八甲田トンネル周辺に分布する和田川層中

の火山岩類とアルカリ性水の関連性

小林茂人^{*1} 水田敏夫^{*1} 石山大三^{*1} 佐藤比奈子^{*1} 徳富恭彦^{*2} 菊池良弘^{*3} 世良耕一郎^{*4}

*1 秋田大学工学資源学部

010-8502 秋田市手形学園町 1-1

*2 鉄道運輸機構・七戸鉄道建設所039-2511 青森県七戸町字笊田川久保 32-2

*3 日鉱探開

105-0001 東京都港区虎ノ門 2-7-10

*4 岩手医科大学サイクロトロンセンター 020-0173 岩手県岩手郡滝沢村字留が森 348-58

1 はじめに

高速道路や鉄道等の高速交通網の整備に伴い,休廃止鉱山地域にトンネル等が建設されるこ とも多い。トンネルは鉱山地域の強変質帯を避け,できるだけ鉱化変質作用の弱い地域に建設さ れるが,掘削に伴い酸性水の発生や重金属類の溶出などが報告されている(服部ほか2002a,b)。 そのため鉱山地域の近傍に計画されるトンネルでは,トンネル湧水とともに多量の掘削残土から 酸性水や重金属含有水の流出が予想される。流出水の環境基準値はpH6。0~8。5 であり,pH6.0 を超える酸性水の流出には対策が必要である。一方で,酸性水とは逆のアルカリ性水の発生が最 近報告されており,アルカリ性水の流出に対しても,環境基準値のpH8.5 を超える場合には対 策が不可欠である。トンネル湧水や掘削残土から,どのようにアルカリ性水が生じるかといった 発生メカニズムを解明するために,流出水の地球化学的特徴を把握する必要がある。本研究では, このアルカリ性水の発生の原因を解明することを目的とし,アルカリ性水が検出された東北新幹 線八甲田トンネル第三工区周辺に分布する岩石を用いて溶出試験を行い,岩石から溶出液への元 素挙動やアルカリ性水の化学的特徴を検討した。

2 地質およびトンネル概要

八甲田トンネルは天間林村低田地区を起点,青森市駒込地区を終点としており,陸上のトンネルとしては,現在世界第二位の長さ(総延長 26455km)を有する長大山岳トンネルである。本トンネルは天間林村側から市ノ渡,屋形,大坪,折紙,築木および梨ノ木の六工区に分けられる(Fig. 1;服部ほか,2002a)。本工事では周辺環境への影響を配慮して,トンネル排水や土捨場浸出水の水質モニタリングを行うとともに,切羽の岩石試料を用いて環境基準値より酸性になる水やアルカリ性になる水を形成する岩石を「管理型ズリ」として,「一般型ズリ」とは区別し,水に触れないように二重シートを敷いた土捨場に処分している(服部ほか,2002b)。

研究を行った東北新幹線八甲田トンネル第三工区は、青森県青森市の東方約 20km、八甲田山



Fig. 1 Map showing the location of the Hakkoda Tunnel excavating area.

北方約 15km に位置する(Fig. 1)。八甲田トンネル地域の地質は、下位から新第三系中新統の 金ヶ沢層、四沢層、和田川層、市ノ渡層、及び第四系の田代平溶結凝灰岩から構成され、第三工 区周辺の地質は、和田川層の安山岩質溶岩と同質の凝灰角礫岩、火山礫凝灰岩、凝灰岩からなる (岩井、1986; 服部ほか、2002a)。

本研究の溶出試験に用いた岩石は,第三工区ボーリングコアの安山岩質溶岩と同質火砕岩類で ある。安山岩質溶岩は緻密質で暗緑色を呈し,初生の斑晶鉱物として斜長石,単斜輝石を含む。 石基は細粒な石英や斜長石から構成される。不透明鉱物として磁鉄鉱,イルメナイトを含み,二 次鉱物として石英,クリストバル石,サポナイト,方解石などが産する。安山岩質火砕岩類は角 礫状で透水性が高く,暗緑色を呈し,上記の鉱物組み合わせに加えて多くの濁沸石と剥沸石,細 粒の黄鉄鉱を産する。

