

平成 26 年度
地層処分技術調査等事業
TRU廃棄物処理・処分技術高度化開発
報告書
(第 3 分冊)

—ナチュラルアナログ調査—

平成 27 年 3 月

公益財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センター

本報告書は、経済産業省からの委託研究として、公益財団法人 原子力環境整備促進・資金管理センターが実施した平成26年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発のうちナチュラルアナログ調査の成果を取りまとめたものです。

報告書の構成

平成 26 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発－ナチュラルアナログ調査－は、以下の分冊により構成されている。

当該報告書	分冊名	報告書の標題
	第 1 分冊	平成 26 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発－ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上－
	第 2 分冊	平成 26 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発－炭素 14 長期放出挙動評価－
◎	第 3 分冊	平成 26 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発－ナチュラルアナログ調査－
	第 4 分冊	平成 26 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発－人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定－
	第 5 分冊	平成 26 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処分技術人工バリア長期性能評価技術開発－ガス移行連成挙動評価手法の開発－

はじめに

TRU 廃棄物の処分方策については、原子力委員会での方針等（平成 6 年の原子力長期計画等）を受けて、「TRU 廃棄物処分概念検討書」（以下、第 1 次 TRU レポート）、「TRU 廃棄物処分技術検討書－第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ－」（以下、第 2 次 TRU レポート）によって、その地層処分の技術的成立性が示され、平成 19 年 6 月には最終処分法の一部が改正により、地層処分の対象廃棄物に追加された。これに伴い、平成 20 年 3 月に「特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針」及び「特定放射性廃棄物の最終処分に関する計画」が改定され、併置処分の実施も念頭に、TRU 廃棄物と高レベル放射性廃棄物は地層処分事業という統合された計画の中で、最終処分の開始を平成 40 年代後半を目途に事業を進めるというスケジュールが示されている。また、同改正法は平成 20 年 4 月より施行され、NUMO が高レベル放射性廃棄物の地層処分に加え、TRU 廃棄物の地層処分の実施主体としての認可を受けた。これらの背景を踏まえて、TRU 廃棄物の処分に向けた技術開発については、TRU 廃棄物の地層処分に関する全体基本計画（以下、基盤研究開発計画）に示されるように、高レベル放射性廃棄物処分の技術開発との整合を図りつつ、併置処分の技術的成立性をより確実にするための検討を含め、地層処分事業のスケジュールを考慮して進める必要がある。そして、NUMO が目的とする技術開発等へ直接的に反映させるために、処分事業に先行して技術基盤の整備を進めることに加え、科学的知見の拡充による技術的信頼性や安全性の向上を図るために、国の基盤研究開発として実施することが期待されている。

このような TRU 廃棄物特有の重要課題として、人工バリア材および地質媒体への収着分配係数が小さく、レファレンスケースの被ばく線量評価では高レベル放射性廃棄物に比べ 2 桁以上高いことが示されている（第 2 次 TRU レポートから最大線量が処分後 10,000 年で $2\mu\text{Sv/y}$ ）ヨウ素 129 および炭素 14 の低減対策に加え、その廃棄物の特性から大量のセメント材を使用することや金属腐食等によるガス発生による人工バリアの長期挙動への影響があげられる。

したがって、TRU 廃棄物処分の技術開発において、TRU 廃棄物処分の重要核種であるヨウ素 129（グループ 1）および炭素 14（グループ 2）の影響を低減するための代替技術の開発として、10 万年以上のヨウ素閉じ込め性能を目標とした複数のヨウ素固化体開発に関して、その処理プロセスの成立性を見通しを示すとともに、長期評価のためのヨウ素放出の評価モデルを提案した。一方、炭素 14 対策としては、ソースタームの現実的な評価として、インベントリ設定方法の基本的な考え方を示すとともに、金属の腐食や炭素 14 浸出率のデータを一部取得して、長期予測のためのモデル化を検討した。さらに、炭素 14 の 10 半減期に相当する 6 万年間の閉じ込めのための容器を開発し、その実現性を示した。これらの成果により、環境条件に応じた評価・概念設計に対応できる基礎的な技術・手法を整備することができたが、それらを用いた長期安全性評価の信頼性を確保するためには、これまでに提案、構築した評価手法、評価モデルの信頼性を向上させるとともに、その説明の妥当性について十分な根拠を示すことが必要である。また、精密調査地区の選定時に、対象となる地質環境に応じた予備的安全評価や施設の概念設計を実現可能な現実的な条件で実施可能とするため、材料および地質環境の多様性に対応した、人工バリアの長期挙

動に係わるデータ取得ならびに評価モデルの開発が行われたが、さらにその精緻化、信頼性向上が必要である。

長期安全性評価の信頼性を確保するためには、これまでに提案、構築した評価手法、評価モデルの信頼性を向上させるとともに、その説明の妥当性を示すための根拠を示すことが重要であり、そのためには、長期試験による評価モデルの確証に加え、類似の天然事例等による説明性の確保が必要である。

本開発では、TRU 廃棄物の地層処分における人工バリア材の特性ならびに重要核種の影響について、特に長期評価の信頼性確保の観点から、これまでに明らかになった課題を解決し、安全評価の信頼性を向上させることを目的とし、平成 25 年度から以下の各技術開発に取り組んできた。

ヨウ素・炭素移行挙動評価技術高度化開発

- (1) ヨウ素 129 対策技術の信頼性向上
- (2) 炭素 14 長期放出挙動評価
- (3) ナチュラルアナログ調査
- (4) 人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定
- (5) ガス移行連成挙動評価手法の開発

本分冊（第 3 分冊）では、ナチュラルアナログ調査に関する平成 26 年度の成果を取り纏めた。

目 次

第 1 章 概要.....	1
1.1 背景.....	1
1.2 目的.....	4
1.3 本事業のこれまでの成果概要.....	5
1.3.1 セメントーベントナイト相互作用のナチュラルアナログが成立するための環境条件.....	5
1.3.2 ナチュラルアナログ調査・研究の進め方.....	6
1.3.3 フィリピンのナチュラルアナログ調査の有意性.....	7
1.3.4 Fossil Type のナチュラルアナログによるベントナイトの長期健全性評価.....	9
1.3.5 Active Type のナチュラルアナログサイトの探査.....	17
1.4 実施概要.....	25
1.4.1 全体計画.....	25
1.4.2 平成 26 年度実施概要.....	28
第 2 章 ナチュラルアナログサイトの探査.....	33
2.1 目的.....	33
2.2 フィリピン国における現地調査の概要.....	35
2.2.1 調査工程.....	35
2.2.2 現地調査の作業工程および主な調査内容.....	35
2.2.3 地下水調査（既存井戸、湧水、既存試錐孔）の概要.....	37
2.2.4 岩石鉱物学的調査の概要.....	39
2.3 Bigbiga 地区（ルソン島北西部）の調査.....	46
2.3.1 構造試錐調査.....	46
2.3.2 地下水の地球化学的特性.....	124
2.3.3 Bigbiga 地区のナチュラルアナログサイトとしての評価.....	134
2.4 Pinatubo 地区（ルソン島北西部）の調査.....	146
2.4.1 調査目的.....	146
2.4.2 位置とアクセス.....	146
2.4.3 気候.....	146
2.4.4 Pinatubo 地区の地質概要.....	147
2.4.5 地質概査結果.....	154
2.4.6 岩石鉱物学的調査.....	156
2.4.7 地下水（湧水）調査.....	161
2.5 Palawan 島中・南部地区の調査.....	163
2.5.1 調査目的.....	163
2.5.2 位置とアクセス.....	163

2.5.3 気候.....	163
2.5.4 Palawan 島の地質概要	164
2.5.5 地質概査結果	176
2.5.6 岩石鉱物学的調査.....	182
2.5.7 地下水（湧水）調査	230
2.6 まとめと今後の調査計画.....	246
第3章 アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセス	254
3.1 Bigbiga のナチュラルアナログ.....	254
3.2 低アルカリ環境下のアルカリ変質反応による岩石鉱物学的・地球化学的特性	255
3.2.1 EPMA 分析結果	255
3.2.2 FESEM-EDS 分析結果.....	269
3.2.3 μ -XRD 分析結果.....	274
3.2.4 記載岩石学的分類.....	276
3.2.5 スメクタイト・沸石の組成的特徴	277
3.3 低アルカリ環境下のアルカリ変質反応による変質鉱物形成の地球化学的プロセス.....	281
第4章 年代測定による反応時間の評価.....	289
4.1 フィリピンナチュラルアナログにおける年代測定の検討	289
4.2 方解石の熱ルミネセンス年代測定	291
4.2.1 熱ルミネセンス年代測定法	291
4.2.2 今年度の検討概要.....	295
4.2.3 ナチュラルアナログ試料.....	295
4.2.4 採取試料の蓄積線量測定.....	297
4.2.5 岩石鉱物学的・地球化学的特性の詳細観察・分析.....	303
4.2.6 Bigbiga の試錐コア（DH05 及び DH07）の方解石の蓄積線量の評価.....	332
4.2.7 Bigbiga の方解石の産状と TL 年代に関する考察.....	341
4.3 まとめと今後の課題	342
第5章 地球化学シミュレーションモデルによる変質解析.....	344
5.1 目的.....	344
5.1.1 これまでの背景と今年度の目的.....	344
5.2 地球化学反応輸送モデル.....	346
5.2.1 地球化学反応輸送モデルで再現することを目標にした二次鉱物の空間分布.....	346
5.2.2 インプットする高アルカリ溶液の組成.....	347
5.2.3 解析モデル及び解析条件.....	348
5.2.4 熱力学データベース及び鉱物の溶解速度	349
5.2.5 解析ケース.....	352

5.2.6 解析結果と考察	354
5.3 まとめ	359
第6章 まとめ	363
6.1 今年度の調査結果のまとめ	363
6.1.1 実施計画策定	363
6.1.2 ナチュラルアナログサイトの探査	363
6.1.3 アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセス	367
6.1.4 年代測定による反応時間の評価	369
6.1.5 地球化学シミュレーションモデルによる変質解析	370

図目次

図 1.3.1 1	オフィオライト (かつての海洋底 (地殻+マントル) の断片) の層序.....	5
図 1.3.1 2	ナチュラルアナログのコンセプト.....	6
図 1.3.3-1	フィリピン国のオフィオライトとベントナイト鉱床の分布.....	8
図 1.3.4-1	フィリピン国ルソン島北西部のナチュラルアナログ調査サイトの位置.....	9
図 1.3.4-2	Saile 鉱山採石場 (Quarry) の露頭 (ベントナイト-沸石層の互層関係) (左) とベントナイト (蜂の巣状の自生スメクタイト) の SEM 画像 (右)	10
図 1.3.4-3	トレンチの枕状溶岩-ベントナイト層接触部(左)と観察結果に基づく模式断面図(右)	12
図 1.3.4-4	スメクタイト含有率と各基本物性との関係.....	13
図 1.3.4-5	ベントナイト-枕状溶岩接触部のサンプリング (トレンチ-5 西南壁)	14
図 1.3.4-6	トレンチ-5 のベントナイト-枕状溶岩の界面の顕微鏡観察と元素マッピング	14
図 1.3.4-7	アルカリ環境下の Ca-モンモリロナイトの鉱物学的変遷過程.....	15
図 1.3.4-8	断裂系充填物の玄武岩比率と方解石の TL 年代.....	15
図 1.3.4-9	Saile 鉱山とその周辺地におけるベントナイトのアルカリ変質に係わる概念モデル	17
図 1.3.5-1	これまでの取り組みと抽出された課題.....	18
図 1.3.5-2	Bigbiga 地区の Compilation MAP.....	19
図 1.3.5-3	LP5 グリッド L1S8~L4S4 (図 1.3.5-2 の青線の断面) の電気伝導率 (2D) ...	20
図 1.3.5-4	トレンチ(BBT02)の全容 (左) とコアリング作業 (右)	20
図 1.3.5-5	トレンチ(BBT02)の大口径岩石試料 (コア試料)	20
図 1.3.5-6	トレンチ試料の主要元素比率.....	21
図 1.3.5-7	DH08 孔の掘削状況 (左) と Well-1 (近傍の自墳井) の白濁 (右)	21
図 1.3.5-8	DH08 孔試錐コア	23
図 1.3.5-9	基盤岩直上 (図 1.3.5-8 の緑枠部) の粘土岩 (Red Claystone) の XRD パターン	24
図 1.4.1-1	本事業の全体計画 (ナチュラルアナログ調査・研究概略工程)	28
図 1.4.2-1	平成 26 年度の実施工程.....	30
図 2.2.1-1	現地調査の工程.....	35
図 2.2.2-1	Pinatubo 地区のフィールド調査ルートマップ.....	36
図 2.2.2-2	Palawan 島中・南部地区のフィールド調査ルートマップ.....	36
図 2.2.4-1	試料の調整法.....	44
図 2.2.4-2	試料の分析と観察に用いた分析装置(a: EPMA; b: FESEM-EDS).....	45
図 2.3.1-1	試錐孔 (DH10) 掘削地点.....	47
図 2.3.1-2	DH10 孔の掘削作業状況	47
図 2.3.1-3	DH10 孔の孔壁崩壊箇所で大量に出た砂状スライム.....	48
図 2.3.1-4	DH10 孔コア写真(0~25m) (赤ラベル: 採取した分析用試料)	50

図 2.3.1-5	DH10 孔コア写真(25~45m) (赤ラベル：採取した分析用試料, プラ袋：スライム試料)	51
図 2.3.1-6	DH10 孔柱状図 (0~GL-15m)	52
図 2.3.1-7	DH10 孔柱状図 (GL-15m~30m)	53
図 2.3.1-8	DH10 孔柱状図 (GL-30m~45m)	54
図 2.3.1-9	柱状図の凡例.....	55
図 2.3.1-10	コア試料の外観(BBDH10-14-Rh-001~029).....	56
図 2.3.1-11	コア試料の外観(BBDH10-14-Rh-033~045).....	57
図 2.3.1-12	コア試料の外観(BBDH10-14-Rh-046~057).....	58
図 2.3.1-13	スライム試料の外観(BBDH10SL-14-Rh-001~006).....	59
図 2.3.1-14	石灰岩 (BBDH10-14-Rh-024) の試料の分離	59
図 2.3.1-15	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉱物組成 (DH10 孔(0~GL-15m), XRD)	64
図 2.3.1-16	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉱物組成 (DH10 孔 (GL-15m~30m), XRD)	65
図 2.3.1-17	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉱物組成 (DH10 孔 (GL-30m~45m), XRD)	66
図 2.3.1-18	BBDH10-14-Rh-001 の粉末 XRD パターン	67
図 2.3.1-19	BBDH10-14-Rh-002 の粉末 XRD パターン	67
図 2.3.1-20	BBDH10-14-Rh-003 の粉末 XRD パターン	67
図 2.3.1-21	BBDH10-14-Rh-004 の粉末 XRD パターン	68
図 2.3.1-22	BBDH10-14-Rh-005 の粉末 XRD パターン	68
図 2.3.1-23	BBDH10-14-Rh-006 の粉末 XRD パターン	68
図 2.3.1-24	BBDH10-14-Rh-007 の粉末 XRD パターン	69
図 2.3.1-25	BBDH10-14-Rh-008 の粉末 XRD パターン	69
図 2.3.1-26	BBDH10-14-Rh-010 の粉末 XRD パターン	69
図 2.3.1-27	BBDH10-14-Rh-012 の粉末 XRD パターン	70
図 2.3.1-28	BBDH10-14-Rh-013 の粉末 XRD パターン	70
図 2.3.1-29	BBDH10-14-Rh-015 の粉末 XRD パターン	70
図 2.3.1-30	BBDH10-14-Rh-017 の粉末 XRD パターン	71
図 2.3.1-31	BBDH10-14-Rh-018 の粉末 XRD パターン	71
図 2.3.1-32	BBDH10-14-Rh-021 の粉末 XRD パターン	71
図 2.3.1-33	BBDH10-14-Rh-022 の粉末 XRD パターン	72
図 2.3.1-34	BBDH10-14-Rh-024-1 の粉末 XRD パターン	72
図 2.3.1-35	BBDH10-14-Rh-024-2 の粉末 XRD パターン	72
図 2.3.1-36	BBDH10-14-Rh-025 の粉末 XRD パターン	73
図 2.3.1-37	BBDH10-14-Rh-026 の粉末 XRD パターン	73
図 2.3.1-38	BBDH10-14-Rh-028 の粉末 XRD パターン	73

図 2.3.1-39	BBDH10-14-Rh-029 の粉末 XRD パターン	74
図 2.3.1-40	BBDH10-14-Rh-033 の粉末 XRD パターン	74
図 2.3.1-41	BBDH10-14-Rh-034 の粉末 XRD パターン	74
図 2.3.1-42	BBDH10-14-Rh-036 の粉末 XRD パターン	75
図 2.3.1-43	BBDH10-14-Rh-037 の粉末 XRD パターン	75
図 2.3.1-44	BBDH10-14-Rh-038 の粉末 XRD パターン	75
図 2.3.1-45	BBDH10-14-Rh-039 の粉末 XRD パターン	76
図 2.3.1-46	BBDH10-14-Rh-040 の粉末 XRD パターン	76
図 2.3.1-47	BBDH10-14-Rh-041 の粉末 XRD パターン	76
図 2.3.1-48	BBDH10-14-Rh-042 の粉末 XRD パターン	77
図 2.3.1-49	BBDH10-14-Rh-043 の粉末 XRD パターン	77
図 2.3.1-50	BBDH10-14-Rh-044 の粉末 XRD パターン	77
図 2.3.1-51	BBDH10-14-Rh-045 の粉末 XRD パターン	78
図 2.3.1-52	BBDH10-14-Rh-046 の粉末 XRD パターン	78
図 2.3.1-53	BBDH10-14-Rh-047 の粉末 XRD パターン	78
図 2.3.1-54	BBDH10-14-Rh-048 の粉末 XRD パターン	79
図 2.3.1-55	BBDH10-14-Rh-049 の粉末 XRD パターン	79
図 2.3.1-56	BBDH10-14-Rh-050 の粉末 XRD パターン	79
図 2.3.1-57	BBDH10-14-Rh-051 の粉末 XRD パターン	80
図 2.3.1-58	BBDH10-14-Rh-052 の粉末 XRD パターン	80
図 2.3.1-59	BBDH10-14-Rh-053 の粉末 XRD パターン	80
図 2.3.1-60	BBDH10-14-Rh-054 の粉末 XRD パターン	81
図 2.3.1-61	BBDH10-14-Rh-055 の粉末 XRD パターン	81
図 2.3.1-62	BBDH10-14-Rh-056 の粉末 XRD パターン	81
図 2.3.1-63	BBDH10-14-Rh-057 の粉末 XRD パターン	82
図 2.3.1-64	BBDH10SL-14-Rh-001-1 の粉末 XRD パターン	82
図 2.3.1-65	BBDH10SL-14-Rh-001-2 の粉末 XRD パターン	82
図 2.3.1-66	BBDH10SL-14-Rh-002	83
図 2.3.1-67	BBDH10SL-14-Rh-003	83
図 2.3.1-68	BBDH10SL-14-Rh-004	83
図 2.3.1-69	BBDH10SL-14-Rh-005	84
図 2.3.1-70	BBDH10SL-14-Rh-006	84
図 2.3.1-71	XRF による試錐孔 DH10 のコア試料及びスライム試料の主要元素比率	85
図 2.3.1-72	試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の CaO-SiO ₂ 関係図	86
図 2.3.1-73	試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の CO ₂ -SiO ₂ 関係図	86
図 2.3.1-74	試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の Al ₂ O ₃ -SiO ₂ 関係図	86
図 2.3.1-75	試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の Fe ₂ O ₃ -SiO ₂ 関係図	87
図 2.3.1-76	試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の MgO-SiO ₂ 関係図	87

図 2.3.1-77	試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の $\text{Na}_2\text{O}-\text{SiO}_2$ 関係図.....	87
図 2.3.1-78	試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の $\text{K}_2\text{O}-\text{SiO}_2$ 関係図.....	88
図 2.3.1-79	試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の $\text{TiO}_2-\text{SiO}_2$ 関係図.....	88
図 2.3.1-80	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の化学組成の変化 (DH10 孔(0~GL-15m), XRF)	89
図 2.3.1-81	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の化学組成の変化 (DH10 孔(GL-15~30m), XRF)	90
図 2.3.1-82	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の化学組成の変化 (DH10 孔(GL-30~45m), XRF)	91
図 2.3.1-83	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の希土類元素パターンの 変化 (DH10 孔(0~GL-25m), ICP-MS)	93
図 2.3.1-84	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の希土類元素パターンの 変化 (DH10 孔(GL-25~45m), ICP-MS)	94
図 2.3.1-85	Rh-026 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右).....	98
図 2.3.1-86	BBDH10-14-Rh-026 試料の元素マップ	99
図 2.3.1-87	鉱物のスポット分析(BBDH10-14-Rh-026)	100
図 2.3.1-88	BBDH10-14-Rh-026 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序	104
図 2.3.1-89	FESEM-EDS 観察結果 (BBDH10-14-Rh-026 試料)	105
図 2.3.1-90	FESEM-EDS 分析結果 (BBDH10-14-Rh-026 試料)	106
図 2.3.1-91	μ -XRD 分析スポット(BBDH10-14-Rh-026 試料).....	107
図 2.3.1-92	XRD パターンと解析結果(BBDH10-14-Rh-026 試料).....	108
図 2.3.1-93	BBDH10-14-Rh-054 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右).....	108
図 2.3.1-94	BBDH10-14-Rh-054 試料の元素マップ	109
図 2.3.1-95	鉱物のスポット分析(BBDH10-14-Rh-054)	110
図 2.3.1-96	BBDH10-14-Rh-054 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序 (左: 玄武 岩溶岩を変質したノントロナイトと方沸石; 右: チルドマーチンを変質したサポナイトと方 沸石)	115
図 2.3.1-97	FESEM-EDS 観察結果(BBDH10-14-Rh-054 試料).....	116
図 2.3.1-98	FESEM-EDS 分析結果(BBDH10-14-Rh-054 試料、その1).....	117
図 2.3.1-99	FESEM-EDS 分析結果(BBDH10-14-Rh-054 試料、その2).....	118
図 2.3.1-100	μ -XRD 分析スポット(BBDH10-14-Rh-054 試料).....	119
図 2.3.1-101	XRD パターンと解析結果(BBDH10-14-Rh-054 試料).....	120
図 2.3.1-102	揚水試験.....	123
図 2.3.2-1	Bigbiga 地区の地下水調査位置と水質	124
図 2.3.3-1	DH08 孔柱状図 (0~GL-15m) [8].....	136
図 2.3.3-2	DH08 孔柱状図 (GL-15m~30m) [8].....	137
図 2.3.3-3	DH08 孔柱状図 (GL-30m~40.54m) [8]	138
図 2.3.3-4	DH09 孔柱状図 (0~GL-15m) [8].....	139

図 2.3.3-5	柱状図の凡例 (DH08 及び DH09) [8].....	140
図 2.3.3-6	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉍物組成 (DH08 孔(0 ~GL-15m), XRD) [8].....	141
図 2.3.3-7	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉍物組成 (DH08 孔 (GL-15m~30m), XRD) [8]	142
図 2.3.3-8	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉍物組成 (DH08 孔 (GL-30m~40.54m) , XRD) [8]	143
図 2.3.3-9	試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉍物組成 (DH09 孔(0 ~GL-15m) , XRD) [8].....	144
図 2.3.3-10	Bigbiga 地区 (Fish Pond 周辺の調査エリア) の Compilation Map.....	145
図 2.4.3-1	フィリピンの気候区分.....	147
図 2.4.4-1	ピナツボ火山とその周辺の地質図.....	148
図 2.4.4-2	Botolan 地域の地質図.....	149
図 2.4.4-3	Zambales オフィオライト複合岩体の分布図 (Salapare et al, 2013[21]に加筆) 151	
図 2.4.4-4	玄武岩質溶岩 (角礫化した自破碎溶岩) の薄片 (左) と顕微鏡写真.....	152
図 2.4.4-5	変質斑れい岩の薄片 (左) と顕微鏡写真.....	153
図 2.4.5-1	Pinatubo 地区のフィールド調査ルートマップ.....	154
図 2.4.5-2	Zambales 地域 Bucao 川流域での露頭調査および岩石試料採取位置.....	154
図 2.4.5-3	Zambales 地域 Mapanuepe 湖周辺での露頭調査および岩石試料採取位置	155
図 2.4.5-4	PNO01-14-Rh-001 岩石試料採取地点の露頭	155
図 2.4.5-5	PNO01-14-Rh-002 岩石試料採取地点の露頭	156
図 2.4.5-6	PNO01-14-Rh-003 岩石試料採取地点の露頭	156
図 2.4.6-1	Pinatubo 地区で採取した岩石試料 (調整前)	156
図 2.4.6-2	Pinatubo 地区で採取した岩石試料 (調整後)	157
図 2.4.6-3	PNO01-14-Rh-001 の粉末 XRD パターン	157
図 2.4.6-4	PNO01-14-Rh-002 の粉末 XRD パターン	158
図 2.4.6-5	PNO01-14-Rh-003 の粉末 XRD パターン	158
図 2.4.6-6	XRF による Pinatubo 露頭試料の主要元素比率.....	159
図 2.4.6-7	Pinatubo 露頭試料の希土類元素パターン	160
図 2.4.7-1	Pinatubo 地区 (Mapamepe 湖周辺) 地下水調査地点.....	161
図 2.4.7-2	沢水 1 の pH 測定状況 (pH 7)	161
図 2.4.7-3	沢水 2 の pH 測定状況 (pH 5)	162
図 2.5.4-1	フィリピン島弧の広域テクトニクス図 (Yummul et al., 2008) [26]と 3 つの主要なプレート (フィリピン/ユーラシア/オーストラリアプレート) 位置図.....	165
図 2.5.4-2	フィリピン及び Pinatubo の地質構造・層序学ユニットの区分	167
図 2.5.4-3	南パラワン島の地質図.....	168
図 2.5.4-4	南パラワン島の地質図と一般層序 (Suggate et al, (2013)[31], Aurelio et al., (2013)[25], Pena (2008)[39])	169

図 2.5.4-5	パラワン島におけるオフィオライト定置のシンプルモデル.....	171
図 2.5.4-6	Palawan オフィオライトと堆積岩との層位関係[39]	173
図 2.5.5-1	Palawan 島中・南部地区のフィールド調査ルートマップ	176
図 2.5.5-2	Palawan 島 St. Lucia, Ebu, Dia base 地区での露頭調査および岩石試料採取位置	176
図 2.5.5-3	Palawan 島 Narra 地区での露頭調査および岩石試料採取位置.....	177
図 2.5.5-4	Palawan 島 Dalrymple Point 地区での露頭調査および岩石試料採取位置	177
図 2.5.5-5	PWO01-14-Rh-002 岩石試料採取地点の露頭.....	178
図 2.5.5-6	Babatou 滝の直近の露頭調査.....	178
図 2.5.5-7	PWO01-14-Rh-004~007 岩石試料採取地点の露頭.....	179
図 2.5.5-8	PWO01-14-HU-001~002 岩石試料採取地点の露頭	179
図 2.5.5-9	Babatou 滝下流（約 100m）の石灰華の平坦地	180
図 2.5.5-10	Babatou 滝周辺のクリーク（沢状の川岸）の露頭.....	180
図 2.5.5-11	PWO01-14-Rh-008 岩石試料採取地点の露頭	181
図 2.5.5-12	PWO01-14-Rh-009 岩石試料採取地点の露頭.....	181
図 2.5.5-13	PW01-14-Rh-011 岩石試料採取地点の露頭	181
図 2.5.6-1	Palawan 島中・南部地区で採取した岩石試料（調整前）	182
図 2.5.6-2	Palawan 島中・南部地区で採取した岩石試料（調整後）	183
図 2.5.6-3	PWO01-14-Rh-001 の粉末 XRD パターン.....	185
図 2.5.6-4	PWO01-14-Rh-002 の粉末 XRD パターン	185
図 2.5.6-5	PWO01-14-Rh-003 の粉末 XRD パターン.....	186
図 2.5.6-6	PWO01-14-Rh-004 の粉末 XRD パターン.....	186
図 2.5.6-7	PWO01-14-Rh-005 の粉末 XRD パターン.....	186
図 2.5.6-8	PWO01-14-Rh-006 の粉末 XRD パターン.....	187
図 2.5.6-9	PWO01-14-Rh-007 の粉末 XRD パターン.....	187
図 2.5.6-10	PWO01-14-Rh-008 の粉末 XRD パターン.....	187
図 2.5.6-11	PWO01-14-Rh-009 の粉末 XRD パターン.....	188
図 2.5.6-12	PWO01-14-Rh-010 の粉末 XRD パターン.....	188
図 2.5.6-13	PWO01-14-Rh-011 の粉末 XRD パターン.....	188
図 2.5.6-14	PWO00-14-HU-001 の粉末 XRD パターン	189
図 2.5.6-15	PWO01-14-HU-001 の粉末 XRD パターン	190
図 2.5.6-16	PWO01-14-HU-002 の粉末 XRD パターン	190
図 2.5.6-17	PWO01-14-HU-003B の粉末 XRD パターン.....	191
図 2.5.6-18	PWO01-14-HU-003U の粉末 XRD パターン	191
図 2.5.6-19	PWO01-14-HU-004B の粉末 XRD パターン.....	192
図 2.5.6-20	PWO01-14-HU-004U の粉末 XRD パターン	192
図 2.5.6-21	PWO01-14-HU-005 の粉末 XRD パターン	193
図 2.5.6-22	PWO01-14-HU-006 の粉末 XRD パターン	193

図 2.5.6-23	PWO01-14-HU-007 の粉末 XRD パターン	194
図 2.5.6-24	PWO01-14-HU-001 の定方位 XRD パターン	194
図 2.5.6-25	PWO01-14-HU-002 の定方位 XRD パターン	195
図 2.5.6-26	PWO01-14-HU-005 の定方位 XRD パターン序	195
図 2.5.6-27	PWO01-14-HU-006 の定方位 XRD パターン	196
図 2.5.6-28	XRF による Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の主要元素比率	197
図 2.5.6-29	Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の CaO-SiO ₂ 関係図	198
図 2.5.6-30	Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の CO ₂ -SiO ₂ 関係図	198
図 2.5.6-31	Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の Al ₂ O ₃ -SiO ₂ 関係図	199
図 2.5.6-32	Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の Fe ₂ O ₃ -SiO ₂ 関係図	199
図 2.5.6-33	Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の MgO-SiO ₂ 関係図	199
図 2.5.6-34	Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の Na ₂ O-SiO ₂ 関係図	200
図 2.5.6-35	Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の K ₂ O-SiO ₂ 関係図	200
図 2.5.6-36	Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の TiO ₂ -SiO ₂ 関係図	200
図 2.5.6-37	Palawan/Pinatubo 露頭試料の希土類元素パターン (その 1)	202
図 2.5.6-38	Palawan/Pinatubo 露頭試料の希土類元素パターン (その 2)	203
図 2.5.6-39	蛇紋岩質かんらん岩(PWO01-14-Rh-003)の薄片 (左) と顕微鏡写真	204
図 2.5.6-40	鉍物のスポット分析(PWO01-14-Rh-006, その 1)	205
図 2.5.6-41	鉍物のスポット分析(PWO01-14-Rh-006, その 2)	206
図 2.5.6-42	鉍物のスポット分析(PWO01-14-Rh-007)	210
図 2.5.6-43	FESEM-EDS 観察結果(PWO01-14-Rh-006)	214
図 2.5.6-44	FESEM-EDS 分析結果(PWO01-14-Rh-006, その 1)	215
図 2.5.6-45	FESEM-EDS 分析結果(PWO01-14-Rh-006, その 2)	216
図 2.5.6-46	FESEM-EDS 観察結果(PWO01-14-Rh-007)	217
図 2.5.6-47	FESEM-EDS 分析結果(PWO01-14-Rh-007)	218
図 2.5.6-48	μ-XRD 分析スポット(PWO01-14-Rh-006)	219
図 2.5.6-49	XRD パターンと解析結果(PWO01-14-Rh-006)	220
図 2.5.6-50	μ-XRD 分析スポット(PWO01-14-Rh-007)	220
図 2.5.6-51	XRD パターンと解析結果(PWO01-14-Rh-007)	220
図 2.5.6-52	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その 1)	221
図 2.5.6-53	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その 2)	222
図 2.5.6-54	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その 3)	222
図 2.5.6-55	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その 4)	223
図 2.5.6-56	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その 5)	223
図 2.5.6-57	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その 6)	224
図 2.5.6-58	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その 7)	224
図 2.5.6-59	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その 8)	225
図 2.5.6-60	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その 9)	225

図 2.5.6-61	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その10).....	226
図 2.5.6-62	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その1).....	226
図 2.5.6-63	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その2).....	227
図 2.5.6-64	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その3).....	227
図 2.5.6-65	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その4).....	228
図 2.5.6-66	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その5).....	228
図 2.5.6-67	偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その6).....	229
図 2.5.7-1	St. Lucia 地区の地下水採取・現地測定位置図.....	230
図 2.5.7-2	採水・水質測定状況: St. Lucia (N09°42' 21.0" ,E118°41' 36.4")	231
図 2.5.7-3	Narra 地区の地下水採取・現地測定位置図.....	232
図 2.5.7-4	採水・水質測定状況: Narra1 (San Isidoro, Parian 温泉: N9°10' 49.8" ,E118°15' 05.7")	232
図 2.5.7-5	採水(中)・水質および湧出ガス測定(右): Narra2 (N09°12' 32.7" ,E118°17' 07.9" : Down stream from Babatou Fall)	233
図 2.5.7-6	採水・水質測定状況: Narra3-1 (N09°12' 18.7" ,E118°16' 46.0" : Crack water of Western Site from apart from Babatou Fall)	234
図 2.5.7-7	採水・水質測定状況: Narra3-2 (N09°12' 13.1" ,E118°16' 50.6" : Down Slope from Western Site)	235
図 2.5.7-8	湧出ガス測定状況: Narra4 (N09°13' 24.9" ,E118°16' 57.3" : Creek side apart from Western Site, Narra)	235
図 2.5.7-9	Palawan のアルカリ湧水の pH-Na ⁺ 濃度関係図	241
図 2.5.7-10	Palawan のアルカリ湧水の pH-K ⁺ 濃度関係図	241
図 2.5.7-11	Palawan のアルカリ湧水の pH-Ca ²⁺ 濃度関係図	241
図 2.5.7-12	Palawan のアルカリ湧水の pH-Al ³⁺ 濃度関係図	241
図 2.5.7-13	Palawan のアルカリ湧水の pH-Mn ²⁺ 濃度関係図	242
図 2.5.7-14	Palawan のアルカリ湧水の pH-Mg ²⁺ 濃度関係図	242
図 2.5.7-15	Palawan のアルカリ湧水の pH-Fe 濃度関係図	242
図 2.5.7-16	Palawan のアルカリ湧水の pH-Si 濃度関係図	242
図 2.5.7-17	Palawan のアルカリ湧水の pH-NO ²⁻ 濃度関係図.....	243
図 2.5.7-18	Palawan のアルカリ湧水の pH-NO ³⁻ 濃度関係図.....	243
図 2.5.7-19	Palawan のアルカリ湧水の pH-PO ⁴ ³⁻ 濃度関係図.....	243
図 2.5.7-20	Palawan のアルカリ湧水の pH-SO ⁴ ²⁻ 濃度関係図.....	243
図 2.5.7-21	Palawan のアルカリ湧水の pH-Cl 濃度関係図	244
図 2.5.7-22	Palawan のアルカリ湧水の pH-F 濃度関係図	244
図 2.5.7-23	フィリピンの地下水の $\delta D - \delta^{18}O$ プロット図.....	245
図 2.6.1-1	フィリピンナチュラルアナログの調査サイト	246
図 2.6.1-2	ナチュラルアナログサイトとしての模式地質断面の概念図.....	249

図 3.2.1-1	BBDH10-14-Rh-041 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右) ...	255
図 3.2.1-2	BBDH10-14-Rh-041 試料の元素マップ.....	256
図 3.2.1-3	鉱物のスポット分析(BBDH10-14-Rh-041)	257
図 3.2.1-4	BBDH10-14-Rh-041 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序 (左: 方解石を包有する沸石; 右: 溶解してモンモリロナイトに変質するクラック近傍の斜長石) ..	261
図 3.2.1-5	BBDH08-13-Rh-010 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右) ...	262
図 3.2.1-6	BBDH08-13-Rh-010 試料の元素マップ.....	263
図 3.2.1-7	鉱物のスポット分析(BBDH08-13-Rh-010)	264
図 3.2.1-8	BBDH08-13-Rh-010 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序 (左: 沸石層とモンモリロナイト層の分帯; 右: 石英と沸石に富む沸石層)	268
図 3.2.2-1	FESEM-EDS 観察結果(BBDH10-14-Rh-041)	269
図 3.2.2-2	FESEM-EDS 分析結果(BBDH10-14-Rh-041)	270
図 3.2.2-3	FESEM-EDS 観察結果(BBDH08-13-Rh-010)	271
図 3.2.2-4	FESEM-EDS 分析結果(BBDH08-13-Rh-010, その1)	272
図 3.2.2-5	FESEM-EDS 分析結果(BBDH08-13-Rh-010, その2)	273
図 3.2.3-1	μ -XRD 分析スポット(BBDH10-14-Rh-041 試料).....	274
図 3.2.3-2	XRD パターンと解析結果(BBDH10-14-Rh-041 試料)	274
図 3.2.3-3	μ -XRD 分析スポット(BBDH08-13-Rh-010 試料).....	275
図 3.2.3-4	XRD パターンと解析結果(BBDH08-13-Rh-010 試料)	276
図 3.2.5-1	スメクタイトの X_{Fe} - X_{Ca} プロット.....	277
図 3.2.5-2	スメクタイトの組成比較プロット(a: Al vs. K; b: Fe vs. K; c: Mg vs. Ca).....	279
図 3.2.5-3	沸石の分類プロット.....	280
図 3.3.1-1	Bigbiga 地区 Fish Pond 近傍の二次元水理地質構造概念モデル	285
図 4.2.1-1	熱ルミネッセンス年代測定の方法.....	291
図 4.2.1-2	SARA 法の実施手順のイメージ	292
図 4.2.3-1	Bigbiga 試錐孔(DH05~DH07)の柱状図と鉱物組み合わせ[12].....	296
図 4.2.4-1	BB12-DH07-RW-001 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]	297
図 4.2.4-2	BB12-DH07-RW-003 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]	298
図 4.2.4-3	BB12-DH05-RW-003 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]	298
図 4.2.4-4	BB12-DH05-RW-005 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]	298
図 4.2.4-5	BB12-DH05-RW-006 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]	299
図 4.2.4-6	BB12-DH05-RW-007 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]	299
図 4.2.4-7	BB12-DH05-RW-013 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]	299
図 4.2.4-8	BB12-DH05-RW-014 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]	300
図 4.2.4-9	BB12-DH05-RW-015 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]	300
図 4.2.4-10	BB12-DH05-RW-016 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]	300
図 4.2.4-11	BB12-DH05-RW-018 の TL データ (左) と検量線 (右) [13].....	301

図 4.2.4-12	フィリピン Bigbiga (試錐コア DH05, DH07) の方解石の熱ルミネッセンス年代 (昨年度の評価結果[13])	302
図 4.2.5-1	Rh-003 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右)	303
図 4.2.5-2	Rh-003 試料の元素マップ	304
図 4.2.5-3	鉱物のスポット分析 (BB12-DH05-Rh-003)	305
図 4.2.5-4	Rh-003 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序 (左: 沸石-方解石脈とマトリクス; 右: マトリクス中に残存するモンモリロナイトと沸石脈)	308
図 4.2.5-5	BB12-DH05-RW-015 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右)	308
図 4.2.5-6	BB12-DH05-RW-015 試料の元素マップ	309
図 4.2.5-7	鉱物のスポット分析(Rh-015)	310
図 4.2.5-8	BB12-DH05-RW-015 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序 (左: 沸石-方解石脈と沸石化した斑晶の内部を充填する方解石; 右: 緻密に成長した沸石に交代されたモンモリロナイト)	313
図 4.2.5-9	BB12-DH05-RW-016 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右)	314
図 4.2.5-10	Rh-016 試料の元素マップ	315
図 4.2.5-11	鉱物のスポット分析(BB12-DH05-RW-016)	316
図 4.2.5-12	BB12-DH05-RW-016 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序 (左: 沸石を包有する方解石脈と微化石方解石; 右: 沸石を包有する二次的方解石と共存する沸石)	318
図 4.2.5-13	FESEM-EDS 観察結果(BB12-DH05-RW-003)	320
図 4.2.5-14	FESEM-EDS 分析結果(BB12-DH05-RW-003)	321
図 4.2.5-15	FESEM-EDS 観察結果(BB12-DH05-RW-015)	322
図 4.2.5-16	FESEM-EDS 分析結果(BB12-DH05-RW-015)	323
図 4.2.5-17	FESEM-EDS 観察結果(BB12-DH05-RW-016)	324
図 4.2.5-18	FESEM-EDS 分析結果(BB12-DH05-RW-016, その1)	325
図 4.2.5-19	FESEM-EDS 分析結果(BB12-DH05-RW-016, その2)	326
図 4.2.5-20	FESEM-EDS 分析結果(BB12-DH05-RW-016, その3)	327
図 4.2.5-21	μ -XRD 分析スポット(BB12-DH05-RW-003)	328
図 4.2.5-22	XRD パターンと解析結果(BB12-DH05-RW-003)	328
図 4.2.5-23	μ -XRD 分析スポット(BB12-DH05-RW-015)	329
図 4.2.5-24	XRD パターンと解析結果(BB12-DH05-RW-015)	329
図 4.2.5-25	μ -XRD 分析スポット(BB12-DH05-RW-016)	330
図 4.2.5-26	XRD パターンと解析結果(BB12-DH05-RW-016)	330
図 4.2.6-1	方解石と周囲岩石からの影響率を方解石ほぼ 0%から 100%まで考慮し得た年代値のプロット	333
図 4.2.6-2	Bigbiga の試錐コアの LA-ICP-MS 分析結果	334
図 4.2.6-3	BB12-DH07-RW-001 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値	337
図 4.2.6-4	BB12-DH07-RW-003 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値	337

図 4.2.6-5	BB12-DH05-RW-001 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値	337
図 4.2.6-6	BB12-DH05-RW-006 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値	338
図 4.2.6-7	BB12-DH05-RW-007 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値	338
図 4.2.6-8	BB12-DH05-RW-013 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値	338
図 4.2.6-9	BB12-DH05-RW-014 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値	339
図 4.2.6-10	BB12-DH05-RW-018 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値	339
図 4.2.6-11	BB12-DH05-RW-003 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値	340
図 4.2.6-12	BB12-DH05-RW-015 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値	340
図 4.2.6-13	BB12-DH05-RW-016 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値	340
図 4.3.1-1	Palawan 島 Narra 地区のトレンチ調査	342
図 5.1.1-1	オフィオライトとベントナイトの層序関係	345
図 5.2.1-1	Saile 鉱山ベントナイトの初期状態におけるベントナイト中の鉱物空間分布	346
図 5.2.1-2	枕状溶岩と接するベントナイトの界面（右写真）で観察された変質後の鉱物組成	346
図 5.2.3-1	一次元反応輸送モデル解析用に設定したベントナイトの体系	349
図 5.2.6-1	60 年後におけるベントナイト中の鉱物空間分布の比較（Case1-4）	355
図 5.2.6-2	カリ長石の生成と溶解を平衡論で取り扱った Case1 での鉱物組み合わせの経時変化	355
図 5.2.6-3	60 年後におけるベントナイト中の鉱物空間分布の比較（Case5-8）	357
図 5.2.6-4	Case6 の条件で解析した場合の鉱物組み合わせの経時変化	357
図 5.2.6-5	全ての解析ケースにおける反応後 60 年間の溶存鉄濃度の経時変化	358

表目次

表 1.3.4-1	調査サイトの地下水水質と低アルカリセメント浸出液とのアナログ性	11
表 1.4.1-1	高アルカリ地下水の影響によるベントナイトの長期健全性に関するナチュラルアナログ調査・研究の進め方.....	27
表 2.2.3-1	物理化学パラメータ 測定項目	37
表 2.2.4-1	今年度のフィールド調査で採取した岩石試料と分析項目	40
表 2.2.4-2	XRD の測定条件一覧.....	41
表 2.2.4-3	XRF による定量分析条件.....	42
表 2.2.4-4	分析項目	43
表 2.3.1-1	掘削作業工程.....	48
表 2.3.1-2	XRD によるコア試料 (DH10) の鉱物同定結果	62
表 2.3.1-3	XRD による試錐孔(DH10)のスライム試料の鉱物同定結果	63
表 2.3.1-4	ICP-MS による試錐孔(DH10)の主成分・微量成分分析及び全ケイ素アルカリ溶融脱水法による Si 濃度分析結果.....	92
表 2.3.1-5	BBDH10-14-Rh-026 試料の石英の化学組成	101
表 2.3.1-6	BBDH10-14-Rh-026 試料の方解石の化学組成.....	102
表 2.3.1-7	BBDH10-14-Rh-026 試料の斜長石の化学組成.....	102
表 2.3.1-8	BBDH10-14-Rh-026 試料の輝石の化学組成	103
表 2.3.1-9	BBDH10-14-Rh-026 試料のスメクタイトの化学組成.....	103
表 2.3.1-10	BBDH10-14-Rh-026 試料の沸石の化学組成	104
表 2.3.1-11	方解石の化学組成	111
表 2.3.1-12	斜長石の化学組成	112
表 2.3.1-13	輝石の化学組成.....	112
表 2.3.1-14	スメクタイトの化学組成	113
表 2.3.1-15	沸石の化学組成.....	114
表 2.3.1-16	Bigbigo 試錐孔 (DH05, DH08, DH10) の分析試料の記載岩石学的分類.....	121
表 2.3.1-17	試錐孔(DH10)及び既存井戸の水質測定結果.....	122
表 2.3.1-18	揚水試験結果.....	123
表 2.3.2-1	地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果 (Bigbigo 地区、平成 26 年度採水、分析(B))	127
表 2.3.2-2	地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果 (全水試料、平成 26 年度採水、分析(B))	128
表 2.3.2-3	地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果 (Bigbigo 地区、平成 26 年度採水、分析(A)(B))	129
表 2.3.2-4	地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果 (Bigbigo 地区、平成 25 年度採水、分析(A)(B)) [8].....	130
表 2.3.2-5	地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果 (Bigbigo 地区、平成 24 年度採	

水その1) [9].....	131
表 2.3.2-6 地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果 (Bigbiga 地区、平成 24 年度採 水その2) [9].....	132
表 2.3.2-7 CFC 年代と安定同位体比.....	133
表 2.4.6-1 XRD による Pinatubo 露頭試料の鉱物同定結果.....	157
表 2.4.6-2 XRF 分析による Pinatubo 露頭試料の元素比率定量結果.....	159
表 2.4.6-3 ICP-MS 及び全ケイ素アルカリ溶融脱水法による主成分・微量成分分析結果 (Pinatubo)	160
表 2.4.7-1 Pinatubo 地区現地水質測定結果.....	162
表 2.5.6-1 XRD による Palawan 露頭試料の鉱物同定結果.....	184
表 2.5.6-2 XRF 分析による Palawan 露頭試料の元素比率定量結果.....	197
表 2.5.6-3 ICP-MS 及び全ケイ素アルカリ溶融脱水法による主成分・微量成分分析結果 (Palawan)	201
表 2.5.6-4 輝石の化学組成.....	207
表 2.5.6-5 スピネルの化学組成.....	208
表 2.5.6-6 炭酸塩の化学組成.....	208
表 2.5.6-7 蛇紋石の化学組成.....	209
表 2.5.6-8 水滑石の化学組成.....	211
表 2.5.6-9 炭酸塩の化学組成.....	212
表 2.5.6-10 蛇紋石の化学組成.....	213
表 2.5.6-11 Palawan の堆積物(PW001-14-Rh-007, -008)の記載岩石学的分類.....	229
表 2.5.7-1 St. Lucia 地区の現地水質測定結果.....	231
表 2.5.7-2 Narra 地区(Narra1~Narra2)の現地水質測定結果 (その1)	233
表 2.5.7-3 Narra 地区(Narra3-1~Narra4)現地水質測定結果 (その2)	234
表 2.5.7-4 地下水パラメータ・溶存イオン濃度測定結果 (Palawan 島中・南部地区、分析 (B))	238
表 2.5.7-5 地下水パラメータ・溶存イオン濃度測定結果 (Palawan 島中・南部地区、分析 (A)(B)(C)、その1)	239
表 2.5.7-6 地下水パラメータ・溶存イオン濃度測定結果 (Palawan 島中・南部地区、分析 (A)(B)(C)、その2)	240
表 2.5.7-7 Palawan と Zambales のアルカリ地下水の地球化学的特性の比較.....	244
表 2.5.7-8 CFC 年代と安定同位体比.....	245
表 2.6.1-1 ナチュラルアナログサイトの地質・地下水の地球化学的特性と現状.....	250
表 3.2.1-1 BBDH10-14-Rh-041 試料の石英の化学組成.....	258
表 3.2.1-2 BBDH10-14-Rh-041 試料の方解石の化学組成.....	259
表 3.2.1-3 BBDH10-14-Rh-041 試料の斜長石の化学組成.....	259
表 3.2.1-4 BBDH10-14-Rh-041 試料のスメクタイトの化学組成.....	260
表 3.2.1-5 BBDH10-14-Rh-041 試料の沸石の化学組成.....	261

表 3.2.1-6	石英の化学組成	265
表 3.2.1-7	斜長石の化学組成	266
表 3.2.1-8	方解石の化学組成	266
表 3.2.1-9	スメクタイトの化学組成	267
表 3.2.1-10	沸石の化学組成	268
表 3.2.4-1	分析試料の記載岩石学的分類	276
表 4.2.1-1	フィリピンのナチュラルアナログにおける放射年代測定の適用性	290
表 4.2.1-1	SAR 法手順	293
表 4.2.4-1	各試料の蓄積線量	301
表 4.2.4-2	方解石と周囲岩石の各種放射性元素濃度と a-value、b-value、c-value 及び各種放射線量率と年間線量	302
表 4.2.5-1	方解石の化学組成	306
表 4.2.5-2	スメクタイトの化学組成	307
表 4.2.5-3	沸石の化学組成	307
表 4.2.5-4	石英の化学組成	311
表 4.2.5-5	斜長石の化学組成	311
表 4.2.5-6	方解石の化学組成	312
表 4.2.5-7	スメクタイトの化学組成	312
表 4.2.5-8	沸石の化学組成	313
表 4.2.5-9	石英の化学組成	316
表 4.2.5-10	方解石の化学組成	317
表 4.2.5-11	沸石の化学組成	318
表 4.2.5-12	石灰質試料の記載岩石学的比較	319
表 4.2.5-13	Bigbiga の炭酸塩試料の記載岩石学的分類	331
表 4.2.6-1	方解石と周囲岩石の各種放射性元素濃度とそれら元素からの各種放射線量率と年間線量	332
表 4.2.6-2	方解石の比率と炭酸塩の TL 年代	332
表 4.2.6-3	各放射線のルミネッセンス効率	225
表 4.2.6-4	放射性元素濃度とルミネッセンス効率を考慮した TL 年代	336
表 5.2.2-1	解析に用いた溶液データ	348
表 5.2.2-2	高アルカリ地下水生成のモデルに用いたかんらん岩の鉱物組成データ	348
表 5.2.4-1	鉱物の熱力学データとモル体積 (cm ³ /mol)[9]	350
表 5.2.4-2	25°Cにおける速度論パラメータ	351
表 5.2.5-1	解析ケース	352

第1章 概要

1.1 背景

東日本大震災による福島第一原子力発電所事故以降、原子力発電の再稼働や廃炉等今後の利用のあり方について安全性確保の考え方に基づく議論が深まっており、発電に伴って発生する放射性廃棄物についてもその安全性について国民的な関心が高まりつつある。高レベル放射性廃棄物や長半減期低発熱放射性廃棄物（以下、TRU 廃棄物という。）の地層処分は、今後の原子力政策の方向性に係わらず、これまで原子力エネルギーを利用してきたわが国にとって避けることのできない重要な課題であり、その実現に向け努力を続けなければならない。

人工バリアと天然バリアで構成される多重バリアシステムを基本とする地層処分場の長期にわたる安全評価において、地層処分に対応する長期の時間スケールに着目し、安全評価上考慮すべき現象と類似した天然現象を、その現象理解や性能評価に活用する研究が「ナチュラルアナログ（NA: Natural Analogue）研究」といわれる。このナチュラルアナログ研究は、地層処分に必要な長期間の性能評価を行うための自然界に存在する類似現象を研究するという地層処分研究の一分野であることに加えて、ナチュラルアナログ研究では地層処分の仕組みそのものの理解を自然界に過去から存在する類似した「もの」により行えるということから、これが関係者の合意形成を図っていく上で一定の役割を果たしうると考えられている。そして後者の観点では、わが国を含め、高レベル放射性廃棄物処分計画を進める世界各国において地層処分を実現するために、地域住民や国民一般から地層処分に対する理解と協力を得ることが不可欠でありことから、ナチュラルアナログは、わが国を含め世界各国が目指す地層処分とはどのような概念かを分かりやすく国民一般への説明を行うための有効な方策でもある。

自然環境におかれた人工的な材料が長期間にわたってどのように変化するのかという、地層処分において非常に重要な問題に対して、室内実験による検討では、特に時間スケールの観点において必然的に得られる情報に限界がある。ナチュラルアナログ研究が始まった当初は、このような人工バリアの構成材料の問題に関する研究が多く行なわれた。その後、これら材料中心のナチュラルアナログ研究に加えて、母岩中における放射性核種の移行と遅延プロセスに重点を置く傾向を示すようになった。近年では、処分システムのアナログということが注目されており、地質環境の長期安定性に関するナチュラルアナログ研究[1][2][3]や、複合的な材料で構成される処分システムの機能に影響を及ぼす構成要素間の相互作用に関するナチュラルアナログ研究[4][5][6]がすすめられている。

本事業では、ナチュラルアナログの特徴を地層処分の長期安全性のセーフティケースの一つとして活用するために、さらに以下の観点に着目したナチュラルアナログのアプローチを提案している。

- ①日本の高レベル放射性廃棄物（あるいは TRU 廃棄物）処分における「セーフティケース」構築のための情報活用に向けて、科学技術的な観点からナチュラルアナログ調査・研究の到

達目標を設定し、その到達目標に対応する課題の設定とそれらの展開に適した場を選定することで、NA 調査・研究計画の最適化をはかる。

②ナチュラルアナログ調査・研究が天然における長期の総合実験として、広義のステークホルダーの意思決定プロセス（理解促進）に資する科学的・技術的な証拠（Public Acceptance）としてのみならず、性能評価モデルの検証・改善（Performance Assessment）のための役割を担うことを認識する。すなわち、ナチュラルアナログを長期現象の直接的な証拠として活用し、主要プロセスの現象理解を深めるとともに、室内実験や解析モデルによる評価と合わせて、対象とする現象の安全評価モデルの信頼性向上を図る。

③ナチュラルアナログ調査・研究が様々な分野にまたがる学際的な研究であることから、大学等の専門家や事業者等幅広い分野の専門家に参加を呼びかけ、情報の共有化・知識の普及を図るとともに、フィールド調査における現地での経験者との共同作業・議論や広範な分野に渡る研究を通じて、若手研究者（技術者）の人材育成の場としてこれを活用する。

本事業で対象とする TRU 廃棄物は、再処理施設で発生する、使用済みの廃棄フィルタ（廃銀吸着材）、使用済み燃料の部品（ハル・エンドピース）、濃縮廃液と、再処理施設や MOX 燃料加工施設及び施設解体により発生する雑固体廃棄物等であり[7]、その人工バリアの基本構成として支保工、構造躯体、充填材等にセメント材の使用が想定されているため、高レベル放射性廃棄物の人工バリアシステム以上に、セメント材料との相互作用の長期評価は重要課題として位置付けられている。特に、ベントナイト緩衝材は人工バリアシステムの中での核種移行抑制において重要な構成要素の一つであり、ベントナイト自身の基本的な性能を長期にわたり確保するという点で、ベントナイトとセメント材の相互作用問題は特に重要である[8][9]。これは日本だけではなく、人工バリア構成材料としてベントナイトを用いる世界の全ての地層処分システムの性能評価に共通の課題である[10]。

この相互作用におけるキープロセスとしては、ベントナイト（主にモンモリロナイト等のスメクタイト族粘土鉱物（以下、スメクタイトという。))がセメント系材料から溶出する高アルカリ性の間隙水によるスメクタイトの変質反応（Ca 型化、二次鉱物の生成、CSH 化やゼオライト化など）により、ベントナイトはその膨潤性が低下し、また、間隙水中の塩濃縮の結果セメンテーションや亀裂が発生し、人工バリアシステムの劣化を引き起こすことが指摘されている[11][12][13]。また、L1 廃棄物（余裕深度処分対象の放射能レベルが比較的高い低レベル放射性廃棄物）の処分概念も同様であるが、ベントナイト層の低透水性が喪失することで処分システムの性能の低下が問題となることも懸念されている。

地層処分においてセメント材から浸出する高アルカリ成分が緩衝材や岩盤に及ぼす影響を評価する目的で、これまで高アルカリ影響による緩衝材の変質に関する個別現象に関する多くの研究が実施されており[14][15]、それらの成果を基に処分場の性能評価が行われてきた[12][16]。また、処分場における高アルカリ成分の影響に関する長期予測についても、多くの機関で実施されてきた[11][12][13]。さらに、上記短期間の試験では得られていなかった現象や、長期予測によって得られたセメント系材料と緩衝材との相互作用による変質（接触面近傍での二次鉱物の生成など）についても、比較的長期間の確証試験によってその一部が確認されてきている[17][18]。しかし、

これらは実験室で得られたデータを入力情報として得られた解析結果、及び、その解析結果に関して小規模な試験体系で数年～10年程度の間を確認したものであり、処分場における数万年以上にわたる人工バリア材の挙動をすべて確認することは困難である。そのため、ナチュラルアナログを既存の室内実験や解析モデルと連携させて、それぞれのアプローチの特徴を踏まえて地層処分システムの長期健全性評価の信頼性を高めることが重要であると考えられる。例えば、ナチュラルアナログにより長期挙動の直接的な証拠を収集し、これによるモデルやそのパラメータの改良等を行うことで長期の安全評価の解決を図ることなどである。そのためには、アナログとしての証拠の収集、すなわち可能性のあるサイトを探索して、ナチュラルアナログとなる天然現象を示す領域をその分野の専門家の経験に基づく調査・評価により確認することが必要不可欠である。

ベントナイトやスメクタイトを含む堆積層（粘土層）のアルカリ変質に関する NA 研究は近年になって検討され始めたテーマであり[19][20]、天然環境でのベントナイト（スメクタイト）－アルカリ地下水の相互作用による長期のアルカリ変質現象については、まだ不明な点も多く、NA として積極的に取り組む課題の一つと位置付けられる。また、高アルカリ地下水とベントナイトが共存する環境は世界中でも極めて限定された場所では確認されておらず、NA プロジェクトとして調査・研究がすすめられているのはフィリピンとキプロス[21]だけである。

1.2 目的

我が国において、これまでの原子力発電の利用に伴って既に放射性廃棄物が発生しており、その処理処分対策を着実に進める必要がある。超ウラン元素を含む長半減期低発熱放射性廃棄物（以下、TRU廃棄物という。）の処分方策については、処分施設設計の合理化や詳細化、性能評価の信頼性向上等が課題として挙げられている。TRU廃棄物の地層処分に必要な技術開発については、高レベル放射性廃棄物処分の技術開発との整合を図りつつ、高レベル放射性廃棄物との併置処分の技術的成立性をより確実にするための検討を含め、地層処分事業のスケジュールを考慮して進める必要がある。

このような背景のもと、本事業では、平成25年度から5年程度の期間で、TRU廃棄物処理・処分技術分野の課題であるヨウ素129及び炭素14の被ばく線量の低減対策を対象とし、ヨウ素129対策技術の信頼性向上及び炭素14長期放出挙動評価に関する研究開発を行い、ヨウ素・炭素移行挙動評価技術を高度化すること、また、人工バリア材の長期挙動及びガス移行連成挙動評価手法の研究開発を行うとともに、ナチュラルアナログ調査を実施し、人工バリア性能評価に係る技術的信頼性の向上及び技術基盤の確立することを目的としている。

本調査研究では、TRU廃棄物処分における人工バリア性能評価に係るセメント系材料の影響による人工バリア（ベントナイト）の長期健全性について、ナチュラルアナログ調査を実施することで、アルカリ緩衝材反応による緩衝材の長期変遷に関する直接的な根拠となるデータを取得し、それらフィールドデータと解析モデルを活用したアルカリ変質現象の解釈に基づき、その長期挙動評価の信頼性向上を図ることを目的として、セメントーベントナイト相互作用のナチュラルアナログが成立する環境である、高アルカリ地下水とベントナイト層が近接することが確認されたフィリピン国において、フィールド調査及び試料分析を実施し、アルカリ地下水の影響範囲やベントナイトのアルカリ変質に関わる鉱物・地球化学・地下水等のデータを取得し、それらフィールドデータの解釈に基づき、ベントナイトアルカリ変質プロセスの現象理解を深める。また、地球化学計算や年代測定を適用し、反応時間や閉塞（Clogging）現象の評価を行い、アルカリ環境下の鉱物変遷過程とその素反応を抑制・促進環境条件や物理化学的なメカニズムの評価を行う。

1.3 本事業のこれまでの成果概要

1.3.1 セメントーベントナイト相互作用のナチュラルアナログが成立するための環境条件

地層処分システムのセメント材の影響においては、セメント材ー地下水反応に起因して高アルカリ性となる地下水との反応プロセスがキープロセスとなる。このような高アルカリ地下水の生成・流出プロセスに酷似する自然系での地球化学的環境としてオフィオライトの蛇紋岩化作用が知られている。ここで、オフィオライトとは、過去の海洋性地殻が造山運動によって大陸地殻に衝上（のしあげ）した、玄武岩・斑れい岩・かんらん岩（超塩基性岩）などの数種類の岩石の組み合わせから成る層状複合岩体である。その一般的な火成層序を図 1.3.1-1 に示す。このオフィオライトの蛇紋岩化作用を起源とする高アルカリ地下水の組成、還元性環境、発熱反応による温度環境、ガスなどの生成環境は、放射性廃棄物の地層処分場の環境と非常に類似しており、ナチュラルアナログ研究の対象の場として絶好の環境条件（地質環境）といえる。

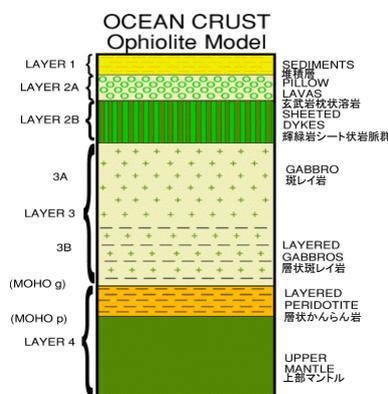
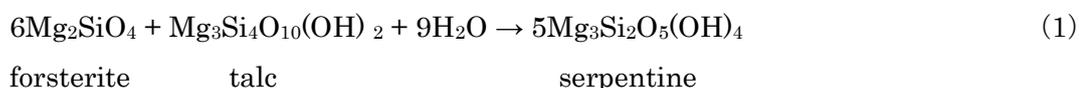


図 1.3.1-1 オフィオライト（かつての海洋底（地殻+マントル）の断片）の層序

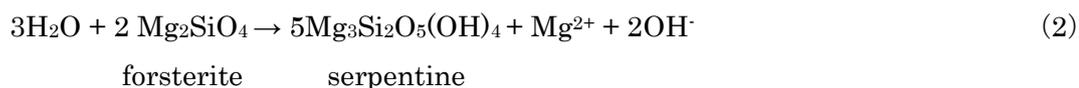
このオフィオライトの蛇紋岩化作用に由来する高 pH 地下水（温泉水も含む）の生成は、かんらん石の蛇紋岩化作用（Serpentinization）によるものであることが解っている。低温下ではかんらん岩はクリソタイル蛇紋岩へ、高温下ではアンチゴライト蛇紋岩に変質する。

蛇紋岩化作用およびそれに関連する反応について、構成式とともに以下に示す[22][23][24]。

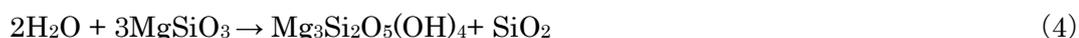
（蛇紋岩化作用）



（カンラン石の溶解）

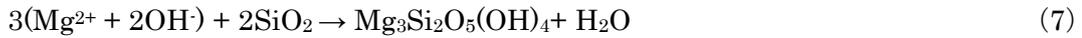


（輝石の溶解）





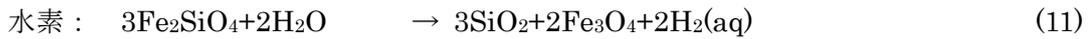
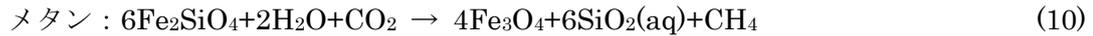
(降水の浸透)



(地下水の水質の構成)



(ガスの発生)



fayalite

magnetite

この一連の反応式で示されるようなオフィオライトの蛇紋岩化作用を起源とする高アルカリ地下水、還元性、発熱反応などの環境は、放射性廃棄物処分場環境と非常に類似しており、ナチュラルアナログ研究の対象の場として絶好の環境条件である。

また、オフィオライトの蛇紋岩体の分布は世界的にみて特定の地域に限られる。

したがって、ベントナイト緩衝材とセメント系材料の相互作用に係わるナチュラルアナログにおいて必要な環境条件は、①ベントナイト層 (Sediment)、②高アルカリ地下水 (Fluid)、③高アルカリ地下水の経路となる断裂系 (Fracture) が存在することである。このような地質環境において、本ナチュラルアナログのコンセプトとして、ベントナイト層が断裂系に沿って上がってきている高アルカリ地下水と接触し、長期にわたりベントナイトと高アルカリ地下水の相互作用が生じている状態を考えている (図 1.3.1-2)。

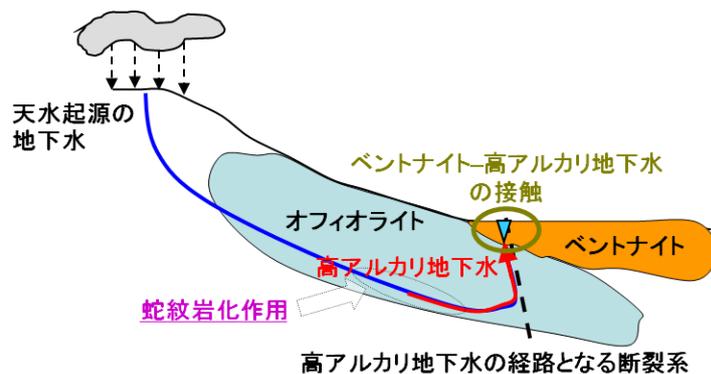


図 1.3.1-2 ナチュラルアナログのコンセプト

1.3.2 ナチュラルアナログ調査・研究の進め方

このような地質環境を有する地域を対象としてフィールド調査を中心に様々な調査を展開することになるが、ナチュラルアナログ調査として、以下のように段階的に調査を進めた。

第1段階として、アナログの要件を満たす地域、すなわち高アルカリ地下水を生成するオフィ

オライト (Ophiolite) とベントナイト層が近接する地域の文献調査を行った。

第2段階として、この過程で抽出された複数の候補地から、アナログの成立性を最優先とし、さらにロジスティックの有利性なども考慮して、調査対象地域を選定する。そして、対象地域の地質概査の実施計画案を作成した。この際、対象地域において予察調査を行い、実施計画案に反映させることで最適化を行った。

第3段階からが現地での本格的な調査・研究を開始するステージとなる。地質概査として、地質調査、地下水調査、及び本事業では高アルカリ地下水の湧出が断裂系に規制されることから断裂系調査を行い、高アルカリ地下水とベントナイト層が接触するアナログサイトを選定した。また、岩石鉱物学的調査、岩石化学的調査を実施して、ベントナイト層や高アルカリ地下水の基本特性、環境条件に係わる基礎データを取得した。

第4段階では、第3段階で選定されたアナログサイトでのトレンチ及び試錐を実施して、ベントナイトー高アルカリ地下水の相互作用及びその生成、環境条件に関する詳細な調査を実施した。ここで、ベントナイト層と高アルカリ地下水の接触については、過去にベントナイトと高アルカリ地下水と接触していたが現在は高アルカリ地下水が何らかの理由で枯れて存在していない場所を Fossil Type のナチュラルアナログサイト、現在もベントナイトと高アルカリ地下水が接触している場所を Active Type のナチュラルアナログサイトと呼ぶことにすると、Active Type のサイトにおいては、接触している地下水の採水・モニタリングが可能な構造試錐の実施もこの段階で検討する。これらの現地での調査結果を踏まえ、現象モデルの作成を行った。

最後の第5段階では、地層処分のどのナチュラルアナログとして活用できるかを明示した上で、得られたデータに基づき、長期間アルカリ環境下に晒されたベントナイトの長期健全性を評価した。またナチュラルアナログ調査での課題については、それに対応した今後の展望と開発戦略を示した。

1.3.3 フィリピンのナチュラルアナログ調査の有意性

ベントナイト緩衝材とセメント系材料の相互作用に係わるナチュラルアナログの成立（適用）要件を満たす地質環境は、蛇紋岩化作用が進行中のオフィオライトに直近または近接してベントナイト層が存在する地域でかつ、オフィオライト起源の高アルカリ地下水が水路となる断裂系に沿って湧出している露頭（コンタクト部）が対象となる。このような環境は、世界中でもフィリピンやキプロスなど極めて限られた地域にしか存在しない[25]。

フィリピンの調査サイトは本ナチュラルアナログの成立（適用）要件を満たす以下のような特徴を有する。

- ① 蛇紋岩化作用が進行中で、高アルカリ地下水を生成するオフィオライトが広く、数多く分布し、それらの高アルカリ地下水の湧出水路として断裂系の存在
- ② 火山砕屑性堆積物起源のベントナイト鉱床やベントナイト層が高アルカリ地下水を湧出しているオフィオライトに直接または近接して分布
- ③ 島弧型の変動帯に属し、わが国の弧状列島のテクトニクスの場合と酷似しているために、データ・知見の汎用性（適用性）

上記の特徴の内、ナチュラルアナログのコンセプトにおいては②が最も重要である。図 1.3.3-1 のように、ルソン島北西部ではアルカリ温泉水が湧出するオフィオライト（ザンバレス(Zambales) オフィオライト）とベントナイト鉱山（サイリー(Saile)鉱山）が近接して存在しており、高アルカリ地下水とベントナイト層が近接、または pH は少し低いアルカリ地下水が直接接触する露頭が存在している。また、パラワン島中南部にも大規模なオフィオライト（パラワン(Palawan)オフィオライト）が存在し、それに近接してスメクタイトを含む堆積層が分布している。

また、③については、わが国の弧状列島のテクトニクスの場合と変遷史に多くの共通な地質事象（地質構造発達事象とプロセス）があり、フィリピンにおけるベントナイトの生成環境と高アルカリ地下水の形成・進化過程に深く関与する地質環境が極めて類似しているために、取得したデータや解釈の汎用性が高いことが特筆される。

これらの地質環境と地球化学的現象の多くが想定された処分環境にアナログできることが、フィリピンでのナチュラルアナログ調査の有意性を示す最大の理由である。さらに、キプロス[21]でも同様にオフィオライト起源の高アルカリ地下水とベントナイト層が近接する環境が存在するが、フィリピンはこれまでの調査で明確なアルカリによるベントナイト（スメクタイト）の変質鉱物が確認された唯一のサイトであることに加え、処分のアナログとして地質環境のセッティングが単純（他の不確実なイベントが少なく解釈が容易）である点で有意である。また日本からのアクセスや調査ロジスティックの容易性等も優れていることもいえる。

これらのことからフィリピンにおいてナチュラルアナログ調査を行った。

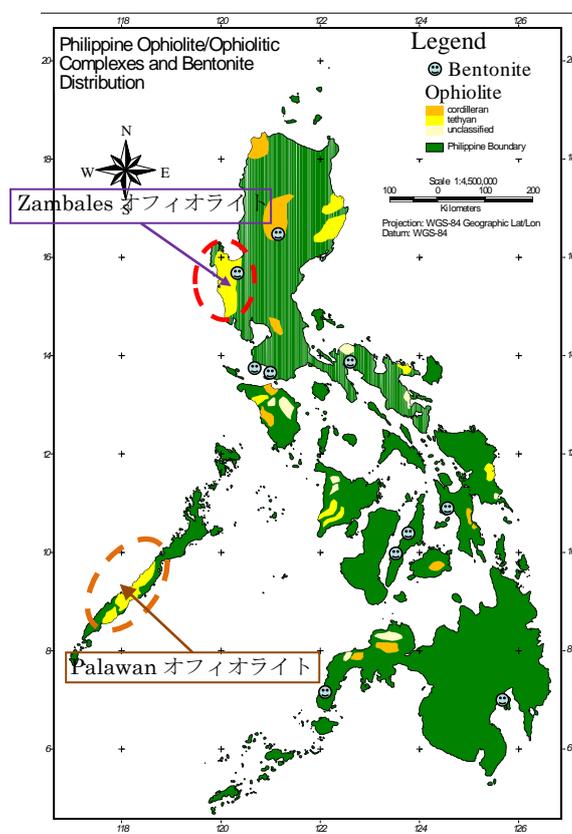


図 1.3.3-1 フィリピン国のオフィオライトとベントナイト鉱床の分布

1.3.4 Fossil Type のナチュラルアナログによるベントナイトの長期健全性

平成 24 年度までのナチュラルアナログ調査[20]により、ルソン島北西部に分布する Zambales オフィオライトに近接する Saile 鉱山 (図 1.3.4-1) では、ベントナイト層が熱水等の影響受けずに続成作用によって生成し、その後、断層活動に伴い形成された断層系を流路として上昇したアルカリ地下水と接触したことを示す直接的証拠が得られた。これらの結果は、Saile 鉱山とその周辺地がセメント材とベントナイト緩衝材との相互作用のナチュラルアナログサイトとして絶好の環境条件を備えていることを示すものであり、現在はアルカリ地下水の湧出が見られないが、過去に高アルカリ地下水とベントナイトが接触し反応していたアナログサイトとして”Fossil Type”のナチュラルアナログサイト (1.3.2 参照) といえる。

ここでは、”Fossil Type”のサイトのナチュラルアナログ調査によって得られたアルカリ環境下のベントナイトの長期健全性について簡単に紹介する。

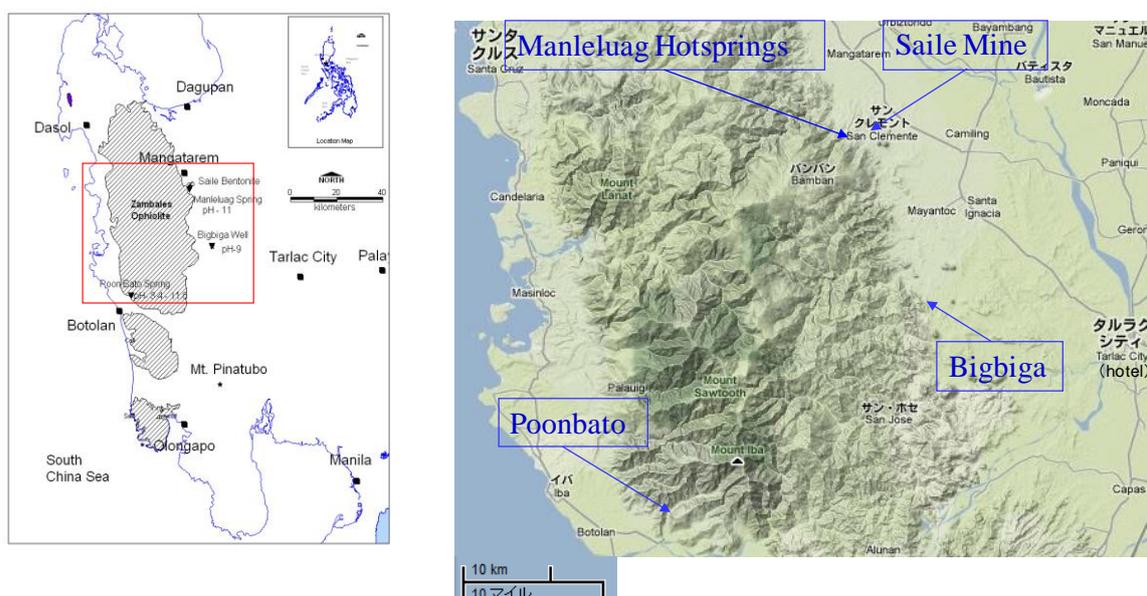


図 1.3.4-1 フィリピン国ルソン島北西部のナチュラルアナログ調査サイトの位置

(1) 地質概況

ルソン島北西部の調査対象地域は、フィリピン国・ルソン島の首都マニラ市から約 180km 離れた北西部に位置し、調査地区は北から南へ順次、Saile 鉱山地区、マンレルアッグ (Manleluag) 温泉保養施設地区、ビッグビガ (Bigbiga) 地区と最南部のプーンバト (Poonbato) 地区である (図 1.3.4-1)。

この地域には、フィリピン群島中で最大規模を有する世界有数の Zambales オフィオライトが、約 30~40km 幅でほぼ南北系に総延長約 130km で分布し、ルソン島西部の海岸山脈を形成している。調査地区に分布しているオフィオライトは、主に Saile 鉱山地区では、枕状玄武岩で、

Manleluag 温泉保養施設地区では、細粒のはんれい岩（一部自破碎玄武岩溶岩が伴う）が優勢であり、より苦鉄質な岩相では蛇紋岩化された露頭が観察される。

このオフィオライトに累重するのがアクシテロ(Aksitero)累層である。両者の関係は、不整合[26][27][28][29]と、整合[30]とする 2 つの解釈がある。現地の地質精査から、不整合とする明白なハイエータスや浸食エピソードが観察されないことにより、整合関係と解釈できる。この Aksitero 累層は、少なくとも深度 1,000m 以上の深海遠洋性堆積物で、主に遠洋性の浮遊性生物遺骸（珪藻類・有孔虫類など）と火山砕屑物（火山ガラス・火山灰・パミスなど）、および少量のオフィオライト起源の単斜輝石・クロム鉄鉱などの外来物質（鉱物）から構成されている。岩相としては凝灰岩質・石灰質砂岩・シルト岩・泥岩と石灰岩質泥岩・粘土岩、石灰岩および、一部の堆積物として特徴的な級化成層のタービタイトが観察される。

Saile 鉱山のベントナイト層の主な構成鉱物は、モンモリロナイト、Ca-沸石（少量のモルデン沸石・斜プチロル沸石・輝沸石）、方解石、斜長石、石英と少量の普通輝石、不透明鉱物（磁鉄鉱・クロム鉄鉱）である。これらのベントナイト-沸石類を形成した初源物質（原岩）は、火山ガラス・パミス・火山灰などを含有する凝灰岩質火山砕屑性堆積物であるが、一部遠洋性の浮遊性生物遺骸から形成された石灰質物質（燐灰石、方解石、ココリスなど）が包有されている。ベントナイト層は、沸石層とほぼ水平な互層関係で堆積しており（図 1.3.4-2（左））、モンモリロナイトの自生鉱物としての特徴（図 1.3.4-2（右））や熱水溶液との反応で生成された特徴的な変質鉱物の沈殿（結晶化）と分帯構造などや、第四紀の火山プラグの貫入による熱の影響を示す熱変質鉱物も観察されないことから、このベントナイト-沸石は、埋没・続成作用による地球化学的反応により形成されたものと解釈できる。

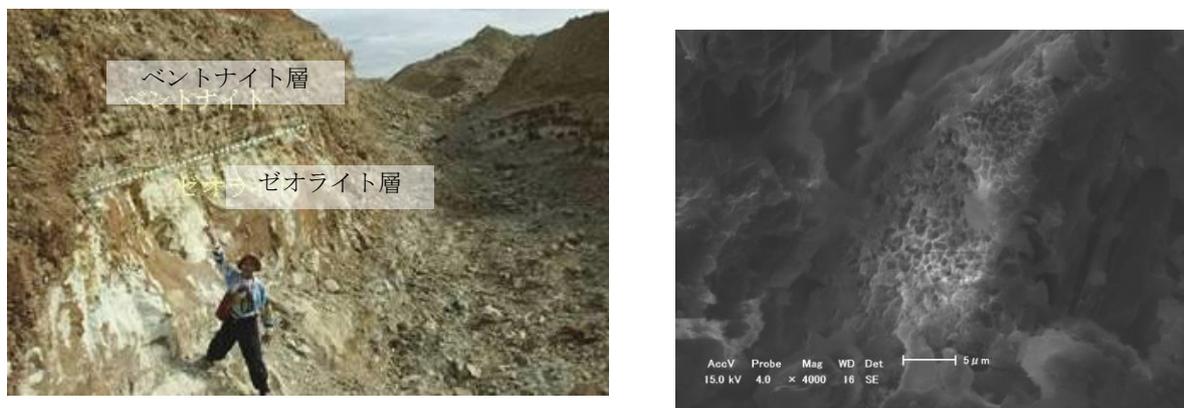


図 1.3.4-2 Saile 鉱山採石場 (Quarry) の露頭（ベントナイト-沸石層の互層関係）（左）とベントナイト（蜂の巣状の自生スメクタイト）の SEM 画像（右）

(2) アルカリ地下水の地球化学的挙動

Zambales オフィオライトが分布する各調査地点のアルカリ地下水は、環境安定同位体比から測定値がフィリピン天水起源ライン[31]の $\delta D = 6\delta^{18}O + 7$ に乗ることから天水起源であり、表

1.3.4-1 に示すように高アルカリ (pH11 以上)、高 Ca 濃度 (Mg 濃度は極めて低い)、還元性、温泉水程度の温度という低温型蛇紋岩作用などにもなう高アルカリ地下水生成の典型的な特性をもつ。これは地層処分での使用が想定される低アルカリセメント浸出水との高いアナログ性を示す。また、普通ポルトランドセメントの $\text{Ca}(\text{OH})_2$ の溶解平衡にある溶液 (RegionII) についても pH はそれに比べると低いアナログであるといえる。

表 1.3.4-1 調査サイトの地下水水質と低アルカリセメント浸出液とのアナログ性

Site	Manleluag HSp. - M1	Manleluag HSp. - M4	Saile Mine	Poonbato	Bigbiga Well	low alkali cement leachates (PNC 1997)*
Sample No.	M1-11-KWP-01	M4-11-KWP-04	SA-10-KWP-01	PB-10-KWP-02	BB-11-Well1	
pH	10.84	10.92	6.73	11.7	9.16	11.09
ORP(Eh) [mV]	-662	-698	65	-178	-118	-
Temp [°C]	34.1	34.2	27.9	27.5	29.6	60
CH ₄ [ppm]	>5000	0 (2200)	0	>5000	0 (0~560)	-
H ₂ [ppm]	62	0 (230)	0	50~1320	0 (0~130)	-
Na [ppm]	1.58	1.57	13.5	23.52	7.13	43
K [ppm]	0.28	0.22	1.92	5.00	0.76	13
Ca ²⁺ [ppm]	23.6	23.75	23.9	37.26	0.33	16.8
Mg [ppm]	0.17	0.01	18.5	0	0	-
Si [ppm]	11.5	12.2	24.0	2.52	36.3	-
Al [ppm]	20.3	24.8	0.02	0	1.11	0.3
Cl [ppm]	16.6	16.6	-	-	4.99	-
HCO ₃ [ppm]	73.5	55.6	232.8	-	153.8	-

*Mix Proportion – Portland cement: silica fume: fly ash = 40: 20: 40

この地域の地下水の形成は、灰長石 : 苦土かんらん石 : 透輝石=8:2:1 の溶解反応、鋳物の溶解・沈殿反応の拡散律速および Mg 鋳物から溶解した Mg はすべて変質鋳物として沈殿すると仮定した反応速度論に基づく水-岩石シミュレーションにより説明できる。また、水-岩石反応の程度は pH の順と同じで、Poonbato 地区 > Manleluag 温泉保養施設地区 > Bigbiga 地区 > Saile 鋳山である。

Saile 鋳山では、ベントナイト層に直接アルカリ地下水が浸水している露頭観察されていないが、トレンチ底面の断裂系・破碎岩の内側の蛇紋石と外側の炭酸塩鋳物、採石場の多数の断裂系の存在と断層岩及びベントナイト表層の γ-水マンガン鋳物の産状、ベントナイト層の重金属・軽希土類元素の濃度特性、基盤岩との接触界面のカリ長石など特徴的なアルカリ変質鋳物の産状等これらの地質鋳物学的証拠から、過去にナチュラルアナログのコンセプト (図 1.3.1-2) で示したような (近傍の pH 11 程度の Manleluag 温泉保養施設地区と同程度の) アルカリ地下水が高アルカリ地下水が断裂系に沿って上昇し、ベントナイト層に浸水していたと考えられる。

(3) 高アルカリ地下水環境下におけるベントナイトのアルカリ変質反応

Saile 鉱山鉱区内のトレンチ調査により、枕状溶岩とベントナイト層のコンタクトが確認され、上記の地質鉱物学的証拠からナチュラルアナログとなる過去に高アルカリ地下水との相互作用があったベントナイトとして、露頭の観察、試料の採取、鉱物・化学分析、物理試験等を実施し、以下のことが明らかになった。

トレンチの枕状溶岩直上のコンタクト部のベントナイトには、枕状玄武岩の波状的な表面からほぼ等距離の幅（約 40cm 程度）で主に炭酸塩鉱物（方解石）による特徴的な白色変質帯(Bleached Zone)が見られるが（図 1.3.4-3）、露頭スケールでスメクタイトのアルカリ変質の傾向を示す明確な鉱物組成の変化はない。また、この変質部は枕状溶岩の波状的な表面からほぼ等距離の幅で分布していることから、高アルカリ地下水が、オフィオライト基盤岩の断裂系を流路として浸水し、ベントナイトには拡散支配で移行したと考えられる。

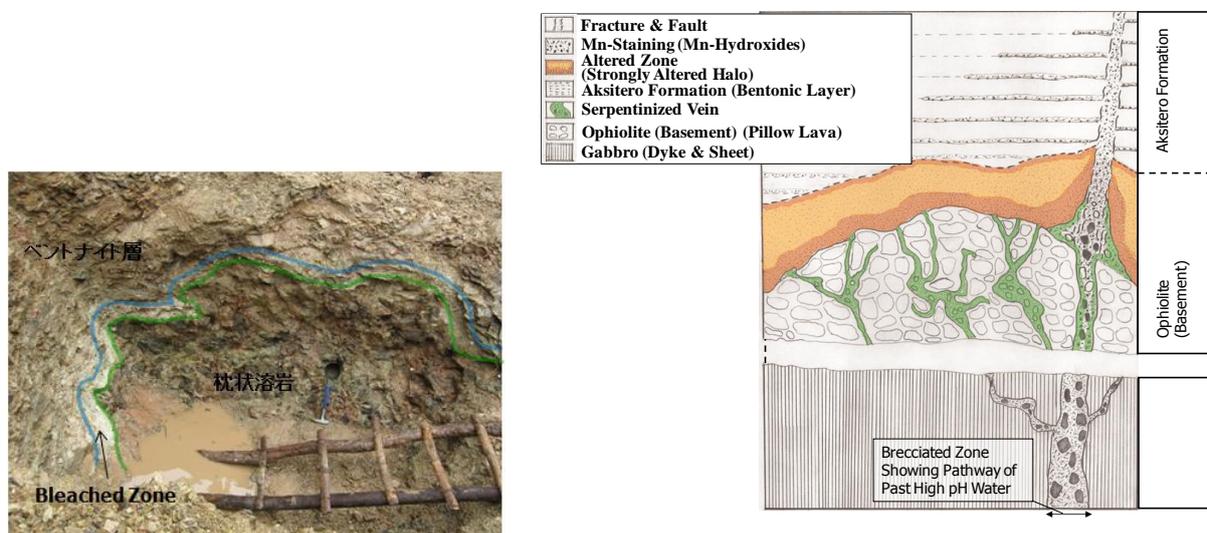


図 1.3.4-3 トレンチの枕状溶岩ーベントナイト層接触部(左)と観察結果に基づく模式断面図(右)

Bleached Zone の方解石を含むベントナイトは、未変質帯ベントナイトに比べ、スメクタイト含有率が小さく、間隙率が小さく（乾燥密度が大きく）、含水比が小さい傾向がある（図 1.3.4-4）。これは、ベントナイトの空隙に方解石が沈殿したことが主要因であり、アルカリのベントナイトの性質そのものへの影響は小さい一方で、空隙の減少で物質移行を抑制する状態になった可能性が高いと考えられる。

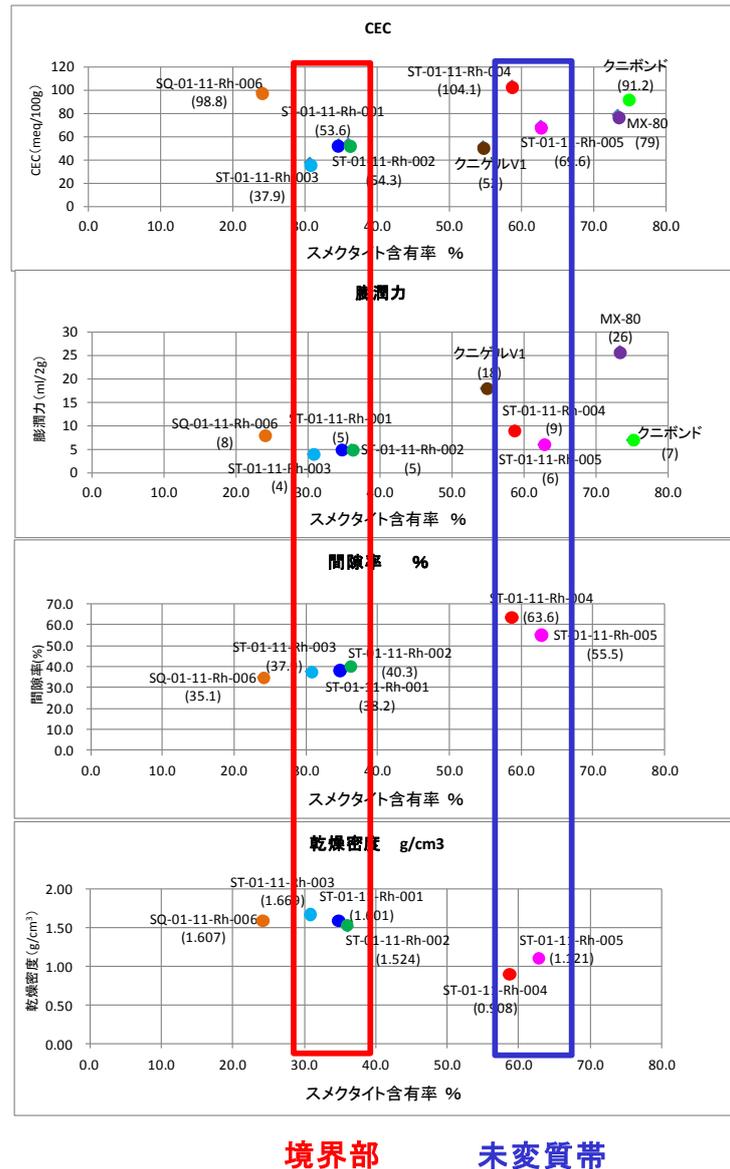


図 1.3.4-4 スメクタイト含有率と各基本物性との関係

トレンチの枕状溶岩-ベントナイトの接触界面 (図 1.3.4-5(a)) では、アルカリ変質反応により生成した、密度の低い変質ベントナイトゾーン (図 1.3.4-5(b)) と密度の高い鉄濃集帯が確認され、変質ベントナイトゾーンでは、Ca-沸石、シリカ鉱物及びカリ長石、鉄濃集帯では、粒状組織の針鉄鉱 (ゲーサイト) と羽毛状のノントロナイトとカリ長石が同定された (図 1.3.4-6)。この変質反応による影響範囲は、約 5mm に制限されており、鉄濃集帯の外側は未変質ベントナイトであることから、この鉄濃集帯がアルカリ溶液の移動を阻止する役割を担ったものと考えられる。

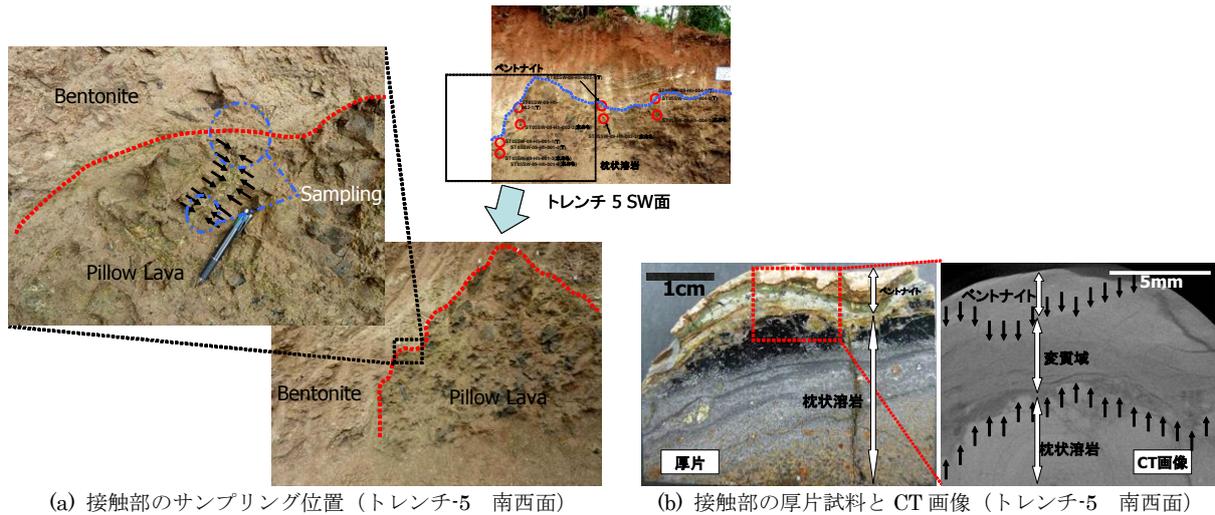


図 1.3.4-5 ベントナイトー枕状溶岩接触部のサンプリング (トレンチ-5 西南壁)

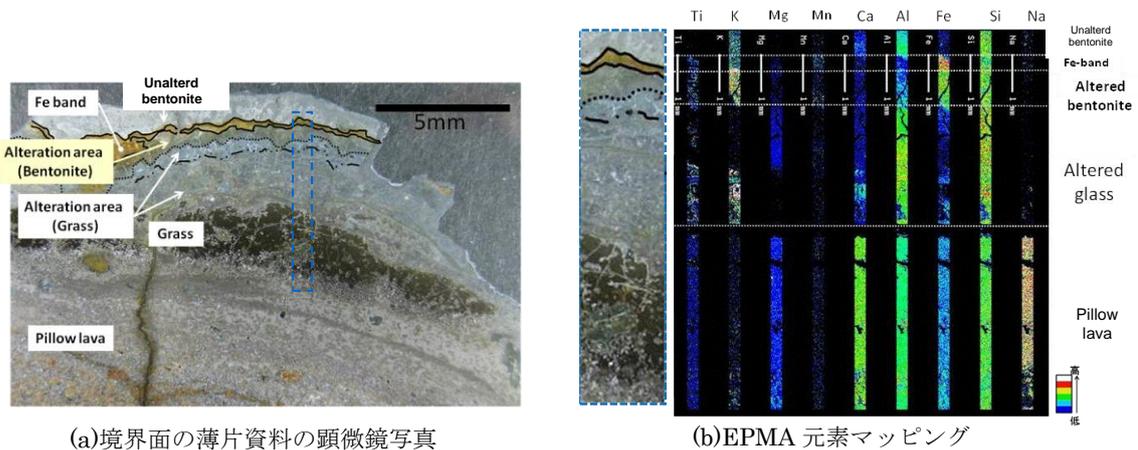


図 1.3.4-6 トレンチ-5 のベントナイトー枕状溶岩の界面の顕微鏡観察と元素マッピング

(4) アルカリ地下水環境下でのベントナイトの長期的な変質生成鉱物の変遷シナリオ

ベントナイトの出発物質である遠洋性堆積物の火山砕屑性堆積物が、間隙水としての古海水(地層水)と反応しながら埋没・続成作用により生成された初生モンモリロナイトは、Na-モンモリロナイトであると想定される。その後、オストワルド熟成段階を経ながら Ca 型化が進み、Ca-モンモリロナイトとその後断裂系から浸出するアルカリ溶液との反応が生じた。

Fe 元素の顕著な化学的挙動については、還元環境下で玄武岩(枕状溶岩)の苦鉄質鉱物(カンラン石、輝石または不透明鉱物)に含有する Fe 元素がアルカリ溶液に溶出し、細粒化された玄武岩質ガラスの最外縁部に浸出・移動した後、2 価の Fe イオンの一部が、2・八面体型モンモリロナイトの層間陽イオンである Ca との陽イオン交換反応により Fe 型化(Fe-モンモリロナイト)し、

一部は溶解反応を伴い Fe-サポナイトとして沈殿し、その後、酸化環境下で余剰の 3 価の Fe が、ノントロナイトと針鉄鉱を晶出（沈殿）させ、特徴的な鉄濃集帯を形成したものと考えられる（図 1.3.4-7）。

また、上記の Fe 元素が影響する反応と並行して、典型的なアルカリ変質反応として、モンモリロナイトの溶解-沈殿（結晶化）反応により、沸石（輝沸石と少量の斜プチロル沸石）とカリ長石、およびシリカ鉱物（クリストバライトと考えられる）が生成されたものと解釈できる。

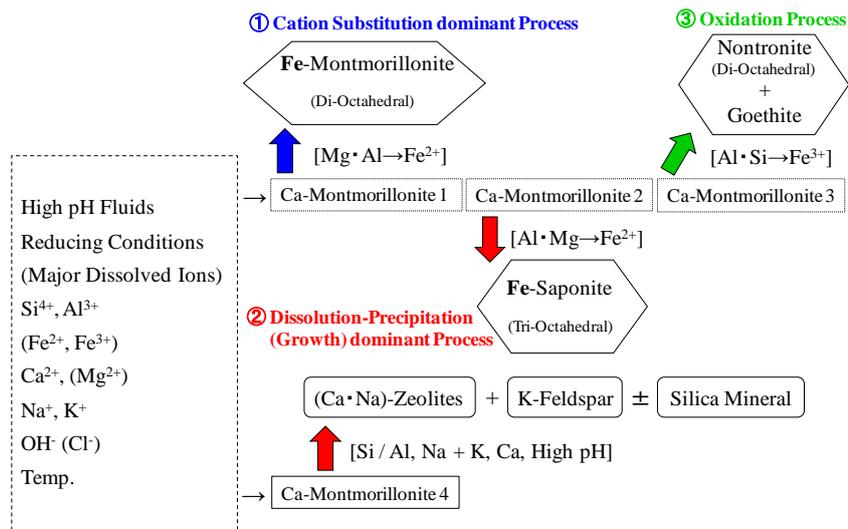


図 1.3.4-7 アルカリ環境下の Ca-モンモリロナイトの鉱物学的変遷過程

(5) 高アルカリ地下水とベントナイトの反応時間スケール

TL 法年代測定により、断裂系充填物の方解石が数 10ka(kilo-annum : 1000 年前)オーダーと評価された（図 1.3.4-8）。

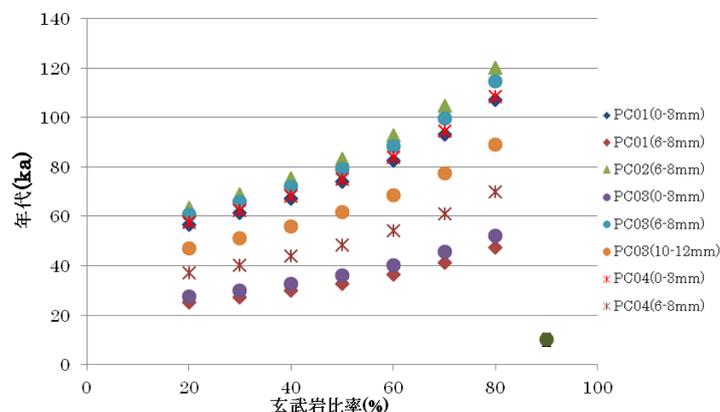


図 1.3.4-8 断裂系充填物の玄武岩比率と方解石の TL 年代

Zambales オフィオライトの生成年代については、斑れい岩中のジルコンの U-Pb 法年代から 44~48Ma[32]、堆積層については超微化石による相対年代の評価から[33]、Aksitero 累層（ベントナイト）で 37.2~23.0Ma(Mega-anuum : 100 万年前)（後期始新世~前期漸新世）、Moriones 累層で 23.0~15.9Ma（前期中新世）であり、Saile 鉱山 Quarry の断裂系が Aksitero 累層を切っているのに対し、不整合に上部に堆積している Moriones 累層を切っていないことから、断裂系が生じた際に高アルカリ地下水の湧水があったとすると、かなりの長期間に渡り（少なくとも 23Ma 以前~数十 ka まで）高アルカリ地下水がベントナイト層と接触していた可能性が考えられる。

(6) Fossil Type のナチュラルアナログが示すベントナイトの長期健全性

1) Bleached Zone の規模（範囲と程度）

Bleached Zone の範囲としては、高アルカリ地下水の浸水フロント（反応フロント）として玄武岩質枕状溶岩の表面（コンタクト）からベントナイト層へ約 40cm 程度の幅の変質部が観察され、この変質部は枕状溶岩の波状的な表面からほぼ等距離の幅で分布していることから、高アルカリ地下水が、オフィオライト基盤岩の断裂系を流路として浸水し、ベントナイトには拡散支配で移行したと考えられる。

変質部の変質の程度については、境界部の界面に限られるアルカリ変質帯を除いて、Ca-スメクタイトと随伴鉱物として主に輝沸石と斜プチロル沸石で構成されており、不均質に方解石が見られる部分を除き、未変質部との鉱物組成、CEC、膨潤力の顕著な違いは見られない。一方、界面のアルカリ変質帯では Fe サポナイト、鉄濃集帯（ノントロナイトと針鉄鉱）、カリ長石等明確なアルカリ変質鉱物が見られるが、顕微鏡スケールで 5mm 程度の幅である。

2) ベントナイトのアルカリ変質帯での物質移行

ベントナイトのアルカリ変質帯が、5mm 程度に限定されている最大の要因は、ノントナイトと共生関係にある針鉄鉱の産状である。これらの両鉱物が、変質ベントナイト（界面に近い部分）や未変質ベントナイトよりも密度の高い濃集帯を形成（閉塞現象：Clogging）し、その結果、物質移行を阻止する役割を担うことになり、アルカリ変質帯の広がりを限定することになったと考えられる。

3) ベントナイトの実測物性値

Bleached Zone の方解石を含むベントナイトは、未変質ベントナイトに比べ、スメクタイト含有率が小さく、間隙率が小さく（乾燥密度が大きく）、含水比が小さい傾向があり、変質した境界部のほうが未変質部より逆に物質移行を抑制する傾向が見られる

4) マクロ的なフィールドの事実

基盤岩との境界部などでベントナイトが大規模に変質している場所は全く見られず、断裂系が発達し、今現在も活発に湧出している高アルカリ地下水が存在するオフィオライトの基盤の

上にベントナイト層が存在し、また、それが過去にその地下水と接触していたにもかかわらず、処分場の評価期間をはるかに超える長期間ベントナイト鉱床は維持されている。

5) まとめ

これら”Fossil Type”のナチュラルアナログサイトである Saile 鉱山とその周辺地におけるベントナイトのアルカリ変質に係わる概念モデルを図 1.3.4-9 に示す。アルカリ地下水環境下のベントナイトは、図 1.3.4-9 に示す変質の規模、変質鉱物の生成プロセス、ベントナイト鉱床のそのものの存在に加え、基本物性等の観点からベントナイト系緩衝材に求められる諸特性の著しい劣化が確認されないことから、ベントナイトの長期健全性が保たれるものと評価できる。

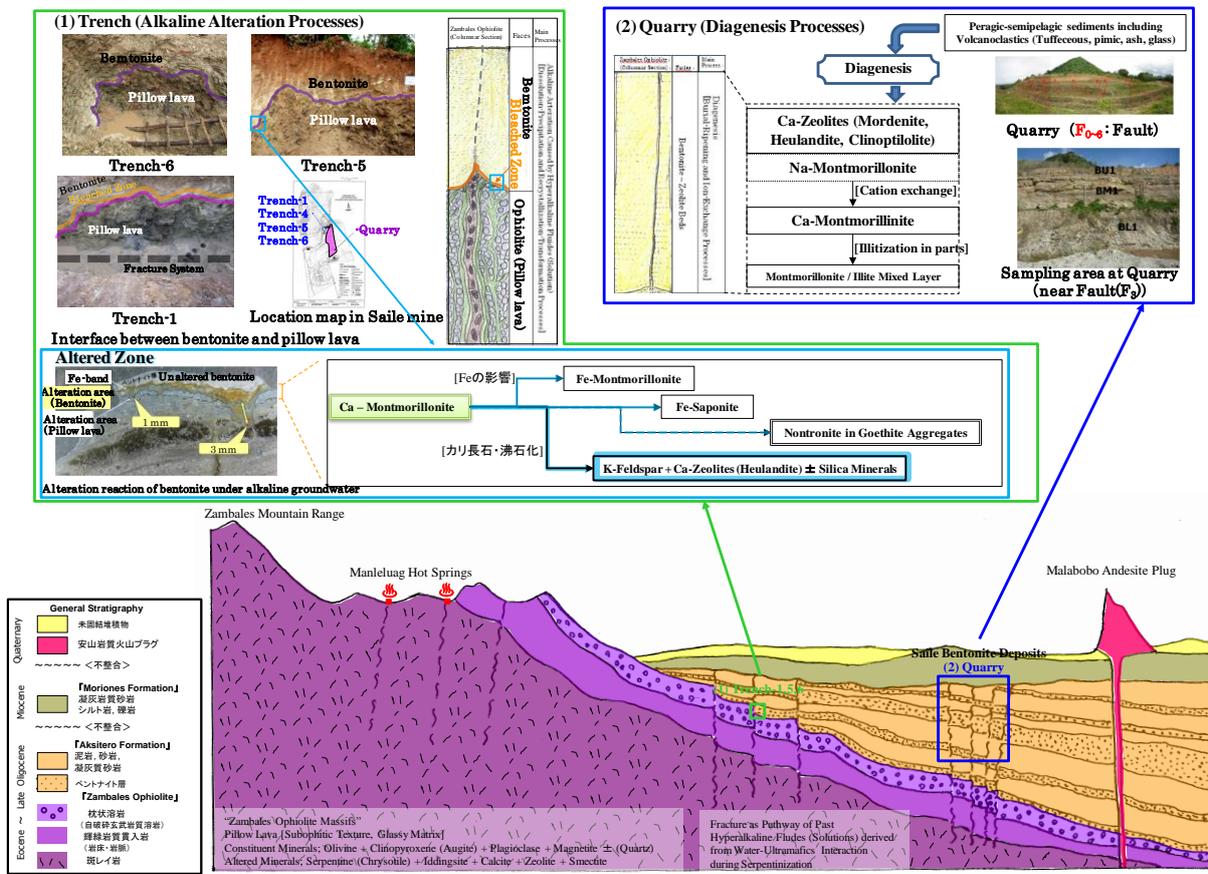


図 1.3.4-9 Saile 鉱山とその周辺地におけるベントナイトのアルカリ変質に係わる概念モデル

1.3.5 Active Type のナチュラルアナログサイトの探査

平成 24 年度までの調査により、前節 (1.3.4) でまとめたフィリピン国ルソン島北西部の Fossil Type のナチュラルアナログからベントナイトのアルカリ変質挙動の天然事例としてその過程を明らかにすることができた一方で、このサイトでのナチュラルアナログで対応可能な課題も明確になった。図 1.3.5-1 にそれをまとめる。

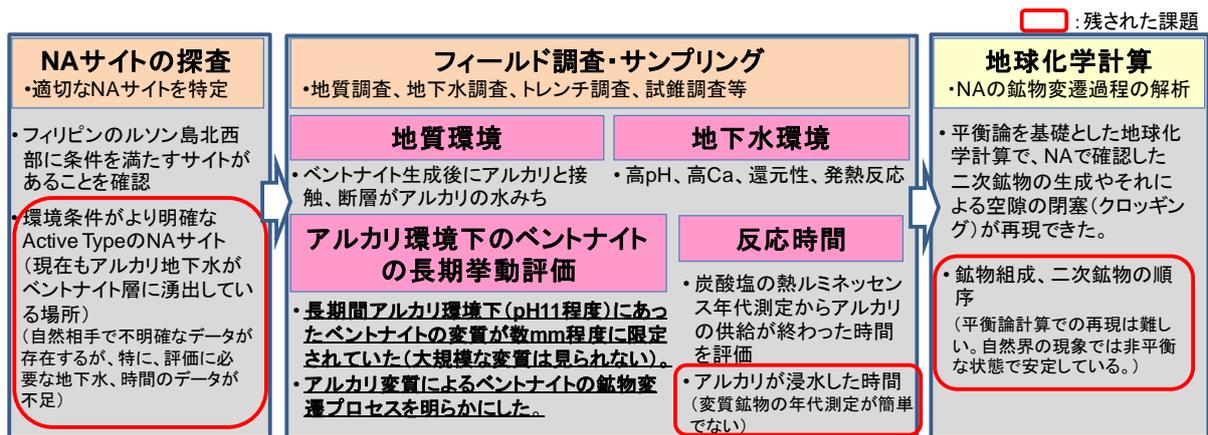


図 1.3.5-1 これまでの取り組みと抽出された課題

このフェーズ(平成25~29年度)で取り組むべき課題として、ナチュラルアナログデータを活用して、解析モデルの最適化を図り、人工バリアの長期挙動(ベントナイトのアルカリ変質)の予測結果の正しさをナチュラルアナログから補強することがあげられる。これは、実験・解析・ナチュラルアナログによる総合的な長期挙動評価による人工バリア長期挙動評価の信頼性向上と言い換えることができる。このようなナチュラルアナログの目標を達成のために、様々な条件のナチュラルアナログの証拠の取得し、年代測定や解析による、反応時間やアルカリ変質反応のメカニズムとその反応を抑制・促進する環境条件の評価することは不可欠であると考え。特にこれまで対象としてきた Fossil Type のサイトでは環境条件が明確でない(過去に浸出していた)アルカリ地下水の地球化学特性とその反応時間について、それらがより明確に理解できる場として、現在もおおアルカリ性地下水が浸出している Active Type のナチュラルアナログを見つけ出し、そこでの観察、試料採取と分析によりベントナイトの長期のアルカリ変質に関する直接的な根拠となるデータを取得することが重要な課題であると考え。このようなデータが得られれば、反応時間も含めたアルカリ変質現象の解釈に基づき、解析モデルの改良が可能であり、それによる処分場における人工バリア長期挙動評価の信頼性向上につなげることが可能となる。

このような背景から、予察調査も含め平成23年度より Active Type の露頭の発見可能性が期待される調査候補地として、Saile 鉱山の南南東 30km に位置する Bigbiga 地区におけるフィールド調査を実施してきた。Bigbiga 地区には、Zambales オフィオライトを整合的に累重する Aksitero 累層が Zambales オフィオライト複合岩体の東縁に細長い谷地形を埋める「Trough タイプ」の堆積構造で分布している。岩相・岩質については、Saile 鉱山が存在する北部の堆積物は凝灰岩質砂岩~粘土岩であるのに対して、Bigbiga 地区の南部では石灰岩質砂岩~泥岩~シルト岩と塊状な石灰岩が優勢であるが、薄層のベントナイト質砂岩やベントナイト質泥岩は、特徴的な伸長されたパミスが観察される。この地層が「鍵層」として層序・層位を考察する上で有効である。また、局所的であるが、火山性石質岩片を伴う砂質タービタイト(混濁流により深海に運ばれ堆積した陸源堆積物)や海底スランピング堆積物(未凝固ないし半凝固の堆積物が、斜面を一団となってすべり下った堆積物)が観察される。

Bigbiga 地区では、このような Aksitero 累層の分布域に pH9.3 のアルカリ地下水の自噴井が存在することが確認されていることから、Active Type のナチュラルアナログとなりうる第一の調査候補地としてこれまで調査を実施してきた。ここでは、Active Type のナチュラルアナログサイトの探査として実施してきた昨年度までの調査結果をまとめる。

調査地区の Fish Pond 北側には NNE-SSW 系の正断層で落差（DH2A 孔-DH2B 孔間）が約 3m 程度の断裂系が存在する。Bigbiga 地区でのアルカリ地下水の賦存については、断裂系近傍の Aksitero 川岸（pH8~9）、自噴井戸は Well-1（孔底深度：-19m, pH9.1~9.5）と、湧水井戸は Well-3（孔底深度：約-100m, pH8.3~9.3）および、割れ目の発達しているオフィオライト基盤岩（自破碎玄武岩質溶岩）中の湧水ため池（pH 8.7）が確認されている。また、アルカリ地下水に含有されるガス（メタン<CH₄>・水素<H₂>ガス）検出調査から、断裂系付近と Well-1 付近に主にメタンガスの濃集箇所（計測ポイント）が確認され、堆積層の薄い Aksitero 川西岸では水素<H₂>ガスも一部検出されており、Poonbato 地区や Manleluag 温泉保養地区等 Zambales オフィオライトのアルカリ湧水と同様に蛇紋岩作用に伴い形成されたアルカリ地下水がこの地区に分布していることが示唆される。

裂か地下水（断裂系に存在する地下水）としての高アルカリ地下水の賦存状況と流路となる流動系の分布特性をみることを目的として実施した TEM 法（過渡現象電磁探査法）による地上物理探査により（図 1.3.5-2 の LP1~5 が測定した領域）、Bigbiga 候補地区内でアルカリ地下水を湧水している井戸近傍の Aksitero 累層（堆積岩）中の浅層部と深層部であるオフィオライト岩盤岩中に電気伝導度のアノマリーが解析・検出された（図 1.3.5-3）。

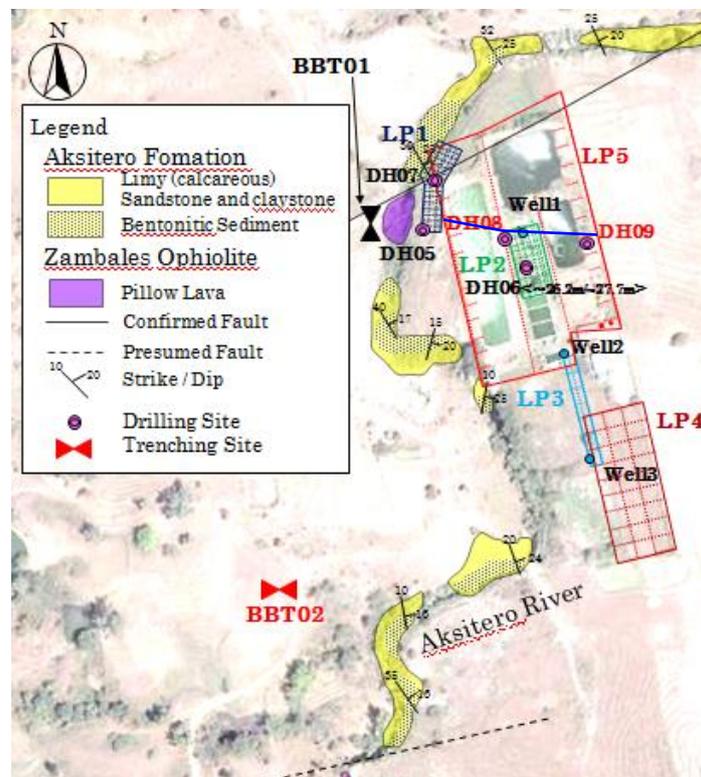


図 1.3.5-2 Bigbiga 地区の Compilation MAP

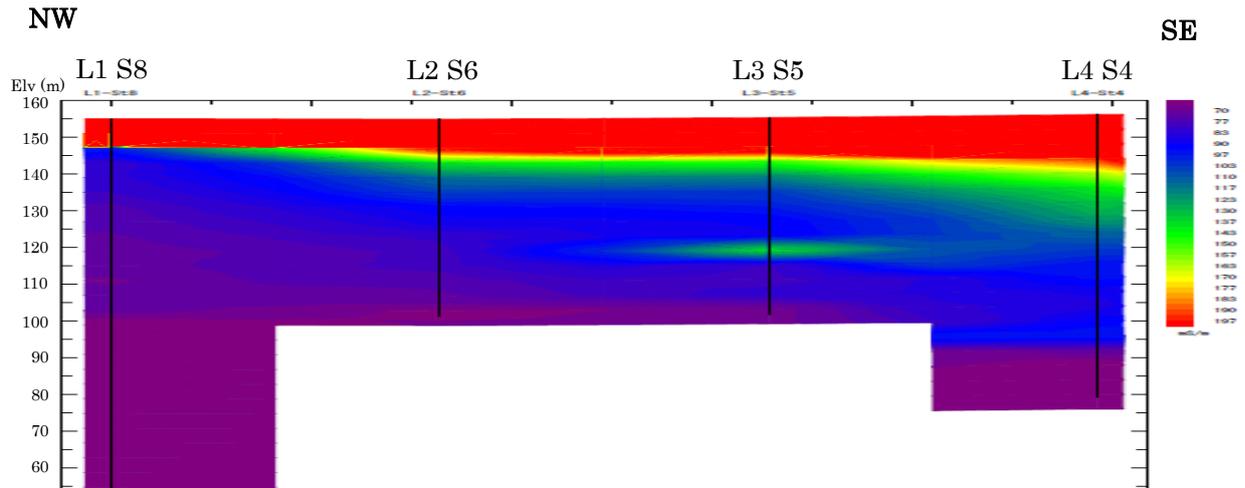


図 1.3.5-3 LP5 グリッド L1S8～L4S4 (図 1.3.5-2 の青線の断面) の電気伝導率 (2D)

トレンチ調査 (図 1.3.5-2 の BBT01, BBT02 (図 1.3.5-4～図 1.3.5-5)) では、Bigbiga 地区に分布する Aksitero 累層の優勢な堆積岩である石灰岩質泥岩～砂岩の一部に薄層 (4～5cm 程度) のベントナイト質の凝灰岩質砂岩が層理面に平行に挟在すること、また、Bigbiga 地区に特徴的な分布をする珪質泥岩が塊状に産状することが確認できた。トレンチの試料はいずれもケイ酸塩鉱物を主成分とし、壁面から採取したベントナイト質凝灰岩質砂岩の薄層を挟在する石灰岩質泥岩～砂岩の化学組成全般については、 SiO_2 と Al_2O_3 成分の間には僅かであるが反比例的な変化が認められる (図 1.3.5-6)。これはモンモリロナイトのモード組成を反映しているものと考えられる。



図 1.3.5-4 トレンチ(BBT02)の全容 (左) とコアリング作業 (右)



図 1.3.5-5 トレンチ(BBT02)の大口径岩石試料 (コア試料)

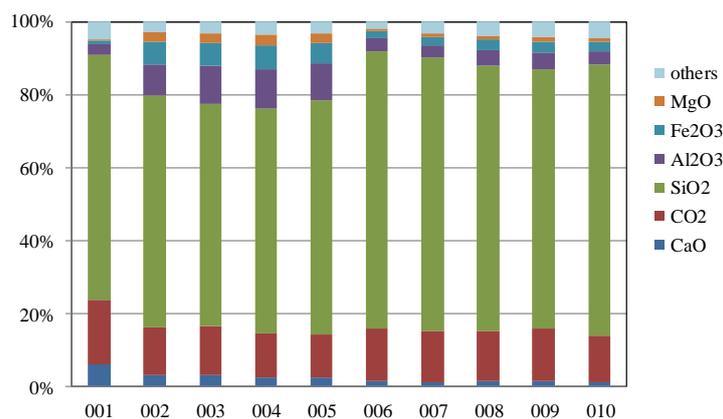


図 1.3.5-6 トレンチ試料の主要元素比率

試錐調査は、NNE-SSW 系断裂系の近傍等で平成 24 年度に実施した 3 か所 (DH05 孔～DH07 孔) に加え、上記の地上物理探査、地下水の地球化学的調査 (計測)、トレンチ調査の一連の調査データ・知見などの総合解析により、①Well-1 の近傍 (DH08 孔) と②アノマリーの東限 (測定グリット内の東端ループ計測点) の地点 (DH09 孔) を試錐地点として、試錐孔の掘削、コア採取とコア観察及び分析、揚水試験・採水と分析を実施した。DH08 孔の掘削においては、掘削深度が 15m を超えるあたりからアルカリ地下水の自噴が観測され (同時に近傍の Well-1 が DH08 孔の掘削水の影響で白濁した (図 1.3.5-7))、オフィオライト基盤岩中の断裂系を流路として上昇しているアルカリ地下水 (掘削水の混入した試錐孔内での pH 計測値: 22m 深度-pH9.16 / 39m 深度-pH8.91) がベントナイト質砂岩または泥岩 (Aksitero 累層) と自破碎玄武岩質溶岩または細粒はんれい岩 (オフィオライトの上部を構成する火成岩) に浸出していることを確認した。一方、DH05 孔～DH07 孔及び DH09 孔ではアルカリ地下水は確認できなかった。



図 1.3.5-7 DH08 孔の掘削状況 (左) と Well-1 (近傍の自噴井) の白濁 (右)

試錐コアの観察 (図 1.3.5-8 参照) 及び鉱物・化学分析から、高アルカリ地下水を自噴している井戸 (Well-1) の近傍に位置している試錐孔 (DH06, DH07, DH08) では、Zambales オフィオライト基盤岩の直上の石灰質細粒砂岩・石灰岩質粘土岩中に顕著な「鏡肌 (Slickenside)」と断層粘土 (Gouge) を随伴する断層帯が観察された。Aksitero 累層を構成する堆積岩は典型的な遠洋性堆積物で、主に遠洋性浮遊性生物の遺骸から形成された石灰質砂岩～泥岩と石灰岩および、

島弧火山活動により供給された火山砕屑性堆積物から構成され、しばしば凝灰岩質堆積物を挟在し（図 1.3.5-8 の緑枠のコア）、ベントナイトの初原物質（出発物質）になっている（図 1.3.5-9 の XRD パターンでスメクタイトの明確なピークを示す）。このような地質環境下のもと、下部層に斜長石や単斜輝石（普通輝石）および、輝沸石と斜プチロ沸石が集中する傾向がみられる。全体としては、石英、沸石（モルデン沸石）、方解石、2・八面体スメクタイト、不透明鉱物では鉄鉱物として磁鉄鉱、鉄水酸化物、マンガン鉱物としてデントライト、水マンガン鉱、硫化鉱物として極少量の黄鉄鉱、そして火山ガラスが同定されている。これらの鉱物の中で、二次鉱物は、沸石類、Fe-スメクタイト（ノントロナイト質スメクタイト）、Mn-rich 方解石と生物起源の方解石および、燐灰石である。一方、基盤岩であるオフィオライトは、上位から自破碎玄武岩質溶岩—少量の枕状玄武岩—細粒はんれい岩と、これらの塩基性火成岩へ貫入した細粒輝緑岩の岩脈が観察され、自破碎玄武岩質溶岩には、多数の割れ目・断裂系が発達している。しかし、一般的に変質作用によりそれらの塩基性岩のそれぞれの境界が不明瞭な場合が多く、特に深度 25m から 34m 間に変質程度が顕著である。それは恐らく、アルカリ地下水との変質反応が進展したものと示唆される。アルカリ地下水の地球化学的特性については、Bigbiga 地区のアルカリ地下水が他の Zambales オフィオライト地域のアルカリ地下水に比べて、pH が低い、ORP が高い、低 Ca 濃度、高 Mg 濃度という特性は、地下水-岩石（超塩基性岩、玄武岩）との反応の程度が小さく、滞留時間が短いためと考えられる。また、Fe、Mn、微量元素（重金属、REE、Ba、Sr、Cs）濃度が高いのは、Fe、Mn 水酸化物と炭酸塩粒子の存在が示唆される。

水理地質構造学的挙動については、自噴する既存井戸水（Well-1）の流量は、降雨量の季節変化の顕著な影響を受けないことから、このアルカリ地下水は、一般的な涵養・蒸発・浸透過程から考えると、ベントナイトを不透水層として被圧地下水（帯水層）として独立した流動場のもと賦存しているものと考えられる。また、DH08 孔のアルカリ地下水は、その自噴深度（22.7m）がオフィオライト基盤岩中に賦存し、この基盤岩中の断裂系を流路として上昇した裂か水であること、また、アルカリ裂か水が、深度約 22m 付近で滞留（貯留）・流動する独立系の水理場と流動系を形成したと思われる要因として、岩脈の貫入の役割が考えられる。それは、元来流動場であった変質自破碎または枕状玄武岩への後期火成岩（細粒輝緑岩または、細粒はんれい岩）の貫入活動（火成活動）により、空間の場の提供を図り、その結果明瞭な水路を形成し、その水路を流動系としたと考えられる。そして、この岩脈は、緻密な岩相・岩質のために「Cap Rock」の役目で不透水層（バリア）として機能したものと考えられる。

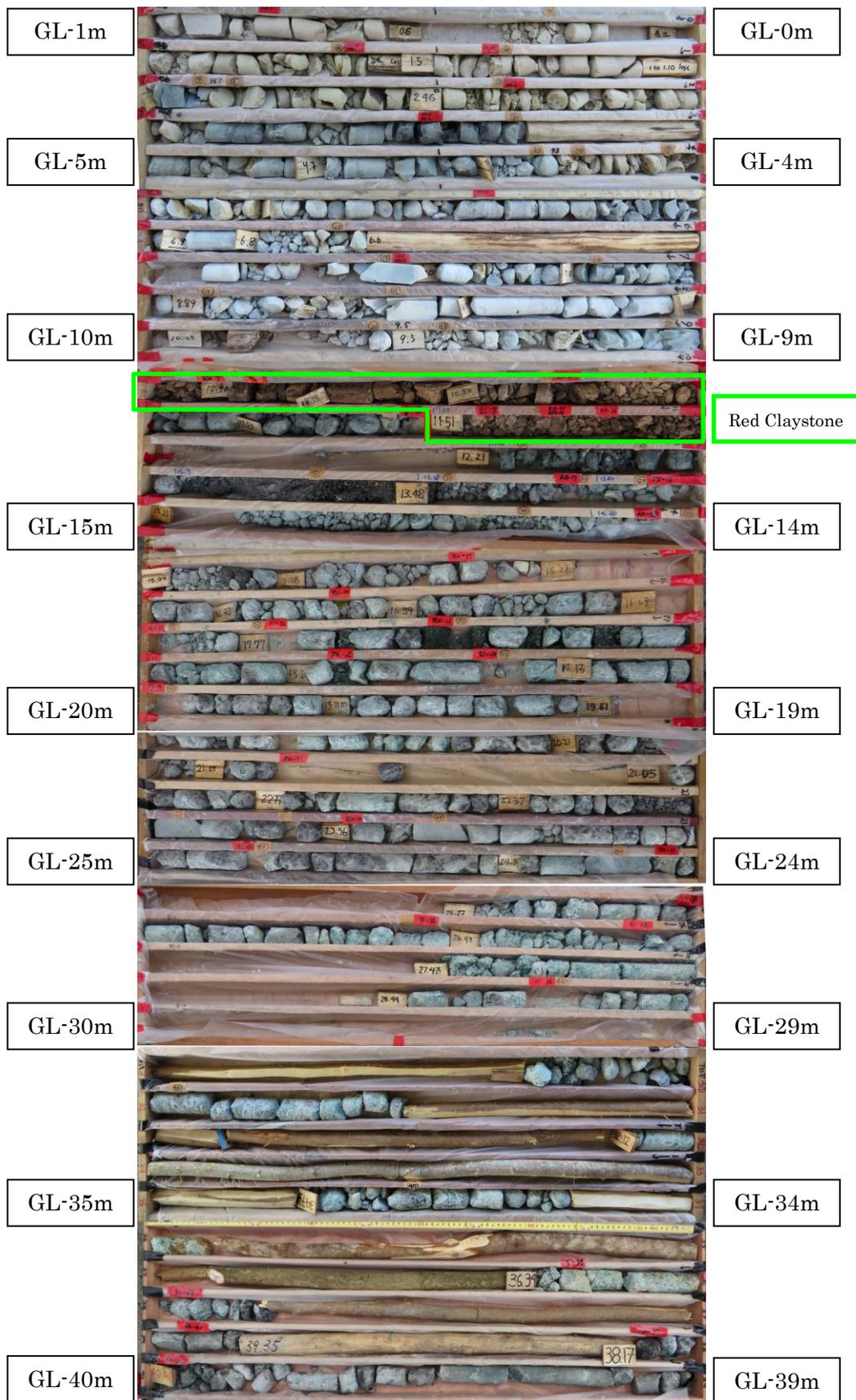
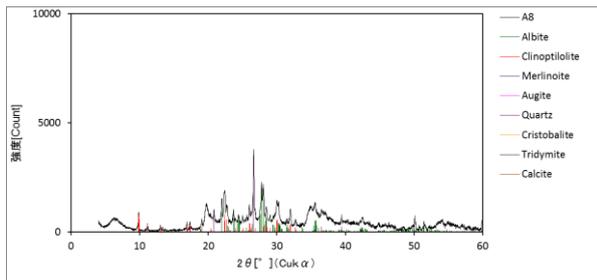
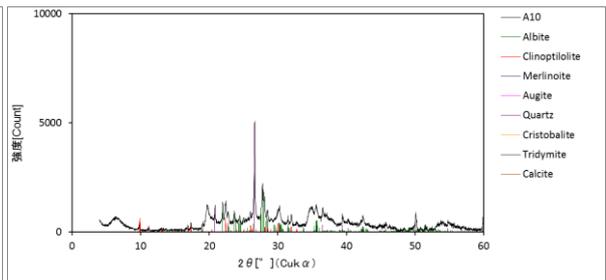


図 1.3.5-8 DH08 孔試錐コア



BBDH08-13-Rh-008



BBDH08-13-Rh-010

図 1.3.5-9 基盤岩直上 (図 1.3.5-8 の緑枠部) の粘土岩 (Red Claystone) の XRD パターン

1.4 実施概要

平成 24 年度までの[20]、過去にアルカリ性地下水との接触が確認できたベントナイト鉱床（フィリピン国北西部の Saile 鉱山とその周辺地区：Fossil Type のナチュラルアナログ）におけるナチュラルアナログ調査から、ベントナイトの変質が数 mm 程度に限定されていることが確認されるとともに、その長期のアルカリ変質による鉱物変遷シナリオを明らかにし、長期間アルカリ地下水環境下にあってもベントナイトの長期健全性が保たれる可能性を示した。また、現在もアルカリ地下水がベントナイトと接触している（Active Type のナチュラルアナログ）可能性が高いサイトの存在も確認され、フィリピン国のフィールドが、TRU 廃棄物の地層処分におけるアルカリ緩衝材反応による緩衝材の長期変遷の評価において多くの有益なデータを取得することが可能なナチュラルアナログサイトであることがわかった。

平成 25 年度から 5 年間の予定で実施する本調査では、上記の成果を踏まえ、Active Type のナチュラルアナログサイトを中心に、アルカリ地下水の影響範囲やベントナイトのアルカリ変質に関わる鉱物・地球化学・地下水等のデータを取得し、それらフィールドデータの解釈に基づき、ベントナイトアルカリ変質プロセスの現象理解を深める。特に、Active Type のナチュラルアナログでは過渡的な変質過程を観察し、これを時間枠が短い室内実験事例と比較することで、過渡的な段階から長期経過後までの状態変遷を明らかにする。また、地球化学計算や年代測定を適用し、反応時間や閉塞（Clogging）現象の評価を行い、アルカリ環境下の鉱物変遷過程とその素反応を抑制・促進環境条件や物理化学的なメカニズムの評価を行う。

ナチュラルアナログ調査で得られた成果は、実際の処分環境とのアナログ性を明確にし、実験や計算モデルに基づく既存研究や本事業で実施する「人工バリア材料長期挙動評価・人工バリア評価の初期条件の設定」でのアルカリ環境下のベントナイトの長期挙動評価との比較・考察（長期評価モデルの検証・最適化等）をおこない、長期評価モデルの信頼性向上を図る。

1.4.1 全体計画

これまでのナチュラルアナログ調査を踏まえ、ナチュラルアナログとしてその調査をどのように進めるべきかという観点で、表 1.4.1-1 に高アルカリ地下水の影響によるベントナイトの長期健全性に関するナチュラルアナログ調査・研究の進め方を示す。

第 1 段階として、アナログの要件を満たす地域、すなわち高アルカリ地下水を生成するオフサイトとベントナイト層が近接する地域の文献調査を行う。

第 2 段階として、この過程で抽出された複数の候補地から、アナログの成立性を最優先とし、さらにロジスティックの有利性なども考慮して、調査対象地域を選定する。そして、対象地域の地質概査の実施計画案を作成する。この際、対象地域において予察調査を行い、実施計画案に反映させることで最適化を行う。

第 3 段階からが現地での本格的な調査・研究を開始するステージとなる。地質概査として、地質調査、地下水調査、及び本事業では高アルカリ地下水の湧出が断裂系に規制されることから断裂系調査を行い、高アルカリ地下水とベントナイト層が接触するアナログサイトを選定する。ま

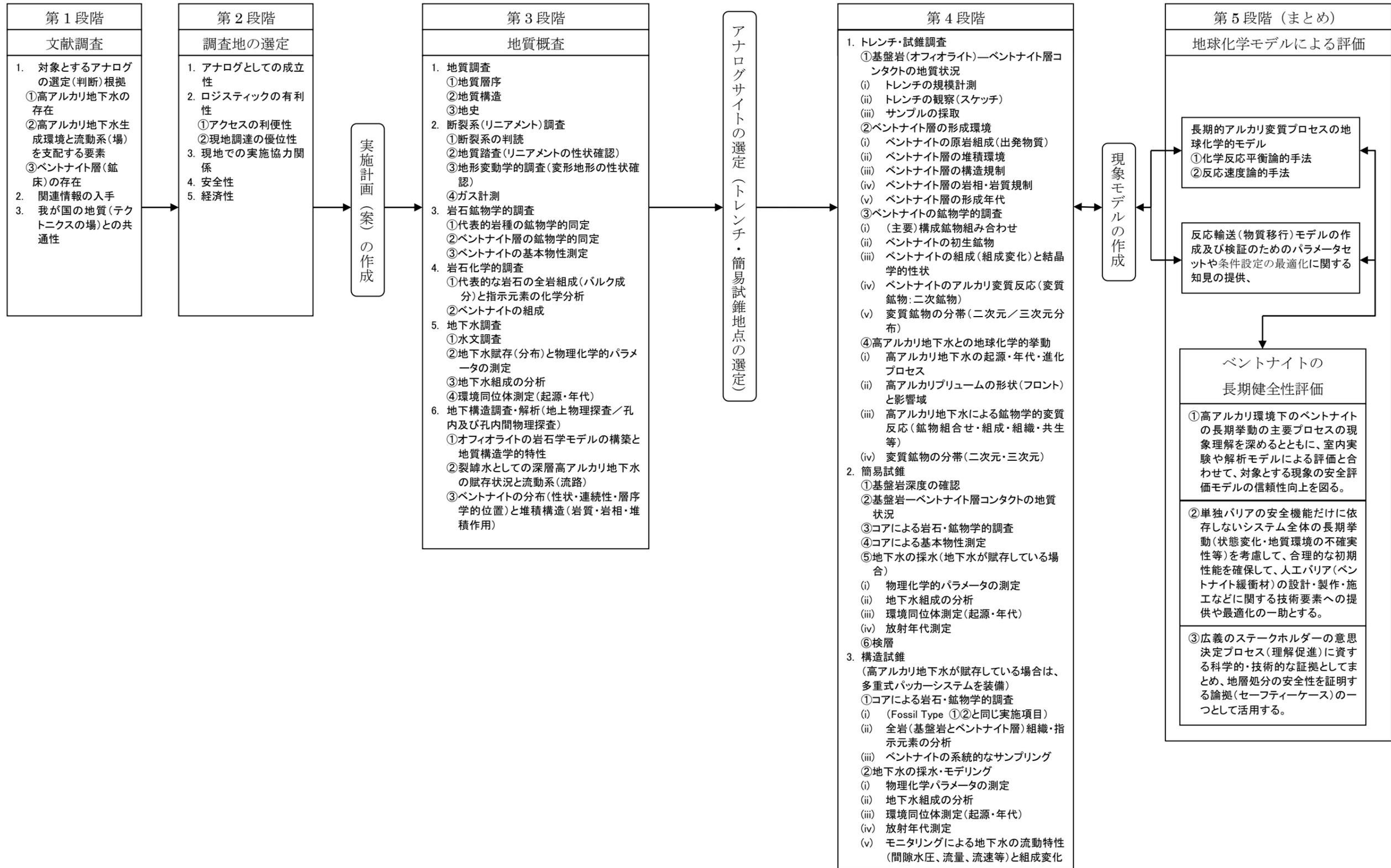
た、岩石鉱物学的調査、岩石化学的調査を実施して、ベントナイト層や高アルカリ地下水の基本特性、環境条件に係わる基礎データを取得する。

第4段階では、第3段階で選定されたアナログサイトでのトレンチ及び試錐を実施して、ベントナイトー高アルカリ地下水の相互作用及びその生成、環境条件に関する詳細な調査を実施する。本調査では、主に **Active Type** のサイトを対象とするため、接触している試料を採取や採水が非常に重要な作業となる。そして、現地での計測や試料分析から、地下水組成やその起源と進化及び流動系などアルカリ地下水に係わる地球化学的挙動とベントナイト層の形成環境とアルカリ変質に係わる鉱物学的調査を実施する。これらの現地での調査結果を踏まえ、現象モデルの作成を行う。

最後の第5段階では、作成した現象モデルに基づいて性能評価で用いる地球化学モデルによる解析を行い、ベントナイトの長期的アルカリ変質プロセスの現象理解とその性能評価に関する数値モデルの検証（パラメータや条件設定の最適化）を行う。さらに、その変質現象のベントナイトの長期健全性への影響を評価し、セーフティケースの作成に必要な科学的論拠として取りまとめる。

本事業は、上記のナチュラルアナログ調査の進め方の観点では、第4段階のアルカリーベントナイトのコンタクトを特定するための調査から進めることになる。そこで、現在もアルカリ地下水がベントナイトに浸出している（コンタクト）**Active Type** のナチュラルアナログの候補サイトとして、これまでの調査でそのコンタクトのポテンシャルが高いと判断された **Bigbiga** 地区をおもな調査対象として、ナチュラルアナログ調査を展開する。一方、地球化学計算の検討は **Saile** 鉱山の枕状溶岩と接触しアルカリ変質が確認されたサイトを対象として検討する。図 1.4.1-1 に今年度からおよそ5カ年の全体計画を示す。

表 1.4.1-1 高アルカリ地下水の影響によるベントナイトの長期健全性に関するナチュラルアナログ調査・研究の進め方



事業項目	～平成24年度	平成25年度	平成26年度	平成27年度	平成28年度	平成29年度	平成30年度以降
1. 実施計画策定	(平成24年度までの放射性廃棄物重要基礎技術研究調査、及び人工バリア長期性能評価技術開発) 成果を反映	全体計画の策定 年度の実施計画及びフィールド調査計画策定	年度の実施計画及びフィールド調査計画策定	年度の実施計画及びフィールド調査計画策定	年度の実施計画及びフィールド調査計画策定	年度の実施計画及びフィールド調査計画策定	Safety Caseとしての説明性の向上
2. Activeな(現在も高アルカリ地下水が断裂系に浸出しベントナイト層と接触) NAサイト(アルカリ地下水と接触している地点)の探査	予察調査(地質調査、カス検出調査、トレンチ調査、試験調査)	Bigbiga(Fish pond)地区 地質調査 物理調査 試験調査(鉱物分析)	Pinatubo地区 Palawan島地区 概査(鉱物分析)	地質調査(Palawan島南部地区等) トレンチ調査(鉱物分析)	(Palawan等南部地区、Pinatubo地区) 地質調査 トレンチ調査(鉱物分析)	トレンチ調査(鉱物分析)	アルカリ反応に寄与する現象、環境条件の把握とそれを考慮したアルカリ変質の評価(例えば、酸化還元フロント、微生物活動等) NAIによる長期評価モデルの高度化・単純化
3. 高アルカリ地下水の地球化学的特性と地質環境条件	予察調査(湧水、河川水、井戸水等の物理化学パラメータの計測、地下水組成の分析)	アルカリ地下水賦存の評価 孔内水の採水 物理化学パラメータの計測	アルカリ地下水賦存の評価 孔内水の採水 物理化学パラメータの計測 地下水組成の分析・評価	湧水等の採水 物理化学パラメータの計測 地下水組成の分析・評価 同位体分析	湧水等の採水 物理化学パラメータの計測・モニタリング 地下水組成の分析・評価 同位体分析 アルカリ地下水進化の評価	湧水等の採水 物理化学パラメータの計測・モニタリング 地下水組成の分析・評価 アルカリ地下水進化の評価	
4. ベントナイトの分布と鉱物学的特性と物理特性	予察調査(露頭・トレンチ・試験コアの鉱物分析)	サンプリング(露頭・試験孔・トレンチ) バルク分析(XRD)	サンプリング(試験孔) バルク分析(XRD, XRF) 詳細鉱物分析(EPMA, FE-SEM等)	サンプリング(トレンチ) バルク分析(XRD, XRF) 詳細鉱物分析(μ-XRD, EPMA, FE-SEM等)	サンプリング(トレンチ) バルク分析(XRD, XRF) 詳細鉱物分析(μ-XRD, EPMA, FE-SEM等)	サンプリング(トレンチ) バルク分析(XRD, XRF) 基本物性試験	
5. アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセス 詳細鉱物分析 地球化学計算 年代測定	Fossil TypeのNAIによる(Saile山とその周辺地における)長期変質プロセスの評価	Saile山の事例を活用した地球化学モデルの適用性の検討 Bigbigaの岩石材料への年代測定適用性評価(方解石のTL年代)	Bigbiga地区の低アルカリ環境下の変質プロセス 詳細鉱物分析(μ-XRD, EPMA, FE-SEM等)	トレンチ調査 詳細鉱物分析(μ-XRD, EPMA, FE-SEM等)	トレンチ調査 詳細鉱物分析(μ-XRD, EPMA, FE-SEM等)	トレンチ調査 詳細鉱物分析(μ-XRD, EPMA, FE-SEM等)	一般への人工バリアの長期安全性説明のためのNAIの活用
総合評価(目標)		Active Typeの露頭の存在可能性(調査地点の絞り込み)	Bigbigaのサイト評価 △: 中間評価	Active Typeの露頭の確認(調査地点の選定)	成果の取りまとめと人工バリアの長期健全性評価への成果・知見の反映	△: 最終評価	

※: 茶線はFossil Typeのサイトを対象とした調査

図 1.4.1-1 本事業の全体計画 (ナチュラルアナログ調査・研究概略工程)

1.4.2 平成 26 年度実施概要

本調査の目的と前項で示した全体計画に基づき、平成 26 年度は以下の調査を実施した。

(1) 実施計画策定

平成 25 年度までの調査結果を踏まえ、平成 26 年度ナチュラルアナログ調査の年度計画及びフィリピン国を対象としたフィールド調査の詳細計画を作成した。

(2) ナチュラルアナログサイトの探査

現在もなおアルカリ性地下水がオフィオライト基盤岩の断裂系に湧出しベントナイト層やスメクタイトを含む地層と接触している可能性が高い地域 (Active Type のナチュラルアナログサイト) として、これまで継続して調査実施してきた Zambales オフィオライトの西端の Bigbiga 地区及び新規の調査サイトである Zambales オフィオライト東南端 (Pinatubo 火山泥流帯)、及び Palawan オフィオライト (Palawan 島中・南部) があげられ、これらの候補サイトにおいてフィールド調査を実施した。

1) Bigbiga 地区 (ルソン島北西部) の探査

Bigbiga 地区においては、平成 25 年度までの調査結果及び地質調査に基づき、Well-1(DH08 孔)以外でアルカリ地下水が確認されている井戸 (Well-3) 近傍で試験孔の掘削を実施してボーリングコアの採取、孔内地下水の採水を行った。

高アルカリ地下水とベントナイト層の接触地点を確認するために、採取したコア試料の観

察・鉍物分析を行い、アルカリ地下水とベントナイト層の接触の可能性を確認するとともに、調査サイトの地質構造とベントナイトの空間分布を調べた。また、試錐孔での揚水試験及び地下水の物理化学パラメータの計測を行い、アルカリ地下水が湧出した場合は溶存イオン濃度等の地球化学的特性の分析を行った。取得した地下水データと地質構造を解析し、アルカリ地下水の賦存を評価した。

これらの検討で得られたアルカリ地下水の賦存、ベントナイトの分布等から、**Bigbiga** が **Active Type** のナチュラルアナログサイトとして成立するかを評価し、次年度以降の全体計画に反映した。

2) 新規のサイト (Pinatubo 及び Palawan) の概査

より pH が高いアルカリ地下水 (pH10~11) が存在する新規のサイトとして、**Pinatubo** (**Zambales** オフィオライト東南端) 地区及び **Palawan** 島中・南部 (**Palawan** オフィオライト) 地区を対象として概査を実施した。

まず文献情報や事前調査結果を踏まえ、オフィオライト近接する堆積層を中心に露頭試料のサンプリングを実施し、調査サイトの地質構造とベントナイトの空間分布を調べるとともに、高アルカリ地下水とベントナイト層の接触地点の探査に向けた基礎情報を収集した。

これらの基礎情報を踏まえ、フィールド調査において高アルカリ地下水の湧水ポイントを確認し、採水、地下水の物理化学パラメータの計測を行った。また、地質環境及び地下水生成のメカニズムを把握するために岩石試料を採取した。得られた水試料の溶存イオン濃度、安定同位体比等の分析及び岩石試料の鉍物・化学分析等を行い、**Active Type** のナチュラルアナログサイトとしての可能性を評価した。

(3) アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセス

アルカリ (pH9.3) の地下水とスメクタイトを含む堆積層 (粘土岩) との相互作用を確認した **Bigbiga** の試料について、詳細な鉍物分析、化学分析等を実施し、**Fossil Type** のサイトである **Saile** 鉍山等既存のアルカリ事例との比較を踏まえベントナイトのアルカリ変質過程の現象理解をすすめた。

(4) 年代測定による反応時間の評価

ベントナイトーアルカリ地下水の反応時間の指標となる年代評価について、アルカリ地下水の痕跡となる炭酸塩鉍物の生成年代の評価のために、**Bigbiga** で採取した試料を対象に鉍物組成や化学組成の熱ルミネッセンス (TL) 特性への影響を調べ、TL 年代測定法の精度向上に関する検討を行った。

(5) 地球化学シミュレーションモデルによる変質解析

Saile 鉍山のナチュラルアナログ事例を用いて、ベントナイトー基盤岩接触部の変質過程について、地球化学計算を実施して、拡散律速下での溶液との反応における溶解・沈殿速度論パラメータの適用性を検討し、天然環境における地球化学計算の信頼性向上を図った。

本年度の実施工程を図 1.4.2-1 に示す。現地調査は8月上旬に実施した。

実施項目	平成26年(2014)										平成27年(2015)		
	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	
①実施計画策定	H26年度実施計画策定		フィールド調査詳細計画										
②ナチュラルアナログサイトの探査	準備・関連情報の収集 文献調査/事前調査		地質・地下水調査(Zambales(Pinatubo), Palawan)										
②.1 地質調査			簡易試験調査(Bigbiga(Fishpond地区))										
②.2 ボーリング・コア観察・サンプリング			Bigbigaのサイト評価										
②.3 鉱物分析/地質構造評価			バルク鉱物分析・化学分析(XRD, XRF) 薄片観察, 詳細分析(FE-SEM, EPMA)										
②.4 高アルカリ地下水の地球化学的特性と地質環境条件			ベントナイトの空間分布と地質構造の評価										
③アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセス			採水・物理化学パラメータの計測										
④地球化学計算	Saile		地下水域の評価										
⑤年代測定			バルク鉱物分析・化学分析(XRD, XRF) 薄片観察, 詳細分析(FE-SEM, EPMA)										
⑥委員会			Bigbigaのアルカリ変質の評価										
⑦報告書作成			Saile 鉱山のベントナイト界面のアルカリ変質プロセスにおける二次鉱物の生成に関する地球化学計算										
			TL用試料のサンプリング										
			方解石TL特性の評価とTL年代測定										
			△ 第1回委員会 (実施計画の評価)										
			△ 第2回委員会 (調査結果の中間評価)										
			△ 第3回, 第4回委員会 (最終評価)										
			報告書ドラフト作成										
			修正										

図 1.4.2-1 平成 26 年度の実施工程

[参考文献]

- [1] Akagawa, F., Yoshida, H., Yogo, S. and Yamamoto, K.: Redox front formation in fractured crystalline rock: an analogue of matrix diffusion in an oxidizing front along water-conducting fractures. *Geochimistry: Exploration, Environment, Analysis* 6, 1-8 (2006).
- [2] 笹尾英嗣, 岩月輝希, 天野由記: 東濃ウラン鉱床でのナチュラルアナログ研究からみた古水理地質研究の役割. *資源地質* 56(2), 125-132 (2006).
- [3] 吉田英一, 大嶋章浩, 吉村久美子, 永友晃夫, 西本昌司: 断層周辺に発達する割れ目形態とその特徴—阿寺断層における‘ダメージゾーン’解析の試み—. *応用地質* 50(1), 16-18 (2009).
- [4] Sato, T., Akita, N. and Arai, S.: Geochemical modeling of hyperalkaline spring water and precipitates at the Oman ophiolite. *Geochim. Cosmochim. Acta* 66, S1, A669 (2002).
- [5] 福士圭介: 鉄—ベントナイト相互作用のナチュラルアナログ研究. (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター編, 平成 21 年度放射性廃棄物共通技術調査等 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 報告書 (第 2 分冊) (2009).
- [6] Fukushi, K., Sugiura, T., Morishita, T., Takahashi, Y., Hasebe, N. and Ito, H.: Iron-bentonite interaction in the Kawasaki bentonite deposit, Zao area, Japan. *Appl. Geochem.* 25(8), 1120-1132 (2010).
- [7] 公益財団法人原子力環境整備促進・資金管理センター: 放射性廃棄物ハンドブック. (2012).
- [8] NAGRA: Kristallin-I, Safety Assessment Report. Nagra Technical Report NTB 93-22, NAGRA, Wettingen, Switzerland (1994).
- [9] 核燃料サイクル開発機構: わが国における高レベル放射性廃棄物地層処分の技術的信頼性—地層処分研究開発第 2 次取りまとめ—. JNC TN1400 99-023, 1999 年 11 月 (1999).
- [10] Metcalfe, R and Walker, C. (eds): Proceedings of the international workshop on bentonite-cement interaction in repository environments. Nuclear Waste Management Organisation of Japan (NUMO) report, NUMO-TR-04-05 (2004).
- [11] NUMO: 高レベル放射性廃棄物地層処分の技術と安全性—「処分場の概要」の説明資料—. NUMO-TR-04-01 (2004).
- [12] 電気事業連合会, 核燃料サイクル開発機構: TRU 廃棄物処分技術検討書—第 2 次 TRU 廃棄物処分研究開発取りまとめ—. JNC TY1400 2005-013, FEPC TRU-TR2-2005-02, 2005 年 9 月 (2005).
- [13] (財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 14 年度地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術 人工バリア長期性能確認試験 報告書 (2003).
- [14] 久保博, 黒木泰貴, 三原守弘: ベントナイト系緩衝材のコンクリート間隙水による長期変質の基礎研究, *地盤工学会誌* 46(10), 31 (1998).
- [15] Johnston, R.M. and Miller, H.G.: The effect of pH on the stability of smectite. AECL-8366 (1984)
- [16] 共同作業チーム: TRU 廃棄物処分概念検討書. 電気事業連合会, JNC TY1400 2001-001, TRU TR-2000-01 (2000).
- [17] (財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 18 年度地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術 人工バリア長期性能確認試験 報告書 (2007).
- [18] (財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 20 年度地層処分技術調査等委託費 TRU 廃棄物処分技術 人工バリア長期性能評価技術開発 報告書 (第 1 分冊) (2009).
- [19] Savage, D., Benbow, S., Watson, C., Takase, H., Ono, K., Oda, C. and Honda, A.: Natural systems evidence for the alteration of clay under alkaline conditions: An example from Searles Lake, California. *Appl. Clay Sci.* 47(1-2), 72-81 (2011).
- [20] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 24 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 多重バリアの長期安定性に関する基礎情報の収集及び整備 平成 19 年度～平成 24 年度の取りまとめ報告書 (2013).
- [21] Alexander, W.R. and Milodowski, A.E.: Cyprus Natural Analogue Project (CNAP) Phase II Final Report. POSIVA Working Report 2011-08, Posiva, Olkiluoto, Finland (2011).
- [22] Barnes, I. and O'NEIL, J.R.: The Relationship between Fluids in Some Fresh Alpine-Type Ultramafics and Possible Modern Serpentinization, Western United States. *Geol. Soc. of*

-
- America Bull. 80(10), 1947-1960 (1969).
- [23] Frost, B.R. and Beard, J.S.: On Silica Activity and Serpentinization. *J. Petrology* 48(7), 1351-1368 (2007).
- [24] Marques, J.M., Carreira, P.M., Carvalho, M.R., Matias, M.J., Goff, F.E., Basto, M.J., Graça, R.C., Aires-Barros, L. and Rocha, L.: Origins of high pH mineral waters from ultramafic rocks, Central Portugal. *Appl. Geochem.* 23, 3278-3289 (2008).
- [25] (財)原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 19 年度放射性廃棄物共通技術調査等 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 報告書 (第 4 分冊) (2008).
- [26] Amato, F.L.: Stratigraphic paleontology in the Philippine. *Philipp. Geol.*, 20, 121-140 (1965).
- [27] Garrison, R.E., Espiritu, E., Horan, L.J. and Mack, L.E.: Petrology, sedimentology and diagenesis of hemipelagic limestone and tuffaceous turbidites in the Aksitero formation, central Luzon, Philippines. *Geol. Surv. Prof. Paper*: 1112 (1979).
- [28] Ingle, J.C. Jr.: Summary of Late Paleogene-Neogene insular stratigraphy, paleobathymetry, and correlations, Philippines Sea and Sea of Japan region. Initial report of the deep sea drilling project. Wahington, U.S. Govt. printing office, 31, 837-855 (1975).
- [29] Roque, V.P. Jr., Reyes, R.P. and Gonzales, B.A.: Report on the comparative stratigraphy of the east and west sides of the mid-Luzon Central Valley, Philippines. *Mineral Engin. Mag.*, Philippines, September, 11-51 (1972).
- [30] Schweller, W.J. and Karig, D.E.: Constrains on the origin and emplacement of the Zambales ophiolite, Luzon, Philippines. *Geol. Soc. Amer.*, Abstracts with programs, 11, 152-152 (1979).
- [31] Abaya, J.G.: Determination of Recharge from Stable Isotope Datato the Hydrological Systems in the Southern Negros Geothermal Field and its Environs, Philippines. *Proceedings World Geothermal Congress 2005, Antalya, Turkey*, 24-29 (2005).
- [32] Encarnación, J., Mukasa, S.B. and Obille, E.J.: Zircon U-Pb Geochronology of the Zambales and Angat Ophiolites, Luzon, Philippines: Evidence for an Eocene Arc-Back Arc Pair. *J. Geophys. Res.* 98(B11), 19991-20004 (1993).
- [33] Schweller, W.J., Roth, P. H., Karig, D. E. and Bachman, S. B.: Sedimentation history and biostratigraphy of ophiolite-related Tertiary sediments, Luzon, Philippines. *Geological Society of America Bulletin* 95, 1333-1342 (1984).

