

平成13年6月

原 著

安山岩の酸性変質過程

鹿児島大学大学院理工学研究所

藤田 俊一, 坂元 隼雄, 富田 克利

(平成12年10月30日受付, 平成13年4月13日受理)

Interaction between Acid Aqueous Solution and an Andesite

Shun-ichi FUJITA, Hayao SAKAMOTO and Katsutoshi TOMITA

Graduate School of Science and Engineering, Kagoshima University

Abstract

The majority of the fumaroles and the acid sulfate hot springs are distributed in Kirishima volcanic areas. The rocks of the surrounding area were intensively altered chemically which can be visible due to the presence of whitish altered zone.

The chemical weathering mechanism by acid geothermal water was studied in the laboratory by dissolution experiments of andesite with acid solution. Relative leaching ability of rock forming components reflects resistivity of minerals in volcanic rocks against acidic alteration.

The results revealed that with acid sulfate dissolution, precipitated calcium took stable chemical forms, otherwise the rock samples will dissolve less in the later stage of the reaction. Leached amounts of Na, K and Al in the experiment of rock-acid solution interaction were assigned to three representative minerals namely; Anorthite, Albite and Orthoclase. Anorthite and Albite were leached more quickly than Orthoclase. The chemical composition ratio of An-Ab-Or showed that the dissolution of plagioclase in andesite which was certified by XRD analysis.

Key words : water-rock interaction, rock alteration, Kirishima volcanic area

キーワード：岩石-水相互作用, 岩石変質, 霧島火山地域

1. 緒 言

霧島火山地域では現在でも活発な地熱活動が続いている。特に霧島火山硫黄谷地区の噴気活動は1980年頃から活発となり、酸性熱水の流動や火山ガスの噴出による路面の陥没や路肩法面の滑落被災等が確認されている。現在では硫黄谷地区噴気災害対策事業によって、熱水や噴気ガスの抜き穴などが打ち込まれ、土砂崩れなどの被害はおさまっているが、酸性熱水の流動や火山ガスの噴出に伴い周囲の岩石・土壌は著しく変色を伴い、岩石の変質は現在も進行している。また、霧島火山手

洗地区では、1971年に台風による大雨のため、変質地帯で大規模な地滑りが生じた。その際、土砂が噴気孔などの出口を塞いだために水蒸気爆発が起こり、周囲の木々などがなぎ倒されるなどの被害を被った(露木ら, 1980)。よって、霧島火山地域における岩石の酸性変質過程に関する知見は、その周辺地域の崩壊・滑落・地滑りなどの予測や防災に役立たせることができる。

天然における岩石の酸性変質現象は、過去から現在までの変質作用の累積結果である。従って変質生成物だけを見ても酸性変質の原因や過程、その他の条件については完全に把握することはできない。よって、化学組成や鉱物組成等が明らかになっている岩石と火山ガスや酸性熱水との反応における岩石の酸性変質過程の研究(湊ら, 1959; 今井ら, 1964; 南・小坂, 1966; 小坂, 1968, 1995; 岩崎ら, 1976, 木川田ら, 2000)、実験室で既定される条件下での酸性溶液と岩石との反応における岩石の酸性変質過程の研究(Kamiya, 1960; 千葉, 1962; 野上・吉田, 1993; 野上ら, 1994; 河野・富田, 1994; Nogami and Yoshida, 1995; 吉池, 1995)、酸性溶液と鉱物との反応における速度論的研究(Sanemasa et al., 1972; Sanemasa and Katsura, 1973; Brady and Walther, 1989; Hellmann et al., 1990)などが報告されている。

本研究では、高温・強酸性溶液による栗野安山岩の人工変質を試み、溶出成分の特徴から造岩鉱物の酸性変質の相対的な難易について考察を行った。

2. 実験方法

2.1 溶出液及び出発物質

溶出液は、特級の硫酸及び塩酸を超純水装置システム(日本ミリポア株式会社製)により精製した超純水で希釈して $0.05 \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3} \text{ H}_2\text{SO}_4$ 及び $0.1 \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3} \text{ HCl}$ を調製した。また、溶出液は使用前に窒素ガスを通じ、酸素と二酸化炭素を除いた。

出発物質としての岩石試料には、霧島火山体の一部を形成している栗野安山岩(Olivine bearing augite-hypersthene andesite: 沢村・松井, 1957)を用いた。この岩石試料は岩石薄片の鏡下観察(モード)では、斜長石を11.4%及び輝石を3.3%含んでいた。

