

那珂川上流，五ヶ山地域の金探鉱跡周辺の 熱水変質早良花崗岩のヒ素含有量

柚原 雅樹*・祐徳 信武**・宇藤 千恵*・小路 泰之*

(平成17年11月30日受理)

Arsenic Content of the Hydrothermally Altered Sawara Granite around the Gold Prospects in the Gokayama Area, Upper Reach of the Naka River, Fukuoka Prefecture

Masaki YUHARA*, Shinobu YUTOKU**, Chie UTO* and Yasuyuki SHOJI*

(Received November 30, 2005)

Abstract

There are two remains of gold prospects in the Gokayama area, upper reach of the Naka River. Two adits were identified at the Ono gold prospects in the Ono area, Nakagawa Town, Fukuoka Prefecture, and another adit at the Ogawachi gold prospects in the Ogawachi area, Higashisefuri Village, Saga Prefecture. The white-altered granodiorite of the Sawara Granite caused by hydrothermal alteration is exposed around the gold prospects. This granodiorite is enriched in arsenic. The correlation between arsenic and sulfur suggests that arsenic is contained in sulphide minerals such as pyrite. Most of arsenic released by dissolution of pyrite are absorbed by Fe oxide - hydroxide minerals.

Key words: arsenic, gold prospects, hydrothermal alteration, Sawara Granite, Gokayama area.

はじめに

福岡県那珂川上流の五ヶ山地域 (Fig. 1) には、福岡県筑紫郡那珂川町五ヶ山大野地区に大野金探鉱跡が、佐賀県神埼郡東脊振村小川内地区に小川内金探鉱跡が残っている (柚原・祐徳, 2005)。柚原・祐徳 (2005) は、両金探鉱跡の現状と周辺の早良花崗岩の熱水変質作用による

岩相変化、化学組成の変化、熱水の温度条件を報告した。その後、探鉱跡周辺に分布する白色変質花崗閃緑岩が、高いヒ素含有量を示すことが判明した。本報告では、新たに分析した早良花崗岩のヒ素含有量を報告するとともに、高いヒ素含有量を示す白色変質花崗閃緑岩の分布、ヒ素の存在形態についての若干の考察を行う。

* 福岡大学理学部地球圏科学科, 〒814-0180 福岡市城南区七隈8-19-1
Department of Earth System Science, Faculty of Science, Fukuoka University, 8-19-1 Nanakuma, Jonan-ku, Fukuoka 814-0180, Japan

** 福岡大学大学院理学研究科地球圏科学専攻, 〒814-0180 福岡市城南区七隈8-19-1
Department of Earth System Science, Graduate School of Science, Fukuoka University, 8-19-1 Nanakuma, Jonan-ku, Fukuoka 814-0180, Japan

