

蛭形ギブサイト結晶にみられるギブサイト-粘土鉱物の累帯構造*

— 大山および三瓶山降下堆積物中の粘土鉱物その5 —

田 崎 和 江

岡山大学温泉研究所 温泉地質学部門

(1972年12月25日受理)

1. はじめに

筆者は、大山降下堆積物中の粘土鉱物について研究を進めており、その概要についてはすでに報告した(田崎, 1971a, 1971b, 1972a, 1972b, 1973; 田崎・佐治1972)。大山降下堆積物中の、いわゆる倉吉浮石層(大山中部火山灰)には、アロフエン、イモゴライトと共存して、しばしば蛭形(vermiform)のギブサイト結晶がみとめられる。今回、X線マイクロプローブ(EPMA)により、ギブサイト-粘土鉱物のくりかえしによる顕著な累帯構造を、この蛭形ギブサイト結晶に見出したので報告する。

なお、このようなギブサイト結晶については、木町・益富(1960)、LODDING(1961, 1972)、磯部(1966)、

WADA and AOMINE(1966)、GARDNER(1970, 1972)の研究がある。これらの研究によれば、このような結晶は、ギブサイトとパーミキュライトとの混合物と少量のカオリナイト、モンモリロナイトが混っている場合や、クロライトと“undetermineable layered mineral”との混合物であったりする(木町・益富, 1960)。また、松阪産のものはギブサイトとカオリナイトよりなり、黒雲母を起源とするものであることが推定されている(磯部, 1966)。電子顕微鏡でみると、曲った棒状を示し、長軸に対し平行と直角方向の両者にわれ目がみとめられる(LODDING 1961; WADA and AOMINE, 1968)。また、多量に石英砂のある中で、カリ長石が風化によって、

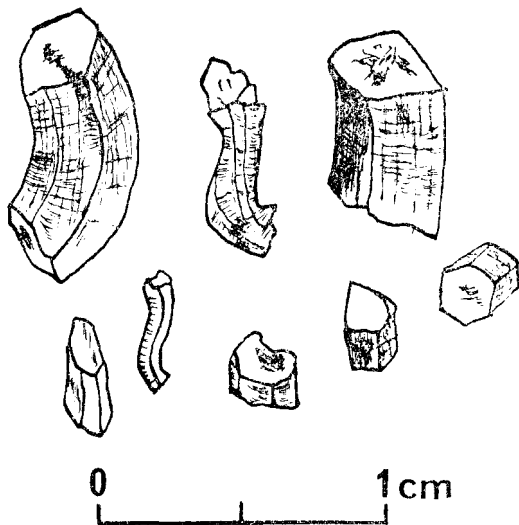


Fig. 1. Sketch of vermicular gibbsite. Vermicular gibbsite shows cleavage perpendicular to the long axis. These platelets have the shape of irregular hexagons, parallelograms, or the composite of these types.

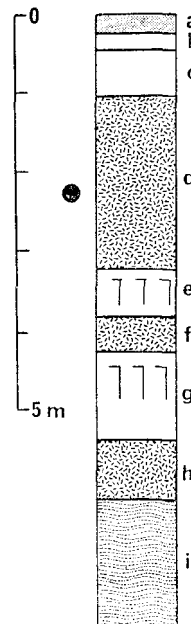


Fig. 2. Columnar section of the stratigraphic succession at Yotsuzuka; vermicular gibbsite was found in this pumice layer.

*1972年12月、第16回粘土科学討論会において一部発表

蛭形ギブサイト結晶に変化するという説 (LODDING, 1961, 1972) や、石英の存在しないところで、カオリナイトが分解してギブサイトが形成されるという説 (GARDNER, 1970) がある。しかし、今回報告するような累帯構造は、これまで、まったく見出されていなかった。

2. 産 状

蛭形ギブサイト結晶のスケッチを第1図に、鳥取県米子市四塚における産状をしめす柱状図を第2図および第1表にしめす。蛭形ギブサイト結晶は、黄褐色の倉吉浮石層に産する。マトリックスの浮石部分の粘土鉱物は、多量のアロフェンと少量のイモゴライトを組成とする。浮石の粒径は大きく、間隙が多い。下層は、水酸化鉄を多くふくんだ赤褐色ロームである。

