

平成29年度  
高レベル放射性廃棄物等の地層処分に  
関する技術開発事業  
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30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29年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 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 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 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 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 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 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 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 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 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 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 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 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発－ガス移行連成挙動評価手法の開発－



## はじめに

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、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の改正により、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、平成 40 年代後半を目途に最終処分事業を開始す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 が必要な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。

平成 27 年 5 月には、平成 26 年 4 月に閣議決定されたエネルギー基本計画や、同年 5 月に公表された放射性廃棄物 WG の「中間とりまとめ」を踏まえ、最終処分法に基づく基本方針の改定（閣議決定）が行われた。改定のポイントは、①現世代の責任と将来世代の選択可能性、②全国的な国民理解、地域理解の醸成、③国が前面に立った取組、④事業に貢献する地域に対する支援、⑤推進体制の改善等である。その国が前面に立った取組として、平成 29 年 7 月には地層処分に関係する地域の科学的特性が整理された科学的特性マップが公表された。これにより処分地選定調査を進めるために地層処分に関する広範な国民理解を得る重要性が改めて認識されるとともに、今後処分地の選定プロセスが進むことが予想され、TRU 廃棄物特有の問題が地層処分の安全評価において大きな障壁とならないよう、技術開発を着実に進める必要がある。

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 レポートのレファレンスケースでは最大線量が処分後 10,000 年で  $2\mu\text{Sv/y}$  とされている）ヨウ素 129 および炭素 14 の低減対策に加え、多様な廃棄体が存在し、HLW のようなオーバーパックの機能がない、坑道集積型の処分場概念である TRU 廃棄物の処分では、大量のセメント系材料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。

これらの重要課題に対して、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の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。

- (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 29 年度の成果を取り纏めた。

## 目 次

第1章 概要 .....	1
1.1 背景 .....	1
1.1.1 ナチュラルアナログとセーフティケース .....	1
1.1.2 TRU 廃棄物の地層処分におけるセメント-ベントナイト相互作用とナチュラルアナログ .....	2
1.1.3 ナチュラルアナログが成立するための環境条件 .....	3
1.1.4 ナチュラルアナログ調査・研究の進め方と用語の定義 .....	5
1.1.5 フィリピンのナチュラルアナログ調査の有意性 .....	8
1.2 目的 .....	10
1.3 本事業のこれまでの成果概要 .....	11
1.3.1 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 .....	11
1.3.2 Bigbiga 地区のナチュラルアナログ .....	20
1.3.3 パラワン島のナチュラルアナログ .....	24
1.4 実施概要 .....	36
1.4.1 全体計画 .....	37
1.4.2 平成 29 年度実施概要 .....	39
第2章 ナチュラルアナログサイトの地質環境調査 .....	43
2.1 目的 .....	43
2.2 フィリピン国における現地調査と試料分析の概要 .....	44
2.2.1 調査工程 .....	44
2.2.2 フィールド調査 .....	45
2.2.3 地下水（湧水）調査の概要 .....	58
2.2.4 岩石鉱物学的調査の概要 .....	60
2.3 パラワン島の概要 .....	65
2.3.1 パラワン島の地質概要 .....	65
2.3.2 Narra 地区の地質概要 .....	83
2.4 地下水調査 .....	85
2.4.1 現地調査（現地測定・簡易分析・採水） .....	85
2.4.2 地下水の地球化学的特性 .....	87
2.5 トレンチ調査 .....	94
2.5.1 トレンチ掘削 .....	94
2.5.2 壁面観察とサンプリング .....	97
2.6 ストリッピング調査 .....	113
2.6.1 ストリッピング掘削 .....	113
2.6.2 壁面観察とサンプリング .....	115
2.7 岩石鉱物学的調査 .....	120

2.7.1 概要 .....	120
2.7.2 試料調整 .....	120
2.7.3 XRD による鉱物分析.....	123
2.7.4 XRF (蛍光 X 線分析) による岩石化学的特性 .....	142
2.7.5 光学顕微鏡観察.....	160
2.7.6 スメクタイトの定量 .....	200
2.8 まとめ .....	214
第 3 章 年代測定による反応時間の評価.....	220
3.1 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.....	220
3.1.1 目的 .....	220
3.1.2 パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログにおける年代測定の検討概要.....	223
3.1.3 年代測定のための試料.....	224
3.2 方解石の熱ルミネセンス(TL)年代測定 .....	227
3.2.1 熱ルミネセンス(TL)年代測定法.....	227
3.2.2 パラワン島の炭酸塩試料の TL 年代測定 .....	231
3.3 放射性炭素( <sup>14</sup> C)年代法による年代測定 .....	253
3.3.1 放射性炭素( <sup>14</sup> C)年代法の概要と実施概要.....	253
3.3.2 AMS による <sup>14</sup> C 年代測定 .....	254
3.3.3 パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログ試料の放射性炭素年代 .....	257
3.4 まとめ .....	261
第 4 章 アルカリ環境下での長期変質プロセスとナチュラルアナログ .....	264
4.1 パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログ .....	264
4.2 ナチュラルアナログ試料の鉱物組成及び組織に関する分析・観察 .....	265
4.2.1 概要 .....	265
4.2.2 分析手法 .....	265
4.2.3 マイクロ XRD 分析.....	268
4.2.4 EPMA 分析 .....	270
4.2.5 鉱物化学組成 .....	298
4.3 スメクタイトの形成環境と形成プロセス .....	328
4.3.1 Narra サイトの地質構造学的発展.....	328
4.3.2 スメクタイト含有砕屑性堆積物の岩石鉱物学的特性 .....	331
4.3.3 XRF 分析による岩石化学的特性 .....	342
4.3.4 EPMA によるスメクタイトの形成に係る観察・分析 .....	344
4.3.5 アルカリ湧水 (地下水) の地球化学的特性.....	358
4.3.6 既存研究に基づく類似する地質環境でのスメクタイト生成に係る地球化学的プロセス ..	360
4.3.7 スメクタイトの形成環境とその鉱物学的変遷および長期安定性.....	364

4.4 アルカリ地下水環境下でのスメクタイトの地球化学的・鉱物学的安定性と人工バリアのナチュラルアナログとしての知見.....	371
4.4.1 アルカリ地下水環境下でのスメクタイト形成プロセスとその鉱物学的変遷モデル.....	371
4.4.2 処分環境とのアナログ性.....	373
4.4.3 ナチュラルアナログの知見に基づく人工バリアの長期健全性.....	375
4.5 まとめ.....	380
4.5.1 ナチュラルアナログ試料の鉱物組成及び組織に関する分析・観察.....	380
4.5.2 スメクタイトの形成環境と形成プロセス.....	381
4.5.3 人工バリアの長期健全性に係るナチュラルアナログの知見.....	383
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.....	388
5.1 実施概要.....	388
5.1.1 これまでの背景.....	388
5.2 アルカリ変質反応による鉱物組成変化の地球化学計算.....	389
5.2.1 パラワン島ナチュラルアナログ環境での安定相の解析.....	389
5.2.2 ルソン島ナチュラルアナログの変質解析.....	401
5.3 まとめ.....	411
第6章 まとめ.....	414
6.1 今年度の調査結果のまとめ.....	414
6.1.1 実施計画.....	415
6.1.2 ナチュラルアナログサイトの地質環境調査.....	415
6.1.3 年代測定による反応時間の評価.....	418
6.1.4 アルカリ環境下での長期変質プロセスとナチュラルアナログ.....	419
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.....	424





# 第1章 概要

## 1.1 背景

### 1.1.1 ナチュラルアナログとセーフティケース

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原子力発電に伴って発生する高レベル放射性廃棄物や TRU 廃棄物の地層処分において、その長期にわたる安全評価は最も重要な課題である。その長期の安全評価において、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、バリアシステムの長期挙動等の”現象理解”や放射性核種の移行挙動等の”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。後者の観点では、高レベル放射性廃棄物等の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、地域住民をはじめ国民一般まで地層処分に対する理解と協力を得ることが不可欠であることから、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、地層処分の重要な本質的な問題に対して、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、母岩中の放射性核種の移行とその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]が進められている。

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 TRU 廃棄物（あるいは高レベル放射性廃棄物）の地層処分における「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、ナチュラルアナログ調査・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。

### 1.1.2 TRU 廃棄物の地層処分におけるセメントーベントナイト相互作用とナチュラルアナログ

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]、オーバーパックの機能がない坑道集積型の TRU 廃棄物処分場の人工バリアの基本構成として支保工、グラウト、インバートコンクリート、構造躯体、廃棄体間／内充填材等にセメント系材料の使用が想定されている。ベントナイト系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機能が求められる[8][9]。

セメント系材料からの高アルカリ浸出水によりベントナイトが変質することが確認されており（ただし、その規模や時間はベントナイトの状態や浸出水の地球化学特性に大きく依存し、長期挙動について明らかでない点が多い）、緩衝材の長期にわたる機能の確保という観点から、TRU 廃棄物処分場のベントナイト系緩衝材の長期健全性に係るセメント系材料との相互作用の長期評価は、高レベル放射性廃棄物の人工バリアシステム以上に重要課題として位置付けられている。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プロセスは、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。）を主要成分とする膨潤性粘土）中のスメクタイトの変質反応（Ca 型化、二次鉱物の生成、C-S-H 化やゼオライト化など）であり、この変質により、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、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系材料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精緻化と信頼性向上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ナチュラルアナログ研究は近年になって検討され、データも集まりつつあるが[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加えその現象を引き起こす地球化学的な環境条件については、まだ不明な点も多く、ナチュラルアナログ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、プロジェクト型のナチュラルアナログとして調査・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。

### 1.1.3 ナチュラルアナログが成立するための環境条件

地層処分システムにおけるセメント系材料の影響では、セメント系材料－地下水反応に起因して高アルカリ性となるセメント浸出水との反応プロセスがキープロセスとなる。地層処分を行う地下深部でのこのような高アルカリ性のセメント浸出水の生成・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、オフィオライトにおける蛇紋岩化作用（Serpentinization）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 1.1.3-1 に示す。

この蛇紋岩化作用に由来する高アルカリ地下水の生成は、オフィオライトを構成する超塩基性岩等の主構成鉱物であるかんらん石や輝石が天水との水－岩石反応により蛇紋石に変質する一連の反応過程によるものであることが解っている。ここで、低温下（処分環境に近い温度）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。

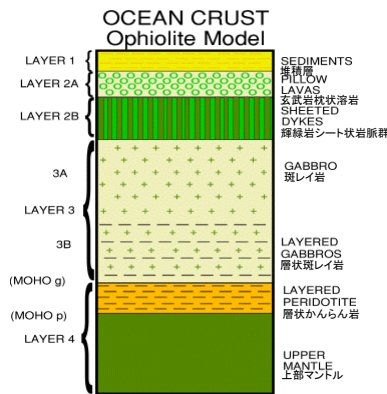
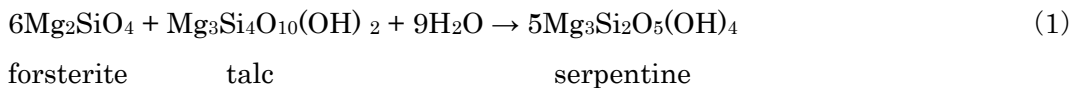


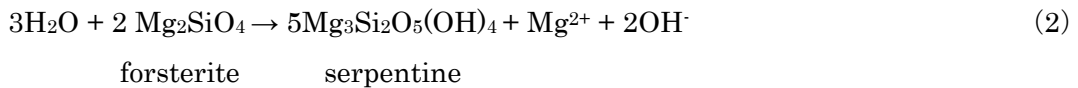
図 1.1.3-1 オフィオライト（かつての海洋底（地殻+マントル）の断片）の層序

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]。

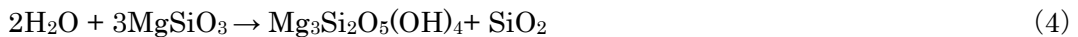
(蛇紋岩化作用)



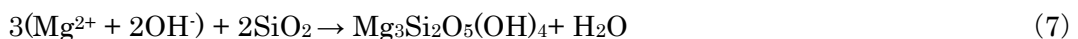
(かんらん石の溶解)



(輝石の溶解)



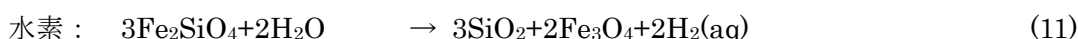
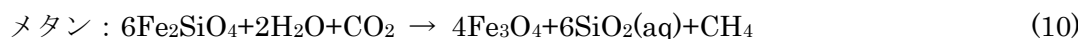
(降水の浸透)



(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低温蛇紋岩化作用を起源とする高アルカリ地下水のイオン組成（高 pH、高 Ca 濃度）、還元性環境、発熱反応による温度環境は、セメント系材料を大量に使用する TRU 廃棄物の処分場の環境と類似しており、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。

一方、このような蛇紋岩化作用が進行しているオフィオライトとベントナイト等のスメクタイト質の粘土層が共存する環境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) あるいはスメクタイト質の粘土層、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 1.1.3-2)。

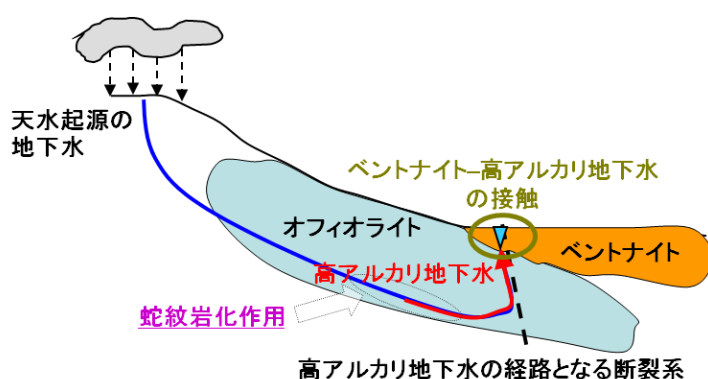


図 1.1.3-2 ナチュラルアナログのコンセプト

#### 1.1.4 ナチュラルアナログ調査・研究の進め方と用語の定義

これまでに実施したナチュラルアナログ調査[20]を踏まえ、表 1.1.4-1 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ィオラ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、第1段階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。

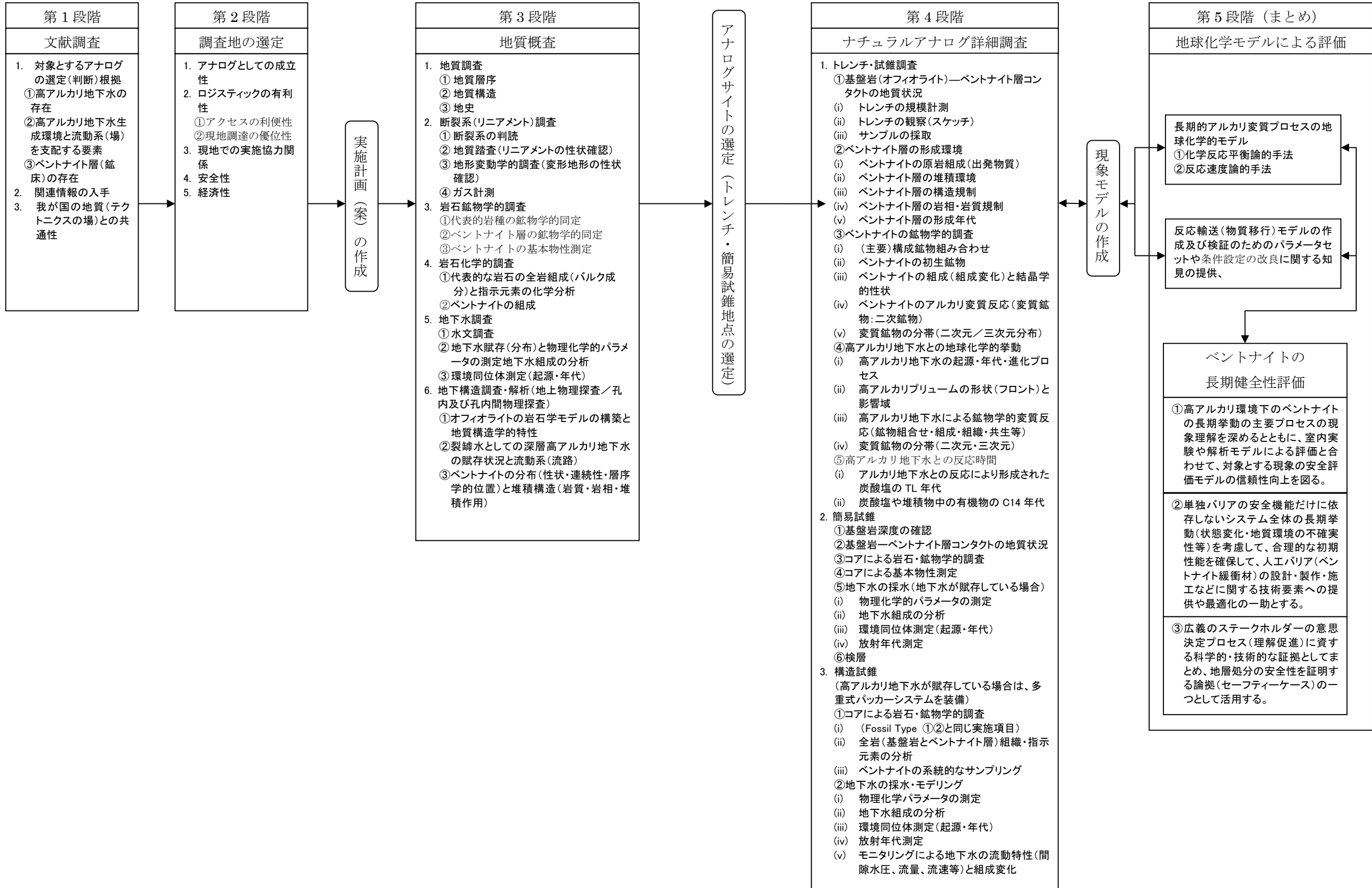
第4段階では、第3段階で選定されたアナログサイトでのトレンチ及び試錐を実施して、ベン

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、現在もアルカリ地下水がベントナイト層に浸出するサイトを対象とするため、アルカリ地下水と接触している試料の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等の改良）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。

また、本ナチュラルアナログ調査においては、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定義する。

表 1.1.4-1 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







### 1.1.5 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（スメクタイト質の粘土層）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が存在すること
- ② 火山砕屑性堆積物起源のベントナイト鉱床（ベントナイト層）またはスメクタイト質の粘土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していること
- 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）があること

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 1.1.5-1 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、蛇紋岩化作用に伴う pH11 を超える高アルカリ湧水が見られ、それに近接してスメクタイト質の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。

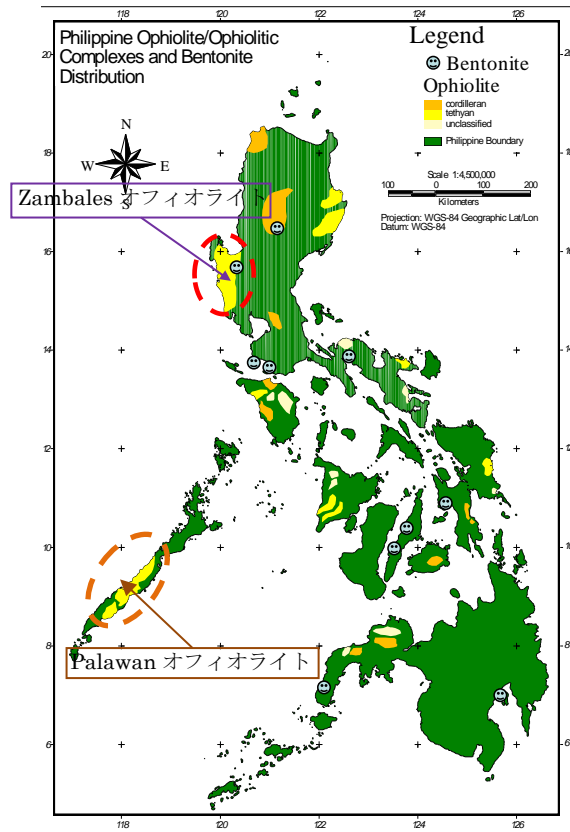


図 1.1.5-1 フィリピン国のオフィオライトとベントナイト鉱床の分布

## 1.2 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。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を確立することを事業全体の目的としている。

本調査では、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いる。

そのために、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、現在も高アルカリ地下水が湧出し、スメクタイトを含む粘土質堆積物に浸出していることが確認されたフィリピン国パラワン島中部地区を対象としたフィールド調査において、トレンチの掘削等を実施して岩石試料の採取、地下水の採水を行う。

また、露頭観察、岩石試料の鉱物・化学分析及び地下水の化学分析等を行い、その結果に基づいてアルカリ変質に伴う鉱物変遷を明らかにし、スメクタイトの生成や安定性を評価する。さらに、アルカリ地下水により生じた炭酸塩層やそれに含まれる有機物の年代測定を実施し、ベントナイトと高アルカリ地下水との反応時間について検討し、TRU のナチュラルアナログとしてとりまとめる。加えて、既にアルカリベントナイトの相互作用が確認された事例を活用して、ベントナイトー基盤岩接触部で確認したアルカリ変質鉱物の生成に着目して地球化学モデル検証のための計算を実施して、ナチュラルアナログを活用した人工バリアの長期挙動モデルの高度化について検討する。

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他のナチュラルアナログ研究及び「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）をおこない、長期評価モデルの信頼性向上を図る。

### 1.3 本事業のこれまでの成果概要

#### 1.3.1 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 1.3.1-1) では、ベントナイト層が熱水等の影響を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系材料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。

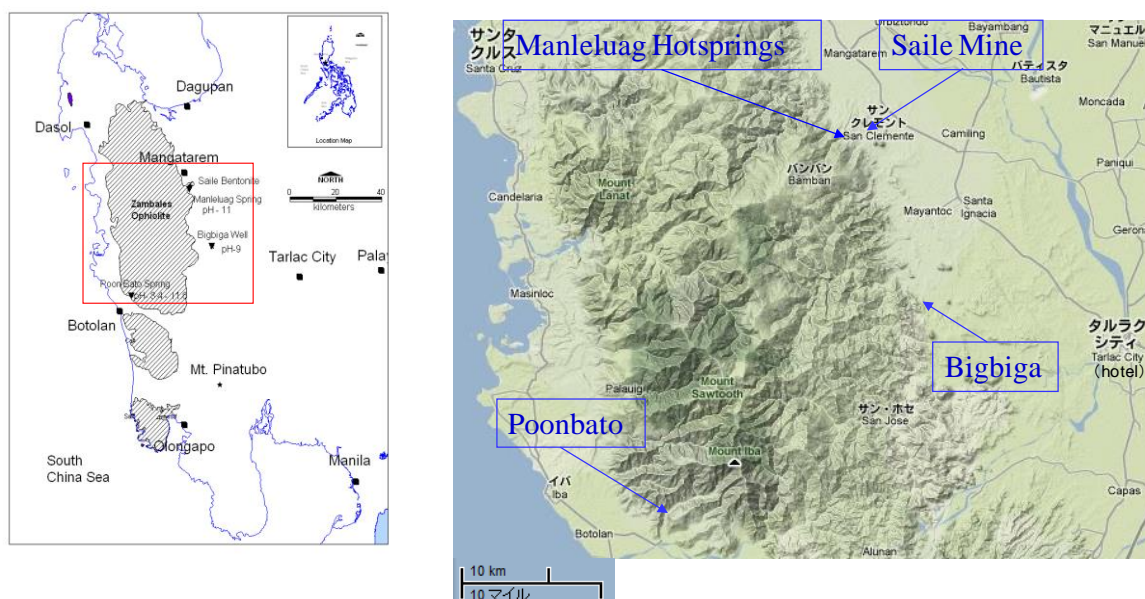


図 1.3.1-1 フィリピン国ルソン島北西部のナチュラルアナログ調査サイトの位置

#### (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 1.3.1-1)。

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 幅では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、細粒の斑れい岩（一部自破砕玄武岩溶岩が伴う）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イ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）と火山性碎屑物（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・斜ブチロル沸石・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碎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 1.3.1-2（左））、モンモリロナイトの自生鉱物としての特徴（図 1.3.1-2（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。

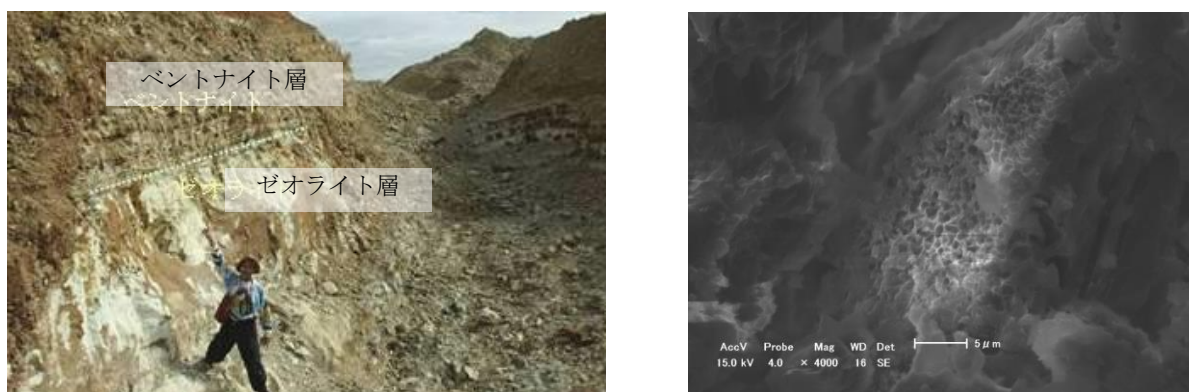


図 1.3.1-2 Saile 鉱山採石場 (Quarry) の露頭（ベントナイト層-沸石層の互層関係）（左）とベントナイト（蜂の巣状の自生スメクタイト）の SEM 画像（右）

## (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 1.3.1-1 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と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(OPC)の  $Ca(OH)_2$  の溶解平衡にある溶液 (RegionII) としても、ルソン島の調査サイトの pH は OPC の RegionII 浸出水に比べると低いがアナログであるといえる。

表 1.3.1-1 ルソン島の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 <sub>4</sub> [ppm]	>5000	0 (2200)	0	>5000	0 (0~560)	-
H <sub>2</sub> [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 <sup>2+</sup> [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 <sub>3</sub> [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、鉱物の溶解・沈殿反応の拡散律速および Mg 鉱物から溶解した Mg はすべて変質鉱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 鉱山である。

Saile 鉱山では、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鉱物、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  $\gamma$ -水マンガン鉱 (Manganite:  $MnO(OH)$ ) 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鉱物の産状等これらの地質鉱物学的証拠から、過去にナチュラルアナロ



グのコンセプト (図 1.1.3-2) 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) 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 1.3.1-3)、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みられなかった。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。

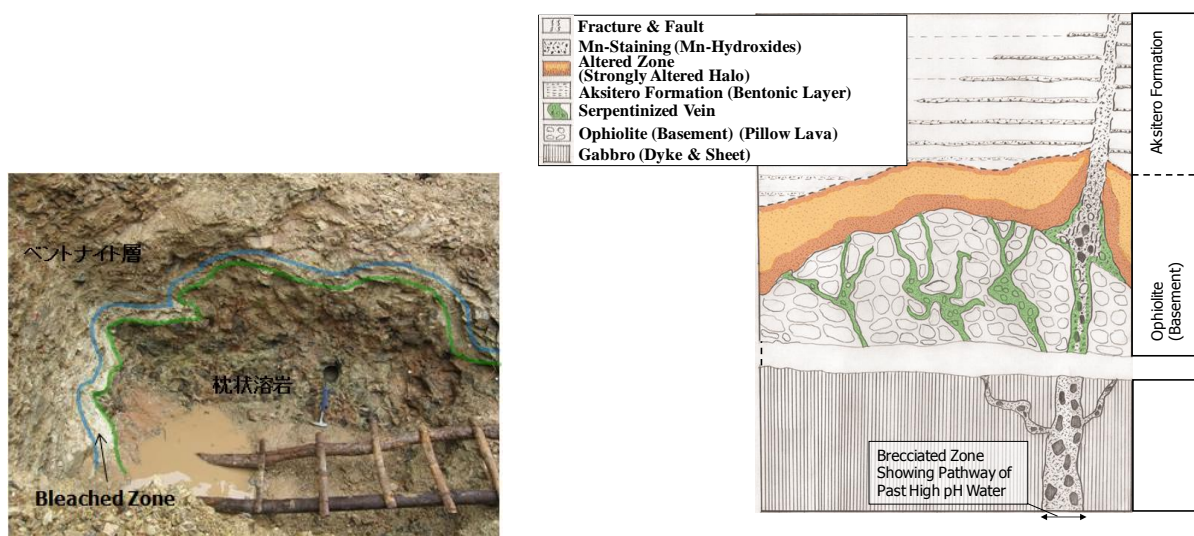


図 1.3.1-3 トレンチの枕状溶岩-ベントナイト層接触部 (左) と観察結果に基づく模式断面図 (右)

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 1.3.1-4)。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。

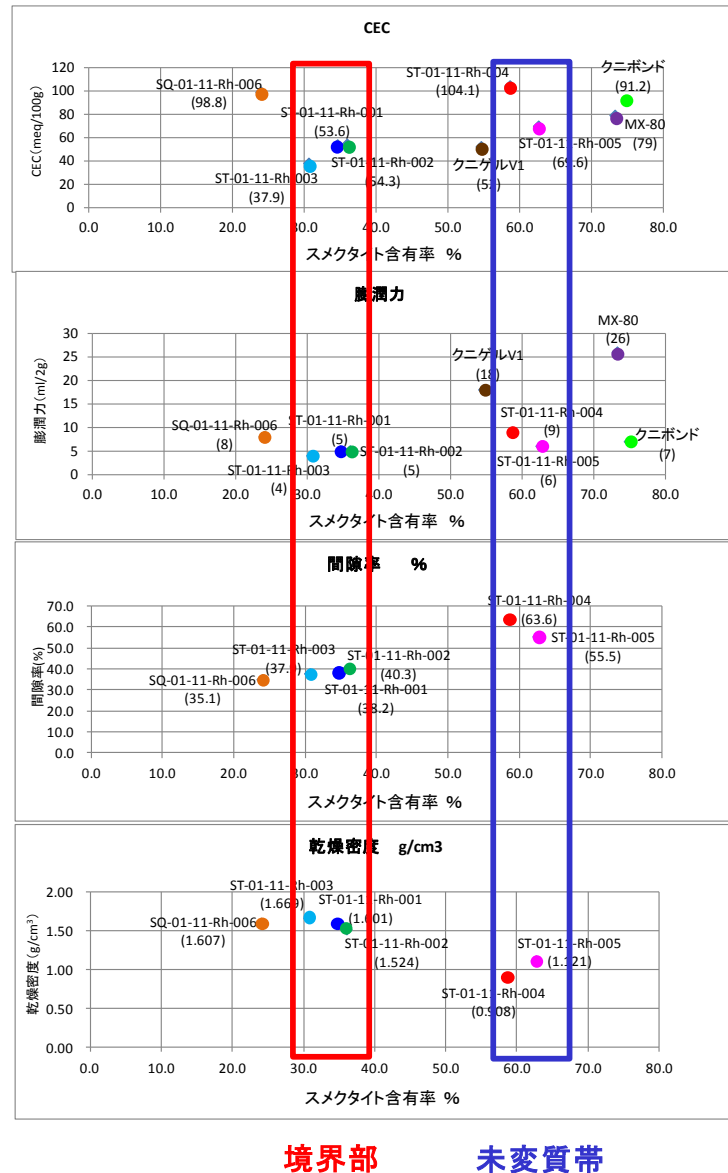


図 1.3.1-4 スメクタイト含有率と各基本物性との関係

トレンチの枕状溶岩-ベントナイトの接触界面 (図 1.3.1-5(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 1.3.1-5(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、Fe 型モンモリロナイト、鉄サポナイト、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 1.3.1-6)。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。



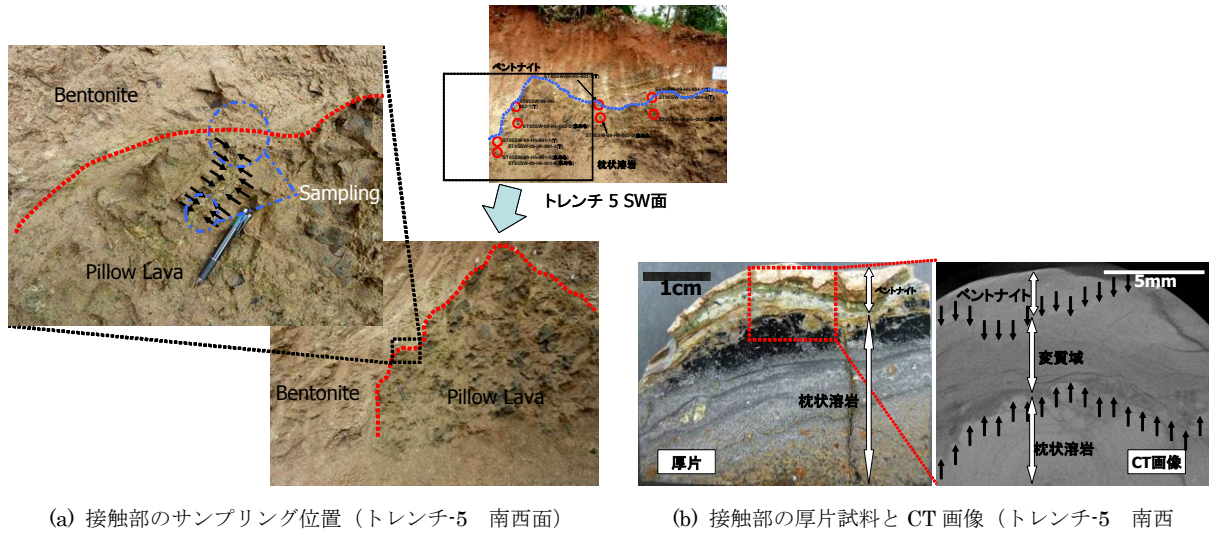


図 1.3.1-5 ベントナイトー枕状溶岩接触部のサンプリング (トレンチ-5 西南壁)

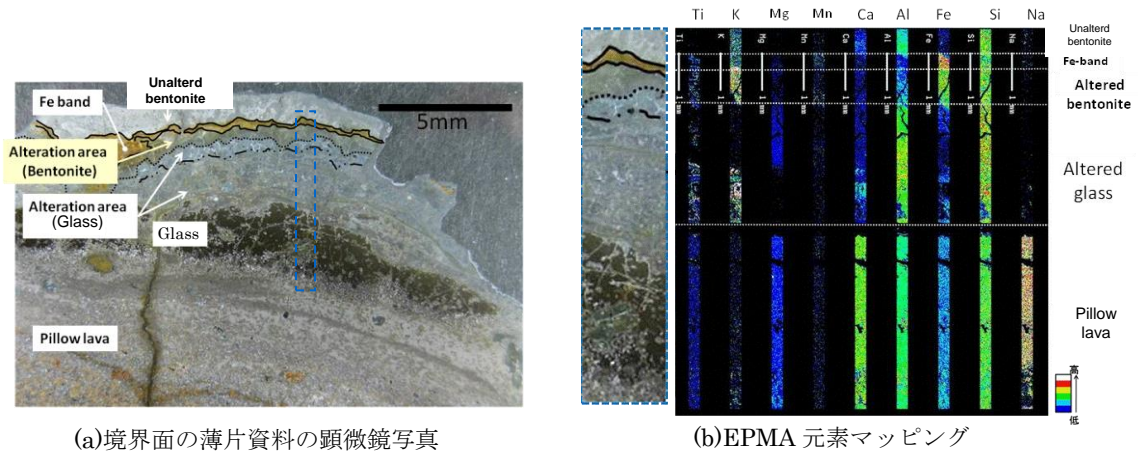


図 1.3.1-6 トレンチ-5 のベントナイトー枕状溶岩の界面の顕微鏡観察と元素マッピング

(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（かんらん石、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・八面体型スメクタイトである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 3・八面体型スメクタイトである鉄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、2・八面体型スメクタイ

トである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 1.3.1-7）。

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（クリストバライト等）が生成されたものと解釈できる。

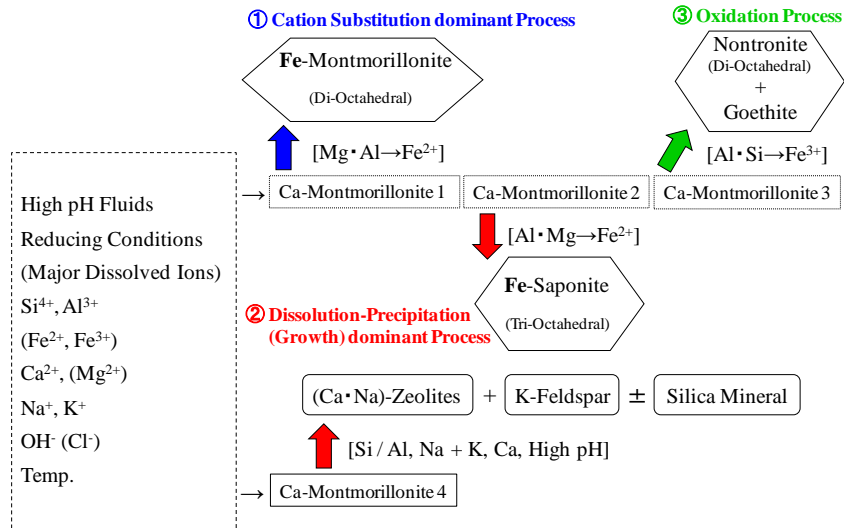


図 1.3.1-7 アルカリ環境下の Ca-モンモリロナイトの鉱物学的変遷過程

(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

SARA 法（Single-Aliquot Regeneration and Added-dose method ; 3.2.1 熱ルミネセンス年代測定法参照）による熱ルミネセンス（TL: Thermo-Luminescence）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 1.3.1-8）。

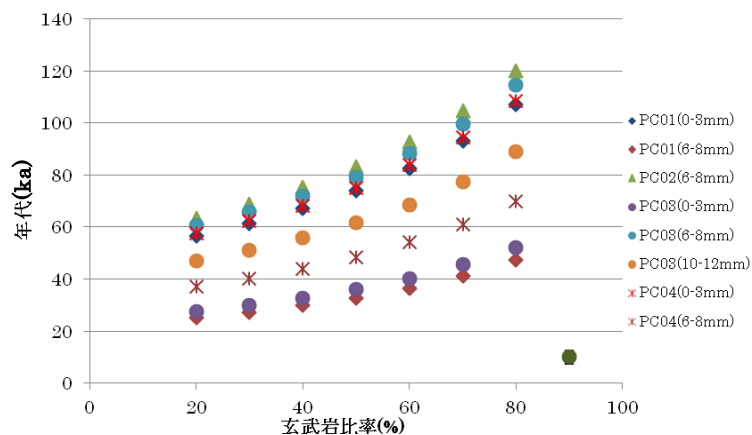


図 1.3.1-8 断裂系充填物の玄武岩比率と方解石の TL 年代

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 鉱山採石場の断裂系が 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仮定すると、地層処分の評価期間に比べてはるかに長期間に渡り（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멕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鉄サポナイト、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、ノントロ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멕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 1.3.1-9 に示す。アルカリ地下水環境下のベントナイトは、図 1.3.1-9 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。

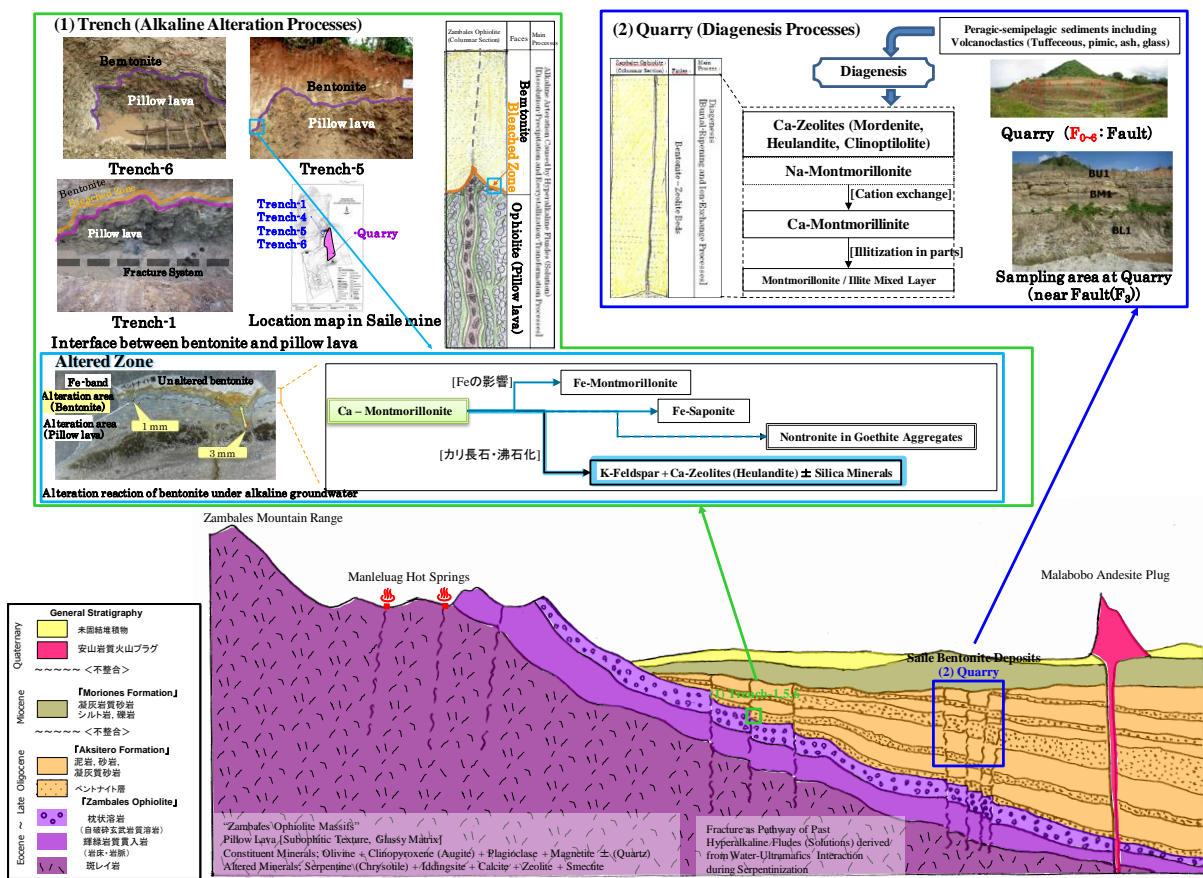


図 1.3.1-9 Saile 鉱山とその周辺地におけるベントナイトのアルカリ変質に係わる概念モデル

### 1.3.2 Bigbiga 地区のナチュラルアナログ

#### (1) 背景

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でできた一方で、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。

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を取得し、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。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。

#### (2) Bigbiga 地区のナチュラルアナログ

以上の背景を踏まえ、**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 **Saile** 鉱山の南南東 30km に位置する **Bigbiga** 地区 (図 1.3.2-2 参照) において調査を実施した[34]。

図 1.3.2-3 に示す **Bigbiga** 地区の試錐孔 **DH08** 及び試錐孔 **DH10** から採取したそれぞれのコア試料からは、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、低アルカリ地下水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、概念的な水理地質構造モデルによる地下水の地化学特性と詳細な鉱物学的・鉱物化学的特性の観察・分析に基づき、ベントナイト質堆積層のアルカリ変質反応の地球化学的プロセスを考察した。

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**)とその近傍の試錐孔(**DH08**)、および、これらの南西に位置する既存井戸(**Well-3**)とその直近の試錐孔(**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 1.3.2-3)。



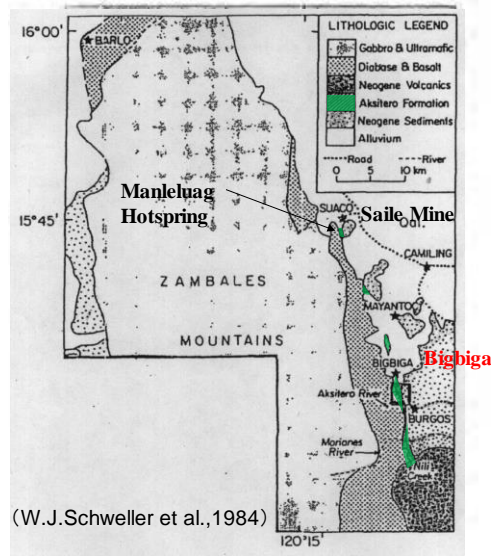


図 1.3.2-1 Bigbica 地区及び Saile 鉱山周辺地区の Aksitero 累層の分布 (Shhweller, W.J., et al. 1984 [33]を加筆)

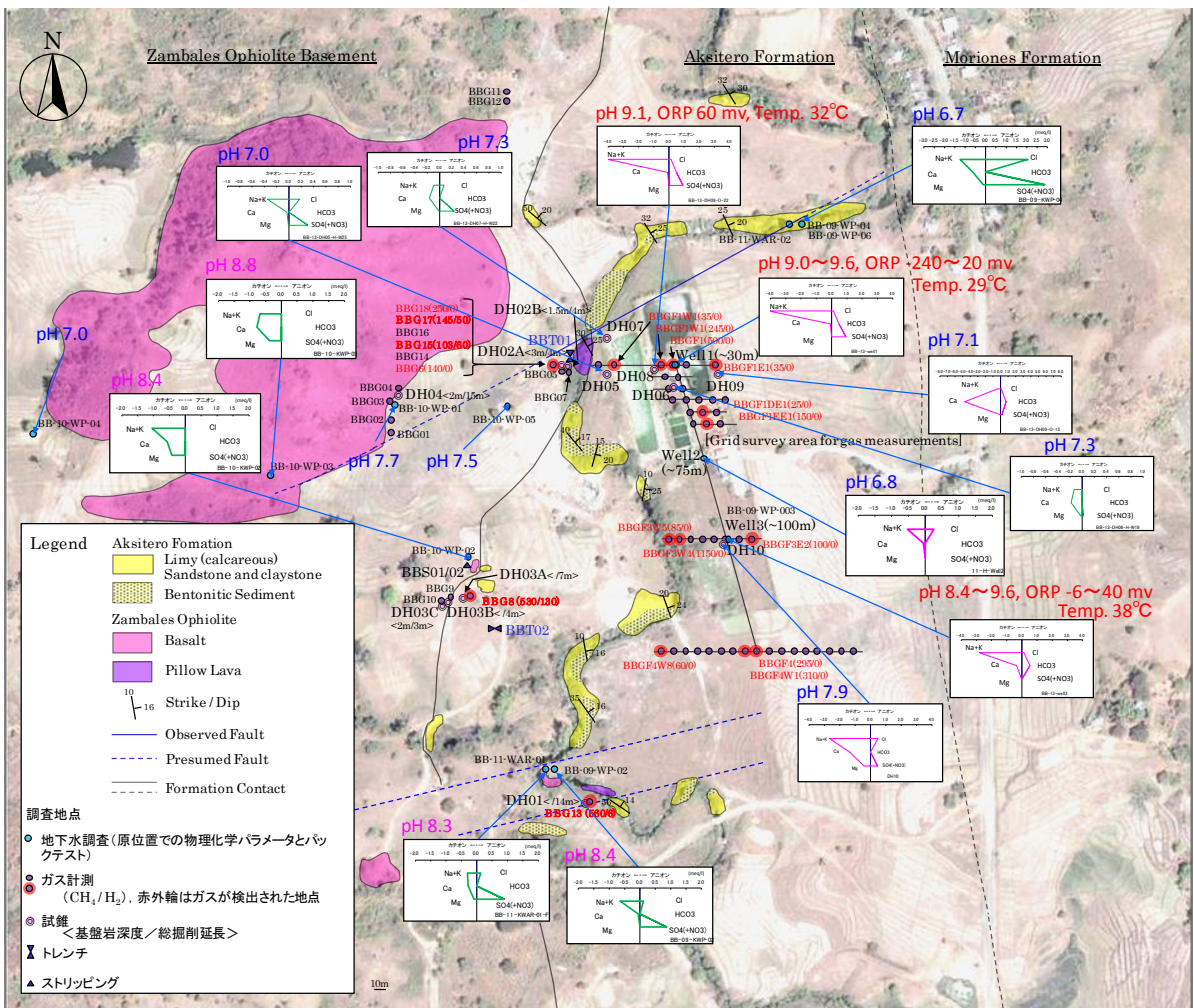


図 1.3.2-2 Bigbica 地区の Compilation Map

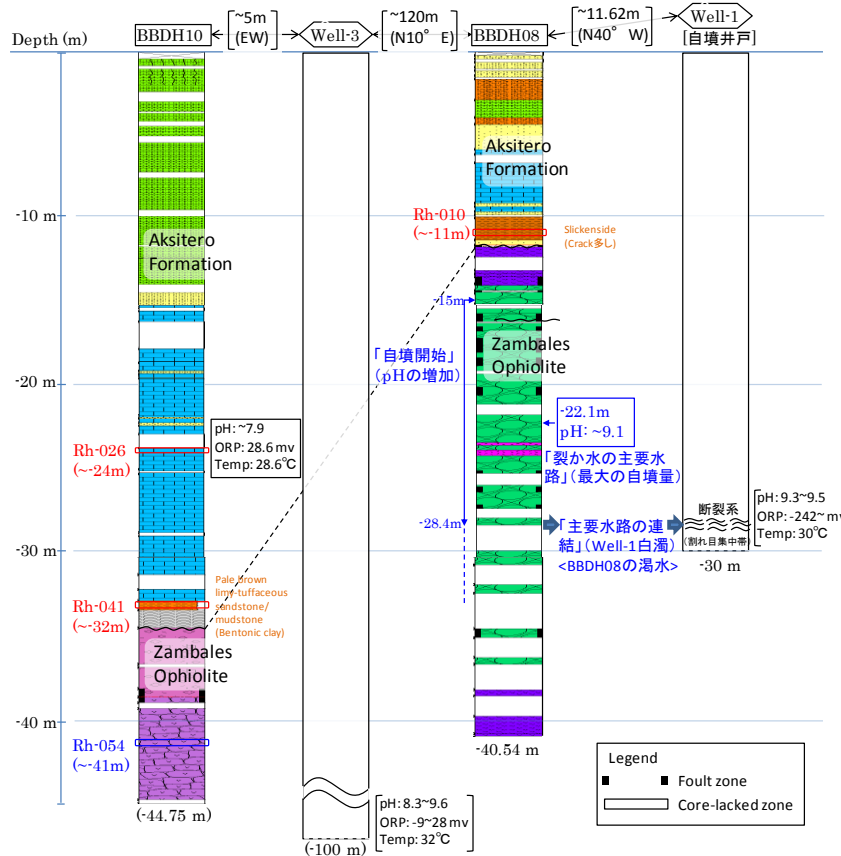


図 1.3.2-3 Bigbiga 地区の二次元水理地質構造概念モデル

図 1.3.2-3 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錐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、DH08 孔（基盤深度：約 11m）において、堀削深度約 15m 近傍から自填開始し、その自填量は深度約 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。

この自填深度や白濁深度での母岩は、細粒斑れい岩 / 輝緑岩の岩脈である。この岩脈は、断層系（割れ目帯）がよく発達しているために、おそらく、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。

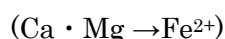
この低アルカリ性地下水は、降雨水-Zambales オフィオライトとの相互作用、特に、地下水形成場の母岩の造岩鉱物（カンラン石、輝石類の苦鉄質鉱物）とその変質鉱物との地球化学

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。水質は、 $\text{Na}^+(\text{K}^+)(\text{Ca}^{2+})-\text{HCO}_3^-$ タイプで若干の  $\text{Cl}^-$ と  $\text{SO}_4^{2-}$ （化石海水の影響）を含み、 $\text{pH}(9 < \text{pH} < 10)$ を示す。

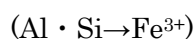
このような環境下でのベントナイト質堆積物に含有されているモンモリロナイトの低アルカリ性地下水との変質反応をまとめると以下ようになる。

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（2八面体型）→ サポナイト（3八面体型）/ 1部 鉄サポナイト



→ ノントロナイト（2八面体型）



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 ベントナイトー沸石鉱床の周辺部のトレンチ内で観察された”Fossil Type”のものと類似している。特にアルカリ変質プロセスに鉄鉱物の影響があることが Bigbiga でも確認され、セメント、鉄、ベントナイトを構成材料とする TRU 廃棄物の地層処分場の長期挙動における鉄鉱物の評価の重要性が認識された。

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、このサイトではデータの取得が十分できないため、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わけではない。

したがってこれら Bigbiga の調査結果から、当ナチュラルアナログ調査において、トレンチによる系統的サンプリングにより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り、これが今後の課題として明確になった。



### 1.3.3 パラワン島のナチュラルアナログ

#### (1) 背景

平成 24 年度[20]まで実施した、アルカリ性地下水との過去の反応が確認できたルソン島 Saile 鉱山の“Fossil Type”のナチュラルアナログに対して、平成 25 年度から現在もアルカリ地下水がベントナイト層に浸出している“Active Type”のナチュラルアナログとして、Bigbiga において調査を実施した。しかしながら、ベントナイトの溶解が顕著な条件でない pH9.5 程度の低アルカリの地下水しか存在せず、またベントナイト質堆積物とのコンタクト部が深部にあるため、その影響範囲の観察・評価が難しいことから、Bigbiga のナチュラルアナログは平成 26 年度で終了した[34]。

これらのナチュラルアナログ調査の成果と課題を図 1.3.3-1 に示すが、これを踏まえ、よりベントナイトのアルカリ変質が顕著な、pH11 を超える高アルカリ条件での“Active Type”のナチュラルアナログ候補サイトを特定するために、平成 26 年度に予察調査[34]を実施した結果、パラワン島中部において pH11 を超えるアルカリ湧水を複数地点で確認した。この結果を踏まえ、平成 27 年度よりナチュラルアナログ調査として高アルカリ地下水がベントナイトもしくはスメクタイト質粘土層が浸出しているナチュラルアナログサイトの探査を開始した。

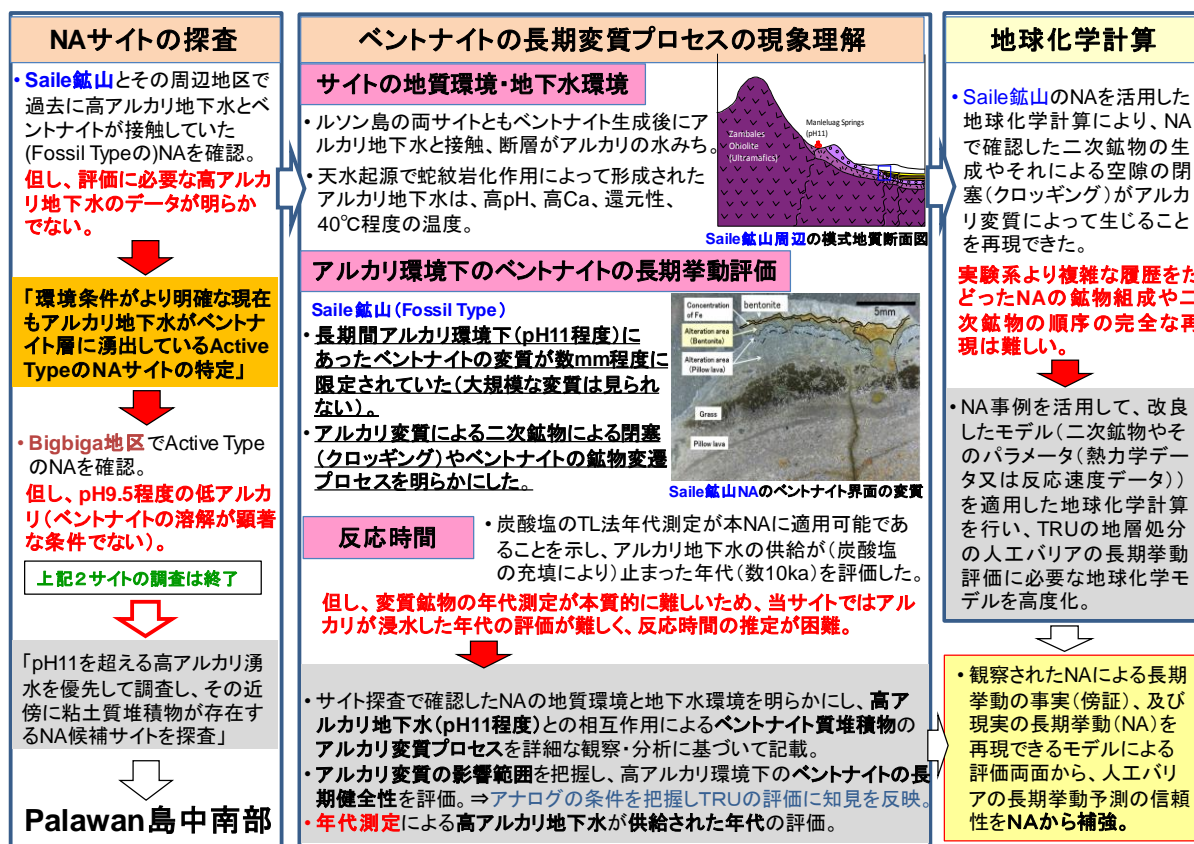


図 1.3.3-1 中間評価時点でのナチュラルアナログ調査で得られた成果と今後の成果目標

## (2) ナチュラルアナログサイトの探査

pH11 程度の高アルカリ地下水がスメクタイトを含有する粘土質堆積物中に直接浸水している Active Type のナチュラルアナログを探査・選定することを目的として、pH11 を超えるアルカリ湧水を複数地点で確認したパラワン島中央部の東部沿岸域に位置するナラ(Narra)地区(図 1.3.3-2 参照)を中心に、平成地質概査、高アルカリ地下水の水理地質学的調査や地球化学的調査およびトレンチ調査などを実施した。

石灰華(Travertine)の平坦地となっている Narra3-2 周辺を対象として露頭調査を行い、2カ所のトレンチ(トレンチ1: Narra3-2 の平坦地に注ぐ河川の比較的上流域周辺、トレンチ2: トレンチ1の下流の地形が落ち込んだ先の石灰華の堆積する場所)掘削地点を選定し、トレンチ調査を実施した。

トレンチ2においては粘土質の碎屑性堆積物を確認した。2ヶ所のトレンチ壁面の浸出水は、pH11 を超える高アルカリ地下水で流量が多い。また、トレンチ2の碎屑性堆積物ではXRDによる鉱物分析からスメクタイトが同定されことから、pH11 を超える高アルカリ地下水が現在もスメクタイトを含む粘土質堆積物に浸出している Active Type のナチュラルアナログといえる露頭を平成27年度の調査で初めて確認した[35]。

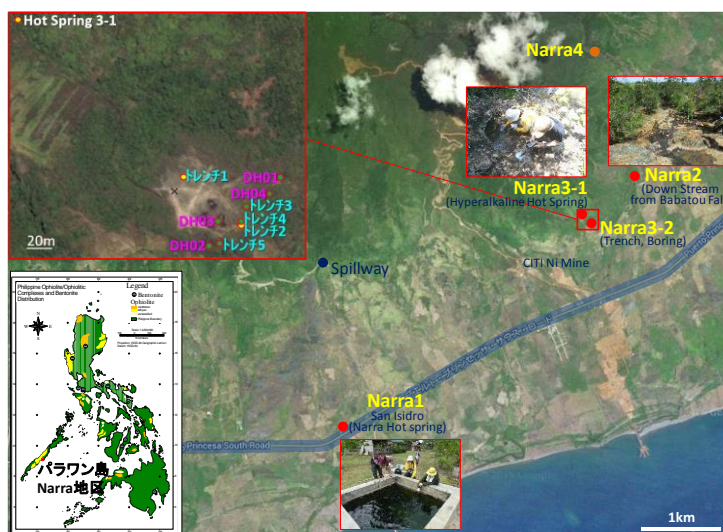


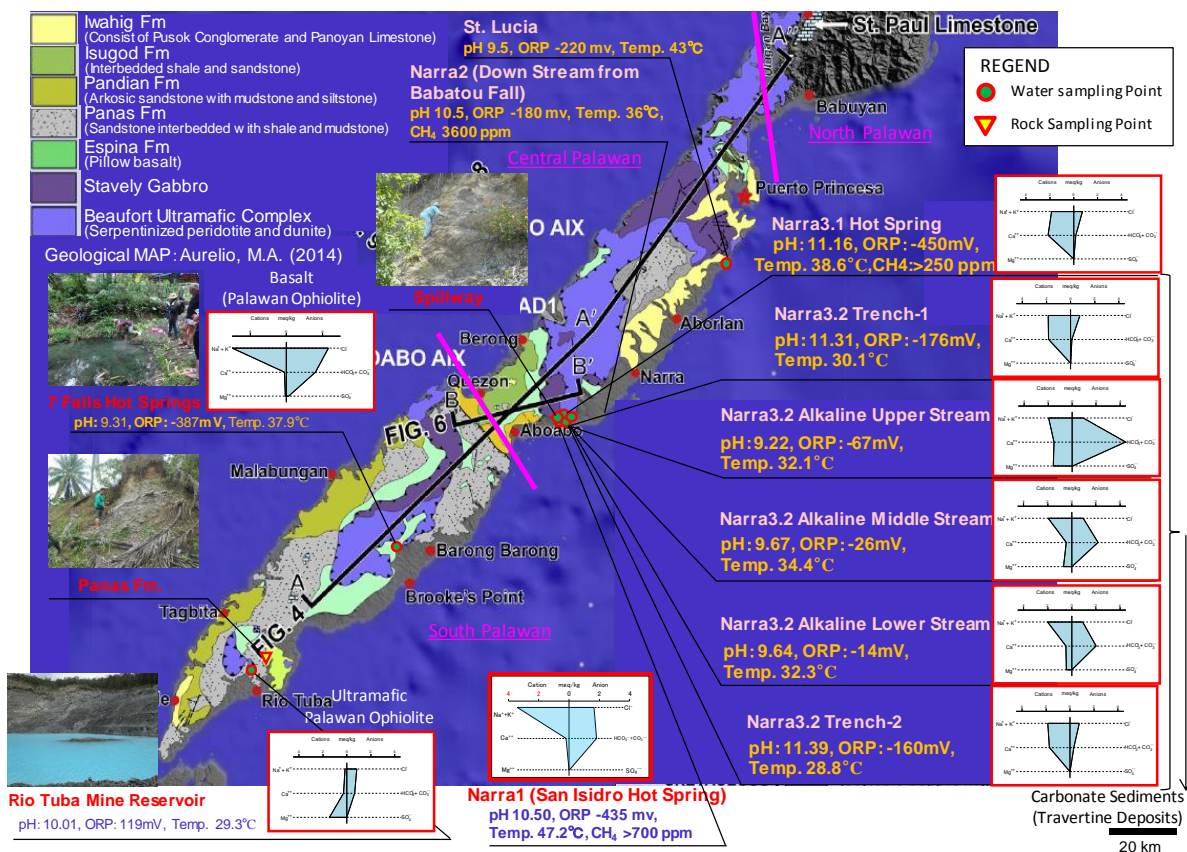
図 1.3.3-2 ナチュラルアナログ調査サイト (Narra 地区) の位置図

## (3) パラワン島のオフィオライトとアルカリ地下水の地球化学的挙動

中央/南部パラワン地域の地質図とフィールド調査のルート MAP 及び地下水調査結果を図 1.3.2-9 に示す。オフィオライト中の断層または亀裂に伴う高 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 St. Lucia (セントルシア)温泉)確認した(図 1.3.2-10)。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  $\text{Mg}^{2+}$ 濃度が低く、 $\text{Ca}^{2+}$ 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(図 1.3.2-11~図 1.3.2-14)。また、

岩石・鉱物学的観点からも、パラワンオフィオライトが Zambales オフィオライトと比較してより塩基性であることは、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といえる。

Na<sup>+</sup>と Cl<sup>-</sup>濃度は明確に pH と負の相関を示すことから(図 1.3.2-11 及び図 1.3.2-14 参照)、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<sup>2+</sup>濃度と pH の正の相関はアルカリ地下水の形成過程で Ca<sup>2+</sup>により pH が上昇したためであり(図 1.3.2-12 参照)、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(図 1.3.2-13 参照)、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。また、Zambales オフィオライトのアルカリ地下水(Poonbato)との比較では、Ca<sup>2+</sup>より Na<sup>+</sup>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、オフィオライト基盤岩中で生成されたアルカリ地下水の組成は比較的近いものと推測される。



(黄色下三角：岩石試料採取地点、緑丸：採水地点)

図 1.3.3-3 中央/南部パラワン地域の地質図と調査地点の水質





(St. Lucia)



(Narra 2)

図 1.3.3-4 中央/南部パラワン地域の湧水地点での採水・水質測定

表 1.3.2-1 パラワンと Zambales(ルソン島北西部)のアルカリ地下水の地球化学的特性の比較

Site	Palawan Riotuba-Waterfall	Palawan Brooke's Point - 7 Falls	Palawan Narra -1	Palawan Narra -3.2 Trench2	Palawan Narra -3.2 Trench1	Palawan Narra - 3.1	Palawan Narra -3.1	Luzon Poonbato	Luzon Manleluag HSp. - MI	Luzon Bigbiga - Well-1	low alkali cement leachates (PNC 1997)**
採取年 Sample No.	2015 Riotuba Mine H	2015 7 Falls 1 H	2015 Narra 1 G	2015 Narra3-2 Trench2 H	2015 Narra3-2 Trench1 H	2015 Narra3-1 H	2014 Narra3-1 O	2010 PB-10-KWP-01	2011 MI-11-KWP-01	2014 P-22	1997
pH	10.01	9.31	10.50	11.39	11.31	11.16	11.11	11.62	10.84	9.52	11.09
ORP(Eh) [mV]	119	-387	-435	-160	-176	-450	-460	27.6	-662	8	-
Temp [°C]	29.3	37.9	47.2	28.8	30.3	38.6	38.8	27.6	34.1	29.2	60
CH <sub>4</sub> [ppm]	0	0	>700	0	0	0	0	>5000	>5000	0 (0-560)	-
H <sub>2</sub> [ppm]	0	0	0	0	0	0	0	50-1320	62	0 (0-130)	-
Na <sup>+</sup> [ppm]	2.53	137	96.4	41.6	41.5	41.5	53.6	23.6	1.58	100.6	43
K <sup>+</sup> [ppm]	1.41	4.13	1.46	2.80	2.86	2.82	2.68	6.85	0.28	1.05	13
Ca <sup>2+</sup> [ppm]	5.50	4.26	3.78	34.9	37.1	43.6	41.9	37.4	23.6	1.34	16.8
Mg <sup>2+</sup> [ppm]	17.9	1.42	0.17	0.12	0.13	0.12	0.20	0	0.17	0.06	-
Si <sup>2+</sup> [ppm]	0.02	33	86.4	1.0	0.4	0.6	0.6	1.40	11.5	72.3	33
Al <sup>3+</sup> [ppm]	- (<0.01)	- (<0.01)	0.19	- (0.08)	- (0.01)	- (0.07)	0.16	0	20.3	0.01	0.3
Cl [ppm]	28.6	167	56.5	27.8	27.5	25.7	29.4	-	16.6	4.50	-
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> [ppm]	b.d.l.	12.4	6.34	b.d.l.	b.d.l.	b.d.l.	0.39	-	-	48.0	-
HCO <sub>3</sub> <sup>-*</sup> [ppm]	[41.08]	[198.7]	-	[19.7]	[6.297]	[10.16]	0.5	124.1	73.5	135.6	-

\*[]の値はHCO<sub>3</sub><sup>-</sup> + CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>, \*\* wt % - ポルトランドセメント:シリカフェーム:フライアッシュ=40:20:40

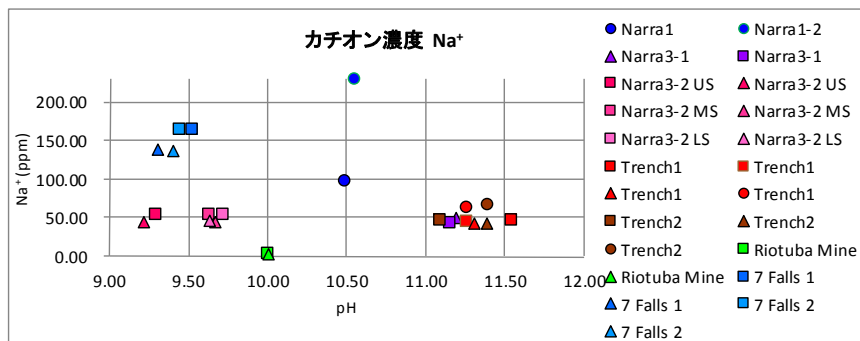


図 1.3.3-5 パラワンのアルカリ湧水の pH-Na<sup>+</sup>濃度関係図

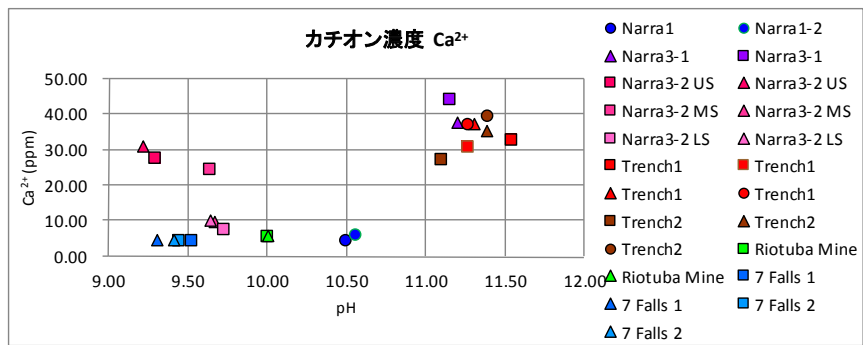


図 1.3.3-6 パラワンのアルカリ湧水の pH-Ca<sup>2+</sup>濃度関係図

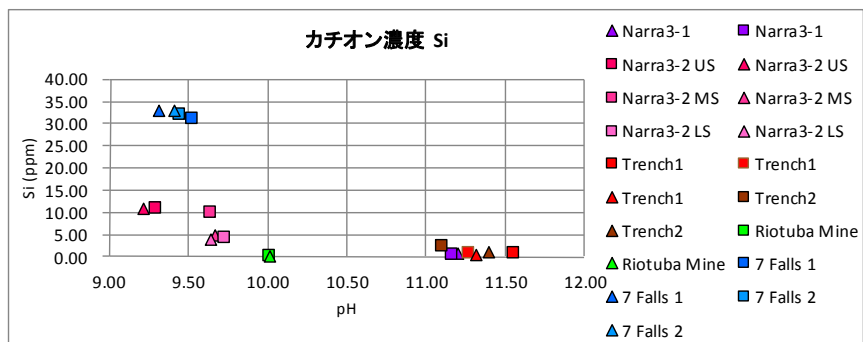


図 1.3.3-7 パラワンのアルカリ湧水の pH-Si 濃度関係図

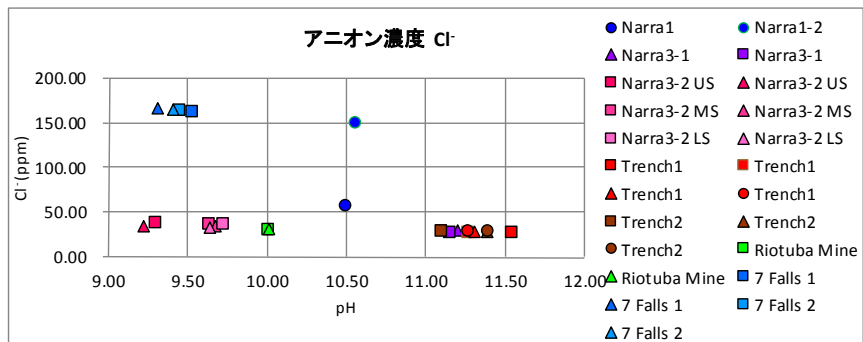


図 1.3.3-8 パラワンのアルカリ湧水の pH-Cl濃度関係図

ナチュラルアナログを確認した Narra3 地点では、図 1.3.3-9 に示すように Narra3-2 地点のトレンチの浸透水は Narra3-1 地点の源泉とほぼ水質が同じであり、一方、表層水と混合しているとみられるアルカリ河川水とは水質が異なる。このことから、Narra3-2 トレンチの浸出水は Narra3-1 地点の源泉の地下水がトラバーチン（石灰華<炭酸塩層>）の上部から下部へ浸透したのではなく、高アルカリ地下水が湧出するオフィオライトの亀裂のチャンネルいくつか存在し、そこからの高アルカリ地下水が炭酸塩層の下位の粘土質の碎屑性堆積物に浸透しているものと考えられる。上面からの降雨水等の浸透を抑制されているのは、炭酸塩鉱物の縞状構造の形成（透水性が高い層と低い層の成層構造）に伴う固化プロセスにおける続成作用によ

り、炭酸塩岩が深くなるほど熟成され、緻密で割れ目が少なく組織的に安定していくため、炭酸塩質堆積物が不透水層となっているためだと考えられる。

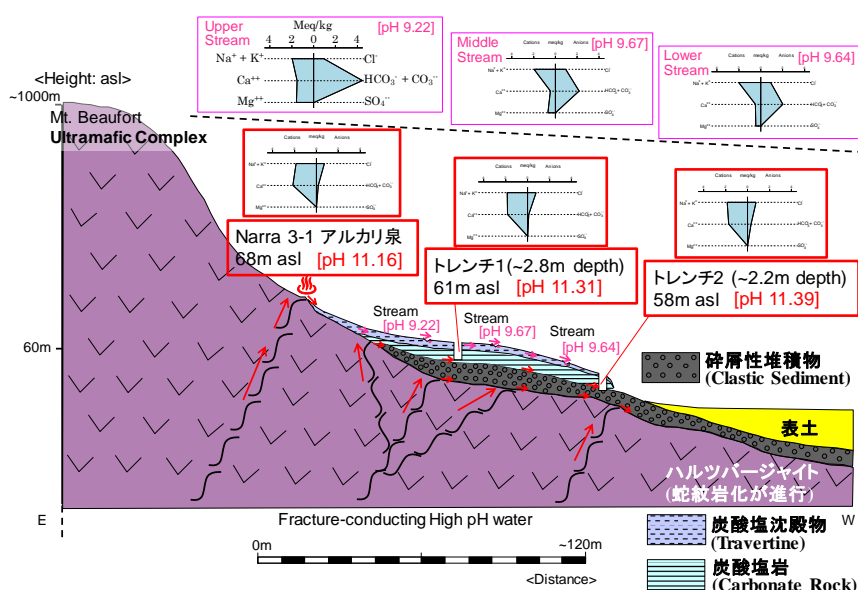


図 1.3.3-9 ナチュラルアナログサイト（Narra 地区）の模式層序学的断面図と地下水水質

#### (4) ナチュラルアナログサイト（パラワン島 Narra 地区）の地質環境調査

パラワン島 Narra 地区（図 1.3.3-2 参照）において、スメクタイトを含有する碎屑性堆積物の分布とその地質構造や高アルカリ地下水流動等を把握することを目的とした試錐調査、アルカリ環境下でのスメクタイトの生成や安定性に関わる現象を直接観察・分析するための試料採取を目的としたトレンチ調査を実施した。

試錐調査から、パラワンオフィオライトの基盤深度は現地形、特に、古河川系に規制された地形面起伏の谷様窪み（凹部）に支配されており、基盤深度の大きなところでは碎屑性堆積物が厚く堆積し、下部層の層厚が厚く、局所的ではあるが黒色の粘土化が顕著である。これは堆積環境での間隙水との変質反応などによる粘土化のためだと考えられる（図 1.3.3-10 地質断面図参照）。

地下水環境については、高アルカリ源泉（Narra3-1）の南東約 100m 下流側に分布する石灰華(Travertine)の平坦地となっている Narra3-2 地点で調査したすべての試錐孔及びトレンチにおいて、pH11 を超える高アルカリ地下水が浸出している碎屑性堆積物を確認したことから、炭酸塩沈殿物の見られる Narra3-2 調査サイト全域に高アルカリ地下水が流動していることが考えられる（図 1.3.3-10 地下水特性参照）。

トレンチ調査から、いずれのトレンチでも碎屑性堆積物の上部層は石灰華起源の炭酸塩沈殿物、下部層は、黒色（還元環境を示す）の碎屑性堆積物で構成され、全体的には碎屑性堆積物の上位は砂質で、下位は泥質である。また、トレンチ 4 及び 5 では、平原に形成された河川系

の谷を埋めた沿岸域の層内礫層とみられる礫岩層が局部的にみられた。

XRDによる鉱物分析では、粘土化しているトレンチ及び試錐孔の試料からはほぼすべてで、スメクタイトの明瞭なピーク（定方位 XRD パターンのエチレングリコール(EG)処理後のピークシフト）を示した。偏光顕微鏡観察でもすべてのトレンチの碎屑性堆積物で（泥質部砂質部とも）スメクタイトが同定された。不定方位 XRD の 060 面のピーク形状から、Narra3-2 地点で採取した試料中に含まれるスメクタイトは、概ね 3 八面体型であるサポナイトが主であると考えられるが、トレンチ 5（及び DH-2 孔）付近においては、2 八面体型であるノントロナイトが含まれる傾向にあった。

XRF 分析に基づく粘土鉱物生成環境に係る岩石化学的特性から、大部分の試料は、パラワンオフィオライト超苦鉄質複合岩体を構成するハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物のため、原岩のバルク組成を反映して、MgO に富み、CaO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に著しく乏しく、Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O にも乏しい。さらに、シリカ成分(SiO<sub>2</sub>)に乏しい不飽和な超塩基性岩としての特性がある。これらのことを総合すると、碎屑性堆積物はパラワンオフィオライト超苦鉄質複合岩体が定置後、比較的表面部が風化・浸食・運搬され沈積した現地性の碎屑物であること推察される。ただし、トレンチ 5 及び試錐孔(DH-2)の試料は、他のトレンチ、試錐孔とは傾向が異なり、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub> 成分に富んでいる。このような差が生じた原因として、碎屑性堆積物中にみられる礫岩の化学組成の違いにより、碎屑性堆積物のバルク化学組成の違いに影響を与えたことが考えられる。トレンチ 5 の礫岩はその鉱物組成から斑れい岩由来であると見られ、そこに多く存在する斜長石から Al が供給されたとみられる。

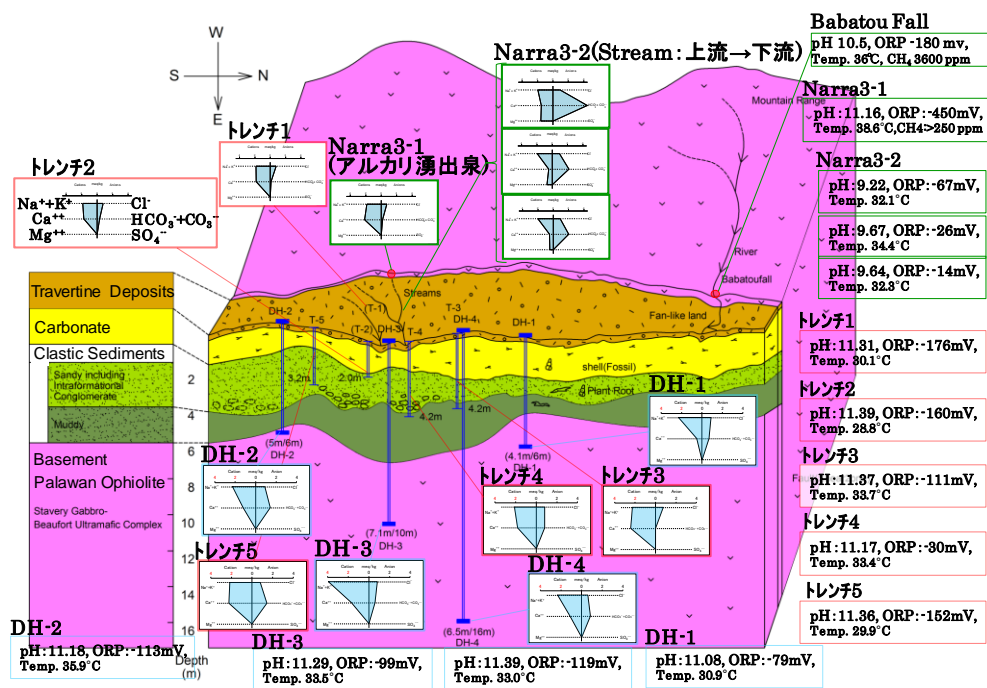


図 1.3.3-10 Narra 地区の地質断面概念図（平成 28 年度時点）と地下水特性

## (5) 年代測定による反応時間の評価

パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログサイトにおいて、高アルカリ地下水が湧出した初期の年代がわかれば、反応時間の最小値として時間スケールを評価することが可能である。ナチュラルアナログサイトである Narra3-2 地点のトレンチでは、アルカリ地下水によって生成・堆積した炭酸塩の年代にかかわる木片や貝殻見られ、放射性炭素年代法の適用が可能である。炭酸塩は放射性炭素年代法だけでなく熱ルミネッセンス年代測定法の適用可能性がある。また、碎屑性堆積物の堆積年代についても、堆積層中の木片、貝殻、土壌の放射性炭素年代測定から推測することが可能である。このような観点から、木片、貝殻、腐葉土、炭酸塩の放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) 年代測定を実施した。

各種試料の  $^{14}\text{C}$  年代測定結果から、トレンチの底部付近で採取した腐葉土（フミン酸・ヒューミン）が最も古い年代を示していることから、碎屑性堆積物に取り込まれた木片が、長い時間での十分な腐植作用のもと熟成し、土壌化した過程を示すものと考えられる。したがって、これらの放射性炭素年代値から、各トレンチにおいて木片の堆積層準（埋没深度）と時間との対応が整合的である。各トレンチの木片の  $^{14}\text{C}$  年代を比較すると、トレンチ 3 (4,669 $\pm$ 48 年)、トレンチ 1 (4,554 $\pm$ 82 年)、トレンチ 4 (3,681 $\pm$ 48 年)、トレンチ 5 (2,443 $\pm$ 46 年：図 1.3.3-11 参照)、トレンチ 2 (1,675 $\pm$ 82 年及び 1,363 $\pm$ 75 年) と各トレンチでばらつきがあり、オフィオライトの浸食・運搬・堆積過程が、これらの期間にわたり、断続的に生じていたことが考えられる。貝殻については、亜熱帯～熱帯の淡水～汽水産に広く分布するカワナノ貝殻であり、碎屑性堆積物から採取したトレンチ 3 の貝殻は 5203 $\pm$ 62 年、であった。基盤岩との境界付近の炭酸塩中から採取したトレンチ 4 の貝殻は 3725 $\pm$ 48 年、トレンチ 5 の貝殻は 2,401 $\pm$ 46 年（図-3 参照）であった。ただし、トレンチ 4 及び 5 の炭酸塩中の貝殻の年代は碎屑性堆積物中のそれぞれの木片の年代と大差は見られなかった。また、腐葉土については、トレンチ 3 (9,939 $\pm$ 58 年：フミン酸、9,721 $\pm$ 57 年：ヒューミン)、トレンチ 5 (9,587 $\pm$ 56 年：フミン酸（図 1.3.3-11 参照）、9,647 $\pm$ 56 年：ヒューミン)、トレンチ 2 (2,368 $\pm$ 77 年：フミン酸、2,413 $\pm$ 82 年：ヒューミン) であり、超塩基性岩を起源とする碎屑物は古いもので堆積してから約 1 万年程度は経過しているものと推測される。

炭酸塩については、アルカリ地下水から方解石が形成されたものが主と考えられるため、アルカリ地下水との接触期間と最も直結する年代と考えられる。炭酸塩鉱物の  $^{14}\text{C}$  年代は 1,965 $\pm$ 46 年であった（図 1.3.3-11 参照）。このことから、高アルカリ地下水が少なくとも 2,000 年程度は碎屑性堆積物に浸出し、その期間アルカリとの相互作用が続いていると考えられる。

一方、Narra のトレンチの炭酸塩試料について、合成方解石による熱ルミネッセンス (Thermoluminescence: TL) 特性に係る試験から年代評価に係る年間線量計算の関係式の改良を加えて、SARA 法による熱ルミネッセンス年代評価を適用した結果、炭酸塩試料は主として方解石であるが、微量の貝化石の混入しているため、その発光曲線はアラゴナイト（サンゴ）の標準試料と類似していることが明らかになった。アラゴナイトは一度熱ルミネッセンス測定を経ると方解石へ変化しそのために人工放射線をあてて測定すると発光曲線は方解石と同様の発光曲線を示すようになる。この鉱物種の変化のため、適切な蓄積線量の決定ができなかつ



た。

パラワンのNAでは、アルカリ地下水との反応時間の観点から、炭酸塩の生成年代である炭酸塩鉱物の $^{14}\text{C}$ 年代として $1965 \pm 46$ 年、というのが直接評価された最も重要な年代データである。ただし、蛇紋岩化作用による高アルカリ地下水の生成環境を考えると、さらに古い時代からアルカリ地下水が浸出していたと考えることもでき、さらに炭酸塩試料を中心に幅広く年代測定を実施して、反応した時間スケールを評価することが残された課題である。



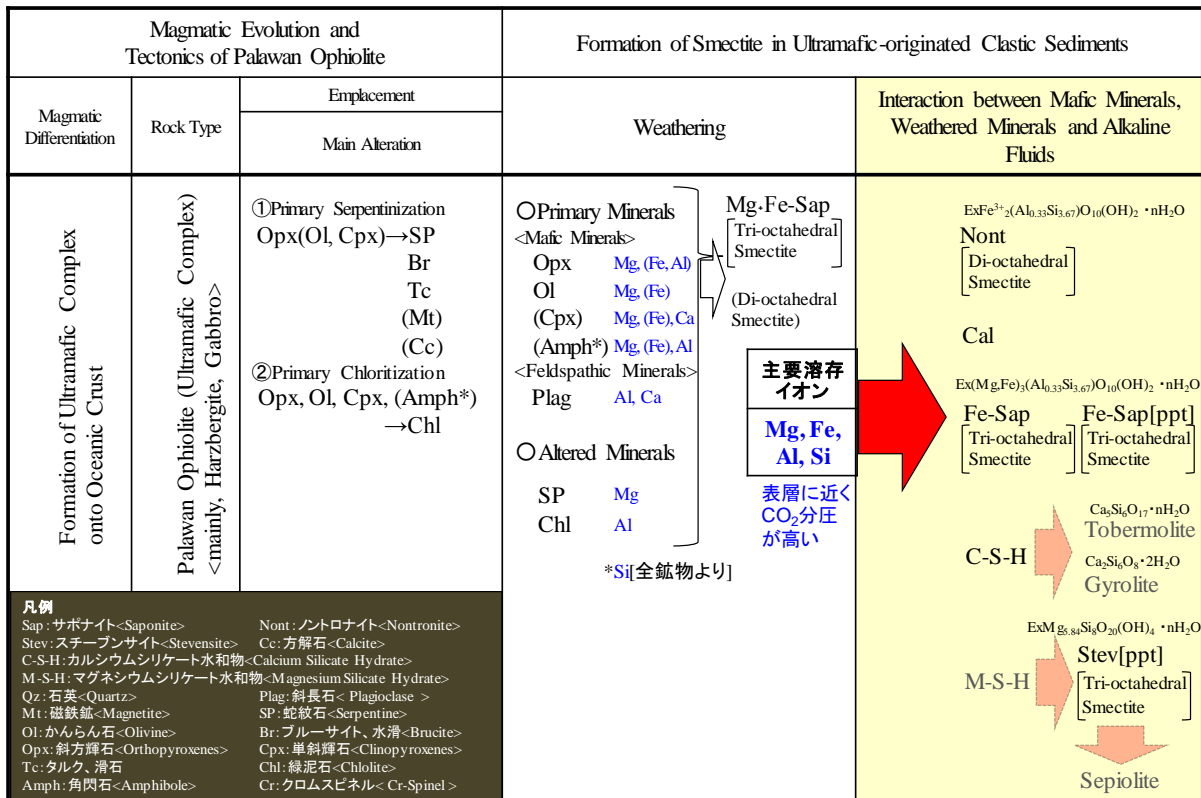
図 1.3.3-11 Narra 地区トレンチ 5 の $^{14}\text{C}$ 年代測定結果

#### (6) アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセス

Narra 地区のアルカリ環境下の4か所のトレンチの粘土化した碎屑性堆積物から採取した試料のEPMA分析の結果、スメクタイトの産状としては、斜方輝石・かんらん石の蛇紋石化作用により形成された蛇紋石や、それを部分的（蛇紋石縁・微小な割れ目・へき開など）に交代して生成した緑泥石の反応縁を交代・置換したものと、苦鉄質鉱物の粒間やマトリックスを充填して存在するものがある。ここでのスメクタイトは、3八面体型サポナイト（Feサポナイトも含む）とスチープンサイトおよび2八面体型ノントロナイトである。総合的にスメクタイトの形成・進展を考察すると、マスバランス的には、風化段階では苦鉄質鉱物（斜方輝石・かんらん石・単斜輝石・角閃石など）と少量な斜長石および、変質鉱物（蛇紋石・緑泥石）からのMg-Si-(Fe)-(Ca)-(Al)の供給により3八面体型Mg-(Fe)サポナイトと2八面体型スメクタイトが形成され、その後、アルカリ地下水環境下での反応で、Feサポナイトとノントロナイトおよび、スチープンサイトが形成されたものと示唆される。また、鉱物組成的には、アルミナ成分の少ない碎屑性堆積物ではAl成分に乏しいスチープンサイトと、Mg成分に富み、Al成分に乏しいサポナイトが形成され、比較的にアルミナ成分に富む、例えば、トレンチ5の場合は、Feサポナイトとノントロナイトが観察・同定されており、これらの傾向はXRDの結果と整合

している。

バルク分析を含むこれまでの分析・観察結果から、これまでに明らかになった、Narra 地区のス멕タイトの形成・進展プロセスに係る鉱物変遷プロセスを図 1.3.3-12 にまとめる。ス멕タイト生成については、風化プロセスにおける、苦鉄質鉱物の交代・置換による、①3 八面体型 Mg-(Fe)サポナイト (Mg 成分に富み Al 成分に乏しいサポナイト)、②2 八面体ス멕タイトの生成と、アルカリ地下水環境下プロセスにおける、出発物質 (前駆鉱物と変質鉱物<蛇紋石、緑泥石>) の変質反応による③3 八面体型 Fe サポナイトの生成、溶液系の飽和状態のもと沈殿・結晶化した C-S-H または方解石と共生する (図 1.3.3-13 参照) 溶液系での新たな溶解・沈殿反応により形成された④ス멕タイト (ゲル状: Ca-Si-Al に富むサポナイト及びノントロナイト)、溶液系(M-S-H)から沈殿・結晶化した⑤スチーブンサイト (Mg 成分に富み Al 成分に乏しいスチーブンサイト) か、前駆鉱物 (蛇紋石) からの変換によるスチーブンサイトの形成があったとみられる。これらのス멕タイトの主要な変質反応プロセスは、前駆鉱物 (主に苦鉄質鉱物) の構造を保存して、(i)層間陽イオン交換と層間物質の吸着・固定による交代・置換反応と、(ii)既存鉱物 (ス멕タイト・変質鉱物も含む) の溶解・沈殿 (結晶化) 反応があり、アルカリ環境下での③、④と⑤のス멕タイト生成は、(ii)の反応による変質反応プロセスに支配されて、形成・進展したものと考えられる。



Amph\*: Pargasite, (Cummingtonite, Actinolite, Tremolite) ppt: precipitation

図 1.3.3-12 Narra 地区のス멕タイトの形成・進展に係る変質プロセス

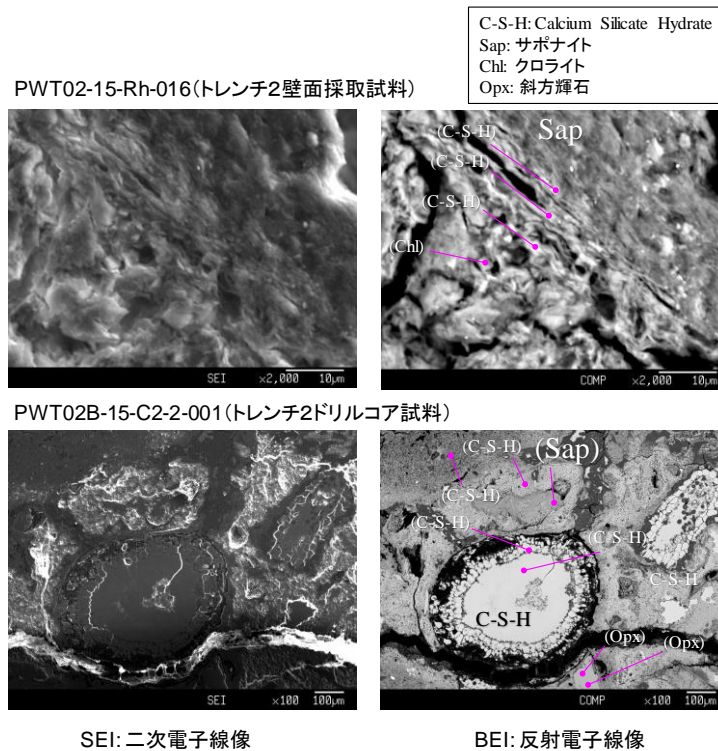


図 1.3.3-13 C-S-H と共生する鉄サポナイトの産状

TRU 廃棄物の地層処分場でのベントナイト-セメント相互作用による変質過程でのもっと重要な反応は、スメクタイト (2 八面体型のモンモリロナイト) と高アルカリ溶液との相互作用、特に、高アルカリによるスメクタイトの溶解である。一方で、アルカリ環境は天然ではスメクタイトを生成する環境でもあり、Narra 地区の調査サイトにおいても、まさにアルカリ溶液から沈殿・成長したスメクタイトが観察されている。したがって、Narra 地区の変質プロセスにおいて NA となる現象は、以下の 2 つである。

- I. 風化作用等により形成した 3 八面体型スメクタイトのアルカリ環境下での変質反応と安定性
- II. アルカリ溶液から、C-S-H 沈殿相 (あるいは炭酸塩) と共存するスメクタイトの形成とその地球化学的環境条件

ルソン島の Saile 鉱山でのアルカリ変質プロセスと現状までの知見で得られたパラワン島 Narra 地区の NA との比較で考察すると、Saile 鉱山でまず着目されるのは、モンモリロナイトを含むスメクタイトのアルカリ変質反応において、Fe イオンの影響を強く受け、Fe を含むスメクタイト等の鉄粘土鉱物が二次鉱物として生成されることである。特に、Fe-サポナイト等の鉄を含む 3 八面体型スメクタイトについては、Saile 鉱山では、Ca 型モンモリロナイトのアルカリ溶液への溶解・沈殿反応により、玄武岩ガラス等から供給される Fe<sup>2+</sup>を使って鉄サポナイトが生成している。一方、Narra 地区では、アルカリ溶液に超塩基性岩起源の碎屑物中の前駆鉱物 (初生苦鉄質鉱物と蛇紋石・緑泥石の変質鉱物) に溶解によって供給される Mg, Fe,

Al, Si が過飽和になり、C-S-H を伴って鉄サポナイトあるいはスチーブンサイトが生成している。すなわち、Narra 地区でのアルカリ溶液から鉄を含む 3 八面体型スメクタイトが生成するプロセスは、Saile 鉱山のプロセスと共通していることから、アルカリによってサポナイトのような 3 八面体型スメクタイトが生成するプロセスはベントナイト-アルカリ相互作用でも生じる可能性が高いと考えられる。

TRU 廃棄物の処分環境を考えた場合、高 pH での鉄の溶解度は低く、鉄筋コンクリートや鉄製容器のようなベントナイトと直接接していない部材からの鉄の供給によるアルカリ変質は、それほど顕著に起きないと想定できる。しかしながら、施工時には様々な鉄部材が処分場に持ち込まれ、施工時の酸化環境での鉄部材の影響が緩衝材に残ったり、あるいは海水環境における Fe, Mg の流入、コロイドによる流入等が生じたりすることが想定され、Narra 地区や Saile 鉱山でみられる Mg, Fe, Al, Si に過飽和なアルカリ溶液による変質反応が、TRU 廃棄物の地層処分場のベントナイト緩衝材においても生じる可能性は十分ある。

Narra 地区でみられる天然現象は、初生物質がベントナイトではないため、TRU 廃棄物処分場の人工バリアのシステムのアナログとは言えないが、処分環境と類似する環境でのベントナイトのアルカリ変質における主要な反応プロセスのナチュラルアナログと位置付けることができる。また、Saile 鉱山と合わせてフィリピンのナチュラルアナログとみれば、システムのナチュラルアナログとして提示することも可能である。

TRU 廃棄物の地層処分場における大量のセメント材によって形成される高アルカリ環境は、スメクタイト（モンモリロナイト）の溶解に伴うベントナイト緩衝材の機能低下・喪失を引き起こすマイナス要因である、一方で、スメクタイトの生成・安定性をもたらすプラスの要因であることがこの Narra 地区のアナログは示している。傍証という程度のナチュラルアナログとしてはこれでも十分かもしれないが、長期挙動の評価にナチュラルアナログを反映させるという意味においてのセーフティケースとして活用することを目指すためには、どのような環境条件でスメクタイトが生成し、安定に存在するのかを示せるようなデータを取得することが今後の課題である。

## 1.4 実施概要

平成 24 年度までの[20]、セメント浸出水のアナログとなる高アルカリ性（高 pH, 高 Ca 濃度, 還元性, 35~70°C 程度の）地下水と過去に接触していたこと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。

平成 25 年度から 5 カ年の予定で実施する本調査では、上記の成果を踏まえベントナイトまたはベントナイト層の主要粘土鉱物であるスメクタイトを含む堆積層に現在も高アルカリ地下水が浸出している Active Type のナチュラルアナログサイトを対象として、ナチュラルアナログ調査を実施して、高アルカリ地下水の影響範囲やスメクタ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、TRU 廃棄物の地層処分の人工バリアとして様々な機能が長期間期待されるベントナイト緩衝材の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段階から長期経過後までの状態変遷を明らかにするとともに、アルカリ変質反応に関わる鉱物等の年代測定により反応時間を評価する。また、ナチュラルアナログデータを活用して地球化学計算実施して、アルカリ環境下の鉱物変遷過程と閉塞（Clogging）現象及びその素反応の抑制・促進する条件を評価する。

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「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）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まとめた表 1.1.4-1 のナチュラルアナログ調査・研究の進め方に従い、本調査の全体計画を作成した。

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** のナチュラルアナログ（候補）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、ルソン島やパラワン島を候補地とした第 2 段階の調査候補地の選定から開始し、平成 28 年度[36]までに、高アルカリ地下水がスメクタイト質粘土層に浸出している **Active Type** のナチュラルアナログをパラワン島の Narra 地区で確認し、平成 28 年度から Narra 地区の調査サイトにおいて第 4 段階の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、環境条件に関する調査を実施している。

平成 29 年度は、引き続きパラワン島 Narra 地区を対象として、ベントナイトー高アルカリ地下水の相互作用に係るスメクタイトの生成、環境条件に関する詳細な調査を行う。一方、地球化学計算の検討では、フィリピンのナチュラルアナログデータを用いた地球化学計算を実施して、スメクタイトのアルカリ変質プロセスにおける鉄粘土鉱物の生成に着目した評価を行い、天然環



境における地球化学モデルのデータセットの検証と改良について検討する。図 1.4.1-1 に5カ年の全体計画を示す。

今年度の報告では、図 1.4.1-1 の全体計画に示した 3.高アルカリ地下水の地球化学的特性と地質環境条件と 4.ベントナイトの分布と鉱物学的特性と物理特性を合わせて「ナチュラルアナログサイトの地質環境調査」として第 2 章にまとめる。また、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の年代測定と地球化学計算については、「年代測定による反応時間の評価」、「地球化学シミュレーションモデルによる変質解析」としてそれぞれ第 3 章、第 5 章にまとめる。したがって、詳細鉱物分析に基づくアルカリ変質プロセスの記載を第 4 章の「アルカリ環境下での長期変質プロセスとナチュラルアナログ」にまとめる。

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 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
2. Activeな(現在も高アルカリ地下水が断層系に浸出しベントナイト層と接触している)ナチュラルアナログ(Natural Analogue: NA)サイトの探査	予察調査(地質調査、ガス放出調査、トレンチ調査、試験調査)	Bigbiga(Fishpond)地区 地質調査 物理探査 試験調査(鉱物分析)	Pinatubo地区 Palawan島地区 概査(鉱物分析)	Palawan島南部地区等 Palawan島中部(Narraとその周辺)地区 トレンチ調査(鉱物分析)	Palawan島南部(Narraとその周辺)地区 地質調査(鉱物分析)		アルカリ-鉄-緩衝材の長期挙動に関するNA化学変質とクロッキングに関するNA
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・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 アルカリ地下水の地球化学特性と流動特性	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 アルカリ地下水の地球化学特性と流動特性	
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(試験孔、トレンチ) バルク分析(XRD, XRF)、偏光顕微鏡観察 詳細鉱物分析(μ-XRD, EPMA, SEM等)	サンプリング(試験孔、トレンチ) スメクタイトの生成環境の評価	人工バリアの長期挙動評価をサポートするNA研究
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(Saite鉱山とその周辺における)長期変質プロセスの評価		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)	Palawan島Narra地区 トレンチ調査 詳細鉱物分析(μ-XRD, EPMA, SEM等)	試験調査 トレンチ調査 詳細鉱物分析(μ-XRD, EPMA, SEM等)	試験調査 トレンチ調査 詳細鉱物分析(μ-XRD, EPMA, SEM等)	NAIによる長期挙動評価のサポート(モデルの検証や長期プロセスの現象理解として) 一般への人工バリアの長期安全性説明のためのNA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)	△: 中間評価	Active Typeの露頭の確認(調査地点の選定)		TRUのセントーベントナイトのNAIとしての取りまとめ	△: 最終評価

※: 茶色はFossil Typeのサイト(Saite鉱山のNA)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 29 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 29 年度は以下の調査を実施した。

##### (1) 実施計画策定

平成 28 年度までの調査結果を踏まえ、pH11 を超える高アルカリ性地下水がスメクタイトを含有する碎屑性堆積物に浸出しているナチュラルアナログが確認されたフィリピン国パラワン島中部 Narra 地区とその周辺地域を対象（調査サイト）としたフィールド調査の平成 29 年度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、気象状況に対応可能な安全の確保と限定された時間でのフィールド調査の効率性を踏まえて検討した。

##### (2) ナチュラルアナログサイトの地質環境調査

pH11 を超える高アルカリ性地下水がベントナイトのアナログとなる碎屑性堆積物に浸出していることが確認されたパラワン島中部の Narra 地区において、平成 28 年度の調査結果に基づきトレンチ調査及びストリップング調査を実施した。現地での壁面観察や岩石（粘土）試料の鉱物・化学分析から、調査サイトでの碎屑性堆積物中のスメクタイトの分布と地質環境の変遷、高アルカリ地下水の影響範囲を評価した。

トレンチやアルカリ泉等の湧水から水試料を採取し、物理化学パラメータの計測を行った。さらに、溶存イオン濃度等の分析結果と計測した地下水パラメータから蛇紋岩化作用に伴う地下水の分布と地球化学的特性を評価した。

##### (3) 年代測定による反応時間の評価

調査サイトの高アルカリ地下水との反応時間を評価することを目的として、アルカリ変質反応に関わる高アルカリ地下水との反応で生成した炭酸塩の TL（熱ルミネッセンス）年代や堆積物に含まれる炭酸塩・植物等の  $^{14}\text{C}$  年代を評価した。

##### (4) アルカリ環境下でのベントナイトの長期変質プロセスとナチュラルアナログ

平成 28 年度[36]の Narra 地区での調査結果を踏まえ、調査サイトでトレンチ等を掘削し、碎屑性堆積物等の系統的サンプリングを実施する。採取した試料の顕微鏡観察・鉱物分析を行い、スメクタイトのアルカリ変質過程について評価した。これらの Narra 地区で得られた知見に基づき、TRU 廃棄物の地層処分場のベントナイト緩衝材のアルカリ変質プロセスのナチュラルアナログとして、アルカリ環境下のベントナイトの長期健全性について考察した。

##### (5) 地球化学シミュレーションモデルによる変質解析

フィリピンのナチュラルアナログ調査で得られたベントナイトー基盤岩接触部のデータを用いた地球化学計算を実施して、スメクタイトのアルカリ変質プロセスにおける鉄粘土鉱物の生成に着目した評価を行い、天然環境における地球化学モデルのデータセットの検証と改良に



ついて検討し、モデルの信頼性向上を図った。

(6) 5か年の成果のとりまとめ

5か年のナチュラルアナログ調査で得られた成果について、TRU 廃棄物の人工バリアシステムのどの現象のナチュラルアナログとして使えるか、という観点でとりまとめた。

なお、5か年のとりまとめについては、平成 29 年度高レベル放射性廃棄物等の地層処分に  
関する技術開発事業 TRU 廃棄物処理・処分技術高度化開発 平成 25 年度～29 年度取りま  
とめ報告書の第 4 章に記載した。

本年度の実施工程を図 1.4.2-1 に示す。現地調査は 6 月中旬に実施した。

実施項目	平成29年(2017)												平成30年(2018)		
	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	H29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地質・地下水環境 ②.1 地質調査 ②.2 トレンチ調査・壁面観察・サンプリング ②.3 鉱物組成・化学組成/地質構造評価 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	準備・関連情報の収集 概査 (Palawan島Narra地区等) トレンチ調査 (Palawan島Narra地区) バルク鉱物分析・化学分析 (XRD, XRF)・薄片観察 湧水等の採水・物理化学パラメータの計測 溶存イオン濃度分析 スメクタイトの定量評価と地質構造の評価 高アルカリ地下水の地球化学特性と流動特性の評価 データ取りまとめ														
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 ③.1 詳細鉱物分析 ③.2 長期アルカリ変質プロセスの評価 ③.3 地球化学計算 ③.4 年代測定	サンプルング 年代測定用試料のサンプリング 詳細分析 (EPMA等) による詳細観察・分析 長期アルカリ変質プロセスの評価 NA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 方解石TL特性の評価とTL年代測定 炭化物のC14年代測定 アルカリ地下水との反応時間の評価														
④5か年の成果のとりまとめ	TRUのセメントーベントナイトのNAとしての成果の取りまとめ														
⑤委員会 △:委員会による決定、レビュー等	△ 第1回委員会 (実施計画の評価) △ 第2回委員会 (中間評価) △ 第3回委員会 (最終評価)														
⑥報告書作成	報告書ドラフト作成 修正 5か年の成果報告書作成														

図 1.4.2-1 平成 29 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] (公財) 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).
- [34] (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 26 年度地層処分技術調査等事業 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- (2015). TRU
- [35] (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 27 年度地層処分技術調査等事業 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- (2016). TRU
- [36] (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 28 年度地層処分技術調査等事業 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- (2017). TRU



## 第2章 ナチュラルアナログサイトの地質環境調査

### 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として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。そのためには、既存鉱物（モンモリロナイト等）の溶解現象（溶解プロセス・溶解速度など）、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・成長を理解することが必要である。

本事業で実施するナチュラルアナログ調査の目的は、自然界で現在アルカリ地下水が直接ベントナイトあるいはスメクタイトを含む堆積物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。

この Active Type のナチュラルアナログが成立するために、①pH 11 程度の高アルカリ地下水の存在、②ベントナイト層またはスメクタイトに富む粘土質堆積物の存在 ③アルカリ地下水の流路となり得るオフィオライト基盤岩中の断層・亀裂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、という三位一体の要件が必要不可欠であり、特に①pH 11 程度の高アルカリ地下水の存在の条件を最重視して、Zambales オフィオライトの西端の Bigbiga 地区、Pinatubo 地区、Zambales オフィオライト東南端（Pinatubo 火山泥流帯）及びパラワン（パラワン）オフィオライト（中央／南部パラワン地域）を対象としてナチュラルアナログサイトの探査を実施してきた結果、パラワン島中央部の東部沿岸域に位置する Narra 地区において、pH11 の高アルカリ地下水が現在もスメクタイトを含む粘土質堆積物に浸出している Active Type のナチュラルアナログといえる露頭を確認した[1]。

スメクタイトの生成・鉱物学的変遷などについては、2つの地球化学的な形成環境（場）とその状態変化が確認されている。その相違は、スメクタイトの生成とその後の鉱物学的変化が、アルカリ地下水との相互作用に支配されているか否かである。具体的には、碎屑性堆積物中のスメクタイトの生成・鉱物学的変遷などについては、①物理的風化環境にあるものと、②アルカリ地下水との相互作用にある地球化学的環境状態にあるものとに区分できることである。また、これらの異なる地球化学的環境における鉱物学的変遷を考察する上で重要な視点は、スメクタイトの地球化学的な生成環境とその状態変化に伴う鉱物学的変化が、低温型の蛇紋岩化作用と密接に関与しているということである。

今年度の地質環境調査の目的は、碎屑性堆積物中で同定されたスメクタイトの地球化学的な形成環境および、その後の地球化学的な状態変化に伴う変質反応によるスメクタイトの鉱物学的変遷を理解する上で必要な地質環境を考察するためのフィールドデータを取得することである。

## 2.2 フィリピン国における現地調査と試料分析の概要

### 2.2.1 調査工程

平成 28 年度[2]までの調査結果を踏まえ、オフィオライト起源の高アルカリ地下水が現在もスメクタイトを含む碎屑性堆積物に浸出している Active Type のナチュラルアナログを確認した Narra 地区において、スメクタイトの生成についてアルカリ地下水との相互作用かアルカリ地下水を介しない風化によるものとの差を明らかにするため、アルカリ影響を受けていない露頭及びアルカリ環境下にある平原 (Narra3-2 サイト) におけるトレンチ調査、ストリッピング調査、その周辺地域も対象とした地下水調査及び概査を実施した。

調査期間は、表 2.2.1-1 に示すように、平成 29 年 6 月 4 日 (日) から 6 月 17 日 (土) までの 14 日間である。

表 2.2.1-1 現地調査の工程

月日		実施内容	宿泊先
2017 年 6 月 4 日	日	東京→Manila→ Puerto Princesa (プエルトプリンセサ) 着	Puerto Princesa 泊
2017 年 6 月 5 日	月	移動: Puerto Princesa → Narra ・地質調査 (トレンチ 6~8 調査地点の選定)	Narra 泊
2017 年 6 月 6 日	火	・地質調査 (アクセス道路沿い露頭調査) ・トレンチ 6~7 調査地点の選定 ・トレンチ 5 排水~地下水調査	
2017 年 6 月 7 日	水	・地質調査 (アクセス道路沿い表層ストリッピング調査位置 (ストリッピング 1~3) の選定) ・トレンチ 5 復水確認	
2017 年 6 月 8 日	木	・ストリッピング 1~3 掘削、壁面観察~試料採取 ・トレンチ 6 掘削	
2017 年 6 月 9 日	金	・トレンチ 6 整形、壁面観察~試料採取 ・トレンチ 7 掘削 ・トレンチ 8 調査地点の選定~掘削	
2017 年 6 月 10 日	土	・トレンチ 7 排水、壁面観察~試料採取	
2017 年 6 月 11 日	日	・トレンチ 8 底面清掃、壁面観察~試料採取	
2017 年 6 月 12 日	月	・地質調査 (Babatou 滝→上流の Micro Gabaro の露頭を確認した地点)	
2017 年 6 月 13 日	火	・試料整理、パッキング	
2017 年 6 月 14 日	水	移動: Narra→北パラワン	
2017 年 6 月 15 日	木	・北パラワン露頭調査	
2017 年 6 月 16 日	金	移動: 北パラワン→Puerto Princesa→Manila	Manila 泊
2017 年 6 月 17 日	土	移動: Manila→東京	

## 2.2.2 フィールド調査

### (1) 調査概要

今年度の調査では、パラワン島中部の Narra 地区の基盤岩である Palawan Ultramafic Complex (パラワン超苦鉄質複合岩体またはパラワンオフィオライト) が物理的な風化作用によるスメクタイトの形成とその後の破壊—破片化(角礫化・粗粒化・細粒化)—運搬—堆積過程を経て形成された碎屑性堆積物中でのアルカリ地下水との相互作用に伴うアルカリ変質反応によるスメクタイトの形成及び鉱物学的変遷を理解することを主要な目的としている。

Narra 地区のナチュラルアナログサイトにおける碎屑性堆積物中のスメクタイトの形成については、①主に物理的風化過程によるものと、②アルカリ地下水との相互作用による溶解・沈殿反応によるものと考えられる。そこで、①アルカリ影響を受けていない露頭での(ストリップングあるいはトレンチによる)露頭観察と試料採取、②アルカリ環境下にある平原でのトレンチによる試料採取と地下水の採取・現位置測定に加え、Narra 地区のオフィオライト帯及びそれと異なる大陸性の岩体で構成されるパラワン島北部の地質調査を実施した。

調査地点の位置図と地形図をそれぞれ図 2.2.2-1、図 2.2.2-2 に示す。

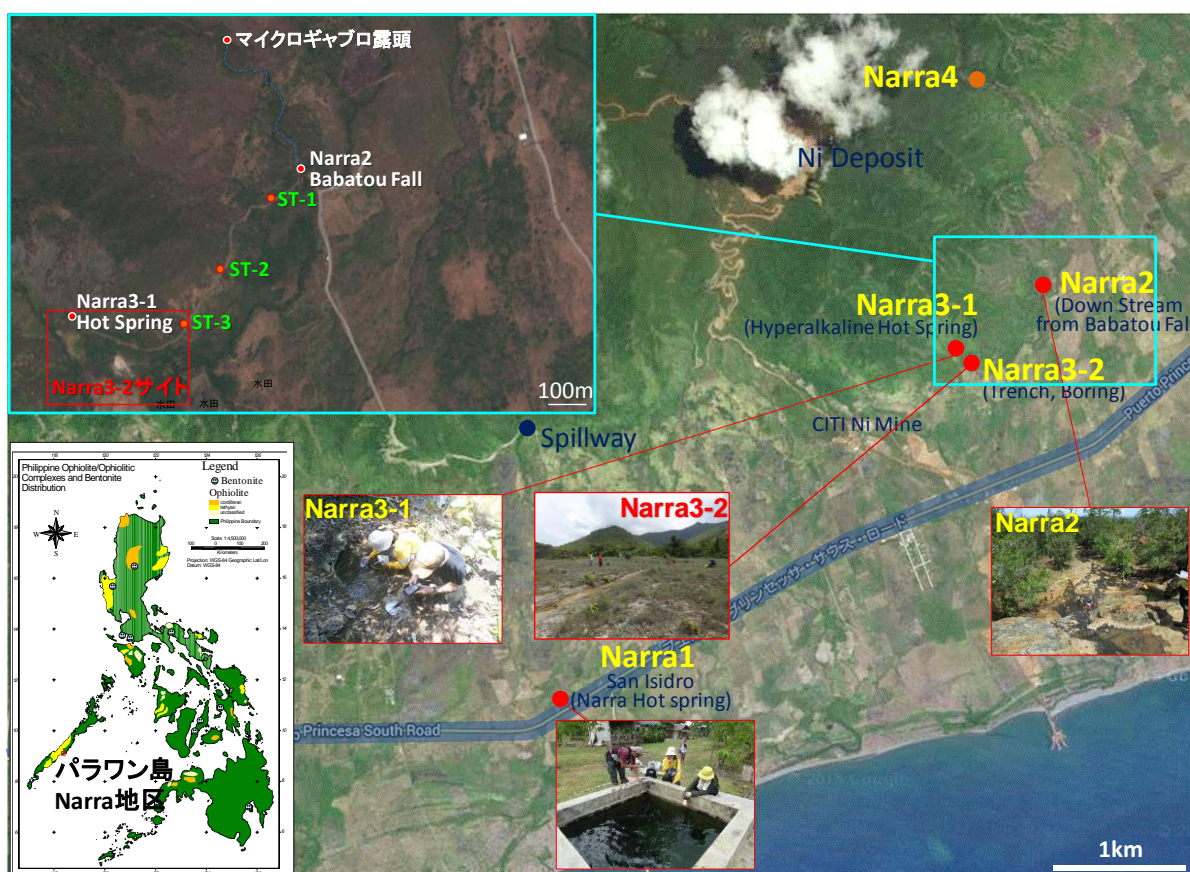


図 2.2.2-1 Narra 地区の調査地点





図 2.2.2-2 Narra3-2 サイトのトレンチ及び試錐調査地点

(2) アルカリ影響を受けていないサイトでのストリッピング調査及びトレンチ調査（ストリッピング 1~3 及びトレンチ 8）

物理的（機械的）な風化作用によるスメクタイトの形成について、それがみられる風化した岩石試料の岩相、岩質、堆積構造、変質特性や主要構成鉱物の鉱物組み合わせ・化学組成・組織を把握し、アルカリによるスメクタイト生成との量比や特徴の違いを明らかにすることを目的として、Narra 地区のアルカリ影響を受けていない地点において、ストリッピング調査及びトレンチ調査を実施した。調査の実施工程を表 2.2.2-1 に示す。

1) ストリッピング掘削地点の選定

物理的風化環境下で生成されたスメクタイトの鉱物学的変遷を考察するために、明らかにアルカリ地下水との相互作用の影響を受けていない碎屑性堆積物を対象に、ストリッピングサイト（剥ぎ取り露頭）を選定した。

サイト選定については、パラワンオフィオライト基盤岩直上に、アルカリ地下水の湧水証拠となるいかなるトラバーチン沈殿物が伴わないことと、近傍に産状しないことが選定に係わる地質環境の最優先条件とした。このような地質環境条件が期待されるサイト選定調査地として、Babadou 滝から Narra サイトのトレンチサイト(Narra3-2)の脇を経由してアルカリ湧水資源(Narra 3-1)に至る新設アクセス道（約 1km）沿いに露出しているパラワンオフィオライト基盤岩を直接被覆する物理的風化環境で形成された碎屑性堆積物（一部岩屑様堆積物）



を対象に地質精査（ルートマッピング）を実施した。

当ルートでの基盤岩は比較的良好に露出しており、一様に弱い蛇紋岩化作用を受けた殆どがハルツバージャイトであるが、一部、層状なかんらん岩や、小規模な貫入岩（岩脈）として細粒の班れい岩（輝緑岩）が観察される。これらのパラワン超苦鉄質岩石の一部が、トレンチ内の礫として取り込まれたものと解釈できる。

基盤岩の最上位は、薄い腐蝕土を含む土壌から構成されている。その下位の基盤岩は角礫化（岩屑化）が進み、一部粘土化が観察される。但し、南西部にある Ni 鉱床の母層である顕著なラテライト化は観察されない。また、表層部の一部に恐らく降雨水と大気酸化により生成された鉄水酸化鉱物の沈積のために淡褐色を呈している。

また、パラワン超塩基性複合岩体の定置か、岩体の冷却過程で形成されたものかは明らかではないが、節理（岩体の延長方向である北東系のものが優勢）と北東系優勢の断裂系や割れ目が発達している。場所によっては炭酸塩鉱物が充填している。これらの割れ目系に支配され、必ずトラバーチン沈殿物が随伴する断裂型アルカリ湧水は、北西－南東系の断裂系または割れ目に多く観察される。これらのアルカリ湧水を伴う割れ目系の方向が複合岩体の延長方向とほぼ直交関係にあるのは興味深く、アルカリ湧水の生成・進化・流動系などを考察する上で重要な特質である。しかし、トラバーチン沈殿物のみ産状し、現状ではアルカリ湧水が確認されない露頭も多い。

これらの地質精査に基づき作成したルートマップを図 2.2.2-3 に示す。選定した 3 サイト（ストリッピング 1～3）の位置は図 2.2.2-1 に及び図 2.2.2-3 中に示す。

また、物理的風化環境下で生成されたスメクタイト生成環境、その安定性および、鉱物学的変遷を考察するために、アルカリ地下水との相互作用は確認されないサイトとして、Narra3-2 サイトの南側に分布する特異的な小高い丘（高まり：比高約 5m 程度）を形成している班れい岩岩脈露頭をトレンチ（トレンチ 8）の掘削地点として選定した。

表 2.2.2-1 アルカリ影響を受けていない露頭での調査実施工程

日時		記 事
6/6	9:00～16:30	アクセス道沿いのルートマッピング
6/7	9:00～15:30	アクセス道沿いのルートマッピング、ストリッピング位置選定
6/8	9:30～18:00	ストリッピング調査（バックホウによる掘削～試料採取） ストリッピング-1（N9.2082500° ,E118.2848333° ） ストリッピング-2（N9.2086333° ,E118.2834444° ） ストリッピング-3（N9.2049444° ,E118.2825000° ）
6/9	12:30～13:00	トレンチ位置選定のための地質調査（トレンチ 8） トレンチ 8 掘削
6/11	9:00～14:40	トレンチ調査（トレンチ 8：壁面観察、水・岩石試料採取等）

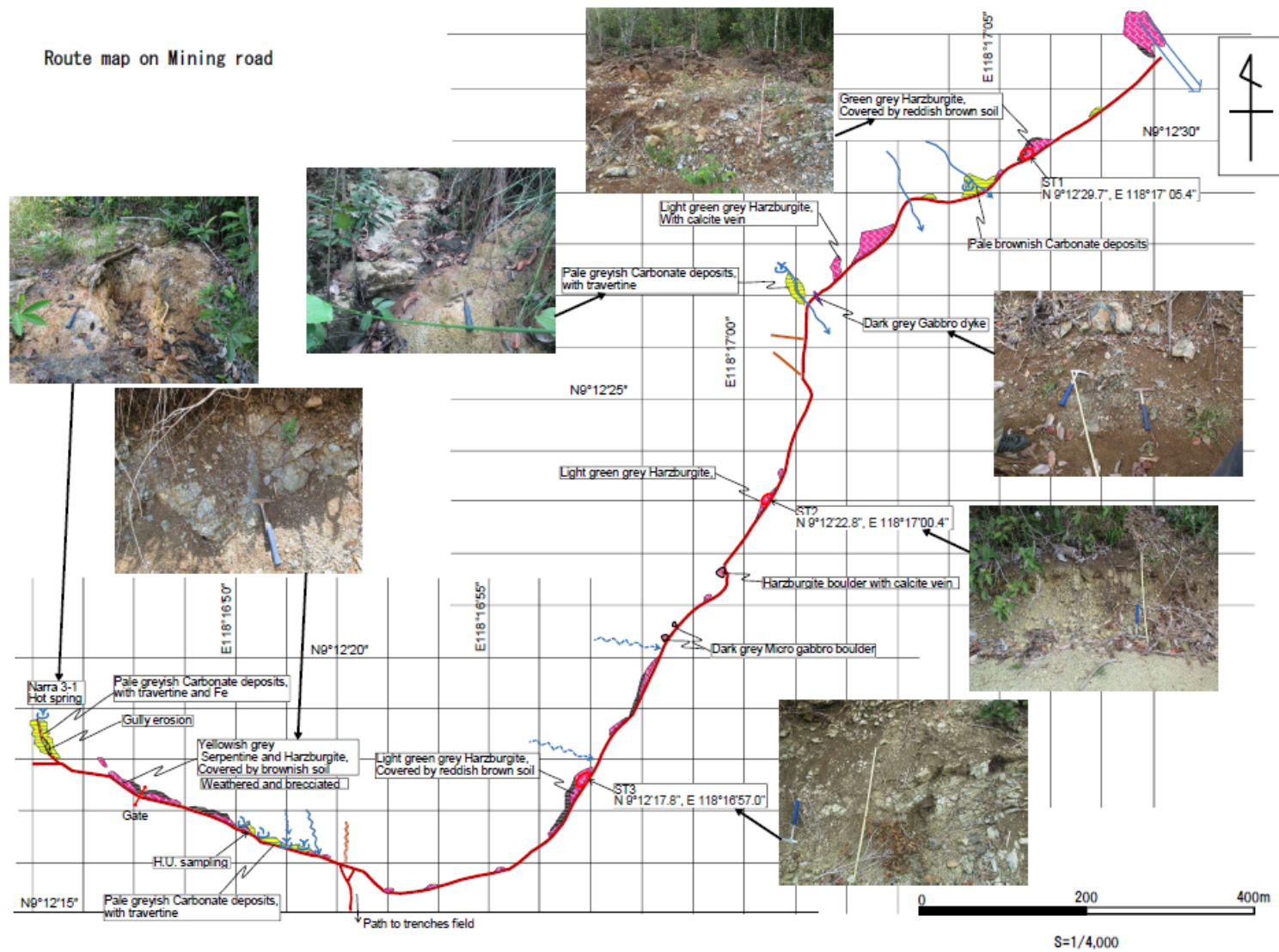


図 2.2.2-3 アクセス道沿いのルートマップ

## 2) ストリッピング及びトレンチ掘削

バックホウにより、Narra3-2 地点へのアクセス道路沿いで選定した 3 か所でストリッピングの掘削を実施した。風化の進んでいない基盤岩（ハルツバージャイトが大部分蛇紋岩化した岩石）が露出するまで表土を剥ぎ取った。掘削後にストリッピングの位置（GPS で計測した座標）の測定、ストリッピングのサイズの計測を実施した。

アルカリ影響を受けていない Narra3-2 サイトの南側で選定した地点においてはトレンチを掘削し、トレンチの位置（GPS で計測した座標）の測定、トレンチの大きさ・深度の計測を実施した。

各ストリッピングの掘削状況を図 2.2.2-4、図 2.2.2-6、図 2.2.2-8 に、トレンチ 8 の掘削状況を図 2.2.2-10 に示す。

## 3) 壁面観察、岩石試料のサンプリング

各ストリッピング（ストリッピング 1～3）及びトレンチ 8 において、掘削後に壁面を削りだして、地質構造や各層の岩質等の特徴について観察した。

また、各ストリッピングでは風化の進んでいる箇所を中心に試料を採取した。トレンチ 8 では堆積部中の岩石試料を採取した。各ストリッピング及びトレンチ 8 でのサンプリングの状況を図 2.2.2-5、図 2.2.2-7、図 2.2.2-9、図 2.2.2-11 に示す。なお、各ストリッピング及びトレンチ 8 ではアルカリ地下水は見られず、不飽和の状態である。

(ストリッピング 1)



図 2.2.2-4 ストリッピング 1 掘削状況（着手前（左）、表層掘削（右））





図 2.2.2-5 ストリッピング1の壁面状況（左）、サンプリング（右）

(ストリップング2)



図 2.2.2-6 ストリッピング2掘削状況（着手前（左）、表層掘削（右）



図 2.2.2-7 ストリッピング2の壁面状況（左）、サンプリング（右）

(ストリップング 3)



図 2.2.2-8 ストリッピング 3 掘削状況 (着手前 (左)、表層掘削 (右))



図 2.2.2-9 ストリッピング 3 の壁面状況 (左)、サンプリング (右)

(トレンチ 8)



図 2.2.2-10 トレンチ 8 掘削状況





図 2.2.2-11 トレンチ 8 の壁面観察 (左)、サンプリング (右)

### (3) アルカリ環境下にある平原でのトレンチ調査

アルカリ地下水との相互作用に伴うアルカリ変質反応によるスメクタイトの形成と鉱物学変遷について、それがみられるアルカリ環境下の碎屑性堆積物の岩相、岩質、堆積構造、変質特性や主要構成鉱物の鉱物組み合わせ・化学組成・組織を把握し、風化過程によるスメクタイトの生成との量比や特徴の違いを明らかにすることを目的として、Narra 地区のアルカリ環境下にある平原でのトレンチ調査（大規模な（深さ 2~3m 程度）の追跡トレンチを 2 箇所（トレンチ 6~7））を実施した。各試錐孔の掘削作業工程を表 2.2.2-2~表 2.2.2-3 に示す。

#### 1) トレンチ掘削地点の選定

アルカリ地下水環境下でのスメクタイトの生成環境と、その鉱物学的変遷と安定性を考察するために、アルカリ地下水が流動しているとみられるトラバーチンの平原（Narra3-2 地点：トレンチ及びボーリングの既調査地点）において、碎屑性堆積物を対象に、より熟成（固結化・岩石化）が促進されるものと期待されるより下部層をターゲットにし、より東傾斜で、走行に平行な 2 サイト（トレンチ 6：平成 28 年度掘削したトレンチ 5 と試錐孔 DH-2[2]の東へ約 8m 地点（碎屑性堆積物の傾斜方向）、トレンチ 7：平成 27 年度に掘削したトレンチ 2[1]の近傍のトレンチ 4 とトレンチ 3 のほぼ中間地点（碎屑性堆積物の走行延長方向））を選定した。

これらのサイトは、Narra サイトの特有な河川系扇状様の緩傾斜面のほぼ東端に位置し、その東端は、あまり比高差（落差）のないアバットする地形変換斜面を形成している。この地形変換斜面の東方には、平坦な稲作田が広がる。

#### 2) トレンチ掘削

バックホウにより、アルカリ河川からの流入防止のためのドレン掘削をした上で、選定した 2 カ所トレンチの掘削を実施した。いずれのトレンチも堆積しているトラバーチンからの浸出水が多く、掘削中にそれがトレンチ内に溜まるため、排水ポンプでの排水（排水用のドレン掘削も合わせて実施）を適宜行いながら、碎屑性堆積物の壁面観察とサンプリングが可

能な深度（深さ 2～3m 程度）まで掘削した。掘削後にトレンチの位置（GPS で計測した座標）の測定、トレンチの大きさ・深度の計測を実施した。

各トレンチの掘削状況を図 2.2.2-12、図 2.2.2-15 に示す。

### 3) 壁面観察、岩石試料のサンプリング

各トレンチ（トレンチ 6～7）において、トレンチ掘削、溜水排水後に壁面を削りだして、堆積物の地質構造や各層の岩質等の特徴について観察した。

各トレンチの壁面から碎屑性堆積物等の粘土質の岩石試料及び年代測定用の木片、炭酸塩試料をハンドピック及びコアサンプラーで採取した。各トレンチでのサンプリングの状況を図 2.2.2-13、図 2.2.2-16 に示す。

### 4) 地下水の物理化学パラメータ計測及び採水

各トレンチとも掘削作業時から浸出水の流量が多いことを確認した。このトレンチ底部の堆積物の層理面から浸出する地下水を採取し、地下水の物理化学パラメータの計測をするとともに、溶存イオン分析に供する水試料の採取を行った。各トレンチでの採水の状況を図 2.2.2-14、図 2.2.2-17 に示す。

（トレンチ 6）

表 2.2.2-2 トレンチ 6 調査実施工程

日時	記事
6/8 11:00 11:00～14:00	トレンチ調査位置の確認（N9.2034444° ,E118.2810556° ） トレンチ掘削
6/9 9:10～9:40 9:40～12:00 （雨天のため中断） 14:50～16:00	法面、壁面整形 トレンチ調査（壁面観察、試料採取位置選定） トレンチ調査（試料採取）



図 2.2.2-12 トレンチ 6 掘削状況



図 2.2.2-13 トレンチ 6 の壁面観察 (左)、サンプリング (右)



図 2.2.2-14 トレンチ 6 浸出水の採水 (左)、ガス濃度測定 (右)

(トレンチ 7)

表 2.2.2-3 トレンチ 7 調査実施工程

日時		記 事
6/9	10:00	トレンチ調査位置の確認 (N9.2035555° ,E118.2813056° )
	10:00~12:00	トレンチ掘削
6/10	9:10~9:30	トレンチ内たまり水排水
	9:30~12:30	トレンチ調査 (壁面観察、水・岩石試料採取)





図 2.2.2-15 トレンチ 7 掘削状況



図 2.2.2-16 トレンチ 7 の壁面削りだし (左)、サンプリング (右)



図 2.2.2-17 トレンチ 7 浸出水の採水

#### (4) Narra 地区及びその周辺の概査

パラワン島は、2つの主要な地質体から構成されており、Narra も含む南部地質体の基盤岩は白亜紀に形成し始めた海底地殻から導かれたものと考えられているオフィオライト複合岩類で構成されているに対して、北パラワン島<地域>は、本島北端に分布する北西パラワンマイクロ大陸地塊で、中国大陸周辺の地殻組成と類似しており、漸新世から中新世時の南シナ海海

底拡大時期に、中国大陸から現在の位置に移動したものと解釈されている[3]。

Narra サイトに分布する碎屑性堆積物は、現地性の超苦鉄質複合岩体を構成する主にハルツバージャイトと少量のかんらん岩・細粒斑レイ岩・輝緑岩がその原岩である。その分布は、河川系扇状地様地形を形成し、その連続性を持って基盤岩に直接被覆しているが、その堆積環境から小規模な河川系のチャンネル構造を形成し、その底部には連続性に乏しく、扁平礫から亜円礫が層間内礫層として偏在的に分布している。

これらの礫は主に蛇紋岩化が進んだ苦鉄質岩石であるが、トレンチ調査で一部観察される頭大サイズの斑れい岩礫の供給源を探查するために、パラワン超苦鉄質複合岩体（基盤岩）調査のために、アクセスのよい、Babatou 滝から上流のクリーク沿いで岩石鉱物学的な露頭観察と試料採取を実施した（図 2.2.2-18）。

図 2.2.2-1 左写真に示す出発地点である Babatou 滝の床面は、ほぼ平坦である。その床面の北東端にある北東系割れ目に沿ったトラバーチン沈殿物を伴うアルカリ湧水がある。滝の落差は約 5m 程度で、水量も多く、上流部の断裂系に伴う伏流水を集水して飲料水として利用している。クリーク（川）は地形勾配が小さいために緩やかな流れで、水質もよく肉眼で魚が観察される。しかし、この滝の下流約 100m では涸れてしまう。このような伏流するような事象は地形・地質学的な要因があるものと推察される。

クリーク沿いに分布する基盤岩は、全体的に塊状で、多くの節理と派生している網目状の割れ目が発達し、部分的には比較的強い蛇紋岩化作用を受けたハルツバージャイトである。一部の露頭では、鉄の水酸化鉱物の沈着のために淡褐色を呈している。中流部（図 2.2.2-1 のマイクロギャブ露頭（図 2.2.2-19）と示された地点）で、この基盤岩に貫入した幅十メートル程度の細粒斑れい岩（輝緑岩）の岩脈露頭が観察される。この産状から、トレンチ壁面に観察される層間内礫の供給源と見做すことができる。

また、ナチュラルアナログサイトのオフィオライトが分布する地質環境との相違を確認するため、大陸性の岩体で構成されるパラワン島北部の露頭調査も実施し、石灰岩等を含む海底堆積物の混合岩であるメラングェを確認した（図 2.2.2-20）。

以下に、調査の実施工程（表 2.2.2-4）および調査状況写真を示す。

表 2.2.2-4 調査実施工程

日時	記 事
6/12 9:30～11:50	Narra2（滝～河川沿い）露頭調査（ハルツバージャイトとギャブロのコンタクト）
6/14 17:00～	パラワン島北部露頭調査





図 2.2.2-18 Babatou 滝 (左写真) (Narra2 地点)上流の露头調査



図 2.2.2-19 Babatou 滝上流のマイクロギャブロ露头



図 2.2.2-20 パラワン島北部のメラレンジェ (混合岩) の露头

### 2.2.3 地下水（湧水）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、パラワン島 Narra 地区の湧水地点、トレンチ内の浸出水を対象に地下水調査を実施した。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) 現地計測（パラメータ測定他）

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-53S（プラスチックボディ電極 9621-10D、EC 計、東亜ディーディーケー社製 ORP 計 RM-20M、ワイエスアイ・ナノテック社製光学式 DO 計 ProDO）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

また、パックテストによる主要 5 種（Ca, Mg, Al, Cl, SiO）の溶存イオン濃度の簡易測定及び、バブリングの確認された地点においてはポータブルガス検知器によるガス（CH<sub>4</sub>および H<sub>2</sub>）の測定を実施した。

#### (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箇所につき、原水を 100ml×1 試料、ろ過水を 100ml×2 試料採取した。ろ過には、20mL シリンジ（テルモシリンジ R）と 0.20µm メンブレンフィルター（ADVANTEC 製、親水性 PTFE）を使用した。ろ過水のうち 1 試料について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、1000 µL の高純度硝酸を用いて酸処理を行なった。また、現地にてアルカリ度を計測するために、ろ過水 50ml ×1 試料を採取し、ろ過には 20mL シリンジ（テルモシリンジ R）と 0.45µm メンブレンフィルター（ADVANTEC 製、親水性 PTFE）を使用した。

#### (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, K, Ca, Mg, 全 Fe, 全 Mn, Al)、陰イオン ( $F^-$ ,  $Cl^-$ ,  $NO_2^-$ ,  $Br^-$ ,  $NO_3^-$ ,  $PO_4^-$ ,  $SO_4^{2-}$ ,  $HCO_3^-$ ,  $CO_3^{2-}$ )、Si である。溶存元素は以下の方法で分析した。

- ①Na, K, Ca, Mg, 全 Fe, 全 Mn, Al : 原子吸光分析法 (一部水試料の微量元素については、誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) で測定)
- 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 $HCO_3^-$ ,  $CO_3^{2-}$  : 60%硝酸溶液での滴定によるアルカリニティの測定値から、炭酸水素イオン (炭酸イオンも含む) を算出

## 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、Narra 地区のトレンチ及びストリップングからの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）を実施した。

また、アルカリ地下水環境下において、スメクタイトの溶解・生成を伴う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、スメクタイトの溶解現象、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)を実施した。

スメクタイトの生成については、物理的風化過程によるものとアルカリ地下水との相互作用による溶解・沈殿反応によるものがあると考えられるが、それらの量比を比較するために、薄片偏光顕微鏡観察と合わせてモード分析を実施し岩石試料中のスメクタイトを定量した。さらに、XRD/リートベルト法、水簸・質量分析によるスメクタイトの定量も検討した。

なお、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 による鉱物・化学分析については、第4章に記載する。

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

パラワン島中部の Narra 地区の Narra3-2 地点で掘削した3ヶ所のトレンチ及び Narra3-2 地点に至るアクセス道沿いの3ヶ所のストリップングから、2.2.2に記載したようにアルカリ環境下の碎屑性堆積物等の粘土質の岩石試料及びアルカリ影響を受けていない風化が進んだ岩石試料を98件採取した。また、堆積物中にみられた埋没木片4件、炭酸塩4試料、土壌（堆積物）5試料を年代測定のための試料として採取した。

また、露頭調査では、Narra2 地点の上流の露頭から4件の岩石試料を採取した。

表 2.2.4-1、表 2.2.4-2 に採取した岩石試料の一覧と分析項目を示す。さらに、過年度に採取した試料のうち、今年度新たに分析を実施する試料及び比較・考察のため過年度の分析データを用いた試料を表 2.2.4-3 に示す。

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 (その1)

No.	Sample Labelling	Lacation	Description	Remarks	TL	C14	XRD	XRF	EPMA, XRD/リートベルト解析	薄片顕微鏡観察 モード分析	
	PWT06-17-Rh-001	Narra Trench 6	底部		Rh-007		●	●			
	PWT06-17-Rh-002			↓		Rh-006		●	●		
	PWT06-17-Rh-003			↓		Rh-005		●	●		
	PWT06-17-Rh-004			↓		Rh-004					
	PWT06-17-Rh-005			↓		Rh-003					
	PWT06-17-Rh-006			↓		Rh-002					
	PWT06-17-Rh-007			上部		Rh-001					
	PWT06-17-Rh-008			礫層(Boulder)							
	PWT06-17-Rh-009				クーラーキャップ						
	PWT06-17-Rh-010			001とほぼ同じ層	クーラーキャップ					●	△
	PWT06-17-Rh-L01			表層	炭酸塩	TL測定用	○				
	PWT06-17-Rh-C01			表層	炭酸塩		○				
	PWT06-17-Rh-C02			表層	炭酸塩		○				
	PWT06-17-Rh-C03			C01の直下	木根, 炭酸塩中		●				
	PWT06-17-Rh-C04				木根, 超塩基性岩起源砕屑性堆積物中		●				
	PWT06-17-Rh-C05				木根, 超塩基性岩起源砕屑性堆積物中		●				
	PWT06-17-Rh-C06			土壌(超塩基性岩起源砕屑性堆積物)		●					
	PWT07-17-Rh-001	Narra Trench 7	底部				●	●	●	●●	
	PWT07-17-Rh-002			↓				●	●	●	●
	PWT07-17-Rh-003			↓				●	●	●	●
	PWT07-17-Rh-004			↓				●	●	●	●
	PWT07-17-Rh-005			↓				●	●	●	●
	PWT07-17-Rh-006			↓				●	●	●	●
	PWT07-17-Rh-007			↓				●	●	●	●
	PWT07-17-Rh-008			↓				●	●	●	●
	PWT07-17-Rh-009			↓				●	●	●	●
	PWT07-17-Rh-010			上部				●	●		
	PWT07-17-Rh-011				クーラーキャップ						
	PWT07-17-Rh-L01			Host Rock							
	PWT07-17-Rh-C01			C02と同じ層	斑レイ岩起源堆積物	TL測定用	○				
	PWT07-17-Rh-C02			表層	炭酸塩		●				
	PWT07-17-Rh-C03			底部層	土壌(斑レイ岩起源堆積物)		●	●	●		●●
	PWT07-17-Rh-C04			C02と同じ層	土壌(斑レイ岩起源堆積物)		●		●		●●
	PWT07-17-Rh-C05			土壌(超塩基性岩起源砕屑性堆積物)		●					
	PWT07-17-Rh-C06			土壌(超塩基性岩起源砕屑性堆積物)		●					
	PWT07-17-Rh-C06			木根, 炭酸塩中		●					
	PWT08-17-Rh-001	Narra Trench 8					●	●	●	●	
	PWT08-17-Rh-002										
	PWT08-17-Rh-003										
	PWT08-17-Rh-004							●	●		
	PWT08-17-Rh-004		礫								
	PWST01-17-Rh-001	Narra Stripping 1			ST-1						
	PWST01-17-Rh-002					ST-1					
	PWST01-17-Rh-003					ST-1					
	PWST01-17-Rh-004					ST-1		●	●		
	PWST01-17-Rh-005					ST-1					
	PWST01-17-Rh-006					ST-1		●	●		
	PWST01-17-Rh-007					ST-1					
	PWST01-17-Rh-008			Host Rock							
	PWST02-17-Rh-001	Narra Stripping 2			ST-2①						
	PWST02-17-Rh-002					ST-2①		●	●		●●
	PWST02-17-Rh-003					ST-2①		●	●	●	
	PWST02-17-Rh-004					ST-2①					
	PWST02-17-Rh-005					ST-2②		●	●	●	
	PWST02-17-Rh-006					ST-2②					
	PWST02-17-Rh-007					ST-2②					
	PWST02-17-Rh-008		Host Rock		ST-2②		●	●			
	PWST03-17-Rh-001	Narra Stripping 3			ST-3①						
	PWST03-17-Rh-002					ST-3①					
	PWST03-17-Rh-003					ST-3①					
	PWST03-17-Rh-004					ST-3①					
	PWST03-17-Rh-005					ST-3②		●	●		
	PWST03-17-Rh-006					ST-3②		●	●		
	PWST03-17-Rh-007					ST-3②					
	PWST03-17-Rh-008			Host Rock							
	PWNRO01-17-Rh-001	The upper stream of Babatou Fall									
	PWNRO03-16-Rh-001										

表 2.2.4-2 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（その2）

No.	Sample Labelling	Lacation	Description	Remarks	粘土定置	XRD	XRF	EPMA, XRD/リート ベルト解析	薄片顕微鏡観察 モード分析
	PWT06-17-HU-001	Narra Trench 6	下		●				
	PWT06-17-HU-002								
	PWT06-17-HU-003			礫層					
	PWT06-17-HU-004								
	PWT06-17-HU-005								
	PWT06-17-HU-006								
	PWT06-17-HU-007					●			
	PWT06-17-HU-008								
	PWT07-17-HU-001	Narra Trench 7	上						
	PWT07-17-HU-002		下(東面)	Carbonate斑レイ岩起源堆積物	薄片用試料採取	●			
	PWT07-17-HU-003								
	PWT07-17-HU-004		上(東面)						
	PWT07-17-HU-005		下(南面)			●			
	PWT07-17-HU-006			礫層	薄片用試料採取				
	PWT07-17-HU-007								
	PWT07-17-HU-008								
	PWT08-17-HU-001	Narra Trench 8	上(南面)	土壌付近					
	PWT08-17-HU-002		(南面)						
	PWT08-17-HU-003		(南面)						
	PWT08-17-HU-004		下(西面)		薄片用試料採取				
	PWT08-17-HU-005			礫層					
	PWT08-17-HU-006			礫層	薄片用試料採取				
	PWT08-17-HU-007			礫層					
	PWT08-17-HU-008		上(西面) (西面)	礫層中の粘土帯 Host Rock		●			
	PWST01-17-HU-001	Narra Stripping 1							
	PWST01-17-HU-002								
	PWST01-17-HU-003								
	PWST01-17-HU-004								
	PWST01-17-HU-005								
	PWST01-17-HU-006								
	PWST01-17-HU-007			土壌 軽石 蛇紋岩					
	PWST02-17-HU-001		Narra Stripping 2	(右面)	砂質				
	PWST02-17-HU-002	(右面)		砂質					
	PWST02-17-HU-003	(右面)		礫層					
	PWST02-17-HU-004	(右面)		礫層					
	PWST02-17-HU-005	(正面)				●			
	PWST02-17-HU-006	(正面)							
	PWST02-17-HU-007	(正面)							
	PWST02-17-HU-008	(正面)							
	PWST02-17-HU-009	(正面)							
	PWST02-17-HU-0010	(左面)		砂質					
	PWST03-17-HU-001	Narra Stripping 3	下						
	PWST03-17-HU-002			carbonate?					
	PWST03-17-HU-003								
	PWST03-17-HU-004								
	PWST03-17-HU-005								
	PWST03-17-HU-006								
	PWST03-17-HU-007								
	PWST03-17-HU-008		上						
	PWOC02-17-HU-001	Outcrop							
	PWOC02-17-HU-002								

表 2.2.4-3 過年度採取した試料のうち比較・考察等に用いる試料と分析項目

No.	Sample Labelling	Lacation	Description	Remarks	粘土定置	XRD	XRF	EPMA, XRD/リート ベルト解析	薄片顕微鏡観察 モード分析	
	PWT02-15-Rh-016	Narra Trench2				(15)	(15)	(15)	(15)	
	PWT02-15-Rh-020						(15)	(15)	(15)	
	PWT02B-15-C1-001						(15)	(15)	(15)	
	PWT02B-15-C2-1-001						(15)	(15)	(15)	
	PWT02B-15-C2-2-001						(15)	(15)	(15)	
	PWT02B-15-C2-2-002						(15)	(15)	(15)	
	PWT03-16-Rh-004		Narra Trench3				(16)	(16)	(16)	
	PWT03-16-C1-004							(16)	(16)	(16)
	PWT03-16-HU-001					●				
	PWT03-16-HU-002					●				
	PWT04-16-Rh-006	Narra Trench4				(16)	(16)	(16)		
	PWT04-16-Rh-009	Narra Trench5				(16)	(16)	(16)		
	PWT05-16-Rh-008						(15)	(15)	(15)	
	PWT05-16-Rh-010						(15)	(15)	(15)	
	ST01-11-Rh-001	Saile Mine Trench1					(11)			
	ST01-11-Rh-002						(11)			
	ST01-11-Rh-003						(11)			
	ST01-11-Rh-004						(11)			
	ST01-11-Rh-005						(11)			
	SG01-11-Rh-006	Saile Mine Quarry				(11)				

※丸数字は分析を実施した年度（西暦の下二桁）を示す。



## (2) X線回折 (XRD)

採取した岩石試料のうち、XRD 欄に●をつけた総計 23 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。

これらのうち、リートベルト解析欄に●をつけた 9 件については、リートベルト法によるスメクタイトの定量分析を実施した。XRD/リートベルト法の詳細について 2.7.4 で後述する。

### 1) 試料調整

各湿潤試料を分析に必要な量をシャーレ等に分取し、数日間真空乾燥を行った。乾燥後メノウ乳鉢にて、力を加えずに試料をほぐし、マトリックス以外の礫、砂、植物根等を除去した後、粉砕した。粉砕後篩にて、105 $\mu$ m 以下を分画し分析試料とした。

### 2) 測定条件

調整した試料をさらに自動乳鉢にて 10 分間粉砕後、分析に供した。に XRD の測定条件を示す。

表 2.2.4-4 XRD の測定条件

項目	詳細
装置名	リガク、RINT2500
ソーラスリット	0.08rad (入射側、受光側共通)
発散、散乱スリット	1°
受光スリット	0.3mm
ターゲット	Cu
電圧、電流	40 k V、50mA
走査範囲	2~70°
走査速度	1°/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)

## (3) 蛍光 X線元素分析 (XRF)

採取した岩石試料のうち、XRF 欄に●をつけた総計 23 件の XRF による全岩化学分析を実施した。

### 1) 試料調整

XRD と同様に、各湿潤試料を分析に必要な量をシャーレ等に分取し、数日間真空乾燥を行った。乾燥後メノウ乳鉢にて、力を加えずに試料をほぐし、マトリックス以外の礫、砂、植物根等を除去した後、粉砕した。粉砕後篩にて、105 $\mu$ m 以下を分画し分析試料とした。

### 2) 測定条件

XRD 試料とともに調製した試料を、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 2.2.4-5 に示す条件により、XRF による定量分析を実施した。

表 2.2.4-5 XRF の測定条件

項目	仕様等
X線ターゲット	Rh
電圧	40kV
電流	95mA

#### (4) 偏光顕微鏡観察及びモード分析

採取した試料のうち、Narra3-2 地点のトレンチ（トレンチ 7~8）壁面から 5 件、アクセス道沿いのストリップング（ストリップング 2）壁面から 1 件、計 6 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。

これらの試料のうち、特にスメクタイトの含有量を定量する目的で、トレンチ 7 から 2 件（PWT07-17-Rh-001, PWT07-17-Rh-C03）、ストリップング 2 から 1 件（PWST02-17-Rh-003）に加え、昨年度実施したトレンチ 5 の 1 件（PWT05-16-Rh-010）の計 4 件の薄片試料についてモード分析を実施した。

##### 1) 試料調製

偏光顕微鏡では透過光により試料を観察する必要があるため、偏光顕微鏡観察用試料は、可視光が透過する厚さ 15~20 $\mu$ m 程度の薄片に調製した。薄片観察を行った試料の番号と薄片の作成方法を表 2.2.4-6 に示す。

表 2.2.4-6 薄片観察試料と薄片作成方法

試料番号	薄片用のチップを作成した試料の状態
PWT07-17-Rh-001	自然乾燥後、砂礫 $\phi$ 2mm アンダーの粒子で薄片作製。
PWT07-17-Rh-003	自然乾燥後、砂礫 $\phi$ 2mm アンダーの粒子で薄片作製。
PWT07-17-Rh-007	自然乾燥後、砂礫 $\phi$ 2mm アンダーの粒子で薄片作製。
PWT07-17-Rh-C03	試料を縦断方向に切断し、内部面から薄片を作製した。
PWT08-17-Rh-001	自然乾燥後、砂礫 $\phi$ 2mm アンダーの粒子で薄片作製。
PWST02-17-Rh-003	自然乾燥後、砂礫 $\phi$ 2mm アンダーの粒子で薄片作製。

##### 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調べた。

## 2.3 パラワン島の概要

### 2.3.1 パラワン島の地質概要

パラワン島は、南シナ海の南東縁にあってフィリピン群島の西端に位置している。島全体としては北東-南西へ約 600km の総延長で、その島幅は平均約 50km 以下の特異な伸長した地形的特徴を持っている。また、西側の海底には、2,000 m を超えるパラワン海溝に繋がっている。

パラワン島は、図 2.3.1-1 及び図 2.3.1-2 に示すように、2つの主要な地質体から構成されている。その1つの地質体（北パラワン島<地域>）は、本島北端に分布する北西パラワンマイクロ大陸地塊で、中国大陸周辺の地殻組成と類似している。この地塊は、漸新世から中新世時の南シナ海海底拡大時期に、中国大陸から現在の位置に移動したものと解釈されている。

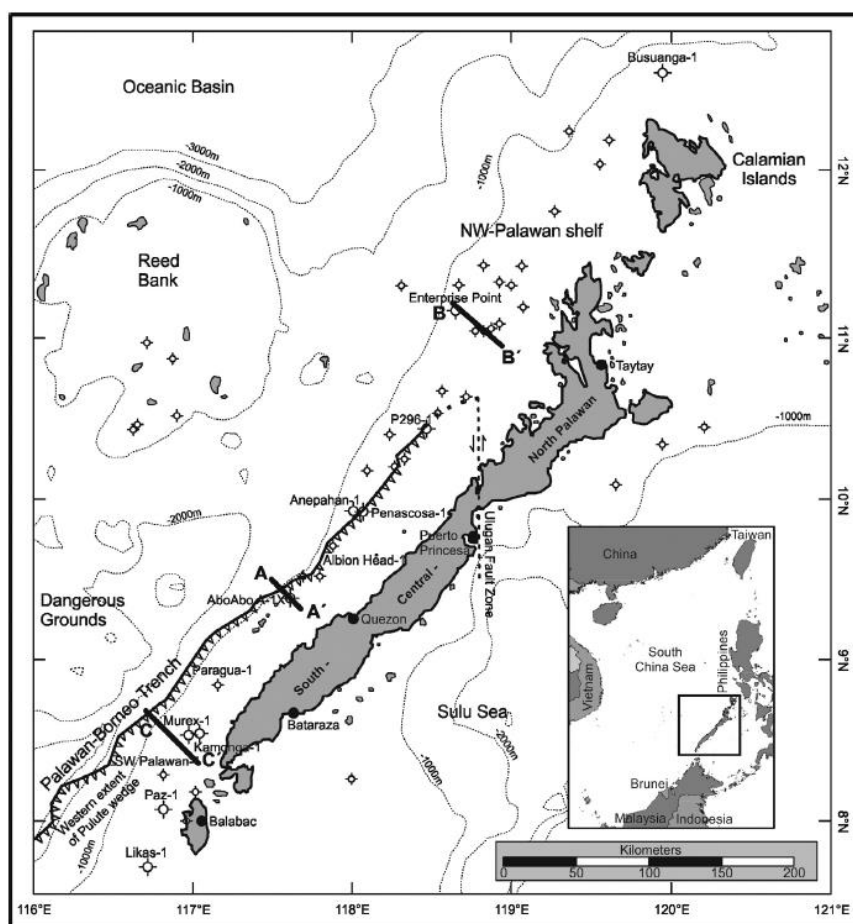


図 2.3.1-1 パラワン地域のテクトニクス(Steuer, S., et al., 2013 [3])

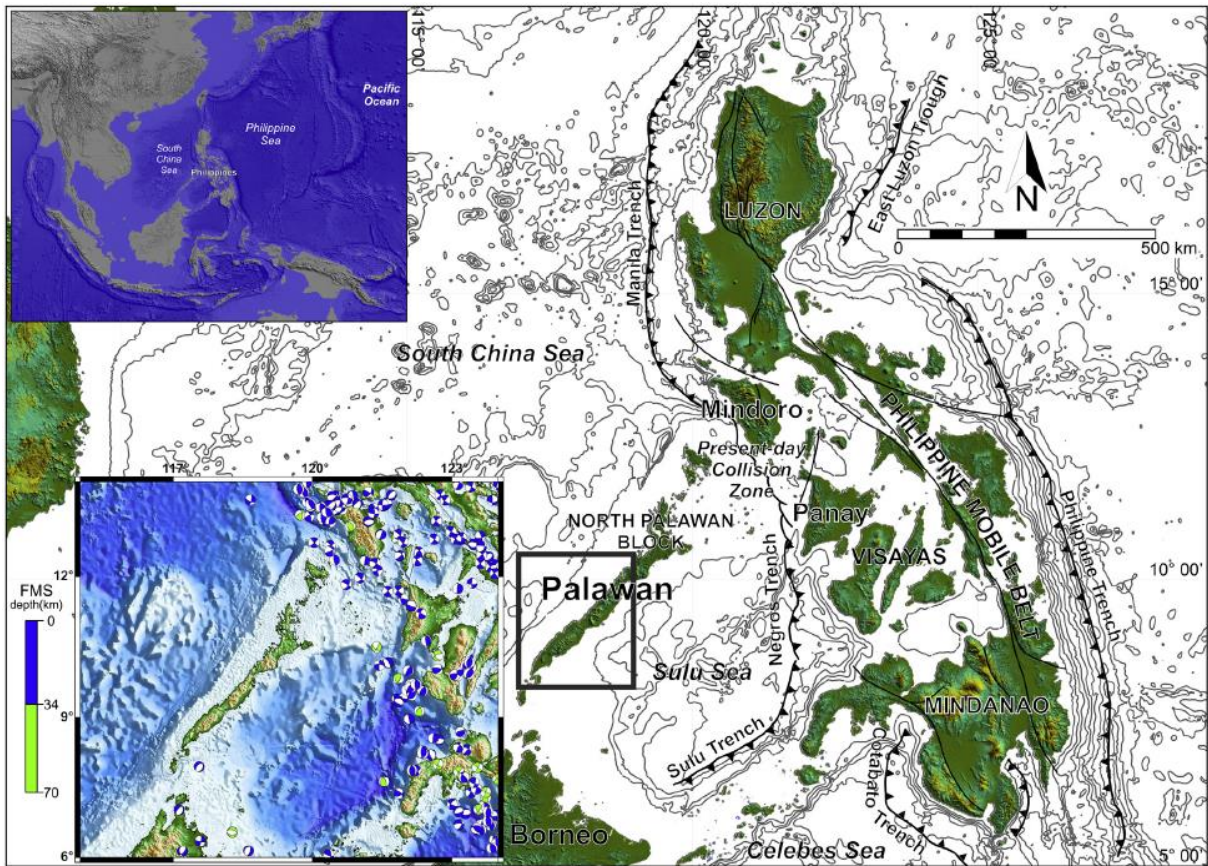


図 2.3.1-2 パラワン島とフィリピン諸島のテクトニクス(Aurelio, M.A., et al. 2013 [4])

これと対照的な中央/南部パラワン島（地域）は、重なり合った衝上断層系で特徴づけられる地質構造体として出現し、西沿岸では、南北系の Ulugan Fault Zone[5]により中央と南部パラワンの2つに区分されている。この衝上断層系で特徴付けられる地質構造は、思索的で中央・南部パラワン沿岸部のみ確認されている。このような地形・地質構造学的特徴から、パラワン島は3つの地域に区分される。それらは、①Ulugan Fault Zoneの東部と Ulugan Bayの北部に位置する北部パラワン地域、②Ulugan Bayの南部と Quezon-Aboabo 町を繋ぐ北部までの中央パラワン地域、そして、③Quezon-Aboabo 町を結ぶ境界から南西にある Balabac 島までの南部パラワン地域である。

但し、中央/南部パラワンの境界区分は地質学的境界ではない。つまり、北部パラワン地域と中央/南パラワン地域における沖合域での一般的な境界区分は、海底地形を表す等深線の著しい変化と一致することでの境界である。特に、パラワン島沿岸部での最も顕著な等深線の特徴は、Borneo-パラワン 海溝（船状海盆：Trough）であるが、この海溝は北部パラワン地域まで延長することではなく、衝突前縁海溝であると解釈されている[6]。

最新の論文では、特に、中央/南部パラワン地域の地質構造学的発達に対する時間的拘束などについて、数多くの生物学的層序とその相対年代の提示、試錐孔の検層、海上地震探査データ、そして特定した2層準の石灰岩（上部中新世～下部鮮新世の Tabon 石灰岩と漸新世から中期中新世

の Nido 石灰岩) の分布特性とその堆積環境などの解釈により、ダイナミックな地質構造学的発展 (テクトニクスな変遷) が検討されている [3]。

また、中央/南部パラワン地域の沿岸-陸域をカバーする 2 次元/3 次元地震波探査データ (地震波速度断面図) に基づき中期から後期新生代時期のテクトニクスイベントに着目した南シナ海の南東縁の地質構造学的発展 (進化) が検討されている [4]。

ここでは、これらの最新なデータ・知見 [3][4] をもとに概説する。中央/南部パラワン地域は、Cagayan 火山孤と北西のパラワンマイクロ大陸地塊間での早期~中期中新世時期の衝突によって創生され、重なり合う衝上断層帯として海底から出現したものと考えられている [7][8][9]。このような形状を持つ付加体くさびは北西 Sulu 海盆から広範囲に拡大された Dangerous Grounds の大陸地塊への衝上により形成されたものと考えられる [5][10]。いずれにせよ、中央/南部パラワン地域の形成は、原始の南シナ海 (Proto-South China Sea) の変遷 に深く関与している。

さらに、原始の南シナ海の海底地殻の残存は、Sabah と Sarawak / Borneo に分布していると信じられており [6]、これが中央/南部パラワン地域のオフィオライト複合岩体の起源であると示唆されている [5][11][12][13]。原始の南シナ海海盆の滅失の始まりは、中期始新生 (約 44Ma [14]) に生じたようである。つまり、海底への沈み込みは、Luconia、Dangerous Grounds、北西パラワンマイクロ大陸地塊が沈み込んでいる衝突期間 (中期中新世晩期~中期中新世の早期) まで活動したということである [14][15][16]。最初の衝突は、南西域 (Luconia Shoals) から生起して、中期中新世 [15][17] まで北東へ順次進んで行ったものと解釈されている。

しかしながら、中央/南部パラワン地域の付加体くさびが大陸地殻の小片 (Dangerous Grounds や北西 Sulu 海盆) か、原始の南シナ海の残存の上にあるのかはまだ明らかではなく、さらに想定される衝突時期についても今後の議論の余地がある。

これまでの地質調査データの再検討と、沿岸域から沖合域を対象にした 2 次元/3 次元地震探査の解析データから、南シナ海南東縁における新生代のテクトニクスな変遷が検討されている [4]。それらによると、北部地質体の基盤は、中新生時期にアジア大陸から移動し、フィリピン弧に衝突した大陸性マイクロ地塊で構成されている [7]。

一方、南部地質体の基盤岩は白亜紀に形成し始めた海底地殻から導かれたものと考えられているオフィオライト複合岩類で構成されている [18]。これらの大陸性マイクロ地塊とオフィオライトの間のテクトニクスな境界については、現在も主要な議論を残しているが、何人かの研究者は、Ulugan Bay Fault (UBF) であると言い ([19] その他多数)、他の研究者は、UBF の北に位置する Sabang の地下河川附近に観察される衝上断層帯であると言っている ([18] その他)。南部地域におけるオフィオライトは、新第三紀晩期の浅海の碎屑性堆積物に被覆されているが、テクトニクスの窓 (Tectonic Window) を形成している下位に始新世のタービタイト質堆積物が存在している [20][21]。このような形状・堆積環境などから、パラワン島は、最も若い変形イベントがオフィオライト定置に密接に関与した”古い地質体 “として考えられている [18][22][23]。

#### (1) パラワン島の広域的テクトニクス

パラワン島は、一般的に地震学的に安定していると言われているが、Mindoro 島と Panay 島



西側の北端は、図 2.3.1-2 に示すようにフィリピン変動帯(Philippine Mobile Belt : PMB)に衝突している。この衝突は、中新世時期にアジアの大陸性地塊が南東に移動し、PMB の西縁に到達したものと考えられている[24]。この地塊が大陸性の北部パラワン地塊(North Palawan Block:NPB)を形成している。これらの大陸性 NPB と PMB 島弧地質体の衝突は、16Ma 頃に生じた南シナ海開口の終息後に起った[9]。この衝突の最盛期は、14–12Ma 頃と解釈されている[25]。これらの衝突は、現在も進行中であり、西部 Nindoro-Panay 島と北部パラワン島で観測される地震発生に密接に関与するものである。つまり、これらの地震は、北西–南東系のマニラーニグロストレンチ間での衝上–走行移動断層メカニズムにより生起するものと解釈されている[25]。

## (2) パラワン島の広域地質概要

この地域の広域地質を図 2.3.1-3 に示す。パラワン島は、特異的に地震の発生がないことで知られているが、地質構造学的には、現在も大陸–弧の衝突の場にある。そのかわりに、圧縮場のテクトニクスが、白亜紀時期のものと推察されているオフィオライト質複合岩類に保存されている数多くの不活潑な衝上断層の形状により観察される[22]。これらの衝上断層は、新第三紀晩期の碎屑性堆積物により充填されている。

パラワン島の最古の岩石は、中生代のオフィオライト質複合岩類(パラワンオフィオライト)である。その形成年代は、パラワンオフィオライト上位の枕状玄武岩に挟在する遠洋性堆積物やチャートに含有される化石の同定[26]と、斑れい岩とかんらん岩の放射性年代測定[18]により取得されている。

ここでは、中央/南部パラワン地域について概説する。図 2.3.1-4 に示すように、オフィオライト最上位の岩石は、始新世のタービタイト(Panas 累層)とそのタービタイトが強く硬化され、弱い変成作用を受けた岩石(Pandian 累層)と層状石灰岩(Sumbling 石灰岩)からなる。さらに、その上位には、晩期漸新世～早期中新世の石灰岩(北部パラワン地域の Nido 累層、南部パラワン地域の Ransang 石灰岩)、そして、中期中新世～更新世の浅海の碎屑性堆積物とそれに伴う炭酸塩岩(Isugod 累層、Alphonso XIII 累層、Iwahing 累層)から構成されている。これらの地域(沿岸部と沖合域)の詳細な一般的層序(対比)とテクトニクスの変遷プロセスなどについては図 2.3.1-5 に示す[4]。

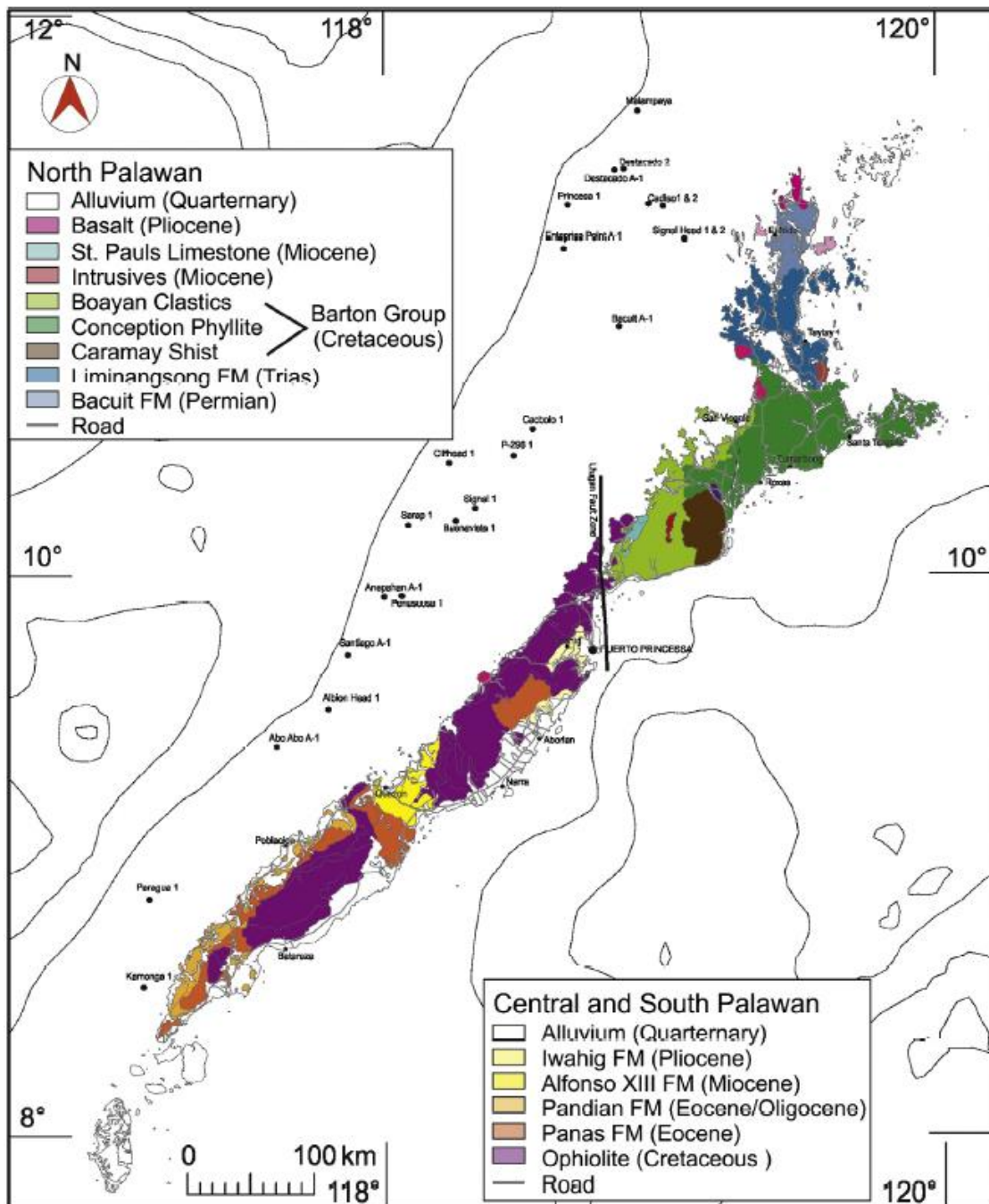


図 2.3.1-3 パラワン島の広域地質図(Steuer, S., et al., 2013 [3])



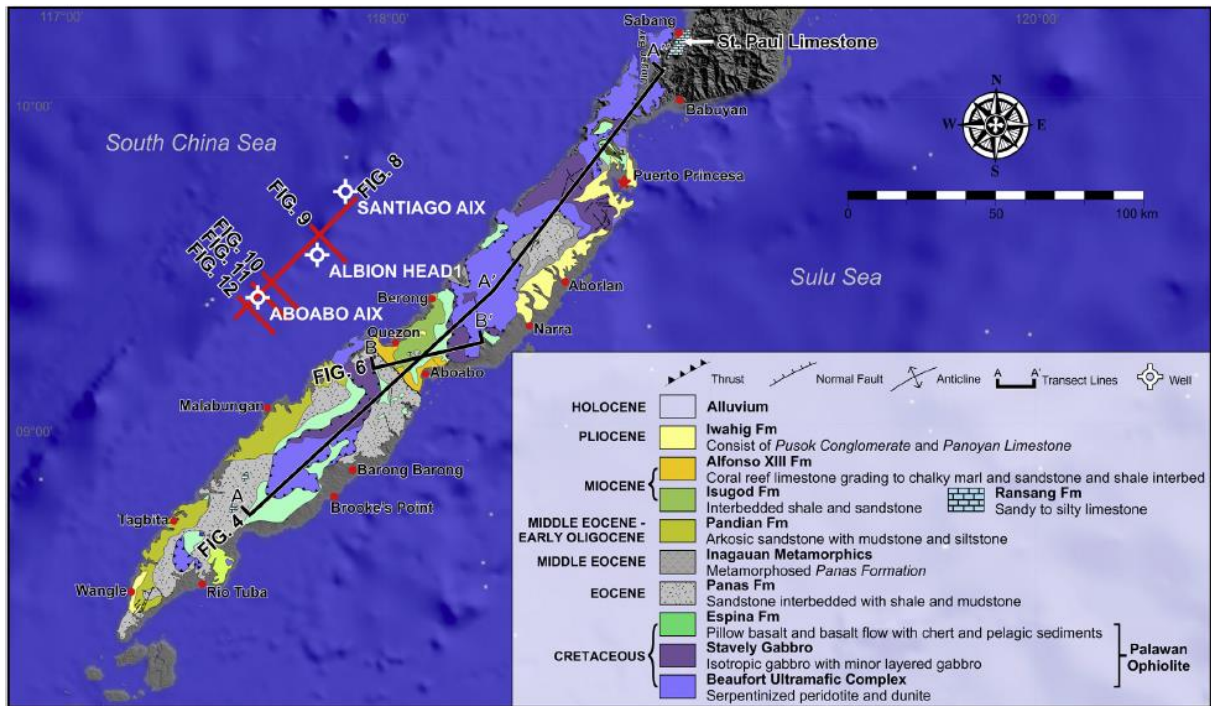


図 2.3.1-4 中央/南部パラワン地域の地質図(Schluter, H.U., 1996 [4])