3 試料調製法および測定法

溶出試験には 20 メッシュに揃えた安山岩質溶岩と同質火砕岩類を用いた。溶出試験は,岩石 10g に対して超純水 50g の条件で行った。溶出試験の溶出期間は,1時間(1h),1日(1d),4 日(4d),1週間(7d),1ヶ月後(1M)である。岩石と反応した溶液を分離する際には,石英 ガラス製ろ過装置を用い,その他の実験操作にはテフロン製のビーカー,攪拌棒,保存容器など

を用いた(Fig.。 2)。Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, Cl⁻, SO₄²⁻成分についてはイ オンクロマトグラフィー法で, Fe などの重金属成分については PIXE 法を用いた。PIXE 法のための分析 試料は, 溶出液と等量の 10ppm のイ ンジウム溶液を加えた混合溶液を 作成し, その混合溶液 30µl を専用ホ ルダーに貼られたポリプロピレン フィルムに滴下, 乾燥し作成した。 試料は乾燥後, NMCC の PIXE 装置 で測定された。



Fig. 2 Schematic diagram for the dissolution experiment.

4 分析結果

今回検討した安山岩質溶岩と同 質火砕岩類の各溶出期間の溶出液 の分析結果を Table 1 に示す。安山 岩質溶岩と同質火砕岩類の溶出液 の1時間後のpHは、それぞれ8.0、 8.6を示した。双方の岩石と超純水 の反応時間が長くなると、溶出液の pH は徐々に中性に近い値に変化し、 最終的に1ヶ月後のpHは、それぞ れ7.8、7.7を示した(Table 1、Fig. 2)。

安山岩質溶岩および同質火砕岩 類と超純水の溶出期間が長くなる と,溶出液中の各元素濃度は徐々に 増加する(Table 1, Fig. 3)。これ らの反応溶液のK⁺, Mg²⁺濃度はと もに低いが,安山岩質火砕岩類と反 応した溶出液のNa⁺, Ca²⁺, SO₄²⁻濃 度は反応時間の増加と共に上昇し, 高い濃度を示す(Table 1, Fig. 3)。 一方,安山岩質溶岩と反応した溶出 液ではCa²⁺濃度は,安山岩質火砕岩 類と同様に反応時間の経過と共に 濃度が上昇し,高い濃度を示す

(Table 1, Fig. 3)。しかし Na⁺, SO₄^{2−}濃度は、反応時間の増加と共 に上昇するものの、それらの濃度は 安山岩質火砕岩類と反応した溶出 液中の Na⁺, SO₄^{2−}濃度に比較する と 1/5~1/10 程度の低い値を示す

(Table 1, Fig_{\circ} 3) $_{\circ}$

重金属元素の中で検出された元 素はFe,Znである。これらの重金 属元素濃度は双方の岩石の溶出液



Fig. 3 Diagrams showing variations of pH and concentrations of elements in solutions reacted with andesitic pyroclastic rocks and lava from Hakkoda Tunnel excavating area.



Fig. 4 Concentrations of Fe and SO_4^{2-} in solution reacted with andesitic lava and pyroclastic rocks. Expected concentrations of Fe were calculated assuming stoichiometric decomposition of pyrite (FeS₂) and concentration of SO_4^{2-} in the reacted solutions.

とも低い値を示す。特に Fe 濃度は両岩石の溶出液ともに 0.3ppm 程度で反応時間と濃度の間に は明瞭な関係は認められなかった(Table 1, Fig. 4)。

	3B643000-	3B643000-	3B643000-	3B643000-	3B643000-	3B644504	3B644504	3B644504+	· 3B644504	3B644504
	12000 1h	12000 1d	12000 4d	12000 7d	12000 1M	+01600 1h	+01600 1d	01600 4d	+01600 7d	+01600 1M
Lithofacis	Andesitic pyroclastic rocks					Andesitic lava				
рН	8.6	8.3	8.5	8.2	7.7	8.0	7.9	7.9	7.7	7.8
	(ppm)									
Na⁺	14.45	16.83	17.45	20.47	24.82	3.33	4.24	5.46	5.76	6.55
K⁺	0.26	0.23	0.39	0.26	0.17	0.99	0.94	1.19	1.10	0.97
Mg ²⁺	2.22	2.23	2.23	2.23	2.24	ND	ND	ND	ND	2.72
Ca ²⁺	14.37	15.65	15.27	20.41	31.61	14.05	15.72	18.39	22.31	29.36
Fe	0.21	0.15	0.30	0.20	0.10	0.20	0.04	0.29	0.18	0.28
Zn	0.02	0.02	0.03	0.02	0.01	0.04	0.04	0.06	0.09	0.02
CI^-	0.48	0.29	0.58	0.53	0.27	1.22	1.24	1.74	1.48	1.25
SO4 ²⁻	14.74	20.25	20.10	22.31	37.70	2.90	3.22	3.79	3.94	6.13

