

火山ガラス及びベントナイトの 長期変質挙動に関する調査研究(VIII)

(動力炉核燃料開発事業団 研究内容報告書)

技術資料		
開示区分	レポート No.	受領日
Σ	J1308 95-001	1995.5.18
この資料は技術管理室保存資料です 閲覧には技術資料閲覧票が必要です 動力炉・核燃料開発事業団 技術協力部技術管理室		

1995年2月

株式会社 ダイヤコンサルタント

この資料は、動燃事業団の開発業務を進めるため、特に限られた関係者だけに開示するものです。ついては、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう特に注意して下さい。

本資料についての問い合わせは下記に願います。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13

動力炉・核燃料開発事業団

技術協力部 技術管理室

火山ガラス及びベントナイトの長期変質挙動に関する調査研究

二口克人*， 桜本勇治**

要 旨

高レベル放射性廃棄物の地層処分に係わるナチュラル・アナログ研究の一環として、火山ガラス及びベントナイトの変質性状に関する調査を実施した。

火山ガラスについては、房総半島茂原ガス田に分布する鮮新世から前期更新世の地層に挟在するスコリアの変質に関与した地下水（化石海水）との比較のために、表流水と間隙水の分析を実施した。茂原ガス田の表流水は、地下水とは異なり、循環性の良い天水起源の水であることが判明した。また、地表露頭から得た泥質岩の間隙水の分析からは、既に天水による溶脱を受けたものであることが判明した。

ベントナイトについては、山形県鶴岡地域の酸性白土鉱床及び島根県大田市北部地域のベントナイト鉱床について、年代測定による貫入岩からの熱的影響について調査した。また、新潟県西頸城郡のモンモリロナイトを含む堆積岩について、貫入岩による熱変質に関する現地調査及び分析を行った。

山形県鶴岡地域では、酸性白土鉱床を胚胎する凝灰岩中に火成岩岩脈が貫入している露頭を確認することができたが、岩脈付近にセリサイト化あるいはセリサイト／モンモリロナイト混合層鉱物化を認めることができなかった。また、岩脈の貫入によるフィッシュン・トラック年代の若返りも認められなかった。

島根県大田市北部地域では、ベントナイト鉱床を胚胎する凝灰岩中に安山岩の岩脈が貫入している露頭を確認することができたが、岩脈付近にセリサイト化あるいはセリサイト／モンモリロナイト混合層鉱物化を認めることができなかった。安山岩岩脈と凝灰岩の年代値を得ることができ、安山岩の年代が 5Ma. 程度若いことが判明した。しかし、岩脈の貫入によるフィッシュン・トラック年代の若返りは認められなかった。

新潟県西頸城郡では、続成作用起源のモンモリロナイトを含む地層にひん岩が貫入している露頭付近を調査した。変質鉱物の組合せと分布に注目して分帯すると、貫入面に近いものから、

- I. イライト帯
- II. イライト／モンモリロナイト混合層鉱物帯
- III. モンモリロナイト帯

の順に配列していることが判明し、ひん岩の貫入による一連の熱変質によるものと判断された。すなわち、

- ① 泥質物の堆積
- ② 埋没続成作用によるモンモリロナイトの形成
- ③ ひん岩の貫入
- ④ 熱変質によるイライト帯及びイライト／モンモリロナイト混合層鉱物帯の形成

と地質現象が進行したと考えられる。

本報告書は、株式会社ダイヤコンサルタントが動力炉核燃料開発事業団の委託により実施した研究成果である。

契約番号：060D0179

事業団担当部課室および担当者：東海事業所環境技術開発部地層処分開発室（間野 正）

*：株式会社ダイヤコンサルタント 東京事業部

**：株式会社ダイヤコンサルタント 技師長室

Katsuhito Putakuchi* , Yuji Sakuramoto **

ABSTRACT

The alteration characteristics of volcanic glass and bentonite are investigated as a part of the natural analogue study of geological disposal of high-level radioactive waste.

For the study of volcanic glass, boring core samples are collected in Mobarra gas field, which penetrated Miura Group (middle Miocene to middle Pliocene) and the Kazusa Group (middle Pliocene to middle Pleistocene), to examine the existence of alteration product on scoria glass.

Chemical analyses of gas-bearing groundwater indicate that they are typical fossil sea water. However, chemical analyses of stream water and pore water of argillaceous rocks which were collected from outcrop indicate that their origin are meteoric water. These hydrochemical studies reveal that existence of fossil sea water is confined to deep underground storata.

For the study of bentonite, radiometric dating of tuff and volcanic dyke were done at Tsuruoka acid clay deposit in Yamagata Prefecture and Ooda bentonite deposit in Simane Prefecture. Preliminary studies were done at marine deposits in Nishikubiki area, Niigata Prefecture.

At Tsuruoka area, volcanic dykes intruded into Tsuruoka acid clay deposit are observed. X-ray diffraction analysis shows that there is no evidence of sericitization in the clay deposit near the contacts. And no annealing was observed by fission track method.

Also, at Ooda area, a andesite dyke intruded into Ooda clay deposit are observed. X-ray diffraction analysis shows that there is no evidence of sericitization in the clay deposit near the contact. The age of andesite dyke was determined by K-Ar method. This andesite dyke have been dated as 1.5Ma. and they intruded into slightly older tuff. And no annealing was observed by fission track method.

The marine deposits in Nishikubiki area, Niigata Prefecture can be divided into the following three zones, based upon the results of X-ray diffraction. These zones, from the intrusive body outward, are;

- I. illite zone (I zone),
- II. illite/montmorillonite mixed layer mineral zone (II zone), and
- III. montmorillonite zone (III zone),

These groups (I to III zones) are products of thermal alteration.

The process of the alteration, which occurred in late Miocene, is assumed to be following order:

- ① sedimentation of marine clastic sediments
- ② formation of montmorillonite by diagenesis
- ③ intrusion of porphyrite into sediments
- ④ formation of illite and illite/montmorillonite mixed layer mineral by thermal alteration.

This work performed by Dia Consultants Co. Ltd. under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation
PNC Liaison: Geological Isolation Technology section, Tokai Works (Tadashi Mano)
* : Dia Consultants Department of Energy Projects
** : Dia Consultants Technical Division

目 次

I. 火山ガラス編

1. 調査目的	1
2. 調査地域の概要	2
2.1 南房総鴨川及び茂原ガス田の地形	2
2.2 南房総鴨川及び茂原ガス田の地質	5
3. 分析・試験	9
3.1 試料	9
3.1.1 表流水	9
3.1.2 間隙水	9
3.2 方法	9
3.2.1 表流水の分析	9
3.2.2 間隙水の分析	9
3.3 分析・試験結果	14
3.3.1 表流水の分析	14
3.3.2 間隙水の分析	14
4. 考察	20
4.1 茂原ガス田及び南房総鴨川の表流水の水質	20
4.2 南房総鴨川の泥質岩の間隙水の水質	20
5. 問題点と今後の課題	21
参考文献	22

II. ベントナイト編

1. 調査目的	2 3
2. 調査地域の概要	2 4
2.1 地 形	2 4
2.1.1 鶴岡地域	2 4
2.1.2 大田市北部	2 4
2.1.3 新潟県西頸城	2 4
2.2 地 質	2 8
2.2.1 鶴岡地域	2 8
2.2.2 大田市北部	2 8
2.2.3 新潟県西頸城	3 1
3. 分析・試験	3 7
3.1 試 料	3 7
3.1.1 鶴岡地域	3 7
3.1.2 大田市北部	3 7
3.1.3 新潟県西頸城	3 7
3.2 方 法	3 7
3.2.1 X線回折分析	3 7
3.2.2 絶対年代測定	4 1
3.2.3 鉍物分離	4 2
3.2.4 顕微鏡観察	4 2
3.3 分析結果	4 2
3.3.1 X線回折分析	4 2
3.3.2 絶対年代測定	4 4
3.3.3 鉍物分離	4 4
3.3.4 顕微鏡観察	4 4
4. 考 察	4 7
4.1 鶴岡地域	4 7
4.2 大田市北部地域	4 7

4.3 新潟県西頸城	48
5. 文献調査によるイライト化の新期対象地域の選定	52
6. 文献調査による沸石化, Ca型化, Fe化のナチュラル・アナログ研究手法の 検討	53
7. 問題点と今後の課題	59
参考文献	60

表 目 次

I. 火山ガラス編

表 3-1	水質分析項目及び分析方法	1 1
表 3-2	茂原ガス田の地下水及び表流水の水質分析結果	1 5
表 3-3	泥質岩の含水比測定結果	1 8
表 3-4	希釈法による間隙水の水質分析結果	1 8

II. ベントナイト編

表 2-1	新潟県西頸城地域の第三系の層序 (西田ほか, 1966)	3 4
表 2-2	能生地域におけるの第三系の粘土, 沸石鉱物 (佐藤, 渡辺, 1989)	3 6
表 3-1	X線回折条件	4 1
表 3-2	新潟県西頸城地域の泥質岩のX線回折分析結果	4 2
表 3-3	フィッシュン・トラック年代測定結果一覧表	4 5
表 3-4	K-Ar年代測定結果一覧表	4 5
表 3-5	西頸城地域のひん岩の鉱物分離結果	4 6
表 3-6	ひん岩薄片のポイント・カウント結果	4 6
表 4-1	変質帯と鉱物組合せ	5 0
表 6-1	我が国におけるpHが10以上のアルカリ鉱泉の例	5 7
表 6-2	各地のモンモリロナイトの交換性陽イオンと CEC (宇野, 武司, 1981)	5 8

図 目 次

I. 火山ガラス編

図 2 - 1	南房総鴨川及びその周辺の地形	2
図 2 - 2	南房総鴨川の水系と地形区分 (中嶋ほか, 1981)	3
図 2 - 3	茂原ガス田付近の地形	4
図 2 - 4	南房総鴨川付近の地質図 (日本の地質「関東地方」編集委員会, 1986) ..	6
図 2 - 5	茂原ガス田付近の地質図 (日本の地質「関東地方」編集委員会, 1986) ..	6
図 2 - 6	東京湾岸沿いの断面位置図 (星野ほか, 1992)	7
図 2 - 7	大多喜-船橋地質断面図 (星野ほか, 1992)	7
図 3 - 1	表流水及び泥質岩試料採取位置図	10
図 3 - 2	泥質岩の間隙水の抽出 (希釈法) 手順	12
図 3 - 3	鴨川地域及び茂原ガス田地域の表流水のヘキサダイアグラム	16
図 3 - 4	表流水の水素同位体比 (δD) と酸素同位体比 ($\delta^{18}O$) の関係	17
図 3 - 5	泥質岩の間隙水のヘキサダイアグラム	19

II. ベントナイト編

図 2 - 1	鶴岡地域調査位置図	2 5
図 2 - 2	大田市北部調査位置図	2 6
図 2 - 3	新潟県西頸城地域調査位置図	2 7
図 2 - 4	鶴岡地域地質図	2 9
図 2 - 5	大田市北部地域地質図	3 0
図 2 - 6	沸石による変質分帯（大田市北部）	3 2
図 2 - 7	西頸城地域地質図	3 3
図 3 - 1	鶴岡地域の試料採取位置図	3 8
図 3 - 2	大田市北部地域の試料採取位置図	3 9
図 3 - 3	西頸城地域露頭位置図	4 0
図 3 - 4	変質鉱物分布図（西頸城地域）	4 3
図 4 - 1	各変質帯の代表的な X線回折パターン	5 1

I. 火山ガラス編

1. 調査目的

火山ガラスのナチュラル・アナログ研究としては、これまでに、富士及び大島起源の約3000年前までのスコリアガラス、大島及び高塚山火山起源の数万年前のスコリアガラスを対象として、風化変質状況やその変質環境についての調査・研究が行われてきた。さらに平成2年度には、これまで以上に古い火山ガラスの変質状況とその変質環境の関係を把握することを目的として、房総半島南部の鴨川地域に露出する新第三紀～第四紀層に挟在するスコリアガラスを対象に調査・研究が行われている。また、平成4年度には、房総半島の茂原ガス田に分布する鮮新世から前期更新世の地層に挟在するスコリアガラスの変質に関与していると考えられる地下水についての調査・研究が行われている。

本調査では、房総半島の鴨川地域から茂原ガス田に分布する鮮新世から前期更新世の地層に挟在するスコリアガラスを対象に、スコリアガラスの変質に関与していると考えられる表流水と間隙水の水質分析を実施した。

2. 調査地域の概要

2.1 南房総鴨川及び茂原ガス田の地形

南房総鴨川及びその周辺の地形の概要を図2-1に、また南房総鴨川付近の水系と地形区分(中島ほか, 1981)を図2-2に示す。

調査地域は房総半島の南部に位置し、標高100~300m程度の低い丘陵地からなり、標高のわりには谷が急峻である。

茂原ガス田及びその周辺の地形の概要を図2-3に示す。

調査地域は房総半島の南東部に位置し、標高10~200m程度の低い丘陵地及び平野からなる。

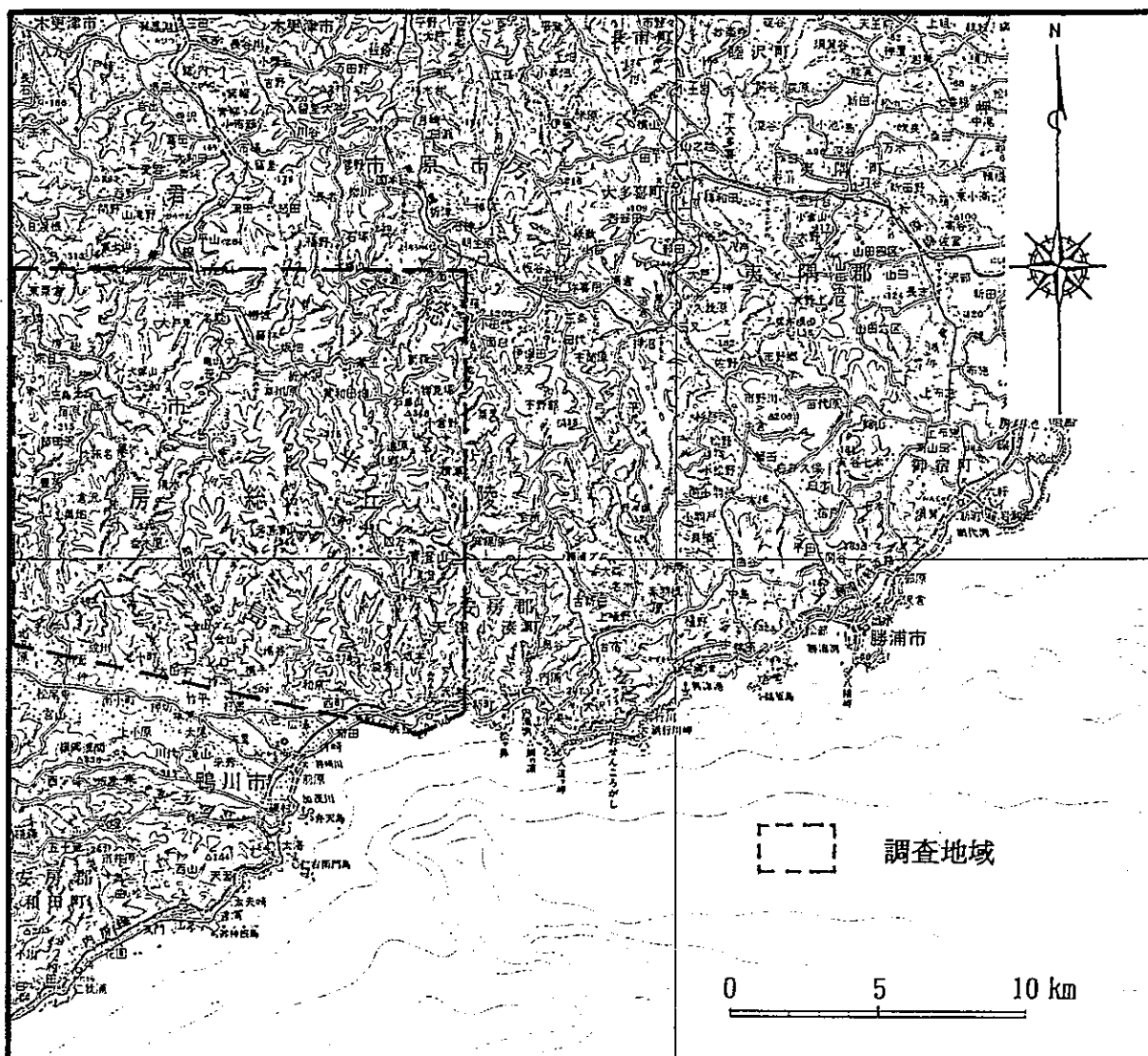
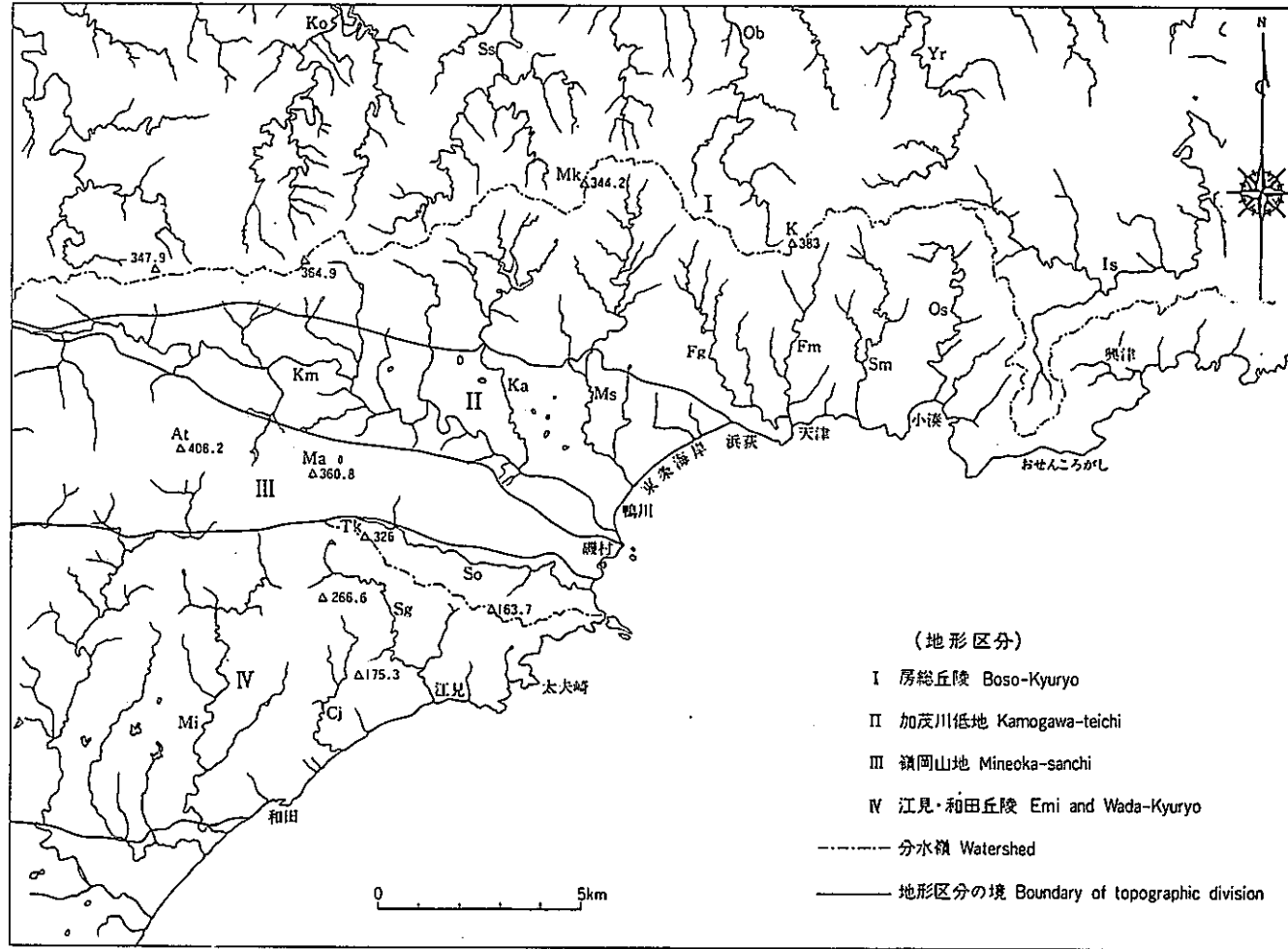


図2-1 南房総鴨川及びその周辺の地形



鴨川圏幅地域付近の水系と地形区分 (山) At: 愛宕山 K: 清道山 Ma: 嶺岡浅間 Mk: 元清道山 Tk: 高鶴山 (川) Cj: 長吉川 Fc: 袋倉川 Fm: 二間川 Is: 奥隅川 Ka: 金山川 Km: 加茂川 Ko: 小糸川 Mi: 三原川 Ms: 待崎川 Ob: 小櫃川 Os: 大風沢川 Sg: 洲貝川 Sm: 神明川 So: 曾呂川 Ss: 笹川 Yr: 養老川

