

堆積岩での自生鉱物形成作用 —天然での処分関連鉱物の生成とその意味するもの—

奥山(楠瀬)康子¹⁾

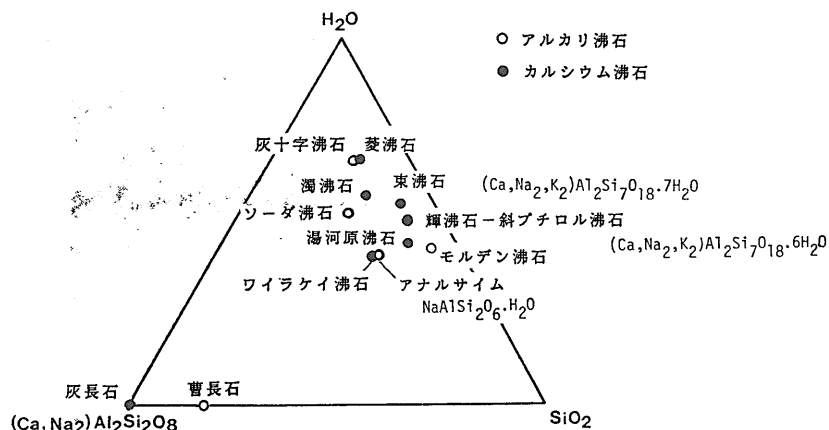
1. はじめに

岩盤内につくられたいわゆる「地下空間」は、廃棄物や騒音源となる施設を人類の生活圏から隔離する目的から、近年注目を集めております(たとえば小出, 1984). 高レベル放射性廃棄物を岩盤深部に建設した施設に隔離する地層処分は、こうした地下空間利用についての一つの考え方といえます. 地下空間による物質の隔離を考えるにあたっては、岩盤を満した地下水や地層水によって対象となる物質が拡散する可能性を検討する必要があります. 降水量の多い日本列島では、地下の岩盤は常に地下水などの水に飽和した状態にあるといえます. 物質の深層隔離に当たっては、通常は何らかの堅固な隔離施設を建設することが考えられますが、地下水飽和の環境下での物質隔離の究極の条件として、岩盤自身が対象となる物質を拡散させやすいかそれとも積極的にそれを保持するかを検討することは、深層隔離の期間が長いほど重要な意味を持ってくると考えられます.

岩盤を満した地下水や地層水による物質の拡散を考える上で、岩盤を構成する岩石の構成鉱物とこれらの水との間の物質交換は、重要なファクターと言えます. 岩

石を構成する各種の鉱物のうち沸石類(第1図)及び、粘土鉱物(第1表)は、しばしば著しい陽イオン交換性を示すとともに、水溶液との間のCs・Srの分配係数が大きい(結晶構造に取り込みやすい)ことが知られています.

現在の土木工学の対象となっている日本列島の比較的浅い部分の60%以上は、6500万年より若い地層によって占められていますが(地質調査所, 1982), こうした地層を構成する固結度の低い比較的柔らかい堆積岩類では、沸石類や粘土鉱物は主要な構成鉱物となっています. 各種の粘土鉱物は、泥岩では主成分鉱物として、また砂岩では砂の粒子を膠結するセメント鉱物や粘土質基質として、広く含まれています. 新第三紀層に代表される若い地層では、砂岩・泥岩といった碎屑岩に伴って火山灰を主とする火砕岩が大量に分布することが知られていますが、その中の火山ガラスは、地層が地下深く埋没するうちに、しばしば各種の沸石鉱物の集合体に変化しています. 火山ガラスの沸石化や膠結物質としての粘土鉱物の生成は、ルーズな堆積物が堅固な堆積岩に変化する過程である「続成作用」のうち、最も重要な過程の一つであり、自生鉱物形成作用(自生作用)と呼ばれています.



第1図 代表的な沸石鉱物.

1) 地質調査所 地質標本館

第1表 代表的な粘土鉱物（須藤ほか，1980による）

I 結晶質粘土鉱物			
A 層状構造			
群	亜群	鉱物種	構造式
2:1 型			
パイロフィライト -滑石	Di	パイロフィライト	$Al_2Si_4O_{10}(OH)_2$
	Tri	滑石	$Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2$
スメクタイト	Di	モンモリロナイト バイデライト	$E_{1/3}(Al_{5/2}Mg_{1/3})Si_4O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O$ $E_{1/3}Al_2(Si_{11/3}Al_{1/3})O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O$
	Tri	サポナイト	$E_{1/3}(Mg, Fe^{2+})_3(Si_{11/3}Al_{1/3})O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O$
パーミキュライト	Tri	パーミキュライト	$E_{0.06}(Mg, Fe, Al)_3(Si, Al)_4O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O$
雲母	Di	白雲母	$KAl_2(Si_3Al)O_{10}(OH)_2$
		Al-雲母粘土鉱物（イライト）	$K_{<1}(Al, Mg)_2(Si, Al)_4O_{10}(OH)_2 \cdot nH_2O$
		セラドナイト	$KMgFe^{3+}Si_4O_{10}(OH)_2$
		海緑石	$K(Fe^{3+}, Al)(Mg, Fe^{2+})(Si, Al)_4O_{10}(OH)_2$
緑泥石	Tri	クリノクロアーシャモサイト	$(Mg, Fe^{2+})_5Al_2Si_3O_{10}(OH)_8$
	Di-Tri	須藤石	$(Mg_{3-x}Al_{2+x})(Si_{4-x}Al_x)O_{10}(OH)_8$
1:1 型			
カオリナイト -蛇紋石	Di	カオリナイト、ディッカイト、ナクライト	$Al_2Si_2O_5(OH)_4$
	Tri	アンチゴライト、リザルダイト、クリソタイル	$Mg_3Si_2O_5(OH)_4$
B 層-リボン構造			
		セピオライト	$Mg_6Si_{12}O_{30}(OH)_4(OH_2)_4 \cdot 8H_2O$
II 非晶質粘土鉱物			
		アロフェン	$1-2SiO_2 \cdot Al_2O_3 \cdot nH_2O$
		ペンウイサイト	$xSiO_2 \cdot MnO \cdot nH_2O$