蛭形ギブサイト結晶は、5~6mmの曲った柱状をなし、長軸に対し、垂直にはがれる性質をもち、横断面は、しばしば六角形や平行四辺形を呈する。一般に白色~肌色を呈すが、周辺部が暗褐色でおおわれたり、内部が虫くい状に暗褐色を呈する部分もみとめられる。

3. 分析結果

3.1 X線回折

蛭形ギブサイト結晶のX線回折結果を第3図にしめす。暗褐色部分は、26.7Å, 23.3Åに弱い反射と、12.6Åに強い反射、10.0Åに弱い反射、7.3Åおよび4.9Åに強い反射がみとめられる。白色部分は、12.8Å, 10.0Å, 7.3Å, 4.9Åに反射がみとめられる。

26.7Å, 12.6Å (白色部の12.8Å) および10.0Å (暗褐色部のみ) の反射は、エチレングリコール処理では変化なく、塩酸処理および100°Cの加熱処理で消失する。また、硝酸アンモン処理では、12.3Åと10.4Åに回折線は移動し、反射は強まるが、26.7Åの回折線は、著しく弱くなる。これらの処理により、26.7Å, 12.6Å (白色部の12.8Å) および10.0Å (暗褐色部のみ) の回折線は、ハイドロバイオタイトと判定した。

白色部の10.0Åの反射は、エチレングリコール処理により10.9Åに移動し、ハロイサイトと判定した。

7.3Åの回折線は、塩酸処理で変化なく、400°C加熱処理で反射が消失することから、カオリン鉱物と判定した。

4.9Åの回折線は、塩酸処理で反射が弱まり、200°Cの加熱処理で反射が消失する。また、300°C, 90kg/cm²,

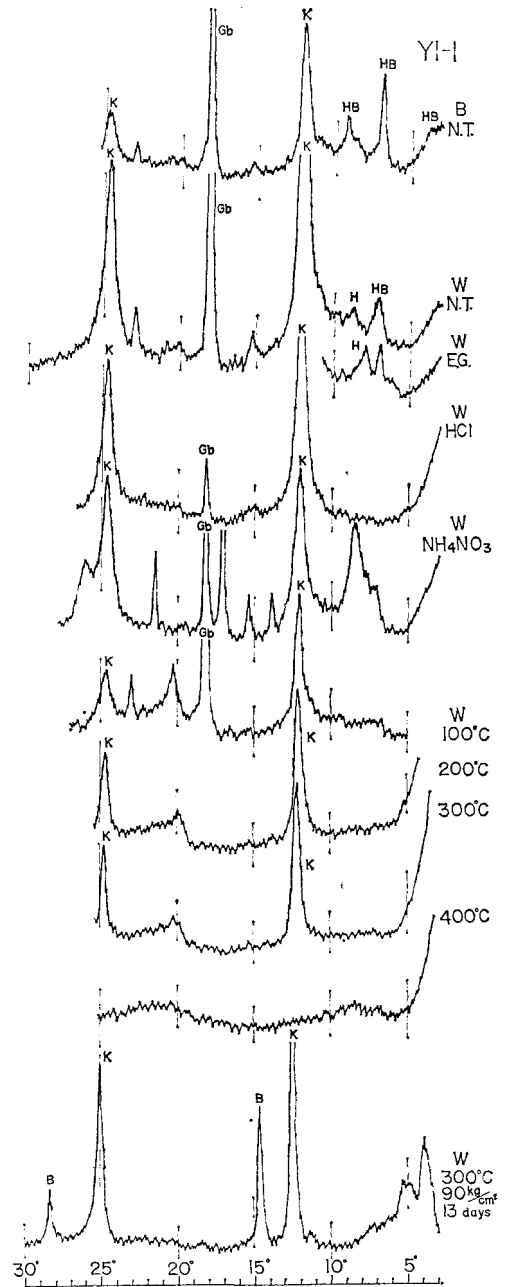


Fig. 3. X-ray diffraction patterns of vermicular gibbsite. B : dark brown part. W : milky white part. N. T. : not treated. E. G. : Ethylene glycol treatment. HCl : HCl treatment. NH₄NO₃ : NH₄NO₃ treatment. 100°C : Heating treatment at the temperature of 100°C for 1 hour. 300°C, 90 kg/cm², 13 days : treated under hydrothermal conditions at temperature 300°C, pressure 90 kg/cm², 13 days. H. B. : hydrobiotite. K : kaolinite minerals. Gb : gibbsite. H : hydrated halloysite. B : boehmite.