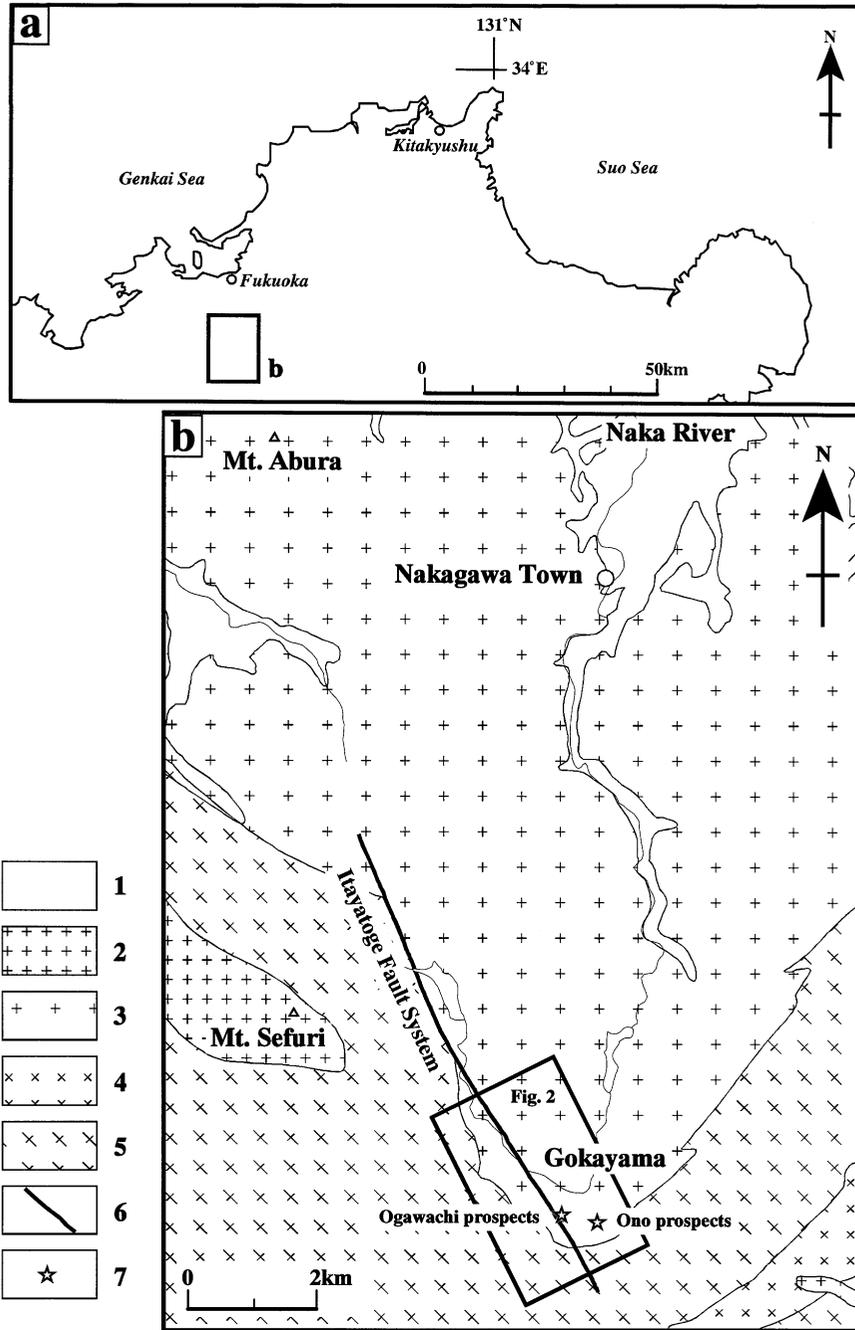


Fig. 1. Geological map of the around area of Nakagawa Town, Fukuoka Prefecture.
a: location of Nakagawa Town, b: geological map of the around area of Nakagawa Town (modified from Kubo et al., 1993) and location of the Gokayama area and the gold prospects.
1: Quaternary system, 2: Saga Granite, 3: Sawara Granite, 4: Fukae Granite, 5: Itoshima Granodiorite, 6: fault, 7: gold prospects.

地質概説

五ヶ山地域周辺には、白亜紀花崗岩類が分布する (Fig.1; 久保ほか, 1993). 白亜紀花崗岩類は糸島花崗閃緑岩, 深江花崗岩, 早良花崗岩, 佐賀花崗岩に分類される (久保ほか, 1993). 那珂川上流部には、北西-南東方向の長さ約 8 km の断層 (板谷峠断層系: 九州活構造研究会, 1989; 久保ほか, 1993) が分布し、糸島花崗閃緑岩と早良花崗岩の境界となっているが、断層南側では両者の境界にずれを生じさせている。

糸島花崗閃緑岩は、粗~中粒の片状普通角閃石黒雲母トータル岩~石英閃緑岩で、花崗閃緑岩を伴う (唐木田ほか, 1994). 本花崗閃緑岩は、結晶質石灰岩, 角閃岩, 泥質~マフィック片岩の小規模なレンズ状岩体を包有する (川野・柚原, 2005). 本花崗閃緑岩について、 116 ± 17 Ma の Rb-Sr 全岩アイソクロン年代, 93.4 ± 0.5 Ma の Rb-Sr 全岩-鉱物アイソクロン年代が報告されている (大和田ほか, 1999).