 Table 1
 List of chemical compositions of solution reacted with andesitic rocks.

ND; not detected

4 考察

今回検討した安山岩質火砕岩類の溶出液中の Na^+, Ca^{2+}, SO_4^{2-} 濃度と安山岩質溶岩の Ca^{2+} 濃度 は高い値を示す(Table 1, Fig. 3)。これは安山岩質火砕岩類に含まれる多量な濁沸石(Laumontite; $CaAl_2Si_4O_{12} \cdot 4H_2O$)と剥沸石(Epistilbite; $CaAl_2Si_6O_{16} \cdot 5H_2O$)中の Ca^{2+} が溶出したことと,安 山岩質溶岩と比較して安山岩質火砕岩類に多く含まれるスメクタイト族のサポナイト

([(Na,Ca_{1/2})^{0, 33}]^{0, 33+}[Mg₃(Si_{3, 67}Al_{0, 33})O₁₀(OH)₂]^{0, 33-})からNa⁺が溶出したことが考えられる。またCa²⁺濃度は両岩石で高い値を示すことから、斜長石(Anorthite; CaAl₂Si₂O₈)からCa²⁺が溶出



した可能性も考えられる。

安山岩質溶岩と同質火砕岩類の溶出液中のイオン 濃度値を Log[Mg²⁺]/[H⁺]² – Log[Ca²⁺]/[H⁺]² 図(Tardy and Garrels, 1974; Brookins, 1988; Dereve, 1982; Weast et al., 1986) に示し,反応溶液と安定に存在す る鉱物の推定を行った(Fig. 5)。安山岩質溶岩および 同質火砕岩類の短時間の反応溶液の組成は Mg-緑 泥石と共存する領域にプロットされるが,反応時間 が増加するにつれて Mg-スメクタイト(サポナイ

Fig. 5 Diagrams of Log [Mg²⁺] / [H⁺]² vs. Log [Ca²⁺] / [H⁺]² showing reaction between chemical compositions of the reacted solutions and mineral species that equilibrium with the solutions.

ト)と共存する方向に組成を変化させることがわかる。さらに長時間反応を行うと、安山岩質溶 岩および同質火砕岩類と反応した溶液は、Mg-スメクタイト(サポナイト)と安定に存在する 可能性が高い。緑泥石は実際には固溶体の性質を持つ鉱物である。今回はそれぞれの鉱物が端成 分の組成を持つと仮定して、端成分の熱力学データを使用し検討した。固溶体の効果を考慮する と、Mg-スメクタイトー濁沸石の境界線がシフトし、反応溶液の[Mg²⁺]/[H⁺]²および[Ca²⁺]/[H⁺]² 濃度比のプロットと、この境界線が一致する可能性もある。実際の試料にはだ濁沸石(Laumontite; CaAl₂Si₄O₁₂・4H₂O)が含まれているため、実際の反応溶液はMg-スメクタイトと濁沸石が共存 する領域の化学組成を持つ可能性がある(Fig. 5)。

