

有田-天草地域の陶石鉱床の変質作用と熱履歴 (予報)

三浦千佳*・太平寛人*

Alteration and thermal history of pottery stone deposits in the Arita-Amakusa area, Kyushu, Japan.

Chika Miura* and Hiroto Ohira*

* 島根大学総合理工学部地球資源環境学科, Department of Geoscience, Shimane University.

はじめに

陶石は流紋岩の貫入後、流紋岩自身が熱水変質を受けて形成する、石英、セリサイト、カオリンなどからなる白色硬質の岩石で、古くから陶器や碍子などの窯業原料として利用されてきた。佐賀県有田地域の泉山陶石鉱床や熊本県天草地方の陶石鉱床などが代表的である。陶石化に関与した熱水変質作用についてはすでに多くの研究があるが熱履歴（温度や時代）については不明な点も残されている。今回、陶石化に関連した熱水変質作用の熱履歴の解明の一環として、これらの陶石鉱床からジルコンのフィッション・トラック年代およびセリサイトのK-Ar年代測定を試みたので報告する。なお天草地域の陶石に含まれるジルコンについては、試料の特性上の問題から予察的な年代を得ることはできなかった。

地質概要

泉山陶石鉱床は佐賀県有田町にあり、古第三紀の杵島層群に貫入する鮮新世後期の岩株状流紋岩(400m×200m)が熱水変質を被り陶石化した鉱床である。流紋岩体の北側半分が高品位の陶石を産し近年までにその多くが採掘された(図1)。鉱床の成因について濱崎(1994)は、流紋岩の重複貫入と揮発成分の脱ガスにより角礫化を生じ、同時期の熱水変質作用により陶石化が進行したと述べた。前田ほか(1996)はセリサイトのK-Ar年代と周辺の有田流紋岩の年代などから、陶石化の要因を他の熱水システムに求めた。またHirasawa and Uehara (1999)は陶石中のセリサイトのサイズや形態、共存鉱物との関係、ポリタイプの特徴などに基づいてセリサイトのタイプ分けを行い、それらが一連の熱水変質作用の熱履歴(低温→高温→低温)と密接に関連する可能性を指摘した。詳細な変質分帯や鉱物学的性質に関する研究も報告されている(中川ほか, 1995)。

一方、天草陶石鉱床は熊本県天草下島の北西部

に位置し、白亜紀の姫浦層群を貫く幅数m～十数m、最大延長約4kmにおよぶ岩脈状の陶石鉱床で、NNE-SSW方向の海岸脈および村山脈、NW-SE方向の皿山脈からなる。このうち皿山脈の傳兵衛木場鉱床については変質作用や鉱物学的性質および年代論についての研究がある(富樫, 1975; 中川, 1988; Nakagawa and Matsuura, 1994; 浜崎, 1996)。流紋岩の活動と陶石化の時代に関しては概ね中期中新世(13～16Ma)と考えられている。

試料

泉山陶石鉱床の採掘場跡から産状の異なる典型的な試料を採取した(図1)。殻状を呈するドーム状流紋岩の一部(IZ-4)、熱水破碎を被った角礫部(IZ-5, 6)、塊状均質な陶石(例IZ-9)などである。変質の強い採掘場中央部付近では陶石を切るように幅10～20cmの純度の高いセリサイト脈が数条存在する(IZ-8)。試料採取に際しては濱崎(1996)による地質図と中川ほか(1995)による変質分帯を参考にした。なお鏡下での特徴については昨年のニュースレターで報告したので省略する。フィッション・トラック年代測定を試みた試料は上記のIZ-4およびIZ-9、泉山陶石鉱床から北東約3kmの竜門ダム付近に露出する流紋岩IZ-16(有田流紋岩)である。またK-Ar年代は上記のIZ-8とIZ-9を対象とした。

天草地域の陶石鉱床については、皿山脈の傳兵衛木場鉱床を対象とした。傳兵衛木場では脈幅約30mの陶石脈を採掘している(図2)。野外では酸化鉄の縞目模様が顕著な陶石(縞目石)

(DB-0)、セリサイトやカオリンの発達のない白色良質の陶石(特等石)(DB-2)、径1～2mmの炭酸塩鉱物(菱鉄鉱)が変質により褐色化し微細な斑点模様を呈する陶石(DB-3)などの多様な産状が観察される。堆積岩との接触部(陶石脈縁部)は特に細粒硬質でわずかに淡緑色を呈する(DB-12)。K-Ar年代測定に供した試