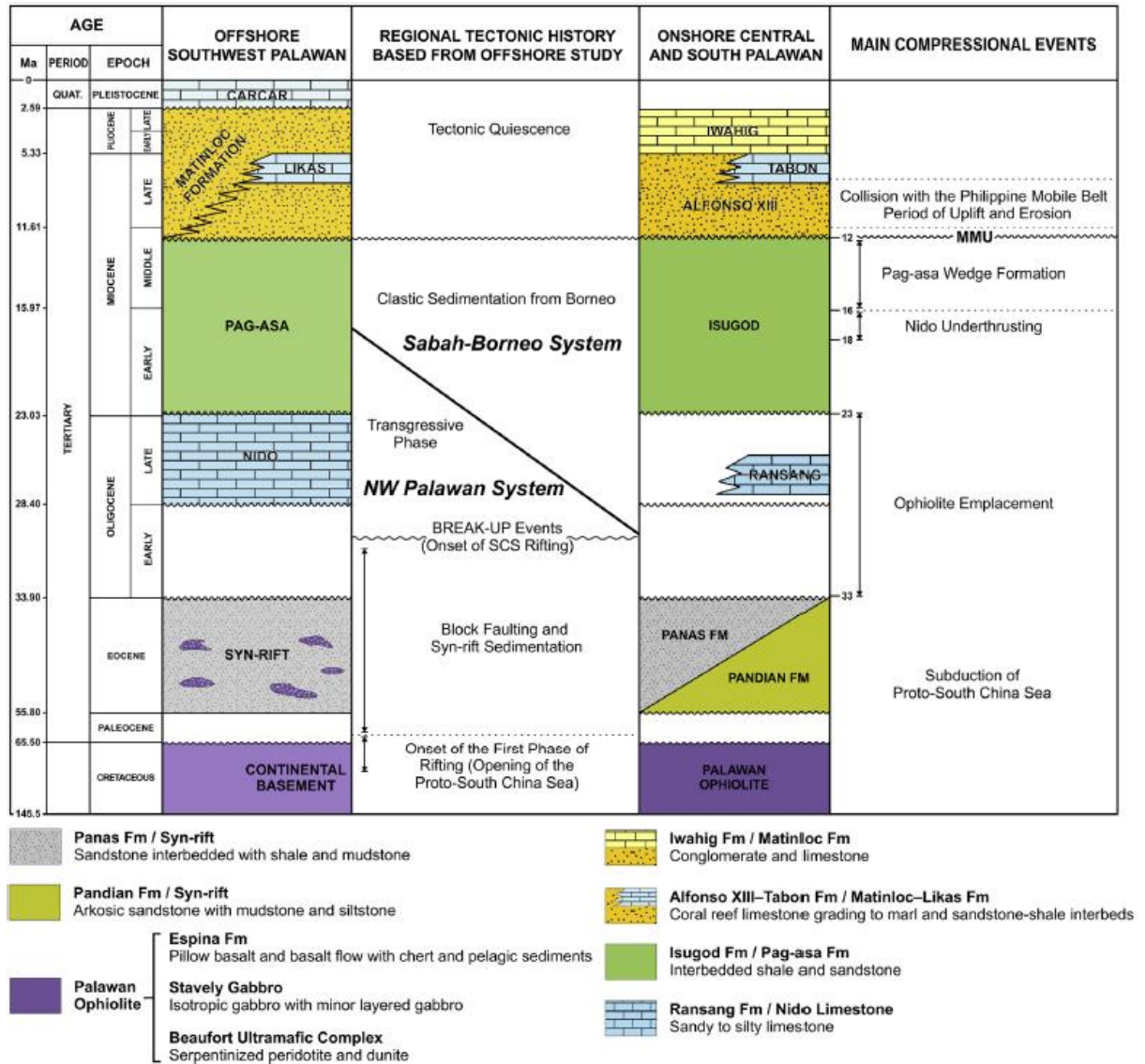


図 2.3.1-5 中央/南部パラワン地域の一般的層序とテクトニクスの変遷プロセス(Schluter, H.U., et al. 1996 [4])

次に、中央/南部パラワン地域の地質断面図（図 2.3.1-6、図 2.3.1-7）による層序対比や地質構造学的関係を概説する。

図 2.3.1-6、図 2.3.1-7 に示すように、中央パラワン地域では、オフィオライトがテクトニクスな窓を形成している始新世のタービダイト層（Panas 累層）の上に衝上（押しつぶせ）していることが解る。このタービダイトは砂岩・シルト岩・頁岩の互層からなる。ある場所では、衝上断層近傍または、断層面に沿って分布する深海の碎屑性堆積物が弱い変成作用の影響を受けている。これらのタービダイトは、暁新世から始新世時期にアジア大陸周辺の隆起中に形成された半地溝部（ほぼ平行な 2 本以上の正断層に挟まれ、相対的沈降によって形成された狭長な地形的凹地帯）の深部を充填した同時・隆起堆積物である。現在ではパラワン島と中国大陸

の周縁に観察される[27]。このタービダイトの堆積に引き続いて、早期漸新世の南シナ海拡大の開始が始まる[24]。また、これらのタービダイトとかんらん岩の衝上関係はいくつかの鉞山露頭で観察され、それらの衝上断層面は北傾斜である。このことはオフィオライト超塩基性岩に残存する走行移動断層の性状と一致している。

また、この遠洋性堆積物（パラワンオフィオライトの上位層）は晩期 Campanian から早期 Maastrichtian (~68Ma) の年代を示していることから、オフィオライト生成上限は、晩期白亜紀であると解釈されている[28]。パラワンオフィオライトのハルツバージャイト（かんらん石と斜方輝石を主成分鉱物とする橄欖岩）の Os（オスミウム）-Re（レニウム）年代測定から、130Ma を取得している[29]。この年代は、MMAJ-JICA (1988)[18] が斑れい岩で取得した放射性同位体年代と類似している。これらを総合すると、パラワンオフィオライトの形成は白亜紀早期から始動したものと示唆される。

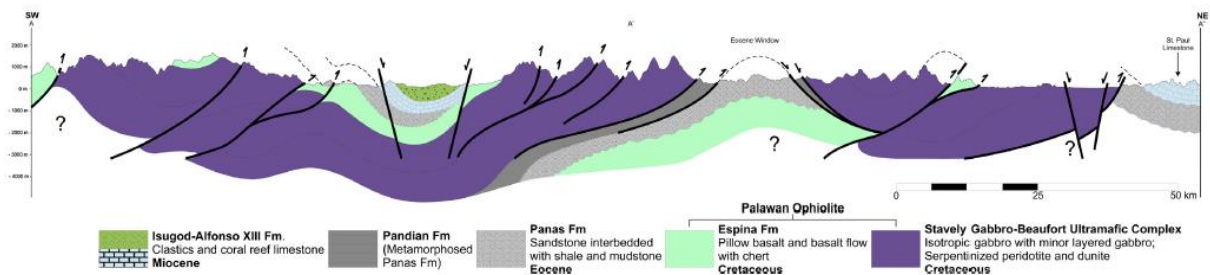


図 2.3.1-6 中央/南部パラワン地域の地質断面図(Schluter, H.U., et al. 1996 [4])

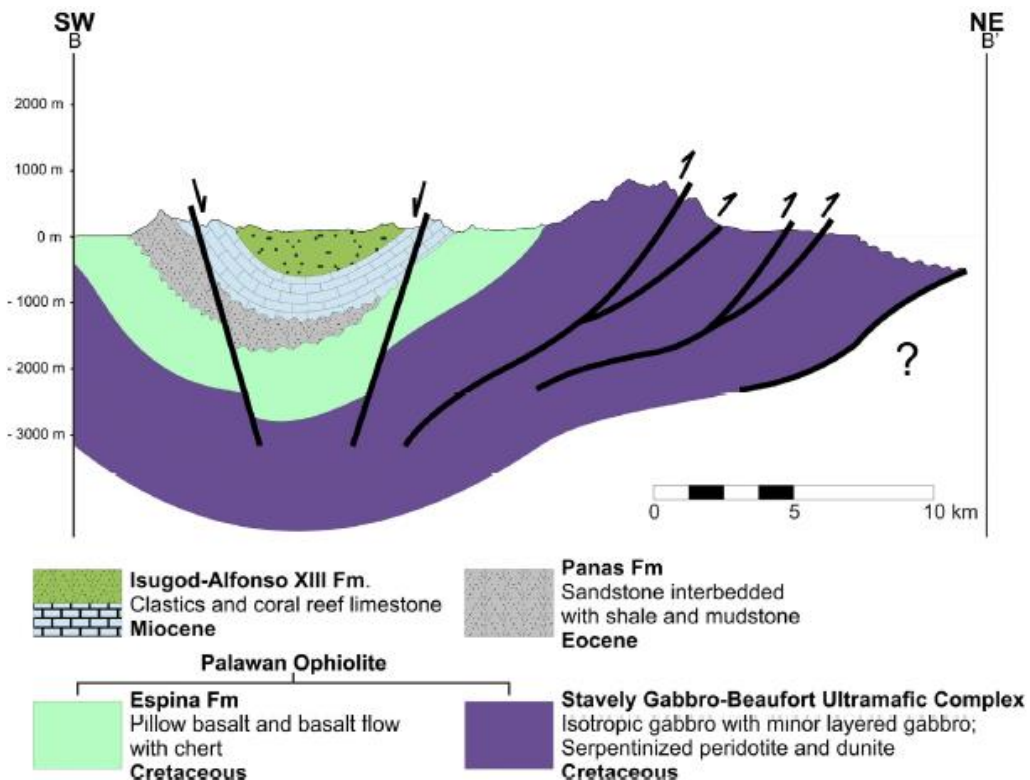


図 2.3.1-7 南部パラワン地域の地質断面図(Schluter, H.U., et al. 1996 [4])

次に、地震探査解析（地質構造断面）による新第三紀堆積岩の衝上断層への充填プロセスについて Aboabo 町と Quezon 町の間にある谷に着目する。この谷は、白亜紀オフィオライトを不整合に被覆する新第三紀盆地内に存在していて、早期中新世～更新世の海成堆積層と石灰岩が、パラワンオフィオライト（苦鉄質・超苦鉄質岩）か、始新世の硬化したタービダイト層のどちらかに包囲されたでこぼこな谷の山腹に急峻にアバットして分布している。そのコンタクト近傍では、Isugod 累層のシルト岩・粘土層が 40~60°傾斜して分布している（大部分は、盆地の中央に向かって穏傾斜から比較的水平に近い傾斜を示す）。この変形様式は、一連の堆積岩の縁に見られる正断層が、盆地形成にみられる初期沈降に関係しているものと示唆されている。

南パラワン地域の Quezon 町周辺の西海岸は、Tabon 石灰岩に対応する層状石灰岩が緩やかな西傾斜で沖合域へと分布している。図 2.3.1-5 に示すように、この Tabon 石灰岩は、Alphonso XIII 累層の炭酸塩岩に対比され[4]、沖合部での Likas 石灰岩や Matinloc 累層と同等である[30]。このように沖合域と沿岸域における晩期中新世～早期鮮新世の石灰岩層序から、沖合域のほうがより若いように見える。これは前進平衡作用（陸地から供給される堆積物によって海岸線が海の方へ進出する埋め広め作用）によるものといえる[3]。この Matinloc 累層の基盤岩は、中期中新世の大不整合 MMU (Middle Miocene Unconformity: ~12Ma) の頂部に位置している。

次に、沿岸域と沖合域を繋ぐ NE-SW 系測線による地震探査解析にもとづき、両域の層序対比と地質構造特性などを図 2.3.1-4 に示す[4]。なお、沖合域の層序は、Forbes et al., (2011)[30] のデータを参照する。南西パラワン地域・沖合域での最古の岩石は、白亜紀の基盤岩である。この基盤岩は、優先的に南傾斜の数多くの正断層により傾動地塊を形成している、これに累重する地層は、断層で境界された傾動地塊により形成された半地溝部を充填した始新世の堆積物である。これらの隆起時期の堆積層と同等の沿岸域の堆積層は、始新世 Panas 累層のタービダイトである。この隆起構造と始新世堆積層の分布性状が、強い地震波の反射面を示す。この反射面は、晩期漸新世～早期中新世の Nido 石灰岩および、北部パラワン地域・陸域の St. Paul 石灰岩のものと同等である。

また、Pagasa 累層と同等であるカオス的な地震波特性ユニットは、Nido 石灰岩の頂部に位置している。

さらに、試誰孔データからは、この堆積層は、粘土岩、頁岩、シルト岩、砂岩、時折、礫岩で構成されている。一方、この地震波特性ユニットと同等な沿岸域堆積物は、Isugod 累層である。変形された Pagasa 累層をシーリングしているのは中期中新世の大不整合面に対応する明瞭な反射面である。晩期中新世～更新世の浅海性碎屑性堆積物や炭酸塩岩に対応する最も若い地震波特性ユニットは、Matinloc 累層、Tabon 石灰岩、Quezon 累層、Carcar 石灰岩から成り、沿岸域での Alphonso XIII 累層と Iwahing 累層と同等である。

次に、地質構造断面による NW-SE 系の地震波測線での隆起地塊、半地溝帯、逆押しかぶせ断層の石灰岩、テクトニクスなくさび形状 と後期のくさび拡張について概説する。傾動基盤

については、沖合域における白亜紀地層が更新世地層に押し上げるような変形様式が地震探査解析図にみられる。沿岸域での隆起時期の堆積岩は、中央/南部パラワン地域や南シナ海沿岸域縁同様に始新世 Panas 累層のタービタイトである[27]。半地溝帯の内部を充填する堆積岩は、場所によっては 500m を越し、個々の傾動地塊側壁に観察される。これらの形状は、隆起段階から拡張期における連続的な沈降と堆積作用の結果であることを示唆するものである。

晩期漸新世~早期中新世の Nido 石灰岩は、非対称な堆積盆地において、一般的に水平で、若干南東へ傾斜する高感度振幅の反射面を示す。この石灰岩底部には、下位のタービタイトの堆積層か、あるいは、石灰岩が不規則な不整合関係にある白亜紀基盤岩に直接累重しているものと推察される。その分布は南西へ行くにつれてほぼ水平であるが、南東傾斜の衝上断層によって分断されていることが観察される。この衝上断層の変位は衝上断層による影響を受けた分断部での層厚が水平に重なり合うようなことを生じさせることにより、垂直的に 1,000m を越えることになったものと考えられる。

Pagasa 層(Pag-asa)内のくさびについては、ばらばらの反射面を示す厚い (2,500m 以上) 無秩序な地層の重なりが Nido 石灰岩頂部にあり、この無秩序な地層が Pagasa 累層に対比され、さらに、沿岸域の Isugod 累層に対比される。数多くの西へ緩傾斜の衝上断層は、衝上断層複合部の頂上部へ背斜構造が形成されるような衝上断層スラブの重なり合った並置を促すような一連の因果的關係に影響を与えている。

また、浅瀬の外側に向かって、衝上断層・褶曲変形は、Pagasa 累層の反射面が緩慢な西傾斜をもつ所で消滅している。このことは、衝上断層フロントが北西へ進行していることを示唆するものである。つまり、高度に変形されたくさび形の地震波特性ユニットが、ここでは Pagasa くさびであると解釈される。

Nido 石灰岩の逆押しかぶせ断層マーカーは、Nido 石灰岩と主要なくさびの間が、南東へ傾斜している重なり合った衝上断層により特化された変形反射面として 500m 層厚を有している。この変形した地震波バンドの意味するものは、くさび形成の着手なのか、または、Nido 石灰岩の逆押しかぶせ断層の始動に関連しているのかである。この変形起源がどちらであっても、Pagasa 累層の最古部層が堆積後の圧縮期間を意味するものである。さらに、衝上断層・褶曲変形と同時堆積物は、Pagasa 累層の上位層である。

次に、中期中新世の不整合と鮮新世から更新世の堆積層の最上位 (キャプ状) の関係について概説する。しかし、すべての先一同時形成の衝上・褶曲構造が、中期中新世と同様に沖合域の試誰孔でその年代が算定された不整合により曖昧になっている。フィリピン沿岸域での不整合は、フィリピン群島西部で確認される。これは中新世に最盛期であったフィリピン孤西部縁での北部パラワン大陸性地塊の衝突結果であると解釈されている[20]。この不整合は広く分布するために、中期中新世不整合と呼称されるほど広域的な不整合として解釈される傾向がある[6]。その背景には、研究者の何人かが、中期中新世不整合は異なる場所で異なる時期に生じた中新世イベントの複雑性を指摘しているためである[31]。

一方、例えば、Sarawak 島での不整合は、早期中新世と言われているが、Sr 同位体比年代からは、18.6-19.0Ma であるために、不整合が 2.0-2.5my 間に層序の時間空間的間隙(Hiatus)



をもつことが指摘されている[6]。フィリピンでは、この衝突イベントの年代が 15Ma と 12Ma 間 (沿岸域: Rangin, et al., 1991[13]; 沖合域: Silver and Rangin, 1991[32])と推定されている。これらの不整合上位層は、強弱交互の地震波反射面を示す。これらは、浅海の碎屑性堆積層で、Likas 石灰岩 (沿岸域での Tabon 石灰岩) と Carcar 石灰岩で代表される少なくとも 2 期間に形成された炭酸塩岩を挟在していることを意味する。これらの最新の堆積物は、一般的に海底岩棚域に分布する炭酸塩岩を伴うような堆積環境の形状を先に生じさせることになる。

次に、中期～晩期新生代のテクトニクスイベントと南シナ海進化への密接な関係を概説する。ここでは、白亜紀における南シナ海の南東縁の開口に影響を与えたテクトニクスイベントと、晩期中新世の衝突－充填のための炭酸塩岩が堆積するまでを解釈する上で重要な時間的拘束について概説する。このための新しいデータ・知見は、始新世 Panas 累層のタービダイトを押しつぶせた中生代パラワンオフィオライトの定置や、中央/南部パラワン地域での Nido 石灰岩への逆断層押しつぶせ、そして、Pagasa くさびの形成に係りあったイベント時期と、そのメカニズムを描写する上での有効な時間的拘束情報である。

白亜紀基盤岩に地質構造的影響を与えた NE-SW系と NW-SE 系正断層に囲まれた傾動地塊が、南東アジア東縁の白亜紀基盤岩の厚さを薄くしていくことにより、特に、北部パラワン地塊の隆起を南東へと進めさせることになった。このような構造は、南シナ海の中国大陸東縁やパラワンの両者に観察される。この結果、断層に囲まれた隆起した傾動地塊は、非対称盆地の沈降サイトになった。このような盆地には、同時隆起したタービダイトや深海性碎屑性堆積物で構成されることになり、中央/南部パラワン地域における始新世 Panas 累層がそのものである。これらの堆積物に満たされた後、沿岸域の始新世 Sumbling 石灰岩と対比される先・Nido 炭酸塩岩の堆積が促される場所となっていく。その後、隆起が休止すると、晩期漸新世から早期中新世には極端な浅海に転じ、広範囲な卓状炭酸塩岩の堆積が促進された。沖合域において、この炭酸塩岩が Nido 石灰岩に対応される。

次に、定置されたオフィオライト、くさびの形成と炭酸塩岩の堆積作用の相互関連については、特に、中央パラワン地域における始新世の地窓(Tectonic Window)の存在が、若い堆積層に押しつぶせたパラワンオフィオライト定置の始動への最も早い時間的拘束である。この定置が制限された最新のイベントは、Aboabo-Quezon に繋がる谷が早期中新世の Isugod 累層の堆積物による供給で満たされたことである。晩期漸新世～早期中新世の Nido 石灰岩の逆断層押しつぶせは、早期中新世の Pagasa 累層の最下位部層への影響を与えた早期変形で明らかである。この石灰岩自身は、衝上断層フロントであるにも拘わらず 比較的未変形であることが注目に値する。これら衝上断層周辺やそれに沿う始新世の碎屑性堆積層が、くさびに試誰した井戸の検層で確認されており、このくさび形成に関与した衝上断層もまた、Nido 石灰岩の下位にある始新世タービダイトをスクラップすることになった。Pagasa 累層の最下位層の変形は、主要な Pagasa くさびの形成を引き起こし、そのイベントは中期中新世まで持続した。つまり、始新世末期と早期中新世間に生じたオフィオライト定置、早期中新世時の Nido 石灰岩への逆断層押しつぶせや、中期中新世に最盛期であった Pagasa 累層における主要なくさびの形成は、始新世～中期中新世の連続的な収斂の場でのすべての産物であると言える。このことは、

隆起した大陸性マイクロ地塊 (NPB<North パラワン Block> : 北部パラワン大陸性地塊) を含む南シナ海南東縁や、その始原としての最前部 (Proto South China)における太古の海底地殻が、始新世~中新世まで連続した収斂 (場) のテクトニクスに支配されたことを意味する。これらのイベントは、主に、隆起地塊の南東方への連続移動と、PMB の西域縁への接近によって誘発された。その要因は、類似した密度、例えば、北部での大陸性 NPB や PMB の収斂する質量と、地殻密度の異なる (例えば、Proto-South China Sea, PMB 弧) ものの沈み込みと、押しつぶせ間の衝突によるものである。これは、お互いに調和しない積み重ねられた地質体ユニット、つまりアジアの類縁性としての白亜紀とその以前の大陸性地質体、タービダイトで充填された同時隆起地層に押しつぶせた白亜紀のオフィオライト、早期から中期中新世のニクスなくさびを押しつぶせた晩期漸新世から早期中新世の石灰岩などが、晩期中新世から鮮新世の浅海性堆積物と炭酸塩岩により杯状に累重されている。このオフィオライトは、例外なく沿岸域のみ露出している。沖合域から沿岸部への変移は、石灰岩への押しつぶせ断層と、テクトニクスなくさびで現わされている。

また、Pagasa 累層内のテクトニクスなくさび形成時期への時間的拘束は、晩期漸新世~早期中新世の Nido 石灰岩と、晩期中新世から早期鮮新世の Tabon 石灰岩の 2 つの石灰岩パッケージを駆使して解釈可能である[3]。多くの研究者が、このユニットを Plute Wedge (くさび) と呼称しているが、数多くの年代測定から、Plute 累層は始新世から早期漸新世と指摘され、Nido 石灰岩より古く、殆どが始新世のタービダイト (Panas 累層) と一致している[33]。

また、このくさびは地震波反射面でも明らかで、Nido 石灰岩より若い早期~中期中新世の Pagasa 累層に影響を与えている。ここでの Pagasa くさびは、沖合域で観察・解析されたくさびである。

次に、南シナ海の変遷について概説する。地質構造学的データから解釈されるテクトニクスイベントは、南シナ海、取り分けその南東縁の発達を解釈するために重要なものである。南シナ海開口に先立ち、ブロック状断層で特徴づけられる基盤岩と、その基盤岩に同時形成された堆積盆地内に見られる顕著な隆起構造がある。この原始の南シナ海の海底地殻構造が、北パラワン地域の隆起した大陸性マイクロ地塊の西端によく保存されている。白亜紀から始新世のタービダイトは、パラワン島の北部と南部に露出している。これは南シナ海の南東縁を特徴づける深海海盆の堆積環境の証でもある。その後、漸新世になると、この南東縁は浅海になり、現在も北西パラワンから北西ボルネオまで追跡できるほど広範囲に堆積している Nido 石灰岩が観察される。

パラワン島沿岸域における堆積盆地内の初源的な同時隆起構造は、パラワンオフィオライト定置過程で被った強い変形によるものであるということが殆ど観察されていない。しかし、堆積盆地の堆積層であるタービダイトは、強力に変形し、オフィオライトコンタクト部では、中程度の変成作用を被っている。このことから、この時期 (過程) に、南シナ海の南東縁が収斂し始めたことが示唆される。この収斂は中新世へ継続されていることが、Pagasa くさびの産状により示されている。このくさびの形成は、主要な不整合が中期中新世末 (MMU) までにフィリピン群島の西部地域で強調されている広範囲な隆起により引き継がれている。鮮新世では、



結果として一般的な沈降が、この浸食イベント後、引き続き起こったが、パラワン地域の海域では、炭酸塩岩（例えば、Tabon 石灰岩）や、浅海性碎屑性堆積層（例えば、Matinloc 累層）の堆積を促した。この鮮新世の浅海性盆地内の堆積作用に関連した拡張的変形は、柵状地域（Shelfale area）に影響させた同時沈降の正断層の形状内に現されている。

現状のテクトニクスでは、パラワンマイクロ大陸性地塊と PMB 西端間との衝突が衰退しているため、パラワン島の北東縁からミンドロ(Mindoro)島とパナイ(Panay)島までが収斂し続けている。パラワン島の中央/南部地域は、テクトニクスな意味で安定しているが、北西ボルネオ地域では衝上-褶曲のようなテクトニクスな変形が特徴的に見られる。従って、このようなシナリオは、早期漸新世時期の海洋形成以来の南シナ海南東縁での拡張的イベントを越えた圧縮イベントの卓越性を示唆するものである。

中央/南パラワン地域における中期から晩期新生代期間は、収斂するテクトニクスな変遷過程でのイベントの連続として見る事が出来る。

ここでは、パラワン島における広域的テクトニクスの変遷について要約する。

- ① 白亜紀パラワンオフィオライトは、始新世 Panas 累層のタービダイトを押しつぶした形状で定置している。この定置に係るイベントは、このタービダイトに変成作用を与えている（Panadian 累層）。つまり、Panadian 累層は Panas 累層と同時異層であるが、この変成作用の正確な年代は得られていない。その変成作用は弱く、場所により砂岩やシルト岩の硬化作用として観察される。但し、この変成年代は Panadian 累層最上位の化石年代から、早期漸新世より古くなることはない[33]。これらの観察から、この定置は、晩期漸新世(~33Ma)から早期中新世(~23Ma)間で生じたものと示唆されるが、オフィオライト質物質の初期の分離層(Detachment)は少し早い時期のもので、恐らく、オフィオライトの生成-沈み込み-押しつぶせへのテクトニクスな変遷を示す先・漸新世に生じたものに違いない。これらのことは、白亜紀以降のフィリピン群島において、数回生起しているものと解釈されている[34]。
- ② 晩期漸新世~早期中新世の Nido 石灰岩の押しつぶせ断層は、早期中新世の最後に生じた。南西パラワン沖合域でのこの石灰岩は、早期中新世 Pagasa 累層の最下位層に属し、地震探査結果から約 600m の層厚があると解析されている。これは主要なくさび形成以前のものである。もし、Steuer et al., (2013) [3]の 18Ma の古い年代を採用すると、Nido 石灰岩の逆押しつぶせ断層が、約 18Ma と約 16Ma 間で生じたような時間的拘束が生じる。
- ③ Pagasa 累層を含む主要なくさび変形作用は、中期中新世(~16Ma~12Ma)に生じた。この Nido 石灰岩の逆押しつぶせ断層が継続しづけている間に 16Ma 頃に Pagasa 累層内でのくさび形成が始まることになる。このくさび頂部に堆積した同時衝上・褶曲した堆積物は、約 12Ma にくさび形成末期に印された MMU によってくさび頂部が削られることになる。
- ④ 後・くさび拡張は、早期中新世から晩期鮮新世の Tabon 石灰岩を含む新しい地層に影響した西傾斜の正断層の形状中に明らかに現わされている。南西パラワン地域において、

この後・くさび形拡張は海底の柵状地域のみに出現している。このことは、くさび形成に関与したイベントに誘発された地形斜面の不安定性に初源的に起因するものと示唆される。今後は、このようなイベントをよく理解することが必要である。それは、特に、分離層を伴う正断層を形成する褶曲・衝上断層のあるところは、新第三紀晩期の塊状デルタ堆積物の滑動により誘発されることが知られているからである。

- ⑤ 中央/南部パラワン地域の基盤岩は、白亜紀のパラワンオフィオライトが優勢であるが、北パラワン地域では、初源的な大陸組成で構成されている。このオフィオライトは、オフィオライト-タービダイト境界に良存されている衝上構造に沿って同時期に上昇した始新世のタービダイト (Panas 累層) の上に定置されて産状している。この衝上運動 (活動) は、Pagasa 累層 (沿岸域の Isugod 累層) の早期中新世頃 (~20Ma) で終息したものであるが、オフィオライト定置は、後期漸新世の末期 (~23Ma) までに時間的拘束されたものと解釈される。つまり、この定置が起きた時期は、33Ma から 23Ma 期間と解釈される。このオフィオライト定置の開始は始新世末期からで、始新世のタービダイト (Panas 累層) の衝上断層運動に関連した変成作用を拘束し、晩期漸新世から早期中新世の Nido 石灰岩へのポスト定置に伴った逆押しかぶせ断層で終息した。早期中新世の末期 (~16Ma) での炭酸塩岩の逆押しかぶせ断層 (活動) は、地震探査解析による地震波ユニットに見られる変形により顕著であり、これは早期から中期中新世の Pagasa 累層の早期部層に対応 (対比) される。これらの形成プロセスから、特異的なテクトクスなくさび形 (Wedge) は、中期中新世の時期 (~16Ma~12Ma) に形成され、これが Pagasa くさびと呼ばれる衝上-褶曲ベルト (帯) を形成している。くさび変形は広域的に観察される中期中新世不整合 (Middle Miocene Unconformity: MMU, ~12Ma) により頂部が削られている。この局所的な後-運動的な拡張は、衝上-褶曲構造、MMU や中新世末期から早期鮮新世の炭酸塩岩 (例えば、Tabon 石灰岩) に影響を与えている。従って、これらのイベントに伴った地質構造変遷は、始新世から中期中新世の末期期間での南シナ海南東縁への影響をもたらした連続的な収束域での変遷あったことを示唆している。また、衝上-褶曲ベルト内での並置された炭酸塩岩、タービダイト、浅海性海成碎屑物に観察される構造を明らかにすることが、炭化水素 (ガス・石油) の生成・濃集のための有望な堆積環境の選定に有効である。

### (3) 中央/南部パラワン島の地質概要

北部パラワン地域と Calamian 島 (パラワン島の北方) 地域の地殻が大陸組成であることの証拠が十分にある一方、中央/南部パラワン地域の地殻組成については、不確かなことがある。北部パラワン地域は、優勢な泥質マトリックス中に二畳紀石灰岩の外來岩塊、二畳紀から三畳紀のチャート・砂岩・玄武岩を含有するジュラ紀のオリストローム (泥質岩層の優勢な地層群が海底地すべりにより、遠方に移動し、再堆積した堆積物) から構成されている [35]。さらに、北部パラワン地域の中央 / 南部地区に分布する Barton Group (界) は若干な変成作用を被った白亜紀の変成岩からなる [33]。それらの岩質・岩層は、東域の Caramay 片岩、白雲母片岩、

Conception 千枚岩および、晩期白亜紀の Boyan 累層の砂岩、泥岩に細区分される[33]。これらの地層は深海底扇状地と盆地状平原に堆積し、その後、フィリピン変動に伴うパラワン島北部地塊の衝突時に変形を被ったと解釈されている[35]。

また、北部パラワン地域の広範囲に分布する変成岩は、中央/南部パラワン島地域での小さなパッチ状の産状に限定されている[33]。

一方、中央/南部パラワン地域に分布する堆積岩の地層は、比較的若く、そして北部パラワン島地域のものとは明白に異なることが指摘されている[33]。

### 1) パラワンオフィオライト (基盤岩)

パラワンオフィオライト (苦鉄質複合岩体) の上位に位置する枕状玄武岩に随伴する最古の堆積物は、早期白亜紀時のものである[8]。それは、中央/南部パラワン地域と Balabac 島の枕状玄武岩に伴う石灰質赤色粘土中から白亜紀の超微化石が確認されているからである[36]。さらに、枕状玄武岩は、 $Ar^{39}/Ar^{40}$  年代測定から 34Ma を取得している[37]。この年代はオフィオライトの押しかぶせ時であると解釈され、Sabah 島 (ボルネオ島北東部の沖合諸島) 中央部に分布している Telupid オフィオライトの晩期始新世時の押しかぶせ (Crocker 累層の上に衝上) 年代と一致している[15]。つまり、これら一連のテクトニクスな Sarawak 造山運動が、始新世~早期漸新世間のイベントであって Sarawak 島から Sabah 島を経てパラワン島へ拡大するような広域的なものであったものと提言されている[11]。

中央/南部パラワン島地域の脊梁山脈を形成するパラワンオフィオライトは Mt. Beaufort 超塩基性複合岩体と言われ、その形成年代は後期白亜紀~始新世である。

また、このオフィオライトの定置時期は、斑れい岩による K-Ar 法により  $34 \pm 0.6$  Ma[38] の年代が得られている。岩相・岩質は、主に蛇紋岩化作用が進んだハルツバージャイト岩 (主に、かんらん石と斜方輝石から構成) とダナイト (90 vol. % のかんらん石のみからなる完晶質超塩基性岩) から構成されている。

### 2) 早期第三系の Espina 累層

Espina 累層は、早期白亜紀から早期第三紀の少量の石灰岩、スピライト質玄武岩に挟在する硬頁岩と挟在するチャート (Espina 累層) から構成されていると報告されている[33]。これらの地層は中央/南部パラワン地域に広範囲に分布するが、その分布は唯一パッチ状に残存している。このような特異的な分布は、広い範囲でオフィオライトの押しかぶせ衝上断層に起因しているからである。この下部層の年代は、放散虫年代から晩期白亜紀 (Campanian の上部/ Maastrichtian の基底) とされている[39]。さらに、上部層のいくつかの有孔虫年代からは、早期第三紀 (古第三紀) であると示唆されている。Espina 累層はパラワンオフィオライトの最上位ユニット層を代表するものと示唆されている[40]。

### 3) 始新世から漸新世の Panas 累層 (Plute 累層)

Panas 累層は、始新世~漸新世下部の薄層泥岩・シルト岩を伴うアルコーズ質砂岩で構成さ

れている[33]。この Panas 累層は、沖合域の海底堆積物で、ボルネオ-パラワン海溝に近接した北東系の付加体くさびの大部分を占めている[5][41]。これら深海域に分布する Panas 累層の褶曲や衝上断層帯はボルネオ-パラワン海溝の東方に延びる鱗状に重なった堆積物の厚いくさびを形成している。

#### 4) 漸新世から中新世の炭酸塩岩

早期中新世の台地状炭酸塩岩は、中央/南部パラワン地域の沖合域/沿岸域においては、殆ど知られていない。数少ない例として、中央パラワン地域の南部 (Quezon 地区) で早期中新世の塊状で斜交断層がある石灰岩 (Ransang 石灰岩) として報告されており、この石灰岩は、北パラワン地域に分布する St. Pauls 石灰岩と対比 (離れた 2 つの地域に認められる地層の同時性を決定すること) されるものであると解釈されている[33]。この炭酸塩岩は、オフィオライトの頂部に保存されている。Quezon 地区から採取した炭酸塩岩での年代測定からは、中期中新世 (16.5~13.5Ma) を示している。このことから、この石灰岩は、最も若い年代を示した Nido 炭酸塩岩が優勢であった時期とほぼ同じ時期に堆積・発達し始めたということである。但し、疑問として、これらの炭酸塩岩が、Nido 炭酸塩岩と対比されることである。これは、むしろ、Tabon 石灰岩か Alfonso XIII 累層 (中央パラワン地域の Quezon 地区や、南パラワン地域の西沿岸部に分布) であることが示唆される[33]。これらの塊状から層理のある炭酸塩岩中で、殆どが微晶質石灰軟泥や粘土基質を多く含む砂岩中の有孔虫や超微化石の年代からは、晚期中新世 (または、恐らく、中新世末期から晚期中新世) の年代を示している[33]。

また、沿岸域でのこの炭酸塩岩は西方に向けて若くなり、その下位層の年代は、15~13.5 Ma である。沖合域での Alfonso XIII 累層は Tabon 石灰岩と同世代のものと解釈されている[33]。但し、北部パラワン地域の北西沖合での Nido 炭酸塩岩は、16.4Ma と同じ位若い石灰岩の上位層として分布している。この年代は、地震探査のマルチチャンネル地震波データから Nido 卓上炭酸塩岩の上部に部分的に形成されたサンゴ礁として決定されたものである。

中央パラワン地域の沿岸部での試錐データからは、Nido 炭酸塩岩の卓上部として同定されている (下部中新世 : 18.8 Ma)。このことから、平原状の Nido 炭酸塩岩は、中部中新世以前に堆積したものであることが明白である。従って、中央パラワン地域の Quezon 地区の中部中新世より若い炭酸塩岩は、むしろ、St. Pauls (Nido) 石灰岩に代わる Tabon 石灰岩であると提言されている[42]。

次に、これらの炭酸塩岩層と衝上断層によるくさび形成間の関係を検討する。それは中央/南部パラワン地域の沖合域に分布する 2 層の炭酸塩岩層と、衝上断層によるくさび形成・発達に密接な関係があるからである。それらの炭酸塩岩である Tabon 石灰岩の時間-空間での発展は、恐らく、くさび形成期間でのテクトニクスな活動とリンクしている。隆起の動きは、炭酸塩岩の成長を促した南東から北西への浅海環境過程でくさびを頂部へもたらしたものと提言されている[3]。この隆起は東部で始動し、現在の中央パラワン地域の沿岸域での、Tabon 石灰岩が直接オフィオライトを被覆していることが観察される。この石灰岩は早期中新世の末期のものである。10~5Ma 期間[43]での一般的な海面上昇が、石灰岩のその後の成長の

ための場所を提供したように考えられる。しかしながら、くさびの頂部が広範囲に水平であることから、炭酸塩岩堆積を西方へ移動させる主な解釈としての海面変化については考慮されない。

従って、仮に、半地表状態で、部分的であるがテクトニックに安定な地域、例えば、沿岸域の **Tabon** 石灰岩を伴う中央パラワン地域では、海水面の上昇が東方への海進の結果によるものと考えられる。このような場合では、炭酸塩岩の堆積と岩礁の発達が生海である西方から始まり、その後、東方へ伝搬するものであるが、その反対の場合もある。中央 / 南パラワン地域のフロントにあるテクトニクスに引き起こされたくさびの隆起は、**Tabon** 石灰岩の堆積を西方へ移動させるような浅海性環境を漸次形成させたためと考えられる[3]。

沖合域でのくさび形成の時期は、被覆されるか、あるいは被覆するかの石灰岩の堆積環境に拘束される。衝上活動は下位 (**Nido** 石灰岩層) の炭酸塩岩質地層の形成後に生起し、堆積した **Tabon** 石灰岩による被覆と密封する以前に休止するに違いない。**Nido** 炭酸塩岩が南パラワン地域の下位にどのくらい遠く東方へ移動するのか、そして、その時期が衝上断層によるくさびの初期形成への明白な時間的拘束であるのかが明白でない。生物学的・層序学的対比からは、これらの卓上炭酸塩岩上位は、18~20Ma で早期中新世のものに対比される。このことから、くさびは 18Ma 以前には形成されなかったものと結論する。卓状炭酸塩岩が沈降して現在の深度になった時期は、確かにいくつかあるはずであるが、くさびは 18Ma 後のある時期に形成し始めたのかも知れない。**Tabon** 石灰岩はくさびをシールしたためにくさび形成後に堆積したものと解釈される。このことが、南部パラワン地域でのくさびの発達に更なる時間的拘束を与えることになる。沿岸域での最古の **Tabon** 石灰岩は 16Ma (早期中新世) である。従って、くさび形成は、18~16Ma の間に始動し、晚期中新世の上部 (~7Ma) まで西方へ移動し続いたものと考えられる。**Tabon** 石灰岩は、炭酸塩岩の堆積が晚期中新世の末期の 5Ma 頃に終息する前までの 2 百万年以上の間ほぼ鉛直方向に堆積・分布し続けた。その結果、くさびフロントは、恐らく、荷重の重力による斜面滑動により何ヶ所かで崩落したものと考えられる。

次に、中央/南部パラワン地域の構造発達プロセスを考察する。これらの地域は、東方から西方への衝上断層によるくさび形成されたくさびが中新世期間の構造発達プロセスそのものである。少なくとも、中央パラワン地域は、早期中新世の末期以前までの発達過程を示している。衝上断層活動とくさびの発達は前期鮮新世の早期まで継続し、その堆積環境は浅海から深海へと変化し、その堆積環境変化は、収斂の終末と一致している。

ここで取り上げている **Tabon** 石灰岩は東方から西方に分布しているものを対象としている。従って、これらの炭酸塩岩は、くさびの発達が東方から西方へ引き起こされるのに伴う隆起によるテクトニクスに支配されているものと結論される。

中生代のパラワンオフィオライトを被覆している **Tabon** 石灰岩に等価な沿岸域の石灰岩層は、著しく褶曲されている。この褶曲は、中央 / 南部パラワン地域において NE-SW 系の海嶺軸を持つ大規模な背斜構造を示す結果となった。事実、南パラワン島の全体的な地形は、この背斜構造の影響を受けている。この褶曲は、**Tabon** 石灰岩の堆積後に生起されと解釈さ

れている。Quezon 周辺に産する最とも新しい石灰岩からは、中期中新世のものと同定されているので、隆起と褶曲も、若いに違いないと推定される。Quezon 町にある洞窟内の二次生成物は 1.2Ma から形成されていることから、石灰岩の陸上露出を示す隆起のタイミングに対しての時間的拘束が考えられる。

これは、南パラワン島の形成に関与している晩期中新世から鮮新世時期の地殻短縮の第 2 段階を示すものである。このことは、Plute 累層 (Panas 累層の相当層) 内のくさびが恐らく連続的に海面下にあった時期が、南パラワン島の海面から隆起した時期なのかも知れない。

これらの事実から、①中央/南部パラワン地域の沿岸部での Nido 炭酸塩岩の露出の証拠はなく、そこに露出している石灰岩は、若い Tabon 石灰岩である。②中央/南部パラワン地域の沖合部または、沿岸部での Tabon 石灰岩の詳細な対比から、この石灰岩は西方へ順行することにより下位にある Plute 累層内のくさびの発達を促すようなテクトニクス拘束されたものと考えられる。③Nido 石灰岩は、下位の Plute 累層のくさびそのものであることが明白であり、ボルネオ西方までの「Dangerous Ground」全体に延長していることが地震探査測線での解析結果により追跡された。④この 2 つの石灰岩は、Plute 累層内くさびの発達のための時間的拘束を与えている。そして、パラワン島では、~18Ma より以前には形成されていなかったが、~7Ma まで活動的であったことが解釈される。

つまり、第 2 段階の隆起の始動は、中央/南部パラワン地域の沿岸域での Tabon 石灰岩の褶曲の起因となった。このイベントへの時間的拘束は、西パラワン大陸棚での後期鮮新世の末期における不整合であり、Quezon 町市周辺の洞窟内の二次生成物 (1.2Ma 以来) の形成をもたらした。



### 2.3.2 Narra 地区の地質概要

フィールド調査サイトである Narra 地区は、パラワン島州都・プエルトプリンセサから南東約 35km に位置する Narra 州・Caguisan 地域・Panacan 地区にある。調査サイトは、パラワン島東部にあるスルー海（フィリピン諸島とボルネオ島北部の間の内海）の海岸線から約 6km 西方の内陸に位置し、その標高は海拔約 60m で、東へ緩傾斜する平坦地（河川扇状地様地形）である。この調査サイト規模は東西約 80m、南北約 150m の範囲の広さである。

Narra 地区の地質概要は、パラワンオフィオライト（Mt. Beaufort Ultramafics <超苦鉄質複合岩体：主に蛇紋岩化作用を受けたハルツバージャイト・かんらん岩・少量のダナイト・レールズライト・斑れい岩などで構成される）の基盤岩と、この基盤岩に直接累重する碎屑性堆積物から構成されている。

また、このパラワンオフィオライトを構成する斑れい岩（輝緑岩）は「Stavelly 斑れい岩」に属し、殆どが岩脈として貫入している。Narra サイトでは、これらの岩脈は小高い丘を形成するような地形的な高まりで特徴づけられる。この斑れい岩は、Narra サイトの東方にある Babatou 滝のクリーク上流部に、パラワンオフィオライト（ハルツバージャイト）に直接貫入した岩脈として産状している。

Narra サイトでの粘土鉱物が含有する堆積物の形成プロセスについては、パラワンオフィオライトが定置後(33~23Ma[30][33])、隆起・露出過程で風化・削剥され、現地性の未固結な堆積物として碎屑性堆積物(Clastic Sediments)が形成され、その後、このパラワンオフィオライト基盤岩近傍の緩斜面上に運搬・堆積したオフィオライト起源の堆積物である。その堆積環境からは、その形成過程が、いわゆる「風化-侵食・削剥-運搬-堆積-岩石化(続成作用)プロセス」を示す現地性の碎屑性堆積物である。

また、碎屑性堆積物中に、屢々、斑れい岩が層間内礫として挟在する礫の大きさや扁平された亜礫の形状から判断して、その運搬距離は遠いものではないといえる。また、初生的に蛇紋岩化作用が進んだ蛇紋岩が強固に破碎されると、屢々、蛇紋岩砂岩～礫岩（堆積性蛇紋岩）が形成されることが報告されている[44]。

この碎屑性堆積物は、その形成過程から、後背地に分布するパラワンオフィオライトから供給された岩石の岩片・鉱物片やそれらの碎屑物から構成されている。これらの碎屑物堆積物は岩屑(Detritus)で、殆どが物理的風化作用の産物である。

また、碎屑性堆積物の鉱物粒径およびマトリックス、鉱物組み合わせ（主要鉱物・副成分鉱物）・組成などの特性要素の解析から、それらの堆積環境（供給源、運搬経路・運搬距離、堆積場所、堆積時間など）を推測することが出来る[45]。さらに、これらの碎屑性堆積物は、その後の埋没作用による固結化（岩石化:コンパクション <圧密作用>）や、前駆鉱物の溶解・沈殿作用などによる広義の鉱物変質（続成作用）が進展していくことになる。

Narra 地区に分布するこれらの碎屑性堆積物は、2 つの岩質ユニット(2-Lithological Units)として、上部層と下部層に大別される。

上部層はトラバーチン（石灰華）起源の炭酸塩沈殿物層が沈積し、その下位にはパラワンオフ

イオライト起源の碎屑性堆積物である下部層が堆積している。上部層は上位から、ルーズな炭酸塩沈殿物から塊状で淡褐色の炭酸塩質堆積物へとその岩相変化と、下位層には若干の岩石化が観察される。この層厚は、地形的上位では厚く、トレンチ 1（平成 27 年度実施）周辺では 5m を超えるものと推定される。また、下位部には葉理構造をもつ固結化が進んだ炭酸塩沈殿層の薄層（約 30cm 程度）が挟在する。

一方、下部層は、その岩相・岩質・堆積構造などから大別すると、部分的ではあるが上位が砂質優勢で、下位は泥質優勢な黒色粘土である。この下位には不規則な分布ではあるがパッチ状粘土質堆積物または、ほぼ層状の粘土質碎屑性堆積物が分布する。

また、下部層には、特徴的な河川系チャンネル構造を思わせる凹部が観察される。ただし、その凹部には、連続性に乏しくかつ分布密度が小さい層間内礫(Intraformational Conglomerate)が最大鉛直方向に数 m 程度の範囲内で不規則に挟在している。その礫岩は、肉眼的にはハルツバージャイト、等粒状斑れい岩、レールズライト等から構成されるパラワンオフィオライト起源の多源礫岩である。

今年度のトレンチ調査で、トレンチ 7 の底面近傍（現地表面から約 2m）のみに、降下火砕堆積物である降下火山灰堆積物（主に、パミス、火山ガラス、半自形の斜長石の鉱物片などで構成されている）が連続性のある水平で北東系走行をもつ層厚約 20cm で挟在している、鍵層になりうる特異的な堆積物を初めて観察した。この起源は、おそらくパラワン島近傍にある火山の火山活動により風（例えば、季節風など）に運ばれ局所的に堆積したものと推察される。

従って、Narra サイトの碎屑性堆積物は、パラワンオフィオライトを構成する①ハルツバージャイト起源と、②Stavelly 斑れい岩起源、そして、③新しい火山活動により風で運ばれ堆積した降下火山灰起源の堆積物の 3 種類である。

これらの 3 種類の碎屑性堆積物における粘土鉱物の形成プロセスを考察する上で、形成環境を支配するバルク組成の地球化学的特性がある。上述したよう①は苦鉄質鉱物から構成されるために、Mg-Fe-(Ca)に富み、②は①と比べて珪長質（長石<斜長石・石英など>）であるために、Al-Si-(Na・K)に富み、③は②と比べて、より珪長質であるために、Si-Al に富むことが地球化学的特性となる。

## 2.4 地下水調査

Narra 地区の①表層域での地下水流動特性、②地下水（湧水も含む）の地球化学的特性を明らかにするため、Narra3-2 地点でのトレンチ内壁面からのアルカリ浸出水、Narra3 地点を含む Narra3-1 のアルカリ湧水及び降雨水を対象に、物理化学的特性<パラメータ>の原位置測定（pH、温度、電気伝導度、酸化還元電位<ORP>、など）・簡易分析（Ca, Mg, Al, SiO<sub>2</sub>, Cl）・ガス濃度測定（H<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>）と水質分析を実施した。

### 2.4.1 現地調査（現地測定・簡易分析・採水）

平成 28 年度の調査[1]において、pH11 を超える高アルカリ地下水がスメクタイトを含有する粘土質の碎屑性堆積物に浸出しているナチュラルアナログを確認した Narra 地区(図 2.4.1-1 参照)において、Narra3-2 地点でのトレンチ内壁面からのアルカリ浸出水（トレンチ 5～7）と Narra 地区のアルカリ湧水地点（Narra3-1 地点）を対象に、その物理化学パラメータの測定と採水を実施した。

表 2.4.1-1～表 2.4.1-3 に Narra 地区の調査地点の状況と地下水の物理化学パラメータの現地測定結果を示す。

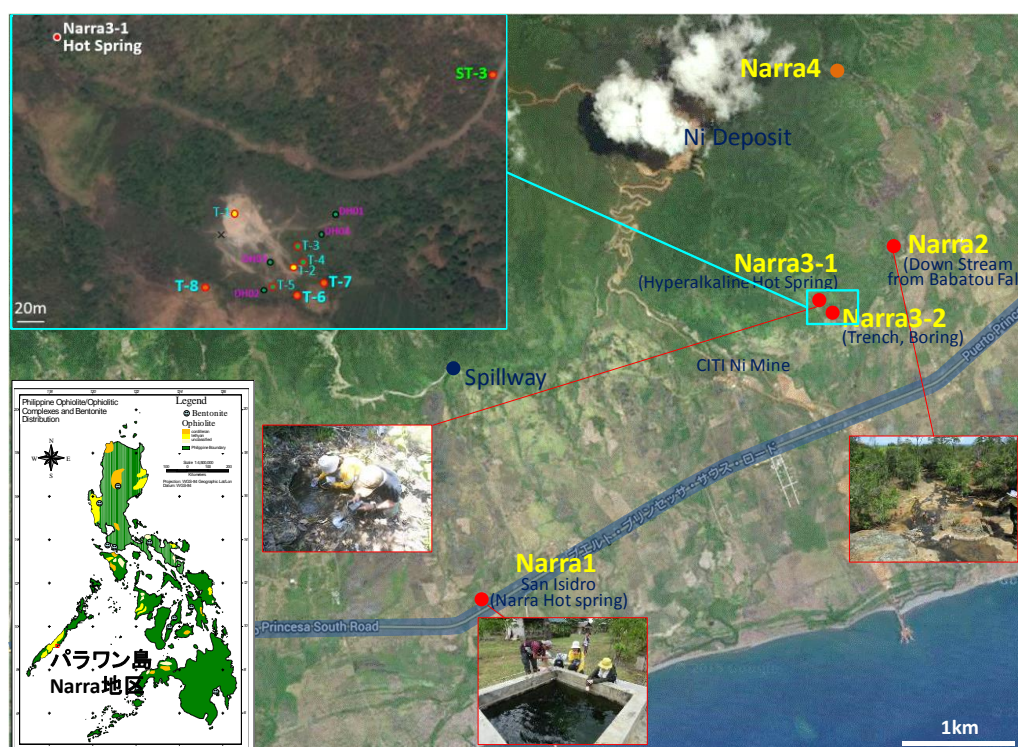


図 2.4.1-1 Narra 地区の地下水調査地点

表 2.4.1-1 Narra3-1 源泉現地水質測定結果


採取日時		位置	採取場所/母岩	測定項目	2016	2017	備考
6/10	13:30	N09°12' 18.6" E118°16' 46.2"	Narra3-1(湧水) 採水 	pH	11.37	11.28	
				Temp. (°C)	38.5	32.3	
				ORP (mV)	-867	-221	
				DO (mg/L)	1.19	3.08	
				EC (mS/m)	91.6	90.6	
				CH4(ppm)	200	—	
				H2(ppm)	0	—	
				Ca(mg/L)	20-50	20-50	
				Mg(mg/L)	0	0	
				Al(mg/L)	0-0.05	0.05-0.1	
				SiO2(mg/L)	5	0	
Cl(D)(mg/L)	>50	>50					

表 2.4.1-2 Narra3-2 トレンチ浸出水現地水質測定結果





採取日時		位置	採取場所/母岩	測定項目	2016	2017	備考
6/6	15:10	N09°12' 12.6" E118°16' 51.4"	Trench5 採水 	pH	11.37	11.17	
				Temp. (°C)	33.7	29.0	
				ORP (mV)	-111	-100	
				DO (mg/L)	3.08	6.59	
				EC (mS/m)	90.6	64.5	
				CH4(ppm)	—	—	
				H2(ppm)	—	—	
				Ca(mg/L)	20-50	20-50	
				Mg(mg/L)	0	0	
				Al(mg/L)	0.1	0.05	
				SiO2(mg/L)	5	10	
Cl(D)(mg/L)	>50	>50					
6/9	10:30	N09°12' 12.4" E118°16' 51.8"	Trench6 採水 	pH	—	10.96	
				Temp. (°C)	—	27.2	
				ORP (mV)	—	-107	
				DO (mg/L)	—	7.02	
				EC (mS/m)	—	49.3	
				CH4(ppm)	—	0	
				H2(ppm)	—	0	
				Ca(mg/L)	—	20-50	
				Mg(mg/L)	—	0	
				Al(mg/L)	—	0-0.05	
				SiO2(mg/L)	—	20	
Cl(D)(mg/L)	—	>50					
6/10	10:30	N09°12' 12.8" E118°16' 52.7"	Trench7 採水 	pH	—	11.16	
				Temp. (°C)	—	27.7	
				ORP (mV)	—	-141	
				DO (mg/L)	—	3.83	
				EC (mS/m)	—	68.9	
				CH4(ppm)	—	0	
				H2(ppm)	—	0	
				Ca(mg/L)	—	20-50	
				Mg(mg/L)	—	0	
				Al(mg/L)	—	0-0.05	
				SiO2(mg/L)	—	10-20	
Cl(D)(mg/L)	—	>50					

表 2.4.1-3 Narra 降雨水現地水質測定結果

採取日時		位置	採取場所/母岩	測定項目	2016	2017	備考
6/11	7:00		Rain water 採水 	pH	—	5.68	
				Temp. (°C)	—	25.8	
				ORP (mV)	—	165	
				DO (mg/L)	—	8.16	
				EC (mS/m)	—	1.35	
				CH4(ppm)	—	0	
				H2(ppm)	—	0	
				Ca(mg/L)	—	—	
				Mg(mg/L)	—	—	
				Al(mg/L)	—	—	
				SiO2(mg/L)	—	—	
				Cl(D)(mg/L)	—	—	

## 2.4.2 地下水の地球化学的特性

パラワン島 Narra 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 2.4.2-1 に示す。炭酸・重炭酸イオンの評価結果は表 2.4.2-2 に示す。また、地下水の水質組成をヘキサダイアグラム(Stiff Diagram)表示で図 2.4.2-1～図 2.4.2-5 に示す。

Narra 地区で賦存している地下水はすべて還元性のアルカリ地下水で、その水質タイプは  $\text{Ca}^{2+}$ - $\text{OH}^-$  である。また、トレンチ壁面からのアルカリ湧水すべてが還元性である。トレンチと Narra3-1 のアルカリ湧水の源泉の水質組成はほぼ類似しているが、トレンチのほうがアルカリ金属イオン( $\text{Na}^+$ + $\text{K}^+$ )濃度と炭酸・重炭酸イオン( $\text{HCO}_3^-$ + $\text{CO}_3^{2-}$ )濃度がやや高い傾向にある。これは、昨年度[2]評価した試錐孔内水で同じ傾向を示した。Mg 濃度の低く高アルカリであるトレンチ浸出水の水質・起源と進化は、Narra 地区の蛇紋岩化作用に伴うアルカリ源泉の地下水そのものであることが示唆される。

パラワン島の地下水調査地点と水質組成を地質図上にまとめた図を図 2.4.2-6 に示す。また、表 2.4.2-3 には、パラワン島の調査サイトの水質を、比較のために、Zambales オフィオライトが分布するルソン島の調査サイト及び(低アルカリ)セメント浸出水の水質データ[46]と合わせて示す。低温型蛇紋岩化作用により生成した高アルカリ地下水の地球化学的特性(pH、Eh、温度、溶解イオン濃度)はセメント浸出水との高いアナログ性を示す。パラワンのアルカリ地下水は総じて Mg 濃度が低く、Ca 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もつ。特に Narra 地区の Narra3-1～3-2 地点のアルカリ地下水は、pH と温度が高く、酸化還元電位が低い(還元性)。これは、岩石・鉱物学的観点から、パラワンオフィオライトが Zambales オフィオライトと比較してより苦鉄質であること、蛇紋岩作用が顕著であることから、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ったためだと考えられる。

次に、図 2.4.2-7 に Narra 地区の調査サイト周辺での湧出水・地下水・トレンチ内湧水・試錐孔内水の水質組成を示す。Narra 地区における表層域サイトスケールでは、局部的ではあるが表層水の主要な流動系は、Narra3-1 (アルカリ源泉の湧水) 地点を頂点として扇形に東方(海方向)に広がる平坦な河川系扇状地的な地形的特徴(N-S 方向:最大約 200m、E-S 方向:最大約 150m)

を示す流動領域内を表層水理場の対象域（境界条件）とすることが出来る。

現在の表層部における主要な流動系（クリーク：小川）は、3方向で概ね東傾斜で緩やかに流下している。中でも真ん中の流動系が、他の2つの流動系と比べると、その流動幅・流量が大きい。これらの流動系は、地下深部において古チャンネル構造として保存されている。これらの古チャンネル形状は“馬蹄形”でその深度とチャンネル幅も数mを超えていることがフィリピン大学のTEM（Transient Electromagnetic；電磁探査）による二次元初期解析からも示唆されている。

また、トレンチ壁面での縦断面観察からもチャンネル構造が明瞭に観察され、その河川系・河床部には、連続性に乏しく、多源の円磨された巨礫（長径：約25cm）や細礫～中礫層が最大幅3m、最大層厚1.5m規模を持って平坦で対称性のある船底状に分布している。これらは、非定常状態での氾濫性礫層と考えられる

このような水理地質構造学的要素から、表層水の流動系は恐らく緩慢な現地形傾斜に支配されていると想定される水頭ポテンシャル差（例えば、動水勾配）のもと、東方に向かって緩慢に流動しているものと推察出来る。

Narra 地区におけるアルカリ源泉口（Narra3-1）からの湧水(pH 11.11~11.37)は、パラワンオフィオライト（基盤岩）内の断裂系に伴う裂か水で、その生成は上述したように水・岩石相互作用に伴う蛇紋岩化作用と密接な関係に起因している。

また、この表層域に広く発達・分布している石灰華の沈殿（形成）は、超苦鉄質複合岩体の蛇紋岩化作用プロセスに伴うアルカリ地下水との地球化学的環境に深く関与していることが事例研究として数多く報告されている[47]。これらの扇状地様平坦地の表層域では、ルーズで未固結な炭酸塩沈殿物が分布するところでは、アルカリ地下水からの石灰華の供給量が持続される地球化学的環境が保持されるものと考えられる。更に、表層水（地表水）の流量・流向などの変動も大きくなく、表層水による侵食（下刻作用）が広くかつ、深く進まないものと考えられる。

一方、浅層の地下水は、アルカリ源泉口の位置する扇頂付近から地下に浸透した伏流水として、貯留され、その流動系は岩石化が進んでいる炭酸塩沈殿層（堆積岩）を不透水層として、被圧地下水（トレンチ壁面から湧水するアルカリ地下水）として、東方に向かって流動しているものと考えられる。



表 2.4.2-1 地下水パラメータ・溶存イオン濃度測定結果（パラワン島中部 Narra 地区）

採水ポイント Location Elevation	Narra, Palawan									
	N09°12' 18.6" ,E118°16' 46.2"		Rain water taken in Maydavian Resort, Narra		N9°12' 12.6" ,E118°16' 51.4"		N9°12' 12.4" ,E118°16' 51.8"		N9°12' 12.6" ,E118°16' 52.7"	
Classification	Crack Water		Rain Water		Seepage Water in Trench5		Seepage Water in Trench6		Seepage Water in Trench7	
採取日	2017/6/10	2016/6/1	2017/6/11		2017/6/6	2016/6/8	2017/6/9		2017/6/10	
Sample No.	Narra3-1		Rainwater		Trench5		Trench6 in Down Slope from		Trench7 in Down Slope from	
pH	11.28	11.37	5.68		11.36	11.36	10.96	-	11.16	-
Temp.(°C)	32.3	38.5	25.8		29.9	29.9	27.2	-	27.7	-
ORP(mV)	-221	-867	165		-152	-152	-107	-	-141	-
EC(mS/cm)	90.6	91.6	1.35		78.3	78.3	49.3	-	68.9	-
DO(mg/L)	3.08	1.19	8.16		2.09	2.09	7.02	-	3.83	-
CO <sub>2</sub> (mg/L)	-	-	-		-	-	-	-	-	-
カチオン濃度 (ppm)	Na <sup>+</sup>	42.9	50.4	0.44		45.4	48.2	50.1	-	49.1
	K <sup>+</sup>	2.26	2.36	0.31		2.16	2.24	2.18	-	2.02
	Ca <sup>2+</sup>	41.3	50.6	0.41		25.5	44.8	24.6	-	26.8
	Si	0.4	0.29	0.07		3.46	4.10	5.77	-	4.27
	Al <sup>3+</sup>	0.18	0.13	b.d.l.		0.30	0.13	0.16	-	0.19
	Mn <sup>2+</sup>	0.01	<0.01	0.01		0.01	<0.01	0.01	-	0.01
	Mg <sup>2+</sup>	0.00	0.01	0.10		0.01	<0.01	0.01	-	0.00
Fe <sup>(2+3+)</sup>	0.00	0.01	0.01		0.00	0.01	0.02	-	0.02	
アニオン濃度 (ppm)	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	26.7*	10.7*	0.6*		32.9*	50.3*	55.0*	-	55.6*
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	b.d.l.	0.63	b.d.l.		b.d.l.	0.62	b.d.l.	-	b.d.l.
	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup>	b.d.l.	0.23	0.46		b.d.l.	0.22	0.33	-	b.d.l.
	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>	b.d.l.	<0.01	b.d.l.		b.d.l.	<0.01	b.d.l.	-	b.d.l.
	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	0.024	0.05	0.15		0.08	<0.01	1.92	-	0.63
	Cl <sup>-</sup>	27.2	28.03	0.67		27.8	27.82	28.5	-	28.6
	Br <sup>-</sup>	0.06	0.06	b.d.l.		0.04	0.06	0.02	-	0.04
F <sup>-</sup>	0.04	<0.01	0.06		0.03	<0.01	0.17	-	0.13	
OH <sup>-</sup>	-	-	-		-	-	-	-	-	
バックテスト (ppm)	SiO <sub>2</sub>	0	5	-		10	5	20	-	10~20
	Cl	>50	>50	-		>50	>50	>50	-	>50
	Al	0.05~0.1	0~0.05	-		0.05	0.1	0~0.05	-	0~0.05
	Ca	20~50	20~50	-		20~50	20~50	20~50	-	20~50
Mg	0	0	-		0	0	0	-	0	
ガス濃度 (ppm)	H <sub>2</sub>	-	0	-		-	-	-	-	-
	CH <sub>4</sub>	-	200	-		-	-	-	-	-
備考	*1はHCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> Ca, Fe, Mg, Alは A.Wの値	*1はHCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> Ca, Fe, Mg, Alは A.Wの値	*1はHCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> Ca, Fe, Mg, Alは A.Wの値		*1はHCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> Ca, Fe, Mg, Alは A.Wの値	*1はHCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> Ca, Fe, Mg, Alは A.Wの値	*1はHCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> Ca, Fe, Mg, Alは A.Wの値	*1はHCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> Ca, Fe, Mg, Alは A.Wの値	*1はHCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> Ca, Fe, Mg, Alは A.Wの値	*1はHCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> +CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> Ca, Fe, Mg, Alは A.Wの値

表 2.4.2-2 重炭酸・炭酸イオン測定結果

濃度(mg/L)	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	備考
Ternch5	3.0	29.9	
Trench6	9.2	45.8	アルカリ度滴定の理論式と合致せず。参考値。
Trench7	8.9	46.7	アルカリ度滴定の理論式と合致せず。参考値。
Narra3-1	1.6	25.1	アルカリ度滴定の理論式と合致せず。参考値。
Rainwater	0.6	0.0	アルカリ度滴定の理論式と合致せず。参考値。

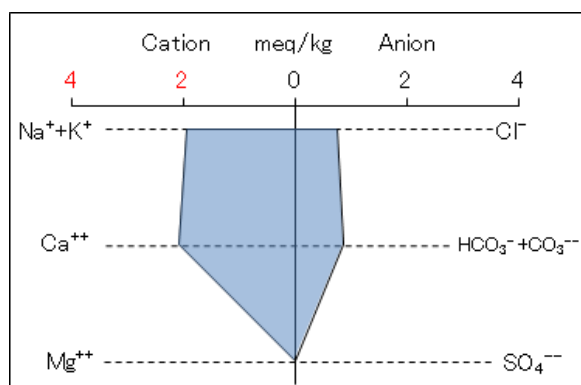


図 2.4.2-1 Narra3-1 のヘキサダイアグラム表示による水質組成

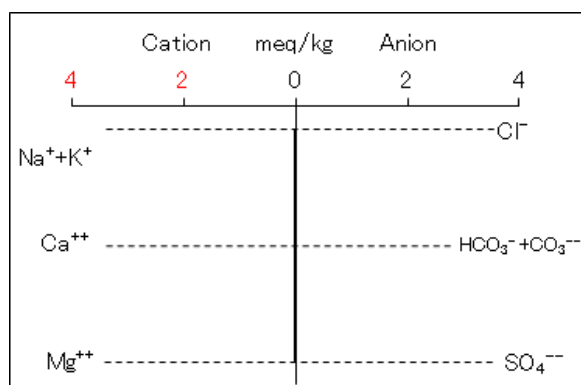


図 2.4.2-2 Rainwater のヘキサダイアグラム表示による水質組成

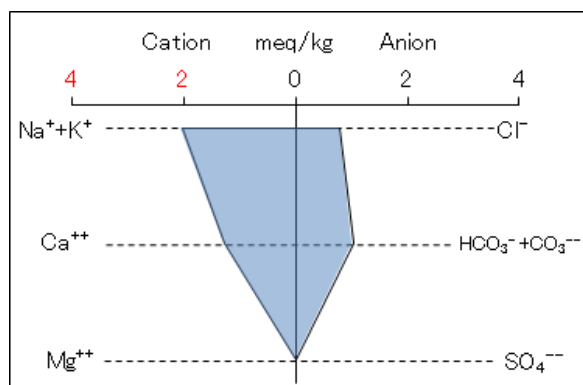


図 2.4.2-3 トレンチ 5 のへキサダイアグラム表示による水質組成

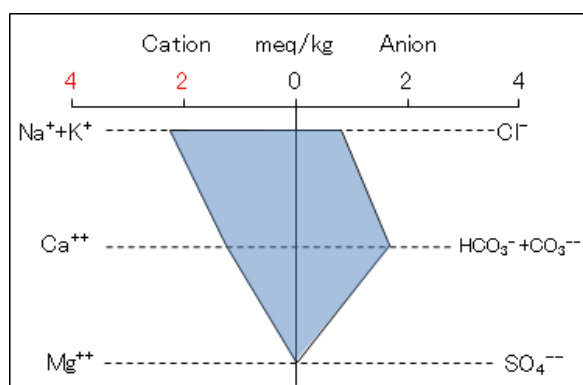


図 2.4.2-4 トレンチ 6 のへキサダイアグラム表示による水質組成

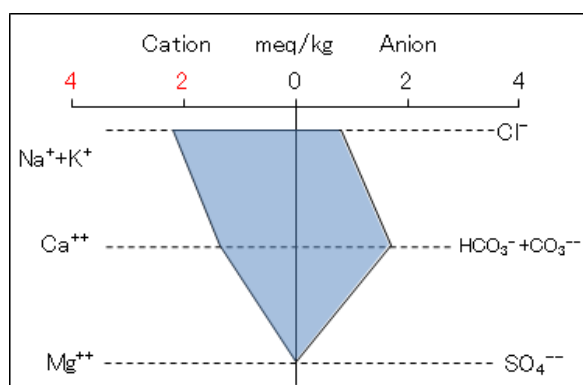


図 2.4.2-5 トレンチ 7 のへキサダイアグラム表示による水質組成

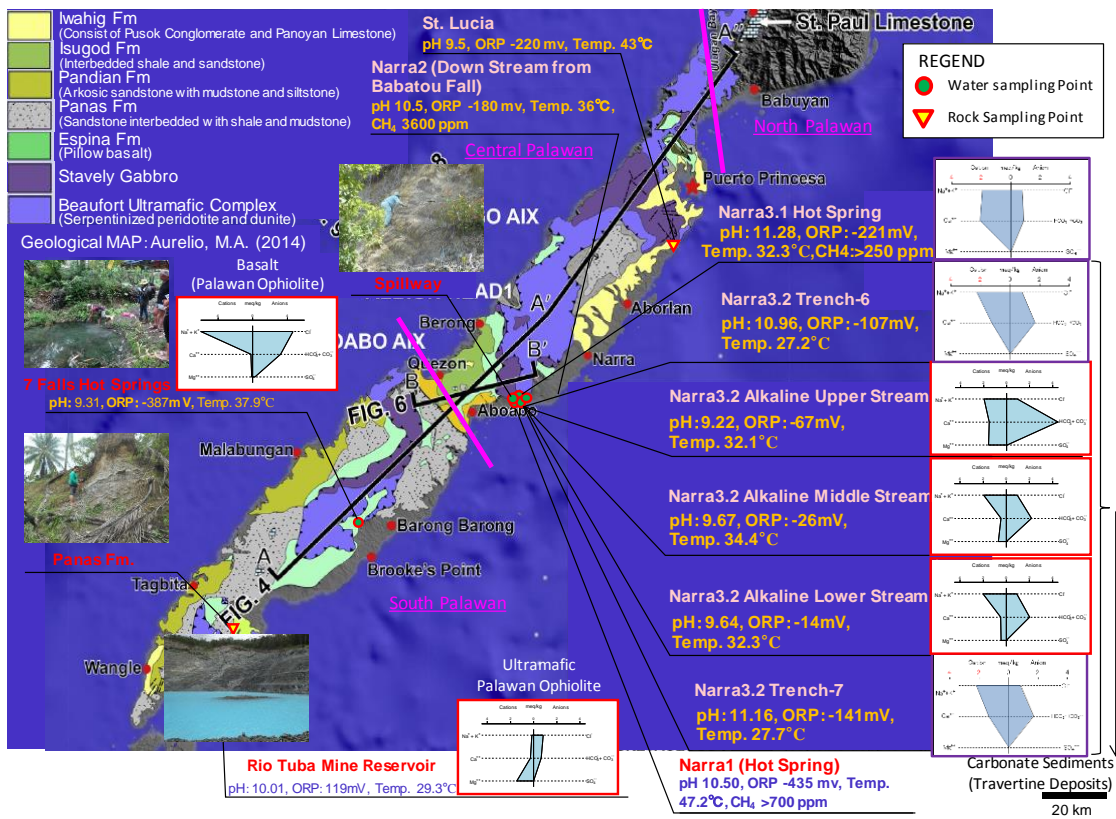


図 2.4.2-6 パラワン島の地下水調査地点と地下水の水質組成

表 2.4.2-3 パラワン島とルソン島(Zambales)のアルカリ地下水の地球化学的特性の比較

Site	Palawan Riotuba-Waterfall	Palawan Brooke's Point - 7 Falls	Palawan Narra -1 Hot Spring	Palawan Narra -3.2 Trench5	Palawan Narra -3.2 Trench6	Palawan Narra -3.2 Trench7	Palawan Narra -3.1 Hot Spring	Luzon Poonbato	Luzon Manleluag Hot Spring - MI	Luzon Bigbiga - Well-1	Low alkali cement leachates (PNC 1997)*
採取年 Sample No.	2015 Riotuba Mine O	2015 7 Falls 1 O	2015 Narra1 G	2017 Narra3-2 Trench5 O	2017 Narra3-2 Trench5 O	2017 Narra3-2 Trench5 O	2017 Narra3-1 O	2013 P-2 G	2013 MI G	2014 Well1 G	1997
pH	10.01	9.31	10.50	11.27	10.96	11.16	11.28	11.41	10.80	9.52	11.09
ORP(Eh) [mV]	119	-387	-435	-100	-107	-141	-221	-111	-420	8	-
Temp [°C]	29.3	37.9	47.2	29.0	27.2	27.7	32.3	28.0	32.9	29.2	60
CH <sub>4</sub> [ppm]	0	0	>700	-	-	-	-	> 5000	2090	0 (0-560)	-
H <sub>2</sub> [ppm]	0	0	0	-	-	-	-	50~1320	0 (0-62)	0 (0-130)	-
Na <sup>+</sup> [ppm]	2.00	164	96.4	45.4	50.1	49.1	42.9	24.3	26.3	100.6	43
K <sup>+</sup> [ppm]	0.44	3.38	1.46	2.16	2.18	2.02	2.26	1.45	0.375	1.05	13
Ca <sup>2+</sup> [ppm]	5.00	3.80	3.78	25.5	24.6	26.8	41.3	92.5	29.9	1.63	16.8
Mg <sup>2+</sup> [ppm]	16.4	1.31	0.17	0.01	0.01	0	0	0.24	0.03	0.02	-
Si <sup>2+</sup> [ppm]	< 0.5	31	86.4	3.46	5.77	4.27	0.40	11	17	72.3	-
Al <sup>3+</sup> [ppm]	< 0.01	< 0.01	0.19	0.14	0.19	0.18	0.30	1.41	1.05	0.97	0.3
Fe <sup>(2++3+)</sup> [ppm]	0.08	0.02	0.06	0	0.02	0.02	0	0.18	< 0.001	0.0058	-
Cl <sup>-</sup> [ppm]	28.6	162	56.5	27.8	28.5	28.6	27.2	12.9	17.8	4.50	-
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> [ppm]	0.03	15.7	6.34	0.08	1.92	0.63	0.02	0.05	0.364	48.0	-
HCO <sub>3</sub> <sup>-*</sup> [ppm]	21.2	121.0	-	3.0	9.2	8.9	1.6	1.6	30.0	135.6	-

\* wt % - Portlandite Cement: Silica Fume: Fly Ash=40: 20: 40

\*\*HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> - アルカリ度滴定結果から算出したHCO<sub>3</sub><sup>-</sup> + CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>の値

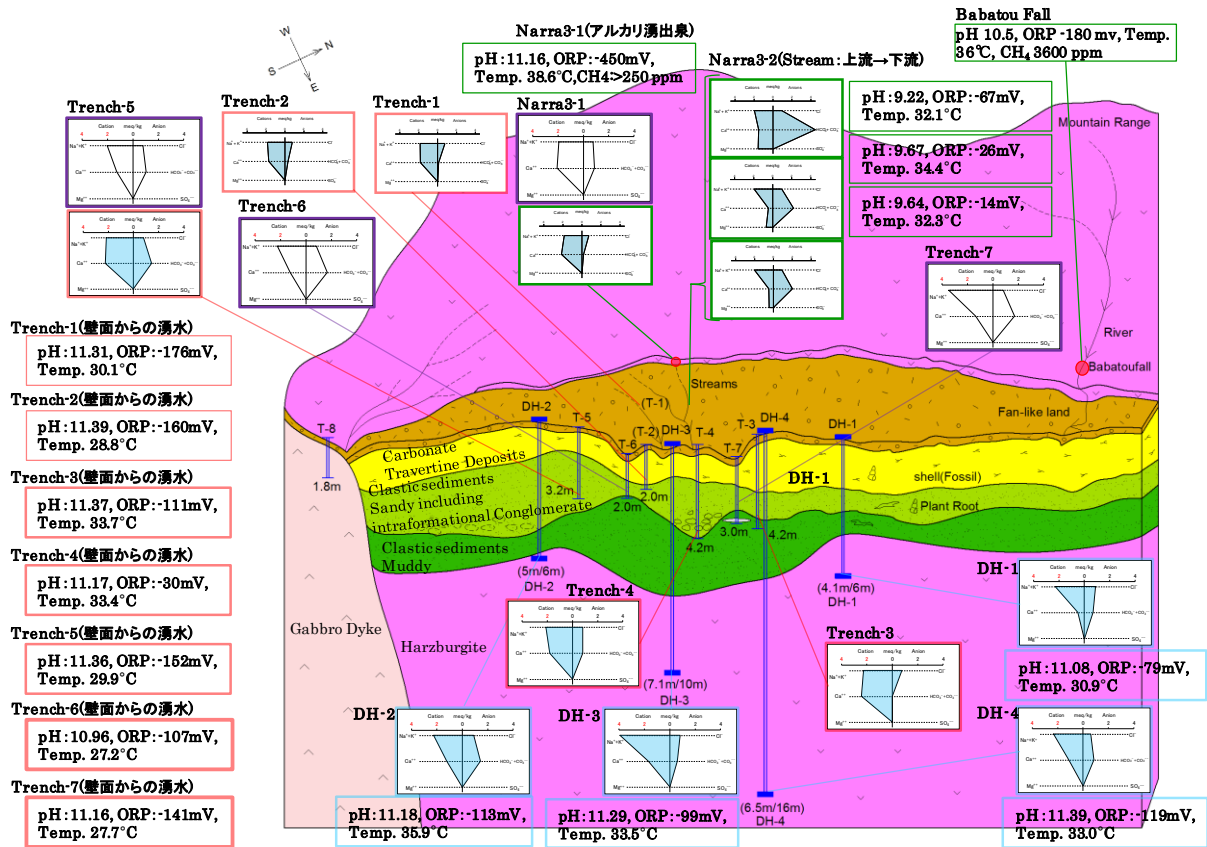


図 2.4.2-7 Narra 地区の模式層序学的断面図と地下水（湧水）の水質

## 2.5 トレンチ調査

### 2.5.1 トレンチ掘削

#### (1) トレンチ掘削地点の選定

今年度のトレンチ調査では、Narra 地区のナチュラルアナログサイトにおける、アルカリ地下水環境下でのスメクタイトの生成環境と、その鉱物学的変遷と安定性を考察するために、アルカリ環境下にある平原でのトレンチによる碎屑物堆積物からの試料採取と地下水の採取を目的として実施した。

現在湧水しているアルカリ泉源位置、そのアルカリ湧水の流動系（流向・流量）・地球化学的特性（物理化学パラメーターの一部である pH、Eh、水温の変化）と地形的関連性を考察した。合わせて、調査対象層の分布（層準・層厚）、岩相・岩質・堆積環境とパラワンオフィオライトの基盤深度を把握するために平成 28 年度[2]に実施した構造試錐データとの総合解析に基づき、トレンチサイトを選定した。

具体的には、Narra 地区（Narra3-2 地点周辺）は、扇状地様の地形学的特徴とトレンチ 2～5 の模式柱状図から判断して、構成地層、特に下部層を構成する粘土質の碎屑性堆積物の分布状況とその走行・傾斜方向および、基盤深度により、現在もアルカリ湧水のある碎屑性堆積物を対象に、より熟成（固結化・岩石化）が促進されるものと期待されるより下部層をターゲットにし、平成 28 年度[2]に実施したトレンチ 3～5 に対して、より東傾斜で、走行に平行な 2 サイト（トレンチ 6/7）を選定した（図 2.5.1-1）。



図 2.5.1-1 Narra 地区調査エリア



また、アルカリとの相互作用がない物理的風化環境下にある碎屑性堆積物の採取するために、Narra3-2 サイトの南西部の小高い丘を形成している斑れい岩岩脈の表層部を構成している風化堆積物（岩屑）がみられる地点をトレンチ掘削地点（トレンチ 8）として選定した。

(2) トレンチ掘削

1) トレンチ 6

バックホウにより、アルカリ河川からの流入防止のためのドレン掘削した上で、トレンチ 6 の掘削を実施した。堆積しているトラバーチンからの浸出水が多く、掘削中にその浸出水がトレンチ内に溜まるため、排水ポンプでの排水を適宜行いながら、GL-2.0m まで掘削した（図 2.5.1-2）。掘削後にトレンチの位置（GPS で計測した座標）の測定、トレンチの大きさ・深度の計測を実施した。表 2.5.1-1 にトレンチ 6 での作業工程を示す。

表 2.5.1-1 トレンチ 6 調査実施工程

日時	記事
6/8 11:00 11:00～14:00	トレンチ調査位置の確認（N9.2034444° ,E118.2810556° ） トレンチ掘削
6/9 9:10～9:40 9:40～12:00 （雨天のため中断） 14:50～16:00	法面、壁面整形 トレンチ調査（壁面観察、試料採取位置選定） トレンチ調査（試料採取）



図 2.5.1-2 トレンチ 6 掘削状況

2) トレンチ 7

トレンチ 6 と同様に、アルカリ河川からの流入防止のためのドレン掘削した後に、適宜ポンプでの浸出水の排水を行いながら、GL-3.0m 深度まで掘削した（図 2.5.1-3）。表 2.5.1-2 にトレンチ 7 での作業工程を示す。

表 2.5.1-2 トレンチ 7 調査実施工程

日時	記事
6/9 10:00 10:00～12:00	トレンチ調査位置の確認 (N9.2035555° ,E118.2813056° ) トレンチ掘削
6/10 9:10～9:30 9:30～12:30	トレンチ内たまり水排水 トレンチ調査 (壁面観察、水・岩石試料採取)



図 2.5.1-3 トレンチ 7 掘削状況

3) トレンチ 8

トレンチ 6,7 の掘削地点から小河川を挟んだ対岸の丘でトレンチ 8 を GL-2.0m 深度まで掘削した (図 2.5.1-4)。表 2.5.1-3 にトレンチ 8 での作業工程を示す。なお、トレンチ 8 はアルカリ影響を受けていないため、排水作業はなかった。

表 2.5.1-3 トレンチ 8 調査実施工程

日時	記事
6/9 12:30～13:00	トレンチ位置選定のための地質調査 (トレンチ 8) トレンチ 8 掘削
6/11 9:00～14:40	トレンチ調査 (トレンチ 8 : 壁面観察、水・岩石試料採取等)



図 2.5.1-4 トレンチ 8 掘削状況

## 2.5.2 壁面観察とサンプリング

### (1) 概要

各トレンチにおいて、トレンチ掘削、溜水排水後に壁面を削り出して（図 2.5.2-1～図 2.5.1-3）、粘土質の碎屑性堆積物の岩相、岩質、堆積構造、変質特性等について観察した。

スメクタイト質堆積層等の主要構成鉱物の鉱物組み合わせ・化学組成・組織を把握するための XRD、XRF による分析、および鉱物組成・産状（組織）に係わるデータの取得のための偏光顕微鏡観察や微細構造分析に供する岩石試料を、トレンチ壁面からハンドピック及びコアサンプラー（形状を崩さずにサンプリングするために金属容器（壁面に差し込んで試料を採取する））で採取した。また、各トレンチで、年代測定用の木片、炭酸塩試料、土壌も採取した。

既存の構造試錐位置（4 地点）とトレンチサイト（4 サイト：トレンチ 2～5）及び今年度実施したトレンチサイト（3 サイト：トレンチ 6～8）の位置関係および、アルカリ湧水（アルカリ泉源・トレンチ内壁面）・クリーク・滝などからの地球化学的特性（水質・物理化学的パラメーター）の解析図として図 2.5.2-4 に示す。

次に、今年度掘削した各トレンチについて、トレンチ壁面の露頭観察スケッチ（図 2.5.2-10、図 2.5.2-15、図 2.5.2-20）による地質学的特徴について報告する。また、XRD による鉱物同定、XRF によるバルク分析と EPMA による詳細な鉱物試験のための岩石試料採取位置、湧水採水位置、年代測定用試料採取位置を合わせて記載する。



図 2.5.2-1 トレンチ 6 壁面観察（右）、コアサンプリング（右）



図 2.5.2-2 トレンチ 7 壁面壁面削りだし（右）、サンプリング（右）





図 2.5.2-3 トレンチ 8 壁面観察 (右)、サンプリング (右)

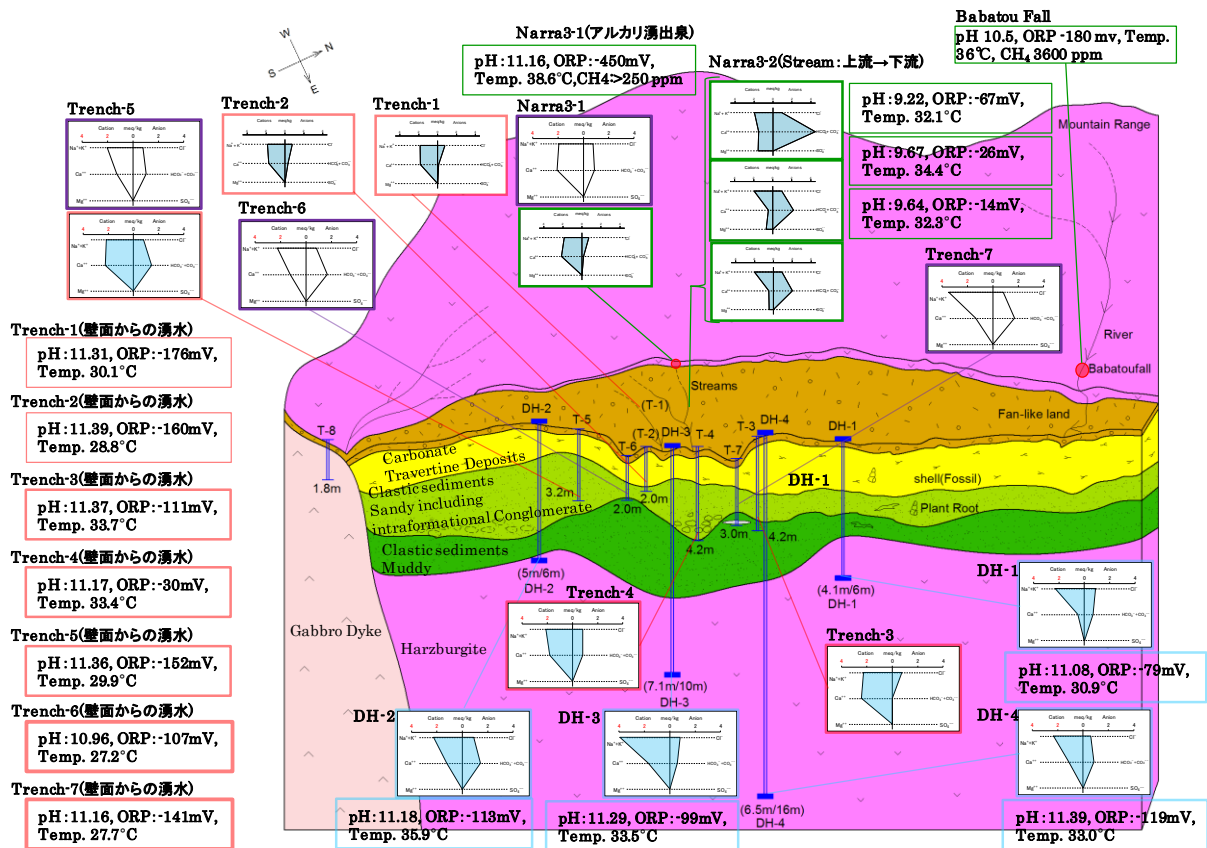


図 2.5.2-4 Narra 地区の地質断面概念図とアルカリ湧水・クリーク・トレンチ内湧水・試錐孔内水の地球化学的特性

(2) トレンチ 6

露頭観察の壁面 (西壁<幅:約 5m、深度:約 1.8m>、北壁<幅:約 3.4m、深度:約 1.8m>、東壁<幅:約 4.5m、深度:約 1.8m>)、南壁<幅:約 2.8m、深度:約 1.8m>

図 2.5.1-1 に示すように、トレンチ 6 はトレンチ 5 とトレンチ 2 (現在埋め戻してある) を

結ぶ法線から約 16m 傾斜方向（南東方向）に位置し、北東方向に船底型様に掘削した。

図 2.5.2-5、図 2.5.2-6 にトレンチ 6 の壁面写真と年代測定試料及び水試料のサンプリング位置を、図 2.5.2-7、図 2.5.2-8 に岩石試料のサンプリング位置を示す。鉍物試験のための岩石試料は北壁断面露頭から採取した。



図 2.5.2-5 トレンチ 6 の北～東壁面と年代測定試料及び水試料採取位置



図 2.5.2-6 トレンチ 6 の西壁面と年代測定試料採取位置





図 2.5.2-7 トレンチ 6 の北壁面と(Rh)岩石試料採取位置

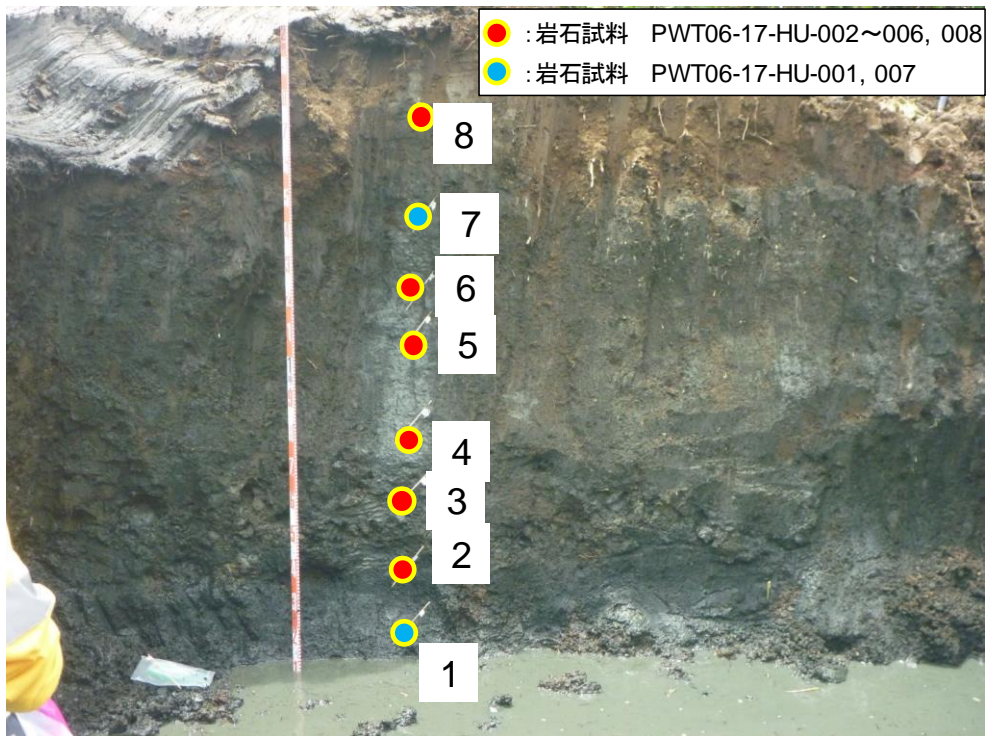


図 2.5.2-8 トレンチ 6 の北壁面と(HU)岩石試料採取位置



図 2.5.2-10 にトレンチ 6 壁面の露頭観察スケッチを示す（凡例は図 2.5.2-9 参照）。トレンチ壁面の全体的な岩質（構成岩片・岩屑の種類、粒度/粒径、集合配列状態<堆積構造・堆積環境など>）については、他のトレンチのものとの差異は観察されなかった。岩質は、最上位から①未固結なトラバーチン起源の炭酸塩沈殿物。②比較的固結した炭酸塩堆積物で、局所的ではあるが一部層理構造を示す。③黒色で粗粒砂質な碎屑性堆積物で、パッチ状に粘土質マトリックスが偏在的に挟在する。④③の下位にルーズで不規則に配列したパラワンオフィオライト起源の扁平な巨礫や亜円礫が、小規模なチャンネル構造の凹部に層間内礫層として挟在している。この礫は、パラワンオフィオライトの岩脈である斑れい岩（輝緑岩）が含有されている。⑤トレンチ底部の最下位は、黒色の細粒砂質と泥質（一部粘土化）な碎屑性堆積物が優勢となる。

これまでのトレンチ調査から、これらの碎屑性堆積物は、大別すると上位層は砂質で、下位層は泥質と言える。また、層間内礫層を構成する大小異なる礫は、その分布や配列などに規則性がないが、上位層の粗粒な砂質部や古チャンネル構造の大きな凹部に多く観察される傾向がある。

Summary of Lithological Units and Legend in Trench at Narra site















	1	 Dark brownish Soil
		 Pale brownish, loosed sandy Alluvium or Talus Unconsolidated deposits
Clastic Sediments	Carbonate Deposits and Sediments derived from Travertine	
	2A	 Pale-brownish and/or pale-grayish and Loosed Carbonate deposits
	2B	 Pale-brownish laminated Carbonate Sediments
	2C	 Dark and pale-brownish Massive Carbonate Sediments
	Upper Zone (Sandy)	
	3A	 Blackish coarse-grained Sandy Clastic Sediments
	3B	 Blackish Sandy Clastic sediments with Patchy clayey matrix including Boulder and Pebble of Palawan Ophiolite
	Lower Zone (Muddy)	
	4A	 Blackish Sandy and Muddy Clastic sediments including granule of Palawan Ophiolite
	4B	 Blackish and fine-grained Sandy Clastic sediments and Muddy clastic sediments
4C	 Blackish and fine-grained Sandy Clastic sediment with pale-grayish Pyroclastic Fall Deposits	
Basement	 Palawan Ophiolite (Ultramafics: Harzburgite, Peridotite, gabbro)	
Legend		Poorly sorted Intraformational Polygenetic Conglomerate (Polygenetic and Conglomeratic Sandy Sediments)
		Organic Matter, likely Buried-Roots
		Occurrence of Living Shells

図 2.5.2-9 トレンチ及びストリッピング露頭観察スケッチの凡例

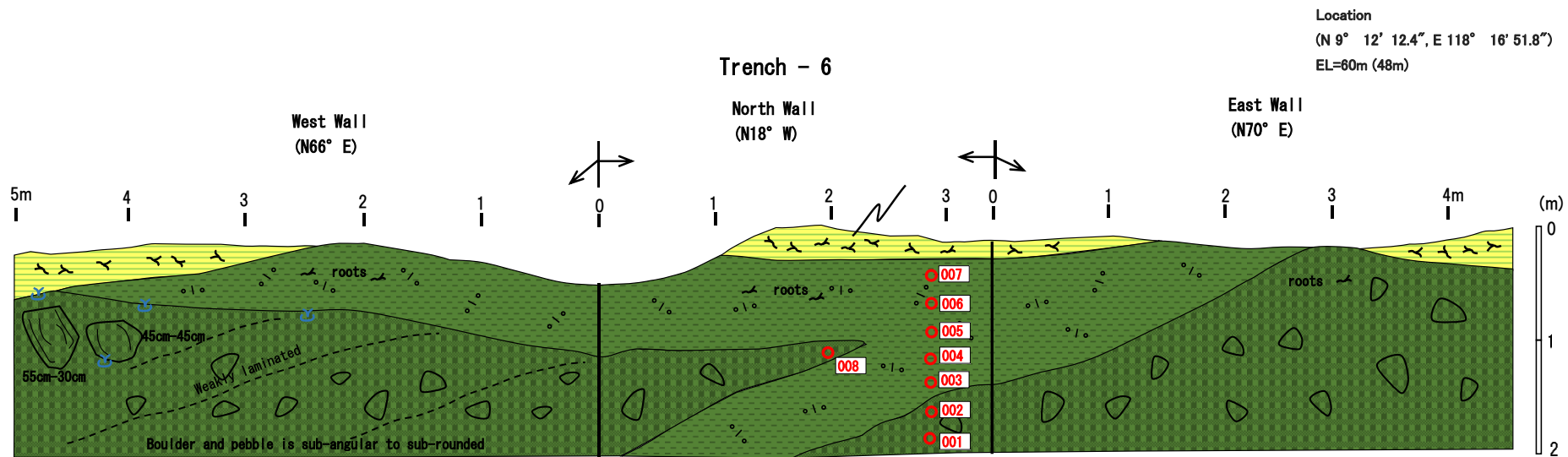


図 2.5.2-10 トレンチ 6 露頭観察スケッチ

### (3) トレンチ 7

露頭観察の壁面（東壁<幅：約 14.5m、深度：約 2.0m>、南壁<幅：約 2.8m、深度：約 2.0m>、西壁<幅：約 14.5m、深度：約 2.0m>）、北壁<幅：約 2.8m、深度：約 2.0m>

図 2.5.1-1 に示すように、トレンチ 7 はトレンチ 2 から南西約 25m、トレンチ 6 から北東約 25m に位置し、トレンチ 6 の北東方向に延長した最大の船底型様に掘削した。

図 2.5.2-11、図 2.5.2-12 にトレンチ 7 の壁面写真と年代測定試料及び水試料のサンプリング位置を図 2.5.2-13、図 2.5.2-14 に岩石試料のサンプリング位置を示す。鉱物試験のための岩石試料は主に東面～南面の壁面から連続的に 9 件採取した。

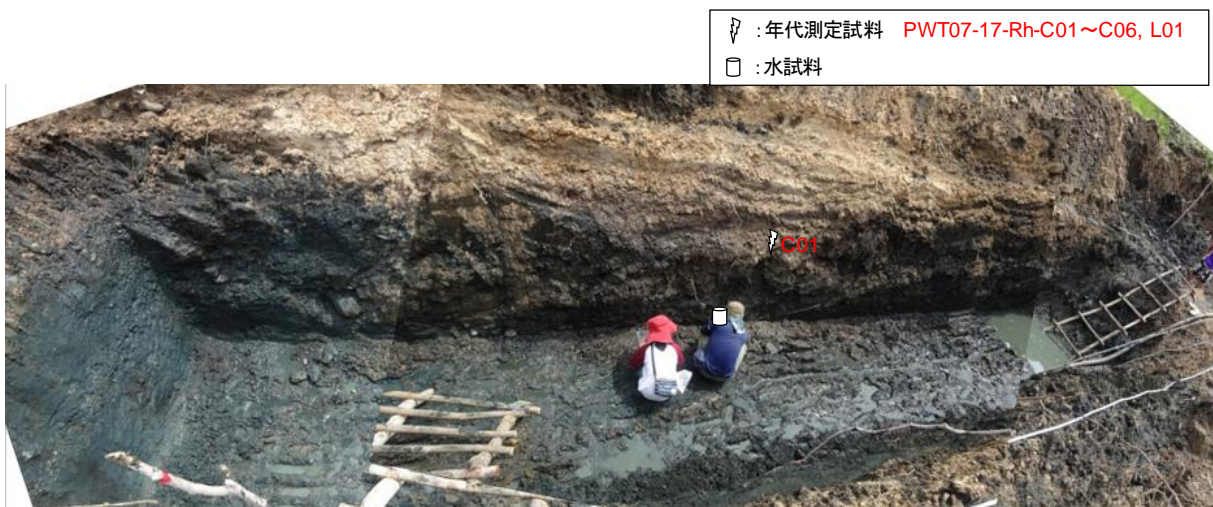


図 2.5.2-11 トレンチ 7 の南～西～北壁面と年代測定試料及び水試料採取位置

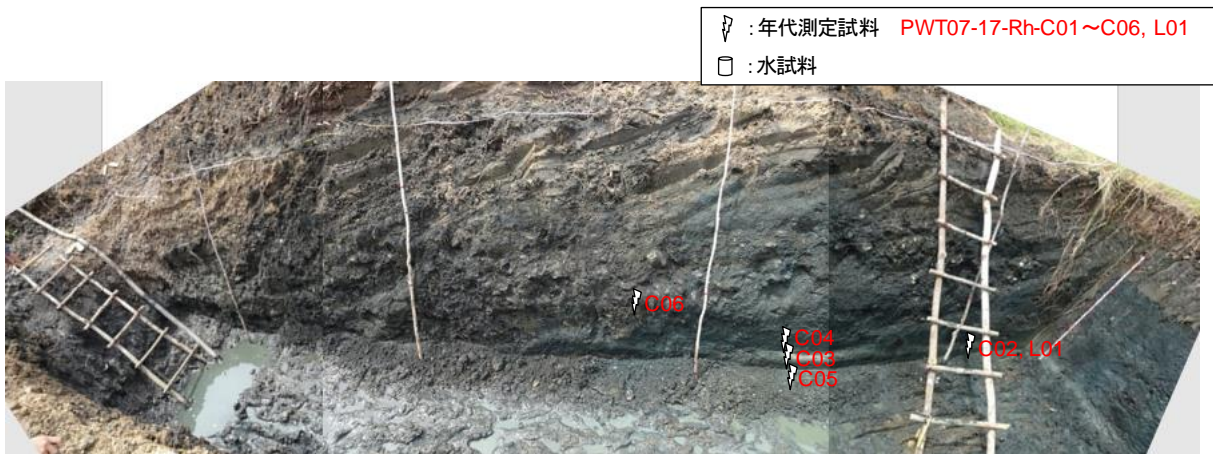


図 2.5.2-12 トレンチ 7 の北～東～南壁面と年代測定試料





図 2.5.2-13 トレンチ 7 の東壁面 (左・中写真) ～南壁面 (右写真) と(Rh)岩石試料採取位置

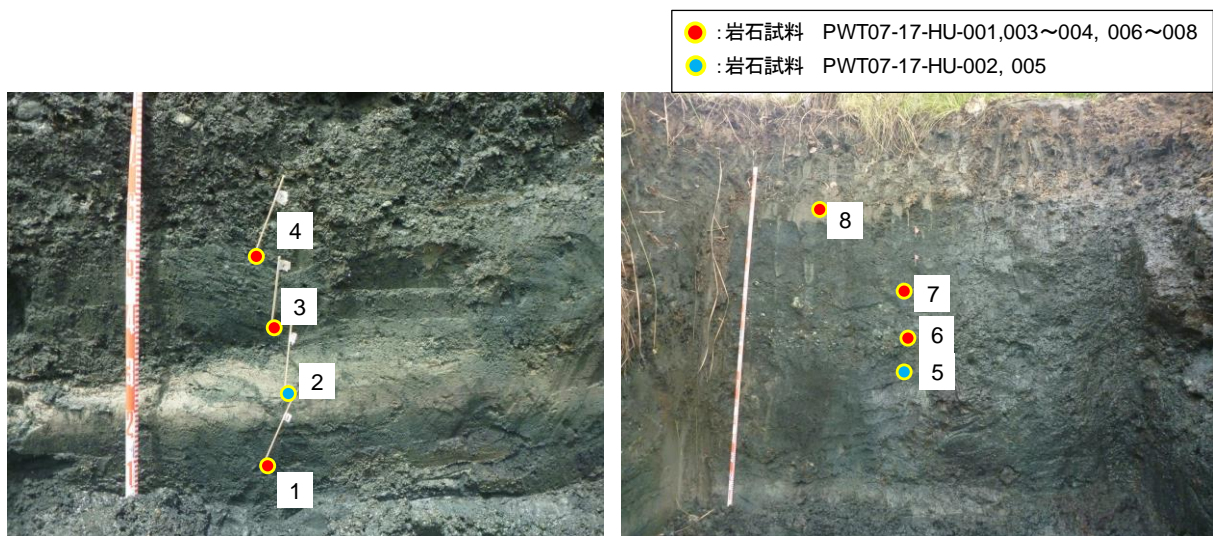


図 2.5.2-14 トレンチ 7 の東壁面 (左写真) ～南壁面 (右写真) と(HU)岩石試料採取位置

図 2.5.2-15 にトレンチ 7 壁面の露頭観察スケッチを示す(凡例は図 2.5.2-9 参照)。岩質は、トレンチ 6 や他のトレンチのものと差異はないが、上位層である砂質部に大小異なる礫が不規則な分布(配列)で観察される。この傾向は一般的な特徴である。これらは小規模なチャンネル系への多量な降雨水による氾濫に伴い運ばれた一時的な土石流なもので、小規模かつ局所的な氾濫性堆積物と推察される。

また、下位層は、泥質な堆積物が広く分布することから、他のトレンチと比べて碎屑性堆積物の熟成化(粘土化)が進展しているように観察される。

今年度初めて確認した特徴的な層が図 2.5.2-12 (PWT07-17-Rh-C02, C03 を採取した層)、

図 2.5.2-13、図 2.5.2-14 (PWT07-17-HU-002 を採取した層) の壁面写真からも明らかに確認できるような、トレンチ 7 の南／東面壁面の床面近傍に、淡灰色からクリーム色の層厚が約 20cm で、ほぼ水平に連続性のある特異な細粒砂質堆積物 (一部泥質なマトリックス) の分布である。この堆積物は分級度が顕著でなく、周辺の他の堆積物と比べて圧密が進展していることである。また、この堆積物の周辺では、黒色の粘土質堆積物が優勢になっている。これらの特異的な岩質が鍵層としての層序学的な新旧関係や、その堆積環境を考察する上で意義のある分布である。

この特異的な堆積物の偏光顕微鏡観察および、EPMA 分析から、降下火砕堆積物起源の火山灰・新鮮な火山ガラス、自形から半自形の斜長石などから構成される火山砕屑性堆積物と考えられる。但し、この降下火山灰堆積物の供給源については明らかではないが、分級度が顕著でないことから判断すると、遠くから運ばれ、深い海底に降下・堆積したものではないと推察される。

次に、この堆積物の堆積環境を考察する上で、岩質と分布に係わる地質学的特性が重要な要素 (鍵) となる。岩質については、その供給源は明らかではないが、明らかに降下火砕堆積物起源である火山砕屑性堆積物である。分布については、Narra サイトとその周辺に降下・堆積したこの堆積物は、一様に侵食・運搬・再堆積を繰り返し、鍵層としての分布 (形状) を維持することが出来なかったものと推察される。

一方、この特異的な堆積物はトレンチ 7 という限定された場所、かつ、トレンチ 7 底面近傍のある層序のみに連続的に水平にかつ、層厚約 20cm 程度の薄層で分布している。この堆積物の特徴である分級度が顕著でないことから判断すると、降下火砕堆積物起源の火山灰・火山ガラス・斜長石の鉱物片などの火山性物質が、表層侵食から免れるような地形的なバリアを持つ小さな窪みに、おそらく楕円状の形状をもつ浅い水深環境に降下・堆積したものと考えられる。したがって、このような地形的・地質学的な優位さが一連の侵食・運搬・再堆積過程から逃れて堆積したものと推察される。

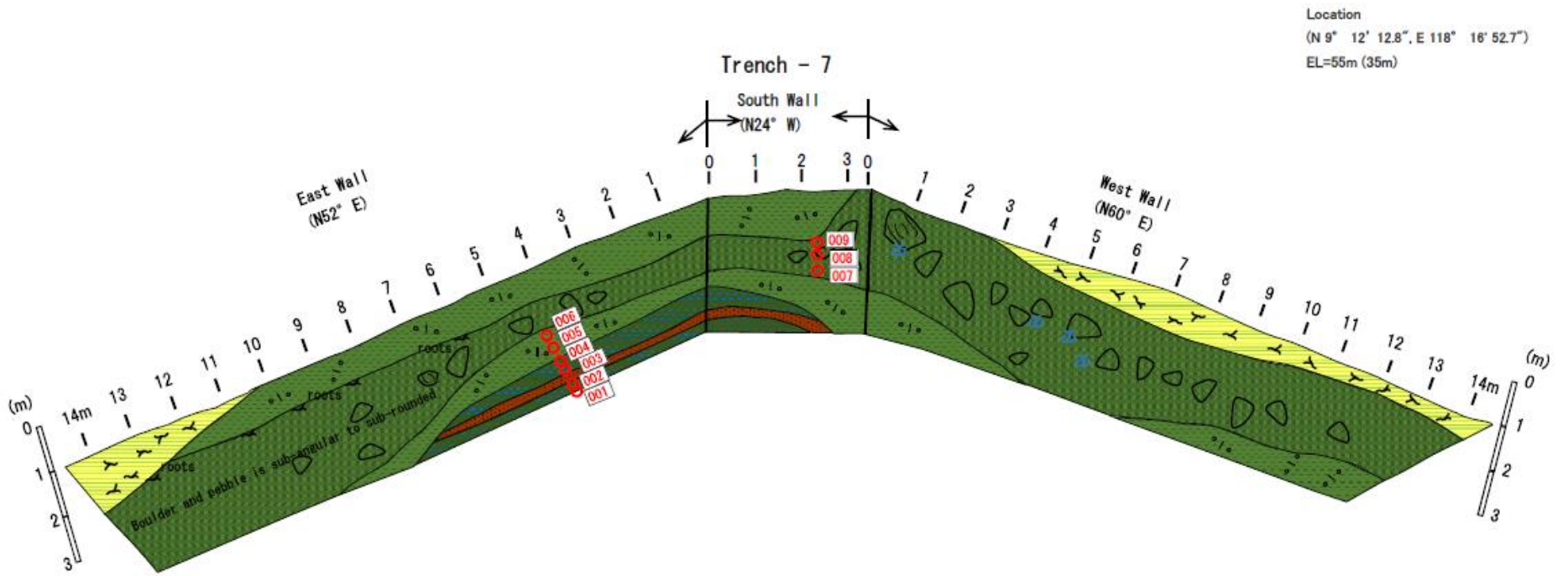


図 2.5.2-15 トレンチ7露頭観察スケッチ



#### (4) トレンチ 8

露頭観察の壁面（東壁<幅：約 3.9m、深度：約 1.9m>、南壁<幅：約 1.2m、深度：約 1.9m>、西壁<幅：約 3.9m、深度：約 1.9m>）、北壁<幅：約 1.2m、深度：約 1.9m>

図 2.5.1-1 に示すように、トレンチ 8 はトレンチ 5 のほぼ東約 50m 離れ、小河川の対岸の小高い丘の斜面の小さな平坦面（比高約 5m）に位置している。サイトの基盤岩は粗粒の斑れい岩の岩脈である。

この基盤岩の表層部には物理的風化過程で形成された碎屑性堆積物（一部、岩屑<Detritus>様）は、アルカリ地下水湧出に伴うトラバーチン沈殿物が確認されないことから、アルカリ地下水の影響はないものと推察される。

図 2.5.2-16 にトレンチ 7 の全体写真を、図 2.5.2-17、図 2.5.2-18 に岩石試料のサンプリング位置を示す。鉍物試験のための岩石試料は南西面の壁面から 2 件、東壁面から 1 件採取した。



図 2.5.2-16 トレンチ 8 の全体写真（北壁面から撮影）



図 2.5.2-17 トレンチ 8 の南壁面～西壁面と(Rh-001~002 及び HU-008)岩石試料採取位置

○ : 岩石試料 PWT08-17-Rh-001~003



図 2.5.2-18 トレンチ 8 の東壁面と(Rh)岩石試料採取位置

図 2.5.2-20 にトレンチ 7 壁面の露頭観察スケッチを示す（凡例は図 2.5.2-9 参照）。最上位の風化堆積物は、未固結で、淡褐色のルーズな砂質である。基盤岩である斑れい岩は、二次的な割れ目がほぼ網目状に観察される。また、脈状の角閃石（図 2.5.2-19 参照）も観察される。

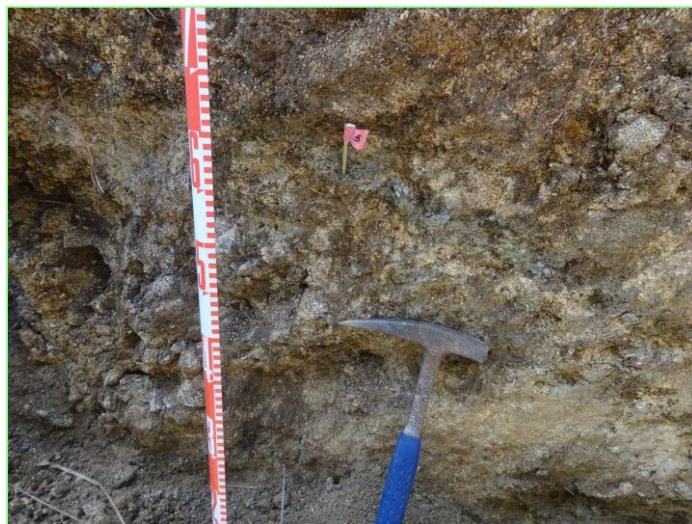


図 2.5.2-19 トレンチ 8 の東壁面 PWT08-17-Rh-003 採取位置の拡大写真(図 2.5.2-18 の緑枠部)



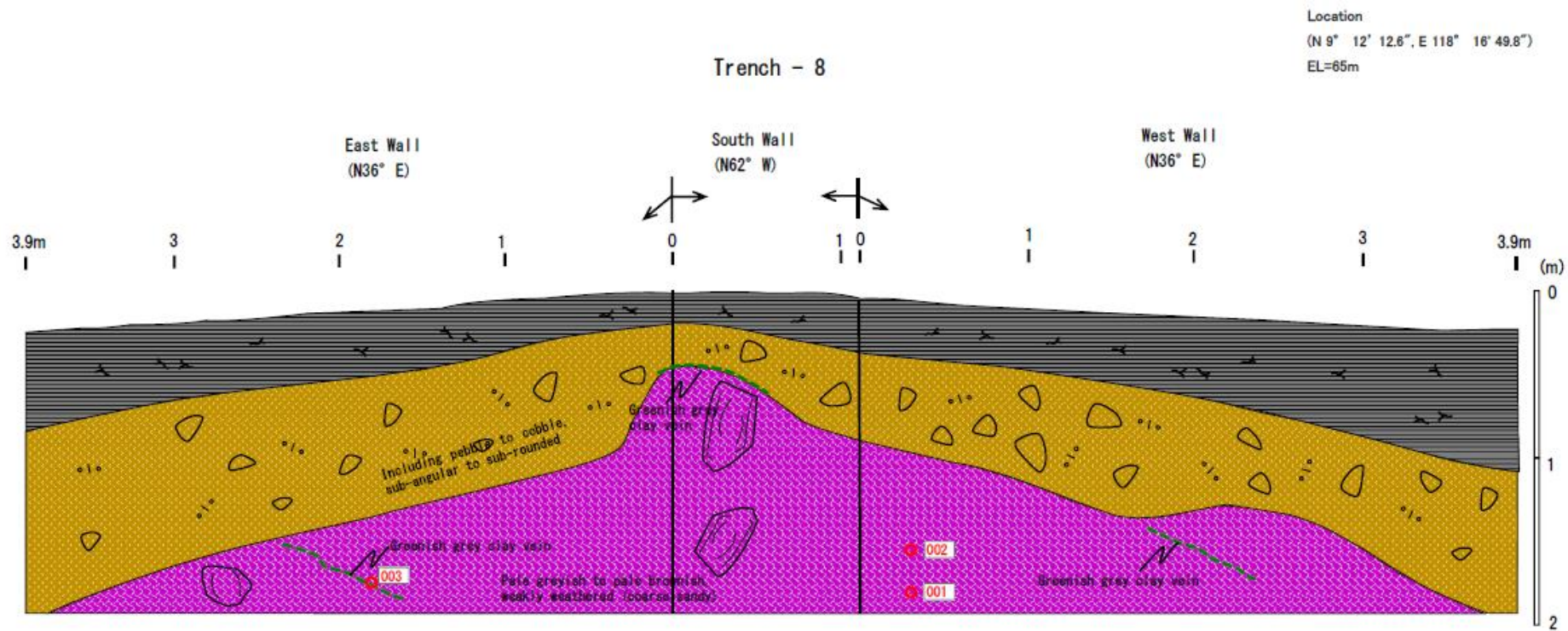


図 2.5.2-20 トレンチ 8 露頭観察スケッチ

(5) 過年度に掘削したトレンチ

過年度に採取した試料のうち、今年度新たに分析を実施する試料及び比較・考察のため過年度の分析データを用いた試料を採取したトレンチ 2～5 の岩石試料のサンプリング位置をそれぞれ図 2.5.2-21～図 2.5.2-25 に示す。



図 2.5.2-21 トレンチ 2 の西壁面の(Rh)岩石試料採取位置



図 2.5.2-22 トレンチ 3 の西壁面の(Rh)岩石試料採取位置



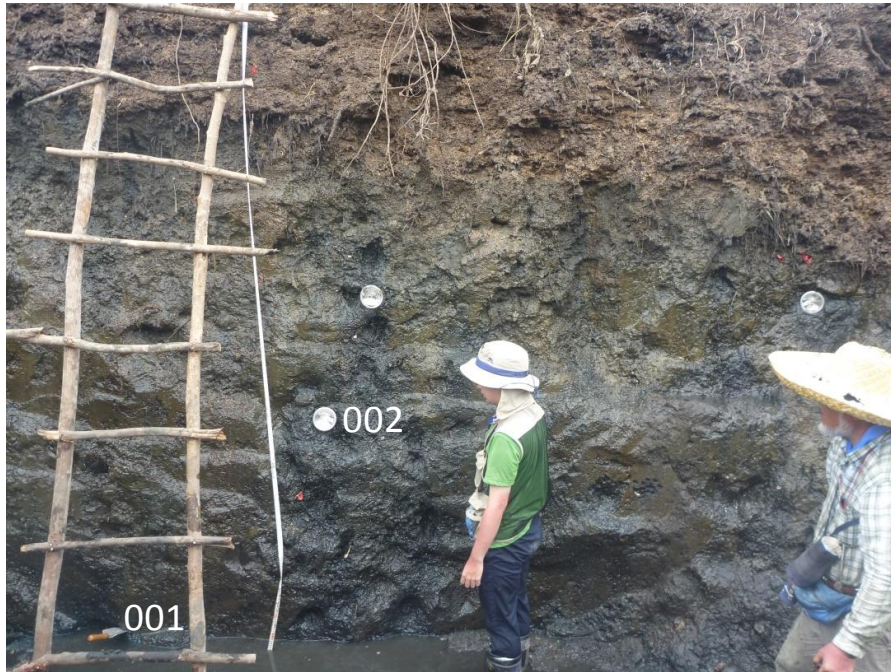


図 2.5.2-23 トレンチ 3 の西壁面の(HU)岩石試料採取位置



図 2.5.2-24 トレンチ 4 の西壁面の(Rh)岩石試料採取位置





図 2.5.2-25 トレンチ 5 の南壁面の(Rh)岩石試料採取位置

## 2.6 ストリッピング調査

### 2.6.1 ストリッピング掘削

#### (1) ストリッピング掘削地点の選定

ストリッピング調査は、物理的風化環境下で生成されたスメクタイトの鉱物学的変遷を考察するために、明らかにアルカリ地下水との相互作用の影響を受けていない碎屑性堆積物からの試料採取と地下水の採取を目的として実施した。

Babatou 滝から Narra サイトのアルカリ湧水源(Narra 3-1)に至るアクセス道沿いでの地質精査（ルートマッピング）に基づき、アルカリ地下水の湧水証拠となるいかなるトラバーチン沈殿物が伴わない、蛇紋岩化作用を受けたハルツバージャイトが露出している地点を 3 サイト ストリッピング掘削地点として選定した。図 2.6.1-1 にストリッピング(ストリッピング 1~3)の位置を示す。

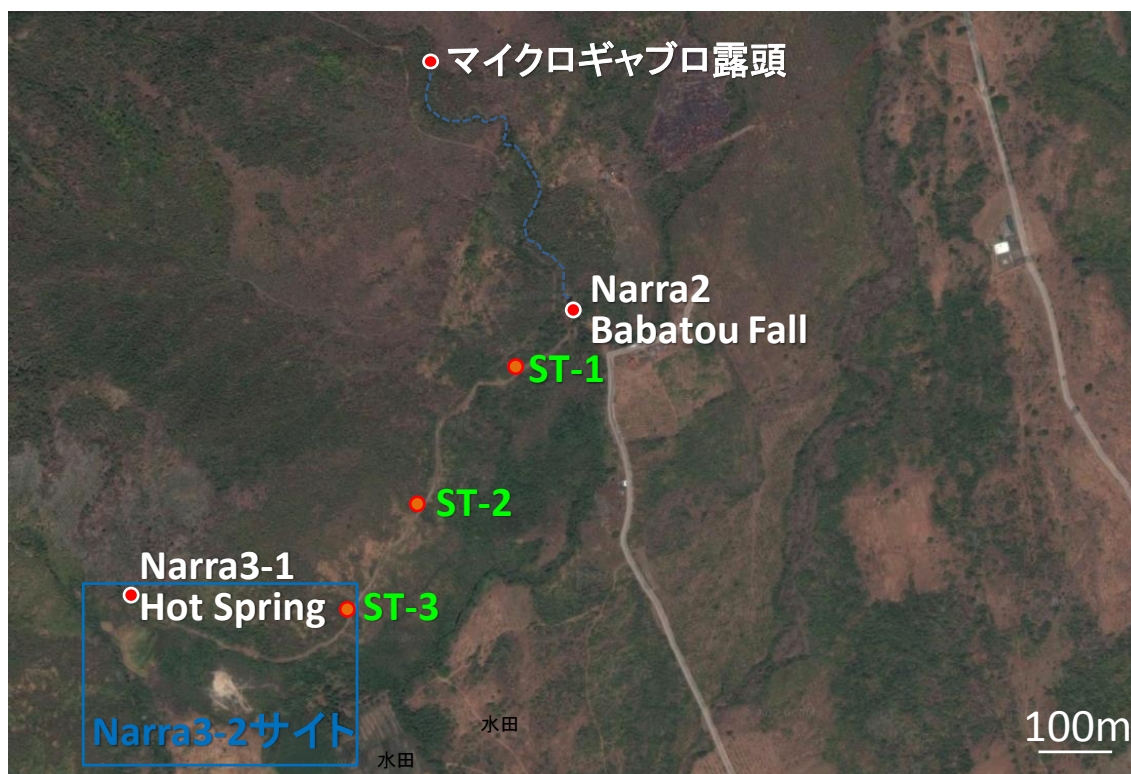


図 2.6.1-1 Narra 地区ストリッピング調査地点

#### (2) ストリッピング掘削

バックホウにより、Narra3-2 地点へのアクセス道路沿いで選定した 3 か所でストリッピングの掘削を実施した。風化の進んでいない基盤岩（ハルツバージャイトが大部分蛇紋岩化した岩石）が露出するまで表土を剥ぎ取った。掘削後にストリッピングの位置（GPS で計測した座標）測定、ストリッピングのサイズの計測を実施した。表 2.6.1-1 にストリッピング調査の作業工程を、図 2.6.2-1、図 2.6.2-2、図 2.6.2-3 に各トレンチの掘削状況を示す。



表 2.6.1-1 ストリッピング調査実施工程

日時		記 事
6/6	9:00～16:30	アクセス道沿いのルートマッピング
6/7	9:00～15:30	アクセス道沿いのルートマッピング、ストリッピング位置選定
6/8	9:30～18:00	ストリッピング調査 (バックホウによる掘削～試料採取) ストリッピング-1 (N9.2082500° ,E118.2848333° ) ストリッピング-2 (N9.2086333° ,E118.2834444° ) ストリッピング-3 (N9.2049444° ,E118.2825000° )



図 2.6.1-2 ストリッピング 1 掘削状況 (着手前 (左)、表層掘削 (右))



図 2.6.1-3 ストリッピング 2 掘削状況 (着手前 (左)、表層掘削 (右))



図 2.6.1-4 ストリッピング 3 掘削状況 (着手前 (左)、表層掘削 (右))

## 2.6.2 壁面観察とサンプリング

### (1) 概要

各ストリッピングにおいて、ストリッピング掘削後に壁面を削り出して（～）、粘土質の碎屑性堆積物の岩相、岩質、堆積構造、変質特性等について観察した。

アルカリ地下水との相互作用の影響を受けていない、物理的風化環境で形成された碎屑性堆積物（一部岩屑様堆積物）の主要構成鉱物の鉱物組み合わせ・化学組成・組織を把握するための XRD、XRF による分析、および鉱物組成・産状（組織）に係わるデータの取得のための偏光顕微鏡観察や微細構造分析に供する岩石試料を、ストリッピング壁面からハンドピックで採取した。

次に、今年度調査した各ストリッピングについて、ストリッピング壁面の露頭観察スケッチ（図 2.5.2-10、図 2.5.2-15 による地質学的特徴について報告する。また、XRD による鉱物同定、XRF によるバルク分析と EPMA による詳細な鉱物試験のための岩石試料採取位置を合わせて記載する。



図 2.6.2-1 ストリッピング 1 の壁面状況（左）、サンプリング（右）



図 2.6.2-2 ストリッピング 2 の壁面状況（左）、サンプリング（右）





図 2.6.2-3 ストリッピング 3 の壁面状況 (左)、サンプリング (右)

(2) ストリッピング 1

図 2.6.1-1 に示すように、ストリッピング 1 は、Babatou 滝から約 100m 南西に位置している。形状は幅約 2.2m、高さ最大約 1.7m (南西縁約 0.5m、北東縁約 1.3m) の扇状に剥ぎ取りをした。

図 2.6.2-4 に鉱物試験のための岩石試料のサンプリング位置を示す。図 2.6.2-5 にストリッピング 1 の露頭観察スケッチを示す (凡例は図 2.5.2-9 参照)。

基盤岩の表層部は、塊状で、節理周辺での角礫化と、割れ目系優勢部での細礫化に伴う岩屑が顕著な物理的風化堆積物で構成されている。

また、表層部では、降雨水による水和・炭酸化・酸化・加水分解・溶解などを主とした接触反応 (化学的風化作用) で分解し、残留物として淡褐色の鉄水酸化物や、淡灰色からクリーム色の炭酸塩鉱物が割れ目を充填したり、表面に沈積したりしている。この一部に粘土化の進んだ箇所が観察される。これは残留物から選択的に溶出した成分が再結合して粘土鉱物を生成している可能性が推察される。

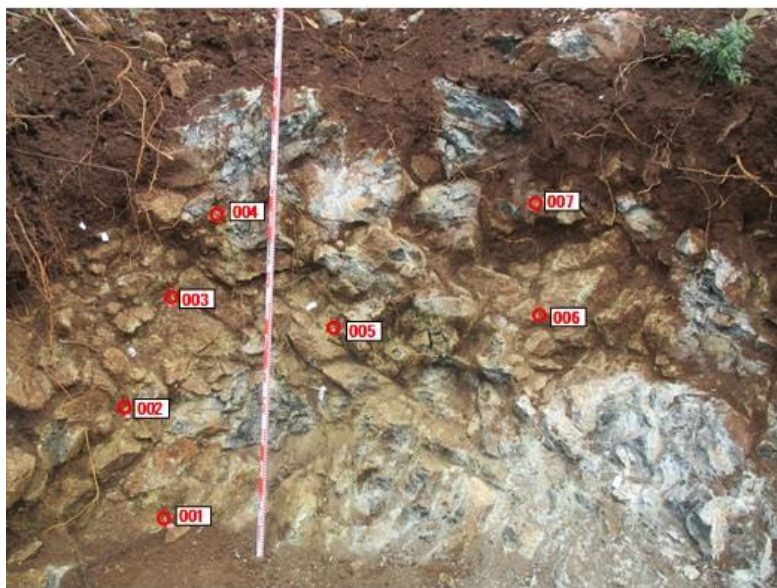


図 2.6.2-4 ストリッピング 1 壁面と(Rh)岩石試料採取位置



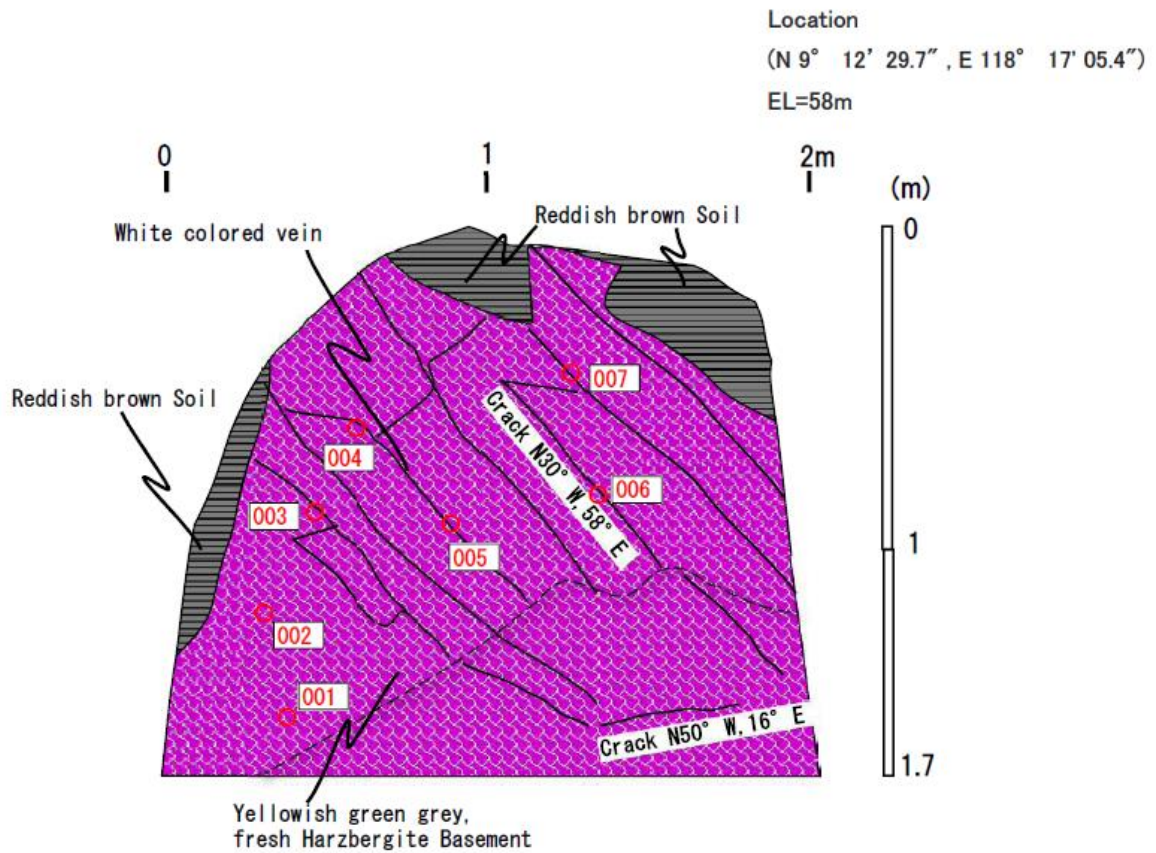


図 2.6.2-5 ストリッピング 1 露頭観察スケッチ

### (3) ストリッピング 2

図 2.6.1-1 に示すように、ストリッピング 2 は、ストリッピング 1 より南西約 200m に位置している。形状は、幅約 0.85m、高さ約 1.6m の縦長状の剥ぎ取りをした。

図 2.6.2-6 に鉱物試験のための岩石試料のサンプリング位置を示す。図 2.6.2-7 にストリッピング 1 の露頭観察スケッチを示す（凡例は図 2.5.2-9 参照）。

基盤岩の表層部は、今回のストリッピングの中で、一番細屑化が進んでいて、全体的に淡褐色からクリーム色を呈する風化堆積物である。露頭観察から、粘土化による粘土鉱物の生成が期待されそうである。

また、節理や割れ目系の性状などには、特筆することはなく、ストリッピング 1 との差異はない。



図 2.6.2-6 ストリッピング 2 壁面と(Rh 及び HU-005)岩石試料採取位置

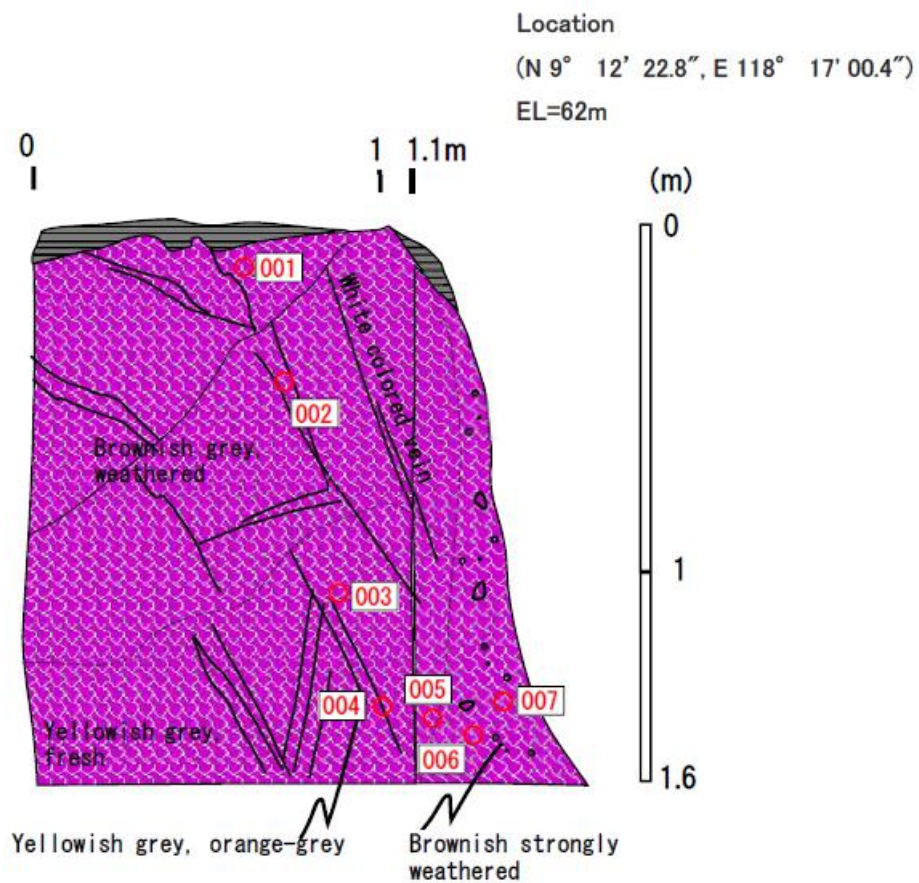


図 2.6.2-7 ストリッピング 2 露頭観察スケッチ



(4) ストリッピング 3

図 2.6.1-1 に示すように、ストリッピング 3 は、ストリッピング 2 の南西約 200m に位置している。形状は、幅最大約 3.4m、高さ最大約 2.2m の馬蹄状の剥ぎ取りをした。

図 2.6.2-8 に鉱物試験のための岩石試料のサンプリング位置を示す。図 2.6.2-9 にストリッピング 1 の露頭観察スケッチを示す（凡例は図 2.5.2-9 参照）。

基盤岩は、全体として塊状で、節理周辺での角礫化と、水平方向に卓越した割れ目系周辺での細礫化が顕著である。表層部は、ストリッピング 1/2 との差異はないが、ストリッピング 2 同様に粘土化が進んでいるものと推察される。



図 2.6.2-8 ストリッピング 3 壁面と(Rh)岩石試料採取位置

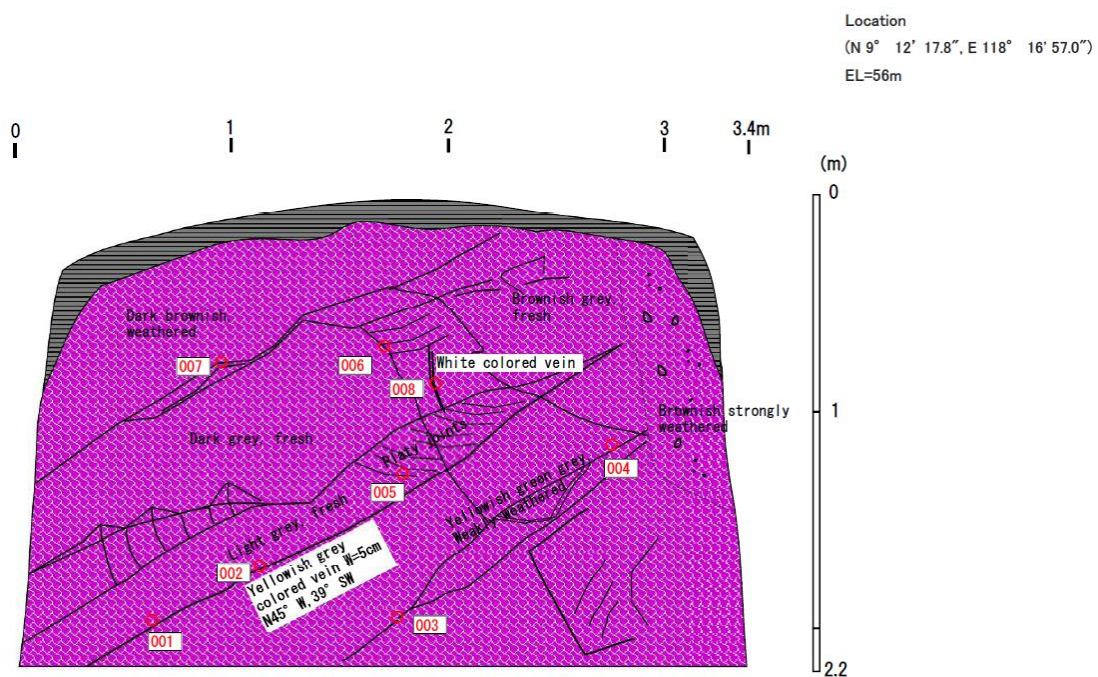


図 2.6.2-9 ストリッピング 3 露頭観察スケッチ

## 2.7 岩石鉱物学的調査

### 2.7.1 概要

Narra サイトのトレンチ及びストリッピングから採取した岩石試料の不定方位法の XRD（一部試料は定方位法 XRD を実施）による鉱物分析、XRF による全岩化学分析、詳細な鉱物の組成及び構造・組織の観察を目的とした薄片の偏光顕微鏡観察及びスメクタイトの含有率を評価することを目的としたモード分析、XRD/リートベルト解析等による定量分析を実施した。

なお、<sup>14</sup>C 年代及び TL 測定用試料の分析結果は第 3 章に、EPMA の分析結果は第 4 章に記載する。

### 2.7.2 試料調整

トレンチ 6 から 3 試料 (PWT06-17-Rh-001~003)、トレンチ 7 から 10 試料 (PWT07-17-Rh-001~009、-C02)、トレンチ 8 から 2 試料 (PWT08-17-Rh-001,-003) の計 15 試料、ストリッピング 1 からは 2 試料 (PWST01-17-Rh-004,-006)、ストリッピング 2 からは 4 試料 (PWST02-17-Rh-002,-003,-005,-008)、ストリッピング 3 からは 2 試料 (PWST-17-Rh-005,-006) の計 8 試料について、X 線回折 (XRD) 測定、蛍光 X 線 (XRF) 分析のために試料の調整を行った。

各湿潤試料を分析に必要な量をシャーレ等に分取し、数日間真空乾燥を行った。乾燥後メノウ乳鉢にて、力を加えずに試料をほぐし、マトリックス以外の礫、砂、植物根等を除去した後、粉砕した。粉砕後篩にて、105 $\mu$ m 以下を分画し分析試料とした。分取前、乾燥前、乾燥・粗破碎、105 $\mu$ m ふるいでふるい分けたときの残分と通過分の状態を図 2.7.2-1~図 2.7.2-2 に示す。




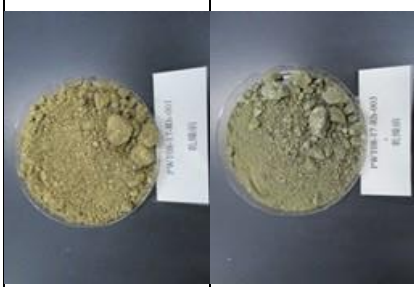
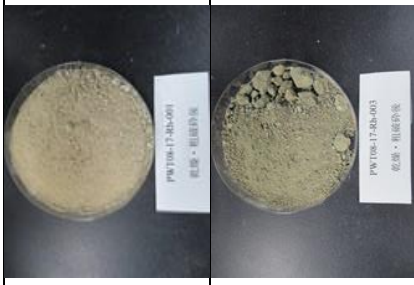


















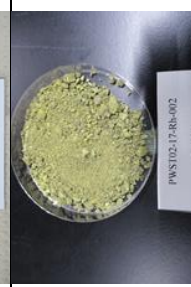




























図 2.7.2-1 分析試料の状態（分取前試料、乾燥前、乾燥・粗砕後、および、105 $\mu$ mふるい残分（ふるい上）と通過分（ふるい下））1/2

試料名	分取前試料	乾燥前（分取）	乾燥・粗砕後	105 $\mu$ mふるい上	105 $\mu$ mふるい下
PWT06-17-Rh-001					
PWT06-17-Rh-002					
PWT06-17-Rh-003					
PWT07-17-Rh-001					
PWT07-17-Rh-002					
PWT07-17-Rh-003					
PWT07-17-Rh-004		No photo			
PWT07-17-Rh-005					
PWT07-17-Rh-006					
PWT07-17-Rh-007					
PWT07-17-Rh-008					
PWT07-17-Rh-009					
PWT07-17-Rh-C02					





図 2.7.2-2 分析試料の状態 (分取前試料、乾燥前、乾燥・粗砕後、および、105 $\mu$ m ふるい残分 (ふるい上) と通過分 (ふるい下)) 2/2

試料名	分取前試料	乾燥前 (分取)	乾燥・粗砕後	105 $\mu$ m ふるい上	105 $\mu$ m ふるい下
PWT08-17-Rh-001					
PWT08-17-Rh-003					
試料名	分取前試料	乾燥前 (分取)	乾燥・粗砕後	105 $\mu$ m ふるい上	105 $\mu$ m ふるい下
PWST01-17-Rh-004					
PWST01-17-Rh-006					
PWST02-17-Rh-002					
PWST02-17-Rh-003					
PWST02-17-Rh-005					
PWST02-17-Rh-008					
PWST03-17-Rh-005					
PWST03-17-Rh-006					



### 2.7.3 XRD による鉱物分析

#### (1) 不定方位（粉末）X 線回折による鉱物相の同定

トレンチ 6～8 の計 15 試料及びストリップング 1～3 の計 8 試料の X 線回折分析による鉱物同定結果を表 2.7.3-1 に示す。また、図 2.7.3-1～図 2.7.3-23 に X 線回折チャートを示す。

トレンチの試料については、全て礫を取り除きマトリックス部を主に分析した。この 15 試料全てにスメクタイトのピークが確認されたが、PWT07-17-Rh-C02 と PWT08-17-Rh-003 のスメクタイトの相対強度は低く、スメクタイト含有量は少ないものと推定される。それらに近い PWT07-17-Rh-002 及び PWT08-17-Rh-001 もスメクタイトの相対強度はやや低い。

トレンチ 8 の 2 試料では斜長石（曹長石）、普通輝石、角閃石、蛇紋石(Lizardite)、が共通して確認され、これらが班れい岩由来の堆積物であると考えられる。一方、トレンチ 7 の PWT07-17-Rh-C02 も斜長石（曹長石）、角閃石の相対強度が高いが、石英がみられるのに対し普通輝石が全くみられない点が、トレンチ 8 の班れい岩由来の堆積物の鉱物組み合わせとは異なる。

他の粘土鉱物としては、緑泥石が同定され、他に PWT08-17-Rh-001 ではハロイサイト、PWT08-17-Rh-003 ではカオリナイトが同定された。その他の鉱物としては、トレンチ 6 及び 7 では沸石、角閃石、斜方輝石、蛇紋石(Lizardite)、方解石が共通して確認された。PWT07-17-Rh-001 では他に斜方輝石、微斜長石、方解石が、PWT07-17-Rh-003 ではぶどう石が確認された。

ストリップング試料についても、粘土鉱物としてスメクタイト及び緑泥石のピークが確認されたが、その相対強度はトレンチ試料に比べると低い。主として蛇紋石（低温タイプの Lizardite と PWST020-17-Rh-002,-003,-005 では高温タイプの Antigorite）のピークが高く、またトレンチ試料に比べると鉱物のバリエーションが圧倒的に少ない特徴がある。その他に、鉄鉱物として PWST02-17-Rh-005 以外で苦土磁鉄鉱のピークが確認された。

スメクタイトと緑泥石の判別及び、スメクタイトの 2 八面体型・3 八面体型の判断については、2.7.3 (2) で後述する。





表 2.7.3-1 岩石試料の X 線回折による鉱物同定結果

試料 No.	粘土鉱物				沸石	角閃石	輝石		蛇紋石		長石		炭酸塩	石英	鉄鉱物	ぶどう石
	スメクタイト	緑泥石	ハロイサイト	カオリナイト	濁沸石	—	斜方輝石	普通輝石	リザルダイト	アンチゴライ ト	曹長石	微斜長石	方解石	—	苦土磁鉄鉱	—
	Smectite	Chlorite	Halloysite	Kaolinite	Laumontite	Amphibole	Orthopyroxene	Augite	Lizardite	Antigorite	Albite	microcline	Calcite	Quartz	Magnesioferrite	Prehnite
PWT06-17-Rh-001	○	○	—	—	△	○	○	—	○	—	—	—	△	—	—	—
PWT06-17-Rh-002	○	○	—	—	△	○	○	—	○	—	—	—	—	—	—	—
PWT06-17-Rh-003	○	○	—	—	△	○	△	—	○	—	—	—	—	—	—	—
PWT07-17-Rh-001	○	○	—	—	△	○	○	—	○	—	—	—	○	—	—	—
PWT07-17-Rh-002	○	○	—	—	△	○	○	—	○	—	—	—	○	—	—	—
PWT07-17-Rh-003	○	○	—	—	△	○	△	—	○	—	○	—	○	△	—	—
PWT07-17-Rh-004	○	○	—	—	△	○	○	—	○	—	—	—	△	—	—	—
PWT07-17-Rh-005	○	○	—	—	△	○	○	—	○	—	—	—	△	—	—	—
PWT07-17-Rh-006	○	○	—	—	△	○	○	—	○	—	—	—	—	—	—	—
PWT07-17-Rh-007	○	○	—	—	△	○	○	—	○	—	△	—	○	△	—	—
PWT07-17-Rh-008	○	○	—	—	△	○	○	—	○	—	—	—	△	△	—	—
PWT07-17-Rh-009	○	○	—	—	△	○	○	—	○	—	—	—	△	—	—	—
PWT07-17-Rh-C02	△	△	—	—	—	○	○	—	○	—	○	—	△	△	—	—
PWT08-17-Rh-001	○	○	○	—	—	△	△	○	△	—	○	○	△	—	—	—
PWT08-17-Rh-003	△	△	—	△	—	○	—	○	△	—	△	—	—	—	—	△
PWST01-17-Rh-004	○	○	—	—	—	—	—	—	○	—	—	—	—	—	△	—
PWST01-17-Rh-006	○	○	—	—	—	—	—	—	○	—	—	—	—	—	△	—
PWST02-17-Rh-002	○	○	—	—	—	—	—	—	○	△	—	—	—	—	△	—
PWST02-17-Rh-003	○	○	—	—	—	—	—	—	○	○	—	—	—	—	△	—
PWST02-17-Rh-005	○	○	—	—	—	—	—	—	○	△	—	—	—	—	—	—
PWST02-17-Rh-008	○	○	—	—	—	—	—	—	○	—	—	—	—	—	○	—
PWST03-17-Rh-005	○	○	—	—	—	—	—	—	○	—	—	—	—	—	○	—
PWST03-17-Rh-006	○	○	—	—	—	—	—	—	○	—	—	—	—	—	○	—



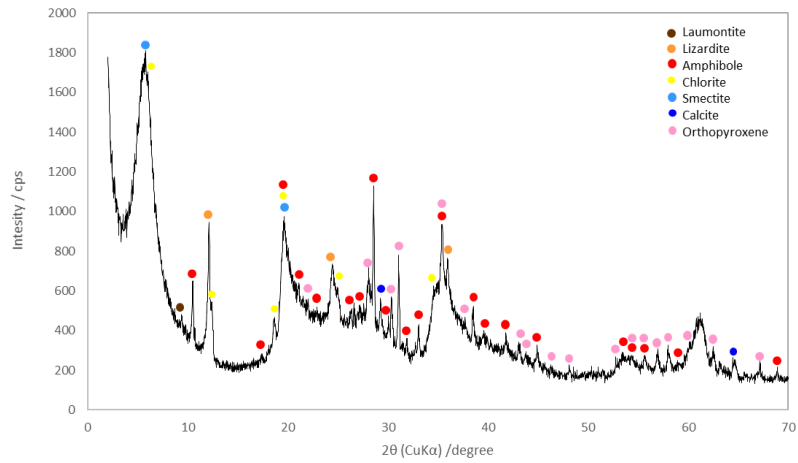


図 2.7.3-1 PWT06-17-Rh-001 の XRD チャート

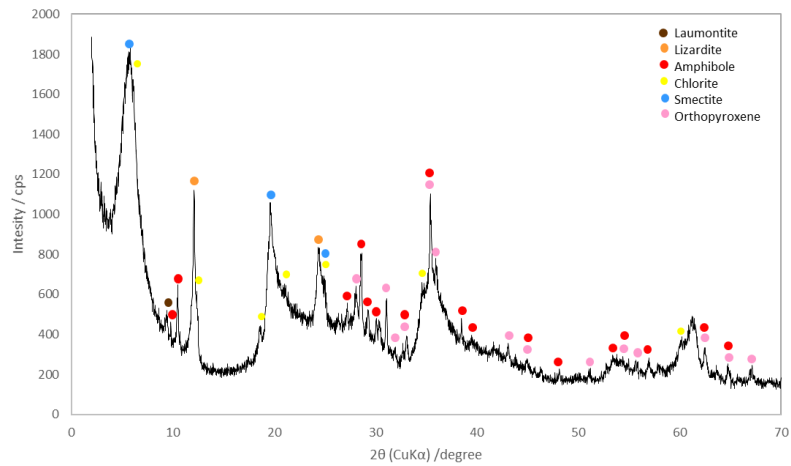


図 2.7.3-2 PWT06-17-Rh-002 の XRD チャート

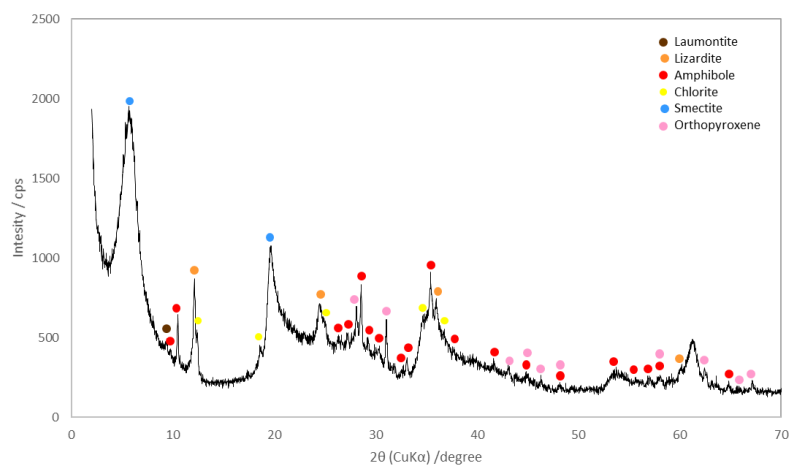


図 2.7.3-3 PWT06-17-Rh-003 の XRD チャート

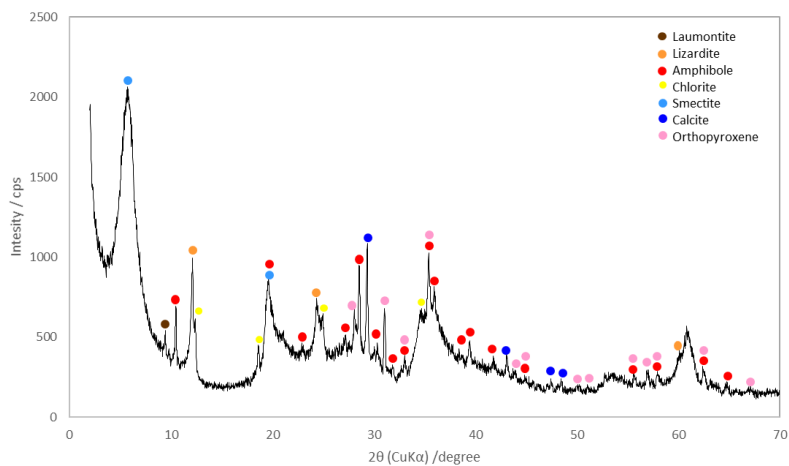


図 2.7.3-4 PWT07-17-Rh-001 の XRD チャート

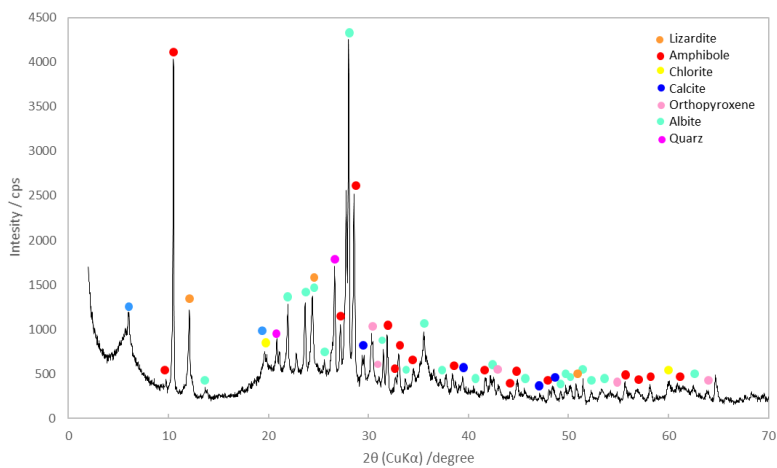


図 2.7.3-5 PWT07-17-Rh-002 の XRD チャート

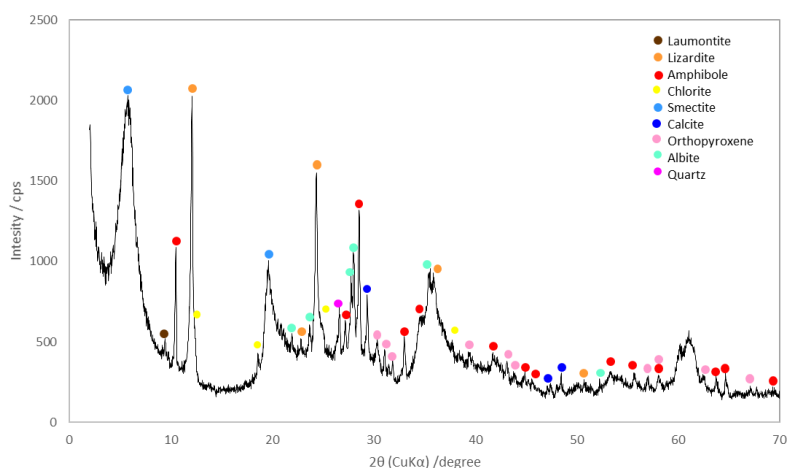


図 2.7.3-6 PWT07-17-Rh-003 の XRD チャート

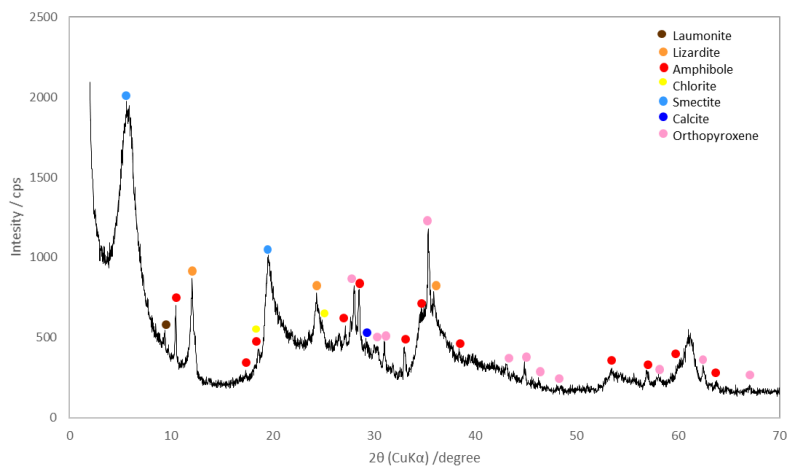


図 2.7.3-7 PWT07-17-Rh-004 の XRD チャート

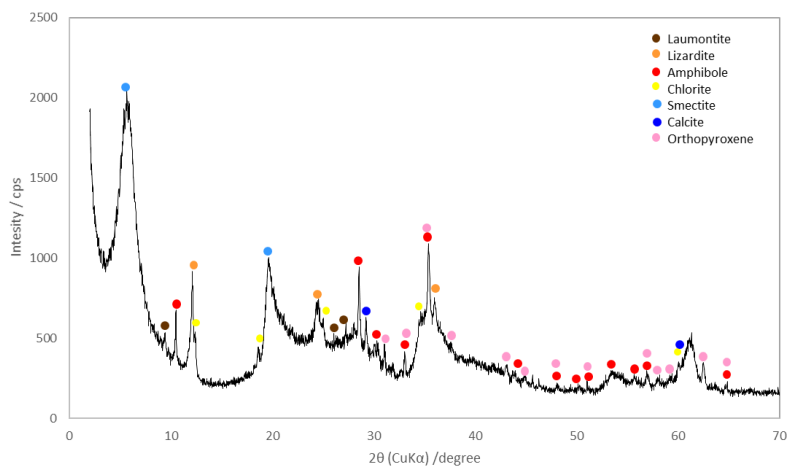


図 2.7.3-8 PWT07-17-Rh-005 の XRD チャート

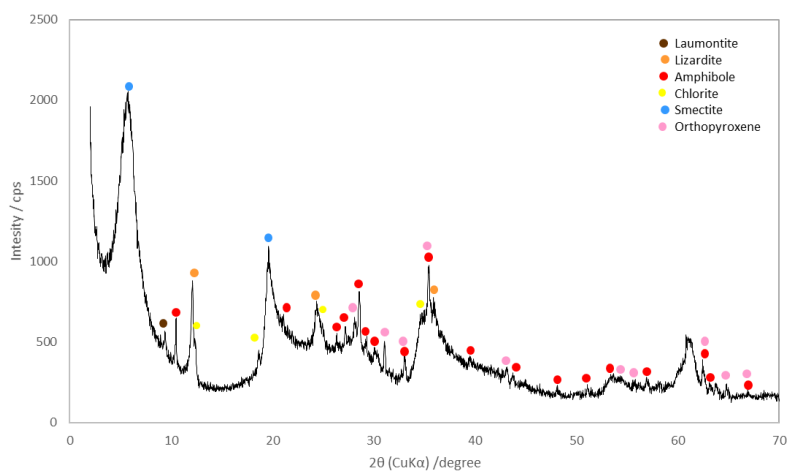


図 2.7.3-9 PWT07-17-Rh-006 の XRD チャート



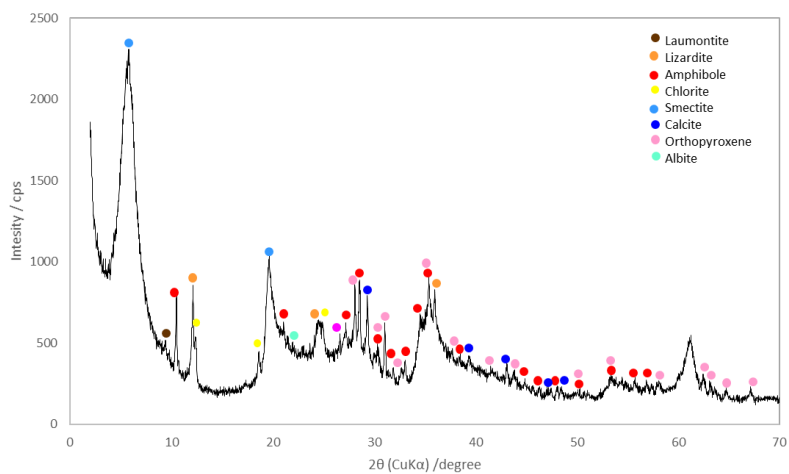


図 2.7.3-10 PWT07-17-Rh-007 の XRD チャート

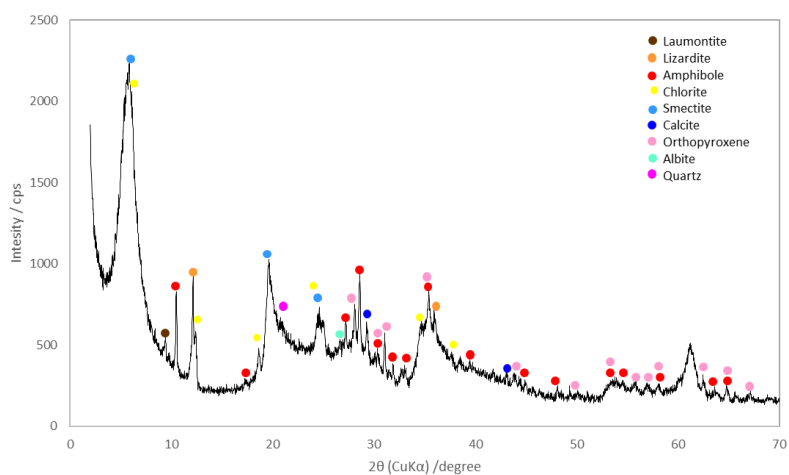


図 2.7.3-11 PWT07-17-Rh-008 の XRD チャート

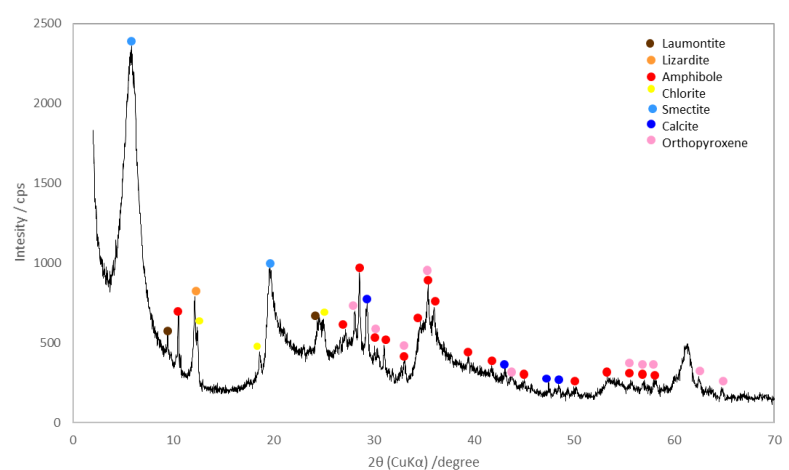


図 2.7.3-12 PWT07-17-Rh-009 の XRD チャート

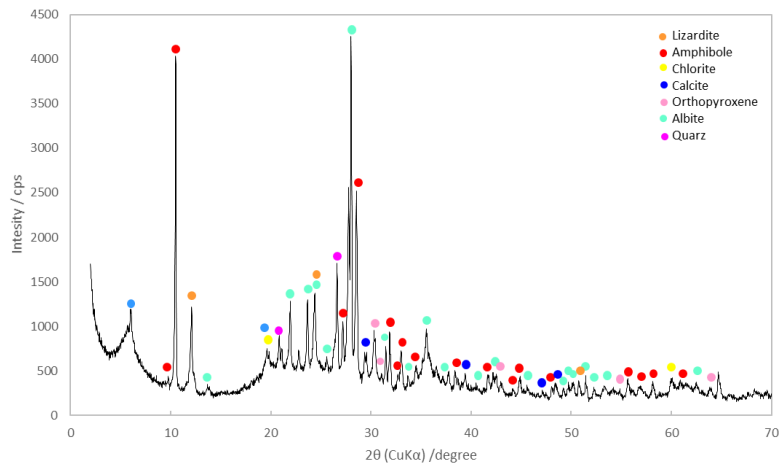


図 2.7.3-13 PWT07-17-Rh-C02 の XRD チャート

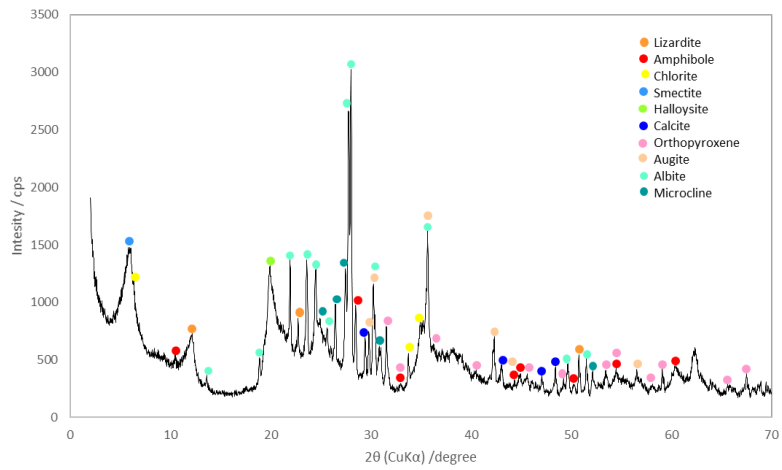


図 2.7.3-14 PWT08-17-Rh-001 の XRD チャート

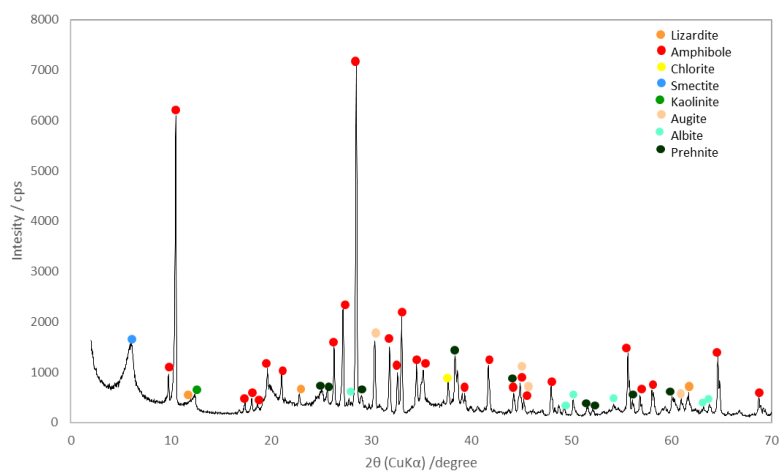


図 2.7.3-15 PWT08-17-Rh-003 の XRD チャート

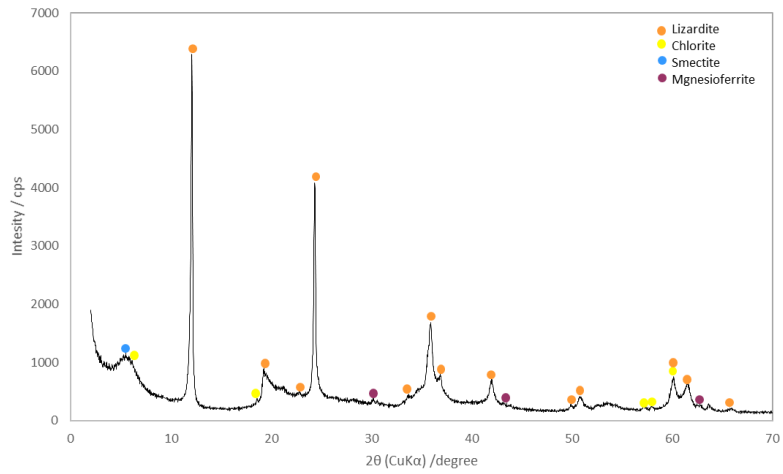


図 2.7.3-16 PWST01-17-Rh-004 の XRD チャート

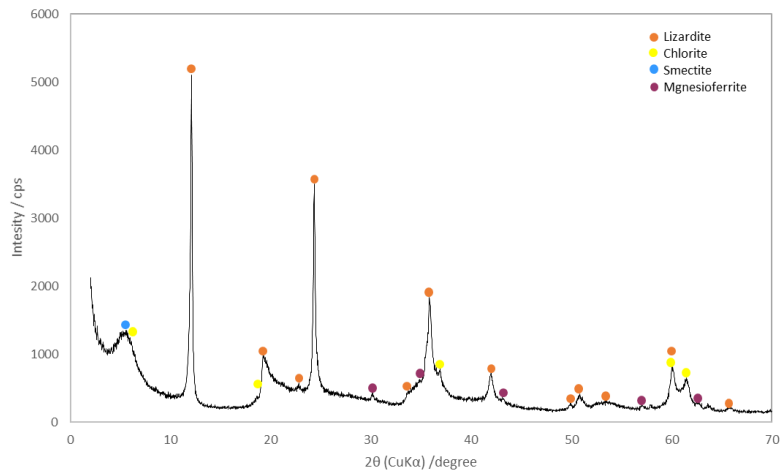


図 2.7.3-17 PWST01-17-Rh-006 の XRD チャート

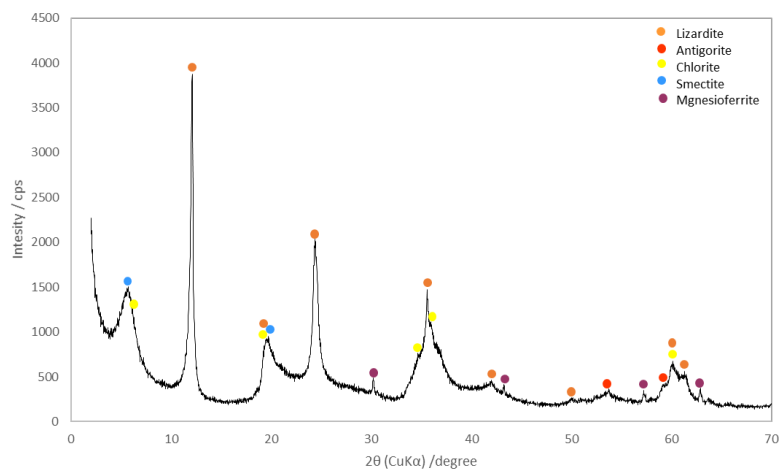


図 2.7.3-18 PWST02-17-Rh-002 の XRD チャート

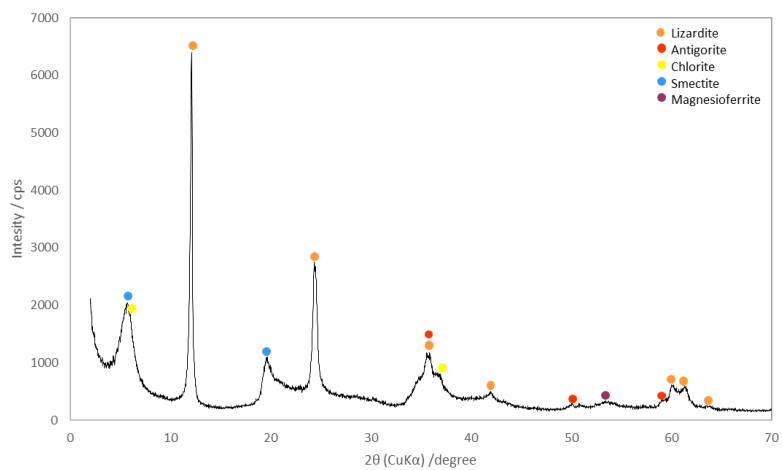


図 2.7.3-19 PWST02-17-Rh-003 の XRD チャート

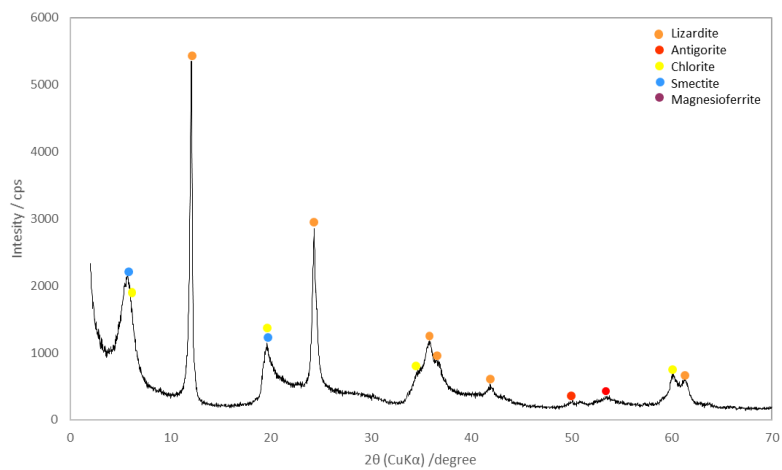


図 2.7.3-20 PWST02-17-Rh-005 の XRD チャート

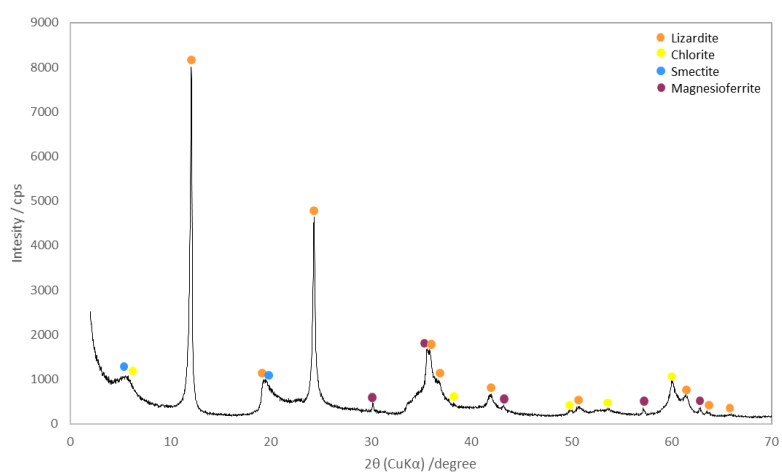


図 2.7.3-21 PWST02-17-Rh-008 の XRD チャート

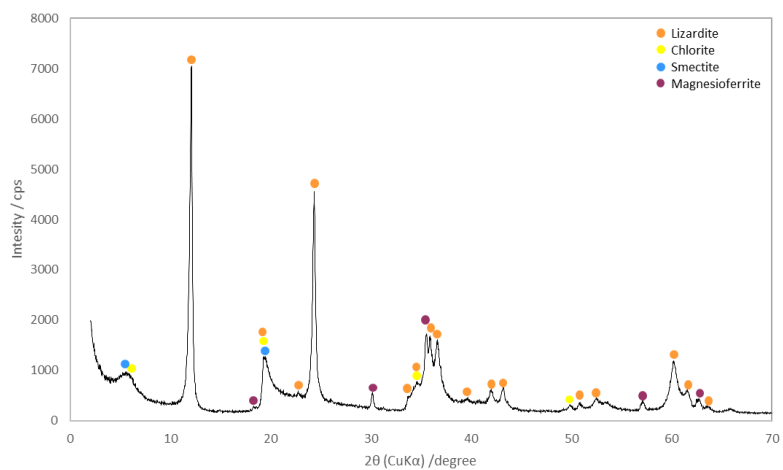


図 2.7.3-22 PWST03-17-Rh-005 の XRD チャート

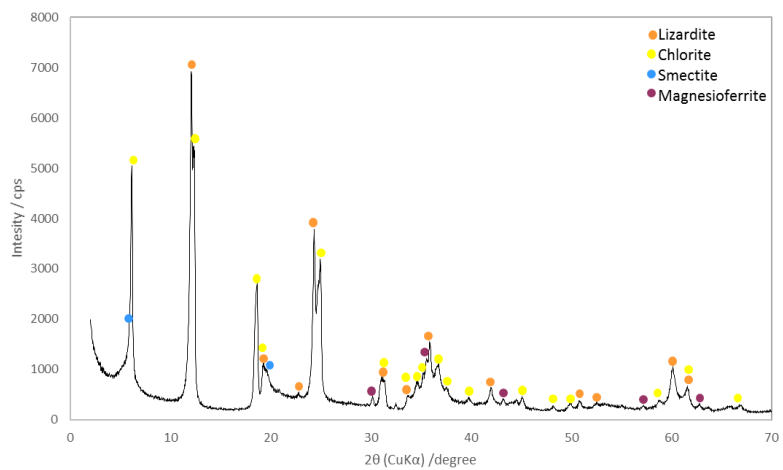


図 2.7.3-23 PWST03-17-Rh-006 の XRD チャート



## (2) 定方位法 X 線回折による鉱物学的特性の詳細検討

### 1) 検査方法

トレンチ試料及びストリップング試料の不定方位 X 線回折分析において、低角部にスメクタイトと考えられるピークが確認された。他の粘土鉱物として緑泥石も確認されているが、低角部において、スメクタイトと緑泥石は、この条件では、ピーク位置を明確に判断することができない。

