

各地の“シラス層” 中に見出される粘土鉱物について

宮内信文・仰木慎一郎*・春山元寿**

Clay Minerals in the so-called “Shirasu” Bed at several Places

Nobufumi MIYAUCHI, Shinichiro ŌGI
and Motohisa HARUYAMA

(Laboratory of Soils and of Erosion Control**)

“シラス” と呼ばれる白色砂質堆積物は、南九州に広く分布しており、各方面から多くの研究がなされて来ている¹⁾。

一般にシラスは、軽石やその破屑片などの比較的粗大な粒子よりなっていて粘土化が進行していないとみなされ、したがってその一次鉱物組成についてはかなり解明されて来たが²⁾³⁾、二次鉱物（粘土鉱物）については、ほとんど着目されていない。

先に筆者の一人は⁴⁾、鹿児島県垂水市鹿大演習林内とその近傍堀切バス停付近の風化シラス層中に、相当量の Halloysite 鉱物が存在することを報告し、一見粗粒質に思われるシラスにも微細粒子や粘土鉱物が存在することを示唆した。

粘土鉱物のような微粒子は、その比表面積がきわめて大きく、含有量が比較的少なくても、その性格が、試料全体の物理、化学性に強く反映されるものと思われる。したがって、20 数種にも分類されるという⁵⁾

“シラス” に粘土鉱物が普遍的に存在しているか否か、その鉱物種は何かということは、種々な角度からのシラス研究に重要な課題かと思われる。

このような観点から、鹿児島（一部宮崎を含む）県下各地に分布する諸種“シラス” 試料を採取し、粘土鉱物学的研究を行なった結果を報告する。

1. 試料および実験法

“シラス” は、古くは単層として取扱われて来たが、火山層序学的研究が進むにつれて、噴出源・時期・堆積様式などにより細分されて来ている。

シラスの分類についてはなお論議が重ねられているが、ここでは主に「20 万分の 1 鹿児島地質図とその説明書」⁶⁾ に準じ、「5 万分の 1 地質図とその説明書」⁷⁾ および太田ら⁵⁾ の「シラスの地質学的分類」を参考にして、“シラス” を次のようなものと考え、採取試料を分類した。

* 現京都セラミック株式会社

- 始良火山大隅軽石流（非熔結部）および大隅降下軽石層とそれらの二次堆積層
- 阿多火山池田軽石流、根占軽石流とそれらの二次堆積層
- 始良火山先カルデラ軽石流（非熔結部）とその二次堆積層
この中に約 10 種の軽石流があり、国分付近では上位から入戸、岩戸、重久、新川と呼ばれる 4 枚の軽石流があるといわれている。
- 阿多火山阿多軽石流（非熔結部）および阿多降下軽石層とそれらの二次堆積層

以上噴出時代（新しいものから）順にならべた第四紀更新世の始良・阿多両火山噴出物が“シラス” と呼ばれるものであろう。なかでも、大隅半島と薩摩半島南部に分布する大隅軽石流・降下軽石層とその二次堆積層、および鹿児島市以北の県中・北部を覆う入戸軽石流（非熔結部）が、“シラス” 層の大部分を占めると考えられる。

しかし、これらの他に軽石流の熔結部、すなわち“灰石” と呼ばれる溶結凝灰岩は、非熔結部と漸変していることが多く、“シラス” と厳密には区別できない。また、始良火山先カルデラ軽石流が重なっている場合、その間に砂礫層が挟まっていることがあり、始良層と呼ばれている。さらに更新世初期と思われる国分層群上部の白色軟弱な凝灰岩、その国分層に不整合に覆われている新第三系鮮新世の隼人（萩の元）軽石流、吉松町～宮崎県えびの町付近に分布する更新世の加久藤層群等も白色砂質堆積物であり、これらも“シラス” と呼ばれることがあるので、本研究でも数点を供試した。

供試試料は次の通り

- ① 鹿児島県垂水市浜平牛頭（以下鹿児島県を省く）
大隅軽石流（非熔結部）、褐色味を帯び風化さ

れた部分.

