

北海道, 石狩炭田北部地域での碎屑岩における自生鉱物の 形成作用: 天然での処分関連鉱物の生成機構

奥山 (楠瀬) 康子*

OKUYAMA-KUSUNOSE, Yasuko. (1991) Formation of authigenic minerals in clastic sedimentary rocks of the northern part of Ishikari coalfield, Hokkaido: its implications to the underground disposal of high-level waste. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 42 (6/7), p. 289-304, 8fig., 1tab., 2pl.

Abstract: Formation of authigenic minerals is studied for clastic sedimentary rocks of the Paleogene Ishikari Group, Hokkaido. The Paleogene formation mainly comprises alternating beds of sandstone and mudstone intercalating with abundant coal seams. Samples studied are sandstone and mudstone from three drill holes and from outcrops. Carbonates, quartz and $K_2O-Al_2O_3$ silicates are found to be principal constituents in the clay-sized fraction of these mudstones. Similar kind of minerals are also present in carbonate-cemented clean sandstones alternating with mudstones. The minerals occur as a part of cement and as pore-filling minerals in these sandstones. A systematic order of precipitation is recognized for cementing carbonates and pore-filling silicates. The order of formation suggests a change in composition of interstitial water equilibrated with these minerals, from the stability field of K-feldspar to kaolinite, keeping saturation with quartz. The trend can be explained either by gradual mixing of two types of formation water, or by incongruent dissolution of kaolinite with slightly alkaline formation water in adjacent mudstone layer. Both models require distinct fluid migration or circulation in a sedimentary pile with very low (less than 5%) porosity. Long-term mixing and compositional change must be considered for fluid in geologic media, or natural barrier, even at a condition of reduced porosity.

要 旨

古第三系石狩層群(北海道)の砂岩泥岩互層における自生鉱物形成を、芦別地域での孔井試料および露頭試料について研究した。自生鉱物として炭酸塩鉱物(方解石, アンケライト, ドロマイト, 菱鉄鉱)および $K_2O-Al_2O_3$ 系珪酸塩鉱物(カリ長石, イライト, カオリナイト, 石英)が, 砂岩・泥岩に共通して広く認められた。砂岩において珪酸塩自生鉱物は, セメントの方解石(一部, アンケライト)が晶出した後に残された体積比にして5%以下の空隙を埋めて, 一定の順序で晶出している。炭酸塩鉱物の分布は, 堆積環境と堆積岩層内での間隙水の混合の二つの要因を反映する。一方, 珪酸塩自生鉱物の系統的な晶出は, 地層間隙水の系統的組成変化を示すと考えられる。間隙水の化学的変化および間隙水と共存する珪酸塩自生鉱物の晶出は, 間隙水が泥岩中の碎屑性カオリナイトの不調和溶解を伴いつつ, 低孔隙率の砂岩泥岩互

*地質標本館

層の中を循環することにより引き起こされた可能性が高い。

1. はじめに

原子力発電により生ずる高レベル放射性廃棄物を生物の活動圏から超長期的に隔離する方法の一つとして, わが国では岩盤中に建設した施設への隔離(地層処分)が考えられている。これは地下空間の力学的安定性(たとえば小出, 1984)が, 超長期隔離に適するとの評価にもとづくものである。隔離施設周囲の岩盤については, 原子力安全委員会(1985)による安全研究年次計画において, 花崗質岩および泥岩を主とする堆積岩層について, 地層処分の観点からの岩盤特性の研究が計画されている。

岩盤中での核種移動の可能性および, 岩盤自体の核種保持能力は, ここで検討すべき重要な岩盤特性の一つで

Keywords: Ishikari coalfield, Hokkaido, authigenic minerals, water-rock interaction, underground disposal, high-level waste, Paleogene, carbonate, quartz, clay

ある。固結度の低い比較的柔らかい堆積岩層を構成する砂岩・泥岩では、各種の粘土鉱物が主要基質構成鉱物として広く含まれている。新第三紀層等の若い地質時代の地層では、碎屑岩とともに火砕岩が大量に含まれるが、その中の火山ガラスは、地層としての埋没を経験するうちに、しばしば各種の沸石鉱物の集合体に変化している。このように粘土鉱物および沸石鉱物は、堆積岩の続成作用によって広く形成されるものである。一方これら鉱物は、しばしば著しい陽イオン交換性を示し、特にCs・Srなど高レベル放射性廃棄物を構成する何種類かの核種を結晶構造に取り込みやすいという、結晶化学的特性を持つ(たとえばKomarneni and White, 1983)。このためこうした鉱物は、地層処分において核種を隔離施設やその周辺から逃がさない、バリアーとしての役割を期待されている。これら鉱物の核種吸着能や、地層処分を想定した環境での生成機構は、さまざまな方法で試験されている(たとえばForberg *et al.*, 1980; Christensen *et al.*, 1981; Komarneni, 1985; Hulbert, 1987)。しかし、こうした実験的研究の実験条件は、10⁵年のオーダーに及ぶとされる地層処分にそのまま適用できるのか、疑問の場合がある(Brookins, 1982)。こうした疑問に答えるためには、天然において地質学的な長期間にわたって進行する処分関連鉱物の生成について、検討する必要があると考えられる。

本研究は、北海道、石狩炭田地域を例に、厚い砂岩泥岩互層の続成作用による自生鉱物の生成を、地層間隙水との化学的相互作用を考慮して検討したものである。このアプローチは、地層処分での処分関連素材の超長期安定性を占うとともに、天然の岩盤のバリアーとしての性質を理解するための第一歩と位置づけている。研究の結果から、圧密が進んで平均的な孔隙率が著しく低くなった堆積岩層での間隙水を媒介とした自生鉱物の生成と、物質移動を明らかにすることができた。

謝 辞 北海道芦別市の三井石炭鉱業株式会社芦別鉱業所には、本研究に用いた試錐試料を提供いただくとともに、鉱区内での野外調査をお許しいただきました。東北大学理学部の青木謙一郎教授には、自生鉱物の微小分析に関して便宜をはかっていただきました。東京大学理学部の松本良博士からは、石狩層群における続成作用について御教示いただきました。鉱物資源部の古宇田亮一主任研究官には、電子顕微鏡観察に当たって便宜をはかっていただきました。同じく鉱物資源部の月村勝宏主任研究官には、X線回折に当たってお世話になりました。また、脆弱な砂岩・泥岩の薄片をつくっていただくに当た

って、地質標本館試料調製課の宮本昭正・佐藤芳治両技官の手を煩わせました。ここに記し、感謝いたします。

2. 地質および採取試料の概説

検討した試料は、北海道石狩炭田地域北部の古第三紀石狩層群中・下部の砂岩および泥岩である。石狩炭田地域の地質構造と層序は、田代(1951)、下河原(1963)等の研究があり、近年、松井(1990)がまとめている。これによると、石狩層群は主として石炭をはさむ砂岩・泥岩の互層からなり、層厚は全体で約2400mに達する(第1図)。その中・下部では、海成層や汽水成層をはさむものの、全体として淡水性の堆積環境の卓越する堆積盆で堆積したと考えられている。

