山陰地区の二・三の陶石鉱床における 陶石化作用の鉱物学的研究

——陶石の生成機構の研究 (1)——

塚 脇 祐 次

(工業技術院地質調査所)

Mineralogical Study of Rock-alteration to Pottery Stone of Some Pottery Stone Deposits in San-in District

On the mechanism of the Mineralization of Pottery Stone, I.

By

Yuji TSUKAWAKI

(Geological Survey of Japan, Tokyo)

Abstract

The pottery stone called "Tôseki" is not defined mineralogically. And the process of rock-alteration to pottery stone is not studied yet.

In San-in district, there are several localities of pottery stone which may be classified into following three types :

I. Deposits produced by rock-alteration of pitchstone, which intruded into rhyolite-represented by Izushi pottery stone deposit in Hyôgo prefecture.

II. Deposits produced by rock-alteration of quartz porphyry-represented by Tanokouchi pottery stone deposit, Tottori prefecture.

III. Deposits produced by rock-alteration of rhyolite-represented by Amabe pottery stone deposit, Kyôto prefecture.

This paper concerns the geological and mineralogical studies of above three deposits stating in detail on the process of rock-alteration and also the mineralogical significance of pottery stone :

(1) Pottery stone deposits are the products of the replacement and metamorphosis under the influence of epithermal solution rising up along the weak line of mother rock.

During the process of deposition alkalies changed their position; Na_2O being generally leached out because of its smaller molecular volume, while K_2O codeposited with Fe on the circumference of pottery stone due to chemical migration giving lower quality ore so-called "Toraishi".

(2) Pottery stone, Tôseki, is composed of SiO_2 and Al_2O_3 as chief ingredient, whose analysis is 75~82% SiO_2 , 12~16% Al_2O_3 , and 1~5% alkies ($\text{K}_2\text{O} + \text{Na}_2\text{O}$). It is white fine ore consisting mainly from quartz, sericite, halloycite and kaolinite, etc.

[Received February 22, 1962]

I. 緒 言

「陶石」とは鉱物学上の名称ではなく、いわゆる商品名であって、従来から「陶石」と称せられているものは「単味焼成によって磁器化し得る¹⁾」ものをさしているが鉱物学的にはまだはっきりされておらず、またその成因についても十分に研究されていなかった。本研究は「陶石」を鉱物学的に明らかにすると共に、自然界におけるその生成過程を究明することを目的として行ったものである。

山陰地区には出石をはじめとして数ヶ所の陶石産地²⁾

があり、窯業地として古くから知られている。この地区の陶石鉱床はその賦存状況から見て、次の2つの型に大別される。すなわち、

I. 母岩の流紋岩中に松脂岩の岩脈が貫入した後、松脂岩がその後の浅熱水の影響をうけて生成した鉱床——出石陶石鉱床。

II. 母岩の弱線に沿って上昇した浅熱水の影響によって生成した鉱床

a) 石英斑岩を母岩とする鉱床——田河内陶石鉱床

b) 石英粗面岩を母岩とする鉱床——海部陶石鉱床

であり、この報文ではこれら原岩を異にする3産地の陶石鉱床についてその地質および鉱床を述べ、さらに「陶石」の鉱物学的意義およびその生成過程を究明した。

II. 地質および鉱床

II.1. 出石陶石地区³⁾⁴⁾⁵⁾ 出石陶石鉱床は兵庫県出石郡出石町地内に胚胎し、同町東部谷山部から南方4 km の間に北から鶏塚・柿谷・日野辺および桐野の4鉱山が点在している。出石町は山陰本線豊岡駅の南東方15.4 km の距離に位置する。

鉱床付近の地質は主として流紋岩からなり、新鮮な流紋岩は有色鉱物の多少および石英の性質によって灰白色・黒色・緑色・暗褐色等を呈し、肉眼で石英・正長石・黒雲母などが明瞭に認められ、鏡下では斑晶は石英・正長石・斜長石・黒雲母からなり、石英の大きさは平均 $0.8 \times 0.8 \text{ mm}$ で、 $2.2 \times 2.8 \text{ mm}$ に達するものもあり、波状消光著しく斑晶の中で最も多量に存在する。斜長石は平均 $0.7 \times 0.3 \text{ mm}$ 程度で、まれに $1.5 \times 0.7 \text{ mm}$ に達するものもありアルバイト双晶を呈し、灰曹長石に属し、分解してカオリン・絹雲母・方解石に変化している。黒雲母はその大きさ平均 $0.3 \times 0.5 \text{ mm}$ で、一部分分解して微細な粘土鉱物になっている。石英は潜晶質で少量の玻璃を含み、流状構造を呈している。

流紋岩は桐野付近において見かけ上変朽安山岩に漸移していると思われるが、この両者の関係は明らかにされなかった。本岩は変質甚だしく外観帯緑黒色を呈し緻密であって、斑晶は肉眼でほとんど認められず、鏡下においても斑晶はほとんどなく、小型の斜長石・石英が認められるにすぎない。斜長石は $0.5 \times 0.3 \text{ mm}$ 程度のもので、まれに $1.0 \times 0.4 \text{ mm}$ 大のものが現れ曹長石化作用をうけており中性長石に相当するものである。石英は比較的新しく $0.03 \times 0.02 \text{ mm}$ 程度の微細なものである。石英は短冊状の斜長石から成り、明瞭な流状構造を示すが、玻璃はほとんど認められず、角閃石より変った緑泥石・方解石・絹雲母などが二次的に生成され、他に磁鉄鉱の微晶を伴うことがある。

また、この流紋岩はほぼ平行した2本の松脂岩*の岩脈によって貫かれ、その走向はN 20~50° Wで、NEに70~90°急斜している。松脂岩脈の幅は東部のものは5~7 m、西部のものは7~10 mである。