岩石試料の調製は、鉄などの混入を避けるために、タンゲステンコーティング製の超硬合金乳鉢を使用し岩石を破碎した。また、反応条件をそろえるために、岩石試料はふるいにかけて粒子の大きさを $0.5 \sim 1.0 \text{ mm}$ にそろえ、水洗し微粒子を取り除いたものを使用した。また、反応終了後(反応開始7200分後)の岩石は超純水でよく洗浄し微粒子を取り除いた後、 50°C で乾燥させたものを使用した。これらの岩石の化学組成はTable 1に示した。

2.2 実験装置

反応装置の概略図をFig. 1に示す。溶出温度、溶出液の流速は吉池(1995)の実験に合わせた。溶出時の温度は恒温槽を用いて $80 \pm 1^\circ\text{C}$ に保ち、反応容器はガラス製カラムG1孔径のガラスろ過器を用いた。岩石試料25gをカラムにつめ、溶出液は定量ポンプによって $6 \text{ ml} \cdot \text{min}^{-1}$ の流速に調節してカラム中に送りこんだ。一定温度、一定流速で流した溶出液は、カラムの下部から岩石試料と約数分間反応させ、反応後の溶液はカラム上部横管より流出させ、流出液を採取した。また、ガラス器具は2M硝酸に数日間浸し、器具からの化学成分の溶出をできるだけ少なくして使用した。

2.3 分析方法

流出液のNa, Kは炎光光度法, Ca, Mgは原子吸光分光分析法, Feは1,10-フェナントロリン吸光光度法, Alは8-キノリノール法, Siはケイモリブデン酸黄法を用いて定量分析した。

岩石試料は粉末試料0.5gを白金るつぽに精秤してアルカリ溶融した後、SiO₂は重量分析法を用いて定量分析した。また、粉末試料0.1gをテフロンビーカーに精秤して超純水で湿らせた後、硝酸1 ml, 過塩素酸3 ml, フッ化水素酸5 mlを加えてホットプレート上で分解・蒸発乾固を行い冷却後、(1+1)塩酸5 mlを加えて温めて溶かし、100 mlに定容した後、Fe₂O₃は1,10-フェナントロリン吸光度法、Al₂O₃は8-キノリノール法、Na₂O, K₂Oは炎光光度法、CaO, MgOは原子吸光分光分析法を用いて定量分析した。

Table 1 Chemical composition (wt.%) of starting material and residual rock

	Starting material	Residual rock (A)	Residual rock (B)	Kurino andesite*
SiO ₂	59.6	71.3	71.8	58.6
TiO ₂	—	—	—	1.05
Al ₂ O ₃	18.8	7.96	9.10	18.6
Fe ₂ O ₃	6.74**	7.19**	6.23**	2.90
FeO	—	—	—	3.30
MnO ₂	0.17	0.22	0.22	0.10
MgO	3.17	4.22	4.12	3.42
CaO	5.50	3.28	2.64	6.87
Na ₂ O	2.98	2.08	2.32	3.25
K ₂ O	2.16	2.22	2.10	1.64
P ₂ O ₅	—	—	—	0.20
Total (wt. %)	99.1	98.5	98.5	100

Reaction solution : (A) 0.05M H₂SO₄, (B) 0.1M HCl (Reaction time: 7200min)