 SO_4^{2-} 濃度は、安山岩質火砕岩類で高く、安山岩質溶岩で低いという特徴がある(Table 1, Fig. 3)。この特徴は安山岩質火砕岩類のほうが安山岩質溶岩よりも、溶液中の硫酸の起源となりうる黄鉄鉱(FeS₂)の存在量が多いという事実と調和的である。黄鉄鉱の分解(FeS₂+7/2O₂+H₂O → Fe²⁺+2SO₄²⁻+2H⁺)がSO₄²⁻の形成に関与する(Singer and Stumm, 1970;笹木, 1998)とすると、溶液中のFe含有量は反応時間の経過とともに増加することが期待されるが、安山岩質溶岩と同質火砕岩類と反応した溶液のFe含有量はともに低く、反応溶液中のSO₄²⁻の濃度変化とは一致しない(Fig. 4)。短時間反応させた安山岩質溶岩および同質火砕岩類の溶液の測定値がpH=8.0, 8.6, Eh=180mV, 210mV である。両岩石の反応溶液のpH, Eh およびFe 含有量を主要なFe 含有相と共に Eh-pH 図に示すと、反応溶液はFe (OH)₃と共生している可能性が考えられる。つまり反応溶液では SO₄²⁻濃度に比較してFe 含有量が低くなっているのは、溶解した Fe²⁺が Fe (OH)₃のような水酸化鉄として沈殿しためと考えられる。

安山岩質火砕岩類と反応した溶液では、H⁺濃度が高い酸性水を形成する黄鉄鉱 (FeS₂)の分解 が起こっていることが期待されるにもかかわらず、H⁺濃度は低く、安山岩質溶岩と反応した溶 液よりもアルカリ性を示す。このことは、黄鉄鉱の分解により生じた H⁺を鉱物が取り込むこと で説明できる可能性がある。安山岩質火砕岩には、Na⁺を溶液に放出することが可能なサポナイ トが豊富に存在している。黄鉄鉱の分解により生じた H⁺は、Na⁺がサポナイトから溶出する代わ りにサポナイトに取り込まれると、反応溶液はアルカリ性になることが可能である。さらに、反 応溶液全体としては溶液中の主要陽イオンである Na⁺および Ca²⁺と、主要陰イオンである SO₄²⁻ および HCO₃⁻によって電気的に中性になり、H⁺上昇が抑制されるためアルカリ性を示している と考えられる。安山岩質火砕岩類中の黄鉄鉱含有量がさらに低ければ、反応溶液はよりアルカリ 性を示す可能性がある。アルカリ性水の形成機構には、沸石類やスメクタイト族であるサポナイ トからの陽イオンの溶出とサポナイトへの水素イオンの取り込みが重要であると考えられる。

以上のことから、安山岩質火砕岩類および溶岩の溶出液は、濁沸石(Laumontite; CaAl₂Si₄O₁₂・ 4H₂O)および剥沸石(Epistilbite; CaAl₂Si₆O₁₆・5H₂O)もしくは斜長石(Anorthite; CaAl₂Si₂O₈), サポナイト ([(Na,Ca_{1/2})^{0, 33}]^{0, 33+}[Mg₃(Si_{3, 67}Al_{0, 33})O₁₀(OH)₂]^{0, 33-}), 黄鉄鉱(FeS₂)の溶解によっ て岩石から Na⁺, Ca²⁺, SO₄²⁻などが溶液に溶出していることが考えられる。

5 まとめ

和田川層の多孔質で透水性が高い安山岩質火砕岩類は、同質の溶岩類と比較して Na⁺, Ca²⁺, SO₄²⁻濃度が高く, pH はアルカリ性を示す。アルカリ性の水を形成するメカニズムには、沸石類 やスメクタイト族であるサポナイトから Na⁺, Ca²⁺の溶出と, サポナイトが H⁺を取り込むような メカニズムが機能している可能性がある。

これら安山岩質溶岩および同質火砕岩類の残土から溶出する水は、初期は高いアルカリ性を示 すが、時間の経過とともに中性に戻っていく。しかし工事により排出された残土については少な くとも初期の段階においては十分に管理し、強アルカリ性水の発生を防止する対策を施す必要が ある。今後、鉱山地域での大型土木工事において、鉱化変質帯の周縁部に広く分布し、沸石およ びスメクタイトを形成しているような変質帯が分布する地域を掘削する場合には掘削直後にア ルカリ性水が発生する可能性があるので、掘削残土処理も含めてアルカリ性水の発生を防止する 環境面の対策に注意する必要がある。