出石陶石地区では、この松脂岩脈は陶石鉱床

ときわめて関係深く、各坑内の観察によれば図一VII-1に図示したように松脂岩が陶石に漸移している状態が見られ、鉱床は母岩の流紋岩中に貫入した2本の松脂岩の岩脈がその後上昇した熱水の影響によって交代変質し、それぞれその一部が陶石化したものと考えられる。

鉱床は東部の松脂岩脈を交代変質したものを第一主脈、西部のそれを第二主脈と呼称され、第一主脈は出石川北部では鶏塚鉱山に始まり、柿谷・日野辺の各鉱山を経て出石川を南方に渡って御貝殿・金屋・山神および茅野の各旧坑に総延長4 km余にわたって連続し、第二主脈は桐野鉱山地区すなわち出石川南部において第一主脈の西方にほぼ平行したもので、現在出石川北部地区においては確認していないが、その南部地区において荒神谷・福蔵・奥殿・石尾および西小谷の各旧坑にほぼ1.6 kmの間連続している。

当地域の陶石鉱床は既述したように出石川北部地区において鶏塚・柿谷および日野辺の3鉱床、出石川南部地区において桐野鉱床に大別されるが、これらについてその鉱床の賦存状況を簡単に記載すれば次のようである。

鶏塚鉱床は現在確認されている第一主脈の北限をなす

Fig. II-1. Geological map showing the pottery stone deposit in Izushi district, Hyôgo prefecture.

* 松脂岩については VII.1.1. 「出石陶石の原岩(松脂岩)について」の項において詳述する。

もので、陶石脈*の走向は $N 40 \sim 70^\circ W$ 、傾斜は $NE 70^\circ$ ないし直立し、その脈幅は $2.5 \sim 5m$ で平均 $3m$ である。

柿谷鉱床は鶏塚鉱床の南方延長で、局部的な膨縮は著しく、ときに尖滅することもあるが平均脈幅は $4m$ である。陶石脈の走向は $N 40 \sim 70^\circ W$ でほとんど直立している。現在入坑可能な坑道は新坑・一号坑および旧二坑の3坑で、いずれも母岩の流紋岩中を $50 \sim 100m$ の立入坑道が掘さくされ、松脂岩の漸移帯を経て着鉱し鍾押坑道で採掘されている。陶石脈は膨縮が著しくその尖滅する付近では陶石脈はその原岩である松脂岩に漸移している。また、柿谷鉱床は日野辺鉱床とともに出石地区において最も陶石化作用の著しく行われた地域と考えられ、陶石中にはときに細粒の黄鉄鉱・閃亜鉛鉱・方鉛鉱などを伴うことがある。

日野辺鉱床は前記2鉱床から連続する第一主脈の南部に位置するもので、その北限は稜線でもって柿谷鉱床と接し陶石脈は娘谷露頭・タコツボ露頭を経て $SE 30^\circ$ 方向にのびて県道際の寺阪小学校裏の露頭に連続している。脈幅は $2 \sim 5m$ で比較的膨縮に富んでいるが平均脈幅は $3m$ である。

桐野鉱床地域には出石川北部地区の3鉱床から連続した第一主脈およびこの西方に曲折しながらもほぼ平行する第二主脈が胚胎する。出石川を南方に渡った第一主脈は走向 $N 15 \sim 30^\circ W$ 、傾斜 $80^\circ SW$ ないし垂直で、御貝殿・金屋・山神および茅野の各旧坑に約 $1.8km$ にわたって連続し、平均脈幅は $4.6m$ である。第二主脈は荒神谷・福蔵・奥殿・石尾および西小谷の各旧坑に総延長 $1.6km$ の間にわたって大体 $N-S$ に連続しており、平均脈幅 $6.1m$ である。

II.2. 田河内陶石地区⁶⁾

田河内陶石鉱床は鳥取市の北東方直距 $16km$ 、鳥取県岩美郡岩美町田河内部落に位置し、山陰本線東浜駅の南南東方 $5.5km$ にある。

鉱床付近の地質は主として石英斑岩からなり、僅かに田河内部落付近に沖積層が発達しているのみである。石英斑岩は灰白色ないし暗緑色を呈し、堅硬緻密な岩石で、鏡下では斑晶は石英・正長石・斜長石および優色鉱物としては比較的多量の黒雲母、また時に少量の角閃石を伴っている。石英の大きさは $0.3 \times 0.3mm \sim 0.5 \times 0.4mm$ で、斑晶の中で最も多量に存在している。

斜長石は平均 $0.3 \times 0.2mm$ でアルバイト双晶を呈し灰曹長石に属する。石基は潜晶質で鏡下でも明らかに認めにくい。当地域の石英斑岩は $N 5 \sim 20^\circ E$ 方向および $N 80^\circ W \sim E-W$ 性の節理面が多く、またこれらの方向に大きな谷が発達していることから石英斑岩岩体中に $N 5 \sim 20^\circ E$ およびこれにほぼ直交する2つの方向の弱線が考えられ、陶石化作用をもたらした浅熱水はこの弱線に沿って上昇し、その周辺部を変質せしめて脈状の陶石鉱床を形成したものと考えられる。

陶石鉱床は一般に走向 $N 5 \sim 20^\circ E$ に走り、垂直に近く傾斜したほぼ平行した4本の脈から成り、東部のものから「東第二脈」・「東第一脈」・「本脈」および「西第一脈」と呼称され、いずれも石英斑岩中に脈状に胚胎している。

「本脈」は田河内陶石鉱床の最も重要な鉱床であって、走向 $N 10^\circ W \sim N 20^\circ E$ に走り、 $80 \sim 85^\circ E$ に傾斜し、総延長 $420m$ が確認されている。脈幅は膨縮著しく $2.5 \sim 18m$ で平均脈幅は $9.6m$ である。「西第一脈」は「本脈」の西方 $100m$ に位置し、これとほぼ平行して胚胎し、その走向は $N 20 \sim 30^\circ E$ で $85 \sim 90^\circ E$ に傾斜し、走向延長 $510m$ に達するが、脈幅は「本脈」

Fig. II-2. Geological map showing the pottery stone deposit in Tanokouchi district, Tottori prefecture.