- ② 垂水市新城小牟田
- ③ 鹿屋市上野町長崎原
ともに大隅軽石流（非熔結部）. ①より硬く灰白色で風化の進んでいない試料.
- ④ 大隅町恒吉春田
- ⑤ 末吉町西鹿倉谷
以上二点, 大隅軽石流の二次堆積層と考えられる.
- ⑥ 財部町下財部柿木段
- ⑦ 財部町北俣坂之上
以上二点, 入戸軽石流（非溶結部）
- ⑧ 加治木町里 国道沿い日豊線トンネル上付近.
隼人軽石流（弱～非溶結部）
- ⑨ 加治木町城 上部国分層
- ⑩ 加治木町布越 二次シラス下の入戸軽石流（非溶結部）. 太田ら⁵⁾の岩戸軽石流（非溶結部）に相当すると思われる.
- ⑪ 加治木町石野の東 入戸（太田ら：岩戸）軽石流の非溶結部または溶結凝灰岩の風化したもの.
- ⑫ 溝辺町笹峯 入戸軽石流溶結部
- ⑬ 国分市岩戸の西 隼人軽石流
- ⑭ 国分市岩戸 岩戸軽石流, 国分層の上の非溶結部分
- ⑮ 国分市重久 重久軽石流, 暗灰～黒色の溶結凝灰岩部
- ⑯ 国分市止上 岩戸軽石流下位の中部シルト質始良層
- ⑰ 同上地点 岩戸軽石流（非溶結部）. 入戸軽石流溶結部（または岩戸溶結凝灰岩）の下位にあり, ⑯の始良層を覆う.
- ⑱ 栗野町黒葛川 入戸軽石流（非溶結部）
- ⑲ 吉松町鶴丸 加久藤層群は, 上部から下浦, 溝園, 昌明寺, 池牟礼の四層からなるが, 本試料は下浦層のものである. 入戸軽石流の水中堆積と考えられる⁸⁾.
- ⑲-1: 粗粒質, 親指大～米粒大の軽石を主に, その破屑片を伴う.
- ⑲-2: 中粒質
- ⑲-3: 細粒質, 軽石破屑片と思われる細粒子を主とする.
- ⑳ 宮崎県えびの町京町 加久藤層群中の昌明寺層. 細粒（分級良）灰白色試料.
- ㉑ 宮崎県えびの町東川北 ㉑同様の試料.
- ㉒ 宮之城町広瀬大谷

- ㉓ 祁答院町蘭牟田辻
- ㉔ 東市来町伊作田辻の園
- ㉕ 東市来町伊作田網屋
- ㉖ 松本町福山牛ヶ迫
- ㉗ 松元町直木松原
- ㉘ 松元町直木河路山
- ㉙ 鹿児島市吉野大明ヶ丘
- ㉚ 鹿児島市鴨池町唐湊
以上㉚～㉛は, 層中の採取位置, 風化程度の違いはあっても, 何れも入戸軽石流（非溶結部）またはその二次堆積層と考えられる.
- ㉛ 知覧町飯野
- ㉜ 知覧町霜出
- ㉝ 知覧町永山
以上三試料は, 大隅軽石流（非溶結部）あるいはその二次堆積層と思われる.

これらの試料の採取位置を Fig. 1 に示す.

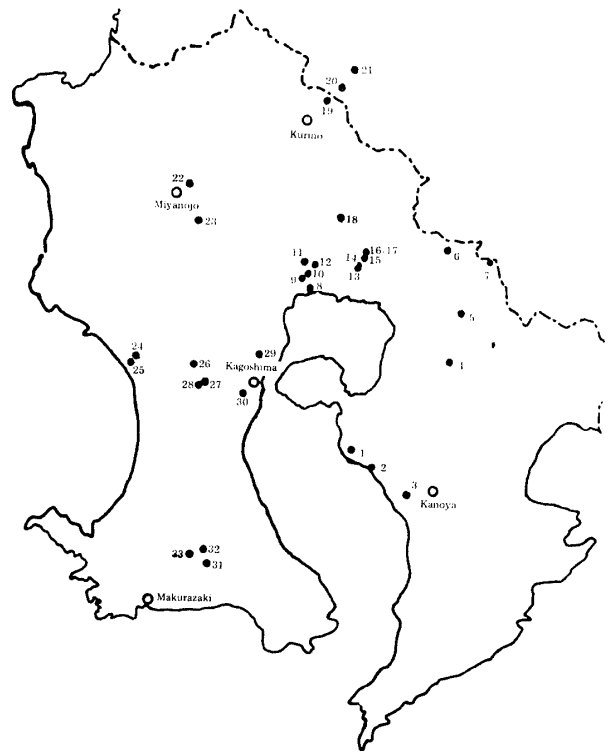


Fig. 1. Localities of samples.

試料は, 単一粒子としての分散系を得るために, H_2O_2 , $\text{Na-citrate-bicarbonate-dithionite} \rightarrow \text{Na}_2\text{CO}_3$ による遊離鉄, アルミ除去, 超音波 (20 KC, 100 W, 15 分) の各前処理を行なった後, 水中分散させ, STOKES の法則にしたがい粘土部分 (国際土壌学会法:

2 μ >) をサイホンでくりかえし採取した。二、三の試料では、粘土部分除去後、微砂部分 (20~2 μ) も同様に採取した。

採取粘土部分 (二、三の微砂も同様) は、1 N 錯酸塩溶液 (pH 7.0) → アルコール洗浄により、Mg-, K- の飽和粘土として調製し、風乾試料、Mg-Glycerol, K-300°C, K-500°C 加熱の各処理後、 2θ : 3 ~ 35°C 間の照射により、X線回折分析を行なった。粘土部分中の結晶性鉱物種を、定方位試料とした場合のC軸方向の回折、すなわち $d(00l)$ 値とその値の各処理に対応する変化により同定したわけである。

