

総説

天草陶石鉱床の特徴と鉱床生成に関する考察

Characteristics and genesis of the Amakusa pottery stone deposit

武内 浩一(Koichi TAKEUCHI)*

Many pottery stone deposits are distributed in the western region of Amakusa-Shimosima Island, Kumamoto Prefecture. They extend 30 km in the north-south direction and 5 km in the east-west direction. More than two million tons of pottery stone has been produced from these deposits and used as raw material for tableware and insulators. Nagasaki metamorphic rocks and Cretaceous and Paleogene sedimentary rocks that have been intruded by a Miocene granodiorite stock and rhyolite dikes are distributed in this area. The pottery stone deposits were formed by the alteration of the rhyolite dikes and they resemble a vein deposit in their form. Major deposits such as the Sarayama vein and the Kaigan vein extend 4-5 km. The width of the veins is generally about 10 m but reaches a maximum of 25 m. Previous studies on the pottery stones revealed the mineral assemblages, the geochemical features of major and minor elements, and the K-Ar ages. The mineral zonation at Denbeikoba quarry, the Sarayama vein, was also clarified. The remarkable characteristics of the Amakusa pottery stone deposits include their widespread distribution, long and narrow form of the ore bodies, and similarity in mode of alteration and mineral assemblage in the high-grade ore. The thermal history and thermal structure of the area surrounding the pottery stone deposits was proposed based on a close examination of the clay minerals in the pottery stone and the vitrinite reflectance of the carbonaceous matter in the surrounding sedimentary rocks. Recently, some data on the microthermometry of fluid inclusions in the pottery stone and radiometric dating by various methods have been reported. These results suggest that the genesis of the Amakusa pottery stone deposits has a close relation with the high geothermal gradient in this area. The genetic process of the Amakusa pottery stone deposits can be better understood by confirming the physicochemical properties, such as the temperature, salinity, and fugacity of carbon dioxide of the alteration fluids.

Keywords: Amakusa pottery stone, Characteristic, ore genesis, Mineral assemblage, Texture, Fluid inclusion, Alteration type

I. はじめに

佐賀県有田町を中心とする西九州地方は日本を代表する陶磁器の生産地で、2012年にこの地域で生産された陶磁器製品の工業出荷額は100億円にのぼる。わが国の重要な地場産業の発展を長年にわたり支えてきた原料は陶石である。九州には多くの陶石鉱床があり、各地の陶磁器食器や碍子などの原料として利用されてきた(Fig. 1)。陶石資源の開発と利用技術は、九州のセラミックス産業史のなかで常に中心的な課題であった。

陶石が陶磁器原料として初めて利用されたのは、豊臣秀

吉の朝鮮出兵の時に鍋島藩に連れて来られた朝鮮陶工団が、有田の泉山鉱床を発見した1610年代にさかのぼる。それ以前は古第三紀の堆積岩が風化して軟弱化した地表面の粘土が、唐津焼などの原料として利用されていたが、陶石の発見を契機として、硬い岩石を粉碎して粘土分を取り出す方法が開発された。同じ時期に大村藩で三股鉱床が、平戸藩では網代(三岳)鉱床が発見され、西九州各藩で高級磁器の生産が開始された。さらに天草地方に産する砥石が優秀な磁器原料であることがわかり、17世紀後半から天草陶石の本格的な利用が始まった。明治になって藩の庇護や統制がなくなり、以後は西九州各地の陶磁器産地で天草

doi: 10.2465/gkk.150406

(平成27年4月6日受付, 平成27年12月18日受理, 平成28年3月1日早期公開. 担当編集委員: 藤本光一郎特集号ゲスト編集委員)

* 長崎県窯業技術センター, 〒859-3726 長崎県東彼杵郡波佐見町榊木場郷 605-2

* Ceramic Research Center of Nagasaki, Hiekoba-Go 605-2, Hasami-Cho, Nagasaki 859-3726, Japan E-mail: takeuchi@pref.nagasaki.lg.jp

天草陶石鉱床の特徴と鉱床生成に関する考察

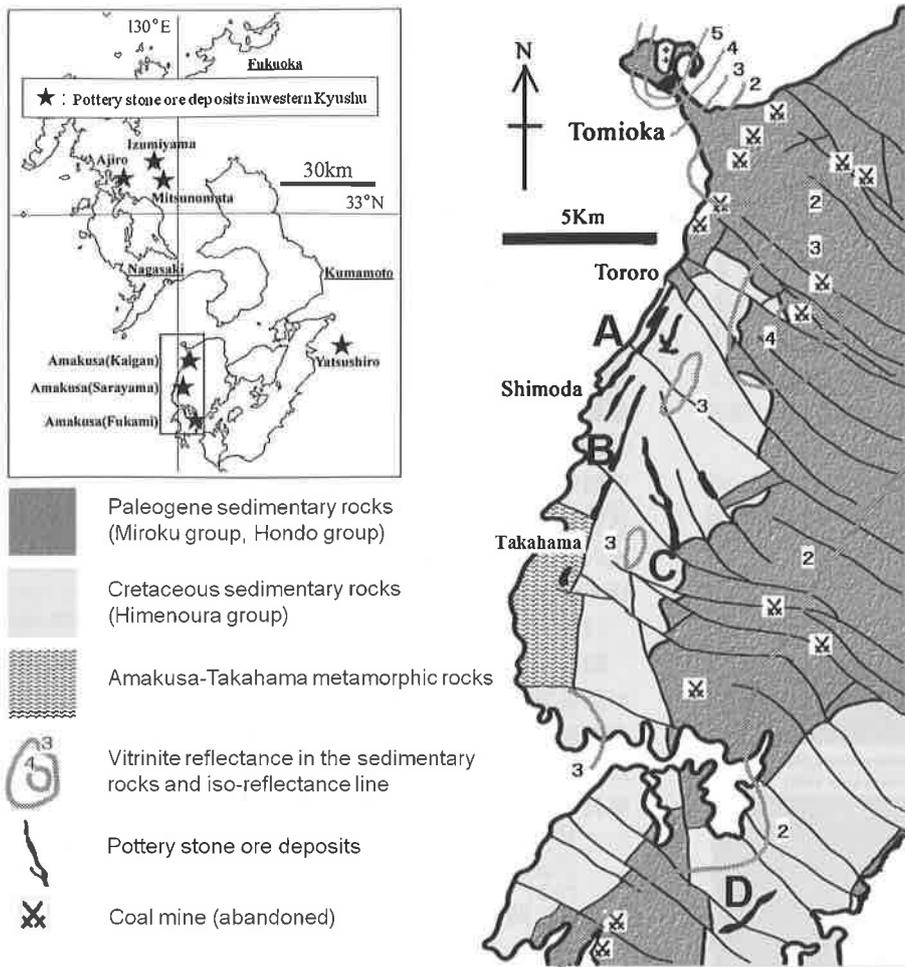


Fig. 1. Locality map and geological map of Amakusa-Shimoshima Island (modified after Takai *et al.*, 1997; Aizawa, 2000). (A) Kaigan vein. (B) Murayama vein. (C) Sarayama vein. (D) Fukami vein.