引用文献

- 1) Brookins, D. G. (1988): Eh-pH Diagrams for Geochemistry. Springer-Verlag, Berlin, 176 p.
- 2) Drever, J. I. (1982): The Geochemistry of Natural Water. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, NJ, 388 p.
- 3) 服部修一・菊池良弘・太田岳洋 (2002a): 八甲田トンネルにおける鉱化変質岩の産状と調査法 について、物理探査, 55, 6, 513-521.
- 4) 服部修一・太田岳洋・木谷日出男 (2002b): 鉱山地域におけるトンネル掘削残土の管理手法に 関する検討.トンネル工学研究論文・報告集, 811p.
- 5) 岩井武彦 (1986):島弧横断ルート No. 10 (十三湖-五所川原-青森-野辺地-上北).地質図, 地質断面図および同説明書,新生代東北本州弧地質試料集(北村信編),宝文堂,1(9).8.
- 6) 笹木圭子 (1998): 黄鉄鉱の常温酸化溶解に関する実験地球化学的研究.鉱物学雑誌, 27, 93-103.
- Singer P. C. and Stumm W. (1970): Acid mine drainage, The rate-determining step. Science, 167, 1121-1123.
- Tardy, Y., and Garrels, R. M. (1974): A method of estimating the Gibbs energies of formation of layer silicates. Geochim, Cosmochim, Acta, 38, 1101-1116.
- Weast, R. C., Astle W. J., and Beyer W. H. (Eds). (1986): CRC Handbook of chemistry and Physics. CRC Press, Boca Raron, FL.

Genetic reaction between alkaline water and reacted andesitic volcanics of the Wadagawa Formation in the Hakkoda Tunnel excavating area, Aomori Prefecture, Japan

Shigeto Kobayashi^{*1}, Toshio Mizuta^{*1}, Daizo Ishiyama^{*1}, Hinako Sato^{*1}, Yasuhiko Tokutomi^{*2}, Yoshihiro Kikuchi^{*3}and Koichiro Sera ^{*4}

> *1 Faculty of Engineering and Resource Science, Akita University 1-1 Gakuen-Machi, Tegata, Akita 010-8502, Japan

*2 Shichinohe Railway Construction office, Japan Railway Construction, Transport and Technology Agency 32-2 Jishodakawakubo, Shichinohe, Aomori 039-2511, Japan

> *3 Nikko Exploration & Development Co., Ltd. 2-7-10 Toranomon, Minsto Ward, Tokyo 105-0001, Japan

*4 Cyclotron Research Center, Iwate Medical University 348-58 Tomegamori Takizawa, Iwate 020-0173, Japan

Abstract

Acid water is formed in the area mineralized around some deposits in the Hakkoda Tunnel excavating area, while generation alkaline water is detected in an area consisting of diagenetic weakly altered andesitic volcanics in the Hakkoda Tunnel No. 3 construction area. Geology of the No. 3 construction area consists of the Wadagawa Formation of Middle Miocene age. The Wadagawa Formation is mainly composed of weakly altered andesitic lavas and their pyroclastic rocks with some lapilli tuffs. The mineral assemblage of weakly altered andesitic lavas is plagioclase, augite, quartz with small amounts of Na-bearing Mg-smectite, cristobalite calcite, magnetite and ilmenite. The weakly altered andesitic pyroclastic rocks consists of plagioclase, augite, quartz, Na-bearing Mg-smectite, Ca-zeolite (laumontite and epistilbite) and small amounts of cristobalite, calcite and pyrite.

A reaction between andesitic volcanics and distilled water was carried out to clarify the generation mechanism of alkaline water. The pH values of water reacted for 1 month with andesitic lavas and andesitic pyroclastic rocks are 7.0 to 8.0 and 8.0 to 9.0, respectively. The pH values of these solutions gradually change from alkaline to neutral according progress of reaction. The solution reacted with andesitic lavas has higher Na⁺, Ca²⁺ and SO₄²⁻ concentrations, while the solution reacted andesitic lavas has high Ca²⁺ concentration. Based on mineral assemblage of andesitic volcanics and ratios of $[Mg^{2^+}]/[H^+]^2$ and $[Ca^{2^+}]/[H^+]^2$ in these solutions, chemical composition of these solutions are controlled by the presence of Mg-smectite and Ca-rich zeolite.

In the solution reacted with andesitic pyroclastics calcium, sodium and sulfuric acid is likely to be generation from the surface reaction with from Ca-rich zeolite, Na-bearing Mg-smectite and pyrite, respectively.