これらの試料にスメクタイトが含まれるかどうか、そして、そのスメクタイトがモンモリロナイトやノントロナイトなどの 2 八面体型のものか、サポナイト（またはスティーブンサイト）などの 3 八面体型のものか確認することが本ナチュラルアナログ調査において重要であるため、本検討では、定方位法 X 線回折及び不定方位法 X 線回折によりそれらを確認する。

スメクタイトが含まれるかどうかを調べる方法は、エチレングリコール置換処理により底面間隔が大きくなるかどうか確認することである。この測定では、底面を強調しピークシフトを明瞭にするために、通常は定方位試料を用いる。

一方、八面体シートの状態を調べるためには、不定方位法により 060 面の面間隔（d 値）を調べる。

### 2) エチレングリコール処理

トレンチ試料の PWT06-17-Rh-001、PWT07-17-Rh-001、-005、-009、-C02、PWT08-17-Rh-001 及びストリップング試料の PWST01-17-Rh-004、-006、PWST02-17-Rh-002、-003、-005、-008、PWST03-17-Rh-005、-006 について、定方位法によって測定用の供試体を作製して XRD 測定を行うとともに、この供試体をエチレングリコール処理して XRD 測定した結果の 001 面ピーク位置及び d 値を表 2.7.3-2 に、X 線回折プロファイルを図 2.7.3-24～図 2.7.3-37 に示す。これらの測定結果では、ピークシフト量に大小があるものの、いずれもピークのシフトが見られたので、これらの試料はスメクタイトを含むと考えられる。なお、一般的にスメクタイトはエチレングリコール処理により約 2Å 膨潤（低角側にピークがシフト）し、緑泥石は変化がない。

### 3) 006 面の観察による碎屑性堆積物の鉱物学的特性

2 八面体シートの場合、060 面の d 値は 1.49~1.52Å であり、CuKα 線の場合、その回折によるピーク位置 (2θ) は 61° ~62° 程度である。さらにモンモリロナイト・バイデライトは 060 面の d 値が 1.49~1.50Å であり、ノントロナイトは 060 面の d 値が 1.51~1.52Å で区別される。3 八面体シートの場合は 060 面の d 値は 1.52~1.54Å であり、CuKα 線の場合、その回折によるピーク位置 (2θ) は 60° 程度である。

060 面相当のピークは、スメクタイト以外のピークも多数あり、明瞭にスメクタイトピークと判断できるものがほぼない結果であった。ある程度、スメクタイトであろうと推察できるピークから判断すると、概ねるピーク位置 (2θ) は 60° 程度であると推察されるため、スメクタイトは 3 八面体型のサポナイトまたはスティーブンサイトの可能性が示唆される。

表 2.7.3-2 定方位およびエチレングリコール処理の 001 面測定結果

No.	定方位		EG 処理後		ピークシフト
	$2\theta$	d (Å)	$2\theta$	d (Å)	d (Å)
PWT06-17-Rh-001	5.64	15.7	5.08	17.4	1.7
PWT07-17-Rh-001	5.70	15.5	5.11	17.3	1.8
PWT07-17-Rh-005	5.74	15.4	5.11	17.3	1.9
PWT07-17-Rh-009	5.63	15.7	5.02	17.6	1.9
PWT07-17-Rh-C02	5.67	15.6	5.17	17.1	1.5
PWT08-17-Rh-001	5.89	15.0	5.14	17.2	2.2
PWST01-17-Rh-004	5.63	15.7	5.05	17.5	1.8
PWST01-17-Rh-006	5.49	16.1	4.94	17.9	1.8
PWST02-17-Rh-002	5.49	16.1	4.91	18.0	1.9
PWST02-17-Rh-003	5.74	15.4	4.86	18.2	2.8
PWST02-17-Rh-005	5.81	15.2	5.02	17.6	2.4
PWST02-17-Rh-008	5.49	16.1	4.99	17.7	1.6
PWST03-17-Rh-005	5.59	15.8	5.08	17.4	1.6
PWST03-17-Rh-006	5.49	16.1	5.05	17.5	1.4

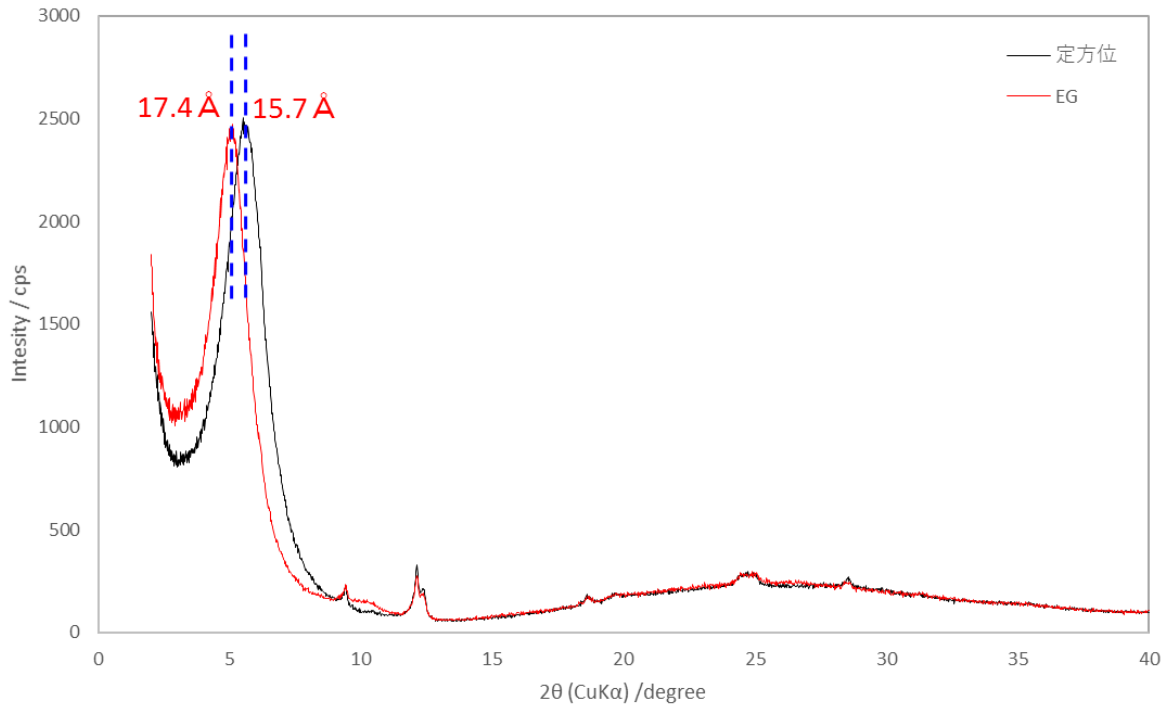


図 2.7.3-24 PWT06-17-Rh-001 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

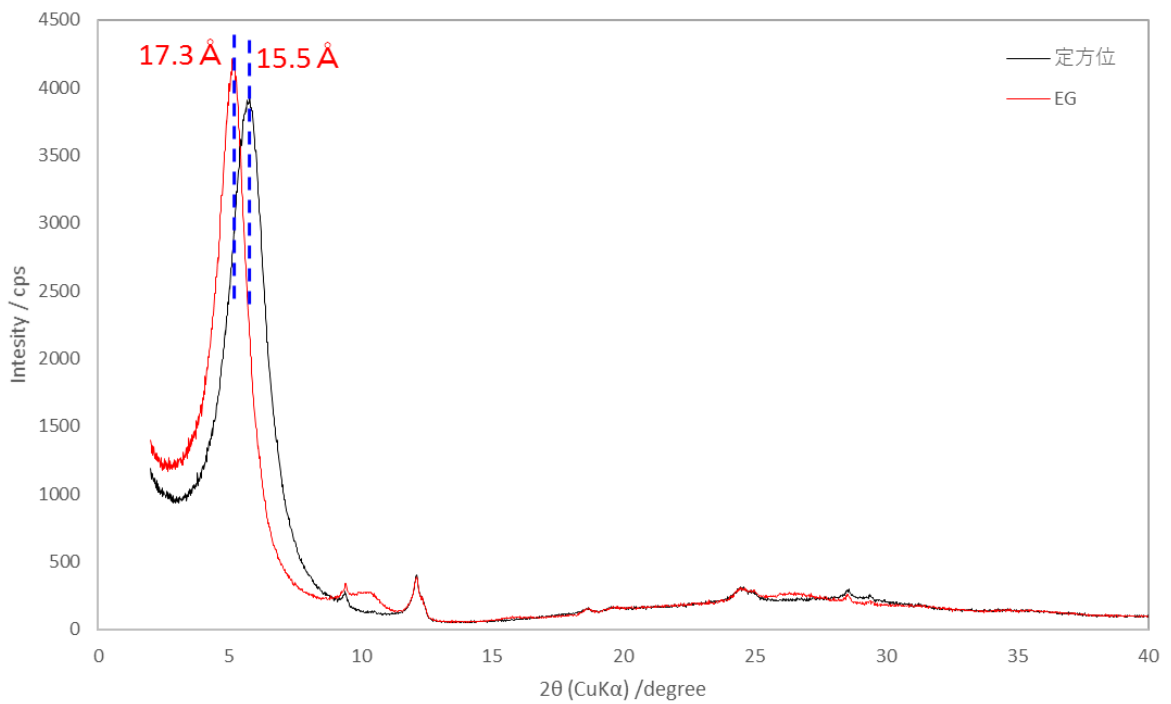


図 2.7.3-25 PWT07-17-Rh-001 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

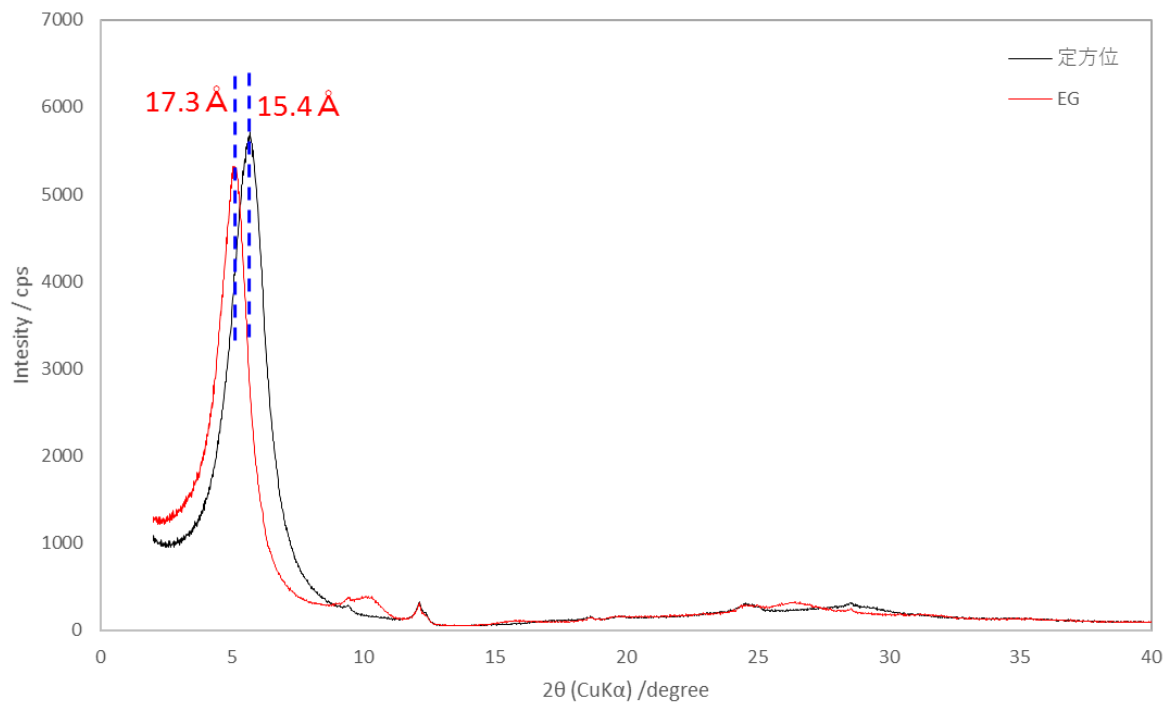


図 2.7.3-26 PWT07-17-Rh-005 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

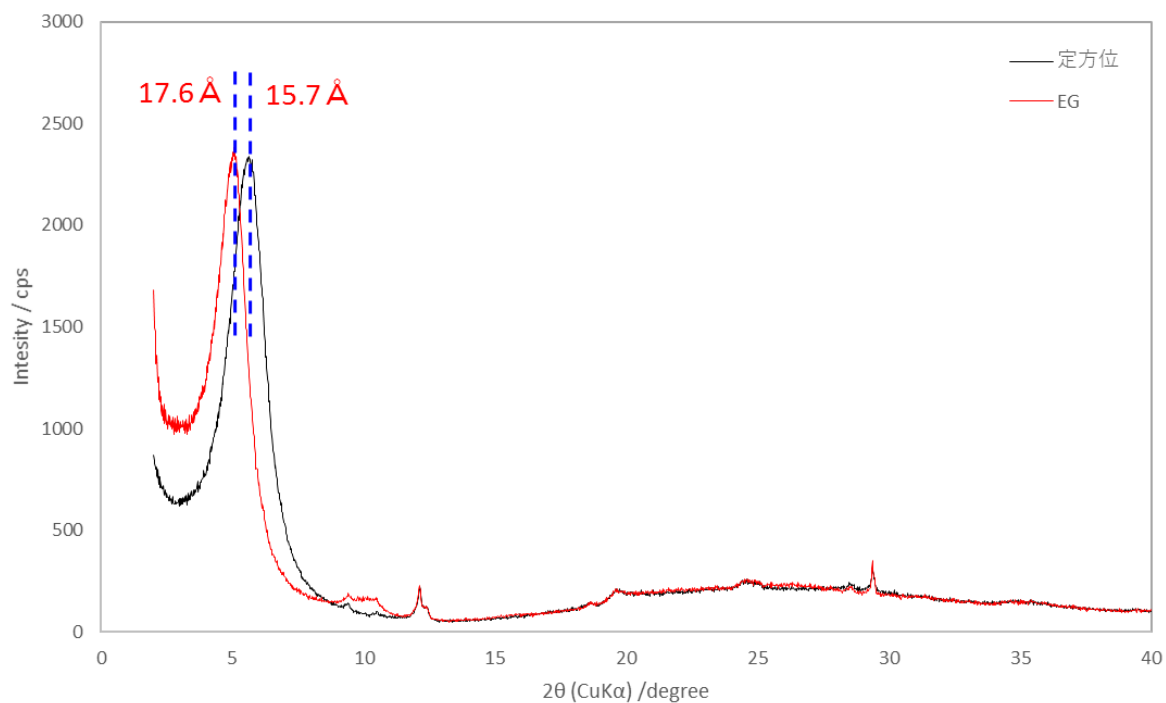


図 2.7.3-27 PWT07-17-Rh-009 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

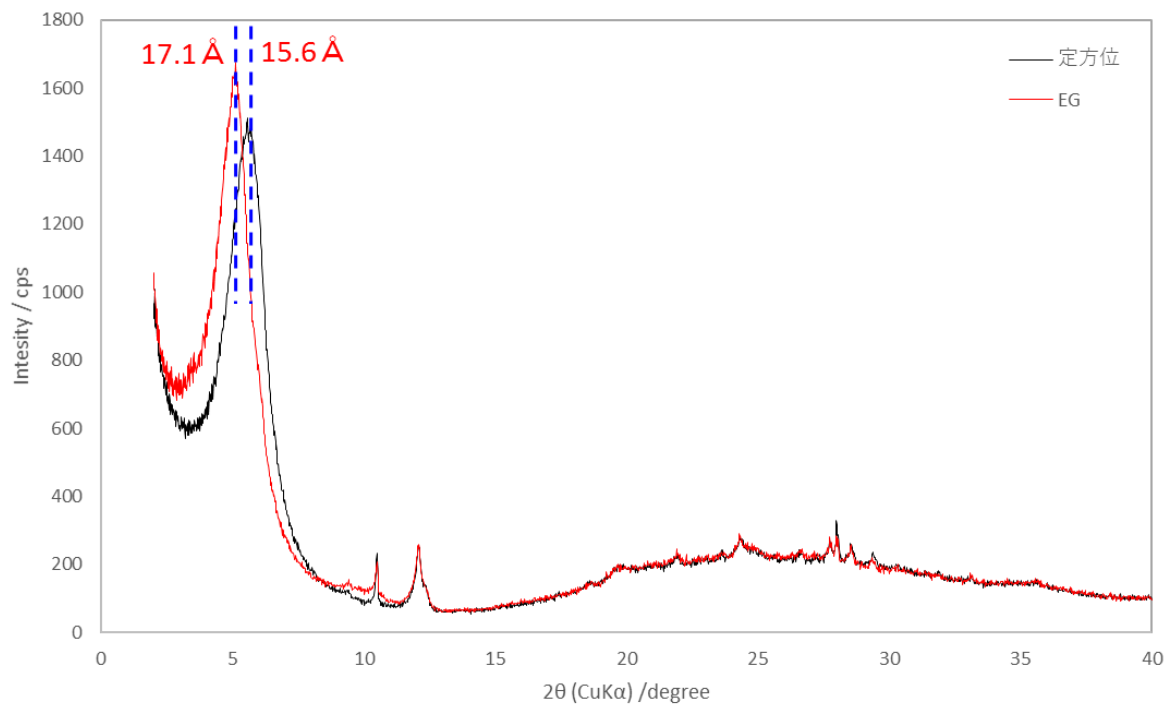


図 2.7.3-28 PWT07-17-Rh-C02 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

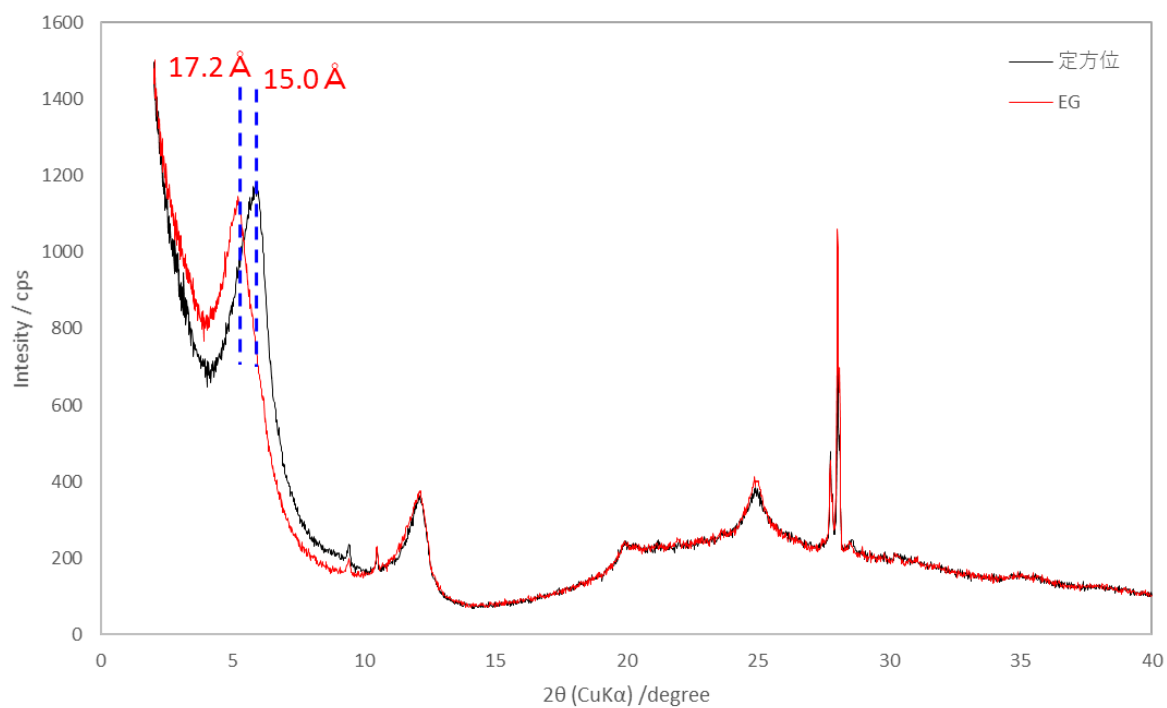


図 2.7.3-29 PWT08-17-Rh-001 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定



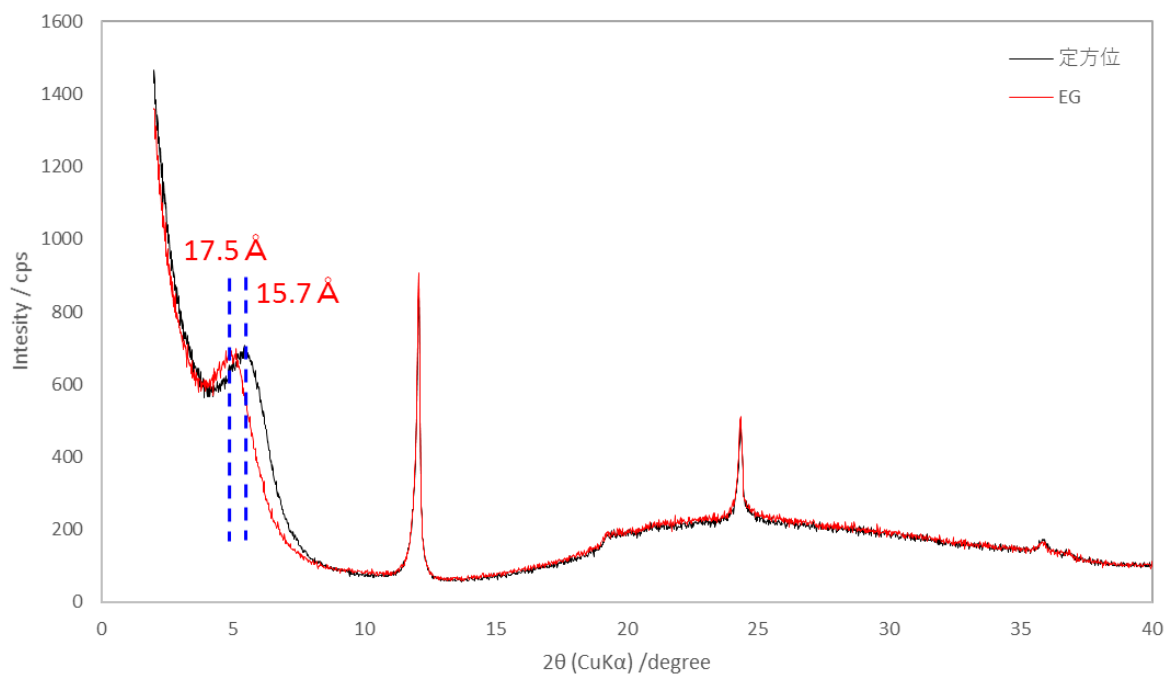


図 2.7.3-30 PWST01-17-Rh-004 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

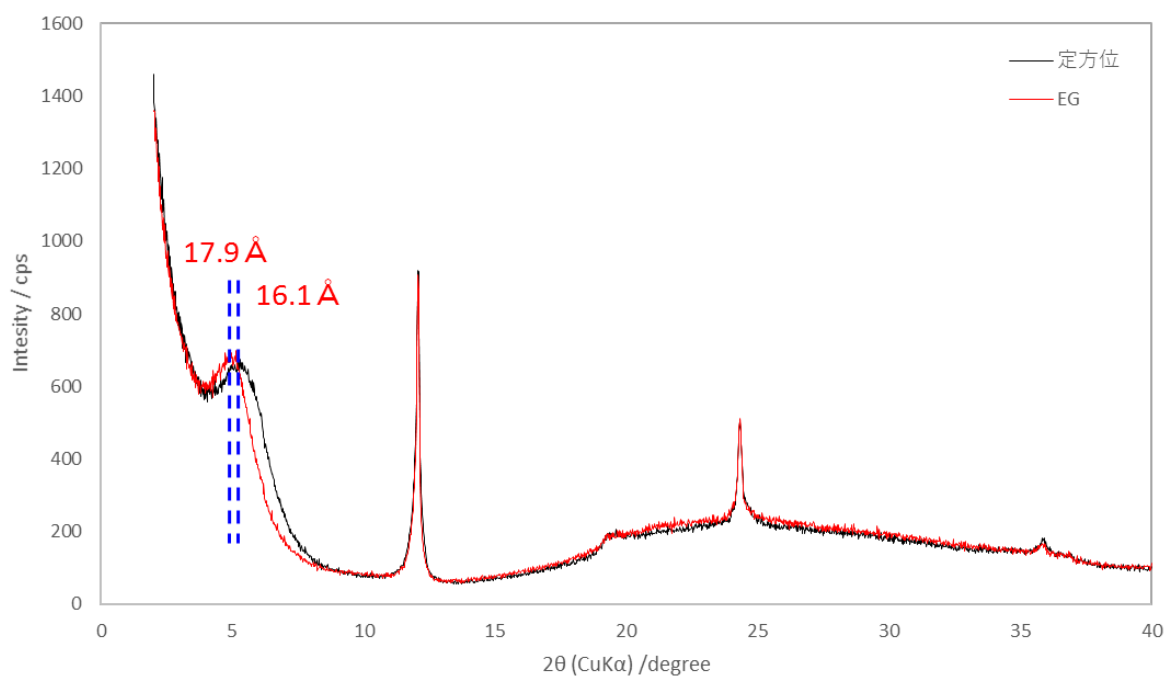


図 2.7.3-31 PWST01-17-Rh-006 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

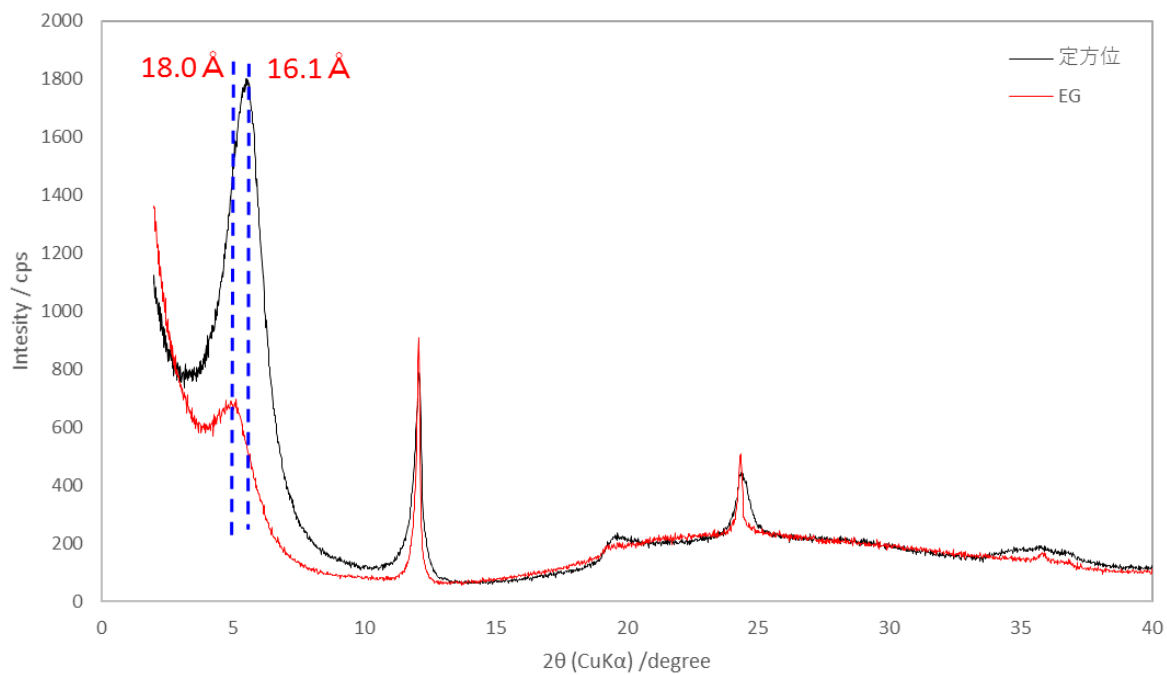


図 2.7.3-32 PWST02-17-Rh-002 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

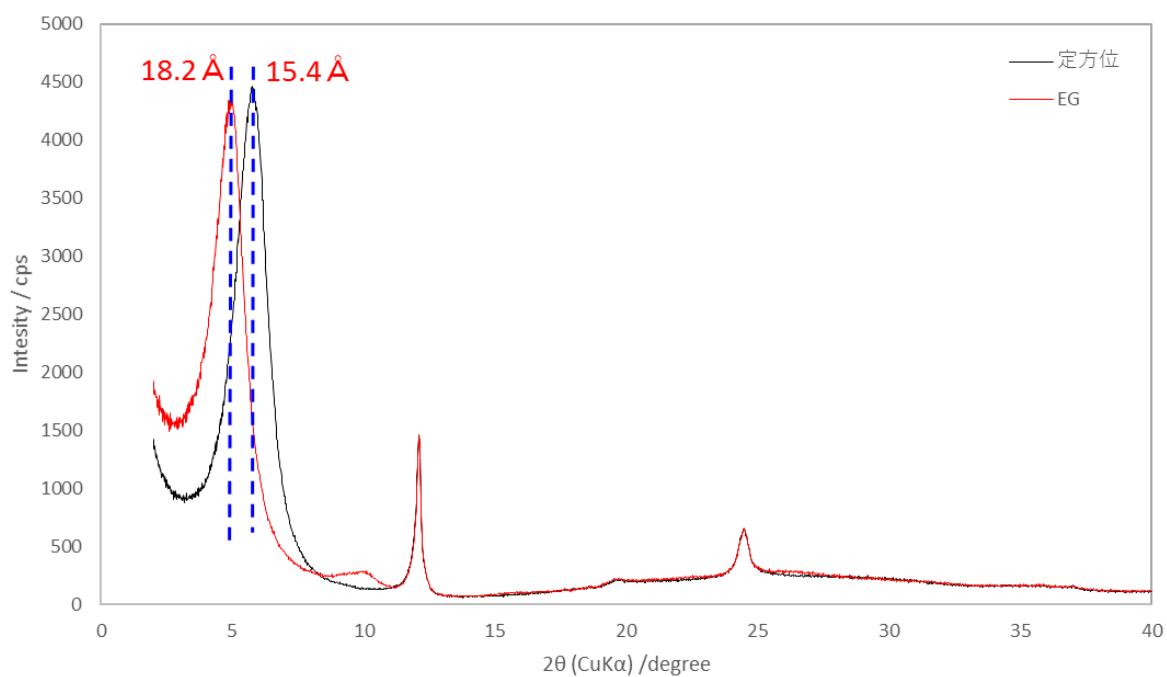


図 2.7.3-33 PWST02-17-Rh-003 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

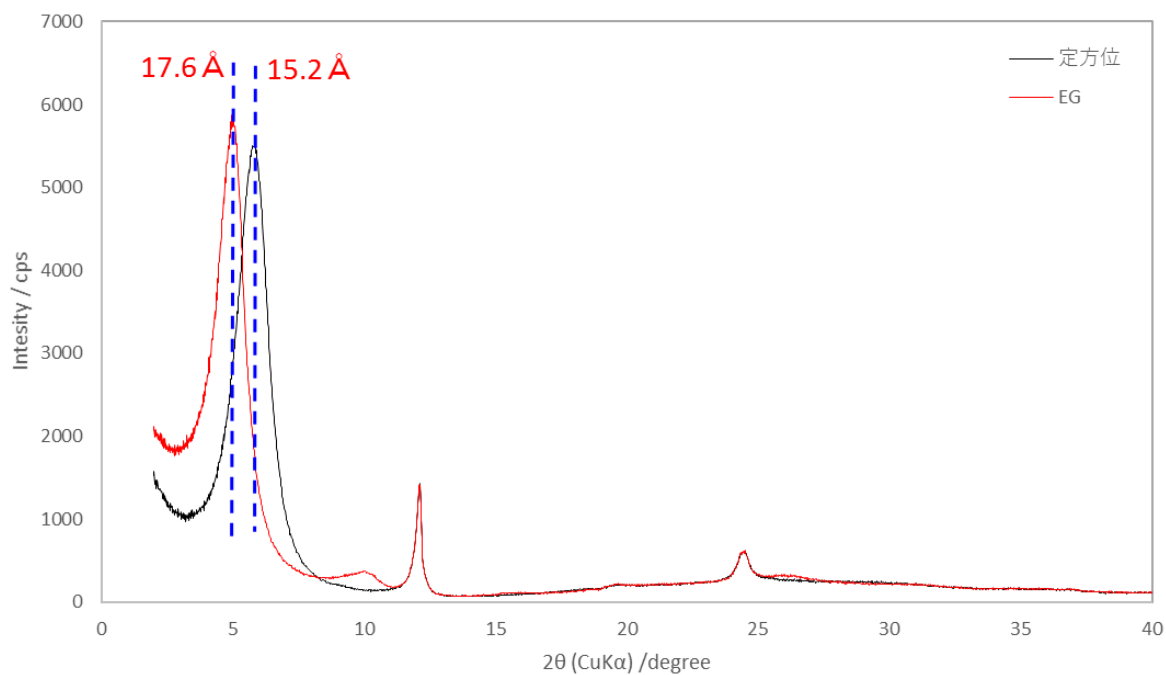


図 2.7.3-34 PWST02-17-Rh-005 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

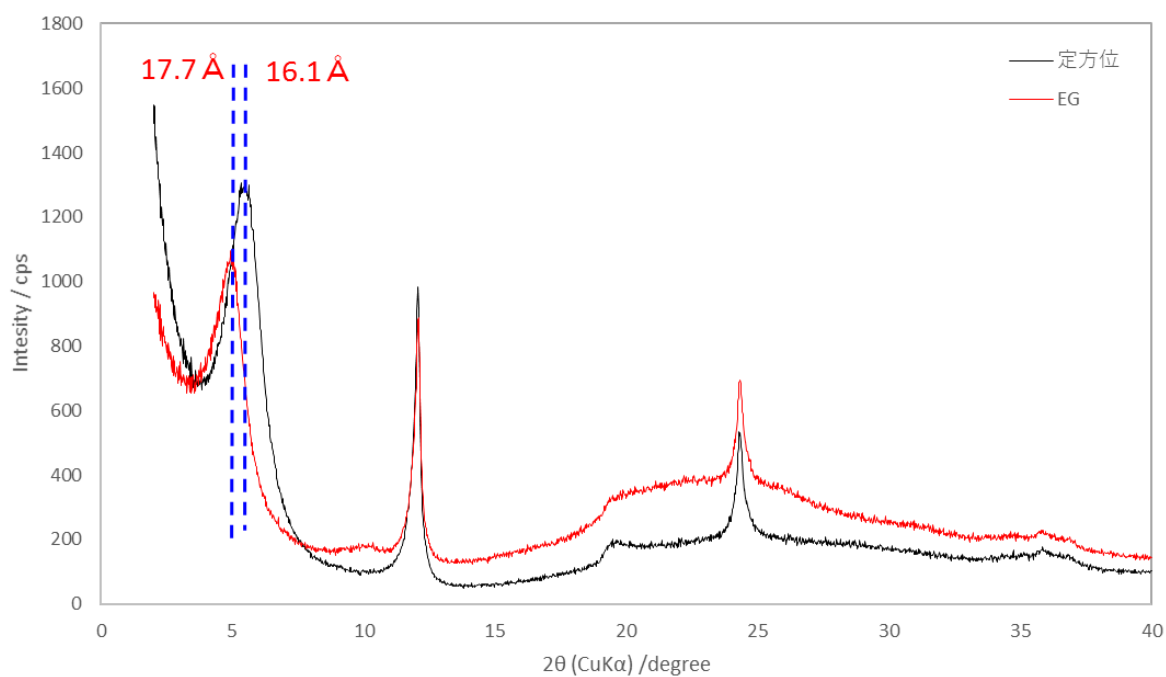


図 2.7.3-35 PWST02-17-Rh-008 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

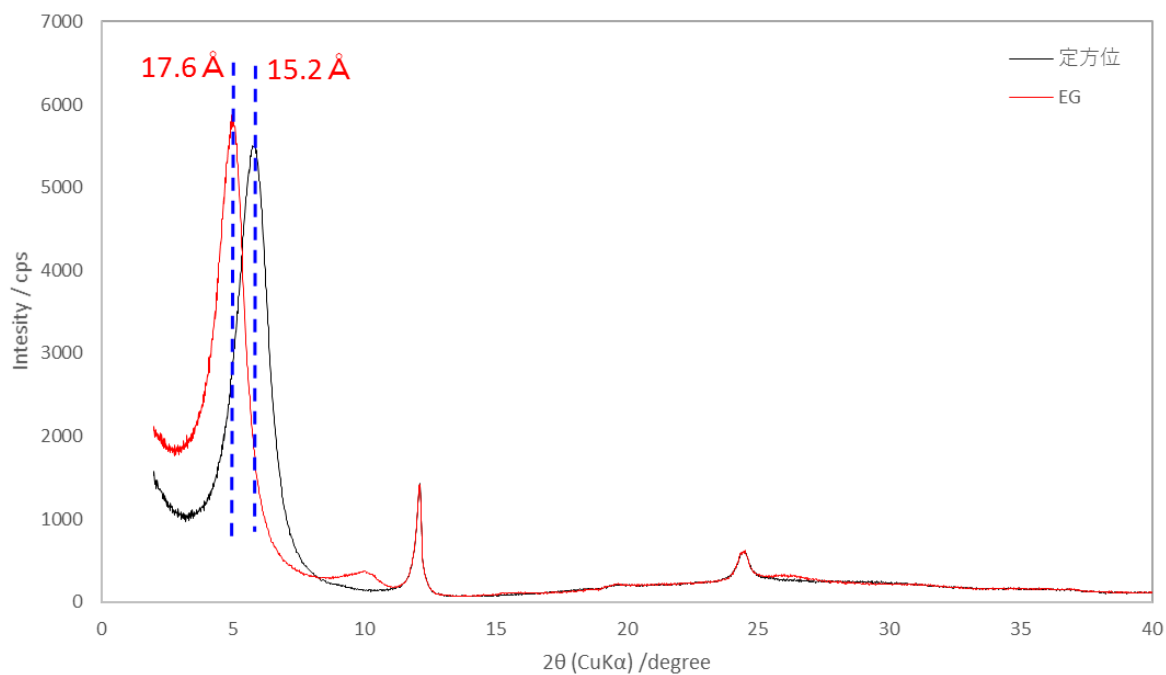


図 2.7.3-36 PWST03-17-Rh-005 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

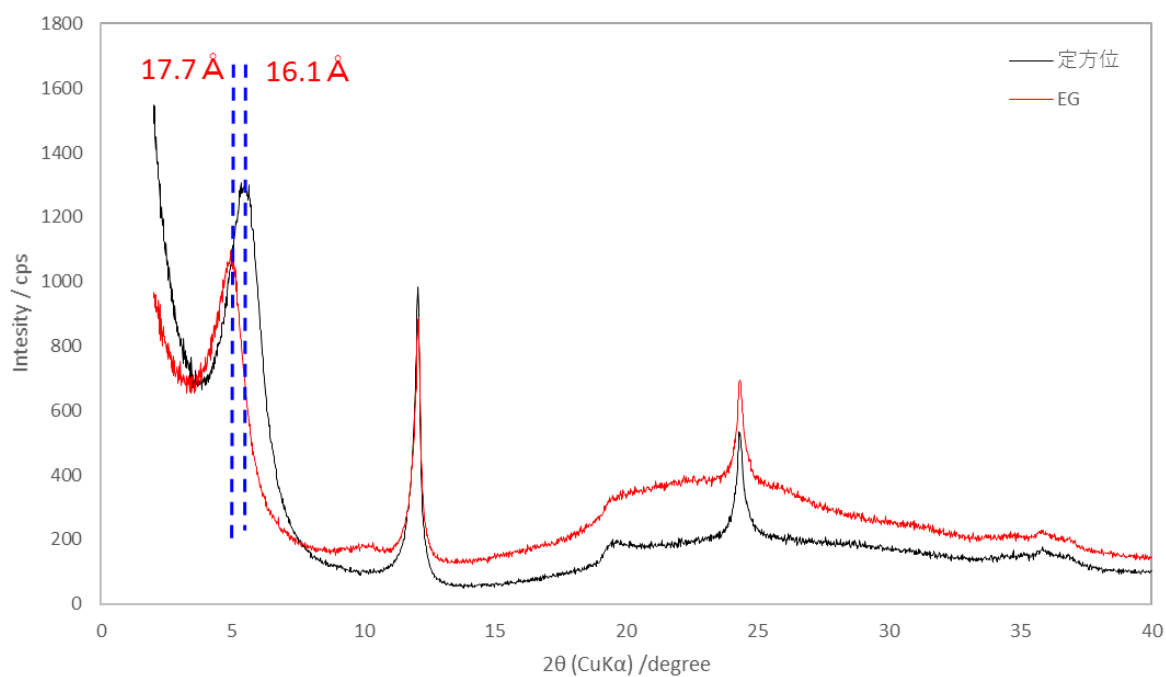


図 2.7.3-37 PWST03-17-Rh-006 の定方位測定および EG 処理試料の定方位測定

## 2.7.4 XRF（蛍光 X 線分析）による岩石化学的特性

Narra3 地区のナチュラルアナログサイトの岩石化学的特性を明らかにするために、2.7.2 で調整したトレンチ試料及びストリップング試料について、XRFによる全岩化学分析を行った。

### (1) XRF（蛍光 X 線分析）による全岩化学分析

トレンチ試料の元素定量結果を表 2.7.4-1～表 2.7.4-4 に、ストリップング試料を表 2.7.4-5、表 2.7.4-6 に示す。なお、表の空欄は、当該元素が検出されないことを示し、結果は酸化物表示で CO<sub>2</sub>を含む結果と CO<sub>2</sub>の含有率を控除して百分率を求めたものをそれぞれ記載している。また、測定結果を棒グラフにプロットしたものを図 2.7.4-1、図 2.7.4-2 に示す。

パラワンオフィオライト超苦鉄質複合岩体を構成する蛇紋岩化が進んだハルツバージャイト（主成分鉱物は斜方輝石、かんらん石で、少量の単斜輝石および、少量のクロム鉄鉱と磁鉄鉱など）起源であるトレンチの碎屑性堆積物とストリップングの蛇紋岩質風化堆積物は原岩のバルク組成を反映し、MgO, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に富み、CaO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に著しく乏しく、Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>Oにも乏しい。また、シリカ成分(SiO<sub>2</sub>)に乏しい不飽和な超塩基性岩としての特性もある。両者の比較では、ストリップングの蛇紋岩質風化堆積物は、スメクタイト化がより進んでいるトレンチの碎屑性堆積物に比べて SiO<sub>2</sub>が少なく、CaO はほとんどない。CaO の違いは、アルカリ環境下で CaO が供給されるトレンチ試料と違い、風化過程で Ca 成分が溶脱しているためだと考えられる。

PWT07-17-Rh-C02、PWT08-17-Rh-001 及び PWT08-17-Rh-003 では、他の試料よりも Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が多く、MgO と Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が少ない傾向が明確にみられた。トレンチ 8 の試料 (PWT08-17-Rh-001 及び PWT08-17-Rh-003) は XRD より、班れい岩由来の斜長石の存在を反映しているものと考えられる。PWT07-17-Rh-C02 の堆積物も斜長石の Al が反映されたものであり、この堆積物のそれぞれ上位層、下位層である PWT07-17-Rh-002、PWT07-17-Rh-003 も PWT07-17-Rh-C02 の堆積物の影響のためやや Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が多い。



表 2.7.4-1 トレンチ 6 及びトレンチ 7 試料の XRF 分析による定量結果(酸化物表記、CO<sub>2</sub> 含む)

試料名 (%)	PWT06-17-Rh			PWT07-17-Rh				
	-001	-002	-003	-001	-002	-003	-004	-005
CO <sub>2</sub>	11.5703	11.3603	13.3321	12.7617	11.4814	11.2270	15.7491	12.8595
CaO	2.2201	4.8370	1.8371	4.2684	4.0294	4.0565	2.0039	2.3566
SiO <sub>2</sub>	47.2061	46.0698	49.4522	40.0409	43.3296	43.9880	44.3568	48.3070
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	19.9216	19.5067	19.5148	20.1238	14.8995	14.7071	18.4163	18.2874
MgO	13.5619	13.9252	11.6427	18.4802	19.9227	19.5691	15.3750	14.5079
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.0910	1.8637	2.1510	2.0724	4.1338	4.2081	2.1238	1.5500
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.7617	0.7452	0.7371	0.8063	0.5183	0.5208	0.5263	0.6212
NiO	0.7606	0.7738	0.7849	0.7215	0.5627	0.5508	0.6976	0.7366
SO <sub>3</sub>	0.0257	0.0163	0.0284	0.0169	0.0259	0.0265	0.0173	0.0138
MnO	0.4282	0.4038	0.1335	0.2159	0.2235	0.2197	0.2319	0.3160
Na <sub>2</sub> O	0.1770	0.1791	0.1544	0.1805	0.3916	0.4252	0.2215	0.1732
TiO <sub>2</sub>	0.0646	0.0664	0.0602	0.0756	0.1858	0.1805	0.0822	0.0558
Co <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.0810	0.0774	0.0779	0.0770	0.0539	0.0551	0.0672	0.0721
K <sub>2</sub> O	0.0558	0.0962	0.0421	0.1127	0.1919	0.1956	0.0957	0.0743
ZnO	0.0158	0.0148	0.0133	0.0138	0.0117	0.0127	0.0119	0.0138
SrO	0.0078	0.0133	0.0071	0.0090	0.0176	0.0173	0.0091	0.0084
V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.0154	0.0131	0.0127	0.0143	-	-	-	0.0107
CuO	0.0067	0.0059	0.0057	0.0056	0.0045	0.0051	0.0055	0.0059
Cl	0.0286	0.0319	0.0128	0.0035	0.0095	0.0109	0.0089	0.0100
In <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	0.0174	-	0.0197
Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
ZrO <sub>2</sub>	-	-	-	-	0.0066	0.0066	-	-
Rb <sub>2</sub> O	-	-	-	-	-	-	-	-
PbO	-	-	-	-	-	-	-	-
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
Br	-	-	-	-	-	-	-	-

表 2.7.4-2 トレンチ7及びトレンチ8試料のXRF分析による定量結果(酸化物表記、CO<sub>2</sub>含む)

試料名	PWT07-17-Rh					PWT08-17-Rh		
	(%)	-006	-007	-008	-009	-C02	-001	-003
CO <sub>2</sub>		12.1760	13.4378	11.5293	13.0206	9.5377	11.4739	10.8139
CaO		2.1309	1.7423	4.4243	5.3056	5.0457	4.0261	6.4195
SiO <sub>2</sub>		48.0292	46.0558	48.7570	46.4857	53.2603	46.6625	42.8429
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		19.0533	19.3246	19.9075	20.0025	8.7847	7.3786	10.6745
MgO		14.8942	15.4236	11.1669	11.0052	8.5706	6.2524	12.6173
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		1.4465	1.9052	1.9104	1.9322	10.5620	23.1758	15.0935
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		0.6225	0.7157	0.7691	0.7473	0.2160	0.0737	0.1258
NiO		0.7938	0.7956	0.7709	0.8059	0.1942	0.1659	0.1449
SO <sub>3</sub>		0.0215	0.0189	0.0155	0.0200	0.0456	0.0161	0.0191
MnO		0.3931	0.1992	0.2728	0.1715	0.1687	0.2016	0.2414
Na <sub>2</sub> O		0.1865	0.1300	0.1774	0.1759	1.6240	0.3951	0.6205
TiO <sub>2</sub>		0.0468	0.0585	0.0632	0.0639	0.4507	0.0930	0.1221
Co <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		0.0733	0.0745	0.0764	0.0751	0.0267	0.0236	0.0315
K <sub>2</sub> O		0.0620	0.0433	0.0997	0.1091	1.3391	0.0052	0.0218
ZnO		0.0138	0.0146	0.0147	0.0151	0.0104	0.0072	0.0107
SrO		0.0090	0.0068	0.0128	0.0151	0.0527	0.0051	-
V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>		0.0103	0.0123	0.0146	0.0131	-	-	0.0229
CuO		0.0061	0.0062	0.0061	0.0056	0.0048	0.0199	0.0259
Cl		0.0312	0.0157	0.0098	0.0128	0.0676	0.0058	0.1504
In <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		-	0.0195	-	-	0.0136	0.0155	-
Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		-	-	-	0.0179	-	-	-
Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		-	-	0.0015	-	0.0020	0.0019	-
ZrO <sub>2</sub>		-	-	-	-	-	-	-
Rb <sub>2</sub> O		-	-	-	-	0.0045	-	-
PbO		-	-	-	-	0.0011	-	-
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>		-	-	-	-	0.0172	-	-
Br		-	-	-	-	-	0.0009	0.0012

表 2.7.4-3 トレンチ 6 及びトレンチ 7 試料の XRF 分析による定量結果 (酸化物表記、CO<sub>2</sub> 含まず)

試料名	PWT06-17-Rh			PWT07-17-Rh				
	(%)	-001	-002	-003	-001	-002	-003	-004
CaO	2.5469	5.5307	2.1570	4.9628	4.6505	4.6676	2.4313	2.7554
SiO <sub>2</sub>	52.8414	51.3913	56.3410	45.4065	48.7066	49.3089	51.9925	54.8455
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	23.4471	22.9122	23.5961	24.1295	17.6409	17.3491	23.1466	21.9970
MgO	14.8779	15.2461	12.9742	20.4779	21.8163	21.3828	17.4929	16.0963
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.4396	2.0689	2.4345	2.3385	4.6157	4.6858	2.4703	1.7495
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.8805	0.8613	0.8725	0.9483	0.6046	0.6056	0.6453	0.7328
NiO	0.9222	0.9344	0.9830	0.8932	0.6850	0.6675	0.9148	0.9162
SO <sub>3</sub>	0.0294	0.0186	0.0332	0.0195	0.0298	0.0304	0.0210	0.0161
MnO	0.5007	0.4715	0.1601	0.2571	0.2633	0.2578	0.2890	0.3774
Na <sub>2</sub> O	0.1930	0.1949	0.1708	0.1986	0.4258	0.4614	0.2497	0.1908
TiO <sub>2</sub>	0.0745	0.0766	0.0711	0.0887	0.2162	0.2094	0.1004	0.0657
Co <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.0956	0.0912	0.0943	0.0925	0.0639	0.0651	0.0846	0.0869
K <sub>2</sub> O	0.0639	0.1097	0.0494	0.1307	0.2210	0.2245	0.1158	0.0867
ZnO	0.0192	0.0179	0.0167	0.0172	0.0143	0.0154	0.0157	0.0172
SrO	0.0096	0.0162	0.0089	0.0112	0.0216	0.0211	0.0120	0.0105
V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.0178	0.0152	0.0151	0.0168	-	-	-	0.0126
CuO	0.0081	0.0071	0.0071	0.0070	0.0055	0.0062	0.0072	0.0074
Cl	0.0327	0.0363	0.0150	0.0040	0.0109	0.0125	0.0108	0.0117
In <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	0.0211	-	0.0244
Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
ZrO <sub>2</sub>	-	-	-	-	0.0081	0.0081	-	-
Rb <sub>2</sub> O	-	-	-	-	-	-	-	-
PbO	-	-	-	-	-	-	-	-
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
Br	-	-	-	-	-	-	-	-

表 2.7.4-4 トレンチ 7 及びトレンチ 8 試料の XRF 分析による定量結果 (酸化物表記、CO<sub>2</sub> 含まず)

試料名 (%)	PWT07-17-Rh					PWT08-17-Rh	
	-006	-007	-008	-009	-C02	-004	-006
CaO	2.4674	2.0489	5.0686	6.1856	5.7329	4.7087	7.3832
SiO <sub>2</sub>	54.1332	52.6215	54.4297	52.6534	58.6620	52.8659	47.9613
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	22.6575	23.4108	23.4317	24.0689	10.1695	8.8100	12.5721
MgO	16.4287	17.1999	12.2469	12.2220	9.2193	6.8139	13.6940
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.6216	2.1636	2.1215	2.1759	11.4941	25.6130	16.6452
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.7265	0.8486	0.8902	0.8825	0.2481	0.0872	0.1467
NiO	0.9745	0.9988	0.9334	1.0009	0.2289	0.2024	0.1746
SO <sub>3</sub>	0.0249	0.0222	0.0178	0.0232	0.0515	0.0187	0.0219
MnO	0.4643	0.2394	0.3192	0.2049	0.1948	0.2399	0.2834
Na <sub>2</sub> O	0.2043	0.1438	0.1933	0.1940	1.7354	0.4277	0.6689
TiO <sub>2</sub>	0.0545	0.0692	0.0730	0.0753	0.5165	0.1099	0.1421
Co <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.0874	0.0904	0.0901	0.0905	0.0309	0.0282	0.0372
K <sub>2</sub> O	0.0717	0.0508	0.1140	0.1269	1.5151	0.0061	0.0250
ZnO	0.0170	0.0184	0.0178	0.0188	0.0123	0.0088	0.0129
SrO	0.0111	0.0086	0.0155	0.0189	0.0623	0.0062	-
V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.0121	0.0145	0.0169	0.0155	-	-	0.0266
CuO	0.0075	0.0077	0.0074	0.0069	0.0057	0.0243	0.0312
Cl	0.0360	0.0184	0.0112	0.0148	0.0763	0.0068	0.1722
In <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	0.0244	-	-	0.0160	0.0188	-
Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	0.0211	-	-	-
Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	0.0019	-	0.0023	0.0023	-
ZrO <sub>2</sub>	-	-	-	-	-	-	-
Rb <sub>2</sub> O	-	-	-	-	0.0054	-	-
PbO	-	-	-	-	0.0014	-	-
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	-	-	-	-	0.0194	-	-
Br	-	-	-	-	-	0.0012	0.0015

表 2.7.4-5 ストリッピング試料の XRF 分析による定量結果 (酸化物表記、CO<sub>2</sub> 含む)

試料名 (%)	PWST01-17-Rh		PWST02-17-Rh				PWST03-17-Rh	
	-004	-006	-002	-003	-005	-008	-005	-006
CO <sub>2</sub>	13.3693	15.0473	16.0178	11.7514	11.2155	12.2105	10.2587	10.9993
CaO	0.1115	0.0793	0.0041	0.0041	0.0050	0.0057	0.0049	0.3629
SiO <sub>2</sub>	35.3760	34.9367	35.1385	38.2936	41.4704	41.9507	42.5132	36.7484
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	17.1851	15.7349	13.3533	14.3427	13.1369	12.4768	9.8961	10.5732
MgO	30.0206	30.4373	33.7886	34.0741	32.7010	31.7610	36.2493	37.3236
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.0481	2.0355	0.2619	0.1470	0.1653	0.2194	0.3009	2.9162
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.6802	0.5510	0.4936	0.4081	0.3565	0.3680	0.1912	0.2922
NiO	0.7850	0.7823	0.6973	0.6857	0.6638	0.7717	0.4037	0.4265
SO <sub>3</sub>	0.0240	0.0156	0.0101	0.0109	0.0117	0.0076	0.0059	0.0097
MnO	0.2703	0.2723	0.1445	0.2009	0.1730	0.1216	0.1073	0.1877
Na <sub>2</sub> O	-	-	-	-	-	-	-	-
TiO <sub>2</sub>	0.0170	-	-	-	-	-	-	-
Co <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.0640	0.0620	0.0518	0.0574	0.0552	0.0545	0.0444	0.0450
K <sub>2</sub> O	0.0107	-	-	-	-	-	-	-
ZnO	0.0154	0.0204	0.0103	0.0107	0.0103	0.0114	0.0083	0.0096
SrO	-	-	-	-	-	-	-	-
V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
CuO	-	0.0039	0.0018	0.0029	0.0031	-	0.0023	-
Cl	0.0184	0.0214	0.0127	0.0104	0.0186	0.0228	0.0138	0.0103
In <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	0.0137	-	0.0137	0.0183	-	0.0154
Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
ZrO <sub>2</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
Rb <sub>2</sub> O	-	-	-	-	-	-	-	-
PbO	-	-	-	-	-	-	-	-
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.0044	-	-	-	-	-	-	0.0041
Br	-	-	-	-	-	-	-	-



表 2.7.4-6 ストリッピング試料の XRF 分析による定量結果 (酸化物表記、CO<sub>2</sub> 含まず)

試料名	PWST01-17-Rh		PWST02-17-Rh				PWST03-17-Rh	
	(%)	-004	-006	-002	-003	-005	-008	-005
CaO	0.1319	0.0961	0.0051	0.0047	0.0058	0.0067	0.0056	0.4219
SiO <sub>2</sub>	40.8283	41.1947	42.1222	43.5758	46.9043	47.9976	47.7954	41.7147
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	20.8863	19.6728	17.0607	17.0882	15.5398	14.9977	11.5931	12.5251
MgO	33.491	34.4651	38.6394	37.4943	35.8019	35.0704	39.3493	40.7631
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.3519	2.3858	0.3125	0.1667	0.1863	0.2499	0.3369	3.2921
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.8084	0.672	0.6149	0.4776	0.415	0.4348	0.2213	0.3413
NiO	0.991	1.0215	0.9332	0.8447	0.8099	0.9591	0.4856	0.52
SO <sub>3</sub>	0.0284	0.0189	0.0125	0.0127	0.0136	0.009	0.0068	0.0112
MnO	0.3259	0.3374	0.1829	0.2379	0.2035	0.1453	0.1252	0.2213
Na <sub>2</sub> O	-	-	-	-	-	-	-	-
TiO <sub>2</sub>	0.0202	-	-	-	-	-	-	0.0772
CO <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.078	0.0778	0.0664	0.0686	0.0655	0.0657	0.0521	0.0534
K <sub>2</sub> O	0.0126	-	-	-	-	-	-	-
ZnO	0.0195	0.0268	0.0139	0.0132	0.0126	0.0142	0.01	0.0117
SrO	-	-	-	-	-	-	-	-
V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	-	-	-	-	-	-	-	0.0114
CuO	-	0.0052	0.0025	0.0035	0.0037	-	0.0028	-
Cl	0.0217	0.0259	0.0156	0.0121	0.0216	0.0268	0.0159	0.012
In <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	0.0183	-	0.0166	0.0227	-	0.0187
Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
Ga <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
ZrO <sub>2</sub>	-	-	-	-	-	-	-	-
Rb <sub>2</sub> O	-	-	-	-	-	-	-	-
PbO	-	-	-	-	-	-	-	-
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.0051	-	-	-	-	-	-	0.0047
Br	-	-	-	-	-	-	-	-

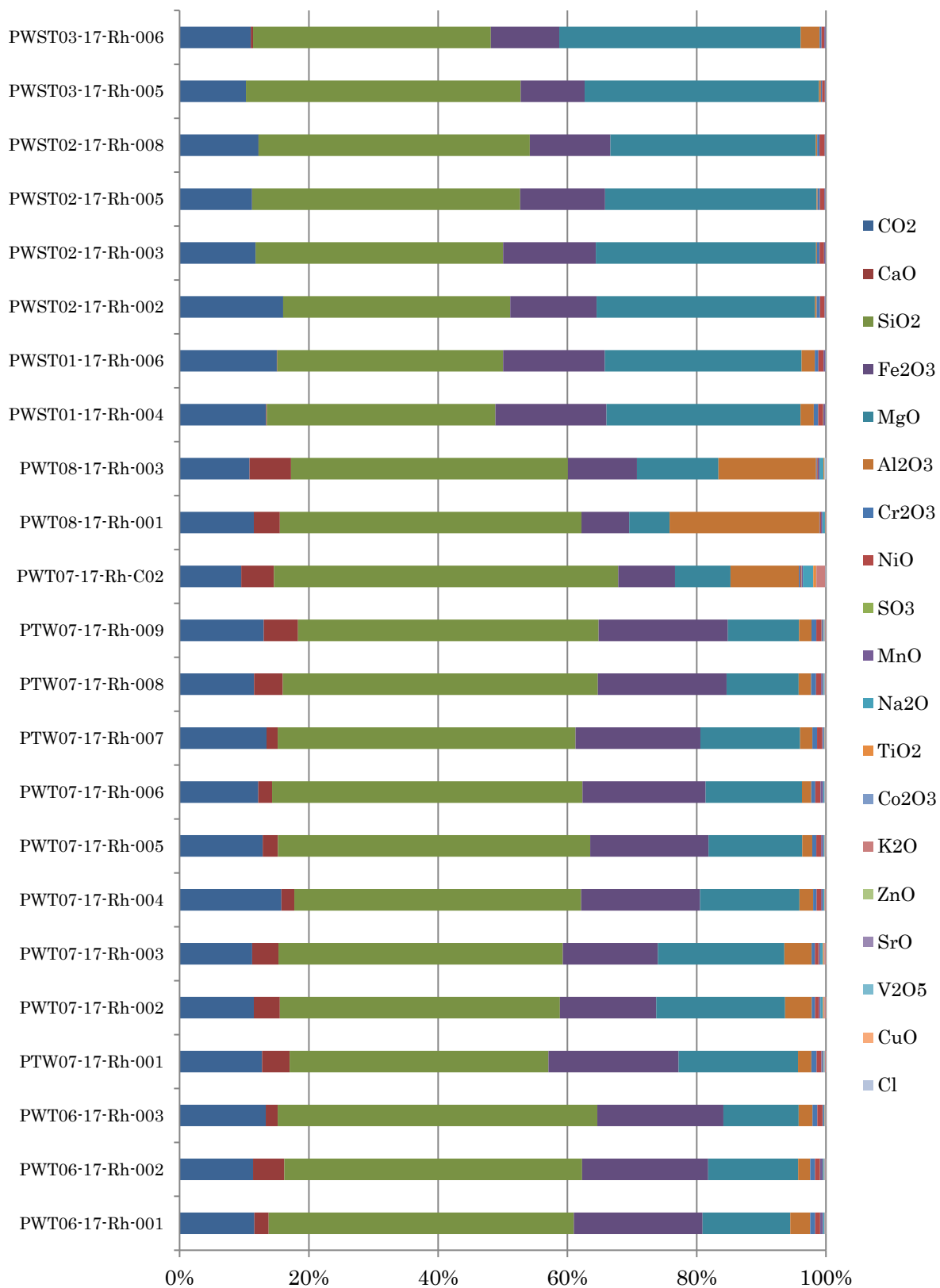


図 2.7.4-1 トレンチ及びストリッピング試料の XRF 分析結果（酸化物表記、CO<sub>2</sub>を含む）

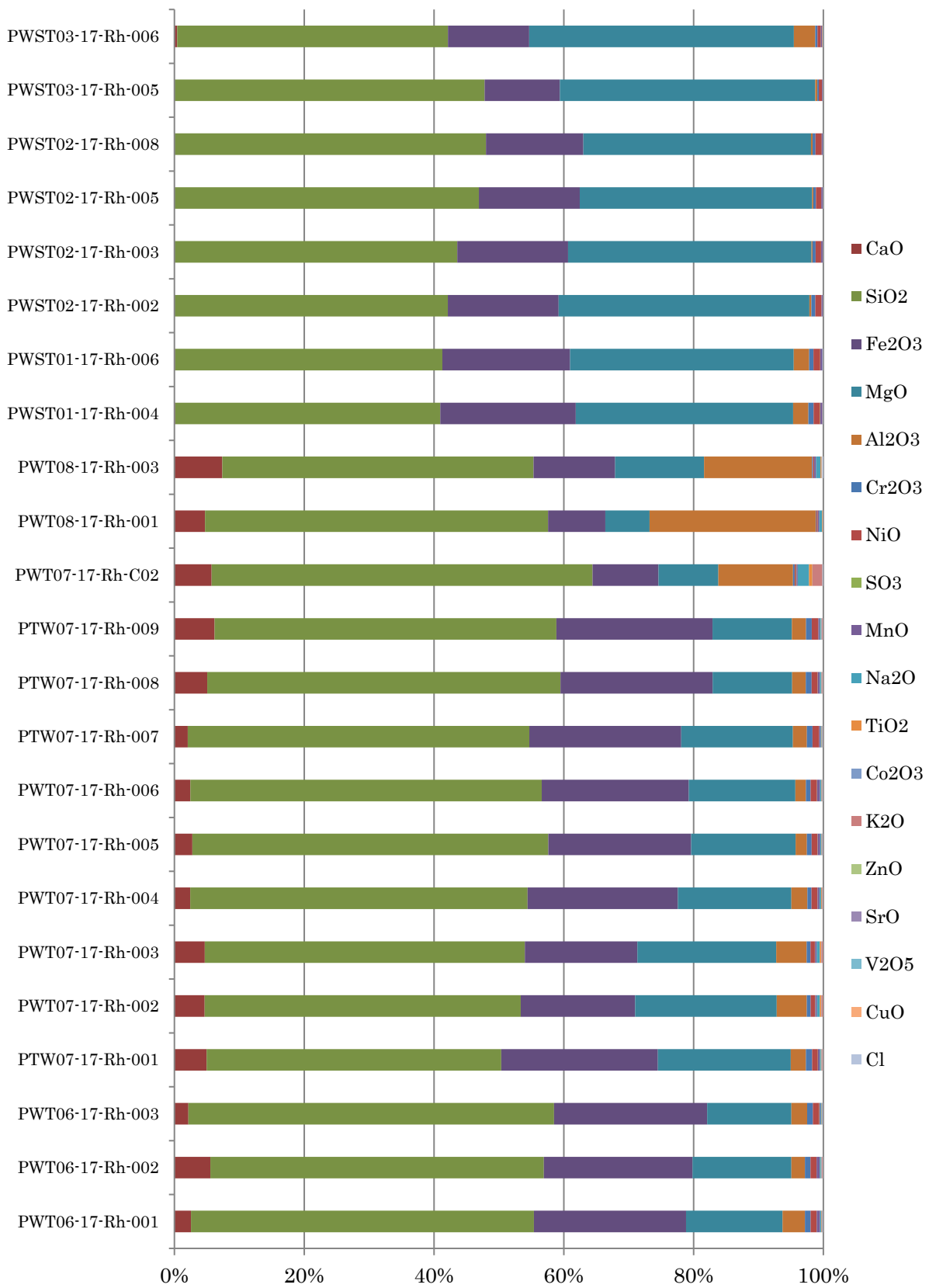


図 2.7.4-2 トレンチ及びストリップング試料の XRF 分析結果（酸化物表記、CO<sub>2</sub> を含まず）

## (2) 碎屑性堆積物の岩石化学的特性

パラワンオフィオライト（基盤岩）起源である碎屑性堆積物の主要バルク組成による岩石化学的特性（地球化学的特性）を考察する上で、特に、粘土鉱物・変質鉱物などの生成環境とその環境変遷（状態変遷）を理解するために主要バルク組成の中で、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、そして、碎屑性堆積物の主要な起源物質（原岩）である超苦鉄質複合岩体に多く含有される  $\text{NiO}$ 、 $\text{Cr}_2\text{O}_3$  に特化し、主要成分と微量成分の地球化学的挙動を検討するために岩石化学的特性を検討する。

Narra 地区のトレンチ及びストリッピングで採取した試料の含有金属元素の質量含有率（酸化物）の  $\text{SiO}_2$  との比をプロットした図を図 2.7.4-3～図 2.7.4-12 に、スメクタイトの形成に係る  $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  と  $\text{MgO}$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  との比をプロットした図を図 2.7.4-13 に示す。

トレンチ試料とストリッピング試料では多くの元素で相関がみられないが、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  には正の相関、 $\text{MgO}$  では負の相関がみられる。

アルカリ溶液との相互作用がみられないストリッピング試料では  $\text{CaO}$ 、 $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{K}_2\text{O}$  はほとんど含有しておらず、風化過程で溶脱されたと考えられる。一方、トレンチ 8 はアルカリとの相互作用が見られないが、ストリッピング試料とは異なりこれらの成分も存在しており、風化による溶脱はそれほど顕著ではないとみられる。

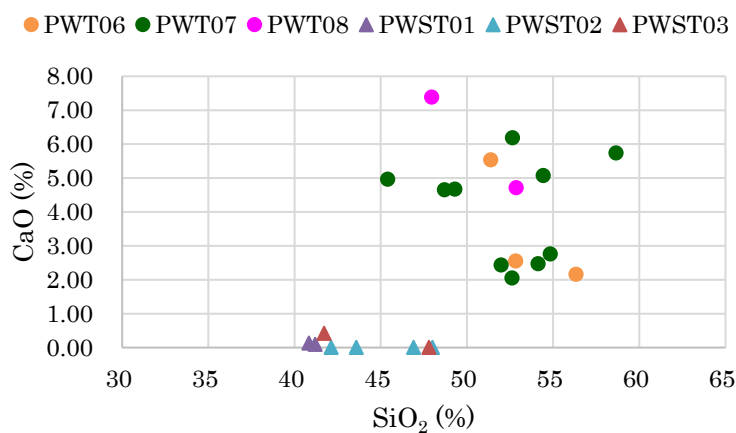


図 2.7.4-3 各試料の XRF 測定結果による成分相互の相関 ( $\text{SiO}_2$ - $\text{CaO}$ )

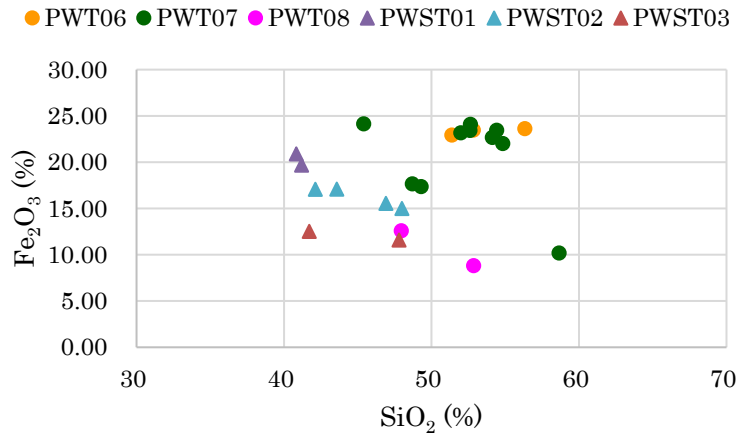


図 2.7.4-4 各試料の XRF 測定結果による成分相互の相関 (SiO<sub>2</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)

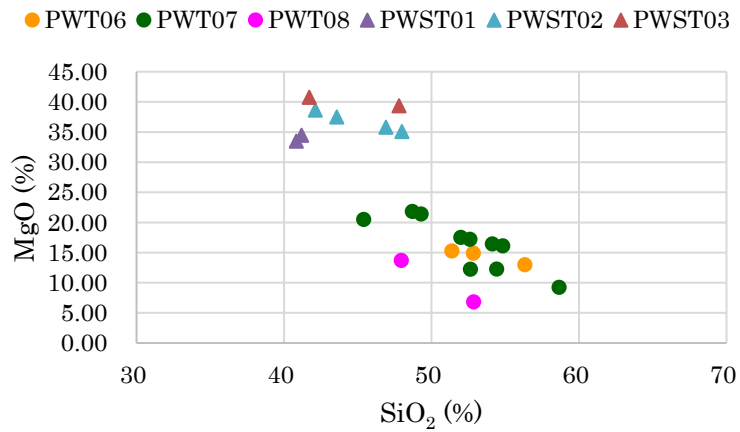


図 2.7.4-5 各試料の XRF 測定結果による成分相互の相関 (SiO<sub>2</sub>-MgO)

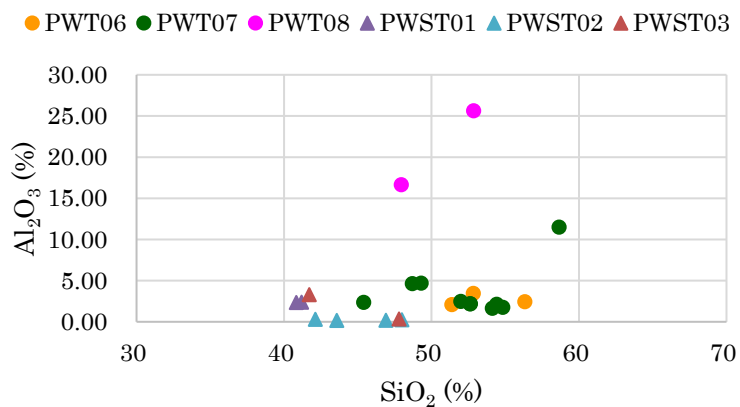


図 2.7.4-6 各試料の XRF 測定結果による成分相互の相関 (SiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)



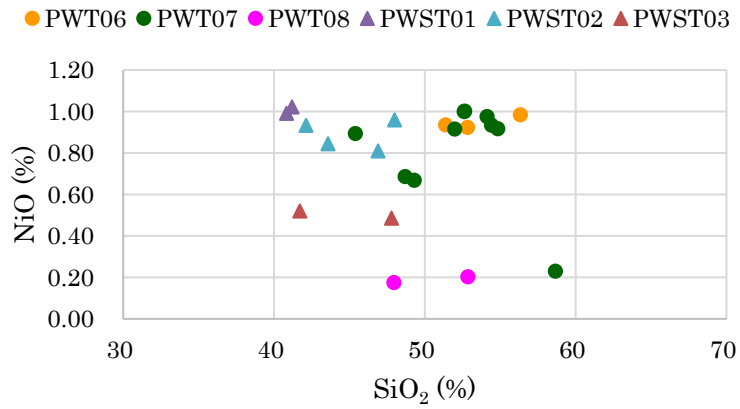


図 2.7.4-7 各試料の XRF 測定結果による成分相互の相関 (SiO<sub>2</sub>-NiO)

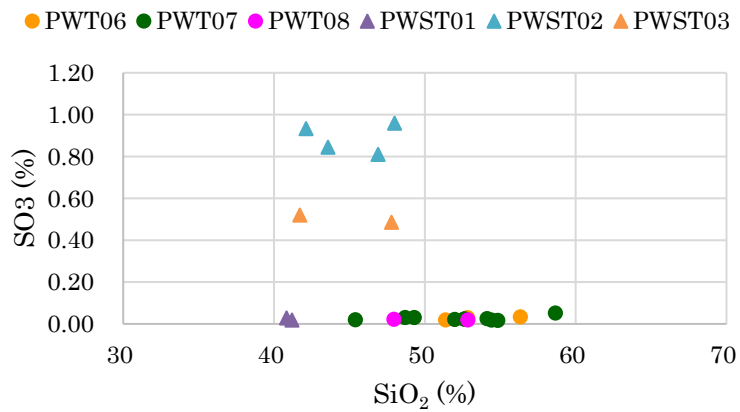


図 2.7.4-8 各試料の XRF 測定結果による成分相互の相関 (SiO<sub>2</sub>-SO<sub>3</sub>)

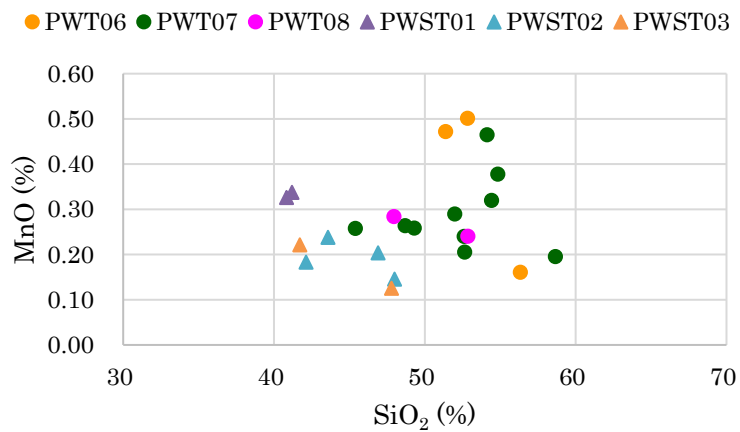


図 2.7.4-9 各試料の XRF 測定結果による成分相互の相関 (SiO<sub>2</sub>-MnO)

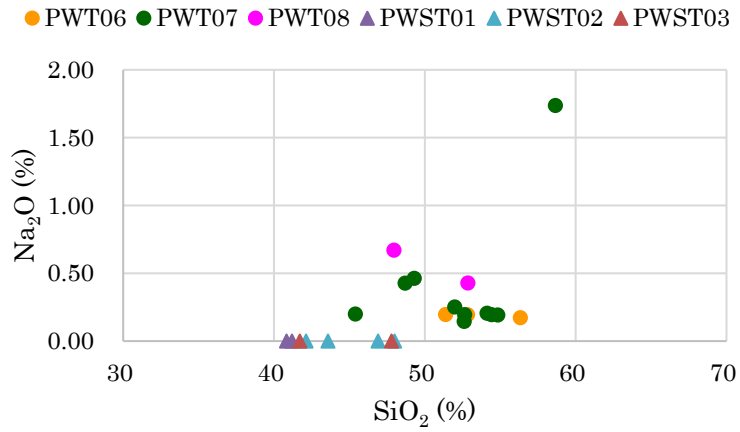


図 2.7.4-10 各試料の XRF 測定結果による成分相互の相関 (SiO<sub>2</sub>-Na<sub>2</sub>O)

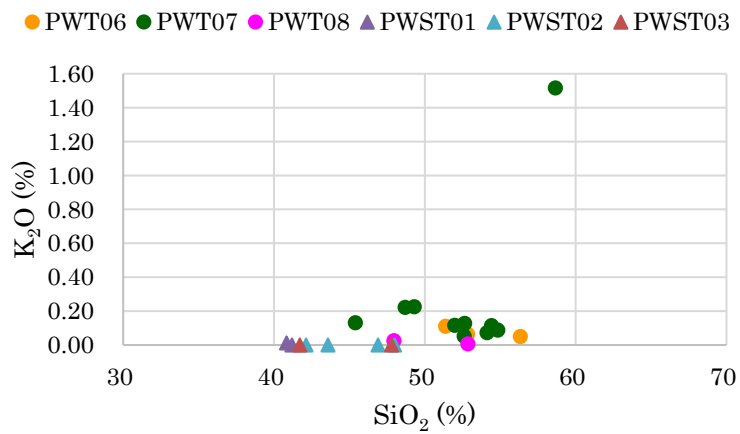


図 2.7.4-11 各試料の XRF 測定結果による成分相互の相関 (SiO<sub>2</sub>-K<sub>2</sub>O)

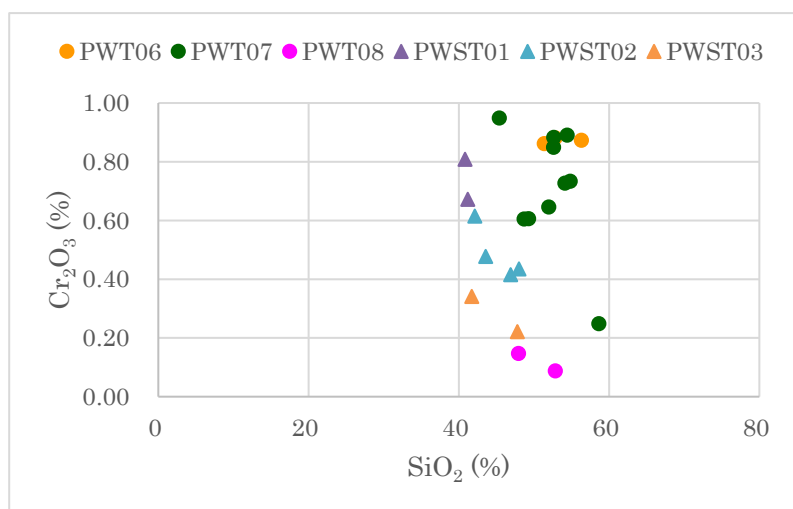


図 2.7.4-12 各試料の XRF 測定結果による成分相互の相関 (SiO<sub>2</sub>-Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)

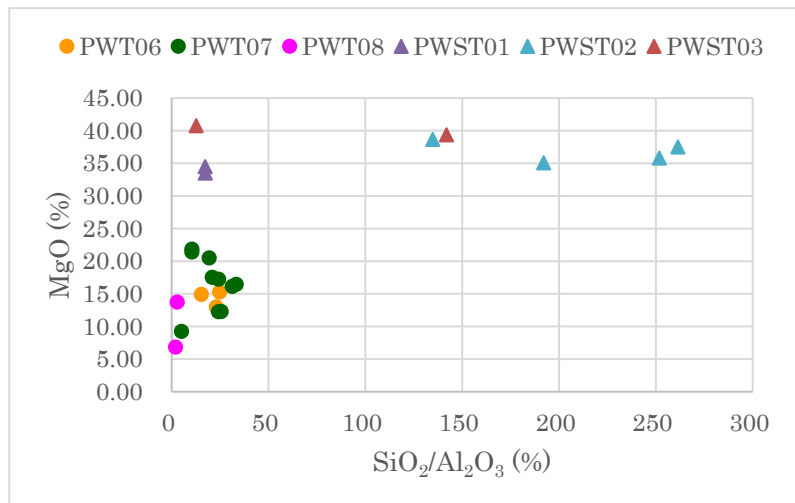
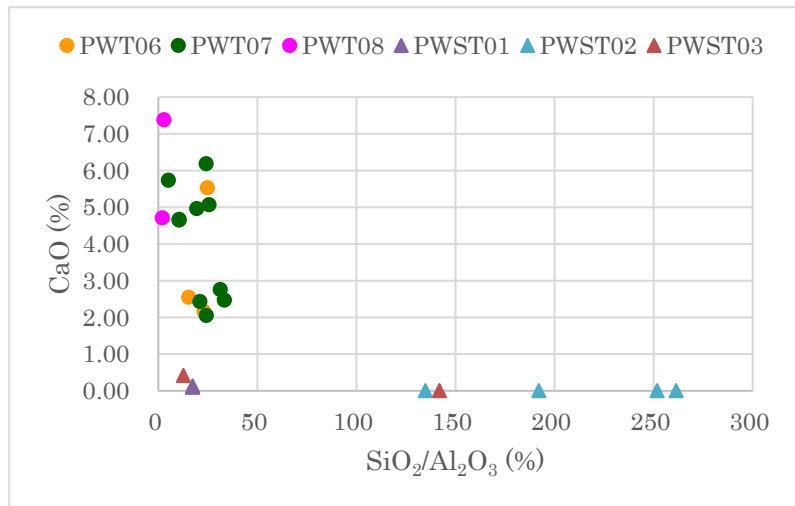
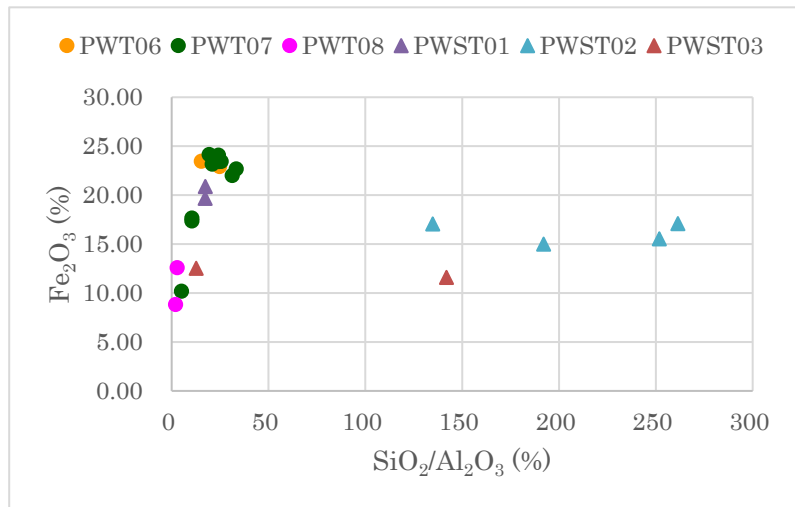


図 2.7.4-13 各試料の XRF 測定結果による成分相互の相関(SiO<sub>2</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>—MgO, CaO, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)

Narra3-2 地点でのトレンチ 6~8 の 3 サイトの試料及びストリップング 1~3 の 3 サイトの試料について、その岩石化学的特性を以下にまとめる。

#### 1) トレンチ 6

超苦鉄質岩類起源の碎屑性堆積物のバルク組成は、原岩のバルク組成に規制され、ケイ酸成分( $\text{SiO}_2$ )に乏しく、その含有量は 51.4–56.3 wt.% で、ケイ酸成分に不飽和な超塩基性岩類の特徴を示す。特に、原岩がハルツバージャイト起源である碎屑性堆積物の岩石化学的特性は、特徴的に CaO の含有量が少ない。これは主要な苦鉄質鉱物である斜方輝石が、Ca に乏しいためである。

碎屑性堆積物を構成する超苦鉄質岩類の細粒岩石片や鉱物粒については、前者は蛇紋岩化作用を受けた蛇紋岩（蛇紋石・滑石、カンラン石・輝石類）そして、初生鉱物としてのクロム鉄鉱・磁鉄鉱など）や、苦鉄質鉱物（カンラン石・斜方輝石と極少量の単斜輝石など）で構成されているために、著しく MgO(12.9–15.2wt%)や  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ (22.9–23.6wt%)の含有量が多く、加えて NiO(0.92–0.98wt%)と  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ (0.86–0.88wt%)の含有量も多い。

一方、粘土鉱物の生成・進化（鉱物学的変遷）環境に好ましい地球化学的な場としてのバルク組成（ $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , CaO, MgO,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  など）に着目すると、取り分けアルミナ成分( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) (2.07–3.44 wt.%)と CaO(2.16–5.53wt%)の含有量は少ない傾向にある。

また、碎屑性堆積物・下部層上位の砂質部(PWT06-17-Rh-003)は下位の泥質部(PWT06-17-Rh-001~002)に比べるとやや  $\text{SiO}_2$  がやや高く MgO が低いが見られるが総じてバルク組成に大きな差は見られない。

$\text{SiO}_2$  との相関関係（組成変化）については、全体的に殆ど組成変化を伴う相関関係がなく、ほぼ一定である。

#### 2) トレンチ 7

トレンチ 7 で特徴的なのは、底部に水平かつ連続的に堆積している白色細粒砂質堆積物(PWT07-17-Rh-C03)の存在である。この白色堆積物は、超苦鉄質岩類起源の黒色の碎屑性堆積物に比べて、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ (10.2wt%)の含有量が極めて多く、 $\text{SiO}_2$  (58.7wt%)の含有量も多い、一方で、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (10.2wt%)と MgO(9.21wt%)の含有量は少ない。また、CaO(5.73wt%)は差がないのに対し、 $\text{Na}_2\text{O}$  (1.74wt%)と  $\text{K}_2\text{O}$  (1.52wt%)の含有量も多い。

超苦鉄質岩類起源の碎屑性堆積物のバルク組成はトレンチ 6 と基本的には大きな差異はない。ただし、PWT07-17-Rh-002 と PWT07-17-Rh-003 は、白色細粒砂質堆積物層とそれぞれ下位、上位で接しており、他の超苦鉄質岩類起源の碎屑性堆積物に比べると、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ (4.62–4.69wt%)、 $\text{Na}_2\text{O}$ (0.43–0.46wt%)、 $\text{K}_2\text{O}$ (0.22wt%)が高く、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ (17.3–17.6wt%)が低いことから、この白色細粒砂質堆積物の影響が明らかにみられる。これら白色細粒砂質堆積物層近傍の 2 試料を除くと、超苦鉄質岩類起源の碎屑性堆積物のバルク組成は、 $\text{SiO}_2$ (45.4–58.6wt%)、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ (1.62–2.47wt%)、CaO(2.05–6.19wt%)、MgO(12.2–20.5wt%)、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ (17.3–24.1wt%)、 $\text{Na}_2\text{O}$ (0.14–0.25wt%)、 $\text{K}_2\text{O}$ (0.05–0.13wt%)で示すことができる。

砕屑性堆積物の下位層・上位層の関係では、下位の深度が深くなるほど（より泥質になるほど） $\text{SiO}_2$ 含有率は低くなるのに対して、逆に  $\text{MgO}$  は高くなる傾向がある。その他の成分には大きな変化は見られない。

### 3) トレンチ 8

トレンチ 8 では、トレンチ 6、7 に比べて、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ (16.6–25.6wt%)の含有量が極めて多く、 $\text{Na}_2\text{O}$  (0.43–0.67wt%)の含有量もやや多い、一方で、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (8.81–12.6wt%)と  $\text{MgO}$ (6.82–13.7wt%)の含有量は少なく、 $\text{Cr}_2\text{O}_3$ (0.087–0.147wt%)、 $\text{NiO}$ (0.175–0.202wt%)、 $\text{Co}_2\text{O}_3$  (0.028–0.037wt%)の含有量も少ない。また、 $\text{CaO}$ (5.73wt%)  $\text{SiO}_2$  (58.7wt%)は差がないのに対し、 $\text{Na}_2\text{O}$  (1.74wt%)と  $\text{K}_2\text{O}$  (1.52wt%)の含有量も多い。XRD から班れい岩由来の堆積物であることが示されており、これらの化学組成も班れい岩由来であることと整合する。

このトレンチにはアルカリ地下水が浸出しておらず、過去に浸出していた明確な痕跡も確認できないが、 $\text{CaO}$ (4.71–7.38wt%)の含有量は同様にアルカリとの相互作用のないストリップング試料と異なり、アルカリ地下水が供給されているトレンチ 6、7 とほぼ変わらない。

### 4) 風化過程で形成されたストリップングサイトの砕屑性堆積物

風化環境下でスメクタイト形成やその鉱物組成変化を考察する上で、トレンチ同様に、風化状態を考慮し、出発物質となる原岩組成に着目し、XRF による主要なバルク組成を分析し、それらの岩石化学的特性を検討する。これらのバルク組成は、初生スメクタイトの形成環境を規制する地球化学的挙動を考察する上での基本データとなる。

$\text{SiO}_2$  との負の相関関係が確認できるのは、 $\text{SiO}_2$ – $\text{Fe}_2\text{O}_3$ (22→10wt%)、 $\text{SiO}_2$ – $\text{NiO}$ (1.2→0.45wt%)、 $\text{SiO}_2$ – $\text{Cr}_2\text{O}_3$ (0.8→0.2wt%)、 $\text{SiO}_2$ – $\text{MnO}$ (0.35→0.11wt%)、 $\text{SiO}_2$ – $\text{Co}_2\text{O}_3$ (0.07→0.05wt%)の組成変化である。一方、低濃度で殆ど組成変化のない  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{Na}_2\text{O}$ 、 $\text{K}_2\text{O}$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{SO}_3$ の組成と、高濃度で組成変化が乏しい  $\text{MgO}$  がある。これらのバルク成分で  $\text{SiO}_2$  成分と顕著な組成変化を示すのは、負の相関関係のある  $\text{Fe}$ 、 $\text{Cr}$ 、 $\text{Ni}$ 、 $\text{Mn}$ 、 $\text{Co}$  に限定される。これらの成分は、超塩基性岩に普遍的に含有される苦鉄質鉱物（主に斜方輝石・単斜輝石、カンラン石など）の風化や降雨水による低温での弱い化学的風化を受けて溶出した影響が考えられる。

また、図 2.7.4-13 に示すように、スメクタイトの形成環境にとって好ましい地球化学的環境である  $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{MgO}$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  の組成関係性を、 $\text{MgO}$ – $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaO}$ – $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ – $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$  相関図で検討した。これらの相関図から、ある組成関係性がみられるのは、 $\text{MgO}$  と  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  との関係性である。このことからスメクタイトの生成環境とその後の組成変化に関しては、 $\text{Mg}$  と  $\text{Fe}$  の地球化学的挙動が関わっていることが示唆される。

トレンチの組成変化と比べると、その組成変化（濃度）のばらつきが小さいことが特徴としている。

次に、ストリップングごとに岩石化学的特性を検討する。ここでは風化程度とスメクタイ



ト形成環境の地球化学的挙動に係わる組成変化を考察する上で、特に、 $\text{SiO}_2$  との負の組成変化を示すバルク成分のみに注視し、検討する。

a. ストリッピング 1

ストリッピング 3 サイトの中で、 $\text{SiO}_2$  濃度 (約 40wt%) 変化がほぼ一定で、負の相関を示すバルク成分(Fe, Ni, Mn, Co)が一番高い濃度を示す。

b. ストリッピング 2

$\text{SiO}_2$  濃度(40~50wt%)で、ストリッピング 1 と同様に負の相関関係を示すバルク成分のみ検討すると、二番目に高い濃度を示す。

c. ストリッピング 3

$\text{SiO}_2$  濃度(40~50wt%)で、上記ストリッピング 2 / 3 同様に負の相関関係を示すバルク成分のみ検討すると、一番低い濃度を示す。

これらの濃度差とストリッピングの露頭観察から、風化程度との強弱関係は、ストリッピング 1 から 3 へ行くほど強くなることが言える。

5) 粘土鉱物生成環境に係る岩石化学的特性

これらのすべての XRF 分析の結果に基づき、風化・侵食・運搬・堆積・岩石化（固結化に伴う初期の続成作用も含む）の生成・熟成プロセスもと、粘土鉱物・変質鉱物（二次鉱物も含む）の生成環境を原岩バルク組成の岩石化学的特性に着目して検討する。

大部分の試料は、パラワンオフィオライト超苦鉄質複合岩体を構成する苦鉄質岩石のハルツバージャイト（主成分鉱物は斜方輝石、かんらん石で、少量の単斜輝石および、少量のクロム鉄鉱と磁鉄鉱など）起源の碎屑性堆積物のために原岩のバルク組成を反映し、 $\text{MgO}$  に富み、 $\text{CaO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  に著しく乏しく、 $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$  にも乏しい。さらに、シリカ成分( $\text{SiO}_2$ )に乏しい不飽和な超塩基性岩としての特性がある。また、オフィオライトの特性として  $\text{NiO}$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ （一部、白金族も随伴）に富む。

この一例として、Narra 地区・調査サイトの南西部に広く分布している蛇紋岩質ハルツバージャイトの著しいラテライト化に伴い Ni-成分が溶脱・富化 (Ni-<Cr> 酸化物・硫化物などの鉱石) し、その結果 Ni-鉱床 (CITI 鉱山) を形成している。勿論、この鉱床は現在稼業中である。

一般的には、粘土鉱物の生成・熟成に好ましいバルク組成としては、 $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{Na}_2\text{O}$ ,  $\text{K}_2\text{O}$ ,  $\text{FeO}$  と水が必要である。 $\text{SiO}_2$  の組成範囲は、トレンチ試料では 31.8-57.0 wt.%, 試錐コアでは 32-59.8 wt.%で両者間にはその差異が認められないが、苦鉄質岩石起源にも拘わらず一部(トレンチ 5 で 3 試料、試錐孔(DH01)で 2 試料、(DH02)で 3 試料、(DH03)で 2 試料) シリカ成分の高いものがあり、試錐コアの方が顕著である。

最初に、主要なバルク組成の中で、 $\text{SiO}_2$  と弱い負の相関がみられるのが  $\text{MgO}$  と、幅広い

相関がみられるのが  $\text{CaO}$  であるが、二つの相関傾向がみられる。それは緩慢な相関と急勾配のものである。但し、強い負の相関がみられるのは  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  である。

また、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  との相関は明らかに 2 つのグループに分かれている。一つのグループ（トレンチ 5 及びトレンチ 7）は、ある一定の含有量（ $\sim 8 \text{ wt.}\%$ ）を保っている。二つめのグループの  $4 \text{ wt.}\%$  以下で、緩慢な負の相関がみられる。

一方、副成分である  $\text{NiO}$ ,  $\text{Co}_2\text{O}_3$  とはかなり強い負の相関があり、 $\text{Cr}_2\text{O}_3$  にも負の相関がみられる。

ここでは、粘土鉱物や変質鉱物、特にアルミノケイ酸塩鉱物のスメクタイト族粘土鉱物の生成環境に好都合な地球化学的な場として不可欠である  $\text{CaO}$ ,  $\text{MgO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$  のマスバランス（バルク組成）の中で、取り分け  $\text{Al}_2\text{O}_3$  の地球化学的挙動が重要である。この意味で、トレンチ 5 の鉱物学的変遷プロセスと合わせて考察することが必要である。

## 2.7.5 光学顕微鏡観察

### (1) 試料調整

偏光顕微鏡では透過光により試料を観察する必要があるため、偏光顕微鏡観察用試料は、可視光が透過する厚さ 15~20 $\mu\text{m}$  程度の薄片に調製した。薄片観察を行った試料の番号と薄片の作成方法を表 2.7.5-1 に示す。

表 2.7.5-1 薄片観察試料と薄片作成方法

試料番号	薄片用のチップを作成した試料の状態
PWT07-17-Rh-001	自然乾燥後、砂礫 $\phi$ 2mm アンダーの粒子で薄片作製。
PWT07-17-Rh-003	自然乾燥後、砂礫 $\phi$ 2mm アンダーの粒子で薄片作製。
PWT07-17-Rh-007	自然乾燥後、砂礫 $\phi$ 2mm アンダーの粒子で薄片作製。
PWT07-17-Rh-C03	試料を縦断方向に切断し、内部面から薄片を作製した。
PWT08-17-Rh-001	自然乾燥後、砂礫 $\phi$ 2mm アンダーの粒子で薄片作製。
PWST02-17-Rh-003	自然乾燥後、砂礫 $\phi$ 2mm アンダーの粒子で薄片作製。

### (2) 凡例

〔岩片・植物片〕

GB:班れい岩 SP:蛇紋岩 TC:タルク集合体 PM:軽石 TR:トレモラ閃石岩 QR:石英集合体 CB:炭酸塩 PLT:植物遺体

〔初生鉱物・鉱物片〕

Ol:かんらん石 Cpx:単斜輝石 Opx:斜方輝石 Px:(詳細不明)輝石 Hb:普通角閃石 Zr:ジルコン Mf:(詳細不明)苦鉄質鉱物 Pl:斜長石 Qz:石英 Cr:クロムスピネル Gl:火山ガラス

Op:不透明鉱物

〔二次鉱物〕

Sm:スメクタイト様粘土鉱物 (一般) Ant:アンチゴライト Chr:クリソタイル

Liz:リザルダイト

Wsp:蛇紋石等 (ブルーサイトを含む) の風化鉱物 (パイロオーライトやコーリンガイト)

Mt:磁鉄鉱 Tr:トレモラ閃石 Chl:緑泥石 Tc:タルク Cb:炭酸塩鉱物 Ahi:非晶質水酸化鉄

〔基質の自生鉱物〕

MXyl:淡褐色～褐色で干渉色黄色の鉱物（スメクタイトなどの可能性）  
MXhi:葉片状で干渉色が高い鉱物（タルクやコーリンガイトなどの可能性）  
MXgy:灰～帯褐灰色の微細鉱物で、干渉色灰色（沸石などの可能性）  
MXah:赤褐色の非晶質水酸化鉄

〔基質形成後に生成した脈鉱物〕

〔Yl〕:黄褐色で、干渉色黄色の粘土鉱物(スメクタイトなどの可能性)

〔Zeo〕:沸石

〔Lps〕:低温沈澱性蛇紋石類(クリソタイル～ジュエライト)

〔Br〕:ブルーサイト

〔Ahi〕:非晶質水酸化鉄

〔その他の記号〕

( ) :仮像    MX:基質    POR:孔隙    [ ] :脈・プール    Amo:非晶質物質

### (3) 偏光顕微鏡写真および観察

今年度掘削したアルカリ環境下のトレンチ（トレンチ 7）内から採取した碎屑性堆積物の 4 試料、アルカリとの相互作用のないトレンチ（トレンチ 8）内から採取した碎屑性堆積物の 1 試料とアルカリとの相互作用のないストリップング 2 から採取した風化を受けた碎屑性堆積物（風化堆積物）の 1 試料を対象にそれぞれの岩石鉱物学的調査を実施した。トレンチ 7 では、底部（下部層）の黒色の粘土質部から PWT07-17-Rh-001、上部層の黒色の砂質部から PWT07-17-Rh-007、XRD、XRF から斜長石を多く含み Al-rich である淡灰色からクリーム色の細粒砂質堆積物から PWT07-17-Rh-C03、そのすぐ上位の黒色の粘土質部から PWT07-17-Rh-003 を採取した。これら総計の 6 試料は、岩石鉱物学的特徴を考察するために薄片を作製して、偏光顕微鏡観察を行った。

各試料の岩石鉱物学的特徴について以下の 1)～6)に記載し、それらのまとめを表 2.7.5-2 に示す。但し、粘土質の碎屑性堆積物については、試料の形状上、直径 2mm 以下の残渣（岩石片や鉱物粒）での薄片作製となり、粘土質部（マトリックス部）での変質鉱物の同定・組成・組織・共生関係などに関する詳細なデータの取得には限界がある。



表 2.7.5-2 偏光顕微鏡観察による岩石鉱物学的特徴

岩質		アルカリ地下水環境下の砕屑性堆積物				物理的風化環境下の砕屑性堆積物		
試料番号	PWT07-17-Rh-001	PWT07-17-Rh-003	PWT07-17-Rh-C03	PWT05-16-Rh-001	PWT08-17-Rh-001	PWT02-17-Rh-003		
岩石名 (原岩)	(ハルツバージャイト質)	(ハルツバージャイト質)	(ハルツバージャイト質・含火山砕屑性堆積物)	(ハルツバージャイト質)	(はんれい岩質)	(ハルツバージャイト質)		
産状 (露頭観察) ・サンプル採取位置 (基盤岩からの距離)	・蛇紋石の円磨粒子 (径2.5mm以下) ・トレンチ7の底部	・蛇紋石の細粒 ・トレンチ7の底部 (Rh-001の直上)	・蛇紋石の細粒・粗粒 (含火山砕屑性堆積物<含バミス・火山ガラス >: 鍵層) ・トレンチ7の底部 (鍵層)	・蛇紋岩質の細粒 ・トレンチ5の上位	・はんれい岩質 (等粒状) ・トレンチ8の下位	・蛇紋石化したハルツバージャイトの表層部 ・ストリップング-2の中位置		
主成分鉱物	カンラン岩 (O1)	仮像 (Liz, Ch1, 一部Brに交代)		SPに完全交代 (短柱状)		ごく少量 (基質)		
	輝石類	単斜輝石 (CPX)	一部残存 (亜角)	SPとシンプレクタイト形成, Tcの交代		角 (径0.5mm以下)		
		斜方輝石 (OPX)	亜角・一部残存 (Liz・Ch1交代, Br脈)	SPに部分交代 (Liz・Ch1)	SPに完全交代	Crとシンプレクタイト組織, 角~亜角 (径0.7mm以下), TC脈を伴う	角~亜角 (径1.0mm以下)	
	角閃石類	アクチノ角閃石 (AC)						
		透角閃石 (TR)				亜角 (径0.6mm, 長柱状の集合)		
	長石類	斜長石 (PL)		角~亜角 (径0.15mm) 微量	角~亜角 (径0.1mm), 新鮮	亜角 (径0.3mm以下)	アルバイト双晶 (角~亜角, 径1.1mm以下)	
		カリ長石 (K-F)						
	ガーネット (GA)							
	石英 (Q)		角~亜角 (径0.15mm以下) 微量			角 (径0.5mm以下) 集合, 内部にHb含存		
	不透明鉱物	クロム鉄鉱 (CR)	他形~自形			角 (周囲からMt化)	角~亜角 (径0.4mm以下), 周囲がMt化	
磁鉄鉱 (MT)								
非晶質水酸化鉄 (Amo)				孔隙 (溶脱) の周囲に沈殿				
変質鉱物 (二次鉱物)	※※蛇紋石類	リザルタイト (Liz)	メッシュ組織 (綾織組織)	メッシュ組織	メッシュ組織	度々Ch1化	メッシュ組織 (Brの生成, Antの生成) 角~亜角, 綾織組織 (Chr)	
		クリソタイト (Chr)						
		アンチゴライト (Ant)	一部綾織組織	微量	OpX・O1・CRを交代		一部生成	綾織組織
		パイロオーライ   (Pya)						
		コーリンガイト (Coa)						
	滑石 (Tc)	亜角 (径0.1mm以下)	高温時生成, 亜角 (長径0.2mm以下) の集合体		角 (径0.2mm以下)			
	水滑石 (Br)						Lizの交代 (細脈)	
化学沈殿物	CSH	トバモライト (TM)						
		ジャロライト (GY)						
(基質・セメント・粒間孔隙)	粘土鉱物	スメクタイト※ (Sm)	葉片状	葉片状	割れ目中に微細な集合体 (脈状)	基質に微細	基質 (微細)	
		クロライト (Ch1)	O1, Liz, Chr, (Br)を交代			Liz・Chrの交代		
	風化蛇紋石類	パイロオーライ   (Pya)	SPの交代					
		コーリンガイト (Coa)	Liz・Ch1・Brの交代					
	水滑石 (Br)							
	沸石	微粒子	微粒子		微粒子 (幅0.1mm以下の脈: 斜ブチロ沸石の可能性)	微粒子	微細粒子	
炭酸塩鉱物 (Ca)				角 (径0.7mm以下)				
緑泥石 (Ch1)								
特記事項	・褐色の砂質堆積物 ・基質に風化の進んだ蛇紋石の円磨粒子の散在	・灰色~褐色の蛇紋石質細粒堆積物 ・Hb (亜角~亜円: 径2mm以下) ・低結晶質の蛇紋石類 (Chr~ジェライトの沈殿)	・基質が灰白色でバミス・透明な火山ガラスの含有 ・Hb (角~亜角, 短柱状) の微細結晶片	・細粒の蛇紋岩	・細粒で, はんれい岩質堆積物 (火成岩片) で泥質基質が非常に少ない ・OpX (Hy: 紫蘇輝石の可能性)	・粗粒・蛇紋岩質細粒堆積物 (岩層) ・基質の一部ガラス質		

凡例

○ 鉱物の変質・風化特性  
 [ ] 変質鉱物  
 < > 先駆鉱物 (初生鉱物)  
 《 》 風化鉱物

○ 鉱物 (Sm) の生成プロセス  
 ※Sm (三八面体Saponite)  
 (i) パラワンオフィオライト起源  
 (OPX), (OPX→Ch1), (OPX→Sp)  
 (ii) デイサイト質 斜長石の斑晶起源 (PL)

○ 鉱物組織  
 ※※ (i) Liz-Chr 蛇紋石 (メッシュ組織)  
 (ii) Ant 蛇紋石 (プレイデット・マット組織: ★綾織組織)

○ 鉱物名  
 Ch1 緑泥石  
 Cb 炭酸塩鉱物  
 EN 頑火輝石  
 Q 石英  
 Hb 普通角閃石  
 Amo 非晶質水酸化鉄



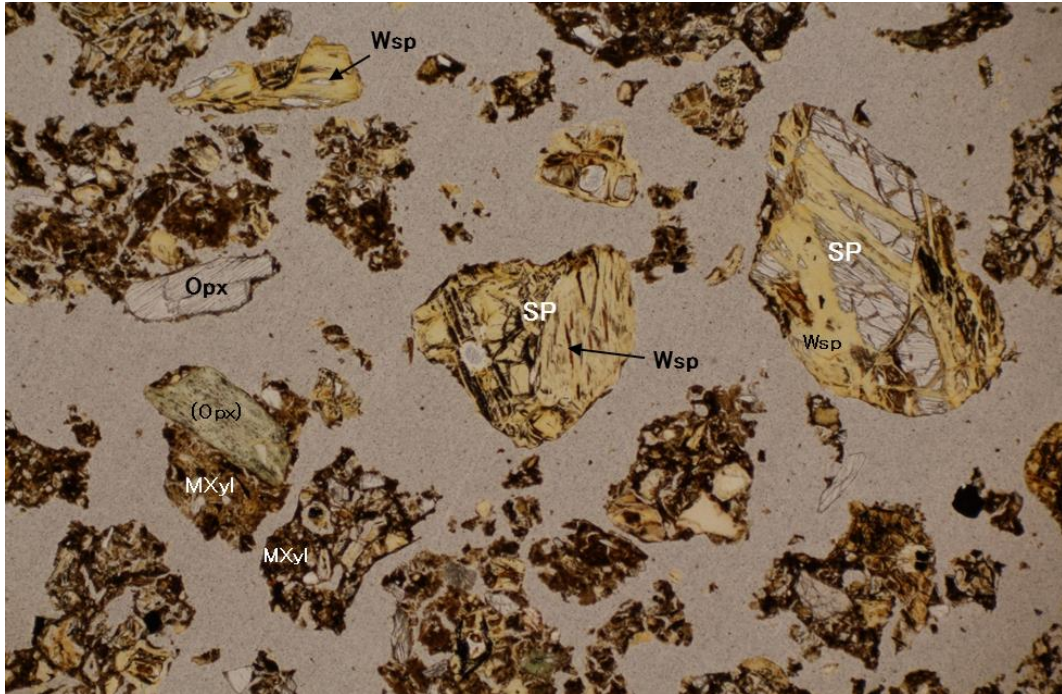


1) PWT07-17-Rh-001 の偏光顕微鏡観察の結果

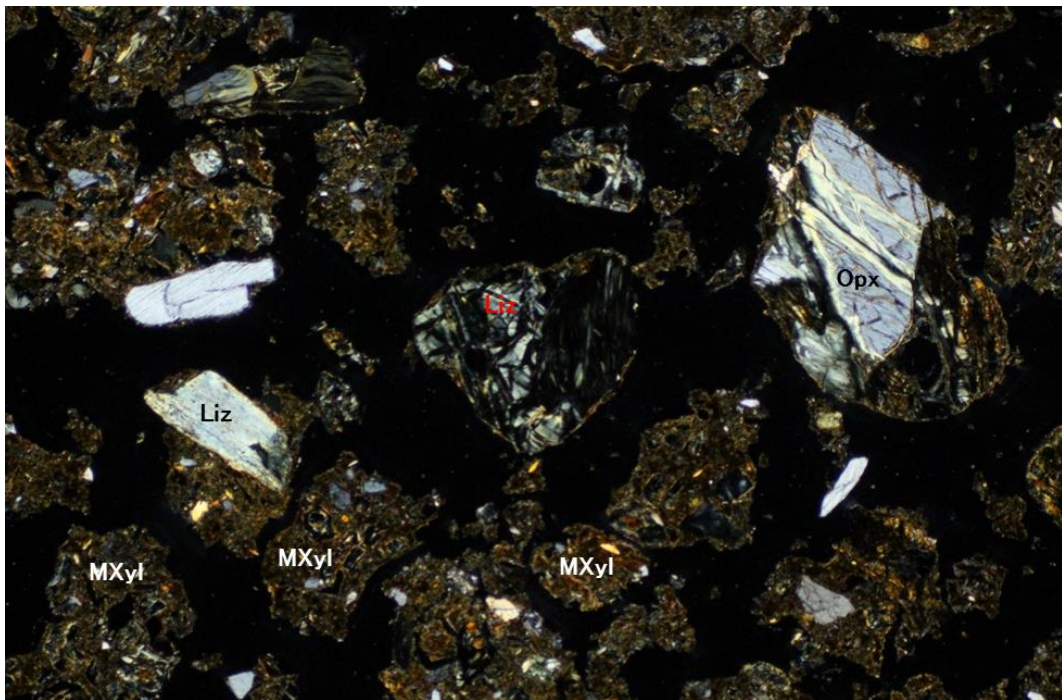
同定した鉱物とその産状を顕微鏡写真とともに図 2.7.5-1～図 2.7.5-3 に示す。

[碎屑性堆積物・下部層(泥質部)]

オープンニコル



クロスニコル




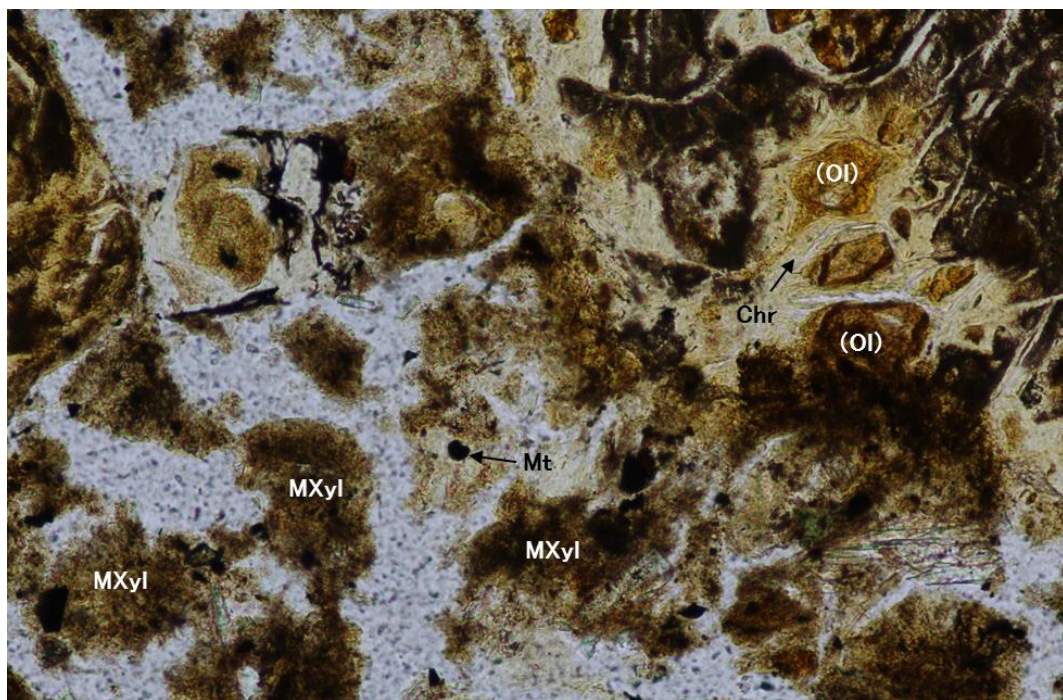
スケール 1.0 mm 

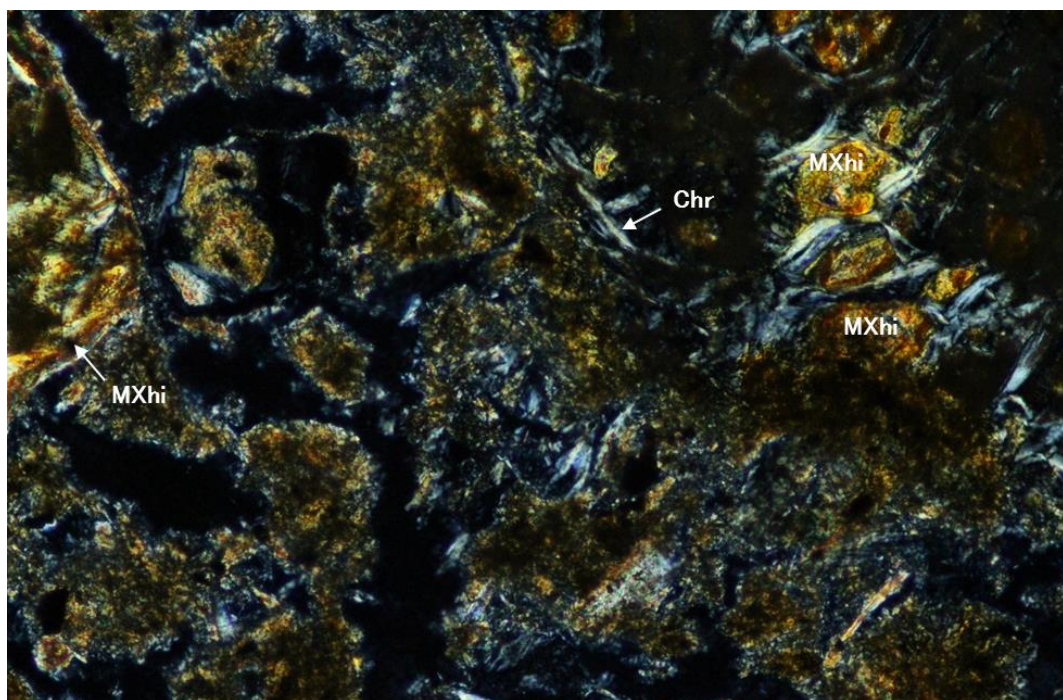
図 2.7.5-1 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-001, その1)



オープンニコル



クロスニコル




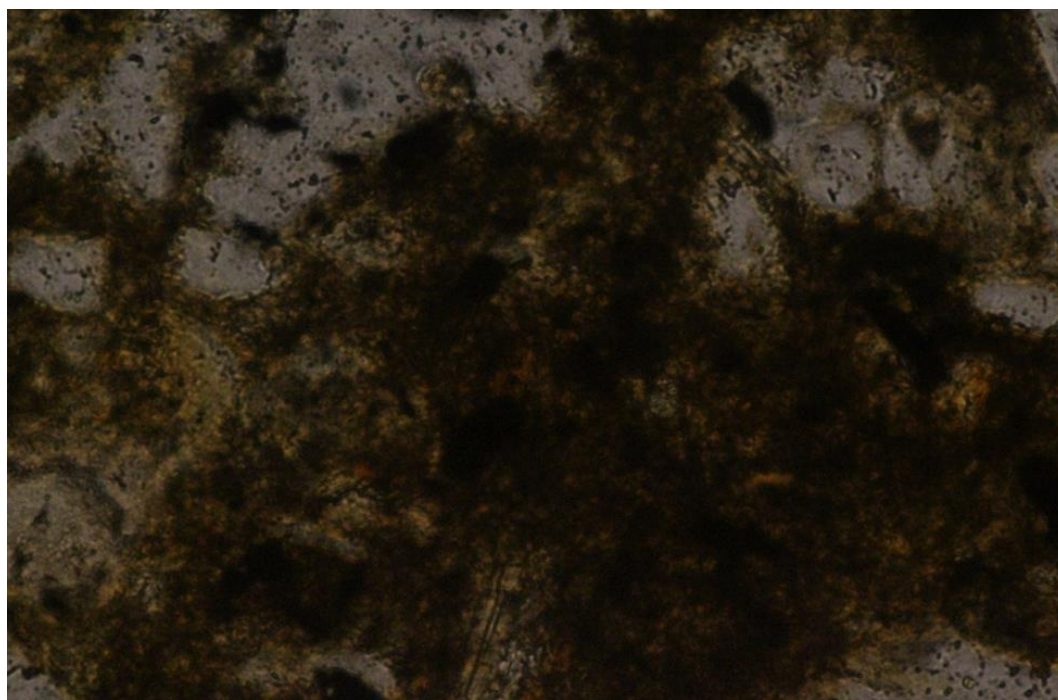
スケール 0.1 mm 

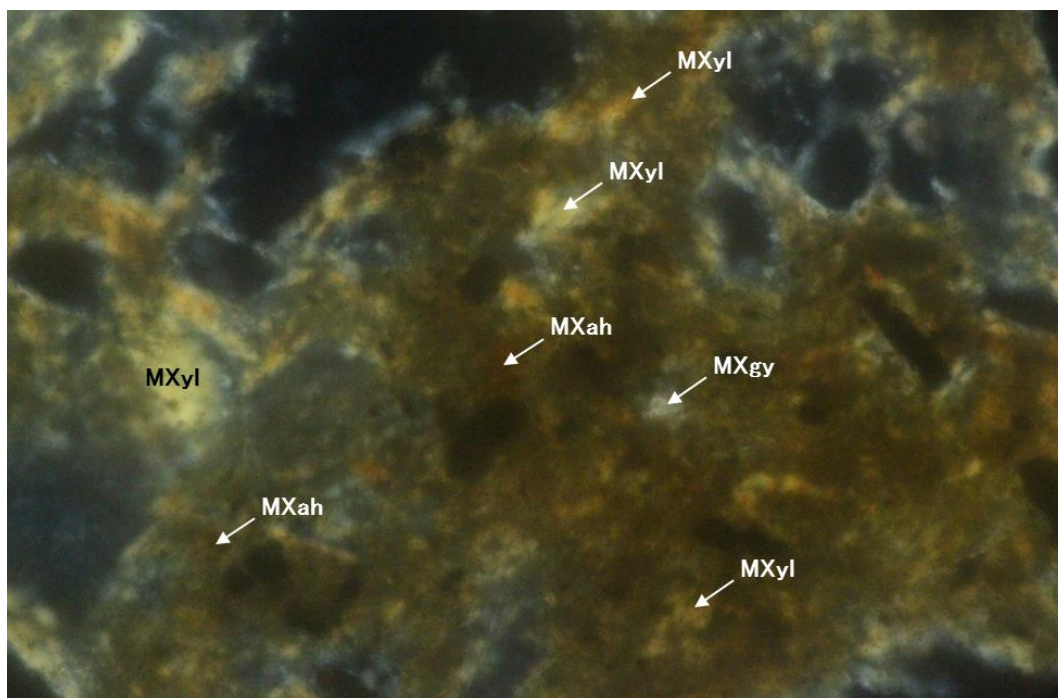
図 2.7.5-2 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-001, その2)



オープンニコル



クロスニコル



スケール 0.1 mm 

図 2.7.5-3 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-001, その3)

d. 肉眼的特徴

褐灰色を呈する砂混り土壌。

e. 岩石組織

基質が褐色の風化土壌からなり、この中に風化の進んだ、径 2.5mm 以下の蛇紋岩の円磨粒子が散在する。

f. 岩片・鉱物片

SP>>Chr·Opx>Cr>Tc>Cpx

- ・ SP は歪角主体。まれに円～歪円。径 2.5mm 以下。主として、リザルダイトークリソタイルからなるメッシュ組織を示す。一部綾織組織 (bladed-mat texture) を示すアンチゴライト蛇紋岩を含む。原岩はハルツバージャイトであるが、Ol は完全に変質。Liz、Chr、一部(Br)、Chl に交代。Opx は、一部残存。微量の Cpx (変質をまぬがれる) や Cr を含む。ときにメッシュのセンターを占める Liz が非晶質化し、格子部の Chr が変質をまぬがれる。メッシュセンターが赤褐色の Wsp に交代されており、Ol を交代した Br をさらに交代した可能性があるものもある。
- ・ Chr は繊維状蛇紋の集合体。伸長正の γ 蛇紋岩。
- ・ Opx はしばしば Liz に交代。また、Chl に交代されるものあり。まれにフラクチャーに沿って [Br] 脈が生成することあり。
- ・ Cr は暗赤褐色で、高 Cr/Al 比のスピネル。初生的には他形～自形だったらしい。周囲から Mt 化。
- ・ Tc は板状。長径 0.3mm 以下。微量。
- ・ Cpx は淡緑色、歪角。径 0.1mm 以下。

g. 基質

[基質]

MXyl>MXgy>MXah

- ・ MXyl は淡褐色～褐色、微細。クロスニコルでコンデンサーを入れると微細な葉片状。干渉色黄、Sm である可能性が高い。
- ・ MXgy は MXyl 集合体の間に不均質に生成。
- ・ MXah は赤褐色、微細。鉱染状にまとまって、散在。

h. 二次鉱物

Sm>Chl>Wsp·Zeo?

[Br]

- ・ Sm は基質の MXyl を構成すると考えられる。主として、褐色～黄褐色、まれに赤褐色。
- ・ Chl は蛇紋石や Opx を部分交代。
- ・ Wsp は SP とそれに由来する鉱物 (Liz, Chr, Br) を交代。主として褐色～黄褐色。まれに赤褐色。前者はパイロオーライト、後者はコーリンガイトの可能性はある。
- ・ Zeo は微粒で MXgy を構成する。
- ・ [Br] は Opx 硫のフラクチャーを充填。Mt ダストを伴わないので、蛇紋岩化作用停止後の生成と考えられる。微量。

i. 備考

- ・ XRD からは Sm・Chl・Am・Liz>Lau・Opx。
- ・ 風化作用に対する抵抗力は Chr>Liz の順で Chr の方が強いと考えられる。Liz の分解で Mg>Si>Fe などが溶出するであろう。
- ・ 鏡下で角閃石類は確認できない。

j. 考察

この試料は円磨された蛇紋岩が散在する蛇紋岩質の細粒碎屑性堆積物で、岩片・鉱物片としては、蛇紋岩（主に、リザルダイト・クリソタイルのメッシュ組織、一部綾織組織のアンチゴライトで構成）の岩片と、かんらん石（リザルダイト・クリソタイル、一部ブルーサイトや緑泥石に完全交代）、斜方輝石（しばしばリザルダイトや緑泥石へ交代、割れ目にブルーサイト脈）、少量の単斜輝石とタルク、クロムスピネル（周囲の磁鉄鉱化、高 Cr/Al 比）の鉱物片で構成されるが、角閃石は同定されなかった。このような鉱物組成から原岩はハルツバージャイトである。

一方、基質における風化・変質域の量比は、MXyl（褐色～淡褐色） > MXgy（灰～帯褐灰色） > MXah（赤褐色）の順で、全体として約 50%程度を占める。MXyl には、微細な葉片状な粘土鉱物（スメクタイトの可能性）が観察される。MXgy は、MXyl 集合体の間に不均質に分布し、MXah には非晶質水酸化鉄が鉱染状に散在している。

二次鉱物は、緑泥石と蛇紋石の風化鉱物（パイロオーライトとコーリンガイト）である。

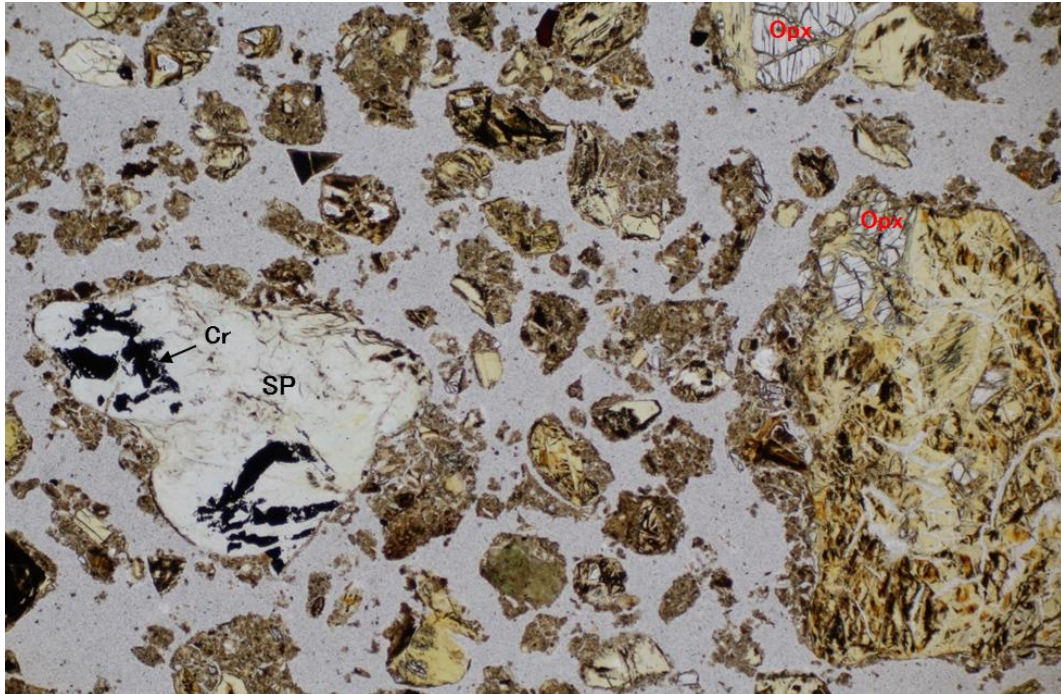


2) PWT07-17-Rh-003 の偏光顕微鏡観察の結果

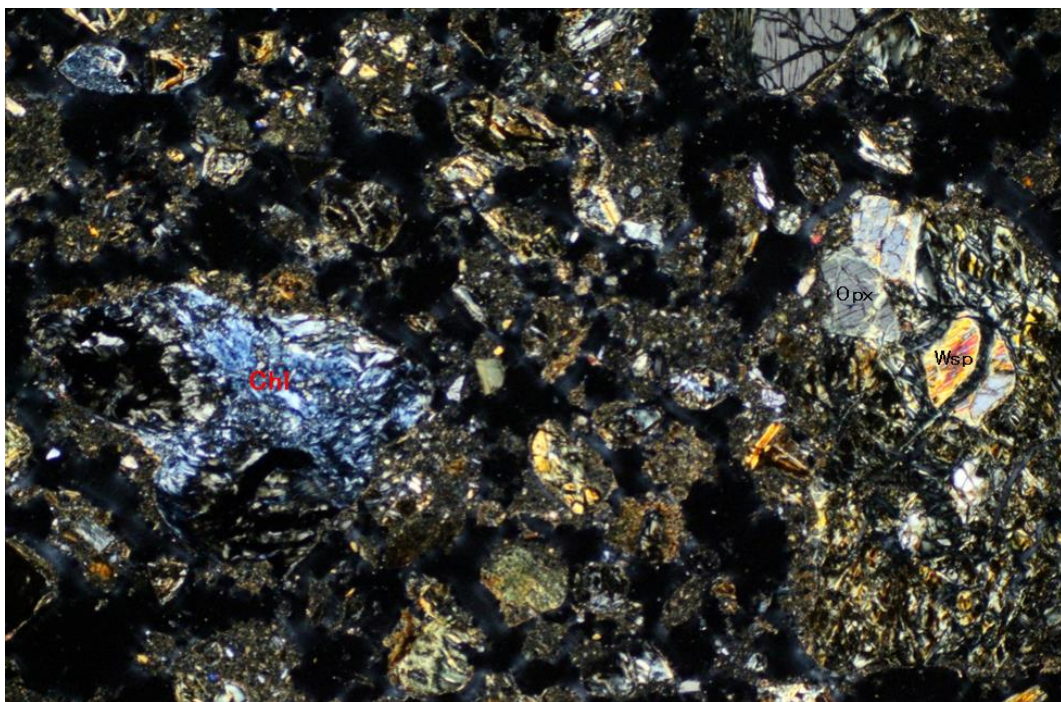
同定した鉱物とその産状を顕微鏡写真とともに図 2.7.5-4～図 2.7.5-8 に示す。

[碎屑性堆積物・白色細粒砂質堆積物上位の下部層(泥質部)]

オープンニコル



クロスニコル




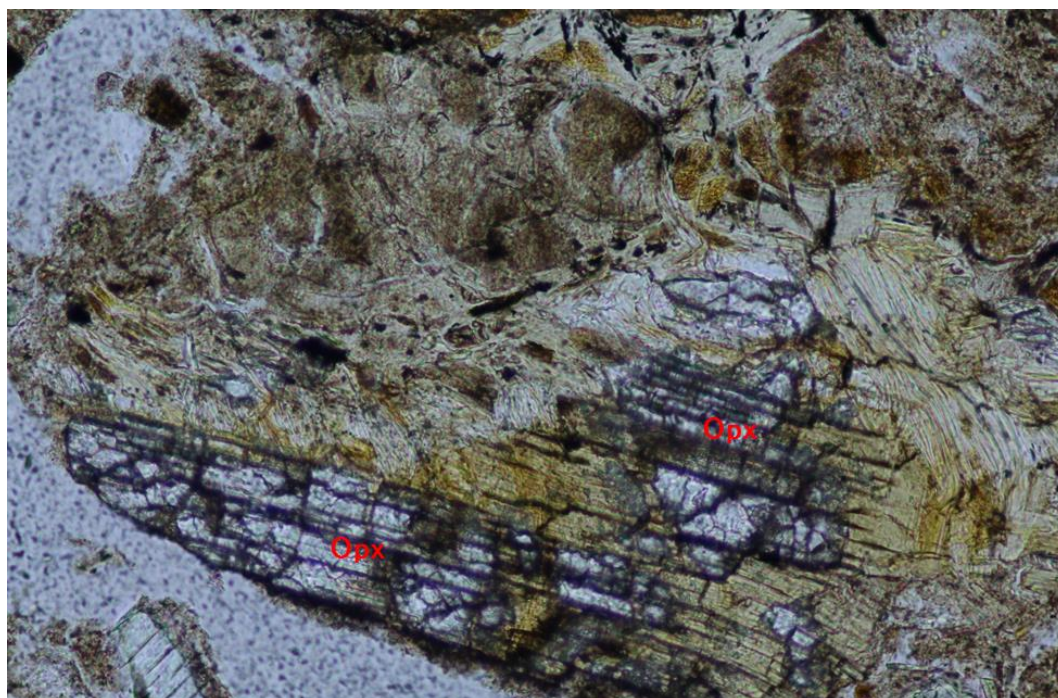
スケール 1.0mm 

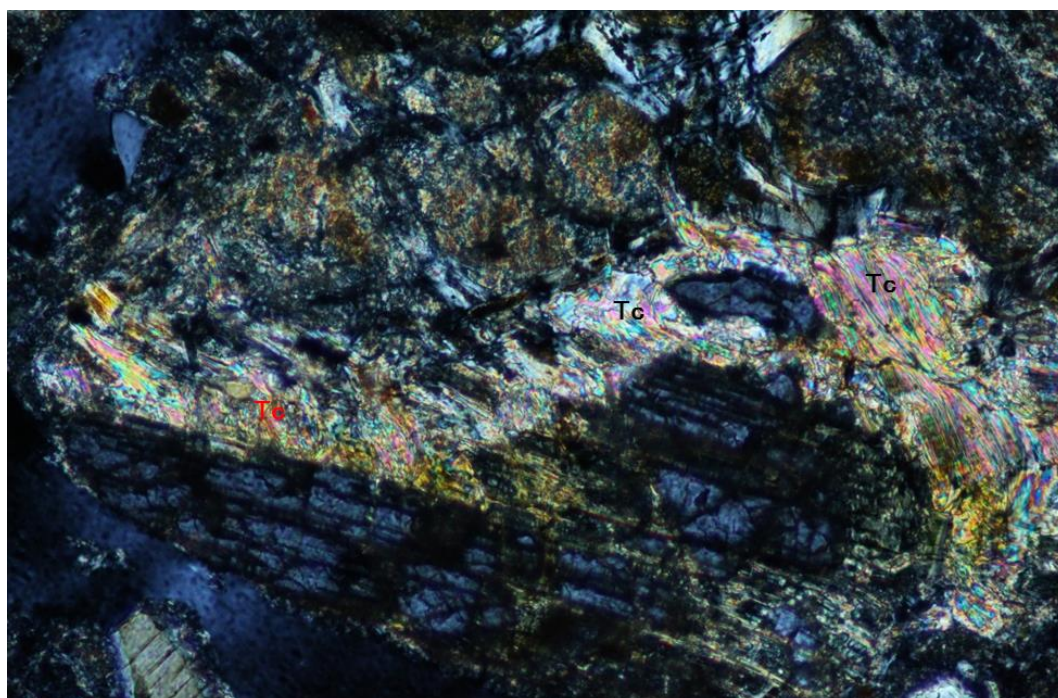
図 2.7.5-4 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-003, その1)




オープンニコル



クロスニコル



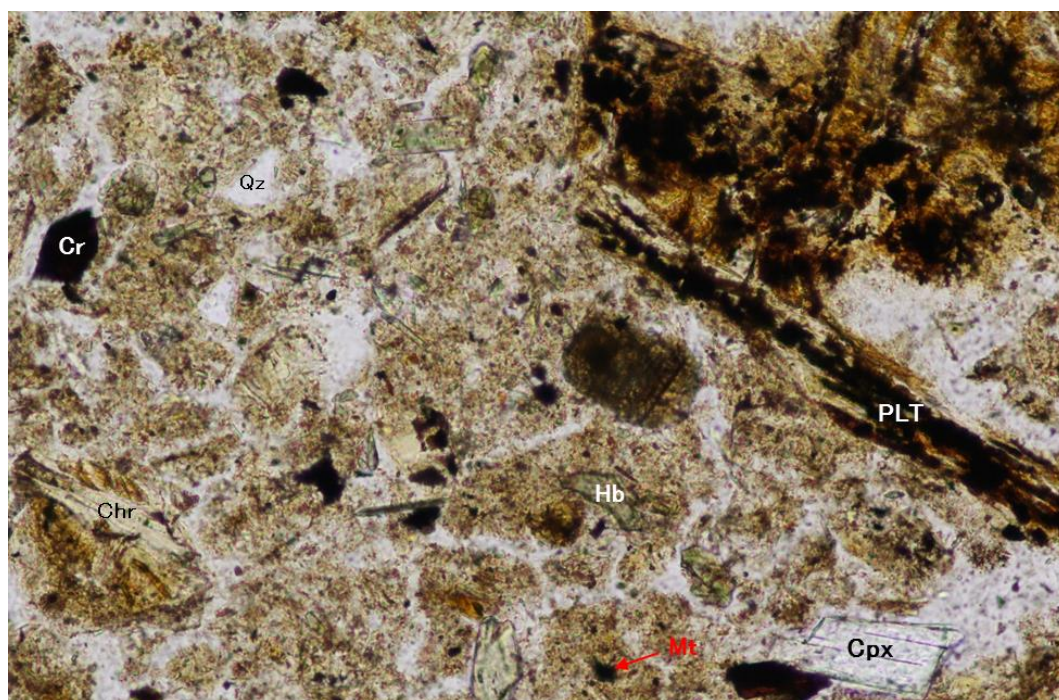
スケール 0.1mm 

備考：斜方輝石(Opx)を直接交代するタルク(Tc)。

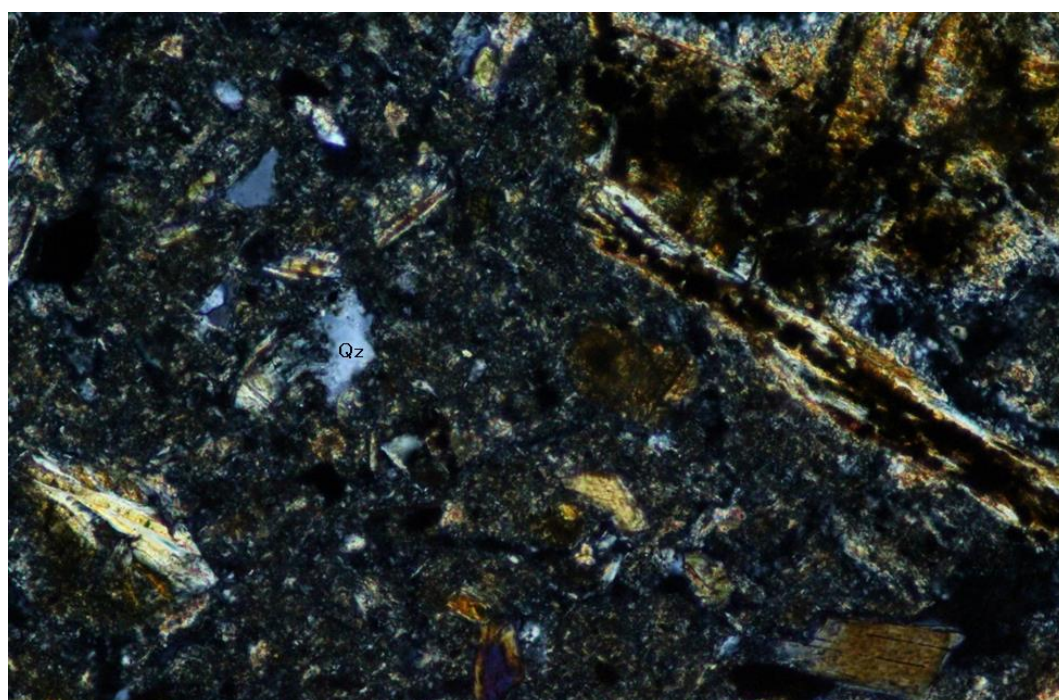
図 2.7.5-5 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-003, その2)



オープンニコル



クロスニコル




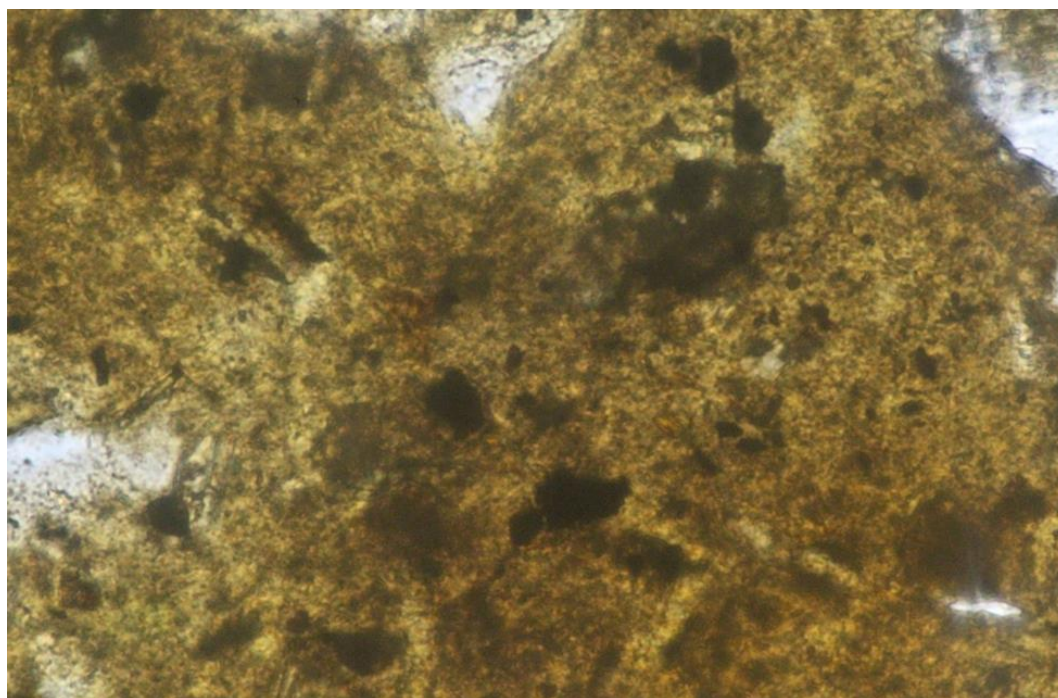
スケール 0.1mm 

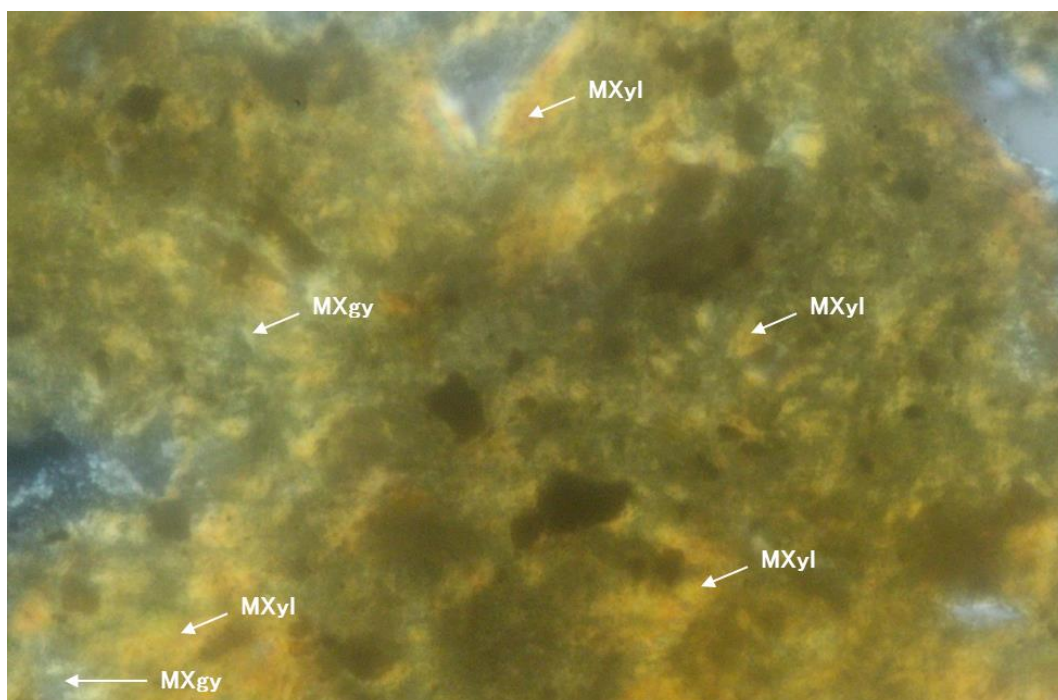
図 2.7.5-6 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-003, その3)



オープンニコル



クロスニコル

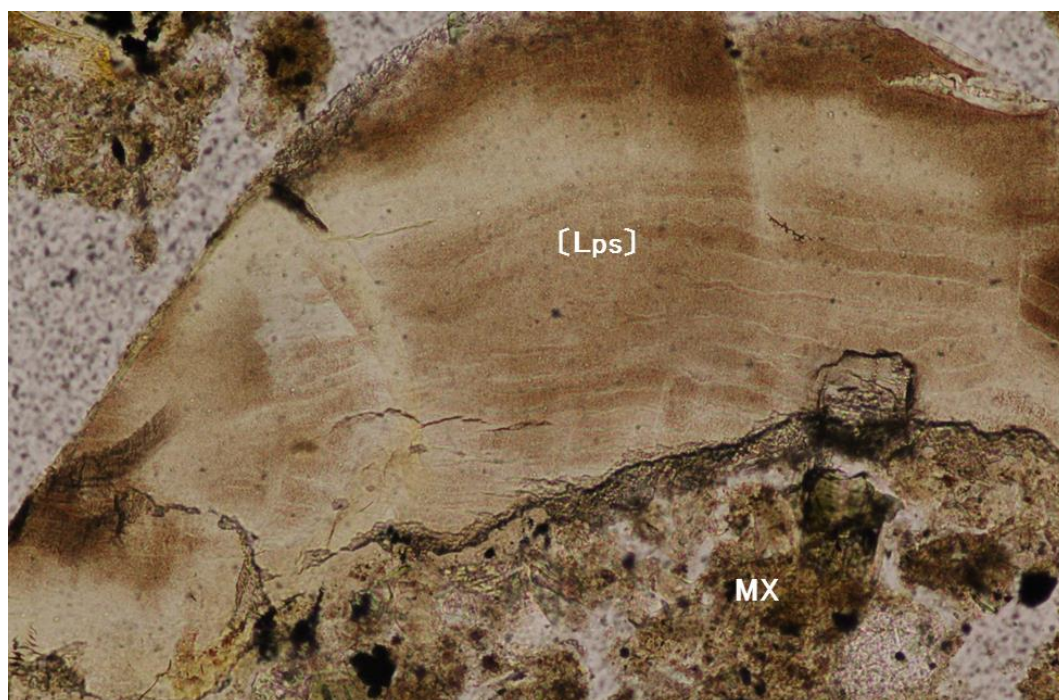


スケール 0.1mm 

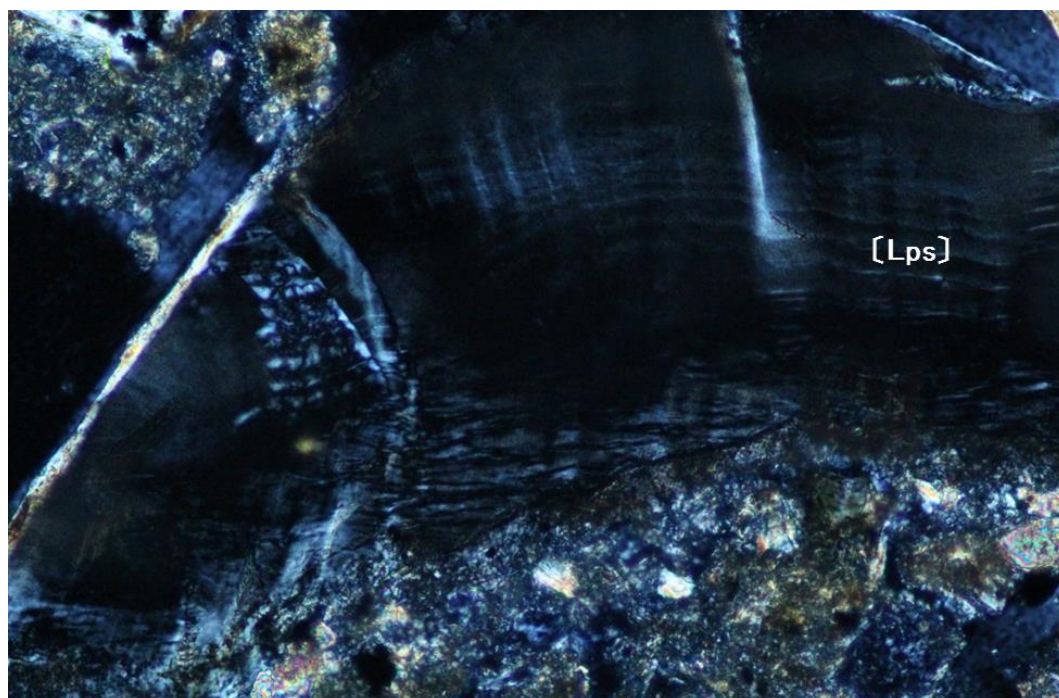
図 2.7.5-7 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-003, その4)



オープンニコル



クロスニコル



スケール 0.1mm 

備考：基質の形成時ないし基質形成後の孔隙に高 Mg/Si 比の地下水から低結晶度の蛇紋石類（クリソタイル～ジェエライト）が沈澱し、縞状の沈澱組織が形成されたことを示す。

図 2.7.5-8 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-003, その5)

a. 肉眼的特徴

灰色～褐灰色を呈する細礫混り土壌。

b. 岩石組織

基質が淡褐色の風化土壌からなるが、細礫～砂サイズの粒子が散在する。

c. 岩片・鉱物片

SP>>Opx>Chr·Hb·Pl·Qz·TC·Cr·Cpx·PLT

- ・ SP は歪角～歪円。径 3.0mm 以下。原岩は大部分ハルツバージャイトと考えられ、Ol>Opx>Cpx>Cr からなる。Cr は主として他形で、ときに Opx とシンプレクタイトをつくる。蛇紋岩としては大部分がメッシュ組織を示すリザルダイトークリソタイル蛇紋岩。Liz·Chr·Mt が生成し、ときに Br もメッシュ中心などに生成。まだ Opx を部分交代する。高温時生成の Tc あり。ほかに微量のアンチゴライト蛇紋岩の粒子あり。全体として、しばしば Wsp に交代して黄褐色。
- ・ Opx は歪角～円。新鮮な粒子から、Liz や Chl に交代する粒子まであり。さらにしばしば Wsp に交代して黄褐色。
- ・ Chr 角～歪円、長柱状の集合体。伸長正の Chr (γ 蛇紋石)。
- ・ Hb は歪角～歪円。径 0.2mm 以下。X'=淡緑色、Z'=緑色。
- ・ Pl は角～歪角。径 0.1mm 以下。微量。
- ・ Qz は角～歪円。径 0.15mm 以下。微量。
- ・ TC は歪円。長径 0.2mm 以下のタルク集合体。
- ・ Cr は角～歪円。径 0.2mm 以下。赤褐色。
- ・ Cpx は角。径 0.2mm 以下。
- ・ PLT は長柱状。長径 1.5mm 以下。

d. 基質

MXyl>MXgy>Mxah

- ・ MXyl は淡褐色～褐色。微細な葉片状。干渉色黄、Sm である可能性が高い。
- ・ MXgy は MXyl 集合体の間に不均質に生成。
- ・ Mxah は赤褐色、微細。鉱染状にまとまって、散在。

e. 二次鉱物

Sm>Chl>Wsp·Cb>Zeo?>Ahi

[Lps]



- ・ Sm は基質の MXyl を構成。
- ・ Chl は Liz、Chr の一部を交代。また、Opx を直接部分交代。
- ・ Wsp は SP とその構成鉱物を交代。褐色～黄褐色。メッシュ中心の Br は選択的に Wsp に交代される。
- ・ Zeo は微粒で MXgy を構成。
- ・ Ahi は赤褐色で基質にごくまれにスポット状に存在。
- ・ [Lps] は基質に接して縞状の沈澱組織を示して生成。

f. 備考

- ・ XRD からは Sm・Chl・Am・Liz・Ab・Cc>Lau・Opx・Qz
- ・ [Lps] の生成は基質の形成時あるいは、それ以降に形成された孔隙に、高 Mg/Si 比の地下水から低結晶度の蛇紋石類（クリソタイル～ジュエライト）が沈澱し、縞状の沈澱組織が形成されたことを示す。
- ・ Opx を部分交代するタルクは、母岩のかんらん岩体の貫入岩の周辺でしばしば見られる。

g. 考察

この試料は細礫～砂状の蛇紋岩が散在する蛇紋岩質の碎屑性堆積物である。岩片・鉱物片としては、蛇紋岩（かんらん石・斜方輝石・単斜輝石・クロムスピネル<時に、斜方輝石とシンプレクタイトを形成>）の岩片と、蛇紋石（リザルダイトークリソタイルのメッシュ組織、斜方輝石の部分交代、ブルーサイトの共生、微量のアンチゴライト）、普通角閃石、斜長石、微量の石英などの鉱物片と埋没木根で構成されている。このような鉱物組成から、原岩は、ハルツバージャイトである。

一方、基質における風化・変質域の量比は、MXyl > MXgy > MXah の順である。全体として約 50%程度である。MXyl には、同じように微細な葉片状の粘土鉱物（スメクタイトの可能性）が観察される。MXgy と MXah は PWT07-17-Rh-001 との差異はないが、MXgy に沸石の沈殿が観察される。

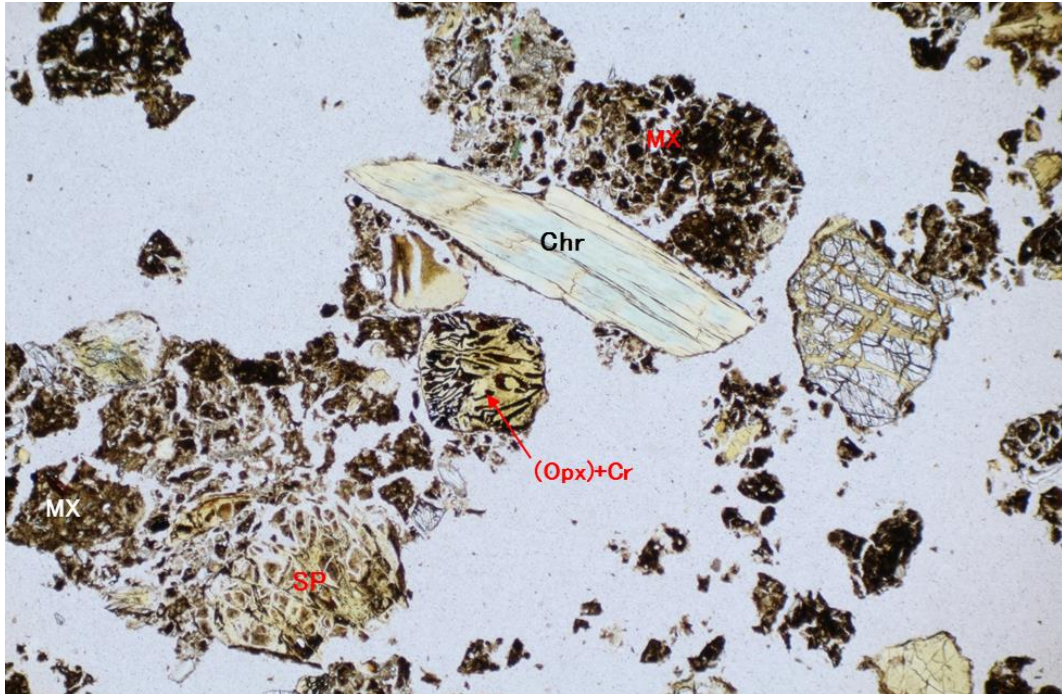
二次鉱物は、斜方輝石を交代した緑泥石、ブルーサイトなどである。

3) PWT07-17-Rh-007 の偏光顕微鏡観察の結果

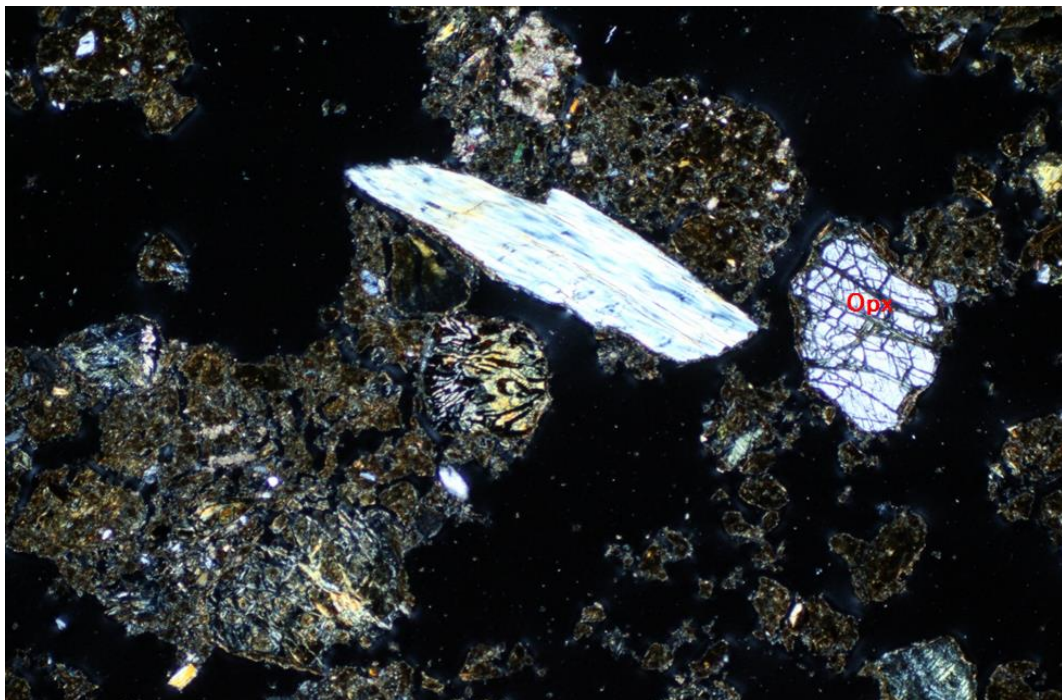
同定した鉱物とその産状を顕微鏡写真とともに図 2.7.5-9～図 2.7.5-11 に示す。

[ 碎屑性堆積物・上部層 (砂質部) ]

オープンニコル



クロスニコル




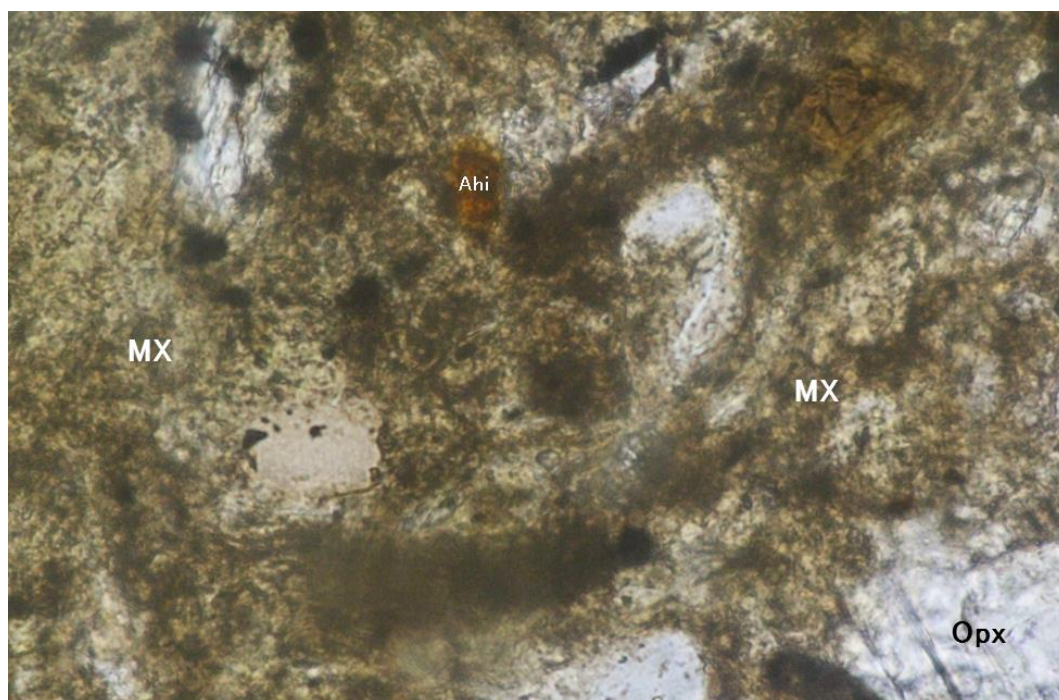
スケール 1.0mm 

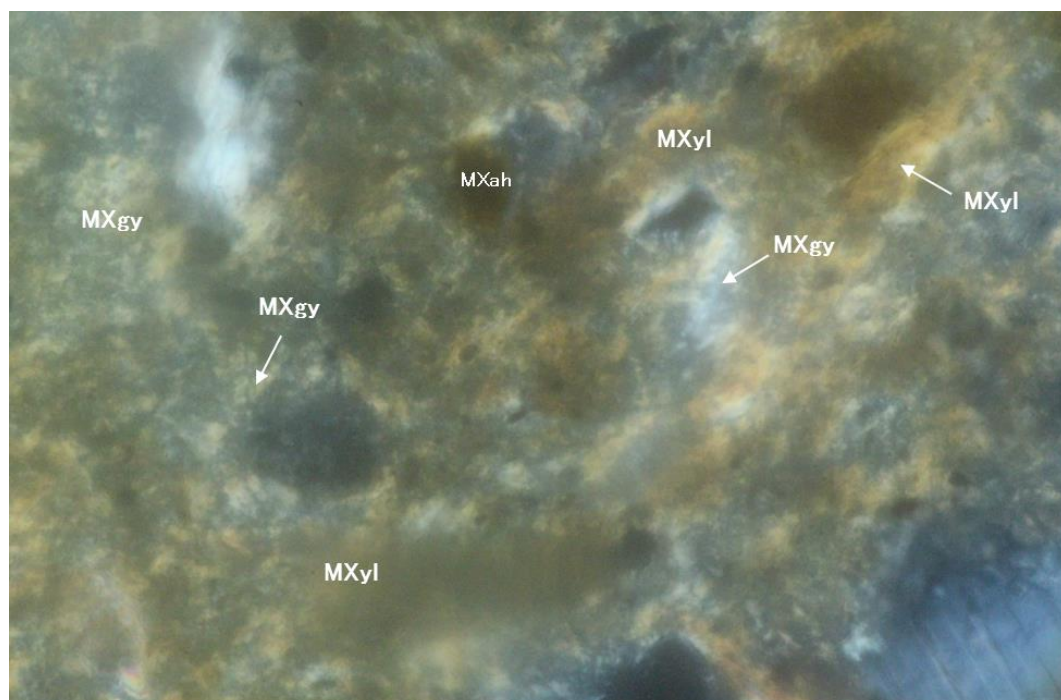
図 2.7.5-9 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-007, その1)



オープンニコル



クロスニコル (コンデンサー入り)

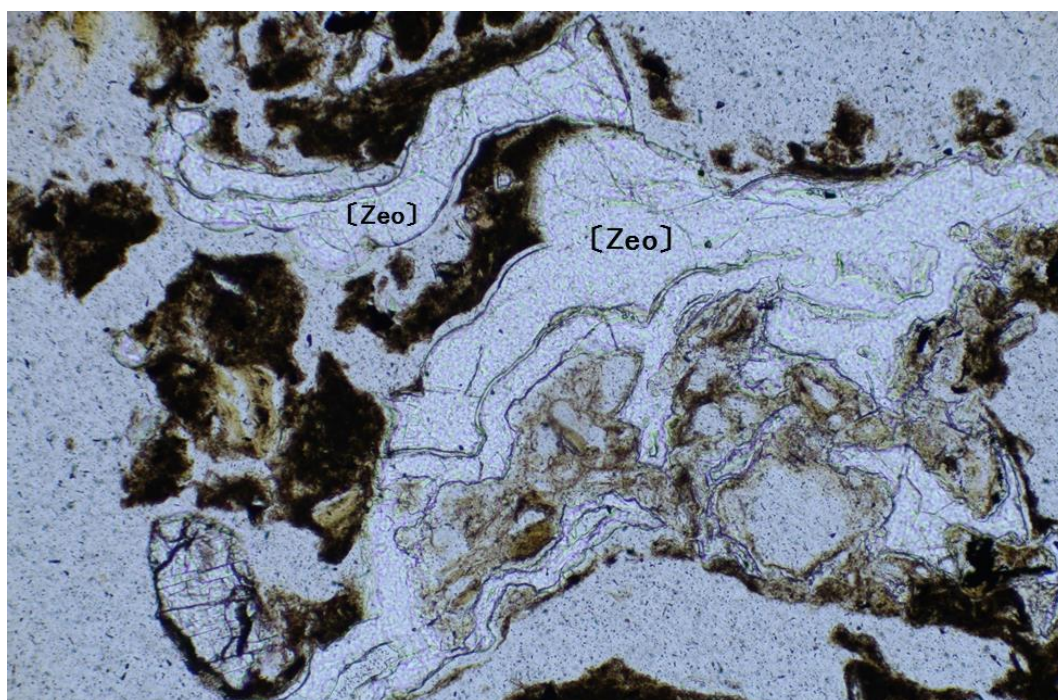


スケール 0.1mm 

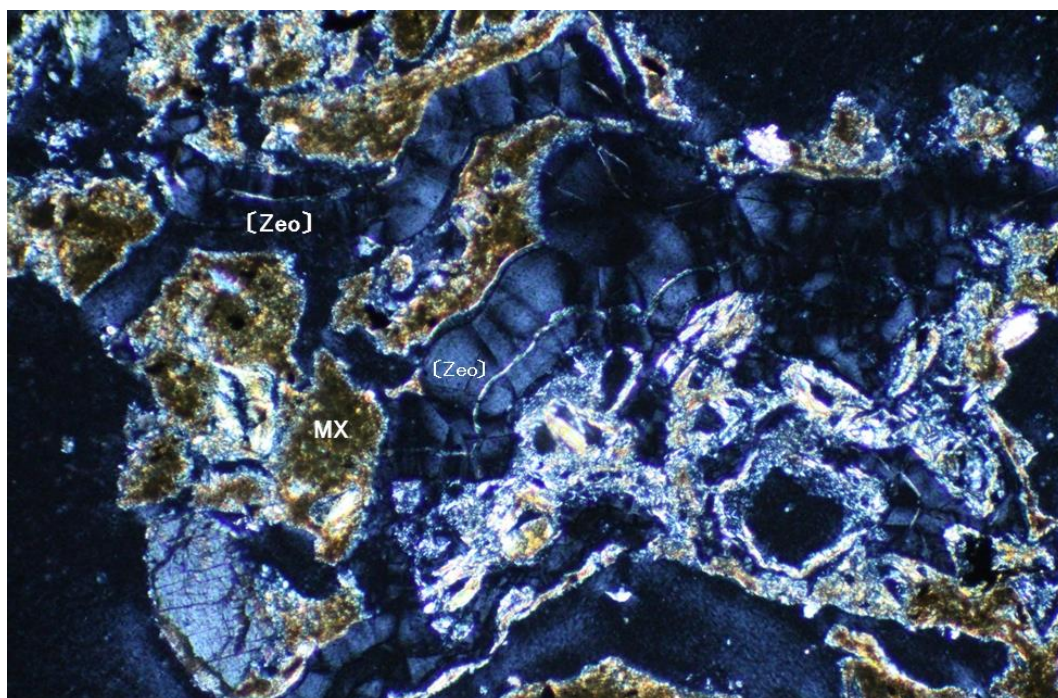
図 2.7.5-10 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-007, その2)




オープンニコル



クロスニコル



スケール 0.1 mm 

備考：基質中に沸石脈〔Zeo〕が認められる。斜プチロル沸石の可能性が考えられる。

図 2.7.5-11 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-007, その3)

a. 肉眼的特徴

褐灰色の基質中に、褐色の蛇紋岩と考えられる細礫や砂が散在する。

b. 岩石組織

基質が暗褐色～淡褐色の風化土壌からなり、この中に大小の蛇紋岩やそれに由来する鉱物片が散在する。

c. 岩片・鉱物片

SP>Opx>>TR>Cpx・Chr・QR・CB・Pl・Qz・TC・Cr

- ・ SPは垂角～垂円。径6mm以下。原岩はハルツバージャイト主体。Cr-(Opx)シンプレクタイトが目立つ。蛇紋岩としては大部分リザルダイトークリソタイル蛇紋岩。しばしばChl化。また、黄褐色～褐色に風化作用を受ける。一部にAntが生成する粒子があるが、そこでは、Liz-Chrが褐色に風化する一方、Antは風化を免れる。
- ・ Opxは角～垂角。径0.7mm以下。一部にTc脈を伴うものあり。
- ・ TRは垂角。径0.6mm。長柱状のTr集合体。
- ・ Cpxは角。径0.5mm以下。
- ・ Chrは垂角。長径2.0mm以下。
- ・ QRは角。径0.5mm以下。Qzのみの集合体で、波動消光顕著。
- ・ CBは角。径0.7mm以下。
- ・ Plは垂角。径0.3mm以下。
- ・ Qzは角。径0.35mm。波動消光顕著。内部にHbを包有する。
- ・ TCは角。径0.2mm以下。
- ・ Crは角。暗赤褐色。径0.2mm以下。周囲からMt化。

d. 基質

MXyl>MXgy>MXah

- ・ MXylは淡褐色～褐色。微細。
- ・ MXgyは灰色～帯褐灰色で微細。干渉色灰。
- ・ MXahは微量が鉱染状に散在。

e. 二次鉱物（蛇紋岩生成後）

Sm>Chl>Wsp・Zeo?