第2章 ナチュラルアナログサイトの探査

2.1 目的

処分施設閉鎖後の再冠水段階（期間）におけるセメント反応アルカリ水（間隙水）によるベントナイト緩衝材のアルカリ変質反応がベントナイトの長期健全性に影響を及ぼすことが指摘されている。特に、ベントナイト緩衝材中でのアルカリ間隙水の地球化学的挙動（アルカリプリュームの形状と移動速度）としての拡散や移流場におけるベントナイトーアルカリ間隙水との変質反応プロセスを把握することが重要である。それは、ベントナイト界面に最初に沈殿する準安定相の初期鉱物の生成・成長や、既存鉱物（モンモリロナイト）の溶解－沈殿反応による二次鉱物の生成に深く依存するモンモリロナイトの溶解現象（溶解プロセス・溶解速度など）を理解することが必要である。

本調査の目的は、自然界で現在アルカリ地下水が直接ベントナイトに浸出している露頭（コンタクト）を対象（ここでは、「Active Type」のナチュラルアナログという）に、ベントナイトのアルカリ変質反応を支配する主要な現象と地球化学的プロセスを適切に抽出・理解するとともに、これらの変質鉱物の長期的な鉱物学的変遷を考察して、ベントナイトの長期健全性評価の一助とすることである。従って、この「Active Type」のナチュラルアナログ成立のためには、①アルカリ地下水の存在、②アルカリ地下水の流動経路となり得る断裂系の存在 ③ベントナイトの分布で示される三位一体の要件が必要不可欠である。

このような要件を満たす可能性が高い地域として、これまで継続して調査実施してきた Zambales オフィオライトの西端の Bigbiga 地区及び新規の調査サイトである Zambales オフィオライト東南端（Pinatubo 火山泥流帯）、及び Palawan オフィオライト（Palawan 島中・南部）があげられ、これらの候補サイトにおいてフィールド調査を実施する。

「Bigbiga 地区」は、これまでの一連の現地調査と採取試料（露頭・トレンチ・試錐コア<岩芯>や採水）による試験・分析・同定結果などにより、アルカリ地下水の自墳井（Well-1 : pH ~9.5）の近傍の試錐孔（DH08）でアルカリ地下水がベントナイト質砂岩または泥岩（Aksitero 累層）に侵水していることを確認した。本年度の調査では、高アルカリ地下水とベントナイト層の接触地点を確認するために、Well-1 以外でアルカリ地下水が確認されている井戸（Well-3 : pH~9.3）近傍で試錐孔の掘削を実施してボーリングコアの採取、孔内地下水の採水を行い。採取したコア試料の観察・鉱物分析を行い、アルカリ地下水とベントナイト層の接触の可能性を確認するとともに、調査サイトの地質構造とベントナイトの空間分布を調べる。また、試錐孔での揚水試験及び地下水の物理化学パラメータの計測を行い、アルカリ地下水が湧出した場合は溶存イオン濃度等の地球化学的特性の分析を行う。過年度のデータも含め、得られたアルカリ地下水の賦存、ベントナイトの分布等から、Bigbiga が高 pH の地下水がベントナイト質の堆積層と現在も接触している Active Type のナチュラルアナログサイトとして成立するかを評価することが「Bigbiga 地区」の探査の目的となる。

一方、アルカリ地下水とのコンタクト見つけ出すという意味では、ベントナイトが分布する地域よりも高 pH のアルカリ地下水が分布する地域から絞り込む方が、これまでの調査からも効率的である。高アルカリ地下水の起源・形成プロセス・進化などについては 1.3.7 で述べているが、それは降雨水とオフィオライトの水-岩石反応により形成され、オフィオライトの断裂系を流路とした裂か水である。その pH の大きさはオフィオライトの主要造岩鉱物であるカンラン石や輝石の Mg の含有量（モード比）に依存することが指摘されている[1]。この事実から、高 pH 地下水は、天水起源の地下水がオフィオライトの中核部を構成するかんらん岩中に貯留・相互作用過程での、蛇紋岩化作用により形成された地下水がより高 pH 地下水になり得ることが事例研究で示されている[2][3][4][5]。このような地質環境を有する地域として、**Bigbiga** 地区と同じ **Zambales** オフィオライトが分布する **Pinatubo**（ルソン島北西部の **Zambales** オフィオライト東南端）地区と **Palawan** オフィオライトが分布する **Palawan** 島中・南部地区が絞り込まれ、これらの地域を新規のナチュラルアナログ候補サイトとして概査を実施する。これら新規サイトにおいては、フィールド調査による高アルカリ地下水の湧水ポイントの確認、採水、地下水の物理化学パラメータの計測、また、地質環境及び地下水生成のメカニズムを把握するための岩石試料の採取、そして、得られた水試料の溶存イオン濃度、安定同位体比等の分析及び岩石試料の鉱物・化学分析等から、**Active Type** のナチュラルアナログサイトとしての可能性を評価することが目的となる。

2.2 フィリピン国における現地調査の概要

2.2.1 調査工程

今年度はナチュラルアナログ (NA) 調査・研究としての「Active Type」の調査露頭 (コンタクト部) を探査するために、これまで継続して調査をしてきた①Bigbiga 地区における試錐調査を実施した。また新規のサイトとして、「Active Type」のポテンシャルサイトとして、①Bigbiga 地区と同様に Zambales オフィオライトが分布し且つかんらん岩等の超塩基性岩の露頭がみられ、高 pH のアルカリ地下水の賦存が期待できる②Pinatubo 地区及び、Zambales オフィオライトと類似する Palawan オフィオライトが分布する③Palawan 島のアルカリ地下水の数多くの賦存サイトにおいて、地質調査、岩石鉱物学的調査とアルカリ地下水の地球化学的特性に関する地下水調査による概査を実施した。

調査期間は、図 2.2.1-1 に示すように、雨期である平成 26 年 8 月 3 日 (日) から 8 月 16 日 (月) までの 16 日間である。なお、調査期間を有効に使うため、調査グループを 2 チーム (Bigbiga 試錐専任チームと Pinatubo・Palawan 予察チーム) に分けて調査を実施した。今年度の調査は、雨季のため河川の増水等でアルカリ湧水サイトの確認が困難な状況もあったが (Pinatubo 地区)、調査期間中は比較的天候にも恵まれ、概ね当初計画通りに実施できた。

Items	Aug.															
	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18
	Sun	Mon	Tue	Wed	Thu	Fri	Sat	Sun	Mon	Tue	Wed	Thu	Fri	Sat	Sun	Mon
Bigbiga Drilling																
Palawan outcrop survey																
Pinatubo outcrop survey																

図 2.2.1-1 現地調査の工程

2.2.2 現地調査の作業工程および主な調査内容

現地調査の内容と作業工程を以下の(1)~(3)にまとめる。新規サイトである Pinatubo 地区及び Palawan 島中・南部地区の調査ルート MAP をそれぞれ図 2.2.2-1、図 2.2.2-2 に示す。

(1) Bigbiga 地区における試錐調査

- 8/4AM~8/14PM : Bigbiga Fish pond 調査エリアの Well-3 より西 3m に DH10 コアボーリング (GL-91m)
- 8/5AM : Well-1 および Well-3 水質測定
- 8/14PM~8/16AM : DH10 坑内水排水洗浄 (2 倍量 3,200L 排水)
- 8/16PM : Well-3、DH10 (共に GL-79m) より採水、水質測定および揚水試験を実施

(2) Pinatubo 地区における露頭調査・岩石試料採取、湧水現地測定

- 8/6~8/7 : Bucao River 周辺調査
- 8/8 : Mapanuepe Lake 周辺調査

(3) Palawan 島中・南部地区における露頭・高アルカリ湧水調査、岩石試料・水試料採取

- 8/10 : St. Lucia 周辺露頭、湧水調査 (パラワン島東岸中央～北寄り)
- 8/11~8/12 : Narra 周辺露頭、湧水調査 (パラワン島東岸中央～南寄り)
- 8/13 : Saint Paul Bay 周辺露頭、湧水調査 (パラワン島西岸中央～北寄り)
- 8/14 : Berong Nickel Mine 調査 (パラワン島西岸中央～南寄り→鉱山)
- 8/15 : Bigbiga へ移動



図 2.2.2-1 Pinatubo 地区のフィールド調査ルートマップ

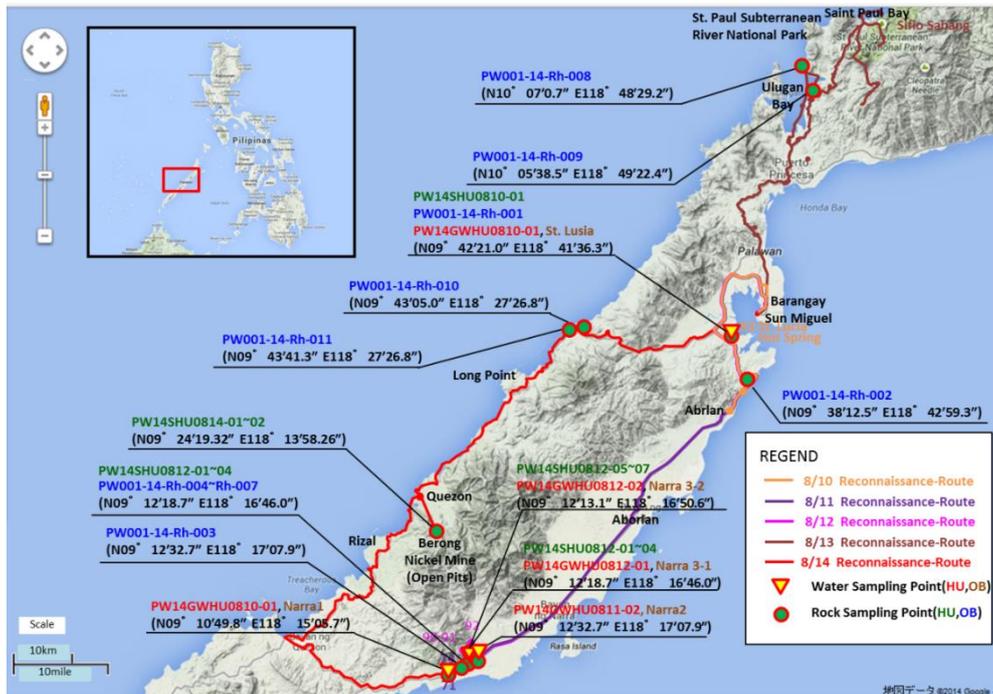


図 2.2.2-2 Palawan 島中・南部地区のフィールド調査ルートマップ

2.2.3 地下水（既存井戸、湧水、既存試錐孔）調査の概要

調査地域の高アルカリ地下水の生成・進化に係わる地下水の地球化学的特性を明らかにするために、Bigbiga 地区の既存井戸・既存試錐孔、Palawan 島中・南部地区の温泉井戸・湧水を対象に地下水調査を実施した。なお、Pinatubo 地区では雨季による増水でアルカリ湧水が確認できなかったため、リトマス試験紙による測定を 2 か所で行ったのみである。

本調査で実施した測定項目と測定方法及び採水方法を以下に示す。

(1) パラメータ測定

地下水や河川水を対象に表 2.2.3-1 に示す物理化学パラメータの計測を実施した。これらの測定には HORIBA pH メーター D-52, D-54（プラスチックボディ電極 9621-10D、ORP 防水電極 9300-10、導電率防水電極 9382-10D）を用いて行った。pH 校正は HORIBA 製の pH 校正液セット 101-S を用いて pH=4, 7, 9 の 3 点で行った。

表 2.2.3-1 物理化学パラメータ 測定項目

測定パラメータ			備考
Temp.	温度	[°C]	発熱反応の影響
pH	水素イオン濃度指数		アルカリ性（酸性）の度合い
ORP(Eh)	酸化還元電位	[V]	還元（酸化）の度合い
EC	電気伝導率	[mS/m]	溶存イオン量の目安
DO	溶存酸素量	[Mg/l]	酸化の度合い

(2) 採水

物理化学パラメータ測定などで地下水の特性を把握したのちに水質分析用の採水を実施した。1ヶ所につき、原水、原水ろ過水、原水+硝酸水の3セットの水試料を採取するため、採取した水（井戸水または湧水）は、原水とは別に、ディスポカップ（PP）を使って分取したのち、30mL シリンジ（テルモシリンジR）と 0.20µm 径メンブレンフィルター（ADVANTEC 製、親水性 PTFE）を使って1回共洗いをしてからろ過し、一箇所につき 50mL ポリビン（アズワン製）×2本採取した。その際、一本は濾過のみ、もう一本は、微生物の増殖によってイオン濃度が変化することや、陽イオン種が試料瓶の内壁に吸着されることなどを防ぐために、500µL の高純度硝酸（関東化学株式会社製硝酸（1.38）UGR）を用いて酸処理を行なった。

CFCs 用の水試料は採水容器には、容積 125cc のよう珪酸ガラス瓶と蓋（内側アルミコーティング）を使用し、ステンレス容器中で、ナイロンチューブを通して地下水をガラス瓶に導入して十分な量の地下水で置換した後に、水中で密栓した。

(3) 水質分析

採取したサンプルは、国内でイオン分析を実施した。分析したイオンは陽イオン元素 (Na, Mg, Al, P, K, Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Rb, Sr, Y, Mo, Cd, Cs, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Pb, Th, U)、陰イオン (F^- , Cl^- , NO_2^- , Br^- , NO_3^- , PO_4^{3-} , SO_4^{2-})、Si, CO_2 である。

溶存元素は以下の 2 種類の方法で分析した。

(A)

- ①Na, K, Ca, Mg, 全 Fe, 全 Mn, Al : 原子吸光分析法
- ②Si : モリブデン青比色法
- ③陰イオン : イオンクロマトグラフ法
- ④ HCO_3^- : TOC 計 (全有機体炭素測定装置) により TIC (全無機炭素) を計測し、Phreeqc を用いた平衡化学計算により算出

(B)

- ①陽イオン : 誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) ; ELEMENT XR(Thermo Scientific)
- ②Si : モリブデン黄吸光光度法
- ③陰イオン : イオンクロマトグラフ法 ; GC-SCL-10A-VP(島津製作所)
- ④ CO_2 : CO_2 分析計(東亜 DKK)

(C)

- ①陽イオン : 誘導結合プラズマ発光分光分析法 (ICP-AES) ; ICPE-9000(島津製作所)
- ②Si : 紫外可視分光計 : V-550(日本分光製)
- ③陰イオン : イオンクロマトグラフ法 ; Metrohm 861 Advanced Compact IC

(4) CFCs 濃度測定

若い地下水 (滞留時間 10 年から 50 年程度) の年代を推定するために、CFCs (クロロフルオロカーボン類 : CFC-11, CFC-12, CFC-113) の濃度を測定した。測定は、試料水約 40ml を前処理装置に導入し、純窒素のバブリングによって水中の CFCs を追い出し、冷却トラップに捕集後、ECD 検出器付ガスクロマトグラフ (GC-8A) に導入して検出した。

(5) 安定同位体比分析

地下水起源の推定のために、水素安定同位体比 (δD) 及び酸素安定同位体 ($\delta^{18}O$) を比近赤外線半導体レーザーを用いたキャビティリングダウン吸収分光法 (CRDS (Cavity Ring Down Spectroscopy)、分析精度 : $\delta^{18}O(\pm 0.1\text{‰})$, $\delta D(\pm 1\text{‰})$) により分析した。

2.2.4 岩石鉱物学的調査の概要

フィールド調査において採取した、Bigbiga 地区の試錐コア試料及び Pinatubo 地区・Palawan 島中・南部地区の露頭採取試料の鉱物学的特徴（鉱物組成・鉱物組み合わせ・組織・共生・原岩組成・変質反応など）と鉱物形成を支配する要素の1つである岩石化学的特性を明らかにするために、XRD による全岩分析（鉱物組み合わせ）、XRF による全岩化学分析（バルク主要成分）、ICP-MS による全岩化学分析（主成分元素、微量成分元素（希土類元素含む））を実施した。

また、アルカリ地下水環境下において、ベントナイトのアルカリ変質反応の地球化学的プロセスを考察するためには、例えば、モンモリロナイトの溶解現象、そしてその溶解過程で沈殿（晶出）した初期鉱物の形成・性状などや、溶解－沈殿反応による変質反応生成鉱物（二次鉱物の形成など）の岩石鉱物学的・鉱物化学的特性に関する基礎的データを取得することが必要になる。そのために、一部の試料については、岩石記載（鉱物組み合わせ・鉱物組成・組織・共生など）を目的とする偏光顕微鏡観察（Petrography）と詳細な鉱物の組成および構造・組織（性状、共生関係）などの観察・同定・元素分布を明らかにすることを目的とした EPMA, μ -XRD, FESEM-EDS による鉱物・化学分析を実施した。

本調査で実施した岩石試料の採取、分析項目と分析方法を以下に示す。

(1) 岩石試料の採取

Bigbiga では DH10 試錐孔のコア及び掘削中に掘削泥水とともに排出されたスライムから分析用の試料（コア試料 57 件、掘削時のスライム試料 6 件）を採取した。

Pinatubo 地区及び Palawan 島中・南部地区では露頭からオフィオライト基盤岩及び堆積物（Palawan 島中・南部地区のみ）の試料（Pinatubo 試料 3 件、Palawan 試料 19 件）を採取した。表 2.2.4-1 に採取した岩石試料の一覧と分析項目を示す。

表 2.2.4-1 今年度のフィールド調査で採取した岩石試料と分析項目

Sample Labelling	Location	Description	Remarks	XRD	XRF	ICP-MS	偏光顕微鏡	EPMA μ-XRD FESEM-EDS
BBDH10-14-Rh-001	Bigbiga Borehole10	3.05m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○		
BBDH10-14-Rh-002		5.65m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-003		7.05m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○		
BBDH10-14-Rh-004		7.70m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-005		8.50m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-006		9.15m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○		
BBDH10-14-Rh-007		9.55m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-008		10.05m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○		
BBDH10-14-Rh-009		10.55m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-010		12.15m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○		
BBDH10-14-Rh-011		12.50m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-012		13.35m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-013		13.65m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-014		14.05m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-015		14.75m	fine ss and mudstone alt. bed		○	○		
BBDH10-14-Rh-016		15.15m	Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-017		15.60m	Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-018		15.95m	Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-019		17.70m	Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-020		19.10m	Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-021		19.50m	Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-022		19.65m	Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-023		19.90m	Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-024		21.80m	No reaction	silicious	○	○	○	○
BBDH10-14-Rh-025		22.25m	Black Laminar		○	○		
BBDH10-14-Rh-026		23.90m	Limestone	dark green layer(tuff?)	○	○		○
BBDH10-14-Rh-027		24.65m	Pumicious Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-028		25.80m	Pumicious Limestone		○	○		
BBDH10-14-Rh-029		26.15m	Pumicious Limestone		○	○		
BBDH10-14-Rh-030		26.95m	Pumicious Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-031		27.35m	Pumicious Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-032		27.85m	Pumicious Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-033		28.15m	Pumicious Limestone	28.05~28.1m : bentonic???	○	○	○	
BBDH10-14-Rh-034		28.45m	Pinkish Limestone		○	○		
BBDH10-14-Rh-035		28.60m	Pinkish Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-036		29.20m	Pinkish Limestone		○	○		
BBDH10-14-Rh-037		29.70m	Pinkish Limestone		○	○		
BBDH10-14-Rh-038		30.20m	Pumicious Limestone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-039		31.03m	Pumicious Limestone		○	○		
BBDH10-14-Rh-040		32.25m	Pumicious Limestone		○	○		
BBDH10-14-Rh-041		32.70m	Brown Clay Stone		○	○	○	○
BBDH10-14-Rh-042		32.90m	Brown Clay Stone		○	○		
BBDH10-14-Rh-043		33.15m	Brown Clay Stone		○	○		
BBDH10-14-Rh-044		33.40m	Pelagic Sediments		○	○	○	○
BBDH10-14-Rh-045		33.95m	Pelagic Sediments		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-046		34.15m	Pelagic Sediments		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-047	Basement	34.40m	Rounded Basalt		○	○		
BBDH10-14-Rh-048		35.50m	Rounded Basalt		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-049		37.60m	Rounded Basalt		○	○		
BBDH10-14-Rh-050		38.15m	Fault Zone		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-051		38.50m	Fault Zone		○	○		
BBDH10-14-Rh-052		39.80m	Autobrecciated Lava		○	○		
BBDH10-14-Rh-053		40.50m	Autobrecciated Pillow Basalt		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-054		41.30m	Autobrecciated Pillow Basalt	縦向き化した塊状を認め、黄色泥岩(チートフ)を含む	○	○	○	○
BBDH10-14-Rh-055		42.50m	Autobrecciated Pillow Basalt		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-056		43.30m	Autobrecciated Pillow Basalt		○	○	○	
BBDH10-14-Rh-057	44.75m	Autobrecciated Pillow Basalt		○	○	○		
BBDH10SL-14-Rh-001	Bigbiga Borehole10		42m付近のスライム		○	○	○	○
BBDH10SL-14-Rh-002			43m付近のスライム		○	○	○	
BBDH10SL-14-Rh-003			45m付近のスライム		○	○		
BBDH10SL-14-Rh-004			45~51m付近のスライム		○	○		
BBDH10SL-14-Rh-005			83.5m付近のスライム		○	○		
BBDH10SL-14-Rh-006			83.5m付近のスライム		○	○		
PNO01-14-Rh-001	Pinatubo Outcrop				○	○	○	
PNO01-14-Rh-002					○	○	○	
PNO01-14-Rh-003					○	○	○	
PW001-14-Rh-001	Palawan Outcrop				○	○	○	
PW001-14-Rh-002					○	○	○	
PW001-14-Rh-003					○	○	○	○
PW001-14-Rh-004			Carbonate		○	○	○	
PW001-14-Rh-005			Sediment		○	○	○	
PW001-14-Rh-006			Sediment		○	○	○	○
PW001-14-Rh-007			Sediment		○	○	○	○
PW001-14-Rh-008				金属質のものがある	○	○	○	○
PW001-14-Rh-009					○	○	○	○
PW001-14-Rh-010					○	○	○	○
PW001-14-Rh-011				pH11.1	○	○	○	○
PW001-14-HU-001			Mud		○	○		
PW001-14-HU-002			Sediment		○	○		
PW001-14-HU-003			Carbonate		○	○		
PW001-14-HU-004					○	○		
PW001-14-HU-005					○	○		
PW001-14-HU-006					○	○		
PW001-14-HU-007					○	○		
PW001-14-HU-008				○	○			

(2) X線回折 (XRD)

採取した全試料 (計 85 件) の鉱物学的特性 (鉱物組み合わせなど) を明らかにするために、XRD による全岩分析・同定を実施した。

1) 試料調整

試料は、厚手のビニールに入れて粗砕して真空乾燥した後、メノウ乳鉢により、100 μ m のふるいを全量通過するまで粉碎し、再度真空乾燥した。

2) 測定条件

XRD の測定条件一覧を表 2.2.4-2 に示す。

XRD 測定には、調整した試料を四分法により必要量 (0.2g 程度) 分取し、下記の計測条件により粉末試料の表面をガラス板で平滑にする充填方法を適用した。

表 2.2.4-2 XRD の測定条件一覧

項目		詳細
装置名		PANALYTICAL社、X'Pert PRO
方式		高速半導体検出器エクセラレータ
測定条件	ソーラスリット	0.04rad (入射側、受光側共通)
	発散スリット	1°
	ターゲット	Cu
	電圧、電流	40 k V、45mA
	走査範囲	4~60°
	走査速度	5°/min
	試料台	ガラスホルダー (回転台: 1回/sec)
	試料充填方法	不定方位 (粉末試料の表面をガラス板で平滑にした。)
環境条件※	開始時の温度、湿度	19°C、11%
	終了時の温度、湿度	24°C、8%
試料条件	粉碎操作	厚手のビニール袋で粗砕後に真空乾燥し、乾燥試料を瑪瑙乳鉢で粉碎した。粉碎試料は、100 μ mのふるいを全量通過するまで粉碎を繰り返した。ふるいを全通した試料は、仕上げに再度真空乾燥した。
	乾燥操作	真空乾燥

※温度および湿度の調整チャンバーは使用していない。温度および湿度は、X線回折装置内の測定開始前後の結果。

(3) 蛍光 X 線元素分析 (XRF)

採取した試料のうち、Bigbiga の試錐 (DH10) コア及びスライムを全試料、Pinatubo の露頭試料を全試料、Palawan の露頭試料から 11 件の総計 67 件の XRF による全岩化学分析を実施した。

1) 試料調整

試料は、XRD と同様に、粗砕し真空乾燥した後、メノウ乳鉢により、100 μ m のふるいを全量通過するまで粉碎し、再度真空乾燥した。

2) 測定条件

XRD 試料とともに調製した試料より 0.2g 程度分取し、島津製作所の波長分散型蛍光 X 線分析装置 XRF-1800 を用いて、表 2.2.4-3 に示す条件により、XRF による定量分析を実施した。

表 2.2.4-3 XRF による定量分析条件

項目	仕様等
X 線ターゲット	Rh
電圧	40kV
電流	95mA

(4) ICP 質量分析 (ICP-MS)

採取した試料のうち、Bigbiga の試錐 (DH10) コアから 27 件、同スライムを 1 件、Pinatubo の露頭試料から 2 件、Palawan の露頭試料から 9 件の総計 39 件の ICP-MS による主成分元素、微量成分元素の化学分析を実施した。

1) 試料調整・測定方法

粉末岩石試料を過塩素酸、フッ酸、硝酸で溶解、凝固し、それを硝酸、塩酸、MIIIQ 水でとかし、それを希釈し、ICP-MS 装置を用いて測定をした。

2) Si 濃度分析

Si 濃度は、土壤分析法に規定された全ケイ素アルカリ溶融脱水法を用いて行った。

(5) 偏光顕微鏡観察

採取した試料のうち、Bigbiga の試錐 (DH10) コアから 5 件、同スライムを 1 件、Pinatubo の露頭試料から Pinatubo の露頭試料から 2 件、Palawan の露頭試料から 9 件の総計 39 件 1 件、Palawan の露頭試料から 5 件の総計 12 件の試料について、岩石鉱物学的特性 (鉱物組み合わせ・組成・組織など) 明らかにするために、薄片を作成して偏光顕微鏡による観察を行った。

1) 試料調製

偏光顕微鏡観察では透過光により試料を観察する必要があるため、観察用試料は厚さ 15～20 μm 程度の薄片に調製した。また、水分子を層間に取り込み膨潤する膨潤性粘土鉱物を含んでいる試料があることから、薄片作製においては非極性溶媒を使用した。

2) 顕微鏡観察

オルソスコープ（オープンニコル（単ニコル）とクロスニコル（直交ニコル））による薄片試料の観察を行う。オープンニコルでは、鉱物の形（自形・多形）、大きさ、へき開、組織、色、多色性、屈折率を、クロスニコルでは、干渉色、双晶、累帯構造、消光位・消光角を観察して鉱物の同定し、岩石の組織と鉱物組み合わせをしらべる。

(6) EPMA, μ -XRD, FESEM-EDS による鉱物・化学分析

鉱物の組成および構造・組織（性状、共生関係）などの観察・同定・元素分布からアルカリ地下水の生成やアルカリ地下水との相互作用による変質プロセスを明らかにするために、Bigbica の試錐（DH10）コアから 3 件（Aksitero 累層の石灰岩、基盤岩の直上の粘土岩、玄武岩質自破砕溶岩：それぞれ 1 件）、Bigbica の試錐（DH08）コアから 1 件（基盤岩の直上の粘土岩）、Palawan の露頭試料から 2 件（堆積物）の総計 12 件の試料について EPMA, μ -XRD, FESEM-EDS による鉱物・化学分析を実施した。なお、DH08 及び DH10 の粘土岩の結果はアルカリベントナイト相互作用の可能性が高いことから、第 3 章にまとめる。

また、第 4 章の年代測定において実施する炭酸塩鉱物の熱ルミネッセンス（Thermoluminescence：TL）年代について、この TL 特性に炭酸塩鉱物の化学組成等が影響することが確認されていることから、Bigbica の試錐孔（DH05）コアの炭酸塩試料 3 件について、同様の分析により化学組成に加え鉱物組成及び組織を調べた。

表 2.2.4-4 に分析項目を整理する。

表 2.2.4-4 分析項目

分析項目	分析手法	試料形態	分析・観察
微細観察・分析	FESEM-EDS	破断片（1 試料）	鉱物の産状観察と化学組成 (簡易 ZAF 定量による)
微細鉱物同定分析	μ -XRD	同上	ビデオ観察と X 線回折のデバイシ ェラーリング解析
反射電子線像, X 線 像観察	EPMA	研磨薄片（2 試料）	鉱物の産状観察と組成推定
EDS-WDS 分析	同上	同上	スポット定量分析 (分析領域は反射電子線像で示す)
元素分布観察	同上	同上	元素マッピング (Si, Al, Fe, Mg, Ca, Na, K, O, C)

1) 試料調製

試料は常圧、真空乾燥後に樹脂包埋処理を行い、シニングしてスライドガラス上に樹脂固定し、#4000 までのラッピングをエタノールのみを用いて行った。試料作成の概観を図 2.2.4-1 に示す。

WDS-EPMA

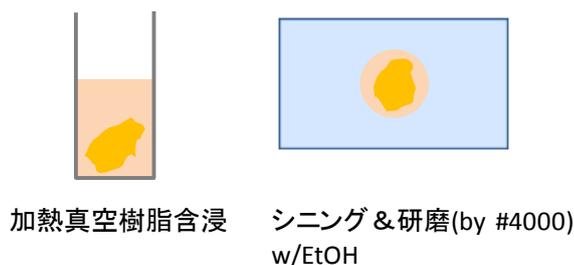


図 2.2.4-1 試料の調整法

これらをスライドガラスに固定した薄片試料は EPMA 用の試料ホルダーに固定され、分析に供された。

FESEM 観察、 μ -XRD による微細鉱物同定分析も EPMA で用いた薄片状試料を利用した。ただし、Palawan の露頭試料については真空乾燥した粉末状試料をカーボンテープ上に固定し、その観察・分析を行った。

2) 測定条件

FESEM 観察では、破断面をもつ数 mm 大の小岩片、または付着していた微粒子を、カーボンテープを貼り付けたスライドガラス基盤上に配置させ、白金コーティングを行った後、FESEM 装置、JEOL JSM-6700F を用いて、15 kV で微細観察とエネルギー分散型 X 線分析装置 (EDS) による定量分析 (主要元素について簡易定量分析) を行った。

EPMA 分析用試料調整では、ハンドピックによって選出した 5-10 mm 大の破断試料を内径 10 mm のアルミ管に収め、それを 60°C のオーブンで一晩乾燥させ、冷却しないうちに真空デシケータに移し、真空引きを数時間行った。充分乾燥した試料へ、岩石薄片作製用樹脂ペトロポキシ 154 を流し込み、そのまま真空引きをさらに 30 分間行い、真空含浸させ、これを 100°C のホットプレート上にて固化させた。樹脂中で固化した試料を、エタノールを用いてダイヤモンド刃の低速カッターで切断した。断面を #600-#1000-#2000-#4000 の順でエタノールを用いてラッピング紙研磨した表面を、同じくペトロポキシ 154 にてスライドガラス上に固着した。これをさらに #600-#1000-#2000-#4000 の順でラッピング紙研磨して平面処理を行ったものに炭素蒸着して分析試料とした。

EPMA 装置、JEOL JXA-8200 では、加速電圧 15 kV において、WDS (wavelength-dispersive

X-ray spectrometer : 波長分散分析装置)による測定と oxide ZAF 補正法によるスポット定量分析(~1 μm 径)を実施した。また、試料の表面の鉱物微細組織の観察には反射電子線像 (BEI: backscattered electron image)を用いた。これらの主要元素のうち、試料を特徴付ける重要な視野については、自動ステージスキャンによる元素マッピングを行った。



a
JEOL JXA-8200
波長・エネルギー分散型
電子線マイクロプローブ分析装置
EPMA



b
JEOL JSM-6700F
電界放出型走査電子顕微鏡
FESEM-EDS

図 2.2.4-2 試料の分析と観察に用いた分析装置(a: EPMA; b: FESEM-EDS)

2.3 Bigbiga 地区（ルソン島北西部）の調査

2.3.1 構造試錐調査

Bigbiga 地区を含むナチュラルアナログ調査対象地域で確認されているすべての高アルカリ地下水の起源と流動系は、基盤岩であるオフィオライトの蛇紋岩化作用（水-岩石反応）により形成・進化し、そのオフィオライト岩盤中の断裂系を流路として上昇した裂か水である。この事実から、高アルカリ地下水の探査の基本は、高アルカリ地下水を随伴する断裂系（断層・割れ目集中帯など）を直接確認し、アルカリ地下水の賦存状況（形状・規模・深度・流動系など）を把握することである。

本章のナチュラルアナログサイトの探査においては、高アルカリ地下水の直近または近傍に胚胎するベントナイト層とのコンタクト（露頭）の直接探査が目的であるが、そのために、Zambales オフィオライトに整合関係で堆積する Aksitero 累層のベントナイト質堆積物の胚胎状況（分布深度・層厚・規模、岩質・岩相、堆積構造<堆積環境>、変質特性、原岩特性、地質構造<断裂系特性>）を把握することが必要不可欠である。

これらの目的から、Bigbiga 地区においては、試錐調査（DH10 孔：試錐コア観察による試錐コア柱状図の作成・岩石鉱物試験用の試料採取と地下水の地球化学的特性調査のために、原位置での孔内水の物理化学パラメータ計測・水質分析用の採水・孔内地下水の簡易揚水試験）を実施した。

(1) 試錐サイトの選定

アルカリ地下水の賦存が期待できる地点として、NNE-SSW 系断裂系の近傍等で平成 24 年度に実施した 3 か所（DH05 孔～DH07 孔）に加え、上記の地上物理探査、地下水の地球化学的調査（計測）、トレンチ調査の一連の調査データ・知見などの総合解析により、①Well-1 の近傍（DH08 孔）と②アノマリーの東限（測定グリット内の東端ループ計測点）の地点（DH09 孔）を試錐地点として、試錐孔の掘削、コア採取とコア観察及び分析、揚水試験・採水と分析を実施した。

これらの結果を踏まえ、今年度はアルカリ地下水が確認され、且つ周辺での試錐調査を実施していない（pH8.9）Well-3 近傍で掘削することとし、その西 3m の地点を試錐地点（図 2.3.1-1）として選定した。

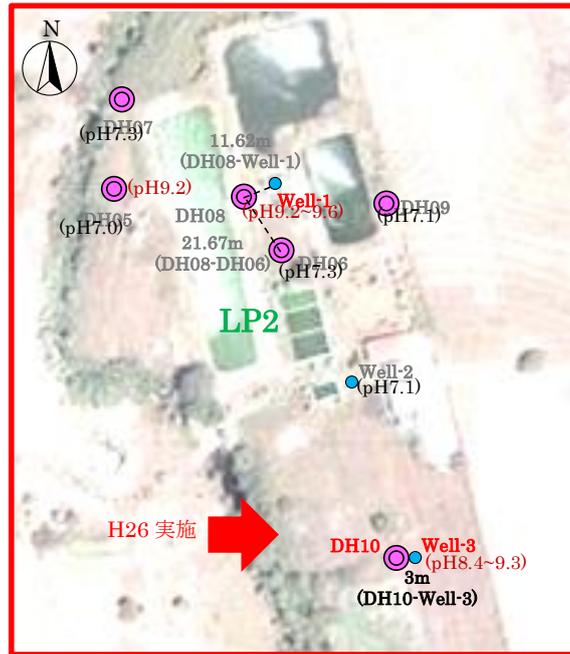


図 2.3.1-1 試錐孔 (DH10) 掘削地点

(2) 試錐孔掘削作業

構造試錐調査の試錐仕様については、コア口径が BQ サイズ（直経約 5cm）でオールコア採取である。また、100m 程度の掘削と堆積岩のコア回収率向上に対応するためワイヤーチューブシステムの試錐機（図 2.3.1-2）を導入する。

試錐作業の工程実績は、掘削期間：8/4～8/14）、掘削深度：91m である（表 2.3.1-1）。ただし、45m 付近から大量の砂状スライムの噴出したため（図 2.3.1-3）、ベントナイトを注入して孔壁保護を図ったが改善されなかったため、さらにポリマー注入して孔壁保護が図られたが、この作業後コアチューブが 84m まで自然落下した。これは高角度のオープンスペースの断層を掘削機が叩いたためだと考えられる。なお、そこから 91m まで掘削したが、落下させたコアチューブが回収できなかったため試料が採取できず、結果、45m までのコア試料のみ採取できた。



図 2.3.1-2 DH10 孔の掘削作業状況

表 2.3.1-1 掘削作業工程

作業日	掘削深度	Remark
8/4	0～4.5m	
8/5	4.5～10.0m	
8/6	10.0～19.05m	
8/7	19.5～29.05m	
8/8	29.05～41.3m	
8/9	41.3～45.0m	
8/10	-	ベントナイト注入による孔壁保護。
8/11	-	エンジンスターター（プーリー）の不具合のため交換。ポリマー注入による孔壁保護。
8/12	45.0～91.0m	ポリマー注入による孔壁保護。45.0～84.0m は自然落下。
8/13	-	インサイドタップによる落下したコアチューブの回収作業。
8/14	-	コアチューブは回収できず掘削作業終了。PVC ケーシングの設置。排水用のポンプのテスト。
8/15	-	ポンプアップによる孔内洗浄。
8/16	-	ポンプアップによる孔内洗浄・揚水試験・孔内水の採水・計測。



図 2.3.1-3 DH10 孔の孔壁崩壊箇所で大量に出た砂状スライム

(3) コア観察

オフィオライト基盤岩と Aksitero 累層を対象に、掘削採取された DH10 孔のコア（岩芯）の観察などにより試錐コア柱状図を作成した。採取したコアの写真を図 2.3.1-4～図 2.3.1-5 に、コア柱状図を図 2.3.1-6～図 2.3.1-9 に示す。

作成にあたっては、ベントナイト層の層厚・粒度・固結度・岩相・岩質・堆積構造（堆積環境）・変質特性・特異な鉱物種・割れ目・断裂系特性や、ベントナイト層の上盤 / 下盤との岩相・岩質および、累重関係、そして、オフィオライト基盤岩においては、変質特性、特にアルカリ地下水の浸出に伴う地球化学的反応による変質鉱物の鉱物学的・鉱物化学的特性と浸出経路となる割れ目・断裂系特性に注視して観察を実施した。

DH10 孔は、Aksitero 累層と Zambales オフィオライトの基盤岩である枕状玄武岩質溶岩（Pillow Basalt）とは深度 34.3m で接する。なお、DH08 孔の基盤深度は 11.5m であり地表面の標高差はほとんどないことから、DH10 孔周辺ではステップフォルトにより基盤深度が深くな

っていると考えられる。また、堆積する石灰岩質の Aksitero 累層も DH08 孔に比べると厚い。

Aksitero 累層の岩質／岩相は浅部から順に砂岩/泥岩互層－石灰岩質砂岩・一部凝灰岩質－粘土岩－海洋性堆積岩である。一方、Zambales オフィオライトは枕状溶岩で全体的に変質が顕著である。その原岩は枕状玄武岩と細粒はんれい岩であり、最上部（34.4～38.0m）は円礫状である。また、38.0～39.0m に断層が存在する。

基盤岩上の Aksitero 累層のスメクタイトを含む粘土岩は DH08 でも同様に見られた。一方、DH08 孔では明確に確認できなかった遠洋性堆積物が赤色粘土岩の下位で基盤岩と接している。

45m 付近からは大量の砂状スライムが噴出した。これも小規模であるが DH08 孔でも同様に見られた現象である。その後、45.0m～84.0m に空間が生じたのは、高角度のオープンスペースの断層に二次的に砂が堆積していた個所を掘削機が叩いたためだと考えられる。

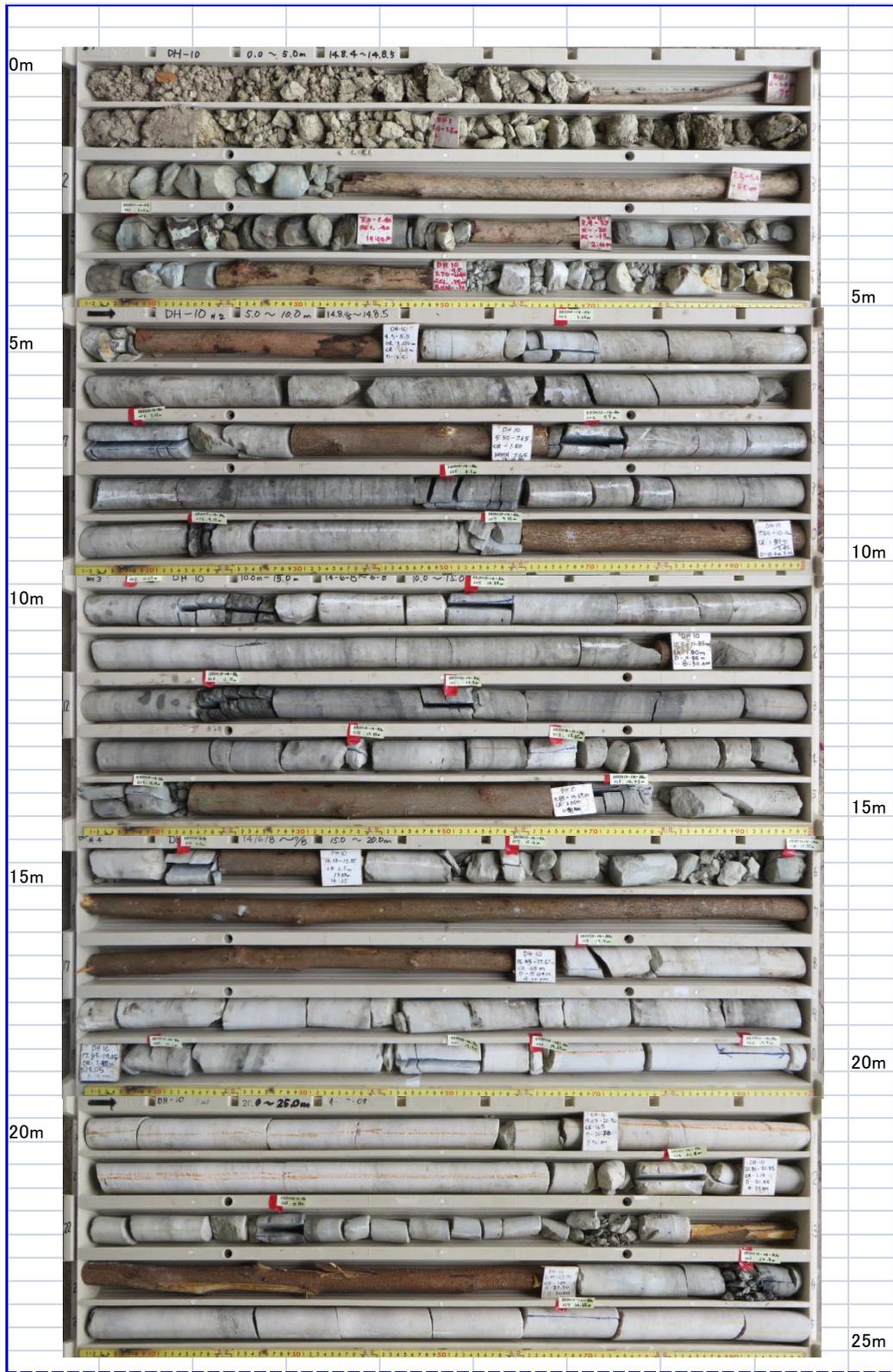


図 2.3.1-4 DH10 孔コア写真(0~25m) (赤ラベル : 採取した分析用試料)

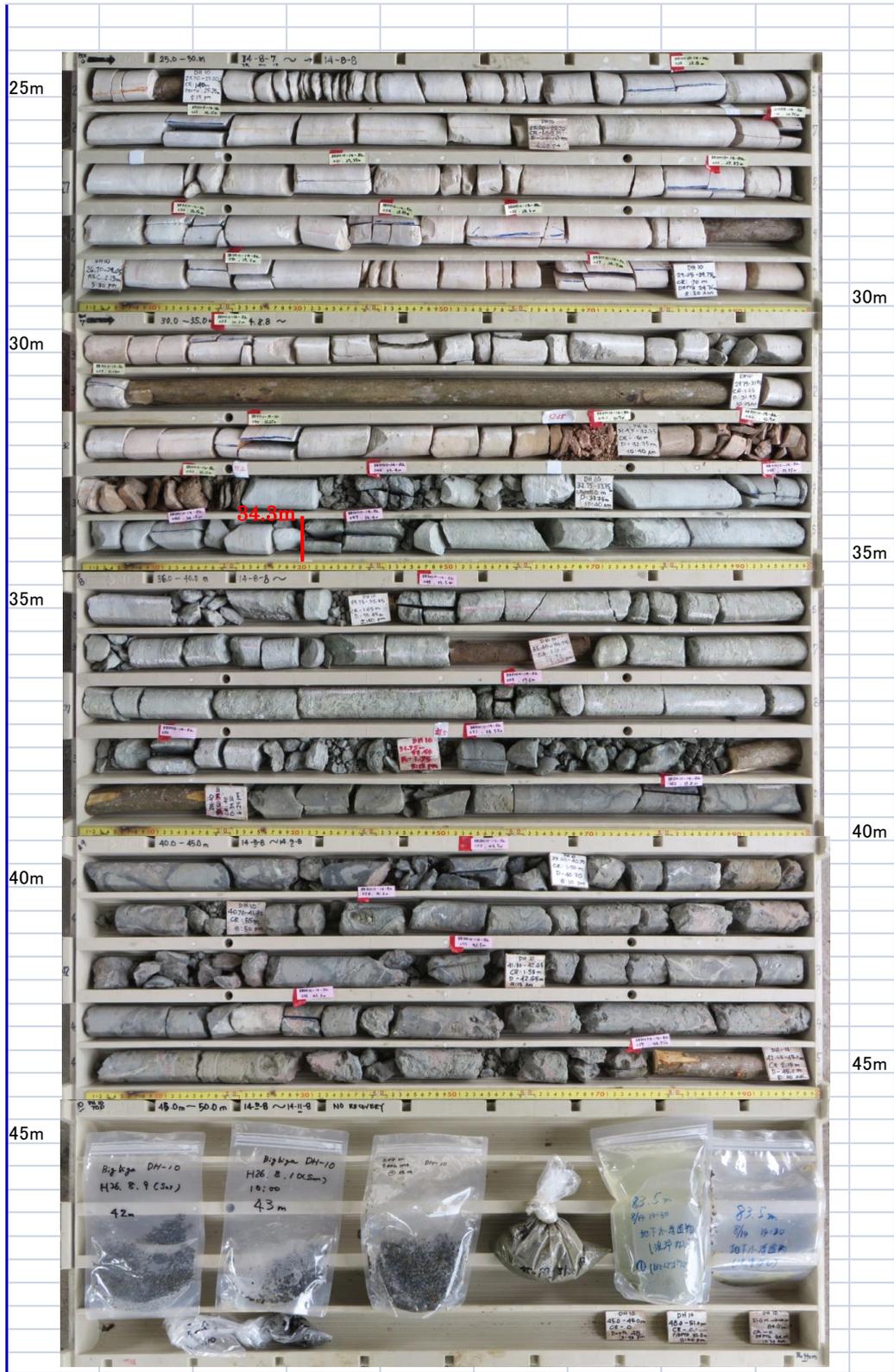


図 2.3.1-5 DH10 孔コア写真(25~45m) (赤ラベル：採取した分析用試料，プラ袋：スライム試料)

Drill Hole Number : DH-10
 Location : N 15° 30' 47.52" , E 120° 22' 54.94" (3.1m from well 3 to the west)
 Elevation : well 3 - 0.57 m
 Core Size : NQ
 Total Footage : 45.00m (91.75m)

CR* (core -lacked zone)
 RB** Range Brecciation
 (crush - Breccia , Fault - Breccia / Fragmentation , Fracturing , cracking)

Depth(m)	Columnar Section	CR	RB	Sample Number (Sample Location)	Lithology	Remarks
0.4					☆0.00~0.40m surface soil	cohesive soil with root
0.7						rock texture clear
1.0					☆1.0~2.0m strong weathered rock (dark brown)	
2.0					☆2.0~5.1m weathered rock (brecciated rock)	2.0~2.4m: pale green(tuffaceous)
2.4						
3.0				BBDH10-14-Rh-001 (●)	dark pale green and black alternation bed (fine sandstone) (mudstone)	3.05m: pale green(tuffaceous)
3.6					advance sandstone	
3.7					calcareous no calcareous	
4.2						
4.5						4.5~4.7m: limy
5.1					0.4~5.1m: weathered rock	below 5m: color is light, and calcareous
5.5				BBDH10-14-Rh-002	☆5.5~15.0m grey fined calcareous sandstone and black muddy alternation bed (sandstone advance)	
5.5~9.6m					a color is dark almost all.	8.4m: conjugated crack 6.8m: a lot of shale patch laminar angle $\lt; 0^{\circ}$
7.3				BBDH10-14-Rh-003 (●)		7.15~7.25m: $\lt; 90^{\circ}$ crack alternation color
7.65				BBDH10-14-Rh-004		7.65~7.8m: oolite vein
				BBDH10-14-Rh-005		
				BBDH10-14-Rh-006		
9.6				BBDH10-14-Rh-007		9.5~9.8m: $\lt; 70^{\circ}$ crack (fresh)
10.0				BBDH10-14-Rh-008 (●)	10~15m color is lighter than upper part (calcareous rich)	black part : no reaction HCl
				BBDH10-14-Rh-009	grey fined calcareous sandstone and black muddy alternation bed (calcareous rich)	black layer : HCl solution no reaction basalt origin ?
11.75					11.5~13.4m muddy a color is dark almost all	11.2~11.3m: vertical hair crack and open crack
11.85				BBDH10-14-Rh-010 (●)		11.85m : $\lt; 70^{\circ}$ crack (fresh)
12.54				BBDH10-14-Rh-011	12.54~12.56m coarse grained sandstone (turbidite) (limy)	12.0~14.15m: black color (a lot of black layer) $\lt; 10^{\circ}$~20° lamina angle ϕ~2mm emerald color
12.56						
				BBDH10-14-Rh-012		13.45m : ϕ 2mm black parts patch is probably kerosene (★)
				BBDH10-14-Rh-013 (■)		
14.15				BBDH10-14-Rh-014	14.15m soft soil	13.9~14.1m: $\lt; 70^{\circ}$~90° vertical crack (fresh)
14.65				BBDH10-14-Rh-015 (●)	14.65~15.0m fine grained sandstone	14.72m : black (dark green) lens (soft) (★) 14.8m : $\lt; 70^{\circ}$ crack (fresh) below 15m : delivery water no return

(●):XRD analysis
 (■):polrizing microscope observation

图 2.3.1-6 DH10 孔柱状图 (0~GL-15m)

Depth (m)	Columnar Section	CR	RB	Sample Number (Sample Location)	Lithology	Remarks
15.15				BBDH10-14-Rh-016	☆15.0~19.45m sandy limestone involve siliceous layer	
15.35				BBDH10-14-Rh-017		15.5~16.0m : pale green (tuffaceous)
16.0				BBDH10-14-Rh-018		15.5m : 1~2m siliceous layer 16.0m : siliceous 15.85~16.96m: fractured zone(siliceous)
17.65				BBDH10-14-Rh-019		
18.41					18.41~18.43m siliceous layer	8.55m : black (dark green) lens soft(*)
18.43						18.6~19.3m: black layer (origly basalt sand?) laminar angle $\angle 20^\circ$
19.0				BBDH10-14-Rh-020	19.0~19.15m fine sandstone (tuff?) (brownish)	
19.15				BBDH10-14-Rh-021 (●)	☆19.15~19.42m sandy limestone	19.46m : $\angle 20^\circ$ calcite layer
19.42				BBDH10-14-Rh-022	☆19.42~19.45m siliceous sandstone	19.65m : siliceous lens sharp boundary
19.45				BBDH10-14-Rh-023	19.45~19.46m coarse grained sandstone (turbidite) laminar angle $\angle 20^\circ$	
19.45					19.45~21.82m : limestone (brownish)	
21.82				BBDH10-14-Rh-024 (⊗)	☆21.82~21.9m : no reaction siliceous	$\angle 70^\circ$ crack ϕ 2.3m spherite?
21.9				BBDH10-14-Rh-025 (●)	☆21.9~22.15m : limestone	21.9~21.92m : black sandstone (origin?)
22.15					☆22.15~22.33m : black laminar mid sandstone (porus) (basalt?)	$\angle 20^\circ$ laminar 22.7~22.8m : brecciated zone
22.33					☆21.82~24.25m : sandy ☆22.33~22.85m : blackish limestone	
23.7				BBDH10-14-Rh-026 (●)	☆23.7~24.25m : blackish limestone below 24.25m limestone (brownish)	23.9~24.0m : dark green (black) layer serpentine fragment?
24.2				BBDH10-14-Rh-027	☆24.2~28.2m pumiceous limestone (brownish)	
25.1				BBDH10-14-Rh-028 (●)		25.8~26.3m : vertical calcite vein (overcross lamina)
25.2				BBDH10-14-Rh-029 (●)		
26.75				BBDH10-14-Rh-030		26.75m : dark green layer (no sample)
27.2				BBDH10-14-Rh-031		?27.2m : 2m lens green tuff (siliceous lens)
28.0				BBDH10-14-Rh-032		$\angle 20^\circ$ lamina 28.0m : dimple inclusion (dark black)
28.0				BBDH10-14-Rh-033 (●)	28.0~28.2m : pale green (tuffaceous)	
28.2				BBDH10-14-Rh-034 (●)	☆28.2~30.2m pinkish limestone	28.5m~ : inclusion almost calcareous
28.85				BBDH10-14-Rh-035		
29.05				BBDH10-14-Rh-036 (●)		
29.65				BBDH10-14-Rh-037 (●)		29.65m : black inclusion (kerosene?) ?28.05~28.1m : bentonic

(●): XRD analysis
(⊗): polarizing microscope observation

图 2.3.1-7 DH10 孔柱状图 (GL-15m~30m)

Depth(m)	Columnar Section	CR	RB	Sample Number (Sample Location)	Lithology	Remarks
31	31.05			BBDH10-14-Rh-038 (●)	☆ 30.2~31.95m pumiceous limestone	30.35~31.05m : vertical crack
				BBDH10-14-Rh-039 (●)		
32	31.95			BBDH10-14-Rh-040 (●)	☆ 31.95~32.65m pinkish limestone	
				BBDH10-14-Rh-041 (●)		no reaction
33	32.65			BBDH10-14-Rh-042 (●)	☆ 32.65~33.23m brownish (red) lay stone	32.8m : calcite + silica vein
				BBDH10-14-Rh-043 (●)	soft rock , flake , slicken	
				BBDH10-14-Rh-044 (●)	siliceous mud (porcellanite)	33.23~34.3m : no reaction HCl cracky along crack plane is soft
34	33.2			BBDH10-14-Rh-045 (●)	☆ 33.23~34.3m ☆ muddy tuff	
				BBDH10-14-Rh-046 (●)		33.3m : vein
				BBDH10-14-Rh-047 (●)	☆ 34.3~38.5m autobrecciated rock	34.0m : fine grained tuff 34.3m : Akaitero Zambales ophiolite member
				BBDH10-14-Rh-048 (●)		34.88m : <30° slicken
35	34.3			BBDH10-14-Rh-049 (●)		35~36.45m : vertical crack (siliceous lamina) HCl no reaction
				BBDH10-14-Rh-050 (●)	38.0~39.2m Fault zone (soft rock , slicken)	
36	36.5			BBDH10-14-Rh-051 (●)	☆ 38.5m~ pillow basalt Fault plane	36m : slicken ☆ 36.75m : drilling well-3 ground water overflow
				BBDH10-14-Rh-052 (●)	☆ 39.2~45m autobrecciated lava (pillow basalt)	36.3m , 36.35m : <70° slicken
37	36.7			BBDH10-14-Rh-053 (●)		37~38m : alternation
				BBDH10-14-Rh-054 (●)	41.0~41.7m serpentinization 41.4m reaction line is calcie	
38	38.0			BBDH10-14-Rh-055 (●)	collapse failure accumulated sand	
				BBDH10-14-Rh-056 (●)		40.8m~41m : calcite
39	38.5			BBDH10SL-14-Rh-001~006 (●)	cutting dust (slime)	41.4m : zonolith 41.5m : patch
				BBDH10-14-Rh-057 (●)	For jamming below 45m we cannot drilling	40.2~40.8m : vertical crack (no slicken) 40.8~41.0m : calcite 42.2 , 42.3m : vein , lens resolve calcite vein many
40	38.85			BBDH10-14-Rh-052 (●)	☆ 39.2~45m autobrecciated lava (pillow basalt)	42.7~43.0m : small crater 42.8m : calcite
				BBDH10-14-Rh-053 (●)	☆ 39.2~45m autobrecciated lava (pillow basalt)	43.1~43.2m : ls fragment 43.0~43.5m : calcite vein
41	39.2			BBDH10-14-Rh-054 (●)		43.5~44.0m : red part no reaction 44.3m : patch (quartz)
				BBDH10-14-Rh-055 (●)		44.0~44.1m : quartz ☆ 44.2m fragment (soft and sandy)
42	40.0			BBDH10-14-Rh-056 (●)		
				BBDH10-14-Rh-057 (●)		
43	40.8			BBDH10-14-Rh-058 (●)		
				BBDH10-14-Rh-059 (●)		
44	41.5			BBDH10-14-Rh-060 (●)		
				BBDH10-14-Rh-061 (●)		
45	44.75			BBDH10-14-Rh-062 (●)		
				BBDH10-14-Rh-063 (●)		

(●): XRD analysis
(●): polarizing microscope observation

図 2.3.1-8 DH10 孔柱状図 (GL-30m~45m)

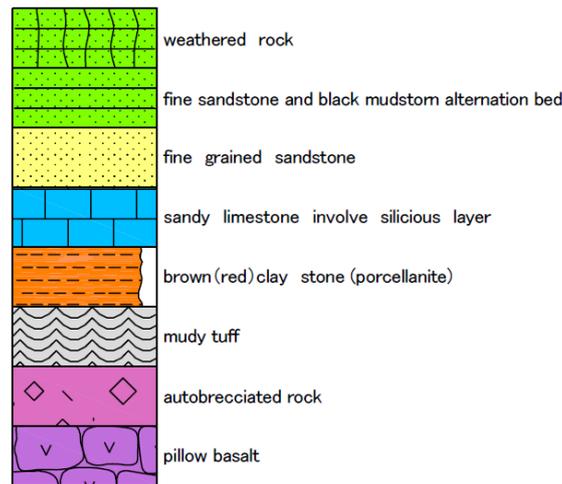


図 2.3.1-9 柱状図の凡例

(4) コア試料による岩石鉱物学的調査

ここでは、試錐孔（DH10）から採取したコア（岩芯）試料によるアルカリ変質反応の地球化学的プロセスについて岩石鉱物学的に観察・考察する。

アルカリ地下水環境下において、ベントナイトのアルカリ変質反応の地球化学的プロセスを考察するためには、例えば、モンモリロナイトの溶解現象、そしてその溶解過程で沈殿（晶出）した初期鉱物の形成・性状などや、溶解－沈殿反応による変質反応生成鉱物（二次鉱物の形成など）の岩石鉱物学的・鉱物化学的特性に関する基礎的データを取得することが必要になる。また、同時に基盤岩であるオフィオライトを構成する主要造岩鉱物の変質反応による変質反応生成鉱物特性を明らかにし、アルカリ地下水との相互作用に関する地球化学的プロセスを考察する上での基礎データを取得するが基本となる。

そのために、ここでは、後者について、鉱物組み合わせ（主要造岩鉱物）を明らかにするために XRD による全岩分析、鉱物形成を支配する要素の1つである岩石化学的特性を考察するために XRF による全岩分析（バルク主要成分）、ICP-MS による全岩分析（バルク主要成分及び微量元素）、鉱物の組成および構造・組織（性状、共生関係）・元素分布を明らかにするために EPMA、 μ -XRD、FESEM-EDS による観察・鉱物同定・化学分析を実施した。前者については、第3章“アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセス”のなかで、詳細な鉱物学的・鉱物化学的特性の観察・分析結果をまとめる。

1) 分析用試料

分析のために DH10 孔より採取した試料は表 2.2.4-1 に示すコア試料 57 件、掘削時のスライム試料 6 件である。図 2.3.1-10～図 2.3.1-12 にコア試料、図 2.3.1-13 にスライム試料の外観写真を示す。なお、石灰岩の BBDH10-14-Rh-024 は塩酸発砲しない脈状の凝灰質とみられる部位が確認されたため、その部分を分離した試料を BBDH10-14-Rh-024-1、それ以外の塩酸発砲する炭酸塩の試料を BBDH10-14-Rh-024-2 とした（図 2.3.1-14）。

また、45m 付近から孔壁の崩壊とみられる理由で大量の砂状スライムが掘削泥水とともに排出された。これら 45m 付近から排出されたスライム試料及びコアの回収ができなかった 83.5m 付近のスライム試料 (BBDH10SL で始まる番号の試料) も採取し、分析に供した。このうち、BBDH10SL-14-Rh-001 試料については、45 μ m でふるい分け、粗粒試料を BBDH10SL-14-Rh-001-1、細粒試料を BBDH10SL-14-Rh-001-2 とした。

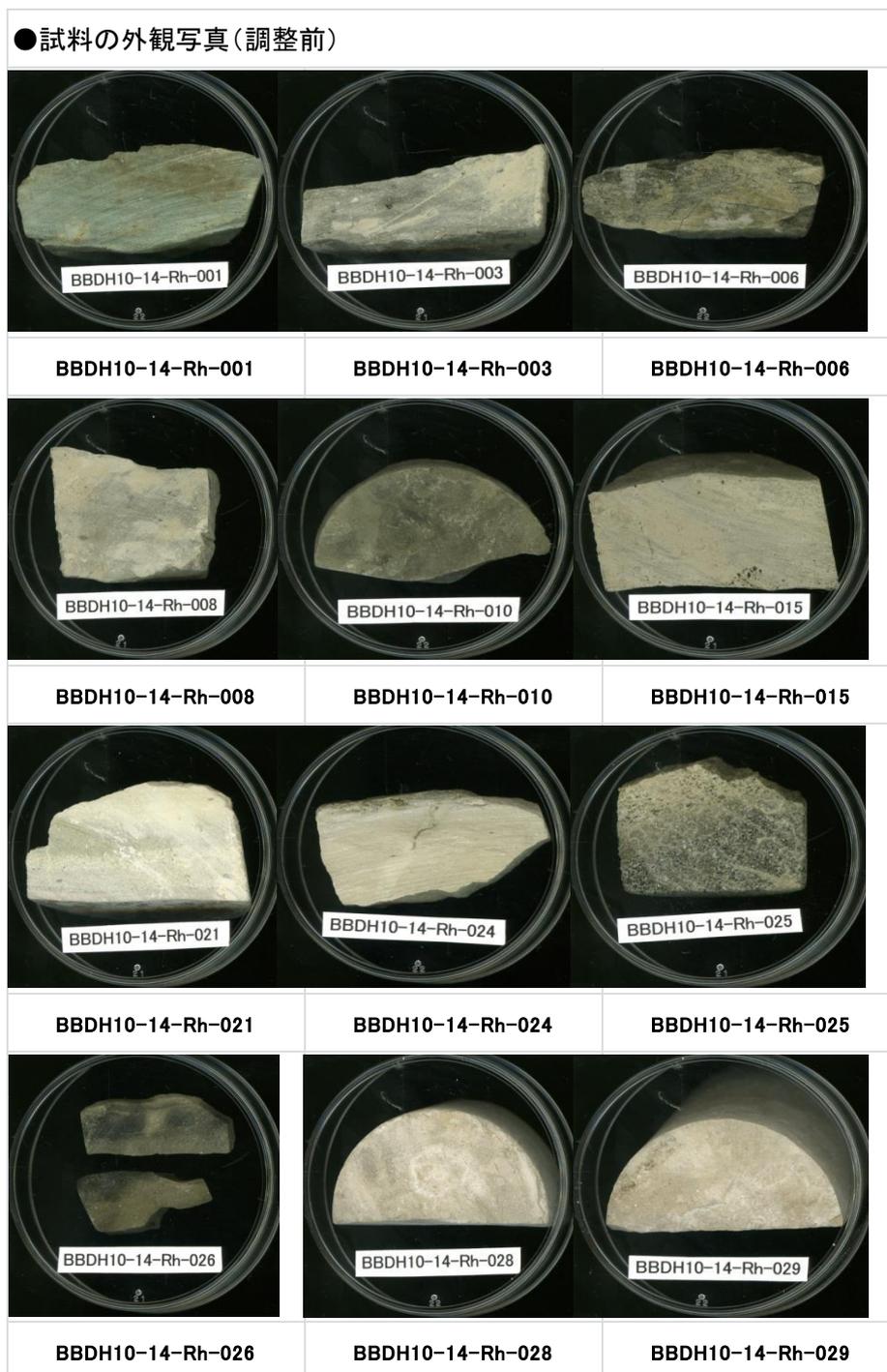


図 2.3.1-10 コア試料の外観(BBDH10-14-Rh-001~029)

●試料の外観写真(調整前)

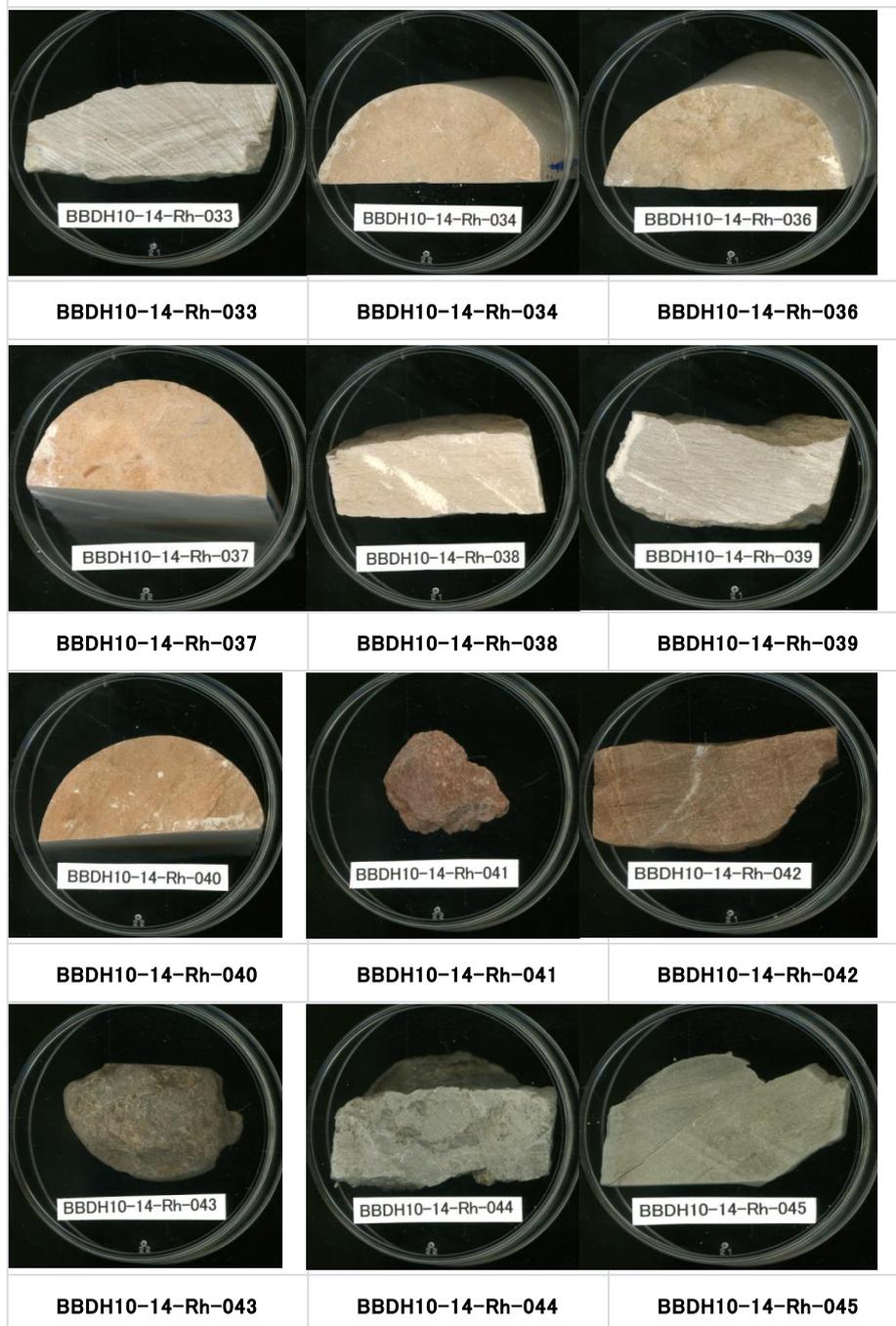


図 2.3.1-11 コア試料の外観(BBDH10-14-Rh-033~045)

●試料の外観写真(調整前)

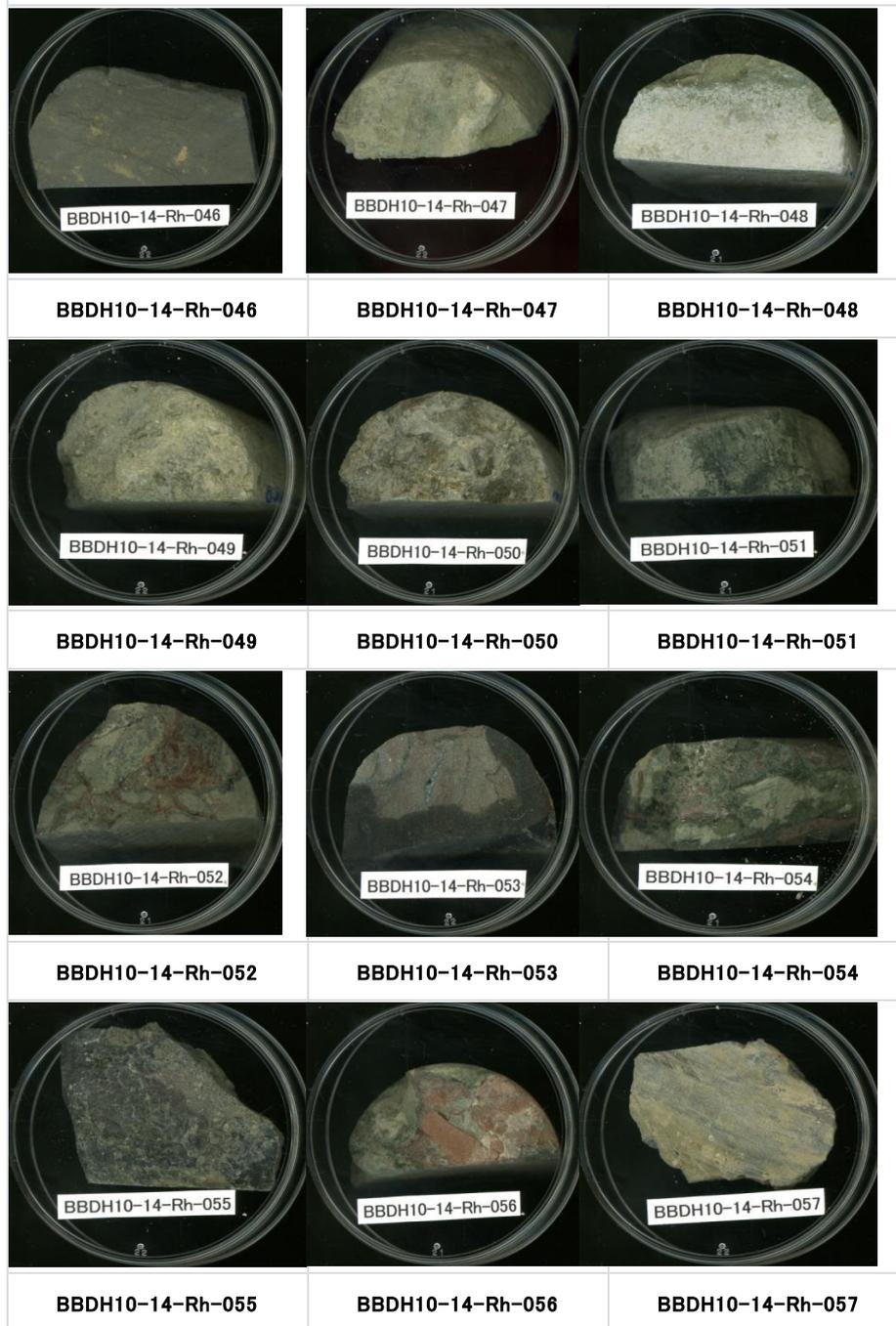


図 2.3.1-12 コア試料の外観(BBDH10-14-Rh-046～057)

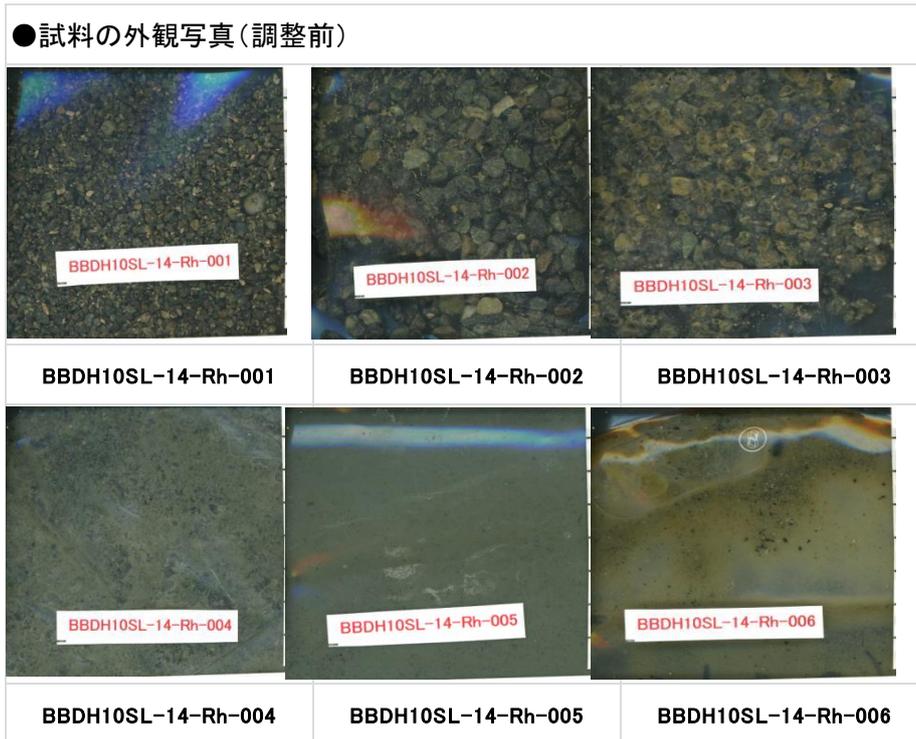


図 2.3.1-13 スライム試料の外観(BBDH10SL-14-Rh-001~006)

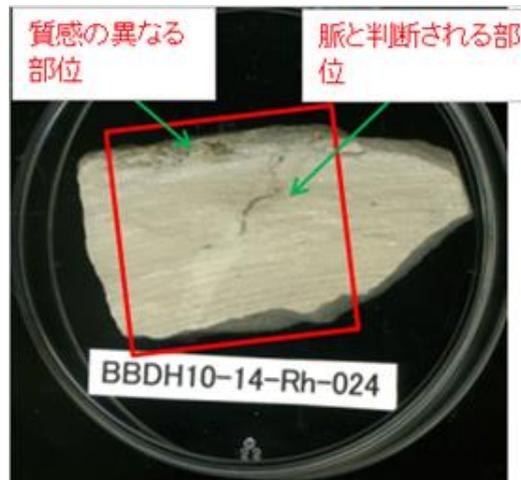


図 2.3.1-14 石灰岩 (BBDH10-14-Rh-024) の試料の分離

2) 鉱物学的特性 (XRD)

試錐孔 DH10 から連続的に採取したコア試料及びスライム試料を使用して、鉱物学的特性(鉱物組み合わせなど)を明らかにするために、XRDによる全岩分析・同定を実施した。XRD測定により同定したコア試料の鉱物組み合わせを表 2.3.1-2 に、スライム試料の鉱物組み合わせを表 2.3.1-3 に示す。この鉱物同定結果に基づき、試錐孔 DH10 の鉱物組み合わせ表を図 2.3.1-15~図 2.3.1-17 に整理した。また、測定した XRD パターンを図 2.3.1-18~図 2.3.1-70 に示す。

Aksitero 累層を構成する堆積岩は典型的な遠洋性堆積物で、主に遠洋性浮遊性生物の遺骸から形成された石灰質砂岩~泥岩と石灰岩および、島弧火山活動により供給された火山砕屑性堆積物から構成され、しばしば凝灰岩質堆積物を挟在し、ベントナイトの初原物質(出発物質)になっている。このような地質環境下の Aksitero 累層の堆積岩では、図 2.3.1-15~図 2.3.1-17 に示すように、上部層では、主構成鉱物である方解石の他に、斜長石、石英、玉髄、2-八面体スメクタイト(モンモリロナイト)、沸石(主に斜プチロル沸石(クリノプチロライト))が、一方、下部層では、斜長石、石英、スメクタイト、斜プチロル沸石が同定された。

上部層は石灰質砂岩~石灰岩であり、その鉱物学的特性については、深度 23.70m を境にして次のように整理できる。深度 23.70m まで(BBDH10-14-Rh-001~027)は、強い方解石のピークに、斜長石、斜プチロル沸石、石英の弱いピークが現れていることが特徴である。

脈状の凝灰岩質部位がみられる BBDH10-14-Rh-024-1 では、その部位の主成分は斜プチロル沸石で、その他粘土鉱物(スメクタイト、ハロイサイト)も含むことがわかる。10Åの底面間隔は雲母鉱物と含水ハロイサイトに共通のため、70°Cの乾燥炉で加熱処理を行い、デシケータで冷却して再度 XRD 回折の計測に供したところ、10Åのピーク強度が低下し、7.2Å程度のピーク、すなわちカオリン型の 1:1 粘土鉱物の特徴が現れたことから、この試料はハロイサイトを含むと考えられる。また、十分に加熱処理した後にも 10Åのピークが計測されたため、この試料には雲母鉱物も含まれると考えられる。

一方、深度 23.70m~32.65m(BBDH10-14-Rh-028~040)は、BBDH10-14-Rh-001~027のグループより強い方解石のピークが見られ、わずかにシリカ鉱物のピークが認められる石灰岩である。

下部層は肉眼観察によるコア柱状図から、上位の赤色粘土岩と基盤岩直上の遠洋性堆積物としたが、両者ともベントナイトの主要な初原物質である凝灰岩質の岩相・岩質を示すことからベントナイト質であるといえる。

赤色粘土岩(深度 32.65m~33.20m : BBDH10-14-Rh-041~043)は、やや強いスメクタイトのピークが見られ、石英の強いピークその他斜長石、斜プチロル沸石が見られる。

遠洋性堆積物(深度 33.20m~34.30m : BBDH10-14-Rh-044~046)は、赤色粘土岩に比べ斜長石の強いピークが見られ、その他は赤色粘土岩と同様に石英(強いピーク)、スメクタイト(やや強いピーク)、斜プチロル沸石が見られる。

基盤岩である Zambales オフィオライトは、上位から Brecciated mixed zone—自破碎玄武岩質のコアが確認でき、昨年度実施した DH08 と同様に変質が顕著な個所が多くみられる。ま

た、深度 38m から 39.2m 間には断層帯が存在し、コアに典型的な鏡面構造が見られる。

Brecciated mixed zone (深度 34.30m~38.00m : BBDH10-14-Rh-047~050) では、珪長質鉱物としては斜長石、石英と変質鉱物とみられるスメクタイト、沸石(斜プチロル沸石、十字沸石(ヒューランダイト))が見られる。

最下部の自破碎玄武岩(深度 38.00m~45.00m : BBDH10-14-Rh-051~057) では、上部の Brecciated mixed zone ではみられない、初生鉱物である苦鉄質(Mafic : マフィック)鉱物の班晶として単斜輝石のピークが明確である。また、斜長石に加えカリ長石もみられる。変質鉱物ではスメクタイト、沸石がみられるが、Brecciated mixed zone と異なり方沸石(アナルサイム)の強いピークがみられる。

またスライム試料の 6 試料 (BBDH10-14-Rh-001-2 を含めて 7 試料) は、概ね同様の傾向を示した。長石、石英、および、方解石の強いピークがあり、方沸石、角閃石の弱いピークが認められた。また、モンモリロナイトと緑泥石のピークが認められた。また、BBDH10-14-Rh-001-2 は、001 を 45 μm のふるいによる乾式分級で通過した細粒部分で、BBDH10-14-Rh-001-1 は不通過部分である。確認された鉱物種はふるい通過と不通過で変わらないが、通過分については方解石のピークが顕著になっていることがわかる。

表 2.3.1-2 XRD によるコア試料 (DH10 孔) の鉱物同定結果

試料名	粘土鉱物		雲母類	長石		沸石				輝石	シリカ鉱物		炭酸塩鉱物
	モンモリロナイト	ハロイサイト	雲母	斜長石	カリ長石	斜ブチロル沸石、 灰斜ブチロル沸石、 輝沸石	モルデン 沸石	方沸石	カリ十字 沸石	単斜輝石	石英	方珪石	方解石
	Montmorillonite	Halloysite	Mica	Plagioclase	K-feldspar	Clinoptilolite, Clinoptilolite-Ca, Heulandite	Mordenite	Analcime	Phillipsite-K	Clinopyroxene	Quartz	Cristobalite	Calcite
BBDH10-	001	△		△		△					△		◎
	002												◎
	003	△		△		△					△		◎
	004												◎
	005												◎
	006	△		△		△					△		◎
	007												◎
	008	△		△		△	△				△		◎
	010	△		△		△					△		◎
	012			○		△	△						◎
	013					◎	○						
	015	△		△		△					△		◎
	017			△		◎	○						○
	018			○		△	○						◎
	021	△		○		△	△				△		◎
	022			△		△	○						◎
	024-1	△	△	△		○					△		△
	024-2	△		△		△					△		◎
	025	△		○		△					○		◎
	026	△		△		△							◎
	028	△		△		△					△		◎
	029	△				△					△	△	◎
	033	△									△	△	◎
	034	△									△	△	◎
	036	△									△	△	◎
	037										△	△	◎
	038										△	△	◎
	039	△									△	△	◎
	040	△									△	△	◎
	041	○		△		△					◎		
	042	○		△		△					◎	△	
	043	○		△		△					○		
	044	○		◎		△					○		
	045	○		◎		△					◎		
	046	△		◎		△					◎		
	047	△		◎		△					○		
	048	△		◎		○					○		
	049	△		○		△			△		△		
	050	△		◎	△	△			△		△		
	051	△		◎						○			
	052	△		○	△			◎		○			△
	053	△		○	△			◎		○			
	054	△		△	△			◎		△			△
	055	△		△	△			◎		○			
	056	△		△	△			◎		△			○
	057	△		○				◎	△	△			

※ ◎:ピーク強度が非常に強い, ○:ピーク強度が強い, △:ピーク強度が弱い, 無印:ピークが確認できない
 ※※ 024-1:脈状に黒褐色を呈する部位, 024-2:白色の部位

表 2.3.1-3 XRD による試錐孔(DH10)のスライム試料の鉱物同定結果

試料名		粘土鉱物		長石	沸石		角閃石	シリカ鉱物	炭酸塩鉱物
		モンモリロナイト	緑泥石	斜長石	斜プチロル沸石、 灰斜プチロル沸石、 輝輝石	方沸石	角閃石	石英	方解石
		Montmorillonite	Clorite	Plagioclase	Clinoptilolite、 linoptilolite-Ca、 Heulandite	Analcite	Amphibole	Quartz	Calcite
BBDH10SL- 14-Rh-	001-1	△	△	◎	△	△	△	◎	△
	001-2	△	△	○	△	△		○	◎
	002	△	△	◎			△	◎	
	003	△	△	◎		△	△	◎	○
	004	△	△	○	△	△	△	◎	○
	005	△		△	△	△		△	○
	006	△	△	○	△	△	△	○	○

Drill Hole Number : DH-10 Core Size : NQ Total Footage : 44.75m				Mafic Minerals		Felsic Minerals		Silica Minerals		Clay Minerals		Zeolite Minerals					Carbonate Minerals		Opaque Minerals			Mica	Remarks
Depth (m)	Columnar Section	CR	RB	Sample Number (Sample Location)	OL	CPX	OPX	Feld.	Qz.	Crist.	Mont.	Hal.	Mor.	Heu.	Cl.	Phil.	Anal.	Cal.	Mag.	Mn.	Py.	Mica	
						Aug.	Hyp.	Plag.	K-Feld.														
0.4																							
0.7																							
1.0																							
2.0																							
2.4																							
3.0				BBDH10-14-Rh-001(●)	Rh-001			△		△			△					◎					
3.6																							
3.7																							
4.2																							
4.5																							
5.1																							
5.5				BBDH10-14-Rh-002																			
7.3				BBDH10-14-Rh-003(●)	Rh-003			△		△			△					◎					
7.65				BBDH10-14-Rh-004																			
9.6				BBDH10-14-Rh-006	Rh-006			△		△			△					◎					
10.0				BBDH10-14-Rh-007																			
10.0				BBDH10-14-Rh-008(●)	Rh-008			△		△			△					◎					
11.75				BBDH10-14-Rh-009																			
11.85				BBDH10-14-Rh-010(●)	Rh-010			△		△			△					◎					
12.54				BBDH10-14-Rh-011																			
12.56				BBDH10-14-Rh-012																			
14.15				BBDH10-14-Rh-013(●)																			
14.15				BBDH10-14-Rh-014																			
14.65				BBDH10-14-Rh-015(●)	Rh-015			△		△			△					◎					

* CR
 ** RB
 *** Sample N.....Rh : RWMC
 Minerals: OL.(Olivine), CPX.(Clinopyroxene), Diop.(Diopside), Aug.(augite), OPX.(Orthopyroxene), Hyp.(Hyperthene), Feld.(Feldspar), Plag.(Plagioclase), K-feld.(K-feldspar), Qz.(Quartz), Crist(Cristobalite), Mor.(Mordenite), Heu.(Heulandite), Cl.(Clinoptilolite), Phil.(Phillipsite), Anal.(Analcime), Mag.(Magnetite), Mn.(Mn-hydroxide), Py.(Pylite)

図 2.3.1-15 試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉱物組成 (DH10 孔(0~GL-15m), XRD)

Drill Hole Number : DH-10 Core Size : NQ Total Footage : 44.75m				Mafic Minerals			Felsic Minerals		Silica Minerals		Clay Minerals		Zeolite Minerals					Carbonate Minerals		Opaque Minerals			Mica	Remarks
Depth (m)	Columnar Section	CR	RB	Sample Number (Sample Location)	OL	CPX	OPX	Feld.		Qz.	Crist.	Sm.	Kaol.	Mor.	Heu.	Cl.	Phil.	Anal.	Cal.	Mag.	Mn.	Py.	Mica	
						Aug.	Hyp.	Plag.	K-Feld.			Mont.	Hal.											
15.15				BBDH10-14-Rh-016																				
15.35				BBDH10-14-Rh-017																				
16.0				BBDH10-14-Rh-018																				
17.0																								
17.65				BBDH10-14-Rh-019																				
18.41																								
18.43																								
19.0				BBDH10-14-Rh-020																				
19.17				BBDH10-14-Rh-021 (●)	Rh-021			○		△		△		△		△			◎				△(1)	
19.27				BBDH10-14-Rh-022																				
19.28				BBDH10-14-Rh-023																				
21.82				BBDH10-14-Rh-024 (●)	Rh-024-1,2			△(2)		△		△	△(1)			O(1)△(2)			△(1)◎(2)					
21.9																								
22.15				BBDH10-14-Rh-025 (●)	Rh-025			○		○		△				△			◎					
22.33																								
22.85																								
23.7				BBDH10-14-Rh-026 (●)	Rh-026			△				△				△			◎					
25.1				BBDH10-14-Rh-027																				
25.2																								
26.0				BBDH10-14-Rh-028 (●)	Rh-028			△		△		△				△			◎					
26.0				BBDH10-14-Rh-029 (●)	Rh-029					△	△	△				△			◎					
27.0				BBDH10-14-Rh-030																				
28.0				BBDH10-14-Rh-031																				
28.0				BBDH10-14-Rh-032																				
28.0				BBDH10-14-Rh-033 (●)	Rh-033					△	△	△							◎					
28.0				BBDH10-14-Rh-034 (●)	Rh-034					△	△	△							◎					
28.0				BBDH10-14-Rh-035																				
28.85				BBDH10-14-Rh-036 (●)	Rh-036					△	△	△							◎					
29.05				BBDH10-14-Rh-037 (●)	Rh-037					△	△								◎					

* CR
 ** RB
 *** Sample N.....Rh : RWMC

Minerals: OL.(Olivine), CPX.(Clinopyroxene), Diop.(Diopside), Aug.(augite), OPX.(Orthopyroxene), Hyp.(Hyperthene), Feld.(Feldspar), Plag.(Plagioclase), K-feld.(K-feldspar), Qz.(Quarz), Crist(Cristobalite), Mor.(Mordenite), Heu.(Heulandite), Cl.(Clinoptilolite), Phil.(Phillipsite), Anal.(Analcime), Mag.(Magnetite), Mn.(Mn-hydroxide), Py.(Pylite)

図 2.3.1-16 試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉱物組成 (DH10 孔(GL-15m~30m), XRD)

Drill Hole Number : DH-10 Core Size : NQ Total Footage : 44.75m				Mafic Minerals			Felsic Minerals		Silica Minerals		Clay Minerals		Zeolite Minerals					Carbonate Minerals		Opaque Minerals			Mica	Remarks
Depth (m)	Columnar Section	CR	RB	Sample Number (Sample Location)	OL	CPX	OPX	Feld.		Qz.	Crist.	Sm.	Kaol.	Mor.	Heu.	Cl.	Phil.	Anal.	Cal.	Mag.	Mn.	Py.	Mica	
						Aug.	Hyp.	Plag.	K-Feld.			Mont.	Hal.											
31				BBDH10-14-Rh-038 (●) Rh-038						△	△								◎					BBDH10SL-14-Rh-001-01 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite △
32				BBDH10-14-Rh-039 (●) Rh-039						△	△	△							◎					BBDH10SL-14-Rh-001-02 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite △
33				BBDH10-14-Rh-040 (●) Rh-040						△	△	△							◎					BBDH10SL-14-Rh-001-02 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite △
				BBDH10-14-Rh-041 (●) Rh-041				△		◎		○												BBDH10SL-14-Rh-002 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Amphibole △ Quartz ◎
				BBDH10-14-Rh-042 (●) Rh-042				△		◎	△	○												BBDH10SL-14-Rh-002 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Amphibole △ Quartz ◎
				BBDH10-14-Rh-043 (●) Rh-043				△		◎		○												BBDH10SL-14-Rh-002 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Amphibole △ Quartz ◎
				BBDH10-14-Rh-044 (●) Rh-044				△		◎		○												BBDH10SL-14-Rh-002 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Amphibole △ Quartz ◎
34				BBDH10-14-Rh-045 (●) Rh-045				◎		◎		○												BBDH10SL-14-Rh-002 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Amphibole △ Quartz ◎
				BBDH10-14-Rh-046 (●) Rh-046				◎		◎		△												BBDH10SL-14-Rh-002 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Amphibole △ Quartz ◎
				BBDH10-14-Rh-047 (●) Rh-047				◎		◎		△												BBDH10SL-14-Rh-002 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Amphibole △ Quartz ◎
35				BBDH10-14-Rh-048 (●) Rh-048				◎		○		△												BBDH10SL-14-Rh-002 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Amphibole △ Quartz ◎
36																								BBDH10SL-14-Rh-003 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite ○
37																								BBDH10SL-14-Rh-003 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite ○
				BBDH10-14-Rh-049 (●) Rh-049				○		△		△												BBDH10SL-14-Rh-004 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite ○
38				BBDH10-14-Rh-050 (●) Rh-050				◎	△	△		△												BBDH10SL-14-Rh-004 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite ○
				BBDH10-14-Rh-051 (●) Rh-051				◎				△												BBDH10SL-14-Rh-004 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite ○
39																								BBDH10SL-14-Rh-005 Montmorillonite △ Plagioclase △ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite ○
40				BBDH10-14-Rh-052 (●) Rh-052				○	△			△							◎					BBDH10SL-14-Rh-005 Montmorillonite △ Plagioclase △ Clinoptilolite △ Analcime △ Quartz △ Calcite ○
				BBDH10-14-Rh-053 (●) Rh-053				○	△			△							◎					BBDH10SL-14-Rh-005 Montmorillonite △ Plagioclase △ Clinoptilolite △ Analcime △ Quartz △ Calcite ○
41				BBDH10-14-Rh-054 (●) Rh-054				△	△			△							◎					BBDH10SL-14-Rh-006 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite ○
42																								BBDH10SL-14-Rh-006 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite ○
43				BBDH10-14-Rh-055 (●) Rh-055				○	△			△							◎					BBDH10SL-14-Rh-006 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite ○
44				BBDH10-14-Rh-056 (●) Rh-056				△	△			△							◎					BBDH10SL-14-Rh-006 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite ○
45				BBDH10-14-Rh-057 (●) Rh-057				△	○			△							◎					BBDH10SL-14-Rh-006 Montmorillonite △ Clorite △ Plagioclase ◎ Clinoptilolite △ Analcime △ Amphibole △ Quartz ◎ Calcite ○

* CR Minerals: OL.(Olivine), CPX.(Clinopyroxene), Diop.(Diopside), Aug.(augite), OPX.(Orthopyroxene), Hyp.(Hyperthene), Feld.(Feldspar), Plag.(Plagioclase),
 ** RB K-feld.(K-feldspar), Qz.(Quarz), Crist(Cristobalite), Mor.(Mordenite), Heu.(Heulandite), Cl.(Clinoptilolite), Phil.(Phillipsite), Anal.(Analcime)
 *** Sample N.....Rh : RWMC Mag.(Magnetite), Mn.(Mn-hydroxide), Py.(Pyrite)

図 2.3.1-17 試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉱物組成 (DH10 孔(GL-30m~45m), XRD)

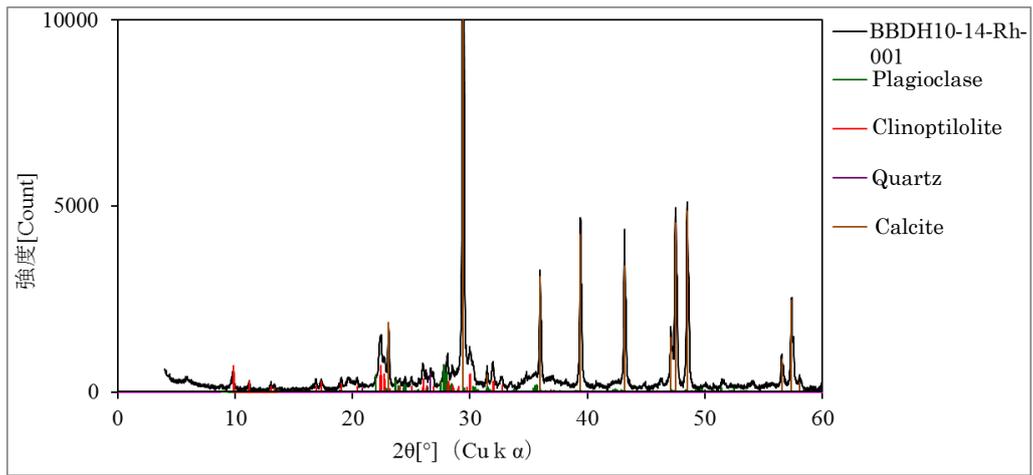


図 2.3.1-18 BBDH10-14-Rh-001 の粉末 XRD パターン

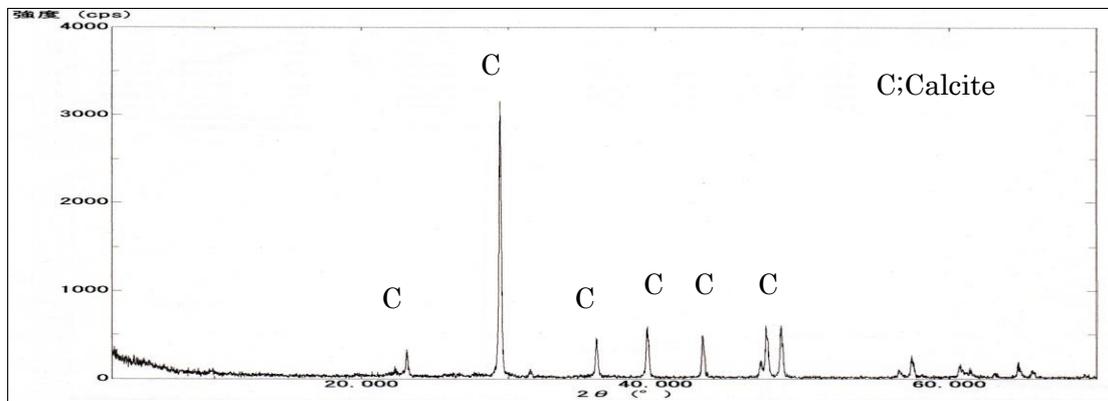


図 2.3.1-19 BBDH10-14-Rh-002 の粉末 XRD パターン

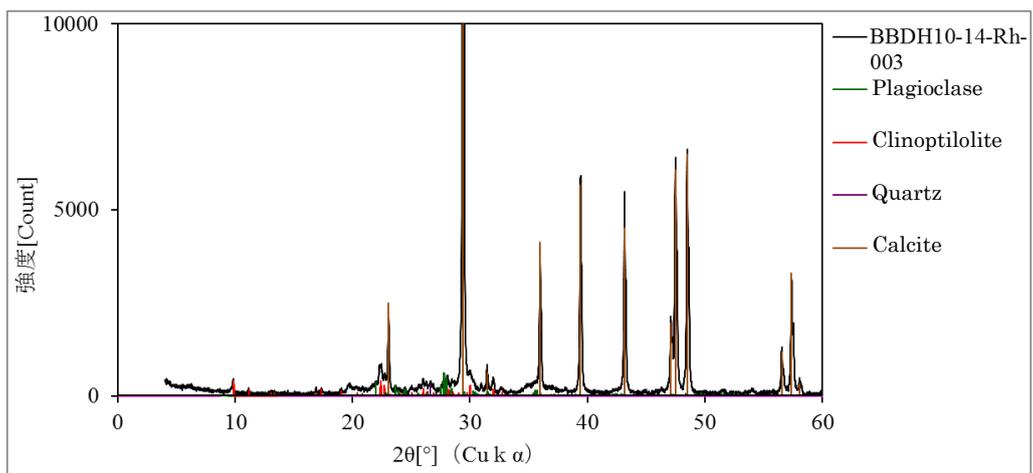


図 2.3.1-20 BBDH10-14-Rh-003 の粉末 XRD パターン

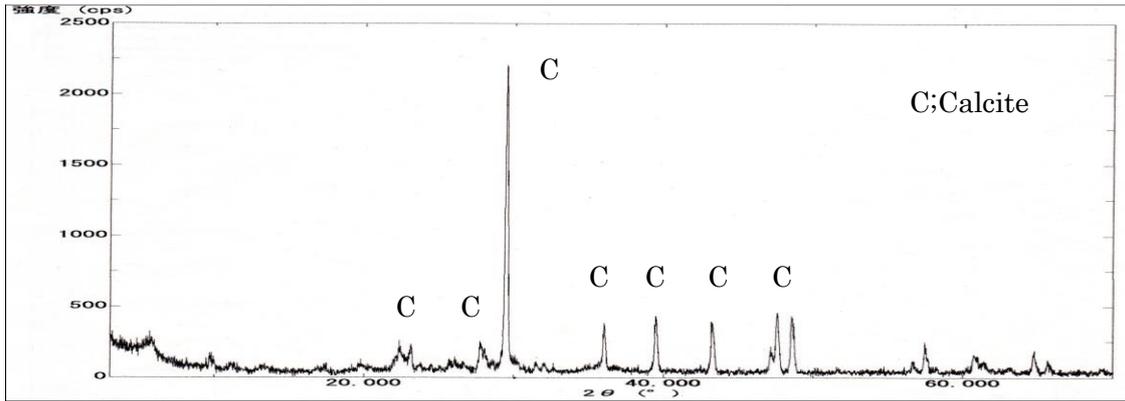


図 2.3.1-21 BBDH10-14-Rh-004 の粉末 XRD パターン

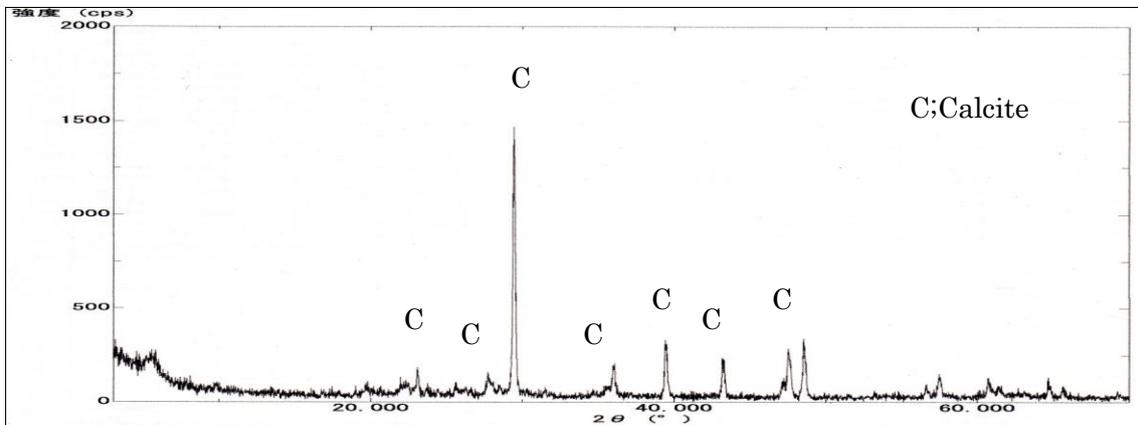


図 2.3.1-22 BBDH10-14-Rh-005 の粉末 XRD パターン

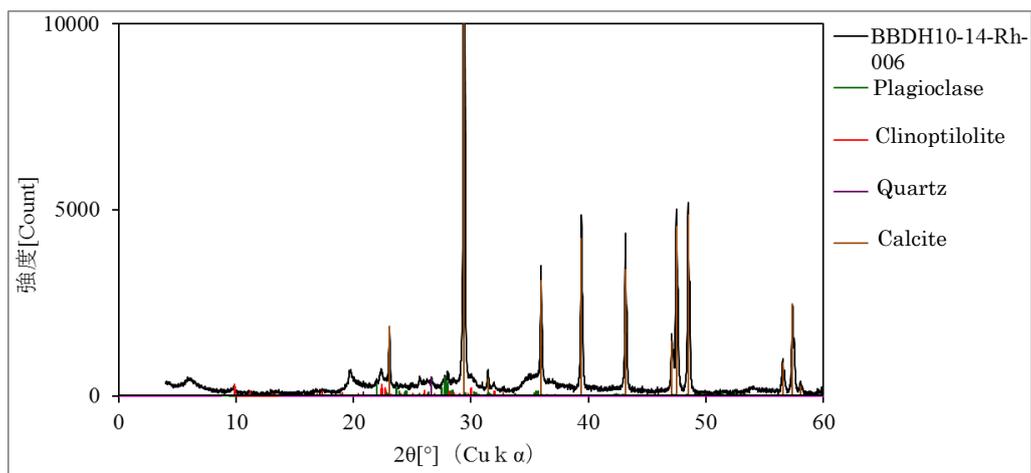


図 2.3.1-23 BBDH10-14-Rh-006 の粉末 XRD パターン

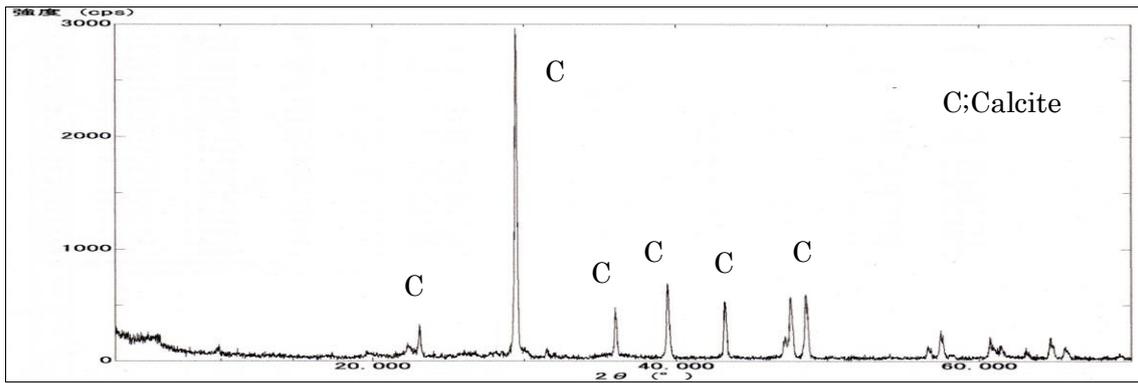


図 2.3.1-24 BBDH10-14-Rh-007 の粉末 XRD パターン

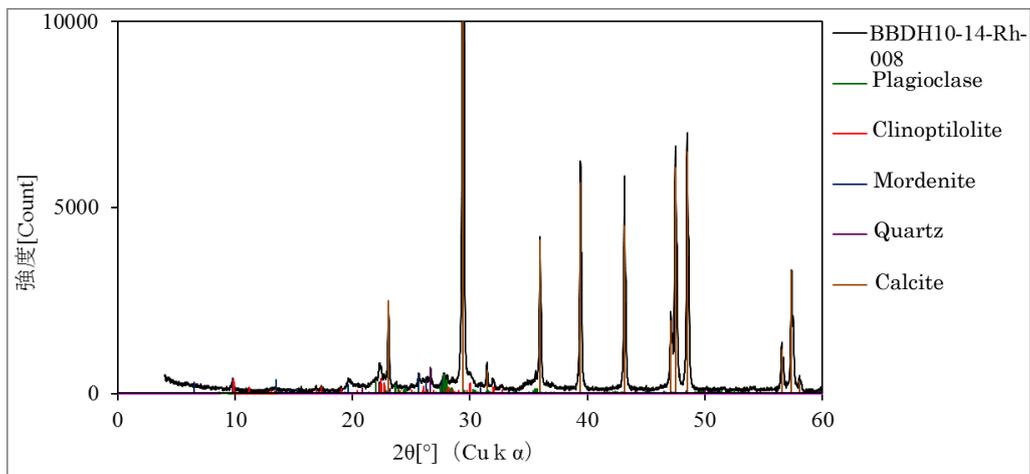


図 2.3.1-25 BBDH10-14-Rh-008 の粉末 XRD パターン

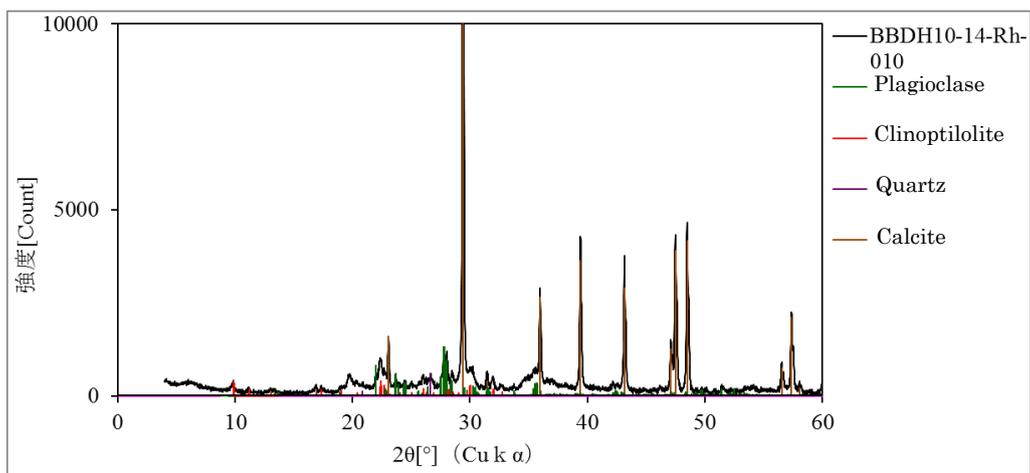


図 2.3.1-26 BBDH10-14-Rh-010 の粉末 XRD パターン

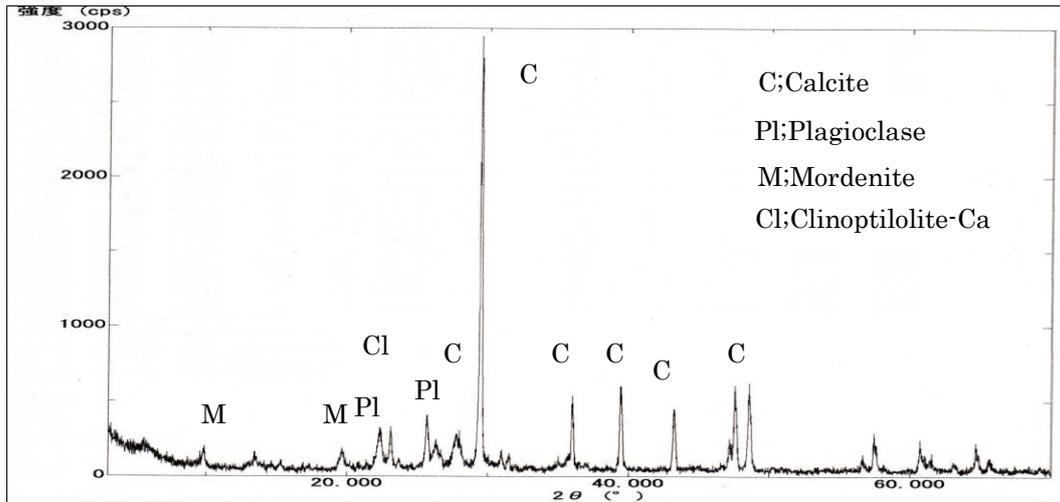


図 2.3.1-27 BBDH10-14-Rh-012 の粉末 XRD パターン

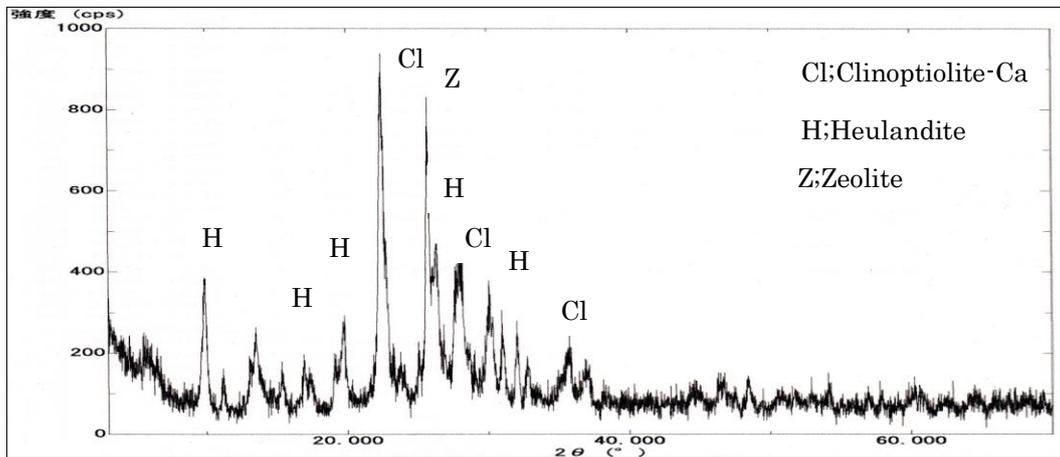


図 2.3.1-28 BBDH10-14-Rh-013 の粉末 XRD パターン

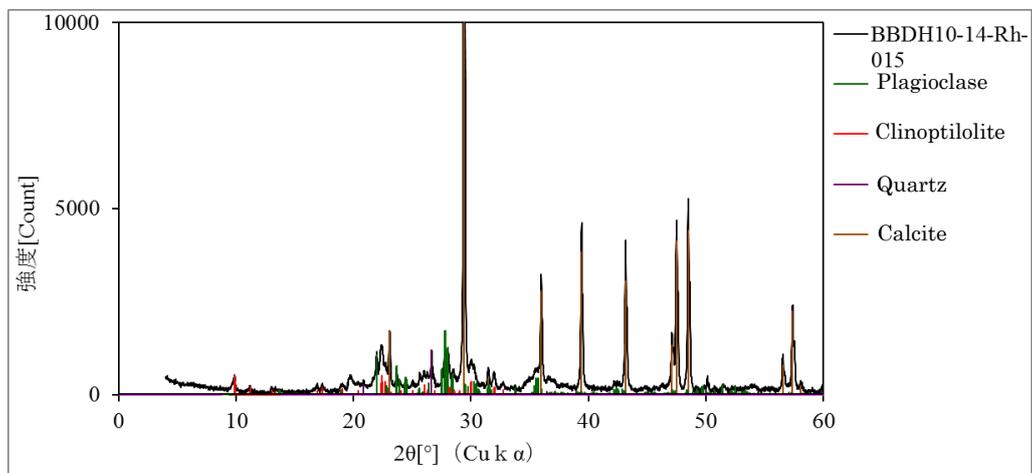


図 2.3.1-29 BBDH10-14-Rh-015 の粉末 XRD パターン

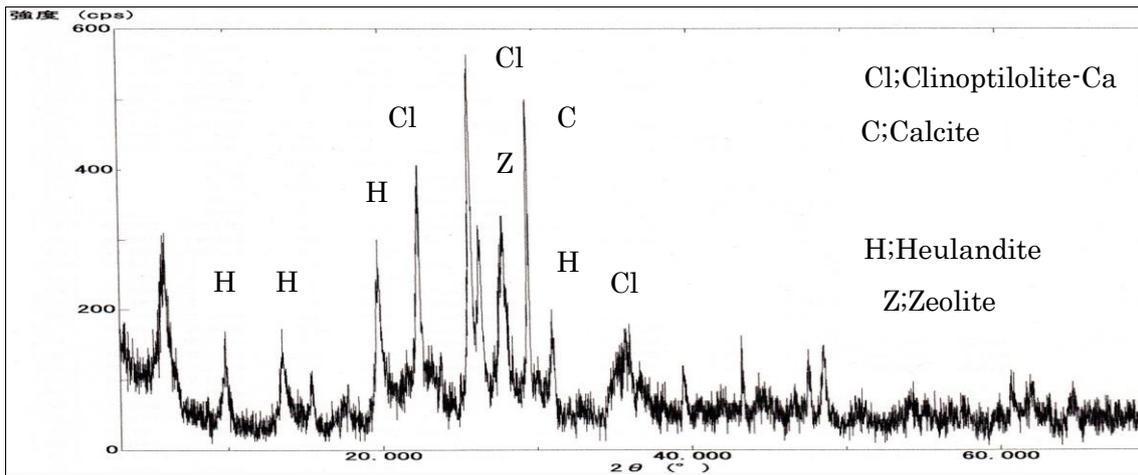


図 2.3.1-30 BBDH10-14-Rh-017 の粉末 XRD パターン

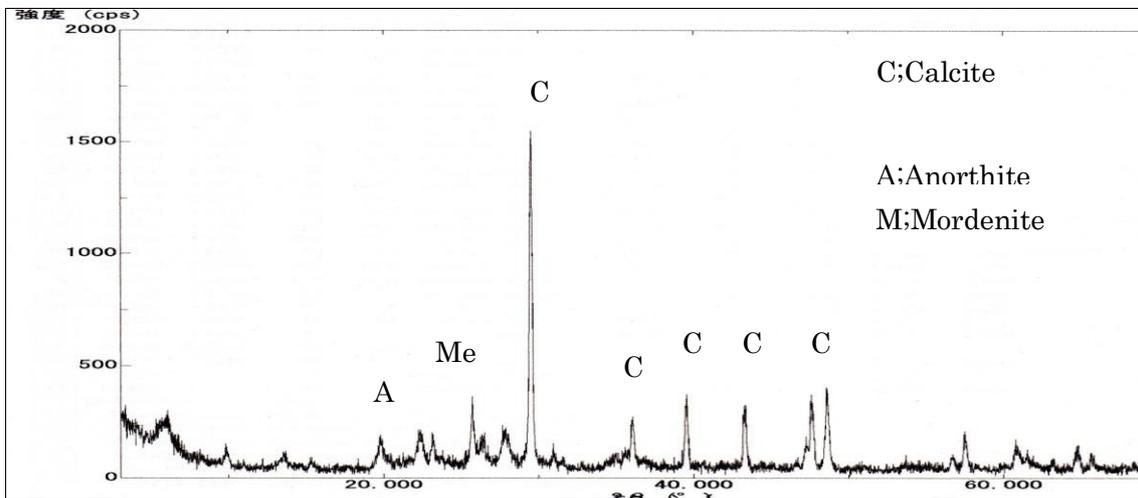


図 2.3.1-31 BBDH10-14-Rh-018 の粉末 XRD パターン

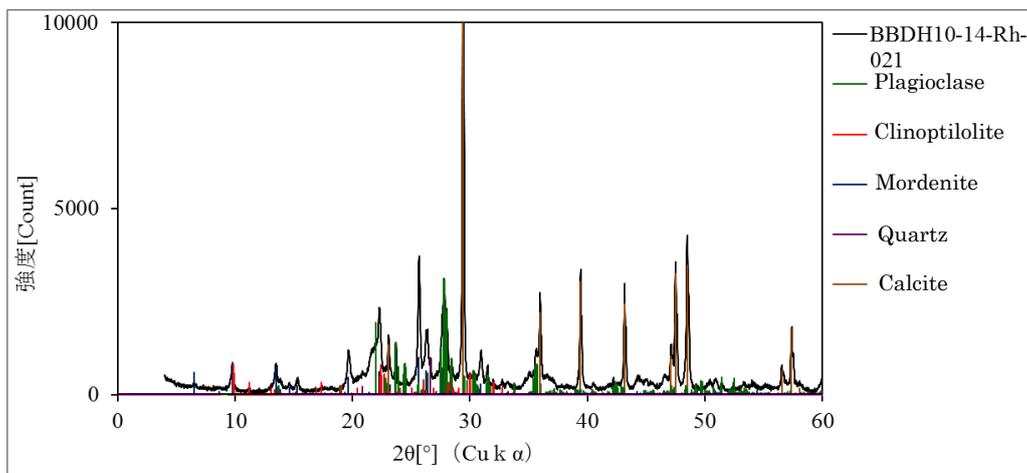


図 2.3.1-32 BBDH10-14-Rh-021 の粉末 XRD パターン

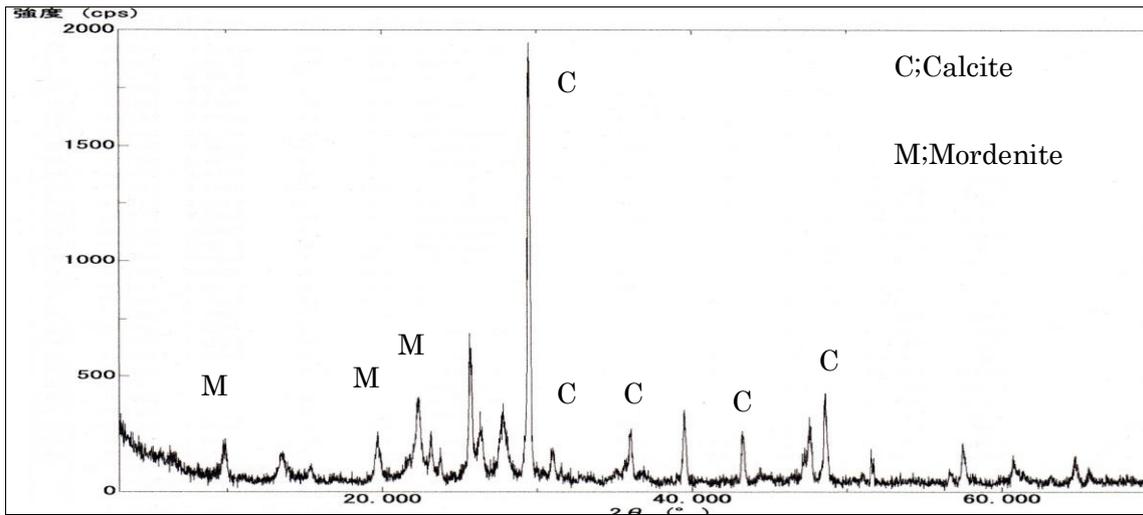


図 2.3.1-33 BBDH10-14-Rh-022 の粉末 XRD パターン

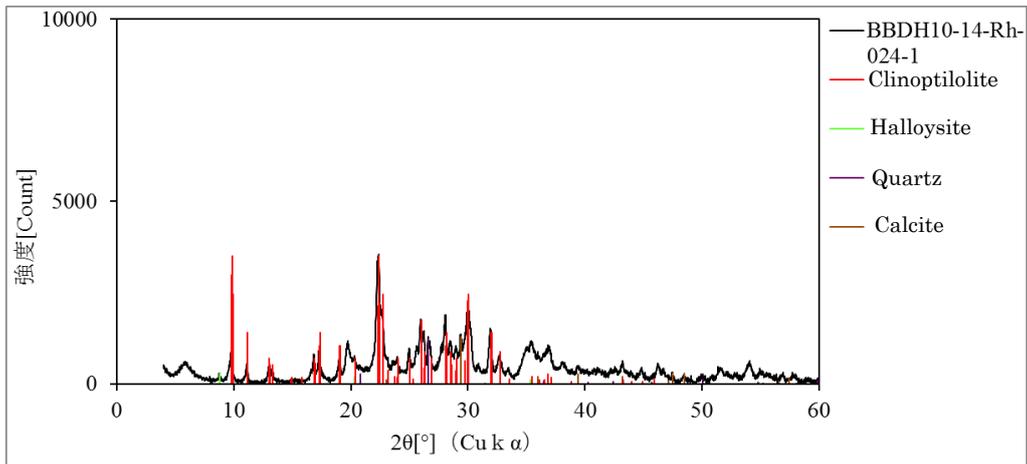


図 2.3.1-34 BBDH10-14-Rh-024-1 の粉末 XRD パターン

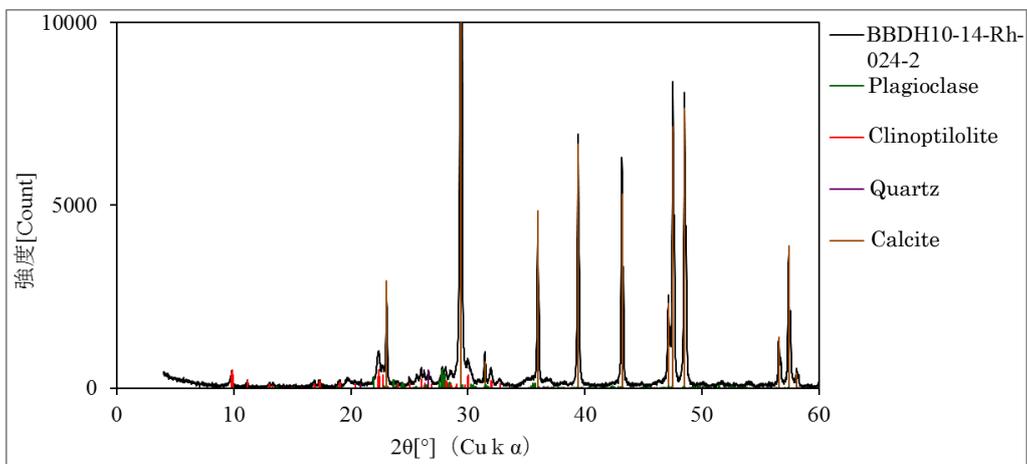


図 2.3.1-35 BBDH10-14-Rh-024-2 の粉末 XRD パターン

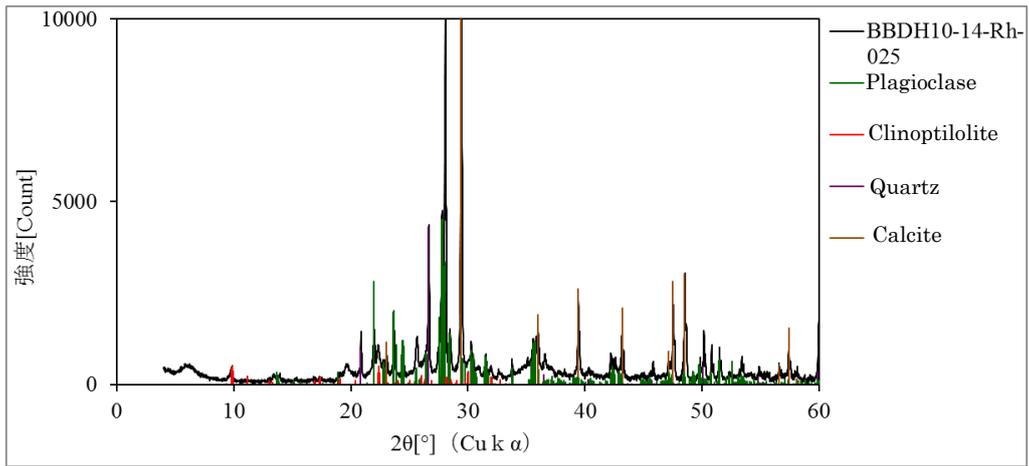


図 2.3.1-36 BBDH10-14-Rh-025 の粉末 XRD パターン

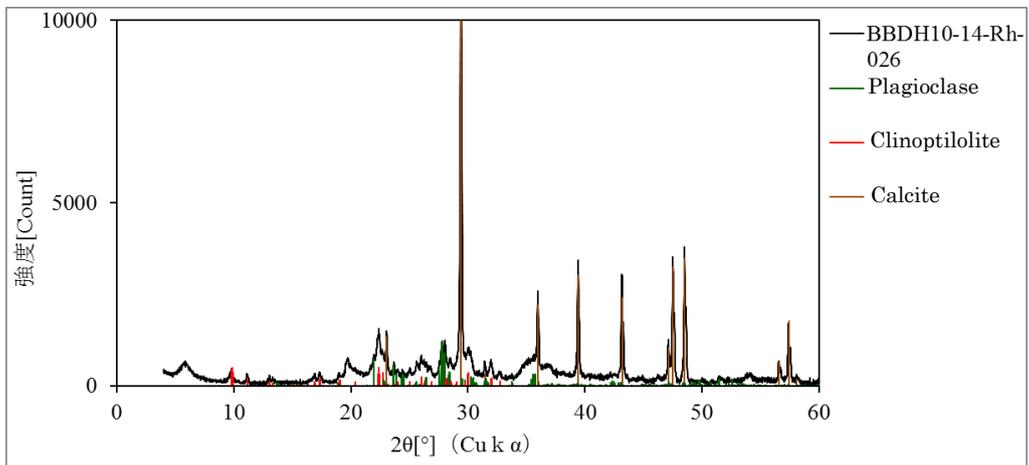


図 2.3.1-37 BBDH10-14-Rh-026 の粉末 XRD パターン

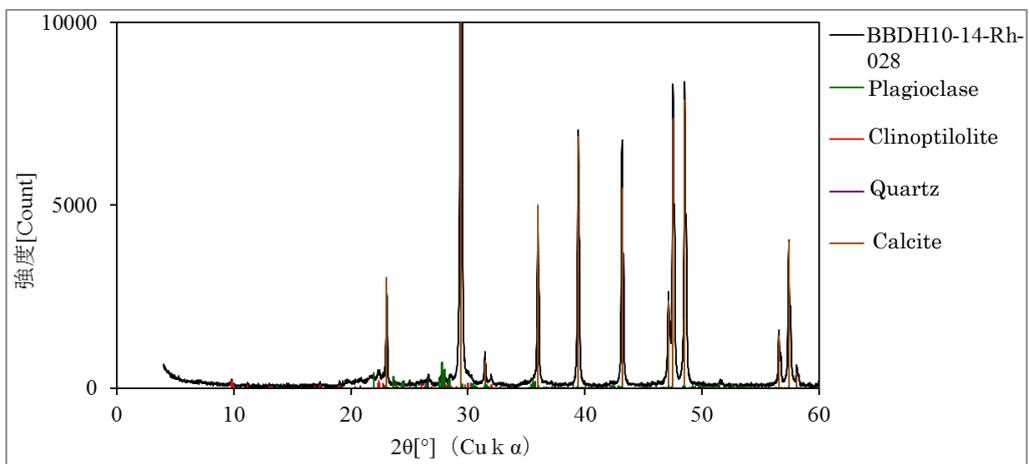


図 2.3.1-38 BBDH10-14-Rh-028 の粉末 XRD パターン

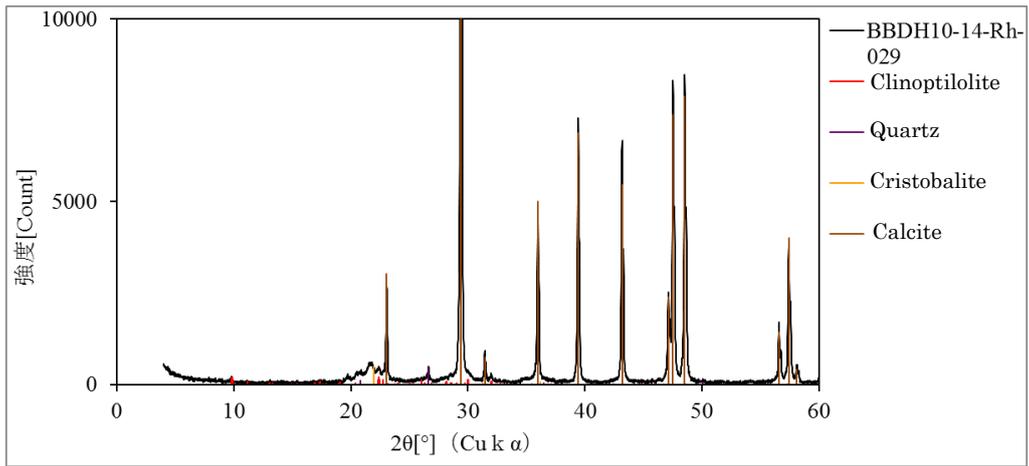


図 2.3.1-39 BBDH10-14-Rh-029 の粉末 XRD パターン

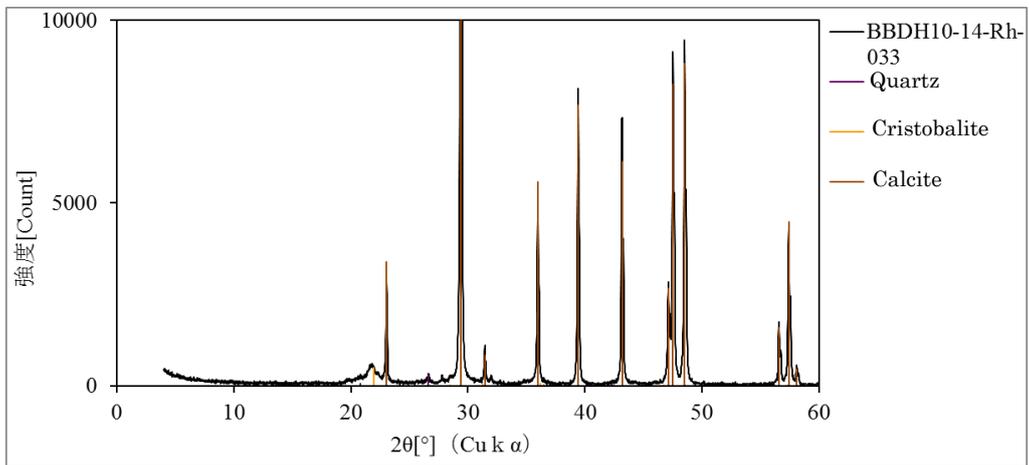


図 2.3.1-40 BBDH10-14-Rh-033 の粉末 XRD パターン

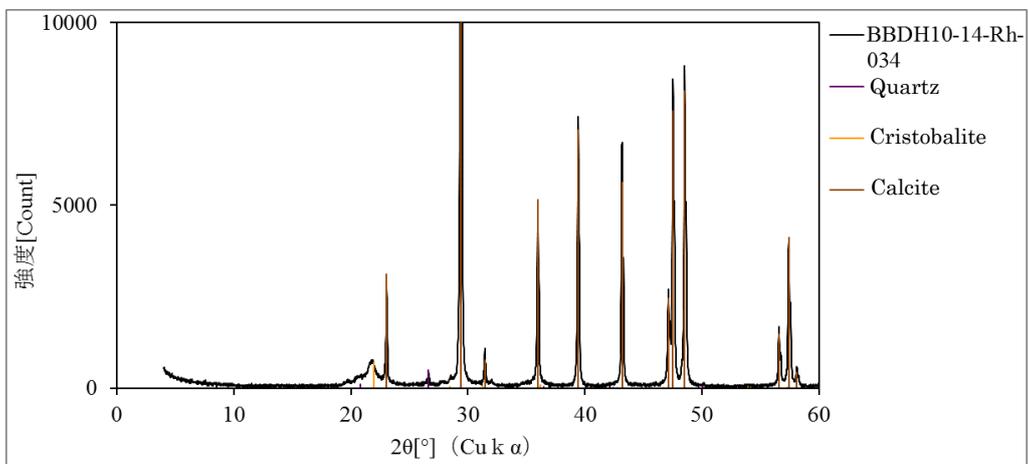


図 2.3.1-41 BBDH10-14-Rh-034 の粉末 XRD パターン

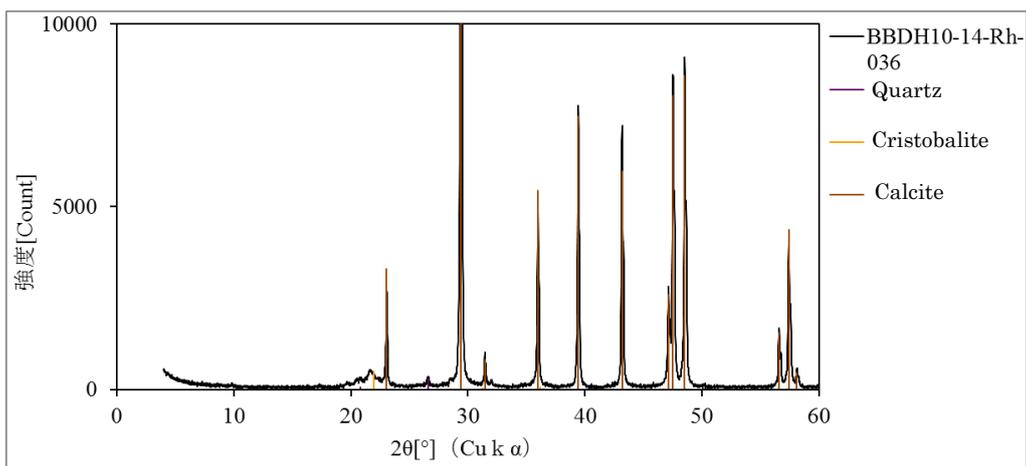


図 2.3.1-42 BBDH10-14-Rh-036 の粉末 XRD パターン

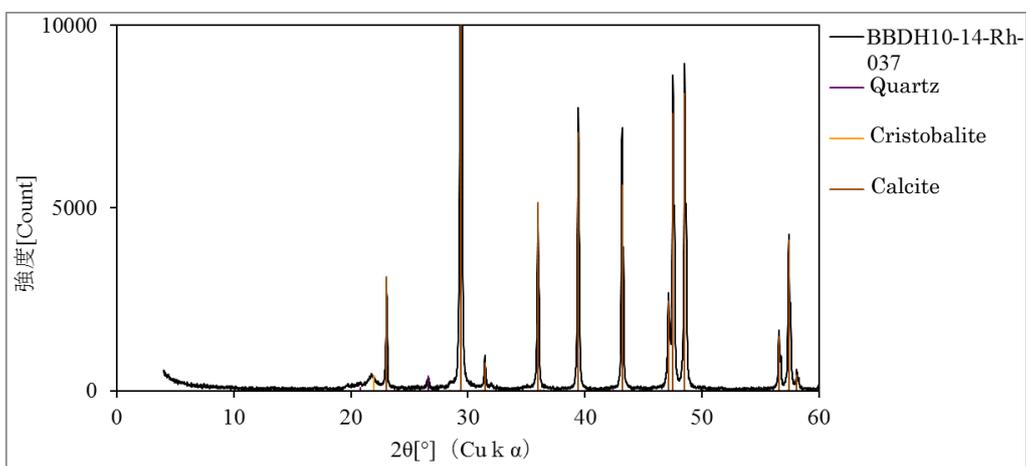


図 2.3.1-43 BBDH10-14-Rh-037 の粉末 XRD パターン

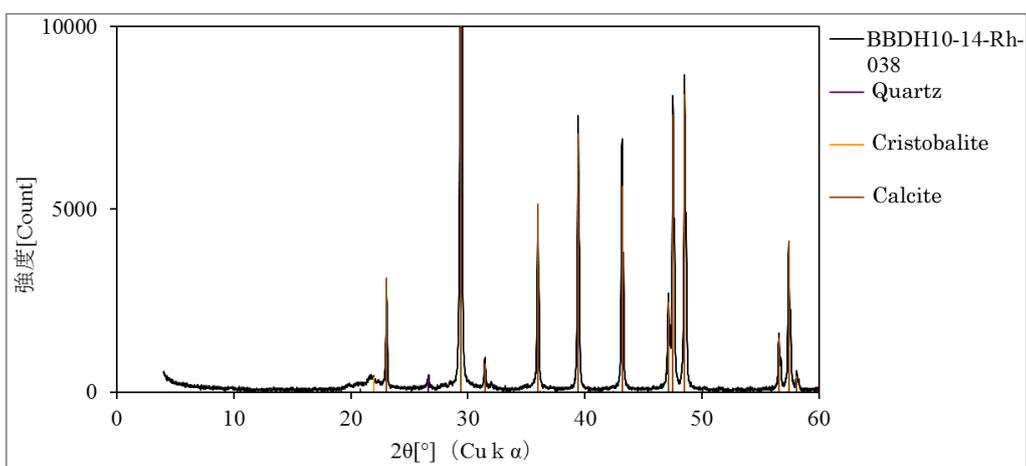


図 2.3.1-44 BBDH10-14-Rh-038 の粉末 XRD パターン

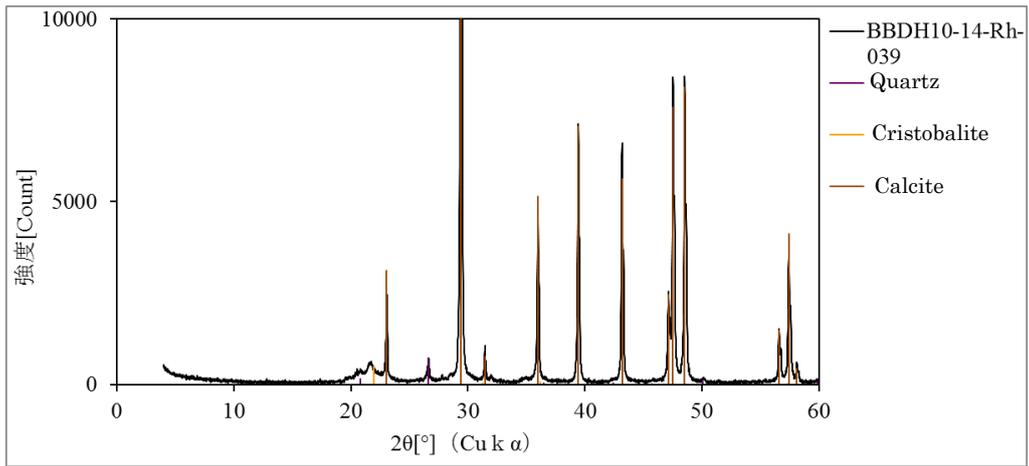


図 2.3.1-45 BBDH10-14-Rh-039 の粉末 XRD パターン

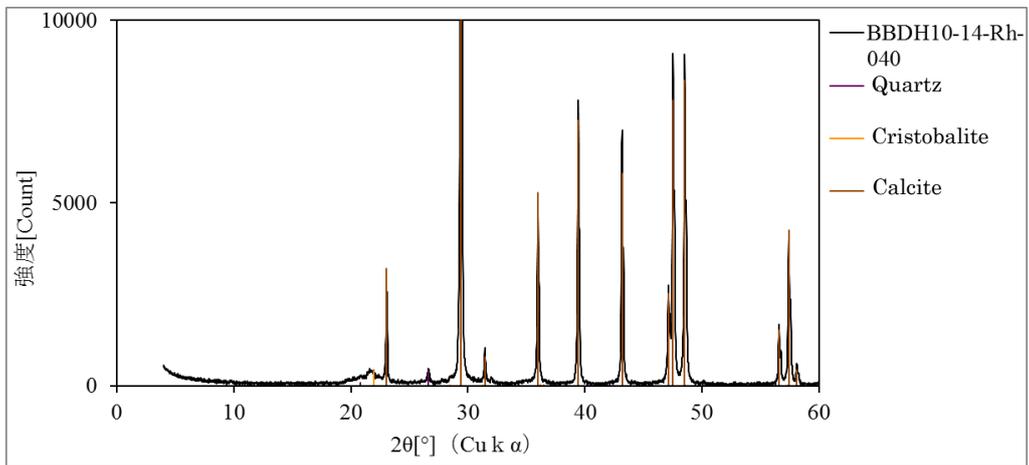


図 2.3.1-46 BBDH10-14-Rh-040 の粉末 XRD パターン

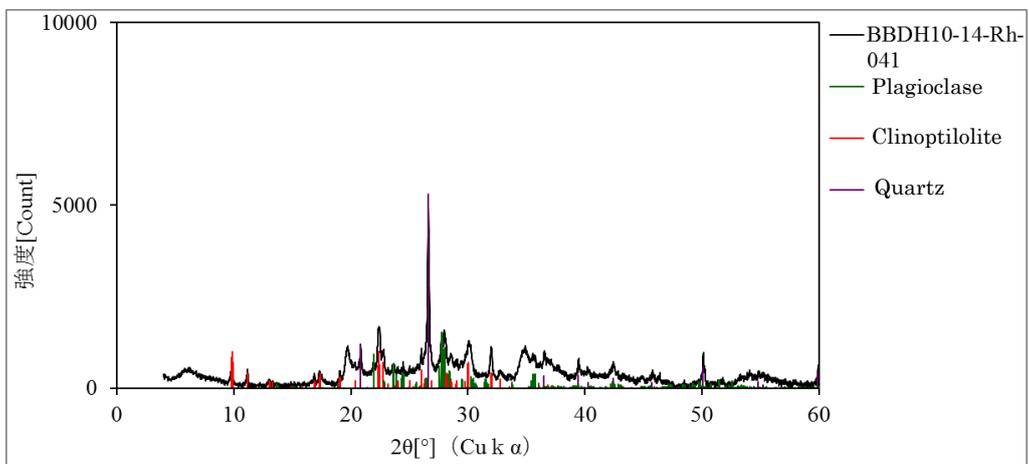


図 2.3.1-47 BBDH10-14-Rh-041 の粉末 XRD パターン

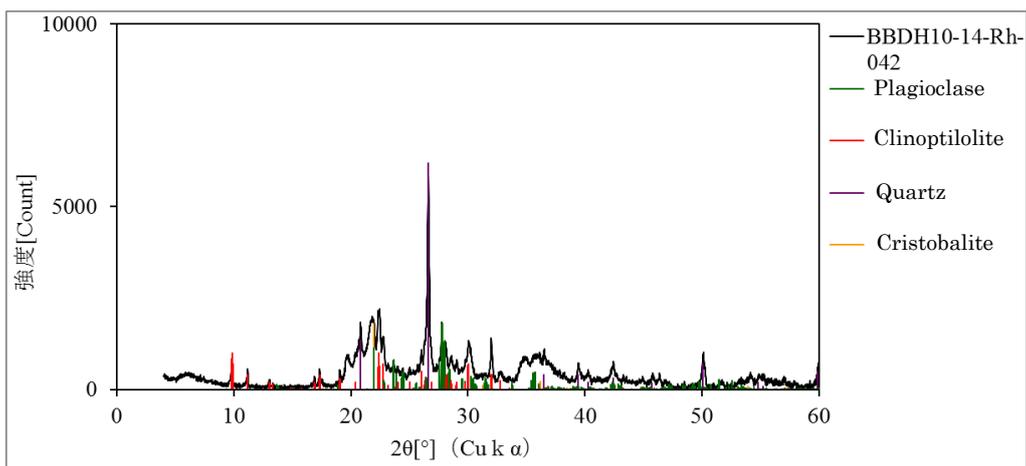


図 2.3.1-48 BBDH10-14-Rh-042 の粉末 XRD パターン

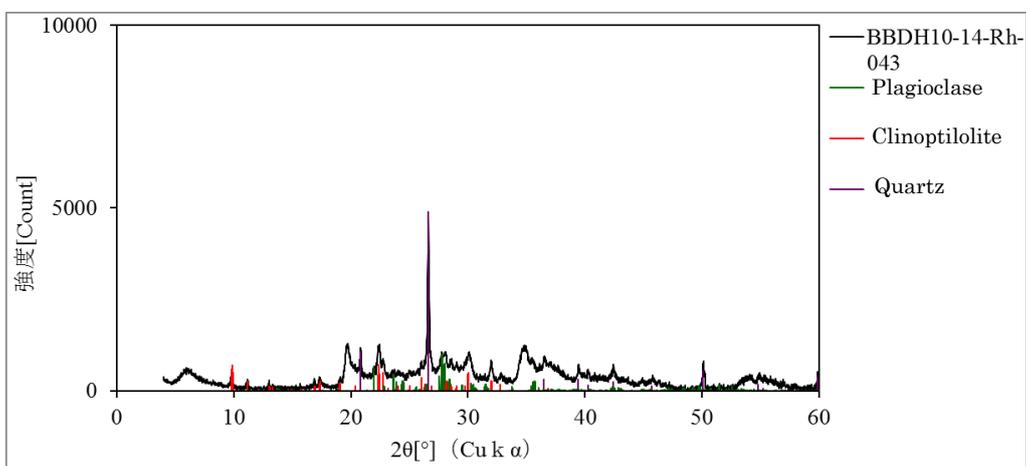


図 2.3.1-49 BBDH10-14-Rh-043 の粉末 XRD パターン

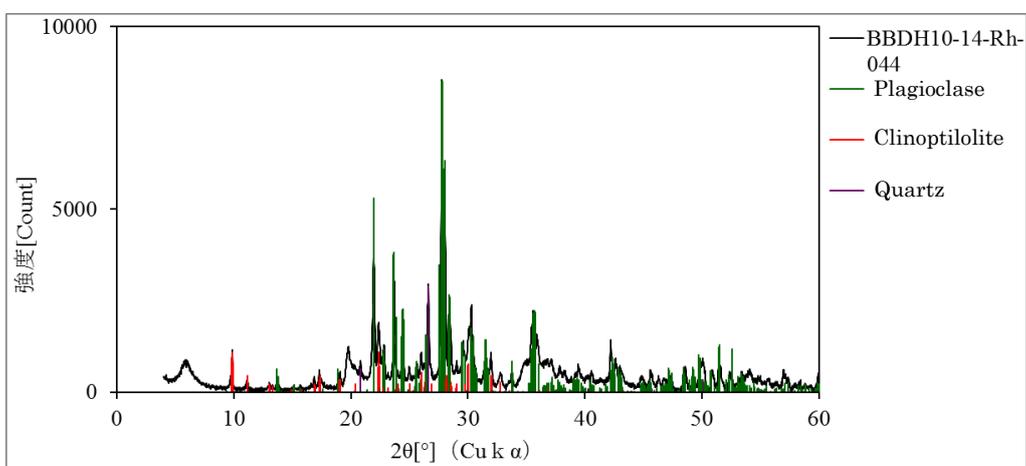


図 2.3.1-50 BBDH10-14-Rh-044 の粉末 XRD パターン

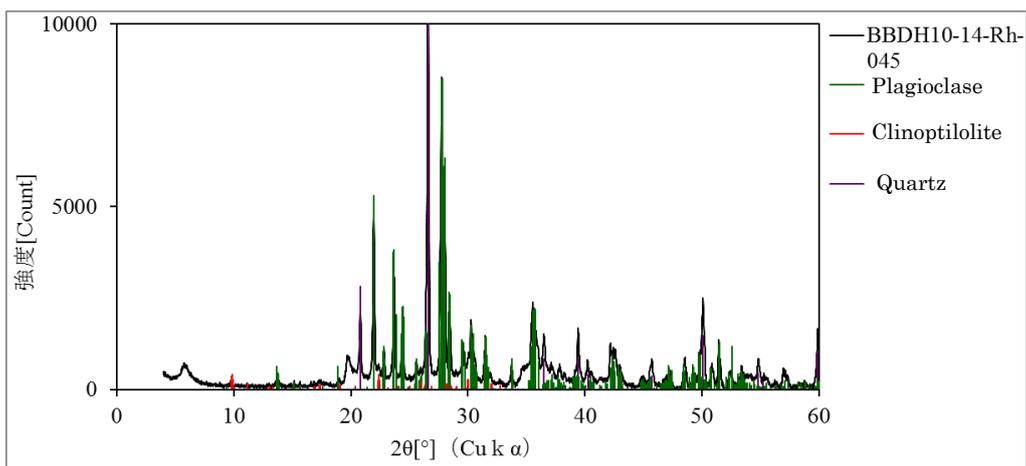


図 2.3.1-51 BBDH10-14-Rh-045 の粉末 XRD パターン

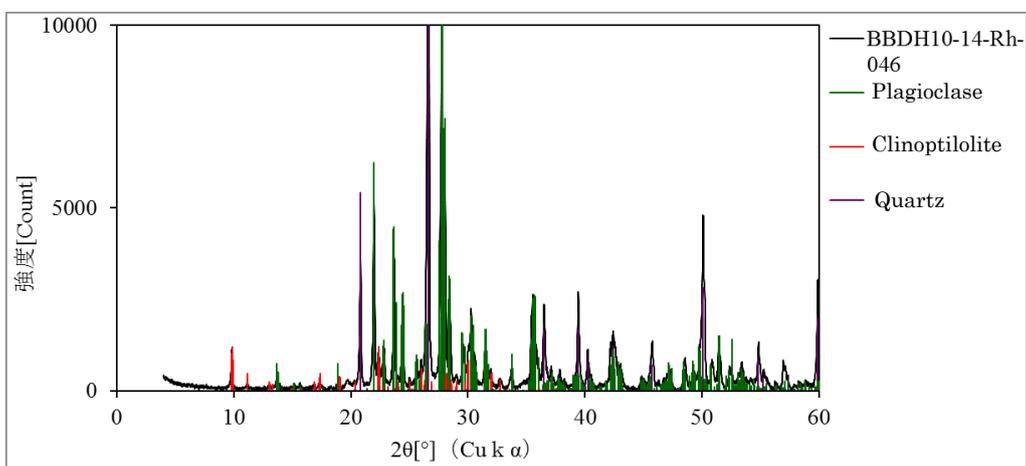


図 2.3.1-52 BBDH10-14-Rh-046 の粉末 XRD パターン

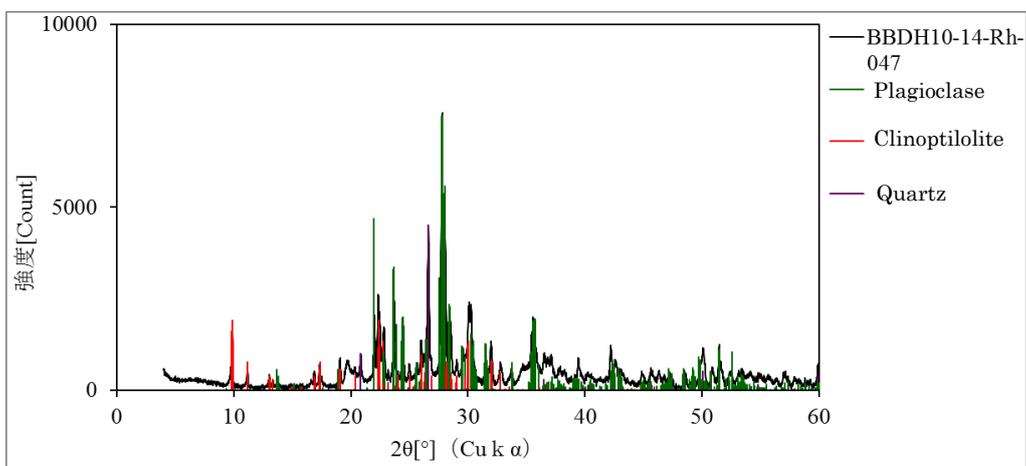


図 2.3.1-53 BBDH10-14-Rh-047 の粉末 XRD パターン

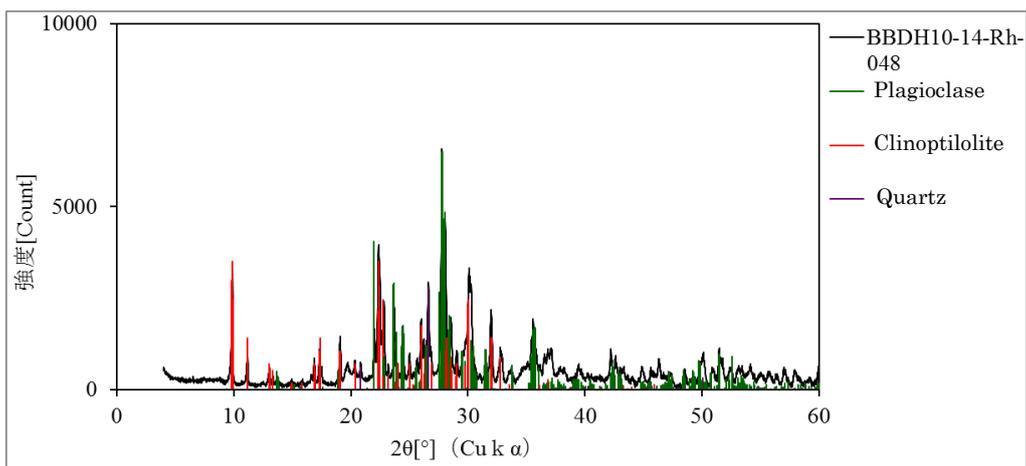


図 2.3.1-54 BBDH10-14-Rh-048 の粉末 XRD パターン

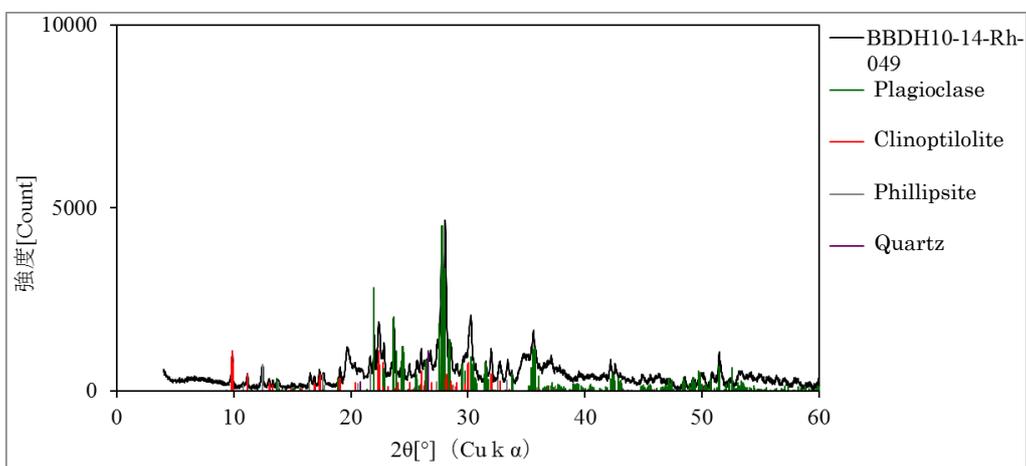


図 2.3.1-55 BBDH10-14-Rh-049 の粉末 XRD パターン

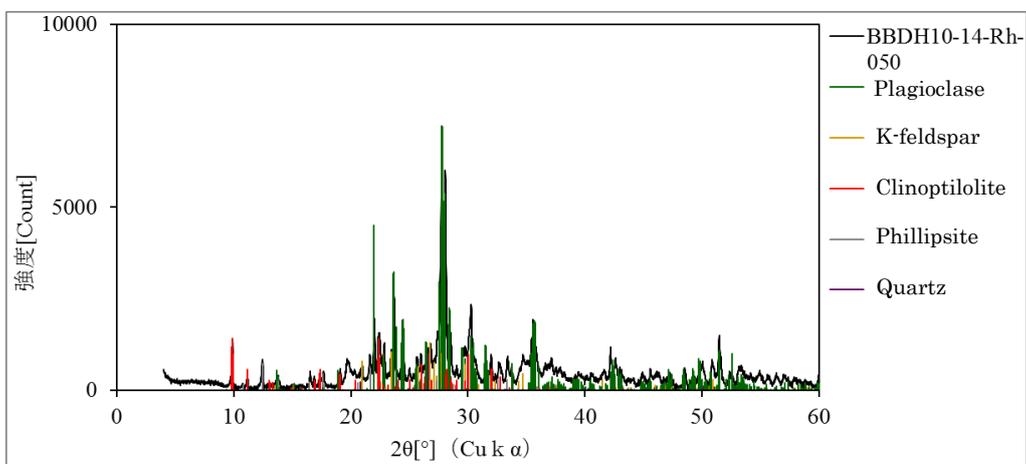


図 2.3.1-56 BBDH10-14-Rh-050 の粉末 XRD パターン

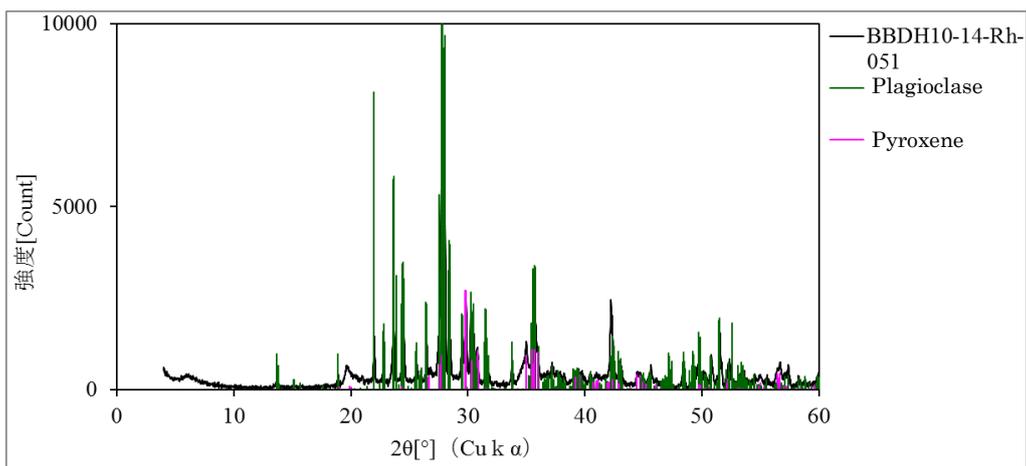


図 2.3.1-57 BBDH10-14-Rh-051 の粉末 XRD パターン

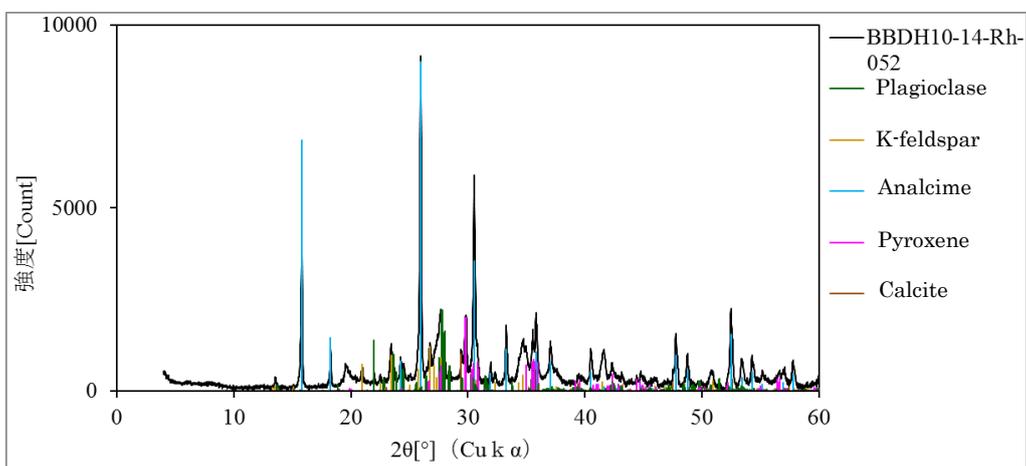


図 2.3.1-58 BBDH10-14-Rh-052 の粉末 XRD パターン

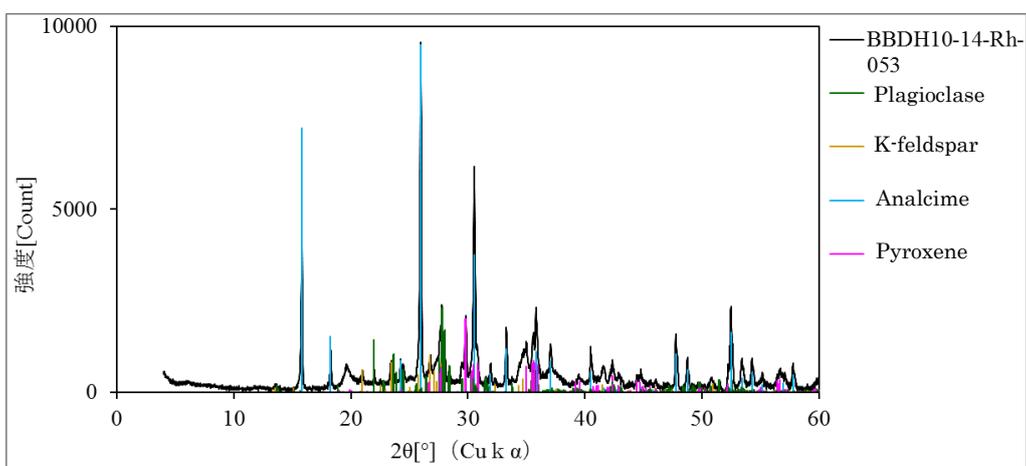


図 2.3.1-59 BBDH10-14-Rh-053 の粉末 XRD パターン

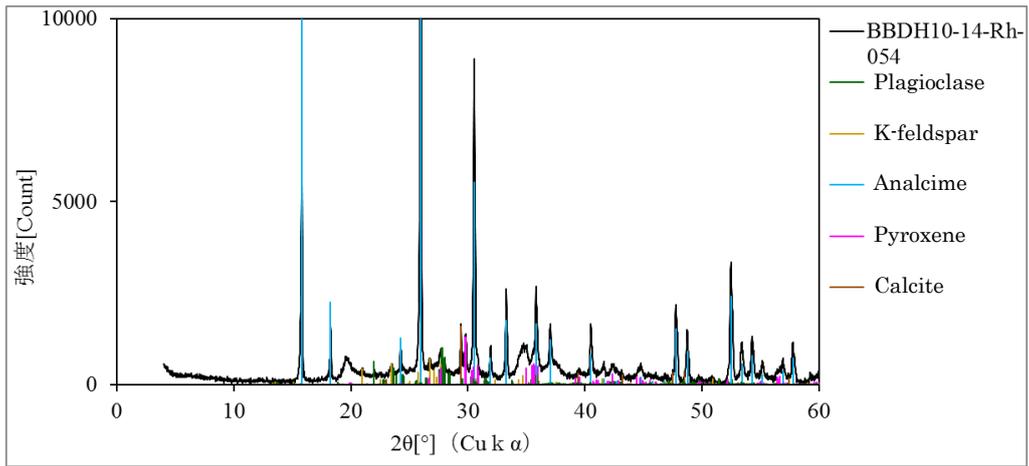


図 2.3.1-60 BBDH10-14-Rh-054 の粉末 XRD パターン

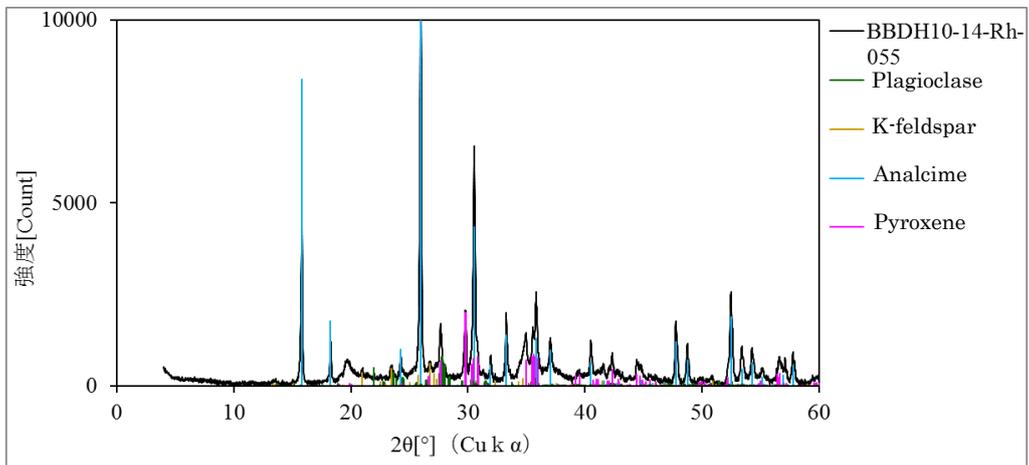


図 2.3.1-61 BBDH10-14-Rh-055 の粉末 XRD パターン

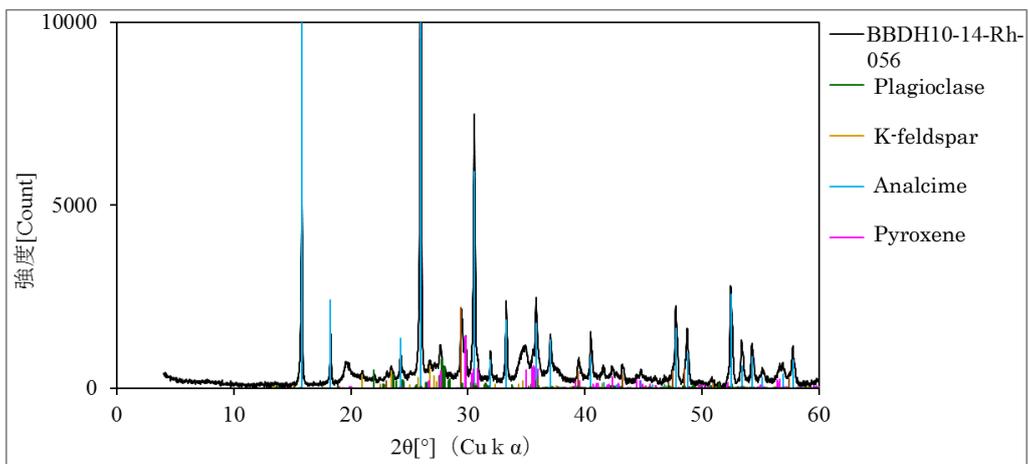


図 2.3.1-62 BBDH10-14-Rh-056 の粉末 XRD パターン

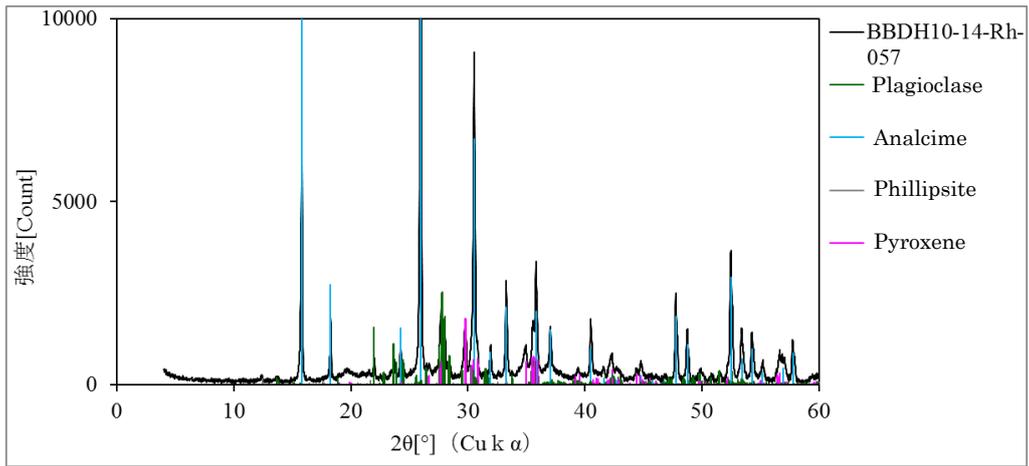


図 2.3.1-63 BBDH10-14-Rh-057 の粉末 XRD パターン

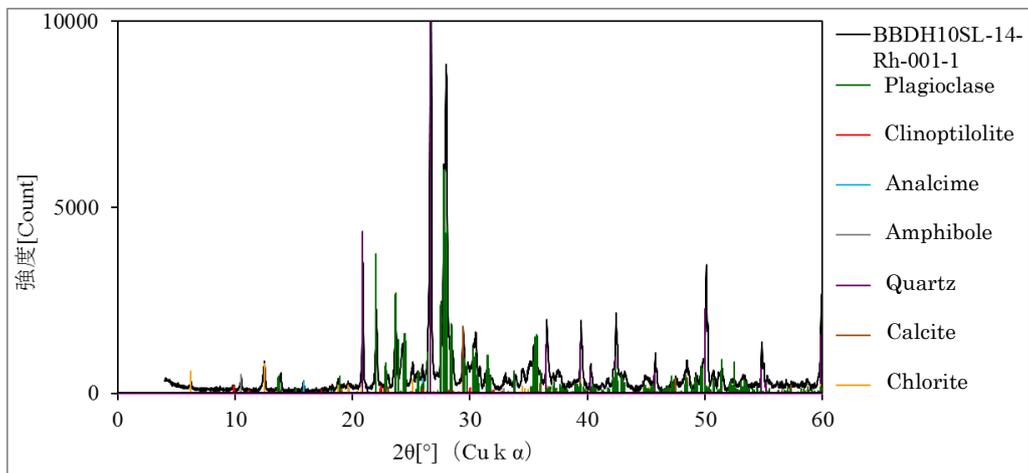


図 2.3.1-64 BBDH10SL-14-Rh-001-1 の粉末 XRD パターン

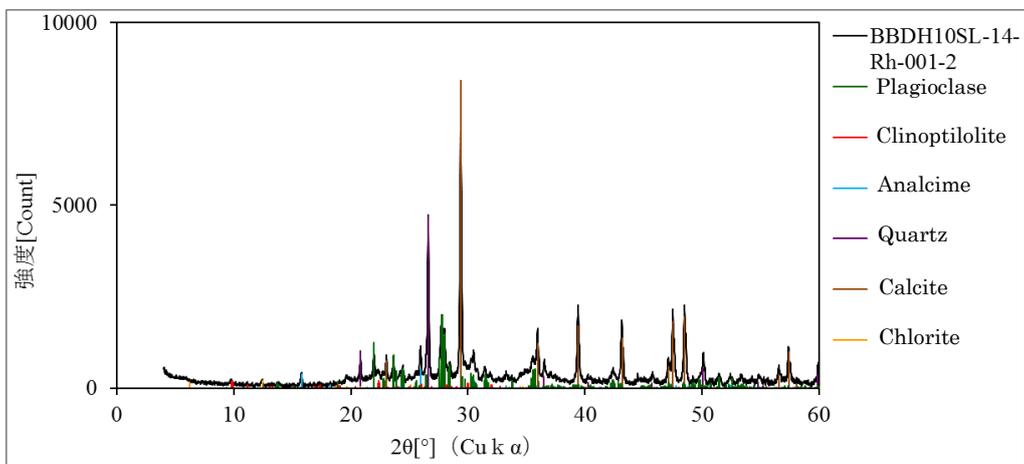


図 2.3.1-65 BBDH10SL-14-Rh-001-2 の粉末 XRD パターン

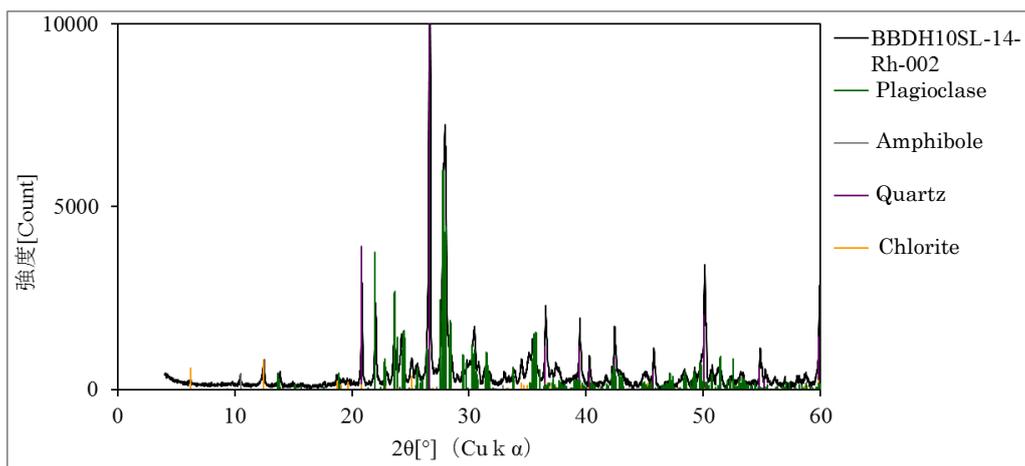


図 2.3.1-66 BBDH10SL-14-Rh-002

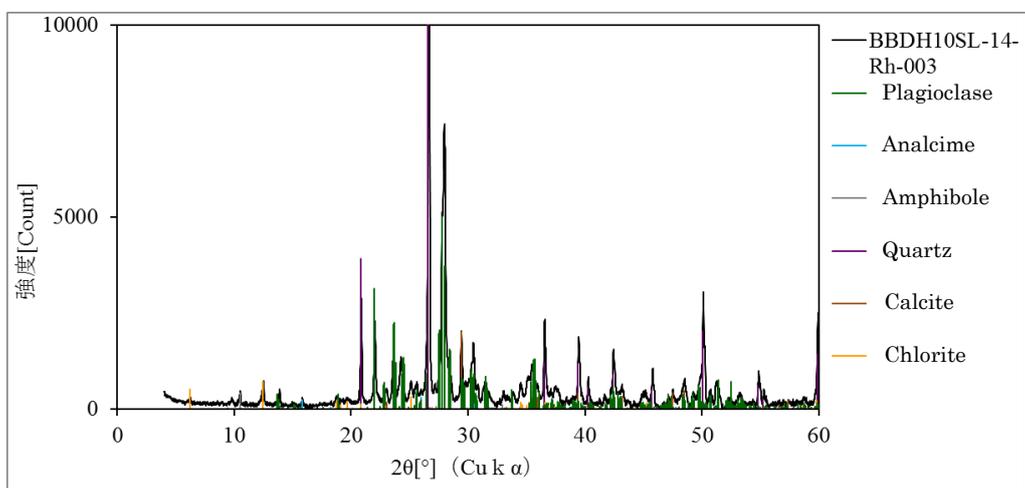


図 2.3.1-67 BBDH10SL-14-Rh-003

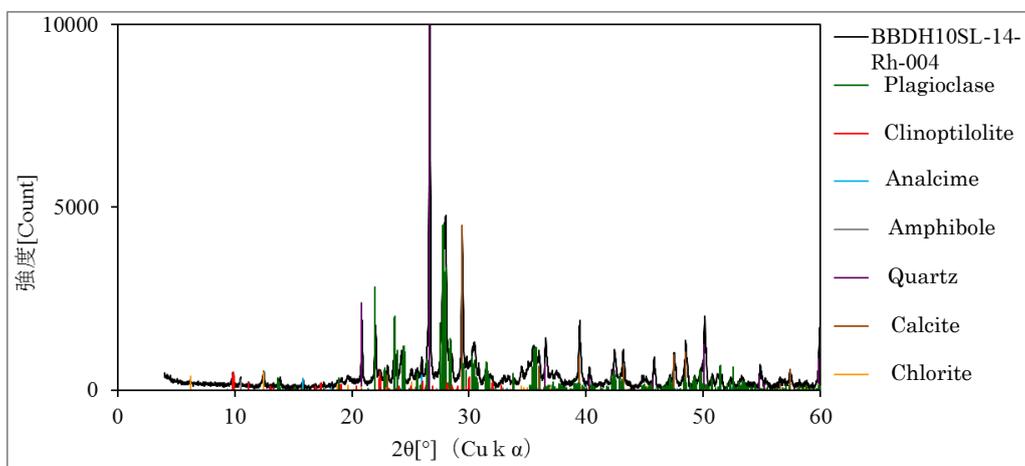


図 2.3.1-68 BBDH10SL-14-Rh-004

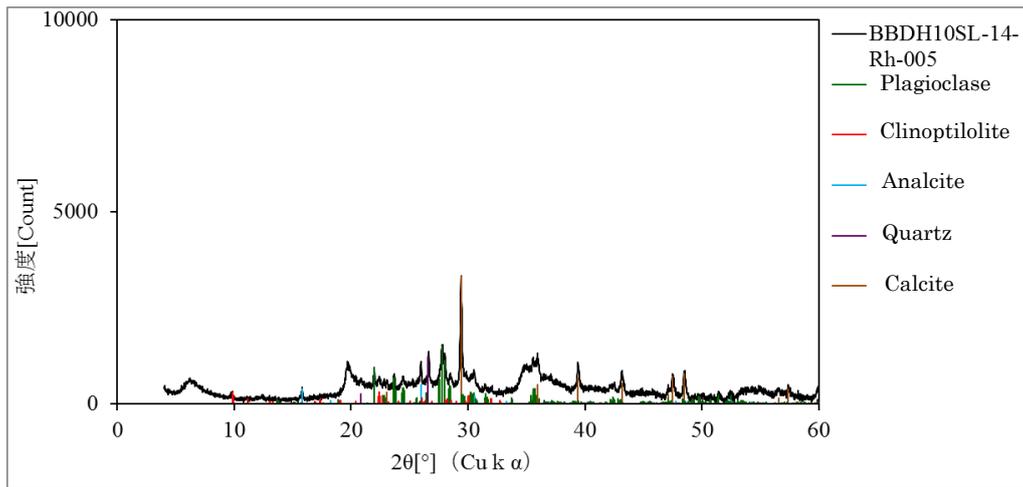


図 2.3.1-69 BBDH10SL-14-Rh-005

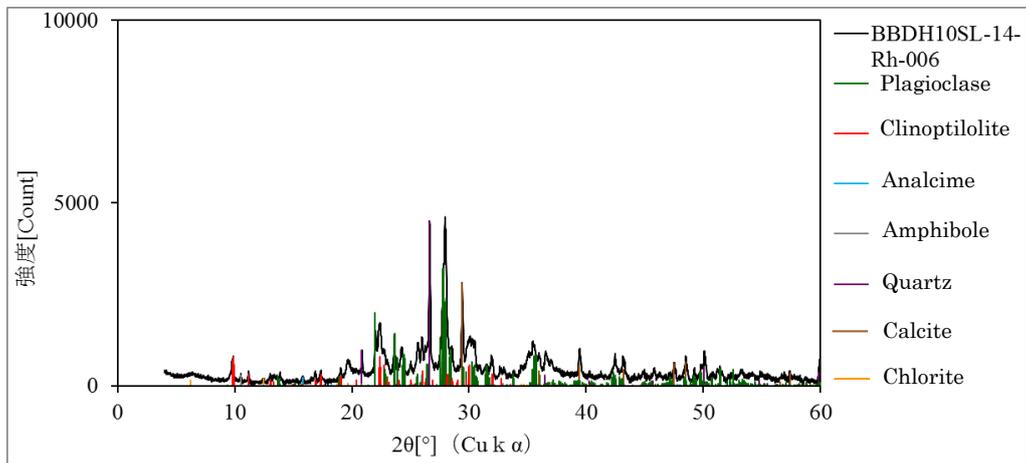


図 2.3.1-70 BBDH10SL-14-Rh-006

3) 岩石の地球化学的特性

a. 蛍光 X 線分析 (XRF)