図 2-2 南房総鴨川の水系と地形区分 (中嶋ほか, 1981)

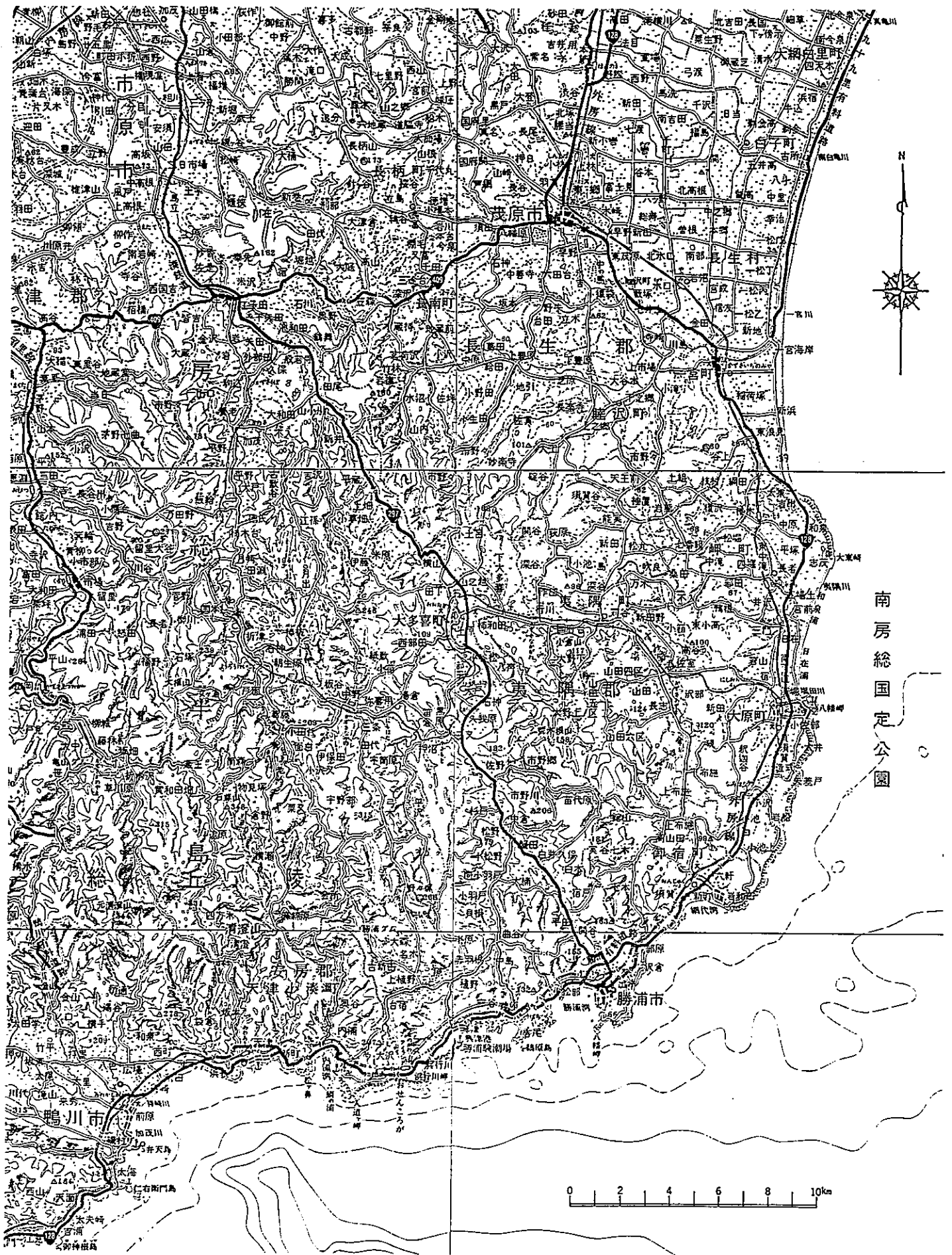


図2-3 茂原ガス田付近の地形

2.2 南房総鴨川及び茂原ガス田の地質

調査地域及びその周辺の地質については、中嶋ほか(1981)、日本の地質「関東地方」編集委員会(1986)等の研究がある。また、茂原ガス田付近の地質および地質構造は、その地下資源の有用性からかなり詳しく調査されている。これらの結果をもとに、調査地域の地質概要を以下に述べる。なお、調査地域及びその周辺の地質図を図2-4、図2-5に示す。また、星野ほか(1992)による船橋から大多喜にかけての断面位置及び地質断面図をそれぞれ図2-6、図2-7に示す。

調査地域には、下位から三浦層群及びそれを不整合(黒滝不整合と呼ばれる)に被覆する上総層群が分布している。三浦層群は、下位から木ノ根層、天津層、清澄層及び安野層の順に堆積している。上総層群は、下位から黒滝層、勝浦層、浪花層、大原層、黄和田層、大田代層及び梅ヶ瀬層の順に堆積している。なお、調査地域の範囲外ではあるが、上総層群は上位の下総層群に不整合(長沼不整合と呼ばれる)に被覆される。

木ノ根層は下位の神川層を不整合に覆い、頁岩を主体として、砂岩、細粒及び軽石凝灰岩を挟んでいる。上部は泥岩主体となっている。

天津層は木ノ根層を整合に覆い、頁岩を主体とするが、スコリア凝灰岩、ゴマシオ凝灰岩、細粒凝灰岩を頻繁に挟んでいる。この様な玄武岩～安山岩質の凝灰岩の挟みの出現は、木ノ根層までの地層に挟まれる凝灰岩類が白色～灰白色細粒凝灰岩や軽石凝灰岩のみであることに対し、大きな変化であるといえる。

清澄層は天津層を整合に覆い、砂がちのフリッシュ型砂岩泥岩互層からなっている。清澄層中にも、天津層と同様な凝灰岩の挟みが認められる。この凝灰岩中には、三浦半島側の地層中の凝灰岩と対比がなされているものもある。

安野層は清澄層を整合に覆い、下部がフリッシュ型砂岩泥岩互層、上部が泥岩主体である。上部の泥岩層は大きく見ると上方に粗粒化する傾向が認められている。

黒滝層は、下位の安野層を黒滝不整合を介して被覆する凝灰質砂礫岩である。調査地域内では、上位の黄和田層に漸移している。

勝浦層は砂岩・泥岩互層からなり、房総半島東部にのみ分布している。

浪花層は泥岩を主体とし、砂岩薄層を挟在し、房総半島東部にのみ分布している。

大原層は泥岩・砂岩互層からなり、房総半島東部にのみ分布している。

黄和田層は泥岩を主体としており、砂岩の薄層を挟んでいる。

大田代層は、下位の黄和田層を整合に被覆し、砂岩泥岩互層からなる。

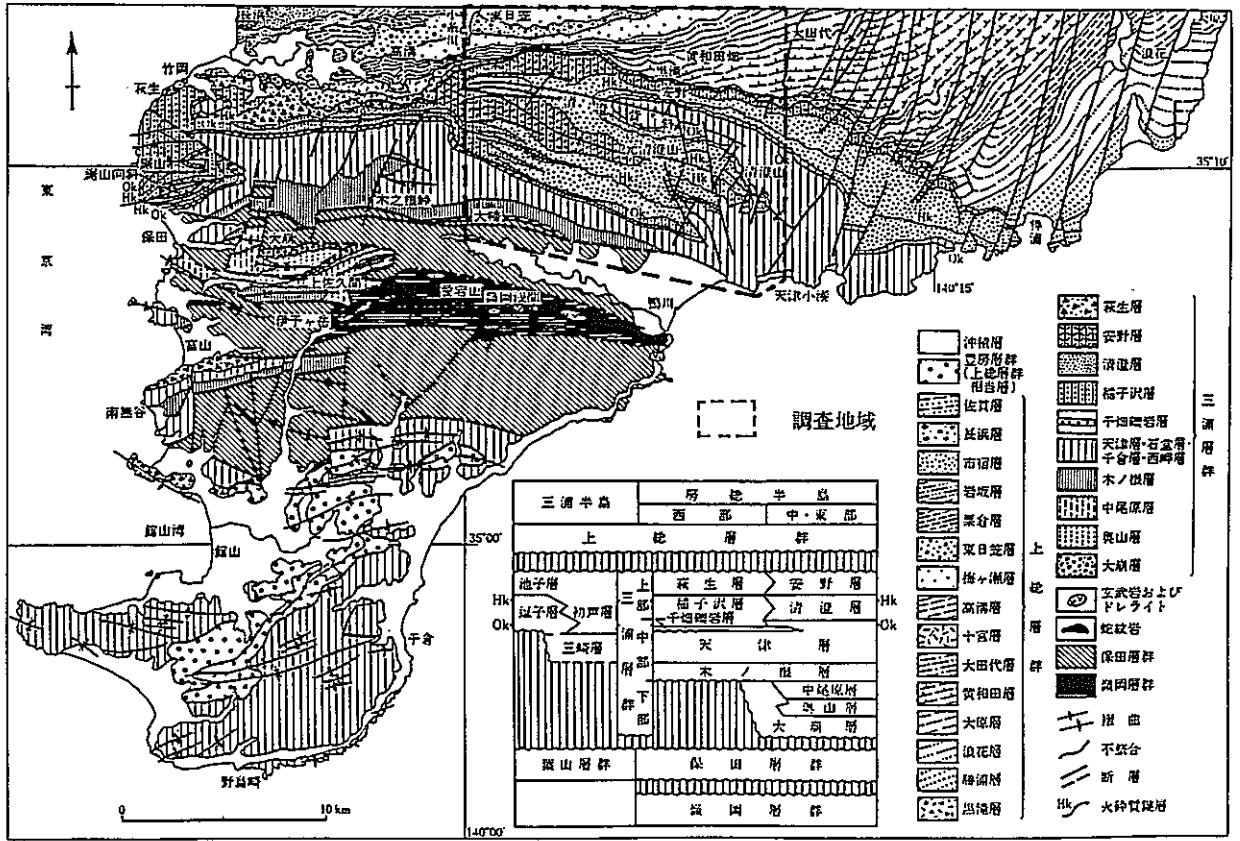


図 2-4 南房総鴨川付近の地質図 (日本の地質「関東地方」編集委員会, 1986)

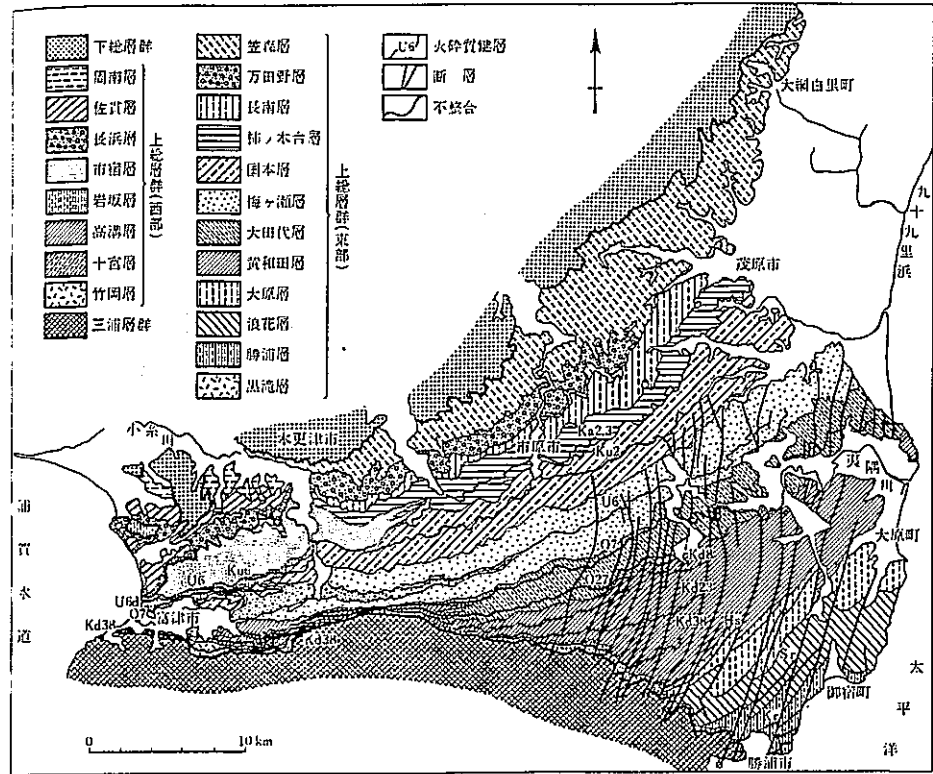


図 2-5 茂原ガス田付近の地質図 (日本の地質「関東地方」編集委員会, 1986)

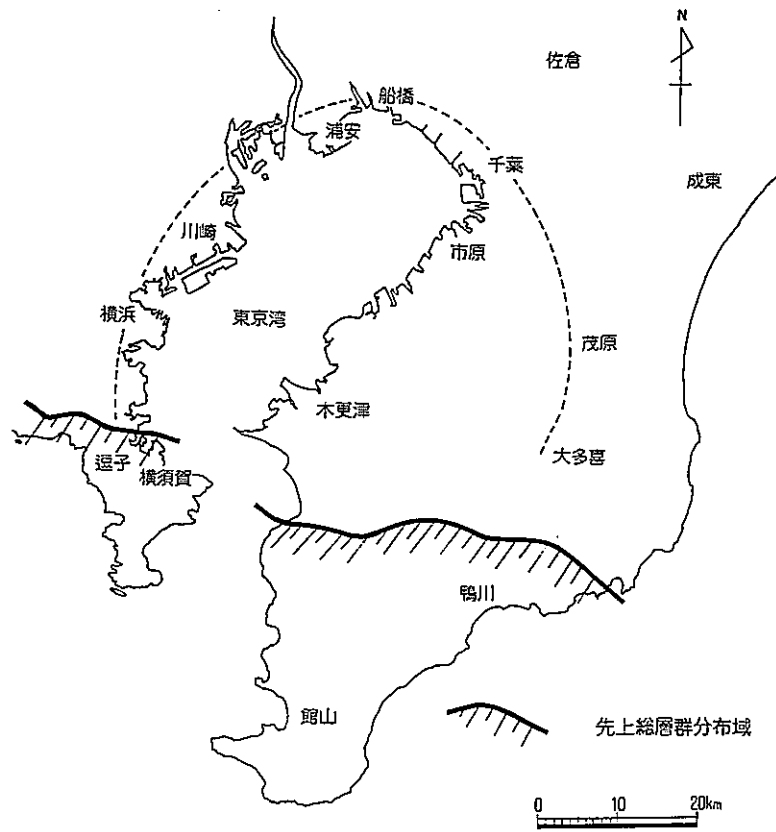


図 2-6 東京湾岸沿いの断面位置図 (星野ほか, 1992)

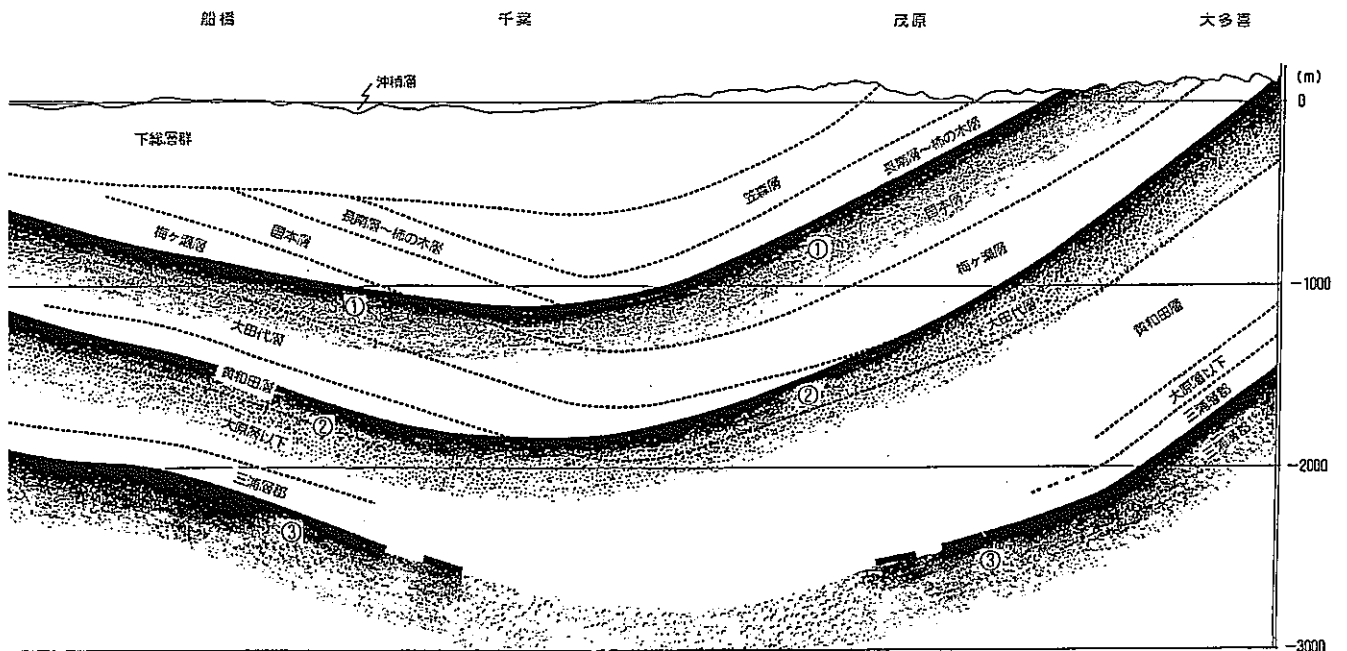


図 2-7 大多喜-船橋地質断面図 (星野ほか, 1992)

梅ヶ瀬層は、下位の大田代層を整合に被覆し、主として砂岩優勢の砂岩泥岩互層からなる。

図2-6及び図2-7に示したように、南房総鴨川では三浦層群が、茂原ガス田では上総層群が主として地表に分布している。この茂原ガス田においては、上総層群中に胚胎する水溶性ガスを採取すると共に、このガスを溶解している地下水中に濃縮されているよう素も採取されている。本ガス田は世界一のよう素の生産量を有している。

3. 分析・試験

3.1 試料

3.1.1 表流水

従来からスコリアガラスの変質の調査対象としてきた、上総層群中のスコリアからなる鍵層 0-8を含有する泥質岩の露頭付近を表流水を採取した。また、比較・検討のために、茂原ガス田分布域の表流水を採取した。採取に際しては、上流域に耕作地等の人為的汚染の恐れが少ない地点を選定した。試料採取位置を図3-1に示す。

3.1.2 間隙水

従来からスコリアガラスの変質の調査対象としてきた、上総層群中のスコリアからなる鍵層 0-8を含有する泥質岩を露頭から採取し、希釈法による間隙水採取用の試料とした。なお、希釈法の操作は酸素をほとんど含まない還元雰囲気制御されたグローブボックス（動燃事業団所有のEDAS）内で実施することから、希釈操作（接液）までの間に空気との接触を避けるため、現場において露頭試料から風化部を除去し、残った新鮮な泥質岩片を速やかにパラフィンでシールした。

3.2 方法

3.2.1 表流水の分析

表流水の分析については、採水後に速やかに測定すべきである項目については現地測定を行い、その他は室内分析とした。それぞれの分析項目および分析方法を表3-1に示す。

3.2.2 間隙水の分析

泥質岩試料からの希釈法による、間隙水の抽出手順を図3-2に示す。

泥質岩試料の一部を用いて、自然状態での含水比を測定した。その他の試料は、パラフィンシールを除去した後に粗砕し、雰囲気制御ボックス内において1週間程度風乾した。その後、この粗砕した泥質岩片を雰囲気制御ボックス内でステンレス乳鉢で粉碎した後、標準篩を用いて0.1mm以下の粉末試料を作製した。この粉末試料100mgと脱気水（電気伝導度が $1.0\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下の蒸留水）100mlをポリエチレン製容器（200ml）にいれ、1時間振とうした。振とう後、遠心分離を行って得た上澄液をメンブランフィルター