[Zeo]

- ・ Smは褐色～黄褐色で微細。基質のMXylを構成。



- ・ Chl は蛇紋石 (Liz、Chr) を交代。
- ・ Wsp は SP とそれに由来する鉱物片を交代。褐色～黄褐色、まれに赤褐色。
- ・ Zeo は微粒で、MXgy を構成する。
- ・ [Zeo] は基質中の幅 0.1mm±の脈をつくる。湾曲した板状結晶の集合。干渉色暗灰、直消光、伸長正と負。斜プチロル沸石の可能性が考えられる。

f. 備考

- ・ 特になし。

g. 考察

この試料細礫～砂状の蛇紋岩が散在する蛇紋岩質の碎屑性堆積物である。岩片・鉱物片としては、蛇紋岩（主に、風化作用を受けたリザルダイトークリソタイルのメッシュ組織で一部クロライト化、一部風化の影響を免れたアンチゴライトで構成、クロムスピネル<斜方輝石とシンプレクタイトを形成>）の岩片と、斜方輝石の部分交代、トレモラ閃石岩の岩片、単斜輝石、蛇紋石（クリソタイル）、石英集合体、炭酸塩、斜長石、石英、タルクの集合体、クロムスピネルで構成されている。このような鉱物組成から、原岩は、ハルツバージャイトである。

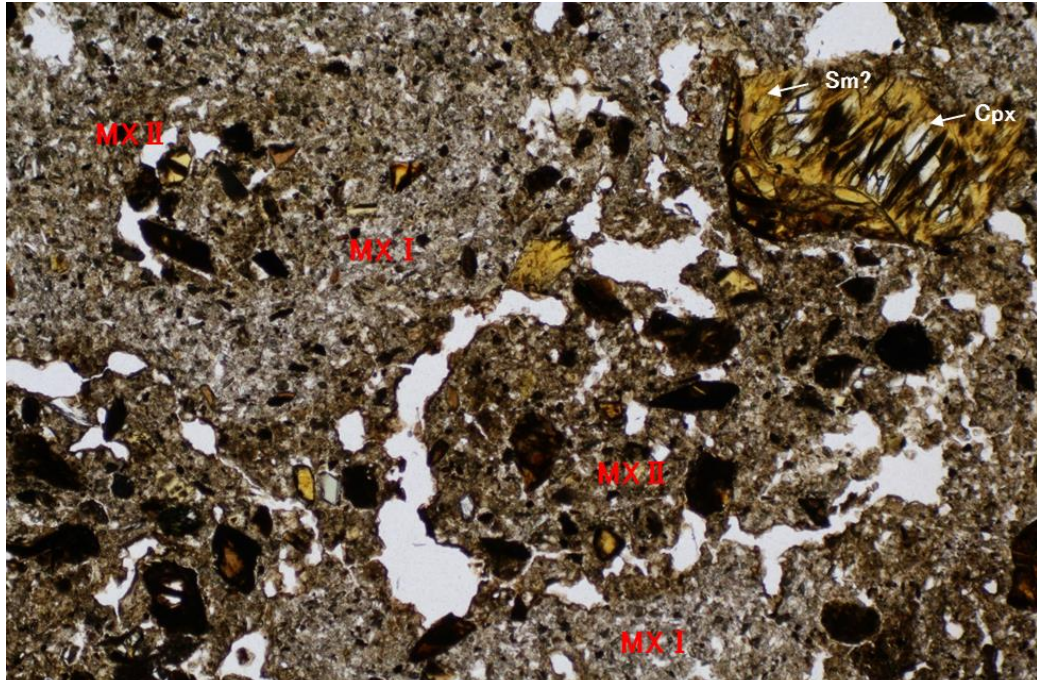
一方、基質における風化・変質域の量比は、MXyl > MXgy > MXah の順である。

二次鉱物は、斜方輝石を交代した緑泥石、蛇紋石の風化産物で、ブルーサイトなど基質中に沸石脈が生成した可能性が認められる。

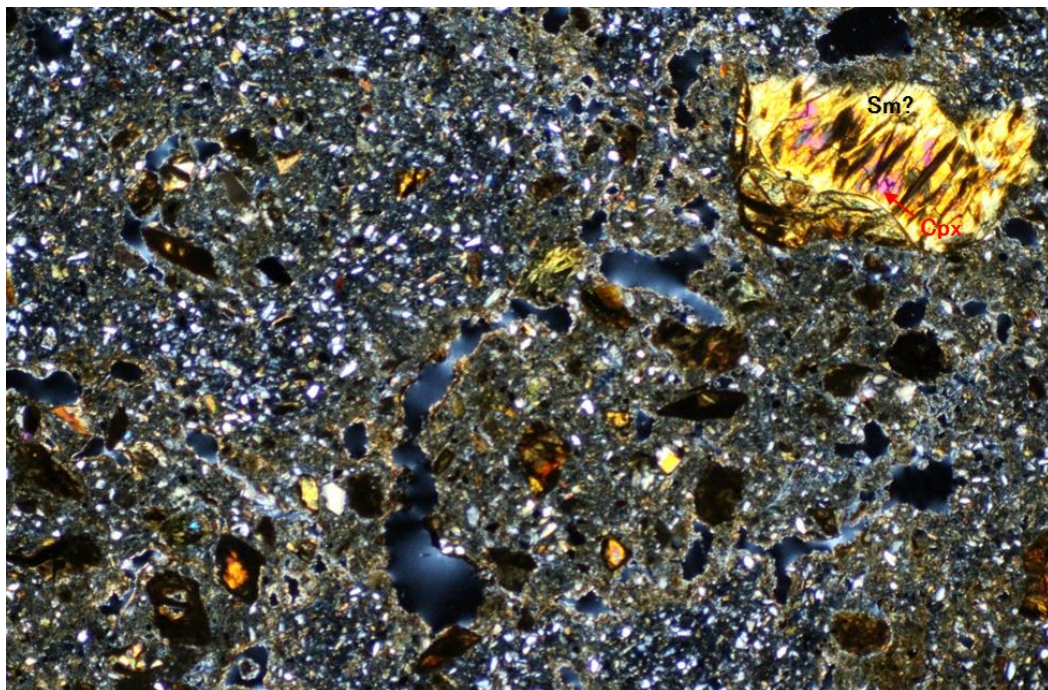
4) PWT07-17-Rh-C03 の偏光顕微鏡観察の結果


同定した鉱物とその産状を顕微鏡写真とともに図 2.7.5-12～図 2.7.5-17 に示す。  
[碎屑性堆積物・底部の白色細粒砂質堆積物層]

オープンニコル



クロスニコル



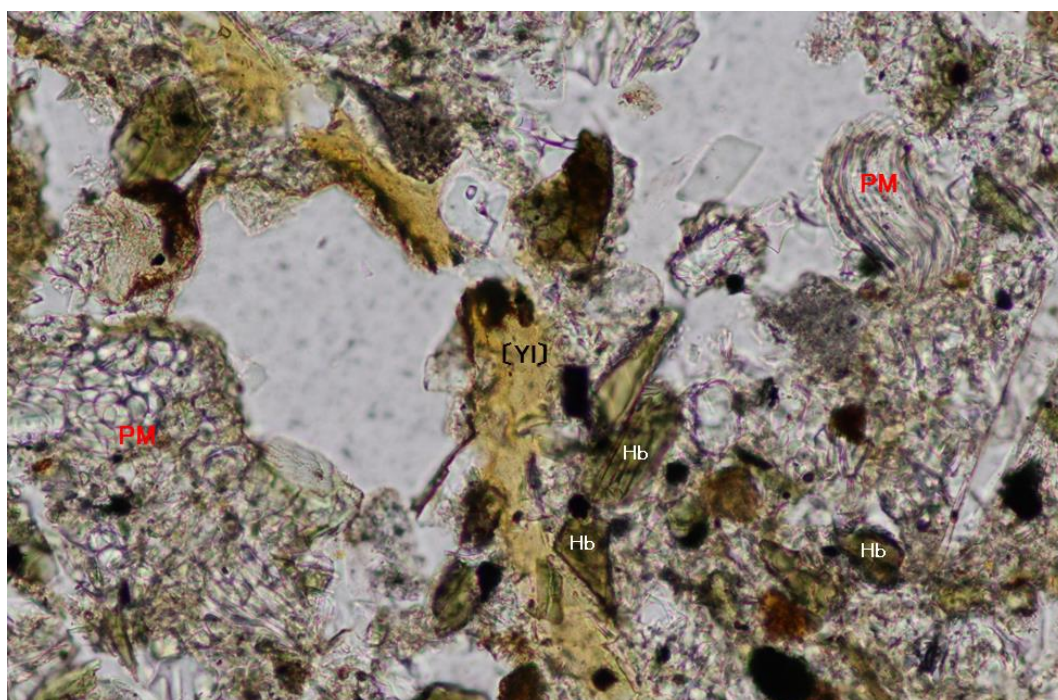
スケール 1.0 mm 

備考：基質はブロック化した基質 I（火山灰質）とその間を充填する褐色味の強い基質 II（蛇紋岩質）に区別できる。

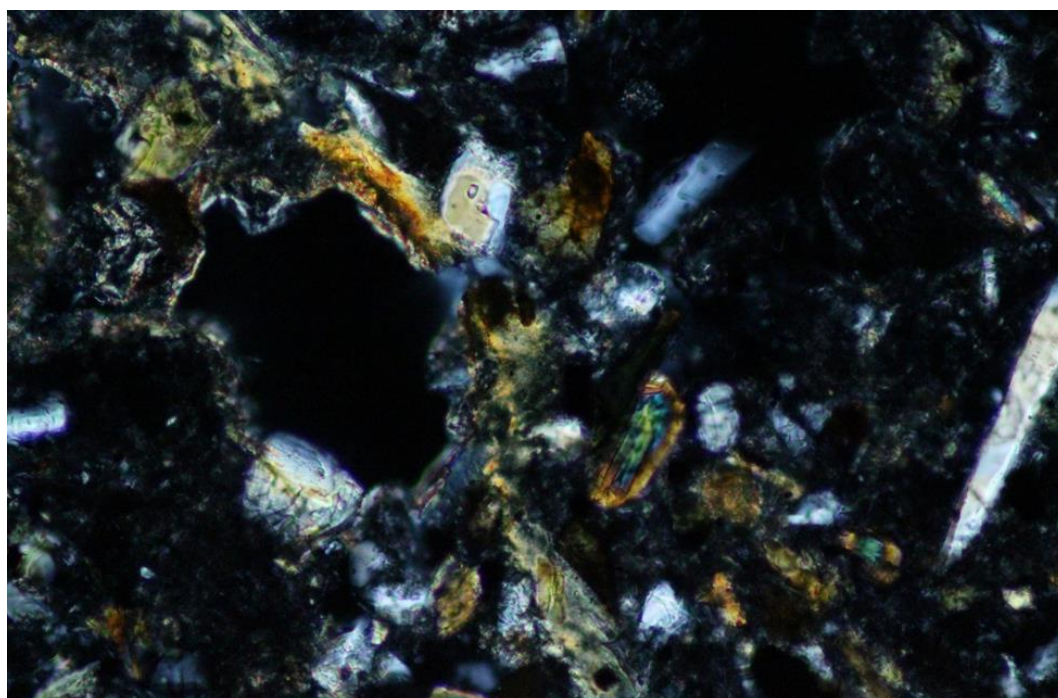
図 2.7.5-12 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-C03, その 1)




オープンニコル



クロスニコル



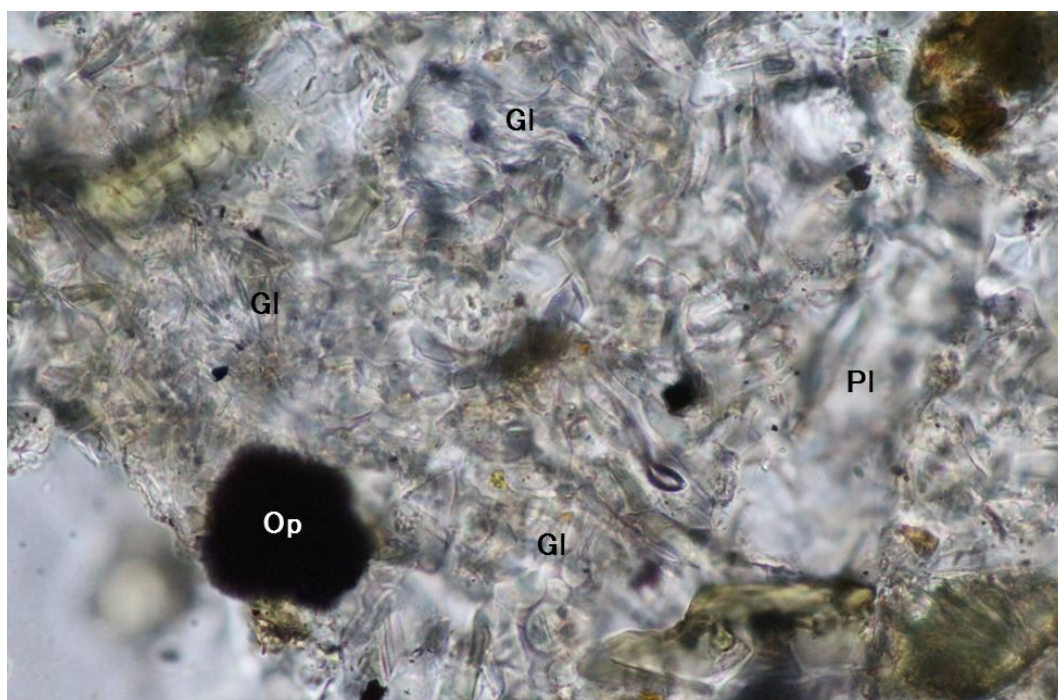
スケール 0.1mm 

備考：基質を割って黄褐色粘土鉱物〔YI〕脈が生成。スメクタイトである可能性が高い。普通角閃石(Hb)、軽石以外の火山ガラス(GI)が目立つ。

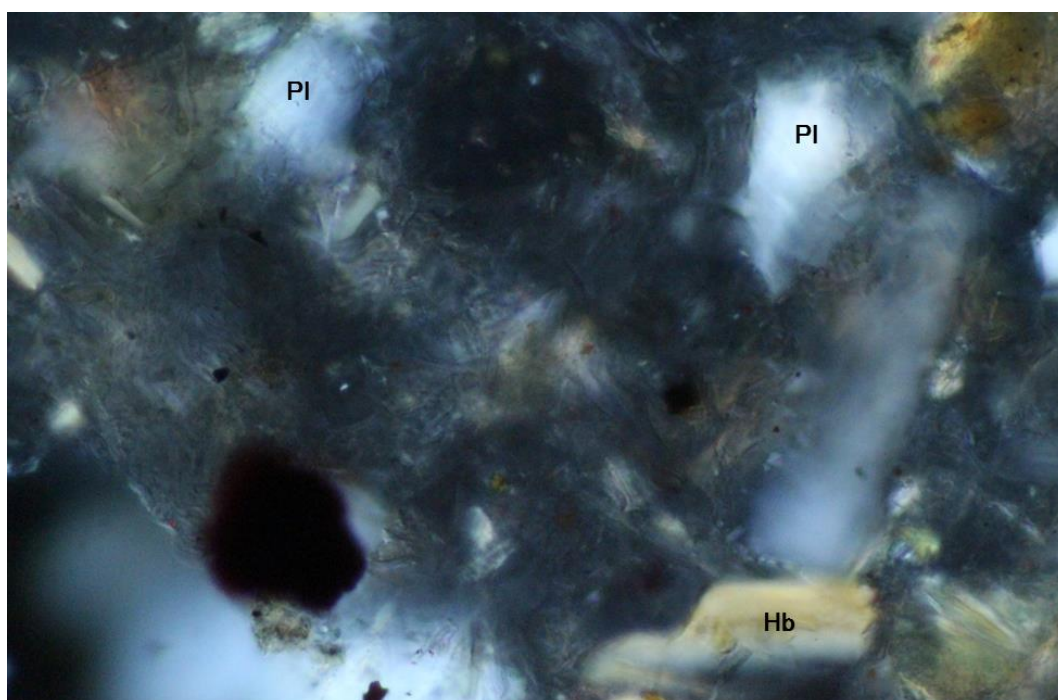
図 2.7.5-13 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-C03, その2)



オープンニコル



クロスニコル

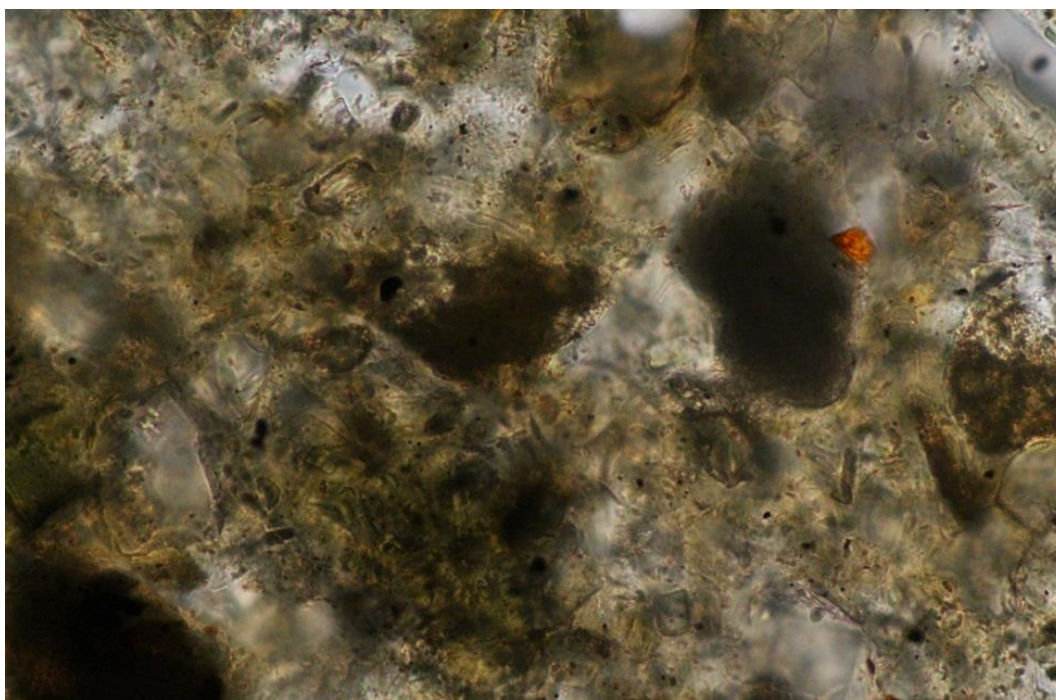


スケール 0.1 mm 

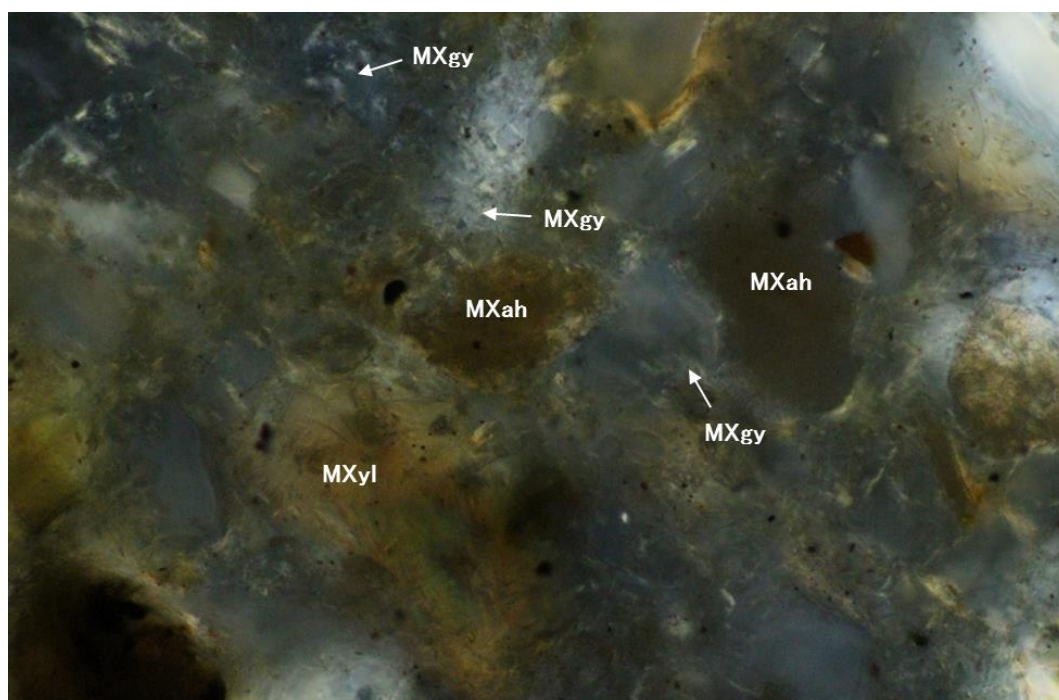
備考：微細な火山ガラス片が卓越する。

図 2.7.5-14 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-C03, その3)

オープンニコル



クロスニコル

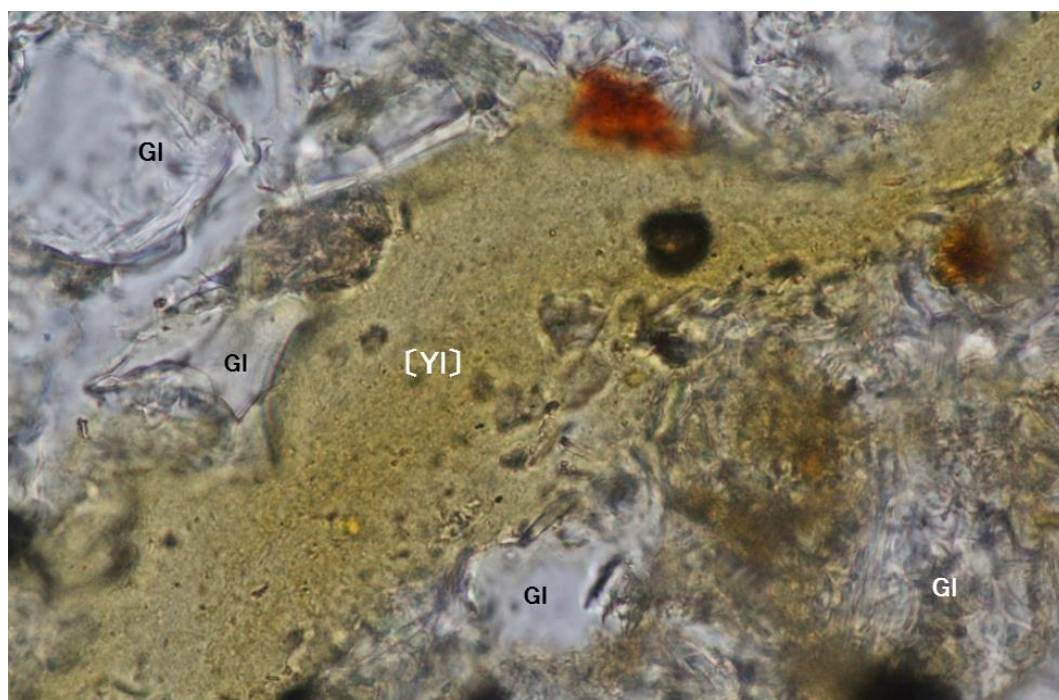


スケール 0.1 mm 

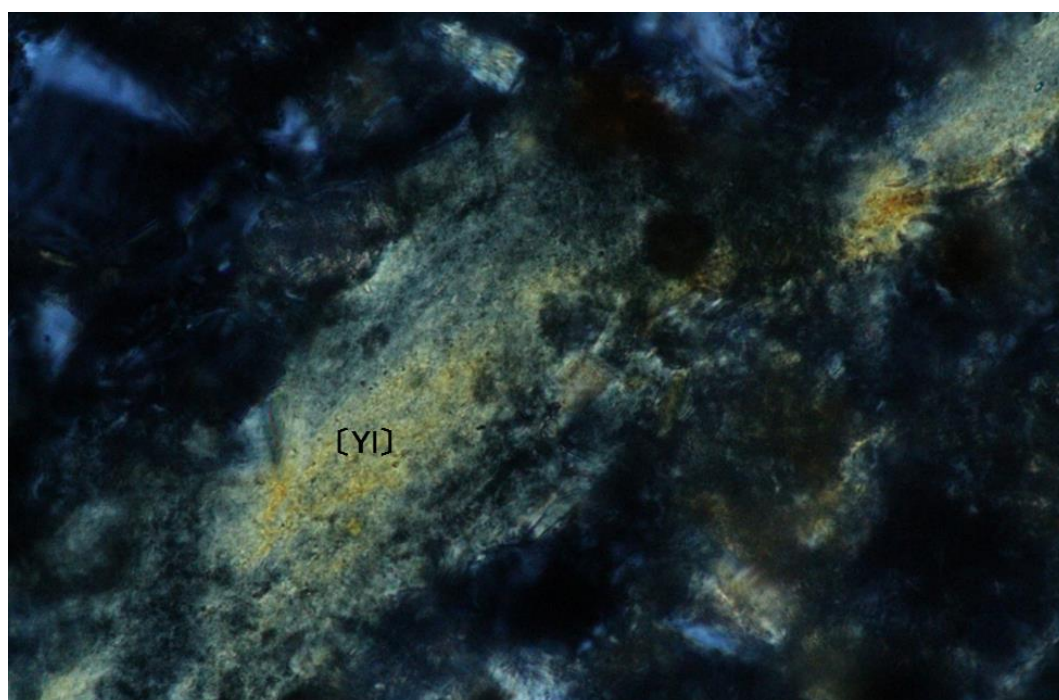
図 2.7.5-15 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-C03, その4)



オープンニコル



クロスニコル

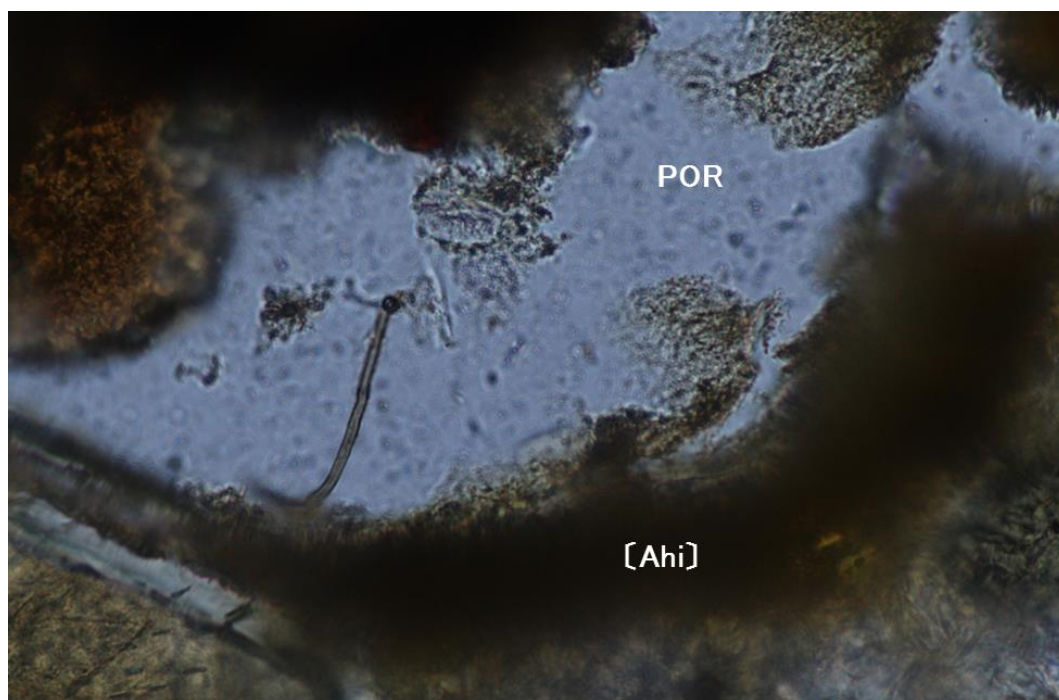


スケール 0.1 mm 

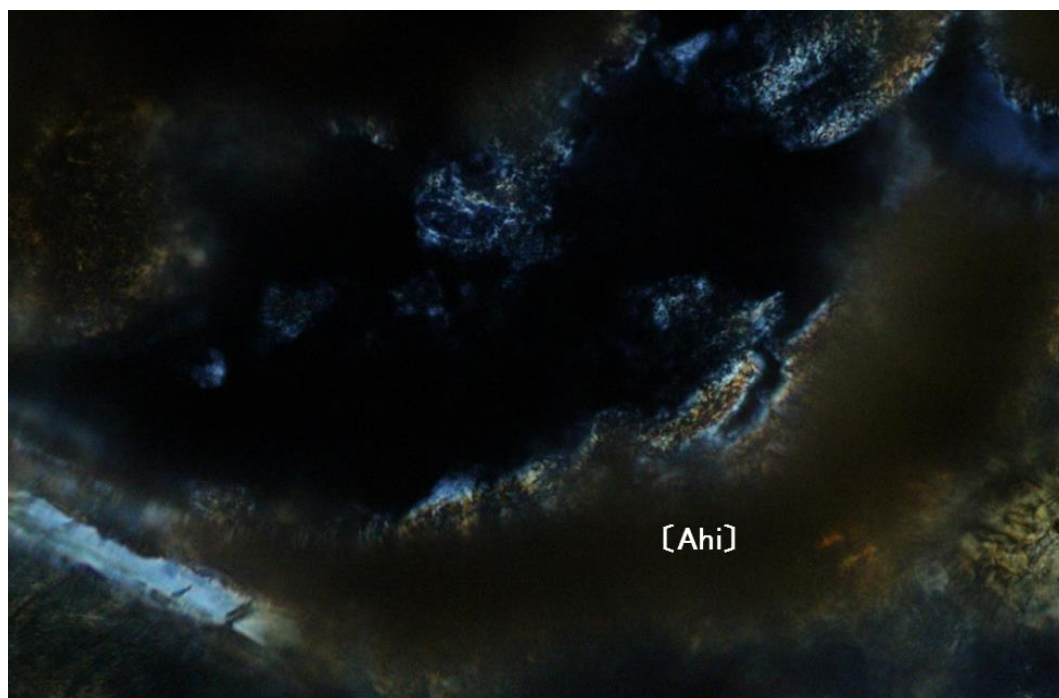
備考：褐色～淡褐色で干渉色黄の鉱物脈 [YI]。スメクタイトである可能性が高い。

図 2.7.5-16 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-C03, その5)

オープンニコル



クロスニコル



スケール 0.1 mm 

備考：孔隙（POR）の周囲に沈澱する非晶質水酸化鉄〔Ahi〕ほか。

図 2.7.5-17 偏光顕微鏡写真(PWT07-17-Rh-C03, その6)

a. 肉眼的特徴

暗灰色を呈する砂混りの火山灰質シルト。

b. 岩石組織

基質が灰白色透明な火山ガラス主体で、シルトサイズの普通角閃石や斜長石も散在。ガラス片の多い部分（基質 MX I）と粘土分の多い部分（基質 MX II）が不均質に入り混じって分布。

c. 岩片・鉱物片・生物遺体（または初生鉱物）

$Gl > Hb > SP > PM > Pl \cdot Cpx \cdot Qz$

- ・ Gl は角、板状一部 Y 字状。長径 2.0mm 以下。無色～帯紫灰色。新鮮で脱ハリを免れるものが多い。
- ・ Hb は角～亜角、短柱状。長径 0.15mm 以下。X'=淡緑色、Z'=緑色。一部、X'=淡褐色、Z'=赤褐色。
- ・ SP は亜角～亜円、径 2.0mm 以下。変質著しく、Wsp が生成し、濃褐色～黄褐色を呈する粒子が多い。大部分メッシュ組織を示すリザルダイトークリソタイル蛇紋岩であったが、蛇紋石はほとんど残存しない。初生鉱物は Opx・Ol・Cr がわずかに残存する粒子あり。まれに変質していないアンチゴライト蛇紋岩の粒子もあり。
- ・ PM は亜角～亜円。径 0.2mm 以下。繊維状が多いがスポンジ状もある。ガラスは新鮮。
- ・ Pl は角～亜角。径 0.1mm 以下。新鮮。
- ・ Cpx は角～亜角。短柱状。長径 0.15mm 以下。
- ・ Qz は角～亜角。径 0.15mm 以下。

d. 基質

$Gl \cdot MXyl \cdot MXgy > Mxah \cdot Hb \cdot Pl$

- ・ Gl は角、板状。大きなものは粒子として記載。
- ・ MXyl は淡褐色～褐色、微細。葉片状。
- ・ MXgy は微細でまとまって存在。MXyl に伴う場合は区別し易いが、Gl 中では区別困難。
- ・ MXah は赤褐色微粒、基質にスポット状、鉱染状に微量生成。
- ・ Hb や Pl は微細な結晶片。

e. 二次鉱物（蛇紋岩生成後）

$Sm > Wsp \cdot Ahi$

[Sm] [Ahi]

- ・ Sm は基質の MXyl を構成。
- ・ Wsp は蛇紋岩粒子を広く交代。
- ・ Ahi は蛇紋岩粒子を広く交代。
- ・ [Sm] は基質のフラクチャー中に黄褐色で微細な結晶の集合体として生成。干渉色は黄～赤。
- ・ [Ahi] は孔隙（溶脱）の周囲に沈澱。

f. 備考

- ・ 基質中のスメクタイトの脈状部 [Sm] はやや高干渉色であることからサポナイト系であるとすると、Al・Mg・Si に富む地下水が供給されたことを示す。
- ・ 基質の MXgy と Gl は、クロスニコルで干渉色が灰色か、暗黒色かで区別するが、微細なため、区別は困難な場合も多い。

g. 考察

この試料は粗粒～砂状の蛇紋岩が混じる細粒の蛇紋岩質の碎屑性堆積物であるが、基質に火山灰や火山ガラス、普通角閃石、斜長石などが散在する起源不詳であることが特異的である。岩片・鉱物片としては、蛇紋岩（リザルダイト・クリソタイルのメッシュ組織、初生鉱物の斜方輝石・かんらん石・クロムスピネルが僅かに残存、稀に、アンチゴライト）、繊維状またはスポンジ状の火山灰や新鮮な火山ガラス、短柱状の斜長石と石英で構成されている。

一方、基質における風化・変質域の量比は、火山ガラス > MXyl > MXgy > MXah の順であるが、微細な普通角閃石・斜長石の鉱物粒が目立っている。MXyl は、同様に粘土鉱物（サポナイト系の可能性）。MXgy は微細で火山ガラスとの区別が難しい。MXah には差異はないが、非晶質な水酸化鉄は微量でスポット状・鉱染状に生成している。

二次鉱物は蛇紋石やブルーサイトの風化鉱物（パイロオーライト・コリンサイト）などである。

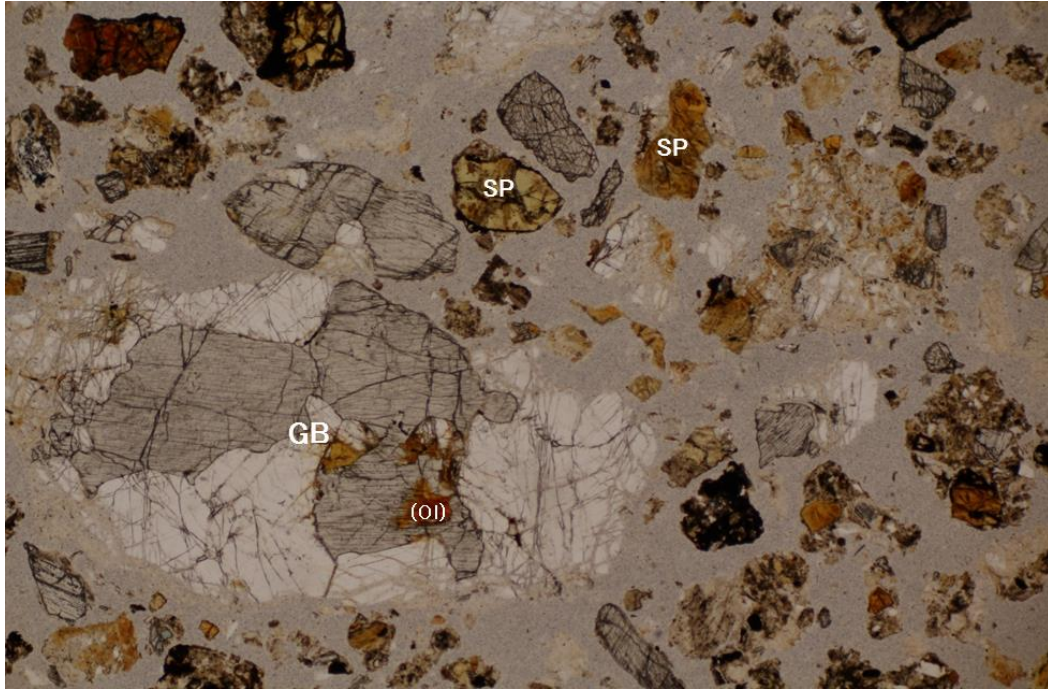


5) PWT08-17-Rh-001 の偏光顕微鏡観察の結果

同定した鉱物とその産状を顕微鏡写真とともに図 2.7.5-18～図 2.7.5-20 に示す。


[礫混り班れい岩質碎屑性堆積物]

オープンニコル



クロスニコル



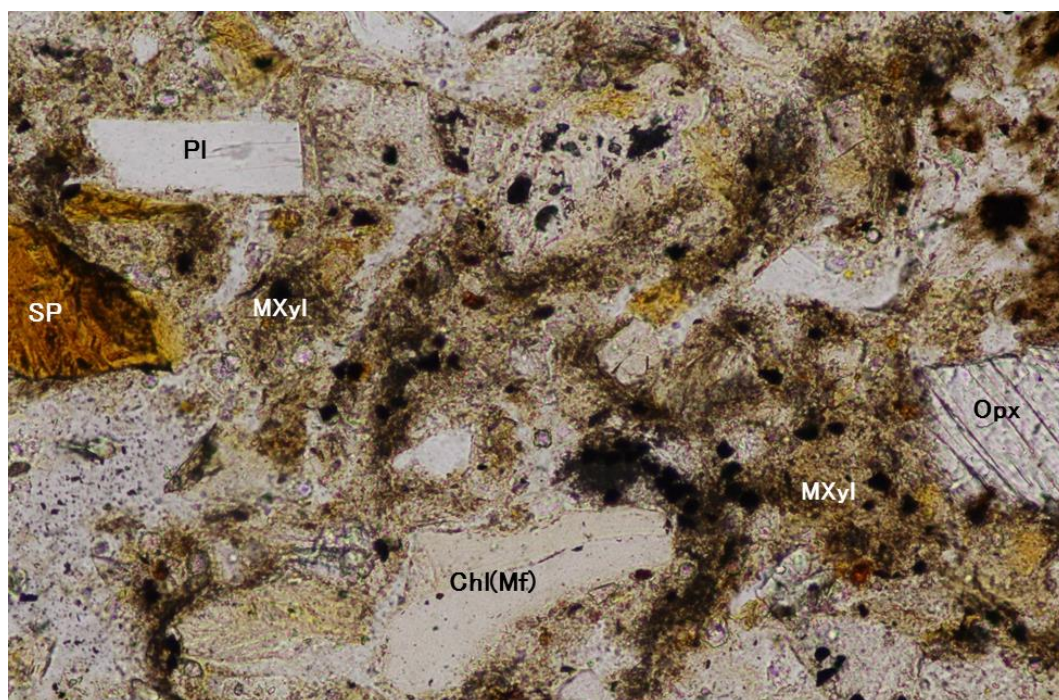
スケール 1.0 mm 

備考：蛇紋岩片も含む。

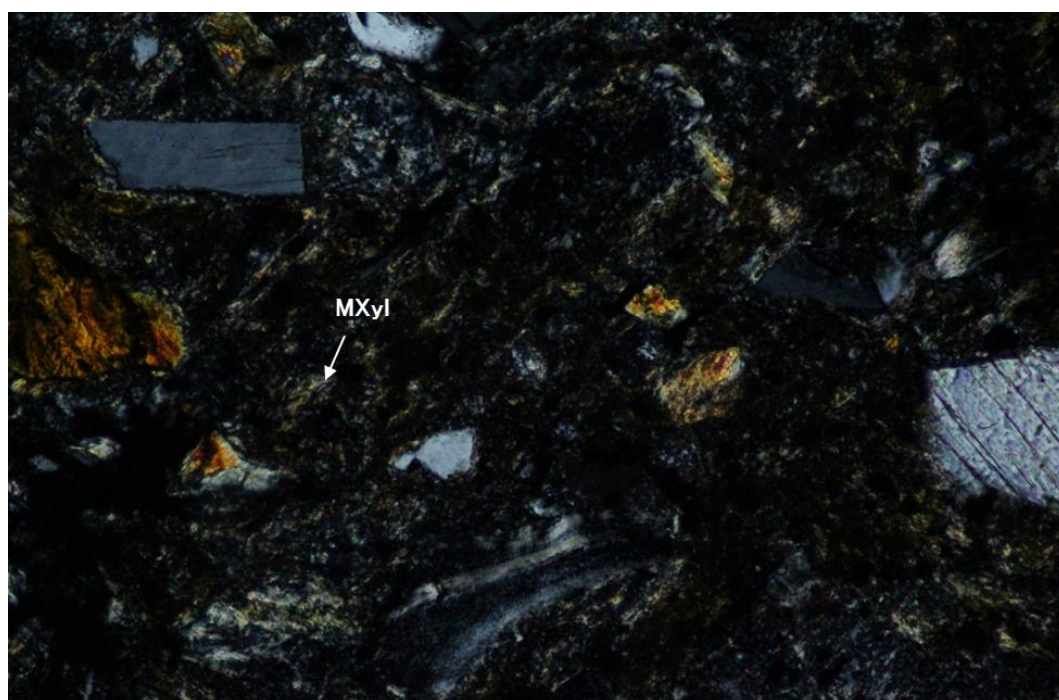
図 2.7.5-18 偏光顕微鏡写真(PWT08-17-Rh-001, その1)



オープンニコル



クロスニコル




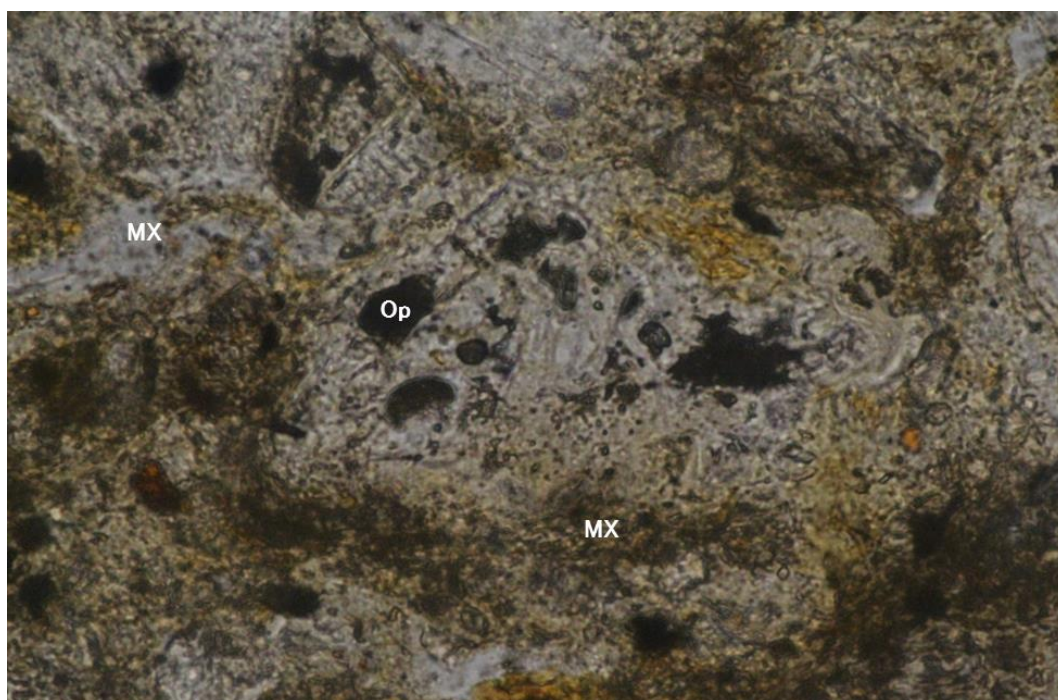
スケール 0.1 mm 

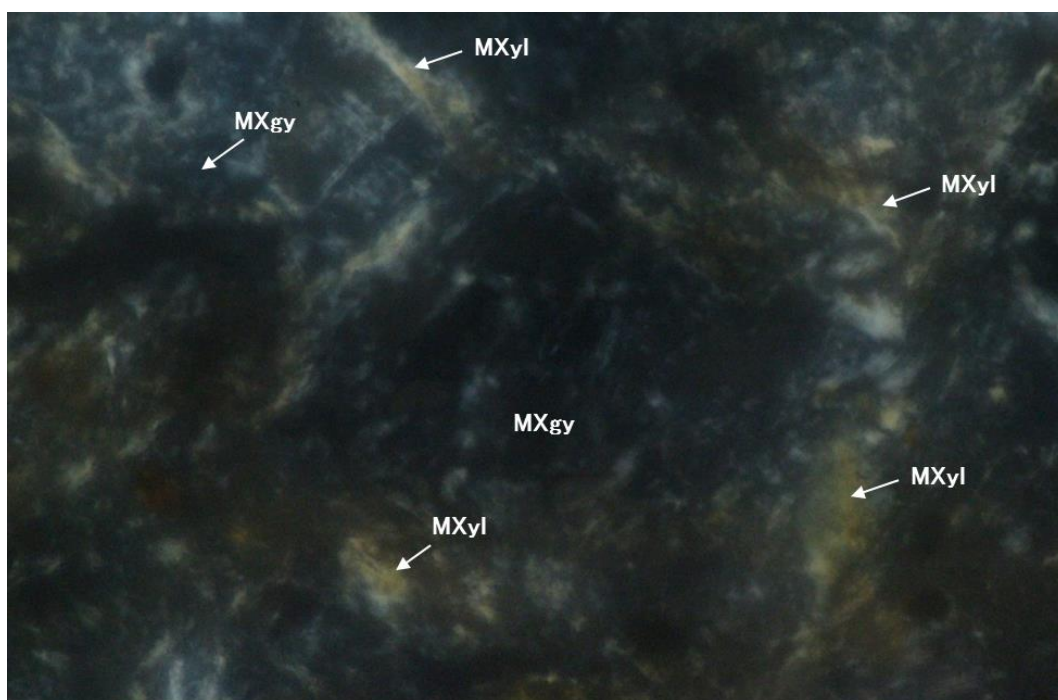
図 2.7.5-19 偏光顕微鏡写真(PWT08-17-Rh-001, その2)



オープンニコル



クロスニコル



スケール 0.1 mm 

図 2.7.5-20 偏光顕微鏡写真(PWT08-17-Rh-001, その3)

a. 肉眼的特徴

暗灰色や褐灰色の火成岩片からなる粗粒砂。泥質基質は非常に少ない。

b. 岩石組織

径 4mm 以下の細礫を含む粗粒砂。岩片は斑れい岩が大部分であるが、少量の蛇紋岩片を含む。泥質基質はあるが少ない。

c. 岩片・鉱物片

GB>SP>Opx>Cpx・Pl

- ・ GB 亜角、一部亜円。径 0.4mm 以下。完晶質等粒状で、主として Pl と Cpx からなり、Ol を含むことあり。Ol は大部分赤褐色に変質するが、まれに残存。Pl のアルバイト双晶の最大対称消光角が  $39^\circ$  ( $An \doteq 65\%$ ) と、曹長石化を免れている。
- ・ SP は角～亜角。径 1.0mm 以下。大部分リザルダイトークリソタイル蛇紋岩であったことが、メッシュ組織からわかるが、蛇紋石類は大部分変質し、Wsp を生じ、黄褐色～赤褐色に変質。
- ・ Opx は角～亜角。径 1.4mm 以下。一部 Wsp に部分交代。一部多色性があり、蛇紋岩由来のほかに、GB 起源の紫蘇輝石が含まれる可能性あり（ただし薄片内の GB に Opx は認められない）。
- ・ Cpx は角～亜角。径 1.0mm 以下。大部分 GB に由来すると考えられる。
- ・ Pl は角～亜角。径 1.1mm 以下。GB に由来すると考えられる。

d. 基質

MXgy・MXyl>MXah

- ・ MXgy と MXyl は密雑に存在するが、全体として少量。この中にスポット状に MXah が散在する。

e. 二次鉱物

Wsp・Ahi・Zeo・Sm

- ・ Wsp は SP に生成。主として褐色～黄褐色、まれに赤褐色。
- ・ Ahi は SP の一部に生成。また基質にスポット状に散在 (MXah) 。
- ・ Zeo は基質の MXgy を構成。
- ・ Sm は基質の MXyl を構成。

f. 備考

特になし。

g. 考察

この試料は斑れい岩の細礫と極少量な蛇紋岩をもつ粗粒な碎屑性堆積物(岩屑)である。岩片・鉱物片としては、斑れい岩(完晶質・等粒状、斜長石、斜方輝石<紫蘇輝石の可能性>、単斜輝石、極少量のかんらん石(赤褐色に変質))と蛇紋岩(リザルダイトークリソタイルのメッシュ組織、蛇紋石の大部分が風化鉱物)、鉱物片としては、斜方輝石は蛇紋石に交代、未変質な単斜輝石や斜長石から構成されている。このような鉱物組成から、原岩は斑れい岩(岩脈)である。

一方、基質における風化・変質域の量比は、 $MX_{gy} > MX_{yl} > MX_{ah}$  の順である。全体として小領域である。

二次鉱物は、蛇紋石の風化鉱物(パイロオーライト、コーリングイトなど)、 $MX_{gy}$  に沸石の可能性、および  $MX_{yl}$  に粘土鉱物(スメクタイトの可能性)がある。

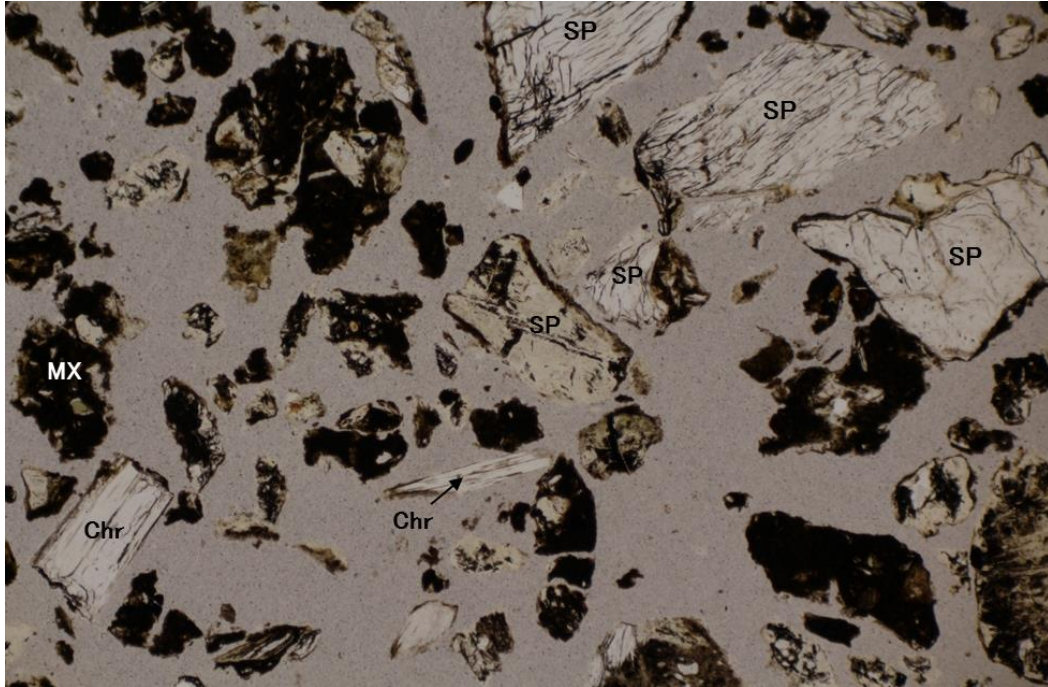


6) PWST02-17-Rh-003 の偏光顕微鏡観察の結果

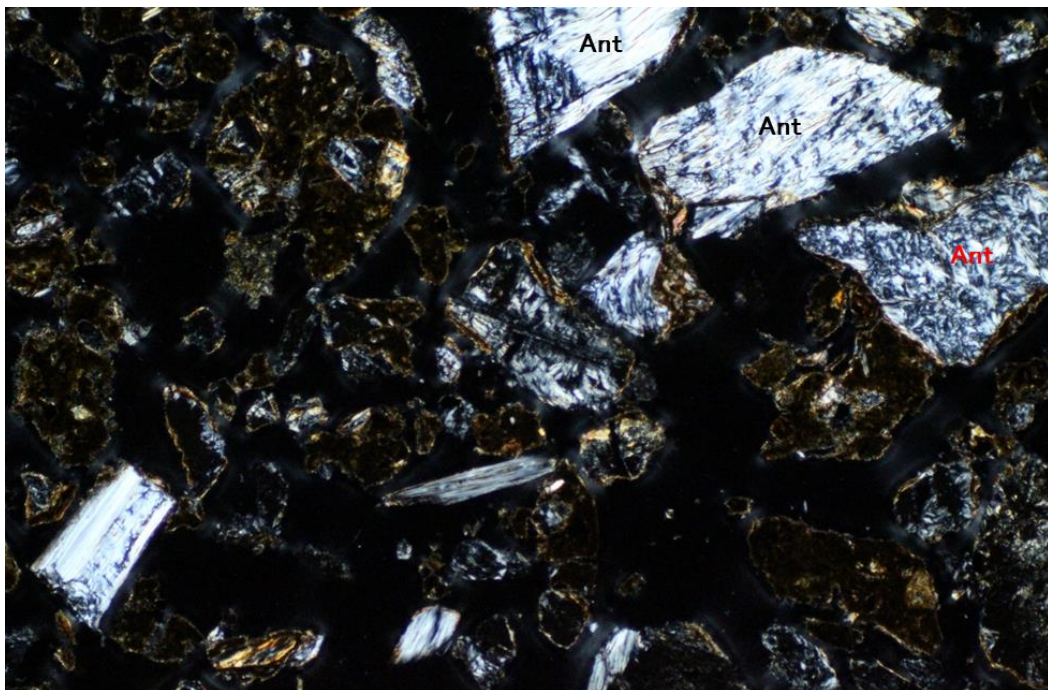
同定した鉱物とその産状を顕微鏡写真とともに図 2.7.5-21～図 2.7.5-24 に示す。

[風化を受けた蛇紋岩質碎屑性堆積物]

オープンニコル



クロスニコル



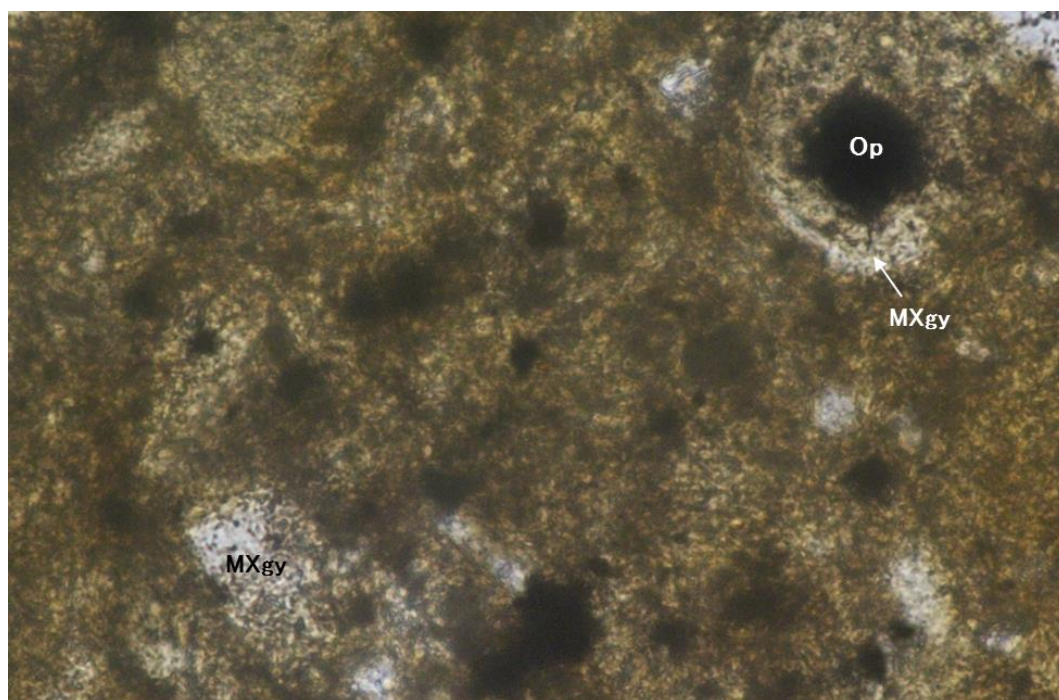
スケール 1.0 mm

備考：含まれる粒子（礫）は大部分がアンチゴライト蛇紋岩。

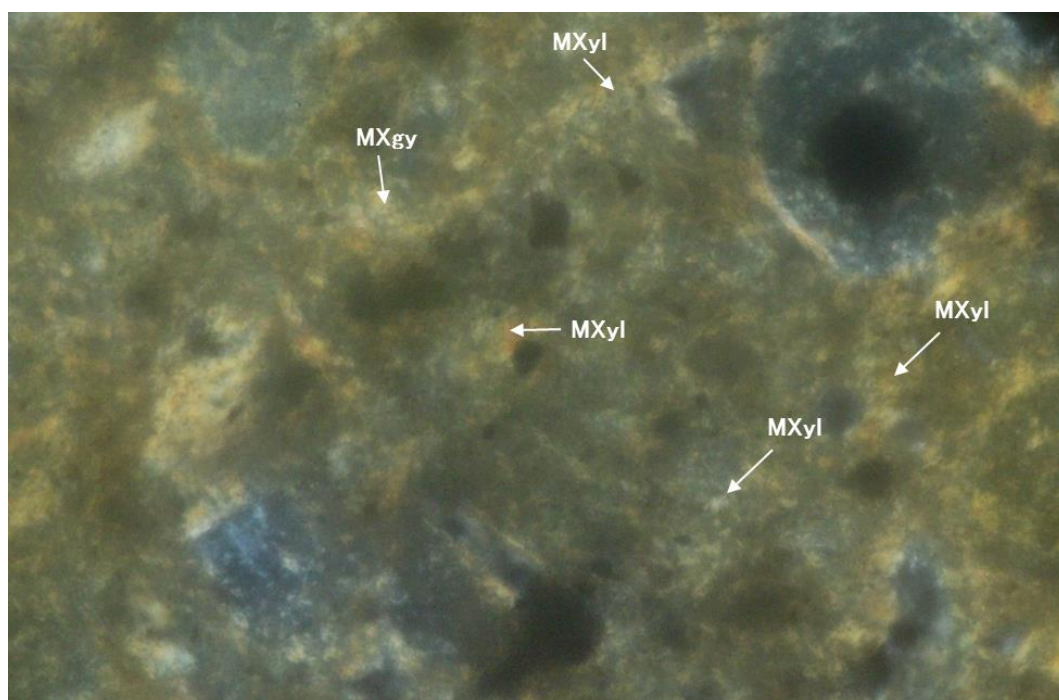
図 2.7.5-21 偏光顕微鏡写真(PWST02-17-Rh-003, その1)



オープンニコル



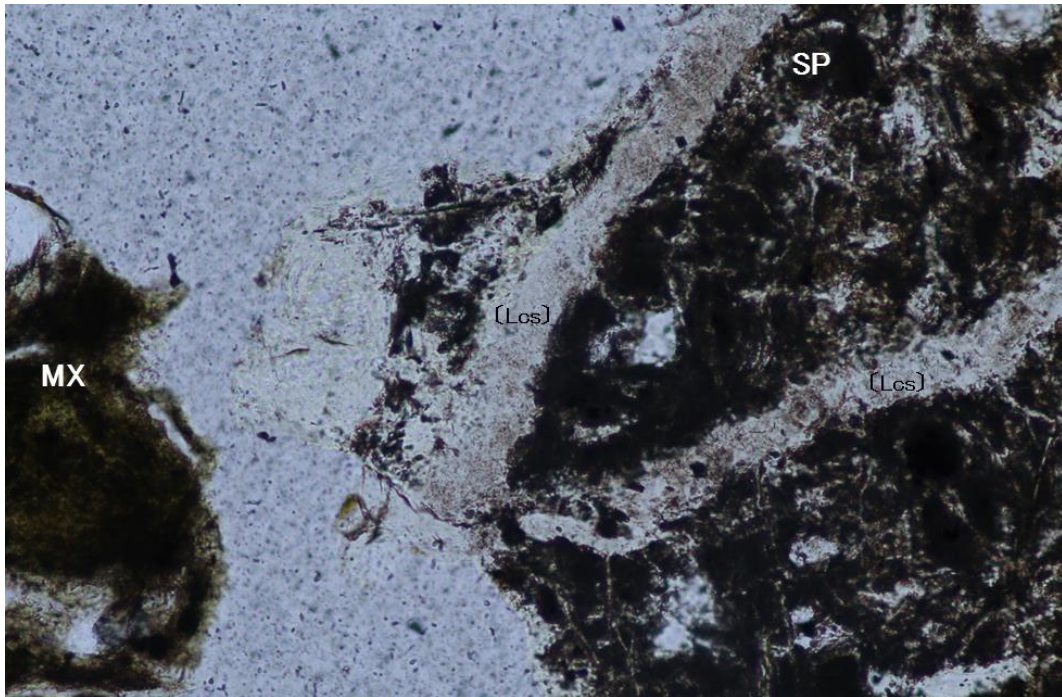
クロスニコル



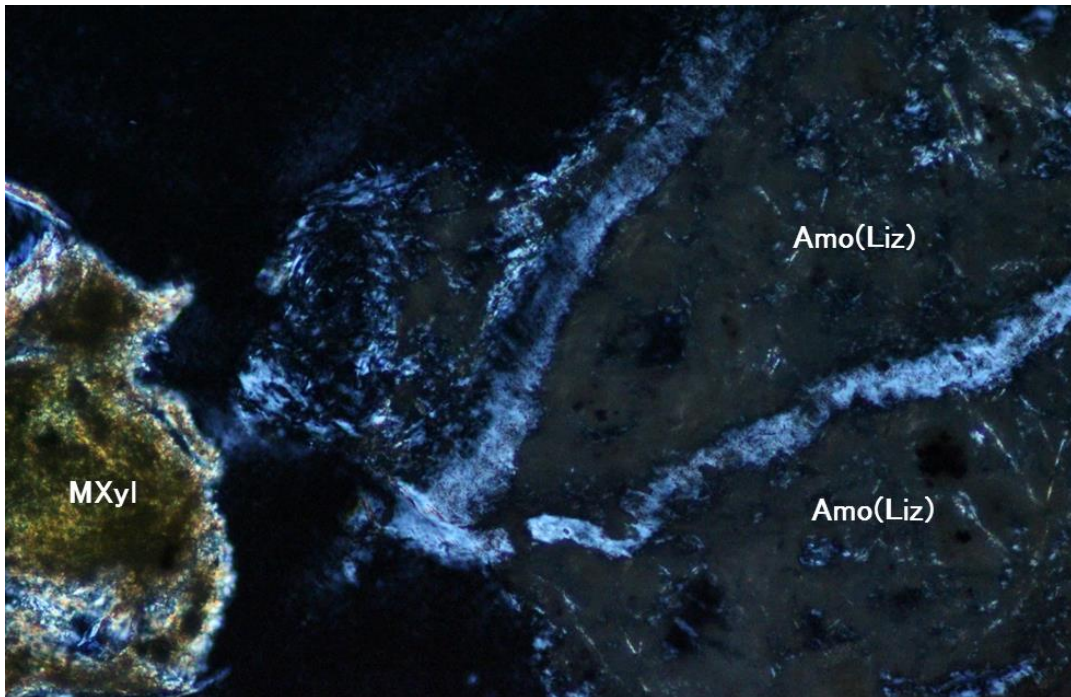
スケール 1.0mm 


図 2.7.5-22 偏光顕微鏡写真(PWST02-17-Rh-003, その2)

オープンニコル



クロスニコル



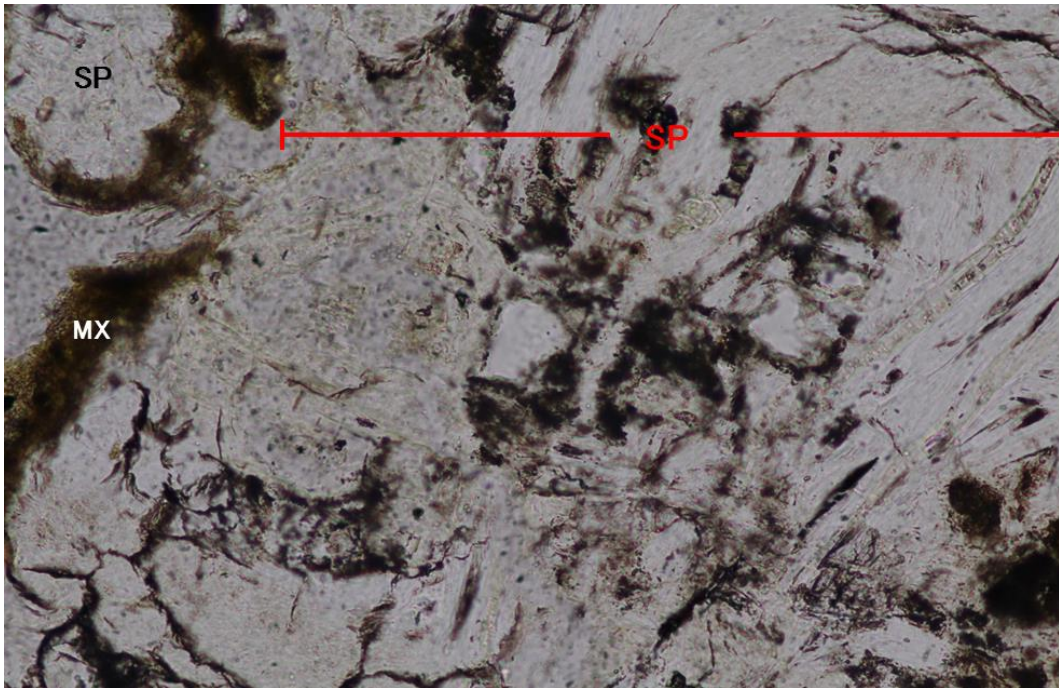
スケール 0.1 mm 

備考：風化作用が進んで非晶質化した蛇紋岩形成後に低温沈澱性の蛇紋石〔Lcs〕がフラクチャーを充填して生成している。基質のMXylはスメクタイトなどの可能性がある。

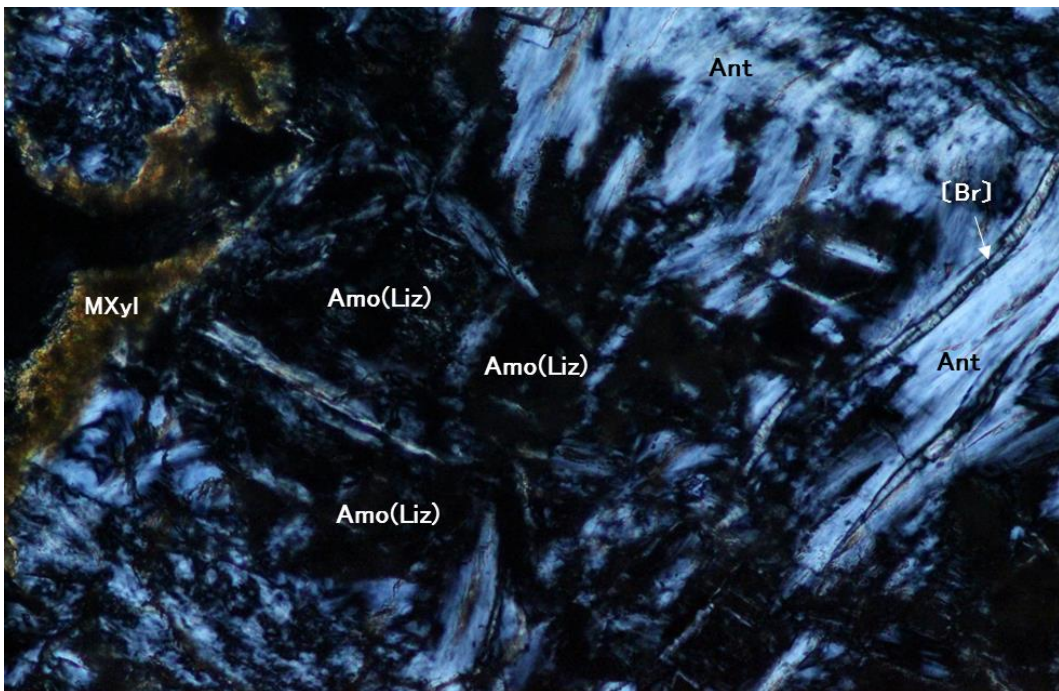
図 2.7.5-23 偏光顕微鏡写真(PWST02-17-Rh-003, その3)




オープンニコル



クロスニコル



スケール 0.1 mm 

備考：メッシュ組織を示すリザルダイト-クリソタイル蛇紋岩が島状に残存して、アンチゴライトが生成している蛇紋岩粒子。風化作用で選択的にリザルダイトが非晶質化 (Amo) する。リザルダイトが溶解した高 Mg 水からブルーサイト脈 [Br] 低温沈澱性蛇紋石類 [Lcs] が生成した可能性。

図 2.7.5-24 偏光顕微鏡写真(PWST02-17-Rh-003, その4)

a. 肉眼的特徴

褐色の基質中に黄灰白色に変質した細礫が混る細粒土。

b. 岩石組織

暗褐色の基質に径 4mm 以下の蛇紋岩粒子が散在する。ガラス片の多い部分（基質 MX I）と粘土分の多い部分（基質 MX II）が不均質に入り混じって分布。

c. 岩片・鉱物片

SP>>Chr>Opx>Cr

- ・ SP は角～亜角、径 0.4mm 以下。主として綾織組織を示すアンチゴライト蛇紋岩。一部、メッシュ組織を示すリザルダイトークリソタイル蛇紋岩。後者のメッシュ中心は Liz ないし Br が存在していたはずであるが、メッシュ格子の Chr が残存しているにもかかわらず、変質している。非晶質化が進んで干渉色暗灰になっていたり、微細な Op 集合体になっていたりする。また、メッシュを一部破壊して Ant が生成する粒子あり。この場合 Ant とメッシュ格子の Chr は新鮮であるが、センターの Liz は非晶質化している。
- ・ Chr は角～亜角。繊維状結晶の束状集合。長径 1.9mm 以下。伸長正の  $\gamma$  蛇紋石。
- ・ Opx は角～亜円。長径 0.9mm 以下。
- ・ Cr は角～亜角。径 0.4mm 以下。暗赤褐色。周囲が Mt 化するものから全体が Mt 化するものまでである。

d. 基質

MXyl>>MXgy>MXhi・MXah

- ・ MXyl は淡褐色～褐色。微細。
- ・ MXgy は灰色～帯褐灰色で、微細。干渉色灰。
- ・ MXhi は微細な葉片状。白雲母様の高次干渉色。Tc の可能性。
- ・ MXah は微量が鉱染状に散在。

e. 二次鉱物

Sm>Wsp・Chl・Zeo?・TC?・Op

[Br] [Lps]

- ・ Sm は褐色～黄褐色で微細。基質の Mxyl を構成。
- ・ Wsp は SP とそれに由来する鉱物片を交代。褐色～黄褐色、まれに赤褐色。
- ・ Ch はリザルダイトークリソタイル蛇紋岩や Opx の一部に生成。

- ・ Zeo は微細 MXgy を構成。
- ・ Op は微細で、風化作用が進んだ蛇紋岩中に密集。
- ・ [Br] はリザルダイトが非晶質化した蛇紋岩中の細脈。
- ・ [Lps] はリザルダイトが黒く非晶質化した粒子のフラクチャーに生成。

#### f. 備考

- ・ 目視で粒子が白っぽいのは、アンチゴライト蛇紋岩が卓越し、褐色風化を免れているためである。
- ・ [Lps] の産状はリザルダイトを含む蛇紋岩が、強く風化作用を受けた後に、そのフラクチャーに沿って地下水から結晶したことを示す。

#### g. 考察

この試料は、粗粒な蛇紋岩が混合する蛇紋岩質の碎屑性堆積物である。岩片・鉱物片としては、蛇紋岩（綾織組織のアンチゴライト、一部、リザルダイト・クリソタイルのメッシュ組織<一部、ブルーサイトに変質>）で構成されている。鉱物片としては、繊維状で束状集合のクリソタイル、微細な斜方輝石、クロムスピネル（粒子の周囲から磁鉄鉱化）などである。このような鉱物組成から、原岩はハルツバージャイト(?) である。

一方、基質における風化・変質域の量比は、MXyl > MXgy > MXhi > MXah の順であるが、ガラス片と粘土分の多い部分が不均質に混合しているのが特筆される。これらの前者2域は微細で粘土化や沸石化が顕著でない。MXhi 域は微細な葉片状で白雲母様の高い干渉色を示すが、タルクの可能性もある。MXah 域は、微少量であるが、非晶質な水酸化鉄が鉱染状に散在している。

二次鉱物は、MXyl 域でのスメクタイト、蛇紋石の風化鉱物（コーリンガイト）、緑泥石（蛇紋石<リザルダイト・クリソタイル>や、斜方輝石の一部を交代）、MXgy 域での沸石（可能性）、ブルーサイトなどである。また、露頭観察で白っぽいのは、アンチゴライト蛇紋岩の風化・変質の特徴である。

### 7) 岩石鉱物学的考察

#### a. 蛇紋石・鉱物他の風化作用を受けやすい順序

今回の鏡下観察から蛇紋岩関連鉱物が風化作用を受けて風化鉱物に変わったり、非晶質化（溶解）し易い順序が判断できる。風化し易い鉱物からしにくい鉱物への順に並べると、ブルーサイト→リザルダイト→クリソタイル→アンチゴライトの順となる。

これらの鉱物の溶解により高 Mg/Si 比の高アルカリ水が発生すると考えられる。アンチゴライトやクリソタイル粒子の多い土壌より、リザルダイトやブルーサイトが多い土壌が水と粒子との反応が速く進み、高 pH 水をより発生し易いと考えられる。

#### b. 土壌中の鉱物脈



これまでのデータから調査地域の蛇紋岩質土壌の基質には、スメクタイトや沸石が生成している。今回、基質の MXyl とした褐色～淡褐色基質（全体の 15～44%を占める）はスメクタイトが中心であると考えられる。

今回確認された蛇紋岩質土壌中の鉱物脈はスメクタイト様粘土鉱物〔YI〕、沸石〔Ze〕、非晶質物質〔Amo〕、低温沈澱性蛇紋石〔Lps〕、ブルーサイト〔Br〕である。

鏡下観察から、土壌中の鉱物脈は、Mg/Si 比の高い方から低い方へ並べると、〔Br〕→〔Lps〕→〔YI〕 ないし〔Ze〕と考えられる。

#### c. Al や Ca の供給の必要性

これらの脈が形成される前には、基質の多量のスメクタイトや沸石を沈澱することができる組成の地下水が供給されていたはずである。

スメクタイトの生成には Mg、Si のほかに Al が必要で、沸石（濁沸石、斜プチロル沸石）の生成にはさらに Ca が必要である。生成鉱物の多様性は土壌中を通過する地下水の組成の違いや時間変化を反映していると考えられる。生成する鉱物や鉱物脈の生成する試料の位置を空間的・時間的に把握し、基質・セメント物質・脈としてスメクタイト他の鉱物が生成する条件を水理地質構造との関係で検討する必要がある。

## 2.7.6 スメクタイトの定量

Narra サイトでみられる碎屑性堆積物中で、風化作用およびアルカリ変質作用によってどの程度スメクタイト化したかを評価するため、スメクタイトの含有率に着目して、光学顕微鏡観察によるモード分析、XRD/リートベルト解析、水簸分級した粘土成分の質量分析による定量分析を実施した。

### (1) モード分析

碎屑性堆積物の岩片・鉱物片および、基質を構成する鉱物組成と、特に基質における風化・化学的反応などにより生成（沈殿・交代など）された変質鉱物（粘土鉱物・沸石・非晶質な水酸化鉄、蛇紋石の風化鉱物<パイロオーライト、コーリンガイト>）に着目し、それぞれのモード鉱物の量比（重量%、体積%）を分析（偏光顕微鏡観察と構成鉱物のモード計測）した。これらのモード鉱物の組み合わせとその量比は、風化・変質プロセスと構成鉱物（造岩鉱物）の風化・変質程度の抵抗度指標として考慮し、検討した。

対象とした試料は、昨年度偏光顕微鏡観察を実施した[2]アルカリ環境下の苦鉄質岩（ハルツバージャイト）起源の碎屑性堆積物（上部層（砂質部））である（ただし、斑レイ岩質礫の影響でややAlが多い）PWT05-16-Rh-010 および本年度実施分の碎屑性堆積物（下部層（泥質部））である PWT07-17-Rh-001、アルカリ環境下の底部の白色の降下火山灰堆積物である PWT07-17-Rh-C03、アルカリ影響を受けていない風化蛇紋岩質碎屑性堆積物である PWST02-17-Rh-003 の計4試料である。

#### 1) 分析方法

偏光顕微鏡にメカニカルステージを設置し、倍率500倍にて、500点以上カウントした。

#### 2) 分析結果

モード鉱物の組み合わせとその量比の測定結果を表 2.7.6-1、岩片・鉱物片（粒子）と、基質の鉱物片および風化・変質域の量比の測定結果を図 2.7.6-1 に示す。測定では、粒径0.06mm以下の粒子は、「基質」としてカウントし、基質のその他を自生鉱物とし、粒間充填状やプール状の自生鉱物は「セメント」としてカウントした。なお、基質の自生鉱物は、以下のように4区分できる。

- ① Mxyl：（オープンニコル下）褐色～淡褐色で、（クロスニコル下）干渉色黄色のもの
- ② Mxhi：淡褐色葉片状で高干渉色のもの
- ③ Mxgy：Mxgy:無色～帯褐灰色葉片状で干渉色が低い（灰）もの
- ④ Mxah：赤褐色の非晶質水酸化鉄

これらの内、①はスメクタイト、②はコーリンガイトなど、③は沸石などの可能性が考えられる。また、PWT07-17-Rh-C03 でみられる脈状の黄褐色粘土鉱物〔YI〕もスメクタイトと考えられる。

分析結果から、最初に、風化環境下とアルカリ環境下における碎屑性堆積物のモード鉱物の組み合わせと、その量比について検討する。

風化環境下(PWSS02-17-Rh-003)における粒子(岩片・鉱物片)を構成する初生鉱物(出発物質)であるかんらん石の殆どが、蛇紋岩化作用に伴い蛇紋石(低温型のクリソタイル・リザルダイト)、一部、自形の高温型アンチゴライトと、少量の磁鉄鉱、ブルーサイト、タルク、不透明鉱物などである。それらのモード鉱物の量比は全体の60%強である。一方、基質の量比が主にMXylで、その他MXgy, MXah, MXhiの順で、全体の40%弱である。このことから、風化・変質の抵抗度は、60%強と見積もられる。

次に、アルカリ環境下の試料については、PWT07-17-Rh-C03は原岩組成を異にしているために、苦鉄質起源であるPWT07-17-Rh-001とPWT05-16-Rh-010の2試料を検討する。

アルカリ環境下にある前者の粒子は、初生鉱物であるかんらん石は、蛇紋岩化作用に伴い殆どが蛇紋石(リザルダイト・クリソタイル)に、斜方輝石も蛇紋石(リザルダイト)に変質し、一部、自形のアンチゴライト、磁鉄鉱、ブルーサイト、タルク、クロムスピネル、不透明鉱物、粘土鉱物などである。それらのモード鉱物の量比は、全体の45%程度である。一方、基質の量比は、MXyl, MXgy, MAahの順で、全体の55%程度である。このことから、風化・変質の抵抗度は、55%強と見積もられる。

アルカリ環境下にある後者の粒子は、初生鉱物であるかんらん石は蛇紋岩化作用に伴い、蛇紋石(リザルダイト・クリソタイル)、斜方輝石も蛇紋石に変質、自形のアンチゴライト、トレモラ角閃石、炭酸塩鉱物、磁鉄鉱などである。それらのモード鉱物の量比から、全体の25%程度である。一方、基質の量比は、MXyl, MXgy, MXah, MXhiの順で、全体の75%程度である。このことから風化・変質の抵抗度は、25%程度と見積もられる。また、PWT05-16-Rh-010は、斑れい岩由来の礫を含み、斜長石から供給されるAlの濃度が高いが、スメクタイト化には大きな影響はなく最もスメクタイト化が進展しており、Alはアルカリ環境下で生成するスメクタイトに容易に取り込まれると考えられる。

全体的な抵抗度を検討すると風化環境下のほうが、アルカリ環境下と比べて抵抗度が大きい。アルカリ環境下での抵抗度の差は、原岩の苦鉄質鉱物、取り分けかんらん石と斜方輝石のモード鉱物の組み合わせとその量比の多い方が、これらの苦鉄質鉱物がアルカリ環境下で選択的に溶脱するために、岩石としての抵抗度が下がる結果となるものと解釈できる。

これらの風化過程あるいはアルカリとの相互作用によって生成した各試料のスメクタイト含有量は、PWT05-16-Rh-010で44.1%、PWT07-17-Rh-001で39.3%、PWST02-17-Rh-003で33.0%とおおよそ1/3以上がスメクタイトである可能性が示唆された。

一方、PWT07-17-Rh-C03ではスメクタイト含有量が16.4%と他よりも少ない結果となった。他の碎屑性堆積物とは傾向が異なり、岩片に軽石(3.8%)、基質に火山ガラス(16.9%)がみられる降下火山灰堆積物である。偏光顕微鏡観察から変質していない火山ガラスが多く確認されており、アルカリ環境下でも火山ガラスの変質はそれほど進展しておらず、スメクタイト化もそれほど進んでいない。

モード分析によるスメクタイトの定量結果は XRD のピークの強さとほぼ整合するが、XRD からはアルカリ環境下の苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物である、PWT05-16-Rh-010 と PWT07-17-Rh-001 はさらにスメクタイト化が進んでいる可能性がある。

表 2.7.6-1 モード分析結果

試料番号	岩 片																						岩片計		
	蛇 紋 岩																				軽石	その他			
	初生鉱物				2 次 鉱 物																				
	かんらん石	斜方輝石	単斜輝石	クロムスピネル	リザルダイト (メッシュセンター) (かんらん石仮像)	クリソタイル (メッシュ格子) (かんらん石仮像)	リザルダイト (バスタイト) (斜方輝石仮像)	アンチゴライト	ブルーサイト	磁鉄鉱	緑泥石	タルク	低温沈澱性蛇紋石/ブルーサイト	炭酸塩鉱物	その他										
	記号	Ol	Opx	Cpx	Cr	Li(Ol)	Ch(Ol)	Li(Opx)	An	Br	Mt	Chl	Tc	Lcs	Cb	Ots	PM	Otl							
細区分					非変質	変質	非変質	褐色変質	非変質	褐色変質		非風化	褐色風化		非風化	褐色風化		非風化	褐色風化						
記号					-nm	-alt	-nm	-alt	-nm	-alt		-nm	-alt		-nm	-alt		-nm	-alt						
PWT05-16 Rh-010	カウント	1	0	0	0	7	6	0	13	0	4	4	0	0	1	3	4	0	0	6	0	0	0	0	49
	%	0.2	0.0	0.0	0.0	1.3	1.2	0.0	2.5	0.0	0.8	0.8	0.0	0.0	0.2	0.6	0.8	0.0	0.0	1.2	0.0	0.0	0.0	0.0	9.4
PWT07-17 Rh-001	カウント	0	1	0	3	59	32	24	17	11	9	3	0	6	1	10	3	0	1	0	0	12	0	0	192
	%	0.0	0.2	0.0	0.6	10.8	5.9	4.4	3.1	2.0	1.7	0.6	0.0	1.1	0.2	1.8	0.6	0.0	0.2	0.0	0.0	2.2	0.0	0.0	35.1
PWT07-17 Rh-C03	カウント	0	0	0	0	0	20	1	10	0	2	0	0	0	0	2	0	0	0	0	0	0	20	0	55
	%	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	3.8	0.2	1.9	0.0	0.4	0.0	0.0	0.0	0.0	0.4	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	3.8	0.0	10.5
PWST02-17 Rh003	カウント	0	0	0	0	25	81	38	3	3	0	157	1	0	4	0	0	0	0	0	0	0	0	0	312
	%	0.0	0.0	0.0	0.0	4.7	15.3	7.2	0.6	0.6	0.0	29.6	0.2	0.0	0.8	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	58.9

試料番号	鉱物片(集合体含む)															植物遺体		基 質												セメント・ブール・脈						
	鉱物片計													生物遺体計		鉱物片				自生鉱物				基質計												
	クリソタイル	タルク	トレモラ閃石	炭酸塩鉱物	斜方輝石	単斜輝石	普通角閃石	石英	斜長石	クロムスピネル	火山ガラス	その他			火山ガラス	粘土化鉱物	不透明鉱物	その他	褐色～淡褐色	淡褐色	灰～帯褐色	赤褐色	基質自生鉱物計	基質計	干渉色黄	非晶質物質	低温沈澱性蛇紋石	セメント・ブール・脈計								
	記号	Chm	Tem	Trm	Cbm	Opxm	Cpxm	Hbm	Qzm	Plm	Crn	Gl	Otm			Glx	Clx	Ox	Otx	MXyl	MXhi	MXgy	MXah	Σ xa	Σ mx	[YI]	[Amo]	[Lcs]	Σ cm							
	細区分	非変質	褐色変質			非変質	褐色変質							Σ m	非ブルーサイト置換	ブルーサイト置換	Σ c																			
記号	-nm	-alt			-nm	-alt								-nm	-alt		-nm	-alt																		
PWT05-16 Rh-010	カウント	3	8	5	9	1	14	6	3	0	2	6	5	0	0	62	2	0	2	0	3	0	8	3	4	18	231	12	76	74	393	411	0	0	0	0
	%	0.6	1.5	1.0	1.7	0.2	2.7	1.2	0.6	0.0	0.4	1.2	1.0	0.0	0.0	11.8	0.4	0.0	0.4	0.0	0.6	0.0	1.5	0.6	0.8	3.4	44.1	2.3	14.5	14.1	75.0	78.4	0.0	0.0	0.0	0.0
PWT07-17 Rh-001	カウント	11	5	2	1	0	12	4	1	0	0	0	4	0	4	44	1	0	1	0	3	0	3	0	2	8	215	0	59	28	302	310	0	0	0	0
	%	2.0	0.9	0.4	0.2	0.0	2.2	0.7	0.2	0.0	0.0	0.0	0.7	0.0	0.7	8.0	0.2	0.0	0.2	0.0	0.6	0.0	0.6	0.0	0.4	1.5	39.3	0.0	10.8	5.1	55.2	56.7	0.0	0.0	0.0	0.0
PWT07-17 Rh-C03	カウント	1	2	0	0	0	6	0	2	50	0	9	0	110	9	189	0	0	0	89	0	10	3	1	10	113	81	0	71	17	169	282	5	8	0	13
	%	0.2	0.4	0.0	0.0	0.0	1.1	0.0	0.4	9.5	0.0	1.7	0.0	20.9	1.7	35.9	0.0	0.0	0.0	16.9	0.0	1.9	0.6	0.2	1.9	21.5	15.4	0.0	13.5	3.2	32.1	53.6	1.0	1.5	0.0	2.5
PWST02-17 Rh003	カウント	8	1	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	11	0	0	0	0	0	0	3	1	3	7	175	6	12	7	200	207	0	0	5	5
	%	1.5	0.2	0.2	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.2	2.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.6	0.2	0.6	1.3	33.0	1.1	2.3	1.3	37.7	39.1	0.0	0.0	0.9	0.9





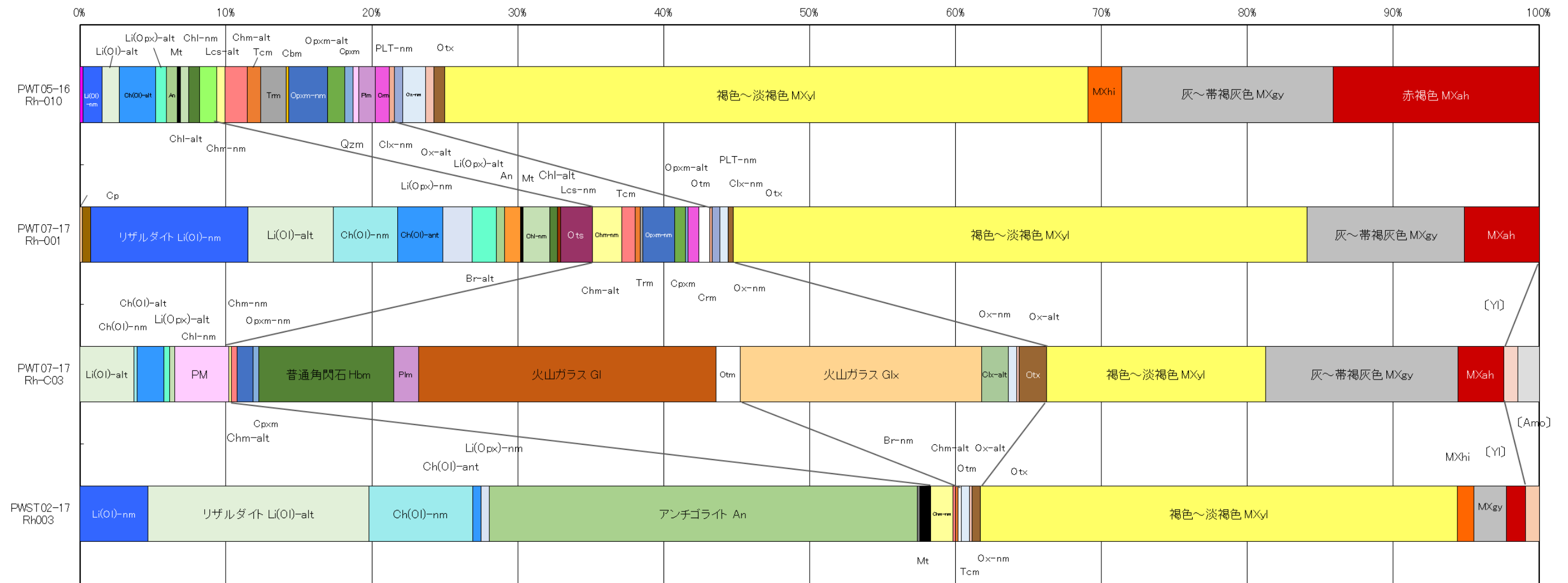


図 2.7.6-1 モード分析結果



## (2) XRD/リートベルト法

スメクタイトがみられる碎屑性堆積物等を対象として、XRD/リートベルト法により試料中のスメクタイトの定量分析を実施した。対象とした試料は、アルカリ環境下の碎屑性堆積物（下部層(泥質部)）である PWT06-17-Rh-010 と PWT07-17-Rh-001、アルカリ環境下の碎屑性堆積物（上部層(砂質部)）である PWT06-17-Rh-007、アルカリ環境下の底部の白色細粒砂質堆積である PWT07-17-Rh-C03、アルカリ環境下の碎屑性堆積物（下部層(泥質部)）で白色細粒砂質堆積層近傍の PWT07-17-Rh-002 (PWT07-17-Rh-C03 の下位) と PWT07-17-Rh-003 (PWT07-17-Rh-C03 の上位)、アルカリ影響を受けていない風化蛇紋岩質碎屑性堆積物である PWST02-17-Rh-003 と PWST02-17-Rh-005、アルカリ影響を受けていない班れい岩質碎屑性堆積物である PWT08-17-Rh-001 の計 9 試料である。

### 1) 分析方法

試料は真空乾燥後の固相を 0.14g 秤量し、当量のセメダインCとメノウ乳鉢上で合わせてアセトンで希釈しながら混練し、最終的に真空デシケータ内で乾燥させた微粉末試料を用いた。これにより完全な不定法位状態を維持できる。測定は XRD 装置、Bulker D2 Phaser を用いて行った。XRD データのリートベルト解析には Bulker TOPAS を用いて行い、データベースは ICCD の結晶データを引用してフィッティング解析した。作業標準試料として地質調査センターの JP-1（超塩基性岩）の解析結果を図 2.7.6-2 に示す。

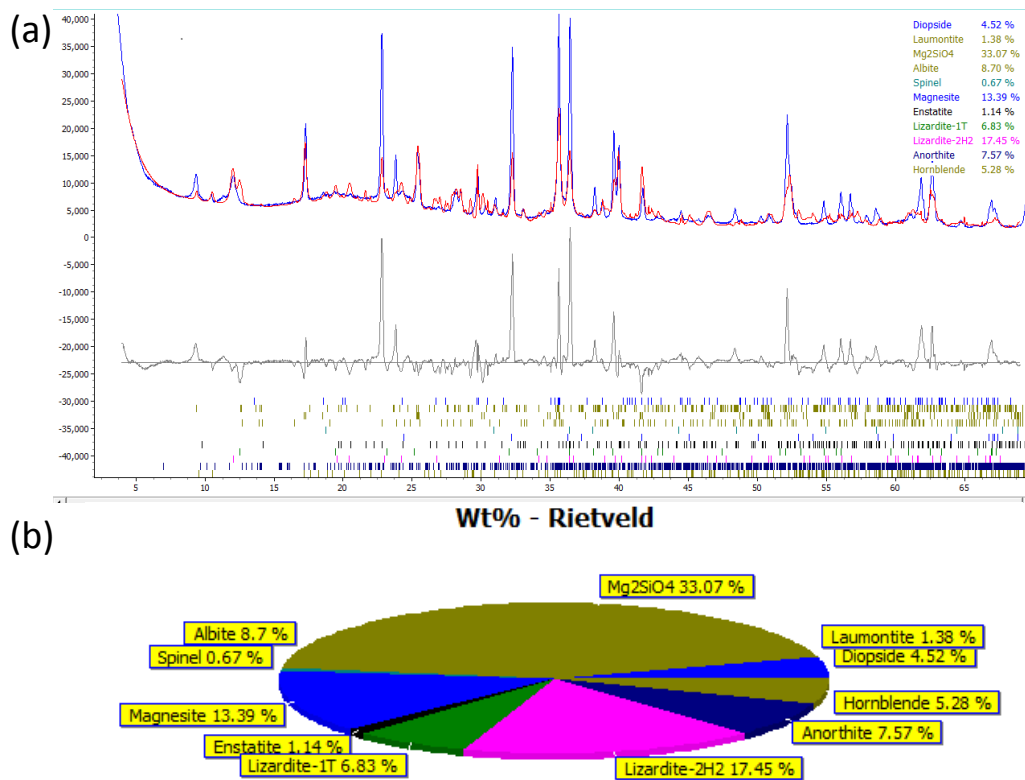


図 2.7.6-2 JP-1 試料の XRD リートベルト解析結果

## 2) XRD 測定値の解析結果

図 2.7.6-3～図 2.7.6-11 に各試料の XRD チャートとリートベルト解析結果を示す。

これらの解析結果を同定した鉱物ごとの質量%が比較できるように表 2.7.6-2 にまとめた。得られた定量結果では、不定方位法 XRD のピーク強度やモード分析の結果と以下の点で整合しない。①スメクタイトの含有量が低くまた、アルカリ環境下でよりスメクタイト化が進んでいるとみられるが、リートベルト法ではあまり差は見られない。②トバモライト、角閃石が多すぎる。③トレンチ 8 (PWT08-17-Rh-001) は斑れい岩質碎屑性堆積物で最も斜長石(曹長石)の含有量が多いとみられるが、他の試料と同じかやや少ない。④アルカリ影響のないストリップング試料 (PWST02-17-Rh-003 及び PWST02-17-Rh-005) は蛇紋石の含有量が最も多いとみられるが、他の試料とほぼ変わらない。

鉱物の定量が難しい理由としては、アルカリや風化による変質が著しい試料で非晶質物質が多く含まれることが考えられる。

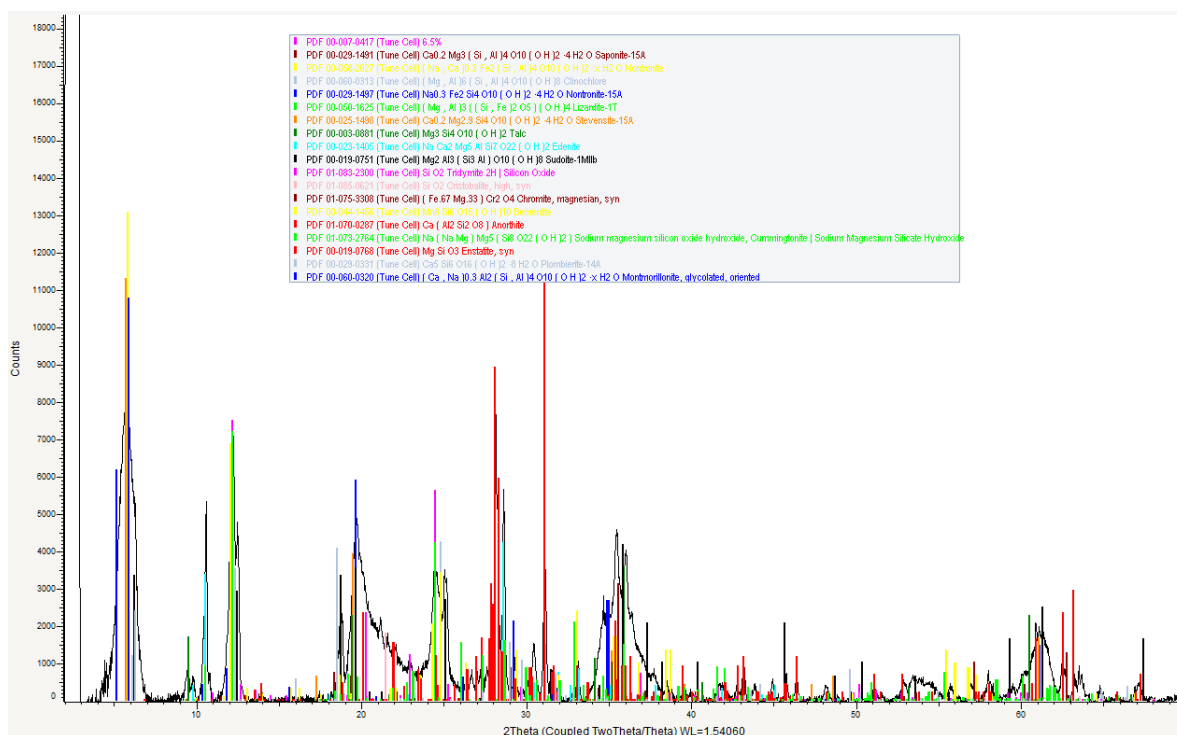


図 2.7.6-3 PWT06-17-Rh-010 のリートベルト解析結果



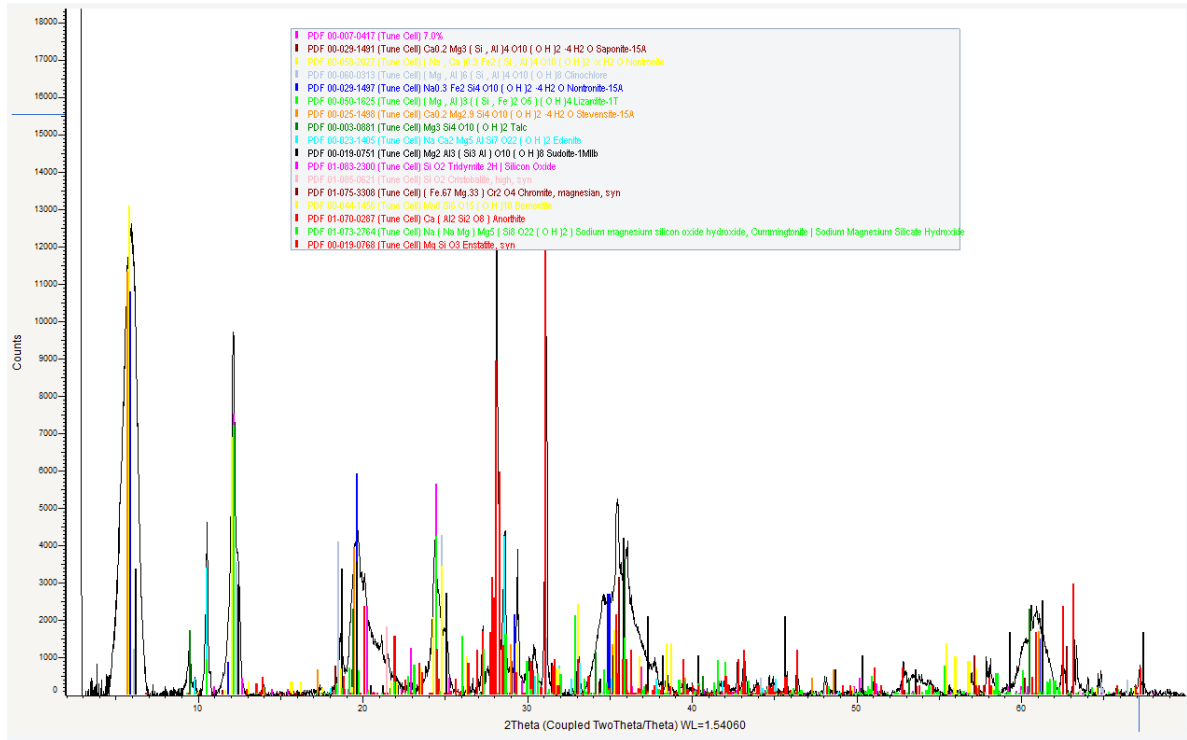


図 2.7.6-4 PWT07-17-Rh-001 のリートベルト解析結果

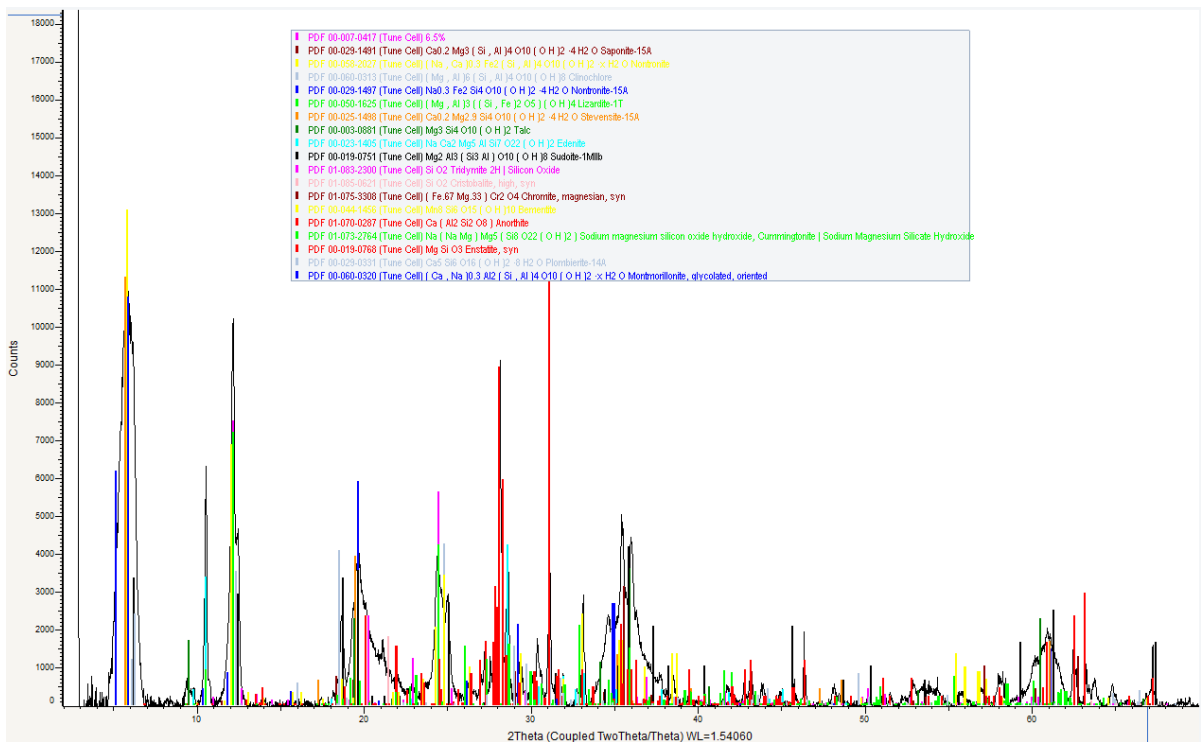


図 2.7.6-5 PWT07-17-Rh-002 のリートベルト解析結果

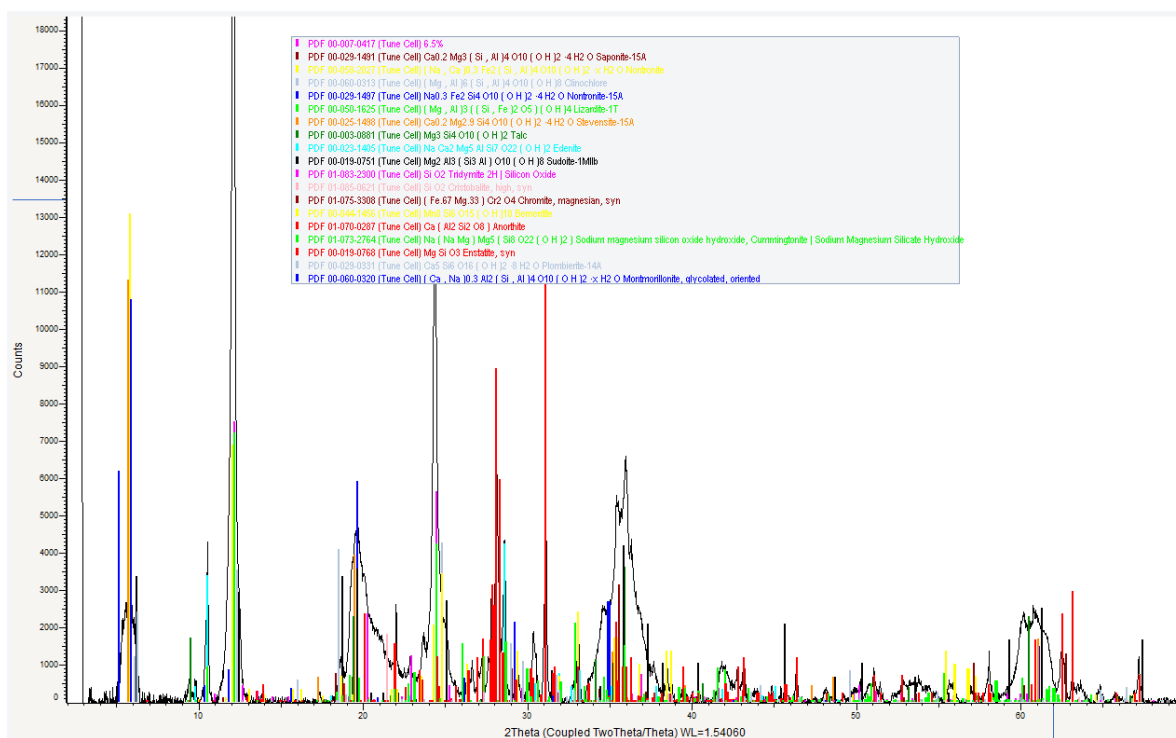


図 2.7.6-6 PWT07-17-Rh-003 のリートベルト解析結果

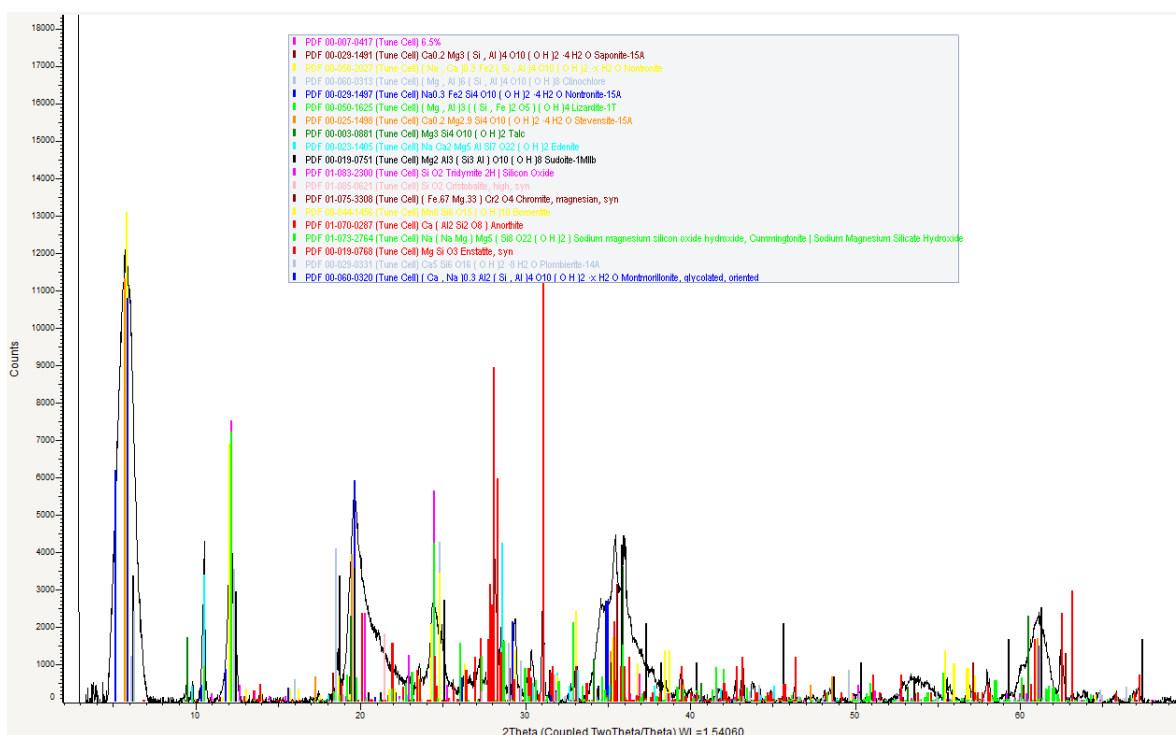


図 2.7.6-7 PWT07-17-Rh-007 のリートベルト解析結果

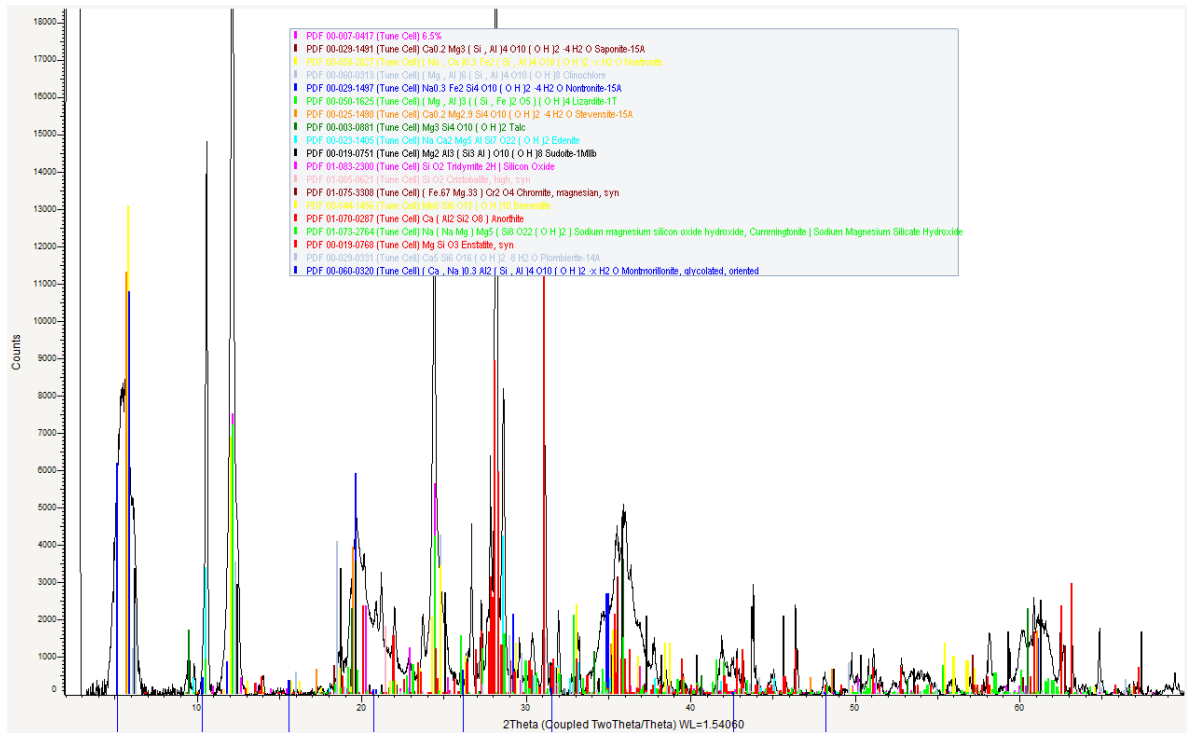


図 2.7.6-8 PWT07-17-Rh-C03 のリートベルト解析結果

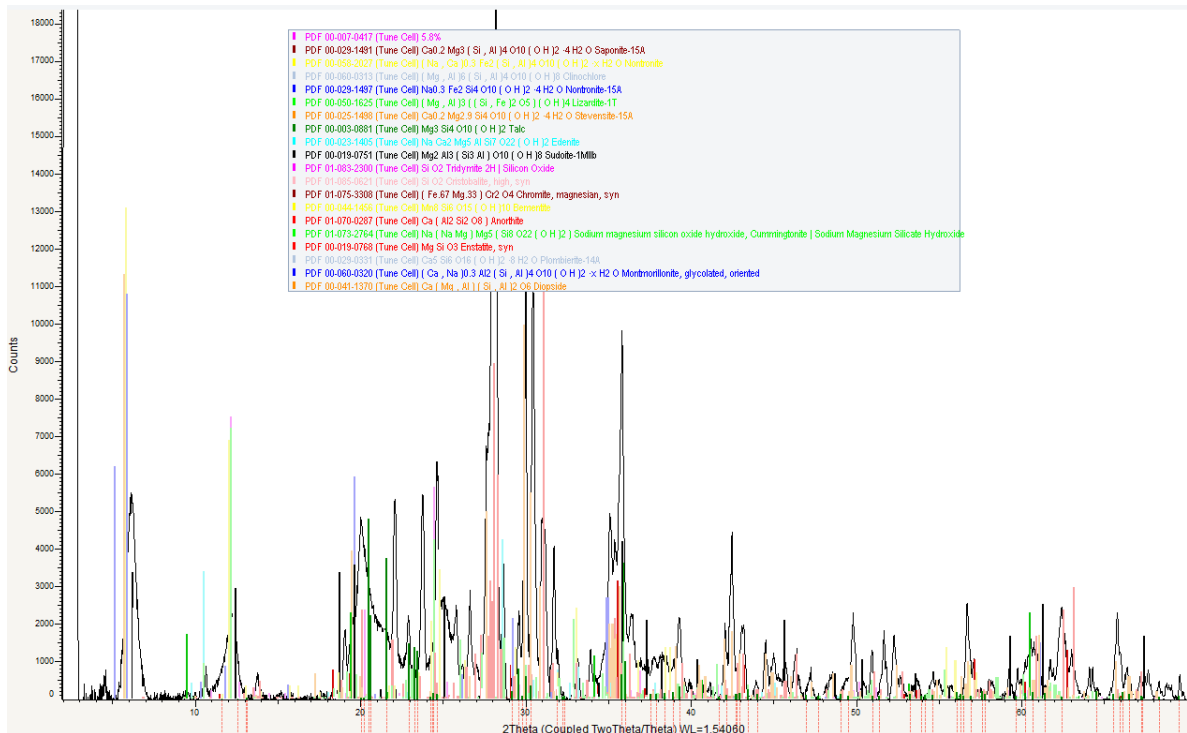


図 2.7.6-9 PWT08-17-Rh-001 のリートベルト解析結果

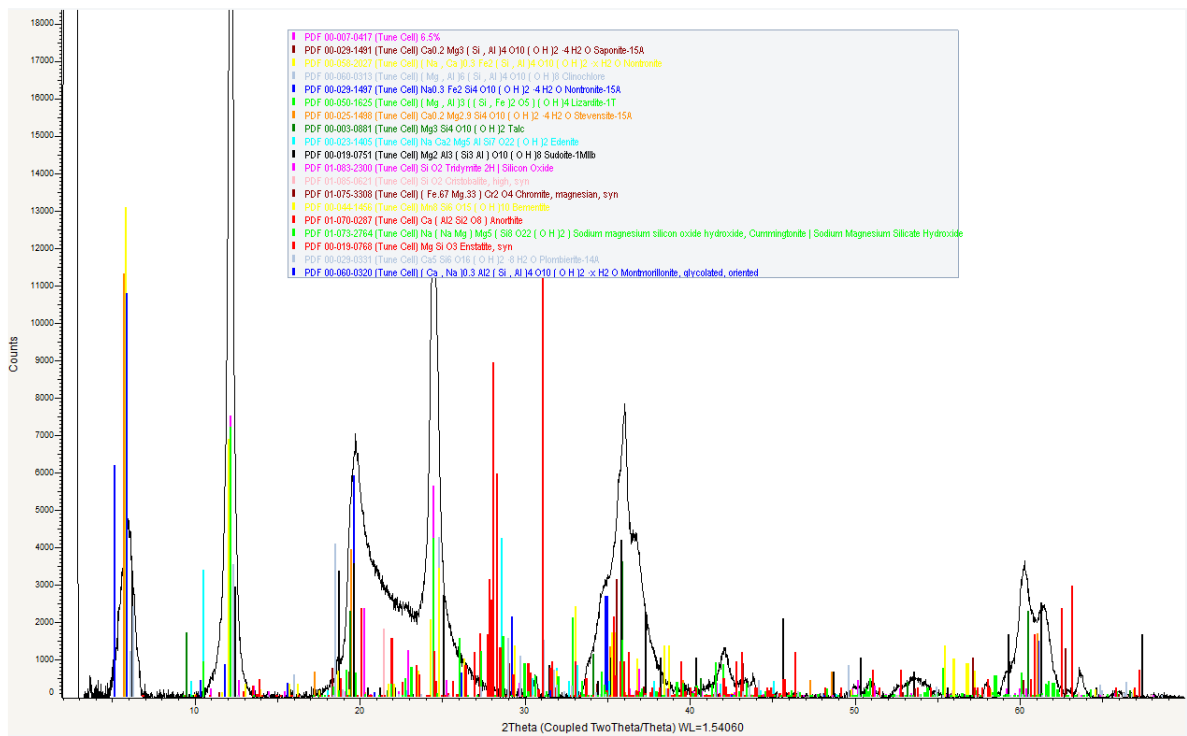


図 2.7.6-10 PWST02-17-Rh-003 のリートベルト解析結果

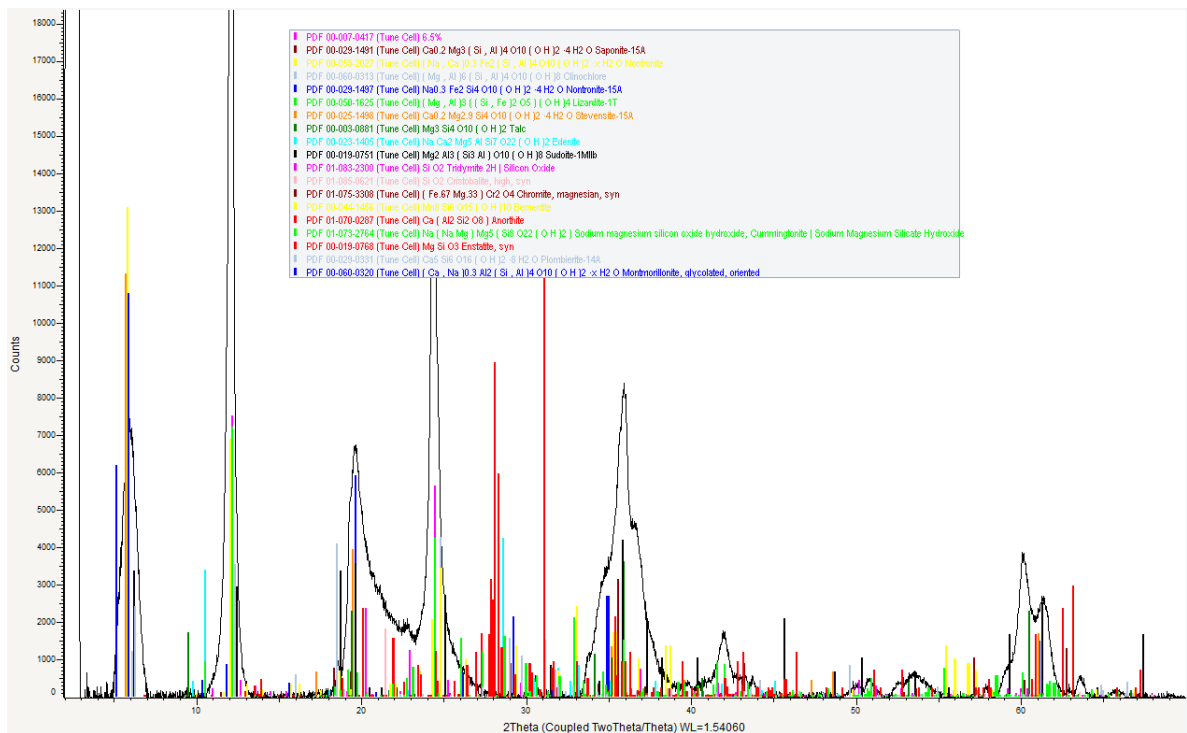


図 2.7.6-11 PWST02-17-Rh-003 のリートベルト解析結果

表 2.7.6-2 リートベルト解析結果

Sample ID	Stratigraphic order	Albite	Chlorite	Chrysotile	Saponite	Tobermorite	Calcite	Cumingtonite	Hornblende	Olivine	Diopside	Enstatite	Nontronite	Gismondine	Chromite	total
PWST02-17-Rh-003	0	5.91	7.99	1.55	3.74	3.68	0	4.96	53.77	0	6.62	1.63	4.81	4.71	0.63	100
PWST02-17-Rh-005	0	5.45	8.1	1.45	5.05	4.7	0	4.13	51.9	0	6.28	1.39	5.79	5.14	0.61	99.99
PWT06-17-Rh-010	8	6.82	6.31	2.57	8.75	11.74	0.53	7.05	37.11	0	2.7	1.49	7.56	6.52	0.85	100
PWT07-17-Rh-001	8	4.85	5.15	1.79	8.53	13.28	5.01	5.17	38.77	0	4.85	2.59	4.94	4.34	0.74	100.01
PWT07-17-Rh-002	7	7.27	6.97	2.97	8.99	14.31	0.27	9.19	29.7	0	5.52	1.71	6.28	6.04	0.78	100
PWT07-17-Rh-003	6	5.17	6.17	1.27	5.05	8.71	1.11	5.15	48.55	0	6.88	3.04	3.78	4.57	0.54	99.99
PWT07-17-Rh-007	2	4.93	8.51	2.59	9.55	10.62	0	8.3	34.6	0	4.26	2.61	8.53	4.49	1.01	100
PWT07-17-Rh-C03	9.5	7.45	8.11	1.58	7.38	12.37	10.07	7.02	22.22	0	7.84	3.22	6.52	5.15	1.07	100
PWT08-17-Rh-001	9	4.66	8.05	0.78	7.43	21.41	3.13	5.53	23.46		8.06	6.19	5.65	4.58	1.09	100.02

(3) 粘土成分の定量分析

スメクタイトがみられる碎屑性堆積物等を対象として、水簸により分級した粘土成分の定量分析を実施した。この方法ではスメクタイト以外の粘土成分も若干含まれるが、水簸を繰り返すことにより、おおよそのスメクタイト成分の定量が可能である。

対象とした試料は、アルカリ環境下の碎屑性堆積物（下部層（泥質部））である PWT03-16-HU-001、PWT06-17-HU-001 と PWT07-17-HU-005、アルカリ環境下の碎屑性堆積物（上部層（砂質部））である PWT03-16-HU-002 と PWT06-17-HU-007、アルカリ環境下の底部の白色の降下火山灰堆積物である PWT07-17-HU-002、アルカリ影響を受けていない風化蛇紋岩質碎屑性堆積物である PWST02-17-HU-005、アルカリ影響を受けていない班れい岩質碎屑性堆積物である PWT08-17-HU-008 の計 8 試料である。

1) 分析方法

打砕いた試料 10g を 50℃で 6 時間以上乾燥させ、乾燥後の固相を 1.0g 秤量（重量①）し、蒸留水 40ml を加えた試料を 15 秒超音波攪拌して 15 分静置し、上澄みを捨てる。この作業を濁らなくなるまで繰り返した後、50℃で 6 時間以上乾燥させ、重量を測定する（重量②）。この結果から、粘土成分の重量に相当する質量差（重量①－重量②）を求める（図 2.7.6-12）。

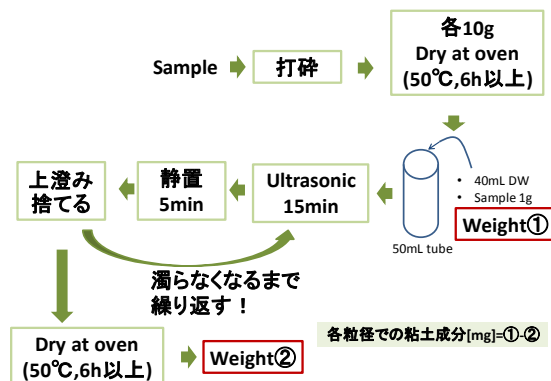


図 2.7.6-12 粘土成分定量の手順



## 2) 粘土成分の定量分析結果

粘土成分の定量分析結果を表 2.7.6-3 と図 2.7.6-13 に示す。

苦鉄質岩起源の風化環境下(PWST02-17-HU-005)とアルカリ環境下(PWT03-16-HU-001, PWT03-16-HU-002, PWT06-17-HU-001, PWT06-17-HU-007, PWT07-17-HU-005)の試料との比較で、アルカリ環境下の碎屑性堆積物の粘土成分にはばらつきがあるものの、総じて風化環境下の碎屑性堆積物よりも粘土成分が多い、すなわち、よりスメクタイト化が進んでいることがわかる。この結果は光学顕微鏡のモード分析の結果とも整合する。

アルカリ環境下の苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物の上部層(砂質部)と下部層(泥質部)の比較では、泥質部のほうがよりスメクタイト化が進んでいると予想されたが、どちらかがスメクタイトが顕著であるという明確な傾向はみられなかった。ただし、本質的には堆積物の粒度が小さいほど、より高アルカリ地下水との溶解・沈殿反応が進み、スメクタイト化が進むとみられるが、現地の堆積物の粒度のばらつきがそれ以上にあったため、明確な差がみられなかったと考えられる。一方、上部層(砂質部)は高アルカリ地下水との反応時間が短いことから、それでもアルカリ環境下でのスメクタイト化はどの試料みられ、苦鉄質鉱物等の溶解に伴い比較的早くスメクタイト化するものと示唆される。

アルカリ環境下の降下火山灰堆積物(PWT07-17-HU-002)は、スメクタイト化が最も進んでなく(粘土成分:34.3%)、これもモード分析の結果と整合する。したがって、火山ガラスはやはりアルカリ環境下でそれほど変質していないとみられる。

風化環境の斑れい岩質碎屑性堆積物(PWT08-17-HU-008)は同様に風化環境の苦鉄質碎屑性堆積物と粘土成分について大差はみられない。したがって、Al成分の量比そのものがスメクタイト化に影響するというのではなく、堆積物中の主要鉱物が風化過程あるいはアルカリ環境下でどの程度溶解が進むかが、スメクタイト化の割合を律速しているものと推察される。

表 2.7.6-3 粘土成分の定量分析結果

サンプル	平均(質量%)	標準誤差
PWT03-16-HU-001	51.21456	1.091427
PWT03-16-HU-002	49.91754	9.83214
PWT07-17-HU-002	34.31221	4.001783
PWT07-17-HU-005	53.93041	3.242296
PWT06-17-HU-001	67.77926	2.134482
PWT06-17-HU-007	78.89704	0.738048
PWT08-17-HU-008	53.23532	2.417161
PWST02-17-HU-005	51.05753	1.915869

### 粘土成分定量

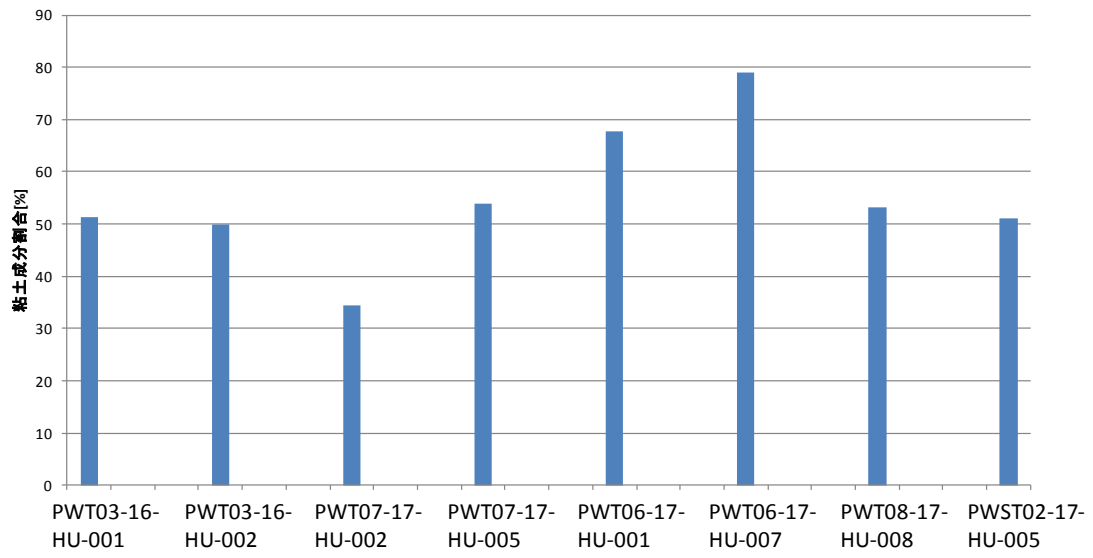


図 2.7.6-13 粘土成分の定量分析結果

## 2.8 まとめ

オフィオライト起源の高アルカリ地下水が現在もスメクタイトを含む碎屑性堆積物に浸出している **Active Type** のナチュラルアナログを確認した **Narra** 地区において、スメクタイトの地球化学的環境の状態変化に伴う鉱物学的変遷とその安定性の評価を目的として、地質環境調査（地質精査（ルートマッピング）、トレンチ等による露頭観察と試料採取、トレンチ内湧水等の地下水調査、基盤岩であるパラワンオフィオライトの岩石鉱物学的な露頭観察を実施した。特に、スメクタイトの生成についてアルカリ地下水との相互作用かアルカリ地下水を介しない風化によるものとの差を明らかにするために、アルカリ影響を受けていない露頭及びアルカリ環境下にある平原（**Narra3-2** サイト）におけるトレンチ調査及びストリッピング調査を重点的に実施した。

地下水調査では、**Narra3-1** 地点の高アルカリ源泉の南東約 100m 下流側に分布する石灰華（**Travertine**）の平坦地となっている **Narra3-2** 地点で調査したトレンチ 5～7（トレンチ 6、7 は今年度掘削）において実験ではスメクタイトの溶解が顕著になる pH11 程度の高アルカリ地下水が浸出している碎屑性堆積物を確認した。これまでの高アルカリ地下水と同様に **Mg** 濃度が低く、**Ca** 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もち、このような高アルカリ地下水が、炭酸塩沈殿物が見られ、河川系扇状地的な地形的特徴をもつ **Narra3-2** 調査サイト全域の地下に高アルカリ地下水が流動していると考えられる。

ルートマッピングに基づき、アルカリ影響を受けていない蛇紋岩化作用を受けたハルツバージャイトが露出しているストリッピング掘削地点（ストリッピング 1～3）を選定した。また、トレンチ 4 及び 5 で観察される頭大サイズの斑れい岩礫の供給源を探索し、**Babatou** 滝から上流のクリーク沿いで基盤岩に貫入した細粒斑れい岩の岩脈露頭を確認した。

トレンチ調査では、下部層を構成する粘土質の碎屑性堆積物の分布状況とその走行・傾斜方向および、基盤深度から、平成 28 年度に実施したトレンチ 3～5 に対して、より東傾斜で、走行に平行な 2 サイトをトレンチ掘削地点（トレンチ 6～7）として選定した。また、アルカリとの相互作用がない物理的風化環境下にある碎屑性堆積物の採取するためのトレンチとして、**Narra3-2** サイトの南西部の小高い丘を形成している地点（トレンチ 8）を選定した。トレンチ 6 及びトレンチ 7 の岩質は、既存のトレンチ（トレンチ 2～5）と同様で、最上位から、(i)未固結なトラバーチン起源の炭酸塩沈殿物、(ii)比較的固結した炭酸塩堆積物、(iii)黒色で粗粒砂質な碎屑性堆積物で、パッチ状に粘土質マトリックスが偏在的に挟在、(iv)(iii)の下位にルーズで不規則に配列したパラワンオフィオライト起源（一部斑れい岩を含有）の扁平な巨礫や垂円礫が層間内礫層として挟在、(v)トレンチ底部の黒色の泥質（一部粘土化）な碎屑性堆積物である。ただし、トレンチ 7 では、床面近傍に、特異的な淡灰色からクリーム色な層厚約 20cm で、ほぼ水平に連続性のある細粒砂質堆積物（一部泥質なマトリックス）が観察された。この特異的な堆積物の偏光顕微鏡観察および、EPMA 分析から、降下火砕堆積物起源の火山灰・新鮮な火山ガラス、自形から半自形の斜長石などから構成される火山碎屑性堆積物と考えられる。但し、この降下火山灰堆積物の供給源については明らかではないが、分級度が顕著でないことから判断すると、遠くから運ばれ、深い海底に降下・堆積したものではないと推察される。また、この降下火山灰堆積物を含むトレ

ンチ 6、7 の碎屑性堆積物には高アルカリ地下水が浸出している。一方、トレンチ 8 は高アルカリ地下水の浸出が見られない、未固結で、淡褐色のルーズな砂質の風化堆積物であった。

ストリッピング調査では、各ストリッピングにおいて細屑化の度合いに差がみられるものの、大きな違いはなく、基盤岩の表層部は、塊状で、節理周辺での角礫化と、割れ目系優勢部での細礫化に伴う岩屑が顕著な物理的風化堆積物で構成されている。細礫化が顕著である風化堆積物では、アルカリ地下水を介しない風化によるスメクタイト生成が期待されるため、これらの岩石試料を鉱物試験のために採取した。

岩石鉱物学的調査として、トレンチ及びストリッピングから採取した試料を対象として、XRD による鉱物分析、XRF による全岩化学分析、薄片の光学顕微鏡観察、スメクタイトの定量分析を実施した。

XRD 分析では、定方位法 X 線回折パターンのエチレングリコール処理後のピークシフトから、トレンチ及びストリッピングで採取したすべての試料でスメクタイトを同定した。アルカリとの相互作用のあるトレンチ 6、7 の超塩基性岩起源の碎屑性堆積物はスメクタイト化が進んでいるが、トレンチ 7 の降下火山灰堆積物及びアルカリとの相互作用のないトレンチ 8 の風化堆積物はスメクタイトの相対強度は低く、スメクタイト含有量は少ないとみられる。そのトレンチ 8 の風化堆積物には斜長石（曹長石）、普通輝石、角閃石、蛇紋石が同定され、斑れい岩由来の堆積物であると考えられる。一方、トレンチ 7 の降下火山灰堆積物も斜長石（曹長石）、角閃石の相対強度が高いが、石英がみられるのに対し普通輝石が全くみられない点が、トレンチ 8 の斑れい岩由来の堆積物の鉱物組み合わせとは異なる。アルカリとの相互作用のないストリッピングの風化堆積物は、蛇紋石が主要な鉱物であり、トレンチの超塩基性岩起源の碎屑性堆積物に比べるとスメクタイトの相対強度は低く、また鉱物のバリエーションが圧倒的に少ない特徴をもつ。

XRF 分析では、パラワンオフィオライト超苦鉄質複合岩体を構成する蛇紋岩化が進んだハルツバージャイト（主成分鉱物は斜方輝石、かんらん石で、少量の単斜輝石および、少量のクロム鉄鉱と磁鉄鉱など）起源であるトレンチの碎屑性堆積物とストリッピングの蛇紋岩質風化堆積物は原岩のバルク組成を反映し、MgO, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に富み、CaO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に著しく乏しく、Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O にも乏しい。また、シリカ成分(SiO<sub>2</sub>)に乏しい不飽和な超塩基性岩としての特性もある。トレンチの碎屑性堆積物の下位層・上位層の関係では、下位の深度が深くなるほど（より泥質になるほど）SiO<sub>2</sub> 含有率は低くなるのに対して、逆に MgO は高くなる傾向がある。トレンチ・ストリッピング両者の比較では、ストリッピングの蛇紋岩質風化堆積物は、スメクタイト化がより進んでいるトレンチの碎屑性堆積物に比べて SiO<sub>2</sub> が少なく、CaO はほとんどない。CaO の違いは、アルカリ環境下で CaO が供給されるトレンチ試料と違い、風化過程で Ca 成分が溶脱しているためだと考えられる。また、トレンチの碎屑性堆積物でもいえるが、同じハルツバージャイトを起源とするストリッピングの蛇紋岩質風化堆積物も含めて、SiO<sub>2</sub> と MgO では明確な負の相関がみられる。一方、トレンチ 8 の斑れい岩起源の風化堆積物とトレンチ 7 の降下火山灰堆積物については、他の試料よりも Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が多く、MgO と Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が少ない傾向が明確にみられた。これらの堆積物に多く見られる斜長石の Al が反映されているためだと考えられる。トレンチ 7 では、降下火山灰堆積物に近接する碎屑性堆積物はその影響を受けて Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> がやや多い。このような現象はトレン

チ 5 でもみられ、斑レイ岩質の礫岩の影響を受けた碎屑性堆積物は  $\text{Al}_2\text{O}_3$  含有量が多かった。

光学顕微鏡による観察及びモード分析から、XRD で同定した鉱物の産状や XRF による化学特性を裏付けるデータが得られ、アルカリ環境下にある①ハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物と②（トレンチ 7 底部の）降下火山灰堆積物、アルカリとの相互作用のない物理的風化環境下の③（ストリップングの）蛇紋岩碎屑性堆積物、④（トレンチ 8 の）斑れい岩質碎屑性堆積物、に分類して、それらの鉱物組み合わせとその量比を以下にまとめることができる。①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物については、基質はスメクタイトが多く、岩片・鉱物片は、初生鉱物であるかんらん石が蛇紋岩化作用に伴い変質した低温型の蛇紋石（リザルダイト・クリソタイル）、斜方輝石も蛇紋石に変質、自形の高温型のアンチゴライト、トレモラ角閃石、炭酸塩鉱物、磁鉄鉱などであり、基質の量比から、風化・変質の抵抗度は 25%程度である。②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物については、基質はスメクタイトが少なく、火山灰や火山ガラス、普通角閃石、斜長石などが散在し、岩片・鉱物片は、初生鉱物であるかんらん石は、蛇紋岩化作用に伴い殆どがリザルダイト・クリソタイルに、斜方輝石もリザルダイトに変質し、一部、自形のアンチゴライト、磁鉄鉱、ブルーサイト、タルク、クロムスピネル、不透明鉱物、粘土鉱物などであり、基質の量比から、風化・変質の抵抗度は 55%程度である。③物理的風化環境下の蛇紋岩碎屑性堆積物については、基質はスメクタイトが優勢であるがその量比は①よりも少なく、岩片・鉱物片は、初生鉱物（出発物質）であるかんらん石の殆どが、蛇紋岩化作用に伴いクリソタイル・リザルダイト、一部、自形のアンチゴライトと、少量の磁鉄鉱、ブルーサイト、タルク、不透明鉱物などであり、基質の量比から、風化・変質の抵抗度は 60%強である。④物理的風化環境下の斑れい岩質碎屑性堆積物については、基質はスメクタイトが少なく沸石等が存在する可能性があり、岩片・鉱物片は、岩片として斑れい岩（完晶質・等粒状、斜長石、斜方輝石、単斜輝石、極少量のかんらん石（赤褐色に変質））と蛇紋岩（リザルダイトークリソタイルのメッシュ組織、蛇紋石の大部分が風化鉱物）、鉱物片として、斜方輝石は蛇紋石に交代、未変質な単斜輝石や斜長石である。

スメクタイト化の定量については、モード分析から、①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物で 39.3~44.1%、③物理的風化環境下の蛇紋岩碎屑性堆積物で 33.0%、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物で 16.4%であり、XRD のピークの強さとほぼ整合するが、XRD からは①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物はさらにスメクタイト化が進んでいる可能性がある。また、粘土成分の定量分析結果からも、アルカリ環境下の碎屑性堆積物の粘土成分にはばらつきがあるものの、総じて風化環境下の碎屑性堆積物よりも粘土成分が多い傾向を示す。②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物はスメクタイト化が最も進んでないことから、火山ガラスはアルカリ環境下でそれほど変質しないということがいえる。④物理的風化環境下の斑れい岩質碎屑性堆積物は風化環境の苦鉄質碎屑性堆積物と粘土成分について大差はみられない。したがって、Al 成分の量比そのものがスメクタイト化に影響するというのではなく、堆積物中の主要鉱物が風化過程あるいはアルカリ環境下でどの程度溶解が進むかが、スメクタイト化の割合を律速しているものと推察される。



[参考文献]

- [1] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 27 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 - (2016).
- [2] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 28 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 - (2017).
- [3] Steuer, S., Franke, D., Meresser, F., Savva, D., Pubellier, M., Auxietre, J.-L. and Aurelio, M.: Time constraints on the evolution of the southern Palawan island, Philippines from onshore and offshore correlation of Miocene limestones. *J. Asian Earth Sci.* **76**, p412-427 (2013).
- [4] 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).
- [5] Schluter, H.U., Hinz, K., and Block, M.: Tectono-stratigraphic terranes and detachment faulting on the South China Sea and Sulu Sea, *Marine Geology* 130, 1-2, P39-51 (1996).
- [6] Hutchison, C. S., and Vijayan, V. R.: What are the Spratly Islands? *J. Asian Earth Sci.*, **39**, 371-385 (2010).
- [7] 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).
- [8] Letouzey, J.L., Sage, and Muller, C.: Geological and Structural Maps of Eastern Asia. p73, Notice : Institute Francis du Petrol. Paris. Introductory notes, AAPG, Tulsa, OK (1988).
- [9] Taylor, B., and Hayes, D.E.: Origin and history of the South China Sea Basin, in *The tectonic and Geological Evolution of Southeast Asian seas and Islands*, editrd by D.E. Hayes, p23-56, AGU, Washington, D.C. (1983).
- [10] Hinz, K., and Schluter, H.U.: Geology of dngerous grounds, South China Sea, and the continental margin of southwest Palawan: Results of Sonne cruises SO-23 and SO- 27, *Energy*, 10,3 / 4, p297-315 (1985).
- [11] Cullen, A.B.: Transverse segmentation of the Baram-Balabac Basin, NW Borneo: refining of the model of Borneo's tectonic evolution, *Petroleum Geoscience*, 16, p3-29 (2010).
- [12] Rangin, C., Bellon, H., Bernard, F., Letouzey, J., Muller, C., and Sanudin, T.: Neogene arc-continent collosion in Sabah, Northern Borneo (Malaysia). *Tectonophysics*, **183**(1-4), 305-319 (1990).
- [13] Rangin, C., Stephan, J. F., Butterlin, J., Bellon. H., Muller, C., Chorowitz, J. and Baladad, D.: Collision neogine d'arc volcaniques dans le centre des Philippines: Stratigraphie et structure de la chaine d'antique (Ile de Panay). *Bull. Soc. Geol. France*, **162** (3), 465-477 (1991).
- [14] Tongkul, F.: Tectonic evolution of Sabah, Malaysia. *Journal of Southeast Asian Earth Sciences*, **6** (3 / 4), 395-405 (1991).
- [15] Concepcion, R., Dimalanta, C., Yumul, G., Faustino-Eslava, D., Queano, K., Tamayo, R., and Imai, A.: Petrography, geochemistry, and tectonics of a rifted fragment of Mainland Asia: evidence from the Lasala Formation, Mindoro Island, Philippines, *International Journal of Earth Sciences*, 101 (1), 273-290 (2012).
- [16] Huchison, C. S.: The North-West Borneo Trough. *Marine Geology*, **271** (1-2), 32-43 (2010).
- [17] Huchison, C. S.: Chapter XIV-The Ophiolite basement, in *Geology of North West Borneo*, edited, p295-223, Elsevier, Amsterdam (2005).
- [18] 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).
- [19] Saldivar-Sali, A.: Reef exploration in the Philippines: In Paper presented at the second Circum-Pacific energy and mineral resources Conference, Honolulu, Hawaii, 30 July-4 August 1978 (1978).

- 
- [20] Aurelio, M.A., Taguibao, K.J.L., Pubellier, M., Dieter, F., Forbed, M.: Structural Constrains on post-rift ophiolite emplacement and thrust-fold deformation in Southern Palawan, Philippines; implications to the evolution of the south-eastern margin of the South China Sea. In Proceedings of the 34th International Geological Congress, Brisbane, Australia, 5-10 august 2012 (in CD) (2012).
- [21] Taguibao, K. J., Aurelio, M. A., Savva, D., Pubellier, M.: Onshore Palawan structures; implications on the evolution of the South China Sea. In: Proceedings of the 34<sup>th</sup> International Geological Congress, Brisbane, Australia, 5-10 August 2012 (in CD).
- [22] Mitchell, A.H. G., Hernandez, F., de la Cruz, A.P.: Cenozoic evolution of the Philippine archipelago. *J. Southeast Asia Earth Sci*, **1**, 1-20 (1986).
- [23] Aurelio, M.A.: A review of mechanisms of ophiolite emplacement: Philippine examples. *J. Geol. Soc. Philipp*. **51**, 3-4, p87-89 (1986).
- [24] Holloway, N.H.: The north Palawan block, Philippines; its relation to the Asian mainland and its role in the evolution of the South China Sea. *Geol. Soc. malays, Bull.* **14**, 19-58 (1981).
- [25] Marchadier, Y., and Rangin, C.: Polyphase tectonics at the southern tip of the Manila trench, Mindoro-Tablas islands, Philippines. *Tectonophysics*, **183**, 273-287 (1990).
- [26] Tumanda, F. P., Santos, R., Tan, M.N., David Jr., S.D., Billedo, E. B. and Pena, R.: Guidebook for fieldtrips. In: Third Symposium of International Geological Correlation Programme No. 350 (IGCP 350), Cretaceous Environment Change in East and South Asia, p23 (1995).
- [27] Sales, A. O., Jacobsen, E. C., Morando, Jr., A. A., Banavidez, J. L., Navarro, F. A., Lima, A. E.: The petroleum potential of deepwater northwest Palawan block GSEC 66. *J. Asia earth Sci*, **15**, 217-240 (1997).
- [28] Wohlfahrt, R., Cepek, P. Gramann, F. Kempter, E. and Porth, H.: Stratigraphy of Palawan Island. *Newsletter Stratigraphy*, **16** (1), 19-48 (1986).
- [29] Santos, R.A.: Chromite and Platinum group mineralization in Arc-related ophiolites; Constraints form Palawan and Dinagat ophiolite complexes, Philippines. Ph. D. Dissertation, Univ. of Tokyo, Japan. P193 (1977).
- [30] Forbes, M.T., Mapaye, C.B. and Bacud, J. A.: Strucural characterization of offshore Southwest Palawan, Philippines using the most recent 2D/3D seismic data. In: Proceedings of the Southeast Asia Petroleum Exploration (SEAPEX) Meeting, Manila, Philippines, 6 April (2011).
- [31] Mat Zin, I. C., and Tucker, M. E.: An alternative stratigraphic scheme for the Sarawak Basin. *J. Asian Earth Sci.*, **17**, 215-232 (1999).
- [32] Silver, E. A., and Rangin, C.: Development of the Celebes Basin in the contex of Western Pacific marginal basin history. In : Silver , E. A., Rangin, C., von Breyman, M. T., (Eds.), *Proceeding of Ocean drilling Program, Leg 124 Scientific results*, 39-50 (1991).
- [33] Aurelio, M.A., and Pena, R.E.: *Geology of the Philippines Tectonics and Stratigraphy*, second ed., vol.1. Mines and Geosciences Bureau, Department of Environment and Natural resources, Quezon, Philippines (2010).
- [34] Encarnacion, J.: Multiple ophiolite generation preserved in the northern Philippines and the growth of an island arc complex. *Tectonophysics*, **392**, 103-130 (2004).
- [35] Shigeyuki, S., Shizuo, T., Graciano, P.Y., Sevillo, D.D., and Daniel, K.A.: Composition and provenance of the Upper Cretaceous to Eocene snadstone in Central Palawan, Philippines: Constraints on the tectonic development of Palawan, The Ialand Arc, **9** (4), 611-626 (2000).
- [36] Muller, C.: Biostratigraphy and Geological Evolution of the Sulu Sea and Surrounding Area, in Proceedings of the Ocean Drilling Program, Scientific results, vol. 124, edited by E.A. Silver, C. Rangin and M.T.v. Breymann, p121-130, ODP, college Station, TX (1991).
- [37] Encarnacion, j. P., Musaka, S. B., and Obille, E. J.: Zircon U-Pb geochronology of the Zambales ophiolite and Angat ophiolitesm Luzon, Philippines: Evidence for the Eocene arc-back arc pair. *Jour. of Geophysical research*, **98**, 19991-20004 (1993).
- [38] Encarnacion, J., Essene, E.J., Mukase, S.B. and Hall, C.: High pressure and temperature subophiolite kayanite-garnet amphibolite generated during ignition of mid-Tertiary subduction, Palawan, Philippines. *Jour. of Petrology*, **36**, 1481-1503 (1995).

- 
- [39] Almasco, J. N., Rodolfo, K. Fuller, M. and Frost, G.: Paleomagnetism of Palawan, Philippines. *Journal of Asian Earth Sciences*, **18** (3), 369-389 (2000).
- [40] Jasin, B.: Middle Miocene planktonic Foraminifera and their implication in the Geology of Sabah. In: G.H. Teh, et al.(eds). *Bull. Geol. Soc. Malaysia*, **45**, 157-162 (2010).
- [41] Franke, D., Barckhausen, U. Baristeasm N. Engels, M. Ladage, S. Lutz, R. Montano, J. Pellejera, N. Ramos, E.G. and Schnabel, M.: The continent-ocean transition at the southeastern margin of the South China Sea. *Marine and petroleum Geology*, **28** (6), 1187-1204 (2011).
- [42] Rehm, S.: *The Miocene Carbonates in Time and Space On-and Offshore SW Palawan, Philippines*, Christian-Albrechts-University, Kiel (2002).
- [43] Haq, B.U., Hardenbol, A.N., and Vali, P.R.: Chronology of Fluctuating Sea Level Since the Triassic. *Science*, **235** (4793), 1156-1167 (1987).
- [44] 荒井章司: 環伊豆地塊蛇紋岩. 静岡大学地球科学研究報告, **20**, 175-185 (1994).
- [45] Boggs, Jr.S.: *Principles of Sedimentology and Stratigraphy*. Pearson Prentice Hall: Upper Saddle River, New Jersey 07458 (2006).
- [46] 入矢桂史郎, 新村亮, 久保博, 黒木泰貴: 人工バリア材の変質に関する研究. 動力炉・核燃料開発事業団委託研究成果報告書, PNC ZJ1201 97-001 (1997).
- [47] Power, I.M., Wilson, S.A., and Dipple, G.M.: Serpentinite Carbonation for CO<sub>2</sub> Sequestration. *Element*, **9** (2), 115-121 (2013).