13日の水熱条件下においては、6.2Åに回折線をもつベーマイトに変化することから、ギブサイトと判定した。

すなわち、蛭形ギブサイト結晶の組成は、ギブサイトを主成分とし、ハイドロバイオタイト、カオリン鉱物、ハロイサイトである。暗褐色部にハイドロバイオタイトが多く、白色部にカオリン鉱物が多くみとめられる。

3・2 示差熱分析

蛭形ギブサイト結晶の示差熱分析結果を第4図にしめす。

100°Cおよび550°Cにおける吸熱反応と、970°Cの発熱反応は、主にカオリン鉱物と少量のハロイサイトおよびハイドロバイオタイトによると考えられる。310°Cの吸熱反応はギブサイトの存在によると考えられる。

3・3 電子顕微鏡観察

蛭形ギブサイト結晶の電子顕微鏡写真を図版1および2にしめす。

図版1における、曲った約1.5μの長さの棒状のものは、ギブサイトであり、うす膜状および網状の部分は、ハイドロバイオタイトと考えられる。図版2における、約0.5μの中空管状または、約0.2μの縦割りした米粒状のものは、ハロイサイトおよびカオリン鉱物と考えられる。

3・4 EPMAによる観察

蛭形ギブサイト結晶の横断面を、へりから中心にかけて1160μの組成を連続的にしらべたEPMAチャートを第5図にしめす。また各元素の計数値の強度を比較したチャートを第6図にしめす。

測定条件は、加速電圧15kV、試料電流0.015μA、ビームの径約10μで、試料を20μ/minの速さで動かした。

Si, Al, Mg, Fe, Kの存在濃度に周期性がみとめられ、その周期性は、大きく三つに分類ができる。すなわち、

- (i), Si, Mg, Fe, Kの濃度が高く、Alが低い部分
- (ii), Si, Mg, Fe, Alの濃度が高く、Kが低い部分

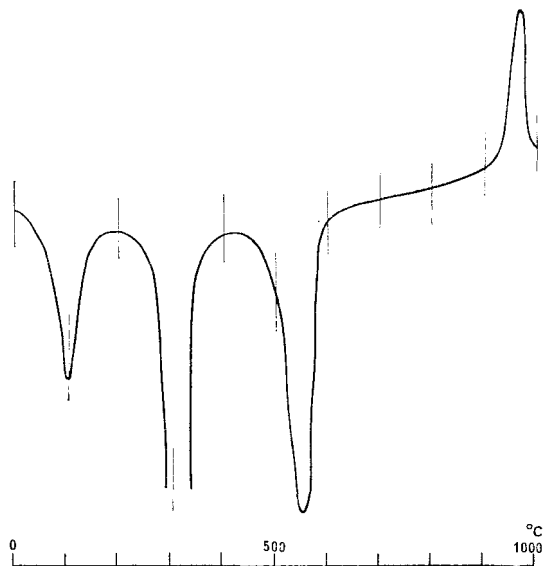


Fig. 4. Differential thermal analyses pattern of vermicular gibbsite. Endthermic peak at 310°C is due to gibbsite. Endthermic peak at 550°C is due to kaoline minerals, hydrated halloysite and hydrobiotite.

Table 1. Occurrence of clay minerals

Layer	Stratigraphic succession	Clay mineral assemblages
a	Kuroboku soils	
b	brown loam	It, 14Å, 14Å/10Å, K
c	brown loam	It, 14Å, 14Å/10Å, K
d	Kurayoshi pumice	A, Gb
e	crack zone in brown loam	It, 14Å, 14Å/10Å, K, Iron oxides and hydroxides.
f	pumice	It, 14Å. K
g	crack zone in brown loam	It, 14Å, 14Å/10Å, K, Iron oxides and hydroxides.
h	pumice	It, 14Å, K
i	pyroclastic flow	H

Abbreviation It : Illite, K : Kaoline minerals, A : Allophane, Gb : Gibbsite, H : Hydrated halloysite, 14Å : 14Å layered mineral, 14Å/10Å : Interstratified mineral of 14Å and 10Å.