陶石が使われるようになった。

鉱物資源としての陶石生産量は1973年に全国で33万トンの最高を記録したが、その後減少が続き現在は2万トンを切っている。代表的な陶石である天草陶石の生産量も、最盛期には8万トンを出荷したが、現在は1万トン台となっている。戦後に採掘された天草陶石の総量は200万トンを超えると推定される。

陶石は「他の原料を混合することなく陶磁器が製造できる岩石」と定義されているが、実際に陶石として採掘されている原料には、より幅広い種類の岩石も含まれている。いずれにしても、陶石には粘土鉱物や長石などの二次鉱物が含まれており、岩石組織から見ても変質作用を受けたことは明らかで、本特集のテーマである「水-岩石相互作用」が関与して生成された重要な鉱物資源である。しかしこれまでに具体的な温度・圧力・関与した流体の性質などを解明したうえで、個々の陶石鉱床の成因について詳しい内容を議論した、鉱床学的な研究はあまり多くない。鉱床の形態・岩石学的特徴・鉱床胚胎の場としての地質環境・生成年代に関するデータなども考慮して、陶石生成プロセスについて新しい観点からの検討を加える必要がある。ここで

は陶磁器原料として最も重要な天草陶石を対象に、これまでの研究成果と著者のデータを紹介し、天草陶石の成因について考察を加える。

II. 天草陶石鉱床のこれまでの研究

1. 天草陶石鉱床の概要

熊本県天草下島西海岸の富岡半島から高浜を経て牛深に至る南北30kmの範囲に、主要な陶石鉱床が分布している。この地域には、長崎変成岩(天草高浜変成岩)、白亜紀の姫浦層群、古第三紀の弥勒層群・本渡層群の堆積岩が分布し、これらに中新世の花崗閃緑岩と流紋岩などの各種岩脈類が貫入している。本渡層群の砥石層からは無煙炭を産し、天草炭田を形成している。高井ら(1997)によれば、前期の構造運動として北北東～南南西系と南北系の正断層を生じ、後期の構造運動として北西～南東系の横ずれ断層を生じている(Fig. 1)。

陶石鉱床は流紋岩の岩脈全体が、ほぼ原岩を残すことなく変質したものであり、形態としては鉱脈鉱床に似ている(Fig. 2)。大規模な鉱床に海岸脈・村山脈・皿山脈があり、それぞれ延長4-5kmで脈幅は10m程度であるが、

最大 25 m に達することがある (Table 1)。海岸脈と村山脈は前期の構造運動で形成された正断層に平行しており、ほぼ直立している。村山脈は長崎変成岩と姫浦層群を区切る高浜断層の北部延長部分に一致している。一方、皿山脈は皿山断層中に存在しており、海岸脈などとは走向・傾斜が異なっている。皿山断層は前期と後期の中間に活動しており、皿山脈を形成した岩脈は前 2 者よりも少し遅れて貫入したと考えられている (高井ら, 1997)。

陶石鉱床は海水準から標高 300 m 付近の高所まで分布している。鉱床の傾斜延長は 200 m 以上と推定されるが、深部の状況は明らかでない。これまでに 50 か所以上の採掘場が設けられて主に坑内掘りを行っていたが、現在は 3 社が 5 か所程度の採掘場で露天掘りを行っている。

(1) 天草陶石の種類

陶石脈全体の中で主たる採掘対象となっているのは外観が白色の岩石であるが、その他にいろいろな特徴を持った低品位の陶石が共に産出する (濱崎・須藤, 1999)。鉱山で

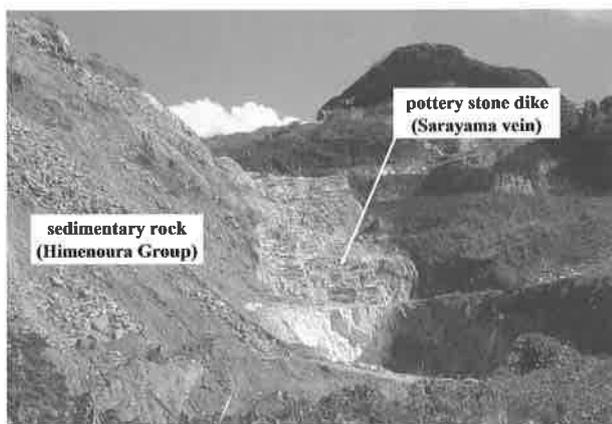


Fig. 2. Typical mode of occurrence of the Amakusa pottery stone (Sarayama vein, Denbeikoba quarry). The height of each bench is ~ 10 m. The size of the Sarayama vein is shown in Table 1. Color version is available online from <http://dx.doi.org/10.2465/gkk.150406>.

Table 1. Properties of main veins of Amakusa pottery stone deposit

Name	strike	length (km)	width (m)	
			mean	maximum
Kaigan vein	NNE-SSW	4	7-8	15
Murayama vein	NNE-SSW	6	7	13
Sarayama vein	NW-SE	3	15	25
Binnomizu vein	NNW-SSE	1.7	5-7	sheet shape
Fukami vein	NE-SW	3	8-15	12

Data from Togashi (1974).

は、採掘後に手作業の選鉱だけで出荷できる高品位陶石を「特等～2等 (Fig. 3a)」, 塩酸を使った脱鉄処理をして出荷する必要がある低品位陶石を「3等～4等」のようにランク分けをしている。また、低品位陶石のなかでも岩石的な特徴に基づいた呼称もある。「縞石 (Fig. 3b)」は褐色に着色された縞状の「リーゼガングリング」構造が顕著に発達する陶石である。「変色 (Fig. 3d)」と呼ばれる陶石は破碎されて大気にさらされると、数ヶ月で岩石の表面全体が着色する性質がある (Fig. 3)。

一方、窯業原料としての特性による品位区分も行われている。西九州の磁器は一般に 1300 °C で焼成するので、標準的な陶石の耐火度は SK26-27 番であるが、鉱床中には「低火度陶石 (Figs. 3-3c)」と呼ばれる SK26 番未満の岩石が相当量存在しており、未活用の資源として採掘されない状態で埋蔵されている。これら性質の異なる各種陶石の鉱床内での分布は採掘場所によってさまざま、一定の規則性が存在するかどうかは明らかになっていない。

(2) 天草陶石の品質

陶石には陶磁器製品の原料として要求される、いくつかの品質項目がある。① 1300 °C (SK10 番) の焼成温度で形状が変形することなく磁器化して、吸水率が 0.1% 以下になること。② 製造した磁器製品ができるだけ白く、透光性に優れていること。③ 坏土 (成形作業時に使用する練った土のこと) の可塑性を確保するため、一定量の粘土鉱物を含むことである。①と②は陶石の化学組成に関係し、③は鉱物組成に関係している。各種の天草陶石の化学分析値を Table 2 に、粉末 X 線回折 (XRD) の実験結果を Figure 4 に示した。なお Table 2 および Figure 4 にはいくつかの新たなデータが含まれているが、これらの詳細については III 章で述べる。高品位の陶石は化学成分として Si, Al, K の 3 成分で構成され、着色原因となる Fe, Ti が少ない。また、耐火度を下げて形状変形の原因となる Na, Ca もほとんど含まれていない。鉱物組成では石英, セリサイト, カオリナイトからなり、粘土鉱物を多く含んでいる。低火度陶石などの低品位の陶石では着色の原因となる元素や、耐火度を下げる元素が増えている。鉱物組成では可塑性がない曹長石が加わり、坏土の成形性を悪くしている。

通商産業省工業技術院 (1999) には、天草地区の 9 個所の鉱床 (陶石脈) から収集した 218 個の試料について、化学組成・鉱物組成 (粉末 X 線回折図形と構成鉱物種の定量値)・耐火度 (推定値) などのデータが納められており、公表された天草陶石のデータベースとしては最も充実している。数多くの分析値からわかることは、10 km 以上離れた採掘場で産出した試料を比較しても、高品位陶石においては Si, Al, K の主成分組成の変動幅が小さいことで、天草陶石は品質的に安定した優れた窯業原料となっている。なお、これらのデータは陶石性状データベース (<http://www.kumin.ne.jp/vsi/pspdb>) として、木村邦夫氏のホームページにも紹介されている。



Fig. 3. Various types of Amakusa pottery stone. (a) High-grade ore: white and with low iron content. (b) 'Shimaishi' ore: remarkable banded structure. (c) 'Teikado Toseki' ore: having refractoriness lower than SK26. (d) 'Henshoku Toseki' ore: characterized by a color change from white to gray caused by weathering. Color version is available online from <http://dx.doi.org/10.2465/gkk.150406>.

