

地質調査総合センター研究資料集, no.752

湯沢地熱地域の酸性変質帯の土壤植生

佐々木宗建<sup>1</sup>\*

<sup>1</sup> 産業技術総合研究所 地質調査総合センター

\* 責任著者: sasaki-munetake@aist.go.jp

キーワード: chemical composition, altered rock, pore water, hot spring water

## Abstract

Geothermal manifestations in geothermal exploration are hot spring, fumarole, and hydrothermal alteration zone. The latter might be hidden by soil formation and vegetation development in attenuation of hot spring and fumarolic activities. However, the hidden alteration zone is still important for the geothermal exploration because geothermal activity continues long at deep depths. Then, soil and vegetation on an acidic alteration surface at the Kawarage district in Yuzawa geothermal field, northeast Japan was geochemically investigated. The results were summarized below.

The Kawarage acidic alteration zone consisted of a silicified body surrounded by a thin clay zone. The silicified body was centroclinal with fumaroles at its top and was composed of exposed rocks at its center and gravel at its hillside. It was constituted mainly of  $\text{SiO}_2$  with a small amount of  $\text{TiO}_2$ . The clay zone was classified into subzones of cristobalite, alunite, kaolinite, montmorillonite to the periphery and was covered by grassland and tall tree. It increased in  $\text{P}_2\text{O}_5$  from the cristobalite zone,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  and  $\text{K}_2\text{O}$  from the alunite zone,  $\text{MgO}$  from the kaolinite zone, and  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{CaO}$  and  $\text{MnO}$  from the montmorillonite zone to the periphery. In a geochemical calculation, fluid/rock ratios forming the clay zone decreased from the center to the periphery.

The surface of the hillside of the silicified body was bare ground, but a small amount of soil was generated beneath gravel, where the  $\text{SiO}_2$  decreased and  $\text{MgO}$  increased with an increase in a small amount of organic matter. The increase in  $\text{MgO}$  might be attributed to the adsorption of the component from rain rather than residue in weathering of host rock. In contrast, thick soil layer developed at the surface of the clay zone and accumulated C and N at A layer,  $\text{MgO}$ ,  $\text{MnO}$ , and  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  at B layer, and  $\text{CaO}$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$ , and  $\text{K}_2\text{O}$  at C layer, with gradual decreases in  $\text{SiO}_2$  and  $\text{Al}_2\text{O}_3$  and increases in  $\text{P}_2\text{O}_5$  and  $\text{TiO}_2$  toward the surface.

The Kawarage hot spring occurred at the northeast margin of the silicified body and was strongly acidic at pH1.5 and Cl-rich of  $\text{Mg} \cdot \text{Ca} - \text{Cl} \cdot \text{SO}_4$  type solution. Seepages occurred at the northeast hillside of the silicified body and north flank of the clay zone. They were both  $\text{Na} \cdot \text{Mg} (\cdot \text{Ca}) - \text{SO}_4 (\cdot \text{Cl})$  type. However, the former was dense with pH2.1-2.3 while the latter was dilute with pH6.2-6.4. The Doroyu hot spring at a 1-km east of the Kawarage alteration zone discharged acidic  $\text{SO}_4$  type and  $\text{SO}_4 - \text{Cl}$  type solutions analogous to those of the Kawarage district. The Kawarage hot-spring water was formed by selective deposition of minerals after dissolution of host rock, based on a comparison of chemical compositions between the hot-spring water and host rock.

Pore waters in soils on the surface of the silicified body were  $\text{Na} \cdot \text{K} - \text{SO}_4 \cdot \text{Cl}$  type with pH3.6-6.0, and those on the surface of the clay zone were  $\text{SO}_4$  type with pH3.9-5.5 having a change in

major cation concentration from K and Na to Ca with depth, where the Mg was low. This low Mg concentration in pore waters resulted in the formation of Mg-rich B layer. Pore waters in soils collected near the seepages were Al – SO<sub>4</sub> type with pH3.3-4.2 at the northeast hillside of the silicified body and SO<sub>4</sub> type with pH3.2-4.2 with various cations of Ca, Zn, Al, and Na at the north flank of the clay zone.

The reason of bare ground without vegetation on the surface of the silicified body was attributed to either influence of H<sub>2</sub>S gas-bearing fumarolic activity, low accumulation of C and N components in thin soil due to erosion by movement of the gravel, or difficulty in keeping water in thin soil due to high permeability of silicified rocks.

This study revealed soil formation and vegetation development on the surface of an acidic alteration zone and provided a basic knowledge not to miss out hidden alteration zones in geothermal exploration. It is necessary in a future study for much clarification to elucidate the period of soil formation and change in chemistry of pore water in soil.

## 1. はじめに

地熱エネルギー資源探査における地表調査は温泉、噴気、熱水変質帯等の地表兆候を把握することを目的とする（犬山ほか，1999）。温泉や噴気が優勢であると，岩石は熱水変質作用を被り，土壤植生は発達し難く裸地をなす。温泉や噴気の湧出や噴出が衰退すると，熱水変質帯は土壤植生に被覆されてしまう。しかしながら，土壤発達と植生定着に要する時間は地熱熱源の冷却期間と比較して極めて短かく，植生に被覆された熱水変質帯であっても地表兆候となり得る可能性がある（角，1975）。地表兆候とされ得る熱水変質帯の生成年代は約 0.1Ma 以内と考えられる（新エネルギー・産業技術総合開発機構，2000）。温泉や噴気が酸性環境を呈すると硫気孔原植生が発達する（根来，1943）。しかしながら，熱水変質帯がどのように土壤植生に被覆されていくかは，これまでに十分に明らかにされているとは言い難い。

そこで本研究では，秋田県南部の湯沢地熱地域の川原毛地区と泥湯地区の酸性変質帯を対象に，熱水変質帯の形成過程と土壤植生の発達過程を，変質岩試料と土壤試料の化学分析と，温泉水試料と湧水試料の水質分析を基に検討した。

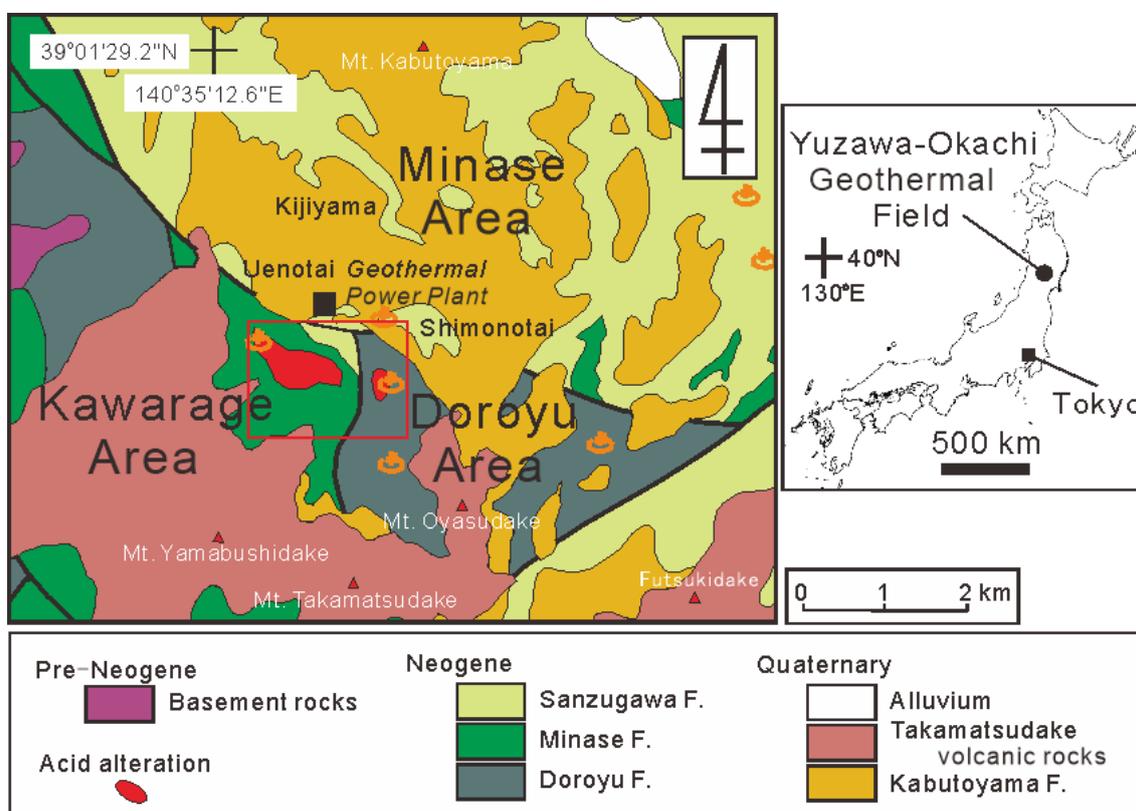
## 2. 調査地域の概要

秋田県南部の湯沢地熱地域には多数の温泉と熱水変質帯が分布する（新エネルギー総合開発機構，1985；新エネルギー・産業技術総合開発機構，1990；薦田，1991）。本地域の中央に位置する上の岱では地熱発電所が稼働し（二子石，1999；日本地熱調査会，2000），南西部の下の岱や木地山では地熱エネルギー資源探査が進められている（エネルギー・金属鉱物資源機構ホームページ）。

湯沢地熱地域の地質は新エネルギー・産業技術総合開発機構（1990），中・岡田（1992），竹野（1988）に報告されている（第1図）。本地域の基盤岩は先第三系のマイロナイトを含む花崗岩類，角閃岩相～緑色片岩相の角閃岩，緑色片岩，蛇紋岩等の変成岩類で構成される。新第三系は下位より泥湯層，皆瀬川層，三途川層からなり，泥湯層は安山岩質溶岩と同質火山碎屑岩類，皆瀬川層は石英安山岩質火山碎屑岩類，三途川層は石英安山岩質火山碎屑岩とシルト岩からなる湖沼堆積物で構成される。第四系は兜山層と高松岳火山岩類があり，前者は火山礫凝灰岩とその溶結層からなり，後者は石英安山岩溶岩と同質火山碎屑岩からなる。本地域には玄武岩，安山岩，デイサイト，碎屑岩の小規模な岩脈が分布する。本地域には北西－南東系を主とし北東－南西系を副とする構造的断層が発達し，北部の皆瀬地区が沈降帯，南西部の川原毛地区が沈降帯，南東部の泥湯地区が隆起帯となっている。

本地域の地熱活動の熱源は南方に位置する高松岳，小安岳，山伏岳の深部に賦存するマ

グマ溜まりと考えられている（栗山，1985；中・岡田，1992；佐々木，2002）。熱水は熱源から高角の断裂系を通じて流動し（張ほか，1999；佐脇・笹田，2003），上の岱地区には天水循環系が形成されているのに対し，川原毛地区と泥湯地区には火山ガスと天水が混合した酸性温泉水が湧出している（松葉谷ほか，2007）。本地域の新第三紀層はグリーンタフ変質作用を被っており，現在の地熱活動による熱水変質作用はそれに重複する（金原，1988；中・岡田，1992）。上の岱地区の地表には熱水変質作用は認められないが，川原毛地区と泥湯地区には酸性変質帯が形成され（谷口ほか，1978；林・森口，1990），酸性環境に特有な硫気孔原植生が発達している（新エネルギー・産業技術総合開発機構，1990，2002；高柳，2019）。



第 1 図 湯沢地熱地域の地質概要（新エネルギー・産業技術総合開発機構，1990 を簡略化）。図中の赤枠は第 2 図の範囲。

### 3. 酸性変質帯の概要

川原毛地区の酸性変質帯は，北と東を高標高の山稜に，南から西を低標高の湯尻沢に囲われ，約  $1.0 \times 0.5 \text{ km}^2$  に分布する（第 2 図）。変質帯の母岩は皆瀬川層の石英安山岩質凝灰

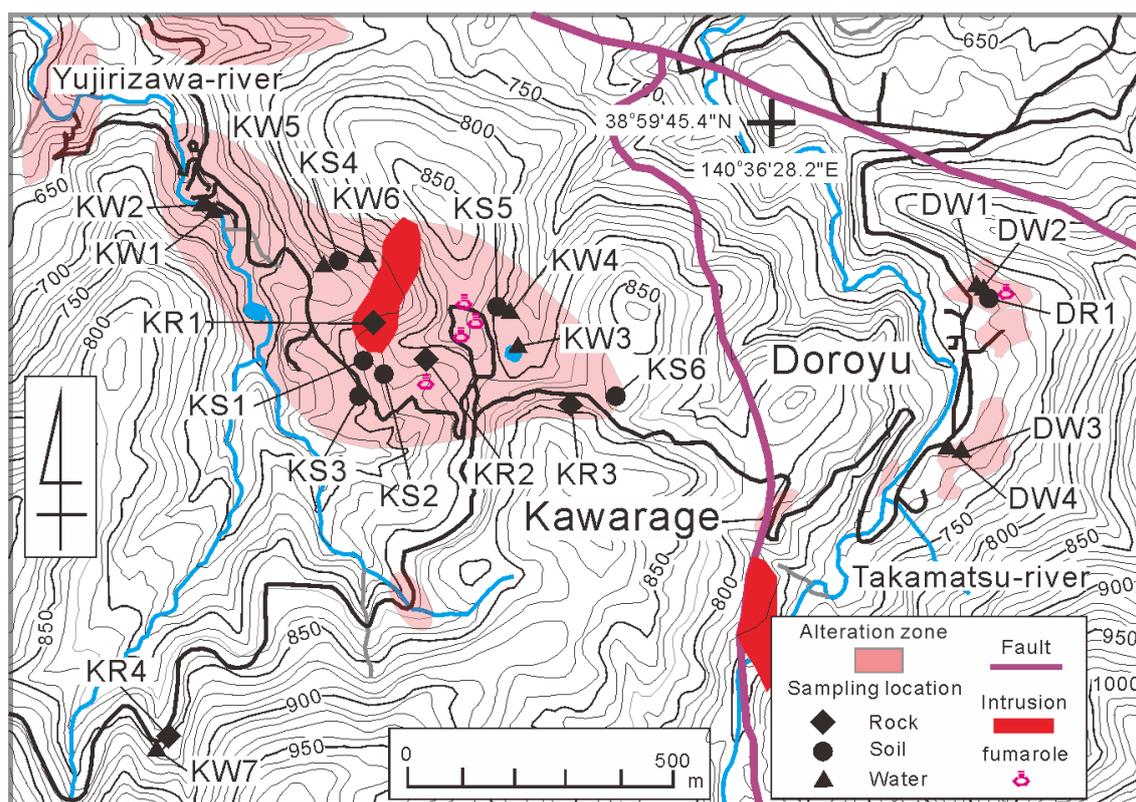
岩と、変質帯中央に小規模に分布する石英斑岩である（新エネルギー・産業技術総合開発機構，1990；1998）。変質帯は塊状の珪化体とそれを取り巻く粘土化帯からなる（谷口ほか，1978；林・森口，1990）。珪化体は中央に丘陵状に分布し，粘土化帯は北と東の山稜の山腹に露出する。珪化体が丘陵状であるのは爆裂火口に取り囲まれていることによる（鹿野ほか，2020）。試錐によると変質帯は下方に漏斗状に先細る（平沢，1977）。本変質帯では西暦 1623～1966 年に硫黄が採鉱された（湯沢市ホームページ）。本変質帯は温度 180～290℃で沸騰状態の熱水により深度約 230m で形成されたと考えられている（武内，1984）。その熱水活動は約 3 万年以降であると推定される（高島ほか，1999；水垣，2004）。

珪化体は頂部が露岩からなり，噴気孔が複数カ所にあり， $H_2S$  ガスを伴い，昇華硫黄を析出し，周辺の岩石は黒ずんでいる。山腹は東～南斜面が緩傾斜で，数 cm 径の小礫に被覆され，一部にガンコウランが小群落を形成する。東麓は平坦で大小礫に被覆され，露天掘り跡の窪地が溜池となっている。溜水は硫黄の浮遊により白濁し，水辺にはチャツモミゴケとヤマタヌキランが小群落を形成する。山腹の西斜面は露天掘りのベンチ跡が残る急崖であり，西麓は大小礫からなる崖錐堆積物からなる。さらに西側は平坦となり，細砂礫が堆積し，雨水が表面を流れた跡があり，ヤマタヌキランやススキが散点的に群落を形成し，草地植生である。珪化体の縁辺で採鉱を免れた部分はキタゴヨウ，アカマツ，ウラジロヨウラク，ミズナラ等が生育し，高木植生であり，その下地にはイオウゴケやガンコウランが小群落を形成する。これに対し，北と東の山稜は頂部が平坦で，キタゴヨウ，シラカバ，ブナが生育し，高木植生である。山腹は粘土化帯の変質岩が露出し，ガンコウランが一部に小群落を形成し，山麓は崖錐堆積物であり，ヤマタヌキラン，ガンコウラン，クマザサが群落を形成する。

湯尻沢の河床と河岸の複数カ所に高温酸性の温泉水が湧出する（中村ほか，1975；阿部ほか，1979）。湧出口にはしばしば硫黄が析出し，河床には含鉛重晶石の沈殿が報告されている（椎川・山口，1956）。湧出口から下流の河床は硫黄の沈積で黄色を呈し，さらに下流は紅藻類の繁殖で緑色を呈する。湧水は中央の丘陵の北東麓で珪化体/粘土化帯の境界と，北の山稜の山腹と山麓の粘土化帯の 2 カ所に認められる。

泥湯地区の酸性変質帯は，東側を山稜に西側を高松川支流に囲まれた南北に狭隘な約  $300 \times 50m^2$  に分布し，北部と南部の変質帯に細分される（第 2 図）。北部の変質帯は噴気地であり，蒸気加熱型の酸性泉が湧出する（中村ほか，1975；阿部ほか，1979；北ほか，1992）。数 10cm 径の陥没孔が数カ所にあり，溜水は黒色または灰白色を呈し，石油臭と  $H_2S$  臭を伴う。噴気地の縁辺ではススキやヌマガヤが群落を形成し，タムシバがまばらに生育する。噴気地の南側は小丘をなし，小径が開削され，土壌は表層から色調が茶褐色，

黄白色，灰白色，白色と変化している。南部の変質帯は川原毛地区から断続的に連続してきた変質帯の一部であり，白色珪硬質な変質岩からなる。酸性泉は東側の山稜麓の崖錐堆積物下と変質帯中央の道路沿いの平坦部の数ヵ所に湧出する（阿部ほか，1979；松葉谷ほか，2007）。



第2図 川原毛地区と泥湯地区の酸性変質帯の分布と試料採取位置。地形図は国土地理院地図を簡略化。変質帯と貫入岩の分布は新エネルギー・産業技術総合開発機構（1998）を参照。試料番号の，R：岩石試料，S：土壌試料，W：水試料，である。

#### 4. 試料採取概要

変質岩試料と土壌試料の採取概要を第1表に整理し，それらの採取地点を第2図に示した。川原毛地区の変質岩試料（KR）は，珪化体の2ヵ所（KR1，KR2），粘土化帯の1ヵ所（KR3），未変質帯の1ヵ所（KR4）で採取した。試料KR1は石英斑岩の分布範囲に位置する暗黒色緻密質の珪化角礫岩脈であった。試料KR2は皆瀬川層の石英安山岩質凝灰岩を原岩とする白色珪化岩で，多孔質部（KR2-1）と含黒色岩片部（KR2-2）であった。試料KR3は東の山稜の頂部の道路斜面に露出した粘土化帯を横断的に6点（KR3-1～KR3-6）で採取した。試料KR4は地域南方の道路沿いの湯尻沢上流で，熱水変質作用を被っていない

緑色変質した皆瀬川層の凝灰岩の暗緑色部 (KR4-1) と明緑色部 (KR4-2) であった。

土壌試料 (KS) は、珪化体では中央丘陵部の南側山腹の裸地の 2 ヲ所 (KS1, KS2) と南西山麓の高木植生の 1 ヲ所 (KS3) で採取した。試料 KS1 は表層細礫下の灰黒色粘土 (A 層) と下位の白色粘土を伴う珪化岩 (C 層) であった。試料 KS2 は表層細礫下の白色粘土 (B 層) と下位の灰白色粘土混じりの珪化岩片 (C 層) のうちの後者であった。試料 KS3 は高木植生下の下地の藻類下で黒色粘土 (A 層) と下位の珪化礫片を伴う灰白色粘土 (C 層) であった。粘土化帯では北の山稜麓の草地植生の 1 ヲ所 (KS4), 北東の珪化体/粘土化帯の境界で珪化体側 (KS5S) の裸地の 2 ヲ所と粘土化帯側 (KS5C) の草地植生の 1 ヲ所, 及び, 東の山稜頂部の高木植生の 1 ヲ所 (KS6) で採取した。試料 KS4 は湧水の湧出口近傍で湧水の供給源側に位置し, ヤマトヌキランの群落下で, 色調が深度で異なる黒灰色部 (A 層), 薄茶褐色部 (B 層), 灰白色部 (C 層) であった。前 2 者は軟質で後者は硬質であった。試料 KS5 は境界部からの湧水の湧出口の近傍で, 湧水が浸透また飛沫がかかる範囲に位置し, 珪化体側の試料 KS5S1 は裸地下の青灰色粘土 (C 層) と, 試料 KS5S2 はヤマトヌキランの小群落下の茶褐色部 (B 層) であり, 粘土化帯側の試料 KS5C はヤマトヌキランの群落下の黒色部 (A 層), 薄茶色部 (B 層), 灰白色部 (C 層) であった。試料 KS6 はシラカバ, ナナカマド, タムシバ, クマザサの下地のスギゴケ下で, 色調が深度で異なり, 黒色部 (A 層), 赤紫色-緑色-青灰色-赤色-黄色部 (B1~B5 層), 白色部 (C1~C3 層) を採取した。このうち A 層と B 層は軟質であり, C 層は硬質であった。B1 層は粘土質部に微粉状の珪化礫片を狭在し, 噴気に伴う降下灰の堆積あるいは道路工事の粉塵の堆積と思われた。土壌試料採取は土石が硬質あるいは薄層であった場合はビニール袋に, 軟質であった場合はステンレス製の土壌円筒 (容量 100ml) に行った。

水試料の採取概要を第 2 表に整理し, 採取地点を第 2 図に示した。水試料は, 湯尻川河床の湧出口の温泉水 (KW1), その下流で河床が黄色から緑色に変化した位置の沢水 (KW2), 露天掘り窪地の溜水 (KW3), 珪化体/粘土化帯の境界からの湧水 (KW4), 北の山稜の中腹と麓の湧水 (KW5, KW6) を採取し, 湯尻沢上流の沢水 (KW7) も参考に採取した。

泥湯地区では, 北部の変質帯で陥没孔の沈殿物 (DR1) と黒色と灰色の溜水 (DW1, DW2) を, 南部の変質帯で東側の山稜麓と中央の平坦部に湧出する温泉水 (DW3, DW4) を採取した (第 1 表, 第 2 表)。

第1表 変質岩試料と土壌試料の採取概要と分析項目.

