

火山ガラス及びベントナイトの長期変質挙動に関する ナチュラルアナログ研究 (I)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1989年1月

株式会社 ダイヤコンサルタント

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒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

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technical Evaluation and Patent Office, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo 107, Japan

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation)

火山ガラス及びベントナイトの長期変質挙動に関する
ナチュラルアナログ研究 (I)

高野 仁,* 桜本勇治**
岡崎和彦**

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、火山ガラスおよびベントナイトの変質性状に関する現地調査を実施した。また、火山ガラスの変質環境条件に関しては、特に水質環境の評価手法を検討した。

火山ガラスについては、伊豆大島火山起源の噴出時代の異なる2つのスコリアガラスを対象として、地形、地質、気候等の環境条件の調査を実施するとともに、X線回折分析、化学分析、偏光顕微鏡観察、水質分析等を行い変質性状を検討した。その結果、①スコリアガラスはいずれもSiO₂量51~52%で玄武岩質であり、年間平均気温約15°C、年間平均降水量約3000mmの、透水性の良い不飽和領域に置かれていること、②両スコリアともに褐色の10⁻³~10⁻²mmの風化変質層が認められ、古い年代のスコリアガラス(1239年前噴出)は新しい年代のスコリアガラス(877年前噴出)よりもNa, Mg, Ca等の相対的な減少が認められることが明かとなった。

ベントナイトについては、新潟県の村上セリサイト鉱床を例として、地表踏査、X線回折分析を行い、①モンモリロナイトとセリサイトを含む粘土鉱床が凝灰岩を母岩とし流紋岩との境界部に層状に分布していること、②粘土鉱床には変質鉱物として、パイロフィライト、セリサイト、カオリナイト、モンモリロンイトが含まれていることが明かとなった。

また、不飽和領域に置かれたスコリアガラスの間隙水の水質評価法を検討した。その結果①減圧法による間隙水の抽出が有効であること、②間隙水と浸透水の水質が良く一致していることが判明した。

Natural Analogue Studies of Long Term Alteration and
Behaviors of Volcanic Glasses and Bentonite (I)

Hitoshi Takano,* Yuji Sakuramoto*
Kzuhiko Okazaki**

Abstract

A field survey on the alteration characteristics of volcanic glass and bentonite is carried out as a part of the natural analogue study of geological disposal of high-level radioactive waste.

Analytical methods of water chemistry to clarify the alteration environments of volcanic glass are also examined.

Natural analogue of volcanic glass : Two scoria glass samples of different eruption ages collected from Izu-Ohsima volcano are used for the study. The investigation includes the surveys on geomorphological, geological and climatological environments. Alteration characteristics of the samples are examined using the X-ray diffraction analysis, chemical analysis, polarising microscope and chemical analysis of water. The results are

- ① Both samples contain 51 to 52 wt% SiO₂ and belong to basaltic glass. They have been situated under the well permeable and unsaturated zone with mean annual temperature of 15°C and 3000 mm/year precipitation.
- ② They have brown alteration layers of 10⁻³~10⁻² mm thick. The older scoria glass(erupted 1239 years ago) shows relative decrease of Na, Mg, Ca contents as compared with the younger one(erupted 877 years ago).

Natural analogue of bentonite: Murakami sericite clay deposit in Niigata Prefecture are surveyed and X-ray diffraction analysis of clay samples are done. The followings are clarified.

- ① The clay deposit containing montmorillonite and sericite are altered product of tuff. The deposit lies as a layer along the contact zone between tuff and rhyolite.
- ② Altered minerals found in the clay deposit are pyrophyllite, sericite, kaolinite and montmorillonite.

Analytical method of water chemistry: Water chemistry of pore water of the scoria under an unsaturated condition are evaluated with several methods. It is found that the reducing pressure method is effective for extraction of pore water and the composition of pore water is similar to that of permission water.

