

岡山県南部の風化花崗岩中の粘土鉱物

——その1：笠岡市北木島について——

坂本尚史・小林祥一*

岡山理科大学理学部基礎理学科

*倉敷芸術科学大学産業科学技術学部機能物質学科

(1996年10月7日 受理)

1. はじめに

岡山県南部一帯には、中生代白亜紀を中心とした火成活動が見られ、花崗岩および流紋岩が広く分布している。その中で、岡山市万成や笠岡市北木島では花崗岩が石材として盛んに採掘され、それぞれ‘万成石’、‘北木石’と呼ばれて珍重され、石碑、石垣、墓石、各種建造物用石材として古くから利用されてきた。

近年、地球環境汚染の一つである、酸性雨などによる各種の建築用石材の汚染・破壊が全世界的に深刻な問題となっている。従来、問題にされる石材は、古代ギリシャの遺跡で代表されるような石灰岩がほとんどであり(Grossi *et al.*, 1994¹⁾: MacGee, 1989²⁾: Charila, 1987³⁾: Gauri and Holder, Jr., 1981⁴⁾, など)、花崗岩質石材は堅牢で耐久性が高いため、問題にされてこなかった。筆者らは、花崗岩石材で作られた岡山市の高松最上稲荷の仁王門表面の剥落現象を観察し、風化作用と極めて類似していることから、これが酸性雨(酸性霧)によるものである可能性を指摘した(Kobayashi *et al.*, 1994⁵⁾)。さらに、この事実を実験的に考察する目的で、花崗岩の酸性溶液による人工風化実験を行なった(小林ら, 1993⁶⁾)。この実験は現在も継続中であるが、その変質初期の挙動が仁王門に見られる変質過程と極めて良く一致することをすでに指摘した。

一方、花崗岩は天然環境でもしばしば風化変質を受け、その周辺では風化により生成した砂質土(まさ、真砂、花崗岩サプロライト)が広く発達していることが良く知られている。岡山県南部でもかなり多くの地点で‘まさ’が発達し、一部地域では庭土用に採掘が行なわれている。さらに、花崗岩中には多くの節理が認められ、それを満たすように、あるいは花崗岩を横切って粘土脈が発達している。これらの風化花崗岩の変質過程や粘土脈中に見られる粘土鉱物を検討することは、酸性雨の岩石鉱物に与える影響を検討する上でも重要なデータを提供してくれるものと考えられることから、岡山県南部の数カ所で試料を採取し、検討を行なっている。