Area	Sample No.	Alteration	Landform	Vegetation	Soil layer (cm depth)	Occurrence	Analyses			
							1	2	3	4
Kawarage (Rock)	KR1	SB	steep slope on west hillside	bare ground	R	black compact silicious vein in quartz porphyry	+	+		
	KR2 - 1	SB	steep slope on south hillside	bare ground	R	white porous silicified rock	+	+		
					R	silicified tuff with black breccia	+	+		
	KR3 - 1	CZ	east mountain top (road side)	tall tree (Pinus parviflora)	R	white-pink silicified rock	+	+	+	
					R	white-pink silicified rock	+	+	+	
					R	white silicified rock	+	+	+	
					R	dark yellow-pink silicified rock	+	+	+	
					R	light gray silicified rock	+	+	+	
					R	light gray silicified rock	+	+		
	KR4 - 1	NA	Yujirizawa-river upstream to the south	tall tree (Fagus crenata, Thuja sandshii)	R	dark green fine unaltered rock	+	+		
R					light green unaltered rock	+	+			
Kawarage (Soil)	KS1 - 1	SB	flat surface on south hillside	bare ground with gravel	A (2)	gray-black clayey soil	+	+	+	
					C (7)	silicified rock with white clay	+	+	+	
	KS2 - 1	SB	gentle slope on south hillside	bare ground with gravel	C (15)	gray-white clay with silicified rock fragments			+	
	KS3 - 1	SB	gentle slope on south hillside (trail side)	tall tree (Pinus parviflora)	A (2)	black clayey soil	+	+	+	+
					C (12)	gray-white clay with silicified rock fragments	+	+	+	+
	KS4 - 1	CZ	north mountain hillside	grassland (Carex angustisquama)	A (2)	black-gray clayey soil	++	+	+	+
					B (8)	brown clayey soil with fragile silicified rock fragments	++	+	+	+
					C (15)	gray cracked silicified rock	++	+	+	
	KS5 - S1	SB side at SB/CZ boundary	steep slope on northeast hillside	bare ground	C (surface)	gray-yellow clay with silicified rock fragments			+	+
					B (10)	brown soil			+	+
					A (5)	black soil			+	+
					B (10)	brown soil			+	+
					C (30)	white compact silicified rock			+	
	KS6 - 1	CZ	east mountain top (parking side)	tall tree (Betula platyphylia, Sorbus commixia)	A (2)	black soil	+	+	+	+
					B1 (7)	red-purple soil with fine silicified rock fragments	+	+	+	+
B2 (10)					dark green soil	+	+	+	+	
B3 (12)					dark blue soil	+	+	+	+	
B4 (15)					dark red soil	+	+	+	+	
B5 (20)					yellow soil with dark materials	+	+	+	+	
B5 (30)					yellow clay	+	+	+	+	
C1 (45)					white clay with fine silicified rock fragments	+	+	+	+	
C2 (60)					fragile silicified rock with white clay	+	+	+		
C3 (80)					compact silicified rock with white clay	+	+	+		
Doroyu (rock)	DR1	CZ	steam ground in North zone	mud pool		suspended matter, fango			+	

Note, alteration zone, SB: silicified body, CZ: clay zone, and NA: unaltered zone, analysis, 1. whole-rock chemical analysis, 2. powder x-ray diffraction, 3. pore water extraction, 4. leaching experiment. #: C and N only.

第2表 水試料の採取概要.

Area	Sample No.	Kinds	Sampling location	Solution color	Temp. (°C)	pH	EC (µS/cm)
Kawarage	KW1	hotspring	discharge point on Yujirizawa-river floor	no	94.3	1.5	19800
	KW2	stream	Yujirizawa-river where red algae appeared on floor	no	45.0	1.8	8300
	KW3	pool	pool at open pit rui, east foot in SB zone	white	7.3	2.1	6100
	KW4	seepage	SB/CZ boundary at northeast hillside	no	nm	2.3	2300
	KW5	seepage	foot of north mountain in CZ zone	no	nm	6.4	87
	KW6	seepage	hillside of north mountain in CZ zone	no	10.5	6.2	92
	KW7	stream	upstream Yujirizawa-river to south in NA zone	no	6.7	6.3	33
Doroyu	DW1	hotspring	mud pool at steam ground in North zone	black, oily	90.1	2.8	1090
	DW2	hotspring	mud pool at steam ground in North zone	gray	97.8	2.7	1550
	DW3	hotspring	foot of east mountain in South zone	gray	74.0	2.5	2200
	DW4	hotspring	center floor in South zone	no	66.0	2.8	1400

Note, nm: not measured.

#### 4. 分析方法

変質岩試料と土壌試料は顕微鏡観察，全岩化学分析，粉末 X 線回析，流体包有物の均質化温度測定，土壌間隙水の抽出・分析に供した（第 1 表）．変質岩試料は薄片を作成して顕微鏡観察した．薄片の厚さは 30 $\mu$ m であった．全岩化学分析はハルツォク社製 HP-MS60 またはメノウ乳鉢を用いて微粉碎し，Activation laboratory 社に依頼した．分析項目は主成分の SiO<sub>2</sub>，TiO<sub>2</sub>，Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>，Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>，Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>，MnO，MgO，CaO，Na<sub>2</sub>O，K<sub>2</sub>O，P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>，LOI (Loss of Ignition)，化合物 (H<sub>2</sub>O+)，吸着水 (H<sub>2</sub>O-)，全硫黄 (S) と，微量成分の Be，Sc，V，Cr，Co，Ni，Cu，Zn，Ga，Ge，As，Se，Br，Rb，Sr，Y，Zr，Nb，Mo，Ag，Cd，In，Sn，Sb，Cs，Ba，La，Ce，Pr，Nd，Sm，Eu，Gd，Tb，Dy，Ho，Er，Tm，Yb，Lu，Hf，Ta，W，Ir，Au，Tl，Pb，Bi，Th，U であった．

微粉碎した試料の一部は理学製 RAD-rA (RINT2500) を用いた粉末 X 線回折法に供した．分析条件は Cu 管球，電圧 40kV，電流 100mA，発散スリット 1°，発散縦制御スリット 10mm，散乱スリット 1.26mm，受光スリット 0.3mm，モノクロ受光スリット 0.8mm，走査軸 2 $\theta$ / $\theta$ ，スキャンスピード 4°/min，サンプリング幅 0.02°， $\theta$  オフセット 0°，走査範囲 3~40°であった．試料台には無反射板を用いた．

流体包有物の均質化温度は USGS 型加熱冷却ステージ (佐脇・笹田，1990) にて測定した．測定誤差は 0°C で  $\pm 0.1^\circ\text{C}$  以内，200°C で  $\pm 1^\circ\text{C}$  以内，400°C で  $\pm 3^\circ\text{C}$  以内であった．

土壌試料は持ち帰って分析までの間は温度 4°C の冷蔵庫に保管した．現地でビニール袋に採取した土壌試料は，風乾後に手で粉碎した後，植根を選別して粒径 2mm で篩い分けし，重量測定した．土壌円筒に採取した土壌試料はコクサン製 H-1400pF 遠心分離機を用いて間隙水を抽出した．抽出は土壌水分張力を pF3 (回転数 3300rpm) と pF4 (回転数 10300rpm) の順に行った．ここで pF は水柱高を cm で表した際の常用対数値であり，pF3 の間隙水は重力 (pF<1.8) や毛細管現象 (pF<2.7) に易移動性であるが，pF4 の間隙水は細孔隙に保持され相対的に難移動性である (松中，2005)．間隙水試料の pH は HORIBA 社製 B212 で，EC は HORIBA 社製 B173 で測定した．

ビニール袋に採取した土壌試料と間隙水を抽出した土壌試料は共に微粉碎し，変質岩試料と同様に全岩化学分析に供した．土壌試料の C と N 含有量は Yanaco 社製 CHN コーダ MT-5 にて分析した．

水試料は現地で温度を Testo 社製 735，pH を ThermoOrion 社製 250A，EC を堀場社製 CEH-12 で測定した．水試料と土壌間隙水試料は，0.45 $\mu$ m フィルターでろ過し，Dionex 社製 ICS1000 と ICS2000 を用いたイオンクロマト法にて Li，Na，K，NH<sub>4</sub>，Mg，Ca，F，Cl，

Br, SO<sub>4</sub>, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, PO<sub>4</sub> を, Jarrell Ash 社製 IRIS-AP を用いた発光分光法にて Al, Cr, Fe, Mn, Zn, Sr, Ba を, HACH 社製 DR2800 を用いた吸光度法にて Si を分析した.

変質岩試料と土壌試料の微粉碎後の残試料を用いて溶出試験を行った. 微粉末 2g を 10cc の純水と混合して 30 分間振とうし, 抽出溶液を作成した. 上澄みを 0.45 $\mu$ m フィルターでろ過し, HORIBA 社製 B212 と B173 で pH と EC を測定し, Dionex 社製 ICS1000 と ICS2000 で Li, Na, K, NH<sub>4</sub>, Mg, Ca, F, Cl, Br, SO<sub>4</sub>, NO<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, PO<sub>4</sub> を, HACH 社製 DR2800 で Si を分析した.

## 5. 分析結果

変質岩試料と土壌試料の鉱物鑑定結果, 土壌試料の重量測定結果, 変質岩試料と土壌試料の全岩化学分析結果, 流体包有物の測定結果, 水試料の化学分析結果, 土壌間隙水の化学分析結果, 溶出試験結果を順に以下に整理した.

### 5.1 変質岩試料と土壌試料の鉱物鑑定結果

変質岩試料と土壌試料の鉱物鑑定結果を第 3 表に整理した. 川原毛地区では, 珪化体の母岩である石英斑岩中の黒色鉱物脈 (KR1) と石英安山岩質凝灰岩の変質岩 (KR2) には石英のみが同定された. 粘土化帯の母岩である石英安山岩質凝灰岩の変質岩 (KR3) には石英が最も多量であり, 珪化体から周縁に向かってクリストバライト, 明礬石, カオリナイト, モンモリロナイト, イライト, 斜長石と, 一部に黄鉄鉱が同定された. これら変質鉱物の粉末 X 線回折結果を第 3 図に示した. 鉱物鑑定結果を基に, 粘土化帯をクリストバライト帯 (Crs), アルーナイト帯 (Alu), カオリナイト帯 (Kln), モンモリロナイト帯 (Mnt) に細分した. 試料採取位置を基にすると, 分帯の幅は Crs 帯が約 5m, Alu 帯が約 3m, Kln 帯が約 2m, Mnt 帯が約 20m 以上と推定された.

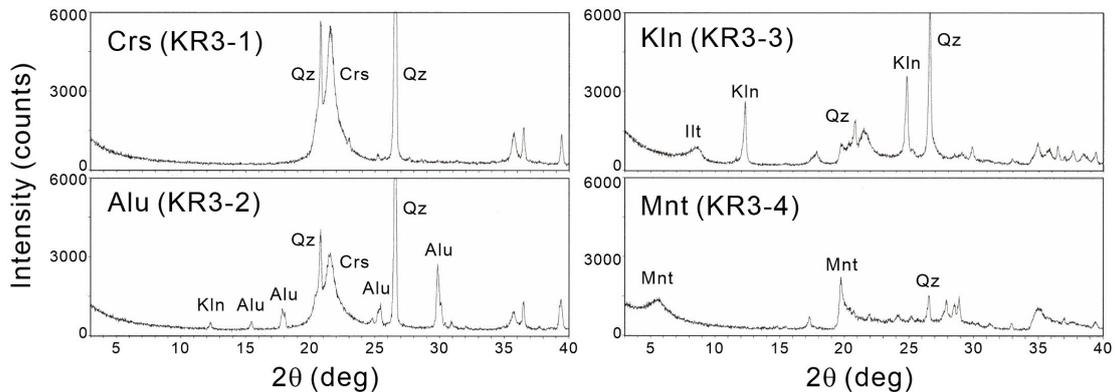
珪化体の土壌試料 (KS1, KS2, KS3) は石英と一部に有機物を含んでいた (第 3 表). 粘土化帯の土壌試料は, 試料 KS4 に石英と深部で明礬石が, 試料 KS5 に珪化体/粘土化帯の境界のいずれの側でも石英, イライト, モンモリロナイトが, KS6 に浅部にクリストバライト, 中部にカオリナイト, 深部にモンモリロナイトが同定された. これら試料の採取位置は, 産出鉱物を基に, 試料 KS4 が Alu 帯, 試料 KS5 が Mnt 帯, KS6 が深部にモンモリロナイトが同定されたことから Mnt 帯に属したと推定される.

泥湯地区の北部の変質帯の陥没孔で採取した試料 DR1 には, 石英, クリストバライト, 明礬石, カオリナイトが同定された.

第3表 変質岩試料と土壌試料の鉱物鑑定結果.

Area	Sample No.	Alteration	Occurrence	Minerals (abundance)										CZ subzone						
				Qz	Crs	Alu	Kln	Ill	Mnt	Pl	Chl	Py	Org							
Kawarage (rock)	KR1	SB	black silicious vein	+++																
	KR2 - 1	SB	porous silicified rock	+++																
			silicified tuff with black breccia	+++																
	KR3 - 1	CZ	white-pink silicified rock	+++	+++													Crs		
			white-pink silicified rock	+++	+++	+++												Alu		
			white silicified rock	+++		+++	+++								++			Kln		
			dark yellow-pink silicified rock	+++				++	+++	+++									Mnt	
			light gray silicified rock	+++				++	+++	+++					++				Mnt	
	- 6		light gray silicified rock	+++				+	++	+++								Mnt		
	KR4 - 1	NA	dark green fine unaltered rock	++				+++	+++				+++							
			light green unaltered rock	++				+++	+++											
	Kawarage (soil)	KS1 - 1	SB	A (2)	+++													++		
				C (7)	+++															
		KS2 - 2	SB	C (15)	+++															
				+++																
KS3 - 1		SB	A (2)	+++														++		
			C (12)	+++																
KS4 - 1		CZ	A (2)	+++								+++					++	Alu		
			B (8)	+++								+++				++				
			C (15)	+++				++												
KS5 - S1		SB side	C (surface)	+++				++	+	++								Mnt		
			B (10)	+++				++	++	++								Mnt		
			- C1	CZ side	A (5)	+++				++	+	++								Mnt
					B (10)	+++				++	++	++								
					C (30)	+++				++	++	+++								
KS6 - 1	CZ	A (2)	++								+				+++		Mnt			
		B1 (7)	+	+++											++					
		B2 (10)	+++	++			+	+	+	+					++					
		B3 (12)	++	++			++	+	+	+					++					
		B4 (15)	+++				++		++						++					
		B5 (20)	+++						+++						++					
		B5 (30)	+++						+++	+										
		C1 (45)	+++						++	++										
		C2 (60)	+++						++	+++										
		C3 (80)	+++						++	++										
Doroyu (rock)	DR1	CZ	suspended matter, fango	+++	+++	++	++				+									

Note, abbreviations. Alu: alunite, Chl: chlorite, Crs: cristobalite, Ill: illite, Kln: kaolinite, Mnt: montmorillonite, Org: organic matter, Pl: plagioclase, Py: pyrite, Qz: quartz.



第3図 変質岩試料の X 線回折結果. 略号, Ant: アナターゼ, Crs: クリソバライト, Alu: 明礬石, Ill: イライト, Kln: カオリナイト, Mnt: モンモリロナイト, Qz: 石英.

## 5.2 土壤試料の重量測定結果

川原毛地区の変質帯の土壤試料は、表層で植物根と径 2mm 以下の粒子が多く、深部で径 2mm 以上の粒子が多かった（第 4 表）。C と N 含有量はどの採取地点でも表層が大きく、表層ほど土壤が黒色を呈することと相関した。C と N 含有量は、珪化体では中央の裸地（KS1）より縁辺の成熟した高木植生下（KS3）で、粘土化帯では草地植生下（KS4）より成熟した高木植生下（KS6）で多かった。

第 4 表 土壤試料の構成物と C と N 含有量。

Area	Sample No.	Occurrence (alteration, soil: cm depth)		Constituent (wt.%)			Content (wt.%)		Ratio
				root	grain (<2mm)	grain (>2mm)	C	N	C/N
Kawarage (soil)	KS1 - 1	SB (bare ground)	A (2)	0	36.8	63.2	0.309	0.030	10.5
	- 2		C (7)	nm	nm	nm	0.031	0.002	15.3
	KS3 - 1	SB (tall tree)	A (2)	0.4	67.3	32.3	2.737	0.099	27.8
	- 2		C (12)	0	50.4	49.6	0.111	0.006	18.4
	KS4 - 1	CZ (grassland)	A (2)	0.4	68.9	30.7	3.076	0.116	26.5
	- 2		B (8)	0.1	66.4	33.5	0.546	0.025	22.3
	- 3		C (15)	nm	nm	nm	0.079	0.004	22.4
	KS6 - 1	CZ (tall tree)	A (2)	4.4	95.6	0	33.571	1.432	23.4
	- 2		B1 (7)	0.3	99.7	0.1	4.198	0.177	23.8
	- 3		B2 (10)	0.3	98.1	1.5	16.004	0.289	55.5
	- 4		B3 (12)	0.5	97.6	1.9	20.078	0.413	48.7
	- 5		B4 (15)	0	88.1	11.9	3.182	0.084	37.9
	- 6		B5 (20)	0	88	12	1.570	0.068	23.1
	- 7		B5 (30)	0	89.9	10.1	1.937	0.090	21.5
	- 8		C1 (45)	0	84.4	15.6	0.701	0.034	20.9
	- 9		C2 (60)	0	6.3	93.7	0.460	0.020	23.0
	- #		C3 (80)	0	4.5	95.4	0.215	0.011	19.5

Note, nm: :not measured

## 5.3 変質岩試料の全岩化学分析結果（主成分）

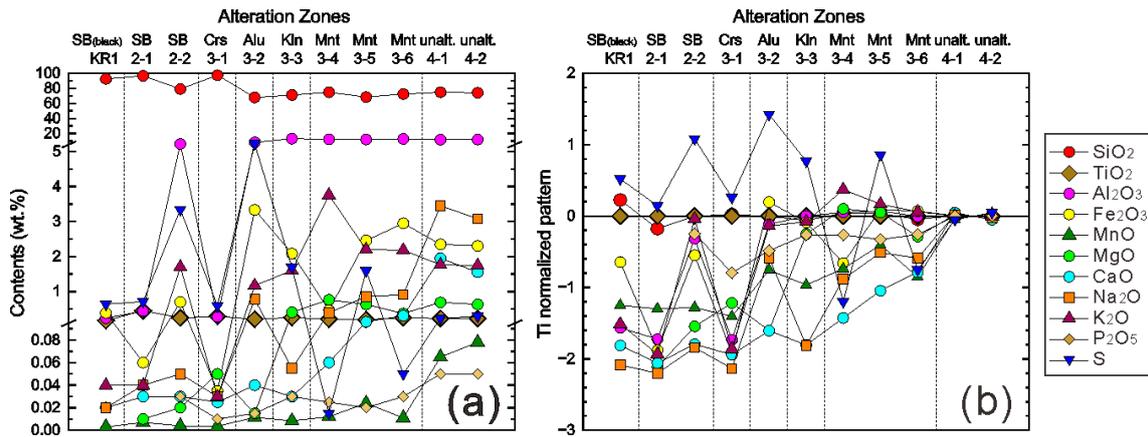
変質岩試料の主成分を第 5 表と第 4 図にとりまとめた。珪化体の黒色珪化岩脈（KR1）と白色多孔質珪化岩（KR2-1）は  $\text{SiO}_2$  に卓越し、その他の成分はいずれも 1wt.%以下であった。これに対し、含黒色異質礫珪化岩（KR2-2）は  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{K}_2\text{O}$ , S が相対的多く、粉末 X 線回折法では同定されなかったが、明礬石を含有する可能性が考えられた。 $\text{TiO}_2$  は含有量が珪化体から未変質帯まで変質分帯区分によらず殆ど変化しなかった。 $\text{Cr}_2\text{O}_3$  はどの試料でも定量限界以下であった。 $\text{P}_2\text{O}_5$  は珪化体ではほぼ失われていた。粘土化帯（KR3）は、Crs 帯（KR3-1）が珪化岩と同様に  $\text{SiO}_2$  に富んでいた。Alu 帯（KR3-2）は Crs 帯と比較して  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$ , S に富み、そのうちの S 含有量は試料中で最大であった。Kln 帯（KR3-3）は Alu 帯と比較して  $\text{Al}_2\text{O}_3$  が高含有量であった。Mnt 帯（KR3-4, 5, 6）は Kln 帯までと比較して  $\text{MgO}$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{MnO}$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$  に富んでいたが、 $\text{K}_2\text{O}$  を除き未変質帯（KR4-1, 2）の含有量には未だ達していなかった。Mnt 帯は  $\text{MgO}$  が  $\text{CaO}$  より多かったが、未変質帯はその逆であった。

第5表 変質岩試料の全岩化学分析結果（主成分）.

Sample No.	KR1 (SB)		KR2 (SB)		KR3 (CZ)						KR4 (NA)	
	black vein		KR2-1 white	KR2-2 breccia	KR3-1 Crs	KR3-2 Alu	KR3-3 Kln	KR3-4 Mnt	KR3-5 Mnt	KR3-6 Mnt	KR4-1 dark green	KR4-2 light green
Composition (wt.%)												
SiO <sub>2</sub>	92.57		96.62	79.1	97.19	67.82	70.99	74.76	68.41	72.46	74.87	73.85
TiO <sub>2</sub>	0.171		0.450	0.246	0.288	0.212	0.254	0.211	0.197	0.250	0.231	0.230
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.24		0.44	6.10	0.28	8.36	13.16	12.25	11.96	12.74	11.83	11.99
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.39		0.06	0.70	0.04	3.34	2.09	0.47	2.46	2.95	2.35	2.30
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	na		na	na	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
MnO	0.003		0.007	0.004	0.0035	0.0115	0.0085	0.012	0.024	0.011	0.065	0.078
MgO	<0.01		0.01	0.02	0.05	0.02	0.41	0.77	0.63	0.37	0.69	0.63
CaO	0.02		0.03	0.03	0.03	0.04	0.03	0.06	0.14	0.31	1.95	1.55
Na <sub>2</sub> O	0.02		0.04	0.05	0.03	0.78	0.06	0.39	0.86	0.91	3.45	3.08
K <sub>2</sub> O	0.04		0.04	1.70	0.03	1.17	1.60	3.76	2.20	2.18	1.77	1.74
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	<0.01		<0.01	0.03	0.01	0.02	0.03	0.03	0.02	0.03	0.05	0.05
LOI	5.13		1.75	10.32	1.94	17.81	9.98	5.98	11.71	6.303	2.97	3.47
Total	98.59		99.45	98.29	99.84	99.54	98.60	98.67	98.58	98.5	100.2	98.97
H <sub>2</sub> O+	na		na	na	1.6	4.9	3.4	2.5	3.5	3.3	1.4	2.0
H <sub>2</sub> O-	na		na	na	0.4	1.4	1.8	3.0	4.2	2.1	0.5	0.8
S.total	0.64		0.71	3.34	0.59	6.32	1.69	0.02	1.59	0.05	0.23	0.29
C	na		na	na	na	na	na	na	na	na	0.43	0.36

Note, na: not analyzed.