* 松脂岩の岩脈の一部を交代変質して生じた脈状の陶石鉱床を「陶石脈」として記載する。

に比し狭小で最も膨大した所で 2m, 平均脈幅 0.8m である。「東第一脈」および「東第二脈」の両脈はいずれも走向 N 20°~25° E 傾斜 85°~90° W で、「本脈」とほぼ平行したものであるが、両脈とも脈幅 0.5m 程度である。

II.3. 海部陶石地区⁷⁾ 海部陶石鉱床は京都府熊野郡久美浜町地内に胚胎し、山陰支線宮津線久美浜駅の東方 3.5~4km に位置する。

鉱床付近の地質は主として第三紀の礫岩および石英粗面岩から成っている。礫岩は下部第三紀に属するもので、当地域の南方地区に広く分布して当地域の基盤をなしている黒雲母花崗岩の上に不整合にのっている。その走向は N 70° E, 傾斜 20° NW で、礫は安山岩の円礫ないし半角稜のあるものを主とし、僅かに花崗岩礫を含みその大いさは直径 20cm 以下である。石英粗面岩は青灰色を呈し、緻密で、N 60°~70° E 方向の節理面が著しく発達している。

鉱床は油池鉱床および甲山鉱床の 2 鉱床からなり、いずれも石英粗面岩が浅熱水の上昇の影響をうけていわゆる陶石化作用を蒙ったもので、この熱水変質は礫岩には及ぼしていない。

油池鉱床は久美浜駅の東方 3.5km の油池部落に位置し、陶石脈の走向は N 60° E, 傾斜は垂直である。陶石化作用を蒙った範囲は最も広い部分で幅 130m で 900m の走向延長が見られる。甲山鉱床は油池鉱床の東方 0.5km, 甲山部落に位置し、陶石脈は N 70° E, 傾斜はほぼ垂直で、平均脈幅 35m で走向延長に 200m 連続している。

III. 陶石の鉱物組成

III.1. 出石陶石 出石川北部地区の陶石は白色ないし淡灰白色を呈し、比較的軟質なものが多く、まれに微細な黄鉄鉱・閃亜鉛鉱・方鉛鉱等が肉眼で認められることがある。鏡下では脱璃作用が十分に行われて原岩構造を失い、斑晶としては自形ないし半自形の石英(径 0.1~0.2mm 程度)と微小な絹雲母からなり、微細なカオリン鉱物を含む。また絹雲母はその量少く全体の 25% 以下で、所によっては針状結晶群で集塊をなすものが見られる。

出石川南部地区の第二主脈の陶石は一般に淡灰色あるいは淡青色を呈し珪質陶石を主とし、堅硬緻密である。鏡下では斑晶はほとんど石英および絹雲母で、石英は径 0.2mm 程度、絹雲母は 0.03mm 以下の針状を呈し、まれに微細な金紅石を伴っている。

III.2. 田河内陶石 陶石は白色・灰白色・黄白色ないし黄褐色を呈し、緻密な岩石で所によってやや軟質な部分もある。比較的良質と考えられる白色ないし灰白色の陶石は顕微鏡下では石英と絹雲母とからなり、石英は不定形微細なもので(径 0.03~0.07mm), 絹雲母は長さ 0.01~0.03mm (0.01mm 内外のものが多い)の鱗片状結晶をなしている。絹雲母は石英に比較して量少く、全体の 30% あるいはそれ以下である。

III.3. 海部陶石 陶石は一般に灰白色・褐色を呈し、比較的堅硬緻密な外観を呈しているが、甲山地区には軟質な部分のものが多く、鏡下では潜晶質な石英から成り、微細な石英質の基質の上に見られ、長石類はほとんど分解し絹雲母および石英となっている。また多少の

Fig. II-3. Geological map showing the pottery stone deposit in Amabe district, Kyôto prefecture.

黄鉄鉱と黒雲母が見られる外、褐鉄鉱が僅かに認められることがある。

IV. 陶石の化学組成

山陰地区産の陶石の中で、その代表的な試料の化学分析値は表-IV-1 のようである。

これらの結果から見て、出石および田河内両地区の陶石は天草陶石の代表的鉱石⁸⁾ に比較して一般に SiO_2 がやや多く、 Al_2O_3 が少い傾向がある。このことは出石・田河内両地区の陶石では絹雲母の目掛量比が 25~30% 程度であるのに対して天草陶石のそれは 35~45% である⁹⁾ ことによるものと考えられる。また、とくに出石川北部地区の鉱石では一般にアルカリの少い鉱石は Al_2O_3 および灼熱減量が多少増加する傾向が認められるが、これは鉱石中のカオリン鉱物の含有量の多少に起因するものであろう。

また、これら化学分析値からその主要成分である SiO_2 , Al_2O_3 , $\text{K}_2\text{O}+\text{Na}_2\text{O}$ について三成分系図を示せば図-IV-1 のようで、山陰地区の 3 陶石はいずれもほとんど同じような成分の範囲内に落ちることがわかる。

I₁: Izushi pottery stone (Niwatorizuka mine),
I₂: " (Kakitani mine),
I₃: " (Hinobe mine),
I₄: " (Kirino mine),
T: Tanokouchi pottery stone,

Ab: Amabe pottery stone,
AK₁₋₂: Amakusa pottery stone

Fig. IV-1. Chemical composition of pottery stone from several localities in San-in district plotted in SiO_2 - Al_2O_3 - R_2O system.

Table IV-1. Chemical analyses of pottery stone from several localities in San-in district.