深江花崗岩は、調査地域の西方に小規模に分布する細~中粒の黒雲母石英閃緑岩~花崗岩で

ある (唐木田, 1985). 本岩は、糸島花崗閃緑岩に密接に伴った小岩体として産する (唐木田, 1985). 本花崗岩について、 86.7 ± 2.2 Ma の Rb-Sr 全岩-鉱物アイソクロン年代が報告されている (大和田ほか, 1999).

早良花崗岩は糸島花崗閃緑岩に貫入し、粗粒岩相 (主岩相) と細粒岩相に分けられる (唐木田ほか, 1994). 前者は、岩体の主部を構成しており、後者は主に岩体の周縁部に分布する。両者は、漸移関係にある場合と、細粒岩相が岩脈として主岩相を貫く場合がある (唐木田ほか, 1994). 本調査地域では、細粒岩相は糸島花崗閃緑岩との境界部に幅約 500 m にわたり分布しており (Fig.2; 川野・柚原, 2005), 主岩相を貫く産状も認められる。主岩相は、粗粒斑状黒雲母花崗岩~花崗閃緑岩で、一般的に塊状であるが、弱い面構造が発達する場合もある。斑晶のかり長石は最大数 cm に達する。細粒岩相は、細粒~中粒塊状黒雲母花崗岩~花崗閃緑岩である。変質花崗閃緑岩は暗緑色を呈し、主に斜長石, 石英, かり長石, 緑泥石からなり、副成分鉱物としてジルコン, モナズ石, 燐灰石, 黄鉄

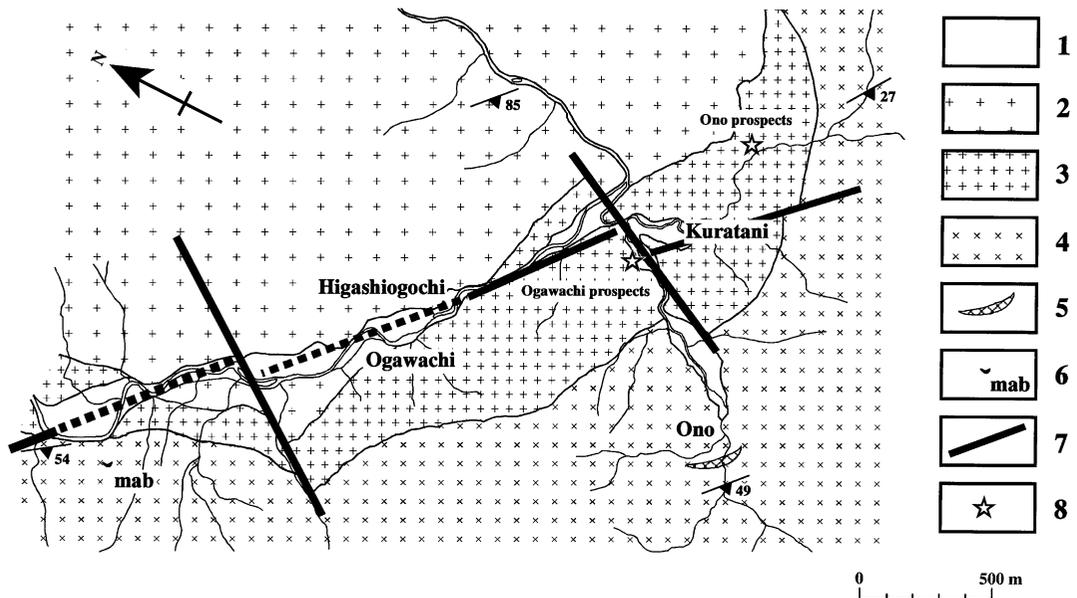


Fig. 2. Geological map of the Gokayama area (modified from Kawano and Yuhara, 2005). 1: Quaternary system, 2: Main facies of the Sawara Granite, 3: Fine-grained facies of the Sawara Granite, 4: Itoshima Granodiorite, 5: Amphibolite, 6: Marble, 7: fault, 8: gold prospects.