前述のように TiO<sub>2</sub>は含有量が変質分帯区分によらず一定であった。そこで、Ti 規格化値を算出した（第4図）。本値は Ti 含有量を基準に、 $\log((M_x/M_{Ti})_{alt}/(M_x/M_{Ti})_{unalt})$  で定義し、alt は変質岩を、unalt は未変質岩を、M<sub>x</sub> と M<sub>Ti</sub> は変質岩の化学成分 X と Ti 含有量であり、未変質岩には試料 KR4 の平均値を与えた。SiO<sub>2</sub> と TiO<sub>2</sub> は Ti 規格化値が珪化体から未変質帯まで一定であった。その他の主成分は珪化体から未変質帯へ向かって Ti 規格化値が段階的に増加した。珪化体の試料 KR2-2 は黒色異質礫片を含んだので除外すると、P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> は珪化体～Crs 帯で、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、K<sub>2</sub>O は Crs 帯～Alu 帯で、MgO は Alu 帯～Kln 帯で、Na<sub>2</sub>O は Kln 帯から Mnt 帯で急増し、CaO と MnO は粘土化帯を通じて徐々に増加した。Na<sub>2</sub>O、S、LOI は Ti 規格化値が珪化岩（KR2-2）と Alu 帯（KR3-2）で極大を示し、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は黒色珪化岩脈（KR1）が白色多孔質珪化岩（KR2-1）より大きかった。熱水変質作用が遠方まで及んだ順は CaO、Na<sub>2</sub>O、MnO、MgO、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、K<sub>2</sub>O、P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、SiO<sub>2</sub>、TiO<sub>2</sub> であり、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> は珪化体の中心域で若干添加され、Na<sub>2</sub>O と S は明礬石の生成に関係して局所的に沈殿した。



第4図 変質岩試料の主成分の全岩化学分析結果。(a) 含有量, (b) Ti規格化値。

#### 5.4 変質岩試料の全岩化学分析結果 (微量成分)

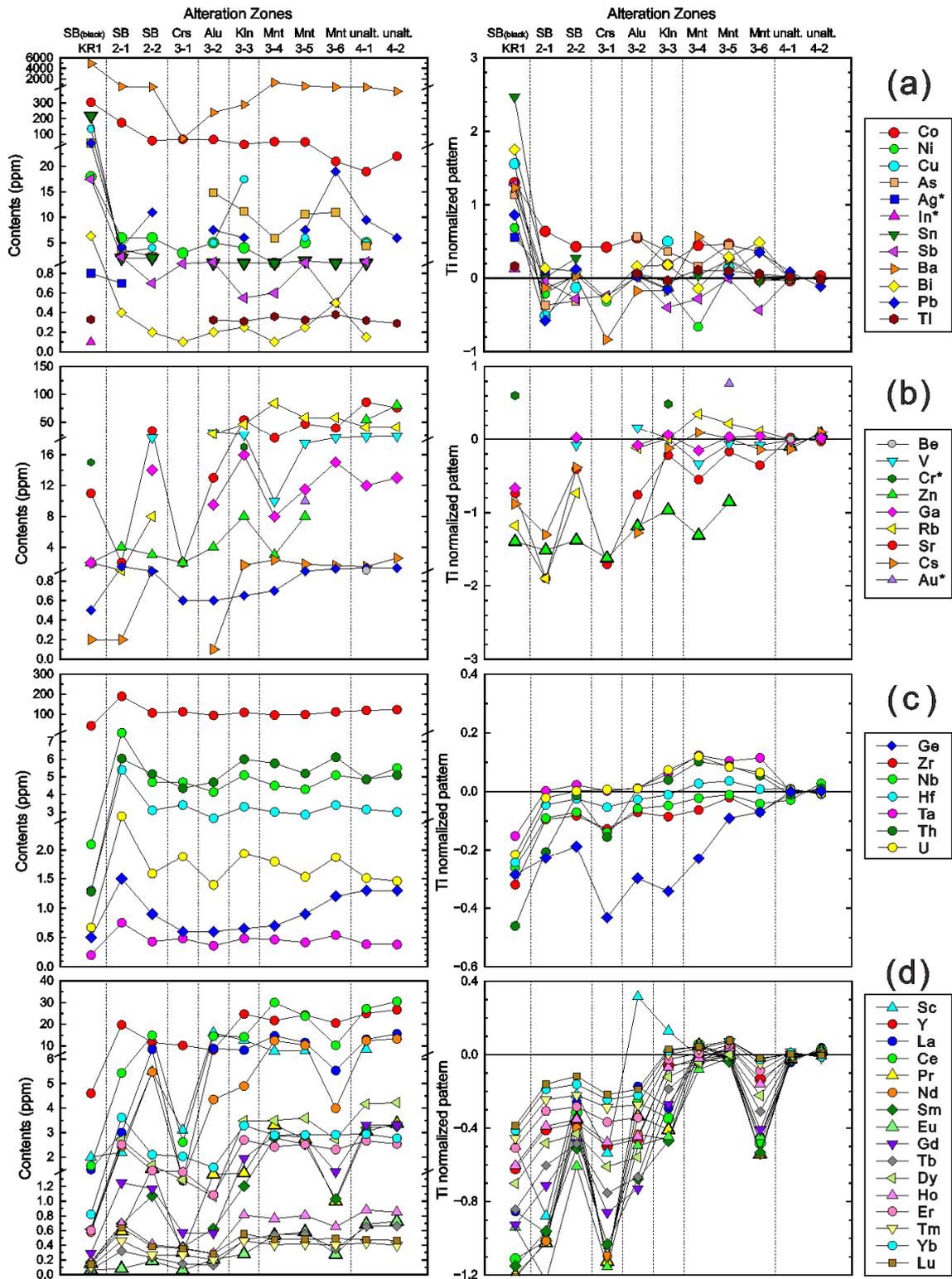
微量成分の全岩化学分析結果を第6表に, Ti規格化値を第5図に示した。但し, Se, Br, Mo, Cd, Ir はいずれの試料でも定量限界以下であり, W は試料の微粉碎時にミルからの混入で高含有量を示したので, 本整理の対象とはせず, Cr, Ag, In, Au は未変質岩試料が定量限界以下であったため, Ti規格化値は定量下限値を用いて算出した。

微量成分は珪化体から未変質岩へ向かっての含有量の変化から次の3つに区分した。珪化体から縁辺に向かって含有量が低下した成分は Co, Ni, Cu, As, Ag, In, Sn, Sb, Ba, Bi, Pb, Tlであった(第5a図)。含有量が増加した成分は V, Ga, Rb, Sr, Cs とおそらく Znであった(第5b図)。このうち Ga, Rb, Sr, Cs は珪化体では黒色珪化岩脈(KR1)が白色多孔質珪化岩(K2-1)より含有量が大きかったが, 非常に富むというほどではなかった。変質分帯区分によらず含有量が殆ど一定であった成分は Ge, Zr, Nb, Hf, Ta, Th, Uであった(第5c図)。これらは珪化体から縁辺に向かって若干増加するが, その割合は他の微量成分と比較して小さかった。Sc, Y, 希土類元素(REEs)は含有量が大局的には珪化体から縁辺に向かって増加し, 含黒色異質礫珪化岩(KR2-2)とAlu帯(KR3-2)で極大を示した(第5d図)。

第6表 変質岩試料の全岩化学分析結果 (微量成分).

Sample No.	KR1 (SB)		KR2 (SB)		KR3 (CZ)						KR4 (NA)	
	black vein		KR2-1 white	KR2-2 breccia	KR3-1 Crs	KR3-2 Alu	KR3-3 Kln	KR3-4 Mnt	KR3-5 Mnt	KR3-6 Mnt	KR4-1 dark green	KR4-2 light green
Composition (ppm)												
Be	<1		<1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	na	1	na
Sc	2.0		2.2	5.5	3.1	16.1	12.6	7.6	7.7	na	8.5	na
V	<5		<5	21	<5	32	27	10	18	21	23	24
Cr	15		<5	<20	<5	<5	17	<5	<5	<20	<5	<20
Co	305		174	59	68	67	35	53	51	21	19	22
Ni	18		6	6	3	5	4	1	5	<20	5	<20
Cu	135		3	4	<1	5	18	<1	6	<10	5	<10
Zn	2		4	3	2	4	8	3	8	<30	54	80
Ga	2		<1	14	<1	10	16	8	12	15	12	13
Ge	0.5		1.5	0.9	0.6	0.6	0.7	0.7	0.9	1.2	1.3	1.3
As	44.8		3.7	2.3	<0.5	14.9	11.2	5.9	10.6	11	4.4	<5
Se	<3		<3	<3	<3	<3	<3	<3	<3	na	<3	na
Br	<0.5		<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	na	<0.5	na
Rb	2		1	8	<1	29	46	84	58	58	41	41
Sr	11		2	34	2	13	54	21	47	39	86	76
Y	4.6		19.7	11.7	10.3	8.2	24.7	21.7	24.2	20.6	24.9	26.7
Zr	43		190	107	113	95	110	96	99	112	120	123
Nb	2.1		8.2	4.7	4.7	4.2	5.1	4.5	4.3	5.1	4.9	5.5
Mo	<2		<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2	<2
Ag	0.8		0.7	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	<0.5	<0.3	<0.5
Cd	<0.5		<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	na	<0.5	na
In	0.1		<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
Sn	218		2	2	<1	1	1	1	2	1	1	<1
Sb	17.5		2.2	0.7	0.9	1.2	0.6	0.6	1.1	0.5	1.3	<0.2
Cs	0.2		0.2	0.9	<0.1	0.1	1.7	2.4	1.8	1.6	1.5	2.6
Ba	4932		561	446	72	240	289	1312	599	451	407	374
La	1.49		3.00	8.43	1.28	8.84	8.08	14.65	11.65	5.53	13.05	15.60
Ce	1.65		5.44	14.9	2.62	14.50	14.25	29.95	23.75	10.30	27.05	30.50
Pr	0.15		0.59	1.53	0.30	1.37	1.38	3.32	2.73	1.00	3.06	3.37
Nd	0.58		2.43	5.48	1.29	4.35	4.90	12.45	10.39	4.00	12.45	13.30
Sm	0.17		0.69	1.07	0.38	0.63	1.21	2.79	2.53	1.03	3.20	3.27
Eu	0.060		0.081	0.186	0.062	0.207	0.278	0.537	0.582	0.274	0.687	0.724
Gd	0.29		1.25	1.17	0.57	0.57	1.96	2.88	2.82	1.40	3.32	3.29
Tb	0.07		0.32	0.23	0.15	0.13	0.47	0.54	0.56	0.35	0.66	0.66
Dy	0.62		2.70	1.66	1.29	1.07	3.49	3.50	3.59	2.73	4.17	4.22
Ho	0.16		0.69	0.41	0.36	0.29	0.81	0.76	0.81	0.65	0.88	0.85
Er	0.60		2.51	1.45	1.40	1.09	2.70	2.43	2.52	2.31	2.67	2.54
Tm	0.108		0.460	0.266	0.267	0.203	0.459	0.409	0.416	0.403	0.430	0.399
Yb	0.82		3.62	2.1	2.03	1.58	3.30	2.90	2.91	2.92	2.94	2.77
Lu	0.143		0.636	0.383	0.356	0.280	0.554	0.475	0.480	0.488	0.475	0.465
Hf	1.3		5.4	3.1	3.4	2.7	3.3	3.0	2.9	3.4	3.2	3.0
Ta	0.20		0.75	0.43	0.48	0.36	0.49	0.47	0.42	0.54	0.39	0.38
W	591		1210	717	925	481	411	396	348	233	215	278
Ir	<5		<5	<5	<5	<5	<5	<5	<5	na	<5	na
Au	<2		<2	<2	<2	<2	<2	<2	10.00	na	<2	na
Tl	0.33		<0.05	<0.05	<0.05	0.33	0.31	0.36	0.33	0.38	0.32	0.29
Pb	42		4	11	<3	8	6	<3	8	19	10	6
Bi	6.3		0.4	0.2	0.1	0.2	0.3	0.1	0.3	0.5	0.2	<0.1
Th	1.28		6.04	5.16	4.36	4.70	6.01	5.77	5.19	6.12	4.87	5.10
U	0.67		2.76	1.59	1.89	1.40	1.94	1.79	1.54	1.87	1.51	1.46

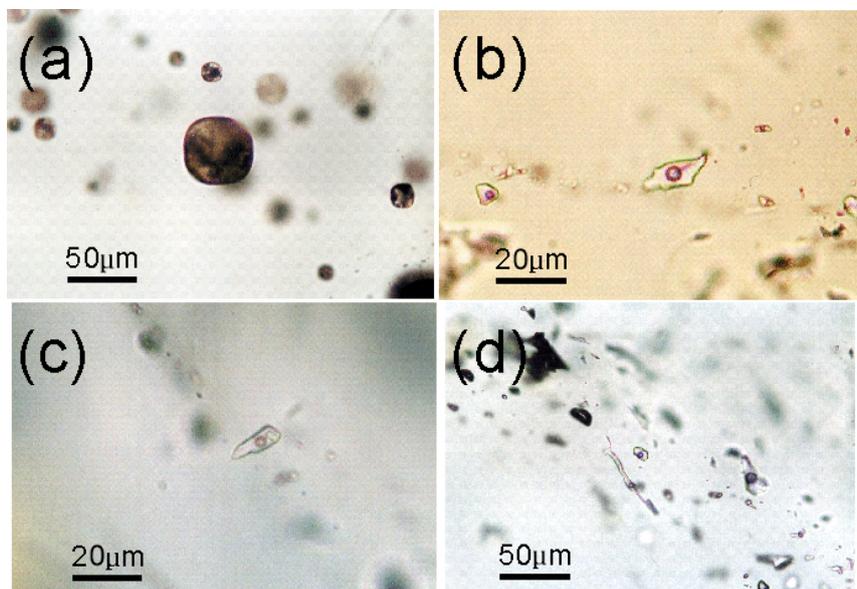
Note, na: not analyzed.



第 5 図 変質岩試料の微量元素の全岩化学分析結果 (左) と Ti 規格化値 (右)。(a) 珪化体から縁辺に減少する成分, (b) 珪化体から縁辺に増加する成分, (c) ほぼ一定の成分, (d) Sc, Y, REEs. \*: Ti 規格化値の計算において未変質岩の含有量を定量下限値とした。

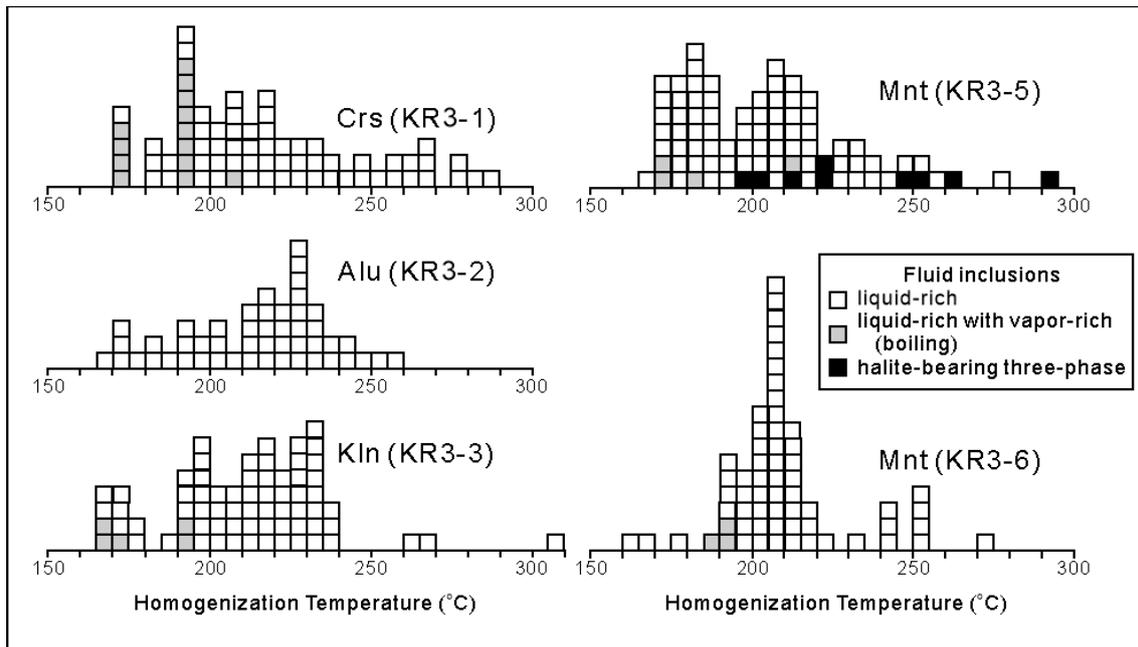
## 5.5 流体包有物の温度測定結果

変質岩試料 (KR3) の母岩である皆瀬川層の石英安山岩質凝灰岩は大きさ数 mm 径の石英粒を含み, 石英粒はガラス包有物と流体包有物を包含した (第 6 図). ガラス包有物はマグマ中で石英が結晶成長した際に周囲のメルトを包有したものであり, 流体包有物は凝灰岩堆積後に熱水活動で石英粒の割れ目に周囲の熱水を捕獲したものである. 流体包有物は主に液相包有物と気相包有物であり, 希に多相包有物が認められ, 固相はハライトと思われる. 前二者はしばしば一つの閉塞面に沿って共存し, 捕獲時の流体が沸騰していたことを示唆した.



第 6 図 流体包有物の産状. (a) ガラス包有物, (b) 液相包有物, (c) 多相包有物, (d)沸騰を示唆する液相包有物と気相包有物.

液相包有物を加熱し気相が消失する温度 (均質化温度: Th) を測定した (第 7 図). クリストバライト帯 (KR3-1) の液相包有物の Th は 170~290°C, アルーナイト帯 (KR3-2) の液相包有物の Th は 165~260°C, カオリナイト帯 (KR3-3) の液相包有物の Th は 165~310°C, モンモリロナイト帯 (KR3-5, 6) の液相包有物の Th は 160~295°Cであり, 縁辺に向かって Th が低下する傾向が認められた. 液相包有物のうち気相包有物と共存し沸騰を示唆したものの Th は 165~215°Cであった. 多相包有物は試料 KR3-5 に観察され, ハライトの消失温度は 195~200°Cで, 均質化温度は 195~295°Cにばらついた. クリストバライト帯の結果は武内 (1984) に報告された流体包有物の均質化温度 (約 180~290°C) に一致し, モンモリロナイト帯の結果はその低温側に一致した.



第7図 流体包有物の均質化温度の頻度分布図。

## 5.6 土壤試料の全岩化学分析結果（主成分）

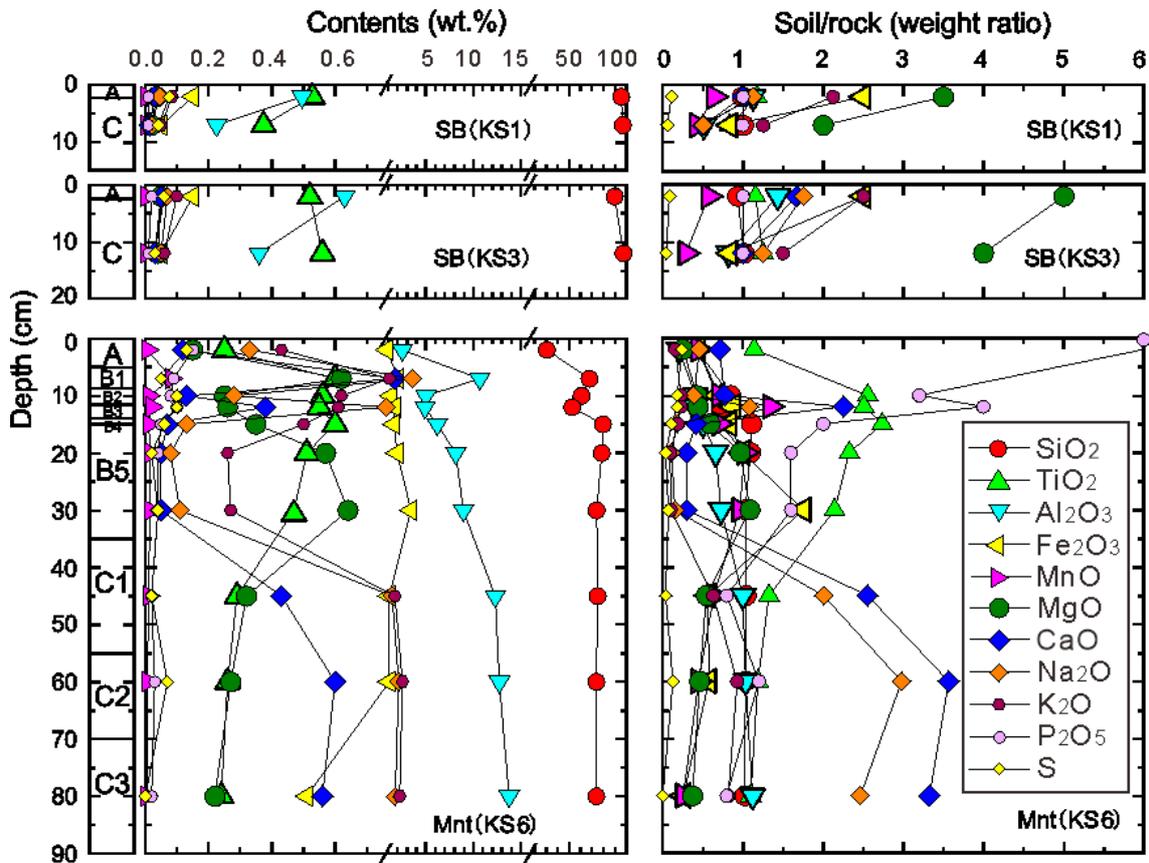
土壤試料の全岩化学分析は、珪化体の裸地下の未成熟土壤（KS1）、高木植生下の成熟土壤（KS3）、粘土化帯（Mnt帯）の高木植生下の成熟土壤（KS6）について行った（第1表）。主成分組成を第7表に示し、その含有量と含有量比の深度変化を第8図に示した。ここで、含有量比は試料KS1とKS2が珪化岩試料KR2-1に、試料KS6が粘土化帯（Mnt帯）試料KR3-4～6の平均値に対してであり、前者では $P_2O_5$ に定量下限値を与えた。

珪化体土壤の主成分は、試料KS1の $SiO_2$ と試料KS3の $SiO_2$ と $TiO_2$ が表層で相対的低含有量であったが、その他の成分は表層で相対的高含有量を示した。含有量比は $MgO$ 、 $Fe_2O_3$ 、 $K_2O$ が1より大きく、 $MnO$ と $S$ が1より小さく、その他の成分は1前後であった。

粘土化帯の成熟土壤（KS6）は、B1層が微粉状の珪化礫片を含んでいたのを除外すると、 $SiO_2$ がB4層から表層に向かって、 $Al_2O_3$ がC1層から表層に向かって含有量を徐々に低下した。 $MgO$ はB5層で含有量が極大を示し、 $MnO$ と $Fe_2O_3$ も含有量比では同層で極大を示した。 $CaO$ 、 $Na_2O$ 、 $K_2O$ はC1層とB5層の境界で含有量を低下し、B2～B4層で小さな極大を示した。C1～C3層は $MgO$ より $CaO$ に富み、モンモリロナイト帯の変質岩試料KR3-4～6とは量比が逆であった。 $TiO_2$ と $P_2O_5$ はC1層とB5層の境界から表層へ向かって徐々に含有量を増加し、前者は表層が低含有量となったが、 $P_2O_5$ は表層まで増加が続いた。

第7表 土壤試料の全岩化学分析結果 (主成分).

Sample No.	KS1 (SB)		KS3 (SB)		KS7 (CZ)									
	bare ground		tall tree		tall tree									
	KS1-1 A (2)	KS1-2 C (7)	KS3-1 A (2)	KS3-2 C (12)	KS7-1 A (2)	KS7-2 B1 (7)	KS7-3 B2 (10)	KS7-4 B3 (12)	KS7-5 B4 (15)	KS7-6 B5 (20)	KS7-7 B5 (30)	KS7-8 C1 (45)	KS7-9 C2 (60)	KS7-10 C3 (80)
Composition (wt.%)														
SiO <sub>2</sub>	95.61	97.11	89.94	97.64	30.54	67.79	60.81	52.73	79.59	78.53	74.06	74.98	73.91	73.85
TiO <sub>2</sub>	0.53	0.37	0.52	0.56	0.25	0.60	0.56	0.55	0.60	0.51	0.47	0.29	0.26	0.24
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.50	0.23	0.63	0.36	2.5	10.67	4.99	4.89	6.2	8.14	8.94	12.31	12.74	13.79
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.15	0.05	0.15	0.05	0.86	2.07	1.33	1.71	1.61	1.95	3.43	1.11	1.12	0.51
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01
MnO	0.005	0.003	0.004	0.002	0.007	0.083	0.011	0.021	0.011	0.016	0.015	0.010	0.007	0.004
MgO	0.04	0.02	0.05	0.04	0.15	0.62	0.25	0.26	0.35	0.57	0.64	0.32	0.27	0.22
CaO	0.03	0.02	0.05	0.03	0.12	1.74	0.13	0.38	0.07	0.05	0.05	0.43	0.60	0.56
Na <sub>2</sub> O	0.05	0.02	0.07	0.05	0.33	3.51	0.28	0.78	0.13	0.08	0.11	1.44	2.14	1.77
K <sub>2</sub> O	0.09	0.05	0.10	0.06	0.43	1.14	0.62	0.61	0.50	0.26	0.27	1.71	2.51	2.22
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.01	0.01	0.02	0.01	0.15	0.09	0.08	0.10	0.05	0.04	0.04	0.02	0.03	0.02
LOI	2.52	0.84	6.66	0.71	63.23	10.26	29.56	36.82	9.34	8.82	10.70	6.41	5.40	5.57
Total	99.52	98.71	98.18	99.50	98.56	98.56	98.62	98.85	98.45	98.97	98.72	99.03	98.97	98.75
H <sub>2</sub> O+	1.5	1.2	<0.1	1.3	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	4.4	3.2	2.8	3.1
H <sub>2</sub> O-	0.4	0.3	0.7	<0.1	5.4	1.2	3.1	3.4	2.2	2.8	3.0	1.9	1.8	2.1
S.total	0.08	0.04	0.06	0.03	0.13	0.05	0.10	0.10	0.06	0.02	0.04	0.02	0.07	<0.1



第8図 土壤試料の主成分組成の深度変化 (左:含有量, 右:含有量比).