Di/Tri : ディオクタヘドラル/トリオクタヘドラル

E: 交換性陽イオン（1価陽イオンで代表）

自生作用は基本的には、地層を満たす間隙水と堆積物との間の化学成分の交換によって進行します。この変化は、若い地層からなる岩盤の均質媒体としての透水性にも、必然的に大きな影響を与えることとなります。したがって堆積岩における自生作用の研究は、10⁵年に及ぶとされる地層処分での処分関連素材の超長期安定性を占うとともに、天然の岩盤のバリアーとしての性質を理解するための第一歩ということができましよう。本文では砕屑岩での各種の自生鉱物の生成と、火山ガラスに富む

火砕岩の沸石岩化を、地層間隙水との化学的相互作用の観点から研究した結果をご紹介します。

2. 砕屑岩での自生作用とその水-岩石相互作用

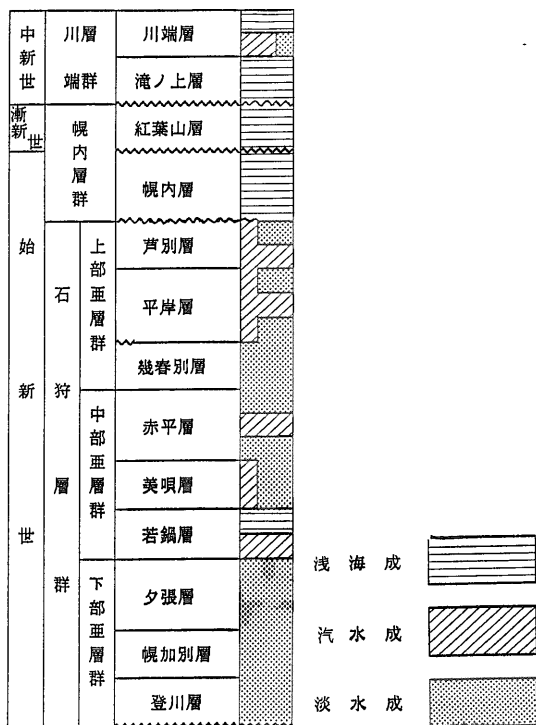
2.1 泥岩の自生鉱物

北海道石狩炭田地域には、石狩層群と呼ばれる古第三紀（約5500-3800万年前）の厚い泥岩・砂岩の互層が、石炭を挟んで分布しています。石狩層群は全体で2400mを越

える層厚を持ち、その中・下部は大部分が淡水の環境下で堆積したものと考えられます(第2図)。一般に若い地層を構成する碎屑岩のなかの粘土鉱物のかなりの部分は、地表での風化作用によって生成したものが碎屑粒子として運搬され、堆積岩層に入った、外来性のものであることが知られています(水谷ほか, 1987)。しかし石狩層群中・下部の砂岩には、碎屑粒子として供給された粘土質基質が少ないアレナイト質砂岩がしばしば認められます(たとえば松本, 1978)。このことはこれらの砂岩類が、続成作用の過程でできる粘土鉱物をはじめとする自生鉱物の性質を調べるのに適していることを意味します。そこで、三井石炭鉱業株式会社声別鉱業所からいただいた、石狩炭田地域北部声別市周辺の3本の試錐試料と鉱業所周辺の露頭試料について、自生鉱物形成作用を調べてみました。

泥岩については、偏光顕微鏡及び走査電子顕微鏡を用いて粘土鉱物の分布状況を調べ、主としてX線回折によって粘土鉱物種と相対的な量比を決定しました。また、エネルギー分散型 EPMA を用いて、予備的分析を行いました(詳しくは、奥山(楠瀬), 投稿中による)。第3図に例を示すように、検討した泥岩試料には膨潤層を含むイライト、緑泥岩、カオリナイトが広範に分布し、海成の若鍋層を中心に海緑石も認められます。走査電子顕微鏡で観察すると、泥岩の細粒基質ではこうした粘土鉱物の葉片状結晶が密に重なった構造が認められ、これらが続成作用の過程で間隙水を媒介とした著しい粒成長を行ったことがうかがえます。こうした粘土鉱物は、より粗粒の炭酸塩鉱物—方解石とアンケライト(第4図)—及び、石英と共存しています。イライトと海緑石は第1表に示す雲母族粘土鉱物に属します。その化学組成を調べてみると、イライトではマスコバイト、海緑石ではセラドナイトに代表される理想組成より系統的にアルカリ・イオンに乏しく、スメクタイト質の膨潤層の存在と調和的な結果が得られます(詳しくは、奥山(楠瀬)(1985)、及び奥山(楠瀬)(投稿中)による)。

石狩層群中・下部の泥岩での鉱物分布の特徴としては、アンケライトや海緑石といった鉄やマグネシウムを主成分とする鉱物と、カオリナイトが共存しないことがあげられます。前二者の鉱物とカオリナイトの組合せは、続成作用が進行した泥岩に広く認められるイライト+緑泥石あるいは緑泥石+方解石の組合せと、化学的に等価です。石狩層群は、続成作用のより遅れた上位の地層です。カオリナイトと菱鉄鉱の反応がおこり、berthierine が生成していることが報告されています(Iijima and Matsumoto, 1982)。今回検討した泥岩がこうした反応がおこるよりも層序的に下位のより深い位置のも



