

隠岐島後中新世郡累層に見いだされた泥岩中の方沸石コンクリーション

鈴木 徳行*・大坂 理**・赤坂 正秀*

Analcime concretion found in mudstone of Miocene Koori Formation in Dogo Oki Islands, Japan

Noriyuki Suzuki*, Osamu Oosaka** and Masahide Akasaka*

Abstract

An analcime concretion was found in mudstone of Miocene Koori Formation in Dogo Oki Islands, Japan. The Miocene Koori Formation was mainly formed in a non-marine depositional environment. The analcime concretion consists of distinctly separated outer crust and inner core. The soft inner core is mainly composed of kaolinite, well crystallized metahalloysite (halloysite 7 Å), and montmorillonite. While analcime with some detrital quartz and authigenic pyrite are major constituents of hard outer crust. No carbonate minerals are present in the analcime concretion. Porosity of the inner core was evaluated as about 50 to 60%, suggesting that this concretion was formed in the very early stage of diagenesis. Kaolin minerals characterized by low Si/Al in the inner core indicate that the inner core was formed in a relatively acidic and fresh pore water. The abundant analcime and pyrite in the outer crust show that the outer crust was formed in a Na⁺ and SO₄²⁻ rich saline pore water. Analcime, however, can not be considered to be the primary mineral, since its formation temperature is generally more than 80°C. Clinoptilolite can be a candidate as a possible primary mineral formed from saline pore water rich in dissolved silica derived from felsic pyroclastic rocks which are commonly observed in this stratigraphic horizon. No evidence of hydrothermal alteration is observed. The occurrence of analcime concretion is possibly concerned with that the marine water invaded the fresh water depositional environment in late Koori Formation deposition.

1. はじめに

島根県隠岐島後の西郷町周辺に分布する新第三紀前期中新世郡累層の最上部に位置する凝灰質砂岩泥岩互層の泥岩中に鶏卵状の方沸石コンクリーションが見いだされた。この方沸石コンクリーションは、後述するように、方沸石、自生および碎屑性石英、黄鉄鉱よりなる硬質な外殻とカオリン鉱物（メタハロイサイト+

カオリナイト）、スメクタイト、および若干の石英よりなる柔らかな内殻より構成されている。堆積岩中のコンクリーションには、Ca/Mg/Fe 炭酸塩鉱物、Mn 酸化物、珪酸鉱物によって膠結されたものが一般によく知られている。しかし、多量の方沸石によって膠結されたコンクリーションはこれまでほとんど報告されていない。

このような方沸石コンクリーションを産した泥岩層は、植物片や台島型の植物化石を多産し、また、淡水貝化石も見いだされることから、これまで淡水成の堆積環境下で形成されたものとされてきた(山崎, 1984)。最近、山崎ら(1991)は、この方沸石コンクリーションが見いだされた堆積層と同層準の泥岩層から得た2

* 島根大学理学部地質学教室
** 株式会社阪神コンサルタンツ
* Department of Geology, Faculty of Science, Shimane University, Matsue, Shimane 690, Japan
** Hanshin Consultants, Co. Ltd., Nara division, 2 chome 860-1, Ooji, Shijo, Nara, Nara 630, Japan