Work performed by Dia Consultants Co.Ltd. under contact with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.
PNC Liaison: Waste Isolation Office (Tomohisa Zaitzu)
* Dia Consultants Energy Department
** Dia Consultants Technical Division

成果概要目次

I. 予備調査	1
1. 調査目的	1
2. 試料	1
3. 実験方法	1
3.1 希釈法による間隙水の水質分析	1
3.2 減圧法による間隙水の水質分析	1
3.3 浸透水・湧水の水質分析	1
4. 結果および考察	2
4.1 希釈法による間隙水の水質	2
4.2 減圧法による間隙水の水質	2
4.3 浸透水および湧水の季節変動	2
4.4 埋没深度による水質環境の変化	2
5. 接触水の水質調査手法の検討	2
II. 大島における火山ガラスのナチュラルアナログ研究	4
1. 調査目的	4
2. 調査地の地形・気候・地質概要	4
2.1 地形	4
2.2 気候	4
2.3 地質	4
3. 現地調査	5
4. 試料分析	6
4.1 方法	5
4.2 結果および考察	6
III. ベントナイトのナチュラルアナログ研究	8
1. 調査目的	8
2. 調査地の概要	8
2.1 地形概要	8
2.2 地質概要	8

3. 露頭調査	8
3.1 層序および構造	8
3.2 粘土鉱床の分布と構造	10
4. 試 験	10
4.1 試料および方法	10
4.2 結 果	10
5. 考 察	11
5.1 セリサイト鉱床の成因	11
5.2 変質年代	11

I. 予備調査

1. 調査目的

火山ガラスのナチュラルアナログ研究において、その主要な変質環境要因は火山ガラスと接触している水（以下接触水と呼ぶ）の水質である。

本調査では、地下水位よりも上部にあるスコリア層の接触水の水質評価手法を検討すること、接触水の水質の季節変動を明らかにすること等を目的として、①間隙水の水質の分析手法の検討、②同一年代試料の埋没深度による接触水の水質の差異、③浸透水及び湧水の水質の季節変動の検討を行った。

2. 試料

調査は、1987年度に火山ガラスに関するナチュラルアナログ調査を実施した富士火山起源の宝永スコリア層の間隙水と浸透水、砂沢スコリア層の間隙水および富士黒土層上部（砂沢スコリア層の下位）からの湧水を対象として行った。

間隙水は、希釈法と減圧法により抽出して、それぞれの結果を比較した。なお、希釈法における最適浸漬条件の検討は砂沢スコリアを用い、埋没深度による水質の差異の検討は宝永スコリア層を用いて行なった。

3. 実験方法

3.1 希釈法による間隙水の水質分析

本実験では、スコリアの間隙水を蒸留水で希釈して抽出する際に、最適な浸漬時間と、希釈比を求めるため、浸漬時間を2～120分の間で段階的に変化させ、また、スコリア／蒸留水比が1/0.5、1/1、1/1.5、1/2のそれぞれの場合について主要成分の濃度変化を検討した。

3.2 減圧法による間隙水の水質分析

スコリア試料を遠心分離器にて10分間処理した後、これを吸引ろ過装置に入れ、吸引鐘内を減圧して、スコリアから間隙水を抽出した。抽出した間隙水について、主要成分の水質分析を行なった。

3.3 浸透水・湧水の水質分析

透水の採取は、スコリア層中に塩ビパイプから成る採水器を設置し、降水時にスコリア層中を浸透してくる浸透水を採取した。また、湧水については、湧水箇所塩ビパイプを挿入して採取した。

4. 結果および考察

4.1 希釈法による間隙水の水質

浸漬時間の増加とともに電気伝導度、イオン濃度およびSiO₂含有量は増加し、浸漬時間60分以上では概ね安定した値となった。また、スコリア／蒸留水比が小さい場合にNa⁺やHCO₃⁻の濃度がやや高くなる傾向が認められるが、スコリア／蒸留水比が1以上であれば各成分濃度は、ほぼ一定となることが明かとなった。したがって、希釈法で間隙水を抽出するには、浸漬時間60分でスコリア／蒸留水比を1にすることが適当と考えられる。