試錐孔 (DH10) から連続的に採取したコア試料のうち 36 試料とスライム試料の全試料を使用して、XRF により全岩化学組成 (バルク成分) 分析を実施し、岩石化学特性を検討した。分析結果は図 2.3.1-71 に示す。この全岩化学分析結果に基づき、試錐孔 DH10 の化学組成の変化について、SiO₂ を横軸に各岩相での成分変化を図 2.3.1-72～図 2.3.1-79 に、柱状図とともに深度に対する化学組成の変化を図 2.3.1-80～図 2.3.1-82 に整理した。

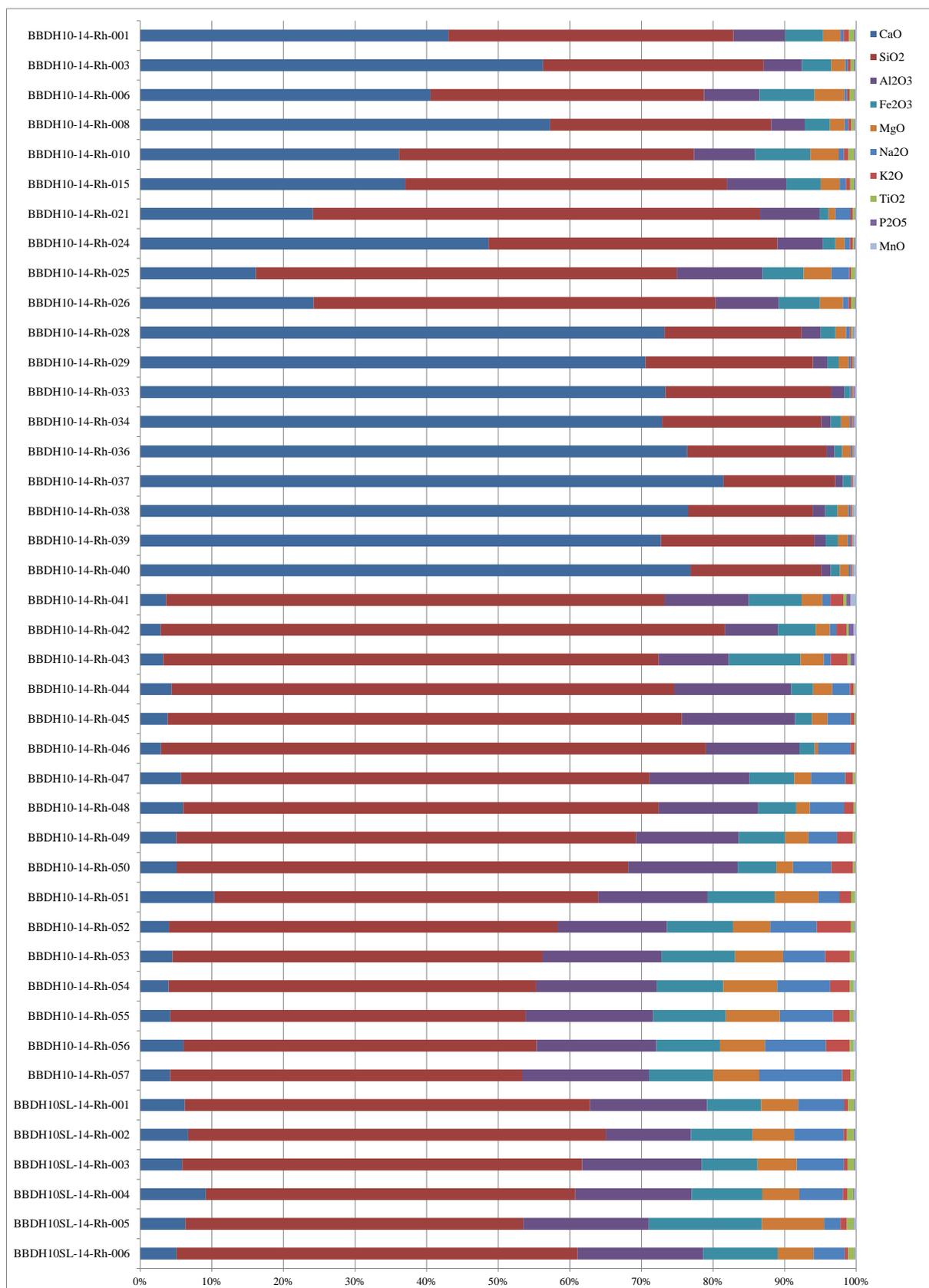


図 2.3.1-71 XRF による試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の主要元素比率

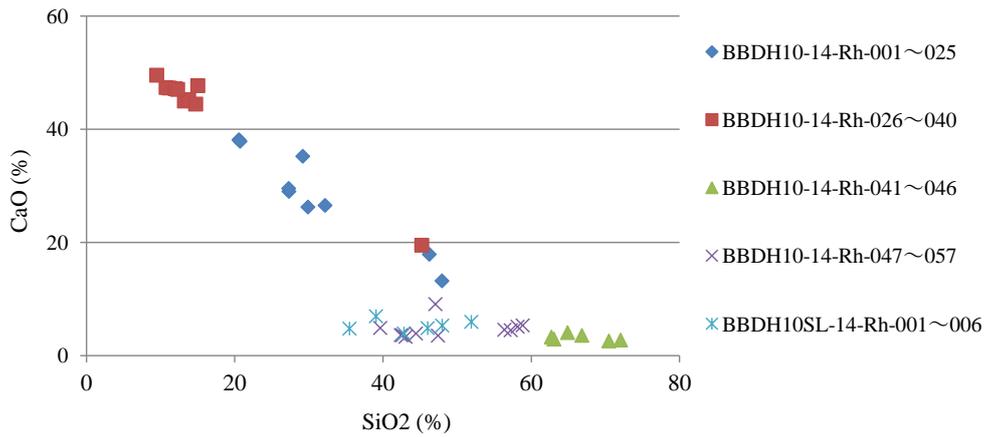


図 2.3.1-72 試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の CaO-SiO₂ 関係図

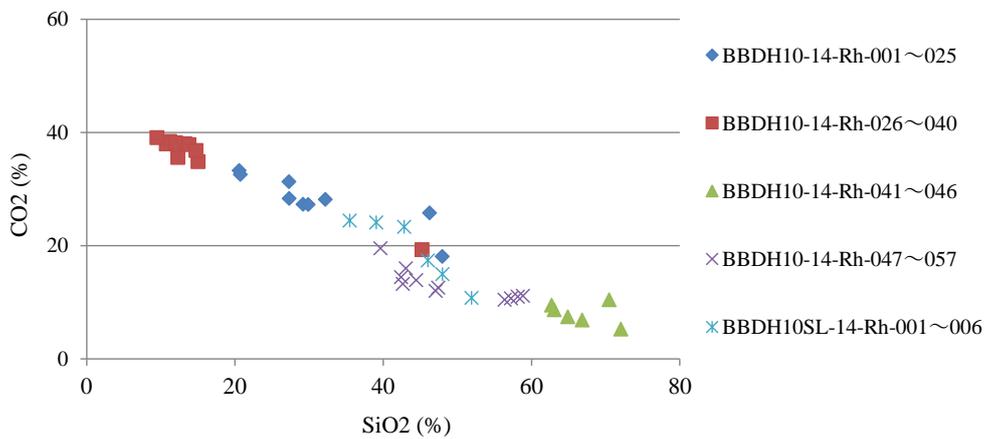


図 2.3.1-73 試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の CO₂-SiO₂ 関係図

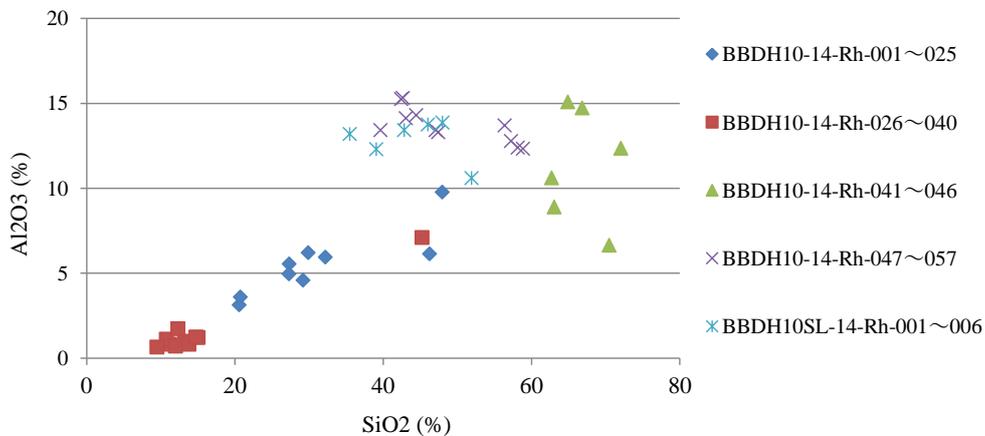


図 2.3.1-74 試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の Al₂O₃-SiO₂ 関係図

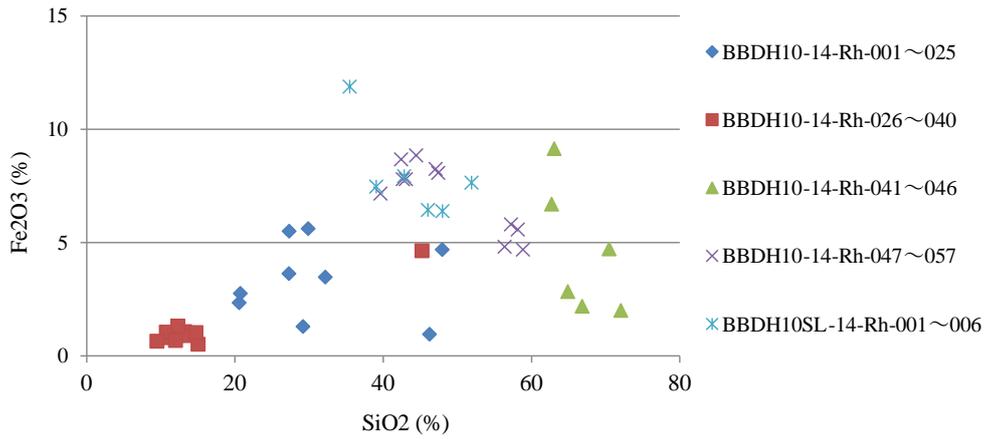


図 2.3.1-75 試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の Fe_2O_3 - SiO_2 関係図

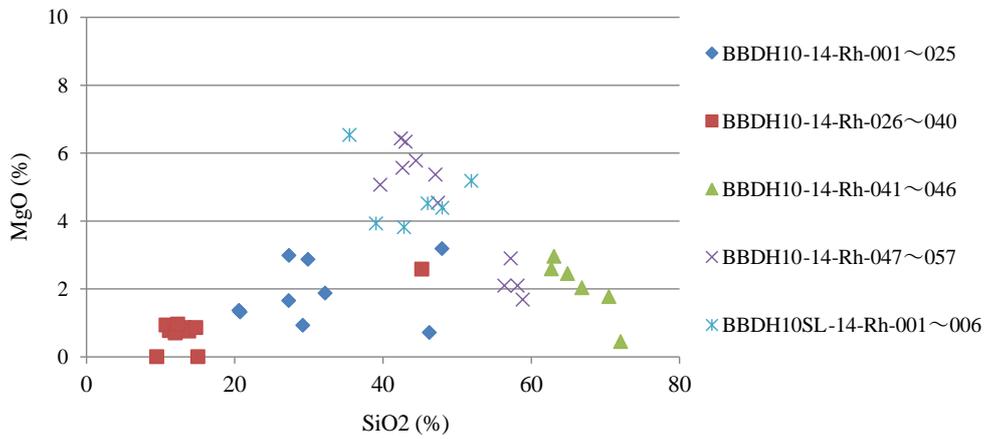


図 2.3.1-76 試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の MgO - SiO_2 関係図

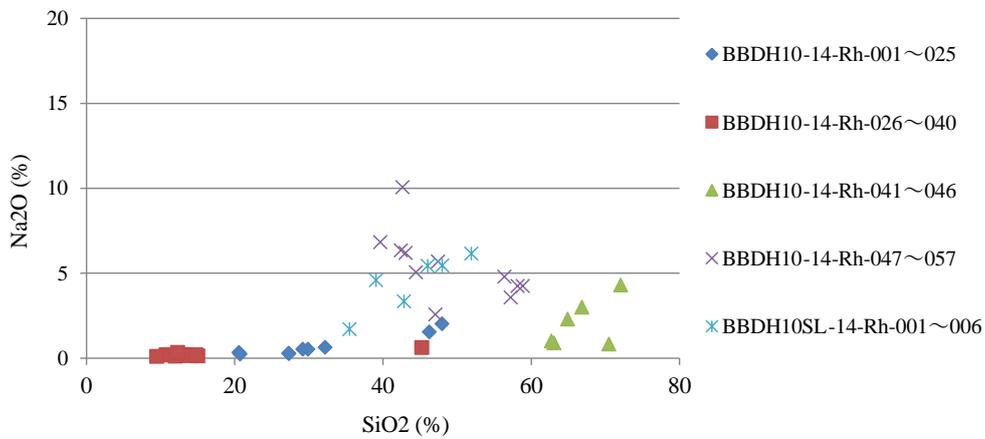


図 2.3.1-77 試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の Na_2O - SiO_2 関係図

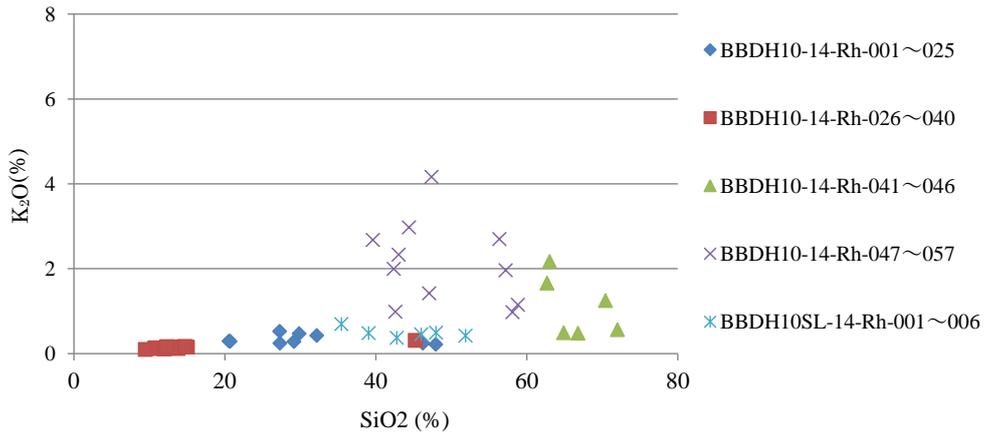


図 2.3.1-78 試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の K_2O - SiO_2 関係図

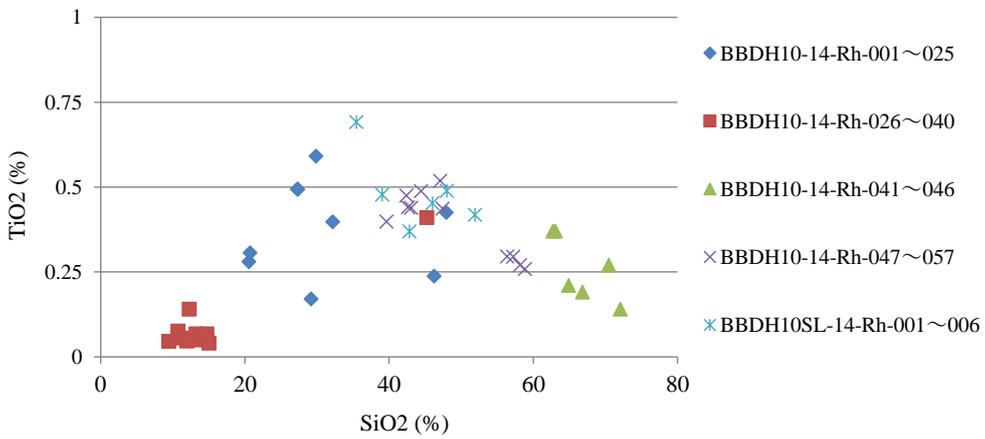
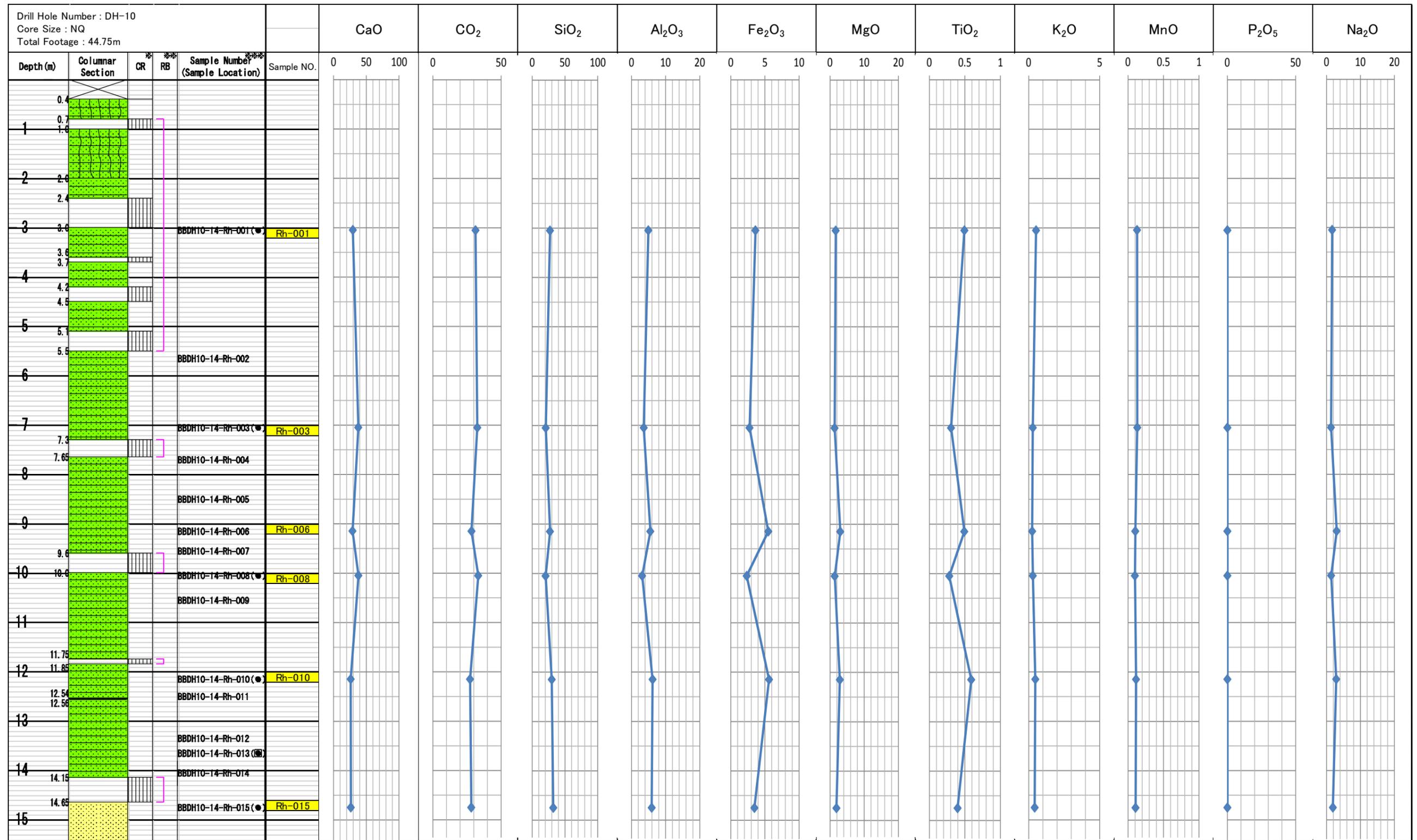
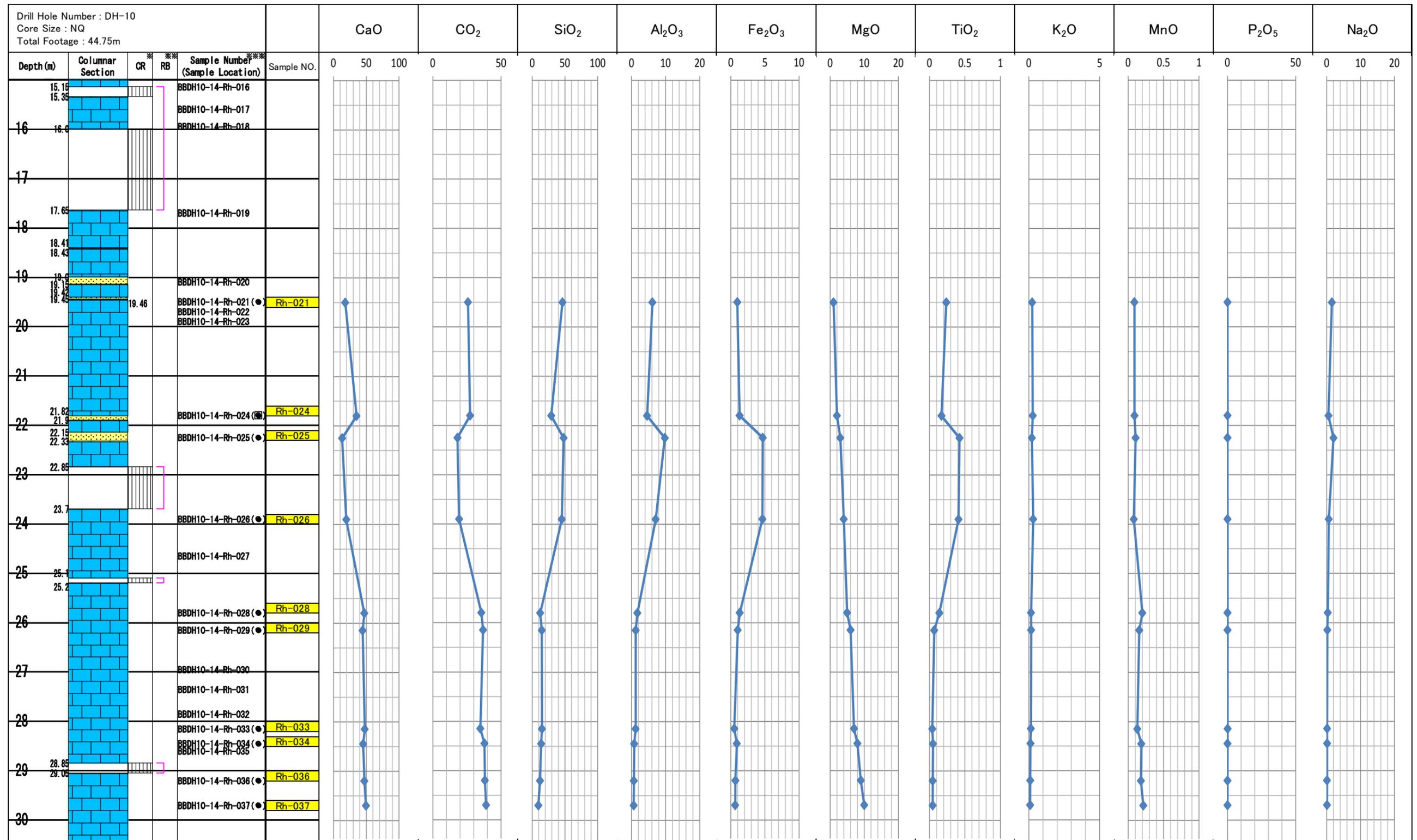


図 2.3.1-79 試錐孔(DH10)のコア試料及びスライム試料の TiO_2 - SiO_2 関係図



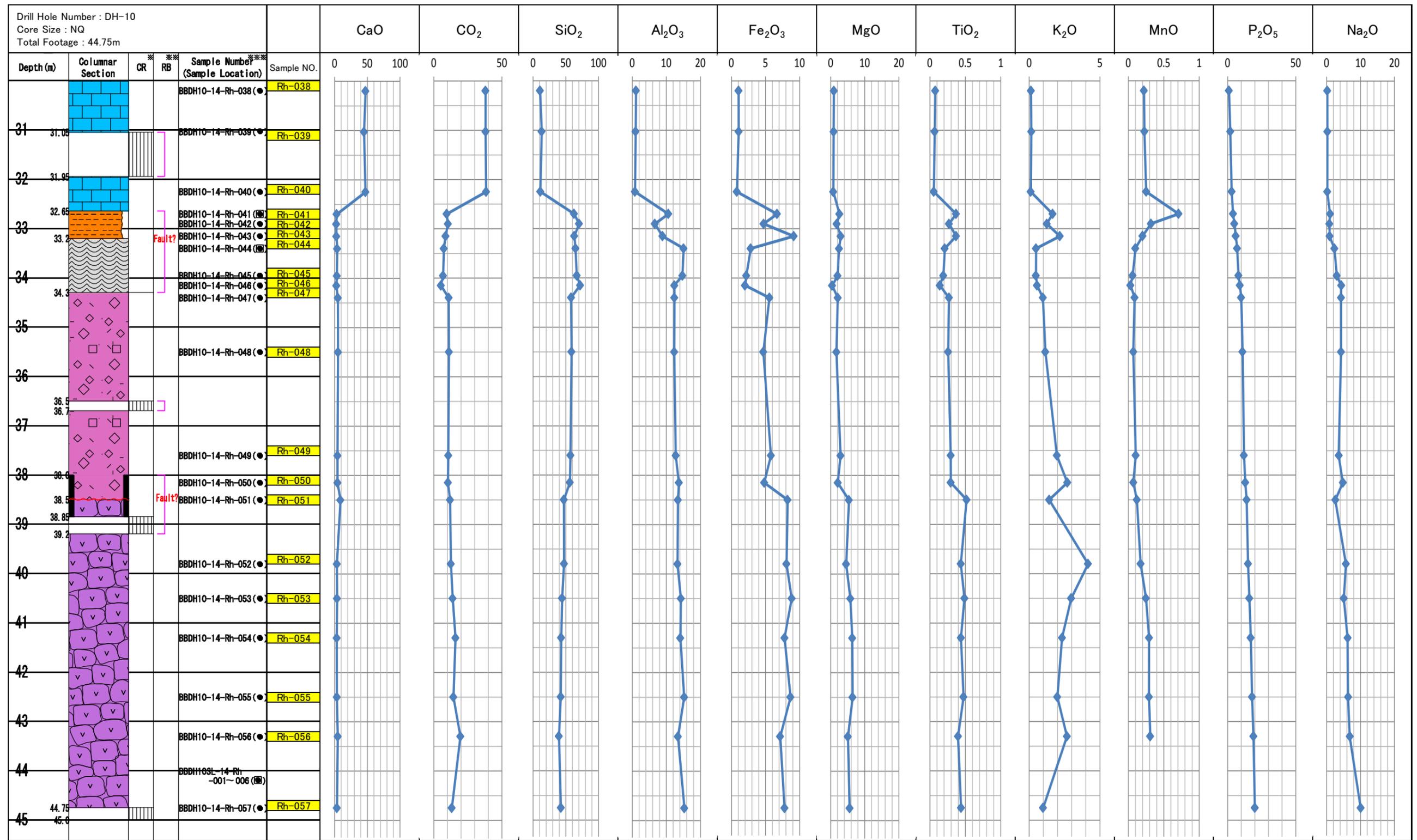
* CR
 ** RB
 *** Sample N.....Rh : RWMC

図 2.3.1-80 試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の化学組成の変化 (DH10 孔(0~GL-15m), XRF)



* CR
** RB
*** Sample N.....Rh : RWMC

図 2.3.1-81 試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の化学組成の変化 (DH10 孔(GL-15~30m), XRF)



* CR
** RB
*** Sample N.....Rh : RWMC

図 2.3.1-82 試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の化学組成の変化 (DH10 孔(GL-30~45m), XRF)

b. 誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) 及び Si 濃度分析

試錐孔 (DH10) から連続的に採取したコア試料のうち 34 試料とスライム試料の 1 試料を使用して、ICP-MS により岩石試料中の主成分、微量成分分析を行った。また、Si 濃度は全ケイ素アルカリ溶融脱水法により定量した。

これらの分析結果を合わせて表 2.3.1-4 に示す。また、オフィオライト基盤岩や Aksitero 累層の起源やアルカリ地下水との反応度を確認するために、希土類元素 (表 2.3.1-4 の青色の元素) パターンを図 2.3.1-83 ~ 図 2.3.1-84 に整理した。

表 2.3.1-4 ICP-MS による試錐孔(DH10)の主成分・微量成分分析及び全ケイ素アルカリ溶融脱水法による Si 濃度分析結果

Location	BBDH10-002	BBDH10-004	BBDH10-005	BBDH10-007	BBDH10-009	BBDH10-011	BBDH10-012	BBDH10-013	BBDH10-014	BBDH10-016	BBDH10-017	BBDH10-018	BBDH10-019	BBDH10-020	BBDH10-022	BBDH10-023	BBDH10-024	BBDH10-027	BBDH10-030	BBDH10-031	BBDH10-032	BBDH10-033	BBDH10-035	BBDH10-036	BBDH10-038	BBDH10-041	BBDH10-044	BBDH10-046	BBDH10-048	BBDH10-050	BBDH10SL-002				
Na (wt.%)	2.51	2.66	2.99	2.38	2.77	2.62	2.95	3.47	3.65	2.56	3.09	3.38	2.64	3.70	4.64	3.36	4.66	2.83	3.13	2.29	2.84	2.46	3.20	6.10	6.77	6.74	7.00	7.09	3.76	4.44	6.14	6.23	6.05	6.41	6.55
Mg	0.27	0.72	0.80	0.69	0.53	1.08	0.50	0.75	0.70	0.70	0.78	0.84	0.29	0.56	0.23	0.49	0.37	0.27	0.25	0.24	0.25	0.22	0.29	3.06	2.52	3.07	2.44	2.71	0.29	2.38	0.79	0.89	0.65	0.75	1.73
Al	2.14	4.47	4.54	3.08	3.12	4.62	4.45	6.59	4.50	3.87	6.66	5.17	2.13	4.07	5.63	3.59	6.45	2.37	1.87	1.42	1.79	1.49	1.90	11.43	9.89	10.71	10.58	10.36	2.29	7.44	5.13	8.18	8.71	9.71	9.08
P	0.03	0.04	0.05	0.04	0.03	0.05	0.04	0.05	0.03	0.07	0.02	0.05	0.04	0.08	0.03	0.06	0.02	0.04	0.05	0.05	0.04	0.05	0.05	0.01	0.01	0.02	0.01	0.02	0.04	0.26	0.01	0.01	0.01	0.01	0.05
K	0.47	0.58	0.56	0.52	0.54	0.62	0.68	0.82	0.74	0.72	0.68	0.58	0.48	0.63	0.55	0.58	0.64	0.47	0.46	0.39	0.51	0.40	0.46	2.38	2.07	1.99	2.21	1.26	0.46	1.64	0.79	0.69	1.21	4.81	0.80
Ca	29.77	18.09	19.08	26.18	23.22	19.57	18.45	2.74	21.56	27.18	4.96	15.89	34.19	28.20	15.89	30.09	8.46	32.08	32.71	37.03	33.16	32.11	35.99	3.96	0.95	2.64	2.97	3.17	35.60	3.37	2.31	2.30	2.90	2.06	3.65
Sc (ppm)	5.51	15.74	14.43	9.05	8.20	12.77	11.32	13.97	12.12	10.17	13.83	16.36	4.39	9.88	8.92	6.95	9.39	3.71	3.41	2.51	4.60	2.26	3.31	35.87	21.35	34.92	29.89	32.98	3.77	19.75	9.48	13.65	12.79	15.53	24.29
Ti (wt.%)	0.08	0.26	0.24	0.15	0.12	0.23	0.16	0.27	0.16	0.14	0.13	0.29	0.06	0.14	0.15	0.11	0.16	0.05	0.04	0.03	0.40	0.02	0.04	0.23	0.15	0.23	0.20	0.22	0.04	0.22	0.12	0.11	0.11	0.15	0.36
V (ppm)	24.49	93.65	88.16	45.43	31.90	69.86	35.98	12.50	35.17	35.11	16.16	81.94	14.46	40.19	12.23	19.20	29.43	14.88	6.78	5.98	6.62	19.51	7.23	168.80	78.14	182.12	136.56	182.29	7.25	60.12	6.61	10.05	5.66	15.91	154.26
Cr	14.44	12.83	18.56	16.12	15.99	27.25	16.95	11.86	13.70	21.99	6.51	10.40	14.87	27.59	10.20	13.91	10.73	66.31	7.60	10.58	12.59	18.48	58.55	43.38	57.09	61.14	46.53	32.57	95.66	21.43	37.44	14.65	10.88	73.12	
Mn (wt.%)	0.11	0.10	0.10	0.09	0.08	0.09	0.08	0.02	0.09	0.12	0.04	0.09	0.12	0.13	0.09	0.12	0.04	0.13	0.15	0.18	0.17	0.13	0.21	0.18	0.19	0.17	0.15	0.20	1.00	0.07	0.05	0.04	0.04	0.10	
Fe	0.96	2.78	3.17	1.99	1.49	2.64	1.50	1.34	1.88	2.32	0.99	3.42	0.86	1.87	0.67	1.17	0.82	0.63	0.70	0.54	0.60	0.47	0.75	5.49	4.57	5.63	4.68	5.30	0.72	5.31	1.69	1.79	2.52	1.83	4.27
Co (ppm)	3.21	10.06	9.42	6.38	5.19	8.92	6.75	3.77	5.76	6.66	5.64	9.95	2.99	6.40	3.56	4.91	3.61	2.93	5.03	5.27	4.41	8.15	6.26	20.69	24.45	24.03	23.03	21.99	6.66	28.57	11.95	7.65	3.68	8.02	12.87
Ni	12.93	12.52	15.15	13.70	39.08	19.35	14.31	6.43	11.35	20.34	12.25	13.33	10.87	20.58	18.45	14.65	9.15	12.99	19.36	13.64	15.67	15.50	21.97	29.95	47.56	33.85	30.27	60.16	58.86	220.36	71.11	81.01	24.13	25.14	34.46
Cu	18.96	34.20	38.54	41.12	32.77	25.05	32.42	78.95	22.24	42.36	31.59	35.11	24.01	22.02	166.94	40.08	21.49	25.69	18.72	24.44	13.93	26.69	17.44	23.26	54.84	30.93	30.89	39.69	19.64	259.03	11.30	13.45	23.04	148.24	45.35
Zn	46.94	73.20	70.39	45.97	41.58	61.37	65.99	91.67	58.61	78.68	100.46	161.31	30.93	56.05	34.23	44.28	66.45	99.25	32.52	29.48	36.14	35.26	44.20	104.34	127.37	112.32	88.07	74.36	53.85	140.63	125.61	85.90	98.12	102.45	
Ga	5.61	4.97	6.82	1.63	b.d.1	6.73	3.78	b.d.1	b.d.1	13.68	11.95	12.57	9.93	20.68	23.48	15.33	25.39	12.09	16.23	14.21	33.20	18.32	21.90	51.09	42.71	47.28	43.98	40.13	42.03	52.61	62.03	59.87	76.56	79.36	63.94
As	6.13	7.78	2.74	2.64	2.59	2.45	19.09	12.32	2.75	3.25	1.95	2.59	3.32	3.67	6.30	3.63	2.35	4.14	4.04	3.34	4.13	2.41	5.57	4.58	2.94	8.98	6.07	10.15	5.45	14.43	6.46	2.01	3.68	3.44	3.24
Rb	5.99	8.13	8.36	8.25	8.87	9.18	13.21	7.58	9.60	16.30	9.06	8.36	7.05	10.00	8.65	7.88	8.54	7.43	6.47	6.26	5.93	5.97	7.19	23.79	39.39	24.03	29.83	36.82	6.96	69.11	2.81	4.05	18.17	20.54	8.14
Sr	639.99	501.76	477.05	566.22	505.22	491.12	419.55	300.97	701.87	741.54	163.56	296.60	652.65	691.24	208.96	773.08	240.19	551.06	572.18	533.63	560.06	574.62	693.43	238.38	116.50	178.64	169.02	161.12	647.18	264.15	308.77	214.13	659.75	245.14	266.13
Y	10.23	19.92	18.34	14.79	13.25	20.75	19.00	34.43	16.89	28.54	18.15	21.51	14.48	23.66	27.45	20.59	26.68	15.37	14.12	15.93	13.10	16.14	16.46	9.70	2.66	13.11	16.99	14.01	16.36	76.41	7.38	11.41	26.11	9.88	22.48
Zr	96.78	121.70	151.09	94.59	151.78	129.89	131.74	268.48	206.59	103.57	184.49	125.77	41.57	124.19	257.05	174.92	277.53	116.60	137.83	61.10	109.35	85.73	120.40	155.13	110.96	131.87	127.55	123.61	147.90	254.51	269.59	280.82	289.47	328.22	230.17
Nb	0.10	0.18	0.39	0.14	0.55	0.24	0.13	0.28	1.13	0.18	0.34	0.08	0.06	0.12	0.17	0.27	0.17	0.09	0.20	0.07	0.61	0.07	0.10	0.35	0.35	0.29	0.38	0.19	0.13	1.15	0.38	0.47	1.05	1.02	1.18
Mo	2.56	1.53	2.12	1.64	5.73	1.80	11.76	2.11	2.70	1.90	2.12	1.63	1.37	1.95	2.43	2.25	2.01	1.51	1.79	1.42	1.51	1.98	1.96	2.43	2.91	2.22	1.60	1.80	4.97	5.40	4.02	5.79	2.89	2.81	3.17
Ag	1.67	0.10	0.08	0.10	0.34	0.07	0.09	0.08	0.14	0.08	0.11	0.12	0.11	0.10	0.07	0.14	0.11	0.22	0.16	0.08	0.25	0.12	0.09	0.20	0.22	0.32	0.09	0.08	0.11	0.10	0.15	0.16	0.24	0.17	0.11
Cd	0.37	0.34	0.39	0.43	0.34	0.39	0.35	0.34	0.33	0.45	0.25	0.39	0.45	0.52	0.44	0.44	0.35	0.46	0.45	0.54	0.48	1.06	0.53	0.27	0.23	0.26	0.27	1.64	1.00	0.28	0.32	0.31	0.30	0.34	0.31
In	0.02	0.04	0.05	0.05	0.03	0.06	0.06	0.09	0.05	0.07	0.09	0.06	0.03	0.04	0.05	0.04	0.06	0.03	0.03	0.03	0.02	0.02	0.02	0.04	0.03	0.03	0.04	0.04	0.03	0.15	0.10	0.09	0.09	0.14	0.08
Sa	24.11	32.23	36.21	25.49	36.43	32.82	23.20	28.43	42.55	28.73	36.92	27.85	26.10	29.55	27.15	33.96	29.29	25.29	35.97	28.88	46.11	26.36	27.05	46.95	42.38	44.95	41.84	39.89	28.51	36.00	39.97	40.11	48.53	45.79	45.27
Sb	10.65	11.86	14.06	9.62	17.30	11.70	10.52	12.24	29.82	10.46	14.47	12.52	9.65	13.25	10.01	14.18	12.05	11.91	16.07	11.45	27.46	11.61	12.77	30.24	22.55	27.33	21.89	20.53	14.25	23.01	24.36	26.08	27.93	26.61	23.24
Cs	0.56	0.63	0.83	0.74	1.30	0.89	1.83	1.46	0.82	1.38	1.68	1.42	1.53	0.88	2.11	0.95	1.53	0.74	0.70	0.60	0.62	1.07	1.03	0.68	0.89	0.67	0.70	1.26	0.73	6.07	0.34	0.27	0.63	0.45	0.48
Ba	3047.61	3529.33	3504.85	3326.33	3306.56	3754.52	3303.																												

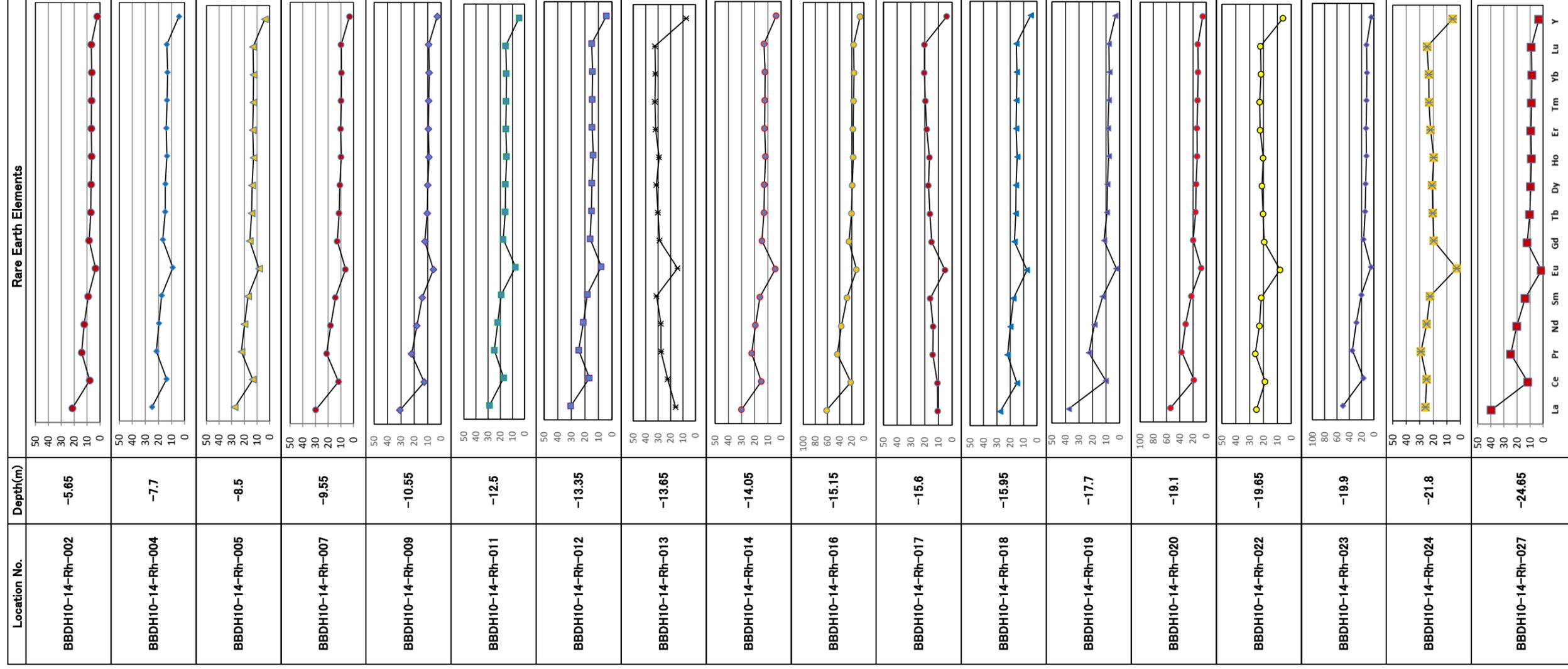


図 2.3.1-83 試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の希土類元素パターンの変化 (DH10(0~GL-25m), ICP-MS)

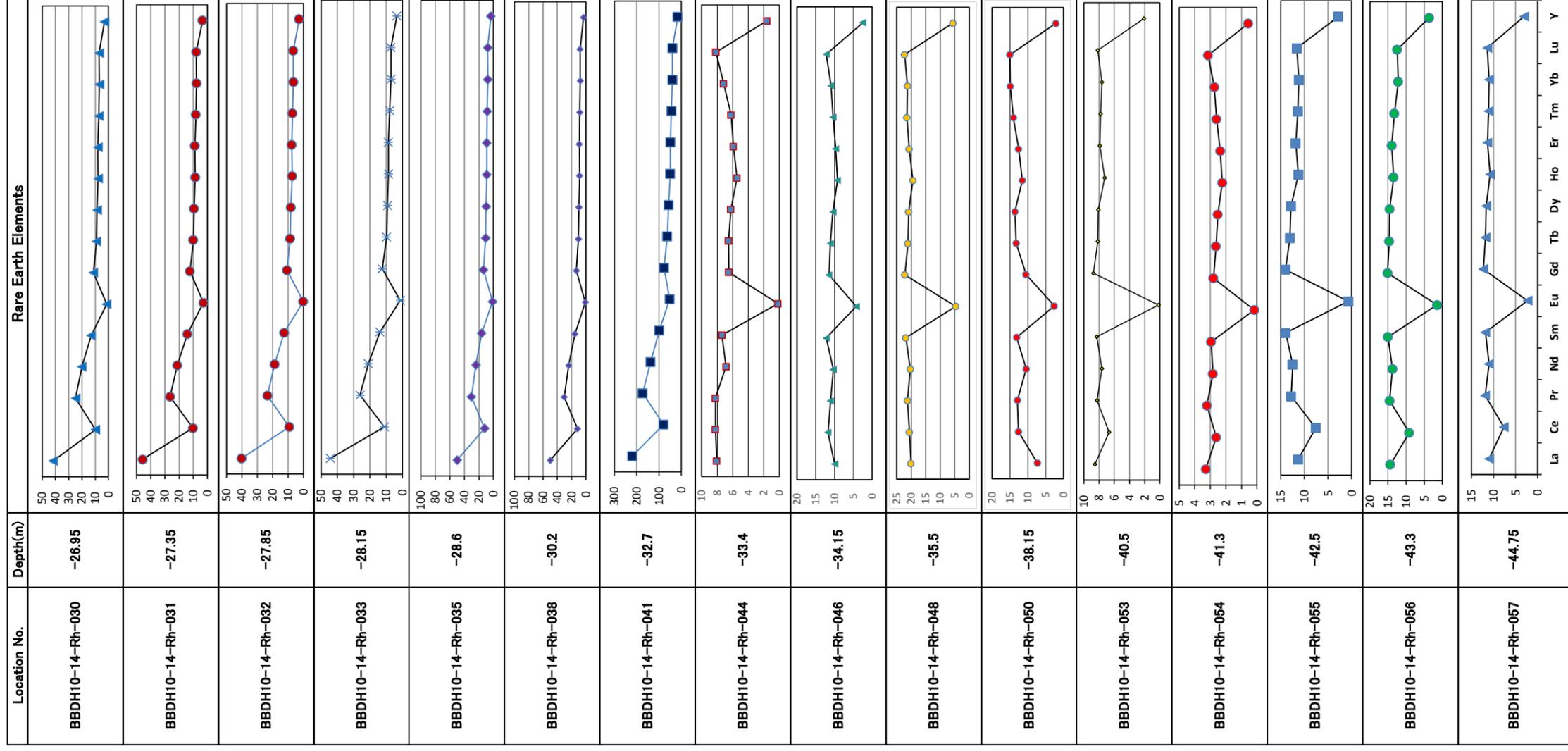


図 2.3.1-84 試雑コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の希土類元素パターンの変化 (DH10(GL-25~45m), ICP-MS)

c. 岩石の地球化学的特性

図 2.3.1-72～図 2.3.1-79 に示す XRF による全岩化学組成（バルク成分）の変化図（ハーカーダイアグラム）の結果から、Aksitero 累層の堆積岩は、岩相・岩質を反映して、石灰質砂岩～石灰岩質泥岩の層準では明らかに CaO に富み、ベントナイト質の上位のパミス質シルト岩と下位の赤色粘土岩は、粘土鉱物の存在のために若干の Al₂O₃, SiO₂ に富み、CaO がかなり減少する。また、赤色粘土岩では苦鉄質鉱物の存在のために Fe₂O₃（特に顕著）、TiO₂, MgO の増加と斜長石の存在のために K₂O, SiO₂, Al₂O₃ が示される。また、方解石が顕著な上位の石灰岩層に比べ、CaO が増加する一方 CO₂ は減少する。

また、DH08 孔では明確に確認できなかった遠洋性堆積物は赤色粘土岩の下位で基盤岩と接しており、その化学組成は赤色粘土岩と類似しているが、Al₂O₃, Na₂O が赤色粘土岩に比べ高く、Fe₂O₃, TiO₂, K₂O, P₂O₅, MnO は低い点で明確に異なる。

基盤岩との境界では、これまでの観察（DH08 孔や Saile 鉱山のトレンチ-1）と同様な物質移動の影響（変質帯）が確認される。この試錐孔は現在もアルカリ裂隙水が自噴していることもあり、組成変化で増加傾向を示す成分は、SiO₂, Al₂O₃, MnO で、逆に減少傾向を示す成分は、Fe₂O₃, K₂O, Na₂O である。この事実は、主要構成鉱物や基質の玄武岩質ガラスを交代して形成された粘土鉱物などの変質反応を考察する上で考慮すべきことである。

基盤岩の Zambales オフィオライトにおいては、構成岩である自破碎玄武岩質溶岩の組成を一樣に反映し、物質移動に伴うような有意義な組成変化は少ないが、枕状溶岩ではカリ長石に伴う K₂O や方沸石に伴う Na₂O の増加がみられる（図 2.3.1-71）。

一方、表 2.3.1-4 に示す全シリカ分析から平均の含有量が約 397g/kg 位であり、XRF の解析から、深度が深くなるにつれてこれが減少したが、深度が 30m 付近からは 60～70% まで上昇していた。これは SiO₂ に富む珪質な岩石になっていることを示しており、デイサイト、安山岩とそれらの凝灰質堆積物の変質作用を受けシリカや炭酸塩に富む岩石になったことに起因している。ゆえに、シリカは主として晶洞を充填するか、脈として存在している。炭酸塩も脈状に存在しており、炭酸塩化は、変質作用の後期に生じたといえる。このような珪質化作用、炭酸塩化作用、粘度化作用がどのような原因で生じたのかが問題であるが、その原因として、低温の地下水、高温の熱水と岩石との反応があげられる。

微量元素については、表 2.3.1-4 に示すように、海洋地殻の上部マントルからのマグマ起源である Zambales オフィオライトの微量元素は、Aksitero 累層の遠洋性・深海成堆積物と比べて、その存在量が多い傾向がある。特に、重金属元である Co, Ni, V, Cr などが高い含有量を示す。

一方、火山性碎屑物の凝灰岩・パミスなどを含有している凝灰岩質砂岩・泥岩（コア試料：BBDH10-14-Rh-020 / 024 / 033 / 041）は微量元素の含有量も相対的に多く、とりわけより凝灰岩質である淡褐色のコア試料（BBDH-14-Rh-041）は、全体的に高い含有量で、Zambales オフィオライトのものと比べて、2～3 の微量元素を除いて最高の含有量を持つ特性がある。このコア試料の最高の存在量の要因については、起源（原岩）岩質・岩相・

堆積環境などが関与しているものと考えられる。この試料の特徴は、より凝灰岩質な堆積物（岩）であることである。その供給源の一つとして、フィリピン島弧の火山活動に起因しているものと考えられる。

しかし、その要因となる地球化学的プロセスを決定することは難しい。それは、これらの微量元素が、希土類元素と同様に、その地球化学的挙動を理解するためには、まず、一次的（初生的）には、マグマの分化・固結過程での元素分配、その後、二次的には、風化・移動・堆積過程での地下水を介した元素分配などの総合的な解析が必要であるからである。

今回の分析結果から、微量成分元素の分布については、Bigbiga 精査地区で実施した試誰コアの微量成分の濃度は、2013 年度に行った試誰コアの性状と比べて、Ni;12~220 [g/kg], Cu;14~250 [g/kg], Zn;25~173 [g/kg], Pb;11~185 [g/kg], Ba;3303~5188 [g/kg], Ca;4.9~37 [g/kg]となっており、地質的には差異を認められなかった。但し、深度が深くなると、これらの元素量が増加する傾向が見られた。

Bigbiga のコア試料の Pb, Ba, Ca 濃度は、Palawan 島の露頭試料の濃度と同程度であった。但し、Zn に関しては Palawan 地域の方が高い濃度を示していたが、その理由としては、Bigbiga トレンチ試料中に炭酸塩が多く、これらの中に Pb, Ba, Ca が多い。Bigbiga のコア試料は SiO₂ 含量の多い火成岩である。アルカリ地下水によるアルカリ変質で Pb, Ba, Ca がアルカリ地下水から岩石に付加されたことが考えられる。すなわち、アルカリ地下水と岩石との反応により炭酸塩の生成により、Pb, Ba, 軽希土類が炭酸塩に取り込まれたというプロセスであって、今後は、この原因について明らかにするため、より詳細な研究がなされることが望まれる。

特に、希土類元素については、図 2.3.1-83~図 2.3.1-84 に示すように、総希土類元素の含有量については、Aksitero 累層を構成する堆積岩の方が、基盤岩の Zambales オフィオライトのものより多い傾向を示し、全体的な存在（分布）パターンからは、Eu、軽希土類元素の Ce と重希土類元素 Y に負の異常が確認される。これらの希土類元素の挙動については、マグマの分化・固結過程での元素の振る舞い（元素の分配）が、主にイオン半径・価数に支配されることが指摘されている[6]。

Eu については、Zambales オフィオライトに顕著な負の異常が示されている。その要因としては、Eu の元素は、マグマの分化過程において、2 価として振る舞い、沈殿相（鉱物）に濃集する性質があり、Ca の元素と非常に似た地球化学的な挙動を示すことが指摘されている[6]。

海洋域における玄武岩質本源マグマの分化過程での結晶分別作用に伴い、斜長石の形成・濃集が促進され、大部分の Eu は斜長石に取り込まれ、その結果、残液の未分化マグマの結晶分別作用により苦鉄質鉱物（かんらん石・輝石など）が卓越的に晶出し、Eu の負の異常を示す超塩基性岩を形成することがある。このことから、Eu の負の異常を示す Zambales オフィオライトの形成の場としては、地球化学的特性である Eu の負の異常を示すことにより、海洋域で玄武岩質本源マグマに由来することが言える。

また、海洋地殻や海洋地殻の上に貫入・噴出した火山岩も同じ Eu の負の異常を示す。

Ce については、Aksitero 累層の堆積岩に顕著な負の異常が示されている。一般的であるが Ce の異常は、古海洋環境や大気酸素の増加の指数として活用されている[7]。このことから、Aksitero 累層の堆積岩は、遠洋性の深海堆積物であるために、その当時の古海水の地球化学的特性である Ce の負の異常を反映したものと解釈できる。

Y の異常は、全希土類元素の中で存在量が少ないために、全体的に負の異常を示すものと考えられる。

今回の分析結果から、Bigbiga 地域に関しては、軽希土類元素（LREE）の含有量は一般的なオフィオライト基盤岩と類似していたが、重希土類元素（HREE）の含有量は少なかった。

4) 岩石鉱物学的・地球化学的特性の詳細観察・分析

Bigbiga の試錐孔(DH10)コアのうち、Aksitero 累層の石灰岩(BBDH10-14-Rh-026)と玄武岩質自破碎溶岩(BBDH10-14-Rh-054)の 2 件を対象に、それぞれの鉱物の組成および構造・組織(性状、共生関係)などの観察・同定・元素分布を明らかにするために、EPMA, μ -XRD, FESEM-EDS による観察、鉱物・化学分析を実施した。

d. BBDH10-14-Rh-026

(a) EPMA 分析結果

カルカリアスゼオライト質石灰岩である BBDH10-14-Rh-026 は、特徴として、多くの方解石と沸石を含んでおり、源岩が火山岩であることから変質したベントナイトであると思われる。試料の元素マッピング分析の視野を示すため、反射電子線像(BEI) と二次電子線像(SEI)を図 2.3.1-85 に示す。また、各元素のマップを図 2.3.1-86 に示す。

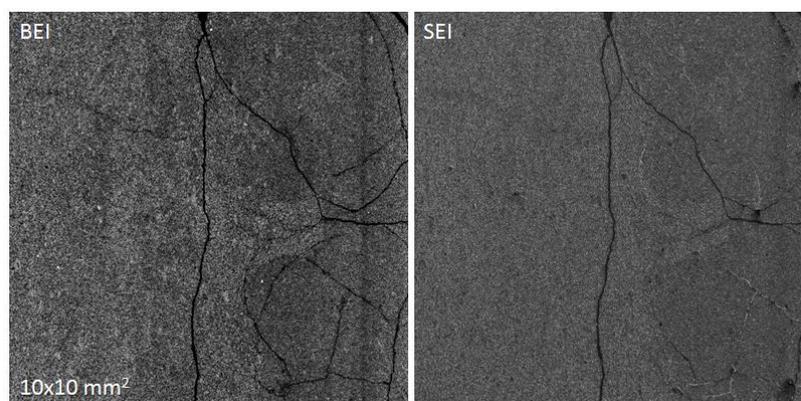


図 2.3.1-85 Rh-026 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右)

BEI, SEI 画像から、試料は非常に緻密な組織でありながら、全体として不均質な化学組成であることがわかる。画像の左が白色を呈する領域(白色帯: White zone)であり、右側が暗褐色を呈する領域(Dark brown zone)である。BEI のコントラストにおいても、左側の白色帯は明るいことから Ca に富む鉱物が多いことが予想される。また、右側の暗褐色帯はひび割れが多いことから、真空処理過程で収縮しやすい粘土鉱物が多いことが窺い知れる。

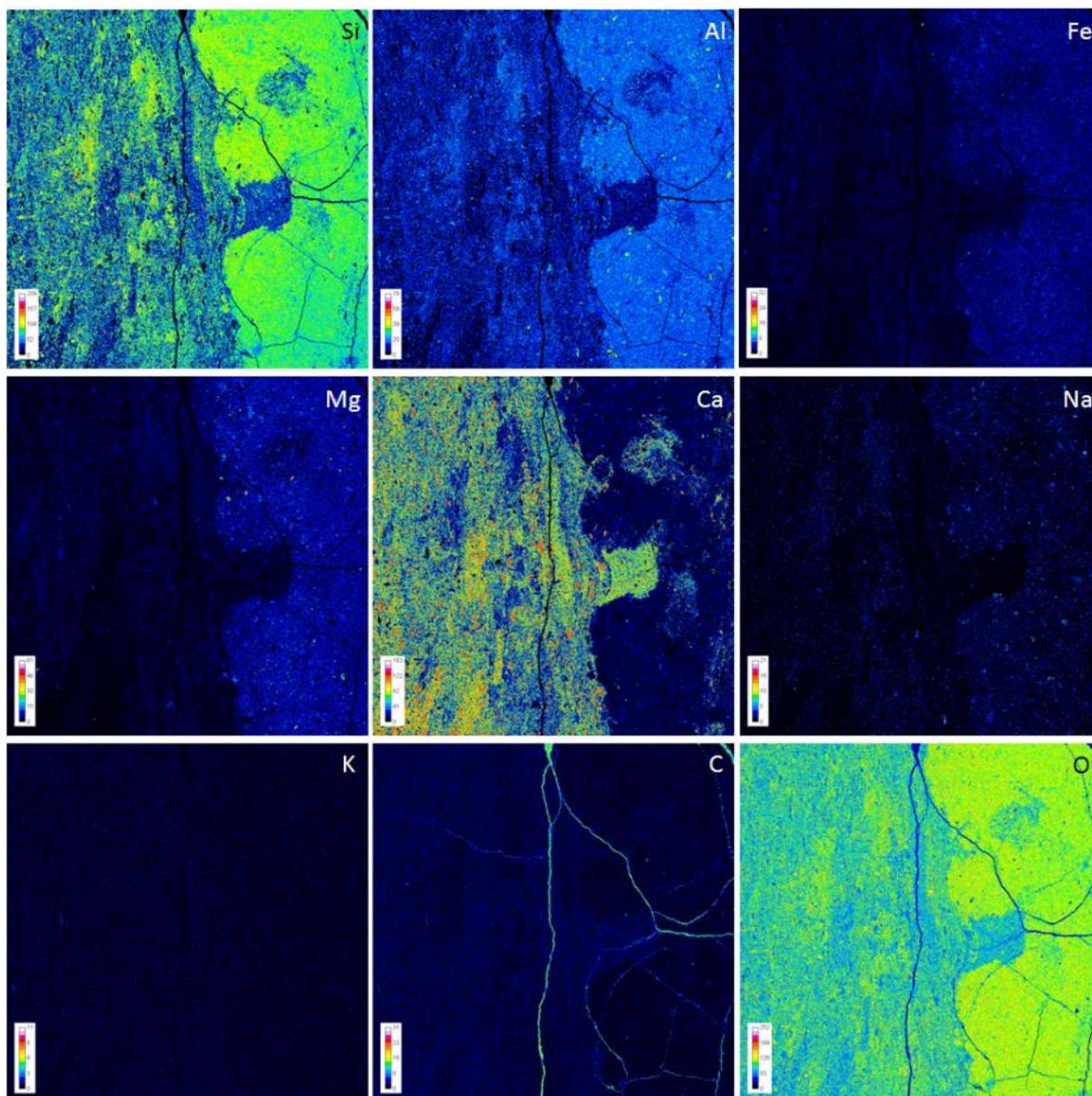


図 2.3.1-86 BBDH10-14-Rh-026 試料の元素マップ

構成鉱物のスポット分析を産状観察とともに行った。それらの結果を以下の図 2.3.1-87 においてまとめて示す。

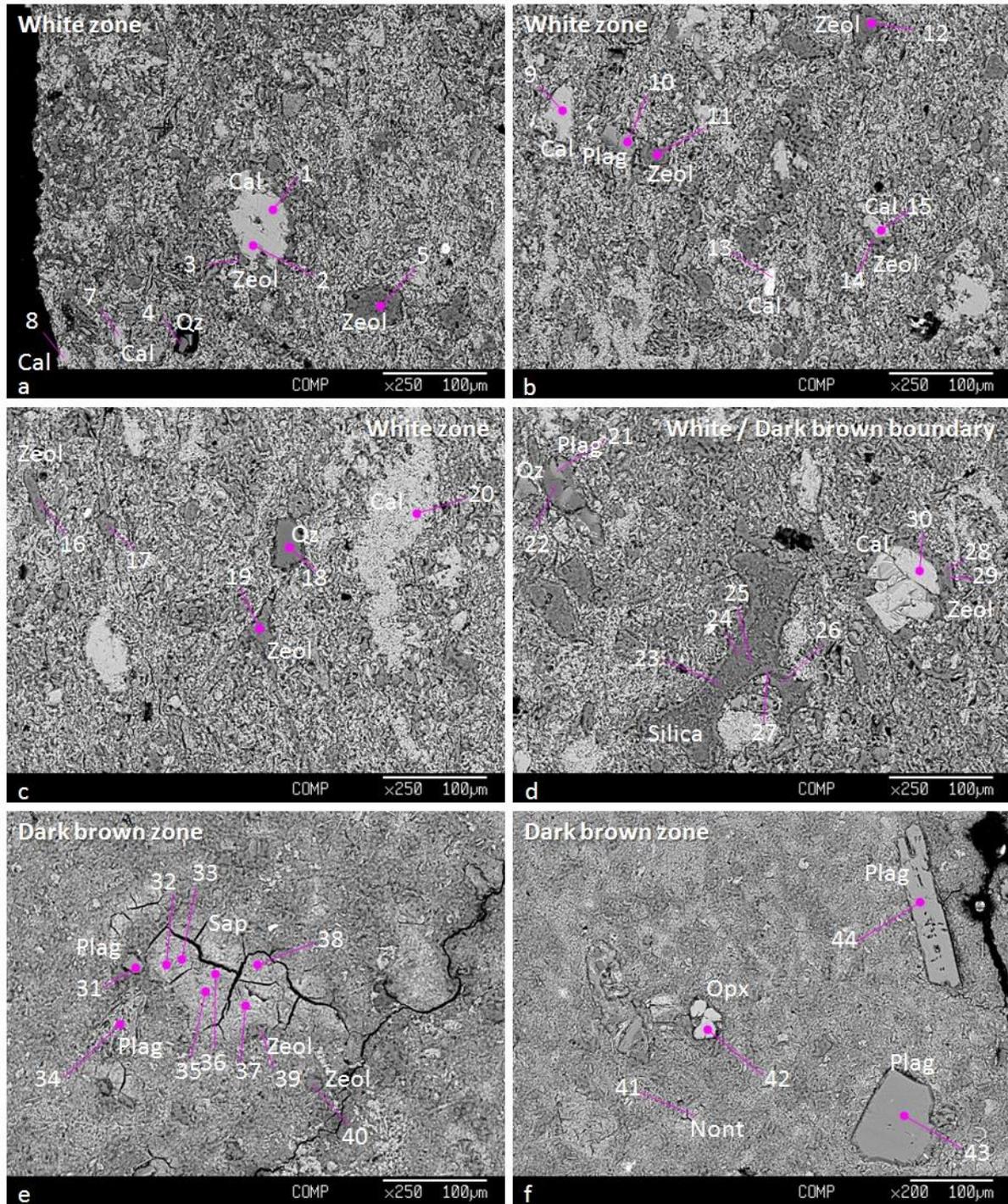


図 2.3.1-87 鉱物のスポット分析(BBDH10-14-Rh-026)

これらのスポット分析の結果を以下に列記する表にまとめて示す。石英の多くは Al_2O_3 成分を 1 wt.% 近くも含んでおり、マグマから晶出した斑晶であることを示している (表 2.3.1-5)。方解石は純粋に近いが、0.5 wt.% 以下の微量の MnO を含んでおり、続成過程で晶出したことをうかがわせる (表 2.3.1-6)。斜長石は $\text{XAn} (= \text{Ca}/(\text{Ca}+\text{Na}+\text{K}))$ 成分で 0.5-0.7 の中性からカルシックな化学組成のレンジを示しており、源岩がデイサイト質から安山岩質のものであることを暗示している (表 2.3.1-7)。斜方輝石の存在はそれを強く支持するものである (表 2.3.1-8)。一方で、この安山岩質の源岩の二次鉱物であるスメクタイトは、やや苦鉄質な源岩の化学組成を反映し、すべて 3 八面体スメクタイトのサポナイトに分類される。そのため、4 配位の Al (Al(4) で表す) が多い。また層間イオン組成はすべて $\text{XCa} (= \text{Ca}/(\text{Ca}+\text{Na}+\text{K})) > 0.7$ と Ca に富む特徴を示している。さらに沸石の組成は、 $\text{Si}/\text{Al} = 4.5-6.5$ (Spot_40 は異常値)、 $\text{XNa}+\text{K} (= (\text{Na}+\text{K})/(\text{Na}+\text{K}+\text{Ca})) > 0.15-0.30$ の斜ブチロル沸石 (輝沸石組成) を示す。

表 2.3.1-5 BBDH10-14-Rh-026 試料の石英の化学組成

Sample ID	Rh-026_spot_4	Rh-026_spot_18	Rh-026_spot_22	Rh-026_spot_23	Rh-026_spot_24	Rh-026_spot_25	Rh-026_spot_26	Rh-026_spot_27
X (mm)	74.243	71.939	72.124	71.965	71.942	71.926	71.908	71.909
Y (mm)	59.497	59.043	61.665	61.86	61.826	61.838	61.844	61.84
Z (mm)	11.542	11.547	11.517	11.517	11.517	11.517	11.517	11.517
Oxide wt. %								
SiO ₂	92.58	94.71	94.60	87.54	88.28	91.37	90.58	92.09
Al ₂ O ₃	1.80	0.28	0.13	0.68	0.63	0.65	0.10	0.03
TiO ₂	0.17	0.00	0.02	0.02	0.01	0.01	0.02	0.02
FeO	0.07	0.09	0.06	0.16	0.04	0.00	0.05	0.10
Cr ₂ O ₃	0.00	0.00	0.03	0.00	0.02	0.01	0.00	0.02
MnO	0.00	0.02	0.01	0.00	0.04	0.02	0.00	0.00
MgO	0.00	0.00	0.01	0.03	0.01	0.07	0.01	0.00
CaO	0.40	0.18	0.11	0.70	0.58	0.66	0.18	0.15
Na ₂ O	0.55	0.00	0.00	0.08	0.07	0.10	0.07	0.01
K ₂ O	0.00	0.01	0.00	0.01	0.03	0.01	0.00	0.01
total	95.59	95.27	94.98	89.22	89.70	92.89	91.00	92.41
Cation based on O=2								
Si	0.976	0.996	0.997	0.987	0.989	0.989	0.997	0.998
Al	0.022	0.003	0.002	0.009	0.008	0.008	0.001	0.000
Ti	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.001	0.001	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001
Cr	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mn	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mg	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.001	0.000	0.000
Ca	0.005	0.002	0.001	0.008	0.007	0.008	0.002	0.002
Na	0.011	0.000	0.000	0.002	0.001	0.002	0.001	0.000
K	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
total	1.017	1.002	1.002	1.009	1.008	1.008	1.003	1.002

表 2.3.1-6 BBDH10-14-Rh-026 試料の方解石の化学組成

Sample ID	Rh-026_spot_1	Rh-026_spot_2	Rh-026_spot_6	Rh-026_spot_7	Rh-026_spot_9	Rh-026_spot_13	Rh-026_spot_15	Rh-026_spot_20	Rh-026_spot_30
X (mm)	74.251	74.268	74.455	74.401	73.571	73.362	73.239	71.806	71.759
Y (mm)	59.548	59.582	59.692	59.669	59.534	59.708	59.658	59.029	61.747
Z (mm)	11.542	11.542	11.542	11.542	11.541	11.541	11.541	11.547	11.517
Oxide wt. %									
SiO ₂	0.00	0.00	0.00	0.27	0.00	0.24	0.02	0.00	0.00
Al ₂ O ₃	0.03	0.01	0.00	0.00	0.02	0.05	0.01	0.00	0.00
TiO ₂	0.00	0.01	0.01	0.00	0.01	0.03	0.01	0.01	0.01
FeO	0.02	0.05	0.10	0.09	0.08	0.18	0.11	0.00	0.14
Cr ₂ O ₃	0.00	0.00	0.00	0.00	0.04	0.00	0.00	0.00	0.00
MnO	0.21	0.10	0.02	0.11	0.19	0.01	0.24	0.44	0.32
MgO	0.00	0.01	0.20	0.01	0.01	0.04	0.01	0.07	0.00
CaO	58.60	56.66	57.07	57.88	57.90	50.48	58.02	58.30	56.05
Na ₂ O	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.38	0.01	0.03	0.00
K ₂ O	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.02	0.01	0.02	0.00
total	58.86	56.84	57.41	58.36	58.26	51.42	58.43	58.88	56.52
Cation based on O=1									
Si	0.000	0.000	0.000	0.004	0.000	0.004	0.000	0.000	0.000
Al	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000
Ti	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.000	0.001	0.001	0.001	0.001	0.003	0.001	0.000	0.002
Cr	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000
Mn	0.003	0.001	0.000	0.001	0.003	0.000	0.003	0.006	0.004
Mg	0.000	0.000	0.005	0.000	0.000	0.001	0.000	0.002	0.000
Ca	0.996	0.997	0.993	0.989	0.995	0.978	0.994	0.992	0.993
Na	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.013	0.000	0.001	0.000
K	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
total	1.000	1.000	1.000	0.996	1.000	1.002	1.000	1.001	1.000

表 2.3.1-7 BBDH10-14-Rh-026 試料の斜長石の化学組成

Sample ID	Rh-026_spot_10	Rh-026_spot_21	Rh-026_spot_31	Rh-026_spot_34	Rh-026_spot_43	Rh-026_spot_44
X (mm)	73.493	72.129	64.522	64.525	64.348	64.316
Y (mm)	59.567	61.65	60.339	60.381	59.319	59.071
Z (mm)	11.541	11.517	11.574	11.574	11.585	11.585
Oxide wt. %						
SiO ₂	51.45	53.76	53.54	55.87	55.36	49.84
Al ₂ O ₃	29.22	28.03	28.05	25.66	27.66	31.25
TiO ₂	0.02	0.06	0.05	0.10	0.03	0.02
FeO	0.60	0.70	0.64	1.56	0.31	0.48
Cr ₂ O ₃	0.03	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01
MnO	0.01	0.01	0.01	0.05	0.00	0.00
MgO	0.05	0.05	0.06	0.68	0.03	0.12
CaO	12.52	10.52	11.17	9.98	9.81	14.45
Na ₂ O	3.42	3.81	3.74	3.91	4.18	2.23
K ₂ O	0.07	0.35	0.10	0.13	0.05	0.04
total	97.39	97.27	97.34	97.94	97.46	98.44
Cation based on O=8						
Si	2.393	2.486	2.476	2.566	2.537	2.302
Al	1.602	1.528	1.529	1.389	1.494	1.701
Ti	0.001	0.002	0.002	0.003	0.001	0.001
Fe	0.023	0.027	0.025	0.060	0.012	0.019
Cr	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mn	0.000	0.001	0.000	0.002	0.000	0.000
Mg	0.004	0.003	0.004	0.047	0.002	0.008
Ca	0.624	0.521	0.553	0.491	0.482	0.715
Na	0.308	0.341	0.335	0.348	0.372	0.199
K	0.004	0.020	0.006	0.008	0.003	0.002
total	4.961	4.929	4.929	4.914	4.903	4.948

表 2.3.1-8 BBDH10-14-Rh-026 試料の輝石の化学組成

Sample ID	Rh-026_spot_42
X (mm)	64.578
Y (mm)	59.222
Z (mm)	11.585
Oxide wt.%	
SiO ₂	53.06
Al ₂ O ₃	0.97
TiO ₂	0.08
FeO	13.95
Cr ₂ O ₃	0.00
MnO	0.32
MgO	28.57
CaO	1.95
Na ₂ O	0.00
K ₂ O	0.00
total	98.89
Cation based on O=6	
Si	1.935
Al	0.042
Ti	0.002
Fe	0.425
Cr	0.000
Mn	0.010
Mg	1.553
Ca	0.076
Na	0.000
K	0.000
total	4.043

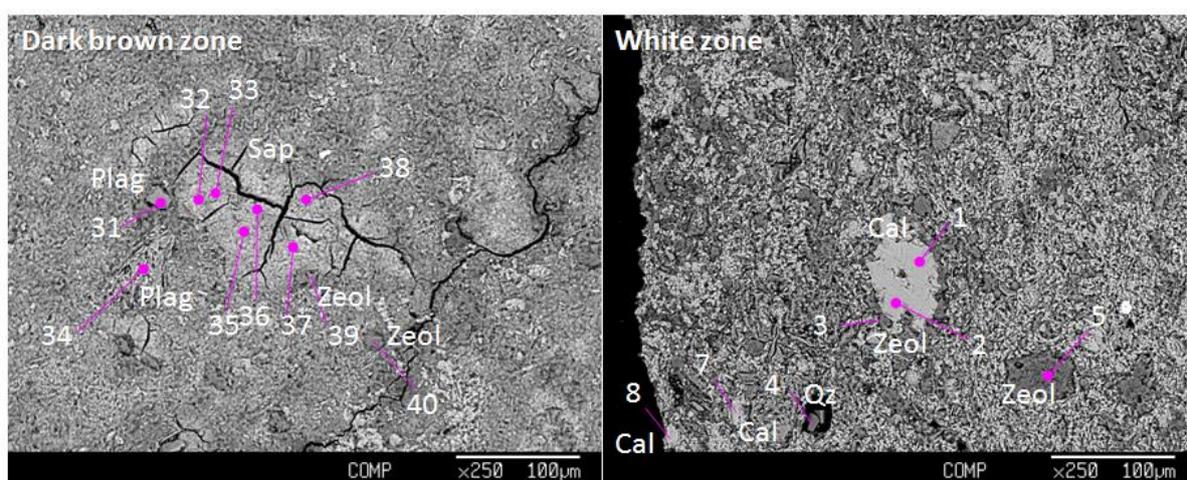
表 2.3.1-9 BBDH10-14-Rh-026 試料のスメクタイトの化学組成

Sample ID	Rh-026_spot_32	Rh-026_spot_33	Rh-026_spot_35	Rh-026_spot_36	Rh-026_spot_37	Rh-026_spot_38	Rh-026_spot_41
X (mm)	64.497	64.476	64.464	64.426	64.418	64.404	64.597
Y (mm)	60.34	60.333	60.36	60.35	60.381	60.344	59.328
Z (mm)	11.574	11.574	11.574	11.574	11.574	11.574	11.585
Oxide wt.%							
SiO ₂	52.28	53.00	54.37	52.71	50.69	54.14	51.46
Al ₂ O ₃	10.53	11.33	11.35	10.74	10.28	11.23	10.82
TiO ₂	0.60	0.77	0.42	0.55	0.31	0.65	0.46
FeO	16.25	14.27	16.04	16.22	15.83	15.35	14.37
Cr ₂ O ₃	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.03
MnO	0.16	0.14	0.14	0.12	0.17	0.13	0.08
MgO	8.10	7.10	7.34	9.68	6.94	8.54	6.71
CaO	2.84	2.76	2.60	2.73	3.00	2.78	2.86
Na ₂ O	0.32	0.28	0.37	0.22	0.30	0.27	0.28
K ₂ O	0.17	0.21	0.23	0.20	0.20	0.20	0.20
total	91.24	89.87	92.85	93.16	87.73	93.28	87.27
Cation based on O=22							
Si	7.501	7.611	7.609	7.406	7.565	7.532	7.632
Al	1.781	1.917	1.872	1.779	1.808	1.841	1.892
Ti	0.065	0.084	0.044	0.058	0.035	0.068	0.051
Fe	1.949	1.714	1.878	1.906	1.976	1.786	1.782
Cr	0.000	0.000	0.000	0.000	0.003	0.000	0.004
Mn	0.020	0.017	0.017	0.014	0.021	0.015	0.010
Mg	1.732	1.520	1.531	2.027	1.544	1.770	1.485
Ca	0.437	0.425	0.390	0.411	0.480	0.414	0.455
Na	0.089	0.079	0.101	0.059	0.087	0.073	0.081
K	0.030	0.038	0.041	0.036	0.037	0.036	0.037
total	13.604	13.405	13.482	13.695	13.556	13.534	13.428
Al(4)	0.500	0.389	0.391	0.594	0.435	0.468	0.368
XFe	0.529	0.530	0.551	0.485	0.561	0.502	0.546
XCa	0.786	0.785	0.734	0.813	0.795	0.791	0.795

表 2.3.1-10 BBDH10-14-Rh-026 試料の沸石の化学組成

Sample ID	Rh-026_spot_3	Rh-026_spot_5	Rh-026_spot_11	Rh-026_spot_12	Rh-026_spot_14	Rh-026_spot_17	Rh-026_spot_19	Rh-026_spot_29	Rh-026_spot_39	Rh-026_spot_40
X (mm)	74.267	74.131	73.465	73.257	73.252	72.104	71.951	71.739	64.402	64.345
Y (mm)	59.597	59.642	59.582	59.447	59.667	59.028	59.134	61.749	60.405	60.458
Z (mm)	11.542	11.542	11.541	11.541	11.541	11.55	11.547	11.517	11.574	11.574
Oxide wt. %										
SiO ₂	67.36	60.69	61.80	64.46	66.27	62.66	61.79	53.10	54.85	53.17
Al ₂ O ₃	12.62	11.21	11.92	12.38	10.42	11.91	12.21	6.95	8.19	5.39
TiO ₂	0.01	0.02	0.03	0.00	0.02	0.00	0.02	0.04	0.00	0.03
FeO	0.14	0.17	0.09	0.07	0.12	0.23	0.19	0.12	0.45	0.25
Cr ₂ O ₃	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02
MnO	0.02	0.02	0.00	0.03	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01
MgO	0.48	0.38	0.54	0.53	0.04	0.55	0.52	0.02	0.06	0.02
CaO	4.43	3.70	4.31	4.29	3.49	4.39	4.50	3.83	3.41	3.11
Na ₂ O	0.37	0.41	0.26	0.29	0.32	0.29	0.32	0.77	0.78	0.24
K ₂ O	0.19	0.41	0.19	0.24	0.06	0.19	0.19	0.02	0.04	0.01
total	85.61	77.02	79.14	82.29	80.75	80.21	79.73	64.86	67.77	62.24
Cation based on O=72										
Si	29.732	29.809	29.548	29.616	30.735	29.585	29.390	30.944	30.596	31.968
Al	6.567	6.491	6.719	6.705	5.696	6.628	6.846	4.775	5.386	3.821
Ti	0.004	0.009	0.010	0.000	0.007	0.001	0.007	0.019	0.000	0.013
Fe	0.050	0.069	0.036	0.026	0.048	0.090	0.074	0.059	0.207	0.128
Cr	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.011
Mn	0.006	0.007	0.000	0.010	0.003	0.000	0.000	0.005	0.000	0.004
Mg	0.315	0.280	0.386	0.361	0.028	0.390	0.367	0.015	0.052	0.013
Ca	2.096	1.947	2.206	2.112	1.733	2.220	2.292	2.392	2.035	2.006
Na	0.312	0.394	0.239	0.259	0.287	0.261	0.296	0.864	0.842	0.274
K	0.107	0.259	0.117	0.141	0.033	0.113	0.112	0.015	0.027	0.005
total	39.190	39.264	39.261	39.231	38.571	39.287	39.383	39.089	39.146	38.242
Si/Al	4.527	4.592	4.398	4.417	5.396	4.464	4.293	6.480	5.680	8.367
XK+Na	0.167	0.251	0.139	0.159	0.156	0.144	0.151	0.269	0.299	0.122

以上の分析より、この岩石の源岩は、暗褐色帯に残存している斑晶鉱物の斜長石の組成 (An₅₀₋₇₀) や斜方輝石と石英を含むことからデイサイトであると推定される。デイサイトは最初の変質過程で、主にガラス質である石基部や溶解しやすい輝石の溶脱成分によって Ca に富むサポナイト質のス멕タイトを生成させたと思われる。この暗褐色帯を覆うように産する白色帯は非常に方解石に富む領域である。この方解石はさらに沸石に取り囲まれており、おそらくサポナイトの生成の後、沸石変質に至る間に沈殿していたと思われる。この晶出順序を表す図を図 2.3.1-88 に示す。



Dacite (Plag+Opx+Qz+Gm) ⇒ Saponite + Qz + Calc ⇒ Calc + Clinoptilolite

Dark brown zone → White zone

図 2.3.1-88 BBDH10-14-Rh-026 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序

(b) FESEM-EDS 分析結果

BBDH10-14-Rh-026 試料の鉍物の産状観察から、図 2.3.1-89 に示す SEM 画像の各測定ポイントでの分析結果を図 2.3.1-90 に示す。

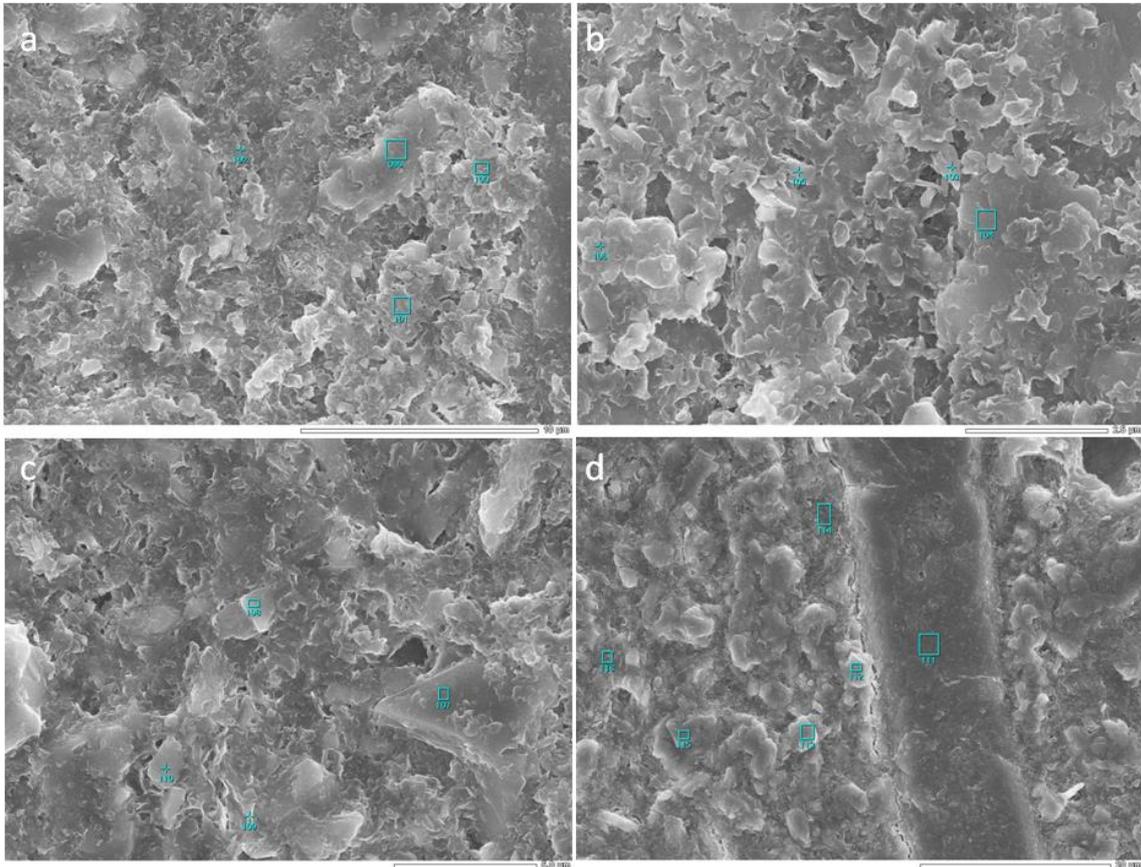


図 2.3.1-89 FESEM-EDS 観察結果 (BBDH10-14-Rh-026 試料)

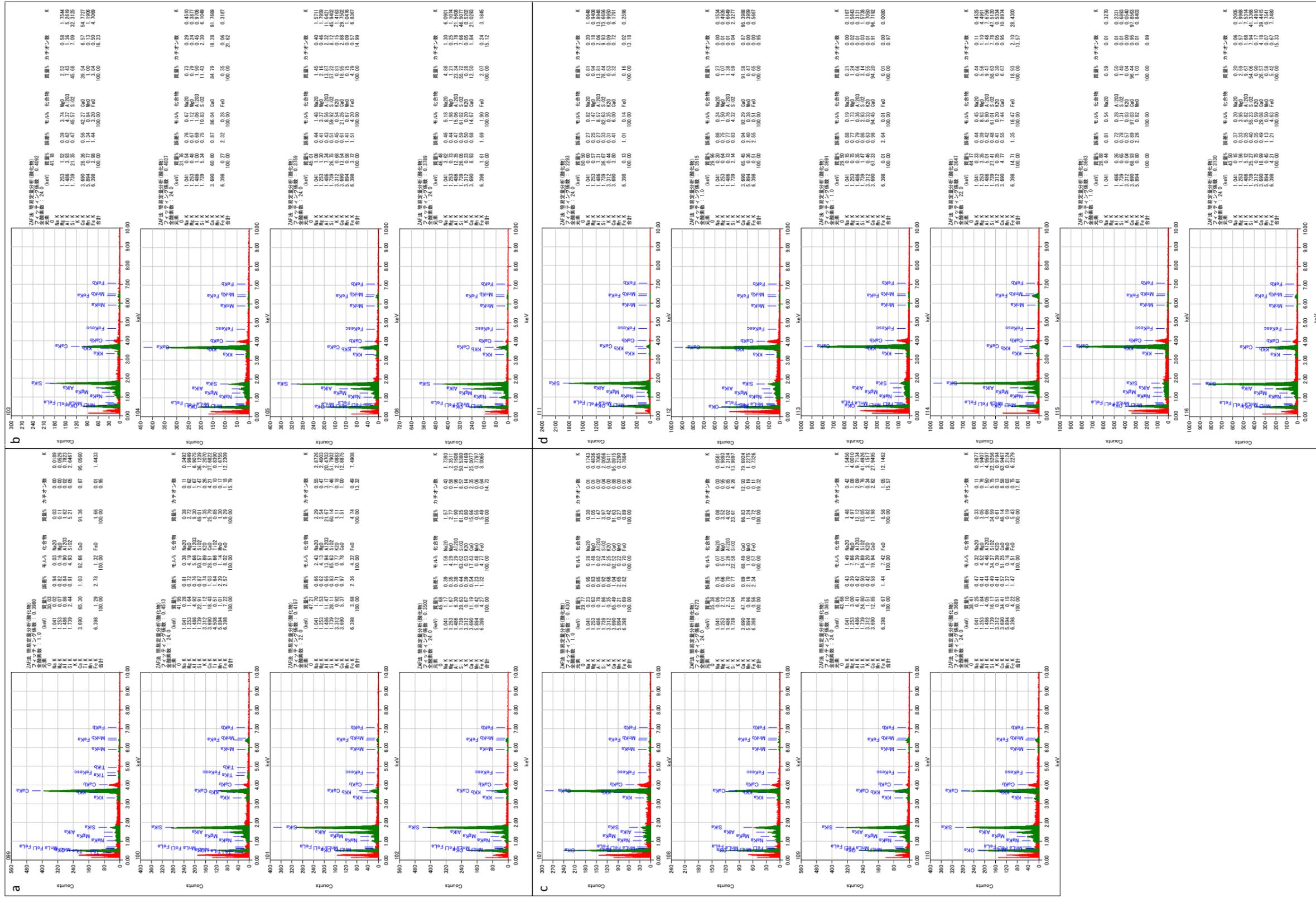


図 2.3.1-90 FESEM-EDS 分析結果 (BBDH10-14-Rh-026 試料)

(c) μ -XRD 分析結果

岩片試料を用いた μ -XRD スポット分析による構成鉱物の同定を行った。結果をスポット位置を示す画像（図 2.3.1-91）とともに図 2.3.1-92 に示す。

褐色帯はサポナイトもしくはノントロナイトに帰属する強いピークを示し、斜プチロル沸石のピーク($2\theta = 10, 22^\circ$)も顕著である。白色帯では、それらに加えて方解石のピークが顕著である。

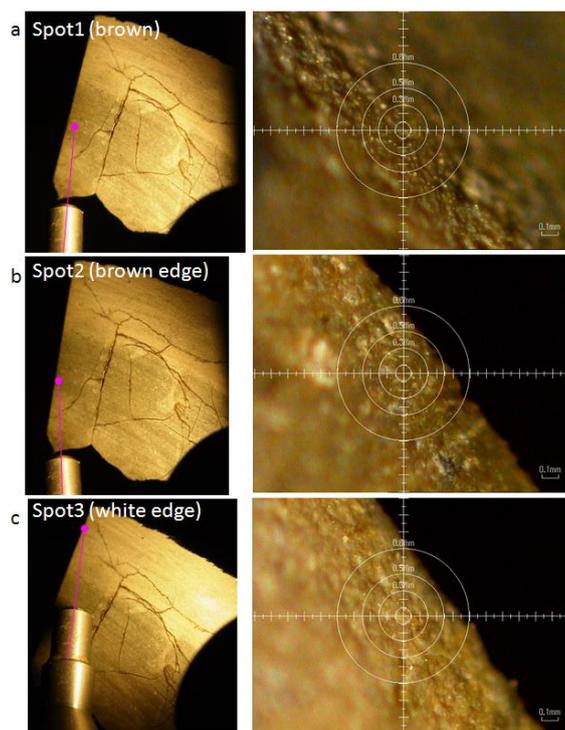


図 2.3.1-91 μ -XRD 分析スポット(BBDH10-14-Rh-026 試料)

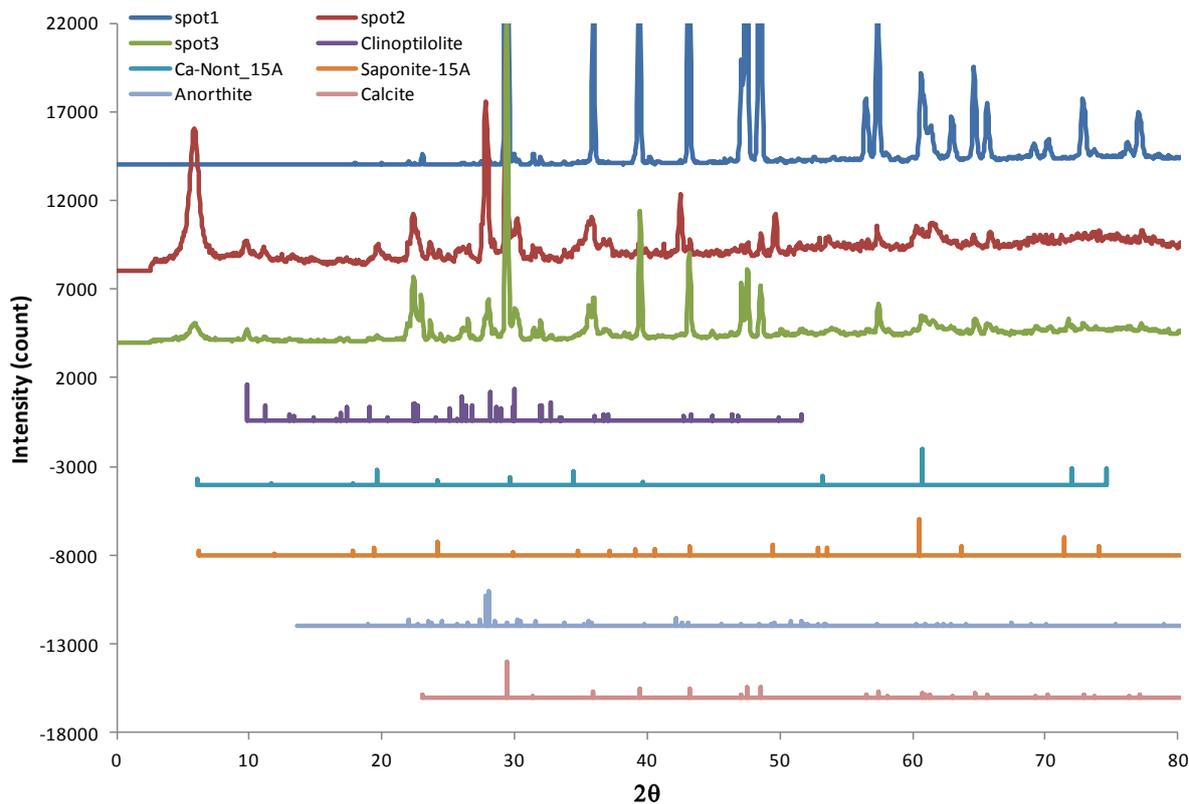


図 2.3.1-92 XRD パターンと解析結果(BBDH10-14-Rh-026 試料)

e. BBDH10-14-Rh-054

(a) EPMA 分析結果

この試料の緑色を呈する領域は変質した玄武岩である。源岩である玄武岩の火山岩組織を残す領域と、外縁部に発達した白色の変質粘土帯の境界に注目してマッピングした結果の BEI と SEI 画像を図 2.3.1-93 に示す。

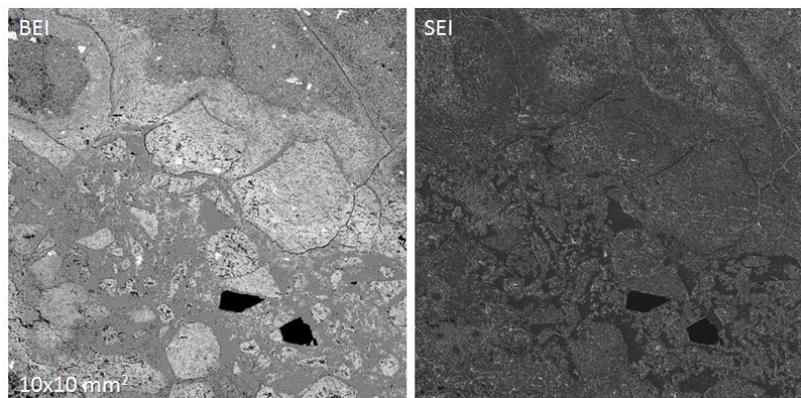


図 2.3.1-93 BBDH10-14-Rh-054 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右)

やや角礫化した周縁部の外部は BEI で明るく表示される粘土質層(Fe などに富む)に置換されている。この玄武岩周縁部は散在する微細なマイクロライトで構成されており、その内側はガラス (今は変質している) に富む。これらの組織から、この周縁部は玄武岩溶岩が噴出後に急冷したチルドマージンであったと推察される。この元素マップを図 2.3.1-94 に示す。

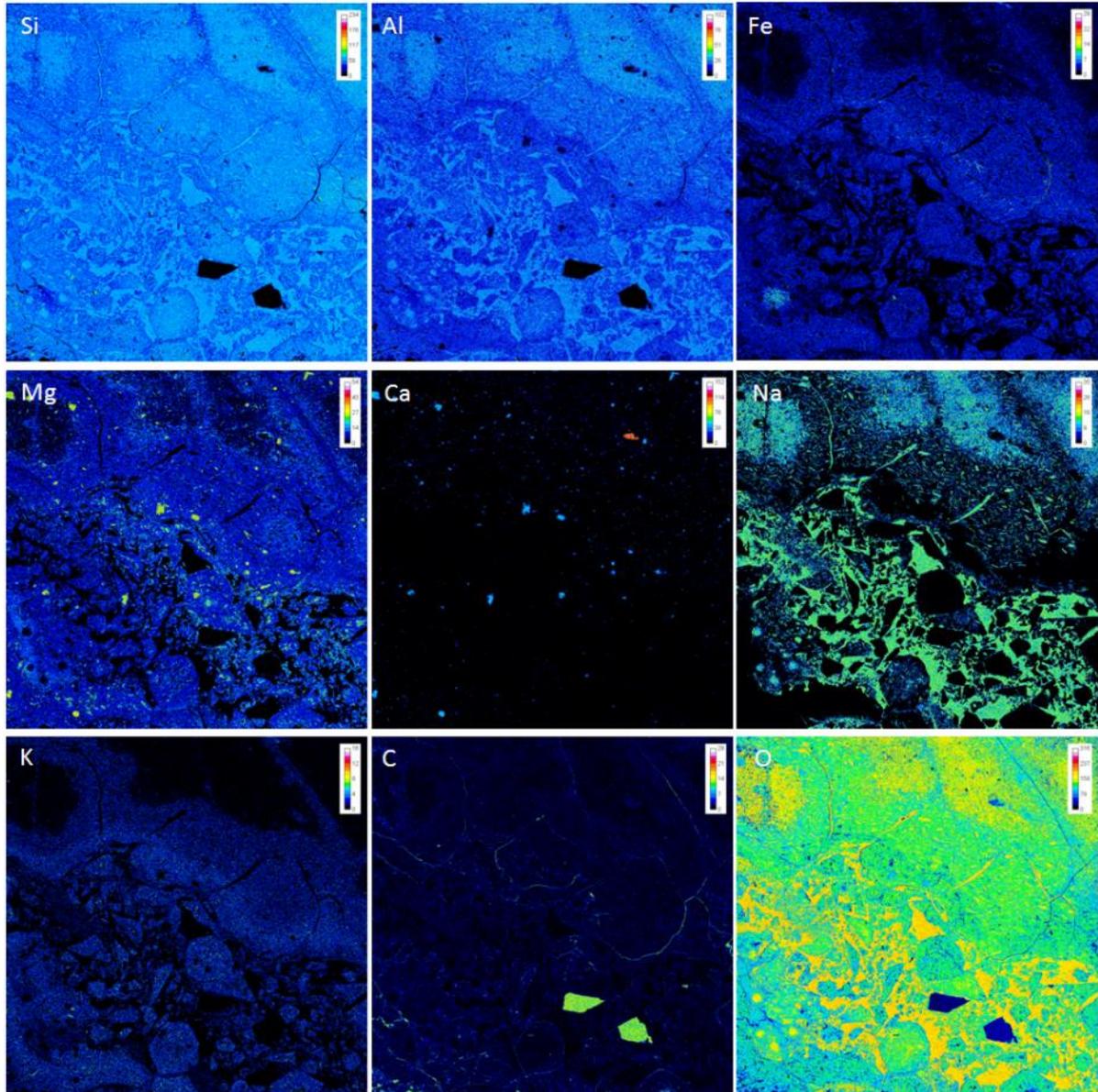


図 2.3.1-94 BBDH10-14-Rh-054 試料の元素マップ

この変質したチルドマージンと思われる岩片周縁部は、はじめは Na に富む微細な斜長石 laths で構成されていたと思われる。この境界部を中心にスポット分析を行った。それらの結果を図 2.3.1-95 に示す。

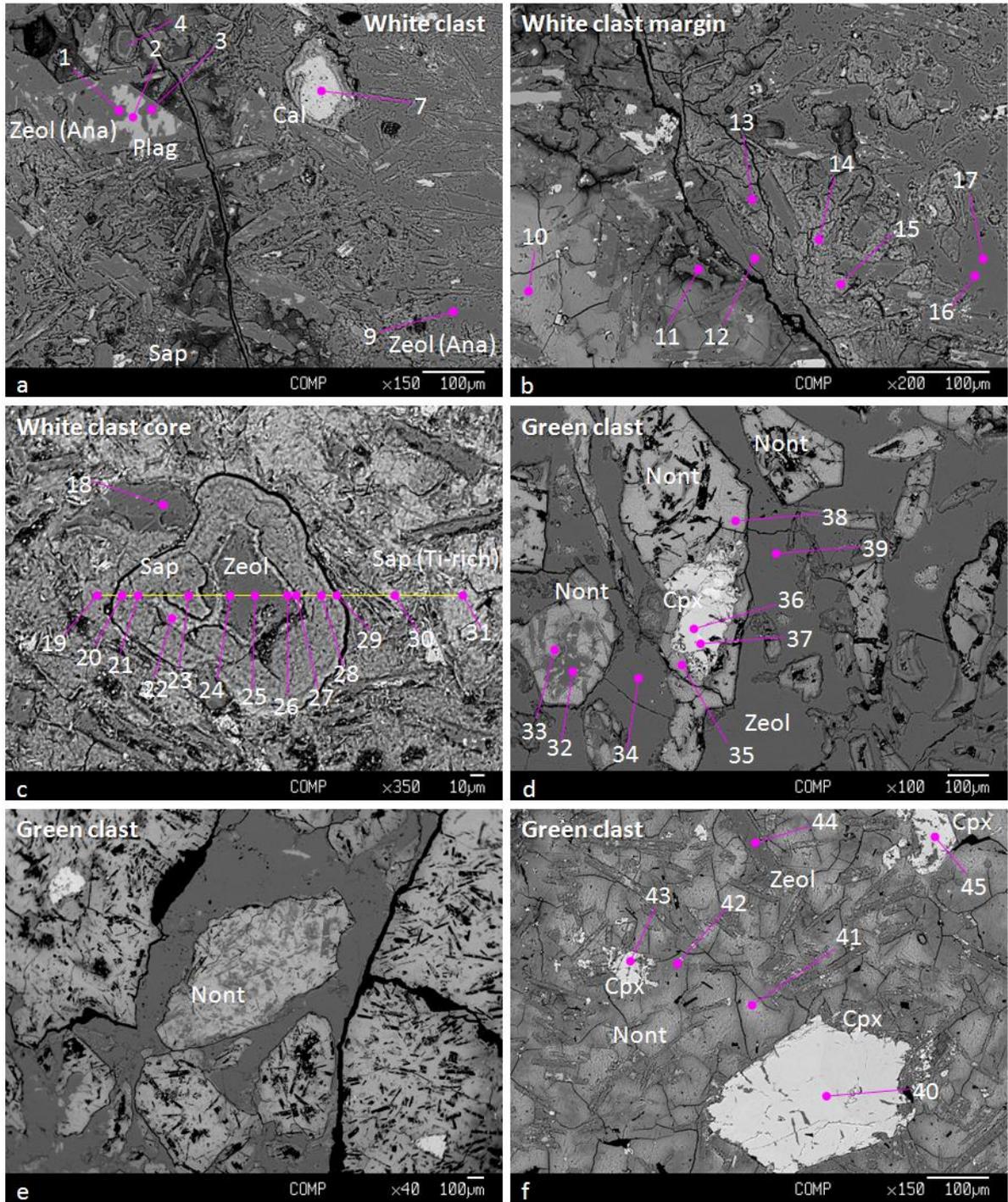


図 2.3.1-95 鉱物のスポット分析(BBDH10-14-Rh-054)

白色の変質岩片は斜長石斑晶組織を示し、それらは内部にわずかに未変質の斜長石領域を残すが、大部分は方沸石に交代されている。白色岩片の外縁部はサポナイト質スメクタイトに富む。局所的に方解石も見られるが、それらはサポナイトに薄く包まれている。白色岩片中央部には方沸石がサポナイトに覆われている組織が認められる。

一方で変質玄武岩は当初はガラス質で、単斜輝石と斜長石斑晶を多く含むものであったはずだが、元の玄武岩組織を残す角礫状の領域（急冷ガラスと思われる）では、石基ガラスはサポナイトに交代されており、斜長石の大部分と、角礫の隙間を方沸石が充填している。輝石は未変質のまま保存されている。

各鉱物の化学組成を以下に列記する。方解石は MnO に富むが、周囲をサポナイト質スメクタイトで覆われていることから、玄武岩の変質の初期に沈殿したものと考えられる。斜長石は玄武岩斑晶としての Ca に富む組成($X_{An} = 0.78$)を示しているが、多くは方沸石へと交代されている。輝石はすべて単斜輝石である。急冷ガラス殻と思われる白色の領域ではガラス部は玄武岩組成であったと思われ、変質してできるスメクタイトも三八面体スメクタイトであるサポナイトである。一方でオリジナルの玄武岩の石基ガラスの変質相は二八面体のノントロナイト質である。沸石はすべて方沸石であり、組成的な変動が小さい。

表 2.3.1-11 方解石の化学組成

Sample ID	Rh-054_spot_7
X (mm)	39.847
Y (mm)	48.949
Z (mm)	11.712
Oxide wt. %	
SiO ₂	0.00
Al ₂ O ₃	0.01
TiO ₂	0.01
FeO	0.03
Cr ₂ O ₃	0.00
MnO	0.67
MgO	0.06
CaO	59.14
Na ₂ O	0.00
K ₂ O	0.00
total	59.91
Cation based on O=1	
Si	0.000
Al	0.000
Ti	0.000
Fe	0.000
Cr	0.000
Mn	0.009
Mg	0.001
Ca	0.989
Na	0.000
K	0.000
total	1.000

表 2.3.1-12 斜長石の化学組成

Sample ID	Rh-054_spot_2
X (mm)	40.15
Y (mm)	48.986
Z (mm)	11.712
Oxide wt.%	
SiO ₂	47.64
Al ₂ O ₃	31.89
TiO ₂	0.00
FeO	0.40
Cr ₂ O ₃	0.05
MnO	0.01
MgO	0.17
CaO	15.54
Na ₂ O	1.64
K ₂ O	0.02
total	97.36
Cation based on O=8	
Si	2.2344
Al	1.7629
Ti	0
Fe	0.0158
Cr	0.0019
Mn	0.0002
Mg	0.0116
Ca	0.7809
Na	0.1493
K	0.0013
total	4.9585

表 2.3.1-13 輝石の化学組成

Sample ID	Rh-054_spot_36	Rh-054_spot_37	Rh-054_spot_40	Rh-054_spot_43	Rh-054_spot_45
X (mm)	41.985	41.965	35.831	36.15	35.636
Y (mm)	55.412	55.459	69.457	69.238	69.033
Z (mm)	11.701	11.701	11.58	11.58	11.58
Oxide wt.%					
SiO ₂	51.20	50.43	49.96	49.14	52.08
Al ₂ O ₃	2.91	0.74	4.36	5.20	0.90
TiO ₂	0.10	0.17	0.21	0.28	0.09
FeO	2.31	5.14	3.02	3.27	3.85
Cr ₂ O ₃	0.28	0.06	0.12	0.29	0.11
MnO	0.13	0.23	0.11	0.15	0.19
MgO	18.08	15.31	17.81	17.20	22.37
CaO	21.74	21.20	20.29	19.84	14.31
Na ₂ O	0.09	0.16	0.15	0.13	0.01
K ₂ O	0.02	0.02	0.02	0.00	0.01
total	96.85	93.44	96.05	95.49	93.91
Cation based on O=6					
Si	1.915	1.982	1.884	1.865	1.977
Al	0.128	0.034	0.194	0.233	0.040
Ti	0.003	0.005	0.006	0.008	0.003
Fe	0.072	0.169	0.095	0.104	0.122
Cr	0.008	0.002	0.004	0.009	0.003
Mn	0.004	0.008	0.004	0.005	0.006
Mg	1.008	0.897	1.001	0.973	1.266
Ca	0.871	0.893	0.820	0.807	0.582
Na	0.007	0.012	0.011	0.009	0.001
K	0.001	0.001	0.001	0.000	0.001
total	4.018	4.002	4.018	4.011	4.000

表 2.3.1-14 スメクタイトの化学組成

Sample ID	spot_6	spot_7	spot_8	spot_9	spot_dark_10	spot_sap_13	spot_sap_12	spot_sap_15	spot_sap_16	spot_sap_17	spot_sap_18	spot_sap_19	spot_sap_20	spot_sap_21	spot_sap_22	spot_sap_23	spot_sap_24	spot_38	spot_41
X (mm)	39.173	39.171	39.168	39.167	39.196	39.351	39.289	39.326	39.311	39.306	39.289	39.28	39.266	39.606	39.591	39.615	39.62	38.954	39.517
Y (mm)	21.708	21.718	21.76	21.775	21.912	22.021	22.007	22.019	22.018	22.013	22.01	22.006	22.003	22.302	22.308	22.318	22.323	22.376	19.679
Z (mm)	11.284	11.284	11.284	11.284	11.284	11.276	11.274	11.276	11.276	11.276	11.276	11.276	11.276	11.278	11.278	11.278	11.278	11.276	11.299
Oxide wt. %																			
SiO ₂	51.47	52.57	51.43	50.40	51.45	51.65	52.80	51.83	52.90	52.23	52.82	53.96	51.75	48.96	48.54	50.61	50.54	53.91	51.68
Al ₂ O ₃	13.83	12.55	13.97	12.40	11.30	9.48	6.04	7.12	5.89	5.92	5.94	6.17	6.17	8.15	10.91	8.28	8.36	11.20	6.31
TiO ₂	0.47	0.19	0.23	0.16	0.16	0.19	0.10	0.12	0.10	0.09	0.09	0.09	0.12	0.13	0.45	0.11	0.08	0.27	0.10
FeO	10.87	12.74	9.92	8.79	10.62	9.48	21.10	18.72	21.28	21.68	21.13	21.38	21.14	18.36	12.81	17.86	17.90	11.86	17.25
Cr ₂ O ₃	0.01	0.00	0.05	0.04	0.00	0.00	0.00	0.04	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.05	0.00
MnO	1.39	1.77	1.72	1.17	1.36	2.22	1.53	1.67	1.63	1.45	1.48	1.58	1.52	1.83	1.73	1.70	1.69	1.61	2.49
MgO	4.09	4.59	3.40	3.65	3.43	2.67	3.92	4.06	3.83	3.78	3.89	4.07	3.52	3.47	2.97	3.81	3.71	3.62	4.00
CaO	1.46	1.62	1.86	2.16	1.78	1.43	2.05	1.99	2.02	2.05	2.00	2.05	2.20	1.50	1.84	1.52	1.49	1.78	1.51
Na ₂ O	0.32	0.44	0.71	0.21	0.32	0.34	0.55	0.47	0.46	0.53	0.57	0.54	0.46	0.27	0.54	0.26	0.30	0.42	0.59
K ₂ O	2.99	3.19	3.27	1.94	3.15	2.73	1.99	2.02	2.03	2.10	1.92	2.07	2.19	4.54	2.51	4.38	4.57	2.48	2.63
total	86.88	89.66	86.56	80.92	83.56	80.19	90.08	88.04	90.13	89.84	89.83	91.90	89.07	87.21	82.30	88.53	88.64	87.19	86.56
Cation based on O=22																			
Si	7.639	7.669	7.668	7.889	7.944	8.249	8.000	7.947	8.018	7.973	8.020	8.007	7.961	7.729	7.753	7.800	7.791	7.978	8.061
Al	2.419	2.157	2.455	2.287	2.056	1.785	1.078	1.288	1.052	1.066	1.063	1.078	1.119	1.516	2.054	1.504	1.519	1.954	1.160
Ti	0.052	0.021	0.026	0.019	0.019	0.023	0.011	0.014	0.011	0.010	0.010	0.010	0.014	0.015	0.054	0.013	0.009	0.030	0.012
Fe	1.349	1.554	1.237	1.150	1.372	1.267	2.673	2.400	2.698	2.768	2.683	2.654	2.720	2.424	1.711	2.302	2.307	1.468	2.250
Cr	0.001	0.000	0.006	0.005	0.000	0.000	0.000	0.005	0.000	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.006	0.000
Mn	0.174	0.219	0.218	0.156	0.178	0.301	0.197	0.217	0.209	0.187	0.190	0.199	0.198	0.245	0.234	0.222	0.221	0.202	0.329
Mg	0.905	0.999	0.757	0.852	0.789	0.635	0.886	0.927	0.864	0.861	0.880	0.899	0.807	0.815	0.707	0.876	0.853	0.798	0.930
Ca	0.232	0.254	0.297	0.362	0.294	0.245	0.332	0.327	0.328	0.335	0.326	0.325	0.363	0.254	0.315	0.250	0.246	0.282	0.252
Na	0.091	0.123	0.205	0.062	0.096	0.106	0.162	0.141	0.134	0.158	0.166	0.155	0.136	0.083	0.166	0.078	0.089	0.120	0.179
K	0.567	0.594	0.621	0.388	0.620	0.556	0.385	0.395	0.392	0.409	0.371	0.392	0.430	0.915	0.511	0.862	0.899	0.469	0.523
total	13.428	13.590	13.489	13.171	13.367	13.166	13.724	13.661	13.708	13.767	13.708	13.718	13.749	13.996	13.505	13.906	13.934	13.307	13.697
Al(4)	0.361	0.331	0.332	0.111	0.056	-0.249	0.000	0.053	-0.018	0.027	-0.020	-0.007	0.039	0.271	0.247	0.201	0.209	0.022	-0.061
XFe	0.598	0.609	0.620	0.575	0.635	0.666	0.751	0.721	0.757	0.763	0.753	0.747	0.771	0.748	0.708	0.724	0.730	0.648	0.708
XCa	0.261	0.262	0.264	0.446	0.291	0.270	0.378	0.379	0.384	0.372	0.377	0.373	0.391	0.203	0.317	0.210	0.200	0.324	0.264
Smectite	nontronite	nontronite	nontronite	nontronite	nontronite	nontronite	saponite	saponite	saponite										

-113-

表 2.3.1-15 沸石の化学組成

Sample ID	Rh-054_spot_1	Rh-054_spot_3	Rh-054_spot_9	Rh-054_spot_11	Rh-054_spot_12	Rh-054_spot_16	Rh-054_spot_17	Rh-054_spot_18	Rh-054_spot_24	Rh-054_spot_25	Rh-054_spot_26	Rh-054_spot_32	Rh-054_spot_34	Rh-054_spot_39	Rh-054_spot_44
X (mm)	40.182	40.129	39.639	39.477	39.4	39.13	39.119	35.153	35.09	35.08	35.069	42.28	42.099	41.758	35.939
Y (mm)	48.98	48.968	49.293	50.98	50.963	50.998	50.96	47.988	48.056	48.056	48.056	55.511	55.536	55.233	69.039
Z (mm)	11.712	11.712	11.712	11.695	11.695	11.695	11.695	11.667	11.667	11.667	11.667	11.701	11.701	11.701	11.58
Oxide wt. %															
SiO ₂	57.80	57.80	58.55	59.11	57.77	57.78	57.65	58.25	57.93	57.32	56.37	57.16	57.45	56.55	57.56
Al ₂ O ₃	24.59	25.01	24.96	27.06	25.96	24.38	24.65	24.80	23.67	24.04	23.92	25.03	24.89	24.27	25.87
TiO ₂	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
FeO	0.07	0.13	0.07	0.14	0.11	0.01	0.05	0.17	0.13	0.21	0.30	0.12	0.05	0.20	0.21
Cr ₂ O ₃	0.06	0.04	0.04	0.03	0.02	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MnO	0.00	0.03	0.01	0.00	0.02	0.02	0.01	0.00	0.02	0.00	0.04	0.00	0.03	0.00	0.02
MgO	0.00	0.00	0.00	0.07	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.02	0.23	0.01	0.00	0.00	0.00
CaO	0.06	0.07	0.05	0.59	0.50	0.06	0.03	0.05	0.10	0.06	0.41	0.20	0.01	0.02	0.26
Na ₂ O	7.69	6.60	6.99	5.64	5.95	7.40	6.94	7.31	6.95	6.31	4.45	6.91	7.35	8.02	7.94
K ₂ O	0.00	0.01	0.01	0.03	0.23	0.03	0.03	0.02	0.04	0.02	0.09	0.03	0.02	0.01	0.03
total	90.28	89.70	90.68	92.69	90.55	89.68	89.36	90.62	88.85	88.02	85.81	89.45	89.78	89.06	91.88
Cation based on O=72															
Si	24.955	24.998	25.063	24.682	24.754	25.070	25.049	25.013	25.322	25.229	25.294	24.847	24.905	24.833	24.516
Al	12.514	12.744	12.593	13.313	13.111	12.470	12.622	12.550	12.197	12.470	12.650	12.823	12.715	12.557	12.989
Ti	0.007	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.007	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.029	0.050	0.029	0.050	0.043	0.007	0.022	0.065	0.050	0.079	0.115	0.043	0.022	0.072	0.072
Cr	0.022	0.014	0.014	0.014	0.007	0.000	0.007	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mn	0.000	0.007	0.000	0.000	0.007	0.007	0.000	0.000	0.007	0.000	0.014	0.000	0.007	0.000	0.007
Mg	0.000	0.000	0.000	0.043	0.000	0.000	0.000	0.000	0.014	0.014	0.151	0.007	0.000	0.000	0.000
Ca	0.029	0.036	0.022	0.266	0.230	0.029	0.014	0.022	0.043	0.029	0.194	0.094	0.007	0.007	0.115
Na	6.437	5.537	5.803	4.565	4.939	6.228	5.846	6.091	5.890	5.386	3.874	5.825	6.178	6.833	6.559
K	0.000	0.007	0.000	0.014	0.122	0.014	0.014	0.014	0.022	0.007	0.050	0.014	0.007	0.007	0.014
total	43.992	43.394	43.531	42.948	43.222	43.826	43.574	43.762	43.538	43.229	42.343	43.661	43.834	44.309	44.280
Si/Al	1.994	1.962	1.990	1.854	1.888	2.010	1.985	1.993	2.076	2.023	1.999	1.938	1.959	1.978	1.887
XK+Na	0.996	0.994	0.996	0.945	0.956	0.995	0.998	0.996	0.993	0.995	0.953	0.984	0.999	0.999	0.983

産状から推定されるこの岩石の変質過程は、チルドマージンを有する玄武岩が、急冷ガラス殻（全岩化学組成とほぼ同じの苦鉄質な組成）と内部の玄武岩の石基ガラス部（リキダス組成）がサポナイトとノントロナイトにそれぞれ変質し、残ったガラス部や斜長石は方沸石に変質したものと推察される。この変質過程では初期には炭酸を含む地表水由来の地下水だったが、後に地下深部で生成した Na に富むアルカリ地下水が関与したとも思われる。これらをまとめて示す図を図 2.3.1-96 に示す。

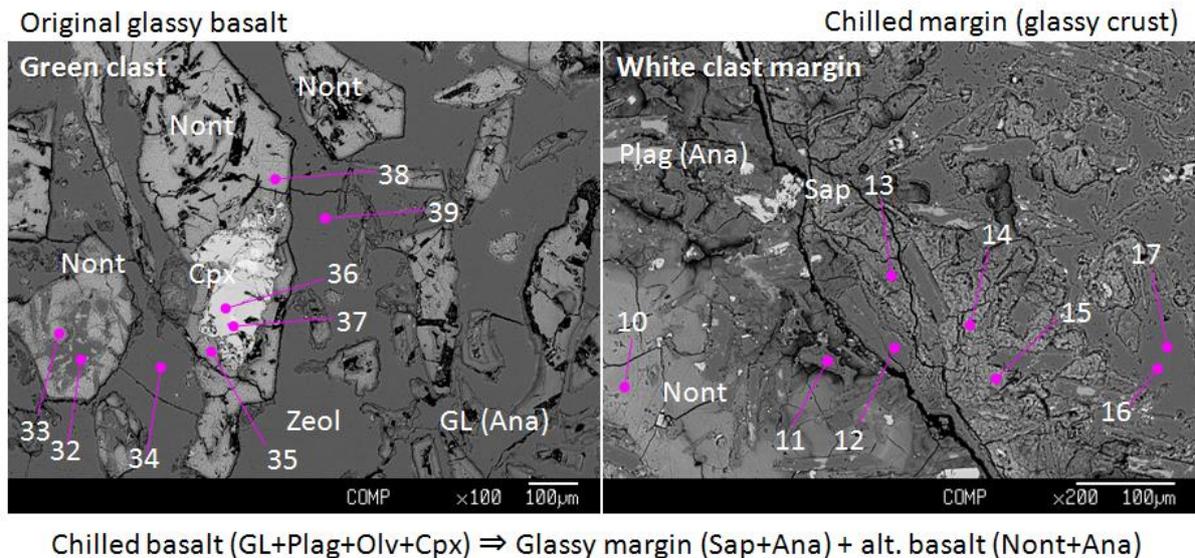


図 2.3.1-96 BBDH10-14-Rh-054 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序（左：玄武岩溶岩を変質したノントロナイトと方沸石；右：チルドマージンを変質したサポナイトと方沸石）

(b) FESEM-EDS 分析結果

BBDH10-14-Rh-054 試料の鉱物の産状観察から、図 2.3.1-97 に示す SEM 画像の各測定ポイントでの分析結果を図 2.3.1-98～図 2.3.1-99 に示す。

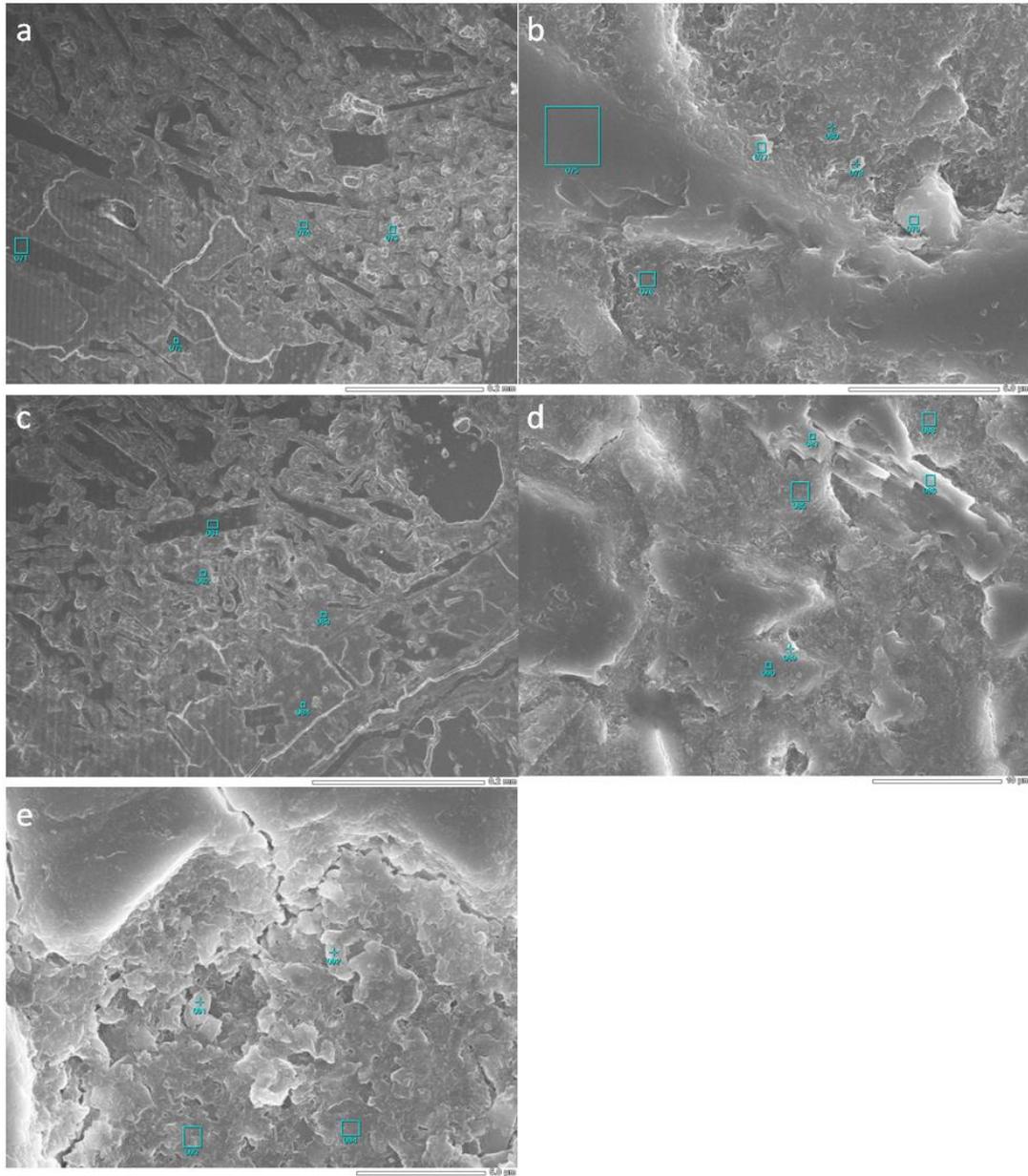


図 2.3.1-97 FESEM-EDS 観察結果(BBDH10-14-Rh-054 試料)

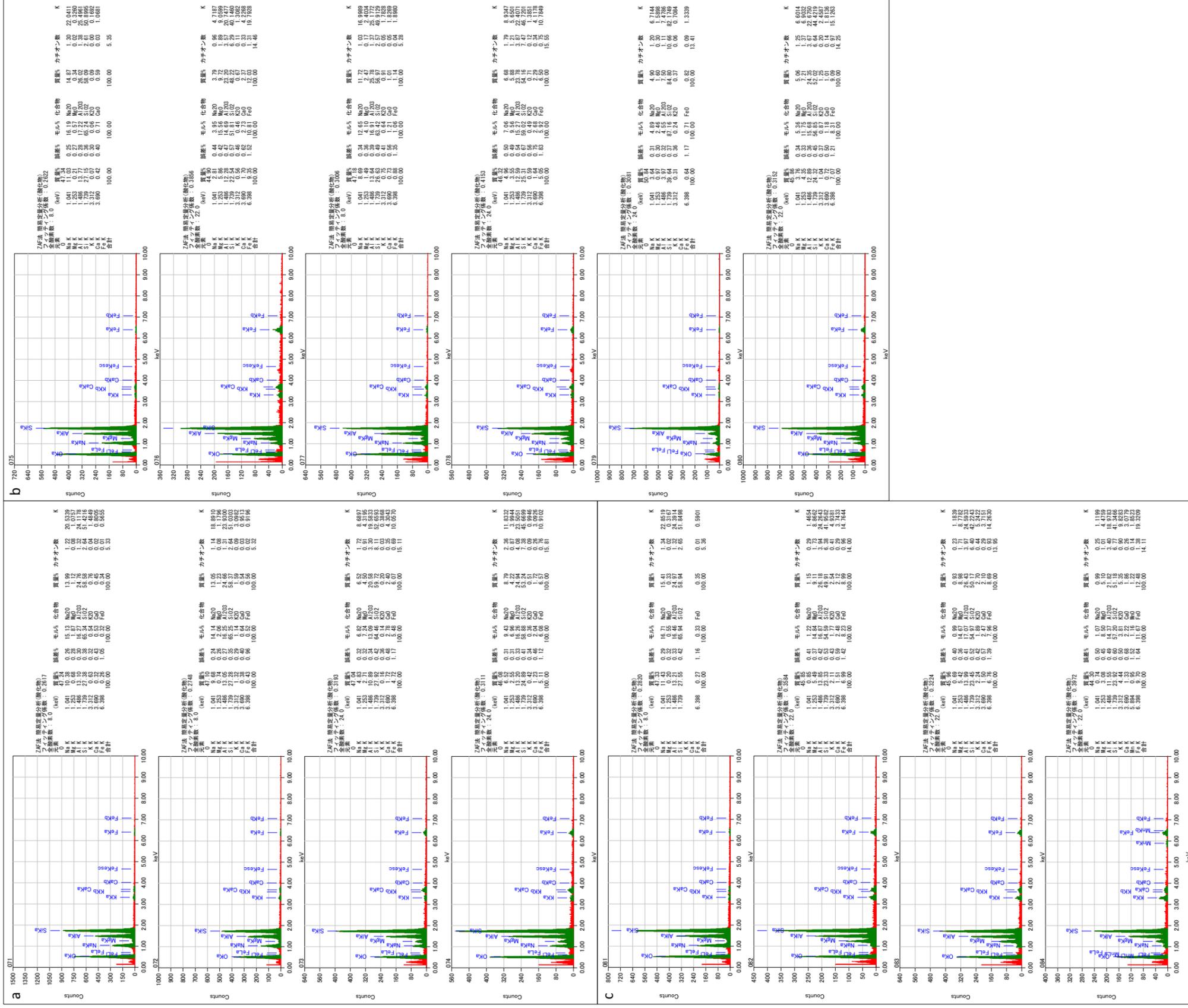


図 2.3.1-98 FESEM-EDS 分析結果(BBDH10-14-Rh-054 試料、その 1)

(c) μ -XRD 分析結果

岩片試料を用いた μ -XRD スポット分析による構成鉱物の同定を行った。結果をスポット位置を示す画像（図 2.3.1-100）とともに図 2.3.1-101 に示す。

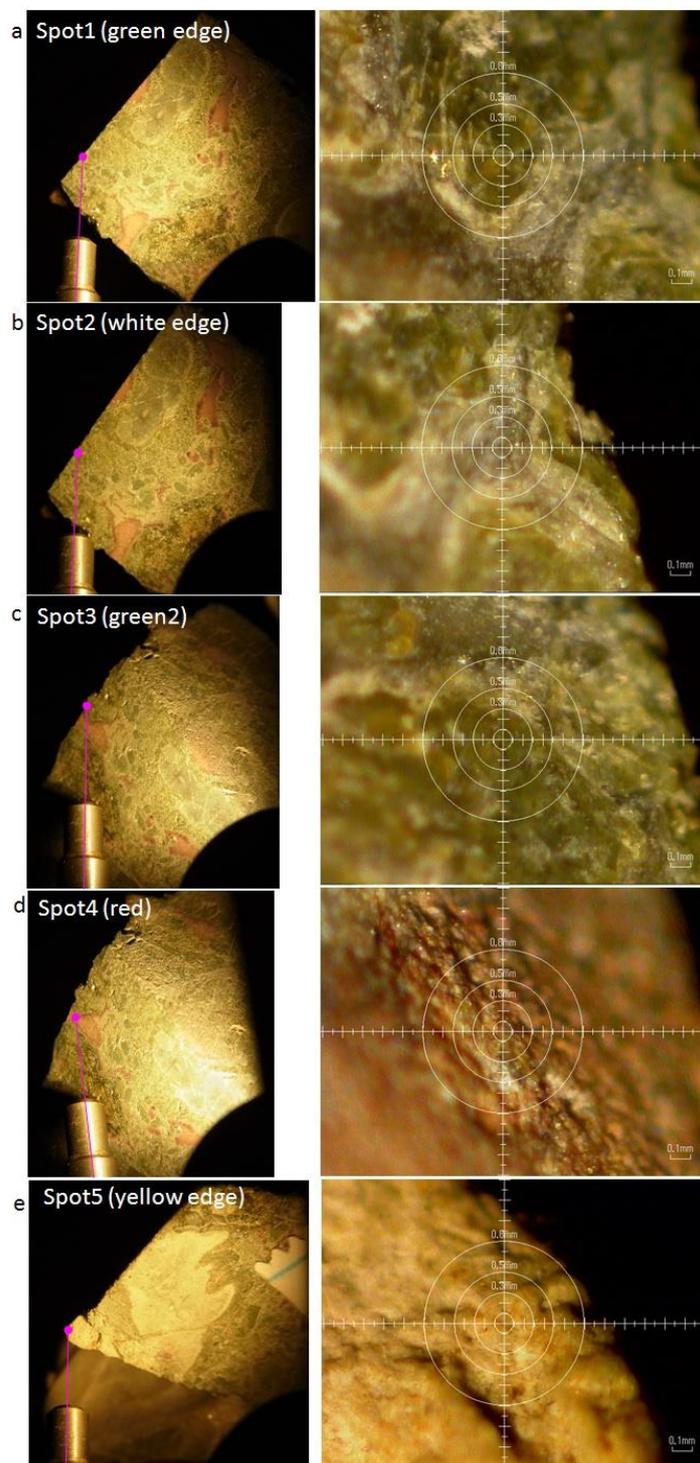


図 2.3.1-100 μ -XRD 分析スポット(BBDH10-14-Rh-054 試料)

変質した玄武岩の領域では Spot1, 2, 3 と共通して方沸石のピークが検出されている。この領域内にある白色鉱物の Spot2 では、 $2\theta = 6^\circ$ 近傍のノントロナイトに帰属されるピークがやや強く出ている。赤色領域ではやや方沸石のピークが鋭くなっている。変質玄武岩を覆う白色帯（変質したチルドマーゼン）はノントロナイトもしくはサポナイトなどのスメクタイトのピークが他と比べて強く表れている。

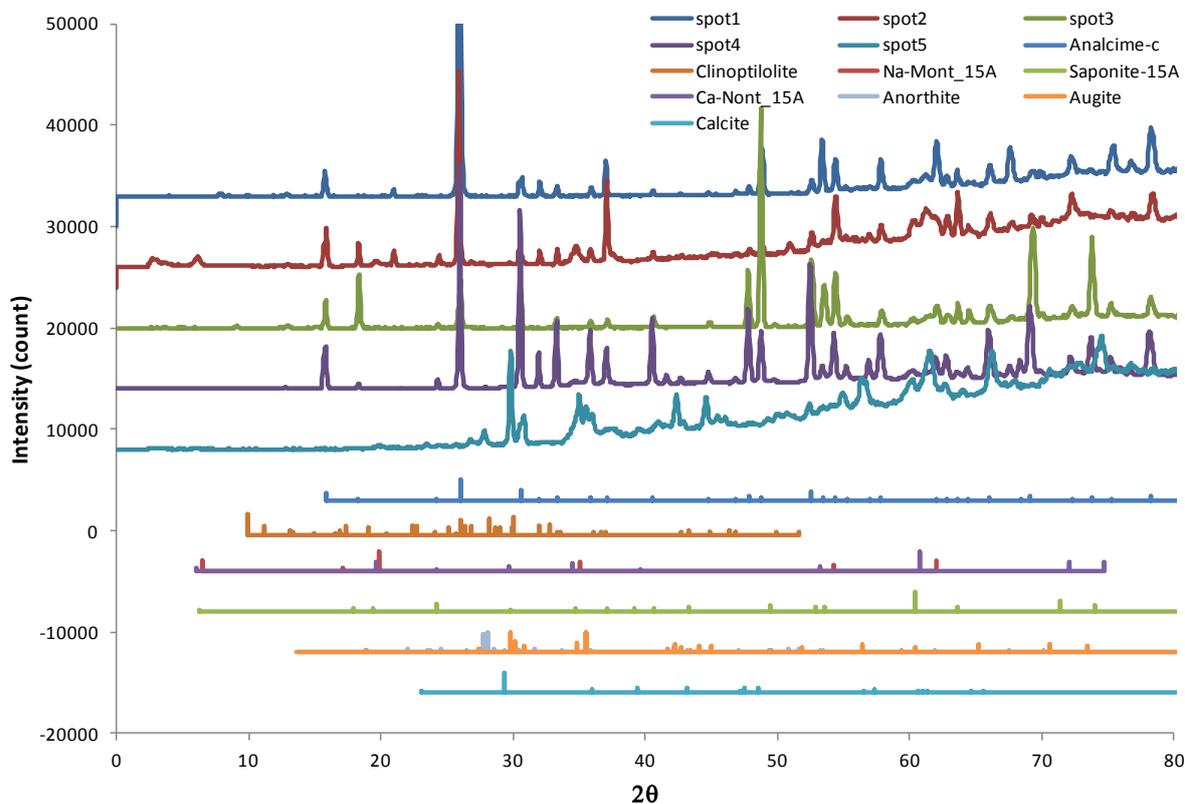


図 2.3.1-101 XRD パターンと解析結果(BBDH10-14-Rh-054 試料)

f. 記載岩石学的分類

岩石鉱物学的・地球化学的特性の詳細観察・分析結果から、DH10 孔の 2 件 (BBDH10-14-Rh-026, BBDH10-14-Rh-054) の岩石種を構成鉱物やその変質相の特徴から分類したものを今回分析した Bibiga の他の試料分析結果と合わせて表 2.3.1-16 に示す。

表 2.3.1-16 Bigbiga 試錐孔 (DH05, DH08, DH10) の分析試料の記載岩石学的分類

Sample ID	Rock name	Minerals	Remarks
BBDH10-14-Rh-026	Calcareous zeolite limestone	Calcite Clinoptilolite Ca-saponite	Calcite surrounded by clinoptilolite Saponite surrounded by clinoptilolite
BBDH10-14-Rh-041	Montmorillonite bentonite	Calcite Montmorillonite Nontronite Clinoptilolite Apatite	Montmorillonite-rich bentonite with Ca-Mg alteration along the cracks.
BBDH10-14-Rh-054	Altered basalt	Analcime Saponite Nontronite	Plagioclase phenocryst replaced with analcime. Groundmass glass replaced with saponite.
BBDH08-13-Rh-010	Montmorillonite-saponite bentonite	Clinoptilolite Quartz Calcite Montmorillonite Saponite Apatite	
BBDH05-13-Rh-003	Calcareous zeolite limestone	Calcite Clinoptilolite	Calcite surrounded by clinoptilolite
BBDH05-13-Rh-015	Calcareous zeolite limestone	Calcite Clinoptilolite	
BBDH05-13-Rh-016	Calcareous zeolite limestone	Calcite Clinoptilolite Pyrite	

(5) 試錐孔内での地下水調査

1) 採水および水質測定

試錐孔(DH10)及び既存井戸 (Well-1, Well-3) (図 2.3.1-1 参照) においてベラーによる採水及び地球化学的パラメータの測定 (水質測定) を行った。なお、DH10 孔では抑留したロッド・コアバレルの上部でケーシング下端付近の深度 (-79m) から採水した。水質測定結果を表 2.3.1-17 示す。

Well-1 については、これまでの結果と比べると ORP がプラスの値であり (これまでの測定ではマイナス (還元性) を示すことが多かった)、雨季のため表層水の影響を多く受けていると考えられる。

Well-3 については、掘削時に DH10 孔の泥水が溢れたことから、亀裂等で地下水の水路 (流路系) が連結していると考えられる。掘削後の pH が高いのは、DH10 孔の 45m 付近掘削時に壁面保護のためポリマーを注入する際 pH 調整しており、Well-3 の孔内水の洗浄が不十分であったことと合わせ DH10 孔の泥水の影響があるためだと考えられる。

DH10 孔については、流路系が連結している Well-3 が弱アルカリであるにもかかわらず、孔内水は中性であった。揚水試験結果が示すように地下水位の回復が早いことから、雨季のため表層水の流入がかなりあると思われる。

採取した水試料は、酸処理・シリンジフィルターろ過処理・原水のセットで持ち帰り (表 2.3.1-17 黄色部の水試料)、2.2.3 に示す分析に供した。溶存イオン濃度等の結果は次の 2.3.2 “アルカリ地下水の地球化学的特性・水理地質構造学的挙動” で示す。

表 2.3.1-17 試錐孔(DH10)及び既存井戸の水質測定結果

採水位置	地下水位 (GL~)	pH (水温℃)	ORP [mV]	EC (mg/m)	DO (mq/l)	測定日	備考 分析機器
Well-1	自噴	9.52 (29.2)	7~8	74.1	7.6	8/5	B
Well-3	-4.05m	8.69 (28.3)	-	-	-	8/5	A
		8.93 (27.8)	40	47.9	6.95	8/5	B
		9.31 (29.4)	60	-	-	8/16	A
		9.23 (29.2)	16	0.868	0.43	8/16	B
DH10 (-79.0m)	-4.75m	7.86 (29.0)	92	-	-	8/16	A
		7.91 (28.6)	55	0.577	1.77	8/16	B

※色付は分析用の持ち帰り分の水試料

2) 揚水試験

試錐孔掘削後に地下水位と表層水の流入等による変化を観察するために、ケーシング挿入後に以下の要領で揚水試験 (孔内の地下水を排水し、その後の地下水位の計測) を実施した (図 2.3.1-102)。

- 坑内水容積 (φ0.063m、掘削深度 GL-91.0m、地下水位 GL-4.05m より 0.271m³)
- 孔内容積の 2 倍以上 (バケツ (容量 18ℓ) 105 杯 (1.89m³)) を目途に置換 (排水)
- ポンプアップにより (容量 18ℓ) バケツ 105 杯 (1.89m³) 揚水

表 2.3.1-18 に排水後の各時間での地下水位の測定結果を示す。表層水の流入がかなり多く、20 分程度で水位は急速に 8 割程度回復し、3 時間 42 分後にはほぼ元の水位まで回復した。この表層水の流入量の多さは、雨季の影響もあると考えられる。



図 2.3.1-102 揚水試験

表 2.3.1-18 揚水試験結果

測定時間	地下水位 (GL~)	
	DH10	Well-3
揚水前	-4.75m	-4.05m
揚水直後 (13:40)	-5.51m	-4.74m
5 分後 (13:45)	-5.17m	-4.43m
10 分後 (13:50)	-5.05m	-4.28m
15 分後 (13:55)	-4.92m	-4.25m
25 分後 (14:05)	-4.87m	-4.16m
35 分後 (14:15)	-4.81m	-4.06m
45 分後 (14:25)	-4.81m	-4.01m
3 時間 42 分後 (17:22)	-4.76m	-4.06m

2.3.2 地下水の地球化学的特性

今年度実施した Bigbiga 地区の試錐孔(DH10)、既存井戸 (Well-1, Well-3) の位置と水質 (六角ダイヤグラム) をこれまでの調査結果と合わせて図 2.3.2-1 に示す。また、各地点の水質分析結果を表 2.3.2-1~表 2.3.2-3 に過年度に実施した Bigbiga 地区の水質分析結果も比較のために表 2.3.2-4~表 2.3.2-6 に示す。また、CFCs 濃度測定と滞留年代評価及び安定同位体比分析結果をまとめて表 2.3.2-7 に示す。

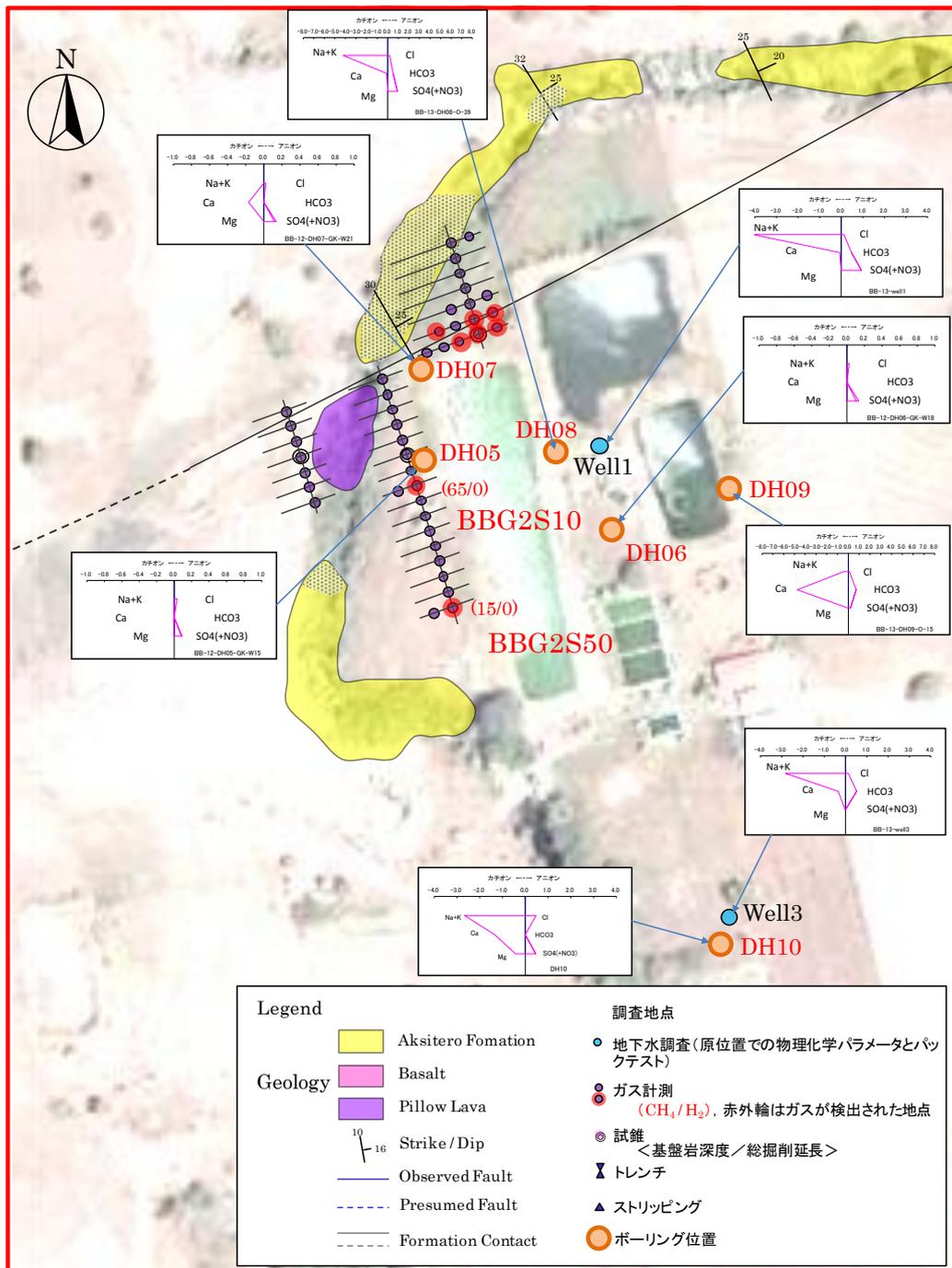


図 2.3.2-1 Bigbiga 地区の地下水調査位置と水質

Bigbiga 地区のこれまでのデータをもとに、Bigbiga 地区の地下水水質の特徴をまとめ、それをもとに Bigbiga 地区の地下水水質に関する成因について考察する。

既存井戸の Well-3 では、pH は Well-1 に比べても低い、Bigbiga のサイトで確認できるアルカリ地下水であるため、今年度は、その Well-3 近傍で、深部の pH の高い地下水を期待して 100m 近くまで試錐調査を実施したが、アルカリ性の地下水には残念ながらあたらなかった。ただし、DH10 の表層水の流入の影響が大きかったことを加味すると、この地点での基盤岩だけでなく直上の堆積層までアルカリ地下水が流動していた可能性もある。

各地下水の溶存イオン濃度については、(B)の分析では原水・原水濾過水 (0.22 μm)・原水+硝酸 (0.1M- HNO_3 , 1ml) 水の 3 種類に分取し、それぞれの溶存元素を分析した。その結果(表 2.3.2-1 参照)、原水+硝酸水の Fe、Mn、重金属 (Co、Ni 等) 濃度が原水や原水濾過水よりも極めて高い値を示していたが、Ba、Sr、Cs、REE などの濃度は原水と同様な値を示していた。なお、Well-1 や Well-3 などの井戸水に関しては、原水や濾過等の処理をした試料と比較しても大きな変動はなかった。

これまでのデータより、Bigbiga 地区の地下水水質は、

- pH は 9 以上にはなるが、10 以上とはなっていない。
- ORP はマイナスの値とはなるものの Manleluag 温泉保養地のように -300mV といった低い値とはならない。
- Ca は、Palawan 地区、Manleluag 温泉保養地、Poonbato 地区より低い、Mg は高い。しかし、Saile 鉱山より低い。
- Ba、Sr などアルカリ・アルカリ土類元素で高いものがある
- 原水+硝酸水で Fe、Mn、その他の重金属元素 (Co、Ni、Cu 等) Ba、Sr、REE が他の地下水 (原水、原水ろ過水地下水 (原水、原水ろ過水、原水+硝酸水) より高い。

以上の Bigbiga 地区の地下水特徴の解釈、成因として以下が考えられる。

主成分元素、pH、ORP 等に加え、滞留時間との関係からも Bigbiga の地下水-岩石 (超塩基性岩、玄武岩) との反応程度は小さいといえる。このことは、酸素・水素同位体データ、CFCs データからも推定される。Bigbiga 地区の地下水 (原水+硝酸水) 中の Fe、Mn、微量元素 (重金属、REE、Ba、Sr) 濃度が高いが、これは 0.2 μm 以下の微粒子中にこれらの元素が多く、これらは Fe、Mn 水酸化物と炭酸塩粒子の存在が考えられる。Bigbiga の地下水で Ca、Sr、Ba、REE が高いのは、石灰質堆積岩との反応のためであり、この地区には Saile 鉱山、Manleluag 温泉保養地、Poonbato 概査地区に比べて、石灰質堆積岩が多く分布している。

Bigbiga 地下水の ORP は Pinatubo、Palawan よりも高く、このことは地下深部からの還元性地下水 (還元的であると、Fe、Mn が地下水中に多く溶ける) が、浅層で酸化的な表層水と混じったことによることを示唆される。ただし、還元的な Pinatubo、Palawan 島の地下水中に Fe、Mn 濃度が高くないことが疑問として残る。この混合により、Fe、Mn 水酸化物が沈殿ですと、これらに多くの重金属 (Co、Ni、Cu 等) が友沈、イオン交換、吸着により多く入り込むと考えられる。

Bigbiga 地下水中の Cl^- 濃度、 SO_4^{2-} 濃度は他の地下水 (Pinatubo 及び Palawan) よりもかなり

高い。このことは、2013 年度[8]においても指摘したように古海水の混入が考えられる。ただし、その混入率は 0.5%程度と低い。海水の pH は一般的に 9 程度であるので、海水の割合が高いと pH が 9 程度にバッファーされる。

しかし、この場合、この割合が低いので、このことは考えにくい。仮に pH=11 の高アルカリ水 (99.5%) と pH9 の古海水 (0.5%) が混じったとしたら、その混合液の pH は 11 に近いものとなる。この混合以外に Bigbiga 地下水の pH が堆積岩中の炭酸塩によりバッファーされている可能性もある。CaCO₃ と平衡にある水溶液 pH を推定すると、仮に地下水中の CO₂ 濃度を 100ppm、Ca 濃度を 100ppm として閉鎖系、解放系共に pH が 8 程度となる。従って、このような水 (浅層水) と高アルカリ水との混合も考えられる。CO₂ 濃度は、Palawan > Bigbiga の順となった。一般的に CO₂ 濃度が高いと酸性、低いとアルカリ性になりやすいが、分析結果にはこの傾向はみられない。従って、CO₂ 濃度は pH に大きな影響を与えたとは言えない。

表 2.3.2-1 地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果 (Bigbiga 地区、平成 26 年度採水、分析(B))

Collection Place	Bigbiga; DH10	Bigbiga; DH10	Bigbiga; DH10	Bigbiga; Well-1	Bigbiga; Well-1	Bigbiga; Well-1	Bigbiga; Well-3	Bigbiga; Well-3	Bigbiga; Well-3
Temporary Number	P-11(N.W)	P-12(F.W)	P-13(A.W)	P-21(N.W)	P-22(F.W)	P-23(A.W)	P-31(N.W)	P-32(F.W)	P-33(A.W)
Na (ppb)	115205.07	94346.05	86875.02	104578.13	100568.13	105887.97	144402.68	131564.13	128263.98
Mg	9177.44	7135.41	9366.84	42.10	61.55	24.00	1094.02	1049.79	1014.83
Al	15.02	9.34	4453.12	1091.06	10.36	968.71	44.92	37.85	41.25
P	7.05	1.27	36.44	11.13	b.d.l.	9.09	4.34	b.d.l.	b.d.l.
K	3752.69	3060.19	3074.56	1025.58	1053.88	1020.47	1735.69	1614.67	1521.40
Ca	45922.39	33632.04	36410.04	1278.81	1339.19	1603.08	8403.47	8428.51	8117.85
Sc	1.81	1.09	1.55	4.85	1.38	1.41	0.44	0.36	0.33
Ti	1.42	0.92	14.10	1.01	1.45	2.80	3.62	1.16	1.22
V	1.18	1.51	6.34	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	1.53	1.18	0.96
Cr	b.d.l.	b.d.l.	2.86	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.
Mn	1.05	131.49	294.84	1.81	0.81	0.86	11.82	3.60	2.96
Fe	7.03	0.75	4469.08	9.97	2.47	5.77	48.97	29.87	34.07
Co	0.09	0.32	3.64	0.27	0.04	0.01	0.16	0.05	0.04
Ni	1.77	2.17	10.03	3.40	0.59	0.23	1.09	0.86	0.82
Cu	2.84	1.09	17.91	0.76	0.42	0.56	4.45	3.13	2.98
Zn	7.83	0.80	162.07	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.
As	2.95	3.03	2.57	1.39	1.62	1.56	1.87	1.50	1.40
Rb	1.52	1.44	1.80	1.76	0.39	0.29	0.89	0.76	0.74
Sr	124.46	103.58	117.30	19.33	9.51	14.47	42.58	44.15	39.90
Y	0.02	0.02	1.40	0.71	0.02	0.06	0.08	0.03	0.03
Mo	20.07	18.59	12.97	1.03	1.36	1.34	15.16	13.53	13.33
Cd	0.04	0.02	0.05	0.06	0.00	0.02	0.03	0.02	0.02
Cs	0.02	0.01	0.03	0.05	0.02	0.01	0.02	0.01	0.01
Ba	434.30	422.82	505.33	399.15	176.30	465.15	12.75	38.50	23.17
La	0.01	0.01	0.60	0.09	0.02	0.04	0.07	0.01	0.01
Ce	0.01	0.01	1.20	0.19	0.01	0.07	0.07	0.02	0.02
Pr	0.00	0.00	0.19	0.86	0.00	0.01	0.02	0.00	0.00
Nd	0.01	0.01	0.91	2.17	0.01	0.04	0.07	0.02	0.01
Sm	0.01	0.00	0.25	0.11	0.00	0.01	0.02	0.00	0.00
Eu	0.12	0.11	0.19	0.45	0.05	0.11	0.02	0.01	0.01
Gd	0.01	0.01	0.30	0.14	0.01	0.02	0.02	0.01	0.00
Tb	0.00	0.00	0.04	0.22	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
Dy	0.00	0.00	0.29	0.33	0.00	0.01	0.02	0.01	0.01
Ho	0.00	0.00	0.05	0.28	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
Er	0.00	0.00	0.17	0.80	0.00	0.01	0.02	0.00	0.00
Tm	0.00	0.00	0.02	0.11	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
Yb	0.00	0.00	0.16	0.71	0.00	0.01	0.02	0.00	0.00
Lu	0.00	0.00	0.03	0.12	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
Pb	0.83	2.22	419.30	0.51	0.09	3.86	4.70	b.d.l.	0.09
Th	0.00	0.00	0.04	0.04	0.00	0.02	0.01	0.00	0.00
U	0.10	0.11	0.11	0.05	0.02	0.02	0.18	0.20	0.20

b.d.l.: below detection limit.