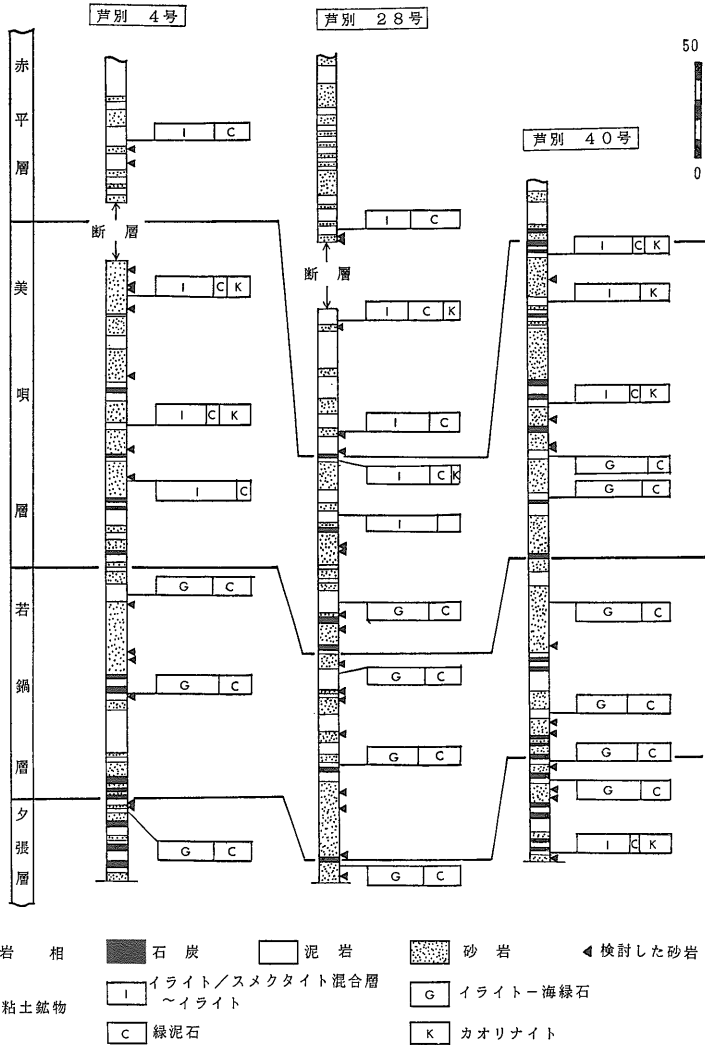
第2図 石狩層群の層序と堆積環境。松井(1990)を簡略化。

のであることと、カオリナイトと Fe-Mg 炭酸塩鉱物が共存しないという観察結果は、調和的なものと考えられます。

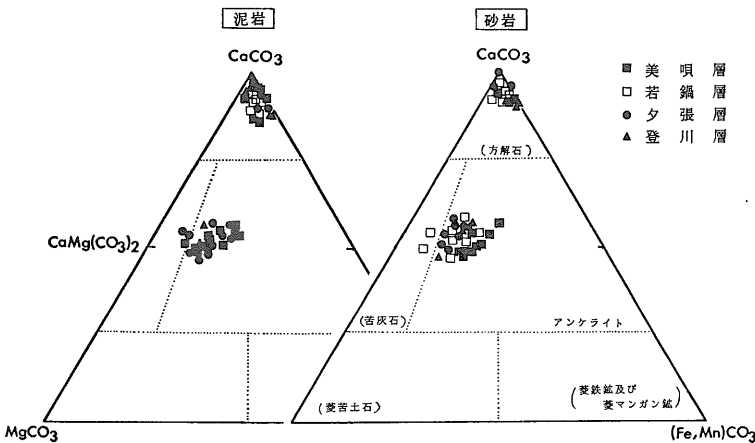
第3図に例を示すように、検討した泥岩には膨潤層を含むイライトと緑泥岩の組合せが広く産出し、それらはしばしば方解石と共存しています。イライト化はまだ完全でなく、スメクタイト質の膨潤層を 20-45% 含んでいます。しかしこの値は、ある程度深い埋没を経験した堆積岩中のイライトには普通に認められる範囲にあります(たとえば Inoue and Utada, 1983)。これらのことから泥岩の粘土鉱物組成は、膨潤層を含むイライトのような最終平衡に達しない中間相を含むものの(Whitney and Northrop, 1988)、外来性の碎屑粒子の偶然的な分布状況を現すのではなく、ある種の反応を経験した安定な状態での粘土鉱物組成をあらわすものと考えられるわけです。

2.2 砂岩中の自生鉱物の規則的分布

さてこうした泥岩と互層する砂岩では、どのようなことが起きているのでしょうか？ 全部で69個の砂岩試料について、セメント鉱物の種類・分布・化学組成を調べてみました。この内の約半数が、粘土質基質に乏しいアレナイト質の砂岩です。これら砂岩では、碎屑性の粒子の間の、現在は炭酸塩鉱物などセメント鉱物により占



第3図 泥岩での粘土鉱物組成。(< 5 μm フラクションを対象に、Mitsui (1975) の標準鉱物法によって決定)。黒色三角印は、砂岩試料の採取位置。



められている部分の体積が43-22%に達します。この値は、自生鉱物の形成が始まる時点での砂岩の孔隙率と考えてさしつかえありません。

セメント鉱物の90%以上は、アンケライトと方解石など炭酸塩鉱物が占め、砂岩はこれによっておおたは固結されているといえます。ドロマイトも認められますが、第4図に示すようにその量はわずかです。松本(1978)が指摘したように、海成ないし汽水成の若鍋層と淡水成のほかの地層との間では、方解石とアンケライトの分布は系統的に異なっています。若鍋層と上位の赤平層及び下位の夕張層との境界付近では、しばしば二種類の炭酸塩鉱物が混在しています。

炭酸塩鉱物が埋め残した残りの部分は、体積にして10%以下ですが、そこにはイライト、カリ長石、カオリナイトという $K_2O-Al_2O_3$ 系珪酸塩鉱物及び、石英が晶出しています。これらの鉱物は、それぞれ特徴的な自形の結晶をなして炭酸塩鉱物の埋め残した空隙に生成しており、間隙水と平衡を保ちつつ晶出したことがうかがえます(第5図)。さらにこれら鉱物の晶出には、一定の系統的な順序があることがわかりました。セメント炭酸塩鉱物の晶出は、碎屑性のカリ長石の再成長に引き続いて始まっています。二種類の炭酸塩鉱物が共存する場合、方解石は常に自形のアンケライトのうえにオーバーグロースしており、その逆の関係は認められません。ごく細粒のカリ長石などの $K_2O-Al_2O_3$ 系珪酸塩鉱物は、石英とともに炭酸塩鉱物の自形結晶を覆ったり、残りの空隙を埋めて産出します。その組み合わせや包有関係から、晶出は常に石英を伴いつつ、カリ長石→イライト→カオリナイトの順で起こっていったこ