Table 2. Chemical compositions of Amakusa pottery stones

Sample	1	2	3	4	5	6
(wt %)						
SiO ₂	79.08	82.12	76.99	76.11	76.92	76.88
TiO ₂	0.01	0.01	0.02	0.03	0.01	0.02
Al ₂ O ₃	14.81	12.96	14.90	15.49	15.00	14.23
Fe ₂ O ₃	0.28	0.27	0.83	0.88	0.88	0.97
MgO	0.08	0.06	0.06	0.07	0.09	0.30
CaO	0.03	0.02	0.05	0.06	0.22	0.59
Na ₂ O	0.06	0.08	1.97	1.97	0.08	0.06
K ₂ O	2.62	2.26	2.90	3.01	3.28	2.20
LOI	2.68	2.04	2.17	2.30	3.25	4.69
Total	99.65	99.82	99.89	99.92	99.73	99.94

- 1, Super grade: Sarayama vein/Denbeikoba (MITI, 1999).
- 2, 2nd grade: Sarayama vein/Iguchiyama (MITI, 1999).
- 3, 4th grade: Murayama vein/Gosou (this study).
- 4, Shima-Ishi: Murayama vein/Uchiyama (this study).
- 5, Teikado: Sarayama vein/Denbeikoba (this study).
- 6, Henshoku: Kaigan vein/Shimizu No. 4 (this study).

2. 天草陶石に関する研究

天草陶石は江戸時代から継続的に使用されており、窯業原料としての工学的な研究は明治初頭から今日に至るまで数多く行われている(社団法人日本窯業協会, 1929; 濱野ら, 1988)。1950年代から偏光顕微鏡や粉末X線回折法を使った岩石・鉱物学的研究が開始され(武司・秦, 1947; 中村ら, 1957), 1970年代以降は陶石を構成する粘土鉱物の詳細な記載(金岡, 1975; 中川ら, 1982; 中川, 1988; Nakagawa, 1994; Nakagawa and Matsuura, 1994), K-Ar法による粘土鉱物の生成年代測定(柴田・富樫, 1975; 濱崎, 1996), また安定同位体による熱水起源の検

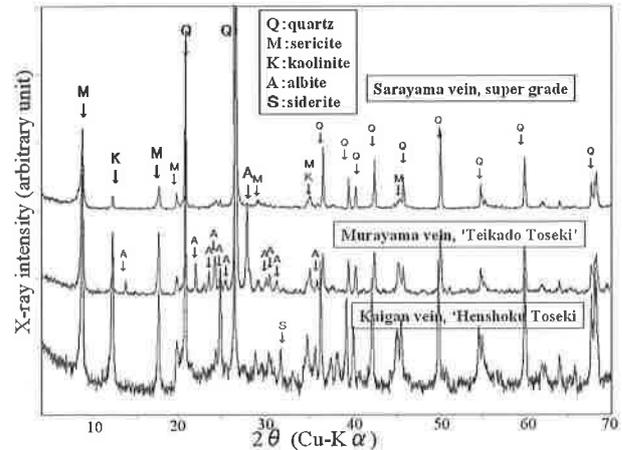


Fig. 4. Powder X-ray diffraction patterns of some types of Amakusa pottery stone. Top: super grade ore; middle: 'Teikado Toseki' ore; and bottom: 'Henshoku Toseki' ore.

討(富樫・松久, 1978)などさまざまな研究が行われている。さらに河島・小木(1991)は天草陶石を含む日本各地の窯業原料とそれらを使用した陶磁器製品について、放射化学分析法による微量元素の定量分析を行っている。また富樫(1973)は陶石化過程に関する鉱床学的な研究を行った。

これらの研究の結果、天草陶石について以下の特徴が明らかになった。陶石中のセリサイト(全岩)を使ったK-Ar年代は、皿山脈(伝兵衛木場)で 16.4 ± 0.3 Ma と 16.6 ± 0.8 Ma (濱崎, 1996), 海岸脈で 13.3 ± 0.6 Ma (柴田・富樫, 1975)である。皿山脈(伝兵衛木場)での陶石(全岩)の酸素同位体比は $+13.1$ – $+15.8$ ‰で、マグマ水の関与と動的同位体効果の影響が考えられ、また、炭酸塩鉱物の酸素同位体組成から推定される平衡温度は 300 °Cであった(富樫・松久, 1978)。陶石の構成鉱物は石英, セリサイト(本報では雲母族粘土鉱物を総称してセリサイトと記載する), カオリナイトを基本とするが、粘土鉱物としてトスタイトやレクトライトの規則型混合層鉱物やスメクタイトも報告されている(中川, 1988; Nakagawa and Matsuura, 1994)。さらに、低品位の陶石には曹長石, 方解石, 菱鉄鉱, 電気石が含まれている(尾崎・中川, 1985)。天草陶石中のセリサイトには不規則型の雲母/スメクタイト混合層鉱物も含まれるが、混合層中のスメクタイト成分は皿山脈で多く、海岸脈と村山脈ではほとんど含まれていない。セリサイトの粒度とポリタイプの種類および生成順序の関係についても詳しく研究されており、これらの結果からはセリサイトの生成温度に違いがあることや、海岸脈に対して皿山脈での陶石化の温度幅が広く、比較的長期間の熱水変質を被った可能性があることが指摘されている。さらに陶石中のセリサイトと共存する細粒石英の鉱物学的特性からは、海岸脈と村山脈に対して皿山脈の細粒石英が比較的低温で晶出した可能性が指摘され、特に白色の高品位鉱で後期の低温変質を受けていることが示されている(中川,

1988 ; Nakagawa, 1994 ; Nakagawa and Matsuura, 1994)。

鉱床学的な研究では、富樫(1973)が皿山脈の伝兵衛木場採掘場で鉱物組成に基づいて、炭酸塩鉱物化帯・粘土鉱物化帯・けい化帯・弱変質帯の4つの変質帯に分帯した。変質帯の形成過程について化学組成、特に熱水溶液中の K^+/H^+ 比と Na^+ の濃度変化に注目し、アルカリ長石・カオリナイト・セリサイト鉱物の安定領域の考察から、陶石化には水素交代作用が強く働いたことを明らかにした。濱崎・須藤(1999)は伝兵衛木場採掘場においてカオリン・セリサイト・炭酸塩鉱物・曹長石の分布を明らかにして、炭酸塩帯(変色帯)・高品位部・低品位部・弱変質部の4部分に分けて品位分布図を作成し、炭酸塩帯の分布が熱水の上昇通路と関係していることを示した。