二、三の粘土試料は、Na-飽和粘土として風乾後、熱分析—10°C/分 の昇温速度に対する示差熱および熱重量変化—を行なった。

粘土含量は試料の 2 mm> 部分に対する割合 (%) で一応示してみた。しかし、分散前処理中に、もろい軽石粒子が細粒子にくだけてしまう場合が多いこと、および二~三の硬い熔結試料は、これを粉砕後、実験していることから、この粘土含量は一応の目安程度のものでありたい。

2. 実験結果および考察

X線回折図により示される構成粘土鉱物種から、各粘土部分試料は、次の四グループに大別される。

- I型 1 : 1型粘土鉱物を主とする試料
- II型 2 : 1型粘土鉱物を主とする試料
- III型 少量の結晶性粘土鉱物を含み、未風化火山ガラスを主とすると思われる試料
- IV型 非晶質のアロフェン様鉱物を主とすると思われる試料

I型試料について

Halloysite (加水型) を主とする Ia 型と Halloysite, Meta-halloysite (脱水型) とからなる Ib 型とに分けられる。Fig. 2 の X線回折図に示されるように、Ia 型では約 10 Å と高角度側にブロードな肩を有する約 4.4 Å, それに 3.3~3.4 Å の typical な Halloysite のピークを示し、Ib 型ではこれに約 7.4, 3.6 Å のピークが加わる。300°C 加熱により 10 Å は 7 Å に移行し、500°C 加熱により 7 Å ピークが消失すること (Fig. 3) から、風乾試料で約 10 Å のピークは、Halloysite, 約 7 Å のピークは Meta-halloysite であることが立証される。

Ia 型試料には、① 垂水市浜平 (大隅軽石流非熔結部), ④ 大隅町 (同二次堆積), ⑥ 財部町下財部, ②③ ⑩の鹿児島市 (以上入戸軽石流非熔結部), ⑬ 国分市

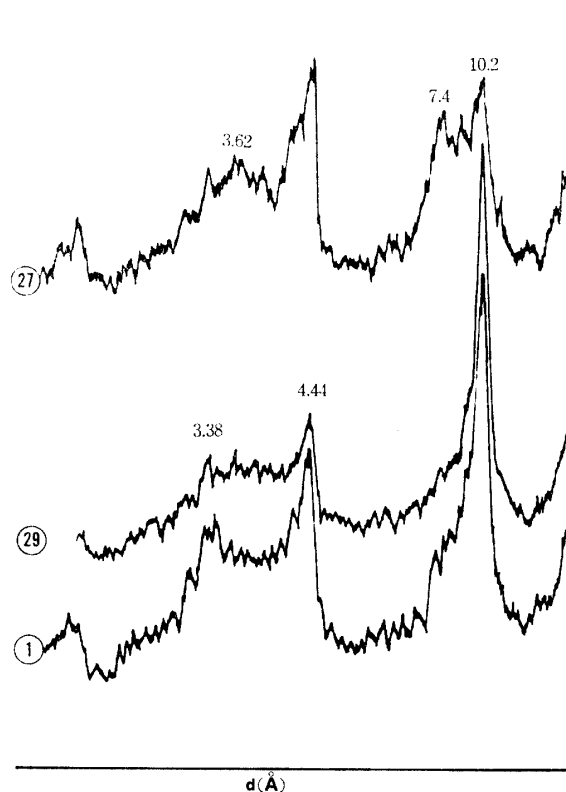


Fig. 2. X-ray diffraction patterns for the clay fractions (-2 μ) of I-type samples in parallel orientation.