第4図 自生炭酸塩鉱物の化学組成。

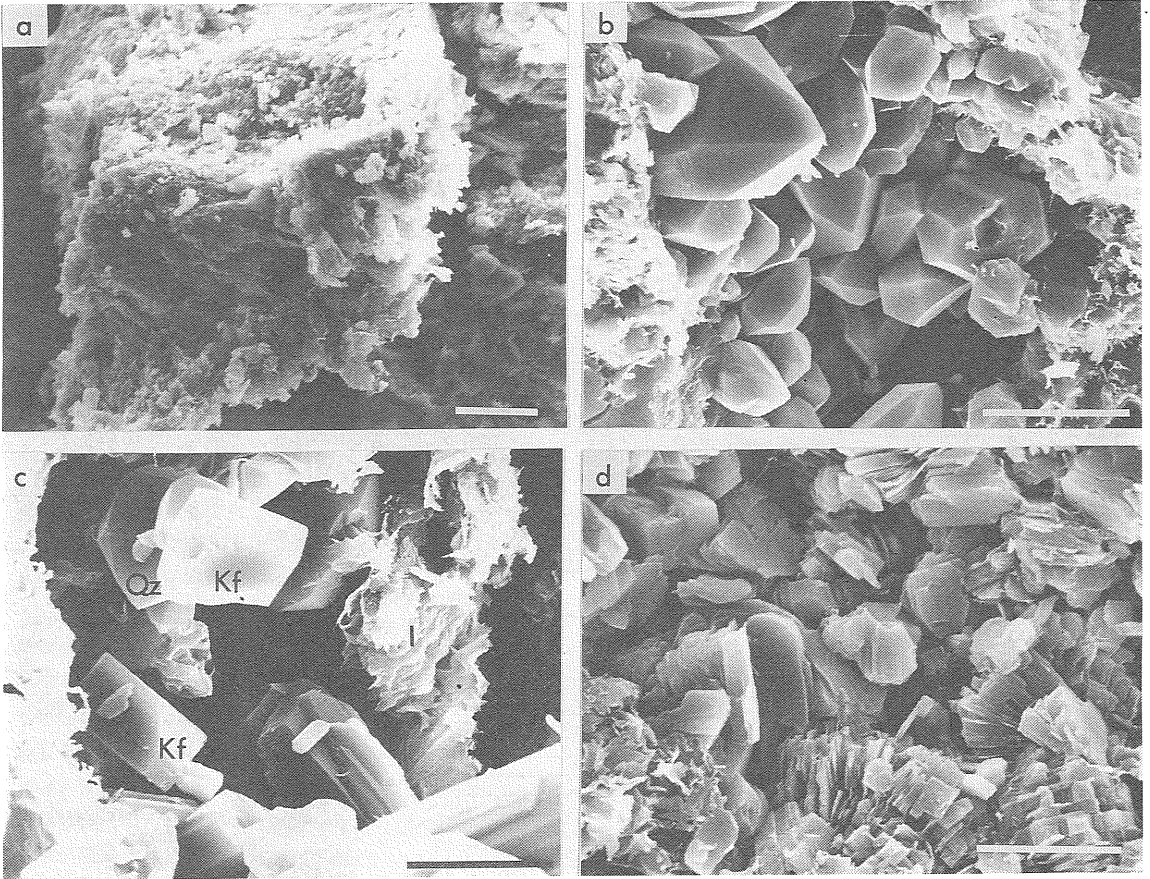


図5 石狩層群砂岩中における自生珪酸塩鉱物の走査電子顕微鏡写真。(スケール・バー=10μm)
 a: 空隙の壁を構成する炭酸塩鉱物(おそらく方解石)の自形結晶。表面は葉片状のイライトに覆われている。
 b: 炭酸塩鉱物の上に群生する自生石英。
 c: 石英(Qz), カリ長石(Kf), イライト(I)の共生する空隙。
 d: 空隙を密に埋めるカオリナイト結晶。

砕屑性斜長石の曹長石化

砕屑性カリ長石の再成長

苦灰石セメント

方解石セメント

自生カリ長石

イライト

石英

カオリナイト

第6図 石狩層群中・下部の砂岩における自生鉱物の晶出順序。

とがわかりました。この順序は、K/Al 比の減少する順序であることに御注目ください。こうした晶出順序をまとめると、第6図のようになります。この順序は、汽水成層・海成層でも淡水成層でも基本的に変りません。

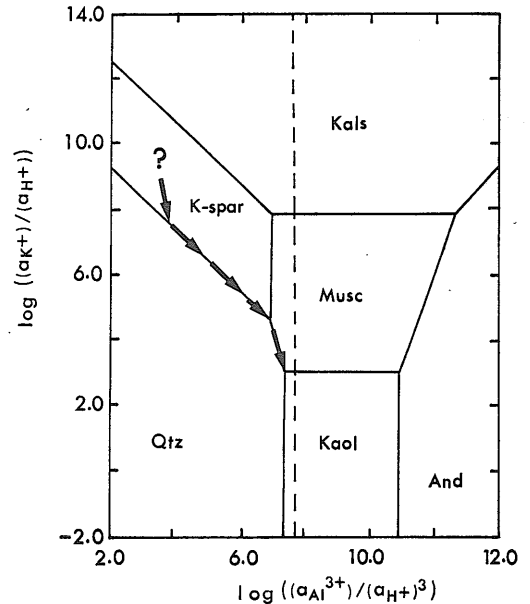
2.3 砂泥互層での自生作用

砕屑岩での自生鉱物形成作用は、堆積岩パイルの埋没史を探り、また、石油・天然ガスについての貯留層としての堆積岩層の性質を明らかにする目的で広く研究されています。こうした研究から、自生鉱物形成作用には、堆積岩パイルを満たした水質の地層間隙流体を媒介とした物質交換が重要なことがわかってきました。こうした地層間隙水をはじめとする各種の水質流体(水溶液、蒸気、熱水)と岩石・鉱物間の反応関係や平衡関係は、通