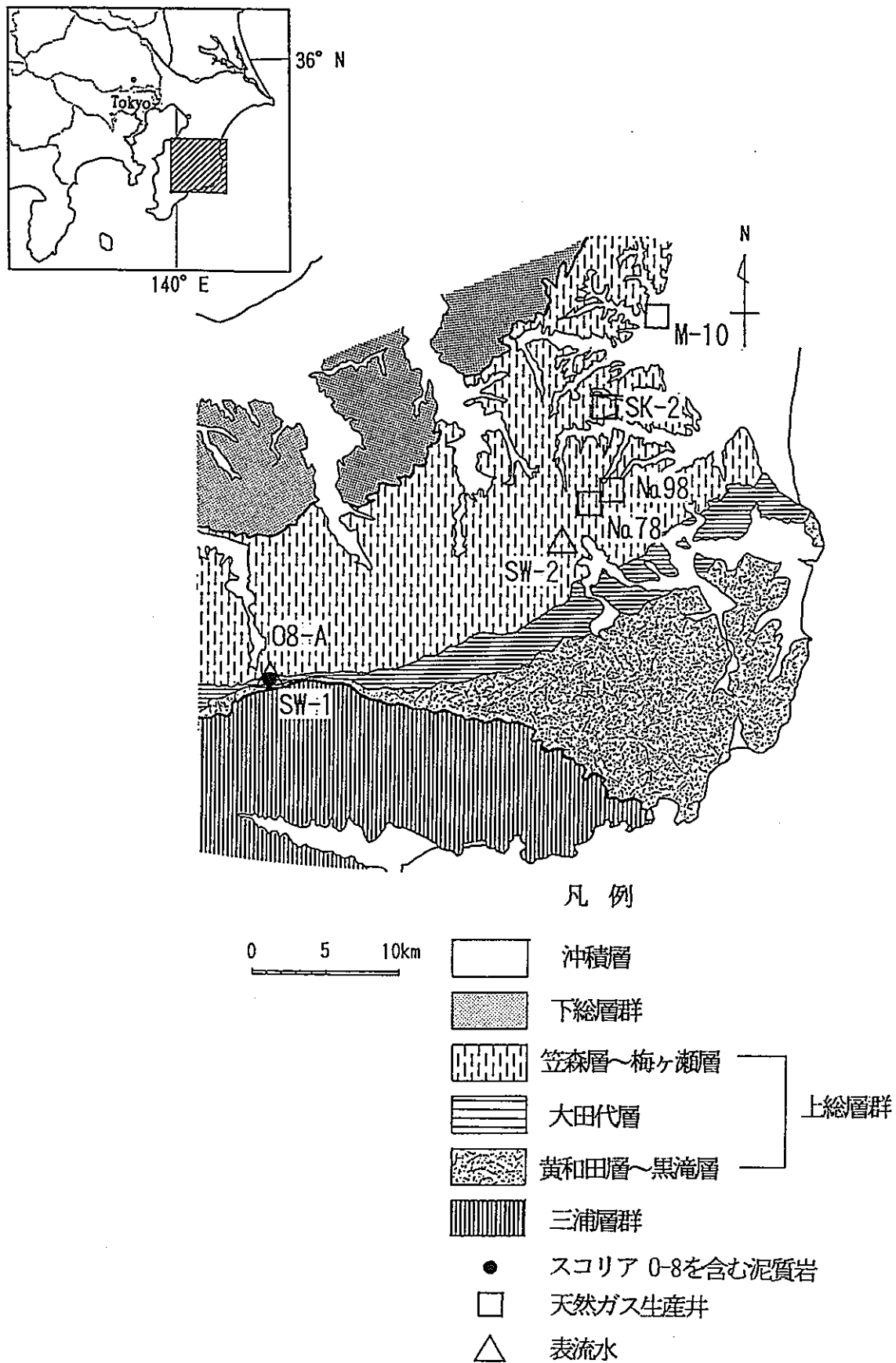


図3-1 表流水及び泥質岩試料採取位置図

表 3 - 1 水質分析項目及び分析方法

項 目	測 定 機 器 ・ 分 析 方 法
気温	水銀棒温度計
水温	水銀棒温度計
電気伝導度	横河電気 SC82
pH	堀場製作所 D-14, ガラス電極
ORP	堀場製作所 D-14, 3.3mol KCl-AgCl 電極
Na ⁺	フレイム光度法 (JIS K 0101)
K ⁺	フレイム光度法 (JIS K 0101)
Mg ²⁺	原子吸光法 (JIS K 0101)
Ca ²⁺	原子吸光法 (JIS K 0101)
Fe	原子吸光法 (JIS K 0101)
Cl ⁻	イオンクロマトグラフ法 (JIS K 0101)
Br ⁻	滴定法 (JIS K 0101)
I ⁻	滴定法 (JIS K 0101)
SO ₄ ²⁻	イオンクロマトグラフ法 (JIS M 0202)
HCO ₃ ⁻	滴定法 (JIS K 0101)
B	マンニット法による容量法 (鉱泉分析法指針)
SiO ₂	モリブデン黄法 (JIS K 0101)
S ²⁻	メチレンブルー吸光光度法 (JIS K 0101)
δD	質量分析法
δ ¹⁸ O	質量分析法
TOC	燃焼-赤外線分析法 (JIS K 0102)
フミン酸	吸光光度法
フルボ酸	吸光光度法

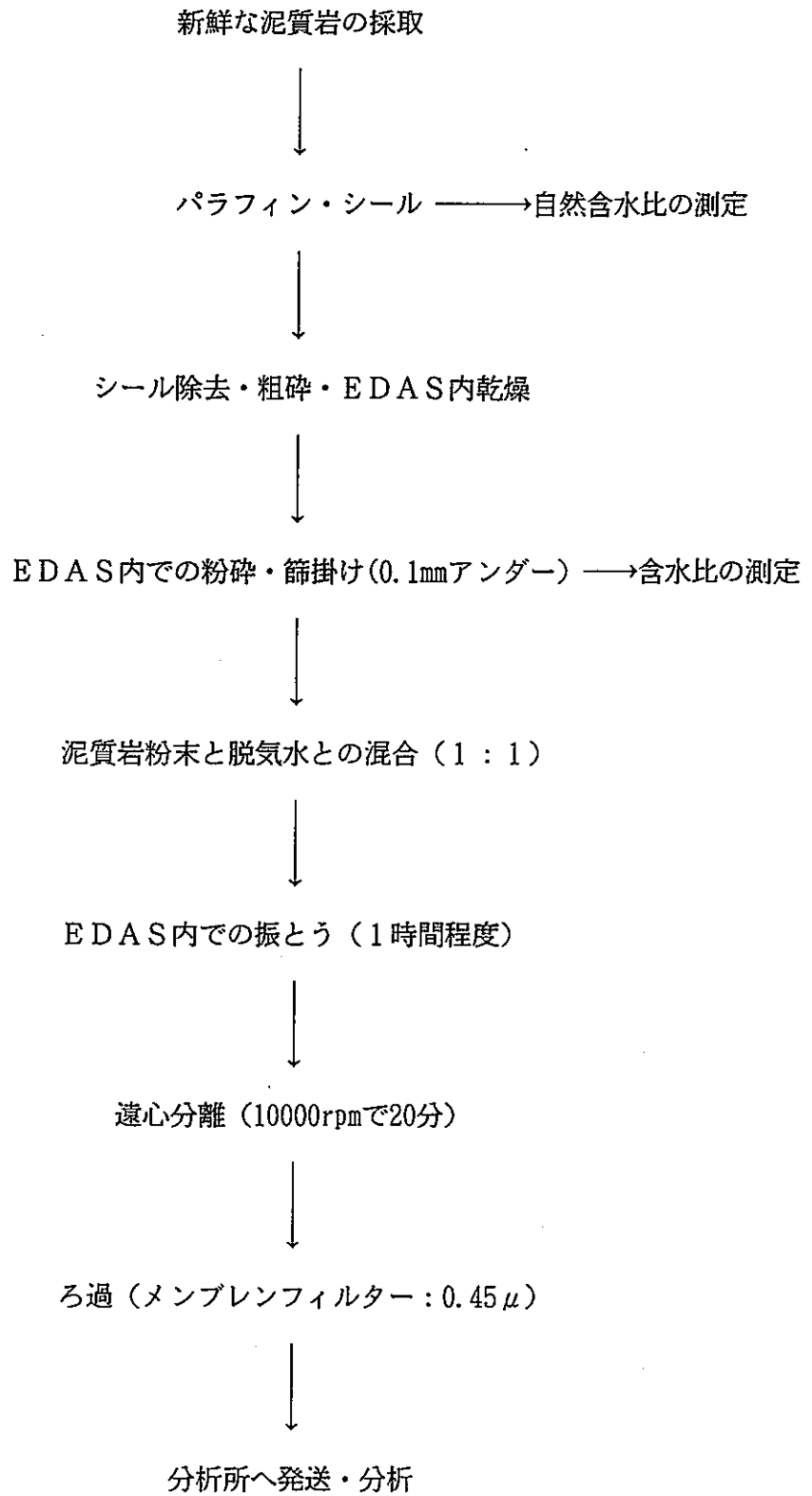


図3-2 泥質岩の間隙水の抽出(希釈法)手順

(0.45 μm)を用いてろ過し、このろ液を水質分析に供した。分析項目および分析方法は、表3-1に示すとおりである。なお、残った粉末試料についても、雰囲気制御ボックス内で密栓して試験室に送付し、含水比を測定した。

3.3 分析・試験結果

3.3.1 表流水の分析

鴨川地域及び茂原ガス田地域の表流水の水質分析結果を表3-2に、それらの結果から作成したヘキサダイアグラムを図3-3に示す。また、表流水の水素・酸素同位体比の関係を図3-4に示す。

3.3.2 間隙水の分析

自然状態及び風乾後の泥質岩試料の含水比測定結果を表3-3に示す。

希釈法によって得た上総層群の泥質岩の間隙水の水質分析結果を表3-4に、それらの結果から作成したヘキサダイアグラムを図3-5に示す。なお、グローブボックス内での乾燥後の含水量は自然状態で含まれていた含水量に対して無視できるほど小さいため、間隙水の各イオン濃度の計算は、希釈操作によって自然含水比の逆数倍、すなわち3.31倍に希釈されたものと考えて計算している。

表3-2 茂原ガス田の地下水及び表流水の水質分析結果

試料番号	No78		No98		No129		SK-2		H-103		U-49		NRH-3		M-10		SW-1		SW-2	
採行団体	合同資源産業(株)						関東天然瓦斯開発(株)						日本天然瓦斯興業(株)				—			
採取日	1992.7.7						1992.7.8						1992.7.9				1994.5.18		1994.5.19	
採水深度 (GL- m)	960~1202		895~1301		1030~1302		717~1140		489~1335		700~1501		1058~1801		517~949		(表流水)			
気温 (°C)	20.5		21.1		23.5		24.4		24.1		26.4		28.3		26.7		16.8		19.7	
水温 (°C)	27.8		28.6		25.5		24.0		29.3		31.3		34.5		24.9		14.7		14.6	
電気伝導度 (mS/cm25°C)	47.7		42.9		47.9		36.4		45.5		49.7		45.9		46.6		0.25		0.128	
pH	7.86		7.79		7.65		7.94		7.50		7.81		7.54		7.74		7.9		7.7	
ORP (mV) *	-256		-240		-232		-279		-285		-271		-263		-258		+221		+216	
	mg/l	meq/l	mg/l	meq/l	mg/l	meq/l	mg/l	meq/l	mg/l	meq/l	mg/l	meq/l	mg/l	meq/l	mg/l	meq/l	mg/l	meq/l	mg/l	meq/l
Na ⁺	10700	465	10400	452	9870	429	7410	322	10200	443	10600	461	9460	411	9390	408	22.4	0.97	6.27	0.27
K ⁺	3020	77.2	2960	75.7	2960	75.7	2120	54.2	3030	77.5	3140	80.3	3080	78.8	2760	70.6	2.91	0.07	1.10	0.03
Ca ²⁺	229	11.4	219	10.9	221	11.0	145	7.24	236	11.8	231	11.5	210	10.5	174	8.68	23.2	1.16	15.2	0.76
Mg ²⁺	315	25.9	339	27.9	312	25.7	223	18.4	351	28.9	358	29.5	316	26.0	362	29.8	4.80	0.39	2.55	0.21
Fe ²⁺	0.98	0.04	2.25	0.08	1.84	0.07	0.86	0.03	2.02	0.07	0.91	0.03	1.52	0.05	1.89	0.07	0.04	—	0.18	—
Fe ³⁺	0.45	0.02	0.41	0.02	0.65	0.03	0.36	0.02	0.40	0.02	0.47	0.03	0.45	0.02	0.36	0.02	—	—	—	—
陽イオン合計	—	579.56	—	566.60	—	541.50	—	401.89	—	561.29	—	582.36	—	526.37	—	517.17	—	2.59	—	1.27
HCO ₃ ⁻	903	14.8	995	16.3	934	15.3	970	15.9	928	15.2	1129	18.5	1007	16.5	897	14.7	95.8	1.57	53.7	0.88
SO ₄ ²⁻	22.3	0.46	17.7	0.37	20.2	0.42	20.6	0.43	23.0	0.48	24.7	0.51	28.4	0.59	19.8	0.41	34.2	0.71	9.90	0.21
Cl ⁻	18800	530	19300	544	18400	519	13500	381	19000	536	19500	550	17600	496	17300	488	11.4	0.32	6.30	0.18
I ⁻	131	1.03	128	1.01	136	1.07	83.7	0.66	100	0.79	120	0.95	109	0.86	111	0.87	<0.2	—	<0.2	—
Br ⁻	136	1.70	134	1.68	129	1.61	95.8	1.20	128	1.60	128	1.60	119	1.49	122	1.53	—	—	—	—
HBO ₃ ²⁻	68.6	2.30	71.9	2.41	63.0	2.11	50.9	1.70	65.8	2.20	74.7	2.50	53.6	1.80	53.6	1.80	—	—	—	—
S ²⁻	<0.2	—	<0.2	—	<0.2	—	<0.2	—	<0.2	—	<0.2	—	<0.2	—	<0.2	—	—	—	—	—
陰イオン合計	—	550.29	—	565.16	—	539.51	—	400.89	—	556.26	—	574.06	—	517.24	—	507.31	—	2.67	—	1.30
SiO ₂	70	—	73	—	64	—	64	—	68	—	74	—	81	—	61	—	32.3	—	32.5	—
δD (‰)	-0.4		1.9		6.7		-0.8		-0.1		1.2		-1.5		-3.2		-39.0		-40.0	
δ ¹⁸ O (‰)	-1.93		-1.90		-1.94		-2.61		-1.94		-1.61		-2.26		-2.53		-6.8		-6.9	
TOC	82	—	67	—	63	—	100	—	58	—	71	—	68	—	69	—	—	—	—	—
フミン酸	104	—	123	—	76	—	74	—	37	—	66	—	102	—	47	—	—	—	—	—
フルボ酸	75	—	74	—	71	—	178	—	57	—	70	—	80	—	66	—	—	—	—	—

* ORP の値は現場での実測値を記入した。

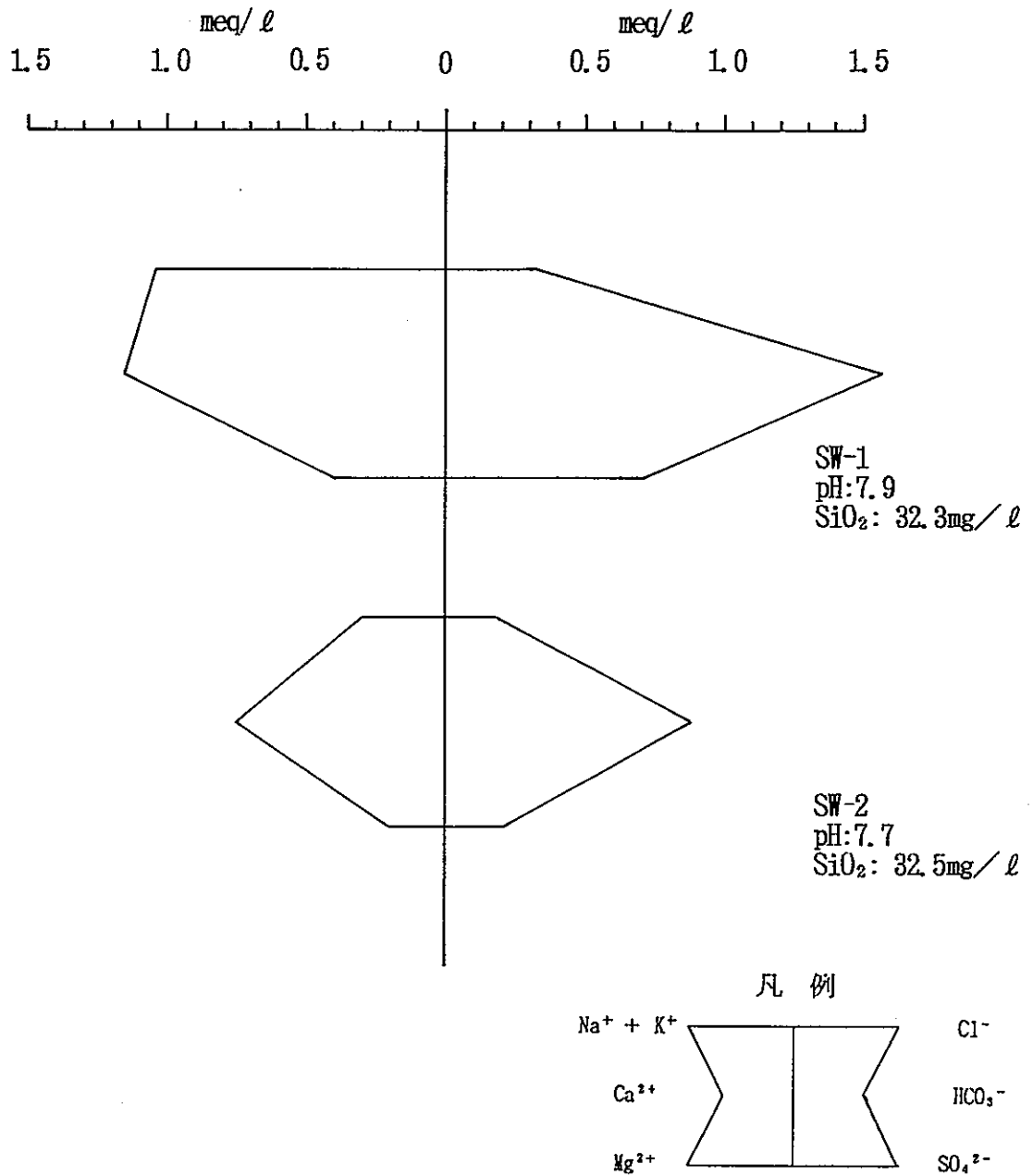


図 3 - 3 鴨川地域及び茂原ガス田地域の表流水のヘキサダイアグラム

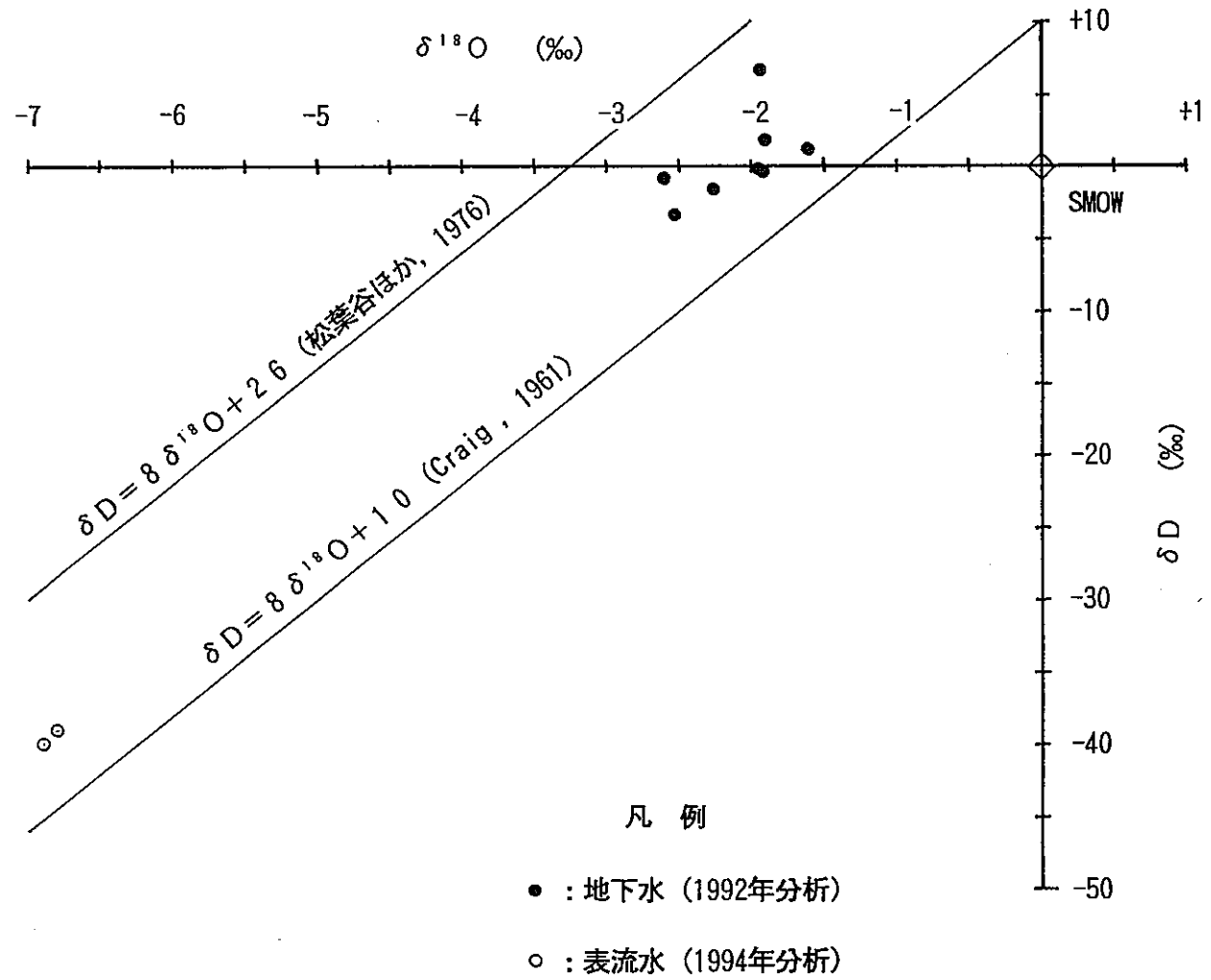


図3-4 表流水の水素同位体比 (δD) と酸素同位体比 ($\delta^{18}O$) の関係

表 3 - 3 泥質岩の含水比測定結果

試料の状態	含水比 (%)
自然状態	30.2
EDAS内で乾燥後	0.37

表 3 - 4 希釈法による間隙水の水質分析結果

試料番号	1		2	
試験日	1994. 8. 10			
	mg/ℓ	meq/ℓ	mg/ℓ	meq/ℓ
Na ⁺	506 (153)	22.0 (6.65)	463 (140)	20.1 (6.09)
K ⁺	52.3 (15.8)	1.34 (0.40)	41.7 (12.6)	1.07 (0.32)
Ca ²⁺	260 (78.5)	13.0 (3.92)	182 (55.0)	9.08 (2.74)
Mg ²⁺	61.9 (18.7)	5.09 (1.54)	46.0 (13.9)	3.78 (1.14)
Fe ²⁺	0.0	—	0.0	—
陽イオン合計	—	41.43 (12.51)	—	34.03 (10.29)
HCO ₃ ⁻	265 (79.9)	4.34 (1.31)	333 (100.7)	5.46 (1.65)
SO ₄ ²⁻	1620 (490)	33.7 (10.20)	1280 (386)	26.7 (8.03)
Cl ⁻	14.6 (4.4)	0.41 (0.12)	15.2 (4.6)	0.43 (0.13)
NO ₃ ⁻	91.0 (27.5)	1.47 (0.44)	81.1 (24.5)	1.31 (0.40)
I ⁻	>0.2	—	>0.2	—
陰イオン合計	—	39.92 (12.07)	—	33.9 (10.21)
SiO ₂	146 (44.1)	—	139 (41.9)	—