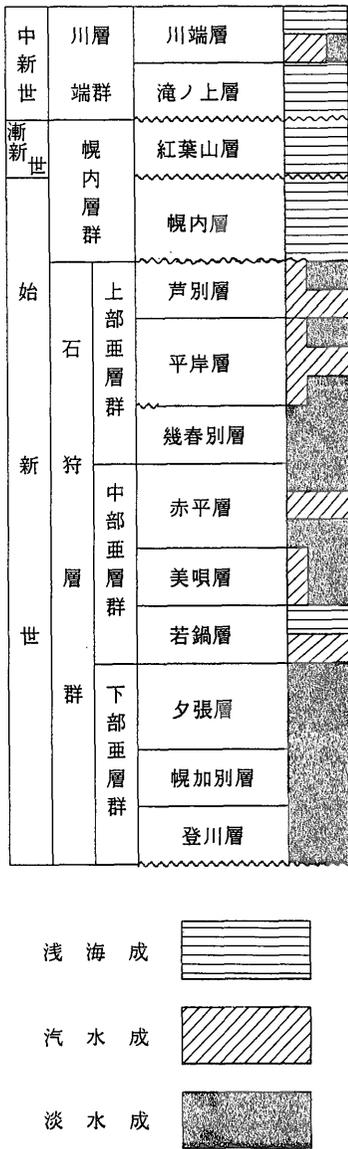
試料としては、三井石炭鉱業株式会社芦別鉱業所より提供いただいた三本の試錐試料および、同鉱業所鉱区内の炭山川流域の露頭試料を用いた(第2図)。試料の層序的採取位置は、石狩層群中・下部の赤平層から登川層に相当する。炭山川セクションおよび試錐についての地質柱状図と試料の採取位置を、第3図および第4図に示す。

一般に若い地層を構成する碎屑岩のなかの粘土鉱物は、地表での風化作用によって生成したものが碎屑粒子として運搬され堆積した、外来性のものであることが多い(水谷ほか, 1987)。しかし石狩層群の砂岩には、たとえば松本(1978)が示したように、碎屑性の粘土質物質がごく少ないものが多産する。このことは、これら砂岩が続成作用の過程でできる自生鉱物、とくに自生珪酸塩鉱物の性質を調べるのに適していることを意味する。

3. 自生鉱物の同定法とその産状

第3図と第4図に示した泥岩について、偏光顕微鏡および走査電子顕微鏡を用いて組織観察を行うとともに、粘土鉱物についてX線回折、薬品処理および熱分析を併用する方法によって(Mitsui, 1975)、種類を同定した。泥岩試料約500gは、250メッシュ以下に粉砕し、1000ccピーカー内で蒸留水と共に攪拌し、分散した。10時間放置後、サイフォンでけん濁液を取り分けた後、粘土鉱物を遠心分離し、70℃で乾燥した。分離した細粒フラクションは95%以上が粘土鉱物からなり(残りは石英および炭酸塩鉱物)、その粒度は5 μ m以下と考えられる。

X線回折は、150kV、40mAの電流・電圧条件で発生したCu K α 線により、スリット系1°-0.3mm-1°、時定数0.2、走査速度1°/min.の2 θ スキャンにより行った。X線回折にあたっては、Mitsui(1975)のスキームに従った薬品処理を併用した。具体的には、エチエングリコール処理による底面反射の移動からスメクタイトを同定し、



第1図 石狩炭田北部地域での石狩層群及び上位層の層序と堆積環境。下川原 (1963) 及び松井 (1990) にもとづき編集。

Fig. 1 Stratigraphic sequence and sedimentary facies of the Paleogene Ishikari Group and overlying strata in the northern part of the Ishikari coalfield. Compiled from Shimogawara (1963) and Matsui (1990).

塩酸処理によって緑泥石とカオリナイトを識別すると共に、カオリナイトについてはヒドラジン処理によって確認した。検討した泥岩試料に認められる14Åの反射は、緑泥石の存在を示す。緑泥石の高角度側の反射はカオリナイトおよびベルチェリン (Iijima and Matsumoto, 1982) の反射と重なる。緑泥石およびベルチェリンに対するカオリナイトの反射の寄与は、試料を塩酸処理することによりある程度見積ることができる。しかし緑泥石とベルチェリンの分離はできなかった。本論では、両鉱物を一括して扱う。イライトは10Å及び5Å付近の強い反射から同定される。海緑石はイライトの反射に接近して比較のブロードな反射を示すが、イライトとの分離はむずかしい場合が多かった。炭酸塩鉱物は一般にこれら層状珪酸塩鉱物よりはるかに粗粒であり、研磨薄片上でエネルギー分散型EPMAによる同定と定量分析が可能であった。粘土鉱物の一部についても、予備的なEPMA分析を行った。さらに、粘土鉱物の相対的な量比を、Mitsui (1975) の標準鉱物法によって求めた。

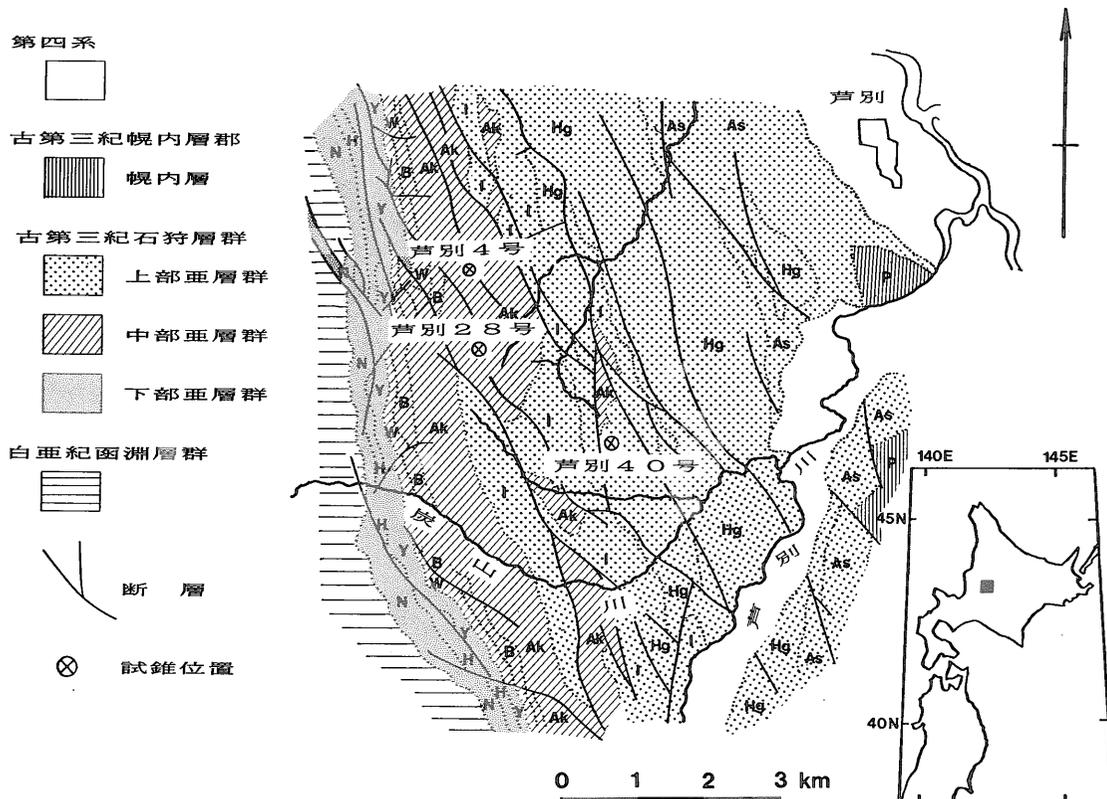
砂岩試料については、偏光顕微鏡と電子顕微鏡による観察に加え、EPMAを用いて自生炭酸塩および珪酸塩鉱物の定性・定量分析を行った。検討した試料を、その中の炭酸塩鉱物の種類と相対量とともに、第3図および第4図に示す。