さらに、天草陶石に特有な特徴として、化学組成上Tiの含有量が一般の流紋岩に比較して極端に少ないこと、希土類元素のYbとLuが他地域の陶石と比べて少ないことが明らかになっている。Table 2に示した産地と品質が異なる6試料の化学分析値では、 TiO_2 は0.01-0.03%の範囲にある。通商産業省工業技術院(1999)にリストされた海岸脈、村山脈、皿山脈の主要3鉱床から採取された試料146個の化学分析値でも、0.01%が68個(46%)、0.02%が64個(44%)、0.03%以上が14個(10%)となっている。Imai *et al.* (1995)では、流紋岩標準物質の TiO_2 はJR-1(0.11%)、JR-2(0.07%)、JR-3(0.21%)である。古澤(2012)による鹿児島県北部(50試料)と菱刈地域(29試料)の各種火山岩類の分析値(79試料)を見ても、 TiO_2 が0.01-0.03%の範囲の値を示す試料は1試料もなく、Ti含有量が極端に少ない天草陶石は特異な岩石である。

河島・小木(1991)の分析値をコンドライトで規格化した結果をFigure 5に示した。分析対象の元素種が少ないこと、この文献以外に陶石の希土類分析のデータがないので詳しい検討はできないが、天草陶石のYbとLuが他地域の陶石よりも1桁近く少ないことが示されている。また上記の流紋岩標準物質(JR-3)と比較しても、同様に1桁小さい(Fig. 5)。

Tiは変質作用や風化作用では移動しにくい元素であり、希土類元素のパターンも低温の変質作用で変化することはないと考えられる。これらの化学組成上の特徴は、陶石の原岩である流紋岩マグマの形成場とも関連すると思われる。天草陶石の生成環境を考える上で重要なポイントと思われる。

III. 最近の研究と天草陶石鉱床生成に関する考察

これまでの天草陶石の研究で明らかになったことは、構成鉱物、皿山脈伝兵衛木場での変質分帯、化学組成(主成分元素の安定性:窯業原料として品質が安定、TiとREEの特異性)、変質年代である。また、陶石鉱床としての重要な特徴では次があげられる。

- 分布範囲が広い。

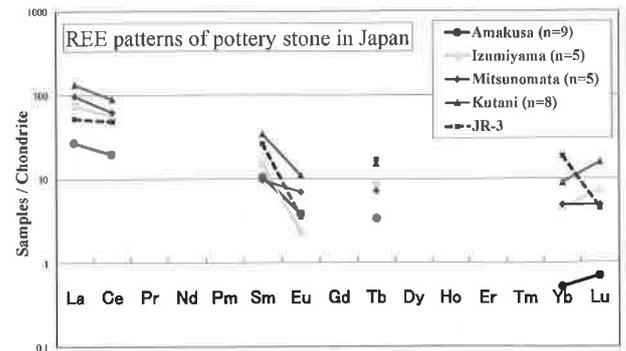


Fig. 5. REE patterns of the Amakusa pottery stone (●), the Izumiyama pottery stone (■), the Mitsunomata pottery stone (◆), the Kutani pottery stone (▲), and the JR-3 (■). 'n' represents the number of samples analyzed (Kawashima and Ogi, 1991). Color version is available online from <http://dx.doi.org/10.2465/gkk.150406>.

- 鉱体が長大かつ狭いが、変質様式が分布域全体で一定している(高品位陶石)。
- 炭酸塩鉱物(特に菱鉄鉱)を含む部分が普遍的に存在する(変色陶石)。
- 曹長石を含む部分が普遍的に存在する(低火度陶石)。
- 周囲の堆積岩(白亜系姫浦層群)に顕著な熱水変質作用の影響が見られない。

多様な研究が行われてきたが、生成環境を考えるために必須である流体包有物の研究は進んでいない。各所の堀場から数多くの研究試料が採取されてきたが、石英脈や水晶を観察した報告はなく、流体包有物も未発見だった。熱水変質作用を被った岩体にもかかわらず、顕著な石英脈が認められない事実も重要な特徴である。

鉱床学的に成因を考えるために、明らかにしなければならないテーマとして以下が考えられる。

- 鉱床の生成温度と関与した流体の性質: 流体包有物、鉱物の生成順序、炭酸塩鉱物の生成環境など基礎データの集積。
- 変質分帯の規則性: 各採掘場での「高品位陶石」「変色陶石」「低火度陶石」の分布様式に規則性があるかどうか。
- 安定同位体組成: 特に「変色陶石」中の炭素の起源について検討が必要。
- 曹長石の産状と生成環境: 「低火度陶石」の主成分鉱物であり、XRDでは容易に検出されるが、鏡下観察での曹長石の報告例は少ない。中村ら(1957)は海岸脈、皿山脈、深海脈などの陶石を偏光顕微鏡観察して正長石と斜長石を記載しているが、これらはすべて初生鉱物であるとしている。Nakagawa and Matsuura(1994)は皿山脈の弱変質帯で変質を免れて残留した初生の曹長石を報告している。しかし、鉱石品位の分類で4割近く(鉱山企業からの私信)を占める「低火度陶石」について、曹長石

の産状を詳細に観察して生成環境(①流紋岩マグマの初成鉱物であるか, ②その変質鉱物であるか, ③熱水からの晶出物であるか)を明らかにすることは, 天草陶石の変質過程を考察するうえで特に重要である。

- 周囲の堆積岩がほんとうに変質作用を被っていないのかどうかを検証し, 熱水が影響を及ぼした空間的な広がりを明らかにする。

本章ではこれらの問題に関して筆者が行った若干の実験データと, 最新の研究成果を合わせて紹介し, 天草陶石鉱床の生成について考察する。

1. 陶石の観察および分析

偏光顕微鏡と波長分散型 X 線分光器付きの走査型電子顕微鏡(SEM/WDS)を用いて, 陶石の観察を行った。試料は Figure 3 に示した「2 等石」「低火度陶石」「変色陶石」である。SEM による破面観察用試料の作製は, 1.5–2.5 mm に粉碎した試料をエタノール中で数 10 秒間超音波処理し, 35 °C で真空乾燥後, 白金蒸着を行った。SEM/WDS での組織観察用の試料作製は, 樹脂埋包した試料をダイヤモンド砥粒で研磨し, 観察表面に炭素蒸着を行った。使用した装置は日本電子製 JXA-840AP である。

また, Table 2 に示した一部の化学分析と Figure 4 の XRD 測定には, Figure 3 の試料から 50 g 程度を採取して粉碎し実験に用いた。化学分析にはフィリップス製蛍光 X 線分析装置 MagiX PRO を用い, 試料 0.4 g を 10 倍の四ホウ酸リチウムで希釈してガラスビード化した後, 検量線法(JIS R 2216: 2005)で測定した。XRD 測定では試料約 1 g をメノウ乳鉢で微粉碎してアルミホルダーに詰めて整形し, フィリップス製粉末 X 線回折装置 MPD 1880 を用いて測定した。

(1) 2 等石(皿山脈, 伊口山採掘場)

XRD で確認した構成鉱物は石英, セリサイト, カオリナイトであった(Fig. 4)。鏡下では 50 μm 程度の石英粒子の間を粘土鉱物が埋める微細な組織を示す(Fig. 6)。セリサイトは大きいレターゲーションを示すため容易に確認できる。セリサイトには 30 μm 程度の大きな粒子と, より微細な粒子の 2 種類が認められる。カオリナイトは干渉色が低い, 5–10 μm の葉片状の集合体として認識できる。