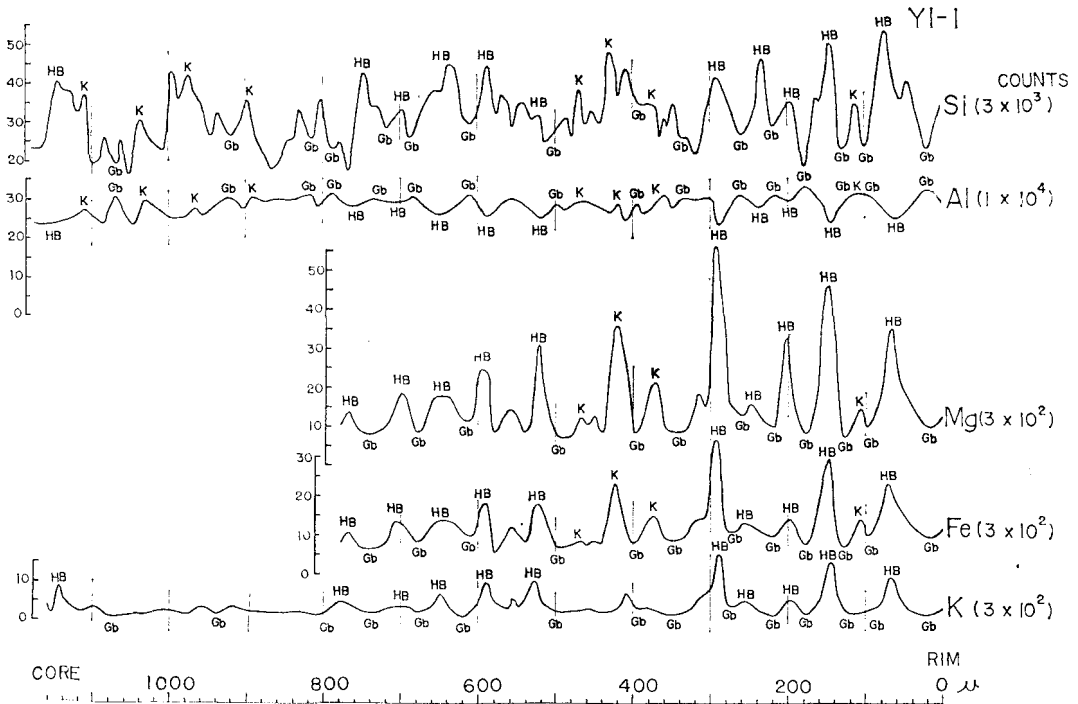


Fig. 5. Electron microprobe scanning across the vermicular gibbsite.
H. B : hydrobiotite, K : kaolinite minerals, Gb : gibbsite.

(iii), Al の濃度のみが高く, Si, Mg, Fe, K が低い部分である。この三つの部分は, X線回折および示差熱分析により存在することがわかった粘土鉱物と対応して考えることができる。

すなわち, ハイドロバイオタイト, カオリン鉱物およびギブサイトの化学組成を考えると, K_2O を多量にふくむものは, ハイドロバイオタイトであり, 下田 (1971) によれば, 3.97~7.84%ふくまれている。これらのことを参考にすれば, (i) は, ハイドロバイオタイトが多く存在する部分と考えられる。

(ii) は, Si および Al の濃度が高いことから, SiO_2 および Al_2O_3 からなるアルミノ珪酸塩鉱物が考えられ, さらに K の濃度が低いので, K_2O の少ないカオリン鉱物が多く存在する部分と推定できる。X線回折から, 少量存在することがわかったハロイサイトも, カオリン鉱物とほぼ同じ化学組成をもつが, 前者の方が H_2O 量が多い。EPMA においては, H_2O 量は測定不可能なので, ハロイサイトとカオリン鉱物の判定はできないが, ほぼ同じ部分に存在することが推定できる。