常、「活動度図」を用いて議論されます。活動度図とは、数種類の溶存成分を含む水質流体が、ある温度・圧力のもとでどのような種類の鉱物と共存可能かを、溶存成分の濃度比の関数として図的に表現したものです。ここでは、石狩層群中・下部の砂岩に記録された鉱物晶出順序を、Bowers *et al.* (1984) のデータにもとづいて計算した、100°C、0.5kbar 下での $K_2O-Al_2O_3-SiO_2-HCl-H_2O$ 系の活動度図のうえでたどってみましょう。温度・圧力条件は、観察された炭酸塩鉱物の種類から、松本 (1978) の炭酸塩鉱物形成の stage II から stage III にかけての深度に相当する条件を仮定しました。第7図に矢印で示すように、観察された $K_2O-Al_2O_3$ 系珪酸塩鉱物の晶出順序は、間隙水中の K^+ が順次鉱物（イライト、カリ長石）に固定され、間隙水から除去されていくことを示しています。

こうした変化経路は、カリ長石領域の組成の間隙水とカオリナイト領域の間隙水が少しずつ混合することによって達成されます。しかしこの場合、二つの組成の間隙水がどこに貯留されていたのかを説明する必要があります。埋没が進んだ堆積岩層中で多量の、かなり組成の違う間隙水を貯蔵する空間を考えることは、不可能ではありませんがなかなかむずかしい問題です。もう一つのモデルは、カリ長石が安定な程度にややアルカリに富む間隙水とカオリナイトが相互に反応しつつ、水溶液相は組成を変化させ、鉱物相の側は不調和溶解 (incongruent dissolution) によって中間相を作って、最終平衡を達するというモデルです。ここで注目されるのは、砂岩と互層する泥岩の中に比較的広くカオリナイトが分布していることです。このことを考慮すると、砂岩の自生作用に関与したカオリナイトの不調和溶解反応は、互層をなす泥岩中でおこっている可能性がでてきます。

炭酸塩鉱物が晶出した後の空隙を満たす珪酸塩鉱物は、量的には決して大きくありません。しかしこれら鉱物を晶出したのは、希薄な水溶液である堆積岩層の間隙水であり、珪酸塩の溶解度を考慮すると残された鉱物の $10^6 \sim 10^8$ 倍、岩石体積の $10^4 \sim 10^8$ 倍程度の間隙水の循環が必要となります。炭酸塩鉱物晶出後の砂岩について観察された孔隙率が平均的には数%程度であることを考慮すると、この値は、圧密が進み平均的な孔隙率が低くなった堆積岩パイルについて一般的に想定されている間隙水の移動量 (たとえば真柄, 1981) に比べ、けた違いに大きな値といわねばなりません。さらに、砂岩中の珪酸塩自生鉱物のソースは、互層をなす泥岩の中のカオリナイトと間隙水との反応に求められる可能性があります。つまり、砂岩での自生鉱物形成作用は砂岩のみを見ても理解できず、隣接する岩層の中での間隙水と鉱物との反応



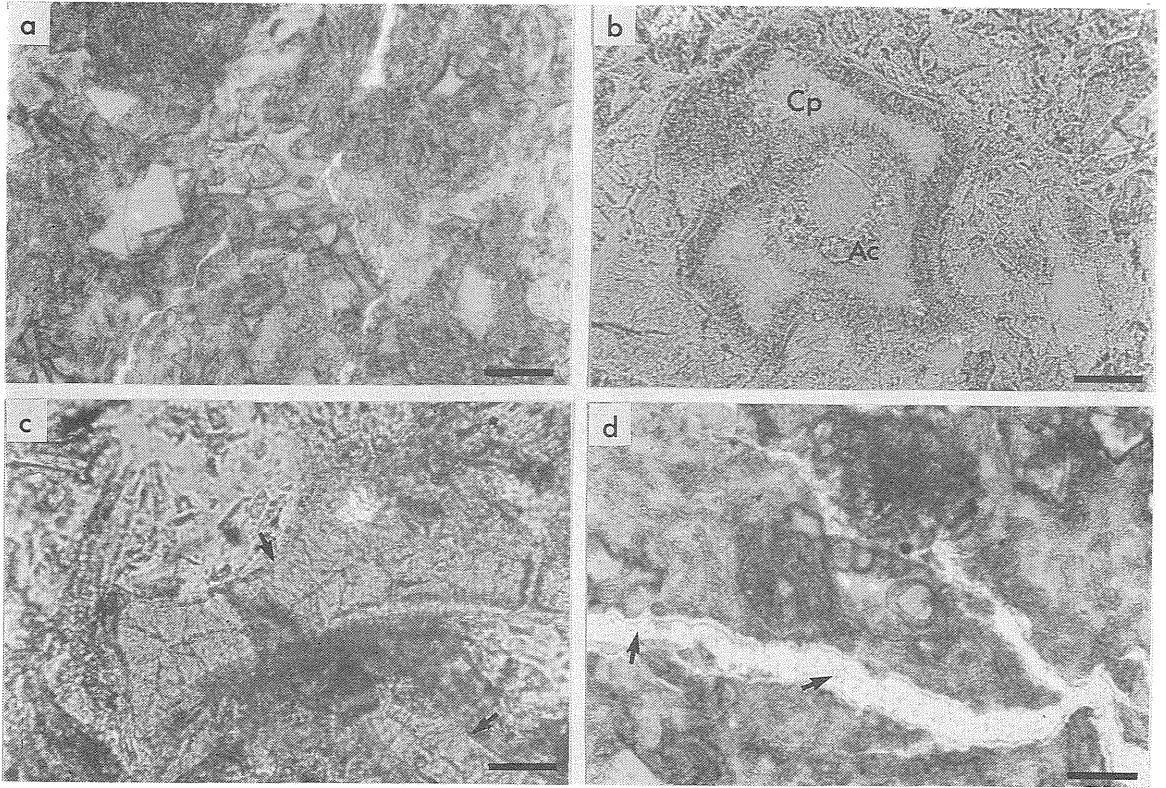
第7図 炭酸塩鉱物晶出後の砂岩間隙水の組成変化 (矢印)。

をも考慮する必要があるのかもしれない。

3. ガラス質凝灰岩の沸石岩化と沸石固溶体組成

では、もう一方のガラス質凝灰岩の沸石岩化では、どのような現象が観察されるのでしょうか？ 岩手県北上山地の門含炭地の古第三紀の流紋岩質凝灰岩を対象に、これを見ていきたいと思います。