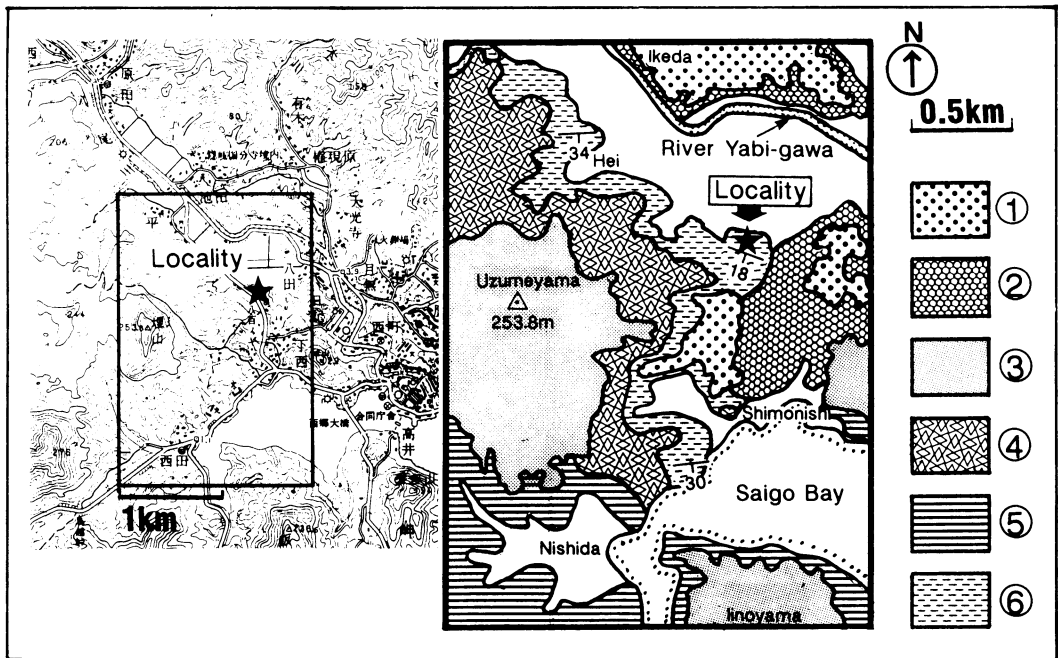
点の試料から多数の海生種珪藻化石を得ており、この凝灰質砂岩泥岩互層中に海成層が挟在している事実を報告している(ただし、山崎ら(1991)ではこの堆積層を久見層に含めている)。上位の久見累層は、海生化石、珪質頁岩、海生珪藻土、海緑石などで特徴づけられ、明らかな海成層であるので、この凝灰質砂岩泥岩互層は陸成から海成堆積環境へと急変する時期に形成されたものであることがわかる。

堆積岩中の自生鉱物の形成を考える上で、孔隙水の化学組成は無視できないものの一つであるが、とくに、斜方チロル沸石や方沸石などの形成を考える上で孔隙水中の Na^+ や溶存シリカ濃度は本質的に重要である(Iijima, 1975)。方沸石あるいはその先駆物質の形成には豊富な Na^+ が必要とされる。産出地付近では熱水変質作用が認められないことから、方沸石コンクリーションの形成は、中新世の大海進と密接に関係している可能性もあり、堆積地史的にも興味深い。これまでに、この方沸石コンクリーションについて粉末X線回折法による検討、顕微鏡下での観察を行ったので、野外での産状と合わせて記載し若干の予察的考

察を行ってみたい。

2. 産出地と平互層の層位学的位置

方沸石コンクリーションは西郷町西方、玉若醉神社北方500m付近の凝灰質砂岩泥岩互層中の泥岩層に見いだされた(第1図)。この方沸石コンクリーションが見いだされた凝灰質砂岩泥岩互層は隠岐島後西郷町の下西北方から平をはじめ、町道塩口八尾線沿い、および、西郷町東方の津井によく露出している。山崎(1984)は西郷町、平に見られる同層を模式地とし、郡累層の最上部部層として、平凝灰岩シルト岩互層部層(以下本分では略記し平互層とする)と呼称した。この平互層はフェルシックマグマの火成活動にともなって形成されたものと思われる凝灰質砂岩、および泥岩の互層から主として構成されている。西郷町東方の津井付近の同層は40~70cm単位の凝灰岩、砂岩、泥岩の互層として見られ、最も厚く堆積しており、層厚は500m以上に及ぶ。層理やクロスラミナが明瞭に観察され、葉片、木片を多産する。町道塩口八尾線沿いでは、調査時、宅地造成中であり新しい好露頭が見ら



第1図 方沸石コンクリーションの産出地と周辺地域の地質図。左の地形図は国土地理院発行の五万分の一地形図「西郷」を利用した。地質図の凡例に示される番号は以下の通りである。①段丘レキ岩層、②ゲンプ岩溶岩(西郷玄武岩類)、③トラカイトーリュウモン岩溶岩(隠岐トラカイトーリュウモン岩類)、④トラカイト貫入岩、⑤珪質、塊状泥岩(久見累層歌木泥岩部層)、⑥凝灰質砂岩泥岩互層(郡累層平凝灰岩シルト岩互層部層)