SEM 観察では石英の周囲を粘土鉱物が取り囲む組織が認められる(Fig. 6)。セリサイトはゆるく湾曲した不定形の葉片状を示し, 破面から非常に薄い鱗片状の微粒子として分離している状態が観察された。カオリナイトは径が 5 μm 程度の葉片が積層したような産状で, 全体として長柱状を呈する。へき開が発達している, 陶土を作製する時の粉碎工程でへき開面で分離して, セリサイトよりも厚みのある板状粒子になると考えられる。

(2) 低火度陶石(縞石)(五層脈, 三助谷採取場)

XRD で確認した構成鉱物は石英, セリサイト, 曹長石, カオリナイトであった(Fig. 4)。鏡下の組織は 2 等石と同様であるが, 縞状構造を反映して褐色に着色された部分が認められた。XRD チャートにおける 2 等石との違いは, 曹長石が存在していることである。全岩の化学分析値は約 2% の Na_2O を示しており(Table 2), 丹念に鏡下観察を行ったが, 曹長石を確認することができなかった。SEM/WDS を用いて試料の数ヶ所で特性 X 線のマッピングを行ったが, Na については顕著な反応をとらえることができなかった(Fig. 7)。

(3) 変色陶石(海岸脈, 清水四坑)

XRD で確認した構成鉱物は石英, セリサイト, カオリナイトであった(Fig. 4)。変色陶石は一般的に炭酸塩鉱物を含んでおり, Figure 4 では菱鉄鉱の最強線に該当する小さなピークが認められる。鏡下で確認できた鉱物は石英, セリサイト, 菱鉄鉱, 方解石であった(Fig. 8)。菱鉄鉱は淡褐色の 30 μm 程度の粒子で, 岩石全体に斑点状に分布し, 脈を作ることはない。方解石は菱鉄鉱と近接して分布している。SEM/WDS での特性 X 線マッピングを Figure 8 に示す。菱鉄鉱と方解石が接して生成している。両鉱物は相互に固溶量が小さく独立の鉱物相として晶出しており, 共生関係にあると考えられる。

2. 流体包有物(均質化温度, 塩濃度)

これまで天草陶石鉱床中には顕著な石英脈を見つけることができず, 流体包有物に関する研究は行われてこなかったが, 大平ら(2012a)は陶石の石英斑晶中に流体包有物を見出し, 均質化温度と NaCl 換算塩濃度を測定した。海岸脈(230–260 °C), 村山脈(210–250 °C), 皿山脈(160–190

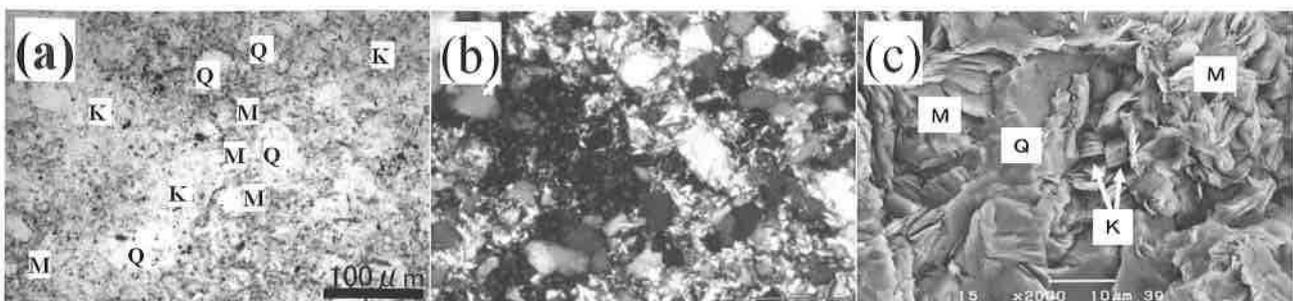


Fig. 6. Photomicrographs of the high-grade Amakusa pottery stone. (a) Open nicols, (b) crossed nicols, and (c) secondary electron image. Q, quartz; M, sericite (mica clay mineral); K, kaolinite. Color version is available online from <http://dx.doi.org/10.2465/gkk.150406>.

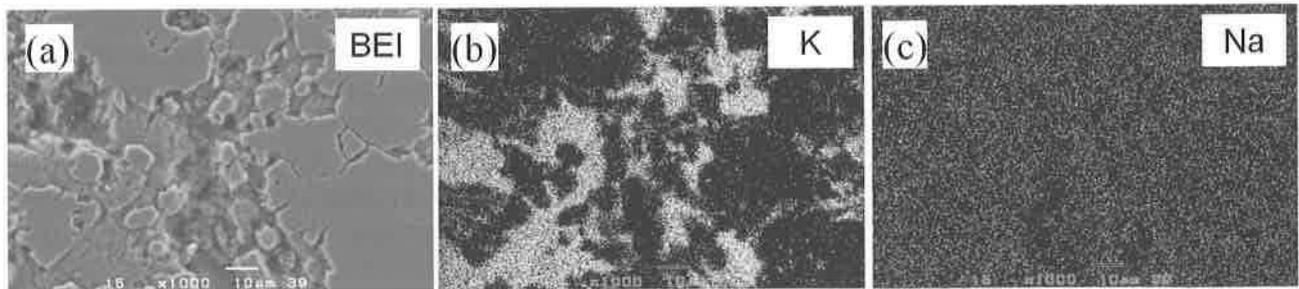


Fig. 7. Photomicrographs of the 'Teikado Toseki' ore. Backscattered electron image (a) and characteristic X-ray images: (b) K and (c) Na.