今回は、高松最上稲荷の仁王門の石材産地でもある、岡山県笠岡市北木島の花崗岩および‘まさ’中に見られる粘土鉱物について報告する。

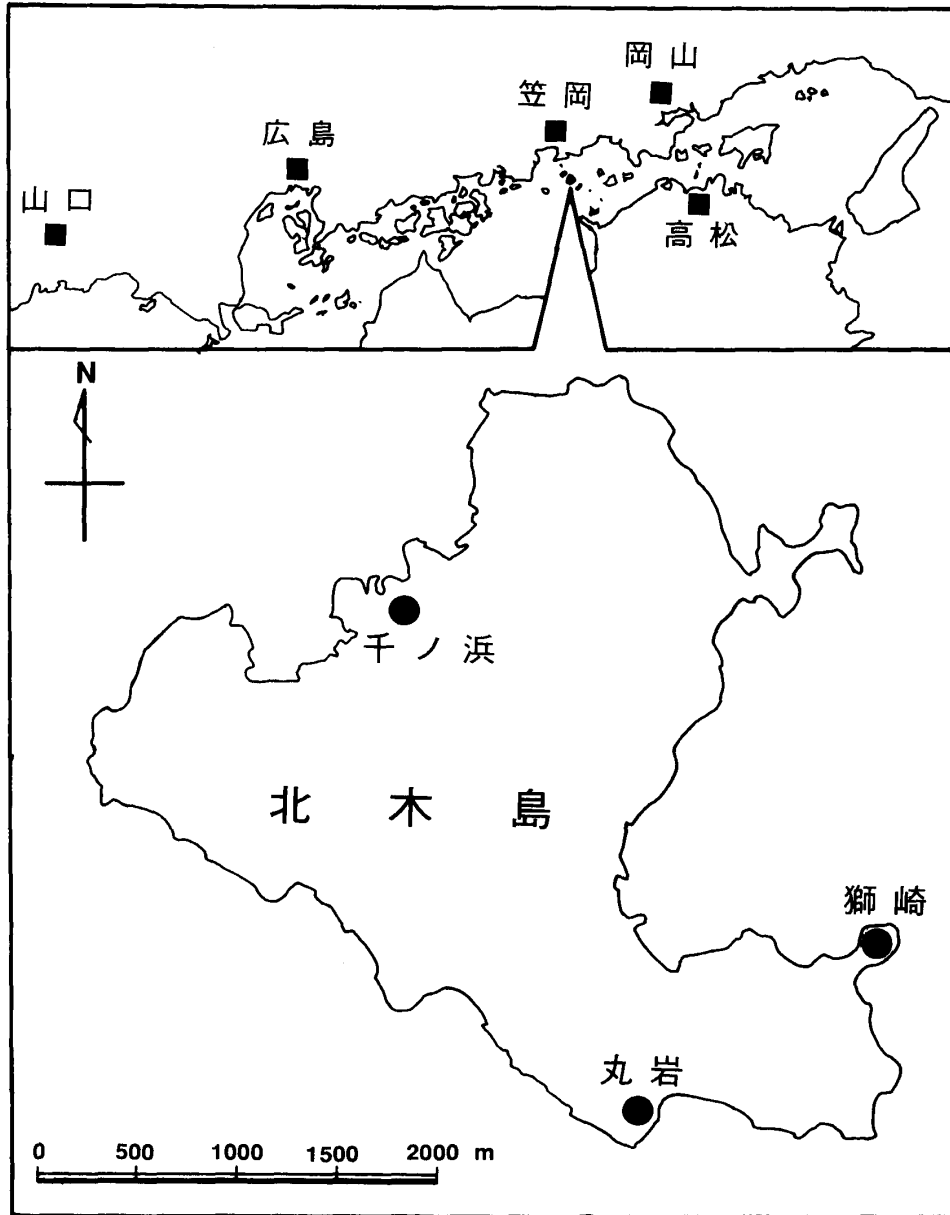


図1 試料採集地点

2. 北木島について

北木島は、岡山県の西部笠岡市の南方約12 kmの瀬戸内海の小島である。島のほとんどは、山陽型に属する中粒の黒雲母花崗岩から成っている(濡木, 1987⁷⁾)。島の南東部の一部にはやや変成を受けた古生層の泥質岩が、また、南部のごく一部には領家変成岩に属するやや粗粒の花崗岩が分布している。中粒の黒雲母花崗岩は‘北木石’と呼ばれて、古くから岡山県の代表的石材として、島の北部を中心に採掘され、大阪城の築城にも使われたといわれている。全体としては新鮮なものが多いが、数カ所では風化を受けて、いわゆる‘まさ’が小規模ながら認められる。試料の採取は、図1に示したように、島北部の千ノ浜の採石場、東部の獅崎近くの露頭、南部の丸岩近くの露頭の3カ所で行なった。これらの内、前

2カ所は黒雲母花崗岩、最後のものは領家花崗岩に属するものである。

3. 実験方法

各地点で採集した試料は、分散剤としてごく少量の0.5 mol/l NaOH水溶液を加えて超音波により分散させた後、沈降法により2 μm 以下の粘土フラクションを採取した。得られた粘土フラクションは、主としてX線回折により粘土鉱物の同定を行なった。この際、エチレングリコール処理(65°Cの蒸気による1時間の飽和处理)、110°Cおよび300°C 1時間加熱処理を行なうとともに、Churchman *et al.* (1984)⁸⁾の方法によりハロイサイトの検出を行なった。この方法は、定方位試料にホルムアミドを噴霧し、約40分放置するとハロイサイトのみがホルムアミドとの複合体を形成することを利用して、カオリナイトと層間水の脱水したハロイサイト(メタハロイサイト)とを識別しようとするものである。この処理により、メタハロイサイトの約7.3Åの回折線は10.4Åに移動するが、カオリナイトの回折線は移動しない。

4. 実験結果

4.1 千ノ浜

千ノ浜で採集した試料は、馬越石材工業(株)の堀場の東壁面近くの花崗岩中の幅数mmの裂罅を充填する粘土試料(白色~淡黄緑色のもの:K-11, および淡褐色のもの:K-06), および東側斜面上部に分布する‘まさ’試料(K-10), ならびに同‘まさ’中に見られた幅10~20cmの変質脈試料(淡黄色のもの:K-09, および淡褐色のもの:K-07), の5試料である。

図2に花崗岩中の裂罅を埋める白色~淡黄緑色の粘土脈(K-11)の粘土フラクションのX線回折パターンを示す。定方位試料では約15, 10.2, および7.5Åに回折線が認められる。約15Åの回折線はエチレングリコール処理で約18Åに、300°C加熱で約10Åに移動することからスメクタイトによるものと考えられる。不定方位試料では060回折線が1.497Åを示すことから、このスメクタイトはdi-型であると考えられる。10.2Åの回折線は、110°C加熱およびエチレングリコール処理で変化が見られないことから雲母粘土鉱物によるものと考えられる。また、7.5Åの回折線はホルムアミド処理で10.4Åに移動することからハロイサイトによるものと考えられるが、ホルムアミド処理においても7.5Åに弱い回折線が残ることから少量のカオリナイトも含まれていることが考えられる。回折線の強度から推定した各粘土鉱物の含有量は、ハロイサイト = スメクタイト > 雲母粘土鉱物 >>> カオリナイトの順である。ほぼ同一地点から別に採集した淡褐色の粘土(K-06)においても、図3に示すように、同様な粘土鉱物が検出されたが、スメクタイトの含有量が大きく、カオリナイトの存在は認められなかった。

採石場横の‘まさ’から得られた粘土フラクション(K-10)のX線回折パターンを図4に示す。定方位試料では14.6, 10.2, および7.3Åに回折線が認められる。14.6Åの回折線は