れた。ここでは、同層は凝灰質砂岩に富んだ砂岩泥岩互層より主としてなるが、粒径数mm程度のレキ岩薄層や5~10mmの層厚をもつ炭層を挟在させている。クロスミナが観察され、また、層理も明瞭である。また、広葉樹と思われる葉片化石を多産する。西郷町西方の下西から平にいたる県道沿いでは、明瞭な層理を持つ凝灰質砂岩泥岩互層よりなり、葉片、木片を多産する。方沸石コンクリーションが見いだされた玉若酢神社北方の露頭は数10cmの凝灰質砂岩泥岩互層より成り数cm程度の炭層が挟在している。平互層と上位の久見累層との関係を直接観察できる露頭は今のところ見いだされていない。さらにわずかに西方の西田や歌木には、上位の久見累層の珪質頁岩が露出していることから、方沸石コンクリーションが見いだされた露頭は平互層の上位付近に位置しているものと思われる。上位の久見累層歌木泥岩部層と平互層の境界部付近にはトラカイトが選択に貫入しており、両者の層位学的関係は今のところ野外で確認されていない(第1図)。

山崎(1984)は平互層をかつて郡累層の最上部部層としたが、最近、山崎ら(1991)は平互層の珪藻化石帯と久見層下部の砂岩層のフィッシュトラック年代に基づいて、平互層と久見累層最下部の砂岩層を同時異相とし、また、上位の久見累層とは不整合の関係であるとしていた平互層のすべてを上位の久見累層に含めることを提案している。

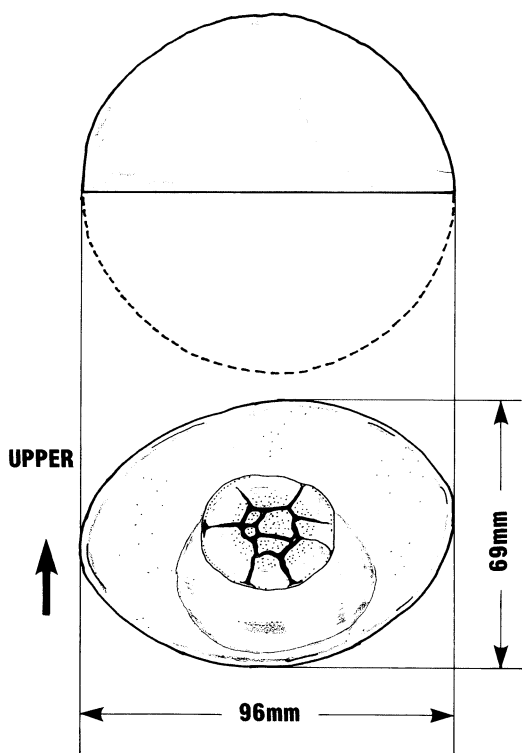
本論文では平互層の層位学上の問題についてあまりふれるつもりはないが、方沸石コンクリーションの層位学上の位置を記載する都合上、筆者らの立場を明確にしておきたい。山崎ら(1991)の成果は、従来淡水成とされていた平互層の堆積時に外洋海水が侵入した事実を示した点、平互層上部の地質年代がより新しくなる可能性を指摘した点、さらに、それらの意義を現在の視点から新しく考察している点で十分に評価されるべきである。しかしながら、郡累層(山崎, 1984)、久見累層(大久保, 1981, 1984)はそれらの部層も含めて模式地に示される岩相とその野外における連続性、実際に観察される他の部層との層序関係など、いわゆる岩相層序に基づいて定義されたものである。山崎(1984)による郡累層の岩相層序の設定は、実際に観察、追跡される岩相の連続関係に基づいて行われており、後に続く調査者にとって受け入れ安い非常に適当な岩相層序であると、筆者らは高く評価している。一方、山崎ら(1991)は、生層序学、フィッシュトラック年代に基づく新しい資料から、従来の久見累層

と連続関係、層序関係が全く見られない郡累層の平互層を久見累層へ移し同層の再定義を提案している。生層序、年代層序学上の対比という意味では、筆者らは山崎ら(1991)に何の累論もない。しかしながら、地質年代層序学的な研究成果から新しい地質年代が得られたとしても、既に岩相層序学的な立場から定義された適当な累層や部層(野外で観察される層序関係に基づいて適切に定められたもの)を、野外で層序関係が認められていない他の累層へ移し変えるという提案には今のところ賛成しがたい。山崎ら(1991)が示した地質年代学上の資料は、平互層の上部に位置するわずか3mの堆積層から得た2点の珪藻化石組成に基づくものである。また、従来、堆積層の走向、傾斜や分布から不整合の関係にあると予想されていた平互層と上位の久見累層歌木泥岩部層の層序関係が否定された訳でもない。このような現状では、平互層は従来通り郡累層の最上部層に含めたまま、郡累層上部と久見累層下部が同時異相の関係にあるとし、今後の資料の蓄積を待つべきではないかと思っている。この小論では、山崎ら(1991)の成果に配慮しつつも、とりあえず、平互層は岩相の層序関係、連続関係が野外で明らかに認められる郡累層中の最上部部層としたまま、方沸石コンクリーションの層位学的な位置を記載しておきたい。