また、間隙水の水質はいずれも重炭酸ナトリウム型であった。

4.2 減圧法による間隙水の水質

減圧法により得られた宝永スコリアと砂沢スコリアの間隙水の水質はいずれも重炭酸カルシウム型であった。

4.3 浸透水および湧水の季節変動

宝永スコリア層の浸透水および富士黒土層上部からの湧水には、季節的な水質変化は認められない。

4.4 埋没深度による水質環境の変化

同一時期に堆積し同じ環境条件下にあるスコリア層でも地下水がスコリア層中を浸透していく間にスコリアとの反応が進んだり、地表近くで腐植酸の影響を被ることなどにより水質成分に変化が生じている可能性が考えられる。しかしながら、調査の結果では埋没深度による間隙水の水質組成に有意な差異は認められない。

5. 接触水の水質調査手法の検討

これまでにスコリアガラスの変質に関与している接触水の分析手法として、蒸留水による希釈法、減圧法および浸透水や湧水の直接採取を検討してきた。

その結果、希釈法における希釈条件としてスコリア試料1kgに対して蒸留水1ℓを加え1時間浸漬するのが最も適切であることが結論付けられた。

しかしながら、希釈法により求められた宝永スコリア層と砂沢スコリア層の間隙水の水質と減圧法で求めた両スコリア層の間隙水のそれとを比較すると、両者の水質組成には大きな差異が認められる。すなわち、前者は重炭酸ナトリウ

ム型であるのに対し、後者は重炭酸カルシウム型である。

一方、宝永スコリア層の浸透水は減圧法による同層の間隙水と同様の重炭酸カルシウム型であり、また、富士黒土層上部からの湧水の水質組成も、 Mg^{2+} と HCO_3^- を除けば減圧法による砂沢スコリア層の間隙水の水質組成と類似している。

1987年度の調査結果によれば宝永スコリアの化学成分も砂沢スコリアの化学成分も Na_2O あるいは K_2O よりも CaO に富んでおり、浸透水・湧水・減圧法によって得られた間隙水の水質組成と対応している。これらの事から、希釈法により求めた間隙水の水質が重炭酸ナトリウム型になる理由として、希釈過程で希釈液とスコリアガラス表面の粘土鉱物との間で陽イオン交換が起こっていると推定される。

以上の事から、希釈法では間隙水の本質的な水質組成を明らかにすることができないため、スコリア試料の間隙水の水質分析にあたっては、減圧法による抽出が適当であり、状況が許せば浸透水の採取を併用することが望ましいと結論づけられる。

II. 大島における火山ガラスのナチュラルアナログ研究

1. 調査目的

火山ガラスのナチュラルアナログ研究は、これまでに富士火山起源のスコリアガラスを対象として、風化変質性状や風化変質環境が調査されてきた。

本調査では、更に異なった年代あるいは異なった環境での火山ガラスの風化変質を把握するため、大島火山起源のスコリアガラスを対象として、現地調査と試料採取を行い、試料の室内分析・試験を実施した。

2. 調査地の地形・気候・地質概要

2.1 地 形

大島は、中央火口丘のひとつである標高758mの三原新山を最高峰とし、北北西-南南東方向約15km、東北東-西南西方向約9kmの卵形を成している。島の中央部には直径約4kmのカルデラが形成され、一般にカルデラの外側はなだらかに海に向かって傾斜し、急崖で海に接している。

島内には大きな河川がなく、通常は渇れ沢となっている。また、陸水のほとんどは海面下に湧出している。

2.2 気 候

島の北西部に位置する気象庁大島測候所における気温の平年値は14.9°C、また、降水量の平年値は2953.1mmである。島内では他の箇所でも断続的ではあるが気象観測が実施されており、これらの各観測点における気温と降水量を比較すると、島の北西部は南東部よりも気温が低く降水量が多い傾向が認められる。