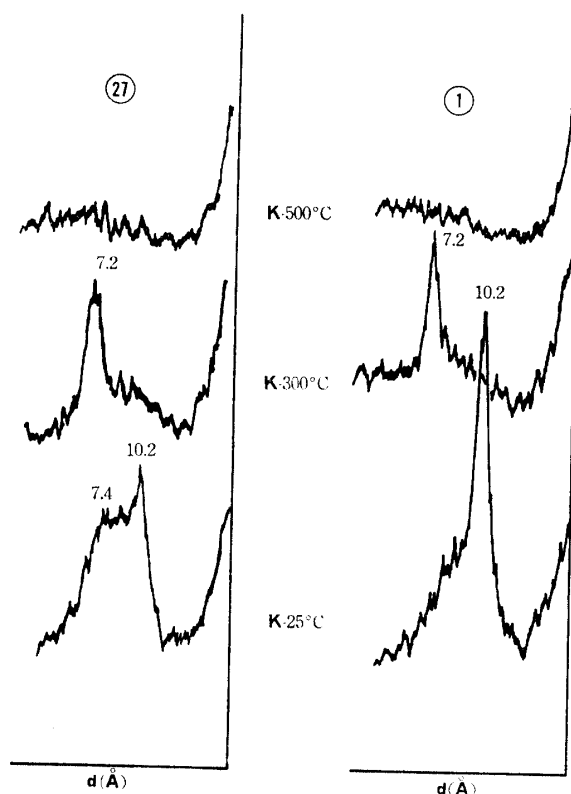


Fig. 3. X-ray diffraction patterns for the clay fractions of I-type samples showing the effects of each treatment.

止上(始良層), ㉑-3 吉松町(加久藤群下浦層)の各試料が相当し, 1b 型には ㉒松元町直木松原と ㉓溝辺町試料(それぞれ入戸軽石流, 二次堆積と熔結部)が属する。

Ia 型試料は, 既報⁴⁾の垂水市高隈演習林とその付近の風化シラス試料に類似している。高隈試料では, 比較的多量の粘土分を含むこと, その粘土部分は Halloysite を主にしており, 化学性から非晶質 Allophane はほとんど含まれないこと, 粒径のより大きい微砂部分でも, Halloysite 鉱物が主鉱物であることを指摘した。

I 型に属する試料も, その粘土含量が比較的高く風化が進んでいるものと思われる。Ia 型試料の示差熱および熱重量曲線 (Fig. 4) を見ると, 100~150°C の吸着および層間水の離脱と, 約 550°C の層面 OH

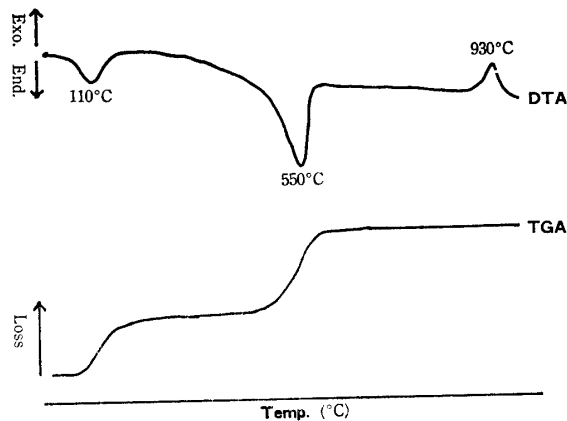


Fig. 4. Thermal curves for the clay fraction of I-type sample.

の離脱(構造破壊)による二吸熱ピーク, それぞれに対応する重量減, および 900~1,000°C の新結晶相転移に伴う発熱ピークを示し, 該試料が Halloysite を主とすることを明らかにした。と同時に, 熱重量曲線の形から, X線で回析線を与えない Allophane も, ほとんど存在しないことがうかがわれ (Allophane は, 変曲点を示さず高温迄連続的の減量を示す曲線を与える。Fig. 11 参照), 既報で化学性から推論した結果と一致した。

また, この I 型試料は, Fig. 5 に示すように高隈試料同様, 粒径のより大きい微砂部分 (20~2 μ) も, 結晶性鉱物としては Halloysite 鉱物を主体としていること, その Halloysite 鉱物は, Ia 型でも Meta-halloysite の占める割合が大きくなるのが特徴的で, 本鉱物の成因上興味深い点と思われる。

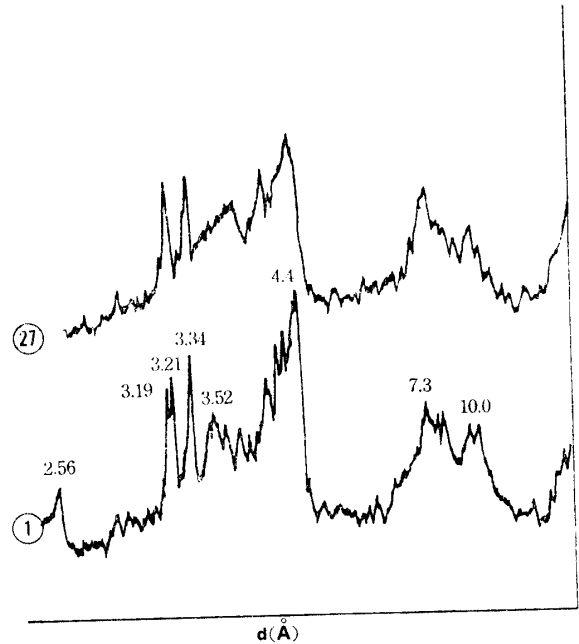


Fig. 5. X-ray diffraction patterns for the silt fractions (20-2 u) of I-type samples in parallel orientation.