4. 結果

4.1 泥岩中の自生鉱物

対象とした泥岩の細粒フラクションを構成する鉱物は、膨潤層を含むイライト、カオリナイト、緑泥石（+ベルチェリン、以下同じ）および海緑石であった。これら粘土鉱物の相対的量比を、第3図と第4図に示す。走査電子顕微鏡による観察では、上記の粘土鉱物に富む泥岩の細粒基質に、葉片状結晶が密に重なった微細構造が普遍的に認められた。また、自形の石英やカリ長石がしばしば葉片状結晶の間に挟み込まれて分布する。したがって泥岩基質の微細構造の形成には、機械的な圧密だけではなく、続成作用の過程での粘土鉱物等の粒成長も寄与したと考えられる。

自生粘土鉱物の鉱物学的特徴と化学組成については、奥山（楠瀬）(1985) による予察的な報告がある。本論では、雲母族粘土鉱物と炭酸塩鉱物の化学組成を、その後得られたデータを含め第5図および第6図に示す。第5図にプロットされたイライトの組成は、理想的なマスコバイトの組成を大きく外れ、マスコバイト-モンモリロナイト結線上からセラドナイト側に行くぶんずれた領域に落ちている。X線回折からイライトは20-45%の膨潤層を



第2図 芦別地域周辺の地質 地質調査所 (1973) を簡略化。

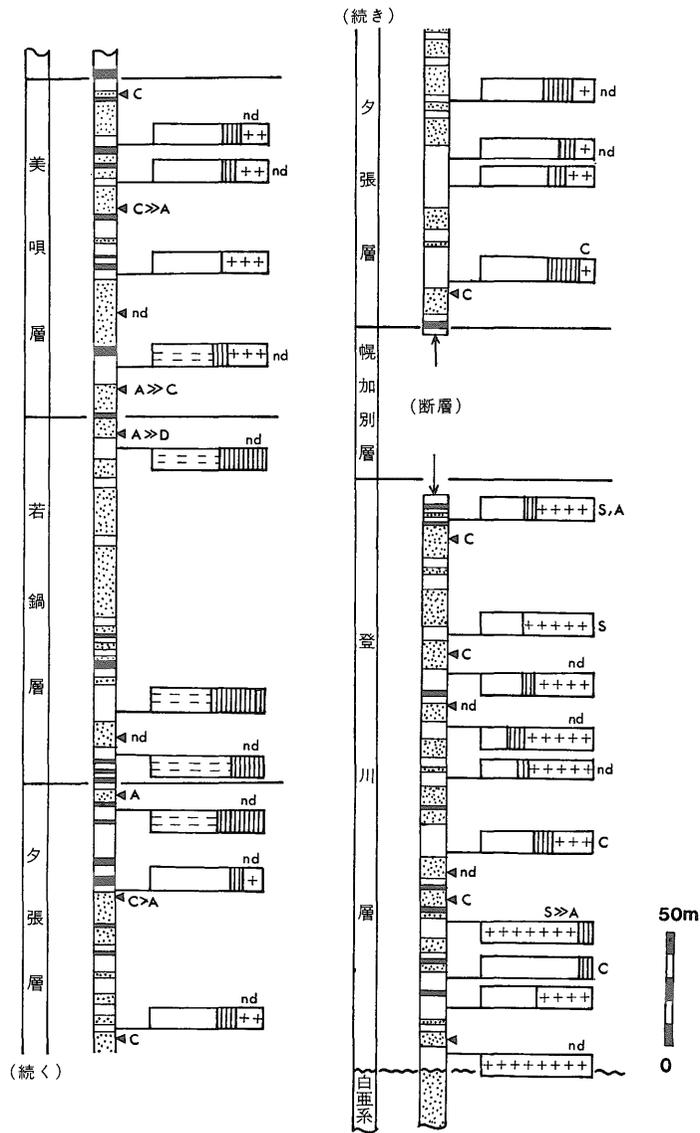
Fig. 2 Simplified geologic map of the Ashibetsu area, northern Ishikari coalfield (after Geological Survey of Japan, 1973)

含むと考えられる。得られた化学組成はこうした性質と調和的である。このような膨潤層 (すなわちスメクタイト層) を含むイライトは、最終平衡に達したものではない (井上, 1986; Whitney and Northrop, 1988)。しかしそのX線の性質と組成は、やや深い埋没深度を経験した堆積岩層に産するイライトとして、一般的なものである (Inoue *et al.*, 1978; Inoue and Utada, 1983; 下田ほか, 1983)。

海緑石にもイライトと同様な理想組成からのずれが認められる。海緑石はFe³⁺を置換してAlを含むためその組成は理想セラドナイトからマスコバイト側にずれるが、現実にはセラドナイト-マスコバイト結線より著しくアルカリに乏しい領域に落ちる。海緑石は比較的少量しか含まれないため、膨潤層の存在はX線のには確認できなかった。しかしこうした化学的特徴は、検討対象とした泥岩中の海緑石が、三木・福岡 (1983) による北部九州地域の第三紀層産の海緑石と同様、かなりの割合の膨潤層を含むことを示唆している。海緑石はカオリナイトとは

共存しない (第3図および第4図)。

炭酸塩鉱物としては、方解石とアンケライトが広く認められたが、ドロマイトは認められなかった。方解石は淡水成層中の泥岩に、アンケライトは海成の若鍋層および、夕張層と美唄層の隣接する部分に卓越する (第3図および第4図)。方解石のCaCO₃含有量は82-95mol%で、ややFeに富む (第6図)。アンケライトは、Fe-Mgについて中間組成よりややMgに富み、ドロマイト端成分よりCaに富む (第6図)。登川層のカオリナイトに富む泥岩には、団塊状の菱鉄鉱が含まれる。Iijima and Matsumoto (1982) は、夕張層以下の石狩層群下部のカオリン質泥岩に産するベルチェリンについて、カオリナイトと菱鉄鉱の反応による生成を議論した。一方普通の泥岩では、今回報告するようにカオリナイト+菱鉄鉱のみならず、カオリナイト+アンケライトの共生も認められない。逆に方解石は、緑泥石とともにカオリナイトを含む泥岩に広く認められた。今回検討した試料について緑泥石フラクションにおけるベルチェリンの寄与を分離することは