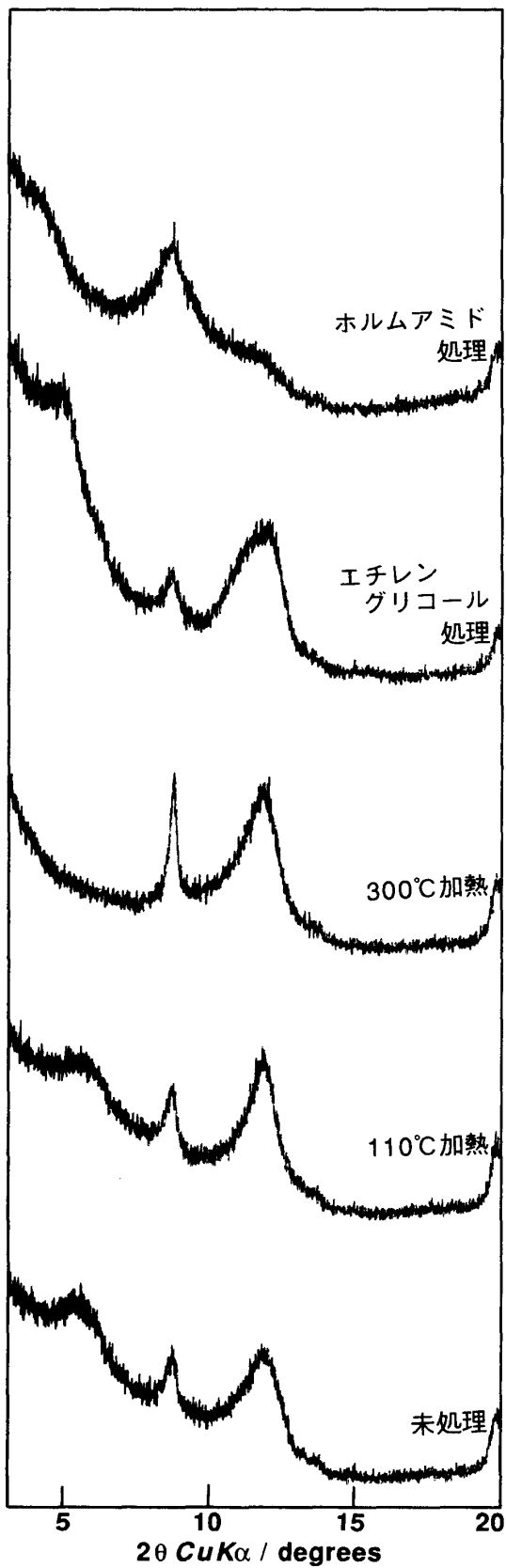


図2 千ノ浜の花崗岩中の裂隙を埋める粘土脈 (K-11) の粘土フラクションのXRDパターン

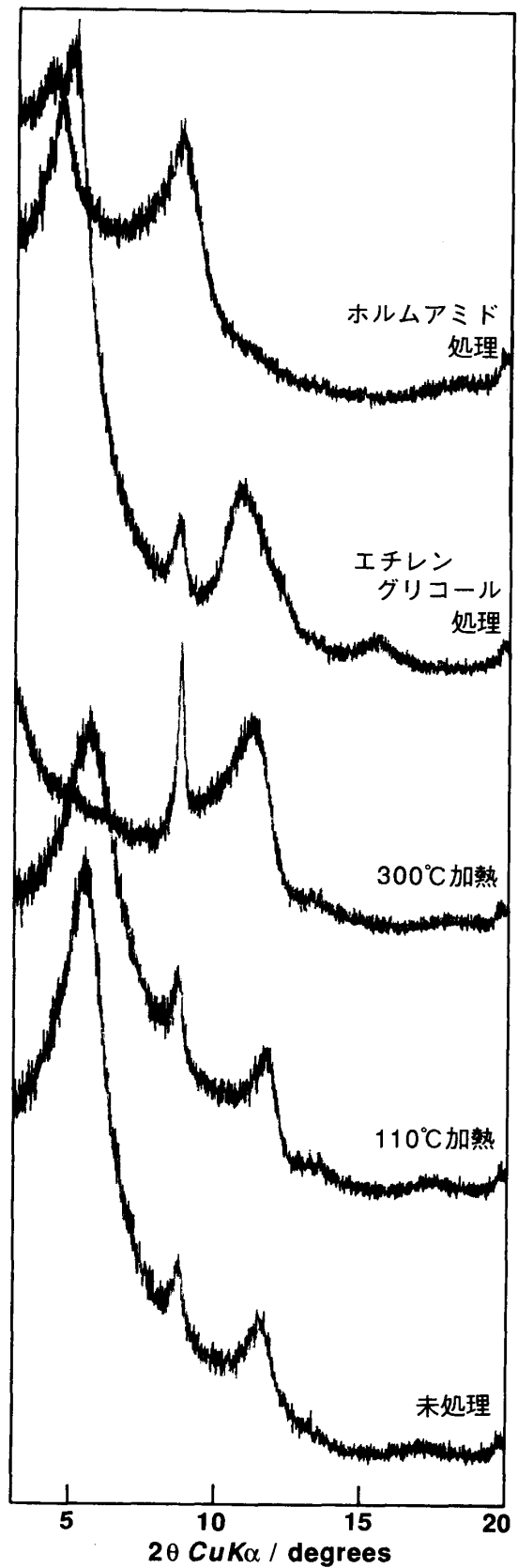


図3 千ノ浜の花崗岩中の裂隙を埋める粘土脈 (K-06) の粘土フラクションのXRDパターン

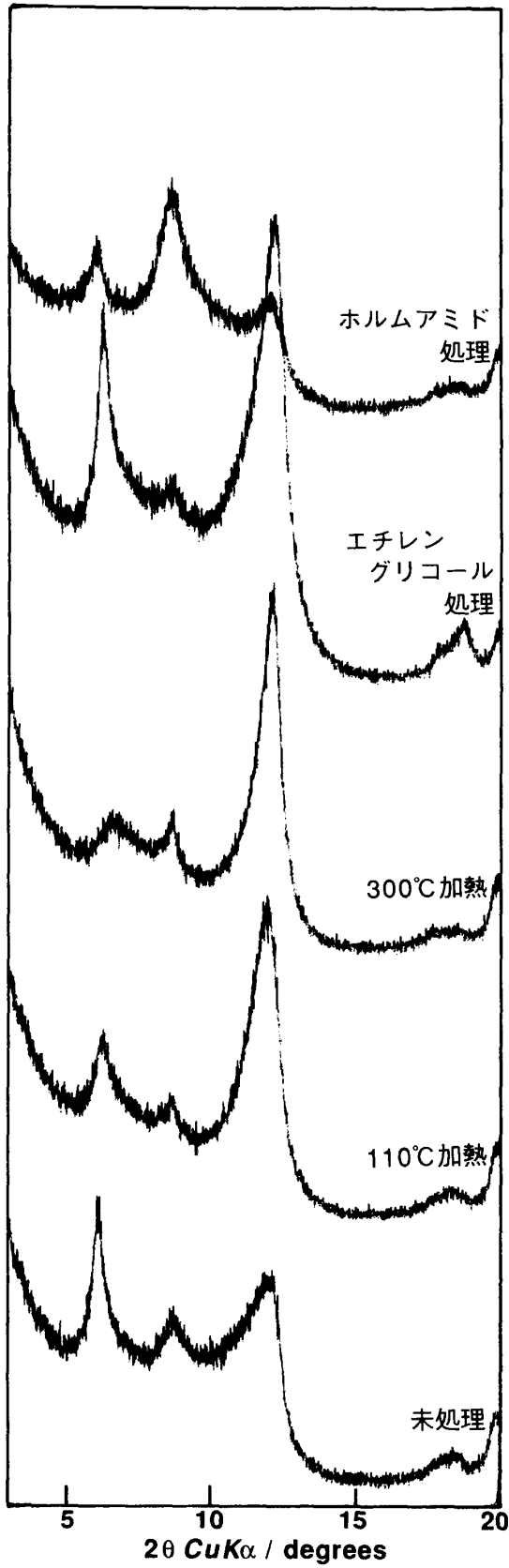


図4 千ノ浜の採石場横の‘まさ’ (K-10) の粘土フラクションの XRD パターン