注) 数値は、希釈法に基づく『間隙水』の濃度に換算した値。また、かっこ内の数値は泥質岩と脱気水とを反応させて得た『原液』の分析結果を示す。

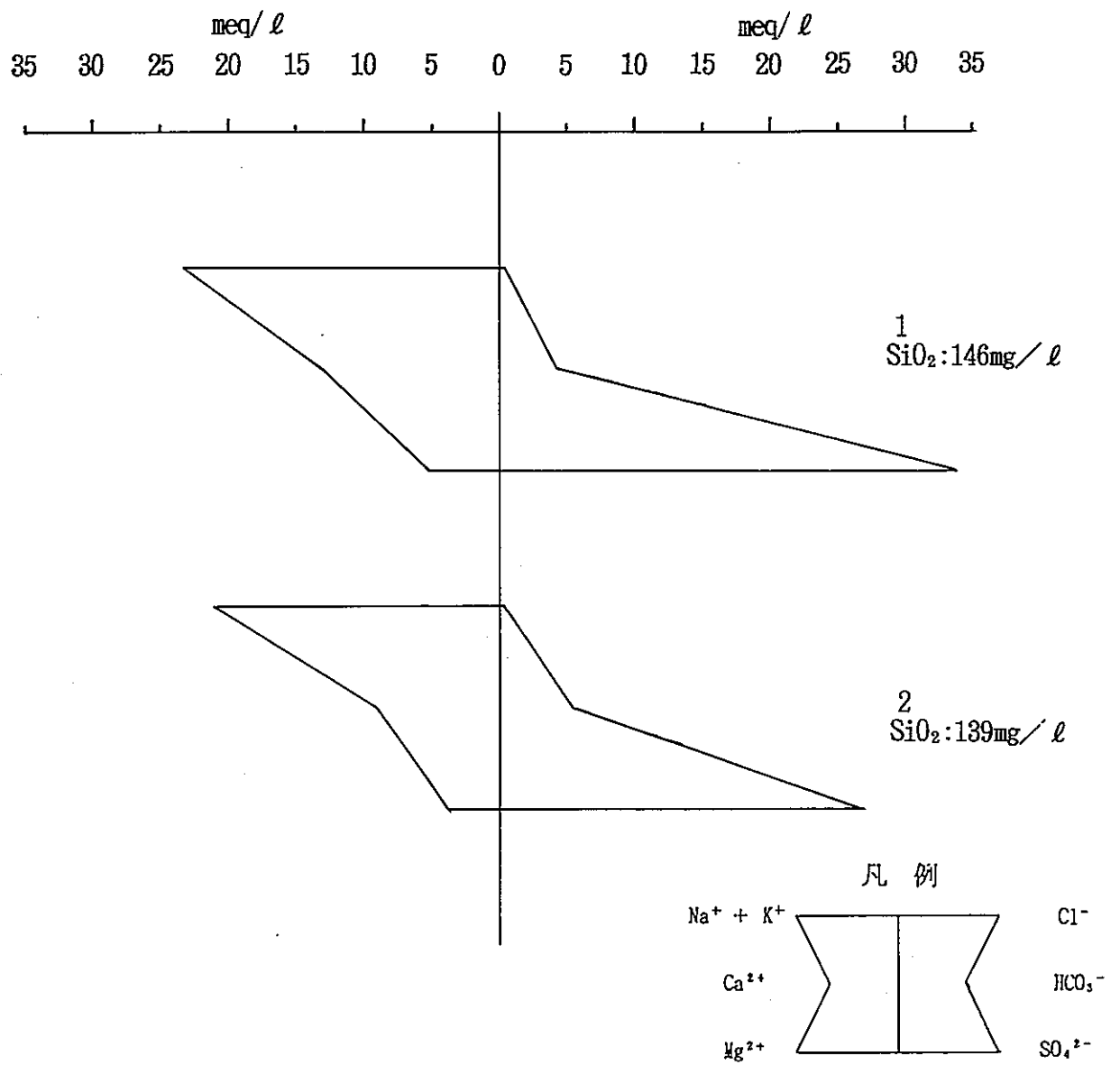


図3-5 泥質岩の間隙水のヘキサダイアグラム

4. 考 察

4.1 茂原ガス田及び南房総鴨川の表流水の水質

表3-2をもとに、茂原ガス田及び南房総鴨川の表流水の水質をみると以下のようにまとめられる。

① SW-1における表流水

pHは7.9で、水質組成はCa-HCO₃型である。溶存分量は、2.59~2.67meq/lである。SiO₂濃度は、32.3mg/lである。

② SW-2における表流水

pHは7.7で、水質組成はCa-HCO₃型である。溶存分量は、1.27~1.30meq/lである。SiO₂濃度は、32.5mg/lである。

このSW-1とSW-2の間には、溶存分量には差が認められるものの、pH、水質の型及びSiO₂濃度に違いは認められない。また、いずれの表流水にもよう素は検出されず、水素・酸素安定同位体比は天水線の範囲にあるものの、水素、酸素共にSMOWよりも非常に低い値を示している。

以上のような特徴は、化石海水と判断された地下水とは全く異なっており、天水起源の循環性の良い水であることを示すと考えられる。言い換えると、表流水と地下水とは現在も大規模な混合等が生じておらず、化石海水として保存され続けていると考えられる。

4.2 南房総鴨川の泥質岩の間隙水の水質

スコリアを含む泥質岩を用い、酸素との接触をできるかぎり避けた条件下で実施して得た希釈法による間隙水の水質は、Fe²⁺を含まず、Na⁺ - SO₄²⁻型という特異な水質型を示している。また、まったくよう素を含まないことを併せて考えると、調査対象の泥質岩は既に天水による間隙水の置換が生じていたと考えられる。この間隙水の水質は、過去のある時期に初生的に含まれていた海水起源の間隙水はよう素とともに溶脱し、酸素を含む水によって硫化物を酸化して硫酸塩を生成し、それを希釈水によって溶解させて形成されたと推定される。

5. 問題点と今後の課題

茂原ガス田の地下水については、平成4年度の水質分析結果に基づく考察から化石海水起源であることが明らかになった。したがって、このような地下水を賦存する地層に挟在しているスコリアガラスは、スコリア堆積後現在に至るまでほぼ海水とほぼ同じ組成を有する地下水の中に置かれてきたことになる。このことは、このような地層中のスコリアガラスの変質状況を調査することによって、海水あるいはそれに近い高い塩分濃度の地下水下における長期変質挙動の解明に対する極めて重要なナチュラル・アナログ研究のフィールドとなることを示唆している。天然ガス稼行団体から提供を受けて調査したボーリング・コア中に含まれるスコリアガラスは、自生鉱物の生成温度を利用した検討から69℃以下の熱履歴を有するものではあるが、全く変質せず新鮮なままのものであるものが多数観察されている。今後、地表試料を用いて検討した南房総鴨川での結果を踏まえながら、房総半島における上総層群～三浦層群の熱履歴を詳細に解明していくことが重要と考えられる。このためには、さらなるボーリング・コアの調査・分析が必要である。

また、ガラスの長期変質挙動とは直接関係はないが、茂原ガス田における化石海水の存在とその中に溶解しているよう素の存在は、非常に長期間にわたり、地下水が外部の水と混合しにくく、閉鎖系を保つことが可能な条件が自然界にも存在していることを示している。このことは、処分場の隔離機能を検討する上で非常に興味深い事例と言える。

参考文献

中嶋輝允, 牧本 博, 平山次郎, 徳橋秀一, 地域地質研究報告 5 万分の 1 図幅「鴨川地域の地質」: 地質調査所, 107p. (1981)

日本の地質『関東地方』編集委員会編, 日本の地質 3 関東地方: 共立出版, 335p. (1986)

星野一男, 渡辺浩平, 八田敏行, 釜井俊孝: 東京湾岸地域の深部軟岩層の地質・物性断面 第24回岩盤力学シンポジウム論文集, p.479~483, (1992)

Aoyagi, K. and Kazama, T., Transformational changes of clay minerals, zeolites and silica minerals during diagenesis: *Sedimentology*, v.27, p.179~188 (1979)

Tardy, Y., Characterization of the principal weathering types by the geochemistry of waters from some European and African crystalline massifs: *Chem. Geol.*, v.7, p. 253~271(1971)

Ⅱ. ベントナイト編

1. 調査目的

本調査では、新潟県村上市付近のセリサイト鉱床、山形県鶴岡市付近、島根県大田市付近及び島根県出雲市付近の酸性白土鉱床あるいはベントナイト鉱床について、文献調査や現地調査を実施し、これらがベントナイトのナチュラル・アナログ研究の対象となりうるか否かの検討を行ってきた。

今年度は、山形県鶴岡市付近、島根県大田市付近の酸性白土鉱床あるいはベントナイト鉱床について現地調査を実施して、調査対象露頭の熱履歴の検討を行うとともに、新たに選定した新潟県西頸城郡に分布するモンモリロナイト含有層を調査し、ベントナイトのナチュラル・アナログ研究候補地としての検討を行った。

2. 調査地域の概要

2.1 地形

2.1.1 鶴岡地域

調査地域及びその周辺の地形の概要を図2-1に示す。

本地域は、庄内平野の南西縁に相当し、平坦地とこれを囲む標高400m程度までのなだらかな丘陵地～山地からなる。特に、酸性白土鉱床はこの平坦地周辺の丘陵地や緩傾斜地に多く分布している。

2.1.2 大田市北部

調査地域及びその周辺の地形の概要を図2-2に示す。

本地域は、島根県大田市北東部で、山陰本線波根駅の東方約2.5kmに位置する。本地域は標高約100mであるが起伏に富み、国道9号線を境として北側はやや急峻な地形を呈している。

2.1.3 新潟県西頸城

調査地域及びその周辺の地形の概要を図2-3に示す。

本地域は、新潟県西頸城郡能生町南南西で、北陸本線能生駅の南南西約6kmに位置する。本地域の南部には標高1000mを越える起伏の大きい山地があり、それらを取り巻くように中～小起伏の山地が分布している。北部の名立付近及び北東部の高田平野西縁には丘陵地が分布し、その縁片部には小規模ながら洪積台地が分布している。調査地域内は平野の発達に乏しく、海浜部及び河川沿いに小規模に分布しているにすぎない。調査地における最高点は鉾ガ岳の1316mである。

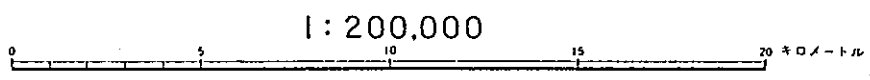
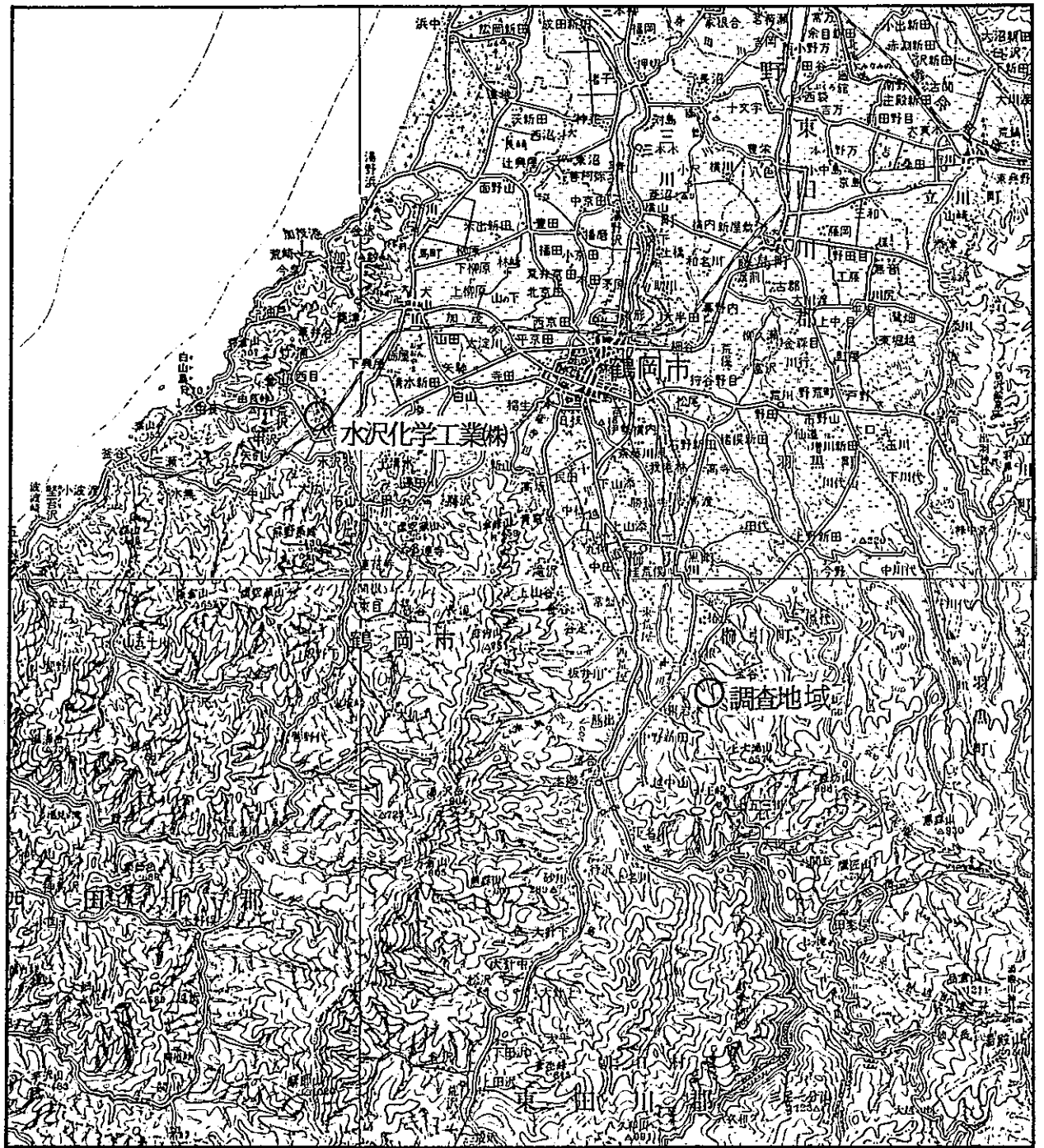