## 第3章 年代測定による反応時間の評価

### 3.1 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

#### 3.1.1 目的

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。

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）により生成された高アルカリ地下水がベントナイト層あるいはスメクタイト質粘土層に浸出している地域は、高アルカリ水-ベントナイト相互作用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ナチュラルアナログ調査サイトである。フィリピンは日本と同様に島弧型の変動帯に属しているため、沈み込み帯で特徴づけられるテクトニクスの場合、**Zambales** オフィオライトやパラワンオフィオライトに代表される様々なオフィオライトが広く分布している。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-堆積層で構成されている。

このような地質構造を有する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（スメクタイトを含有する泥（粘土）質堆積物）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高アルカリ地下水が空隙閉塞等でベントナイト層への供給が止まった時期、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 3.1.1-1）。

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定されている。

そのため本事業のナチュラルアナログ調査においては、蛇紋岩作用によるアルカリ地下水生成プロセスに着目し、高アルカリ地下水の痕跡が残る断裂系充填物や堆積物等の炭酸塩鉱物、あるいは炭酸塩層やその直下の堆積物の年代決定から、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目的として年代測定法について検討する。

パラワン島 Narra 地区の調査サイトは、高アルカリ地下水が現在も湧出し、碎屑性堆積物に浸出している **Active Type** のナチュラルアナログサイトである。ここでは、アルカリ地下水によっ



て形成した炭酸塩鉱物（石灰華（トラバーティン））が層状に重なって堆積しており、そのような炭酸塩鉱物に、断裂系充填物の炭酸塩鉱物（方解石）への適用可能性を示した熱ルミネッセンス（Thermoluminescence: TL）年代測定が適用可能かを検討する必要がある。また、炭酸塩や土壌、それらの中に存在する木片等の有機物や貝等の生物の遺骸が保存されているため、放射性炭素（ $^{14}\text{C}$ ）法年代測定による年代や堆積環境の推定を試みる。

表 3.1.1-1 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スメクタイトを含有する泥(粘土)質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) <sup>14</sup> C [500~40,000 年] (ii) <sup>36</sup> Cl [50,000~200 万年]  ( <sup>2</sup> H(D), <sup>18</sup> 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] (ix) LA-ICP-MS (K-Ar) (x) EPMA (xi) CHIME [8000 万年~] (xii) SHRIMP (U-Pb)	(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



### 3.1.2 パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログにおける年代測定の検討概要

Active Type のナチュラルアナログサイトにおける把握すべき時間スケールは、パラワンオフィオライトを構成する超塩基性岩と地下水との相互作用に蜜接に関与する蛇紋岩化作用に伴って生成される高アルカリ地下水環境下でのベントナイトやベントナイト質堆積物の主要構成鉱物（主に、モントモリロナイト、沸石、長石、石英など）の変質反応プロセスを時空間で理解することである。そのためには、①高アルカリ地下水の起源・変遷プロセス、②ベントナイトやベントナイト質堆積物への高アルカリ地下水の浸透開始・滞留時間などを規制する水理学的場と地球化学場の状態変化（変遷）、③高アルカリ地下水環境下での主要構成鉱物の変質反応プロセス（変質反応パス）・二次鉱物の形成プロセス、④その長期安定性などに係わるそれぞれの時間スケールを地球科学的・岩石鉱物学的根拠・水理学・地下水の地球化学的特性のもと時間スケールを検討することが必要である。

パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログでは、ルソン島の Fossil Type のナチュラルアナログで適用した炭酸塩鉱物の TL 年代測定法について、Active Type のナチュラルアナログを確認した Narra3-2 地点の碎屑性堆積物の上部に堆積する炭酸塩層への適用可能性について検討する。ルソン島のナチュラルアナログで対象としたのは、高アルカリ地下水の湧出経路となっている断裂系の充填物である方解石だったのに対し、パラワン島ナチュラルアナログでは、明らかに高アルカリ地下水から化学的沈殿プロセスで析出し、その後の固結・堆積プロセスで熟成された炭酸塩鉱物であり、比較的若い試料であり、また固結度も低い。また、不純物等も含むため、TL 法の適用が難しい可能性もある。したがって、このような炭酸塩鉱物の TL 特性を把握し、高アルカリ地下水による炭酸塩層の生成年代の評価への適用可能性を検討する。

また、高アルカリ地下水が湧水・流出している炭酸塩鉱物が広く分布している平坦地（Narra3-2 地点）では、既存のトレンチ[1]で、 $^{14}\text{C}$  年代測定に供することが可能な、炭酸塩層あるいはその炭酸塩層や碎屑性堆積物中に木片、貝殻が存在することを確認した。これらの年代を明らかにできれば、アルカリ地下水の反応時間（特に Narra 地区は Active Type のサイトであるため、いつから高アルカリ地下水が供給されているかがわかれば、それから現在までの時間が反応時間）を推測することが可能である。

今年度は、これらトレンチの内壁から採取した 3 件の炭酸塩、4 件の木片（植物遺体）と 5 件の土壌を対象に、それら放射性炭素を含む鉱物や植物の埋没・堆積時の絶対年代取得のために  $^{14}\text{C}$  年代測定を行った。

これらのデータによる総合的な考察から、高アルカリ地下水の流動場や浸透・滞留時間スケールの推定が可能となり、炭酸塩鉱物の下位にあり、パラワンオフィオライト基盤岩の直上に累重する碎屑性堆積物を構成しているスメクタイト（サポナイトやノントロナイト）のアルカリ変質反応に係る高アルカリ地下水が相互作用している時間スケールを検討する。

### 3.1.3 年代測定のための試料

今年度の年代測定（①炭酸塩鉱物の TL 法による絶対年代測定、②埋没木根の放射性炭素（ $^{14}\text{C}$ ）による絶対年代測定）では、Narra のナチュラルアナログのアルカリ地下水が浸出し始めた年代を把握するため、Narra3-2 地点で掘削したトレンチから採取した試料を対象とする。

TL 年代測定用の試料は、水平方向に数層の堆積構造が見られる石灰華の堆積層から採取し、平成 27 年度[2]にトレンチ 1 で鉛直方向に採取した 2 試料(PWT01-15-Rc-004 及び PWT01-15-Rc-007) (図 3.1.3-1)、今年度掘削したトレンチ 6 から碎屑性堆積物直上の炭酸塩を 1 試料(PWT06-17-Rh-L01) (図 3.1.3-2)、トレンチ 7 から同じく碎屑性堆積物直上の炭酸塩を 1 試料(PWT07-17-Rh-L01) (図 3.1.3-3) の計 4 試料である。これらの炭酸塩試料は、できるだけ光曝を避けて容器やアルミ製試料袋に封入して採取した。

$^{14}\text{C}$  年代測定用の試料も、今年度掘削したトレンチ（トレンチ 6 及び 7）から採取した。トレンチ 6 からは、碎屑性堆積物直上の炭酸塩を 2 試料(PWT06-17-Rh-C01 及び PWT06-17-Rh-C02)、炭酸塩中の木片を 1 試料(PWT06-17-Rh-C03)、碎屑性堆積物中の木片を 2 試料(PWT06-17-Rh-C04 及び PWT06-17-Rh-C05)、底部の土壌を 1 試料（碎屑性堆積物：PWT06-17-Rh-C06）採取した (図 3.1.3-2)。トレンチ 7 からは、碎屑性堆積物直上の炭酸塩を 1 試料(PWT07-17-Rh-C01)、礫混合炭酸塩中の木片を 1 試料(PWT07-17-Rh-C06)、底部の土壌を 4 試料（白色細粒砂質堆積物：PWT07-17-Rh-C02 及び PWT07-17-Rh-C02、碎屑性堆積物（白色細粒砂質堆積物の下位）：PWT07-17-Rh-C05、碎屑性堆積物（白色細粒砂質堆積物の上位）：PWT07-17-Rh-C04）採取した (図 3.1.3-3)。

炭酸塩、土壌、木片は、超音波洗浄やメス、ピンセット等で異物を取り除いている。土壌は分析の前処理において、腐植性炭酸塩質堆積物と腐植質堆積物に分離している。

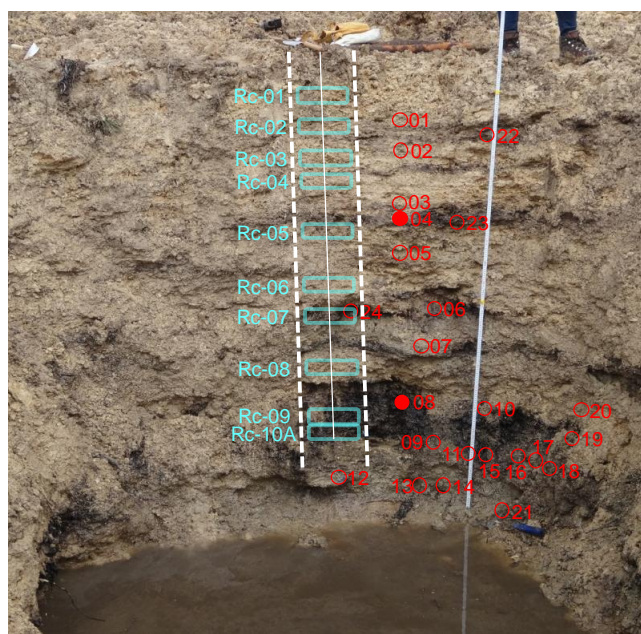


図 3.1.3-1 トレンチ 1 での年代測定用炭酸塩試料の採取位置（●は貝殻を確認した層）





図 3.1.3-2 トレンチ 6 での年代測定用試料の採取位置（上：北～東壁面、下：西壁面）



📍 : 年代測定試料 PWT07-17-Rh-C01~C06, L01  
📦 : 水試料



📍 : 年代測定試料 PWT07-17-Rh-C01~C06, L01  
📦 : 水試料



図 3.1.3-3 トレンチ 7 での年代測定用試料の採取位置（上：西壁面、下：東壁面）

## 3.2 方解石の熱ルミネセンス(TL)年代測定

### 3.2.1 熱ルミネセンス(TL)年代測定法

鉱物は放射線を受けると、鉱物結晶内の原子や格子部位が電離し、電離した電子は不純物や格子欠陥に捕獲される。ここで熱の刺激によって捕獲電子が励起されると、正孔／電子が再結合し発光を生じる（図 3.2.1-1）。この発光を熱ルミネセンス(TL)という。ルミネセンス強度と鉱物に与えられた放射線量（蓄積線量）は比例するため、この現象を線量計として、年代測定に用いることができる。これを熱ルミネセンス(TL)年代測定法と呼ぶ[3]。年代式は次式による。

$$\text{年代} = \text{蓄積線量} / \text{年間線量} \quad (3.2.1-1)$$

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年代測定法の利点として、1)環境放射能を利用するため試料自身の放射性元素が乏しくても利用可能なこと、2)炭酸塩鉱物で一般的に利用される<sup>14</sup>C法（適用範囲：約5万年）や<sup>230</sup>Th-<sup>234</sup>U法（約50万年）よりも年代適用範囲が広い（約100万年）が挙げられる。アルカリ地下水の沈殿物である炭酸塩鉱物の年代測定にも利用可能と考えられる。

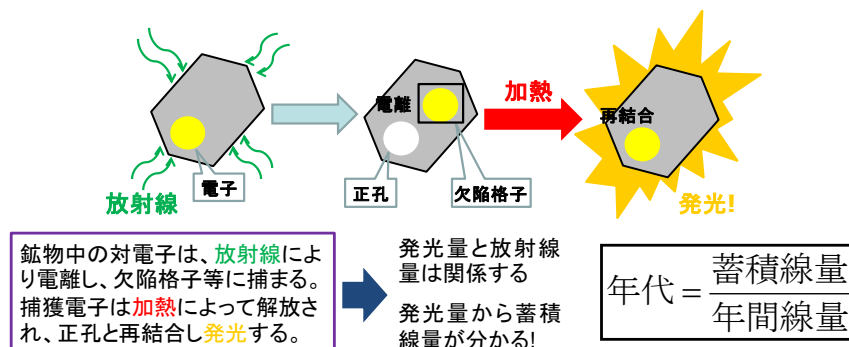


図 3.2.1-1 熱ルミネセンス(TL)年代測定概念

#### (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に依存していろいろな算出法があり、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[4]。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 3.2.1-1 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[5]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 3.2.1-2 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。

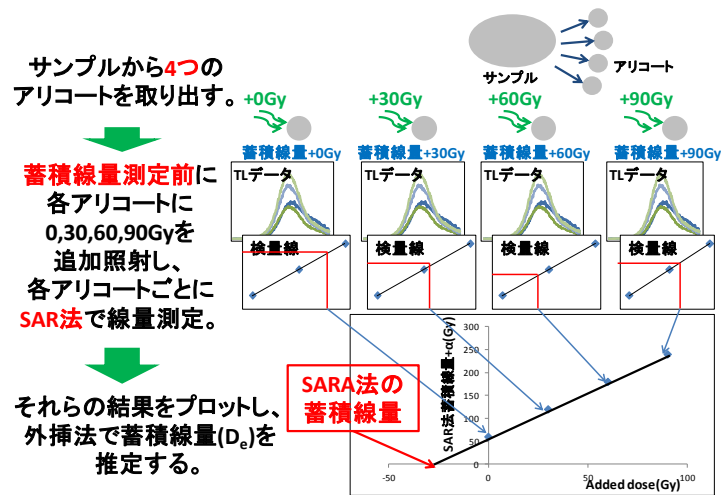


図 3.2.1-2 SARA 法の実施手順のイメージ

表 3.2.1-1 SAR 法手順

1. X線を照射する
2. プレヒート(200°C,240秒)
3. RTL測定(L <sub>i</sub> )
4. テスト照射する
5. カットヒート(200°C,240秒)
6. RTL測定(T <sub>i</sub> )
7. 1に戻る

## 2) TL 測定条件

熱ルミネセンスカラー画像(Thermoluminescence Color Image: 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: RTL) 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°C、加熱率は 1°C/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°C、240 秒間とする。本照射、テスト照射は各アリコートに相当量を照射する。

## 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(Laser Ablation-Inductively Coupled Plasma-Massspectrometry)を用いて測定する。

### 1) 年間線量算出

Ito et al. (2009)[6]の式から年間線量を算出する。

$$\text{Annual dose (Gy/year)} = D_{\alpha} + D_{\beta} + D_{\gamma}$$

$$\begin{aligned} &= \frac{2.18 \times U(\text{ppm}) + 0.6111 \times Th(\text{ppm})}{1 + 1.5 \times W.C.} \times a \\ &+ \frac{0.146 \times U(\text{ppm}) + 0.0273 \times Th(\text{ppm}) + 0.00038 \times Rb(\text{ppm}) + 0.649 \times K_2O(\%)}{1 + 1.25 + W.C.} \times b \\ &+ \frac{0.113 \times U(\text{ppm}) + 0.0476 \times Th(\text{ppm}) + 0.202 \times K_2O(\%)}{1 + 1.14 + W.C.} \times c \end{aligned}$$

(3.2.1-2)

ここで、 $D_{\alpha}$ 、 $D_{\beta}$ 、 $D_{\gamma}$ はそれぞれ  $\alpha$  崩壊、 $\beta$  崩壊、 $\gamma$  崩壊からの放射線に基づく年間線量である。 $a$ は有効  $\alpha$  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.  $D_a$ の項

$\alpha$ 線の飛程範囲はおよそ  $10\mu\text{m}$  である。このため、年代測定を行う方解石自身からの  $\alpha$ 線のみを考慮し、玄武岩からの  $\alpha$ 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  $^{29}\text{Si}$ ,  $^{43}\text{Ca}$ ,  $^{85}\text{Rb}$ ,  $^{86}\text{Sr}$ ,  $^{87}\text{Rb}$ ,  $^{88}\text{Sr}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  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。 $^{85}\text{Rb}$  は Rb の 72.17%、 $^{238}\text{U}$  は U の 99.2745%、 $^{232}\text{Th}$  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)[7]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  $\sigma_{AD}$ 、 $\sigma_U$ 、 $\sigma_{Th}$ 、 $\sigma_{Rb}$  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。

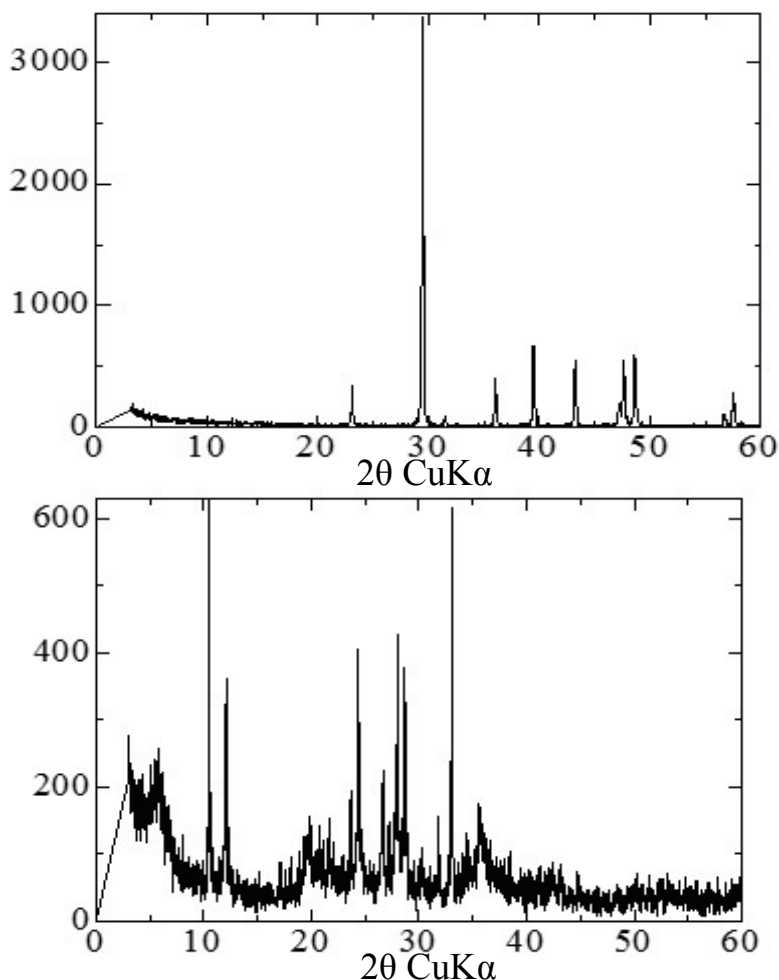
$$\sigma_{AD}^2 = \sigma_U^2 + \sigma_{Th}^2 + \sigma_{Rb}^2 \quad (3.2.1-3)$$

### 3.2.2 パラワン島の炭酸塩試料の TL 年代測定

フィリピンパラワン島の Narra 地区の調査サイトで採取した炭酸塩試料 PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-004、PWT01-15-Rc-007、PWT01-15-Rc-010A、PWT06-17-Rh-L01 および PWT07-17-Rh-L01 の年代測定について検討した。

#### (1) XRD 分析

年代測定に際して、鉱物組成が明らかでなかった PWT06-17-Rh-L01 と PWT07-17-Rh-L01 の XRD 測定を行った。PWT06-17-Rh-L01 は方解石ピークのみを示したが、PWT07-17-Rh-L01 は複数の鉱物から成ることが示された (図 3.2.2-1)。PWT07-17-Rh-L01 の TL 発光曲線を測定しても有為なピークを示さなかった (図 3.2.2-2) ため、本年度は PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-004、PWT01-15-Rc-007、PWT01-15-Rc-010A、PWT06-17-Rh-L01 の蓄積線量測定を行った。



(a)は方解石ピークのみ示すが、(b)は複数の鉱物ピークを示す。

図 3.2.2-1 XRD チャート ((a) PWT06-17-Rh-L01, (b)PWT07-17-Rh-L01)

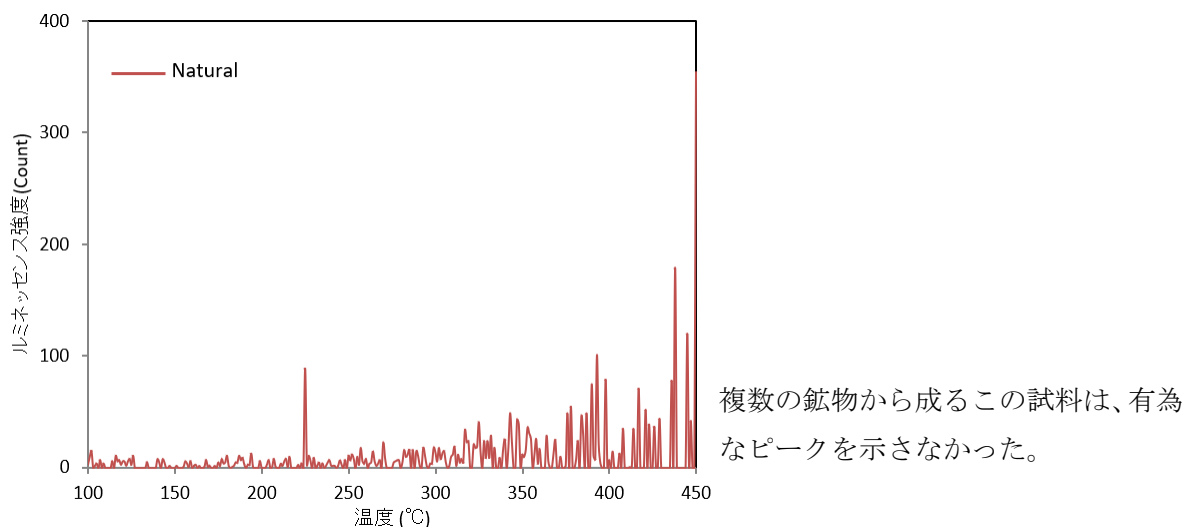
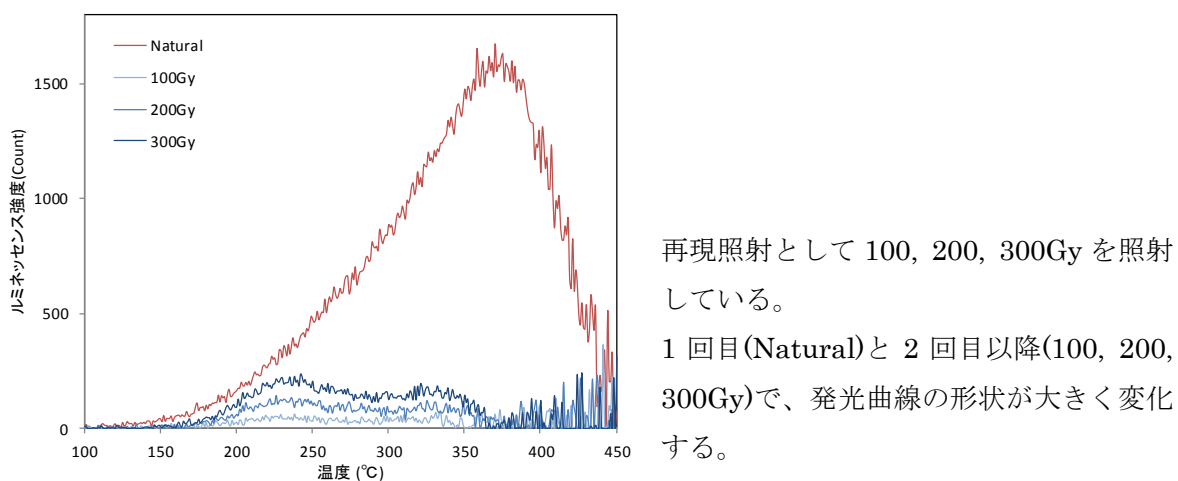


図 3.2.2-2 PWT07-17-Rh-L01 の発光曲線

## (2) SAR 法 vs MAAD 法

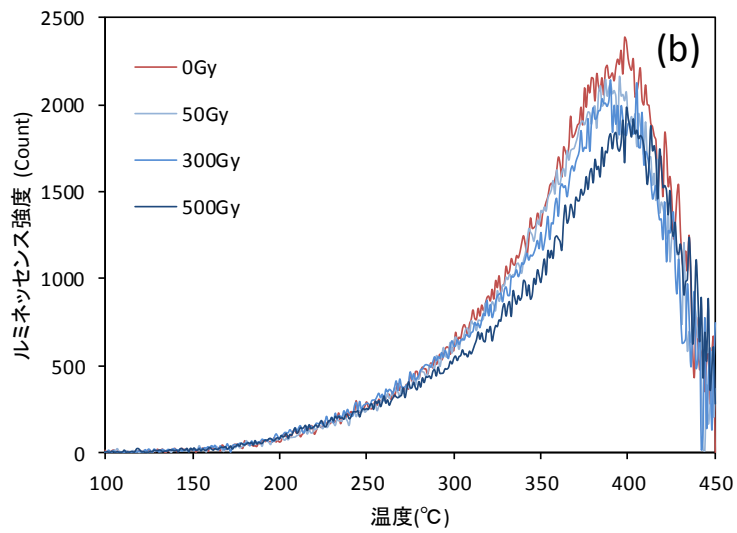
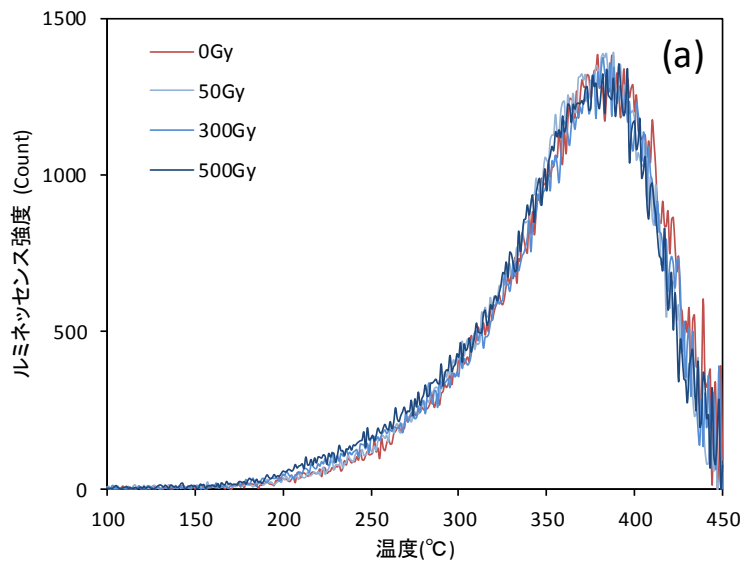
蓄積線量測定には、同一試料に対して放射線照射と TL 測定を行うことで検量線を作成する SAR(Single-aliquot regeneration)法を利用するのが一般的である。しかし、パラワン島の方解石は、平成 27 年度[2]、28 年度[1]の研究において測定した PWT01-15-Rc-001 と PWT01-15-Rc-010A と同様に、繰り返しの加熱によって TL の形状が大きく変化する (図 3.2.2-3) ため、SAR 法[8]を適用することができない。

そこで試料をサブ試料に分割し、異なる量の放射線を先に与えてから測定を実施する多分画付加線量(Multi-aliquot additive dose: MAAD)法[9]を用いて蓄積線量を行った。図 3.2.2-4 は PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-004、PWT01-15-Rc-007 の、図 3.2.2-5 は PWT01-15-Rc-010A、PWT06-17-Rh-001 の発光曲線を示す。付加線量として 50, 300, 500Gy を与え、何も付加していない試料も含め各 1 回ずつ測定を行った。



再現照射として 100, 200, 300Gy を照射している。  
1 回目(Natural)と 2 回目以降(100, 200, 300Gy)で、発光曲線の形状が大きく変化する。

図 3.2.2-3 SAR 法による PWT06-17-Rh-L01 の発光曲線



付加線量 50,300,500Gy を与えた試料と何も付加しない試料を測定した。

図 3.2.2-4 MAAD 法による(a)PWT01-15-Rc-001, (b)PWT01-15-Rc-004 の発光曲線

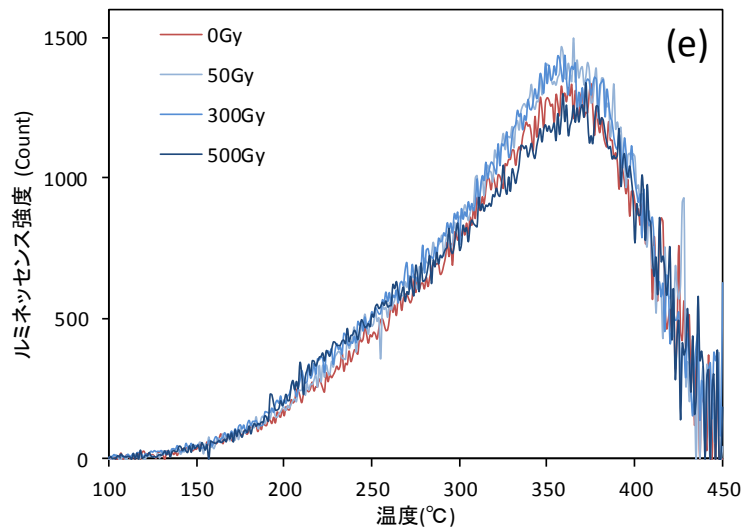
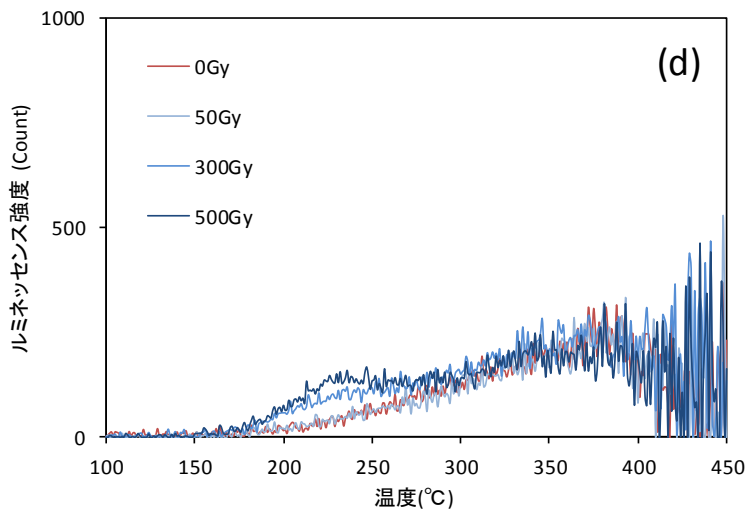
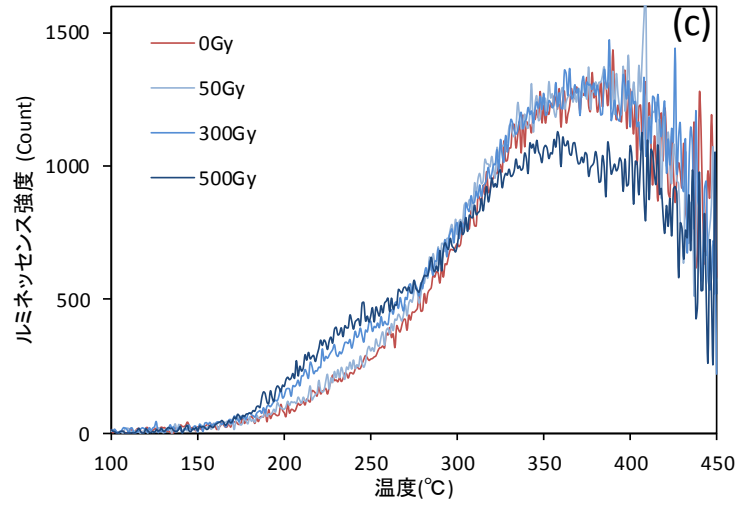


図 3.2.2-5 MAAD 法による(c)PWT01-17-Rc-007, (d)PWT01-15-Rc-010A, (e)PWT06-17-Rh-L01 の発光曲線



### (3) MAAD 法による結果

本試料の発光曲線は 350°C前後に高い発光を示しているが、350°Cピークにおいて付加線量とルミネッセンス強度に相関はみられなかった(図 3.2.2-6 及び図 3.2.2-7)。これは、(1) サブ試料毎の試料量やルミネッセンス感度が異なる、(2) 蓄積線量(天然環境下で蓄積された欠陥の量)が非常に大きく(古い)飽和している、(3) 放射線応答性が小さい(もしくは無い)こと等が原因と考えられる。

全ての試料で、何も付加していない試料と 500Gy を付加した試料の発光曲線が逆転していることから、試料間の感度の違いに紛れる程に、試料の蓄積線量は 500Gy を大きく上回っていると考えられる。年間線量を 0.5mGy/year と仮定すると、100 万年を大きく上回ることになる。しかし本試料は湧出したアルカリ水が沈積したもので、比較的若い年代が期待されており、その予想とは一致しない。

他の温度域の TL シグナルでは、PWT01-15-Rc-007 と PWT01-15-Rc-010A において、240°C前後で、付加線量に相関して増加していることが見て取れた(図 3.2.2-7 (c), (d))。このピークを用いて蓄積線量を求めたところ、約 900Gy と 300Gy を示した。しかし 240°Cピークは高い発光量を示す 350°Cピークと一部重なっているため、求められた線量は過大評価されていることが考えられる。また、他の試料で 240°Cピークの相関が見て取れなかったのも 350°Cピークの影響と考えられる。正しく線量を見積もるためには、350°Cピークと分離する必要がある。

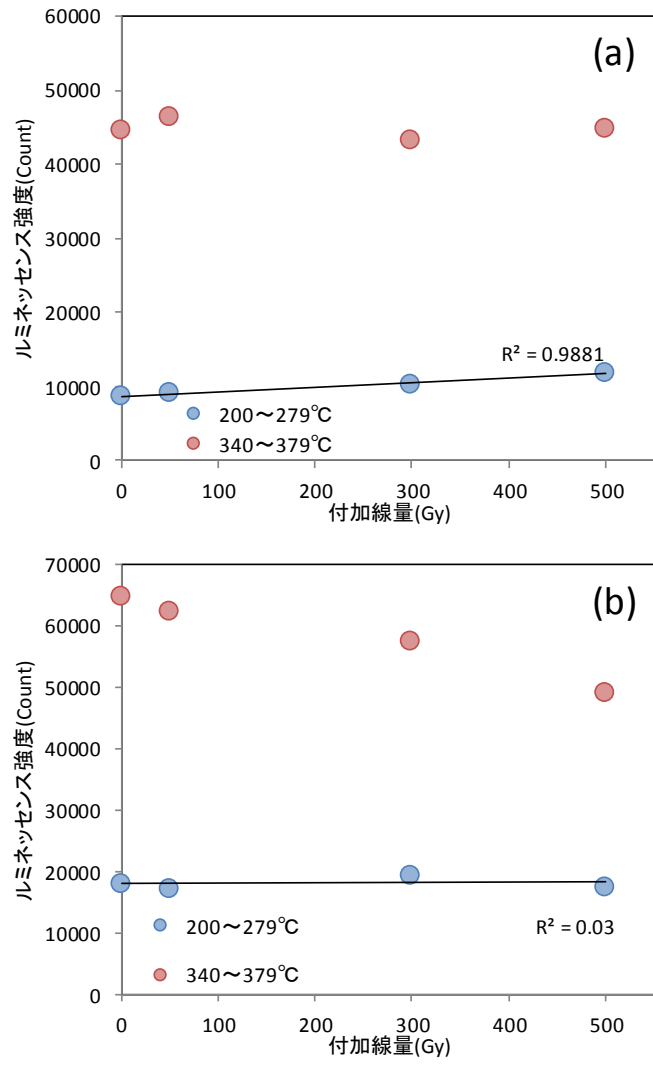


図 3.2.2-6 (a)PWT01-15-Rc-001, (b)PWT01-15-Rc-004 の放射線応答曲線

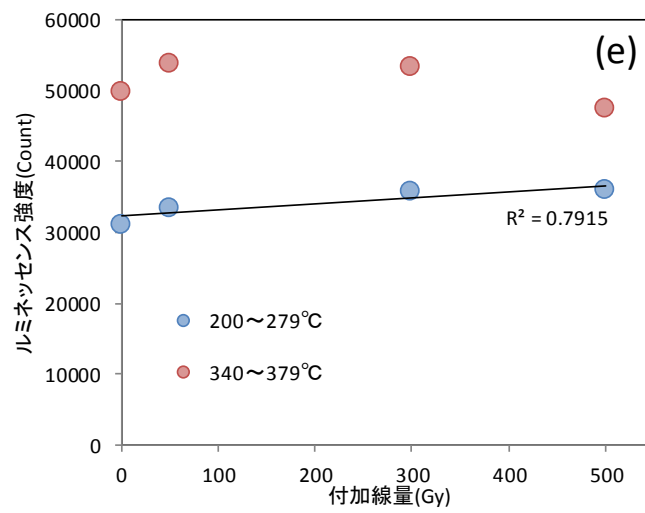
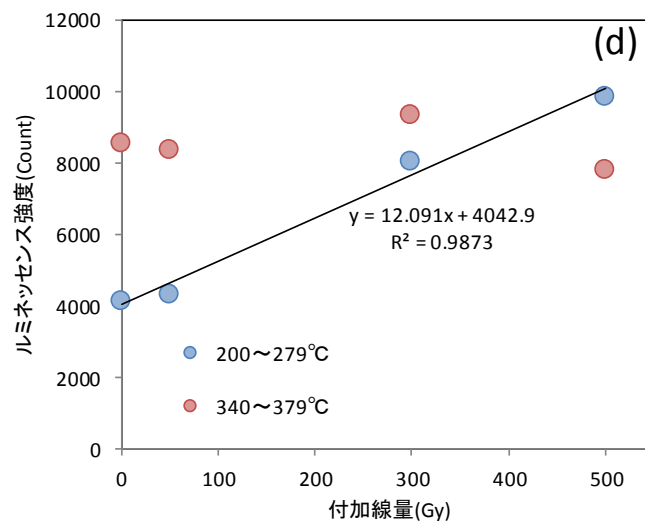
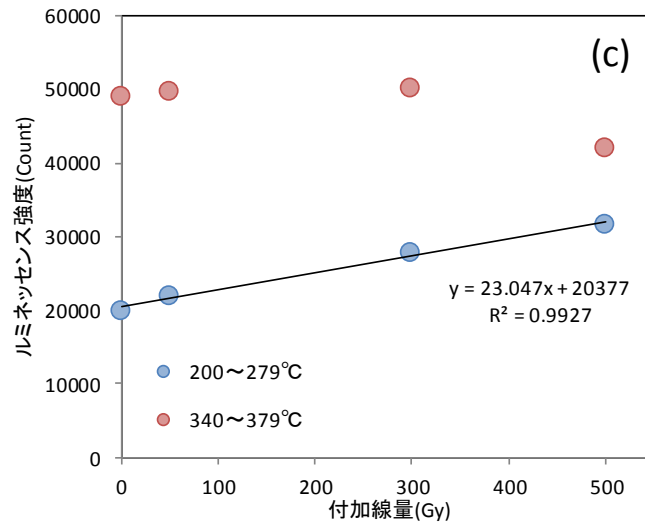


図 3.2.2-7 (c)PWT01-15-Rc-007, (d)PWT01-15-Rc-010A, (e)PWT06-17-Rh-L01 の放射線応答曲線

#### (4) サブ試料毎の感度補正

サブ試料毎のルミネッセンス感度・試料量を補正するために以下の2つを試みた。

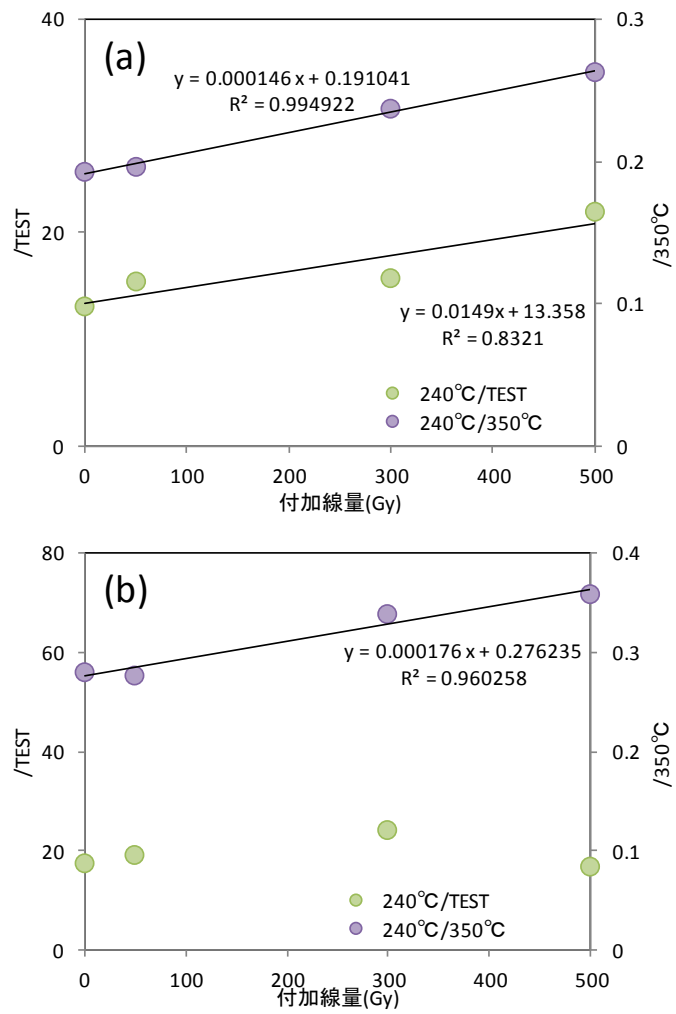
##### 1) テスト照射による補正

測定試料は、加熱することで発光曲線が大きく変化してしまう。しかし加熱によるルミネッセンス感度の変化率がサブ試料間で変わらないと仮定すると、SAR法と同様にテスト線量による補正を行うことができる。そこで、テスト線量(100Gy)による補正を行った(図 3.2.2-8 及び図 3.2.2-9)。

テスト照射による発光量が非常に低かったため(図 3.2.2-10 及び図 3.2.2-11)、PWT01-15-Rc-004 と PWT06-17-Rh-L01 は相関を示さなかった。PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-007、PWT01-15-Rc-010A は相関を示し、蓄積線量は 911、620、236Gy を示した。PWT01-15-Rc-007 と PWT01-15-Rc-010A においては、補正なしと比べ低い値となった。試料間の感度変化率の違いを確かめること、またテスト照射の量を増やすことで、より正確に補正できる可能性がある。

##### 2) 350°Cピークを用いた補正

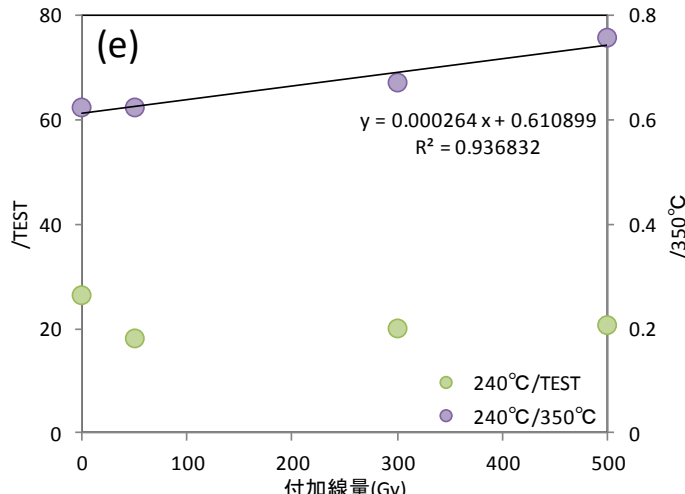
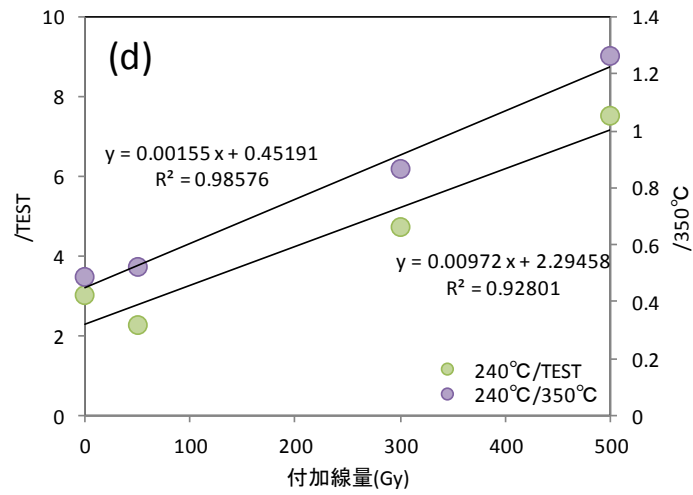
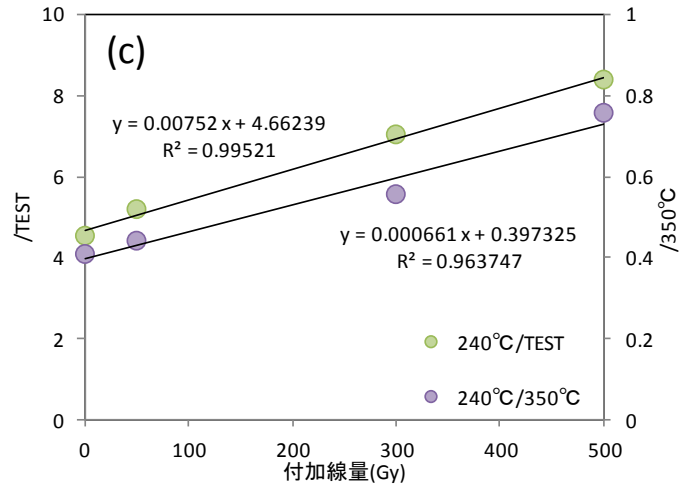
サブ試料毎の各ピークの発光比率(240°Cピーク:350°Cピーク)が変わらないこと、また350°Cピークの蓄積線量がすでに飽和していることを仮定すると、350°Cピークを用いて240°Cピークを補正できると考えられる。結果を図 3.2.2-8 及び図 3.2.2-9 に示す。全ての試料で、良い相関を示した。PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-004、PWT01-15-Rc-007、PWT01-15-Rc-010A、PWT06-17-Rh-001 の蓄積線量は、それぞれ約 1310、1570、236、292、2310Gy となった。PWT01-15-Rc-007 の結果は補正なしよりも低い値を示した。350°Cピークの性質をよく理解することで、利用できる可能性がある。



240°Cを TEST 照射、または 350°Cピークで補正している。

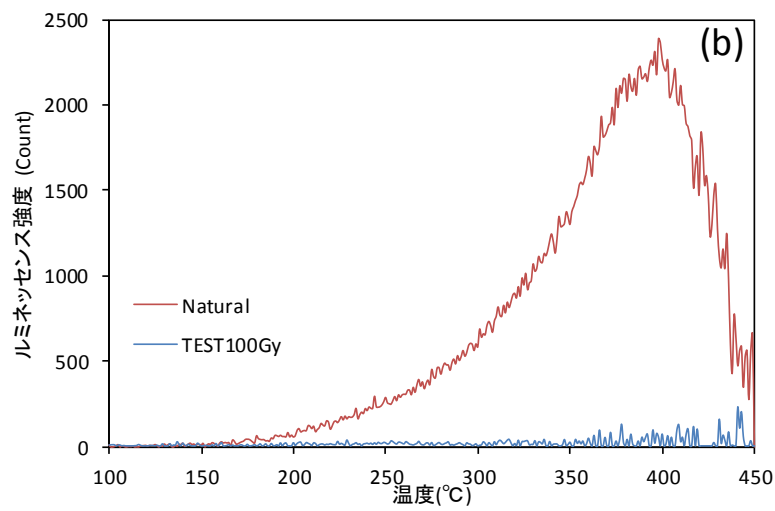
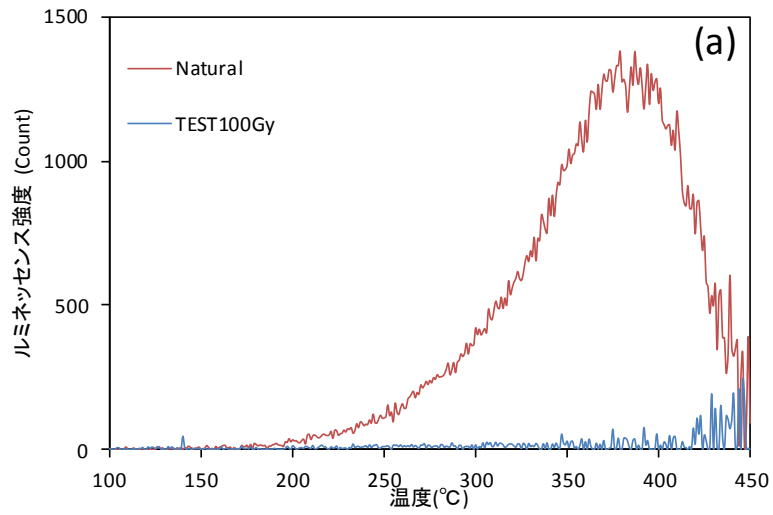
図 3.2.2-8 (a)PWT01-15-Rc-001, (b)PWT01-15-Rc-004 の放射線応答曲線





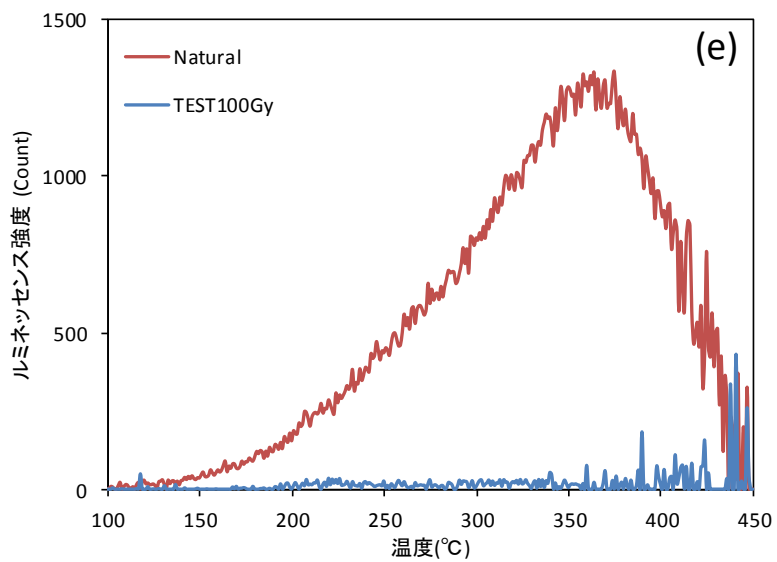
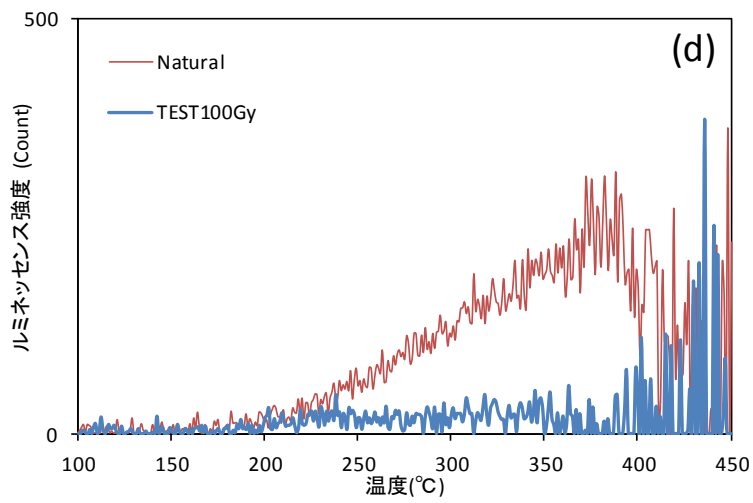
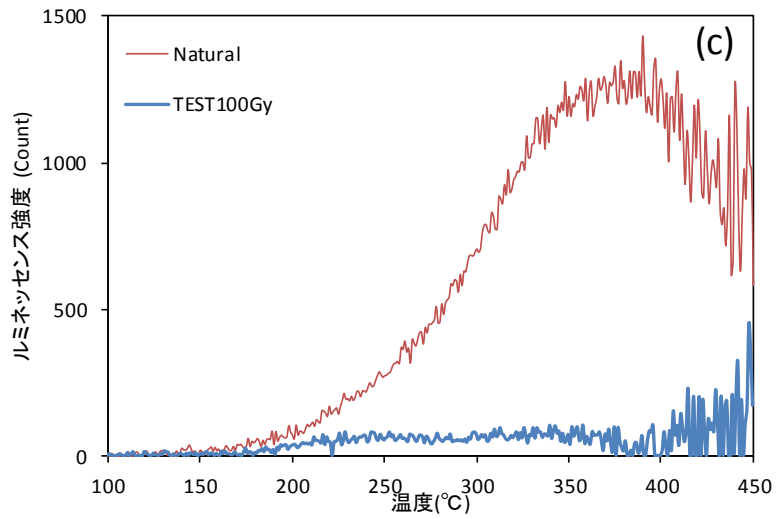
240°Cを TEST 照射、または 350°Cピークで補正している。

図 3.2.2-9 (c)PWT01-15-Rc-007, (d)PWT01-15-Rc-010A, (e)PWT06-17-Rh-L01 の放射線応答曲線



蓄積線量と TEST 照射 100Gy の反応を表している。

図 3.2.2-10 (a)PWT01-15-Rc-001, (b)PWT01-15-Rc-004 の発光曲線



蓄積線量と TEST 照射 100Gy の反応を表している。

図 3.2.2-11 (c)PWT01-15-Rc-007, (d)PWT01-15-Rc-010A, (e)PWT06-17-Rh-L01 の発光曲線

### (5) 350°Cのシグナル要因

350°Cに高い発光を示し、放射線応答性が小さい（もしくは大きい）という特徴はアラゴナイト（シャコガイ）の標準試料(GSJ CRM Jct-1)[10]と酷似している（図 3.2.2-12）。昨年度[1]は、PWT01-15-Rc-001 および PWT01-15-Rc-010A 中に微量の貝化石（アラゴナイト）が混入し、アラゴナイトの TL 発光が著しいことから、このような結果が得られ、また貝化石の年代を求めていたと考えた。しかし PWT06-17-Rh-001 の XRD 結果は方解石ピークのみを示したことから、別の要因によるものと考えられる。

そこで、方解石の TL 量を増加させる要因（アクチベーター）である Mn を 42ppm と減少要因（クエンチャー）の Fe を 420ppm 添加した合成方解石と無添加の合成霰石（アラゴナイト）を用いて、発光曲線の比較を行った。

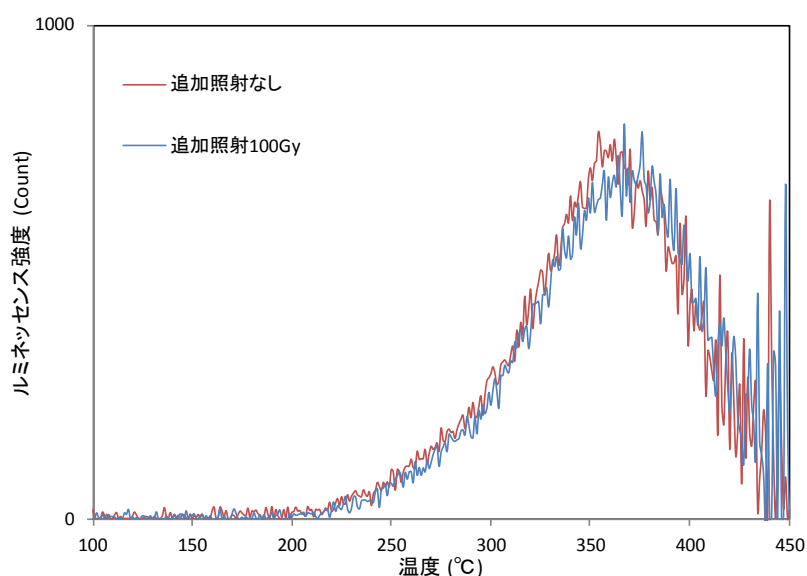


図 3.2.2-12 Jct-1 の発光曲線

図 3.2.2-13 に X 線を 100Gy 照射した合成方解石と未照射の合成方解石の発光曲線を示す。照射試料は 240,350°C にピークが生じ、未照射試料は 350°C のみにピークを示した。放射線を照射すると表れる 240°C ピークは放射線欠損由来である。未照射にも関わらず表れた 350°C ピークは、加熱によって構造が変化すること（構造欠陥）によって生じる発光と考えられるが、放射線を照射することでルミネッセンス強度が増加することから、放射線欠損の影響も受けていることが考えられる。構造欠陥による発光を含むと蓄積線量を過大評価してしまうこと、またルミネッセンス感度が 350°C ピークよりも 240°C ピークの方が非常に高いことから、蓄積線量測定には 240°C ピークが適しているといえる。

図 3.2.2-14 に X 線を 100Gy 照射した合成霰石と未照射の合成霰石の発光曲線を示す。照射、未照射ともに、300, 350°C にピークが生じた。未照射の状態でも発光が示されることから、300, 350°C は構造欠陥によるルミネッセンスと考えられる。また照射によってこれらの発光量が増加することから、放射線欠損の影響も受けている。合成方解石と比較すると、どのピークにも

構造欠陥による発光が生じ、また TL 感度に対して構造欠陥の発光量が大きいため、霰石で蓄積線量測定をする際には、構造欠陥の補正を行う必要があることが明らかになった。

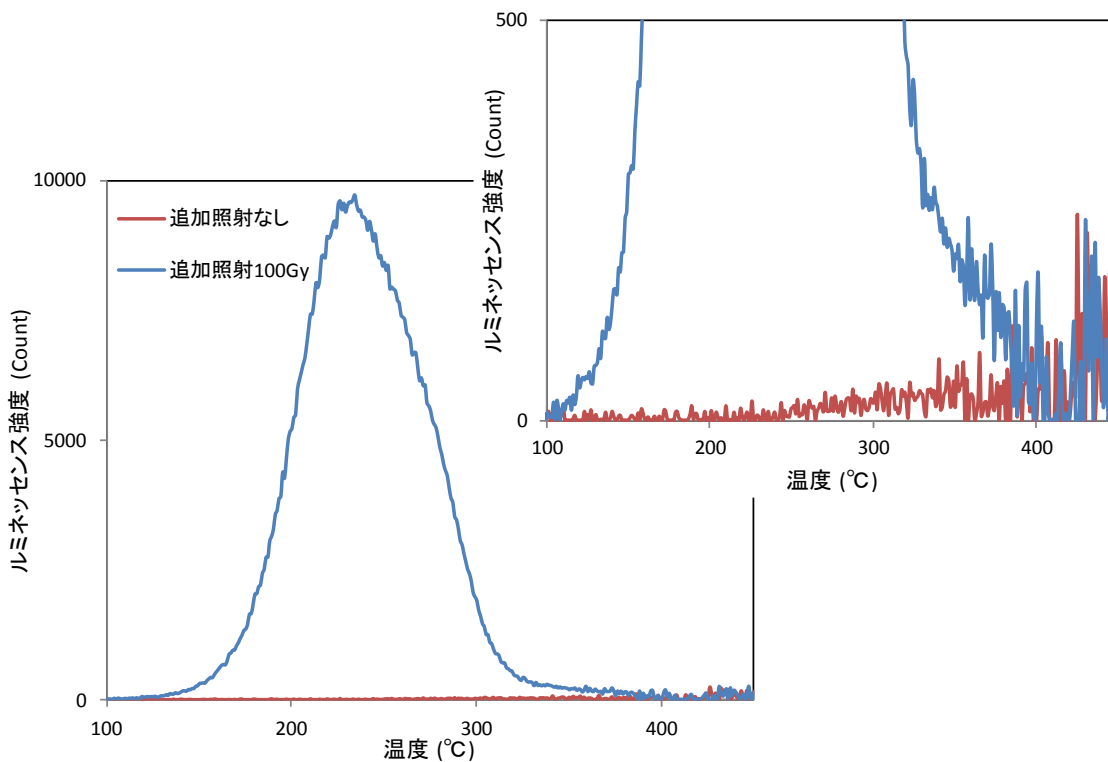


図 3.2.2-13 合成方解石の発光曲線（右上図は拡大図）

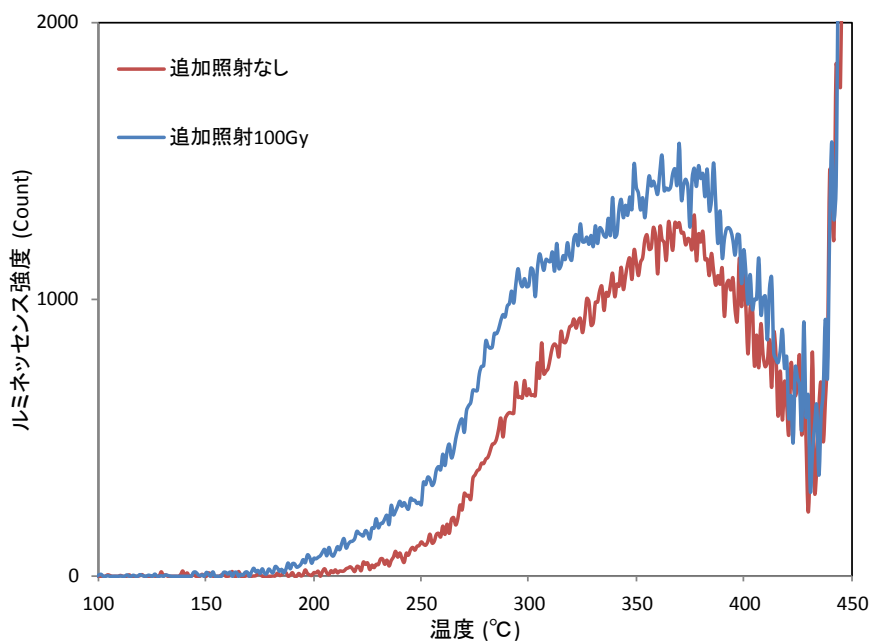


図 3.2.2-14 合成霰石の発光曲線



パラワン島の試料の発光曲線を見ると、350°Cピークが高いこと、また放射線応答性が小さいことから、アラゴナイト型の特徴を示すことが明らかになった。方解石にも関わらず、アラゴナイト型の特徴を示すことから、ルミネッセンス特性は鉱物種（結晶構造）以外の要因に強く依存することが考えられる。そこで 1)結晶子サイズ測定、2)微量元素濃度測定、3)粒径による熱ルミネッセンスの変化、4)試料調整法による変化の測定を行った。

#### 1) 結晶サイズ測定

測定試料の異常な TL ピークは結晶度が小さいために生じる構造欠陥が原因となっている可能性がある。

そこで、測定試料の結晶度を調べるために、結晶子サイズの導出を行った。結晶子サイズの導出には Scherrer の式(Scherrer,1918)[11]を用いる。

$$L = \frac{K\lambda}{\beta \cos\theta} \quad (3.2.2-1)$$

Lは結晶子サイズ、Kはシェラー定数(=0.94)、λはX線の波長、βはXRDの回折ピークの半値全幅、θは回折ピークの位置をそれぞれ表す。なお、βとθはラジアン単位を用いる。

半値全幅を求める際にはピーク強度からバックグラウンドを引き、その半分の値を半値とし、その値でのピークの広がり幅を半値全幅としている。計算した結果、PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-004、PWT01-15-Rc-007、PWT01-15-Rc-010Aの結晶子サイズはそれぞれ  $36.13 \pm 7.45\text{nm}$ 、 $49.87 \pm 7.03\text{nm}$ 、 $30.40 \pm 6.46\text{nm}$ 、 $46.09 \pm 7.84\text{nm}$  となった。比較のため、方解石型の発光曲線を示す合成方解石の結晶子サイズも求めたところ  $46.89 \pm 6.35\text{nm}$  となった。

測定試料と合成方解石の結晶子サイズにはそれほど差がみられないことから、測定試料の異常な TL ピークは結晶度の違いによるものではないと考えられる。

#### 2) 微量元素濃度測定

ルミネッセンス特性は不純物に強く依存することが報告されている。典型的な方解石の TL 曲線を示す天然方解石 4 種(DH1A, DH1B, DR3-2, ST01-08-C8-001)、合成方解石 2 種(Mn 添加: Single2, Mn+Fe 添加:Dual4)と PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-004、PWT01-15-Rc-007、PWT01-15-Rc-010A、PWT06-17-Rh-L01 の微量元素濃度の比較を行った(図 3.2.2-15)。

天然方解石と合成方解石、PWT06-17-Rh-L01 の微量元素測定には金沢大学理工学域の LA-ICP-MS(7500s Agilent)を用いた。外部標準試料として NIST610 を用いた[12]。PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-004、PWT01-15-Rc-007、PWT01-15-Rc-010A の微量元素濃度は平成 28 年度のデータ[1]を利用した。

合成方解石との比較では PWT01-15-Rc-004 において P が、PWT06-17-Rh-L01 において Hf が最も低い値を示したが、それ以外の元素はどれも合成方解石よりも高い値となったため、

どの元素がパラワン島方解石の TL に影響を与えているか特定することはできなかった。天然方解石との比較において、ほぼ全ての測定試料で高い値を示したのは Na、Al、Mo、Ba、Pb の 5 つであった。これが方解石の TL 曲線に影響を与えている可能性はあるが、確証は得られないため他の様々な方解石試料との比較が必要である。また、Laphaz and Iacconi (1976)[13]では Pb の存在によって 260K、300K、410K に 300nm と 620nm の発光からなる TL ピークが見られるという報告がある。したがって、Pb が多く含まれるパラワン島方解石では低温および低波長での TL も観察する必要があると考えられる。

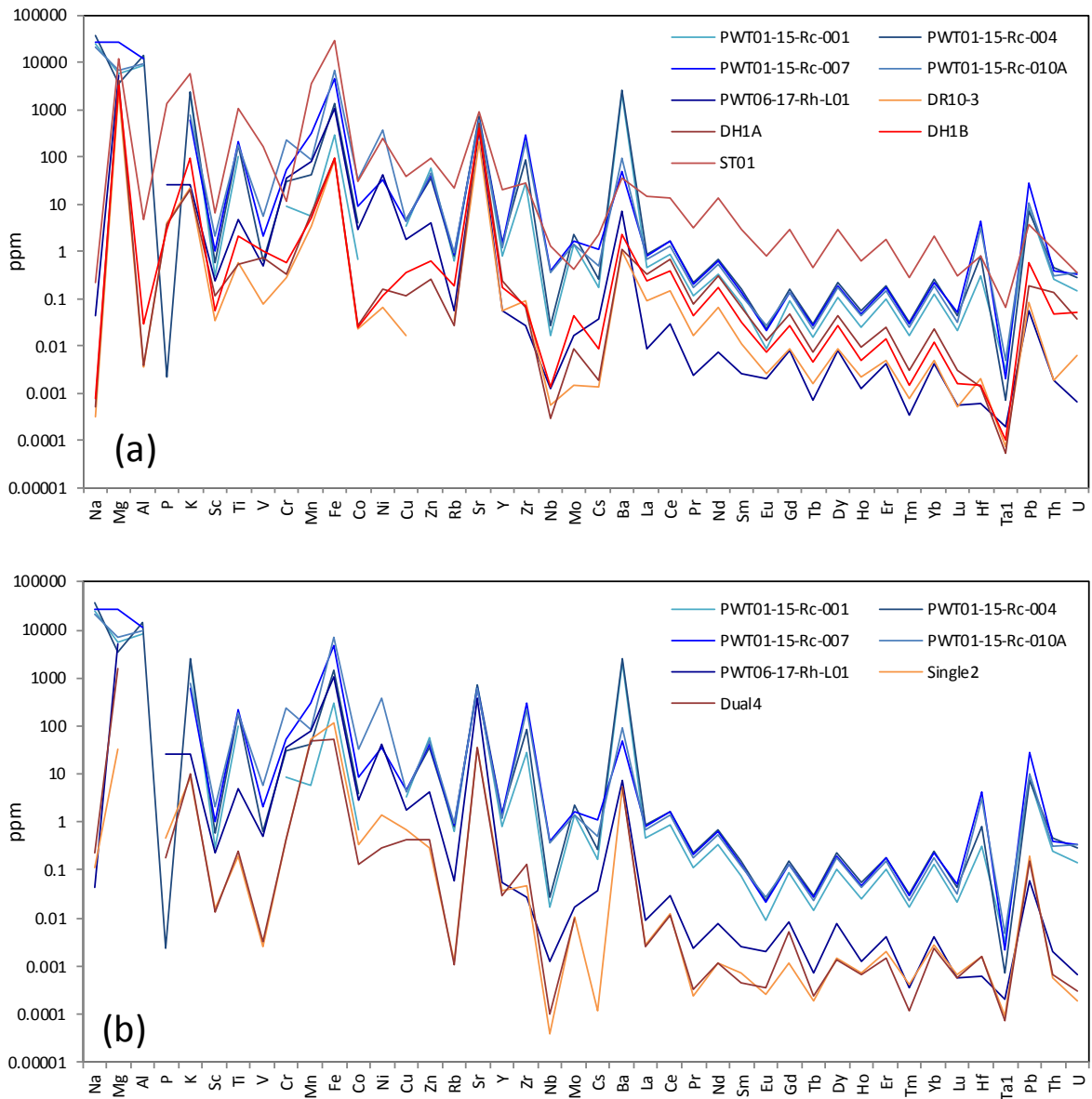


図 3.2.2-15 測定試料と(a)天然方解石、(b)合成方解石との微量元素濃度の比較

### 3) 粒径による熱ルミネッセンスの変化

粒径によって粒子の起源や結晶度が違うのではないかと想定し、 $250\mu\text{m}$  以下のものと  $250\mu\text{m}$  以上のものをふるい分けし、発光曲線を比較した。その結果を図 3.2.2-16 に示す。粒径が  $250\mu\text{m}$  以下のものと  $250\mu\text{m}$  以上のものとは発光量に多少の差は見られたものの、TL 曲線の形状には変化は見られなかった。

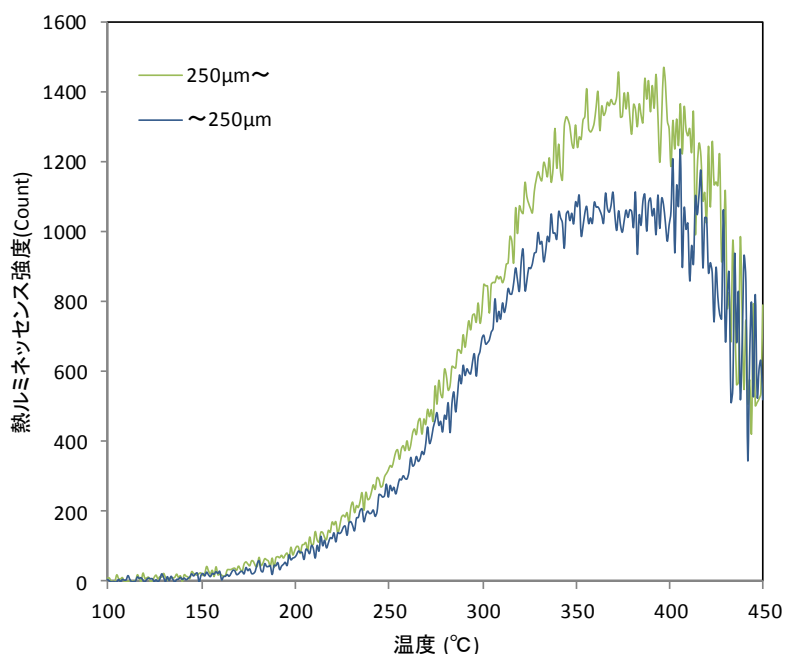


図 3.2.2-16 粒径による熱ルミネッセンスの変化(PWT01-15-Rc-007)

#### 4) 試料調整法による熱ルミネッセンスの変化

試料調整法が影響している可能性を考え、様々な乾燥法( $77^{\circ}\text{C}$ 乾燥、 $100^{\circ}\text{C}$ 乾燥、凍結乾燥)で乾燥した本試料(過酸化水素処理なし)の TL 測定を行い、発光曲線を比較した。また過酸化水素処理の有無によって熱ルミネッセンスに変化が見られるかも調査した。その結果を図 3.2.2-17 及び図 3.2.2-18 に示す。乾燥法の違いは発光量に多少の差をもたらしたが、TL 曲線の形状に大きな変化は見られなかった。一方、過酸化水素処理の有無で TL 曲線に大きな変化が見られたことから有機物が TL 曲線に影響を与えることが明らかになったが、本試料の構造欠陥の要因を特定するに至らなかった。

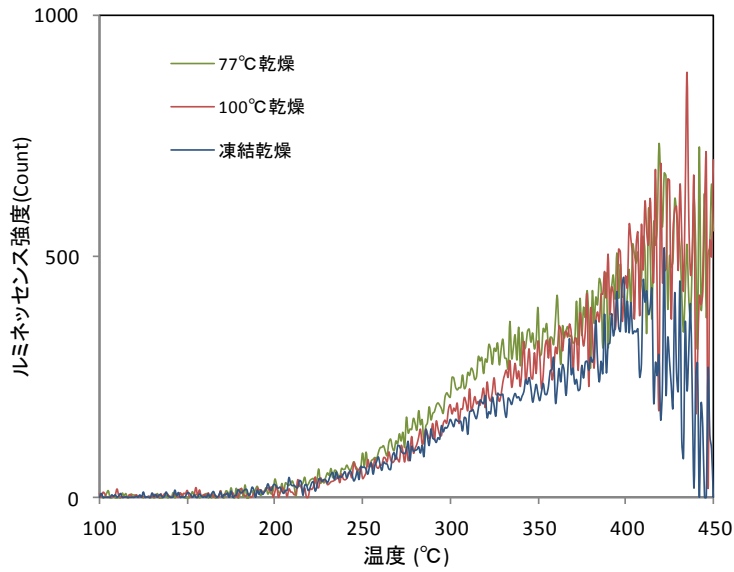


図 3.2.2-17 乾燥法による TL 曲線の変化

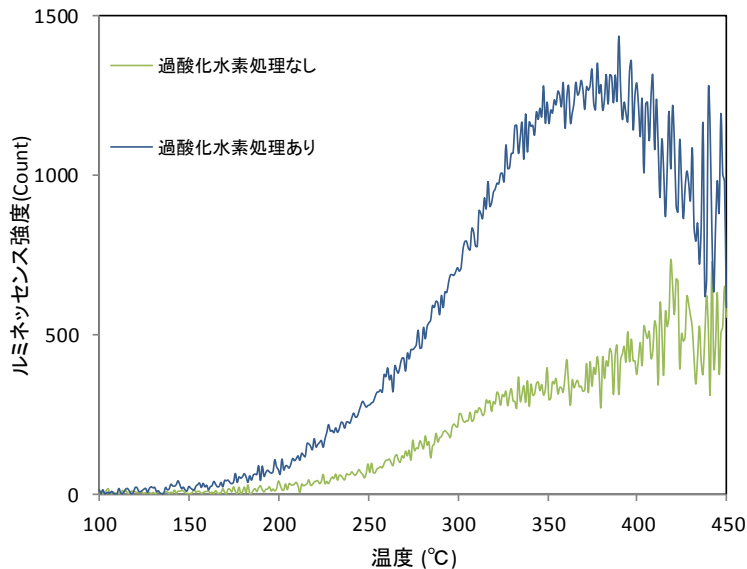


図 3.2.2-18 過酸化水素水処理の有無による TL 曲線の変化

#### (6) 年代の算出

MAAD 法での各補正方法による年代値を算出した。年間線量は、平成 27 年度[2]の放射性元素濃度をから、Ito.et al (2009)[12]の式を用いて各試料の年間線量を導出した。PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-004、PWT01-15-Rc-007、PWT01-15-Rc-010A の年間線量はそれぞれ 0.36mGy/year、0.44mGy/year、0.46mGy/year、0.5mGy/year となった。また PWT06-17-Rh-L01 は試料の年間線量の平均値である 0.44mGy/year を用いた。

テスト照射による補正では PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-007、PWT01-15-Rc-010A の年代はそれぞれ 2530、1350、472ka となった。350°Cピークによる補正では PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-004、PWT01-15-Rc-007、PWT01-15-Rc-010A と PWT06-17-Rh-L01 の

年代はそれぞれ 3640、3570、513、584、5250ka となった。しかし、求めた蓄積線量は放射線損傷とは関係のない構造欠陥が原因と考えられる高温側の強いピークの影響を受けてしまっているため、過大評価である。また、この試料は現在も湧出しているアルカリ水が沈積したもので、比較的若い年代が期待されており、それに加えて同地域の炭酸塩とそれに含まれる有機物の  $^{14}\text{C}$  年代測定法により求めた年代値は 2,000~10,000 年程度であると報告されている。その予想にも合わない結果となっており、過大評価の程度が大きいと考えられる。

## (7) ピーク分離

今回、測定試料の異常な TL ピークによる影響で SAR 法と MAAD 法では共に正しい蓄積線量を求めることが出来なかった。その主な原因は(1)熱ルミネッセンス測定により、TL 曲線の形状が大きく変化すること。(2)200-280°Cの間に存在する TL ピークは 360-400°C付近に存在する TL ピークの裾野により過剰評価していること、が挙げられる。

そこで、放射性応答性を示さない 360-400°Cのピークを構造欠陥由来によるピークであると想定し、放射線応答性を示す 240-280°Cのピークから分離することでより正確な年代値が算出できると考え、ピーク分離を行った。なお、ピーク位置は Mn を約 50ppm 加えた合成方解石のピーク位置(240、280、330、420°C)を参考にしている。例として PWT01-15-Rc-007 の結果を図 3.2.2-19 に示す。

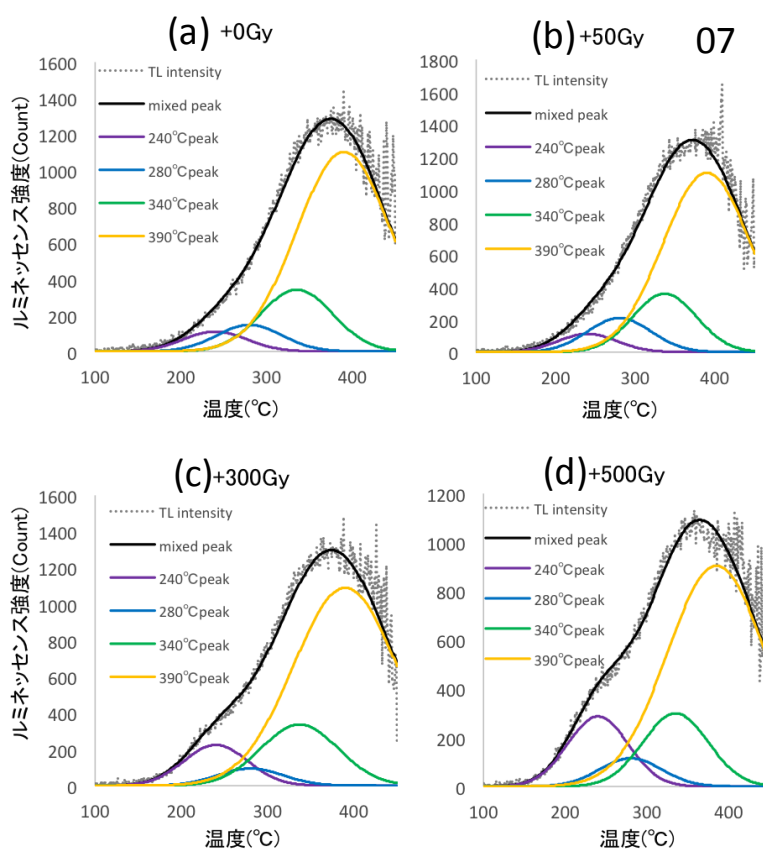


図 3.2.2-19 PWT01-15-Rc-007 のピーク分離結果



240°Cピークが X 線の増加に伴ってその強度が増加したので、240°Cピークを用いて蓄積線量測定を行った。また、試料皿ごとの感度変化を補正するために放射線応答性を示さない390°Cピーク(PWT01-15-Rc-004のみ400°Cピーク)で割ることで規格化を行った。その結果、得られたルミネッセンス成長曲線を図 3.2.2-20 及び図 3.2.2-21 に示す。

ルミネッセンス成長曲線から得られた蓄積線量を基に各試料の年代値を算出したところ、PWT01-15-Rc-001、PWT01-15-Rc-004、PWT01-15-Rc-007、PWT01-15-Rc-010A と PWT06-17-Rh-L01 の年代はそれぞれ 525ka、2460ka、430ka、167ka と 169Ka となった。全ての試料においてその年代値は若くなったが、10 万年を超える古い値となり、依然期待値より古い結果となった。この原因としては 200-280°Cに存在するピークにも構造欠陥が含まれている可能性などが考えられる。より正確な蓄積線量を測定するためには、本試料の正確なピーク位置の特定や構造欠陥由来の発光に関するさらなる研究が必要である。

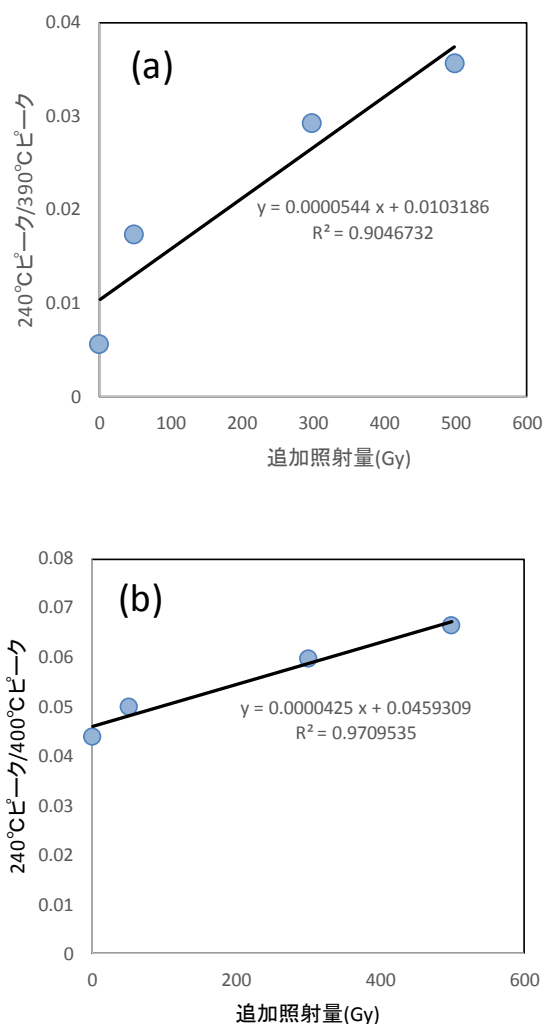


図 3.2.2-20 (a)PWT01-15-Rc-001、(b)PWT01-15-Rc-004 のピーク分離後のルミネッセンス成長曲線

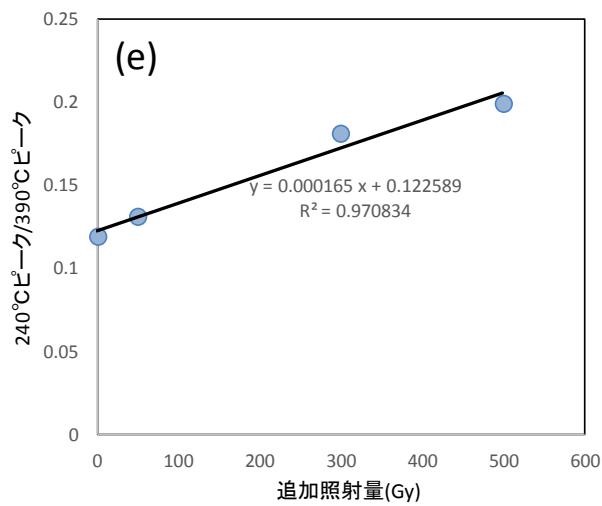
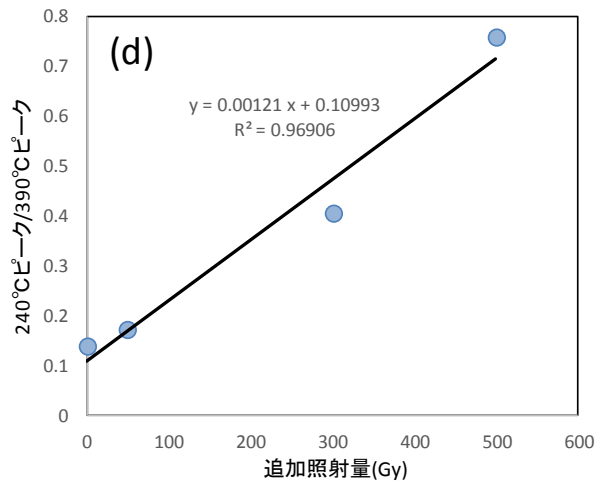
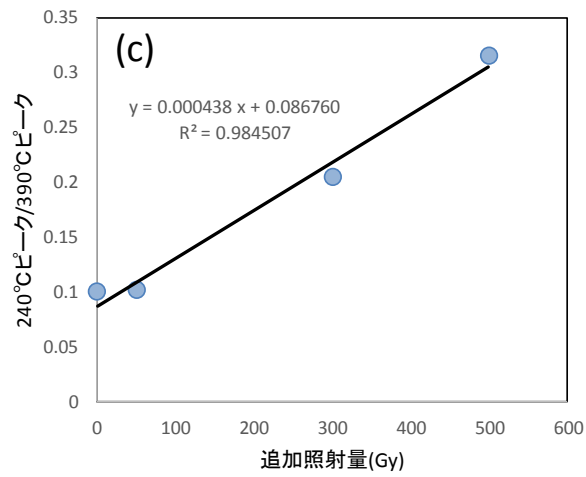


図 3.2.2-21 (c)PWT01-15-Rc-007、(d)PWT01-15-Rc-010A、(e)PWT06-17-Rh-L01 のピーク分離後のルミネッセンス成長曲線

(8) まとめ

フィリピンパラワン島 Narra 地区の炭酸塩の蓄積線量を MAAD 法を用いて算出した。しかし、熱ルミネッセンス測定時による感度変化の影響、高温側の強いピークの影響により求めた蓄積線量が正しいかどうか疑義が残る結果となった。

通常、方解石では 230-260°C あたりに強いピークを示すのに対して、測定した試料ではそのようなピークは見られず、360-400°C 付近に比較的強いピークを示した。このピークはアラゴナイトが示す TL ピークと非常に類似していた。合成アラゴナイトの TL ピークが放射線の照射なしで同様のピークを示したことから、この異常なピークは放射線損傷によるものではなく、放射線損傷とは無関係の何らかの結晶構造の欠陥による可能性が高いと考えられる。この構造欠陥の要因を解明するために、結晶度測定、微量元素濃度の比較、粒径や試料調整法の違いによる TL 曲線の比較を行ったが、その原因を特定することは出来なかった。

構造欠陥由来の発光とみられる 360-400°C のピークを Mn 添加合成方解石のピーク位置を参考に分離した結果、全ての試料においてその年代値は若くなったが、依然 10 万年を超える値となった。これは現在も湧出している高アルカリ水から析出したとみられ、比較的若い年代値が期待されている本試料の予想に反する。この原因としては 200-280°C のピークにも構造欠陥由来の発光が含まれている可能性などが考えられる。したがって、本試料の年代値をより正確に算出するには、本試料の正確なピーク位置を特定することや構造欠陥由来の発光についてさらなる研究が必要である。

### 3.3 放射性炭素年代法( $^{14}\text{C}$ )による年代測定

#### 3.3.1 放射性炭素( $^{14}\text{C}$ )年代法の概要と実施概要

放射性炭素( $^{14}\text{C}$ )は時間とともに壊変し、その半減期は 5,730 年である。これを利用する方法が放射性炭素( $^{14}\text{C}$ )年代法で、現代から数万年前の年代範囲を対象とする年代測定のうち最も精度の高い年代測定法の 1 つである。

動植物が活着している間は光合成や呼吸を行うため大気中とほぼ同じ割合の炭素同位体を含むが、動植物の死後は、大気との交換が止まり、体内に残った  $^{14}\text{C}$  のみが時間とともに減少していくため、試料中の  $^{14}\text{C}$  濃度を測定することにより年代値を推定することができる。

ここでは、国立研究開発法人日本原子力機構の東濃地科学センター土岐地球年代学研究所において、当研究所の加速器質量分析 (Accelerator Mass spectrometry: AMS) 装置 (ペレトロン年代測定装置) を用いて、パラワン島 Narra 地区ナチュラルアナログサイトである Narra3-2 地点のトレンチで採取した炭酸塩、木片、土壌 (ヒューミン) の炭素同位体を定量し、 $^{14}\text{C}$  年代を算出する[14][15][16]。

### 3.3.2 AMS による $^{14}\text{C}$ 年代測定

#### (1) AMS 装置と測定手法

今回利用する AMS 装置（ペレトロン年代測定装置）（図 3.3.2-1）は  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{129}\text{I}$  の放射性同位体の測定が可能である。今回実施する  $^{14}\text{C}$  年代測定では、試料は、カソードに詰められた後、ホイールに充填され、固体試料用イオン源①にセットされる。試料は、そこでイオン化された後、逐次入射システム②で同位体ごとに分離され、加速器③に送られる。加速器では、二段階のイオンの加速が行われ、検出器に運ばれる。 $^{12}\text{C}$  及び  $^{13}\text{C}$  はファラデーカップ検出器④で、量の少ない  $^{14}\text{C}$  は重イオン検出器⑤で検出される[17]。に AMS 装置の概要を表 3.3.2-1 示す。

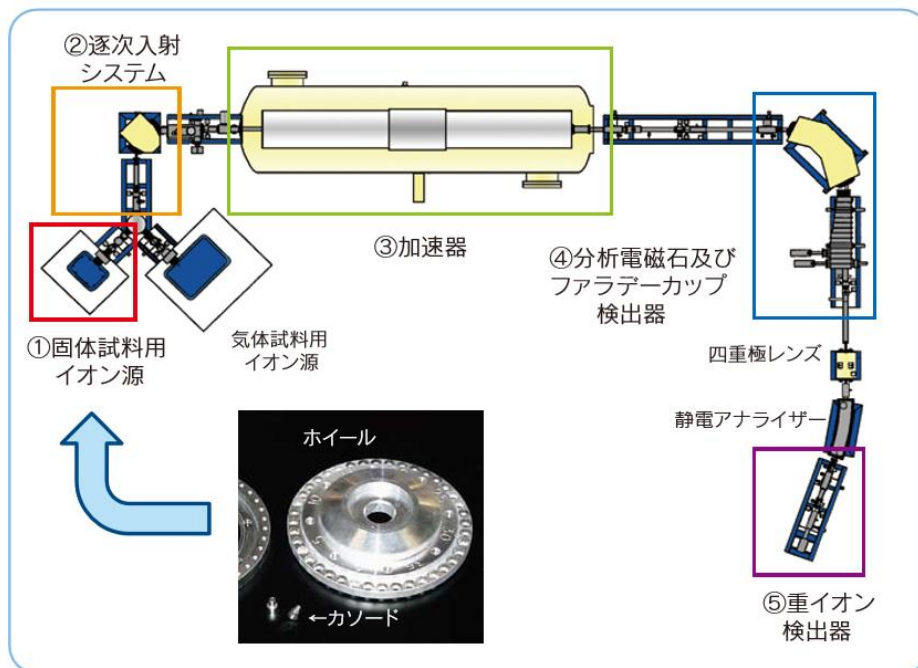


図 3.3.2-1 AMS 装置（ペレトロン年代測定装置）図[15]

表 3.3.2-1 AMS 装置の概要

名称	JAEA-AMS-TONO
製造元	National Electrostatics Corp. (USA)
加速器	ペレトロン 5MV 15SDH-2
最大加速電圧	5 MV
最大電流	1 $\mu\text{A}$
最小試料量	数 mg（炭素の場合）
年代測定範囲	最大約 6 万年前まで（炭素の場合）
測定所要時間	1 試料あたり約 1 時間程度（炭素の場合）



放射性炭素同位体を対象とした基本的な AMS 測定の内容を表 3.3.2-2 に示す。

表 3.3.2-2 AMS 測定の内容

同位体比 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ , $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ , $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$	
加 速 電 圧	4.5 メガボルト (イオンエネルギーは 22.5 メガ電子ボルト)
検出イオン (方法)	$^{12}\text{C}^{4+}$ , $^{13}\text{C}^{4+}$ (以上, ファラデーカップ), $^{14}\text{C}^{4+}$ ( $\Delta E$ 電離箱)
測 定 時 間	1 サイクル約 0.1s ( $^{12}\text{C}$ : 0.3 ms + $^{13}\text{C}$ : 0.9 ms + $^{14}\text{C}$ : 98.6 ms) × 約 3600 サイクル (6 分) × 繰り返し約 10 回。 したがって $^{14}\text{C}$ 測定時間は約 1 時間。

(2) 試料調整

試料は、洗浄、酸・アルカリ処理後に燃焼法によって二酸化炭素を回収し、これを鉄触媒による水素還元法によって炭素粉末 (グラファイト) にして、AMS 測定に用いられる。図 3.3.2-2 に試料調整の流れを示す。

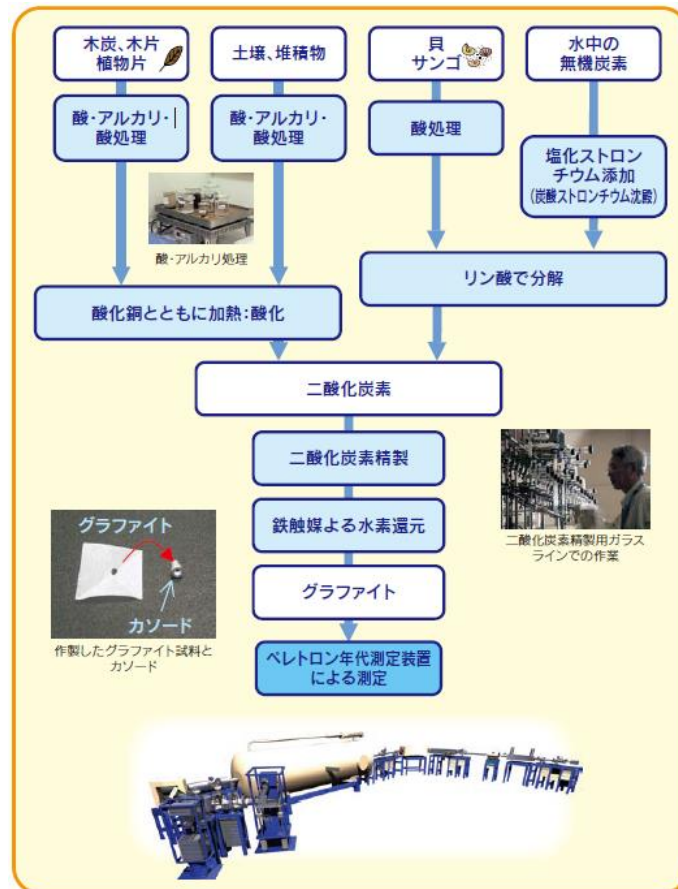


図 3.3.2-2 AMS 測定における放射性炭素年代測定のための試料調整方法[15]

(3)  $^{14}\text{C}$  年代の算出

AMS 装置で測定した同位体比  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ ,  $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  から、次式により年代を算出する。

$$t = -\frac{1}{\lambda} \ln \left[ \frac{N}{N_0} \right] = \frac{T_{1/2}}{0.693} \ln \left[ \frac{N}{N_0} \right] = -8033 \ln \left[ \frac{N}{N_0} \right] = -8033 \ln \left[ \frac{R_{SA}}{f \times R_{STD}} \right]$$

$T_{1/2}$  :  $^{14}\text{C}$  の半減期=5730 年

$\lambda$  :  $^{14}\text{C}$  の崩壊定数

$N$  : 現代炭素の  $^{14}\text{C}$  濃度

$N_0$  : 未知試料の  $^{14}\text{C}$  濃度

$f$  : 標準試料によって決定される定数

$R_{STD}$  : 標準試料の同位体比 ( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  または  $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ )

$R_{SA}$  : 未知試料の同位体比 ( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  または  $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ )

(3.3.2-1)

同位体比の正確さを確認するため、IAEA 国際標準試料を同時に測定している。その pMC (percent Modern Carbon) 単位の  $^{14}\text{C}$  濃度の測定値と標準値の差が標準値の 1% 以内にある事をもって測定データが妥当であると判断する。

$^{14}\text{C}$  のバックグラウンドの由来は主に並列する他のカソードからの汚染と試料調整の際の現代炭素の汚染によると考えられる。 $^{14}\text{C}$  のバックグラウンドによる  $^{14}\text{C}$  年代の補正は次式で表される。

$$t = -8033 \ln \left[ \frac{(R_{SA} \times D_{SA} - R_B \times D_B)}{f \times (R_{STD} - R_B)} \right]$$

$R_B$  : バックグラウンド試料の同位体比 ( $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  または  $^{14}\text{C}/^{13}\text{C}$ )

$D_B$  : バックグラウンド試料の炭素同位体分別による補正係数

(3.3.2-2)

今回の測定では、同位体比の正確さを確認するための標準試料として IAEA C2 (標準値 : 41.14±0.03) を、同位体比の補正のための標準試料として NIST OxII (標準値 : 134.07) を、バックグラウンドの補正のための標準試料として IAEA C1 (標準値 : 0.00±0.02) を用いている。これら標準試料の測定値はナチュラルアナログ分析試料の結果とともに表 3.3.3-1 に示す。

### 3.3.3 パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログ試料の $^{14}\text{C}$ 年代

平成 28 年度[1]に実施した Narra3-2 地区のトレンチから採取した試料の  $^{14}\text{C}$  年代は、木片 (2,443~4669 年)、カワナ貝殻 (2,401~5,203 年)、土壌のヒューミン (9,647~9,721 年) 炭酸塩 (1,965 年) であった。したがって、土壌の年代から、超塩基性岩を起源とする碎屑物が堆積してから約 1 万年程度は経過し、炭酸塩の年代から、高アルカリ地下水が少なくとも 2,000 年程度は碎屑性堆積物に浸出し、その期間アルカリとの相互作用が続いている可能性を示した。

今年度は、アルカリ地下水から方解石が形成されたものが主である炭酸塩の年代が、アルカリ地下水が浸出し始めた時間ともっとも直結すると考えられることから、スメクタイト化が進んでいる碎屑性堆積物直上の炭酸塩を中心に放射性炭素年代測定を実施した。また、トレンチ 7 では白色細粒砂質堆積物層を確認したため、これらの前後の層も含めて土壌中のヒューミンの  $^{14}\text{C}$  年代測定を実施した。

対象となる試料は、碎屑性堆積物直上の炭酸塩が 3 試料 (トレンチ 6 : PWT06-17-Rh-C01 及び PWT06-17-Rh-C02、トレンチ 7 : PWT07-17-Rh-C01)、木片が炭酸塩中から 1 試料 (トレンチ 6 : PWT06-17-Rh-C03)、礫混合炭酸塩中から 1 試料 (PWT07-17-Rh-C06)、碎屑性堆積物中から 2 試料 (トレンチ 6 : PWT06-17-Rh-C04 及び PWT06-17-Rh-C05)、トレンチ 6 の底部の土壌が 1 試料 (碎屑性堆積物 : PWT06-17-Rh-C06)、トレンチ 7 の底部の土壌が 4 試料 (白色細粒砂質堆積物 : PWT07-17-Rh-C02 及び PWT07-17-Rh-C02、碎屑性堆積物 (白色細粒砂質堆積物の下位) : PWT07-17-Rh-C05、碎屑性堆積物 (白色細粒砂質堆積物の上位) : PWT07-17-Rh-C04) である。

これら全 10 試料の  $^{14}\text{C}$  年代の測定結果を表 3.3.3-1 に示す。なお、標準試料として石灰華 (IAEA C2 : 標準値  $41.14 \pm 0.03$ )、同位体比補正の標準試料として米国国立標準・技術研究所 (NIST: National institute of standards and technology) によって作製されたシュウ酸 (NIST OxII : 標準値 134.07)、バックグラウンド補正の標準試料として大理石 (IAEA C1 : 標準値  $0.00 \pm 0.02$ ) を用いている。また、解析は AMS 装置製造元より提供されている解析ソフト (NEC AMS Analysis Program “abc” Ver.6.1) を使用している。

図 3.3.3-1~図 3.3.3-2 に各トレンチの試料採取位置と  $^{14}\text{C}$  年代を示す。

各種試料の  $^{14}\text{C}$  年代測定結果から、トレンチの底部付近で採取した土壌試料 (ヒューミン) が、最も古い年代を示しており、平成 28 年度[1]のトレンチ (トレンチ 3~5) と同様の結果を示した。土壌 (碎屑性堆積物) 中のヒューミンは土壌腐食物質のうちアルカリ、酸ともに不溶性の有機物であり、その  $^{14}\text{C}$  年代が堆積年代を示すと考えられる。トレンチ 6 ( $4,008 \pm 73$  年 : PWT06-17-Rh-C06 ヒューミン)、トレンチ 7 ( $4,516 \pm 74$  年 : PWT07-17-Rh-C05 ヒューミン) という結果から、今年度掘削したトレンチの碎屑性堆積物の堆積年代が 4,000~4,500 年程度と推察される。昨年度のトレンチでは、トレンチ 3 ( $9,721 \pm 57$  年 : PWT03-16-Rh-017 ヒューミン)、トレンチ 5 ( $9,647 \pm 56$  年 : PWT05-16-Rh-014 ヒューミン) であったことを踏まえると、扇状地様である Narra3 サイト (Narra3-1 の源泉から Narra3-2 のトレンチ掘削地点にわたる調査サイト) において走行方向での碎屑性堆積物の堆積年代の差はほとんどない、一方で傾斜方向では下

部層（東南）方向の堆積年代の方が 5,000 年程度若いことがわかる。

木片の  $^{14}\text{C}$  年代については、トレンチ 6 の炭酸塩中の木片 (818 $\pm$ 71 年 : PWT06-17-Rh-C03)、  
砕屑性堆積物中の木片 (1,227 $\pm$ 72 年 : PWT06-17-Rh-C04、762 $\pm$ 71 年 : PWT06-17-Rh-C05)  
トレンチ 7 の礫混合炭酸塩中の木片 (698 $\pm$ 72 年 : PWT07-17-Rh-C06) であった。炭酸塩中の  
木片が砕屑性堆積物中の木片よりも年代が若いのは、調査サイトの堆積過程から整合的である。  
ただし、PWT06-17-Rh-C05 は土壌の年代測定をした PWT06-17-Rh-C06 の近傍であり、これが  
埋没していた砕屑性堆積物の堆積年代よりもかなり若い年代が評価された。このことから、木片  
については、断続的に生じていたと考えられるオフィオライトの浸食・運搬・埋没過程において、  
埋没した木片の位置が移動していた可能性があり、必ずしも木片の年代はそれが埋没していた堆  
積物の堆積年代と一致するとは限らないことを示している。

炭酸塩の  $^{14}\text{C}$  年代については、トレンチ 6 の炭酸塩 (1,703 $\pm$ 72 年 : PWT06-17-Rh-C01、942  
 $\pm$ 71 年 : PWT06-17-Rh-C02)、トレンチ 7 の炭酸塩 (2,771 $\pm$ 73 年 : PWT07-17-Rh-C01) であ  
った。PWT07-17-Rh-C01 は昨年度測定した[1]炭酸塩(トレンチ 5 (1,965 $\pm$ 46 年 : PWT05-16-Rh-  
007)) を含め、PWT07-17-Rh-C01 が最も古い年代を示す炭酸塩である。炭酸塩については、ア  
ルカリ地下水と大気中の炭酸ガスとの相互作用により方解石の沈殿によって形成したものが主で  
あり、アルカリ地下水が連続して流出している間にさらに古い時代に生成した炭酸塩や不純物を  
固結しながら堆積したと考えられるため、アルカリ地下水との接触期間という意味では、その生  
成年代がもっとも接触時間と直結する年代と考えられる。また、したがって、PWT07-17-Rh-C01  
の  $^{14}\text{C}$  年代から、アルカリ地下水が少なくとも 2,800 年程度前からこのサイトに流出し、砕屑性  
堆積物にも浸出していたと考えられる。

表 3.3.3-1 パラワン島 Narra3-2 地区トレンチ 6~7 の各試料の <sup>14</sup>C 年代測定結果

受付番号 736				測定結果 Results							
測定日 平成29年 11月 1日				JAEA-AMS-TONO							
No	ユーザー試料ID	施設試料ID	試料種 <sup>†</sup>	$\delta^{13}\text{C}$ value (‰)	pMC <sup>††</sup>	不確かさ <sup>†††</sup>		<sup>14</sup> C age (BP) <sup>††††</sup>	不確かさ <sup>†††</sup>		
	User's sample ID	Lab's sample ID	Type <sup>†</sup>	(‰)		UNC <sup>†††</sup>	UNC <sup>†††</sup>		UNC <sup>†††</sup>	UNC <sup>†††</sup>	
1	-	OXII	OXII	-17.64	134.07	±	1.10	-	±	-	
2	-	OXII_13296_1	OXII	-17.66	135.04	±	1.18	-	±	-	
3	-	OXII_13296_2	OXII	-17.66	134.46	±	1.17	-	±	-	
4	-	OXII_13297_1	OXII	-17.62	133.99	±	1.17	-	±	-	
5	-	OXII_13297_2	OXII	-17.62	132.73	±	1.15	-	±	-	
6	-	C1	C1	2.48	0.10	±	0.01	-	±	-	
7	-	C1_13303_1	C1	2.48	0.09	±	0.01	-	±	-	
8	-	C1_13303_2	C1	2.48	0.10	±	0.01	-	±	-	
9	-	C2_13551_1	C2	-8.47	41.53	±	0.39	-	±	-	
10	-	C2_13551_2	C2	-8.47	41.24	±	0.39	-	±	-	
11	PWT06-17-Rh-C01	UNK_13394_1	UNK	-16.53	80.89	±	0.72	1703	±	72	
12	PWT06-17-Rh-C02	UNK_13395_1	UNK	-17.41	88.94	±	0.79	942	±	72	
13	PWT06-17-Rh-C03	UNK_13396_1	UNK	-27.29	90.32	±	0.80	818	±	71	
14	PWT06-17-Rh-C04	UNK_13397_1	UNK	-26.41	85.84	±	0.77	1227	±	72	
15	PWT06-17-Rh-C05	UNK_13398_1	UNK	-25.32	90.95	±	0.81	762	±	71	
16	PWT06-17-Rh-C06ヒューミン	UNK_13399_1	UNK	-24.49	60.72	±	0.55	4008	±	73	
17	PWT06-17-Rh-C01	UNK_13400_1	UNK	-16.76	70.82	±	0.64	2771	±	73	
18	PWT07-17-Rh-C04ヒューミン	UNK_13404_1	UNK	-24.96	65.13	±	0.59	3445	±	73	
19	PWT07-17-Rh-C05ヒューミン	UNK_13406_1	UNK	-23.50	57.00	±	0.52	4516	±	74	
20	PWT07-17-Rh-C06	UNK_13407_1	UNK	-24.10	91.68	±	0.82	698	±	72	
21	-	-	-	-	-	±	-	-	±	-	
22	-	-	-	-	-	±	-	-	±	-	
23	-	-	-	-	-	±	-	-	±	-	
24	-	-	-	-	-	±	-	-	±	-	

† 試料種Type. UNK: Unknown (未知試料)

†† pMC: percent Modern Carbon

††† 不確かさ: 1σ標準偏差. UNC(Uncertainty): 1σ standard deviation.

†††† <sup>14</sup>C ageは丸められておりません。この丸めを行う場合、通常、放射性炭素年代の記載に関する慣例より、不確かさが±50年より大きい場合は10年、それ以下の場合は5年で丸められます。



北～東壁面

西壁面



PWT06-17-Rh-C01:  
炭酸塩(碎屑性堆積物の上位層)  
14C年代: 1703±72年

PWT06-17-Rh-C03:  
木片(炭酸塩中)  
14C年代: 818±71年



PWT06-17-Rh-C02:  
炭酸塩(碎屑性堆積物の上位層)  
14C年代: 942±71年



PWT06-17-Rh-C04:  
木片(碎屑性堆積物中)  
14C年代: 1227±72年



PWT06-17-Rh-C05:  
木片(碎屑性堆積物中)  
14C年代: 762±71年  
PWT06-17-Rh-C06:  
ヒューミン(底部の碎屑性堆積物)  
14C年代: 4008±73年

図 3.3.3-1 トレンチ 6 の試料採取位置と 14C 年代

トレンチ-7

西壁面

東壁面



PWT07-17-Rh-C01:  
炭酸塩(碎屑性堆積物の上位層)  
14C年代: 2771±73年



PWT07-17-Rh-C04:  
ヒューミン(底部の碎屑性堆積物)  
14C年代: 3445±73年  
PWT07-17-Rh-C03:  
ヒューミン(底部の斑レイ岩起源の碎屑性堆積物)  
14C年代: Cの量が少なく定量できず



PWT07-17-Rh-C02:  
ヒューミン(底部の斑レイ岩起源の碎屑性堆積物)  
14C年代: Cの量が少なく定量できず



PWT07-17-Rh-C05:  
ヒューミン(底部の碎屑性堆積物)  
14C年代: 4516±74年  
PWT07-17-Rh-C06:  
木片(礫混合炭酸塩中)  
14C年代: 698±72年

図 3.3.3-2 トレンチ 7 の試料採取位置と 14C 年代

### 3.4 まとめ

パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログは現在もアルカリ地下水が湧出する Active Type のサイトであり、高アルカリ地下水が湧出した初期の年代がわかれば、反応時間の最小値として時間スケールを評価することが可能である。ナチュラルアナログサイトである Narra3-2 地点のトレンチでは、アルカリ地下水によって生成・堆積した炭酸塩や土壌（腐葉土）及びそれらの中に取り込まれた木片や貝殻見られ、 $^{14}\text{C}$  年代法の適用が可能である。 $^{14}\text{C}$  年代で評価可能な年代よりさらに古い年代なら、TL 年代法も適用できる可能性がある。

平成 28 年度[1]に実施した、Narra3-2 地区のトレンチの  $^{14}\text{C}$  年代が、木片 (2,443~4,669 年)、カワニナ貝殻 (2,401~5,203 年)、土壌のヒューミン (9,647~9,721 年) 炭酸塩 (1,965 年) であったことを踏まえ、今年度は、アルカリ地下水から方解石が形成されたものが主である炭酸塩の年代が、アルカリ地下水が浸出し始めた時間ともっとも直結すると考えられることから、スメクタイト化が進んでいる碎屑性堆積物直上の炭酸塩を中心に  $^{14}\text{C}$  年代測定を実施した。また、トレンチ 7 では降下火山灰堆積物層を確認したため、これらの前後の層も含めて土壌中のヒューミンの  $^{14}\text{C}$  年代測定を実施した。

各種試料の  $^{14}\text{C}$  年代測定結果から、トレンチの底部付近で採取した土壌試料（ヒューミン）が、最も古い年代を示しており、平成 28 年度[1]のトレンチ（トレンチ 3~5）と同様の結果を示した。土壌（碎屑性堆積物）中のヒューミンは土壌腐食物質のうちアルカリ、酸ともに不溶性の有機物であり、その  $^{14}\text{C}$  年代が堆積年代を示すと考えられる。トレンチ 6 (4,008 $\pm$ 73 年 : PWT06-17-Rh-C06 ヒューミン)、トレンチ 7 (4,516 $\pm$ 74 年 : PWT07-17-Rh-C05 ヒューミン) という結果から、今年度掘削したトレンチの碎屑性堆積物の堆積年代が 4,000~4,500 年程度と推察される。昨年度のトレンチでは、トレンチ 3 (9,721 $\pm$ 57 年 : PWT03-16-Rh-017 ヒューミン)、トレンチ 5 (9,647 $\pm$ 56 年 : PWT05-16-Rh-014 ヒューミン) であったことを踏まえると、扇状地様である Narra3 サイト（Narra3-1 の源泉から Narra3-2 のトレンチ掘削地点にわたる調査サイト）において走行方向での碎屑性堆積物の堆積年代の差はほとんどない、一方で傾斜方向では下部層（東南）方向の堆積年代の方が 5,000 年程度若いことがわかる。

木片の  $^{14}\text{C}$  年代については、トレンチ 6 の炭酸塩中の木片 (818 $\pm$ 71 年 : PWT06-17-Rh-C03)、碎屑性堆積物中の木片 (1,227 $\pm$ 72 年 : PWT06-17-Rh-C04、762 $\pm$ 71 年 : PWT06-17-Rh-C05) トレンチ 7 の礫混合炭酸塩中の木片 (698 $\pm$ 72 年 : PWT07-17-Rh-C06) であった。炭酸塩中の木片が碎屑性堆積物中の木片よりも年代が若いのは、調査サイトの堆積過程から整合的である。ただし、PWT06-17-Rh-C05 は土壌の年代測定をした PWT06-17-Rh-C06 の近傍であり、これが埋没していた碎屑性堆積物の堆積年代よりもかなり若い年代が評価された。このことから、木片については、断続的に生じていたと考えられるオフィオライトの浸食・運搬・埋没過程において、埋没した木片の位置が移動していた可能性があり、必ずしも木片の年代はそれが埋没していた堆積物の堆積年代と一致するとは限らないことを示している。

炭酸塩の  $^{14}\text{C}$  年代については、トレンチ 6 の炭酸塩 (1,703 $\pm$ 72 年 : PWT06-17-Rh-C01、942 $\pm$ 71 年 : PWT06-17-Rh-C02)、トレンチ 7 の炭酸塩 (2,771 $\pm$ 73 年 : PWT07-17-Rh-C01) であ

った。PWT07-17-Rh-C01 は昨年度測定した[1]炭酸塩（トレンチ 5 (1,965±46 年:PWT05-16-Rh-007)) を含め、PWT07-17-Rh-C01 が最も古い年代を示す炭酸塩である。炭酸塩については、アルカリ地下水と大気中の炭酸ガスとの相互作用により方解石の沈殿によって形成したものが主であり、アルカリ地下水が連続して流出している間にさらに古い時代に生成した炭酸塩や不純物を固結しながら堆積したと考えられるため、アルカリ地下水との接触期間という意味では、その生成年代がもっとも接触時間と直結する年代と考えられる。また、したがって、PWT07-17-Rh-C01 の  $^{14}\text{C}$  年代から、アルカリ地下水が少なくとも 2,800 年程度前からこのサイトに流出し、碎屑性堆積物にも浸出していたと考えられる。

一方、トレンチ 1 及びトレンチ 6 の炭酸塩については、ルソン島の Fossil Type のナチュラルアナログで適用した TL 年代法の適用性を検討した。その結果、トレンチの炭酸塩試料は、方解石でみられる 230-260°Cあたりに強いピークがみられない、一方で、360-400°C付近に比較的強いピークを示した。これは合成アラゴナイト放射線の照射なしの TL ピークと類似しており、この異常なピークは放射線損傷によるものではなく、放射線損傷とは無関係の何らかの結晶構造の欠陥による可能性が高いと考えられる。この構造欠陥の要因を解明するために、結晶度測定、微量元素濃度の比較、粒径や試料調整法の違いによる TL 曲線の比較を行ったが、その原因を特定することは出来なかった。

構造欠陥由来の発光とみられる 360-400°Cのピークを Mn 添加合成方解石のピーク位置を参考に分離した結果、全ての試料においてその年代値は若くなったが、依然 10 万年を超える値となった。これは現在も湧出している高アルカリ水から析出したとみられ、比較的若い年代値が期待されている本試料の予想に反する。この原因としては 200-280°Cのピークにも構造欠陥由来の発光が含まれている可能性などが考えられる。したがって、本試料の年代値をより正確に算出するには本試料の正確なピーク位置を特定することや構造欠陥由来の発光についてさらなる研究が必要である。

[参考文献]

- [1] (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター:平成28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)ーナチュラルアナログ調査ー(2017).
- [2] (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター:平成27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)ーナチュラルアナログ調査ー(2016).
- [3] 兼岡一郎:年代測定概論.東京大学出版会(1998).
- [4] 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).
- [5] 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).
- [6] 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).
- [7] 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).
- [8] Murray, A.S. and Wintle, A.G.: Luminescence dating of quartz using an improved single-aliquot regenerative-dose protocol. *Radiation Measurements*, **32**, 57-73 (2000).
- [9] Aitken, M.J.: *Thermoluminescence Dating*. Academic Press, London (1985).
- [10] 岡井貴司, 鈴木涼, 寺島滋, 井上麻夕里, 野原昌人, 川幡穂高, 今井登:産総研地球化学標準物質 JCp-1(サンゴ), JCT-1(シャコガイ)の共同分析結果. *地球科学*, **38**, 281-286 (2004).
- [11] Scherrer, P.: Bestimmung der Größe und der inneren Struktur von Kolloidteilchen mittels Röntgenstrahlen. *Nachrichten von der Gesellschaft der Wissenschaften zu Göttingen, Mathematisch-Physikalische Klasse*, 98-100 (1918).
- [12] 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).
- [13] Laphaz, D. and Iacconi, P.: On some luminescent and optical properties of synthetic calcite single crystals. *Phys. Stat. sol. (a)*, **36**, 603 (1976).
- [14] Saito-Kokubu, Y., Nishizawa, A., Suzuki, M., Ohwaki, Y., Nishio T., Matsubara, A., Saito, T., Ishimaru, T., Umeda, K. and Hanaki, T.: Current status of the AMS facility at the Tono Geoscience Center of the Japan Atomic Energy Agency, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* 294, 43-45 (2013).
- [15] Matsubara, A., Saito-Kokubu, Y., Nishizawa, A., Miyake, M., Ishimaru, T. and Umeda, K.: Quaternary Geochronology using Accelerator Mass Spectrometry (AMS): Current Status of the AMS System at the Tono Geoscience Center, In *Geochronology - Methods and Case Studies*, edited by J. van Mourik, 3-30 (2014), ISBN 978-953-51-1643-1, InTech. <http://www.intechopen.com/books/geochronology-methods-and-case-studies>
- [16] Saito-Kokubu, Y., Matsubara, A., Miyake, M., Nishizawa, A., Ohwaki, Y., Nishio, T., Sanada, K. and Hanaki, T.: Progress on multi-nuclide AMS of JAEA-AMS-TONO, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 361, 48-53 (2015).
- [17] ペレトロン年代測定装置ホームページ  
<http://www.jaea.go.jp/04/tono/shisetsu/pere/pere.htm>





## 第4章 アルカリ環境下での長期変質プロセスとナチュラルアナログ

### 4.1 パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログ

ルソン島の 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）が当初の予想に反して限られた狭い範囲（オフィオライトとベントナイトの界面）に限定されていたことが確認された。しかしながら、相互作用していた時期の地下水の地球化学特性や流動特性が明らかでなく、また変質プロセスの過程でのそれら環境条件の変遷も把握するのが難しい。また、反応時間の評価においても、アルカリ地下水との反応が始まった時間と流出が止まった時間の両者を評価するのは難しい。

このような Fossil Type のナチュラルアナログの限界に対して、Active Type のナチュラルアナログでは、これらを明らかにできる可能性があり、特に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結晶縁での交代・置換や、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－熱力学的に安定な鉱物の生成）について、その現象理解に基づき、ベントナイトの長期健全性やそこで得た実データを用いた解析モデルの改良にまで展開することが期待される。

パラワン島 Narra 地区では、pH11 を超える高アルカリ地下水がスメクタイトに浸出している Active Type のナチュラルアナログサイトが平成 27 年度の調査[1]で確認された。この Narra 地区のナチュラルアナログで確認したスメクタイトは 3 八面体型のサポナイトや 2 八面体型のノントロナイトであるが、オフィオライト（玄武岩ガラス）とベントナイト界面での鉄の供給がある Fossil Type のナチュラルアナログサイトである Saile 鉱山においても、Ca モンモリロナイト主要鉱物とするベントナイトのアルカリ変質により 3 八面体型のサポナイトや 2 八面体型のノントロナイトがアルカリ変質鉱物として生成されたことを確認している。このような鉄粘土鉱物、特に鉄を含有するスメクタイト生成を伴う変質現象が、様々な鉄製の部材の影響や海水等から鉄の流入が考えられる TRU 廃棄物の人工バリアシステムにおいて、緩衝材中のモンモリロナイトの鉄－アルカリ相互作用による変質過程で生じる可能性は十分考えられることから、このフィリピンで見られる天然現象を TRU 廃棄物処分におけるアルカリ－緩衝材の相互作用のナチュラルアナログとしてみることができる。

鉄が影響するベントナイト－セメント相互作用によるアルカリ変質反応において、モンモリロナイトからサポナイトへの変質が生じ、アルカリ環境可で安定であるとすれば、モンモリロナイトに比べ膨潤性等は少し落ちるかもしれないが、同じスメクタイト族の粘土鉱物への変質であり、それによって Saile 鉱山の変質プロセスのように変質が抑制されれば極端な緩衝材の機能喪失の可能性は小さいと見込まれる。したがって、このスメクタイトのアルカリ環境下での安定性も、ナチュラルアナログで観察することが重要である。

## 4.2 ナチュラルアナログ試料の鉱物組成及び組織に関する分析・観察

### 4.2.1 概要

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、XRD/リートベルト法で定量分析（2.7.6(2)参照）を実施した試料である、①アルカリ環境下のハルツバーグジャイト起源の碎屑性堆積物（下部層（泥質部））である PWT06-17-Rh-010 と PWT07-17-Rh-001、①ハルツバーグジャイト起源の碎屑性堆積物（上部層（砂質部））である PWT06-17-Rh-007、②アルカリ環境下の底部の降下火山灰堆積物である PWT07-17-Rh-C03、①アルカリ環境下のハルツバーグジャイト起源の碎屑性堆積物（下部層（泥質部））で白色細粒砂質堆積層近傍の PWT07-17-Rh-002（PWT07-17-Rh-C03 の下位）と PWT07-17-Rh-003（PWT07-17-Rh-C03 の上位）、③アルカリ影響を受けていない風化蛇紋岩質碎屑性堆積物である PWST02-17-Rh-003 と PWST02-17-Rh-005、④アルカリ影響を受けていない斑れい岩質碎屑性堆積物である PWT08-17-Rh-001 の計 9 試料について、電子線プローブマイクロアナライザー(Electron Probe Micro Analyzer: EPMA)による元素マッピング観察、鉱物のスポット定量分析、元素マッピング、マイクロ XRD による微細領域の鉱物同定を実施した。

### 4.2.2 分析手法

#### (1) 試料調製

分析する 9 試料は、フィールド調査での観察と XRD 及び XRF によるバルク分析の結果から、原岩の種類とアルカリとの相互作用の有無から以下の 4 つに大別できる（表 4.2.2-1）。この後の記載はこのカテゴリー順に示す。

表 4.2.2-1 採取した試料の分類

源岩 スメクタイトの生成環境	超塩基性岩	Al 含有量が多い岩石
アルカリ相互作用	PWT07-17-Rh-001 PWT07-17-Rh-002 PWT07-17-Rh-007 PWT06-17-Rh-010 PWT07-17-Rh-003 (やや Al 量多い)	(降下火山灰堆積物)  PWT07-17-Rh-C03
物理的風化作用	PWST02-17-Rh-003 PWST02-17-Rh-005	(斑れい岩質碎屑性堆積物) PWT08-17-Rh-001

試料はすべて未固結であったため、そのまま凍結乾燥を行い、エポキシ樹脂（ペトロポキシ 154）による真空樹脂包埋を行った。アイソメットカッターによってスライスした試料を再び同一樹脂でスライドガラス(28x48 mm)上に固定し、エタノールを用いて#4000 のバフ研磨を行い、エタノール中で超音波洗浄したものを炭素蒸着して EPMA 分析試料とした。試料はマクロ観察をイメージスキャナーで行い、分析対象領域の選定に役立てた。図 4.2.2-1 から図 4.2.2-4 には試料の外観を比較したものを示す。



図 4.2.2-1 超塩基性岩起源のアルカリ相互作用のある碎屑性堆積物試料

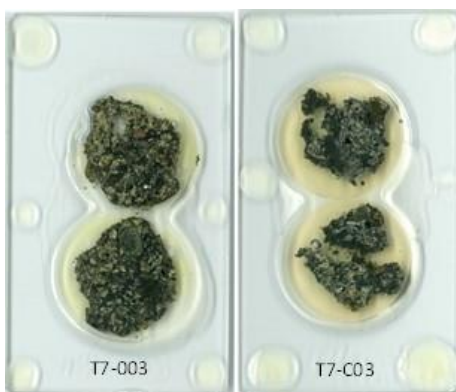


図 4.2.2-2 アルカリ相互作用のある降下火山灰堆積物試料



図 4.2.2-3 超塩基性岩起源の物理的風化作用を受けた碎屑性堆積物試料

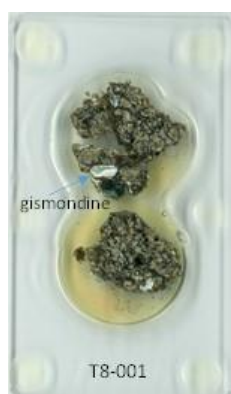


図 4.2.2-4 斑レイ岩起源の物理的風化作用を受けた碎屑性堆積物試料

## (2) 分析手法

EPMA 分析には、JEOL JXA-8200 を用いた (図 4.2.2-5)。観察および分析時の電子線加速電圧は 15 kV であり、定量分析時の試料電流は 12 nA を、マッピング分析の際は 20 nA を用いた。定量法は Oxide ZAF 補正法に基づき、酸化物結晶を標準試料としている。

マイクロ XRD 分析には Rigaku Rint-Rapid-I を用いた。Cu K $\alpha$ 線管球の出力は加速電圧 40 kV、照射電流 30 mA であった。試料への照射 X 線ビーム径は 300  $\mu\text{m}$  で、ビデオカメラ観察しながら位置決めした。取得したデバイシェラー回折線の補正には、同条件で測定した NIST Si 標準試料のピークを用いている。



図 4.2.2-5 試料の分析と観察に用いた分析装置(EPMA)

#### 4.2.3 マイクロ XRD 分析

真空乾燥した試料片を、固化したときの形状を保ち、300 ミクロンスポットのマイクロ XRD 分析 (Rigaku, Rint Rapid-I) に供した。分析した試料は、トレンチ試料の PWT06-17-Rh-010、PWT07-17-Rh-001、-C03、PWT08-17-Rh-001 及びストリップング試料の PWST02-17-Rh-003 である。

図 4.2.3-1 に測定した粒子のビデオ写真を示す。それらの試料において測定された XRD パターンと同定結果について図 4.2.3-2 に示す。

Al に富む斑れい岩質砕屑性堆積物(PWT08-17-Rh-001)では、緑泥石(clinochlore)、サポナイト、ノントロナイトの他に Al-rich スメクタイトであるバイデライトのピークが、比較的、輝石(enstatite = Opx)のピークの強い試料(yellow2)において確認された。また、Al, Si に富む降下火山灰堆積物(PWT07-17-Rh-C03)試料ではシリカ(quartz に同定)のピークが確認できる。初生的な鉍物として輝石以外に角閃石(pargasite)がほとんどの試料において認められる。

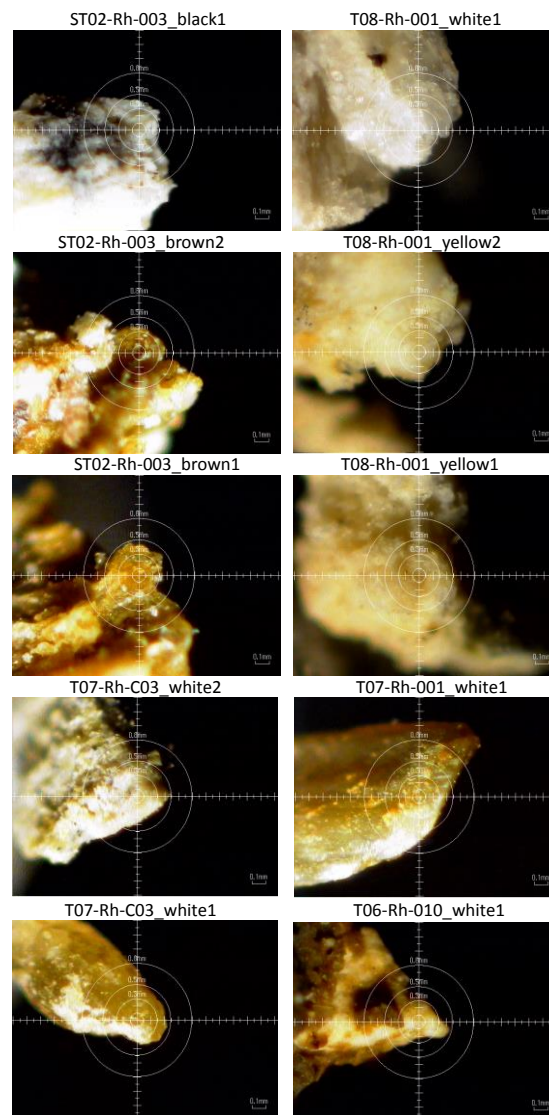
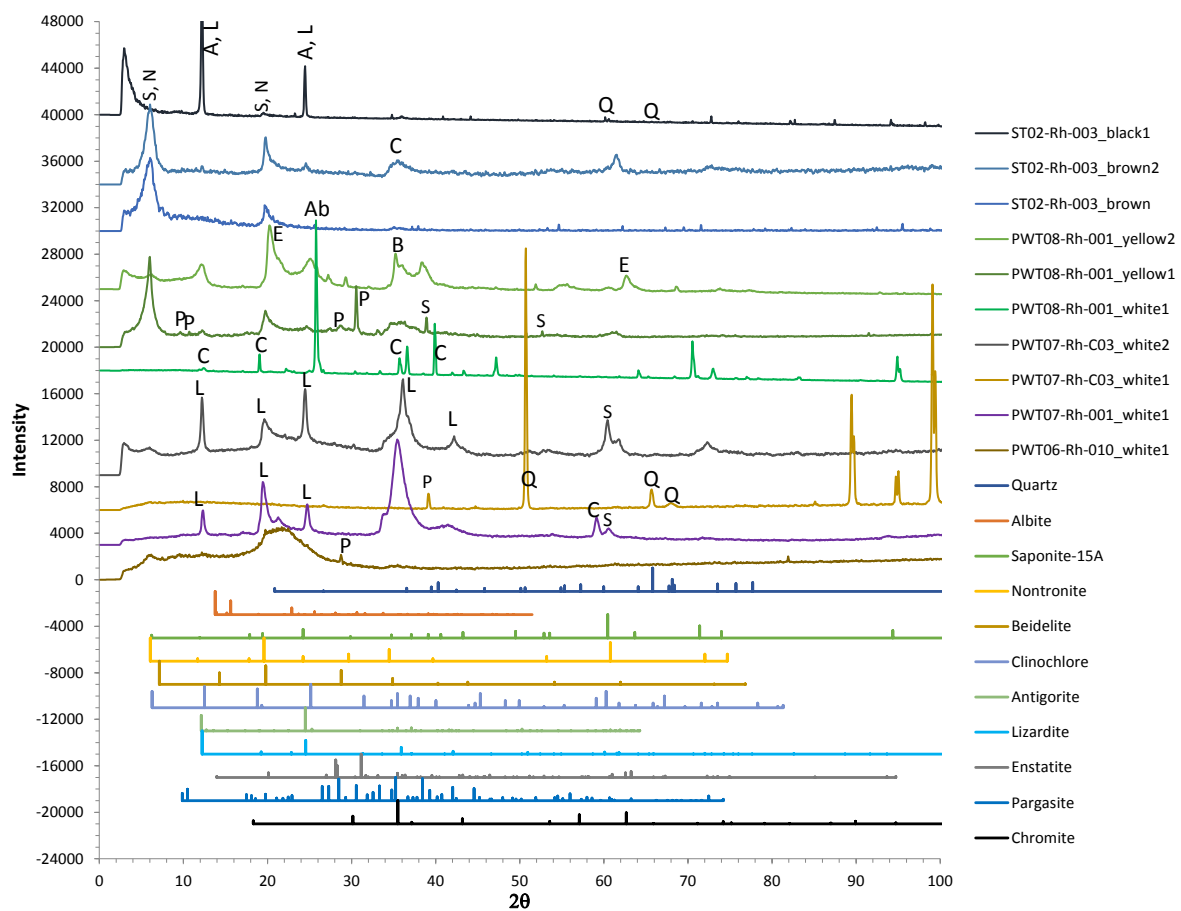


図 4.2.3-1 マイクロ XRD 測定スポットのビデオ写真





[Q: quartz; Ab: albite; S: saponite; N: nontronite; B: beidellite; C: clinochlore; A: antigorite; L: lizardite; E: enstatite; P: pargasite]

図 4.2.3-2 マイクロ XRD パターンと鉱物同定結果

#### 4.2.4 EPMA 分析

各試料において、乾燥固化した試料を樹脂含浸させて研磨薄片を作成して炭素蒸着を施したものを、EPMA を用いて観察・分析した。測定条件は、掃引時間 10 ms/pixel でのステージスキャンによる反射電子線像(BEI: Backscattered ElectronImage)、二次電子線像(SEI: Secondary Electron Image)で、測定視野はすべて 1x1 mm<sup>2</sup>で、1000x1000pixel<sup>2</sup>であった。観察は主に反射電子線像を用いて行い、鉱物組織（性状、共生関係等）についての情報を取得しながら、スポット分析によって化学組成を定量した。代表的な一視野を元素マッピングによって鉱物の分布と化学組成の関係を調べた。表 4.2.4-1 に分析の概要をまとめる。

表 4.2.4-1 EPMA 分析の概要

分析項目	分析手法	試料形態	分析・観察
反射電子線像、 X 線像観察	EPMA	研磨薄片	鉱物の産状観察と組成推定
二次電子線像観察	同上	同上	鉱物の産状観察
鉱物組成分析	同上	同上	定量元素 (Si, Ti, Al, Fe, Cr, Ni, Mn, Mg, Ca, Na, K)
元素分布観察	同上	同上	元素マッピング (Si, Al, Fe, Cr, Mg, Ca, Na, K, O, C)

以下に試料ごとの観察結果を示す。なお、画像中の数字はスポット定量分析位置を示している。また、EPMA 分析に基づく各鉱物の化学組成について 4.2.5 項で詳述する。

(1) PWT06-17-Rh-010

1) 元素マッピング

代表的な視野における元素マッピング分析結果を図 4.2.4-1 に示す。

この試料では多くの蛇紋石はノントロナイト化しており、微細なシリカ沈殿物を伴っている。またノントロナイト部は Ca の不均質が顕著である。

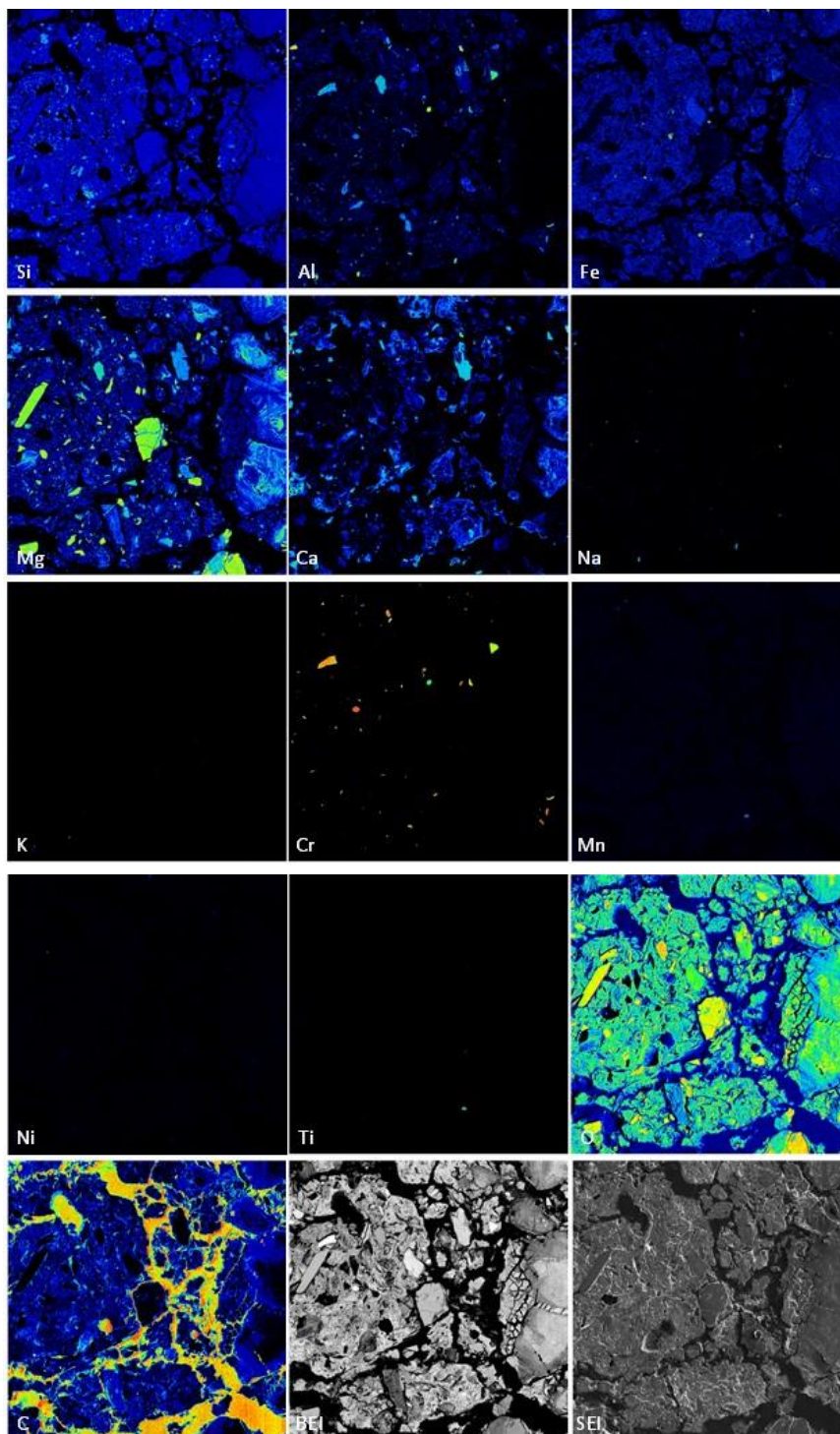


図 4.2.4-1 元素マップ (PWT06-17-Rh-010、3x3 mm<sup>2</sup>)

2) スポット分析

鉱物産状観察とスポット分析を行った結果を図 4.2.4-2～図 4.2.4-5 に示す。

図 4.2.4-3 にはリムが磁鉄鉱化しているクロマイト質スピネルを示している。安定と思われるスピネルもアルカリ変質過程では Mg, Al, Cr を供給するという証拠である。

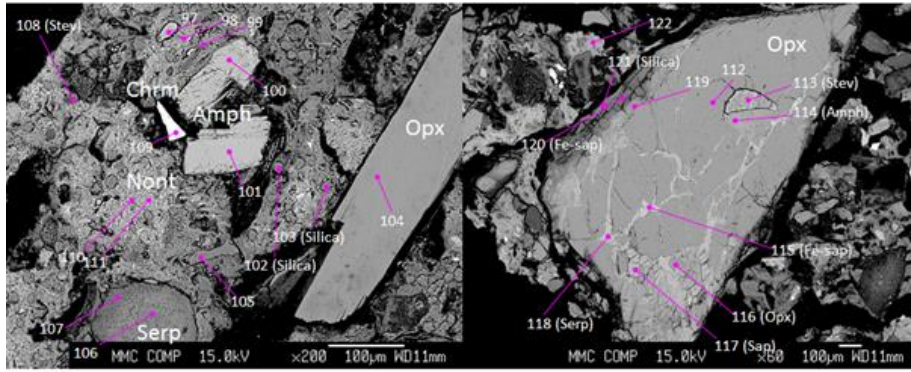


図 4.2.4-2 スポット分析 (PWT06-17-Rh-010、その 1)

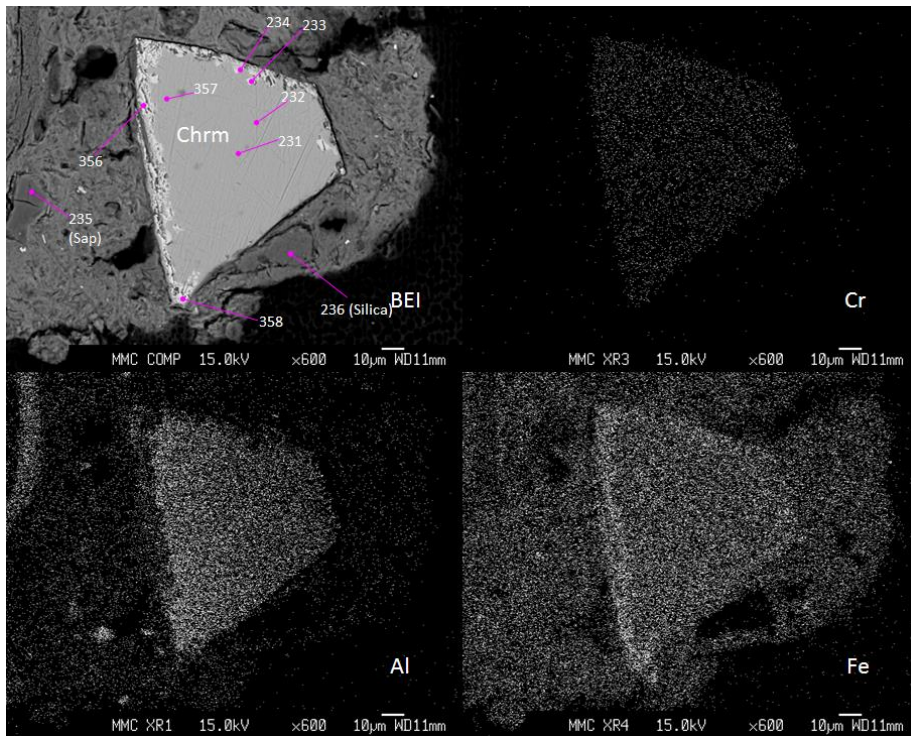


図 4.2.4-3 スポット分析 (PWT06-17-Rh-010、その 2)



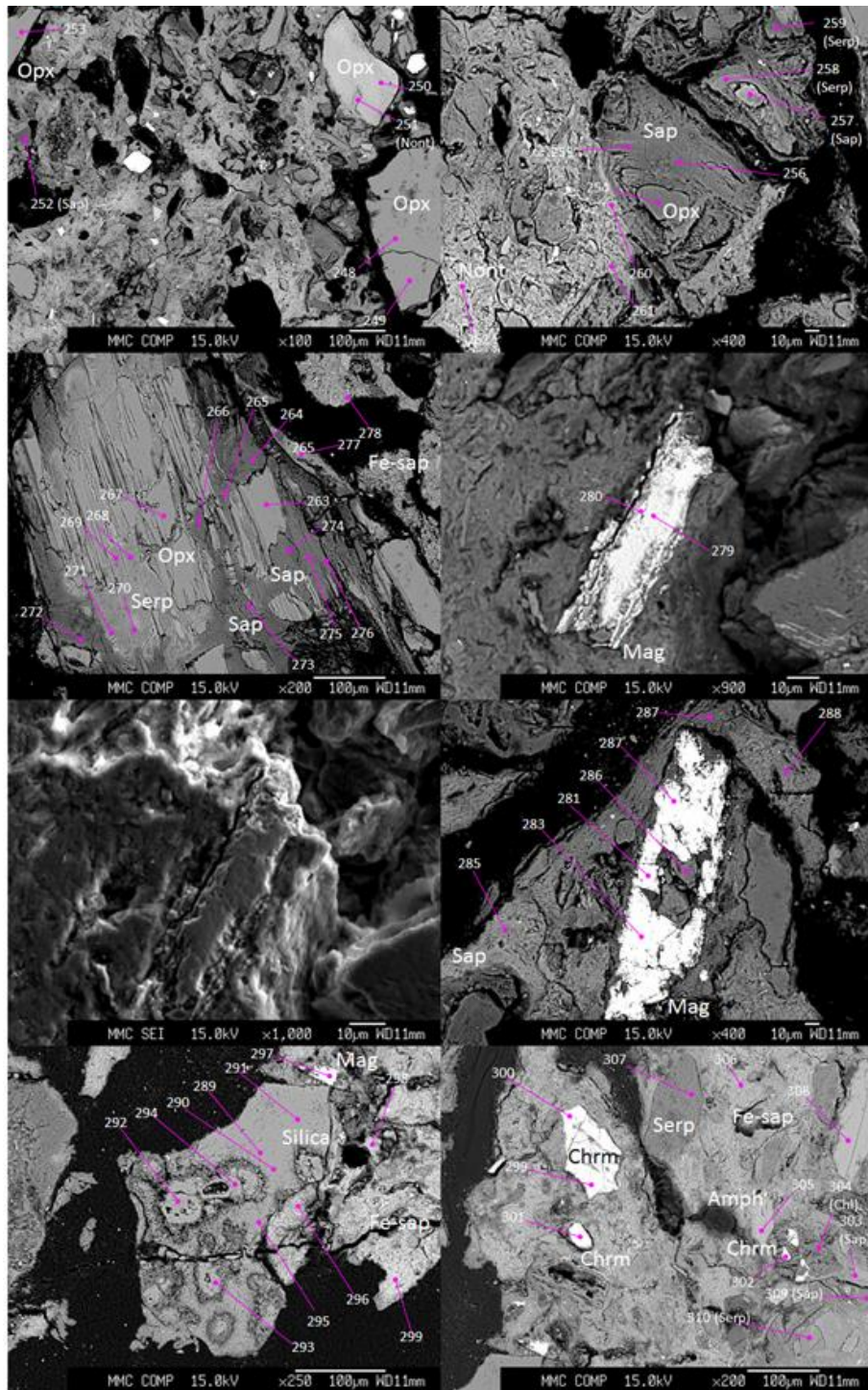


図 4.2.4-4 スポット分析 (PWT06-17-Rh-010、その3)



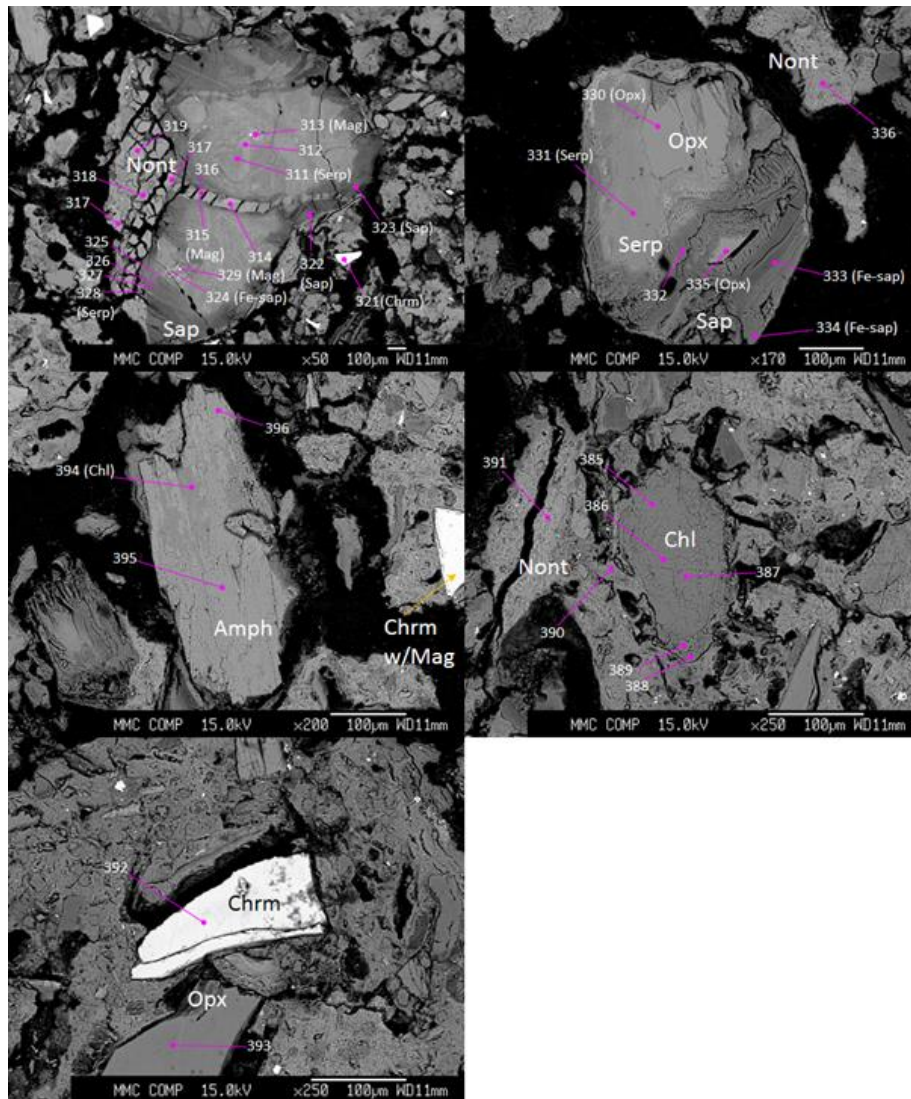


図 4.2.4-5 スポット分析 (PWT06-17-Rh-010、その4)

(2) PWT07-17-Rh-001

1) 元素マッピング

代表的な視野における元素マッピング分析結果を図 4.2.4-6 に示す。

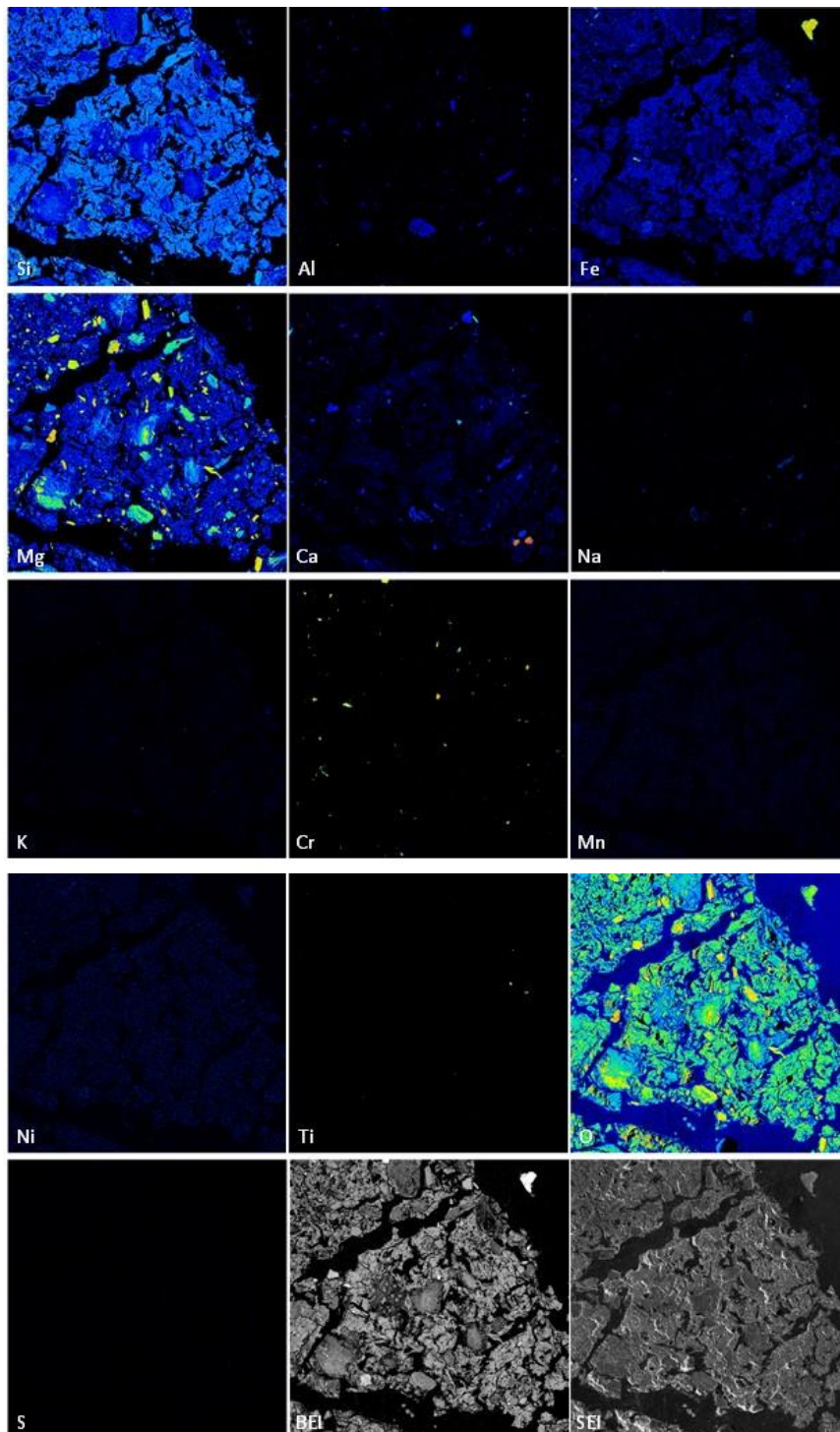


図 4.2.4-6 元素マップ (PWT07-17-Rh-001、4x4 mm<sup>2</sup>)

サポナイト質スメクタイトが 1 mm 以下の比較的粗粒な蛇紋石、緑泥石、破片状の斜方輝石と角閃石を含んでいる様子が確認できる。蛇紋石はコアが Mg に富み、リムは乏しくなったゾーニング組織を残している。微細なクロマイト成分に富むスピネルが分散しているが、同時に粗粒な磁鉄鉱も確認できる。わずかに  $\text{CaCO}_3$  の存在が認められる。

## 2) スポット分析

鉱物産状観察とスポット分析を行った結果を図 4.2.4-7～図 4.2.4-8 に示す。

アルカリ変質により輝石(Opx)やその水和物である蛇紋石(Serp)がサポナイト(Sap)化している様子が観察できる。カルサイトも認められる。

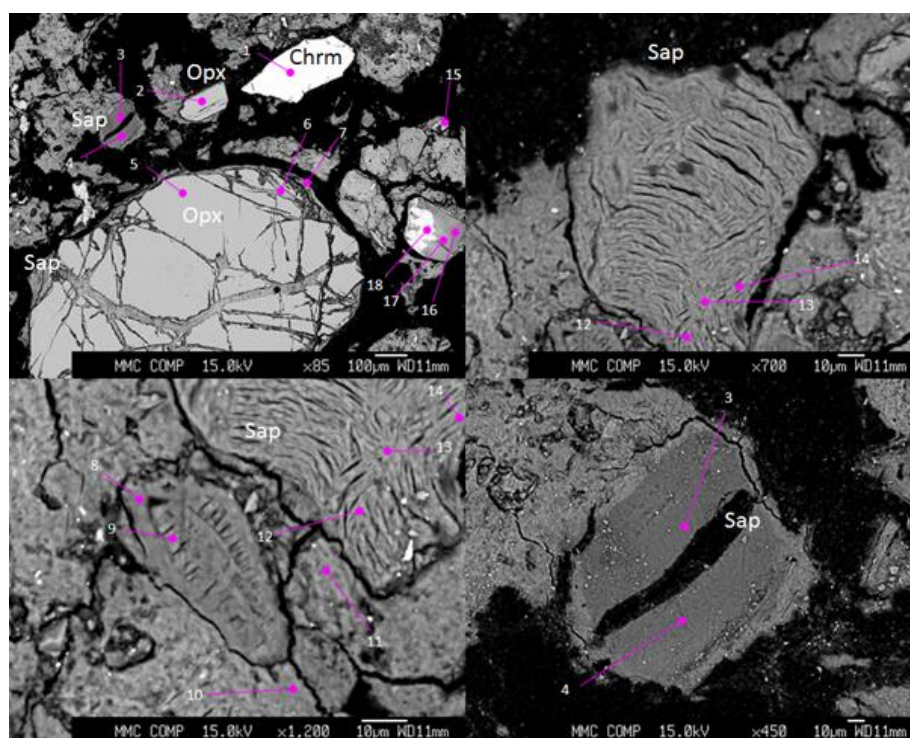


図 4.2.4-7 スポット分析 (PWT07-17-Rh-001、その1)



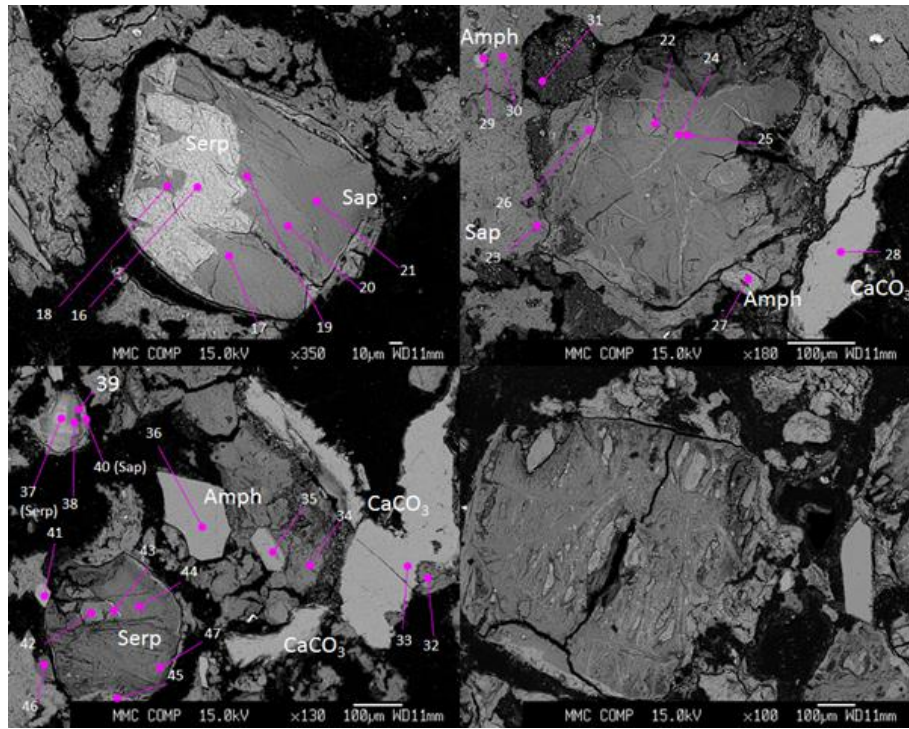


図 4.2.4-8 スポット分析 (PWT07-17-Rh-001, その2)

(3) PWT07-17-Rh-002

1) 元素マッピング

代表的な視野における元素マッピング分析結果を図 4.2.4-9 に示す。

斜方輝石の変質による不均質な Mg の分布を持つ二次鉱物の蛇紋石やスメクタイトの組織が見られる。無数に存在する微細なクロマイト質スピネルの他、角閃石も多いことがわかる。

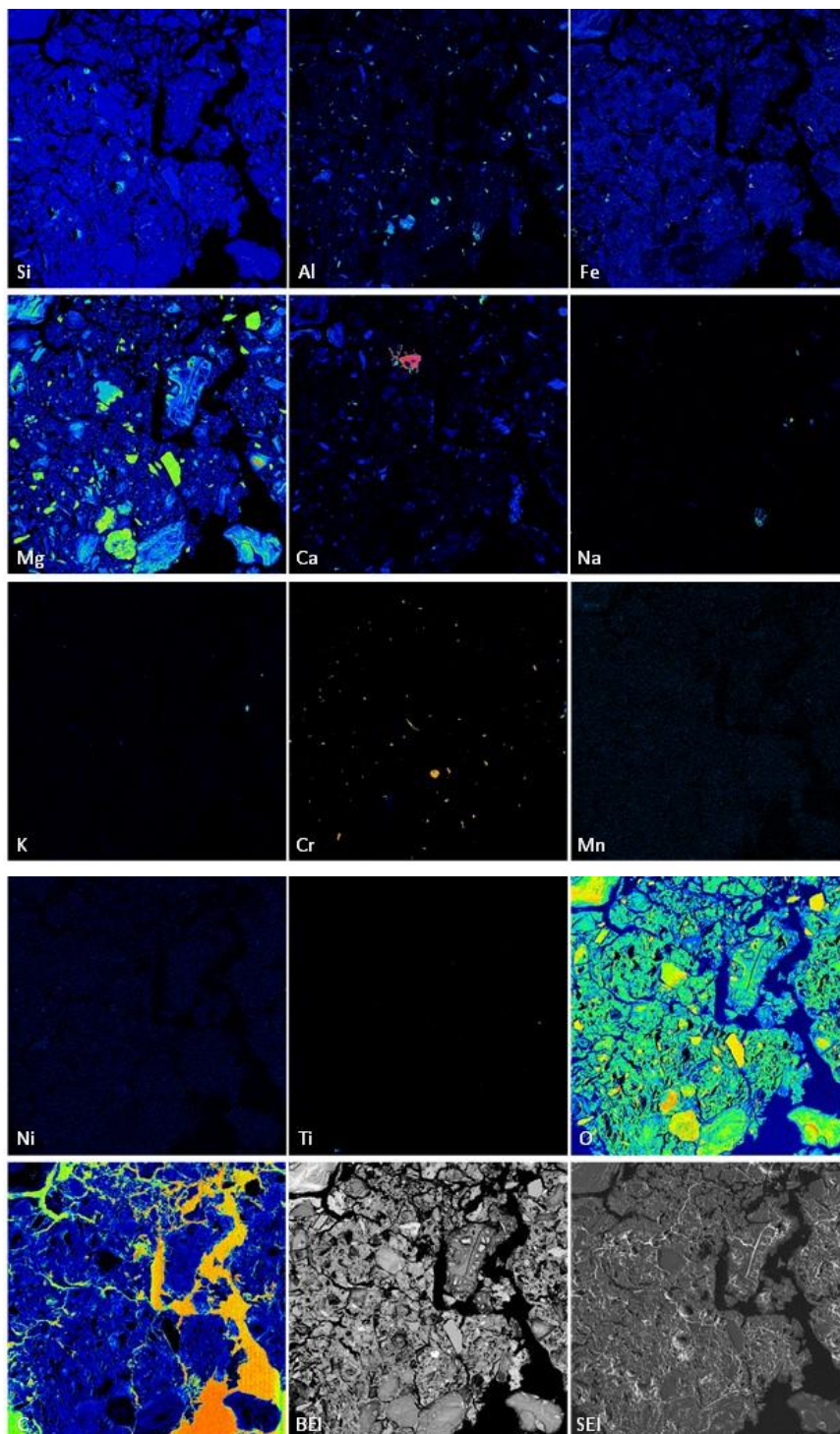


図 4.2.4-9 元素マップ (PWT07-17-Rh-002、3x3 mm<sup>2</sup>)



## 2) スポット分析

鉱物産状観察とスポット分析を行った結果を図 4.2.4-10～図 4.2.4-11 に示す。

蛇紋石や角閃石からノントロナイトが生成しているが、その中間生成物としてスチープンサイト（常に丸みを帯びている）の存在が確認できる。またクロマイト質スピネル以外に磁鉄鉱が含まれている。リムが反応しているスフィーン（くさび石）が認められた。サポナイトのリムがノントロナイトへ変質している産状も見られる。

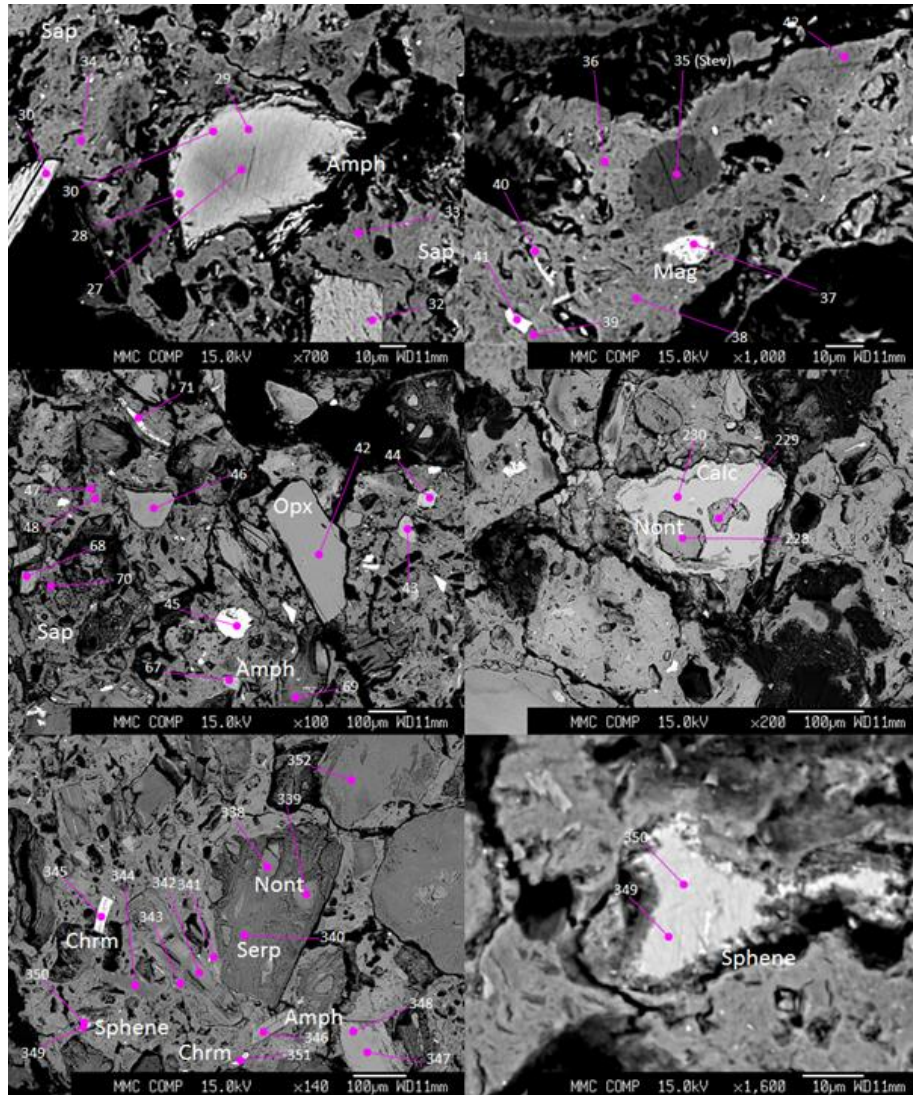


図 4.2.4-10 スポット分析 (PWT07-17-Rh-002、その1)

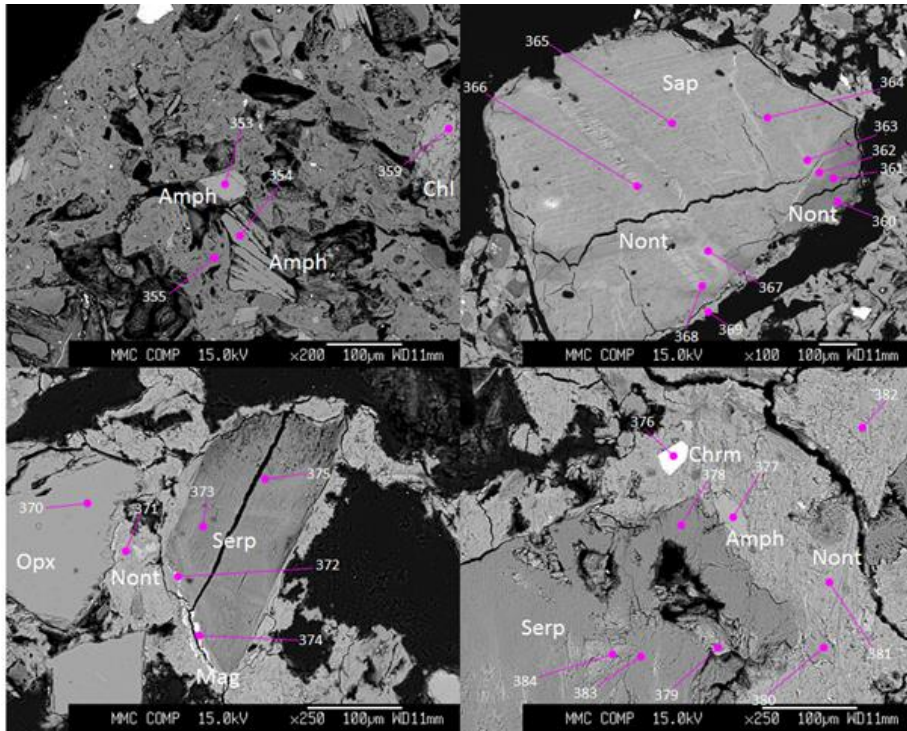


図 4.2.4-11 スポット分析 (PWT07-17-Rh-002、その2)

(4) PWT07-17-Rh-003

1) 元素マッピング

代表的な視野における元素マッピング分析結果を図 4.2.4-12 に示す。

この試料には微細なクロマイト質スピネルが少なく、角閃石も少ないという特徴がある。

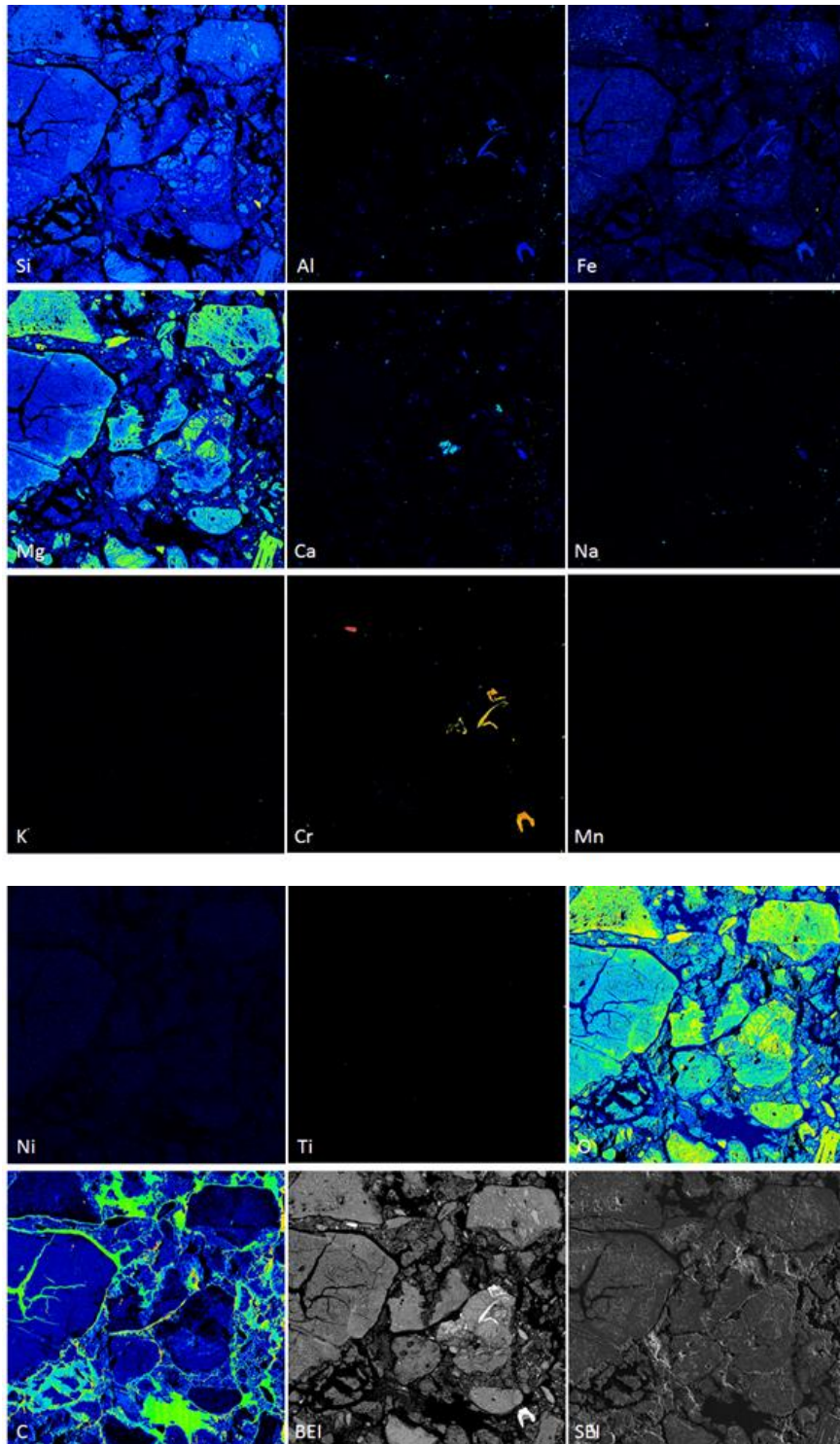


図 4.2.4-12 元素マップ (PWT07-17-Rh-003、5x5 mm<sup>2</sup>)



2) スポット分析

鉱物産状観察とスポット分析を行った結果を図 4.2.4-13 に示す。

内部に未変質のオリビンを有する多孔質な蛇紋石内部はスチープンサイトやサポナイトに交代されており、それらの最外縁部は小規模だが緑泥石化している。

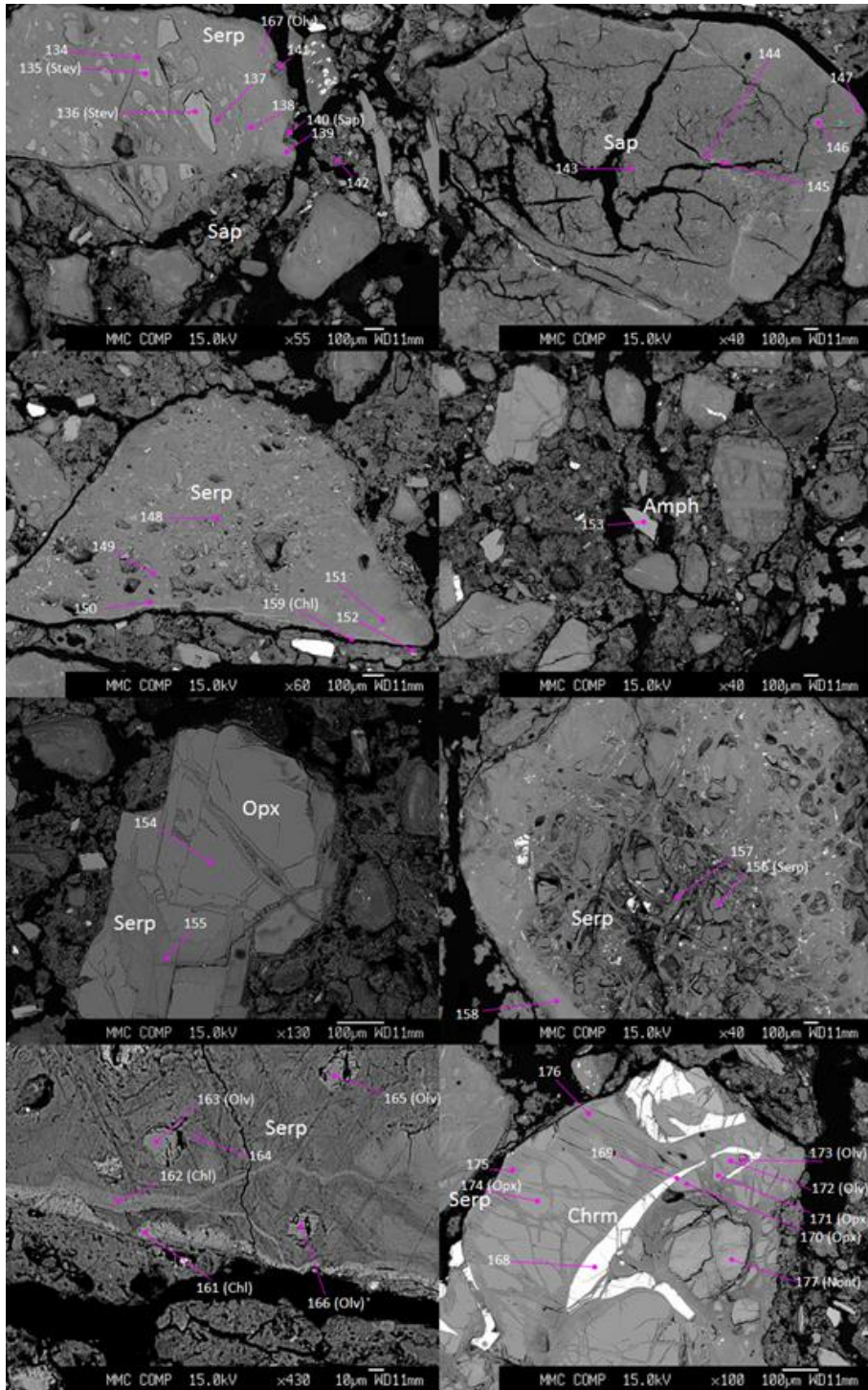


図 4.2.4-13 スポット分析 (PWT07-17-Rh-003)

(5) PWT07-16-Rh-007

1) 元素マッピング

代表的な視野における元素マッピング分析結果を図 4.2.4-14 に示す。

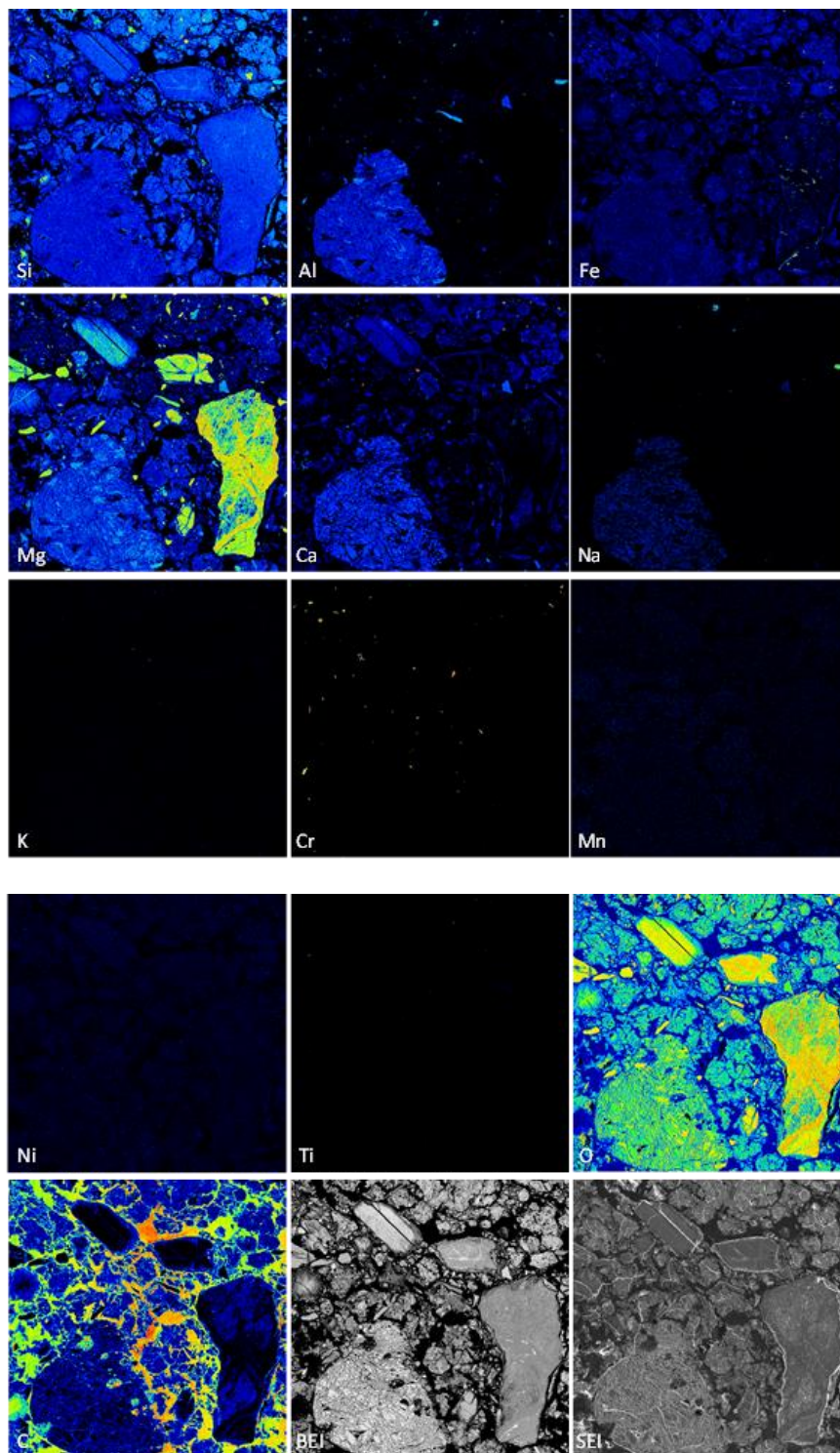


図 4.2.4-14 元素マップ (PWT07-17-Rh-007、3x3 mm<sup>2</sup>)



## 2) スポット分析

鉱物産状観察とスポット分析を行った結果を図 4.2.4-15～図 4.2.4-17 に示す。

この試料には緑泥石と共存する角閃石クロットが含まれている。粗粒な蛇紋石やサポナイト化した粒子は Fe と Ca に富むノントロナイトのリムを持っている。また微細なカルサイトも比較的多く認められる。微細な分散粒子のクロマイト質スピネル、蛇紋石内部に生成している磁鉄鉱、スポット的に生成しているシリカ鉱物の他、比較的粗粒なアルバイト質斜長石や蛇紋石の分散結晶が認められる。

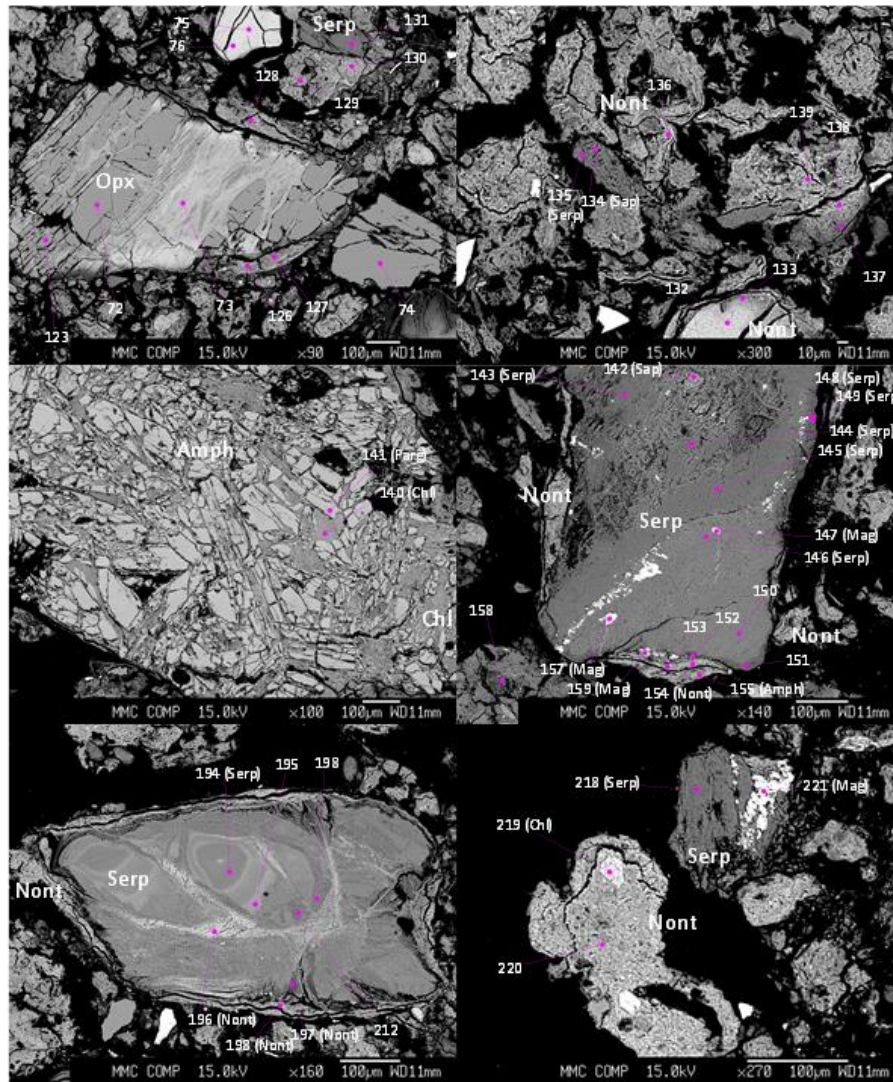


図 4.2.4-15 スポット分析 (PWT07-17-Rh-007、その1)

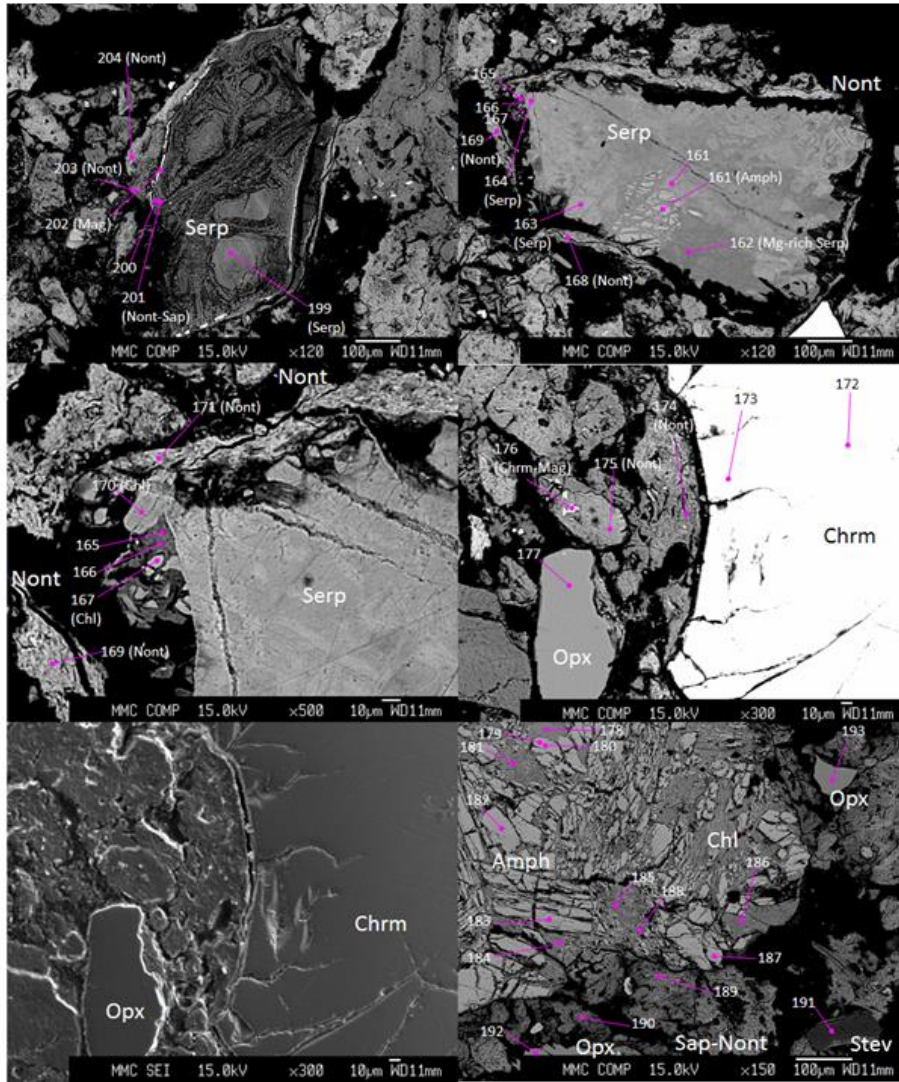


図 4.2.4-16 スポット分析 (PWT07-17-Rh-007, その2)