3. 方沸石コンクリーションの産状と肉眼的構造

平互層の泥岩中に見いだされたコンクリーションは、長辺96mm、短辺69mmの楕円球状を呈し、長辺の方向は地層面に沿っている(第2図)。コンクリーションの表面は硬質で基質の泥岩と明瞭に境されており、容易に掘り出すことができる(図版1)。同露頭中には同様なコンクリーションは他に見いだせなかった。基質の泥岩は小さなクラックが発達した塊状の脆い泥岩で、層理は明瞭であるが葉理の発達が見られない。

図版2には、コンクリーションの内部構造の写真を示した。コンクリーション内部は非常に硬質な外殻と柔らかい内殻の2層に明瞭に分かれている。外殻には微粒な暗灰色鉱物が点在していることが認められるが、全体としては灰白色でほぼ均質である。外核周縁部は淡い褐色の不明瞭なバンドによって境された1~2mm程の薄層によって被覆されている。また、外殻には、内殻からしみ出たものによると思われる茶褐色のハローが下側(下位の地層方向)に広がっているのが



第2図 方沸石コンクリション断面のスケッチ。
 外殻と内殻の境界は明瞭で、内殻中には放射状のクラックが認められる。内殻から外殻への赤褐色ハローは下方に広がっている。上、上面図。下、側面図。

見られるが、その終端は外殻内部にある。内殻は淡褐色の砂粒状粘土塊よりなり、明瞭なクラックが放射状に発達している。この粘土塊は柔らかく指で容易に変形させることができる。内殻から外殻にしみ出したと思われるもののハローから、内殻内部はかつて溶液で満たされていたことがうかがえる。

4. 顕微鏡下での観察

硬質な外殻を岩石顕微鏡、反射顕微鏡によって観察した。長軸50~150 μ mの三角形、長柱状の碎屑性石英と、微粒な自生石英、自生方沸石が主要な鉱物として観察された。碎屑性の斜長石も希に認められる。100 μ m前後の粒状、集合体状の自生黄鉄鉱が点在している。自生黄鉄鉱のモードは、3~5%程度である。また、微細な長石や粘土鉱物がわずかに認められる。最も外側の外殻表面は方沸石に富んでいる。図版

3, 4にそれぞれオープンニコル、クロスニコルで撮影した顕微鏡写真を示した。なお、内殻は脆く、粘土鉱物を主としていることがわかったので、検鏡試料を作成しなかった。将来、内殻を走差電顕、透過電顕で観察する予定でいる。

内殻、外殻中に認められた茶褐色のハローは、オープンニコルでは赤褐色の色調を示し、クロスニコルでは光学的に等方で、複屈折を示す。これらは、いわゆる褐鉄鉱（ゲータイト+レピドクロサイトの集合体）であると思われる。