鉍，不透明鉍物を伴う（柚原・祐徳，2005）。さらに熱水変質作用を被った白色変質花崗閃緑岩では，斜長石と緑泥石の大部分がイライトに交代されている。本花崗岩については， 114 ± 11 Ma の Rb-Sr 全岩アイソクロン年代， 105.2 ± 2.3 Ma の Rb-Sr 全岩-鉍物アイソクロン年代が報告されている（大和田ほか，1999）。

佐賀花崗岩は，背振山山頂周辺に分布する細粒塊状の両雲母花崗岩～黒雲母花崗岩で，糸島花崗閃緑岩と早良花崗岩に貫入する（唐木田ほか，1994）。本花崗岩について， 87.9 ± 18.2 Ma の Rb-Sr 全岩アイソクロン年代， 82.6 ± 0.7 Ma の Rb-Sr 全岩-鉍物アイソクロン年代が報告されている（大和田ほか，1999）。

これらを，細礫～巨礫を含む砂礫からなる第四紀の河川堆積物が覆う。

調査地域内には，北西-南東方向の断層とそれを分断する北北東-南南西方向の右横ずれ断層が存在する（Fig. 2）。これらは最大幅20cm

の断層ガウジと最大幅約2mの破碎帯を伴う（柚原ほか，2006）。これらの断層は，板谷峠断層系に属すると考えられる（柚原ほか，2006）。

白色変質花崗閃緑岩の分布

白色変質花崗閃緑岩は大野探鉍跡および小川内探鉍跡周辺のほか，北西-南東方向の断層と北北東-南南西方向の断層に沿って点在する（Fig. 3）。さらに，これらの断層から離れた地点にも分布する。小川内探鉍跡周辺や断層沿いに点在する白色変質花崗閃緑岩の多くは，後の断層活動による破碎のため断裂が多数発達しカタクレサイト化しており，全体的に褐色を呈する。大野探鉍跡においても，断裂に沿って，数mm～1.5cmの褐色帯が認められる（Fig. 4）。

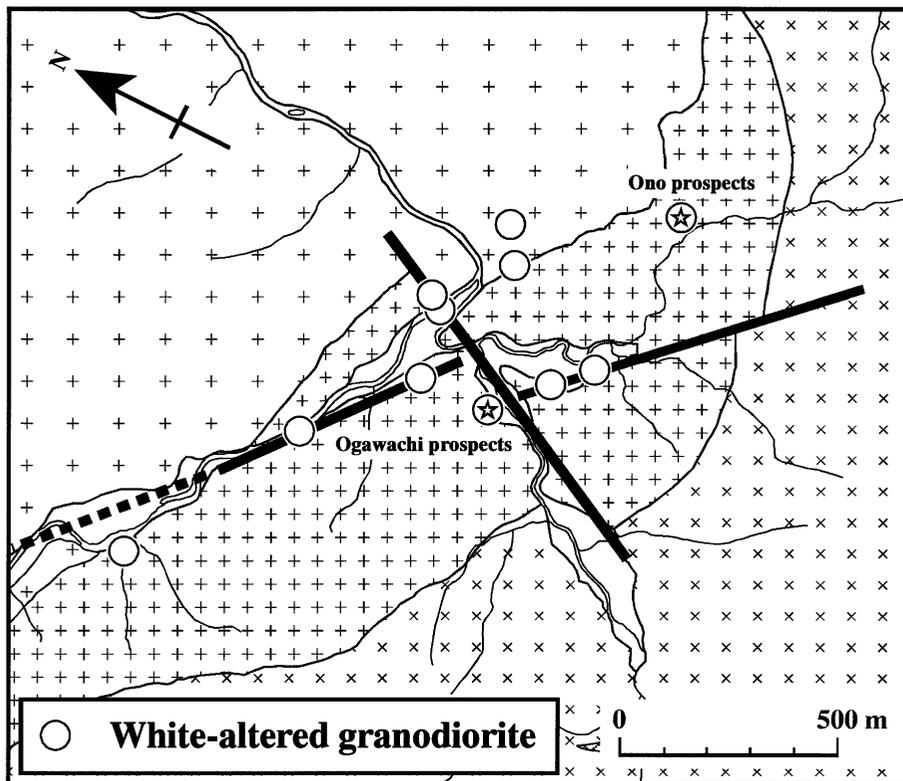


Fig. 3. Distribution of white-altered granodiorite of the Sawara Granite in the Gokayama area. Legend is the same as that in Figure 2.