ギブサイトは, $Al_2O_3 \cdot 3H_2O$ の構造をもち, Al の他には, ほとんど他の元素をもたないので, (iii) の部分

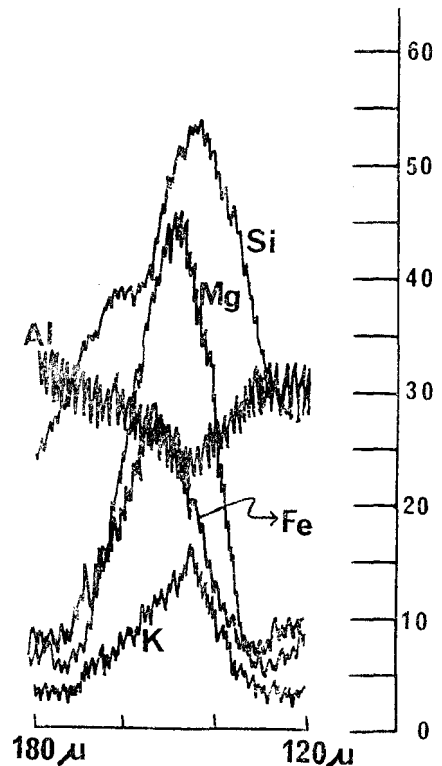


Fig. 6. Relative intensities of the elements at the hydrobiotite-rich part.

は、主にギブサイトが多く存在すると考えられる。

さらに、この三つの部分にも周期性がみとめられる。すなわち、ハイドロバイオタイトおよびカオリン鉱物からなる粘土鉱物の部分は、両側にギブサイトの部分を持ち、ギブサイト-粘土鉱物-ギブサイト-粘土鉱物と交互にくりかえされている。ハイドロバイオタイトとカオリン鉱物との間における周期性はみとめられないが、Mg, Fe, Kの濃度分布が中心にいくにしたがい減少しているため、ふちの部分に比較的ハイドロバイオタイトが多く存在していると考えられる。

ごく中心部分も、Kの濃度がたかく、ハイドロバイオタイトがおおく存在すると考えられる。

ふちに近い部分を、模式的にあらわしたものを第7図

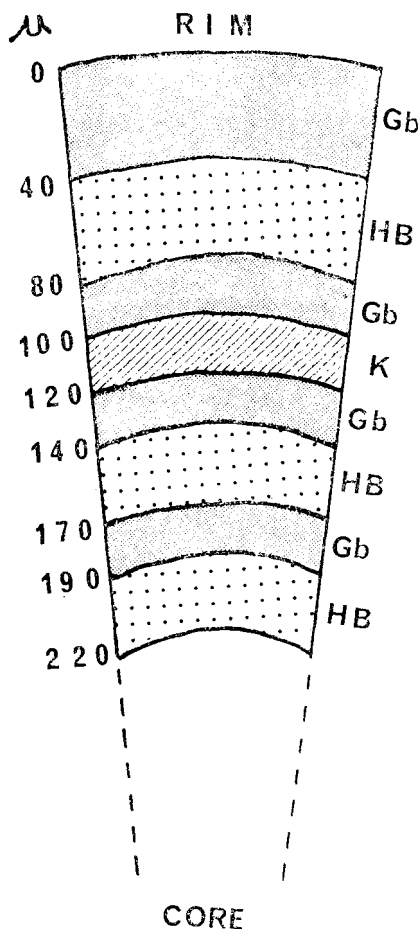


Fig. 7. Zoned alternation of gibbsite and clay minerals in the vermicular gibbsite. Zone by zone growth of gibbsite and clay minerals are schematically shown. Gb : gibbsite, H. B : hydrobiotite, K : kaoline minerals.

にしめす。図のように、20~40μの中をもつ同心円状の累帯構造をもつことがわかる。

4. ま と め

- ①米子市四塚産の蛭形ギブサイト結晶は、ギブサイト、カオリン鉱物、ハイドロバイオタイト、ハロイサイトよりなっている。
- ②横断面における、Si, Al, Mg, Fe, Kの濃度分布に周期性がみとめられ、その濃度分布のタイプから、ハイドロバイオタイト、カオリン鉱物およびギブサイトの三つの部分に分けられる。
- ③ハイドロバイオタイトおよびカオリン鉱物などの粘土鉱物の部分は、両側にギブサイトの部分を持ち、ギブサイト-粘土鉱物-ギブサイト-粘土鉱物のくりかえしになっている。その間隔は、20~40μの中をもち、同心円状の累帯構造をもつことが判明した。

