2O 含有量を測定した。数gの粉末試料から4分法で得られた約0.5gの試料を通常の硫酸-弗酸法によって分解し、EKO N-A型蛍光光度計で比色法により定量した。得られた分析値は第3表に示した。 Na_2O は0.25~2.36 wt.%の範囲にあるが、大部分は0.83~1.91 wt.% とはほぼ1%付近に集まる。一般的に、佐伊津層(1.05~1.49 wt.%), 砥石層(0.25~1.05 wt.%), 志岐山層(0.83~1.60 wt.%)の3層の泥質岩が他の層のものに比べて低い値を示す。 K_2O は0.51~4.66 wt.% と N_2O に比べて著しく変化に富む。しかし、 Na_2O 値が低い砥石層および志岐山層が、2.24~4.66 wt.% と高い K_2O 値を示す傾向がある。

Na_2O と K_2O との関係(第6図)を見ると、非海成層である佐伊津層、砥石層、赤崎層試料の分析値がきわめて不規則に広範囲に散在するのに対して、海成層である坂瀬川層、志岐山層、姫ノ浦層群の試料はそれぞれ、比

エチレングリコール処理を併用して鉱物種の同定を行なった。測定条件は次の通りである。使用X線 $\text{Cu-K}\alpha$, 励起電圧 30 kV, 管電流 10 mA, 時定数 2 sec, スリット系 1° -0.4 mm- 1° , 記録紙速度 1.0 cm/min, 走査速度 2° /min。

X線分析の結果、モンモリロナイト、クロライト、クロライト-モンモリロナイト混合層鉱物、イライト-モンモリロナイト混合層鉱物、イライト、カオリンの6種類の鉱物種が同定された。ここでイライトとしたのは、 d 値が10 Å付近のピークがシャープなものである。それよりも d 値が若干大きく、ピークがブロードで、エチレングリコール処理によってピークが多少とも移動するものはすべてイライト-モンモリロナイト混合層鉱物とした。クロライト-モンモリロナイト混合層鉱物としたのは、第1次反射の d 値がクロライトのそれより大きく、エチレングリコール処理によって若干ピークの位置が移動するものである。

モンモリロナイトは佐伊津層の1試料(S-3)に認めら

第3表 Na₂O, K₂O 分析値

		Na ₂ O (wt.%)	K ₂ O (wt.%)	Na ₂ O/K ₂ O
Saltzu-F.	S-1	1.49	2.13	0.70
	S-2	1.05	1.45	0.72
	S-3	1.23	0.80	1.54
Sakasegawa-F.	S-4	1.70	2.02	0.84
	S-5	1.53	1.84	0.83
	S-6	1.91	1.61	1.19
	S-7	1.28	1.46	0.88
	S-8	1.65	1.78	0.93
	K-1	1.75	1.93	0.91
	K-2	1.76	1.62	1.09
	K-3	1.86	1.88	0.99
Toishi-F.	S-9	0.25	4.66	0.05
	S-10	1.05	3.31	0.32
Shikiyama-F.	S-11	1.60	2.30	0.70
	S-12	1.24	2.38	0.52
	S-13	1.23	2.28	0.54
	S-14	1.03	2.91	0.35
	S-15	1.41	2.45	0.58
	S-16	1.12	2.52	0.44
	S-17	1.13	2.24	0.50
	K-4	0.92	2.81	0.33
	K-5	0.83	3.46	0.24
	K-6	0.91	2.78	0.33
Akasaki-F.	K-7	2.36	0.51	4.63
	K-8	1.52	1.67	0.91
	K-9	1.50	1.75	0.86
	K-10	1.63	1.73	0.94
	K-11	1.66	1.86	0.89
Himenoura-G.	S-18	1.76	3.02	0.58
	S-19	1.39	2.78	0.50

第6図 Na₂O-K₂O⁻図(A~Dは源岩組成)