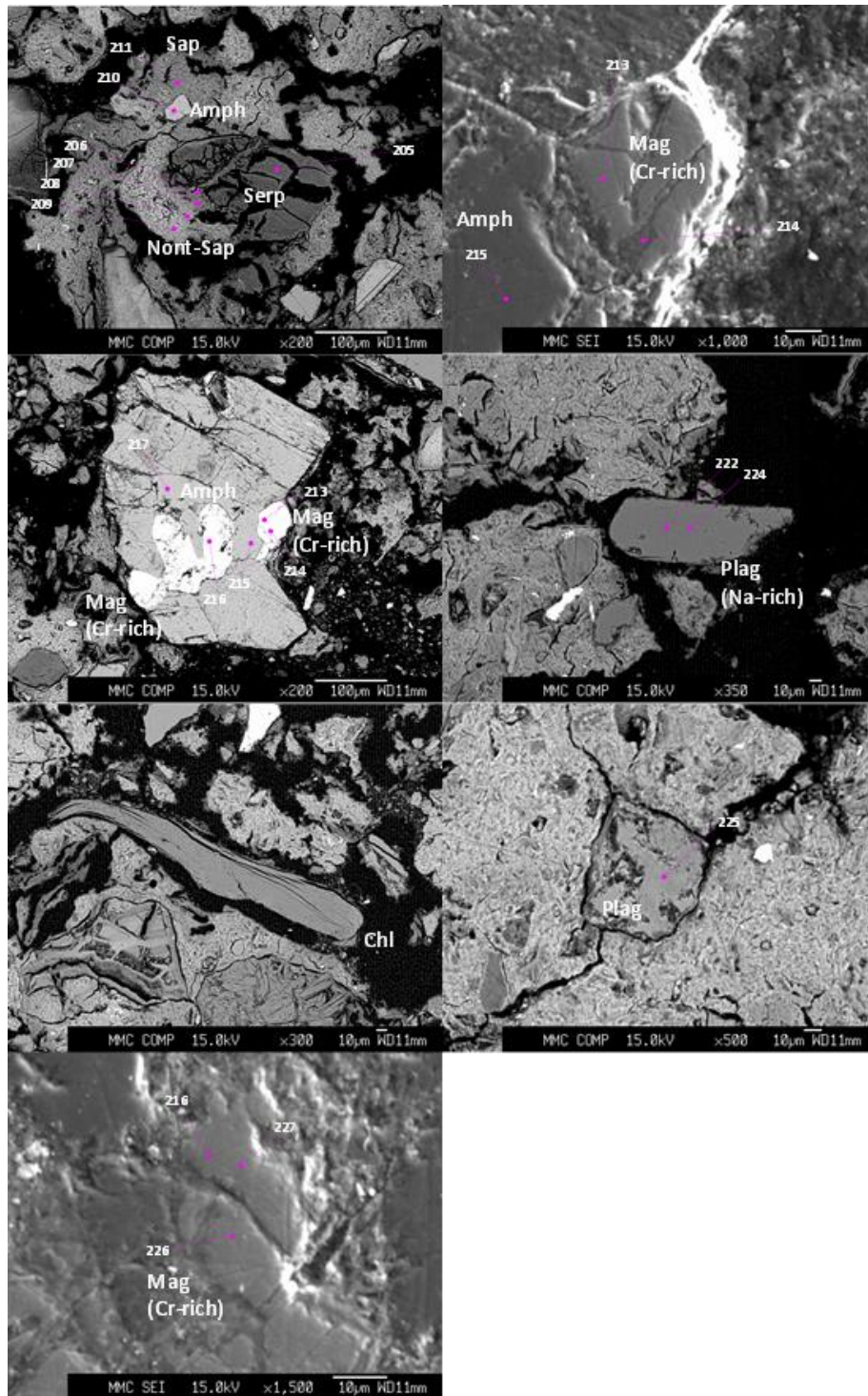


図 4.2.4-17 スポット分析 (PWT07-17-Rh-007, その3)

(6) PWT07-17-Rh-C03

1) 元素マッピング

代表的な視野における元素マッピング分析結果を図 4.2.4-18 に示す。

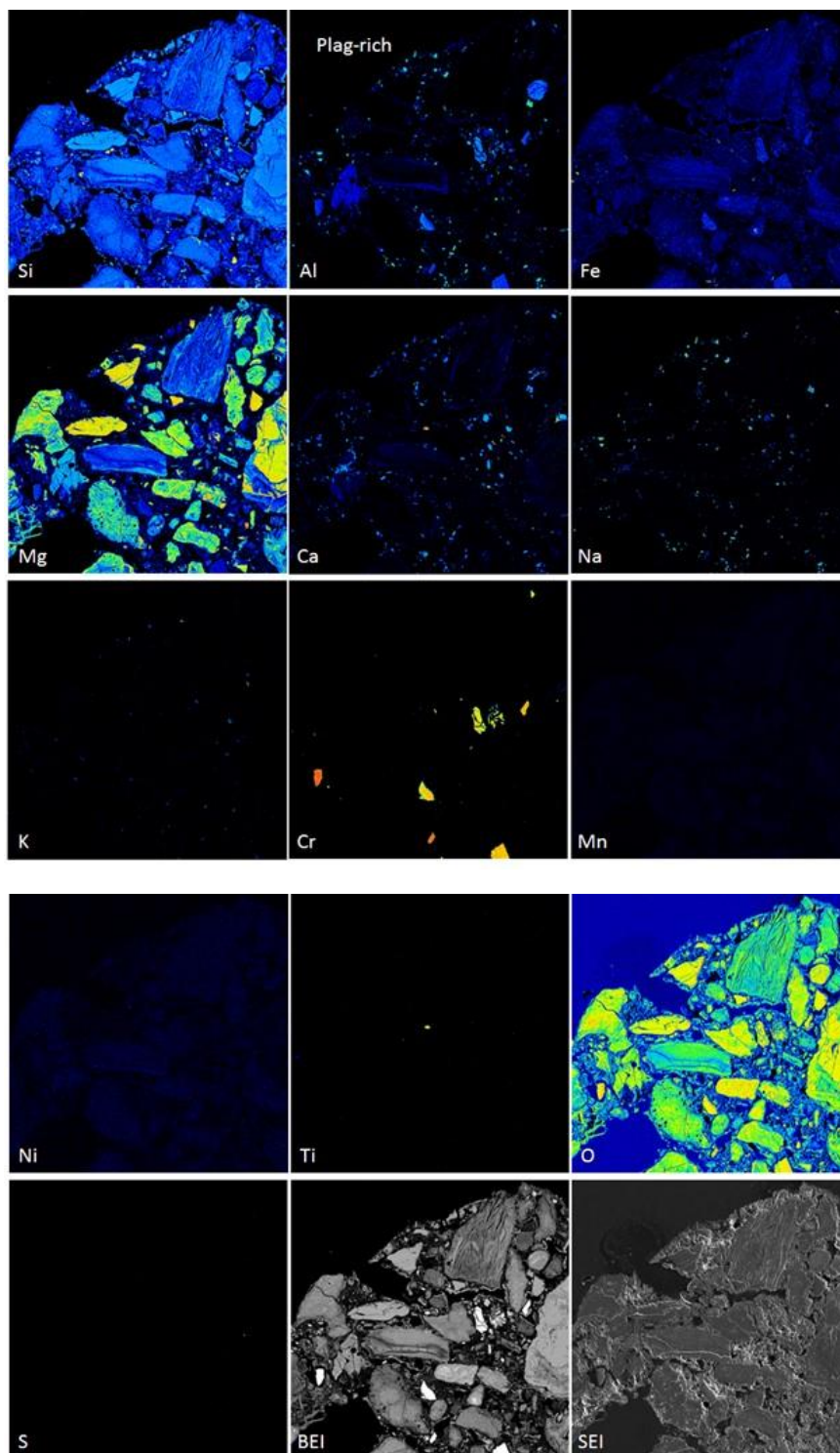


図 4.2.4-18 元素マップ (PWT07-17-Rh-C03、4x4 mm<sup>2</sup>)

微細な斜長石と角閃石に富む特徴を持つ。またシリカ沈殿物や K を持つ微粒子が多いことがわかる。中央に位置するサポナイト粒子の周縁部が Al-rich の組成を示しており、この部分がバイデライト化していることが後述のスポット分析で明らかとなった。

## 2) スポット分析

鉱物産状観察とスポット分析を行った結果を図 4.2.4-19～図 4.2.4-21 に示す。

斜方輝石を交代してできたサポナイトは Al-rich のバイデライトに縁どられ、さらにこれらは最終的なマトリクス構成スメクタイトであるノントロナイトで覆われている。ノントロナイトはシリカと共存している。火山軽石（パミス）が確認され、ガラスも残存している様子が確認された。斑晶と思われる斜長石も共存している。破片状の斜長石も多く含まれ、これらを縁どるスメクタイトはモンモリロナイト組成であった。つまり、サポナイトを交代してできるバイデライトと、斜長石を交代してできるモンモリロナイトの2つの Al-rich スメクタイト形成が起こっていると考えられる。このときに作用している Al の起源はおそらく斜長石である。パーガサイト質角閃石やクロマイト質スピネルも Al のソースとして重要であるが、これらはおそらく Fe も供給するためノントロナイト化に寄与していると考えられる。



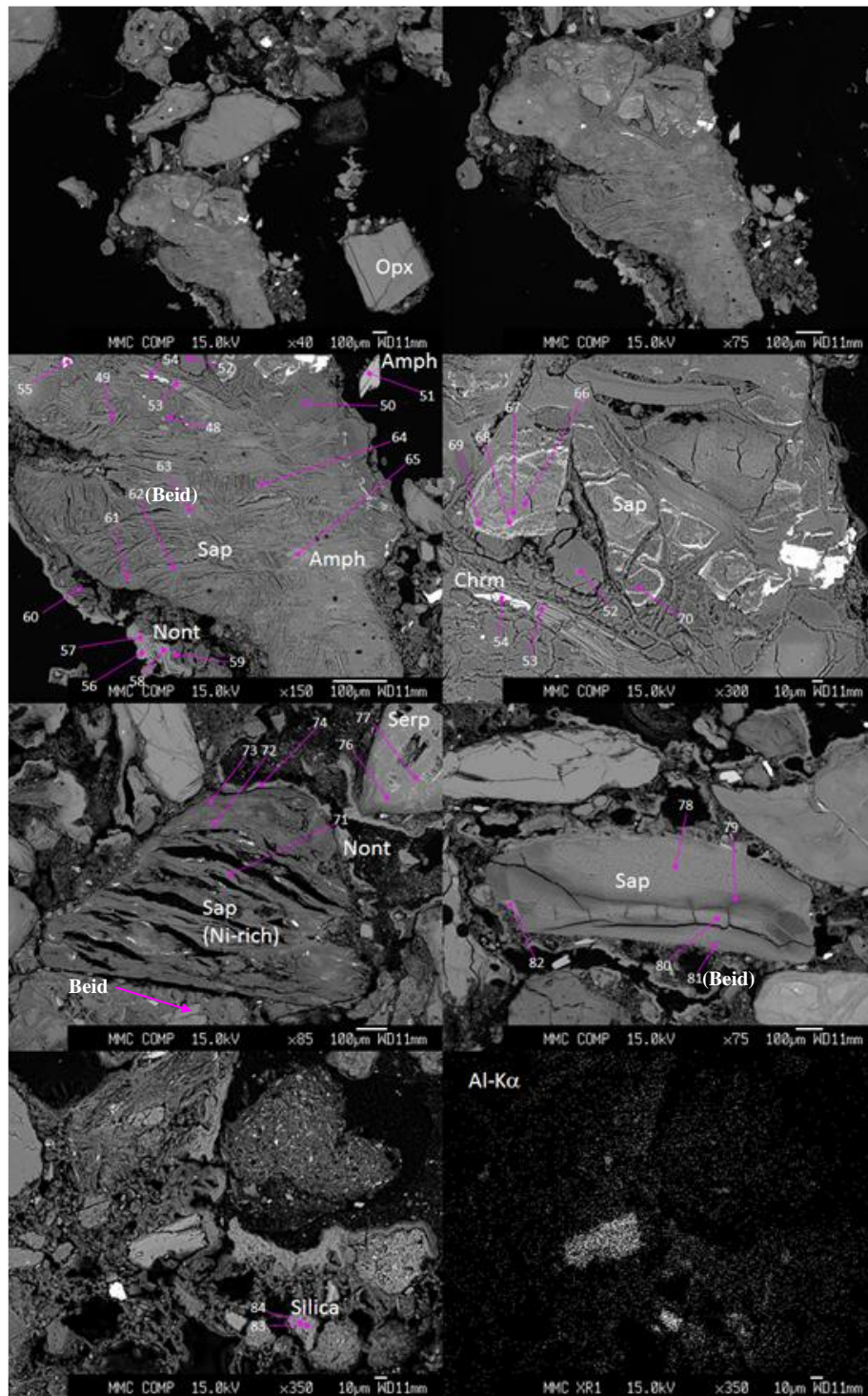


図 4.2.4-19 スポット分析 (PWT07-17-Rh-C03、その1)

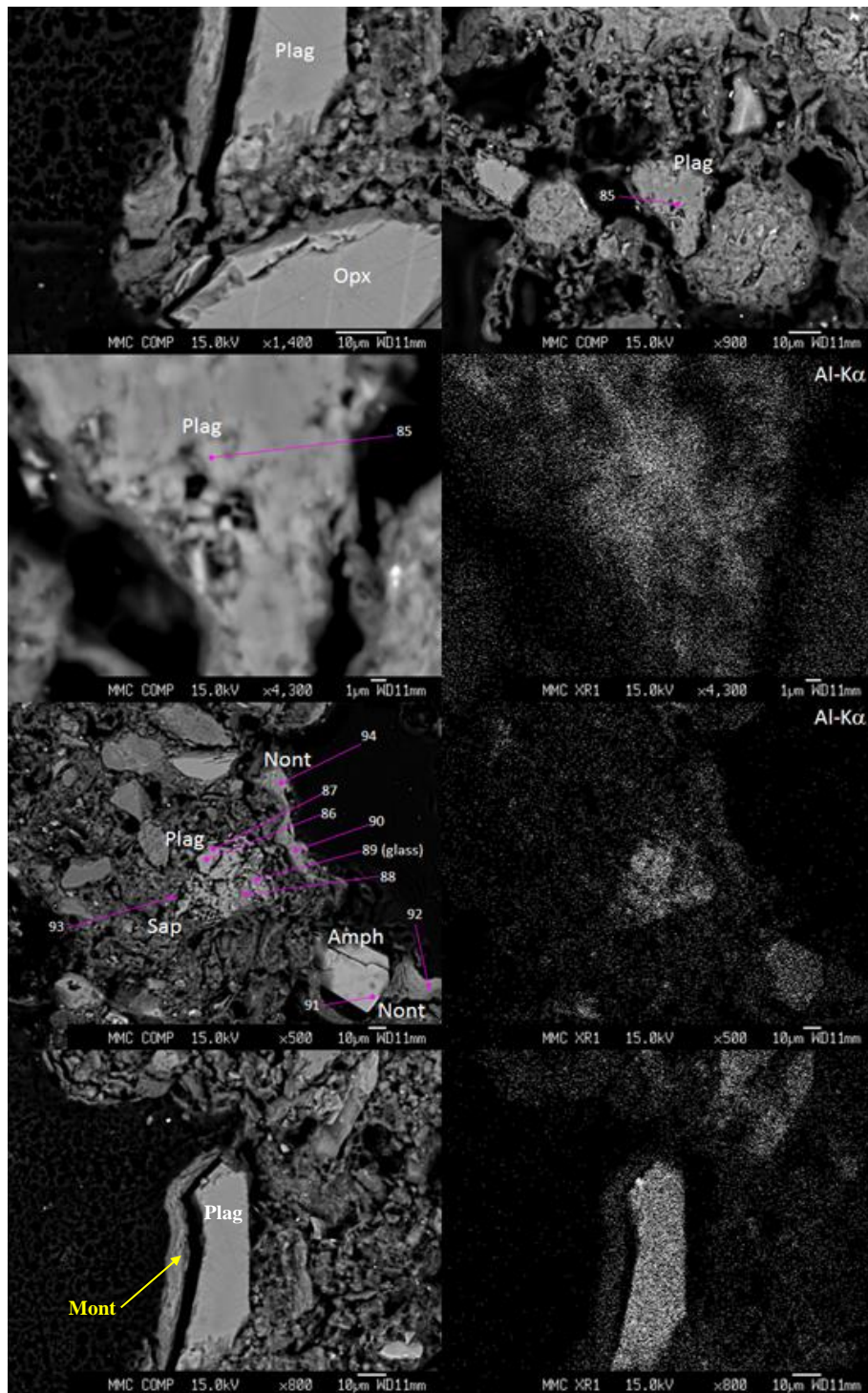


図 4.2.4-20 スポット分析 (PWT07-17-Rh-C03、その2)

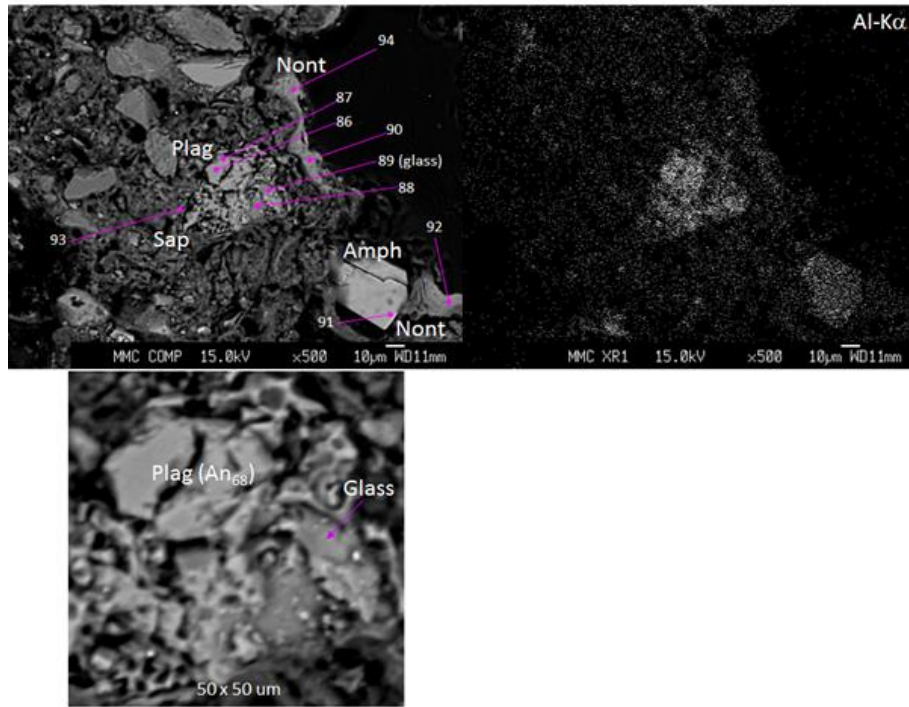


図 4.2.4-21 スポット分析 (PWT07-17-Rh-C03、その3)



(7) PWT08-17-Rh-001

1) 元素マッピング

代表的な視野における元素マッピング分析結果を図 4.2.4-22 に示す。

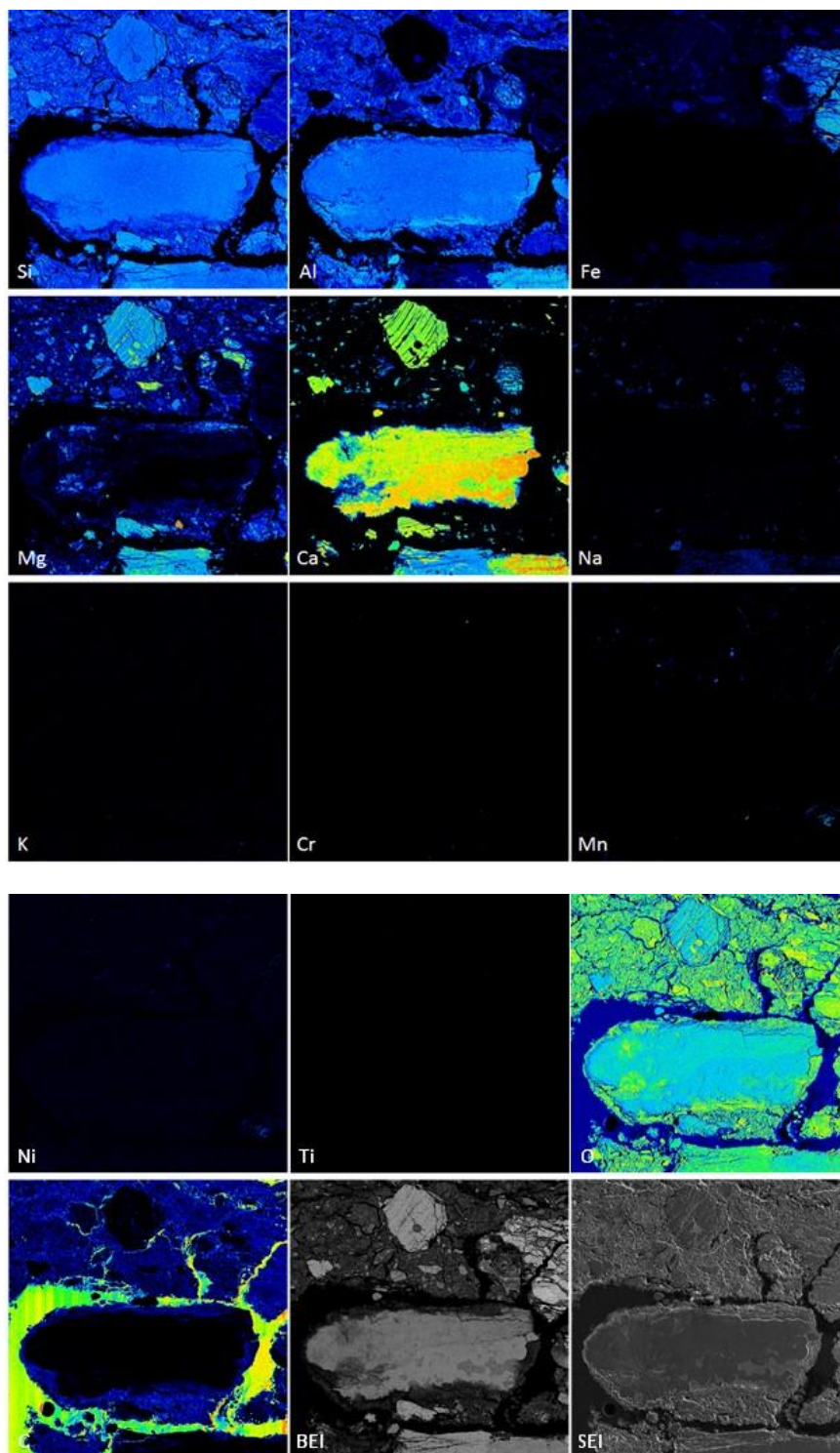


図 4.2.4-22 元素マップ (PWT08-17-Rh-001、4x4 mm<sup>2</sup>)

中央に位置するアノーサイト質斜長石は内部が Mg-poor (玄武岩由来のアノーサイトは Mg を含む) で Ca-rich に変質している。この部分はアノーサイトと類似の化学組成を持つギズモンダイン (ゼオライトの一種) と思われる。

## 2) スポット分析

鉱物産状観察とスポット分析を行った結果を図 4.2.4-23~図 4.2.4-24 に示す。

特徴的なスフェルライト状組織を示すギズモンダインがバイデライトに交代される様子が観察される。単斜輝石と斜方輝石が角閃石と (ゼオライト化しているが斜長石も) 共存している組織が見られ、この試料の源岩が斑レイ岩であったことを示唆している。

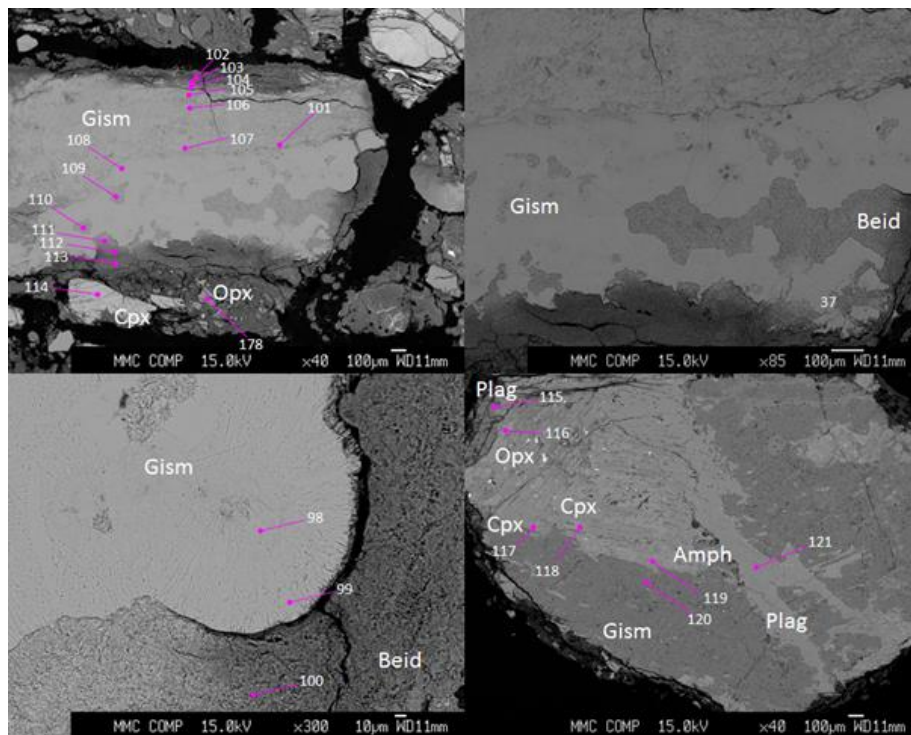


図 4.2.4-23 スポット分析 (PWT08-17-Rh-001、その1)



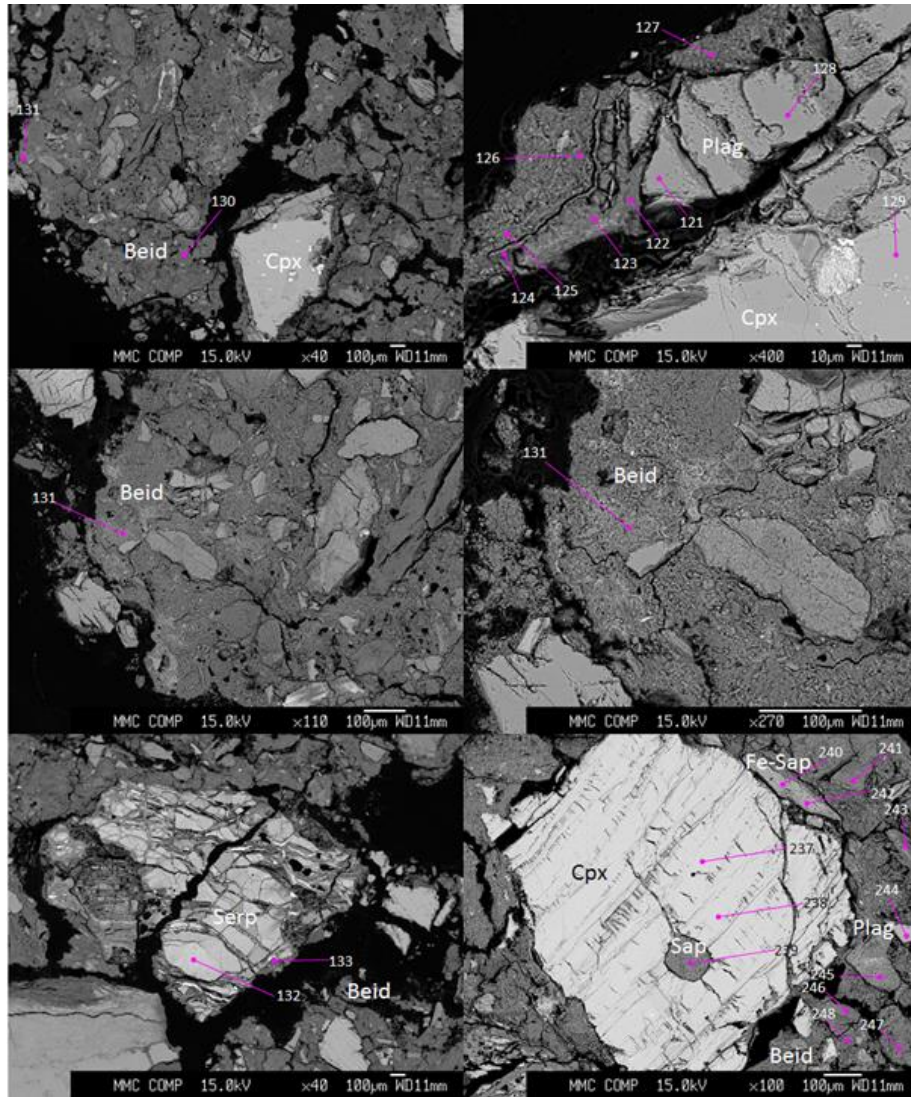


図 4.2.4-24 スポット分析 (PWT08-17-Rh-001, その2)

(8) PWST02-17-Rh-003

1) 元素マッピング

代表的な視野における元素マッピング分析結果を図 4.2.4-25 に示す。

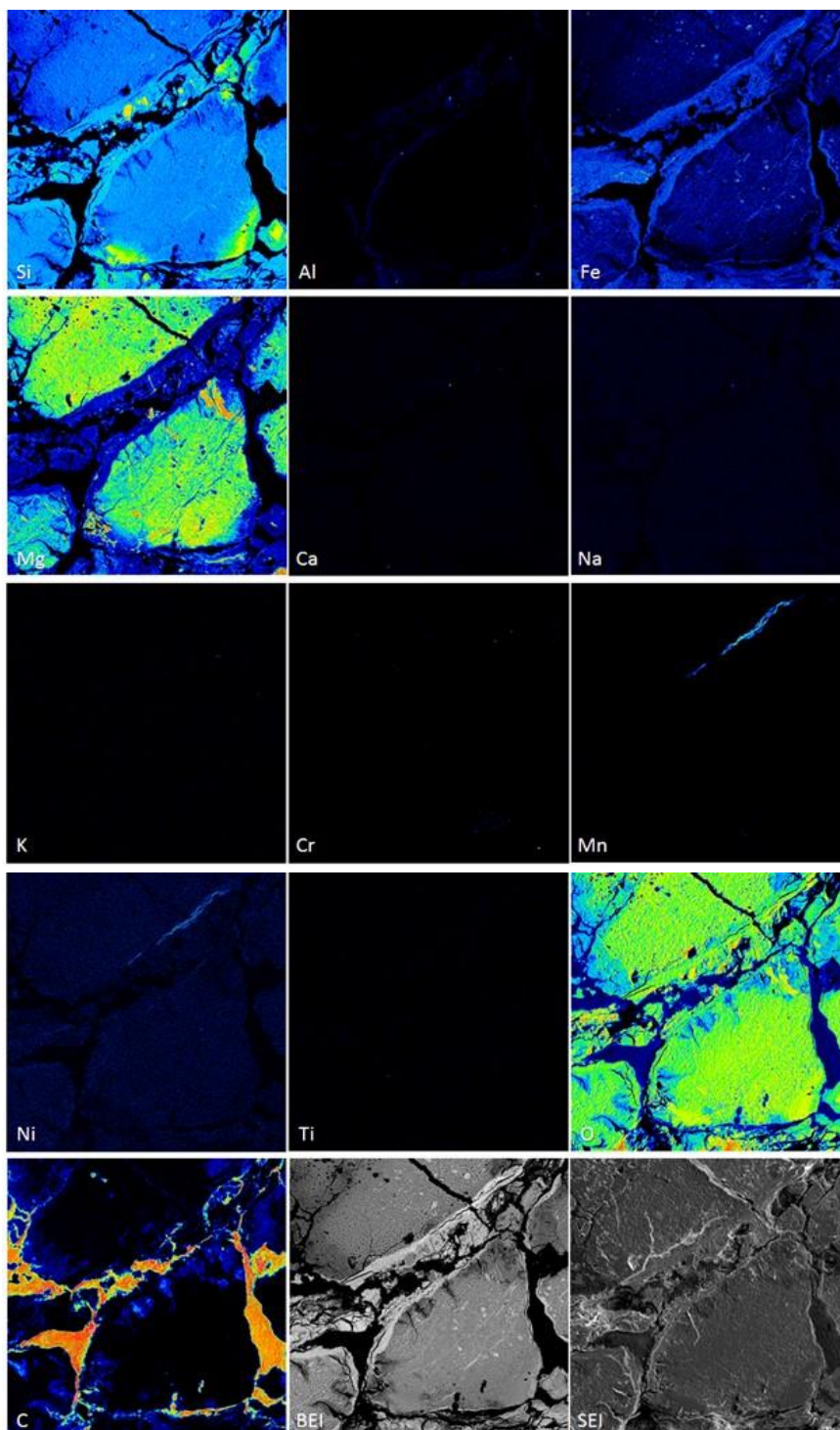


図 4.2.4-25 元素マップ (PWST02-17-Rh-003、1x1 mm<sup>2</sup>)

大きな蛇紋石粒子が Fe に富むノントロナイトに、またそのゾーンの最外縁部は Al に富むスメクタイトに交代される様子が示されている。さらに局所的に Mn に富むリムも見られ、マトリクスを構成するノントロナイト中にはシリカの沈殿もあり、変質過程の元素の挙動は複雑であったことがうかがい知れる。

## 2) スポット分析

鉱物産状観察とスポット分析を行った結果を図 4.2.4-26～図 4.2.4-27 に示す。

蛇紋石からサポナイト、そしてノントロナイトへと変遷していく様子が観察できる。ノントロナイトはシリカに富む組成を示し、そのマトリクス内には数十ミクロン大のシリカが頻りに観察される。

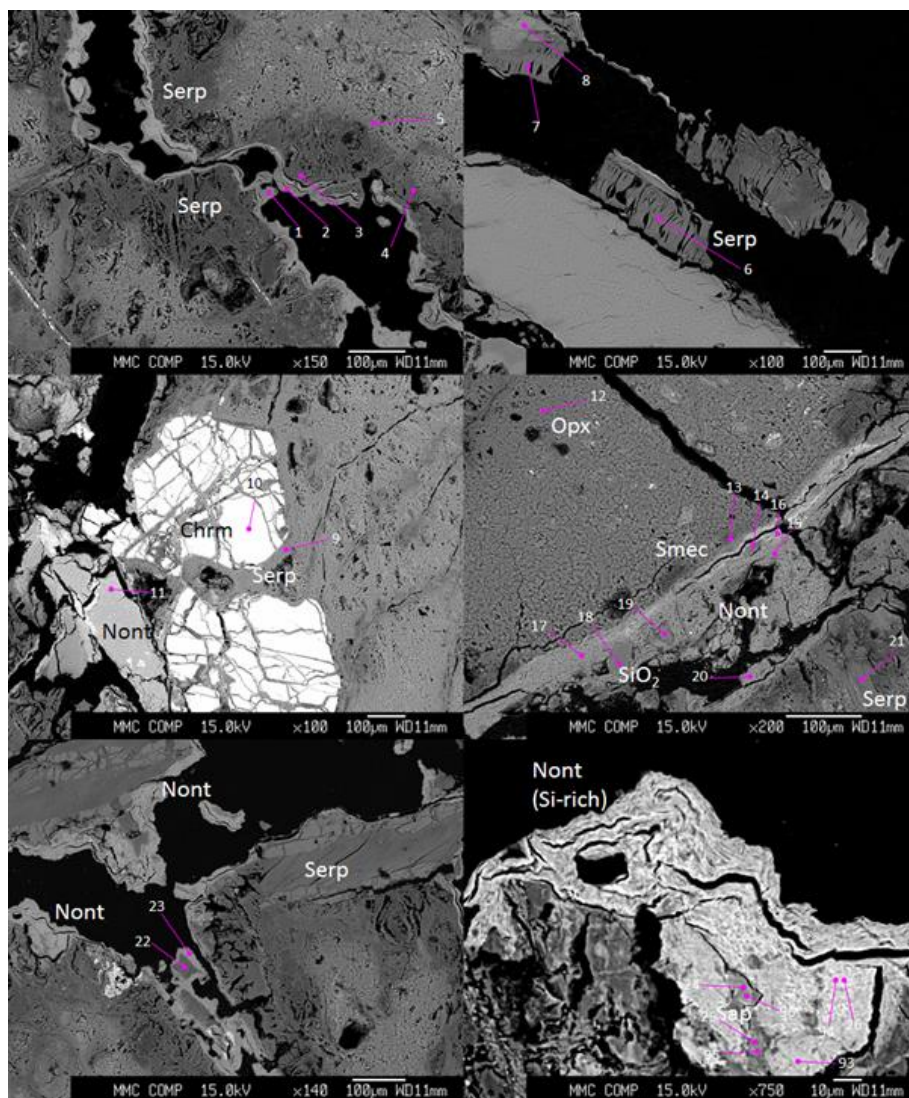


図 4.2.4-26 スポット分析 (PWST02-17-Rh-003、その1)



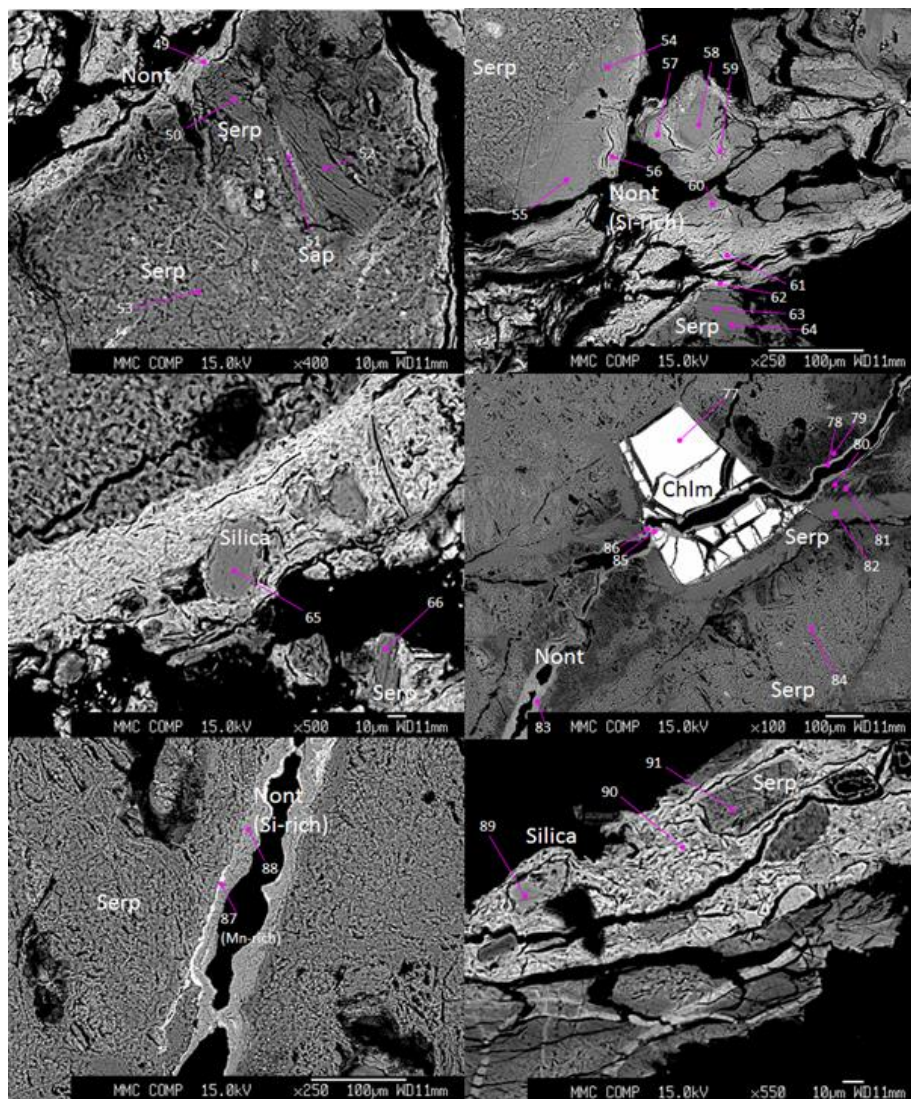


図 4.2.4-27 スポット分析 (PWST02-17-Rh-003、その2)

#### 4.2.5 鉱物化学組成

以下に、パラワン試料の EPMA 分析結果を鉱物ごとに記載する。

##### (1) かんらん石

超塩基性岩由来の未変質かんらん石はトレンチ 7 の PWT07-17-Rh-003 にのみ確認できる。スピネルを含んだ 1 mm 大の粒子で、内部には Fe サポナイトも含まれている。組成的特徴として XFo 値が 0.92-0.94 と超塩基性岩のかんらん石組成を示している。かんらん石周縁部および含まれるスピネル周縁部は層状構造を示す粘土鉱物が生成しており、スポット分析では層間水の影響がトータルが低いため鉱物化学組成は取得できていないが、Al の存在からやや Fe に富むサポナイトと思われる (Spot 175, 176)。かんらん石の化学組成を表 4.2.5-1 に示す。

表 4.2.5-1 かんらん石の化学組成

Sample ID	PWT07-17-Rh-003					
Spot ID	T7-003_16	T7-003_16	T7-003_16	T7-003_16	T7-003_17	T7-003_17
No.	163	165	166	167	172	173
SiO <sub>2</sub>	42.12	42.00	41.79	42.47	42.33	41.66
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.00	0.01	0.04	0.01	0.00	0.00
TiO <sub>2</sub>	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
FeO	8.18	8.07	7.75	7.91	6.49	5.84
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.00	0.02	0.05	0.01	0.18	0.44
NiO	0.32	0.40	0.36	0.38	0.38	0.52
MnO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MgO	52.21	51.46	51.62	52.41	53.04	52.94
CaO	0.01	0.01	0.04	0.01	0.00	0.01
Na <sub>2</sub> O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00
K <sub>2</sub> O	0.01	0.01	0.02	0.01	0.02	0.00
Total	102.86	101.97	101.66	103.20	102.47	101.41
Cation (O=4)						
Si	0.996	1.001	0.998	0.999	0.998	0.992
Al	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
Fe	0.162	0.161	0.155	0.156	0.128	0.116
Cr	0.000	0.000	0.001	0.000	0.003	0.008
Ni	0.006	0.008	0.007	0.007	0.007	0.010
Mn	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mg	1.840	1.828	1.838	1.838	1.864	1.878
Ca	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000
Na	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000
K	0.000	0.000	0.001	0.000	0.001	0.000
Total	3.004	2.999	3.001	3.001	3.001	3.004
XFo	0.919	0.919	0.922	0.922	0.936	0.942

##### (2) 輝石

輝石はパラワン試料では最も普遍的に存在する鉱物である。図 4.2.5-1 には平成 28 年度[2] 採取試料の分析値と合わせて Ca-Mg-Fe 輝石ダイアグラムにプロットして組成を比較したものを示す。平成 28 年度の分析値とほぼ調和的な結果となった。

しかし、図 4.2.5-2 に示すように、Al(6)や微量元素の Cr で評価すると、今回の分析値では Cr は平成 28 年度の分析値[2]と同レベルであるが、明らかに Al(6)に富むチェルマック輝石 (CaAl<sub>2</sub>SiO<sub>6</sub>)成分が高い特徴が見て取れる。



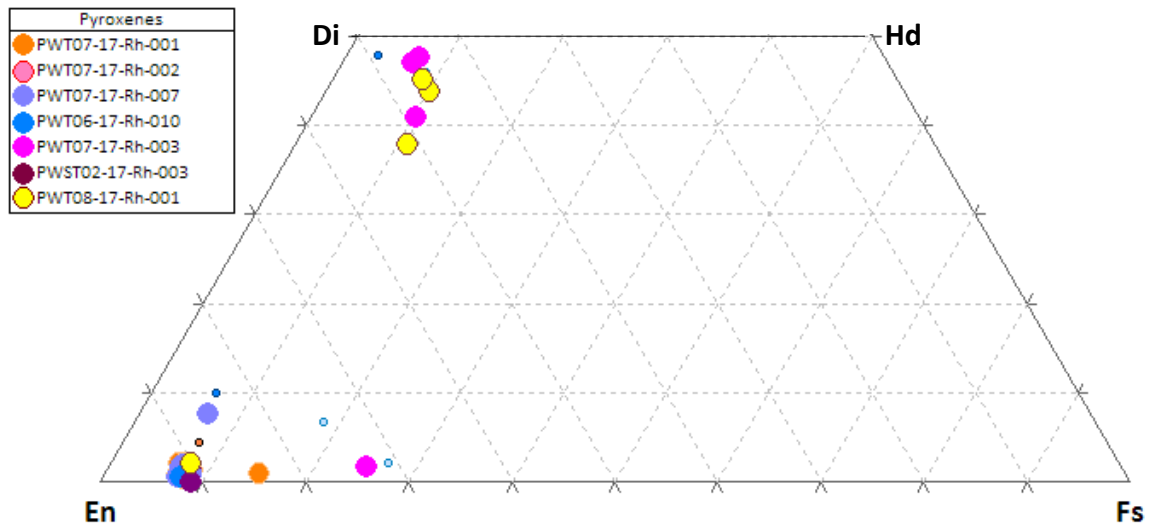


図 4.2.5-1 輝石のトップレスダイアグラム

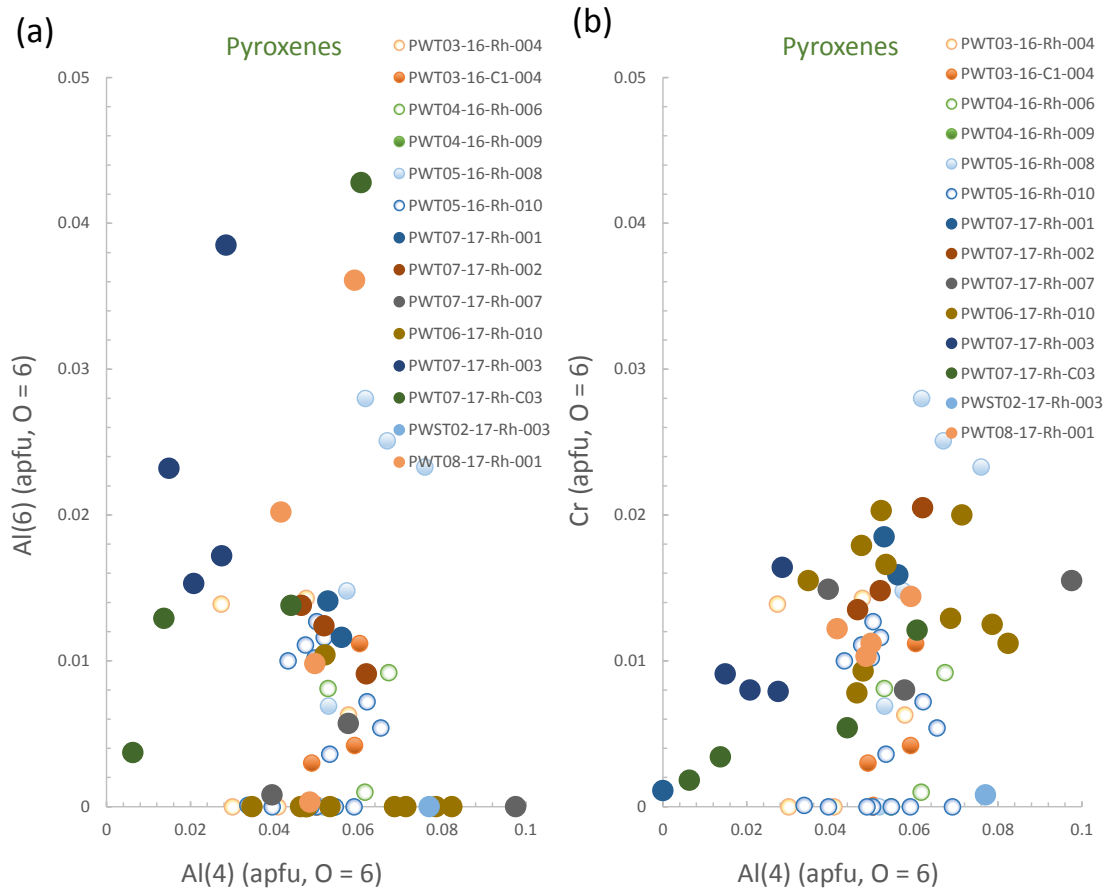


図 4.2.5-2 輝石の化学組成プロット(a: Al(4) vs. Al(6); b: Al(4) vs. Cr)

### (3) スピネル

スピネルも輝石と並んでパラワン試料では普遍的に存在する鉱物である。スピネルの組成は  $MgAl_2O_4-FeCr_2O_4-Fe_3O_4$  の固溶体であり、スピネル-クロム鉄鉱（クロマイト）-磁鉄鉱（マグネタイト）の端成分がある。従って溶解すれば溶液中の Fe, Al, Mg, Cr 挙動において重要な役割を果たすと考えられる。そこで、今回はスピネルの化学組成を  $Fe^{3+}/Fe^{2+}$  比を構造式より再計算して  $Fe_3O_4 (= Fe^{2+}Fe^{3+}_2O_4)$  成分を求め、三角ダイアグラム上で組成変化を評価した（図 4.2.5-3）。これによると、超塩基性岩のスピネルは  $MgAl_2O_4-FeCr_2O_4$  系の中央付近に分布するが、クロマイト成分を含みながらマグネタイトまでの変化を示すトレンドラインが浮かび上がってくる。スピネル周縁部がマグネタイトに置換されている産状が PWT06-17-Rh-010 試料に観察されているが（図 4.2.4-3）、これはスピネルの変質過程を表している証拠だと思われる。超塩基性岩のクロマイト成分を有するスピネルは、不調和溶解によって最初に  $Mg^{2+}$ ,  $Al^{3+}$  溶脱させながらクロマイト成分を高め、最終的には  $Fe^{2+}$ ,  $Cr^{3+}$  も放出し、安定なマグネタイトへと変遷していったと考えられる。その場合、スピネルの初期の溶解過程では Mg, Al の、後期では Fe, Cr のソースとして重要な役割を演じたことになる。

スピネルの分析値を

表 4.2.5-2～表 4.2.5-5 に示す。

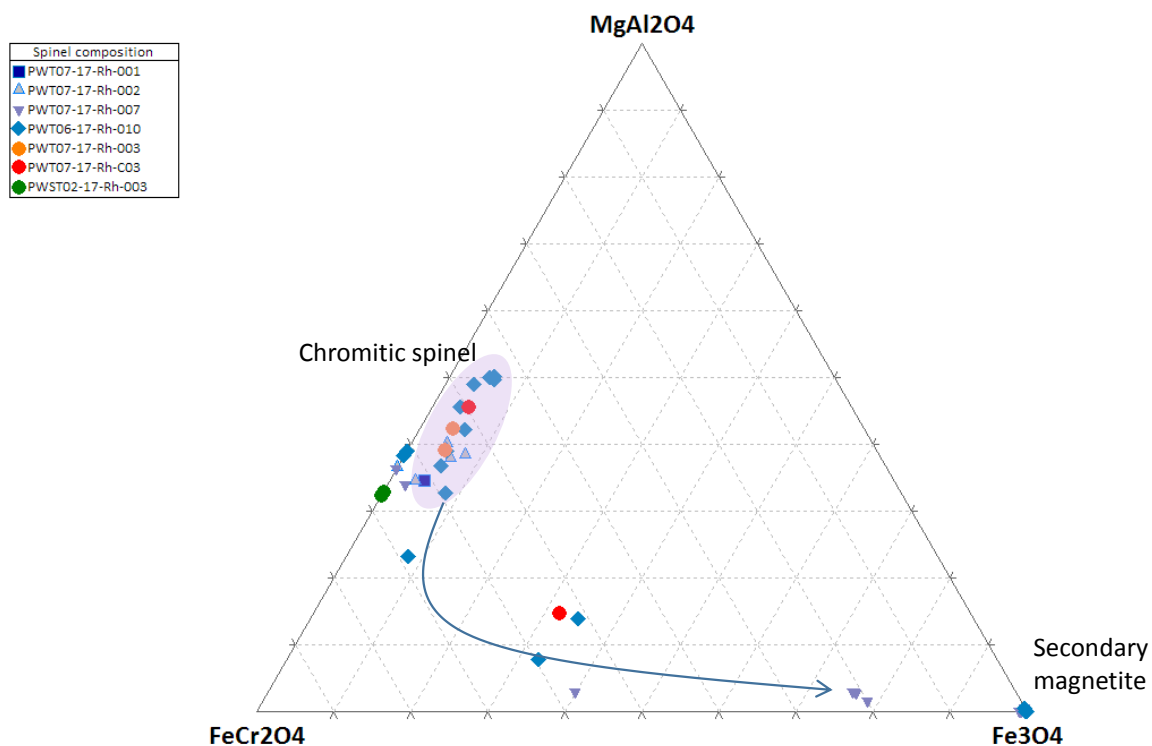


図 4.2.5-3 スピネル化学組成の変化

表 4.2.5-2 スピネル分析値(1)

Sample ID	PWT07-17- Rh-001		PWT07-17- Rh-002						
	T7-001_01	T7-002_41	T7-002_45	T7-002_71	T7-002_345	T7-002_351	T7-002_376	T7-002_372	
Spot ID									
SiO2	0.05	0.20	0.05	0.06	0.05	0.02	0.02	0.76	
Al2O3	18.77	19.38	21.04	20.30	21.25	20.92	18.60	0.11	
TiO2	0.01	0.03	0.03	0.01	0.02	0.01	0.01	0.08	
FeO	20.15	16.82	24.42	25.12	21.35	23.64	20.30	82.61	
Cr2O3	49.34	50.06	43.71	44.55	43.56	44.19	49.68	0.07	
NiO	0.07	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
MnO	0.00	0.34	0.22	0.26	0.19	0.20	0.22	0.08	
MgO	12.15	9.87	11.20	9.57	10.82	9.71	11.14	0.34	
CaO	0.00	0.12	0.00	0.04	0.03	0.00	0.03	0.11	
Na2O	0.02	0.04	0.02	0.05	0.04	0.00	0.00	0.00	
K2O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	
Total	100.56	96.86	100.69	99.96	97.31	98.69	99.99	84.16	
Recalc.									
SiO2	0.05	0.20	0.05	0.06	0.05	0.02	0.02	0.76	
TiO2	0.01	0.03	0.03	0.01	0.02	0.01	0.01	0.08	
Al2O3	18.77	19.38	21.04	20.30	21.25	20.92	18.60	0.11	
Cr2O3	49.34	50.06	43.71	44.55	43.56	44.19	49.68	0.07	
Fe2O3	3.79	0.00	6.64	5.12	3.80	4.06	2.76	60.18	
FeO	16.74	16.82	18.45	20.51	17.93	19.99	17.81	28.46	
MnO	0.00	0.34	0.22	0.26	0.19	0.20	0.22	0.08	
MgO	12.15	9.87	11.20	9.57	10.82	9.71	11.14	0.34	
total	100.85	96.70	101.34	100.39	97.62	99.09	100.23	90.08	
cations recalcd.									
Si	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.03	
Ti	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
Al	0.69	0.75	0.77	0.76	0.80	0.79	0.69	0.01	
Cr	1.22	1.29	1.07	1.12	1.10	1.11	1.24	0.00	
Fe3	0.09	0.00	0.15	0.12	0.09	0.10	0.07	1.92	
Fe2	0.44	0.46	0.48	0.54	0.48	0.53	0.47	1.01	
Mn	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00	
Mg	0.56	0.48	0.52	0.45	0.52	0.46	0.52	0.02	
SumCAT	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	
SumO	4.00	4.03	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	
Xsp	0.35	0.37	0.39	0.38	0.40	0.39	0.35	0.00	
Xchrm	0.61	0.63	0.54	0.56	0.55	0.56	0.62	0.00	
Xmag	0.04	0.00	0.08	0.06	0.05	0.05	0.03	1.00	

NOTE Xsp = Al/(Al+Cr+Fe3+); Xchrm = Cr/(Al+Cr+Fe3+); Xmag = Fe3+/(Al+Cr+Fe3+).

表 4.2.5-3 スピネル分析値(2)

Sample ID	PWT07-17- Rh-007												
	T7-007_172	T7-007_173	T7-007_176	T7-007_213	T7-007_216	T7-007_226	T7-007_227	T7-007_147	T7-007_148	T7-007_157	T7-007_159	T7-007_202	T7-007_221
Spot ID													
SiO2	0.07	0.05	0.15	0.04	0.04	0.10	0.03	0.08	0.47	0.72	3.01	0.50	5.50
Al2O3	19.35	20.73	1.23	0.65	1.19	1.14	1.22	0.03	0.02	0.00	0.03	0.03	0.15
TiO2	0.02	0.01	0.28	0.34	0.53	0.56	0.54	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
FeO	14.13	13.76	51.73	77.99	75.38	75.71	74.96	86.77	86.13	85.97	80.46	85.05	76.35
Cr2O3	54.08	54.44	36.15	12.79	13.15	13.10	13.29	0.57	0.64	0.46	0.07	0.02	0.02
NiO	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
MnO	0.21	0.18	0.55	0.53	0.68	0.69	0.66	0.07	0.09	0.02	1.26	0.62	0.81
MgO	15.64	14.36	1.23	0.04	0.06	0.13	0.10	0.22	0.33	0.22	1.08	0.37	1.58
CaO	0.00	0.01	0.06	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.04	0.30	0.15	0.55
Na2O	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.09	0.01	0.01	0.01	0.04	0.02	0.02	0.08
K2O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01
Total	103.50	103.56	91.38	92.38	91.04	91.54	90.81	87.75	87.71	87.46	86.24	86.75	85.04
Recalc.													
SiO2	0.07	0.05	0.15	0.04	0.04	0.10	0.03	0.08	0.47	0.72	3.01	0.50	5.50
TiO2	0.02	0.01	0.28	0.34	0.53	0.56	0.54	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
Al2O3	19.35	20.73	1.23	0.65	1.19	1.14	1.22	0.03	0.02	0.02	0.03	0.03	0.15
Cr2O3	54.08	54.44	36.15	12.79	13.15	13.10	13.29	0.57	0.64	0.46	0.07	0.02	0.02
Fe2O3	2.10	0.00	26.43	52.90	50.43	50.68	50.11	64.28	63.26	62.54	56.60	63.06	0.00
FeO	12.25	13.76	27.95	30.40	30.00	30.11	29.87	28.93	29.21	29.69	29.53	28.31	76.35
MnO	0.21	0.18	0.55	0.53	0.68	0.69	0.66	0.07	0.09	0.02	1.26	0.62	0.81
MgO	15.64	14.36	1.23	0.04	0.06	0.13	0.10	0.22	0.33	0.22	1.08	0.37	1.58
total	103.70	103.53	93.97	97.68	96.09	96.52	95.82	94.18	94.03	93.67	91.59	92.90	84.41
cations recalcd.													
Si	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.03	0.12	0.02	0.23
Ti	0.00	0.00	0.01	0.01	0.02	0.02	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Al	0.68	0.73	0.06	0.03	0.06	0.05	0.06	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01
Cr	1.27	1.28	1.13	0.39	0.41	0.41	0.42	0.02	0.02	0.01	0.00	0.00	0.00
Fe3	0.05	0.00	0.79	1.55	1.50	1.50	1.49	1.97	1.94	1.93	1.75	1.96	1.54
Fe2	0.30	0.34	0.92	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	1.00	1.02	1.01	0.98	1.10
Mn	0.01	0.00	0.02	0.02	0.02	0.02	0.02	0.00	0.00	0.00	0.04	0.02	0.03
Mg	0.69	0.64	0.07	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01	0.07	0.02	0.10
SumCAT	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00
SumO	4.00	4.01	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00
Xsp	0.34	0.36	0.03	0.02	0.03	0.03	0.03	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Xchrm	0.64	0.64	0.57	0.20	0.21	0.21	0.21	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00
Xmag	0.02	0.00	0.40	0.79	0.76	0.77	0.76	0.99	0.99	0.99	1.00	1.00	0.99

表 4.2.5-4 スピネル分析値(3)

Sample ID	PWT06-17-Rh-010											
Spot ID	T6-010_109	T6-010_231	T6-010_232	T6-010_233	T6-010_234	T6-010_299	T6-010_300	T6-010_301	T6-010_302	T6-010_321	T6-010_392	T6-010_356
SiO2	0.01	0.01	0.03	0.00	0.03	0.02	0.04	0.03	0.03	0.03	0.03	0.24
Al2O3	21.79	28.18	27.42	3.55	16.41	19.88	21.64	26.97	22.72	25.22	22.06	10.78
TiO2	0.06	0.12	0.14	0.20	0.10	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.13
FeO	14.24	23.61	23.84	51.48	30.49	21.87	21.82	20.82	28.27	21.19	15.63	34.49
Cr2O3	52.25	36.83	36.49	40.76	44.23	46.44	46.17	38.78	41.73	41.95	51.43	47.69
NiO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MnO	0.19	0.22	0.22	0.52	0.42	0.22	0.24	0.20	0.34	0.21	0.21	0.44
MgO	13.08	11.45	11.22	1.10	5.91	11.43	11.93	11.58	7.85	11.54	13.12	2.25
CaO	0.03	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00
Na2O	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.02	0.02	0.00	0.02	0.00	0.00	0.01
K2O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.03	0.00	0.01	0.00
Total	101.66	100.40	99.36	97.60	97.59	99.88	101.88	98.39	100.99	100.14	102.48	96.02
Recalc.												
SiO2	0.01	0.01	0.03	0.00	0.03	0.02	0.04	0.03	0.03	0.03	0.03	0.24
TiO2	0.06	0.12	0.14	0.20	0.10	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.13
Al2O3	21.79	28.18	27.42	3.55	16.41	19.88	21.64	26.97	22.72	25.22	22.06	10.78
Cr2O3	52.25	36.83	36.49	40.76	44.23	46.44	46.17	38.78	41.73	41.95	51.43	47.69
Fe2O3	0.00	5.00	5.31	23.59	6.46	4.78	4.55	3.14	5.05	3.18	0.00	5.93
FeO	14.24	19.11	19.06	30.25	24.67	17.57	17.72	17.99	23.73	18.33	15.63	29.15
MnO	0.19	0.22	0.22	0.52	0.42	0.22	0.24	0.20	0.34	0.21	0.21	0.44
MgO	13.08	11.45	11.22	1.10	5.91	11.43	11.93	11.58	7.85	11.54	13.12	2.25
total	101.62	100.90	99.89	99.95	98.24	100.34	102.29	98.69	101.44	100.46	102.47	96.60
cations recalc.												
Si	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01
Ti	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
Al	0.78	1.00	0.99	0.15	0.65	0.73	0.78	0.98	0.84	0.91	0.78	0.46
Cr	1.26	0.88	0.88	1.18	1.18	1.15	1.11	0.95	1.04	1.02	1.23	1.36
Fe3	0.00	0.11	0.12	0.65	0.16	0.11	0.10	0.07	0.12	0.07	0.00	0.16
Fe2	0.36	0.48	0.49	0.93	0.69	0.46	0.45	0.46	0.62	0.47	0.39	0.88
Mn	0.00	0.01	0.01	0.02	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Mg	0.59	0.52	0.51	0.06	0.30	0.53	0.54	0.53	0.37	0.53	0.59	0.12
SumCAT	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00
SumO	4.02	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.01	4.00
Xsp	0.38	0.50	0.50	0.08	0.33	0.37	0.39	0.49	0.42	0.46	0.39	0.23
Xchrm	0.62	0.44	0.44	0.59	0.59	0.58	0.56	0.47	0.52	0.51	0.61	0.69
Xmag	0.00	0.06	0.06	0.33	0.08	0.06	0.05	0.04	0.06	0.04	0.00	0.08

表 4.2.5-5 スピネル分析値(4)

Sample ID	PWT06-17-Rh-010 (continued)											
Spot ID	T6-010_357	T6-010_358	T6-010_279	T6-010_280	T6-010_281	T6-010_282	T6-010_283	T6-010_297	T6-010_313	T6-010_329	T6-010_315	
SiO2	0.02	0.21	0.60	1.76	0.42	0.39	0.43	0.28	0.49	0.18	0.68	
Al2O3	28.10	6.14	0.00	0.16	0.02	0.00	0.01	0.00	0.01	0.01	0.00	
TiO2	0.10	0.15	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	
FeO	23.16	50.60	84.26	74.42	84.19	87.10	88.02	85.58	86.54	88.99	85.44	
Cr2O3	37.37	33.66	0.07	0.01	0.00	0.00	0.01	0.03	0.08	0.01	0.03	
NiO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
MnO	0.20	0.45	1.05	0.56	0.91	0.61	0.61	1.68	0.50	0.52	0.69	
MgO	11.53	1.33	0.59	1.13	0.56	0.62	0.55	0.63	0.38	0.34	0.99	
CaO	0.00	0.00	0.16	0.07	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
Na2O	0.00	0.01	0.06	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
K2O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	
Total	100.48	92.54	86.80	78.13	86.10	88.71	89.63	88.20	88.01	90.04	87.83	
Recalc.												
SiO2	0.02	0.21	0.60	1.76	0.42	0.39	0.43	0.28	0.49	0.18	0.68	
TiO2	0.10	0.15	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	
Al2O3	28.10	6.14	0.00	0.16	0.02	0.01	0.01	0.00	0.01	0.01	0.00	
Cr2O3	37.37	33.66	0.07	0.01	0.00	0.00	0.01	0.03	0.08	0.01	0.03	
Fe2O3	4.60	24.02	62.89	53.83	63.04	65.10	65.62	64.97	64.09	66.45	63.92	
FeO	19.02	28.99	27.67	25.98	27.46	28.52	28.97	27.11	28.87	29.19	27.93	
MnO	0.20	0.45	1.05	0.56	0.91	0.61	0.61	1.68	0.50	0.52	0.69	
MgO	11.53	1.33	0.59	1.13	0.56	0.62	0.55	0.63	0.38	0.34	0.99	
total	100.94	94.94	92.89	83.44	92.42	95.25	96.20	94.71	94.43	96.70	94.23	
cations recalc.												
Si	0.00	0.01	0.02	0.08	0.02	0.02	0.02	0.01	0.02	0.01	0.03	
Ti	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
Al	1.00	0.28	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
Cr	0.89	1.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
Fe3	0.10	0.69	1.95	1.83	1.96	1.97	1.96	1.98	1.96	1.99	1.94	
Fe2	0.48	0.92	0.95	0.98	0.95	0.96	0.96	0.92	0.98	0.97	0.94	
Mn	0.01	0.01	0.04	0.02	0.03	0.02	0.02	0.06	0.02	0.02	0.02	
Mg	0.52	0.08	0.04	0.08	0.03	0.04	0.03	0.04	0.02	0.02	0.06	
SumCAT	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	3.00	
SumO	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	4.00	
Xsp	0.50	0.14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
Xchrm	0.45	0.51	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
Xmag	0.05	0.35	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	

(4) 斜長石

斜長石の分析値を表 4.2.5-6 と表 4.2.5-7 に示す。斜長石を交代させて生成したゼオライトの化学組成も合わせて示す。

表 4.2.5-6 斜長石の化学組成 (その1)

Sample ID	PWT07-17-Rh-007				PWT07-17-Rh-C03				PWT08-17-Rh-001			
	T7-007_222	T7-007_224	T7-007_225	T7-C03_85	T7-C03_86	T7-C03_87	T7-C03_96	T7-C03_97	T8-001_115	T8-001_121	T8-001_244	T8-001_128
Spot ID No.	222	224	225	85	86	87	96	97	115	121	244	128
SiO2	68.29	70.91	60.32	68.77	56.07	56.12	54.17	57.32	46.61	50.37	47.11	50.81
Al2O3	20.05	21.25	25.23	25.67	28.30	28.35	25.06	26.57	35.68	33.71	33.32	33.36
TiO2	0.00	0.00	0.03	0.04	0.03	0.03	0.00	0.01	0.02	0.02	0.01	0.03
FeO	0.22	0.23	0.38	0.65	0.74	0.80	0.34	0.40	0.18	0.29	0.36	0.33
Cr2O3	0.03	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.02	0.00	0.00	0.00	0.02
NiO	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.06	0.00	0.00	0.00
MnO	0.01	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00
MgO	0.00	0.02	0.00	0.14	0.05	0.04	0.05	0.02	0.01	0.00	0.02	0.04
CaO	0.02	0.11	5.67	4.51	9.82	9.91	8.33	8.04	18.12	15.74	16.20	15.32
Na2O	8.99	6.37	7.08	8.52	5.65	4.97	5.02	5.42	1.03	2.46	1.42	2.78
K2O	0.02	0.02	0.06	1.48	0.48	0.37	0.59	0.64	0.00	0.03	0.01	0.04
Total	97.62	98.93	98.76	109.78	101.14	100.60	93.56	98.44	101.70	102.62	98.46	102.73
Cation (O=8)												
Si	3.018	3.051	2.702	2.782	2.503	2.511	2.592	2.601	2.107	2.240	2.188	2.256
Al	1.045	1.078	1.332	1.224	1.489	1.495	1.413	1.421	1.901	1.767	1.824	1.747
Ti	0.000	0.000	0.001	0.001	0.001	0.001	0.000	0.001	0.001	0.001	0.000	0.001
Fe	0.008	0.008	0.014	0.022	0.028	0.030	0.013	0.015	0.007	0.011	0.014	0.012
Cr	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001
Ni	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	0.000	0.000	0.000
Mn	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000
Mg	0.000	0.001	0.000	0.009	0.003	0.002	0.004	0.001	0.000	0.000	0.001	0.002
Ca	0.001	0.005	0.272	0.195	0.470	0.475	0.427	0.391	0.878	0.750	0.807	0.729
Na	0.770	0.531	0.615	0.668	0.489	0.431	0.466	0.477	0.090	0.212	0.128	0.240
K	0.001	0.001	0.003	0.076	0.027	0.021	0.036	0.037	0.000	0.002	0.000	0.002
Total	4.845	4.677	4.940	4.977	5.010	4.967	4.952	4.944	4.987	4.983	4.964	4.990
XAn	0.001	0.009	0.306	0.208	0.476	0.513	0.460	0.432	0.907	0.778	0.863	0.751
XAb	0.997	0.988	0.691	0.711	0.496	0.465	0.501	0.527	0.093	0.220	0.137	0.247

NOTE: XAn = Ca/(Ca+Na+K); XAb = Na/(Ca+Na+K)

表 4.2.5-7 斜長石の化学組成 (その2)

Sample ID	T8-001											
	98	99	101	104	105	106	107	108	109	110	120	
Spot ID No.	98	99	101	104	105	106	107	108	109	110	120	
SiO2	45.70	42.51	45.78	44.72	45.26	44.96	46.45	45.65	45.47	45.85	42.26	
Al2O3	24.29	23.21	24.99	24.42	24.78	24.91	24.38	24.21	25.63	25.48	30.04	
TiO2	0.00	0.02	0.02	0.01	0.00	0.01	0.01	0.01	0.00	0.01	0.00	
FeO	0.00	0.03	0.09	0.36	0.19	0.43	0.05	0.03	0.52	0.21	0.05	
Cr2O3	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.02	0.06	
NiO	0.04	0.09	0.07	0.04	0.00	0.00	0.00	0.02	0.02	0.00	0.00	
MnO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
MgO	0.03	0.01	0.79	2.06	1.24	2.21	0.57	0.02	1.83	1.25	0.05	
CaO	24.15	24.17	23.77	22.28	23.86	20.26	23.47	25.58	19.62	22.34	22.06	
Na2O	0.09	0.12	0.04	0.04	0.01	0.03	0.05	0.09	0.06	0.04	0.40	
K2O	0.03	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.05	
Total	94.32	90.17	95.55	93.92	95.33	92.80	94.98	95.60	93.16	95.18	94.97	
Cation (O=8 Cation (O=8, gismondine)												
Si	2.279	2.234	2.253	2.237	2.236	2.257	2.292	2.259	2.266	2.253	2.089	
Al	1.428	1.438	1.449	1.440	1.443	1.474	1.418	1.412	1.506	1.476	1.750	
Ti	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
Fe	0.000	0.002	0.004	0.015	0.008	0.018	0.002	0.001	0.022	0.009	0.002	
Cr	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.002	
Ni	0.001	0.004	0.003	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	
Mn	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
Mg	0.002	0.001	0.058	0.154	0.091	0.165	0.042	0.002	0.136	0.092	0.004	
Ca	1.290	1.361	1.253	1.194	1.263	1.090	1.241	1.356	1.048	1.176	1.168	
Na	0.009	0.013	0.003	0.003	0.001	0.003	0.005	0.009	0.005	0.004	0.038	
K	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.003	
Total	5.012	5.053	5.024	5.045	5.042	5.007	5.001	5.039	4.984	5.010	5.056	
XAn	0.992	0.991	0.997	0.997	1.000	0.998	0.996	0.994	0.994	0.997	0.966	
XAb	0.007	0.009	0.003	0.003	0.000	0.002	0.004	0.006	0.005	0.003	0.032	



(5) 蛇紋石

蛇紋石は輝石の交代相として重要であり、今回対象とした全ての試料に認められる。蛇紋石は本来単純な化学組成( $Mg_3Si_2O_5(OH)_4$ )であるが、パラワンの蛇紋石には Ca が含まれるものが多い。そこで八面体サイトの XMg 値(=  $Mg/(Mg + Fe)$ )と Ca についてプロットし、平成 28 年度[2]の分析値を比較した(図 4.2.5-4)。これによると、風化試料である PWST02-17-Rh-003、PWT08-17-Rh-001 はほとんど Ca を含まないが、その他の試料は平成 28 年度試料よりも Ca に富むことが示された。超微細な C-S-H 相などを取り込んでいるのかもしれない。今年度採取した試料には C-S-H や  $CaCO_3$  が少ないため、地下水中には Ca が多く含まれていると思われる。

蛇紋石の分析値を表 4.2.5-8~表 4.2.5-14 に示す。

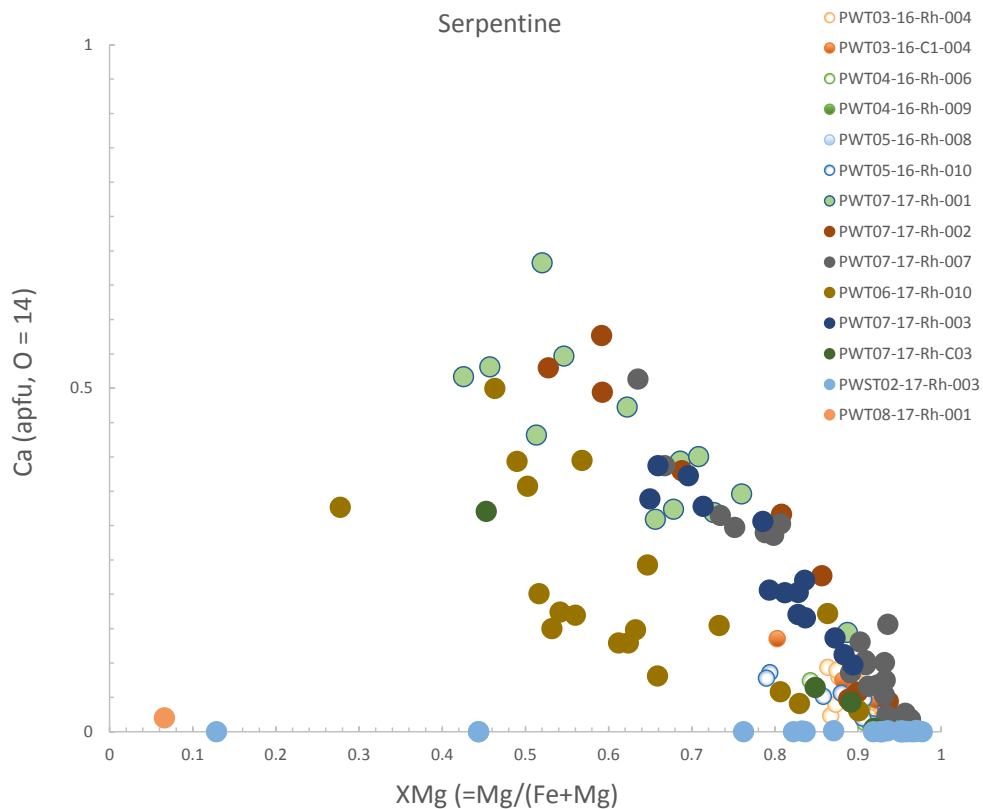


図 4.2.5-4 蛇紋石の化学組成プロット

表 4.2.5-8 蛇紋石分析值(1)

Sample ID	PWT07-17-Rh-001														
Spot ID	T7-001_6	T7-001_9	T7-001_12	T7-001_13	T7-001_16	T7-001_17	T7-001_18	T7-001_22	T7-001_23	T7-001_24	T7-001_37	T7-001_38	T7-001_39	T7-001_44	T7-001_47
No.	6	9	12	13	16	17	18	22	23	24	37	38	39	44	47
SiO2	39.26	42.06	37.41	42.16	38.12	24.32	29.27	28.61	18.79	38.25	41.85	42.19	33.29	33.60	25.76
Al2O3	1.82	0.85	3.20	3.27	2.99	0.72	0.96	0.63	0.67	1.02	1.10	0.33	1.95	0.65	0.53
TiO2	0.00	0.09	0.01	0.01	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.02
FeO	14.72	15.01	12.00	10.47	24.77	8.20	9.26	14.14	12.04	22.84	23.24	7.42	12.29	12.41	11.54
Cr2O3	0.74	0.11	0.66	0.61	0.80	0.47	0.34	0.01	0.04	0.21	0.04	0.02	0.04	0.06	0.00
NiO	0.63	0.63	0.49	0.43	0.82	0.35	0.43	0.64	0.57	0.71	0.57	0.20	0.55	0.96	0.71
MnO	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	0.00	0.00
MgO	17.40	16.07	14.72	18.60	10.31	8.75	13.82	9.55	8.11	13.52	10.99	32.76	11.37	16.91	7.02
CaO	2.68	2.59	3.08	3.02	4.27	1.99	1.95	3.22	2.95	3.52	4.49	1.36	3.20	2.88	3.51
Na2O	0.06	0.08	0.12	0.10	0.05	0.08	0.06	0.08	0.08	0.06	0.02	0.02	0.20	0.11	0.14
K2O	0.02	0.09	0.09	0.10	0.04	0.06	0.02	0.04	0.04	0.02	0.06	0.00	0.20	0.07	0.16
Total	77.34	77.57	71.78	78.77	82.18	44.94	56.11	56.92	43.27	80.14	82.38	84.32	63.08	67.65	49.40
Cation (O=14)															
Si	4.421	4.681	4.472	4.503	4.308	4.670	4.478	4.527	4.068	4.382	4.618	4.169	4.592	4.355	4.672
Al	0.241	0.111	0.451	0.412	0.398	0.164	0.174	0.118	0.170	0.138	0.143	0.038	0.316	0.099	0.114
Ti	0.000	0.007	0.001	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.001	0.000	0.003
Fe	1.387	1.397	1.200	0.935	2.341	1.317	1.185	1.871	2.179	2.188	2.145	0.613	1.418	1.345	1.751
Cr	0.066	0.009	0.062	0.051	0.072	0.071	0.041	0.001	0.006	0.019	0.004	0.002	0.004	0.006	0.000
Ni	0.057	0.056	0.047	0.037	0.075	0.054	0.052	0.081	0.099	0.065	0.051	0.016	0.061	0.100	0.104
Mn	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
Mg	2.921	2.667	2.622	2.962	1.736	2.506	3.152	2.252	2.616	2.309	1.808	4.825	2.338	3.267	1.898
Ca	0.324	0.309	0.394	0.346	0.517	0.409	0.319	0.547	0.684	0.432	0.531	0.144	0.472	0.400	0.683
Na	0.013	0.016	0.028	0.021	0.012	0.029	0.016	0.025	0.033	0.013	0.005	0.005	0.052	0.028	0.050
K	0.003	0.013	0.013	0.014	0.006	0.014	0.004	0.007	0.011	0.002	0.008	0.000	0.034	0.012	0.037
Total	9.433	9.266	9.291	9.282	9.465	9.234	9.423	9.429	9.866	9.548	9.314	9.813	9.290	9.613	9.312
XMg	0.678	0.656	0.686	0.760	0.426	0.656	0.727	0.546	0.546	0.513	0.457	0.887	0.622	0.708	0.520

表 4.2.5-9 蛇紋石分析值(2)

Sample ID	PWT07-17-Rh-002									
Spot ID	T7-002_47	T7-002_69	T7-002_73	T7-002_34	T7-002_35	T7-002_36	T7-002_37	T7-002_37	T7-002_37	T7-002_38
No.	47	69	73	340	352	363	375	378	383	383
SiO2	34.22	26.01	39.10	33.83	43.68	35.17	25.39	40.53	42.86	42.86
Al2O3	1.33	0.70	0.70	0.30	0.12	0.51	0.56	0.34	0.25	0.25
TiO2	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
FeO	11.26	11.56	18.74	6.73	4.21	19.04	7.01	6.04	6.86	6.86
Cr2O3	0.07	0.07	0.29	0.01	0.02	0.16	0.74	0.06	0.00	0.00
NiO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MnO	0.16	0.22	0.11	0.15	0.06	0.16	0.10	0.06	0.08	0.08
MgO	13.95	9.40	11.75	22.55	34.73	15.54	16.54	30.28	30.71	30.71
CaO	2.64	3.10	4.15	1.65	0.42	3.78	1.80	0.51	0.44	0.44
Na2O	0.02	0.04	0.01	0.01	0.01	0.01	0.03	0.01	0.03	0.03
K2O	0.07	0.00	0.12	0.00	0.00	0.02	0.00	0.01	0.02	0.02
Total	63.73	51.11	74.97	65.23	83.25	74.39	52.16	77.85	81.24	81.24
Cation (O=14)										
Si	4.601	4.519	4.655	4.331	4.264	4.292	4.172	4.281	4.340	4.340
Al	0.211	0.143	0.098	0.045	0.013	0.074	0.109	0.042	0.030	0.030
Ti	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000
Fe	1.267	1.680	1.866	0.721	0.344	1.943	0.963	0.533	0.581	0.581
Cr	0.008	0.010	0.027	0.001	0.001	0.016	0.097	0.005	0.000	0.000
Ni	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mn	0.019	0.033	0.011	0.016	0.005	0.016	0.013	0.006	0.007	0.007
Mg	2.797	2.435	2.085	4.304	5.055	2.827	4.051	4.767	4.636	4.636
Ca	0.380	0.577	0.530	0.227	0.044	0.494	0.316	0.057	0.047	0.047
Na	0.006	0.015	0.003	0.002	0.002	0.003	0.009	0.003	0.005	0.005
K	0.013	0.000	0.019	0.000	0.000	0.003	0.000	0.001	0.003	0.003
Total	9.299	9.412	9.294	9.647	9.729	9.666	9.730	9.696	9.649	9.649
XMg	0.688	0.592	0.528	0.857	0.936	0.593	0.808	0.899	0.889	0.889



表 4.2.5-12 蛇紋石分析值(5)

Sample ID	PWT06-17-Rh-003													
Spot ID	T7-003_13	T7-003_13	T7-003_13	T7-003_13	T7-003_14	T7-003_14	T7-003_14	T7-003_15	T7-003_15	T7-003_15	T7-003_15	T7-003_15	T7-003_15	T7-003_16
No.	134	137	138	139	145	148	149	150	151	155	156	157	158	164
SiO2	40.79	38.86	46.45	38.47	37.17	44.52	37.76	40.89	43.73	41.28	36.82	37.08	36.76	41.89
Al2O3	0.76	0.70	1.70	1.61	1.28	2.42	1.22	2.44	3.61	2.00	1.55	1.97	0.88	0.97
TiO2	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01
FeO	10.45	10.10	11.27	8.98	11.46	11.30	7.68	8.38	6.38	9.71	14.04	11.56	13.24	6.88
Cr2O3	0.06	0.08	0.04	0.48	0.07	0.24	0.05	0.00	0.24	0.95	0.02	0.00	0.04	0.01
NiO	0.66	0.44	0.53	0.44	0.94	0.60	0.41	0.83	0.15	0.48	0.74	0.51	0.61	0.56
MnO	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	0.00
MgO	30.07	21.76	27.30	24.24	16.05	23.23	20.76	32.13	30.18	27.71	15.25	14.84	13.77	29.23
CaO	1.53	1.68	2.00	1.43	2.49	2.89	1.58	1.30	0.94	2.05	2.96	2.81	2.48	1.02
Na2O	0.02	0.03	0.03	0.16	0.03	0.09	0.05	0.04	0.03	0.02	0.06	0.10	0.03	0.04
K2O	0.00	0.06	0.05	0.02	0.03	0.05	0.02	0.02	0.04	0.00	0.21	0.18	0.01	0.03
Total	84.35	73.70	89.37	75.84	69.50	85.33	69.53	86.04	85.31	84.20	71.64	69.05	67.82	80.63
Cation (O=14)														
Si	4.115	4.454	4.373	4.273	4.579	4.408	4.511	4.000	4.204	4.150	4.489	4.591	4.683	4.299
Al	0.091	0.094	0.189	0.211	0.185	0.283	0.172	0.281	0.409	0.237	0.223	0.288	0.132	0.117
Ti	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.882	0.968	0.887	0.834	1.181	0.936	0.767	0.686	0.513	0.816	1.431	1.197	1.410	0.590
Cr	0.004	0.007	0.003	0.042	0.007	0.019	0.005	0.000	0.018	0.076	0.002	0.000	0.004	0.001
Ni	0.053	0.041	0.040	0.040	0.093	0.048	0.039	0.065	0.012	0.039	0.073	0.051	0.062	0.046
Mn	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
Mg	4.523	3.718	3.832	4.012	2.947	3.429	3.697	4.686	4.324	4.153	2.771	2.739	2.615	4.470
Ca	0.166	0.206	0.202	0.171	0.328	0.306	0.203	0.136	0.097	0.220	0.387	0.373	0.339	0.112
Na	0.004	0.006	0.006	0.035	0.006	0.017	0.012	0.008	0.006	0.003	0.014	0.024	0.008	0.007
K	0.000	0.009	0.005	0.003	0.004	0.007	0.003	0.003	0.005	0.000	0.032	0.028	0.002	0.004
Total	9.838	9.503	9.537	9.620	9.330	9.452	9.409	9.865	9.588	9.695	9.422	9.291	9.254	9.647
XMg	0.837	0.793	0.812	0.828	0.714	0.786	0.828	0.872	0.894	0.836	0.659	0.696	0.650	0.883

表 4.2.5-13 蛇紋石分析值(6)

Sample ID	PWT07-17-Rh-C03				PWST02-17-Rh-003_3								
Spot ID	T7-C03_64	T7-C03_68	T7-C03_72	T7-C03_77	PWST02-1_3	PWST02-1_4	PWST02-1_5	PWST02-1_6	PWST02-1_7	PWST02-1_8	PWST02-1_9	PWST02-1_14	PWST02-1_16
No.	64	68	72	77	3	4	5	6	7	8	9	14	16
SiO2	45.26	39.62	43.25	42.09	32.89	36.70	41.89	28.16	37.35	39.83	38.12	20.56	29.40
Al2O3	0.93	0.79	0.64	0.51	0.01	0.01	0.04	0.03	0.01	0.07	0.10	0.05	0.16
TiO2	0.01	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
FeO	5.31	30.54	7.08	8.97	6.06	5.69	4.08	5.12	3.44	2.66	2.48	21.40	16.45
Cr2O3	0.29	0.40	0.04	0.10	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.04	0.35	0.01	0.00
NiO	0.13	0.53	0.66	0.54	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MnO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.03	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.30	16.94
MgO	33.89	14.18	32.68	28.19	16.92	21.45	28.91	14.70	28.05	29.68	27.34	1.77	7.36
CaO	0.05	2.81	0.41	0.58	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00
Na2O	0.02	0.21	0.04	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
K2O	0.03	0.11	0.02	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.02	0.04
Total	85.91	89.19	84.82	81.00	55.92	63.89	74.92	48.03	68.86	72.29	68.41	44.11	70.35
Cation (O=14)													
Si	4.291	4.218	4.224	4.339	4.790	4.663	4.499	4.774	4.379	4.415	4.460	4.640	4.192
Al	0.103	0.100	0.073	0.062	0.002	0.001	0.005	0.006	0.001	0.010	0.014	0.013	0.027
Ti	0.001	0.001	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Fe	0.421	2.719	0.579	0.774	0.738	0.604	0.367	0.726	0.337	0.246	0.242	4.041	1.962
Cr	0.021	0.033	0.003	0.008	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	0.004	0.033	0.001	0.000
Ni	0.010	0.045	0.052	0.044	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	0.003	0.003	0.000	0.000	0.000	0.000	0.001	0.058	2.045
Mg	4.789	2.251	4.758	4.332	3.674	4.062	4.629	3.716	4.903	4.904	4.767	0.596	1.565
Ca	0.005	0.321	0.043	0.064	0.001	0.001	0.000	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000
Na	0.004	0.044	0.008	0.002	0.000	0.001	0.000	0.004	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
K	0.004	0.015	0.002	0.000	0.002	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.001	0.007	0.008
Total	9.650	9.745	9.742	9.627	9.210	9.337	9.499	9.225	9.621	9.579	9.518	9.356	9.799
XMg	0.919	0.453	0.892	0.849	0.833	0.871	0.927	0.836	0.936	0.952	0.952	0.129	0.444

表 4.2.5-14 蛇紋石分析値(7)

Sample ID	PWST02-17-Rh-003_3 (continued)															PWT08-17-Rh-001
Spot ID	PWST02-1	PWST02-1	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	T8-001_13
No.	21	22	50	52	53	63	64	66	79	81	82	84	87	91	132	
SiO2	44.64	43.61	44.38	44.98	45.66	42.04	43.98	41.36	33.03	43.88	42.46	46.85	19.77	40.74	28.10	
Al2O3	0.05	0.07	0.03	0.01	0.03	0.09	0.11	0.15	0.03	0.07	0.07	0.01	0.05	0.33	2.69	
TiO2	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	
FeO	2.39	4.26	3.20	2.19	9.79	2.07	1.93	2.70	7.99	1.59	2.88	5.61	15.01	2.68	52.92	
Cr2O3	0.00	0.01	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.05	0.00	0.02	0.04	0.00	0.09	0.00	
NiO	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	0.00	0.19	
MnO	0.02	0.02	0.02	0.02	0.00	0.01	0.01	0.01	0.01	0.02	0.00	0.01	23.44	0.01	0.00	
MgO	36.55	31.24	37.08	39.16	25.42	35.61	39.24	35.03	14.37	38.19	31.71	35.57	6.72	34.11	2.10	
CaO	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.15	
Na2O	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01	0.01	0.02	0.00	0.00	0.01	0.04	0.01	0.01	0.00	
K2O	0.01	0.02	0.01	0.00	0.00	0.01	0.02	0.01	0.03	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	
Total	83.66	79.24	84.72	86.39	80.92	79.84	85.32	79.28	55.50	83.76	77.14	88.13	65.00	77.97	86.15	
Cation (O=14)																
Si	4.284	4.439	4.233	4.192	4.650	4.232	4.152	4.211	4.903	4.202	4.411	4.329	3.373	4.216	3.620	
Al	0.006	0.009	0.003	0.001	0.004	0.010	0.013	0.019	0.006	0.007	0.009	0.001	0.011	0.041	0.409	
Ti	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.001	0.000	
Fe	0.191	0.363	0.255	0.170	0.834	0.174	0.152	0.230	0.992	0.127	0.250	0.434	2.142	0.232	5.703	
Cr	0.000	0.001	0.000	0.001	0.001	0.000	0.000	0.000	0.006	0.000	0.002	0.003	0.000	0.007	0.000	
Ni	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	0.019	
Mn	0.002	0.002	0.002	0.002	0.000	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.000	0.001	3.387	0.001	0.000	
Mg	5.229	4.741	5.271	5.440	3.859	5.343	5.522	5.317	3.180	5.453	4.911	4.899	1.709	5.262	0.403	
Ca	0.000	0.000	0.000	0.002	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.020	
Na	0.001	0.002	0.000	0.001	0.000	0.001	0.002	0.005	0.000	0.000	0.001	0.006	0.002	0.002	0.000	
K	0.001	0.003	0.001	0.000	0.000	0.001	0.003	0.001	0.005	0.001	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	
Total	9.714	9.558	9.766	9.808	9.348	9.763	9.845	9.783	9.093	9.793	9.584	9.673	10.623	9.760	10.175	
XMg	0.965	0.929	0.954	0.970	0.822	0.968	0.973	0.959	0.762	0.977	0.952	0.919	0.444	0.958	0.066	

(6) 緑泥石

図 4.2.5-5 に緑泥石の組成プロットを示す。緑泥石は PWT07-17-Rh-007 試料に多く含まれている。それらは分散して存在しているものだけではなく、角閃石の交代相として産している。つまり、源岩の角閃石を含む超塩基性岩をおそらく retrograde 変成過程の高温流体で変質させたものと考えられる。そのためか Al の含有量が平成 28 年度試料[2]よりも高いものが多い。

緑泥石の分析値を表 4.2.5-15～表 4.2.5-16 に示す。

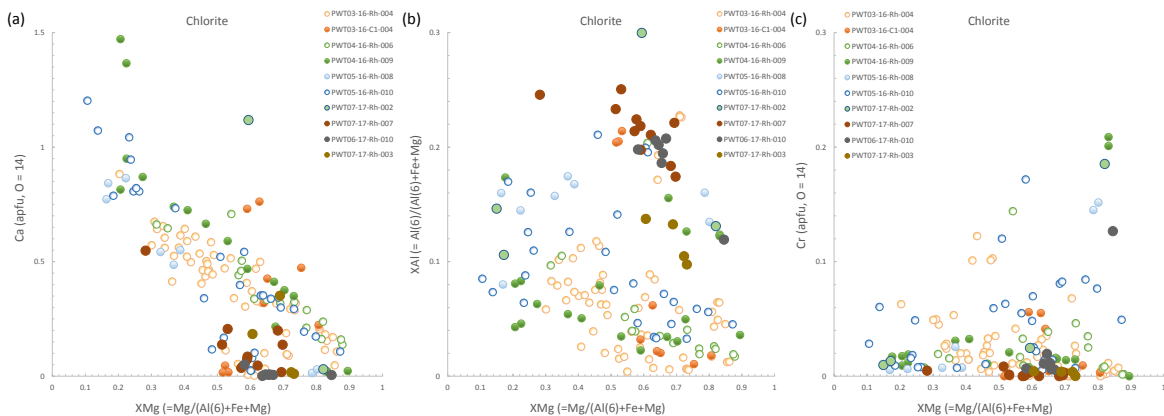


図 4.2.5-5 緑泥石の組成プロット



表 4.2.5-15 緑泥石の化学組成 (その1)

Sample ID	PWT07-17-Rh-002				PWT07-17-Rh-007										
	T7-002_349	T7-002_350	T7-002_359	T7-002_344	T7-007_140	T7-007_167	T7-007_170	T7-007_178	T7-007_181	T7-007_184	T7-007_185	T7-007_186	T7-007_188	T7-007_219	T7-007_223
No.	349	350	359	344	140	167	170	178	181	184	185	186	188	219	223
SiO2	31.49	30.20	44.43	33.26	27.19	38.87	36.35	26.13	26.70	24.39	29.44	24.89	31.57	30.08	27.29
Al2O3	6.47	6.51	11.43	11.80	21.29	7.68	10.02	21.39	19.70	19.87	14.82	21.39	15.87	12.12	22.86
TiO2	19.52	18.71	0.17	0.00	0.04	0.00	0.01	0.02	0.00	0.02	0.02	0.01	0.02	0.07	0.01
FeO	2.99	3.38	5.71	3.26	13.72	7.88	8.20	14.86	12.69	13.96	14.80	11.44	13.28	23.93	6.20
Cr2O3	0.12	0.16	0.34	2.33	0.01	0.00	0.04	0.00	0.06	0.03	0.09	0.00	0.02	0.05	0.01
NiO	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	0.00	0.00
MnO	0.05	0.02	0.09	0.02	0.13	0.18	0.10	0.18	0.13	0.16	0.19	0.12	0.14	0.31	0.03
MgO	0.36	0.45	17.91	30.94	22.44	22.59	24.97	22.27	21.91	21.87	16.89	23.81	18.10	8.03	28.35
CaO	26.15	25.49	11.52	0.28	0.41	1.77	1.24	0.33	0.64	0.73	1.14	0.41	1.81	4.34	0.17
Na2O	0.06	0.03	0.95	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.02	0.01	0.07	0.02	0.03	0.14	0.00
K2O	0.03	0.01	0.08	0.01	0.02	0.02	0.04	0.03	0.02	0.00	0.01	0.01	0.01	0.02	0.01
Total	87.24	84.96	92.63	81.91	85.24	79.00	80.97	85.21	81.87	81.04	77.46	82.09	80.84	79.10	84.93
Cation (O=14)															
Si	3.263	3.225	4.024	3.342	2.767	4.072	3.741	2.685	2.823	2.643	3.318	2.615	3.363	3.545	2.678
Al	0.790	0.820	1.220	1.398	2.554	0.948	1.216	2.591	2.456	2.539	1.969	2.649	1.993	1.683	2.644
Ti	1.521	1.502	0.012	0.000	0.003	0.000	0.001	0.002	0.000	0.002	0.001	0.001	0.002	0.006	0.001
Fe	0.259	0.302	0.432	0.274	1.167	0.691	0.706	1.277	1.122	1.265	1.395	1.006	1.183	2.359	0.509
Cr	0.010	0.013	0.025	0.185	0.000	0.000	0.003	0.000	0.005	0.003	0.008	0.000	0.001	0.005	0.001
Ni	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	0.004	0.002	0.007	0.002	0.011	0.016	0.009	0.016	0.011	0.015	0.018	0.011	0.013	0.030	0.003
Mg	0.055	0.072	2.418	4.635	3.405	3.527	3.832	3.411	3.454	3.533	2.837	3.730	2.874	1.411	4.146
Ca	2.904	2.917	1.118	0.030	0.045	0.199	0.137	0.036	0.073	0.085	0.138	0.046	0.206	0.548	0.018
Na	0.012	0.005	0.167	0.000	0.000	0.000	0.000	0.002	0.003	0.002	0.016	0.003	0.007	0.032	0.000
K	0.004	0.002	0.009	0.001	0.002	0.003	0.005	0.004	0.003	0.000	0.001	0.001	0.001	0.003	0.001
Total	8.824	8.860	9.431	9.867	9.954	9.456	9.651	10.021	9.950	10.086	9.701	10.062	9.643	9.623	10.000
Al(4)	0.737	0.775	0.000	0.658	1.233	0.000	0.259	1.315	1.177	1.357	0.682	1.385	0.638	0.455	1.322
Al(6)	0.054	0.044	1.220	0.740	1.321	0.948	0.958	1.275	1.279	1.182	1.287	1.264	1.356	1.228	1.322
XAl	0.146	0.106	0.300	0.131	0.224	0.184	0.174	0.214	0.218	0.198	0.233	0.211	0.250	0.246	0.221
XMg	0.150	0.172	0.594	0.821	0.578	0.683	0.697	0.572	0.590	0.591	0.514	0.622	0.531	0.282	0.694

NOTE: XAl = Al(6)/(Al(6)+Mg+Fe); XMg = Mg/(Al(6)+Mg+Fe)

表 4.2.5-16 緑泥石の化学組成 (その2)

Sample ID	PWT06-17-Rh-010				PWT07-17-Rh-003										
	T6-010_30	T6-010_38	T6-010_38	T6-010_38	T6-010_38	T6-010_38	T6-010_38	T6-010_39	T7-003_15	T7-003_16	T7-003_16	T7-003_16	T7-003_16	T7-003_16	T7-003_16
No.	305	385	386	387	388	389	394	159	160	161	162	161	162	161	162
SiO2	31.98	28.28	28.27	28.09	27.90	29.26	27.79	36.24	27.91	34.54	37.58	34.54	37.58	34.54	37.58
Al2O3	14.97	20.06	19.46	18.86	18.60	19.90	19.82	8.30	6.01	9.11	8.77	9.11	8.77	9.11	8.77
TiO2	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.03	0.02	0.01	0.00	0.01	0.02	0.01	0.02	0.01	0.02
FeO	2.64	11.17	10.64	8.43	11.07	10.71	15.38	11.99	8.42	15.84	12.63	15.84	12.63	15.84	12.63
Cr2O3	1.69	0.14	0.24	0.07	0.14	0.08	0.08	0.05	0.04	0.05	0.00	0.04	0.05	0.00	0.00
NiO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.12	0.93	2.31	0.00	0.93	2.31	0.00	0.00
MnO	0.02	0.13	0.13	0.12	0.11	0.13	0.14	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MgO	35.46	25.17	25.27	25.49	25.58	26.87	22.91	28.29	18.26	21.02	30.35	18.26	21.02	30.35	30.35
CaO	0.05	0.01	0.07	0.05	0.06	0.07	0.47	0.16	2.44	1.64	0.10	2.44	1.64	0.10	0.10
Na2O	0.05	0.04	0.01	0.01	0.03	0.06	0.03	0.04	0.05	0.12	0.00	0.05	0.12	0.00	0.00
K2O	0.01	0.01	0.00	0.02	0.03	0.02	0.00	0.00	0.00	0.06	0.00	0.00	0.06	0.00	0.00
Total	86.86	85.02	84.09	81.15	83.51	87.12	86.63	85.19	64.06	84.70	89.45	64.06	84.70	89.45	89.45
Cation (O=14)															
Si	3.033	2.843	2.868	2.916	2.863	2.863	2.811	3.631	3.751	3.619	3.589	3.631	3.751	3.619	3.589
Al	1.674	2.378	2.327	2.308	2.250	2.295	2.363	0.980	0.953	1.125	0.987	0.953	1.125	0.987	0.987
Ti	0.000	0.001	0.000	0.000	0.000	0.002	0.001	0.000	0.000	0.001	0.001	0.000	0.001	0.001	0.001
Fe	0.210	0.939	0.903	0.732	0.950	0.876	1.301	1.005	0.947	1.388	1.009	0.947	1.388	1.009	1.009
Cr	0.127	0.011	0.020	0.006	0.011	0.006	0.007	0.004	0.004	0.004	0.000	0.004	0.004	0.000	0.000
Ni	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.010	0.100	0.195	0.000	0.100	0.195	0.000	0.000
Mn	0.001	0.011	0.011	0.011	0.010	0.011	0.012	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mg	5.013	3.772	3.821	3.946	3.913	3.918	3.454	4.226	3.658	3.284	4.320	3.658	3.284	4.320	4.320
Ca	0.005	0.001	0.007	0.006	0.006	0.007	0.051	0.017	0.351	0.184	0.010	0.351	0.184	0.010	0.010
Na	0.008	0.007	0.001	0.003	0.006	0.012	0.006	0.007	0.013	0.025	0.001	0.013	0.025	0.001	0.001
K	0.002	0.002	0.000	0.002	0.004	0.002	0.000	0.000	0.001	0.007	0.000	0.001	0.007	0.000	0.000
Total	10.072	9.965	9.959	9.929	10.012	9.992	10.006	9.880	9.778	9.832	9.917	9.778	9.832	9.917	9.917
Al(4)	0.967	1.157	1.132	1.084	1.138	1.138	1.189	0.369	0.249	0.381	0.411	0.369	0.249	0.381	0.411
Al(6)	0.707	1.221	1.195	1.224	1.112	1.158	1.174	0.612	0.704	0.744	0.576	0.612	0.704	0.744	0.576
XAl	0.119	0.206	0.202	0.207	0.186	0.194	0.198	0.105	0.133	0.137	0.097	0.105	0.133	0.137	0.097
XMg	0.845	0.636	0.646	0.669	0.655	0.658	0.583	0.723	0.689	0.606	0.732	0.689	0.606	0.732	0.732

## (7) スメクタイト

スメクタイトはパラワン試料では普遍的に含まれている。それはサポナイト（3八面体スメクタイト）とノントロナイト（2八面体）、バイデライト（2八面体）に大別できる。図 4.2.5-6 に  $X_{Mg} [=Mg/(Al(6)+Fe+Mg)]$  に対する Ca, Cr のプロット、図 4.2.5-7 に Al に対する Cr のプロット、図 4.2.5-8 に Al に対する Mg, Fe, Si のプロット、図 4.2.5-9 に Si に対する Mg, Fe, Al のプロットを示す。

岩石タイプの分類から、高アルカリ地下水との相互作用のない風化された堆積物である PWT02-17-Rh-003 と PWT08-17-Rh-001 のスメクタイトには、Ca が非常に少ない特徴が示される（図 4.2.5-6(a)）。これらはそれぞれノントロナイトとバイデライトに分類されるものである。バイデライトは PWT08-17-Rh-001 と同様に Al 含有量の多い PWT07-17-Rh-C03 にも認められるが、これには Ca が含まれている。したがって、アルカリとの相互作用により Ca がスメクタイトに供給されていると考えられる。

アルカリ変質により生成した Fe サポナイトは、平成 28 年度[2]試料と同程度もしくはそれ以上に Ca に富む特徴を示している。微量元素の Cr については、ノントロナイトとバイデライトはやや低い含有量を示すが、アルカリ変質試料のサポナイトは平成 28 年度試料よりも富むものが多く、 $X_{Mg}$  値が 0.4-0.6 近傍で Cr が最大を示すような分布が見られる。正の相関を示すものもある（図 4.2.5-6(b)の 2 本のフィッティング曲線）。

スメクタイトの Al 組成については、斑れい岩起源の風化された堆積物でありバイデライトが主である PWT08-17-Rh-001 は明らかにその含有量が多い。一方で、XRF でも確認されているが、平成 28 年度のトレンチ 5 の超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物でも斑れい岩起源の層内礫層の影響で比較的 Al 成分が多く、アルカリ相互作用により生成したサポナイトにも Al が取り込まれている。PWT07-17-Rh-C03 では Al 含有量の差が大きく、源岩の組成を反映した Al を含むバイデライトと Al の少ないサポナイトが共存していると考えられる。また、Narra の堆積物中のスメクタイトについては、図 4.2.5-7 から Al と Cr、図 4.2.5-8 から Al と Fe, Si には負の相関があることが見て取れる。

次に、Si-Al-(Fe+Mg)の 3 成分三角プロットを図 4.2.5-10 に示す。このプロットでは、確認された火山ガラス組成、長石類(albite, anorthite)、輝石(enstatite)、オリビン、スピネル、角閃石(pargasite, cummingtonite)、蛇紋石(lizardite)、緑泥石(clinocllore)、スメクタイト(montmorillonite, saponite = minesotaite, nontronite, beidelite, stevensite and pyrophyllite)も示し、考えられる変質トレンドを矢印で示してある。また、八面体イオンの総数のヒストグラムを図 4.2.5-11 に示す。この八面体イオンの総数からスメクタイトが 2 八面体型か、3 八面体型かの分類がおおよそ区別できる。

図 4.2.5-10 に示すように、Fe、Mg に富むサポナイト、ノントロナイト、スチーブンサイト組成のスメクタイトが多く、特に超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物中のスメクタイトはほとんどがこのような組成のスメクタイトである。EPMA の産状観察結果も考慮すると、Narra の高アルカリ環境では、サポナイトあるいは鉄サポナイトが主として生成し、条件によって一部ノントロナイトやスチーブンサイトが生成していると考えられる。

それに対して、Al に富む斑れい岩質堆積物(PWT08-17-Rh-001)と降下火山灰堆積物(PWT07

-17-Rh-C03)では、Fe, Mg に富むサポナイトに分類されるスメクタイトがある一方で、モンモリロナイトやバイデライトに分類される Al に富むスメクタイトも多くみられる。

図 4.2.5-11 では、Al-poor な環境でのスメクタイトは 2 八面体型と 3 八面体型の中間組成のスメクタイトが多いのに対して、Al-rich な環境では 2 八面体型のスメクタイトと 3 八面体型のスメクタイトと明確に区別されるスメクタイトが多いことがわかる。

降下火山灰堆積物では、ベントナイトの主要粘土鉱物である 2 八面体型のモンモリロナイトが同定された。モンモリロナイトはアルカリ環境下で一部は溶解したと考えられるが、処分環境よりもはるかに移流による物質移動が大きいパラワンの環境でも、数千年にわたりアルカリ環境下で残存している。一方で周囲に苦鉄質鉱物が存在するアルカリ環境下で Fe, Mg に富むサポナイト化も見られが、苦鉄質の堆積物に比べると、その程度は小さい。

スメクタイトの分析値を表 4.2.5-17～表 4.2.5-27 に示す。

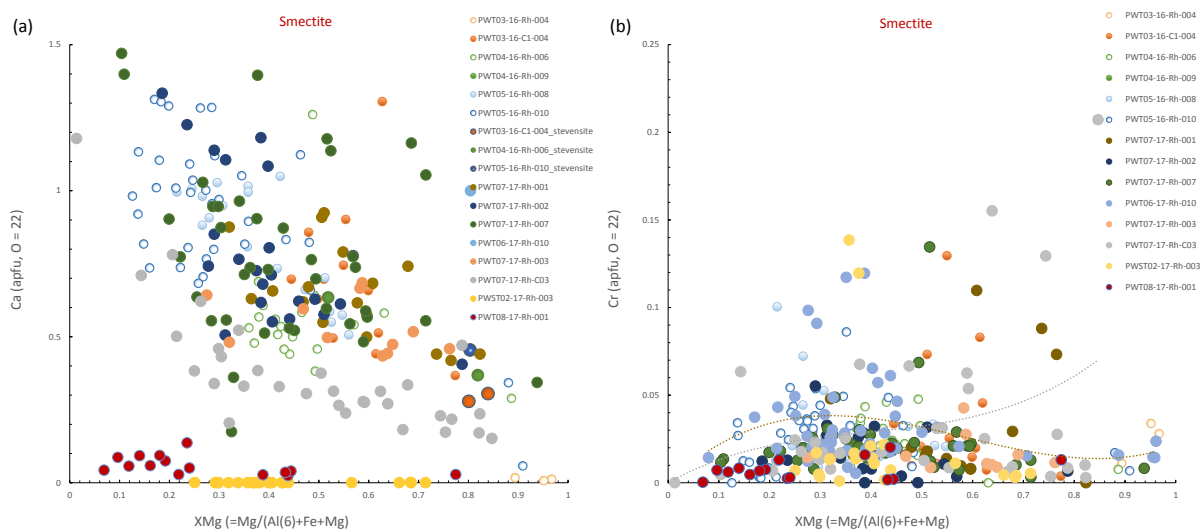


図 4.2.5-6 スメクタイトの組成プロット(a: XMg vs. Ca; b: XMg vs. Cr)

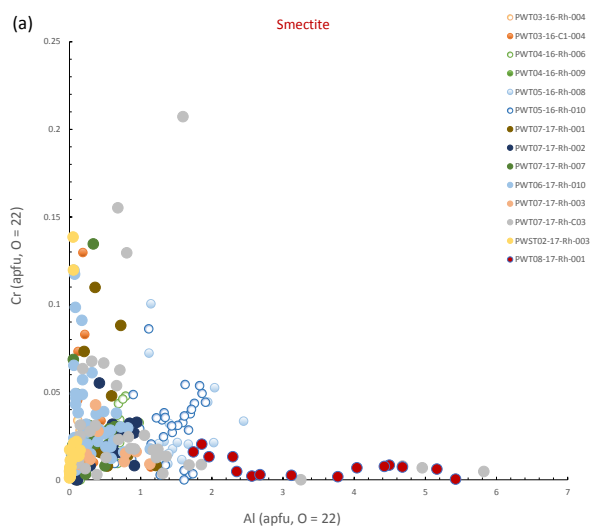


図 4.2.5-7 スメクタイトの組成プロット(a: Al vs. Cr)

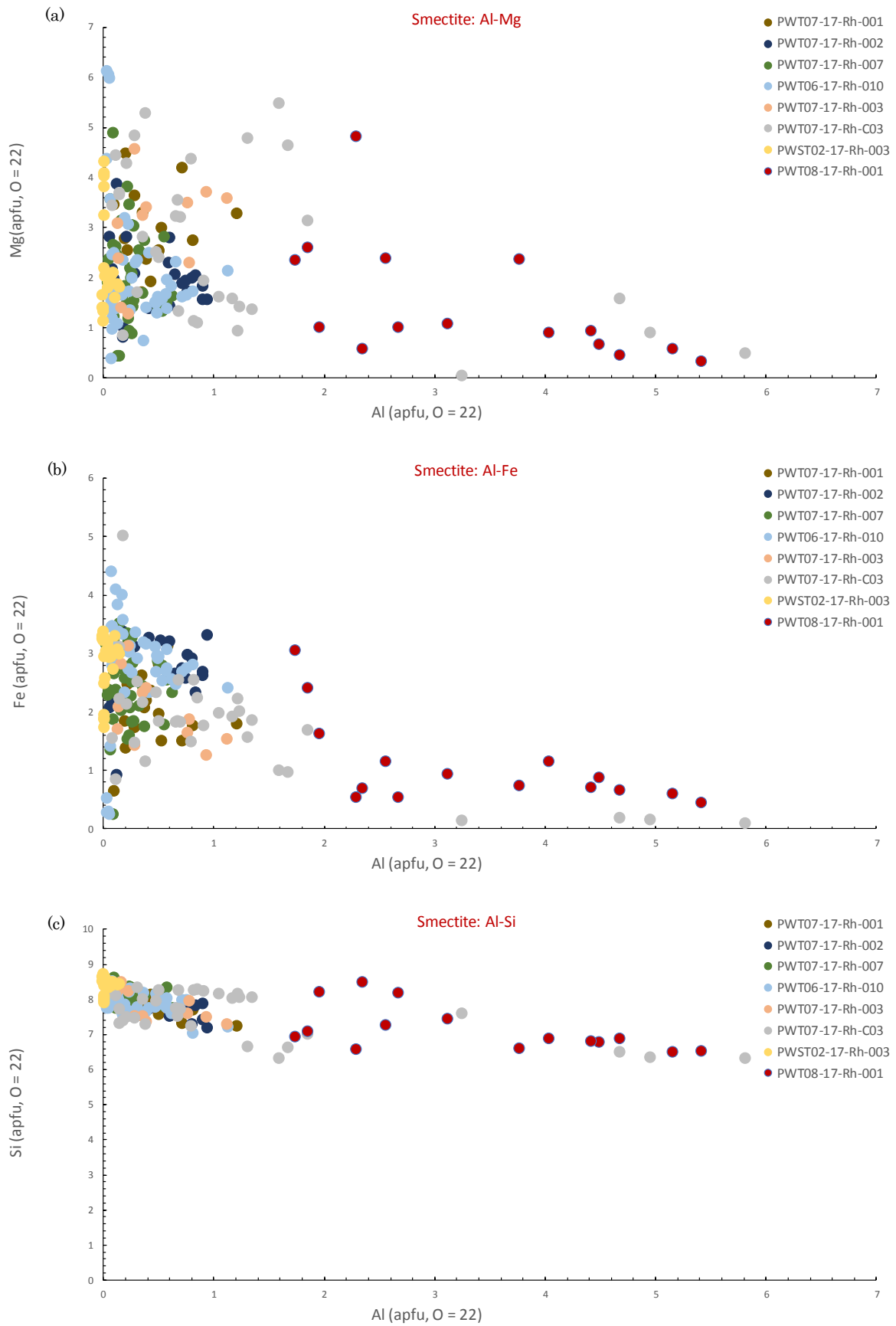


図 4.2.5-8 スメクタイトの組成プロット(a: Al vs. Mg; b: Al vs. Fe; c: Al vs. Si)

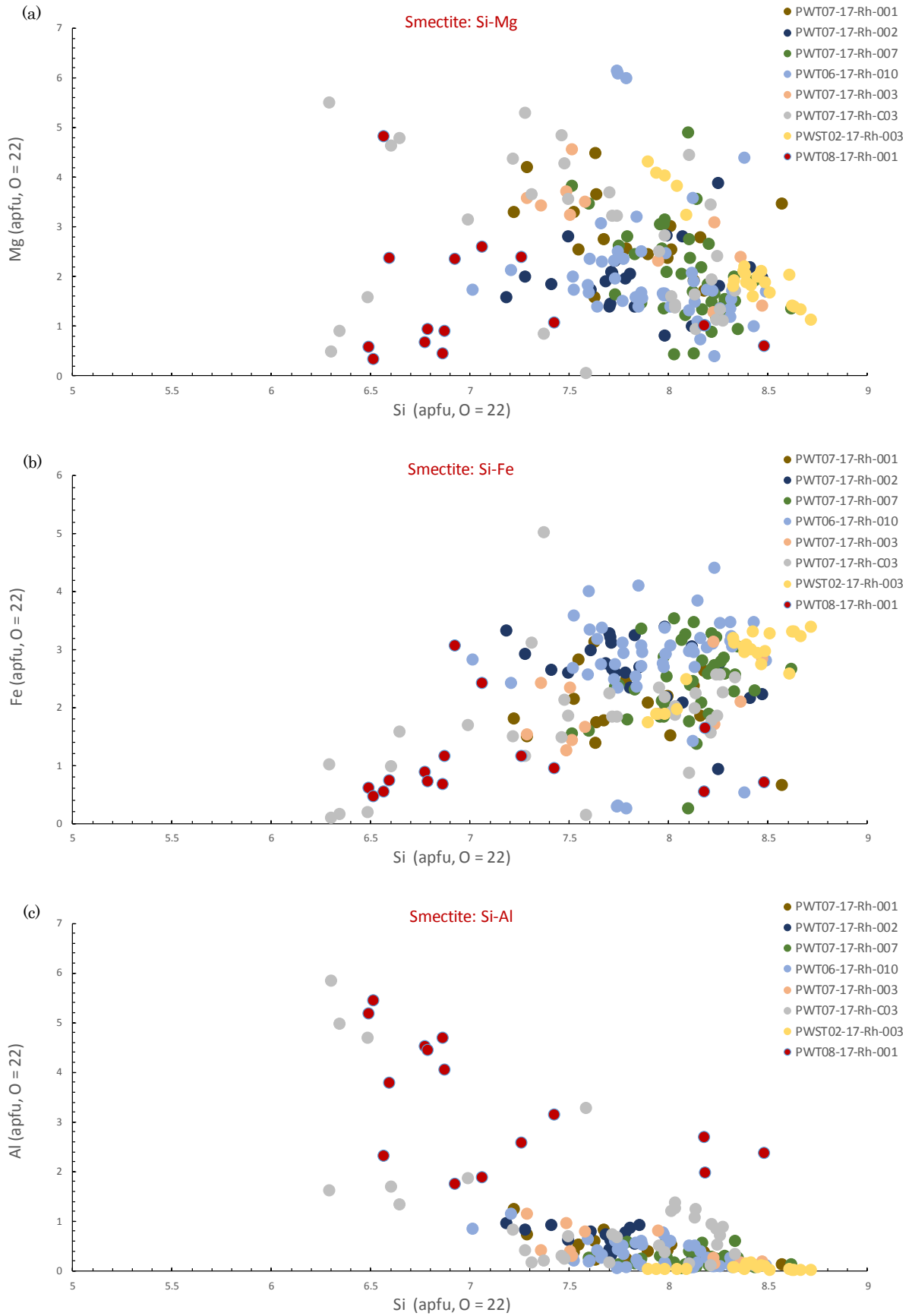


図 4.2.5-9 スメクタイトの組成プロット(a: Si vs. Mg; b: Si vs. Fe; c: Si vs. Al)



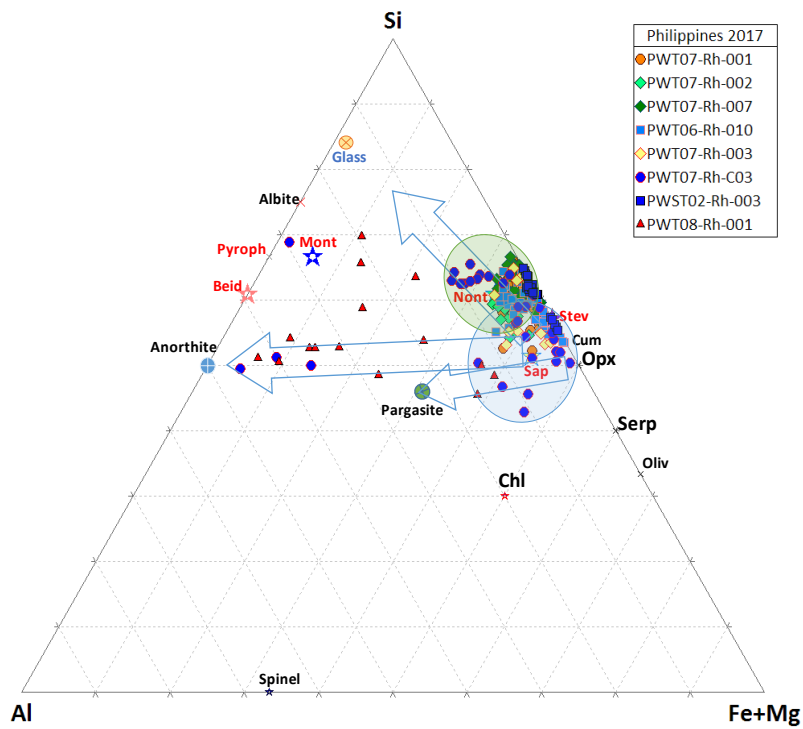


図 4.2.5-10 スメクタイトの組成プロット(Si-Al-Mg+Fe 3成分系)

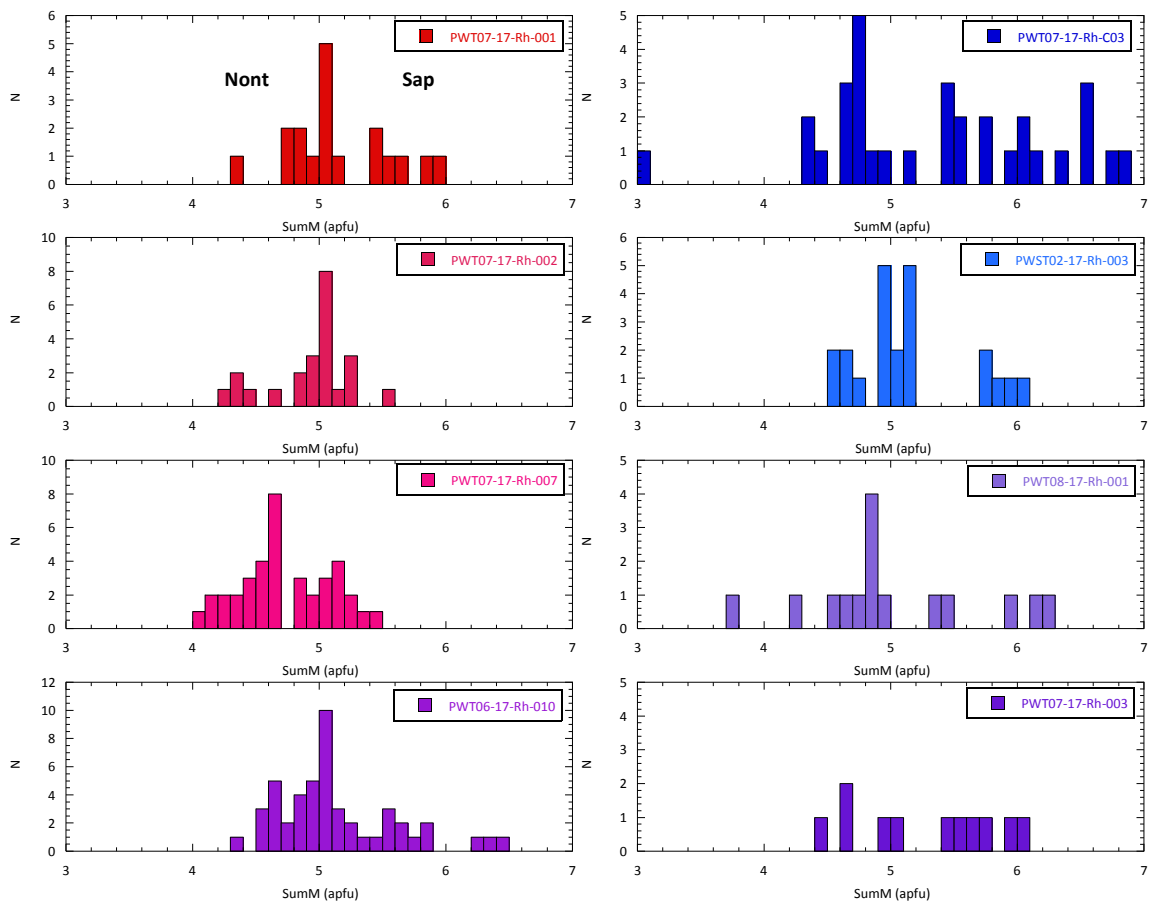


図 4.2.5-11 スメクタイトの八面体サイトの総数







表 4.2.5-23 スメクタイト分析値(7)

Sample ID PWT07-17-Rh-003												
Spot ID	T7-003_135	T7-003_136	T7-003_140	T7-003_141	T7-003_142	T7-003_143	T7-003_144	T7-003_146	T7-003_147	T7-003_152	T7-003_177	
No.	135	136	140	141	142	143	144	146	147	152	177	
SiO2	53.29	56.37	33.07	39.58	32.58	34.82	31.06	50.73	31.14	39.29	40.47	
Al2O3	0.76	0.94	2.78	3.40	4.28	1.44	1.43	0.69	1.01	4.16	0.99	
TiO2	0.01	0.00	0.03	0.04	0.03	0.00	0.00	0.01	0.01	0.04	0.00	
FeO	15.83	22.37	9.30	10.22	8.11	12.86	12.09	12.47	7.04	7.79	18.30	
Cr2O3	0.07	0.12	0.08	0.07	0.05	0.25	0.15	0.09	0.06	0.11	0.09	
NiO	0.51	0.31	0.41	0.27	0.54	0.72	0.64	0.39	0.35	0.55	0.33	
MnO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
MgO	10.16	6.27	6.42	12.25	10.71	10.08	9.65	12.74	12.67	13.05	4.20	
CaO	2.95	2.98	2.31	2.16	1.97	2.88	2.70	2.50	1.77	2.53	2.95	
Na2O	0.09	0.11	0.06	0.09	0.08	0.05	0.05	0.15	0.05	0.08	0.19	
K2O	0.17	0.22	0.19	0.19	0.17	0.09	0.07	0.27	0.02	0.13	0.35	
Total	83.85	89.69	54.65	68.26	58.51	63.17	57.83	80.04	54.12	67.72	67.86	
Cation (O=22)	135	136	140	141	142	143	144	146	147	152	177	
Si	8.364	8.477	7.949	7.581	7.292	7.509	7.362	8.235	7.515	7.490	8.229	
Al	0.140	0.167	0.788	0.768	1.128	0.365	0.399	0.132	0.287	0.936	0.236	
Ti	0.001	0.000	0.006	0.005	0.004	0.000	0.000	0.001	0.002	0.006	0.000	
Fe	2.078	2.814	1.869	1.638	1.518	2.320	2.397	1.693	1.420	1.242	3.113	
Cr	0.009	0.014	0.015	0.010	0.009	0.043	0.028	0.011	0.012	0.016	0.015	
Ni	0.065	0.037	0.078	0.041	0.098	0.125	0.122	0.051	0.068	0.084	0.054	
Mn	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
Mg	2.376	1.406	2.299	3.498	3.572	3.239	3.409	3.082	4.558	3.708	1.273	
Ca	0.497	0.481	0.596	0.442	0.473	0.666	0.685	0.434	0.459	0.517	0.643	
Na	0.028	0.032	0.029	0.032	0.033	0.020	0.022	0.048	0.022	0.028	0.076	
K	0.035	0.043	0.059	0.048	0.049	0.023	0.022	0.056	0.005	0.032	0.090	
Total	13.592	13.470	13.688	14.064	14.177	14.309	14.446	13.744	14.347	14.059	13.728	
	0.000	0.000	0.051	0.419	0.708	0.492	0.638	0.000	0.485	0.510	0.000	
	0.140	0.167	0.737	0.349	0.420	0.000	0.000	0.132	0.000	0.426	0.236	
	0.517	0.321	0.469	0.638	0.648	0.583	0.587	0.628	0.762	0.690	0.275	

表 4.2.5-24 スメクタイト分析値(8)

Sample ID PWT07-17-Rh-C03																	
Spot ID	T7-C03_48	T7-C03_49	T7-C03_52	T7-C03_56	T7-C03_57	T7-C03_58	T7-C03_60	T7-C03_61	T7-C03_62	T7-C03_63	T7-C03_66	T7-C03_67	T7-C03_69	T7-C03_70	T7-C03_71	T7-C03_73	T7-C03_74
No.	48	49	52	56	57	58	60	61	62	63	66	67	69	70	71	73	74
SiO2	38.29	44.62	16.53	53.35	47.75	40.45	37.80	44.77	39.64	36.63	56.17	50.98	40.05	52.00	42.93	39.40	45.50
Al2O3	1.22	3.43	0.35	4.69	4.07	5.04	3.56	4.23	8.52	1.19	0.53	0.83	0.70	0.67	1.66	1.76	3.22
TiO2	0.00	0.01	0.01	0.06	0.08	0.07	0.06	0.01	0.00	0.03	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01	0.02	0.05
FeO	13.73	13.01	13.41	17.23	17.60	11.49	9.64	10.92	7.45	8.61	12.60	17.57	20.30	6.46	13.83	7.36	16.73
Cr2O3	0.39	1.17	0.18	0.15	0.18	0.11	0.10	1.02	1.65	0.17	0.08	0.21	0.22	0.08	0.21	0.02	0.16
NiO	0.77	0.42	0.79	0.70	0.76	0.41	0.42	0.39	0.33	0.35	0.39	0.45	0.43	0.60	0.78	0.81	0.75
MnO	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	0.00	0.00	0.00	0.00
MgO	5.26	14.14	1.26	4.77	4.36	5.35	5.97	18.16	23.19	15.89	15.78	16.34	13.38	19.13	10.15	19.20	4.88
CaO	1.65	1.50	1.49	3.74	2.07	2.46	1.41	1.32	0.89	1.00	2.14	1.93	1.35	1.02	1.57	1.19	1.74
Na2O	0.11	0.21	0.05	0.28	0.14	0.26	0.15	0.10	0.16	0.12	0.20	0.23	0.07	0.17	0.12	0.16	0.21
K2O	0.04	0.20	0.05	0.34	0.30	0.23	0.18	0.16	0.10	0.04	0.21	0.21	0.09	0.26	0.19	0.39	0.45
Total	61.45	78.71	34.11	85.32	77.31	65.86	59.29	81.07	81.92	64.02	88.12	88.75	76.61	80.38	71.45	70.29	73.68
Cation (O=22)	48	49	52	56	57	58	60	61	62	63	66	67	69	70	71	73	74
Si	8.338	7.497	7.376	8.275	8.245	8.018	8.220	7.222	6.296	7.463	8.217	7.708	7.314	8.108	7.983	7.280	8.261
Al	0.313	0.679	0.186	0.857	0.828	1.177	0.913	0.804	1.594	0.287	0.091	0.148	0.151	0.123	0.364	0.384	0.689
Ti	0.001	0.001	0.004	0.007	0.011	0.011	0.010	0.002	0.000	0.004	0.001	0.000	0.001	0.000	0.002	0.002	0.007
Fe	2.500	1.829	5.004	2.235	2.541	1.904	1.753	1.474	0.989	1.467	1.542	2.221	3.101	0.842	2.152	1.137	2.540
Cr	0.068	0.155	0.063	0.018	0.024	0.017	0.018	0.130	0.207	0.028	0.009	0.025	0.031	0.010	0.031	0.003	0.023
Ni	0.135	0.057	0.282	0.087	0.106	0.065	0.074	0.050	0.043	0.057	0.046	0.054	0.064	0.075	0.117	0.120	0.109
Mn	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
Mg	1.706	3.542	0.837	1.104	1.123	1.581	1.934	4.367	5.489	4.825	3.442	3.683	3.644	4.446	2.813	5.289	1.320
Ca	0.384	0.270	0.710	0.621	0.383	0.523	0.329	0.229	0.151	0.217	0.335	0.313	0.265	0.170	0.313	0.236	0.339
Na	0.046	0.069	0.040	0.084	0.047	0.099	0.063	0.032	0.048	0.047	0.058	0.067	0.026	0.053	0.042	0.056	0.073
K	0.010	0.044	0.027	0.068	0.067	0.058	0.051	0.033	0.021	0.009	0.039	0.041	0.021	0.052	0.046	0.093	0.103
Total	13.500	14.142	14.529	13.357	13.375	13.453	13.362	14.342	14.838	14.404	13.780	14.260	14.618	13.878	13.862	14.599	13.464
	0.000	0.503	0.624	0.000	0.000	0.000	0.000	0.778	1.704	0.537	0.000	0.293	0.686	0.000	0.017	0.720	0.000
	0.313	0.176	0.000	0.857	0.828	1.177	0.913	0.026	0.000	0.091	0.000	0.000	0.123	0.347	0.000	0.689	0.000
	0.378	0.639	0.143	0.263	0.250	0.339	0.420	0.744	0.847	0.767	0.678	0.624	0.540	0.822	0.530	0.823	0.290





表 4.2.5-27 スメクタイト分析値(11)

Sample ID	PWT08-17-Rh-001														
Spot ID	T8-001_124	T8-001_125	T8-001_126	T8-001_127	T8-001_130	T8-001_131	T8-001_133	T8-001_239	T8-001_240	T8-001_241	T8-001_242	T8-001_245	T8-001_246	T8-001_247	T8-001_248
No.	124	125	126	127	130	131	133	239	240	241	242	245	246	247	248
SiO2	47.47	43.10	45.79	40.13	47.74	43.03	39.99	46.84	44.47	44.97	34.92	44.68	48.48	38.25	43.54
Al2O3	27.45	24.25	30.88	22.18	11.22	15.34	28.25	13.89	9.48	10.04	10.46	9.08	13.47	19.06	21.12
TiO2	0.05	0.12	0.04	0.05	0.08	0.09	0.01	0.03	0.29	0.03	0.03	0.00	0.02	0.05	0.00
FeO	5.42	6.57	4.95	4.94	4.58	6.45	3.26	4.55	23.35	18.29	6.60	10.57	3.70	7.63	5.73
Cr2O3	0.06	0.07	0.06	0.06	0.03	0.02	0.00	0.12	0.13	0.16	0.01	0.09	0.02	0.05	0.01
NiO	0.07	0.13	0.12	0.12	1.03	2.04	0.03	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MnO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.08	0.00	0.04	0.05	0.01	0.01	0.03	0.04
MgO	2.08	2.87	2.70	3.69	2.20	4.16	1.33	23.03	10.12	11.07	7.66	3.67	4.02	3.33	10.45
CaO	0.56	0.55	0.37	0.41	0.31	0.74	0.25	0.19	0.16	0.15	0.18	0.14	0.28	0.48	0.22
Na2O	0.15	0.06	0.08	0.12	0.01	0.07	0.05	0.00	0.02	0.00	0.03	0.00	0.03	0.03	0.02
K2O	0.11	0.10	0.10	0.17	0.01	0.08	0.06	0.03	0.04	0.03	0.01	0.02	0.09	0.04	0.05
Total	83.41	77.82	85.09	71.86	67.21	72.02	73.23	88.76	88.06	84.79	59.96	68.25	70.11	68.96	81.18
Cation (O=22)	124	125	126	127	130	131	133	239	240	241	242	245	246	247	248
Si	6.866	6.777	6.495	6.791	8.486	7.426	6.516	6.570	6.926	7.064	7.260	8.188	8.180	6.875	6.597
Al	4.679	4.495	5.163	4.425	2.352	3.120	5.425	2.296	1.741	1.859	2.564	1.961	2.678	4.039	3.771
Ti	0.005	0.014	0.004	0.006	0.010	0.011	0.002	0.003	0.034	0.004	0.005	0.000	0.003	0.007	0.000
Fe	0.655	0.864	0.588	0.699	0.681	0.931	0.444	0.534	3.041	2.403	1.147	1.620	0.522	1.147	0.726
Cr	0.007	0.008	0.006	0.008	0.005	0.003	0.000	0.013	0.016	0.020	0.002	0.013	0.003	0.007	0.002
Ni	0.008	0.017	0.014	0.016	0.147	0.284	0.004	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	0.010	0.000	0.005	0.009	0.002	0.001	0.005	0.005
Mg	0.448	0.673	0.571	0.930	0.584	1.070	0.324	4.814	2.350	2.593	2.375	1.003	1.011	0.893	2.361
Ca	0.087	0.092	0.057	0.074	0.059	0.136	0.043	0.028	0.027	0.025	0.040	0.028	0.050	0.093	0.035
Na	0.043	0.019	0.023	0.039	0.002	0.024	0.017	0.000	0.004	0.000	0.012	0.000	0.010	0.010	0.005
K	0.020	0.021	0.018	0.037	0.003	0.018	0.012	0.005	0.008	0.006	0.002	0.004	0.019	0.010	0.011
Total	12.818	12.978	12.937	13.025	12.328	13.023	12.785	14.272	14.147	13.980	13.417	12.818	12.476	13.085	13.513
	1.135	1.224	1.505	1.209	0.000	0.574	1.485	1.431	1.074	0.936	0.740	0.000	0.000	1.125	1.403
	3.544	3.271	3.658	3.216	2.352	2.546	3.941	0.866	0.666	0.923	1.824	1.961	2.678	2.914	2.368
	0.096	0.140	0.119	0.192	0.161	0.235	0.069	0.775	0.388	0.438	0.444	0.219	0.240	0.180	0.433

(8) 角閃石

角閃石のデータを2016年試料のデータとともにプロットした図を図 4.2.5-12～図 4.2.5-13 に示す。(Na+K)<sub>A</sub>の値が0.5以下のものを分類上はホルンブレンドと呼ぶが、PWT07-17-Rh-007, C03, PWT08-17-Th-001の3試料については0.5を超えるパーガサイト質角閃石(Al-rich)が含まれており、超塩基性岩由来の高圧角閃石の存在が示唆される。また、(Na+K)<sub>A</sub>の値が0.5以下の角閃石のうち Al-rich のものがチェルマカイトに分類されるが、PWT07-17-Th-007 の角閃石の多くはこれに類する。

角閃石の分析値を表 4.2.5-28～表 4.2.5-32 に示す。

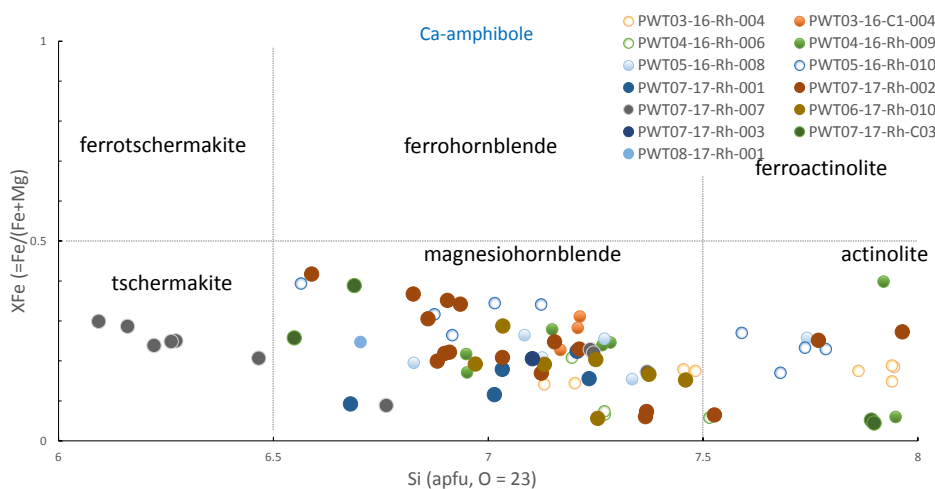


図 4.2.5-12 角閃石の組成プロット (その1)

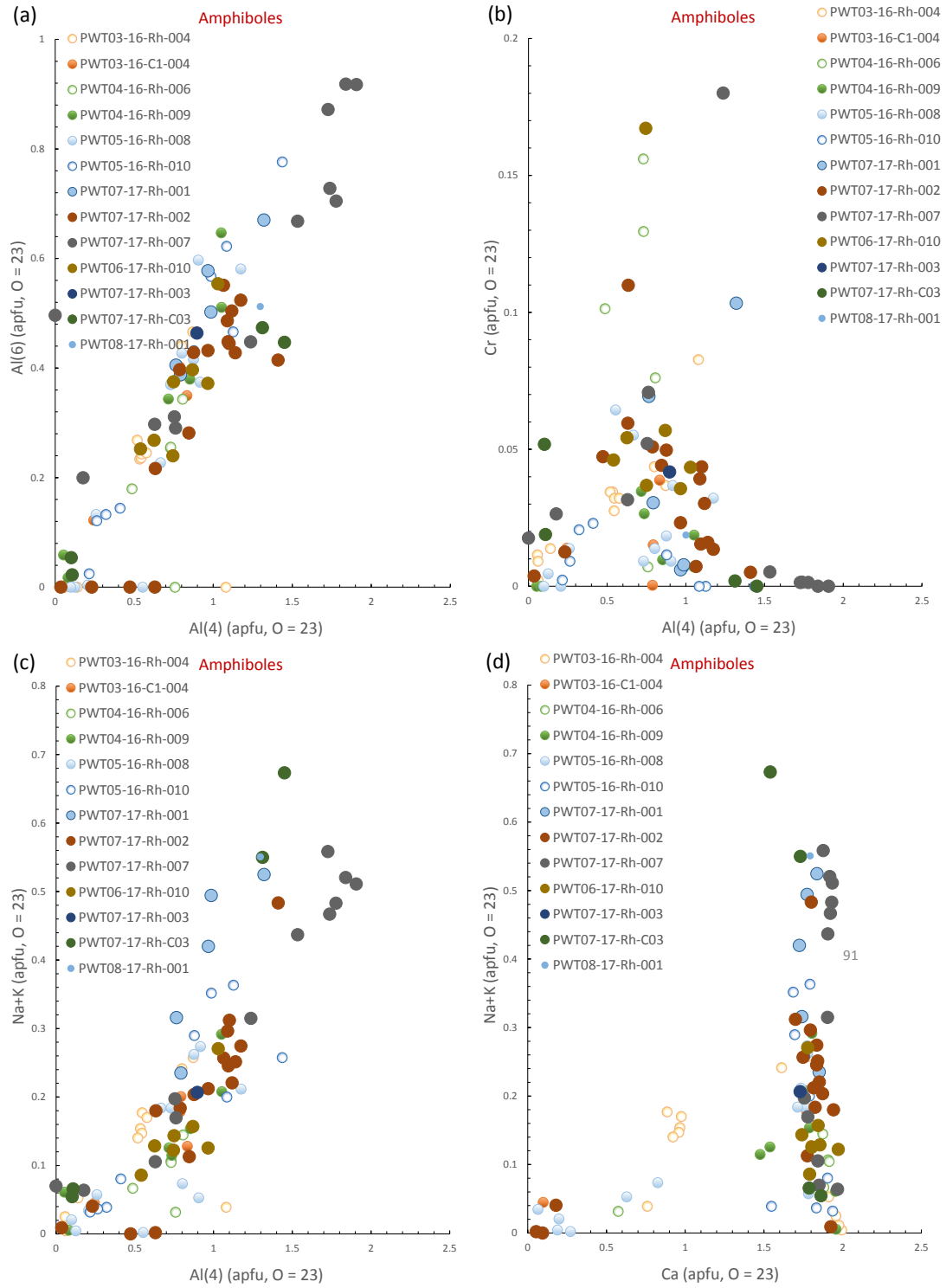


図 4.2.5-13 角閃石の組成プロット (その2)

表 4.2.5-28 角閃石の分析値 (その1)

Sample ID	PWT07-17-Rh-001				
Spot ID	T7- 001_27	T7- 001_29	T7- 001_35	T7- 001_36	T7- 001_41
No.	27	29	35	36	41
SiO2	52.68	50.21	50.48	47.81	48.52
Al2O3	7.23	9.36	9.08	12.09	6.74
TiO2	0.21	0.24	0.03	0.10	0.22
FeO	6.38	7.04	4.66	3.44	8.55
Cr2O3	0.64	0.05	0.07	0.94	0.26
NiO	0.06	0.03	0.06	0.11	0.08
MnO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MgO	19.48	18.17	20.03	19.04	16.62
CaO	11.84	11.50	11.92	12.28	11.64
Na2O	1.15	1.49	1.80	1.82	0.77
K2O	0.06	0.09	0.05	0.18	0.07
Total	99.71	98.17	98.20	97.80	93.46
Cation (O=23)					
Si	7.235	7.033	7.015	6.680	7.207
Al	1.170	1.545	1.488	1.991	1.181
Ti	0.022	0.025	0.003	0.010	0.024
Fe	0.733	0.825	0.542	0.402	1.062
Cr	0.069	0.006	0.008	0.103	0.031
Ni	0.007	0.003	0.007	0.012	0.009
Mn	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mg	3.988	3.794	4.150	3.966	3.680
Ca	1.742	1.726	1.775	1.837	1.852
Na	0.305	0.404	0.485	0.493	0.221
K	0.011	0.016	0.010	0.031	0.014
Total	15.281	15.377	15.482	15.526	15.281
Al(4)	0.765	0.967	0.986	1.321	0.793
Al(6)	0.405	0.578	0.502	0.670	0.388
XMg	0.845	0.821	0.884	0.908	0.776
Na+K(A)	0.316	0.420	0.494	0.525	0.235

NOTE XMg = Mg/(Mg+Fe); Na+K(A) = A-site occupancy

表 4.2.5-29 角閃石の分析値 (その2)

Sample ID	PWT07-17-Rh-002																	
Spot ID	T7- 002_27	T7- 002_28	T7- 002_29	T7- 002_30	T7- 002_31	T7- 002_32	T7- 002_42	T7- 002_43	T7- 002_44	T7- 002_67	T7- 002_68	T7- 002_346	T7- 002_347	T7- 002_348	T7- 002_353	T7- 002_354	T7- 002_377	
No.	27	28	29	30	31	32	42	43	44	67	68	346	347	348	353	354	377	
SiO2	46.11	45.22	44.24	42.51	45.21	45.70	53.75	53.38	45.98	49.38	51.29	46.49	45.04	53.44	47.92	55.00	47.55	
Al2O3	8.74	8.94	9.34	9.99	8.75	8.69	1.60	0.94	8.92	6.88	5.02	7.84	9.01	0.13	7.44	0.69	6.36	
TiO2	0.36	0.33	0.35	0.79	0.24	0.22	0.01	0.04	0.42	0.26	0.00	0.20	0.12	0.03	0.20	0.02	0.27	
FeO	13.46	12.59	13.40	15.47	8.23	8.49	4.94	14.41	11.82	8.89	2.40	7.94	7.41	11.08	6.38	4.29	9.89	
Cr2O3	0.13	0.06	0.11	0.04	0.32	0.37	0.55	0.11	0.14	0.44	0.97	0.19	0.25	0.03	0.42	0.44	0.37	
NiO	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	0.00	0.00	0.00	0.00	
MnO	0.13	0.13	0.12	0.30	0.09	0.09	0.06	0.18	0.10	0.08	0.02	0.08	0.09	0.20	0.10	0.09	0.13	
MgO	13.94	13.60	12.96	12.13	16.22	17.01	35.01	24.05	15.08	16.78	21.03	16.93	16.71	16.61	17.57	34.86	16.85	
CaO	11.44	10.65	11.11	10.85	10.97	10.52	0.37	1.15	11.52	11.67	12.62	11.21	11.32	12.06	11.76	0.65	11.02	
Na2O	0.75	0.77	0.79	1.15	0.95	1.01	0.00	0.14	0.77	0.59	0.62	0.66	0.70	0.02	0.67	0.00	0.34	
K2O	0.15	0.14	0.20	0.70	0.08	0.08	0.01	0.00	0.15	0.09	0.04	0.09	0.06	0.03	0.06	0.00	0.07	
Total	95.20	92.43	92.62	93.93	91.05	92.17	96.29	94.40	94.90	95.06	94.02	91.63	90.72	93.62	92.52	96.01	92.85	
Cation (O=23)																		
Si	6.905	6.935	6.826	6.589	6.910	6.899	7.369	7.769	6.860	7.212	7.366	7.034	6.882	7.964	7.124	7.527	7.154	
Al	1.543	1.616	1.698	1.825	1.576	1.546	0.259	0.161	1.568	1.185	0.851	1.399	1.623	0.022	1.305	0.111	1.127	
Ti	0.040	0.038	0.041	0.092	0.027	0.025	0.001	0.004	0.048	0.028	0.000	0.022	0.014	0.003	0.023	0.002	0.031	
Fe	1.686	1.615	1.730	2.006	1.052	1.072	0.566	1.754	1.475	1.086	0.289	1.005	0.947	1.381	0.793	0.491	1.245	
Cr	0.015	0.007	0.014	0.005	0.039	0.044	0.060	0.013	0.016	0.051	0.110	0.023	0.030	0.004	0.050	0.047	0.044	
Ni	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	
Mn	0.016	0.017	0.015	0.040	0.012	0.012	0.007	0.023	0.012	0.009	0.003	0.011	0.011	0.025	0.012	0.010	0.016	
Mg	3.112	3.109	2.981	2.803	3.695	3.827	7.156	5.218	3.354	3.652	4.503	3.818	3.807	3.691	3.894	7.111	3.780	
Ca	1.835	1.750	1.837	1.802	1.796	1.701	0.054	0.180	1.842	1.826	1.943	1.817	1.853	1.926	1.874	0.095	1.777	
Na	0.218	0.229	0.235	0.346	0.280	0.296	0.000	0.040	0.223	0.167	0.173	0.194	0.209	0.004	0.193	0.000	0.099	
K	0.028	0.027	0.039	0.138	0.016	0.016	0.002	0.000	0.029	0.017	0.007	0.018	0.012	0.005	0.011	0.000	0.014	
Total	15.398	15.344	15.415	15.646	15.403	15.437	15.472	15.160	15.426	15.234	15.244	15.340	15.388	15.025	15.278	15.393	15.286	
Al(4)	1.095	1.065	1.174	1.411	1.090	1.101	0.631	0.231	1.140	0.788	0.634	0.967	1.118	0.036	0.876	0.473	0.846	
Al(6)	0.448	0.551	0.524	0.414	0.486	0.445	0.000	0.000	0.428	0.397	0.217	0.432	0.504	0.000	0.428	0.000	0.281	
XMg	0.649	0.658	0.633	0.583	0.778	0.781	0.927	0.748	0.695	0.771	0.940	0.792	0.801	0.728	0.831	0.935	0.752	
Na+K(A)	0.245	0.257	0.274	0.483	0.296	0.312	0.002	0.040	0.251	0.184	0.180	0.212	0.221	0.009	0.204	0.000	0.113	

NOTE XMg = Mg/(Mg+Fe); Na+K(A) = A-site occupancy

表 4.2.5-30 角閃石の分析値 (その3)

Sample ID		PWT07-17-Rh-007										
Spot ID	T7-	T7-	T7-	T7-	T7-	T7-	T7-	T7-	T7-	T7-	T7-	T7-
	007_141	007_155	007_160	007_179	007_180	007_182	007_183	007_187	007_210	007_215	007_217	
No.	141	155	160	179	180	182	183	187	210	215	217	
SiO2	42.54	49.29	47.31	41.66	40.55	41.98	42.51	41.03	50.49	49.82	50.06	
Al2O3	14.95	2.59	10.00	15.82	15.94	14.02	12.28	13.89	5.39	6.15	6.25	
TiO2	0.14	0.01	0.06	0.10	0.10	0.08	0.08	0.06	0.19	0.10	0.12	
FeO	8.82	15.59	3.40	10.03	10.35	9.13	7.47	8.70	6.88	9.26	8.95	
Cr2O3	0.01	0.14	1.59	0.00	0.00	0.01	0.04	0.01	0.27	0.62	0.46	
NiO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
MnO	0.09	0.15	0.04	0.07	0.08	0.10	0.11	0.08	0.08	0.14	0.13	
MgO	14.86	8.91	19.67	14.03	13.63	15.50	16.10	15.60	18.54	17.60	17.86	
CaO	11.88	10.62	12.44	12.11	12.02	12.03	11.70	11.89	11.78	11.43	11.34	
Na2O	1.89	0.12	1.06	1.69	1.61	1.54	1.40	1.58	0.35	0.56	0.66	
K2O	0.10	0.16	0.11	0.19	0.21	0.11	0.13	0.10	0.03	0.06	0.07	
Total	95.28	87.57	95.68	95.68	94.50	94.52	91.81	92.94	94.00	95.74	95.88	
Cation (O=23)												
Si	6.273	8.019	6.763	6.161	6.094	6.262	6.466	6.223	7.370	7.238	7.245	
Al	2.599	0.496	1.685	2.758	2.824	2.466	2.202	2.482	0.927	1.052	1.066	
Ti	0.015	0.001	0.007	0.011	0.011	0.009	0.009	0.007	0.021	0.011	0.013	
Fe	1.088	2.121	0.406	1.241	1.300	1.139	0.950	1.104	0.840	1.125	1.083	
Cr	0.001	0.018	0.180	0.000	0.000	0.002	0.005	0.001	0.032	0.071	0.052	
Ni	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	
Mn	0.011	0.021	0.005	0.009	0.011	0.013	0.014	0.011	0.010	0.017	0.016	
Mg	3.267	2.162	4.190	3.092	3.054	3.447	3.651	3.527	4.034	3.811	3.852	
Ca	1.877	1.851	1.905	1.919	1.935	1.923	1.907	1.932	1.843	1.780	1.759	
Na	0.540	0.037	0.295	0.486	0.470	0.446	0.412	0.463	0.100	0.159	0.184	
K	0.018	0.033	0.020	0.035	0.041	0.021	0.025	0.020	0.005	0.011	0.013	
Total	15.691	14.758	15.456	15.710	15.739	15.728	15.640	15.770	15.182	15.274	15.282	
Al(4)	1.727	0.000	1.237	1.839	1.906	1.738	1.534	1.777	0.630	0.762	0.755	
Al(6)	0.872	0.496	0.448	0.919	0.918	0.728	0.668	0.705	0.297	0.290	0.311	
XMg	0.750	0.505	0.912	0.714	0.701	0.752	0.794	0.762	0.828	0.772	0.781	
Na+K(A)	0.558	0.070	0.315	0.520	0.511	0.467	0.437	0.483	0.105	0.170	0.197	

NOTE XMg = Mg/((Mg+Fe); Na+K(A) = A-site occupancy

表 4.2.5-31 角閃石の分析値 (その4)

Sample ID		PWT06-17-Rh-010							
Spot ID	T6-	T6-	T6-	T6-	T6-	T6-	T6-	T6-	T6-
	010_100	010_101	010_114	010_305	010_308	010_395	010_396		
No.	100	101	114	306	309	395	396		
SiO2	49.58	51.50	51.77	46.92	48.45	52.56	49.25		
Al2O3	9.56	6.78	5.96	7.57	7.30	4.74	5.06		
TiO2	0.29	0.18	0.00	0.17	0.19	0.06	0.06		
FeO	7.57	8.45	2.25	11.34	7.42	6.35	6.48		
Cr2O3	0.39	0.33	1.51	0.30	0.49	0.41	0.46		
NiO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00		
MnO	0.07	0.09	0.04	0.10	0.10	0.09	0.09		
MgO	17.87	18.58	21.35	15.80	17.61	19.90	18.24		
CaO	11.81	11.55	13.14	11.24	11.70	11.78	11.57		
Na2O	0.94	0.48	0.44	0.38	0.49	0.27	0.39		
K2O	0.08	0.08	0.02	0.09	0.09	0.06	0.07		
Total	98.15	98.01	96.48	93.91	93.82	96.23	91.68		
Cation (O=23)									
Si	6.970	7.251	7.255	7.034	7.131	7.460	7.374		
Al	1.584	1.124	0.985	1.338	1.266	0.793	0.894		
Ti	0.031	0.020	0.000	0.019	0.021	0.007	0.007		
Fe	0.890	0.995	0.264	1.422	0.913	0.754	0.812		
Cr	0.043	0.037	0.167	0.036	0.057	0.046	0.054		
Ni	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000		
Mn	0.009	0.010	0.004	0.013	0.012	0.011	0.011		
Mg	3.744	3.899	4.460	3.530	3.864	4.210	4.072		
Ca	1.779	1.742	1.973	1.806	1.845	1.791	1.857		
Na	0.257	0.130	0.118	0.109	0.140	0.075	0.114		
K	0.014	0.014	0.004	0.016	0.017	0.011	0.014		
Total	15.321	15.221	15.230	15.323	15.265	15.157	15.209		
Al(4)	1.030	0.750	0.745	0.966	0.869	0.540	0.626		
Al(6)	0.554	0.375	0.240	0.372	0.397	0.252	0.268		
XMg	0.808	0.797	0.944	0.713	0.809	0.848	0.834		
Na+K(A)	0.271	0.143	0.122	0.125	0.157	0.086	0.129		

NOTE XMg = Mg/((Mg+Fe); Na+K(A) = A-site occupancy



表 4.2.5-32 角閃石の分析値 (その5)

Sample ID	PWT07-17-Rh-003					PWT08-17-Rh-001
Spot ID	T7-003_153	T7-003_51	T7-003_91	T7-003_53	T7-003_65	T8-001_119
No.	153	51	91	53	65	119
SiO2	49.14	45.52	46.89	59.29	57.53	46.29
Al2O3	7.99	10.31	11.53	0.83	0.96	10.60
TiO2	0.17	0.96	1.37	0.02	0.01	0.22
FeO	8.17	14.92	10.77	2.39	1.93	9.67
Cr2O3	0.37	0.02	0.00	0.18	0.48	0.16
NiO	0.06	0.01	0.00	0.08	0.12	0.05
MnO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MgO	17.76	13.19	17.44	24.67	23.29	16.48
CaO	11.17	11.01	10.30	12.54	12.66	11.56
Na2O	0.70	1.45	2.18	0.24	0.19	1.91
K2O	0.06	0.73	0.46	0.03	0.02	0.08
Total	95.57	98.11	100.94	100.25	97.19	97.02
Cation (O=23)						
Si	7.103	6.688	6.549	7.892	7.898	6.703
Al	1.361	1.785	1.898	0.130	0.156	1.810
Ti	0.018	0.106	0.144	0.002	0.001	0.024
Fe	0.987	1.833	1.259	0.266	0.222	1.171
Cr	0.042	0.002	0.000	0.019	0.052	0.019
Ni	0.007	0.001	0.000	0.008	0.013	0.006
Mn	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000	0.000
Mg	3.826	2.890	3.631	4.894	4.765	3.558
Ca	1.730	1.732	1.541	1.788	1.863	1.794
Na	0.196	0.414	0.591	0.061	0.051	0.536
K	0.010	0.136	0.082	0.004	0.003	0.014
Total	15.281	15.587	15.695	15.065	15.025	15.635
Al(4)	0.897	1.312	1.451	0.108	0.102	1.297
Al(6)	0.464	0.474	0.447	0.022	0.054	0.513
XMg	0.795	0.612	0.743	0.949	0.956	0.752
Na+K(A)	0.207	0.550	0.673	0.066	0.054	0.551

NOTE XMg = Mg/((Mg+Fe); Na+K(A) = A-site occupancy

(9) その他

その他の鉱物としてカルサイト及び非晶質シリカや分析上分類ができなかったものの分析値を表 4.2.5-33～表 4.2.5-40 に示す。降下火山灰堆積物である PWST07-17-Rh-C03 にはガラスが含まれており、その化学組成は  $\text{SiO}_2 = 66.2 \text{ wt.}\%$  の中性マグマを示している。同様の観察は、分散試料における光学顕微鏡観察でもより鮮明に観察でき、図 4.2.5-14 に示した拡大した BEI では発泡したガラスのバブル形状が確認できる。

表 4.2.5-33 その他の鉱物分析値(T7-Rh-001)

Sample ID	PWT07-17-Rh-001						
Spot ID	T7-001_28	T7-001_33	T7-001_4	T7-001_17	T7-001_21	T7-001_23	T7-001_31
No.	28	33	4	17	21	23	31
SiO2	0.15	0.07	22.58	24.32	16.63	18.79	18.38
Al2O3	0.02	0.00	0.61	0.72	0.60	0.67	1.08
TiO2	0.01	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00
FeO	0.08	0.03	8.22	8.20	9.46	12.04	2.15
Cr2O3	0.01	0.00	0.15	0.47	0.39	0.04	0.00
NiO	0.02	0.00	0.53	0.35	0.38	0.57	0.12
MnO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MgO	0.01	0.00	3.88	8.75	9.02	8.11	5.49
CaO	55.41	56.45	2.76	1.99	2.52	2.95	1.63
Na2O	0.00	0.06	0.13	0.08	0.07	0.08	0.21
K2O	0.00	0.02	0.07	0.06	0.03	0.04	0.26
Total	55.71	56.64	38.93	44.94	39.10	43.27	29.32
Mineral	Calcite	Calcite					

表 4.2.5-34 その他の鉱物分析値(T7-Rh-002)

Sample ID		PWT07-17-Rh-002											
Spot ID	T7-002_23	T7-002_37	T7-002_70	T7-002_34	T7-002_36	T7-002_36	T7-002_36	T7-002_36	T7-002_36	T7-002_37	T7-002_37	T7-002_38	T7-002_37
No.	230	37	70	342	360	361	362	364	368	370	379	380	373
SiO2	0.69	12.68	25.21	16.52	12.63	16.39	14.00	38.01	40.64	53.30	40.15	53.50	25.74
Al2O3	0.02	0.84	0.73	0.36	0.20	0.75	0.38	2.14	1.97	1.70	1.48	0.62	0.89
TiO2	0.00	0.14	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.01	0.01	0.00
FeO	0.56	52.22	7.27	13.82	8.18	10.22	11.62	12.88	15.01	4.96	9.95	4.71	12.29
Cr2O3	0.00	0.27	0.16	0.08	0.02	0.09	0.08	0.77	0.19	0.65	0.03	0.45	0.43
NiO	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
MnO	0.03	0.14	0.15	0.22	0.12	0.14	0.12	0.08	0.08	0.09	0.08	0.06	0.16
MgO	0.18	5.33	7.31	1.44	1.18	7.04	5.11	14.18	16.61	34.24	19.59	33.63	6.54
CaO	61.14	2.27	1.35	3.97	3.04	4.01	4.67	3.35	7.53	0.89	3.92	0.27	3.21
Na2O	0.00	0.06	0.04	0.04	0.07	0.05	0.03	0.04	0.05	0.02	0.05	0.00	0.03
K2O	0.00	0.01	0.02	0.01	0.02	0.04	0.04	0.08	0.04	0.00	0.02	0.01	0.02
Total	62.62	73.95	42.25	36.45	25.47	38.72	36.04	71.51	82.11	95.86	75.27	93.26	49.30
Mineral	Calcite												

表 4.2.5-35 その他の鉱物分析値(T7-Rh-007)

Sample ID		PWT07-17-Rh-007			
Spot ID	T7-007_20	T7-007_15	T7-007_20	T7-007_21	
No.	209	158	205	214	
SiO2	36.17	35.19	18.74	14.33	
Al2O3	1.07	0.59	0.20	11.29	
TiO2	0.00	0.01	0.02	0.67	
FeO	10.78	4.57	7.86	31.15	
Cr2O3	0.17	0.10	0.07	25.91	
NiO	0.00	0.00	0.00	0.00	
MnO	0.38	0.12	0.54	0.99	
MgO	9.00	3.55	1.60	0.99	
CaO	10.25	5.78	3.47	2.71	
Na2O	0.15	0.04	0.04	0.10	
K2O	0.08	0.06	0.01	0.04	
Total	68.06	49.99	32.54	88.16	
Mineral	Unknown				

表 4.2.5-36 その他の鉱物分析値(T6-Rh-010)

Sample ID		PWT06-17-Rh-010									
Spot ID	T6-010_10	T6-010_10	T6-010_12	T6-010_23	T6-010_28	T6-010_29	T6-010_29	T6-010_29	T6-010_29	T6-010_29	T6-010_29
No.	103	105	121	236	290	291	292	293	294	295	296
SiO2	82.19	94.88	91.25	92.35	91.62	90.04	90.89	91.87	91.11	93.20	90.67
Al2O3	0.02	0.01	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00
TiO2	0.01	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00
FeO	0.49	0.47	0.51	0.38	0.25	0.25	0.28	0.23	0.09	0.27	0.38
Cr2O3	0.00	0.00	0.00	0.18	0.03	0.00	0.00	0.01	0.02	0.00	0.03
NiO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
MnO	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.01
MgO	0.01	0.06	0.39	0.08	0.01	0.00	0.00	0.02	0.16	0.01	0.02
CaO	0.03	0.04	0.11	0.04	0.00	0.00	0.01	0.04	0.25	0.00	0.02
Na2O	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00
K2O	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.02	0.00
Total	82.76	95.46	92.28	93.05	91.90	90.30	91.22	92.18	91.64	93.51	91.13
Mineral	Silica	Silica	Silica	Silica	Silica	Silica	Silica	Silica	Silica	Silica	Silica

表 4.2.5-37 その他の鉱物分析値(T6-Rh-010、その2)

Sample ID	PWT06-17-Rh-010										
Spot ID	T6-010_10	T6-010_99	T6-010_11	T6-010_25	T6-010_26	T6-010_26	T6-010_26	T6-010_27	T6-010_33	T6-010_33	
No.	102	99	119	253	265	266	267	275	334	335	
SiO2	60.31	52.87	25.63	25.41	15.59	22.39	21.50	23.53	23.26	22.06	
Al2O3	0.01	1.76	0.47	0.10	0.25	0.41	0.32	0.38	0.35	0.44	
TiO2	0.00	0.03	0.00	0.01	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	
FeO	0.39	18.02	14.20	4.63	9.42	12.75	11.76	16.06	12.41	12.35	
Cr2O3	0.00	0.21	0.37	0.04	0.20	0.43	0.57	0.30	0.09	0.13	
NiO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
MnO	0.00	0.15	0.27	0.20	0.34	0.34	0.32	0.40	0.22	0.28	
MgO	0.01	5.06	7.12	6.59	1.38	5.32	4.26	2.28	3.77	2.71	
CaO	0.03	1.89	1.39	0.64	1.08	0.80	0.90	1.63	0.85	0.91	
Na2O	0.02	0.21	0.06	0.05	0.03	0.05	0.03	0.07	0.04	0.05	
K2O	0.03	0.08	0.01	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.01	0.01	
Total	60.79	80.26	49.52	37.66	28.31	42.50	39.67	44.65	40.99	38.94	
Mineral	Silica										

表 4.2.5-38 その他の鉱物分析値(T7-Rh-003, T7-Rh-C03)

Sample ID	PWT07-17-Rh-003					PWT07-17-Rh-C03				
Spot ID	T7-003_17	T7-003_17	T7-C03_50	T7-C03_59	T7-C03_89					
No.	175	176	50	59	89					
SiO2	19.50	16.12	22.92	3.06	66.23					
Al2O3	0.67	0.51	0.73	0.17	9.55					
TiO2	0.00	0.02	0.01	0.05	0.46					
FeO	9.31	11.16	11.24	10.68	0.96					
Cr2O3	0.22	0.33	0.09	0.04	0.00					
NiO	0.54	0.45	0.86	0.34	0.00					
MnO	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00					
MgO	2.97	4.22	2.69	0.07	0.24					
CaO	2.68	2.96	1.44	1.21	0.23					
Na2O	0.07	0.12	0.08	0.00	0.51					
K2O	0.04	0.09	0.03	0.09	3.51					
Total	36.00	35.99	40.09	15.72	81.70					
Mineral	Glass									

表 4.2.5-39 その他の鉱物分析値(ST02-Rh-003)

Sample ID	PWST02-17-Rh-003																
Spot ID	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R	ST02-17-R
No.	18	19	65	83	89	1	2	54	55	56	57	58	59	60	80	88	
SiO2	88.97	88.57	91.17	76.05	91.93	64.71	52.54	52.76	52.47	64.47	62.49	67.01	62.27	53.52	27.53	68.59	
Al2O3	0.00	0.00	0.00	0.17	0.00	0.46	0.41	0.04	0.03	0.44	0.25	0.06	0.26	0.33	0.03	0.16	
TiO2	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.01	0.00	0.01	
FeO	0.53	0.48	0.49	9.62	0.52	12.80	15.73	4.14	3.26	15.80	15.52	4.34	17.30	14.37	5.48	12.94	
Cr2O3	0.00	0.00	0.00	0.03	0.04	0.05	0.04	0.02	0.06	0.09	0.03	0.04	0.09	0.07	0.01	0.03	
NiO	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	0.00	0.00	0.00	
MnO	0.02	0.01	0.00	0.05	0.02	0.02	0.02	0.01	0.01	0.00	0.00	0.01	0.03	0.00	0.02	0.04	
MgO	0.13	0.09	0.12	6.26	0.11	4.55	5.43	11.99	8.13	6.54	4.18	3.50	5.46	7.77	11.93	6.82	
CaO	0.01	0.05	0.04	0.00	0.07	0.00	0.00	0.01	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	
Na2O	0.00	0.01	0.01	0.02	0.00	0.00	0.01	0.00	0.02	0.00	0.04	0.00	0.00	0.00	0.04	0.02	
K2O	0.00	0.02	0.00	0.00	0.00	0.01	0.00	0.02	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.04	0.01	0.01	
Total	89.66	89.23	91.83	92.19	92.68	82.59	74.19	68.99	63.98	87.33	82.54	74.97	85.40	76.11	45.05	88.62	
Mineral	Silica	Silica	Silica	Silica	Silica	Unknown											

表 4.2.5-40 その他の鉱物分析値(ST02-Rh-003)