## 5.7 土壤試料の全岩化学分析結果（微量成分）

土壤試料の微量成分組成を第 8 表に、含有量と含有量比の深度変化を第 9 図に示した。

第 8 表 土壤試料の全岩化学分析結果（微量成分）。

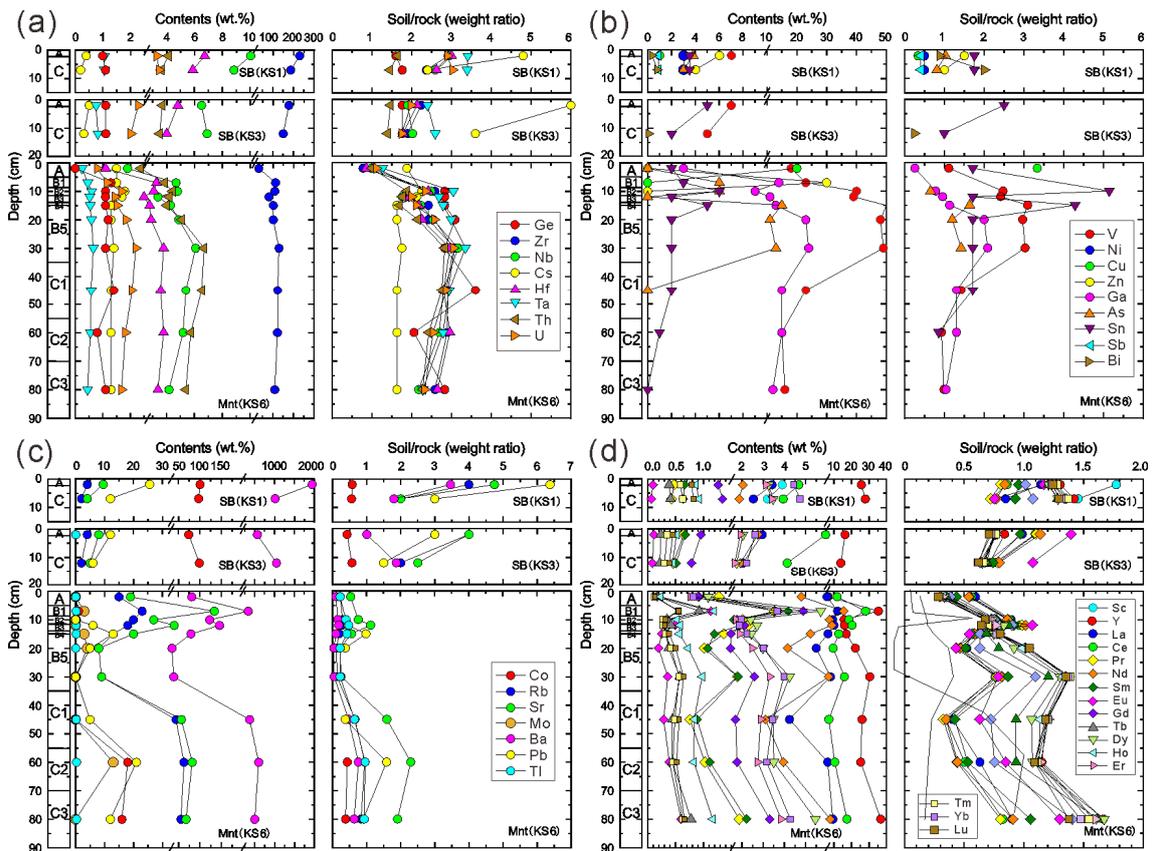
Sample No.	KS1 (SB)		KS3 (SB)		KS7 (CZ)									
	bare ground		tall tree		tall tree									
	KS1-1 A (2)	KS1-2 C (7)	KS3-1 A (2)	KS3-2 C (12)	KS7-1 A (2)	KS7-2 B1 (7)	KS7-3 B2 (10)	KS7-4 B3 (12)	KS7-5 B4 (15)	KS7-6 B5 (20)	KS7-7 B5 (30)	KS7-8 C1 (45)	KS7-9 C2 (60)	KS7-10 C3 (80)
Composition (ppm)														
Be	<1	<1	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na
Sc	3.9	3.2	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na
V	7	<5	7	5	18	23	40	39	50	48	49	23	15	16
Cr	<20	<20	<20	<20	<20	<20	40	20	40	<20	<20	<20	<20	<20
Co	101	97	74	99	<1	1	<1	<1	<1	<1	<1	<1	18	16
Ni	3	3	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20	<20
Cu	1	<1	<10	<10	20	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<10
Zn	6	4	<30	<30	<30	30	<30	<30	<30	<30	<30	<30	<30	<30
Ga	<1	<1	<1	<1	3	14	9	11	13	23	24	15	15	12
Ge	1.0	1.1	1.1	1.1	<0.5	1.3	1.1	1.1	1.1	1.2	1.1	1.4	0.8	1.1
As	3.8	3.0	<0.5	<0.5	<5	6	6	<5	15	11	13	<5	<5	<5
Se	<3	<3	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na
Br	<0.5	<0.5	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na
Rb	4	2	4	2	15	23	20	18	13	8	9	44	63	56
Sr	10	4	8	5	19	134	27	40	20	8	9	57	82	68
Y	25.7	28.0	16.5	14.1	6.9	35.5	16	16.2	17.2	22.4	30.6	26.3	25.5	36.9
Zr	231	188	177	150	33	114	110	82	103	103	131	124	123	110
Nb	10.1	8.9	6.5	6.9	1.9	4.7	4.8	3.4	4.3	4.9	6.1	5.4	5.2	4.2
Mo	<2	<2	<2	<2	<2	3	<2	<2	3	4	<2	<2	13	<2
Ag	<0.3	<0.3	<0.5	<0.5	1.1	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5
Cd	<0.5	<0.5	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na
In	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
Sn	4	4	5	2	2	3	6	2	5	2	2	2	1	<1
Sb	0.9	0.9	na	na	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
Cs	0.4	0.2	0.5	0.3	1.5	1.5	1.8	1.7	1.3	1.3	1.4	1.3	1.3	1.3
Ba	1941	1012	564	1050	81	337	123	146	79	35	39	372	599	502
La	3.43	2.54	2.96	2.06	6.30	12.30	9.48	10.20	6.86	5.52	8.24	4.26	6.70	9.57
Ce	4.68	3.95	5.95	4.14	12.00	28.20	18.80	20.60	13.00	9.75	16.20	7.41	10.70	17.60
Pr	0.48	0.43	0.65	0.46	1.28	3.54	2.04	2.31	1.37	1.02	1.80	0.76	1.03	1.89
Nd	2.05	1.87	2.76	1.93	4.81	15.70	7.70	9.07	5.25	4.16	7.29	3.12	3.98	8.13
Sm	0.66	0.64	0.67	0.51	0.92	4.18	1.63	1.94	1.20	1.08	1.83	0.89	1.12	2.23
Eu	0.095	0.061	0.113	0.087	0.179	1.140	0.351	0.497	0.252	0.200	0.364	0.292	0.393	0.603
Gd	1.27	1.35	0.96	0.79	0.91	4.90	1.78	2.13	1.50	1.49	2.59	1.71	1.78	3.32
Tb	0.39	0.41	0.24	0.22	0.17	0.93	0.35	0.42	0.33	0.38	0.58	0.45	0.45	0.78
Dy	3.26	3.47	2.05	1.76	1.09	5.73	2.42	2.72	2.45	3.00	4.26	3.48	3.51	5.47
Ho	0.87	0.92	0.52	0.45	0.24	1.20	0.53	0.58	0.57	0.73	0.98	0.84	0.83	1.17
Er	3.15	3.42	1.93	1.67	0.77	3.68	1.74	1.85	1.93	2.50	3.32	2.91	2.76	3.86
Tm	0.588	0.630	0.352	0.303	0.120	0.557	0.284	0.285	0.325	0.425	0.567	0.491	0.456	0.632
Yb	4.45	4.74	2.63	2.23	0.82	3.67	1.98	1.90	2.25	3.03	3.99	3.47	3.18	4.29
Lu	0.79	0.82	0.45	0.39	0.14	0.57	0.32	0.31	0.39	0.50	0.65	0.57	0.52	0.66
Hf	6.8	5.9	4.8	4.0	1.1	3.3	3.1	2.5	2.8	2.9	3.8	3.6	3.8	3.4
Ta	1.07	1.06	0.75	0.81	0.25	0.46	0.60	0.53	0.55	0.59	0.66	0.58	0.55	0.45
W	1056.0	873.0	718.0	1060.0	0.5	1.1	1.1	1.1	0.9	0.8	0.8	0.6	189.0	183.0
Ir	<5	<5	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na
Au	<2	<2	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na	na
Tl	<0.05	<0.05	0.06	<0.05	0.08	0.16	0.14	0.17	0.15	0.08	0.08	0.23	0.34	0.33
Pb	26	12	12	6	<5	<5	<5	6	13	5	<5	5	21	12
Bi	0.4	0.8	<0.1	0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
Th	4.15	3.65	3.69	3.50	2.38	3.87	4.44	4.19	4.03	5.10	6.71	6.54	5.75	5.40
U	3.33	3.48	2.28	2.01	0.80	1.17	1.69	1.44	1.52	1.85	2.20	2.07	1.83	1.68

Note, na: not analyzed.

どの試料においても Be, Se, Br, Cd, In, Ir, Au は定量限界以下あるいは未分析であり, Sc, Cr, Ni, Cu, Zn, Mo, Ag, Sb, Bi は少数の試料にのみ定量された。

珪化体の裸地下 (KS1) と高木植生下 (KS3) の土壌は, 表層で高含有量を示した成分が V, Rb, Sr, Zr, Cs, LREEs (La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu), Hf, Pb, Th で, 表層で低含有量を示した成分が Bi であり, その他の成分は試料毎に異なった。含有量比は多くが珪化岩 (KR2-1) より高く, 特に Rb, Sr, Zr, Nb, Cs, Hf, Ta, Pb が顕著であった。

粘土化帯の土壌 (KS6) は,  $\text{SiO}_2$  と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  のように B4 層~C1 層から表層に向かって含有量を低下した成分が Ge, Zr, Nb, Hf, Ta, Th, U であり,  $\text{MgO}$  のように B5 層で含有量の極大を示した成分が V, Ga, As であり,  $\text{CaO}$  のように C1 層と B5 層の境界から含有量を低下した成分が Co, Rb, Sr, Mo, Ba, Pb, Tl であり, これらは Co を除き B2~B4 層の  $\text{CaO}$  と同様な小さな極大を示し,  $\text{TiO}_2$  のように表層に向かって含有量を増加した成分が Sn と Cs であった。Y, Sc, REEs は極値を示しながら表層に向かって含有量を低下した。



第 9 図 土壌試料の微量元素の深度変化 (左: 含有量, 右: 含有量比). (a)  $\text{SiO}_2$  と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  に変化が類似した成分, (b)  $\text{MgO}$  に類似した成分, (c)  $\text{CaO}$  に類似した成分と, (d) Y, Sc, REEs.

## 5.8 水試料の化学分析結果

水試料の化学分析結果を第 9 表に整理した。但し、Li, Br, NO<sub>2</sub>, NO<sub>3</sub>, PO<sub>4</sub>はいずれの試料においても定量限界以下であった。

川原毛地区の温泉水 (KW1) は pH1.5 の Cl に富む Mg・Ca-Cl・SO<sub>4</sub> 型泉質であった。温泉から下流で採取した沢水 (KW2) は温泉水が温度 45°C に低下し、濃度が約半分に希釈されていた。珪化体の溜水 (KW3) と湧水 (KW4) は pH2.1~2.3 の Cl を含まない Na・Mg (・Ca) -SO<sub>4</sub> 型水質であった。粘土化帯の湧水 (KW5, 6) は pH6.2~6.4 の Al と Fe を含まない低濃度の Na・Mg・Ca-SO<sub>4</sub> (・Cl) 型水質であり、沢水 (KW7) より Mg, Ca, SO<sub>4</sub> に富んでいた。

泥湯地区では、北部の変質帯の泥池の温泉水 (DS1, DS2) は pH2.7~2.8 の Cl に乏しく Al と Fe に富む Na・Mg・Ca-SO<sub>4</sub> 型泉質であった。南部の温泉水は試料 DS3 が pH2.5 の Al と Fe に富む Mg・Ca-SO<sub>4</sub> 型泉質であり、試料 DS4 が pH2.8 の Al と Fe に乏しい Na・Mg・Ca-SO<sub>4</sub>・Cl 型泉質であった。

第 9 表 水試料の化学分析結果。

Area	Kawarage							Doroyu			
	KW1	KW2	KW3	KW4	KW5	KW6	KW7	DW1	DW2	DW3	DW4
Sample No.	hotspring	stream	pool	seepage	seepage	seepage	steam	hotspring	hotspring	hotspring	hotspring
Temp.(°C)	94.3	45	7.3	nm	nm	10.5	6.7	90.1	97.8	74.0	66.0
pH	1.5	1.8	2.1	2.3	6.4	6.2	6.3	2.8	2.7	2.5	2.8
EC (μS/cm)	19800	8300	6100	2300	87	92	33	1090	1550	2200	1400
Composition (mg/L)											
Li	<3	<2	<0.8	<0.4	<0.02	<0.02	<0.008	<0.2	<0.2	<0.4	<0.2
Na	63	27	5.3	8.5	7.7	7.5	4.4	14	9.6	17	79
K	49	21	4.8	5.2	2.0	2.0	2.4	6.1	3.8	8.4	24
NH <sub>4</sub>	<16	<8	<4	<2	<0.08	<0.08	0.12	1.5	<1	17	<1
Mg	153	66	1.9	3.9	2.4	2.3	0.71	21	4.0	32	25
Ca	143	60	3.1	1.8	6.0	5.7	2.0	26	11	104	36
Sr	0.35	0.21	0.021	0.020	0.028	0.025	0.0075	0.11	<0.1	0.24	0.11
Ba	0.050	0.17	0.0052	0.010	0.0094	0.0072	0.0036	0.015	<0.1	0.13	0.066
Al	93	41	11	30	<0.2	<0.6	<0.1	34	53	17	0.23
Cr	0.90	0.25	<0.03	0.036	0.0027	0.0036	<0.001	0.10	0.061	0.066	<0.05
Fe	68	33	8.7	19	<0.2	<0.6	<0.1	144	95	40	0.38
Mn	2.4	1.0	0.13	0.21	0.0024	0.0072	<0.001	0.60	0.075	2.2	0.54
Zn	4.1	1.2	0.11	0.077	0.011	0.0042	<0.001	0.34	0.18	0.31	<0.001
F	9.3	3.8	<0.5	<0.3	0.060	0.057	0.014	<0.1	<0.1	<0.3	0.52
Cl	2249	929	<6	<3	5.0	5.0	4.2	<2	<2	6.9	171
Br	<17	<9	<4	<2	<0.09	<0.09	<0.04	<1	<1	<2	<1
SO <sub>4</sub>	1400	579	1143	596	26	32	7.7	435	695	889	254
NO <sub>3</sub>	<25	<13	<6	<3	<0.1	<0.1	<0.06	<2	<2	<3	<2
NO <sub>2</sub>	<18	<9	<5	<2	<0.09	<0.09	<0.05	<1	<1	<2	<1
PO <sub>4</sub>	<65	<33	<16	<8	<0.3	<0.3	<0.2	<4	<4	<8	<4
SiO <sub>2</sub>	306	120	44	109	23	24	13	230	237	156	95
Water type	Mg・Ca -Cl・	Mg・Ca -Cl・	Na・Mg・ Ca-	Na・Mg -SO <sub>4</sub>	Na・Mg・ Ca-	Na・Mg・ Ca-	Na・Ca -SO <sub>4</sub> ・	Na・Mg・ Ca-	Na・Mg・ Ca-	Mg・Ca -SO <sub>4</sub>	Na・Mg・ Ca-
	SO <sub>4</sub>	SO <sub>4</sub>	SO <sub>4</sub>		SO <sub>4</sub> ・Cl	SO <sub>4</sub>	Cl	SO <sub>4</sub>	SO <sub>4</sub>		SO <sub>4</sub> ・Cl

Note, nm: not measured.

## 5.9 土壌間隙水の化学分析結果

土壌試料の間隙水の抽出結果と化学分析結果を第 10 表に整理した。間隙水の抽出は、珪化体縁辺の高木植生下 (KS3)、北の山稜麓の粘土化帯の草地植生下 (KS4)、珪化帯/粘土化帯の境界の裸地下～草地植生下 (KS5)、東の山稜頂部の粘土化帯の高木植生下 (KS6) の土壌からであった。

土壌間隙水は pF3 の抽出過程でしばしば水分量が多過ぎて漏洩した。そのため正確ではないが、抽出量は pF3 より pF4 が多かった (第 10 図)。pH は、試料 KS3 の A 層が 3.6～4.0、C 層が 5.2～6.0 と試料中最大で、試料 KS4 が 3.2～4.0 と試料中最小で、試料 KS5 の珪化体側が 3.3～4.2、粘土化帯側が 3.9～5.5 であった。湧水近傍の試料 KS4 は pH が湧水 (KW5) の pH6.4 より小さく、試料 KS5 は湧水 (KW4) の pH2.3 より大きかった。いずれの試料でも pH は pF3 が pF4 より大きかった。EC は、試料 KS3 が 156～500 $\mu$ S/cm、試料 KS4 が 260～1,020 $\mu$ S/cm、試料 KS5 が 470～4,300 $\mu$ S/cm、試料 KS6 が 96～390 $\mu$ S/cm であった。試料 KS4 と試料 KS5 の EC は近傍の湧水 (KW5, KW4) より、どちらも数倍大きかった。

土壌間隙水はしばしば茶色や青色を呈した (第 10 表)。化学分析結果は Li と Br がいずれの試料でも定量限界以下であり、NO<sub>2</sub> と PO<sub>4</sub> が少数の試料に定量されたのみであった。試料 KS3 は Na・K-SO<sub>4</sub>・Cl 型水質であり、主成分組成に Cl が含まれた。試料 KS4 は、層位と pF で陽イオン組成が異なり、A 層の pF3 が Ca・Zn-SO<sub>4</sub> 型、pF4 が Al・Zn-SO<sub>4</sub> 型、B 層の pF3 が Ca・Na-SO<sub>4</sub> 型、pF4 が H・Al-SO<sub>4</sub> 型であった。試料 KS5 は基本的に Al-SO<sub>4</sub> 型水質であり、層位により陽イオンに Ca, Mg, Fe が加わった。このうち珪化体側の試料 KS5-S1 は Al と SO<sub>4</sub> 濃度が試料中最大であった。試料 KS6 は、層位と pF で陽イオン組成が異なり、pF3 では A 層と B1 層が K・Na-SO<sub>4</sub> 型、B2 層が Ca-SO<sub>4</sub> 型、B3 層が K・Ca・Na-SO<sub>4</sub> 型、B5 層が Ca・K～K・Na・Ca-SO<sub>4</sub> 型水質を示し、pF4 では A 層と B1 層が K・Na～Na・K-SO<sub>4</sub> 型水質で pF3 とほぼ同じであったが、B2 層が Al・K-SO<sub>4</sub> 型、B3 層が Na-SO<sub>4</sub> 型、B5 層が Al・K～Al・Na-SO<sub>4</sub> 型水質と異なった。

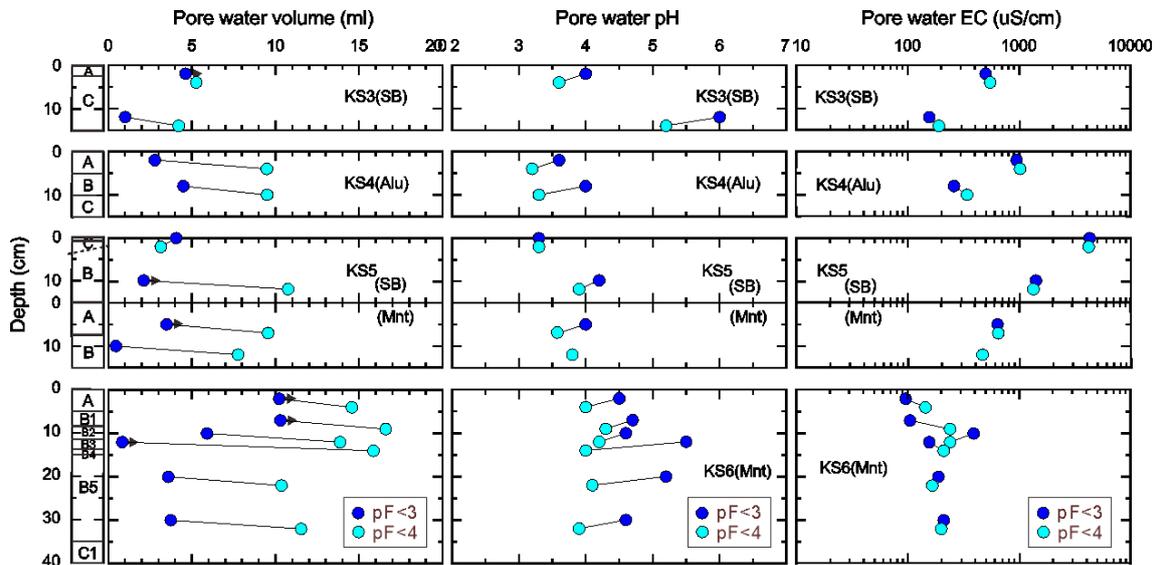
溶存成分の深度による変化を第 11 図に示した。試料 KS3 と試料 KS5 ではどの成分も深度と共に低下し、試料 KS6 では Na と K は余り変わらず、Ca は深度と共に増加したが pF3 と pF4 の差が大きくなり、Mg と Mn は徐々に増加し、Al は表層で急増し、逆に Fe は表層で急減し、Cl と SO<sub>4</sub> は表層で急増し、逆に SiO<sub>2</sub> は表層で急減した。

第 10 表 土壤間隙水の化学分析結果.