較的近似した値を示し、小範囲にまとまる傾向がある。
すなわち粘土鉱物組成と同様にアルカリ含有量でも各層ごとの特徴が表われているといえることができる。

4. 考 察

今回検討した姫ノ浦層群から佐伊津層に至る各層は、これまでの多くの重鉱物組成や礫組成による検討結果(三木・松枝, 1974; MIKI, 1975)から、供給源岩を異にする4つのグループに分類できることはすでに述べた。次に堆積環境としては、これもすでに述べたように、主として化石上の資料から、本地域は非海成の赤崎層、砥石層、佐伊津層と、海成の姫ノ浦層群、志岐山層、坂瀬川層との交互層から成ることが知られている。以上のように本地域の地層は、供給源岩、堆積環境の変化に富むといえることができる。

粘土鉱物は第2表で明らかなように、互いに異なる組成が区別されるが、その各組成は上記4グループに対応しているように見えるし、顕微鏡下での観察によっても量的なばらつきはあるものの、碎屑性のイライト、クロライトの存在が確認されるので、これら粘土鉱物組成の差異は供給源岩の影響を受けていることは確かである。クロライト、クロライト-モンモリロナイト混合層鉱物をクロライト類、イライト、イライト-モンモリロナイト混合層鉱物をイライト類として考えると、姫ノ浦層群では両者がほぼ等しいのに対して、赤崎層ではクロライト類が多く、志岐山層-坂瀬川層では砥石層を除いてはイライト類が多いということがわかる。この事実は、堆積後の変質、変成ということはあるにしても、クロライト類とイライト類という異なる化学組成を有する鉱物種によって示される源岩の化学組成の差が初生的に存在していたことをある程度暗示するものであろう。このように地層堆積時の源岩組成が粘土鉱物組成に影響していることは考えられるが、現在見られる粘土鉱物組成が源岩にのみ左右されているとは考えられない。顕微鏡下でも長石の劈開に沿って生成しているイライトや、基質部を埋める自生のイライトなど、明らかに続成作用進行時に2次的に生成したと思われる粘土鉱物が比較的多量に認められるし、源岩組成では同一グループと考えられる志岐山層、砥石層、坂瀬川層で、上位の坂瀬川層から下位の志岐山層に向ってイライト-モンモリロナイト混合層鉱物の量が減少して、次第にイライトの量が増加することや、混合層鉱物についても、上位から下位へとd値が減少する、すなわちモンモリロナイト層の割合が減少し、イライトに近づく傾向を示す(第7図)ことは、現在見られる粘土鉱物組成が続成変化の影響を受けていることを示しているものと考えられる。粘土鉱物は続

第7図 イライト-モンモリロナイト混合層鉱物の第1次反射の位置の変化

成作用の進行に伴って、一般にはモンモリロナイトからイライト-モンモリロナイト混合層鉱物を経てイライトへと変遷の過程をたどるものと考えられている（青柳・小林・風間，1975，他）。今回の結果はそのような考え方に基本的には矛盾しないが、碎屑性粘土鉱物が比較的多く混在するために、続成変化の影響がそれほど明瞭には読み取れないものと解釈される。青柳・浅川（1977）は、モンモリロナイトが続成作用によって混合層鉱物を経てイライトに変化するには、それぞれ約2,800m, 4,100mの埋没深度が必要であると述べている。もしそうすれば、本地域の古第三系は最大2,000m程度の厚さしかないで、過去にはさらに上位にかなりの厚さの堆積物が累重していた可能性も推察され、今後の研究が必要である。一方、カオリンは部分的に少量認められるに過ぎないが、それらは主として非海成の地層に含まれることは従来の考え（例えば DUNOYER DE SEGONZAC, G., 1970）と矛盾しない。

アルカリ含有量については、前述したように Na_2O については地層ごとの差は顕著ではないが、 K_2O についてはかなり明確な差が認められる。今回使用した試料の顕微鏡およびX線による検討の結果、 Na_2O を含む主要な鉱物としては斜長石を、 K_2O を含むものとしてはカリ長石およびイライトを考えれば良い。 Na_2O は全体としてそれほど変化がないので、斜長石はほぼ似たような含有量であったと推定されるが、 K_2O はきわめて変化に富