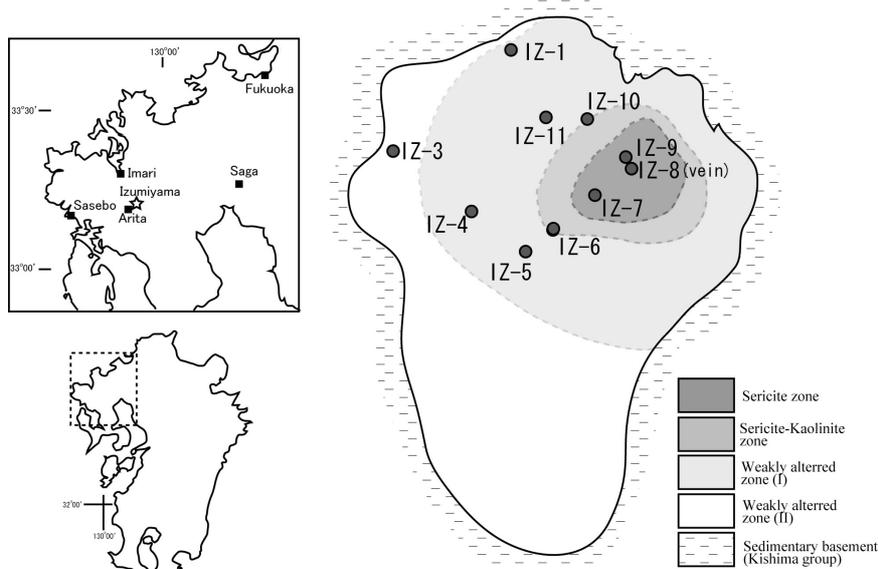


図1. 有田泉山陶石鉱床の試料採取地点. 変質分帯は中川ほか (1995) による.

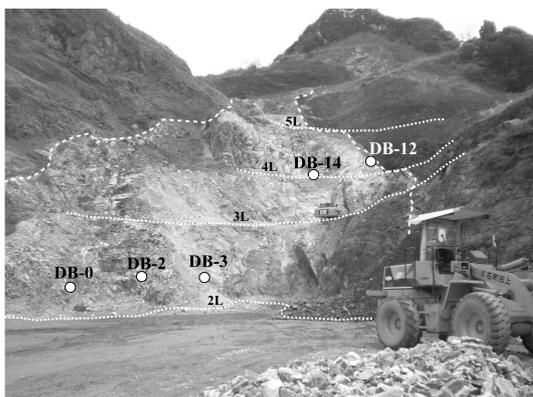


図2. 天草陶石皿山脈・傳兵衛木場鉱床の採掘場の様子と主な試料採取地点.

料は脈中心付近の品位の高い陶石, DB-2とDB-14である. 傳兵衛木場の陶石の典型的な薄片を図3に示す. DB-2 (特等石) は細粒均質で20~50 μ mの他形粒状の石英, 葉片状セリサイト, 粒状のカオリンからなる. 1~2mmの自形石英斑晶をまれに含む. 有田泉山地域の陶石 (セリサイトが概ね10 μ m以下) に比較するとセリサイトのサイズが大きい. カオリンは干渉色の低い5~10 μ m以下の葉片が複数集合してひとつの粒子をなしている. DB-12 (陶石脈縁部) では, 長径0.5mm程度の長柱状の斜長石を斑晶として含む. 斜長石の一部はセリサイトに変質しているがK含有量は少ない. 石基に相当する部分は微細な長石および珪長質物質からなり, それらの30%以上が炭酸塩鉱物 (菱鉄鉱や苦灰石) に置換している. 全体にセリサイト化は軽微である.

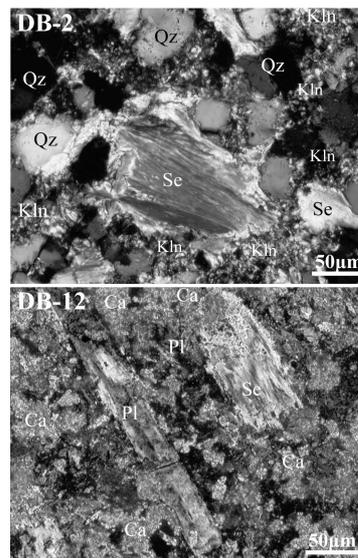


図3. 天草陶石 (傳兵衛木場) の薄片写真. Qz (石英) Se (セリサイト), Kln (カオリン), Pl (斜長石), Ca (炭酸塩鉱物: 菱鉄鉱や苦灰石など)

フィッション・トラック年代測定

典型的な陶石からジルコンを取り出しフィッション・トラック (FT) 年代測定を試みた. 有田泉山陶石のジルコンの含有量は少ないが予察的年代を得ることができた. 一方, 天草傳兵衛木場の陶石はジルコン含有量が極端に少なくサイズも小さい. また自発FT密度が著しく高く短時間のエッチングでFTの認定が困難になるため年代値を得ることはできなかった. これはジルコンのU濃度が著しく高いことによると考えられる.