図 2 - 1 鶴岡地域調査位置図

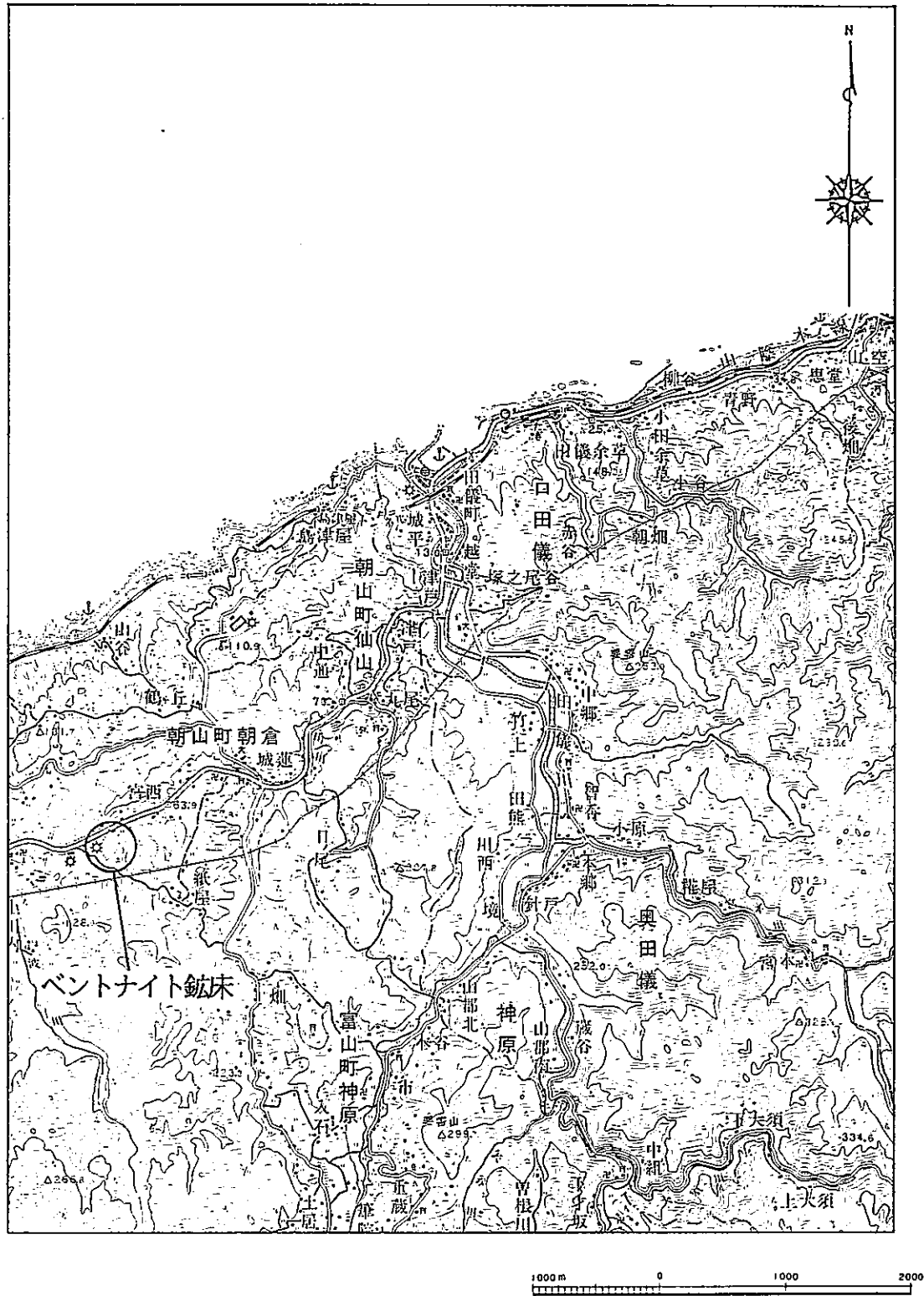


図 2 - 2 大田市北部調査位置図

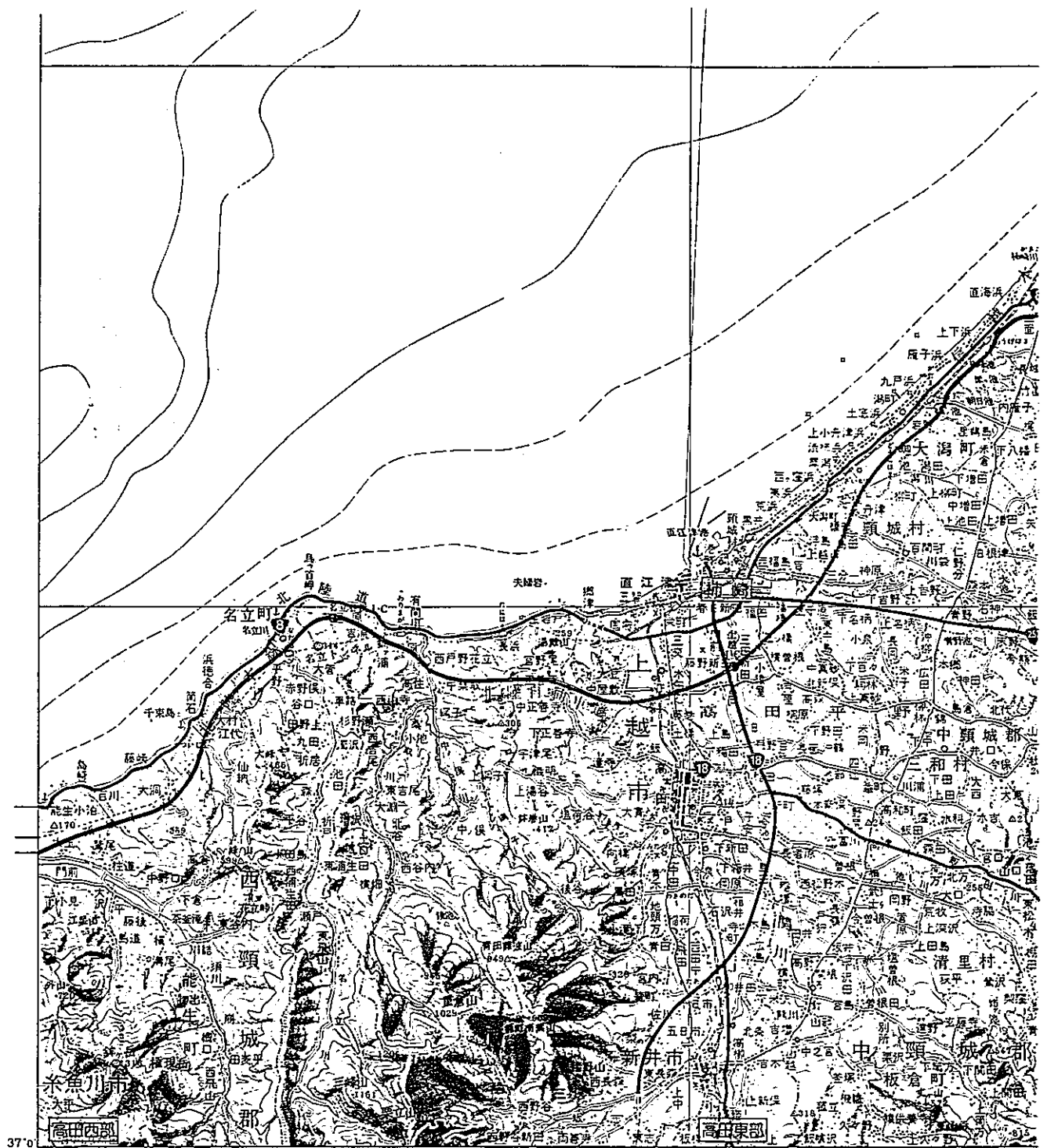


図2-3 新潟県西頸城地域調査位置図

2.2 地質

2.2.1 鶴岡地域

調査地域及びその周辺の地質図を図2-4に示す。

調査地域は、いわゆるグリーン・タフ地域に属し、秋田県から山形県に分布する油田地帯の南部に相当する。基盤岩類による構造区分では、棚倉構造線の西部の足尾帯に属している。

調査地域での先第三系の基盤岩類は、後期白亜紀の花崗岩類及び田川酸性岩類からなり、それらを不整合に新第三系の堆積岩類が被覆している。この新第三系は、秋田の標準層序と対比すると、門前階～西黒沢階に相当し、阿仁合型、台島型植物群や八尾-門ノ沢動物群といった化石群集を産するとされている。調査地域である松根地区の新第三系は、上大滝石英安山岩、酸性凝灰岩、凝灰質泥岩～礫岩、安山岩類及び玄武岩類からなる大網層、そして硬質頁岩からなる松根層から構成されている。さらに調査地域の東部の丘陵～山地は月山火山噴出物が広く被覆している。そして、赤川沿いには河川堆積物が広く分布している。

酸性白土鉱床は新第三系内の酸性凝灰岩が風化変質して形成されたと考えられている。この酸性白土は、地表下3～10mまでが利用度の高い部分であり、その下部では長周期粘土鉱物、原岩の長石類およびガラス、沸石鉱物の含有量が増加し、MgO、CaO、Na₂O成分が多くなるとされている。

本鉱床は昭和初期に注目され始め、昭和12年に水沢化学の工場が設立されて本格的な開発が行われた。

2.2.2 大田市北部

調査地域の地質図を図2-5に示す。

調査地域は、島根県の日本海岸に沿う新第三系分布地帯のほぼ中央に位置し、中新世の地層が分布している。これらは3つの累層に区分されているが、いずれも海成堆積岩及び海底火山噴出物からなり、整合に累重している。海成堆積岩は礫岩、粗粒砂岩、頁岩を主とし、海底火山噴出物は安山岩および流紋岩の溶岩、凝灰岩、凝灰角礫岩等からなる。これらのうちの凝灰岩にベントナイト鉱床が胚胎している。本凝灰岩の走向・傾斜はE-W、5～20°Nであり、層厚は激しく変化するものの平均的には50m程度である。また、本凝灰岩には安山岩岩脈の貫入が認められる。なお、凝灰岩の年代は15.8～18.6Ma.、安山岩の年代は14.5～16.0Ma.（いずれもK-Ar法）と考えら



更新世	月山火山噴出物	△Ba	安山岩塔岩・同質火砕岩及び泥流堆積物	
中新世	松根層	MT	硬質頁岩	
	大網層	OA	酸性凝灰岩・凝灰質砂岩・泥岩及び礫岩	
		越中山安山岩部層	OAA	普通輝石安山岩・紫蘇輝石安山岩塔岩
		七ツ池玄武岩部層	OAb	変質玄武岩塔岩・同質火砕岩
	大泉層	Op	変質輝石安山岩塔岩・同質火砕岩	
上大橋	石英安山岩	↑Yd↑		

図 2 - 4 鶴岡地域地質図

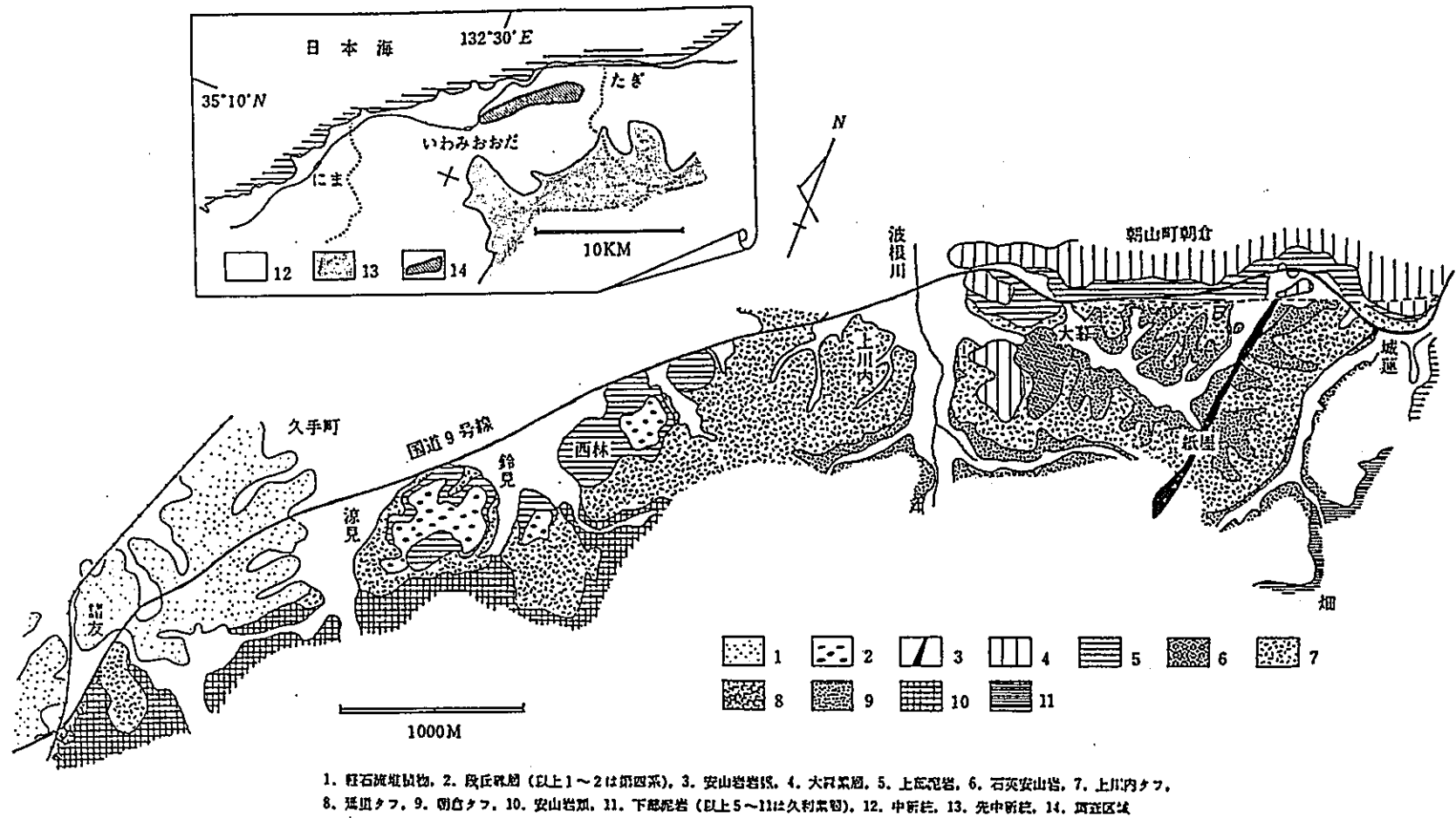


図2-5 大田市北部地域地質図

れている（沢田，板谷，1987）。

稼行されているベントナイト鉱床は，凝灰岩がモンモリロナイト化したもので，青色，一部は緑色ないし淡緑色を呈し，地表付近では白色で脆弱である。

本鉱床は，X線回折分析によって得られた結果から沸石に注目して4帯に分帯されている（図2-6参照）。すなわち，

- A帯：未変質ガラス・斜プチロル沸石帯
- B帯：斜プチロル沸石・モルデン沸石帯
- C帯：モルデン沸石帯
- D帯：フェリエライト帯

に区分され，モンモリロナイトはほぼ全帯に認められるものの，特にC帯に顕著に発達している。モンモリロナイトに注目すると，未変質ガラス帯，漸移帯，モンモリロナイト帯に区分され，全体として概ね平坦な帯状分布（クラゲ型）を呈している。凝灰岩中には数多くの珪質脈が認められ，これらを通路とした熱水変質が本ベントナイト鉱床の成因と考えられている。フェリエライトは，微視的に観察するとモンモリロナイトを切って晶出しており（モンモリロナイトを交代），D帯の分布も安山岩の岩脈に調和的であることから，モンモリロナイト生成後の安山岩の岩脈の貫入時の産物と考えられている。

なお，本鉱床のモンモリロナイトはCa型である。

現在現地においては，大田市上川内地区においてモンモリロナイトを対象として露天掘りによる採掘が実施されている。

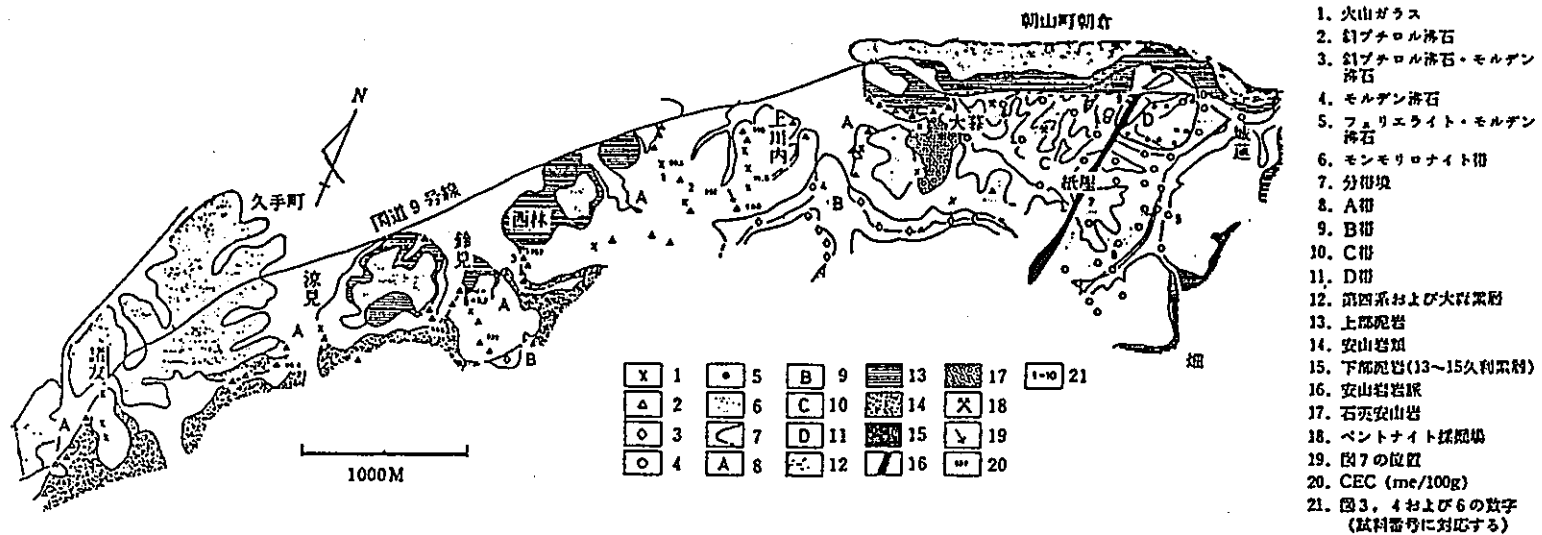
2.2.3 新潟県西頸城

調査地域の地質図を図2-7に示す。

調査地域は，いわゆるフォッサマグナの最北部に位置し，フレッシュ型互層を主体とする厚い新第三系が分布していることで知られている。西田ほか（1966）をもとに調査地域の主として新第三系の地質状況を以下に記述する。

この地域の層序は，新第三紀の久比岐層群，能生谷層，川詰層，名立層，谷浜層からなり（表2-1参照），第四紀の段丘堆積層，焼山火山噴出物，沖積層等が分布している。

久比岐層群は新第三系の下半分を占める地層で，主に黒色頁岩と細粒砂岩からなり有律互層を形成している。また，スランピングが発達している。この久比岐層群の上位に，黒色泥岩によって特徴づけられる能生谷層が整合に累重している。能生谷層の



1. 火山ガラス
2. 斜方輝石
3. 斜方輝石・モルデン
輝石
4. モルデン輝石
5. フェリエライト・モルデン
輝石
6. モンモリロナイト帯
7. 分帯境
8. A帯
9. B帯
10. C帯
11. D帯
12. 第四系および大沢系砂
13. 上部泥岩
14. 安山岩類
15. 下部泥岩(13~15久利系砂)
16. 安山岩岩脈
17. 石英安山岩
18. ペントナイト採掘場
19. 図7の位置
20. CEC (me/100g)
21. 図3, 4および6の数字
(試料番号に対応する)

図2-6 沸石による変質分帯 (大田市北部)

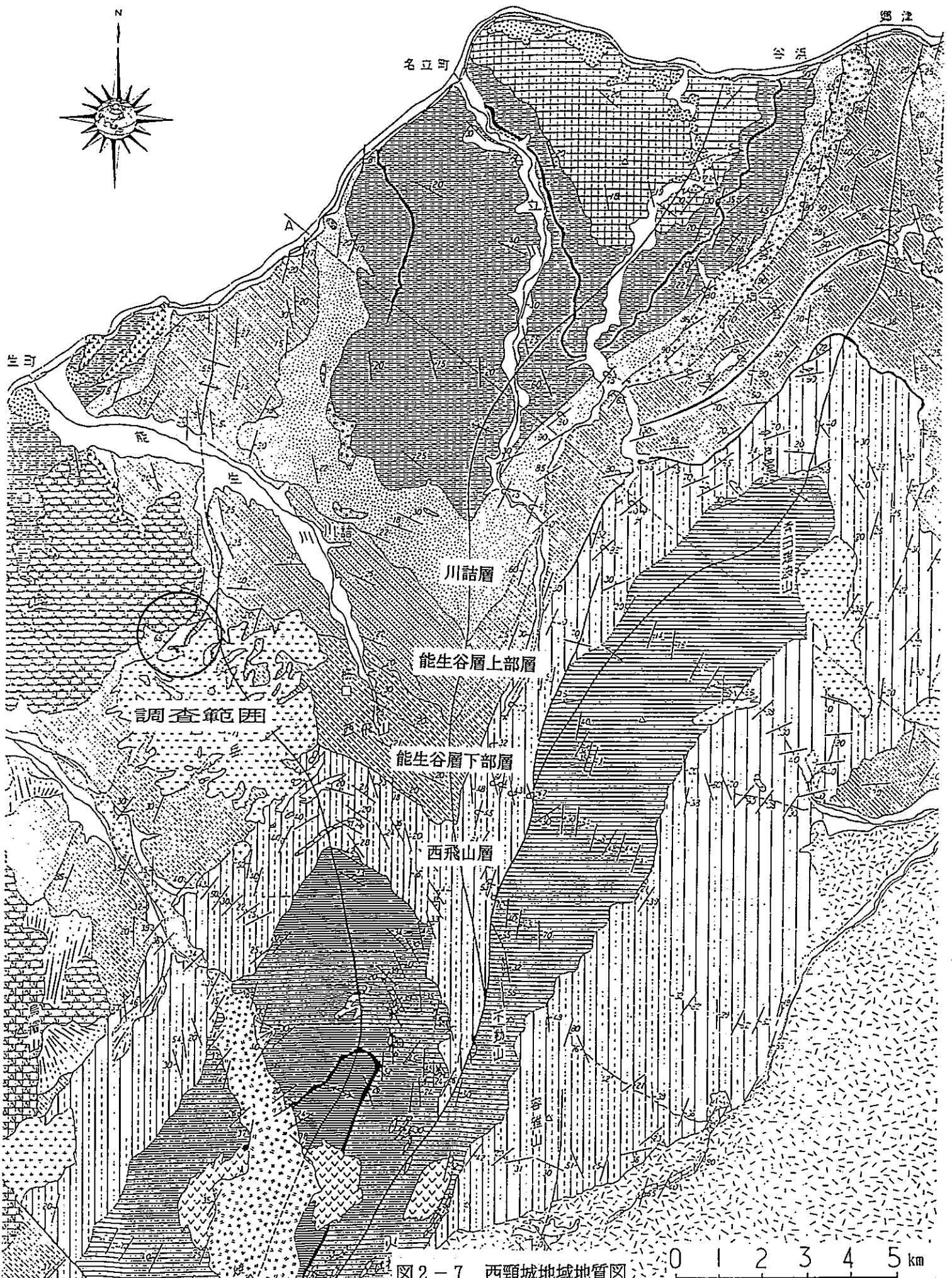


図2-7 西頸城地域地質図

0 1 2 3 4 5 km

表 2 - 1 新潟県西頸城地域の第三系の層序 (西田ほか, 1966)

地 層		地 質 柱 状 図	層 厚 m	主 要 岩 質
谷 浜 層			200 400	礫岩, シルト岩, 安山岩質火山円礫岩, 安山岩質 溶岩および同質凝灰角礫岩などからなるが, 上部に石英 安山岩質円礫岩がある。
名 立 層			500	全体として灰色泥岩と白灰色中粒~粗粒砂岩との互 層からなる。 安山岩質溶岩, 凝灰角礫岩, 凝灰岩を挟む。
川 詰 層			150 300	淡灰色凝灰質砂岩を主とし礫岩, 黑色頁岩を介在 する。
能 生 谷 層	上 部		800	塊状黑色頁岩からなるが, 最下部は砂岩頁岩の互 層である。
	下 部		550	いわゆる 黑色頁岩様の砂質頁岩と淡灰色中粒~粗粒 砂岩との厚い互層からなる。砂岩は凝灰質の場合がある。
久 比 岐 層	上 部		1170	<i>slumping structure</i> の著しい暗灰色頁岩と淡灰 色細粒~中粒砂岩との互層からなるが, 上部と下部に はみごたな砂泥有律互層が発達し, 各種の堆積構 造がみられる。 苦灰質団塊を多含する。
	下 部		310	主に淡灰色中粒~粗粒砂岩からなり, 部分的に礫 質となる。 暗灰色頁岩を介在する。
火 打 山 層	上 部		640	全体として黑色硬質頁岩からなり, 稀に灰色中粒砂 岩を介在するが, 部分的には砂泥有律互層となる。 最下位に曲型的砂泥有律互層が発達し, 各種の 堆積構造がみられる。
	中 部		750	主に着しく葉理を有する黑色硬質頁岩からなる。
	下 部		?	粘板岩状黑色硬質頁岩, 緑色凝灰角礫岩からなる。