Locality	Compositions (%)									
	SiO_2	TiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	MnO	CaO	MgO	K_2O	Na_2O	Ig. loss
Izushi pottery stone (Niwatorizuka mine)	81.74	—	12.13	0.32	—	0.52	0.42	0.65	0.93	3.30
" (Kakitani mine)	81.18	0.10	12.70	0.11	tr	0.53	0.19	1.57	0.93	2.93
" (Hinobe mine)	82.17	0.40	11.93	0.28	0.12	0.24	tr	1.60	0.50	2.81
" (Kirino mine)	80.38	0.11	13.09	0.36	tr	0.60	0.04	3.48	0.16	2.04
Tanokouchi pottery stone (Main vein)	81.14	0.13	13.13	0.28	tr	0.15	0.16	1.29	0.28	3.68
Amabe pottery stone (Yuike)	78.34	0.17	13.01	0.31	tr	0.33	0.11	3.92	0.54	3.44
Amakusa pottery stone (1)	79.87	tr	13.90	0.44	—	tr	tr	2.56	0.28	3.09
" (2)	78.52	tr	15.04	0.30	—	0.04	tr	2.68	0.34	3.14

V. 陶石の X 線解析

出石陶石 (日野辺鉱山 六号 坑内産)・田河内陶石お

Table V-1. X-ray powder data for pottery stone from several localities in San-in district.

Izushi pottery stone			Tanokouchi pottery stone			Amabe pottery stone		
$d(\text{\AA})$	I/I_0	Minerals	$d(\text{\AA})$	I/I_0	Minerals	$d(\text{\AA})$	I/I_0	Minerals
7.13	3	K	7.15	7	K	10.15	1	S
5.01	1	S	4.99	2	S	7.15	3	K
4.94		L	4.94		L	4.98	2	S
4.83	3	S				4.93		L
4.48	5	S	4.48	5	S	4.48	3	S
4.43	8	KH						
4.25	52	Q	4.25	35	Q	4.26	64	Q
4.15		K						
3.757	1	S	3.757	1	S	3.779	22	S?
3.561	3	K	3.564	7	K	3.562	2	K
3.340	100	QS (H)	3.341	100	QS (H)	3.338	100	QS
3.240		R						
3.191	1	S	3.195	1	S	3.197	1	S
						2.854	2	S
2.805	1	S	2.801	1	S	2.801	1	S
2.718		L	2.720		L	2.718		L
2.590	1	H	2.590	2	H			
						2.588	5	K
2.569	1	S	2.565	1	S	2.565	1	S
2.489		R	2.490		R			
2.454	15	Q K	2.454	14	Q K	2.458	10	Q K
2.414		L	2.414		L	2.414		L
2.333	2	H	2.334	2	H			
2.279	15	Q	2.280	11	Q	2.282	9	Q
2.235	10	Q	2.236	9	Q	2.237	5	Q
2.185		R						
						2.164	4	K
2.124	11	QS	2.127	10	QS	2.128	9	Q
2.036		L						
1.998	1	S				1.997	1	S
1.979	8	Q	1.980	7	Q	1.979	5	Q
1.817	22	Q	1.818	17	Q	1.818	16	Q
						1.801	3	Q
1.758		L	1.760		L	1.760		L
1.705	1	H	1.707	1	H			
1.686		R						
1.671	8	Q K	1.672	8	Q K	1.672	6	Q K
1.658	3	Q	1.660	2	Q	1.661	3	Q
1.641	1	S	1.641	1	S	1.641	1	S
1.541	21	Q	1.542	15	Q	1.542	11	Q
1.497	1	S	1.497	2	S	1.497	2	S
1.485	3	H	1.488	1	H			
1.453	3	Q	1.454	4	Q	1.453	3	Q
1.420	1	Q				1.418	1	Q
1.382	11	Q	1.382	11	Q	1.383	8	Q
1.372	16	Q	1.375	11	Q	1.375	10	Q
			1.372	12	Q	1.373	9	Q

CuK α , 35 kV, 15 mA, S.F. 4, T.C 4

Q: Quartz, S: Sericite, K: Kaolinite, H: Halloysite*, L: Limonite, R: Rutile.

* ハロイサイトについては問題点もあるのでその確認は今後の研究に残す

よび海部陶石の鉍石を-200メッシュに粉碎した試料をNorelcoによって粉末X線解析を行った結果は表-V-1のようで、各陶石とも石英および絹雲母の外にカオリナイト・ハロイサイト等の粘土鉍物の廻折線がみとめられ、この外に微弱であるが4.94Å**・4.20・2.719・2.414・1.758付近の線は褐鉄鉍の特徴線に相当するものと考えられ、これらの陶石中にはそれぞれ不純物として褐鉄鉍が存在することは顕微鏡観察の結果と一致し、また出石陶石には3.24Å・2.49・2.184・1.686付近の線がみとめられ、これは金紅石の特徴線に相当するものと考えられる。

VI. 陶石の微量成分

X線解析に使用した同一の粉末試料について微量成分の分析を行った結果は表-VI-1のようである。

VII. 陶石鉍床の生成

VII.1. 出石陶石

VII.1.1. 出石陶石の原岩(松脂岩)について 出石地方の陶石鉍床の原岩と考えられる松脂岩はこの付近に広く分布する流紋岩中に岩脈状をなして露出し、一般に濃緑色を呈し、松脂光沢を有し堅硬で比較的割れ目が多い。鏡下ではほとんど玻璃から成り、この中に微細な黒雲母および灰青長石が僅かに認められ、副成分として角閃石・燐灰石などを伴う。

本岩の化学分析値は表-VII-1に示したようで、この分析値からH₂O±を除外して100%に改算するとSiO₂の値は76.28%となり、またノルム計算値においてH₂O±を除外した時のSalは97.99%に達し、いずれも玻璃質岩石としての特性を示している¹²⁾。さらに本