Sample ID	PWT08-17-Rh-001		
Spot ID	T8-001_12	T8-001_12	T8-001_243
No.	122	123	243
SiO <sub>2</sub>	29.10	36.71	25.47
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	12.30	10.64	5.98
TiO <sub>2</sub>	0.02	0.02	0.00
FeO	2.91	2.47	3.21
Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.02	0.07	0.00
NiO	0.12	0.04	0.00
MnO	0.00	0.00	0.02
MgO	2.16	2.18	0.94
CaO	0.39	0.24	0.16
Na <sub>2</sub> O	0.05	0.00	0.01
K <sub>2</sub> O	0.02	0.03	0.02
Total	47.08	52.40	35.82

Mineral	Unknown
---------	---------

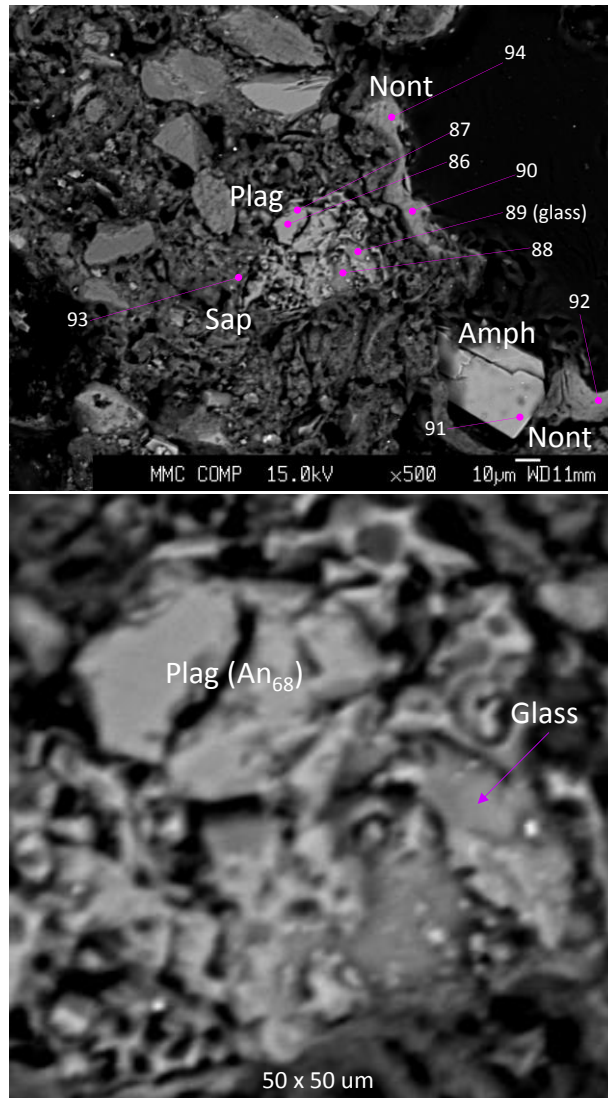


図 4.2.5-14 PWT07-17-Rh-C03 の火山ガラス質粒子

## 4.3 スメクタイトの形成環境と形成プロセス

### 4.3.1 Narra サイトの地質構造学的発展

平成 27 年度[1]にパラワン島・中央部に位置する Narra 地区（調査対象地区）のトレンチ 2 において、母層である砕屑性堆積物・下部層に挟在する暗黒色の粘土質堆積物にスメクタイト（主に、サポナイト、鉄サポナイトと一部ノントロナイト）および、肉眼観察可能な C-S-H 固相が同定・観察された。このサイトでは、砕屑性堆積物中にアルカリ地下水（pH 11 以上）が現在でも湧水しており、特徴的な C-S-H 固相がアルカリ地下水環境で安定であることと合わせて、このスメクタイトがアルカリ地下水環境下での鉱物学的変遷プロセスを地球化学的場の状態変化のもとで考察することが出来る。このことは、ナチュラルアナログとしての有効性が「処分システムにおけるあるプロセスに指向した部分アナログ(Process Oriented Analogue)」として成立し、アルカリ地下水環境下でのスメクタイトの鉱物学的変遷（風化・変質反応プロセス）の理解のもと、スメクタイトの長期安定性の評価にとって重要なデータ・知見を提供するものである。

このサイトの地質構造学的発展は、I.パラワンオフィオライト（ハルツバージャイト質超塩基性岩体）の定置・隆起（図 4.3.1-1）、II.パラワンオフィオライトの風化（図 4.3.1-2）、III.パラワンオフィオライトの浸食－破碎－運搬－堆積による砕屑性堆積物の形成（図 4.3.1-3）、IV.砕屑性堆積物中に浸透する高アルカリ地下水との相互作用（図 4.3.1-4）と解釈することができる。

また、図 4.3.1-1～図 4.3.1-4 にはこのような地質環境においてスメクタイトの形成にかかわった源岩の鉱物組成と化学成分を合わせて示す。Narra サイトで同定・観察されたスメクタイトは、パラワンオフィオライト（超苦鉄質複合岩体）が定置後(33~23 Ma[3][4])、地表に露出し、風化作用（浸食・破碎・削離・運搬・沈積・堆積/再堆積プロセス）により供給された砕屑性堆積物（堆積性の超苦鉄質岩礫あるいは、超苦鉄質岩起源鉱物粒子）の堆積過程で形成された風化起源のもと、その後、この風化作用で形成されたスメクタイトが、母層であるこの砕屑性堆積物の固結過程（岩石化）で、蛇紋岩化作用により生成・進化したアルカリ地下水との接触によりアルカリ変質反応の地球化学的場（系）に晒されたものとに区別できる。

その堆積環境からは、その形成過程が、いわゆる「風化－侵食・削離－運搬－堆積－岩石化（続成作用）プロセス」を示す現地性の砕屑性堆積物で、この堆積物に層間内礫として挟在する礫の大きさや扁平された亜礫の形状から判断して、その運搬距離は遠いものではないといえる。また、堆積物には班れい岩起源の礫や降下火山灰層を確認しており、貫入した班れい岩質の砕屑物や近隣の火山島からの火山灰が堆積したイベントが過去に生じていたと考えられる。

更に、砕屑性堆積物に現生化石であるカワニナ（沿岸域で棲息し、淡水・海水を棲み分ける）が観察・同定されていることから、一時期、浅海性（沿岸域）環境下での堆積/再堆積があったことが考えられる。

ここでは、スメクタイトの形成・進展を明らかにするために、地球化学的場の状態変化（状態変遷）と鉱物変遷に係る主要な現象を理解することが重要である。そのために、スメクタイト含有の砕屑性堆積物の岩石鉱物学的特性、岩石化学的特性とアルカリ湧水の地球化学的特性を理解し、スメクタイト形成環境とスメクタイトの鉱物学的変遷を考察する。



Major Constituent Minerals				
	Main Minerals	Mineral Composition	Modal Volume	Main Components
Harzburgite	Mafic Minerals	Opx*** Ol*** (Cpx)** (Amph)*	◎ ◎ △ △	Mg, (Fe), Si, (Al) Mg, (Fe), Si Mg-Ca, (Fe), Si, (Al) Mg, Ca, (Fe), Si, Al, Na, K
	Opaque Minerals	Chr Cr Mt	△ △ △	Cr, Mg, Fe Cr, Mg, Fe, Al (Mg), Fe
Gabbro	Mafic Minerals	Cpx* Opx* (Ol)** (Amph)*	○ ○ △ △	Mg-Ca, (Fe), Si, (Al) Mg, (Fe), Si, (Al) Mg, (Fe), Si Mg, Ca, (Fe), Si, Al, Na, K
	Feldspars	Plag K-Feld	◎ ○	Ca, Si, Al, Na, K
	Silica Minerals	Qz	◎	Si
	Opaque Minerals	Mt	△	Fe

Initial Alteration of Palawan Ophiolite	
① Serpentinization* (Low Temp. Type SP) Chrysotile Lizardite	Mg, Si Mg, Si
② Chloritization* (Low Temp. Type Chl) Mg-Chlorite	Mg, (Fe), Si, Al

\*Forbes et al.(2011); Aurelio and Pena (2010)

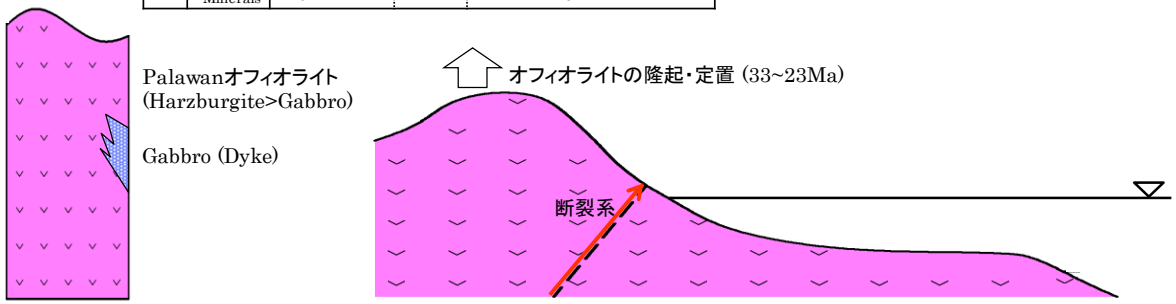


図 4.3.1-1 パラワンオフィオライトの定置

Weathering Processes	
Starting Materials	Formation of Smectite
Serpentinized Harzburgite Clasts (Rock Fragments)	(Mg-rich / Al-poor Smectite) Mg-Saponite [Trioctahedral Type] [ExMg <sub>5</sub> (Al <sub>0.33</sub> Si <sub>3.67</sub> )O <sub>10</sub> (OH) <sub>2</sub> · nH <sub>2</sub> O]
Aggregates of Altered Mafic Minerals	(Fe-rich / Al-poor Smectite) Nonttronite [Diocahedral Type] [ExFe <sup>3+</sup> <sub>2</sub> (Al <sub>0.33</sub> Si <sub>3.67</sub> )O <sub>10</sub> (OH) <sub>2</sub> · nH <sub>2</sub> O]
Altered Gabbro Clasts	(Al-rich / Mg-poor Smectite) Beidellite [Diocahedral Type] [ExAl <sub>2</sub> (Al <sub>0.33</sub> Si <sub>3.67</sub> )O <sub>10</sub> (OH) <sub>2</sub> · nH <sub>2</sub> O]

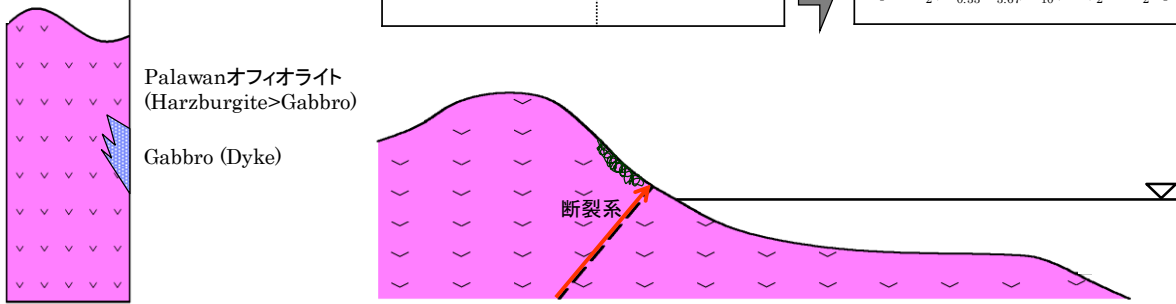


図 4.3.1-2 パラワンオフィオライトの風化

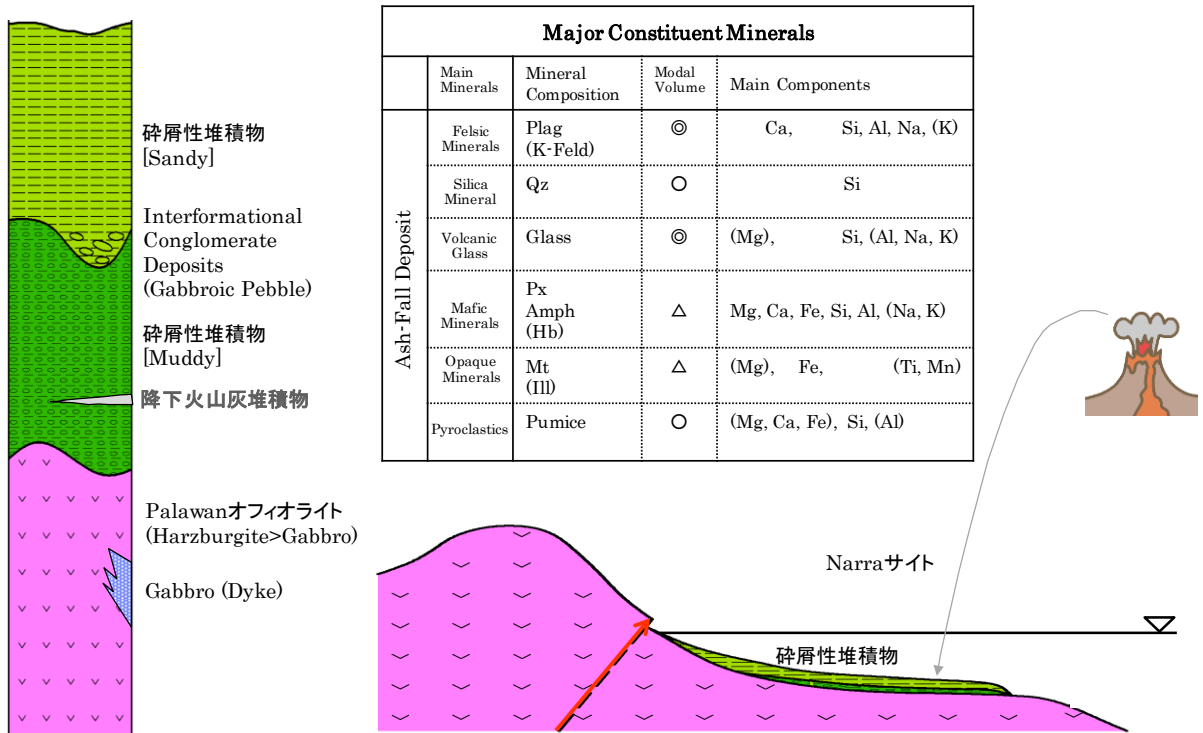


図 4.3.1-3 パラワンオフィオライトの浸食—破碎—運搬—堆積による碎屑性堆積物の形成

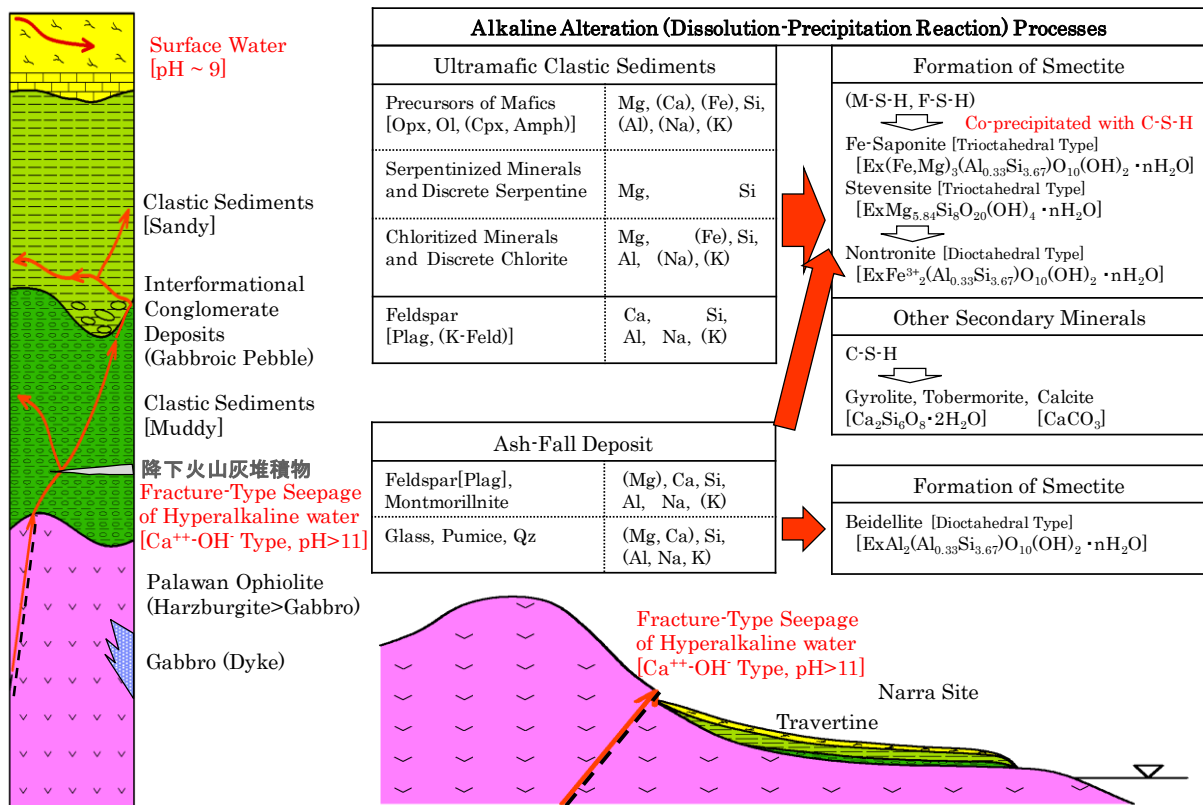


図 4.3.1-4 碎屑性堆積物中に浸透する高アルカリ地下水との相互作用

#### 4.3.2 スメクタイト含有砕屑性堆積物の岩石鉱物学的特性

これまでに実施したトレンチ調査（トレンチ 1～8）、ストリッピング調査（ストリッピング 1～3）と試錐調査（試錐孔(DH01, 02, 03, 04)）で採取した試料の XRD による鉱物同定結果および、光学顕微鏡観察結果と合わせて、スメクタイト含有の砕屑性堆積物の岩石鉱物学的特性を検討する。

砕屑性堆積物中のスメクタイトの形成は、原岩（母岩）である超苦鉄質複合岩中の主要苦鉄鉱物の斜方輝石・かんらん石と少量の単斜輝石との水和反応による低温の蛇紋岩化作用と、比較的低温での緑泥石化作用により、前者は蛇紋石・ブルース石・磁鉄鉱、後者は緑泥石が生成されている。これらの苦鉄質鉱物、変質鉱物、風化鉱物に加えオフィオライトに貫入した斑れい岩起源の斜長石、石英等の一部も出発物質（前駆鉱物も含む）として、スメクタイト形成の地球化学的な場を提供しているものと想定される。その後の累進的な風化・変質反応過程で、蛇紋岩化された超苦鉄質岩起源の砕屑物（砕屑性蛇紋岩）の蛇紋石や緑泥石などがスメクタイトに交代・置換されていることや、前駆鉱物の溶解・沈殿反応によりスメクタイトの形成・進展が観察される。このような風化・変質反応によるスメクタイトの形成・進展については数多く報告されている[5][6][7][8]。

##### (1) 光学顕微鏡観察による岩石鉱物学的特性

スメクタイトの形成・進展の環境条件を考察する上で、スメクタイト形成に寄与した母層である原岩（パラワンオフィオライト：超苦鉄質複合岩体）と、パラワンオフィオライトの定置後の風化作用により形成された砕屑性堆積物（または、砕屑性堆積層）の岩石鉱物学的特性を把握することが必要である。

Narra サイトに分布する原岩は典型的なマントル起源のオフィオライト火成岩類で、主にハルツバージャイトと、少量のルールズライトで代表されるいわゆる超苦鉄質複合岩体（Beaufort Ultramafic Complex）で、その後貫入したスタバーリイ斑れい岩（Staverly Gabbro）の岩脈・岩床で構成されている[9]。前者の主要鉱物組成は、斜方輝石・かんらん石・単斜輝石・Ca-角閃石類・クロム鉄鉱／磁鉄鉱と、変質鉱物としては蛇紋石・滑石と、緑泥石で構成されている。さらに、シリカ成分に不飽和な超苦鉄質岩石で Mg・(Fe)に富み、Al・(Ca)に比較的乏しい特徴的なバルク組成特性を示す。一方、後者の斑れい岩は、トレンチ（4～5）内の層内礫岩層やトレンチ 8 の風化堆積物から、その主要鉱物組成は、斜長石、斜方輝石<紫蘇輝石の可能性>、単斜輝石、極少量のかんらん石と変質鉱物としては蛇紋石で構成されている。

Narra3-1 地点の高アルカリ源泉の南東約 100m 下流側に分布する石灰華（Travertine）の平坦地となっている Narra3-2 地点の岩質は、最上位から、(i)未固結なトラバーチン起源の炭酸塩沈殿物、(ii)比較的固結した炭酸塩堆積物、(iii)黒色で粗粒砂質な砕屑性堆積物で、パッチ状に粘土質マトリックスが偏在的に挟在、(iv)(iii)の下位にルーズで不規則に配列したパラワンオフィオライト起源（一部斑れい岩を含有）の扁平な巨礫や亜円礫が層間内礫層として挟在、(v)トレンチ底部の黒色の泥質（一部粘土化）な砕屑性堆積物である。ただし、トレンチ 7 でのみ、その床面近傍に、特異的な淡灰色からクリーム色な層厚約 20cm で、ほぼ水平に連続性の

ある降下火山灰堆積物を確認している。

トレンチ 4 及び 5 の西壁から採取した層内礫岩は、碎屑性堆積物・下部層に位置し、礫分布密度が乏しく、その産状に規則性のない層内礫岩層を構成している。この層内礫層は、おそらく、緩慢な平坦地形面に水量が多くない浅いクリーク（小川）が分布する小規模な氾濫性堆積物（層）の礫層として取り込まれたものと考えられる。礫岩は暗緑色から暗灰色の塊状で扁平な人指サイズの小さな礫岩である。これらの礫岩には、灰白色の脈状な繊維状鉱物が観察される。これらの礫岩の主要な構成鉱物は、斜方輝石・珪灰石・透角閃石で、少量であるが滑石と、一部苦鉄質鉱物の交代反応による緑泥石及び特異的である自形から半自形のジルコンが観察される。但し、これらの構成鉱物から一般的な斑れい岩特有の岩石鉱物学的特性が乏しく、石灰質なケイ酸塩鉱物（例えば、スカルン鉱物）を形成するような Ca- 富む熱水による交代作用を受けた岩石（例えば、珪灰岩）の可能性もある。ただし、Narra3-2 サイトの南西部の小高い丘を形成している地点のトレンチ 8 では斜長石（曹長石）、普通輝石、角閃石、蛇紋石で構成される斑れい岩由来の風化堆積物を確認し、スメクタイトを形成する上でのバルク組成としての、Al・Ca・Si・Mg の供給源として好ましい形成環境である。

これまでに調査サイトで得られたデータから、アルカリ環境下にある①（トレンチ 2～7 の）ハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物と②（トレンチ 7 底部の）降下火山灰堆積物、アルカリとの相互作用のない物理的風化環境下の③（ストリップングの）蛇紋岩質碎屑性堆積物、④（トレンチ 8 の）斑れい岩質碎屑性堆積物、に分類して、それらの鉱物組み合わせとその量比を以下にまとめることができる。

①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物については、基質はスメクタイトが多く、岩片・鉱物片は、初生鉱物であるかんらん石が蛇紋岩化作用に伴い変質した蛇紋石（リザルダイト・クリソタイル）、斜方輝石も蛇紋石に変質、自形のアンチゴライト、トレモラ角閃石、炭酸塩鉱物、磁鉄鉱などであり、基質の量比から、風化・変質の抵抗度は 25%程度である。

②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物については、基質はスメクタイトが少なく、火山灰や火山ガラス、普通角閃石、斜長石などが散在し、岩片・鉱物片は、初生鉱物であるかんらん石は、蛇紋岩化作用に伴い殆どが蛇紋石（リザルダイト・クリソタイル）に、斜方輝石も蛇紋石（リザルダイト）に変質し、一部、自形のアンチゴライト、磁鉄鉱、ブルーサイト、タルク、クロムスピネル、不透明鉱物、粘土鉱物などであり、基質の量比から、風化・変質の抵抗度は 55%程度である。

③物理的風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物については、基質はスメクタイトが優勢であるがその量比は①よりも少なく、岩片・鉱物片は、初生鉱物（出発物質）であるかんらん石の殆どが、蛇紋岩化作用に伴い蛇紋石（低温型のクリソタイル・リザルダイト）、一部、自形の高温型アンチゴライトと、少量の磁鉄鉱、ブルーサイト、タルク、不透明鉱物などであり、基質の量比から、風化・変質の抵抗度は 60%強である。

④物理的風化環境下の斑れい岩質碎屑性堆積物については、基質はスメクタイトが少なく沸石等が存在する可能性があり、岩片・鉱物片は、岩片として斑れい岩（完晶質・等粒状、斜長石、斜方輝石<紫蘇輝石の可能性>、単斜輝石、極少量のかんらん石（赤褐色に変質））と蛇紋

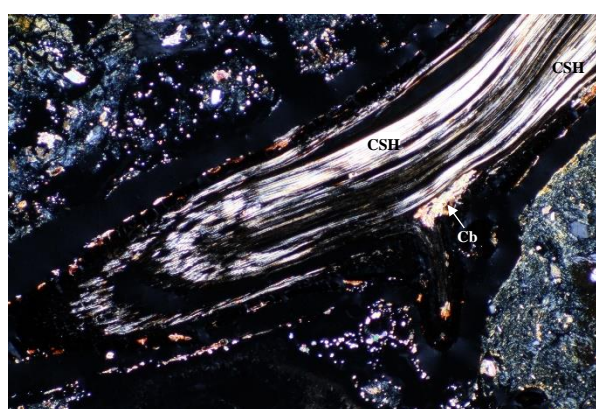
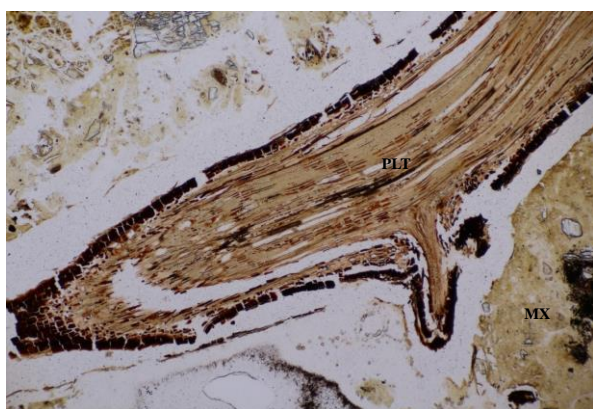
岩（リザルダイトークリソタイルのメッシュ組織、蛇紋石の大部分が風化鉱物）、鉱物片として、斜方輝石は蛇紋石に交代、未変質な単斜輝石や斜長石である。

①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物のアルカリ環境下での変質プロセスは、前駆鉱物の結晶構造を残存した固体状態で、反応縁や角閃石を取り巻くような交代・置換反応である。粘土鉱物の産状については、碎屑性堆積物の基質を充填するものと、主に、蛇紋岩質岩石の蛇紋石粒間（間隙）を充填する2つのタイプがある。主要な粘土鉱物はスメクタイト（3八面体型サポナイト）で、主に蛇紋石・透角閃石・緑泥石などからの交代・置換反応で形成されたものと考えられる。このスメクタイトの形成にとって、角閃石・緑泥石・斜方輝石からの Al・Mg・Si・Ca の供給源として提供したものと考えられる。また、班れい岩質の層内礫岩層や②白色細粒砂質堆積物から供給された長柱状から柱状の自形を示し、一部緑泥石やスメクタイトへ変質している斜長石がみられる部分もあり、この斜長石がスメクタイトの生成において Al・Si・Ca・Na の供給源として寄与していると考えられる。

また、全体的にいろいろな深度から木片が産出しているが、埋没による炭化作用（土壌化）の進展の結果、より還元環境維持に寄与しているものと考えられる。C-S-H の生成が顕著なトレンチ 2 では、顕微鏡スケールで、この木根の内部に C-S-H 固相の沈殿が観察される（図 4.3.2-1、図 4.3.2-2）。また、C-S-H 固相の一部がトバモライトに結晶化する構造（図 4.3.2-3～図 4.3.2-5）や炭酸塩との共存（図 4.3.2-1、図 4.3.2-3～図 4.3.2-5）も確認される。泥質な碎屑性堆積物中に顕微鏡スケールの C-S-H 固相と共生関係を示すシリカ鉱物がコロフォーム状に成長している産状は、アルカリ地下水環境下での C-S-H 準安定相からの析出（結晶成長）を示す証拠になり得るものである。さらに、この C-S-H 固相と共存状態を示すスメクタイトが数多く観察されている（図 4.3.2-5～図 4.3.2-7）。このスメクタイトはこのアルカリ地下水環境下における沈殿した非晶質物質からの新たなスメクタイトの形成を示唆するものである。

オープンニコル

クロスニコル



スケール 0.1 mm

（トレンチ 2 PWT02B-15-C2-1-001 の偏光顕微鏡写真）

図 4.3.2-1 植物遺体を置換する C-S-H（炭酸塩との共存も見られる）



オープンニコル

クロスニコル



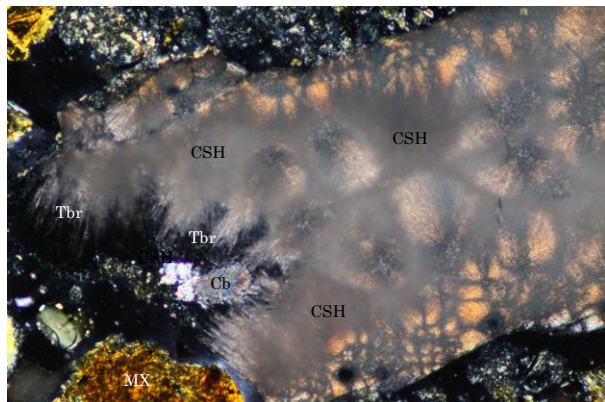
スケール 0.1 mm

(トレンチ 2 PWT02-15-Rh-016 の偏光顕微鏡写真)

図 4.3.2-2 植物遺体を置換 C-S-H と共生するスメクタイト

オープンニコル

クロスニコル



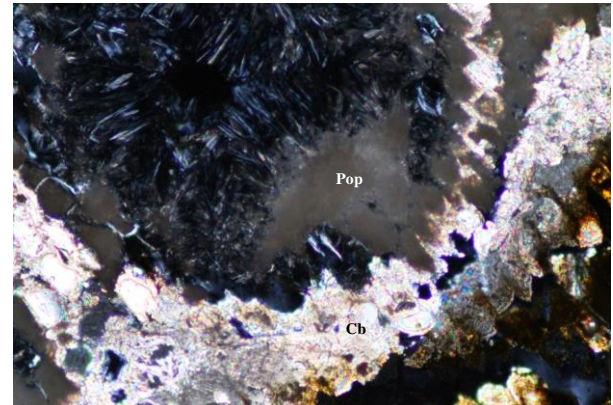
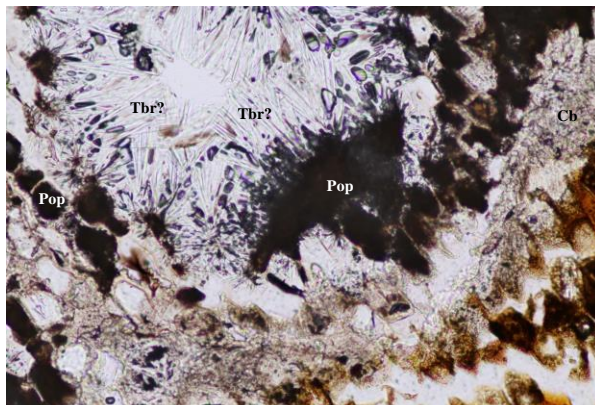
スケール 0.1 mm

(トレンチ 2 PWT02-15-Rh-016 の偏光顕微鏡写真)

図 4.3.2-3 C-S-H 固相のトバモライト化

オープンニコル

クロスニコル



スケール 0.1 mm

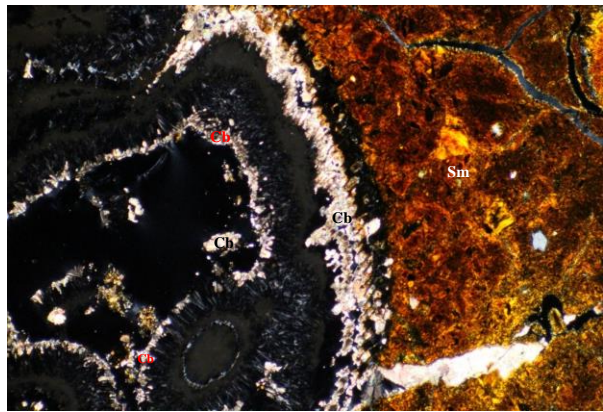
(トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-001 の偏光顕微鏡写真)

図 4.3.2-4 C-S-H 固相のトバモライト化 (外側は炭酸塩化)



オープンニコル

クロスニコル



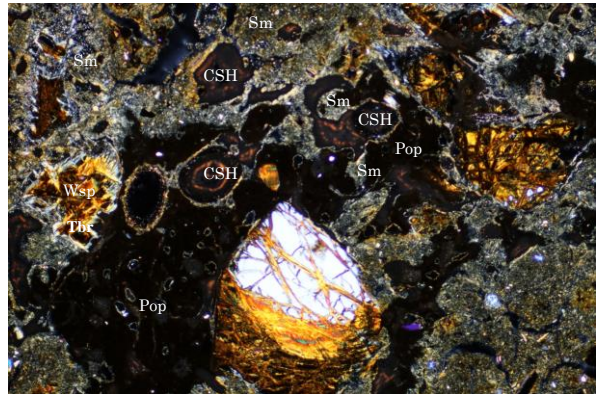
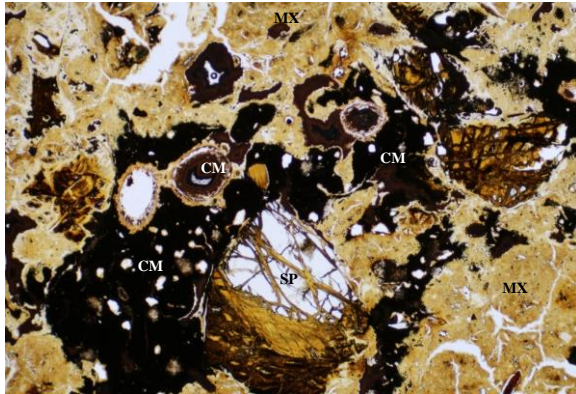
スケール 1.0 mm

(トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-001 の偏光顕微鏡写真)

図 4.3.2-5 C-S-H 固相 (羽毛状にトバモライト化、外側は炭酸塩化) と共生するスメクタイト

オープンニコル

クロスニコル



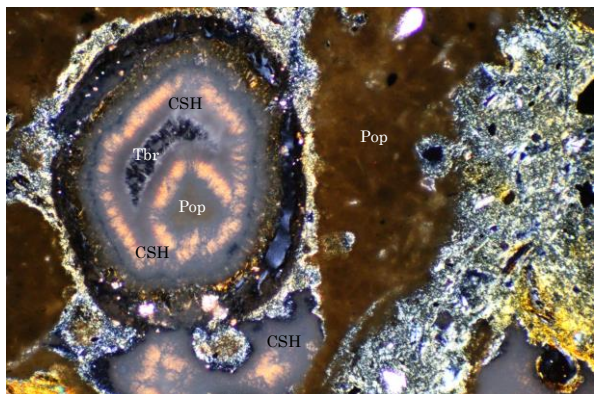
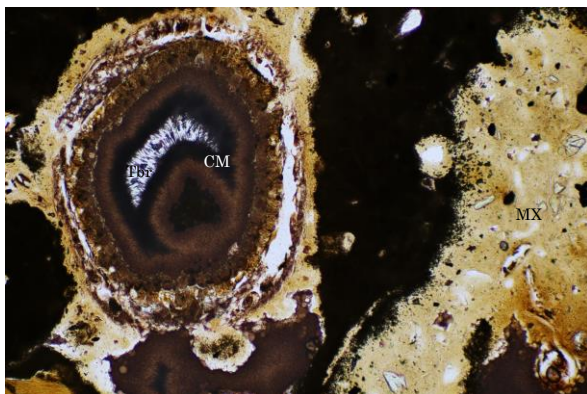
スケール 1.0 mm

(トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-002 の偏光顕微鏡写真)

図 4.3.2-6 C-S-H 固相と共生するスメクタイト

オープンニコル

クロスニコル



スケール 0.1 mm

(トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-002 の偏光顕微鏡写真)

図 4.3.2-7 C-S-H 固相のトバモライト化 (外側は炭酸塩化)

## (2) スメクタイトの定量分析

スメクタイト化の定量については、モード分析から、①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物で 39.3~44.1%、③物理的風化環境下の蛇紋岩碎屑性堆積物で 33.0%、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物で 16.4%であり、XRD のピークの強さとほぼ整合するが、XRD からは①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物はさらにスメクタイト化が進んでいる可能性がある。また、粘土成分の定量分析結果からも、アルカリ環境下の碎屑性堆積物の粘土成分にはばらつきがあるものの、総じて風化環境下の碎屑性堆積物よりも粘土成分が多い傾向を示す。②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物はスメクタイト化が最も進んでないことから、火山ガラスはアルカリ環境下でそれほど変質しないということがいえる。④物理的風化環境下の斑れい岩質碎屑性堆積物は風化環境の苦鉄質碎屑性堆積物と粘土成分について大差はみられない。したがって、Al 成分の量比そのものがスメクタイト化に影響するというのではなく、堆積物中の主要鉱物が風化過程あるいはアルカリ環境下でどの程度溶解が進むかが、スメクタイト化の割合を律速しているものと推察される。

## (3) XRD 回析による鉱物学的特性

上記①~④の堆積物で分類される、トレンチ調査 (トレンチ 2~8)、ストリッピング調査 (ストリッピング 1~3) と試錐調査 (試錐孔(DH01, 02, 03, 04)) で採取したすべての堆積物で、定方位法 X 線回折パターンのエチレングリコール処理後のピークシフトからスメクタイトを同定した (トレンチ 1 は碎屑性堆積物層の深度まで届かないため試料を採取していない)。

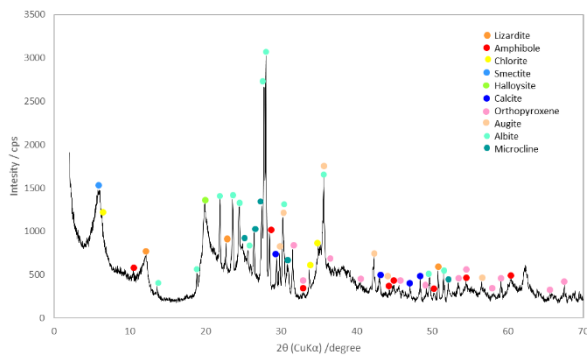
①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物 (図 4.3.2-11~図 4.3.2-21) はスメクタイト化が進んでいるが、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物 (図 4.3.2-9) 及び④物理的風化環境下の斑れい岩質碎屑性堆積物 (図 4.3.2-8) はスメクタイトの相対強度は低く、スメクタイト含有量は少ないとみられる。

④物理的風化環境下の斑れい岩質碎屑性堆積物には斑れい岩由来であることを示す斜長石 (曹長石)、普通輝石、角閃石、蛇紋石が同定されている。一方、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物も斜長石 (曹長石)、角閃石の相対強度が高いが、石英がみられるのに対し普通輝石が全くみられない点が、④物理的風化環境下の斑れい岩質碎屑性堆積物の鉱物組み合わせとは異なる。

③物理的風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物 (図 4.3.2-10) は、蛇紋石が主要な鉱物であり、トレンチの超塩基性岩起源の碎屑性堆積物に比べるとスメクタイトの相対強度は低く、また鉱物のバリエーションが圧倒的に少ない特徴をもつ。また、①アルカリ環境下の碎屑性堆積物中の蛇紋岩化が進んだハルツバージャイト質の礫 (図 4.3.2-22) は、③物理的風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物と比べると、スメクタイト化は小さく、原岩の苦鉄質鉱物が比較的にみられる点が異なる。

また、①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物のうち C-S-H の生成が顕著にみられるトレンチ 2 の試料では、XRD から 14Å トバモライトのピークが確認できる (図 4.3.2-19~図 4.3.2-21)。

不定方位法



定方位法

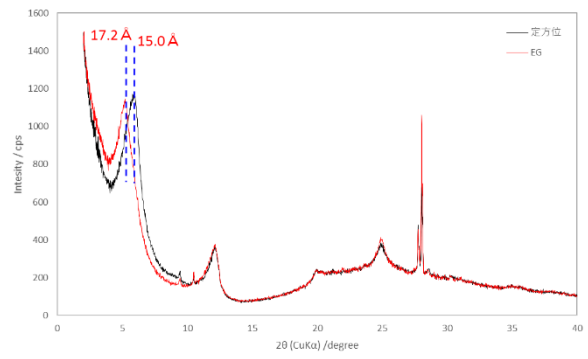
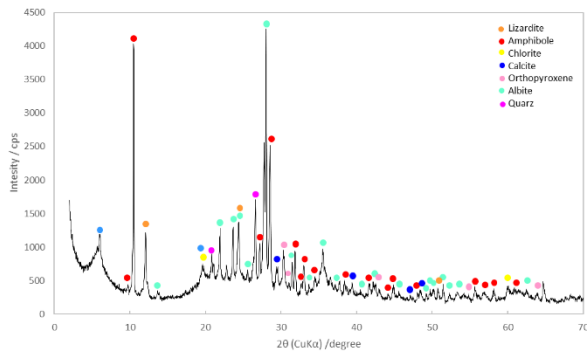


図 4.3.2-8 ④物理的風化環境下の斑れい岩質砕屑性堆積物の XRD チャート (トレンチ 8 PWT08-17-Rh-001)

不定方位法



定方位法

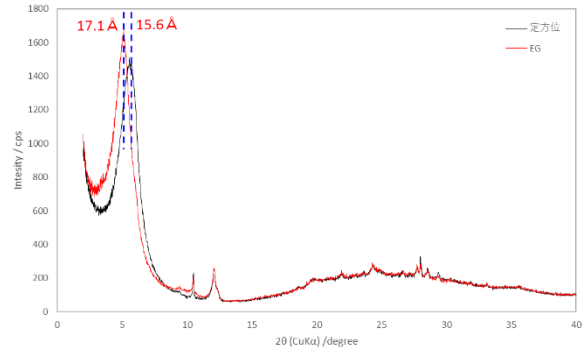
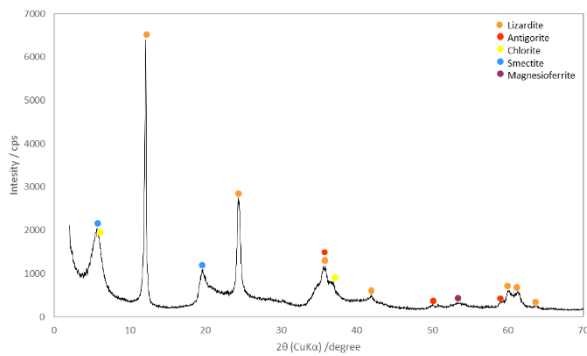


図 4.3.2-9 ②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物の XRD チャート (トレンチ 7 PWT07-17-Rh-C02)

不定方位法



定方位法

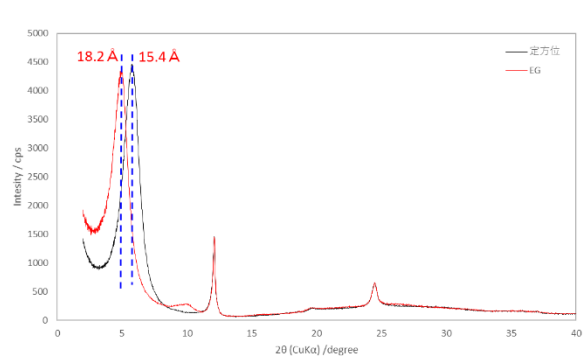
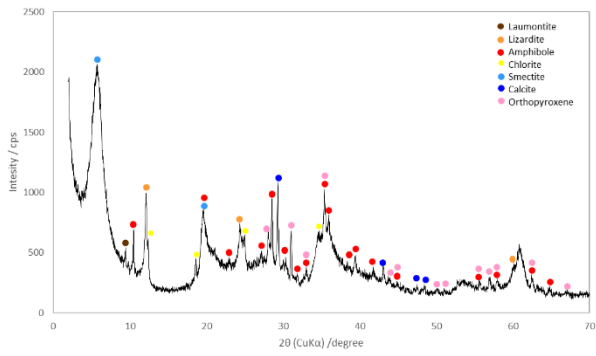


図 4.3.2-10 ③物理的風化環境下の蛇紋岩質砕屑性堆積物の XRD チャート (ストリップング 2 PWST02-17-Rh-003)

不定方位法



定方位法

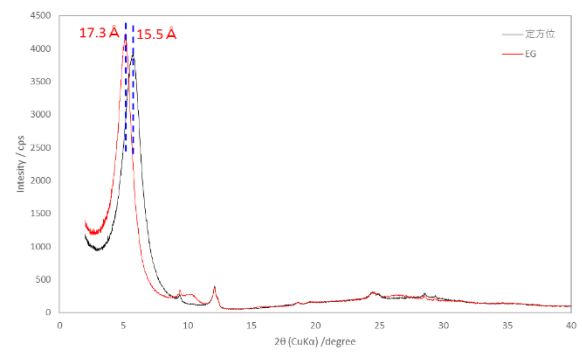
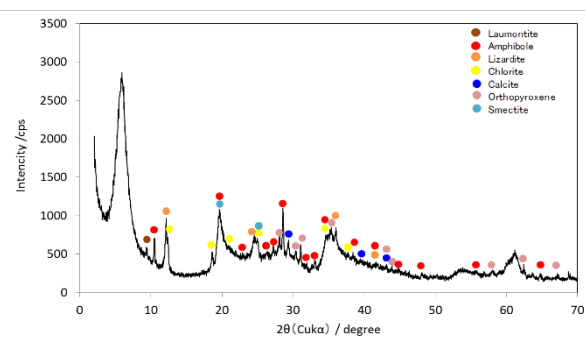


図 4.3.2-11 ①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の XRD チャート (トレンチ 7 PWT07-17-Rh-001)

不定方位法



定方位法

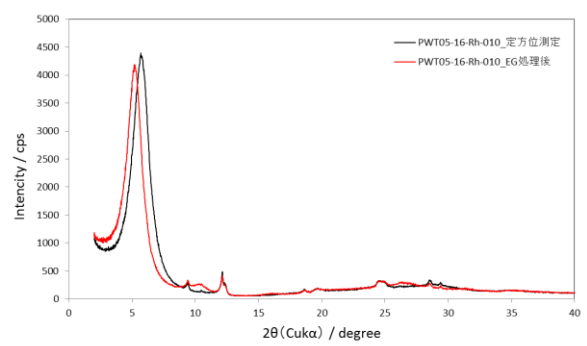
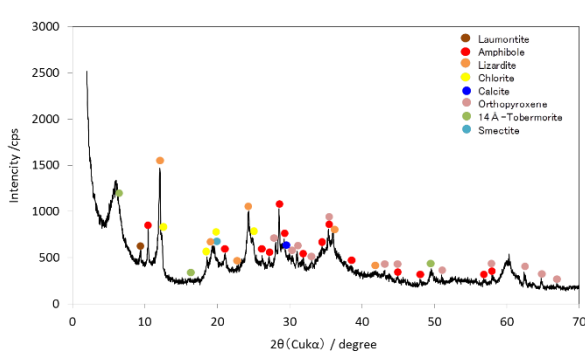


図 4.3.2-12 ①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の XRD チャート (トレンチ 5 PWT05-16-Rh-010)

不定方位法



定方位法

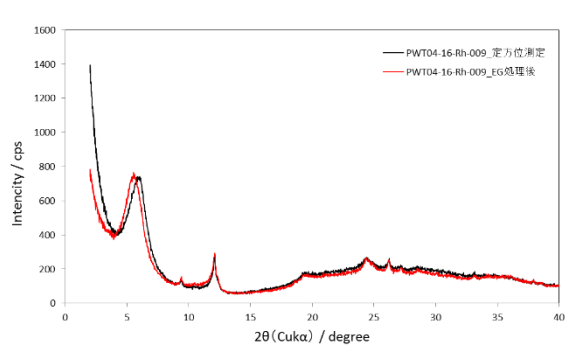
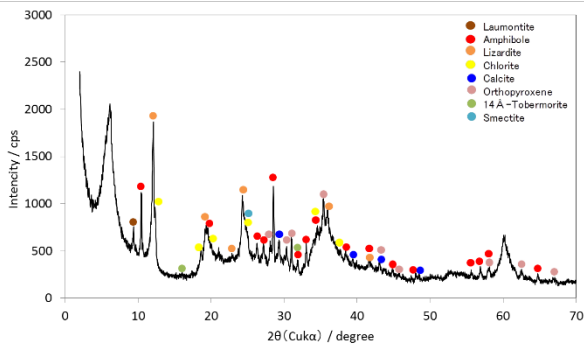


図 4.3.2-13 ①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の XRD チャート (トレンチ 4 PWT04-16-Rh-009)



不定方位法



定方位法

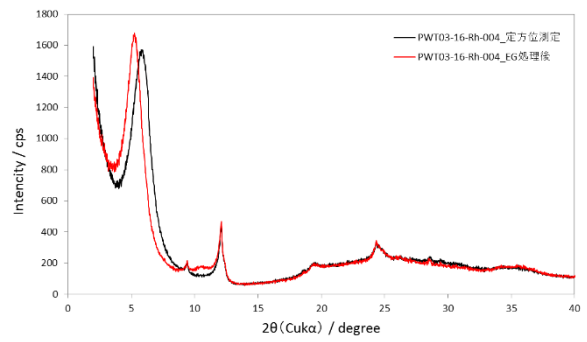
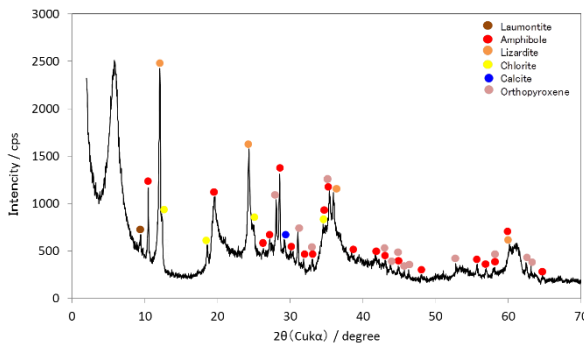


図 4.3.2-14 ①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の XRD チャート (トレンチ 3 PWT03-16-Rh-004)

不定方位法



定方位法

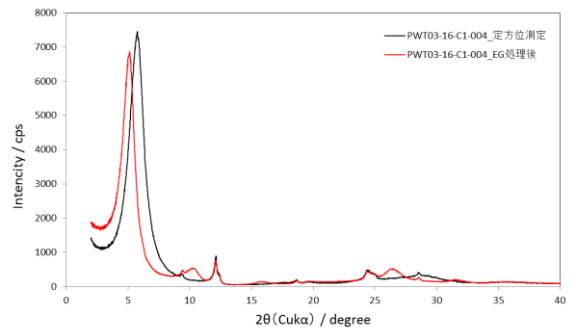
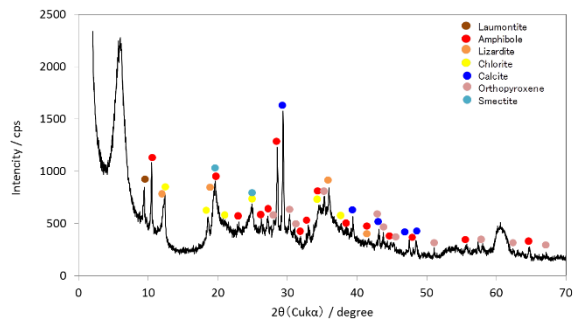


図 4.3.2-15 ①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の XRD チャート (トレンチ 3 PWT03-16-C1-004)

不定方位法



不定方位法

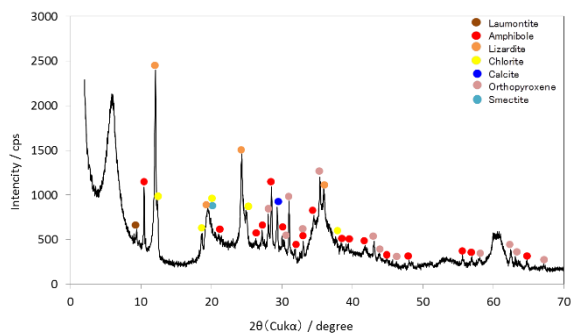
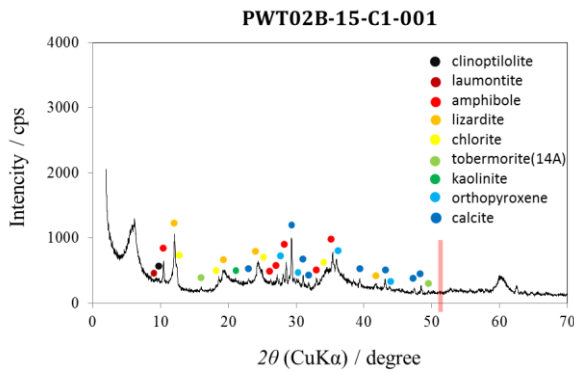


図 4.3.2-16 ①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の XRD チャート (左: トレンチ 5 PWT05-15-Rh-008、右: トレンチ 4 PWT04-15-Rh-006)

不定方位法



定方位法

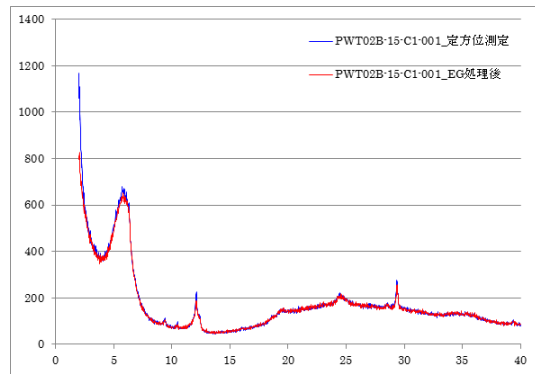
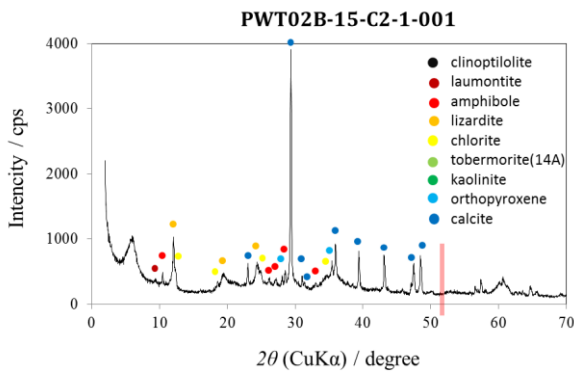


図 4.3.2-17 ①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の XRD チャート (トレンチ 2 PWT02B-15-C1-001)

不定方位法



定方位法

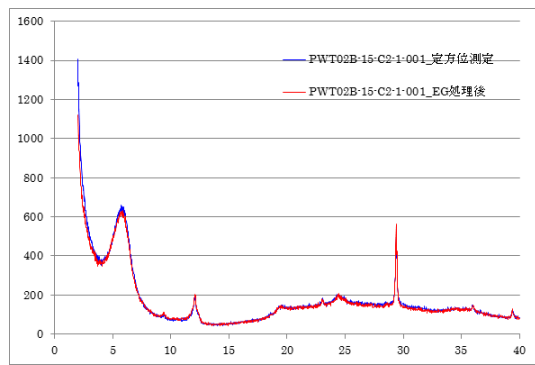
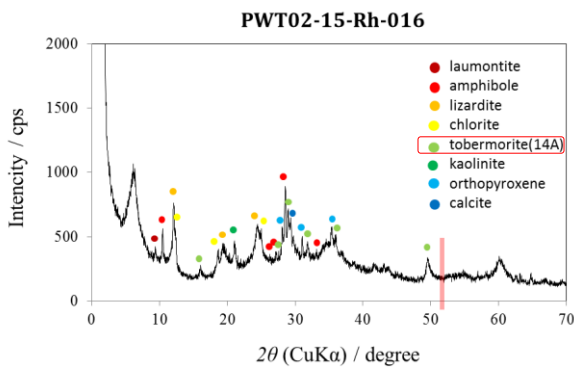


図 4.3.2-18 ①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の XRD チャート (トレンチ 2 PWT02B-15-C2-1-001)

不定方位法



定方位法

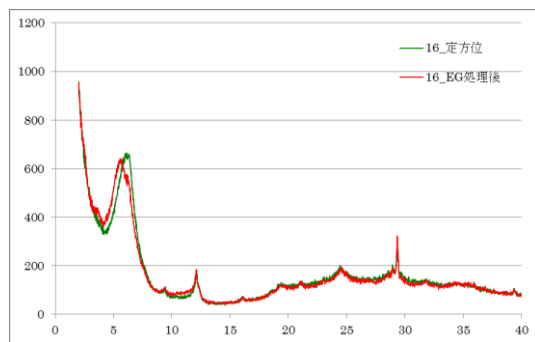


図 4.3.2-19 C-S-H が顕著な①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の XRD チャート (トレンチ 2 PWT02-15-Rh-016)

不定方位法

定方位法

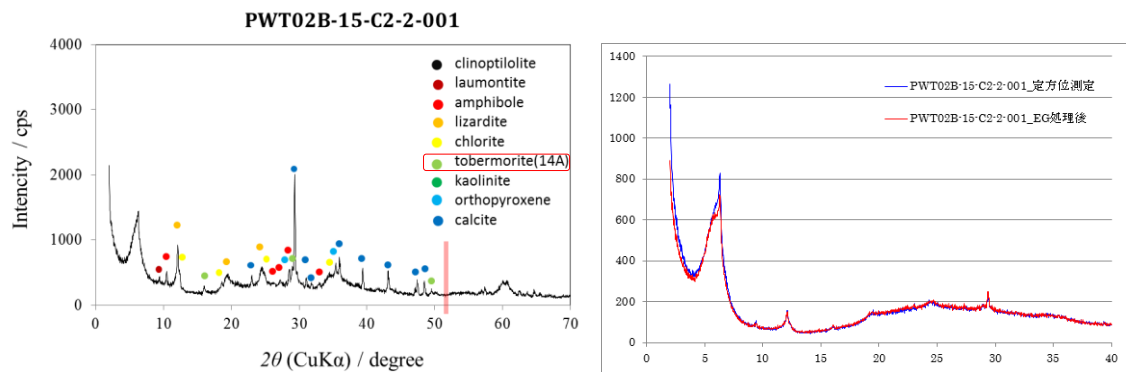


図 4.3.2-20 C-S-H が顕著な①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の XRD チャート (トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-001)

不定方位法

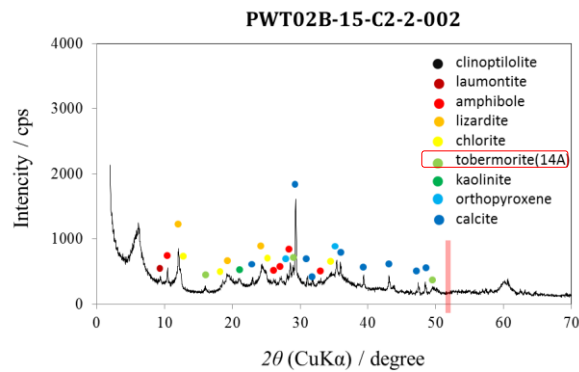


図 4.3.2-21 C-S-H が顕著な①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の XRD チャート (トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-002)

不定方位法

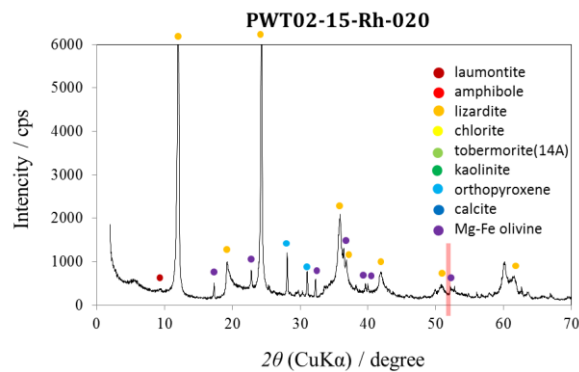


図 4.3.2-22 アルカリ環境下の碎屑性堆積物中の蛇紋岩化が進んだハルツバージャイト質の礫の XRD チャート (トレンチ 2 PWT02-15-Rh-020)

### 4.3.3 XRF 分析による岩石化学的特性

ここでは、碎屑性堆積物中のスメクタイトの形成・進展の深く関与している地球化学的な形成環境を理解するために、図 4.3.3-1 に示す Narra 地区のトレンチ及びストリップングで採取した碎屑性堆積物及び Saile 鉱山のベントナイト層（ただし、ST01-11-Rh-001~003 は白色変質帯（空隙に方解石が充填）のベントナイト）の全岩のバルク組成によって、岩石化学的特性を検討・解析する。

スメクタイトの形成・進展を考察する上で、地球化学的場の提供する主要な初生鉱物は、パラワンオフィオライト超苦鉄質複合岩体を構成する斜方輝石・かんらん石・単斜輝石・少量の Ca-角閃石・クロム鉄鉱・磁鉄鉱、そして、貫入した班れい岩由来の斜長石である。更に、この超塩基性岩との水和反応（特徴的な蛇紋岩化作用）により形成された蛇紋石（主に、低温型のクリソタイル）、滑石、磁鉄鉱などである。更に、この蛇紋岩化作用に随伴したとされる比較的低温での緑泥石化作用により形成された緑泥石である。また、アルカリ地下水環境下で沈殿（結晶化）した準安定固相の C-S-H 固相も考慮することとする。

碎屑性堆積物（層）におけるスメクタイトの形成・進展のための地球化学的な場として想定出来るバルク成分は、主に苦鉄質鉱物からの MgO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、SiO<sub>2</sub>、少量の CaO、極少量の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に加え、斜長石から Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> とアルカリ地下水からの Ca 等のアルカリ成分などである。特に、アルミ成分・シリカ成分の濃度とそれらの地球化学的挙動（活動度）がスメクタイト形成にとって必要不可欠な成分になる。

パラワンオフィオライト超苦鉄質複合岩体を構成する蛇紋岩化が進んだ①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物と③風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物は原岩のバルク組成を反映し、MgO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に富み、CaO、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に著しく乏しく、Na<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>O にも乏しい。また、シリカ成分(SiO<sub>2</sub>)に乏しい不飽和な超塩基性岩としての特性もある。

PWT02-15-Rh-020 はアルカリ環境下のトレンチ 2 の碎屑性堆積物中の蛇紋岩化が進んだハルツバージャイトの礫であるが、この源岩が風化し一部スメクタイトしたものが③物理的風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物、さらにアルカリ環境下でスメクタイト化がより進んだものが①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物とみると、スメクタイト化に伴い、MgO が消費され Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> が付加されていくことが、岩石化学的特性からいえる。また、①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物だけでもいえるが、同じハルツバージャイトを起源とする③物理的風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物も含めて、SiO<sub>2</sub> と MgO では明確な負の相関がみられ、SiO<sub>2</sub> もスメクタイト化によって付加されるとみられる。

③物理的風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物は、①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物に比べて CaO はほとんどない。この CaO の違いは、アルカリ環境下で CaO が供給されるトレンチ試料と違い、風化過程で Ca 成分が溶脱しているためだと考えられる。

トレンチの①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物の下位層・上位層の関係では、下位の深度が深くなるほど（より泥質になるほど）SiO<sub>2</sub> 含有率は低くなるのに対して、逆に MgO は高くなる傾向がある。これが高アルカリ地下水との反応時間とスメクタイト化と関係しているとすると、前述のスメクタイト化に伴う SiO<sub>2</sub>、MgO の傾向とは逆になる。

一方、④物理的風化環境下の斑れい岩質砕屑性堆積物と②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物については、他の試料よりも  $\text{Al}_2\text{O}_3$  が多く、 $\text{MgO}$  と  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  が少ない傾向が明確にみられた。これらの堆積物に多く見られる斜長石の  $\text{Al}$  が反映されているためだと考えられる。トレンチ 7 の①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物では、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物に近接する部分はその影響を受けて  $\text{Al}_2\text{O}_3$  がやや多い。このような現象はトレンチ 5 の①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の砕屑性堆積物でもみられ、斑れい岩質の礫岩の影響を受けた部分は  $\text{Al}_2\text{O}_3$  含有量が多いが、スメクタイト化の程度にはそれほど違いは見られない。

アルカリ環境下での C-S-H の生成については、トレンチ 2 では顕著であったが、トレンチ 6、7 ではほとんど見られなかった。この原因として、 $\text{CaO}$  の量比の違いが考えられ、トレンチ 2(8.18–21.1wt%)に対してトレンチ 6(2.16–5.53wt%)、トレンチ 7(2.05–6.19wt%)はかなり少なく、C-S-H 形成に十分な  $\text{Ca}$  がトレンチ 6、7 では供給されてないためだと考えられる。トレンチ 2 の試料はトレンチ 6、7 に比べると表層の炭酸塩層から近い砕屑性堆積物層から採取しており、高アルカリ地下水中の  $\text{Ca}$  濃度が、炭酸塩層に近い浅層部の上位層の砕屑性堆積物と比較的離れた下位層の砕屑性堆積物で異なっている可能性が考えられる。

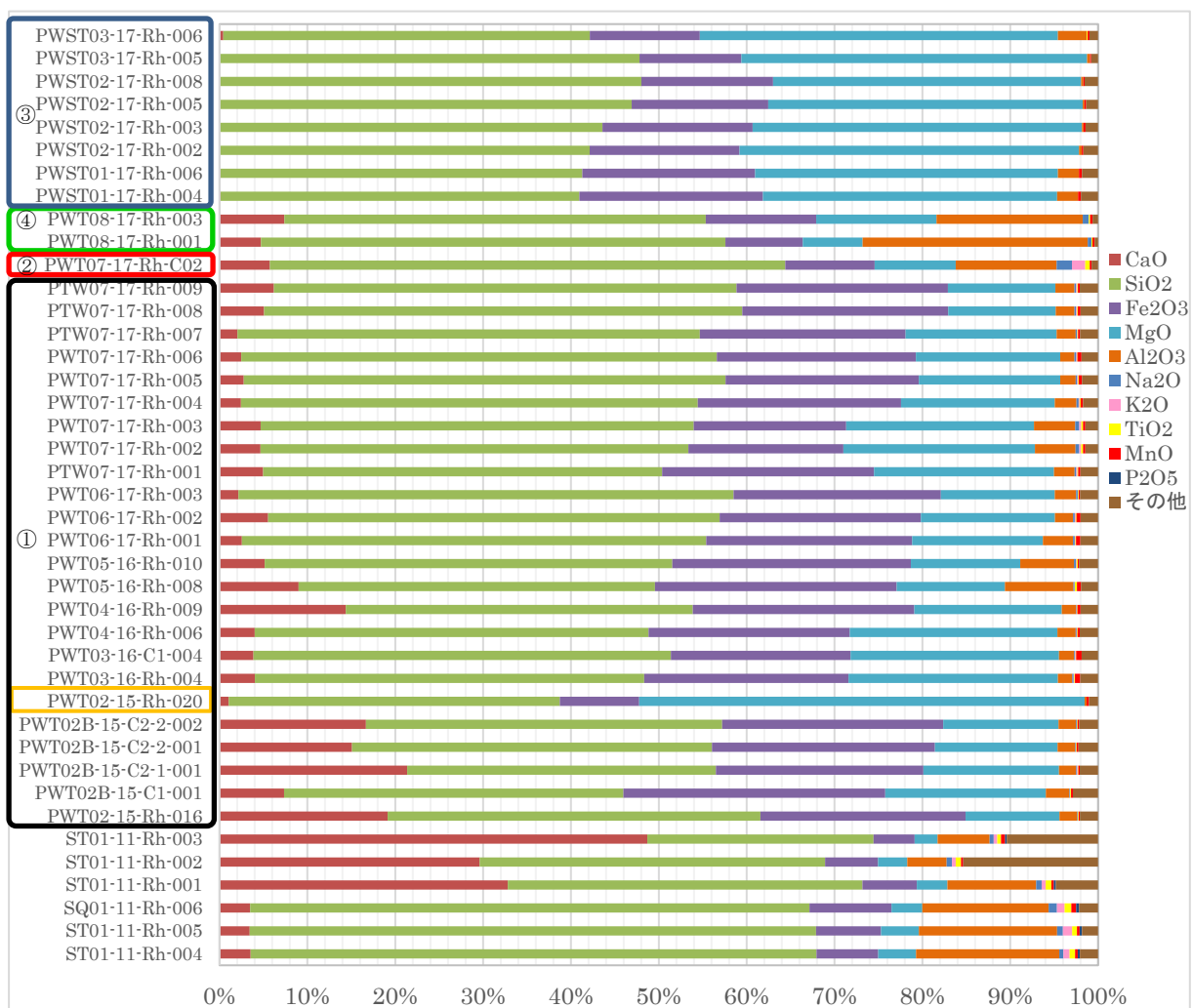


図 4.3.3-1 Narra 地区の砕屑性堆積物及び Saile 鉱山の XRF による全岩化学組成



#### 4.3.4 EPMA によるスメクタイトの形成に係る観察・分析

トレンチ及びストリッピングから採取したスメクタイトがみられる砕屑性堆積物について、バルク分析や顕微鏡観察の結果から分類できる、アルカリ環境下にある①（トレンチ 2~7 の）ハルツバーサイト起源の砕屑性堆積物と②（トレンチ 7 底部の）降下火山灰堆積物、アルカリとの相互作用のない物理的風化環境下の③（ストリッピングの）蛇紋岩質砕屑性堆積物、④（トレンチ 8 の）斑れい岩質砕屑性堆積物を対象に、スメクタイトの形成・進展プロセスを検討する上で、極めて重要且つ不可欠であるスメクタイトの組成・共生関係・組織・構造について、EPMA による観察・分析を実施した。

砕屑性堆積物におけるスメクタイトの形成・進展（鉱物学的変遷）を考察する上で、まず、スメクタイトの形成のための出発物質となり得るパラワンオフィオライトの原岩を構成する初生構成鉱物と、その後の岩石-水相互作用で生じた蛇紋岩化作用および緑泥石化作用により形成された変質鉱物の組成とその組成変化を明らかにすることが必要である。それらの鉱物組成としては、前者の初生鉱物は、主要である苦鉄質鉱物（斜方輝石・かんらん石・単射輝石・Ca-/Mg-角閃石）とスピネル鉱物（磁鉄鉱・クロマイト質鉄鉱）、一部貫入した斑れい岩起源の斜長石・石英、で構成されている。後者の変質鉱物は、蛇紋石（低温型のクリソタイル）と緑泥石である。これらの鉱物のバルク組成としては、Mg-Fe-Ca-Si-Al 成分系で代表される。

ここでは、EPMA 分析の結果から、スメクタイトの形成・進展に密接に関連した特定鉱物（前駆鉱物や共生鉱物）の組成・成因・共生関係・組織・構造などと、その供給源としての必要成分については検討・要約する。

##### (1) かんらん石

組成上は苦土かんらん石( $Mg_2SiO_4$ )で、多くは蛇紋石へ変質しており、その蛇紋石化作用の反応生成物として微細な磁鉄鉱物がかんらん石に包含される特徴的な組織を示す。

スメクタイト形成にとって、Mg, Fe の供給となり、スピネル周縁部では層状構造を示す粘土鉱物（サポナイト）の生成もみられる。

##### (2) 輝石

①アルカリ環境下の苦鉄質砕屑性堆積物に最も普遍的に存在する鉱物である。組成上は、単射輝石として透輝石（端成分： $Ca(Mg, Fe)Si_2O_6$ ）と、斜方輝石として頑火輝石（端成分： $(Mg, Fe)SiO_3$ ）で構成されている。特に、トレンチ 5 の斜方輝石は、Fe に富む組成を示す。全体的には組成変化が一様でない。輝石の 4 配位の Al とチェルマック輝石成分の 6 配位の Al とには殆ど組成変化がなく、Al の含有量にも相関が認められない。

スメクタイト形成にとって、これらの輝石からの  $Al(Al_2O_3: \sim 2.25 \text{ wt } \%)$  の供給源としては少量である。

##### (3) スピネル鉱物

輝石と同様に①アルカリ環境下の苦鉄質砕屑性堆積物に普遍的に存在する鉱物である。組成上は、 $MgAl_2O_4$ - $FeCr_2O_4$ - $Fe_3O_4$  の固溶体であり、スピネル-クロム鉄鉱（クロマイト）-磁鉄鉱（マグネタイト）の端成分がある。産状としては輝石内に包有（共存）しているが、変質し

た蛇紋石や緑泥石の内部に溶解組織を示すものやスピネル周縁部がマグネタイトに置換されている産状が観察される。このことは、これらのスピネル鉱物が部分溶解を示唆するものである。超塩基性岩のスピネルは  $\text{MgAl}_2\text{O}_4\text{-FeCr}_2\text{O}_4$  系の中央付近に分布するが、クロマイト成分を含みながらマグネタイトまでの変化を示す。

スメクタイト形成にとって、モード比から極少量ではあるが  $\text{Al}(\text{Al}_2\text{O}_3: \sim 26.6 \text{ wt } \%)$ ,  $\text{Mg}$ ,  $\text{Fe}$  の供給源として期待される。

#### (4) 斜長石

②降下火山灰堆積物や④班れい岩質碎屑性堆積物に多く見られる。組成上は、 $\text{Ca}$  に富む斜長石( $\text{An}_{78-81}$ )と、一部少量であるが  $\text{Na}$  に富む。斜長石の一部がゼオライトやモンモリロナイトに変質した産状も見られる。

スメクタイト形成にとって、 $\text{Al}(\text{Al}_2\text{O}_3: \sim 32.3 \text{ wt } \%)$ ,  $\text{Si}$ ,  $\text{Ca}(\text{CaO}: \sim 15.4 \text{ wt } \%)$  の供給源としては重要な鉱物である。

#### (5) 角閃石

組成上は、 $\text{Ca}$ -角閃石（普通角閃石・アクチノ角閃石<陽起石>）、 $\text{Mg}$ -角閃石（カミングトン角閃石）で、その組成上の多様性が特徴である。 $(\text{Na}+\text{K})_{\text{A}}$  の値が 0.5 以下のものを分類上はホルンブレンドと呼ぶが、0.5 を超えるパーガサイト質角閃石( $\text{Al}$ -rich)が含まれており、超塩基性岩由来の高圧角閃石の存在が示唆される。これらの角閃石は鉱物縁（リム）が溶解しているのが多く観察される。少量であるがその本来の形状を失う構造を示し、一部は緑泥石に交代されている。トレンチ 3 で、このような角閃石を交代して成長した緑泥石は、 $\text{Al}$  に富む組成を示す。また、4 配位の  $\text{Al}$  が 6 配位の  $\text{Al}$  と  $\text{Cr}$  の 3 価の陽イオンと典型的なチェルマック置換を示す。一般的に、 $\text{Al}$  に乏しい角閃石の多くは斑レイ岩起源のものと考えられる。

スメクタイト形成にとって、 $\text{Ca}(\text{CaO}: \sim 12.9 \text{ wt } \%)$ ,  $\text{Al}(\text{Al}_2\text{O}_3: \sim 12.4 \text{ wt } \%)$ ,  $(\text{Na}, \text{K})$  の供給源としては大いに期待できる。

#### (6) 蛇紋石

蛇紋石は輝石の交代相として重要であり、今回対象とした全ての試料に認められる。組成上は、低温型のクリソタイルが主要である。 $\text{Mg}$  の含有量に変動幅があるが、 $\text{Fe}$  との交換性はない。多くの蛇紋石は斜方輝石の蛇紋石化作用による形成が卓越している。その内部に沈殿組織を残す微細な磁鉄鉱を伴うのが、かんらん石を交代・置換した蛇紋石である。風化試料である、③風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物と④風化環境下の班れい岩質碎屑性堆積物はほとんど  $\text{Ca}$  を含まないが、①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物は  $\text{Ca}$  に富み。これらの蛇紋石は  $\text{Fe}(\text{FeO}: \sim 12.1 \text{ wt } \%)$  と  $\text{Ni}(\text{NiO}: \sim 0.59 \text{ wt } \%) \cdot \text{Ca}(\text{CaO}: \sim 2.34 \text{ wt } \%)$  である。

スメクタイト形成にとって、 $\text{Mg}$ ,  $\text{Si}$  の供給源として期待される。

#### (7) 緑泥石

組成上は、 $\text{Mg} \cdot \text{Ca} \cdot \text{Fe}$  含有量の変化が顕著で、トレンチ 3 では  $\text{Mg}$  に富み、 $\text{Ca}$  が少なく、トレンチ 4 では  $\text{Fe}$  と  $\text{Ca}$  に富むのが目立つ。但し、深度とこれらの組成変化の相関は認められないが、トレンチ 4 や 7 で、角閃石と共生している緑泥石は  $\text{Al}(\text{Al}_2\text{O}_3: \sim 14.2 \text{ wt } \%)$  に富む特徴がある。角閃石の交代相としてみられる緑泥石は、源岩の角閃石を含む超塩基性岩をおそら

く *retrograde* 変成過程の高温流体で変質させたものと考えられる。

ス멕タイト形成にとって、Al ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ; ~17.6 wt %), Fe ( $\text{FeO}$ : 28.5 wt %)の供給源として期待される。

(8) 炭酸塩鉱物

組成上は、ほとんどが方解石で、ドロマイト成分( $\text{MgO}$ : ~0.29 wt %)に乏しい。

(9) C-S-H

C-S-H 固相 (準安定相) は、バルクの Ca 成分に富むトレンチ 2~4 (特に Ca 含有量の多いトレンチ 2 では目視可能) で確認される。その産状は、トレンチ 3 では放射状・羽毛状に結晶する特徴的な構造 (組織) (図 4.3.4-1)、トレンチ 4 では空隙を充填する構造 (図 4.3.4-2) がみられる。トレンチ 2 では様々なタイプがみられ、トレンチ 3、4 でみられた空隙充填型、放射状・羽毛状 (図 4.3.4-3 c) の成長に加え、六角柱状 (図 4.3.4-3 a) や植物置換型 (図 4.3.4-3 b) も存在する。また、炭酸塩との共存も確認される (図 4.3.4-3 d)。また、充填型 C-S-H の周囲は水和したリム (沈殿生成物) で包まれる特徴的な構造を示す。その組成はトバモライトからジャイロライトと同定される。但し、Ca/Si 比の変動幅(0.5~1.02)は大きい。

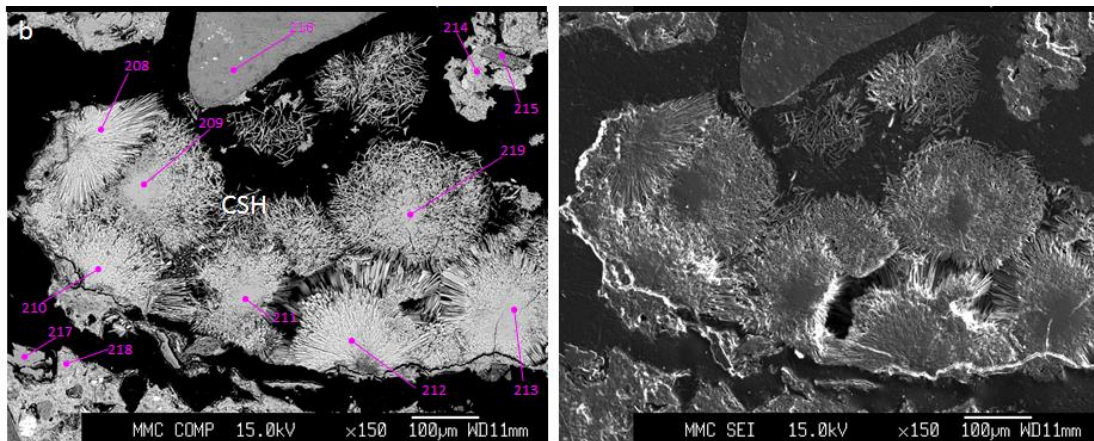


図 4.3.4-1 C-S-H の放射状の結晶成長 (トレンチ 3 PWT03-16-Rh-004)

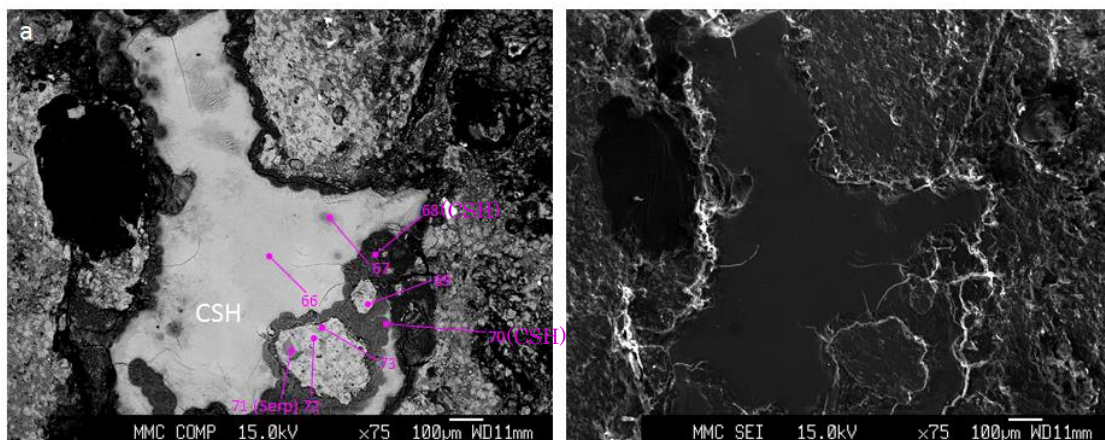


図 4.3.4-2 空隙を充填する C-S-H (トレンチ 4 PWT04-16-Rh-009)



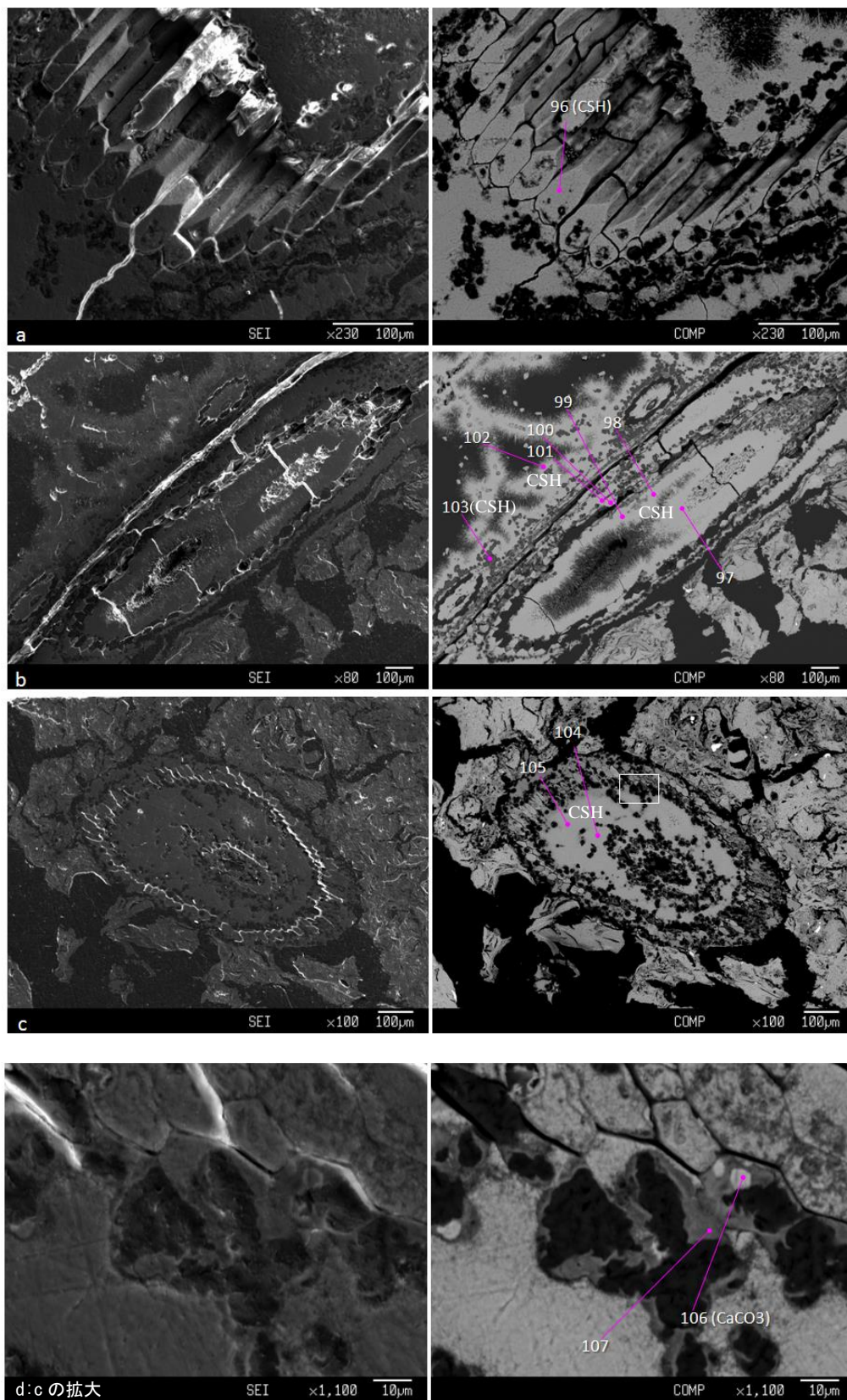


図 4.3.4-3 C-S-H の産状 (トレンチ 2 PWT02B-15-C1-001、a: 六角柱状の構造, b: 植物遺体の置換, c: 羽毛状の構造, d: 炭酸塩との共存)

セメントーベントナイトのナチュラルアナログにおいてキーとなる鉱物で、当サイトにおいて最も詳細な観察が必要な鉱物はスメクタイトである。碎屑性堆積物の岩石鉱物学的・地球化学的特性に拘束されそうなスメクタイトは、風化段階の風化過程で形成されたものと、堆積段階、すなわちアルカリ地下水環境下でのスメクタイトの形成・進展するものとに大別して考察する必要がある。特に、EPMAによる分析結果の中で、スメクタイトの形成・進展プロセスを検討する上で、極めて重要且つ不可欠であるスメクタイトの組成・共生関係・組織・構造などを以下にまとめる。

#### (10) スメクタイト

スメクタイトの種類と組成について示す。スメクタイトは碎屑性堆積物に普遍的に含まれており、図 4.2.5-10 の Si-Al-(Fe+Mg) の 3 成分三角プロットに示すように、Fe、Mg に富むサポナイト (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)、スチープンサイト (3 八面体型スメクタイト) 組成のスメクタイトが多く、特に超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物中のスメクタイトはほとんどがこのような組成のスメクタイトである。EPMA の産状観察結果も考慮すると、Narra の高アルカリ環境では、サポナイトあるいは鉄サポナイトが主として生成し、条件によって一部ノントロナイトやスチープンサイトが生成していると考えられる。苦鉄質の碎屑性堆積物を構成している蛇紋石・輝石・角閃石・炭酸塩鉱物などの産状に特徴的な差異はないが、これらの共生鉱物のモード比が、バルク組成を変化させ、その結果、モード比の高い泥質な碎屑性堆積物の方がスメクタイトの形成・進展に優位性を与えているように考えられる。また、図 4.2.5-9 から、苦鉄質の碎屑性堆積物中のスメクタイトには Si と Mg に負の相関、Si と Fe に正の相関がみられることから、スメクタイト化が進んでシリケートが生成するのに伴い、Mg が減少し、Fe に富む組成になる傾向がみられる。

これらに対して、Al に富む③物理的風化環境下の班れい岩質堆積物と①アルカリ環境下の降下火山灰堆積物では、Fe、Mg に富むサポナイトに分類されるスメクタイトがある、一方で、モンモリロナイトやバイデライトに分類される Al に富むスメクタイトも多くみられる。

図 4.2.5-11 の八面体イオンの総数のヒストグラムからは、Al-poor な環境でのスメクタイトは 2 八面体型と 3 八面体型の中間組成のスメクタイトが多いのに対して、Al-rich な環境では 2 八面体型のスメクタイトと 3 八面体型のスメクタイトと明確に区別されるスメクタイトが多いことがわかる。

アルカリとの相互作用のない③風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物と④風化環境下の班れい岩質碎屑性堆積物中のスメクタイトには Ca が非常に少ない特徴が示される (図 4.2.5-6)。これらはそれぞれノントロナイトとバイデライトに分類されるものである。バイデライトは③風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物と同様に Al 含有量の多い②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物にも認められるが、これには Ca が含まれている。したがって、アルカリとの相互作用により Ca がスメクタイトに供給されていると考えられる。

Narra の高アルカリ環境では、①ハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物だけでなく②降下火山灰堆積物でも、Fe-rich、Mg-rich であるサポナイトが主として生成する。①アルカリ環境



下にあるハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物中のアルカリ変質により生成した鉄サポナイトは、Ca に富む特徴を示している。ただし、サポナイトのリムにノントロナイトが生成している産状も見られ、酸化環境の物理的風化過程だけでなく、還元性のアルカリ環境下でも Fe<sup>3+</sup>をもつノントロナイトが一部生成する。また、微量のスチーブンスサイトの生成もみられ、碎屑性堆積物のアルミナ成分に乏しい地球化学的な場（状態）が環境条件で、Al 成分に乏しいスチーブンスサイトが形成されたものと示唆される。

微量元素の Cr については、ノントロナイトとバイデライトはやや低い含有量を示すが、アルカリ変質試料のサポナイトは Cr に富むものが多く、XMg 値が 0.4-0.6 近傍で Cr が最大を示すような分布が見られる。

バイデライトが主である④風化環境下の班れい岩質碎屑性堆積物中のスメクタイトは明らかに Al 成分が多い。一方で、XRF でも確認されているが、トレンチ 5 の試料も班れい岩起源の層内礫層の影響で比較的 Al 含有量が多く、アルカリ相互作用により生成したサポナイトやノントロナイトにも Al が取り込まれている。②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物中のスメクタイトは Al 含有量の差が大きく、源岩の組成を反映した Al を含むバイデライトと Al の少ないサポナイトが共存していると考えられる。Al と Fe, Mg には負の相関があることが見て取れる（図 4.2.5-8）。

②降下火山灰堆積物では、ベントナイトの主要粘土鉱物であるモンモリロナイトが同定された。2 八面体型のモンモリロナイトはアルカリ環境下で一部は溶解していると考えられるが、処分環境よりもはるかに移流による物質移動が大きいパラワンの環境でも、数千年にわたりアルカリ環境下で残存している。一方で周囲に苦鉄質鉱物が存在するアルカリ環境下で Fe, Mg に富むサポナイト化も見られが、苦鉄質の堆積物に比べると、その程度は小さい。

次に、スメクタイトの共生関係・組織・構造について示す。

サポナイトの産状は、①アルカリ環境下にあるハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物中の斜方輝石（図 4.3.4-4）・かんらん石の蛇紋石化作用により形成された蛇紋石（図 4.3.4-5）や、それを部分的（蛇紋石縁・微小な割れ目・へき開など）に交代した緑泥石の反応縁（図 4.3.4-6）を交代・置換したものと、苦鉄質鉱物（角閃石も含む）の粒間（図 4.3.4-7）やマトリックスを充填して（図 4.3.4-8）存在するものがある。さらに、C-S-H と共生するサポナイトの産状（図 4.3.4-9～図 4.3.4-11）が多くみられ、これはアルカリ環境下で C-S-H と共沈したサポナイト、すなわち、アルカリ溶液からの沈殿によりサポナイトが形成された痕跡と考えられる。また、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物でも蛇紋石や角閃石を交代・置換した産状がみられる。

スチーブンスサイトは、①アルカリ環境下にあるハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物中で斜方輝石や Ca-rich 角閃石を交代・置換している（図 4.3.4-12）産状、緑泥石を交代・置換し、その外縁部がサポナイトに交代している（図 4.3.4-13）産状やサポナイトに交代・置換されてサポナイトに取り囲まれている（図 4.3.4-14）産状がみられる。

ノントロナイトは、③風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物中の蛇紋石の反応縁に生成している（図 4.3.4-15）。また、アルカリ環境下でもハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物（図 4.3.4-16）や降下火山灰堆積物（図 4.3.4-17）中で生成したサポナイトの反応縁に生成している。①アルカリ環境下にあるハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物中では Ca 成分に富む斜

長石( $An_{78}Ab_{22}$ )、斜方輝石や単斜輝石、緑泥石と Ca-角閃石・緑泥石の微細集合体からの交代・置換で Fe 成分に富むのサポナイト質ノントロナイトの生成 (図 4.3.4-18) がみられる。

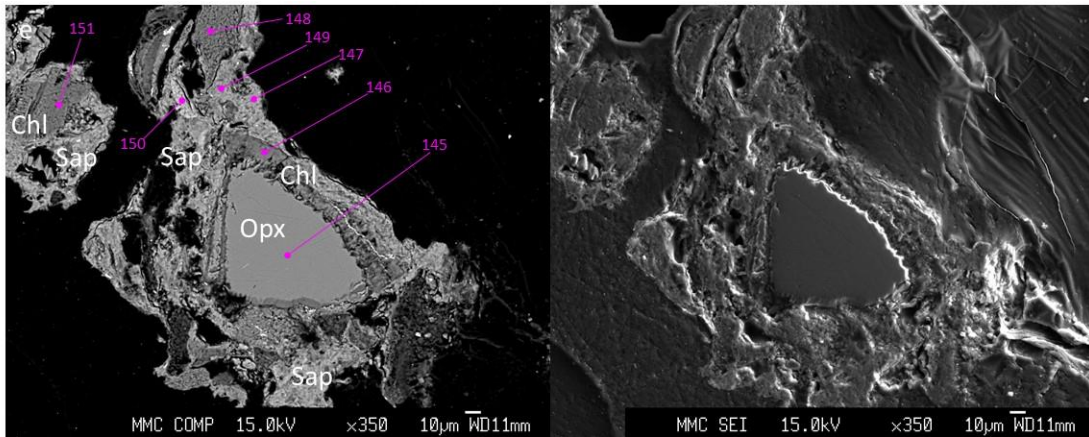


図 4.3.4-4 斜方輝石を交代するサポナイトの産状 (トレンチ 4 PWT04-16-Rh-006)

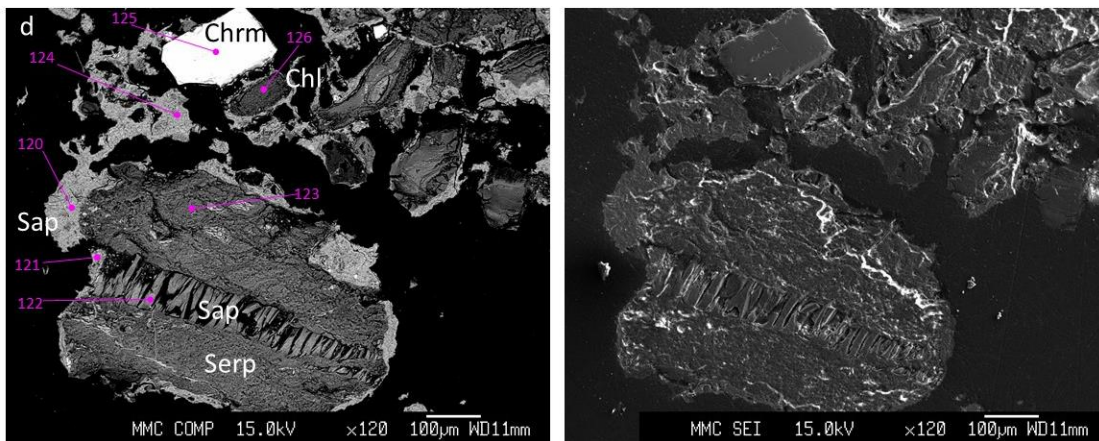


図 4.3.4-5 蛇紋石を交代するサポナイトの産状 (トレンチ 4 PWT04-16-Rh-006)

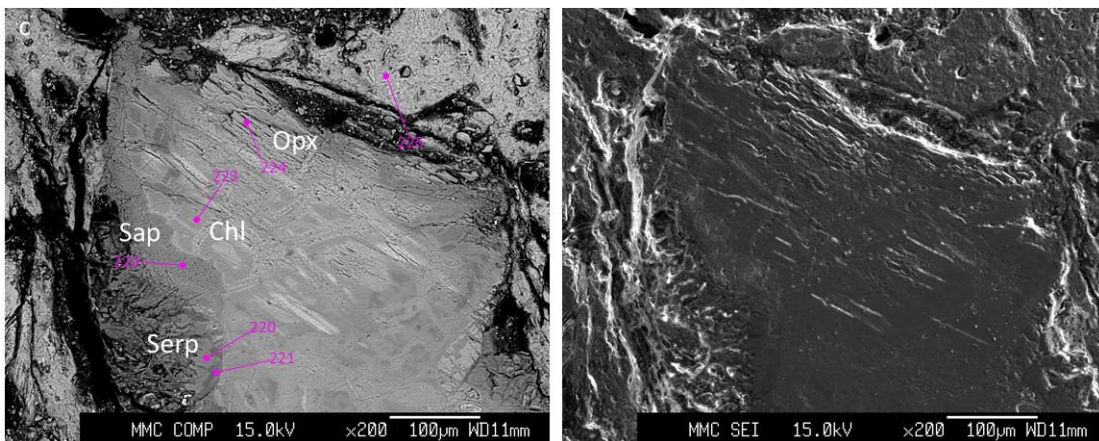


図 4.3.4-6 緑泥石の反応縁を交代するサポナイトの産状 (トレンチ 3 PWT03-16-Rh-004)



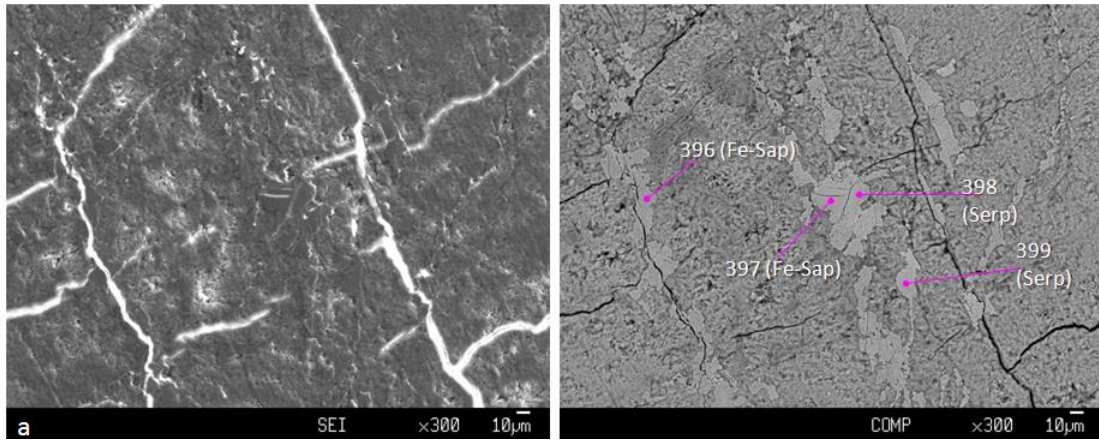


図 4.3.4-7 苦鉄質鉱物の粒間に生成する鉄サポナイト (トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-001)

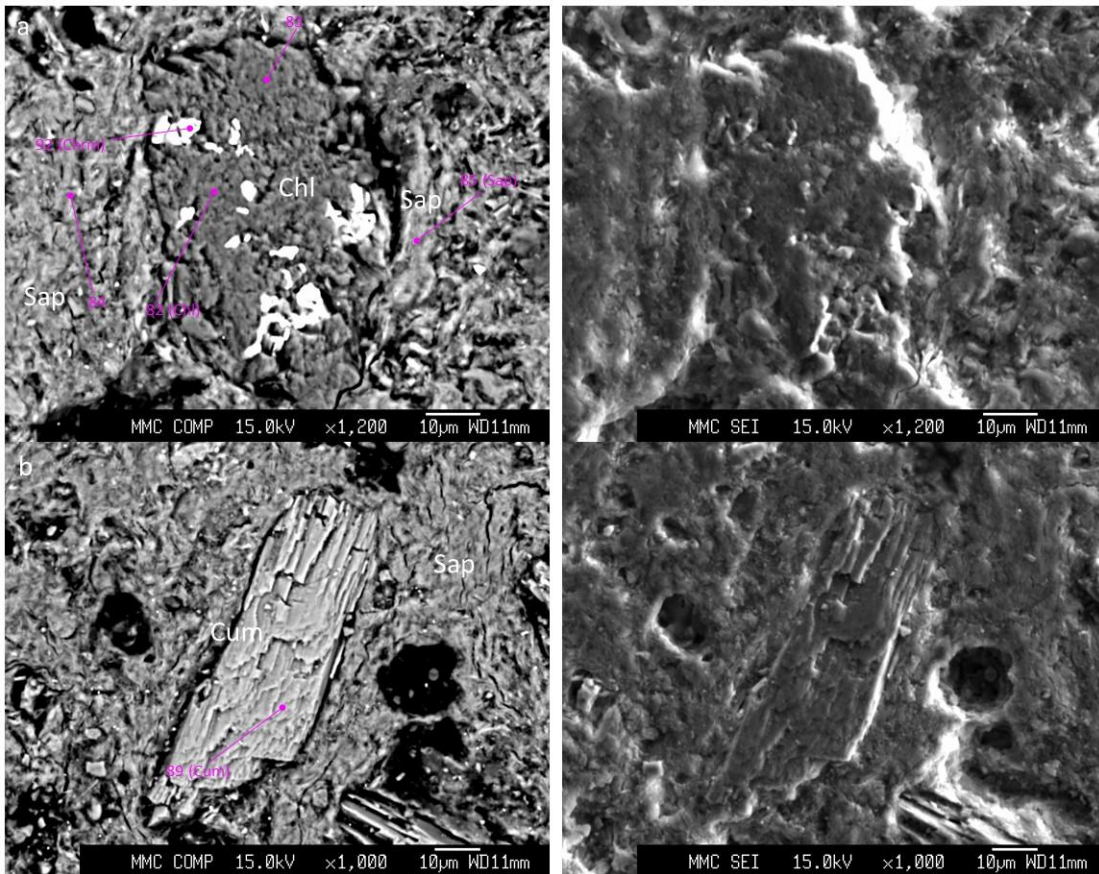


図 4.3.4-8 マトリックスを充填するサポナイト (トレンチ 5 PWT05-16-Rh-008)



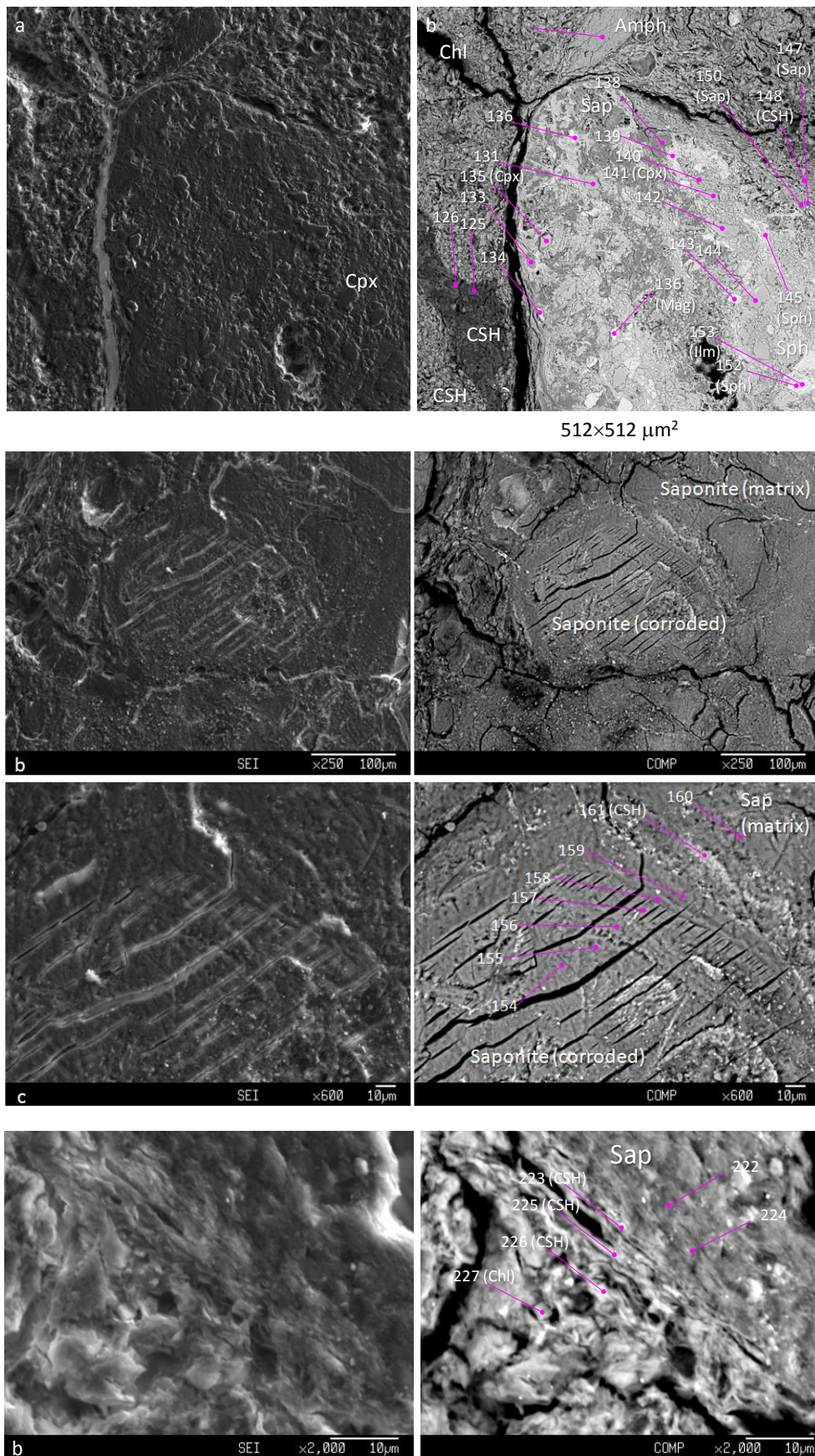


図 4.3.4-9 C-S-H と共生するサポナイト (その 1) (トレンチ 2 PWT02-15-Rh-016)



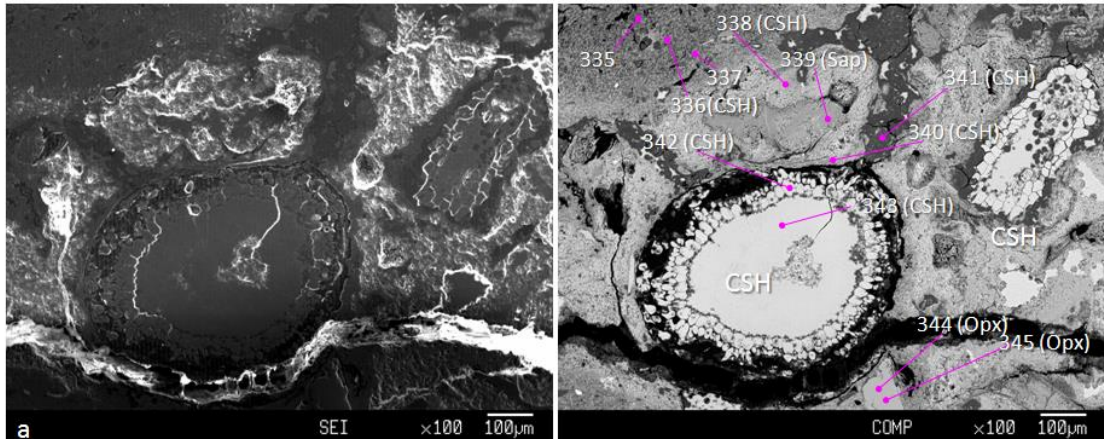


図 4.3.4-10 C-S-H と共生するサポナイト (その 2) (トレンチ 2 PWT02B-15-C2-2-001)

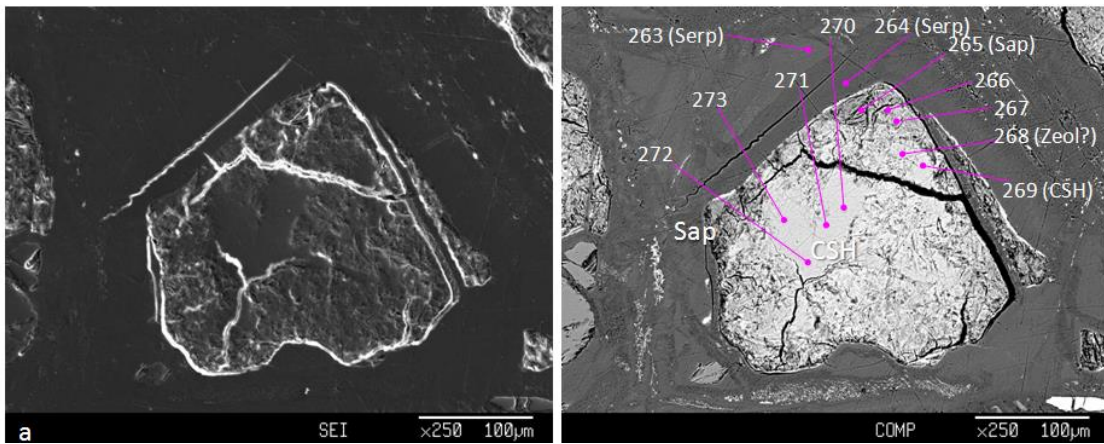


図 4.3.4-11 C-S-H と共生するサポナイト (その 3) (トレンチ 2 PWT02-15-Rh-020)

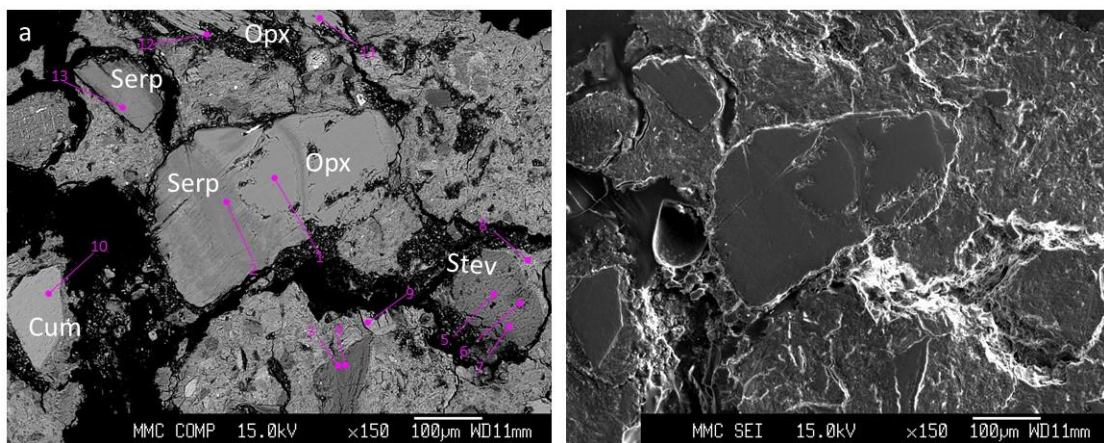


図 4.3.4-12 斜方輝石を交代するスチープンサイトの産状 (トレンチ 3 PWT03-16-C1-004)



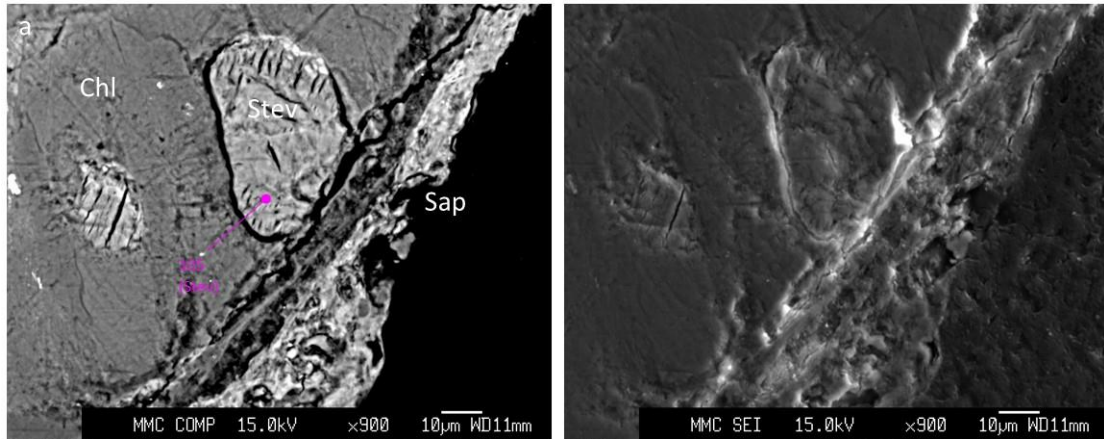


図 4.3.4-13 緑泥石を交代・置換し、その外縁部がサポナイトに交代しているスチープンサイトの産状 (トレンチ 4 PWT04-16-Rh-006)

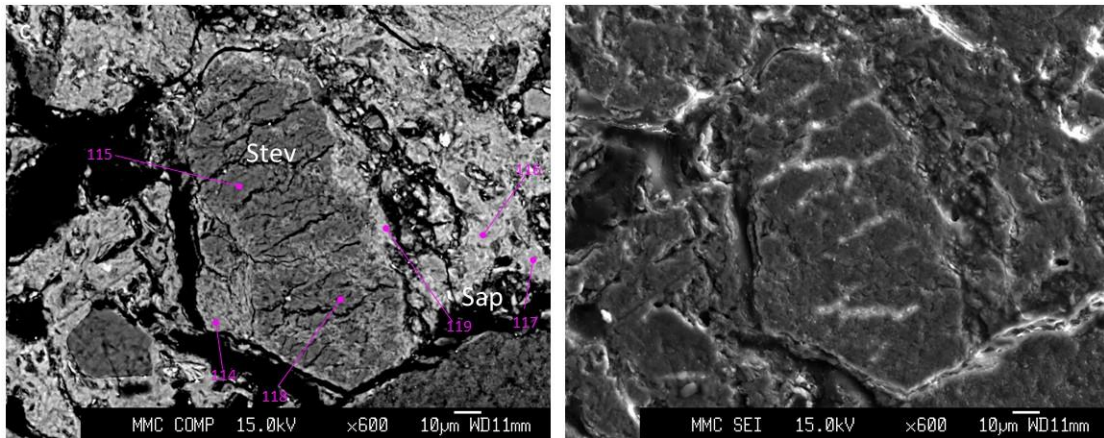


図 4.3.4-14 サポナイトに交代・置換されて取り囲まれているスチープンサイトの産状 (トレンチ 4 PWT04-16-Rh-006)

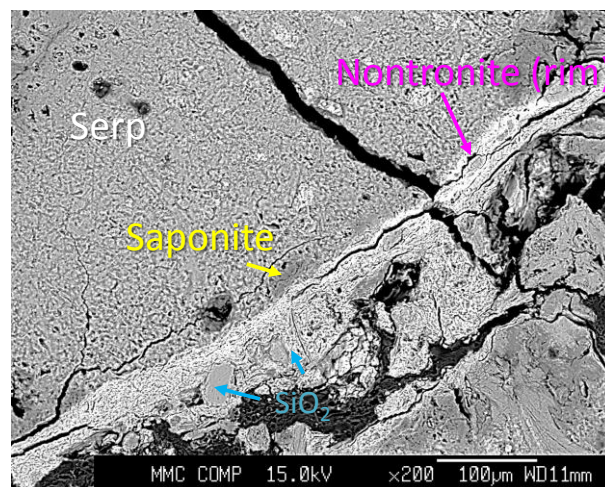


図 4.3.4-15 ③風化環境下の蛇紋岩質碎屑性堆積物中で蛇紋石のリムに生成しているノントロナイトの産状 (ストリップング 2 PWST02-17-Rh-003)

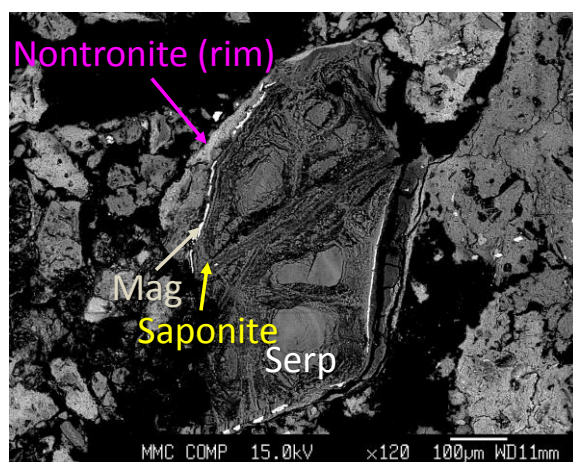


図 4.3.4-16 ①アルカリ環境下の砕屑性堆積物中のサポナイトのリムに生成するノントロナイトの産状 (トレンチ 7 PWT07-17-Rh-007)

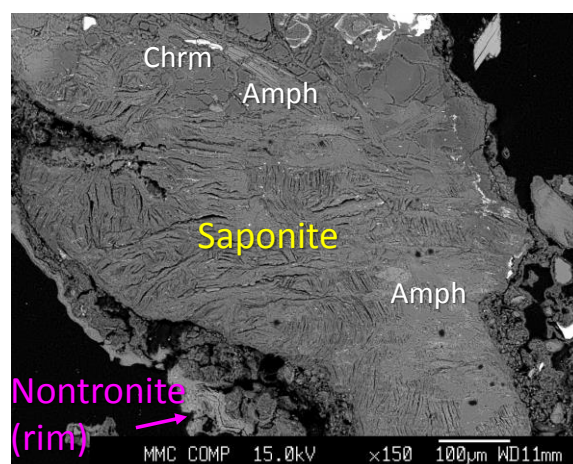


図 4.3.4-17 ②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物のサポナイトのリムに生成するノントロナイトの産状 (トレンチ 7 PWT07-17-Rh-C03)

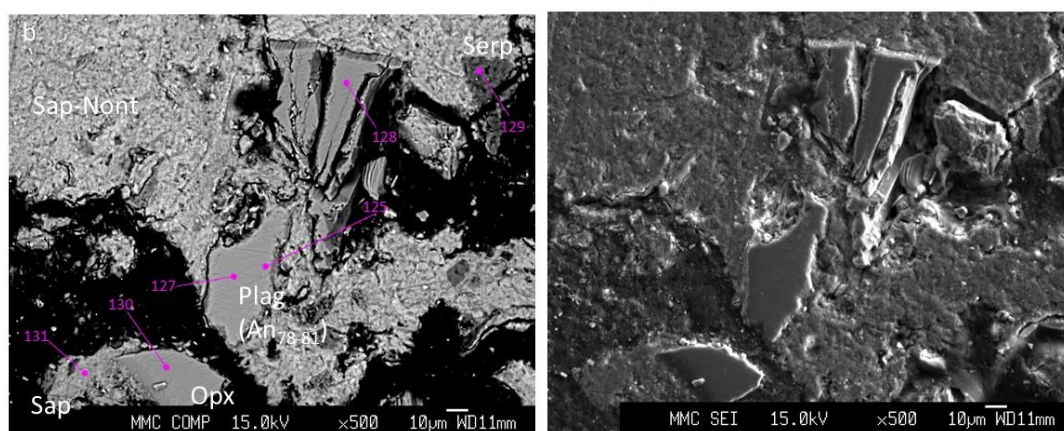


図 4.3.4-18 ①アルカリ環境下の砕屑性堆積物中の斜長石、斜方輝石の微細集合体を交代するサポナイト質ノントロナイトの産状 (トレンチ 5 PWT05-16-Rh-010)



バイデライトは斜長石が多い Al 成分に富む④風化環境下の斑れい岩質碎屑性堆積物（図 4.3.4-19）と②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物（図 4.3.4-20）のみで見られる。斑れい岩質碎屑性堆積物では（一部ゼオライト化した）斜長石の反応縁に生成している。降下火山灰堆積物ではアルカリ環境下で交代したサポナイトの一部にバイデライトが生成している。

モンモリロナイトは②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物（図 4.3.4-21）のみで見られ、斜長石を交代して生成している。

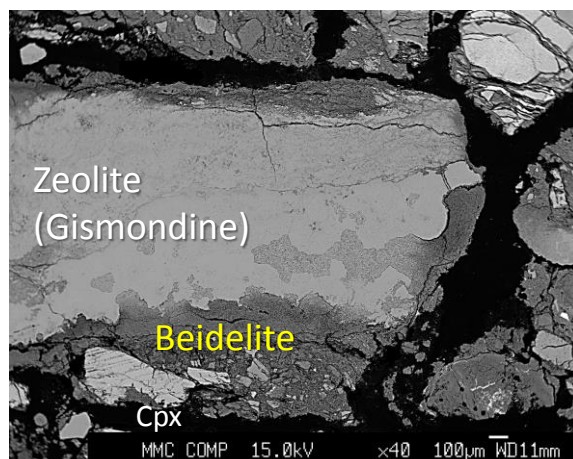


図 4.3.4-19 ④風化環境下の斑れい岩質碎屑性堆積物中のゼオライト化した斜長石のリムに生成するバイデライトの産状（トレンチ 8 PWT08-17-Rh-001）

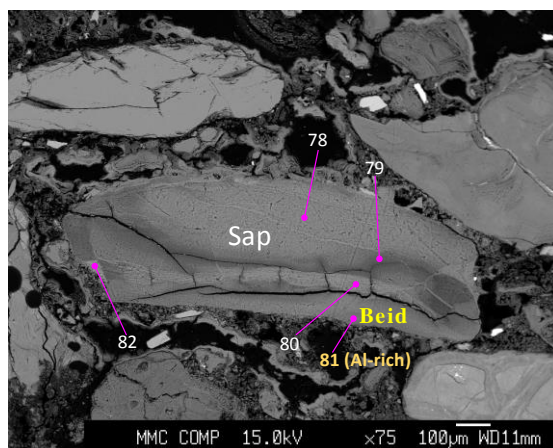


図 4.3.4-20 ②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物中のバイデライトの産状（トレンチ 7 PWT07-17-Rh-C03）

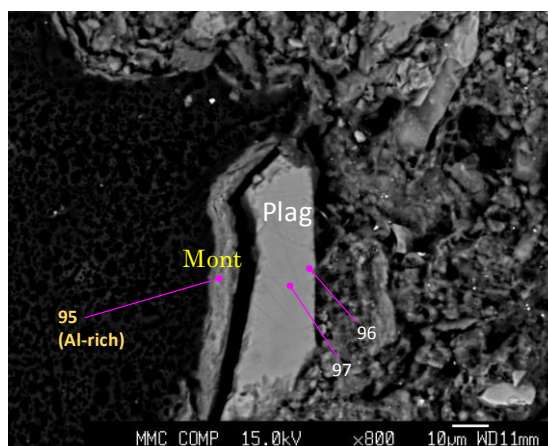


図 4.3.4-21 ②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物中の斜長石を交代したモンモリロナイトの産状（トレンチ 7 PWT07-17-Rh-C03）

これらの鉱物学的特性（組成・鉱物組み合わせ・共生関係など）からスメクタイトの形成・進展を解析する。

Fe, Mg に富む超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物では、パラワンオフィオライト定置後の、いわゆる風化過程で、パラワンオフィオライトの蛇紋岩化が進んだハルツバージャイトの風化に伴う交代・置換反応により形成された 2 八面体型のノントロナイトと少量の 3 八面体型のサポナイトのと斜長石に富む基盤岩に貫入した斑レイ岩の風化に伴う変質で形成された Al 成分に富む 2 八面体型のバイデライトと少量の Mg, Fe に富む 3 八面体型のサポナイト、その後、侵食・運搬・堆積を経て、高アルカリ地下水環境下で形成・進展（オストワルド熟成）した 3 八面体型の Mg-Fe-Al サポナイト、Fe サポナイトと少量の 2 八面体型のノントロナイト及び 3 八面体型のスチープンサイトが考えられる。

一方、Al に富む降下火山灰堆積物では、高アルカリ地下水との相互作用により、源岩が Al-rich などところでは 2 八面体型のバイデライト、Fe-rich などところでは 3 八面体型のサポナイトと 2 八面体型のノントロナイトが生成する。モンモリロナイトは降下火山灰の堆積過程からできていたとみられ、一部はアルカリ環境下で溶解した可能性があるが、比較的流量のあるアルカリ環境下でも残存したものとみられる。

#### 4.3.5 アルカリ湧水（地下水）の地球化学的特性

Narra サイトにおけるアルカリ湧水の流動系は、パラワンオフィオライト基盤岩の断裂系より湧水する裂隙水が、当サイトのアルカリ源泉地点(Narra3-1)を基点として、東方に開いた河川系扇状地様の緩慢な傾斜に沿って表層部を流下（ここでは表層水と呼称する）している。

表層地質は、前述しているように、表層部はトラバーチン（石灰華）起源のルーズな炭酸塩沈殿物である。局所的ではあるが深部へ向かって固結化（岩石化）が進み、炭酸塩堆積層または、塊状の炭酸塩岩が観察される。

また、これまでのトレンチ調査でのトレンチ 1~7 及び試錐調査での 4 孔において、アルカリ湧水位置（湧水源）は、碎屑性堆積物層まで届いていないトレンチ 1 を除き、炭酸塩堆積物（一部、炭酸塩岩）と下位の砂質で粗粒な碎屑性堆積物の境界及び、砂質な碎屑性堆積物と泥質な碎屑性堆積物の境界付近からである。これらのアルカリ湧水をここでは、浅層アルカリ地下水(pH > 11) と呼称する。

また、表層水を試錐掘削時に使用したにも拘わらず、すべての試錐孔内水は、アルカリ地下水 (pH > 11) である。これらの事実から、浅層アルカリ地下水は、独立した水理場での流動系を保持しているものと考えられる。

一方、細いクリークを流下している表層水は弱アルカリ性 (pH: 上流は 9.2、中流は 9.6、下流は 9.6) を示す。この pH の差異は、浅層地下水のアルカリ湧水とは異なる水理場と流動系を持ち、降雨水との混和による希釈と、溶存している炭酸イオンによる緩衝により低減されたものと考えられる。

このアルカリ地下水の水理場やその流動系から、上位の砂質で粗粒な碎屑性堆積物、下部層・下位の泥質な碎屑性堆積物ともアルカリ地下水との確実な接触（貯留）する地球化学的な場（環境）であることが示唆される。

次に、これらの湧水（地下水）の地球化学的特性を表 4.3.5-1 及び図 4.3.5-1 に示す。

図 4.3.5-1 のヘキサダイアグラムから、トレンチ内からの湧水組成は、一部アルカリ金属イオンと炭酸・炭酸水素イオン濃度に若干の差はあるが、全体としての水質パターンは類似し、Narra サイトのアルカリ源泉のものと同様である。アルカリ成分や塩素イオン濃度は、おそらく海水の影響を受けた証拠として考えられる。更に、殆ど検出限界濃度の Mg イオンは、世界的にオフィオライト起源の蛇紋岩化作用に伴うアルカリ湧水（地下水）組成に確認される一般的な特性である。

このような pH と温度が高く、酸化還元電位が低い（還元性の）高アルカリ地下水との長期の相互作用をもたらす環境は、TRU 廃棄物の地層処分におけるセメント-ベントナイトのプロセスアナログの場として、特にその高アルカリ環境下での碎屑性堆積物中のスメクタイト形成・進展についての考察が有効であることが示唆される。



表 4.3.5-1 ナチュラルアナログ調査地点（パラワン島及びビルソン島）の水質分析結果

Site	Palawan Riotuba-Waterfall	Palawan Brooke's Point - 7 Falls	Palawan Narra -1 Hot Spring	Palawan Narra -3.2 Trench5	Palawan Narra -3.2 Trench6	Palawan Narra -3.2 Trench7	Palawan Narra -3.1 Hot Spring	Luzon Poonbato	Luzon Manleuag Hot Spring - MI	Luzon Bigbiga - Well-1	Low alkali cement leachates (PNC 1997)*
採取年 Sample No.	2015 Riotuba Mine O	2015 7 Falls 1 O	2015 Narra 1 G	2017 Narra3-2 Trench5 O	2017 Narra3-2 Trench5 O	2017 Narra3-2 Trench5 O	2017 Narra3-1 O	2013 P-2 G	2013 M1 G	2014 Well1 G	1997
pH	10.01	9.31	10.50	11.27	10.96	11.16	11.28	11.41	10.80	9.52	11.09
ORP(Eh) [mV]	119	-387	-435	-100	-107	-141	-221	-111	-420	8	-
Temp [°C]	29.3	37.9	47.2	29.0	27.2	27.7	32.3	28.0	32.9	29.2	60
CH <sub>4</sub> [ppm]	0	0	>700	-	-	-	-	> 5000	2090	0 (0-560)	-
H <sub>2</sub> [ppm]	0	0	0	-	-	-	-	50-1320	0 (0-62)	0 (0-130)	-
Na <sup>+</sup> [ppm]	2.00	164	96.4	45.4	50.1	49.1	42.9	24.3	26.3	100.6	43
K <sup>+</sup> [ppm]	0.44	3.38	1.46	2.16	2.18	2.02	2.26	1.45	0.375	1.05	13
Ca <sup>2+</sup> [ppm]	5.00	3.80	3.78	25.5	24.6	26.8	41.3	92.5	29.9	1.63	16.8
Mg <sup>2+</sup> [ppm]	16.4	1.31	0.17	0.01	0.01	0	0	0.24	0.03	0.02	-
Si <sup>2+</sup> [ppm]	< 0.5	31	86.4	3.46	5.77	4.27	0.40	11	17	72.3	-
Al <sup>3+</sup> [ppm]	< 0.01	< 0.01	0.19	0.14	0.19	0.18	0.30	1.41	1.05	0.97	0.3
Fe <sup>(2+3+)</sup> [ppm]	0.08	0.02	0.06	0	0.02	0.02	0	0.18	< 0.001	0.0058	-
Cl <sup>-</sup> [ppm]	28.6	162	56.5	27.8	28.5	28.6	27.2	12.9	17.8	4.50	-
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> [ppm]	0.03	15.7	6.34	0.08	1.92	0.63	0.02	0.05	0.364	48.0	-
HCO <sub>3</sub> <sup>-*</sup> [ppm]	21.2	121.0	-	3.0	9.2	8.9	1.6	1.6	30.0	135.6	-

\* wt % - Portlandite Cement: Silica Fume: Fly Ash=40: 20: 40  
 \*\*HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> - アルカリ度滴定結果から算出したHCO<sub>3</sub><sup>-</sup> + CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>の値

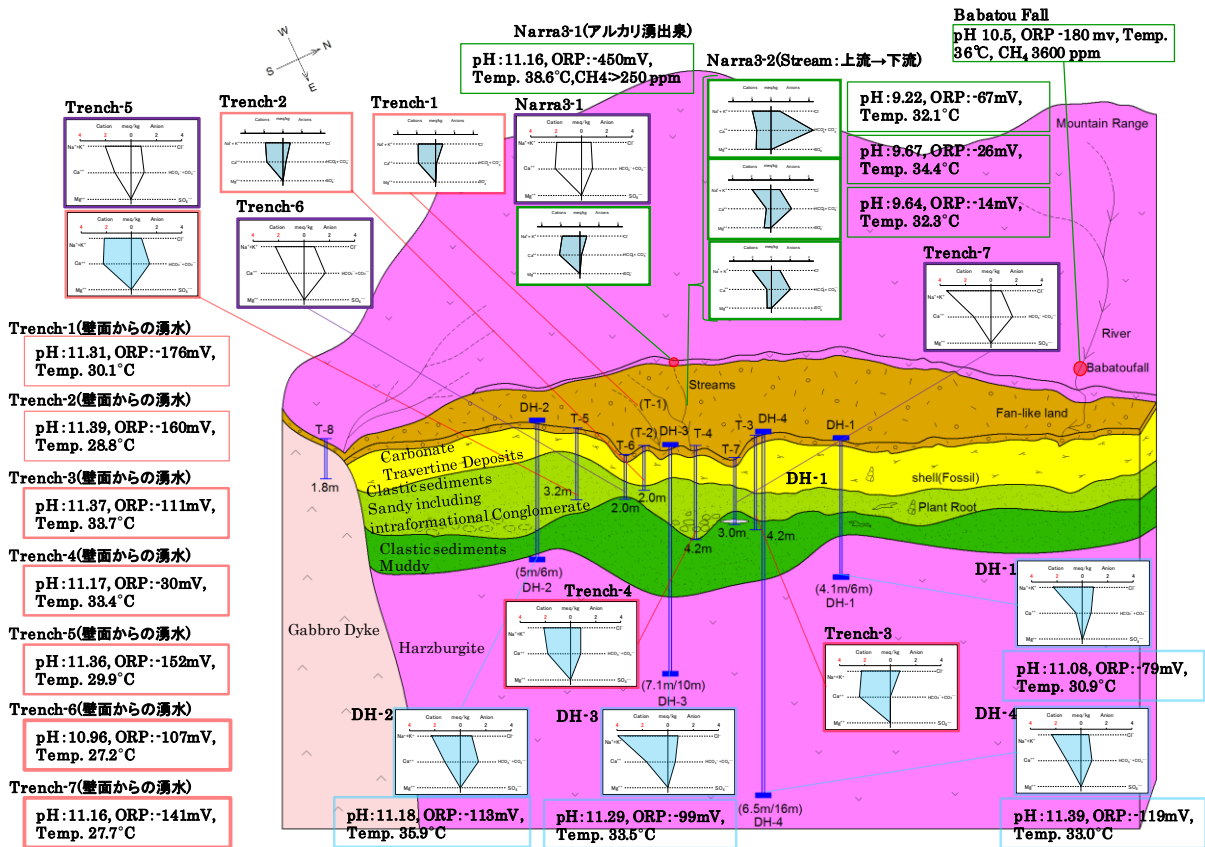


図 4.3.5-1 Narra3 調査地区の模式層序学的断面図と地下水（湧水）の水質

#### 4.3.6 既存研究に基づく類似する地質環境でのスメクタイト生成に係る地球化学的プロセス

Narra サイトに分布するパラワンオフィオライト起源の碎屑性堆積物で同定・観察されたスメクタイトの形成・進展を考察する上で、同様なテクトニクス場の地質鉱物学的・地球化学的環境に類似している事例研究を文献調査し、その結果を要約する。

ここでは、いわゆる超苦鉄質岩石の風化・変質過程で形成されるスメクタイトの産状が数多く報告されている文献調査を活用して、Narra サイトで確認されてスメクタイトの形成プロセスと、その地球化学的な場（形成環境）を比較・参考できるデータ・知見を取得する。

一般的に、超苦鉄質岩石（玄武岩・斑レイ岩・橄欖岩で代表されるオフィオライト複合岩体など）の風化作用により、スメクタイトを含む種々の粘土鉱物が形成されることが数多く報告されている[7][10]。

表層地下水系パスに密接に関係する風化作用では、早期は陽イオン溶出する層状のケイ酸塩鉱物の生成で始まり、晩期は針鉄鉱・カオリン鉱物のような Mg-Fe または Al の端成分鉱物で示される風化鉱物の形成が一般的である。

但し、風化過程では、天水起源の表層水の水質（組成）が、ローカルな pH, Eh であっても風化プロセスにとって極めて重要な役割を演じる因子である。仮に、この風化プロセスを速度論的に考察するなら、原位置での表層水（天水起源）の組成と酸素分圧の測定が不可欠である。

最初に、超苦鉄質鉱物の代表的初生鉱物（輝石、かんらん石、角閃石など）の風化作用とその風化プロセス（一部メカニズム）について、特に、風化過程で重要因子である溶解プロセスや、その結果としての風化変質鉱物の形成について検討する。風化プロセスは、新鮮な母岩の岩石学的・鉱物学的・地球化学的パス（岩石から土壌）を水平・垂直方向に展開し、①母岩の鉱物学・岩石学、②表層系（開放系・閉鎖系）、間隙タイプ・サイズ、地下水賦存状態、③二次鉱物の鉱物学的・構造配列（溶解メカニズムと溶解速度）に着目して風化プロセスにおける鉱物学的・岩石学的・地球化学的に考察することである。原理的には風化に伴う溶液パスは物理化学的な状態に強く依存することが解っているので、それらの風化段階については、早期では鉱物粒内の腐蝕（粒界・縁・割れ目・双晶境界・転移など）が生起する。さらに、風化プロセスでの鉱物の割れ目の発達は、透水性、地下水の浸水速度、透過水量・流速などにより支配されるために、その結果、風化作用を大きく規制することになると指摘されている[11]。

風化プロセスにおける重要な鉱物溶解プロセスは、既存鉱物（前駆鉱物）の結晶構造学的方位を維持して転移的置換(Topotactic Replacement)する現象である。例えば、鉱物の溶出は表層水の pH に依存して、アルカリ土類元素が溶出する。また、サポナイトが、高 pH で中粒の堆積物（岩）に産状・観察される。

一方、土壌中では、バーミュキライトがサポナイトより優勢に産状する[12]。また、Kolel 斑レイ岩中の輝石の風化生成物については、その風化プロセスを代表する鉱物が、スメクタイト→緑泥石→針鉄鉱に変換していることが報告されている[13]。Al に乏しいスメクタイトの好ましい形成環境は、地球化学的に微少な環境(Micro-environment)である岩片質な碎屑性堆積物で、ハロイサイトは土壌的な環境を好むと指摘されている[14]。

次に、輝石の溶解による二次鉱物の形成に関する熱力学的シミュレーションによるアプローチ

を紹介する。溶解については理論的な調和溶解とし、速度論的效果（影響）は考慮しない。また、初生の pH、O<sub>2</sub>・CO<sub>2</sub> フガシティー、温度、開放系で限定された溶液と、既知鉱物の混合相を対象としている。両輝石の二次鉱物の形成は、連続的な置換による「Fe・Al 含有生成物（針鉄鉱・カオリン・スメクタイト）」の形成であるとしている。粘土鉱物の固溶体組成を著しく支配するのが酸素分圧と、Al-含有量であると指摘している[5]。

次に、実験事例を取り上げてみる。この実験では pH6 で、非化学量論的に Ca, Mg, Si が溶脱する実験結果では、頑火輝石（Enstatite, 斜方輝石）では Mg が Si より多く溶脱し、透輝石（Diopside, 単斜輝石）では、Mg/Si が一定であれば、Ca が Mg, Si より優先的に溶脱、普通輝石（Augite, 単斜輝石）では Mg は、Ca より優先的に溶脱する。なお、溶脱陽イオンは、H<sup>+</sup>か H<sub>3</sub>O<sup>+</sup>のいずれかに交換（陽子化された表層面）され、比較的ではあるが Ca あるいは Mg-溶出層は輝石の表面に生起する。

また、非晶質物質は水和相または陽子化された表層面に発達する。この非晶質物質は閉じた系として表現され、例えば、サポナイトが地下水面や下降斜面付近に観察されることがその一例である[5]。

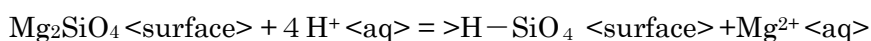
次に、超苦鉄質岩石のラテライト化作用プロセスでの初生両輝石の溶解・沈殿を考えてみる。一般的であるが斜方輝石は単斜輝石より早く風化される。その理由として、単斜輝石はタルク様鉱物相を伴い、好都合な格子適合層を備えているからと示唆している。このことは、単斜輝石が斜方輝石より転移制限表面を形成し易いからであると解釈でき、その事例として、透輝石の風化程度は 2 倍であるために均質な鉄サポナイトを形成すると指摘している[11]。

また、頑火輝石や透輝石が部分的に熱水変質を受けると緑泥石に、そして温度依存性があるが、最終的には緑泥石-バーミキュライト（苦土蛭石）と、副成分鉱物として針鉄鉱の仮像様な弱い空隙性のある鉱物に置換される[15]。

普通輝石の風化作用は、調和溶解によりネットワーク状に組織されたバーミキュライトと非晶質物質を形成するが、いかなる漸移ゲル相は形成しない。つまり、これらの非晶質物質は、予測される水和相か、陽子化された表層面の発達過程での未成熟な風化生成物であると解釈できる[16]。

次に、かんらん石の風化プロセスについて紹介する。かんらん石の風化・分解作用の晩期には、3 八面体スメクタイトとハロイサイト（ハロイ石）が随伴する。一般的であるが、早期生成されたスメクタイトは、3 八面体構造を示すが、風化作用が進むと 2 八面体型のバイデライト-ノントロナイト様鉱物に置換される。更に風化作用が進むと、これらのスメクタイトは非晶質で、より結晶化した酸素水素酸化物(Oxyhydroxides)に置換されてしまう。この形成環境はより開いた系で平衡反応からかなり離れた状態であると考えられる。かんらん石の溶解速度は、鉱物自身の組成、結晶学、転位、密度、微細な組織特性と、外部環境としては、溶液組成・pH、イオン活動度、Eh などに支配され、酸性環境では b - 軸に沿ってより溶解し易い。つまり、溶解は、(010), (hk0), (hk0)に平行に食凹(etch pits)を形成しながら生起すると指摘されている[17]。

一方、ややアルカリ環境下では、シリカに富んだ複雑な先駆物質が下記の反応により、Mg<sup>2+</sup>イオンを伴う H<sup>+</sup>イオンの置換を通して鉱物表面に形成することが指摘されている[18]。;



これらの事象から、複雑な表層部の分解については、酸性環境では苦土かんらん石溶解制限の速度制限段階にあり、苦土かんらん石の鉱物粒は特徴的に食刻される。かんらん石のこのような食刻兆候と構造的溶解の関係についても検討されている[19]。

次に、共生鉱物としての輝石、かんらん石と角閃石の風化作用について紹介する。風化したスカルン鉱物であるヘデンベルグ輝石のノントロナイトへの変換プロセスとそのメカニズムは、最初に  $\text{Ca}^{2+} \cdot \text{Mg}^{2+} \cdot \text{Si}^{4+}$  イオンが溶出・消失し、その後、 $\text{Fe}^{2+}$  イオンの酸化・水和反応の結果、4配位の Si と 8配位  $\text{Fe}^{3+}$  の鎖の再結合が進み、{010} 輝石の鎖へ移動し、ノントロナイト様滑石のユニットを形成したものである。頑火輝石の場合は、滑石への転移反応（輝石の(001), (100), (010)が、それぞれが滑石の(100), (001), (010)に対応）があることが指摘されている。更なる風化作用により、優先的にスメクタイトによる滑石の置換や、時折、スメクタイト→緑泥石への置換により消失するような進行的な関係を示すことが指摘されている[20]。

また、風化した斑レイ岩中の普通輝石・紫蘇輝石(Hypersthene)はバーミュキュライトの仮像として産状することが指摘されている[16]。

輝石・角閃石の溶解に対する表層制御メカニズムは、風化鉱物粒に普遍的に食刻が観察されることである。普通輝石・普通角閃石は、かんらん石と比べて溶解が弱く安定であるが、斜方輝石は粘土化され易く、スメクタイト（2八面体型のバイデライト・ノントロナイト、3八面体型のサポナイト）に置換され易いと指摘されている[21]。

次に、Narra サイトの碎屑性堆積物にみられる極めて少量である斜長石・カリ長石の風化作用について紹介する。これらの長石類の風化作用により、Ca-K-Fe を含有するスメクタイトへ置換し、更なる風化作用により、ハロイサイト・ギブサイト（ギブス石）へ置換し、最終的にはサプロライトに置換される。風化作用に伴う長石類の溶解は、溶出層の仮説（Si・Al イオンに対する陽イオンの溶出制限）が適応され、最初にこれらの陽イオンが  $\text{H}^+$  イオンに置換され、長石内部からの固体状態メカニズムにより外部の溶液に溶出層を通して拡散していくことが指摘されている[22]。

長石の溶解（溶解速度）は、Na に富む曹長石より Ca に富む灰長石が溶解し易く、酸性環境下では溶解を促進する。これは錯体の性質より、むしろ高プロトン濃集を促すからである。また、長石溶解における転位と微細構造への影響については、転位と欠陥から転位と溶解速度の関係を明らかにすることと、風化作用に伴う溶液の飽和度にも深く関与している。特に、微細組織の代表であるカリ長石中の曹長石の微細なラメラ組織がその良い事例である。長石類の一般的な風化生成物は、ハロイサイト、カオリン、ギブサイトの産状で、灰曹長石の場合では、カオリン＋スメクタイトである。

次に、変質鉱物としての緑泥石の風化・変質作用は、豪州の北部準州にある Koongarra ウラン鉱床の表層部（酸化帯）での詳細な研究がある。風化帯の母岩は石英 - 雲母片岩で、外側（地表）に向かって；緑泥石→緑泥石 - バーミュキュライト（中間層）/ 中間地層→バーミュキュライト（カオリン）+ 細粒の Fe-酸化物に分帯される。このバーミュキュライトの形成プロセスは、Fe, Mg の消費と若干の Al の消失により特徴付けられている[23]。その詳細なメカニズムは、滑石シートの非化学量論的な優先的溶解によると指摘している[24]。

玄武岩の場合では、緑泥石の転移から規則型中間層緑泥石を経てバーミュキュライト（コーレン

サイト) へと変換すると指摘されている[25]。

最後に、超苦鉄質岩の主要な構成鉱物(斜方輝石・かんらん石・単斜輝石・角閃石・長石)と特徴的な変質鉱物(蛇紋石・緑泥石)の風化・アルカリ変質反応による風化生成物(主に粘土鉱物)について取りまとめる。

風化した岩石プロファイルの基底部における特別に閉じた系・平衡に近い環境では、かんらん石、両輝石、角閃石、緑泥石は、定方位の膨潤性 3 八面体型粘土鉱物(スメクタイト、パーミキュライト、中間層雲母など)へ転移している。その産状は先駆鉱物の仮像である。それらに加えて、Fe-鉱物(針鉄鉱・赤鉄鉱)の産状である。このような鉱物学的方位(配位)の特徴は、前駆鉱物組成と風化生成物の結晶構造(結晶学的方位)に密接な関係を保持しているからである。それは風化岩の長石分解による粘土鉱物の形成において、前駆鉱物の結晶構造を支配するフレームワークに支配され層状構造へ余儀なくされるためである。例えば、長石からスメクタイトまたは、ハロイサイトの変換などが例示的な事例である。

非層状のケイ酸塩鉱物の表面での水による溶解現象については、残存表層の形(鉱物溶解速度を支配する表層の厚さ)と、これらの残存層の欠如した中間の鉱物表面での溶解に対する非調和溶解と調和溶解に依存し、さらに、構造上の転位と欠陥サイトでの優先的溶解や、転位による密度変化と溶解速度間に内在する何らかの関係を明らかにするために数多くの議論がされているのが現状である。



#### 4.3.7 スメクタイトの形成環境とその鉱物学的変遷および長期安定性

##### (1) スメクタイトの形成環境と蛇紋岩化作用

スメクタイトの形成・進化プロセスを考察する上で、スメクタイトの形成環境に2タイプがあることが確認されている。一つは、パラワンオフィオライト（基盤岩：超苦鉄質複合岩類／超塩基性岩類：Narra サイトでは、主にハルツバージャイトと少量の細粒・粗粒の完晶質斑レイ岩）の定置・陸化（隆起）・侵食・運搬・堆積過程で特徴付けられる物理的風化環境プロセスで形成されたものと、もう一つは、アルカリ地下水環境下で形成したものである。

これまでの調査・解析結果から、アルカリ相互作用については、アルカリ地下水環境下でのスメクタイトの形成環境とその後の鉱物学変遷とその安定性を考察（解析）する上での主要な課題は、(i) M-S-H を前駆体とするスチーブンスサイトの形成プロセスと安定性、(ii) C-S-H と共生するサポナイトの形成プロセスおよび、(iii) F-S-H を前駆体とする鉄サポナイトとノントロナイトの形成・変換プロセスとそれらの安定性を明らかにし、スメクタイトの鉱物学的変遷モデルを構築することである。

物理的風化プロセスで形成されたスメクタイトの形成環境とその後の鉱物学的変遷を考察するために、今年度は3サイトでのストリッピング調査（ストリッピング 1~3）と1サイトでのトレンチ調査（トレンチ 8）を実施した。また、これらの2つのタイプのスメクタイトの形成環境における初生物質（出発物質）を検討するために、その原岩（パラワンオフィオライト）の地球化学的・鉱物化学的挙動を考察する。合わせて スメクタイト形成に好都合な地球化学的環境を検討するために、主要なバルク成分化学成分である Al, Si, Mg, Ca, Fe の溶存イオン種、水溶性ケイ酸と溶液中の(OH<sup>-</sup>)に着目する。

特に、スメクタイトの形成環境とその後の進化プロセスに密接かつ深く関与している主要な地球化学的挙動は、水-岩石相互作用（加水分解反応）に伴う蛇紋岩化作用である。その主要な根拠は、上記2タイプのスメクタイトの産状は、必ず蛇紋岩作用により生成された低温型の蛇紋石（クリソタイル・リザルダイト）と共生していることと、この前駆物質（前駆鉱物）がパラワンオフィオライトの超苦鉄質岩石に普遍的に含有する苦鉄質鉱物（斜方輝石・かんらん石・単斜輝石など）と、斑れい岩に含有する輝石・長石類・石英・角閃石などで構成されていることである。特に、物理的風化作用は一連の蛇紋岩化作用に貢献していることである。また、偏光顕微鏡観察や EPMA 分析結果から、これらの前駆鉱物が、蛇紋石に変質した後、スメクタイトに部分的または完全に交代されているものと、一部の斜長石がモンモリロナイトやバイデライトへ鉱物学的変換していることが観察される。

そこで、スメクタイトの形成と蛇紋岩化作用に関連する地球化学的挙動について考察する。岡本(2012)[26]によると、蛇紋岩化作用は、地球表層から海洋底・沈み込み帯まで、500°C以下の多様な環境で進行する。そのプロセスは、変成作用[27]、交代作用[28]、風化作用[29]などに伴って生起する。その蛇紋岩の反応カイネティクスや進行過程の解明については、水-岩石相互作用（かんらん岩-水の相互作用）の理解に繋がるものと指摘している。それは、蛇紋岩化作用で形成される蛇紋石（多形鉱物<低温型：クリソタイル・リザルダイト／高温型：アンチゴライト>）形成の素反応をかんらん石（Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>-Fe<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> 固溶体）のみで考察すると、か

んらん石の溶解、蛇紋石・ブルース石の析出である。ここで Fe 成分も合わせて考慮すると、磁鉄鉱の生成と反応に寄与する鉱物の Mg/Fe 比を考慮する必要がある。これに斜方輝石や単斜輝石を加えるとその素反応は更に複雑になる。また、かんらん石-水、斜方輝石-水系での熱水反応による蛇紋石の転換時間を検討すると、低温でも斜方輝石がかんらん石より早く蛇紋石へ変換することが指摘されている[30]。

次に、溶液化学的観点から溶存化学種を検討する。 Narra サイトの碎屑性堆積物が地下水との相互作用の結果、超塩基性岩であるハルズバージャイト起源の碎屑性堆積物は、殆どが苦鉄質鉱物 (Mg-Fe ケイ酸塩鉱物) であるかんらん石や輝石類で構成されているために、溶存化学種としては、Mg 成分の場合で、 $Mg^{2+}$ ,  $Mg(OH)^+$ ,  $Mg(HSiO_3)^+$ ,  $SiO_2$  (または、 $H_4SiO_4$ ) で、その主成分として準安定性の M-S-H であると推察される。

Fe 成分の場合では、 $Fe^{2+}$ ,  $Fe(OH)^+$ ,  $Fe(HSiO_3)^+$  で、その主成分として準安定性の Fe-S-H であり、そして、ケイ酸塩鉱物のシリカ成分は水溶性ケイ酸で、 $H_4SiO_4$ ,  $H_3SiO_4^-$ ,  $H_2SiO_4^{2-}$ ,  $HSiO_3^{3-}$ ,  $SiO_4^{4-}$  などが考えられる。

これらの準安定相は、非晶質な物質として粒間や間隙を充填している。恐らく、これらの溶存化学種や一部準安定相としてのゲル物質がスメクタイトの前駆物質としてスメクタイト族の形成に参与することが示唆される。例えば、アルカリ環境下で、非晶質な M-S-H や、F-S-H から Fe-Mg rich スメクタイトの形成である。仮に、M(F)-S-H の核成長を促すような地球化学的な環境であれば、Mg-Fe に富み、Al-free なスメクタイトが初生スメクタイトとして形成される可能性が示唆される。

一方、少量ではあるが班れい岩起源の碎屑性堆積物と、限定されて分布している降下火砕堆積物である火山灰・火山ガラス・斜長石・少量の普通角閃石の鉱物片などを含有する碎屑性堆積物の場合では、珪長質鉱物の代表である斜長石の溶存化学種としては、 $Al^{3+}$ ,  $Al(OH)_4^-$ ,  $Al(OH)_3$  で、その主成分としての準安定相の A-S-H などであろう。このような地球化学的な環境であれば、Al-rich スメクタイトの形成が示唆される。

また、アルカリ地下水環境では、C-S-H の産状が観察され、その後の熟成の結果、トバモライト、ジャイロサイトそして、方解石として沈殿している。

しかし、スメクタイトの形成環境や鉱物学的変遷プロセスやモデルを構築する場合は、固相 (鉱物) と共存する溶液との相互作用に伴う溶液組成などの進化と合わせて考察することの必要性、特に溶液組成 (液相: 液相中の溶存化学種) と反応生成物 (固相: 鉱物) のどちらかを重視して考察するかが、スメクタイト組成を支配することになると指摘している[26]。

また、スメクタイトの形成に深く関与している蛇紋岩化反応は、初生鉱物である苦鉄質鉱物が溶解して、その表面に二次鉱物 (蛇紋石) が形成され、その後、スメクタイトが交代反応で形成するという複数の素反応が同時進行する 3 段階の不均一反応である[26]。さらに、蛇紋岩化作用の大きな特徴の一つが、反応促進させる反応物としての水溶液 (水) が不可欠である。つまり蛇紋岩化作用の促進度は、水の供給速度に支配されている同時に、温度と粒径によっても変化すると指摘されている[31][32]。最近、蛇紋岩化反応において、溶液のシリカ濃度 (シリカ活動度) が極めて重要で、シリカ活動度の大小が蛇紋石、ブルース石、滑石の安定領域と蛇紋石の反応経路まで変化させることが指摘されている[33][34]。

## (2) 碎屑性堆積物の形成環境

Narra サイトにおけるスメクタイトの形成環境と変質反応プロセスを考察する上で、スメクタイトの母層である碎屑性堆積物の形成－堆積過程を考察することが必要である。この過程は基盤岩であるパラワンオフィオライトのテクトニクス変遷過程を理解することから始まる。このオフィオライトは SSZ 型（プレート沈み込み帯に起因）で、34Ma に海底地殻として誕生し、その後、23Ma に定置され陸化したものである[3]。

その後、いわゆる風化－侵食－破碎－運搬－沈積などをくり返しながらか、地形的には東方のスルー海(Sulu Sea)に向かう緩傾斜の河川系に支配されている、扇状地様地形面で特徴付けられる沿岸域（カワニナの存在）に堆積したものと解釈される。

この碎屑性堆積物は、基盤岩であるパラワンオフィオライト超塩基性複合岩体を構成する、蛇紋岩化作用を受けたハルツバージャイトと、少量の斑れい岩を起源物質とする。この碎屑性堆積物は上位からトラバーチン起源の炭酸塩沈殿物（主成分は方解石）が比較的厚く（恐らく厚いところでは 5m を越える）、ルーズで塊状な堆積構造を示すが、一部、層理面をもつ成層構造による固結化（岩石化）が観察される。その下位の碎屑性堆積物は大別すると、上位部は砂質で、下位部は泥質である。砂質部には原岩（パラワンオフィオライト）の垂角礫で扁平な礫が、層間内礫層として古河川系の凹部に挟在する。これらの碎屑性堆積物は、定置後のテクトニクな構造的擾乱はなく、地質学的には静穏な堆積環境であったものと推察できる。

また、碎屑性堆積物の下位部（トレンチ 7 の床面のみ分布）に特異的な降下火砕堆積物起源の火山灰・新鮮な火山ガラス・斜長石などから構成される火山碎屑性物質が観察される。この供給源は明らかではないが、あまり遠くない火山の新しい火山活動からと推察される。

以上のことから、スメクタイトを含有している碎屑性堆積物の起源は、(i)パラワンオフィオライトを構成するハルツバージャイト岩石（殆どが、苦鉄質鉱物  $\langle \text{Mg} \cdot \text{Fe} \cdot \text{Ca} \text{-ケイ酸塩鉱物} \rangle$  で構成されるシリカ成分に不飽和な岩石）、(ii)パラワンオフィオライトを構成する斑れい岩（苦鉄質鉱物 $\langle$ 少量の角閃石 $\rangle$ 、斜長石、石英などで構成される  $\text{Si} \cdot \text{Al} \cdot \text{Mg} \cdot \text{Fe} \cdot \text{Ca}$ -ケイ酸塩鉱物）と、(iii)今年度初めて観察された降下火砕堆積物である火山灰・火山ガラス・パミスと斜長石の鉱物片（ $\text{Si} \cdot \text{Al} \cdot \text{Na} \cdot \text{K}$ -ケイ酸塩鉱物）を含有する淡灰色で分級度の悪い、層厚約 20cm 程度の特徴的な細粒砂質碎屑物である。

## (3) アルカリ地下水の滞留時間

Narra サイトでは、基盤岩の北東系に優勢な割れ目（断裂系）からアルカリ湧水(pH> 11)が観察され、その湧水源周辺には、特徴的なトラバーチン起源の炭酸塩沈殿物が広く随伴する。

また、トレンチ内のアルカリ水は、トレンチ壁面観察から碎屑性堆積物の砂質－泥質部境界近傍で湧出している。この湧水近傍の炭酸塩や土壌中のヒューミン物質の炭素同位体（14 C 年代測定）測定から、その年代は 1,000 年～10,000 年と算出されている。このことから、アルカリ水は、少なくともこの期間中は湧出していたものと推察する。

また、地下水タイプは、蛇紋岩化作用に伴う代表的な Ca-OH タイプの水質で、しかも還元環境を示す。

#### (4) スメクタイトの形成環境と変質反応プロセス

これまでの調査・研究結果から、Narra サイトにおけるスメクタイトの形成環境は、前述した通り、①物理的風化環境と、②アルカリ地下水環境に区別される。

両者にとって密接に共通する地球化学的な形成環境として、特に、低温タイプの蛇紋岩化作用と低温タイプの緑泥石化作用が重要である。それはスメクタイトの前駆体（前駆鉱物）の素性（鉱物組成）とその形成環境変化（状態変遷）が、その後の変質反応プロセスを決める初生物質（出発物質）の多様な地球化学的特性に支配的な要因となるからである。

スメクタイトの形成を強く規制する地球化学的特性は、前駆物質（初生鉱物または、出発物質）の鉱物組成・組織・性状・変質程度などと、その全岩バルク組成である。

仮に 珪長質（Si、Al と Na・K 成分に富む長石類や石英）な前駆物質では、Al-rich な 2 八面体型スメクタイト（モンモリロナイト）と Al-rich/Mg-poor なバイデライトの形成が示唆される（Al-rich モンモリロナイトーバイデライト系列）。

一方、苦鉄質（Mg、Fe と Ca 成分などの富む苦鉄質鉱物）な前駆物質の場合は、Mg-rich/Fe-rich な 3 八面体型サポナイト（少量の Al-free なスチープンサイト）と、2 八面体型の Fe-rich なノントロナイトの形成が示唆される（Fe-rich サポナイトーノントロナイト系列）。

これらスメクタイトの形成・進化（鉱物学的変遷）を考察するためには、主要なバルク成分のマスマラズを考慮し、特に、Mg、Fe、(Ca)、Si、Al の溶存イオンと(OH<sup>-</sup>)の陰イオンの地球化学的挙動に注視すること必要である。

##### 1) 物理的風化環境下でのスメクタイトの形成環境と変質反応プロセス

物理的風化環境下で形成された碎屑性堆積物（トレンチ 8、ストリッピング 1~3）の源岩は、ハルツバージャイトと班れい岩（トレンチ 8）である。前者は超塩基性岩（シリカ成分に不飽和な岩石化学的特性）で、大部分が苦鉄質鉱物から構成され、その主成分鉱物は斜方輝石・かんらん石、少量の単斜輝石と、副成分鉱物として、スピネルー磁鉄鉱・クロム鉄鉱などである。

また、この超塩基性岩は、広範囲に蛇紋岩化作用を受けて低温型の蛇紋石（リザルダイト・クリソタイル）を産出している。蛇紋岩化作用は、偏光顕微鏡や EPMA 観察から、斜方輝石→かんらん石→単斜輝石の順に変質・交代している。

一方、苦鉄質鉱物の風化作用に対する抵抗度は、かんらん石→斜方輝石→単斜輝石→角閃石→黒雲母の順に大きくなる[35]。

物理的風化環境下における液相は、恐らく天水起源の表層水で、未成熟な土壌や未固結な碎屑性堆積物との相互作用による、緩慢なイオン交換を主体とする希釈な溶液と推察される。

このような地球化学的な場での苦鉄質鉱物（ハルツバージャイト）を主成分とする碎屑性堆積物の溶出イオンは、Mg<sup>2+</sup>、Fe<sup>2+</sup> (Fe<sup>3+</sup>)と、非晶質または、ゲル状のシリカ(SiO<sub>2</sub>, H<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>)と Mg(OH)<sup>+</sup>、Mg(HSiO<sub>3</sub>)<sup>+</sup>、Fe(OH)<sup>+</sup>、Fe(HSiO<sub>3</sub>)<sup>+</sup>および、(OH)<sup>-</sup>などが想定される。

一方、珪長質鉱物（班れい岩）である長石類（斜長石・カリ長石）と石英および、単射/斜方輝石・角閃石・少量のかんらん石などから構成される碎屑性堆積物の溶出イオンは苦鉄質

鉱物を主成分にする碎屑性堆積物と異なり、特に  $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Al}(\text{OH})_4^-$ ,  $\text{Al}(\text{OH})_3$  などの溶存イオンが豊富に存在するものと考えられる。

物理的風化環境下で形成された碎屑性堆積物（ストリップング 1~3 とトレンチ 8）で同定されたスメクタイトは、苦鉄質鉱物の蛇紋岩化作用によってできた蛇紋石の全面交代か部分的交代、反応縁、劈開または、平行成長などの産状で、いわゆる固相反応（固相状態での変換）が多く観察される。

苦鉄質鉱物を主成分とする碎屑性堆積物の地球化学的環境下 (**Mg-Fe-rich**, **Al-free**) でのスメクタイト形成プロセスとしては、前駆鉱物とこのような溶液との相互作用により、2 八面体型のスメクタイト（ノントロナイト）と 3 八面体型で **Al-poor** な **Mg-Fe** スメクタイト（サポナイト）が初生鉱物である。その後、**Fe-rich** なサポナイトへ鉱物学的な組成変化（変換）をする。

一方、珪長質鉱物と少量な苦鉄質鉱物を主成分とする碎屑性堆積物の地球化学的環境下 (**Al-Si-rich**) でのスメクタイトの形成は、2 八面体型の **Al-rich** で **Mg-poor** なスメクタイト（バイデライト）と苦鉄質鉱物を交代して生成した 3 八面体型スメクタイト（サポナイト）である。

## 2) アルカリ地下水環境下でのスメクタイトの形成環境と変質反応プロセス

パラワンオフィオライト起源の碎屑性堆積物が堆積・埋没・固結化（岩石化）過程でアルカリ地下水との相互作用に伴う物理的・化学的影響により、弱い埋没続成作用を受けたものと推察される。この過程では、碎屑性堆積物の間隙が次々と新たな堆積物の荷重による圧密で減少し、荷重-圧密の増大により碎屑物質（碎屑岩片・碎屑粒子など）の細粒化が促進し、部分的であるが粘土化が進展しているものと考えられる。

このような物理・化学的環境下のもと、碎屑粒子（蛇紋岩化作用の進んだ岩片、複合または単一苦鉄質鉱物の細片など）とアルカリ溶液との相互作用により、閉鎖系に近い変質反応系の地球化学的な場が形成されものと推察される。

ハルツバージャイト起源、班れい岩起源と、極少量の降下火砕堆積物である火山灰、火山ガラスおよび、斜長石、普通角閃石の鉱物片から構成されるそれぞれの起源物質を異にする 3 種類の碎屑性堆積物におけるアルカリ地下水環境下でのスメクタイトの形成環境と、変質反応プロセスを考察する。

前述の通り、偏光顕微鏡観察と EPMA による組成・組織・共生関係などから、スメクタイトは、前駆物質として多く観察・同定される蛇紋石、苦鉄質鉱物（大部分が斜方輝石とかんらん石）、少量の角閃石、緑泥石と斜長石などを完全・部分的交代、反応縁、平行成長などの形態と、碎屑粒子間の間隙 (**M-S-H**, **F-S-H**, **C-S-H**, **A-S-H**)、微小割れ目、劈開などを充填する形態で特徴づけられる 2 形態の組織的パターンが観察される。これらの形態は、前駆物質の特性（鉱物組成・モード比、組織・共生など）と共生・進化するアルカリ地下水との相互作用に密接に関与するものと考えられる。

超塩基性岩起源（ハルツバージャイト岩）の碎屑性堆積物では、主に 3 八面体型の **Mg-Fe rich** スメクタイト（サポナイト及びスチープンサイト）が形成されている。その後の熟成段



階で2八面体型のノントロナイトやより Fe-rich な 組成のサポナイトへ変質すると考えられる。

アルカリ環境下の班れい岩起源の碎屑性堆積物は直接観察されていないが、班れい岩質の礫を含む苦鉄岩質の碎屑性堆積物のスメクタイトの産状から、斜長石等から溶出した Al は比較的容易にスメクタイトにとられているので、アルカリ環境下での前駆体の段階で M-S-A-H や F-S-A-H を形成して、それらが Al を含むサポナイトになる。

降下軽石（火山灰）堆積物では、物理的風化過程で半自形の斜長石に形成された 2 八面体型のモンモリロナイトはアルカリ環境下で溶解するものがあるとみられるが、一部、アルカリ環境下においても溶解せずに 4,000 年程度の時間スケールにわたり残存している。一方、アルカリ環境下において、苦鉄質鉱物を交代して、Mg・Fe-rich な 3 八面体型のサポナイトと一部 Al-rich な 2 八面体型のバイデライトが生成し、その後熟成して周囲がノントロナイト化する。

一般的に 3 八面体スメクタイトの方が溶解度が小さいため、このアルカリ環境下での 2 八面体型スメクタイトへの変質過程は、スメクタイトの安定化トレンドをたどっているものと解釈できる。スメクタイトのダイバーシティは、系に与えられるアルカリ溶液の組成進化を表しているというよりも、一定のアルカリ溶液供給が多様な源岩（Si-Al 組成の違い）に対して行われた際に、生成しうるスメクタイト種を素直に反映しているものと考えられる。

このような Narra サイトでの環境条件でのスメクタイトの形成・進展は、図 4.3.7-1、図 4.3.7-2 のようにまとめることができる。

Mg, Fe に富む超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物では、高アルカリ地下水との相互作用により、苦鉄質鉱物や蛇紋石、緑泥石が溶解して、Mg, Fe, Si が溶解し、高アルカリ地下水中の Ca、少量の班れい岩由来の斜長石から溶出する Al によって、スメクタイトの前駆体となる M-S-H や F-S-H と C-S-H が沈殿する。Fe や Al も容易に取り込み、M-F-A-S-H のようなやや複雑な組成にもなりうる M-S-H から、(Mg) サポナイト、鉄サポナイト、スチープンサイト等の 3 八面体型のスメクタイトが生成し、さらに、Fe-rich の 3 八面体型スメクタイトの周囲では、より安定なノントロナイトが生成する。一方、C-S-H は数千年の時間スケールでジャイロライト等に一部結晶化したり、カルサイトに変化したりする。

Al に富む降下火山灰堆積物では、高アルカリ地下水との相互作用により、降下火山灰堆積物中の斜長石や火山ガラス、火山軽石（パミス）が一部溶解して、Al, Si が溶解し、高アルカリ地下水中の Ca、周囲の苦鉄質鉱物等から溶出する Mg, Fe によって、Al-rich などころでは 2 八面体型のバイデライト、Fe-rich などころでは超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物と同様にサポナイト等の 3 八面体型のスメクタイトが生成し、一部そのリムでノントロナイトが生成する。

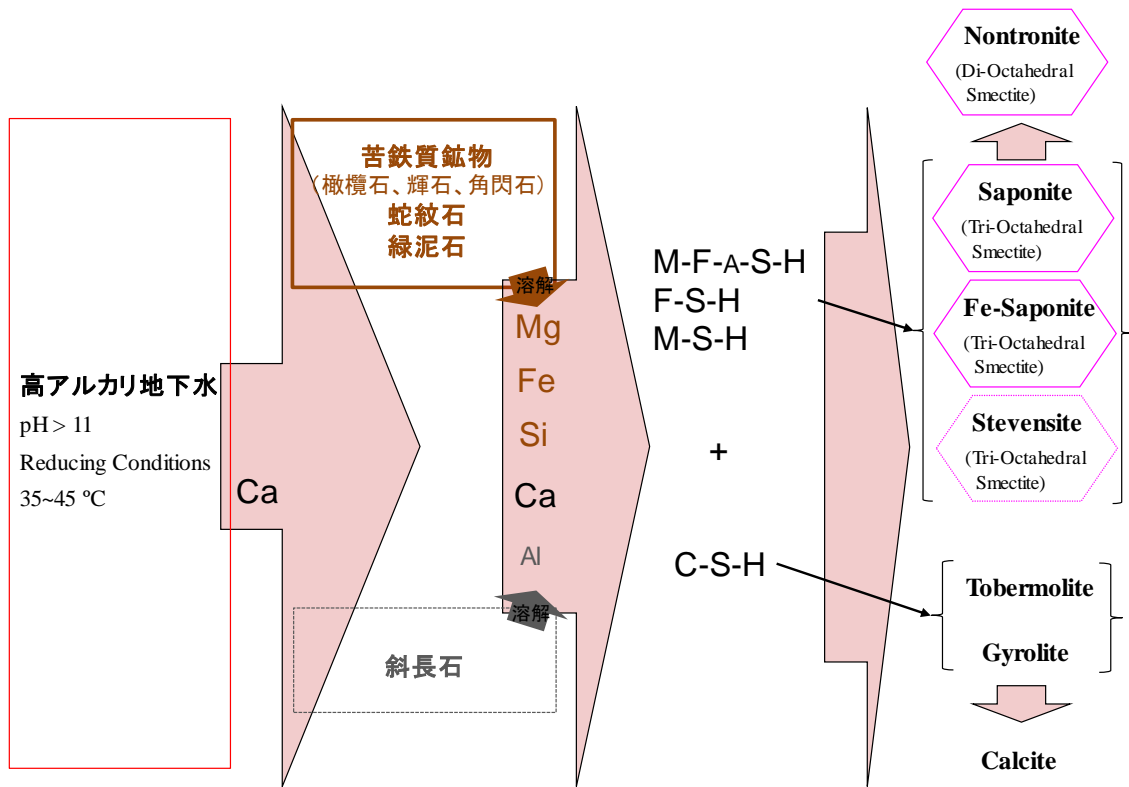


図 4.3.7-1 パラワン島 Narra 地区の Mg, Fe に富む超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物中のスメクタイト生成に係る鉱物変遷プロセス