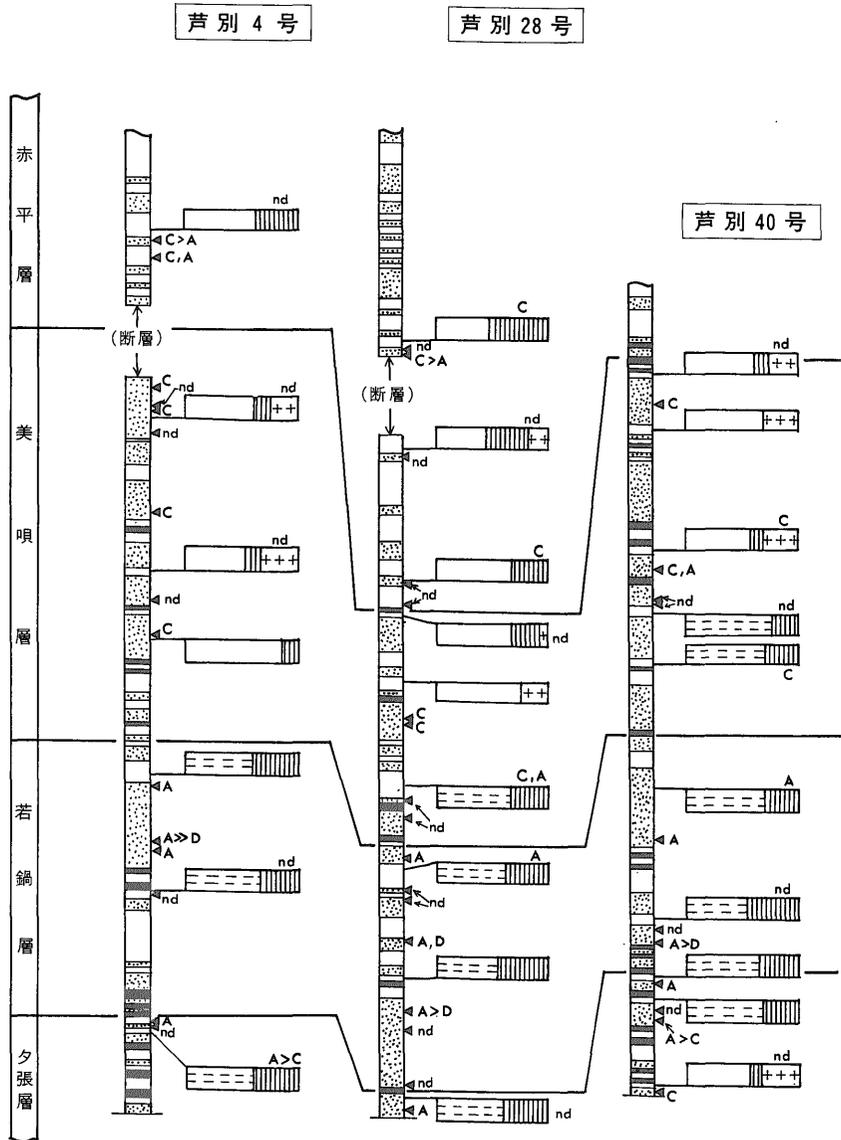
岩 型 ; ■ 石 炭 □ 泥 岩 ▨ 砂 岩
 粘 土 鉱 物 ; □ イライト 及 び
 □ イライト / スメクタイト 混 合 層 鉱 物 ▨ イライト 及 び 海 綠 石
 ▨ 緑 泥 石 (ペルチエリン を 含 む) □++++ カオリナイト

第 3 図 炭山川セクションの地質柱状図 泥岩中での粘土鉱物の種類と量比及び、砂岩・泥岩中での炭酸塩鉱物種を、あわせ示す。黒色三角形は、砂岩試料採取位置を示す。

鉱物名等の略号; C:方解石, A:アンケライト, D:ドロマイト, S:菱鉄鉱, nd:未同定

Fig. 3 Stratigraphic column along the Tanzangawa River. Also shown are the relative proportions of clay minerals in fine-grained fraction of mudstones and the distribution of carbonates in sandstones and mudstones. Closed triangles indicate sampling points for sandstones studied.

Abbreviations; C:calcite, A:ankerite, D:dolomite, S:siderite, nd:not determined.



第 4 図 試錐試料についての柱状図 シンボル等は、第 3 図に同じ。

Fig. 4 Stratigraphic columns for three drill holes shown in Fig. 2. See Fig. 3 for explanation of symbols.

できなかった。しかし、アンケライトとカオリナイトの共存が認められない観察事実は、石狩層群中・下部で Fe-Mg 炭酸塩鉱物とカオリナイトとの鉱物間反応がおこったことを示唆するものであろう。

以上の粘土鉱物および炭酸塩鉱物の分布と共生関係から、各泥岩試料における粘土鉱物組成は、基本的に埋没履歴を反映した組み合わせであると考えられる。ただ明瞭な 14 Å の反射を示す緑泥石については、外来性の可能性を否定できない。後述のように、Iijima and Matsu-

moto (1982) による緑泥石の安定化温度は、石狩層群下部では達成されなかったと考えられるからである。

4.2 砂岩の自生鉱物

第 3 図と第 4 図に記した 69 個の砂岩試料について、セメント鉱物の種類・分布・化学組成を検討した。試料の約半数 (37 個) は炭酸塩鉱物に膠結されたアレナイトで、残りの試料はかなりの量の粘土質基質を含むものであった。第 1 表に示すように、アレナイト中の現在は炭酸塩鉱物で膠結されている碎屑性粒子間隙部分の体積、す

第1表 砂岩モード組成とマイナスセメント孔隙率

Table 1 Modal composition and minus cement porosity of sandstones.

試料			碎屑粒子				自生鉱物				MCP
番号	層	岩型	石英	長石	岩片	他	Cal	Ank + Dol	Replace-ment	KAS + pore	
炭山川ルート											
6251a	美唄	m. sdst.	30	13	15	10	23	0	3	6	29
6251d	美唄	m. sdst.	33	7	6	4	14	20	10	6	40
6252d	若鍋	c. sdst.	35	6	6	4	0	33	11	5	38
6253f	夕張	m. sdst.	31	17	13	7	23	0	4	5	28
6253h	夕張	m. sdst.	26	15	17	6	27	0	5	4	31
6255b	登川	m. sdst.	13	25	15	12	25	0	6	4	29
6255d	登川	m. sdst.	20	23	14	8	20	0	8	7	27
6255j	登川	m. sdst.	20	19	13	10	16	13	4	5	34
芦別4号井											
265	美唄	c. sdst.	21	8	26	11	25	0	4	5	30
289	美唄	m. sdst.	21	16	14	5	28	0	12	4	32
318	美唄	m. sdst.	36	7	6	9	19	14	5	4	37
329	若鍋	m. sdst.	22	10	20	5	0	32	5	6	38
338	若鍋	c. sdst.	14	11	21	4	0	35	8	7	42
352	若鍋	m. sdst.	30	12	8	4	0	33	7	6	39
368	夕張	m. sdst.	20	19	13	10	16	13	4	5	34
芦別28号井											
638	赤平	m. sdst.	25	11	19	6	19	9	8	3	31
658	赤平	m. sdst.	26	11	18	8	26	0	6	5	31
728	赤平	m. sdst.	17	23	16	8	29	0	3	4	33
828	美唄	m. sdst.	37	4	6	4	23	8	12	5	36
1117	若鍋	m. sdst.	36	7	5	4	18	20	5	6	43
1171	夕張	c. sdst.	21	7	19	5	0	26	17	5	31
芦別40号井											
410	美唄	m. sdst.	20	8	25	11	25	0	6	5	36
444	美唄	m. sdst.	24	17	10	7	18	8	10	6	32
493	若鍋	m. sdst.	20	18	12	5	0	37	4	4	41
519	若鍋	m. sdst.	19	21	11	4	26	11	4	4	41
547	夕張	m. sdst.	31	13	17	7	0	15	7	10	22
554	夕張	m. sdst.	28	17	15	6	13	9	4	8	30