この研究を遂行するにあたり、鳥取大学教育学部の赤木三郎教授には、試料採集にあたり、産状および火山灰層の層序学的位置づけ等についてご指導をいただいた。また同大学農学部文部事務官岸本稔氏ならびに文部技官森本賢一氏には、電子顕微鏡写真撮影でお世話になった。EPMA分析について岡山大学温泉研究所の田崎耕市氏に手伝っていただいた。さらに、研磨薄片の作製は、同研究所文部技官麻田齊氏にお世話になった。

以上の方々に厚く感謝申しあげる。この研究に要した費用の一部に文部省科学研究費を使用した。

文 献

GARDNER L. R. (1970). A chemical model for the origin of gibbsite from kaolinite. *Am. Mineralogist* 55, 1380-1389.

— (1972). Conditions for direct formation of gibbsite from K-feldspar— further discussion. *Am. Mineralogist* 57, 294-300.

磯部克 (1966). 松阪付近に産出するギブサイトの産状と性質について。地学研究, 17, [9], 235-238.

木町鶴永・益富寿之助 (1960). 伯耆大山地方のヒル石の仮晶について。地学研究, 14, [9-12], 360-363.

LODDING W. (1961). Gibbsite vermiforms in the Pensauken formation of New Jersey. *Am. Mineralogist* 46, 394-401.

— (1972). Conditions for direct formation of gib-

- bsite from K-feldspar— discussion. *Am. Mineralogist* **57**, 292-294.
- 下田右 (1971). 茨城県常陸太田市長谷鉱山産の黒雲母とパーミキュライトの混合層鉱物. *粘土科学*, **11**, [3], 13-22.
- 田崎和江 (1971 a). 大山降下堆積物および三瓶山降下堆積物中の粘土鉱物その2, とくにイモゴライトについて. *地質雑*, **77**, [7], 407-414.
- (1971 b). Imogolite および Allophane の水熱条件下における変化. *地学関係5学会連合学術大会講演要旨*, p. 244.
- (1972 a). 三瓶山降下堆積物および大山降下堆積物中の粘土鉱物その1. *地球科学*, **26**, [1], 1-11.
- (1972 b). 大山降下堆積物中のギブサイト結晶について. *第16回粘土科学討論会講演要旨集*, p. 9.
- (1973). 中海アコ試料中の火山灰および浮石の粘土鉱物—大山および三瓶山降下堆積物中の粘土鉱物その3—. *地質雑*, **79**, [2], 79-88.
- 田崎和江・佐治孝式 (1972). 岡山県蒜山原のイモゴライト. *地質雑*, **78**, [11], 627-628.
- WADA K. and AOMINE S. (1966). Occurrence of gibbsite in weathering of volcanic materials at Kuroishibaru, Kumamoto. *Soil Sci. Plant Nutr. (Tokyo)* **12**, [4], 25-31.

ZONED ALTERNATION OF GIBBSITE AND CLAY MINERALS IN THE VERMICULAR GIBBSITE

by Kazue TAZAKI, *Division of Geology, Institute for Thermal Spring Research, Okayama University.*

Vermicular gibbsite aggregates found in the weathered pumice layer (the Kurayoshi pumice) at Yotsuzuka, western part of Tottori prefecture, range in size from 5 to 10 mm (Fig. 1).

They are more or less twisted and show some cleavages perpendicular to the long axis. Vermicular gibbsite are milky white colored and usually coated with dark brown color.

X-ray diffraction patterns show strong reflections for gibbsite, kaoline minerals, hydrobiotite and a relatively small amount of hydrated halloysite (Fig. 3).

Kaoline minerals are rather abundant at the white

part. On the other hand, the dark brown part is rich in hydrobiotite.

Differential thermal analysis shows the endothermic reaction for the dehydration of gibbsite at 310°C and of kaoline minerals, hydrated halloysite and hydrobiotite at 550°C (Fig. 4).

Electron microscopy shows that the gibbsite consist of peculiarly warped rods (Plate 1). The clay minerals which are looked like "cracked rice grain" are seemingly kaoline minerals or hydrated halloysite.