門含炭地といわれる地域は、岩手県北部の岩泉町の西にあります。岩泉町周辺は北部北上山地に広く分布する古い時代(中生代三畳紀からジュラ紀)の地層から成りますが、門含炭地ではこれをきって発達した断層沿いに、古第三紀の石炭を挟む地層が細い帯状に分布しています。古第三紀層の大部分は、砂岩・泥岩及びカオリン粘土化した凝灰岩層からなりますが(棚井ほか, 1978)、その中にはほぼ全体が斜ブチロル沸石からなる沸石岩が数枚挟まれています。この岩石は、細粒の石基の間に少量の石英・カリ長石・斜長石斑晶が浮かぶ、まさに凝灰岩の組織を持っています。しかし本来石基の大部分を占めていたはずの軽石片などの火山ガラスは、現在、すべて斜ブチロル沸石の集合体に置き換えられています(第8図)。石基の部分だけを分離してX線回折を行ってみても、斜ブチロル沸石以外の鉱物のピークはほとんど認められません。こうした、凝灰岩がまるごといろいろな沸石鉱物の集合体に変化してしまう「沸石岩化」は、日本の比較的新しい地層ではしばしば認められ、特に新第三紀のグリ



第8図 沸石岩の顕微鏡写真。

- a : 沸石岩の組織。大量の火山ガラス片（中央部の発泡した軽石片など）のほか、少量の斑晶鉱物の破片や、二次的に生成した方解石質の細脈が認められる。スケール・バー=0.2mm
- b : 発泡した軽石片の空隙を充填する斜ブチロル沸石 (Cp) と自形のアナルサイム (Ac)。スケール・バー=0.05mm
- c : 斜ブチロル沸石の密な集合体に置き換えられた火山ガラス片。スケール・バー=0.05mm
- d : 方解石、アナルサイム (矢印)、カルセドニーからなる細脈。スケール・バー=0.2mm

ーン・タフ地域にはかなり広範に認められています（詳しくは Iijima, 1988）。門炭灰地の斜ブチロル沸石岩はこうしたグリーン・タフ地域の沸石岩と地質時代が異なりますが、現象としては全く同じものです。

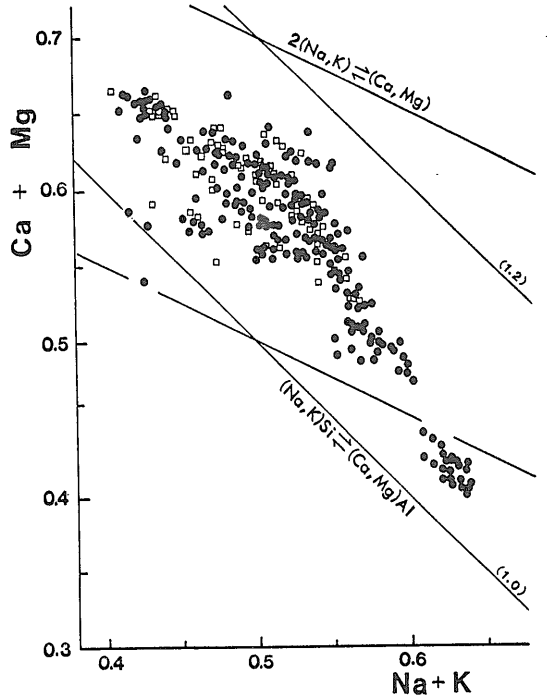
この沸石岩での沸石鉱物の産状を、もう少し詳しくみてみましょう。岩石試料の大部分を占める斜ブチロル沸石は、まず、軽石片を含む石基の火山ガラスを密な集合体をなして交代しています。また、凝灰岩が初生的に有していた空隙（発泡した軽石の穴など）を埋め、さらに凝灰岩の初生的な組織を切る細脈をなして晶出しています（第8図）。X線回折ではわかりませんが、斜ブチロル沸石と共に、空隙を充填してアナルサイムとカルセドニー、細脈をなしてアナルサイム、カルセドニー及び方解石が生成しているのも認められました。組織的關係から沸石化は、まず石基火山ガラスの交代、ついで空隙の充填、そして最後に岩石組織を切る細脈の形成と進行したこと

がわかります。

こうした組織的關係は、沸石鉱物の化学組成とどのような関係があるのでしょうか？ EPMA 分析によって、斜ブチロル沸石とアナルサイムの化学組成を調べてみました。ここで注意しなければならないのは、目的とする沸石鉱物が EPMA 分析にともなう真空と電子線照射による発熱に、たいへん弱いということです。とくに比較的 Ca に富む斜ブチロル沸石では、照射電流量の小さいエネルギー分散型 EPMA であっても、熱による構造の破壊を心配しなければなりません。そこで今回は、加速電圧 20kV、試料電流 0.2nA の条件のもとで、電子線の照射時間（すなわち、X線の計測時間）を 150秒未満に短く設定して分析を行ってみました。この条件のもとでは著しい構造の破壊は避けられましたが、個々の分析値の精度が十分に高いものとはいえないのです。しかし、多くの分析点を得ることによって、組織別に沸石鉱物一特に