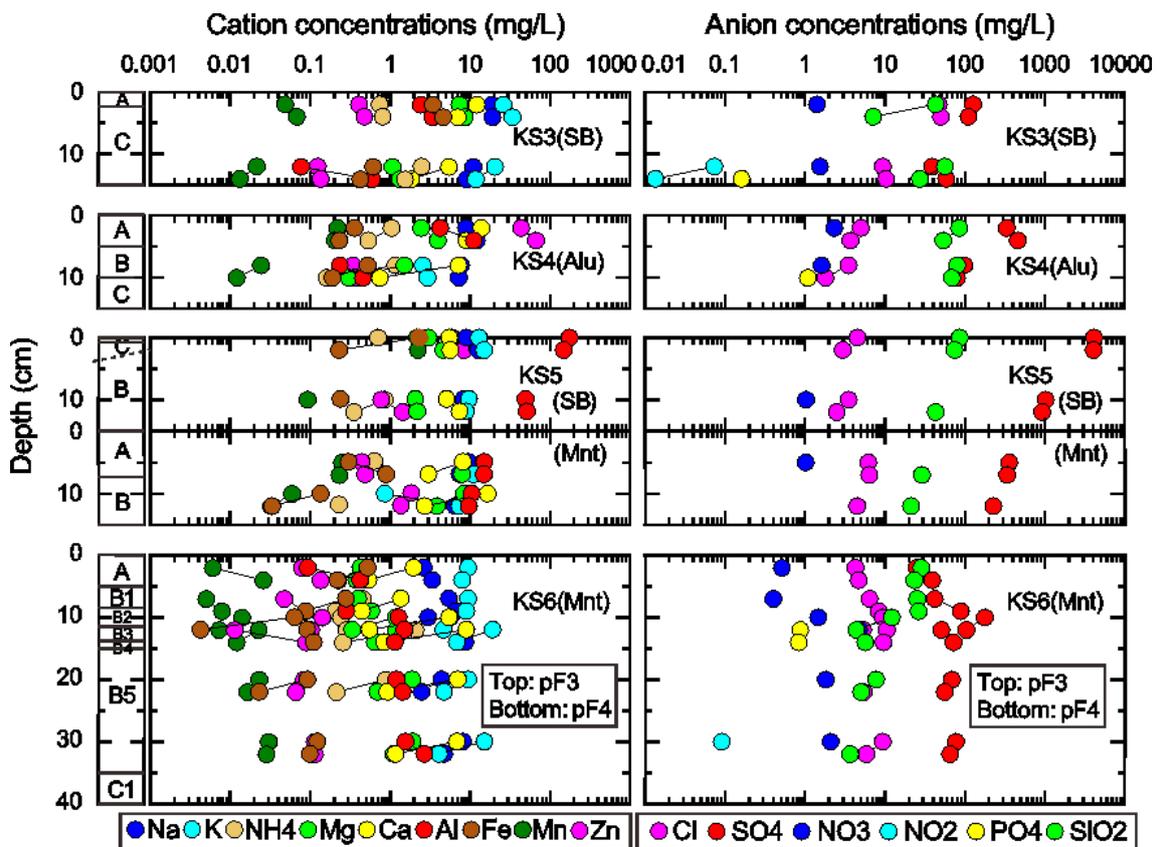
Sample No.	KS3				KS4				KS5					
	SB (tall tree)				Alu (grassland)				SB side (bare)		SB side (grass)		CZ side (grass)	
	KS3-1		KS3-2		KS4-1		KS4-2		KS5-S1		KS5-S2		KS5-C1	
Layer (cm depth)	A (2)		C (12)		A (2)		B (8)		C (0)		B (10)		A (5)	
Weight (g/100ml)	86.30		106.67		140.69		104.37		150.00		135.35		139.04	
Pore water	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)
Extraction (ml)	4.63	5.26	1.00	4.20	2.78	9.49	4.50	9.50	>4.05	3.14	>2.12	10.75	>3.49	9.55
Solution color	brown	brown	brown	brown	non	non	brown	brown	blue	blue	blue	blue	non	non
pH	4.0	3.6	6.0	5.2	3.6	3.2	4.0	3.3	3.3	3.3	4.2	3.9	4.0	3.6
EC (μS/cm)	500	550	156	190	950	1020	260	340	4300	4200	1420	1340	640	650
Composition (mg/L)														
Li	<0.05	<0.04	<0.01	<0.02	<0.1	<0.1	<0.03	<0.04	<0.5	<0.4	<0.1	<0.1	<0.05	<0.1
Na	18	18	11	8.9	8.8	12	7.6	7.2	8.9	12	8.3	8.0	9.4	7.3
K	25	33	20	11	4.2	11	2.5	2.9	13	15	9.6	8.8	15	11
NH <sub>4</sub>	0.72	0.80	2.4	1.5	1.0	0.53	1.2	0.16	0.69	<1	0.83	0.34	0.62	<0.3
Mg	7.2	8.4	1.0	1.3	2.4	3.9	1.5	0.30	3.0	4.6	2.1	2.2	8.1	7.9
Ca	11.8	6.8	5.3	1.8	13.8	9.0	7.1	0.74	5.4	5.6	5.1	7.3	8.1	3.0
Sr	0.067	0.037	0.032	0.012	0.11	0.025	0.044	0.0060	0.080	0.025	0.066	<0.3	0.066	0.036
Ba	0.051	0.081	0.036	0.074	0.025	0.03	0.017	0.033	<0.3	<0.1	0.002	<0.3	0.016	0.021
Al	2.3	3.3	0.075	0.58	4.2	11	0.23	0.45	173	147	49	51	15	15
Cr	na	0.018	na	0.0012	na	<0.3	na	0.0012	na	0.13	na	0.15	na	0.0072
Fe	3.3	4.5	0.60	0.41	0.36	0.23	0.52	0.19	2.3	0.23	0.24	<50	0.30	0.88
Mn	0.049	0.068	0.021	0.013	0.22	0.20	0.024	0.012	2.2	2.2	0.091	<0.5	0.25	0.23
Zn	0.41	0.48	0.13	0.14	43	65	0.34	0.35	6.0	8.5	0.78	1.5	0.44	0.48
F	0.24	0.15	0.018	<0.04	0.058	<0.2	<0.02	<0.07	0.61	<0.7	0.25	0.23	0.12	<0.2
Cl	46	50	9.4	10	4.9	3.6	3.5	1.8	4.5	2.9	3.5	2.5	6.2	6.3
Br	<0.2	<0.4	<0.07	<0.2	<0.5	<0.9	<0.1	<0.4	<2	<4	<0.6	<0.9	<0.2	<0.9
SO <sub>4</sub>	126	110	39	58	329	454	96	78	4134	4047	1019	919	357	337
NO <sub>3</sub>	1.4	<0.6	1.5	<0.3	2.3	<1	1.6	<0.6	<4	<6	1.0	<1	1.0	<1
NO <sub>2</sub>	<0.4	<0.02	0.073	0.013	<0.5	<0.05	<0.1	<0.02	<2	<0.2	<0.6	<0.05	<0.2	<0.05
PO <sub>4</sub>	<1	<0.2	<0.4	0.16	<3	<0.5	<0.8	1.1	<13	<2	<3	<0.5	<1	<0.5
SiO <sub>2</sub>	43	7.0	56	27	84	53	79	68	86	74	na	43	na	29
Water type	Na·K—	K·Na	K·Na	Na·K	Ca·Zn	Al·Zn	Ca·Na	H·Na	Al	Al	Al	Al·Fe	Al	Al
	SO <sub>4</sub> ·Cl	—SO <sub>4</sub> ·Cl	—SO <sub>4</sub> ·Cl	—SO <sub>4</sub>										

Sample No.	KS5		KS6											
	CZ side (grass)		CZ (tall tree)											
	KS5-C2		KS6-1		KS6-2		KS6-3		KS6-4		KS6-6		KS6-7	
Layer (cm depth)	B (10)		A (2)		B1 (7)		B2 (10)		B3 (12)		B5 (20)		B5 (30)	
Weight (g/100ml)	169.27		99.59		119.39		154.94		146.39		132.54		140.89	
Pore water	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)	(pF<3)	(pF<4)
Extraction (ml)	0.46	7.76	>10.22	14.57	>10.29	16.59	5.90	13.86	>0.84	15.86	3.59	10.36	3.73	11.54
Solution color	non	non	non	brown	non	non	non	non	non	non	non	non	non	non
pH	nm	3.8	4.5	4.0	4.7	4.3	4.6	4.2	5.5	4.0	5.2	4.1	4.6	3.9
EC (μS/cm)	nm	470	96	144	105	240	390	240	156	210	189	166	210	200
Composition (mg/L)														
Li	na	<0.04	<0.01	<0.02	<0.01	<0.03	<0.05	<0.03	<0.1	<0.03	<0.01	<0.02	<0.02	<0.03
Na	na	6.4	2.6	3.3	5.4	6.5	2.9	1.5	8.8	8.6	4.3	2.4	8.0	4.7
K	0.8	7.2	9.3	7.9	9.4	8.8	5.6	4.6	19	6.8	9.3	4.7	15	4.0
NH <sub>4</sub>	na	0.22	<0.04	0.22	0.45	0.20	0.24	0.28	2.0	0.25	0.86	0.21	1.6	<0.1
Mg	8.3	3.8	0.42	0.37	0.39	0.57	1.2	0.33	1.2	0.63	1.9	0.68	1.9	1.1
Ca	16.4	2.7	1.9	0.53	1.3	0.44	5.4	0.54	8.9	0.83	6.9	0.91	6.7	1.1
Sr	0.11	0.028	0.012	0.014	0.0080	0.0030	0.032	0.0036	0.056	0.0072	0.041	0.0054	0.040	0.0084
Ba	0.0065	0.024	0.0040	0.025	0.0030	0.0048	0.0050	0.0072	0.011	0.011	0.0060	0.0072	0.0090	0.019
Al	10	9.5	0.092	0.41	<0.3	0.28	1.3	1.5	<4	1.1	1.2	1.4	1.5	2.6
Cr	na	<0.01	na	0.0072	na	0.0024	na	<0.006	na	<0.006	na	<0.006	na	0.0084
Fe	0.13	0.033	0.51	0.22	0.28	0.086	0.063	0.0042	0.090	0.11	0.091	0.023	0.12	0.098
Mn	0.058	0.032	0.0060	0.026	0.0050	0.0078	0.014	0.0072	0.023	0.012	0.023	0.016	0.030	0.028
Zn	1.8	1.4	0.078	0.13	0.047	0.087	0.141	0.102	0.011	0.089	0.083	0.066	0.113	0.114
F	na	<0.07	<0.005	<0.04	<0.005	<0.08	<0.03	<0.08	<0.1	<0.08	0.16	<0.04	0.052	<0.08
Cl	na	4.5	4.2	4.6	6.4	8.2	9.3	5.3	10	9.4	7.7	5.3	9.3	5.8
Br	na	<0.4	<0.05	<0.2	<0.05	<0.4	<0.02	<0.4	<0.7	<0.4	<0.05	<0.4	<0.08	<0.4
SO <sub>4</sub>	na	226	25	38	42	87	176	103	50	71	68	55	76	65
NO <sub>3</sub>	na	<0.6	0.51	<0.3	0.40	<0.5	1.4	<0.5	4.7	<0.5	1.8	<0.3	2.1	<0.5
NO <sub>2</sub>	na	<0.02	<0.05	<0.05	<0.05	<0.1	<0.2	<0.1	<0.3	<0.1	<0.05	<0.05	0.090	<0.1
PO <sub>4</sub>	na	<0.2	<0.3	<0.2	<0.3	<0.3	<1	0.86	<0.2	0.82	<0.3	<0.2	<0.4	<0.3
SiO <sub>2</sub>	na	21	28	23	25	26	12	4.4	na	5.6	7.7	5.0	na	3.6
Water type	Al·Ca·	Al	K·Na	K·Na	K·Na	Na·K	Ca	Al·K	K·Ca·Na	Na	Ca·K	Al·K	K·Na·Ca	Al·Na
	Mg	—SO <sub>4</sub> ·Cl	—SO <sub>4</sub>											

Note, nm: not measured, and na: not analyzed.



第 10 図 土壌間隙水の抽出量, pH, EC の深度変化.



第 11 図 土壌間隙水の陽イオン (左) と陰イオン (右) の深度変化.

風化作用で生成する一般的鉱物に対し、土壌間隙水の飽和度を計算した（第 11 表）。採択した鉱物は非晶質シリカ、クリストバライト、石英、明礬石、ギブサイト、カオリナイト、イライト、モンモリロナイト、ゲーサイト、ジャロサイトであった。後二者については全 Fe 濃度を  $Fe^{3+}$  と仮定して計算した。

間隙水の  $SiO_2$  濃度はいずれの試料においても非晶質シリカに対して不飽和状態にあった。クリストバライトには試料 KS3 の pF3, 試料 KS4, 試料 KS5 の珪化体側が過飽和状態であり, KS6 は不飽和状態であった。石英には試料 KS6 の B3 層以深を除き飽和状態であった。

明礬石には試料 KS3, 試料 KS5, 試料 KS6 の B2 と B5 層が過飽和状態で, 試料 KS4 が不飽和状態であった。ギブサイトには試料 KS3 の C 層, 試料 KS5 の珪化体側, 試料 KS6 の B2 と B5 層が過飽和状態であった。カオリナイトには殆どの試料が過飽和状態であった。イライトとスメクタイトには殆どの試料が不飽和状態であった。

ゲーサイトには殆どの試料が過飽和状態で, ジャロサイトには試料 KS3, 試料 KS4, 試料 KS5, 試料 KS6 の A 層がほぼ過飽和状態であった。

第 11 表 土壌間隙水の風化生成鉱物に対する飽和度。

Sample No.	KS3				KS4				KS5					
	SB (tall tree)				Alu (grassland)				SB side (bare)		SB side (grass)		CZ side (grass)	
	KS3-1 A (2)	KS3-2 C (12)			KS4-1 A (2)	KS4-2 B (8)			KS5-S1 C (0)		KS5-S2 B (10)		KS5-C1 A (5)	
Saturation Index														
Am-Si	-0.45	-1.23	-0.33	-0.65	-0.16	-0.36	-0.18	-0.25	-0.15	-0.21	na	-0.45	na	-0.62
Crs	0.01	-0.77	0.13	-0.19	0.30	0.10	0.28	0.21	0.31	0.25	na	0.01	na	-0.16
Qz	0.59	-0.20	0.70	0.39	0.88	0.68	0.85	0.79	0.89	0.83	na	0.59	na	0.42
Alu	1.36	-0.46	3.59	5.28	-0.91	-1.68	-2.58	-5.79	1.92	1.78	5.99	4.25	3.66	1.15
Gib	-0.35	-1.34	2.71	2.45	-1.50	-2.36	-1.29	-3.02	-1.52	-1.59	1.04	0.20	0.24	-0.94
Kln	2.01	-1.56	8.35	7.19	0.28	-1.84	0.66	-2.94	0.26	-0.01	na	3.10	na	0.48
Ill	-1.22	-6.66	9.48	6.82	-4.45	-7.40	-3.59	-8.89	-4.46	-4.92	na	-0.17	na	-4.11
Mnt	-1.42	-6.56	5.86	3.28	-3.04	-5.47	-2.48	-6.54	-3.32	-3.61	na	-1.04	na	-3.64
Gth*	4.75	4.32	6.13	5.16	3.11	1.95	3.96	2.44	2.59	1.59	3.78	na	3.67	3.50
Jrs*	4.98	4.86	2.19	1.76	1.26	-0.42	1.50	-1.06	2.61	-0.32	2.55	na	2.29	2.81

Sample No.	KS5		KS6											
	CZ side (grass)		CZ (tall tree)											
	KS5-C2	B (10)	KS6-1 A (2)	KS6-2 B1 (7)	KS6-3 B2 (10)	KS6-4 B3 (12)	KS6-6 B5 (20)	KS6-7 B5 (30)						
Saturation In														
Am-Si	na	-0.76	-0.63	-0.72	-0.68	-0.67	-1.00	-1.44	na	-1.34	-1.20	-1.39	na	-1.52
Crs	na	-0.30	-0.17	-0.26	-0.22	-0.21	-0.54	-0.98	na	-0.88	-0.74	-0.93	na	-1.06
Qz	na	0.28	0.40	0.32	0.35	0.37	0.03	-0.40	na	-0.30	-0.16	-0.35	na	-0.49
Alu	na	1.60	-0.84	-1.54	na	-0.02	3.56	1.36	na	-0.13	6.27	0.54	3.98	0.13
Gib	na	-0.44	-0.04	-0.87	na	-0.30	1.08	0.11	na	-0.54	2.77	-0.09	1.31	-0.44
Kln	na	1.20	2.24	0.42	na	1.67	3.76	0.94	na	-0.15	6.74	0.64	na	-0.33
Ill	na	-3.11	-0.87	-3.98	na	-1.90	1.06	-3.49	na	-5.04	5.95	-3.98	na	-5.63
Mnt	na	-3.32	-1.68	-3.94	na	-2.42	-1.14	-5.11	na	-5.82	1.65	-5.22	na	-6.50
Gth*	na	2.45	4.54	3.61	4.48	3.53	3.72	2.11	4.80	3.29	4.50	2.74	4.00	3.12
Jrs*	na	-1.38	1.25	0.23	0.93	-0.17	-0.20	-4.31	-0.12	-0.30	-0.17	-2.62	0.40	-0.85

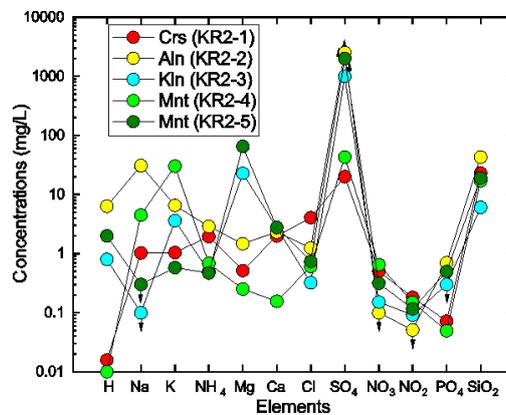
Note, na: not analyzed, \*: total Fe as  $Fe^{3+}$ , abbreviation, Alu: alunite, Am-Si: amorphous silica, Crs: cristobalite, Gib: gibbsite, Gth: goethite, Ill: illite, Jrs: jarosite, Kln: kaolinite, Mnt: montmorillonite, and Qz: quartz.

### 5.10 溶出試験結果

変質岩試料 (KR3) の溶出試験結果を第 12 表に整理し, 各溶出成分の試料間での相違を第 12 図に示した. 溶出溶液の pH は 2.2~5.0 を示し, Alu 帯と Mnt 帯 (KR3-5) が相対的に低かった. 溶出量が相対的に多かった成分は, Crs 帯の Cl, Alu 帯の Na と K, Kln 帯の K と Mg, Mnt 帯の Na と K (KR3-4) または Ca と Mg (KR3-5) であり, SO<sub>4</sub> は Alu 帯, Kln 帯, Mnt 帯 (KR3-5) で 2,000mg/L を越えた.

第 12 表 変質岩試料の溶出試験結果.

Sampe No.	KR3 (CZ)				
	KR3-1 Crs	KR3-2 Alu	KR3-3 Kln	KR3-4 Mnt	KR3-5 Mnt
Extraction					
pH	4.8	2.2	3.1	5.0	2.7
EC (μS/cm)	88	6900	2000	155	4000
Solution colo	non	brown	non	non	non
Composition (mg/L)					
Li	<0.006	<0.1	<0.06	<0.006	<0.1
Na	1.0	31	<0.1	4.5	<0.3
K	1.0	6.5	3.6	30	0.58
NH <sub>4</sub>	1.9	2.9	0.50	0.68	0.47
Mg	0.51	1.5	23	0.25	65
Ca	2.0	2.3	2.7	0.16	2.8
F	<0.006	<0.16	<0.06	<0.006	1.8
Cl	4.0	1.2	0.32	0.61	0.74
Br	<0.008	0.19	<0.08	<0.008	<0.2
SO <sub>4</sub>	20	>2500	>1000	43	>2000
NO <sub>3</sub>	0.50	<0.1	0.15	0.65	0.31
NO <sub>2</sub>	0.18	0.051	0.091	0.15	0.12
PO <sub>4</sub>	0.072	<0.7	<0.3	0.049	<0.5
SiO <sub>2</sub>	23	43	6.1	17	19
Water type					
	Na•K•Ca -SO <sub>4</sub> •Cl	Na -SO <sub>4</sub>	Mg -SO <sub>4</sub>	Na•K -SO <sub>4</sub>	Mg -SO <sub>4</sub>



第 12 図 溶出溶液の化学成分の変質岩試料間での比較.

土壌試料の溶出試験結果を第 13 表に整理した。試料 KS1, KS4-3, KS6-8, 9, 10 は硬質のため土壌間隙水を抽出できなかった試料であり、その他の試料は抽出後であった。

第 13 表 土壌試料の溶出試験結果.

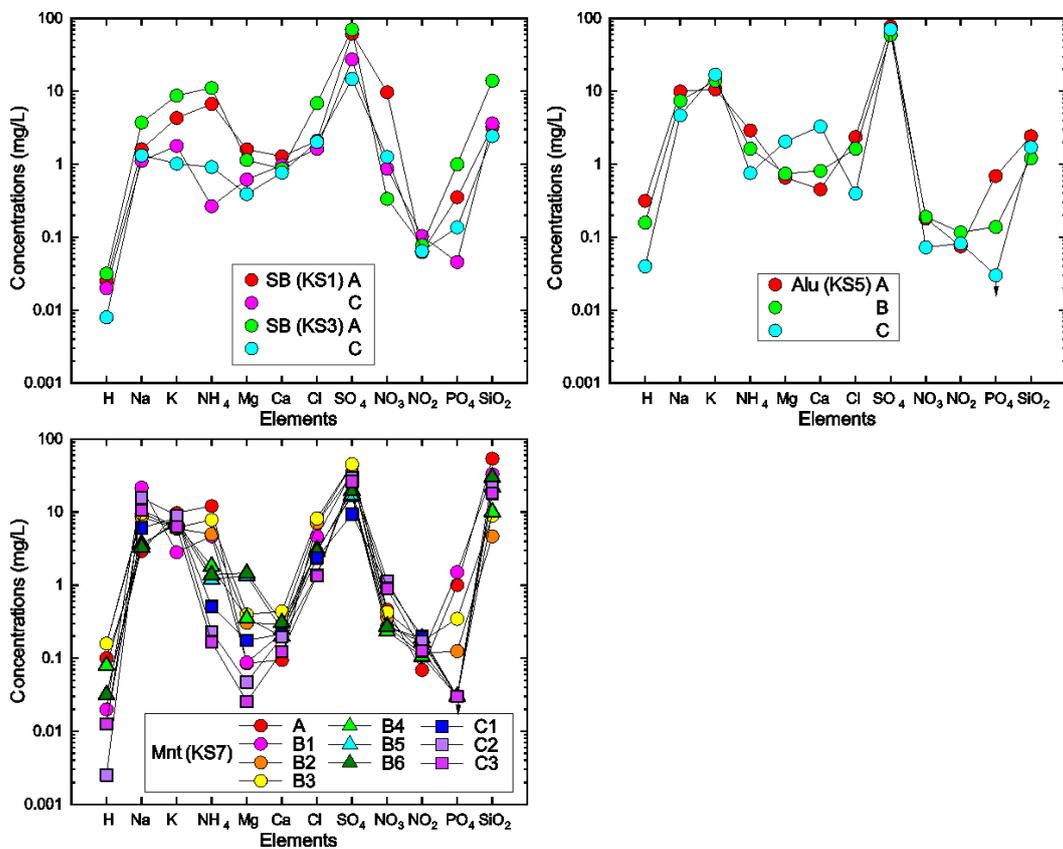
Sampe No.	KS1 (SB)		KS3 (SB)		KS4 (CZ)			KS6 (CZ)	
	KS1-1	KS1-2	KS3-1	KS3-2	KS4-1	KS4-2	KS4-3	KS6-1	KS6-2
	A (2)	C (7)	A (2)	C (12)	A (2)	B (8)	C (15)	A (2)	B1 (7)
Extraction									
pH	4.6	4.7	4.5	5.1	3.5	3.8	4.4	4.0	4.7
EC ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ )	194	81	260	59	350	220	191	270	188
Solution color	non	non	brown	non	non	non	non	non	brown
Composition (mg/L)									
Li	<0.006	0.0092	<0.006	<0.006	<0.006	<0.006	<0.006	<0.006	<0.006
Na	1.6	1.1	3.7	1.3	9.9	7.4	4.7	2.9	22
K	4.3	1.8	8.7	1.0	11	14	17	9.7	2.8
NH <sub>4</sub>	6.7	0.27	11	0.91	2.9	1.6	0.76	12	4.7
Mg	1.6	0.61	1.1	0.39	0.65	0.74	2.0	0.085	0.087
Ca	1.3	0.97	0.86	0.76	0.45	0.81	3.3	0.095	0.22
F	<0.006	<0.006	<0.006	0.14	<0.006	<0.006	<0.006	<0.006	<0.006
Cl	2.1	1.6	6.9	2.0	2.4	1.6	0.40	7.2	4.6
Br	<0.008	0.0064	<0.008	<0.008	0.015	<0.008	<0.008	0.036	0.079
SO <sub>4</sub>	61	27	70	15	78	59	71	44	35
NO <sub>3</sub>	9.7	0.87	0.33	1.3	0.18	0.19	0.072	0.46	0.27
NO <sub>2</sub>	0.062	0.10	0.077	0.064	0.075	0.12	0.082	0.069	0.11
PO <sub>4</sub>	0.35	0.045	>1	0.14	0.69	0.14	<0.03	>1	1.5
SiO <sub>2</sub>	3.2	3.6	14	2.4	2.4	1.2	1.7	54	33
Water type	K•Mg -SO <sub>4</sub>	Na•K•Mg• Ca-SO <sub>4</sub>	Na•K•Mg -SO <sub>4</sub>	Na•Mg• Ca-SO <sub>4</sub>	Na•K -SO <sub>4</sub>	Na•K -SO <sub>4</sub>	Na•K -SO <sub>4</sub>	Na•K -SO <sub>4</sub>	Na -SO <sub>4</sub>