一方、大島における古気候については、田沢(1980)が火山灰の分布や埋没腐植土層の厚さから、約10,000年前には現在のモンスーン的な気候になり、約5,000年前以後は、主風向が北東と南西であったと推定している。

2.3 地 質

大島には、新第三紀から第四紀更新世の火山岩類を基盤として、現在の大島火山を構成する泉津層群、古期大島層群、新期大島層群が累積している。

古期大島層群および新期大島層群は、一輪廻の火山活動を示す堆積サイクルをもとに細区分され、下位より、前者はO₉₅~O₁の95部層に、後者はS₂~S₁、N₄~N₁およびY₆~Y₁の12部層に細区分されている。これらの地層は、断片的に¹⁴C法や出土した遺物や古文書の記録からおおよその堆積年代が推定されている。

3. 現地調査

文献で記載された露頭を中心に現地調査を行い、火山ガラス (=スコリア) を多量に含むこと、堆積年代が特定できること、露頭が新鮮であること等に注目してナチュラルアナログ研究対象としての適否を検討した。

現地調査の結果、比較的露頭状況が良く調査対象として適当と判断された露頭の位置と地質柱状図を図-1に示す。

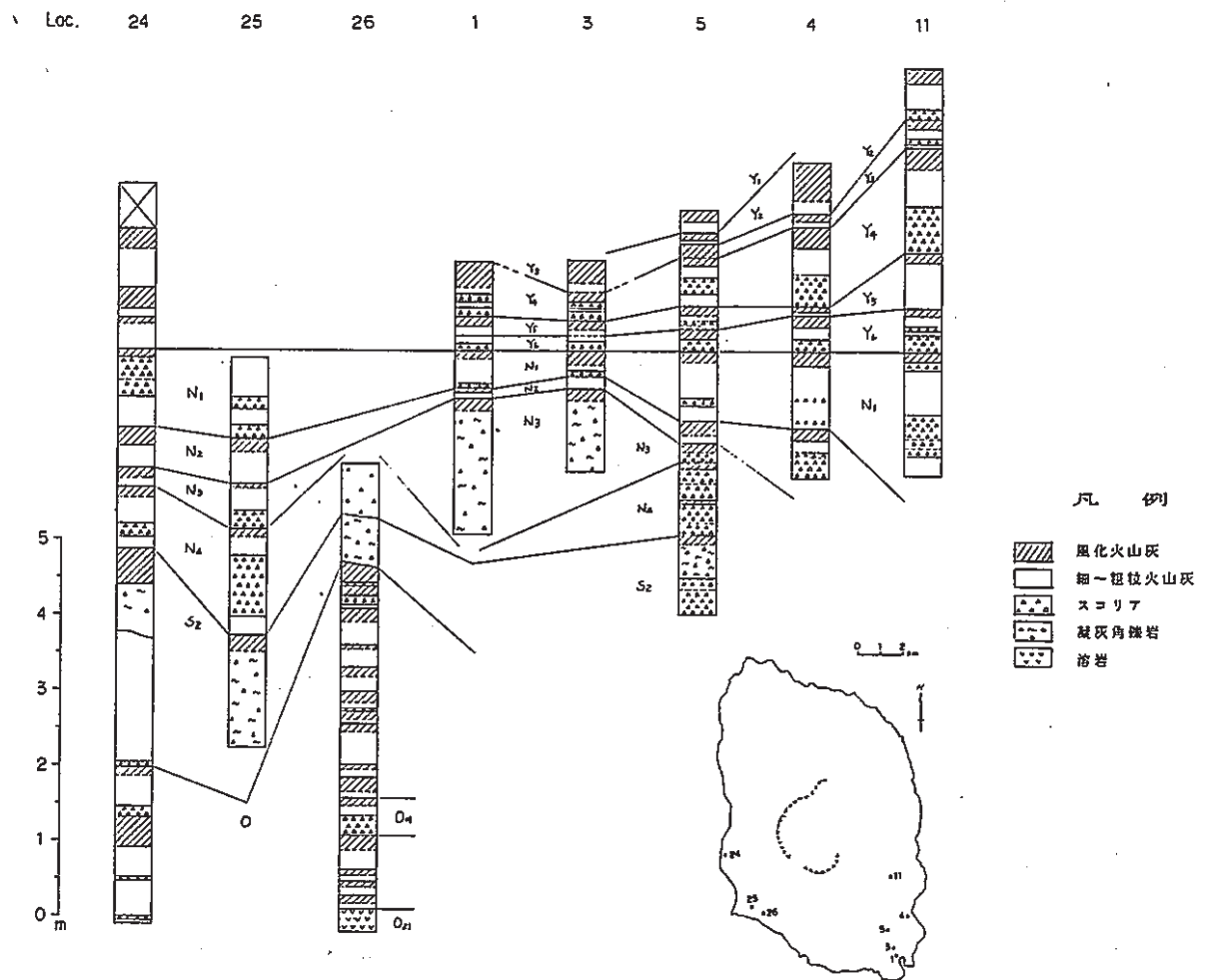


図-1 主要露頭における地質柱状図

これらの露頭のうち、気象観測点からの距離が近いことを考慮して、島の南西部にあたる野増南方0.5Kmに位置するLoc. 24地点を調査対象として選定した。

Loc. 24は、最近土取り場として掘削された露頭である。本露頭では、N₄部層とN₁部層にそれぞれ厚さ17cmと50cmの発泡のよいスコリア層（以下それぞれN₁スコリア、N₄スコリアと呼称する）が認められ、これらの上部には細粒火山灰を主体とするY₁からY₆部層が地表面とほぼ平行に堆積している。