* Analyzed by Takahashi (Sawamura and Matsui, 1957) ** Total iron as Fe₂O₃

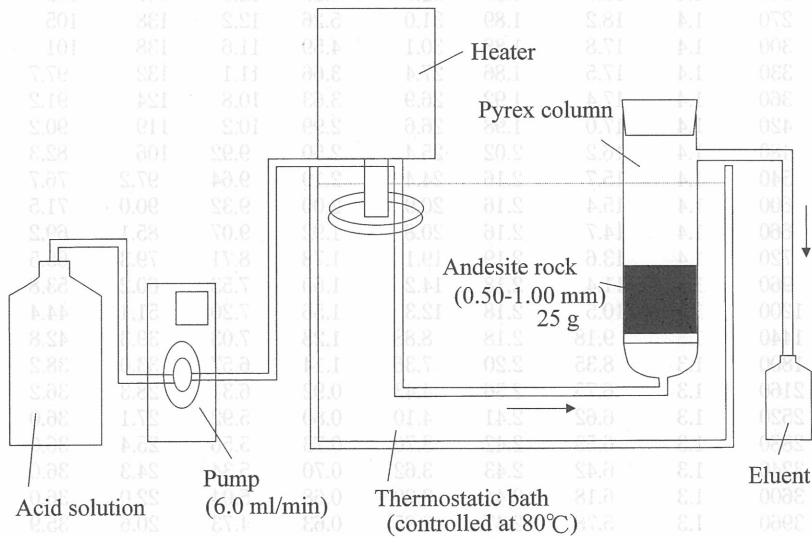


Fig. 1 Rock dissolution experiment set-up

3. 結果と考察

3.1 岩石成分の溶出量と元素間の相関性

酸性溶液と反応する造岩鉱物間では酸性変質作用に対する耐性に差があることから、岩石から溶出した成分と岩石中の鉱物との間には密接な関係があるものと考えられ、鉱物単位での溶出実験が行われている (Sanemasa et al., 1972; Sanemasa and Katsura, 1973; Hellmann et al., 1990; Muir and Nesbitt, 1992; Walther and Woodland, 1993)。しかし、火山岩の場合にはガラス質の部分も多く、鉱物単位で行った溶出実験の結果を合わせるだけでは各成分の溶出過程を明らかにすることは困難である。野上ら (1994) は、ガラス質の部分にも長石や輝石等の構成鉱物に相当する単位が存在し、そ

Table 2 Chemical compositions of sample aliquot per time.

Reaction solution : (A) 0.05M H₂SO₄

Time (min)	pH	Na (mg/l)	K (mg/l)	Ca (mg/l)	Mg (mg/l)	Fe (mg/l)	Al (mg/l)	Si (mg/l)
15	1.5	14.2	12.8	79.5	31.0	20.9	125	149
30	1.5	16.0	7.27	56.3	25.9	23.1	148	151
45	1.5	16.7	4.43	49.6	22.5	22.9	163	149
60	1.5	17.4	2.63	48.8	21.4	21.9	162	144
75	1.5	17.3	2.17	47.2	19.4	20.7	167	137
90	1.5	17.2	2.13	46.3	17.1	19.4	165	127
105	1.4	18.1	2.03	44.2	18.1	18.7	162	125
120	1.4	18.6	2.00	41.6	13.0	17.9	161	128
135	1.4	18.8	1.96	39.2	12.3	17.1	162	122
150	1.4	19.0	1.95	38.3	10.5	15.8	160	123
165	1.4	18.9	1.87	36.8	10.1	15.3	159	121
180	1.4	18.8	1.98	35.4	8.54	14.5	151	120
210	1.4	18.9	1.90	34.2	6.69	13.5	148	114
240	1.4	18.8	1.89	32.6	6.28	12.8	147	109
270	1.4	18.2	1.89	31.0	5.26	12.2	138	105
300	1.4	17.8	1.88	30.1	4.59	11.6	138	101
330	1.4	17.5	1.86	27.4	3.66	11.1	132	97.7
360	1.4	17.4	1.92	26.9	3.63	10.8	124	91.2
420	1.4	17.0	1.98	26.6	2.99	10.2	119	90.2
480	1.4	16.2	2.02	25.4	2.50	9.92	106	82.3
540	1.4	15.7	2.16	24.4	2.19	9.64	97.2	76.7
600	1.4	15.4	2.16	20.9	2.00	9.32	90.0	71.5
660	1.4	14.7	2.16	20.8	1.92	9.07	85.1	69.2
720	1.4	13.6	2.19	19.1	1.78	8.71	79.3	65.5
960	1.3	11.4	2.18	14.2	1.60	7.53	60.2	53.8
1200	1.3	10.5	2.18	12.3	1.56	7.20	51.1	44.4
1440	1.3	9.18	2.18	8.88	1.28	7.03	39.3	42.8
1800	1.3	8.35	2.20	7.36	1.14	6.57	33.0	38.2
2160	1.3	6.75	2.36	4.43	0.92	6.31	28.3	36.2
2520	1.3	6.62	2.41	4.10	0.80	5.92	27.1	36.0
2880	1.3	6.53	2.42	3.70	0.73	5.56	25.4	36.0
3240	1.3	6.42	2.43	3.62	0.70	5.34	24.3	36.0
3600	1.3	6.18	2.44	3.20	0.68	5.04	22.0	36.0
3960	1.3	5.78	2.47	2.85	0.63	4.73	20.6	35.9
4320	1.3	5.46	2.52	2.71	0.60	4.49	19.7	35.5
5040	1.3	5.17	2.63	1.79	0.56	3.98	17.8	35.5
5760	1.3	4.76	2.67	1.72	0.52	3.64	15.7	35.5
6480	1.3	4.38	2.71	1.44	0.45	3.28	12.4	34.1
7200	1.3	3.95	2.75	1.22	0.45	2.92	11.1	32.6

こから各成分が溶出している可能性を指摘している。

各フラクションにおける岩石成分の溶出量及びpHをTable 2に示す。また、各フラクションにおけるNa, K, Ca, Mg, Fe, Alの6成分の溶出量について二成分間の相関係数をTable 3に示す。野上ら(1994)によるガラス質流紋岩の酸性変質実験においてはNa, K, CaがAlと相関を持つのでガラス質の部分にも長石のような構成鉱物単位が存在するとしている。しかし、本研究で用いた岩石ではNa, CaがAlと強い相関を示したのでガラス質の部分にも曹長石、灰長石のような鉱物に相当する構造単位は存在すると思われるが、KはAlとの相関を示さなかったので、カリ長石のような鉱物に相当する構造単位は存在しないものと思われる。