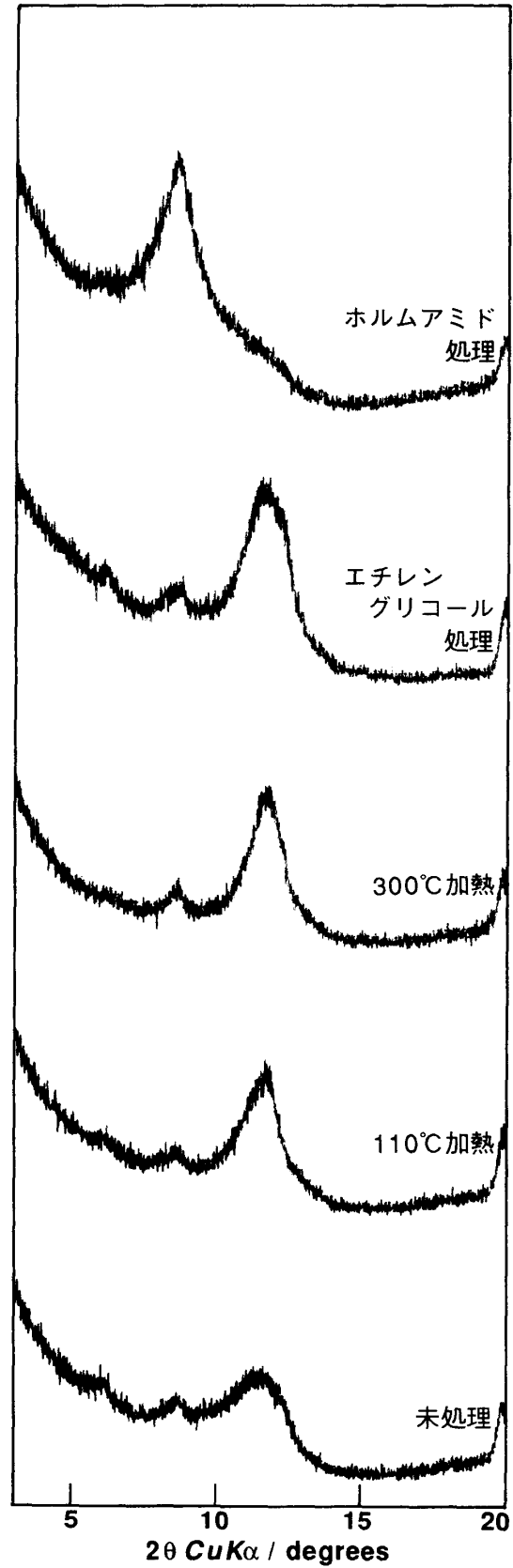


図5 千ノ浜の採石場横の‘まさ’中の粘土脈 (K-09) の粘土フラクションの XRD パターン

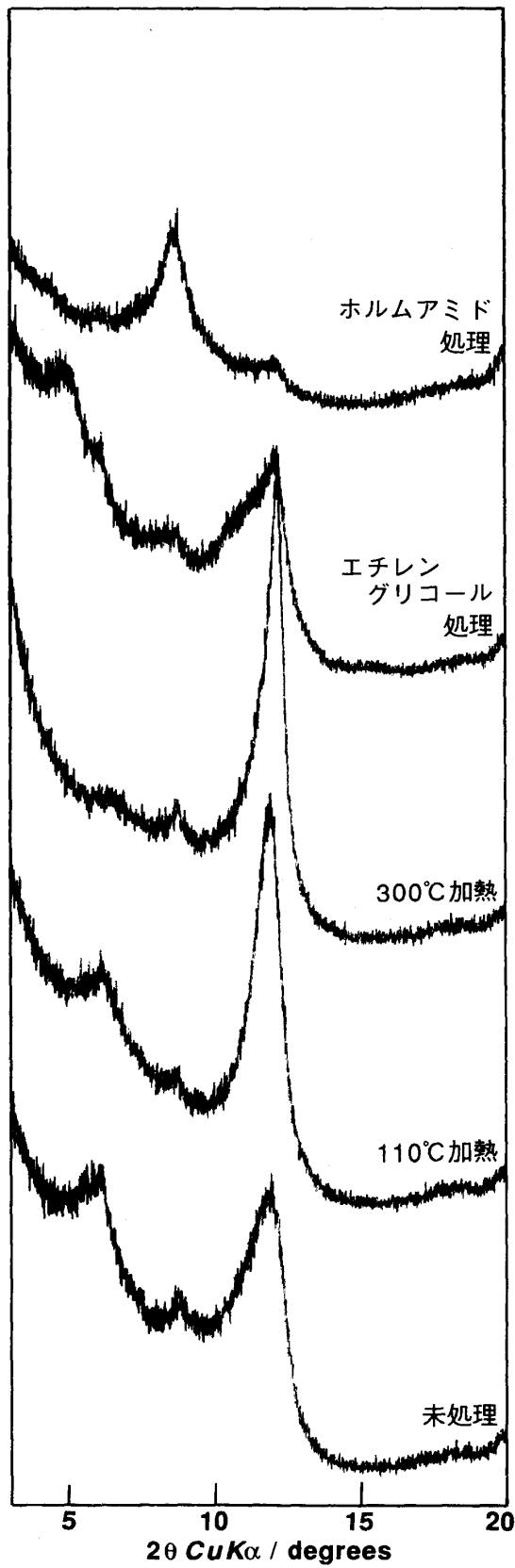


図6 千ノ浜の採石場横の'まさ'中の粘土脈 (K-07) の粘土フラクションの XRD パターン

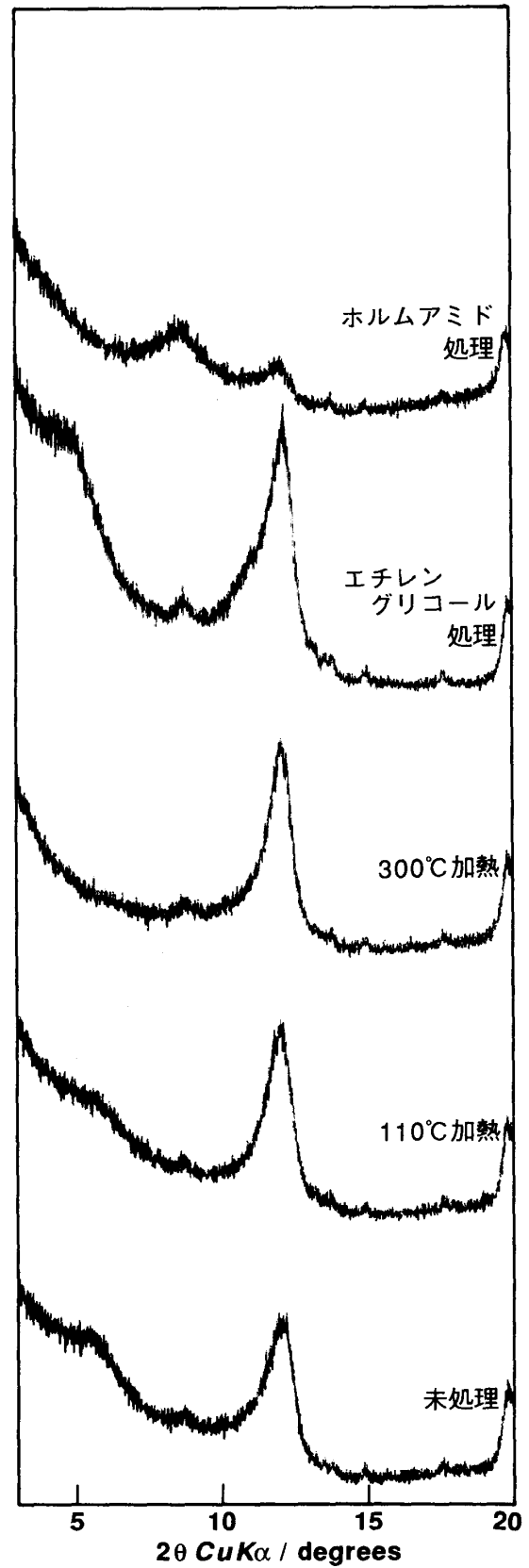


図7 獅崎の'まさ'中の粘土脈 (K-13) の粘土フラクションの XRD パターン

比較的鋭いもので、エチレングリコール処理で変化せず、加熱処理でも強度は低下するものの底面間隔に変化がないことから、パーミキュライトによるものと考えられる。10.2 Åの回折線は、110°C加熱およびエチレングリコール処理で変化が見られないことから雲母粘土鉱物によるものと考えられる。7.3 Åの回折線はホルムアミド処理で10.4 Åと7.3 Åの2つの回折線に分かれることからハロイサイトとカオリナイトの両者によるものと考えられる。