岩の比重は2.28(4°C)であり、かつH₂O±の分析値は8.10%であることより黒曜岩とも区別され¹³⁾¹⁴⁾¹⁵⁾¹⁶⁾、本岩は松脂岩であることが明白である。

この松脂岩を-200メッシュに粉碎して粉末X線解析を行った結果は表-VII-3のNo. 1に示した。この解析結果では石英および絹雲母の著しい特徴線はきわめて微弱なものであり、また4.4~3.0Åの間の廻折線の強度が高くて全般的に見られる山型は玻璃質なものの廻折線と一致し¹⁷⁾、本岩石が非晶質でほとんどガラス質から成ることを示しており、今まで種々な観察および実験によって本岩は松脂岩であることを理論づけたが、さらに粉末X線解析によっても本岩は松脂岩の範疇に入ることがわかった。

なお、この松脂岩の微量成分については、X線解析に使用した同一試料によって微量分析を行ったが、これについては次項に記述する。

VII.1.2. 出石陶石鉍床の生成 出石陶石鉍床は松脂岩を原岩としてその弱線に沿って上昇した浅熱水の影響をうけて松脂岩の一部が変質して生成したものと考

Fig. VII-1. Idealized illustration showing the traditional arrangement of pitchstone and pottery stone.

Table VI-1. Minor elements in pottery stone from several localities in San-in district.

Pottery stone	Minor Elements																		
	Si	B	K	Na	Ba	Ca	Mg	Al	Mn	Zn	Cr	Mo	Fe	Ni	Ti	V	P	Sn	Pb
Izushi	+++	++	±	+	-	±	+	++	+	±	±	±	+	-	+	-	±	±	+
Tanokouchi	+++	+	±	+	-	+	++	+	±	±	±	±	+	-	+	-	±	±	+
Amabe	+++	±	-	++	-	-	+	+	±	-	±	-	+	-	+	-	±	-	±

Experimental conditions

Spectrograph: Jarrell-Ash 3.4 m stigmatic grating spectrograph

Grating angle: 9.95° 2nd order

Electrode assembly:

Upper electrode: Special Carbon electrode, obtained from the Nippon Cabon Co., 5 mm diameter, pointed at one end.

Lower electrode: Carbon electrode, crater with 4×4 mm.

Analytical gap: 3 mm

Slit: 20 μ

Excitation source: D.C. arc 7 amp.

Exposure time: 60 sec.

Emulsion: Fuji spectroscopic process, plate

Development: 5 min. at 20°C in D-19 with continuous agitation.

Microphotometry: Jarrell-Ash Console microphotometer

Table VII-1. Chemical analysis of pitchstone in Izushi district.

SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	FeO	MnO	CaO	MgO	K ₂ O	Na ₂ O	P ₂ O ₅	H ₂ O+	H ₂ O-	Total
70.10	0.08	12.54	0.54	0.45	0.06	1.09	0.17	2.62	3.73	0.05	7.26	0.84	99.53

* ハロイサイトについてはカオリナイトの廻折線とほとんど重複し、問題点もあるので、その確認は今後の研究に残す。

**以下単位 Å 省略

Table VII-2. Chemical analyses of each rock faces of transitional zone of pitchstone and pottery stone.

Sample No.	Compositions (%)														
	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	FeO	MnO	CaO	MgO	K ₂ O	Na ₂ O	P ₂ O ₅	H ₂ O ⁺	H ₂ O ⁻	Ig-loss	Total
1	70.10	0.08	12.54	0.54	0.45	0.06	1.09	0.17	2.62	3.73	0.05	7.26	0.84	—	99.53
2	73.42	0.08	13.55	0.58	0.29	0.01	0.81	0.20	4.83	1.80	0.03	2.92	1.12	—	99.65
4	73.58	0.11	13.84	1.10	0.07	0.06	0.55	0.08	6.30	1.33	0.04	2.04	0.42	—	99.52
5	82.17	0.40	11.93	0.28	—	0.12	0.24	tr	1.60	0.50	—	—	—	2.81	100.05

1 : pitchstone (non-altered), 2 : pitchstone (weak-altered) 4 : lower quality pottery stone (so-called "Toraishi"), 5 : pottery stone.

えられる。

当地区の陶石鉱床は坑内観察により 図-VII-1 に図示した如く母岩の流紋岩に接して濃緑色ないし淡青灰色の松脂岩が見られ、母岩から相離れるに従ってこの松脂岩は変質し灰褐色を呈するいわゆる「虎石」と俗称せられる低品位陶石*に漸移し、さらにこの低品位陶石は白色の陶石に移化しているのが観察される。これらの漸移帯の各種岩相の鉱物学的な研究を行って、当地方の陶石鉱床の生成に関して考察をこころみた。

漸移帯の最も外側の変質をうけていない松脂岩 (No. 1)**は一般に濃緑色を呈し、堅硬で松脂光沢を有し、鏡下ではほとんど玻璃から成り、この中に微細な黒雲母および灰曹長石が僅かにみとめられ、副成分として角閃石・燐灰石を伴うが量的には少い。弱変質部の松脂岩 (No. 2) は色調徐々に淡くなり淡青灰色を呈し、弱脱璃作用を受けた岩相部で、鏡下では斜長石はやや分解して絹雲母を晶出し、この絹雲母はまれに半自形質または不定形の小斑晶のものがみられる外針状の微細なもので、針状結晶の配列が原岩の流理と思われる方向性を示す傾向が見られる。松脂岩と低品位陶石との漸移部の岩相 (No. 3) は外觀やや褐色味を帯びた淡青灰色を呈し、鏡下で長石が分解して晶出した絹雲母はやや大型化している。また、石基のガラス質物の脱璃作用が進んで不定形の石英の斑晶が認められる。低品位陶石 (No. 4) は灰褐色を呈し、褐鉄鉱がリーゼガング状をなして縞模様をなすのがみとめられ、虎皮のような外觀を呈するため「虎石」と俗称されるものでやや堅硬質である。鏡下では脱璃が著しく進んで斑晶は石英および絹雲母から成り、石英は大型化し、(No. 3) のものに較べて量はきわめて多くなっている。絹雲母も大型化しているが量的には少くなり、また全般に褐鉄鉱および含鉄蛋白石が認められる。陶石 (No. 5) は白色ないし淡灰白色で、比較的軟質で、まれに微細な黄鉄鉱・閃亜鉛鉱などを伴うことがある。鏡下では斑晶は石英および絹雲母から成り、脱璃作用が十分に行われて石英は自形ないし半自形を呈