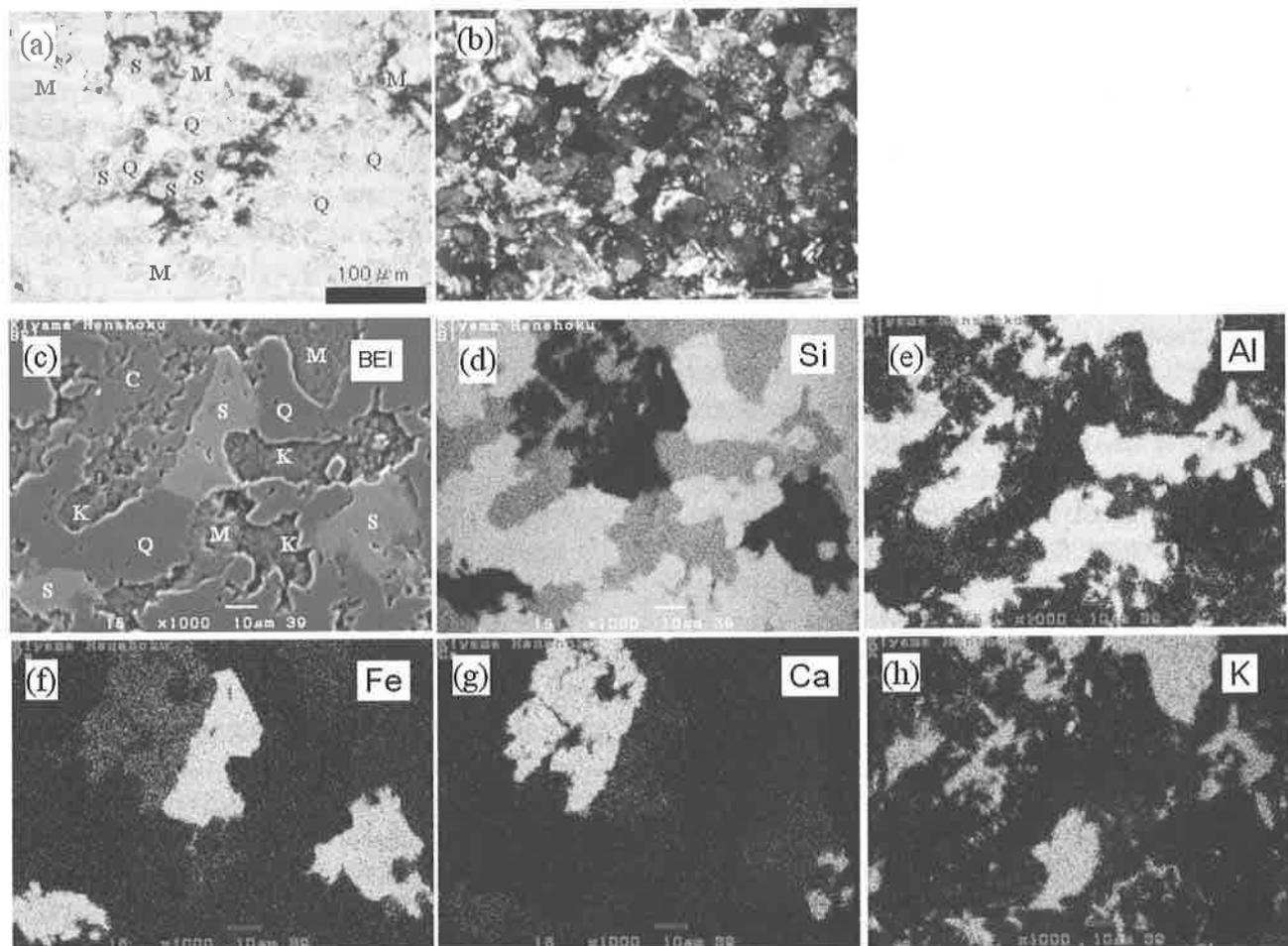


Fig. 8. Photomicrographs of the 'Henshoku Toseki' ore. Open nicols (a), crossed nicols (b), backscattered electron image (c), and characteristic X-ray images: (d) Si, (e) Al, (f) Fe, (g) Ca, and (h) K. Abbreviations: Q, quartz; M, sericite; K, kaolinite; S, siderite; C, calcite. Color version is available online from <http://dx.doi.org/10.2465/gkk.150406>.

°C), 塩濃度 2-7% という結果が得られ, これらの測定値は Nakagawa and Matsuura (1994) が述べたように, 皿山脈での陶石化温度が高温から低温まで幅広く, 熱水変質がより長期間続いたとする指摘とも調和的である。

流体包有物を探するため今回あらためて薄片試料を観察し, 「皿山脈良質陶石」とされた薄片中に約 500 μm の石英斑晶を認めた。石英粒子本体は原岩由来の斑晶と考えら

れるが, その内部に直線的に並んだ 10 μm 以下の流体包有物を観察することができた (Fig. 9)。気液 2 相の包有物である。包有物の配列形状から, 石英斑晶中に生じた亀裂に沿って形成されたものと考えられる。今後, このような斑晶中を丹念に探すことで, 多くの包有物を見出すことができると思われる。縞石や変色陶石, 低火度陶石などの鉱種別に流体包有物の研究を行うことにより, 変質

作用に関与した熱水についての重要な知見が得られると期待される。

3. 年代測定

陶石鉱床の生成に関係した年代測定は、陶石中のセリサイトの K-Ar 年代として、皿山脈(伝兵衛木場)で 16.4 Ma と 16.6 Ma(濱崎, 1996), 海岸脈で 13.3 Ma(柴田・富樫, 1975)が報告されている。三浦・大平(2012)は皿山脈(伝兵衛木場)で陶石中に捕獲された堆積岩中のジルコンから 14.7 ± 0.7 Ma と 15.1 ± 0.9 Ma のフィッシュン・トラック年代と、同じ場所で採取したセリサイトから 13.8 ± 0.3 Ma と 14.0 ± 0.3 Ma の K-Ar 年代を得た。また大平ら

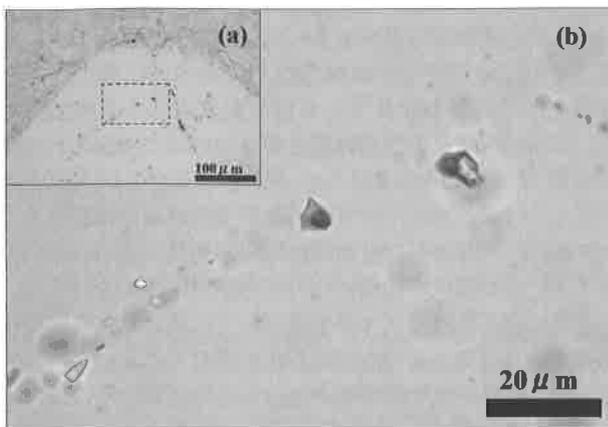


Fig. 9. Fluid inclusions in a quartz phenocryst from the Sarayama vein (a) and enlarged photomicrograph of the rectangular area shown by the broken line in the low-magnification photograph (b). Color version is available online from <http://dx.doi.org/10.2465/gkk.150406>.

(2012b)では陶石中のジルコンを使って LA-ICP-MS による U-Pb 年代を測定し、14.4 Ma(皿山脈伝兵衛木場), 14.3 Ma(海岸脈文七), 14.9 Ma(富岡半島流紋岩)の値を得ている。年代値のばらつきが試料の処理や測定方法の違いによるものか、あるいは変質作用の時間的継続性を意味するのかについては、さまざまな知見が蓄積され、総合的な見地から明らかにされる必要がある。

4. 陶石鉱床の生成プロセスの考察

「陶石」は工業的な用途上から名付けられた名称であり、その成因にはさまざまタイプが考えられる。Fig. 10 に陶石の生成プロセスを模式的に示した。タイプ1から3はこれまでに提唱されたもの、タイプ4は天草陶石の成因を説明するために、新たに提案するものである。

タイプ1は古くから説明されてきた「初生変質」あるいは「自変成作用」で、マグマから分離された流体が、固化した岩石自身と反応するタイプである。このような変質作用は気成鉱床に伴うグライゼン化や、斑岩銅鉱床での変質に近いものである。このタイプの鉱床からは高温・高塩濃度の流体包有物の出現が予想される(Roedder, 1984)。日本では群馬県御座入鉱山(須藤, 2001)や長野県藪原鉱山(須藤・高木, 1994)の長石鉱床がこの条件に近い地質環境にあり、今後検討する必要がある。

タイプ2はマグマが貫入固化した後、地表面に比較的近い場所で火山ガスや水蒸気による変質を受けて陶石化する場合である。鉄成分の溶脱、オパール CT や長石微結晶の生成などの現象が見られる。流体包有物は均質化温度、塩濃度ともに広い範囲にばらつき、一定しない。火山の噴気作用に関係する変質作用であり、その空間的、時間的な広がりには限定される。このタイプの例として長崎県網代陶石