むことから、カリ長石とイライトの合計量が試料によってかなり異なっていることがわかる。イライトを多く含む砥石層、志岐山層は K_2O 含有率が高く、イライトを余り含まない赤崎層では低いので、 K_2O はイライトの含有量に最も強く、次いでカリ長石の含量に支配されていることが考えられるが、顕微鏡下で、イライトには碎屑性のものや、カリ長石からの変質によるものなどが多く見られるので、 K_2O （イライト+カリ長石）は第一義的には供給源物質の影響を強く受けていると考えられる。重鉱物組成などから同一源岩起源と考えられる志岐山層～坂瀬川層でも、 Na_2O , K_2O 組成は地層ごとにより異なっているが、このことは最初に述べたように、砂岩の検討結果から推定される源岩組成が泥質岩にも適用できるとするならば、同一源岩での場所による鉱物組成の差など、より細かな堆積状況の差を示しているものと解釈される。また第6図で明らかなように、地層によって分析値が散在する場合と、小範囲に集中する場合とがある。すなわち、佐伊津層、砥石層、赤崎層は分析値が広範囲にプロットされるのに対して、坂瀬川層、志岐山層、姫ノ浦層群では分析値は小範囲に集中している*。このことは、前者は非海成層で、きわめて局所的な供給源物質の鉱物組成の違いや、物質運搬経路の違いによって堆積物の性質の違いを生じ得る小規模な堆積盆地で形成された地層であり、後者は公海性の、堆積状況に変化の少ない安定した比較的規模の大きな堆積盆地で形成された地層であるという、地質的背景と対応している。類似のことは稲積（1975）、片田・神戸・大森（1974）によって、中国地方中生層頁岩や、登米層群泥質岩についても指摘されているが、本地域でも同様に、アルカリ組成の細かな数値が堆積状況の安定性を暗示しているのか、あるいは、前述の志岐山層～坂瀬川層間での Na_2O , K_2O 値の差異と考え合わせると、砂岩と泥質岩とは源岩組成が異なっていたのか、今後試料数を増して、より詳しい検討を行なうことが必要である。

5. ま と め

堆積岩の粘土鉱物組成や化学組成は供給源岩や堆積環境、風化・続成作用などの進行に伴う2次的変化など多くの要因に支配されると考えられるので、現在見られる粘土鉱物組成や化学分析値から、それら各要因についての詳細を知することは容易ではない。今回は、まず重・軽鉱物組成と化石資料とから砂岩についての供給源岩、堆積環境を知った上で、顕微鏡観察、X線回析によって、

* K-4, 5, 6は上島で採取した試料であり、下島で得られた他の志岐山層試料と組成が若干異なるのは、地域的な差を示しているものと考えられる。

これら砂岩と共生する頁岩の粘土鉱物組成を検討し、さらに化学分析による Na_2O , K_2O の含有量について若干の考察を行なった。

検討した各層は粘土鉱物組成によって特徴づけられ、その組成の変化は、砂岩の検討結果に基づいて推定されている源岩組成の変化に対応しているようである。他方、粘土鉱物の顕微鏡やX線による詳しい検討は、続成変化による2次的生成の粘土鉱物があることを示しており、現在各層間に見られる粘土鉱物組成の差は、源岩組成の違いと、続成変化の程度の差を示しているものと考えられる。しかし、堆積環境の指示鉱物としては、今回用いた試料ではカオリンはそれほど有力でない。 Na_2O , K_2O 組成も地層ごとの特徴を示しており、また、分析値のばらつきの程度と堆積盆地の安定度が対応していることが認められる。今回は、主として砂岩の重鉱物組成から推定されている源岩組成が泥質岩にも当てはまるものと考えて考察を進めたが、特に砥石層のように、粘土鉱物組成、アルカリ含有量がともに同一源岩とされている上下の地層とかなり異なることは、同一地層中でも砂岩と泥質岩とでは源岩に違いがあるという可能性を示していないとは即断できず、また、今回使用した試料がその地層を代表していない危険性もあるので、今後は試料数を増すとともに、従来の砂岩研究の立場とは別の観点から泥質岩を検討することも大切であろう。