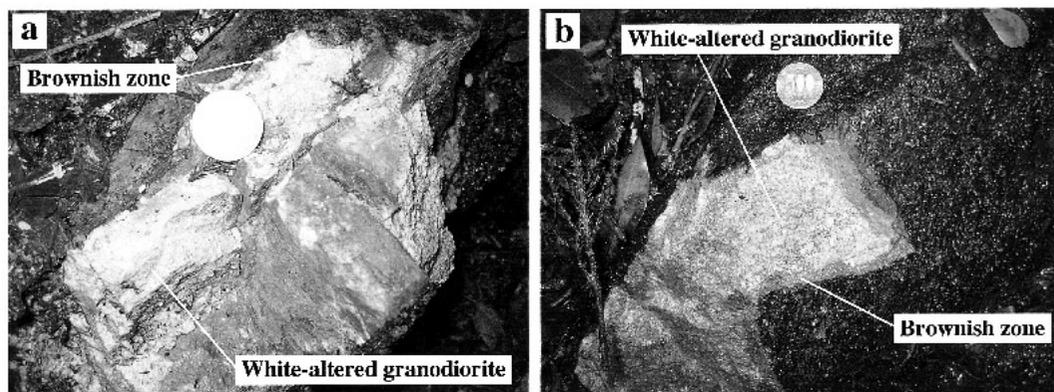


Fig. 4. Photographs of white-altered granodiorite of the Sawara Granite around the adit (A) of the Ono gold prospects
a: GDS10, b: GDS11.

岩石の化学組成

柚原・祐徳（2005）で報告した大野探鉱跡および小川内探鉱跡周辺の早良花崗岩から採取した試料についてヒ素を測定した。さらに，新たに採取した25試料（Appendix 1, 2）について，試料に含まれる主成分および微量元素の測定を行った。測定には福岡大学理学部に設置の理学電機工業社製蛍光 X 線分析装置 ZSX100e を使用し，試料調整および測定方法は，柚原・田口

（2003a, b），柚原ほか（2004），高本ほか（2005）に従った。分析結果を Table 1, 2 および 3 に示す。

早良花崗岩のヒ素含有量は，新鮮な花崗閃緑岩や変質花崗閃緑岩では検出限界（4 ppm）以下であるのに対し，白色変質花崗閃緑岩ではこれらよりも高く最大79ppmに達する（Fig.5；Tables 1, 2）。硫黄も同じく白色変質花崗閃緑岩で富む傾向にある。褐色化した白色変質花崗閃緑岩のヒ素含有量は，白色変質花崗閃緑岩と

Table 1. Arsenic contents of the Sawara Granite in the Gokayama area.

| Fresh granodiorite | | | |
|--------------------|-------|-------|-------|
| Sample No. | GDS25 | GDS33 | GDS60 |
| As(ppm) | <4 | <4 | <4 |

| Altered granodiorite | | | | | | | | | | | |
|----------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|--------|
| Sample No. | GDS21 | GDS09 | GDS17 | GDS20 | GDS40 | GDS16 | GDS19 | GDS08 | GDS07 | GDS06 | GDS61a |
| As(ppm) | n.d. | <4 | <4 | <4 | <4 | <4 | <4 | <4 | <4 | <4 | <4 |

| Altered granodiorite | | |
|----------------------|-------|-------|
| Sample No. | GDS35 | GDS34 |
| As(ppm) | <4 | n.d. |

| White-altered granodiorite | | | | | | | | | | | |
|----------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| Sample No. | GDS28 | GDS22 | GDS14 | GDS03 | GDS11 | GDS15 | GDS10 | GDS38 | GDS12 | GDS01 | GDS02 |
| As(ppm) | 4 | 15 | 28 | 16 | 13 | 8 | 13 | 15 | 33 | 29 | 53 |

| Brownish white-altered granodiorite | | | | | | | | | | | |
|-------------------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|--|
| Sample No. | GDS26 | GDS13 | GDS18 | GDS23 | GDS30 | GDS05 | GDS29 | GDS37 | GDS24 | GDS04 | |
| As(ppm) | 9 | 14 | <4 | 6 | <4 | 13 | 6 | 23 | 20 | 11 | |