Sampe No.	KS6 (CZ)							
	KS6-3	KS6-4	KS6-5	KS6-6	KS6-7	KS6-8	KS6-9	KS6-10
	B2 (10)	B3 (12)	B4 (15)	B5 (20)	B6 (30)	C1 (45)	C2 (60)	C3 (80)
Extraction								
pH	3.8	3.8	4.1	4.5	4.5	4.9	5.6	4.9
EC ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ )	200	250	104	64	99	74	128	90
Solution color	yellow	yellow	yellow	non	non	non	non	non
Composition (mg/L)								
Li	<0.006	<0.006	0.010	0.020	0.021	<0.006	<0.006	<0.006
Na	8.7	9.6	3.7	3.6	3.3	6.1	16	11
K	5.9	6.1	6.8	7.1	7.7	8.3	8.9	6.3
NH <sub>4</sub>	5.0	7.8	1.8	1.2	1.4	0.51	0.23	0.17
Mg	0.31	0.40	0.35	1.3	1.5	0.18	0.047	0.025
Ca	0.29	0.44	0.20	0.25	0.31	0.21	0.19	0.12
F	<0.006	<0.006	<0.006	<0.006	<0.006	<0.006	<0.006	<0.006
Cl	7.1	8.2	3.1	3.0	2.9	2.4	1.4	1.4
Br	0.13	0.16	0.060	0.074	0.095	0.14	0.12	0.081
SO <sub>4</sub>	33	45	16	17	20	9.3	30	26
NO <sub>3</sub>	0.36	0.43	0.23	0.27	0.27	>1	1.1	0.90
NO <sub>2</sub>	0.12	0.17	0.11	0.17	0.19	0.20	0.17	0.13
PO <sub>4</sub>	0.12	0.35	<0.03	<0.03	<0.03	<0.03	<0.03	<0.03
SiO <sub>2</sub>	4.6	8.9	10	22	30	22	22	18
Water type	Na•K -SO <sub>4</sub> •Cl	Na•K -SO <sub>4</sub>	Na•K -SO <sub>4</sub> •Cl	Na•K -SO <sub>4</sub>	Na•K•Mg -SO <sub>4</sub>	Na•K -SO <sub>4</sub> •Cl	Na•K -SO <sub>4</sub>	Na•K -SO <sub>4</sub>

珪化体の試料 KS1 の溶出溶液は主成分が K と Mg であった。試料 KS3 は間隙水が Na・K-SO<sub>4</sub>・Cl 型水質であったのに対し、溶出溶液は主成分に Mg を含み、Cl を含まなかった。Alu 帯の試料 KS4 は Na・K-SO<sub>4</sub> 型水質で、深いほど pH が高く、EC が低くなった。Mnt 帯の試料 KS6 は pH が B1 と B2 層で低く、C 層で相対的高く、全体に Na・K-SO<sub>4</sub> 型水質であった。

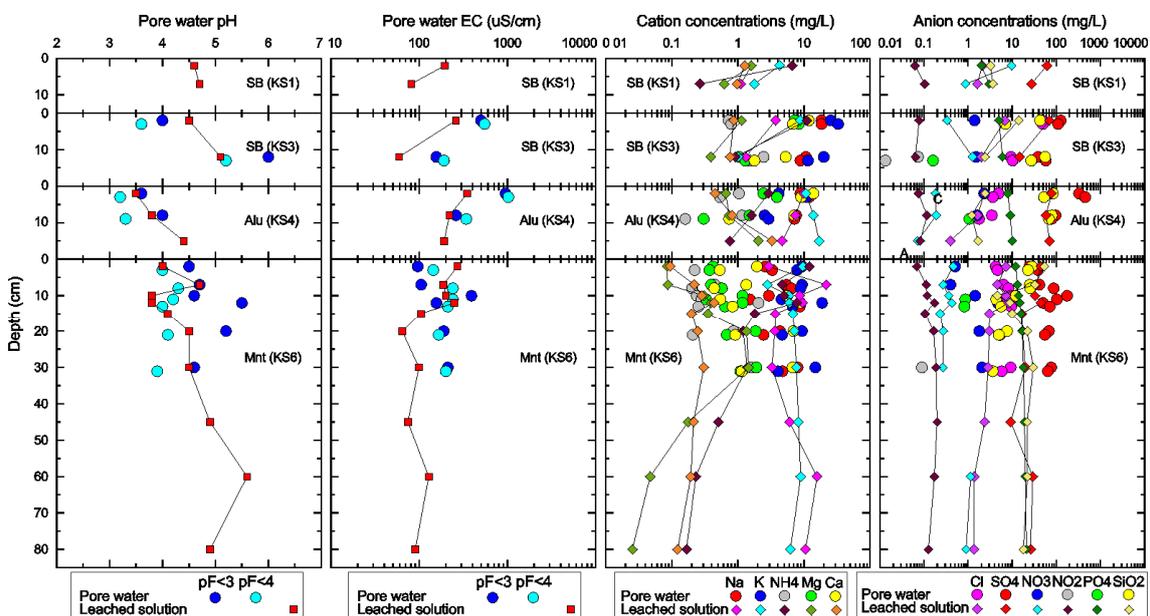
変質帯毎に各溶出成分の試料間での相違を第 13 図に整理した。珪化体試料では K の、Alu 帯では Ca の、Mnt 帯では Mg の層位によるばらつきが相対的が大きかった。



第 13 図 溶出溶液の各化学成分の土壌試料間での比較。

土壌間隙水と溶出溶液の化学組成を比較した (第 14 図)。溶出溶液の pH は概ね pF3 と pF4 の土壌間隙水の間にあった。EC は溶出溶液が土壌間隙水より低かった。試料 KS3 では土壌間隙水と溶出溶液は共に Na と K が Mg と Ca より高濃度であった。試料 KS4 では土壌間隙水は Mg と Ca が表層ほど高濃度であったが、溶出溶液は逆であった。試料 KS6 では土壌間隙水と溶出溶液で Na, K, Mg がほぼ同じ濃度であったが、Ca は溶出溶液が低かつ

た。土壤間隙水と溶出溶液の  $\text{SO}_4$  と  $\text{Cl}$  はいずれの試料でも概ね同じ濃度であった。どの試料でも  $\text{PO}_4$  の溶出が顕著であった。



第 14 図 土壤間隙水と溶出溶液の化学組成の深度変化の比較結果。

## 6. 考察

湯沢地熱地域の酸性変質帯について、野外観察、変質岩試料と土壤試料の全岩化学分析、温泉、湧水、土壤間隙水試料の地化学分析を行った。これらの結果を基に、川原毛地区の酸性変質帯の形成過程、土壤化・植生化の特性、酸性変質帯の水理構造について以下に考察した。

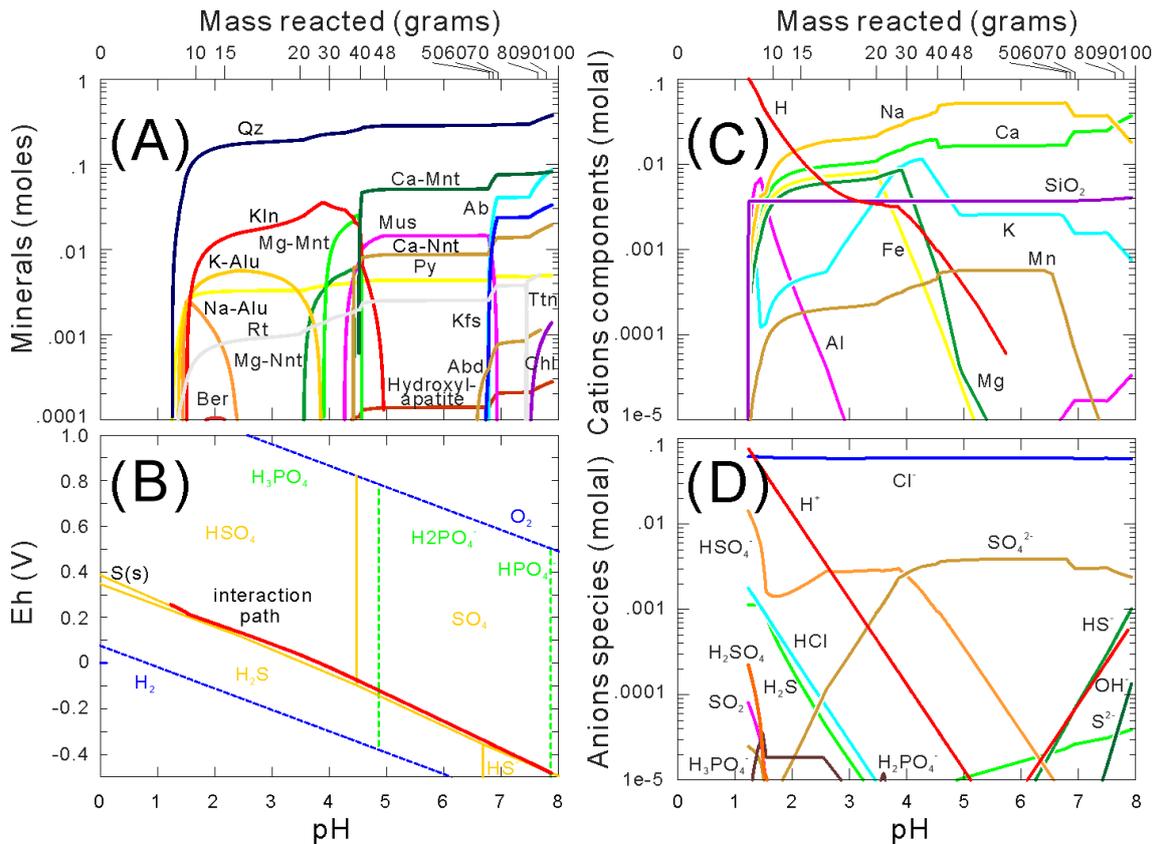
### 6.1 酸性変質帯の形成過程

川原毛変質帯は珪化体とこれを取り囲む粘土化帯で形成され、後者は主な変質鉱物を基にクリストバライト帯、アルーナイト帯、カオリナイト帯、モンモリロナイト帯に細分した。本変質帯の形成過程を地化学的数値解析手法によりモデル化した。本手法では熱水性状、岩石組成、反応温度を初期設定する必要がある。熱水性状は温泉水試料の  $\text{Cl}$  濃度 (63.5mmolal) と  $\text{SO}_4$  濃度 (14.6mmolal)、及び、阿部ほか (1979) による同温泉水の  $\text{H}_2\text{S}$  濃度 (1.17mmolal) を設定した。岩石組成は未変質岩の化学組成 (KR4) の平均値とした。但し、Fe は谷口ほか (1978) を参考に  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  と  $\text{FeO}$  に配分した。反応温度は粘土化帯の石英粒に見られた流体包有物の均質化温度を参考に 200°C に設定した。計算には Geochemist's

Workbench ソフトウェア (Bethke, 1996) を用いた。計算では熱水と鉱物の平衡状態を仮定し、熱水 1L に岩石を徐々に添加して行った。対象とした溶存種は Na, K, Ca, Mg, Mn, Al, Fe, P, Si, Ti, Cl, S, 鉱物種は変質岩試料の同定鉱物を参考に、含 Na 鉱物には Na 明礬石・パラゴナイト・曹長石, 含 K 鉱物には K 明礬石・白雲母・カリ長石, 含 Ca 鉱物には Ca モンモリロナイトと斜長石, 含 Mg 鉱物には Mg モンモリロナイトと緑泥石, 含 Mn 鉱物には閃マンガン鉱, 含 Al 鉱物にはカオリナイト, 含 Fe 鉱物には黄鉄鉱と Ca・Mg ノントロナイト, 含 P 鉱物にはベルリナイトと水酸燐灰石, 含 Si 鉱物には石英, 含 Ti 鉱物にはルチルとチタナイトを与えた。計算結果を第 15 図に示した。

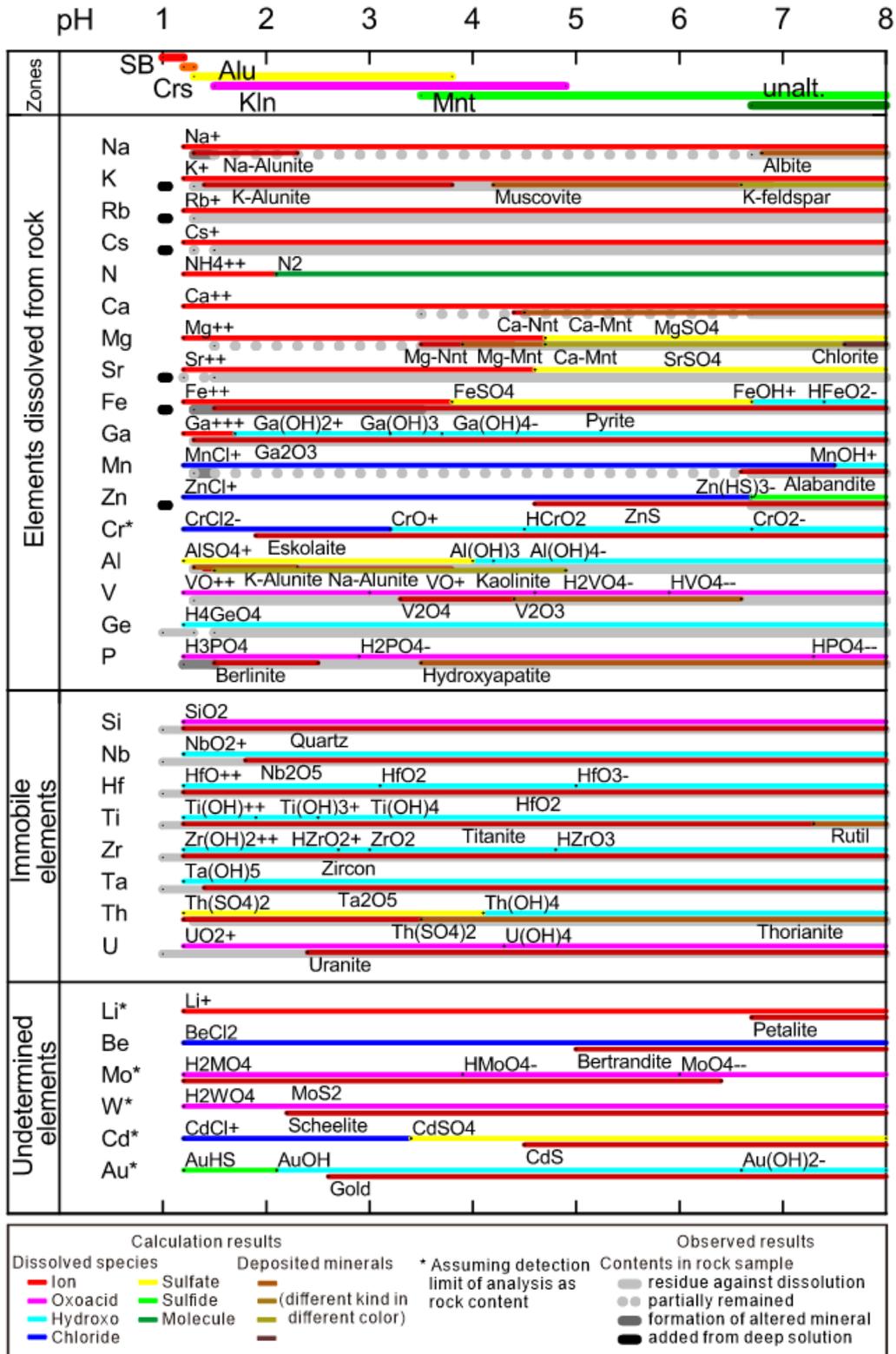
熱水は pH の初期値が 1.2 であった。熱水は岩石を添加すると徐々に中和し、ルチル、石英、黄鉄鉱、明礬石、ベルリナイト、カオリナイト、スメクタイト (含 Mg と含 Ca のノントロナイトとモンモリロナイト)、白雲母、閃マンガン鉱、長石類、緑泥石を順に沈殿した。この順序は、ベルリナイトと閃マンガン鉱を除き、粘土化帯の観察結果に概ね一致した。これら沈殿鉱物のうち明礬石とカオリナイトは岩石の添加量が約 10g で、スメクタイトは約 30g で沈殿し始めた。その際の流体/岩石比は約 100 と約 30 であり、熱水の供給量は縁辺に向かって低下していたことを示唆する。溶液組成は、Si が反応初期から濃度一定を呈し、Al が pH 約 1.5 で、K, Mg, Fe が pH 約 4 で極大を示した。Na は pH 約 7 で曹長石が沈殿するまで濃度増加し、Ca はスメクタイトの沈殿のみでは濃度低下が余り進まなかった。そのため pH 約 4 以上では各陽イオン間での濃度差が大きくなった。陰イオンは Cl が濃度一定を示し、S が pH 約 4 で溶存形態を  $\text{HSO}_4^-$  から  $\text{SO}_4^{2-}$  へと変化した。Eh は S の酸化還元境界付近に位置した。

計算結果の感度解析では次の変化が認められた。Na 明礬石は  $\text{SO}_4$  が 8mmolal 以上で沈殿を生じた。石英の代わりにクリストバライトあるいは非晶質シリカを初期設定すると明礬石の沈殿量が低下し、カオリナイトの代わりにパイロフィライトが出現した。 $\text{H}_2\text{S}$  を 70mmolal 以上にすると自然硫黄が反応初期に沈殿した。硬石膏を計算に含めると明礬石の消失後に硬石膏が沈殿し、Ca 濃度を約 0.004molal 以下に抑制した。赤鉄鉱または磁鉄鉱を計算に含めると、ノントロナイトの代わりにそれらが沈殿した。

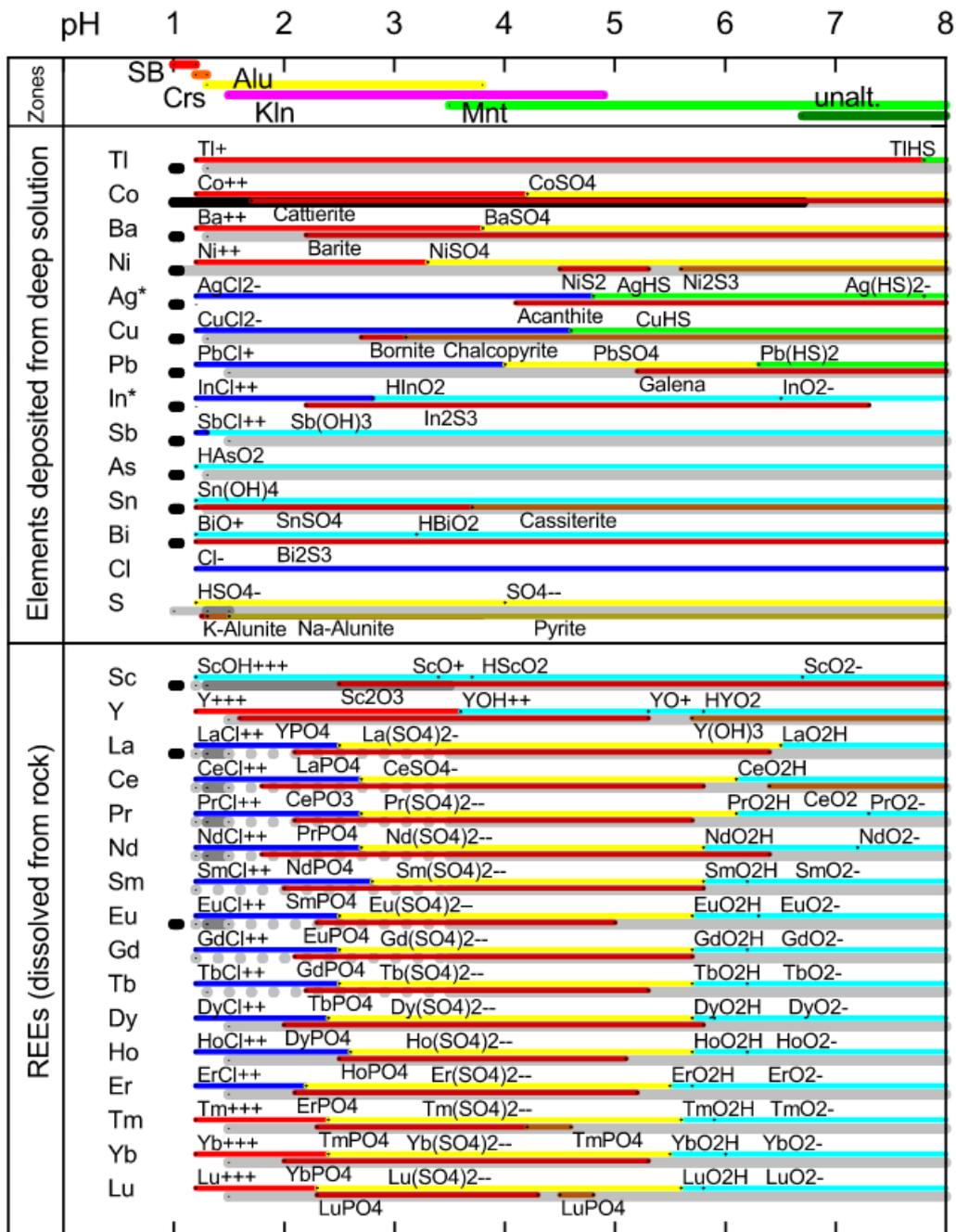


第 15 図 酸性変質帯を形成した流体/岩石反応過程。(A) 鉱物の沈殿量, (B) 酸化還元電位, (C) 陽イオンの総組成, (D) 陰イオンの化学種濃度と H<sup>+</sup>濃度。計算条件: 温度 200°C, Cl 63.5mmolal, SO<sub>4</sub> 14.6mmolal, H<sub>2</sub>S 1.17mmolal。Ab: 曹長石, Abd: 閃マンガン鉱, K-Alu: K 明礬石, Na-Alu: Na 明礬石, Chl: 緑泥石 (14Å クリノクロア), Kfs: カリ長石, Kln: カオリナイト, Ca-Mnt: Ca モンモリロナイト, Mg-Mnt: Mg モンモリロナイト, Mus: 白雲母, Ca-Nnt: Ca ノントロナイト, Mg-Nnt: Mg ノントロナイト, Qz: 石英, Py: 黄鉄鉱, Rt: ルチル, Ttn: チタナイト。

本計算に種々の微量成分を追加設定した際の計算結果を第 16 図に整理した。微量成分の熱力学的データは様々な文献から採用した。微量成分の全岩化学分析値が定量限界以下の場合には、参考に定量下限値を設定した。5.3 節では変質帯の微量元素を、中心で溶脱が著しかったもの、変質分帯区分によらず不変であったもの、中心で添加されたものに分類した。計算結果はこの分類結果に従って整理し、変質帯で微量成分が分布した範囲と計算で当該元素を含む鉱物が沈殿した範囲とを比較した。図には主な溶存種も示した。



第 16 図 酸性変質帯の形成過程における微量成分の地化学的挙動。



第 16 図 酸性変質帯の形成過程における微量成分の地化学的挙動 (続き).