4. 試料分析

4.1 方法

Loc. 24のN₁部層中のスコリア（以下N₁スコリアと呼称する）とN₄部層中のスコリア（以下N₄スコリアと呼称する）について、変質環境と変質状態を把握するため現場密度試験、含水比測定、粒度分析、化学分析、X線回折分析、偏光顕微鏡観察、間隙水の水質分析を行った。なお、化学分析とX線回折分析は全岩および水ひ試料について行い、スコリア間隙水は減圧法を用いて抽出した。

4.2 結果および考察

分析・試験結果の概要をまとめて表-1に示す。表-1の堆積年代のうち、N₁スコリアについては古文書の記録から、N₄スコリアについてはNakamura (1964)の平均噴火周期から求めたものである。

表-1 分析・試験結果一覧表

試料		N ₁ スコリア	N ₄ スコリア
分析・試験項目			
現場密度試験(g/cm ³)		0.88	0.80
含水比測定(%)		13.2	28.6
粒度分析(相対的な淘汰度)		細粒・淘汰やや不良	粗粒・淘汰良
化学分析(SiO ₂ 含有量)		51.66	51.42
X線回折分析(主要鉱物)		斜長石=輝石	斜長石>輝石
偏光顕微鏡観察		スコリア外周に褐色および淡褐色の風化変質層あり。	スコリア外周に褐色の風化変質層あり。
間隙水の水質分析	pH	6.0	6.0
	溶存成分量	5.903~5.650 (meq/l)	6.905~7.242 (meq/l)
	水質組成	Na ⁺ +K ⁺ >Ca ²⁺ >Mg ²⁺ Cl ⁻ >>SO ₄ ²⁻ >HCO ₃ ⁻	Na ⁺ +K ⁺ >Ca ²⁺ >Mg ²⁺ Cl ⁻ >>SO ₄ ²⁻ >HCO ₃ ⁻
堆積年代		877年前	1239年前