し、大型化して全般的に生成している。絹雲母は微細かつ少量になっている。褐鉄鉱は低品位陶石の岩相部 (No. 4) のものにくらべて極めて少くなり、僅かにみとめられるにすぎない。

これら漸移帯の各岩相の化学分析値は表-VII-2 に示すようである。すなわち、母岩に近い未変質部の濃緑色松脂岩から陶石に移化するに従って化学分析値上 SiO₂ の

1 : pitchstone (non-altered), 2 : pitchstone (weak-altered)
4 : lower quality pottery stone (so-called "Toraishi")
5 : pottery stone.

Fig. VII-2. Chemical composition of each rock faces of transitional zone of pitchstone and pottery stone plotted in SiO₂-Al₂O₃-R₂O system.

1 : pitchstone (non-altered), 2 : pitchstone (weak-altered)
4 : lower quality pottery stone (so-called "Toraishi"),
5 : pottery stone.

Fig. VII-3. Chemical composition of each rock faces of transitional zone of pitchstone and pottery stone plotted in SiO₂-Na₂O-K₂O system.

* 鉱物学的には陶石に類するものであるが、陶石化作用の過程において熱水によって泳動した鉄が周辺部に縞状に沈澱して生じたもので、虎皮の外觀を呈するため「虎石」と俗称され、鉄分多きため陶石として利用価値が低く、本論文文中では「低品位陶石」として記載した。

** (No. 1) は図-VII-1 に図示した各岩相の番号を示す。以下これに準ずる。

増大およびアルカリとくに Na_2O の減少しているのが認められ、これについて $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-R}_2\text{O}$ 系列の中に図示すれば図-VII-2 に示したように低品位陶石の部分に R_2O は増加する関係を見、さらに R_2O を Na_2O , K_2O に分けてその泳動のあり方を図示すれば図-VII-3 のような状態を示す。すなわち、アルカリの中で分子量の低い

Na_2O は全般的に溶脱し、 K_2O は低品位陶石の部分に集中して沈澱し、むしろ増加の傾向を示している。

また、この同一試料を -200 メッシュに粉碎したものを Norelco によって粉末X線解析を行った結果は表-VII-3 に示したようである。すなわち、弱変質部の松脂岩の構成鉱物は前節にて述べた未変質部の松脂岩と同様で

Table VII-3. X-ray powder data for each rock faces of transitional zone of pitchstone and pottery stone.

① Pitchstone (non-altered)				② Pitchstone (weak-altered)				③ Transitional zone between pitchstone and lower quality pottery stone				④ Lower quality pottery stone				⑤ Pottery stone			
$d(\text{\AA})$	I/I_0	Minerals		$d(\text{\AA})$	I/I_0	Minerals		$d(\text{\AA})$	I/I_0	Minerals		$d(\text{\AA})$	I/I_0	Minerals		$d(\text{\AA})$	I/I_0	Minerals	
6.38	3	OI		6.39	2	OI						7.19				7.13			K
4.46	5	S		5.01	1	S		4.48		S		5.01		S		5.01		S	
4.21	5	Q		4.47	1	S						4.46		S		4.48	1	S	
4.13	4	S		4.22	6	Q		4.23	3	Q		4.43		H K		4.43	1	H K	
				4.13	1	S						4.24	3	Q		4.25	5	Q	
4.00	4	S		4.00		S		4.01		S		4.14		K		4.15		K	
3.864	2	OI		3.864		OI						4.01		S					
3.751	3	S						3.756	1	S		3.757	1	S		3.757		S	
3.739	5	OI		3.739		OI													
3.648	5	OI																	
												3.559		K		3.561		K	
3.463	3	OI		3.458	8	OI													
				3.377	4	OI													
3.338	10	Q						3.338	10	Q		3.333	10	Q S(H)		3.340	10	Q S(H)	
3.202	5	S OI		3.209	10	S OI		3.209	1	S		3.210	1	S		3.191		S	
3.140	4	OI																	
				3.089	1	S													
2.988	3	S		2.985	3	S OI		2.980	1	S		2.984	1	S					
2.976	2	OI																	
2.911	3	OI		2.917	1	OI													
2.862	2	S		2.857		S		2.848		S		2.849		S					
2.846	2	OI		2.839	2	OI													
2.810	5	S						2.806		S						2.805		S	
												2.592		H		2.590		H	
2.567	2	S		2.570	1	S		2.567		S		2.569	1	S		2.569		S	
				2.506	1	OI													
2.458	2	Q						2.453	1	Q		2.451	1	Q		2.454	2	Q	
2.415	2	OI		2.414	1	OI													
								2.382		S									
2.378	3	OI		2.378	1	OI						2.370		K		2.374		K	
												2.335		H		2.333		H	
2.279	2	Q		2.281	1	Q		2.278	1	Q		2.278	1	Q		2.279	2	Q	
2.233	2	Q						2.232		Q		2.233		Q		2.235	1	Q	
												2.195		S					
												2.165		K					
2.128	3	Q		2.120	1	Q		2.124	1	Q		2.124	1	Q		2.124	1	Q	
1.997	2	S		1.996	1	S		2.001		S		2.006		S		1.998		S	
1.981	2	Q						1.976		Q		1.977		Q		1.979	1	Q	
1.816	2	Q		1.818	1	Q		1.815	1	Q		1.815	2	Q		1.817	2	Q	
												1.705		H		1.705		H	
1.671	2	Q		1.671	1	Q		1.670	1	Q		1.670	1	Q		1.671	1	Q	
								1.657		Q		1.658		Q		1.658		Q	
1.543	2	Q		1.540		Q		1.541	1	Q		1.540	1	Q		1.541	2	Q	
1.496	3	S		1.499	1	S		1.497		S		1.497		S		1.497		S	
												1.494		K					
												1.484		H		1.485		H	
1.454	1	Q		1.454	1	Q		1.452		Q		1.452		Q		1.453		Q	
1.418	2	Q		1.418		Q		1.418		Q		1.417		Q		1.420		Q	
1.381	2	Q						1.381	1	Q		1.381	1	Q		1.382	1	Q	
1.375	2	Q		1.372	1	Q		1.374	1	Q		1.375	1	Q		1.372	2	Q	
								1.371	1	Q		1.371	1	Q					