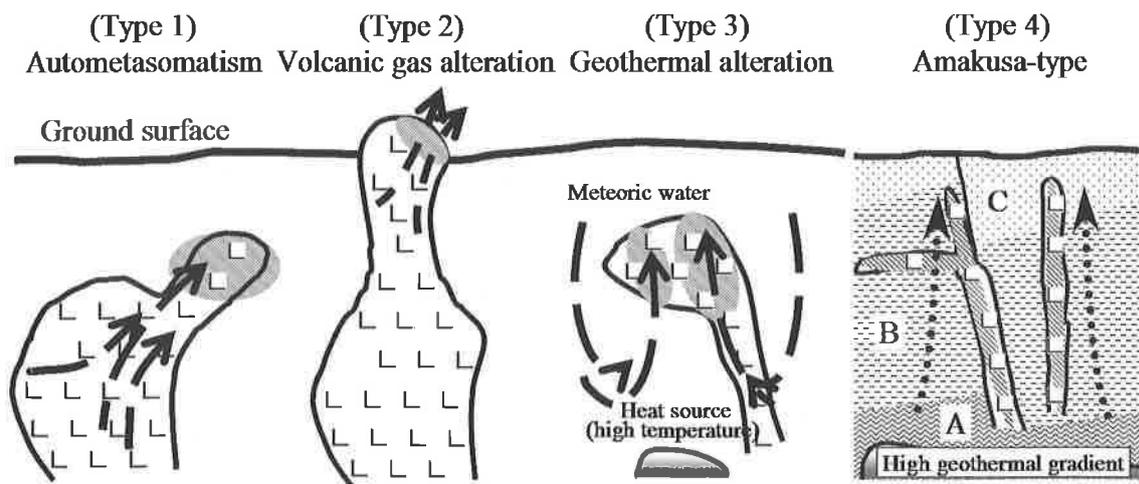


Fig. 10. Diagram showing four types of genetic model of the pottery stone ore deposit. Types 1 to 3 were previously proposed as ordinary models. Type 4 is the 'Amakusa-type' model for explaining the hydrothermal alteration by which a rhyolite dike is converted uniformly into pottery stone over a wide region under a high geothermal gradient. The hatched areas indicate altered regions, namely pottery stone ore deposits. The wide broken arrows represent the paths of geothermal fluids. The dotted arrows in the Amakusa-type model represent the direction of heat flow and a small amount geothermal fluid. In the figure of 'Amakusa-type', (A), (B), and (C) represent metamorphic rocks, Cretaceous sedimentary rocks and Paleogene sedimentary rocks, respectively.

(武内ら, 1999; 武内, 2010)が考えられる。

タイプ3は地熱系における変質作用と同じもので、循環する地熱水によって既存の岩石が変質を受けて陶石化する場合である。長期にわたって地熱系が活動するため、比較的広い範囲が変質作用をこうむり、岩体全体が陶石化することもある。多量の熱水が作用するので、石英脈や珪化帯、また硫化鉱物も形成される。浅熱水性金銀鉱脈鉱床と同様の特徴が考えられ、作用した熱水は200–300℃の均質化温度、数%の塩濃度、天水起源の安定同位体組成などが予想される(鹿園, 1977)。このタイプの例として長崎県三股陶石(武内ら, 2002)が考えられる。熱水変質を引き起こした熱源との空間的位置関係は、陶石化した岩体の直下に存在する場合から、離れた場所にあつて特定できない場合も存在する。またマグマの貫入からその後の変質作用に至るまでの時間も、泉山陶石や三股陶石のように数十万年の時間差が生じる場合がある(前田ら, 1996; Hirasawa and Uehara, 1999; 武内, 2010)。

天草陶石鉱床は、大平ら(2012a)が述べた均質化温度と塩濃度からはタイプ3に該当する。しかし、陶石鉱床の分布域である南北30kmに及ぶような大規模な熱水系を作りうる火成岩体が顕在化していないことや、熱水変質の影響が確認できない白亜系堆積岩中で、脈幅は狭いながら数km連続する流紋岩脈だけを選択的に変質させるような熱水系や熱水循環モデルを考えることは難しい問題である。また、顕微鏡レベルも含めて石英脈が観察されないことは、シリカ鉱物が自由空間に沈殿する環境ではなかったことを示唆しており、変質に関与した熱水の量、つまり水/岩石比の視点からもタイプ3で説明することは難しい。

天草地域での陶石化に関与した熱源と変質温度さらに熱水の供給について、マグマの貫入とそれに引き続く熱水変質という視点だけではなく、この地域の過去の地温勾配を考慮する必要があると考えている。特定の地層が被った最高温度を知る方法として、堆積岩中の炭質物(ビトリナイト)の反射率を測定することが行われている。地質図(Fig. 1)にAizawa(2000)によるビトリナイトの等反射率線を記入したが、白亜系～古第三系の地質構造とは関係なく、おおむね東から西に向かって反射率が上昇し、福岡半島では19MaのK-Ar年代を示す花崗閃緑岩(柴田・富樫, 1975)に関係するように、高い反射率が分布している。陶石鉱床に近い場所にも反射率3以上の場所がスポット的に存在しており、Aizawa(2000)は当地域の堆積岩中の石英脈に含まれる流体包有物から、142–273℃の均質化温度を報告している。大平ら(2012a)が測定した陶石中の流体包有物の均質化温度もこの範囲に入っている。

濱崎(1996)は陶石の原岩も含んだ火成岩の貫入が、19Maから14Maまでの長期間にわたって連続的に生じていたことを述べている。粘土鉱物の研究からは変質作用は温度が変化しながら、一定期間継続したことが指摘されている(Nakagawa and Matsuura, 1994)。これらのことから、

この時期に地域全体の地温が高くなる特殊な地温勾配が継続していた可能性が考えられる。また、これまでに測定された陶石鉱床の変質年代が16Maから13Maの広い範囲におよぶことは、変質作用が高い地温環境下で継続的に進行したと考えられる。

以上をまとめると、天草地域では過去に高い地温勾配の時代があり(鮎沢, 1990)、流紋岩脈中にセリサイトやカオリナイトが生成するのに十分な温度条件が形成されたと考えられる。このような局所的な高い地温勾配と大量の熱水が循環しない環境下で、広域的に同質の変質作用が行われるプロセスを、4番目の陶石化作用(天草タイプ)として提案したい。

天草陶石の具体的な生成環境は少しずつ明らかになりつつあるが、未解明な部分も多い。主要な陶石鉱床の大部分でチタン成分(TiO₂)が0.03%以下であり、このことが西九州地方の磁器の特長である白色度に大きく貢献している。工業技術連絡会議窯業連合部会(1992)に掲載されている全国37ヶ所の陶石鉱山で、チタン成分が0.03%以下を示すものは伊西陶石や洪草陶石を産する岐阜県飛騨地方だけである。天草陶石では新鮮な原岩が発見されていないため、マグマの組成や起源についての検討は進んでいない。チタンに枯渇したマグマが生成されて、貫入した岩脈群が陶石化したと考えるのか、陶石化の過程でチタンを特異的に溶脱する地球化学的環境が生じたと考えるのか、根本的な課題が未解明である。陶石化過程についても、変質に関与した熱水の温度、塩濃度、pH、二酸化炭素分圧、水/岩石比などについて研究を行い、長大な岩脈がまるごと陶石に変質するような鉱床生成プロセスを明らかにし、この地域における熱史とも関連付けた地史的位置付けの検討が待たれる。

IV. おわりに

本稿は、鹿園直建先生と天草陶石について研究を開始したいと思い、その研究に取りかかるための説明資料として考えていた内容である。鹿園先生は慶応義塾大学を退職された年の平成24年9月、奥様とご一緒に伊万里・有田・波佐見など九州のやきもの産地を一週間の長期にわたって訪問された。奥様はやきもの工房を、先生は筆者と共に泉山陶石、三股陶石、波佐見金山を見てまわられた。その時に、陶石鉱床の成因にかなり興味を持たれ、筆者が、陶石鉱床を研究するのであれば生産量・品質共に最高の天草陶石を最初に攻めるべきと申し上げると、「じゃ、次は天草に行きましょう」と言われ、筆者はその時を楽しみに待っていた。しかし、先生の天草行きは実現することなく、ご逝去された。