6. 謝 辞

本稿をまとめるに当たり、種々ご助言をいただき、校閲の労を取っていただいた九州大学理学部の高橋良平教授に感謝する。この研究を行なうに際しては、秋田大学鉱山学部の松枝大治氏と高知大学理学部の東 正治氏から多大のご援助を得た。また島田允堯博士を初め、九州大学理学部地質学教室の方々から多くのご助言、ご討論を得た。ここに深く謝意を表する。

引用文献

- 青柳宏一・小林 登・風間利栄(1975): 本邦含油第三系および白亜系堆積岩中の粘土鉱物, 須藤俊男教授記念論文集, 167-172.
- 青柳宏一・浅川 忠(1977): 継変作用下における炭化水素の第1次移動, 石技誌, 42巻, 2号, 76-89.
- DUNOYER DE SEGONZAC, G. (1970): The Transformation of Clay Minerals during Diagenesis and Low-grade Metamorphism: A Review, *Sedimentology*, vol. 15, 281-346.
- 原村 寛(1961a): 古生層の粘板岩の化学組成. I. 三波川変成帯より太平洋側の地域, 地質雑, 67巻, 794号, 618-622.
- 原村 寛(1961b): 古生層の粘板岩の化学組成. II. 長野県辰野・塩尻地方, 地質雑, 67巻, 795号, 671-675.
- 原村 寛(1962): 古生層の粘板岩の化学組成. III. 西日本内帯の3地域, 地質雑, 68巻, 796号, 29-32.
- 波多江信広(1960): 天草下島南半部の地質と地質構造, 鹿大理科報告, 9号, 61-107.
- 稲積章生(1971a): 四国地方頁岩および粘板岩の化学組成, 日化誌, 92巻, 4号, 326-330.
- 稲積章生(1971b): 四国地方頁岩および粘板岩中のバナジウム, ニッケルおよびクロム, 日化誌, 92巻, 4号, 331-334.
- 稲積章生(1975): 中国地方の中生層頁岩の化学組成, 香川大教育研報, 25巻, 2号, 43-55.
- 片田正人・神戸信和・大森えい(1974): 南部北上山地二疊紀登米相泥質岩の Na_2O と K_2O , 地調月報, 24巻, 5号, 233-242.
- 加藤磐雄・阿部正宏(1956): 石油母岩の研究(第1報). 新庄盆地北縁部の主として最上層群中に発達する海成油母岩層について(その1), 岩鉱, 40巻, 5号, 169-177.
- 小林和夫・生沼 郁(1960): 北海道石狩炭田上砂川地方に分布する白亜紀, 第三紀の堆積岩の粘土鉱物学的研究(I), 地質雑, 66巻, 779号, 506-516.
- 松下久道(1949): 九州北部炭田の地質, 九鉱誌, 特別号, 1-57.
- MIKI, T. (1972): Cretaceous-Tertiary Unconformity in the Western Part of Amakusa-Shimoshima, *Mem. Fac. Sci., Kyushu Univ.*, Geol., vol. 21, no. 2, 217-237.
- MIKI, T. (1975): Formation and Development of Sedimentary Basins during the Paleogene in Amakusa and its Adjacent Areas, Western Kyushu, *Mem. Fac. Sci., Kyushu Univ.*, Geol., vol. 23, no. 2, 165-209.
- 三木 孝・松枝大治(1974): 西九州天草の赤崎層について, 九大理研報, 地質, 12巻, 1号, 27-40.
- 三木 孝・松枝大治(1977): 西九州天草および高島における紫赤色岩層について, 日本地質学会第84年大会要旨集, 164.
- 生沼 郁・小林和夫(1961): 北海道石狩炭田上砂川地方に分布する白亜紀, 第三紀の堆積岩の粘土鉱物学的研究(II), 地質雑, 67巻, 784号, 14-22.
- 大塚裕之(1970): 北西部九州有明海南部地域の更新一最新統の層序学的, 堆積学的研究, 鹿大理紀要, 3号, 35-65.
- 田代正之・野田雅之(1973): 九州のいわゆる姫浦層群の地質時代, 地質雑, 79巻, 7号, 465-480.