Table 2 (continued)
Reaction solution : (B) 0.1M HCl

Time (min)	pH	Na (mg/l)	K (mg/l)	Ca (mg/l)	Mg (mg/l)	Fe (mg/l)	Al (mg/l)	Si (mg/l)
15	1.3	18.1	15.9	275	33.6	18.9	129	119
30	1.3	21.6	9.74	130	20.1	20.6	138	108
45	1.3	21.6	4.94	93.7	16.9	24.5	137	100
60	1.3	19.1	3.29	83.4	19.1	24.7	142	95.0
75	1.3	20.8	2.76	81.9	18.4	24.4	152	89.9
90	1.3	20.6	2.69	67.4	18.2	22.9	147	87.7
105	1.3	21.7	2.54	64.9	16.5	22.5	143	86.3
120	1.2	20.7	2.34	67.5	14.0	21.7	139	83.3
135	1.2	23.8	2.41	66.0	14.7	19.2	137	81.1
150	1.2	23.4	2.57	65.4	13.2	18.4	136	80.4
165	1.2	23.1	2.31	64.6	11.8	18.6	132	78.9
180	1.2	22.6	2.49	64.8	11.6	18.0	130	77.5
210	1.2	21.1	2.41	63.8	8.16	16.3	128	73.1
240	1.2	20.7	2.44	63.2	7.48	14.4	126	71.6
270	1.2	20.6	2.52	61.9	7.22	13.8	122	67.2
300	1.2	20.5	2.68	55.5	6.04	12.7	122	67.2
330	1.2	20.1	2.72	51.1	5.98	13.0	114	64.3
360	1.2	18.4	2.63	50.4	5.90	11.3	104	64.3
420	1.2	18.8	2.77	41.4	4.88	10.7	102	60.7
480	1.2	18.4	2.31	40.3	4.48	9.44	98.7	57.0
540	1.2	18.3	2.67	40.4	4.10	8.98	94.5	54.1
600	1.2	17.9	2.60	33.2	4.12	8.44	86.9	50.4
660	1.2	17.4	2.63	31.4	4.00	8.12	84.4	48.9
720	1.2	16.2	2.56	31.5	4.00	7.66	75.7	47.5
960	1.2	14.2	2.72	31.0	4.00	6.53	67.4	41.6
1200	1.2	12.1	2.81	30.6	4.00	5.72	58.3	38.7
1440	1.2	10.5	2.91	28.2	4.00	5.00	42.4	36.1
1800	1.1	9.89	3.13	23.9	4.00	4.56	32.4	36.5
2160	1.1	8.60	2.86	18.0	4.00	3.90	27.4	34.3
2520	1.1	8.59	2.92	17.6	3.60	3.41	25.0	34.3
2880	1.1	8.58	3.32	17.0	3.32	3.15	22.5	34.3
3240	1.1	8.55	3.07	14.9	3.24	3.09	22.0	34.3
3600	1.1	7.64	3.03	11.0	2.98	2.98	19.6	34.7
3960	1.1	7.21	3.07	10.2	2.80	2.93	18.7	33.6
4320	1.1	6.50	3.11	9.7	2.68	2.82	17.8	32.5
5040	1.1	6.21	2.97	9.3	2.70	2.69	16.6	32.1
5760	1.1	5.68	3.04	6.8	2.70	2.71	15.9	31.0
6480	1.1	5.23	3.07	5.96	2.76	2.57	14.4	30.7
7200	1.1	4.71	2.97	5.26	2.40	2.58	13.4	29.6

Table 3 Correlation coefficients between two elements, calculated element contents on each fraction data

(A)							
	Na	K	Ca	Mg	Fe	Al	Si
Na		-0.03	0.81	0.55	0.79	0.96	0.87
K	0.07		0.51	0.62	0.36	0.07	0.32
Ca	0.58	0.82		0.92	0.96	0.89	0.97
Mg	0.61	0.66	0.91		0.93	0.72	0.87
Fe	0.87	0.22	0.68	0.85		0.90	0.97
Al	0.97	0.15	0.66	0.73	0.95		0.96
Si	0.84	0.48	0.85	0.92	0.95	0.92	

(B)