両スコリアともSiO₂含有量から玄武岩質であり、気象試料から平均温度14.9°C、降水量2953.1mm/yearの環境に置かれていると考えられる。X線回折分析においては水ひ試料からも変質生成鉱物は認められない。しかしながら、

偏光顕微鏡観察ではスコリアの外周に $10^{-3} \sim 10^{-2}$ mm褐色の風化変質層が認められ、変質鉱物化には至らないものの、風化変質が進行していることが推定される。

両スコリアの間隙水は同様の水質組成を示しているが、一般的な河川水と比較すると両スコリアの間隙水とも Na^+ と Cl^- が非常に多く、逆に HCO_3^- が少なくなっている。これは、試料採取地点が海に近く、風送塩や雨水中に溶けた NaCl が地層中に濃集しているためと考えられる。

Ⅲ. ベントナイトのナチュラルアナログ研究

1. 調査目的

本調査では、ベントナイトのナチュラルアナログ研究の第一歩として、新潟県の村上にあるセリサイト鉱床を例に、ベントナイトを構成しているモンモリロナイトの分布、成因、変質性状、セリサイトとの関係等を把握するための基礎資料を得ることを目的として野外調査および試料の分析を行なった。

2. 調査地の概要

2.1 地形概要

調査地は、新潟県村上市の北方16Kmに位置し、標高100～600mの深く開析された山地となっている。調査地のほぼ中央には大須戸川が山地を東西に分断して南流しており、それに沿って比較的幅の広い沖積平野が形成されている。

2.2 地質概要

長浜他(1976)によれば、調査地およびその周辺には先新第三紀の花崗岩類を基盤とし、新第三紀の火山岩、火山砕屑岩および堆積岩が分布している。新第三紀の火山岩類および堆積岩類は下位より、蒲萄層、巻の沢層、天井山層、朝日層、大須戸頁岩層、明神岩安山岩層の6層に区分され、朝日層は更に、下位より蒲萄泥岩部層、長坂峠流紋岩部層、荒沢砂岩礫岩部層の3層に細区分されている。調査地付近には、このうち朝日層に属する長坂峠流紋岩部層が分布しており、本層にはセリサイト鉱床が胚胎している。

3. 露頭調査

セリサイト鉱山を中心として、半径約1.5Kmの範囲を縮尺1/5,000の地形図を用いて露頭調査を行ない、層序の概要と粘土変質帯の分布と構造を調査した。

3.1 層序および構造

露頭調査の結果得られた概略地質図を図-1に示す。

調査地には、主として流紋岩および同質の火砕岩類から成る長坂峠流紋岩層相当層が分布している。長坂峠流紋岩層は、下位より、白色流紋岩層、凝灰岩層、黒雲母流紋岩層の3層に区分される。また、これらを買いて真珠岩の小岩体が分布している。