‘まさ’中の淡黄色の粘土脈試料(K-09)では、図5に示すようにハロイサイト、パーミキュライト、および雲母粘土鉱物が認められる。しかし、ハロイサイトの含有量が大きく、パーミキュライトと雲母粘土鉱物の含有量は少ないものと思われる。ほぼ同一地点から得られた淡褐色の粘土脈試料(K-07)でも、図6に示すように、ハロイサイトが多く含まれているが、エチレングリコール処理で約18 Åに、ホルムアミド処理で7.3 Åに回折線が認められることから、パーミキュライトおよび雲母粘土鉱物に加えて少量のスメクタイトおよびカオリナイトを含むものと考えられる。

4. 2 獅崎

獅崎の道路沿いの造成地の南側に風化花崗岩の崖面が観察され、その‘まさ’中の幅十数 cmの白色粘土脈から試料(K-13)を採集した。

この試料の粘土フラクションのX線回折パターンを図7に示す。定方位試料では、約15 Åと10.2 Åに弱い回折線、および7.4 Åに回折線が認められる。15 Åの回折線はエチレングリコール処理で約18 Åに移動し、10.2 Åの回折線は各処理で移動しないことから、それぞれ少量のスメクタイトおよび雲母粘土鉱物によるものと考えられる。7.4 Åの回折線はホルムアミド処理で10.4 Åと7.3 Åの回折線に分かれることから、ハロイサイトとカオリナイトが含まれているものと思われる。

4. 3 丸岩

丸岩から大宇根に向かう岩場に領家花崗岩と思われるやや粗粒の花崗岩が分布している。この花崗岩中に見られる幅数 cmの粘土脈から試料(K-12)を採集した。

この試料の粘土フラクションのX線回折パターンを図8に示す。定方位試料では10.2 Åと7.4 Åに回折線が認められ、さらに15 Å付近に極めて弱い回折線が認められる。10.2 Åの回折線は110°C加熱処理では強度を弱めるものの残存することから、ハロイサイトとともに少量の雲母粘土鉱物が含まれているものと考えられる。7.4 Åの回折線はホルムアミド処理で10.4 Åに移動するものの7.3 Åに回折線が残存することから、ほとんどがハロイサイトによるものであるが少量のカオリナイトも含まれるものと考えられる。15 Åの回折線はエチレングリコール処理で14.5 Åに残ることからパーミキュライトによるものと考えられる。なお、9.46 Åおよび6.86 Åに見られる鋭い回折線は濁沸石によるものである。