Table 2. Whole-rock chemical compositions of the Sawara Granite in the Gokayama area.

| Sample No. | Fresh granodiorite | | | | | Altered granodiorite | | | | White-altered granodiorite | | |
|--------------------------------|--------------------|--------|--------|--------|--------|----------------------|---------|---------|--------|----------------------------|--------|--------|
| | GDS167 | GDS157 | GDS155 | GDS173 | GDS171 | GDS177 | GDS178a | GDS178b | GDS175 | GDS177 | GDS176 | GDS179 |
| SiO ₂ (wt%) | 70.29 | 70.62 | 70.70 | 71.34 | 71.44 | 71.88 | 66.65 | 67.05 | 71.67 | 69.05 | 69.57 | 70.71 |
| TiO ₂ | 0.33 | 0.27 | 0.33 | 0.30 | 0.34 | 0.32 | 0.58 | 0.52 | 0.33 | 0.57 | 0.56 | 0.50 |
| Al ₂ O ₃ | 15.35 | 15.12 | 14.89 | 14.78 | 14.51 | 14.32 | 16.03 | 15.65 | 15.43 | 16.67 | 15.55 | 16.28 |
| Fe ₂ O ₃ | 0.51 | 0.29 | 0.39 | 0.39 | 0.36 | 0.44 | 0.90 | 0.66 | 0.26 | 1.67 | 1.42 | 0.45 |
| FeO | 1.71 | 1.44 | 1.57 | 1.43 | 1.92 | 1.50 | 2.35 | 2.41 | 0.99 | 0.38 | 0.71 | 0.25 |
| MnO | 0.05 | 0.03 | 0.04 | 0.04 | 0.05 | 0.04 | 0.08 | 0.07 | 0.02 | 0.04 | 0.13 | 0.01 |
| MgO | 0.57 | 0.45 | 0.39 | 0.47 | 0.46 | 0.52 | 1.04 | 1.00 | 0.35 | 0.33 | 0.26 | 0.17 |
| CaO | 2.45 | 2.01 | 2.30 | 1.75 | 2.20 | 1.51 | 2.91 | 2.23 | 2.14 | 0.34 | 0.76 | 0.75 |
| Na ₂ O | 4.10 | 3.83 | 3.85 | 3.87 | 3.79 | 3.89 | 4.31 | 4.22 | 3.83 | 2.01 | 3.17 | 3.53 |
| K ₂ O | 3.33 | 3.98 | 3.33 | 3.41 | 3.16 | 3.31 | 2.47 | 2.80 | 3.32 | 5.33 | 4.48 | 4.93 |
| P ₂ O ₅ | 0.08 | 0.07 | 0.09 | 0.08 | 0.09 | 0.08 | 0.17 | 0.15 | 0.08 | 0.14 | 0.15 | 0.07 |
| L.O.I. | 0.93 | 1.37 | 1.36 | 1.46 | 1.32 | 1.53 | 2.44 | 2.33 | 1.05 | 2.91 | 2.60 | 1.60 |
| Total | 99.70 | 99.48 | 99.24 | 99.32 | 99.64 | 99.34 | 99.93 | 99.54 | 99.47 | 99.44 | 99.36 | 99.25 |
| As(ppm) | n.d. | <4 | <4 | <4 | <4 | <4 | <4 | <4 | 27 | 79 | 55 | 18 |
| Ba | 792 | 1188 | 870 | 911 | 787 | 793 | 522 | 613 | 766 | 544 | 591 | 775 |
| Cr | 7 | 8 | <4 | 5 | 4 | 6 | 8 | 6 | 4 | 7 | 7 | 8 |
| Cu | 6 | 8 | 19 | 7 | 5 | 7 | 33 | 22 | 8 | 11 | 7 | 22 |
| Ga | 19 | 18 | 19 | 18 | 19 | 18 | 21 | 20 | 20 | 23 | 20 | 21 |
| Nb | 11 | 9 | 11 | 9 | 10 | 11 | 17 | 15 | 11 | 15 | 17 | 13 |
| Ni | <4 | 6 | 7 | 5 | <4 | 6 | 5 | 5 | 6 | 8 | 8 | 7 |
| Pb | 18 | 18 | 17 | 19 | 15 | 16 | 16 | 16 | 18 | 35 | 14 | 15 |
| Rb | 92 | 93 | 88 | 79 | 90 | 93 | 85 | 93 | 89 | 175 | 145 | 147 |
| S | 19 | n.d. | 264 | n.d. | 31 | 57 | 13 | 5 | 41 | 12878 | 10474 | 4064 |
| Sr | 360 | 390 | 376 | 397 | 351 | 384 | 431 | 431 | 338 | 145 | 256 | 311 |
| Th | 7 | 7 | 6 | 9 | 7 | 8 | 9 | 7 | 8 | 9 | 10 | 7 |
| V | 19 | 17 | 22 | 18 | 20 | 17 | 35 | 29 | 20 | 37 | 32 | 32 |
| Y | 10 | 9 | 10 | 9 | 10 | 9 | 16 | 13 | 8 | 15 | 15 | 9 |
| Zn | 68 | 52 | 57 | 56 | 68 | 62 | 82 | 80 | 47 | 56 | 52 | 10 |
| Zr | 187 | 167 | 181 | 174 | 198 | 186 | 202 | 191 | 192 | 242 | 205 | 180 |