CuK α , 35 kV, 15 mA, S.F. 4, T.C.4

Q: Quartz, S: Sericite, OI: Oligoclase, H: Halloysite*, K: Kaolinite.

* ハロイサイトについては問題点もあるので、その確認は今後の研究に残す

Table VII-4. Minor elements in each rock faces of tranditional zone of pitchstone and pottery stone.

Sample No.	Minor elements																									
	Si	B	K	Na	Ba	Ca	Mg	Al	Mn	Zn	Cr	Mo	Fe	Ni	Ti	V	P	Sn	Pb	Yt	In	Ga	Cu	As	Bi	Ag
1	+++	+	+	++	++	+	++	++	+	-	±	-	+	-	+	-	+	-	+	+	±	±	+	±	+	-
2	+++	+	+	++	+	+	++	++	+	-	±	-	+	-	+	-	+	-	+	+	±	±	+	±	+	-
3	+++	+	+	++	±	+	+	++	+	-	±	-	+	-	+	-	±	-	+	±	-	±	+	±	-	-
4	+++	+	+	++	±	+	+	++	+	±	±	±	+	-	+	-	±	±	+	+	±	±	++	±	+	±
5	+++	++	±	+	-	±	+	++	+	±	±	±	+	-	+	-	±	±	+	+	-	±	++	±	±	±

(Experimental conditions are same to "Table VI-1".)

1: pitchstone (non-altered), 2: pitchstone (weak-altered), 3: tranditional zone between pitchstone and lower quality pottery stone, 4: lower quality pottery sotne (so-called "Toraishi"), 5: pottery stone.

あるが、この岩相では未変質部のものに見られた 4.4~3.0 Å の間の全般的な山型は失われて、脱璃作用が行われ微細な結晶質構造があらわれて来たことを示し、石英および絹雲母の廻折線も比較的明瞭に認められる。松脂岩と低品位陶石の漸移部の岩相では石英の廻折線はきわめて明瞭に認められ、また絹雲母の廻折線も明瞭となり遊離したアルカリ珪酸塩が二次鉱物として絹雲母を生成したことを示している。また松脂岩の各岩相部に見られた灰曹長石の廻折線は認められず、7.19 Å・4.42・3.56・2.583・2.366・2.301・1.495 などに見られる微弱な廻折線はカオリナイトの廻折線と一致し、松脂岩中の長石がカオリン化作用を蒙りつつある段階を示すものと考えられる。さらに低品位陶石および陶石の各岩相部では石英の明確な廻折線の外に絹雲母・カオリナイト・ハロイサイト等の廻折線が認められる。なお陶石についてのX線解析は V. の項において既述した。

粉末X線解析に使用した同一試料について微量成分の分析を行った結果を表-VII-4 に示した。すなわち、試料 1 と 2 の松脂岩の各岩相ではその微量成分に著しい差異は認められないが、試料 3 ~ 5 の陶石質ないし陶石の岩相部では松脂岩のものにくらべて変化が見られ、ことに Zn・Mo・Sn・Cu・Ag などの各元素が前者より後者に多いことは松脂岩中の弱線に沿って上昇し陶石化作用をもたらした熱水中にこれらの元素が含まれていたことを示すものと考えられ、陶石中にまれに閃亜鉛鉱・方鉛鉱・黄鉄鉱などの細粒を伴うことは、このこととよい一致を示すものと思われる。

以上の種々な観察および実験結果を総合すれば、化学分析結果から陶石は松脂岩に較べて SiO₂ が増加し、アルカリとくに Na₂O が減少していることは熱水によって岩石中の可溶成分が泳動を行い、とくにアルカリにおいては沈澱に際してその位置を異にし、K₂O は Fe とともに陶石の周辺部に共沈して低品位陶石いわゆる「虎石」を形成し、絹雲母化およびカオリン化などが行われている。X線解析によってもこの機構は同様に認められた。従って鉄・アルカリなどの溶脱した陶石の部分は珪酸によって代表される部分である。柿谷鉱山坑内において観察されるように陶石脈の尖滅する付近では陶石脈が

松脂岩に漸移することあるいは微量成分の変化および陶石中に黄鉄鉱・閃亜鉛鉱・方鉛鉱などが見られることなどから、出石地方の陶石鉱床は母岩の流紋岩中に松脂岩の岩脈が貫入後、さらにその弱線に沿って上昇した黄鉄鉱・閃亜鉛鉱・方鉛鉱などの生成と関係のある微酸性の浅熱水の上昇によって交代された鉱床で、松脂岩が変質していわゆる陶石化するという事は以上のような過程によって行われた鉱化現象を示すものである。