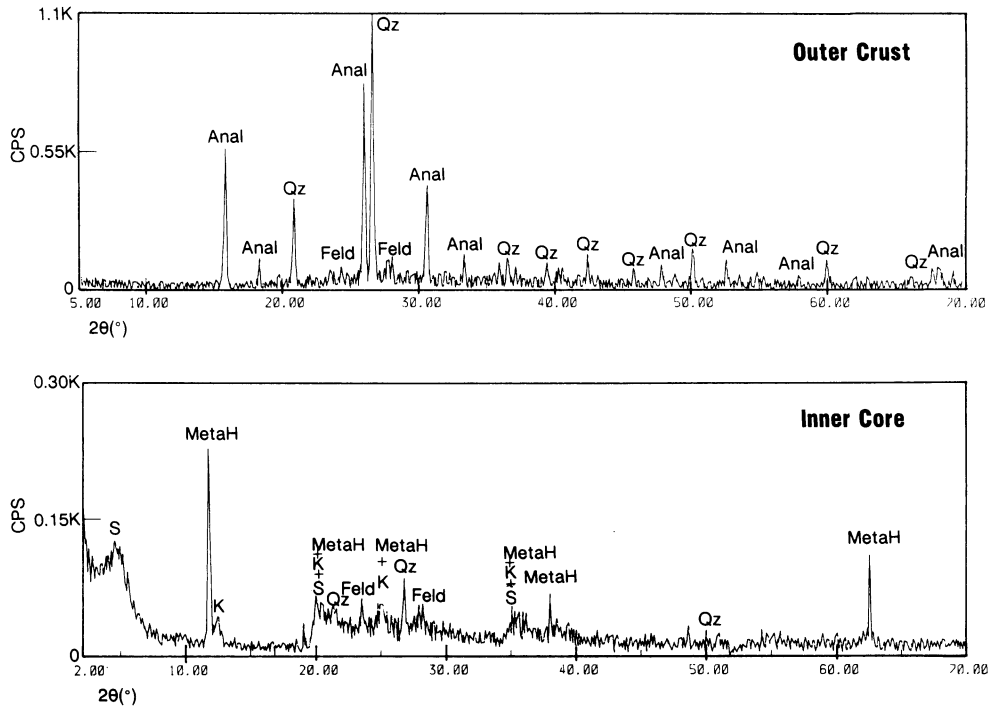
5. X線粉末回折法による鉱物の同定

外殻、内殻をそれぞれ指感のない程度の粉末にし、X線粉末回折法により鉱物組成を検討した。第3図には外殻、内殻試料のX線ディフラクトグラムを示した。X線回折は理学電機社製X線ディフラクトメーターにより、Cu-K α 線（管電圧30kv、管電流17.5mA）を用い、回折速度1°（2 θ /min）、時定数1（sec）で行った。なお、モノクロメーターを使用している。鉱物の同定は理学電機社の定性分析ライブラリーサーチシステムRAD-B ver. 3.00によって予察的に実施し、さらに、JCPDS (The Joint Committee on Powder Diffraction Standards) による、粉末回折ファイル (JCPDS, 1986) によって確認した。

外殻は石英、方沸石（理想式、NaAlSi₃O₈ · H₂O）、および若干の長石を主な鉱物としている。反射顕微鏡下で観察された黄鉄鉱によるものと思われる弱い反射が認められるが、それ程強くない。他の鉱物はX線のほとんど認められない。内殻は、石英、斜長石、スメクタイトのほかカオリナイト、および、7.5Å付近に反射を示す結晶度のよいメタハロイサイト（7Åハロイサイト）などのカオリン鉱物が認められた。石英は外殻ほど豊富ではない。

基質の泥岩には、スメクタイト、石英、方沸石、長石が主要な鉱物として認められた。カオリナイト、メタハロイサイトなどのカオリン鉱物は認められなかった。

第1表は内殻、外殻、基質泥岩にわけ、それぞれに認められた主要鉱物をリストアップしたものである。



第3図 方沸石コンクリーションの外殻と内殻から得た全粉末試料のX線ディフラクトグラム。
 Anal：方沸石，Qz：石英，Feld：長石，MetaH：メタハロイサイト，K：カオリナイト，
 S：スメクタイト。

第1表 コンクリーションと基質泥岩の主要構成鉱物

内 殻	外 殻	基質泥岩
スメクタイト	方沸石	スメクタイト
メタハロイサイト	石英	石英
カオリナイト	(黄鉄鉱)	方沸石
石英 (長石)	(長石)	長石

6. 考 察

6-1 コンクリーションの形成深度

碎屑岩中の炭酸塩コンクリーションの形成深度を評価する方法として、MCP (minus cement porosity) (Heald, 1956) が知られている。これは、コンクリーション中に現在残っている空孔から孔隙率を測定し、仮定した深度-孔隙率曲線を基に、形成時の深度を評価するというものである。方沸石コンクリーションの外殻が硬質であることに注目し同様なアプローチで形

成深度を考察してみる。第1図、図版2からわかるように方沸石コンクリーションの内殻には相当の空間がある。内殻構成物の一部を取り出し、その見かけの比重から求めた構成物の孔隙率は約40%であった(鉱物の比重を2.60と仮定)。さらに、内殻内にみられる空孔を考慮すると内殻全体の孔隙率として約50~60%程度が見積られる。もし、この孔隙率が外殻の形成によって内殻が閉じ込められた時点での堆積物の孔隙率を示しているものと考えたと、この方沸石コンクリーションは水底下に近い非常に浅い深度で形成されたことになる。

6-2 コンクリーションの一次鉱物

内殻の主要な構成鉱物であるスメクタイトとカオリン鉱物はいずれも碎屑物として直接供給され得る粘土鉱物である。しかしながら、内殻中に石英や長石が乏しいことやメタハロイサイトの結晶度が非常に良いことから、これらの一部は風化産物ではなく、コンクリーション内で新たに形成された可能性がある。その場合、続成作用下における加水ハロイサイトの脱水は