鹿園先生は伊万里市大河内山のある窯元で、そこで焼成している天然青磁が気に入られ、店主が話す原料や焼成方法の説明を熱心に聞いておられた。奥様からいただいたお便りには、いま先生は青磁の中で眠っておられると、添え

書きがあった。

謝辞 各種陶石の特徴を調べるため、有限会社木山陶石鉱業所、共立マテリアル株式会社天草鉱業所、有限会社上田陶石から陶石サンプルを提供していただいた。流体包有物の観察には、元長崎県窯業技術センター所長の関秀哉氏が作製した薄片を使用させていただいた。蛍光X線での定量分析には長崎県窯業技術センターの木須一正氏の協力を得た。また、2名の査読者の方からは、文献の取り扱いや考察での問題点を指摘していただき、丁寧なコメントをいただいた。査読者の意見により、筆者は基本的な考え方を再整理することができ、本稿の内容も大きく改善された。これらの方々に心から感謝の意を表します。

電子付録 Figures 2, 3, 5, 6, 8, 9のカラー図は下記のWEBサイトに掲載しています。

<http://doi.org/10.2465/gkk.150406>

引用文献

- 鮎沢 潤(1990): 流体包有物に基づく統成過程の古地温と炭質物の統成度—北西九州第三紀堆積盆の場合—。岩鉱, **85**, 145-154.
- Aizawa, J. (2000): Thermal history of selected sedimentary basins in an island arc: evidence from organic matter and fluid inclusions. In *Organic Matter and Mineralization: Thermal Alteration, Hydrocarbon Generation and Role in Metallogenesis* (Glikson, M. and Mastalerz, M. Eds.). Kluwer Acad. Pub., 400-420.
- 古澤美由紀(2012): 九州の鉱床を伴う新第三紀および第四紀火成岩の地球化学。 <http://hdl.handle.net/10232/12640>
- 濱野健也, 岡田 繁, 波多野敦(1988): 曹長石含有天草陶石による高強度磁器素地の開発。日本セラミックス協会昭和63年年会講演予稿集, 58.
- 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。地調月報, **47**, 201-207.
- 濱崎聡志, 須藤定久(1999): 熊本県天草地方の陶石鉱床, 地質ニュース, **538**, 38-47.
- Hirasawa, K. and Uehara, S. (1999): Hydrothermal history of the Izumiyama pottery stone deposit inferred from Microstructure analysis of illite by SEM and TEM. *Res. Geol. Spec. Issue*, No. 20, 113-122.
- Imai, N., Terashima, S., Itoh, S. and Ando, A. (1995): 1994 compilation of analytical data for minor and trace elements in seventeen GSJ geochemical reference samples, "Igneous rock series", *Geostandards Newsletter*, **19**, 135-213.
- 金岡繁人(1975): 陶石中のTOSUDITE様粘土鉱物について。須藤俊男教授退官記念論文集, 34-41.
- 河島達郎, 小木一良(1991): 陶磁器胎土の科学分析, 古九谷の実証的見方。pp. 177, 創樹社美術出版。
- 工業技術連絡会議窯業連合部会(1992): 日本の窯業原料(1992)。pp. 919, ティー・アイ・シー。
- 前田勝彦, 渡辺公一郎, 井澤英二, 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.
- 三浦千佳, 大平寛人(2012): 熊本県天草地域の陶石脈の変質作用とフィッシュン・トラック年代。フィッシュン・トラックニューズレター, **25**, 46-49.
- 中川昌治(1988): 天草陶石の構成鉱物。粘土科学, **28**, 11-29.
- Nakagawa, M. (1994): Clay mineral associations and mineralogical properties of quartz in some pottery stones of western Kyushu, Japan. *Appl. Clay Sci.*, **8**, 331-347.
- Nakagawa M. and Matsuura T. (1994): Hydrothermal alteration at Denbekoba deposit of Amakusa pottery stone. *Clay Sci.*, **9**, 123-136.
- 中川善兵衛, 浜野健也, 武司秀夫, 宇野泰賞(1982): 天草陶石の構成鉱物と2, 3の鉱物学的性質。粘土科学, **22**, 179-191.
- 中村小四郎, 松村英雄, 田中圭吾, 岡部 博(1957): 天草陶石の顕微鏡的研究, 熊本大学工学部研究報告, **6**, 36-44.
- 大平寛人, 三浦千佳, 田村明弘, 荒井章司, 武内浩一, 田口幸洋(2012a): 天草陶石鉱床の熱水変質作用とジルコンの放射年代。日本地質学会学術大会講演要旨第119年学術大会, 196.
- 大平寛人, 三浦千佳, 田村明弘, 荒井章司, 武内浩一, 田口幸洋(2012b): 天草陶石鉱床のジルコンのLA-ICP-MSによるU-Pb年代。資源地質学会第62回年会講演会講演要旨(O-30), 56.
- 尾崎正陽, 中川昌治(1985): 熊本県天草富岡半島産含電気石陶石脈。三鉱連合学術講演会講演要旨集, 60.
- Roedder, E. (1984): Ore deposition environments. In *Fluid inclusions* (Roedder, E. Ed.). pp. 646, *Reviews in Mineralogy*, **12**, Mineral. Soc. Amer., Washington, 413-471.
- 社団法人大日本窯業協会(1929): 工学博士北村弥一郎窯業全集第二巻, 108-125.
- 柴田 賢, 富樫幸雄(1975): 熊本県天草下島西部に分布する酸性火成岩類のK-Ar年代。地質調査所月報, **26**, 187-191.
- 鹿園直建(1977): 鉱脈鉱床。現代鉱床学の基礎(立見辰雄: 著)。pp. 257, 東京大学出版会, 188-202.
- 須藤定久(2001): 日本の長石及び長石質資源。地質ニュース, **559**, 50-58.
- 須藤定久, 高木哲一(1994): 長野県, 藪原鉱山の交代性長石鉱床—その産状と岩石記載—。地調月報, **45**, 247-265.
- 高井保明, 坊城俊厚, 原田種成(1997): 熊本県天草炭田の地質及び石炭鉱床。日本炭田図XIV, 天草炭田地質図説明書, 地調, 77.
- 武司秀夫, 秦 孝明(1947): 天草陶石中の絹雲母質鉱物の研究。窯業協会誌, **55**, 115-117.
- 武内浩一(2010): 熱水性非金属鉱床 熱水性陶石・粘土鉱床。日本地方地質誌8, 九州・沖縄地方, 朝倉書店, 527-537.
- 武内浩一, 大串邦男, 都築 宏(1999): 長崎県針尾島の網代陶石。第43回粘土科学討論会講演要旨集, 128-129.
- 武内浩一, 島田允堯, 田口幸洋(2002): 長崎県三股陶石と網代陶石の流体包有物と生成環境。資源地質学会第52回年会講演会講演要旨集, 84.
- 富樫幸雄(1973): 熊本県天草陶石鉱床における変質作用。地調月報, **25**, 491-508.
- 富樫幸雄, 松久幸敬(1978): 安定同位体組成からみた天草陶石鉱床の熱水の起源について。三鉱学会連合学術講演会講演要旨集, 99.
- 通商産業省工業技術院(1999): 陶石の鉱物・化学・熱的性質。研究情報公開データベースCD-ROM版。