Cal; 方解石

KAS; $K_2O-Al_2O_3$ 系珪酸塩鉱物

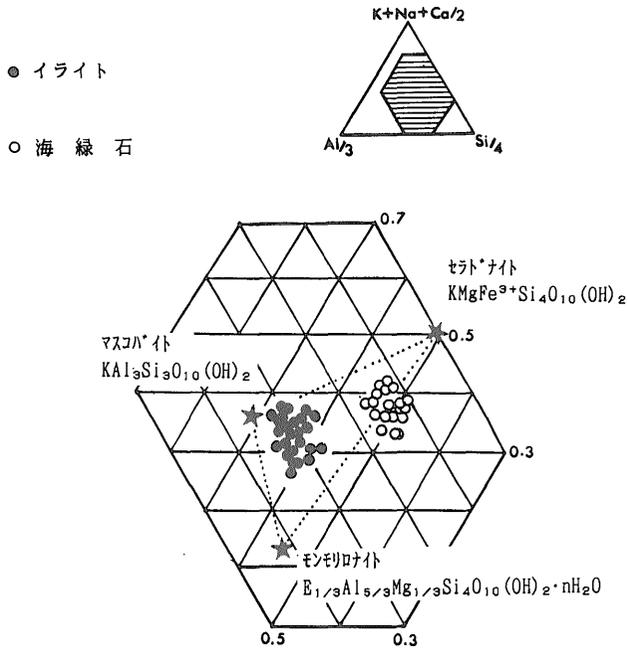
Ank + Dol; アンケライト+ドロマイト

MCP; マイナスセメント孔隙率

なわちマイナスセメント孔隙率は43-22vol%に達し,これが炭酸塩鉱物の沈澱が起り始める深度に達したときの孔隙率と考えられる。

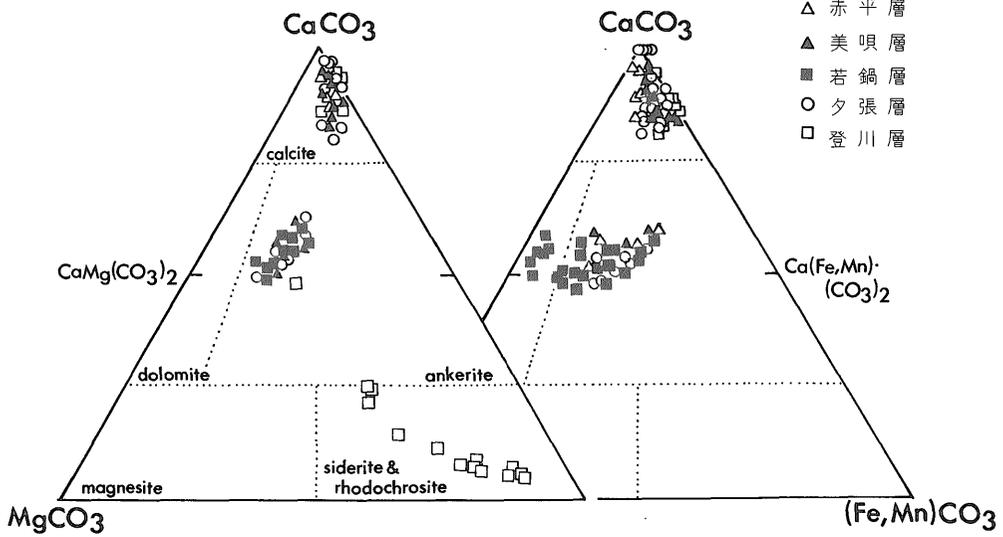
碎屑粒子のあいだの部分の90%以上は,セメントとしてのアンケライトと方解石が占めている。ドロマイトも一部の試料に産するが,菱鉄鉱は認められなかった。第

6図に示すように,砂岩中の方解石とアンケライトの組成は,全般に泥岩中のものと類似する。脈をなす純度の高いものを除くと,方解石には82-94mol%の $CaCO_3$, 10-5mol%の $FeCO_3$ が含まれる。1個の試料の中での組成の幅はかなり大きく,上記の組成変化範囲の8割程度に達する。これらやや不純な組成の方解石は,松本(1978)



第 5 図 雲母族粘土鉱物の EPMA 分析による化学組成

Fig. 5 Compositions of authigenic mica clay minerals on a $Al/3-(K+Na+Ca)/2-Si/4$ diagram. Analyses by EPMA.



第 6 図 自生炭酸塩鉱物の化学組成

Fig. 6 Compositions of authigenic carbonates.

のstage IIの方解石に相当すると考えられる。炭酸塩鉱物の種類は、海成ないし汽水成層と淡水成層のあいだで系統的に異なっている。第3図および第4図に示すように、若鍋層と下位の夕張層最上部では、アンケライトのみが認められ、隣接する夕張層上部および赤平層下部では、アンケライトと方解石がしばしば共存している。方解石とアンケライトの共存は必ずしもこの部分に限定されないが、これ以外の淡水成と考えられる層準では方解石が卓越している。こうした産状は、松本 (1978) が報告したこの地域の炭酸塩岩における炭酸塩鉱物の産状と類似する。

珪酸塩自生鉱物としては、イライト、カリ長石、カオリナイトという $K_2O-Al_2O_3$ 系珪酸塩鉱物および石英が見いだされた。これらの珪酸塩鉱物は、体積比にして10%以下の炭酸塩鉱物が埋め残した部分を占めるにすぎない。図版Iに示すように、これらの鉱物はいずれも自形ないし半自形をなして生成しており、間隙水と平衡を保ちつつ生成したことがうかがえる。緑泥石、海緑石については、空隙に晶出した自形結晶は認められなかった。海緑石は、海成の若鍋層の砂岩を中心に、径0.5-1mm前後のペレット状集合体をなして含まれることがある。カオリナイトも同様の集合体をなして、非海成層の砂岩に含まれることがある。これらはいずれも炭酸塩セメントによって膠結されている (図版II)。

以上の炭酸塩鉱物、 $K_2O-Al_2O_3$ 系珪酸塩鉱物および石英は、一定の系統的な順序で晶出していることが、偏光顕微鏡および走査電子顕微鏡による観察から判明した。セメント鉱物としての自生炭酸塩鉱物の晶出は、碎屑性斜長石のアルバイト化と、碎屑性カリ長石の再成長に引き続いて始まっている。鏡下では、自形のアンケライト上への方解石のオーバーグロースが、しばしば認められた (図版II)。こうしたアンケライト-方解石連晶をさらに交代する組織を示すアンケライト (一部、ドロマイト) も認められたが、その頻度は低い。したがってこれら砂岩では、アンケライトの晶出ステージが方解石の晶出に先だっていたと考えられる。ごく細粒の自形カリ長石、イライト等の $K_2O-Al_2O_3$ 系珪酸塩自生鉱物は、炭酸塩鉱物の自形結晶を覆うか、残りの空隙を埋めて産する (図版I, II)。自形の石英は $K_2O-Al_2O_3$ 系珪酸塩自生鉱物に常にともなうが、炭酸塩鉱物に包有されることはない。したがって、その晶出は方解石の晶出後に始まり、残りの自生鉱物形成作用の最末期まで続いたと考えられる。自形カリ長石は、石英とともに、あるいは石英+イライト組み合わせとして微小な空隙を埋めている。カリ長石を欠くイライト+石英組み合わせも、出現頻度が低いな

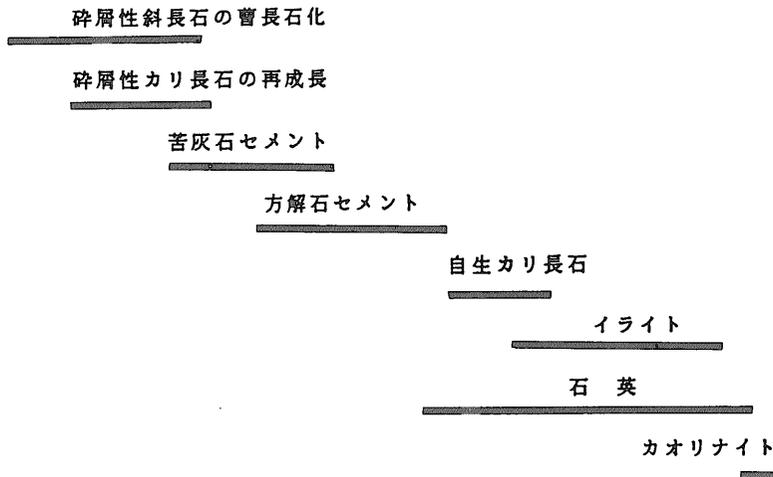
がらも認められる。自形のカリ長石結晶を覆うイライトは認められたが、その逆の関係は認められなかった。したがって、イライトの晶出はカリ長石の晶出後と考えられる。自生のカオリナイトは、以上の鉱物が埋め残した残りの空隙を密に充填して産する。検討した砂岩には明らかな碎屑粒子として大型のカオリナイト結晶 (結晶粒度約0.07mm) が密に集合したペレット状粒子が広く含まれるが (図版II)、自生カオリナイトはこれよりはるかに細粒である (図版I)。カリ長石やイライト等が埋め残した空隙を埋める産状は、自生カオリナイトが砂岩中での自生鉱物形成作用のもっとも末期の生成物であることを示している。以上の観察結果から、石狩層群中・下部における自生鉱物の晶出順序は、第7図のようにまとめられる。こうした規則的關係は、アンケライトと方解石の分布の違いをのぞいて、淡水成層の卓越する赤平・美唄・夕張・登川の各層と汽水成ないし海成の若鍋層の間で基本的に変わらない。