結晶度の良いメタハロイサイトを形成するための有力な生成過程のひとつとしてあげられる。こうした粘土鉱物の成因については電子顕微鏡による観察が有効であるものと思われる。いくつかの問題がまだあるものの、内殻を構成する鉱物に Si/Al 比が小さいカオリン鉱物が豊富に含まれていることから、より酸性で陰イオンに乏しい孔隙水のもとで内殻が形成されたと考えることができよう。内殻から浸出したと思われる溶液から褐鉄鉱が形成されたことは、内殻中の溶液では鉄は $\text{Fe}(\text{OH})_3$ として挙動していたことを示しており、上述したこととよく調和している。

外殻の主要な鉱物である方沸石の形成には適当な温度が必要であるので、方沸石がコンクリーション形成に際した一次鉱物であったとは考えがたい。堆積岩やフェルシック火山砕屑岩中では、方沸石の最も代表的な先駆物質として斜プチロル沸石が知られている。日本の新第三系の砕屑岩の場合、珪酸に飽和した通常の孔隙水中では、火山ガラスから斜プチロル沸石ができるのが 35~60℃、斜プチロル沸石から方沸石の形成は 80~90℃ で生じることが知られている (Utada, 1971, Iijima, 1971)。一方、飯島 (1978) は孔隙水中の Na^+ 濃度が斜プチロル沸石、方沸石の生成温度を変化させることを指摘しており、低い Na^+ 濃度では、コンクリーションの外殻を構成するほどの斜プチロル沸石や方沸石の生成は期待されない。方沸石に富む外殻の初期的な生成過程を現在十分に説明できないが、少なくとも、外殻形成時には Na^+ に富んだ孔隙水が存在していたことが予想される。また、外殻には、自形黄鉄鉱が点在している。このことは、外殻形成時は還元的な反応環境であったことと、孔隙水中には、 FeS などの硫化物を形成できる程の硫酸イオンがあったことを示している。

なお、内殻から外殻にかけて認められる褐鉄鉱のハローは外殻形成後にできたものである。

6-3 方沸石コンクリーションの形成とその地質学的意義

方沸石コンクリーションの内殻孔隙率、内殻に含まれるカオリン鉱物、外殻に含まれる方沸石、黄鉄鉱から、その生成環境について以下のことが指摘できる。

- (1) コンクリーションは比較的浅い深度で形成された。
- (2) 内殻形成時の孔隙水はより酸性で Fe に富む淡水であった。

- (3) 外殻形成時の孔隙水は Na^+ や SO_4^{2-} に富む塩水であった。

鳥居 (1984) は隠岐島後下部中新統火砕岩類の変質作用について広域的に検討している。このコンクリーションを産した平地域平互層中のフェルシック凝灰岩は斜プチロル沸石とス멕タイトによって特徴づけられている。この地域では、火山ガラスとス멕タイトで特徴づけられるより弱い変質帯と斜プチロル沸石の出現で特徴づけられる変質帯との境界が、堆積層の層序とほぼ並行して認められることから、鳥居 (1984) は平地域の凝灰岩中に見られる沸石の生成は熱水変質作用によるものではなく、埋没続成作用によるものであると結論している。産出地の露頭では層理が明瞭に認められ、熱水変質作用を受けたと思われる形跡を観察することができない。いまのところ、この方沸石コンクリーションが熱水変質作用によって形成されたものとは考えがたい。

基質泥岩にも方沸石が認められていることから方沸石コンクリーションを含む堆積層を方沸石で特徴づけられる続成変質帯 (鳥居 (1984) ではⅢ帯) として位置づけることができる。平互層のフェルシック凝灰岩のほとんどは火山ガラスとス멕タイトによって特徴づけられるⅠ帯に属し、斜プチロル沸石を含むⅡ帯がわずかに認められるだけであるので (鳥居, 1984), 平互層中にこの方沸石が産出したこと自体が特異である。今後、産出露頭の他の堆積層についても鉱物組成を検討する必要がある。

最近、山崎 (1991) は同層準の平互層上部から海生珪藻化石群集の産出を報告している。この群集には外洋種が多産しており、また、すぐ下位の堆積層には原地性の淡水生貝化石が含まれていることから、平互層の上部は外洋水の影響を受けやすい堆積環境にあったものと推定している。淡水性環境への海水の突然の侵入によって孔隙水の化学的環境が急変したという状況の設定は、外殻と内殻の境界が明瞭で構成鉱物が著しく異なっていることを説明する上で都合がよい。しかしながら、このように塩分濃度が急変する場合、どのような鉱物が外殻の先駆物質として形成されるのかいまのところ特定できない。斜プチロル沸石が 35℃ 程度でも生成されえることを考えると、前述したように方沸石の先駆物質として斜プチロル沸石が先駆的な初期鉱物として最も可能性が高いものと思われる。