変質帯で微量成分が分布した範囲と計算での鉱物種の沈殿範囲が概ね一致したのは、中心で溶脱が著しかった成分では Na, K, Ca, Mg, Fe, Ga, Mn, Al, P であった。Zn, V, P は範囲が相違し、Ge と Sr は沈殿を生じず、Rb と Cs は熱力学的データに適切な鉱物種が報告されていなかった。変質分帯区分によらず不変であった成分では Si, Hf, Ti, Zr, Ta,

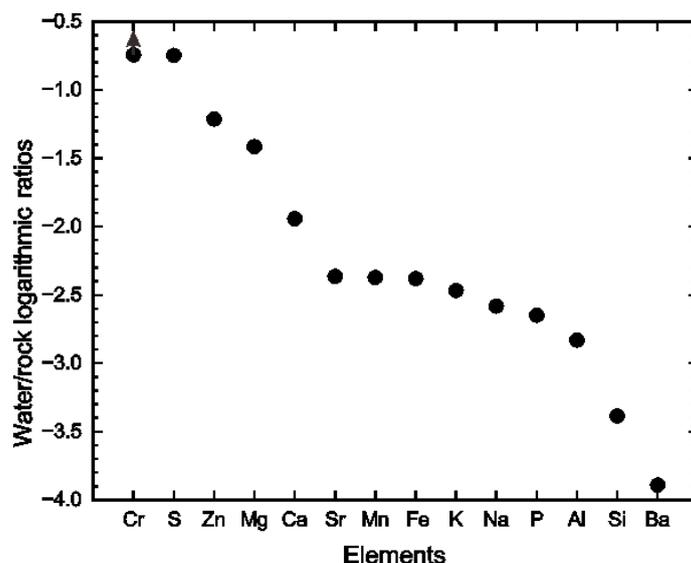
Th が概ね良い一致を示した。Nb と U はより外側の粘土化帯から沈殿を生じた。中心で添加された成分では Co, Sn, Bi が範囲の一致を示した。Ba, Ni, Cu はより外側の粘土化帯から沈殿し始め, Tl, Sb, As は沈殿を生じず, Ag と In は変質帯での分布範囲が特定できていなかった。希土類元素は酸化物を対象とすると Sc のみが沈殿し, リン酸塩鉱物を対象とするとカオリナイト帯から沈殿したが, La~Tb は早く, Sc, Y, Dy~Lu は遅かった。

強酸性 (pH<3) 範囲における主な溶存形態は次の通りであった。イオンがアルカリ金属元素 (Li, Na, K, Rb, Cs), Be を除くアルカリ土類金属元素 (Mg, Ca, Sr, Ba), 第 3 族元素の Y と Tm~Lu, 遷移金属元素の Fe, Co, Ni, Tl, 塩化物錯体がアルカリ土類金属元素の Be, 第 3 族元素の La~Er, 遷移金属元素の Cr, Mn, Cu, Zn, Ag, Cd, In, Pb, 半金属元素の Sb であった。硫酸塩錯体が Al と Th であった。硫化物錯体が Au のみであった。オキソ酸が遷移金属元素の V, Mo, W, U, 半金属元素の Si, 非金属元素の P と, 水酸化物錯体が遷移金属元素の Sc, Ti, Zr, Nb, Hf, Ta, Sn, 半金属元素の Ge, As, Bi であった。計算条件は, H<sub>2</sub>S 濃度が余り高くない Cl>SO<sub>4</sub>型泉質であったため, 硫酸塩錯体と硫化物錯体が殆ど出現しなかった。これは変質帯形成過程の一つの特徴であったと思われる。

## 6.2 温泉水の溶存成分濃度の特徴

川原毛地区の温泉水は地下で火山ガスが凝縮して生成した熱水が, 周囲の岩石と反応し, 天水と混合し, 温度約 150°C で沸騰して, 湧出したものである (松葉谷ほか, 2007)。これら温泉形成の素過程のうち岩石反応の特徴を, 温泉水と未変質岩の化学組成の比率を基に検討した (第 17 図)。

一般に Mg は酸性環境下で沈殿を生じ難い溶液中の保存成分である (Giggenbach et al., 1987)。温泉水と岩石の Mg 比は対数値で -1.41 であった。これは, 熱水による岩石の調和的溶解を仮定した場合, 熱水 1L に岩石 39g が溶解した換算である。これに対し, S, Cr, Zn は Mg より比率が高く, その理由は S が火山ガスに由来し, Cr と Zn が岩石の選択的溶解によると思われる。その他の溶存成分は比率が Mg より小さく, 岩石の溶解後に変質鉱物の含有成分として沈殿したと推定される。特に Si と Ba は Mg との差が大きく, 溶解した岩石のうち約 0.4g と約 0.1g 分しか溶液中に残存していない。温泉水の湧出までの間に, Cr と Zn を除く多くの岩石由来成分が沈殿したことが示唆される。



第 17 図 川原毛地区の温泉水と皆瀬川層の未変質岩の化学組成比。

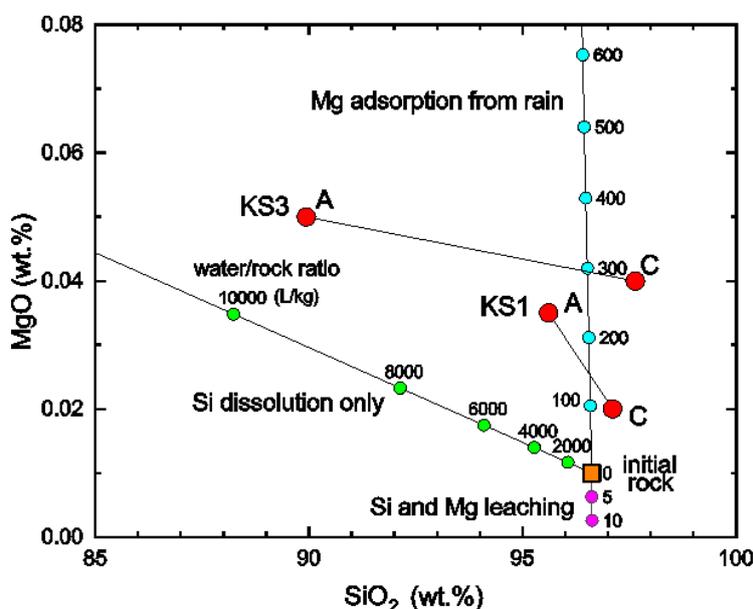
### 6.3 珪化体の土壤化特性

珪化体は中央の急傾斜部が露岩で、周囲の緩傾斜部～平坦部が細礫に被覆された裸地で、縁辺が高木植生に覆われる。裸地下には薄い未成熟土壌（KS1, KS2）と、高木植生下には厚い成熟土壌（KS3）が形成されていた。未成熟土壌は表層に黒色有機物を少量ながら蓄積し、下位は白色粘土化した珪化岩であった。黒色有機物は現地性の藻類や地衣類の微生物による分解生成物と、風雨に運搬され細礫間に捕獲された花粉や種子等の異地性の分解産物とからなると推測される。これに対し、高木植生下の成熟土壌は落葉の蓄積と分解の繰り返しにより表層の有機物層がより厚化し、試料 KS3 の採取地点では C 含有量が未成熟土壌の約 9 倍と、N 含有量が約 3 倍になっていた。珪化体の大部分が裸地である理由は、中央の急傾斜部は露岩の崩落と  $H_2S$  ガスを伴う噴気の影響により、緩傾斜部～平坦部は風雨や積雪で細礫が移動し表層が削剥されることにより C と N の蓄積が進み難いことと、全岩化学分析値の LOI 量（または  $H_2O$ -量）に示唆されるように、珪化岩が水分を保持し難いことによると推量される。

珪化体土壌の特徴は、母材の珪化岩と比較して表層ほど  $SiO_2$  含有量が低く、その他の成分は含有量が高く、特に  $MgO$  含有量の増加が顕著であったこと、及び、土壌間隙水が表層ほど高濃度を呈したことであった。 $MgO$  含有量の増加は、珪化岩からの Si と Mg の溶出の差（その極端な場合が Si 成分のみの溶出）と、雨水からの Mg の添加が考えられる。それらの過程を、珪化岩に試料 KR2-1 の全岩化学分析値、Si と Mg の溶出濃度に土壌間隙水（KS3）の平均濃度、雨水の化学組成に小川ほか（1998）を用いて計算した（第 18 図）。

珪化岩から Si と Mg が溶出すると、珪化岩の SiO<sub>2</sub> 含有量が殆ど変化しないうちに MgO が消失した。Si 成分のみの溶出では、珪化岩の SiO<sub>2</sub> 含有量の低下に応じて MgO 含有量が相対的増加した。雨水からの添加では、珪化岩の SiO<sub>2</sub> 含有量が一定のまま MgO 含有量のみが増加した。これらの過程と比較して、珪化体の土壤試料 KS1 と試料 KS3 (C 層) は雨水からの添加を、試料 KS3 (A 層) は Si 成分のみの溶出と雨水からの添加の両方を示唆した。

もう一つの特徴である表層ほど土壤間隙水が高濃度であった要因としては蒸発濃縮が考えられる。試料 KS3 は間隙水の Cl 濃度が A 層で 46~50mg/L, C 層で 9.4~10mg/L であり、約 5 倍に蒸発濃縮した可能性が示唆される。本試料の採取地点への Cl の供給源は雨水であり、珪化体北西に湧出する温泉水の飛沫が飛翔してきたとは考え難く、珪化岩は元来 Cl を含有していなかったと思われる。

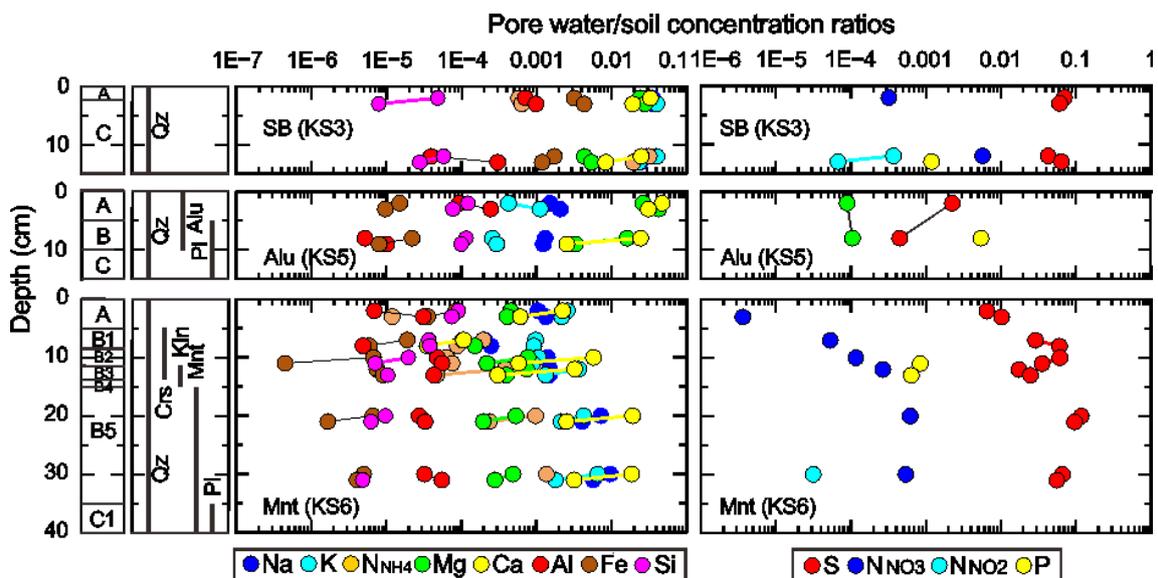


第 18 図 珪化体土壤の MgO 含有量の変化要因。

#### 6.4 粘土化帯の土壤化特性

粘土化帯の高木植生下には成熟土壤が発達し、試料 KS6 の土壤は C と N 含有量が 33.6 と 1.4wt.%であった。これらは珪化体の高木植生下の成熟土壤の約 12 と 15 倍であり、より長期に安定して発達したと推定される。本土壤では主な構成鉱物が浅部から深部へ、石英 (A 層)、クリストバライト (B1~B3 層)、カオリナイト (B3~B4 層)、モンモリロナイト (B4~B5 層)、斜長石 (C 層) と変化した。全岩化学組成は、SiO<sub>2</sub> と Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が深度と共に増加し、MgO, MnO, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が B5 層で極大を示し、Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O, CaO が C 層から増加し

た。B5層の極大はモンモリロナイトの、C層の増加は斜長石に関する。土壌間隙水はA層～B層で採取し、化学組成はNaとKが深度によらず殆ど一定で、CaとMgがB層以深で増加し、Alが表層からB2層まで急増する一方でSiが低下し、以深は共にほぼ一定であった。これら土壌と土壌間隙水の化学組成比を第19図に示した。Na, K, Ca, MgはAl, Si, Feより高い比を示し、土壌から間隙水に相対的移行しやすいことが示唆される。但し、それらの比率は0.004～0.05と1より小さく、移行の度合いは僅かである。Na, K, Caは深度と共に比が大きくなり、Mgは深度で比がほぼ一定であった。そのため、B5層ではMgはNa, K, Caより相対的残留しやすく、全岩化学分析値でMgOの極大を形成したことが示唆される。本土壌層のモンモリロナイトはMgに相対的富むかもしれない。AlはA層～B1層で比が小さく、SiとFeはA層～B3層で大きかった。これらはクリストバライトとカオリナイトの産出に関係したと推察される。



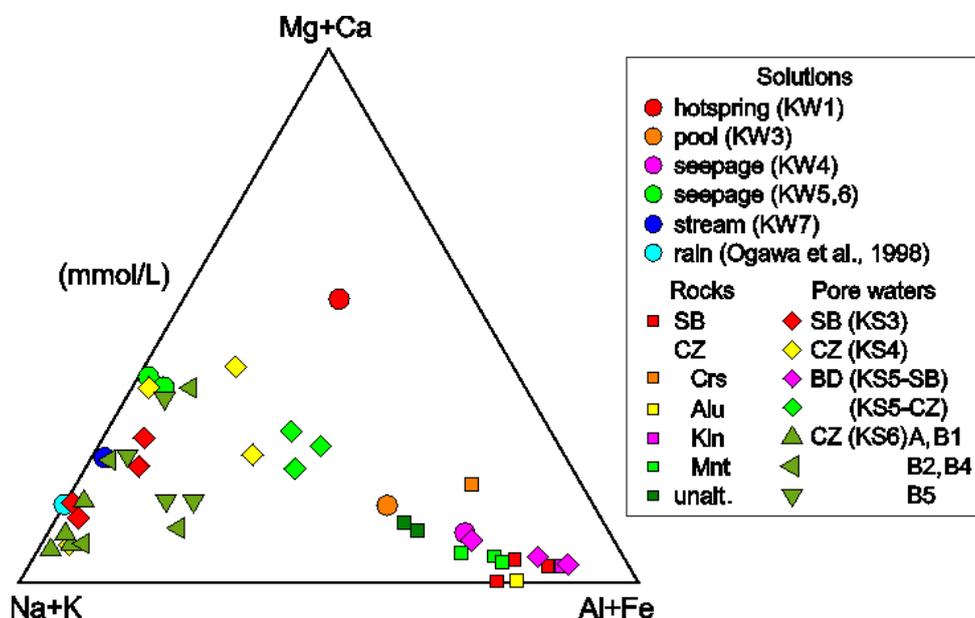
第19図 土壌間隙水と土壌の化学組成比。但し、試料KS5には変質岩試料KR3-3の全岩化学分析値を与えた。

### 6.5 湧水近傍の土壌化特性

変質帯の数ヶ所に湧水があり、その周囲は草地植生が分布していた。珪化体/粘土化帯の境界からの湧水(KW4)は低pHかつ高ECでAl(30mg/L)とSO<sub>4</sub>(596mg/L)に富んでいた。この湧水は珪化体に浸透した雨水が蒸気中のH<sub>2</sub>Sを溶解・酸化し形成されたと推定される。この湧水近傍の土壌(KS5)は、間隙水のAlとSO<sub>4</sub>が湧水より珪化体側(KS5-S1, S2)で約1.5～7.0倍高く、粘土化帯側(KS5-C1, C2)で約0.3～0.6倍と低かった。これら

間隙水の Al/SO<sub>4</sub> 比 (0.042~0.055) は湧水のその比 (0.051) に概ね一致し、どちら側の土壌も湧水の影響を受け、濃縮と希釈を被ったと推定される。これら湧水と土壌の関係は Mg+Ca, Na+K, Al+Fe 相関図上で、湧水と間隙水が Al+Fe 極からほぼ一方向に並ぶことに表れていた (第 20 図)。但し、粘土化帯側の土壌間隙水は Mg+Ca に若干富んでいた。

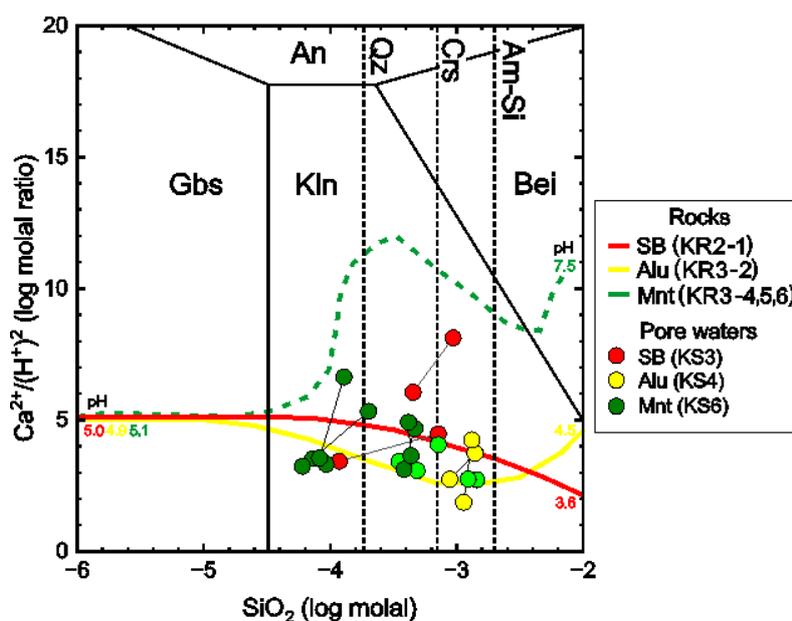
これに対し、北の山稜麓の二カ所の湧水 (KW5, 6) は、中性 pH でかつ低 EC で Al は定量限界以下で SO<sub>4</sub> (26~32mg/L) に乏しかった。北の山稜は珪化体とは水系が異なり、湧水は雨水にのみ由来する。湧水 (KW5) 近傍の土壌 (KS4) は湧水の供給源に位置し、間隙水は湧水より Al (0.23~11mg/L) と SO<sub>4</sub> (78~454mg/L) が約 3~16 倍高濃度であった。但し、第 20 図で間隙水は雨水と岩石の間に位置しておらず、雨水が岩石を単純に溶解して生成したものではない。本土壌には明礬石が同定されたが、間隙水は本鉱物に対し不飽和状態であった。従って、間隙水は本鉱物を選択的に溶解した可能性がある。また、間隙水は表層が高濃度であり、蒸発濃縮が生じていた。このような間隙水が新たに浸透した雨水に希釈されつつ流されて湧水となったと思われる。この間に溶液中の Al+Fe 比は相対的減少した (第 20 図)。本土壌の C と N 含有量は珪化体縁辺の成熟土壌とほぼ同じであったにも関わらず、高木植生の発達には至っておらず、それには土壌が湿性であったことが関係すると思われる。



第 20 図 水試料の Mg+Ca, Na+K, Al+Fe の相関図.

## 6.6 風化過程の特性

一般に、雨水による珪長質岩の風化過程では、Si の飽和状態が石英、クリストバライト、非晶質シリカ、Al の飽和状態がギブサイト、カオリナイト、スメクタイトの順に移行する（鹿園，2001）。そこで、変質岩の風化過程を計算し、 $\text{Ca}/(\text{H}^+)^2 - \text{SiO}_2$  図に示した（第 21 図）。計算では、雨水の化学組成を小川ほか（1998）と、岩石の化学組成を珪化体、アルーナイト帯、モンモリロナイト帯の変質岩試料の全岩化学分析値とした。図中の反応曲線はシリカ鉱物が沈殿しない場合であり、それらが沈殿する場合は Si 濃度がシリカ鉱物の溶解度に達するとその位置で縦軸方向にのみ変化した。土壌間隙水は多くがカオリナイトの安定領域で、クリストバライトの溶解度の前後に分布した。計算の pH は約 3.8~4.8 の範囲にあった。反応曲線の pH が低下する理由は、変質岩が S を含有し  $\text{H}_2\text{SO}_4$  を生成したことによる。粘土化帯の土壌試料 KS6 はモンモリロナイトを含んだが、土壌間隙水は本鉱物に対し殆ど不飽和状態にあり、風化変質作用の進行途上にあったことが示唆される。



第 21 図  $\text{Ca}^{2+}/(\text{H}^+)^2 - \text{SiO}_2$  図。風化進行過程の計算は雨水（小川ほか，1998）と各変質岩試料（珪化岩：KR2-1，Alu 帯：KR3-2，Mnt 帯：KR3-4~6 の平均値）の反応による。略称，Am-Si：非晶質シリカ，An：斜長石，Bei：バイデライト，Crs：クリストバライト，Gbs：ギブサイト，Kln：カオリナイト，Mnt：モンモリロナイト，Qz：石英。

## 6.7 植生化の特性

一般に噴気地では、植生の噴気中の  $\text{H}_2\text{S}$  への暴露、表層水の  $\text{H}_2\text{S}$  ガス吸収による硫酸生成に伴う低 pH 化、岩石溶脱に伴う地下水の高 Al 化のため、これらに耐性を有する植生が

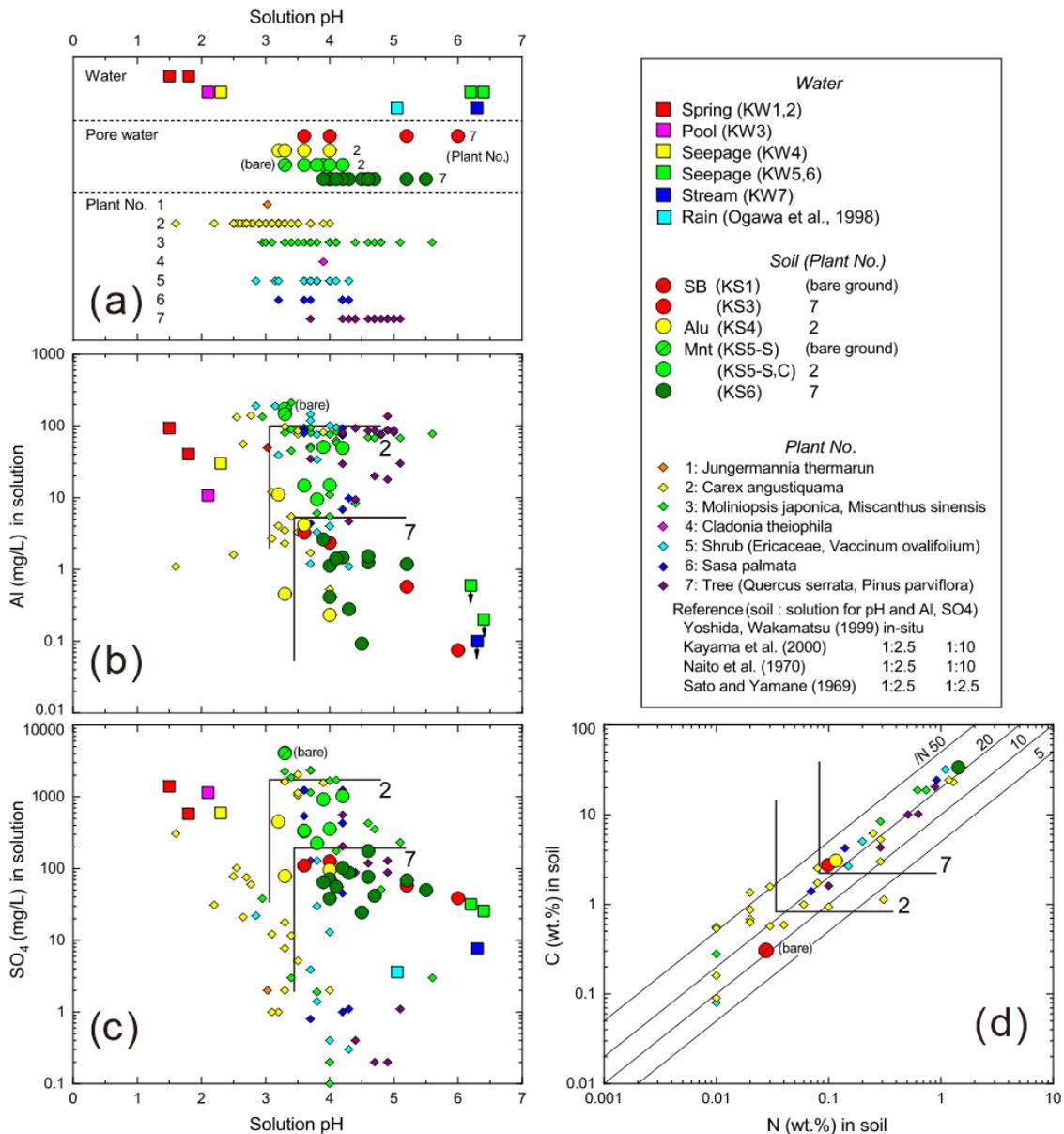
発達し、硫気孔原植生と称される（根来，1943）．それらは噴気孔から外側に向かって、チャツボミゴケ、ヤマタヌキラン・ススキ・イオウゴケ等の草地植生、ツツジ・ガンコウラン・ササ等の低木植生、キタゴヨウ・ブナ等の高木植生の順に呈帯配列する（内藤ほか，1970；佐藤・山根，1970；斎藤ほか，1976；吉田・若松，1991；香山ほか，2000）．川原毛地区の変質帯の植生と上述の阻害要因との関係を以下に整理した（第 22 図）．