上部は塊状の厚い泥岩からなるが、下部は砂岩との互層となっている。能生谷層を整合に被覆する川詰層は、凝灰質砂岩を主体として礫岩や泥岩を挟在している。川詰層を整合に被覆する名立層は、泥岩を主体とし、時に火砕岩を挟在する。これらを不整合に被覆する谷浜層は、礫岩や火砕岩を主体とし、泥岩を挟在する。

本地域の新第三紀層は、石英閃緑ひん岩－閃緑ひん岩を主とする岩体に所々で貫入あるいは進入されており、西頸城半深成岩類と呼ばれている。これらの貫入部の泥岩は微弱ながら変質しているとされている。これらの西頸城半深成岩類の貫入時期は、西田ほか（1966）や赤羽，加藤（1989）では能生谷層より新期の地層に貫入していないことから、能生谷層堆積後で川詰層堆積前と考えられている。一方、茅原ほか（1984）では、谷浜層の火砕岩がこれらの貫入岩類の噴出相であると考えており、この見解によれば、西頸城半深成岩類の貫入時期は谷浜層堆積時と考えられる。

渡辺，佐藤（1986），佐藤，渡辺（1989），佐藤ほか（1991）は、久比岐層群，能生谷層，川詰層の泥岩及び砂岩中の粘土鉱物や沸石を調査し、モンモリロナイトが能生谷層上部層以上に地層群にのみ認められ、それよりも下位の地層群にはイライト／モンモリロナイト混合層鉱物が認められること、そしてこの混合層鉱物のイライトの割合が下位ほど大きくなることを見だし、この粘土鉱物の変化は続成作用による一連のものであると結論づけている（表2－2参照）。

表2-2 能生地域における第三系の粘土，沸石鉱物（佐藤，渡辺，1989）

Table . List of clay minerals and zeolite found from the Nō district

Formation	Sample No.	Mont.	I/S	Mi.	Ch.	Cp.	R.F.	
KAWAZUME F.	85071802	Na/Ca				•	f.s.s.	
	85071801	Na				•	f.s.s.	
	85071806	Na				•	f.s.s.	
NODANI F.	UPPER	85071809	Ca		•	•	f.s.s.	
		85071814	Ca		•	•	b.s.	
		85071817	Ca		•	•	b.s.	
		85071822	Na/Ca					b.s.
		85072219	Ca		•	•		b.s.
		85072215	Ca		•	•		b.s.
		85072211	Ca		•	•		b.s.
		85072208	Ca		•	•		b.s.
		85073102		• 90%				b.s.
	85072206	Ca		•	•		b.s.	
	LOWER	85072203	Na/Ca					b.s.
		85072815		• 90%	•	•		b.s.
		85072201		• 90%	•	•		b.s.
		85072813		• 90%	•	•		f.s.s.
		85072810		•	•	•		f.s.s.
		85072807		• 90%	•	•		b.s.
		85072801		• 90%	•	•		f.s.s.
		85073110		• 70%	•	•		f.s.s.
		85073115		• 70%	•	•		b.s.
85073116			• 70%	•	•		b.s.	
85072401		• 60%	•	•		b.s.		
NISHIYAMA F.	85072405		•	•	•		f.s.s.	
	85072406		• 45%	•	•		b.s.	
	85072408		• 50%	•	•		b.s.	
	85072409		• 25%	•	•		b.s.	
	85072410		•	•	•		b.s.	
	85072411		•	•	•		b.s.	
	85072415		•	•	•		b.s.	
	85072417		• 15%	•	•		b.s.	
	85072424		• 10%	•	•		b.s.	
	85072431		• 5%	•	•		b.s.	
	85072432		• 5%	•	•		b.s.	

Mont. : Montmorillonite.

I/S : Illite/smectite interstratified mineral.

Mi. : Mica. Ch. : Chlorite. Cp. : Clinoptilolite.

R.F. : Rock facies. f.s.s. : fine sandstone.

b.s. : black shale

Value in I/S column showing percentage of smectite layers in I/S.

Na, Ca and Na/Ca in Mont. column showing interlayer cation.

3. 分析・試験

3.1 試料

3.1.1 鶴岡地域

鶴岡市南部の松根地区に分布する凝灰岩について、粗粒玄武岩からなる岩脈の貫入面直近の試料と、貫入面から十分離れた位置の試料とを採取し、ジルコンを用いたフィッシュン・トラック年代測定に供した。試料の採取位置図を図3-1に示す。なお貫入岩の粗粒玄武岩は、平成3年度調査における貫入岩と同様に変質が著しいこととKの初期濃度がほとんど期待できない岩質であることから、年代測定は実施しなかった。

3.1.2 大田市北部

大田市北部の紙屋地区に分布する凝灰岩について、安山岩からなる岩脈の貫入面直近の試料と、貫入面から十分離れた位置の試料とを採取し、ジルコンおよびアパタイトを用いたフィッシュン・トラック年代測定に供した。また、岩脈を構成する安山岩についても試料採取を実施し、K-Ar年代測定に供した。試料の採取位置図を図3-2に示す。

3.1.3 新潟県西頸城

渡辺、佐藤（1986）、佐藤、渡辺（1989）、佐藤ほか（1991）の研究により、続成作用の結果、粘土鉱物としてモンモリロナイトのみを含み、イライト／モンモリロナイト混合層鉱物を含んでいないと判断される能生谷層上部層を試料とし、本層に対する西頸城半深成岩類の貫入による熱変質を検討対象とした。

調査地の既往文献をもとに、貫入岩の能生谷層に対する貫入面と直交するような流路を有するルートとして、能生川支流の島道川を選定した。能生谷層上部層を構成する泥質岩を確認した後、2本の支沢において、貫入岩であるひん岩を露頭で確認するまでの区間について、泥質岩の全露頭調査を行った。確認した露頭位置を図3-3に示す。これらの露頭から得られた泥質岩をX線回折分析用試料とした。また、ひん岩の冷却史の把握の可能性を検討するために、フィッシュン・トラック年代測定およびK-Ar年代測定に供することができる鉱物について、それらの有無と含有量を鉱物分離と薄片観察を行った。

3.2 方法

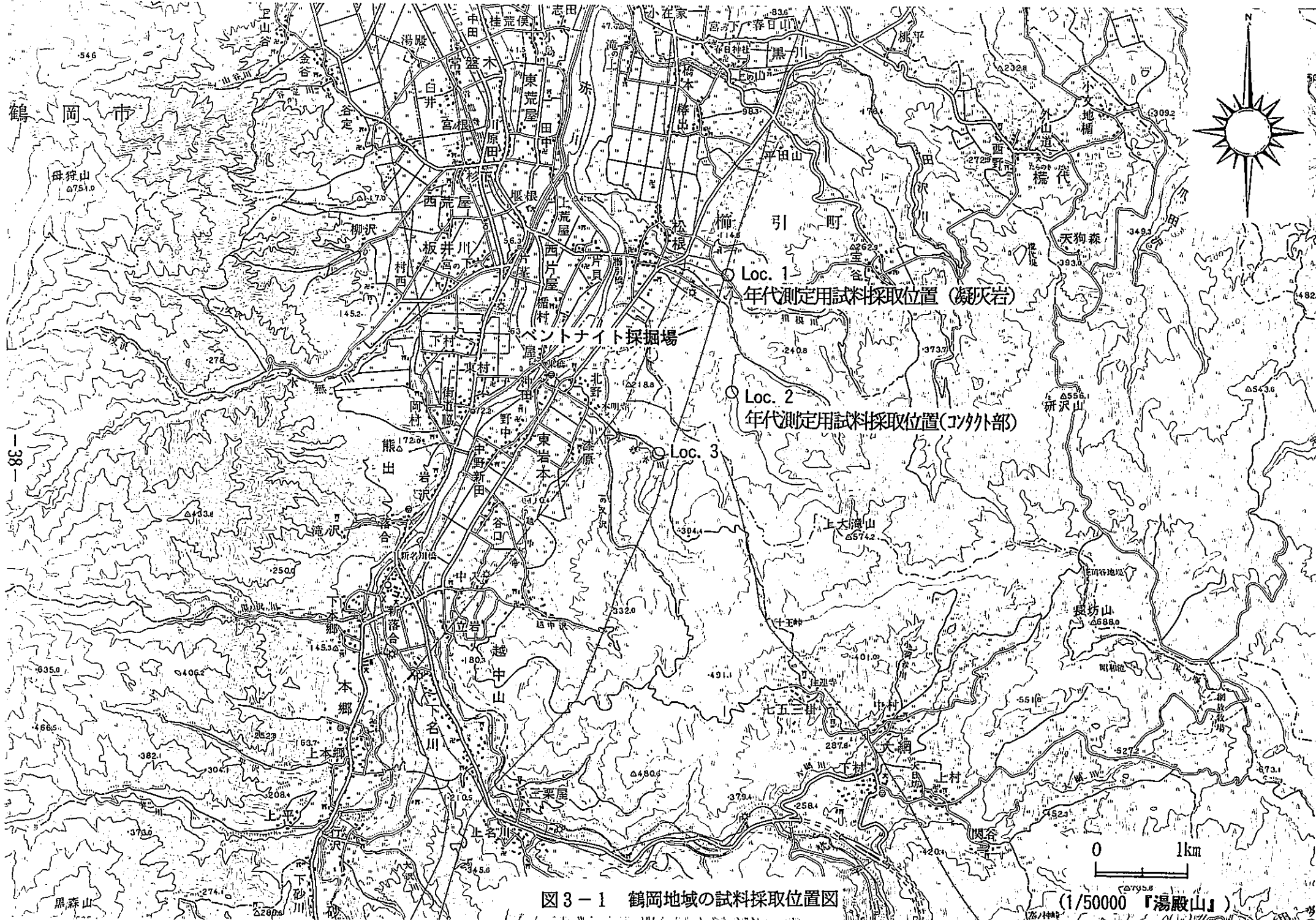


図3-1 鶴岡地域の試料採取位置図

(1/50000 『湯殿山』)

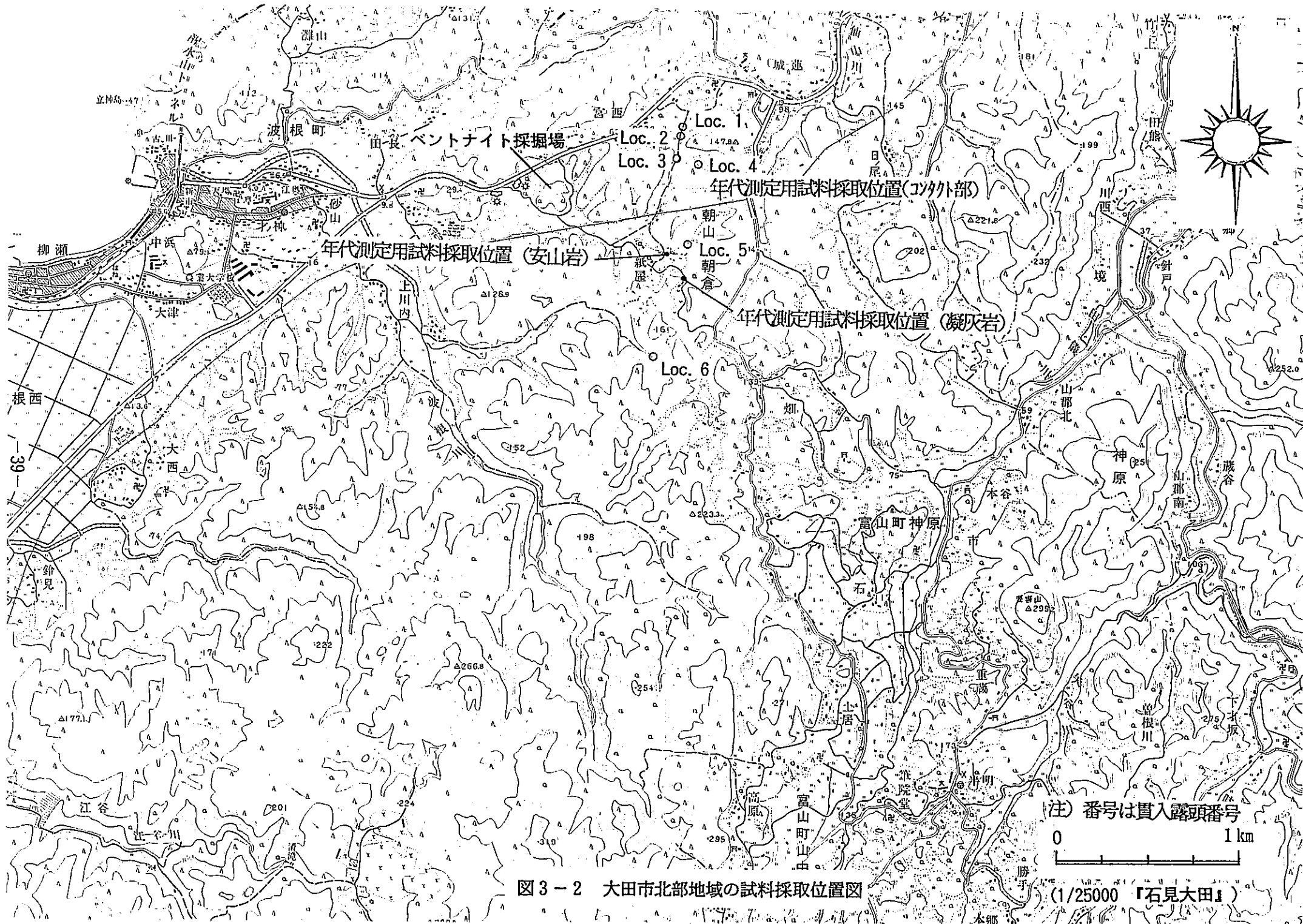
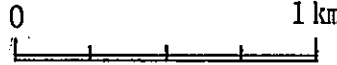


図3-2 大田市北部地域の試料採取位置図

(注) 番号は貫入露頭番号



(1/25000 『石見大田』)

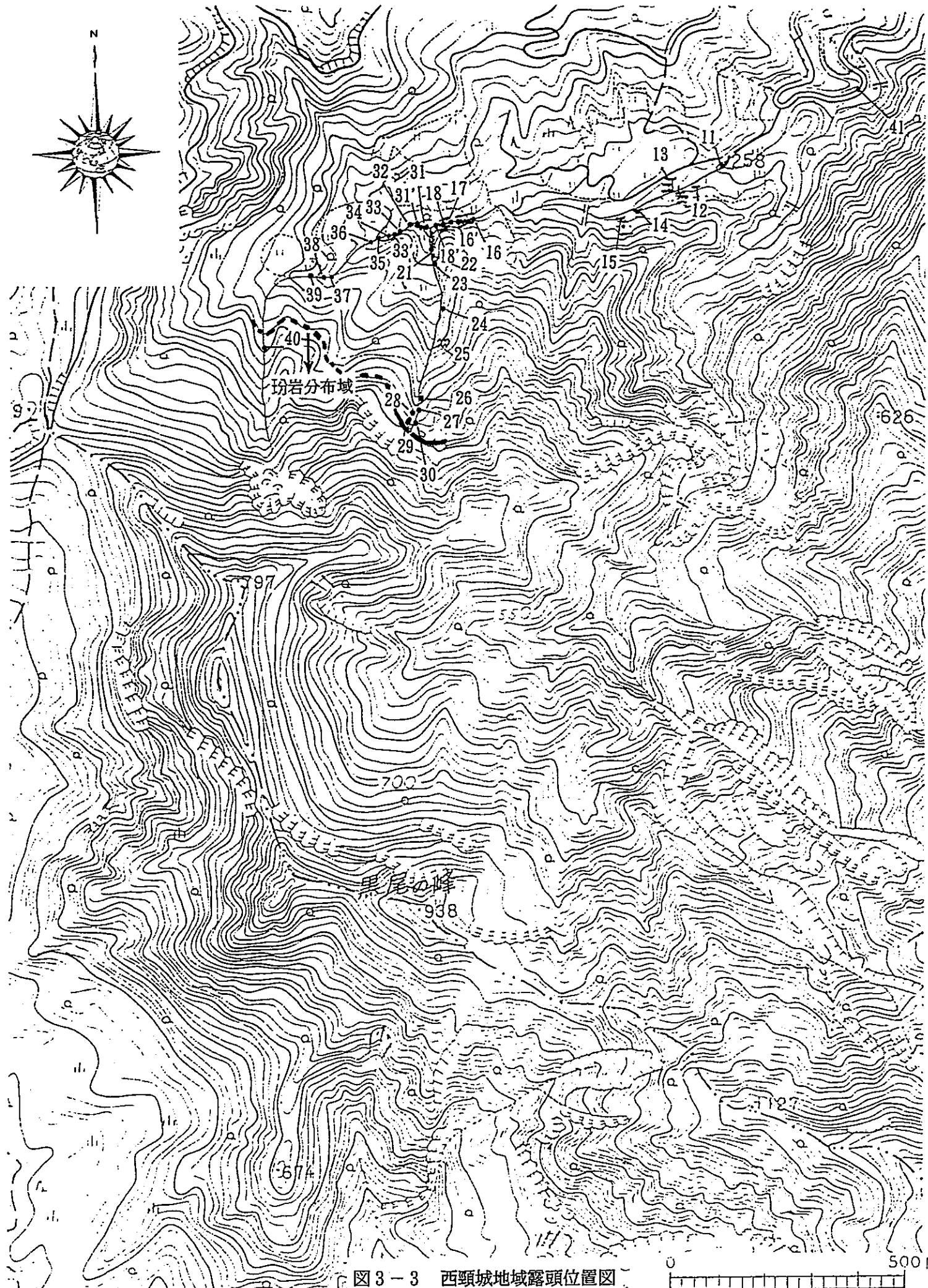


图 3-3 西頤城地域露头位置图

3.2.1 X線回折分析

X線回折分析は以下のような方法で実施した。

採取した試料を風乾したのちステンレス乳鉢で粗砕し、さらに自動らいかい機で指頭にざらつきを感じない程度に粉碎し、粉末試料を作製した。この粉末試料の一部をガラス製試料板に詰め無定方位試料を作製した。また、この粉末試料を蒸留水と共にシリンダー（容積：1ℓ）中に分散させ、8時間放置したのち、上澄液10cmを回収し、遠心分離機によって粘土分を沈澱させた。この沈澱物をスライドガラスに塗布して定方位試料を作製した。無定方位試料については、表3-1の左側に示した条件で、定方位試料については表3-1の中央に示した条件でX線回折分析を実施した。定方位試料のうち、7Å及び14~15Åの反射が認められるものについては、それぞれ塩酸処理及びエチレングリコール処理を行った後、表3-1の右側に示した条件でX線回折を実施して粘土鉱物を同定した。

なお、X線回折には、日本電子株式会社製JDX-11PA型X線回折装置を用いた。

表3-1 X線回折条件

区分	無定方位試料	定方位試料	定方位試料
対陰極	Cu	Cu	Cu
フィルター	Ni	Ni	Ni
管電流	30 kV	30 kV	30 kV
管電圧	10 mA	10 mA	10 mA
スリット系	1° - 0.3mm-1°	1° - 0.3mm-1°	1° - 0.3mm-1°
走査速度	1° /min.	1° /min.	1° /min.
記録紙速度	10 mm/min.	10 mm/min.	10 mm/min.
カウンタ	2000cps	1000cps	1000cps
時定数	1 sec.	1 sec.	1 sec.
走査範囲	2θ = 2~60°	2θ = 2~20°	2θ = 2~20°

3.2.2 絶対年代測定

鶴岡地域及び大田地域の凝灰岩については、採取した試料からジルコン結晶粒を抽出し、そのフィッシュン・トラック年代をgrain by grain-外部ディテクター法により測定した。なお、年代産出に際しては、²³⁸Uの自発壊変定数として 7.03×10^{-17} /yr.を用いた。

大田地域の貫入岩である安山岩については、風化部を除去した試料を粉碎し、60~80メッシュに粒径を揃えたものを超音波洗浄してK-Ar年代測定に供した。測定は長尾

・板谷 (1988) に示された方法に基づき行った。年代の計算に用いた定数は、 $\lambda e = 0.581 \times 10^{-10}/y.$, $\lambda \beta = 4.963 \times 10^{-10}/y.$, $^{40}K/K = 0.01167 \text{ atm } \%$ である。

3.2.3 鉱物分離

西頸城地域のひん岩を粉碎・洗浄し、篩分けによって60メッシュ以下の粒径の試料を対象に、重液分離と磁選を繰り返し、ジルコン、アパタイト、角閃石、斜長石、そしてその他のカリウムを含む鉱物について存在の有無と含有量を測定した。