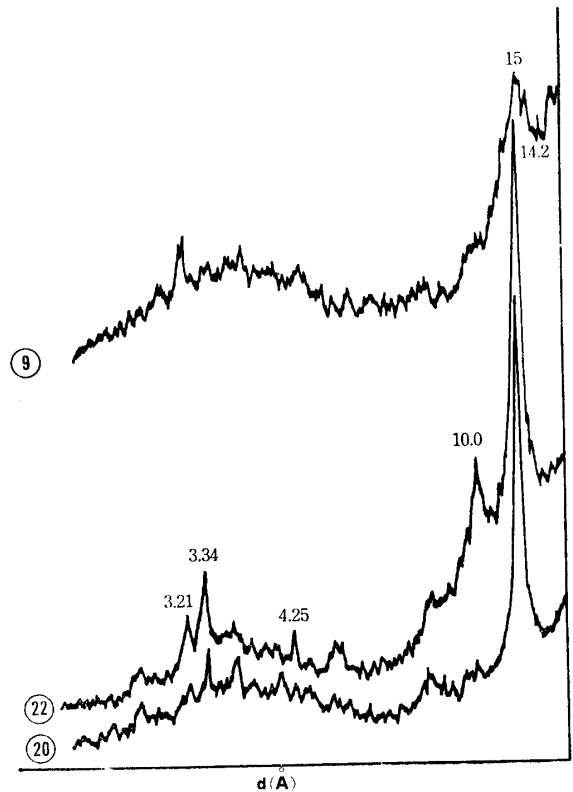


Fig. 6. X-ray diffraction patterns for the clay fractions of II-type samples in parallel orientation.

II 型試料について

Fig. 6 に示した ㉑, ㉒, ㉓ 試料で代表されるように, 主に 14~15 Å の層間間隔を有する 2:1 型鉱物

からなる試料である。各処理での層間隔の変化を Fig. 7 に示す。Mg 飽和風乾試料で示された 14 \AA 鉱物は、Fig. 7 の ㉒ のように Vermiculite であることが多いが、Montmorillonite を伴うことも少なくない。Glycerol 処理で 17.8 \AA に膨潤する Montmorillonite を主とする Fig. 7, ㉑ のようなこともある。また、Fig. 6 の ㉒ でも観察されるが、 10 \AA のピークも存在する場合が多いが、この 10 \AA は、 $300, 500^\circ\text{C}$ 加熱で変化しない Illite 鉱物であることが多い。

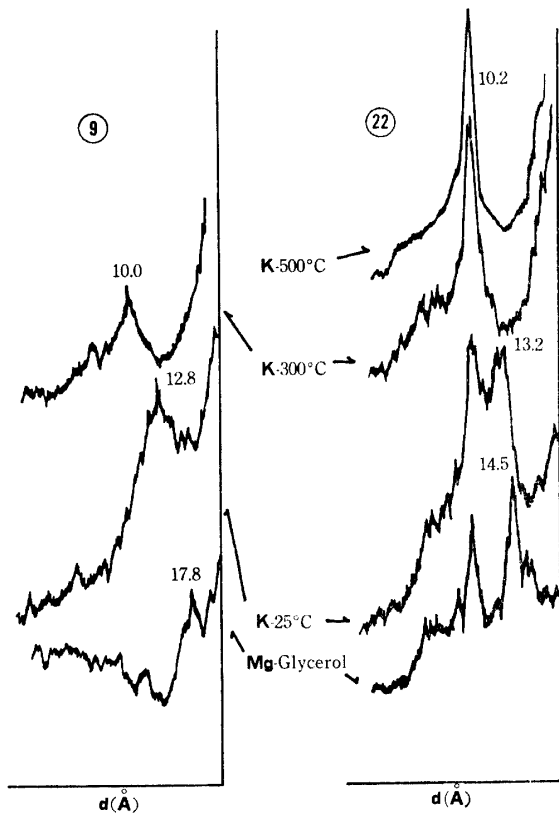


Fig. 7. X-ray diffraction patterns for the clay fractions of II type samples showing the effects of each treatment.

Ⅰ型試料の微砂部分は、Fig. 8 に示すように粘土鉱物の存在がほとんど認められず、Ⅰ型試料と対照的である。

㉑財部町北俣, ㉒加治木町布越, ㉓宮之城町, ㉔那答院町 (以上入戸軽石流非熔結部または二次堆積), ㉕加治木町里 (隼人軽石流), ㉖加治木町城 (上部国分層), ㉗㉘の宮崎県えびの町 (加久藤層群, 昌明寺層) の諸試料がⅡ型に相当する。