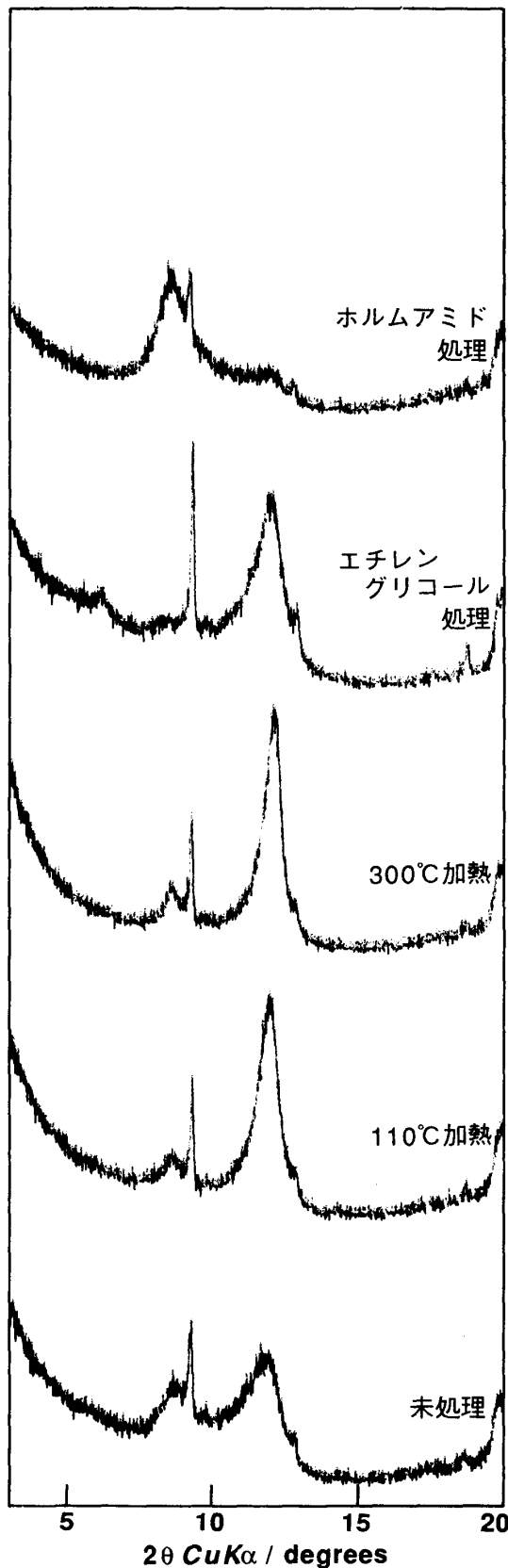


図8 丸岩の花崗岩中の粘土脈 (K-09) の粘土フラクションの XRD パターン

5. 考察およびまとめ

北木島各地の‘まさ’および粘土脈から見出された粘土鉱物をまとめて表1に示す。

表に示した粘土鉱物の相対的含有量は、X線回折における回折線の相対強度から推定したものである。

千ノ浜における花崗岩の風化により生成した‘まさ’を構成する粘土鉱物は、バーミキュライト、ハロイサイト、および少量のカオリナイトであった。バーミキュライトは黒雲母の風化により、ハロイサイトとカオリナイトは長石類の風化により生成したものと考えられる。なお、少量の‘雲母粘土鉱物’ (XRDにおける 10.2\AA の回折線) が認められたが、これは未変質の黒雲母が混入した可能性もあり、風化により生じた雲母粘土鉱物ではないことも考えられるため、本考察では除外した。花崗岩質岩石の風化については、これまでに多くの研究が行なわれている (三浦, 1966⁹⁾; 大八木ら, 1969¹⁰⁾; 柿谷・河野, 1972¹¹⁾; 中川ら, 1972¹²⁾; 遠藤, 1987¹³⁾; 長沢・森嶋, 1990¹⁴⁾; 中川・津田, 1993¹⁵⁾, など)。それらの報告によれば、黒雲母は風化変質により黒雲母/バーミキュライト混合層鉱物、バーミキュライトを経てカオリン鉱物へ、長石類はハロイサイトを経てカオリナイトへ、それぞれ変わるとされており、場合によってはギブサイトが生成するとされている。今回の結果もこれらの報告に類似しており、特に、黒雲母とバーミキュライトの混合層鉱物が認められない点については、中川と津田 (1993)¹⁵⁾ の報告した小豆島の例に良く一致している。

粘土脈中の粘土鉱物としては、ハロイサ

表1 北木島の花崗岩中の粘土脈および‘まさ’から得られた粘土鉱物

| 産出地点 | 産 状 | 試料番号 | 粘土鉱物 (相対的含有量) |
|------|------------|------|--|
| 千ノ浜 | 花崗岩中の裂罅を充填 | K-11 | Halloysite = Smectite > Mica-clay >>> Kaolinite |
| 千ノ浜 | 花崗岩中の裂罅を充填 | K-06 | Smectite >> Halloysite > Mica-clay |
| 千ノ浜 | ‘まさ’ | K-10 | Halloysite > Vermiculite >> Kaolinite > Mica-clay |
| 千ノ浜 | ‘まさ’中の粘土脈 | K-09 | Halloysite >>> Mica-clay = Vermiculite |
| 千ノ浜 | ‘まさ’中の粘土脈 | K-07 | Halloysite >> Smectite > Mica-clay > Kaolinite > Vermiculite |
| 獅 崎 | ‘まさ’中の粘土脈 | K-12 | Halloysite >> Kaolinite > Smectite > Mica-clay |
| 丸 岩 | 領家花崗岩中の粘土脈 | K-13 | Halloysite >> Mica-clay > Kaolinite >> Vermiculite |

イトがすべての粘土脈について認められ、さらに粘土脈によりスメクタイト、バーミキュライト、およびカオリナイトが認められた。これらに加えて、少量の‘雲母粘土鉱物’(XRDにおける10.2Åの回折線)が認められたが、これは‘まさ’と同様に未変質の黒雲母が混入した可能性もあり、本考察からは除外した。花崗岩中の粘土脈に関する研究は、これまでも広島県下の例を中心にする広範な調査・研究が行なわれている(北川・柿谷, 1977¹⁶⁾, 1978 a¹⁷⁾, 1978 b¹⁸⁾, 1978 c¹⁹⁾, 1981²⁰⁾: Kitagawa and Kakitani, 1981²¹⁾: 北川ら, 1981²²⁾)。彼らは、花崗岩中の粘土脈には、白色でハロイサイトを主とするものと、緑色でイライトおよびスメクタイトを主とするものの2種類あると述べている。また、同じ脈中でも上部と下部とでは粘土鉱物組成が異なる場合があることを報告している。その成因としては、未だ不明な点が多々あるものの、花崗岩の貫入に引き続いた熱水活動と、その後の風化および地下水の作用によるものであることを推定している。今回の千ノ浜および獅崎の‘まさ’中の粘土脈も白色ないし淡褐色を呈し、主要な粘土鉱物はハロイサイトであり、北川と柿谷が報告した広島県下の花崗岩中の白色粘土脈と類似している。少量のスメクタイトと付随しているが、北川と柿谷も同様な例があることを指摘している。その成因については、千ノ浜では粘土脈の両側に変質を受けた跡が認められ、これが熱水性起源であることを示している。獅崎の場合にはそのような変質部は観察できなかったが、粘土鉱物組成から見て、同様に熱水性起源であるものと思われる。いずれの場合も、北川と柿谷も指摘したように、花崗岩の貫入に引き続く熱水作用により粘土脈が形成され、その後の風化作用により花崗岩が‘まさ’化しても、ほぼそのまま残ったものと考えられる。丸岩の領家花崗岩中の白色粘土脈も、‘まさ’化が生じていないものの、同様な成因により生成したものであろう。