検討すべきいくつかの課題があるが、郡累層平互層上部の泥岩中に産したカオリン-方沸石コンクリ-

ションは、中新世郡期末期における淡水性環境への海水の侵入と密接に関係している可能性がある。

7. お わ り に

堆積物中にできたこのような方沸石コンクリーションは、世界的にもめずらしく、さらにマイクロな視点からのその成因を明らかにしてゆく必要がある。とくに、スメクタイトとカオリン鉱物の電子顕微鏡レベルでの組織観察は、内殻の形成を明らかにするために不可欠である。

隠岐島前、島後は地質学研究の宝庫とも言われている。事実、隠岐島後、島前の地質史を無視して日本列島の成立を語れない。島田豊郎先生は昭和56年に島根大学に赴任され、その年から学生とともに隠岐島の調査を開始された。その後、先生は毎年のように隠岐島に通われた。その間、久見累層の隠岐海緑石や郡累層の淡水成ピチュミナス頁岩を記載されたほか、隠岐島後にワイラケ沸石を発見されている。先生は会津は私の庭だと常々言っておられたが、おそらく、隠岐島前、島後を箱庭のように愛されていたはずである。島田先生が退官されたこの年に、隠岐島後に産した方沸石によって膠結された化学的堆積岩について小論を著すことができたことを筆者らは心から嬉しく先生御退官の記念としたい。

方沸石コンクリーションを産した平互層の層位学上の問題について当地質学教室の高安克己助教授とは有意義な討論をしていただいた。

文 献

- Heald, M. T., 1956 : Cemenntation Simpson and St. Peter Sandstones in Parts of Oklahoma, Arkansas, and Missouri, *Jour. Geol.* **64**, 16-30.
- Iijima, A. 1975 : Effect of pore water to clinoptilolite-analcime-albite reaction series. *Jour. Fac. Sci., Univ., Tokyo, Ser. 2*, **19**, 133-147.
- 飯島 東, 1978 : 沸石統成作用, 地質学論集「ダイアジェネシス」, 田口一雄, 飯島 東, 青柳宏一編, 15号, 135-150.
- JCPDS, 1986 : Mineral Powder Diffraction File. Data Book. International Centre for Diffraction Data, Swarthmore, U. S. A.
- 大久保雅弘, 1981 : 隠岐・島後の中新統化石層. 島根大理紀要, **15**, 125-137.
- 大久保雅弘, 1984 : 隠岐の地質概論, 島根大地質研報, **3**, 75-86.
- 島居直也, 1984 : 隠岐島後下部中新統火砕岩類の変質. 島根大地質研報, **3**, 99-109.
- Utada, M., 1971 : Zeolitic Zoning of the Neogene pyroclastic rocks in Japan. *Sci. Paper, Col. Gen. Educ., Univ. Tokyo*, **21**, 189-221.
- 歌田 実, 1978 : 統成作用における地層水の組成変化. 地質学論集「ダイアジェネシス」, 田口一雄, 飯島 東, 青柳宏一編, 15号, 151-164.
- 山崎博史, 1984 : 隠岐島後の中新統. 島根大地質研報, **3**, 87-97.
- 山崎博史, 下末 恵, 高安克己, 1991 : 隠岐島後中新統那累層と久見累層の層序関係の再検討. *地球科学*, **45**, 177-190.