Ⅰ～Ⅱ型試料について

Halloysite 鉱物と 2:1 型鉱物が、ともに相当量含まれている試料。㉙末吉町 (大隅軽石流二次堆積),

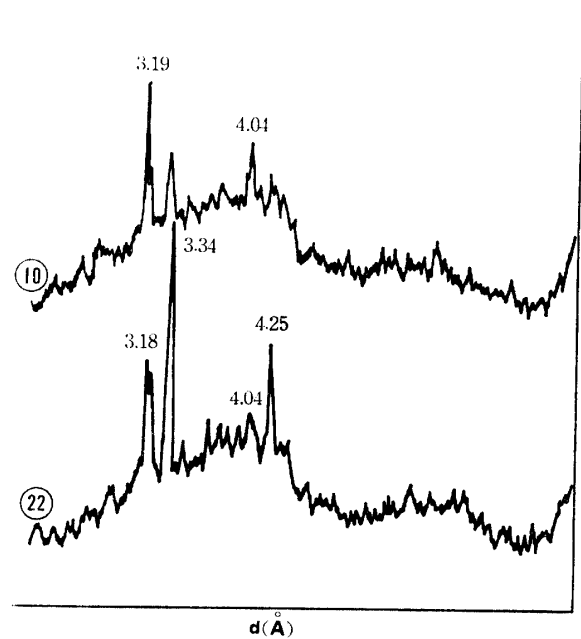


Fig. 8. X-ray diffraction patterns for the silt fractions of II-type samples.

㉛松元町福山 (入戸軽石流非熔結部) ㉜国分市重久 (重久軽石流) ㉝-2 吉松町 (加久藤層群下浦層) が属する。

Ⅲ型試料について

Fig. 9 の四つの例のように、程度の差はあるが弱い回析ピークしか示さず、非晶質粒子が主体と思われる試料。このⅢ型試料の熱分析曲線 (Fig. 10) は、試料中に存する少量の結晶性鉱物——本図ではおそらく Halloysite 鉱物——のそれであり、示差熱、熱重量減とも、存在する結晶性粘土鉱物量の多少に支配されるように思われる。換言すると、Ⅲ型試料の主体である非晶質物は、熱的不活性物質おそらく火山ガラスの未風化細粒子であると推定される。

なお、随伴結晶鉱物種の同定は、その回析ピークが弱いため判別困難なことも少なくないが、Ⅰ, Ⅱ型で見られる各鉱物が認められるようである。

㉞垂水市新城, ㉟鹿屋市 (大隅軽石流非熔結部), ㊱加治木町石野の東, ㊲栗野町, ㊳㊴東市来町, ㊵松元町直木 (以上入戸軽石流非熔結部), ㊶国分市岩戸, ㊷同止上 (岩戸軽石流非熔結部), ㊸国分市岩戸の西 (隼人軽石流), ㊹-1 吉松町 (加久藤層群下浦層) の各試料が該当しよう。

Ⅳ型試料について

知覧町試料㊺㊻㊼に見られる型。すなわち Fig. 9 の一番上の回析図に示されるように、X線分析では全く非晶質な粘土であるが、熱的性質 (Fig. 11) はⅢ

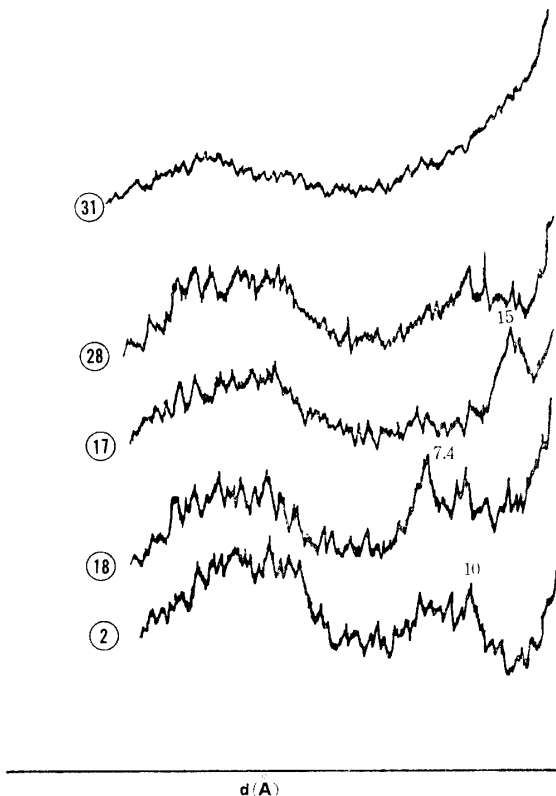


Fig. 9. X-ray diffraction patterns for the clay fractions of III-type (2, 17, 18, 28) and IV-type (31) samples in parallel orientation.