3.2.4 顕微鏡観察

西頸城地域のひん岩の薄片を作成し、鏡下で構成鉱物種と組織を観察した。

3.3 分析結果

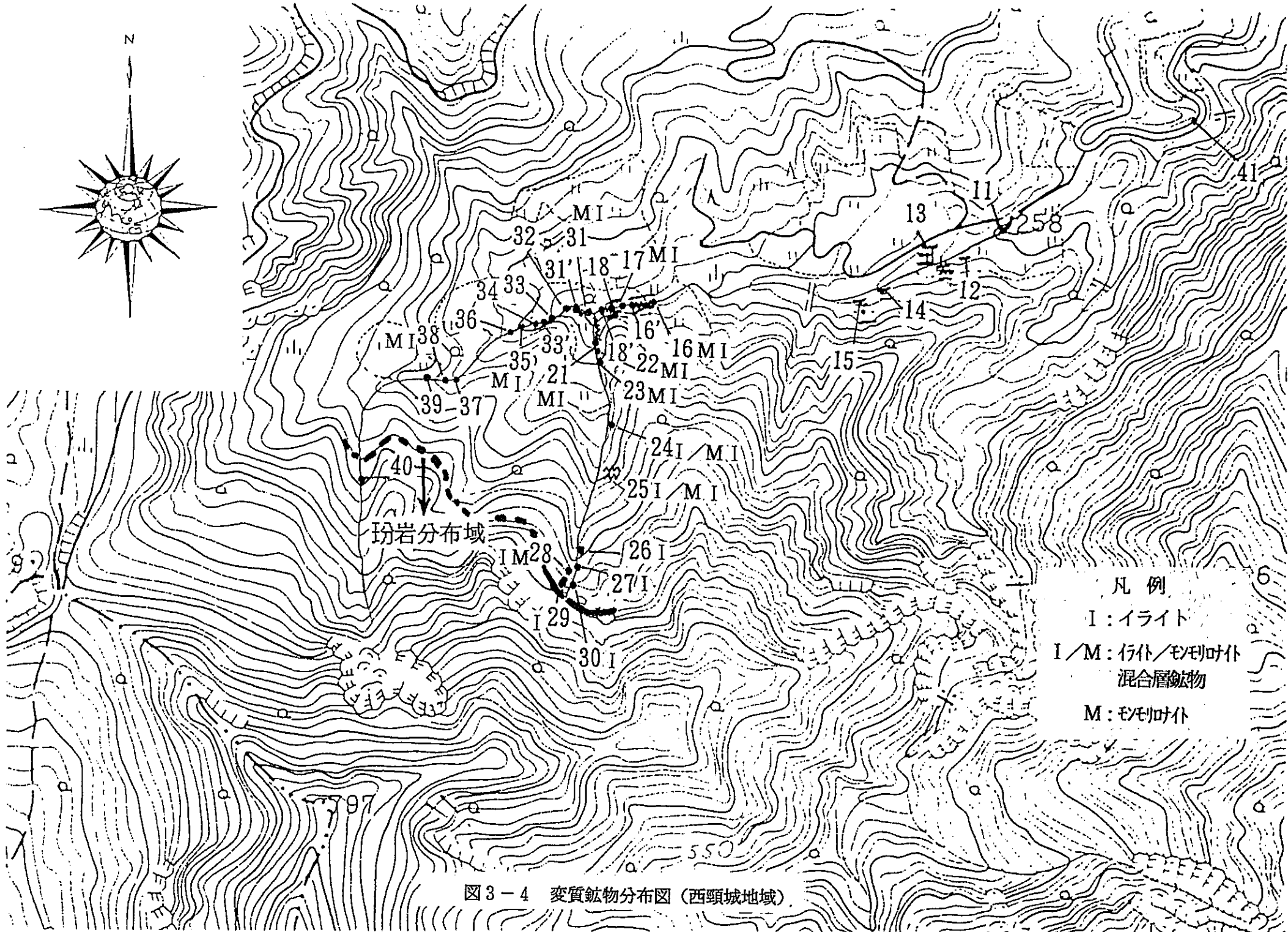
3.3.1 X線回折分析

表3-2に新潟県西頸城郡の試料のX線回折分析結果を示す。また、変質鉱物の平面的な分布を図3-4に示す。

表3-2 新潟県西頸郡の泥質岩のX線回折分析結果

試料名 \ 鉱物名	緑泥石	モンモリロナイト / 混合層鉱物	イライト	イライト / 混合層鉱物	モンモリロナイト	斜長石	石英
16	△		・		△	◎	◎
17	・		・		△	△	◎
21	・		・		・	○	◎
22	・		・		△	△	◎
23	・		・		・	△	◎
24	△		・	・		△	◎
25	・		・	・		△	◎
26	△		△			○	◎
27		△	△			○	◎
28	△		△		・	○	◎
29	△		△			△	◎
30	△		△			○	◎
31	△		・		△	○	◎
35	・		・		△	△	◎
38	△		・		△	△	◎
ひん岩		△	・			◎	◎

相対含有量：◎多量，○中量，△少量，・微量



- 凡例
- I : イライト
 - I/M : 行仆/モリ叶仆
混合層鉱物
 - M : モリ叶仆

図3-4 変質鉱物分布図(西頸城地域)

3.3.2 絶対年代測定

鶴岡地域及び大田市北部の凝灰岩の、ジルコンあるいはアパタイトを用いたフィッシュン・トラック年代測定結果を表3-3に示し、大田市北部の安山岩のK-Ar年代測定結果を表3-4に示す。

3.3.3 鉱物分離

西頸城地域のひん岩の鉱物分離結果を表3-5に示す。

フィッシュン・トラック年代測定試料としては、ジルコンの含有量は極めて少ないが、アパタイトは十分な含有量を有している。

K-Ar年代測定試料としては、斜長石が十分な含有量を有している以外には、好適な鉱物種は認められない。

3.3.4 顕微鏡観察

西頸城地域のひん岩薄片の鏡下で観察された特徴を以下に記述する。

斑晶：斜長石，普通角閃石，不透明鉱物

石基：細粒の石英，斜長石，不透明鉱物

斜長石は新鮮で自形を呈するものが多い。普通角閃石は1mm以下のものは、ほとんどが粘土鉱物に変質している。以上の他に、空隙を充てんする方解石が認められる。参考のために、鏡下でのポイント・カウント結果を表3-6に示す。

表3-3 フィッション・トラック年代測定結果一覧表

試料名	自発核分裂飛跡		誘導核分裂飛跡		熱中性子フルエンス		結晶数	相関係数 r	ウラン濃度 (ppm)	年代値 (ma)
	Ns	$\rho_s(1/cm^2)$	Ni	$\rho_i(1/cm^2)$	nd	$\rho_d(1/cm^2)$				
鶴岡-1 (コンタクト部)	316	1.05×10^6	697	2.33×10^6	1243	8.07×10^4	29	0.642	230	13.6 ± 1.0
鶴岡-2 (凝灰岩)	453	9.89×10^5	1044	2.28×10^6	1244	8.08×10^4	30	0.648	230	13.0 ± 0.8
大田-1 (コンタクト部)	266	2.49×10^6	442	4.13×10^6	1246	8.09×10^4	18	0.914	410	18.1 ± 1.5
大田-2 (凝灰岩)	839	2.78×10^6	1178	3.90×10^6	1247	8.09×10^4	26	0.665	390	21.4 ± 1.2

表3-4 K-Ar年代測定結果一覧表

試料No.	^{40}Ar (10^{-8}ccSTP/g)	Non Rad Ar (%)	K (wt%)	年代値 (Ma)
S31-400	19.3 ± 1.2	76.8	0.330 ± 0.017	15.0 ± 1.2
S31-401	19.2 ± 1.2	76.8		14.9 ± 1.2

表 3 - 5 西頸城地域のひん岩の鉍物分離結果

年代測定法	鉍物名	分離結果状況
フィッシュン・トラック法	ジルコン	2 個/0.25kg と含有量は極めて少ない。個々の結晶粒径は、長径 100 μm 以下と小さく、測定が困難となる可能性がある。
	アパタイト	500 個/0.25kg と含有量は十分である。ただし自形・透明度はやや劣る。ウラン濃度が適当量あれば測定可能。
K - A r 法	角閃石	分離結果において、全く得られていない。薄片観察において、ほぼ完全に粘土鉍物化しているため、測定は不可能。
	斜長石	0.1g/0.25kg と含有量は十分である。薄片観察において、70~80% は比較的新鮮である。しかし、破断した粒子が認められ、破断面沿いに変質鉍物が充てんしている。この変質鉍物の除去は完全には実施できないと予想されるが、測定は可能である。
	その他	黒雲母やサニディン等の測定に適したその他の鉍物は、まったく含まれていない。

表 3 - 6 ひん岩薄片のポイント・カウント結果

	斜長石	普通角閃石	不透明鉍物	方解石	基質	合計
カウント数	489	147	42	15	807	1500
含有率(%)	32.6	9.8	2.8	1.0	53.8	100.0

4. 考察

鶴岡地域と大田市北部地域については、各種年代測定結果をもとに火成岩岩脈周辺の凝灰岩への熱的影響についての考察を試みる。新潟県西頸城地域については、調査・分析結果をもとに火成岩岩脈と粘土鉱物の分布関係について考察する。

4.1 鶴岡地域

平成3年度の調査結果においては、モンモリロナイトがすべての試料に認められ、一部の試料に α -リンケイ石・ α -クリストバル石が認められるものの、セリサイトやセリサイト/モンモリロナイト混合層鉱物は認められていない。すなわち、平成3年度調査対象とした露頭においては珪化変質は生じているものの、モンモリロナイトのセリサイト化（イライト化）を検討する上では不相当と判断し、平成4年度にさらに現地調査を行うことによって、いくつかの凝灰岩と貫入岩の貫入面を含む露頭を確認してX線回折分析を実施した。

平成5年度調査で確認した、酸性凝灰岩に火山岩が貫入している露頭試料のX線回折分析結果では、セリサイトやセリサイト/モンモリロナイト混合層鉱物は生成されておらず、沸石類を多量に含むものが認められた。

そこで、今年度の調査においては、本調査地での貫入露頭はモンモリロナイトが貫入岩の貫入を受けたにもかかわらず変質を生じなかった事例として位置づけ、どのような熱履歴を有していたかを検討した。

フィッシュン・トラック年代測定結果においては、貫入面直近の凝灰岩と貫入面から十分離れた凝灰岩の年代値は誤差の範囲で一致しており、貫入による加熱による年代の若返りは認められない。また、加熱に起因するトラック長の短縮化も認められない。さらに、鉱物分離を行ってもジルコンよりも低温の閉鎖温度を有するアパタイトも検出されなかった。

これらのことから、本調査地域においては、調査対象とした貫入岩による熱的な影響の証拠を得ることはできないと判断される。

4.2 大田市北部地域

酒井, 井上, 飯塚(1980)によれば、本地域のモンモリロナイトは熱水変質によって生成されたと考えられている。沸石類の鏡下での観察によれば、フェリエライトはモンモリロナイトを切って晶出していること、沸石による変質分帯の分布が安山岩岩脈に調

和的であることから、モンモリロナイト生成後に安山岩岩脈が貫入して沸石を生じたとして解釈されている。したがって、本地域のモンモリロナイトは、その生成後に熱あるいは熱水による変質を受けた可能性が高いと予想される。

一方、平成4年度の調査結果においては、モンモリロナイトがほとんどの試料に認められ、一部の試料に α -リンケイ石・ α -クリストバル石が認められるものの、セリサイトやセリサイト/モンモリロナイト混合層鉱物は認められない。このことは、平成4年度調査対象とした露頭においては珪化変質は生じているものの、モンモリロナイトのセリサイト化（イライト化）を検討する上では不相当と判断し、今年度にさらに現地調査を行うことによって、同一貫入岩の延長上において、いくつかの貫入面を含む露頭を確認してX線回折分析を実施した。その結果は、稀に沸石を含むものがあるものの、主としてモンモリロナイト及びシリカ鉱物を主体としている。

そこで、今年度の調査においては、本調査地での貫入露頭はモンモリロナイトが貫入岩の貫入を受けたにもかかわらず変質を生じなかった事例として位置づけ、どのような熱履歴を有していたかを検討した。

大田市北部の凝灰岩中のジルコンのフィッシュン・トラック年代は、コンタクト部で 18.1 ± 1.5 Ma.、貫入面から十分離れた部分で 21.4 ± 1.2 Ma.であり、貫入による加熱に起因する若返りがある可能性が否定できないが、両方の試料ともジルコン結晶個々の年代値のバラツキが大きいことと、異質結晶の混在の可能性が高いことから、上記の年代値に有意の差はほとんど無いと判断される。また、同凝灰岩中のアパタイトのフィッシュン・トラック年代は、コンタクト部で 16.0 ± 3.8 Ma.、貫入面から十分離れた部分で 23.8 ± 3.9 Ma.であり、それぞれのジルコンでの値と誤差の範囲で一致しており、アパタイトの方が若いとはいえない。

一方、貫入岩を構成する安山岩のK-Ar年代測定結果である 15.0 ± 1.2 Ma.及び 14.9 ± 1.2 Ma.は、既往文献の大森層相当層のK-Ar年代値と良く一致しており、調査対象の安山岩岩脈の貫入時期が大森層堆積時であるとした酒井ほか（1980）及び井上ほか（1981）の推定を裏付ける結果となった。

4.3 新潟県西頸城

本地域に分布する泥質岩には、構成鉱物として、緑泥石、緑泥石/モンモリロナイト混合層鉱物、イライト、イライト/モンモリロナイト混合層鉱物、モンモリロナイトが

認められる。

これらの構成鉱物とその組合せ、さらにそれらの分布及び産状を考慮して本地域の変質分帯を①イライト帯、②イライト／モンモリロナイト混合層鉱物帯及び③モンモリロナイト帯の3つに区分した。各変質帯と構成鉱物組合せとの関係を表4-1に示す。また、図4-1に各変質帯の試料の代表的なX線回折パターンを示す。

イライト帯は、少量のイライトを含み、イライト／モンモリロナイト混合層鉱物やモンモリロナイトをほとんどまったく含まないことで特徴づけられる。イライト帯は、ひん岩に最も近い領域で認められ、色調は黒色を帯びやや硬質となっている。

イライト／モンモリロナイト混合層鉱物帯は、イライト／モンモリロナイト混合層鉱物の存在により特徴づけられる。微量のイライトを含み、モンモリロナイトを全く含んでいない。色調は暗オリーブ灰を呈し、軟質でわずかに粘性がある。イライト／モンモリロナイト混合層鉱物帯は、イライト帯の北側、すなわちさらにひん岩から離れた位置に認められる。

モンモリロナイト帯は、少量から微量のモンモリロナイト及び微量のイライトを含み、イライト／モンモリロナイト混合層鉱物を含まないことで特徴づけられる。色調は暗オリーブ灰を呈し、軟質でわずかに粘性がある。モンモリロナイト帯は、イライト／モンモリロナイト混合層鉱物帯のさらに北側～北東側に広く分布している。

各変質帯とひん岩との位置関係をみると、ひん岩から外側に向かい、イライト帯→イライト／モンモリロナイト混合層鉱物帯→モンモリロナイト帯の順に配列している。

既往文献の、能生谷層上部層のモンモリロナイトは続成作用によって生成されたことが明らかにされており、モンモリロナイト帯及びイライト／モンモリロナイト混合層鉱物帯中の微量のイライトが堆積時に堆積粒子として含まれたものであると考えると、これらの変質帯の分布は明らかに貫入岩の加熱によって形成されたと考えられる。

以上のことから、本調査地域はベントナイトのイライト化（熱変質）のナチュラル・アナログの研究フィールドとして非常に好適であると判断される。このため、調査対象地域の詳細な熱履歴の復元のための、各種年代測定が重要であるが、ひん岩の鉱物分離結果においては、年代測定に好適な鉱物は2種類しか得られておらず、不完全な冷却曲線しか得られない。今後は、上記の鉱物の年代測定と変質の少ないひん岩露頭の調査や各層の3次元的な分布状況の把握が必要と考えられる。

表4-1 変質帯と鉱物組合せ

変質帯 鉱物	イライト帯	イライト/モンモリロナイト 混合層鉱物帯	モンモリロナイト帯
	イライト		
イライト/モンモリロナイト 混合層鉱物			
モンモリロナイト			
緑泥石			
緑泥石/モンモリロナイト 混合層鉱物	—		
斜長石			
石英			

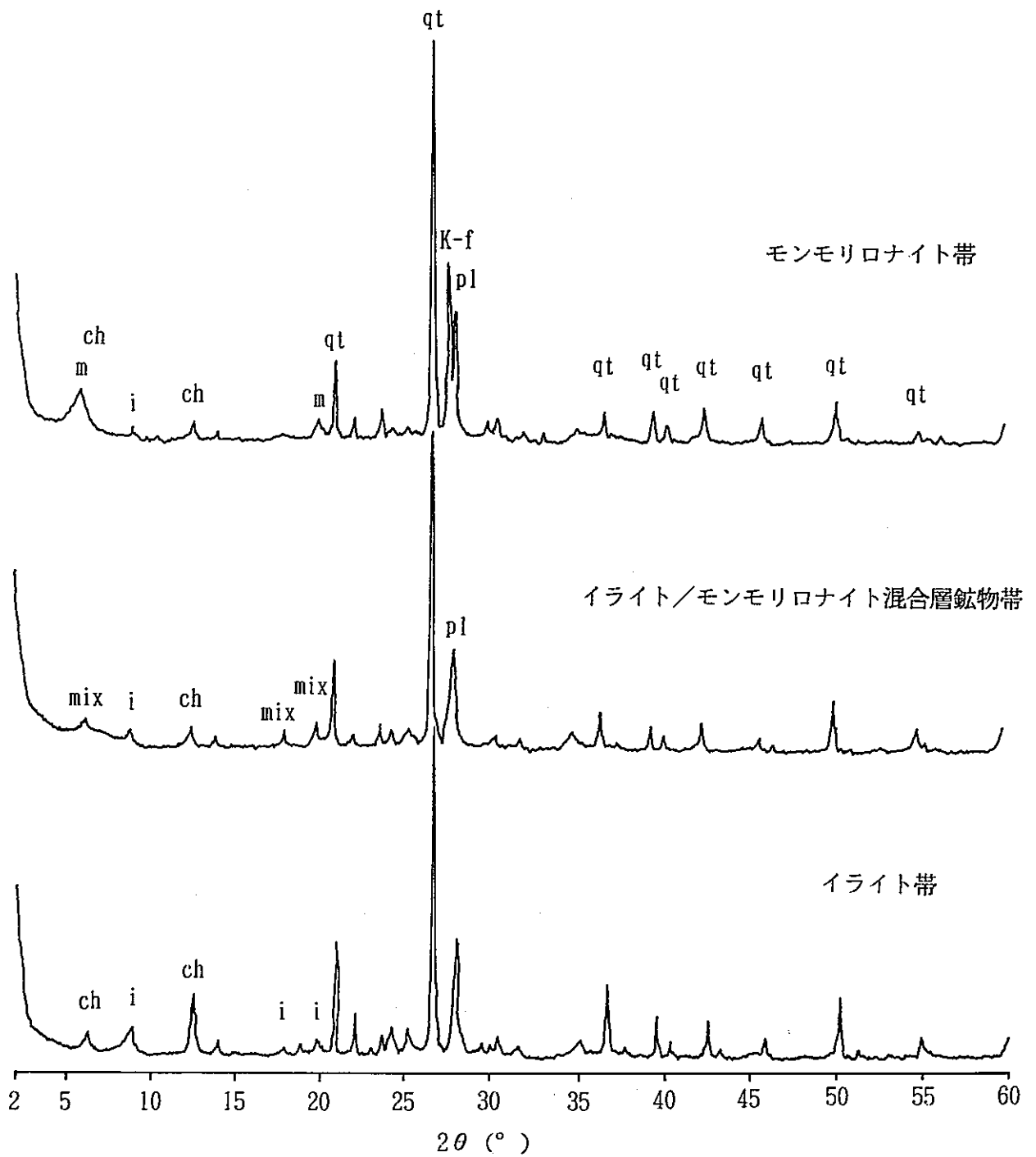


図4-1 各変質帯の代表的なX線回折パターン

5. 文献調査によるイライト化の新期対象地域の選定

これまでの、モンモリロナイトのイライト化に関するナチュラル・アナログ研究の対象地域の検討の基本方針としては、イライト（あるいはセリサイト）化の生じている地域でモンモリロナイトも存在が確認されており、ベントナイト鉱床に火成岩の貫入が確認されているような地域を求めている。

ベントナイト鉱床は工業的にも非常に重要な資源であるため、我が国における存在・分布についてはほぼ明らかにされており、現時点で新期対象とすべき地点は見当たらない。

イライト（セリサイト）も工業・窯業資源として重要であるため、主要なセリサイト鉱床の存在・分布についてはほぼ明らかにされており、現時点で新期対象とすべき地点は見当たらない。