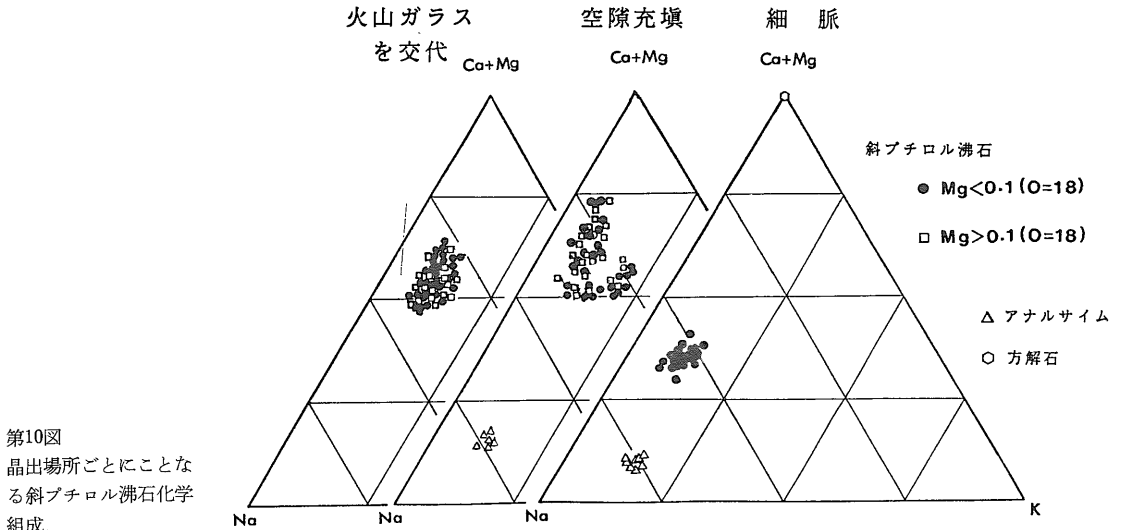
固溶体効果の知られている斜ブチロル沸石の化学組成の傾向をつかむことができました。その結果、鉱物構成の上からは比較的均質な問題の沸石岩が、化学的には決して単純ではないことがわかりました。アナルサイムの組成はほとんど一定ですが、斜ブチロル沸石の化学組成は第9図に示すように広範にわたります。そしてその固溶体組成は、交換性陽イオンサイト内で電荷のバランスをとる2:1型置換 $2(\text{Na}, \text{K}) \rightleftharpoons (\text{Ca}, \text{Mg})$ よりむしろ、沸石の構造を作る $\text{Si} \cdot \text{Al}$ の関与する1:1型カップルド置換 $(\text{Na}, \text{K})\text{Si} \rightleftharpoons (\text{Ca}, \text{Mg})\text{Al}$ によって規制されているのがわかります。このことから、これら斜ブチロル沸石の組成は、二次的な陽イオン交換などによる改変を受けていないものと判断されます。

さらに斜ブチロル沸石の化学組成は、その晶出の場所に応じて異なっていることがわかりました。第10図に示すように、石基を置き換えた斜ブチロル沸石は Ca-Na-K 三角図上で K に乏しい中間的組成を示しますが、空隙を埋める斜ブチロル沸石は石基のものに比べ明らかに Ca に富んでいます。そして最も後にできた細脈の斜ブチロル沸石は、逆に著しく Na に富んでいるのです。注目されるのは、 Ca 質の空隙の斜ブチロル沸石も Na 質の細脈の斜ブチロル沸石もともに、より Na/Ca 比の高い沸石であるアナルサイムと共存していること及び、細脈では Ca を濃集する鉱物である方解石が二種類の沸石鉱物と共に晶出していることです。この事実は、間隙水の Ca/Na 比があまり変化しないと仮定しても、第三の鉱物（ここでは方解石）の出現によって固溶体組成範囲の広い沸石の組成が著しく影響されうることを意味しま



第9図 斜ブチロル沸石における交換性陽イオン組成。シンボルの、第10図を参照。

す。細脈での方解石の晶出は、間隙水中での重炭酸イオン強度の著しい上昇によって引き起こされ、そのもととなる CO_2 の供給源は凝灰岩の外部—おそらくは沸石岩に挟まれる石炭層—の可能性が高いと考えられます。



第10図 晶出場所ごとにことなる斜ブチロル沸石化学組成。

4. 結 び

本文で紹介いたしました堆積岩類での鉱物学的な変化は、基本的には、岩石の中に数多く存在するごく小さな空隙内で、そこに満たした間隙水を媒介として起こっているものです。こうした現象は、均質なポーラスメディアに時間をかけて浸透・循環する間隙水が関与した、水-岩石相互作用の一種として理解することができます。こうしたシステムに対するものであるフラクチャー系を持つメディアでは、より多量の流体がより短い時間のうちに流通すると考えられるので、異なった水-岩石相互作用の起きている可能性があります。しかし、その研究は今後の課題といえましょう。

今回紹介しました自生鉱物形成作用の意味するものとして、堆積岩パイルの中では従来は事実上空隙相互の連結はないと考えられていた著しく低い孔隙率のもとでも、間隙水を媒介とした化学的変化がやや大きなスケールで進行している可能性を示したことに、注意していただきたいと思えます。さきに述べたように、そのスケールは標本サイズをこえ、隣接する異った岩層での化学的変化とカップルする可能性さえあります。堆積岩層は予想される処分場立地のうえでの一つの可能な岩盤環境にすぎませんが(原子力安全委員会, 1985)、かりに安全性確保のために地下水・間隙水のモニタリングにもとづく水-岩石相互作用モデルを作成する場合は、反応の場である岩石系をあまり単純化して考えることができないかもしれせん。

また、沸石岩を構成する斜プチロル沸石に、標本スケールでも著しい固溶体効果が認められる事実は、沸石を多量に含む岩盤の特性の上からだけではなく、処分関連物質としての沸石(特に天然沸石)の性能を議論する上でも重要といえましょう。第9図及び第10図は得られた全分析値をプロットしたのですが、一個の岩石試料における斜プチロル沸石の組成範囲はしばしばそのほとんど全域にわたっています。これに類似する沸石化学組成の不均質性は、たとえば、米国の廃棄物処分場とされるYucca Mountains 地域からも報告されていますが(Broxton *et al.*, 1987)、まだ十分に把握されているとはいえないのが現状です。このような岩石内での組成不均質性は言うまでもなく、岩盤のバリアーとしての性能を議論する上で大きな問題となりましょう。同じような組成変異は、粘土鉱物にも存在すると考えられます。しかし、地層処分で想定される水-岩石相互作用に関与する鉱物については、実験においても均質組成を仮定し、また、活動度図に代表される理論面での取扱いでは組成の固定した端成分を前提にしているのが現状です。例えばイオ