表 2.3.2-2 地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果(全水試料、平成 26 年度採水、分析(B))

Analysis Item	Name	Unit	Bigbica			Palawan				
			DH10	Well-1	Well-3	Narra-1	Narra-2	Narra-3.1	Narra-3.2	St Lusia
Field	pH		7.91	9.52	8.92	10.52	10.56	11.22	10.93	9.59
	ORP	mV	55	8	37	-302	-177	-414	-60	-215
Analysis ⁽¹⁾	EC	mg/m	0.6	75.6	48.2	0.6	0.4	0.9	0.6	0.6
	DO	mg/L	1.8	7.5	7.0	2.9	2.0	0.0	0.0	2.6
Major Elements	Mg	μ g/L	9177.44	42.10	1094.02	4.63	10602.41	35.26	157.42	73.62
	Al		15.02	1091.06	44.92	297.74	340.48	1879.61	1345.58	5.91
	Ca		45922.39	1278.81	8403.47	2630.55	1535.90	44822.89	8257.06	5189.45
(Balk) ⁽²⁾	Ti	μ g/L	1.42	1.01	3.62	0.93	0.14	1.07	0.35	0.80
	Mn	1.05	1.81	11.82	b.d.l.	0.01	0.70	b.d.l.	0.82	
	Fe	7.03	9.97	48.97	b.d.l.	b.d.l.	4.45	b.d.l.	1.41	
Other Elements ⁽³⁾	Si ⁽⁴⁾	mg/L	35.1	72.3	6.1	87.6	2.9	1.1	1.7	58.7
	P	7.05	11.13	4.34	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	
	Sc	1.81	4.85	0.44	1.69	0.25	0.76	0.58	1.16	
	V	1.18	b.d.l.	1.53	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	
	Cr	b.d.l.*	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	
	Co	0.09	0.27	0.16	0.00	0.01	0.05	0.01	0.08	
	Ni	1.77	3.40	1.09	0.06	0.15	0.19	0.19	2.12	
	Cu	2.84	0.76	4.45	0.11	b.d.l.	0.36	0.35	4.27	
	Zn	7.83	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	188.97	
	As	μ g/L	2.95	1.39	1.87	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	
	Rb	1.52	1.76	0.89	0.46	1.26	2.60	2.79	2.79	
	Sr	124.46	19.33	42.58	8.77	11.11	131.09	88.00	19.57	
	Mo	20.07	1.03	15.16	0.36	0.11	0.17	0.20	0.34	
	Cd	0.04	0.06	0.03	0.00	b.d.l.	0.00	b.d.l.	0.05	
	Cs	0.02	0.05	0.02	0.01	0.05	0.09	0.11	0.07	
	Ba	434.30	399.15	12.75	121.86	354.59	687.78	616.10	263.67	
	Pb	0.83	0.51	4.70	b.d.l.	b.d.l.	0.05	b.d.l.	2.25	
	Th	0.00	0.04	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
	U	0.10	0.05	0.18	0.01	0.00	0.01	0.00	0.02	
	Trace Elements ⁽⁵⁾	La	μ g/L	0.01	0.09	0.07	0.00	0.00	0.02	0.01
Ce		0.01	0.19	0.07	b.d.l.	b.d.l.	0.01	0.00	0.00	
Pr		0.00	0.86	0.02	b.d.l.	b.d.l.	0.00	0.00	0.00	
Nd		0.01	2.17	0.07	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	
Sm		0.01	0.11	0.02	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	
Eu		0.12	0.45	0.02	0.03	0.08	0.13	0.10	0.04	
Gd		0.01	0.14	0.02	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	
Tb		0.00	0.22	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
Dy		0.00	0.33	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
Ho		0.00	0.28	0.01	b.d.l.	0.00	0.00	0.00	0.00	
Er		0.00	0.80	0.02	b.d.l.	b.d.l.	0.00	b.d.l.	0.00	
Tm		0.00	0.11	0.01	b.d.l.	0.00	0.00	0.00	0.00	
Yb		0.00	0.71	0.02	b.d.l.	0.00	0.00	0.00	0.00	
Lu		0.00	0.12	0.01	b.d.l.	0.00	0.00	0.00	0.00	
Y	0.02	0.71	0.08	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00		
Anion Elements ⁽⁶⁾	F ⁻	mg/L	0.57	0.60	1.50	0.50	0.50	0.50	0.50	
	Cl ⁻	17.00	4.50	20.00	58.00	19.00	27.00	30.00	140.00	
	NO ₂ ⁻	0.11	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	
	Br ⁻	0.05	0.05	0.05	0.21	0.08	0.10	0.11	0.45	
	NO ₃ ⁻	0.19	0.05	0.05	0.05	0.43	0.05	0.13	0.28	
	PO ₄ ³⁻	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	0.50	
SO ₄ ²⁻	22.00	48.00	34.00	3.90	0.52	0.12	0.47	11.00		
Cation Elements ⁽⁷⁾	Na ⁺	μ g/L	115205.07	104578.13	144402.68	94499.65	34534.66	61587.69	63947.65	113712.42
	K ⁺	3752.69	1025.58	1735.69	917.07	1681.82	3409.78	3400.28	2920.04	
Carbon Dioxide ⁽⁸⁾		mg/L	12.9	135.6	0.3	95.5	15.5	0.5	261.2	501.8
Oxygen Hydrogen Isotope Elements ⁽⁹⁾	δ ¹⁸ O		-8.50	-8.10	-6.80	-7.50	-7.10	-7.40	-6.20	-6.60
	δ D		-46.20	-54.50	-47.80	-45.10	-42.90	-44.20	-39.00	-42.10
	d-excess		6.10	10.30	6.80	15.10	13.90	14.80	10.80	10.50

*: below detection limit.

<Explanation of the footnote>

(1)Field Analysis --- Portable Measuring Instrument (pH:東亜DKK-HM-21P, EC:東亜DKK-CM-21P, ORP:東亜DKK-RM20-P, DO:東亜DKK-OD-21-P)

(2),(3) Elements Analysis --- ICP-MS(ELEMENT XR Type)

(4)Testing Methods for Industrial Water :Molybdenum Yellow Absorptiometric Method 「JISK0101.44.1-1998」

(5) Elements Analysis --- ICP-MS(ELEMENT XR Type)

(6) Ion Chromatography Analysis --- 島津製作所製 :SCL-104 VP

(7) Elements Analysis --- ICP-MS(ELEMENT XR Type)

(8) Portable Measuring Instrument (東亜製DKK-Ti-9004)

(9) Cavity Ring Down Spectroscopy (Near-Infrared Light Semiconductor Laser Type)

表 2.3.2-3 地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果 (Bigbiga 地区、平成 26 年度採水、分析(A)(B))

採水ポイント	Bigbiga, Zambales													
	N15°19' 13.60" E120°04' 22.10" 170m Well-1 Artesian Well			N15°30' 47.50" E120°22' 55.0" 172m Well-3 Well			N15°30' 47.50" E120°22' 55.0" 172m DH10 Drilling hole							
Classification	Artesian Well			Well			Drilling hole							
採取日	2014/8/5	2014/8/5	2014/8/5	2014/8/5	2014/8/5	2014/8/16	2014/8/16	2014/8/16	2014/8/16	2014/8/16	2014/8/16	2014/8/16	2014/8/16	
分析	(B)	(B)	(B)	(A)	(B)	(B)	(B)	(B)	(A)	(A)	(B)	(B)	(B)	
Sample No.	P-21(N.W)	P-22(F.W)	P-23(A.W)			P-31(N.W)	P-32(F.W)	P-33(A.W)			P-11(N.W)	P-12(F.W)	P-13(A.W)	
pH	9.52			8.69	8.93	9.23			7.86		7.91			
Temp.(°C)	29.2			28.3	27.8	29.2			29.0		28.6			
ORP(mv)	8			*	40	16			92		55			
EC(mS/m)	75.6			*	47.9	0.43			*		0.577			
DO(mg/l)	7.5			*	6.95	0.868			*		1.77			
CO ₂ (mg/l)	135.6			*	*	0.3			*		0.3			
カチオン濃度 (ppm)	Na	104.6	100.6	105.9	*	*	144.4	131.6	128.3	68.0	60.0	115.2	94.3	86.9
	K	1.03	1.05	1.02	*	*	1.74	1.62	1.52	2.55	2.44	3.06	3.07	10.3
	Ca	1.28	1.34	1.6	*	*	8.40	8.43	8.12	31.7	27.0	36.4	1.28	1.34
	Si	72.3	*	*	*	*	6.00	*	*	14.00	14.00	35.10	*	*
	Al	1.09	0.01	0.969	*	*	0.04	0.04	0.04	0.01	0.05	0.02	0.45	0.97
	Mn	0.0018	0.0008	0.0009	*	*	0.012	0.004	0.003	0.12	0.13	0.001	0.131	0.250
	Mg	0.0421	0.0616	0.0240	*	*	1.094	1.050	1.015	5.70	5.20	9.18	7.14	9.37
	Fe (2 ⁺ +3 ⁺)	0.0100	0.0025	0.0058	*	*	0.049	0.030	0.034	<0.01	<0.01	0.007	0.001	4.469
アニオン濃度 (ppm)	HCO ₃ ⁻	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	NO ₃ ⁻	<0.05	*	*	*	*	<0.05	*	*	0.05	0.07	0.11	0.11	*
	NO ₂ ⁻	*	*	*	*	*	<0.05	*	*	0.07	7599.00	0.19	0.19	*
	PO ₄ ³⁻	<0.5	*	*	*	*	<0.5	*	*	0.03	0.03	<0.5	<0.5	*
	SO ₄ ²⁻	48.0	*	*	*	*	34.0	*	*	22.05	22.89	22.00	22.00	*
	Cl ⁻	4.50	*	*	*	*	20.0	*	*	16.97	17.25	17.00	17.00	*
	Br ⁻	<0.05	*	*	*	*	0.05	*	*	0.02	<0.01	<0.05	<0.05	*
	F ⁻	0.60	*	*	*	*	1.5	*	*	0.53	0.10	0.57	0.57	*
バックテスト (ppm)	OH ⁻	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	SiO ₂	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	Cl	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	Al	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	Ca	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
ガス濃度 (ppm)	H ₂	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	CH ₄	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
備考			酸処理					酸処理		酸処理			酸処理	
				GL:-10m	GL:-79m		GL:-79m			GL:-79m			GL:-79m	

(B)分析

Reference

P-01(N.W)---Sample P-01,Nonprocessing water

P-02(F.W)---Sample P-02,Filtrated Water

P-03(A.W)---Sample P-03,Acidding Water

P-04(RF.W)---Sample P-04 Sample Refiltrated Water

b.d.l.: below detection limit.

表 2.3.2-4 地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果 (Bigbiga 地区、平成 25 年度採水、分析(A)(B)) [8]

採取地	位置状況	Bigbiga														
		DH08				DH09				well1				well2	well3	
		22.7m		39m		14.8m				自噴				56.75m	100m	
GPS	N15°30' 51.90" E120°22' 53.00"				N15°30' 52.1" E120°22' 54.6"				N15°30' 52.09" E120°22' 53.17"				N15°30' 49.9" E120°22' 54.2"	N15°30' 47.5" E120°22' 55.0"		
分析	(A)	(B)	(A)	(B)	(A)	(B)	(B)	(B)	(B)	(A)	(B)	(B)	(B)	(A)	(A)	
採取日	2013/11/8	2013/11/10	2013/11/8	2013/11/10	2013/11/10	2013/11/10	2013/11/10	2013/11/10	2013/11/10	2013/11/8	2013/11/10	2013/11/10	2013/11/10	2013/11/10	2013/11/11	
Sample No.	BB-13-DH08-O-22	PP004(F.W)	BB-13-DH08-O-39	PP005(F.W)	BB-13-DH09-O-15	P-01(N.W)	P-02(F.W)	P-03(A.W)	P-04(RF.W)	BB-13-well1	P-71(N.W)	P-72(F.W)	P-73(A.W)	-	BB-13-well3	
pH	9.16	9.16	8.91	8.91	7.12		7.13			9.34		9.37		6.80	8.37	
Temp.(°C)	31.9	31.9	29.4	29.4	30.6		29.7			29.9		29.4		29.3	32.2	
ORP(mv)	63	63	*	-	153		135			-18		-48		150	28	
EC(mS/m)	-	-	-	-	-		71.4			-		16.7		-	-	
DO(mg/l)	-	-	-	-	-		8.0			-		2.5		-	-	
CO2(mg/l)	-	15.2	-	17.7	-		1.4			-		3.5		-	-	
カチオン濃度 (ppm)	Na ⁺ *1	93	-	96	-	8.8	7.70	9.41	11.35	7.06	94	98.23	92.67	101.07	-	63
	K ⁺ *1	0.79	-	1.2	-	1.1	1.01	1.00	2.03	1.36	0.67	0.67	0.62	0.77	-	3.0
	Ca ²⁺ *1	1.8	-	2.1	-	95	81.60	80.45	127.84	71.28	1.5	1.35	1.42	1.61	-	6.9
	Si ⁺ *2	15	-	15	-	9.3	-	-	-	-	15	-	-	-	-	0.9
	Al ³⁺ *1	0.02	-	0.03	-	0.01	0.01	0.00	10.91	7.69	0.02	0.04	0.02	0.03	-	0.02
	Mn ²⁺ *1	N.D.	-	N.D.	-	N.D.	0.00	0.26	1.04	0.60	N.D.	0.00	0.00	0.00	-	N.D.
	Mg ²⁺ *1	0.03	-	0.05	-	0.69	7.96	8.04	12.43	6.98	0.02	0.03	0.03	0.03	-	0.40
	Fe (2+3+) *1	0.03	-	0.03	-	0.01	0.03	b.d.l.	9.41	7.90	0.02	0.09	0.04	0.08	-	0.04
	HCO ₃ ⁻ *3	30	-	31	-	44	-	-	-	-	29	-	-	-	-	32
アニオン濃度 (ppm)	NO ₂ ⁻ *4	N.D.	0	N.D.	0	N.D.	0.0724	-	-	-	N.D.	0	-	-	N.D.	
	NO ₃ ⁻ *4	N.D.	1.4582	N.D.	0.3249	N.D.	1.4403	-	-	-	N.D.	0.05144	-	-	N.D.	
	PO ₄ ³⁻ *4	N.D.	0	N.D.	0	N.D.	0	-	-	-	N.D.	0	-	-	N.D.	
	SO ₄ ²⁻ *4	44	0.0502	44	0.7207	9.3	5.8707	-	-	-	45	36.6829	-	-	0.76	
	Cl ⁻ *4	4.7	11.3007	6.3	3.7904	3.1	4.1691	-	-	-	4.5	4.1063	-	-	4.8	
	Br ⁻ *4	N.D.	0	N.D.	0	N.D.	0	-	-	-	N.D.	0	-	-	N.D.	
	F ⁻ *4	0.53	0.0159	0.54	0.1062	0.12	0.1917	-	-	-	0.55	0.1443	-	-	3.5	
	OH ⁻ *5	9.33(21.2°C) *5	-	9.25(21.2°C)	-	7.70(21.8°C)	-	-	-	-	9.53(21.2°C)	-	-	-	-	8.44(21.2°C)
	SiO ₂	100	-	100	-	50	-	-	-	-	100	-	-	-	50	10
バックグランド (ppm)	Cl	20	-	20	-	2	-	-	-	-	≥50	-	-	-	5	2
	Al	0	-	0	-	0	-	-	-	0	-	-	-	0	0	
	Ca	0	-	0	-	≥50	-	-	-	0	-	-	-	≥50	10	
	Mg	0	-	0	-	10	-	-	-	0	-	-	-	5	1	
ガス濃度 (ppm)	H ₂	*	-	*	-	*	-	-	-	-	-	-	-	*	*	
	CH ₄	*	-	*	-	*	-	-	-	-	-	-	-	*	*	
備考						揚水試験、 孔内水替後										

<Remark>

(A)分析

- *1 原子吸光分析法によりそれぞれ元素として計測
- *2 モリブデン青による分光光度法によりケイ酸濃度をSiO₂として計測しSiに換算
- *3 TOC計によりトータル無機炭素(TIC)として計測
- *4 イオンクロマトグラフィ法により、それぞれの種として計測
- *5 液の機器分析の直前にpHと液温を計測

(B)分析

Reference

- P-01(N.W)---Sample P-01,Nonprocessing water
- P-02(F.W)---Sample P-02,Filtrated Water
- P-03(A.W)---Sample P-03,Acidding Water
- P-04(RF.W)---Sample P-04 Sample Refiltrated Water
- b.d.l.: below detection limit.

表 2.3.2-5 地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果 (Bigbiga 地区、平成 24 年度採水その 1) [9]

採取地	位置状況	Aksitero River			Aksitero River		Well1									DH02付近		DH04付近			
		河川の割れ目湧水 (09年)	湧水、降雨時	河川の割れ目湧水 (09年)	Aksitero Riverバフリングポイント		井戸水 (Fishpond のアルカリ地下水) (09年)	井戸水	Fish pond 屋根 のある井戸の井戸 水	Fish pond 屋根 のある井戸の井戸 水	井戸水 (Fishpond のアルカリ地下水)	井戸水 (Fishpondのアル カリ地下水) (09年)	井戸水	Fish pond 屋根 のある井戸の井戸 水	井戸水 (Fishpond のアルカリ地下水)	Fish pond 屋根 のある井戸の井戸 水	灌池 (DDH-2近)	灌池 (DDH-2近)	灌池 (DH04Cの 背後)	灌池 (DH04Cの 背後)	
	N15°30'56.2" E120°22'56.0"			N15° 30'56.2" E120°22'56.9"		N15°30'52.1" E120°22'53.2"									N15° 30'51.4" E120°22'48.5"		N15° 30'50.5" E120°22'34.9"				
採取者	慶大		北大	北大	大林組	慶大					北大				大林	慶大	北大	慶大	北大		
採取日	2009/10/7	2009/10/7	2009/10/7	2011/9/5	2011/9/5	2009/10/4	2009/10/7	2011/8/31	2011/8/31	2010/11/8	2009/10/4	2009/10/7	2010/11/8	2011/8/31	2011/8/31	2010/11/8	2010/11/8	2010/11/7	2010/11/7		
Sample No.	BB-09-KWP-04	BB-09-KWP-06	BB-09-HWP-04	BB-11-HWAR-02	BB-11-OWAR-02	BB-09-KWP-01	BB-09-KWP-05	Well1	Well1	BB-10-KWP-06	BB-09-HWP-01	BB-09-HWP-05	BB-10-HWP-06	Well1	Well1	BB-10-WP-05	BB-10-WP-05	BB-10-WP-04	BB-10-WP-04		
pH	6.67	6.9	7.63	7.28	6.92	9.24	9.58	9.16	—	9.37	9.09	9.37	9.37	9.04	9.23	7.49	7.49	7.03	7.03		
Temp.(°C)	29.4	29.2	30.8	30.2	29.9	29	29.3	29.6	—	29.5	29.4	30.9	30.1	30.2	29.3	31.5	30.6	35	35		
ORP(mv)	-76	-74	-41	—	-140	28	-1	-118	—	22	-242	-181	252	-82	100	216	338	170	74-61		
EC(mS/m)	113	117.2	106.6	—	—	44	44.4	60.2	—	45.1	42.8	43.6	42.6	0.04	—	24.4	23	9.9	7.55		
DO(mg/l)	3.75	3.37	—	6.36	—	5.76	4.49	0.78	—	2.3	—	—	1.06	0.29	—	8.52	5.57	11.86	4.92		
CO2(mg/l)	—	—	—	—	—	—	—	253.8	—	168.4	—	—	—	—	—	115.8	—	23.5	—		
カチオン濃度 (ppm)	Na ⁺	28.003	—	143	96.4	—	15.797	—	7.13	7.15	117.2	—	91.2	—	107	11.2	—	16.72	60.2	6.27	13.8
	K ⁺	0.855	—	2.54	1.65	—	0.512	—	0.76	0.74	1.97	—	2.14	—	0.215	1.71	—	3.99	7.2	5.13	6.13
	Ca ²⁺	12.717	—	87.4	4.81	—	0	—	0.33	0.24	1.93	—	0.052	—	0.599	89.8	—	19.53	78.3	5.03	75.5
	Si ⁺	—	—	23.2	22.2	—	—	—	36.33	33.11	29.75	—	36.1	—	34.66	22.08	—	9.02	34.73	12.01	7.87
	Al ³⁺	—	—	—	n.d	—	—	—	1.11	-0.26	0	—	—	0.012	n.d	—	0	0.013	2.98	0.006	
	Mn ²⁺	0	—	—	0.02	—	0	—	0	-0.01	0	—	—	0.061	n.d	—	0	0.113	0.01	0.065	
	Mg ²⁺	1.331	—	5.17	0.8	—	0	—	0	0	0.01	1.24	—	0.092	3.45	—	7.75	12.2	2.63	19.1	
Fe (2 ⁺ +3)	0	—	—	0.33	—	0	—	0	0.01	0.27	—	—	0.035	n.d	—	0.41	0.211	2.31	0.048		
アニオン濃度 (ppm)	HCO ₃ ⁻	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	153.89	—	—	—	—	—		
	NO ₂ ⁻	4.944	—	—	61.3	—	0	—	—	—	—	—	0.979	69.9	—	—	0.491	—	0.481		
	NO ₃ ⁻	0.045	—	—	n.d	—	0	—	0	—	—	—	—	1.199	0.9	—	—	1.203	—	0.956	
	PO ₄ ³⁻	0	—	—	15.2	—	0	—	—	—	—	—	0	n.d	—	—	0	—	0		
	SO ₄ ²⁻	138.088	—	257.512	n.d	—	51.21	—	46.98	—	—	50.221	—	1.332	n.d	—	—	2.846	—	1.323	
	Cl ⁻	72.6	—	94.91	8.6	—	4.283	—	4.99	—	—	4.041	—	1.543	1.09	—	—	0.772	—	1.725	
	Br ⁻	0	—	—	4.54	—	0	—	—	—	—	—	—	0	4.63	—	—	0	—	0	
F ⁻	0	—	—	—	—	0.572	—	0.78	—	—	—	—	0.106	—	—	—	0.009	—	0.008		
OH ⁻	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0.582	—	—	—	0.001	—	0.008		
ガス濃度 (ppm)	H2	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0	—	—	—	—		
	CH4	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	0	—	—	—	—		
備考								フィルター	酸処理												

表 2.3.2-6 地下水パラメータ、溶存イオン濃度測定結果 (Bigbiga 地区、平成 24 年度採水その 2) [9]

採取地	位置状況	DH04付近			DH03C付近		DH03C付近		DH04底近		DH03付近			Aksitero River		Aksitero River				井戸
		灌池 (DH04近傍)	灌池 (DH03Cの背後)	灌池 (DH03Cの背後)	灌池 (DH03Cの背後)	井戸水 (Fishpondの旧揚水井) (09年)	井戸水 (Fishpondの旧揚水井) (09年)	井戸水 (地下4m)	灌池 (ボーリング (DDH-3)の背後)	灌池 (DH03近傍、Aはbasalt,Bはbentonite)	灌池 (DH03近傍、Aはbasalt,Bはbentonite)	河川の湧水 (09年)	河川の湧水 (09年)	Aksitero Riverバプリングポイント	Aksitero Riverバプリングポイント	Aksitero Riverバプリングポイント	Aksitero Riverバプリングポイント	井戸水		
GPS	N15° 30'51.6" E120°22'45.3"	N15°30'49.9" E120°22'54.2"			N15° 30'49.5" E120°22'41.7"		N15°30'47.7" E120°22'54.8"		N15° 30'47.4" E120°22'48.0"	N15° 30'47.0" E120°22'47.5"			N15°30'41.1" E120°22'49.8"		N15° 30'41.1" E120°22'49.7"				N15° 30'20.1" E120°21'46.0"	
採取者	北大	慶大	北大	大林	慶大	北大	慶大	北大	慶大	慶大	北大		慶大	北大	慶大		北大	大林	北大	
採取日	2010/1/6	2011/9/5	2011/9/5	2011/9/5	2010/1/7	2010/1/7	2009/10/7	2009/10/7	2010/1/6	2010/1/6	2010/1/6	2010/1/6	2009/10/7		2011/9/5				2011/8/30	
Sample No.	BB-10-HWP-01	Well2	Well2	Well2	BB-10-KWP-03	BB-10-HWP-03	BB-09-KWP-03	BB-09-HWP-03	BB-10-KWP-01	BB-10-KWP-02	BB-10-HWP-02A	BB-10-HWP-02B	BB-09-KWP-02	BB-09-HWP-02	BB-11-KWAR-01	BB-11-KWAR-01	BB-11-HWAR-01	BB-11-OWAR-01	BB-11-HWAR-03	
pH	6.88	6.99	7.17	7.15	8.76	8.76	9.3	9.6	7.68	8.44	8.44	8.4	8.38	8.45	8.3	—	8.38	8.5	5.52	
Temp.(°C)	30.64	29.4	27.7	29.7	33.4	33.4	31	32.5	28.6	32.2	32.4	32.5	28.8	30.9	29	—	30.9	29.9	23.6	
ORP(mv)	224	238	—	-11	170	225	30	-9	63	175	265	268	10	-202	-131	—	—	200	-14	
EC(mS/m)	21.4	38.6	—	—	20.2	15.69	34.7	35	48.2	14.8	12.48	12.5	42.6	41.1	30.3	—	—	—	0.03	
DO(mg/l)	—	5.82	0.85	—	25.67	18.62	5.02	—	8.48	21.18	16.1	14.18	5.02	—	1.94	—	13.3	—	2.94	
CO2(mg/l)	—	—	—	—	53.1	—	—	—	15.4	40.6	—	—	—	—	278.9	—	—	—	—	
カチオン濃度 (ppm)	Na ⁺	—	—	11.2	—	12.58	4.21	10.922	65.6	61.6	—	10.2	14.555	83.6	6.46	6.38	174	—	—	
	K ⁺	—	—	1.58	—	5.3	8.12	0.878	3.54	2.82	—	16.6	0.644	4.32	0.97	1.00	3.28	—	—	
	Ca ²⁺	—	—	1.05	<50	15.61	15	0	0.797	37.88	11.4	—	50.7	1.212	5.82	5.59	5.08	75.7	5~10	—
	Si ⁺	—	—	33.59	—	13.18	7.35	—	1.24	31.63	12.91	—	13.9	—	33.6	34.75	31.17	32.7	—	—
	Al ³⁺	—	—	n.d	2	0	0.039	—	—	0	0	—	0.045	—	—	4.71	4.02	n.d	0	—
	Mn ²⁺	—	—	n.d	—	0	0.568	0	—	0.15	0.28	—	0.323	0	—	0.03	0.06	0.0314	—	—
	Mg ²⁺	—	—	n.d	0	4.56	5.52	0	5.29	6.22	5.09	—	9.95	0	0.093	1.01	0.96	4.58	0~1	—
Fe (2 ⁺ +3)	—	—	n.d	—	0.26	0.041	0	—	0.54	0.33	—	—	0	—	0.02	0.02	n.d	—	—	
アニオン濃度 (ppm)	HCO ₃ ⁻	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	68.59	—	—	—	—	—	—	
	NO ₂ ⁻	—	—	164.2	—	—	0.407	0	—	—	—	—	0.635	0	—	—	—	12.5	—	
	NO ₃ ⁻	—	—	0.15	—	—	0.646	0	—	—	—	—	1.129	0	—	—	—	0.6	—	
	PO ₄ ³⁻	—	—	0.94	—	—	0	0	—	—	—	—	0	—	—	—	—	20.3	—	
	SO ₄ ²⁻	—	—	n.d	—	—	1.189	0	0.211	—	—	—	39.788	41.322	44.486	42.86	—	n.d	—	
	Cl ⁻	—	—	9.1	<50	—	1.163	8.223	7.75	—	—	—	1.791	3.98	4.079	4.6	—	0.2	50	
	Br ⁻	—	—	n.d	—	—	0	0	—	—	—	—	0	0	—	—	—	1.72	—	
	F ⁻	—	—	—	—	—	0.006	2.968	—	—	—	—	0.014	0.394	—	0.65	—	—	—	
OH ⁻	0.08	—	—	—	—	0.004	—	—	—	—	—	0.074	0.18	—	—	—	—	—		
ガス濃度 (ppm)	H2	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
	CH4	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
備考															フィルター	酸処理				

表 2.3.2-7 CFC 年代と安定同位体比

Name of the Official Sample	CFC Value (ppb)			$\delta^{18}\text{O}$	$\delta\text{ D}$	d-excess	The Cultivation Generation		
	CFC-11	CFC-12	CFC-113				%		
Bigbica DH10	48	127	13	-8.5	-46.2	6.1	1985	1967	1981
Bigbica Well-1	80	67	10	-8.1	-54.5	10.3	1974	1970	1979
Bigbica Well-3	-	-	-	-6.8	-47.8	6.8			

2.3.3 Bigbiga 地区のナチュラルアナログサイトとしての評価

自然界におけるベントナイトの長期的なアルカリ変質反応を支配する主要な現象とその地球化学的プロセスを理解し、ベントナイトの長期健全性を評価するためのデータセットを取得することが必要である。そのためには、ナチュラルアナログ研究手法が有効である。とりわけ、世界的観点から、(高)アルカリ地下水の湧出近傍にベントナイト層(ベントナイト質堆積物)が分布する好都合なサイト(露頭のコンタクト部)が殆ど存在しないが、フィリピン国ルソン島北西部に位置する Saile ベントナイト-沸石鉱床の近傍に「Fossil Type」のナチュラルアナログサイトがある。

一方、現在も(高)アルカリ地下水が湧水している近傍にベントナイト層が分布するサイト(Bigbiga 地区)を対象にした「Active Type」のナチュラルアナログサイトとしての成立性評価のために調査を実施してきた。サイト成立性評価のために、前述した今年度取得したデータに加え、平成 25 年度[8]に実施した試錐孔(DH08)及び(DH09)の柱状図を図 2.3.3-1~図 2.3.3-5 に、試錐コアの鉱物組成を図 2.3.3-6~図 2.3.3-9 に示す。また、平成 24 年度[9]に実施した試錐孔 DH05~DH07 の柱状図と鉱物分布については、図 4.2.3-1 を参照いただきたい。これらの試錐調査による地下水の地球化学特性を含め、これまでに Bigbiga 地区で実施した調査結果概要を Compilation Map として図 2.3.3-10 にまとめる。

サイトとしての具体的な成立要件(要素)は、3つの基本要件である。それは、①(現在も湧水する高アルカリ性地下水($11 < \text{pH} < 12$ 程度)の存在、②対象地層となるモンモリロナイトに富むベントナイト層または、ベントナイト質堆積物(一部タービダイト層の泥岩・砂岩、火山性碎屑物、粘土層などに含有するモンモリロナイトの存在)の分布、③高アルカリ性地下水の流路となる断裂系が、高アルカリ性地下水の形成・貯留場から調査対象層としている②に可能な限り直接連結、である。

従って、ナチュラルアナログサイトとしての成立性(好ましい地質環境)の評価については、上記3つの基本要件が満たされる会合部(コンタクト部)の露頭が確認できるサイトである。

高アルカリ地下水環境とすれば、①アルカリ地下水は少なくとも pH 11 程度の高アルカリ地下水であること。緩衝材の候補材料の一つであるベントナイトのアナログとすれば、鉱物組成としては、②モンモリロナイトに富むベントナイト層または、ベントナイト質堆積物(岩)が存在すること。アルカリ地下水の流路としての断裂系の性状としては、③アルカリ地下水の流路となり得る断裂系がアルカリ地下水の形成・貯留場からベントナイト層へ直接連結していることである。

次に、Bigbiga 地区のナチュラルアナログサイトとしての成立性について検討する。

最初に、基本要件①であるアルカリ地下水の賦存であるが、当地での最高 pH は、既存井戸(Well-1)の湧水地下水である。この井戸水の水量は季節変化がなく、pH 値は 9.2~9.6 範囲で還元環境である。また、この湧水井戸(Well-1)から南へ約 100mにある井戸(Well-3:自由地下水面が約-25m)の pH 値は 9.3~8.4 範囲である。さらに、既存井戸(Well-1)周辺で実施した試錐孔(DH08)においても、基盤岩である Zambales オフィオライトを堀削中にアルカリ地下水(pH 9.3~8.91)が一時自墳している。しかし、既存井戸(Well-3)直近の西 5m 試錐孔(DH10)では、中性であった。これは、降雨期での堀削のために、恐らく表層水の混和によるものと推察される。

このアルカリ地下水は、Zambales オフィオライトと地下水との相互作用により形成され、その pH の値は、アルカリ地下水形成場となる母岩 (Zambales オフィオライト) の鉱物組成、特に、バルク組成としての Mg 含有量に依存している。これまでの地下水の地球化学的特性調査の結果である pH については、Saile 鉱山周辺にある Manleluag の裂か水は 10.1 (母岩は細粒はんれい岩)、Poonbato の裂か水は、11.7 (母岩は橄欖岩)、そして、Bigbiga の裂か水は、9.6 (母岩は枕状玄武岩または自破碎玄武岩) である。このことから、より高い pH の地下水の形成は、より母岩の塩基性度、すなわち Mg 含有量、換言すれば、かんらん石のモード重量%が大きくなる必要がある。

従って、pH が 11 を超える地下水形成場としては、出来るだけ深部の超塩基性岩 (例えば、かんらん岩、ダナイト岩など) が好ましい地下水環境となる。

以上のことから、Bigbiga 地区でのアルカリ地下水形成場の母岩が、枕状玄武岩または、自破碎玄武岩であることから、①の要件である高アルカリ地下水の賦存の可能性は低いと考えられる。

②については、対象地層としてのベントナイト層あるいは、ベントナイト質堆積物 (岩) の存在が不可欠になる。換言すると、ベントナイト形成の原岩となる Aksitero 累層の構成メンバーである凝灰岩質層の存在環境が地質環境条件となる。

これまでの地表調査 (地質調査・トレンチ調査) などにより、凝灰岩質堆積物 (岩) は、当地で広く分布している石灰質砂岩・シルト岩・泥岩層中に挟在して分布しているが、薄層で、ベントナイト化が顕著でない。試誰調査により基盤岩である Zambales オフィオライトの直上にある安山岩起源で、淡褐色の凝灰岩質砂岩には、相対的にモンモリロナイトが多いことが確認できたが、やはり薄層であった。このモンモリロナイト形成の程度は、ベントナイトを形成する原岩の組成に依存するためであると考えられる。ここでは、石英安山岩起源の凝灰岩質層が多い傾向にある。

以上のことから、対象地層としてのベントナイト層あるいは、ベントナイト質堆積物 (岩) の更なる分布の可能性は低いと考えられる。

最後に、③については、断裂系をアルカリ地下水の流路とする裂か水であることから、断裂系を通路として湧水していることが明らかである。

しかし、このアルカリ地下水の流路となっている断裂系の性状については、試誰孔(DH08)のみで確認されているが、断裂系と対象地層とのコンタクトを判定できる断裂系の性状が可視出来ない。

以上のことから、アルカリ地下水の流路としての断裂系と対象地層とのコンタクト (対象地層に流入するアルカリ地下水の流路<断裂系>の位置) の空間的な位置の判定可能性は低い。

Bigbiga 地区のナチュラルアナログサイトとして、これらの 3 つの成立要件のもと検討した結果、今後の調査により、更なる好ましい地質環境になり、これらの成立要件がより満足される可能性は低いものと評価出来る。

Drill Hole Number : DH-08
 Location : N 15° 30' 51.9" , E 120° 22' 53.0"
 Elevation : 107m
 Core Size : NQ
 Total Footage : 40.54m
 Drilling Operation : 2. Nov. 2013 (pm) ~ 7. Nov. 2013 (pm)

Depth (m)	Columnar Section	CR*	RB**	Sample Number*** (Sample Location)	Lithology	Remarks
0.20				BBD08-13-Hu-001	0.00~0.20m surface soil (Alluvium deposits) unconsolidated sediments	
0.40				BBD08-13-Ru-001	0.60~1.00m light yellow white fine grained sandstone tuffaceous	0.7m $\angle 70^\circ$ crack plane is black color 0.9m spot状のcalcite (biogenic ?) (lamination $\angle 10^\circ$ concordant)
0.60				BBD08-13-Hu-002		1.1m $\angle 60^\circ$ This crack plane is brown
1.00				BBD08-13-Ru-002	1.10~1.50m light yellow white fine grained tuffaceous sandstone	1.4~1.43m(2) brown bed and white layer \Rightarrow cal (3) blue layer \Rightarrow ?
1.10				BBD08-13-Hu-003		
1.50				BBD08-13-Ru-003	1.60~2.85m light yellow brown pumiceous siltstone	1.6m clay (beantonic ?) 1.9~2.0m clay (beantonic ?)
1.60				BBD08-13-Hu-004		
				BBD08-13-Ru-004	0.00~2.90m weathered color 2.90m~ reduction color	
				BBD08-13-Hu-005	2.85~3.90m black mud stone and blueish grey sandstone alternated bed	2.1m tuffaceous ss 2.3~2.9m there are many high angle cracks crack plane is brown color 2.9m black bitumen inclusion 3.4~3.5m $\angle 80^\circ \sim 90^\circ$ calcite vein 3.4m turbidite / sharp boundary, upward fine grain 3.7~3.8m elastic dyke (liquefaction ?) 4.0~4.3m hair crack (include green mineral) 4.5m calcite vein (hair crack)
2.85				BBD08-13-Ru-005		
				BBD08-13-Hu-006	3.90~4.30m light yellow browns tuffaceous siltstone	
3.90				BBD08-13-Hu-007		
4.30				BBD08-13-Hu-008	4.30~5.80m blueish to pale grey calcareous tuffaceous fine grained sandstone	4.7m clay (beantonic ?) 5.1m black bitumen inclusion 5.8~5.9m $\angle 45^\circ$ crack plane is yellow brown include pyrite 5.9~6.0m $\angle 70^\circ$ open crack plane is reddish brown
4.30				BBD08-13-Hu-009		
4.30				BBD08-13-Hu-010		
4.30				BBD08-13-Hu-011		
				BBD08-13-Ru-006	5.80~9.20m light pale green tuffaceous calcareous fine grained sandstone \rightarrow limestone	6.6~6.7m exp. or berry? (light green color) 6.8m black fragment (beantonic)
5.80				BBD08-13-Hu-012		Dip 0~10° green patch ϕ 1mm black inclusion
6.00				BBD08-13-Ru-001		7.15m black pitted inclusion (not reaction) soft 7.5m opaque mineral perhaps pyrite 7.59m, 8.5m pumice elongate $\angle 20^\circ \phi 1 \sim 2$ mm $\angle 70^\circ$ hair crack 8.7~8.8m alteration Mn $\angle 45^\circ$ crack cal $\angle 70^\circ$ crack turbidite ? \Rightarrow 9.00~9.20m
6.00				BBD08-13-Hu-013		9.1~9.5m cracky zone calcareous rock crack plane slickenside normal Fault ? 9.5m light yellow white clay (beantonic ?)
6.60				BBD08-13-Hu-014		
				BBD08-13-Hu-015	9.20~9.50m light yellow brown calcareous fine grained sandstone	10.2~10.3m siliceous layer in ss fragment (2) 10.8m 付近 dark orange layer (beantonic ?) $\angle 5^\circ$ crack slickenside
				BBD08-13-Hu-016	9.50~9.70m light yellow white (grey) fine grained sandstone (cal reaction)	
				BBD08-13-Hu-017	9.80~11.20m brown mudstone (clay) \Rightarrow red claystone ?	
				BBD08-13-Ru-007		
				BBD08-13-Hu-018	11.20~11.50m medium ~ fine grained sandstone	11.50m Aksitara Formation Zambales ophiolite member
				BBD08-13-Hu-019	11.50~11.60m fault breccia	
				BBD08-13-Ru-008	11.60~12.21m autobrecciated basalt (lava)	11.8m crack slickenside many 11.9~12.2m black and green clay attache a crack side (2) 12.2m green clay
				BBD08-13-Hu-020		
				BBD08-13-Ru-002		
				BBD08-13-Hu-021	13.00~13.20m autobrecciated basalt (lava)	(micro gabbro) 13.1m (3) crack plane; cal slickenside
				BBD08-13-Ru-009	13.20~13.46m serpentized basalt (many black parts)	
				BBD08-13-Hu-022	13.46~13.90m black sand is perhaps basalt	
				BBD08-13-Hu-023	13.90~14.20m serpentized gabbro	cutting and filling deposits
				BBD08-13-Ru-010	14.20~14.30m clay (fault gouge)	(3) 14.02m silica mineral (agate ?) or (corundum ?)
				BBD08-13-Hu-024	14.30~23.40m black and light green (alternated) serpentized gabbro	14.4m silica vein ※ about 13.0~16.0m 付近 cracky zone Fault effect

CR : Core Recovery (Core-lacked Zone)
 RB : Range of Brecciation (Crush-Breccia, Fault-Breccia/Fragmentation, Fracturing, cracking)

図 2.3.3-1 DH08 孔柱状図 (0~GL-15m) [8]

Depth (m)	Columnar Section	CR*	RB**	Sample Number *** (Sample Location)	Lithology	Remarks
15.21				BBDH08-13-Rb-019	14.30~23.40m black and light green (alternated) serpentized gabbro	black and green color alternation crack plane is fresh There is many low angle crack but, claypart → high angle
15.50					(15.50~16.00m : include clay, darkgreen and black color)	16.2~16.3m high angle shear 16.4m crack → talc ? 16.5m pygmaic silica vein (no reaction)
16.00				BBDH08-13-Rb-020	(16.30~16.59m : include clay, dark green color)	17.7m ∠70°vein 18.1m ∠60°crack stickside
16.09					(17.00~17.90m : include sand, dark green color)	1.6m以下、core形状変う (t=10cm columnar core)
16.30				BBDH08-13-Rb-021 BBDH08-13-Rb-022 BBDH08-13-Rb-023 BBDH08-13-Rb-024 BBDH08-13-Rb-025	(18.20~18.70m : crack plane is soft)	18.0~20.0m black part include py 18.3m spherulite(zeolite or silica) + pyrite 18.7m ∠20°silica vein ⑨ 19.35m vertical pale green vein 19.7~20.5m black parts many
16.59						
17.00				BBDH08-13-Rb-026 BBDH08-13-Rb-027 BBDH08-13-Rb-028 BBDH08-13-Rb-029	(20.00~20.50m : silica vein ∠70° shear zone)	about t=10cm columnar core is many contents 20.20m clay 20.50m white vein : silica green vein : serpentine? crack plane is fresh (almost)
17.90						
18.20				BBDH08-13-Rb-030 BBDH08-13-Rb-031 BBDH08-13-Rb-032 BBDH08-13-Rb-033	(23.40~23.56m diabase 23.56~23.65m sp. gabbro 23.85~24.20m diabase 24.20~39.35m serpentized gabbro (like autobreccia)	24.0~24.1m vertical crack 24.6m ∠50°crack 22.2m smoothly (serpentine)
18.70						
19.00				BBDH08-13-Rb-034 BBDH08-13-Rb-035		⑩ 23.4m φ1mm程度等粒状 ∠0°foliation 24.0~24.1m open crack ∠70~80°付着 24.1m crack plane is yellow brown color crack spot ※24.4m ∠70°cal lens
19.20						
20.00				BBDH08-13-Rb-036 BBDH08-13-Rb-037		※diabase rough skin serpentized but, finer grain and smoother than gabbro
20.50						
21.00				BBDH08-13-Rb-038 BBDH08-13-Rb-039		about 24.8m black part magnetic force
21.09						
21.70				BBDH08-13-Rb-040 BBDH08-13-Rb-041 BBDH08-13-Rb-042 BBDH08-13-Rb-043		※deeper than 25.0m 2m毎の掘削のため、ロスが多くなる (25.1~25.27m green clay)
22.1						
23.40				BBDH08-13-Rb-044 BBDH08-13-Rb-045		no cal reaction → silica mineral almost
23.56						
23.85				BBDH08-13-Rb-046 BBDH08-13-Rb-047		(26.1~26.43m green clay)
24.20						
25.10				BBDH08-13-Rb-048 BBDH08-13-Rb-049		(27.2~27.43m green clay)
25.27						
26.00				BBDH08-13-Rb-050 BBDH08-13-Rb-051		black part — basalt ? (bubbly, not porphyritic)
26.10						
26.33				BBDH08-13-Rb-052 BBDH08-13-Rb-053		black, pale green and gray contrast boundary is not sharp
27.29						
27.43				BBDH08-13-Rb-054 BBDH08-13-Rb-055		
28.00						
28.44				BBDH08-13-Rb-056 BBDH08-13-Rb-057		
28.44						
30.00						

CR* : Core Recovery (Core-lacked Zone)
RB** : Range of Brecciation (Crush-Breccia, Fault-Breccia/Fragmentation, Fracturing, cracking)

図 2.3.3-2 DH08 孔柱状図 (GL-15m~30m) [8]

Depth (m)	Columnar Section	CR*	RB**	Sample Number*** (Sample Location)	Lithology	Remarks
30.44					24.20~39.35m serpentinized gabbro (like auto brecha)	全体に岩質がsoft pale green colorが強い
31						
31.60				BBDH08-13-Hi-046		
32						
32.12						
33						
34						
34.20				BBDH08-13-Ri-037	34.20~34.73m (include green clay)	about 34.6m crack slickenside
34.73				BBDH08-13-Hi-047		
35						
36						
35.90				BBDH08-13-Ri-038		
36.30				BBDH08-13-Hi-048		
37						
38						
37.80				BBDH08-13-Ri-039	deeper 37.80m It becomes black in the whole	diabase fine grain size mineral (equigranular)
38.17				BBDH08-13-Hi-049	37.8~40.54m autobrecciated basalt (lava)	
39						Fault gouge?
39.35				BBDH08-13-Ri-041		
40						
40.40				BBDH08-13-Hi-050		
40.54				BBDH08-13-Ri-042	40.40~40.54m include black clay	40.0~40.4m like basalt crater spot
41						
42						
43						
44						
45						

CR* : Core Recovery (Core-lacked Zone)

RB** : Range of Brecciation (Crush-Breccia, Fault-Breccia/Fragmentation, Fracturing, cracking)

図 2.3.3-3 DH08 孔柱状図 (GL-30m~40.54m) [8]

Drill Hole Number : DH-09
 Location : N 15° 30' 52.1" , E 120° 22' 54.6"
 Elevation : 108m
 Core Size : NQ
 Total Footage : 14.97m
 Drilling Operation : 4. Nov. 2013 (am) ~ 7. Nov. 2013 (pm)

Depth (m)	Columnar Section	GR*	RB**	Sample Number*** (Sample Location)	Lithology	Remarks
1					0.00~1.54m bank φ1~5cm white calcareous rock 0.25~0.74m, 1.0~1.3m : loss	<p>1.00~1.54m : pumiceous silt : dark yellow brown fine grain ss : light pale green 全体にcalcareous tuffaceous</p>
2	1.54~2.28			BBD09-13-R0-001 BBD09-13-R0-002 BBD09-13-B0-001	1.54~3.40m pumiceous silt and fine green sandstone alternation bed	<p>1.54~1.88m : *include bentonitic clay pale green-tuffaceous ss ∠70°crack plane dark brown</p>
3	2.28~2.46 2.46~2.74 2.74~2.90 2.90~3.18 3.18~3.40			BBD09-13-R0-003 BBD09-13-R0-004 BBD09-13-R0-005 BBD09-13-R0-006	HCL ... reaction almost I=5~10cm columnar core or flake core	<p>1.8~2.7m : vertical crack It weathered along a crack</p>
4	3.40~4.20 4.20~4.40			BBD09-13-R0-007 BBD09-13-B0-002 BBD09-13-R0-008	3.40~5.03m dark yellow brown pumiceous siltstone	<p>3.4~3.5m : silica mineral (agate ?) ②3.8m : ∠70°cal vein, brown layer (上側粘土化) 3.8~3.9m : sandyな部分を挟む</p>
5	4.40~5.03			BBD09-13-R0-009	0.00~5.00m weathered color 5.0m~ reductioned color	<p>4.0m ∠80°hair crack gap in the strata</p>
6	5.03~5.78 5.78~6.00 6.00~6.40 6.40~6.50 6.50~6.70			BBD09-13-B0-003 BBD09-13-B0-004 BBD09-13-B0-005 BBD09-13-R0-010 BBD09-13-B0-006	5.03~6.70m black fine ss and dark grey silt alternated bed (fine grained sandstone major)	<p>5.0~5.2m : vertical crack It weathered along a crack</p>
7	6.70~7.28 7.28~7.40 7.40~7.70			BBD09-13-B0-007 BBD09-13-B0-008	in the whole calcareous laminar dip 5~10°	<p>5.15m, 5.75m : emerald green color layer (width2cm) 5.37m : ∠15°layer dip concordant yellow color</p>
8	7.70~8.00 8.00~8.42 8.42~8.80			BBD09-13-R0-011 BBD09-13-B0-009 BBD09-13-R0-012 BBD09-13-B0-010	6.70~10.00m light pale green tuffaceous calcareous fine grained sandstone → limestone	<p>6.2~6.3m : vertical crack, crack plane is reddish brown</p>
9	8.80~9.28 9.28~9.78 9.78~10.00			BBD09-13-R0-013 BBD09-13-B0-011 BBD09-13-B0-012	10.00~13.15m dark gray fine sandstone (mudy)	<p>6.3m : ∠5~10°mad white lithic (width1mm) 6.5m : ∠70°vein black inclusion (spot) ∠20° opaque mineral</p>
10	10.00~10.28 10.28~10.71 10.71~10.88 10.88~11.20			BBD09-13-R0-014 BBD09-13-B0-013 BBD09-13-B0-014	I = 5 ~ 10cm columnar core or flake core	<p>about 7.2m boundary : clay (yellow brown) 7.5m : ∠70°crack open and hair crack brown color → Mn ?</p>
11	11.20~11.80 11.80~12.10 12.10~12.80					<p>7.7m : white clay 8.8~9.3m : vertical crack— yellow-brown 9.6m : thickness 1cm black layer (∠5°)</p>
12	12.80~13.15 13.15~13.22 13.22~13.60			BBD09-13-R0-015 BBD09-13-B0-015	13.15~13.70m autobrecciated basalt (lava) (Fault zone)	<p>9.25m : white clay 10.5m ∠45°hair crack vertical cal vein</p>
13	13.60~14.50 14.50~14.76 14.76~14.97				13.70~14.97m autobrecciated basalt (lava) 14.50~14.56m) pebble core 14.70~14.97m)	<p>10.0m : pegmatic cal (euhedral cry) laminar angle 0~10° 11.2m : ∠45° hair crack 13.6m : partially green color</p>
14						<p>13.15m Akistro Formation Zambales ophiolite member 13.15~13.7m : fault brecha crack plane slickenside 13.5m include Akistro member (normal fault) deeper than 13.7m : crack plane slickenside 14.5m : cal vein, qz spot</p>

GR* : Core Recovery (Core-lacked Zone)
 RB** : Range of Brecciation (Crush-Breccia, Fault-Breccia/Fragmentation, Fracturing, cracking)

図 2.3.3-4 DH09 孔柱状図 (0~GL-15m) [8]

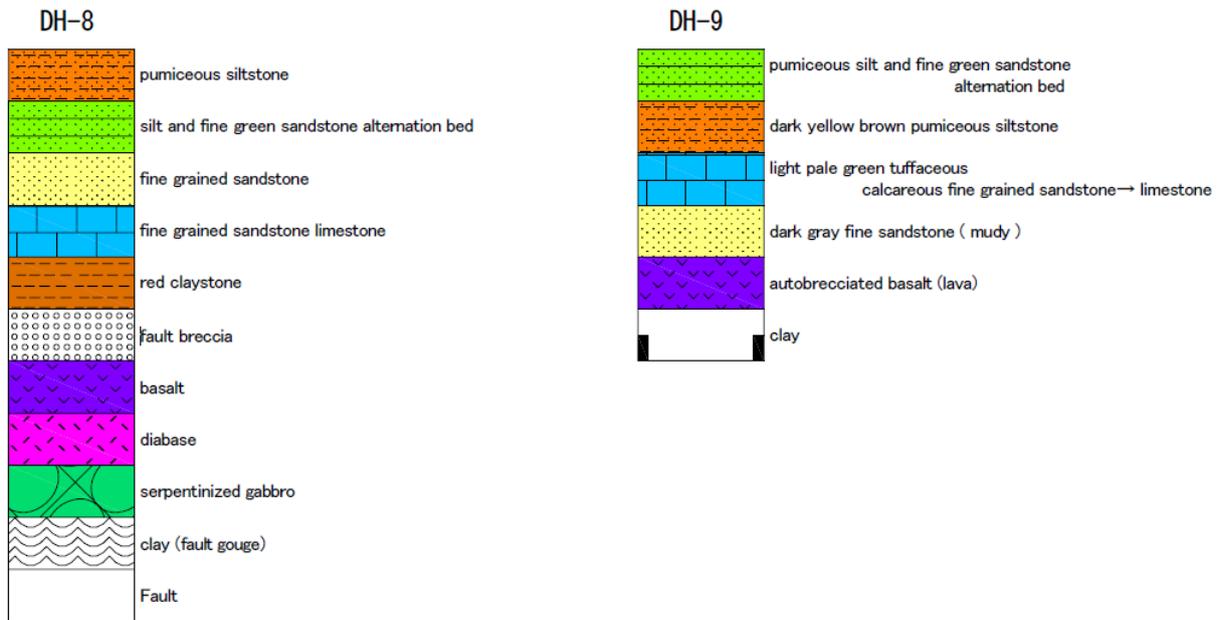


図 2.3.3-5 柱状図の凡例 (DH08 孔及び DH09 孔) [8]

Drill Hole Number : DH-08 Core Size : NQ Total Footage : 40.54m				Mafic Minerals			Felsic Minerals		Silica Minerals		Clay Minerals	Zeolite Minerals					Carbonate Minerals		Opaque Minerals			Remarks				
Depth (m)	Columnar Section	CR**	RB***	Sample Number (Sample Location)		OL.	CPX.		OPX.		Feld		Montmorillonite	Zeolite Minerals					Cal.	Opaque Minerals			MnOOH MnO ₂			
							Diop.	Aug.	Hyp.	Plag.	K-feld.	Qz.		Crist.	M.	H.	CL.	Ph		St.	Mag.	Mn.		Py.		
0.20				BBOC00-13-Rh-001	Hu-001								△					○								
0.40				BBOC00-13-Rh-001	Rh-001								△	△	△			○								
0.60				BBOC00-13-Rh-002																						
1.00				BBOC00-13-Rh-002																						
1.10				BBOC00-13-Rh-002	Rh-002								△	△	△			○								
1.50				BBOC00-13-Rh-003	Rh-003								△	△	*△			*○		*						
1.60				BBOC00-13-Rh-004																						
2.00				BBOC00-13-Rh-004	Rh-004								△	△				○								
2.85				BBOC00-13-Rh-005																						
3.00				BBOC00-13-Rh-005	Rh-005								△	△	△			○								
3.90				BBOC00-13-Rh-006	Hu-008								△					○								
4.30				BBOC00-13-Rh-009																						
5.80				BBOC00-13-Rh-006	Rh-006								△	△	△			○								
6.00				BBOC00-13-Rh-001																						
6.60				BBOC00-13-Rh-013																						
6.80				BBOC00-13-Rh-014																						
8.60				BBOC00-13-Rh-007	Rh-007								△	△				○								
9.00				BBOC00-13-Rh-016																						
9.20				BBOC00-13-Rh-017																						
9.50				BBOC00-13-Rh-019																						
9.70				BBOC00-13-Rh-020																						
9.80				BBOC00-13-Rh-008	Hu-021		○	○		○			○													
11.20				BBOC00-13-Rh-009	Rh-008								○													
11.50				BBOC00-13-Rh-009	Rh-009								○													
11.60				BBOC00-13-Rh-010	Hu-023		○	○		○			○													
11.70				BBOC00-13-Rh-011	Rh-010								○													
11.80				BBOC00-13-Rh-012	Rh-011								○													
11.90				BBOC00-13-Rh-012	Rh-012		○	○		○			△													
12.00				BBOC00-13-Rh-013	Rh-013		○	○		○			△													
12.10				BBOC00-13-Rh-014	Rh-014		△	*△		*○			*△					*								
12.20				BBOC00-13-Rh-015	Rh-015		△	△		○			○													
12.21				BBOC00-13-Rh-002	Hu-026		△	△		○			△													
13.00				BBOC00-13-Rh-016	Rh-016			*	*	*○			*○													
13.20				BBOC00-13-Rh-017	Rh-017					○			△													
13.46				BBOC00-13-Rh-021																						
13.90				BBOC00-13-Rh-022																						
14.20				BBOC00-13-Rh-018	Rh-018			*	*	*○			*△													
14.30				BBOC00-13-Rh-003																						
14.97				BBOC00-13-Rh-004																						

* CR: Core Recovery
 ** RB: Range of Brecciation
 *** Sample Number: Rh: RWMC, Hu: Univ. of Hokkaido

Minerals: Ol.(Olivine), Cpx.(Clinopyroxene), Diop.(Diopside), Aug.(augite), Oxp.(Orthopyroxene), Hyp.(Hyperthene), Feld.(Feldspar), Plag.(Plagioclase), K-feld.(K-feldspar), Qz.(Quartz), Crist(Cristobalite), M.(Mordenite), H.(Heulandite), Cl.(Crinoptilolite), Ph.(Phillipsite), St.(Stellerite)
 Mag.(Magnetite), Mn.(Mn-oxide or Mn-hydroxide), Py.(Pylite)

図 2.3.3-6 試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉱物組成 (DH08 孔(0~GL-15m), XRD) [8]

Drill Hole Number : DH-08 Core Size : NQ Total Footage : 40.54m				Mafic Minerals			Felsic Minerals		Silica Minerals		Clay Minerals	Zeolite Minerals					Carbonate Minerals		Opaque Minerals			Remarks	
Depth (m)	Columnar Section	CR*	RB** Sample Number*** (Sample Location)	OL	CPX		OPX	Feld		Qz	Tridy.	Montmorillonite	M.	H.	CL.	Ph	St.	Cal.		Mag.	Mn.		Py.
					Diop.	Aug.		Plag.	K-feld														
30.4																							
31																							
31.60																							
32																							
32.12																							
33																							
34																							
34.20																							
34.73																							
35																							
36																							
35.90																							
36.30																							
37																							
38																							
37.80																							
38.17																							
39																							
39.35																							
40																							
40.40																							
40.54																							
41																							
42																							
43																							
44																							
45																							

* CR: Core Recovery
 ** RB: Range of Brecciation
 *** Sample Number: Rh: RWMC, Hu: Univ. of Hokkaido

Minerals: Ol.(Olivine), Cpx.(Clinopyroxene), Diop.(Diopside), Aug.(augite), Opx.(Orthopyroxene), Hyp.(Hyperthene), Feld.(Feldspar), Plag.(Plagioclase), K-feld.(K-feldspar), Qz.(Quartz), Crist(Cristobalite), M.(Mordenite), H.(Heulandite), Cl.(Crinoptilolite), Ph.(Phillipsite), St.(Stellerite)
 Mag.(Magnetite), Mn.(Mn-oxide or Mn-hydroxide), Py.(Pyrite)

図 2.3.3-8 試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉱物組成 (DH08 孔(GL-30m~40.54m), XRD) [8]

Drill Hole Number : DH-09 Core Size : NQ Total Footage : 14.97m				Mafic Minerals			Felsic Minerals		Silica Minerals		Clay Minerals	Zeolite Minerals					Carbonate Minerals		Opaque Minerals			Remarks		
Depth (m)	Columnar Section	CR**	RB***	Sample Number*** (Sample Location)	Sample NO.	Diop.	Aug.	Hyp.	Feld		Qz.	Crist.	Montmorillonite	M.	H.	CL.	Ph.	Eri.	Cal.		Mag.		Mn.	Py.
									Plag.	K-feld														
1																								
2	1.54			BRDH09-13-RL-001 BRDH09-13-RL-002	Rh-001					○		○	△		△	△								
					Rh-002						△		△	△	△		△	△				△		
3	2.24 2.40			BRDH09-13-RL-003 BRDH09-13-RL-004	Rh-003				△		△	△	△		△	△		△						
					Rh-004						△		△	△	△		△	△		△	○			
4	2.74 2.90			BRDH09-13-RL-005 BRDH09-13-RL-006	Rh-005				△		△	△	△		△	△		△						
					Rh-006						△		△	△	△		△	△		△				
5	3.18 3.40			BRDH09-13-RL-007 BRDH09-13-RL-008	Hu-002							○	△	◎	△	△								
					Rh-007						△		△	△	△		△	△				◎		
6	4.20 4.40			BRDH09-13-RL-009 BRDH09-13-RL-010	Rh-008						△	△	△		△	△								
					Rh-009						△		△	△	△		△	△				◎		
7	5.08 5.78			BRDH09-13-RL-011 BRDH09-13-RL-012	Rh-010				△		△	△	△		△	△								
					Hu-006						△		△	△	△		△	△				◎		
8	6.00 6.40			BRDH09-13-RL-013 BRDH09-13-RL-014	Rh-011				△		△	△	△		○	△	△							
					Rh-012						△		△	△	△		△	△				◎		
9	6.50 6.70			BRDH09-13-RL-015 BRDH09-13-RL-016	Hu-010								△											
					Rh-013						△		△	△	△		△	△				◎		
10	7.24 7.40			BRDH09-13-RL-017 BRDH09-13-RL-018	Rh-011				△		△	△	△		○	△	△							
					Rh-012						△		△	△	△		△	△				◎		
11	7.70 8.00			BRDH09-13-RL-019 BRDH09-13-RL-020	Hu-010								△											
					Rh-013						△		△	△	△		△	△				◎		
12	8.42 8.80			BRDH09-13-RL-021 BRDH09-13-RL-022	Rh-011				△		△	△	△		○	△	△							
					Rh-012						△		△	△	△		△	△				◎		
13	9.24 9.50			BRDH09-13-RL-023 BRDH09-13-RL-024	Hu-013		○	○		◎		△	△		○	○								
					Rh-014						◎		△	△	△		△	△						
14	10.00 10.28			BRDH09-13-RL-025 BRDH09-13-RL-026	Hu014		△	△		◎		△	△											
					Rh-015						◎		△	△	△		△	△				○		
15	10.71 10.89																							

* CR: Core Recovery
 ** RB: Range of Brecciation
 *** Sample Number: Rh: RWMC, Hu: Univ. of Hokkaido

Minerals: Ol.(Olivine), Cpx.(Clinopyroxene), Diop.(Diopside), Aug.(augite), Oxp.(Orthopyroxene), Hyp.(Hyperthene), Feld.(Feldspar), Plag.(Plagioclase), K-feld.(K-feldspar), Qz.(Quartz), Crist(Cristobalite), M.(Mordenite), H.(Heulandite), Cl.(Crinoptiolite), Ph.(Phillipsite), St.(Stellerite)
 Mag.(Magnetite), Mn.(Mn-oxide or Mn-hydroxide), Py.(Pyrite)

図 2.3.3-9 試錐コア (Zambales Ophiolite and Aksitero Formation) の鉱物組成 (DH09 孔(0~GL-15m), XRD) [8]

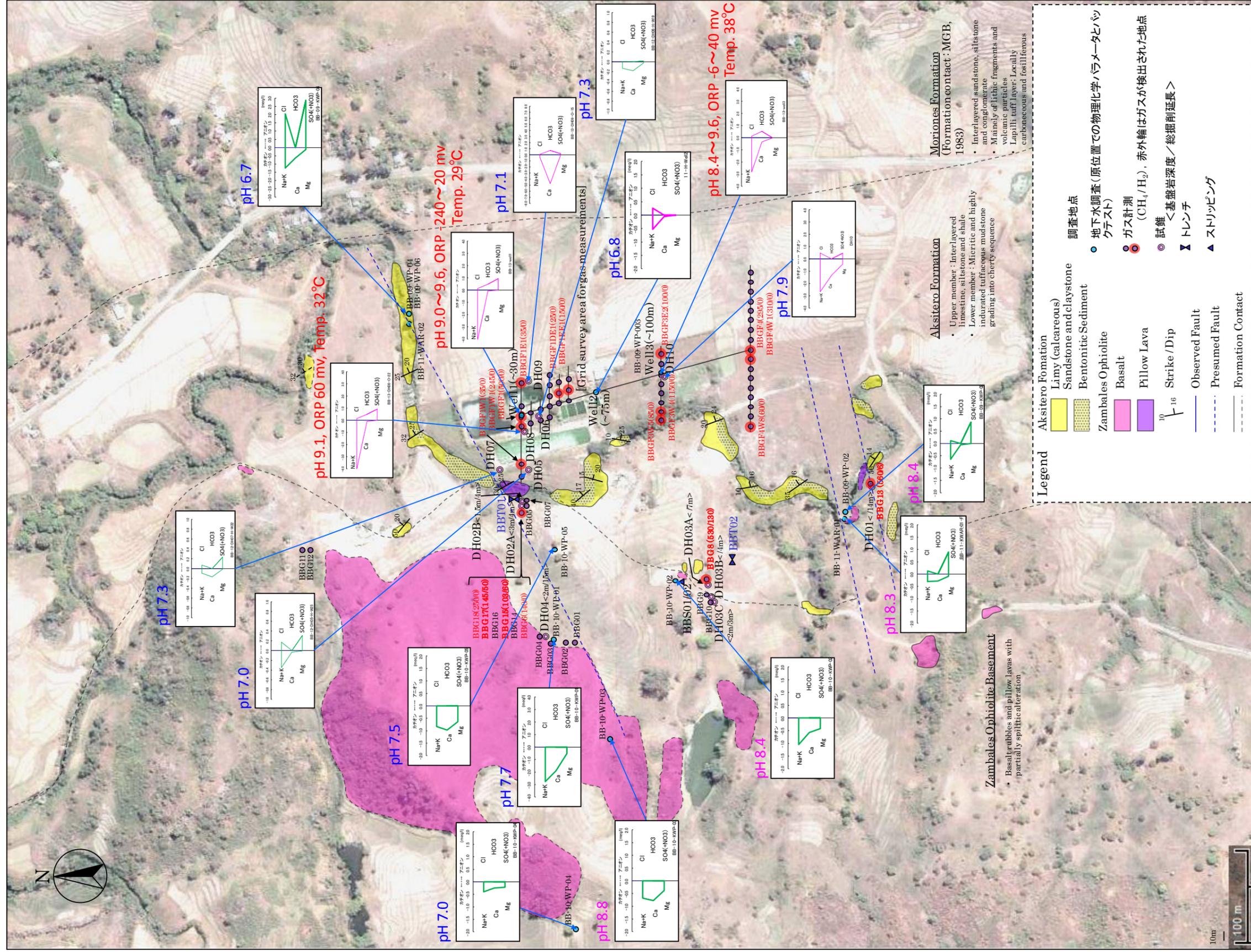


図 2.3.3-10 Bigbica 地区 (Fish Pond 周辺の調査エリア) の Compilation Map

2.4 Pinatubo 地区（ルソン島北西部）の調査

2.4.1 調査目的

これまでの主な調査は、ルソン島西部の Botolan 市から北東約 4Km に位置する Loob Bunga Creek 川岸（Botolan Area）に露出する Zambales オフィオライト（基盤岩）の断裂系に伴うアルカリ地下水（裂か水）を対象に地球化学的調査（アルカリ地下水の湧出地点での物理化学パラメータ<水質>、pH、ORP、温度、電気伝導度、主要溶存イオンの濃度、環境同位体等の計測・分析）と岩石鉱物学的調査（主要造岩鉱物組成・変質鉱物・組織、岩石化学<組成>等）を実施してきている。特に、アルカリ地下水の形成に深く関与している水-岩石相互作用によるアルカリ地下水の起源・進化および、地球化学的特性などを検討する上での基礎的データ・知見を蓄積している。

今年度予察の主目的は、「Active Type」のナチュラルアナログとしてのポテンシャルサイト（露頭）を選定することである。具体的には、アルカリ変質反応が考察できるベントナイト層または、ベントナイト質堆積物を探査し、好ましいサイト（候補地・露頭）を選定することである。そのために、これまでに取得したアルカリ地下水の湧出地点や地球化学的特性に関する知見のもと、Zambales オフィオライト起源のアルカリ地下水の湧出近傍にベントナイト層もしくは、ベントナイト質堆積物（岩）の露頭を探査・評価・選定することである。これは、ナチュラルアナログサイトとしての不可欠な 3 要素（①アルカリ地下水の存在、②アルカリ地下水の流路<断裂系など>、③ベントナイトの存在）の一つであるベントナイト層の分布の探査である。

一般的には、ベントナイト成因の原岩は火山碎屑性堆積物（火山灰・火山ガラス・パミス、凝灰岩など）であることから、ベントナイト層（ベントナイト質堆積物）の露頭（分布）を探査する上での地質条件としては、Pinatubo 山の火山活動により、噴出・流出・堆積した火山碎屑性堆積物（岩）が、Zambales オフィオライト複合岩体近傍または、直接コンタクトする露頭が分布することである。さらに、それらの露頭観察を通して、それらの火山碎屑性堆積物の岩質・岩相、堆積環境などを調査し、ベントナイト化（粘土化）の有無とその規模（範囲・程度）を観察・判断することも必要である。

今年度は、基盤岩である Zambales オフィオライトの東部地域（ここでは Pinatubo 地区 と呼称する）に広く分布する Pinatubo 山 からの火山噴出物起源であるベントナイト化した火山碎屑性堆積物（岩）を調査地域層として、踏査（予備的な地質調査）による予察を実施した。

2.4.2 位置とアクセス

Pinatubo 地区の Botolan は Zambales 州の州都で、フィリピン諸島の西部に位置し、首都マニラ市から北西約 140Km にある。そのアクセスは、車で約 5 時間である。

地形的には、西部の海岸線に沿って走行する Zambales オフィオライトの海岸山脈の高地と深く下刻した谷（沢・川）が発達する対照的な地形に特徴がある。さらに、Botolan より南西部約 45km に、Pinatubo 山（火山）が美しい単一峰の姿で聳えている。

Botolan からの Pinatubo 山へのアクセス（道：4 輪駆動車道、もしくは踏査可能な山道）は可能であるが、雨季シーズンは、増水した大河や沢での数回の渡渉を強いられ、途中での宿泊施設は営業していない。

2.4.3 気候

Zambales 州の気候は、図 2.4.3-1 に示すように、Type- I に属し、2 つの明瞭なシーズンがあ

り、1つは乾季（11月から4月まで）、もう一方は雨季（5月から10月末）である。年間降雨量は3,800~3,900mmで、1日の平均雨量は雨季で24~150mmである。

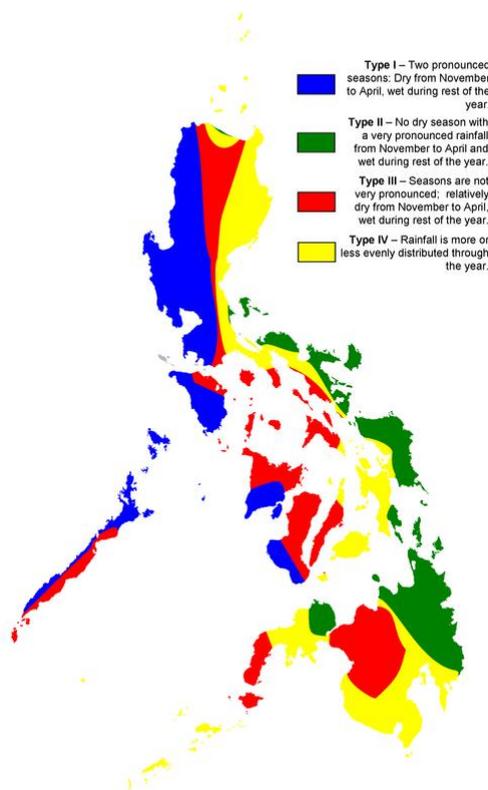


図 2.4.3-1 フィリピンの気候区分

2.4.4 Pinatubo 地区の地質概要

Pinatubo 地域の地質については、Corby et al., (1951)[10], Roque et al., (1972)[11], de Boer et al., (1980)[12], Philippine Bureau of Mines and Geosciences (1982)[13], Hawkins & Evans (1983)[14], Schweller et al., (1983)[15], Delfin (1983, 1984, 1992)[16][17][18]によって報告されている。

それらを要約すると、Pinatubo 地区は、地質構造発達過程（テクトニクスの変遷）において、Late Oligocene[19]時期に上昇した Eocene の海洋地殻が、東傾斜したスラブに沿って定置した Zambales Ophiolite 複合岩体の西側（または部分的に下部）の側面に位置している。

この地域の北部、東部と南東部には、Late Miocene~Pliocene 時期の海成・非海成の堆積物と火山砕屑性堆積物（Tarlac 累層[11]）が Zambale オフィオライト複合岩体に不整合に被覆していることが報告されている（図 2.4.4-1）。

図 2.4.4-2 に示すように、Pinatubo 地域の西部と北西部に分布する Zambales オフィオライトは、かんらん岩と斑れい岩が優勢であるが、北部は玄武岩が優勢である[14]。また、Pinatubo 山南西部に分布する Zambales オフィオライト複合岩体は、細粒閃緑岩、輝緑岩の岩脈が優勢で、少量のホルンフェルス、玄武岩、斑れい岩とモンゾニ岩質閃緑岩が随伴する[20]。興味深いことは、このオフィオライト複合岩体の岩石が、恐らくピナツボ火山の下部に産状しているために、Pinatubo 火山岩中に捕獲岩として産状していることである。

この Zambales オフィオライトの西部と Pinatubo 山の北西部の地形的な高まりは、Mt.

Pinatubo の西方約 10 Km にある南北断層（名称なし）の活動により、東部が沈降して形成されたものと解釈されている[18]。

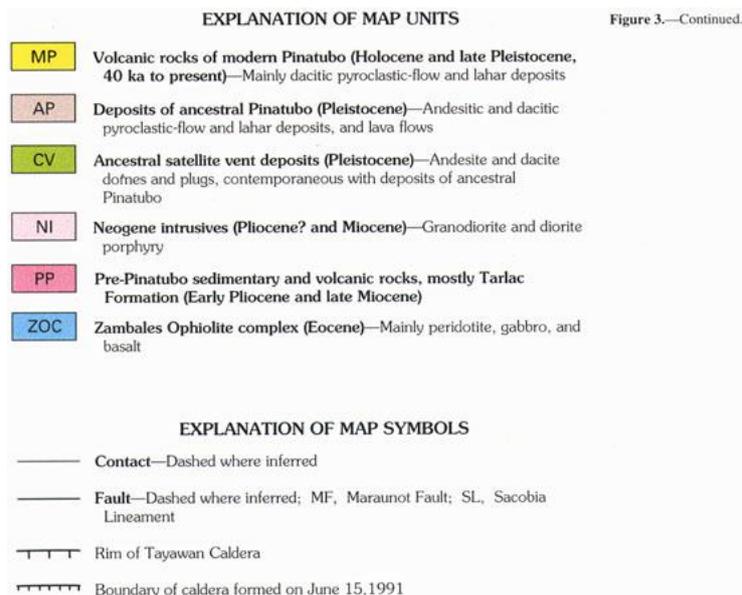
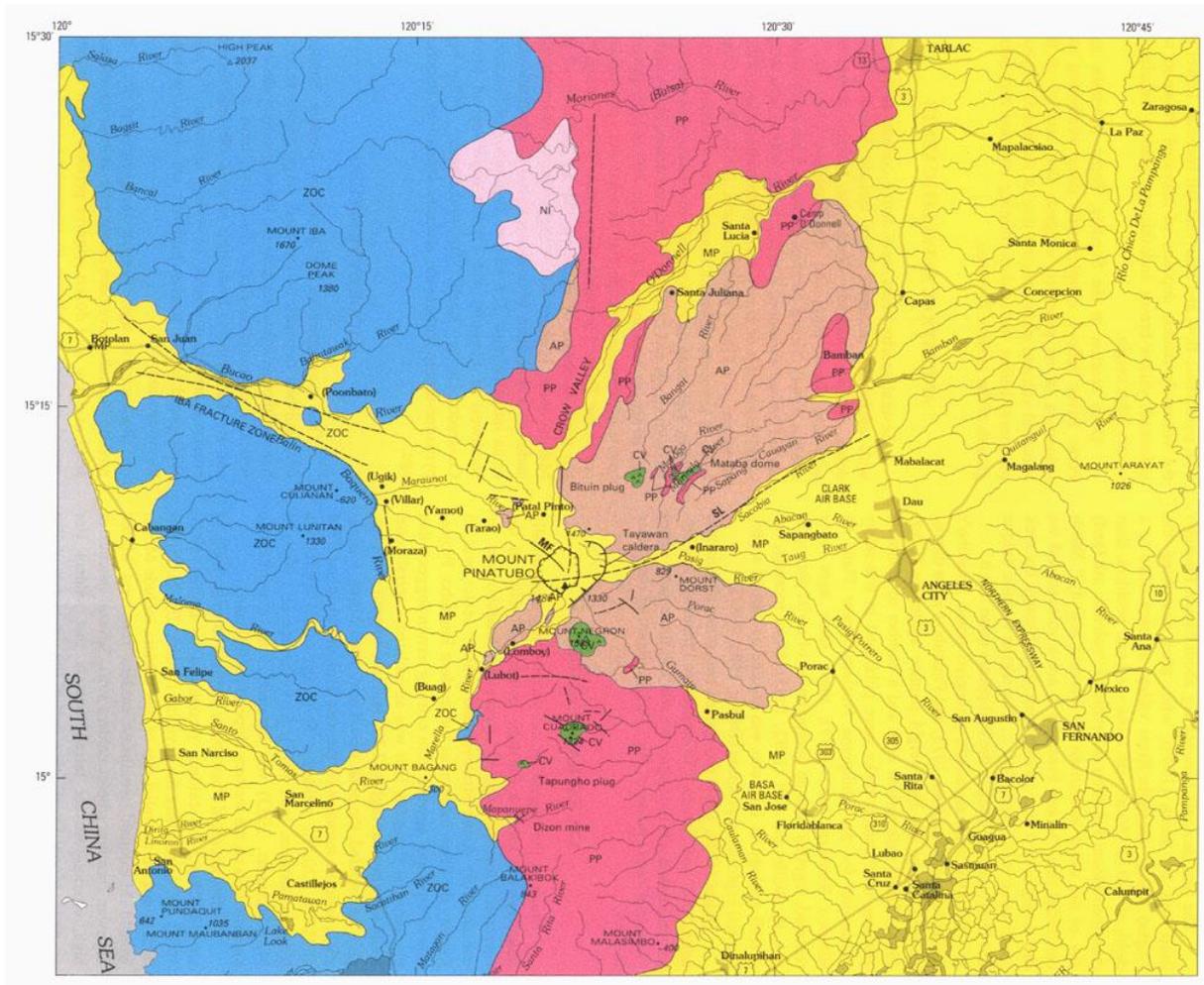


Figure 3.—Continued.

図 2.4.4-1 ピナツボ火山とその周辺の地質図

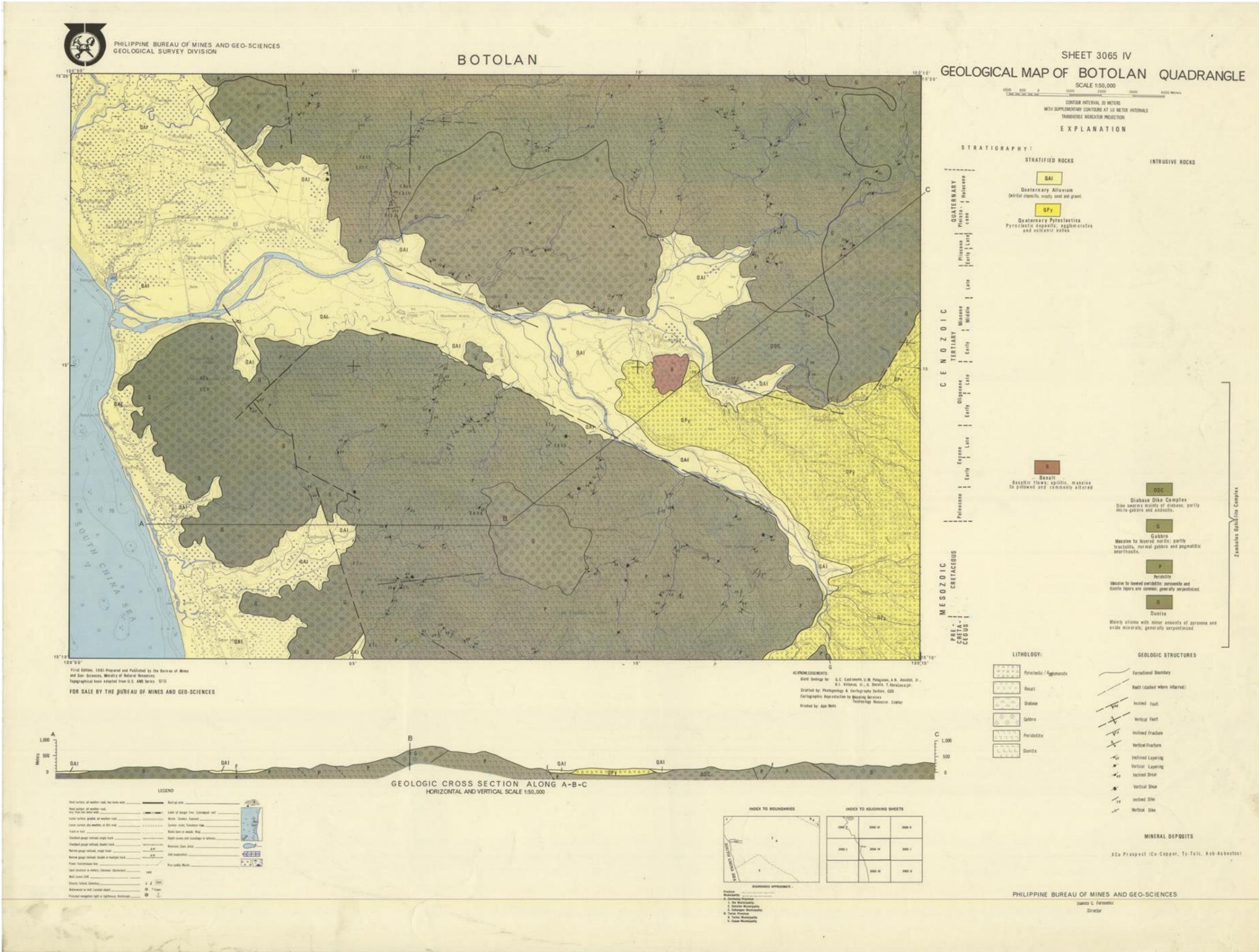


図 2.4.4-2 Botolan 地域の地質図

第三紀堆積岩の Tarlac 累層（層厚：1000m 以上）は、主に化石を含む砂岩とシルト岩で構成され、Zambales オフィオライト複合岩体を不整合に被覆し、上部層はレンズ状の砂岩を伴う礫岩が優勢であるが、安山岩の岩脈の貫入が観察される。また、Crow 溪谷の南端付近には、堆積岩層を不整合に被覆する火山灰流－凝灰岩が観察され、Malago と Marimla 川岸には Tarlac 累層の堆積物が、溶岩により被覆されたり、Mataba 山ドームの貫入が観察される。Tarlac 累層の火山岩は、今も継続している Manila トレンチに沿った東傾斜のサブダクションでのマグマ活動に深く由来するものと解釈されている。

一般的傾向として、西部に分布する火山岩はソレイト質岩石で、東部の火山岩は若干アルカリ質岩石であるが、主要な火山帯の岩石はカルクアルカリ岩が優勢である[12][19]。Miocene~Pliocene 時期に形成されたいくつかの火口は、Dizon 鉱山で観察されるような火山底貫入(subvolcanic intrusion) レベルまで浸食され露出している。

地質構造学的特徴である主要な断裂系として、Delfin's (1983, 1984, 1992)[16][17][18]が Maraunot 断層の一部であろう主要な北西系断裂帯である Iba 断裂帯を指摘している。その指摘の中で Pinatubo 山は、Iba 断裂帯と火山弧が交差する所に位置しているものと解釈している[12]。

(1) Pinatubo 地区の Zambales オフィオライト

この地区の Zambales オフィオライト複合岩体は、完全なオフィオライト岩相で構成され、主に苦鉄質鉱物の残晶に富む斜方輝石かんらん岩(ハルツバージャイト)と複輝石かんらん岩(レルゾライト)、上部へ層状・塊状の超塩基性岩と集積した結晶の顕著な苦鉄質岩、岩脈－シル状の複合岩体、火山岩(枕状玄武岩・玄武岩質溶岩)、そして、最上部には整合的に海成堆積物が累重している。

この Zambales オフィオライトは、図 2.4.4-3 に示すように、北から①Masinloc Massif (北に Acoje Block、その南に Coto Block)、南に②Cabangan Massif、そして、その西に③San Antonio Massif の3つの岩体に区分されている。また、南部に位置するテクトニックな構造線である Subic Bay Fault Zone が、②と③の岩体を分離させている[20]。さらに、岩石学－岩石化学的考察により、Acoje Block は島弧型 (IA : Island Arc Type)、クロム鉄鉱の鉱物学－鉱物化学的特性から、Coto Block は漸移的な太平洋中央海嶺玄武岩型 (MORB: Transitional Mid-Ocean Ridge Basalt)－島弧型(IA)+であると解釈されている[14]。

岩石学・地球化学的特性から、San Antonio Massif は Acoje Block に、Cabangan Massif は Coto Block とのそれぞれの関連性から、お互いが同源マグマの結晶分別作用により形成されたものと解釈されている[20]。また、Acoje Block は、Ni-Cu 硫化物と Cr 金属(クロム鉄鉱)およびその随伴金属として白金族鉱物を伴う鉱床を、Coto Block はクロム鉄鉱の鉱床を胚胎している。

今年度調査地区に分布する Zambales オフィオライトは、Coto Block の南縁で Cabangan Massif の北端に位置し、殆どがかんらん岩(ハルツバージャイト)であり、断裂系の発達する構造的に弱線部では、顕著な蛇紋岩化作用が観察される。

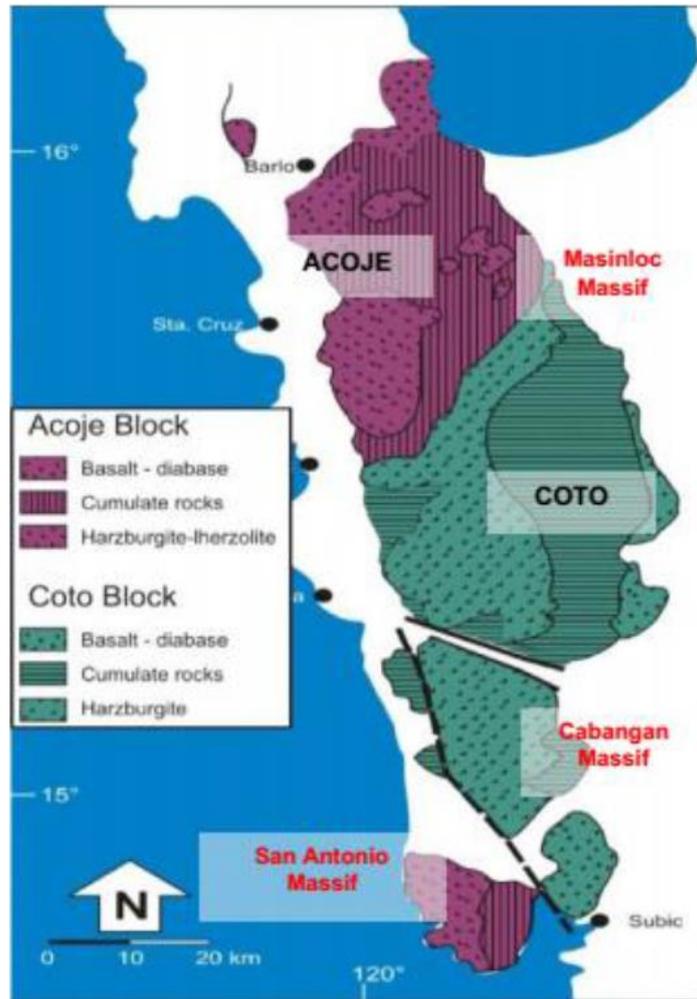


図 2.4.4-3 Zambales オフィオライト複合岩体の分布図 (Salapare et al, 2013[21]に加筆)

(2) Pinatubo 火山の地質・岩石学的概要

Pinatubo 山は、南ルソン島から台湾へと北上するルソン弧に沿った Late Tertiary ~ Quaternary 火山帯に位置している。

Pinatubo 山は、中央ルソン島の Zambales オフィオライトと第三紀堆積物にコンタクトして被覆している。主な火山岩類は、大部分が角閃石-安山岩、石英-安山岩で、少量の輝石-安山岩と玄武岩質溶岩、火山碎屑物などで構成され、貫入岩は、岩脈、岩床、ドームとして産状する。

ピナツボ火山の噴火活動は、2 時期に区分され、それらは先史時代の噴火 (35 ka 以前のある時期から約 1Ma) と人類有史以来の噴火 (35 ka から現在) である。

先史時代の Pinatubo 山は、大規模で爆発的な噴火の証拠がないが、石英安山岩-安山岩の成層火山である。現在の Pinatubo 山は、石英安山岩-安山岩ドームの複合岩体で成層火山であり、大規模で爆発的な石英安山岩質噴火から供給された火砕流と泥流堆積物でエプロン状に取り囲まれている。

最後の噴火活動は、1991 年で先史時代に噴火した岩石と酷似しており、繰り返し玄武岩質岩石が大規模に、ガスを含む石英安山岩の岩体に貫入している証拠が記録されている。その後、爆発的な噴火が続き、最後に晩期の溶岩ドームが形成させている[22]。

(3) Zambales オフィオライトの岩石鉱物学的特徴

Zambales オフィオライトの岩石試料（試誰コア/ 露頭）の偏光顕微鏡観察により、岩石鉱物学的特徴を説明する。

Bigbiga 地区の試錐孔 DH10 から採取したコア試料 BBDH10-14-Rh-054（図 2.4.4-4 左写真）は Zambales オフィオライトの玄武岩質溶岩（角礫化した自破碎溶岩）である。同定した鉱物とその産状を偏光顕微鏡写真とともに図 2.4.4-4 右写真に示す。

主要構成鉱物は、斑晶として単斜輝石、針状～短冊状の斜長石（一部炭酸塩鉱物<恐らく方解石>に置換されている）、微細な不透明鉱物（恐らく、鉄水酸化鉱物・赤鉄鉱）などで構成されている。また、角礫されたマトリックス部には粘土鉱物が観察される。

一方、石基は、大部分がガラス質であるが、淡褐色の不定形や球状の火山灰や針状～長柱状の微細な斜長石からなる凝灰質な部分がある。

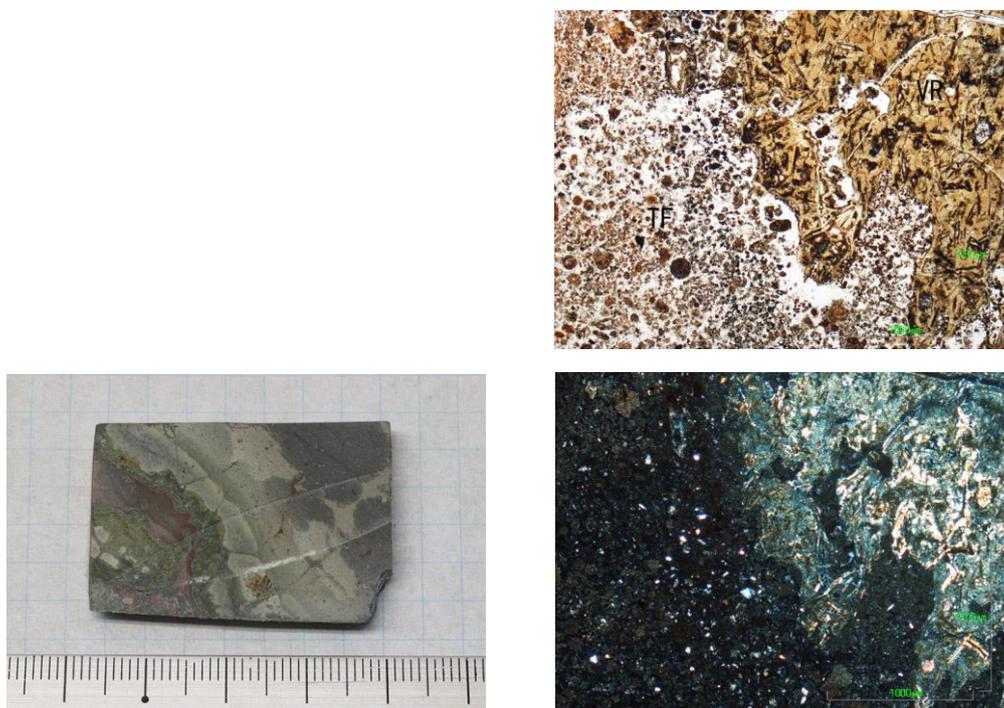


図 2.4.4-4 玄武岩質溶岩（角礫化した自破碎溶岩）の薄片（左）と顕微鏡写真

Pinatubo 地区の露頭から採取した試料 PNO01-14-Rh-001（図 2.4.4-5 左写真）は Zambales オフィオライトの変質斑れい岩である。同定した鉱物とその産状を偏光顕微鏡写真とともに図 2.4.4-5 右写真に示す。

主要鉱物は、かんらん石・輝石（これらの苦鉄質鉱物は蛇紋石へ変質）で、全体的には灰緑色で、繊維状や葉片状なバスタイト様の組織である。斜長石は、ソーシュライト化（斜長石の分解によって生じた微細な鉱物 < 曹長石・緑簾石・パンペリー石・緑泥石など > の集合体）により変質している。また、赤褐色～暗赤褐色で粒状の Cr-スピネルや黒色粒状の不透明鉱物が少量観察される。

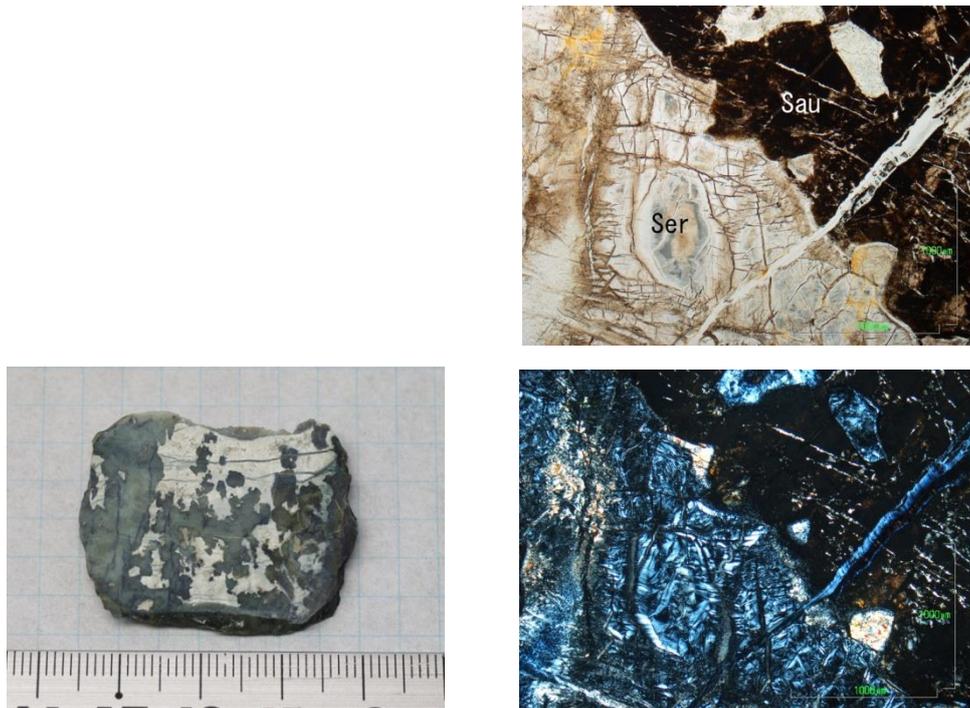


図 2.4.4-5 変質斑れい岩の薄片（左）と顕微鏡写真

(4) 調査対象層（火山碎屑性堆積物<岩>）

Pinatubo 地域における調査対象層としてのベントナイト層または、ベントナイト質堆積物（岩）の原岩となり得る火山碎屑性堆積物（岩）は、図 2.4.4-1 に示すように、下位から①PP : Tarlac 累層 (Late Miocene~Early Pliocene: 後期中新世<11Ma~5.3Ma>から前期鮮新世<3.6~2.5Ma>)、②CV : 火道堆積物 (Pleistocene<更新世<2.5~0.01Ma>)、③AP : 先史時代の Pinatubo の堆積物 (更新世)、④MP : 現生 Pinatubo の火山碎屑性堆積物 (後期更新世から現代) である。これらの地層（堆積岩）は Pinatubo 山の四方周辺に分布し、Zambales オフィオライトを直接被覆している。

2.4.5 地質概査結果

Pinatubo 地区の調査ルート MAP を図 2.4.4-1 の地質図上に示す (図 2.4.5-1)。図 2.4.5-1 には今年度採取した試料の番号と位置に加え、昨年度採取した Loob Bunga Creek のアルカリ湧水の測定結果も合わせて示す。また、露頭調査および岩石試料 (PNO01-14-Rh-001~003) 採取位置を図 2.4.5-2~図 2.4.5-3 に示す。

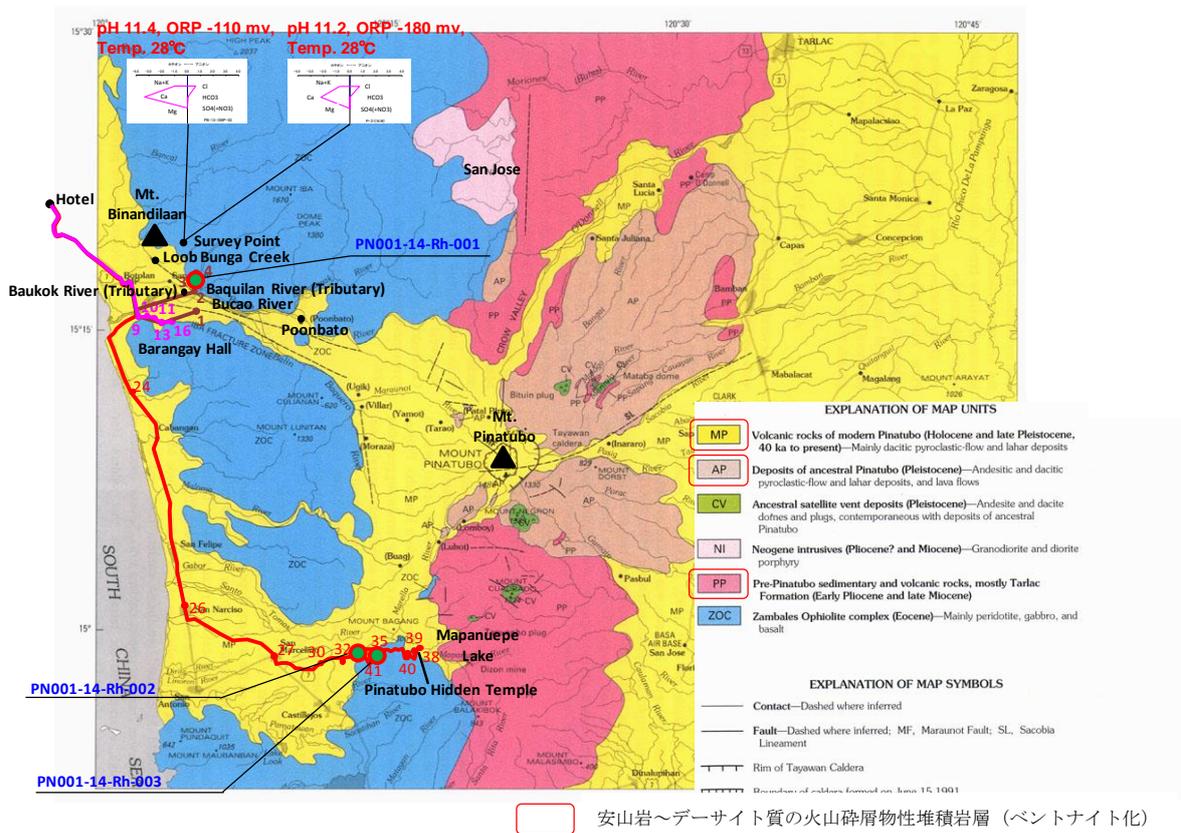


図 2.4.5-1 Pinatubo 地区のフィールド調査ルートマップ



図 2.4.5-2 Zambales 地域 Bucao 川流域での露頭調査および岩石試料採取位置

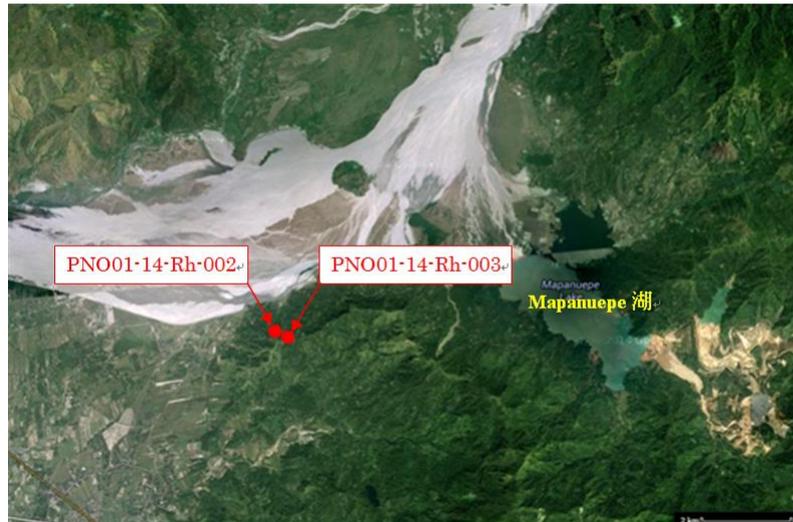


図 2.4.5-3 Zambales 地域 Mapanuepe 湖周辺での露頭調査および岩石試料採取位置

(1) Bucao 川 (Iba 地域 : Botolan 市) の上流約 8km 東方の支流 Baquilian 川と Baukok 川の合流地点周辺

基盤岩は、蛇紋岩化作用の進んだかんらん岩と粗粒斑れい岩が分布している (両者とも造構造運動が顕著)。この地点 (図 2.4.5-4) で岩石試料 1 件 (PNO01-14-Rh-001) を採取した。



図 2.4.5-4 PNO01-14-Rh-001 岩石試料採取地点の露頭

(2) Baquilian 川の出合いから約 6km 北東上流周辺

基盤岩は、斑れい岩～蛇紋岩化されたかんらん岩が分布している。一方、Pinatubo 火山起源の火山碎屑性堆積物 (層) は未確認である。また、フィリピン大での XRD 回析によって、両者の川で pH 8.4 (平均) を計測した箇所採取した河川堆積物 (Stream Sediment) には、主に斜長石、角閃石、輝石、磁鉄鉱とモンモリロナイトが同定された。

(3) Botolan 市南東部、約 35km Marcelino 川上流にある Mapamepe 湖周辺

基盤岩は細粒斑れい岩 (斜長石に富む優白質) が分布している。一方、火山碎屑性堆積物 (層) の石英安山岩-安山岩質火山碎屑岩および、海成～非海成火山碎屑性堆積物 (層) の露頭 (Tarlac 累層) は未確認である。この地点で岩石試料 2 件 (PNO01-14-Rh-002(図 2.4.5-5)、PNO01-14-Rh-003(図 2.4.5-6)) を採取した。



図 2.4.5-5 PNO01-14-Rh-002 岩石試料採取地点の露頭



図 2.4.5-6 PNO01-14-Rh-003 岩石試料採取地点の露頭

2.4.6 岩石鉱物学的調査

Pinatubo 地区の露頭から採取した岩石試料を対象として、不定方位法の XRD による鉱物分析、XRF による全岩化学分析、ICP-MS による微量成分分析を実施した。

分析試料の内訳は、Zambales オフィオライト（3 試料：PNO01-14-Rh-001~003）の超塩基性岩で、輝緑岩の 1 試料を除いて、造構造的節理とその後の造構運動により破碎され、かつ蛇紋岩化されたかんらん岩である。調整前後の試料を図 2.4.6-1~図 2.4.6-2 に示す。

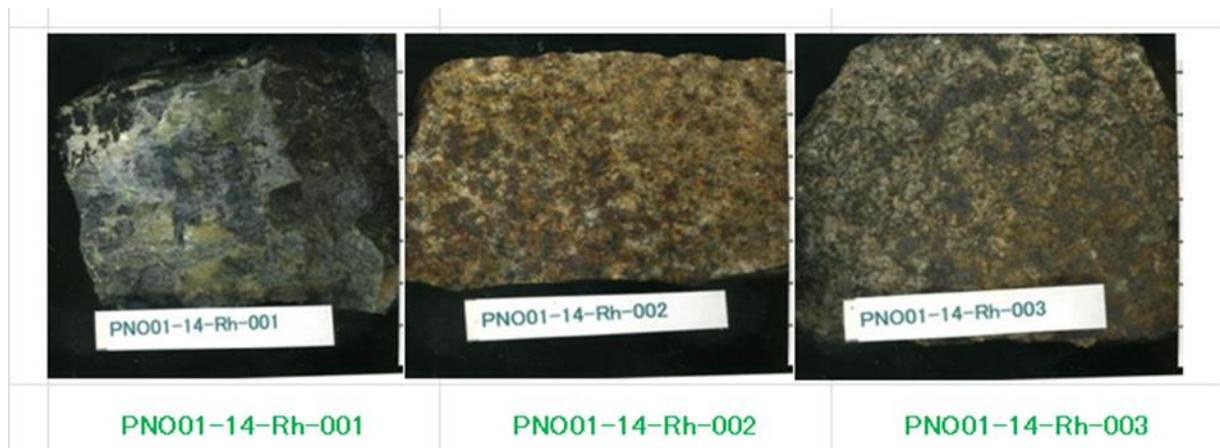


図 2.4.6-1 Pinatubo 地区で採取した岩石試料（調整前）

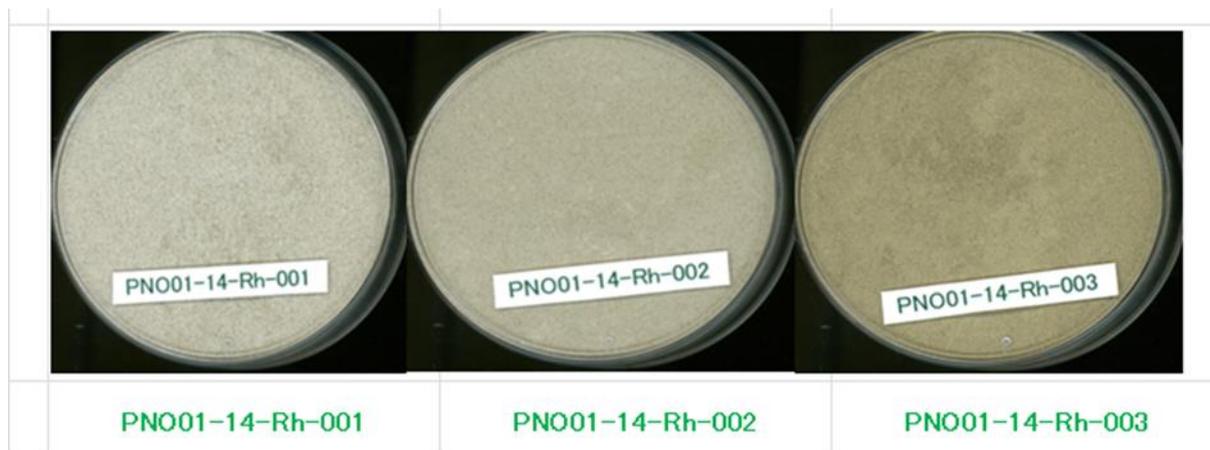


図 2.4.6-2 Pinatubo 地区で採取した岩石試料（調整後）

(1) 鉱物学的特性 (XRD)

XRD による鉱物同定結果に基づき、Pinatubo 試料の鉱物組み合わせを表 2.4.6-1 に示す。また、測定した XRD パターンを図 2.4.6-3～図 2.4.6-5 に示す。

表 2.4.6-1 XRD による Pinatubo 露頭試料の鉱物同定結果

試料名	粘土鉱物			長石	蛇紋石	角閃石	珪酸塩	炭酸塩		その他		
	モンモリロナイト	緑泥石	雲母類	斜長石	リザード石 クリソタイル	角閃石	石英	方解石	霏石	水滑石	葡萄石	灰簀 ざくろ石
	Montmorillonite	Clorite	Mica	Plagioclase	Lizardite Crysotile	Amphibole	Quartz	Calcite	Aragonite	Brucite	Prehnite	Grossular
PNO01-14-Rh	1	△		△	○		△					○
	2	△	△	◎			◎					
	3	△	△	◎		△	◎					

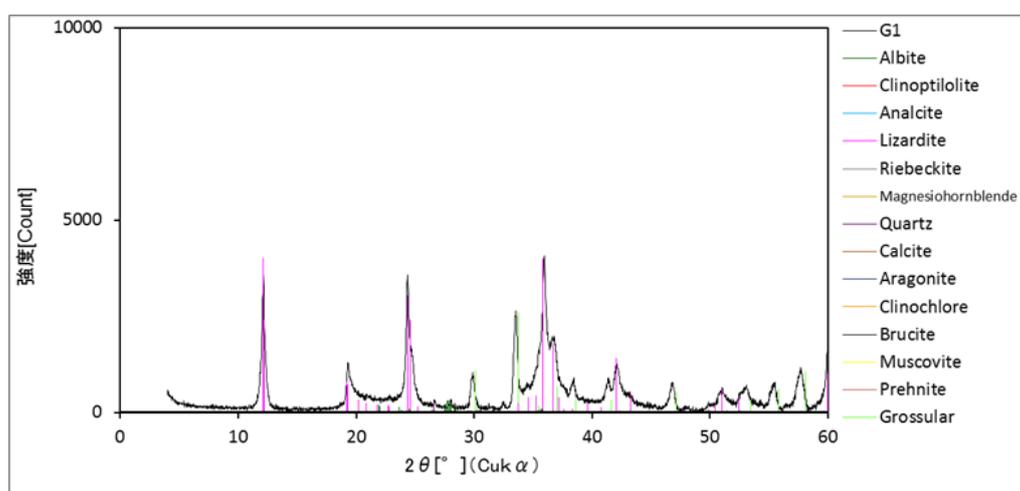


図 2.4.6-3 PNO01-14-Rh-001 の粉末 XRD パターン

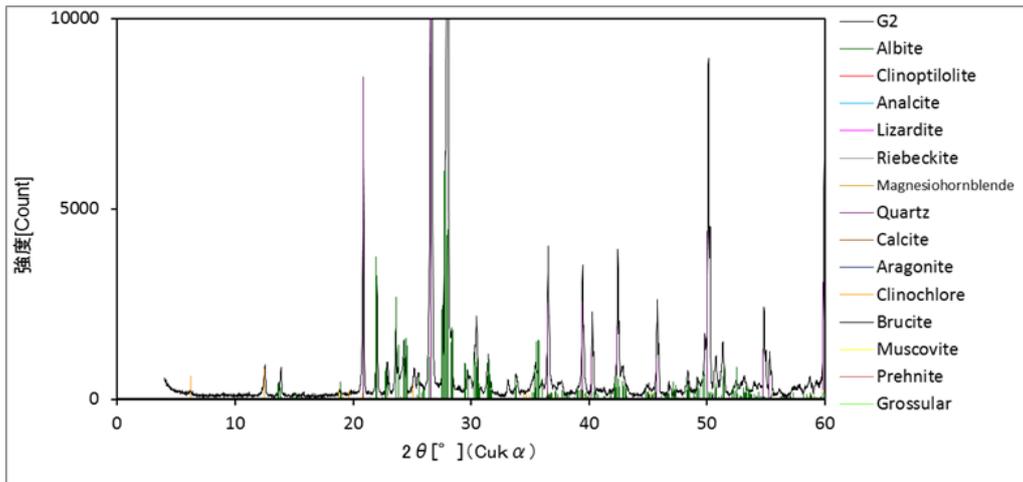


図 2.4.6-4 PNO01-14-Rh-002 の粉末 XRD パターン

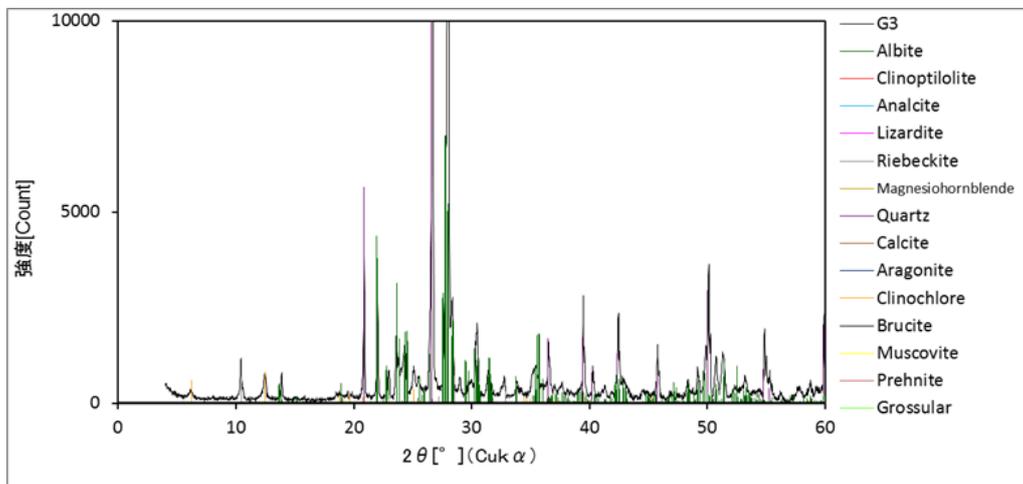


図 2.4.6-5 PNO01-14-Rh-003 の粉末 XRD パターン

(2) 岩石の地球化学的特性

1) 蛍光 X 線分析 (XRF)

XRF による元素比率定量結果を表 2.4.6-2 に、主要元素比率を図 2.4.6-6 に示す。また、組成変化図 (ハーカードイヤグラム) を Palawan のデータと合わせて示す。

Zambales オフィオライトの SiO₂ は、約 40wt % (かんらん岩) ~60wt % (輝緑岩) の広い範囲にあるが、他の主要バルク成分の濃度変化がなく、おおよそ組成は一定である。これは、ほぼ同じオフィオライト火成岩層準で、同時期の造構運動に見舞われた結果なのかも知れない。

また、PNO01-14-Rh-001 は XRD でも蛇紋石のピークが明らかであり、それゆえ MgO 含有量が高い。

表 2.4.6-2 XRF 分析による Pinatubo 露頭試料の元素比率定量結果

料名 元素	PN001-14-Rh-001	PN001-14-Rh-002	PN001-14-Rh-003
CaO	5.4499	2.0967	3.3987
SiO ₂	34.2144	67.4846	56.1853
CO ₂	12.7732	8.7142	9.7314
Al ₂ O ₃	7.2246	11.0415	10.686
Fe ₂ O ₃	6.6012	3.9163	9.7864
MgO	33.0289	0.9294	2.5906
Na ₂ O	-----	5.2498	6.1543
K ₂ O	0.0044	0.1697	0.3444
TiO ₂	0.0153	0.2437	0.5292
P ₂ O ₅	-----	0.0511	0.2313
MnO	0.1481	0.0462	0.2503

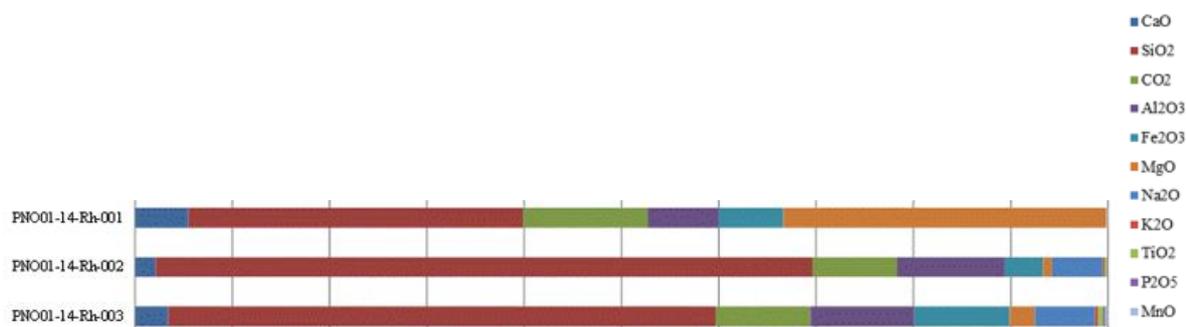


図 2.4.6-6 XRF による Pinatubo 露頭試料の主要元素比率

2) 誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) 及び Si 濃度分析

ICP-MS により 2 件 (PNO01-14-Rh-001 及び PNO01-14-Rh-003) の試料の主成分・微量元素分析を行った。また、Si 濃度は Bigbiga と同様に全ケイ素アルカリ溶融脱水法により定量した。表 2.4.6-3 にこれらの結果を示す。

また、希土類元素パターンを図 2.4.6-7 に示す。PNO01-14-Rh-003 が LREE よりも HREE の方が高い含有量を示しているのが興味深い。

表 2.4.6-3 ICP-MS 及び全ケイ素アルカリ溶融脱水法による主成分・微量成分分析結果 (Pinatubo)

Sample No.	BR-45	BR-46
Location	PNO01-001	PNO01-003
Na (wt.%)	3.96	7.12
Mg	24.26	0.69
Al	3.59	7.46
P	0.00	0.08
K	0.35	0.72
Ca	0.75	2.06
Sc (ppm)	6.70	22.04
Ti (wt.%)	0.02	0.21
V (ppm)	20.09	2.31
Cr	1107.10	62.97
Mn (wt.%)	0.08	0.15
Fe	4.76	4.81
Co (ppm)	95.91	4.37
Ni	2148.48	86.54
Cu	69.10	b.d.l
Zn	51.64	98.33
Ga	53.81	82.29
As	1.99	1.85
Rb	0.95	4.35
Sr	87.90	192.04
Y	1.73	28.31
Zr	238.88	182.86
Nb	0.09	0.48
Mo	11.09	9.71
Ag	0.19	0.21
Cd	0.31	0.24
In	0.01	0.12
Sn	32.00	36.52
Sb	16.74	22.14
Cs	0.22	0.49
Ba	3827.27	4294.64
La	1.07	3.62
Ce	2.10	9.31
Pr	0.25	1.58
Nd	0.87	8.03
Sm	0.22	2.98
Eu	b.d.l	0.40
Gd	0.21	4.44
Tb	0.04	0.79
Dy	0.27	5.38
Ho	0.07	1.17
Er	0.22	3.51
Tm	0.04	0.52
Yb	0.30	3.39
Lu	0.06	0.53
Hf	4.47	4.13
Ta	b.d.l	0.01
W	26.85	0.92
Tl	0.01	0.04
Pb	12.72	25.52
Bi	0.14	0.33
Th	0.59	0.74
U	0.31	0.29
SiO ₂ (g/kg)	399	691

b.d.l.: below detection limit.

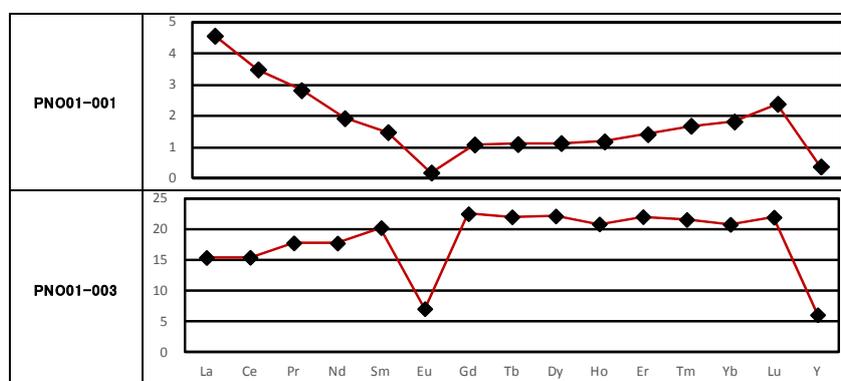


図 2.4.6-7 Pinatubo 露頭試料の希土類元素パターン

2.4.7 地下水（湧水）調査

Pinatubo 地区の Botolan、Bukao 川および Mapanuepe 湖周辺にて、湧水地点等からの地下水の採取、パラメータ（pH 等）測定、 H_2 ガス・ CH_4 ガス濃度の測定および溶存イオンの簡易分析（パックテストによる主要イオン（ Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Al^{3+} 、 Cl^- 等）の現地での簡易測定を含む）のための調査を実施した。しかしながら、雨季による増水のためアルカリ湧水が確認できず、当調査地区ではリトマス紙による pH 測定のみで、採水は実施しなかった。

(1) Baquilian 川の出合いから約 6km 北東上流周辺

湧水（小川の流れ）の地球化学的特性については、Bnquilan 川が pH 8.8（フィリピン大での測定値）、Bankok 川が pH 7.7（フィリピン大での測定値）であったのは、すべて降雨水との混合により、pH が緩衝されたものと推測される。

(2) Botolan 市南東部、約 35km Marcelino 川上流にある Mapamepe 湖周辺

図 2.4.7-1～図 2.4.7-3 に示す 2 地点で露頭（斑れい岩）の湧水（裂か水）のリトマス紙による pH 測定を実施した。図 2.4.5-1 Pinatubo 地区のフィールド調査ルートマップの結果の通り中性～弱酸性であった。



図 2.4.7-1 Pinatubo 地区（Mapamepe 湖周辺）地下水調査地点



図 2.4.7-2 沢水 1 の pH 測定状況（pH 7）



図 2.4.7-3 沢水 2 の pH 測定状況 (pH 5)

表 2.4.7-1 Pinatubo 地区現地水質測定結果

採取場所	Mapanuepe 湖周辺 (沢水 1)	Mapanuepe 湖周辺 (沢水 2)
		N14° 58' 55.4" E120° 15' 09.9"
pH	7	5
備考	2014.8.8 測定 (リトマス紙)	2014.8.8 測定 (リトマス紙)

2.5 Palawan 島中・南部地区の調査

2.5.1 調査目的

ベントナイトの長期健全性評価のために考慮すべき事象の一つとして、アルカリ環境下でのベントナイトを構成するモントモリロナイトの長期的変質反応により、ベントナイトの基本性能の劣化が指摘されている。この変質反応については、モントモリロナイトとアルカリ溶液との変質反応プロセスにおける鉱物化学的反応と物質移動の両面から考察することが必要である。特に、アルカリ変質反応に係る地球化学的プロセスを支配する現象と、変質生成鉱物の変遷プロセスを理解することが基本になる。

これらのデータ・解析結果は、ベントナイトの長期健全性評価の基本的な知見として、ベントナイトの基本性能や解析計算の妥当性（データベース；パラメータ、境界条件等の）評価に寄与することになる。

初年度のパラワン島の中・南部地区（ここでは南パラワン島と呼称する）の調査は、アルカリ地下水がベントナイト緩衝材の主要構成鉱物であるモントモリロナイトを含有するベントナイト質堆積岩（層）または、タービタイト中の泥岩層中に直接湧出しているサイト（露頭：コンタクト部）をターゲットとする「Active Type」としてのナチュラルアナログが成立可能なポテンシャルサイトを探索することを目的として、予察を実施した。

今年度の主要な予察地区は、パラワン島州都であるプエルト・プリンシーサ市(Puerto Princesa)の北西に位置する①Ulugan Bay 地区の地質・岩石学的調査、東方のスールー海(Sulu Sea)に面した②Narra 地区での地下水調査と岩石学的調査、中央パラワン島の脊梁部を形成する③Palawan オフィオライトの岩石学的調査、そして、南西海岸のケソン市近傍にある④ラテライト-Ni 鉱床とその胚胎母岩である超塩基性岩（Palawan オフィオライト）の岩石学的調査を実施した。

2.5.2 位置とアクセス

パラワン島は、北東に約 450km、幅 9~50km の細長い列島で[23]、西に南シナ海(South China Sea)、東にスールー海に囲まれ、北東には、ミンドロ島(Mindoro Island)、南西には、ボルネオ島(Borneo Island)が位置する。

地形的特徴から、パラワン島は、Ulugan Bay に走る「Ulugan Bay Fault」を境に、北方を北パラワン島(Northern Palawan Island)と南方を南パラワン島(Southern Palawan Island)としている。更に、南パラワン島を南シナ海に面するケソン市(Quezon city)沖合の特異な海底地形とスールー海に面する Aboado 村を結ぶ北西線を南限として、中央パラワン島(Central Palawan Island)と区分している。ただし、この区分は、地質学的意義によるものではない[24]。

パラワン島州都 へのアクセスは、首都マニラからジェット便で約 2 時間、フェリー便(Inter-Island Ferry)では約 28 時間の道程である。なお、予察地区までのアクセス時間は、晴天時の四輪駆動車で、①Ulugan Bay まで約 3 時間（一部、船<漁船>の利用）、②Narra 地区まで約 3 時間、④Quezon 市までは約 4 時間を要する。道路事情は、東海岸の沿岸道路は、一部を除いて舗装されているが、パラワン島の東西横断道路と西海岸の沿岸道路は、大部分が未舗装道路である。

2.5.3 気候

パラワン島の気候は、図 2.4.3-1 に示すように、西海岸地区 (Type- I) と東海岸地区 (Type-

Ⅲ) に区分される。Type-I は、明瞭に 2-シーズン (乾季: 11 月~4 月、雨季: 5 月~10 月、特に 6 月~9 月に最高降雨量を記録する) で特徴付けられる。一方、タイプ-Ⅲは、雨季・乾季の時期が明瞭でなく、経験的に乾季は 12 月~2 月 (または、3 月~5 月) である。但し、最高降雨量の期間はない。

島全体では、年平均降雨量が、2000mm (最高の降雨量月は 9 月、最低の降雨量月は 2 月である。平均最高温度は 31°C で、年間の気温変化は殆どない。

2.5.4 Palawan 島の地質概要

(1) 地質構造学的背景

最初に、フィリピン諸島とその一部を構成する Palawan 島の全体的なテクトニクス場の変遷について簡単に概説する。

Palawan 島は、南部地域 (Southern Palawan) にオフィオライト、北部地域 (Northern Palawan) には、異地性 (中国大陸の東南部に分布する岩石を起源) の堆積層 (岩) とそれらの原岩の一部が変成作用により形成された各種変成岩 (下部角閃岩相の変成度) で特徴づけられる。これらの特徴は、フィリピン諸島を取り囲むプレート運動による広域的な構造発達段階 (テクトニクスの変遷: 付加体の形成、大陸隆起、海底拡大、海盆の閉鎖、島弧の形成、プレートの沈み込み、オフィオライトの押しつぶせ<定置>、島弧-大陸衝突、走行移動断層、火成岩の貫入、火山活動など) に深く係りあって変遷したことが指摘されている [25][26]。

図 2.5.4-1 に示すように、フィリピン諸島とその周辺には大規模な海溝 (Trench: トレンチ) が、東西に相反する沈み込み帯として位置している。西方の沈み込み帯は東側へ、東方のものは西側へ傾斜して分布している。東傾斜の沈み込み帯は、Early Miocene 時期の Manila Trench (早期中新世時のマニラトレンチ)、Middle Miocene 時期の Negro Trench (中期中新世時のニグロトレンチ)、Late Miocene (後期中新世) ~ Pliocene (鮮新世) 時期の Sulu Trench (スールートレンチ) と、Cotaba Trench で構成され、西傾斜の沈み込み帯は、Eocene 時期の Philippine Trench と始新世時期のフィリピン海プレートの斜めの沈み込み帯である East Luzon Trench である。更に、大陸縁辺盆地 (South China Sea, Sulu Sea, Celebes Sea, Molucca Sea, Philippine Sea に発達した堆積盆地) と海底等深の高まり (NW Luzon Oceanic Bathymetric High, Scarborough seamount, Palawan-Mindoro Continental Block, Zamboanga-Sulu Peninsula) に取り囲まれている [26]。

特に、Palawan 海盆は Palawan 島の北方に平行に位置し、島の中央と南側に沿って分布している。Palawan 海盆の起源に関するいくつかのモデルがある。その一つのモデルは、南シナ海の開口に関係した伸長する断層群 (地溝構造) による海底等深の高まりに伴い形成されたものとする解釈である。一方、初生段階での南シナ海が Paleogene (古第三紀) 期に沈み込み以前の沈み込み帯 (過去の海溝) の名残りであるとする解釈もある [27][28]。但し、この解釈の正当性については現在も論争中である。

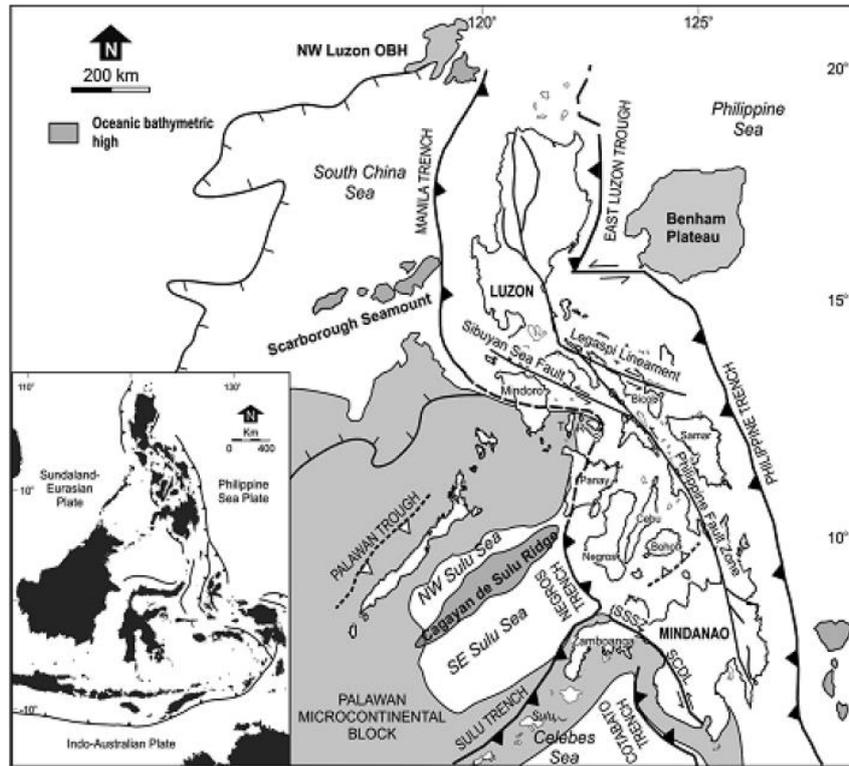


図 2.5.4-1 フィリピン島弧の広域テクトニクス図 (Yummul et al., 2008) [26]と3つの主要なプレート(フィリピン/ユーラシア/オーストラリアプレート)位置図

(2) Palawan 島とその周辺地質概要

フィリピン諸島は、2つの地質構造・層序学ユニットに区分される。それは、Philippine Mobile Belt(PMB<フィリピン変動帯>[29])と Palawan - Mindoro Continental Block(PCB)である(図 2.5.4-2 参照)。この PCB を構成する Palawan の北部地域、Mindoro 島、Romblon Island Group と Panay 島北西端の Buruanga 半島は、一般的に大陸起源物質から構成されている。この事実から、Early Oligocene 時期(32 Ma)に開口された南シナ海(SCS)に海盆が出現し、その主要な堆積物は、アジア大陸(南方の中国大陸)から供給されたものと考えられている。そして、Early Miocene 時期(17Ma)に PMB に衝突して、SCS が開口して終結となったものと解釈されている[23]。

PCB 以外のフィリピン諸島にある PMB には、大部分が島弧に伴う白亜紀のオフィオライト、緑色片岩や火成岩で構成されている。これらはほぼ赤道付近で形成され、フィリピン海プレートの回転により現在の位置へドリフトし、Eocene-Miocene 時期[30]に拡大したものと解釈されている。PCG と PMB の間における Late Early Miocene から Early Middle Miocene 時期の島弧-大陸の衝突は、いくつかの特徴的な地質事象(押しつぶされたプレートの先端化、火山弧のギャップ、オフィオライトの定置、初期背弧の上昇、島弧の回転、傾動運動、海岸段丘の隆起、変成作用、火成岩の貫入、急傾斜で沈み込んだスラブなど)の証拠として示されている[26]。

PCB は、北部パラワンブロック(North Palawan Block <NPB>[28])または、北部パラワン大陸塊(North Palawan Continental Terrain : NPCT)と南部パラワン塊(South Palawan Terrain <SPT>[31][32])の2つのブロックに細分されている。NPCT は Early Oligocene 時期に、南シナ海の開口過程での南部中国辺縁からの移動に伴う大陸の岩片残存物であると解釈されている[28][33]。これは、Upper Paleozoic (上部古生代) から Lower Mesozoic (下部中生代) 時期の

堆積岩が下位に横たわっていることから地質学的解釈が成立する[31]。また、Upper Cretaceous から Eocene 時代に堆積した砂岩の原岩が大陸起源であることから、この解釈が支持されている[23]。

一方、SPT は Oligocene から Miocene 時代の堆積層に押しつぶされた Lower Cretaceous から Eocene 時に生じたオフィオライト定置に伴う海洋底起源の岩石分布により NPCT から分化したものと解釈されている[32][30]。NPCT と SPT 間のテクトニックコンタクトは、以前 Ulugan Bay Fault[28]に沿ったものと解釈されている。この断層は走行移動断層で、パラワン島の西海岸の Baheli Isthmus から東海岸の Honda Bay へ走行している。しかしながら、MMAJ - JICA (1988)[34]の調査結果、そのコンタクトは Ulugan Bay の北の Sabang に観察される衝上断層帯であることが指摘され、今日では、この解釈が多く受け入れられている。

NPCT が大陸から運ばれた岩片に対するオフィオライトの押しつぶせ(オフィオライトの定置)は、Middle Eocene から始動し、Early Miocene 時代に最高潮に達したものと解釈されている。

Palawan オフィオライトは超塩基性岩、苦鉄質岩、珪長質岩と深海性堆積岩から構成され、その成因は時限的であり、その起源や組成は、地球内部の上部を構成する海底地殻と上部マントルの柱状断片と考えられ、そのオフィオライト定置の形、複雑な内部構造や地球化学的特性の類似性からも考察されている[35]。従って、オフィオライトは、マグマ弧の発達する基盤を代表していると言える。

Palawan オフィオライトの岩相は、下位から、①未変質なもの・蛇紋岩化した斜方輝石かんらん岩(ハルツバージャイト)、ダナイト岩、輝岩(パイロキシナイト: Pyroxenite) からなる「Mt. Beaufort Ultramafics」、②かんらん石斑れい岩、トロクトライト(Troctolite)を含む粗粒斑れい岩から成る「Stavelly(Range) Gabbro」、③砂岩とチャートを挟在するスピライト質玄武岩からなる「Espina 累層」で構成されている[36]。

MGB (2010)[30]による SPB(South Palawan Block)の地質調査の範囲は、中央と南限の Balabac 島を含む領域(総延長約 300km)を SPB として取り扱っている。その結果、北部パラワン島は、一般的には大陸起源物質-変成岩の層序的特性があり、南部パラワン島は、対照的にオフィオライト複合岩体(Palawan Ophiolite Complex[37])で特徴づけられていると指摘している。Palawan 島は、大別すると最古の基盤岩である Palawan オフィオライトに不整合に累重する Paleogene 時代の堆積岩から構成されている[37]。この堆積岩の一部は、メランジェであると考えられている[27][38]。

最近、MGB (2010)[30]が公開した南パラワン島の地質図(図 2.5.4-3)と比較、参考として、Suggate et al, (2013)[31], Aurelio et al., (2013)[25]と、Pena (2008)[39]の一般層序図表(図 2.5.4-4)と合わせて示す。なお、岩石ユニットは、堆積岩(堆積盆地)、オフィオライト複合火成岩体と変成岩類の3つのグループとして分類されている。

この Palawan オフィオライトを累重する Paleogene 時代の堆積岩は、砂岩、頁岩と少量の礫岩で代表される碎屑物質(例えば、Panas / Pandian 累層)を原岩としている。そして、これらの堆積岩に押しつぶされた Palawan オフィオライトの定置は、Late Eocene 時代の大洋底拡大の結果により生じたものと考えられている[40]。

更に、Palawan 島は、急激な古海水面の変動が顕著である。これは Central Palawan に活断層の存在を示唆することになる[41]。

Palawan 島に分布する堆積岩類は、Neogene(新第三紀)時代の堆積盆地の基盤岩を構成する堆積物が、Late Oligocene 時代に堆積し始め、その後、その堆積相を変化させながら、浅海性碎屑物・炭酸塩岩相から深海タービタイト相へと異なる堆積物となっている[30]。このことから、

ユーラシアプレートにある堆積盆地は全体的にパラワン島を取り囲んでいることになる。

South Palawan における堆積岩は、下位から Panas、Pandian、Isugod 層累で構成され、その岩相はタービタイト質（泥岩・シルト岩の挟在層）・塊状の石英・長石質碎屑物のものと、Sumbing、Ransang、Iwahig 累層で構成される含化石または非化石の多種の石灰岩である。また、Panas、Pandian や Sumbiling 累層での岩相変化は、それらの層序内と累層間のコンタクト部で観察される。

一般的には、フィリピン諸島における変成岩は、①大陸起源の Pre-Cretaceous の変成岩（北部パラワン変成岩）、②島弧に見られるような Post-Jurassic（後ジュラ紀）の変成岩の 2 つのカテゴリーに区分されている[30]。

南部パラワン島には、Dalrymple Point 角閃岩が露出している。この産状はオフィオライト自身の定置に伴った変成作用により形成されたものである。また、その原岩物質は塩基性の火山岩、泥岩、チャートで構成され、その変成度は下部角閃岩相である[30]。

また、Southern Palawan には、Ni 濃集の鉄質土壌（Ni に富んだラテライト）が Palawan オフィオライト基盤の表層に濃集する複数の Ni-鉱床（Rio Tuba・Berong 鉱床：0.35~1.60 %Ni）、クロム鉄鉱、リン酸塩鉱物やリン酸石灰岩の P-鉱床が胚胎している。

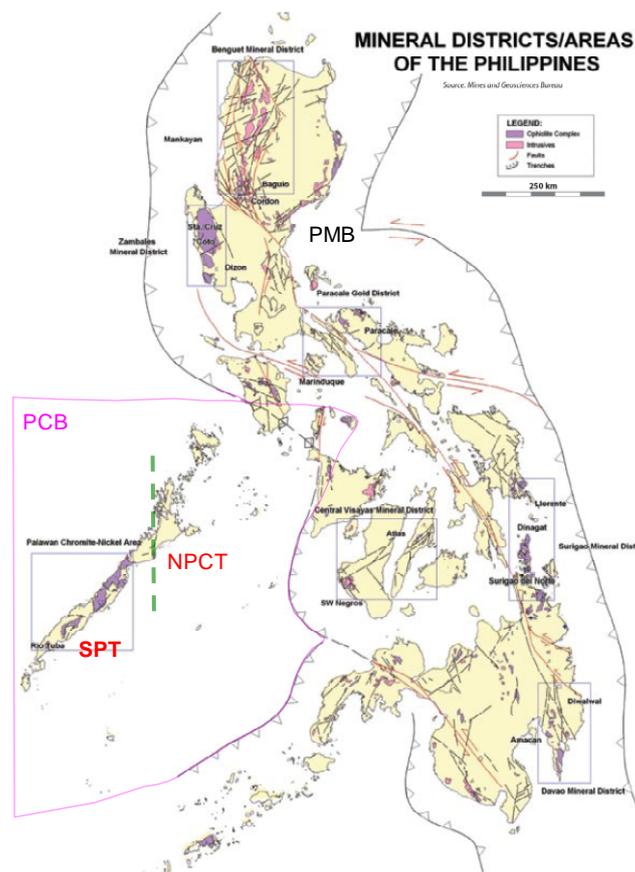
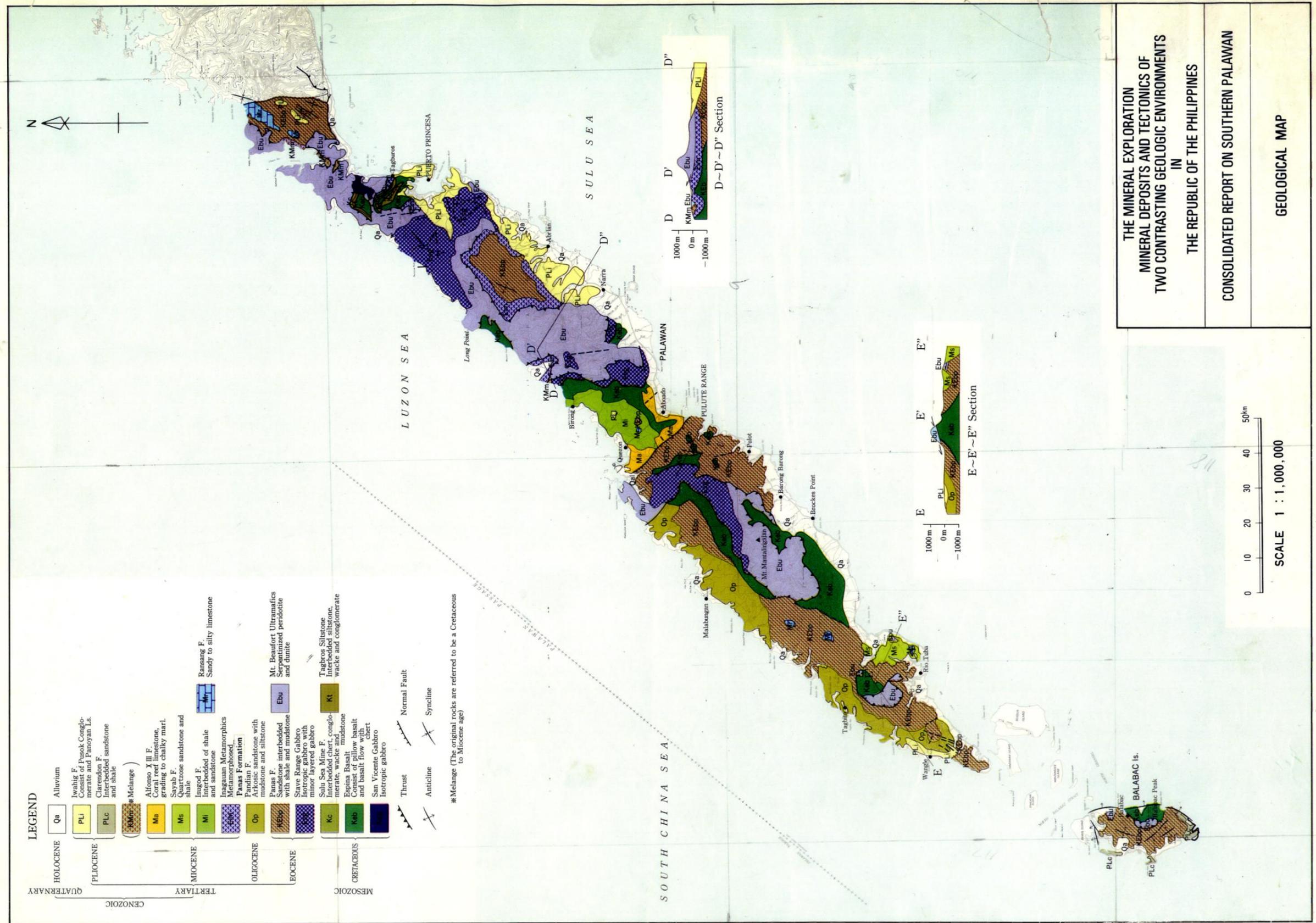


図 2.5.4-2 フィリピン及び Pinatubo の地質構造・層序学ユニットの区分



THE MINERAL EXPLORATION
 MINERAL DEPOSITS AND TECTONICS OF
 TWO CONTRASTING GEOLOGIC ENVIRONMENTS
 IN
 THE REPUBLIC OF THE PHILIPPINES
 CONSOLIDATED REPORT ON SOUTHERN PALAWAN
 GEOLOGICAL MAP

図 2.5.4-3 南パラワン島の地質図

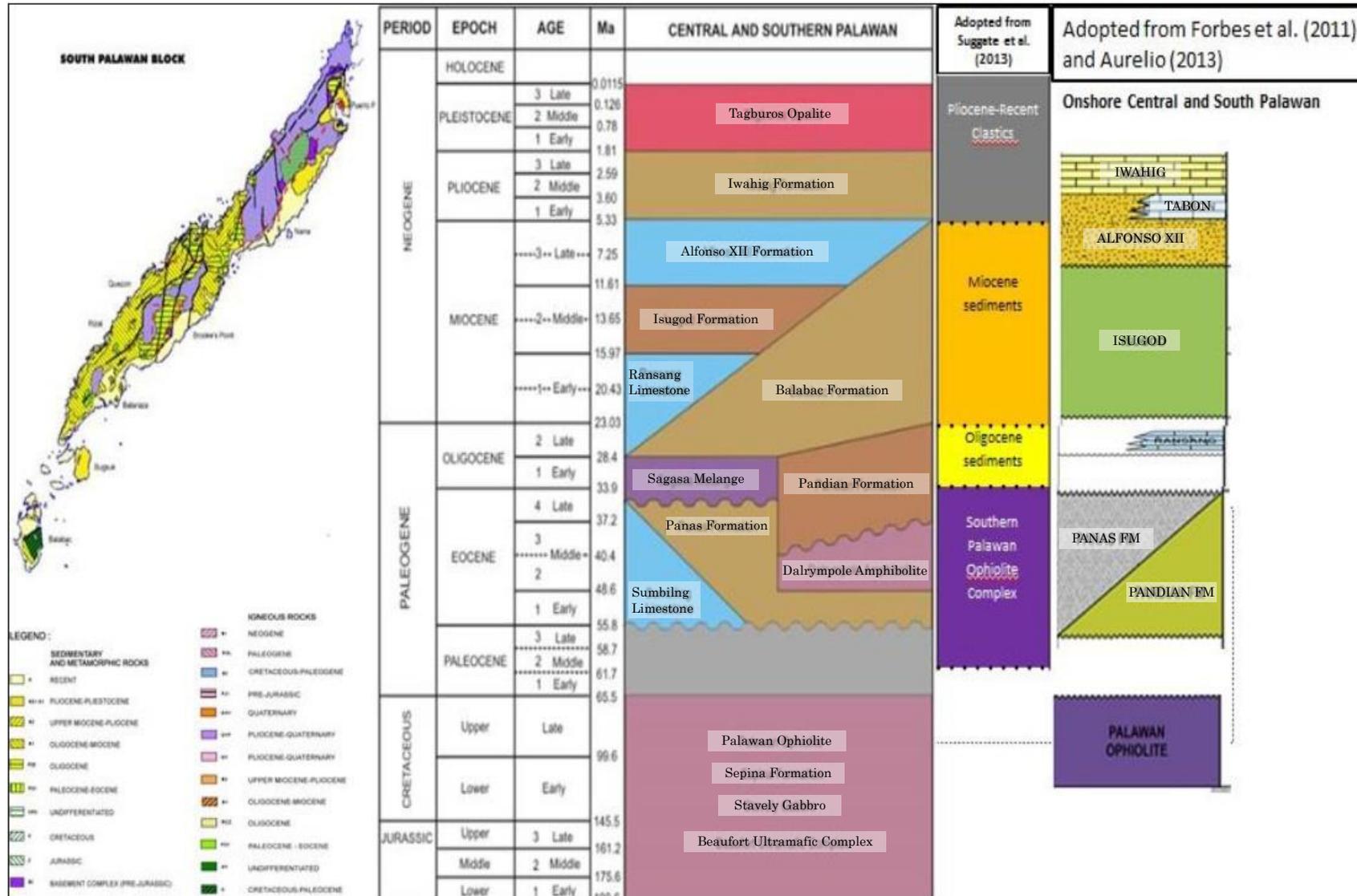


図 2.5.4-4 南パラワン島の地質図と一般層序 (Suggate et al, (2013)[31], Aurelio et al., (2013)[25], Pena (2008)[39])

(3) Palawan 島南部の地質概要

調査対象層を探索する上で重要な地質要素は、南部パラワン島におけるオフィオライト定置とそれに伴う堆積過程・堆積環境（岩相・岩質など）について、単純化したモデル(Figure-E)に基づいて考察することが必要である。

Palawan 島の南部は、複雑な沈み込み、押しつぶせ、大洋底拡大などのテクトニクス場での地球科学的な変遷を受けて現在の地形・地質が形成されている。

Eocene 時期のタービタイト質砕屑物で構成される Panas と Pandian 累層は、Early Oligocene 時期に南シナ海の開口時期と同時に堆積・隆起した堆積物である。従って、これらの堆積物は、圧倒的に石英-長石質砂岩、頁岩、泥岩で特徴付けられる。これらの石英、長石鉱物と石質破片の重量比により、大陸のテクトニクス発展プロセスを解釈する手立てになっている。隆起期間中に、堆積盆地内の地溝や半地溝のような隆起構造による強力なブロック状断層を生起させた拡張歪みが南方シナ海沿岸の大陸縁に沿って南シナ海の開口に関与している。特に、半地溝の形成に伴う地形的な高低差は、ユニークな地形的特徴を示し、この高低差（深度の違い）が堆積環境の違いを生み、その結果、堆積物（岩）が深海性から浅海性への岩相を規制することになっている。この地形的特徴が、部分的ではあるが、殆ど同時期と思われる高い標高かより浅い環境で形成された Pandian 累層と低い標高またはより深い環境下での Panas 累層のタービタイト質砂岩と泥岩の岩質・岩相とその性状を説明することができる。

南シナ海の開口の出現で最初の南シナ海の沈み込みが開始し、Miocene 時期にその活動が休止したことが指摘されている[25]。このことは、南シナ海の開口の休止と海洋底の押しつぶせ（オフィオライトの定置）との時期に、Panas 累層と Pandian 累層の同時期か隆起時期に堆積が起ったに違いない。この時期は大陸周縁部へのオフィオライトの押しつぶせ（オフィオライトの定置）を意味することになる。

オフィオライトの押しつぶせより以前の大陸性物質（North Palawan 大陸塊）の離接運動は恐らく、Late Oligocene から Early Miocene 時期で、一連のテクトニクスな隆起が Panadian 累層の塊状砂岩のような浅海性堆積物の堆積を好むような圧縮場で生起したものと考えられる。

Panas 累層は、時代的に Pandian 累層より比較的古いのが、Panadian 累層の塊状砂岩の形成にテクトニクスな隆起事象を被っている。そして、いかなる場合においてもタービタイト相から塊状な砕屑性堆積相への不合理な変化は、押しつぶせ以前でさえ堆積盆地が漸進的に浅くなっていることを意味することになる。恐らく、初期のスラブ剥片により、海洋底岩石圏の細長い裂片の分離がオフィオライトとして乗り上げるように押しつぶさったものと考えられる[25]。その時期は、Late Oligocene と Early Miocene である。この白亜紀のオフィオライトの強力な衝上断層運動が、下位の砕屑岩への変形運動と変質作用を促した。それはタービタイト層の強力な褶曲や変質作用および、定置による塊状砂岩の変形イベントが観察されることから明らかである。

しかし、典型的なオフィオライト、例えば、結晶集積や等粒斑れい岩の岩質特性についてはこの地域では報告されていない。このことは、押しつぶせの進行時に強力な破碎作用によりオフィオライト岩石の一部の大規模な寸断（もぎ取られ）によるものと説明可能である。

オフィオライト定置の休止後、連続的な隆起が、海水面の低下を促し、オフィオライトにカップ状に堆積物の堆積（沈積）させる容易な環境を提供した。Middle Miocene 時期の堆積層である Ransang 累層は、まさにこれらの環境下で堆積した。つまり、オフィオライト定置の休止とその過程に関連するカップ状の堆積イベントが一致しているということである。更に、Ransang 累層に属する含化石・石灰岩の出現（特に、Mt. Gotoc 地域の露頭）により、海底堆積盆地が暫時浅くなっていくことを示しているものと考えられる。

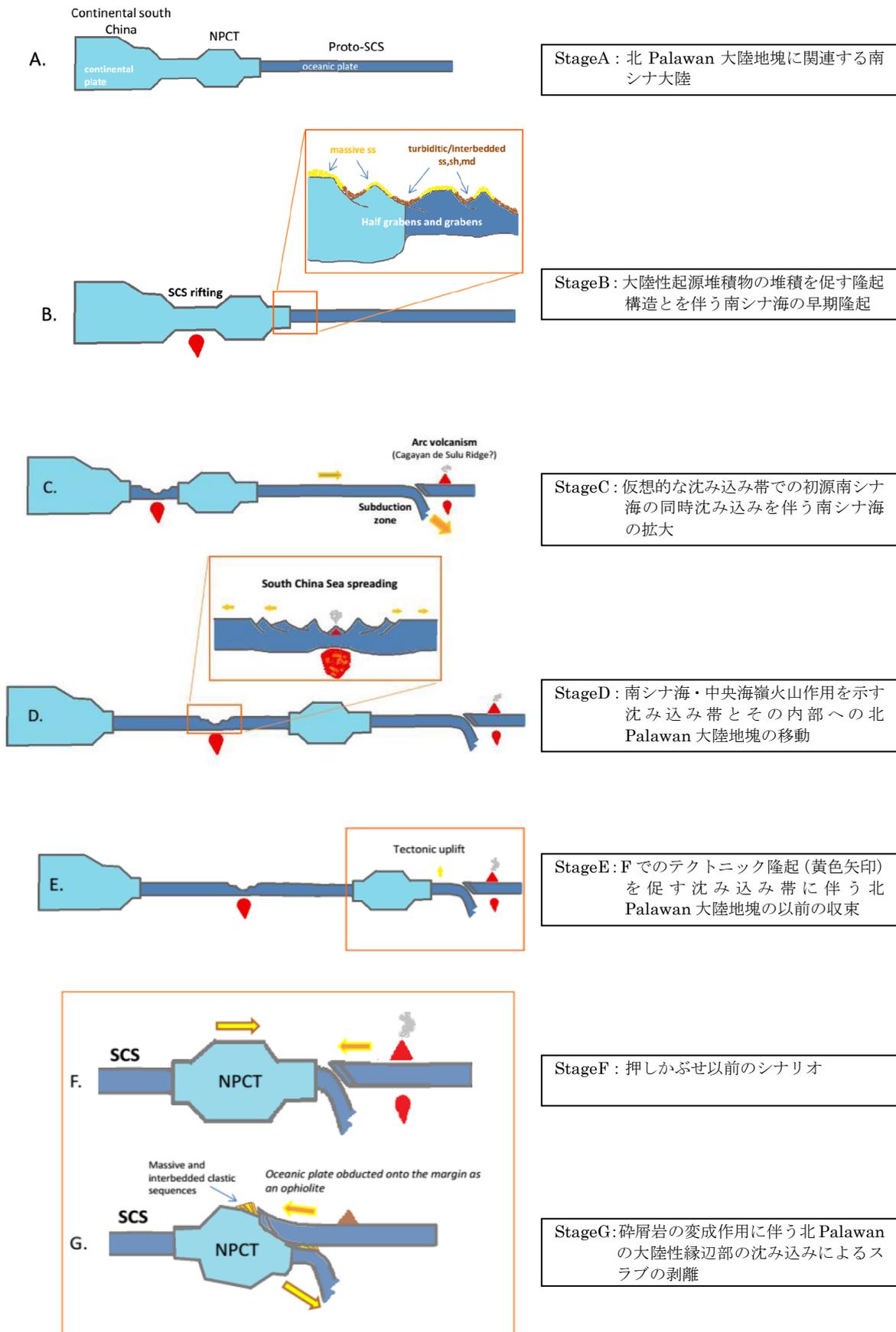


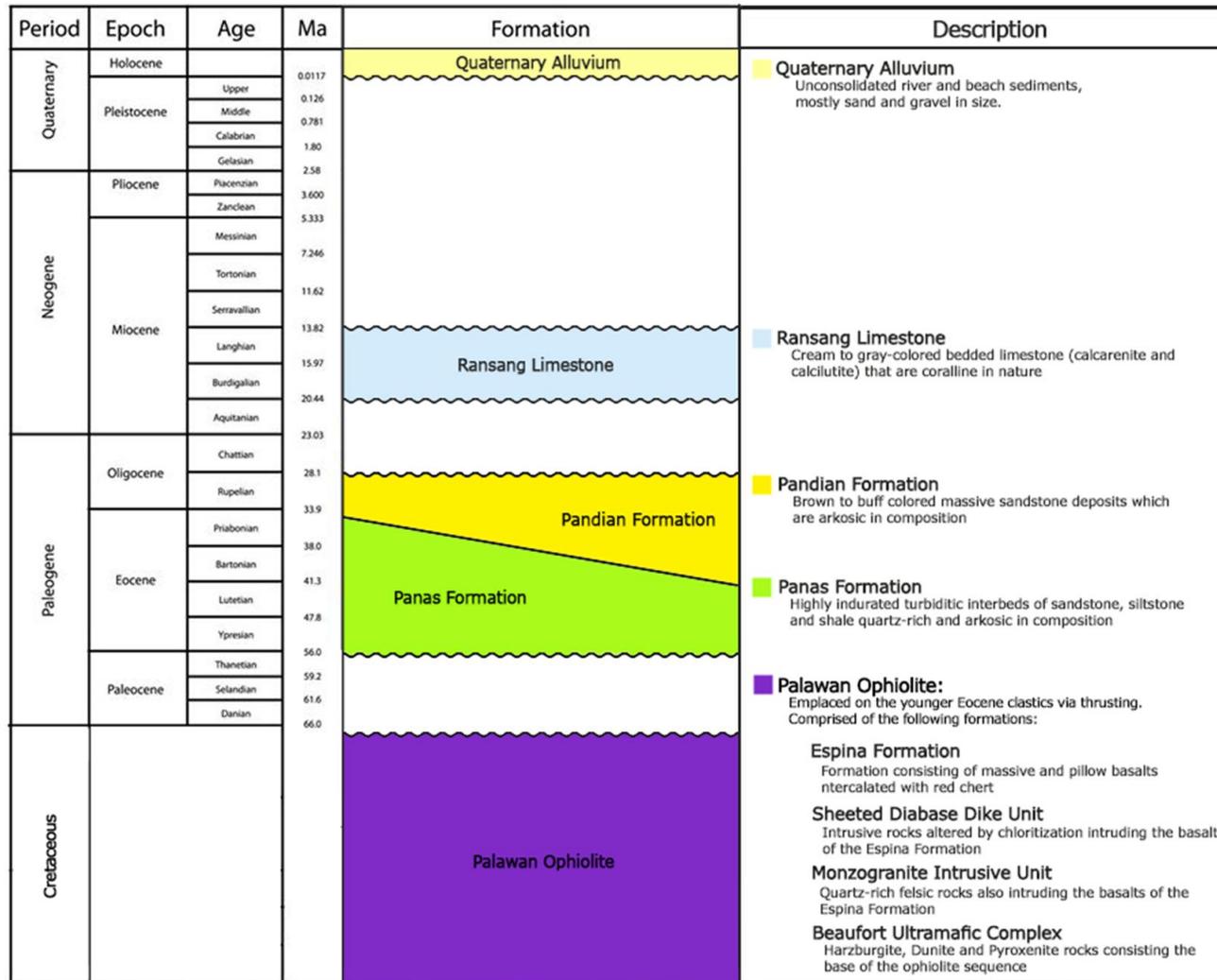
図 2.5.4-5 パラワン島におけるオフィオライト定置のシンプルモデル

次に、South Palawan 諸島に露出する岩石の岩質・岩相について概説する。

基盤岩である Palawan オフィオライトは、急峻で高角度の山脈である Bulanjao Range とそれを囲む水平から緩傾斜のものから複雑に褶曲した産状が観察される。

岩質は①ダナイト岩、斜方輝石かんらん岩、輝岩、種々な斑れい岩の様な残存苦鉄質岩、②スピライト質な塊状の枕状玄武岩、③深海チャート、③モンゾ岩質花崗岩の様な珪質貫入岩である。この他、これらの苦鉄質岩類は層厚の変化する赤色リゴリス（表土）に被覆され、Fe や Ni に富み、一部、Ni 鉱床を形成する。また、これらの赤色表土の赤色化は、ラテライト化した土壤に、針鉄鉱(Goethite: $\alpha\text{-FeOOH}$)と赤鉄鉱(Hematite: Fe_2O_3)が含有するためである。

Bulanjao Range(Baranggays Rio Tuba, Ocayan, Sandoval, Iwahig, Tarusan, Culandanum, Panalingaan, Taburi, Latud, Canipaan, Sumbling)を取り囲む地域での堆積岩の岩質・岩相は、①石英質—長石質の碎屑物からなる砂岩、シルト岩、頁岩、泥岩の挟在層、②塊状でアルコーズ質砂岩により不整合に被覆、③層理面の発達した石灰岩・石灰シルト岩による整合に被覆するものに分類され、5つの累層で構成されている。それらは、Palawan オフィオライトを構成する①Beaufort Ultramafic Complex、②Espina 累層で、輝緑岩の岩脈やモンゾ岩質花崗岩の貫入岩も含まれる。Beaufort Ultramafic Complex は、Bulanjao Range では Espina 累層に不整合関係で並置されていることが観察される。また、シート状の輝緑岩岩脈やモンゾ岩質花崗岩の貫入岩も Espina 累層に非調和的な産状をする。Palawan オフィオライトは Panas と Pandian 累層の碎屑質堆積物に不整合関係で衝上している。Pandian 累層は Panas 累層を不整合関係で被覆している。そして、Ransang 累層は Pandian 累層と整合関係で累重する。これらの Palawan オフィオライトと堆積岩との層位関係を図 2.5.4-6 に示す[39]。



Ma values for the boundaries of periods, epochs, and stages are taken from the International Stratigraphic Chart v.2014/2 (IUGS, 2014)
 Stratigraphic descriptions based on *Lexicon of Philippine Stratigraphy, 2008* by Rolando Peña

図 2.5.4-6 Palawan オフィオライトと堆積岩との層位関係[39]

(4) Espina 累層

Espina 累層は白亜紀に形成され、主にスピライト化した枕状玄武岩と塊状の玄武岩溶岩で、少量の頁岩、クリーム色の含化石石灰岩と赤色から褐色のチャートを挟在し、一部、火山碎屑性物質も観察される。

このチャートの形成については、二つの解釈があり、一つは海底火山の産物である。もう一つは生物学的起源である。前者は、水底マグマからシリカの無機的沈殿から直接形成されたか、水底火山作用により非晶質含水ケイ酸華から間接的に形成された。後者は、いかなる火山作用とは無関係に珪質放散虫の集積により形成されたとする諸説である。ただ広域的かつ多量の堆積物の分布特徴から、後者の成因説が合理的であるとされている。

この Espina 累層は、主に Central Palawan と南端の Balabac 島に広く分布する。

(5) Panas 累層

この Panas 累層は、下位の Palawan オフィオライトとは不整合関係であるが、産状は Palawan オフィオライトが衝上断層活動を伴い Panas 累層に押しつぶせるよう（オフィオライト定置）に被覆している。その基底には、少量の礫岩層（ハイエータスを示す地質学的証拠）が観察されるが、この礫岩層は部分的ではあるが、中程度で薄層の層理面を持つ砂岩・シルト岩・頁岩の互層からなるタービタイト相に変化する。そして、このタービタイト相は、明るい色から暗い色で、炭酸塩鉱物や粘土質マトリクスによりセメント化し、一般的に石英-長石質である。

また、オフィオライト定置過程での、そのテクトニクスに起因する応力・歪みによる多種多様な褶曲形態が観察される。それは対称的・非対称的、横臥的そして、複雑である。

この累層の生成時期については、有孔虫の組み合わせの古生物学・生層位学的アプローチから、Palaeocene から Early Eocene[42]と解釈されたが、現在では、Eocene 時期と再定義されている[43]。

(6) Pandian 累層

Pandian 累層は、主に塊状・粗粒・多孔質なアルコーズ質砂岩であるが、硬結で暗い灰色の泥岩、シルト質頁岩を挟在し、局所的ではあるが基盤に礫岩層が観察され、Mt. Bulanjao の北西部に広く分布している。

この Pandian 累層の形成年代は、有孔虫[44]や石灰質の超微化石[45]の組み合わせによる同定結果、Middle Miocene ~Early Oligocene であると解釈されている。

(7) Ransang 累層

この Ransang 累層は、下位の Pandian 累層に整合に累重している。この地層は、Northern Palawan 地域の沿岸部に分布する St. Paul Limestone と沖合に分布する Nido Limestone と対比されが、起源的には Ransang 川に分布する炭酸塩のことである。従って、岩質はクリーム色から灰色で、塊状から層理面のある石灰岩であるが、石灰砂岩・石灰シルト岩も観察される。