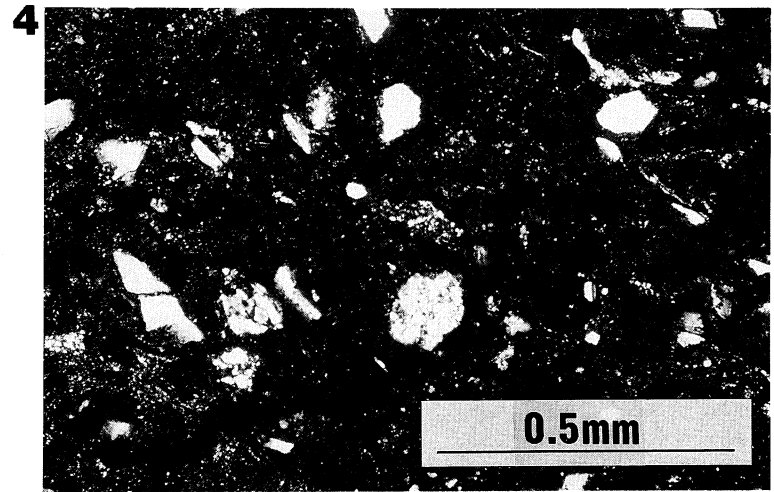
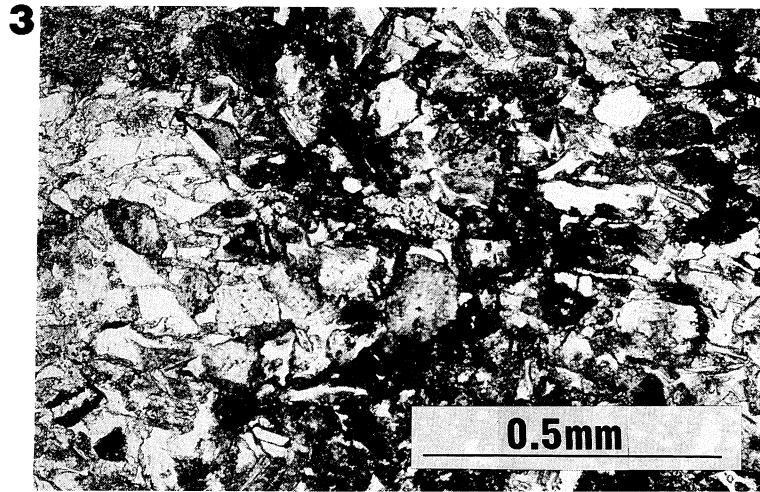
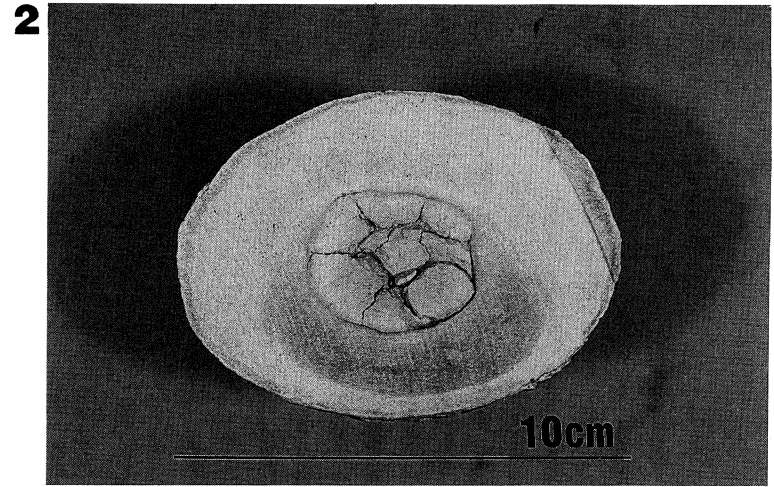
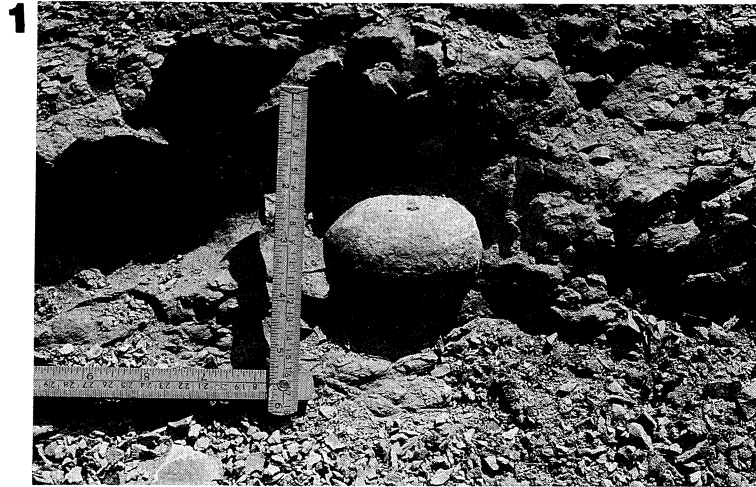


図 版

方沸石コンクリーションの産状と偏光顕微鏡写真。①露頭での産状。②コンクリーションの断面。③オープンニコル。黒色の鉱物は黄鉱鉄。
④クロスニコル。暗黒色の鉱物は方沸石。