Reaction solution : (A) 0.05 M H₂SO₄, (B) 0.1 M HCl

3.2 溶出成分量から推定される溶出率

長石を構成する代表的な化学成分であるNa, K, Ca, Al, Siの溶出率(%)を野上・吉田(1993)による計算方法を用いて求めた(Fig. 2)。反応終了後のAlの溶出率は硫酸処理で57.2%, 塩酸処理で55.3%, Naの溶出率は硫酸処理で55.7%, 塩酸処理で67.4%とそれぞれ50%以上の溶出率を示した。しかし, Caの溶出率は硫酸と塩酸処理とで大きく異なり, 硫酸処理で28.4%, 塩酸処理で76.7%であった。硫酸処理では反応時間1000分までCaの溶出率は反応時間とともに増えているが, 反応時間1000分あたりから急激に溶出率が低くなっている。このことから, 硫酸処理ではCaが溶出しにくい傾向を持つか, Caが溶出するときに石膏のような二次鉱物あるいは化学的安定状態を形成し, 変質岩石中に固定または残留していることが考えられる。石膏の生成は, 今井ら(1964)の現地反応実験により確認され, Kikawada et al.(1995)による実験室での反応実験においても, 石膏の生成とカルシウムの溶出挙動との関係は指摘されている。よって, 硫酸処理でCaの溶出率が低くなることの原因としては石膏の生成が考えられる。

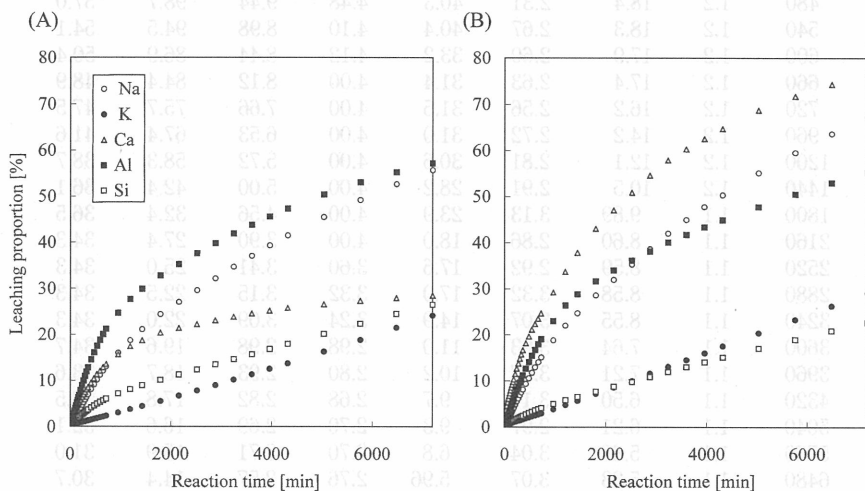


Fig. 2 Change in leached proportions of Na, K, Ca, Al and Si vs. reaction time, resulting from leaching of these major elements from andesite under acid aqueous solution. Reaction solution: (A) 0.05M H₂SO₄, (B) 0.1M HCl

Siの溶出率はNa, Alに比べて少なく, 硫酸処理で26.5%, 塩酸処理で22.7%を示した。よって, Na, Alに比べれば溶出しにくい成分であることが示唆され, 反応終了後の岩石 (Table 1) のSiO₂ (wt.%)は硫酸処理で71.3%, 塩酸処理で71.8%と残留傾向を示した。これは岩石中のSiO₂が他の成分に比べて溶出しにくいためである。野上・吉田(1993)も, 天然現象と同じく, SiO₂だけが岩石中に残留することを報告している。

また, Kの溶出率は硫酸処理で24.1%, 塩酸処理で29.1%を示した。また, Siの溶出率を基準としたK/Si (Na/Si)の溶出率比は硫酸処理で0.9(2.1), 塩酸処理で1.3(3.0)と硫酸処理で低い値を示した。このことは, 硫酸もしくは硫酸の関与する変質環境下で普通に見られる明礬石の生成と関係があるものと考えられる。今井ら(1964)は, 酸性熱水及び火山ガス中で安山岩質岩石の変質実験を行い, 鏡下観察によって明礬石が孔隙や割れ目に沿って生成していることを報告している。したがって, 本研究においてもKAl₃(SO₄)₂(OH)₆で示される明礬石の生成が考えられる。また, Kの一部はNaで置き換えられることから, 明礬石の生成がNa, Kの残留に寄与している可能性が高い。小坂(1961)は, 火山ガス噴気孔周辺における火山灰層の変朽現象において, 明礬石の生成が一般的には易溶性と考えられるNa, Kの溶出を妨げていることを指摘している。