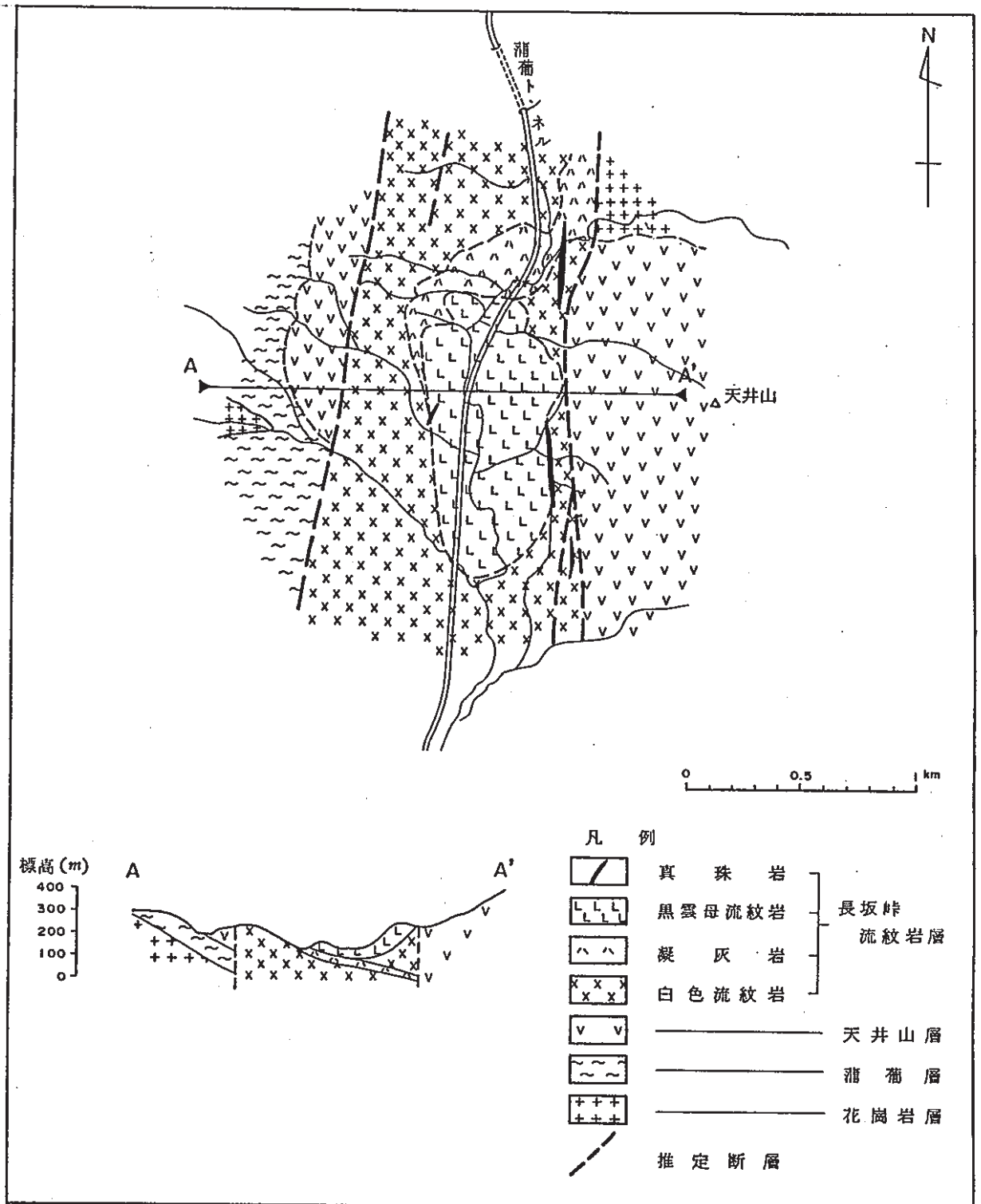


図-1 概略地質図

長坂峠流紋岩層は、その東西両縁を南北性の断層で境されていると推定され、安山岩類からなる天井山層と接している。長坂峠流紋岩層中の白色流紋岩層および凝灰岩層は、全体として南東～東に20～40°で傾斜した同斜構造を成していると推定される。

3.2 粘土鉱床の分布と構造

セリサイト鉱山付近のセリサイト粘土は黒雲母流紋岩層の下位に同流紋岩にほぼ平行して分布するとされている。一方、地表露頭においても、黒雲母流紋岩に近い凝灰岩層の上部層準に粘土化帯が認められる。したがって、セリサイトを胚胎する粘土鉱床は黒雲母流紋岩を熱源あるいは、キャップロックとして凝灰岩層の上部層準が変質して形成されたものと推定される。粘土層の厚さは少なくとも20~30mと推定される。