実験は大平・永井 (2004) に従った. エッチングはNaOH-KOH共融体 (225 $^{\circ}$ C) で38~40時

表1. フィッション・トラック年代測定結果 (有田泉山陶石と有田流紋岩)

Sample Name	Occurrence	No. crys	ρ_s (Ns) ($\times 10^6/cm^2$)	ρ_i (Ni) ($\times 10^6/cm^2$)	$P(\chi^2)$ %	ρ_d (Nd) ($\times 10^5/cm^2$)	r	U ppm	Age(Ma) ($\pm 1\sigma$)
IZ-4	Pottery stone (weakly altered)	34	2.536(1643)	9.614(6230)	72.9	0.4983(3291)	0.91	2562	2.5 \pm 0.1
IZ-9	Pottery stone	35	2.518(1846)	9.357(6859)	90.9	0.5095(3365)	0.72	2473	2.6 \pm 0.1
IZ-16	Arita rhyolite	34	1.919(1514)	7.216(5809)	13.4	0.5084(3358)	0.68	1802	2.6 \pm 0.1

Dating was carried out by the external detector method and internal crystal surface was used. Ages were calculated using dosimeter glass NIST-SRM612 and the zeta value 377.1 \pm 5.1. Samples were irradiated at the pneumatic tube of JRR-4 reactor of Japan Atomic Energy Agency (JAEA). ρ =track density; N=total number of tracks counted; subscripts: s for spontaneous, i for induced and d for dosimeter; $P(\chi^2)$ =probability of obtaining χ^2 value for ν degree of freedom (where ν =number of crystals-1)(Galbraith 1981); r=correlation coefficient between ρ_s and ρ_i ; U=uranium content.

表2. K-Ar年代測定結果 (有田泉山陶石: IZ-8, IZ-9; 天草陶石皿山脈傳兵衛木場の陶石: DB-2, DB-14)

Sample Name	Mineral	K wt. %	Rad. ^{40}Ar (10^{-8}cc STP/g)	Age(Ma)	Non-Rad. ^{40}Ar (%)
IZ-8	sericite	7.233 \pm 0.145	67.6 \pm 2.6	2.41 \pm 0.10	66.9
IZ-9	sericite	5.555 \pm 0.111	54.6 \pm 3.9	2.53 \pm 0.19	80.8

Sample Name	Mineral	K wt. %	Rad. ^{40}Ar (10^{-8}cc STP/g)	Age(Ma)	Non-Rad. ^{40}Ar (%)
DB-2	sericite	6.044 \pm 0.121	324.0 \pm 4.5	13.76 \pm 0.33	26.5
DB-14	sericite	5.454 \pm 0.109	296.4 \pm 3.8	13.95 \pm 0.33	21.7

間行った。中性子照射は日本原子力研究開発機構の原子力科学研究所のJRR-4の気送管で10秒間行った。FT年代測定結果を表1に示す。今回得られた泉山陶石 (IZ-4およびIZ-9) および有田流紋岩 (IZ-16) の年代はそれぞれ2.5Ma \pm 0.1Ma, 2.6Ma \pm 0.1Ma, 2.6Ma \pm 0.1Maである。

K-Ar年代測定

有田泉山陶石および天草傳兵衛木場の陶石から水ひによりセリサイトを抽出しK-Ar年代測定を行った。測定は蒜山地質年代学研究所に依頼した。なお天草傳兵衛木場の試料については水ひ後のXRDでイライト-ス멕タイト規則混合層 (トスダイト) が含まれたため、測定前に塩酸処理を施した。測定結果を表2に示す。有田泉山陶石については塊状均質な陶石 (IZ-9) とそれを切る純度の高いセリサイト脈 (IZ-8) がそれぞれ2.5 \pm 0.2Maおよび2.4 \pm 0.1Maである。有田流紋岩の年代は2.6 \pm 0.1Maである。天草傳兵衛木場の陶石 (DB-2, DB-14) からはそれぞれ13.8 \pm 0.3Maおよび14.0 \pm 0.3Maの年代が得られた。