3.3 溶出成分から推定される長石成分の溶出および残留

岩石の化学組成と鉱物組成の間の関係を示すためにNORM分類によって化学組成を標準鉱物に換算することがある。火山岩の代表的な造岩鉱物は斜長石及び輝石である。そこで, NORM分類の概念を利用して, 溶出成分に参与する標準鉱物として長石族の灰長石 (An): CaAl₂Si₂O₈, 曹長石 (Ab): NaAlSi₃O₈, 正長石 (Or): KAlSi₃O₈の3端成分鉱物に相当する構造単位に割りふった。なお, このNORM計算については野上ら(1994)によって報告されているので, その計算式を用いた。また, NORM計算ではNa, K, Alの濃度からAn, Ab, Orのモル濃度を算出することができるので, Caが二次鉱物として残留傾向を示した場合でも, 岩石中から溶出したAn, Ab, Orの各モル濃度は正確に求められると考えられる。各フラクションにおける溶液及び岩石成分のAn-Ab-Or (mol.%)の組成比をFig. 3に示した。

硫酸及び塩酸処理では, 溶出液の組成比は斜長石の組成比に近いので, 斜長石の溶出率が高いと考えられる。また, 溶出成分の組成比を長石族の3端成分鉱物に相当する構造単位でみると, 反応開始直後は灰長石の割合が非常に大きく, 灰長石の溶解が急速に起こっていることがわかる。また,

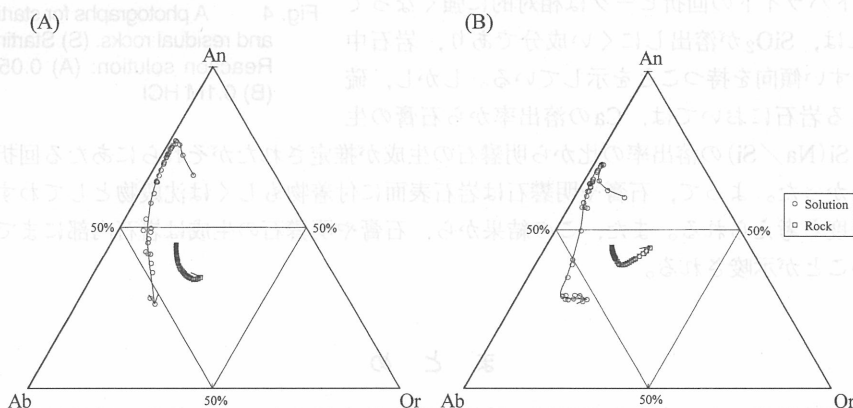


Fig. 3 Change of An-Ab-Or (mol.%) in solution and the residual rock vs. reaction time. Reaction solution: (A) 0.05M H₂SO₄ (B) 0.1M HCl

反応時間の経過に伴って曹長石の割合が大きくなっていることがわかる。野上ら(1994)は、曹長石と灰長石が相当変質した後で正長石の溶出が起こっていることを指摘しているが、そのことは塩酸処理の溶出液の組成比で確認された。

硫酸処理によるCaの溶出率は反応時間1000分あたりから残留傾向を示すことが確認された(Fig. 2)。その原因として、硫酸処理では灰長石が溶出しにくい性質を持つか、石膏のような二次鉱物あるいは化学的安定状態を形成したものが変質岩石中に固定または残留しているものと考えられるが、溶出成分のAn-Ab-Orの組成比は灰長石が硫酸処理でも塩酸処理の場合と同じように溶出する傾向を示している。また、硫酸処理におけるCaO(wt.%)はTable 1を見ても塩酸処理と同じように減少している。

次に実験に用いた反応前の岩石と硫酸及び塩酸処理による反応終了後の岩石の写真をFig. 4に示す。反応終了後の岩石には0.5 mm以下のものが含まれていることが確認できた。また、岩石の乾燥重量から求めた岩石重量の減少率は硫酸処理で28.0%、塩酸処理で32.0%であった。

また、これらの岩石を粉末状に粉砕してX線分析を行った結果をFig. 5に示す。出発物質に用いた岩石では石英や α -クリストバライト、斜長石及び輝石の回折ピークが認められる。硫酸及び塩酸処理による岩石のX線回折曲線を反応前の岩石と比較すると、硫酸及び塩酸処理による岩石では岩石組織構造の破壊が進み、斜長石の回折ピークが相対的に弱くなっている。よって、岩石成分のAn-Ab-Orの組成比から斜長石の溶出が推定されたように、X線回折曲線からも斜長石の溶出が確認された。また、石英や α -クリストバライトの回折ピークは相対的に強くなっている。それは、 SiO_2 が溶出しにくい成分であり、岩石中に残留しやすい傾向を持つことを示している。しかし、硫酸処理による岩石においては、Caの溶出率から石膏の生成及びK/Si(Na/Si)の溶出率の比から明礬石の生成が推定されたがそれらにあたる回折ピークは認められなかった。よって、石膏や明礬石は岩石表面に付着物もしくは沈殿物としてわずかに存在している程度と考えられる。また、この結果から、石膏や明礬石の生成は岩石内部にまで十分進行していないことが示唆される。