ン交換能ひとつをとってみても、鉱物が顕著な組成不均質性をもつ場合、バルク試料を用いた方法では必ずしも十分に評価できない恐れがあるのは明かでしょう。今回御紹介した研究で微小スケールでの組成不均質性が明らかとなった沸石岩が、X線的には一種類の沸石からなるとみられるものであることは、処分関連材料における微小スケールでのキャラクタリゼーションの重要性を改めて示すものといえましょう。

謝 辞: 今回の一連の研究に用いた試料は、北海道芦別市の三井石炭鉱業株式会社芦別鉱業所及び、岩手県岩泉町の日本粘土鉱業岩手鉱業所から提供いただきました。東北大学理学部の青木謙一郎教授には、EPMA 分析に当たって便宜をはかっていただきました。地質調査所鉱物資源部の古宇田亮一主任研究官には、電子顕微鏡観察に当たってお世話になりました。また、脆弱な泥岩・沸石岩の薄片作成に当たっては、地質標本館試料調製課の宮本昭正・佐藤芳治・野神貴嗣技官の手を煩わせました。以上の方々と機関に、感謝いたします。

文 献

- Bowers, T. S., Jackson, K. T. and Helgeson, H. C. (1984): Equilibrium activity diagrams for coexisting minerals and aqueous solutions at pressures and temperatures to 5 kb and 600°C. Springer-Verlag, 398p.
- Broxton, D. E., Bish, D. L. and Warren R. G. (1987): Distribution and chemistry of diagenetic minerals at Yucca Mountains, Nye County, Nevada. *Clay and Clay Minerals*, **35**, 89-110.
- 地質調査所 (1982): 日本地質アトラス. 120p.
- 原子力安全委員会 (1985): 高レベル放射性廃棄物等安全研究年次計画 (昭和61年度~65年度). 44p.
- Iijima, A. (1988): Diagenetic transformation of minerals as exemplified by zeolites and silica minerals—a Japanese view, in Chilingarian, C. V. and Wolf, K. H. eds., *Diagenesis II, Development in sedimentology*, **43**, Elsevier: 147-212.
- Iijima, A. and Matsumoto, R. (1982): Berthierine and chamosite in coal measures of Japan. *Clay and Clay Minerals*, **30**, 264-274.
- Inoue, A. and Utada, M. (1983): Further investigations of a conversion series of dioctahedral mica/smectite in the Shinzan hydrothermal alteration area, Northeast Japan. *Clay and Clay Minerals*, **31**, 401-412.
- 小出 仁 (1984): アンダーグラウンド—隠れたフロンティア. 地質ニュース, no. 363, 38-55.
- 真柄欽次 (1981): 堆積盆地内での圧密水, 続成水, 天水の移動と石油の集積. 「堆積盆地内の流体移動」杉山隆二・池辺展生・星野通平・柴崎達朗編, 東海大出版, 27-36.
- 松井 愈 (1990): 古第三系—北海道中央部. 「日本の地質. 1. 北海道地方」, 日本の地質北海道地方編集委員会編, 共立出版, 49-56.

- 松本 良 (1978): 自生炭酸塩鉱物および炭酸塩岩の生成段階とその起源. 地質学論集, 15, 35-52.
- Mitsui, K. (1975): Diagenetic alteration of some minerals in argillaceous sediments in western Hokkaido, Japan. Sci. Rep. Tohoku Univ., ser. 3, 13, 13-61.
- 水谷伸次郎・斎藤靖二・勘米良亀齡 (1987): 日本の堆積岩. 岩波書店, 226p.
- 奥山 (楠瀬) 康子 (1985): エネルギー分散型マイクロプローブによる泥質堆積岩中の層状珪酸塩鉱物の化学分析: 予察的研究. 堆積研報, 22/23, 90-94.
- Okuyama-Kusunose, Y. (1989): Chemistry of diagenetic clinoptilolite and associated zeolite in a shallow sedimentary basin, NE Japan. Proc. 6th Int. Symp. Water-Rock Interaction, 533-536.
- 奥山 (楠瀬) 康子 (投稿中): 北海道, 石狩炭田地域の碎屑岩における自生鉱物形成作用とその水-岩石相互作用. 地調月報, 42.
- 須藤俊男・下田 右・四本晴夫・会田嵯武朗 (1980): 粘土鉱物の電子顕微鏡写真図譜. 講談社, 216p.
- 棚井敏雅・飯島 東・吾妻高志 (1978): 北上北部岩手粘土鉱山周辺の上部白亜-古第三系. 地質雑, 84, 459-473.
- Whitney, G. and Northrop, H. R. (1988): Experimental investigation on the smectite to illite reactions: Dual reaction mechanisms and oxygen isotope systematics. Amer. Mineral., 73, 77-90.
-
- OKUYAMA-KUSUNOSE Yasuko (1991): Formation of authigenic minerals in some sedimentary rocks: implications to the underground disposal of high-level waste.
-
- <受付: 1991年2月12日>

GEOSTAT Intern. Inc. 社研修コース 1991

場所: モントリオール, 使用言語: 英語 (仏語も可), 研修費用: 各コース当たり625加ドル

- 1) 6月18—20日: 鉱量予測と品位コントロールのための地質統計学
- 2) 9月24—26日: マイクロ電算器による鉱床モデリング
- 3) 10月1—3日: 貯留層の特性と制御のための地質統計学
- 4) 12月3—5日: 鉱量予測と品位コントロールのための地質統計学

申込みと問合せ: Geostat Systems Intern. Inc., 4385 St-Hubert, Suite 1, Montréal Québec,

Canada H2J 2X1 電話: 514-521-7544, ファクス: 514-525-8484