この Ransang 累層の形成年代は、有孔虫組み合わせの同定から、Early Miocene であると解釈されている[45]。

(8) Palawan 島の地震地帯構造学的特性

Palawan 島自体、地球物理学の領域である地震地帯構造学的見地から考察すると、安定した地塊であると指摘されており、広域な断層系は極めて少ない特性を持っている。但し、Palawan Ophiolite 定置に伴い、その周辺では、強力で力学的な変形・破壊により衝上断層や断層系が確認されているが、それらの分布は限定的である。しかしながら、Beaufort Ultramafic Complex の超塩基性岩（カンラン岩・輝岩(Pyroxenite)）中の断裂系の密度は、Espina 累層の塊状の枕状玄武岩や玄武岩溶岩のものとは比べて、相対的に高いことが指摘される。

(9) 調査対象層

モンモリロナイトの存在が期待される含モンモリロナイト堆積物は、凝灰岩質相（ベントナイト化）、泥岩・シルト岩質相（粘土化）である。

文献調査および今年度の予察結果から、このナチュラルアナログに適したサイトとなり得る Palawan 島の候補堆積物（岩）層は、Panas 累層、Panadian 累層が挙げられる。また、礫岩層の Iwahig 累層も可能性がある。

その他、高アルカリ地下水の湧水に伴う石灰華（Travertine）層の直下に発達する粘土層（土壌など）も挙げられる。

2.5.5 地質概査結果

Palawan 島中・南部地区の調査ルート MAP を図 2.5.4-3 の地質図上に示す (図 2.5.5-1)。図 2.5.4-1 に岩石試料及び水試料の番号と採取位置及び湧水の測定結果も合わせて示す。また、露頭調査および岩石試料採取位置を図 2.5.5-2～図 2.5.5-4 に示す。

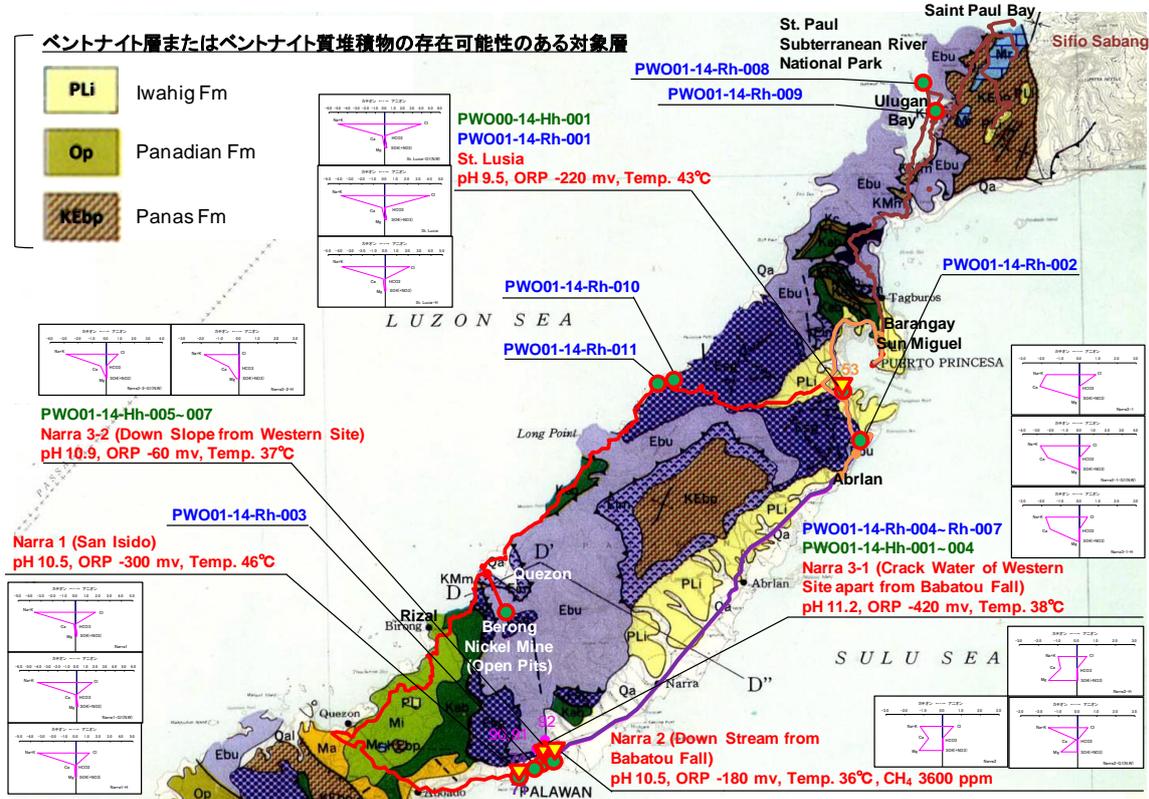


図 2.5.5-1 Palawan 島中・南部地区のフィールド調査ルートマップ



図 2.5.5-2 Palawan 島 St. Lucia, Ebu, Dia base 地区での露頭調査および岩石試料採取位置



図 2.5.5-3 Palawan 島 Narra 地区での露頭調査および岩石試料採取位置



図 2.5.5-4 Palawan 島 Dalrymple Point 地区での露頭調査および岩石試料採取位置

- (1) St. Lucia 温泉（保養施設：温泉プールの底からのスポット状の湧き出し<空気の発泡を伴う>）

基盤岩露頭は近傍にはないが、温泉施設建設（主にプール）に使用した石材（現地性の礫岩）の岩種から判断すると、かんらん岩（一部蛇紋岩化作用を示す）、シート状斑れい岩が多い傾向にある。プール水（pH: 9.5）の排出口（施設外）の周辺には、典型的な「淡褐色のバイオマット」

が発達している。この St. Lucia 温泉で 2 件 (PWO01-14-Rh-001, PWO00-14-HU-001)、この St. Lucia から南東にある Ebu の露頭 (図 2.5.5-5) から 1 件 (PWO01-14-Rh-002) の岩石試料を採取した。



図 2.5.5-5 PWO01-14-Rh-002 岩石試料採取地点の露頭

(2) Narra 地区

1) San Ishidoro, Parian 温泉 (保養施設：源泉源<豊富な湯量で自噴>)

Sta Lucia 温泉保養地と同様に、露頭がなく、温泉 (pH10.5) 施設建設の石材から判断すると、主にかんらん岩である。

2) Babatou 滝の直近 (5m 下流) の河床からの湧水 (オフィオライト岩盤の断裂系：裂か水)

基盤岩はかんらん岩 (一部、ダナイト岩) で、岩石鉱物学的には Poonbato (Zambales オフィオライト) の高アルカリ地下水 (裂か水) が湧水している露頭と酷似している。また、この裂か水 (pH10.5) の湧水水路となっている断裂は、当地の北北西系の断裂系に支配されているものと考えられる。

この地点 (図 2.5.5-6) で岩石試料 1 件 (PWO01-14-Rh-003) を採取した。



図 2.5.5-6 Babatou 滝の直近の露頭調査

3) Babatou 滝の北西部に位置する湧水 (オフィオライト岩盤の断裂系に伴う裂か水で、その周辺に石灰華の随伴)

pH11.2 のアルカリ湧水が湧出するサイトで、基盤岩はかんらん岩で破碎が進んでいて、石

灰華 (Travertine) が発達し、塊状に厚く (肉眼では 20~30cm 程度) 沈積している。

この地点で岩石試料 8 件 (PWO01-14-Rh-004~007 及び PWO01-14-HU-001~004) を採取した。採取地点の露頭を図 2.5.5-7 (PWO01-14-Rh-004~007) 及び図 2.5.5-8 (PWO01-14-HU-001~002) に示す。

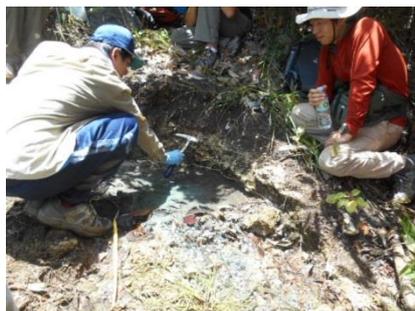


図 2.5.5-7 PWO01-14-Rh-004~007 岩石試料採取地点の露頭



PWO01-14-HU-001 の露頭



PWO01-14-HU-002 の露頭

図 2.5.5-8 PWO01-14-HU-001~002 岩石試料採取地点の露頭

- 4) Babatou 滝の下流(約 100m)に分布する石灰華の平坦地(Travertine Plain)の小川(Stream) 母岩は石灰華 (下部には Pliocene の堆積物 <砂岩・頁岩など> 賦存の可能性) で構成され (図 2.5.5-9)、緩斜面の平坦地を形成している。

湧水した小川 (pH10.9) の露頭で岩石試料 3 件 (PWO01-14-HU-005~007) を採取した。



図 2.5.5-9 Babatou 滝下流（約 100m）の石灰華の平坦地

5) Babatou 滝周辺のクリーク（沢状の川岸での高濃度のメタン・水素ガス：オフィオライト岩盤の断裂系）

アルカリ湧水は見られないが、蛇紋岩化作用に伴う高濃度のメタン・水素ガスが沢状の川岸に噴出するのが確認できるサイトで、基盤岩は、かんらん岩、斑れい岩である。



図 2.5.5-10 Babatou 滝周辺のクリーク（沢状の川岸）の露頭

(3) Dalrymple Point 地区周辺（西海岸の沿岸）

当地区ではアルカリ湧水は見られないが、Palawan 島に分布する基盤岩（Palawan オフィオライト）と堆積岩（Babuyan River タービダイト<深海に運ばれ堆積した陸源堆積物>、Concepcion Pebbly 千枚岩、St. Paul's 石灰岩）対象に地質・岩石鉱物学的調査を実施した。

基盤岩の岩石鉱物学特性は、塩基性岩類（かんらん岩、ダナイト岩、輝岩）が優勢で、部分的に造構造運動を受けており、一部の輝石類には再結晶化が観察される。一方、堆積岩についてはアルコーズ質砂岩と含礫千枚岩が観察されたが、ベントナイト質堆積物としての泥質岩源で凝灰質堆積岩源の緑色千枚岩は観察されなかった。

この地点（図 2.5.5-11～図 2.5.5-12）で岩石試料 2 件（PWO01-14-Rh-008~009）を採取した。



図 2.5.5-11 PWO01-14-Rh-008 岩石試料採取地点の露頭



図 2.5.5-12 PWO01-14-Rh-009 岩石試料採取地点の露頭

(4) Long Point～Quezon 地区周辺

当地区ではアルカリ湧水は見られないが、基盤岩である Mt. Beaufort Ultramafics（蛇紋岩化されたかんらん岩、ダナイト岩）、Espina Basalt（含枕状溶岩）と Inaguan 変成岩（Panas 累層）を対象に地質・岩石鉱物学的調査を実施した。

基盤岩の岩石鉱物学的特性は、超塩基性岩類が優勢で、一部ラテライト化したかんらん岩・ダナイト岩中に高品位の Ni 鉱床が胚胎する（Berong Ni 鉱床）。また、後期貫入岩として、斑れい岩～輝緑岩の岩脈が観察される。

この地点（図 2.5.5-13）で岩石試料 2 件（PWO01-14-Rh-010～011）を採取した。



図 2.5.5-13 PWO01-14-Rh-011 岩石試料採取地点の露頭

2.5.6 岩石鉱物学的調査

Palawan 島中・南部地区の露頭から採取した岩石試料を対象として、不定方位法の XRD（一部試料は定方位法 XRD を実施（表 2.5.6-1 参照）による鉱物分析、XRF による全岩化学分析、ICP-MS による微量成分分析及び詳細な鉱物の組成及び構造・組織の観察を目的とした EPMA, μ -XRD, FESEM-EDS を実施した。

調整前後の試料（PWO01-14-Rh-001~011）を図 2.5.6-1～図 2.5.6-2 に示す。

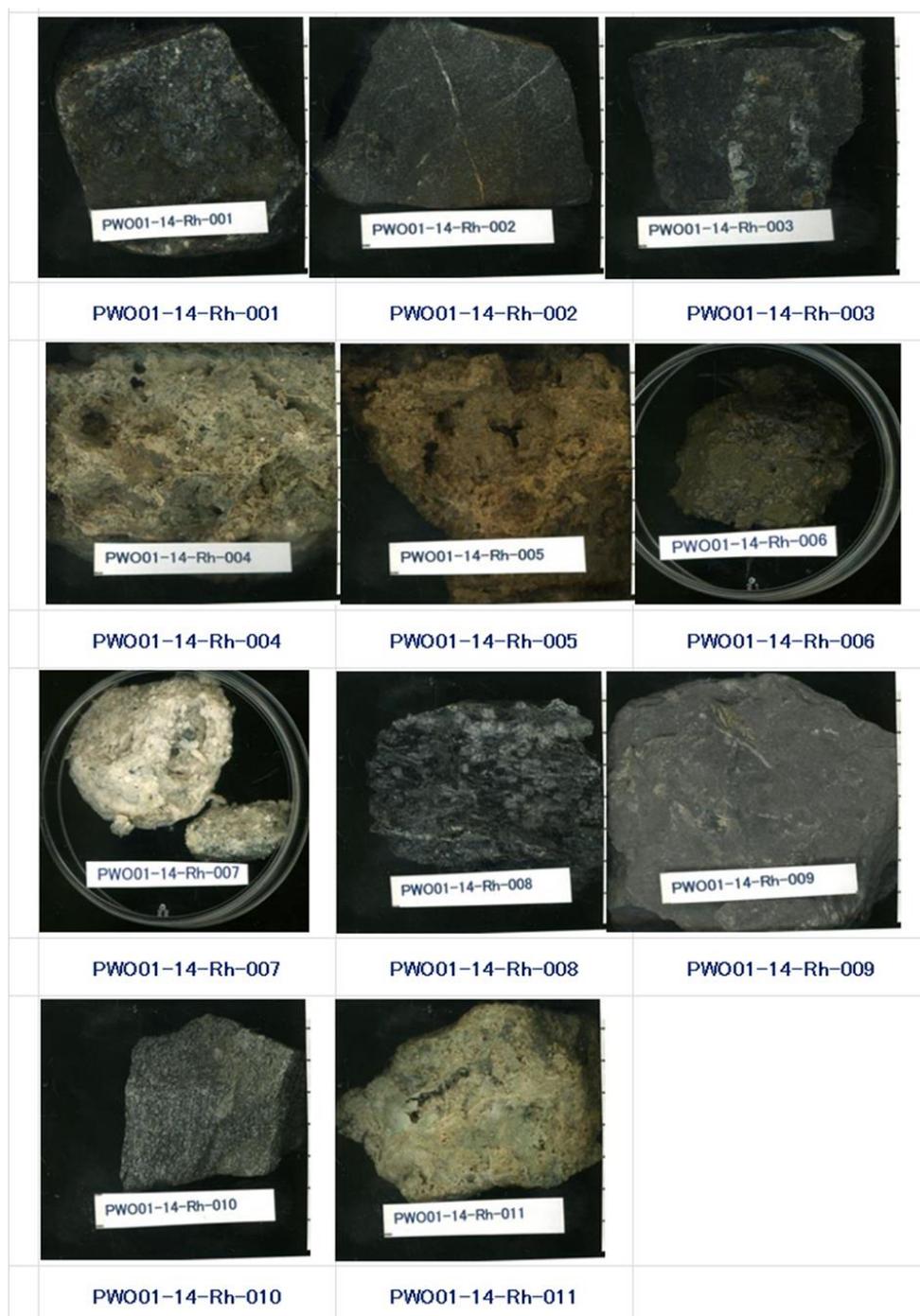


図 2.5.6-1 Palawan 島中・南部地区で採取した岩石試料（調整前）

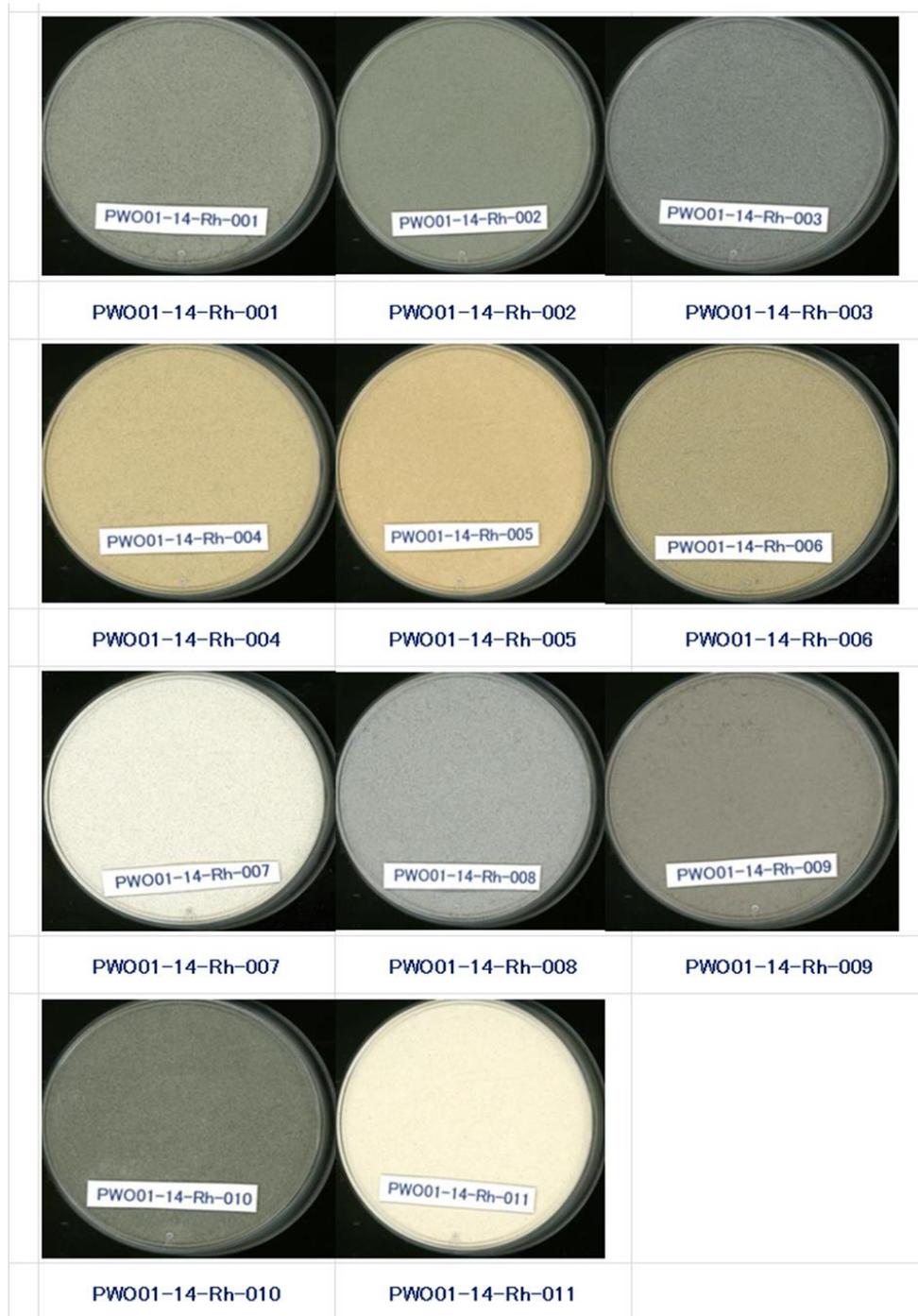


図 2.5.6-2 Palawan 島中・南部地区で採取した岩石試料（調整後）

(1) 鉱物学的特性 (XRD)

Palawan 島中・南部地区の露頭から採取した全試料について、XRD による全岩分析・鉱物同定を実施した。

PWO01-14-Rh-001~011 と PWO00-14-Hh-001 及び PWO01-14-Hh-001~007 の計 19 試料の鉱物組み合わせを Zambales オフィオライトでの結果と合わせて表 2.5.6-1 に示す。

表 2.5.6-1 XRD による Palawan 露頭試料の鉱物同定結果

試料名	採取場所	Description	粘土鉱物			長石	蛇紋石	角閃石	珪酸塩			炭酸塩		その他	Remark	
			モンモリロナイト	緑泥石	雲母類	斜長石	リザード石 クリソタイル	角閃石	石英	クリストパライ イト	フィロケイ酸塩	方解石	霏石	水滑石		葡萄石
			Mont.	Clorite	Mica	Plagioclase	Lizardite Crysotile	Amphibole	Quartz	Cristobalite	Phyllosilicate	Calcite	Aragonite	Brucite		Prehnite
PWO01-14-Rh-001	St. Lusia	基盤岩	△	△		△	△	◎								
PWO01-14-Rh-002	Ebu	基盤岩	△				◎								○	
PWO01-14-Rh-003	Narra	基盤岩	△				◎					△		△		
PWO01-14-Rh-004	Narra	Carbonate	△				△				◎	△				
PWO01-14-Rh-005	Narra	Sediment	△				△				◎	△				
PWO01-14-Rh-006	Narra	Sediment	△				△				◎	△				
PWO01-14-Rh-007	Narra	Sediment	△				○				◎	△		◎		
PWO01-14-Rh-008	Dalrymple Point	基盤岩	△	△	△	△	◎		◎		△			△		
PWO01-14-Rh-009	Dalrymple Point	基盤岩	△	○	△	○			◎		△					
PWO01-14-Rh-010	Long Point	基盤岩	△			◎		◎	◎							
PWO01-14-Rh-011	Long Point	Carbonate	△								◎	△				
PWO00-14-Hh-001	St. Lusia	泥						◎	○	○	○	○				
PWO01-14-Hh-001	Narra	源泉(噴出口)で採取した堆積物	△				○					◎			定方位XRD: Mont., Serp.	
PWO01-14-Hh-002	Narra	源泉の白色化学沈殿物					○					◎		◎	定方位XRD: Br., Serp., Cal.	
PWO01-14-Hh-003B	Narra	源泉から2m下流で採取(下部)					○					◎				
PWO01-14-Hh-003U	Narra	源泉から2m下流で採取(上部)					○					◎				
PWO01-14-Hh-004B	Narra	源泉から4m40cm下流で採取(下部)					○					◎				
PWO01-14-Hh-004U	Narra	源泉から4m40cm下流で採取(上部)					○					◎				
PWO01-14-Hh-005	Narra	源泉までの道中の川(pH9.45@33.6°C)で採取										◎			定方位XRD: Mont., Cal., Serp.	
PWO01-14-Hh-006	Narra	源泉までの道中の川(pH10.86@37.5°C)の上部5cmを採取										◎			定方位XRD: Cal.	
PWO01-14-Hh-007	Narra	源泉までの道中の川(pH10.86@37.5°C)の下部5cmを採取										◎				

PWO01-14-Rh-001~011 の 11 試料については、PWO01-14-Rh-001~003, 008~010 (6 試料) が Palawan オフィオライトの超塩基性岩であるが、PWO01-14-Rh-001 だけが輝緑岩・岩脈の岩石試料である。一方、PWO01-14-Rh-004~007 は、高アルカリ地下水(pH 11.3)の湧水(裂か水)地点に発達している石灰華(Travertine)に伴う粘土質土壌試料(4 試料)である。但し、PWO01-14-Rh-010 は、千枚岩質変成岩である。

図 2.5.6-3~図 2.5.6-13 にその XRD パターンを示す。これらの結果から、Palawan の基盤岩は Zambales の基盤岩に比べると蛇紋石の明確なピークを示すのが特徴的である。これは活発な蛇紋岩化作用によるアルカリ地下水の生成を裏付けるものであり、この地区がより pH の高いアルカリ地下水を原岩となるポテンシャルを有することを示すものである。また、角閃石のピークが強い岩石 (PWO01-14-Rh-001, 002, 010) も存在する。

PWO01-14-Rh-004~007 の粘土質土壌試料は、ほとんどが方解石であるが、Zambales オフィオライトでは明確なピークが見えなかった蛇紋石や一部水滑石(ブルーサイト: Brucite)の強いピークが見られた。また、霏石(アラゴナイト: Aragonite)の弱いピークも確認できる。

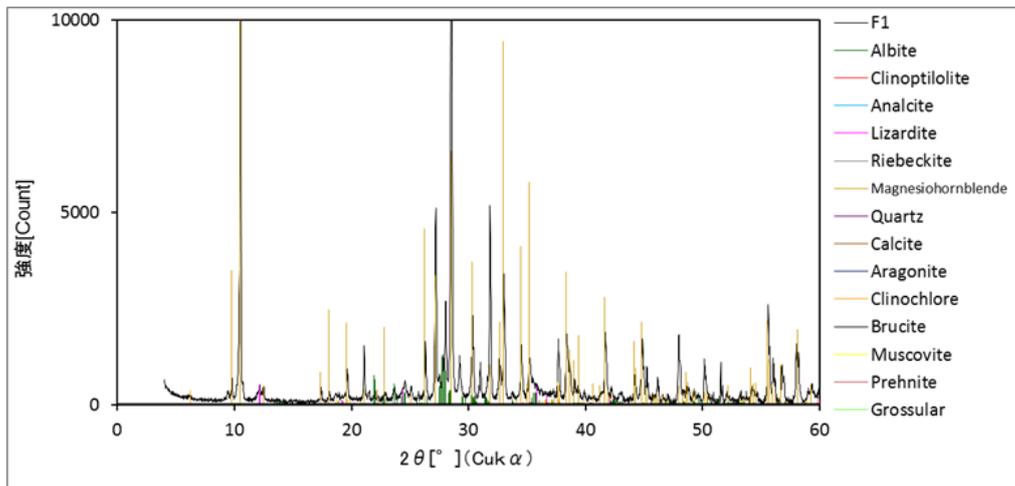


図 2.5.6-3 PWO01-14-Rh-001 の粉末 XRD パターン

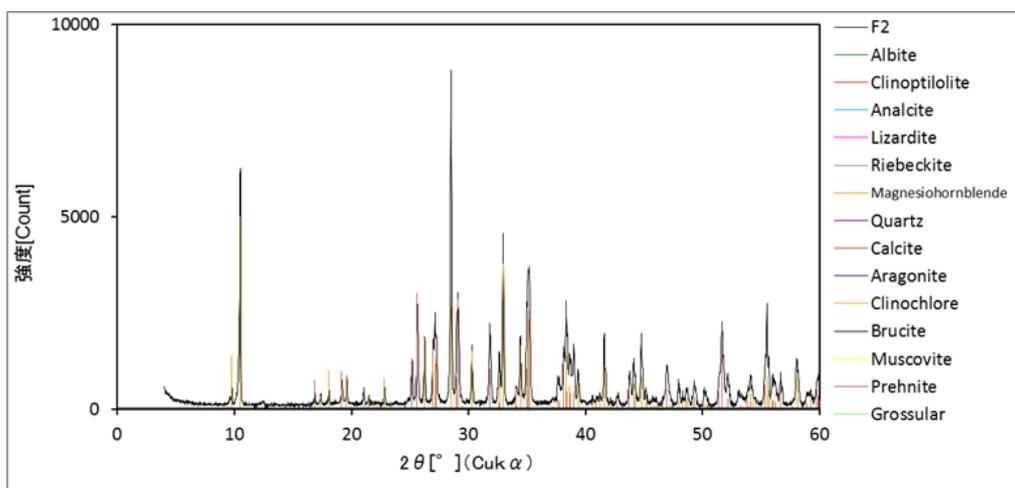


図 2.5.6-4 PWO01-14-Rh-002 の粉末 XRD パターン

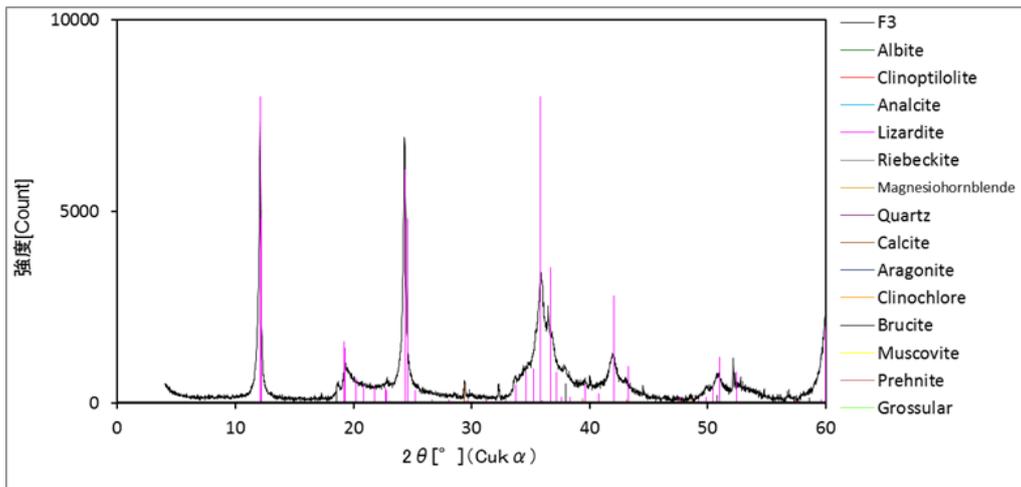


図 2.5.6-5 PWO01-14-Rh-003 の粉末 XRD パターン

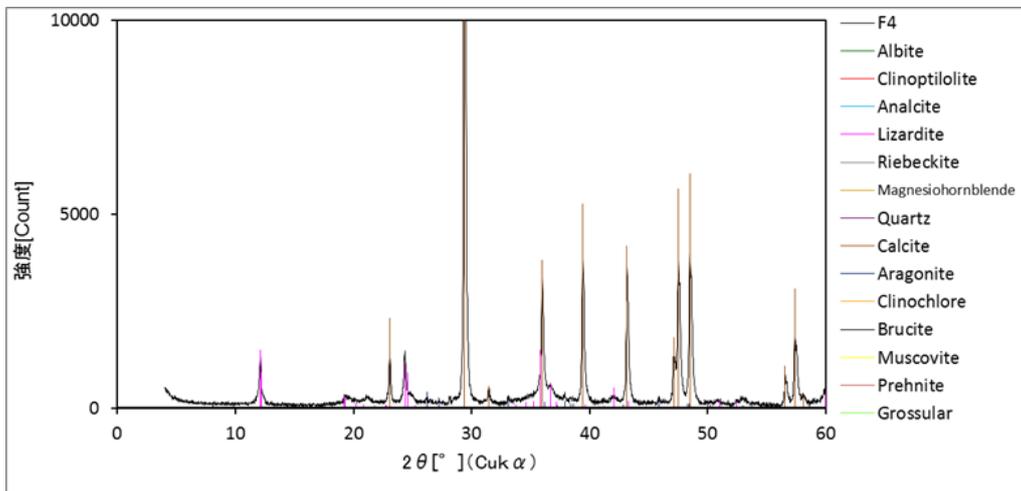


図 2.5.6-6 PWO01-14-Rh-004 の粉末 XRD パターン

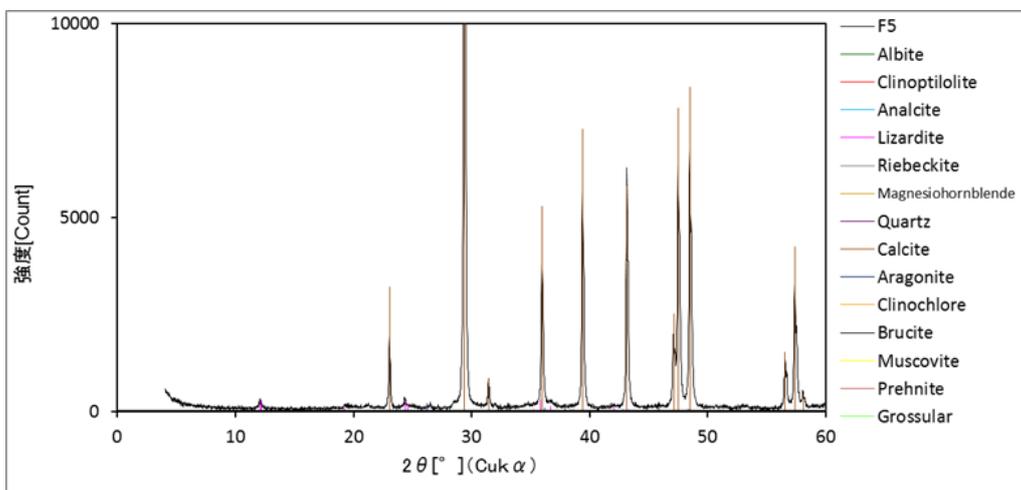


図 2.5.6-7 PWO01-14-Rh-005 の粉末 XRD パターン

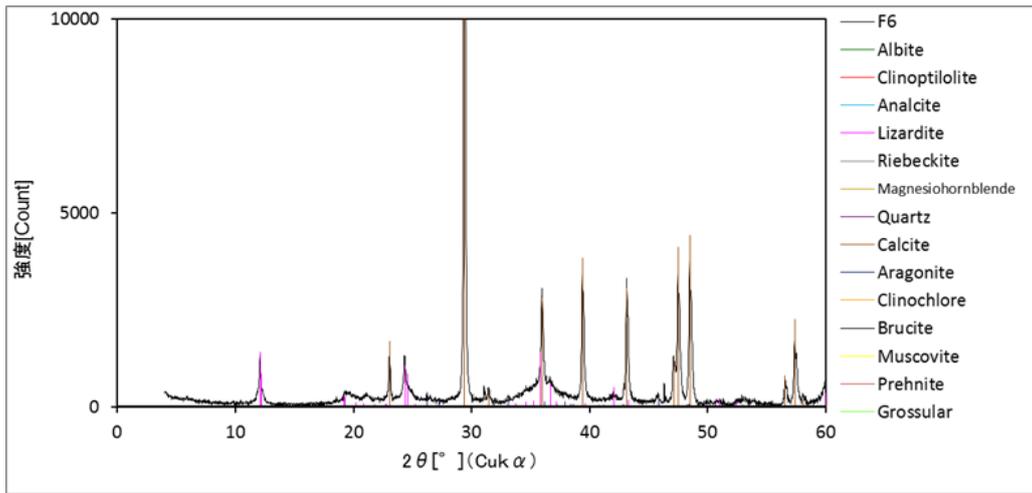


図 2.5.6-8 PWO01-14-Rh-006 の粉末 XRD パターン

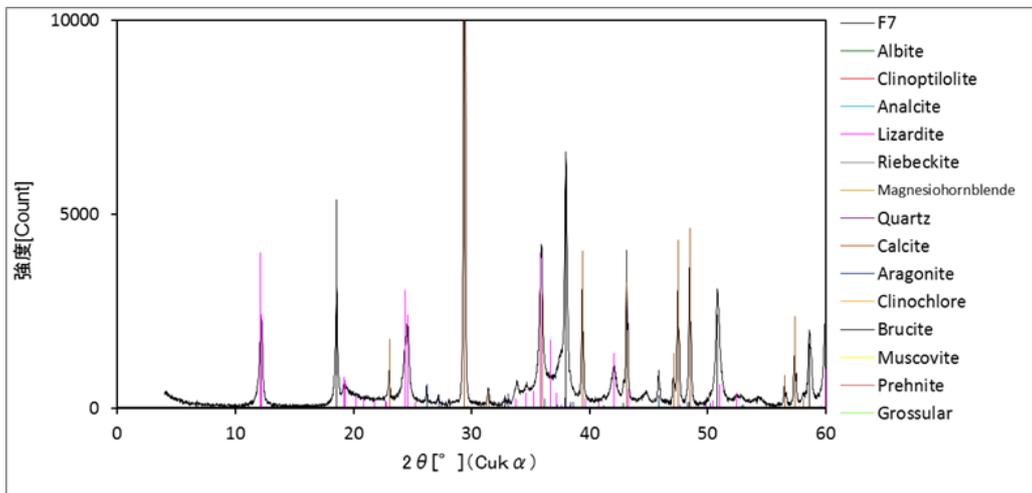


図 2.5.6-9 PWO01-14-Rh-007 の粉末 XRD パターン

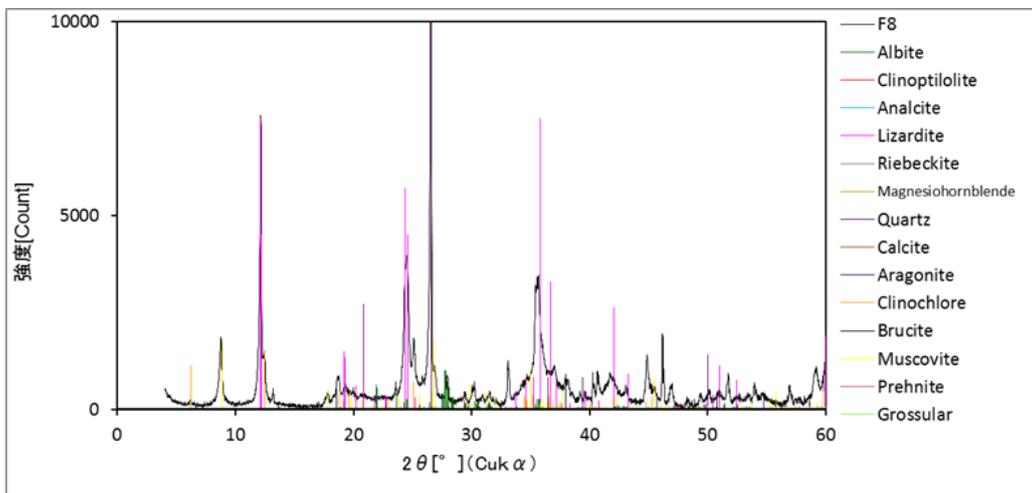


図 2.5.6-10 PWO01-14-Rh-008 の粉末 XRD パターン

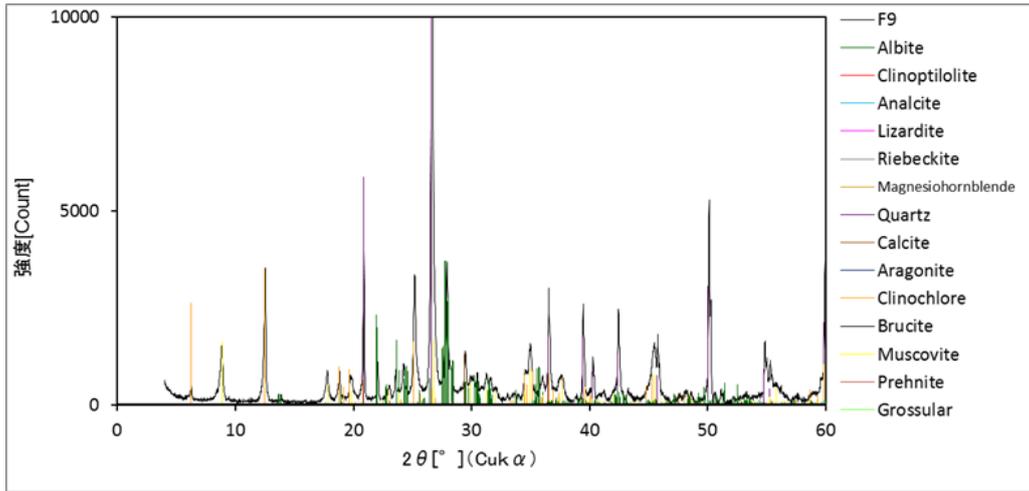


図 2.5.6-11 PWO01-14-Rh-009 の粉末 XRD パターン

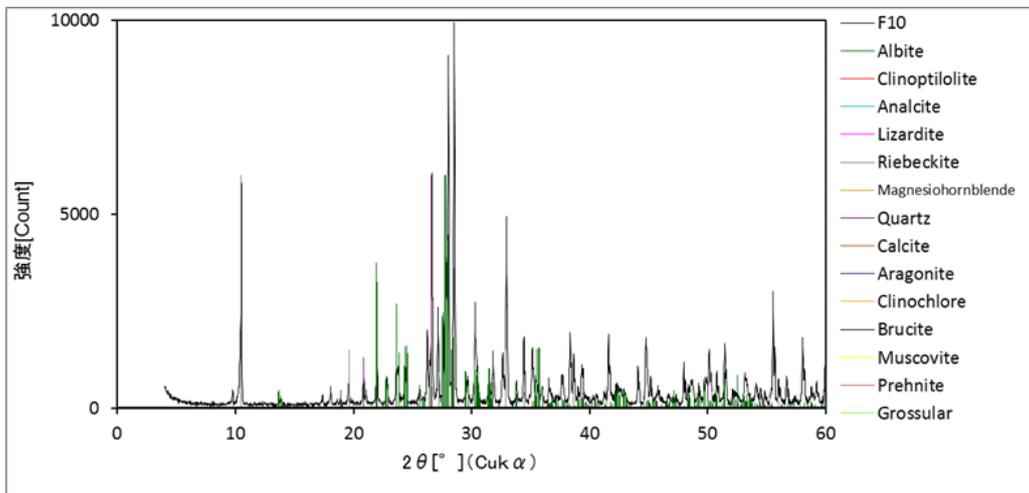


図 2.5.6-12 PWO01-14-Rh-010 の粉末 XRD パターン

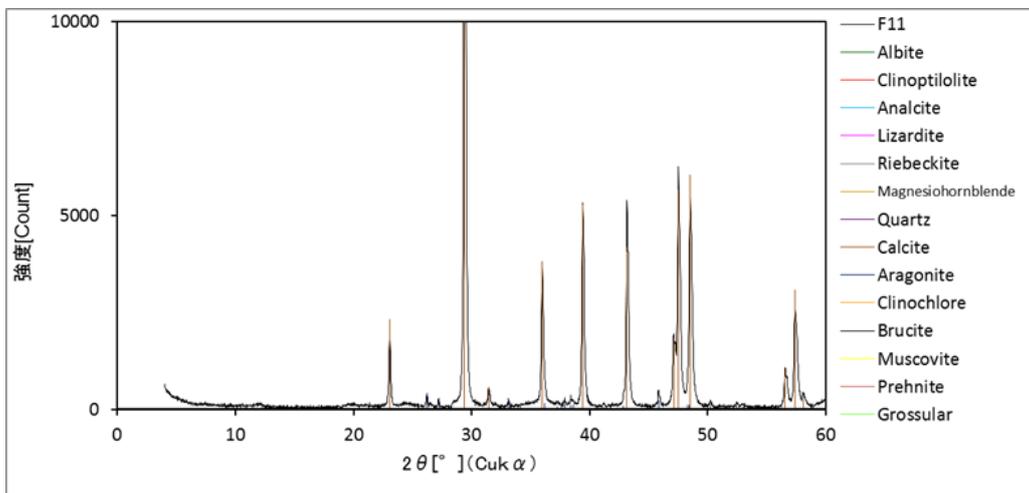


図 2.5.6-13 PWO01-14-Rh-011 の粉末 XRD パターン

PWO00-14-HU-001 及び PWO01-14-HU-001~007 の 8 試料については、アルカリ湧水地点近傍の露頭の堆積物を中心にサンプリングを行った。なお、PWO01-14-HU-003, 004 については、上部と下部に分けて分析した。測定した粉末(不定方位)XRD パターンを図 2.5.6-14~図 2.5.6-23 に示す。また、粘土質 (PWO01-14-HU-001, 002, 005, 006 : 計 4 試料) の試料については、スメクタイトの同定のために定方位 XRD 分析も実施した。図 2.5.6-24~図 2.5.6-27 に定方位 XRD パターンを示す。

PWO01-14-Rh-004~007 の堆積物と同様にほとんどが方解石であるが、蛇紋石 (ほとんどの試料) や水滑石 (PWO00-14-HU-001 のみ) が同定された。

高アルカリ泉は、源泉が沸いているところ以外は方解石の沈殿が卓越していて、ほとんどスメクタイトの存在は認められなかったが、Nara の高アルカリ泉の源泉に堆積していた砂状の粒子および平原の弱アルカリ性の川が流れていた堆積物にスメクタイトの存在を確認した。このスメクタイトの成因は不明だが、高アルカリ水とスメクタイトのアクティブサイトとして調査できる可能性がある。

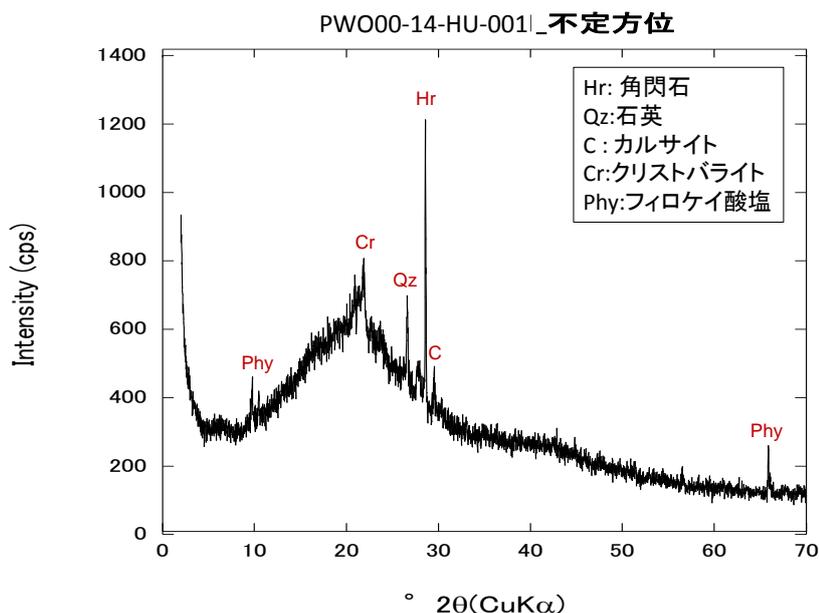


図 2.5.6-14 PWO00-14-HU-001 の粉末 XRD パターン

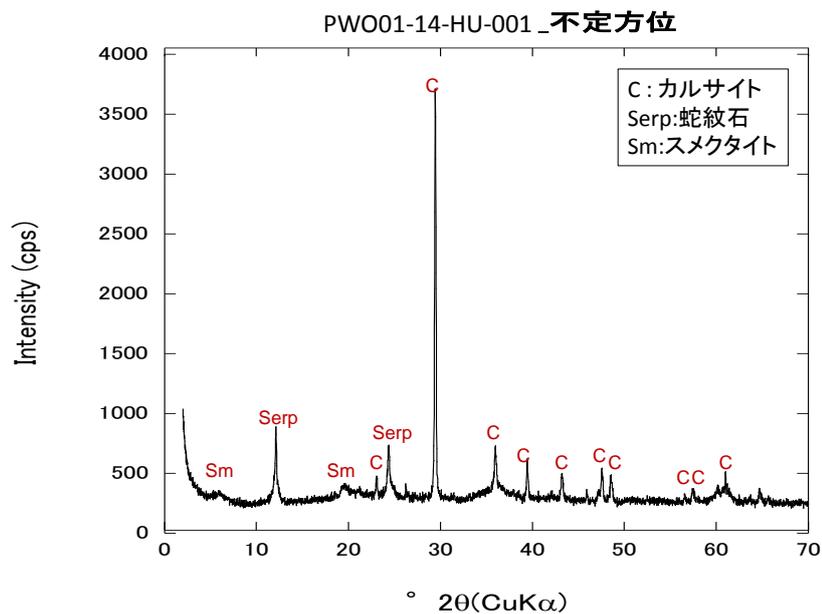


図 2.5.6-15 PWO01-14-HU-001 の粉末 XRD パターン

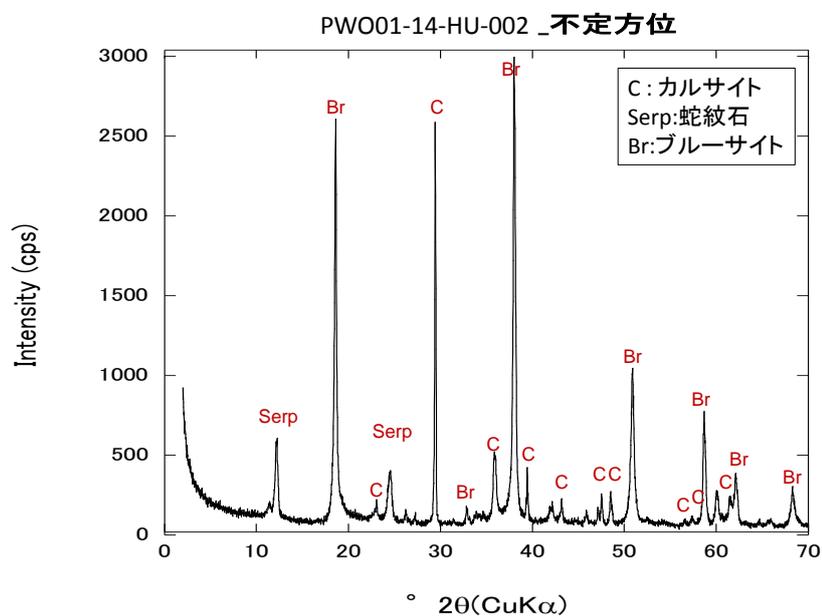


図 2.5.6-16 PWO01-14-HU-002 の粉末 XRD パターン

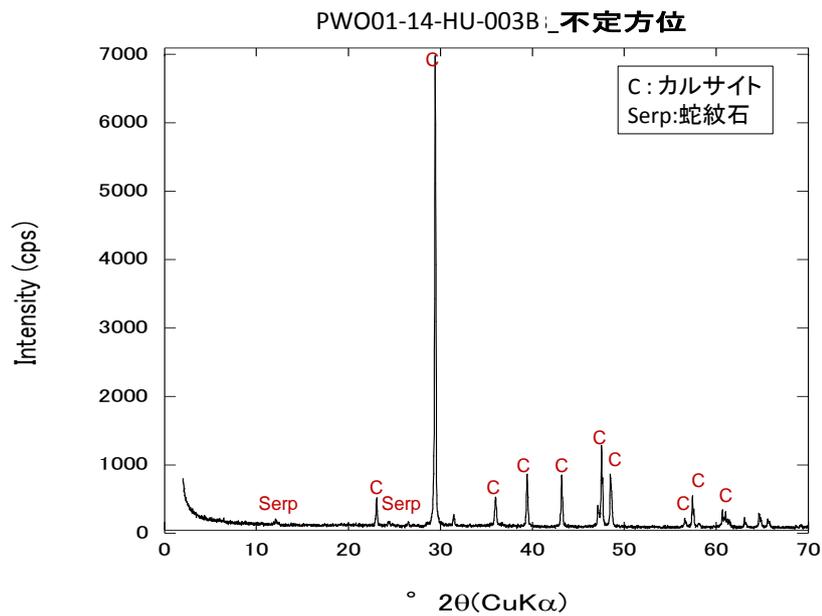


図 2.5.6-17 PWO01-14-HU-003B の粉末 XRD パターン

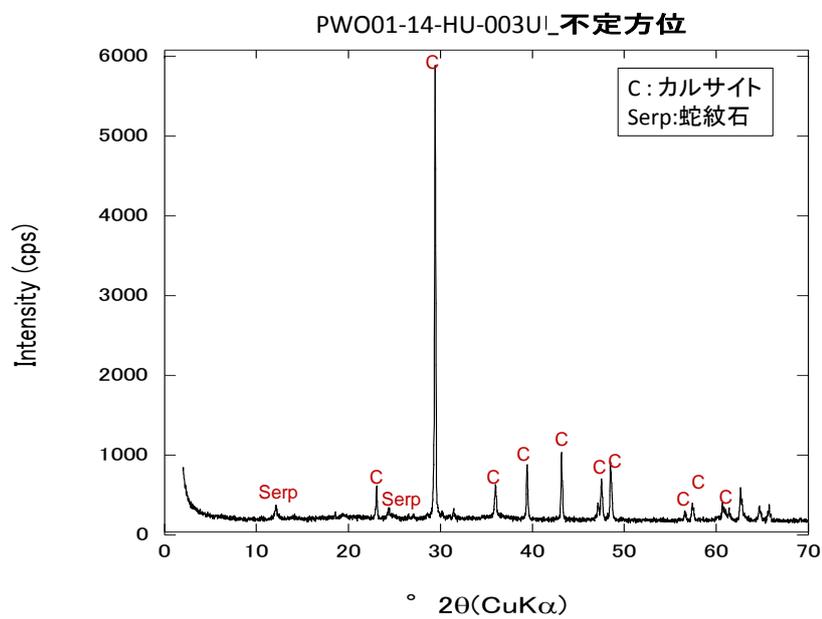


図 2.5.6-18 PWO01-14-HU-003U の粉末 XRD パターン

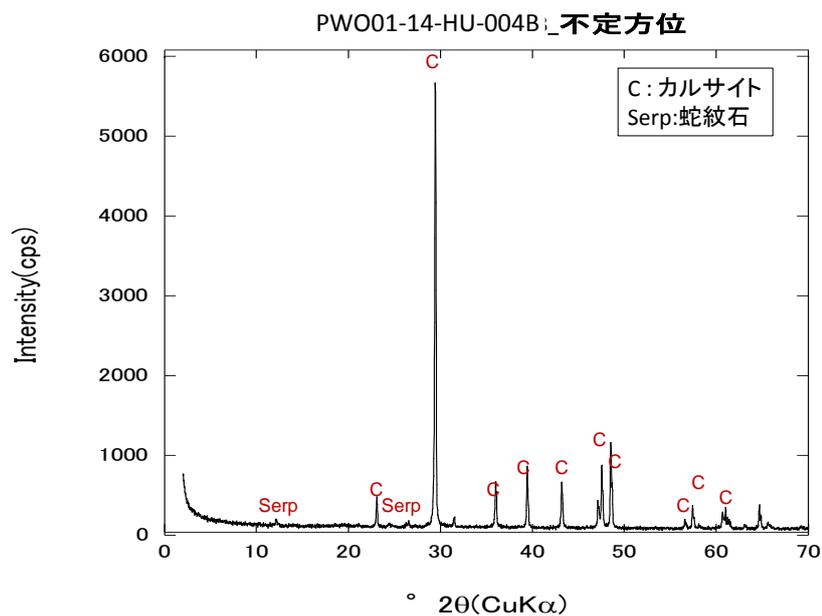


図 2.5.6-19 PWO01-14-HU-004B の粉末 XRD パターン

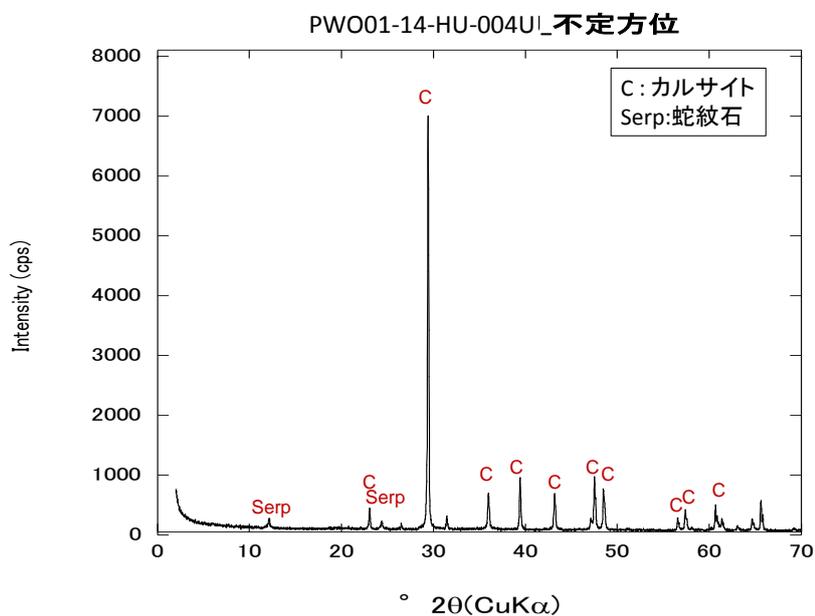


図 2.5.6-20 PWO01-14-HU-004U の粉末 XRD パターン

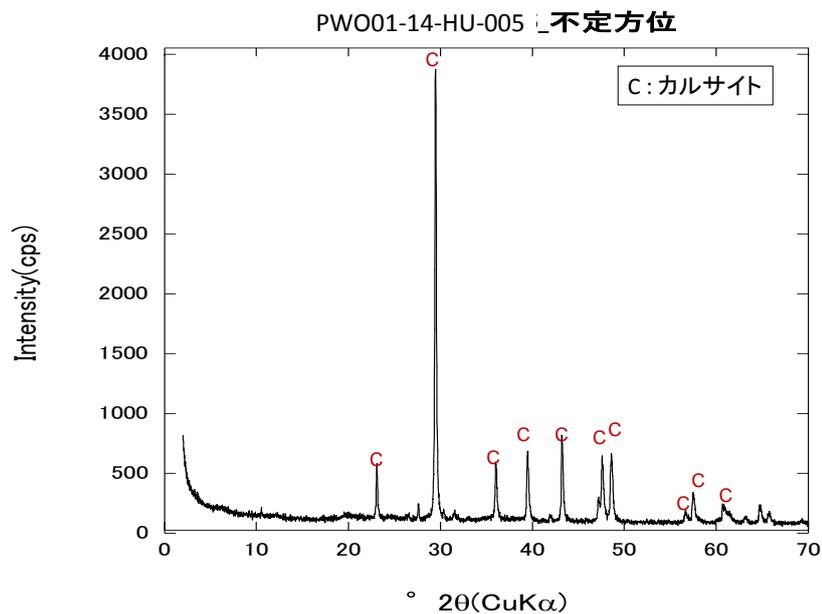


図 2.5.6-21 PWO01-14-HU-005 の粉末 XRD パターン

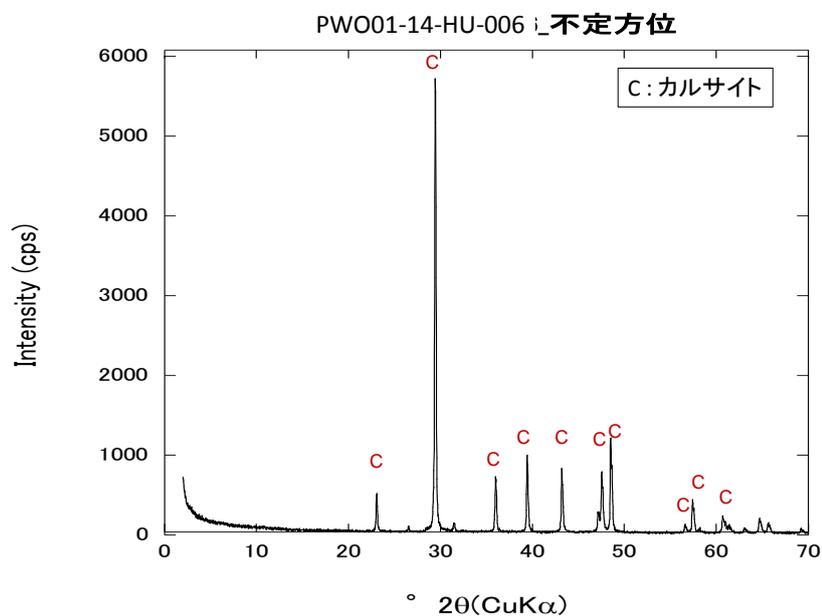


図 2.5.6-22 PWO01-14-HU-006 の粉末 XRD パターン

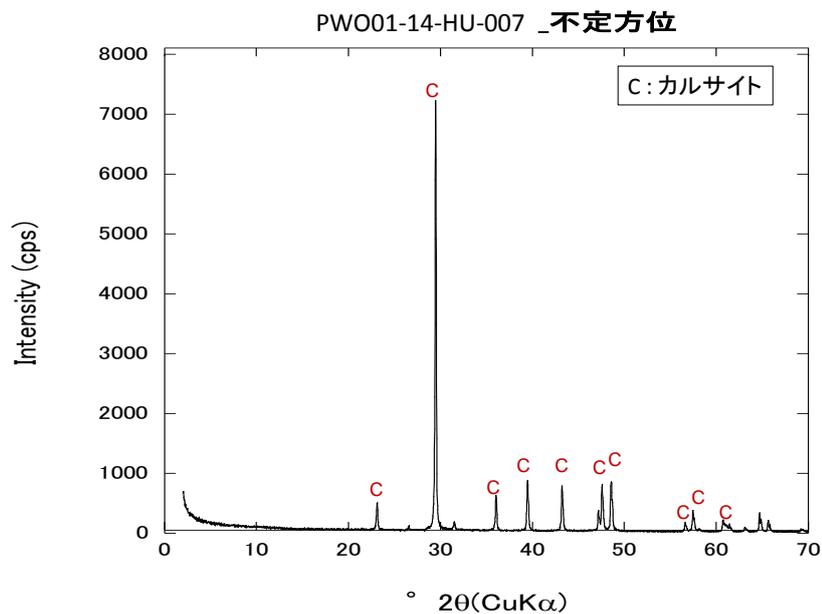


図 2.5.6-23 PWO01-14-HU-007 の粉末 XRD パターン

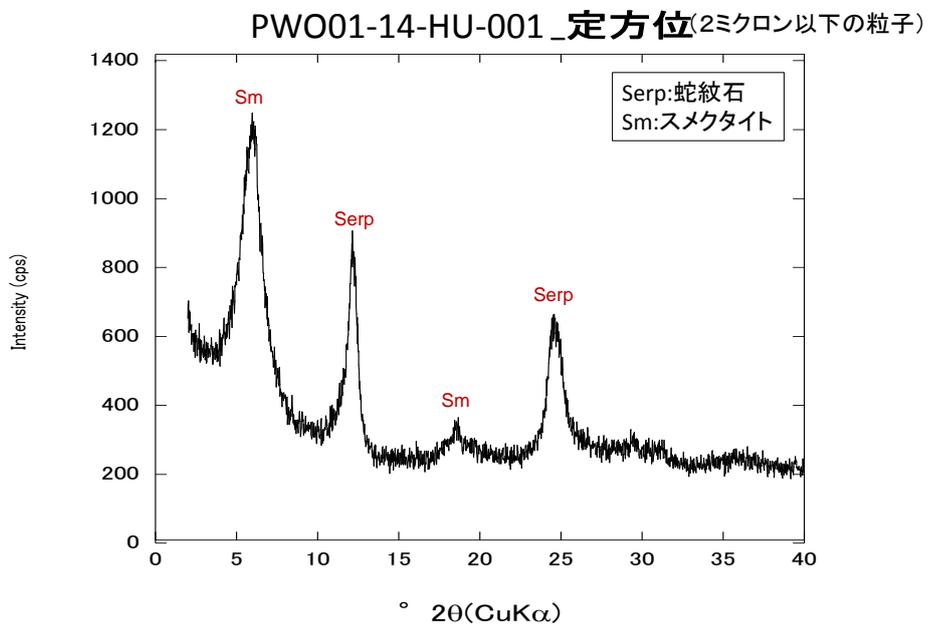


図 2.5.6-24 PWO01-14-HU-001 の定方位 XRD パターン

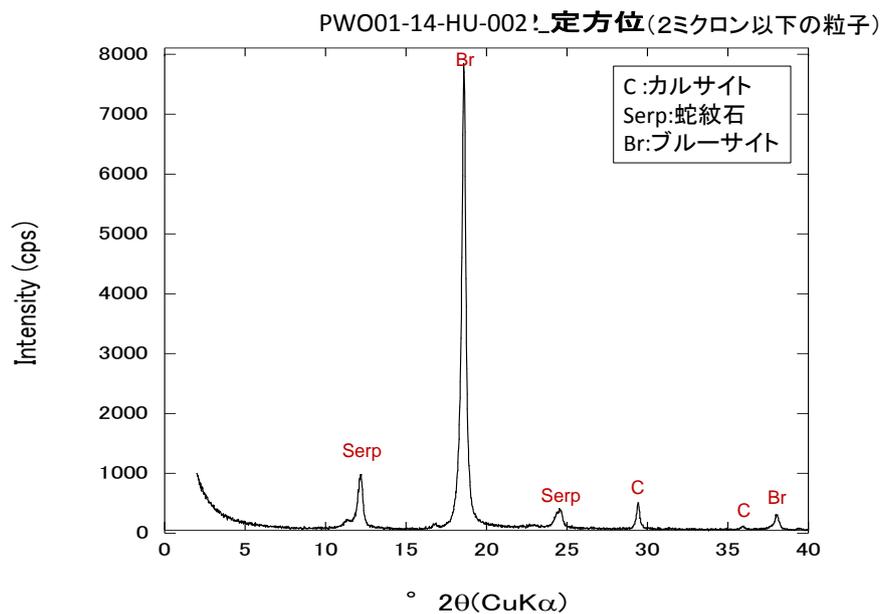


図 2.5.6-25 PWO01-14-HU-002 の定方位 XRD パターン

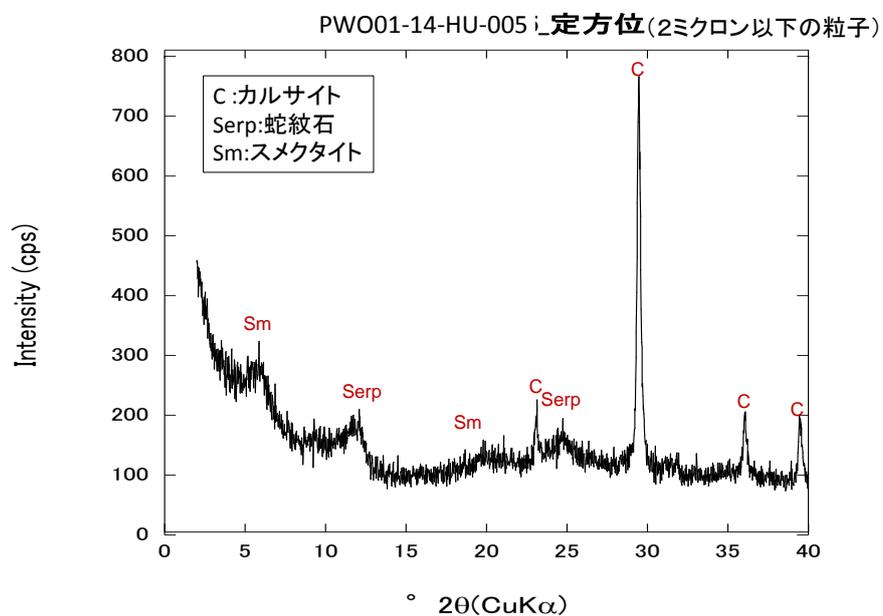


図 2.5.6-26 PWO01-14-HU-005 の定方位 XRD パターン

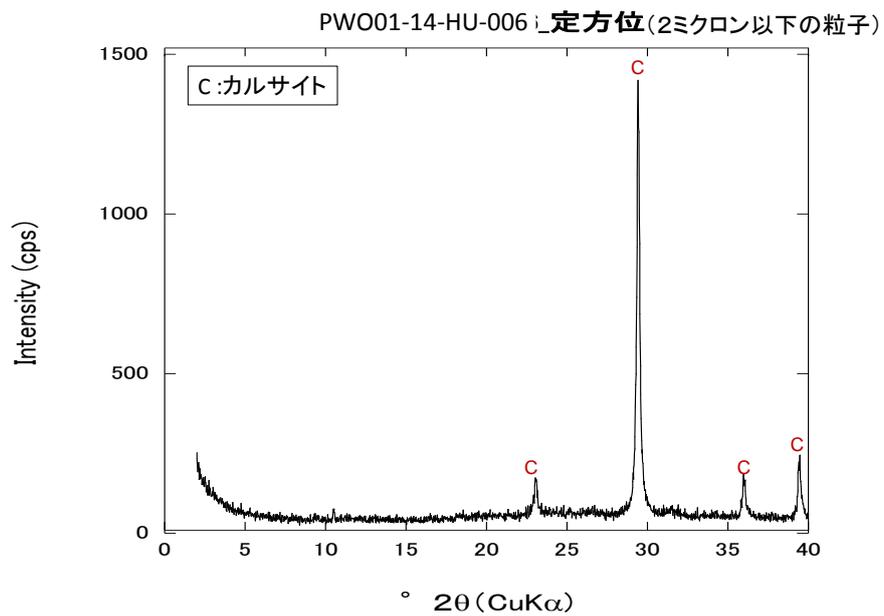


図 2.5.6-27 PWO01-14-HU-006 の定方位 XRD パターン

(2) 岩石の地球化学的特性

1) 蛍光 X 線分析 (XRF)

PWO01-14-Rh-004~011 の計 11 試料について、XRF によるの元素比率の定量結果を Pinatubo の結果と合わせて表 2.5.6-2 に示す。また、主要元素比率は図 2.5.6-28 に示す。

表 2.5.6-2 XRF 分析による Palawan 露頭試料の元素比率定量結果

試料 No.	CaO	SiO ₂	CO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	TiO ₂	P ₂ O ₅	MnO
PWO01-14-Rh-001	5.62	31.4289	9.6483	7.9572	14.8924	27.0008	1.7783	0.082	0.8222	0.0538	0.2241
PWO01-14-Rh-002	17.9679	40.4639	7.1063	11.3649	11.621	8.967	0.4453	0.092	1.4625	0.1739	0.1833
PWO01-14-Rh-003	0.5891	37.7627	10.727	0.3589	7.4683	42.1353	-----	-----	-----	-----	0.1045
PWO01-14-Rh-004	35.6576	13.0557	29.4283	1.1845	5.1506	14.9549	0.0264	0.0033	0.1036	-----	0.059
PWO01-14-Rh-005	48.3658	4.3865	38.2862	0.6319	2.6054	5.3423	0.0309	0.0055	0.0433	0.0073	0.0447
PWO01-14-Rh-006	28.3844	20.3834	27.0229	2.1983	6.3464	14.9065	0.0398	0.017	0.0893	0.0085	0.0959
PWO01-14-Rh-007	14.944	20.6296	13.8503	5.6767	1.2374	43.5003	-----	-----	0.012	-----	0.0137
PWO01-14-Rh-008	0.5996	34.8695	10.1491	9.081	9.2931	33.2635	0.126	1.1793	0.5541	0.0924	0.1754
PWO01-14-Rh-009	1.4269	56.6498	15.8664	14.2492	5.2469	3.6608	1.6227	-----	0.7312	0.0817	0.05
PWO01-14-Rh-010	9.4323	46.7767	8.1943	11.8975	11.1759	6.6265	3.8161	0.1387	1.4449	0.1906	0.1795
PWO01-14-Rh-011	47.3541	6.8844	33.5477	0.3784	0.6949	11.0094	-----	0.0044	0.0135	-----	0.0172
PNO01-14-Rh-001	5.4499	34.2144	12.7732	7.2246	6.6012	33.0289	-----	0.0044	0.0153	-----	0.1481
PNO01-14-Rh-002	2.0967	67.4846	8.7142	11.0415	3.9163	0.9294	5.2498	0.1697	0.2437	0.0511	0.0462
PNO01-14-Rh-003	3.3987	56.1853	9.7314	10.686	9.7864	2.5906	6.1543	0.3444	0.5292	0.2313	0.2503

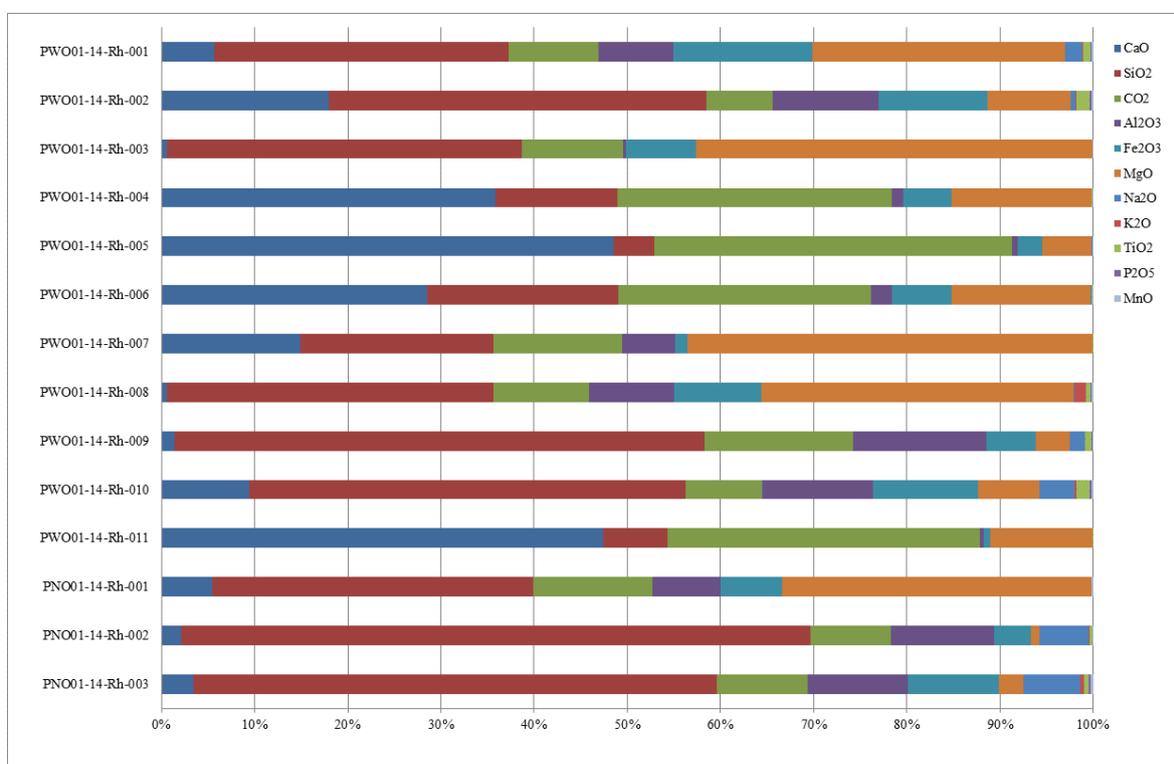


図 2.5.6-28 XRF による Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の主要元素比率

この全岩化学分析結果に基づき、Palawan 及び Pinatubo の露頭試料の全岩化学組成変化図（ハーカードイヤグラム）を図 2.5.6-29～図 2.5.6-36 に示す。

これらのハーカードイヤグラムから、Palawan オフィオライトは、超塩基性岩特有の SiO_2 が 40 wt %前後で、輝緑岩のみが約 60 wt %である。但し、 SiO_2 – MgO には相関がみられないが、 Fe_2O_3 や Al_2O_3 に富む傾向は、 Fe_2O_3 は苦鉄質鉱物（かんらん石・輝石類・角閃石など）、 Al_2O_3 は Ca-斜長石（灰長石）の産状によるものと考えられる。

CaO と CO_2 の濃度は、石灰華に伴う粘土質土壌で最大で、良い相関を示す。

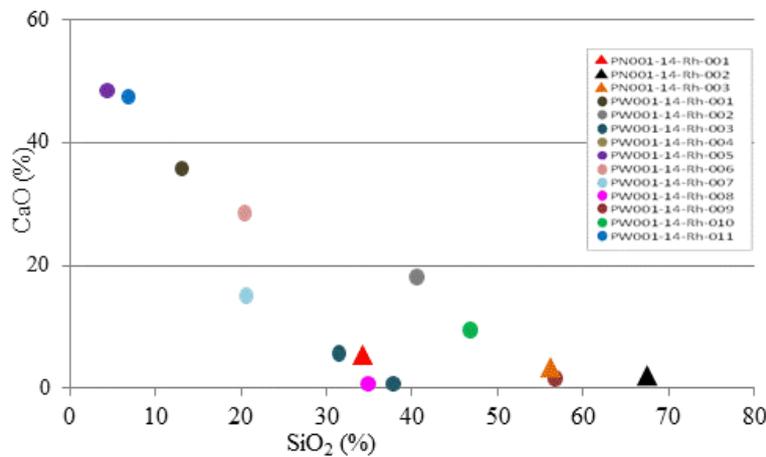


図 2.5.6-29 Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の CaO - SiO_2 関係図

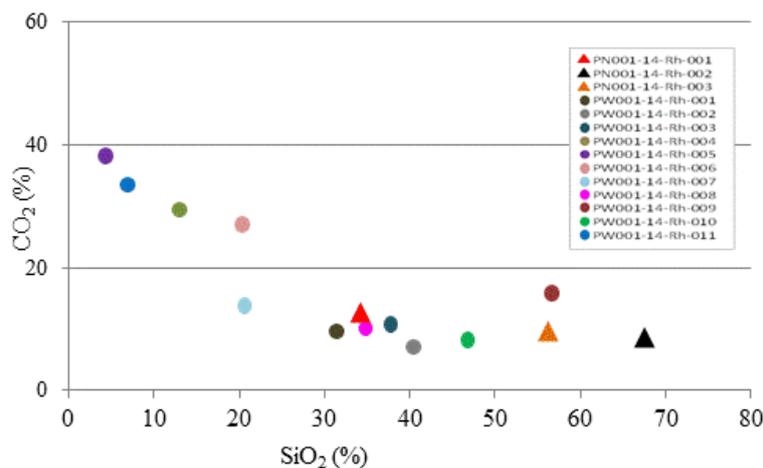


図 2.5.6-30 Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の CO_2 - SiO_2 関係図

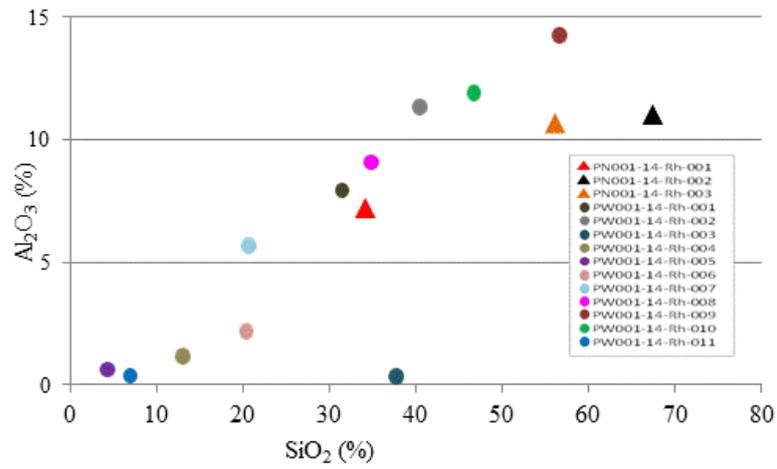


図 2.5.6-31 Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の Al₂O₃-SiO₂ 関係図

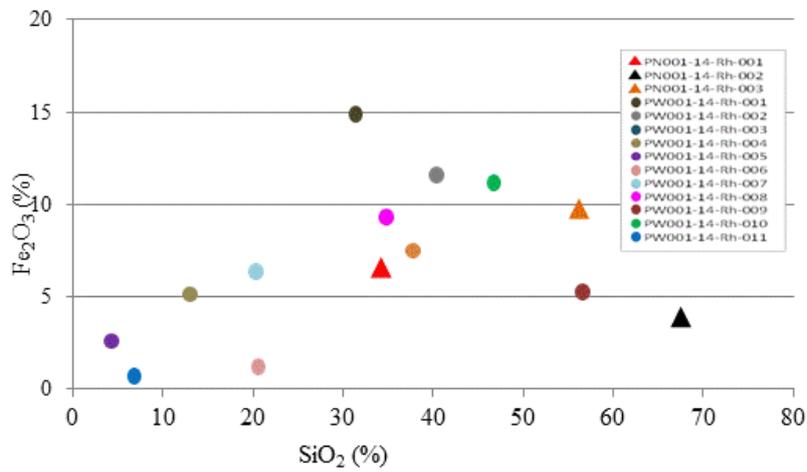


図 2.5.6-32 Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の Fe₂O₃-SiO₂ 関係図

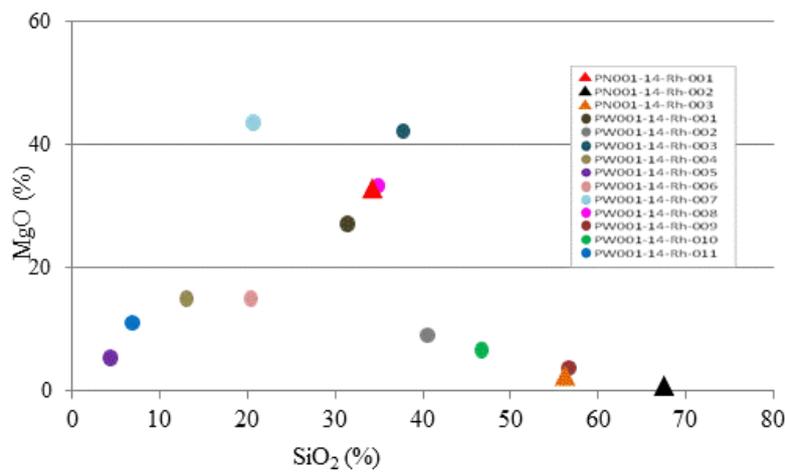


図 2.5.6-33 Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の MgO-SiO₂ 関係図

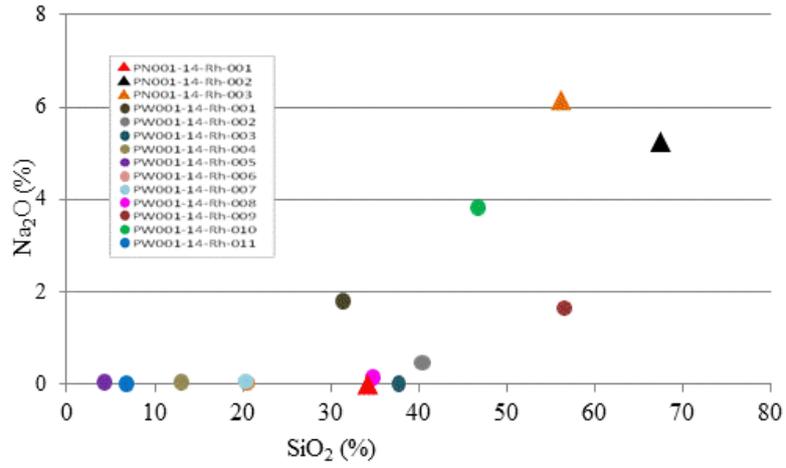


図 2.5.6-34 Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の Na₂O-SiO₂ 関係図

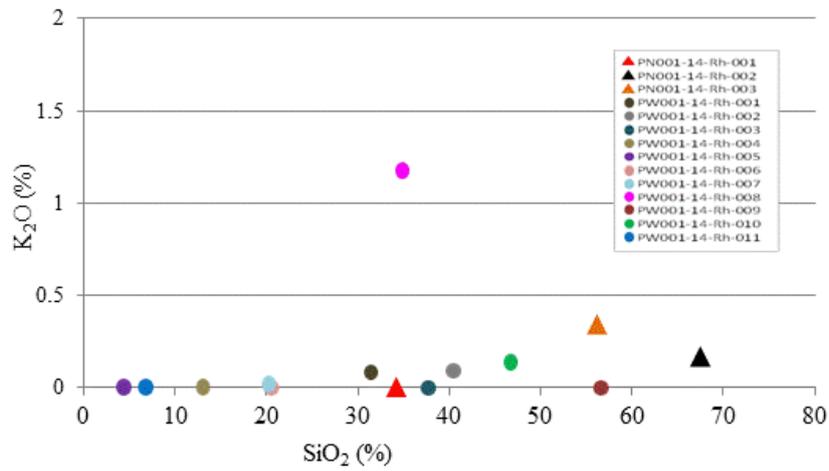


図 2.5.6-35 Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の K₂O-SiO₂ 関係図

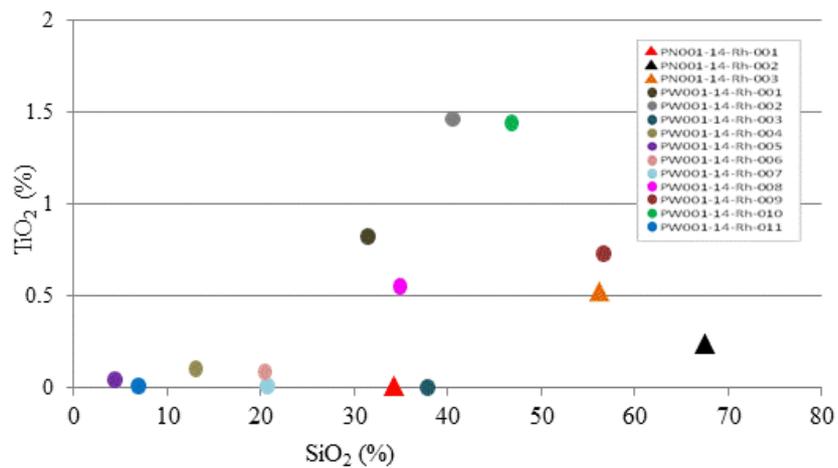


図 2.5.6-36 Palawan 及び Pinatubo 露頭試料の TiO₂-SiO₂ 関係図

2) 誘導結合プラズマ質量分析岩 (ICP-MS) 及び Si 濃度分析

PWO01-14-Rh-004~011 (図表の標記では PWO01-004~011) のうち 002 と 006 を除く 9 試料について、ICP-MS により主成分・微量成分分析を行った。全ケイ素アルカリ溶融脱水法で定量した Si 濃度と合わせてにそれらの結果を示す。

また、希土類元素パターンを図 2.5.6-37 に示す。また、Pinatubo の結果と合わせて図 2.5.6-37 にまとめた。

表 2.5.6-3 ICP-MS 及び全ケイ素アルカリ溶融脱水法による主成分・微量成分分析結果 (Palawan 露頭試料)

Sample No.	BR-36	BR-37	BR-38	BR-39	BR-40	BR-41	BR-42	BR-43	BR-44
Location	PWO01-001	PWO01-003	PWO01-004	PWO01-005	PWO01-007	PWO01-008	PWO01-009	PWO01-010	PWO01-011
Na (wt.%)	3.35	3.08	3.44	6.33	3.44	1.62	4.87	5.88	3.61
Mg	24.06	24.02	9.05	1.23	16.57	5.02	1.48	3.45	11.47
Al	1.78	1.60	2.72	1.63	5.42	5.83	11.40	9.49	3.05
P	0.00	0.00	0.01	0.05	0.00	0.14	0.05	0.06	0.01
K	0.36	0.33	0.35	0.34	0.36	2.80	3.50	0.53	0.34
Ca	0.35	0.42	25.44	37.40	16.44	0.63	1.01	6.97	15.93
Sc (ppm)	9.07	7.41	10.80	2.73	2.44	19.13	17.12	38.07	9.58
Ti (wt.%)	0.01	0.01	0.11	0.02	0.01	0.58	0.43	0.80	0.06
V (ppm)	20.61	15.40	40.87	6.78	7.35	362.87	109.69	354.54	29.00
Cr	2127.86	1159.42	625.93	472.81	237.27	207.20	118.37	93.90	1130.84
Mn (wt.%)	0.06	0.08	0.06	0.02	0.01	0.19	0.04	0.14	0.08
Fe	5.25	4.73	5.07	1.08	0.84	18.60	3.87	7.75	4.70
Co (ppm)	96.69	86.21	50.19	20.91	13.18	75.35	10.57	30.98	73.97
Ni	2202.23	2056.81	1487.79	377.46	367.46	334.09	104.35	146.49	1708.03
Cu	3.43	b.d.1	9.03	6.16	5.17	10.35	53.37	66.88	10.56
Zn	52.95	43.43	44.74	19373.62	84.13	119.89	126.30	105.37	50.07
Ga	46.86	33.50	50.55	47.96	61.17	64.38	79.26	90.11	61.28
As	1.96	1.67	1.85	2.06	2.15	1.02	8.36	2.07	2.07
Rb	1.09	0.89	1.06	1.42	0.89	120.40	170.74	2.73	1.19
Sr	101.77	92.02	267.62	432.03	217.25	87.07	177.78	214.74	233.53
Y	1.38	1.12	3.90	1.64	1.56	18.04	20.19	30.91	3.17
Zr	166.43	159.96	94.14	153.03	176.52	6.61	280.44	213.06	201.21
Nb	0.11	0.22	0.06	0.09	0.15	0.02	13.38	1.97	0.10
Mo	4.39	5.62	10.54	12.00	10.33	1.36	9.19	10.04	10.36
Ag	0.11	0.19	0.33	0.39	0.20	0.43	0.24	1.42	0.16
Cd	0.20	0.22	0.27	0.22	0.25	0.03	0.29	0.35	0.28
In	0.01	0.00	0.02	0.00	0.01	0.12	0.08	0.08	0.01
Sn	35.13	36.69	22.18	26.72	34.01	1.29	43.40	43.64	29.12
Sb	21.70	19.43	14.44	14.75	18.20	11.79	24.69	25.38	16.29
Cs	0.32	0.28	0.38	0.57	0.44	5.50	9.06	0.72	0.28
Ba	3967.73	3653.22	3743.99	3651.28	4066.93	3175.18	4841.67	4461.95	3778.21
La	0.77	0.73	1.03	0.85	0.82	122.12	36.34	3.95	1.15
Ce	1.50	1.48	2.29	1.71	1.61	298.37	76.37	11.13	2.46
Pr	0.18	0.17	0.35	0.23	0.21	29.19	8.90	1.90	0.32
Nd	0.67	0.60	1.50	0.90	0.74	100.20	31.22	9.64	1.29
Sm	0.15	0.14	0.46	0.21	0.18	16.01	5.58	3.35	0.37
Eu	b.d.1	b.d.1	b.d.1	b.d.1	b.d.1	2.46	0.24	0.58	b.d.1
Gd	0.17	0.15	0.57	0.23	0.20	9.94	4.36	4.83	0.47
Tb	0.03	0.02	0.10	0.04	0.03	1.11	0.66	0.87	0.08
Dy	0.21	0.19	0.71	0.27	0.25	4.88	4.10	6.00	0.54
Ho	0.05	0.04	0.15	0.06	0.06	0.82	0.85	1.28	0.12
Er	0.18	0.14	0.47	0.21	0.19	2.36	2.60	3.88	0.39
Tm	0.03	0.02	0.07	0.03	0.03	0.36	0.40	0.57	0.06
Yb	0.23	0.19	0.53	0.26	0.24	2.51	2.69	3.76	0.44
Lu	0.05	0.03	0.09	0.05	0.04	0.44	0.42	0.58	0.07
Hf	3.50	3.40	1.05	2.85	3.62	0.11	6.60	5.07	3.56
Ta	0.00	0.01	b.d.1	0.00	0.00	0.00	0.42	0.05	b.d.1
W	2.14	2.00	1.62	4.46	40.93	1.30	20.63	7.66	4.25
Tl	0.02	0.01	0.01	0.24	0.01	1.17	0.84	0.02	0.01
Pb	11.27	13.40	12.14	19.25	29.20	11.18	31.71	12.23	11.76
Bi	0.30	0.27	0.12	0.15	0.16	0.23	0.84	0.33	0.29
Th	0.45	0.43	0.48	0.48	0.48	51.62	17.31	0.74	0.53
U	0.24	0.22	0.23	0.23	0.25	0.90	2.91	0.31	0.29
SiO ₂ (g/kg)	390	352	132	27	128	268	639	522	240

b.d.1: below detection limit.

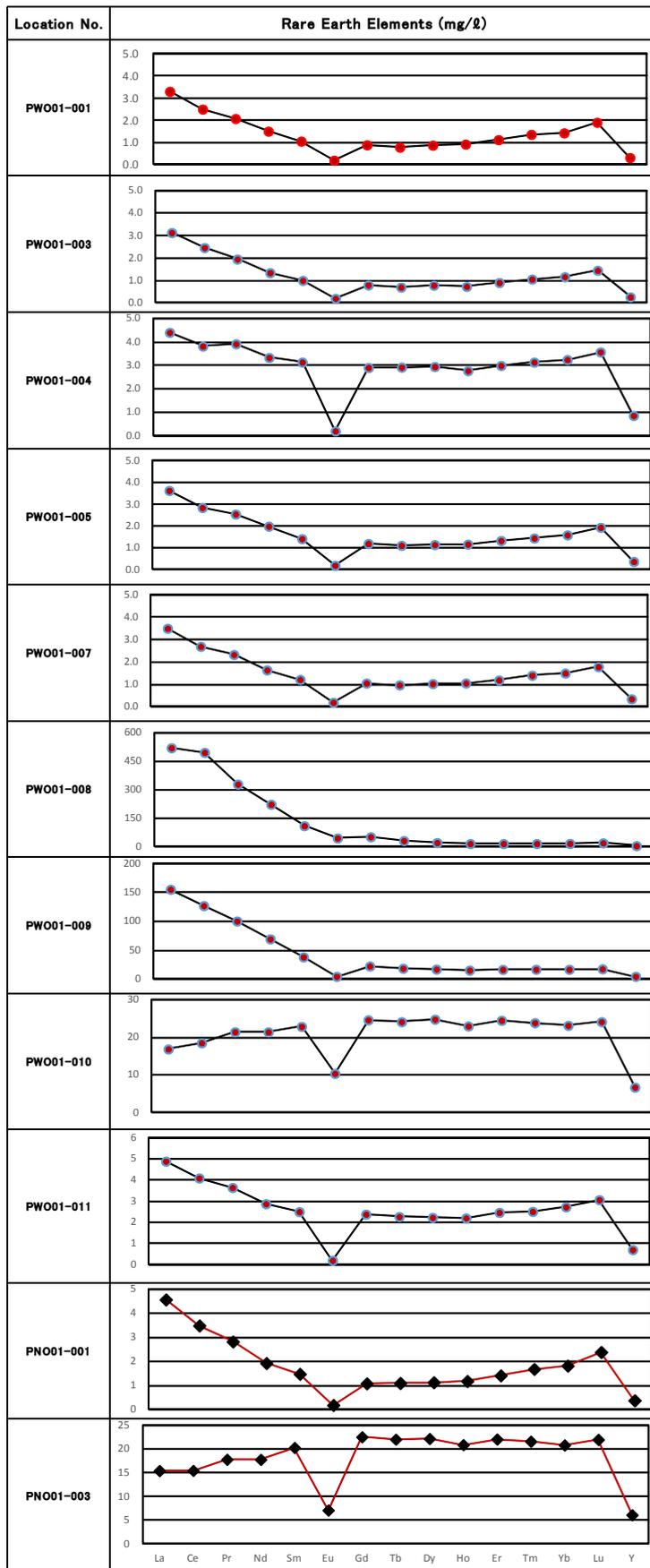


図 2.5.6-37 Palawan/Pinatubo 露頭試料の希土類元素パターン (その1)

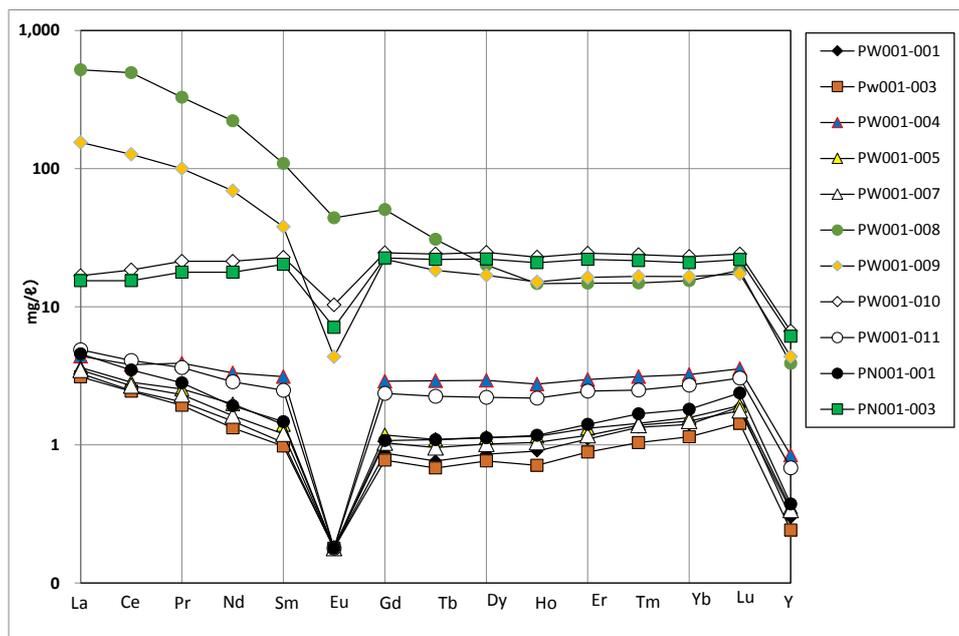


図 2.5.6-38 Palawan/Pinatubo 露頭試料の希土類元素パターン (その2)

3) 岩石の地球化学的特性

Palawan 島中・南部地区のバルク組成については、 SiO_2 分析で見ると平均的な含有量が 299g/kg 程度あって (表 2.5.6-3)、これで見ると (表 2.3.1-4 の) Bigbiga と比べてみると、CaO 成分が 3 (g/kg) 以下のものが多く、また、MgO が 1~25wt% であって、Bigbiga の 0.3~1.1wt% と比べて火成岩の変質物としての珪酸質から斑れい岩等を含んでいた。

微量成分元素の分布については、Ni: 104~2202(g/kg)、Cu: 5~53(g/kg)、Zn: 84~19373(g/kg)、Pb: 11~31(g/kg)、Ba: 3170~4841(g/kg)、Ca: 0.4~37(g/kg) という結果を得た。

希土類元素パターンからは、Palawan 地域に関しては、PW001-14-Rh-008 のように、La や Ce 等の LREE 類が 519~494(mg/l) と高い含有量を示したが、HREE 元素については微量程度しか存在していなかった。

一般的な REE 分布から考察すると、Pinatubo オフィオライトは海洋地殻の特質である HREE が多く LREE が少ないのに対して、Palawan オフィオライトは大陸地殻の影響により LREE と HREE とも全体的に多く含有する傾向を示す。一方、Eu のアノマリーについては両者間には明瞭な差が見られなかった。

(3) 岩石鉱物学的・地球化学的特性の詳細観察・分析

Palawan 島 Nara 地区の Babatou 滝の母岩の露頭で採取した蛇紋岩質かんらん岩 (PWO01-14-Rh-003) について、偏光顕微鏡による岩石鉱物学的特性の観察を行った。

Palawan 島 Nara 地区の Babatou 滝の北西部の湧水周辺の堆積物から採取した粘土質土壌試料 2 件 (PWO01-14-Rh-006 及び PWO01-14-Rh-007) を対象に、それぞれの鉱物の組成および構造・組織 (性状、共生関係) などの観察・同定・元素分布を明らかにするために、EPMA、 μ -XRD、FESEM-EDS、偏光顕微鏡による観察、鉱物・化学分析を実施した。

1) Palawan オフィオライト超塩基性岩の光学顕微鏡観察

蛇紋岩質かんらん岩である PWO01-14-Rh-003 の薄片の図 2.5.6-39 左写真に、同定した鉱物とその産状を顕微鏡写真とともに図 2.5.6-39 の右写真に示す。

主要鉱物は、かんらん石、斜方輝石から構成され、これらの苦鉄質鉱物の暗灰黒~淡灰色の網目状組織または、繊維状組織および、微細な割れ目には、蛇紋石が充填している。特に、直線状の繊維状組織には、いわゆるバスタイト (bastite: 蛇紋石類・緑泥石・ブルース石などの集合体) や脈状の滑石などが産状する。また、赤鉄鉱や Cr-スピネルも観察される。

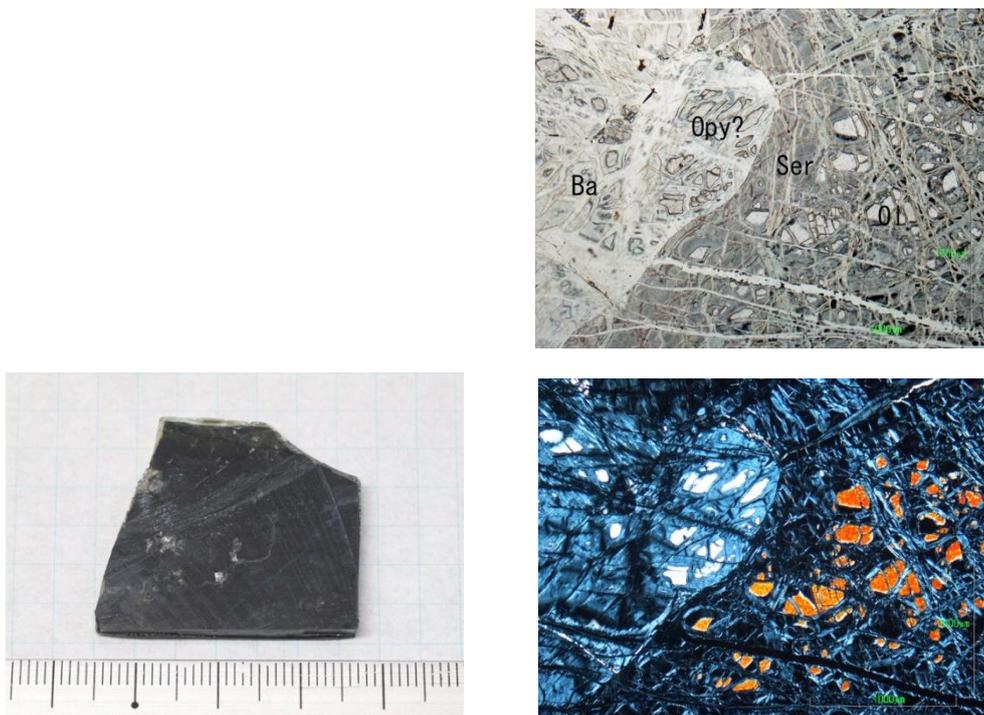


図 2.5.6-39 蛇紋岩質かんらん岩(PWO01-14-Rh-003)の薄片 (左) と顕微鏡写真

2) 粘土質土壌試料の EPMA 分析

a. PWO01-14-Rh-006

沈殿した泥状堆積物試料である PWO01-14-Rh-006 は真空乾燥処理の後に、樹脂包埋して、薄片状試料に調整された。その試料を構成する鉱物の化学組成を調べた。そのスポット分析結果を図 2.5.6-40 に示す。

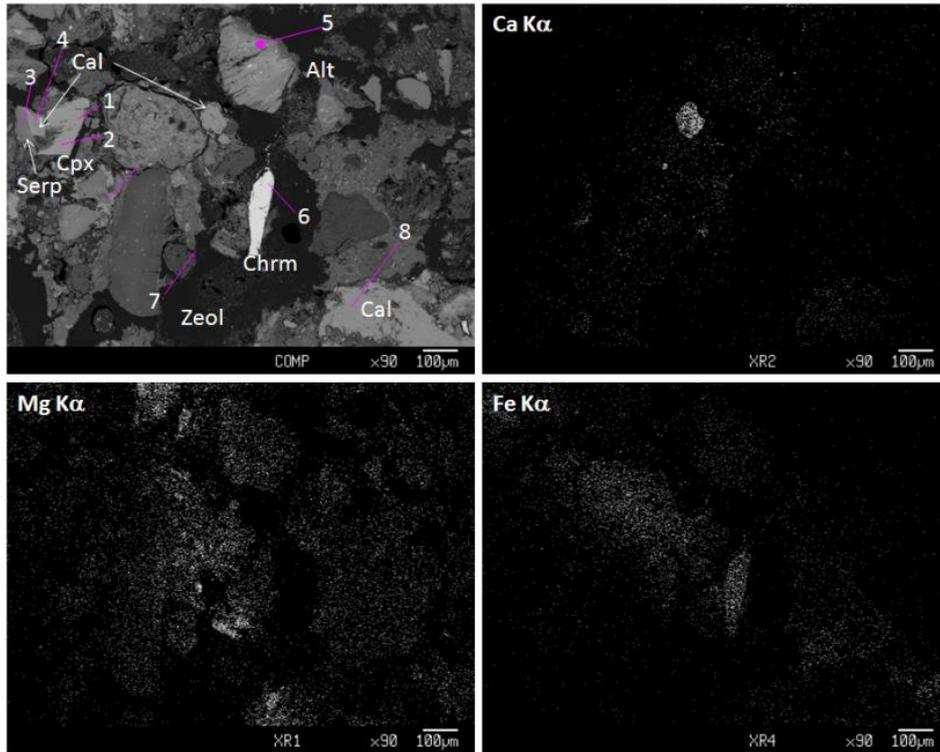


図 2.5.6-40 鉱物のスポット分析(PWO01-14-Rh-006, その1)

さらに詳細な鉱物分析を産状観察とともに行った。そのスポット分析結果を表 2.5.6-5 に示す。

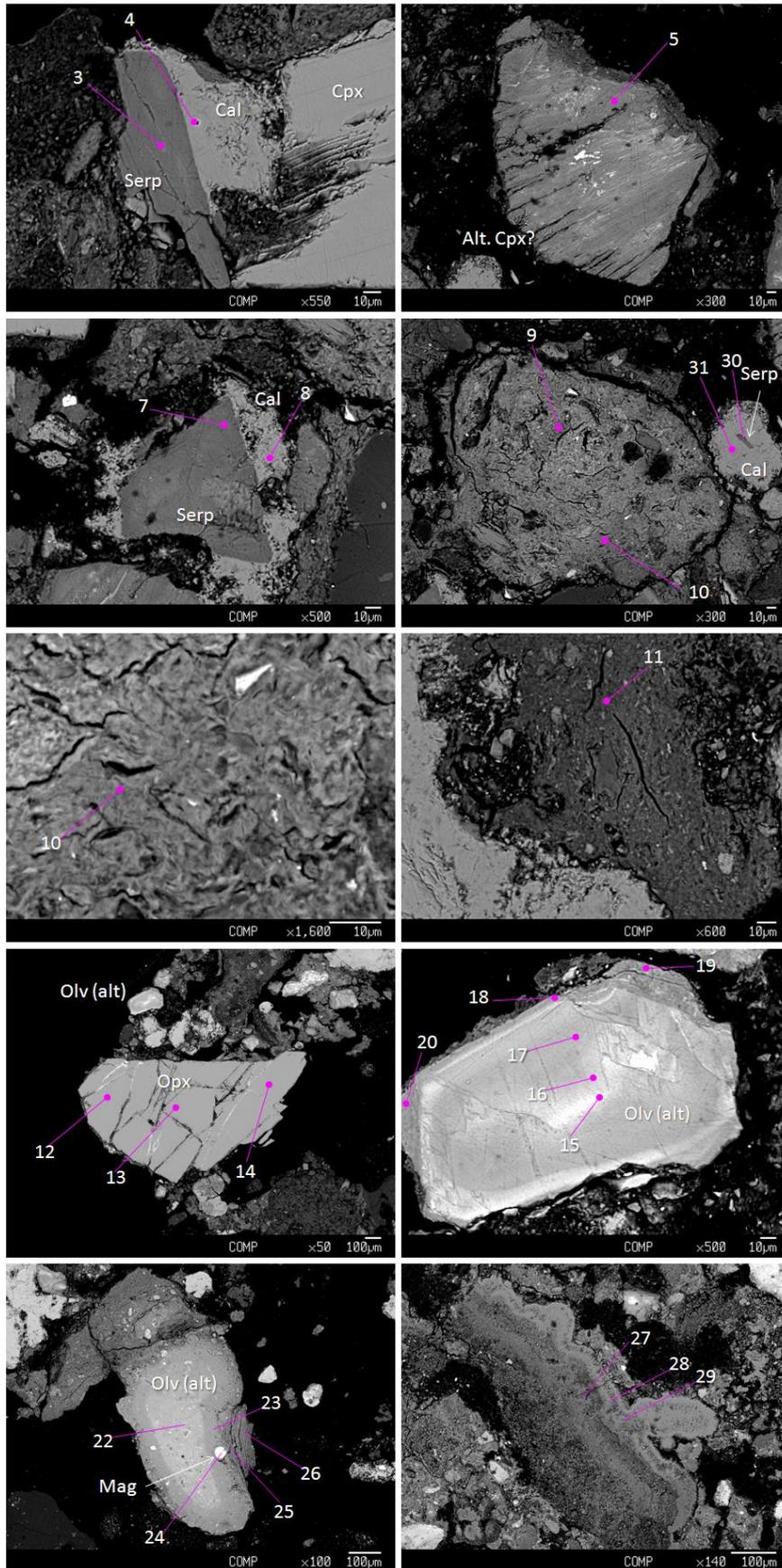


図 2.5.6-41 鉍物のスポット分析(PWO01-14-Rh-006, その2)

各鉱物の化学組成を以下の表に列記する。輝石は単斜輝石と斜方輝石の両方が確認でき、スピネル（クロマイト）も含まれている。炭酸塩にはMgOを0.7 wt.%含むものがあるが、多くは純粋な組成に近い。かんらん石と思われる結晶はすっかり変質しており、化学組成的にはややFeが多く、蛇紋石族の組成を示す。また蛇紋石はマトリクス状にも存在しており、Mgに富む組成（例えばクリソタイル）を示す。

以上の詳細な分析の結果、変質しているがかんらん石が確認され、また未変質の輝石類、スピネルなど玄武岩由来の苦鉄質鉱物が源岩であることがわかる。この碎屑物はおそらく地下水の流路に大量に存在しており、地下水流とともに運ばれてきたものである。その過程で、かんらん石や苦鉄質ガラスなどの溶解しやすい物質が水和して、蛇紋石に変質したと考えられる。しかし溶脱したMg, CaなどのpHを高めるアルカリ土類成分はこの試料には沈殿相として含んでいない。固相としては、主に溶解、変質を受けた固体物質としての特徴を見せるにとどまっている。このことから、この試料は、地下水の流路に相当する岩石を代表したものと解釈できる。

表 2.5.6-4 輝石の化学組成

Sample ID	Rh-006_spot_1	Rh-006_spot_2	Rh-006_spot_12	Rh-006_spot_13	Rh-006_spot_14
X (mm)	15.449	15.488	15.983	15.55	15.042
Y (mm)	59.761	59.831	61.833	61.896	61.753
Z (mm)	11.265	11.262	11.259	11.259	11.259
Oxide wt. %					
SiO ₂	50.89	43.84	54.87	54.92	54.68
Al ₂ O ₃	2.60	11.56	1.09	1.01	1.02
TiO ₂	0.23	1.02	0.02	0.02	0.02
FeO	2.78	4.35	4.45	4.28	4.04
Cr ₂ O ₃	0.54	1.44	0.65	0.62	0.58
MnO	0.11	0.10	0.13	0.12	0.13
MgO	16.72	16.63	35.61	35.61	35.12
CaO	23.56	14.47	0.70	0.91	1.01
Na ₂ O	0.14	1.80	0.01	0.01	0.00
K ₂ O	0.00	0.05	0.02	0.01	0.00
total	97.57	95.27	97.54	97.50	96.59
Cation based on O=6					
Si	1.907	1.674	1.935	1.937	1.944
Al	0.115	0.520	0.045	0.042	0.043
Ti	0.007	0.029	0.001	0.001	0.000
Fe	0.087	0.139	0.131	0.126	0.120
Cr	0.016	0.044	0.018	0.017	0.016
Mn	0.003	0.003	0.004	0.004	0.004
Mg	0.934	0.946	1.872	1.872	1.861
Ca	0.946	0.592	0.027	0.034	0.038
Na	0.010	0.133	0.000	0.001	0.000
K	0.000	0.003	0.001	0.000	0.000
total	4.026	4.083	4.034	4.034	4.026
Pyroxene	Cpx	Cpx	Opx	Opx	Opx

表 2.5.6-5 スピネルの化学組成

Sample ID	Rh-006_spot_6
X (mm)	14.889
Y (mm)	59.929
Z (mm)	11.264
Oxide wt.%	
SiO ₂	0.00
Al ₂ O ₃	19.18
TiO ₂	0.03
FeO	20.73
Cr ₂ O ₃	48.36
MnO	0.32
MgO	12.01
CaO	0.00
Na ₂ O	0.03
K ₂ O	0.01
total	100.68
Cation based on O=4	
Si	0.000
Al	0.713
Ti	0.000
Fe	0.547
Cr	1.206
Mn	0.008
Mg	0.564
Ca	0.000
Na	0.002
K	0.000
total	3.041

表 2.5.6-6 炭酸塩の化学組成

Sample ID	Rh-006_spot_4	Rh-006_spot_8	Rh-006_spot_21	Rh-006_spot_31
X (mm)	15.586	15.339	15.557	15.048
Y (mm)	59.759	59.924	61.461	59.745
Z (mm)	11.262	11.257	11.259	11.26
Oxide wt.%				
SiO ₂	0.00	0.00	0.00	0.75
Al ₂ O ₃	0.00	0.00	0.01	0.14
TiO ₂	0.00	0.01	0.00	0.00
FeO	0.19	0.06	0.08	0.58
Cr ₂ O ₃	0.01	0.00	0.00	0.00
MnO	0.02	0.01	0.02	0.00
MgO	0.70	0.49	0.02	0.79
CaO	52.50	53.20	59.78	56.03
Na ₂ O	0.01	0.02	0.00	0.05
K ₂ O	0.00	0.01	0.00	0.00
total	53.43	53.81	59.90	58.33
Cation based on O=1				
Si	0.000	0.000	0.000	0.012
Al	0.000	0.000	0.000	0.003
Ti	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.003	0.001	0.001	0.008
Cr	0.000	0.000	0.000	0.000
Mn	0.000	0.000	0.000	0.000
Mg	0.018	0.013	0.000	0.018
Ca	0.978	0.986	0.998	0.946
Na	0.000	0.001	0.000	0.001
K	0.000	0.000	0.000	0.000
total	1.000	1.000	1.000	0.988

表 2.5.6-7 蛇紋石の化学組成

Sample ID	spot_3	spot_5	spot_7	spot_9	spot_10	spot_11	spot_15	spot_16	spot_17	spot_18	spot_19	spot_20	spot_22	spot_23	spot_25	spot_26	spot_28	spot_29	spot_30
X (mm)	15.598	14.895	15.38	15.248	15.195	12.921	15.744	15.75	15.755	15.767	15.706	15.863	13.396	13.32	13.245	13.208	14.041	13.962	15.036
Y (mm)	59.774	59.541	59.921	59.728	59.846	59.084	61.256	61.241	61.205	61.192	61.179	61.252	61.537	61.535	61.532	61.558	56.897	56.923	59.745
Z (mm)	11.262	11.262	11.257	11.257	11.257	11.271	11.259	11.259	11.259	11.259	11.259	11.259	11.26	11.26	11.26	11.26	11.277	11.277	11.26
Oxide wt. %																			
SiO2	37.35	32.93	21.73	32.00	45.31	31.96	25.30	30.80	33.41	34.11	37.34	39.62	27.06	26.12	26.42	29.10	24.56	34.11	36.24
Al2O3	0.87	6.67	0.21	21.04	2.76	6.05	0.73	0.72	1.36	3.06	2.06	2.27	2.99	2.51	3.14	4.41	0.74	1.04	0.60
TiO2	0.01	0.10	0.13	0.03	0.04	0.08	0.00	0.00	0.04	0.05	0.00	0.00	0.01	0.05	0.06	0.04	0.02	0.01	0.01
FeO	5.28	21.05	14.55	5.05	6.72	11.59	29.82	22.26	18.19	16.13	11.63	8.82	29.55	23.72	0.00	13.75	0.06	0.03	5.21
Cr2O3	0.47	0.18	0.13	0.01	0.55	0.17	0.08	0.08	0.13	0.16	0.05	0.10	0.10	0.10	0.15	0.10	0.00	0.00	0.03
MnO	0.06	0.36	0.05	0.05	0.12	0.29	0.26	0.16	0.22	0.30	0.13	0.21	0.22	0.23	0.20	0.23	0.02	0.01	0.09
MgO	35.01	16.71	10.25	29.45	32.11	19.79	24.80	30.00	29.61	28.30	33.00	35.16	25.99	27.40	20.45	25.06	21.76	27.73	32.63
CaO	0.64	1.81	0.90	0.33	1.01	1.12	0.76	0.93	1.29	1.50	0.42	0.46	1.13	1.00	0.85	0.91	1.11	1.15	3.76
Na2O	0.03	0.11	0.08	0.07	0.01	0.04	0.00	0.00	0.01	0.02	0.11	0.07	0.04	0.08	0.00	0.06	0.02	0.00	0.00
K2O	0.01	0.02	0.02	0.01	0.05	0.06	0.02	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.01	0.02	0.03	0.02	0.00	0.02	0.00
total	79.71	79.94	48.03	88.05	88.67	71.15	81.76	84.95	84.24	83.63	84.75	86.70	87.10	81.21	51.30	73.66	48.29	64.11	78.58
Cation based on O=7																			
Si	1.949	1.876	2.092	1.495	2.101	1.934	1.541	1.692	1.794	1.816	1.894	1.927	1.522	1.538	2.049	1.752	2.042	2.119	1.941
Al	0.053	0.448	0.024	1.159	0.151	0.432	0.053	0.047	0.086	0.192	0.123	0.130	0.198	0.174	0.287	0.313	0.073	0.076	0.038
Ti	0.000	0.004	0.009	0.001	0.001	0.004	0.000	0.000	0.001	0.002	0.000	0.000	0.000	0.002	0.004	0.002	0.001	0.001	0.000
Fe	0.230	1.003	1.172	0.197	0.261	0.587	1.519	1.022	0.817	0.718	0.493	0.359	1.390	1.168	0.000	0.692	0.004	0.002	0.233
Cr	0.019	0.008	0.010	0.000	0.020	0.008	0.004	0.003	0.005	0.007	0.002	0.004	0.004	0.004	0.009	0.005	0.000	0.000	0.001
Mn	0.003	0.018	0.004	0.002	0.005	0.015	0.013	0.007	0.010	0.014	0.006	0.008	0.010	0.011	0.013	0.012	0.001	0.000	0.004
Mg	2.723	1.419	1.471	2.051	2.220	1.786	2.251	2.456	2.370	2.247	2.496	2.550	2.180	2.405	2.364	2.249	2.698	2.567	2.605
Ca	0.036	0.111	0.093	0.017	0.050	0.073	0.050	0.054	0.074	0.085	0.023	0.024	0.068	0.063	0.070	0.058	0.099	0.077	0.216
Na	0.003	0.012	0.014	0.007	0.001	0.005	0.000	0.000	0.001	0.002	0.011	0.006	0.004	0.009	0.000	0.007	0.003	0.000	0.000
K	0.000	0.002	0.003	0.001	0.003	0.004	0.002	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.001	0.002	0.003	0.001	0.000	0.002	0.000
total	5.016	4.899	4.890	4.928	4.813	4.846	5.432	5.283	5.159	5.084	5.049	5.009	5.378	5.376	4.800	5.092	4.921	4.843	5.039
Serpentine			Alt. olivine				Alt. olivine core	Alt. olivine rim	Alt. olivine core	Alt. olivine rim									

-209-

b. PWO01-14-Rh-007

パラワン堆積物としての PWO01-14-Rh-007 試料では、変質した玄武岩物質とともに、Ca, Mg 成分の沈殿相が明瞭に確認できる。図 2.5.6-42 に詳細な産状観察とスポット分析の結果を示す。

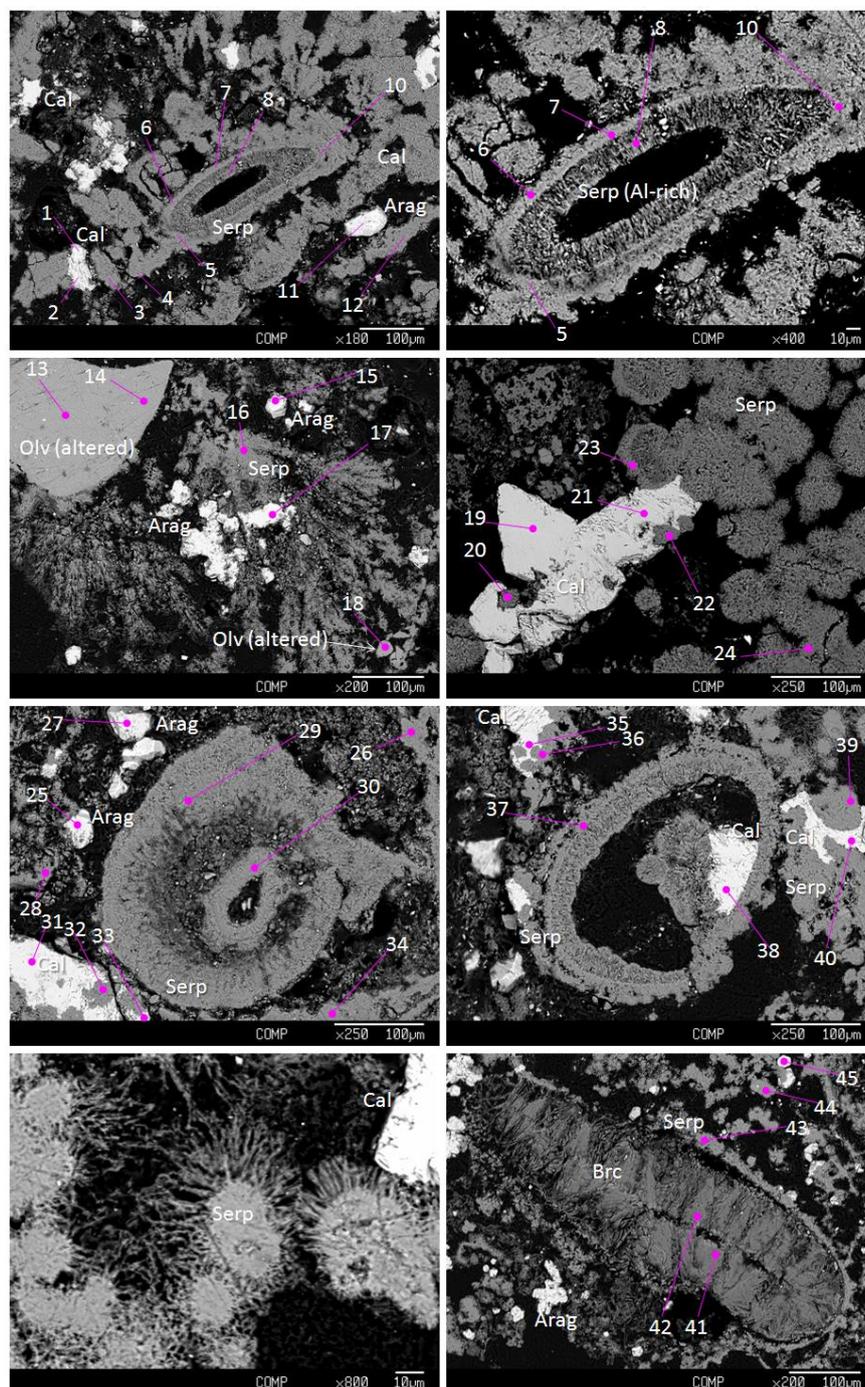


図 2.5.6-42 鉾物のスポット分析(PWO01-14-Rh-007)

以上の分析結果より、玄武岩から Mg, Ca を溶脱し、高 pH 溶液として運ばれてきた地下水から、Mg(OH)₂ (水滑石) や CaCO₃ がその場で沈殿したものがこの試料であると考えられる。また、特徴として CaCO₃ には形態が異なる 2 種類が含まれており、細粒で六角状の断面を示しているものと、比較的粒子状で菱面体の形状を示すものがある。分析値では前者は MgO を 0.6-0.9 wt.% 多く含み、形態からはおそらく霏石である。霏石は Mg に富む溶液から準安定相として先に飽和して沈殿しやすい (Mg は方解石核形成の抑制効果をもつ) ことが実験的に知られている[46][47][48][49]。

表 2.5.6-8 水滑石の化学組成

Sample ID	Rh-007_spot_41	Rh-007_spot_42
X (mm)	44.871	44.881
Y (mm)	17.18	17.13
Z (mm)	11.439	11.439
Oxide wt. %		
SiO ₂	4.34	4.62
Al ₂ O ₃	1.81	1.22
TiO ₂	0.00	0.01
FeO	0.00	0.00
Cr ₂ O ₃	0.01	0.00
MnO	0.01	0.00
MgO	65.86	52.50
CaO	0.04	0.04
Na ₂ O	0.00	0.04
K ₂ O	0.02	0.01
total	72.09	58.43
Cation based on O=1		
Si	0.039	0.052
Al	0.019	0.016
Ti	0.000	0.000
Fe	0.000	0.000
Cr	0.000	0.000
Mn	0.000	0.000
Mg	0.891	0.872
Ca	0.000	0.000
Na	0.000	0.001
K	0.000	0.000
total	0.951	0.941

表 2.5.6-9 炭酸塩の化学組成

Sample ID	spot_1	spot_2	spot_11	spot_15	spot_17	spot_19	spot_21	spot_25	spot_27	spot_31	spot_33	spot_35	spot_38	spot_40	spot_45
X (mm)	43.153	43.154	42.67	43.488	43.487	41.739	41.614	43.814	43.747	43.866	43.739	43.822	43.591	43.463	44.767
Y (mm)	20.945	20.991	20.91	19.083	19.232	15.606	15.575	22.937	22.83	23.104	23.165	22.026	22.188	22.132	16.914
Z (mm)	11.453	11.453	11.453	11.449	11.449	11.439	11.439	11.452	11.452	11.452	11.452	11.447	11.455	11.455	11.444
Oxide wt.%															
SiO2	0.00	0.48	0.06	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.05
Al2O3	0.00	0.20	0.07	0.01	0.01	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.01	0.02
TiO2	0.04	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.01	0.00	0.01	0.02	0.01	0.02	0.00
FeO	0.01	0.07	0.00	0.00	0.03	0.00	0.00	0.00	0.04	0.00	0.00	0.00	0.02	0.02	0.00
Cr2O3	0.03	0.02	0.00	0.03	0.07	0.00	0.00	0.04	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.04
MnO	0.00	0.00	0.02	0.00	0.03	0.00	0.00	0.04	0.02	0.00	0.03	0.00	0.00	0.01	0.00
MgO	0.09	0.67	0.85	0.33	0.11	0.05	0.06	0.17	0.04	0.04	0.58	0.02	0.10	0.08	0.20
CaO	58.98	55.25	50.93	55.21	55.22	62.00	55.31	62.15	56.82	57.36	56.60	55.57	53.97	54.33	52.98
Na2O	0.00	0.02	0.00	0.03	0.00	0.03	0.00	0.00	0.07	0.06	0.00	0.05	0.01	0.01	0.01
K2O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00
total	59.15	56.72	51.94	55.62	55.47	62.09	55.39	62.43	57.02	57.49	57.23	55.67	54.11	54.48	53.30
Cation based on O=1															
Si	0.000	0.008	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001
Al	0.000	0.004	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Ti	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Cr	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001
Mn	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mg	0.002	0.016	0.023	0.008	0.003	0.001	0.001	0.004	0.001	0.001	0.014	0.001	0.003	0.002	0.005
Ca	0.996	0.961	0.972	0.990	0.995	0.998	0.998	0.994	0.997	0.998	0.985	0.998	0.997	0.997	0.992
Na	0.000	0.001	0.000	0.001	0.000	0.001	0.000	0.000	0.002	0.002	0.000	0.002	0.000	0.000	0.000
K	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
total	0.999	0.991	0.998	1.000	1.000	1.001	1.000	1.000	1.001	1.001	1.000	1.000	1.000	1.000	0.999

表 2.5.6-10 蛇紋石の化学組成

Sample ID	spot_3	spot_4	spot_5	spot_6	spot_7	spot_8	spot_10	spot_12	spot_20	spot_22	spot_23	spot_24	spot_28	spot_16	spot_26	spot_29	spot_30	spot_32	spot_34	spot_36	spot_37	spot_39	spot_43	spot_44	spot_13	spot_14	spot_18
X (mm)	43.095	43.056	42.996	43.001	42.96	42.938	42.727	42.627	41.777	41.591	41.627	41.459	43.862	43.529	43.441	43.633	43.62	43.791	43.525	43.806	43.757	43.455	44.869	44.789	43.77	43.698	43.328
Y (mm)	20.996	20.973	20.923	20.881	20.841	20.843	20.789	20.926	15.676	15.6	15.522	15.752	22.999	19.162	22.831	22.892	22.993	23.125	23.154	22.037	22.121	22.094	17.028	16.952	19.131	19.091	19.43
Z (mm)	11.453	11.453	11.453	11.453	11.453	11.453	11.453	11.453	11.439	11.439	11.439	11.439	11.452	11.449	11.452	11.452	11.452	11.452	11.452	11.447	11.447	11.455	11.439	11.439	11.443	11.443	11.449
Oxide wt.%																											
SiO ₂	17.03	16.41	16.86	16.62	16.09	16.97	14.12	13.16	13.13	13.51	11.56	14.26	14.08	26.37	25.47	27.61	27.17	25.03	25.76	27.61	26.25	29.19	24.61	27.74	37.31	37.55	39.86
Al ₂ O ₃	8.28	8.80	9.96	8.82	8.69	9.38	8.79	7.26	8.95	8.19	6.08	9.11	8.51	13.09	11.66	12.00	10.85	8.99	12.14	13.90	10.85	13.86	14.69	15.41	0.80	0.79	0.95
TiO ₂	0.02	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.00	0.02	0.00	0.00
FeO	0.07	0.00	0.04	0.04	0.02	0.00	0.04	0.05	0.00	0.00	0.03	0.01	0.00	0.00	0.00	0.04	0.00	0.01	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.20	2.78	2.71	2.17
Cr ₂ O ₃	0.02	0.01	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.11	0.06	0.07
MnO	0.00	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.03	0.08	0.02	0.05	0.02
MgO	22.22	22.45	23.65	23.59	22.35	22.67	21.67	18.25	20.44	17.80	15.77	20.66	21.18	33.88	32.83	34.49	34.07	25.22	28.67	36.11	25.75	31.16	31.78	33.41	34.95	35.32	38.30
CaO	0.12	0.12	0.08	0.12	0.13	0.15	0.09	0.12	0.33	0.43	0.17	0.12	0.15	0.14	0.11	0.08	0.11	0.30	0.13	0.15	0.12	0.22	0.14	0.22	0.04	0.04	0.04
Na ₂ O	0.03	0.00	0.05	0.00	0.03	0.03	0.03	0.00	0.00	0.00	0.08	0.02	0.00	0.01	0.05	0.09	0.00	0.05	0.04	0.00	0.02	0.02	0.00	0.02	0.02	0.03	0.00
K ₂ O	0.03	0.00	0.00	0.02	0.03	0.02	0.03	0.00	0.00	0.00	0.05	0.01	0.00	0.02	0.00	0.01	0.00	0.02	0.02	0.02	0.00	0.00	0.03	0.03	0.01	0.01	0.00
total	47.81	47.83	50.65	49.23	47.35	49.22	44.79	38.85	42.86	39.94	33.74	44.18	43.94	73.53	70.13	74.32	72.24	59.63	66.80	77.81	63.01	74.47	71.29	77.12	76.04	76.55	81.40
Cation based on O=7																											
Si	1.452	1.400	1.360	1.382	1.390	1.405	1.296	1.385	1.261	1.381	1.403	1.321	1.314	1.458	1.478	1.509	1.528	1.686	1.555	1.444	1.667	1.577	1.403	1.459	1.999	1.997	1.987
Al	0.832	0.885	0.947	0.865	0.884	0.915	0.951	0.900	1.013	0.986	0.869	0.995	0.937	0.853	0.797	0.773	0.719	0.713	0.864	0.857	0.812	0.882	0.987	0.956	0.050	0.049	0.056
Ti	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.001	0.000	0.001	0.000	0.001	0.000	0.000
Fe	0.005	0.000	0.003	0.002	0.001	0.000	0.003	0.004	0.000	0.000	0.003	0.001	0.000	0.000	0.000	0.002	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.009	0.125	0.121
Cr	0.001	0.001	0.000	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.005	0.003	0.003
Mn	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.004	0.001	0.002	0.001
Mg	2.825	2.856	2.845	2.923	2.877	2.799	2.963	2.861	2.925	2.712	2.852	2.852	2.949	2.793	2.839	2.810	2.856	2.531	2.580	2.816	2.437	2.509	2.701	2.620	2.791	2.801	2.846
Ca	0.011	0.011	0.006	0.011	0.012	0.014	0.009	0.013	0.034	0.047	0.022	0.012	0.015	0.008	0.007	0.005	0.007	0.021	0.008	0.008	0.008	0.013	0.009	0.013	0.002	0.002	0.002
Na	0.004	0.000	0.007	0.000	0.005	0.006	0.005	0.000	0.000	0.000	0.019	0.004	0.000	0.001	0.005	0.010	0.000	0.006	0.004	0.000	0.002	0.002	0.000	0.002	0.001	0.003	0.000
K	0.004	0.000	0.000	0.002	0.003	0.002	0.004	0.000	0.000	0.001	0.007	0.002	0.000	0.002	0.000	0.001	0.000	0.001	0.001	0.001	0.000	0.000	0.002	0.002	0.001	0.001	0.000
total	5.134	5.156	5.170	5.187	5.173	5.141	5.232	5.165	5.233	5.127	5.176	5.185	5.216	5.116	5.127	5.110	5.112	4.961	5.015	5.128	4.927	4.983	5.104	5.064	4.974	4.978	4.984
Serpentine	Al-rich											Alt. olivine	Alt. olivine	Alt. olivine													

215

3) 粘土質土壌試料の FESEM-EDS 分析

EPMA で用いた薄片状試料を使って FESEM-EDS 観察・分析を行った。それぞれの試料で鉱物産状の観察と分析を実施した SEM 画像 (図 2.5.6-43 (PWO01-14-Rh-006)、図 2.5.6-46 (PWO01-14-Rh-007)) と各測定ポイントでの分析結果 (図 2.5.6-44~図 2.5.6-45 (PWO01-14-Rh-006))、図 2.5.6-47 (PWO01-14-Rh-007)) を以下に示す。

a. PWO01-14-Rh-006

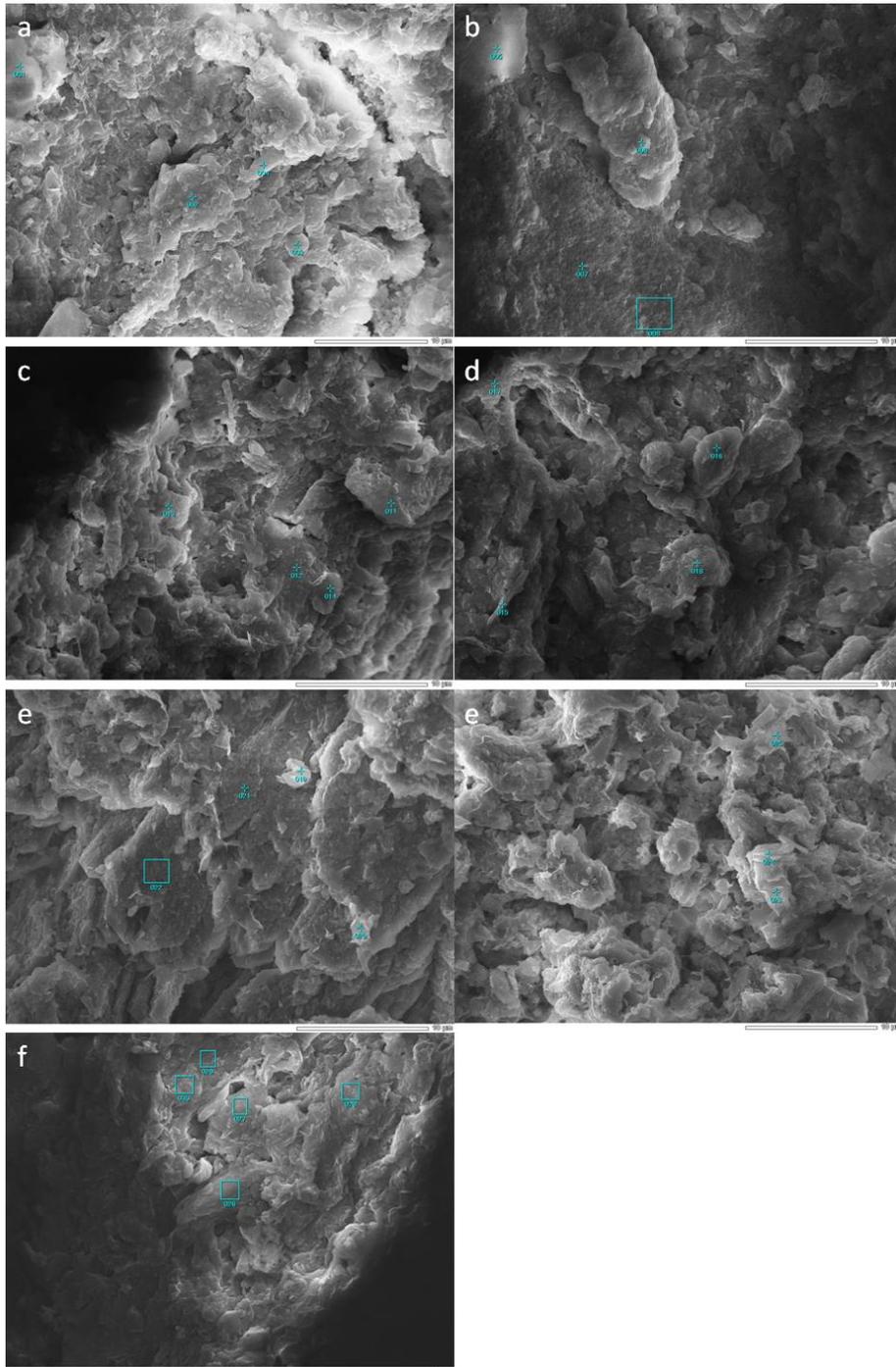


図 2.5.6-43 FESEM-EDS 観察結果(PWO01-14-Rh-006)

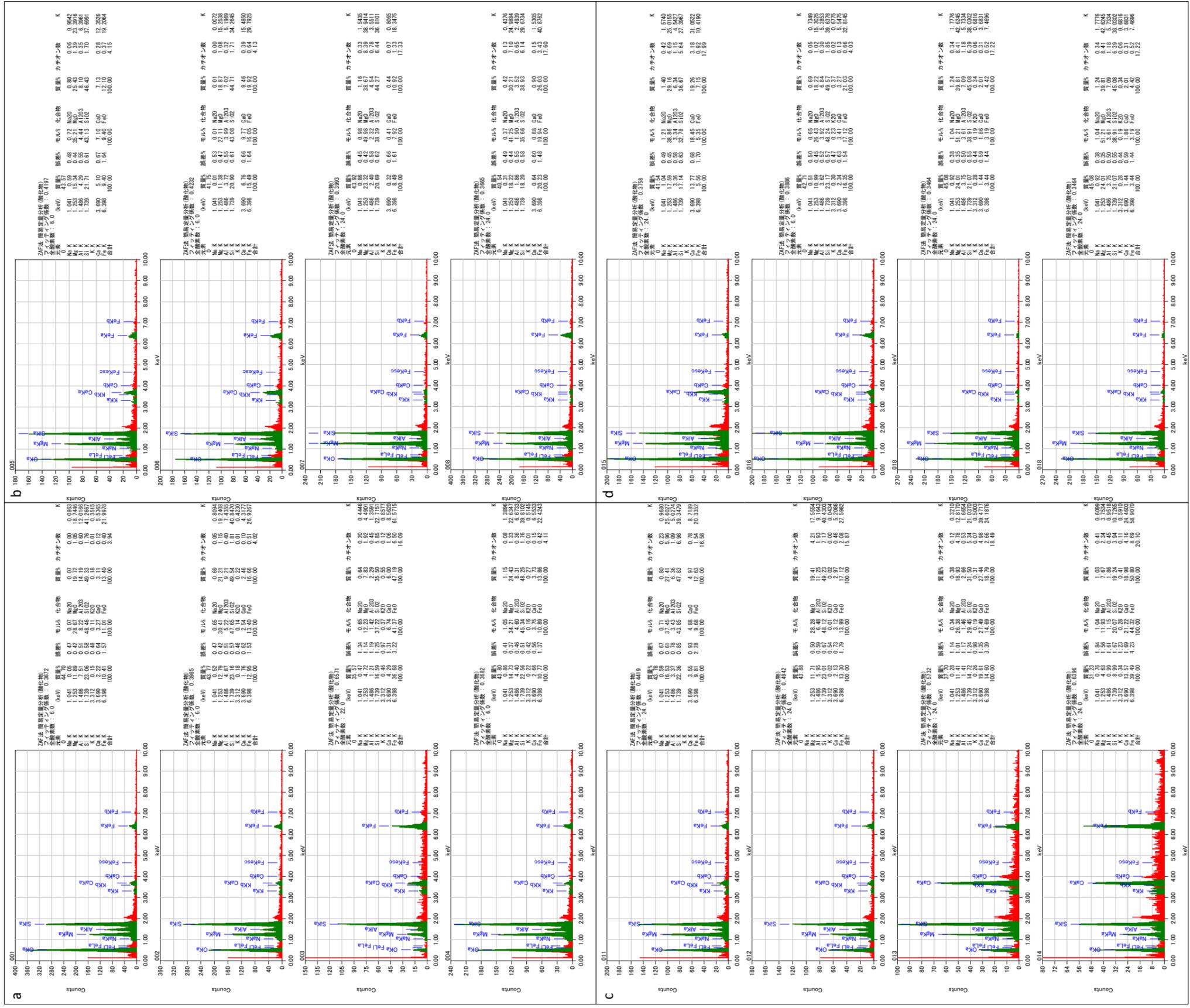


図 2.5.6-44 FESEM-EDS 分析結果(PW001-14-Rh-006, その1)

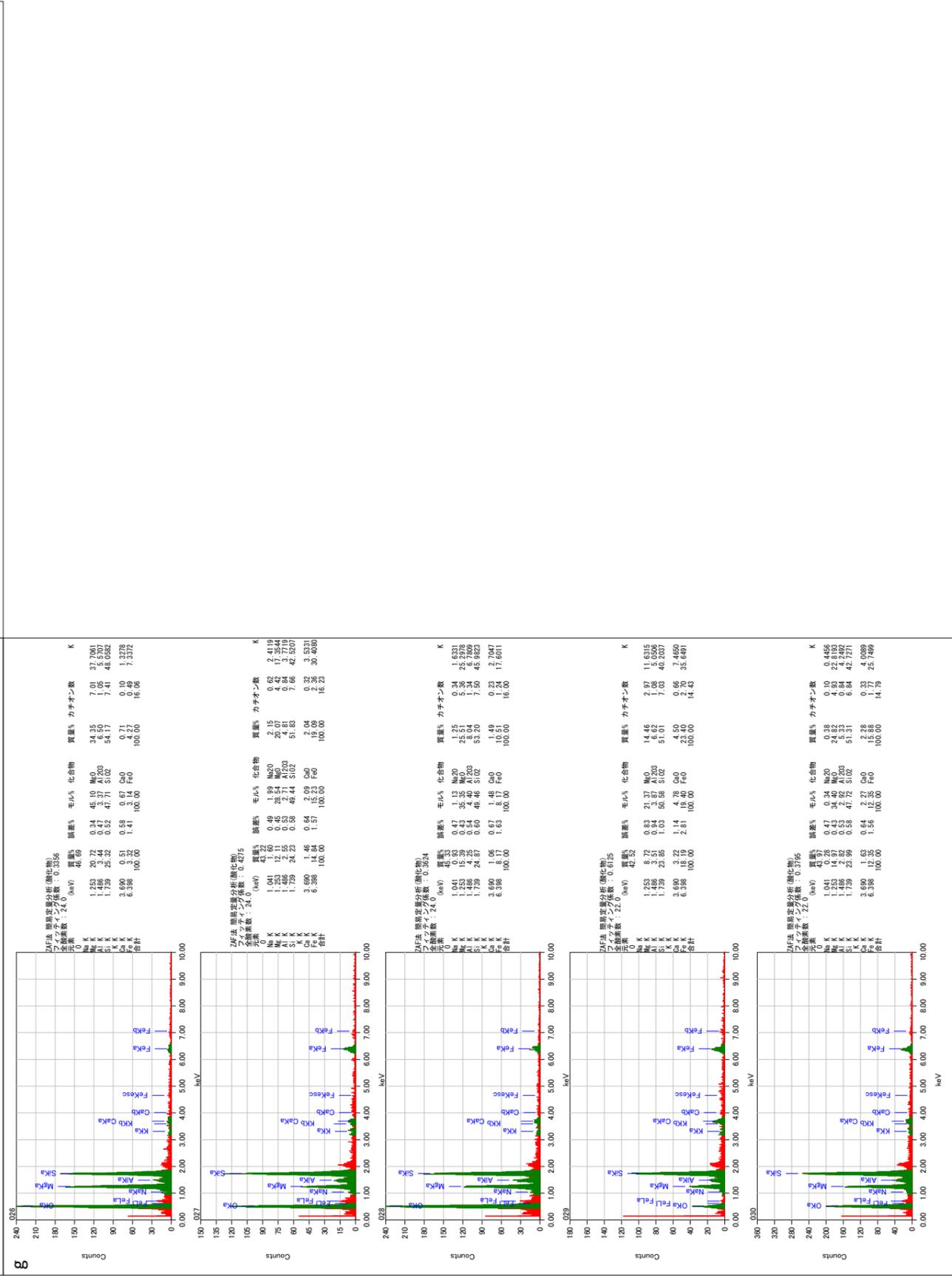
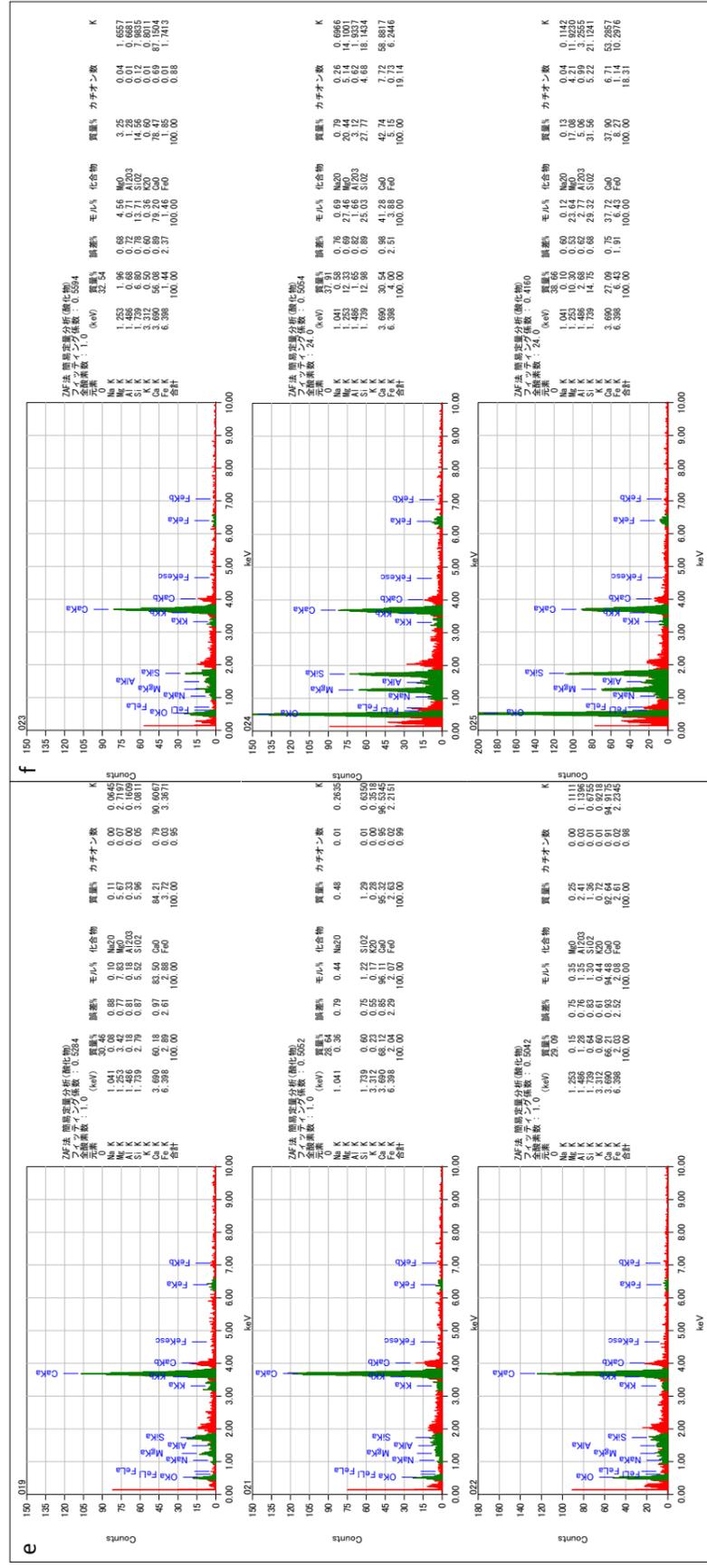


図 2.5.6-45 FESEM-EDS 分析結果(PW001-14-Rh-006, その2)

b. PWO01-14-Rh-007

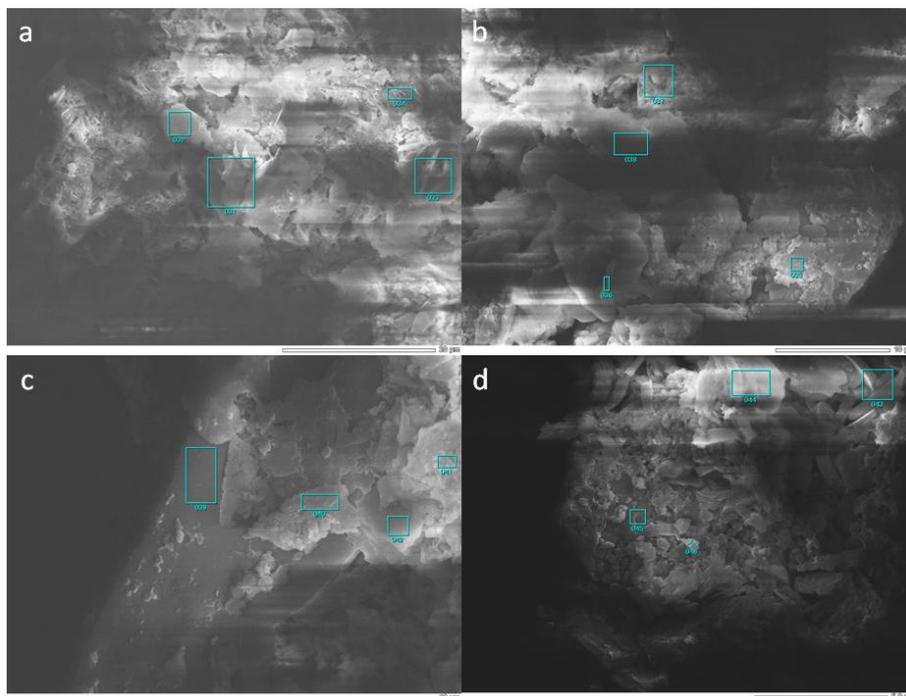


図 2.5.6-46 FESEM-EDS 観察結果(PWO01-14-Rh-007)

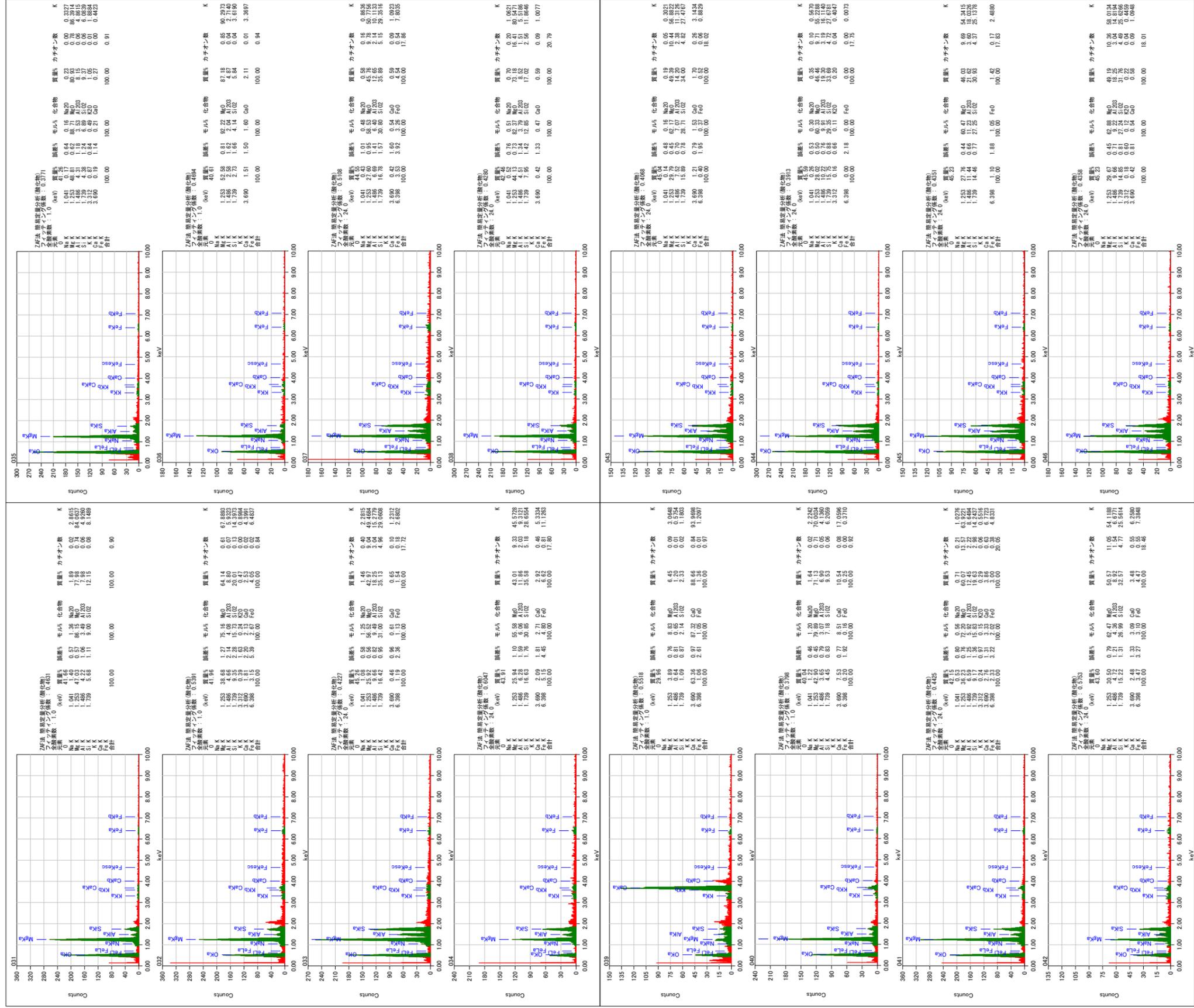


図 2.5.6-47 FESEM-EDS 分析結果(PWO01-14-Rh-007)

4) 粘土質土壌試料の μ -XRD 分析

岩片試料を用いた μ -XRD スポット分析による構成鉱物の同定を行った。結果をスポット位置を示す画像とともに以下に示す。

a. PWO01-14-Rh-007

明瞭なクリソタイルのピークが確認できる。37°近傍には弱く水滑石も検出される。炭酸カルシウムはほとんどが方解石であるが、46°近傍には霏石と思われる弱くブロードなピークもある。

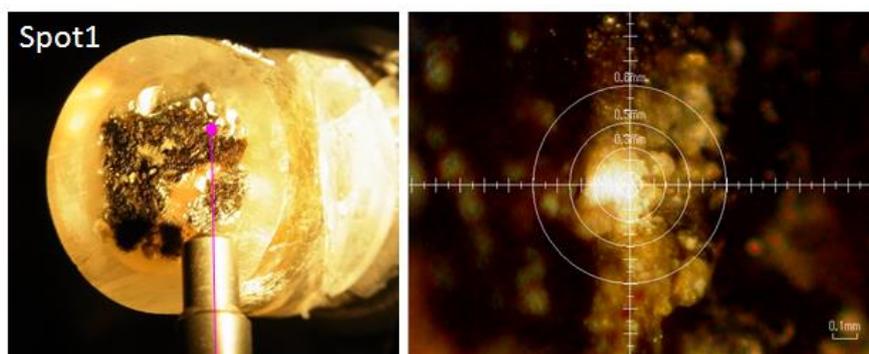


図 2.5.6-48 μ -XRD 分析スポット(PWO01-14-Rh-006)

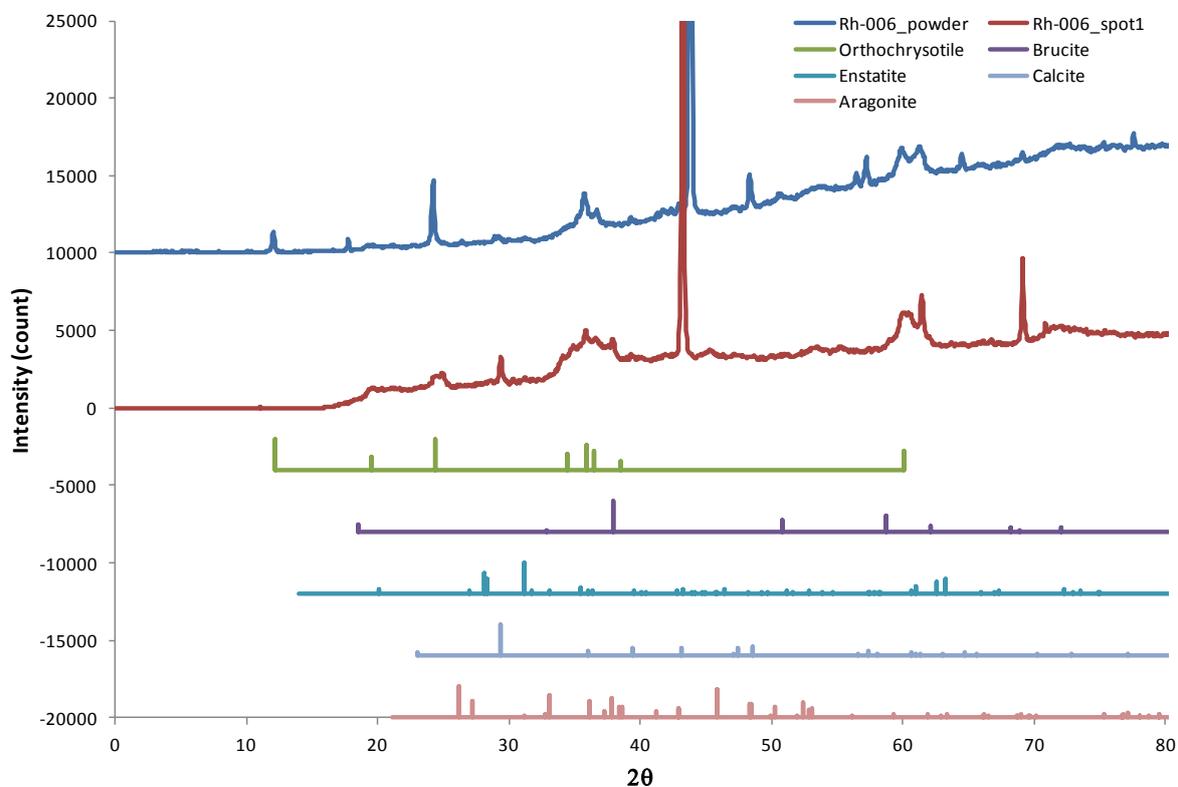


図 2.5.6-49 XRD パターンと解析結果(PWO01-14-Rh-006)

b. PWO01-14-Rh-007

どのスポットも共通してクリソタイルおよび水滑石が確認できる。また粉末試料では、方解石と明瞭な霏石のピークが確認できる ($2\theta = 26, 27^\circ$)。

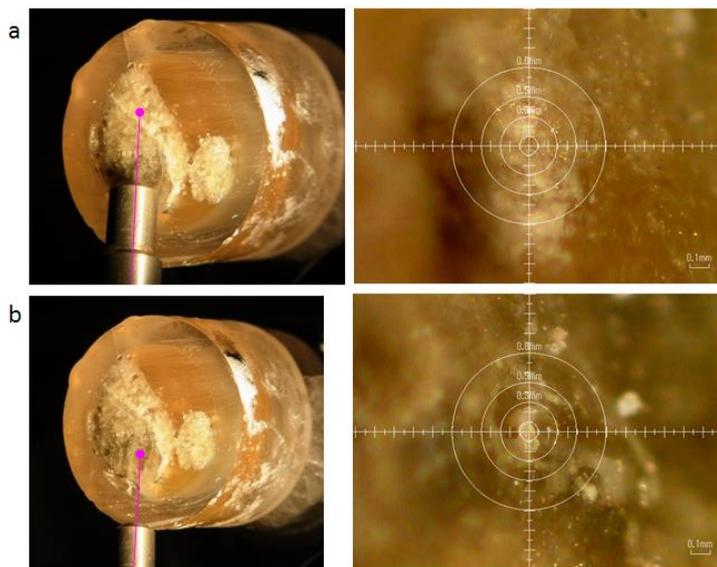


図 2.5.6-50 μ-XRD 分析スポット(PWO01-14-Rh-007)

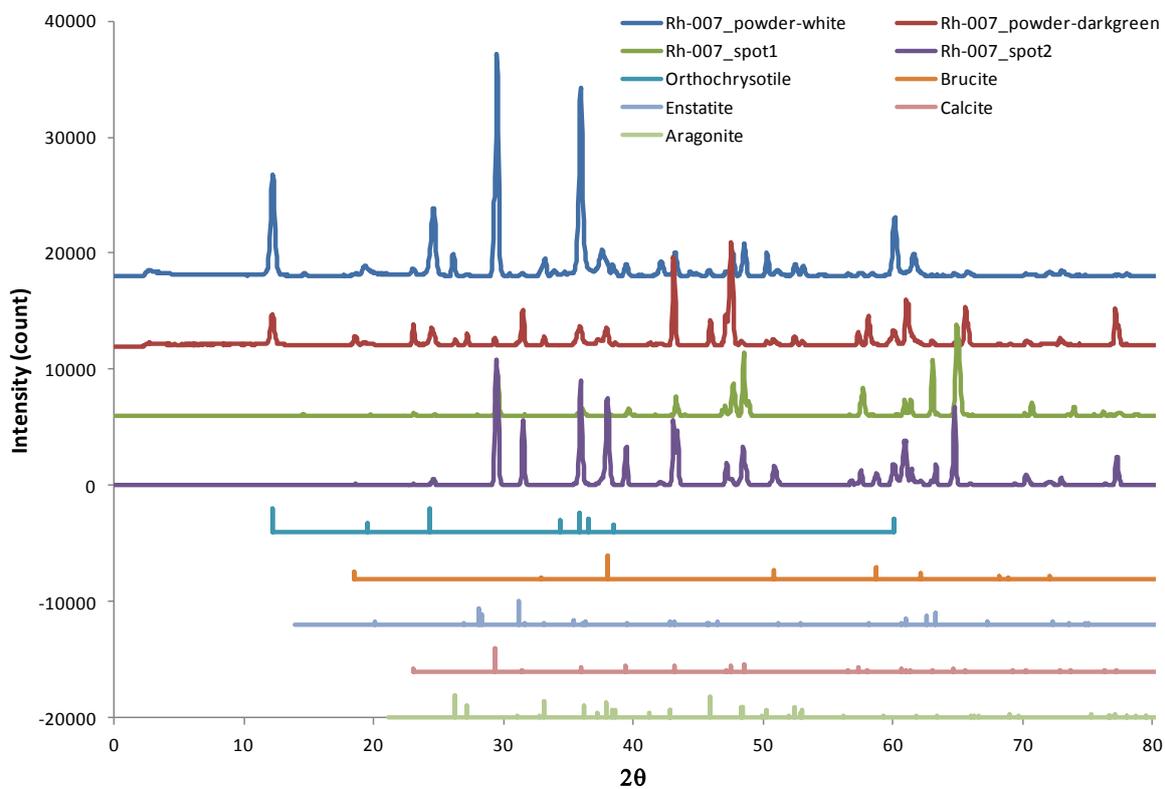


図 2.5.6-51 XRD パターンと解析結果(PWO01-14-Rh-007)

5) 粘土質土壌試料の光学顕微鏡観察

薄片試料作成して偏光顕微鏡による鉱物産状の観察を行った。同定した鉱物とその産状を顕微鏡写真（図 2.5.6-52～図 2.5.6-61 (PWO01-14-Rh-006)、図 2.5.6-62～図 2.5.6-67 (PWO01-14-Rh-007)）とともに以下に示す。

a. PWO01-14-Rh-006

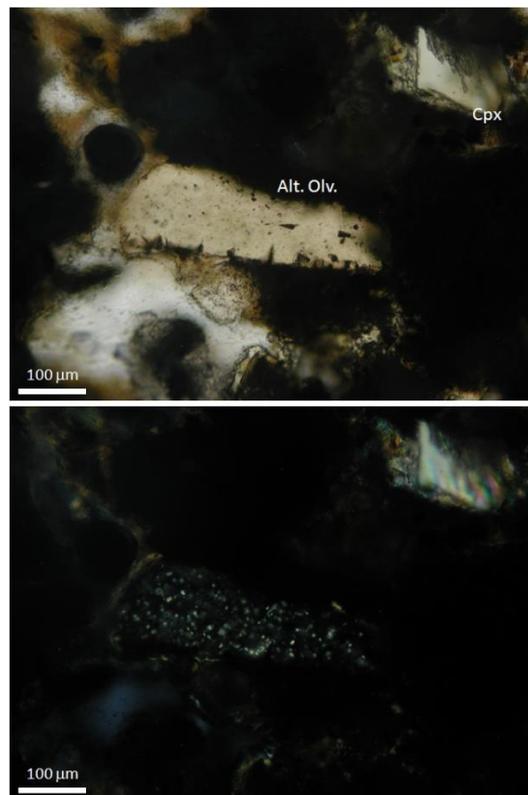


図 2.5.6-52 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その1)

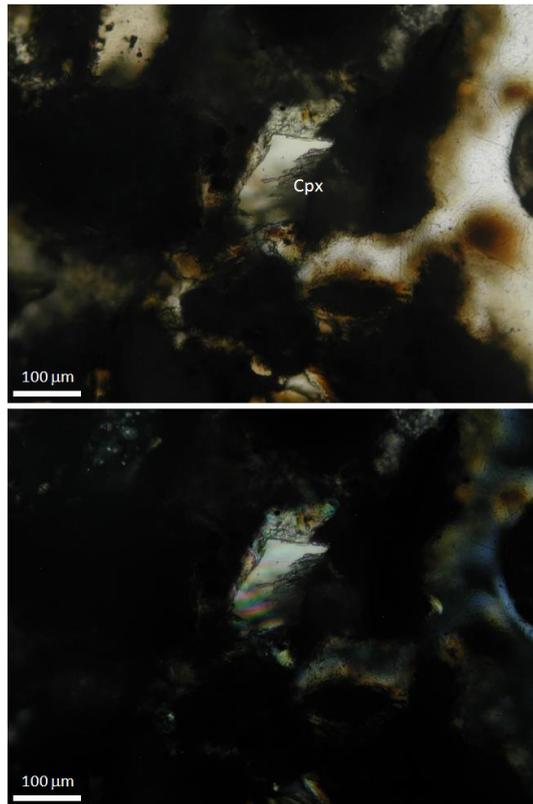


図 2.5.6-53 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その2)

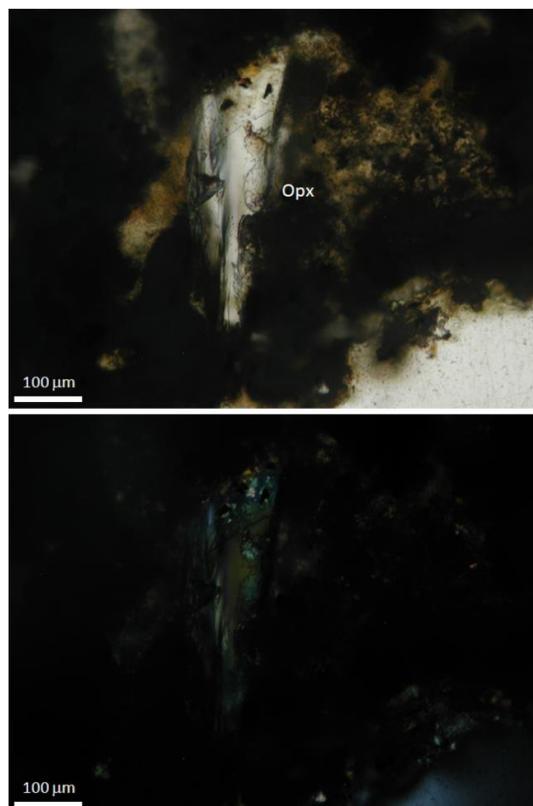


図 2.5.6-54 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その3)

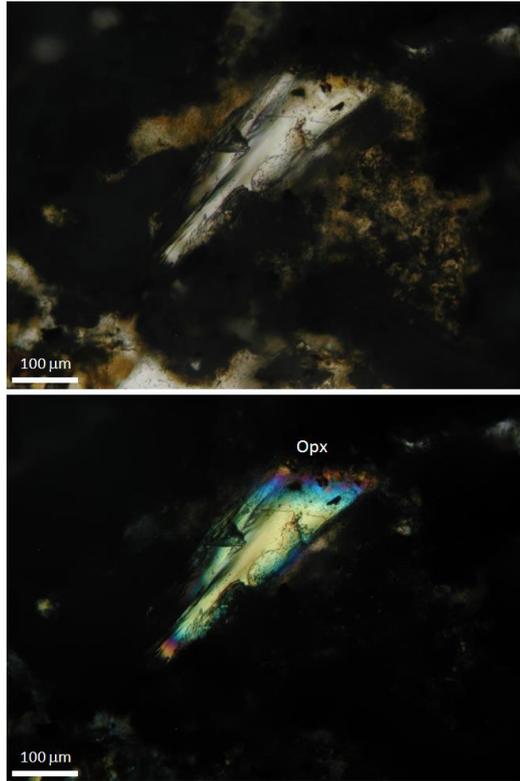


図 2.5.6-55 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その4)

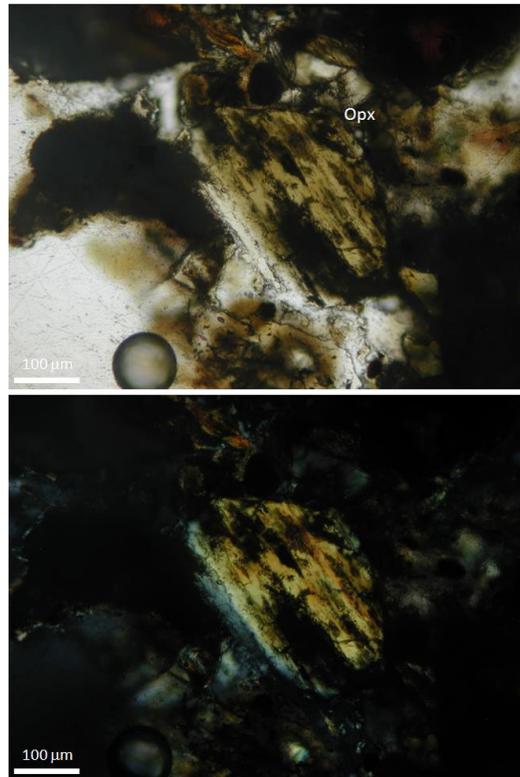


図 2.5.6-56 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その5)

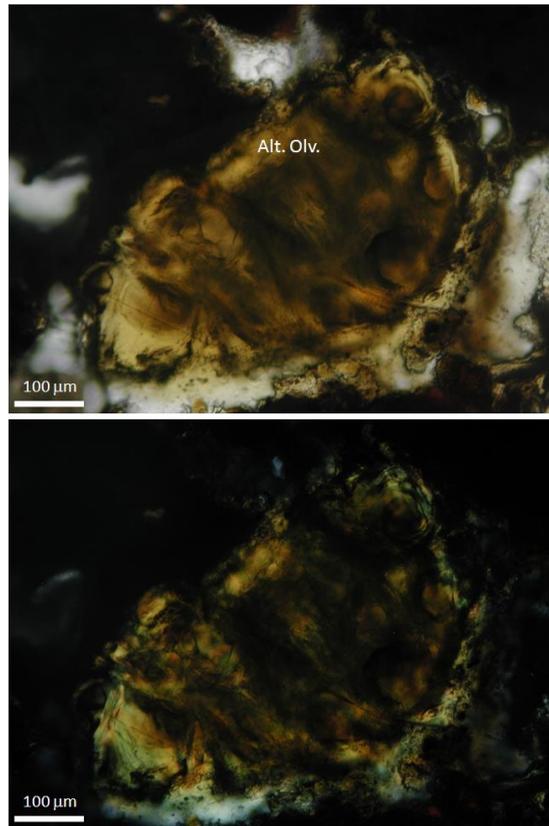


図 2.5.6-57 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その6)

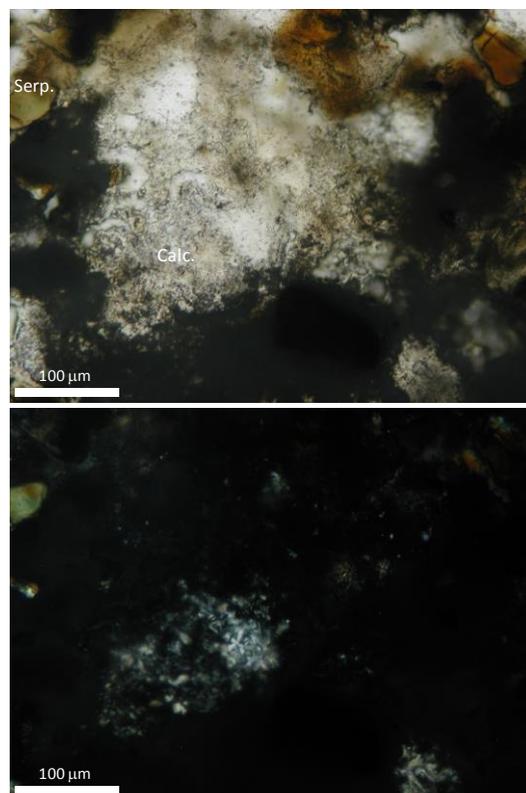


図 2.5.6-58 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その7)

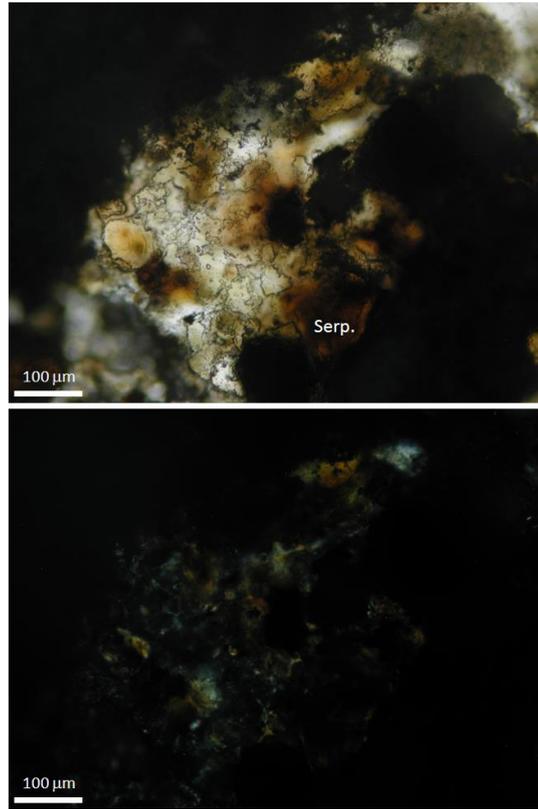


図 2.5.6-59 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その8)

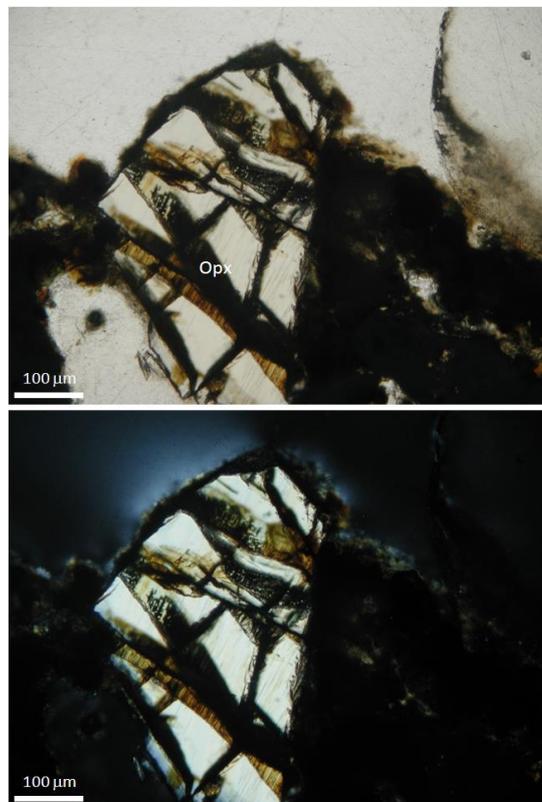


図 2.5.6-60 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その9)

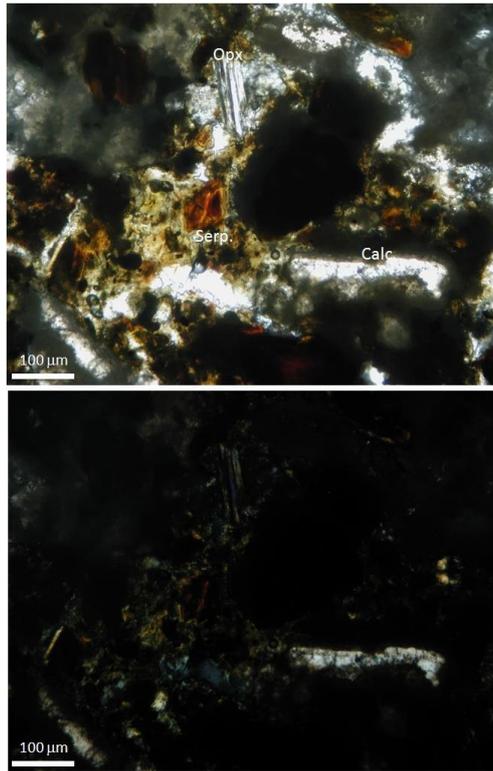


図 2.5.6-61 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-006, その10)

b. PWO01-14-Rh-007

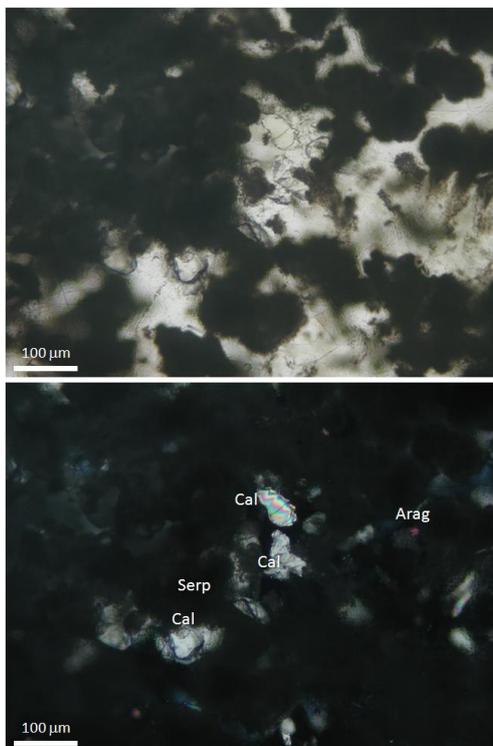


図 2.5.6-62 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その1)

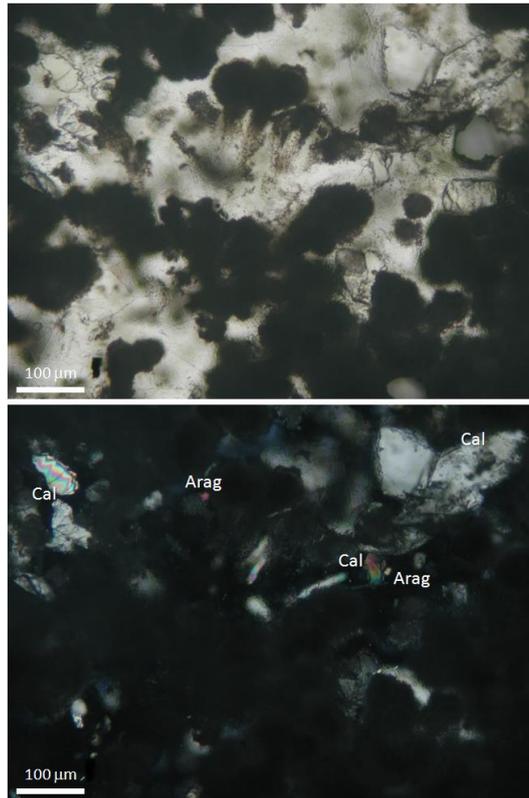


図 2.5.6-63 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その2)

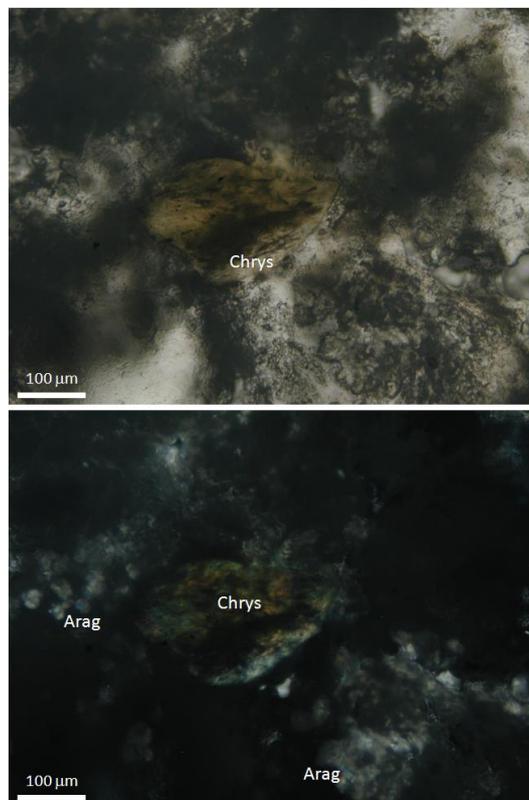


図 2.5.6-64 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その3)

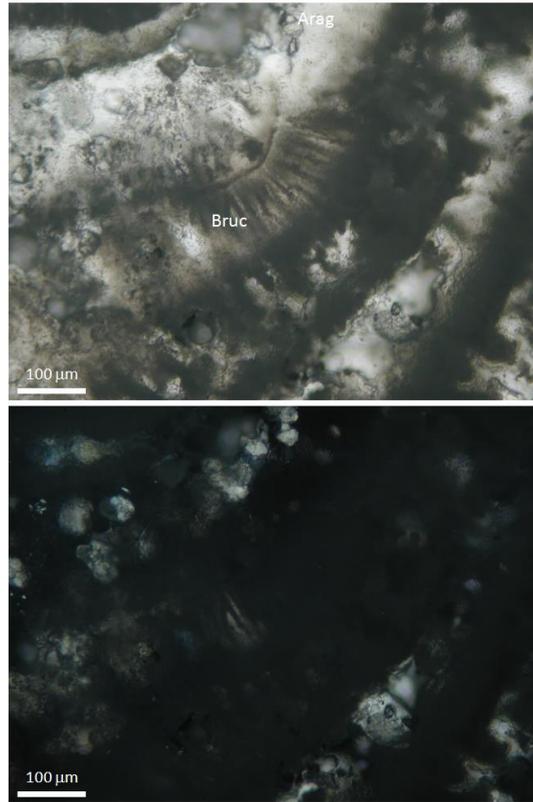


図 2.5.6-65 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その4)

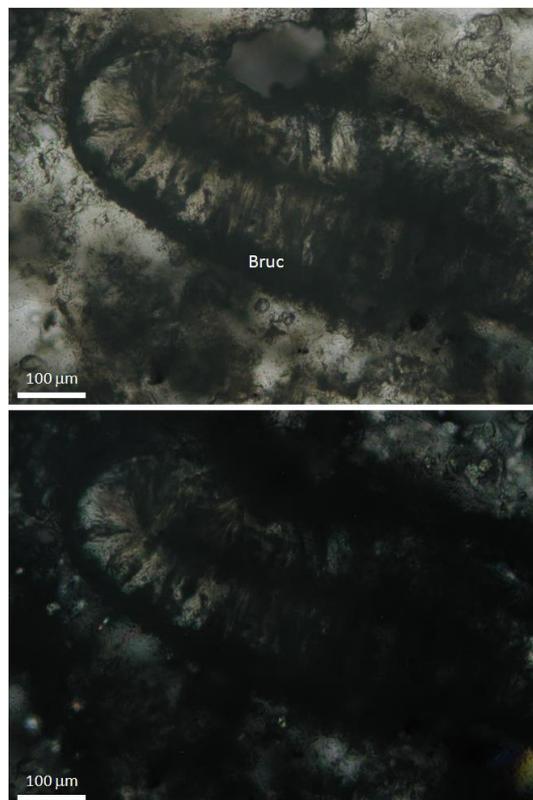


図 2.5.6-66 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その5)

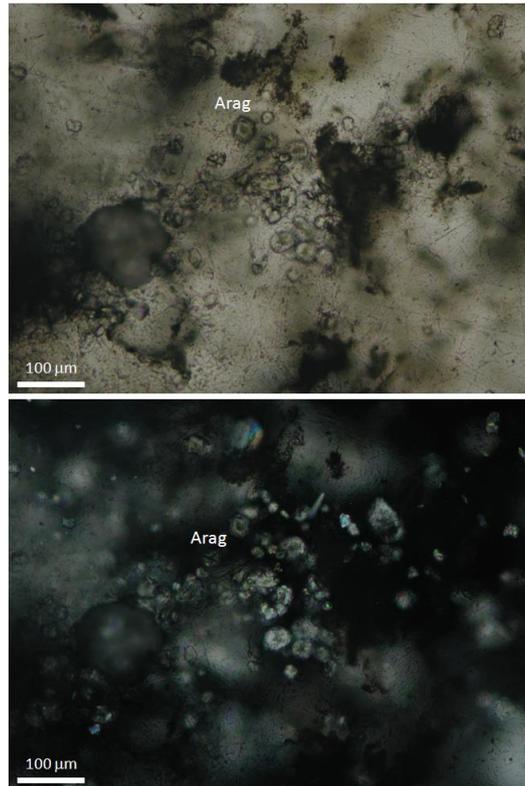


図 2.5.6-67 偏光顕微鏡写真(PWO01-14-Rh-007, その6)

6) 粘土質土壌試料の記載岩石学的分類

岩石鉱物学的・地球化学的特性の詳細観察・分析結果から、Palawan の堆積物から採取した試料 2 件 (PWO01-14-Rh-007, -008) の岩石種を構成鉱物やその変質相の特徴から分類したものを表 2.5.6-11 に示す。

これらの観察・分析結果から、この堆積物においてはアルカリ由来と見られる方解石や、バルク分析でも確認された蛇紋石や霰石が同定された。

表 2.5.6-11 Palawan の堆積物(PWO01-14-Rh-007, -008)の記載岩石学的分類

Sample ID	Rock name	Minerals	Remarks
PW001-14-Rh-007	Serpentine mud	Chrysotile Aragonite Calcite Brucite	No smectite!
PW001-14-Rh-006	Serpentine mud with basaltic sand	Chrysotile Fe-serpentine (altered olivine and clinopyroxene), Calcite	No smectite!