ま と め

硫酸及び塩酸処理による安山岩質岩石の酸性変質実験を試みた。その結果、酸性溶液による変質に伴う岩石の組成変化は、造岩鉱物である長石族鉱物等の構成鉱物の化学的安定性に支配されることが確認された。

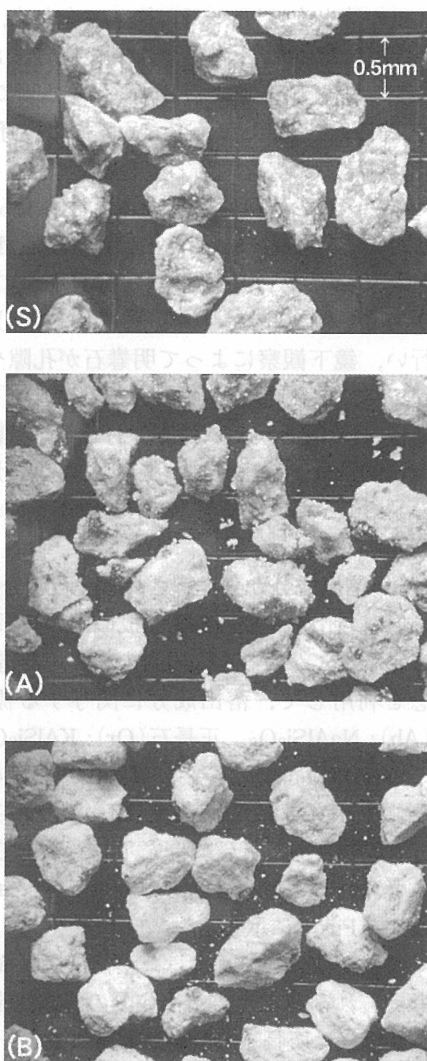


Fig. 4 A photographs for starting material and residual rocks. (S) Starting material, Reaction solution: (A) 0.05M H_2SO_4 , (B) 0.1M HCl

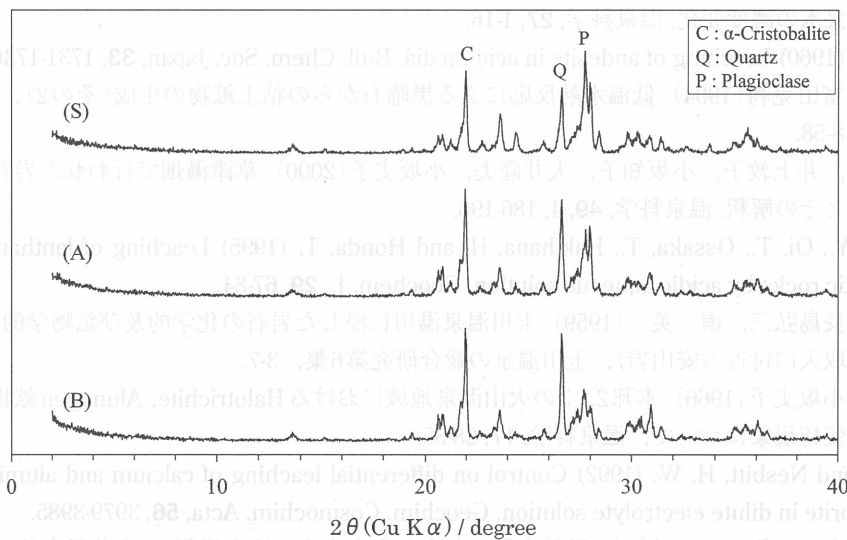


Fig. 5 XRD patterns for starting material and residual rocks. (S) Starting material, Reaction solution: (A) 0.05M H₂SO₄, (B) 0.1M HCl

酸性変質による変質岩石中では、溶出液のAn-Ab-Or組成比の変化から斜長石の溶出が著しい事が分かり、粉末X線回折の結果からも同様のことが確認された。また、硫酸処理ではCaの溶出率が1000分あたりから急激に低下することから、Caは溶出しにくい傾向を持つか、二次鉱物あるいは化学的安定状態を形成し、変質岩石中に固定または残留していることが示された。岩石のAn-Ab-Or組成比の変化は、塩酸処理と同様に灰長石の溶出を示したので、Caは石膏などの二次鉱物を形成するものと考えられた。