VII. 2. 田河内および海部陶石鉱床の生成 田河内および海部両陶石については母岩をそれぞれ石英斑岩および石英粗面岩として、その弱線に沿って上昇した浅熱水の影響を受けて出石陶石の場合と同様な過程を経て生成されたもので、かつその機構についても出石陶石と同一の作用に基づくものである。

VIII. 結 語

以上種々な研究の結果、いわゆる「陶石」と称せられているものは SiO₂・Al₂O₃ 等を主成分とするもので、化学組成上 SiO₂ 75~82%, Al₂O₃ 12~16%, K₂O+Na₂O 1~5% で、鉱物組成上では石英を主成分として絹雲母・カオリナイト等の粘土鉱物を伴った白色緻密な岩石であり、鉄成分の含有量の少ないもの程良質のものである。

また、陶石鉱床の生成については原岩の弱線に沿って上昇した浅熱水の影響によって交代変質して生成したもので、その変質生成の際に珪化作用・絹雲母化作用およびカオリン化作用を蒙り、またその生成の過程においてアルカリは沈澱に際してその位置を異にし、分子量の低い Na₂O は全般的に溶脱し、K₂O は Fe とともに陶石の周辺部に共沈して低品位陶石いわゆる「虎石」を形成していることがわかった。

さらに、山陰地区には松脂岩を変質して生成した出石陶石、石英斑岩および石英粗面岩をそれぞれ変質して生成した田河内および海部両陶石などの原岩を異にするものがあるが、その原岩が優白色な含鉄鉱物の含有の少ないものであれば、その生成物はほとんど同一のものであることも判明した。

謝辞: この研究にあたって御指導と御批判を賜り、また本稿を校閲していただいた京都大学伊藤貞市教授に心かななる感謝の意を捧げるものである。また、研究中御指導ならびに貴重な助言を頂いた京都大学吉沢甫・上田建夫両博士・地質調査所

* ハロイサイトについては問題点もあるので、その確認は今後の研究に残す。

大阪駐在員事務所 大塚寅雄所長・名古屋工業技術試験所 森田清
課長・名古屋工業大学福尾寿一助教授に 謹んで 謝意を表する次
第である。

参 考 文 献

- 1) 地質調査所編, 日本鉱産誌 B Ⅲ (主として窯業原料とな
る鉱石), 104 (1950)
- 2) 塚脇祐次, 地質学雑誌, 59 [694] 356 (1953)
- 3) 塚脇祐次, 地質, 1, 99-106 (1950)
- 4) 浜野一彦・上野三義, 地質調査所月報, 2 [1] 22-32
(1951)
- 5) 塚脇祐次・尾崎次男, 地質調査所月報, 4 [6] 417-420
(1953)
- 6) 塚脇祐次・土井啓司・繁沢和夫, 地質調査所月報, 2[10]
447-452 (1951)
- 7) 塚脇祐次, 地質調査所月報, 4 [9] 589-594 (1953)
- 8) 繁沢和夫・久保義蔵, 名古屋工業技術試験所調査報告,
3, 52 (1953)
- 9) 上野三義, 地質調査所月報, 3 [9] 414 (1952)
- 10) 久保輝一郎・加藤誠軌, X線回折による化学分析 (1955)
- 11) 須藤俊男, 粘土鉱物 (1953)
- 12) 河野義礼, 地質調査所報告, 134, 21 (1950)
- 13) 河野義礼, 同上, 25 (1950)
- 14) 地質調査所編, 日本鉱産誌 BⅣ (物理的特性を利用する
鉱物) 173 (1953)
- 15) W.W. Moorhouse, The Study of Rocks in Thin
Section
- 16) H. Williams, F.J. Turner and C.M. Gilbert, Petro-
graphy, 121
- 17) 上野力・浦野信義, 大工試季報, 10 [4] 284 (1959)
- 18) G.W. Brindley, X-ray Identification and Crystal
Structures of Clay Minerals (1952)
- 19) Dana, System of Mineralogy (7th Ed.)
- 20) U.S.G.S., The data of Geochemistry
- 21) R.E. Grim, Clay Mineral
- 22) 兵庫県地質図編輯委員会, 17 万分の 1 兵庫県地質鉱産図
および説明書 (1961)

(2/22/62 受付)

フォルステライト磁器の微構造と電氣的 および機械的性質との関係

高周波用絶縁材料としてのフォルステライト磁器 (第 5 報)

杉浦正敏・平井道雄・佐野資郎・石井英一

(名古屋工業技術試験所)

The Relation Between the Microstructure and the Electrical and Mechanical Properties of Forsterite Porcelain Forsterite Porcelain as High Frequency Insulator, V

By

Masatoshi SUGIURA, Michio HIRAI, Shiro SANO and Eiichi ISHII

(The Government Industrial Research Institute, Nagoya)

Abstract

Three kinds of forsterite batches of molar ratios, $\text{MgO} : \text{SiO}_2 = 2.00 : 0.82$ (specimen M), $2.00 : 1.00$ (specimen F), and $2.00 : 1.05$ (specimen S) were calcined at 1300°C , added 5% of Kaolin and fired at various temperatures.

Firing shrinkage, apparent specific gravity, water adsorption, dielectric loss, insulation resistance and bending strength of the fired specimens were measured to discuss the relation between the properties and the microstructure.

Above physical properties gave the maximum or the minimum values at certain firing temperatures. The specimen M fired at 1550°C , F at 1390°C , and S at 1370°C gave the maximum values of firing shrinkage, apparent specific gravity, T'_e values of volume resistivity, and bending strength, and the minimum values of water adsorption and dielectric loss.

At these maximum or minimum points each specimen showed a similar microstructure being composed of the forsterite crystals of about 10μ . The texture was dense but not yet the perfect mosaic structure which came out by firing at higher temperature through the rapid aggregation of forsterite crystals.

In such a specimen cracks were observed in crystal and matrix which leads to the lowering of many properties.