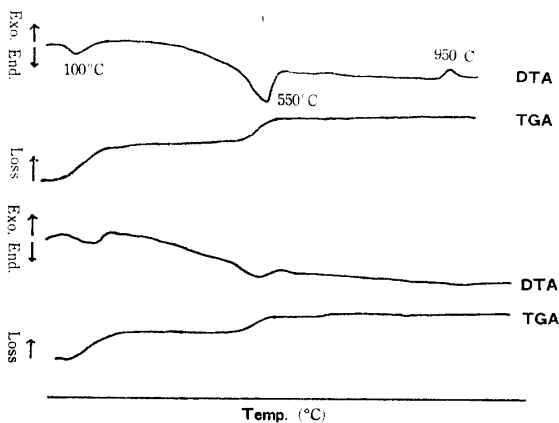


Fig. 10. Thermal curves for the clay fractions of III-type samples.

型試料と対照的で、 $100\sim 150^{\circ}\text{C}$ 間の大きな吸熱ピーク、約 900°C の顕著な発熱ピークを示差熱曲線に与えている。また、 150°C 付近までの多量の重量減（吸着水の離脱）とそれに続く変曲点を示さぬ連続的な重量減を熱重量変化曲線で示している。これらは、いずれも非晶質珪酸塩、Allophane の性格と一致しているので、この型の粘土部分は Allophane 様鉱物が主体であると考えられる。

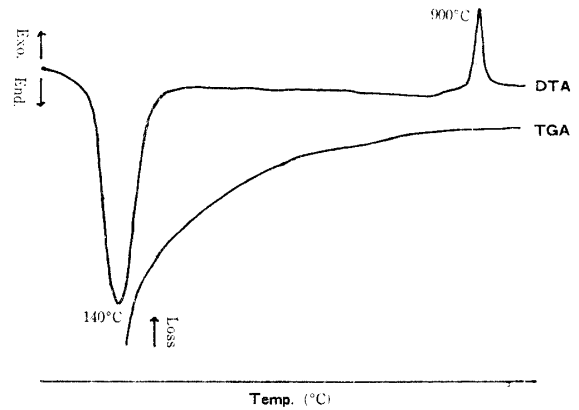


Fig. 11. Thermal curves for the clay fractions of IV-type samples.

これらの結果をとりまとめて Table 1 に示す。

これらの実験結果から、一見粗粒質に思われる“シラス”層中にも、多かれ少なかれ粘土鉱物の存在していることが明らかとなった。

従来、“シラス”の鉱物組成の研究では、その対象がもっぱら一次鉱物だけに向けられており、微粒子は夾雑物として取除かれて、粘土鉱物の存在すらも疑問視されて来た。しかし、粘土鉱物は微細な粒子として比表面積がきわめて大きく、かつ表面活性も大きいので、たとえその含量が $5\sim 10\%$ としても、“シラス”の性格に大きな影響を与えているものと考えられる。

本研究では、前述のように試料の粘土部分の鉱物組成により、シラス試料を I～IV 型に分けてみたが、シラスの地質学的分類とこの四型との間には、あまり関連性は認められなかった。

既報⁴⁾の高隈シラスでは、Halloysite が、種々な点からシラス層中でシラス構成粒子から生成されたものと推論した。

しかし、本実験では Sampling が系統的なものでなく、粘土鉱物組成と地質学的に分類されたシラスとの関連や、粘土鉱物の成因などを論ずるには data が不十分であり、今後種々な点を考慮して検討する予定である。