考察

有田地域については泉山陶石と周辺の有田流紋岩から得られたジルコンFT年代はともに2.5~2.6Maである。この年代は既報の有田流紋岩のジルコンFT年代 (宮地, 1990) と調和的であ

る。また陶石中のセリサイトのK-Ar年代は2.4~2.5Maと年代中央値はわずかに若い誤差範囲は重なる。泉山陶石は流紋岩の重複貫入とその後の脱ガスによる熱水変質により形成されたと考えられているが (濱崎, 1994), セリサイトの形態やポリタイプは、陶石化に際して、低温 \rightarrow 高温 \rightarrow 低温といった二次的温度的上昇を伴う熱履歴を示唆している (Hirasawa and Uehara, 1999)。今回得られたFT年代やK-Ar年代は、限られた試料についてのデータではあるが、上述のような複雑な熱史を伴う変質作用 (陶石化) が流紋岩の貫入直後の限られた期間に起こった可能性を示唆する。一方本鉱床からはやや若いセリサイトK-Ar年代 (2.2Ma) も報告されており (前田ほか, 1996), 鉱床内を切って分布する断層の影響や、時代幅のある継起的な熱水変質作用の可能性についても検討する必要がある。

天草傳兵衛木場の陶石からはジルコンFT年代を得ることはできなかったが、セリサイトのK-Ar年代は13.8~14.0Maを示す。同採掘場からは、陶石を切るセリサイト脈 (未処理の全岩試料) のK-Ar年代が16.4 \pm 0.3Maおよび16.6 \pm 0.8Ma年代と報告されている (濱崎, 1996)。今回得られたK-Ar年代は水ひにより抽出したセリサイトを測定対象としているが、既報の値に比べて約2.5Ma若い。同じ採掘場から約2.5Ma異なる年代が得られることは、陶石化に関与した熱水変質作用が一定の期間 (数Ma) にわたり継的に起

こった可能性を示すのかもしれない。天草地域の陶石脈は白亜紀姫浦層群中の広域的な構造線（断層）に沿って貫入した流紋岩脈が変質して形成した鉱床であり、傳兵衛木場採掘場においても陶石中の小断層を境に約2mの変位の認められる露頭がある。このような産状は陶石の形成後も断層が活動していることを示しており、そのような断層に沿って二次的な熱水が作用することは十分に考えられる。また品位のよい陶石を産するDB-2付近（図2）では陶石のクラックに沿って幅数mmのカオリン脈が発達する。このような産状も熱水の継起的活動に関連するのかもしれない。

今回天草陶石のジルコンについてはFT年代測定を適用することができなかったが、エッチングを工夫して再度実験を試みるとともに、レーザーアブレーションICPマスによるU-Pb年代測定の適用可能性も検討する必要がある。今後の課題である。

参考文献

- 濱崎聡志, 1994, 流紋岩浅所貫入岩体の内部構造と貫入過程－佐賀県泉山陶石鉱床における流紋岩体の例－, 火山, 3, 91-98.
- 濱崎聡志, 1996, 熊本県天草地域の火成活動とセリサイト化熱水変質作用のK-Ar年代, 地質調査所月報, 47, 201-207.
- Hirasawa K. and Uehara S., 1999, Hydrothermal History of the Izumiyama pottery stone deposit inferred from Microtexture and Microstructure analysis of illite by SEM and TEM. Resource Geology Special Issue, 20, 113-122.
- 前田勝彦・渡辺公一郎・井沢英二・板谷徹丸・武内浩一, 1996, 西九州, 有田－波佐見地域の金鉱化作用と粘土化作用のK-Ar年代, 資源地質, 46, 25-31.
- 中川昌治, 1988, 天草陶石の構成鉱物, 粘土科学, 28, 11-29.
- 中川昌治・中本順子・吉原俊昭, 1995, 佐賀県泉山陶石鉱床における熱水変質作用－石英とNH₄含有セリサイトの鉱物学的性質－. 粘土科学, 35, 1-14.
- Nakagawa M. and Matsuura T., 1994, Hydrothermal alteration at the Denbekoba deposit of Amakusa pottery stone. Clay Science, 9, 123-136.
- 富樫幸雄, 1975, 熊本県天草陶石鉱床における変質作用, 地質調査所月報, 25, 10, 491-508.
- 宮地六美, 1990, 北西部九州の火山岩類のフィックション・トラック年代, 九大教養地研報, 28, 9-12.
- 大平寛人・永井淳也, 2004, 放射年代学 (FT法) 入門.地球科学, 58, 185-189.