したがって、これまでの基本方針上での新期対象地域の選定は困難と考えられる。そこで、今年度調査を開始した新潟県西頸城郡のような、ベントナイト鉱床ではなくともモンモリロナイトを含むことが確実な地層に火成岩の貫入が確認されているような地域が、新たな調査対象地域として考えられる。このような地質条件を考えた場合、比較的堆積時代の新しい泥質岩に岩脈が貫入しているような地点が広く対象となり得るが、イライト化反応の出発物質としてのモンモリロナイトの成因や分布が明確であることが望ましい。このような条件を比較的良く満たすものとしては、埋没続成作用によってモンモリロナイトが層準に規制される分布を有しているような地層が考えられ、すでに埋没続成作用の存在が研究・確認されている新潟油田地域のようなフィールドが好適と予想される。

6. 文献調査による沸石化, Ca型化, Fe化のナチュラル・アナログ研究手法の検討

本検討のうち, モンモリロナイトの沸石化については, Pusch (1982) による示唆が大きな比重を占めている。

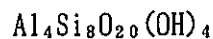
『次の2つ主な化学的なプロセスがNa型モンモリロナイトに対して影響を及ぼす。

①コンクリートによる高いpH, あるいはセメントモルタル中の間隙水中でのCa(OH)₂の溶解によって生ずる高いpH。

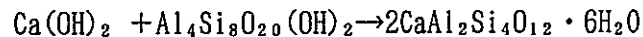
②イオン交換サイトや粒子間間隔への影響を支配する, セメントから粘土へと移行してきたCa。

②のプロセスは, 強い接着剤として働き, 集合体の中のスメクタイトのラメラ間の距離を小さくする。膨潤圧は比重 1.8としておよそ 0.8MPa に低下するだろう。格子の効果は透水性を2~5倍に増加させる。

①のプロセスには, Ca(OH)₂ の溶液から粘土への移動が含まれる。ことを単純にするために, モンモリロナイトを一般的なパイロフィライトの化学式で特徴づける。すなわち,



もし, セメントモルタルから過剰のCa(OH)₂ が付加されると, 次の反応が予想される。



この反応で生成されるのは沸石であるchabazite である。アルカリ溶液の供給量によっては他の沸石, scolecite, gismondite が生成する。ベントナイト中のNaの存在を考慮すると, analcime も反応生成物となる可能性がある。これらの鉱物群は, いずれもモンモリロナイトよりも小さい比重を有しており, この沸石化は膨張を伴うであろう。もし, 圧縮ベントナイトがコンクリートと接触した場合, 限られた間隙と強大な膨潤圧は沸石の結晶核の成長を妨げるであろう。しかし, SFRでの概念におけるより多孔質なモンモリロナイトでは沸石の成長は生じ得るであろう。しかしながら, この現象は, 既存の空隙を連続的に埋めていくので, 結果として透水性は減少するであろう。

OH⁻ のアタックは, Al(OH)₄, Mg(OH)₂, SiO(OH)₃を誘導することも注意すべきであろう。実際, 非晶質物質とゲルが反応場の中で形成され, 鉱物は一切認められない。これらのことは, Meter and Kalk(1964)やKenny et al. (1967)のような, 天然の堆積物中の粘土鉱物の表面の様子多くの調査結果から結論付けられたものなのである。』

また, より詳細な議論をJohnston and Miller (1985) は行っている。彼らは, 沸石が生ずるような化学的な条件として, 以下のような記述をしている。

『沸石は、 Ca^{2+} またはアルカリの活量の高いようなアルカリ性の条件下でのみ安定なものである。沸石は、弱アルカリ条件下でのガラスの変質物質を構成するものとしてよく認められるが、粘土鉱物の溶解を起こすほどpHが高い（ $\text{pH} > 9$ ）場合以外で、粘土鉱物の変質物質として認められることはほとんどない。沸石とガラスの間の累進的な関係を考えると、フィロ珪酸鉱物からの沸石の生成において必要となる大々的な結晶構造の再構築は、反応速度論的に不利であることを示している。』

したがって、処分環境を踏まえた考察としては、

『緩衝材の沸石化は、処分施設の地下水が強アルカリ条件下でのみ生じるであろう。現時点での指摘では、弱酸性環境が（処分施設付近で）普通であるだろうとしている。グラウト、シーリング等で大量にCaに富むコンクリートが使用されると、処分施設内のアルカリ性の地下水がCaOの溶解を引き起こし、pHを10~12に引き上げる。このような条件下では、周辺の地下水は高い Ca^{2+} と Na^+ の活量を持ち、沸石化を引き起こすだろう。

沸石化の反応速度はpHと温度に強く依存している。50°C~100°Cでの1次成長速度に基づけば、沸石の結晶化の活性化エネルギーは40~60kJ/molで、界面反応にコントロールされるプロセスと考えられる。結晶の核形成速度は、 $[\text{OH}^-]^2$ に正比例し、成長速度は $[\text{OH}^-]^{1.75}$ に比例する。アルカリ度の増加は、溶液中の化学種の濃度増加のためである。

確認された沸石化速度のpHに対する依存の程度は、天然で観察された速度と一致している。pH約9.5のアルカリ性の塩湖内で凝灰岩の沸石化は、 $10^3 \sim 10^4$ 年である。pHが8で10~30°Cの深海底での沸石化は、 $10^5 \sim 10^6$ 年と見積もられているが、深海堆積物での現世から中新世までの地質時代間の沸石量の増加は、平衡論的には 10^7 年を越える時間が必要であるとしている。Puschは、10~20°Cでのコンクリートと圧縮ベントナイトとの間の相互作用の効果を検討し、最大で1cm厚の粘土系の緩衝材が500~1000年の間に沸石化するだろうと結論している。

温度が上昇すると、沸石化速度も増加する。Arrheniusの式から、活性化エネルギーが50kJ/molとして、100°Cまで温度が上昇すると反応速度定数はおよそ 10^3 に増加する。このように、温度の上昇あるいは非常に高いpH条件では、沸石化速度は相対的に大きくなり少なくとも 10^3 年の間に無視できない程度に反応が進行する。

（生成される）可能性のある沸石の結晶構造と組成の範囲は広く、与えられた系において生成されるであろう沸石を予想するのは不可能である。ある陽イオンは特定の構造を取りやすいが、陽イオンの置換は広い範囲を持ち、Si/Al比とO/H₂O比は沸石の共生関係を

決定する、より重要な因子である。一般的には、沸石の Si/Al比は生成原料それを反映しているため、方沸石、灰十字沸石、ソーダ沸石のような低シリカタイプの沸石であれば、Si/Al比 1.5 (バイデライト) から 2.5 (モンモリロナイト) の範囲のス멕タイトから生成されるであろう。このように、沸石生成はシリカあるいはアルミナを大量の放出はしないであろう。

沸石は 2~6 の O/H₂O 比を有し、10~20%の水を含んでいて、ス멕タイトのそれとほぼ同じ量である。1.2nmのス멕タイトは1枚の層間水層を有し、1分子当たり (O₁₀)約4分子のH₂Oを有していることからO/H₂O比は2.5であり、常温・常圧下でのベントナイトの含水量は10~30%である。ス멕タイトと同様、300℃未満の低い温度条件下で沸石は可逆的な脱水をすることができ、沸石自身は膨潤しないのに、この2つの鉱物群は同程度の水の吸収能がある。50~100℃の低温条件では、エリオナイト、モルデン沸石、faujasite、菱沸石のような含水沸石がしやすい。

沸石類はス멕タイトよりもアルカリに富んでいる。Z/T比 (ZはNa⁺, K⁺, 1/2Ca²⁺等で、TはAl³⁺, Si⁴⁺)はス멕タイトでおおよそ0.05で、沸石では0.5~0.1の範囲にある。沸石のCECは高く、2~6mol(+)/kgもある。陽イオンは、アルミノシリケートの枠組みの中の溝の中に、弱く付着している。この溝の大きさは沸石のタイプによって変化し、構造内に取り込まれるイオンの大きさを限定している。このことによって、ある沸石ではイオンの篩分けができ、高度に選択的なイオン交換を行うことができる。たとえば、方沸石はNa⁺をRb⁺ (イオン半径0.149nm)と交換できるが、Cs⁺ (イオン半径0.165nm)とは交換できない。ある核種について強い選択性を持つような沸石が存在する一方で、適切な構造タイプをもつ沸石を生産できる保証はない。沸石類は低い水和エネルギーの陽イオンを好み、それらの多原子価イオンに対する選択性は低い。

沸石類は分子構造がひろがった形態を持つため、ス멕タイトよりも低い比重 (1.9~2.3)を有している。(モンモリロナイトの比重は約2.8と見積もられている)。ス멕タイトの沸石化は体積膨張を生じるであろう。空隙の体積は沸石の構造の50%を占め、そのためス멕タイトより空隙率が高く、沸石の形成は結果として透水性の増大を起こすであろう。沸石類は堅固なシリケートの結合構造を持っているため、まったく膨潤しない。沸石類は時には砂岩の膠結物質として認められ、砂粒大の粒子の膠結物質として機能することによって、緩衝材の塑性を小さくする可能性がある。』としている。

これらの記述を踏まえると、モンモリロナイトの沸石化に関するナチュラル・アナログ

研究の対象としては、モンモリロナイトを含む地層にpHが9を越えるような高pHの水が接しているような現象が生じている場所が好適と考えられる。天然環境においてpHが9を越えるような水としては、いわゆるアルカリ鉱泉が挙げられ、蛇紋岩等の超塩基性岩分布域の地下水も高pHである場合があることが知られている（例えばオマーンのオフィオライト地域）。表6-1に公表文献にもとづく、我が国におけるpH>10の水質を示す例を示す。これらの地域のうち、モンモリロナイトを含む地層と高アルカリの水とが接している露頭を調査してみることが1つのアプローチとなると考えられる。

次に、Na型モンモリロナイトのCa型化に関連した既往文献について紹介する。

宇野、武司（1981）は我が国の代表的なモンモリロナイト鉱床から採取した試料について、新鮮なモンモリロナイトとその風化物の各々について、交換性陽イオン、CEC、熱的性質についての違いを比較検討し、風化過程におけるモンモリロナイトの性質の変化について考察している。検討用の試料は、それぞれの鉱床の切羽において青色系統を呈するものを風化の程度が低いもの、黄色系統を呈するものを風化の程度が高いものとして区分して分析している。各地のモンモリロナイトの交換性陽イオンとCECをまとめて表6-2に示す。これらの産地のうち、風化の程度の低い試料において交換性陽イオンがNaが主体のもの、すなわち中条、三川、月布の3産地での結果が、Na型モンモリロナイトのCa型化に関連した検討対象となる。なお、表6-2では、Na、K、Mg、Ca、Al以外の交換性陽イオンがCECに占める割合を右端に記入しているが、ここではその主要なものをHと仮定した。

中条では、風化の程度が強くなるにしたがいNaが激減する。風化試料ではMgとHが顕著に増加しCaが増加し、最も強く風化を受けた試料では、Caが激減し、交換性陽イオン全体に占めるHの割合が1/2程度にまで増加している。

三川では、風化した試料では、Naが激減するものの、Caにはほとんど変化がなく、交換性陽イオン全体に占めるHの割合が1/2程度にまで増加している。

月布では、風化した試料では、NaとCaがほぼ半減し、交換性陽イオン全体に占めるHの割合が1/4程度にまで増加している。

以上の3産地の結果をみると、風化の過程でNa型モンモリロナイトに生じる交換性陽イオンの変化が、Ca型化ではなくH型化、すなわちいわゆる酸性白土化であると推察することができる。

表6-1 我が国におけるpHが10以上のアルカリ鉱泉の例

No.	都道府県名	採水位置	名称・利用者	地質・地層名	水源種	利用目的等	pH
1	北海道	釧路炭田庶路炭鉱	二卸No.4孔立入本坑	古第三紀層	坑道	坑道湧水	10.20
2	北海道	釧路炭田庶路炭鉱	二卸No.4孔付近	古第三紀層	坑道	坑道湧水	12.08
3	北海道	新得町	オソウシ微温泉	はんれい岩	湧泉	温泉, 鉱泉	10.10
4	青森	青函トンネル本州方先進導坑	2120~2130m	新第三紀層	坑道	坑道湧水	10.50
5	青森	青函トンネル本州方先進導坑	3300~3310m	新第三紀層	坑道	坑道湧水	10.40
6	青森	青函トンネル本州方先進導坑	4280~4290m	新第三紀層	坑道	坑道湧水	10.50
7	青森	青函トンネル本州方先進導坑	6650~6660m	新第三紀層	坑道	坑道湧水	10.50
8	福島	湯の本温泉	会田屋	花崗岩類	湧泉	温泉, 鉱泉	10.00
9	山形	—	湯丹沢温泉	沖積層	湧泉	温泉, 鉱泉	10.00
10	山形	河北町	富本温泉	不明	井戸	温泉, 鉱泉	10.10
11	千葉	鴨川市	—	不明	湧泉	用水	11.60
12	群馬	利根郡片品村戸倉温泉	水芭蕉の湯	不明	不明	温泉, 鉱泉	10.40
13	茨城	里見村上深萩	大菅鉱泉	花崗岩類	井戸	温泉, 鉱泉	10.00
14	神奈川	中川温泉	中川町宮温泉	石英閃緑岩	井戸	温泉, 鉱泉	10.00
15	神奈川	伊勢原市大山	—	不明	井戸	温泉, 鉱泉	10.50
16	神奈川	中川温泉	町宮源泉	石英閃緑岩	井戸	温泉, 鉱泉	10.00
17	愛知	佐屋観測所	愛知県	沖積層, 洪積層	井戸	観測井	11.50
18	愛知	甚目寺観測所	愛知県	沖積層, 洪積層	井戸	観測井	10.10
19	福井	敦賀市新保	敦賀トンネル温泉	不明	坑道	温泉, 鉱泉	10.08
20	熊本	豊肥地域平山温泉	—	不明	不明	温泉, 鉱泉	10.06

表6-2 各地のモンモリロナイトの交換性陽イオンとC.E.C (宇野, 武司, 1981)

Table . Exchange cations and C. E. C. of montmorillonites (meq/100g)

Specimen	Na	K	Mg	Ca	Al	Total C.E.C.	Δ	$\Delta/C.E.C.\%$	
Nakajo (a)	38.9	0.5	14.7	8.5	1.1	63.7	72.0	8.3	11.5
Nakajo (b)	7.8	4.0	43.6	16.8	1.0	73.2	100.1	26.9	26.9
Nakajo (c)	1.2	3.6	13.9	0.3	5.9	24.9	53.2	28.3	53.2
Odo (a)	0.1	1.8	44.1	35.9	—	81.9	82.7	0.8	1.0
Odo (b)	1.1	1.9	10.6	6.2	1.8	20.6	67.4	46.8	69.4
Mikawa (a)	44.4	1.9	7.3	5.9	—	59.5	64.9	5.4	8.3
Mikawa (b)	3.9	1.1	26.6	4.3	—	35.9	73.3	37.4	51.0
Tsukinuno (a)	46.1	0.1	6.9	22.3	—	75.4	75.0	-0.4	-0.5
Tsukinuno (b)	26.2	0.5	7.5	10.6	—	44.8	59.9	15.1	25.2
Kawasaki (a)	5.2	0.0	28.6	42.0	—	75.8	86.6	10.8	12.5
Kawasaki (b)	0.1	0.0	29.4	28.7	—	58.2	66.8	8.6	12.9
Dobuyama (a)	2.5	2.5	8.2	40.1	—	51.6	76.7	25.1	32.7
Dobuyama (b)	1.6	1.6	12.7	19.5	—	37.3	52.3	17.0	32.5
Asakura (a)	6.2	6.2	4.2	33.9	—	45.6	63.1	17.5	27.7
Asakura (b)	1.3	1.3	5.5	9.9	—	17.3	63.7	46.4	72.8
Cheto	2.3	1.2	4.8	101.5	—	109.8	112.5	2.7	2.4
Wyoming	48.0	1.6	13.3	19.8	0.4	83.1	84.0	0.9	1.1

$$\Delta = \text{C.E.C.} - (\text{Na} + \text{K} + \text{Mg} + \text{Ca} + \text{Al})$$

(a) ; blue clay, (b) ; yellow clay, (c) ; yellow clay (strongly weathered specimen)

7. 問題点と今後の課題

山形県鶴岡の酸性白土鉱床及び島根県大田のベントナイト鉱床ではモンモリロナイトを含む地層を火山岩岩脈が貫入している露頭を探して分析を実施したが、セリサイト化（イライト化）は認められなかった。そこで、これらの地域においては、貫入岩及び凝灰岩の年代測定を実施することで温度履歴を把握し、貫入岩の加熱があったにもかかわらずモンモリロナイトが変質しなかった事例として検討を試みた。しかし、両地域とも貫入面直近の試料と貫入面から十分に離れた試料との間で年代値に有意な差が認められなかった。したがって、これらの地域においては、ベントナイトの熱的安定性に関する情報を得ることはできないと判断した。

新潟県西頸城郡の泥質岩の調査では、モンモリロナイトを含んでいる泥質岩中で、貫入面からの距離が小さくなるに従い、より高温型の変質鉱物が出現することが確認できた。本地域は、モンモリロナイトのイライト化についての貴重なナチュラル・アナログ研究のフィールドと考えられ、今後は各変質帯の詳細な分布状況の把握と、貫入岩の冷却史の検討を進めていくことが望まれる。

モンモリロナイトの沸石化、Ca型化、Fe型化の文献調査によるナチュラル・アナログ研究手法の検討については、天然環境下でこれらの問題を明確に記載しているものが見いだせなかった。沸石化については、pHが9や10といった非常に高いpHを有した水の関与が重要と判断され、我が国での非常に高いpHを有する地下水（湧水等）の分布を調査し、そのような高pHの地下水分布域でのモンモリロナイト含有層の鉱物組成の検討という方向性が示された。

Ca型化、Fe型化のうち、Ca型化については我が国でのNa型モンモリロナイトの風化に伴う変化の調査例によれば、地表風化の過程においてはCa型化は顕著でなく、むしろH型化すなわち酸性白土化が進行することが示された。しかし、既往文献例に乏しく、この分野でのナチュラル・アナログ研究の方向を示す判断材料は不足していると判断される。

参考文献

- 小坂文予, 火山温泉地域における岩石の変質現象について: 地熱, No.17, p. 65~79 (1968)
- Nishimura, S. and Mogi, T., The Interpretation of Discordant Ages of Some Granitic Bodies. : Jour. Geotherm. Res. Soc. Japan, v. 8, No.2, p. 145~163 (1986)
- 北村 信, 新生代東北本州弧地質資料集 第3巻: ㈱宝文堂, (1986)
- 酒井禮男, 島根県大田市朝倉ベントナイト: 地学雑誌, 第79巻, 第6号, p. 49-54, (1970)
- 酒井禮男, 井上多津男, 飯塚信之, 島根県大田市北部の火砕岩の変質-とくにフェリエライトの産状について-: 島根県立工業技術センター研究報告, 第17号, p. 52-61, (1980)
- 井上多津男, 酒井禮男, 飯塚信之, 島根県大田市朝山付近の中新統の層序と変質: 島根県立工業技術センター研究報告, 第18号, p. 20-28, (1981)
- 沢田順弘, 板谷徹丸, 島根県東部における第三紀火山岩類のK-Ar年代: 日本地質学会第94年学術大会, p. 417, (1987)
- 金原啓司, 変質帯調査, 地熱開発総合ハンドブック, 初版, ㈱フジ・テクノシステム, 東京, p. 41~52, (1982)
- Pusch, R., Chemical Interaction of Clay Buffer Materials and Concrete. : SFR 82-01 p. 1~29, (1982)
- Johnston, R. M. and Miller, H. G., Hydrothermal Stability of Bentonite-based Buffer Materials. : AECL-8376, p. 1~67, (1985)
- Pusch, R., Stability of Deep-sited Smectite Minerals in Crystalline Rock-Chemical Aspects. : KBS TR 83-16, p. 1 ~68, (1983)
- Miller, M. et al., Natural Analogue Studies in the Geological Disposal of Radioactive Wastes. : Studies in Environmental Science 57, 395p., (1994)
- 酒井幸子, 群馬県下の温泉水中のホウ酸含量: 温泉科学, v. 31, p. 128~138, (1981)
- 鈴木勲子, アルカリ性鉱泉のフッ素: 地球化学, v. 13, p. 25~31, (1979)
- 立松英信, 青函トンネルにおける粘土鉱物と湧水水質に関する研究: 鉄道技術研究報告, No.165, p. 1~76, (1984)
- 阿部喜久男, 茂野 博, 日本のいくつかの地熱地域における熱水・温泉水のLi, Cs含有量とその地球化学的意味: 地質調査所月報, v. 37, No.12, p. 625~646, (1986)

大木靖衛ほか 9 名, 丹沢山地の温泉鉍泉 : 神奈川県温研報告, No.2, p.19~38, (1964)

齊藤 仁, 北海道の鉍泉資源 : 地下資源調査所報告, No.28, p.1~88, (1962)

宇野泰章, 武司秀夫, モンモロロナイト風化物の交換性陽イオンと高温生成相 : 鉍物学雑誌 v.15, p.156~169.