謝 辞

本研究を行うにあたり、鹿児島大学理学部の山本温彦助教授、富安卓滋助教授、穴澤活郎博士には有益な助言をいただいた。鹿児島大学理学部の井村隆介助教授には岩石試料を提供していただいた。その他、岩石の粉碎、X線粉末回折装置の使用等でご協力いただいた方々に深く感謝申し上げます。

(日本温泉科学会第53回大会で発表、平成12年8月27日; 日本地球化学会第47回年会で発表、平成12年9月25日)

文 献

- Brady, P. and Walther, J. V. (1989) Controls on silicate dissolution rates in neutral and basic pH solutions at 25°C. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **53**, 2823-2830.
- Hellmann, R., Eggleston, C. M., Hochella JR, M. F. and Crerar, D. A. (1990) The formation of leached layers on albite surfaces during dissolution under hydrothermal condition. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **54**, 1267-1281.
- 今井直哉, 大塚良平, 堤 貞夫(1964) 硫気孔ガスおよび温泉による安山岩質岩石の変質について. 早稲田大学理工学研究所報告第26輯, 42-51.
- 岩崎岩次, 吉池雄蔵, 吉田征子, 大森禎子(1976) 玉川温泉における岩石と温泉水との連続反応に

よる温泉水の濃度変化. 温泉科学, **27**, 1-16.

Kamiya, H. (1960) Leaching of andesite in acid media. *Bull. Chem. Soc. Japan*, **33**, 1731-1736.

河野元治, 富田克利(1994) 低温水熱反応による黒曜石からの粘土鉱物の生成(その2). 粘土科学, **34**, 1, 48-58.

木川田喜一, 井上敦子, 小坂知子, 大井隆夫, 小坂丈予(2000) 草津湯畑で行われた岩石変質実験の結果とその解釈. 温泉科学, **49**, 4, 186-196.

Kikawada, Y., Oi, T., Ossaka, T., Kakihana, H. and Honda, T. (1995) Leaching of lanthanoids from andesitic rocks by acidic aqueous solution. *Geochem. J.*, **29**, 67-84.

湊 秀雄, 長島弘三, 南 英一(1959) 玉川温泉湯川に浸した岩石の化学的及び鉱物学的変化(その一毒水取入口付近の安山岩). 玉川温泉の総合研究第6集, 3-7.

南 英一, 小坂丈予(1966) 本邦2, 3の火山温泉地域におけるHalotrichite, Alunogen 鉱物の生成と母岩の変朽現象について. 温泉科学, **17**, 28-35.

Muir, I. J. and Nesbitt, H. W. (1992) Control on differential leaching of calcium and aluminum from labradorite in dilute electrolyte solution. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **56**, 3979-3985.

野上健治, 吉田 稔(1993) 岩石の酸性変質にともなう主成分の溶出過程. 日本化学会誌, **3**, 251-258.

野上健治, 吉田 稔, 星加康昭, 小坂丈予(1994) 岩石の酸性変質過程における造岩鉱物の溶出挙動. 温泉科学, **44**, 4, 209-216.

Nogami, K. and Yoshida, M. (1995) Leaching rates of rock-forming components through acidic alteration. *J. Volc. Geotherm. Res.*, **65**, 41-49.

小坂丈予(1961) 焼山火山の噴気孔周辺における変朽現象について. 火山, 第2集, **5**, 3, 145-153.

小坂丈予(1968) 火山温泉地域における岩石の変質現象について. 地熱, **17**, 65-79.

小坂丈予(1995) 岩石の変質と温泉の化学成分. 温泉科学, **45**, 3, 159-167.

Samemasa, I., Yoshida, M and Ozawa, T. (1972) The dissolution of olivine in aqueous solution of inorganic acids. *Bull. Chem. Soc. Japan*, **45**, 1741-1746.

Sanemasa, I. and Katsura, T. (1973) The dissolution of CaMg (SiO₃)₂ in acid solutions. *Bull. Chem. Soc. Japan*, **46**, 3416-3422.

沢村孝之助, 松井和典(1957) 霧島山(5万分の1, 地質図幅説明書), 地質調査所, 56-57.

千葉 茂(1962) 希硫酸による安山岩成分の溶出. 福島大学学芸学部理科報告, **11**, 19-29.

露木貞利, 金田良則, 小林哲夫(1980) 火山地域に見られる地盤災害とその評価(1) 霧島火山群地域にみられる崩壊型について. 鹿児島大学理学部紀要(地学・生物学), **13**, 91-103.

Walther, J. V. and Woodland, A. B. (1993) Experimental determination and interpretation of the solubility of the assemblage microcline, muscovite and quartz in supercritical H₂O. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **57**, 2431-2437.

吉池雄蔵(1995) 岩石と酸性溶液の反応(I)—安山岩と塩酸との反応—. 工業用水, **442**, 10-20.