5. 考 察

5.1 自生鉱物の晶出から推定される間隙水組成変化

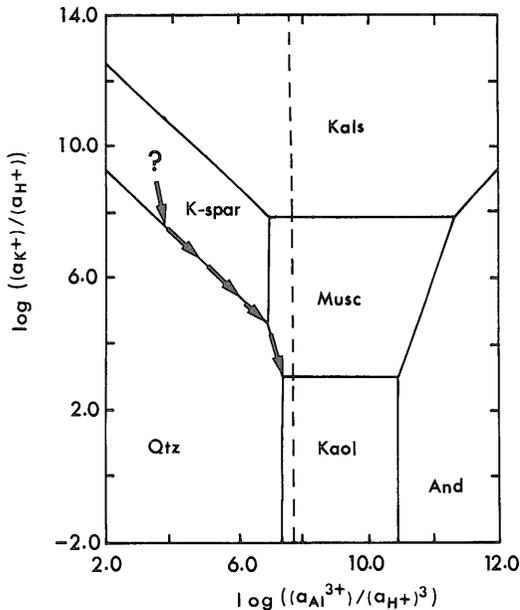
碎屑岩の自生鉱物形成作用は、堆積岩層の埋没史をさぐり、また、石油・天然ガスについての砂岩貯留層としての性質を明らかにする目的で、広く研究されている (たとえば McHargue and Price, 1982; Loucks *et al.*, 1984; Trevena and Clark, 1986; Milliken, 1989)。これらの研究は、堆積岩中の地層間隙水を媒介とした物質交換が、自生鉱物形成作用において重要なことを明らかにしてきた。第7図にまとめる石狩層群中・下部の砂岩における自生鉱物形成作用からは、1) 早期に大量の炭酸塩鉱物が晶出し、2) 引き続いて $K_2O-Al_2O_3$ 系珪酸塩鉱物が石英をともなって晶出し、3) $K_2O-Al_2O_3$ 系珪酸塩鉱物は、K/Al比が小さいものほど後の時期に晶出しているという、規則性を読み取ることができる。この規則性を、地層間隙水との相互作用の観点から考察する。

日本の炭田第三系における炭酸塩岩の形成機構の研究において、松本 (1978) は、石狩層群中・下部ではある程度埋没が進行した深度約1500m以深において (stage II)、間隙水の混合のもとはじめにアンケライト、引き続いて方解石が生成することを見いだした。砂岩のセメント鉱物として炭酸塩岩の場合と同じ種類の炭酸塩鉱物が同様の晶出順序で形成されていること、炭酸塩鉱物の分布から淡水成層と海成層の間に間隙水の混合が予想されること、より浅所 (stage I) を特徴づける菱鉄鉱の分布が限定されること、ならびに方解石がやや不純な組成で



第 7 図 石狩層群中・下部の砂岩における自生鉱物の晶出順序

Fig. 7 Order of formation of authigenic minerals in sandstones of the middle and lower subgroup of the Ishikari Group.



第 8 図 自生鉱物晶出順序から考えられる炭酸塩鉱物晶出後の砂岩間隙水の組成変化 (矢印)
 $K_2O-Al_2O_3-SiO_2-HCl-H_2O$ 系活動度図は, Bowers *et al.* (1984) のデータにより 100°C, 0.5 kb の条件で計算.

Fig. 8 Possible chemical evolution of pore water equilibrated with authigenic silicates (arrows). The activity diagram in the system $K_2O-Al_2O_3-SiO_2-HCl-H_2O$ was calculated after Bowers *et al.* (1984) at conditions of 100°C, 0.5 kb.

ある事実は、砂岩のセメントとしての炭酸塩鉱物が松本 (1978) の stage II に生成したものであることを強く示唆する。検討した砂岩でのマイナスセメント孔隙率も、1500 m 以深という深度と矛盾しない。今回検討した試料は層序的には stage III に達する埋没を経験した可能性があるが、このステージの炭酸塩鉱物に相当すると明確にいえるものは見いだされなかった。一方、セメントをなす炭酸塩鉱物の融食を示す観察事実もない。したがって、stage II で達成された炭酸塩 (方解石) 飽和の条件は、その後のより深い埋没においても引き続いて維持されたと考えられる。

珩酸塩自生鉱物の生成は、大量の炭酸塩鉱物の晶出に引き続いておき、一連の晶出過程においては K/Al 比が小さいものほど後の時期に晶出している。図版 I に示すように、石英をはじめとする各種の鉱物は自形結晶をなし、間隙水との平衡を保っていたことが考えられる。そこで、 $K_2O-Al_2O_3-SiO_2-HCl-H_2O$ 系の平衡状態を描出した活動度図のうえで、各種の鉱物の晶出順序をたどることを試みる。第 8 図は Bowers *ほか* (1984) のデータにもとづいて作成した 100°C, 0.5 kbar での $K_2O-Al_2O_3-SiO_2-HCl-H_2O$ 系の相関係である。石狩層群中・下部での石炭のヴァイトリニット反射率は 0.75-0.9% に達し、Castanõ and Sparks (1974) によると 90-100°C に達する最高温度が見積もられる。約 100°C との推定温度は、石狩炭田北部地域の石狩層群中・下部での沸石帯の分布 (Shimoyama and Iijima, 1978) と著しく矛盾しない。活動度図中の領域は領域をラベルする鉱物が平衡共存可能な水質流体の組成

範囲をあらわすので、境界線上および境界線の交点では2相あるいは3相の共存が可能である。したがって、砂岩に記録された鉱物晶出順序（第7図）は、計算された活動度図上では矢印で示すように追跡できる。この矢印で示されたトレンドは、石英が広く安定であるもて、間隙水中の K^+ が鉱物（イライト、カリ長石）に固定されていくという間隙水の組成変化を示している。

5.2 間隙水変化のモデル

さきに示したように、珪酸塩自生鉱物はセメントとして炭酸塩鉱物が晶出した後の体積比にして数%の部分埋めるにすぎない。しかし地層間隙水はマグマのような濃厚溶液にはなりえないので、炭酸塩鉱物晶出後の空隙にトラップされた地層水だけで問題の珪酸塩鉱物の晶出とそれにとまう地層水の組成変化を説明することはできない。第8図上のトレンドを説明するには、より広範囲での流体の混合と循環を考える必要がある。