3. 摘 要

鹿児島、宮崎両県下 33ヶ所から採取した“シラス”試料について粘土鉱物学的研究を行なった。

その結果、全試料とも多かれ少なかれ粘土鉱物を含んでいることが明らかとなった。

シラス試料の粘土部分 ($2\mu>$) を、その鉱物組成により次の四型に大別した。

I) Halloysite 鉱物を主とするもの

Table 1. Clay minerals in the “Shirasu” samples

Sample	Mineral comp. of clay fraction			Clay content
	type	main	accessory	
1 Tarumizu, Osumi P. F. (unwelded)	I	Ht.	M·Ht.	14.8%
2 " ; "	III	G.	Ht. M·Ht.	5.8
3 Kanoya ; "	III	G.	Ht. M·Ht.	5.6
4 Osumi, Secondary deposit from Osumi P. F.	I	Ht.	M·Ht.	6.7
5 Sueyoshi, "	I~II	M·Ht. It.		6.4
6 Takarabe, Ito P. F. (unwelded)	I	Ht.	M·Ht.	7.2
7 " ; "	II	It. Vt.		6.6
8 Kajiki, Hayato P. F. (unwelded)	II	Mt.	It.	8.5
9 " , Kokubu formation	II	Mt.	F.	6.5
10 " , Ito P. F. (unwelded)	II	Mt.	It. Q, Cr. F.	6.8
11 " ; "	III	G. Ht. M·Ht.	Q.	6.8
12 Mizobe, Ito P. F. (welded)	I	Ht. M·Ht.	F. Cr.	20.7
13 Kokubu, Hayato P. F. (unwelded)	III	G.	M·Ht. Ht. Mt.	7.8
14 " , Iwato P. F. (unwelded)	III	G.	M·Ht. It. F.	9.4
15 " , Shigehisa P. F. (welded)	I~II	M·Ht. It.	Q. F. Cr.	7.0
16 " , Aira formation	I	Ht.		19.9
17 " , Iwato P. F. (unwelded)	III	G.	Mt.	7.3
18 Kurino, Ito P. F. (unwelded)	III	G.	M·Ht. Vt. It.	6.2
19 19-3 Yoshimatsu, Shimoura formation	I	Ht.	M·Ht.	10.6
20 Ebino, Shomyoji formation	II	Vt.		9.2
21 " ; "	II	Mt. It.	Q.	6.4
22 Miyanojo, Ketoin, Higashiichiki, } 22~30	II	Vt. It.	Q.	6.0
23 " ; "	II	Vt. It.	M·Ht. Q F.	6.0
24 " ; "	III	G.	It. M·Ht.	7.4
25 " ; "	III	G.	It. Q.	7.2
26 Matsumoto, Ito P. F. (unwelded)	I~II	Vt. Ht.	M·Ht.	8.7
27 " ; "	I	Ht. M·Ht.		10.8
28 " ; "	III	G.	It.	5.6
29 Kagoshima, Ito P. F. (unwelded)	I	Ht.	M·Ht.	n. d.
30 " ; "	I	Ht.	M·Ht.	n. d.
31 Chiran, Osumi P. F. (unwelded)	IV	All.		n. d.
32 " ; "	IV	All.		n. d.
33 " ; "	IV	All.		n. d.

P. F. : Pumice flow, Ht. : Halloysite, M·Ht. : Meta-halloysite, Vt. : Vermiculite, Mt. : Montmorillonite, It. : Illite, All. : Allophane, G. : Volcanic glass, F. : Feldspar, Q. : Quartz, Cr. : Cristobalite, n. d. : not determined

II) 2 : 1 型粘土鉱物を主とするもの

III) 火山ガラスを主とし、これに多少の結晶性粘土鉱物を伴うもの

IV) Allophane を主とするもの

“シラス”は一見粗粒質であるので、従来、微細粒子、粘土鉱物についてはほとんど関心が払われていなかった。しかし含量がたとえ少なくとも、粘土鉱物はその比表面積、活性が大きく、シラスの物理化学性におよぼす影響は大きいと思われるので、今後さらに検討を進めていきたい。

本研究を行なうにあたり、本学農学部品川昭夫教授に有益な御助言をいただいた。また、本学理学部露木利貞教授には、試料⑧~⑬の採取にあたり種々御指導いただいた。記して謝意を表する。

文 献

1) 春山元寿・山内豊聰：南九州における火山性堆

積土“シラス”に関する文献集録，九州大学工学部土木工学教室（1965），同追補（1966）。

2) TANEDA, S. : *Mem. Fac. Sci. Kyushu Univ., Series D.* 6 : 91~105 (1957).

3) 大庭 昇・露木利貞・海老原絃子：岩鉱，58 : 81-97 (1967).

4) 宮内信文・品川昭夫：鹿大農学術報告，21 : 135-141 (1971).

5) 太田良平・郡山 栄・脇元康夫・シラスの地質学的分類，鹿児島県企画部（1967）。

6) 鹿児島地学調査研究会：鹿児島島の地質（20万分の1地質図幅および説明書），鹿児島県，（1967）。

7) 地質調査所：5万分の1地質図とその説明書。沢村孝之助：国分（1956）。

沢村孝之助・松井和典：霧島山（1957）。

太田良平：垂水（1964）。

太田良平・河内洋佑：鹿屋（1965）。

太田良平：加治木（1967）。

8) 太田良平・沢村孝之助：防災科学技術総合研究報告，26，21-33（1971）。

Summary

The "Shirasu" (pyroclastic formation) is distributed widely over southern Kyushu and is classified geologically into more than 20 groups.

Generally, the "Shirasu" is composed of rather large particles and, therefore, mineralogical interests have been focussed only on its primary mineral compositions and not on its fine particles or secondary minerals.

In this work, the "Shirasu" samples collected at 33 places in Kagoshima and Miyazaki Pref.s were investigated clay-mineralogically.

From the x-ray and thermal analyses, all samples were ascertained to be containing more or less amount of clay-minerals.

The clay-fractions ($2\mu >$) of the samples were divided, from their mineral compositions, into 4 groups: i.e. I) mainly composed of halloysite mineral, II) of 2:1 type minerals (vermiculite, montmorillonite, illite), III) of amorphous fine volcanic glass particles accompanied with small amount of crystalline clay-minerals and IV) of allophanic clays.