2.5.7 地下水（湧水）調査

2.5.5 の Palawan 中・南部地区の地質概査したサイトにおいて地下水調査を実施した。高アルカリ地下水が確認された St. Lucia 温泉及び Narra 地区においては、湧水地点においてのパラメータ（pH 等）測定、地下水の採取、H₂ガス・CH₄ガス濃度の測定および溶存イオンの簡易分析（バックテストによる主要イオン（Ca²⁺、Mg²⁺、Al³⁺、Cl⁻等）の現地での簡易測定を含む）のための調査を実施した。

(1) St. Lucia 温泉（保養施設：温泉プールの底からのスポット状の湧き出し<空気の発泡を伴う>）

St. Lucia 地区の地下水調査位置を図 2.5.7-1 に示す。St. Lucia 地区では、大プールを基準とし、大プールの西側に位置する西プールおよび南西側に位置する南西プールの 3 ヶ所の水質を調査した（図 2.5.7-2）。



図 2.5.7-1 St. Lucia 地区の地下水採取・現地測定位置図

St. Lucia の地下水（温泉水）は、pH: 9.47~9.50, ORP: -231~-390 mV, Temp: 44.1~53.7°C（プール水で計測）であった。現地計測結果を表 2.5.7-1 にまとめる。

大プールの水温が 40~45°Cであるのに対し、西プールおよび南西プールの水温は 50°Cを超えており、西プールおよび南西プールが大プールの源流と思われる。そのため、大プールにおいて分析用の採水を実施した。

また、プール水の排出口（施設外）の周辺には、典型的な「淡褐色のバイオマット」が発達している事が確認された。



図 2.5.7-2 採水・水質測定状況：St. Lucia (N09° 42' 21.0" ,E118° 41' 36.4")

表 2.5.7-1 St. Lucia 地区の現地水質測定結果

採水ポイント		St. Lucia, Palawan					
		N09°42' 21.0" ,E118°41' 36.4"					
Classification		St. Lucia					
		Hot spring (Hot well)					
採取日		2014/8/10					
Sample No.		St. Lucia					
		大プール			西プール	南西プール	
分析		大林組	学芸大	北大	大林組	大林組	北大
pH		9.50	9.59	9.47	9.50	9.48	9.49
Temp.(°C)		44.1	42.7	40.5	53.0	53.7	54
ORP(mV)		-231	-215	*	-366	-390	*
EC(mS/cm)		*	0.6	*	*	*	*
DO(mg/l)		*	2.58	*	*	*	*
CO2(mg/l)		*	*	*	*	*	*
バックテスト (ppm)	SiO ₂	<5	*	*	*	*	*
	Cl	>50	*	*	*	*	*
	Al	0~0.05	*	*	*	*	*
	Ca	10~20	*	*	*	*	*
	Mg	0	*	*	*	*	*
ガス濃度 (ppm)	H ₂	*	*	*	*	*	*
	CH ₄	*	*	*	*	*	*
備考							

(2) Narra 地区

Narra 地区の地下水調査位置を図 2.5.7-3 に示す。Narra 地区では、San Ishidoro (Narra1) 及び Babatou 滝周辺 (Narra2~Narra4)の計 5 ヶ所の水質を調査した。



図 2.5.7-3 Narra 地区の地下水採取・現地測定位置図

1) San Ishidoro, Parian 温泉 (保養施設：源泉源<豊富な湯量で自噴>)

San Ishidoro, Parian 温泉 (Narra1) の地下水 (温泉水) の地球化学的特性は、pH:10.45~10.52, ORP:-302~-429mV, Temp: 45.2~46.2°Cであった (表 2.5.7-2)。温泉プールにおいて分析用の採水を実施した (図 2.5.7-4)。



図 2.5.7-4 採水・水質測定状況 : Narra1 (San Ishidoro, Parian 温泉 : N9° 10' 49.8" ,E118° 15' 05.7")

表 2.5.7-2 Narra 地区(Narra1~Narra2)の現地水質測定結果 (その1)

採水ポイント	Narra, Palawan					
	N09°10' 49.8" ,E118°15' 05.7" San Isido, Palawan Narra			N09°12' 32.7" ,E118°17' 07.9" Babatou Fall, Narra		
Classification	Hot spring (Hot well)			Crack Water		
採取日	2014/8/11			2014/8/11		
Sample No.	Narra1			Narra2		
分析	大林組	学芸大	北大	大林組	学芸大	北大
pH	10.45	10.52	10.66	10.45	10.56	10.47
Temp.(°C)	46.2	45.2	45.8	36.3	35.5	35.3
ORP(mV)	-429	-302	*	-260	-177	*
EC(mS/cm)	*	0.608	*	*	0.42	*
DO(mg/l)	*	2.93	*	*	1.98	*
CO2(mg/l)	*	*	*	*	*	*
バックテスト (ppm)	SiO ₂	100~200	*	*	5~10	*
	Cl	>50	*	*	>50	*
	Al	0~0.05	*	*	0~0.05	*
	Ca	5	*	*	5	*
	Mg	0	*	*	2~5	*
ガス濃度 (ppm)	H ₂	0	*	*	0	*
	CH ₄	0	*	*	3,600	*
備考						

2) Babatou 滝の直近 (5m 下流) の河床からの湧水 (オフィオライト岩盤の断裂系: 裂か水)

Babatou 滝 (Narra2) は、基盤岩はかんらん岩 (一部、ダナイト岩) 裂か水が湧出しており、Poonbato の状況と酷似している。また、この裂か水の湧水水路となっている断裂は、当地の北北西系の断裂系に支配されているものと考えられる。

Babatou 滝 (Narra2) の温泉水 (裂か水) の地球化学的特性は、pH: 10.45~10.56, ORP: -177~-260mV, Temp: 45.2~46.2°Cであった (表 2.5.7-2)。また、この裂か水 (湧水地点) の下流 (約 30m) の河川中でガスの発泡 (CH₄: 340~3,600 ppm) が計測された。この裂か水が見られる Babatou 滝の直近の露頭において分析用の採水を実施した (図 2.1 46)。



図 2.5.7-5 採水 (中)・水質および湧出ガス測定 (右): Narra2 (N09° 12' 32.7" ,E118° 17' 07.9" : Down stream from Babatou 滝)

3) Babatou 滝の北西部に位置する湧水（オフィオライト岩盤の断裂系に伴う裂か水で、その周辺に石灰華の随伴）

Babatou 滝の北西部に位置する採水地点（Narra3-1）については、破碎の進んだかんらん岩の断裂系から裂か水が湧出しており、周辺に石灰華（Travertine）が塊状に厚く（肉眼では20~30cm程度）沈積している。

Babatou 滝の北西部の裂か水の地球化学的特性は、pH: 11.1~11.2、ORP: -460~-414mV、Temp: 37.5~38.8°Cであった（表 2.5.7-3）。この湧水がみられる露頭において分析用の採水を実施した（図 2.5.7-6）。



図 2.5.7-6 採水・水質測定状況：Narra3-1 (N09° 12' 18.7" ,E118° 16' 46.0" : Crack water of Western Site from apart from Babatou Fall)

表 2.5.7-3 Narra 地区(Narra3-1~Narra4)現地水質測定結果（その2）

採水ポイント	Narra, Palawan						
	N09°12' 18.7" ,E118°16' 46.0" Crack water of Western Site from			N9°12' 13.1" ,E118°16' 50.6" Down Slope from Western Site, Narra			N09°13' 24.9" ,E118°16' 57.3" Creek side apart from Western Site, Narra
Classification	Crack Water			Crack Water			Crack Water
採取日	2014/8/11			2014/8/12			2014/8/12
Sample No.	Narra3-1			Narra3-2			Narra4サンプルなし()
分析	大林組	学芸大	北大	大林組	学芸大	北大	大林組
pH	11.11	11.22	11.11	10.86	10.93	10.86	*
Temp.(°C)	38.8	37.5	38.8	37.6	37	37.5	*
ORP(mV)	-460	-414	*	-108	-60	*	*
EC(mS/cm)	*	0.899	*	*	0.602	*	*
DO(mg/l)	*	0	*	*	0	*	*
CO2(mg/l)	*	*	*	*	*	*	*
バックテスト (ppm)	SiO ₂	0~5	*	*	*	*	*
	Cl	>50	*	*	*	*	*
	Al	0~0.07	*	*	*	*	*
	Ca	>50	*	*	*	*	*
	Mg	0	*	*	*	*	*
ガス濃度 (ppm)	H ₂	0	*	*	*	*	>700
	CH ₄	0	*	*	*	*	>5,000
備考							

4) Babatou 滝の下流(約 100m)に分布する石灰華の平坦地(Travertine Plain)の小川(Stream)

Narra3-1 の採水地点よりさらに南東へ訳 100m の位置 (Narra3-2) では、緩斜面の平坦な地に石灰華(下部には Pliocene の堆積物 <砂岩・頁岩など> 賦存の可能性) が分布しており、表層部で 2 つの小川の流れが確認された。

Narra3-2 の地下水(湧水した小川: 表層水)の地球化学的特性は、pH: 10.86~10.93、ORP: -108~-60mV、Temp: 37~37.6°Cであった(表 2.5.7-3)。この湧水がみられる露頭において分析用の採水を実施した(図 2.5.7-7)。



図 2.5.7-7 採水・水質測定状況: Narra3-2 (N09° 12' 13.1" ,E118° 16' 50.6" : Down Slope from Western Site)

5) Babatou 滝周辺のクリーク(沢状の川岸での高濃度のメタン・水素ガス: オフィオライト岩盤の断裂系)

Babatou 滝周辺のクリーク(Narra4)においては、増水で調査が川岸に限られた。川岸でのガス測定(図 2.5.7-8)の結果、メタン: 5000ppm 以上(オーバーレンジ)、水素: 700ppm 以上を示した(表 2.5.7-3)。



図 2.5.7-8 湧出ガス測定状況: Narra4 (N09° 13' 24.9" ,E118° 16' 57.3" : Creek side apart from Western Site, Narra)

(3) Dalrymple Point 地区周辺(西海岸の沿岸)

当地区では地下水の湧水は確認できなかった。

(4) Long Point～Quezon 地区周辺

当地区では地下水の湧水は確認できなかった。

(5) 地下水の地球化学的特性

Palawan 島中・南部地区で採取した各水試料の水質分析結果を現地で計測した水質パラメータと合わせて表 2.5.7-4～表 2.5.7-6 に示す。

雨季にも拘わらずオフィオライト中の断裂系に伴うほとんどの表層附近の Palawan 地区のアルカリ地下水(降雨水による希釈の影響大)は、pH と温度が高く、酸化還元電位が低い(還元性)。Palawan のアルカリ地下水は総じて Mg^{2+} 濃度が低く、 Ca^{2+} 濃度が高い蛇紋岩化作用に伴うアルカリ地下水の典型的な特徴を示す。

岩石・鉱物学的観点から、Palawan オフィオライトは、Zambales オフィオライトと比較して、より苦鉄質であることは、蛇紋岩作用が顕著であり、測定したような高アルカリ地下水が形成される十分な環境であることがいえる。

溶存イオンについて、微量成分については、Pinatubo 及び Palawan 島予察地区では、Ba 元素が 200～700ppb 程度含まれていたが、その他の元素類の水質にはあまり差がなかった(図 2.5.7-4)。

一方、主要成分については、pH を横軸にとって結果を図 2.5.7-9～図 2.5.7-22 に整理した。pH と溶存イオンとの相関について考察すると、図 2.5.7-9 及び図 2.5.7-21 から、 Na^+ と Cl^- 濃度は明確に pH と負の相関を示す($St. Lucia \geq Narra1 > Narra3$)。これは当アルカリ湧水サイトが海水(または化石海水)の影響を受けていることが原因と考えられ、 $St. Lucia$ が最もその影響が強い。

図 2.5.7-11 から、 Ca^{2+} 濃度は pH と正の相関があり($St. Lucia \approx Narra1 < Narra3-2 \ll Narra3-1$)、これは蛇紋岩化作用によるアルカリ地下水の形成過程で Ca^{2+} により pH が上昇したことを示す証拠である。また、図 2.5.7-16 から、 Si 濃度は pH と負の相関を示しているが($St. Lucia \leq Narra1 > Narra2 > Narra3$)、これはオフィオライト基盤岩の塩基性を示していると考えられ、オフィオライト中の超塩基性岩と天水との水-岩石反応による蛇紋岩化作用において、塩基性の高い(Si 濃度の低い) $Narra3$ が最も高 pH のアルカリ地下水の生成環境であることを示している。

また、 Mg^{2+} 濃度については(図 2.5.7-14)、 $Narra2$ を除き総じて濃度が低く、上述の通りこれも蛇紋岩化作用に伴うアルカリ地下水生成の特徴である。pH が高いにもかかわらず Mg^{2+} 濃度が高い $Narra2$ のアルカリ湧水は、 Na^+ や Cl^- の影響も小さいが、このような特徴をもつ理由として、まだ蛇紋岩化作用が進行中のアルカリ地下水である可能性が考えられる。一般的に、蛇紋岩化作用によるアルカリ地下水の生成過程においては、超塩基性岩中のかんらん石等の Mg が蛇紋岩化作用によって消費される(水滑石や蛇紋石の生成で Mg が溶液から固相に取られる)が、このサイトではそれが弱い(蛇紋岩化作用が進行中)ということが理由として考えられ、反応が進むと

より高 pH、低 Mg^{2+} の方向に進み Narra3-1 の地下水組成に近づくものと考えられる。

Zambales オフィオライトのアルカリ地下水と比較すると (表 2.5.7-7)、Bigbiga 地区の地下水のバルク組成から、Bigbiga の地下水は弱アルカリ性の地下水であるが、Palawan 島中・南部地区の地下水 (湧水) は pH が 9.59~11.22 と高かった。このような pH が高い地下水中には Ca^{2+} が多く含まれていたが、 Mg^{2+} に関しては Bigbiga 地区を除けば、ほとんど含まれていなかった。詳細にみると、 Ca^{2+} は、Bigbiga の DH10 孔試料が約 46ppm であったが、Palawan の Narra3-1 においても約 44ppm という同等な値を示していたのが特徴的であったが、全体的には、いずれの地区でも高めに推移していることが分かった。 Mg^{2+} は、Bigbiga や Palawan とともに地域によって含有量の変動していたが、最も高い DH10 孔や Nara-2 では 9~10ppm 程度を示しており、その他は少ない値を示していた。

Palawan 島中・南部地区では Cl^{-} イオン濃度が平均で約 55ppm 程度含まれており、特に、St Lusius では 140ppm と高めであった。また、Bigbiga 地区の SO_4^{2-} イオンが平均で約 35ppm であって、Palawan と比べると 10 倍程度高かった。

Palawan オフィオライトのアルカリ地下水では、最も pH の高い Narra3-1 が本体のアルカリ地下水 (表層水や海水との混合がない蛇紋岩化作用によるアルカリ地下水) の組成に近い特性をもつと考えられるが、これと Zambales オフィオライトのアルカリ地下水 (Poonbato) とを比較すると、 Ca^{2+} より Na^{+} 濃度の方が高い点異なるが、Narra3-1 も海水影響があることも考慮すると、本体のアルカリ地下水の組成は比較的近いものと推測される。

次に、表 2.5.7-8 に CFCs 濃度測定と滞留年代評価及び安定同位体比分析結果を示す。図 2.5.7-23 に安定同位体比の値を $\delta D - \delta^{18}O$ 図に既存データ (ルソン島で分析した Saile 鉱山、Manleluag 温泉保養地、Bigbiga 精査地区の試誰孔・井戸水、Poonbato の裂か水等) とフィリピンの天水曲線と合わせて示した。

この図から、Palawan 島の湧水は、ルソン島における天水起源から δD に富む傾向が見られる。これは化石海水の影響なのか、それとも、ルソン島固有の天水起源の環境同位体比の違いによるのかは明らかではない。今後の課題である。

また、CFC による地下水年代は 1960~1980 年と評価された。これも蛇紋岩化作用によるアルカリ地下水本体の滞留年代なのか、さらに検討が必要である。

表 2.5.7-4 地下水パラメータ・溶存イオン濃度測定結果 (Palawan 島中・南部地区、分析(B))

Collection Place	Narra-1	Narra-1	Narra-1	Narra-2	Narra-2	Narra-2	Narra-3	Narra-3	Narra-3
Temporary Number	P-41(N.W)	P-42(F.W)	P-43(A.W)	P-51(N.W)	P-52(F.W)	P-53(A.W)	P-61(N.W)	P-62(F.W)	P-63(A.W)
Na (ppb)	94499.65	104662.59	104622.35	34534.66	34186.65	36717.09	61587.69	61642.93	59601.83
Mg	4.63	9.08	16.63	10602.41	7035.92	23101.75	35.26	29.24	36.07
Al	297.74	433.72	1411.06	340.48	348.36	1266.11	1879.61	1789.68	1288.01
P	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	6.11	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.
K	917.07	1084.16	1375.86	1681.82	1664.51	2090.10	3409.78	3518.99	3166.71
Ca	2630.55	2951.28	3442.34	1535.90	1473.37	34847.40	44822.89	43992.53	47400.34
Sc	1.69	1.86	1.74	0.25	0.24	0.60	0.76	0.73	0.20
Ti	0.93	2.42	3.79	0.14	0.13	5.57	1.07	0.56	2.98
V	b.d.l.								
Cr	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	0.87	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.
Mn	b.d.l.	1.51	0.41	0.01	b.d.l.	3.98	0.70	0.18	0.36
Fe	b.d.l.	4.71	6.79	b.d.l.	b.d.l.	35.08	4.45	2.46	17.59
Co	0.00	0.07	0.02	0.01	0.01	0.18	0.05	0.04	0.05
Ni	0.06	0.13	0.60	0.15	0.17	1.58	0.19	0.38	0.63
Cu	0.11	0.17	b.d.l.	b.d.l.	0.04	0.68	0.36	0.67	0.62
Zn	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	0.54	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.
As	b.d.l.								
Rb	0.46	0.51	0.59	1.26	1.24	1.36	2.60	2.67	2.48
Sr	8.77	9.01	19.48	11.11	11.14	85.06	131.09	125.10	131.47
Y	0.00	0.03	0.06	0.00	0.00	0.12	0.02	0.01	0.07
Mo	0.36	0.41	0.39	0.11	0.11	0.20	0.17	0.16	0.14
Cd	0.00	0.01	0.01	b.d.l.	b.d.l.	0.01	0.00	0.00	0.00
Cs	0.01	0.01	0.01	0.05	0.05	0.07	0.09	0.09	0.09
Ba	121.86	142.44	740.82	354.59	371.89	731.14	687.78	611.45	710.53
La	0.00	0.03	0.04	0.00	0.00	0.08	0.02	0.01	0.04
Ce	b.d.l.	0.02	0.08	b.d.l.	b.d.l.	0.11	0.01	0.00	0.07
Pr	b.d.l.	0.01	0.01	b.d.l.	b.d.l.	0.02	0.00	0.00	0.01
Nd	0.00	0.02	0.04	0.00	b.d.l.	0.07	0.01	0.00	0.04
Sm	0.00	0.01	0.02	0.00	0.00	0.02	0.01	0.00	0.01
Eu	0.03	0.04	0.16	0.08	0.08	0.16	0.13	0.11	0.13
Gd	0.00	0.01	0.02	0.00	0.00	0.03	0.01	0.01	0.02
Tb	0.00	0.01	0.00	0.00	b.d.l.	0.01	0.00	0.00	0.00
Dy	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.01
Ho	b.d.l.	0.01	0.00	0.00	b.d.l.	0.01	0.00	0.00	0.00
Er	b.d.l.	0.01	0.01	b.d.l.	b.d.l.	0.02	0.00	0.00	0.01
Tm	b.d.l.	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00
Yb	b.d.l.	0.01	0.01	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.01
Lu	b.d.l.	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00
Pb	b.d.l.	0.06	5.67	b.d.l.	b.d.l.	32.47	0.05	b.d.l.	3.06
Th	0.00	0.01	0.03	0.00	b.d.l.	0.04	0.00	0.00	0.03
U	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.02	0.01	0.01	0.01

b.d.l.: below detection limit.

Collection Place	Narra-3.2	Narra-3.2	Narra-3.2	St Lueia	St Lueia	St Lueia
Temporary Number	P-71(N.W)	P-72(F.W)	P-73(A.W)	P-81(N.W)	P-82(F.W)	P-83(A.W)
Na (ppb)	63947.65	63993.10	61209.27	113712.42	115251.15	114224.49
Mg	157.42	125.32	562.91	73.62	75.66	20.61
Al	1345.58	1306.06	988.44	5.91	5.73	807.20
P	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.
K	3400.28	3473.08	3236.24	2920.04	3127.14	1221.58
Ca	8257.06	6884.52	16672.61	5189.45	5108.63	5312.73
Sc	0.58	0.53	0.18	1.16	1.12	0.98
Ti	0.35	0.75	3.09	0.80	0.71	1.85
V	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.
Cr	b.d.l.	b.d.l.	2.32	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.
Mn	b.d.l.	0.47	0.86	0.82	0.40	0.58
Fe	b.d.l.	1.90	29.82	1.41	b.d.l.	7.76
Co	0.01	0.04	0.09	0.08	0.09	0.04
Ni	0.19	0.35	2.47	2.12	2.36	2.34
Cu	0.35	0.38	0.51	4.27	6.40	0.07
Zn	b.d.l.	b.d.l.	0.46	188.97	246.29	16.60
As	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.
Rb	2.79	2.84	2.80	2.79	3.04	0.75
Sr	88.00	84.08	93.55	19.57	19.82	21.47
Y	0.00	0.01	0.06	0.00	0.00	0.04
Mo	0.20	0.41	0.28	0.34	0.36	0.21
Cd	b.d.l.	0.00	0.01	0.05	0.06	0.01
Cs	0.11	0.11	0.12	0.07	0.07	0.05
Ba	616.10	638.32	584.28	263.67	265.44	453.41
La	0.01	0.01	0.04	0.00	0.00	0.03
Ce	0.00	0.01	0.07	0.00	0.00	0.05
Pr	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01
Nd	0.00	0.01	0.03	0.00	0.00	0.03
Sm	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01
Eu	0.10	0.10	0.10	0.04	0.04	0.07
Gd	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01
Tb	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Dy	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01
Ho	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Er	b.d.l.	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01
Tm	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Yb	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01
Lu	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Pb	b.d.l.	b.d.l.	3.24	2.25	8.34	6.51
Th	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.01
U	0.00	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01

b.d.l.: below detection limit.

表 2.5.7-5 地下水パラメータ・溶存イオン濃度測定結果 (Palawan 島中・南部地区、分析(A)(B)(C)、その1)

採水ポイント	St. Lucia, Palawan						Narra, Palawan						Narra, Palawan						
	N09°42' 21.0" E118°41' 36.4" 50m St. Lucia						N09°10' 49.8" E118°15' 05.7" 29m San Isido, Palawan Narra						N09°12' 32.7" E118°17' 07.9" 58m Down stream from Babatou Fall, Narra						
Classification	Hot spring (Hot well)						Hot spring (Hot well)						Crack Water						
採取日	2014/8/10						2014/8/11						2014/8/11						
分析	(A)		(B)		(C)		(A)		(B)		(B)		(A)		(B)		(B)		
Sample No.	St. Lucia	St. Lucia+酸	P-81(N.W)	P-82(F.W)	P-83(A.W)	140810-1	Narra1	Narra1+酸	P-41(N.W)	P-42(F.W)	P-43(A.W)	140811-1	Narra2	Narra2+酸	P-51(N.W)	P-52(F.W)	P-53(A.W)	140811-1	
pH	9.50		9.59			9.47	10.45		10.52			10.66	10.45		10.56			10.47	
Temp.(C)	44.1		42.7			40.5	46.2		45.2			45.8	36.3		35.5			35.3	
ORP(mV)	-231		-215			*	-429		-302			*	-260		-177			*	
EC(mS/cm)	*		0.600			*	*		0.608			*	*		0.42			*	
DO(mg/l)	*		2.58			*	*		2.93			*	*		1.98			*	
CO ₂ (mg/l)	*		501.8			*	*		95.5			*	*		15.5			*	
カチオン濃度 (ppm)	Na	92.0	88.0	113.7	115.3	114.2	87.0	81.0	82.0	94.5	104.7	104.6	78.0	20.0	26.5	34.5	34.2	36.7	22.0
	K	0.86	0.86	2.92	3.13	1.22	0.73	0.99	1.04	0.92	1.08	1.38	0.73	1.49	1.34	1.68	1.67	2.09	1.10
	Ca	4.62	4.81	5.19	5.11	5.31	3.90	3.05	2.48	2.63	2.95	3.44	2.60	1.53	14.8	1.54	1.47	34.9	17.0
	Si	24.0	24.0	58.7	*	*	27.0	39.0	33.0	87.6	*	*	35.0	0.85	6.90	2.90	*	*	5.70
	Al	0.08	0.14	0.0059	0.0057	0.8072	0.06	0.28	0.33	0.30	0.43	1.41	0.23	<0.01	0.06	0.34	0.35	1.27	b.d.l
	Mn	<0.01	<0.01	0.0008	0.0004	0.0006	b.d.l	<0.01	<0.01	b.d.l	0.0002	0.4100	b.d.l	<0.01	<0.01	0.0000	b.d.l	0.0040	b.d.l
	Mg	0.01	0.01	0.0736	0.0757	0.0206	0.86	<0.01	0.01	0.0005	0.0009	0.0017	0.93	9.00	15.0	10.6	7.04	23.1	18.0
	Fe (2 ⁺ +3 ⁺)	<0.01	<0.01	0.0014	<0.0001	0.0078	b.d.l	<0.01	<0.01	b.d.l	0.0047	0.0060	b.d.l	<0.01	<0.01	b.d.l	b.d.l	0.0350	b.d.l
アニオン濃度 (ppm)	HCO ₃ ⁻	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	NO ₃ ⁻	0.03	0.01	<0.05	*	*	4.90	0.03	0.06	<0.05	*	15.0	0.03	0.10	<0.05	*	*	29.0	
	NO ₂ ⁻	0.08	840.0	0.28	*	*	b.d.l	0.09	8933	<0.05	*	*	b.d.l	1.04	8510	0.43	*	b.d.l	
	PO ₄ ³⁻	0.03	0.03	<0.5	*	*	b.d.l	0.02	<0.01	<0.5	*	*	b.d.l	0.03	0.05	<0.5	*	b.d.l	
	SO ₄ ²⁻	7.29	7.04	11.0	*	*	1.80	5.96	2.06	3.90	*	*	b.d.l	0.38	0.64	0.52	*	1.30	
	Cl ⁻	140.3	133.3	140.0	*	*	75.0	62.0	61.5	58.0	*	*	42.0	20.8	19.6	19.0	*	18.0	
	Br ⁻	0.38	0.39	0.45	*	*	<0.05	0.17	0.15	0.21	*	*	b.d.l	0.05	<0.01	0.08	*	b.d.l	
	F ⁻	0.08	0.07	<0.5	*	*	<0.5	0.04	<0.01	<0.5	*	*	b.d.l	<0.01	<0.01	>0.5	*	b.d.l	
Alkalinity	*	*	*	*	*	0.0007	*	*	*	*	*	0.0002	*	*	*	*	*	0.0002	
バックテスト (ppm)	SiO ₂	<5	*	*	*	*	>20	100~200	*	*	*	>20	5~10	*	*	*	*	20	
	Cl	>50	*	*	*	*	*	>50	*	*	*	*	>50	*	*	*	*	*	
	Al	0~0.05	*	*	*	*	*	0~0.05	*	*	*	*	0~0.05	*	*	*	*	*	
	Ca	10~20	*	*	*	*	*	5	*	*	*	*	5	*	*	*	*	*	
	Mg	0	*	*	*	*	<1	0	*	*	*	<1	2~5	*	*	*	*	10~20	
ガス濃度 (ppm)	H ₂	*	*	*	*	*	0	*	*	*	*	0	*	*	*	*	*	*	
	CH ₄	*	*	*	*	*	0	*	*	*	*	3,600	*	*	*	*	*		
備考		酸処理			酸処理			酸処理			酸処理			酸処理			酸処理		

表 2.5.7-6 地下水パラメータ・溶存イオン濃度測定結果 (Palawan 島中・南部地区、分析(A)(B)(C)、その2)

採水ポイント	Narra, Palawan										
	N09°12' 18.7" E118°16' 46.0" 74m Crack water of Western Site from apart from Babatou Fall, Narra					N09°12' 13.1" E118°16' 50.6" 57m Down Slope from Western Site, Narra					
	Classification	Crack Water					Crack Water				
採取日	2014/8/11					2014/8/12					
分析	(A)		(B)			(B)	(A)		(B)		
Sample No.	Narra3-1	Narra3-1+酸	P-61(N.W)	P-62(F.W)	P-63(A.W)	140812-1	Narra3-2	P-71(N.W)	P-72(F.W)	P-73(A.W)	
pH	11.11			11.22		11.11	10.86			10.93	
Temp.(°C)	38.8			37.5		38.8	37.6			37	
ORP(mV)	-460			-414		*	-108			-60	
EC(mS/cm)	*			0.899		*	*			0.602	
DO(mg/l)	*			0		*	*			0	
CO ₂ (mg/l)	*			0.5		*	*			261.2	
カチオン濃度 (ppm)	Na	53.6	39.0	61.6	61.6	59.6	40.0	*	63.9	64.0	61.2
	K	2.68	2.30	3.41	3.52	3.17	1.90	*	3.40	3.17	3.24
	Ca	32.4	41.9	44.8	44.0	47.4	31.0	*	8.26	6.89	17.0
	Si	0.60	0.77	1.10	*	*	0.48	*	1.70	*	*
	Al	0.10	0.16	1.88	1.79	1.29	b.d.l.	*	1.35	1.31	0.99
	Mn	<0.01	<0.01	0.0007	0.0002	0.0004	b.d.l.	*	b.d.l.	0.0005	0.0009
	Mg	0.02	0.20	0.04	0.03	0.04	1.40	*	0.16	0.13	0.56
	Fe (2 ⁺ +3 ⁺)	<0.01	0.17	0.0045	0.0025	0.0176	b.d.l.	*	b.d.l.	0.0019	0.0298
アニオン濃度 (ppm)	HCO ₃ ⁻	*	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	NO ₂ ⁻	0.02	0.13	<0.05	*	*	75.0	*	<0.05	*	*
	NO ₃ ⁻	0.03	8844	<0.05	*	*	b.d.l.	*	0.13	*	*
	PO ₄ ³⁻	0.03	0.05	<0.5	*	*	b.d.l.	*	<0.5	*	*
	SO ₄ ²⁻	0.14	0.39	0.12	*	*	b.d.l.	*	0.47	*	*
	Cl ⁻	30.8	29.4	27.0	*	*	15.0	*	30.0	*	*
	Br ⁻	0.08	<0.01	0.10	*	*	b.d.l.	*	0.11	*	*
	F ⁻	<0.01	<0.01	<0.5	*	*	b.d.l.	*	>0.5	*	*
Alkalinity	*	*	*	*	*	0.0002	*	*	*	*	
バックテスト (ppm)	SiO ₂	0~5	*	*	*	*	1	*	*	*	*
	Cl	>50	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	Al	0~0.07	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	Ca	>50	*	*	*	*	*	*	*	*	*
	Mg	0	*	*	*	*	*	<1	*	*	*
ガス濃度 (ppm)	H ₂	0			*			*		*	
	CH ₄	0			*			*		*	
備考			酸処理			酸処理				酸処理	

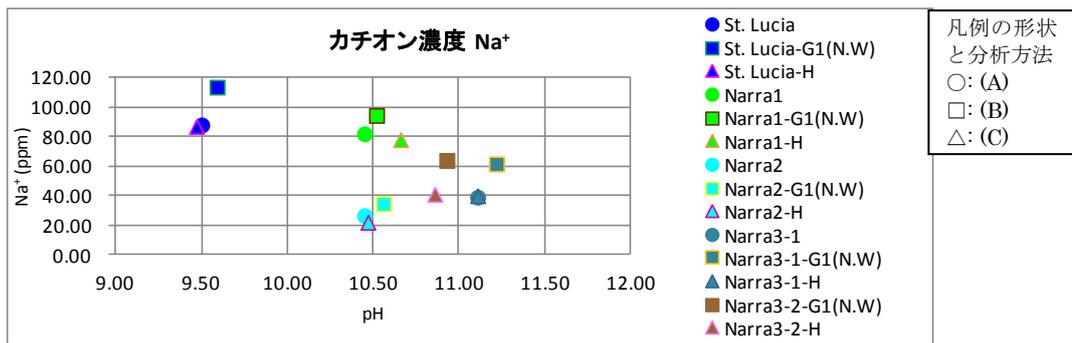


図 2.5.7-9 Palawan のアルカリ湧水の pH-Na⁺濃度関係図

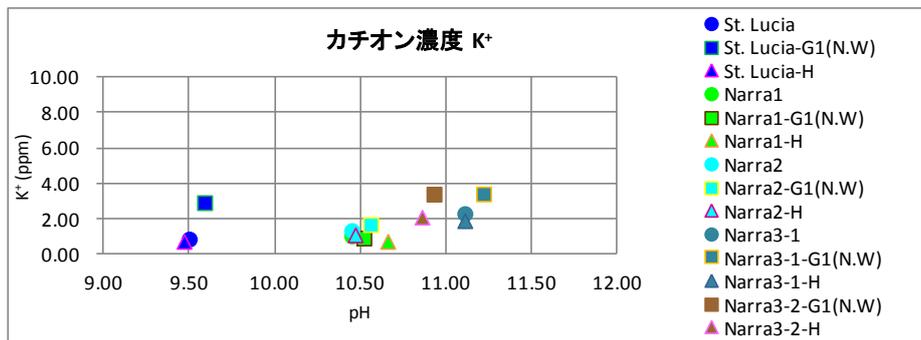


図 2.5.7-10 Palawan のアルカリ湧水の pH-K⁺濃度関係図

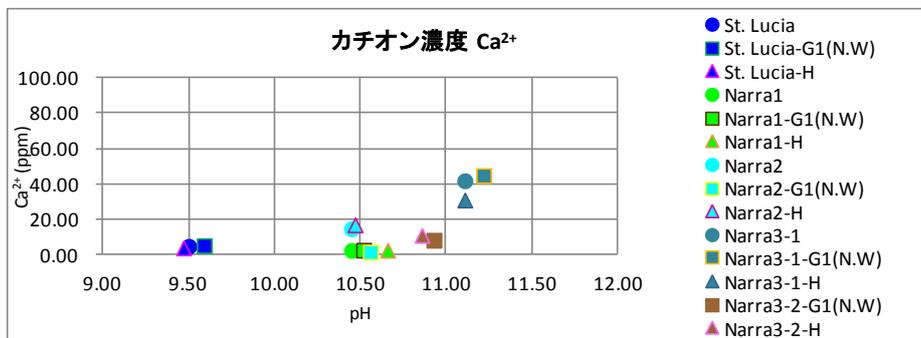


図 2.5.7-11 Palawan のアルカリ湧水の pH-Ca²⁺濃度関係図

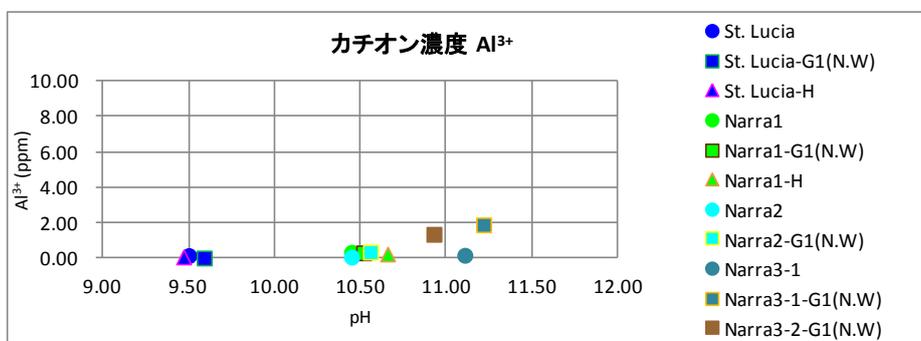


図 2.5.7-12 Palawan のアルカリ湧水の pH-Al³⁺濃度関係図

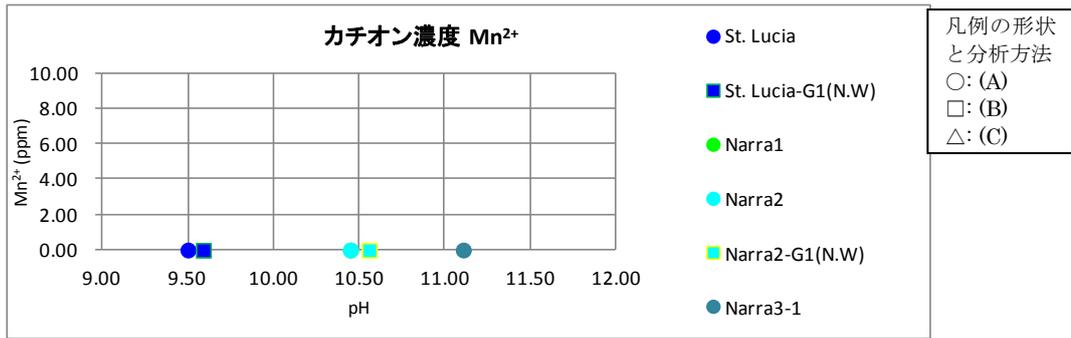


図 2.5.7-13 Palawan のアルカリ湧水の pH- Mn^{2+} 濃度関係図

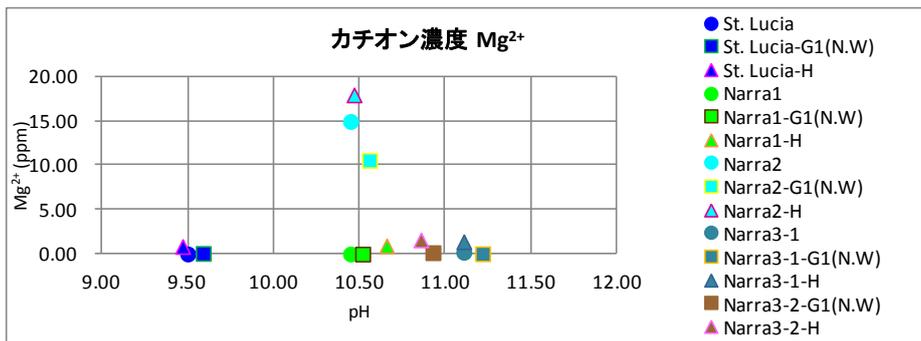


図 2.5.7-14 Palawan のアルカリ湧水の pH- Mg^{2+} 濃度関係図

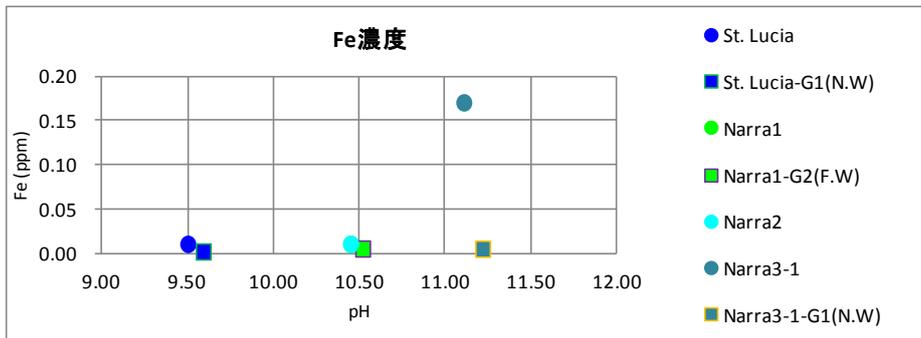


図 2.5.7-15 Palawan のアルカリ湧水の pH-Fe 濃度関係図

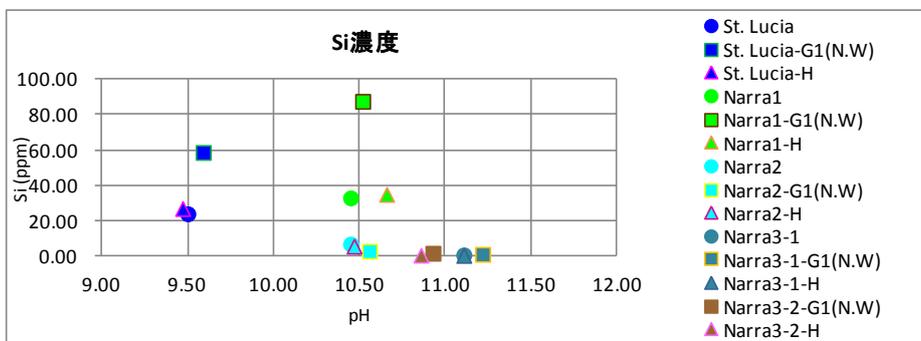


図 2.5.7-16 Palawan のアルカリ湧水の pH-Si 濃度関係図

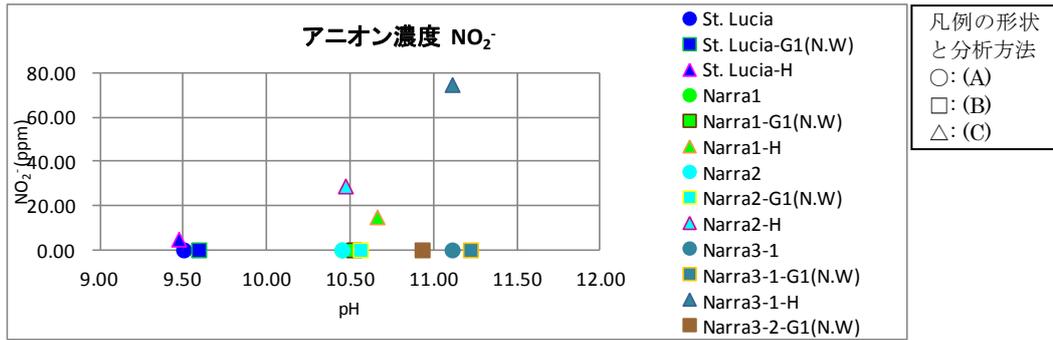


図 2.5.7-17 Palawan のアルカリ湧水の pH-NO₂⁻濃度関係図

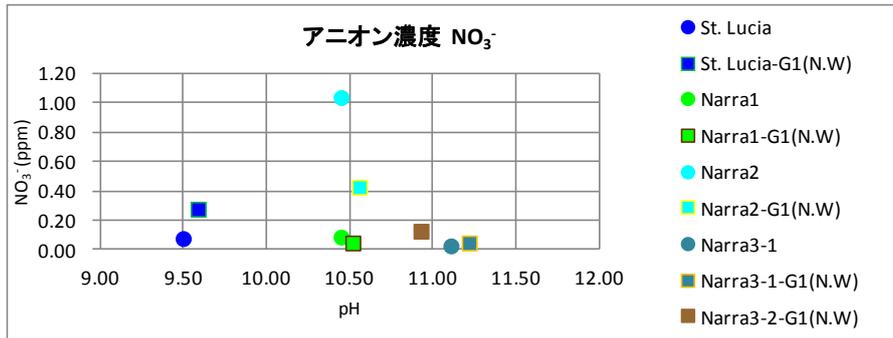


図 2.5.7-18 Palawan のアルカリ湧水の pH-NO₃⁻濃度関係図

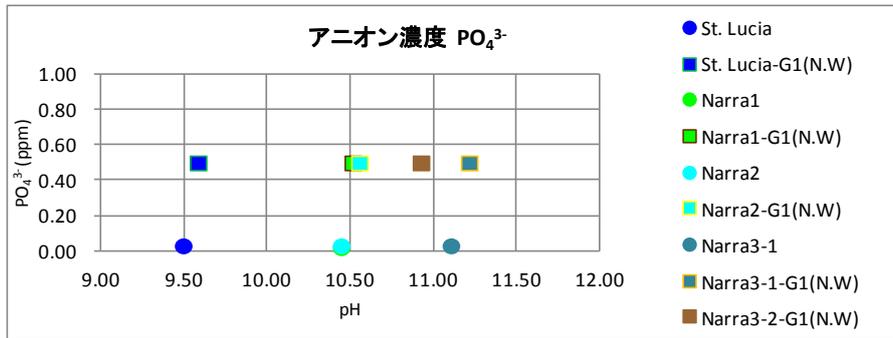


図 2.5.7-19 Palawan のアルカリ湧水の pH-PO₄³⁻濃度関係図

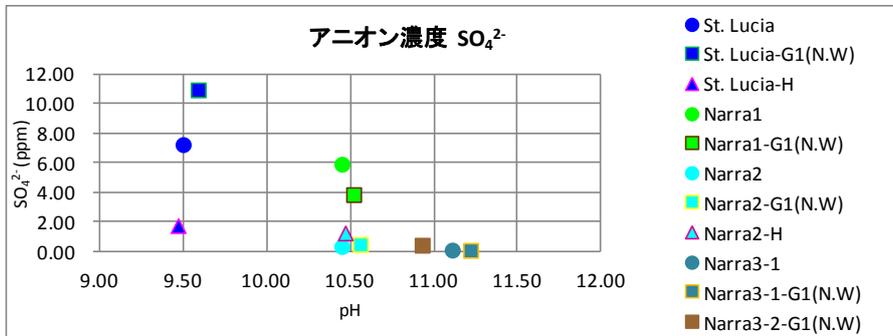


図 2.5.7-20 Palawan のアルカリ湧水の pH-SO₄²⁻濃度関係図

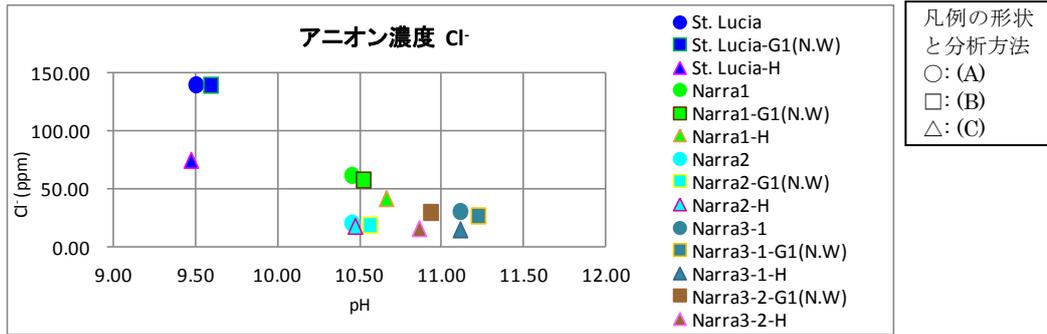


図 2.5.7-21 Palawan のアルカリ湧水の pH-Cl濃度関係図

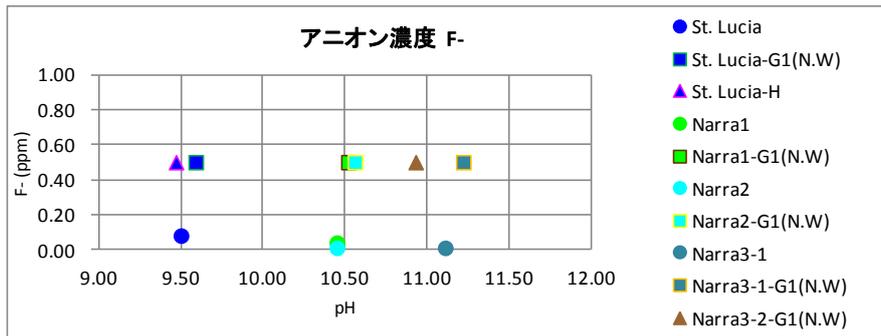


図 2.5.7-22 Palawan のアルカリ湧水の pH-F濃度関係図

表 2.5.7-7 Palawan と Zambales のアルカリ地下水の地球化学的特性の比較

Site	Poonbato	Manleluag HSp. - M1	Bigbiga Well-1	Bigbiga Well-3	Bigbiga DH10	Palawan Narra-1	Palawan Narra-2	Palawan Narra-3.1	Palawan Narra-3.2	Palawan St. Lucia	low alkali cement leachates (PNC 1997)*
Sample No.	PB-10-KWP-01	M1-11-KWP-01	P-22	P-32	P-32	P-42	P-52	P-62	P-72	P-82	
pH	11.62	10.84	9.52	8.93	7.91	10.52	10.56	11.22	10.93	9.59	11.09
ORP(Eh) [mV]	27.6	-662	8	40	55	-302	-177	-414	-60	-215	-
Temp [°C]	27.6	34.1	29.2	27.8	28.6	45.2	35.5	37.5	37.0	42.7	60
CH ₄ [ppm]	>5000	>5000	0 (0~560)	0	0	0	340~3600	0	0 (>5000)	-	-
H ₂ [ppm]	50~1320	62	0 (0~130)	0	0	0	0	0	0 (>700)	-	-
Na ⁺ [ppm]	23.6	1.58	100.6	131.5	94.35	104.7	34.2	61.6	64.0	115.3	43
K ⁺ [ppm]	6.85	0.28	1.05	1.62	3.07	1.08	1.66	3.52	3.47	3.13	13
Ca ²⁺ [ppm]	37.4	23.6	1.34	8.43	1.28	2.95	1.47	44.0	6.88	5.19	16.8
Mg ²⁺ [ppm]	0	0.17	0.06	1.05	7.14	0.01	7.04	0.03	0.13	0.08	-
Si ²⁺ [ppm]	1.40	11.5	72.3	6.00	35.1	87.6	2.9	1.1	1.7	58.7	
Al ³⁺ [ppm]	0	20.3	0.01	0.04	0.45	0.43	0.35	1.79	1.31	0.01	0.3
Cl ⁻ [ppm]	-	16.6	4.50	20.0	17.0	58.0	19.0	27.0	30.0	140.0	-
SO ₄ ²⁻ [ppm]	-	-	48.0	34.0	22.0	3.90	0.52	0.12	0.47	11.0	-
HCO ₃ ⁻ [ppm]	124.1	73.5	135.6	0.3	12.9	95.5	15.5	0.5	261.2	501.8	-

表 2.5.7-8 CFC 年代と安定同位体比

Name of the Official Sample	CFC Value (ppb)			$\delta^{18}\text{O}$	δD	d-excess	The Cultivation Generation		
	CFC-11	CFC-12	CFC-113				%	CFC-11	CFC-12
Bigbiga Area	48	127	13	-8.5	-46.2	6.1	1985	1967	1981
Bigbiga Area	80	67	10	-8.1	-54.5	10.3	1974	1970	1979
Bigbiga Area	-	-	-	-6.8	-47.8	6.8			
Palawan Area	48	31	6	-7.5	-45.1	15.1	1967	1967	1976
Palawan Area	128	72	15	-7.1	-42.9	13.9	1975	1973	1982
Palawan Area	46	20	7	-7.4	44.2	14.8	1964	1966	1977
Palawan Area	126	90	12	-6.2	-39	10.8	1978	1973	1980
Palawan Area	151	137	20	-6.6	-42.1	10.5	1986	1975	1984

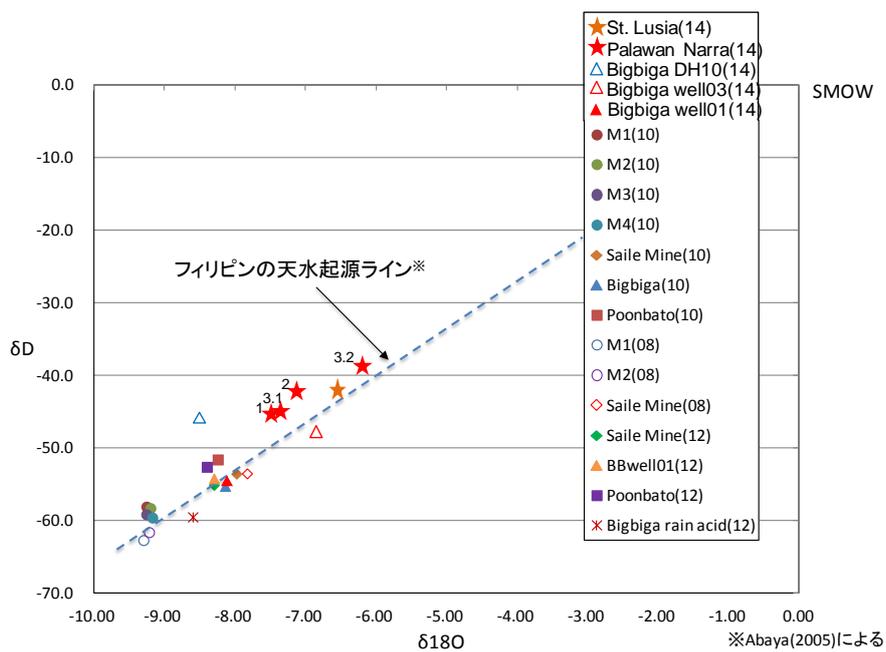


図 2.5.7-23 フィリピンの地下水の $\delta\text{D}-\delta^{18}\text{O}$ プロット図

2.6 まとめと今後の調査計画

今年度の主要な調査目的の一つである「Active Type」のナチュラルアナログサイト選定のために、図 2.6.1-1 に示す 3 地区（①Bigbiga 地区、②Pinatub 地区、③Palawan 島の中央部・南部地区）で精査・概査・予察を実施した。

その内、①Bigbiga 地区での調査については、地質精査（ルートマッピング）、トレンチ調査、地上物理探査、（TEM 法比抵抗探査）、試誰調査（これまでに 10 地点で試誰実施）および、地下水の地球化学的調査（環境同位体測定）、岩石鉱物学的調査などによる精査を実施している。

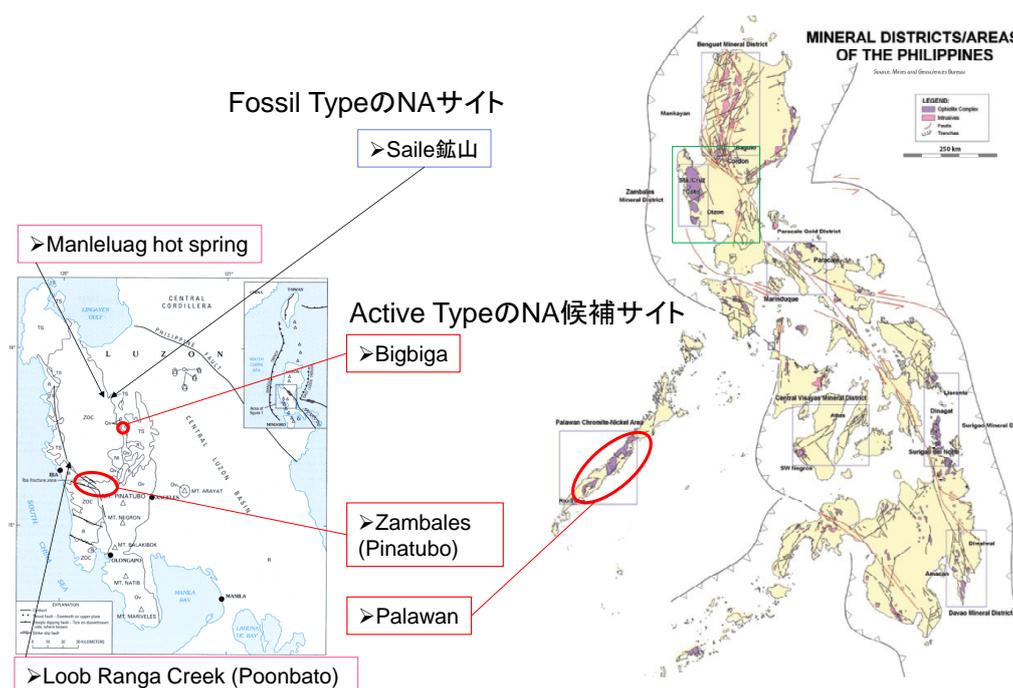


図 2.6.1-1 フィリピンナチュラルアナログの調査サイト

②Pinatubo 地区においては、Zambales 州都 Botolan 市北東約 4Km に位置する Loob Bunga Creek 川岸（呼称 Poonbato 地区）に沿って広く露出する Zambales オフィオライト（主に、かんらん岩（斜方輝石かんらん岩・ダナイト岩）などの超塩基性岩）の断裂系に伴う高アルカリ湧水（裂か水：pH 11.7）を対象にした地球化学的調査と、湧水が賦存する母岩の岩石鉱物学的調査などによる概査を実施してきた。

一方、③Palawan 島においては、平成 20 年に、Palawan 島の東海岸に位置する Narra 地区とその南方にある Brooke's Points 周辺に露出する Palawan オフィオライトに伴う高アルカリ裂か水（一部、温泉水）を対象に、予備的な地球化学的調査が実施されている[50]。今年度は、主に、高アルカリ地下水の賦存状況とその地球化学的調査および、岩石鉱物学的調査による予察を実施した。

なお、上記 3 地区（①Bigbiga 精査地区< Saile 鉱山>、②Pinatubo 概査地区、③Palawan 島

予察地区)を対象に、「Active Type」のナチュラルアナログ・ポテンシャルサイトとしての成立性(サイト選定)に好都合なサイト(コンタクト部<露頭>)の模試地質断面図に基づく概念図を図 2.6.1-2 に示す。また、これまでの精査地区、概査地区と予察地区での調査結果および、関連文献調査などにより、それぞれの地区における地質環境要素(母岩と地下水)について表 2.6.1-1 に示す。図 2.6.1-2 には参考のために、Saile ベントナイトー沸石鉱山周辺地区で実施した「Fossil type」の概念図をも添付する。

今年度は、他の 2 地区での概査・予察段階のものとは比べ精査段階にある Bigbiga 地区において、これまでのデータ・知見などを総合的に検討し、「Active Type」のナチュラルアナログサイトとしての成立性(サイト選定)の最終評価を実施した。

成立性の検討・評価に不可欠な基本要件は、前述の 2.3.3 で示しているように、下記の 3 要件である。

- ① 現在も湧水する高アルカリ性地下水 ($10 < \text{pH} < 12$ 程度) の存在
- ② 対象地層となるモンモリロナイトに富むベントナイト層または、ベントナイト質堆積物(一部タービダイト層の泥岩・砂岩、火山性碎屑物、粘土層などに含有するモンモリロナイトの存在)の分布
- ③ 高アルカリ性地下水の流路となる断裂系の高アルカリ性地下水の形成・貯留場から調査対象層としている②への可能な限り直接的な連結

従って、好都合なサイトは、上記 3 要件が満たされる会合部(コンタクト部)の露頭が確認できるサイトである。

図 2.6.1-2 及び表 2.6.1-1 に示すように、高アルカリ性地下水の起源は、ほぼ同時代に定置されたオフィオライト複合岩体中の超塩基性岩(母岩)と天水起源の地下水との相互作用により生成されたものと考えられる。そのために、Pinatubo 地区と Palawan 島中・南部地区の地下水は、母岩が超塩基性岩との相互作用の結果、高アルカリ性地下水 ($10 < \text{pH} < 12$) が確認されたが、Bigbiga 地区の地下水は、母岩が塩基性岩である枕状玄武岩質溶岩あるいは、自破碎玄武岩質溶岩のために低アルカリ性 ($9 < \text{pH} < 10$) の地下水である。このように地下水の pH の値は、岩石の塩基性 (SiO_2 含有量が低く、苦鉄質鉱物<かんらん石・輝石類>が多い)への依存性が強いために、高アルカリ性地下水の生成・貯留場が深部(中核部)になるということになる。このことは、一般的に、オフィオライトを構成する岩石は深部に行くにつれて塩基性を増し、超塩基性岩で構成されていることに整合的である。

また、これらの高アルカリ地下水は、すべて断裂系に伴う裂か水である。このことは、基盤岩であるオフィオライト中の断裂系を流路として湧水していることを意味する。

一方、対象地層の分布については、Bigbiga 精査地区においては、薄層ではあるが、淡褐色の凝灰質砂岩～泥岩の分布が確認され、モンモリロナイトの産状が観察される。

Pinatubo 地区における対象地層としては、Pinatubo の火山活動により噴出・流出・堆積(再堆積)などにより形成された火山性碎屑物・火砕流堆積物・降下火砕堆積物の凝灰質などの地層である。これらの堆積物はベントナイト化(粘土化)し易い特性があるから有望な堆積物となり得る。さらに、Tarlac 累層(漸新世～中新世)の凝灰岩質堆積岩も有望な対象地層である。

Palawan 島中・南部地区における対象地層としては、Panas 累層（始新世）と Panadian 累層（漸新世）などが有望である。これらの地層は、遠洋性堆積物で、一部、タービダイト層を伴う泥岩・砂岩が優勢であり、部分的ではあるが、モンモリロナイトを含有する可能性の高い凝灰質堆積物が挟在しているため、有望な地層になり得るものと考えている。

また、高アルカリ地下水の湧出部に良く発達する石灰華(Travertine)の下位に粘土や土壌層などが観察され、今後の対象地層の堆積物として検討することが必要である。

しかしながら、今年度の概査・予察地区であった上記 2 地区（Pinatubo 地区、Palawan 島中・南部地区）については、特に、前者は雨季による増水のために、河川・沢に露出する対象地層と高アルカリ地下水の湧出地点の探査を実施することが出来なかった。

また、後者については、高アルカリ地下水の地球化学的調査などが出来たが、対象地層の探査は、同様に雨季のための増水やアクセス道路の悪条件のために実施することが出来なかった。これらは来年度調査の主要な課題になった。

以上の調査結果や文献調査などから、「Active Type」のナチュラルアナログサイトとしての検討については、現状での相対的評価のための判断程度を表 2.6.1-1 に示す。

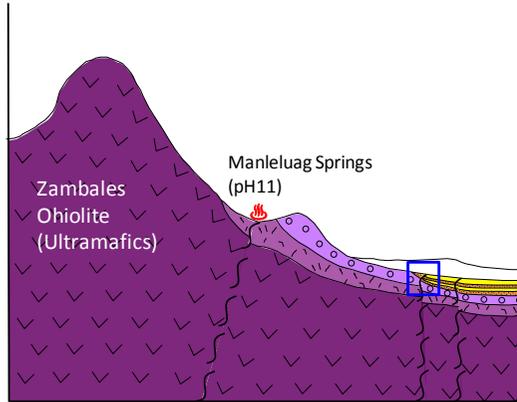
表 2.6.1-1 に示した Bigbiga 精査地区のナチュラルアナログサイトとしての成立性については、前述した基本要件に沿って検討した。最初に、基本要件である①高アルカリ性地下水 ($11 < \text{pH} < 12$) の存在が期待できないことと、②モンモリロナイトを多く含むベントナイト層またはベントナイト質堆積物（層）の分布が極めて限定されていること、そして、①と②が同時成立する露頭（コンタクト部）が唯一基盤岩直上に限定されるために、そのコンタクト部が、深部になることが懸念される（トレンチ調査レベルでの立体的な観察が出来ない。特に、アルカリ性地下水のベントナイト層へ浸出<アルカリブルーム>プロセスの観察が難しい）。

以上の 3 要件による検討結果、サイトとしての成立性において十分な地質環境条件を満足するには、限界があるとの評価により、今年度でフィールドでの調査は終了することにする。

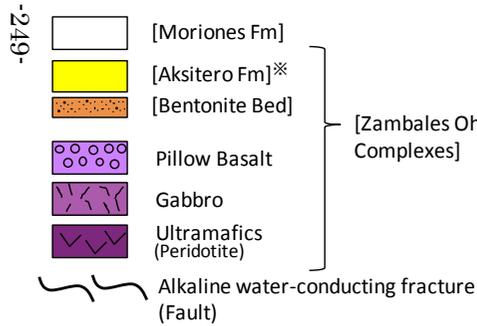
なお、低アルカリ地下水環境下でのベントナイト質堆積物の変質反応については、多くのデータ・知見などが得られた。これらは第 3 章にまとめる。

今後は、この 2 地区（(i)Pinatubo 地区、(ii)Palawan 島）に対しては、十分な調査が出来なかったことを考慮して、次年度の調査課題として、基本要件の②対象地層に対する地質・岩石鉱物学的調査を実施することが不可欠である。そのためには、事前調査や文献調査にもとづいて、調査地域（調査ルートや地域）を選定し、集中的な地質調査をする必要がある。さらに、対象地層の分布、層序・岩質・堆積環境、深度等の情報をできるだけ把握した上で、特に高アルカリ地下水の存在を確認した（表 2.6.1-1 の①アルカリ地下水の存在 ($\text{pH}10\sim12$) で◎と評価した）(ii)Palawan 島を対象として、高アルカリ地下水の湧水周辺でのトレンチ調査などを実施し、“Active Type”のポテンシャルサイトの検討・評価のための基本要件に関する十分なデータ・知見などを取得することが必要である。

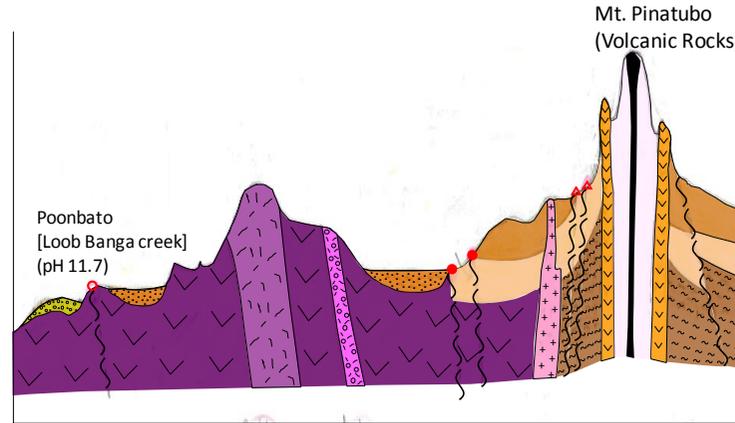
Luzon Island
(Saile bentonite-zolite Deposit)



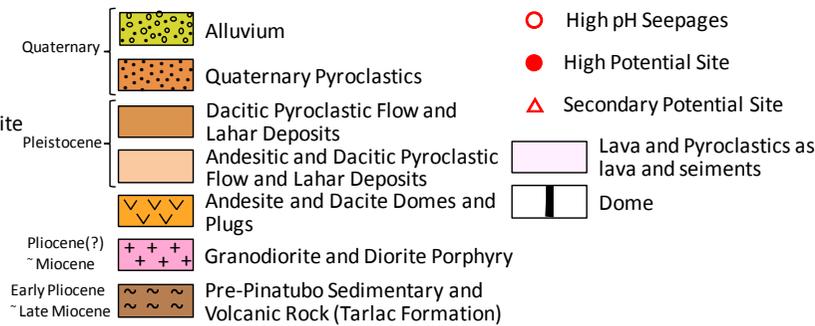
Fossil Type



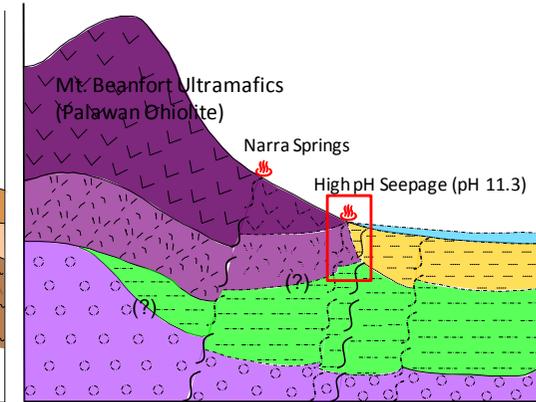
Luzon Island
(Mt. Pinatubo Area <Poonbato high pH seepage>)



Active Type



Palawan Island
(Narra area of central Palawan)



Active Type



* Pelagic Sediments as a part of Turbideite indicating target of investigation for NA

図 2.6.1-2 ナチュラルアナログサイトとしての模式地質断面の概念図

表 2.6.1-1 ナチュラルアナログサイトの地質・地下水の地球化学的特性と現状

調査サイト		ルソン島			パラワン島
		Saile鉱山周辺	Bigbiga地区	Pinatubo地区	Palawan島の中央部・南部地区 (Narra地区)
NAタイプ		Fossil Type	Active Type		
1. 地質	基盤岩	Zambales Ophiolite [44~45Ma*]			Palawan Ophiolite [43.8Ma**]
	定置	タイプ	上部地殻－沈み込み帯		
		時期	海底地殻		中国(南部)の大陸地殻
	対象層	始新世(Eocene)		後期白亜紀～始新世	
		Aksitero累層(遠洋性堆積物)		火山砕屑物・火砕流堆積物・ 降下火砕堆積物(鮮新世) Tarlac累層(漸新世・中新世)	Panadian累層(鮮新世) Panas累層(始新世)
ベントナイト層 (Saileベントナイト・沸石鉱床)		淡褐色石灰質・凝灰質砂岩・泥岩	凝灰質堆積物 (ベントナイト質堆積物)	遠洋性堆積物(一部タービタイト) 泥岩・シルト岩、一部凝灰質砂岩	
2. 地下水 (湧水)	賦存状況	裂隙水(温水の湧出:オフィオライト-地下水の相互作用)			
	pH	Manleluag Springs(低温)	湧水井戸(低温)	Loob Banga Creek(低温)	Narra springs(高温)
		~11	~9.3	~11.7	~11.3
	水質	Mg ²⁺ , Cl ⁻ が低く、Ca ²⁺ が高い			Mg ²⁺ が低く、Cl ⁻ , NO ₂ ⁻ , Ca ²⁺ がやや高く、Na ⁺ が高い
		Ca ²⁺ -OH型	Na ⁺ (Ca ²⁺)-HCO ₃ ⁻ 型	Ca ²⁺ -OH型	Ca ²⁺ -OH型
母岩	細粒斑レイ岩	枕状玄武岩質溶岩 (自破碎玄武岩質溶岩)	超塩基性岩(かんらん岩・ダナイト・ハルツバージャイト)	超塩基性岩(かんらん岩・ダナイト・斑れい岩)・枕状玄武岩	
サイトの 成立性	①高アルカリ地下水の存在 (pH10~12)	○	×	○	◎
	①対象地層の分布	◎	○ (薄層)	○	○
	①高アルカリ地下水の流路(断裂系の存在)	◎	◎	◎	◎
	①コンタクトの確認 (①, ②, ③の会合部)	△	△	○	○

*ジルコンのU-Pb法(Encarnación., 2004), **全岩のK-Ar法(Fuller et al., 1991)

【相対的評価のための判断程度】

◎(十分満足する)

○(満足する)

○(今年度未調査、今後の課題)

△(現時点での判断が難しい)

×(満足しない)

[参考文献]

- [1] Alexander, W.R., Mckinley, I.G., Arcilla, C.A., Takahashi, Y., Kawamura, H., Yamakawa, M. and Aoki, K.: Hyperalkaline natural analogue potential in the Philippines. Proc. 2008. East Asia Forum on Radwaste Management Conference (2008 EAFORM, 2nd conference), 20-23 (2008).
- [2] Barnes, I., and O'Neil, J.R.O.: The relationship between fluid in some fresh Alpine-type ultramafics and possible modern serpentinization, western United States. Geol. Soc. Amer. Bull. 80, 1947-1960 (1969).
- [3] Marques, J.M., Carreira, P.M., Carvalho, M.R., Matias, M.J., Goff, F.B., Basto, M.J., Graca, R.C., Aires-Barros, J. and Rocha, L.: Origin of high pH mineral water from ultramafic rocks, Central Portugal. Appl. Geochem. 23, 3278-3289 (2008).
- [4] Power, I.M., Wilson, S.A. and Dipple, G.M.: Serpentinite carbonate for CO₂ sequestration. Elements 9, 115-121 (2013).
- [5] Evans, B.W., Hattori, K. and Baronnet, A.: Serpentinite: what, why, where? Elements 9, 99-110 (2013).
- [6] Walker, D.: Lunar and Terrestrial Formation. Jour. Geophysics, Res., 88, Suppl. B17-B25 (1983).
- [7] Nakada, R. Takahashi, Y. and Tanimizu, M.: Isotopic and speciation study on Cerium during its solid-water distribution with implication for Ce stable isotope as a paleo-redox proxy. Geochim. Cosmochim. Acta, 103, 49-62 (2013).
- [8] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 25 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書 (第 3 分冊) - ナチュラルアナログ調査 - (2014).
- [9] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 24 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 報告書 (第 3 分冊) - 多重バリアの長期安定性に関する基礎情報の収集及び整備 - (2013).
- [10] Corby G.W., and others: Geology and oil possibilities of the Philippines. Republic of the Philippines: Department of Agriculture and Natural Resources, Technical Bulletin 21, 363 (1951).
- [11] Roque, V.P., Jr., Reyes, B.P., and Gonzales, B.A.: Report on the comparative stratigraphy of the east and west of the mid-Luzon Central Valley, Philippines. Mineral Engineering Magazine, Philippine Society of Mining, Metallurgical, and Geological Engineers, 24, 11-62 (1972).
- [12] de Boer, J., Odom, L.A., Ragland, R.C., Snider, F.G., and Tilford, N.R.: The Bataan orogene: Eastward subduction, tectonic rotations, and volcanism in the western Pacific (Philippines). Tectonophysics, 67(3-4), 251-282 (1980).
- [13] Philippine Bureau of Mines and Geosciences: Geological map of the Sta. Juliana quadrangle, Tarlac province: 1:50,000, 1 sheet (1982).
- [14] Hawkins, J.W., and Evans, C.A.: Geology of the Zambales Range, Luzon, Philippine Islands: Ophiolite derived from an island arc-back arc basin pair, in Hayes, D.E., ed., The tectonic and geologic evolution of Southeast Asian seas and islands, part 2: American Geophysical Union Monograph, 27, 95-123 (1983).
- [15] Schweller, W.J., Karig, D.E., and Bachman, S.B.: Original setting and emplacement history of the Zambales ophiolite, Luzon, Philippines, from stratigraphic evidence, in Hayes, D.E., ed., The tectonic and geologic evolution of Southeast Asian seas and islands, part 2: American Geophysical Union Monograph, 27, 124-138 (1983).
- [16] Delfin Jr., F.G.: Geology of the Mt. Pinatubo geothermal project. Philippine National Oil Company, unpublished report, 35, plus figures (1983).
- [17] Delfin Jr., F.G.: Geology and geothermal potential of Mt. Pinatubo. Philippine National Oil Company, unpublished report, 36 (1984).
- [18] Delfin Jr., F.G., Sussman, D., Ruaya, J.R., and Reyes, A.G.: Hazard assessment of the Pinatubo volcanic-geothermal system. Clues prior to the June 15, 1991 eruption: Geothermal Resources Council, Transactions, 16, 519-527 (1992).
- [19] Villones, R.: The Aksitero Formation: Its implications and relationship with respect to the

Zambales ophiolite. Philippine Bureau of Mines and Geosciences, Technical Information Series, no. 16-80, 21 (1980).

[20] Aniceto-Villarosa, H.G., Lapuz, R.G., and Pagado, E.S.: Geology and petrology of well PIN-1. Philippine National Oil Company, unpublished report, 23 (1989).

[19] Datuin, R.: An insight on Quaternary volcanoes and volcanic rocks of the Philippines. *Journal of the Geological Society of the Philippines*, **36**, 1 (1982).

[20] Yumul Jr., G.P. and Dimalanta, C.B.: Geology of the Southern Zambales Ophiolite Complex (Philippines): Juxtaposed Terrains of Diverse Origin. *Jour. of Asian Earth Sciences*, **15**, 413-21 (1997).

[21] Salapare, R.C., Dimalanta, C.B., Eslava, D.V., Queano, K.L., Ramos, N.T., Manalo, P.C., Padrones, J.T., Marquez, E.J. and Yumul, G.P.Jr.: Subsurface characterization using gravity and magnetic data: Implications for the post-emplacement history of the Zambales Ophiolite Complex, Philippines. Proc. Geocon 2013 Conference, December 3-4, 2013, Geological Society of the Philippines, Manila, Philippines (2013).

[22] Newhall, C.G., Daag, A.S., Delfin Jr., F.G., Hoblitt, R.P., McGeehin, J., Pallister J.S., Regalado, Ma.T.M., Rubin, M., Tubianosa, B.S., Tamayo Jr., R.A. and Umbal, J.V.: Eruptive history of Mount Pinatubo. in NEWHALL, C.G. and PUNONGBAYAN, R.G. (eds.) (1996) "FIRE AND MUD: ERUPTIONS AND LAHARS OF MOUNT PINATUBO, PHILIPPINES", Philippine Institute of Volcanology and Seismology (PHILVOLCS) / USGS / University of Washington Press (1996).

[23] Walia M., Knittel U., Suzuki, S., Chung, S.L., Pena, R.E. and Yang, T.F.: No Paleozoic metamorphics in Palawan (the Philippines?) Evidence from single grain U-Pb dating of detrital zircons. *Jour. of Asian Earth Sciences*, **52**, 134-145 (2012).

[24] Steuer, S., Franke, D., Meresse, F., Savva, D., Pubellier, M., Mouly, B., Aurelio, M. and Auxietre, J.-L.: Time Constraints on the Southern Palawan Island, Philippines from an On- and Offshore Correlation of the Miocene Limestones. *Jour. of Asian Earth Sciences*, **76**, 412-427 (2013).

[25] Aurelio, M.A., Forbes, M., Taguibao, K.J.L., Savella, R., Bacud, J.A., Franke, D., Pubellier, M., Savva, D., Meresse, F., Steuer, S. & Carranza, C.: Middle to Late Cenozoic tectonic events in south and central Palawan (Philippines) and their implications to the evolution of the southeastern margin of South China Sea: Evidence from onshore structural and offshore seismic data. *Marine and Petroleum Geology*, doi:10.1016/j.marpetgeo. 2013.12.002 (2013).

[26] Yumul Jr., G.P., Dimalanta, C.B., Maglambayan.: Tectonic setting of a composite terrain: a review of the Philippine island arc system. *Geosci. J.*, **12**, 7 (2008).

[27] Hamilton, W.: Tectonics of the Indonesian region. U S Geological Survey, Professional Paper, no. 1078, 1-345, USGS, Renton, USA. (1979).

[28] Holloway, N.: North Palawan block—its relation to Asian mainland and role in evolution of South China Sea. *American Association of Petroleum Geologists Bulletin*, **66**, 1355–1383 (1982).

[29] Gervacio, F.C.: Age and nature of orogenesis in the Philippines. *Journal of the Geological Society of the Philippines*, 1-19 (1966).

[30] MGB (Mines and Geosciences Bureau, Philippines): Geology of the Philippines. Quezon City: Mines and Geosciences Bureau, Manila, Philippines. (2010).

[31] Suggate, S.M., Cottam, M.A., Hall, R., Sevastjanova, I., Forster, M., White, L.T., Armstrong, R.A., Carter, A., Mojare, E.: South China continental margin signature for sandstones and granites from Palawan, Philippines. *Gondwana Research*, **26**, 699-718 (2013)

[32] Yumul Jr., G.P., Dimalanta, C.B., Marquez, E.J., Queano, K.L.: Onland signatures of the Palawan microcontinental block and the Philippine mobile belt collision and crustal growth process: a review. *Journal of Asian Earth Sciences*, **34**, 610–623 (2009).

[33] Hall, R.: Reconstructing Cenozoic SE Asia. In: Hall, R., Blundell, D.J. (Eds.), *Tectonic evolution of SE Asia*. Geological Society of London Special Publication, **106**, 153–184 (1996). *Bedrock Geosciences Technical Report 14-02* (1996)

[34] MMAJ-JICA (Metal Mining Agency of Japan-Japan International Cooperation Agency): Report on the Mineral Exploration: Mineral Deposits and Tectonics of two Contrasting

Geologic Environments in the Republic of the Philippines-Palawan V-VI, Area, West Negros Area and Samar I-III Area. Report submitted by MMAJ-JICA to the Republic of the Philippines. MMAJ-JICA, Tokyo, Japan. (1988).

[35] Dilek, Y. and Furnes, H.: Ophiolites and their Origins. *Elements*. doi: 10.2113/gselements.10.2.93, **10**(2), 93-100 (2014).

[36] Rashka, H., Nacario, E., Rammlair, D., Samonte, C. and Steiner, L.: Geology of the ophiolite of central Palawan Island, Philippines. *Ophioliti*, **10**, 375-390 (1985).

[37] Gealey, W. K.: Ophiolite obduction mechanism in Ophiolites. Proceedings of the International Ophiolite Symposium, Cyprus (1979), edited by Panayiotou, 228-243, Geological Survey Dept., Nicosia, Cyprus. (1980).

[38] Keston, S.: Geological Relationship between Reed Bank and offshore western Palawan, Philippines. Proceedings, GEOSEA, 1981 Manila, Philippines, 829-833 (1981).

[39] Pena, E.R.: Lexicon of Philippine Stratigraphy 2008. Geological Society of the Philippines, Manila (2008).

[40] Cabrera, R.C.: Geology of Bulaloc, Canipan, Candian Point, Tarusan, Sapa and Katipunan Quadrangles. Region IV: Bureau of Mines and Geosciences, Manila, Philippines. Bedrock Geosciences Technical Report 14-02 (1985).

[41] Maeda, Y., Siringan, F., Omura, A., Berdin, R., Hosono, Y., Atsumi, S., Nakamura, T.: Higher-than-present Holocene mean sea levels in Ilocos, Palawan and Samar, Philippines. *Quaternary International*, 15–26 (2004).

[42] BMG (Bureau of Mines and Geosciences, Philippines): Geology and Mineral Resources of the Philippines, 1 (Geology). Manila, 406: BMG, Ministry of Natural Resources. Bureau of Mines (Philippines), Manila, Philippines. (1981).

[43] MMJA-JICA (Metal Mining Agency of Japan-Japan International Cooperation Agency): Report on the Cooperative Mineral Exploration Geological Assessment of Chromite, Base Metals, Platinum and Related Precious Metal Occurrences in South Central Palawan, the Republic of Philippines: Consolidated Report (1993).

[44] Camboa, M.M.: A Geologic Report on the Tagbita Silica Project. Tagbita Silica Industries Corporation, Silica Sand Project, Unpublished Report (1977).

[45] Maac Aguilar, Y.O., Ylade, E.D.: Stratigraphic and paleontologic studies of Tablas, Romblon. Research on Stratigraphic Correlation of Cenozoic Strata in Oil and Gas Fields, Philippines, ITIT Project 8319. *Geol. Soc. Japan*, 44-67 (1988).

[46] 神谷寛一, 作花済夫: 炭酸カルシウム多形の生成. *Gypsum & Lime*, **163**, 243-253 (1979).

[47] Reddy, M.M. and Wang, K.K.: Crystallization of Calcium Carbonate in the Presence of Metal Ions: I. Inhibition by Magnesium Ion at pH 8.8 and 25°C. *J. Cryst. Growth*, **50**(2), 470-480 (1980).

[48] Liu, X.Y., Tsukamoto, K. and Sorai, M.: New Kinetics of CaCO₃ Nucleation and Microgravity Effect. *Langmuir*, **16**(12), 5499-5502 (2000).

[49] Araki, Y., Tsukamoto, K., Takagi, R., Miyashita, T., Oyabu, N., Kobayashi, K. and Yamada, H.: Direct Observation of the Influence of Additives on Calcite Hydration by Frequency Modulation Atomic Force Microscopy. *Cryst. Growth Des.*, **14**, 6254–6260 (2014).

[50] Alexander, W.R., Arcilla, C.A., Calibo, M.Y. and McKinley, I.G.: Natural analogue of bentonite alteration by hyperalkaline water: field programme in the Philippines. MC-TR-08-02, McKinley Consulting Report, Baden-Dättwil, Switzerland. (2008).

第3章 アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセス

3.1 Bigbiga のナチュラルアナログ

Active Type におけるベントナイトのアルカリ変質反応により形成される変質鉱物の鉱物学的・鉱物化学的特性に係る地球化学的プロセスを考察する上で、その要因（トリガー）となるアルカリ地下水の流動特性と地球化学的特性の理解に向けた取り組みにおいて、これまでの調査・研究結果に基づき重要度の高い課題への取り組みを明確にすることが必要である。

Fossil Type のナチュラルアナログでは、ベントナイトのアルカリ変質反応の規模（範囲・程度）が予想以上にある限られた狭い範囲（オフィオライトとベントナイトの界面）であったことが確認された。このことは少なくとも2つの取り組みをする課題があるということになる。

その一番目は、アルカリ地下水（溶液）がベントナイトに浸出する過程での溶液のダイナミックスとしての取り扱いである。一般的には、ベントナイト内での物質移動の大部分が拡散支配場であるが、一部幾何学形状を持つ割れ目（不均質な湿潤・膨潤などによるベントナイトとの反応に伴う体積の減少・密度低下などにより形成）などを水路として移流場が想定される。その両者に共通するダイナミックスは、このアルカリ溶液の性状（アルカリプルームの形状とアルカリフロントの挙動および組成変化など）とその移動速度などの理解である。

二番目は、ベントナイトとアルカリ溶液との変質反応による変質鉱物の形成プロセスでの固相変化である主に陽イオン交換で代表されるネオトランスフォーム（結晶縁での交代・置換など）および、モンモリロナイトやシリカ鉱物などの溶解－沈殿反応による二次鉱物の形成（結晶核の誕生－結晶核の成長－熱力学的安定な鉱物）である。特に、後者のモンモリロナイトの溶解現象の理解と溶解速度の算定は極めて重要である。

Bigbiga で確認できたアルカリ地下水の pH は 9.5 程度であり、処分場のセメントのアナログとしては低アルカリセメント浸出水の pH よりも低く、室内実験の時間スケールではスメクタイトの溶解・変質はほとんど見られない。しかしながら、カリフォルニアの Searles Lake[1]の事例では pH9~10 のアルカリ塩湖の湖床堆積物のスメクタイトが長期にわたる（堆積後 360 万年）アルカリとの相互作用により変質したことが確認されており、地層処分の時間スケールで変質の程度を観察することは、緩衝材の長期の変質がその安全性にどの程度影響を与えるのかを示す上で重要である。

このような低アルカリが長期間ベントナイト質堆積層に作用する現象を自然界で適切に抽出可能なナチュラルアナログとして、Bigbiga の事例は活用することができる。ここでは、アルカリ地下水がベントナイト質の粘土岩に作用していたと考えられる、試錐孔 DH08 及び試錐孔 DH10 から採取したそれぞれのコア試料について、詳細な鉱物学的・鉱物化学的特性の観察・分析にもとづくアルカリ変質反応の地球化学的プロセスを考察する。なお、鉱物の組成および構造・組織（性状、共生関係）などの観察・同定・元素分布・化学分析には 2.2.4 で説明した EPMA、 μ -XRD、FESEM-EDS を使用した。

3.2 低アルカリ環境下のアルカリ変質反応による岩石鉱物学的・地球化学的特性

ここではオフィオライトの基盤岩の直上に分布する褐色粘土岩 (Red Claystone, BBDH10-14-Rh-041(DH10)と BBDH08-13-Rh-010(DH08)の計 2 試料) について、破断片を用いた産状観察により予め共存鉱物との関係を記載する。鉱物同定には特定場所のスポット分析が可能な μ -XRD 分析法を用いた。

また、研磨薄片を作成し、EPMA を用いて、鉱物組成及び組織 (性状、共生関係等) 及びアルカリ変質反応生成物 (変質鉱物) の情報を取得した。

3.2.1 EPMA 分析結果

(1) BBDH10-14-Rh-041 の分析結果

この試料はミルフィーユ状に積層したやや硬質のベントナイトである。樹脂含浸処理は入念に行ったが、試料切断の際にかなりの領域が剥離してしまったため、分析試料としてもまとまった厚みのある領域が限られてしまった。マッピング領域としては、 $2 \times 2 \text{ mm}^2$ とやや狭い領域に限定している。図 3.2.1-1 に BEI, SEI 画像を示す。

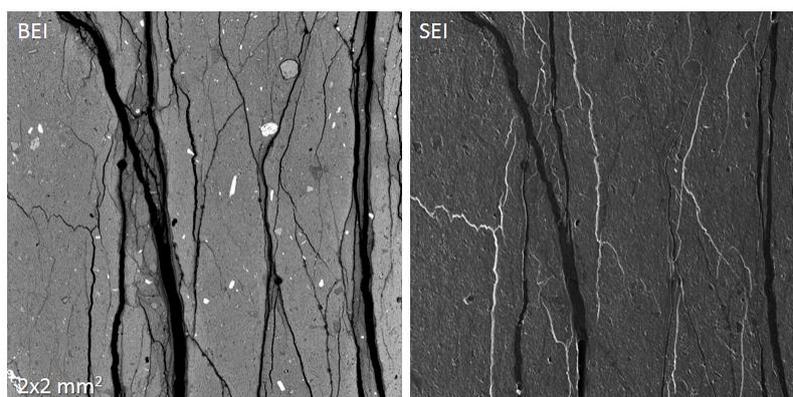


図 3.2.1-1 BBDH10-14-Rh-041 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右)

非常に緻密な組織を示すことがわかり、今回の分析試料のうちでは最も粘土量の多いベントナイトである。点在する明るいスポットは、源岩の火山岩斑晶鉱物の斜長石(An_{20-70})と方解石、燐灰石(アパタイト)である。元素マップを図 3.2.1-2 に示す。

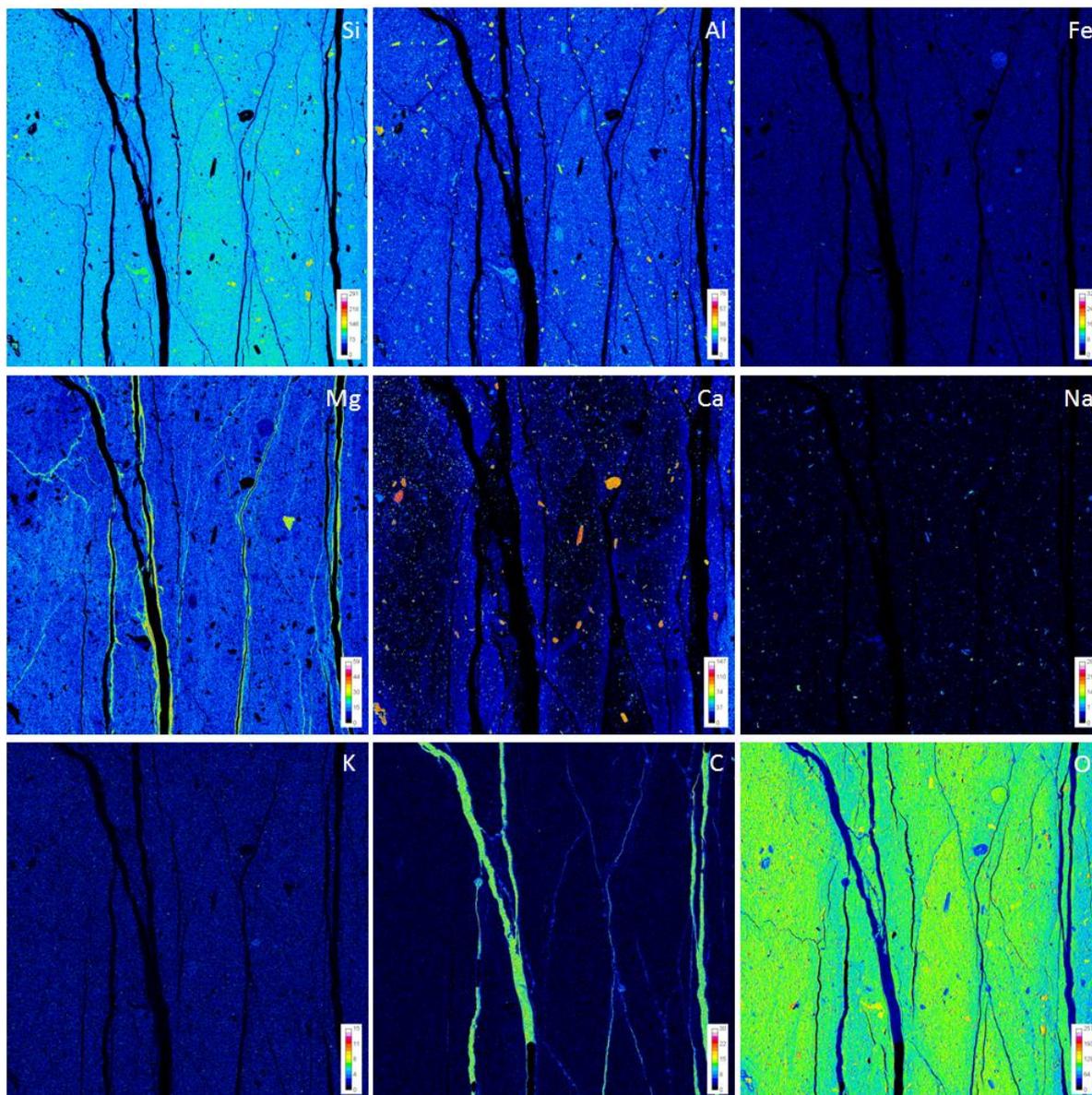


図 3.2.1-2 BBDH10-14-Rh-041 試料の元素マップ

このマッピング分析でわかった最も明瞭な元素の特徴は、クラックに沿って発達する **Ca-Mg** に富む領域があることである。Ca の富化帯は Mg のそれよりも幅広い分布を示す。おそらく、Ca, Mg を固定している粘土鉱物の種類が異なることに起因していると思われる。鉱物の産状観察とスポット分析の結果を図 3.2.1-3 に示す。

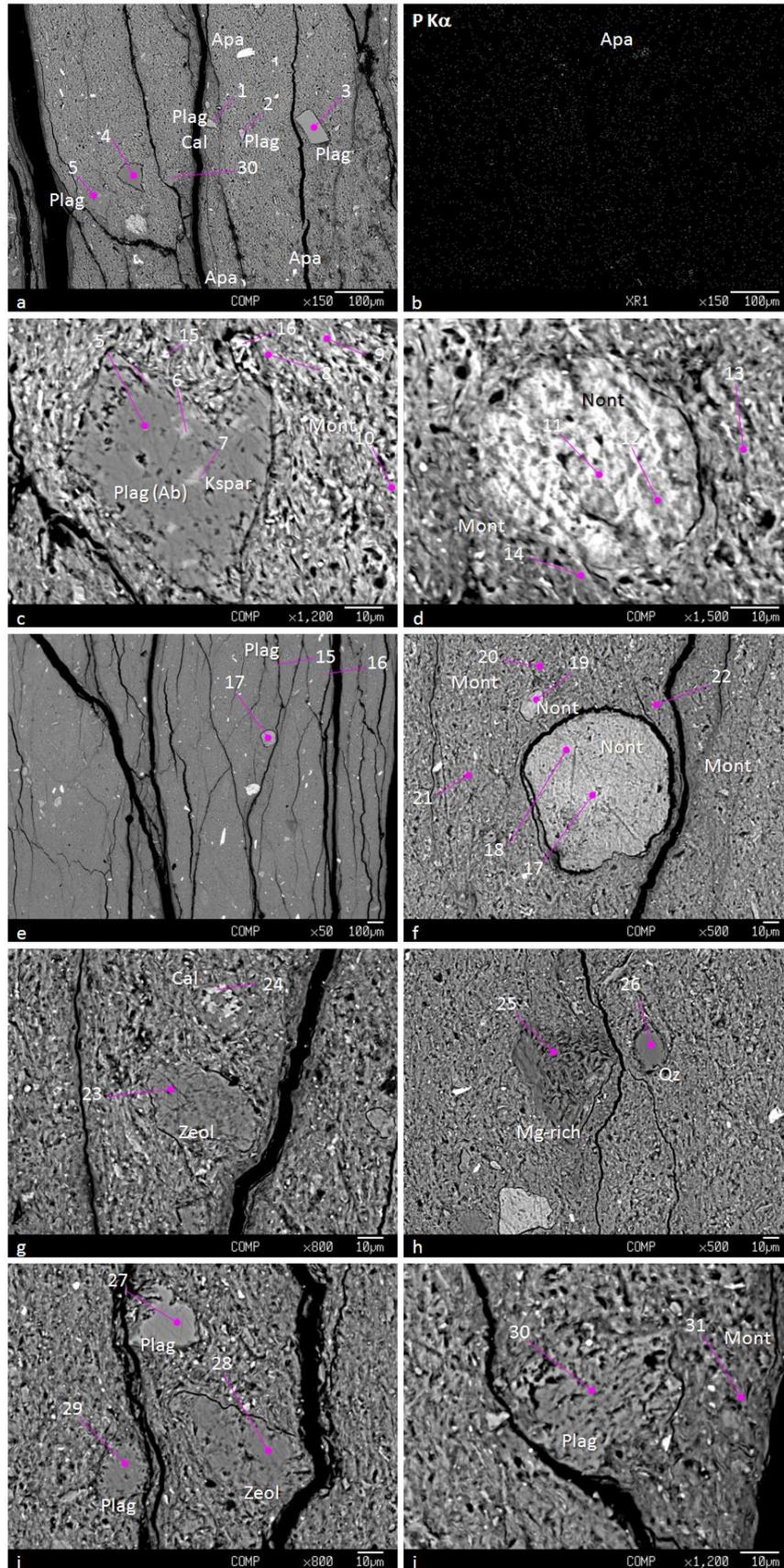


図 3.2.1-3 鉱物のスポット分析(BBDH10-14-Rh-041)

分析値を以下の表で列記して示す。石英の Al_2O_3 含有量は 0.1 wt.%以下と少なく、この結晶は続成過程で生成したものである可能性が高い。また方解石は MnO を 1 wt.%近く含んでいる。斜長石は $\text{XAn} = 0.4\text{-}0.7$ のデイサイトから安山岩由来の斑晶組成を示すものと、 XOr ($=\text{K}/(\text{Ca}+\text{Na}+\text{K})$)値が 0.5-0.7 を示すアルカリ長石とが認められるが、ほぼすべての斜長石で分析値に基づく構造式は正常値よりも $\text{Ca}+\text{Na}+\text{K}$ が 1 を下回っている。これは結晶が風化を受けていることによるのかもしれない。この試料中、多く存在するスメクタイトのうち、 $\text{Al}(4)$ が小さいものは 2 八面体スメクタイトのモンモリロナイト組成を示すものが多いが、 $\text{Al}(4)$ 値が大きいものは、 XFe ($=\text{Fe}/(\text{Fe}+\text{Mg})$)値も大きく、ノントロナイト組成を示す。モンモリロナイトの層間イオン組成の XCa 値は 0.45-0.55 に集中しており、ノントロナイトのそれは 0.3-0.6 と大きく変動する (Spot_{25} は異常値かサポナイトの岩片)。マッピングで明らかになったクラックに沿って存在する Ca-Mg に富む領域はおそらく Ca-rich のモンモリロナイトである。 Ca は Mg とともに特に濃集している $5\mu\text{m}$ 以下の領域の周囲にも約 $100\mu\text{m}$ の規模で広く分布しており、このことは、このベントナイトには Ca に富む流体との接触がある時期にあったこと、そしてその際には Mg の富化を起こす過程があったことを暗示している。沸石は少なく、 $40\mu\text{m}$ 大の粒子として確認されている。これらは $\text{Si}/\text{Al}-\text{XNa}+\text{K}$ の関係より斜プチロル沸石 (輝沸石組成) に分類される。

表 3.2.1-1 BBDH10-14-Rh-041 試料の石英の化学組成

Sample ID	Rh-041_spot_4	Rh-041_spot_26
X (mm)	11.626	11.139
Y (mm)	70.097	68.446
Z (mm)	11.609	11.625
Oxide wt. %		
SiO_2	95.49	95.11
Al_2O_3	0.01	0.06
TiO_2	0.01	0.00
FeO	0.16	0.22
Cr_2O_3	0.03	0.00
MnO	0.04	0.04
MgO	0.01	0.01
CaO	0.02	0.03
Na_2O	0.00	0.01
K_2O	0.00	0.00
total	95.76	95.48
Cation based on O=2		
Si	0.999	0.998
Al	0.000	0.001
Ti	0.000	0.000
Fe	0.001	0.002
Cr	0.000	0.000
Mn	0.000	0.000
Mg	0.000	0.000
Ca	0.000	0.000
Na	0.000	0.000
K	0.000	0.000
total	1.001	1.002

表 3.2.1-2 BBDH10-14-Rh-041 試料の方解石の化学組成

Sample ID	Rh-041_spot_24
X (mm)	11.365
Y (mm)	68.072
Z (mm)	11.628
Oxide wt.%	
SiO2	5.89
Al2O3	0.73
TiO2	0.01
FeO	0.19
Cr2O3	0.01
MnO	0.98
MgO	0.05
CaO	52.97
Na2O	0.07
K2O	0.08
total	60.96
Cation based on O=1	
Si	0.083
Al	0.012
Ti	0.000
Fe	0.002
Cr	0.000
Mn	0.012
Mg	0.001
Ca	0.799
Na	0.002
K	0.001
total	0.913

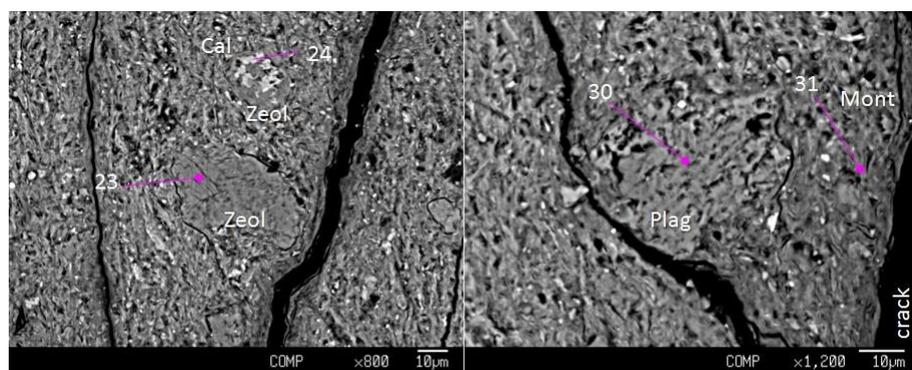
表 3.2.1-3 BBDH10-14-Rh-041 試料の斜長石の化学組成

Sample ID	Rh-041_spot_1	Rh-041_spot_2	Rh-041_spot_3	Rh-041_spot_5	Rh-041_spot_15	Rh-041_spot_16	Rh-041_spot_27	Rh-041_spot_29	Rh-041_spot_30	Rh-041_spot_6	Rh-041_spot_7
X (mm)	11.453	11.385	11.24	11.705	11.697	11.675	10.814	10.837	11.549	11.694	11.69
Y (mm)	69.994	70.013	69.998	70.145	70.126	70.122	68.33	68.386	70.101	70.146	70.158
Z (mm)	11.609	11.609	11.609	11.609	11.609	11.609	11.625	11.625	11.609	11.609	11.609
Oxide wt.%											
SiO2	53.55	49.68	58.41	68.05	52.91	52.23	54.91	76.36	67.69	69.44	68.82
Al2O3	29.16	30.73	26.25	20.80	24.38	28.82	27.28	12.31	20.84	18.99	18.45
TiO2	0.00	0.04	0.00	0.02	0.08	0.01	0.04	0.03	0.02	0.01	0.00
FeO	0.61	0.79	0.27	0.16	1.61	0.81	0.47	1.20	0.57	0.18	0.21
Cr2O3	0.02	0.04	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MnO	0.06	0.06	0.02	0.04	0.38	0.10	0.04	0.12	0.05	0.06	0.03
MgO	0.06	0.07	0.00	0.00	1.93	0.27	0.05	0.08	0.01	0.00	0.01
CaO	11.53	14.02	7.56	0.39	9.42	12.24	9.70	2.26	3.15	0.08	0.05
Na2O	3.54	2.43	4.80	8.01	2.85	3.21	3.96	3.57	6.04	1.68	0.81
K2O	0.09	0.07	0.04	0.05	0.62	0.13	0.08	0.29	0.65	9.26	12.25
total	98.615	97.925	97.357	97.527	94.167	97.819	96.536	96.234	99.012	99.703	100.632
Cation based on O=8											
Si	2.446	2.310	2.651	3.003	2.537	2.417	2.541	3.360	2.968	3.081	3.074
Al	1.570	1.684	1.404	1.082	1.378	1.572	1.488	0.639	1.077	0.993	0.971
Ti	0.000	0.001	0.000	0.001	0.003	0.001	0.002	0.001	0.001	0.000	0.000
Fe	0.023	0.031	0.010	0.006	0.065	0.032	0.018	0.044	0.021	0.007	0.008
Cr	0.001	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mn	0.003	0.002	0.001	0.002	0.015	0.004	0.002	0.005	0.002	0.002	0.001
Mg	0.004	0.005	0.000	0.000	0.138	0.019	0.003	0.005	0.001	0.000	0.001
Ca	0.564	0.699	0.368	0.019	0.484	0.607	0.481	0.107	0.148	0.004	0.003
Na	0.313	0.219	0.422	0.685	0.265	0.288	0.356	0.305	0.513	0.145	0.070
K	0.005	0.004	0.003	0.003	0.038	0.008	0.005	0.017	0.036	0.524	0.698
total	4.928	4.957	4.859	4.800	4.922	4.945	4.894	4.481	4.767	4.756	4.825

表 3.2.1-5 BBDH10-14-Rh-041 試料の沸石の化学組成

Sample ID	Rh-041_spot_23	Rh-041_spot_28
X (mm)	11.388	10.777
Y (mm)	68.112	68.383
Z (mm)	11.628	11.625
Oxide wt. %		
SiO ₂	55.01	61.06
Al ₂ O ₃	11.39	12.54
TiO ₂	0.00	0.02
FeO	0.24	0.30
Cr ₂ O ₃	0.00	0.00
MnO	0.05	0.06
MgO	0.17	0.24
CaO	4.54	5.45
Na ₂ O	0.69	0.21
K ₂ O	0.29	0.05
total	72.36	79.92
Cation based on O=72		
Si	29.045	29.110
Al	7.092	7.042
Ti	0.000	0.007
Fe	0.108	0.115
Cr	0.000	0.000
Mn	0.022	0.022
Mg	0.130	0.166
Ca	2.563	2.779
Na	0.706	0.194
K	0.194	0.029
total	39.859	39.478
Si/Al	4.095	4.134
XK+Na	0.260	0.074

斜長石にはバーサイト組織を有するアルカリ長石が認められ、源岩はやや Na 成分に富むものであったと思われる。そのためか、Na 質斜長石を交代して生成したと思われるスメクタイトはやや Na に富むモンモリロナイト ($X_{Ca}=0.5$) 質である。しかしスメクタイトは他にノントロナイト質のものも認められ、おそらく変質の母結晶が苦鉄質鉱物であったことが予想される。方解石は少ないが、比較的多く存在する沸石に取り込まれていることがあり、おそらく沸石の生成前には、スメクタイト類と共に、方解石が存在していたと思われる。データは少ないが、非常に方解石に富む BBDH10-14-Rh-026 よりも沸石の Ca 含有率が少ないものがある。化学組成の記載ですでに述べたが、クラックに沿って認められる Ca-Mg 変質に注目して変質順序を推定する図を図 3.2.1-4 に示す。



Dacite (Plag+Opx+Qz+Gm) ⇒ Mont >> Nont > Calc ⇒ Clinoptilolite
 ↓
 Ca-Mg-rich Mont

図 3.2.1-4 BBDH10-14-Rh-041 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序 (左: 方解石を包有する沸石; 右: 溶解してモンモリロナイトに変質するクラック近傍の斜長石)

(2) BBDH08-13-Rh-010 の分析結果

この試料はベントナイトが沸石へ変質したものである。比較的均質なベントナイトは、多くの微細な火山性碎屑物を含んでいるが、それらはフェルシクな火山岩（デイサイト質）由来であると思われる。また化石由来の堆積物も多く、浮遊性有孔虫や燐灰石の骨格を有する微生物由来の碎屑物が見られる。沸石とスメクタイトの多い分帯が存在し、おそらく堆積構造に従って分布していると考えられる。試料の反射電子線像(BEI) と二次電子線像(SEI)を図 3.2.1-5 に示す。また、各元素のマップを図 3.2.1-6 に示す。

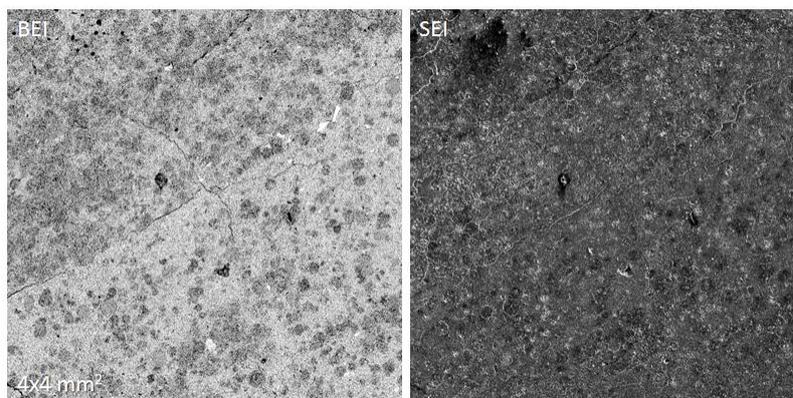


図 3.2.1-5 BBDH08-13-Rh-010 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右)

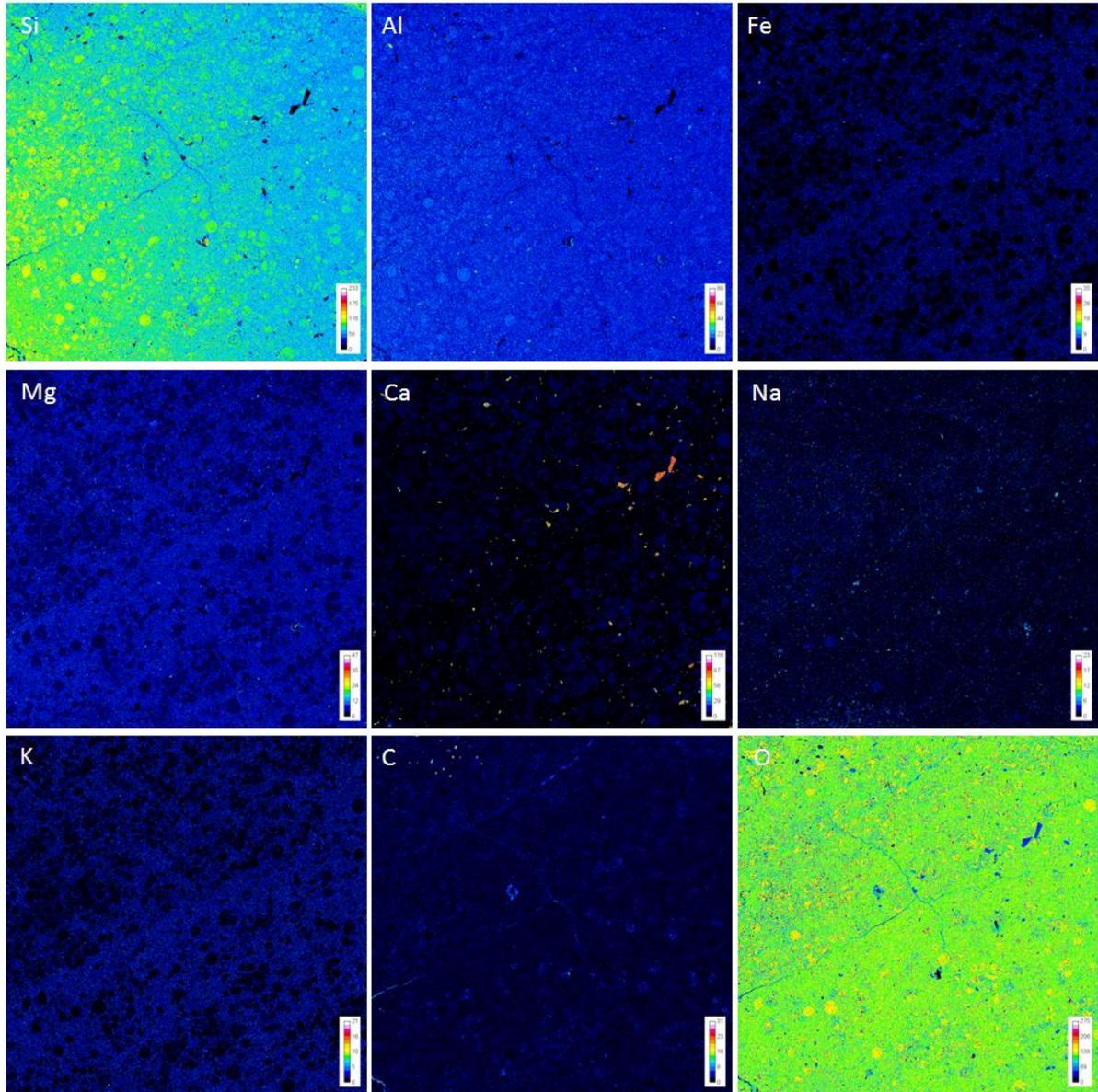


図 3.2.1-6 BBDH08-13-Rh-010 試料の元素マップ

Fe, Mg, K にやや乏しい分帯が沸石に富む層である。この試料におけるスポット分析を行った結果を図 3.2.1-7 に示す。

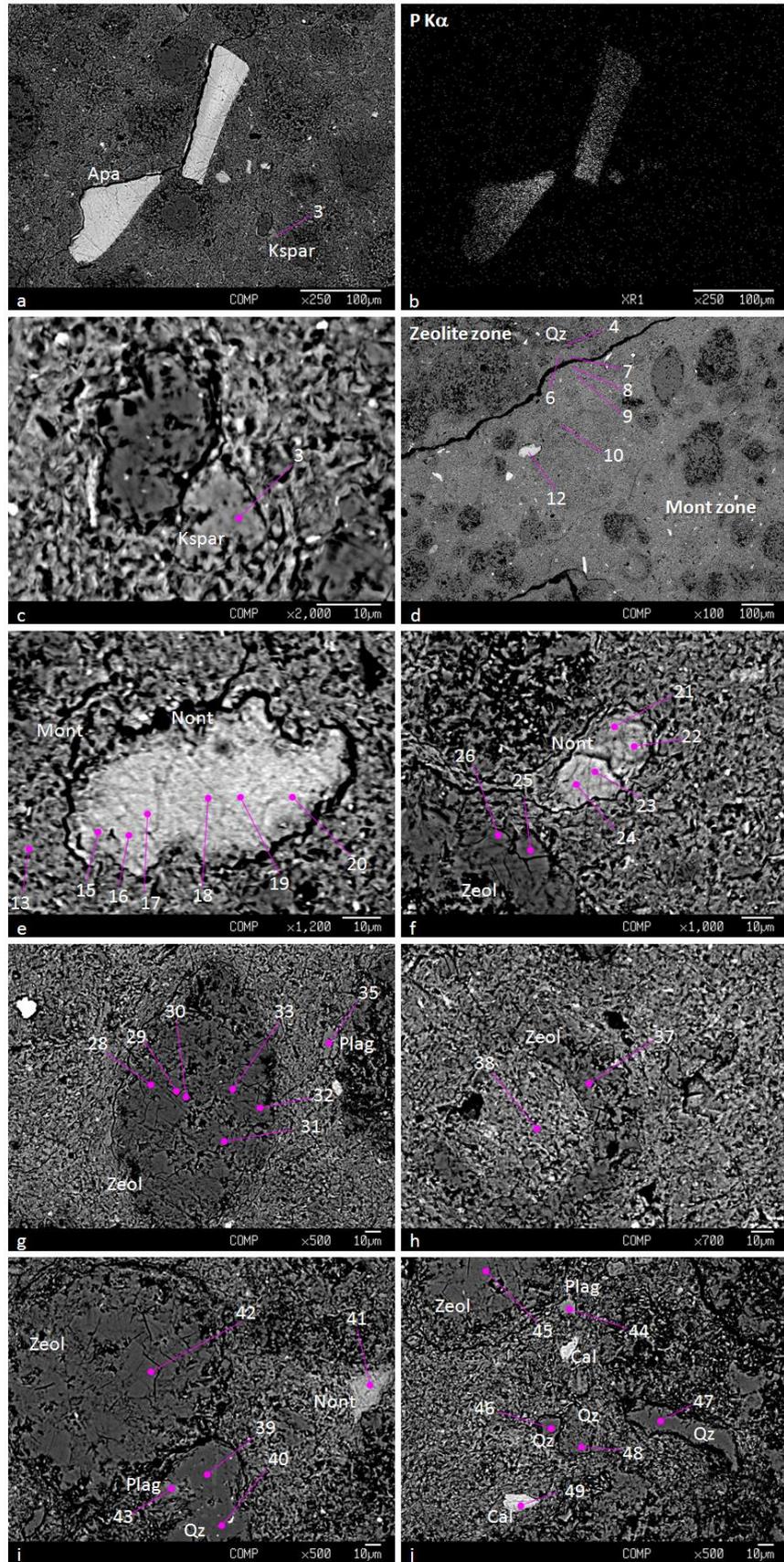


図 3.2.1-7 鉱物のスポット分析(BBDH08-13-Rh-010)

分析の結果を以下の表に列記する。石英は Al₂O₃ を含んでおり、火山岩斑晶由来であることがわかる。斜長石の XCa 組成(0.4-0.6)より源岩はデイサイト質であり、一部サニディン組成のアルカリ長石も認められる。わずかに含まれる方解石は MnO, FeO, MgO に富む特徴を持ち、スメクタイトなどの変質過程で沈殿したものと推察される。スメクタイトはやや Fe に富むモンモリロナイトが主体で、小岩片状にノントロナイト質スメクタイトが点在する。この源物質は苦鉄質な組成の火山岩ガラス片かもしれない。沸石はすべて斜プチロル沸石（輝沸石組成）に分類されるものであり、組成的変動は小さかった。

表 3.2.1-6 石英の化学組成

Sample ID	spot_4	spot_39	spot_40	spot_46	spot_47	spot_48
X (mm)	39.165	39.62	39.611	40.027	39.951	40.012
Y (mm)	21.68	19.736	19.767	20.768	20.765	20.778
Z (mm)	11.284	11.299	11.299	11.292	11.295	11.292
Oxide wt. %						
SiO ₂	94.88	93.84	94.02	94.62	91.48	90.14
Al ₂ O ₃	0.08	0.28	0.21	0.10	0.34	1.48
TiO ₂	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
FeO	0.21	0.10	0.14	0.26	0.13	0.15
Cr ₂ O ₃	0.03	0.00	0.01	0.00	0.03	0.05
MnO	0.05	0.00	0.04	0.03	0.02	0.01
MgO	0.03	0.00	0.01	0.04	0.02	0.03
CaO	0.02	0.08	0.08	0.03	0.09	0.28
Na ₂ O	0.00	0.10	0.07	0.00	0.06	0.72
K ₂ O	0.02	0.01	0.00	0.02	0.11	0.13
total	95.31	94.42	94.58	95.10	92.28	92.99
Cation based on O=2						
Si	0.998	0.996	0.996	0.997	0.994	0.979
Al	0.001	0.004	0.003	0.001	0.004	0.019
Ti	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.002	0.001	0.001	0.002	0.001	0.001
Cr	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mn	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mg	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.001
Ca	0.000	0.001	0.001	0.000	0.001	0.003
Na	0.000	0.002	0.001	0.000	0.001	0.015
K	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	0.002
total	1.002	1.004	1.003	1.002	1.005	1.020

表 3.2.1-7 斜長石の化学組成

Sample ID	Rh-010_spot_3	spot_35	spot_36	spot_43	spot_44
X (mm)	35.673	38.769	39.214	39.633	40.007
Y (mm)	19.982	21.729	22.347	19.747	20.693
Z (mm)	11.31	11.287	11.276	11.299	11.292
Oxide wt. %					
SiO ₂	66.85	56.26	53.32	58.30	53.98
Al ₂ O ₃	19.50	27.30	26.63	26.32	28.14
TiO ₂	0.00	0.04	0.41	0.02	0.02
FeO	0.42	0.58	1.28	0.68	0.61
Cr ₂ O ₃	0.06	0.00	0.00	0.02	0.00
MnO	0.06	0.00	0.07	0.03	0.03
MgO	0.01	0.02	0.17	0.02	0.05
CaO	1.31	9.12	11.23	8.56	10.62
Na ₂ O	1.88	4.43	2.98	5.20	4.34
K ₂ O	8.81	0.51	0.08	0.12	0.18
total	98.90	98.27	96.18	99.26	97.96
Cation based on O=8					
Si	3.013	2.561	2.499	2.619	2.481
Al	1.036	1.465	1.471	1.394	1.524
Ti	0.000	0.001	0.014	0.001	0.001
Fe	0.016	0.022	0.050	0.026	0.023
Cr	0.002	0.000	0.000	0.001	0.000
Mn	0.002	0.000	0.003	0.001	0.001
Mg	0.001	0.002	0.012	0.001	0.003
Ca	0.063	0.445	0.564	0.412	0.523
Na	0.165	0.391	0.271	0.453	0.387
K	0.507	0.030	0.005	0.007	0.011
total	4.804	4.916	4.889	4.914	4.955

表 3.2.1-8 方解石の化学組成

Sample ID	spot_49
X (mm)	40.038
Y (mm)	20.816
Z (mm)	11.292
Oxide wt. %	
SiO ₂	12.28
Al ₂ O ₃	1.22
TiO ₂	0.07
FeO	1.29
Cr ₂ O ₃	0.02
MnO	0.40
MgO	0.46
CaO	32.18
Na ₂ O	0.31
K ₂ O	0.48
total	48.71
Cation based on O=1	
Si	0.192
Al	0.022
Ti	0.001
Fe	0.017
Cr	0.000
Mn	0.005
Mg	0.011
Ca	0.539
Na	0.009
K	0.010
total	0.806

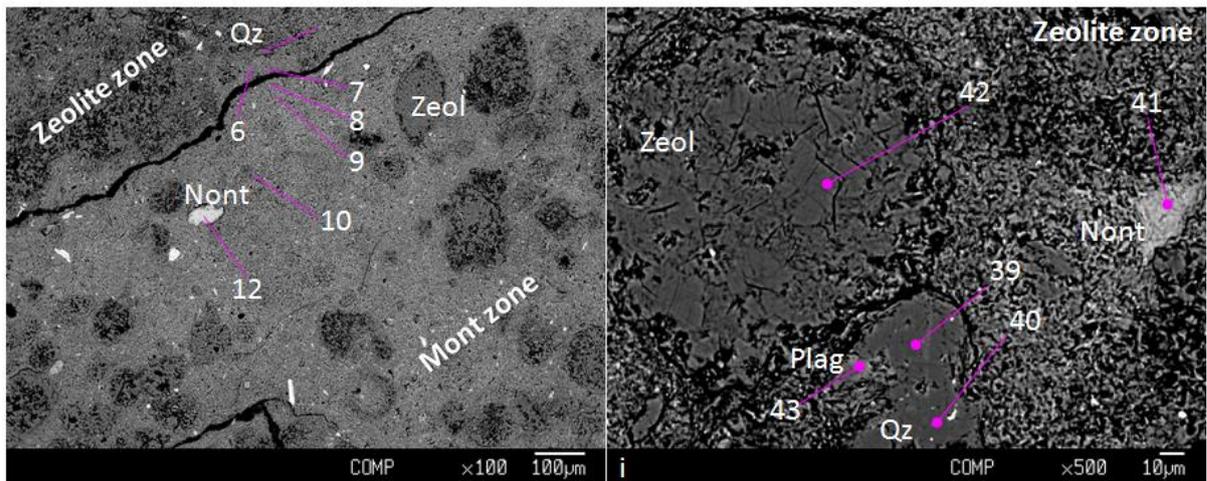
表 3.2.1-9 スメクタイトの化学組成

Sample ID	spot_6	spot_7	spot_8	spot_9	spot_dark_10	spot_sap_13	spot_sap_12	spot_sap_15	spot_sap_16	spot_sap_17	spot_sap_18	spot_sap_19	spot_sap_20	spot_sap_21	spot_sap_22	spot_sap_23	spot_sap_24	spot_38	spot_41
X (mm)	39.173	39.171	39.168	39.167	39.196	39.351	39.289	39.326	39.311	39.306	39.289	39.28	39.266	39.606	39.591	39.615	39.62	38.954	39.517
Y (mm)	21.708	21.718	21.76	21.775	21.912	22.021	22.007	22.019	22.018	22.013	22.01	22.006	22.003	22.302	22.308	22.318	22.323	22.376	19.679
Z (mm)	11.284	11.284	11.284	11.284	11.284	11.276	11.274	11.276	11.276	11.276	11.276	11.276	11.276	11.278	11.278	11.278	11.278	11.276	11.299
Oxide wt. %																			
SiO ₂	51.47	52.57	51.43	50.40	51.45	51.65	52.80	51.83	52.90	52.23	52.82	53.96	51.75	48.96	48.54	50.61	50.54	53.91	51.68
Al ₂ O ₃	13.83	12.55	13.97	12.40	11.30	9.48	6.04	7.12	5.89	5.92	5.94	6.17	6.17	8.15	10.91	8.28	8.36	11.20	6.31
TiO ₂	0.47	0.19	0.23	0.16	0.16	0.19	0.10	0.12	0.10	0.09	0.09	0.09	0.12	0.13	0.45	0.11	0.08	0.27	0.10
FeO	10.87	12.74	9.92	8.79	10.62	9.48	21.10	18.72	21.28	21.68	21.13	21.38	21.14	18.36	12.81	17.86	17.90	11.86	17.25
Cr ₂ O ₃	0.01	0.00	0.05	0.04	0.00	0.00	0.00	0.04	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.05	0.00
MnO	1.39	1.77	1.72	1.17	1.36	2.22	1.53	1.67	1.63	1.45	1.48	1.58	1.52	1.83	1.73	1.70	1.69	1.61	2.49
MgO	4.09	4.59	3.40	3.65	3.43	2.67	3.92	4.06	3.83	3.78	3.89	4.07	3.52	3.47	2.97	3.81	3.71	3.62	4.00
CaO	1.46	1.62	1.86	2.16	1.78	1.43	2.05	1.99	2.02	2.05	2.00	2.05	2.20	1.50	1.84	1.52	1.49	1.78	1.51
Na ₂ O	0.32	0.44	0.71	0.21	0.32	0.34	0.55	0.47	0.46	0.53	0.57	0.54	0.46	0.27	0.54	0.26	0.30	0.42	0.59
K ₂ O	2.99	3.19	3.27	1.94	3.15	2.73	1.99	2.02	2.03	2.10	1.92	2.07	2.19	4.54	2.51	4.38	4.57	2.48	2.63
total	86.88	89.66	86.56	80.92	83.56	80.19	90.08	88.04	90.13	89.84	89.83	91.90	89.07	87.21	82.30	88.53	88.64	87.19	86.56
Cation based on O=22																			
Si	7.639	7.669	7.668	7.889	7.944	8.249	8.000	7.947	8.018	7.973	8.020	8.007	7.961	7.729	7.753	7.800	7.791	7.978	8.061
Al	2.419	2.157	2.455	2.287	2.056	1.785	1.078	1.288	1.052	1.066	1.063	1.078	1.119	1.516	2.054	1.504	1.519	1.954	1.160
Ti	0.052	0.021	0.026	0.019	0.019	0.023	0.011	0.014	0.011	0.010	0.010	0.010	0.014	0.015	0.054	0.013	0.009	0.030	0.012
Fe	1.349	1.554	1.237	1.150	1.372	1.267	2.673	2.400	2.698	2.768	2.683	2.654	2.720	2.424	1.711	2.302	2.307	1.468	2.250
Cr	0.001	0.000	0.006	0.005	0.000	0.000	0.000	0.005	0.000	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.006	0.000
Mn	0.174	0.219	0.218	0.156	0.178	0.301	0.197	0.217	0.209	0.187	0.190	0.199	0.198	0.245	0.234	0.222	0.221	0.202	0.329
Mg	0.905	0.999	0.757	0.852	0.789	0.635	0.886	0.927	0.864	0.861	0.880	0.899	0.807	0.815	0.707	0.876	0.853	0.798	0.930
Ca	0.232	0.254	0.297	0.362	0.294	0.245	0.332	0.327	0.328	0.335	0.326	0.325	0.363	0.254	0.315	0.250	0.246	0.282	0.252
Na	0.091	0.123	0.205	0.062	0.096	0.106	0.162	0.141	0.134	0.158	0.166	0.155	0.136	0.083	0.166	0.078	0.089	0.120	0.179
K	0.567	0.594	0.621	0.388	0.620	0.556	0.385	0.395	0.392	0.409	0.371	0.392	0.430	0.915	0.511	0.862	0.899	0.469	0.523
total	13.428	13.590	13.489	13.171	13.367	13.166	13.724	13.661	13.708	13.767	13.708	13.718	13.749	13.996	13.505	13.906	13.934	13.307	13.697
Al(4)	0.361	0.331	0.332	0.111	0.056	-0.249	0.000	0.053	-0.018	0.027	-0.020	-0.007	0.039	0.271	0.247	0.201	0.209	0.022	-0.061
XCe	0.598	0.609	0.620	0.575	0.635	0.666	0.751	0.721	0.757	0.763	0.753	0.747	0.771	0.748	0.708	0.724	0.730	0.648	0.708
XCa	0.261	0.262	0.264	0.446	0.291	0.270	0.378	0.379	0.384	0.372	0.377	0.373	0.391	0.203	0.317	0.210	0.200	0.324	0.264
Smectite	montmorillonite	montmorillonite	montmorillonite	montmorillonite	montmorillonite	montmorillonite	nontronite	nontronite	nontronite										

表 3.2.1-10 沸石の化学組成

Sample ID	spot_cal_25	spot_cal_26	spot_28	spot_29	spot_30	spot_31	spot_32	spot_33	spot_37	spot_42	spot_45
X (mm)	39.639	39.648	38.893	38.882	38.874	38.839	38.826	38.812	38.923	39.657	40.071
Y (mm)	22.349	22.341	21.771	21.771	21.778	21.77	21.773	21.774	22.358	19.659	20.671
Z (mm)	11.278	11.278	11.287	11.287	11.287	11.287	11.287	11.287	11.276	11.299	11.292
Oxide wt.%											
SiO ₂	64.89	66.40	59.53	62.13	61.10	62.94	58.89	69.97	69.40	57.80	62.96
Al ₂ O ₃	11.16	11.19	9.88	10.62	11.08	11.19	9.82	12.41	11.98	10.60	10.95
TiO ₂	0.00	0.03	0.00	0.00	0.03	0.01	0.00	0.00	0.03	0.00	0.00
FeO	0.11	0.14	0.12	0.60	0.20	0.34	0.08	0.11	0.12	0.04	0.14
Cr ₂ O ₃	0.00	0.03	0.00	0.02	0.00	0.01	0.05	0.01	0.01	0.00	0.02
MnO	0.03	0.04	0.05	0.16	0.08	0.04	0.03	0.02	0.08	0.03	0.03
MgO	0.78	0.64	0.40	0.57	0.59	0.51	0.38	0.57	0.57	0.45	0.33
CaO	3.53	3.46	3.78	3.38	3.49	3.46	3.58	3.95	3.68	3.25	3.44
Na ₂ O	0.42	0.39	0.36	0.51	0.37	0.45	0.54	0.37	0.36	0.48	0.57
K ₂ O	0.31	0.27	0.32	0.49	0.38	0.44	0.37	0.27	0.21	0.46	0.39
total	81.24	82.58	74.44	78.48	77.32	79.41	73.73	87.67	86.43	73.10	78.83
Cation based on O=72											
Si	30.110	30.254	30.211	30.024	29.866	29.966	30.190	30.060	30.197	29.873	30.132
Al	6.098	6.012	5.911	6.048	6.379	6.278	5.933	6.278	6.142	6.458	6.178
Ti	0.000	0.007	0.000	0.000	0.014	0.007	0.000	0.000	0.007	0.000	0.000
Fe	0.043	0.050	0.050	0.245	0.079	0.137	0.036	0.036	0.043	0.014	0.058
Cr	0.000	0.007	0.000	0.007	0.000	0.007	0.022	0.000	0.007	0.000	0.007
Mn	0.014	0.014	0.022	0.065	0.036	0.014	0.014	0.007	0.029	0.014	0.014
Mg	0.540	0.439	0.302	0.410	0.432	0.360	0.288	0.367	0.367	0.346	0.238
Ca	1.757	1.685	2.059	1.750	1.829	1.764	1.966	1.814	1.714	1.800	1.764
Na	0.374	0.346	0.353	0.475	0.346	0.418	0.533	0.310	0.302	0.475	0.526
K	0.187	0.151	0.209	0.302	0.238	0.266	0.238	0.144	0.115	0.302	0.238
total	39.125	38.981	39.118	39.334	39.226	39.233	39.226	39.031	38.930	39.290	39.161
Si/Al	4.937	5.032	5.111	4.964	4.682	4.773	5.089	4.788	4.917	4.625	4.878
XK+Na	0.242	0.228	0.214	0.308	0.242	0.279	0.282	0.200	0.196	0.302	0.302

以上の分析結果より、このベントナイトの変質過程を推定すると、デイサイト質な堆積物が最初に変質してやや Fe に富むモンモリロナイトを生成させた。また混在していた苦鉄質な碎屑物はノントロナイトに変質した。しかし、層状の堆積物にはもともと鉱物の量比が異なっていて、おそらく火山性の石英碎屑物の多い層は沸石化しやすかったのだと思われる。その結果、斜プチロル沸石質の層とモンモリロナイト層の層状構造が形成されたと考えられる。その過程を示す図を図 3.2.1-8 に示す。



Pyroclastic sediment ⇒ Mont > Zeol
 Qz-rich pyroclastics ⇒ Zeol >> Mont

図 3.2.1-8 BBDH08-13-Rh-010 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序（左：沸石層とモンモリロナイト層の分帯；右：石英と沸石に富む沸石層）

3.2.2 FESEM-EDS 分析結果

EPMA で用いた薄片状試料を使って FESEM-EDS 観察・分析を行った。それぞれの試料で鉱物産状の観察と分析を実施した SEM 画像（図 3.2.2-1 (BBDH10-14-Rh-041)、図 3.2.2-3 (BBDH08-13-Rh-010)）と各測定ポイントでの分析結果（図 3.2.2-2 (BBDH10-14-Rh-041)、図 3.2.2-4～図 3.2.2-5 (BBDH08-13-Rh-010)）を以下に示す。

(1) BBDH10-14-Rh-041

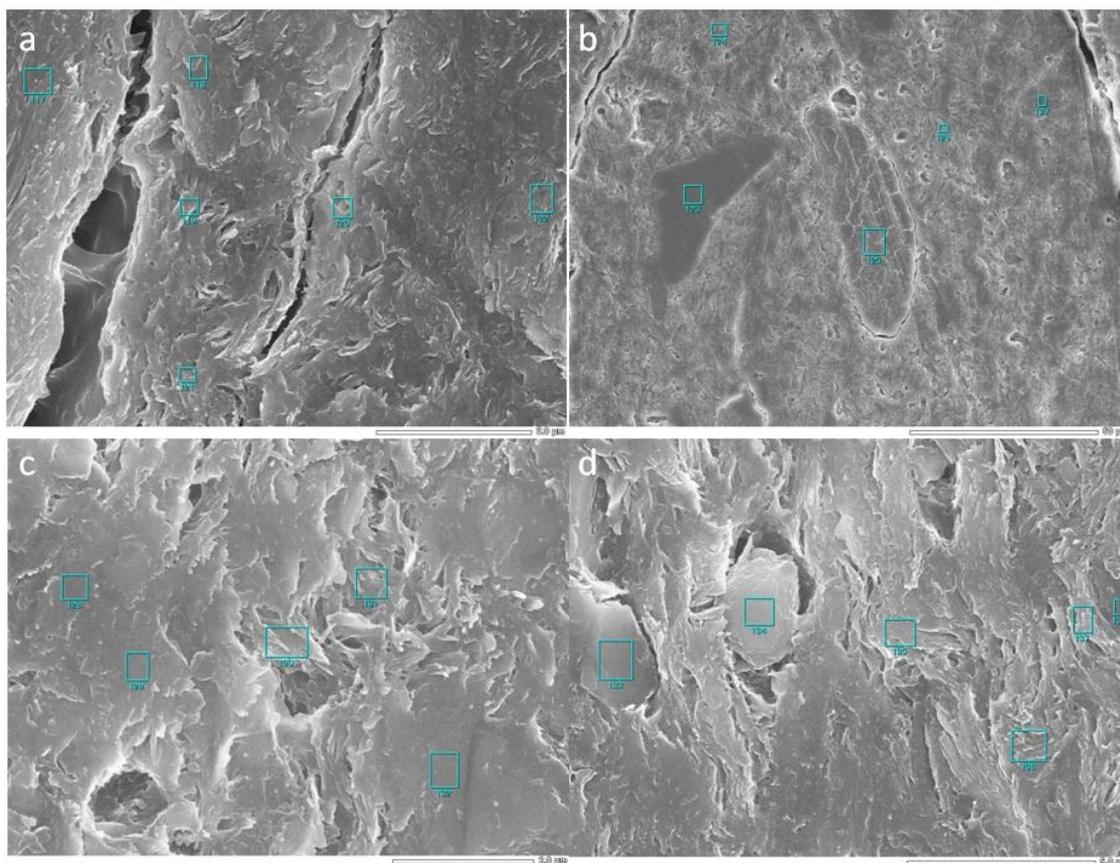


図 3.2.2-1 FESEM-EDS 観察結果(BBDH10-14-Rh-041)

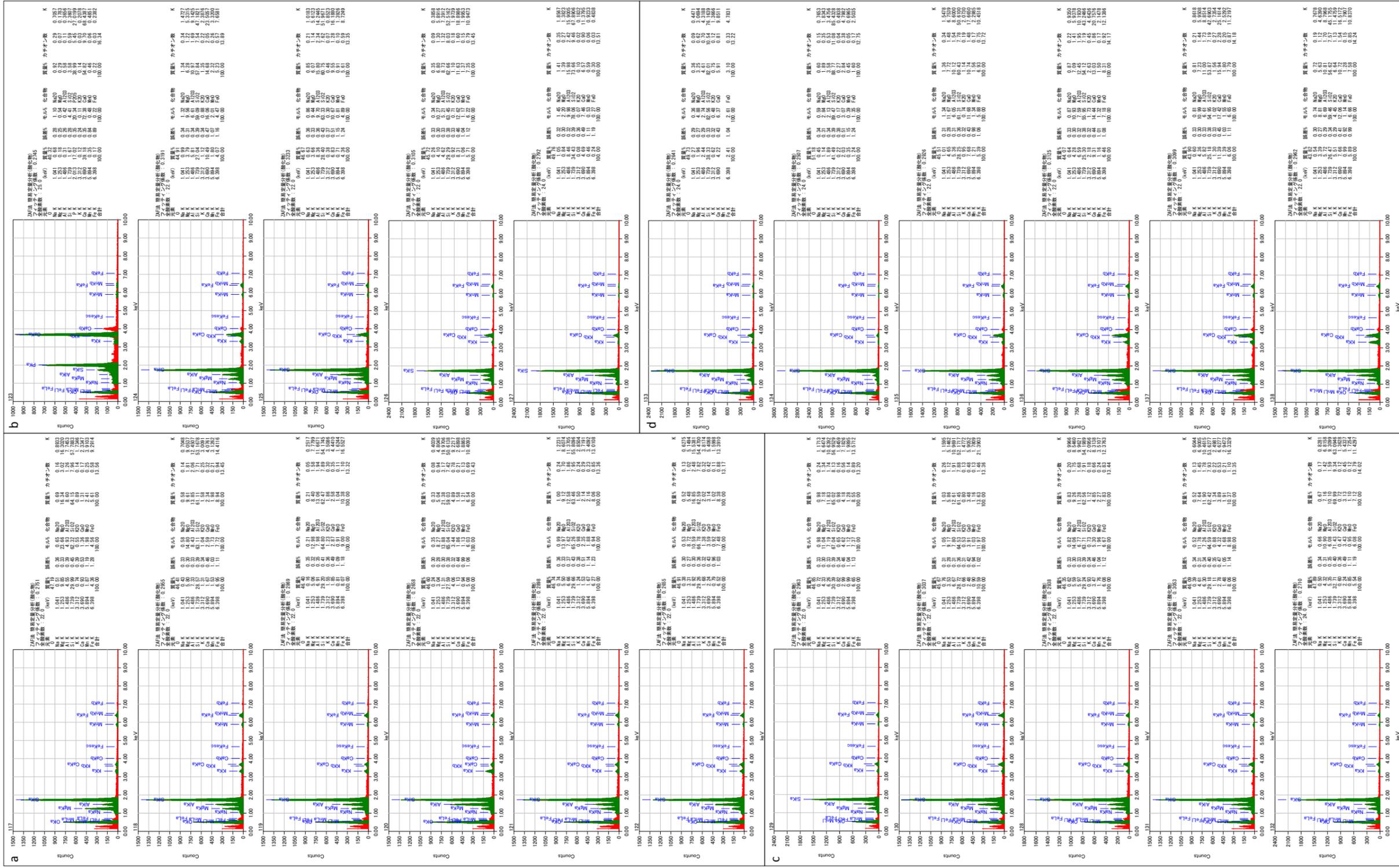


図 3.2.2-2 FESEM-EDS 分析結果(BBDH10-14-Rh-041)