地層間隙水の組成変化を説明するモデルの一つとして、問題の砂岩の初生間隙水組成とは異なる間隙流体が、少量づつ混合することを考えることができる。石狩炭田においてもstage IIにおいては、淡水成層とそこに挟まれる汽水成層・海成層の間にわたる間隙流体の混合があったと考えられている（松本，1978）。埋没が進んだ地層間隙水の代表としては油田灌水が考えられ、その組成はややアルカリに富んだものが一般的である（歌田，1978；Morton and Land，1987）。こうした組成の地層間隙水は、カリ長石と平衡共存可能であることが知られている（たとえばAli and Turner，1982）。検討した砂岩において珪酸塩自生鉱物の晶出時期にトラップされていた間隙水組成が油田灌水的なものと仮定すると、混合の相手となる流体の組成は、アルカリに極めて乏しい、埋没が進んだ地層における間隙水としてはやや特異な組成のものとなる。

もうひとつのモデルとしては、カリ長石と平衡共存可能なややアルカリに富む地層間隙水が、何らかの鉱物と反応し、連続的に組成を変えていくという考え方があげられる。この場合、反応の相手となる鉱物相として、最終生成物であるカオリナイトを仮定すると、カリ長石、イライトなどはその不調和溶解（incongruent dissolution）による中間相に相当する。カオリナイトの晶出によって系は最終平衡に達する。

このどちらのモデルにおいても、珪酸塩の溶解度を考慮すると、残された鉱物を晶出させるためには延べにしてその 10^4 – 10^5 倍程度の間隙水が必要となる。珪酸塩自生鉱物が岩石全体に占める量は、体積比にして10–1%程度であるので、この間隙水量は岩石体積の 10^4 – 10^5 倍程度に

相当する。固定した組成の2種類の地層間隙水の混合という最初のモデルは、これだけの流体が埋没の進んだ堆積岩層の中に貯留される可能性の点で疑問である。砂岩のマイナス・セメント孔隙率のデータは、石狩炭田の含炭古第三系の砂岩が、埋没の比較的初期の段階から、炭酸塩鉱物の晶出によって孔隙率を減じていたことを示している。こうした場合混合の相手となる流体が、堆積岩層の上位の層準であろうとも地層内に保持されていると考えるのはむずかしい。可能性を否定する積極的証拠はないが、最初のモデルは考え難いと言えよう。

一方第二のモデルでは、溶解するカオリナイトの所在を考察する必要がある。淡水成層からの砂岩試料には、碎屑性と考えられるペレット状のカオリナイト粒子が広く含まれている。しかしこのカオリナイトは、早期に晶出した炭酸塩鉱物によって被覆されており、すでに砂岩の間隙水から隔離されている。したがって、砂岩での珪酸塩自生鉱物の晶出に関与したカオリナイトの不調和溶解反応は、砂岩と互層をなす泥岩中でおこっている可能性がある。すなわち、互層する砂岩・泥岩の中を間隙水が循環することにより、泥岩の中でカオリナイトの溶解が進行し、その泥岩の中だけでなく隣接する砂岩の孔隙にも各種の生成相を沈澱させたと考えられる。間隙水の循環の規模として地層の互層のスケールを仮定すると、その規模は上下方向におよそ 10^{-1} – 10^2 m程度であったと考えられる。間隙水循環セルが安定に存在するには、側方へこの数倍程度のスケールの広がりが必要であろう。この大きさが、流体移動の最小範囲と考えられる。すでに述べたように石狩層群中・下部の泥岩では、カオリナイトと炭酸塩鉱物の間の反応を示唆する鉱物分布が認められた。カオリナイトが埋没にともなって地層間隙水と反応関係にあった可能性は高い。

6. ま と め

北海道、石狩炭田地域の古第三紀石狩層群中・下部では、碎屑岩中に自生鉱物として方解石、ドロマイト、カリ長石、膨潤層を含むイライトなどが、一定の規則性を持って分布している。泥岩中の自生鉱物の分布は、混合層鉱物のような最終平衡に達しない中間相を含むものの、外来性の碎屑粒子の偶然的な分布状況を現すのではなく、堆積岩層の中での反応の進行途上にある状態を現すと考えられる。泥岩と密に互層する砂岩では、大量の炭酸塩鉱物がセメントとして晶出した後、 K_2O – Al_2O_3 系珪酸塩鉱物が K/Al 比が減少するように系統的に晶出している。こうした系統的变化は、これら珪酸塩鉱物と平衡共存した流体の組成が、時間と共に連続的に変化して行ったこ

とを示す。圧密が進んだ堆積岩層には、しばしばごく小さな間隙水の移動が想定される (たとえば真柄, 1981)。しかし観察されたような自生鉱物の晶出に当たっては、かなりの量の地層間隙水の流通が必要なことは明らかであろう。

さらに今回の研究は、検討した砂岩中の珪酸塩自生鉱物が、互層をなす泥岩の中のカオリナイトと間隙水との反応によって形成された可能性を示した。このことは、特定の堆積岩での自生鉱物形成作用を、隣接する岩層の中での水-岩石相互作用をも考慮した現象として捕らえる必要があることを示唆している。堆積岩層は処分場立地上予想される一つの岩盤環境にすぎないが、かりに安全性確保のために地下水・間隙水のモニタリングにもとづく水-岩石相互作用モデルを作成する場合は、反応の場である岩石系の単純化には注意を要する。

文 献

- Ali, A.D. and Turner, P. (1982) Authigenic K-feldspar in the Bronsgrove Sandstone Formation (Triassic) of central England. *Jour. Sed. Petrol.*, vol.52, p.187-197.
- Bowers, T.S., Jackson, K.T. and Helgeson, H.C. (1984) Equilibrium activity diagrams for coexisting minerals and aqueous solutions at pressures and temperatures to 5 kb and 600°C. Springer-Verlag, New York, 398p.
- Brookins, D. G. (1982) Geochemistry of the Dakota Formation of northwestern New Mexico: relevance to radioactive waste studies. *Nucl. Tech.* vol. 59, p.420-428.
- Castanõ, J.R. and Sparks, D.M. (1974) Interpretation of vitrinite reflectance measurements in sedimentary rocks and determination of burial history using vitrinite reflectance and authigenic minerals. *Geol. Soc. Amer. Spec. Papers*, 153, p.31-52.
- 地質調査所 (1973) 石狩炭田図, 日本炭田図XI.
- Christensen, A.B., Del Debbio, J.A., Knecht, J.D. and Tanner J.E. (1981) Loading and leachage of krypton immobilized in zeolites and glass, In Moore, J.G., ed., *The scientific basis for nuclear waste management*, vol.3, Plenum Press, New York, p.267-274.
- Forger, S., Westermark, T., Arnek, R., Gredthe, I., Falth, L. and Anderson, S. (1980) Fixation of medium-level waste in titanites and zeolites: progress towards a system for transfer of nuclear reactor activities from spent organic to inorganic ion exchangers, In Northrup, C. J. M., Jr., ed., *The scientific basis for nuclear waste management*, vol. 2, Plenum Press, New York, p. 867-874.
- 原子力安全委員会 (1985) 高レベル放射性廃棄物等安全研究年次計画 (昭和61年度-65年度). 44p.
- Hulbert, M.H. (1987) Sodium, calcium and ammonium exchange on clinoptilolite from the Fort Laclede deposit, Sweetwater County, Wyoming. *Clay and Clay Minerals*, vol. 35, p.458-462.
- Iijima, A. and Matsumoto, R. (1982) Berthierine and chamosite in coal measures of Japan. *Clay and Clay Minerals*, vol.30, p.264-274.
- and —— (1982) Unusual heulandite-clinoptilolite of the Shirahama limestone from Shimoda, Izu, Central Japan. *Jour. Fac. Sci. Univ. Tokyo*, Sec. II, vol.25, p.39-50.
- 井上厚行 (1986) 混合層粘土鉱物の生成と変化に関する研究の最近の動向. 粘土科学, vol.26, p.247-262.
- Inoue, A., Minato, H. and Utada, M. (1978) Mineralogical properties and occurrence of illite/ montmorillonite mixed layer minerals formed from Miocene volcanic glass in Waga-Omono district. *Clay Sci.*, vol.5, p.123-136.
- and Utada, M. (1983) Further investigations of a conversion series of dioctahedral mica/smectite in the Shinzan hydrothermal area, Northeast Japan. *Clay and Clay Minerals*, vol.31, p.401-412.
- 小出 仁 (1984) アンダーグラウンド—隠れたフロンティア. 地質ニュース, no.363, p.38-