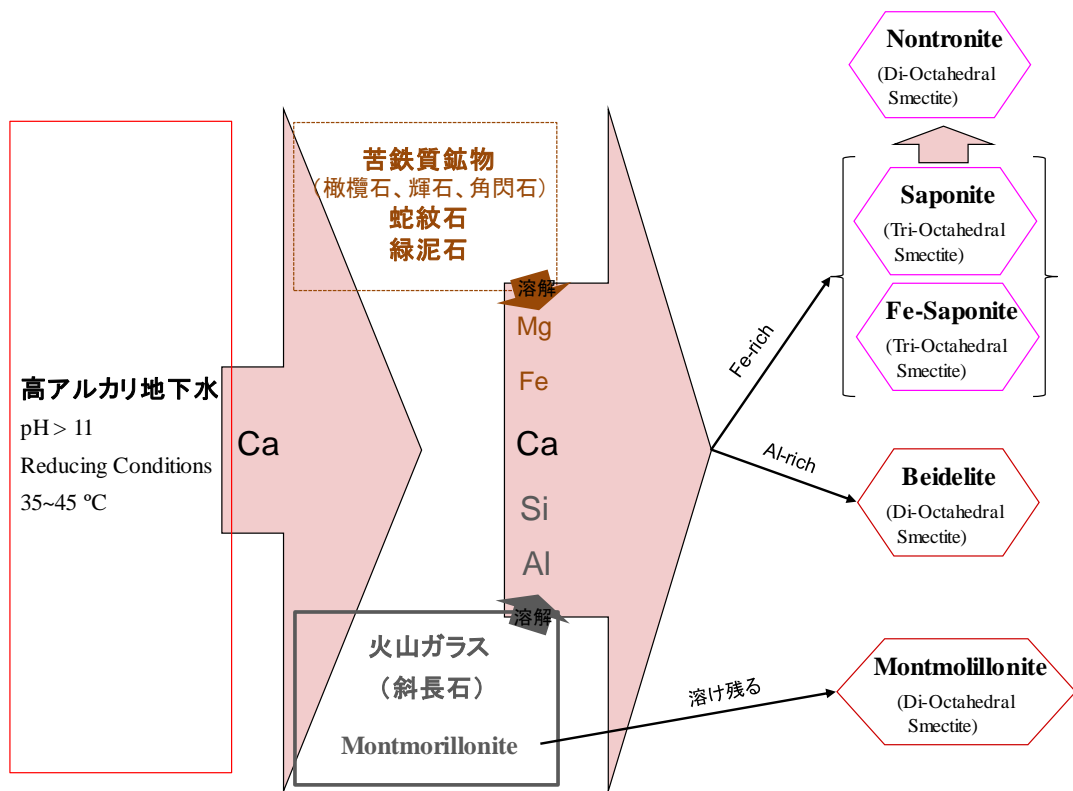


図 4.3.7-2 パラワン島 Narra 地区の Al に富む降下火山灰堆積物中のスメクタイト生成に係る鉱物変遷プロセス

#### 4.4 アルカリ地下水環境下でのスメクタイトの地球化学的・鉱物学的安定性と人工バリアのナチュラルアナログとしての知見

##### 4.4.1 アルカリ地下水環境下でのスメクタイト形成プロセスとその鉱物学的変遷モデル

Narra サイトにおけるパラワンオフィオライト（超苦鉄質複合岩体）のテクトニクス変遷過程で生じた定置後（陸化）の一連の風化作用で形成された碎屑性堆積物（層）に含有するスメクタイトの形成プロセスとその地球化学的な場の状態変化および、超苦鉄質複合岩体との水和反応（蛇紋岩化作用）により生成されたアルカリ地下水(pH > 11)環境下での新たなスメクタイト形成と既存スメクタイトの変質反応・進展プロセスを検討・考察し、その鉱物学的変遷モデル（変質パス）を示す。

#### [状態変遷とスメクタイトの形成・進展]

##### (1) 物理的風化プロセス（酸化状態）

ハルツバージャイト由来の蛇紋石（斜方輝石・かんらん石・単斜輝石等の前駆鉱物が蛇紋岩化作用により変質）の交代・置換による、(i)2 八面体型ノントロナイト、(ii)3 八面体型 Mg-(Fe) サポナイト (Mg-rich/Al-poor サポナイト) の生成

斑れい岩由来の斜長石（出発物質）の交代・置換による、(I)2 八面体型バイデライト(Al-rich/Mg-Poor)、(II)2 八面体型モンモリロナイト(Al-rich)の生成

##### (2) アルカリ地下水環境下プロセス（還元状態、発熱環境<40°C~100°C以下程度>）

超苦鉄質岩由来の出発物質（前駆鉱物<斜方輝石、かんらん石、単斜輝石、角閃石、スピネル等>と変質鉱物（低温蛇紋石化作用による蛇紋石、緑泥石化作用による緑泥石、物理的風化作用による Mg-rich スメクタイト<(i), (ii)>）及び少量の斑れい岩由来の斜長石と高アルカリ地下水との相互作用による変質反応（溶解・沈殿）による、(iii)3 八面体型 Mg-rich サポナイト、(iv) 3 八面体型鉄サポナイト、(v) 3 八面体型と 2 八面体型の中間構造であるサポナイト質ノントロナイト、(vi)3 八面体型スチーブンスサイト(Mg-rich/Al-free)の生成とアルカリ環境下での Mg-Fe rich スメクタイトの熟成（組成変化）による(vii) 2 八面体型ノントロナイトへの進展。

降下火山灰由来の出発物質（斜長石、火山ガラス、パミス）と変質鉱物（物理的風化作用による Al-rich スメクタイト<(I), (II)>）と高アルカリ地下水との相互作用による変質反応（溶解・沈殿）による、(III)2 八面体型バイデライト、(IV)3 八面体型サポナイトの生成、アルカリ環境下での Mg-Fe rich スメクタイトの熟成（組成変化）による(V) 2 八面体型ノントロナイトへの進展、(VI) 2 八面体型モンモリロナイトの溶解

これらの同定・観察・解析結果から、パラワンオフィオライト起源の碎屑性堆積物（層）や降下火山灰堆積物に含有されているスメクタイトの主要なアルカリ変質反応プロセスは、高アルカリ地下水による溶解・沈殿反応であり、(a)出発物質（主に苦鉄質鉱物、蛇紋石、緑泥石）の構造を保存した完全・部分的交代、反応縁、平行成長と、(b)碎屑粒子間の間隙、微小割れ目、劈開などの充填する形態でスメクタイトが生成する。

アルカリ地下水環境下プロセスと物理的風化プロセスでのスメクタイト化の度合いは、Fe, Mg に富む超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物では、モード分析等のスメクタイトの定量分析から、アルカリ地下水環境下プロセスの方がスメクタイト化の度合いが大きいといえる。

アルカリ地下水環境下でのスメクタイト生成過程について、Mg, Fe に富む超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物、Al に富む降下火山灰堆積物との比較では、スメクタイトの定量分析から、苦鉄質堆積物のほうがスメクタイトの度合いが大きい。一方、斑れい岩由来礫等からの Al はスメクタイト化を妨げず容易に 3 八面体型のサポナイト等に取り込まれること、降下火山灰堆積物では変質していない火山ガラスが多くみられることから、Al 成分の量比そのものがスメクタイト化に影響するということではなく、高アルカリ地下水と反応する堆積物中の主要鉱物の溶解の程度が、スメクタイト化の割合を律速していると考えられる。また、トレンチでの観察した岩質から、降下火山灰堆積物はアルカリ環境下でスメクタイト化が顕著でない一方、苦鉄質堆積物に比べて緻密で固結化がより進んでいるという特徴もある。

反応時間については、土壌試料（ヒューミン）の  $^{14}\text{C}$  年代から考察できる。高アルカリ地下水との直接の反応時間は炭酸塩の  $^{14}\text{C}$  年代から少なくとも 2,800 年程度であることは示されているが、碎屑性堆積物が堆積した時代からアルカリ地下水との相互作用あったと考えると、土壌試料（ヒューミン）の  $^{14}\text{C}$  年代である、トレンチ 2 ( $^{14}\text{C}$  年代: 2,413 $\pm$ 82 年)、トレンチ 7 ( $^{14}\text{C}$  年代: 4,516 $\pm$ 74 年)、トレンチ 3 ( $^{14}\text{C}$  年代: 9,721 $\pm$ 57 年) が高アルカリ地下水との相互作用期間と仮定できる。トレンチ 2 では空隙等を充填するスメクタイトと共生する C-S-H が多くみられことから、アルカリ環境下において、苦鉄質鉱物等溶解に伴い、Si と Mg, Fe との結合による M-S-H や F-S-H の形成と、アルカリ溶液からの Ca と Si との結合による C-S-H の形成は、高アルカリ地下水が浸出してそれほど時間を経ずに生じ、M-S-H や F-S-H は速やかにスメクタイト質に変化したものと考えられる。一方、XRD のトレンチ 2 のスメクタイトのピークはトレンチ 7 やトレンチ 3 よりもやや弱く、これは過渡期のスメクタイト化を示していると考えられる。従って、アルカリによる溶解を伴う変質反応により生じた沈殿は速やかにスメクタイト質になるが、より Si-rich な結晶質のスメクタイトに成長・進展する反応は、アルカリとの相互作用が始まって 2,400 年~4,500 年程度の長期の反応であることがいえる。

#### 4.4.2 処分環境とのアナログ性

TRU 廃棄物の地層処分場の人工バリアシステムには、構造躯体や容器内および容器間の充填材等に大量のセメント系材料の使用が考えられており、そのセメント系材料からの高アルカリ浸出水によるスメクタイトの溶解・変質によるベントナイトの不安定化が、緩衝材としての機能が期待される長期にわたりどの程度生じるのかということが本事業の大きな課題である。そのような長期の性能評価にナチュラルアナログを活用して現象理解を深め、長期評価モデルの向上ならびに直接的な証拠（ナチュラルアナログ）そのものによる説明性の向上を図ることを目的としている。

そのような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サイトの必要要件は、(A)ベントナイト層 (Sediment) あるいはスメクタイトを含有する粘土層、(B)高アルカリ地下水 (Fluid)、(C)高アルカリ地下水の経路となる断裂系 (Fracture) のすべてが存在する地質環境である。

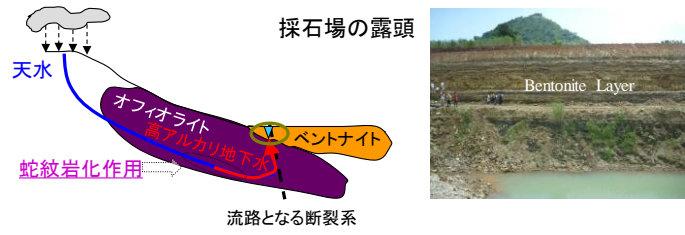
パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログサイトの地質環境のコンセプトは図 4.4.2-1 下であり、(C)オフィオライトの基盤岩の複数の亀裂を流路とする、(B)pH11 が超える高アルカリが、(A)スメクタイトを含有する粘土層に今現在も進出しており、このサイトでは前述したような高アルカリ地下水による様々な変質プロセスを確認している。このパラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログと図 4.4.2-1 上の Saile 鉱山のナチュラルアナログの地質環境のコンセプトと比較すると、高アルカリ地下水が作用する初生物質が Saile 鉱山ではベントナイトであるのに対して、パラワン島 Narra 地区ではスメクタイトを含むもののベントナイトそのものではないという点が大きく異なる。すなわち、Saile 鉱山では、ベントナイトと高アルカリ地下水の相互作用そのものを観察することができる、非常に単純明快な地質環境条件を有する、地層処分場の人工バリアシステムのナチュラルアナログだったのに対し、パラワン島 Narra 地区は、ベントナイトそのものの変質現象が観察されるサイトではないため、ベントナイトを構成要素とする TRU 廃棄物処分場の人工バリアでのアルカリ変質プロセスのナチュラルアナログといえる。

また、パラワン島 Narra 地区はオフィオライト起源の苦鉄質に富む地質環境であるが、実際の日本の処分環境においても、施工時の鉄部材の影響、海水からの流入、コロイドによる流入によって Fe, Mg に富む環境になる可能性もあるため、そのような環境条件での人工バリアでのアルカリ変質プロセスのナチュラルアナログということもできる。

ただし、後述するように、Narra 地区のアルカリ変質プロセスでは Saile 鉱山のアルカリ変質プロセスと共通するものも多いため、Narra 地区と Saile 鉱山を合わせて、TRU 地層処分場のベントナイトを構成要素とする人工バリアシステムのナチュラルアナログとして、フィリピンの高アルカリ環境での事例を示すことが可能である。



### Natural Analogue of Fossil Type in Saile Mine



### Natural Analogue of Active Type in Narra

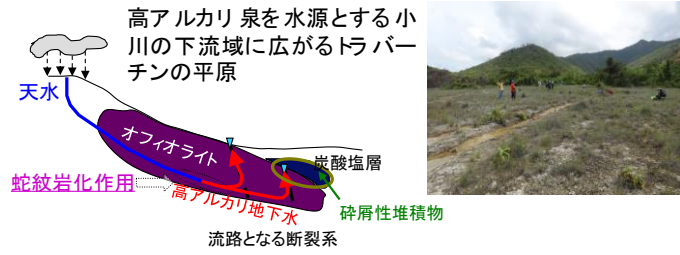


図 4.4.2-1 ナチュラルアナログサイトの地質環境のコンセプト

#### 4.4.3 人工バリアの長期健全性に係るナチュラルアナログの知見

これまでのパラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログ調査から得られた知見を以下のメッセージにまとめる。

- **高アルカリ溶液はスメクタイトを生成させる環境になりうる。**

TRU 廃棄物の地層処分場でのベントナイト-セメント相互作用での最も重要な反応は、ベントナイトの主要粘土鉱物であるスメクタイト（2 八面体型のモンモリロナイト）の高アルカリ溶液による溶解・変質である。しかしながら、Narra 地区のサイトでは、高アルカリ環境(pH > 11)がスメクタイト（Mg, Fe に富むスメクタイト（3 八面体型のサポナイト、2 八面体型のノントロナイト等））を生成する環境でもあることを示している。もちろん、このようなスメクタイトが生成する高アルカリ環境では、スメクタイトが長期にわたり安定に存在する。

このキーとなるのは Mg, Fe の存在であり、GWB (Geochemist's WorkBench) による地球化学計算でも、Narra 地区の地下水環境ではサポナイトが安定相と評価された。この高アルカリがサポナイトを生成するという環境は、このようなフィリピンの苦鉄質鉱物に富み高アルカリ地下水が浸出する極めて特殊なパラワン島 Narra 地区に限ったものではなく、国内の地質環境にも当たり前に存在する Mg, Fe が高アルカリに溶出すると、高アルカリ溶液による変質鉱物がスメクタイトになることは十分ありうる話である。実際、ルソン島のベントナイトではサポナイトが生成している。また、セメント浸出水の安定相図から、高アルカリ条件で Mg<sup>2+</sup>の活量が上がるとサポナイトの安定領域になることを確認している。

- **Fe, Mg に富む高アルカリ環境での二次鉱物はゼオライトではなくスメクタイトである。**

前述したメッセージと重なる点でもあるが、Narra 地区の地下水環境はこのキーとなるのは Mg, Fe の存在であり、地球化学計算からサポナイトが安定相であり、実際に Narra 地区のアルカリ環境下の堆積物中にはゼオライトはほとんど存在せず、アルカリ変質によって生成したスメクタイトは主に 3 八面体型のサポナイトである。アルカリ変質反応でキーとなるのは Si の挙動であり、Fe, Mg に富む高アルカリ環境では、Si は、アルカリに取り込まれてゼオライトが生成するのではなく、Fe, Mg と結びついて前駆体となる M-S-H や F-S-H 等で沈殿し、それらが (Mg) サポナイト、鉄サポナイト、スチーブンスサイト等の 3 八面体型のスメクタイトが生成する。降下火山灰堆積物でも、Al-rich などところでは、2 八面体型のバイデライトも生成するが、サポナイトの生成のほうが多い。

実際には、M-S-H は Fe や Al も容易に取り込み、M-F-A-S-H のようなやや複雑な組成のものができると思われる。M-S-H については、熱力学データ等も整備されつつあるが、F-S-H (特に Fe<sup>2+</sup>のデータ) は実験的に難しい点もあるためほとんど取られておらず、当然このサイトでみられるような M-F-A-S-H の評価は現状ではできないため、現実的なアルカリ変質の解析のためにこれらの熱力学データの取得が課題である。

- 高アルカリ環境でのスメクタイト質の M-S-H の生成は速やかに生じるが、スメクタイトの結晶化は 2,400~4,500 年程度の長期にわたる反応である。

Narra 地区の苦鉄質の堆積物中で生成するスメクタイトには C-S-H と共生している産状が多くみられる。アルカリ溶液からの Ca と Si との結合による C-S-H の形成は、高アルカリ地下水が浸出してそれほど時間を経ずに生じ、M-S-H や F-S-H は速やかにスメクタイト質に変化したものと考えられる。Mg 鉱物への変質プロセスでは、M-S-H の生成（沈殿）速度ではなく、高アルカリ溶液と反応する出発物質の溶解速度に律速すると考えられる。ただし、そのようなアルカリとの相互作用により生成した M-S-H や F-S-H は時間をそれほど経ずにスメクタイト質に変化するが、堆積年代の異なるトレンチの碎屑性堆積物のスメクタイトのピーク強度の差から、アルカリとの相互作用が始まって 2,400 年~4,500 年程度の長期の時間を経て、より Si-rich な結晶質のスメクタイトに成長・進展する。

- ベントナイトは高アルカリ溶液で一部変質するかもしれないが、概ね、長期間健全である（緩衝材としての機能が損なわれない）。

パラワン島 Narra 地区のサイトではスメクタイトのアルカリ変質プロセスを直接観察できるナチュラルアナログサイトであるが、ここで主にみられるスメクタイトは、サポナイト、ノントロナイト、スチープンサイトといった Fe と Mg 成分に富むスメクタイトであることである。処分場の変質プロセスを考えた場合、珪長質成分に富むモンモリロナイトや随伴鉱物で構成されるベントナイトのアルカリ変質で、当ナチュラルアナログサイトで観察される Fe, Mg 成分に富むスメクタイト現実的に生成するののかという点を考慮しなければならない。

ここで、改めてルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログにおけるアルカリ変質プロセスについて説明する。このサイトでは（Ca 型モンモリロナイトを主要鉱物とする）Ca 型ベントナイトに基盤岩（玄武岩質枕状溶岩）の亀裂を流路とする pH11 程度の高アルカリ地下水が接触し、枕状溶岩-ベントナイト界面で 5mm 程度のベントナイトのアルカリ変質が確認された。この微小の変質領域でのアルカリ変質による二次鉱物を同定しており、界面付近の玄武岩ガラスの溶解に伴い溶出した 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 型モンモリロナイト）し、一部は溶解反応を伴い鉄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である。

この Saile 鉱山でのアルカリ変質プロセスと現状までの知見で得られたパラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログのアルカリ変質プロセスを合わせて図 4.4.3-1 に示す（図 4.4.3-1 の青点線より上が Saile 鉱山、赤点線より下（及びノントロナイトと方解石の生成）が Narra 地区の反応プロセス）。ここでまず着目されるのは、モンモリロナイトを含むベントナイトのアルカリ変質反応において、Fe イオンの影響を強く受け、Fe を含むスメクタイト等の鉄粘土鉱物が二次鉱物として生成されることである。鉄を含むスメクタイト（3 八面体型サポナイトや 2 八面体型ノントロナイト）については、Saile 鉱山では、Ca 型モンモリロナイトのアルカリ溶液への溶解・沈殿反応により、玄武岩ガラス等から供給される Fe<sup>2+</sup>を使って鉄を含むスメクタイトが生成しているのに対し、Narra 地区では、アルカリ溶液に超塩基性岩起源の碎屑物中の前駆鉱物（初生苦鉄

質鉱物と蛇紋石・緑泥石の変質鉱物)の溶解によって供給される Mg, Fe, Al, Si が過飽和になり、C-S-H を伴って、サポナイト等の Mg-Fe rich スメクタイトが生成し、それらの一部から 2 八面体型ノントロナイトが生成 (進展) する。

すなわち、Narra 地区でのアルカリ溶液から鉄を含むスメクタイトが生成するプロセスは、Saile 鉱山のアルカリ変質プロセスと共通しており、アルカリによって Fe を含むスメクタイトが生成するプロセスはベントナイト-アルカリ相互作用でも生じる可能性が高いと考えられる。その場合は、Saile 鉱山のナチュラルアナログが示すように、アルカリ変質反応に伴い生成した鉄を含むスメクタイトのクロッキング (空隙閉塞) が物質移行を抑制し、それによって変質反応が抑制されることが期待できる。

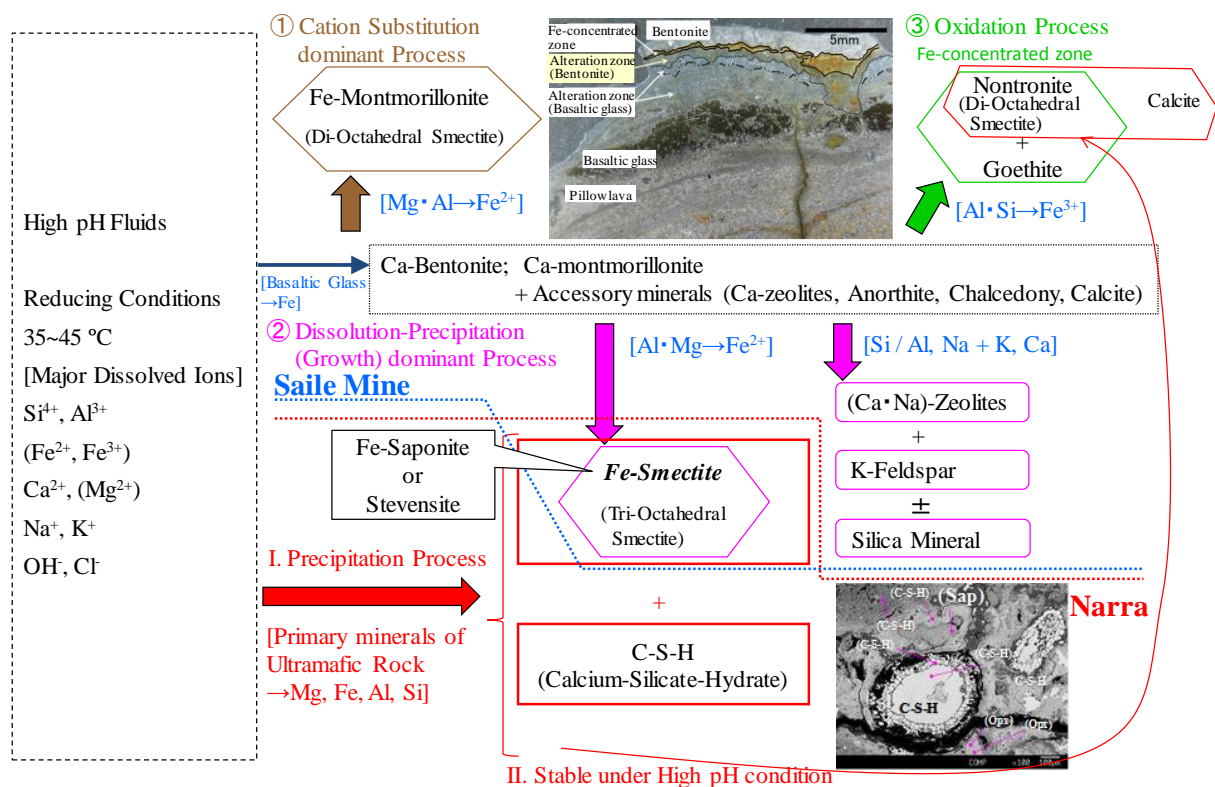


図 4.4.3-1 フィリピンナチュラルアナログのアルカリ変質プロセス (ルソン島 Saile 鉱山の NA とパラワン島 Narra 地区の NA の比較)

TRU 廃棄物の処分環境を考えた場合 (図 4.4.3-2 参照)、高 pH での鉄の溶解度は低く、鉄筋コンクリートや鉄製容器のようなベントナイトと直接接していない部材からの鉄の供給によるアルカリ変質は、それほど顕著に起きないと想定できる。しかしながら、施工時には様々な鉄部材が処分場に持ち込まれ、酸化環境での鉄部材の影響が緩衝材に残ったり、あるいは海水環境における Fe, Mg イオンの流入、コロイドによる Fe イオンの流入等が生じたりすることが想定され、Narra 地区や Saile 鉱山でみられる Mg, Fe, Al, Si に過飽和なアルカリ溶液による変質反応が、TRU 廃棄物処分場のベントナイト緩衝材においても生じる可能性は十分ある。

従って、そのような処分場のアルカリ環境は、スメクタイトを生成する環境でもあるため、高アルカリ浸出水によりモンモリロナイトの溶解・変質が生じても、スメクタイトが生成することで、緩衝材中のスメクタイト含有量の大幅な低下は見込まれず、緩衝材の膨潤性や収着性といった機能の低下・喪失が引き起こされるほどのベントナイトの変質が生じる可能性は低いといえる。

ただし、Fe, Mg が少ない環境でのベントナイトのアルカリ変質については、このナチュラルアナログは直接の証拠とはならない。このような環境では、室内実験で見られるように、アルカリ環境下で生成する安定相はスメクタイトでなく沸石であるかもしれない。ただし、その場合でも処分場と同様の圧密条件では、Fe, Mg があるフィリピンのナチュラルアナログと同様に、界面でのクロッキングにより見かけ上変質が進んでいない現象もみられている。生成する二次鉱物の種類に係る化学的な条件と反応に係る物質移行に係る物理的な条件との組み合わせが界面のクロッキングの生成条件になると考えられるが、その（二次鉱物が空隙をクロッキングする）生成プロセスは明らかでないため、その解明が実験、ナチュラルアナログ両方の残された課題である。

高アルカリがスメクタイトを生成する環境は危険側になるのではなく、むしろベントナイト緩衝材にとって好ましい環境であるため、処分場の成立性を左右する課題とはならないが、一方で、これまでの一部のアルカリ変質の評価では、室内実験等の外装から過度に保守的な評価をされていたことも否めない。より現実的な評価により、ベントナイトの長期健全性を示すことも必要である。

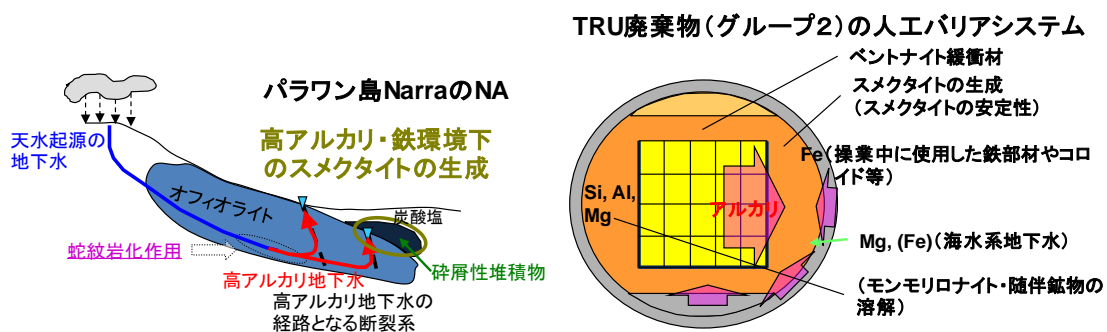


図 4.4.3-2 パラワン島 Narra 地区の天然現象の TRU 廃棄物人工バリアにおけるアナログ性

- 高アルカリ環境でも（火山）ガラスは 4,500 年程度では一部しか変質せず、未変質のまま残存するものが多い。

Narra 地区のアルカリ環境下の Al に富む降下火山灰堆積物では、超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物に比べるとスメクタイト化が進んでいない。高アルカリ環境下におけるスメクタイト化は出発物質の溶解速度に律速しており、降下火山灰堆積物の顕微鏡観察では、多くの鉱物片サイズの火山ガラスが未変質のまま残存し、基質の鉱物も変質した年度鉱物は 3 割程度で、半数は火山ガラスのままであることを確認している。高アルカリ環境下で火山ガラスの溶解が進まない理由は現状まだ明らかでないが、既に変質して粘土化したスメクタイト等の変質鉱物が溶解を妨げている可能性が考えられる。これは、降下火山灰の堆積過程生成したモンモリロナイトが比較的流量のあるアルカリ環境下でも残存していることでも、変質鉱物が溶解・変質妨げると同じ理由



であるかもしれない。また、トレンチのサンプリング時に岩質の違いが明確に体感しており、火山ガラスを含む降下火山灰堆積物は苦鉄質堆積物に比べて緻密で固結化がより進んでいるという特徴もあった。

パラワン島の地質関連の既存論文では、このような降下火山灰堆積物の記載がみられず、予想外の成果であった。そのため、現地において降下火山灰堆積物と認識できなかったため、十分なサンプリングができていない。この降下火山灰堆積物のサンプリングし、さらに分析データを追加することで、本研究の趣旨ではないが、高レベル放射性廃棄物のガラス固化体のナチュラルアナログとなる、アルカリ環境下の（火山）ガラス溶解の知見、特に、なぜ溶解が制限されているかについての現象理解が深まるとともに、ベントナイトのアナログにより近いモンモリロナイトのアルカリ環境下での長期安定性に関わる知見も得られる可能性が高い。

## 4.5 まとめ

### 4.5.1 ナチュラルアナログ試料の鉱物組成及び組織に関する分析・観察

Narra 地区のトレンチ及びストリップングから採取したスメクタイトがみられる碎屑性堆積物について、バルク分析や顕微鏡観察の結果から分類できる、アルカリ環境下にある①ハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物と②（トレンチ 7 底部の）降下火山灰堆積物、アルカリとの相互作用のない物理的風化環境下の③（ストリップングの）蛇紋岩碎屑性堆積物、④（トレンチ 8 の）班れい岩質碎屑性堆積物を対象に実施した EPMA による観察・分析から、スメクタイトの形成・進展プロセスに係るスメクタイトの組成・共生関係・組織・構造について以下の知見が得られた。

スメクタイトの源岩となる岩石タイプの分類から、高アルカリ地下水との相互作用のない風化された堆積物のスメクタイトは、Ca が非常に少なく、これらはそれぞれノントロナイトとバイデライトに分類される。バイデライトは降下火山灰堆積物試料にも認められるが、これには Ca が含まれている。したがって、アルカリとの相互作用により Ca がスメクタイトに供給されていると考えられる。

スメクタイトの Al 組成については、バイデライトが主である班れい岩起源の風化された堆積物は明らかにその含有量が多い。一方で、トレンチ 5 の超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物でも班れい岩起源の層内礫層の影響で比較的 Al 成分が多く、アルカリ相互作用により生成したサポナイトにも Al が取り込まれている。降下火山灰堆積物では Al 含有量の差が大きく、源岩の組成を反映した Al を含むバイデライトと Al の少ないサポナイトが共存していると考えられる。また、Narra の堆積物中のスメクタイトについては、Al と Cr、Al と Fe、Si には負の相関がある。

Si-Al-(Fe+Mg)の3成分三角プロットから、Fe、Mg に富むサポナイト、ノントロナイト、スチープンサイト組成のスメクタイトが多く、特に超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物中のスメクタイトはほとんどがこのような組成のスメクタイトである。EPMA の産状観察結果も考慮すると、Narra の高アルカリ環境では、サポナイトあるいは鉄サポナイトが主として生成し、条件によって一部ノントロナイトやスチープンサイトが生成していると考えられる。それに対して、Al に富む班れい岩質堆積物と降下火山灰堆積物では、Fe、Mg に富むサポナイトに分類されるスメクタイトがある一方で、モンモリロナイトやバイデライトに分類される Al に富むスメクタイトも多くみられる。

八面体イオンの総数のヒストグラムから、Al-poor な環境でのスメクタイトは 2 八面体型と 3 八面体型の中間組成のスメクタイトが多いのに対して、Al-rich な環境では 2 八面体型のスメクタイトと 3 八面体型のスメクタイトと明確に区別されるスメクタイトが多いことがわかる。

降下火山灰堆積物では、ベントナイトの主要粘土鉱物であるモンモリロナイトが同定された。2 八面体型のモンモリロナイトはアルカリ環境下で一部は溶解していると考えられるが、処分環境よりもはるかに移流による物質移動が大きいパラワンの環境でも、数千年にわたりアルカリ環境下で残存している。一方で周囲に苦鉄質鉱物が存在するアルカリ環境下で Fe、Mg に富むサポナイト化も見られが、苦鉄質の堆積物に比べると、その程度は小さい。

#### 4.5.2 スメクタイトの形成環境と形成プロセス

ナチュラルアナログサイトであるパラワン島 Narra 地区のスメクタイトの形成環境と変質反応プロセスは、物理的風化環境と、アルカリ地下水環境に区別される。

物理的風化環境下でのスメクタイトの形成環境と変質反応プロセスについては、苦鉄質鉱物を主成分とする砕屑性堆積物の地球化学的環境下(Mg-Fe-rich, Al-free)でのスメクタイト形成プロセスとしては、前駆鉱物とこのような溶液との相互作用により、2八面体型のスメクタイト(ノントロナイト)と3八面体型でAl-poorなMg-Feスメクタイト(サポナイト)が初生鉱物である。その後、Fe-richなサポナイトへ鉱物学的な組成変化(変換)をする。一方、珪長質鉱物と少量な苦鉄質鉱物を主成分とする砕屑性堆積物の地球化学的環境下(Al-Si-rich)でのスメクタイトの形成は、2八面体型のAl-richでMg-poorなスメクタイト(バイデライト)と苦鉄質鉱物を交代して生成した3八面体型スメクタイト(サポナイト)である。

アルカリ地下水環境下でのスメクタイトの形成環境と変質反応プロセスについては、Mg, Feに富む超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物では、高アルカリ地下水との相互作用により、苦鉄質鉱物や蛇紋石、緑泥石が溶解して、Mg, Fe, Siが溶解し、高アルカリ地下水中のCa、少量の斑れい岩由来の斜長石から溶出するAlによって、スメクタイトの前駆体となるM-S-HやF-S-HとC-S-Hが沈殿する。FeやAlも容易に取り込み、M-F-A-S-Hのようなやや複雑な組成にもなりうるM-S-Hから、(Mg)サポナイト、鉄サポナイト、スチーブンスサイト等の3八面体型のスメクタイトが生成し、さらに、Fe-richの3八面体型スメクタイトの周囲では、より安定なノントロナイトが生成する。一方、C-S-Hは数千年の時間スケールでジャイロライト等に一部結晶化したり、カルサイトに变化したりする。Alに富む降下火山灰堆積物では、高アルカリ地下水との相互作用により、降下火山灰堆積物中の斜長石や火山ガラス、火山軽石(パミス)が一部溶解して、Al, Siが溶解し、高アルカリ地下水中のCa、周囲の苦鉄質鉱物等から溶出するMg, Feによって、Al-richなところでは2八面体型のバイデライト、Fe-richなところでは超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物と同様にサポナイト等の3八面体型のスメクタイトが生成し、一部そのリムでノントロナイトが生成する。

アルカリ地下水環境下でのスメクタイト生成過程について、Mg, Feに富む超苦鉄質岩起源の砕屑性堆積物、Alに富む降下火山灰堆積物との比較では、スメクタイトの定量分析から、苦鉄質堆積物のほうがスメクタイトの割合が大きい。一方、斑れい岩由来礫等からのAlはスメクタイト化を妨げず容易に3八面体型のサポナイト等に取り込まれること、降下火山灰堆積物では変質していない火山ガラスが多くみられることから、Al成分の量比そのものがスメクタイト化に影響するというのではなく、高アルカリ地下水との相互作用により堆積物中の主要鉱物の溶解の程度が、スメクタイト化の割合を律速していると考えられる。また、トレンチでの観察した岩質から、降下火山灰堆積物はアルカリ環境下でスメクタイト化が顕著でない一方、苦鉄質堆積物に比べて緻密で固結化がより進んでいるという特徴もある。

反応時間については、土壌試料(ヒューミン)の<sup>14</sup>C年代から考察できる。高アルカリ地下水との直接の反応時間は炭酸塩の<sup>14</sup>C年代から少なくとも2,800年程度であることは示されているが、砕屑性堆積物が堆積した時代からアルカリ地下水との相互作用あったと考えると、土壌試料

(ヒューミン) の  $^{14}\text{C}$  年代である、トレンチ 2 ( $^{14}\text{C}$  年代:  $2,413 \pm 82$  年)、トレンチ 7 ( $^{14}\text{C}$  年代:  $4,516 \pm 74$  年)、トレンチ 3 ( $^{14}\text{C}$  年代:  $9,721 \pm 57$  年) が高アルカリ地下水との相互作用期間と仮定できる。トレンチ 2 では空隙等を充填するスメクタイトと共生する C-S-H が多くみられことから、アルカリ環境下において、苦鉄質鉱物等溶解に伴い、Si と Mg、Fe との結合による M-S-H や F-S-H の形成と、アルカリ溶液からの Ca と Si との結合による C-S-H の形成は、高アルカリ地下水が浸出してそれほど時間を経ずに生じ、M-S-H や F-S-H は速やかにスメクタイト質に変化したものと考えられる。一方、XRD のトレンチ 2 のスメクタイトのピークはトレンチ 7 やトレンチ 3 よりもやや弱く、これは過渡期のスメクタイト化を示していると考えられる。従って、アルカリによる溶解を伴う変質反応により生じた沈殿は速やかにスメクタイト質になるが、より Si-rich な結晶質のスメクタイトに成長・進展する反応は、アルカリとの相互作用が始まって 2,400 年~4,500 年程度の長期の反応であることがいえる。

#### 4.5.3 人工バリアの長期健全性に係るナチュラルアナログの知見

- **高アルカリ溶液はスメクタイトを生成させる環境になりうる。**

TRU 廃棄物の地層処分場でのベントナイト-セメント相互作用での最も重要な反応は、ベントナイトの主要粘土鉱物であるスメクタイト（2 八面体型のモンモリロナイト）の高アルカリ溶液による溶解・変質である。しかしながら、Narra 地区のサイトでは、高アルカリ環境(pH > 11)がスメクタイト（Mg, Fe に富むスメクタイト（3 八面体型のサポナイト、2 八面体型のノントロナイト等））を生成する環境でもあることを示している。もちろん、このようなスメクタイトが生成する高アルカリ環境では、スメクタイトが長期にわたり安定に存在する。

このキーとなるのは Mg, Fe の存在であり、GWB (Geochemist's WorkBench) による地球化学計算でも、Narra 地区の地下水環境ではサポナイトが安定相と評価された。この高アルカリがサポナイトを生成するという環境は、このようなフィリピン島の苦鉄質鉱物に富み高アルカリ地下水が浸出する極めて特殊なパラワン島 Narra 地区に限ったものではなく、国内の地質環境にも当たり前に存在する Mg, Fe が高アルカリに溶出すると、高アルカリ溶液による変質鉱物がスメクタイトになることは十分ありうる話である。実際、ルソン島のベントナイトではサポナイトが生成している。また、セメント浸出水の安定相図から、高アルカリ条件で Mg<sup>2+</sup>の活量が上がるとサポナイトの安定領域になることを確認している。

- **Fe, Mg に富む高アルカリ環境での二次鉱物はゼオライトではなくスメクタイトである。**

前述したメッセージと重なる点でもあるが、Narra 地区の地下水環境はこのキーとなるのは Mg, Fe の存在であり、地球化学計算からサポナイトが安定相であり、実際に Narra 地区のアルカリ環境下の堆積物中にはゼオライトはほとんど存在せず、アルカリ変質によって生成したスメクタイトは主に 3 八面体型のサポナイトである。アルカリ変質反応でキーとなるのは Si の挙動であり、Fe, Mg に富む高アルカリ環境では、Si は、アルカリに取り込まれてゼオライトが生成するのではなく、Fe, Mg と結びついて前駆体となる M-S-H や F-S-H 等で沈殿し、それらが (Mg) サポナイト、鉄サポナイト、スチープンサイト等の 3 八面体型のスメクタイトが生成する。降下火山灰堆積物でも、Al-rich などところでは、2 八面体型のバイデライトも生成するが、サポナイトの生成のほうが多い。

実際には、M-S-H は Fe や Al も容易に取り込み、M-F-A-S-H のようなやや複雑な組成のものができるとみられる。

- **高アルカリ環境でのスメクタイト質の M-S-H の生成は速やかに生じるが、スメクタイトの結晶化は 2,400~4,500 年程度の長期にわたる反応である。**

Narra 地区の苦鉄質の堆積物中で生成するスメクタイトには C-S-H と共生している産状が多くみられる。アルカリ溶液からの Ca と Si との結合による C-S-H の形成は、高アルカリ地下水が浸出してそれほど時間を経ずに生じ、M-S-H や F-S-H は速やかにスメクタイト質に変化したものと考えられる。Mg 鉱物への変質プロセスでは、M-S-H の生成（沈殿）速度ではなく、高アルカリ溶液と反応する出発物質の溶解速度に律速すると考えられる。ただし、そのようなアルカリと



の相互作用により生成した M-S-H や F-S-H は時間をそれほど経ずにスメクタイト質に変化するが、堆積年代の異なるトレンチの碎屑性堆積物のスメクタイトのピーク強度の差から、アルカリとの相互作用が始まって 2,400 年～4,500 年程度の長期の時間を経て、より Si-rich な結晶質のスメクタイトに成長・進展する。

- ベントナイトは高アルカリ溶液で一部変質するかもしれないが、概ね、長期間健全である（緩衝材としての機能が損なわれない）。

パラワン島 Narra 地区のサイトではスメクタイトのアルカリ変質プロセスを直接観察できるナチュラルアナログサイトであるが、ここで主にみられるスメクタイトは、サポナイト、ノントロナイト、スチープンサイトといった Fe と Mg 成分に富むスメクタイトであることである。処分場の変質プロセスを考えた場合、珪長質成分に富むモンモリロナイトや随伴鉱物で構成されるベントナイトのアルカリ変質で、当ナチュラルアナログサイトで観察される Fe, Mg 成分に富むスメクタイト現実的に生成するののかという点を考慮しなければならない。

ルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログサイトでは（Ca 型モンモリロナイトを主要鉱物とする）Ca 型ベントナイトに基盤岩（玄武岩質枕状溶岩）の亀裂を流路とする pH11 程度の高アルカリ地下水が接触し、枕状溶岩－ベントナイト界面で 5mm 程度のベントナイトのアルカリ変質が確認された。この微小の変質領域でのアルカリ変質による二次鉱物を同定しており、界面付近の玄武岩ガラスの溶解に伴い溶出した 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 型モンモリロナイト）し、一部は溶解反応を伴い鉄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である。

この Saile 鉱山でのアルカリ変質プロセスでまず着目されるのは、モンモリロナイトを含むベントナイトのアルカリ変質反応において、Fe イオンの影響を強く受け、Fe を含むスメクタイト等の鉄粘土鉱物が二次鉱物として生成されることである。鉄を含むスメクタイト（3 八面体型サポナイトや 2 八面体型ノントロナイト）については、Saile 鉱山では、Ca 型モンモリロナイトのアルカリ溶液への溶解・沈殿反応により、玄武岩ガラス等から供給される Fe<sup>2+</sup>を使って鉄を含むスメクタイトが生成しているのに対し、Narra 地区では、アルカリ溶液に超塩基性岩起源の碎屑物中の前駆鉱物（初生苦鉄質鉱物と蛇紋石・緑泥石の変質鉱物）の溶解によって供給される Mg, Fe, Al, Si が過飽和になり、C-S-H を伴って、サポナイト等の Mg-Fe rich スメクタイトが生成し、それらの一部から 2 八面体型ノントロナイトが生成（進展）する。

すなわち、Narra 地区でのアルカリ溶液から鉄を含むスメクタイトが生成するプロセスは、Saile 鉱山のアルカリ変質プロセスと共通しており、アルカリによって Fe を含むスメクタイトが生成するプロセスはベントナイト－アルカリ相互作用でも生じる可能性が高いと考えられる。その場合は、Saile 鉱山のナチュラルアナログが示すように、アルカリ変質反応に伴い生成した鉄を含むスメクタイトのクロッキング（空隙閉塞）が物質移行を抑制し、それによって変質反応が抑制されることが期待できる。

TRU 廃棄物の処分環境を考えた場合、高 pH での鉄の溶解度は低く、鉄筋コンクリートや鉄製容器のようなベントナイトと直接接していない部材からの鉄の供給によるアルカリ変質は、それ

ほど顕著に起きないと想定できる。しかしながら、施工時には様々な鉄部材が処分場に持ち込まれ、酸化環境での鉄部材の影響が緩衝材に残ったり、あるいは海水環境における Fe, Mg イオンの流入、コロイドによる Fe イオンの流入等が生じたりすることが想定され、Narra 地区や Saile 鉱山でみられる Mg, Fe, Al, Si に過飽和なアルカリ溶液による変質反応が、TRU 廃棄物処分場のベントナイト緩衝材においても生じる可能性は十分ある。

従って、そのような処分場のアルカリ環境は、スメクタイトを生成する環境でもあるため、高アルカリ浸出水によりモンモリロナイトの溶解・変質が生じても、スメクタイトが生成することで、緩衝材中のスメクタイト含有量の大幅な低下は見込まれず、緩衝材の膨潤性や収着性といった機能の低下・喪失が引き起こされるほどのベントナイトの変質が生じる可能性は低いといえる。

ただし、Fe, Mg が少ない環境でのベントナイトのアルカリ変質については、このナチュラルアナログは直接の証拠とはならない。このような環境では、室内実験で見られるように、アルカリ環境下で生成する安定相はスメクタイトでなく沸石であるかもしれない。ただし、その場合でも処分場と同様の圧密条件では、Fe, Mg があるフィリピンのナチュラルアナログと同様に、界面でのクロッキングにより見かけ上変質が進んでいない現象もみられている。生成する二次鉱物の種類に係る化学的な条件と反応に係る物質移行に係る物理的な条件との組み合わせが界面のクロッキングの生成条件になると考えられるが、その（二次鉱物が空隙をクロッキングする）生成プロセスは明らかでないため、その解明が実験、ナチュラルアナログ両方の残された課題である。

高アルカリがスメクタイトを生成する環境は危険側になるのではなく、むしろベントナイト緩衝材にとって好ましい環境であるため、処分場の成立性を左右する課題とはならないが、一方で、これまでの一部のアルカリ変質の評価では、室内実験等の外装から過度に保守的な評価をされていたことも否めない。より現実的な評価により、ベントナイトの長期健全性を示すことも必要である。

- **高アルカリ環境でも（火山）ガラスは 4,500 年程度では一部しか変質せず、未変質のまま残存するものが多い。**

Narra 地区のアルカリ環境下の Al に富む降下火山灰堆積物では、超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物に比べるとスメクタイト化が進んでいない。高アルカリ環境下におけるスメクタイト化は出発物質の溶解速度に律速しており、降下火山灰堆積物の顕微鏡観察では、多くの鉱物片サイズの火山ガラスが未変質のまま残存し、基質の鉱物も変質した年度鉱物は 3 割程度で、半数は火山ガラスのままであることを確認している。高アルカリ環境下で火山ガラスの溶解が進まない理由は現状まだ明らかでないが、既に変質して粘土化したスメクタイト等の変質鉱物が溶解を妨げている可能性が考えられる。これは、降下火山灰の堆積過程生成したモンモリロナイトが比較的流量のあるアルカリ環境下でも残存していることでも、変質鉱物が溶解・変質妨げるという同じ理由であるかもしれない。また、トレンチのサンプリング時に岩質の違いが明確に体感しており、火山ガラスを含む降下火山灰堆積物は苦鉄質堆積物に比べて緻密で固結化がより進んでいるという特徴もあった。

[参考文献]

- [1] (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター:平成27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)ーナチュラルアナログ調査ー(2016).
- [2] (公財)原子力環境整備促進・資金管理センター:平成28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)ーナチュラルアナログ調査ー(2017).
- [3] Aurelio, M.A. and Pena, R.E., (Eds.): *Geology of the Philippines Tectonics and Stratigraphy*, second ed., vol.1, Mines and Geosciences Bureau, Department of Environment and Natural Resources, Quezon City, Philippines (2010).
- [4] Aurelio, M.A., Franke, D., Savva, D. and Steur, S.: Middle to Late Cenozoic tectonic events in South and central Palawan (Philippines) and their implications to the evolution of the south-eastern margin of south China sea: Evidence. *Marine and Petroleum Geology*, p1-16 (2013).
- [5] Noack, Y., Colin, F., Nahon, D., Delvigne, J. and Michaux, L.: Secondary-Mineral Formation during Natural Weathering of Pyroxene: Review and Thermodynamic Approach. *Amer. Jour. of Science*, **293**, 111-134 (1993).
- [6] Wilson, M. J.: Soil Smectites and related Interstratified Minerals: Recent Developments. In proceedings of the International Clay Conference, Denver, 167-173 (1987).
- [7] Wilson, M.J.: Weathering of the primary rock - forming minerals: Processes, products and rates. *Clay Minerals*, **39**, 233-266 (2004).
- [8] Lesovaya, S.N, Goryachkin, S.V. and Polekhovki, Y.S.: Soil Formation and weathering on Ultramafic Rocks in the Mountainous Tundra of the Rai - Iz massif. *Polar Ural Eurasian Soil Science*. **45** (1), 33-44 (2012).
- [9] Forbes, M.T., Mapaye, C.B. and Baculd, J.A.: Structural characterization of off-shore Southwest Palawan, Philippines using the most recent 2D / 3D seismic data. In Proceedings of Southeast Asia Petroleum Exploration (SEAPEX) Meeting, Manila, Philippines, 6 April (2011).
- [10] Klopogge, J.T., Komarneni, S. and Amonette, J.E.: Synthesis of Smectite Clay Minerals: Critical Review. *Clays and Clay Minerals*, **47** (5), 529-554 (1999).
- [11] Eggleton, R.A.: The relationships between crystal structure and silicate weathering rates, in Colman, S.M. and Dethier, D.P., editors, *Rates of Chemical weathering of rocks and minerals*: Orlando, Florida, Academic Press Incorporated, 21-40 (1986).
- [12] Smith, W.W.: Weathering in some Scottish basic igneous rocks with reference to soil formation. *Sol Sciences Journal*. **13**, 202-214 (1962).
- [13] Pion, J.C.: Alteration de massifs cristallins basiques en zone tropicale seche. Etude de quelques toposequences en Haute-Volta: *Sciences Geologiques, Memories*, Vol.57, 220 (1979).
- [14] Glasmann, J.R.: Alteration of andesite in wet, unstable soil of Oregon's Western Cascades. *Clays and Clay Minerals*, **30** (4), 253-263 (1982).
- [15] Colin, F., Nahon, D., Trescases, J-J. and Melfi, A.J.: lateritic Weathering of Pyroxenites at Niquelandia, Goias, Brazil: The Supergene Behavior of Nickel. *Economic Geology*, **85**, 1010-1023 (1985).
- [16] Basham, I.R.: Mineralogical changes associated with deep weathering of gabbro in Aberdeenshire. *Clay minerals*, **10**, 189-202 (1974).
- [17] Awad, A., Koster van Groos, A.F. and Guggenheim, S.: Effect of crystallographic direction on dissolution kinetics. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **64** (10), 1765-1772 (2000).
- [18] Pokrovsky, O.S. and Schott, J.: Forsteritic surface composition in aqueous solutions: A combined potentiometric, electrokinetics and spectroscopic approach. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **64** (19), 3299-3312 (2000).
- [19] Kirby, S.H. and Wegner, M.W.: Dislocation substructure of mantle-derived olivine as revealed by selective chemical etching and transmission electron microscopy. *Physics and Chemistry of Minerals*, **3**, 309-330 (1978).
- [20] Eggleton, R.A. and Boland, J.N.: Weathering of enstatite to talc through a sequence of transitional phases. *Clays and Clay Minerals*, **30**, 11-20 (1982).
- [21] Nahon, D.B and Collin, F.: Chemical weathering of orthopyroxenes under lateritic

- 
- conditions. *American Journal of science*, **282**, 1232-1245 (1982).
- [22] Wollast, R.: Kinetics of the alteration of K-feldspar in buffered solutions at low temperature. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **31** (4), 635-648 (1967).
- [23] Murakami, T., Isobe, H., Sato, T. and Ohnuki, T.: Weathering of chlorite in a quartz-chlorite schist. I. Mineralogical and chemical changes. *Clays and Clay Minerals*, **44**, 244-256 (1996).
- [24] Banfield, J.F. and Murakami, T.: Atomic resolution transmission electron microscope evidence for the mechanism by which chlorite weathers to 1:1 semi-regular chlorite-vermiculite. *American Mineralogist*, **83**, 348-357 (1998).
- [25] Aspandiar, M. F. & Eggleton, R. A.: Weathering of chlorite. II. Reaction and Products in microsystems controlled by the solution avenues. *Clays and Clay Minerals*, **50**, 699-709 (2002).
- [26] 岡本敦: 海洋リソスフェアにおける蛇紋岩化作用の速度 : 水熱反応実験からの制約. *岩石鉱物科学*, **41**, 185-192 (2012).
- [27] Evans, B. W.: Matamorphism of Alpine peridotite and serpentinite. *Ann. Rev. Earth. Planet. Sci.*, **5**, 397-447 (1977).
- [28] Boschi, C., Fruh-Green, G.L., Delacour, A., Karson, J.A. and Kelly, D.S.: Mass transfer and fluid flow during detachment faulting and development of an oceanic complex, Atlantis Massif (MAR30°N). *Geochem. Geophys. Geosys.*, **7** (1), Doi: 10.129/2005GC001074 (2006).
- [29] Undul, O. and Tugrul, A.: The influence of weathering on the engineering properties of dunites. *Rock Mech. Rock Engineering*, **45**, 225-239 (2012).
- [30] Wegner, W.W. and Ernst, W.G.: Experimentally determined hydration and dehydration reaction rates in the system MgO – SiO<sub>2</sub> – H<sub>2</sub>O. *Amer. J. Sci.*, **283**-A (Orlive volume), 151-180 (1983).
- [31] Martin, B. and Fyfe, W.S.: Some experimental and theoretical observation on the kinetics of hydration reactions with particular references to serpentinitization. *Chem. Geol.*, **6**, 185-202 (1970).
- [32] Macdonald, A.H. and Fyfe, W.S.: Rate of serpentinitization in seafloor environments. *Tectonophys.*, **116**, 123-135 (1985).
- [33] Frost, B.R. and Beard, J.S.: On silica activity and serpentinitization. *J. Petrol.*, **48**, 1351-1368 (2007).
- [34] Katayama, I., Kudosaki, I. and Hirauchi, K.: Low silica activity for hydrogen generation during serpentinitization: An example of natural serpentinites in the Mineoka Ophiolite complex, central Japan. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **239**, 199-204 (2019).
- [35] 松井健: 土壤地理学序説. 筑地書院 (1988).

## 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 実施概要

#### 5.1.1 これまでの背景

TRU 廃棄物処分場におけるセメントーベントナイト相互作用の影響評価については、実際の処分場の条件を模擬した、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や、その実験結果を再現することを目的として、一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。このような地球化学モデルでは、短期間の室内実験（カラム変質実験等）結果を再現できる場合でも、複雑なプロセスが絡む天然現象の再現は難しい場合が多く、現在でも課題が残されている。そのため、人工バリアを構成するベントナイトの長期性能評価において、地球化学シミュレーションモデルを使うためには、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）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 鉱山のナチュラルアナログで、オフィ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[1]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。

また、ルソン島の Saile 鉱山のナチュラルアナログではアルカリ変質鉱物として、鉄モンモロロナイト、鉄サポナイト、ノントロナイトが同定されている一方、パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログではアルカリ環境下で鉄サポナイトが生成するサイトが確認され、アルカリ溶液の化学組成、特に、Si, Al, Mg, Fe, Ca 濃度の差がスメクタイト等の鉄含有粘土鉱物の生成・溶解に影響を与えている可能性が高く、その評価に必要な熱力学データが現状のデータベースでこれらが十分整備されているものは少なく、このナチュラルアナログや人工バリアシステムの評価に必要な鉄粘土鉱物の安定相図はデータベースによって大きく異なるという問題があり、TRU 廃棄物地層処分場環境でも生じる可能性のある鉄・アルカリ環境下での変質を考える場合には、整備されつつある鉄スメクタイトの熱力学データ[2][3][4]の適用性を確認する必要がある。

平成 28 年度[5]までの検討において、Saile 鉱山のナチュラルアナログの二次鉱物（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・溶解における平衡論的または速度論的な取り扱いについて、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について検討した。その結果、二次鉱物の溶解は、拡散速度より反応速度が十分遅いとみられ、反応速度を設定することで、実現象の固相組成・固相分布の再現性が向上することが確認されたが、初期鉱物の溶解に伴う密度の低下が大きく、二次鉱物による閉塞は現状の解析条件での再現が難しいという課題がある。



## 5.2 アルカリ変質反応による鉱物組成変化の地球化学計算

本年度は、平成 28 年度までの検討結果[5]を踏まえ、最新の熱力学データを反映した地球化学モデルでの変質解析を行う。これらの検討結果を踏まえ、オフィオライトの蛇紋岩化作用過程で生成した高アルカリ地下水とベントナイトとの相互作用において、アルカリ環境下のスメクタイトの安定性やアルカリ溶液からの二次鉱物生成挙動のベントナイトのアルカリ変質に伴う状態変遷評価について、パラワン島及びルソン島のナチュラルアナログを対象として以下の地球化学計算を実施した。

### 5.2.1 パラワン島ナチュラルアナログ環境での安定相の解析

パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログでは、アルカリ溶液中の Si, Al, Mg, Fe, Ca 濃度の差がスメクタイト生成反応に影響を与えている可能性があるため、これらの元素の挙動に着目したナチュラルアナログサイトの地下水環境での安定相を二次鉱物として生成すると考えられる鉄粘土鉱物の最新の熱力学データを反映した地球化学モデルによる平衡計算によって評価した。地下水データについては、フィールド調査における実測データを用いた。検討に使用する地下水データを、表 5.2.1-1 に示す。

表 5.2.1-1 パラワン島 Narra 地区の地下水組成分析値

Site	Palawan Narra-3.1 Hot Spring	Palawan Narra-3.1 Hot Spring	Palawan Narra-3.1 Hot Spring	Palawan Narra-3.1 Hot Spring
採取年 Sample No.	2014 Narra3-1 O	2015 Narra3-1 O	2016 Narra3-1 O	2017 Narra3-1 O
pH	11.11	11.16	11.37	11.28
ORP(Eh)[mV]	-460	-450	-867	-221
Temp [°C]	38.8	38.6	38.5	32.3
CH <sub>4</sub> [ppm]	0	0	200	—
H <sub>2</sub> [ppm]	0	0	0	—
Na <sup>+</sup> [ppm]	53.6	48.6	50.4	42.9
K <sup>+</sup> [ppm]	2.68	2.94	2.36	2.26
Ca <sup>2+</sup> [ppm]	41.9	37.5	50.6	41.3
Mg <sup>2+</sup> [ppm]	0.20	0.02	0.01	0
Si <sup>2+</sup> [ppm]	0.6	0.9	0.29	0.40
Al <sup>3+</sup> [ppm]	0.16	0.07	0.13	0.30
Fe <sup>(2+,3+)</sup> [ppm]	0.17	0.02	0.01	0
Cl <sup>-</sup> [ppm]	29.4	29.5	28.0	27.2
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> [ppm]	0.39	0.18	0.05	0.02
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> [ppm]	0.5	0.09	0.5	1.6

Termoddem (フランス地質調査所で整備している熱力学データベース) の最新データベースにおいて、 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-FeO-MgO-CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$  系の安定相図を **GWB(Geochemist's WorkBench)** を用いて書き出し、それにパワラン島 Narra 地区の高アルカリ地下水の実測値をプロットし、Narra 地区のナチュラルアナログサイトでの鉄含有粘土鉱物の安定相を評価した。

なお、計算では、溶存シリカの活量をアモルファスシリカ飽和に、溶存 Al はアノーサイトに飽和、Fe はマグネタイトに飽和、Mg はブルーサイトに飽和、Ca はカルサイトに飽和の条件で計算を行った。

結果を図 5.2.1-1～図 5.2.1-10 に示す。Narra 地区で採取された溶液は、概ねサポナイトの安定領域にプロットされており、特に、図 5.2.1-1、図 5.2.1-2、図 5.2.1-6 からは、サポナイトや鉄サポナイト等の 3 八面体型スメクタイトの前駆体の主要成分である、Mg, Fe, Si 濃度が高い領域において、サポナイトが安定相であることが確認できる。これらは Narra 地区のナチュラルアナログサイトの碎屑性堆積物中で観察されたスメクタイトの産状と整合することから、高アルカリ地下水によってスメクタイト化が進んだことが地球化学計算の観点からもいえる。

Ca について、図 5.2.1-3 と図 5.2.1-5 を見ると、C-A-S-H とサポナイトの境界付近にプロットされている。これは、C-S-H とサポナイトの共生が多く確認された、Ca 濃度が高いトレンチ 2 の碎屑性堆積物中の鉱物の産状と整合する。

Al について、図 5.2.1-7 と図 5.2.1-8 をみると、Al-rich のスメクタイトであるバイデライトと Fe, Mg-rich のスメクタイトであるサポナイトの境界付近にプロットされている。これは、降下火山灰堆積物中のスメクタイトで類似した産状がみられ、アルカリ変質によって、Al 成分の多いところはバイデライト、Fe, Mg 成分の多いところはサポナイトが生成することを、地球化学計算でも示している。

図 5.2.1-9 の結果では、Narra 地区で採取された溶液のプロット点はサポナイトの安定領域外ではあるが、地下水の溶存シリカの活量が実測値よりも高い濃度 ( $10^{-3}$  mol/L 程度) であれば、サポナイトの安定領域内に存在することとなる。溶存シリカの活量が高いと、サポナイトが安定することが分かった。

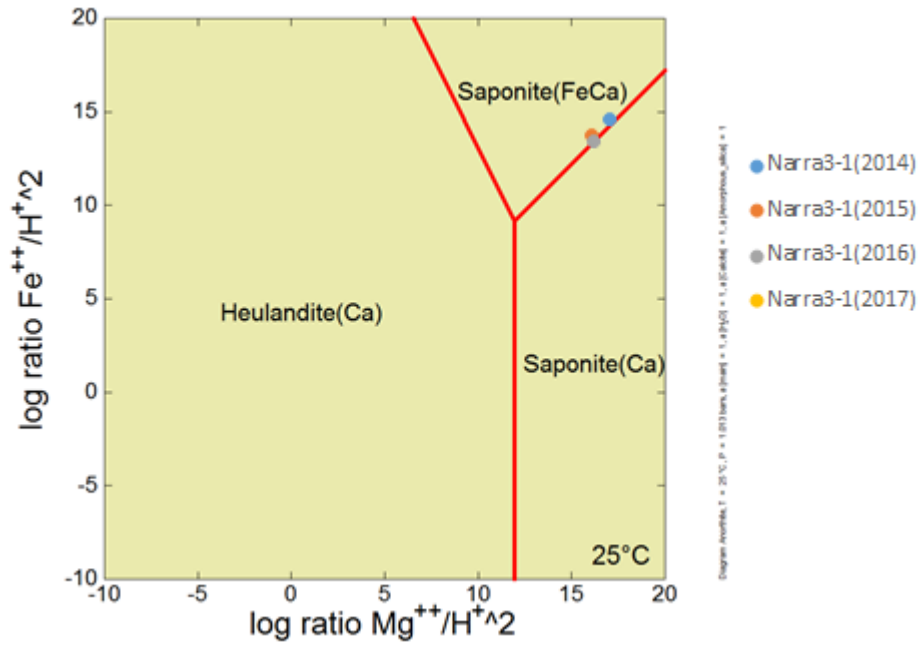


図 5.2.1-1 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-FeO-MgO-CaO-SiO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O 系の安定相図（縦軸 FeO、横軸 MgO）

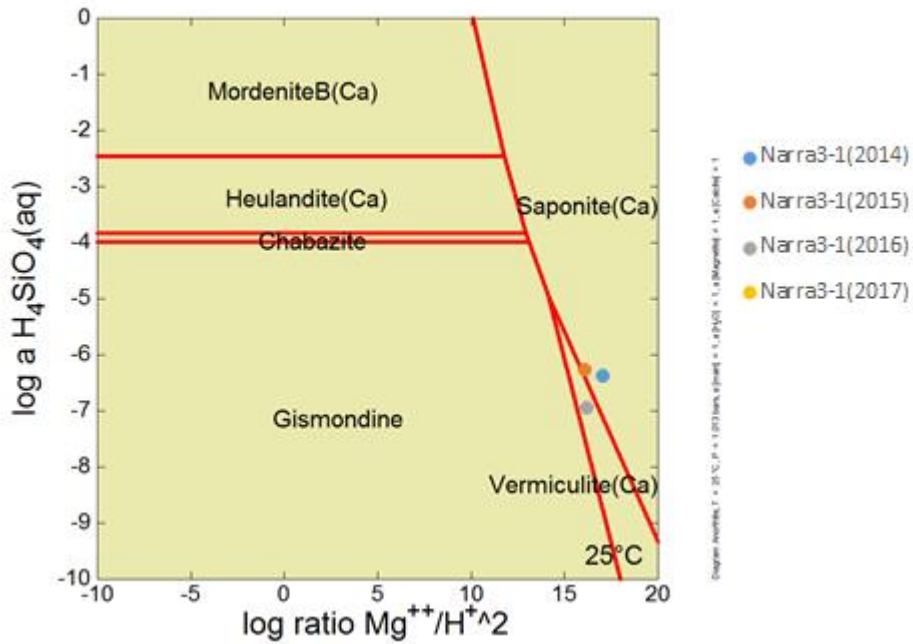


図 5.2.1-2 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-FeO-MgO-CaO-SiO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O 系の安定相図（縦軸 SiO<sub>2</sub>、横軸 MgO）

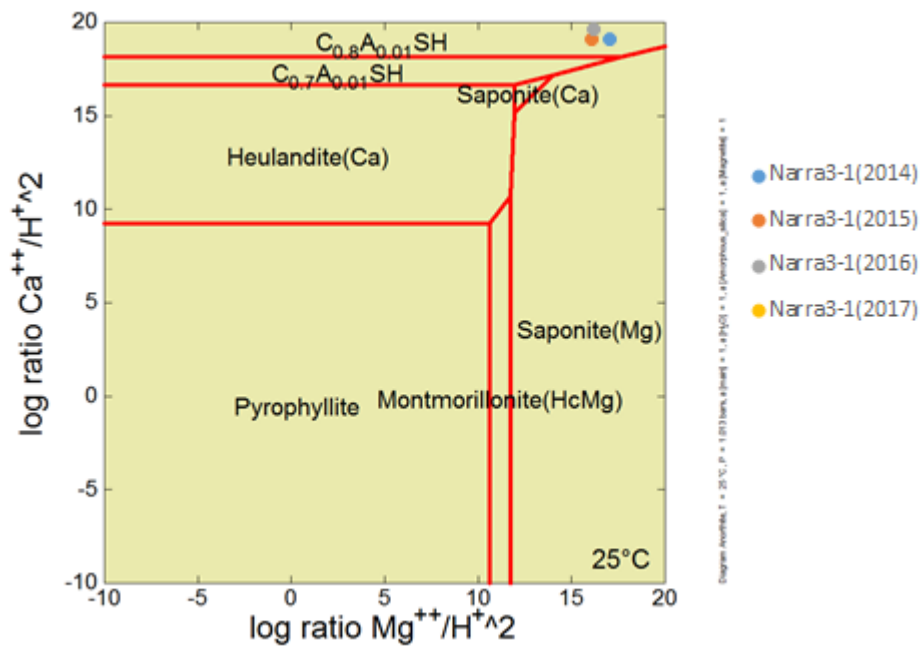


図 5.2.1-3  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-FeO-MgO-CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$  系の安定相図 (縦軸 CaO、横軸 MgO)

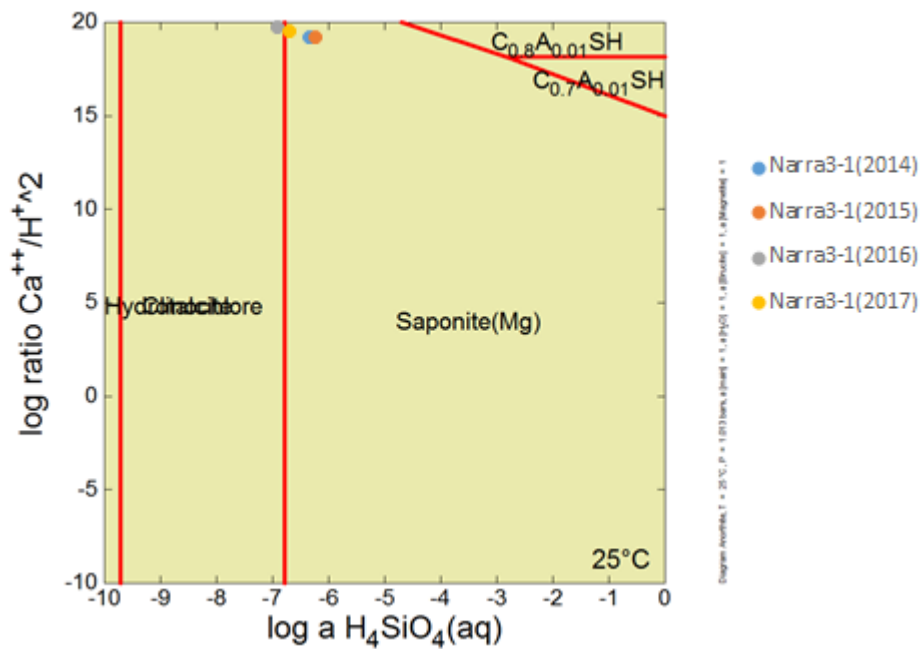


図 5.2.1-4  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-FeO-MgO-CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$  系の安定相図 (縦軸 CaO、横軸  $\text{SiO}_2$ )

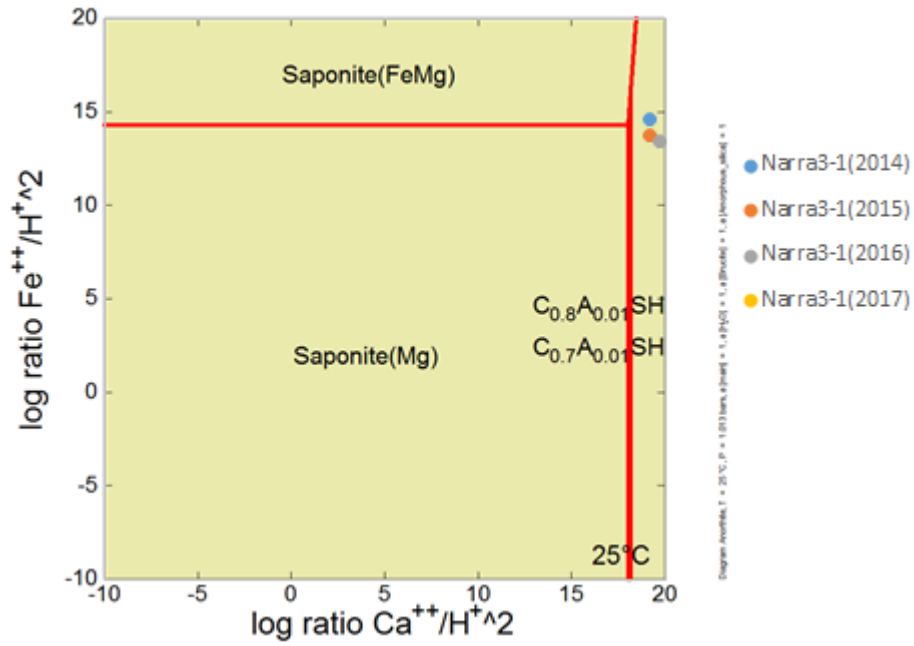


図 5.2.1-5  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-FeO-MgO-CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$  系の安定相図 (縦軸 FeO、横軸 CaO)

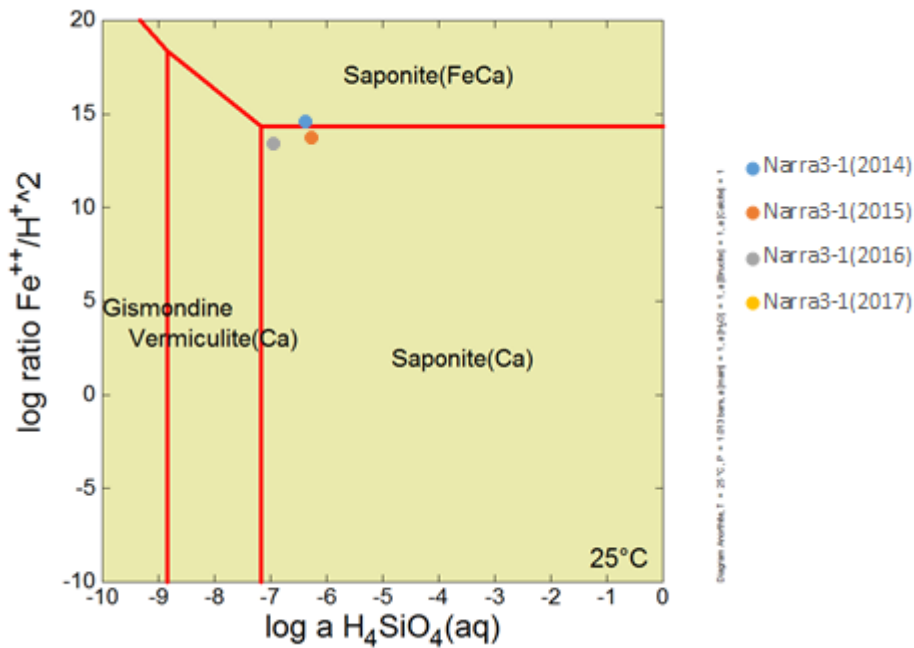


図 5.2.1-6  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-FeO-MgO-CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$  系の安定相図 (縦軸 FeO、横軸  $\text{SiO}_2$ )



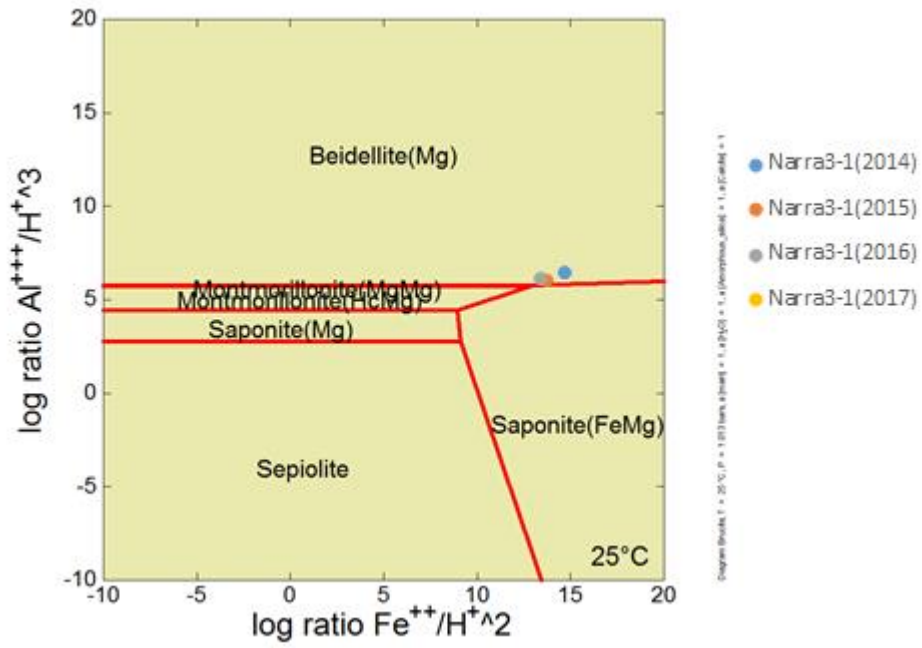


図 5.2.1-7  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-FeO-MgO-CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$  系の安定相図 (縦軸  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、横軸  $\text{FeO}$ )

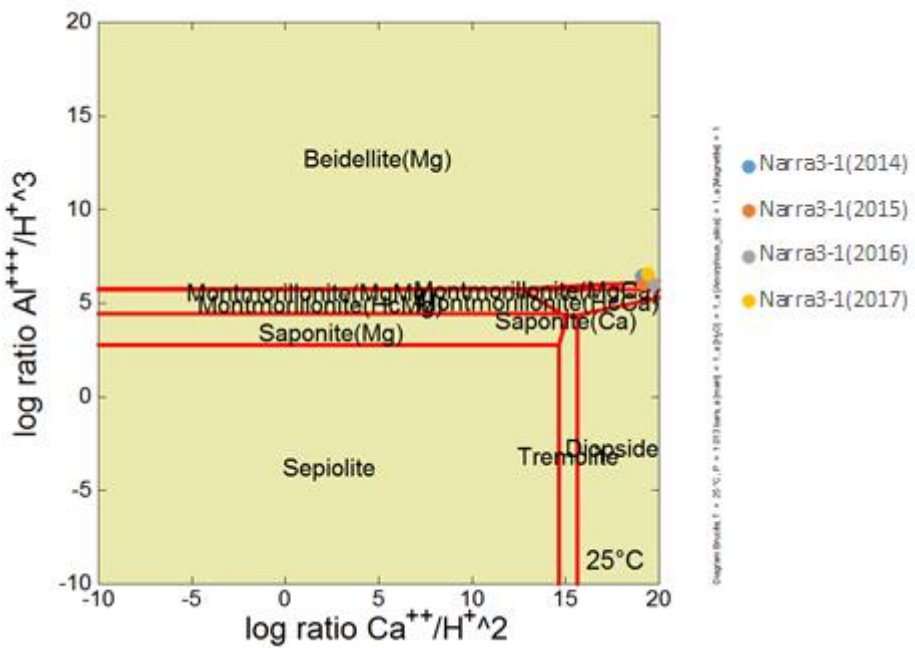


図 5.2.1-8  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-FeO-MgO-CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$  系の安定相図 (縦軸  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、横軸  $\text{CaO}$ )

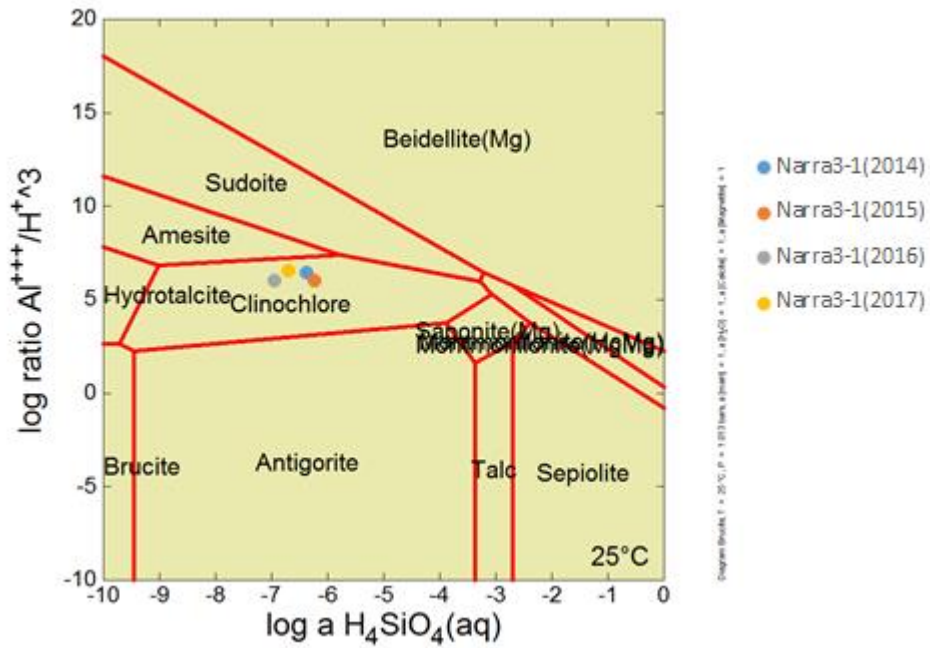


図 5.2.1-9  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-FeO-MgO-CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$  系の安定相図 (縦軸  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、横軸  $\text{SiO}_2$ )

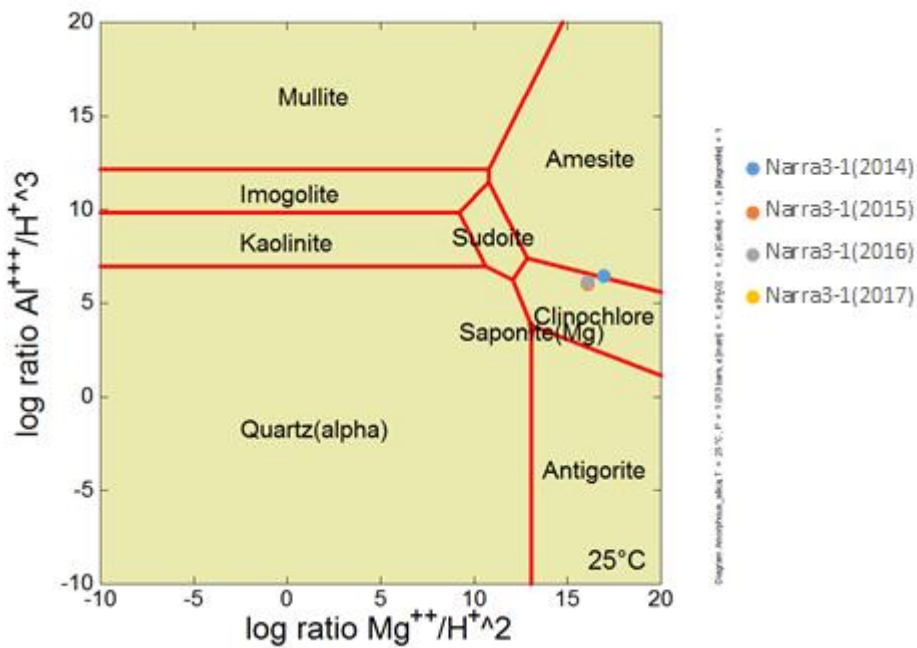


図 5.2.1-10  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-FeO-MgO-CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$  系の安定相図 (縦軸  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、横軸  $\text{MgO}$ )

また、Narra 地区の蛇紋岩化が進む超苦鉄質岩と平衡な高アルカリ地下水環境と処分場のセメント-ベントナイトが共存する高アルカリ環境との違いを確認するために、TRU 廃棄物地層処分場の条件で  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - $\text{MgO}$ - $\text{CaO}$ - $\text{SiO}_2$ - $\text{H}_2\text{O}$  系の安定相図を作成し、粘土鉱物の安定相を評価した。

なお、計算では、Narra 地区の NA サイトの安定相図と同様、溶存シリカの活量をアモルファスシリカ飽和に、溶存 Al はアノーサイトに飽和、Mg はブルーサイトに飽和、Ca はカルサイトに飽和の条件で計算を行った。

検討に使用する液組成データとして、セメント平衡水およびセメント-ベントナイト平衡水を用いることとした。セメント平衡水の液組成データは、普通ポルトランドセメント (OPC) を降水系地下水 (FRHP) に、液固比 (水/出発試料) =0 (ブランク)、10、100、200、1000、2000 とせるように 6 ヶ月浸漬したバッチ式浸漬試験の液相分析の結果[6]を用いることとした。また、セメント-ベントナイト平衡水の液組成データは、粒子状のセメント (OPC) とベントナイト (クニゲル V1) を材料の質量比 (セメント/ベントナイト) =0.3、0.5 となるように混合した試料を、降水系地下水 (FRHP) に 6 ヶ月浸漬した粒子状浸漬試験の液相分析の結果[7]を用いることとした。

検討に使用した液組成データを表 2.4.1-2 と表 2.4.1-3 に示す。

表 2.4.1-2 OPC バッチ式浸漬試験 (浸漬期間 6 ヶ月) の液相分析結果[6]

Sample No.	OPC/FRHP 10	OPC/FRHP 100	OPC/FRHP 200	OPC/FRHP 1000	OPC/FRHP 2000
pH	12.7	12.6	12.6	12.0	11.6
$\text{Na}^+$ [mol/L]	8.68E-03	4.33E-03	4.05E-03	3.46E-03	3.42E-03
$\text{K}^+$ [mol/L]	4.35E-03	6.65E-04	3.88E-04	1.31E-04	1.13E-04
$\text{Ca}^{2+}$ [mol/L]	1.17E-02	1.94E-02	1.64E-02	2.12E-03	4.63E-04
$\text{Mg}^{2+}$ [mol/L]	ND	ND	ND	ND	ND
$\text{Si}^{2+}$ [mol/L]	1.32E-05	ND	ND	1.26E-04	7.93E-04
$\text{Al}^{3+}$ [mol/L]	4.51E-06	5.63E-06	8.24E-06	4.49E-05	3.74E-05
$\text{Fe}^{(2+,3+)}$ [mol/L]	ND	ND	ND	ND	ND
$\text{SO}_4^{2-}$ [mol/L]	8.68E03	4.33E-03	4.05E-03	3.46E-03	3.43E-03

表 2.4.1-3 浸漬液の測定結果：粒子状浸漬試験（浸漬期間6ヶ月）[7]

Sample No.	OPC/kunigelV1 0.3 (FRHP)	OPC/kunigelV1 0.5 (FRHP)
pH	12.5	12.6
Na <sup>+</sup> [mol/L]	3.30E-02	3.80E-02
K <sup>+</sup> [mol/L]	4.40E-04	8.40E-04
Ca <sup>2+</sup> [mol/L]	5.50E-04	2.10E-03
Mg <sup>2+</sup> [mol/L]	ND	ND
Si <sup>2+</sup> [mol/L]	1.90E-04	9.50E-05
Al <sup>3+</sup> [mol/L]	1.10E-04	6.80E-05
Fe <sup>(2+,3+)</sup> [mol/L]	ND	ND
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> [mol/L]	1.00E-03	5.40E-04

結果を図 5.2.1-11～図 5.2.1-16 に示す。

セメント平衡水またはセメントーベントナイト平衡水の化学組成は、Narra 地区の NA サイトと同様、サポナイトの安定領域内に存在していることが確認された。また、今回用いた液組成データでは、Mg<sup>2+</sup>濃度が検出限界以下のためプロット出来ない点があったが（図 5.2.1-11、図 5.2.1-12、図 5.2.1-16）、間隙水が pH12.5 付近の場合、Mg<sup>2+</sup>の活量が 10<sup>-7</sup> mol/L 程度 ( $\log([\text{Mg}^{2+}]/[\text{H}^+]^2)=16.8$ )であれば、サポナイトの安定領域内であることが確認された。

現状のセメント平衡水のデータでは、Fe, Mg の影響は評価されていないが、処分場においては海水や鉄部材からの Fe, Mg の影響で、ゼオライトが安定相とはならないケースも十分考えられ、この評価は今後の課題である。

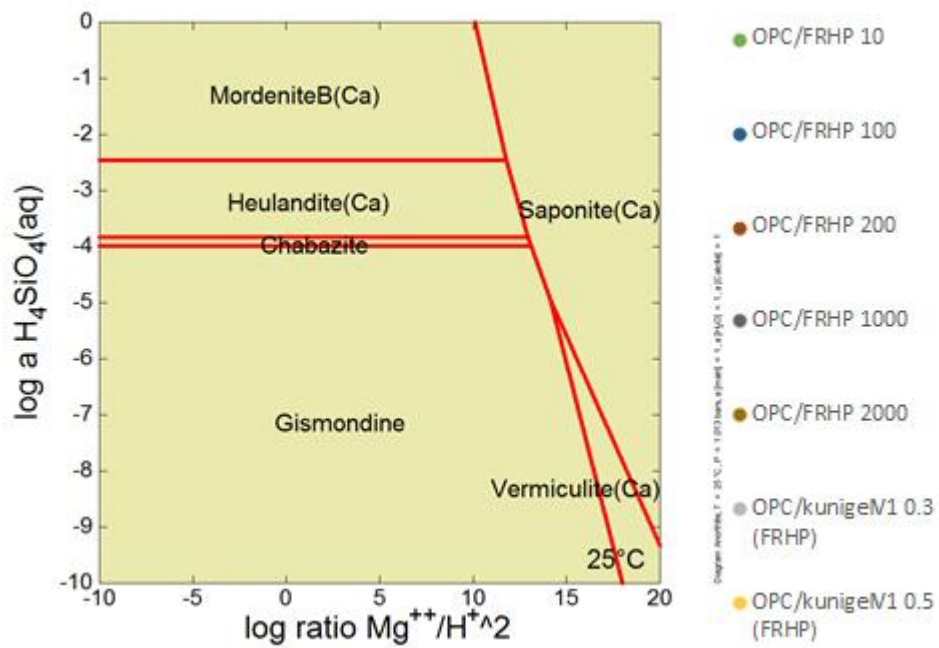


図 5.2.1-11 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO-CaO-SiO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O 系の安定相図 (縦軸 SiO<sub>2</sub>、横軸 MgO)

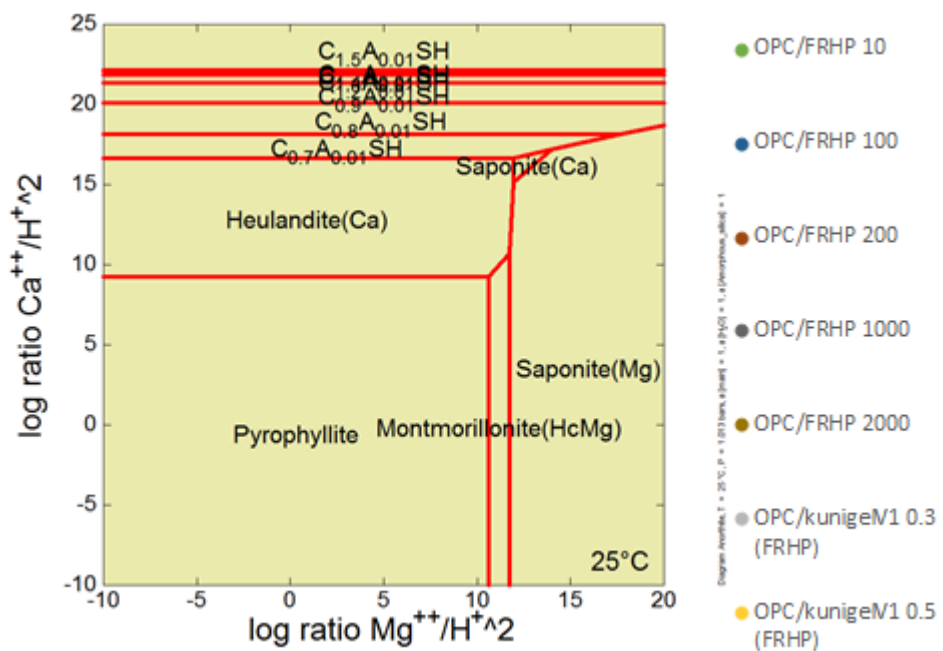


図 5.2.1-12 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-MgO-CaO-SiO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O 系の安定相図 (縦軸 CaO、横軸 MgO)



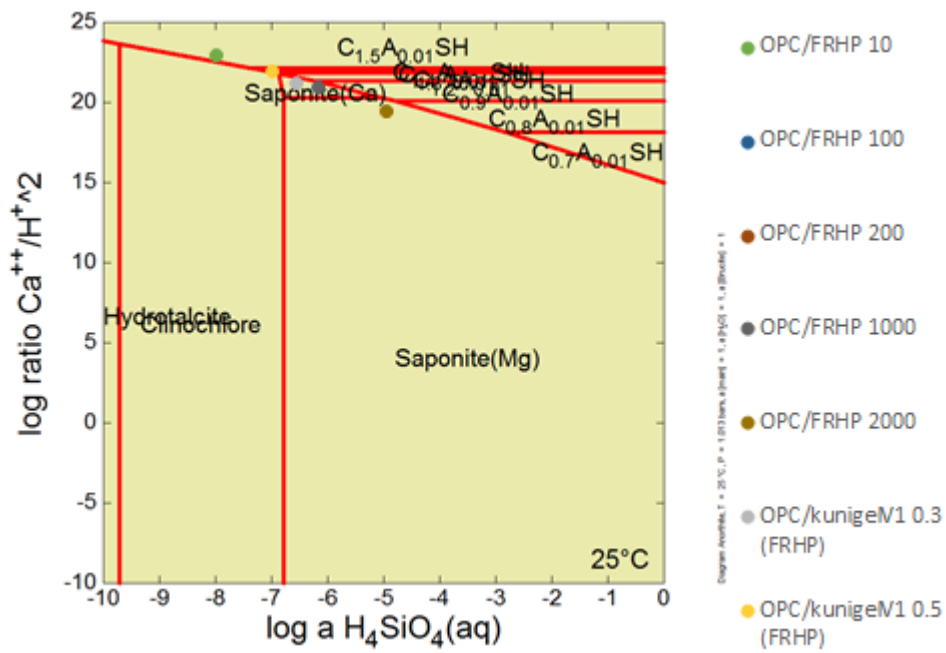


図 5.2.1-13  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-MgO-CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$  系の安定相図 (縦軸 CaO、横軸  $\text{SiO}_2$ )

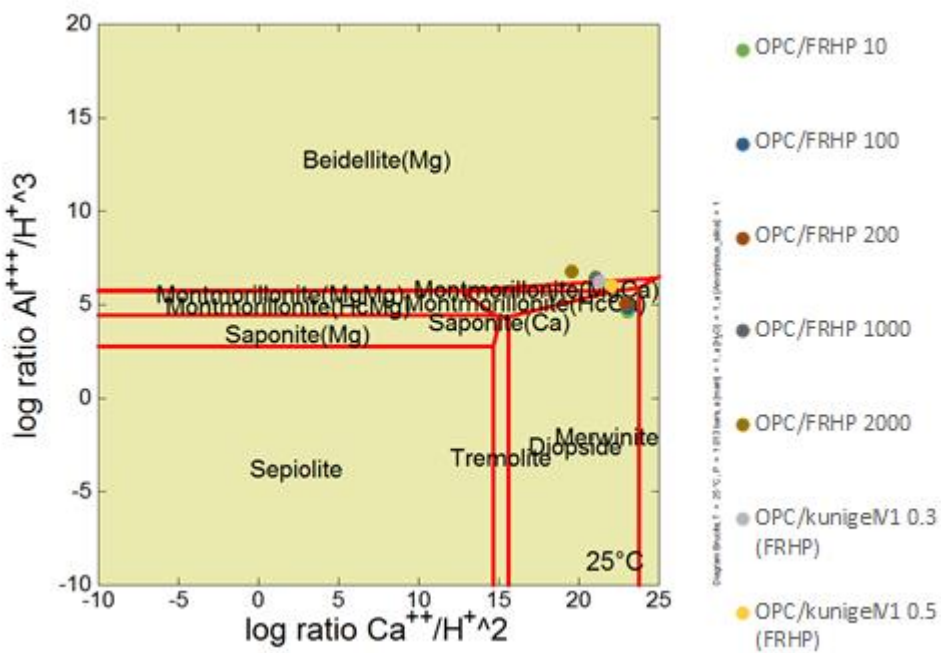


図 5.2.1-14  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-MgO-CaO-SiO}_2\text{-H}_2\text{O}$  系の安定相図 (縦軸  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、横軸 CaO)

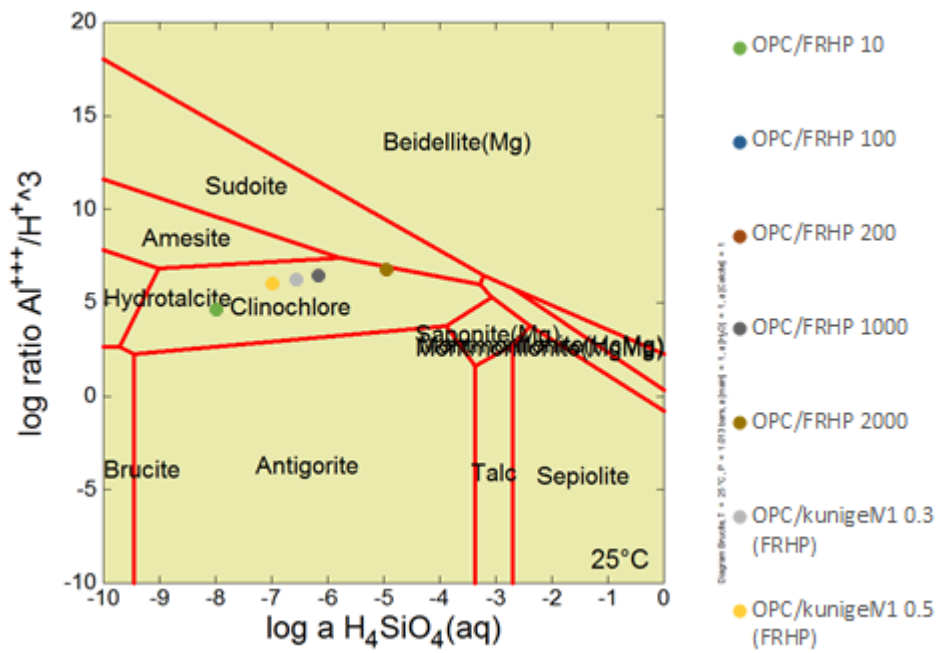


図 5.2.1-15  $Al_2O_3$ -MgO-CaO-SiO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O 系の安定相図 (縦軸  $Al_2O_3$ 、横軸  $SiO_2$ )

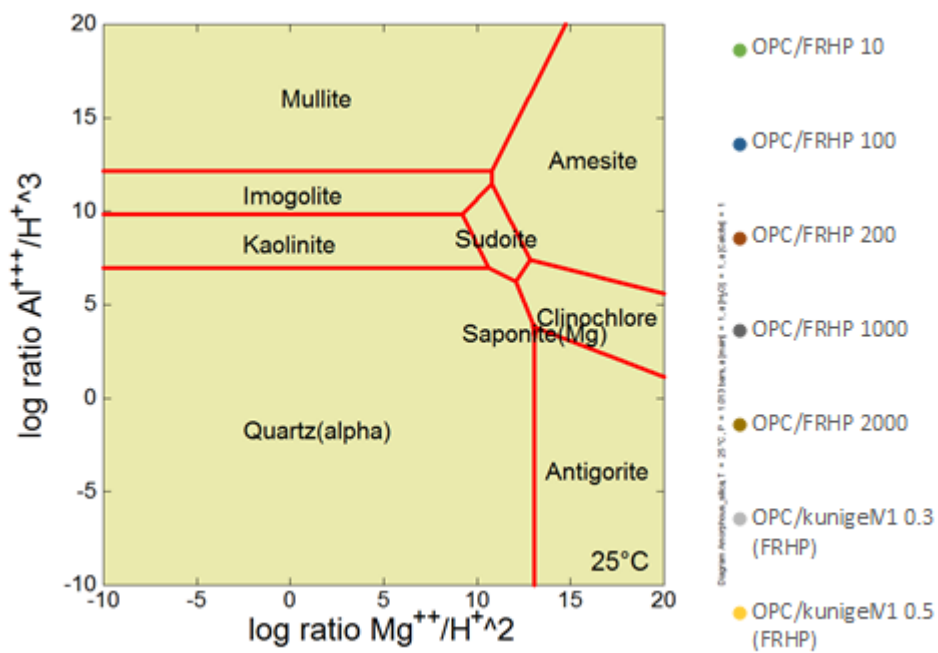


図 5.2.1-16  $Al_2O_3$ -MgO-CaO-SiO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O 系の安定相図 (縦軸  $Al_2O_3$ 、横軸 MgO)

## 5.2.2 ルソン島ナチュラルアナログの変質解析

ルソン島の Saile 鉱山のナチュラルアナログで確認された、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枕状溶岩の接触部において、1~5mm のベントナイトの変質帯を確認しており、この天然事象を対象として、平成 28 年度までの検討結果[5]を踏まえ、5.2.1 と同じ最新の熱力学データを反映した地球化学モデルでの変質解析を行った。これらの検討結果を踏まえ、人工バリア長期挙動の長期評価における界面現象の地球化学モデルにおける課題について整理した。

### (1) インプットする高アルカリ溶液の組成

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鉄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、地表に湧出する前的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て用いた。

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)[8]を参考にした。まず、典型的な雨水 1kg を反応溶液として用意し、そのうち 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 5.2.1-1 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[9]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)[10]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(The GEOCHEMIST WORKBENCH)[11]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)[10]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 5.2.1-2)。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 5.2.1-1 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 <sup>+</sup>	1.58	126
	K <sup>+</sup>	0.280	13
	Ca <sup>2+</sup>	23.6	379
	Si <sup>4+</sup>	11.5	0.0179
	Al <sup>3+</sup>	20.3	1.52x10 <sup>-3</sup>
	Mg <sup>2+</sup>	0.17	7.04x10 <sup>-4</sup>
	Fe <sup>+</sup> (2+, 3+)	0.001	0.0475
	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	73.5	0.001
	Cl <sup>-</sup>	charge balance	

表 5.2.1-2 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 <sub>2</sub> (SiO <sub>4</sub> )	79
Fayalite	Fe <sub>2</sub> (SiO <sub>4</sub> )	8.0
Enstatite	Mg <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> O <sub>6</sub>	11
Ferrosilite	FeMgSi <sub>2</sub> O <sub>6</sub>	1.0
Diopside	CaMg(Si <sub>2</sub> O <sub>6</sub> )	1.0

## (2) 変質解析対象とした天然事象の概要

枕状溶岩とベントナイトの接触部では、界面の枕状溶岩のガラス部分に変質しているとともに、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た。このベントナイト変質部よりも 1~5mm 程度下流側には、ノントロナイトと針鉄鋼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は空隙が減少して高密度となっていた。これらから、高アルカリ地下水と

の反応前は図 5.2.2-1 に示すような鉱物組成であったものが、反応後は図 5.2.2-2 のような鉱物組成と空間分布となったと考えた。従って、本検討で実施する変質解析では、図 5.2.2-2 に示す鉱物組成と分布を再現することを目標とした。

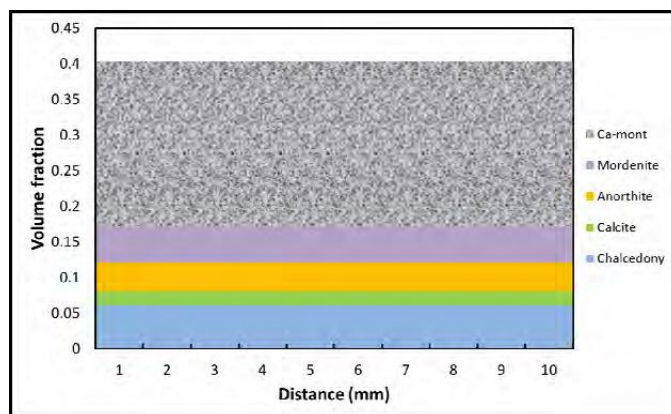


図 5.2.2-1 Saile 鉱山ベントナイトの初期状態におけるベントナイト中の鉱物空間分布

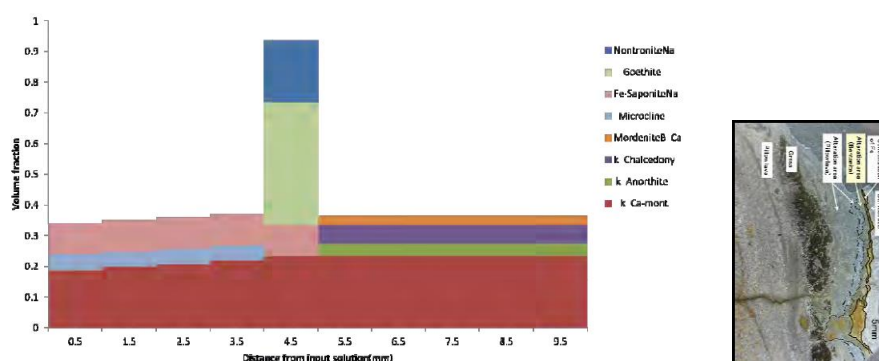


図 5.2.2-2 枕状溶岩と接するベントナイトの界面（右写真）で観察された変質後の鉱物組成

### (3) 解析条件

解析プログラムは、地球化学反応と物質輸送現象を連成させた PHREEQC-TRANS[12][13] を使用する。鉱物変化による空隙率の変化及び拡散係数変化を反映することができる。

#### 1) ベントナイト基本物性

本検討における解析条件の初期条件として、平成 23 年度[14]に取得した物性値（スメクタイト（モンモリロナイト）含有率：60%、乾燥密度：1.1 g/cm<sup>3</sup>、間隙率：60%）を使用する。この物性値から、ベントナイト部の初期鉱物組成を設定する。ベントナイト構成鉱物含有割合として、Na 型モンモリロナイト 60wt%、随伴鉱物として方解石 5wt%、モルデン沸石（Mordenite）を 10wt%、斜長石として灰長石 5wt%、非晶質シリカとして玉髄を 10wt%とした。初期鉱物組成を表 5.2.3-1 に示す。



表 5.2.3-1 ベントナイトの初期鉱物組成

鉱物		含有率 (wt%)	初期濃度 (mol/L_water)
モンモリロナイト	Na-Mont	60	3.00
方解石	Calcite	5	0.92
モルデン沸石	Mordenite	10	0.41
灰長石	Anorthite	5	0.33
玉髄	Chalcedony	10	3.05

2) 解析体系

解析は、図 5.2.2-3 に示すような 1 次元の体系で行った。上流側を地下水組成固定境界とし、下流側は自由流出境界とした。なお、本検討では物質移行は拡散のみを考慮し、移流による物質移行は考慮しない。ベントナイト部の拡散係数は昨年度と同様に、 $4.71 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$  とした。

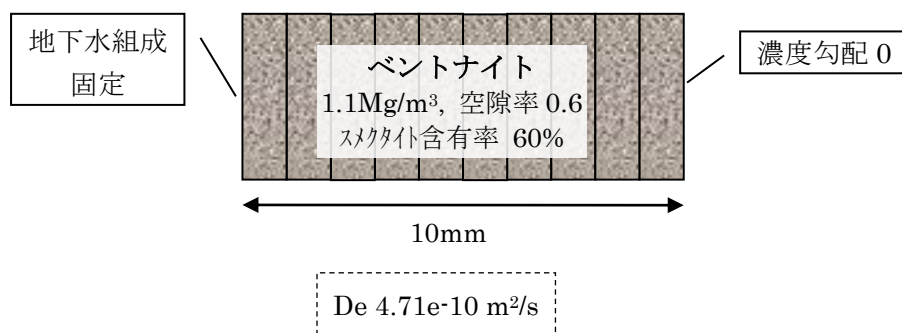


図 5.2.2-3 解析体系概念図

3) 熱力学データベース

昨年度[5]まで検討に使用していた熱力学データベースは、フランスの地質調査所 (BRGM) の新しいデータベース (thermoddemv1.10\_11dec2014) [15]である。ここでは、最新のデータベース (thermoddemv1.10\_06Jun2017) [16]を用いることとする。

解析にあたり、表 5.2.1-1 の地下水組成について、thermoddem にて電荷バランスを調整した溶液組成を表 5.2.2-4 に示す。また、今年度用いた熱力学データと昨年度用いた熱力学データとの比較を表 5.2.2-5 に示す。

表 5.2.2-4 解析に用いた溶液データ

		溶液 1	溶液 2
温度	°C	34	25
pH		11.08	12.1
pe		-12.1	-13.2
Na	mol/l	2.42E-3 *	5.48E-3
K		7.16E-6	3.32E-4
Ca		5.89E-4	9.46E-3
Si		4.09E-4	6.37E-7
Al		7.52E-4	5.63E-8
Mg		6.99E-6	2.90E-8
Fe		1.79E-8	8.51E-7
C		1.20E-3	1.64E-8
Cl		0.0	8.79E-3 *

\*電荷バランスを調整 (溶液 1 においては Na で調整、溶液 2 においては Cl で調整)

表 5.2.2-5 熱力学データの比較

鉱物	昨年度使用 (phreeqc\thermoddemv1.10_11dec2014.dat)		今年度使用 (PHREEQC_ThermoddemV1.10_06Jun2017.dat)	
モンモリロナイト	Montmorillonite (MgCa)	Ca0.17Mg0.34Al1.66Si4O10(OH)2 + 6.000H+ + 4.000H2O = 1.660Al+3 + 0.170Ca+2 + 0.340Mg+2 + 4.000H4SiO4 log k 5.003	Montmorillonite (MgCa)	Ca0.17Mg0.34Al1.66Si4O10(OH)2 + 6.000H+ + 4.000H2O = 1.660Al+3 + 0.170Ca+2 + 0.340Mg+2 + 4.000H4SiO4 log k 4.206
方解石	Calcite	CaCO3 + 1.000H+ = 1.000HCO3- + 1.000Ca+2 log k 1.847	Calcite	CaCO3 + 1.000H+ = 1.000HCO3- + 1.000Ca+2 log k 1.847
モルデン沸石	MordeniteB(Ca)	Ca0.515Al1.03Si4.97O12.3.1H2O + 4.120H+ + 4.780H2O = 1.030Al+3 + 0.515Ca+2 + 4.970H4SiO4 log k -2.925	MordeniteB(Ca)	Ca0.515Al1.03Si4.97O12.3.1H2O + 4.120H+ + 4.780H2O = 1.030Al+3 + 0.515Ca+2 + 4.970H4SiO4 log k -2.918
灰長石	Anorthite	Ca(Al2Si2)O8 + 8.000H+ = 2.000Al+3 + 1.000Ca+2 + 2.000H4SiO4 log k 25.305	Anorthite	Ca(Al2Si2)O8 + 8.000H+ = 2.000Al+3 + 1.000Ca+2 + 2.000H4SiO4 log k 24.224
玉髓	Chalcedony	SiO2 + 2.000H2O = 1.000H4SiO4 log k -3.456	Chalcedony	SiO2 + 2.000H2O = 1.000H4SiO4 log k -3.453
針鉄鉱	Goethite	FeOOH + 3.000H+ = 1.000Fe+3 + 2.000H2O log k 0.362	Goethite	FeOOH + 3.000H+ = 1.000Fe+3 + 2.000H2O log k 0.359
微斜長石	Microcline	K(AlSi3)O8 + 4.000H+ + 4.000H2O = 1.000Al+3 + 1.000K+ + 3.000H4SiO4 log k 0.044	Microcline	K(AlSi3)O8 + 4.000H+ + 4.000H2O = 1.000Al+3 + 1.000K+ + 3.000H4SiO4 log k 0.004
ノントロナイト	Nontronite(Ca)	Ca0.17Fe1.67Al0.67Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.670Al+3 + 0.170Ca+2 + 1.670Fe+3 + 3.660H4SiO4 log k -0.027	Nontronite(Ca)	Ca0.17Fe1.67Al0.67Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.670Al+3 + 0.170Ca+2 + 1.670Fe+3 + 3.660H4SiO4 log k -2.823
	Nontronite(K)	K0.34Fe1.67Al0.67Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.670Al+3 + 1.670Fe+3 + 0.340K+ + 3.660H4SiO4 log k -2.296	Nontronite(K)	K0.34Fe1.67Al0.67Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.670Al+3 + 1.670Fe+3 + 0.340K+ + 3.660H4SiO4 log k -3.993
	Nontronite(Mg)	Mg0.17Fe1.67Al0.67Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.670Al+3 + 1.670Fe+3 + 0.170Mg+2 + 3.660H4SiO4 log k 0.341	Nontronite(Mg)	Mg0.17Fe1.67Al0.67Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.670Al+3 + 1.670Fe+3 + 0.170Mg+2 + 3.660H4SiO4 log k -3.369
	Nontronite(Na)	Na0.34Fe1.67Al0.67Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.670Al+3 + 1.670Fe+3 + 0.340Na+ + 3.660H4SiO4 log k -1.591	Nontronite(Na)	Na0.34Fe1.67Al0.67Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.670Al+3 + 1.670Fe+3 + 0.340Na+ + 3.660H4SiO4 log k -3.494
鉄サポナイト	Saponite(FeCa)	Ca0.17Mg2FeAl0.34Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.340Al+3 + 0.170Ca+2 + 1.000Fe+2 + 2.000Mg+2 + 3.660H4SiO4 log k 30.778	Saponite(FeCa)	Ca0.17Mg2FeAl0.34Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.340Al+3 + 0.170Ca+2 + 1.000Fe+2 + 2.000Mg+2 + 3.660H4SiO4 log k 26.553
	Saponite(FeK)	K0.34Mg2FeAl0.34Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.340Al+3 + 1.000Fe+2 + 0.340K+ + 2.000Mg+2 + 3.660H4SiO4 log k 28.509	Saponite(FeK)	K0.34Mg2FeAl0.34Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.340Al+3 + 1.000Fe+2 + 0.340K+ + 2.000Mg+2 + 3.660H4SiO4 log k 25.382
	Saponite(FeMg)	Mg0.17Mg2FeAl0.34Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.340Al+3 + 1.000Fe+2 + 2.170Mg+2 + 3.660H4SiO4 log k 30.943	Saponite(FeMg)	Mg0.17Mg2FeAl0.34Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.340Al+3 + 1.000Fe+2 + 2.170Mg+2 + 3.660H4SiO4 log k 26.005
	Saponite(FeNa)	Na0.34Mg2FeAl0.34Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.340Al+3 + 1.000Fe+2 + 2.000Mg+2 + 0.340Na+ + 3.660H4SiO4 log k 29.213	Saponite(FeNa)	Na0.34Mg2FeAl0.34Si3.66O10(OH)2 + 7.360H+ + 2.640H2O = 0.340Al+3 + 1.000Fe+2 + 2.000Mg+2 + 0.340Na+ + 3.660H4SiO4 log k 25.707

4) 二次鉱物と鉱物の反応速度

二次鉱物は、実際にトレンチ試料で観察されている鉱物であるノントロナイトと針鉄鉱、カリ長石のマイクロクリン (Microcline)、モルデン沸石、鉄サポナイトを設定した。また、今年度は M-S-H および F-S-H を二次鉱物の設定に追加した。

なお、計算に使用した二次鉱物を表 5.2.2-6 に、追加した二次鉱物 (M-S-H、F-S-H) の熱力学データを表 5.2.2-7 示す。

表 5.2.2-6 考慮した二次鉱物とモル体積

鉱物		モル体積 (L/mol)
針鉄鉱	Goethite	0.0208
微斜長石	Maximum_Microcline	0.109
モルデン沸石	Mordenite-Ca	1.704
ノントロナイト	Nontronite-Ca	0.138
	Nontronite-K	0.141
	Nontronite-Mg	0.138
	Nontronite-Na	0.139
鉄サポナイト	Saponite-CaFe	0.140
	Saponite-KFe	0.144
	Saponite-MgFe	0.140
	Saponite-NaFe	0.141
M-S-H	MSH06	0.0288
	MSH12	0.0337
	M3S2H5(Nied)	0.2024
	M3S4H5(Nied)	0.1304
F-S-H	Greenalite_pre(Tosca)	0.0445

表 5.2.2-7 追加した二次鉱物の熱力学データ

鉱物	熱力学データ	
MSH	MSH06 <sup>※1</sup>	Mg0.82SiO2.385(OH)0.87 + 1.640H+ + 0.745H2O = 0.820Mg+2 + 1.000H4SiO4 log_k 9.120
	MSH12 <sup>※1</sup>	Mg1.07SiO2.075(OH)1.99 + 2.140H+ = 1.070Mg+2 + 1.000H4SiO4 + 0.065H2O log_k 12.730
	M3S2H5(Nied) <sup>※2</sup>	(MgO)3(SiO2)2:5H2O + 6.000H+ = 3.000Mg+2 + 2.000H4SiO4 + 4.000H2O log_k 36.23
	M3S4H5(Nied) <sup>※2</sup>	(MgO)3(SiO2)4:5H2O +6.000H+ = 3.000Mg+2 + 4.000H4SiO4 log_k 25.95
FSH	Greenalite_pre(Tosca) <sup>※3</sup>	Fe3Si2O5(OH)4 + 6.000H+ = 3.000Fe+2 +2.000H4SiO4 + 1.000H2O log_k 28.22556

※1 thermoddemv1.10\_06Jun2017.dat に記載されている熱力学データ

※2 文献[17]を参照

※3 文献[18]を参照

初期鉱物であるモンモリロナイトについては速度論を考慮する。

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 式と飽和度の影響を考慮した Oda 式を組み合わせた 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。

Sato 式

$$f(\text{OH}^-) = \left( 4.74 \cdot 10^{-6} \cdot e^{-39.6/RT} \cdot \frac{177 \cdot e^{20.4/RT} \cdot a_{\text{OH}^-}}{1 + 177 \cdot e^{20.4/RT} \cdot a_{\text{OH}^-}} + 1.70 \cdot e^{-69.7/RT} \cdot \frac{0.0297 \cdot e^{23.5/RT} \cdot a_{\text{OH}^-}}{1 + 0.0297 \cdot e^{23.5/RT} \cdot a_{\text{OH}^-}} \right)$$

Oda 式

$$f(\Delta G_r) = 1 - \exp\left(-2.56 \cdot 10^{-5} \cdot \left(\frac{\Delta G_r}{2RT}\right)^3\right)$$

ここで、

R: 気体定数 [J/K/mol]

T: 絶対温度 [K]

$a_{OH^-}$ ：水酸化物イオンの活量

$f(\Delta G_r)$ ：反応のギブス自由エネルギー変化の関数

モンモリロナイトの溶解速度は、次のように表す。

$$\text{モンモリロナイトの溶解速度} = f(OH^-) \cdot A_{\min} \cdot f(\Delta G_r)$$

ここで、 $A_{\min}$  は鉱物の反応表面積( $m^2/dm^3$ )である。モンモリロナイトの比表面積として Yokoyama et al. (2005)[19] にて算出された  $7(m^2/g)$ を使用した。

### 5) 計算ケース

平成 28 年度[5]の計算ケース H28M1-1T、H28M1-2T を対象として、計算ケースを表 5.2.3-5 のように設定した。

取り扱う熱力学データベースは、フランスの地質調査所 (BRGM) のデータベース (thermoddemV1.10\_06Jun2017) [16]とする。

なお、拡散係数は、第 2 次 TRU レポートにおいてベントナイト系材料に用いられている次の関係式[12]に従い、空隙率の変化を考慮する。

ベントナイト系材料の実効拡散係数

$$De = 2.27 \times 10^{-9} \varepsilon^n$$

$$n = 2.22fs^{0.13} + 1$$

$fs$  : モンモリロナイト含有割合

$\varepsilon$  : 空隙割合

表 5.2.3-5 計算ケース

ケース	地下水組成	拡散係数	二次鉱物		熱力学データベース	昨年度の計算ケース
			カリ長石及び鉄サポナイト	その他の二次鉱物		
H29M1-1	溶液 1	空隙率関係式	平衡論	平衡論	Thermoddem V1.10_06Jun2017 [16]	H28M1-1T
H29M1-2	溶液 2		平衡論	平衡論		H28M1-2T



#### (4) 解析結果

解析結果を図 5.2.2-4 に示す。溶液 1、溶液 2 ともに M-S-H または F-S-H と鉄サポナイトが生成していることが確認された。

平成 28 年度[5]に実施した GWB で解析による Narra 地区の Mg-Si 系非晶質物質の安定相の解析結果より、アルカリ溶液から沈殿形成して生成していたスメクタイトは M-S-H がその前駆体である可能性が示唆されたが、ルソン島の Saile 鉱山のナチュラルアナログサイトの変質解析においても M-S-H と鉄サポナイトが同時に生成することが確認されたことから、サポナイトの生成に M-S-H が影響を与える可能性があることが解析上でも確認された。

Saile 鉱山のナチュラルアナログでは、鉄濃集帯としてノントロナイトと針鉄鉱であったが、これらの鉱物の生成は解析では確認されなかった。これらの鉱物は、Fe<sup>3+</sup>をもつ鉄鉱物であり、表層からの酸化水や微生物の影響で酸化還元電位が酸化側に変化することで、ナチュラルアナログサイトではこれらの鉄鉱物が生成したと考えられる。しかし、酸化還元電位の局所的な変化を現状の地球化学モデルに反映させることが難しいために、今回の計算ではそのような酸化還元電位が変化する条件は入れていないことが、原因と考えられる。

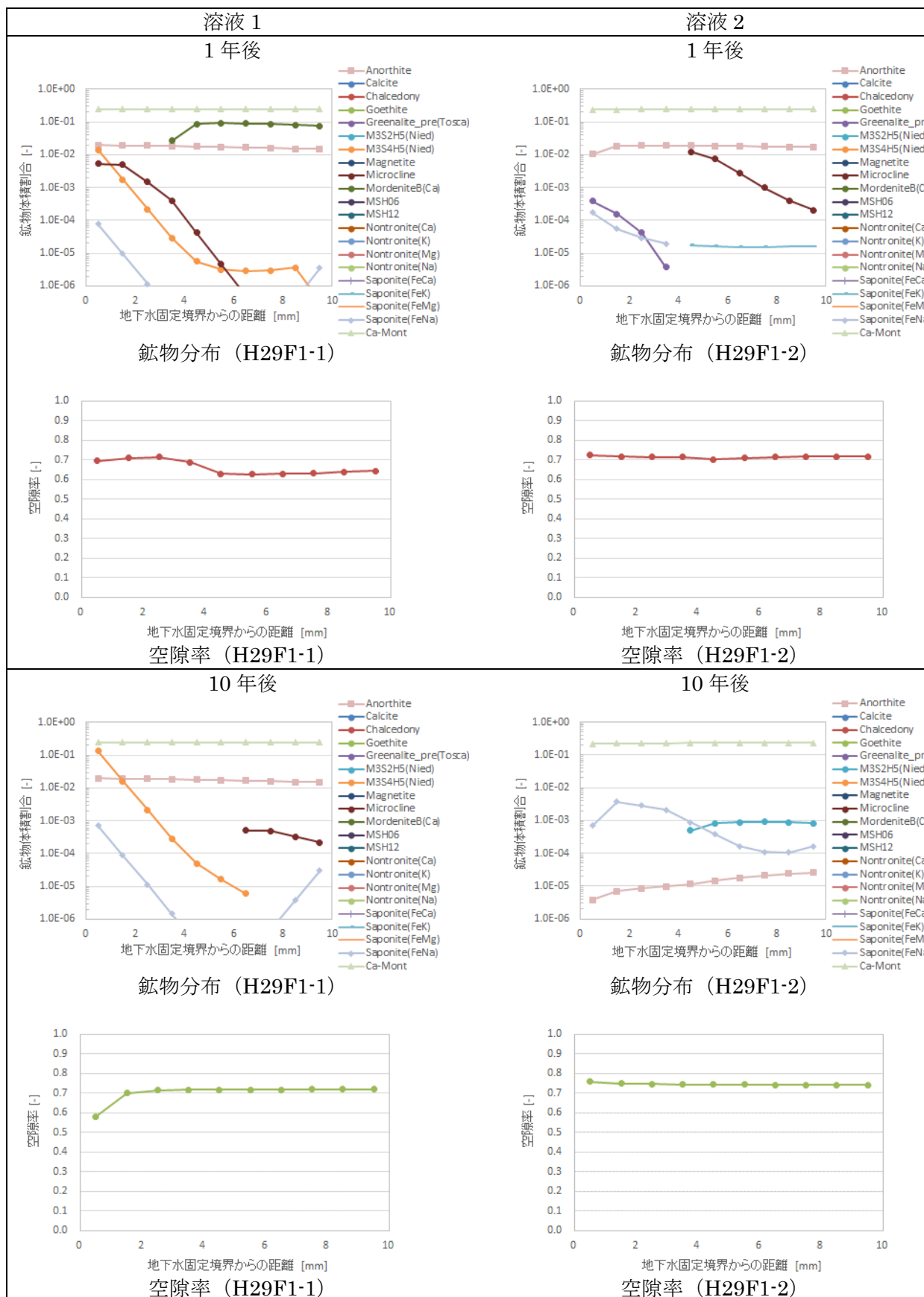


図 5.2.2-4 変質解析結果 (1年、10年後の鉱物分布と空隙率)

### 5.3 まとめ

オフィオライトの蛇紋岩化作用過程で生成した高アルカリ地下水とベントナイトとの相互作用において、アルカリ環境下のスメクタイトの安定性やアルカリ溶液からの二次鉱物生成挙動のベントナイトのアルカリ変質に伴う状態変遷評価について、パラワン島及びルソン島のナチュラルアナログを対象として以下の地球化学計算を実施した。

パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログ環境での安定相の解析から、Narra 地区で採取された地下水は、概ねサポナイトの安定領域にプロットされており、特に、サポナイトや鉄サポナイト等の 3 八面体型スメクタイトの前駆体の主要成分である、Mg, Fe, Si 濃度が高い領域において、サポナイトが安定相であることが確認できた。これらは Narra 地区のナチュラルアナログサイトの碎屑性堆積物中での観察結果と整合することから、高アルカリ地下水によってスメクタイト化が進んだことが地球化学計算の観点からもいえる。

Ca については、C-A-S-H とサポナイトの境界付近に Narra 地区の地下水はプロットされている。これは、C-S-H とサポナイトの共生が多く確認された、Ca 濃度が高いトレンチ 2 の碎屑性堆積物中の鉱物の産状と整合する。Al については、Al-rich のスメクタイトであるバイデライトと Fe, Mg-rich のスメクタイトであるサポナイトの境界付近にプロットされている。これは、降下火山灰堆積物中のスメクタイトで類似した産状がみられ、アルカリ変質によって、Al 成分の多いところはバイデライト、Fe, Mg 成分の多いところはサポナイトが生成することを、地球化学計算でも示している。また、縦軸を  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、横軸  $\text{SiO}_2$  にとった安定相図では、Narra 地区の地下水のプロット点はサポナイトの安定領域外ではあるが、地下水の溶存シリカの活量が実測値よりも高い濃度 ( $10^{-3}$  mol/L 程度) であれば、サポナイトの安定領域内に存在することとなる。溶存シリカの活量が高いと、サポナイトが安定することが分かった。

一方、セメント平衡水またはセメントーベントナイト平衡水の化学組成でも、Narra 地区の NA サイトと同様、サポナイトの安定領域内に存在していることが確認された。Mg<sup>2+</sup>濃度が検出限界以下のためプロット出来ない点があるが、間隙水が pH12.5 付近の場合、Mg<sup>2+</sup>の活量が  $10^{-7}$  mol/L 程度 ( $\log([\text{Mg}^{2+}]/[\text{H}^+]^2)=16.8$ ) であれば、サポナイトの安定領域である。現状のセメント平衡水のデータでは、Fe, Mg の影響は評価されていないが、処分場においては海水や鉄部材からの Fe, Mg の影響で、ゼオライトが安定相とはならないケースも十分考えられ、この評価は今後の課題である。

ルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログの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枕状溶岩の接触部の変質解析から、これまでの条件に M-S-H および F-S-H を二次鉱物の設定に追加したことにより、M-S-H または F-S-H と鉄サポナイトがアルカリ変質鉱物(二次鉱物)として生成していることが確認された。パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログの観察結果や安定相の解析結果から、アルカリ溶液から沈殿形成して生成していたスメクタイトについては、M-S-H がその前駆体である可能性が示唆されたが、ルソン島の Saile 鉱山のナチュラルアナログサイトの変質解析においても M-S-H と鉄サポナイトが同時に生成することが確認され、サポナイトの生成に M-S-H が影響を与える可能性があることを解析上でも確認できた。

Saile 鉱山のナチュラルアナログでは、鉄濃集帯としてノントロナイトと針鉄鉱であったが、これらの鉱物の生成は解析では確認されなかった。これらの鉱物は、 $\text{Fe}^{3+}$ をもつ鉄鉱物であり、表層からの酸化水や微生物の影響で酸化還元電位が酸化側に変化することで、ナチュラルアナログサイトではこれらの鉄鉱物が生成したと考えられる。しかし、酸化還元電位の局所的な変化を現状の地球化学モデルに反映させることが難しいために、今回の計算ではそのような酸化還元電位が変化する条件は入れていないことが、原因と考えられる。

[参考文献]

- [1] (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).
- [2] 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).
- [3] [http://thermoddem.brgm.fr/IMG/txt/phreeqc\\_thermoddemv1.10\\_11dec2014.txt](http://thermoddem.brgm.fr/IMG/txt/phreeqc_thermoddemv1.10_11dec2014.txt).
- [4] 日本原子力研究開発機構 (2014): 平成 25 年度地層処分技術調査等事業セメント材料影響評価技術高度化開発報告書
- [5] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 28 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 - (2017).
- [6] (公財) 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) - 人工バリアの長期挙動の評価 - (2009).
- [7] (公財) 原子力環境整備促進・資金管理センター: 平成 21 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) - 人工バリアの長期挙動の評価 - (2010).
- [8] 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).
- [9] Anraku, S., Morimoto, K., Sato, T. and Yoneda, T.: Formation of Secondary Minerals and Uptake of Various Anions Under Naturally-Occurring Hyperalkaline Conditions in Oman. *Proc. ASME*. 44083; ASME 2009, 12th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management, **2**, 851-856 (2009).
- [10] 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).
- [11] <http://www.gwb.com/>
- [12] 電気事業連合, 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, 根拠資料集 4-2 (2005).
- [13] 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).
- [14] (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).
- [15] [http://thermoddem.brgm.fr/IMG/txt/phreeqc\\_thermoddemv1.10\\_11dec2014.txt](http://thermoddem.brgm.fr/IMG/txt/phreeqc_thermoddemv1.10_11dec2014.txt).
- [16] [http://thermoddem.brgm.fr/IMG/txt/phreeqc\\_thermoddemv1.10\\_06jun2017.txt](http://thermoddem.brgm.fr/IMG/txt/phreeqc_thermoddemv1.10_06jun2017.txt)
- [17] Dominik Nied, Kasper Enemark-Rasmussen, Emilie L'Hopital, Jorgen Skibsted and Barbara Lothenbach: Properties of magnesium silicate hydrates(M-S-H). *Cement and Concrete Research*, **79**, 323-332 (2016).
- [18] Nicholas J. Tosca, Stephen Guggenheim and Peir K. Pufahl: An authigenic origin for Precambrian greenalite: Implications for iron formation and the chemistry of ancient seawater. *Geological society of America*, **128**(3/4), 551-530 (2016).
- [19] 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).



## 第6章 まとめ

### 6.1 今年度の調査結果のまとめ

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、最も文献調査等でナチュラルアナログの成立要件が高いと評価されたフィリピンルソン島において開始された。

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は、ここで取り扱う課題も含めセメント影響が重要な問題であると位置づけられている。そのため、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）の長期健全性評価に係る検討として、ナチュラルアナログ調査を開始した。本事業では、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、ナチュラルアナログ調査を進めている。

特に、平成 24 年度まで実施してきたルソン島 Saile 鉱山の Fossil Type のナチュラルアナログサイトでは、過去に浸出していたアルカリ地下水の地球化学特性やその反応時間が明確でないことが、解決が困難な課題であった。それらがより明確に理解できる場として、現在も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平成 27 年度にパラワン島 Narra 地区において確認した。さらに、ナチュラルアナログにおけるアルカリ変質プロセスやそのような反応が生じる環境条件を、フィールド調査のデータに基づき明らかにし、それが TRU 処分場のアナログとしてどう位置付けられるかを示すための検討を今年度は実施した。

上記に示すこれまでの検討の背景を踏まえ、平成 29 年度の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地質環境調査 (6.1.2)、年代測定による反応時間の評価 (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とナチュラルアナログ (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

5 年のナチュラルアナログ調査の全体計画と平成 28 年度までの調査結果を踏まえ、平成 29 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、気象状況に対応可能な安全の確保と限定された時間でのフィールド調査の効率性を踏まえて検討した。

### 6.1.2 ナチュラルアナログサイトの地質環境調査

オフィオライト起源の高アルカリ地下水が現在もスメクタイトを含む碎屑性堆積物に浸出している Active Type のナチュラルアナログを確認した Narra 地区において、スメクタイトの地球化学的環境の状態変化に伴う鉱物学的変遷とその安定性の評価を目的として、地質環境調査（地質精査（ルートマッピング）、トレンチ等による露頭観察と試料採取、トレンチ内湧水等の地下水調査、基盤岩であるパラワンオフィオライトの岩石鉱物学的な露頭観察を実施した。特に、スメクタイトの生成についてアルカリ地下水との相互作用かアルカリ地下水を介しない風化によるものとの差を明らかにするために、アルカリ影響を受けていない露頭及びアルカリ環境下にある平原（Narra3-2 サイト）におけるトレンチ調査及びストリッピング調査を重点的に実施した。

地下水調査では、Narra3-1 地点の高アルカリ源泉の南東約 100m 下流側に分布する石灰華（Travertine）の平坦地となっている Narra3-2 地点で調査したトレンチ 5～7（トレンチ 6、7 は今年度掘削）において実験ではスメクタイトの溶解が顕著になる pH11 程度の高アルカリ地下水が浸出している碎屑性堆積物を確認した。これまでの高アルカリ地下水と同様に Mg 濃度が低く、Ca 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もち、このような高アルカリ地下水が、炭酸塩沈殿物が見られ、河川系扇状地的な地形的特徴をもつ Narra3-2 調査サイト全域の地下に高アルカリ地下水が流動していると考えられる。

ルートマッピングに基づき、アルカリ影響を受けていない蛇紋岩化作用を受けたハルツバージヤイトが露出しているストリッピング掘削地点（ストリッピング 1～3）を選定した。また、トレンチ 4 及び 5 で観察される頭大サイズの斑れい岩礫の供給源を探索し、Babado 滝から上流のクリーク沿いで基盤岩に貫入した細粒斑れい岩の岩脈露頭を確認した。

トレンチ調査では、下部層を構成する粘土質の碎屑性堆積物の分布状況とその走行・傾斜方向および、基盤深度から、平成 28 年度に実施したトレンチ 3～5 に対して、より東傾斜で、走行に平行な 2 サイトをトレンチ掘削地点（トレンチ 6～7）として選定した。また、アルカリとの相互作用がない物理的風化環境下にある碎屑性堆積物の採取するためのトレンチとして、Narra3-2 サイトの南西部の小高い丘を形成している地点（トレンチ 8）を選定した。トレンチ 6 及びトレンチ 7 の岩質は、既存のトレンチ（トレンチ 2～5）と同様で、最上位から、(i)未固結なトラバーチン起源の炭酸塩沈殿物、(ii)比較的固結した炭酸塩堆積物、(iii)黒色で粗粒砂質な碎屑性堆積物で、パッチ状に粘土質マトリックスが偏在的に挟在、(iv)(iii)の下位にルーズで不規則に配列したパラワンオフィオライト起源（一部斑れい岩を含有）の扁平な巨礫や垂円礫が層間内礫層として挟在、

(v)トレンチ底部の黒色の泥質（一部粘土化）な碎屑性堆積物である。ただし、トレンチ 7 では、床面近傍に、特異的な淡灰色からクリーム色な層厚約 20cm で、ほぼ水平に連続性のある細粒砂質堆積物（一部泥質なマトリックス）が観察された。また、この白色細粒砂質堆積物を含むトレンチ 6、7 の堆積物には高アルカリ地下水が浸出している。一方、トレンチ 8 は高アルカリ地下水の浸出が見られない、未固結で、淡褐色のルーズな砂質の風化堆積物であった。

ストリッピング調査では、各ストリッピングにおいて細屑化の度合いに差がみられるものの、大きな違いはなく、基盤岩の表層部は、塊状で、節理周辺での角礫化と、割れ目系優勢部での細礫化に伴う岩屑が顕著な物理的風化堆積物で構成されている。細礫化が顕著である風化堆積物では、アルカリ地下水を介しない風化によるスメクタイト生成が期待されるため、これらの岩石試料を鉱物試験のために採取した。

岩石鉱物学的調査として、トレンチ及びストリッピングから採取した試料を対象として、XRD による鉱物分析、XRF による全岩化学分析、薄片の光学顕微鏡観察、スメクタイトの定量分析を実施した。

XRD による鉱物分析では、定方位法 X 線回折パターンのエチレングリコール処理後のピークシフトから、トレンチ及びストリッピングで採取したすべての試料でスメクタイトを同定した。アルカリとの相互作用のあるトレンチ 6、7 の超塩基性岩起源の碎屑性堆積物はスメクタイト化が進んでいるが、トレンチ 7 の降下火山灰堆積物及びアルカリとの相互作用のないトレンチ 8 の風化堆積物はスメクタイトの相対強度は低く、スメクタイト含有量は少ないとみられる。そのトレンチ 8 の風化堆積物には斜長石（曹長石）、普通輝石、角閃石、蛇紋石が同定され、班れい岩由来の堆積物であると考えられる。一方、トレンチ 7 の降下火山灰堆積物も斜長石（曹長石）、角閃石の相対強度が高いが、石英がみられるのに対し普通輝石が全くみられない点が、トレンチ 8 の班れい岩由来の堆積物の鉱物組み合わせとは異なる。アルカリとの相互作用のないストリッピングの風化堆積物は、蛇紋石が主要な鉱物であり、トレンチの超塩基性岩起源の碎屑性堆積物に比べるとスメクタイトの相対強度は低く、また鉱物のバリエーションが圧倒的に少ない特徴をもつ。

XRF による全岩化学分析では、パラワンオフィオライト超苦鉄質複合岩体を構成する蛇紋岩化が進んだハルツバージャイト（主成分鉱物は斜方輝石、かんらん石で、少量の単斜輝石および、少量のクロム鉄鉱と磁鉄鉱など）起源であるトレンチの碎屑性堆積物とストリッピングの蛇紋岩質風化堆積物は原岩のバルク組成を反映し、MgO、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に富み、CaO、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に著しく乏しく、Na<sub>2</sub>O、K<sub>2</sub>Oにも乏しい。また、シリカ成分(SiO<sub>2</sub>)に乏しい不飽和な超塩基性岩としての特性もある。トレンチの碎屑性堆積物の下位層・上位層の関係では、下位の深度が深くなるほど（より泥質になるほど）SiO<sub>2</sub>含有率は低くなるのに対して、逆にMgOは高くなる傾向がある。トレンチ・ストリッピング両者の比較では、ストリッピングの蛇紋岩質風化堆積物は、スメクタイト化がより進んでいるトレンチの碎屑性堆積物に比べてSiO<sub>2</sub>が少なく、CaOはほとんどない。CaOの違いは、アルカリ環境下でCaOが供給されるトレンチ試料と違い、風化過程でCa成分が溶脱しているためだと考えられる。また、トレンチの碎屑性堆積物でもいえるが、同じハルツバージャイトを起源とするストリッピングの蛇紋岩質風化堆積物も含めて、SiO<sub>2</sub>とMgOでは明確な負の相関がみられる。一方、トレンチ 8 の班れい岩起源の風化堆積物とトレンチ 7 の降下火山灰堆積物については、他の試料よりもAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が多く、MgOとFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が少ない傾向が明確にみられた。これ

らの堆積物に多く見られる斜長石の Al が反映されているためだと考えられる。トレンチ 7 では、降下火山灰堆積物に近接する碎屑性堆積物はその影響を受けて  $\text{Al}_2\text{O}_3$  がやや多い。このような現象はトレンチ 5 でもみられ、斑レイ岩質の礫岩の影響を受けた碎屑性堆積物は  $\text{Al}_2\text{O}_3$  含有量が多かった。

光学顕微鏡による観察及びモード分析から、XRD で同定した鉱物の産状や XRF による化学特性を裏付けるデータが得られ、アルカリ環境下にある①ハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物と②（トレンチ 7 底部の）降下火山灰堆積物、アルカリとの相互作用のない物理的風化環境下の③（ストリップングの）蛇紋岩碎屑性堆積物、④（トレンチ 8 の）斑レイ岩質碎屑性堆積物、に分類して、それらの鉱物組み合わせとその量比を以下にまとめることができる。①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物については、基質はスメクタイトが多く、岩片・鉱物片は、初生鉱物であるかんらん石が蛇紋岩化作用に伴い変質した低温型の蛇紋石（リザルダイト・クリソタイル）、斜方輝石も蛇紋石に変質、自形の高温型のアンチゴライト、トレモラ角閃石、炭酸塩鉱物、磁鉄鉱などであり、基質の量比から、風化・変質の抵抗度は 25%程度である。②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物については、基質はスメクタイトが少なく、火山灰や火山ガラス、普通角閃石、斜長石などが散在し、岩片・鉱物片は、初生鉱物であるかんらん石は、蛇紋岩化作用に伴い殆どがリザルダイト・クリソタイルに、斜方輝石もリザルダイトに変質し、一部、自形のアンチゴライト、磁鉄鉱、ブルーサイト、タルク、クロムスピネル、不透明鉱物、粘土鉱物などであり、基質の量比から、風化・変質の抵抗度は 55%程度である。③物理的風化環境下の蛇紋岩碎屑性堆積物については、基質はスメクタイトが優勢であるがその量比は①よりも少なく、岩片・鉱物片は、初生鉱物（出発物質）であるかんらん石の殆どが、蛇紋岩化作用に伴いクリソタイル・リザルダイト、一部、自形のアンチゴライトと、少量の磁鉄鉱、ブルーサイト、タルク、不透明鉱物などであり、基質の量比から、風化・変質の抵抗度は 60%強である。④物理的風化環境下の斑レイ岩質碎屑性堆積物については、基質はスメクタイトが少なく沸石等が存在する可能性があり、岩片・鉱物片は、岩片として斑レイ岩（完晶質・等粒状、斜長石、斜方輝石、単斜輝石、極少量のかんらん石（赤褐色に変質））と蛇紋岩（リザルダイト・クリソタイルのメッシュ組織、蛇紋石の大部分が風化鉱物）、鉱物片として、斜方輝石は蛇紋石に交代、未変質な単斜輝石や斜長石である。

スメクタイト化の定量については、モード分析から、①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物で 39.3~44.1%、③物理的風化環境下の蛇紋岩碎屑性堆積物で 33.0%、②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物で 16.4%であり、XRD のピークの強さとほぼ整合するが、XRD からは①アルカリ環境下のハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物はさらにスメクタイト化が進んでいる可能性がある。また、粘土成分の定量分析結果からも、アルカリ環境下の碎屑性堆積物の粘土成分にはばらつきがあるものの、総じて風化環境下の碎屑性堆積物よりも粘土成分が多い傾向を示す。②アルカリ環境下の降下火山灰堆積物はスメクタイト化が最も進んでないことから、火山ガラスはアルカリ環境下でそれほど変質しないということがいえる。④物理的風化環境下の斑レイ岩質碎屑性堆積物は風化環境の苦鉄質碎屑性堆積物と粘土成分について大差はみられない。したがって、Al 成分の量比そのものがスメクタイト化に影響するというのではなく、堆積物中の主要鉱物が風化過程あるいはアルカリ環境下でどの程度溶解が進むかが、スメクタイト化の割

合を律速しているものと推察される。

### 6.1.3 年代測定による反応時間の評価

パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログは現在もアルカリ地下水が湧出する Active Type のサイトであり、高アルカリ地下水が湧出した初期の年代がわかれば、反応時間の最小値として時間スケールを評価することが可能である。ナチュラルアナログサイトである Narra3-2 地点のトレンチでは、アルカリ地下水によって生成・堆積した炭酸塩や土壌（腐葉土）及びそれらの中に取り込まれた木片や貝殻見られ、放射性炭素年代( $^{14}\text{C}$ )法の適用が可能である。、 $^{14}\text{C}$ 年代で評価可能な年代よりさらに古い年代なら、熱ルミネッセンス(TL)法も適用できる可能性がある。

これまでに実施した Narra3-2 地区のトレンチの  $^{14}\text{C}$  年代測定から、木片 (2,443~4,669 年)、カワニナ貝殻 (2,401~5,203 年)、土壌のヒューミン (9,647~9,721 年) 炭酸塩 (1,965 年) であったことを踏まえ、今年度は、アルカリ地下水から方解石が形成されたものが主である炭酸塩の年代が、アルカリ地下水が浸出し始めた時間ともっとも直結すると考えられることから、スメクタイト化が進んでいる碎屑性堆積物直上の炭酸塩を中心に放射性炭素年代測定を実施した。また、トレンチ 7 では白色細粒砂質堆積物層を確認したため、これらの前後の層も含めて土壌中のヒューミンの放射性炭素年代測定を実施した。

各種試料の放射性炭素年代測定結果から、トレンチの底部付近で採取した土壌試料（ヒューミン）が、最も古い年代を示しており、トレンチ 3~5 と同様の結果を示した。土壌（碎屑性堆積物）中のヒューミンは土壌腐食物質のうちアルカリ、酸ともに不溶性の有機物であり、その放射性炭素年代が堆積年代を示すと考えられる。トレンチ 6 ( $4,008 \pm 73$  年)、トレンチ 7 ( $4,516 \pm 74$  年) という結果から、今年度掘削したトレンチの碎屑性堆積物の堆積年代が 4,000~4,500 年程度と推察される。昨年度のトレンチでは、トレンチ 3 ( $9,721 \pm 57$  年)、トレンチ 5 ( $9,647 \pm 56$  年) であったことを踏まえると、扇状地様である Narra3 サイト（Narra3-1 の源泉から Narra3-2 のトレンチ掘削地点にわたる調査サイト）において走行方向での碎屑性堆積物の堆積年代はほとんどない、一方で傾斜方向では下部層（東南）方向の堆積年代の方が 5,000 年程度若いことがわかる。

木片の  $^{14}\text{C}$  年代については、トレンチ 6 の炭酸塩中の木片 ( $818 \pm 71$  年)、碎屑性堆積物中の木片 ( $1,227 \pm 72$  年及び  $62 \pm 71$  年) トレンチ 7 の礫混合炭酸塩中の木片 ( $698 \pm 72$  年) であった。炭酸塩中の木片が碎屑性堆積物中の木片よりも年代が若いのは、調査サイトの堆積過程から整合的である。ただし、埋没していた碎屑性堆積物の堆積年代よりも木片のほうがかなり若い年代が評価されるケースもみられた。このことから、木片については、断続的に生じていたと考えられるオフィオライトの浸食・運搬・埋没過程において、埋没した木片の位置が移動していた可能性があり、必ずしも木片の年代はそれが埋没していた堆積物の堆積年代と一致するとは限らないことを示している。

炭酸塩の  $^{14}\text{C}$  年代については、トレンチ 6 の炭酸塩 ( $1,703 \pm 72$  年及び  $942 \pm 71$  年)、トレンチ 7 の炭酸塩 ( $2,771 \pm 73$  年) であった。トレンチ 7 の炭酸塩はこれまでに測定した炭酸塩で最も古い年代を示す炭酸塩である。炭酸塩については、アルカリ地下水と大気中の炭酸ガスとの相互



作用により方解石の沈殿によって形成したものが主であり、アルカリ地下水が連続して流出している間にさらに古い時代に生成した炭酸塩や不純物を固結しながら堆積したと考えられるため、アルカリ地下水との接触期間という意味では、その生成年代がもっとも接触時間と直結する年代と考えられる。また、したがって、トレンチ 7 の炭酸塩の ( $2,771 \pm 73$  年という)  $^{14}\text{C}$  年代から、アルカリ地下水が少なくとも 2,800 年程度前からこのサイトに流出し、碎屑性堆積物にも進出していたと考えられる。

一方、トレンチ 1 及びトレンチ 6 の炭酸塩については、ルソン島の Fossil Type のナチュラルアナログで適用した TL 年代法の適用性を検討した。その結果、トレンチの炭酸塩試料は、方解石でみられる  $230\text{-}260^\circ\text{C}$  あたりに強いピークがみられない、一方で、 $360\text{-}400^\circ\text{C}$  付近に比較的強いピークを示した。これは合成アラゴナイト放射線の照射なしの TL ピークと類似しており、この異常なピークは放射線損傷によるものではなく、放射線損傷とは無関係の何らかの結晶構造の欠陥による可能性が高いと考えられる。この構造欠陥の要因を解明するために、結晶度測定、微量元素濃度の比較、粒径や試料調整法の違いによる TL 曲線の比較を行ったが、その原因を特定することは出来なかった。

構造欠陥由来の発光とみられる  $360\text{-}400^\circ\text{C}$  のピークを Mn 添加合成方解石のピーク位置を参考に分離した結果、全ての試料においてその年代値は若くなったが、依然 10 万年を超える値となった。これは現在も湧出している高アルカリ水から析出したとみられ、比較的若い年代値が期待されている本試料の予想に反する。この原因としては  $200\text{-}280^\circ\text{C}$  のピークにも構造欠陥由来の発光が含まれている可能性などが考えられる。したがって、本試料の年代値をより正確に算出するには本試料の正確なピーク位置を特定することや構造欠陥由来の発光についてさらなる研究が必要である。

#### 6.1.4 アルカリ環境下での長期変質プロセスとナチュラルアナログ

##### (1) ナチュラルアナログ試料の鉱物組成及び組織に関する分析・観察

Narra 地区のトレンチ及びストリップングから採取したスメクタイトがみられる碎屑性堆積物について、バルク分析や顕微鏡観察の結果から分類できる、アルカリ環境下にある①ハルツバージャイト起源の碎屑性堆積物と②(トレンチ 7 底部の) 降下火山灰堆積物、アルカリとの相互作用のない物理的風化環境下の③(ストリップングの) 蛇紋岩碎屑性堆積物、④(トレンチ 8 の) 班れい岩質碎屑性堆積物を対象に実施した EPMA による観察・分析から、スメクタイトの形成・進展プロセスに係るスメクタイトの組成・共生関係・組織・構造について以下の知見が得られた。

スメクタイトの源岩となる岩石タイプの分類から、高アルカリ地下水との相互作用のない風化された堆積物のスメクタイトは、Ca が非常に少なく、これらはそれぞれノントロナイトとバイデライトに分類される。バイデライトは降下火山灰堆積物試料にも認められるが、これには Ca が含まれている。したがって、アルカリとの相互作用により Ca がスメクタイトに供給されていると考えられる。

スメクタイトの Al 組成については、バイデライトが主である斑れい岩起源の風化された堆積物は明らかにその含有量が多い。一方で、トレンチ 5 の超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物でも斑れい岩起源の層内礫層の影響で比較的 Al 成分が多く、アルカリ相互作用により生成したサポナイトにも Al が取り込まれている。降下火山灰堆積物では Al 含有量の差が大きく、源岩の組成を反映した Al を含むバイデライトと Al の少ないサポナイトが共存していると考えられる。また、Narra の堆積物中のスメクタイトについては、Al と Cr、Al と Fe、Si には負の相関がある。

Si-Al-(Fe+Mg) の 3 成分三角プロットから、Fe、Mg に富むサポナイト、ノントロナイト、スチープンサイト組成のスメクタイトが多く、特に超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物中のスメクタイトはほとんどがこのような組成のスメクタイトである。EPMA の産状観察結果も考慮すると、Narra の高アルカリ環境では、サポナイトあるいは鉄サポナイトが主として生成し、条件によって一部ノントロナイトやスチープンサイトが生成していると考えられる。それに対して、Al に富む斑れい岩質堆積物と降下火山灰堆積物では、Fe、Mg に富むサポナイトに分類されるスメクタイトがある一方で、モンモリロナイトやバイデライトに分類される Al に富むスメクタイトも多くみられる。

八面体イオンの総数のヒストグラムから、Al-poor な環境でのスメクタイトは 2 八面体型と 3 八面体型の中間組成のスメクタイトが多いのに対して、Al-rich な環境では 2 八面体型のスメクタイトと 3 八面体型のスメクタイトと明確に区別されるスメクタイトが多いことがわかる。降下火山灰堆積物では、ベントナイトの主要粘土鉱物であるモンモリロナイトが同定された。2 八面体型のモンモリロナイトはアルカリ環境下で一部は溶解していると考えられるが、処分環境よりもはるかに移流による物質移動が大きいパラワンの環境でも、数千年にわたりアルカリ環境下で残存している。一方で周囲に苦鉄質鉱物が存在するアルカリ環境下で Fe、Mg に富むサポナイト化も見られ、苦鉄質の堆積物に比べると、その程度は小さい。

## (2) スメクタイトの形成環境と形成プロセス

ナチュラルアナログサイトであるパラワン島 Narra 地区のスメクタイトの形成環境と変質反応プロセスは、物理的風化環境と、アルカリ地下水環境に区別される。

物理的風化環境下でのスメクタイトの形成環境と変質反応プロセスについては、苦鉄質鉱物を主成分とする碎屑性堆積物の地球化学的環境下(Mg-Fe-rich, Al-free)でのスメクタイト形成プロセスとしては、前駆鉱物とこのような溶液との相互作用により、2 八面体型のスメクタイト(ノントロナイト)と 3 八面体型で Al-poor な Mg-Fe スメクタイト(サポナイト)が初生鉱物である。その後、Fe-rich なサポナイトへ鉱物学的な組成変化(変換)をする。一方、珪長質鉱物と少量な苦鉄質鉱物を主成分とする碎屑性堆積物の地球化学的環境下(Al-Si-rich)でのスメクタイトの形成は、2 八面体型の Al-rich で Mg-poor なスメクタイト(バイデライト)と苦鉄質鉱物を交代して生成した 3 八面体型スメクタイト(サポナイト)である。

アルカリ地下水環境下でのスメクタイトの形成環境と変質反応プロセスについては、Mg、Fe に富む超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物では、高アルカリ地下水との相互作用により、苦鉄質鉱物や蛇紋石、緑泥石が溶解して、Mg、Fe、Si が溶解し、高アルカリ地下水中の Ca、少量の斑

れい岩由来の斜長石から溶出する Al によって、スメクタイトの前駆体となる M-S-H や F-S-H と C-S-H が沈殿する。Fe や Al も容易に取り込み、M-F-A-S-H のようなやや複雑な組成にもなりうる M-S-H から、(Mg) サポナイト、鉄サポナイト、スチープンサイト等の 3 八面体型のスメクタイトが生成し、さらに、Fe-rich の 3 八面体型スメクタイトの周囲では、より安定なノントロナイトが生成する。一方、C-S-H は数千年の時間スケールでジャイロライト等に一部結晶化したり、カルサイトに变化したりする。Al に富む降下火山灰堆積物では、高アルカリ地下水との相互作用により、降下火山灰堆積物中の斜長石や火山ガラス、火山軽石（パミス）が一部溶解して、Al, Si が溶解し、高アルカリ地下水中の Ca、周囲の苦鉄質鉱物等から溶出する Mg, Fe によって、Al-rich などころでは 2 八面体型のバイデライト、Fe-rich などころでは超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物と同様にサポナイト等の 3 八面体型のスメクタイトが生成し、一部そのリムでノントロナイトが生成する。

アルカリ地下水環境下でのスメクタイト生成過程について、Mg, Fe に富む超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物、Al に富む降下火山灰堆積物との比較では、スメクタイトの定量分析から、苦鉄質堆積物のほうがスメクタイトの度合いが大きい。一方、斑れい岩由来礫等からの Al はスメクタイト化を妨げず容易に 3 八面体型のサポナイト等に取り込まれること、降下火山灰堆積物では変質していない火山ガラスが多くみられることから、Al 成分の量比そのものがスメクタイト化に影響するということではなく、高アルカリ地下水との相互作用により堆積物中の主要鉱物の溶解の程度が、スメクタイト化の割合を律速していると考えられる。また、トレンチでの観察した岩質から、降下火山灰堆積物はアルカリ環境下でスメクタイト化が顕著でない一方、苦鉄質堆積物に比べて緻密で固結化がより進んでいるという特徴もある。

反応時間については、土壌試料（ヒューミン）の  $^{14}\text{C}$  年代から考察できる。高アルカリ地下水との直接の反応時間は炭酸塩の  $^{14}\text{C}$  年代から少なくとも 2,800 年程度であることは示されているが、碎屑性堆積物が堆積した時代からアルカリ地下水との相互作用あったと考えると、土壌試料（ヒューミン）の  $^{14}\text{C}$  年代である、トレンチ 2 ( $^{14}\text{C}$  年代：2,413±82 年)、トレンチ 7 ( $^{14}\text{C}$  年代：4,516±74 年)、トレンチ 3 ( $^{14}\text{C}$  年代：9,721±57 年) が高アルカリ地下水との相互作用期間と仮定できる。トレンチ 2 では空隙等を充填するスメクタイトと共生する C-S-H が多くみられことから、アルカリ環境下において、苦鉄質鉱物等溶解に伴い、Si と Mg, Fe との結合による M-S-H や F-S-H の形成と、アルカリ溶液からの Ca と Si との結合による C-S-H の形成は、高アルカリ地下水が浸出してそれほど時間を経ずに生じ、M-S-H や F-S-H は速やかにスメクタイト質に変化したものと考えられる。一方、XRD のトレンチ 2 のスメクタイトのピークはトレンチ 7 やトレンチ 3 よりもやや弱く、これは過渡期のスメクタイト化を示していると考えられる。従って、アルカリによる溶解を伴う変質反応により生じた沈殿は速やかにスメクタイト質になるが、より Si-rich な結晶質のスメクタイトに成長・進展する反応は、アルカリとの相互作用が始まって 2,400 年～4,500 年程度の長期の反応であることがいえる。

### (3) 人工バリアの長期健全性に係るナチュラルアナログの知見

#### ● 高アルカリ溶液はスメクタイトを生成させる環境になりうる。

TRU 廃棄物の地層処分場でのベントナイト-セメント相互作用での最も重要な反応は、ベ

ントナイトの主要粘土鉱物であるスメクタイト（2八面体型のモンモリロナイト）の高アルカリ溶液による溶解・変質である。しかしながら、Narra 地区のサイトでは、高アルカリ環境(pH > 11)がスメクタイト（Mg, Fe に富むスメクタイト（3八面体型のサポナイト、2八面体型のノントロナイト等））を生成する環境でもあることを示している。もちろん、このようなスメクタイトが生成する高アルカリ環境では、スメクタイトが長期にわたり安定に存在する。

このキーとなるのは Mg, Fe の存在であり、GWB (Geochemist's WorkBench) による地球化学計算でも、Narra 地区の地下水環境ではサポナイトが安定相と評価された。この高アルカリがサポナイトを生成するという環境は、このようなフィリピンの苦鉄質鉱物に富み高アルカリ地下水が浸出する極めて特殊なパラワン島 Narra 地区に限ったものではなく、国内の地質環境にも当たり前に存在する Mg, Fe が高アルカリに溶出すると、高アルカリ溶液による変質鉱物がスメクタイトになることは十分ありうる話である。実際、ルソン島のベントナイトではサポナイトが生成している。また、セメント浸出水の安定相図から、高アルカリ条件で  $Mg^{2+}$  の活量が上がるとサポナイトの安定領域になることを確認している。

- **Fe, Mg に富む高アルカリ環境での二次鉱物はゼオライトではなくスメクタイトである。**

前述したメッセージと重なる点でもあるが、Narra 地区の地下水環境はこのキーとなるのは Mg, Fe の存在であり、地球化学計算からサポナイトが安定相であり、実際に Narra 地区のアルカリ環境下の堆積物中にはゼオライトはほとんど存在せず、アルカリ変質によって生成したスメクタイトは主に 3八面体型のサポナイトである。アルカリ変質反応でキーとなるのは Si の挙動であり、Fe, Mg に富む高アルカリ環境では、Si は、アルカリに取り込まれてゼオライトが生成するのではなく、Fe, Mg と結びついて前駆体となる M-S-H や F-S-H 等で沈殿し、それらが (Mg) サポナイト、鉄サポナイト、スチーブンスサイト等の 3八面体型のスメクタイトが生成する。降下火山灰堆積物でも、Al-rich などところでは、2八面体型のバイデライトも生成するが、サポナイトの生成のほうが多い。

実際には、M-S-H は Fe や Al も容易に取り込み、M-F-A-S-H のようなやや複雑な組成のものでできるとみられる。

- **高アルカリ環境でのスメクタイト質の M-S-H の生成は速やかに生じるが、スメクタイトの結晶化は 2,400~4,500 年程度の長期にわたる反応である。**

Narra 地区の苦鉄質の堆積物中で生成するスメクタイトには C-S-H と共生している産状が多くみられる。アルカリ溶液からの Ca と Si との結合による C-S-H の形成は、高アルカリ地下水が浸出してそれほど時間を経ずに生じ、M-S-H や F-S-H は速やかにスメクタイト質に変化したものと考えられる。Mg 鉱物への変質プロセスでは、M-S-H の生成（沈殿）速度ではなく、高アルカリ溶液と反応する出発物質の溶解速度に律速すると考えられる。ただし、そのようなアルカリとの相互作用により生成した M-S-H や F-S-H は時間をそれほど経ずにスメクタイト質に変化するが、堆積年代の異なるトレンチの碎屑性堆積物のスメクタイトのピーク強度の差から、アルカリとの相互作用が始まって 2,400 年~4,500 年程度の長期の時間を経て、より Si-rich な結晶質のスメクタイトに成長・進展する。

- **ベントナイトは高アルカリ溶液で一部変質するかもしれないが、概ね、長期間健全である（緩衝材としての機能が損なわれない）。**

パラワン島 Narra 地区のサイトではスメクタイトのアルカリ変質プロセスを直接観察できるナチュラルアナログサイトであるが、ここで主にみられるスメクタイトは、サポナイト、ノントロナイト、スチーブンサイトといった Fe と Mg 成分に富むスメクタイトであることである。処分場の変質プロセスを考えた場合、珪長質成分に富むモンモリロナイトや随伴鉱物で構成されるベントナイトのアルカリ変質で、当ナチュラルアナログサイトで観察される Fe, Mg 成分に富むスメクタイト現実的に生成するののかという点を考慮しなければならない。

ルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログサイトでは(Ca 型モンモリロナイトを主要鉱物とする) Ca 型ベントナイトに基盤岩(玄武岩質枕状溶岩)の亀裂を流路とする pH11 程度の高アルカリ地下水が接触し、枕状溶岩-ベントナイト界面で 5mm 程度のベントナイトのアルカリ変質が確認された。この微小の変質領域でのアルカリ変質による二次鉱物を同定しており、界面付近の玄武岩ガラスの溶解に伴い溶出した 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 型モンモリロナイト) し、一部は溶解反応を伴い鉄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である。

この Saile 鉱山でのアルカリ変質プロセスでまず着目されるのは、モンモリロナイトを含むベントナイトのアルカリ変質反応において、Fe イオンの影響を強く受け、Fe を含むスメクタイト等の鉄粘土鉱物が二次鉱物として生成されることである。鉄を含むスメクタイト (3 八面体型サポナイトや 2 八面体型ノントロナイト) については、Saile 鉱山では、Ca 型モンモリロナイトのアルカリ溶液への溶解・沈殿反応により、玄武岩ガラス等から供給される  $Fe^{2+}$  を使って鉄を含むスメクタイトが生成しているのに対し、Narra 地区では、アルカリ溶液に超塩基性岩起源の碎屑物中の前駆鉱物 (初生苦鉄質鉱物と蛇紋石・緑泥石の変質鉱物) の溶解によって供給される Mg, Fe, Al, Si が過飽和になり、C-S-H を伴って、サポナイト等の Mg-Fe rich スメクタイトが生成し、それらの一部から 2 八面体型ノントロナイトが生成 (進展) する。

すなわち、Narra 地区でのアルカリ溶液から鉄を含むスメクタイトが生成するプロセスは、Saile 鉱山のアルカリ変質プロセスと共通しており、アルカリによって Fe を含むスメクタイトが生成するプロセスはベントナイト-アルカリ相互作用でも生じる可能性が高いと考えられる。その場合は、Saile 鉱山のナチュラルアナログが示すように、アルカリ変質反応に伴い生成した鉄を含むスメクタイトのクロッキング (空隙閉塞) が物質移行を抑制し、それによって変質反応が抑制されることが期待できる。

TRU 廃棄物の処分環境を考えた場合、高 pH での鉄の溶解度は低く、鉄筋コンクリートや鉄製容器のようなベントナイトと直接接していない部材からの鉄の供給によるアルカリ変質は、それほど顕著に起きないと想定できる。しかしながら、施工時には様々な鉄部材が処分場に持ち込まれ、酸化環境での鉄部材の影響が緩衝材に残ったり、あるいは海水環境における Fe, Mg イオンの流入、コロイドによる Fe イオンの流入等が生じたりすることが想定され、Narra 地区や Saile 鉱山でみられる Mg, Fe, Al, Si に過飽和なアルカリ溶液による変質反応が、TRU 廃棄物処分場のベントナイト緩衝材においても生じる可能性は十分ある。

従って、そのような処分場のアルカリ環境は、スメクタイトを生成する環境でもあるため、



高アルカリ浸出水によりモンモリロナイトの溶解・変質が生じて、スメクタイトが生成することで、緩衝材中のスメクタイト含有量の大幅な低下は見込まれず、緩衝材の膨潤性や収着性といった機能の低下・喪失が引き起こされるほどのベントナイトの変質が生じる可能性は低いといえる。

ただし、Fe, Mg が少ない環境でのベントナイトのアルカリ変質については、このナチュラルアナログは直接の証拠とはならない。このような環境では、室内実験で見られるように、アルカリ環境下で生成する安定相はスメクタイトでなく沸石であるかもしれない。ただし、その場合でも処分場と同様の圧密条件では、Fe, Mg があるフィリピンのナチュラルアナログと同様に、界面でのクロッキングにより見かけ上変質が進んでいない現象もみられている。生成する二次鉱物の種類に係る化学的な条件と反応に係る物質移行に係る物理的な条件との組み合わせが界面のクロッキングの生成条件になると考えられるが、その（二次鉱物が空隙をクロッキングする）生成プロセスは明らかでないため、その解明が実験、ナチュラルアナログ両方の残された課題である。

高アルカリがスメクタイトを生成する環境は危険側になるのではなく、むしろベントナイト緩衝材にとって好ましい環境であるため、処分場の成立性を左右する課題とはならないが、一方で、これまでの一部のアルカリ変質の評価では、室内実験等の外装から過度に保守的な評価をされていたことも否めない。より現実的な評価により、ベントナイトの長期健全性を示すことも必要である。

- **高アルカリ環境でも（火山）ガラスは 4,500 年程度では一部しか変質せず、未変質のまま残存するものが多い。**

Narra 地区のアルカリ環境下の Al に富む降下火山灰堆積物では、超苦鉄質岩起源の碎屑性堆積物に比べるとスメクタイト化が進んでいない。高アルカリ環境下におけるスメクタイト化は出発物質の溶解速度に律速しており、降下火山灰堆積物の顕微鏡観察では、多くの鉱物片サイズの火山ガラスが未変質のまま残存し、基質の鉱物も変質した年度鉱物は 3 割程度で、半数は火山ガラスのままであることを確認している。高アルカリ環境下で火山ガラスの溶解が進まない理由は現状まだ明らかでないが、既に変質して粘土化したスメクタイト等の変質鉱物が溶解を妨げている可能性が考えられる。これは、降下火山灰の堆積過程生成したモンモリロナイトが比較的流量のあるアルカリ環境下でも残存していることでも、変質鉱物が溶解・変質妨げると同じ理由であるかもしれない。また、トレンチのサンプリング時に岩質の違いが明確に体感しており、火山ガラスを含む降下火山灰堆積物は苦鉄質堆積物に比べて緻密で固結化がより進んでいるという特徴もあった。

#### 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

オフィオライトの蛇紋岩化作用過程で生成した高アルカリ地下水とベントナイトとの相互作用において、アルカリ環境下のスメクタイトの安定性やアルカリ溶液からの二次鉱物生成挙動のべ

ントナイトのアルカリ変質に伴う状態変遷評価について、パラワン島及びルソン島のナチュラルアナログを対象として以下の地球化学計算を実施した。

パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログ環境での安定相の解析から、Narra 地区で採取された地下水は、概ねサポナイトの安定領域にプロットされており、特に、サポナイトや鉄サポナイト等の 3 八面体型スメクタイトの前駆体の主要成分である、Mg, Fe, Si 濃度が高い領域において、サポナイトが安定相であることが確認できた。これらは Narra 地区のナチュラルアナログサイトの碎屑性堆積物中での観察結果と整合することから、高アルカリ地下水によってスメクタイト化が進んだことが地球化学計算の観点からもいえる。

Ca については、C-A-S-H とサポナイトの境界付近に Narra 地区の地下水はプロットされている。これは、C-S-H とサポナイトの共生が多く確認された、Ca 濃度が高いトレンチ 2 の碎屑性堆積物中の鉱物の産状と整合する。Al については、Al-rich のスメクタイトであるバイデライトと Fe, Mg-rich のスメクタイトであるサポナイトの境界付近にプロットされている。これは、降下火山灰堆積物中のスメクタイトで類似した産状がみられ、アルカリ変質によって、Al 成分の多いところはバイデライト、Fe, Mg 成分の多いところはサポナイトが生成することを、地球化学計算でも示している。また、縦軸を  $Al_2O_3$ 、横軸  $SiO_2$  にとった安定相図では、Narra 地区の地下水のプロット点はサポナイトの安定領域外ではあるが、地下水の溶存シリカの活量が実測値よりも高い濃度 ( $10^{-3}$  mol/L 程度) であれば、サポナイトの安定領域内に存在することとなる。溶存シリカの活量が高いと、サポナイトが安定することが分かった。

一方、セメント平衡水またはセメントベントナイト平衡水の化学組成でも、Narra 地区の NA サイトと同様、サポナイトの安定領域内に存在していることが確認された。Mg<sup>2+</sup>濃度が検出限界以下のためプロット出来ない点があるが、間隙水が pH12.5 付近の場合、Mg<sup>2+</sup>の活量が  $10^{-7}$  mol/L 程度 ( $\log([Mg^{2+}]/[H^+]^2)=16.8$ ) であれば、サポナイトの安定領域である。現状のセメント平衡水のデータでは、Fe, Mg の影響は評価されていないが、処分場においては海水や鉄部材からの Fe, Mg の影響で、ゼオライトが安定相とはならないケースも十分考えられ、この評価は今後の課題である。

ルソン島 Saile 鉱山のナチュラルアナログの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枕状溶岩の接触部の変質解析から、これまでの条件に M-S-H および F-S-H を二次鉱物の設定に追加したことにより、M-S-H または F-S-H と鉄サポナイトがアルカリ変質鉱物(二次鉱物)として生成していることが確認された。パラワン島 Narra 地区のナチュラルアナログの観察結果や安定相の解析結果から、アルカリ溶液から沈殿形成して生成していたスメクタイトについては、M-S-H がその前駆体である可能性が示唆されたが、ルソン島の Saile 鉱山のナチュラルアナログサイトの変質解析においても M-S-H と鉄サポナイトが同時に生成することが確認され、サポナイトの生成に M-S-H が影響を与える可能性があることを解析上でも確認できた。

Saile 鉱山のナチュラルアナログでは、鉄濃集帯としてノントロナイトと針鉄鉱であったが、これらの鉱物の生成は解析では確認されなかった。これらの鉱物は、Fe<sup>3+</sup>をもつ鉄鉱物であり、表層からの酸化水や微生物の影響で酸化還元電位が酸化側に変化することで、ナチュラルアナログサイトではこれらの鉄鉱物が生成したと考えられる。しかし、酸化還元電位の局所的な変化を現

状の地球化学モデルに反映させることが難しいために、今回の計算ではそのような酸化還元電位が変化する条件は入れていないことが、原因と考えられる。