(2) BBDH08-13-Rh-010

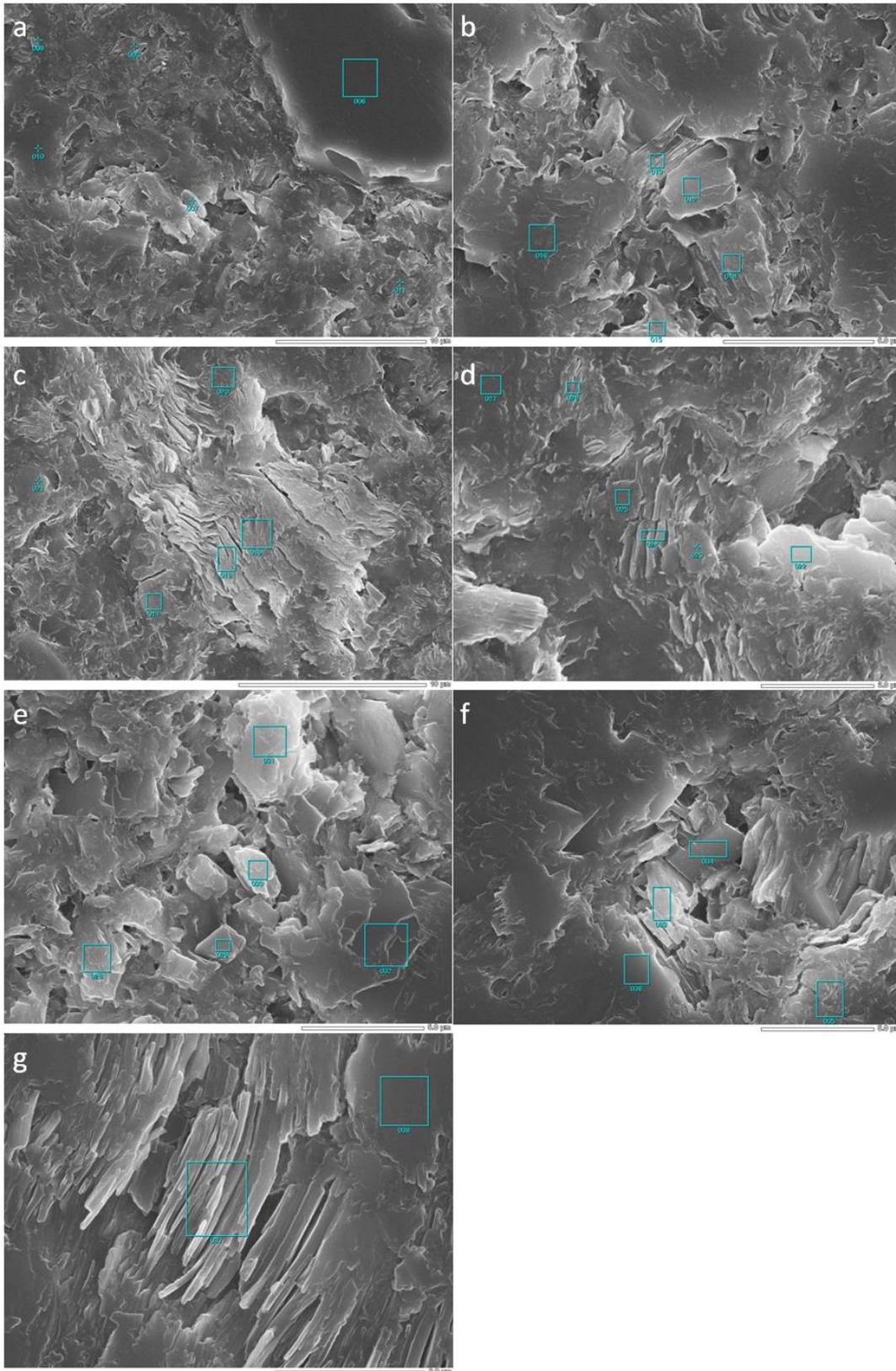


圖 3.2.2-3 FESEM-EDS 觀察結果(BBDH08-13-Rh-010)

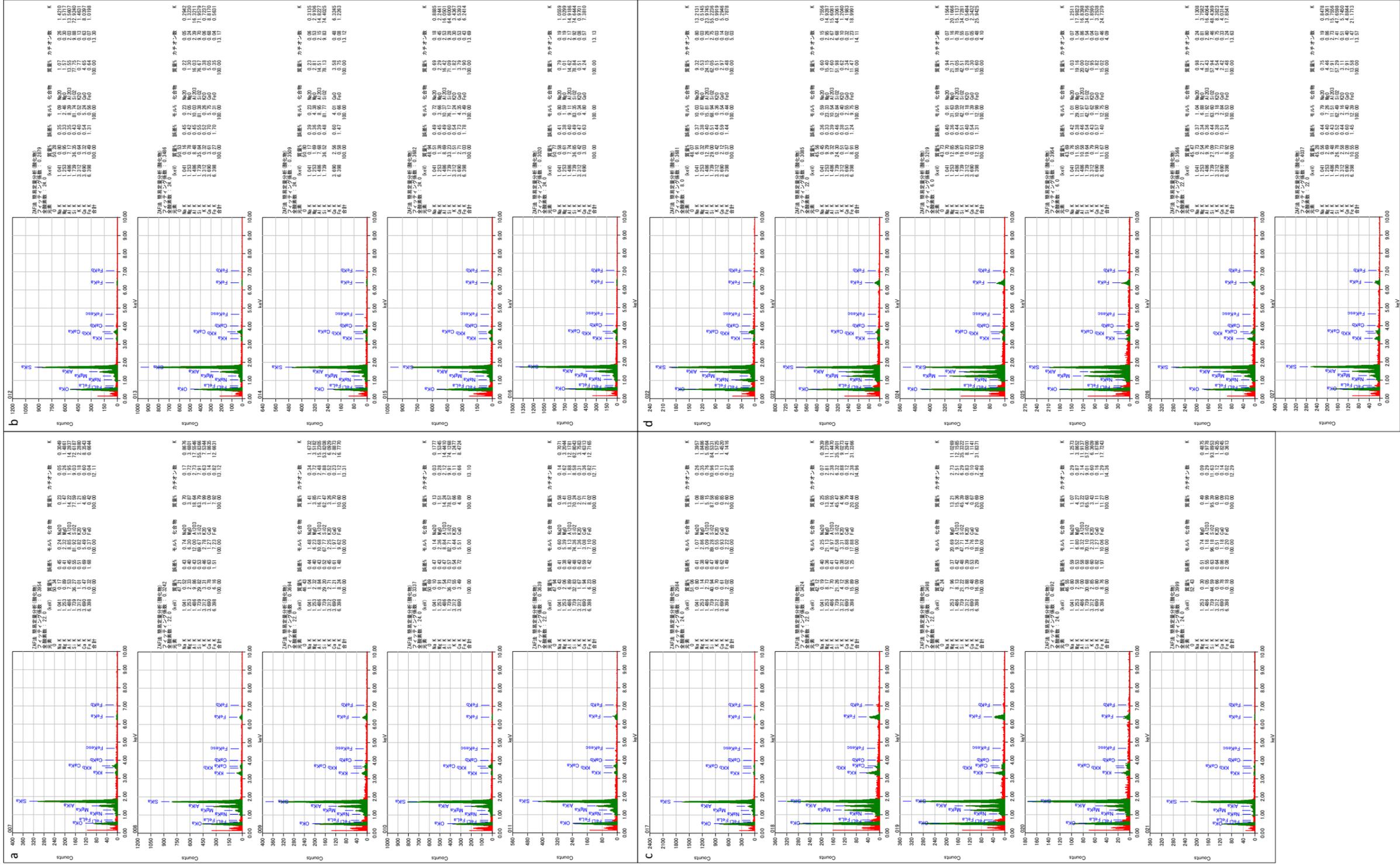


図 3.2.2-4 FESEM-EDS 分析結果(BBDH08-13-Rh-010, その1)

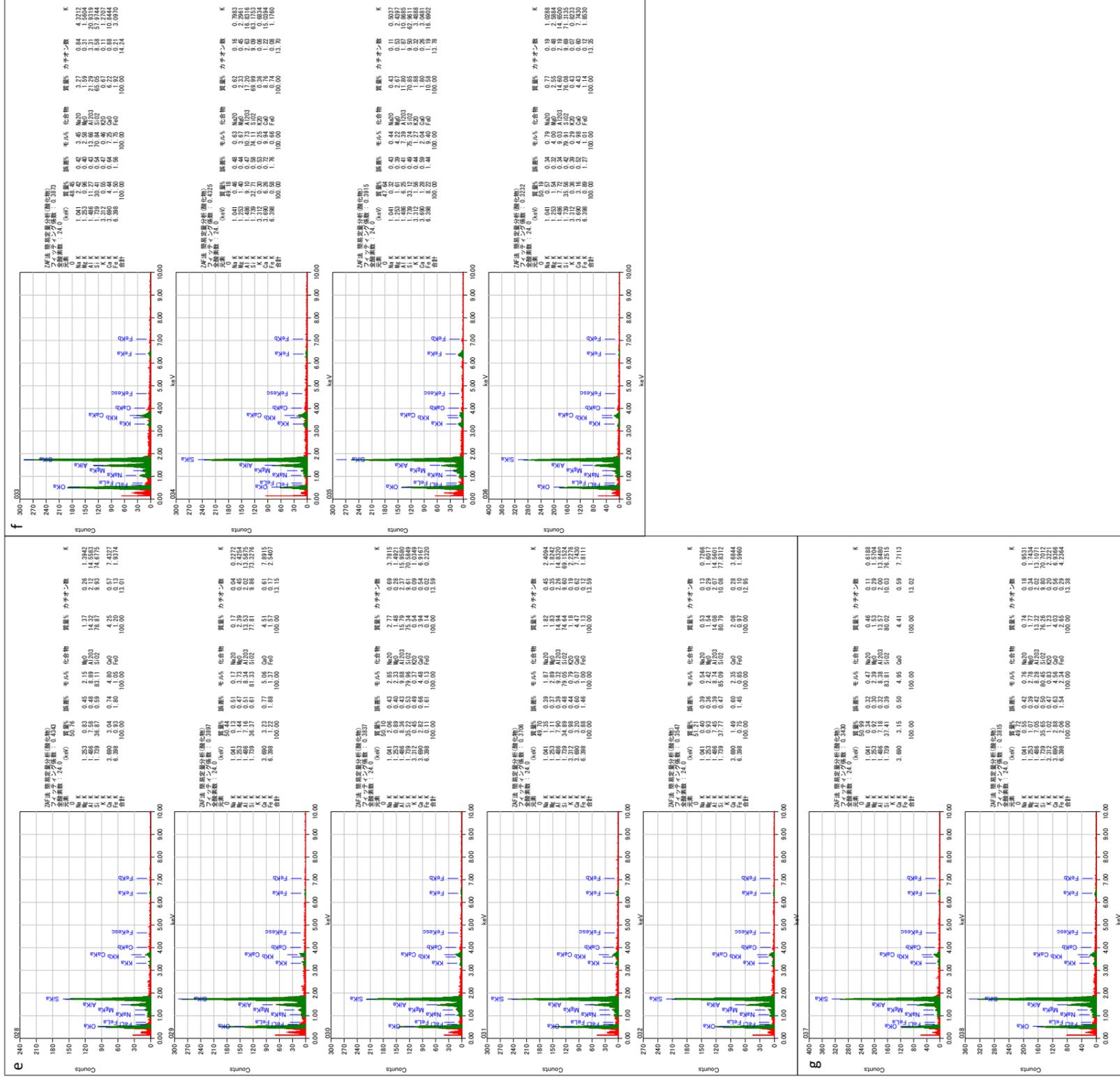


図 3.2.2-5 FESEM-EDS 分析結果(BBDH08-13-Rh-010, その2)

3.2.3 μ -XRD 分析結果

岩片試料を用いた μ -XRD スポット分析による構成鉱物の同定を行った。結果をスポット位置を示す画像とともに以下に示す。

(1) BBDH10-14-Rh-041 の分析結果

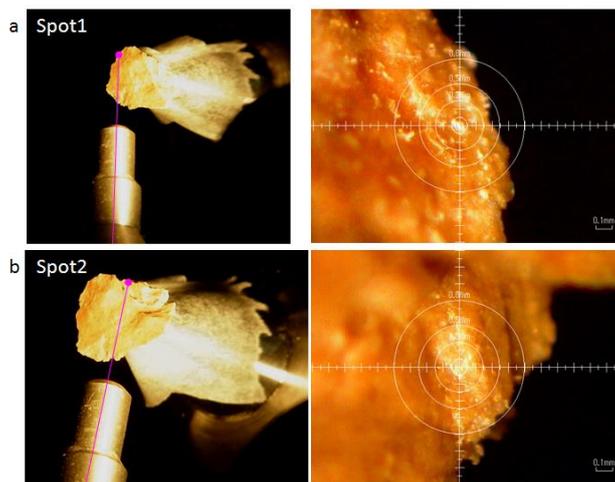


図 3.2.3-1 μ -XRD 分析スポット(BBDH10-14-Rh-041 試料)

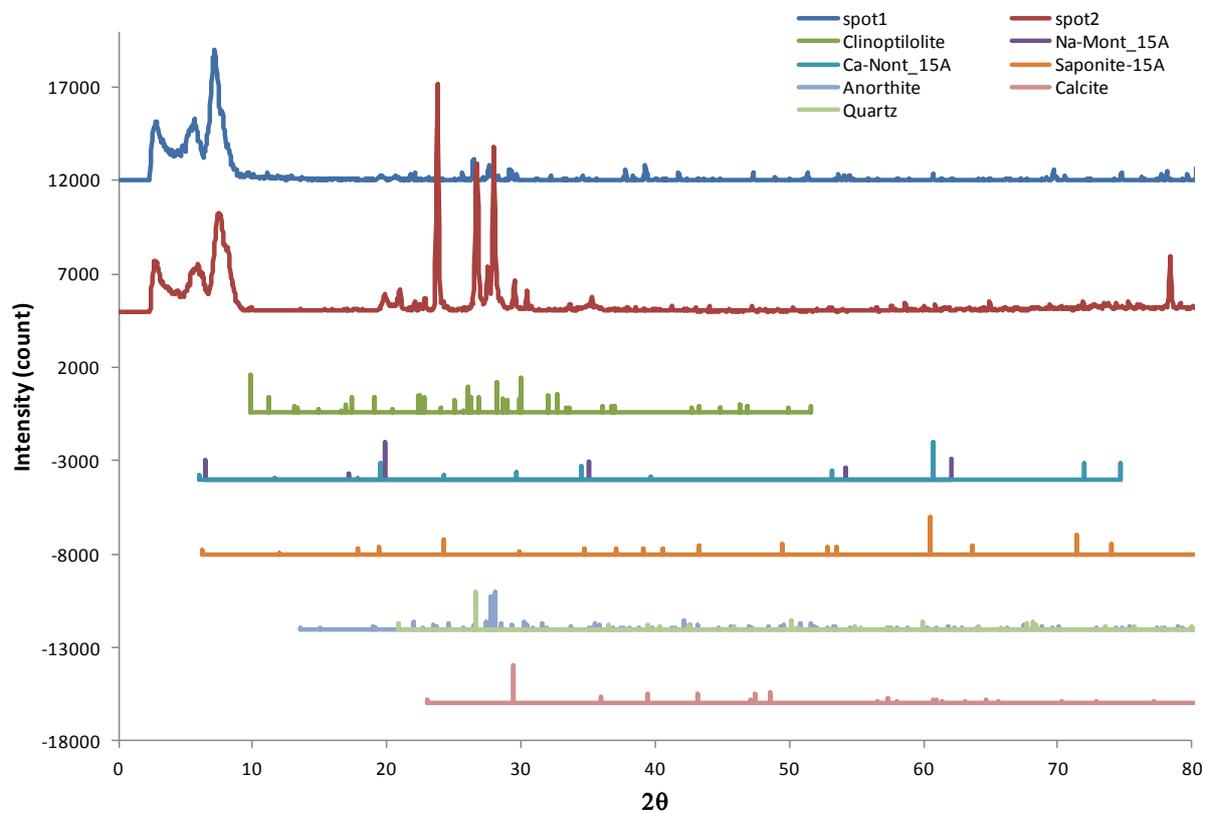


図 3.2.3-2 XRD パターンと解析結果(BBDH10-14-Rh-041 試料)

$2\theta = 23^\circ$ 近傍にはサポナイトもしくはノントロナイトの鋭いピークが認められる。これらのスメクタイトと共に斜プチロル沸石と方解石のピークが弱く検出されている。

(2) BBDH08-13-Rh-010 の分析結果

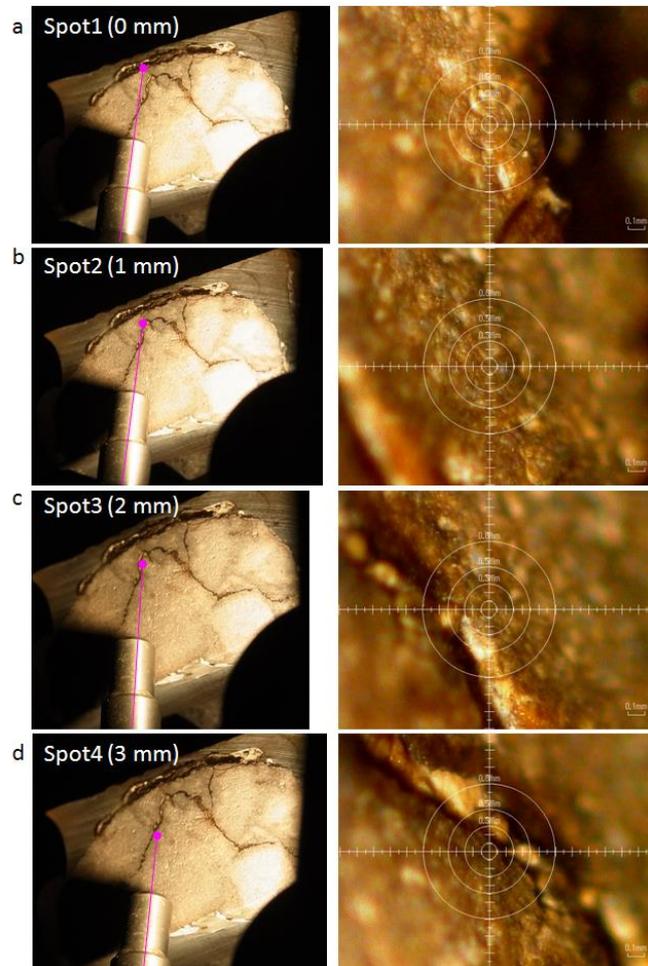


図 3.2.3-3 μ -XRD 分析スポット(BBDH08-13-Rh-010 試料)

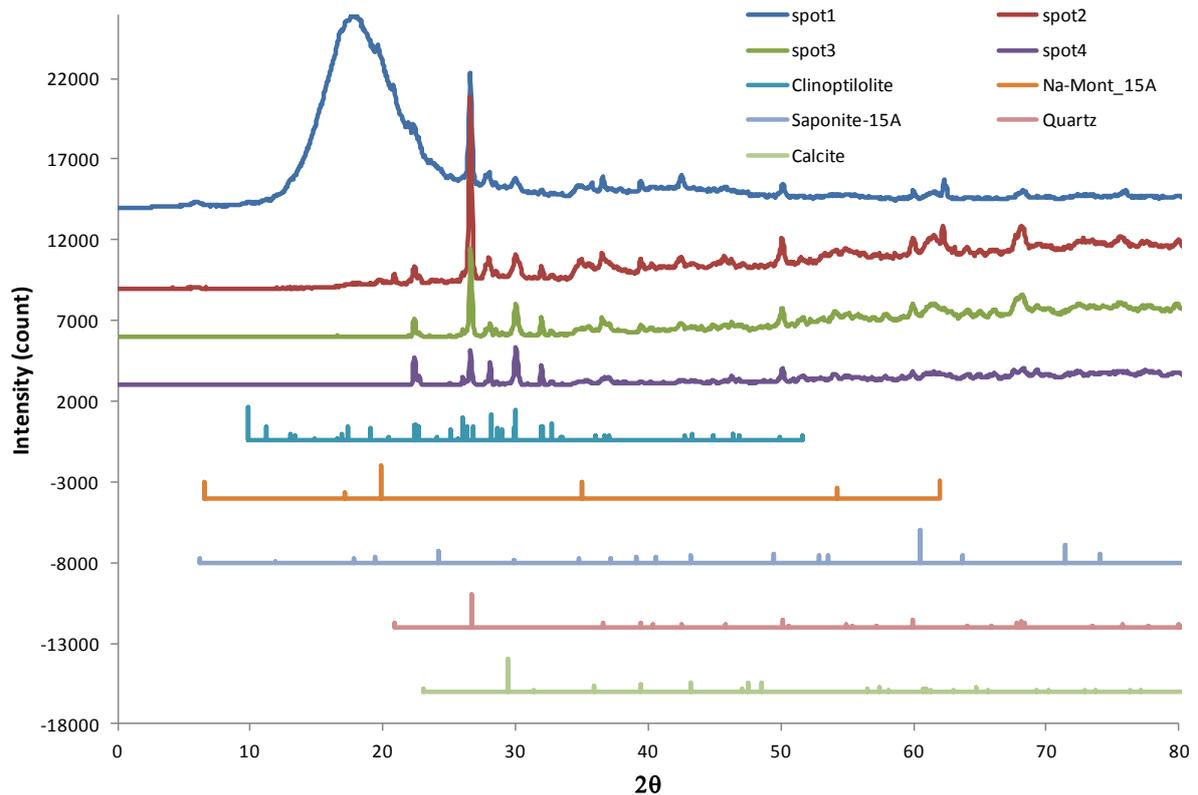


図 3.2.3-4 XRD パターンと解析結果(BBDH08-13-Rh-010 試料)

どのスポットも共通して斜プチロル沸石と石英のピークが顕著である。非常に弱い方解石のピークも認められる。

3.2.4 記載岩石学的分類

オフィオライトの基盤岩の直上に分布する褐色粘土岩の岩石種を構成鉱物やその変質相の特徴から分類したものを表 3.2.4-1 に示す。両褐色粘土岩ともモンモリロナイトを含むベントナイトといえるが、BBDH08-13-Rh-010 のほうがアルカリ変質と考えられる沸石化が進んでいる。

表 3.2.4-1 分析試料の記載岩石学的分類

Sample ID	Rock name	Minerals	Remarks
BBDH10-14-Rh-041	Montmorillonite bentonite	Calcite Montmorillonite Nontronite Clinoptilolite Apatite	Montmorillonite-rich bentonite with Ca-Mg alteration along the cracks.
BBDH08-13-Rh-010	Montmorillonite-saponite bentonite	Clinoptilolite Quartz Calcite Montmorillonite Saponite Apatite	

3.2.5 スメクタイト・沸石の組成的特徴

(1) スメクタイトの組成的特徴

天然ベントナイト中のスメクタイトの組成変化は、ナチュラルアナログ分析から推定される過去のアルカリ変質過程を物語る非常に重要な情報の一つである。そこで、基盤岩直上の粘土岩を含め本年度分析したすべてのスメクタイトの層間イオン組成 (XCa 値) と 6 配位陽イオン組成 (XFe 値) について、比較したプロットを試みた。図 3.2.5-1 にその結果を示す。

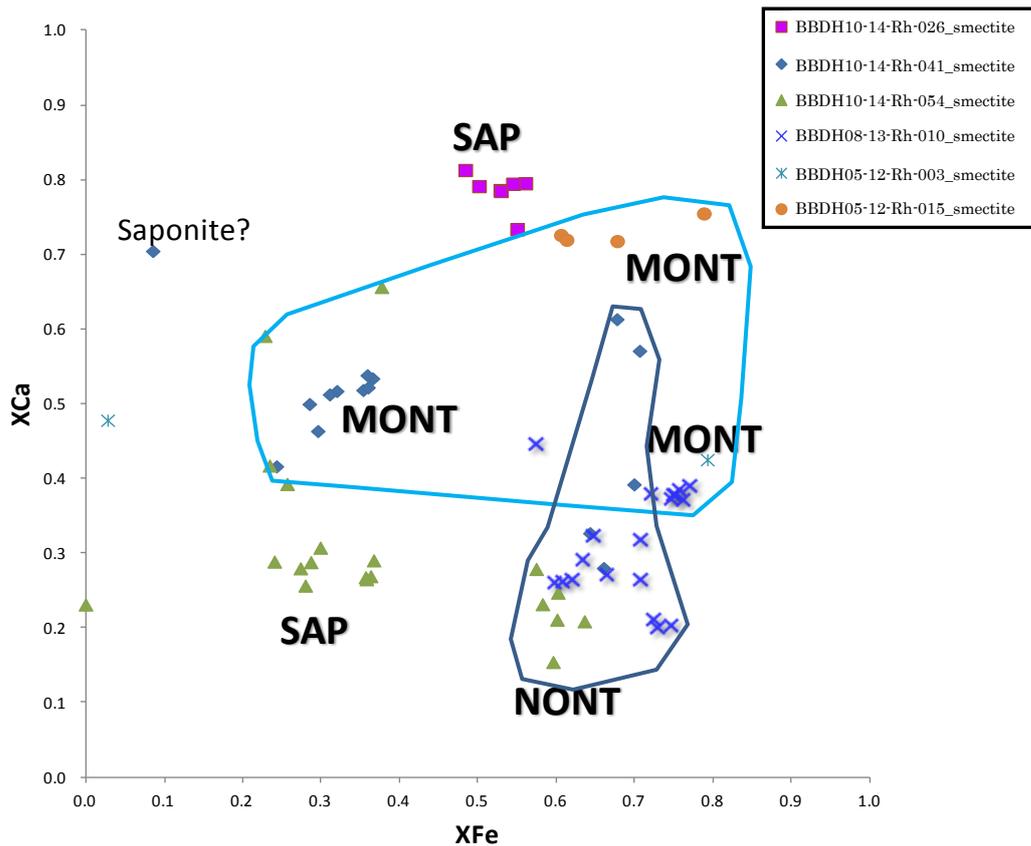


図 3.2.5-1 スメクタイトの X_{Fe}-X_{Ca} プロット

このプロットから、スメクタイトの Ca 組成変化は、モンモリロナイトが 0.5-0.7 近傍に集まるのに対し、ノントロナイトとサポナイトは Ca に富むグループ (XC_a > 0.7) とそうでないグループ (0.1-0.3) に二分されることがわかる。これら 2 つのグループは、源岩の化学組成に支配されてスメクタイトの層間イオン組成が変化すると解釈できる。例えば、XC_a 値の高い BBDH10-14-Rh-026 試料は輝石を含むやや苦鉄質な安山岩からデイサイトの変質したものであるし、XC 値が低い BBDH10-14-Rh-054 は玄武岩が変質したもので、沸石として方沸石を有する。

このプロットから検討すると、モンモリロナイトについて注目すべき試料は BBDH05-12-Rh-015 試料である。XC_a 値が高いモンモリロナイトをもつ BBDH05-12-Rh-015 試料は、非常に多くの沸石が存在し、その粒間にモンモリロナイトが残存している。つまり、沸石への変質過程で、モンモリロナイトは強い Ca 置換にさらされる事実を示している。しかし、層間イオンの総量

(CEC) はモンモリロナイトの構造式に強く支配されて決まるため、XCa 値という相対値では容易に判定できない。具体的にはモンモリロナイトでは、4 配位サイトの Al(4)が多く、Fe²⁺, Mg²⁺などの 6 配位サイトの 2 価の陽イオンが多い場合には正の電荷不足が生じるため、チャージバランスをとるために層間イオン総量が増える。BBDH10-14-Rh-026 試料のモンモリロナイトは図 3.2.5-2 に示すように、Ca (apfu)は 0.3 近傍を示しており決して多くないことがわかる。その理由は Fe や Mg が少ないことに起因していると思われる。

最も均質に近い組成レンジを示している BBDH10-14-Rh-041 試料のモンモリロナイトでは、亀裂にそって進行する弱い Ca 変質が認められている。この亀裂では、XCa = 0.52 とやや高く、Ca = 0.43 apfu を示している。すべてのスメクタイトにおける Mg vs. Ca プロット (図 3.2.5-2c) では、非常にラフではあるが、正の相関が見られ、源岩の化学組成に支配された変質が推察される。Fe vs. K においても一部を除くと正の相関が見てとれる (図 3.2.5-2b)。

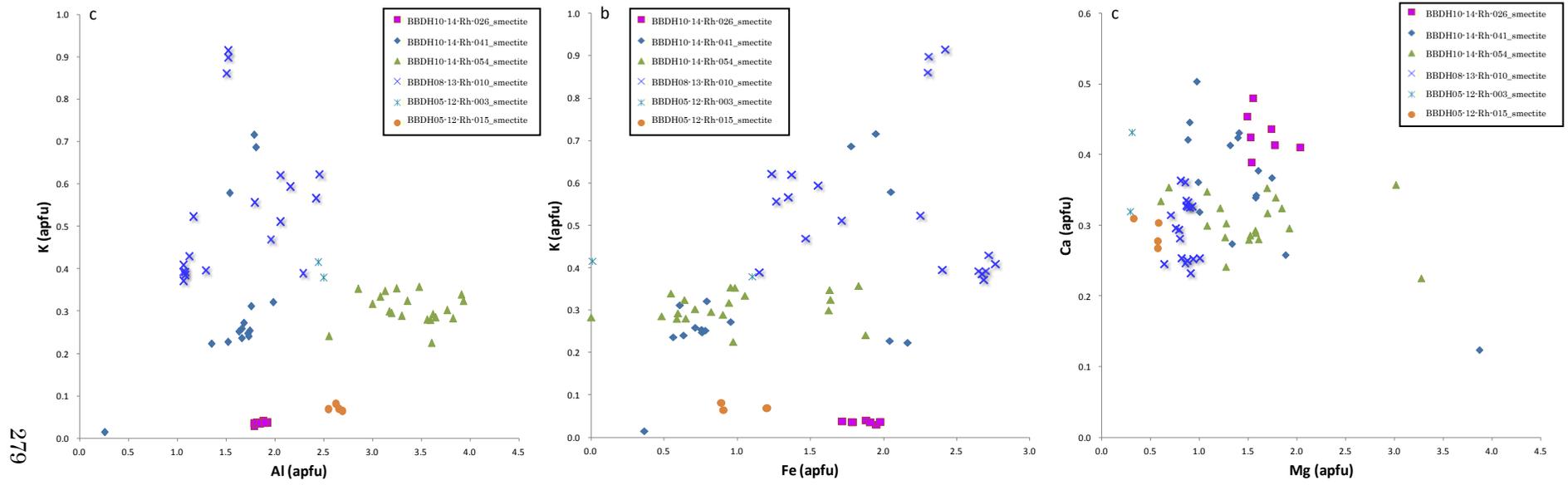


図 3.2.5-2 スメクタイトの組成比較プロット(a: Al vs. K; b: Fe vs. K; c: Mg vs. Ca)

(2) 沸石の組成的特徴

次に、すべての沸石を比較したプロットを試みた。図 3.2.5-3 にその結果を示す。

多くの沸石は斜プチロル沸石のレンジに収まっていることがわかるが、多くはいわゆる輝沸石（鉱物学的には斜プチロル沸石に属する）の Ca に富む沸石である。BBDH10-14-Rh-054 試料のみ Na 系の方沸石を産しており、他とは全く異なる変質過程があったことを示している。

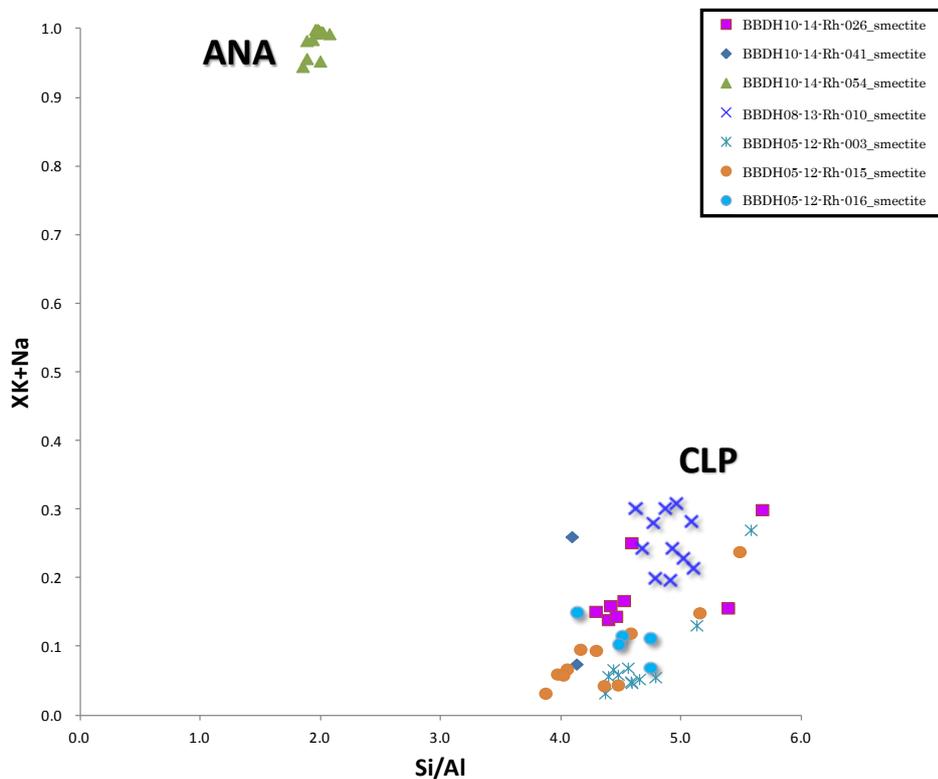


図 3.2.5-3 沸石の分類プロット

3.3 低アルカリ環境下のアルカリ変質反応による変質鉱物形成の地球化学的プロセス

Bigbiga 地区にある低アルカリ地下水が湧水している既存井戸 (Well-1 ; pH 9.7) 周辺で実施した試錐調査 (DH08 孔 <平成 25 年度実施>、DH10 孔 <平成 26 年度実施>) により採取したコア試料について、前節で説明した各種試験・同定・分析 (岩石鉱物学的記載・鉱物試験など) 結果に基づき、低アルカリ地下水環境下でのベントナイト質堆積物の変質反応による変質鉱物生成の地球化学的プロセスを考察する。

Aksitero 累層は遠洋性・深海環境で堆積・固結した堆積岩であるが、一部、タービダイト (陸源堆積物相) で特徴づけられる混濁流の堆積物を伴う。この累層は、基盤岩である Zambales オフィオライト複合岩体の上位にある枕状溶岩 (場所により自破碎玄武岩溶岩) と断層関係で直接接し、主に石灰岩、石灰岩質砂岩・泥岩・シルト岩などから構成されている。

ここで対象とするベントナイト質堆積物は、基盤岩の近傍にあり、目立った淡褐色を呈し、局所的ではあるがやや伸長したパミスと火山灰および、極少量の火山ガラスなどを伴う凝灰質な岩質である。その堆積環境は、比較的良好な層理面をもって石灰質砂岩・泥岩層へ薄層として挟在し、部分的ではあるが互層関係で分布している。また、このベントナイト質堆積物は、北部に位置する Saile ベントナイト-沸石鉱床の成因と同じく、長期の埋没・続成作用により形成されたものである。

今年度の鉱物試験などに使用した岩石試料 (Aksitero 累層のベントナイト質堆積物) は、低アルカリ変質反応の類似性を示す H25 年度実施した試錐孔から 1 件 (BBDH08-13-Rh-010)、今年度実施した 2 件の試錐コア (BBDH10-14-Rh-026 / Rh-041) および、参考のために基盤岩の Zambales Ophiolite の上部岩相である破碎された 1 件の玄武岩質溶岩 (BBDH10-14-Rh-54) である。それぞれの試料コア採取深度と岩相・岩質などについては、2 章の試錐柱状図 (DH08 孔 : 図 2.3.3-1~図 2.3.3-3, DH10 孔 : 図 2.3.1-6~図 2.3.1-8) を参照いただきたい。特に、2 件の岩石試料 (BBDH08-13-Rh-010 と BBDH10-14-Rh-041) は基盤岩の直上に位置し、Zambales オフィオライト岩盤中の断裂系に沿って湧出した低アルカリ性裂か水と接触して、低アルカリ性裂か水との変質反応が生起・持続したものと考えられる。

BBDH10-14-Rh-026 は、緻密な組織であるが、明瞭な淡褐色帯と白色帯の不均質なバルク組成を反映するような岩相を持つ石英安山岩起源の暗灰色の凝灰質・石灰質泥岩である。

一方、BBDH10-14-Rh-41 も同じく緻密な組織であるが、粘土量が多いベントナイト質な岩質である。ただ、BBDH10-14-Rh-026 と比べて、やや塩基性の安山岩起源の淡褐色の凝灰質泥岩である。

BBDH08-13-Rh-010 は、石英安山岩起源の微細な火山性碎屑物を含有する比較的均質な淡褐色のベントナイト質砂岩・泥岩である。岩質・岩層の特徴として、沸石とモンモリロナイトの鉱物分帯が観察される。これは、初期の原岩組成と堆積構造を反映したものと考えられる。全体的に、微化石由来の燐灰石が散在している。これらの堆積岩のモンモリロナイト量については、DH08 孔の試錐コア (BBDH08-13-Rh-010) が多く観察されるが、DH 10 孔では試錐コア (BBDH10-14-Rh-041) の方が、試錐コア (BBDH10-14-Rh-026) より多く含有している。

従って、よりベントナイト質堆積物であり、低アルカリ地下水の湧水近傍にあるという地質・水理地質構造学的・地球化学的環境のもとでの低アルカリ性地下水環境下での変質反応（溶解・沈殿反応）を考察する上で好ましい岩石試料として DH08 孔の BBDDH08-13-Rh-010 と DH 10 孔の BBDH10-14-Rh-041 を選定・考察する。なお、参考のために、BBDDH10-14-Rh-026 と BBDH10-14-Rh-054 の岩石試料（分析結果は 2.3.1 に記載）を合わせて検討する。

一般的には、自然界での続成作用による変質反応は、ベントナイトの原岩の堆積作用（堆積環境、堆積速度、粒度、層厚など）とその堆積物に含有されている間隙水（組成、性状、量など）などの地球化学的挙動との相互作用における時間依存性を考慮して考察することが必要である。特に、低アルカリ性地下水環境下でのモンモリロナイトの変質反応に深く関与するモンモリロナイトの溶解については、熱力学平衡論か、溶液中の Si 濃度に依存する経験的溶解速度（または、実験的溶解速度）により評価されている。ここでは、低アルカリ性地下水環境下でのモンモリロナイトの長期における変質反応に係る地球化学的プロセスに着目して、モンモリロナイト溶解・沈殿反応により形成された二次鉱物の鉱物学・鉱物化学的特性（鉱物組み合わせ・組成、組織など）について検討し、変質鉱物形成の地球化学的プロセスを考察する。

BBDH10-14-Rh-026 の鉱物組み合わせについては、 μ -XRD の回折結果（図 2.3.1-93）、淡褐色帯はサポナイト（ノントロナイト）+ 斜プチロル沸石で、白色帯は方解石が顕著である。また、副成分鉱物としては、スメクタイト、斜長石(An_{50-70})、石英、斜方輝石が同定される（図 2.3.1-88）。

変質反応プロセスは、石英安山岩質のガラスである石基部（極微粒子な斜長石+斜方輝石+石英が観察）の溶解・沈殿反応により Ca-スメクタイト、サポナイト、方解石が沈殿後、方解石を取り囲むよう（反応縁）に斜プチロ沸石が形成（交代）されている（図 2.3.1-88、図 2.3.1-89）。

BBDH10-14-Rh-041 の鉱物組み合わせについては、 μ -XRD の回折結果、サポナイト（ノントロナイト）、斜プチロル沸石、方解石が顕著である。また、副成分鉱物としては、スメクタイト、安山岩斑晶鉱物の斜長石(An_{20-70})、石英、カリ長石、リン灰石（生物起源）が同定された（図 3.2.3-2）。特に、特徴的なカリ長石は、Na に富む（曹長石）斜長石のインクルージョンとして沈殿している。また、安山岩起源の凝灰岩質のためにやや苦鉄質鉱物（斜方輝石など）を含有するので、炭酸塩鉱物（方解石）が少なく、沸石に富む傾向を示す。

変質反応プロセスは、基本的には BBDH10-14-Rh-026 と同様であるが、安山岩の石基部（散在する斜長石+斜方輝石+石英）の溶解・沈殿反応により、やや Na-rich スメクタイト($X_{Ca}=0.5$) とノントロナイト、方解石が沈殿後、スメクタイトは Ca・Mg に富むスメクタイトに変化している。また、方解石は取り囲むように斜プチロル沸石により交代して形成されている（図 3.2.1-3、図 3.2.1-4）。

BBDH08-13-Rh-10 の鉱物組み合わせについて、 μ -XRD の回折結果、斜長石(An_{40-60})、斜プチロル沸石と石英が顕著であるが、少量のモンモリロナイト、サポナイト(Fe-サポナイト)と方解石が同定される（図 3.2.3-4）。

変質反応プロセスは、安山岩質ガラスの変質反応により、やや Fe に富むモンモリロナイトが形成され、その後、ノントロナイト質スメクタイトへ変化したものと考えられる。沸石については、石英に富む火山性砕屑物の変質反応により、殆どが斜プチロル沸石である。このようなノントロナイトと斜プチロル沸石の層状構造は原岩の組成（やや苦鉄質と石英質）の違いに依るもの

と考えられる (図 3.2.1-8)。

なお、DH10 孔内から取得した基盤岩の試錐コアである BBDH10-14-Rh-54 は、角礫化した玄武岩質溶岩で、部分的にスピライト化作用 (Ca に富んだ斜長石が曹長石 <Na に富んだ斜長石> に変化する作用) が観察される。この溶岩は急冷周辺相を持ち、微小な粘土鉱物が散在している。また、角礫化したその周辺には、大部分が方解石により充填されている。

鉱物組み合わせについては、 μ -XRD の解析結果、方沸石、ノントロナイト (サポナイト)、普通輝石 (単斜輝石)、Ca に富んだ斜長石 (An_{78})、方解石が同定される (図 2.3.1-102)。

変質反応プロセスは、斜長石が方沸石に交代され、その外縁部にはサポナイト質スメクタイト (3 八面体型スメクタイトであるサポナイト)、局所的には方解石が観察される。ガラス質の石基では、苦鉄質鉱物 (輝石類) がノントロナイト (2 八面体型スメクタイト) に交代され、角礫の隙間を方沸石が充填している (図 2.3.1-97)。

次に、ベントナイト質堆積物に含有されるスメクタイト組成の鉱物学・鉱物化学的特性について考察する。ここでは、DH10 孔から採取した 2 件の試錐コア (BBDH10-14-Rh-026 / Rh-041) と DH08 孔から採取した試錐コア (BBDH08-13-Rh-010) のスメクタイトである。

図 3.2.5-1 に示すように、モンモリロナイトの Ca 組成変化 (X_{Ca}) については、DH10 孔試錐コアでは 0.5~0.7 で、DH08 試錐コアでは 0.2~0.5 内にとどまるが、ノントロナイトとサポナイトは、Ca に富む ($X_{Ca} > 0.7$) ものと、そうでない ($X_{Ca} = 0.1 \sim 0.4$) に区別される。この区別は、ベントナイト質堆積物の組成が反映されているものと考えられる。つまり、BBDH10-14-Rh-026 は、石英安山岩起源の凝灰岩質・石灰質な岩質のために、バルク組成的に Ca に富む特性を示し、その結果、スメクタイト層間イオン組成が Ca に富むものへ変化したものと解釈される。また、モンモリロナイトの層間イオン総量 (CEC) は構造的に強く支配されるので、 X_{Ca} の相対値で判定するのは難しい。具体的には、モンモリロナイトでは、4 配位サイトの Al が多く、 Fe^{2+} 、 Mg^{2+} の 6 配位サイトに 2 価の陽イオンが多い場合には、正の電価不足が生じるために電価バランスを取るために層間イオン総量が増えることになる。

図 3.2.5-2 に示すように、BBDH10-14-Rh-026 のモンモリロナイトの $Ca(apfu)$ は、0.4~0.5 範囲の程度である。これは、Fe と Mg が少ないことに起因しているものと考えられる。BBDH10-14-Rh-41 試料では、 $X_{Ca} = 0.52$ 、 $Ca(apfu) = 0.43$ で、 $[Ca(apfu) - Mg(apfu)]$ 図 (図 3.2.5-2 左図) では、正の相関が見られる。この相関性は、ベントナイト質堆積物の原岩組成に依存しているものと考えられる。一方、BBDH08-13-Rh-010 試料は、DH10 孔の 2 試料の中間的な性質をしめしている。

さらに、沸石組成の鉱物学・鉱物化学的特性については、図 3.2.5-3 に示すように、BBDH10-14-Rh-026、BBDH10-14-Rh-041、BBDH08-13-Rh-010 試料の沸石類は、斜プチロル沸石の領域に入り、組成上の変化は顕著でない。

次に、DH10 孔 (BBDH10-14-Rh-026、BBDH10-14-Rh-041) および、DH08 孔 (BBDH08-13-Rh-010) からそれぞれ採取したコア試料のベントナイト質堆積物 (岩) に含有されているモンモリロナイトの低アルカリ地下水環境下における変質反応による変質鉱物の形成について考察する。低アルカリ地下水による変質反応に係るモンモリロナイトの先駆物質 (Precursor) は、初源的には、火山性碎屑物の隙間を充填する石基のガラス、微小な斜長石、パミスなどである。初生的なモン

モンモリロナイトは、埋没・続成過程での海水環境が、恐らく Na-モンモリロナイトの形成を促し、その後、アルカリ地下水との変質反応プロセスで、陽イオン交換反応により Ca-モンモリロナイト化が進んだものと考えられるが、部分的には、層間内での Ca-Mg の陽イオン交換により組成変化が生じたものも観察される。出発物質である Ca-モンモリロナイトは、初期ではアルカリ地下水との反応であり、その後、炭酸塩鉱物（主に、方解石）の沈殿により pH が緩衝され、低アルカリ地下水との反応に変化したものと推測される。

これまでのモンモリロナイト変質反応に係る地球化学的プロセスに関する鉱物学・鉱物化学的特性データ・知見に基づき変質鉱物の形成を考察する。出発物質である Ca-モンモリロナイトは、アルカリ地下水との溶解・沈殿反応により、サポナイト（3八面体型スメクタイト）、ノントロナイト（2八面体型スメクタイト）、沸石（斜プチロル沸石）、方解石、シリカ鉱物（主に石英）が形成している。なお、この沸石の中には、後生的に方解石の外縁から交代して形成していることが観察されている。

また、カリ長石の沈殿については、BBDH10-14-Rh-041 の試料にのみ観察され、これは安山岩起源の火山性碎屑物のためのバルク組成（塩基性）の違いに起因しているものと考えられる。

これらの低アルカリ変質反応により形成された変質生成鉱物の組み合わせ・組成・組織などは、Saile 鉱山周辺で開削したトレンチ内でのベントナイト層のアルカリ変質反応(Fossil Type)との有意義な差異は観察されなかった。このことは、低アルカリ地下水環境下においても、モンモリロナイトの溶解・沈殿反応は進み、同じような変質鉱物の形成が生起するということになる。この要因として、低アルカリ変質反応による変質鉱物の熟成は、恐らく時間依存性によるものと考えられる[1]。

次に、低アルカリ性地下水環境下でのベントナイト質堆積物の変質反応プロセスを概念的な水理地質構造モデルのもと地下水の地化学特性の両面から考察し、ベントナイト質堆積物の低アルカリ変質反応による変質鉱物生成プロセスを総括する。

まず、水理場における地下水流動系を検討する上で、その対象とする水理地質構造モデルの領域は、北の既存井戸(Well-1)から、その南西約 11m の DH08 孔、そして、Well-1 から南南西約 120m離れた既存井戸(Well-3)、その西 5m の DH10 孔を取り囲む領域とする（図 2.3.3-10）。この領域は、平成 25 年度に実施した TEM 地上物探査領域の北半分にあたる。この境界条件については、北および西側に位置する Aksitero 川の存在（外部境界：定透水性境界）を考慮して設定する。

地下水流動系の場合としては、表層水（降雨水との応答関係）の流動場である表層流動領域、Zambales オフィオライトと Aksitero 累層が断層で接している断層帯で現在も流出している低アルカリ性裂か水($9 < \text{pH} < 10$)の流動場である中層流動領域、そして、Zambales オフィオライトの超塩基性複合岩体内での高アルカリ性($\text{pH} > 11$)裂か水（高アルカリ性地下水の形成場）の流動場である深層流動領域の 3 つの流動領域に区分されようである。なお、この対象地域で、唯一自噴している低アルカリ性地下水($\text{pH} 9.0\sim 9.6$)は、既存井戸(Well-1)だけで、その水量は年間を通じて変わらない。

特に、低アルカリ性地下水の水理特性・流動系を検討するために、既存井戸(Well-1)とその近傍の試誰孔(DH08)、および、これらの南西に位置する既存井戸(Well-3)とその直近の試誰孔(DH10)

を包含した概念的な二次元水理地質構造モデルを作成した (図 3.3.1-1)。但し、既存の 2 つの井戸(Well-1, Well-3)の地質柱状図に関するデータはない。

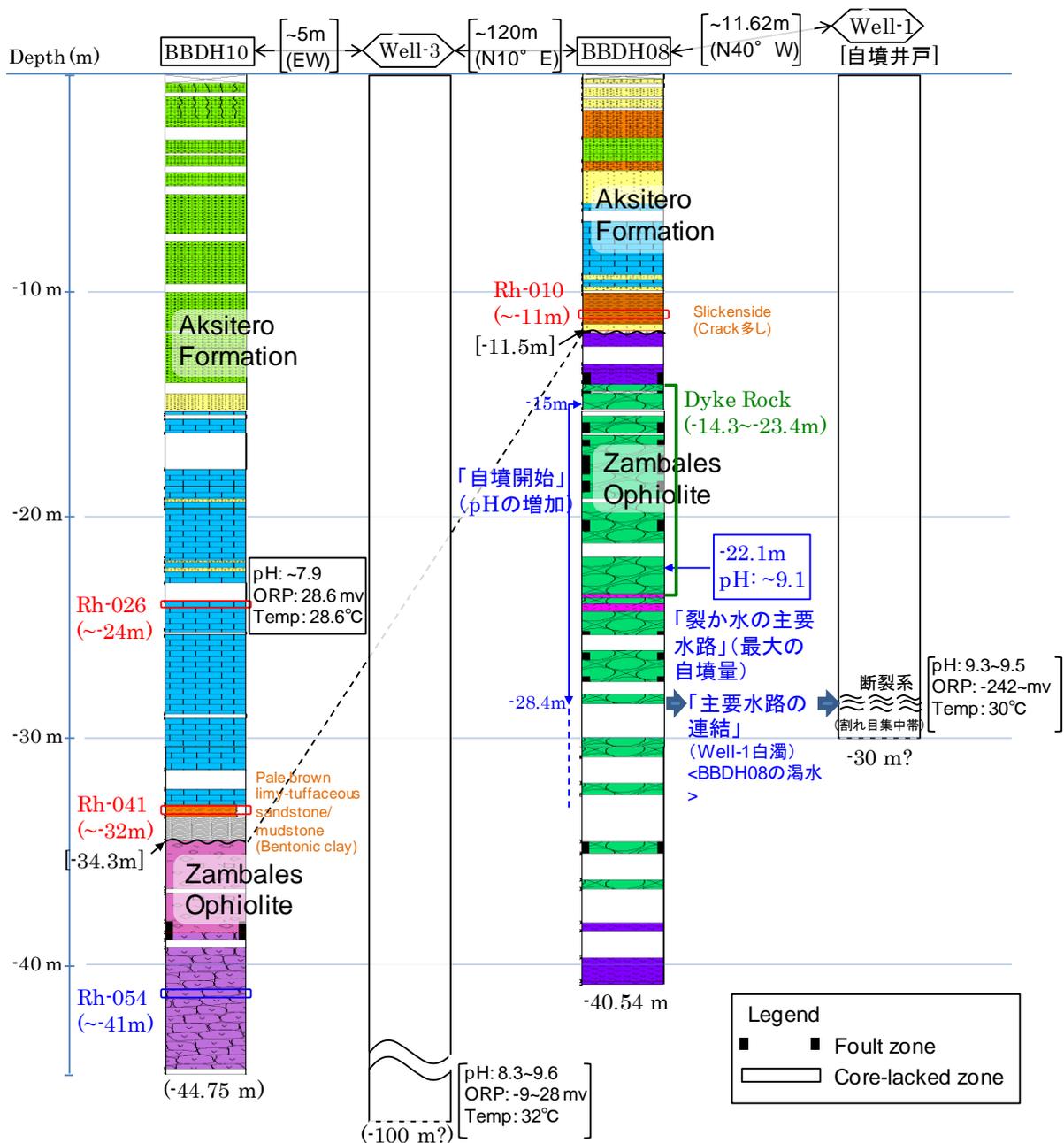


図 3.3.1-1 Bigbiga 地区 Fish Pond 近傍の二次元水理地質構造概念モデル

図 3.3.1-1 から、低アルカリ性地下水の流動位置 (深度) を検討すると、その流動位置は、基盤岩内および近傍に発達している断層帯内部にあることから、DH08 孔では 11m、DH10 孔では、34m と算定できる。その流動方向について試誰柱状図から基盤岩深度から動水勾配を想定すると、低アルカリ性地下水は、DH08 孔 (基盤深度: 約 11m) から東の既存井戸(Well-1)へ流動し、南に位置する DH10 孔 (基盤深度: 約 34m) へ流動するものと考えられる。

更に、確認されている低アルカリ性地下水の存在とその流動特性をもとに、DH08 孔と既存井戸(Well-1)間の水理場について検討する。DH08 孔（基盤深度：約 11m）において、堀削深度約 15m 近傍から自墳開始し、その自墳量は深度約 22m(pH 9.1)で最大（目視）になった。その後、堀削深度約 28m で既存井戸(Well-1)が堀削泥剤により白濁した。このことは、この深度での白濁現象は、DH08 孔と既存井戸(Well-1)の低アルカリ地下水の裂か水の主要な水路が連結していることを意味する。

この自墳深度や白濁深度での母岩は、細粒はんれい岩 / 輝緑岩の岩脈である。この岩脈は、断裂系（割れ目帯）がよく発達しているために、恐らく、低アルカリ地下水の水路としての空間場の提供に寄与したものと考えられる。また、この岩脈の上位には、脈状の非晶質シリカ鉱物の充填が顕著で、おそらく上方への定常量の流入を低減するようなキャップロック（遮水帯）としての役割も担っていたものと考えられる。

従って、このような水理場が、低アルカリ地下水の飽和状態を緩慢に形成・継続し、極めて遅い流速のもと、ベントナイト質堆積物にとって長期の変質反応時間が保持されるような水理地質構造的環境にあったものと推察される。

地下水の地球化学的特性（組成）については、その地下水の起源とその進化過程における地球化学的プロセスに依存していることが指摘されている。この低アルカリ性地下水は、降雨水—Zambales オフィオライトとの相互作用、特に、地下水形成場の母岩の造岩鉱物（カンラン石、輝石類の苦鉄質鉱物）とその変質鉱物との地球化学的反応（蛇紋岩化作用）により形成されたものと考察出来る。低アルカリ地下水の組成は、 $\text{Na}^+(\pm\text{K}^+)-\text{HCO}_3^-$ タイプであるが、一部、 Ca^{2+} を含有することもある。また、若干の Cl^- と SO_4^{2-} の溶存陰イオン種が検出される。これらの陰イオンの供給源は、おそらく化石海水との混和によるものと考えられる。

最後に、このような低アルカリ性地下水環境下でのベントナイト質堆積物のアルカリ変質反応による変質鉱物の形成とその地球化学的プロセスを総括する。

ベントナイト質堆積物の供給源としては、安山岩質なものや石英安山岩質の火山性碎屑物であり、遠洋性・深海環境のもと、大量の微化石などによる石灰質堆積物（石灰岩）が優勢ではあるが、一部、薄層の凝灰質砂岩・泥岩として堆積した。その後の埋没・固結過程での続成作用によりベントナイト化（モンモリロナイトの存在）が進んだものと推察される。

低アルカリ性地下水は、基盤岩である Zambales オフィオライト（基盤岩）と天水起源の降雨水との相互作用により形成された裂か水で、その流動場は、基盤岩と Aksitero 累層が断層で接している断裂系とその近傍（割れ目集中帯）である。水質は、 $\text{Na}^+(\text{K}^+)(\text{Ca}^{2+})-\text{HCO}_3^-$ タイプで若干の Cl^- と SO_4^{2-} （化石海水の影響）を含有し、 pH は $9 < \text{pH} < 10$ である。

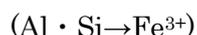
このような環境下でのベントナイト質堆積物に含有されているモンモリロナイトの低アルカリ性地下水との変質反応をまとめると以下ようになる。

① モンモリロナイトの鉄イオンとの反応を伴う変質（溶解・沈殿）反応

(Ca)-モンモリロナイト（2・八面体）→ サポナイト（3・八面体） / 1 部 Fe - サポナイト



→ ノントロナイト（2・八面体）



② モンモリロナイトの溶解・沈殿反応

(Ca)-モンモリロナイト→斜プチロル沸石+カリ長石+方解石+非晶質シリカ鉱物

この低アルカリ変質反応は、Saile ベントナイト→沸石（モルデン沸石を生産）鉱床の周辺部のトレンチ内で観察された”Fossil Type”のものと同様している。ただし、Fossil Type の NA は、アルカリ性地下水($10 < \text{pH} < 11$)によるアルカリ変質反応であり、拡散支配場での物質移動と変質反応による変質鉱物の生成に関する地球化学的プロセスがよく観察できる。

また、この低アルカリ変質反応については、アメリカ・カリフォルニア州・Searles Lake（塩湖）の湖底堆積物（泥岩）の変質反応による変質鉱物（Fe-イライト、方沸石、カリ長石、カオリン、緑泥石）が報告されている[1]。

室内実験ではこのような低 pH の条件ではベントナイトのアルカリ変質はほとんど確認できず、この低アルカリ条件では TRU 処分場の緩衝材の変質の評価でもほとんど変質を受けずにベントナイトが保たれると思われる。一方、Bigbiga のナチュラルアナログでは、時間スケールは明確でないが、低アルカリ条件でも長期の相互作用ではモンモリロナイトがアルカリ変質する事例が観察された。ただし、変質の程度やもともとのベントナイトの鉱物組成や物理条件（処分場の緩衝材に比べると Bigbiga のナチュラルアナログはアルカリ地下水が流れやすい状態だった可能性もある）については、このサイトでは十分データの取得ができないため、この事例だけをもって、処分場での低アルカリ環境下のベントナイトの変質が問題となるとは言えない。このような条件を明らかにするためにも、新たなサイトで 2.6 に示したようなトレンチによる系統的サンプリングで変質による鉱物組成や物理状態の空間的な変化を把握することが重要である。

アルカリ変質プロセスについては、上記のように Bigbiga においても鉄を含む鉱物変遷が確認できた。現状検討している TRU 処分場の変質解析では鉄の影響（鉄鉱物が沈殿するくらいの鉄イオンの溶出）は直接考慮していないが、処分場の概念によっては廃棄体のパッケージや構造躯体等は鉄の供給源となりうる可能性があるため、このナチュラルアナログのアルカリ地下水が基盤岩（玄武岩ガラス等）の鉄を溶かしてベントナイトに作用したような環境が実際の処分場でも十分想定できる。また、この鉄を含む二次鉱物は Saile 鉱山のナチュラルアナログではクロッキングによる物質移行の阻止によって変質反応が進まない、といった効果も確認しており、このような鉄の影響がある環境でのアルカリ変質プロセスについては、これを処分場の評価においてどのように扱うか、変質解析も含めさらに検討が必要である。

[参考文献]

- [1] Savage, D., Benbow, S., Watson, C., Takase, H., Ono, K., Oda, C. and Honda, A.: Natural systems evidence for the alteration of clay under alkaline conditions: An example from Searles Lake, California. *Appl. Clay Sci.*, 47(1-2), 72-81 (2010).

第4章 年代測定による反応時間の評価

4.1 フィリピンでのナチュラルアナログにおける年代測定の検討

ナチュラルアナログ研究は、自然界に存在する類似現象に着目し、特に室内実験など他の方法で直接評価できない長期現象を直接観察し、地層処分の性能評価に役立てるという役割を担っている。そのため、その類似現象やそこまでに至るプロセスの時間スケールを把握することは極めて重要な課題であると位置づけられる。

フィリピン国には、Zambales オフィオライトや Palawan オフィオライトに代表されるオフィオライトが広く分布しており、その一般層序は年代の古い順にかんらん岩・斑レイ岩・輝緑岩岩脈・玄武岩枕上溶岩・堆積層（Zambales オフィオライトでは Aksitero 累層；泥岩、砂岩、凝灰質砂岩（ベントナイト質、沸石質））で構成されている。また、地下にはオフィオライト起源の高アルカリ水（オフィオライトの超塩基性岩と天水との反応（蛇紋岩化作用）により生成）が流れている。この高アルカリ地下水は、断裂系に沿って湧出し、ベントナイト層に接触しており高アルカリ水によるベントナイトの変質プロセスを研究するのに適した地域である。

このようなナチュラルアナログサイトにおいて最も把握すべき時間スケールは、オフィオライト蛇紋岩化作用などに伴う高アルカリ環境下のベントナイトの変質過程における①ベントナイト胚胎層（深海成の碎屑性堆積物）の堆積時期及び埋没・続成変質作用の時期、②高アルカリ地下水の生成時期（滞留時間）、③高アルカリ地下水のベントナイト層への侵入・浸透時期、④高アルカリ地下水によるベントナイト層の変質帯の形成時期、である。これらの年代評価の適用性の検討のために、放射年代測定手法の適用性を整理した（表 4.2.1-1）。

ベントナイトの変質プロセスの時間スケールを把握するためには、ベントナイトの変質帯の形成時期を直接測定することが望ましい。しかしながら、ベントナイト変質プロセスの温度が低いことが推定されるため（150°C以下）、熱年代学的手法によってベントナイトの変質年代を直接測定することは難しい。またベントナイトの変質で生じた鉱物に適した年代測定法にも乏しく、適用できる手法は極めて限られたものである。そのため本事業のナチュラルアナログにおいては、オフィオライトからのアルカリ地下水生成プロセスに着目し、高アルカリ地下水が通った痕跡である断裂系充填物や堆積物等の炭酸塩鉱物の年代決定から、この地域でいつ頃から高アルカリ地下水が湧出し、それによる変質が起こっていたかを推定することを検討する。

断裂系充填物に含まれる炭酸塩鉱物（方解石）については、高アルカリ地下水が閉塞される最終期に CO₂ に接して形成したと考えられることから、方解石の生成年代から高アルカリ地下水の閉塞時期を推定することのために、これまで熱ルミネッセンス（TL）法による年代測定を検討し、その適用可能性を示した。さらに、評価年代の精度向上（鉱物組成や産状等の影響）を図るために、フィリピン国ルソン島北西部の Zambales オフィオライトの西端の Active Type のナチュラルアナログ候補サイトである Bigbiga の炭酸塩鉱物について、その TL 特性とそれを踏まえた年代測定について検討した。

表 4.2.1-1 フィリピンのナチュラルアナログにおける放射年代測定の適用性

放射年代測定内容	放射年代測定のための試料仕様	放射年代測定法			備考<可能な分析依頼先>
		液相	固相 (鉱物/全岩)	放射年代測定法[測定年代範囲]	
1. ベントナイト胚胎層 (深海成の碎屑性堆積物) の堆積時期及び埋没・続成変質作用の時期	(1) ベントナイト層における未変質部の主要構成鉱物 (2) ベントナイト層を構成する主要構成鉱物		(i) ベントナイト層の未変質な鉱物 1) 主要構成鉱物 ➢ 斜長石 ➢ 黒雲母・絹雲母 ➢ 石英 ➢ (火山ガラス・軽石) 2) U-Th 含有の副成分鉱物 ➢ ジルコン ➢ モナザイト ➢ アラナイト ➢ ゼノタイム ➢ 燐灰石 3) その他 ➢ 化石 (ii) ベントナイトを構成する変質鉱物 ➢ ベントナイトと共生関係にある鉱物	(i) K-Ar [10,000~30 億年] (ii) U-Pb [100 万~45 億年] (iii) Rb-Sr [6,000 万~45 億年] (iv) ESR [1,000~100 万年] (v) FT [50 万~10 億年] (vi) OSL [0~50 万年] (vii) TL [0~50 万年] (viii) LA-ICP-MS (U-Pb) (ix) Ar-Ar (x) CHIME [8000 万年~]	※ 閉鎖温度放射年代 (年代値) (ii) SHRIMP<広島大> (ix) <産総研> (x) サブグレイン年代<名古屋大>
2. 高アルカリ地下水の生成時期 (滞留時間)	(1) オフィオライト-水相互作用 (蛇紋岩化作用) ① オフィオライト基盤岩中の断裂系に伴う地下水 (湧水) ② 試錐孔 (オフィオライト岩盤内) の地下水 (深層地下水)	地下水		(i) ¹⁴ C [500~40,000 年] (ii) ³⁶ Cl [50,000~200 万年] (² H(D), ¹⁸ O (涵養源・起源))	(i) <名古屋大/ (JAEA・TGC) > (ii) <電中研/オーストラリア国立大> <地球化学研究所等>
3. 高アルカリ地下水のベントナイト層への侵入・浸透時期	(1) オフィオライト岩体中の断裂帯 (高アルカリ地下水の水路) の変質部 (2) ベントナイト層中の断裂帯 (高アルカリ地下水の水路) の変質部 (3) 試錐孔内での断裂帯の変質部		(i) 断裂帯の充填物 ➢ 粘土鉱物他 ➢ 蛇紋石 ➢ 斜長石 (曹長石) ➢ 方解石	(i) K-Ar [10,000~30 億年] (ii) U-Pb [100 万~45 億年] (iii) Rb-Sr [6,000 万~45 億年] (iv) ESR [1,000~100 万年] (v) FT [50 万~10 億年] (vi) OSL [0~50 万年] (vii) TL [0~50 万年] (viii) U-Th [0~50 万年]	(v) <金沢大> (vi) <金沢大> (vii) <金沢大>
4. 高アルカリ地下水によるベントナイト層の変質帯の形成時期	(1) オフィオライト岩体の上部層 (枕状溶岩) の変質部 (2) ベントナイト層の変質 (変質ハロー) 部 (3) 試錐孔内でのベントナイト層の変質 (変質ハロー) 部		(i) タキライト層の変質部 ➢ 玄武岩質ガラス ➢ 粘土鉱物他 ➢ 斜長石 (ii) ベントナイト層の変質ハロー部 ➢ 粘土鉱物他 ➢ 蛇紋石 ➢ 斜長石 ➢ ジルコン他 (U-Th 含有の副成分鉱物)	(ix) LA-ICP-MS (K-Ar) (x) EPMA (xi) CHIME [8000 万年~] (xii) SHRIMP (U-Pb)	

ESR : Electron Spin Resonance, FT : Fission Track, OSL : Optically Stimulated Luminescence, TL : Thermal Luminescence,

CHIME : Chemical Th-U-total Pb Isochron Method, SHRIMP : Sensitive High Resolution Ion-MicroProbe, LA-ICP-MS : Laser Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry

4.2 方解石の熱ルミネセンス年代測定

4.2.1 熱ルミネセンス年代測定法

熱ルミネセンス（Thermoluminescence: TL）年代測定法とは、環境放射能により放射線を受けた鉱物を加熱するときに出るルミネセンス（発光）の量から年代を算出する方法である。試料自体にウランやカリウムなどの放射性核種をほとんど含まなくても年代測定が可能である。

U,Th,K等の放射性元素からの放射線（ α,β,γ 線）や宇宙線が鉱物に照射されると、鉱物を構成する原子の電子が電離する。電子が欠けた部位をルミネセンスセンター（正孔）と呼ぶ。電離した電子の大部分はすぐに元の状態になるが、一部は欠陥光子や不純物に捕らえられ捕獲電子と成る。図 4.2.1-1 のように捕獲電子は加熱や光の照射等の刺激を与えることにより解放され、正孔と再結合し、この際にルミネセンス現象が起こる。熱による発光を熱ルミネセンス、光による発光を光励起ルミネセンス（Optically stimulated luminescence）と呼ぶ。

ルミネセンス量は今まで鉱物が受けた放射線量（蓄積線量）に比例するので、ルミネセンス量を調べることで蓄積線量を求めることができる。鉱物周囲の自然放射線の強さを基にすれば、蓄積線量との関係から時間情報（経過年代）を知ることができる。式では次のように表せる。

$$\text{年代} = \text{蓄積線量} / \text{年間線量} \quad (4.2.1-1)$$

年間線量は1年間に鉱物が受ける放射線の量であり、鉱物周囲の自然放射線の強さ、すなわち放射性元素の濃度より算出する。TL法は数十万年までの年代を対称にできる[1][2]。アルカリ地下水の湧出は現在も続いており、対象とするイベントの年代域が若いことが期待される。TL法の年代適用範囲は数十万年までであることも、本手法が通していると思われる理由である。蓄積線量及び年間線量は以下の手順により算出する。

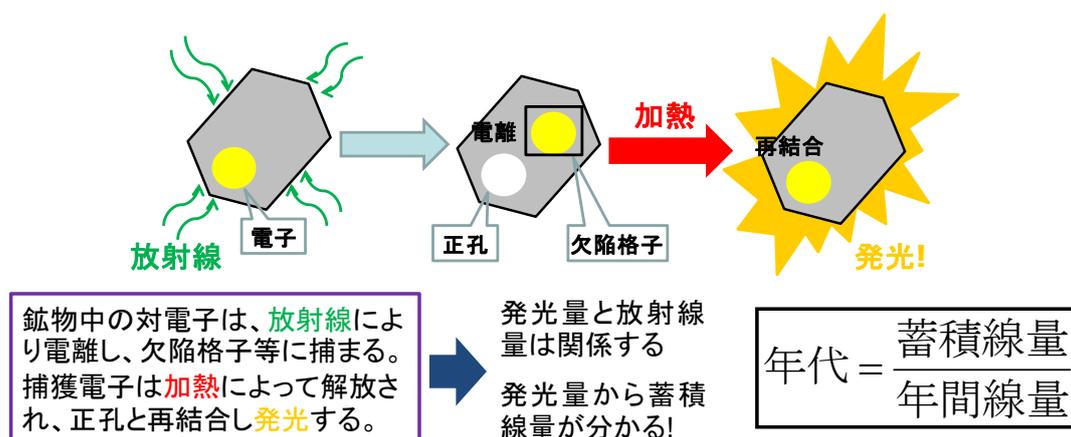


図 4.2.1-1 熱ルミネセンス年代測定概念

(1) 蓄積線量測定

サンプルの蓄積放射線量を求めるための実験過程の詳細を以下に述べる。

1) SARA 法

ルミネセンス年代測定法による蓄積線量の算出は、人工放射による線量とルミネセンス測定で得たシグナル強度の関係を求める検量線を引き、その検量線を利用して天然放射線による蓄積線量を求めるというものである。検量線をどのように求めるか依存して、いろいろな算出法ありその中で近年一般的に用いられているのは、SAR (single-aliquot regenerative-dose) 法である[2]。SAR 法とは、サンプルから1つのアリコートを取り出し、“線量を与える(本照射) (天然ルミネセンス測定時はなし) —プレヒート-TL測定—一定線量照射(テスト照射) —プレヒート-TL測定” の手順を繰り返し行い検量線を引く方法である。なお、プレヒートとは、人工照射後に生成する不安定なシグナルを除去するために行う手順である(表 4.2.1-1 参照)。つまり、1つのアリコートのみで、既知の人工照射とルミネセンス測定から検量線を求め、その検量線に天然ルミネセンスを内挿し、蓄積線量を得る方法である。テスト照射は繰り返しの加熱と放射線照射に伴う試料の感度変化の補正のために行う手順である。

しかし、SAR 法では方解石等で生じるとされる最初の加熱(天然ルミネセンス測定)後の重大な感度変化[3]が問題になってしまう。そこで、今回の測定ではこの感度変化を無視できる SARA (single-aliquot regeneration and added-dose) 法を使用した。SARA 法の手順を以下に記述する。

SARA 法では、1つのサンプルから4~5アリコートを取り出し、各アリコートに特定量の放射線(今回は0, 30, 60, 90Gy または 0, 30, 60, 90, 120Gy)を照射する。追加照射後に各アリコートの蓄積線量を SAR 法で測定し、追加照射量の関数として SAR 法蓄積線量を図示することにより蓄積線量を求める方法である(図 4.2.1-2 参照)。感度変化が起きていない場合、描かれた直線の傾きは1になるが、負の感度変化(最初の加熱によって線量に対する発光量が減少すること)が場合は傾きが >1 に、反対に正の感度変化(最初の加熱によって線量に対する発光量が増加すること)が起きた場合は傾きが <1 になる。

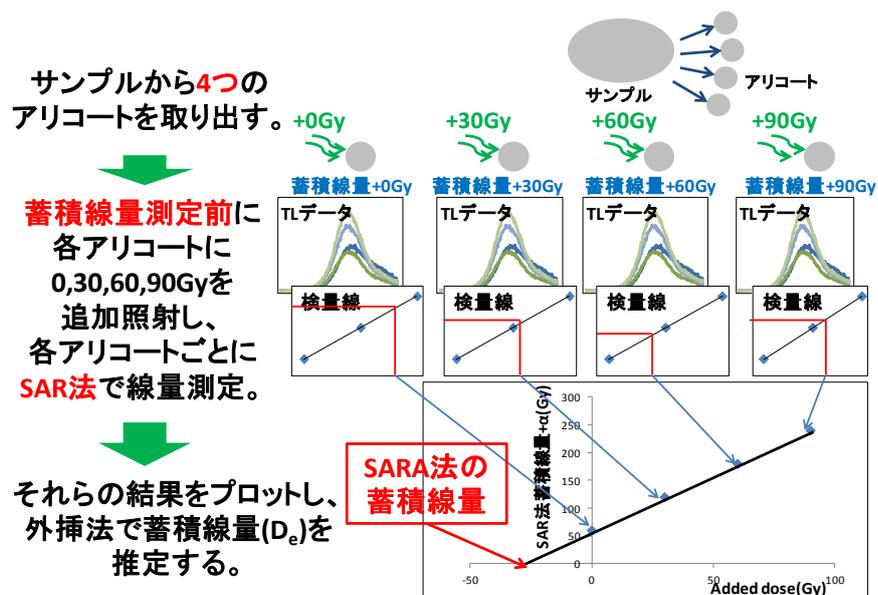


図 4.2.1-2 SARA 法の実施手順のイメージ

表 4.2.1-1 SAR 法手順

1. X線を照射する
2. プレヒート(200℃,240秒)
3. RTL測定(L _i)
4. テスト照射する
5. カットヒート(200℃,240秒)
6. RTL測定(T _i)
7. 1に戻る

2) TL測定条件

TLCI 撮影からサンプルの熱ルミネセンスが最も多い赤色熱ルミネセンス (Red Thermoluminescence) を測定する。RTL測定のため、受光波長域を約 600-650nm にする透過フィルター (R60, hoya+IRC-65L, kenko) を付けた光電子増倍管 (浜松フォトニクス, 受光波長域 300-850nm, ピーク 420nm) を使用する。TL測定温度は 100-400℃、加熱率は 1℃/s で行う。追加照射は 0, 30, 60, 90Gy または 0, 30, 60, 90, 120Gy を照射する。人工的に放射線を照射するために、線量率 0.12Gy/s の X 線を利用する。プレヒートは 200℃、240 秒間とする。本照射、テスト照射は各アリコートに適当量を照射する。

3) 蓄積線量誤差

周囲の岩石との距離や沈積した年代の差のため、採取位置によって蓄積線量が異なると考えられるため複数の位置・深さから試料を採取し、蓄積線量を評価する。採取場所の差異による蓄積線量誤差を最小にするため、各位置の各アリコート測定を 1 回ずつにする。

(2) 年間線量測定

年間線量の測定には、試料採取場所に線量計を置き直接測定する方法と、試料中と試料周囲の放射性元素濃度から測定する方法がある。今回は後者の方法を利用し年間線量を求める。年間線量計算に必要な放射性元素は U, Th, Rb, K である。これらの濃度を XRF、EPMA、LA-ICP-MS を用いて測定する。

1) 年間線量算出

本研究では年間線量を算出するために、Ito et al. (2009)[4]の式を用いる。

$$\begin{aligned} \text{Annual dose (Gy/year)} &= D_{\alpha} + D_{\beta} + D_{\gamma} \\ &= \frac{2.18 \times U(\text{ppm}) + 0.6111 \times Th(\text{ppm})}{1 + 1.5 \times W.C.} \times a \\ &\quad + \frac{0.146 \times U(\text{ppm}) + 0.0273 \times Th(\text{ppm}) + 0.00038 \times Rb(\text{ppm}) + 0.649 \times K_2O(\%)}{1 + 1.25 + W.C.} \times b \end{aligned}$$

$$+ \frac{0.113 \times U(\text{ppm}) + 0.0476 \times Th(\text{ppm}) + 0.202 \times K_2O(\%)}{1 + 1.14 + W.C.} \times c \quad (4.2.1-2)$$

ここで、 D_α 、 D_β 、 D_γ はそれぞれ α 崩壊、 β 崩壊、 γ 崩壊からの放射線に基づく年間線量である。 a は有効 α 線量、w.c.は含水比である。なお、年間線量の算出において以下のことに留意する。

a. D_α の項

α 線の飛程範囲はおよそ10 μm である。このため、年代測定を行う方解石自身からの α 線のみを考慮し、玄武岩からの α 線はないものと仮定する。

b. W.C. (含水比)

現在までの試料の保存場所・状態が分からない場合は、正確な含水比を得ることができないとして含水比を0と仮定した。

c. U、Th、Rb濃度

LA-ICP-MS測定では ^{29}Si 、 ^{43}Ca 、 ^{85}Rb 、 ^{86}Sr 、 ^{87}Rb 、 ^{88}Sr 、 ^{232}Th 、 ^{234}U 、 ^{238}U の濃度を測定し、これらの結果から各放射性同位体の同位体存在比率を用いてU、Th、Rb濃度を算出する。 ^{85}Rb はRbの72.17%、 ^{238}U はUの99.2745%、 ^{232}Th はThの100%を占める存在比率であるため、U、Th、Rb濃度は測定した濃度の存在比率の逆数をかけることから算出する。

d. 宇宙線

年間線量を考慮するには、宇宙線の寄与を考えなければならない。Prescott and Hutton (1994)[5]の式を用いて宇宙線の算出を行う。

2) 年間線量誤差

年間線量(AD)の誤差については以下の誤差伝播の式を用いて算出する。ここで σ_{AD} 、 σ_U 、 σ_{Th} 、 σ_{Rb} はそれぞれ年間線量の相対誤差、U濃度の相対誤差、Th濃度の相対誤差、Rb濃度の相対誤差である。以下の式により算出した年間線量の相対誤差をもとに年間線量の誤差を算出する。

$$\sigma_{AD}^2 = \sigma_U^2 + \sigma_{Th}^2 + \sigma_{Rb}^2 \quad (4.2.1-3)$$

4.2.2 今年度の検討概要

炭酸塩熱ルミネセンス年代測定は、石英を利用する熱ルミネセンス年代測定と比較し利用例が少ない。これは炭酸塩熱ルミネセンス特性が加熱による物性変化の影響[6][7]や、不純物濃度[8][9]等に大きく依存しそれらの影響の補正について理解がすすんでいないことが原因と考えられる。Medlin (1968)[8]は、炭酸塩の発光は Mn^{2+} イオンサイトの遷移が主な原因であり、そのため鉱物中の Mn 濃度によって TL 特性が変化することを示した。Townsend et al., (1994)[9]は Medlin (1968)の研究結果を基に、高 Mn 濃度の天然方解石、Mn 濃度や他元素濃度の低い Iceland Spar、および合成方解石を、温度 20-400°C、波長 200-800nm 範囲で TL 測定を行った結果、Mn 以外の不純物濃度によっても TL 特性が変化することを示した。

Mn 以外の元素では U 濃度が方解石熱ルミネセンスに大きく影響するという報告もある[10]。また微量元素の有無により熱ルミネセンス特性が変化することも示されている。

塚本(1994)[11]は、方解石カソードルミネセンスの発光促進元素として Mn が、発光抑制作用として Fe が最も重要な元素とし、これらの量比によって発光量が変化することを示している。カソードルミネセンスと熱ルミネセンスは励起エネルギー以外の発光メカニズムは同様なので、方解石熱ルミネセンスにおいても発光抑制の役割を果たす元素が存在し、それらが発光量に影響を及ぼすことが考えられる。

そこで発光メカニズムの理解をすすめるために、炭酸塩の化学組成と発光特性の関連の調査が必要である。昨年度は天然炭酸塩を用い化学組成を測定するとともに、発光特性研究、とくに各種放射線によりルミネセンスサイトが形成される効率に関して調査を行った。その結果 Mn, Fe, Mg 濃度が発光特性に大きく寄与を与える可能性が明らかになった。また β 線、 γ 線によるルミネセンスサイト形成効率と、 α 線によるルミネセンスサイト形成効率は挙動が全く異なっていた。しかしながら天然の試料ではいろいろな元素が微量に混入し、支配要因を定量的に特定するのに課題があった。

そのため、今年度はフィリピン国ルソン島北西部の平成 24 年度[12]に掘削した Bigbiga の試錐孔 (DH05 及び DH07) のコア試料からサンプリングした方解石について、その化学組成が TL 発行特性に及ぼす影響を把握し、それを補正した TL 年代の算出に関する検討を実施した。

4.2.3 ナチュラルアナログ試料

TL 年代に供するフィリピンのナチュラルアナログ試料は、ルソン島北西部の Bigbiga の試錐コア (DH05 (9 試料) 及び DH07 (2 試料)) からサンプリングした方解石である。

図 4.2.3-1 に柱状図と分析するサンプルを示す。これらは Zambales オフィオライト基盤岩の上位の堆積層 (Aksitero 累層) から採取した試料である。Aksitero 累層の岩相・岩質は淡褐色石灰質・凝灰質砂岩・泥岩であるが、Bigbiga 地区では石灰質砂岩が卓越しており、分析用の試料もこの層から採取した。また、粉末 XRD 分析から、同定された鉱物は方解石のみである。

Variation Diagram of Mineral Assemblages of Drilled Cores from Pelagic and Hemi-Pelagic Sediment of Aksitero Formation at Bigbiga Area

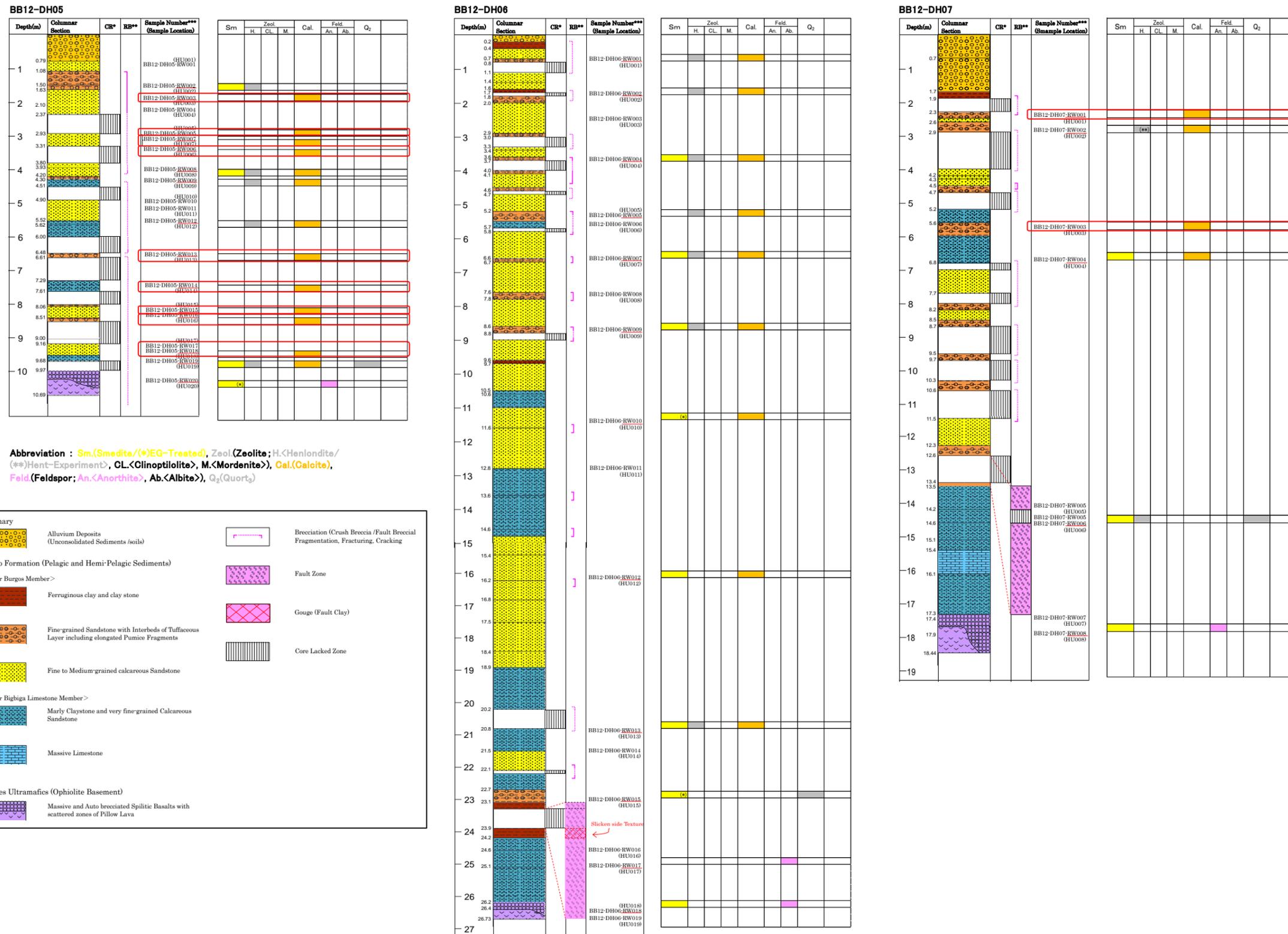


図 4.2.3-1 Bigbiga 試錐孔(DH05~DH07)の柱状図と鉱物組み合わせ[12]

4.2.4 採取試料の蓄積線量測定

Bigbiga の試錐コア(DH05 : BB12-DH05-RW-003, 005, 006, 007, 013, 014, 015, 016, 018)及び試錐コア(DH07 : BB12-DH07-RW-001, 003)からサンプリングした 11 試料の方解石の蓄積線量測定は平成 25 年度[13]に以下の手順で実施している。

方解石の赤色熱ルミネセンス (RTL) 測定のため、受光波長域を約 600-650nm にする透過フィルター (R60, hoaya+IRC-65L, kenko) を付けた光電子増倍管 (浜松フォトニクス、受光波長域 300-850nm、ピーク 420nm) を使用した。TL 測定温度はそれぞれ 100-400°C、加熱率は 1°C/s で行う。再現照射には、線量率 0.11Gy/s の X 線を利用した。方解石のプレヒートは 180°C、180 秒間とした。

測定した方解石試料の TL グロー曲線のピーク温度は、Natural (自然放射線) では 280°C、人工放射線 (X 線) では 250°Cに表れ、それぞれピーク温度が異なる。これは、放射線によって励起され電子捕獲中心に捕獲された電子が長い時間をかけてより安定したエネルギー準位に遷移したことが原因と考えられる。よって検量線の作成には、Natural では 260~290°Cの TL グローカーブシグナル、事前放射線では 230°C~260°Cの TL グローカーブシグナルの積算値を用いた。

各試料の TL データと検量線の結果を図 4.2.4-1~図 4.2.4-11 に示し、得られた蓄積線量を表 3.2.6-1 にまとめる。

また得られた蓄積線量を、同一試料ではないが、今回基礎実験に供したフィリピン断裂充填試料の化学組成と同等であったと仮定して、その試料の Fe 濃度に基づき a-x-value、b-x-value、c-x-value を用いて年代値を見積もった。また炭酸塩脈の産状、特に周辺岩石との距離によっても年間線量が変わるため、周辺岩石からの影響の割合を代えていくつか年代を見積もった。年代値はおおよその見積もりではあるが、得られた年代は 10ka から 500ka にわたった。

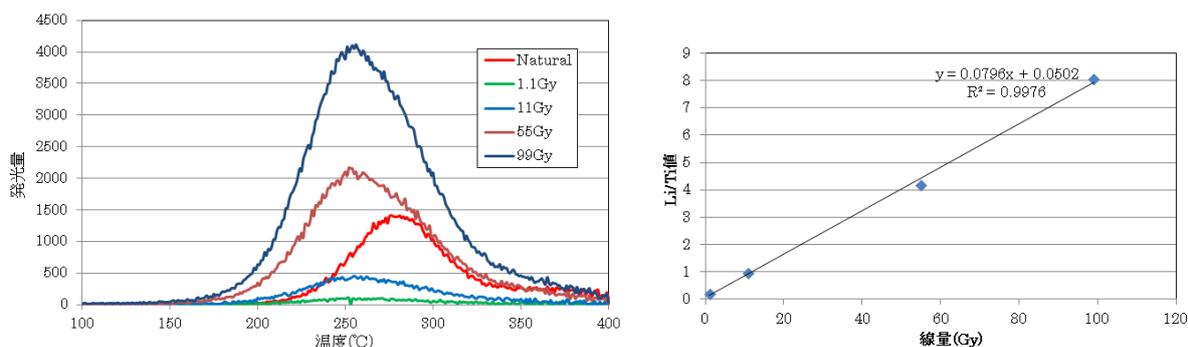


図 4.2.4-1 BB12-DH07-RW-001 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]

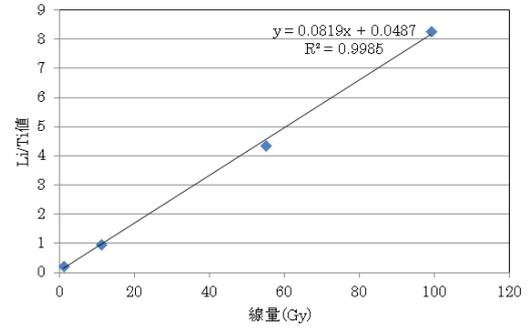
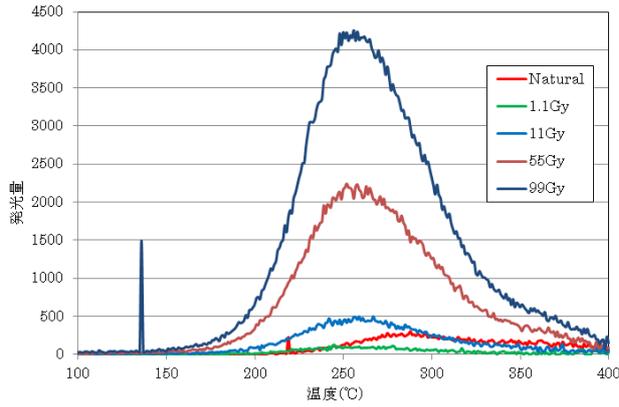


図 4.2.4-2 BB12-DH07-RW-003 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]

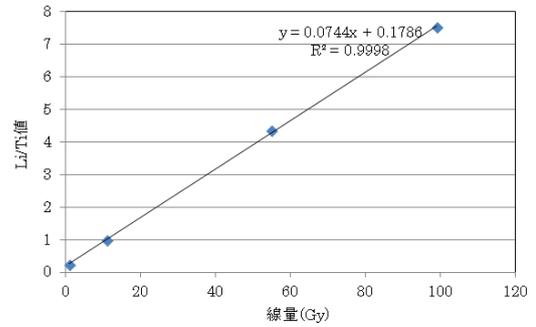
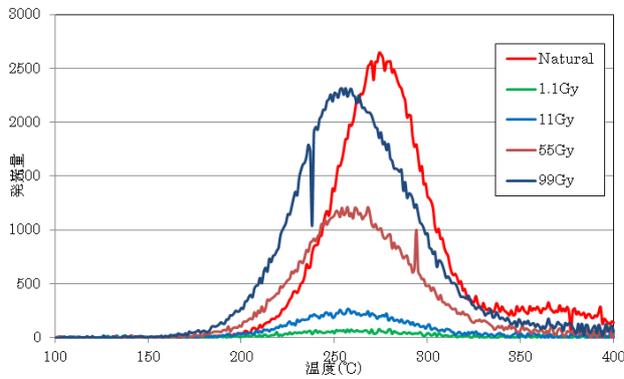


図 4.2.4-3 BB12-DH05-RW-003 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]

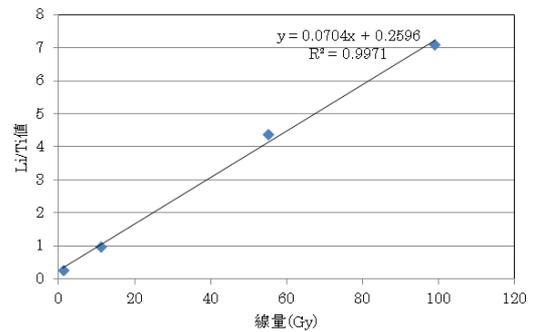
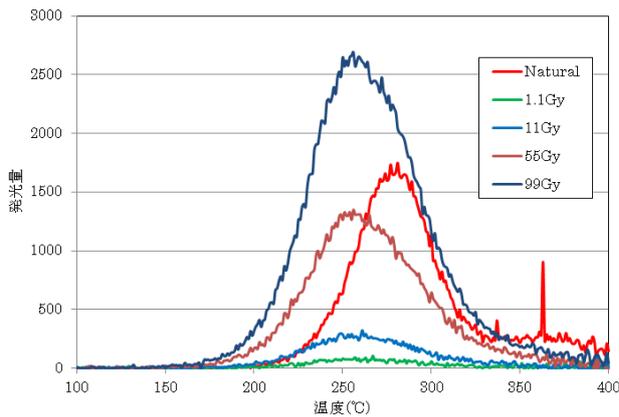


図 4.2.4-4 BB12-DH05-RW-005 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]

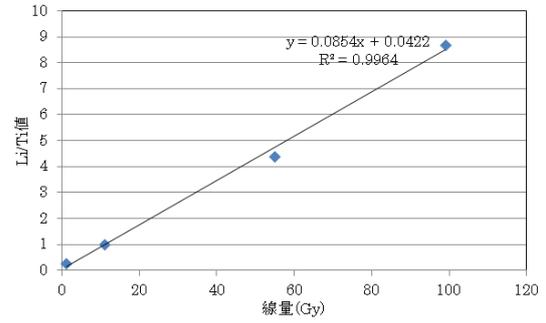
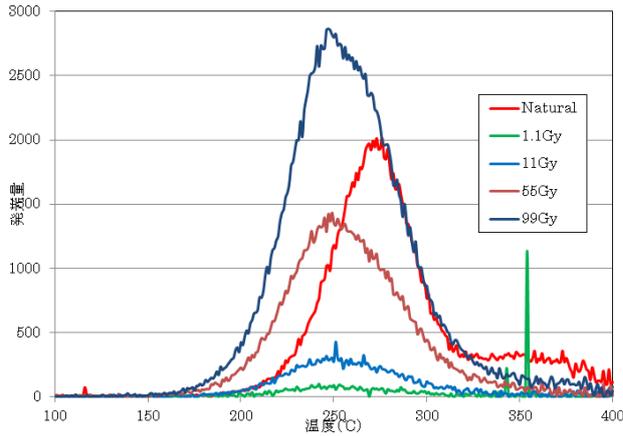


図 4.2.4-5 BB12-DH05-RW-006 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]

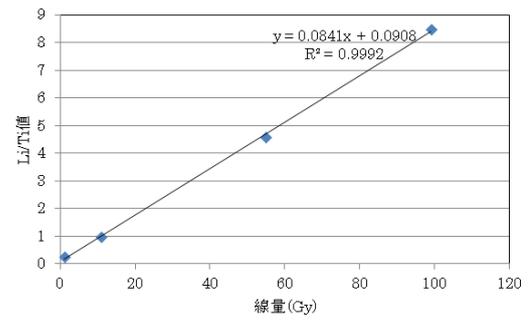
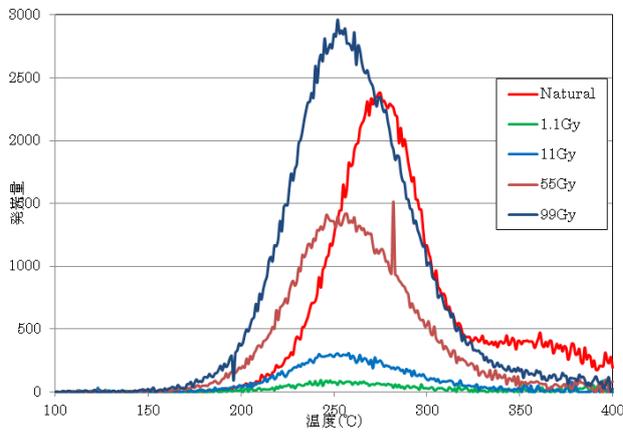


図 4.2.4-6 BB12-DH05-RW-007 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]

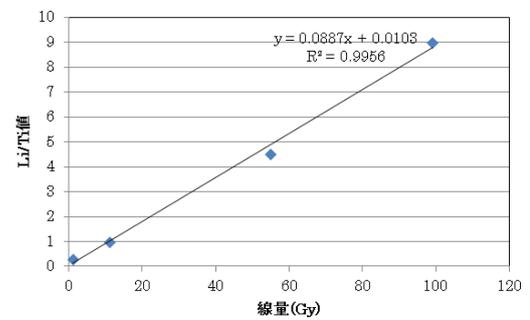
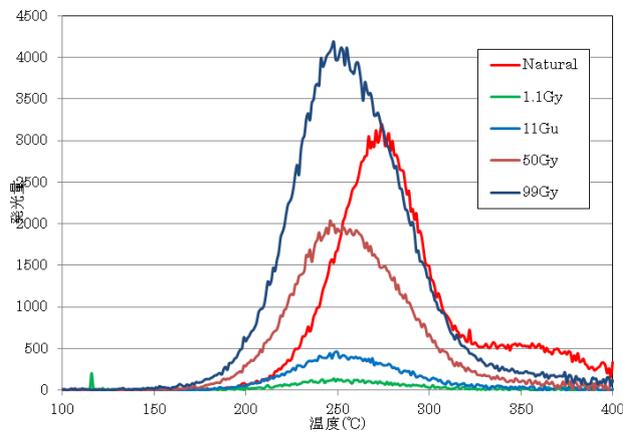


図 4.2.4-7 BB12-DH05-RW-013 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]

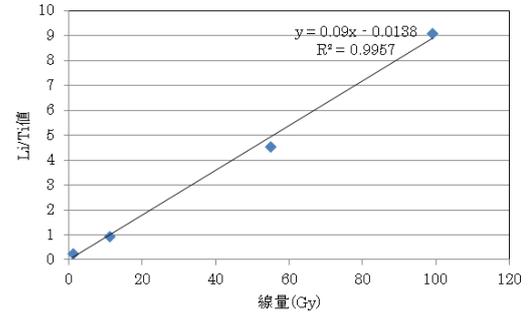
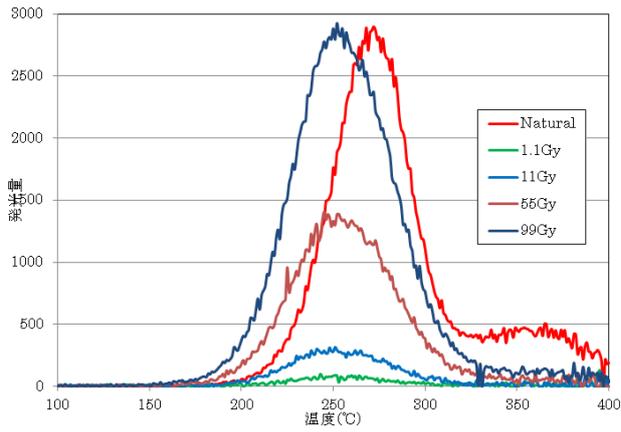


図 4.2.4-8 BB12-DH05-RW-014 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]

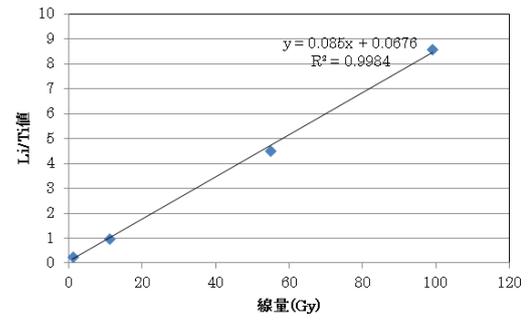
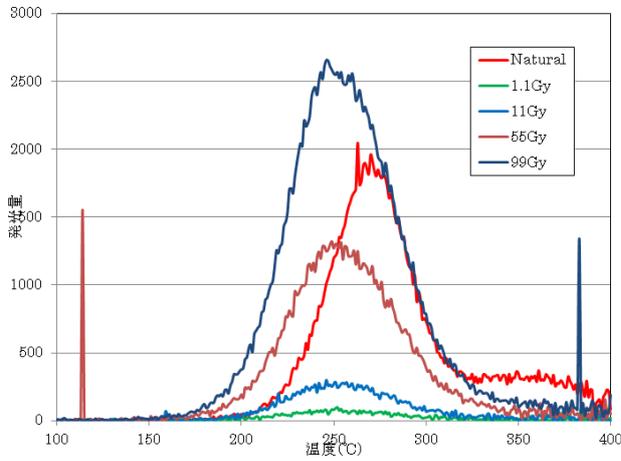


図 4.2.4-9 BB12-DH05-RW-015 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]

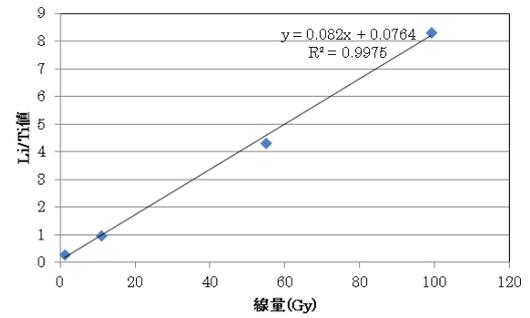
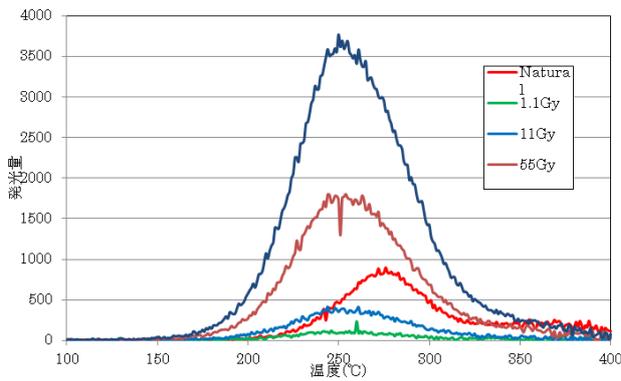


図 4.2.4-10 BB12-DH05-RW-016 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]

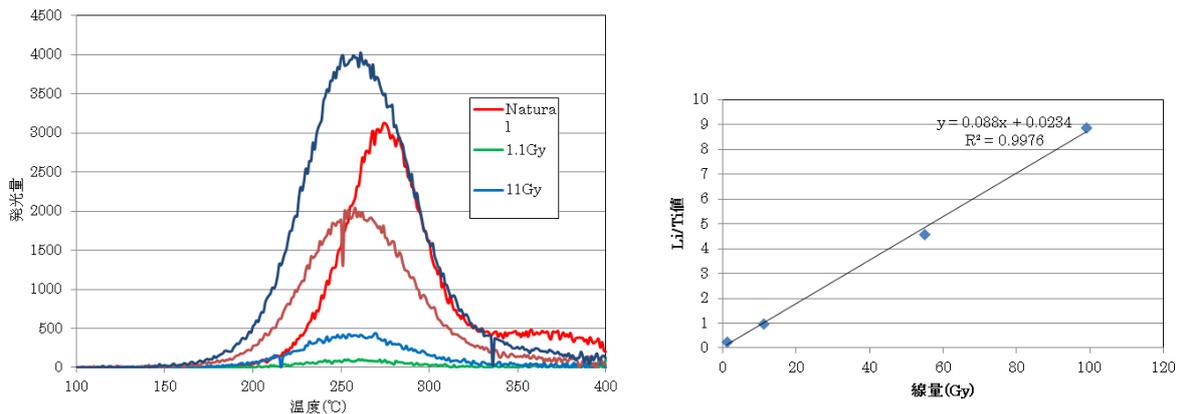


図 4.2.4-11 BB12-DH05-RW-018 の TL データ (左) と検量線 (右) [13]

表 4.2.4-1 各試料の蓄積線量[13]

Sample	蓄積線量 (Gy)
BB12-DH07-RW-001	38.2
BB12-DH07-RW-003	6.7
BB12-DH05-RW-003	129
BB12-DH05-RW-005	74.3
BB12-DH05-RW-006	62.5
BB12-DH05-RW-007	78
BB12-DH05-RW-013	66.2
BB12-DH05-RW-014	85
BB12-DH05-RW-015	62.6
BB12-DH05-RW-016	24.7
BB12-DH05-RW-018	73.8

表 4.2.4-2 方解石と周囲岩石の各種放射性元素濃度と a-value、b-value、c-value 及び各種放射線量率と年間線量[13]

	方解石脈	角礫岩
U(ppm)	0.15	0.071
Th(ppm)	0.63	0.051
Rb(ppm)	12	8.4
K2O(%)	0	0.24
含水比(W.C.for Lumi)	0	0
α (mGy/y)	0.57	
a-value	0.80	
β (mGy/y)	0.002	0.01
b-value	0.046	0.046
γ (mGy/y)	0.013	0.016
c-value	0.27	0.27
宇宙線(mGy/y)	0.12	0.12
年間線量(mGy/y)	0.70	0.14

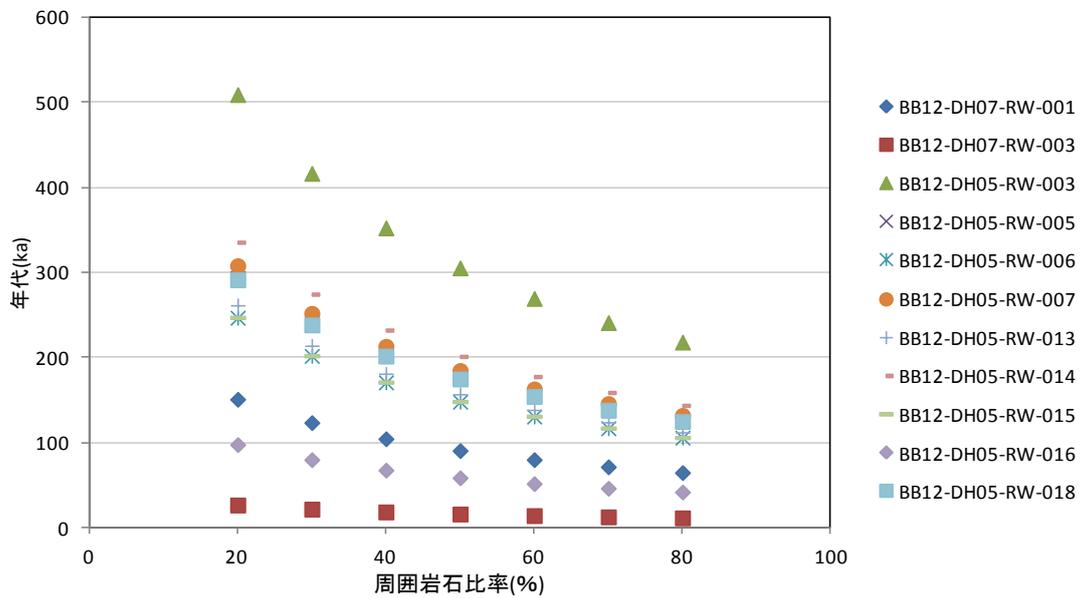


図 4.2.4-12 フィリピン Bigbiga (試錐コア DH05, DH07) の方解石の熱ルミネッセンス年代 (昨年度の評価結果[13])

4.2.5 岩石鉱物学的・地球化学的・特性の詳細観察・分析

Bigbica の試錐コア (DH05, DH07) の方解石の熱ルミネッセンス年代は、同じ試錐孔で比較したところ、同じ層準でも最大で 400ka の違いがある (図 4.2.4-12 : 周囲岩石率(20%)、BB12-DH05-RW-003 (最古) と BB12-DH05-RW-016 (最新))。

前述のように TL 発光特性に炭酸塩鉱物の化学組成等が影響することが確認されており、この分析では、特に TL 年代の異なる 3 試料 (BB12-DH05-RW-003, BB12-DH05-RW-015, BB12-DH05-RW-016) でどのような違いがあるかに着目し、化学組成に加え鉱物組成及び組織について EPMA, μ -XRD, FESEM-EDS による観察、鉱物・化学分析を実施した。

(1) EPMA 分析結果

1) BB12-DH05-RW-003 の分析結果

この試料は微細な方解石が主体で少量の沸石の結晶粒と脈で構成された沸石質石灰岩である。沸石の脈は方解石を包有しており、方解石には初生的なものと脈形成時の二次的なものがある。試料の反射電子線像(BEI) と二次電子線像(SEI)を図 4.2.5-1 に示す。また、各元素のマップを図 4.2.5-2 に示す。

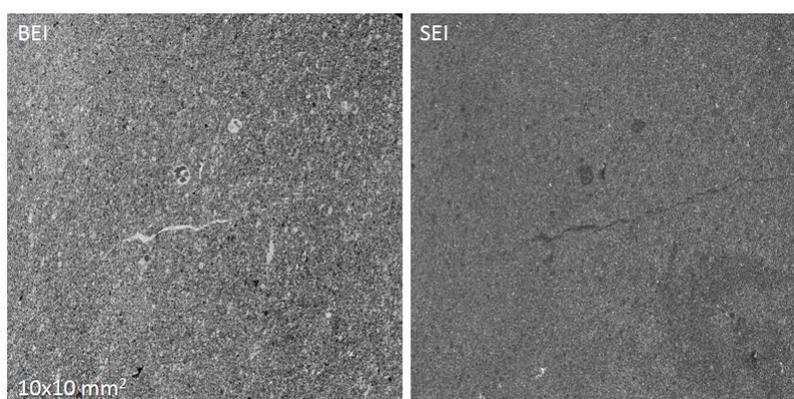


図 4.2.5-1 BB12-DH05-RW-003 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右)

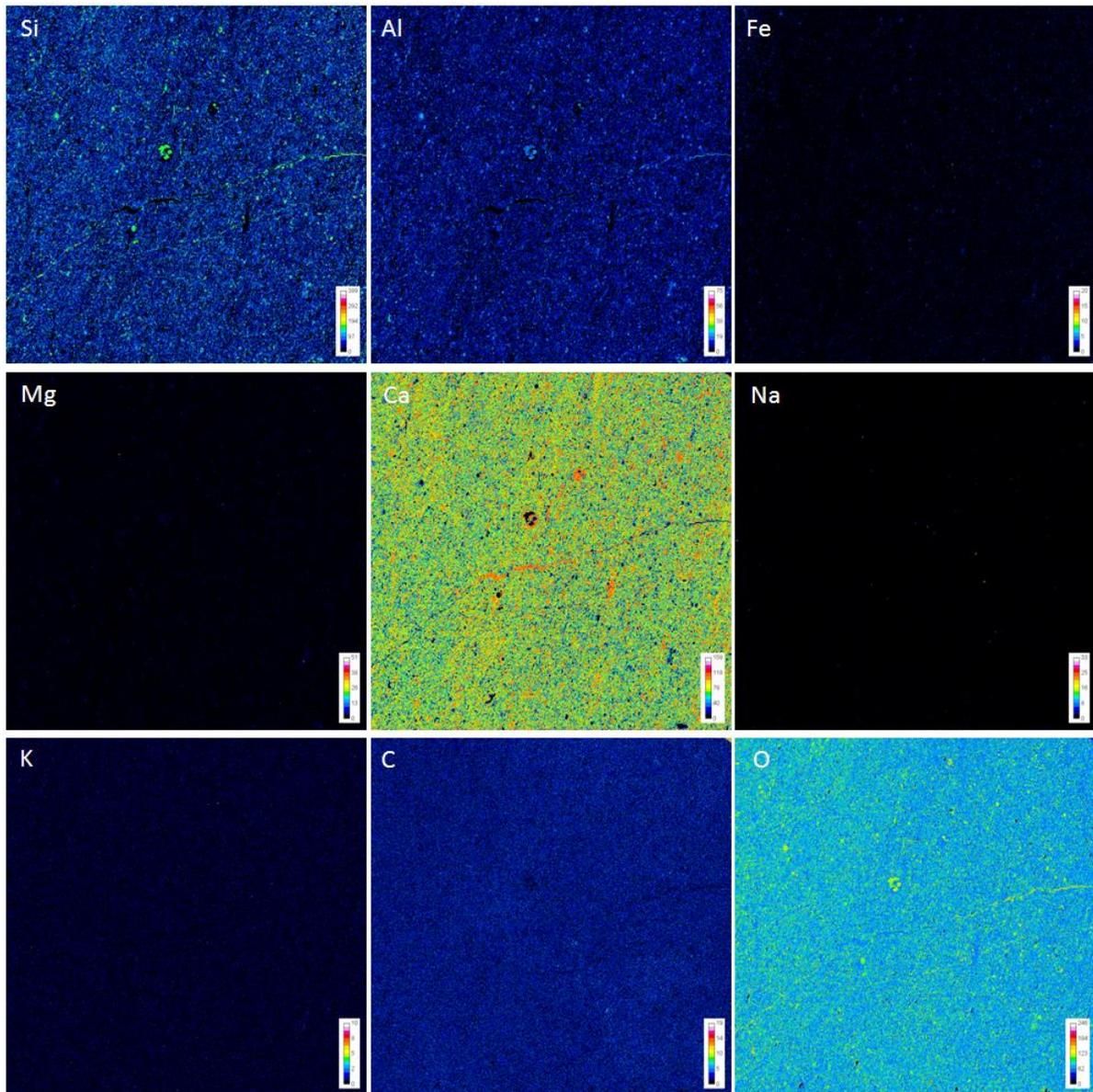


図 4.2.5-2 BB12-DH05-RW-003 試料の元素マップ

非常に Ca に富む岩石であることがわかるが、脈状に Si と Ca-rich 鉱物が濃集していることがわかり、これらは沸石と方解石を表している。この試料におけるスポット分析を行った結果を図 4.2.5-3 に示す。

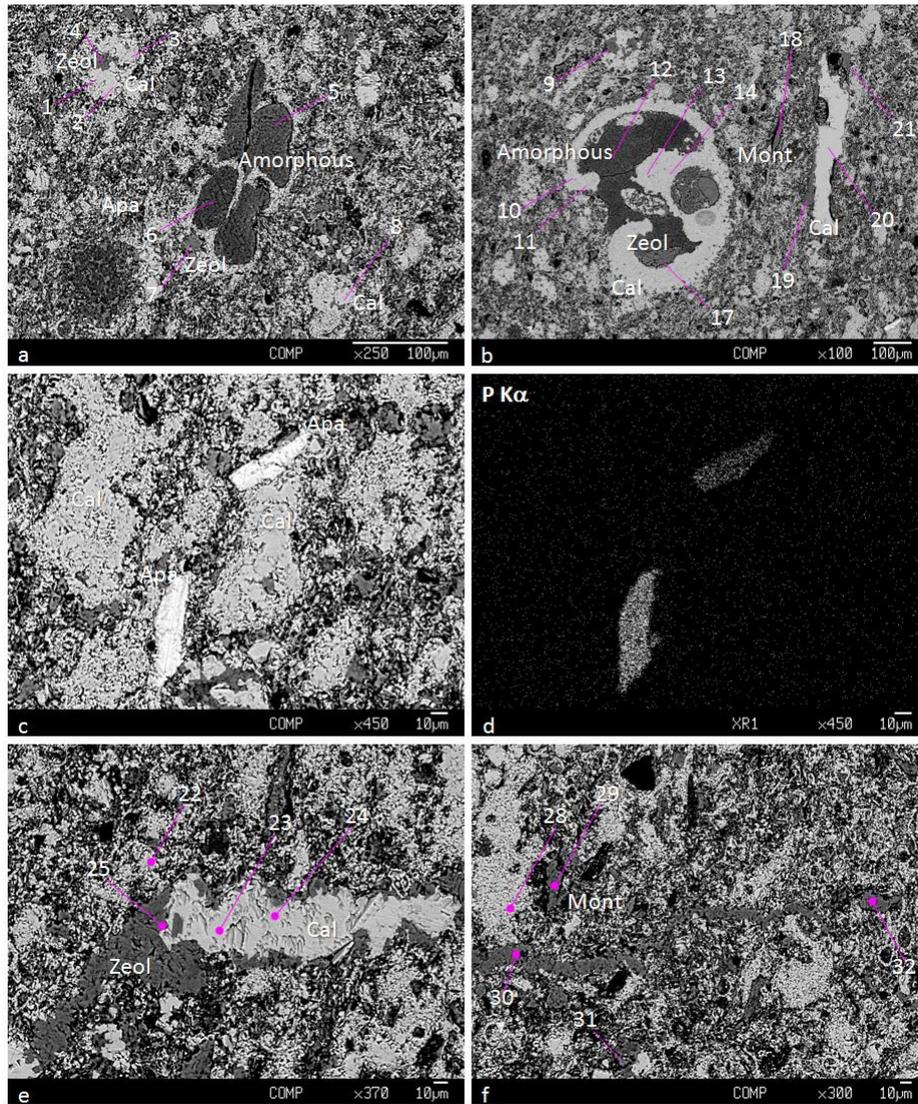


図 4.2.5-3 鉱物のスポット分析 (BB12-DH05-Rh-003)

Ca-rich 鉱物は微化石の方解石と燐灰石であることがわかる。有孔虫と思われる微化石の内部は非晶質シリカが充填している。マトリクス中の微細な方解石と、脈に成長する結晶質の方解石が見られ、沸石も同様の成長を示す。晶出順序を判定する産状が見られないが、方解石主体のマトリクスからスメクタイトが生成し、その後に沸石と二次的な方解石がほぼ同時期に生成したものと思われる。

これらの分析値を以下の表に列記する。方解石はマトリクス中の微細結晶では FeO, MgO をわずかに含有しているが、脈状方解石にはこれらは含まれない。スメクタイトはこの試料ではほとんど含まれないが、マトリクス中に認められた粒子では Fe に富むモンモリロナイトであることがわかる。またスメクタイトといっしょに表示してあるが、変質した黒雲母（バーミキュライトか？）も認められており、Fe に乏しく Ti に富む組成的特徴を持っている。沸石は非常に Ca に富むものが多い（輝沸石質）が、Si/Al 値とともに Na+K が徐々に増加する斜プチロル沸石トレンドに沿って変動している。

表 4.2.5-1 方解石の化学組成

Sample ID	spot_1	spot_2	spot_3	spot_8	spot_10	spot_11	spot_13	spot_14	spot_20	spot_22	spot_23	spot_24	spot_26	spot_27	spot_28
X (mm)	71.601	71.585	71.565	71.344	70.479	70.426	70.286	70.238	69.764	67.459	67.409	67.356	64.642	64.647	64.645
Y (mm)	55.818	55.826	55.794	56.053	55.484	55.464	55.463	55.451	55.353	55.948	55.996	55.986	55.391	55.411	55.519
Z (mm)	11.384	11.384	11.384	11.384	11.393	11.393	11.393	11.393	11.393	11.391	11.391	11.391	11.398	11.398	11.398
Oxide wt.%															
SiO2	0.65	0.33	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Al2O3	0.10	0.04	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01	0.01	0.00	0.02
TiO2	0.01	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
FeO	0.04	0.06	0.06	0.05	0.04	0.04	0.03	0.01	0.00	0.08	0.00	0.00	0.05	0.02	0.00
Cr2O3	0.04	0.05	0.05	0.00	0.02	0.05	0.03	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.07	0.00	0.00
MnO	0.17	0.21	0.17	0.04	0.15	0.22	0.06	0.20	0.33	0.25	0.30	0.25	0.14	0.50	0.19
MgO	0.00	0.00	0.00	0.01	0.05	0.04	0.03	0.07	0.00	0.11	0.00	0.00	0.00	0.03	0.08
CaO	58.94	58.31	57.64	58.83	55.94	56.51	55.17	55.92	57.77	62.20	58.82	59.42	57.36	57.30	57.49
Na2O	0.03	0.06	0.05	0.01	0.04	0.00	0.10	0.00	0.02	0.09	0.06	0.00	0.00	0.03	0.00
K2O	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01
total	60.00	59.09	57.98	58.95	56.26	56.85	55.43	56.25	58.13	62.76	59.18	59.68	57.65	57.88	57.79
Cation based on O=1															
Si	0.010	0.005	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Al	0.002	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Ti	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000
Cr	0.001	0.001	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000
Mn	0.002	0.003	0.002	0.001	0.002	0.003	0.001	0.003	0.004	0.003	0.004	0.003	0.002	0.007	0.003
Mg	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.001	0.001	0.002	0.000	0.002	0.000	0.000	0.000	0.001	0.002
Ca	0.973	0.982	0.995	0.998	0.995	0.995	0.995	0.995	0.995	0.992	0.995	0.996	0.996	0.992	0.995
Na	0.001	0.002	0.002	0.000	0.001	0.000	0.003	0.000	0.001	0.003	0.002	0.000	0.000	0.001	0.000
K	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
total	0.989	0.995	1.000	1.000	1.001	1.000	1.001	1.000	1.000	1.001	1.001	1.000	1.000	1.001	1.000

表 4.2.5-2 スメクタイトの化学組成

Sample ID	Rh-003_spot_29	Rh-003_spot_18
X (mm)	64.588	69.915
Y (mm)	55.509	55.336
Z (mm)	11.398	11.393
Oxide wt.%		
SiO ₂	51.91	47.29
Al ₂ O ₃	13.56	11.74
TiO ₂	0.58	2.59
FeO	8.44	0.06
Cr ₂ O ₃	0.01	0.07
MnO	0.03	0.01
MgO	1.23	1.16
CaO	1.91	2.29
Na ₂ O	0.18	0.16
K ₂ O	1.91	1.85
total	79.75	67.23
Cation based on O=22		
Si	8.098	8.330
Al	2.493	2.438
Ti	0.068	0.343
Fe	1.102	0.009
Cr	0.001	0.010
Mn	0.003	0.002
Mg	0.287	0.304
Ca	0.320	0.432
Na	0.053	0.056
K	0.380	0.416
total	12.804	12.339
Al(4)	-0.098	-0.330
XFe	0.794	0.028
XCa	0.425	0.478
Smectite montmorillonite Alt. biotite		

表 4.2.5-3 沸石の化学組成

Sample ID	Rh-003_spot_4	Rh-003_spot_7	Rh-003_spot_9	Rh-003_spot_12	Rh-003_spot_17	Rh-003_spot_19	Rh-003_spot_21	Rh-003_spot_25	Rh-003_spot_30	Rh-003_spot_31	Rh-003_spot_32
X (mm)	71.601	71.5	70.365	70.368	70.218	69.832	69.732	67.44	64.633	64.529	64.294
Y (mm)	55.805	55.993	55.096	55.423	55.673	55.516	55.137	55.993	55.573	55.671	55.528
Z (mm)	11.384	11.384	11.393	11.393	11.393	11.393	11.393	11.391	11.398	11.398	11.398
Oxide wt.%											
SiO ₂	65.48	57.56	61.64	68.41	63.81	64.62	64.98	58.28	65.86	66.76	65.58
Al ₂ O ₃	12.70	10.71	10.92	11.30	12.19	11.78	12.53	11.04	12.19	10.14	12.12
TiO ₂	0.00	0.03	0.00	0.08	0.00	0.02	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00
FeO	0.00	0.05	0.02	1.22	0.00	0.03	0.06	0.06	0.05	0.02	0.05
Cr ₂ O ₃	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.02	0.03
MnO	0.00	0.00	0.01	0.03	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.01	0.00
MgO	0.63	0.43	0.48	0.69	0.55	0.48	0.49	0.43	0.52	0.00	0.57
CaO	4.52	5.14	4.74	4.26	5.29	4.46	4.92	4.88	4.92	4.04	4.82
Na ₂ O	0.04	0.16	0.12	0.14	0.18	0.11	0.14	0.13	0.09	0.75	0.08
K ₂ O	0.06	0.08	0.06	0.33	0.05	0.05	0.04	0.07	0.07	0.13	0.07
total	83.45	74.15	77.98	86.47	82.07	81.54	83.16	74.89	83.71	81.85	83.32
Cation based on O=72											
Si	29.592	29.498	29.873	30.053	29.477	29.873	29.549	29.513	29.729	30.686	29.736
Al	6.768	6.466	6.235	5.854	6.638	6.415	6.718	6.588	6.480	5.494	6.473
Ti	0.000	0.007	0.000	0.029	0.000	0.007	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.000	0.022	0.007	0.446	0.000	0.014	0.022	0.022	0.022	0.007	0.022
Cr	0.007	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.007	0.000	0.007	0.007
Mn	0.000	0.000	0.000	0.007	0.000	0.000	0.000	0.000	0.007	0.000	0.000
Mg	0.425	0.324	0.353	0.454	0.382	0.331	0.331	0.324	0.353	0.000	0.389
Ca	2.189	2.822	2.462	2.009	2.621	2.210	2.398	2.650	2.383	1.987	2.340
Na	0.036	0.158	0.108	0.115	0.158	0.094	0.122	0.122	0.079	0.662	0.072
K	0.036	0.050	0.036	0.187	0.029	0.029	0.022	0.043	0.043	0.072	0.043
total	39.053	39.362	39.082	39.154	39.305	38.981	39.168	39.276	39.089	38.930	39.082
Si/Al	4.372	4.562	4.791	5.134	4.440	4.657	4.399	4.480	4.588	5.586	4.594
XK+Na	0.032	0.069	0.055	0.131	0.067	0.052	0.057	0.059	0.049	0.270	0.047

以上の結果より変質過程を推定してみた。火山性砕屑物に乏しく、化石由来の物質に富むこの石灰岩は続成過程で CaCO₃ にバッファーされたややアルカリ条件の間隙水での変質があったと考えられる。初期に少量の火山性砕屑物の変質して存在していたと思われる Fe に富むモンモリロナイト質スメクタイトは、層間イオン組成より Ca と K に富む間隙水から形成したと思われる。スメクタイトのほとんどは後に沸石化してしまい、わずかに存在していた Na-K 成

分は沸石に組成的な変化を作り出した。変質過程を説明する図を図 4.2.5-4 に示す。

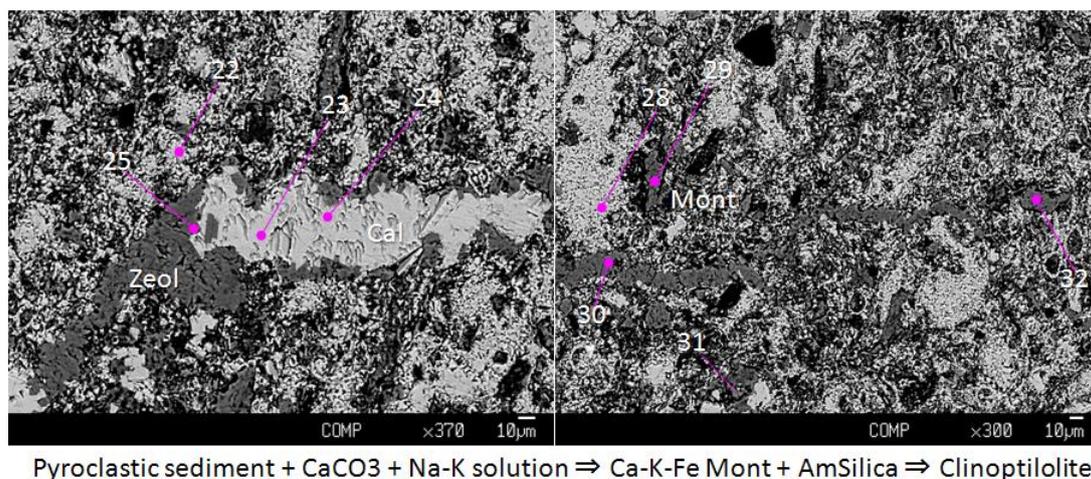


図 4.2.5-4 BB12-DH05-RW-003 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序 (左：沸石－方解石脈とマトリクス；右：マトリクス中に残存するモンモリロナイトと沸石脈)

2) BB12-DH05-RW-015 の分析結果

この試料はデイサイトを起源とする火山性碎屑物由来のベントナイトであるが、変質が進み、主要な構成鉱物は沸石である。この沸石の粒子間隙には、変質し残ったスメクタイトが充填していて、それらのマトリクス部に少量の微化石由来の方解石が周囲を沸石に縁取りされた形で点在している。方解石には元々斜長石斑晶（今は沸石に交代）の内部に生じた溶解による空隙を二次的に充填する形で産出しているものも多い。沸石は脈を形成しており、そこには微細な方解石が包有されている。試料の反射電子線像(BEI) と二次電子線像(SEI)を図 4.2.5-5 に示す。また、各元素のマップを図 4.2.5-6 に示す。

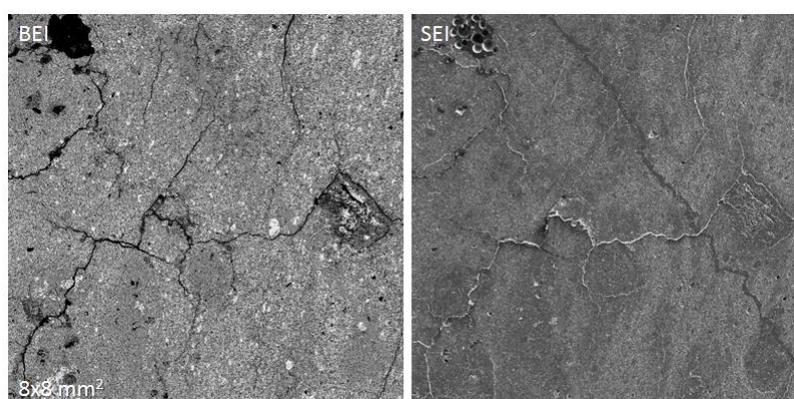


図 4.2.5-5 BB12-DH05-RW-015 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右)

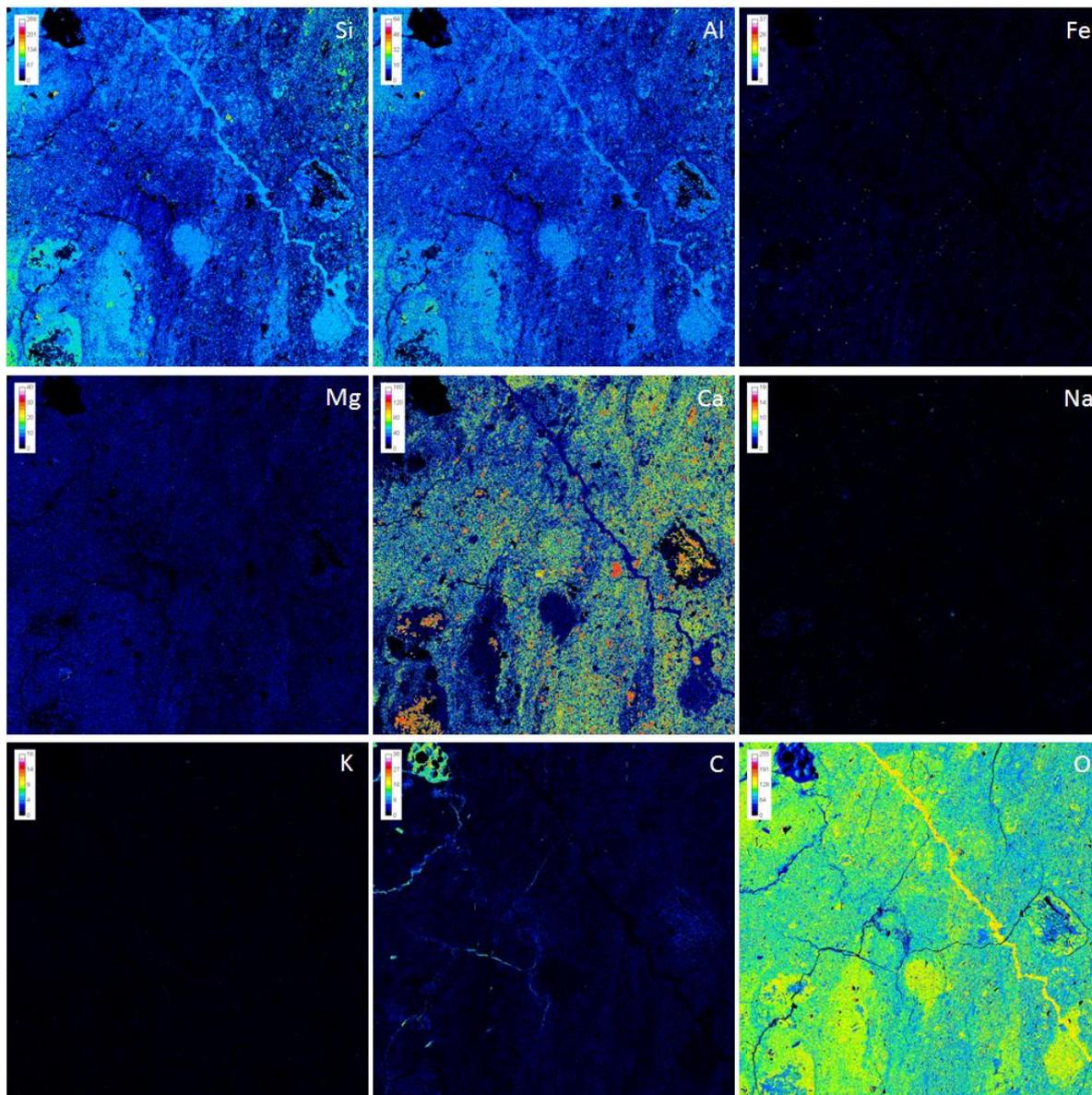


図 4.2.5-6 BB12-DH05-RW-015 試料の元素マップ

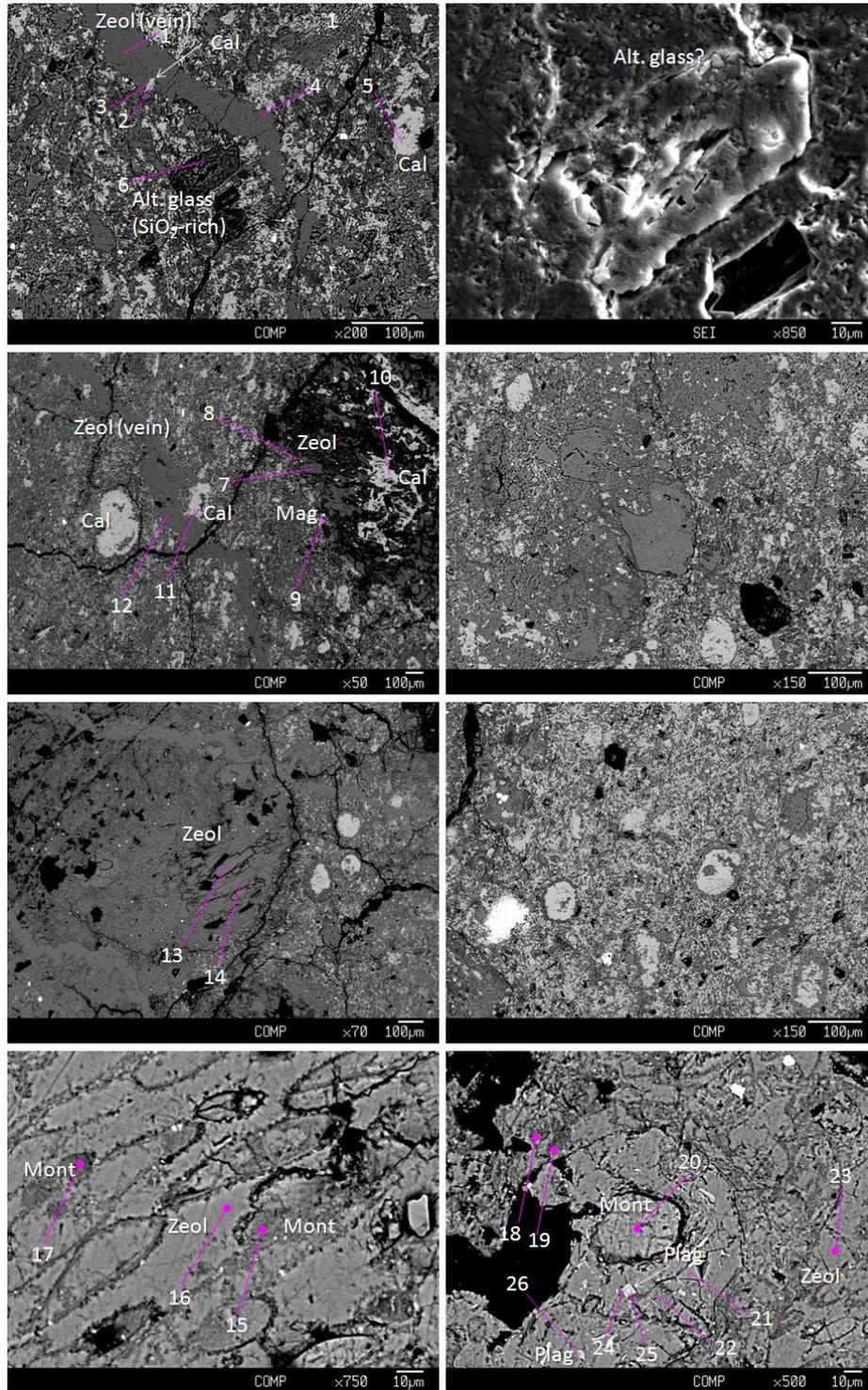


図 4.2.5-7 鉱物のスポット分析(BB12-DH05-RW-015)

分析の結果を以下の表にまとめて示す。石英は Al₂O₃ を 0.7 wt.% 含んだデイサイト起源のものである。斜長石は XAn 値が 0.5-0.6 のデイサイト由来の組成を示している。微化石や脈状沸石に伴う方解石はほぼ純粋な組成を示しているが、溶解した斑晶の内部を充填している二次的

な方解石は Fe, Mn に富む特徴を示している。スメクタイトは Fe に富むモンモリロナイトであり、層間イオンの XCa 値は 0.7 以上の高い Ca 型を示している。沸石は Si/Al-XNa+K プロット上で斜プチロル沸石トレンド（輝沸石組成が多い）上に並ぶ組成的変動を見せている。

表 4.2.5-4 石英の化学組成

Sample ID	Rh-015_spot_6
X (mm)	36.586
Y (mm)	63.238
Z (mm)	11.402
Oxide wt.%	
SiO ₂	85.11
Al ₂ O ₃	0.69
TiO ₂	0.11
FeO	0.26
Cr ₂ O ₃	0.04
MnO	0.02
MgO	0.04
CaO	0.78
Na ₂ O	0.16
K ₂ O	0.30
total	87.49
Cation based on O=2	
Si	0.983
Al	0.009
Ti	0.001
Fe	0.002
Cr	0.000
Mn	0.000
Mg	0.001
Ca	0.010
Na	0.004
K	0.004
total	1.015

表 4.2.5-5 斜長石の化学組成

Sample ID	Rh-015_spot_24	Rh-015_spot_core_25	Rh-015_spot_26
X (mm)	44.74	44.738	44.763
Y (mm)	52.165	52.167	52.203
Z (mm)	11.585	11.585	11.585
Oxide wt.%			
SiO ₂	50.84	53.48	57.05
Al ₂ O ₃	28.68	19.56	26.59
TiO ₂	0.06	0.42	0.01
FeO	0.69	6.12	0.56
Cr ₂ O ₃	0.06	0.02	0.00
MnO	0.03	0.15	0.02
MgO	0.22	3.17	0.34
CaO	12.80	9.78	10.88
Na ₂ O	2.54	2.12	2.54
K ₂ O	0.05	0.30	0.09
total	95.96	95.12	98.09
Cation based on O=8			
Si	2.397	2.595	2.589
Al	1.594	1.119	1.422
Ti	0.002	0.015	0.000
Fe	0.027	0.248	0.021
Cr	0.002	0.001	0.000
Mn	0.001	0.006	0.001
Mg	0.015	0.229	0.023
Ca	0.647	0.509	0.529
Na	0.232	0.199	0.223
K	0.003	0.019	0.005
total	4.921	4.940	4.814

表 4.2.5-6 方解石の化学組成

Sample ID	Rh-015_spot_2	Rh-015_spot_3	Rh-015_spot_5	Rh-015_spot_10	Rh-015_spot_11
X (mm)	36.66	36.654	36.304	39.249	40.333
Y (mm)	63.133	63.139	63.231	57.525	57.692
Z (mm)	11.402	11.402	11.402	11.488	11.488
Oxide wt.%					
SiO ₂	0.30	0.07	0.00	0.00	0.00
Al ₂ O ₃	0.10	0.01	0.01	0.02	0.00
TiO ₂	0.00	0.01	0.01	0.01	0.00
FeO	0.05	0.06	0.09	0.29	0.06
Cr ₂ O ₃	0.01	0.00	0.07	0.00	0.00
MnO	0.20	0.16	0.30	4.00	0.41
MgO	0.03	0.00	0.04	0.06	0.03
CaO	60.06	58.79	58.98	57.94	58.15
Na ₂ O	0.02	0.00	0.00	0.03	0.03
K ₂ O	0.02	0.02	0.00	0.00	0.02
total	60.78	59.11	59.50	62.34	58.69
Cation based on O=1					
Si	0.005	0.001	0.000	0.000	0.000
Al	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000
Ti	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.001	0.001	0.001	0.004	0.001
Cr	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000
Mn	0.003	0.002	0.004	0.052	0.006
Mg	0.001	0.000	0.001	0.001	0.001
Ca	0.984	0.994	0.992	0.943	0.993
Na	0.001	0.000	0.000	0.001	0.001
K	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
total	0.995	0.999	1.000	1.000	1.001

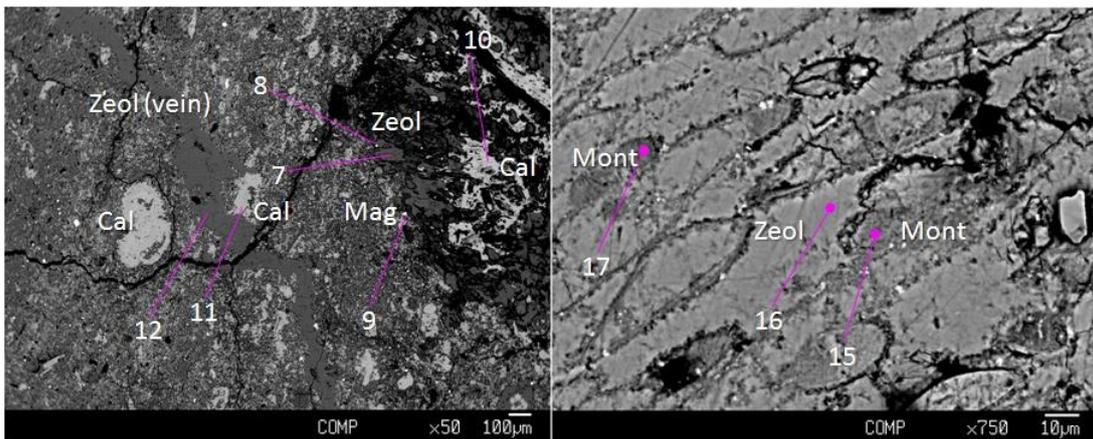
表 4.2.5-7 スメクタイトの化学組成

Sample ID	Rh-015_spot_13	Rh-015_spot_15	Rh-015_spot_17	Rh-015_spot_20
X (mm)	44.252	44.48	44.549	44.733
Y (mm)	52.146	52.134	52.11	52.133
Z (mm)	11.585	11.585	11.585	11.585
Oxide wt.%				
SiO ₂	56.00	47.81	46.62	56.22
Al ₂ O ₃	15.04	13.36	12.79	15.90
TiO ₂	0.18	0.18	0.18	0.25
FeO	10.01	8.54	6.12	7.54
Cr ₂ O ₃	0.00	0.00	0.01	0.01
MnO	0.07	0.07	0.04	0.06
MgO	2.66	1.28	2.23	2.66
CaO	1.75	1.72	1.63	1.81
Na ₂ O	0.13	0.10	0.10	0.16
K ₂ O	0.38	0.33	0.37	0.36
total	86.20	73.38	70.09	84.97
Cation based on O=22				
Si	8.027	8.044	8.096	8.054
Al	2.542	2.649	2.618	2.685
Ti	0.019	0.023	0.024	0.027
Fe	1.200	1.202	0.889	0.904
Cr	0.000	0.000	0.002	0.001
Mn	0.008	0.009	0.006	0.008
Mg	0.568	0.321	0.576	0.568
Ca	0.268	0.310	0.304	0.278
Na	0.036	0.031	0.033	0.044
K	0.069	0.070	0.082	0.065
total	12.736	12.659	12.628	12.631
Al(4)	-0.027	-0.044	-0.096	-0.054
XFe	0.679	0.789	0.607	0.614
XCa	0.718	0.755	0.726	0.719
Smectite	montmorillonite	montmorillonite	montmorillonite	montmorillonite

表 4.2.5-8 沸石の化学組成

Sample ID	Rh-015_spot_1	Rh-015_spot_4	Rh-015_spot_7	Rh-015_spot_12	Rh-015_spot_14	Rh-015_spot_16	Rh-015_spot_18	Rh-015_spot_19	Rh-015_spot_21	Rh-015_spot_22	Rh-015_spot_23
X (mm)	36.707	36.501	39.703	40.515	44.199	44.482	44.795	44.786	44.706	44.703	44.617
Y (mm)	63.084	63.199	57.504	57.564	52.201	52.127	52.079	52.087	52.158	52.168	52.141
Z (mm)	11.402	11.402	11.488	11.488	11.585	11.585	11.585	11.585	11.585	11.585	11.585
Oxide wt. %											
SiO ₂	50.76	48.24	62.45	58.50	45.09	53.50	49.51	55.29	46.29	53.52	59.66
Al ₂ O ₃	10.84	10.09	13.67	12.34	6.96	10.40	9.78	11.26	8.57	8.80	11.29
TiO ₂	0.01	0.01	0.02	0.00	0.02	0.07	1.22	0.49	0.00	0.00	0.02
FeO	0.06	0.11	0.12	0.01	0.08	0.00	2.02	2.43	0.25	0.15	0.25
Cr ₂ O ₃	0.00	0.00	0.01	0.00	0.02	0.00	0.01	0.01	0.04	0.00	0.00
MnO	0.00	0.00	0.03	0.02	0.00	0.00	0.10	0.01	0.00	0.01	0.00
MgO	0.53	0.50	0.77	0.54	0.01	0.47	0.78	0.86	0.35	0.57	0.75
CaO	4.45	4.52	4.86	4.58	3.35	4.65	4.41	4.30	4.87	4.53	5.05
Na ₂ O	0.05	0.05	0.05	0.07	0.41	0.05	0.09	0.08	0.14	0.10	0.05
K ₂ O	0.16	0.19	0.07	0.14	0.26	0.10	0.25	0.26	0.35	0.51	0.13
total	66.86	63.70	82.04	76.19	56.20	69.24	68.16	74.99	60.86	68.19	77.19
Cation based on O=72											
Si	0.401	0.401	0.401	0.404	0.422	0.408	0.393	0.397	0.406	0.415	0.408
Al	0.101	0.099	0.104	0.101	0.077	0.093	0.091	0.095	0.089	0.081	0.091
Ti	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.007	0.003	0.000	0.000	0.000
Fe	0.000	0.001	0.001	0.000	0.001	0.000	0.013	0.015	0.002	0.001	0.001
Cr	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mn	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000
Mg	0.006	0.006	0.007	0.006	0.000	0.005	0.009	0.009	0.005	0.007	0.008
Ca	0.038	0.040	0.033	0.034	0.034	0.038	0.038	0.033	0.046	0.038	0.037
Na	0.001	0.001	0.001	0.001	0.008	0.001	0.001	0.001	0.002	0.002	0.001
K	0.002	0.002	0.001	0.001	0.003	0.001	0.003	0.002	0.004	0.005	0.001
total	0.549	0.551	0.548	0.547	0.544	0.546	0.556	0.555	0.553	0.548	0.547
Si/Al	3.974	4.055	3.875	4.023	5.492	4.363	4.296	4.166	4.585	5.159	4.480
XK+Na	0.060	0.067	0.032	0.058	0.238	0.043	0.094	0.096	0.119	0.149	0.044

以上の分析結果をもとに変質過程を推定した。まず微化石を含んだ火山性砕屑物は続成過程で方解石を含むモンモリロナイト主体のベントナイトに変質し、その後石英を含む斑晶鉱物の溶解と共に斜プチロル沸石を生成した。モンモリロナイトは非常に緻密に沈殿した斜プチロル沸石のわずかな隙間や内部に残存している。斜プチロル沸石は脈形成も行い、すべての亀裂を充填するように生成している。微化石方解石は沸石成長の際一旦溶解しているが、すぐに沈殿し、溶解した斑状結晶の空隙を充填したと考えられる。



Pyroclastic sediment ⇒ Mont + CaCO₃ (fossil) ⇒ Zeol >> Mont + CaCO₃ (secondary)

図 4.2.5-8 BB12-DH05-RW-015 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序 (左: 沸石一方解石脈と沸石化した斑晶の内部を充填する方解石; 右: 緻密に成長した沸石に交代されたモンモリロナイト)

3) BB12-DH05-RW-016 の分析結果

化石由来の方解石が多いのは試料 BB12-DH05-RW-015 と同じであるが、マトリクス中では、斜プチロル沸石よりも圧倒的に方解石が多く見られる。火山性碎屑物がほとんど認められない。またマトリクス中の結晶質方解石には斜プチロル沸石結晶を包有するものがある (BB12-DH05-RW-015 とは逆の関係)。脈が形成されているが、それらは方解石である。化石由来方解石も脈状方解石も純粋に近い組成を示し、わずかに MnO を 0.0-0.6 wt.%含む程度である。特徴としてこの岩石には黄鉄鉱が含まれている。試料の反射電子線像(BEI) と二次電子線像(SEI)を図 4.2.5-9 に示す。また、各元素のマップを図 4.2.5-10 に示す。

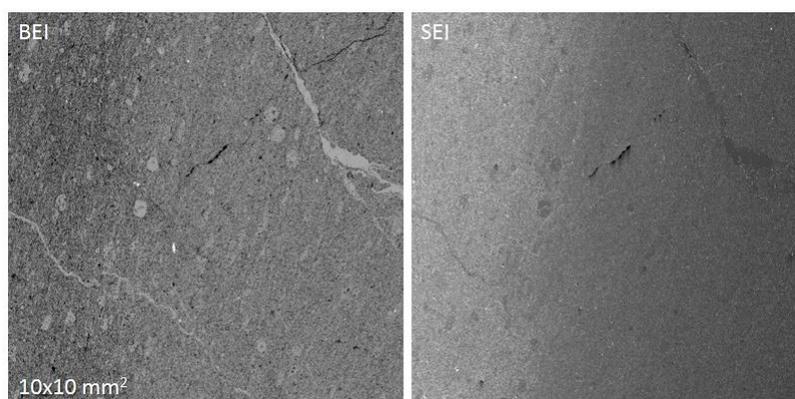


図 4.2.5-9 BB12-DH05-RW-016 試料の反射電子線像(BEI: 左)と二次電子線像(SEI: 右)

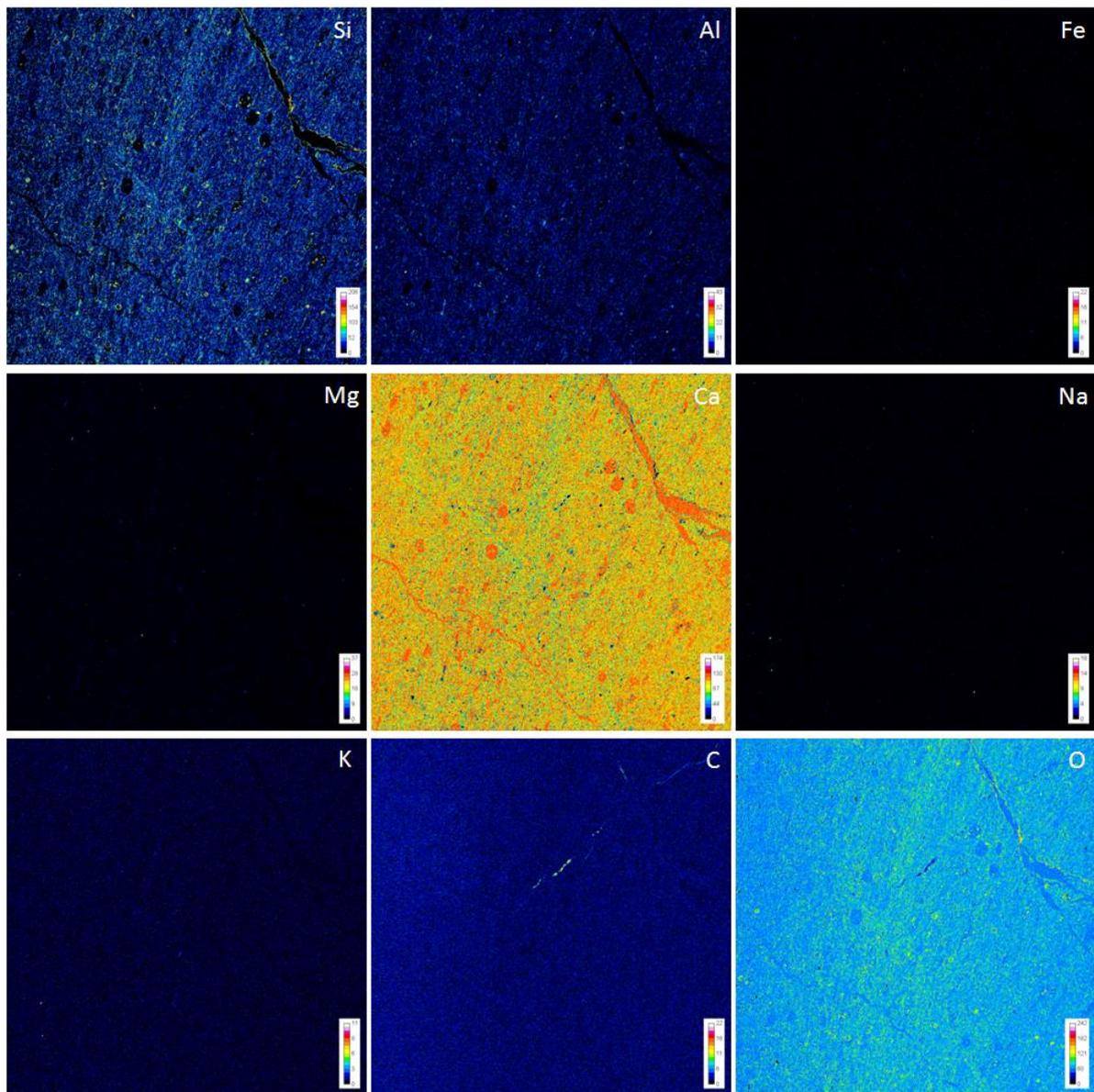


図 4.2.5-10 BB12-DH05-RW-016 試料の元素マップ

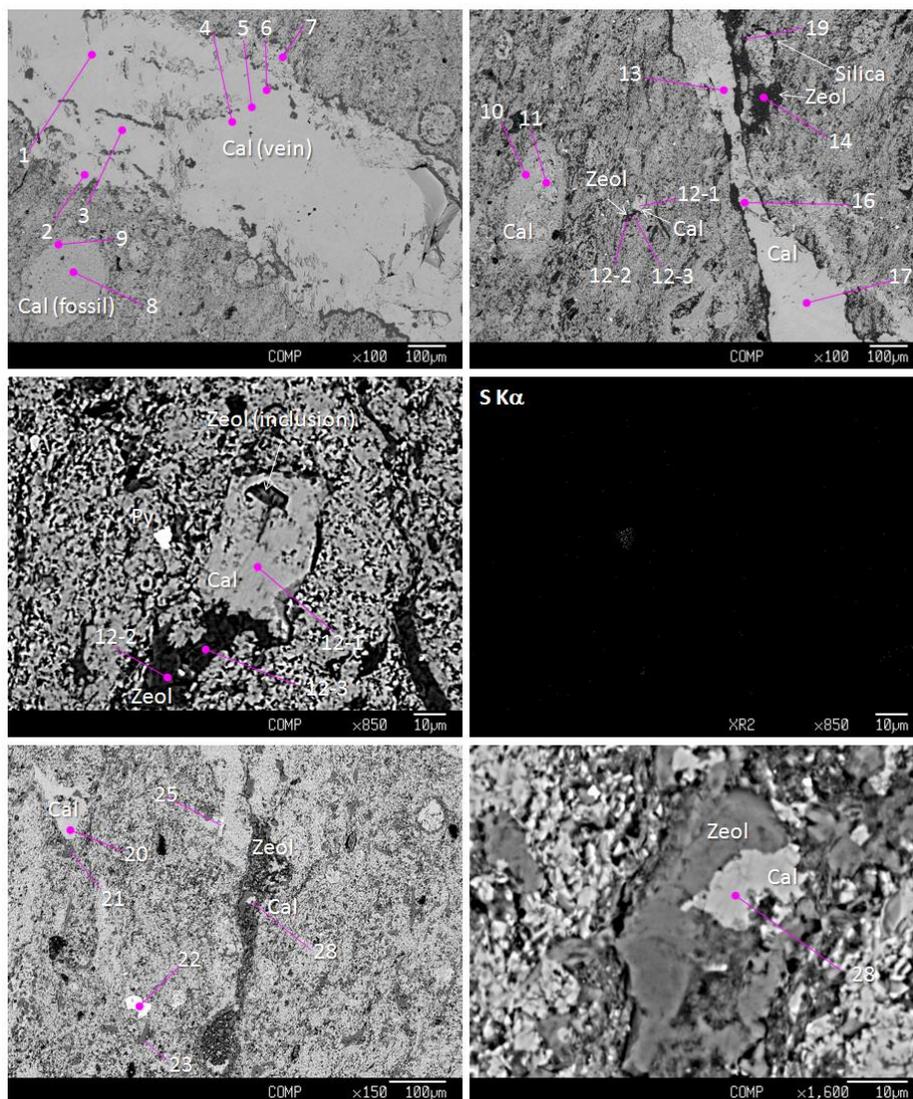


図 4.2.5-11 鉱物のスポット分析(BB12-DH05-RW-016)

表 4.2.5-9 石英の化学組成

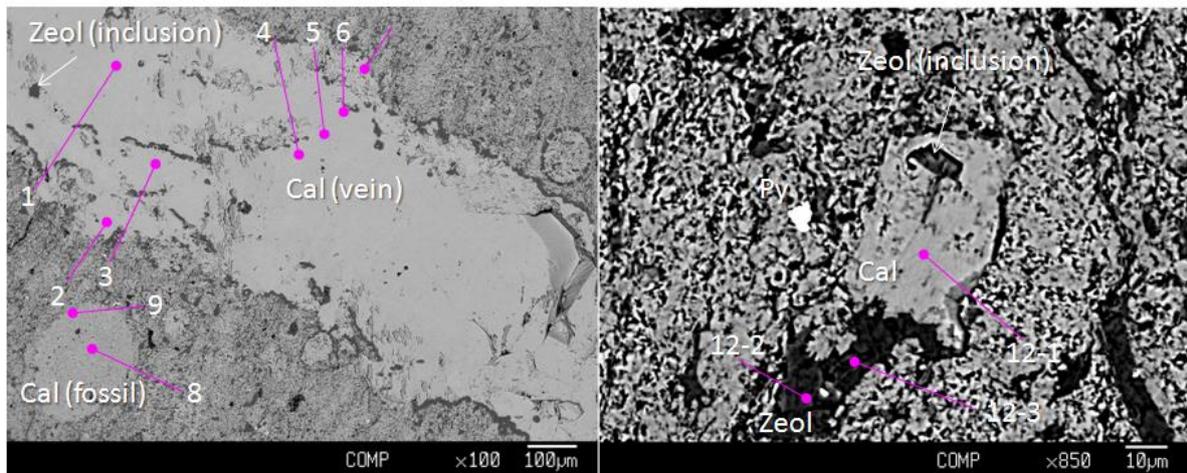
Sample ID	Rh-016_spot_19
X (mm)	10.779
Y (mm)	57.38
Z (mm)	11.422
Oxide wt. %	
SiO ₂	87.68
Al ₂ O ₃	0.35
TiO ₂	0.00
FeO	0.00
Cr ₂ O ₃	0.05
MnO	0.02
MgO	0.00
CaO	0.63
Na ₂ O	0.07
K ₂ O	0.02
total	88.82
Cation based on O=2	
Si	0.992
Al	0.005
Ti	0.000
Fe	0.000
Cr	0.000
Mn	0.000
Mg	0.000
Ca	0.008
Na	0.001
K	0.000
total	1.007

表 4.2.5-10 方解石の化学組成

Sample ID	spot_1	spot_2	spot_3	spot_4	spot_5	spot_6	spot_7	spot_8	spot_9	spot_10	spot_11	spot_12	spot_12-4	spot_13	spot_16	spot_17	spot_20	spot_22	spot_28
X (mm)	60.706	58.228	57.596	58.856	57.866	57.69	58.766	57.594	57.768	59.025	57.647	58.32	58.348	58.888	56.244	56.574	58.644	51.218	58.384
Y (mm)	6.028	6.067	5.969	5.655	5.585	5.575	5.527	6.097	6.13	11.373	11.318	11.064	11.092	10.853	10.777	10.627	16.967	16.848	16.638
Z (mm)	60.399	60.688	60.577	60.569	60.509	60.466	60.399	60.959	60.878	57.738	57.761	57.82	57.781	57.483	57.816	58.061	62.905	63.223	63.035
Z (mm)	11.441	11.441	11.441	11.441	11.441	11.441	11.441	11.441	11.441	11.411	11.411	11.411	11.411	11.411	11.411	11.411	11.345	11.345	11.345
Oxide wt. %																			
SiO2	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.04	0.00	0.20	0.00	0.00	0.00	0.23
Al2O3	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.02	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.02	0.00	0.03	0.00	0.00	0.01	0.13
TiO2	0.02	0.03	0.00	0.03	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00
FeO	0.00	0.03	0.04	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00	0.02	0.03	0.00	0.04	0.00	0.01	0.00	0.01	0.02	0.04	0.00
Cr2O3	0.01	0.00	0.04	0.01	0.00	0.03	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	0.00	0.03	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00
MnO	0.41	0.61	0.44	0.47	0.41	0.32	0.43	0.34	0.02	0.44	0.28	0.89	0.15	0.26	0.31	0.56	0.00	0.10	0.26
MgO	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.02	0.02	0.07	0.02	0.03	0.01	0.00	0.04	0.00	0.03	0.01	0.01	0.06	0.00
CaO	60.27	57.54	57.08	58.32	57.42	57.28	58.29	57.15	57.68	58.51	57.35	57.33	58.07	58.59	55.67	55.98	58.58	50.43	57.75
Na2O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.03	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.53	0.00
K2O	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.02	0.02
total	60.71	58.23	57.60	58.86	57.87	57.69	58.77	57.59	57.77	59.03	57.65	58.32	58.35	58.89	56.24	56.57	58.64	51.22	58.38
Cation based on O=1																			
Si	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.003	0.000	0.000	0.000	0.004
Al	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.002
Ti	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000
Cr	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mn	0.005	0.008	0.006	0.006	0.006	0.004	0.006	0.005	0.000	0.006	0.004	0.012	0.002	0.004	0.004	0.008	0.000	0.002	0.004
Mg	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.002	0.001	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.001	0.000	0.000	0.002	0.000
Ca	0.994	0.990	0.993	0.992	0.994	0.994	0.993	0.993	0.999	0.993	0.996	0.986	0.994	0.996	0.987	0.992	0.999	0.986	0.985
Na	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.019	0.000
K	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
total	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.001	1.000	1.000	1.000	0.999	1.000	0.996	1.000	1.001	1.009	0.995