4. 試験

4.1 試料および方法

セリサイト鉱山の坑内および周辺露頭から粘土試料と岩石試料を採取した。粘土試料はすべてX線回折分析により構成鉱物を同定し、セリサイトが含まれているものについてはその結晶化度を求めるとともにポリタイプの同定を行なった。また、地表から採取した岩石試料は岩石薄片を作製し偏光顕微鏡により観察を行なった。

X線回折分析では、全岩無定方位試料、水ひ産物無定方位試料を作製し、必要に応じて処理試料を作製して鉱物同定を実施した。

4.2 結果

X線回折分析の結果、坑内では概略の傾向として坑道の南西から北東に向かってパイロフィライト帯-セリサイト帯-セリサイト・カオリナイト・モンモリロナイト帯の3つの変質鉱物帯に分帯され、これは黒雲母流紋岩体からの距離に概ね一致している。一方、坑道外の粘土試料はモンモリロナイトが主体となっており、セリサイトがわずかに含まれているのみである。これらのことから、黒雲母流紋岩体との接触面から遠ざかるにつれて主要変質鉱物がパイロフィライト→セリサイト→カオリナイト→モンモリロナイトという変化系列を示すと考えられる。

同定できたセリサイトのポリタイプは、すべて1Mおよび1Mdであり2Mは認められない。また、結晶化度は0.4~0.9までと多様であるが、地質や上記の鉱物分帯とは特に関係は認められない。

偏光顕微鏡観察によれば、粘土試料はいずれも微細な石英と変質鉱物がモザイク状を成しており、まれに石英の残晶が認められるものの全体としては非常に均質となっている。一方、流紋岩類は概ね新鮮で、二次変質は微弱であるが、凝灰岩は、基質中に微細な針状の変質鉱物が網状に生成している。

5. 考 察

5.1 セリサイト鉱床の成因

黒雲母流紋岩周辺では、その接触面から遠ざかるにつれて、主要変質鉱物はパイロフィライト→セリサイト→カオリナイト→モンモリロナイトという変化系列を示すと考えられる。これらの変質鉱物の生成条件から判断すると、この変化系列は200°C以上の酸性熱水の一連の変質作用によって形成されたと考えられる。すなわち、黒雲母流紋岩の活動に伴ってもたらされた酸性の熱水が凝灰岩に浸透し反応していく過程で、温度が低下していくにつれてパイロフィライト→セリサイト→カオリナイトが生成し、さらにpHが酸性から中性～アルカリ性に変化することによってモンモリロナイトが生成したと考えられる。また、この変化系列の形成機構は、始めに凝灰岩が続成変質作用によりモンモリロナイト化し、その後黒雲母流紋岩の活動に伴ってもたらされた酸性熱水の熱水変質作用によりパイロフィライト→セリサイト→カオリナイトが生成したとも考えることができる。

このようにモンモリロナイトの生成については2通りの考え方があるが、生成条件の異なるモンモリロナイトとカオリナイトが共存している試料が多いことから、後者の可能性が高いものと考えられる。

5.2 変質年代

動力炉核燃料開発事業団の実施したK-Ar, Rb-Sr, フィッシュントラックの各年代測定結果によると、黒雲母流紋岩の年代値は7.1から4.7Maであり、一方、粘土試料の年代値は7.3から6.4Maである。

黒雲母流紋岩の年代値の幅は鉱物の閉鎖温度を考慮すると、岩体の冷却期間を示しているものと考えられ、粘土試料の年代値もこの期間に概ね含まれている。したがって、前節にて述べた酸性の熱水による変質はこの時期に行なわれたものと考えられる。

一方、村松(1987)によれば、変質母岩である凝灰岩層の下位の白色流紋岩のフィッシュントラック年代は14.1Maであり、凝灰岩層がこれとほぼ同時期のものであれば、黒雲母流紋岩が活動した7.1Maまでに続成変質を被ることは十分可能であり、モンモリロナイトが他の変質鉱物と同時期の生成でない可能性を示唆している。