- 55.
- Komarneni, S. (1985) Phillipsite in Cs decontamination and immobilization. *Clay and Clay Minerals*, vol. 33, p. 145-151.
- and White, W.B. (1983) Hydrothermal reactions of strontium and transuranic simula-tor elements with clay minerals, zeolites and shales. *Clay and Clay Minerals*, vol. 31, p. 113-121.
- Loucks, R.G., Dodge, M.M. and Galloway, W.E. (1984) Regional control on diagenesis and reservoir quality in lower Tertiary sandstones along the Gulf Coast, In MacDonald, D.A. and Surdam, R.C. eds., *Clastic Diagenesis*, Amer. Assoc. Petrol. Geol. Mem., no. 37, p. 15-36.
- 真柄欽次 (1981) 堆積盆地内での圧密水, 続成水, 天水の移動と石油の集積. 杉山隆二・池田展生・星野通平・柴崎達雄編「堆積盆地内の流体移動」, 東海大出版, 東京, p. 27-36.
- 松井 愈 (1990) 古第三系—北海道中央部. 日本の地質・北海道地方編集委員会編「日本の地質. 1. 北海道地方」, 共立出版, 東京, p. 49-56.
- 松本 良 (1978) 自生炭酸塩鉱物および炭酸塩岩の生成段階とその起源. 地質学論集, no. 15, p. 35-52.
- McHargue, T. R. and Price, R. C. (1982) Dolomite from clay in argillaceous or shale-associated marine carbonates. *Jour. Sed. Petrol.*, vol. 52, p. 873-886.
- 三木 孝・福岡正人 (1983) 北部九州の第三紀層に含まれる“海緑石”. 石油技誌, vol. 48, p. 19-28.
- Milliken, K.L. (1989) Petrography and composition of authigenic feldspars, Oligocene Frio Formation, south Texas. *Jour. Sed. Petrol.*, vol. 59, p. 361-374.
- Mitsui, K. (1975) Diagenetic alteration of some minerals in argillaceous sediments in western Hokkaido, Japan. *Sci. Rep. Tohoku Univ.*, ser. 3, no. 13, p. 13-61.
- 水谷伸次郎・斎藤靖二・勘米良亀齡 (1987) 日本の堆積岩. 岩波書店, 東京, 226p.
- Morton, R. A. and Land, L. S. (1987) Regional variations in formation water chemistry, Frio Formation (Oligocene), Texas Gulf Coast. *Amer. Assoc. Petrol. Geol. Bull.* vol. 71, p. 191-206.
- 奥山 (楠瀬) 康子 (1985) エネルギー分散型マイクロプローブによる泥質堆積岩中の層状珪酸塩鉱物の化学分析: 予察的研究. 堆積研報, vol. 22/23, p. 90-94.
- 下河原寿男 (1963) 夕張炭田の形成とその地質構造の発展. 石炭地質研究, vol. 5, 北海道炭鉱技術会地質部会, 244p.
- Shimoyama, T. and Iijima, A. (1978) Influence of temperature on coalification of Tertiary coal in Japan. *Geol. Soc. Japan Mem.*, no. 15, p. 205-222.
- 田代修一 (1951) 石狩炭田の地質構造に関する一考察. 石炭地質研究, vol. 1, 北海道炭鉱技術会地質部会, 68p.
- Trevena, A.S. and Clark, R.A. (1986) Diagenesis of sandstone reservoirs of Pattina Basin, Gulf of Thailand. *Amer. Assoc. Petrol. Geol. Bull.*, vol. 70, p. 299-308.
- 歌田 実 (1978) 続成作用における地層水の組成変化. 地質学論集, no. 15, p. 151-164.
- Whitney, G. and Northrop, H.R. (1988) Experimental investigation on the smectite to illite reactions: Dual reaction mechanisms and oxygen isotope systematics. *Amer. Mineral.*, vol. 73, p. 77-90.

(受付: 1991年2月6日; 受理: 1991年3月22日)

図版 I 石狩層群砂岩中の自生珪酸塩鉱物の走査電子顕微鏡写真 (スケール・バー=10 μ m)

- a : 空隙の壁を構成する炭酸塩鉱物 (おそらく方解石) の自形結晶。表面は葉片状のイライトに覆われている。若鍋層上部。
- b : 炭酸塩鉱物の上に群生する自生石英。美唄層下部。
- c : 石英 (Qz), カリ長石 (Kf), イライト (IL) の共生する空隙。夕張層上部。
- d : 大型のカリ長石 (Kf), 石英 (Qz) を伴う。夕張層上部。
- e : 石英 (Qz) と大量のイライト (IL) によってほぼ埋め尽くされた空隙。夕張層上部。
- f : 空隙を密に埋めるカオリナイト結晶。夕張層上部。

Plate I SEM photographs of authigenic minerals in sandstones of the Ishikari Group. Scale bar = 10 μ m

- a. Open pore surrounded by rhombic crystals of carbonates (probably calcite). The surface of carbonate crystals is coated with fine-grained illite. Upper part of the Wakanabe Formation.
- b. A group of low quartz crystals in a pore in carbonate cement. Lower part of the Bibai Formation.
- c. Partly filled pore with K-feldspar (Kf), illite (IL) and quartz (Qz). Upper part of the Yubari Formation.
- d. A large grain of K-feldspar (Kf) associated with quartz (Qz). Upper part of the Yubari Formation.
- e. Mostly filled pore with abundant illite (IL) and quartz (Qz). Upper part of the Yubari Formation.
- f. Kaolinite crystals densely filling a pore. Upper part of the Yubari Formation.

図版 II 石狩層群砂岩の偏光顕微鏡写真。(スケール・バー=0.1 mm)

- a : 方解石セメント (C) によって膠結された砂岩。中心部の明るい部分は、光学的方位が同じな方解石単結晶よりなる。若鍋層中部。
- b : セメントの方解石 (C) およびアンケライト (A) の空隙を埋めるカリ長石 (Kf) とイライト (I)。夕張層上部。
- c : セメントをなすアンケライト (A) の空隙を埋めるイライト (I)。若鍋層下部。
- d : 碎屑性石英粒 (Qz) にはさまれたペレット状カオリナイト (Kln)。夕張層中部。

Plate II Photomicrographs of sandstones in the Ishikari Group. Scale bar = 0.1 mm

- a. Sandstone cemented with abundant calcite (C). The bright area in the center of the photograph is a single grain of calcite. Middle part of the Wakanabe Formation.
- b. K-feldspar (Kf) and illite (I) filling a pore in cement of calcite (C) and ankerite (A). Upper part of the Yubari Formation.
- c. Illite (I) filling a pore in ankerite (A) cement. Upper part of the Yubari Formation.
- d. Kaolinite pellet (Kln) as a grain together with clastic quartz (Qz). Middle of the Yubari Formation.