千ノ浜の花崗岩中の裂罅を埋める白色～淡黄緑色の粘土脈は、スメクタイトを主成分としており、‘まさ’中の粘土脈とは若干その特徴を異にしている。北川と柿谷もスメクタイトを主成分とする粘土脈の存在を報告しており、ハロイサイトを主成分とする粘土脈と基本的に同じ成因であろうと推定している。しかし、今回のスメクタイトは di-型であり、彼らが報告した tri-型のものとは異なっているが、今回の調査のみでは、その成因の違いを考察することは出来なかった。

今回は、調査範囲も狭く、得られた粘土試料も数少なかったため、粘土の成因や酸性雨

の影響の有無についての考察は出来なかった。今後、岡山県南部の他の地域にも調査範囲を拡げ、花崗岩の風化変質についてより詳細な検討を行なう予定である。

謝 辞

本研究を行なうに際して、馬越石材工業（株）社長馬越昭二氏および同社専務の奥野敬氏には試料採集にあたって大変お世話になった。また、木場智子、東谷智子両嬢（当時、岡山理科大学学生）は実験に協力された。篤く御礼申し上げる。

参考文献

- 1) Grossi, C. M., Esbert, R. M., Lewry, A. J. and Butlin, R. N. (1994) Proceedings of the 7 th International IAEG Congress, 3573-3582.
- 2) MacGee, E. S. (1989) U. S. Geol. Surv. Bull., No. B, **1889**, 1-25.
- 3) Charola, A. E. (1987) Jour. Chem. Educ., **64**, 436-437.
- 4) Gauri, K. L. and Holdren, Jr. G. C. (1981) Envir. Sci. Tech., **15**, 386-390.
- 5) Kobayashi, S., Sakamoto, T. and Kakitani, S. (1994) Proceedings of the 7th International IAEG Congress, 3651-3658.
- 6) 小林祥一・坂本尚史・柿谷 悟 (1993) 粘土科学, **33**, 81-91.
- 7) 濡木輝一 (1987) 日本の地質 7 「中国地方」, 84.
- 8) Churchman, G. J., Whitton, J. S., Claridge, G. G. C. and Theng, B. K. G. (1984) Clays Clay Miner., **32**(4), 241-248.
- 9) 三浦 清 (1966) 岩鉱, **56**, 256-283.
- 10) 大八木規夫・内田哲男・鈴木宏芳 (1969) 防災科学技術センター研報, **2**, 21-44.
- 11) 柿谷 悟・河野忠臣 (1972) 粘土科学, **12**, 51-62.
- 12) 中川善兵衛・小坂丈子・浦部和順・山田久夫 (1972), 岩鉱, **67**, 283-290.
- 13) 遠藤則夫・木宮一邦 (1987), 応用地質, **28**, 139-146.
- 14) 長沢敬之助・森嶋 光 (1990), 粘土科学, **30**, 101-108.
- 15) 中川昌治・津田隆幸 (1993), くろしお, **7**, 11-15.
- 16) 北川隆司・柿谷 悟 (1977), 鉱物雑, **13** (特別号), 187-196.
- 17) 北川隆司・柿谷 悟 (1978), 粘土科学, **18**, 1-10.
- 18) 北川隆司・柿谷 悟 (1978), 粘土科学, **18**, 31-39.
- 19) 北川隆司・柿谷 悟 (1978), 鉱物雑, **13**, 357-379.
- 20) 北川隆司・柿谷 悟 (1981), 鉱物雑, **15** (特別号), 107-115.
- 21) Kitagawa, R. and Kakitani, S. (1981), Jour. Japan. Assoc. Min. Pet. Econ. Geol., **76**, 176-179.
- 22) 北川隆司・柿谷 悟・湊 秀雄 (1981), 粘土科学, **21**, 141-152.

Clay Minerals in the Weathered Granitic Rocks
in the Southern Part of Okayama Prefecture, Japan
— Part 1 . Its Mineralogy and Occurrence in Kitagi Island —

Takabumi SAKAMOTO and Shouichi KOBAYASHI*

*Department of Applied Science,
Faculty of Science,
Okayama University of Science,
Ridai-cho 1-1, Okayama 700, Japan*

**Division of Earth Sciences,
Kurashiki University of Science and the Arts,
2640 Nishinoura, Tsurajima-cho, Kurashiki 712, Japan*

(Received October 7, 1996)

The constituent clay minerals of the weathered granites (saprolite), veins, and fractures in the Sanyo-type granitic body, and the vein in the Ryoke-type granitic body of Kitagi Island, Okayama Prefecture, have been examined by X-ray powder diffraction.

The saprolite contains halloysite, vermiculite, and a small amount of kaolinite. The clay vein mainly consists of halloysite and a small amount of kaolinite, vermiculite, and di-octahedral smectite in the Sanyo-type granite, and kaolinite and vermiculite in the Ryoke-type granite. In the fracture, commonest clay mineral is di-octahedral smectite with subordinate amounts of halloysite and kaolinite. Mica clay mineral is found in all cases.

The clay minerals in the saprolite were formed during the chemical weathering. On the other hand, it seems that the clay minerals in the veins and fractures are hydrothermal origin and remain unchanged through weathering.