By the electron microprobe scanning across the vermicular gibbsite, the triform structure is revealed, such as the gibbsite rich part, the hydrobiotite rich part and kaoline minerals rich part (Fig. 5 and 6).

Gibbsite and clay minerals (hydrobiotite or kaoline minerals) grow alternately zone by zone (Fig. 7). The width of each zone ranges in size from 20 to 40 micron.

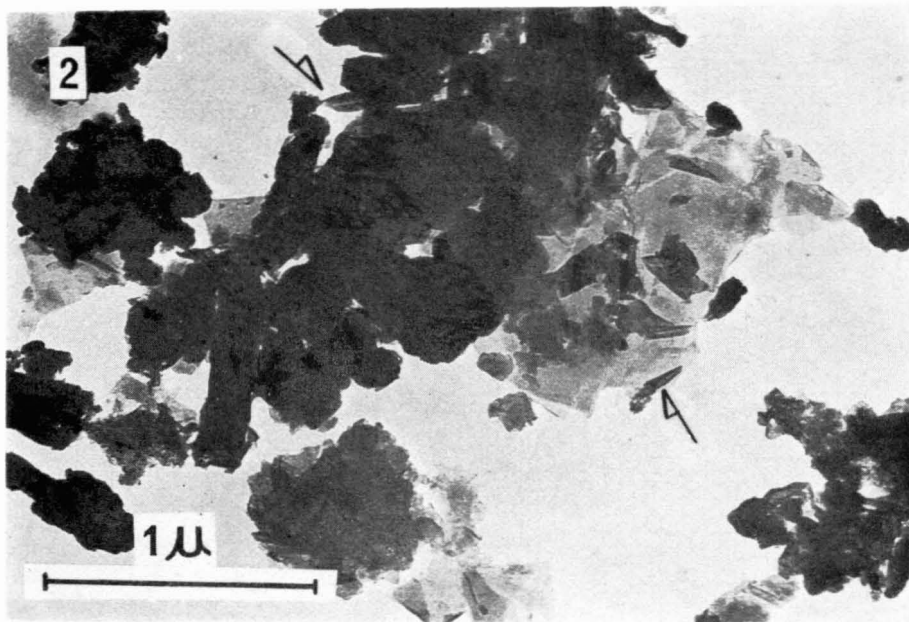
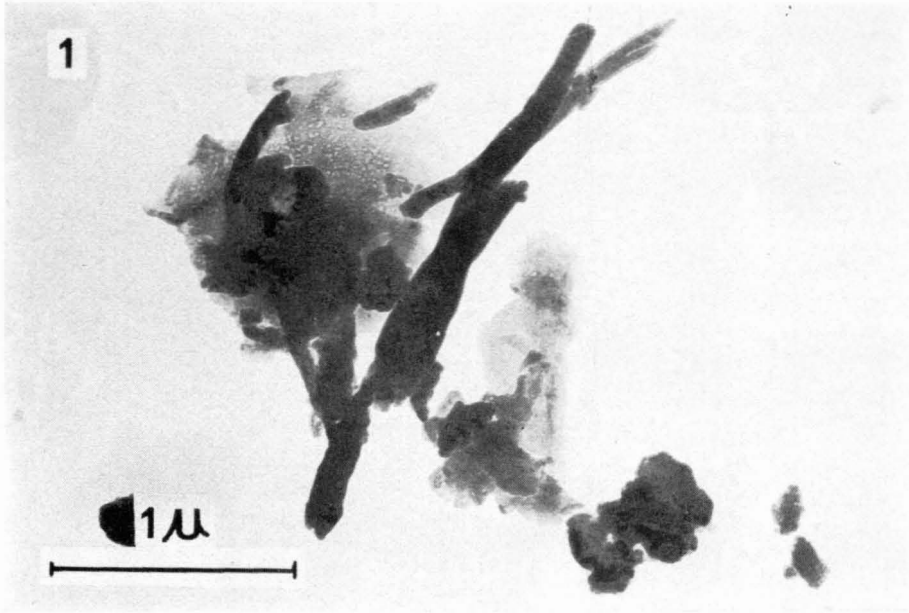


Plate 1 and 2. Electron micrographs of the vermicular gibbsite.