噴気地の植生は土壌 pH により変化し、ヤマタヌキランは約 2.5 以上、ススキ・ヌマガヤは約 3.0 以上、ツツジ・ガンコウランは約 3.5 以上、キタゴヨウ・ブナは約 4.0 以上で生育が認められている．北の山稜麓（試料 KS4）と珪化体/粘土化帯境界（試料 KS5）にはヤマタヌキランが、珪化体南縁（試料 KS3）と東の山稜頂部（試料 KS6）にはゴヨウマツやシラカバが生育していた．前者で試料 KS4 は湧水の供給源に、試料 KS5 は湧水が浸透または飛沫がかかる位置であった．試料 KS4 と試料 KS5 の間隙水の pH は 3.2～4.2、試料 KS3 と試料 KS6 の間隙水の pH は 3.6～6.0 であった．前者は文献のヤマタヌキランの pH の高い範囲に、後者は文献の高木植生の範囲に一致した（第 22a 図）．

試料 KS4 と試料 KS5 の間隙水の Al 濃度は 0.23～49mg/L と、裸地下（KS5-S1）で 147～175mg/L、試料 KS3 と試料 KS6 の間隙水の Al 濃度は 0.07～3.3mg/L であった（第 22b 図）．従って、Al 濃度における植生境界は、タヌキランが約 100mg/L 以下、高木植生が約 5mg/L 以下と推定される．前者は文献とほぼ同じであったが、後者は文献では約 100mg/L 以下であり、差が大きかった．文献の Al 濃度は土壌試料から抽出した濃度であり、抽出溶媒の種類と量により相違が生じたと思われる．

試料 KS4 と試料 KS5 の間隙水の SO<sub>4</sub> 濃度は 78～1,019mg/L と、裸地下（KS5-S1）で 4,047～4,134mg/L、試料 KS3 と試料 KS6 の間隙水の SO<sub>4</sub> 濃度は 25～176mg/L であった（第 22c 図）．従って、SO<sub>4</sub> 濃度における植生境界は、ヤマタヌキランが約 1,000mg/L 以下、高木植生が約 200mg/L と推定される．これらの値は共に文献の上限値に一致した．

文献のヤマタヌキランとその他の植生下の土壌では C と N 含有量に差異が認められる（第 22d 図）．それら文献値と土壌試料の表層（A 層）の C と N 含有量を比較すると、珪化体の裸地（KS1）は文献のヤマタヌキランの分布の下端に、粘土化帯の草地植生（KS4）は文献のヤマタヌキランの分布の上端に位置した．珪化体の高木植生（KS3）は文献の草地～低木植生の分布範囲に、粘土化帯の高木植生下の土壌（KS6）は文献の高木植生の若干高含有量方に位置した．従って、裸地、ヤマタヌキラン、高木植生の植生境界は大局的には C：1wt.%、N：0.1 wt.%の前後にあると思われる．珪化体の裸地（KS1）は C/N 比が 11、珪化体と粘土化帯の植生下の土壌（KS3、KS4、KS6）は 23～28 であり、前者は土壌化の初期を、後者は土壌化が落ち着いた状態を示唆すると推測される．



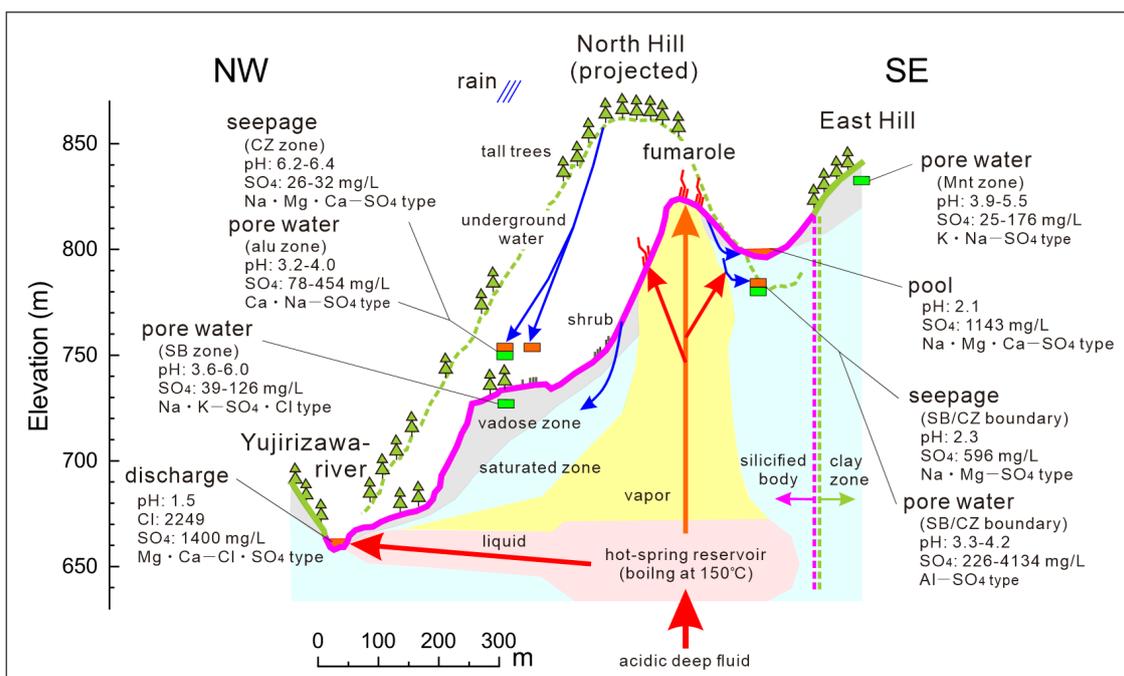
第 22 図 植生と発達障害要因の関係。(a) 植生と土壤間隙水の pH の関係、(b) 土壤間隙水の Al 濃度と pH の関係、(c) 土壤間隙水の SO<sub>4</sub>濃度と pH の関係、(d) 土壤の A 層の C と N 含有量の関係。植生：1. チャツボミゴケ、2. ヤマトヌキラン、3. ススキ、4. イオウゴケ、5. 低木（ツツジ、クロウソゴ）、6. ササ、7. 高木（コナラ、ゴヨウマツ）。

## 6.8 変質帯の水利構造

川原毛地区の酸性変質帯の水利構造は、表層の不飽和帯、下位の地下水層、その深部の温泉帯水層からなり、温泉帯水層では熱水が沸騰し、生じた気相が上方に広がって噴気をなし、液相が側方流動し温泉水として湧出したと推定される（第 23 図）。従って、土壤植

生には天水と熱水のいずれかが影響していた。珪化体の表層は中央頂部が裸岩で、中腹から山麓が大小礫に被覆された裸地であった。前者は急傾斜かつ噴気の影響が強く、後者は細礫下に薄く土壌を生成していたものの母岩の透水性がよくかつ細礫が移動するため、植生が発達し難いと考えられた。これに対し、珪化体縁辺から粘土化帯の表層はゴヨウマツ等の高木植生に被覆され、植生下には成熟土壌（試料 KS3, KS6）が発達していた。これらの間隙水は雨水を起源とし、pH3.3~6.0 で低濃度の Na・K-SO<sub>4</sub>・(Cl) 型水質を呈し、珪化体の表層では蒸発濃縮していた。

北の山稜麓の粘土化帯は母岩に黄鉄鉱と明礬石を含んだため、土壌の間隙水は雨水を起源とするが、それらを溶出しかつ蒸発濃縮して、pH3.2~4.0 の高 SO<sub>4</sub> 濃度 (454mg/L) を呈した。新たな雨水は間隙水を希釈して集水し、pH6.2~6.4 で低濃度の SO<sub>4</sub> 型水質の湧水を生じた。近傍にはヤマタヌキランが群落を形成していた。一方で、深部の温泉帯水層から分離した気相の一部は、地下水層で H<sub>2</sub>S が酸化されて SO<sub>4</sub> 型水質の酸性水となり、珪化体/粘土化帯の境界から湧出し、また、露天掘り跡に溜水を形成した。これら湧水と溜水は pH2.1~2.3 の SO<sub>4</sub> 型水質で、温泉水と異なり Cl を含まなかった。湧水は周辺の土壌に浸透または飛散し、間隙水は蒸発濃縮の影響も合わさり、pH3.3~4.2 で湧水より高 SO<sub>4</sub> 濃度 (~4,134mg/L) であった。湧水近傍にはヤマタヌキランが群落を形成していた。このように本変質帯では天水の浸透と熱水から分離した気相の上昇が土壌植生の発達に影響を及ぼしていた。



第 23 図 川原毛地区の酸性変質帯の水利構造モデル。

本研究は、湯沢地熱地域において地熱兆候の一つである熱水変質帯がどのように土壌と植生に被覆されているかを調査した。より詳細な検討を進めるためには、今後土壌の形成期間と土壌間隙水の経時変化を明確にする必要がある。本研究の結果は地熱資源探査における地熱兆候の一つである熱水変質帯の分布を調査する際に参考となると思われる。

## 7. まとめ

本研究では湯沢地熱地域の川原毛・泥湯地区の酸性変質帯について、野外観察、変質岩試料と土壌試料の全岩化学分析、温泉、湧水、土壌間隙水試料の地化学分析、変質岩試料と土壌試料の溶出試験を行い、酸性変質帯の形成過程、土壌化・植生化の特性、水理構造を考察した。これらの結果を以下にとりまとめた。

(1) 川原毛地区の酸性変質帯は中央の珪化体とこれを取り巻く粘土化帯で形成されていた。粘土化帯は主な変質鉱物を基にクリストバライト帯、アルーナイト帯、カオリナイト帯、モンモリロナイト帯に分類した。粘土化帯は流体包有物に基づく温度約 200°C で形成された。珪化体の主要成分は  $\text{SiO}_2$  と  $\text{TiO}_2$  であり、クリストバライト帯でこれに  $\text{P}_2\text{O}_5$  が加わり、アルーナイト帯で  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{K}_2\text{O}$  が増加し、カオリナイト帯から  $\text{MgO}$  と、モンモリロナイト帯から  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{MnO}$  が増加し未変質帯へ至っていた。珪化体中央では熱水から  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  が添加され、アルーナイト帯では  $\text{Na}_2\text{O}$  と  $\text{S}$  が局所的に沈殿していた。微量成分は、珪化体が  $\text{Co}$ ,  $\text{Ni}$ ,  $\text{Cu}$ ,  $\text{As}$ ,  $\text{Ag}$ ,  $\text{In}$ ,  $\text{Sn}$ ,  $\text{Sb}$ ,  $\text{Ba}$ ,  $\text{Bi}$ ,  $\text{Pb}$ ,  $\text{Tl}$  に富み、粘土化帯ではクリストバライト～アルーナイト帯で  $\text{V}$ ,  $\text{Ga}$ ,  $\text{Rb}$  が、クリストバライト～カオリナイト帯で  $\text{Sr}$  と  $\text{Cs}$  が、粘土化帯を通じては  $\text{Zn}$ ,  $\text{Sc}$ ,  $\text{Y}$ ,  $\text{REEs}$  が増加した。アルーナイト帯では局所的に  $\text{Sc}$ ,  $\text{La}$ ,  $\text{Ce}$ ,  $\text{Pr}$ ,  $\text{Nd}$  が増大し、変質分帯区分によらず  $\text{Ge}$ ,  $\text{Zr}$ ,  $\text{Nb}$ ,  $\text{Hf}$ ,  $\text{Ta}$ ,  $\text{Th}$ ,  $\text{U}$  は一定であった。

(2) 珪化体は大部分が裸地であり、縁辺と粘土化帯は草地植生～高木植生であった。裸地であっても細礫下には薄く土壌が生成し、 $\text{SiO}_2$  が溶出する一方でその他の成分が集積し、特に  $\text{MgO}$  が増加していた。微量成分は  $\text{Sc}$ ,  $\text{V}$ ,  $\text{Cu}$ ,  $\text{Zn}$ ,  $\text{As}$ ,  $\text{Rb}$ ,  $\text{Sr}$ ,  $\text{Zr}$ ,  $\text{Sn}$ ,  $\text{Cs}$ ,  $\text{LREEs}$  ( $\text{La}$ ,  $\text{Ce}$ ,  $\text{Pr}$ ,  $\text{Nd}$ ,  $\text{Sm}$ ,  $\text{Eu}$ ),  $\text{Hf}$ ,  $\text{Pb}$ ,  $\text{Th}$  が表層に多く、 $\text{Co}$ ,  $\text{Ge}$ ,  $\text{Ta}$ ,  $\text{Bi}$  が少なかった。草地植生下～高木植生下には厚く土壌が発達し、粘土化帯では A 層に  $\text{C}$  と  $\text{N}$  が集積し、B 層に  $\text{MgO} \cdot \text{MnO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3$  が局所的に濃集し、C 層から  $\text{CaO} \cdot \text{Na}_2\text{O} \cdot \text{K}_2\text{O}$  が増加していた。 $\text{SiO}_2$  は B 層から、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  は C 層から表層に向かって減少し、逆に、 $\text{P}_2\text{O}_5$  と  $\text{TiO}_2$  は表層ほど濃集していた。微量成分は  $\text{SiO}_2$  の深度変化に類似したのが  $\text{Zr}$ ,  $\text{Y}$ ,  $\text{Sc}$ ,  $\text{REEs}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  に類似したのが  $\text{Nb}$ ,  $\text{Hf}$ ,  $\text{Ta}$ ,  $\text{Th}$ ,  $\text{U}$ ,  $\text{MgO}$  に類似したのが  $\text{V}$ ,  $\text{Ga}$ ,  $\text{As}$ ,  $\text{Mo}$ ,  $\text{CaO}$

に類似したのが Sr, Ba, Cr, Cs, さらに深部で増加したのが Co, Rb, Pb, Tl, TiO<sub>2</sub> に類似したのが Cu, Ag, Snであった。

(3) 川原毛地区の温泉水は pH1.5 の Cl 卓越な Mg・Ca-Cl・SO<sub>4</sub> 型泉質であった。珪化体の溜水と湧水は共に Na・Mg (・Ca) -SO<sub>4</sub> (・Cl) 型水質であったが、前者は pH2.1~2.3 の高 SO<sub>4</sub> 濃度で、後者は pH6.2~6.4 で低 SO<sub>4</sub> 濃度であり、蒸気凝縮型の硫酸酸性水と含 S 鉱物溶解型の中性水であった。泥湯地区の酸性変質帯は北部と南部に区分され、温泉水は北部が蒸気加熱型の SO<sub>4</sub> 型泉質を、南部が蒸気加熱型の SO<sub>4</sub> 型泉質と川原毛地区より相対的低濃度の SO<sub>4</sub>-Cl 型泉質であった。北部の温泉湧出口にはクリストバル石、明礬石、カオリナイトが生成していた。

(4) 珪化体の土壤間隙水は pH3.6~6.0 の Na・K-SO<sub>4</sub>・Cl 型水質、粘土化帯の土壤間隙水は pH3.9~5.5 で陽イオン組成が浅部の K・Na 卓越から深部の Ca 卓越へ移行する SO<sub>4</sub> 型水質であり、珪化体/粘土化帯境界の湧水近傍の土壤間隙水は湧水に類似した pH3.3~4.2 の Al-SO<sub>4</sub> 型水質で、粘土化帯で湧水の供給源に位置した土壤間隙水は pH3.2~4.2 の陽イオンが様々 (Ca, Zn, Al, Na) な SO<sub>4</sub> 型水質であった。いずれの間隙水も表層ほど蒸発濃縮が著しかった。

(5) 川原毛地区の酸性変質帯の形成過程のモデル計算では流体/岩石比が縁辺に向かって 100 から 30 に低下した。川原毛地区の温泉水は岩石を溶解後に鉱物を沈殿し、調和的溶解と異なる泉質であった。珪化体の土壤は母岩と比較して MgO に富み、雨水の Mg を吸着した可能性と、粘土化帯の土壤は B 層が MgO に富み、母材の Mg が Na, K, Ca と比較して土壤間隙水に移行し難かった可能性とが指摘された。ヤマタヌキランは土壤間隙水が pH3.2~4.2, Al 0.23~49mg/L, SO<sub>4</sub> 78~1,019mg/L で、ゴヨウマツは pH3.6~6.0, Al 0.07~3.3mg/L, SO<sub>4</sub> 25~176mg/L で生育していた。珪化体の殆どが未だ裸地である要因は、中央頂部が急傾斜と噴気の影響により、山腹の緩傾斜~平坦部は表層の細礫が移動し土壤が剝され C と N の蓄積が進み難いことと、母岩の珪化岩が雨水を保持し難いことによると推察された。

本研究は、地熱兆候の一つである熱水変質帯が、どのように土壤と植生に被覆されているかを調査した。今後には土壤の形成期間と土壤間隙水の経時変化をより明確にする必要がある。本研究の結果は地熱資源探査における地熱兆候としての熱水変質帯の調査に参考となると思われる。

## 謝辞

産業技術総合研究所の谷口政碩氏に鉱物の鑑定方法を、佐脇貴幸氏に流体包有物の測定

法を，村上浩康氏に全岩化学分析方法を，今井 登氏と鎌田悦子氏に CHN 分析方法を，安原正也氏と稲村明彦氏に間隙水の抽出方法を，高橋正明氏にイオンクロマト分析法を，岡井貴司氏に分光分析法を御指導頂き，茂野 博氏には御議論を頂いた。湯沢市ジオパーク推進協議会の高柳春稀氏に硫気孔原植生を御教示頂き，秋田県生活環境文化部自然保護課，産業経済部観光振興課，雄勝地域振興局農林部森づくり推進課，林野庁秋田森林管理署湯沢支所に川原毛地区の土石試料採取を，泥湯温泉旅館には温泉水試料採取をご許可頂いた。ここに記して感謝の意を表する。

#### 参考文献

- 阿部喜久男・茂野 博・池田喜代治・安藤直行・後藤隼次（1979）秋田県小安・泥湯・秋の宮地熱地域の熱水・蒸気凝縮水の溶存化学成分，水素・酸素同位体組成およびトリチウム濃度。地質調査所月報，30，177-197.
- Bethke, C. M. (1996) Geochemical reaction modeling. Oxford University Press, New York, 397p.
- 張 文山・高島 勲・佐々木恭治（1999）栗駒北部湯沢雄勝地域の坑井変質と地熱系。日本地熱学会誌，21，143-153.
- 林 久人・森口安宏（1990）秋田県川原毛・泥湯地域の熱水変質作用について。鉱物学雑誌，19，77-85.
- 平沢 清（1977）地熱開発調査の地域レポート[2]栗駒北部地域。地熱エネルギー，3，20-37.
- 二子石正雄（1999）上の岱地熱発電所-探査，開発から現況まで-。日本地熱学会誌，21，225-235.
- 犬山文孝・島田寛一・鶴田洋行・横井浩一（1999）温泉・地下水影響予測マニュアル（1）。地熱エネルギー，24，25-61.
- 鹿野和彦・大場 司・石山大三（2020）秋田県湯沢市，川原毛地獄の爆裂火口と噴出物。火山，65，105-118.
- 香山雅純・野村 睦・佐藤冬樹・小泉武栄（2000）鬼首片山地獄の硫気孔原植生の群落立地要因。北海道大学農学部演習林研究報告，57，71-94.
- 北 逸郎・長尾敬介・中村祐二・田口幸洋（1992）秋田県泥湯・川原毛地熱系に放出される気体の化学及び同位体組成による深部情報。日本地熱学会誌，14，115-128.
- 金原啓司（1988）秋田県栗駒北部地域の岩石変質と地熱系。地質調査所報告，268，245-262.

- 薦田靖志（1991）地熱開発促進調査の地域レポート（20）皆瀬地域，地熱エネルギー，16，13-23.
- 栗山 隆（1985）湯沢雄勝地域の地熱系モデル．日本地熱学会誌，7，311-328.
- 松葉谷治・川原谷浩・石山大三・高橋芳信・鈴木 勝・五十嵐和夫（2007）秋田県，泥湯および川原毛地区の温泉や噴気の地球化学的特徴とその成因．温泉科学，57，88-98.
- 松中照夫（2005）土壌学の基礎．農文協，389p.
- 水垣桂子（2004）放射年代測定法を用いた地熱系の長期変動解析．地質調査所研究報告，55，431-438.
- 内藤俊彦・菅原亀悦・飯泉 茂・山根一郎（1970）宮城県鳴子町瀧沼周辺の植生と土壌．日本生態学会誌，20，198-203.
- 中 東策・岡田 博（1992）上の岱地熱地帯の探査とその開発．資源地質，42，223-240.
- 中村久由・鈴木 孝・前田憲二郎（1975）秋田県秋の宮・皆瀬温泉調査報告．地質調査所月報，6，627-638.
- 根来健一郎（1943）噴気孔原植物の研究．生物学の進歩，第1輯，151-193，東京共立出版.
- 日本地熱調査会（2000）新版わが国の地熱発電所設備要覧．日本地熱調査会，254p.
- 小川信明・菊池良栄・後藤 博・梶川正弘・尾関 徹（1998）制御斜方回転因子分析法による秋田の降水中の海塩起源汚染物質の評価．BUNSEKI KAGAKU，47，503-511.
- 佐々木茂（2002）地熱開発促進調査の地域レポート[C-3]秋ノ宮地域．地熱エネルギー，27，479-501.
- 斎藤員郎・河合洋子・阿部 均（1976）蔵王山硫気孔原植生の生態学的研究．山形大学紀要（自然科学），9，91-111.
- 佐藤 牧・山根一郎（1969）東北地方の硫気孔原土壌に関する研究．東北大農研報，21，133-162.
- 佐脇貴幸・笹田政克（1990）ガスフロー型加熱冷却台（USGS 型ステージ）の校正法．地質調査所研究資料集，141，33p.
- 佐脇貴幸・笹田政克（2003）秋田県湯沢雄勝地域産流体包有物の研究－温度履歴と地熱流体の化学性状－．日本地熱学会誌，25，267-295.
- 椎川 誠・山口良二（1956）秋田県川原毛産鉛重晶石について（第1報）．岩石鉱物鉱床学会誌，40，137-148.
- 鹿園直建（2001）水－岩石反応による地下水中の主化学成分組成の変化（I）－化学平衡とマスバランス－．地下水学会誌，43，149-159.
- 新エネルギー総合開発機構（1985）地熱開発促進調査報告書 No.7 湯沢雄勝地域．新エネルギー

- ギー総合開発機構, 814p.
- 新エネルギー・産業技術総合開発機構 (1990) 地熱開発促進調査報告書 No.20 皆瀬地域.  
新エネルギー・産業技術総合開発機構, 1281 p.
- 新エネルギー・産業技術総合開発機構 (1998) 平成 8 年度地熱開発促進調査 環境影響調査報告書 No.C-2 山葵沢地域. 新エネルギー・産業技術総合開発機構, 752p.
- 新エネルギー・産業技術総合開発機構 (2000) 地熱開発促進調査のうち開発可能性調査 戦略的調査実施標準マニュアル. 新エネルギー・産業技術総合開発機構, 69p.
- 新エネルギー・産業技術総合開発機構 (2002) 地熱開発促進調査報告書 No.B-7 桑ノ沢地域.  
新エネルギー・産業技術総合開発機構, 834 p.
- 森林土壌研究会 (1993) 森林土壌の調べ方とその性質 (改訂版). 林野弘済会, 334p.
- 角 清愛 (1975) 全国地熱基礎調査について～地質学・地球化学関係調査～. 地質ニュース, 247, 3, 12-27.
- 高島 勲・荻原宏一・張 文山・村上英樹 (1999) 秋田県泥湯周辺地域の第四紀火山岩類の TL 年代. 岩鉱, 94, 1-10.
- 高柳春稀 (2019) ゆぎわジオパークに生息する生物にとり噴気孔や豪雪は好ましい環境か? ヤマタヌキラン (*Carex angustisquama*) やユキツバキ (*Camellia rusticana*) を対象としてガイド案内を考える. 日本地球惑星科学連合, O08-P06.
- 竹野直人 (1988) 栗駒北部地域の地質. 地質調査所報告, 268, 191-210.
- 武内寿久禰 (1984) 秋田県川原毛珪化体及び静岡県宇久須珪化体の流体包有物の研究. 鉱山地質, 34, 263-273.
- 谷口政碩・岡田 博・角 清愛 (1978) 秋田県湯沢市・雄勝郡川原毛地熱地域の熱水変質帯. 地質調査所報告, 259, 311-339.
- 吉田 実・若松善彦 (1991) 岩手県藤七温泉付近の硫気孔原の土壌 pH と植生. 日本土壌肥料学雑誌, 62, 434.
- エネルギー・金属鉱物資源機構ホームページ (<https://geothermal.jogmec.go.jp>)  
湯沢市ホームページ (<https://www.city-yuzawa.jp/site/bunkazai/2201.html>)