表 4.2.5-11 沸石の化学組成

Sample ID	Rh-016_spot_12-2	Rh-016_spot_12-3	Rh-016_spot_14	Rh-016_spot_21	Rh-016_spot_23
X (mm)	11.092	11.08	10.721	16.973	16.84
Y (mm)	57.851	57.852	57.545	62.951	63.282
Z (mm)	11.411	11.411	11.411	11.345	11.345
Oxide wt.%					
SiO ₂	66.27	64.12	65.36	62.86	62.50
Al ₂ O ₃	11.82	13.16	12.28	11.90	11.17
TiO ₂	0.00	0.02	0.00	0.00	0.03
FeO	0.00	0.05	0.04	0.00	0.02
Cr ₂ O ₃	0.00	0.03	0.00	0.01	0.00
MnO	0.02	0.00	0.02	0.02	0.02
MgO	0.47	0.61	0.54	0.54	0.50
CaO	6.76	5.02	4.65	4.72	4.84
Na ₂ O	0.28	0.32	0.13	0.11	0.07
K ₂ O	0.29	0.26	0.32	0.28	0.21
total	85.92	83.57	83.34	80.44	79.34
Cation based on O=72					
Si	29.477	29.153	29.671	29.592	29.808
Al	6.199	7.049	6.566	6.602	6.278
Ti	0.000	0.007	0.000	0.000	0.007
Fe	0.000	0.014	0.014	0.000	0.007
Cr	0.000	0.007	0.000	0.007	0.000
Mn	0.007	0.000	0.007	0.007	0.007
Mg	0.310	0.410	0.367	0.382	0.353
Ca	3.226	2.448	2.261	2.383	2.470
Na	0.245	0.281	0.115	0.101	0.065
K	0.166	0.151	0.180	0.173	0.122
total	39.629	39.528	39.197	39.240	39.139
Si/Al	4.755	4.136	4.519	4.482	4.748
XK+Na	0.113	0.150	0.115	0.103	0.070



Limestone (fossil) ⇒ CaCO₃ (fossil) + Zeol (originally smectite?) ⇒ CaCO₃ (fossil+vein) + Zeol

図 4.2.5-12 BB12-DH05-RW-016 試料の変質の特徴とそこから推定される変質順序（左：沸石を包有する方解石脈と微化石方解石；右：沸石を包有する二次的方解石と共存する沸石）

BB12-DH05-RW-015 試料と BB12-DH05-RW-016 試料は共に白色を呈する石灰質の岩片で、類似した外見をもつが、記載岩石学的、鉱物学的には以下のように分類される。

表 4.2.5-12 石灰質試料の記載岩石学的比較

BB12-DH05-RW-015	Calcareous zeolite limestone	Calcite Clinoptilolite
BB12-DH05-RW-016	Calcareous zeolite limestone	Calcite Clinoptilolite Pyrrite

方解石の化学組成を比較すると、BB12-DH05-RW-015 試料は、FeO がわずかだが含まれている。また源岩の斑晶鉱物の仮像に含まれている方解石には FeO, MnO に非常に富むものがあるが、それ以外は BB12-DH05-RW-016 よりも FeO は多く、MnO 含有量は少ない。一方、BB12-DH05-RW-016 試料では、FeO の含有量はどれも非常に少ない（黄鉄鉱の存在と関係している可能性）。しかし MnO は BB12-DH05-RW-015 よりもわずかだが多く含まれている。

また、記載岩石学的な BB12-DH05-RW-015 と BB12-DH05-RW-016 の最も大きな違いは、方解石と沸石の量比が大きく異なることである。鉱物の産状から、前者は方解石が沸石よりも先に、後者は後に晶出していると思われる。

方解石の化学組成の特徴より、FeO が BB12-DH05-RW-015 では多く含まれていることから、Fe 成分が存在する雑多な化学組成の間隙水から沈殿した初期の方解石の性質が保存されていると思われる。一方で BB12-DH05-RW-016 は、続成過程での高温、再結晶を経験しており、その過程で不純物である Fe 成分を黄鉄鉱に分配して高純度化したものと考えられる。Mn についての説明としては、この成分は方解石に強く分配され続ける成分なのかもしれない。

(2) FESEM-EDS 分析結果

EPMA で用いた薄片状試料を使って FESEM-EDS 観察・分析を行った。それぞれの試料で鉱物産状の観察と分析を実施した SEM 画像（図 4.2.5-13 (BB12-DH05-RW-003)、図 4.2.5-15 (BB12-DH05-RW-015)、図 4.2.5-17 (BB12-DH05-RW-016)）と各測定ポイントでの分析結果（図 4.2.5-14 (BB12-DH05-RW-003)、図 4.2.5-16 (BB12-DH05-RW-015)、図 4.2.5-18～図 4.2.5-20 (BB12-DH05-RW-016)）を以下に示す。

1) BB12-DH05-RW-003 の分析結果

マトリクス中の微細な方解石（図 4.2.5-13a）に対し脈状の自形の発達した方解石（図 4.2.5-13b）の違いが確認できる。図 4.2.5-13c では非晶質シリカの産状がみえる。

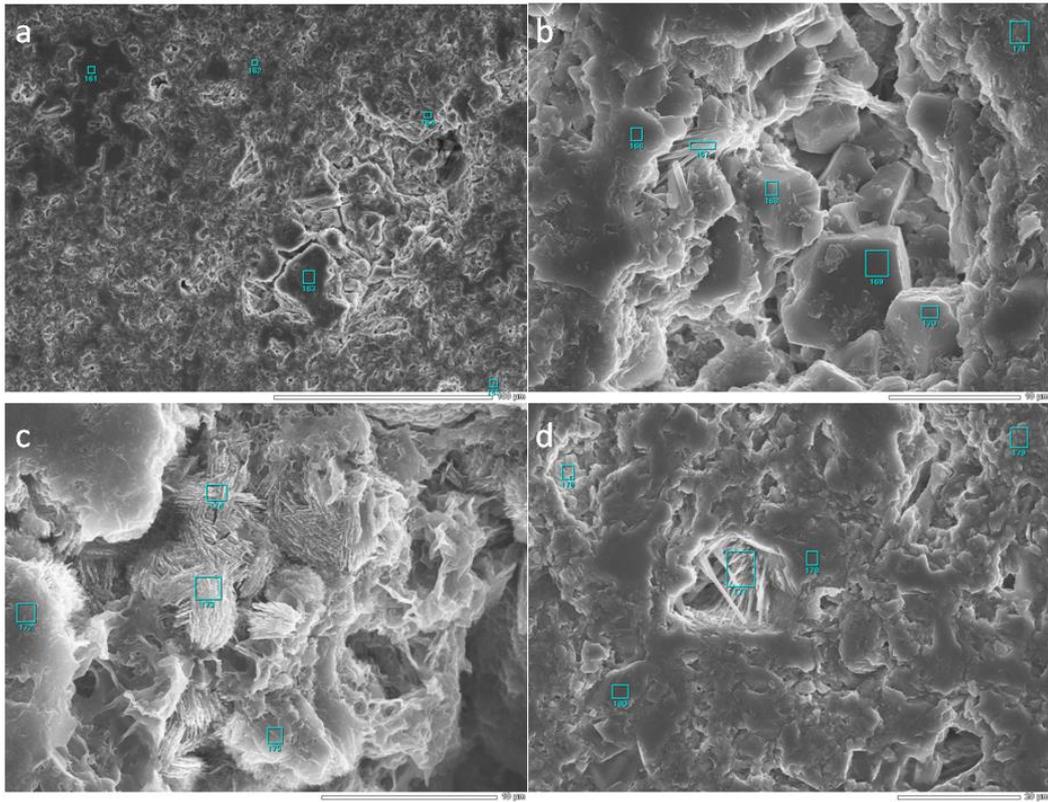


図 4.2.5-13 FESEM-EDS 観察結果(BB12-DH05-RW-003)

2) BB12-DH05-RW-015 の分析結果

BB12-DH05-RW-003 に比べると、図 4.2.5-16 のスポット分析結果からも EPMA の観察結果と同様に沸石が多い試料であることがわかる。沸石は自形の発達した産状(図 4.2.5-15 の b, c, d)が多くみられる。図 4.2.5-15a では方解石を含む沸石のマトリックス中に鉄の濃集部(図 4.2.5-15a の 143 スポット)がみられる。沸石の粒子間を充填するスメクタイトが図 4.2.5-15b の 145 スポットやcの 153 スポットで確認できる。

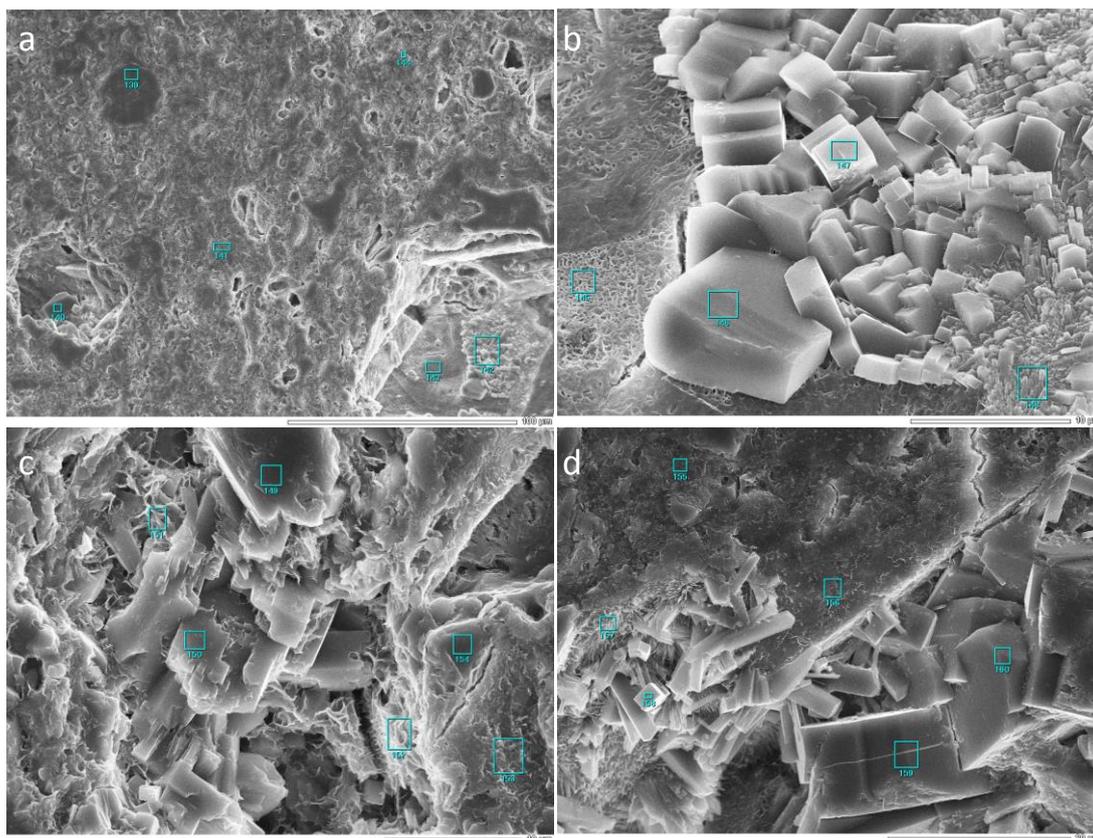


図 4.2.5-15 FESEM-EDS 観察結果(BB12-DH05-RW-015)

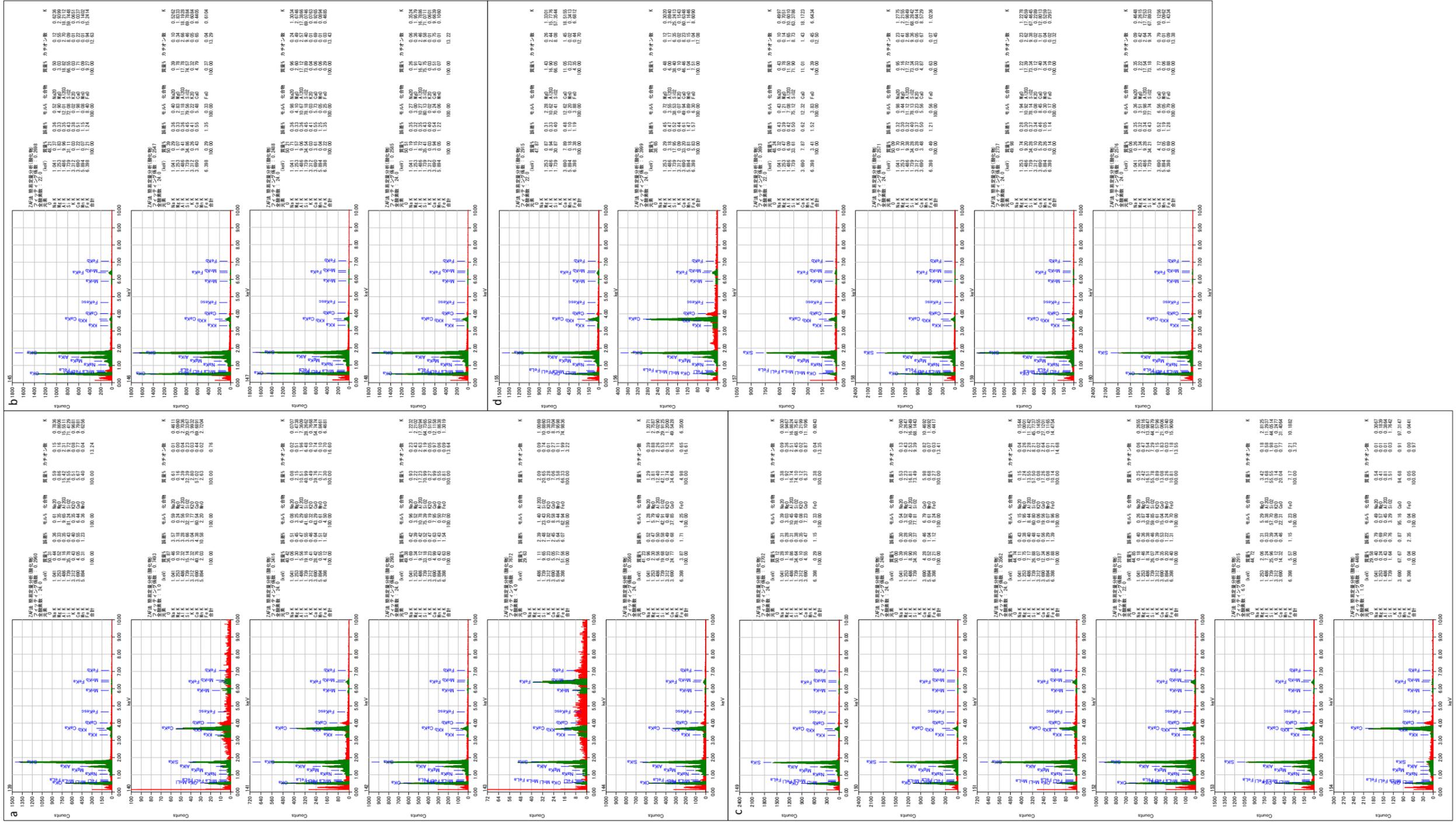


図 4.2.5-16 FESEM-EDS 分析結果(BB12-DH05-RW-015)

3) BB12-DH05-RW-016 の分析結果

BB12-DH05-RW-015 に比べると、図 4.2.5-18～図 4.2.5-20 のスポット分析結果からも EPMA の観察結果と同様に方解石が多い試料であることがわかる。方解石は多形の産状（図 4.2.5-17b の 046 スポット）と自形の産状（図 4.2.5-17a の 040,041 スポット、b の 044 スポット、d の 050,053～058 スポット、e の 061 スポット、g の 068,069 スポット）がみられる。図 4.2.5-17d にはゼオライトを包有する二次的な方解石の産状がみられる。

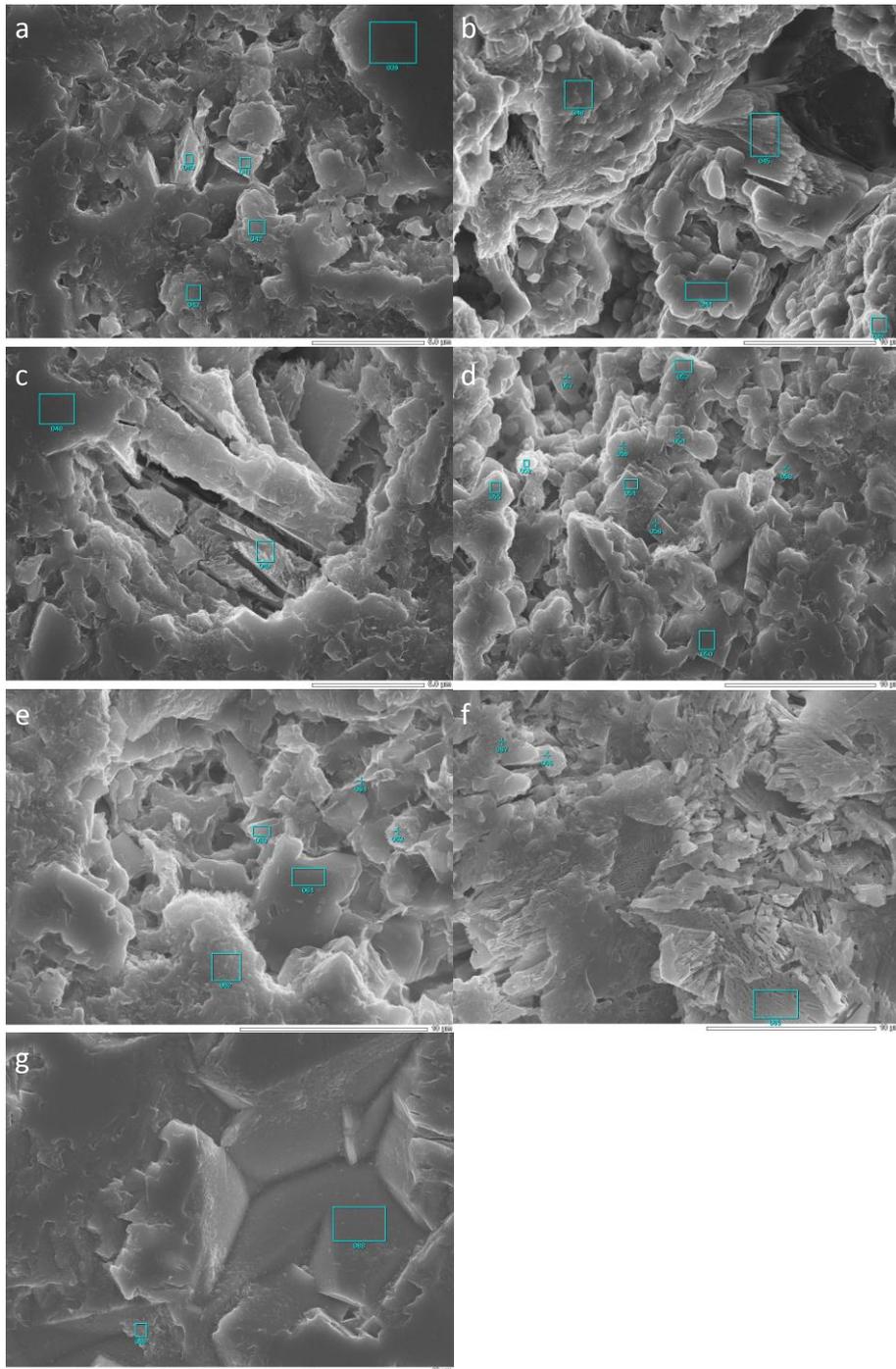


図 4.2.5-17 FESEM-EDS 観察結果(BB12-DH05-RW-016)

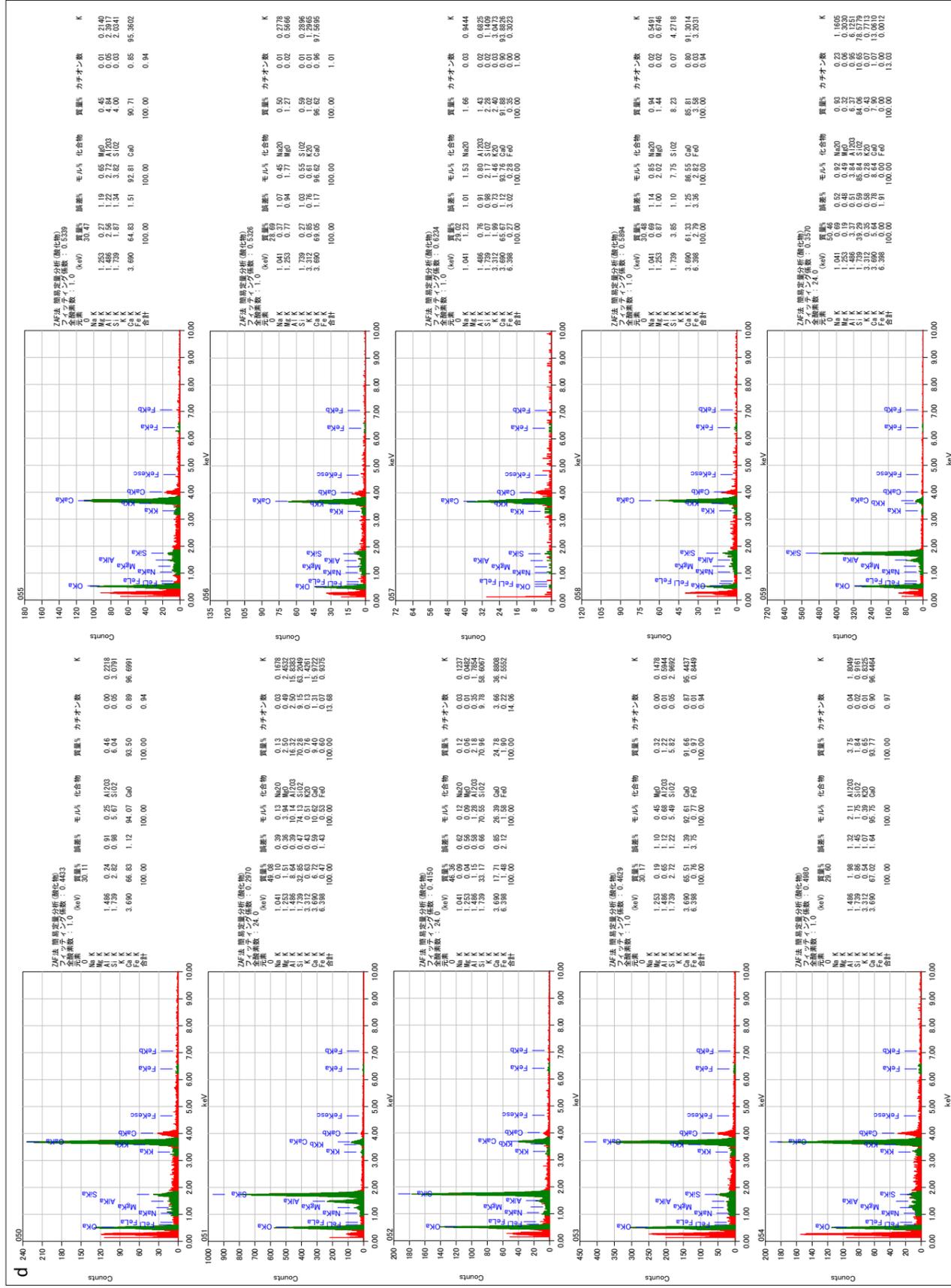


図 4.2.5-19 FESEM-EDS 分析結果(BB12-DH05-RW-016, その2)

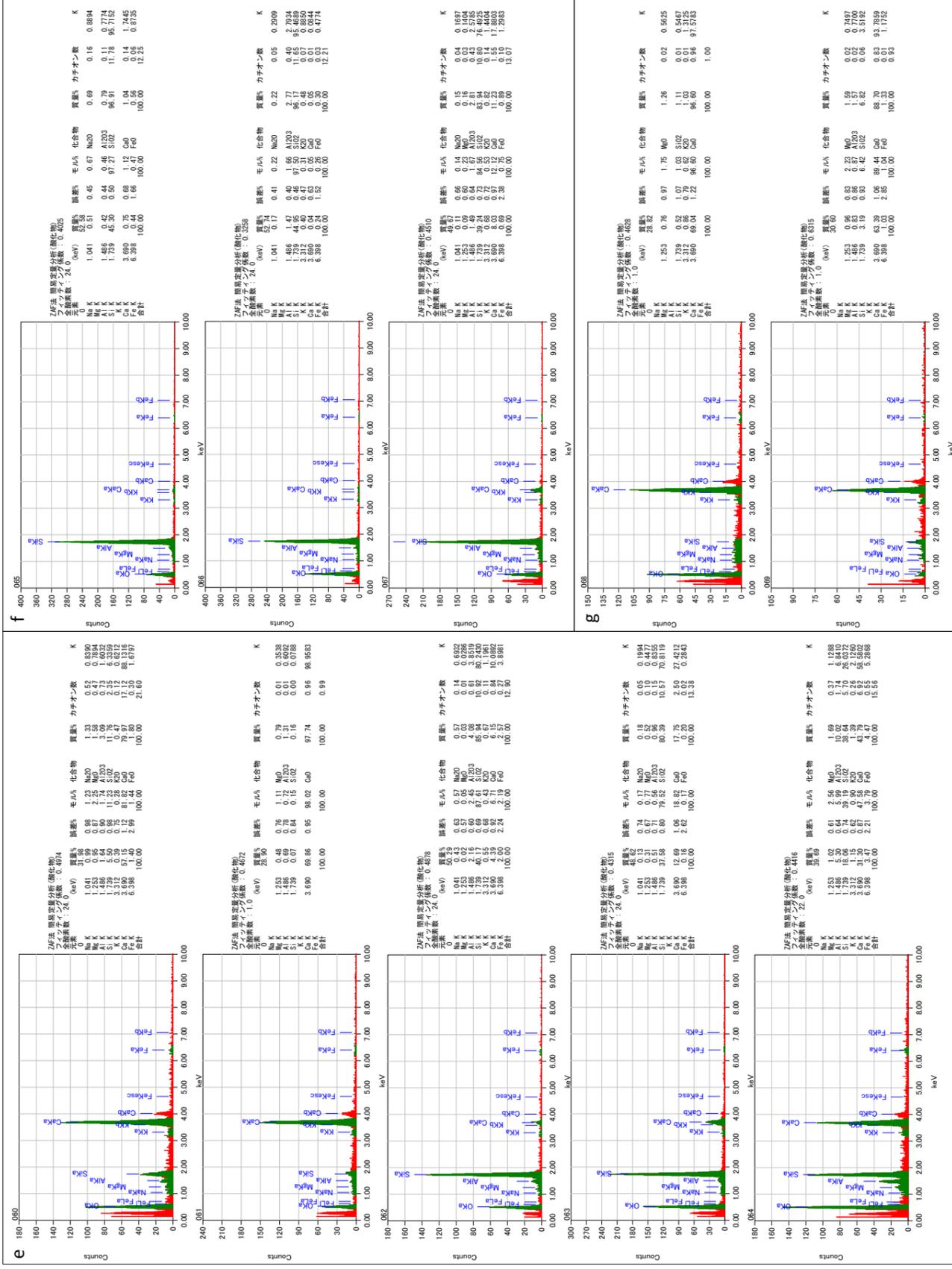


図 4.2.5-20 FESEM-EDS 分析結果(BB12-DH05-RW-016, その3)

(3) μ -XRD 分析結果

岩片試料を用いた μ -XRD スポット分析による構成鉱物の同定を行った。結果をスポット位置を示す画像とともに以下に示す。

1) BB12-DH05-RW-003

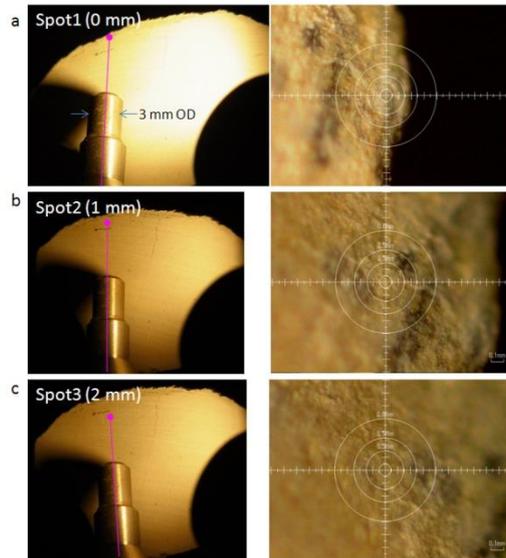


図 4.2.5-21 μ -XRD 分析スポット(BB12-DH05-RW-003)

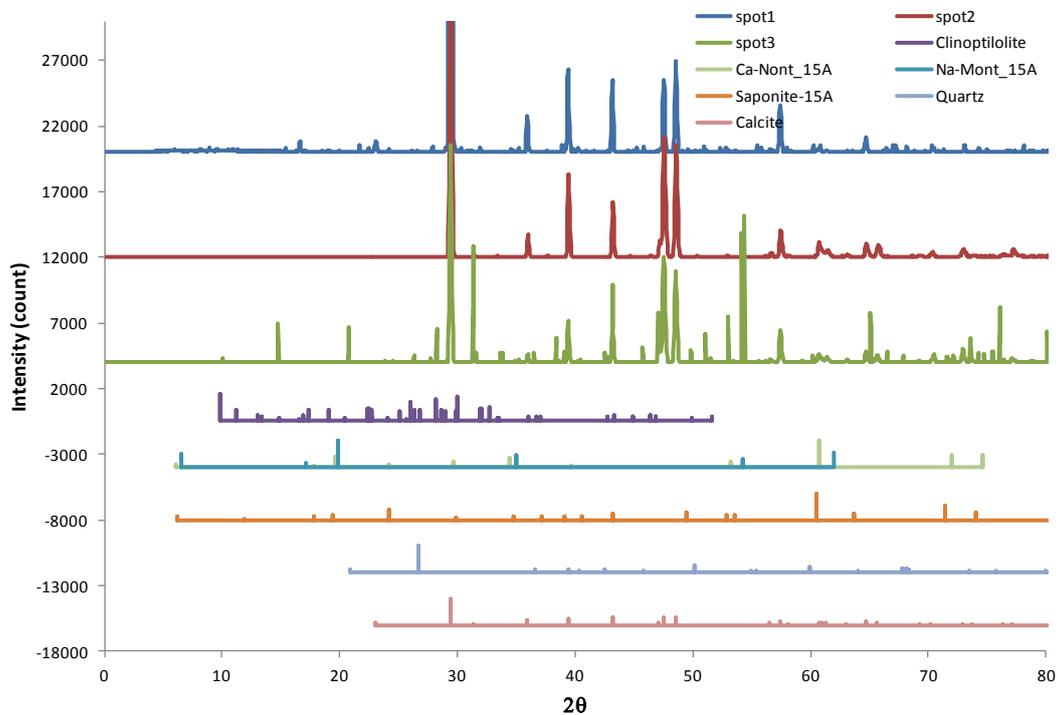


図 4.2.5-22 XRD パターンと解析結果(BB12-DH05-RW-003)

どのスポットにおいても方解石と斜プチロル沸石のピークが認められるが、方解石のピークが斜プチロルよりも顕著に強く表れている。

2) BB12-DH05-RW-015

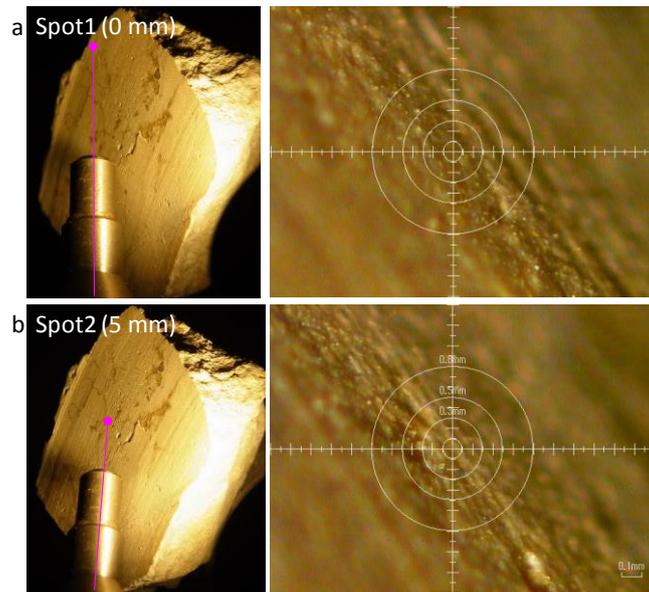


図 4.2.5-23 μ-XRD 分析スポット(BB12-DH05-RW-015)

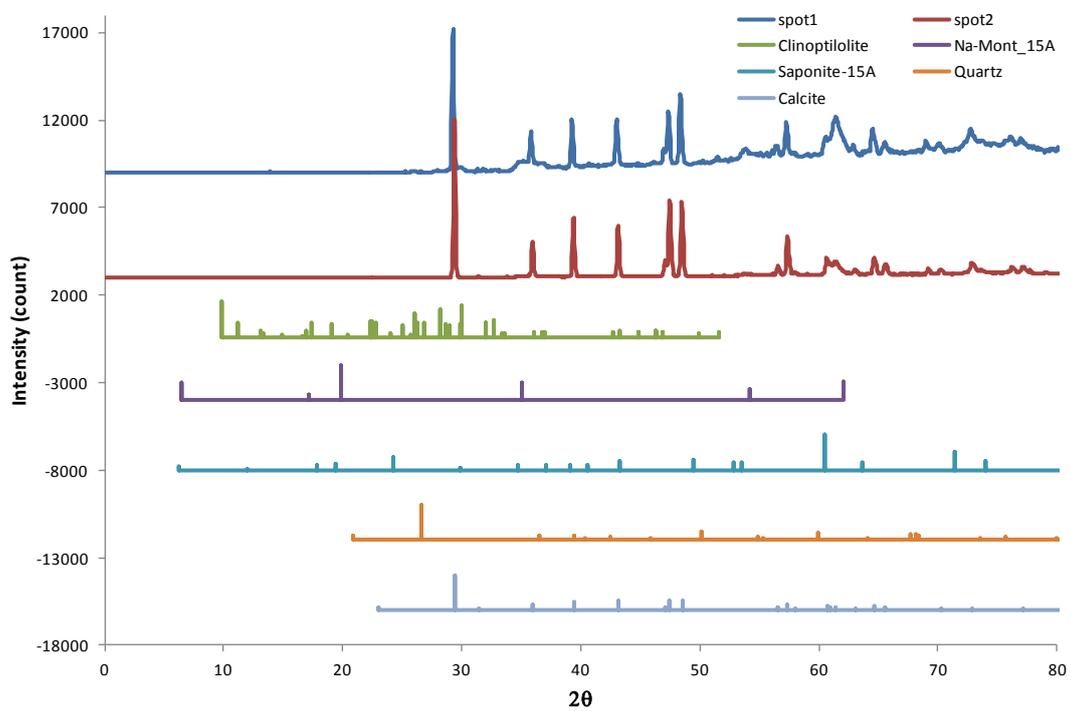


図 4.2.5-24 XRD パターンと解析結果(BB12-DH05-RW-015)

非常に鋭い方解石のピークが検出されているが、わずかに斜プチロル沸石が確認できる。

3) BB12-DH05-RW-016

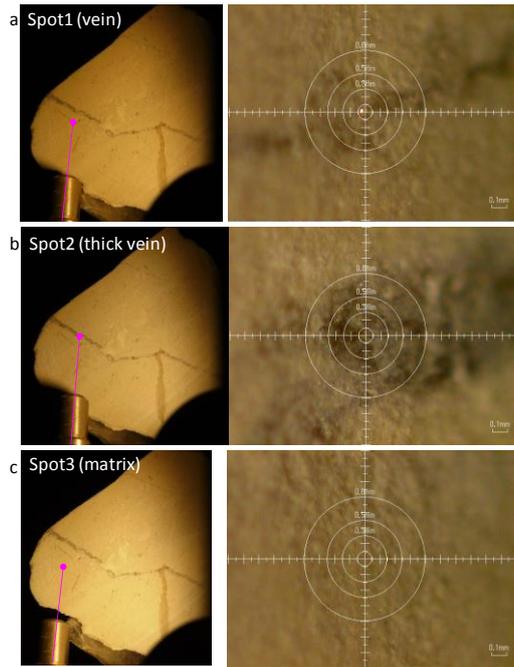


図 4.2.5-25 μ-XRD 分析スポット(BB12-DH05-RW-016)

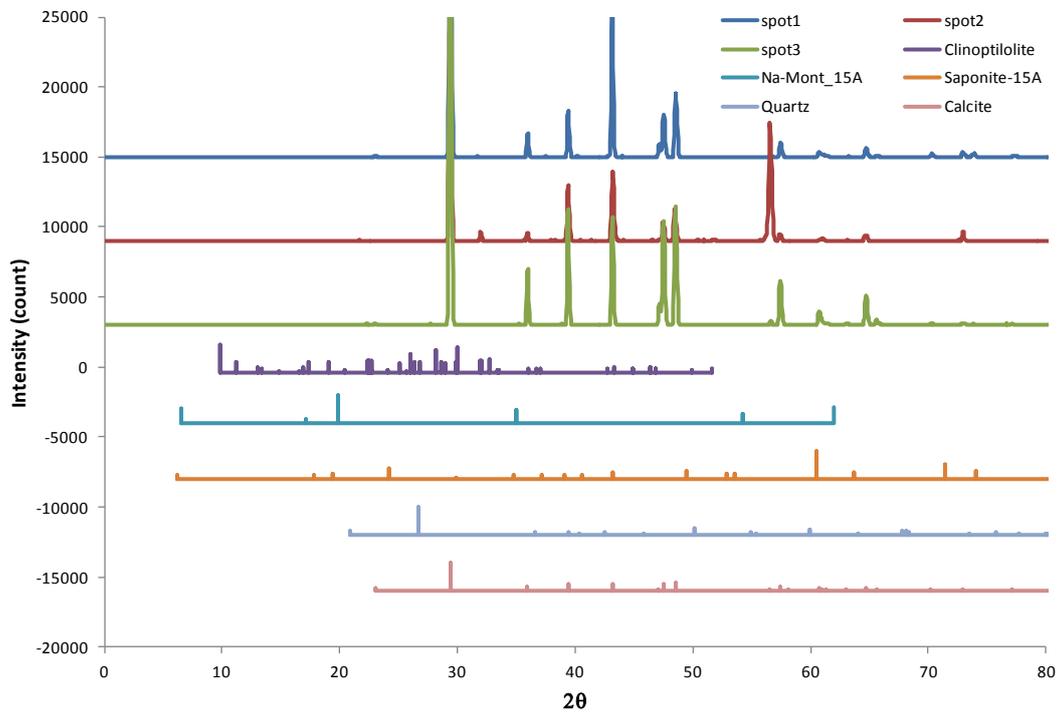


図 4.2.5-26 XRD パターンと解析結果(BB12-DH05-RW-016)

BB12-DH05-RW-015 試料よりもより鋭く方解石のピークが検出されている。斜プチロル沸石のピークは非常に弱い。

4) 記載岩石学的分類

岩石鉱物学的・地球化学的特性の詳細観察・分析結果から、Bigbiga の炭酸塩試料から採取した試料 3 件 (BB12-DH05-RW-003, 015, 016) の岩石種を構成鉱物やその変質相の特徴から分類したものを DH10 の炭酸塩鉱物(BBDH10-14-Rh-026)と合わせて表 4.2.5-13 に示す。

表 4.2.5-13 Bigbiga の炭酸塩試料の記載岩石学的分類

Sample ID	Rock name	Minerals	Remarks
BBDH10-14-Rh-026	Calcareous zeolite limestone	Calcite Clinoptilolite Ca-saponite	Calcite surrounded by clinoptilolite Saponite surrounded by clinoptilolite
BBDH05-13-Rh-003	Calcareous zeolite limestone	Calcite Clinoptilolite	Calcite surrounded by clinoptilolite
BBDH05-13-Rh-015	Calcareous zeolite limestone	Calcite Clinoptilolite	
BBDH05-13-Rh-016	Calcareous zeolite limestone	Calcite Clinoptilolite Pyrite	

4.2.6 Bigbica の試錐コア (DH05 及び DH07) の方解石の蓄積線量の評価

4.2.4 で示したように、フィリピン国ルソン島北西部の Bigbica の試錐コア(DH05 孔及び DH07 孔)からサンプリングした方解石について、ほぼ同じ層準から採取した試料でも蓄積線量が異なる場合があった。BB12-DH05-RW-015 及び BB12-DH05-RW-016 は、それぞれ蓄積線量が 62.4Gy と 24.7Gy であり 2 倍以上の開きがあり、年間線量が同等であるとすると、年代値も同じく 2 倍以上異なる事になる。

昨年度の複数の天然試料を用いた基礎研究に基づくと、放射性元素濃度が同じであってもルミネッセンスを生じさせる効率が炭酸塩の化学組成に依存するため、実効年間線量が異なることが蓄積線量の違いをもたらした可能性がある。Mn, Fe, Mg, Sr 濃度など、複数の元素により効率が変動する可能性があるため、天然試料でみられた関係に基づき、各試料独自のルミネッセンス効率の推定を試みた。

まず年代値を計算する際に、 α 線の飛程が 100 μm 以下であることを考慮し、 α 線による線量は炭酸塩由来のものだけを常に受けているとし、年代値の再計算を行った。 β 線、 γ 線による線量については周辺岩石（玄武岩質角礫岩）からの寄与を考慮し、寄与率を仮定して計算を行った（表 4.2.6-1）。その結果、炭酸塩、周辺岩石の β 線、 γ 線線量がほぼ等しくなったため、周辺岩石からの寄与率に関わらず年代値はほぼ一定となることが分かった（表 4.2.6-2 及び図 4.2.6-1）。なお、ここでの計算では、フィリピンの Saile 鉱山で採取された断裂系の方解石の代表的な放射性元素濃度を利用した。

表 4.2.6-1 方解石と周囲岩石の各種放射性元素濃度とそれら元素からの各種放射線量率と年間線量

	方解石脈	角礫岩
U(ppm)	0.15	0.071
Th(ppm)	0.63	0.051
Rb(ppm)	12	8.4
K2O(%)	0	0.24
含水比(W.C.for Lumi)	0	0
α (mGy/y)	0.71	
β (mGy/y)	0.04	0.17
γ (mGy/y)	0.05	0.06
宇宙線(mGy/y)	0.12	0.12

表 4.2.6-2 方解石の比率と炭酸塩の TL 年代

年代(ka)	方解石の比率	0	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100
BB12-DH07-RW-001	54	54	54	54	54	54	54	54	54	54	54	54
BB12-DH07-RW-003	9	9	9	9	9	9	9	9	9	9	10	10
BB12-DH05-RW-003	181	181	181	182	182	182	182	182	183	183	183	183
BB12-DH05-RW-005	104	104	104	105	105	105	105	105	105	105	105	106
BB12-DH05-RW-006	88	88	88	88	88	88	88	88	88	89	89	89
BB12-DH05-RW-007	109	110	110	110	110	110	110	110	110	111	111	111
BB12-DH05-RW-013	93	93	93	93	93	93	93	94	94	94	94	94
BB12-DH05-RW-014	119	119	120	120	120	120	120	120	120	120	121	121
BB12-DH05-RW-015	88	88	88	88	88	88	88	88	89	89	89	89
BB12-DH05-RW-016	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35
BB12-DH05-RW-018	103	104	104	104	104	104	104	104	104	105	105	105

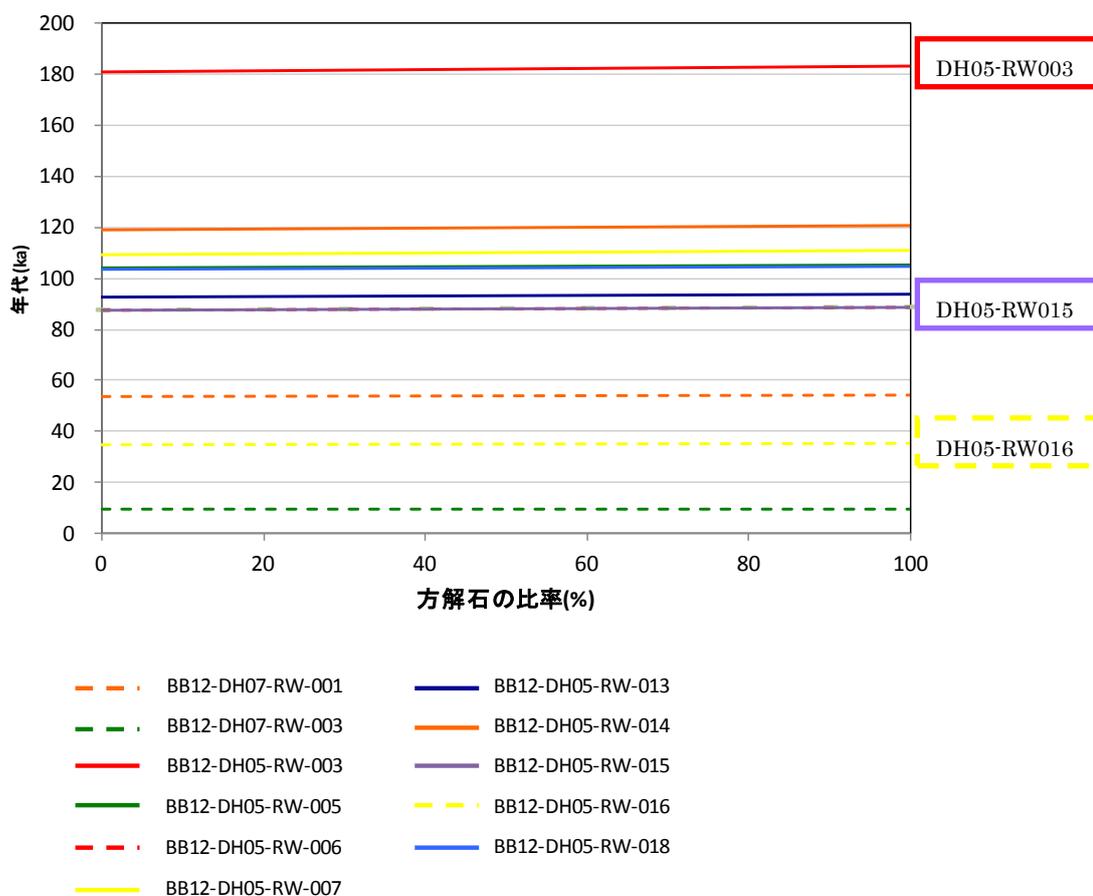


図 4.2.6-1 方解石と周囲岩石からの影響率を方解石ほぼ 0%から 100%まで考慮し得た年代値のプロット

次に化学組成の違いが年間線量にどの程度影響するかについて検討するため、LA-ICP-MS を用いて、各試錐コアの微量元素濃度を調べた。測定装置は金沢大学理工学域の 7500S Agilent を用いた。測定条件を表 1 に示す。外部標準試料として NIST610 を用いた。測定した元素濃度は ${}^7\text{Li}$, ${}^{11}\text{B}$, ${}^{23}\text{Na}$, ${}^{24}\text{Mg}$, ${}^{27}\text{Al}$, ${}^{29}\text{Si}$, ${}^{31}\text{P}$, ${}^{39}\text{K}$, ${}^{42}\text{Ca}$, ${}^{43}\text{Ca}$, ${}^{45}\text{Sc}$, ${}^{47}\text{Ti}$, ${}^{51}\text{V}$, ${}^{53}\text{Cr}$, ${}^{55}\text{Mn}$, ${}^{57}\text{Fe}$, ${}^{59}\text{Co}$, ${}^{62}\text{Ni}$, ${}^{63}\text{Cu}$, ${}^{66}\text{Zn}$, ${}^{85}\text{Rb}$, ${}^{88}\text{Sr}$, ${}^{89}\text{Y}$, ${}^{90}\text{Zn}$, ${}^{93}\text{Nb}$, ${}^{95}\text{Mo}$, ${}^{133}\text{Cs}$, ${}^{137}\text{Ba}$, ${}^{139}\text{La}$, ${}^{140}\text{Ce}$, ${}^{141}\text{Pr}$, ${}^{146}\text{Nd}$, ${}^{147}\text{Sm}$, ${}^{151}\text{Eu}$, ${}^{157}\text{Gd}$,

^{159}Tb , ^{163}Dy , ^{165}Ho , ^{166}Er , ^{169}Tm , ^{172}Yb , ^{175}Lu , ^{178}Hf , ^{181}Ta , ^{208}Pb , ^{232}Th , ^{238}U である。

測定した結果 (図 4.2.6-2) から、概ね全ての試料で似た傾向を示したが、バリウム、ニッケル、銅、亜鉛の量にはばらつきが出た。また BB12-DH05-RW-014 は微量元素濃度が高い傾向があった。

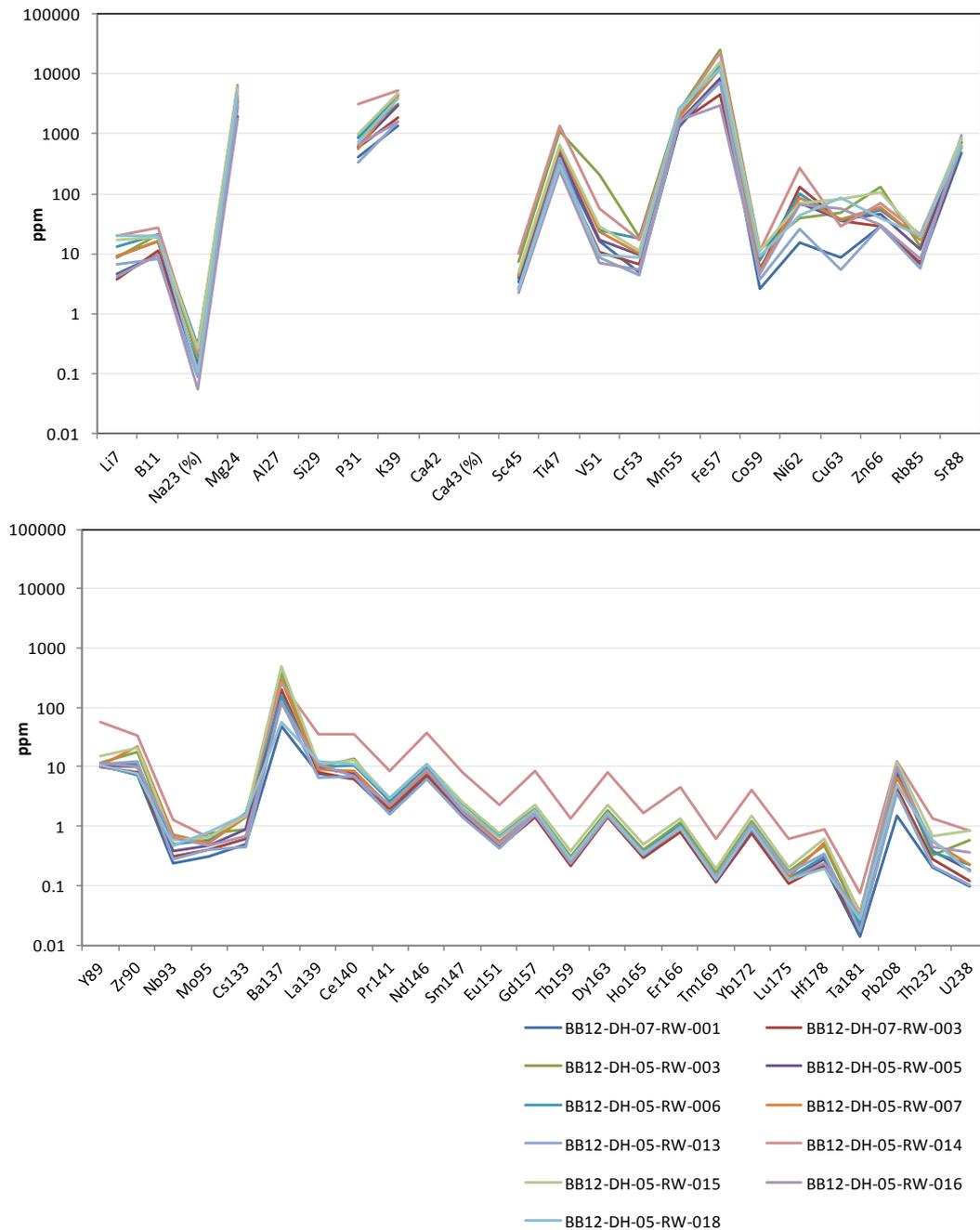


図 4.2.6-2 Bigbiga の試錐コアの LA-ICP-MS 分析結果

次にルミネッセンス効率 (a-value, b-value, c-value) の評価をおこなった。ここで、昨年度の研究から、天然試料を用いて α, β, γ 線それぞれの照射実験を行い、X線熱ルミネッセンスを基準とした発光感度の調査において、試料毎にルミネッセンス効率が異なっており、これが化学組成に依存している可能性が示されている。ここでは、天然試料分析により得られている化学組成依存性を利用して試料の Mn 濃度、Fe 濃度から推定した。

詳細な分析を実施した DH05 孔の 3 試料については、Mn 濃度、Fe 濃度を EPMA のスポット分析値を利用して見積もった (表 4.2.6-3)。これらの値は LA-ICP-MS によって得られた Mn 濃度、Fe 濃度を利用する場合と、特に Fe の値に不一致が見られた (表 4.2.6-4)。これについては今後、微量元素濃度の不均一性を議論する必要があると思われる。また Mn 濃度により推定値と Fe 濃度による推定値は大きくかけ離れており、ルミネッセンス効率を考慮する際には単成分だけでは推定できないことが示唆された。

年間線量を各試料の放射性元素濃度 (LA-ICP-MS 分析値) を用いて再計算し (今回の Bigbiga の炭酸塩のコア試料は基盤岩 (玄武岩質角礫岩) から十分離れているとして周囲岩石からの影響率を 0 とした)、かつ EPMA または LA-ICP-MS 分析による Mn 濃度や Fe 濃度に基づいてルミネッセンス効率を考慮して年代値を計算した。表 4.2.6-4 に化学組成に基づくルミネッセンス効率と TL 年代値の評価結果を示す。また、図 4.2.6-3~図 4.2.6-13 には、各コア試料のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値の関係を示す。本検討で着目した、同じ層準であるにもかかわらず蓄積線量が異なっていた BB12-DH05- RW015、および BB12-DH05-RW016 の値については、図 4.2.6-12~図 4.2.6-13 のように近づく傾向を示し、特に Fe 濃度・LA-ICP-MS 基準のルミネッセンス効率を適用すると、逆に BB12-DH05- RW015 のほうが古い年代を示した。

表 4.2.6-3 各放射線のルミネッセンス効率

		a-value	b-value	c-value
Saile 鉍山試料		0.8	0.05	0.27
BB12-DH05-RW-003	Mn	0.75	0.04	0.27
	Fe	0.42	0.23	0.44
BB12-DH05-RW-015	Mn	0.89	0.04	0.22
	Fe	0.71	0.07	0.30
BB12-DH05-RW-016	Mn	0.79	0.04	0.25
	Fe	0.49	0.18	0.40

※Saile 鉍山試料は、フィリピンの Saile 鉍山トレンチの断裂系の方解石試料の Fe 濃度 (LA-ICP-MS による実測値) に基づいて評価した値

表 4.2.6-4 放射性元素濃度とルミネッセンス効率を考慮した TL 年代

Sample	蓄積線量 (Gy)	Concentration of radioactive element						Concentration of efficiency controlling element				Measured efficiency			Mn correlated efficiency			Fe correlated efficiency			with measured standard Philippines (Saile mine) efficiency		with Mn corrected efficiency		with Fe corrected efficiency	
		U(ppm)	error for U	Th(ppm)	error for Th	Rb(ppm)	error	Fe (%)	error	Mn(%)	error	a value	b value	c value	a value	b value	c value	a value	b value	c value	年代 (ka)	error	年代 (ka)	error	年代 (ka)	error
BB12-DH07-RW-001	38.2	0.10	0.05	0.20	0.06	9.12	2.33	0.80	0.17	0.13	0.03									97	56	104	61	109	65	
BB12-DH07-RW-003	6.7	0.12	0.05	0.28	0.11	9.95	6.61	0.46	0.31	0.15	0.05									14	6	15	6	17	8	
BB12-DH05-RW-003	129	0.58	0.11	0.33	0.28	18.15	3.41	2.51	0.49	0.25	0.05									98	13	100	14	99	13	
								0.078*	0.06	*0.16	0.08															
BB12-DH05-RW-005	74.3	0.18	0.07	0.38	0.18	16.84	5.64	0.84	0.37	0.16	0.04									118	43	124	47	134	53	
BB12-DH05-RW-006	62.5	0.22	0.01	0.37	0.05	25.23	1.78	1.35	0.08	0.19	0.01									89	5	92	5	96	6	
BB12-DH05-RW-007	78	0.22	0.12	0.54	0.19	23.47	2.80	1.25	0.17	0.18	0.03									98	37	103	40	108	43	
BB12-DH05-RW-013	66.2	0.10	0.05	0.22	0.20	7.71	0.86	0.74	0.04	0.16	0.03									159	118	168	127	181	142	
BB12-DH05-RW-014	85	0.83	1.09	1.37	0.65	29.59	9.23	2.34	0.61	0.22	0.04									37	14	38	15	38	14	
BB12-DH05-RW-015	62.6	0.83	0.15	0.68	0.10	25.89	8.53	1.57	0.32	0.25	0.05									32	2	33	2	34	3	
								*0.27	0.22	*0.79	1.16															
BB12-DH05-RW-016	24.7	0.37	0.02	0.45	0.10	11.36	3.24	0.29	0.05	0.17	0.02									25	1	26	2	33	2	
								*0.03	0.04	*0.27	0.16															
BB12-DH05-RW-018	73.8	0.17	0.04	0.57	0.24	27.51	4.11	1.22	0.09	0.27	0.05									103	27	104	27	113	31	
Standard Philippines								2.90	0.07	0.37	0.03	0.8	0.05	0.27												

※BB12-DH05-RW-003, -015, -016 の 2 段目の値は EPMA のスポット分析値に基づく値、それ以外は LA-ICP-MS の分析値に基づく値

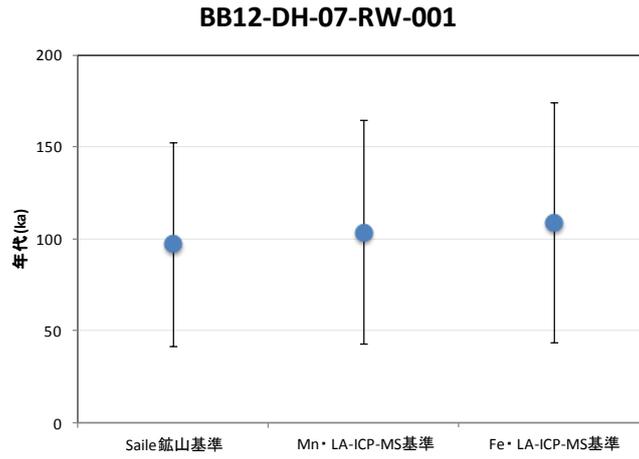


図 4.2.6-3 BB12-DH07-RW-001 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値

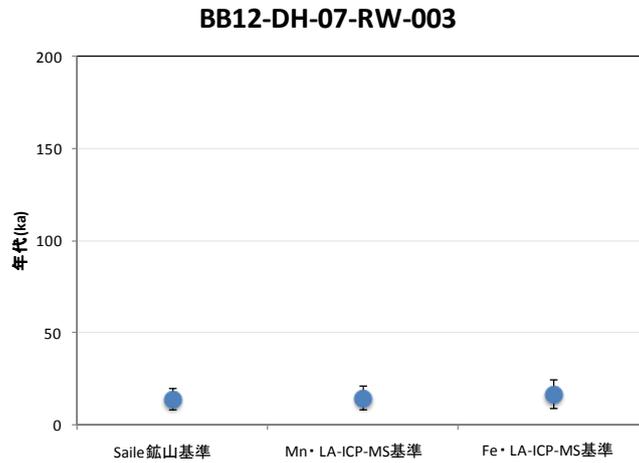


図 4.2.6-4 BB12-DH07-RW-003 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値

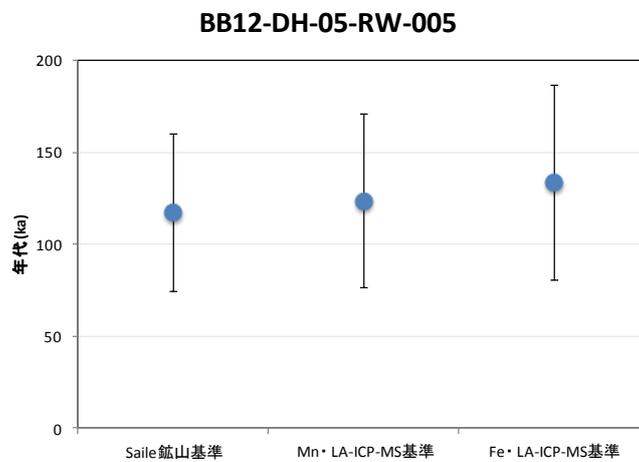


図 4.2.6-5 BB12-DH05-RW-001 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値

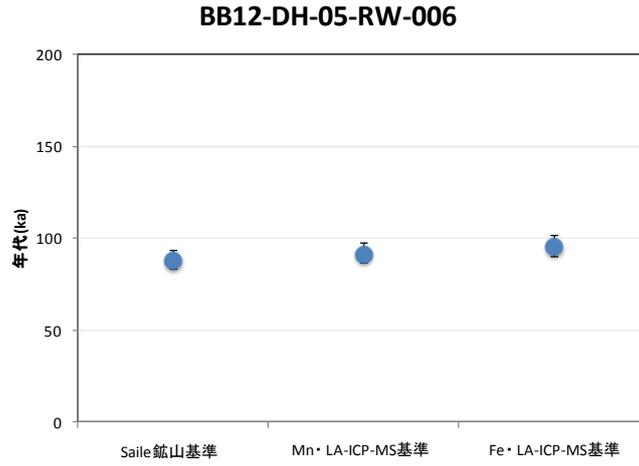


図 4.2.6-6 BB12-DH05-RW-006 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値

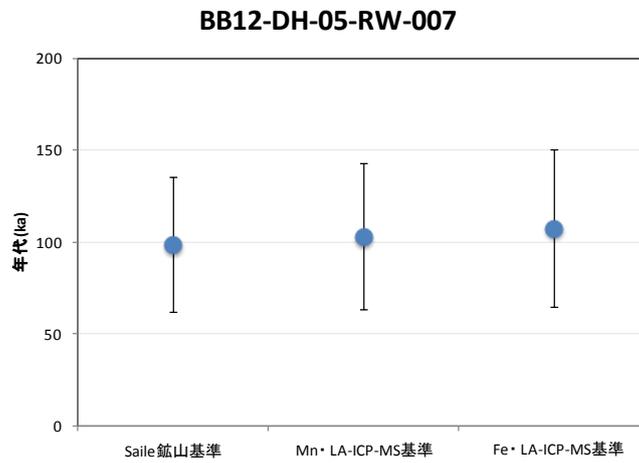


図 4.2.6-7 BB12-DH05-RW-007 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値

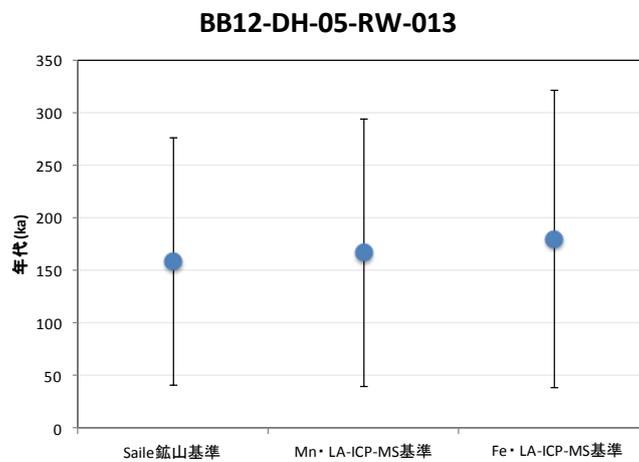


図 4.2.6-8 BB12-DH05-RW-013 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値

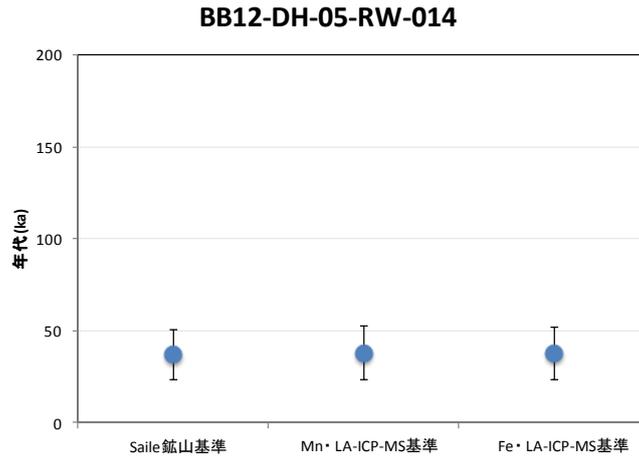


図 4.2.6-9 BB12-DH05-RW-014 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値

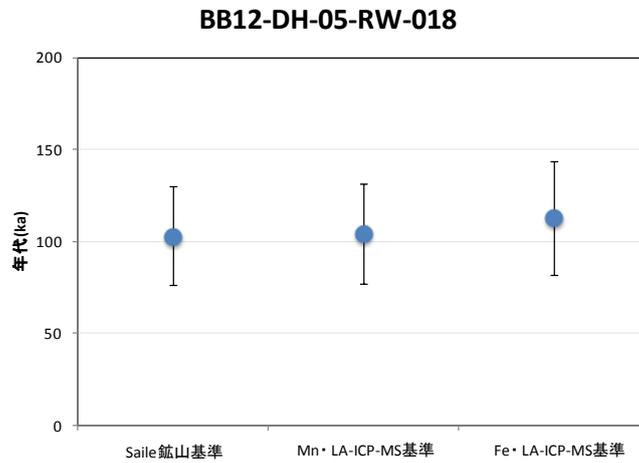


図 4.2.6-10 BB12-DH05-RW-018 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値

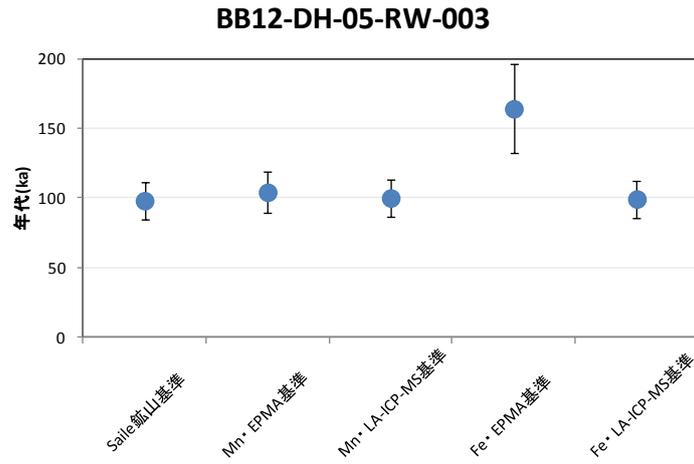


図 4.2.6-11 BB12-DH05-RW-003 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値

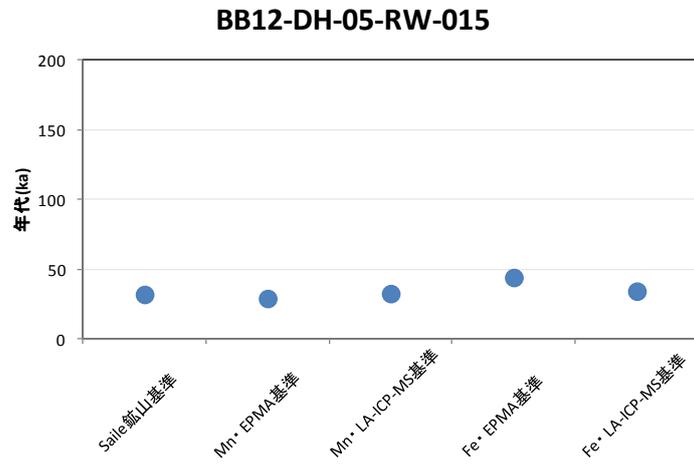


図 4.2.6-12 BB12-DH05-RW-015 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値

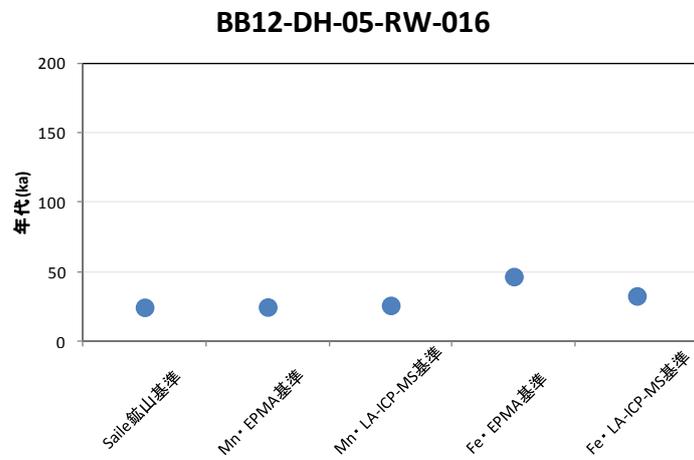


図 4.2.6-13 BB12-DH05-RW-016 のルミネッセンス効率の基準と TL 年代値

4.2.7 Bigbiga の方解石の産状と TL 年代に関する考察

今回詳細な分析を実施した TL 年代の異なる 3 つのコア試料 (BB12-DH05-RW-003, BB12-DH05-RW-015, BB12-DH05-RW-016) について、化学組成を考慮した TL 年代は (Fe 濃度・LA-ICP-MS 基準は除くと)、RW-003(98~104ka) > RW-015(29~34ka) \geq RW-016(25~33ka)、であった。

一方、4.2.5 で示した EPMA 等による詳細観察結果から、各コア試料の方解石の産状は以下のようにまとめられる。

(BB12-DH05-RW-003)

初生的な特徴のマトリクス中の微細な方解石と、二次的に形成した特徴の脈に成長する結晶質な方解石火山性砕屑物に乏しく、化石由来の物質に富むこの石灰岩は続成過程で CaCO_3 にバッファーされたややアルカリ条件の間隙水との反応があったと考えられる。

(BB12-DH05-RW-015)

化石由来の方解石は多いが、主要な構成鉱物はデイサイトを起源とする火山性砕屑物由来で変質が進んだ沸石。微化石由来の方解石が周囲を沸石に縁取りされた形で点在しており、方解石は沸石よりも先に晶出していたと考えられる。

(BB12-DH05-RW-016)

化石由来の方解石は多いが、斜プチロル沸石よりも圧倒的に方解石が多く、火山性砕屑物がほとんど認められない。マトリクス中の結晶質方解石には斜プチロル沸石結晶を包有するものが多く、方解石は沸石よりは後に晶出していたと考えられる。

これらの産状観察から、初生的な特徴を持つ方解石が多い BB12-DH05-RW-003 が最も古く、BB12-DH05-RW-015 と BB12-DH05-RW-016 の比較では、沸石と方解石の産状から BB12-DH05-RW-015 の方解石が沸石よりも先に晶出した産状を示すのに対し、BB12-DH05-RW-016 の方解石は後に晶出した産状を示すことから、BB12-DH05-RW-015 のほうがより古いと考えられる。したがって、これらの鉱物学的な産状は定性的には TL 年代と一致するといえる。

この Bigbiga 地区の炭酸塩の TL 年代とアルカリ地下水がベントナイト質の Aksitero 層群に作用した時間との関係について考察する。Aksitero 累層の堆積年代は 23~29Ma なのに対し、その炭酸塩の TL 年代は 14~181ka である。この年代のギャップについては、方解石の産状観察から脈状の方解石や溶解・再結晶した痕跡が多くみられることから、二次的に溶解・再結晶した方解石の年代を示していると思われる。少なくとも Ma オーダーの方解石なら TL は検出されないの、堆積後初期に形成したと考えられる炭酸塩の生成年代ではないことは確かである。

TL で見積もられた方解石の形成年代については、これがアルカリ地下水との変質反応によって形成された証拠がないため、アルカリ地下水によるスメクタイト変質の時間スケールと直接関連付けることは難しい。

4.2.8 まとめと今後の課題

今年度の検討により、Bigbiga のコア試料の方解石の産状観察と TL 年代の定性的な傾向が一致することが確認できた。炭酸塩の TL 年代が鉱物産状から説明可能であることは、これまで実施例が決して多くない炭酸塩の TL 年代の信頼性向上が一步進んだものといえる。したがって、数 ka の誤差を含む方解石の TL 年代と相対的な年代差については現状の手法でもナチュラルアナログの時間スケールの推定に適用可能である。

ただし、TL 年代値については試料の化学組成に基づくルミネッセンス効率を適用した評価の方が真値に近いと考えられるが、化学組成と TL 特性との関係は引き続き検討すべき課題であり、これによって年代誤差の範囲も縮小可能である。今後は、a-value、b-value、c-value の推定方法の確立を行うとともに、炭酸塩の年間線量には含まれる U, Th からの α 線の寄与が大きいいため、試料毎に U, Th 濃度を測定し、年代値の計算に反映させる必要がある。

Bigbiga 地区については、アルカリ変質に関わる現象と炭酸塩の生成との関係が不明確なため、アルカリ変質に関わる時間スケールと炭酸塩の TL 年代を直接関連付けることができなかったが、Palawan の Narra 地区において、流出したアルカリ地下水から形成された石灰華(トラバーチン)の TL 年代については、アルカリ変質と直接関連付けられる可能性が高い。

このような石灰華が厚く堆積する Narra 地区では、図 4.2.8-1 のようなトレンチ調査がナチュラルアナログ調査において効果的・効率的であると考えている。もし、スメクタイトを含む堆積層直上の石灰華の TL 年代が評価できれば、少なくともそれ以降はアルカリースメクタイトの相互作用が現在まで続いていると考えられる。Bigbiga と異なり Narra 地区では、炭酸塩の形成年代とナチュラルアナログの時間スケールが単純に関連付けられる可能性が高い。また、石灰華は Narra 地区のアルカリ河川の直下に広く堆積しており、トレンチでの特定が難しい断裂系の方解石より圧倒的にサンプリングが容易であることも利点である。

図 4.2.8-1 に示す石灰華(炭酸塩)が厚く堆積している箇所でトレンチ調査を実施し、炭酸塩の成長線(層)が観察できるようところで、その鉛直方向にコアリングして数 cm おきにサンプリング、TL 測定ができれば極めて有益なデータが取得できる。この TL データと対で FE-SEM 等での鉱物の産状(結晶形態)を観察し、それと生成年代と TL の関係が明らかにすることが次の課題である。

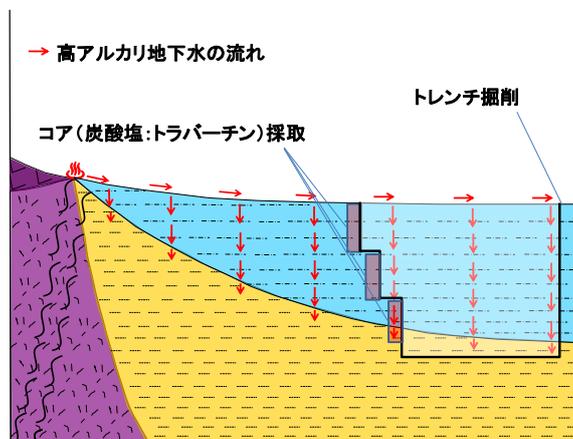


図 4.2.8-1 Palawan 島 Narra 地区のトレンチ調査

参考文献

-
- [1] 兼岡一郎: 年代測定概論. 東京大学出版会 (1998).
- [2] 橋本哲夫: ルミネッセンス (発光) で探る古代情報. 新潟日報事業社 (2005).
- [3] Duller, G.A.T., Penkman, K.E.H. and Wintle, A.G.: Assessing the potential for using biogenic calcites as dosimeters for luminescence dating. *Radiation Measurements* 44, 429-433 (2009).
- [4] Ito, K., Hasebe, N., Sumita, R., Arai, S., Yamamoto, M., Kashiwaya, K., and Ganzawa, Y.: LA-ICP-MS analysis of pressed powder pellets to luminescence geochronology. *Chem. Geol.* 262, 131-137 (2009).
- [5] Prescott, J.R. and Hutton, J.T.: Cosmic ray contributions to dose rates for luminescence and ESR dating: Large depths and long-term variations. *Radiation Measurements* 23(2/3), 497-500 (1994).
- [6] Roque, C., Guibert, P., Vartanian, E., Bechtel, F., Schvoerer, M.: Thermoluminescence dating of calcite: study of heated limestone fragments from Upper Paleolithic layers at Combe Sauniere. Dordogne, France. *Quaternary Science Reviews* 20, 935-938 (2001).
- [7] Buylaert, J.P., Murray, A.S., Huot, S., Vriend, M.G.A., Vandenberghe, D., De Corte, F., Van Den Haute, P.: A comparison of quartz OSL and isothermal TL measurements on chinese loess. *Radiation Protection Dosimetry* 119(1-4), 474-478 (2006).
- [8] Medlin, W.L.: The nature of traps and emission centers in thermoluminescent rock materials. In *Thermoluminescence of Geological Materials* (Edited by D.J. McDougall), Ch.4. Academic Press, New York (1968).
- [9] Townsend, P.D., Luff, B.J. and Wood, R.A.: Mn²⁺ Transitions in the TL emission spectra of calcite. *Radiation Measurement* 23(2/3), 433-440 (1994).
- [10] Valle-Fuentes, F.J., Garcia-Guinea, J., Cremades, A., Correcher, V., Sanchez-Moral, S., Gonzalez-Martin, R., Sanchez-Munoz, L. and Lopez-Arce, P.: Low-magnesium uranium-calcite with high degree of crystallinity and gigantic luminescence emission. *Applied Radiation and Isotopes* 65, 147-154 (2007).
- [11] 塚本斉: ルミネッセンス顕微鏡・分光分析を利用した岩石・鉱物の研究. *地質ニュース* 474, 46-56 (1994).
- [12] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 24 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査 報告書 (第 3 分冊) -多重バリアの長期安定性に関する基礎情報の収集及び整備- (2013).
- [13] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 25 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 報告書 (第 3 分冊) -ナチュラルアナログ調査- (2014).

第5章 地球化学シミュレーションモデルによる変質解析

5.1 目的

5.1.1 これまでの背景と今年度の目的

TRU 廃棄物処分場ではセメント系材料とベントナイトが接して設置される可能性が高い。そのため、実際の処分場を模擬したセメントーベントナイト接触試料に対して数多くの変質加速実験が実施されてきた。また、その実験結果を再現することを目的として次元反応輸送モデリングが行われ、モデルや熱力学データベースの検証がなされてきた。しかし、短期間の室内実験（カラム変質実験等）結果さえも十分再現できない場合も多く、現在でも課題が残されている。中林ら (2013)[1]は、カラム変質実験中のベントナイト内での変質を時空間的に高解像度でモニターする X 線 CT 法を開発し、それらの固相データや反応溶液の化学的性質の時間変化を説明するための次元反応輸送モデルを提案している。しかし、短期間の室内実験やそこで得られたデータを用いた検証だけでは、天然環境の長期間現象を予測するには不十分で、ベントナイトの長期性能評価には実際の天然環境で生じた長期間の反応（鉱物変質の変遷等）をも説明可能なモデルが必要不可欠である。

本事業において、フィリピン国ルソン島西部の Saile ベントナイト・沸石鉱山のトレンチ調査により、Fossil タイプの高アルカリ地下水ーベントナイト相互作用の痕跡が観察可能な、オフイオライト最上位の枕状溶岩とベントナイトの接触界面が見つかり、平成 24 年度までに鉱物変質の変遷の空間的な情報が得られた。残念ながら、現在までにその鉱物変質の変遷の時間的な情報は得られていないが、上述のモデル検証に値する空間的な情報は得られている。それゆえに、現在得られている反応輸送モデルや構成式、熱力学的データベースで、上述の鉱物変質の変遷の空間分布を説明可能かどうかの検証を実施してゆく作業が必要となる。

そこで平成 25 年度[2]は、フィリピン国ルソン島西部の Saile ベントナイト・沸石鉱山のトレンチ（図 5.1.1-1 を参照）調査で観察されたベントナイトの高アルカリ地下水による変質過程を地球化学計算コード PHREEQC により解析し、現在得られている反応輸送モデルや構成式、熱力学的データベースで説明可能かどうかの検証を試みた。しかし、以下のような課題が残り、次年度以降の検討課題として指摘された。

- ① 界面の変質現象の再現のためには、反応させる溶液の溶存鉄の濃度が足りていない。反応させる溶液の鉄濃度の設定は、鉄濃度の高いかんらん岩の水和溶解反応のほうが適合するかもしれない。
- ② 鉄サポナイトが生成するとそれに鉄が消費されるため、下流側での針鉄鉱(goethite)やノントロナイトは飽和にならず生成しない。鉄サポナイト生成の速度論的な扱いが必要かもしれない。
- ③ カリ長石は一旦生成しても再溶解して消失してしまう。カリ長石の溶解も速度論的な扱いが必要かもしれない。
- ④ ミキシングセル(反応容積)の体積量は平成 24 年度[3]のモデルよりは再現性が向上したが、

スメクタイト溶解への影響が大きく、さらに検討が必要。

- ⑤ 二次鉱物（特に今回設定しなかった沸石やシリカ鉱物とカリ長石や鉄鉱物）の共存状態の再現ができていない。

本年度は、ベントナイト-枕状溶岩界面の鉱物の溶解や沈殿により変化する鉱物の共存状態の進化過程を再現することを目的とし、ベントナイトに含まれる一次鉱物であるモンモリロナイトや玉髄、灰長石、方解石の溶解だけでなく、カギを握る二次鉱物のカリ長石と Fe-サポナイトの溶解・沈殿の速度論的に取り扱いについて検討し、二次鉱物の生成や分布を再現できるモデルを構築するための変質解析のケーススタディーを実施した。

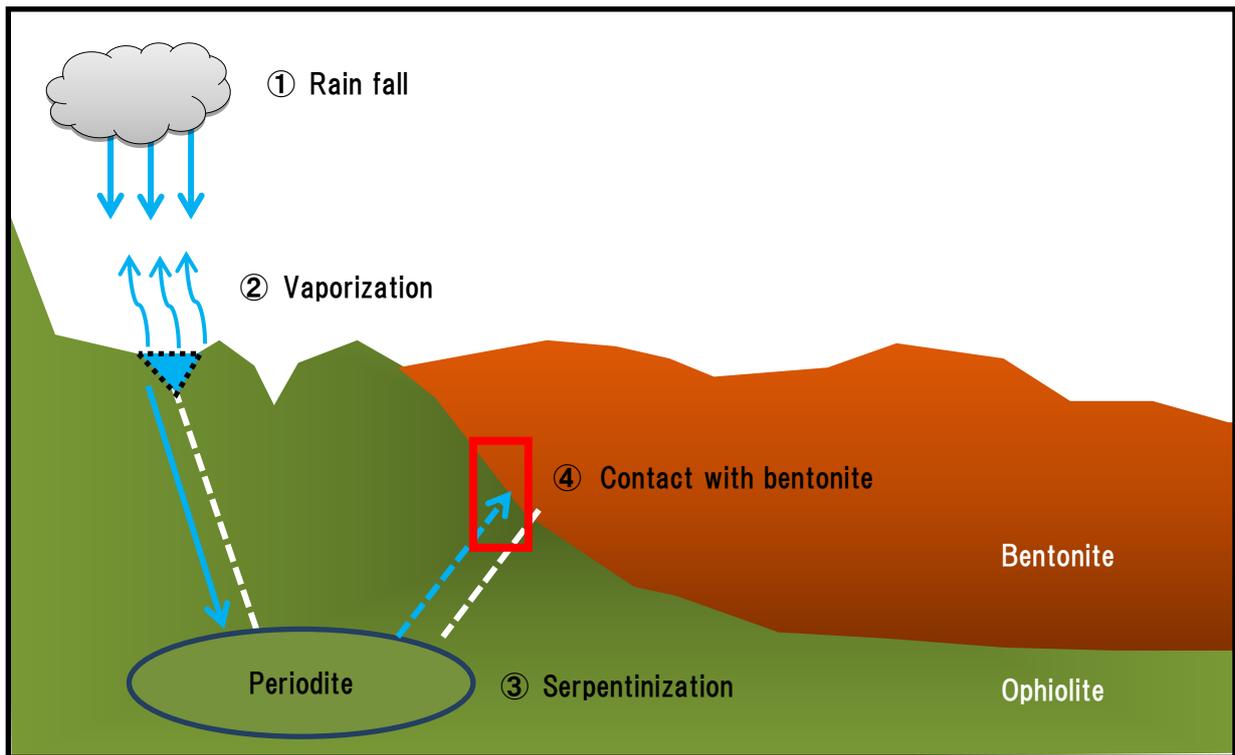


図 5.1.1-1 オフィオライトとベントナイトの層序関係

5.2 地球化学反応輸送モデル

5.2.1 地球化学反応輸送モデルで再現することを目標にした二次鉱物の空間分布

上述のように、今年度検討する地球化学モデリングでは、フィリピン国ルソン島西部の Saile ベントナイト・沸石鉱山のトレンチ調査で観察された、ベントナイトの高アルカリ地下水による変質過程を表現できるモデルの構築を目標としている。

枕状溶岩とベントナイトの接触界面では（図 1.3.4-6）、界面の枕状溶岩のガラス部分が変質していると共に、界面の接触部であるベントナイトも高アルカリ地下水と反応して溶解し低密度となるとともに、Fe-サポナイトやカリ長石の生成が認められる。このベントナイト変質部よりも1-5mm程度の下流側には、ノントロナイトと針鉄鉱で特徴付けられる鉄濃集帯が観察され、X線CT観察により鉄濃集帯部は空隙が減少して高密度になっていた。

以上から、高アルカリ地下水との反応前は図 5.2.1-1 に示すような鉱物組成であったものが、反応が終結した際は図 5.2.1-2 のような鉱物組成と空間分布になったと考えた。したがって、本検討で実施する地球化学反応輸送モデルでは図 5.2.1-2 に示す鉱物組成と空間分布を再現することを目標としている。

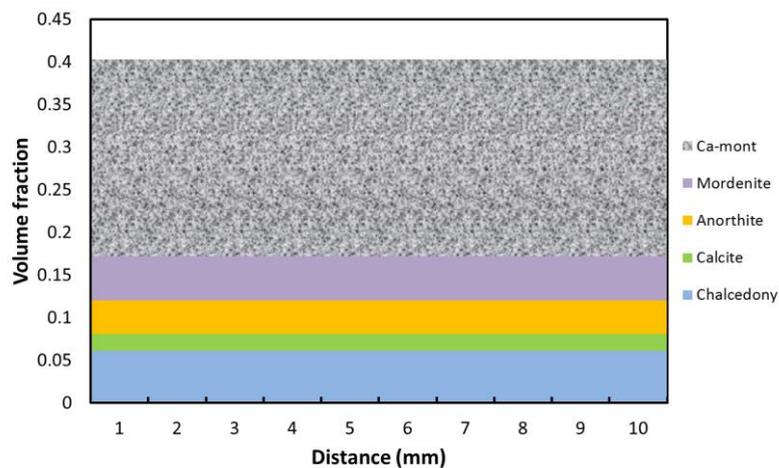


図 5.2.1-1 Saile 鉱山ベントナイトの初期状態におけるベントナイト中の鉱物空間分布

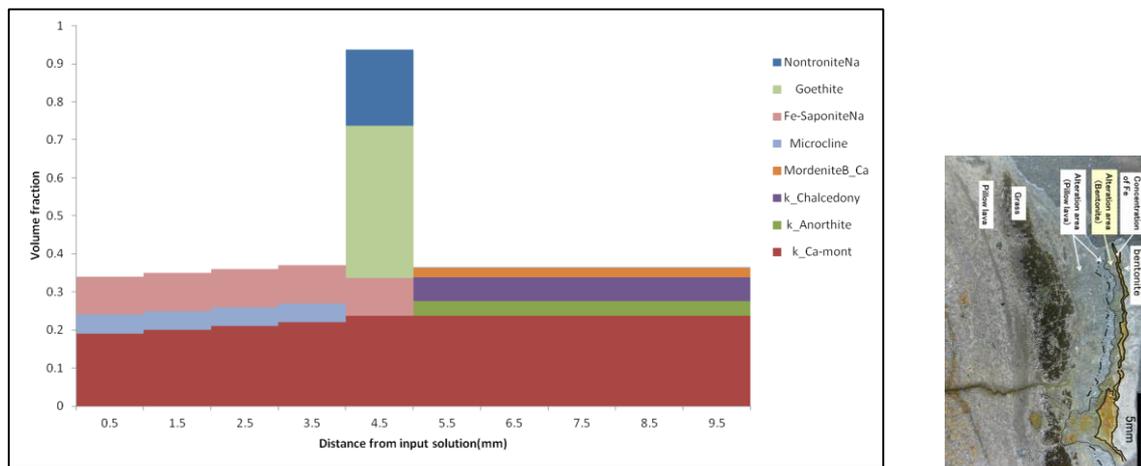


図 5.2.1-2 枕状溶岩と接するベントナイトの界面（右写真）で観察された変質後の鉱物組成

5.2.2 インプットする高アルカリ溶液の組成

今回の地球化学モデリングの概要およびセッティングは平成 24 年度[3]および平成 25 年度[2]に報告した「地球化学反応輸送モデルの概要」の内容と同様のものである。しかし、本年度は二次生成鉱物として考慮する鉱物の種類と分布を観察結果に合わせ、その生成ためにインプットする高アルカリ溶液の組成を考慮するとともに、二次鉱物の溶解・沈殿過程を平衡論的および速度論的に取り扱い比較することとした。

平成 24 年度[3]に実施した検討によって、Saile 鉱山近傍の Manleluag 温泉保養施設や Poonbato 地区における高アルカリ泉の実測データを使用しても、測定地点の化学組成の違いが解析結果に与える影響は小さかった。そこで平成 25 年度[2]は、はじめに実測データとして Manleluag の高アルカリ泉の溶液データ (Manleluag 温泉の中で最も pH が高かったもの) を用いた。

しかし、実際の地表で採水する高アルカリ水は、カンラン石の低温蛇紋岩作用により発生したものが断裂系に沿って亀裂を通過した後のものであり、その蛇紋岩化に際して Mg や Fe とシリカが消費されるため、かんらん岩の水和反応で生成する溶液に比べて溶存 Mg や Fe が少ない。上述のように、界面での反応では鉄を主成分とするスメクタイトである Fe-サポナイトやノントロナイト、鉄水酸化鉱物の針鉄鉱の生成が認められているので、亀裂を上昇し枕状溶岩中のガラスの Fe を溶脱させた溶液より溶存 Fe 濃度が低い可能性が高い。

そこで、本年度は平成 25 年度[2]と同じく、地表に湧出する前の高アルカリ地下水として、岩石学的研究に関する報告の多いオマーンのかんらん岩の鉱物組成と典型的な雨水を反応させ、Fe 鉱物の沈殿を suppress して計算した地下水組成を反応高アルカリ地下水とした。

具体的な方法は、オマーンの低温蛇紋岩化作用と高アルカリ地下水の生成に関する先行研究である秋田 (2002)[4]を参考にした。まず、典型的な雨水 1kg の反応溶液として用意し、その 900g が蒸発した 25°C の溶液がかんらん岩と反応する地下水と設定した (表 5.2.2-1 を参照)。この蒸発の過程で生成した沈殿物は、セピオライト (Sepiolite) ・水苦土石 (Hydromagnesite) ・方解石等であり、オマーンオフィオライトの亀裂に生成している二次鉱物と一致している。ちなみに、蒸発後の Na ・ Cl 濃度は 10 倍となっている。

次に、上で求めた反応溶液にかんらん岩の構成鉱物を添加する計算を行った。このシミュレーションでは、かんらん岩の構成鉱物は少しずつ添加され、添加された鉱物はその都度溶解度に従って瞬時に溶解すると共に、過飽和になった鉱物は瞬時に沈殿する設定となっている。ここでの構成鉱物の添加量は、地下にしみこんだ地表水が徐々に水みちのかんらん岩と反応することを模擬している。このとき添加されるかんらん岩の構成鉱物は松影 (1999)[5]によって報告された鉱物の EPMA 定量分析とモード組成測定を参考に設定した。GWB の熱力学データセットには、かんらん岩の構成鉱物の端成分鉱物しか含まれていないため、固溶体は端成分鉱物の混在物として表現した。苦土かんらん石 (Forsterite)、鉄かんらん石 (Fayalite)、頑火輝石 (Enstatite)、鉄紫蘇輝石 (Ferrosilite)、透輝石 (Diopside) を組み合わせて、松影(1999)[5]の分析値をできるだけ忠実に再現した鉱物組み合わせのモデリングをかんらん岩の組成とした (表 5.2.2-2)。かんらん岩として添加される鉱物比は Forsterite : Fayalite : Enstatite : Ferrosilite : Diopside = 0.79 : 0.08 : 0.11 : 0.01 : 0.01 である。

今回行ったモデリングでは、最終的にかんらん岩の構成鉱物を 2mol 反応させている。なお、高アルカリ泉は大気に対して閉鎖的な環境に置かれていたと考えられるので、それを模擬するためにかんらん岩と反応溶液の反応過程において二酸化炭素の供給がないように設定した。すなわち、系に存在する二酸化炭素やメタン等の炭素種はスタートの反応溶液に含まれていたもののみとなる。

表 5.2.2-1 解析に用いた溶液データ

		溶液 1	溶液 2
pH		11.08	12.1
Temp.(°C)		34.0	25.0
pe		-12.1	-13.2
溶液濃度 (ppm)	Na ⁺	1.58	126
	K ⁺	0.280	13
	Ca ²⁺	23.6	379
	Si ⁴⁺	11.5	0.0179
	Al ³⁺	20.3	1.52x10 ⁻³
	Mg ²⁺	0.17	7.04x10 ⁻⁴
	Fe ⁺ (2+, 3+)	0.001	0.0475
	HCO ₃ ⁻	73.5	0.001
Cl ⁻	charge balance		

表 5.2.2-2 高アルカリ地下水生成のモデルに用いたかんらん岩の鉱物組成データ

Minerals	Chemical formula	(wt%)
Forstelite	Mg ₂ (SiO ₄)	79
Fayalite	Fe ₂ (SiO ₄)	8.0
Enstatite	Mg ₂ Si ₂ O ₆	11
Ferrosilite	FeMgSi ₂ O ₆	1.0
Diopside	CaMg(Si ₂ O ₆)	1.0

5.2.3 解析モデル及び解析条件

地球化学計算コードPHREEQC[6]を用いた一次元反応輸送モデルにより、ベントナイトのアルカリ変質反応による鉱物組成の経時変化データの取得を試みた。

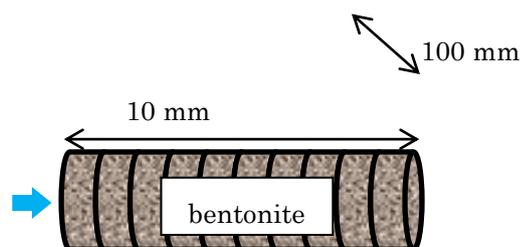
物質移行は拡散支配とし、分散長は考慮しないこととした。ベントナイトの実効拡散係数はMihara and Sasaki (2005)[7]より4.71E-10 m²/sとし、モンモリロナイトの陽イオン交換反応は考慮しなかった。

解析は長さ10 mm、直径100 mmのセルを10分割した一次元体系で行った(図 5.2.3-1)。反応溶液は40Lとし、上流側は濃度固定境界、下流側は濃度勾配ゼロ境界とした。

平成23年度の検討[8]において、解析モデルに関する情報収集及び変質解析において不可欠であるベントナイト基本物性のベントナイトの間隙率、乾燥密度、スメクタイト含有率を取得しており、本解析ではそれらの値を採用している。

今回の解析では、上流側での鉱物の組み合わせの再現を主な目的としているため、下流側での鉄鉱物の沈殿によるクロッキングは解析の対象としない。

また、今回の解析では、二次鉱物で変質現象の鍵を握る相であるカリ長石とFe-サポナイトの生成・溶解を平衡論的に扱ったものと速度論的に扱ったものを比較することとした。



Hot spring water (Diffusion)

図 5.2.3-1 一次元反応輸送モデル解析用に設定したベントナイトの体系

5.2.4 熱力学データベース及び鉱物の溶解速度

熱力学データベースは、フランスの地質調査所(BRGM)が公表しているThermoddem[9]を用いた。

ベントナイトの鉱物含有割合としてNa型モンモリロナイトを60wt%、付随鉱物として、方解石を5wt%、モルデン沸石(Mordenite)を10wt%、斜長石として灰長石を5wt%、非晶質シリカとして玉髄を10wt%とした。乾燥密度は 1.1 Mg/m^3 であり間隙率は60%と設定した。二次鉱物として実際にトレンチ試料で観察されているノントロナイトおよび針鉄鉱、カリ長石のマイクロクリン(Microcline)、沸石類の輝沸石、斜プチロル沸石、モルデン沸石を設定した。本モデルで考慮した鉱物の熱力学データをまとめたものを表 5.2.4-1に示す。

表 5.2.4-1 鉱物の熱力学データとモル体積 (cm³/mol)[9]

鉱物	Log K	ΔH (kJ/mol)	Molar volume (cm ³ mol ⁻¹)
斜プチロル沸石	-2.11	-69.84	209.66
Fe-サポナイト Ca	26.54	-256 776	139.9614
Fe-サポナイト K	24.93	-238 293	143.50
Fe-サポナイト Mg	26.73	-260 846	140.2119
Fe-サポナイト Na	26.07	-248 471	140.8164
針鉄鉱	0.36	38.22	20.82
輝沸石	2.46	-155.10	315.65
マイクロクリン	0.04	-56.46	108.74
モルデン沸石	-2.92	-67.88	209.80
Na-モンモリロナイト	11.17	-326.67	262.48
ノントロナイト Ca	-4.72	28.77	137.79
ノントロナイト K	-6.32	47 247	141.3248
ノントロナイト Mg	-4.42	24 695	137.8962
ノントロナイト Na	-5.18	37 069	138.6415

粉末状のモンモリロナイトの溶解速度式は、温度と pH の影響を考慮した Sato 式[10]と飽和度の影響を考慮した Oda 式[11]を組み合わせた Sato-Oda 式を考慮した。Oda 式は pH12.1 (70°C) の実験で求められた溶解速度に対する飽和の影響を表現した経験式である。以下にそれぞれの式を記述する。

・ Sato 式[10]

$$f(OH^-) = \left(4.74 \cdot 10^{-6} \cdot e^{-39.6/RT} \cdot \frac{177 \cdot e^{20.4/RT} \cdot a_{OH^-}}{1 + 177 \cdot e^{20.4/RT} \cdot a_{OH^-}} + 1.70 \cdot e^{-69.7/RT} \cdot \frac{0.0297 \cdot e^{23.5/RT} \cdot a_{OH^-}}{1 + 0.0297 \cdot e^{23.5/RT} \cdot a_{OH^-}} \right)$$

・ Oda 式[11]

$$f(\Delta G_r) = 1 - \exp\left(-2.56 \cdot 10^{-5} \cdot \left(\frac{\Delta G_r}{2RT}\right)^3\right)$$

ここで、R は気体定数(J/K/mol)、T は絶対温度(K)、 a_{OH^-} は水酸化物イオンの活量、 $f(\Delta G_r)$ は反応のギブスの自由エネルギー変化の関数である。

モンモリロナイトの溶解速度は以下のように表すことができる。

$$\text{モンモリロナイトの溶解速度} = f(OH^-) \cdot A_{min} \cdot f(\Delta G_r)$$

ここで、 A_{min} は鉱物の反応表面積(m²/dm³)である。本報ではモンモリロナイトの比表面積として Yokoyama et al. (2005)[12]にて算出された 7(m²/g)を使用した。

今年度の解析の特徴は、初期鉱物や二次鉱物の溶解や沈殿を速度論的に取り扱うことである。それらの速度論的な扱いに関しては様々な報告があるが、本年度は、本検討と同様にセメントとベントナイト界面の現象を取り扱っている Marty et al., (2014)[13]と同様の速度論的な取り扱い

をした。鉱物の速度一般式には様々なものがあるが、広い pH 領域によって異なる溶解様式をとる鉱物の場合には、以下の式で溶解速度を表現することが多い (Lasaga et al. (1994)[14]と Palandri and Kharaka (2004)[15])。

$$Rate = \left(k_{25}^{nu} \cdot \exp \left[\frac{-E_a^{nu}}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{298.15} \right) \right] + k_{25}^H \cdot \exp \left[\frac{-E_a^H}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{298.15} \right) \right] \cdot a_H^{nH} + k_{25}^{OH} \cdot \exp \left[\frac{-E_a^{OH}}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{298.15} \right) \right] \cdot a_H^{nOH} \right) \cdot A_{min} \cdot |1 - \Omega^\theta|^\eta$$

ここで k は速度定数 (mol/m²/s)、上付き文字の nu と H 、 OH はそれぞれ中性と酸性、アルカリ性の領域における反応を表している。 a_H は H^+ の活動度であり、 n は指数である。 E_a は反応の活動エネルギー (J/mol)。 A_{min} は鉱物の反応表面積を表している (m²/dm³)。 θ と η は定数を表している。灰長石と玉髓、カリ長石と鉄サポナイトの速度パラメータを表 5.2.4-2 に示す。ただし、Marty et al., (2014)[13] では、沈殿については速度論的に扱っていないので、本研究では、Marty et al., (2014)[13] で使用された鉱物の溶解速度定数の符号を反対にして沈殿を速度論的に取り扱うこととした。

表 5.2.4-2 25°Cにおける速度論パラメータ

	灰長石 ^{*1}	玉髓 ^{*2}	カリ長石 ^{*3}	鉄サポナイト ^{*4}
A_{min} (m ² g ⁻¹)	0.24	0.03	0.1	8.5
Log k_{25}^{nu} (mol m ⁻² sec ⁻¹)	-12.1	-	-14	-13
E_a^{nu} (kJ mol ⁻¹)	61.1	-	-	-
Log k_{25}^H (mol m ⁻² sec ⁻¹)	-9.47	-	-	-
E_a^H (kJ mol ⁻¹)	64.3	-	-	-
nH	0.335	-	-	-
Log k_{25}^{OH} (mol m ⁻² sec ⁻¹)	-9.38	-12.5	-	-
E_a^{OH} (kJ mol ⁻¹)	60.6	-	-	-
nOH	-	-0.6	-	-
θ	1	1	1	1
η	1	1	1	1

The kinetic constants are determined with data from:

*¹ Chou and Wollast (1984)[16]; Chou and Wollast (1985)[17]; Burch et al. (1993)[18]; Hellmann (1994)[19]; Knauss and Copenhaver, (1995)[20]; Alekseyev et al. (1997)[21]; Hellmann and Tisserand (2006)[22]

*² Savage et al. (2002)[23]

*³ Inskeep and Bloom (1985)[24]; Lioliou et al. (2007)[25]

*⁴ Marty et al. (2014)[13]

5.2.5 解析ケース

表 5.2.5-1に解析ケースの一覧を示す。表 5.2.5-1ではManleluag 温泉地における湧水の溶液データ（溶液1）に加え、オマーンオフィオライトのかんらん岩と地表水の相互作用から計算で求められた高アルカリ地下水の溶液データ（溶液2）を使用した（表 5.2.2-1）。

今回の計算ではモンモリロナイトの溶解はもとより、溶解の速度論的データが充実している灰長石、玉髄、方解石の溶解生成を速度論的に（表 5.2.4-2）、その他の鉱物の溶解生成反応は平衡論的に（表 5.2.4-1）取り扱い、カリ長石および鉄サポナイトについて溶解や沈殿を平衡論的および速度論的に取り扱い、それらの結果を比較した。

Case1-4 は溶液 1 を使用した解析系、Case5-8 は溶液 2 をインプット溶液として使用した解析系で、インプット溶液の違いによるモンモリロナイトの溶解量、二次鉱物の生成量や鉱物組み合わせの違いを比較することとした。

Case1、5 では、一次鉱物の玉髄の溶解、二次鉱物であるカリ長石、鉄サポナイトの生成を平衡論的に取り扱った。Case2、6 では、玉髄の溶解は平衡論的に取り扱い、カリ長石、鉄サポナイトの生成は平衡論的、生成したカリ長石、鉄サポナイトの溶解は速度論的に取り扱った。Case1 と 2、Case5 と 6 を比較することで、上述した本年度の課題③「カリ長石は一旦生成しても再溶解して消失してしまう。カリ長石の溶解も速度論的な扱いが必要かもしれない」の仮説について考察する。

Case3 と 7 では、玉髄、カリ長石、鉄サポナイトの溶解は平衡論的に取り扱い、カリ長石、鉄サポナイトの生成は速度論的に取り扱った。これにより、本年度の課題②「鉄サポナイトが生成するとそれに鉄が消費されるため、下流側での針鉄鉱やノントロナイトは飽和にならず生成しない。鉄サポナイト生成の速度論的な扱いが必要かもしれない」の仮説について考察する。Case4 と 8 では、一次鉱物の玉髄の溶解および二次鉱物であるカリ長石、鉄サポナイトの生成・溶解を速度論的に取り扱っている。Case4 と 8 の結果とその他の Case の結果を比較することで、二次鉱物の速度論的取り扱いの必要性について議論する。

表 5.2.5-1 解析ケース

No.	溶液組成	一次鉱物		二次鉱物	
		玉髄	スメクタイト	カリ長石	鉄サポナイト
1	溶液 1	平衡論	速度論(溶解)	平衡論	平衡論
2		平衡論	速度論(溶解)	速度論(溶解)	速度論(溶解)
3		平衡論	速度論(溶解)	速度論(沈殿)	速度論(沈殿)
4		速度論(溶解)	速度論(溶解)	速度論(溶解・沈殿)	速度論(溶解・沈殿)
5	溶液 2	平衡論	速度論(溶解)	平衡論	平衡論
6		平衡論	速度論(溶解)	速度論(溶解)	速度論(溶解)
7		平衡論	速度論(溶解)	速度論(沈殿)	速度論(沈殿)
8		速度論(溶解)	速度論(溶解)	速度論(溶解・沈殿)	速度論(溶解・沈殿)

なお、本解析では物質移行として拡散のみを考慮しているため、本年度の課題④のようにミキシングセルの体積量が解析結果に大きな影響を与える[26]。しかし、昨年度までの検討から、本年度もすべてのケースでキシングセル（モデル上の反応溶液）の体積をベントナイトの空隙容量と等しい0.0464Lとして計算した。

5.2.6 解析結果と考察

(1) Case1- Case4 の解析

図 5.2.6-1 に Case1- Case4 の系で 60 年後におけるベントナイト中の鉱物空間分布の解析結果を示す。Case1- Case4 の系のどの系においても、一次鉱物のモルデン沸石のアルカリによる溶解に加え二次鉱物としてモルデン沸石の生成が認められ、その結果 60 年後においても下流側にモルデン沸石が残存している。実際の界面の観察では沸石種の同定までできていないが、沸石の存在は確認されているので、その点からすると、沸石についてはどのケースでも観察結果と合致する結果が得られているといえる。

カリ長石については、Case1、Case2 ではよりアルカリ変質反応が進んだ界面付近にカリ長石の生成が認められるのに対して、Case3、Case4 ではカリ長石の生成は認められない。これは、カリ長石の沈殿を速度論的に扱うと、使用した速度論的パラメータでは、その生成速度が遅すぎて解析期間（図 5.2.6-1 の場合では 60 年間）ではカリ長石が生成しえなかった為と考えられる。カリ長石の生成位置はともかく、高アルカリ地下水とベントナイトの反応により、低温での高アルカリ溶液の代表的な二次生成物であるカリ長石の生成は平衡論的取り扱いをした時に表現可能であった。また、Case1 のようにカリ長石の生成と溶解を平衡論で取り扱った系で解析した鉱物組み合わせの経時変化を求めてみても（図 5.2.6-2）、カリ長石の分布位置が時間の経過とともに下流側に移動はするものの、少なくとも 550 年後もカリ長石の存在は確認できている。

一方、鉄サポナイトの生成については、その生成を平衡論的に取り扱った Case1、2 で、界面付近にごく微量の生成が認められたが、Case3、4 では認められなかった。反応後の溶存鉄濃度については後述するが、溶液 1 の鉄濃度は鉄サポナイトの生成だけを考えた場合は、十分な量の溶存鉄濃度かもしれない。しかし、これらベントナイト中での一連の反応後にノントロナイトや針鉄鉱の生成を下流側で再現するのは大変難しい。

モンモリロナイトの溶解は、反応溶液の pH が比較的良かったため、60 年間では顕著な体積減少は認められなかった。一方、玉髄や方解石は反応開始の初期から溶解し、60 年後には両方とも消滅している。実際の観察では、初期玉髄の存在の有無を議論するのは難しいが、少なくとも界面付近では方解石の存在が認められなかった事実とは合致する。

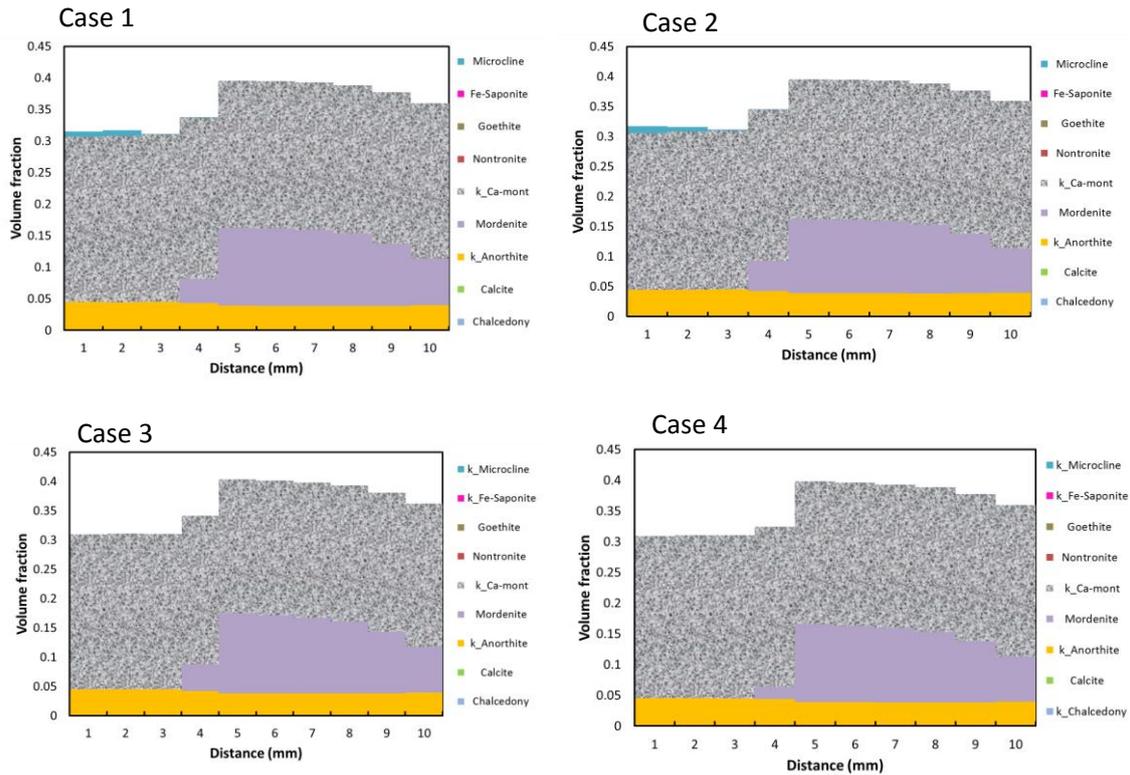


図 5.2.6-1 60 年後におけるベントナイト中の鉱物空間分布の比較 (Case1-4)

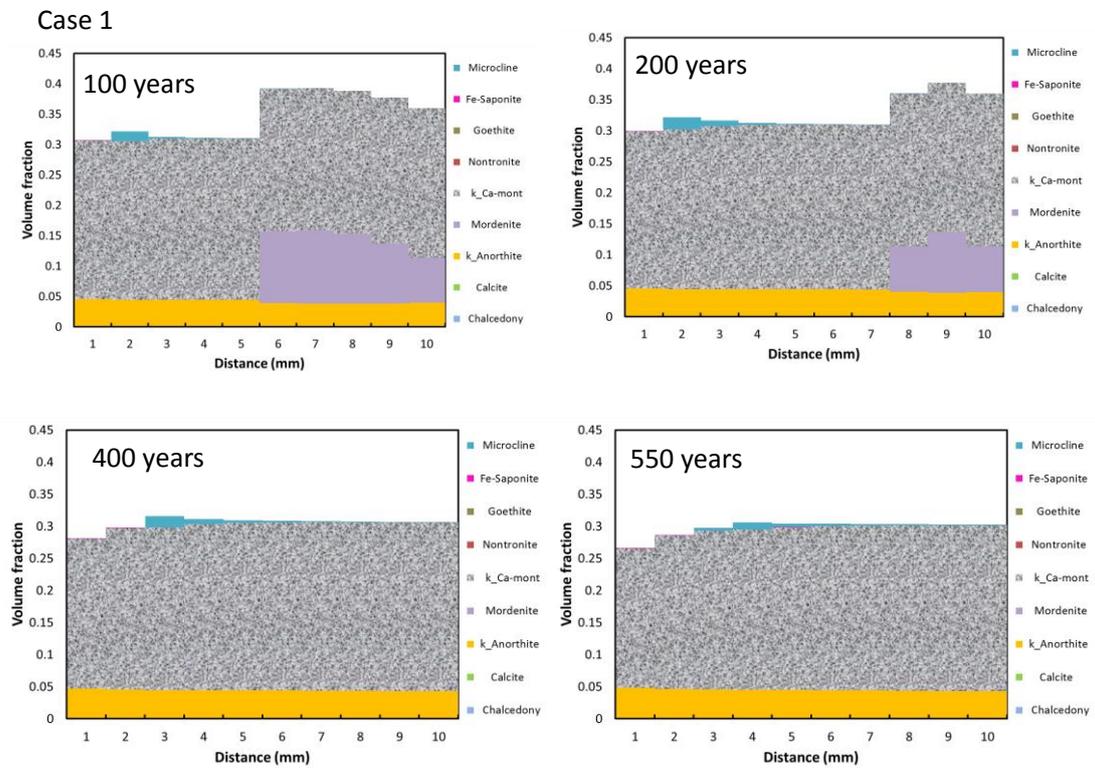


図 5.2.6-2 カリ長石の生成と溶解を平衡論で取り扱った Case1 での鉱物組み合わせの経時変化

(2) Case 5- Case 8 の解析

図 5.2.6-3 に Case5- Case8 の系で 60 年後におけるベントナイト中の鉱物の空間分布に関する解析結果を示す。Case 5- Case 8 の系のどの系においても、60 年後にはモルデン沸石含めた沸石の生成は認められなかった。これは、沸石の生成も溶解も平衡論で解いているため、溶液 2 で不飽和な沸石種は直ちに溶解したものと考えられる。例えば、Case6 でモルデン沸石の消滅までの時間変化を追ってみると、おおよそ 22 年後には初期に含有していたモルデン沸石が消滅していることが分かる (図 5.2.6-4)。したがって、溶液 2 を使用した場合は、沸石種に対しては不飽和なので、沸石の溶解は速度論的取り扱いが必要なかもしれない。

また、Case5、Case6 ではカリ長石の生成が認められるのに対して、Case7、Case8 ではカリ長石の生成は認められない。これは、上述の Case1-4 同様、カリ長石の沈殿を速度論的に扱うと、その生成速度が遅すぎて解析期間 (図 5.2.6-3 の場合では 60 年間) ではカリ長石が生成しえなかったためと考えられ、低温での高アルカリ溶液の代表的な二次生成物であるカリ長石の生成は平衡論的取り扱いをした時に表現可能であった。Case5、6 で、カリ長石の溶解を平衡論と速度論で取り扱った系を比較すると、その分布の広がりには違いが認められた。

一方、Case5、Case 6 の系で鉄サポナイトの生成は認められ、Case7、Case8 の系では認められなかった。これは、カリ長石同様、鉄サポナイトの沈殿を速度論的に扱うと、その生成速度が遅すぎて解析期間 (図 5.2.6-3 の場合では 60 年間) では鉄サポナイトが生成しえなかったためと考えられる。鉄サポナイトの生成を平衡論的に扱った時に鉄サポナイトの生成が認められたことから、溶液 2 の組成は鉄サポナイトの生成のためには、溶存鉄濃度が十分であることがうかがえる。

モンモリロナイトの溶解は、反応溶液の pH が比較的高かったため、60 年間では入水口で顕著な体積減少は認められた。玉髄や方解石は反応開始の初期から溶解し、60 年後には両方とも消滅している。これも、少なくとも界面付近では方解石の存在が認められなかった事実とは合致する。

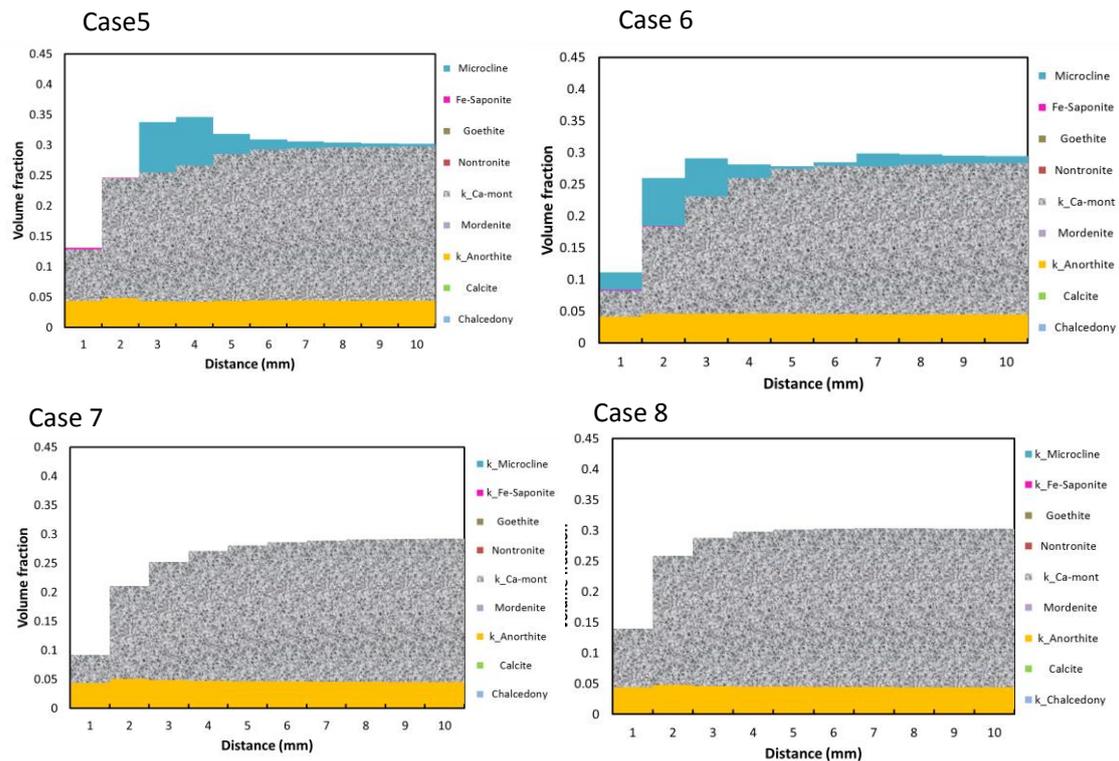


図 5.2.6-3 60 年後におけるベントナイト中の鉱物空間分布の比較 (Case5-8)

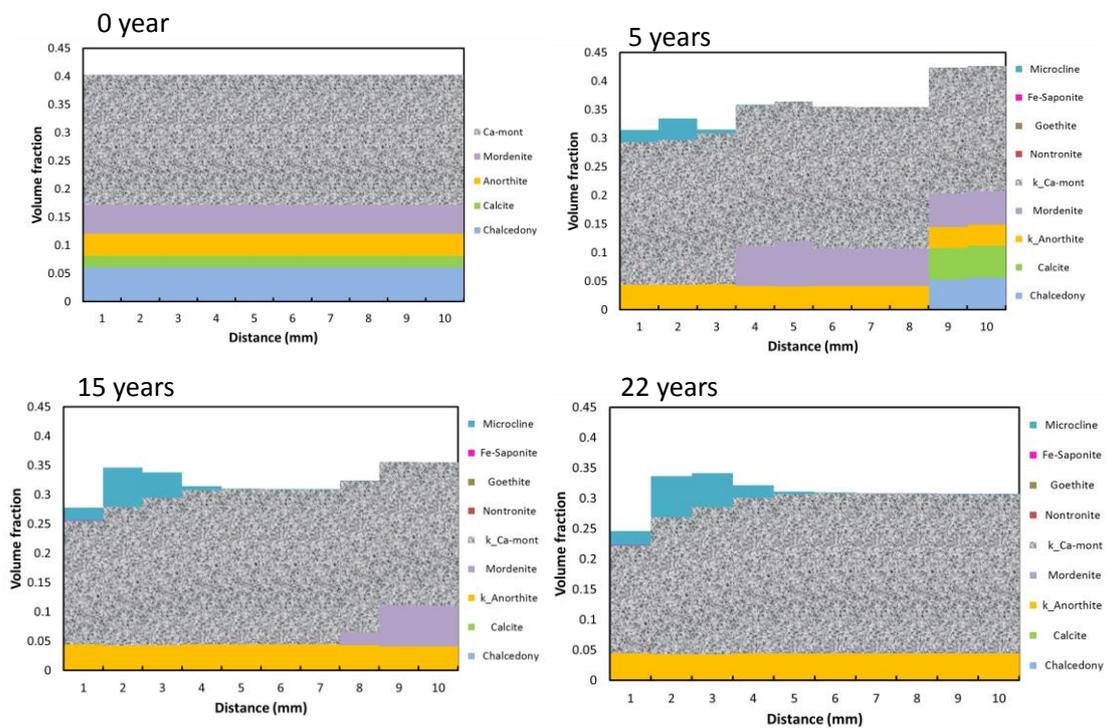


図 5.2.6-4 Case6 の条件で解析した場合の鉱物組み合わせの経時変化

(3) 反応後の溶存鉄濃度の比較

すべての解析ケースにおいて、60年までの溶存鉄濃度の経時変化を図 5.2.6-5 に示す。Case1、2では鉄サポナイトが極微量生成しているために、鉄サポナイトの生成を速度論で扱った Case3、4のケースよりも溶存鉄濃度が低くなっている。また、鉄サポナイトが生成していない Case3、4では、Case1、2よりも比較的高い鉄濃度になるが、後述する溶液 2 のケースと比較するとその溶存鉄濃度には 2 オーダーの差が認められる。

一方、溶存鉄濃度が相対的に高い溶液 2 を用いた Case5-8 の場合では、鉄サポナイトの生成を平衡論的に扱った Case5、6 で明らかな鉄サポナイトの生成が認められるが、その生成のため溶存鉄濃度はかなり低く抑えられる。それに対して、鉄サポナイトの生成を速度論的に扱った Case7、8 では溶存鉄濃度は高いが、鉄サポナイトの生成は認められない。鉄サポナイトの存在を再現し、なおかつ下流側でノントロナイトや針鉄鉱の沈殿を可能とする条件についてはさらなる検討が必要と考える。

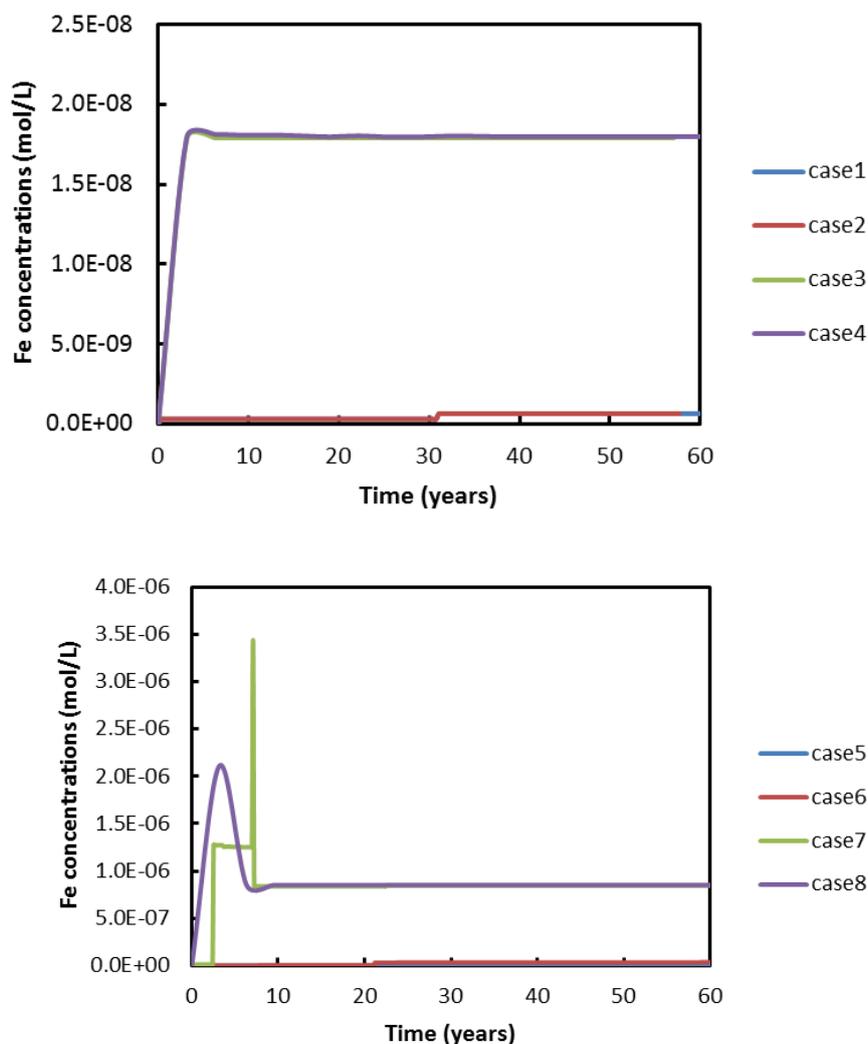


図 5.2.6-5 全ての解析ケースにおける反応後 60 年間の溶存鉄濃度の経時変化

5.3 まとめ

昨年度までの変質解析において課題として挙げられていた「変質ベントナイト層の鉱物組み合わせの再現ができていないこと」に対して、二次鉱物種の生成と溶解を平衡論的および速度論的に取り扱うことによって比較し、地球化学反応・輸送モデル上でそれらの生成と溶解を扱う場合の取り扱いについて検討した。本年度の地球化学シミュレーションモデルによる変質解析の結果、以下のことが明らかとなった。

1. カリ長石の生成について

カリ長石は、生成を平衡論で取り扱った系（Case1、2 および Case5、6）で生成が認められたが、生成を速度論で取り扱った系（Case3、4 および Case7、8）では、60年という反応期間では生成が認められなかった。数百年程度まで計算を実施したケースでもその傾向はかわらなかった。

2. カリ長石の分布

カリ長石の生成が認められた系（Case1、2 および Case5、6）で、カリ長石の溶解を平衡論と速度論で取り扱った系を比較すると、その分布の広がりには違いが認められた。平衡論で取り扱った系では、その分布が時間の経過とともに下流側に移動していた。しかし、少なくとも550年まではカリ長石が消滅することはなかった。

3. 鉄サポナイトの生成

溶存鉄濃度の高い溶液2で、生成を平衡論で取り扱った系（Case5、6）で鉄サポナイト生成が認められたが、生成を速度論で取り扱った系（Case7、8）では、60年という反応期間では生成が認められなかった。Case7、8では、鉄サポナイトが生成していないので、より下流側に溶存鉄が運搬されてクロッキングやノントロナイト生成に消費されることが予想されるが、上流側での鉄サポナイト生成の速度論に左右される。

4. 沸石（モルデン沸石）の生成と溶解

今回、沸石の生成・溶解は平衡論的に扱ったが、溶液1と2で大きな違いが認められ、例えば溶液2のCase6の場合、22年後にモルデン沸石は消滅していた。沸石に関しては、溶解の速度論を導入する必要有り。

以上のことから、本年度の検討からは、変質ベントナイト中で生成する二次鉱物（カリ長石、鉄サポナイト、沸石）の鉱物組み合わせを再現するために、それらの二次鉱物の生成は平衡論的、溶解は速度論的に取り扱う必要性が示唆された。

ただし、本質的にはベントナイトのアルカリ変質反応については、反応に寄与するアルカリ溶液の①拡散速度と②鉱物の溶解・生成（沈殿）の反応速度の大きさによって平衡論と速度論の取り扱いが決まるものとする。これらの中で最も遅い速度で反応が律速されることから、①拡散速度 \gg ②反応速度の場合は②反応速度が重要であり速度論的な取り扱いが必要なのに対して、①拡散速度 \ll ②反応速度の場合は平衡論での取り扱いで構わない。

検討している Saile 鉱山の界面のアルカリ変質については、②溶解速度が①拡散速度に比べて十分遅い場合は、今回のケーススタディーで確認したように速度論的な扱いが必要ということになる。②生成速度についても同様のことがいえるが、生成速度についてはその律速過程でもっと

重要な核形成速度の評価が難しく（溶液の主成分・微量成分組成に大きく影響される[27]）、十分信頼性のあるデータがそろっていない現状である。

従って、速度論の適用についてはこのような研究途上の難しい課題は含んでいるため、鉱物の生成を含む地球化学シミュレーションではこのような不確実性があることを踏まえて、ナチュラルアナログにおける拡散速度を評価し、これと生成する鉱物の反応速度との関係を明らかにして、変質解析への適用を検討することが、まずはこの検討での重要な課題であると考えられる。

このナチュラルアナログにおける地球化学シミュレーションの検討により、実際の TRU 処分場の評価において、変質鉱物の二次鉱物（ベントナイトの変質鉱物）の設定や溶解生成反応の扱い（速度論的データの必要性）等を地球化学モデルに反映していくことが重要な課題である。また、現状の人工バリアの検討ではまだ検討していない鉄の影響や酸化還元フロントの影響等についても、評価モデルで考慮すべき問題なのか、本ナチュラルアナログにおける地球化学シミュレーションの検討を通じて明らかにする必要がある。

[参考文献]

- [1] 中林亮, 木嶋達也, 塚田康元, 佐藤努, 大竹翼, 金子勝比古, 米田哲朗: 高アルカリ環境における圧縮ベントナイト中のシリカ鉱物の溶解 - X線 CT 観察および地球化学モデリングによる定量的評価. 粘土科学, **52**(1), 9-22 (2013).
- [2] (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 25 年度地層処分技術調査等事業 TRU 廃棄物処理・処分高度化開発報告書 (第 3 分冊) - ナチュラルアナログ調査 - (2014).
- [3] (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 24 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査報告書 (第 3 分冊) - 多重バリアの長期安定性に関する基礎情報の収集及び整備 - (2013).
- [4] 秋田奈生子: オマーンオフィオライトに湧出する高アルカリ泉と沈殿物の地球化学. 金沢大学修士論文, 110 (2002).
- [5] 松影香子・荒井章司: オマーンオフィオライトのマントル〜モホ遷移帯の火成岩岩石学. 月刊地球, **21**(6), 339-344 (1999).
- [6] Parkhurst, D.L. and Appelo, C.A.J.: User's guide to PHREEQC (version 2)-a computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations. USGS Water-resour. Inv. Rep., 99-4259 (1999).
- [7] Mihara, M. and Sasaki, R.: RAMDA; Radio-nuclides Migration Datasets (RAMDA) on cement, bentonite and rock for TRU waste repository in Japan. JNC TN8400 2005-027 (2005).
- [8] (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 23 年度放射性廃棄物共通技術調査等事業 放射性廃棄物重要基礎技術研究調査報告書 (第 3 分冊) - 多重バリアの長期安定性に関する基礎情報の収集及び整備 - (2012).
- [9] Blanc, P. and Galihnou, H.: Thermochimie: Estimation des entropies, capacités calorifiques et volumes molaires des phyllosilicates deshydrates et hydrates, Rapport final. Rapport BRGM/RP-55966-FR (2007).
- [10] Sato, T., Otani, Y., Takayama, H., Yokoyama, S., Oda, C., Honda, A., Yoneda, T.: Effect of deviation from equilibrium on dissolution rate of smectite under hyperalkaline condition. Proc. Int. Conf. Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Wasete Confinement (2007).
- [11] 小田治恵, 本田明, 高瀬博康, 小曾根健嗣, 佐々木良一, 山口耕平, 佐藤努: セメント系材料由来のアルカリ性条件における緩衝材の鉱物学的変遷シナリオに基づく化学反応・物質移動連成解析. 粘土科学, **51**(2), 34-49 (2012).
- [12] Yokoyama, S., Kuroda, M. and Sato, T.: Atomic force microscopy study of montmorillonite dissolution under highly alkaline conditions. Clays and Clay Minerals **53**(2), 147-154 (2005).
- [13] Marty, N.C.M., Munier, I., Gaucher, E.C., Tournassat, C., Gaboreau, S., Vong, C.Q., Giffaut, E., Cochevin, B. and Claret, F.: Simulation of Cement/Clay Interactions: Feedback on the Increasing Complexity of Modelling Strategies. Transport in porous media, **104**, 385-405 (2014).
- [14] Lasaga, A.C., Soler, J.M., Ganor, J., Burch, T.E. and Nagy, K.L.: Chemical-weathering rate laws and global geochemical cycles. Geochimica et Cosmochimica Acta, **58**, 2361-2386 (1994).
- [15] Palandri, J.L. and Kharaka, Y.K.: A compilation of rate parameters of water-mineral interaction kinetics for application to geochemical modeling. U.S. Geological Survey Water-Resources Investigations Report, 04-1068 (2004).
- [16] Chou, L. and Wollast, R.: Study of the weathering of albite at room-temperature and pressure with a fluidized-bed reactor. Geochimica et Cosmochimica Acta, **48**, 2205-2217 (1984).
- [17] Chou, L. and Wollast, R.: Steady-state kinetics and dissolution mechanisms of albite. American Journal of Science, **285**, 963-9938 (1985).
- [18] Burch, T.E., Nagy, K.L. and Lasaga, A.C.: Free-energy dependence of albite dissolution Kinetics at 80°C and pH 8.8. Chemical Geology, **105**, 137-162 (1993).
- [19] Hellmann, R.: The albite-water system: Part I. The kinetics of dissolution as a function of pH at 100, 200, and 300°C. Geochimica et Cosmochimica Acta, **58**, 595-611 (1994).

-
- [20] Knauss, K.G. and Copenhaver, S.A.: The effect of malonate on the dissolution kinetics of albite, quartz, and microcline as a function of pH at 70°C. *Applied Geochemistry*, **10**, 17-33 (1955).
- [21] Alekseyev, V.A., Medvedeva, L.S., Prisyagina, N.I., Meshalkin, S.S. and Balabin, A.I.: Change in the dissolution rates of alkali feldspars as a result of secondary mineral precipitation and approach to equilibrium. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **61**, 1125-1142 (1997).
- [22] Hellmann, R. and Tisserand, D.: Dissolution kinetics as a function of the Gibbs free energy of reaction: An experimental study based on albite feldspar. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **70**, 364-383 (2006).
- [23] Savage, D., Noy, D. and Mihara, M.: Modelling the interaction of bentonite with hyperalkaline fluids. *Applied Geochemistry*, **17**(3), 207-223 (2002).
- [24] Inskeep, W.P. and Bloom, P.R.: An evaluation of rate equations for calcite precipitation kinetics at pCO₂ less than 0.01 atm and pH greater than 8. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **49**, 2165-2180 (1985).
- [25] Lioliou, M.G., Paraskeva, C.A., Koutsoukos, P.G. and Payatakes, A.C.: Heterogeneous nucleation and growth of calcium carbonate on calcite and quartz. *Journal of Colloid and Interface Science*, **308**, 421 -428 (2007).
- [26] Watson, C., Hane, K., Savage, D., Benbow, S., Cuevas, J. and Fernandez, R.: Reaction and diffusion of cementitious water in bentonite: Results of 'blind' modelling. *Applied Clay Science*, **45**, 54-69 (2009).
- [27] Tsukimura, K., Suzuki, N., Suzuki, Y. and Murakami, T.: Kinetic Theory of Crystallization of Nanoparticle. *Crystal Growth & Design*, **10**(8), 3596-3607 (2010).

第6章 まとめ

6.1 今年度の調査結果のまとめ

本事業で実施したフィリピンにおけるナチュラルアナログは、今後実際に処分事業を進めて行くに当たり、基礎的かつ学際的な知見として処分事業の進捗に貢献し得る諸分野の広範な研究テーマの内、重要な基礎テーマを対象に、大学等の基礎的研究機関等と連携して取り組んでいくことにより、所要の基盤技術を確立することとあわせ、研究成果や収集した情報について広く提供を行い、情報の共有化、知識の普及を図るために、平成 19 年度より「放射性廃棄物重要基礎技術研究調査」の一テーマとして開始された。

ここでナチュラルアナログの対象としているセメントーベントナイト相互作用の問題は、HLW に比べ充填材や構造躯体等多くのセメント系材料を使用されると見込まれる TRU 廃棄物の地層処分において重要な問題であると位置づけられていることから、平成 25 年度より「TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発」において、TRU 廃棄物処分における人工バリア性能評価に係るセメント系材料の影響による人工バリア（ベントナイト）の長期健全性について、ナチュラルアナログ調査を実施することで、アルカリ緩衝材反応による緩衝材の長期変遷に関する直接的な根拠となるデータを取得し、それらフィールドデータと解析モデルを活用したアルカリ変質現象の解釈に基づき、その長期挙動評価の信頼性向上を図ることを目的として、本事業を進めている。

特に、平成 24 年度まで実施してきた Fossil Type のサイトでは環境条件が明確でない（過去に浸出していた）アルカリ地下水の地球化学特性とその反応時間について、それらがより明確に理解できる場として、現在もなおアルカリ性地下水が浸出している Active Type のナチュラルアナログを見つけ出し、そこでの観察、試料採取と分析によりベントナイトの長期のアルカリ変質に関する直接的な根拠となるデータを取得することが重要な課題であると考えている。

上記に示すこれまでの検討で得られた課題を踏まえ、今年度は、ナチュラルアナログ調査として、実施計画策定（6.1.1）、ナチュラルアナログサイトの探査（6.1.2）、アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセス（6.1.3）、年代測定による反応時間の評価（6.1.4）、地球化学シミュレーションモデルによる変質解析（6.1.5）、について検討した。以下にその成果をまとめる。

6.1.1 実施計画策定

平成 25 年度に策定した 5 カ年のナチュラルアナログ調査の全体計画を踏まえ、平成 26 年度ナチュラルアナログ調査の年度計画及びフィリピン国を対象としたフィールド調査の詳細計画を作成した。フィールド調査計画の策定においては、台風等現地の気象状況に対応可能な安全の確保とフィールド調査の効率性を踏まえ、2 チーム編成による調査の実施を反映した。

6.1.2 ナチュラルアナログサイトの探査

Active Type のナチュラルアナログ候補サイトとして、Bigbiga 地区に加え、新規の調査サイトとして Pinatubo 地区（ルソン島北西部）及び Palawan オフィオライト（Palawan 島中・南部）

においてフィールド調査を実施した。

また、本事業の 5 年計画の中間評価という位置づけで、これまでこれまで継続して調査実施してきた Bigbiga 地区の Active Type のナチュラルアナログサイトとしての成立性を評価した。

(1) Bigbiga 地区（ルソン島北西部）の調査

1) 試錐調査

Bigbiga 地区においては、平成 25 年度までの調査結果及び地質調査に基づき、Well-1(DH08) 以外でアルカリ地下水が確認されている井戸 (Well-3) の近傍で試錐孔(DH10)を掘削して、試錐調査を実施した。

試錐孔(DH10)は 45m 付近からの孔壁崩壊のため、掘削深度 91m であるがコアの採取は 45m までであった。コア観察から以下の結果が得られた。

Aksitero 累層と Zambales オフィオライトの基盤岩である安山岩質溶岩 (Pillow Basalt) とは深度 34.3m で接していた。DH08 孔の基盤深度は 11.5m であり、DH10 孔周辺ではステップフォルトにより基盤深度が深いため、堆積する石灰岩質層が厚い。Aksitero 累層の岩質/岩相は浅部から順に砂岩/泥岩互層—石灰岩質砂岩・一部凝灰岩質—粘土岩—海洋性堆積岩である。一方、Zambales オフィオライトは枕状溶岩で全体的に変質が顕著である。その原岩は枕状玄武岩と細粒斑れい岩であり、最上部 (34.4~38.0m) は円礫状である。また、38.0~39.0m に断層が存在する。基盤岩上の Aksitero 累層のスメクタイトを含む粘土岩は DH08 孔でも同様に見られた。45m 付近からは大量の砂状スライムが噴出した。これも小規模であるが DH08 孔で同様みられた現象である。その後、45.0m~84.0m に空間が生じたのは、高角度のオープンスペースの断層に二次的に砂が堆積していた個所を掘削機が叩いたためだと考えられる。

DH10 孔の地下水は、掘削位置が Well-3(pH8.9)近傍で、深部の pH の高い地下水を期待して 100m 近くまで試錐調査を実施したが、アルカリ性の地下水には残念ながらあたらなかった。ただし、揚水試験から DH10 孔の表層水の流入の影響が大きかったことを加味すると、この地点での基盤岩だけでなく直上の堆積層までアルカリ地下水が流動していた可能性がある。

2) ナチュラルアナログサイトとしての評価

これまでの調査結果を踏まえ、Bigbiga 地区を対象にした Active Type のナチュラルアナログサイトとしての成立性を評価した。

サイトとしての具体的な成立要件 (要素) は、①アルカリ地下水は少なくとも pH 11 程度の高アルカリ地下水であること。緩衝材の候補材料の一つであるベントナイトのアナログとすれば、鉱物組成としては、②モンモリロナイトに富むベントナイト層または、ベントナイト質堆積物 (岩) が存在すること。アルカリ地下水の流路としての断裂系の性状としては、③アルカリ地下水の流路となり得る断裂系がアルカリ地下水の形成・貯留場からベントナイト層へ直接連結していることである。

①アルカリ地下水の賦存については、当地での最高 pH は、既存井戸 (Well-1)の湧水地下水で、pH 値は 9.2~9.6 範囲で還元環境である。このアルカリ地下水は、Zambales オフィオライトと地下水との相互作用により形成され、その pH の値は、アルカリ地下水形成場となる母岩の鉱物組成、特に、バルク組成としての Mg 含有量に依存している。これまでの地下水の地球

化学的特性調査から、Manleluag の裂か水は pH10.1（母岩は細粒斑れい岩）、Poonbato の裂か水は、pH 11.7（母岩はかんらん岩）、そして、Bigbiga の裂か水は、pH 9.6（母岩は枕状玄武岩または自破碎玄武岩）である。このことから、より高い pH の地下水の形成は、より母岩の塩基性度、すなわち Mg 含有量、換言すれば、かんらん石のモード重量%が大きくなる必要がある。したがって、Bigbiga 地区でのアルカリ地下水形成場の母岩が、枕状玄武岩または、自破碎玄武岩であることから、①の要件である高アルカリ地下水の賦存の可能性は低いと考えられる。

②ベントナイト層の存在については、ベントナイト形成の原岩となる Aksitero 累層の構成メンバーである凝灰岩質層の存在環境が地質環境条件となる。

これまでの地表調査（地質調査・トレンチ調査）などにより、凝灰岩質堆積物（岩）は、Bigbiga 地区で広く分布している石灰質砂岩・シルト岩・泥岩層中に挟在して分布しているが、薄層で、ベントナイト化が顕著でない。試誰調査により、基盤岩である Zambales オフィオライトの直上にある安山岩起源で、淡褐色の凝灰岩質砂岩には、相対的にモンモリロナイトが多いが、薄層である。このモンモリロナイト形成の程度は、ベントナイトを形成する原岩の組成に依存するためであると考えられる。Bigbiga 地区では、石英安山岩起源の凝灰岩質層が多い傾向にあるため、対象地層としてのベントナイト層あるいは、ベントナイト質堆積物（岩）の更なる分布の可能性は低いと考えられる。

③については、断裂系をアルカリ地下水の流路とする裂か水であることから、断裂系を通路として湧水していることが明らかである。しかし、このアルカリ地下水の流路となっている断裂系の性状については、DH08 孔のみで確認されているが、断裂系と対象地層とのコンタクトを判定できる断裂系の性状が可視出来ていない。したがって、アルカリ地下水の流路としての断裂系と対象地層とのコンタクト（対象地層に流入するアルカリ地下水の流路<断裂系>の位置）の空間的な位置の判定可能性は低い。

また、①と②が同時成立する露頭（コンタクト部）が唯一基盤岩直上に限定されるために、そのコンタクト部が、深部になることが懸念される（トレンチ調査レベルでの立体的な観察が出来ない。特に、アルカリ性地下水のベントナイト層へ浸出<アルカリブルーム>プロセスの観察が難しい）。

以上のように、Bigbiga 地区のナチュラルアナログサイトとして、これらの3つの成立要件のもと検討した結果、これらの成立要件がより満足される可能性は低いものと評価し、今年度でフィールドでの調査は終了することにする。

(2) Pinatubo 地区（ルソン島北西部）の調査

Pinatubo 地区においては、Zambales 州都 Botolan 市北東約 4km に位置する Loob Bunga Creek 川岸（呼称 Poonbato 地区）に沿って広く露出する Zambales オフィオライト（主に、かんらん岩・ハルツバージャイト・ダナイトなどの超塩基性岩）の断裂系に伴う高アルカリ湧水（裂か水：pH 11.7）を対象にした地球化学的調査と、湧水が賦存する母岩の岩石鉱物学的調査などによる概査を実施した。

しかし、今回は雨期のためにクリーク（沢）は増水し、沢沿いによく観察される断裂系に随伴

する高アルカリ湧水箇所が水没のために、未確認になった。また、火山碎屑性堆積物（層）の露頭についても、雨期の増水のため踏査できなかった。

(3) Palawan 島中・南部地区の調査

Palawan 島中・南部地区においては、パラワン島州都であるプエルト・プリンシーサ市(Puerto Princesa)の北西に位置する①Ulugan Bay 地区 (St. Lucia 温泉等) の地下水調査と岩石学的調査、東方のスルー海(Sulu Sea)に面した②Narra 地区での地下水調査と岩石学的調査、中央パラワン島の脊梁部を形成する③Palawan オフィオライトの岩石学的調査、そして、南西海岸のケソン市近傍にある④ラテライト-Ni 鉱床とその胚胎母岩である超塩基性岩 (Palawan オフィオライト) の岩石学的調査を実施した。

雨季にも拘わらずオフィオライト中の断裂系に伴う高 pH ($10 < \text{pH} < 12$) のアルカリ地下水の湧水を複数箇所 (Narra 地区及び Ulugan Bay 地区 (St. Lucia 温泉)) で確認した。これらのアルカリ地下水はほとんどの表層附近の湧水であるが (降雨水による希釈の影響大)、pH と温度が高く、酸化還元電位が低く (還元性)、総じて Mg^{2+} 濃度が低く、 Ca^{2+} 濃度が高い蛇紋岩化作用に伴うアルカリ地下水の典型的な特徴を示す。また、岩石・鉱物学的観点からも、Palawan オフィオライトは、Zambales オフィオライトと比較して、より苦鉄質であることは、蛇紋岩作用が顕著であり、測定したような高アルカリ地下水が形成される十分な環境であることがいえる。

Na^+ と Cl^- 濃度は明確に pH と負の相関を示すことから、アルカリ湧水サイトによって海水 (または化石海水) の影響を受けていることが考えられ、St. Lucia が最もその影響が強い。 Ca^{2+} 濃度と pH の正の相関はアルカリ地下水の形成過程で Ca^{2+} により pH が上昇したであり、また、 Si 濃度と pH の負の相関はオフィオライト基盤岩の塩基性を示しているためであり、それぞれオフィオライト中の超塩基性岩と天水との水-岩石反応による蛇紋岩化作用による高 pH のアルカリ地下水の生成環境であることを示している。

Palawan オフィオライトのアルカリ地下水では、最も pH の高い Narra3-1 が本体のアルカリ地下水 (表層水や海水との混合がない蛇紋岩化作用によるアルカリ地下水) の組成に近い特性をもつと考えられるが、これと Zambales オフィオライトのアルカリ地下水 (Poonbato) とを比較すると、 Ca^{2+} より Na^+ 濃度の方が高い点は異なるが、Narra3-1 も海水影響があることも考慮すると、本体のアルカリ地下水の組成は比較的近いものと推測される。

高アルカリ地下水の湧出部に良く発達する石灰華 (Travertine) の下位に粘土や土壌などが観察され火山碎屑性堆積物 (層) の露頭を確認し、石灰華に伴う粘土質土壌試料はほとんどがカルサイトであるが、Zambales オフィオライトでは明確なピークが見えなかった蛇紋石や一部水滑石 (Brucite)、霰石 (Aragonite) を同定した。しかしながら、Narra の高アルカリ泉の源泉に堆積していた砂状の粒子および平原の弱アルカリ性の川が流れていた堆積物にスメクタイトの存在を確認したが、凝灰質堆積物を含む堆積層の明瞭な露頭は確認できなかった。

以上の結果から、Palawan 島中・南部地区では高 pH ($10 < \text{pH} < 12$) のアルカリ地下水が現在も湧出しており、Active Type のナチュラルアナログサイトの重要な要件の一つを満たす有望な候補サイトを確認できた。

(4) 調査結果を踏まえた今後のフィールド調査計画

高アルカリ地下水の起源は、ほぼ同時代に定置されたオフィオライト複合岩体中の超塩基性岩（母岩）と天水起源の地下水との相互作用により生成されたものと考えられる。そのために、Pinatubo 地区と Palawan 島中・南部地区の地下水は、母岩が超塩基性岩との相互作用の結果、高アルカリ地下水が生成されたが、Bigbiga 地区の地下水は、母岩が塩基性岩である枕状玄武岩質溶岩あるいは、自破碎玄武岩質溶岩のために低アルカリ性になったものと考えられる。このように岩石の塩基性（SiO₂含有量）への依存性が強いと言うことは、高アルカリ地下水の生成・貯留場が深部になるということである。このことは、一般的に、オフィオライトの岩型は深部に行くにつれて塩基性を増し、超塩基性岩で構成されていることと整合的である。

また、これらの高アルカリ地下水は、すべて断裂系に伴う裂か水である。このことは、断裂系を流路としていることを意味するものである。

一方、対象地層の分布であるが、Bigbiga 地区においては、薄層ではあるが、淡褐色の石灰質・凝灰質砂岩～泥岩の分布が確認されている。

Pinatubo 地区における対象地層としては、Pinatubo 山の火山活動により噴出・流出・堆積（再堆積）などにより形成された火山砕屑物・火砕流堆積物・降下火砕堆積物の凝灰質な地層である。それはベントナイト化し易い特性があるから有望堆積物となり得る。さらに、Tarlac 累層（漸新世～中新世）の凝灰岩質堆積岩も有望な対象地層である。

Palawan 島中・南部地区における対象地層としては、Panas 累層（始新世）と Panadian 累層（漸新世）等が有望である。これらの地層は、遠洋性堆積物で、一部、タービダイト層を伴う泥岩・砂岩が優勢であり、部分的ではあるが、凝灰質堆積物が挟在している有望な地層である。また、高アルカリ地下水の湧出部に良く発達する石灰華の下位に粘土や土壌などが観察され、今後の対象地層としての堆積物として検討することが必要である。

しかしながら、今年度の概査・予察地区であった上記 2 地区（Pinatubo 地区、Palawan 島中・南部地区）の対象地層の探査は、雨季のための増水やアクセス道路の悪条件のために実施することが出来なかった。

今後は、この 2 地区（Pinatubo 地区、Palawan 島）に対しては、十分な調査が出来なかったことを考慮して、次年度の調査課題として、ナチュラルアナログサイトの基本要件である対象地層に対する地質・岩石鉱物学的調査を実施することが不可欠である。そのためには、事前調査や文献調査にもとづいて、調査地域（調査ルートや地域）を選定し、集中的な地質調査をする必要がある。さらに、対象地層の分布、層序・岩質・堆積環境、深度等の情報をできるだけ把握した上で、特に高アルカリ地下水(pH10~12)の存在を確認した Palawan 島を対象として、高アルカリ地下水の湧水周辺でのトレンチ調査などを実施し、“Active Type”のポテンシャルサイトの検討・評価のための基本要件に関する十分なデータ・知見などを取得することが必要である。

6.1.3 アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセス

Bigbiga 地区は、アルカリ地下水の pH は 9.5 程度であり、上記のようにさらに継続してフィールド調査をするポテンシャルは小さいと判断した。一方で、試錐孔 DH08 及び試錐孔 DH10 から採取したそれぞれのコア試料は、アルカリ地下水がベントナイト質の粘土岩に作用していたと考

えられることから、低アルカリが長期間ベントナイト質堆積層に作用する現象を自然界で適切に抽出可能なナチュラルアナログとして、詳細な鉱物学的・鉱物化学的特性の観察・分析にもとづくアルカリ変質反応の地球化学的プロセスを考察した。

ベントナイト質堆積物の供給源としては、安山岩質なものと同石英安山岩質の火山性碎屑物であり、遠洋性・深海環境のもと、大量の微化石などによる石灰質堆積物（石灰岩）が優勢ではあるが、一部、薄層の凝灰質砂岩・泥岩として堆積した。その後の埋没・固結過程での続成作用によりベントナイト化（モンモリロナイトの存在）が進んだものと推察される。

低アルカリ性地下水は、基盤岩である **Zambales** オフィオライト（基盤岩）と天水起源の降雨水との相互作用により形成された裂か水で、その流動場は、基盤岩と **Aksitero** 累層が断層で接している断層系とその近傍（割れ目集中帯）である。水質は、 $\text{Na}^+(\text{K}^+)(\text{Ca}^{2+})-\text{HCO}_3^-$ タイプで若干の Cl^- と SO_4^{2-} （化石海水の影響）を含有し、 pH は $9 < \text{pH} < 10$ である。

このような環境下でのベントナイト質堆積物に含有されているモンモリロナイトの低アルカリ性地下水との変質反応をまとめると以下ようになる。

① モンモリロナイトの鉄イオンとの反応を伴う変質（溶解・沈殿）反応

(Ca)-モンモリロナイト (2・八面体) → サポナイト (3・八面体) / 1部 Fe-サポナイト



→ ノントロナイト (2・八面体)



② モンモリロナイトの溶解・沈殿反応

(Ca)-モンモリロナイト → 斜プチロル沸石 + カリ長石 + 方解石 + 非晶質シリカ鉱物

この低アルカリ変質反応は、**Saile** ベントナイト-沸石（モルデン沸石を生産）鉱床の周辺部のトレンチ内で観察された”Fossil Type”のもの（アルカリ性地下水 ($10 < \text{pH} < 11$) によるアルカリ変質反応であり、拡散支配場での物質移動と変質反応による変質鉱物の生成に関する地球化学的プロセスを確認したナチュラルアナログ）と類似している。

Bigbiga のナチュラルアナログでは、時間スケールは明確でないが、低アルカリ条件でも長期の相互作用ではモンモリロナイトがアルカリ変質する事例が観察された。ただし、変質の程度やもともとのベントナイトの鉱物組成や物理条件については、このサイトでは十分データの取得ができないため、この事例だけをもって、処分場での低アルカリ環境下のベントナイトの変質が問題となるとは言えない。このような条件を明らかにするためにも、ベントナイトの鉱物組成や物理状態の空間的な変化を把握することができるトレンチ調査が可能な別のサイトでの調査が重要である。

アルカリ変質プロセスについては、上記のように **Bigbiga** においても鉄を含む鉱物変遷が確認できた。現状検討している **TRU** 処分場の変質解析では鉄の影響（鉄鉱物が沈殿するくらいの鉄イオンの溶出）は直接考慮していないが、処分場の概念によっては廃棄体のパッケージや構造躯体等は鉄の供給源となりうる可能性があるため、このナチュラルアナログのアルカリ地下水が基盤岩（玄武岩ガラス等）の鉄を溶かしてベントナイトに作用したような環境が実際の処分場でも十分想定できる。また、この鉄を含む二次鉱物は **Saile** 鉱山のナチュラルアナログではクロッキングによる物質移行の阻止によって変質反応が進まない、といった効果も確認しており、このよ

うな鉄の影響がある環境でのアルカリ変質プロセスについては、これを処分場の評価においてどのように扱うか、変質解析も含めさらに検討が必要である。

6.1.4 年代測定による反応時間の評価

断裂系充填物に含まれる炭酸塩鉱物（方解石）は高アルカリ地下水が閉塞される最終期に CO₂ に接して形成したと考えられることから、方解石の生成年代から高アルカリ地下水の閉塞時期を推定するが可能である。炭酸塩鉱物の熱ルミネッセンス（TL）法による年代測定については、評価年代の精度向上や適用可能性（鉱物の産状等）の範囲を探るために、フィリピン国ルソン島北西部の Zambales オフィオライトの西端の Active Type のナチュラルアナログ候補サイトである Bigbiga の炭酸塩鉱物について、その化学組成が TL 発行特性に及ぼす影響を把握し、それを補正した TL 年代の算出に関する検討を実施した。

Bigbiga の試錐コア（DH05 孔）の方解石の熱ルミネッセンス年代は、従来の方法で測定した蓄積線量から算出した結果（10ka～500ka）、同じ層準でも最大で 400ka の違いがある。これまで検討してきた天然試料を用いた基礎研究に基づくと、放射性元素濃度が同じであってもルミネッセンスを生じさせる効率が炭酸塩の化学組成に依存するため、実効年間線量が異なることが蓄積線量の違いをもたらした可能性がある。そこで、Mn, Fe, Mg, Sr 濃度など、複数の元素により効率が変動する可能性があるため、天然試料でみられた関係に基づき、各試料独自のルミネッセンス効率の算出し、TL 年代を再評価した。

年代値の計算では、α 線の飛程が 100 μm 以下であることを考慮し、α 線による線量は炭酸塩由来のものだけを常に受けているとし、β 線、γ 線による線量については、周辺岩石（玄武岩質角礫岩）からの寄与を考慮し、寄与率を仮定して計算を行った結果、炭酸塩、周辺岩石の β 線、γ 線線量がほぼ等しくなったため、周辺岩石からの寄与率に関わらず年代値はほぼ一定となることが分かった。

ルミネッセンス効率（a-value, b-value, c-value）については、天然試料分析により得られている化学組成を考慮した TL 年代は（Fe 濃度・LA-ICP-MS 基準は除くと）、RW-003(98~104ka) > RW-015(29~34ka) ≧ RW-016(25~33ka)と評価された。

一方、これらの産状観察から、初生的な特徴を持つ方解石が多い RW-003 が最も古く、RW-015 と RW-016 の比較では、ゼオライトと方解石の産状から RW-015 の方解石がゼオライトよりも先に晶出した産状を示すのに対し、RW-016 の方解石は後に晶出した産状を示すことから、RW-015 のほうがより古いと考えられる。したがって、これらの鉱物学的な産状は定性的には TL 年代と一致するといえる。

この Bigbiga 地区の炭酸塩の TL 年代とアルカリ地下水がベントナイト質の Aksitero 層群に作用した時間との関係について、Aksitero 累層の堆積年代は 23~29Ma なのに対し、その炭酸塩の TL 年代は 14~181ka であり、この年代のギャップが、カルサイトの産状観察から脈状の方解石や溶解・再結晶した痕跡が多くみられることから、二次的に溶解・再結晶した方解石の年代を示していると思われる。少なくとも Ma オーダーの方解石なら TL は検出されないため、堆積後初期に形成したと考えられる炭酸塩の生成年代ではないことは確かである。したがって、TL で見積もられた Bigbiga の方解石の形成年代については、これがアルカリ地下水との変質反応によって形

成された証拠がないため、アルカリ地下水によるスメクタイト変質の時間スケールと直接関連付けることは難しい。

TL年代測定手法については、数kaの誤差を含む方解石のTL年代と相対的な年代差については、これまでの検討結果から、現状の手法でもナチュラルアナログの時間スケールの推定に適用可能であるといえる。ただし、TL年代値については、試料の化学組成に基づくルミネッセンス効率を適用した評価の方が真値に近いと考えられるが、化学組成とTL特性との関係は引き続き検討が必要である。今後は、a-value、b-value、c-valueの推定方法の確立を行うとともに、炭酸塩の年間線量には含まれるU、Thからの α 線の寄与が大きいため、試料毎にU、Th濃度を測定し、年代値の計算に反映させることが課題である。

一方で、PalawanのNarra地区において、流出したアルカリ地下水から形成されたトラバーチンのTL年代については、アルカリ変質と直接関連付けられる可能性が高く、石灰華（炭酸塩）が厚く堆積している箇所でもトレンチ調査を実施し、炭酸塩の成長線（層）が観察できるようところで、その鉛直方向にコアリングして数cmおきにサンプリングしてTL測定することが次の課題となる。

6.1.5 地球化学シミュレーションモデルによる変質解析

フィリピン国ルソン島西部のSaileベントナイト・ゼオライト鉱山のトレンチ調査で観察されたナチュラルアナログでは、地球化学シミュレーションモデルにおいて現在得られている反応輸送モデルや構成式、熱力学的データベースで説明可能かどうかの検証に値する空間的な情報が得られている。そこで、このナチュラルアナログで観察されたベントナイト-枕状溶岩界面の鉱物の溶解や沈殿により変化する鉱物の共存状態の進化過程を再現することを目的として、地球化学計算コードPHREEQCによる変質解析を実施した。

本年度は、昨年度までの検討成果を踏まえ、ベントナイトに含まれる一次鉱物であるモンモリロナイトや玉髄、灰長石、方解石の溶解だけでなく、カギを握る二次鉱物のカリ長石とFe-サポナイトの溶解・沈殿を速度論的に取り扱った計算を実施した。

カリ長石の生成については、生成を平衡論で取り扱った系で生成が認められたが、生成を速度論で取り扱った系では、60年という反応期間では生成が認められず、数百年程度までその傾向はかわらなかった。また、カリ長石の溶解を平衡論と速度論で取り扱った系を比較すると、その分布の広がりには違いが認められ、平衡論で取り扱った系では、その分布が時間の経過とともに下流側に移動していた。しかし、少なくとも550年まではカリ長石が消滅することはなかった。

鉄サポナイトの生成については、溶存鉄濃度の高い溶液条件で、生成を平衡論で取り扱った系で鉄サポナイト生成が認められたが、生成を速度論で取り扱った系では、60年の反応期間では生成が認められなかった。溶存鉄はより下流側でのクロッキングやノントロナイト生成に消費されることが予想されるが、これは上流側での鉄サポナイト生成の速度論に左右される。

沸石（モルデン沸石）については、溶液の違いでその溶解挙動に大きな違いが認められ、溶存鉄濃度の高い溶液条件では、最長のケースでも22年後にモルデン沸石は消滅していた。

以上の検討結果からは、変質ベントナイト中で生成する二次鉱物（カリ長石、鉄サポナイト、沸石）の鉱物組み合わせを再現するために、それらの二次鉱物の生成は平衡論的、溶解は速度論

的に取り扱う必要性が示唆された。

ただし、本質的にはベントナイトのアルカリ変質反応については、反応に寄与するアルカリ溶液の①拡散速度と②鉱物の溶解・生成（沈殿）の反応速度の大きさによって平衡論と速度論の取り扱いが決まるものとする。これらの中で最も遅い速度で反応が律速されることから、①拡散速度 \gg ②反応速度の場合は②反応速度が重要であり速度論的な取り扱いが必要なのに対して、①拡散速度 \ll ②反応速度の場合は平衡論での取り扱いで構わない。

速度論の適用については各形成速度のような難しい課題は含んでいるため、鉱物の生成を含む地球化学シミュレーションではこのような不確実性があることを踏まえて、ナチュラルアナログにおける拡散速度を評価し、これと生成する鉱物の反応速度との関係を明らかにして、変質解析への適用を検討することが、まずはこの検討での重要な課題であるとする。このナチュラルアナログにおける地球化学シミュレーションの検討により、実際の TRU 処分場の評価において、変質鉱物の二次鉱物（ベントナイトの変質鉱物）の設定や溶解生成反応の扱い（速度論的データの必要性）等を地球化学モデルに反映していくことが重要な課題である。