| Sample No. | White-altered granodiorite | | | Brownish white-altered granodiorite | | | | | | | |
|--------------------------------|----------------------------|-------|-------|-------------------------------------|--------|---------|---------|---------|-------|--------|--------|
| | GDS156 | GDS78 | GDS93 | GDS168 | GDS64 | GDS177b | GDS179b | GDS176b | GDS90 | GDS67 | GDS174 |
| SiO ₂ (wt%) | 71.81 | 71.83 | 72.13 | 72.28 | 69.20 | 69.98 | 70.40 | 71.42 | 71.97 | 72.69 | 74.20 |
| TiO ₂ | 0.31 | 0.30 | 0.33 | 0.37 | 0.42 | 0.56 | 0.53 | 0.45 | 0.29 | 0.61 | 0.34 |
| Al ₂ O ₃ | 15.24 | 14.38 | 14.79 | 15.33 | 15.54 | 16.67 | 15.59 | 15.57 | 14.77 | 15.52 | 14.16 |
| Fe ₂ O ₃ | 0.15 | 0.46 | 0.34 | 0.15 | 3.80 | 1.56 | 1.85 | 1.90 | 0.68 | 0.62 | 0.23 |
| FeO | 0.56 | 1.14 | 0.84 | 0.97 | 0.07 | 0.37 | 0.38 | 0.30 | 1.08 | 0.25 | 0.46 |
| MnO | 0.03 | 0.04 | 0.09 | 0.02 | 0.31 | 0.05 | 0.02 | 0.05 | 0.02 | 0.00 | 0.02 |
| MgO | 0.17 | 0.20 | 0.20 | 0.37 | 0.34 | 0.35 | 0.22 | 0.23 | 0.50 | 0.11 | 0.12 |
| CaO | 0.69 | 2.40 | 0.84 | 0.29 | 0.14 | 0.19 | 0.47 | 0.41 | 0.66 | 0.25 | 0.23 |
| Na ₂ O | 4.11 | 3.69 | 3.21 | 4.76 | 3.35 | 1.23 | 3.58 | 2.67 | 3.60 | 4.63 | 5.02 |
| K ₂ O | 4.61 | 2.99 | 4.84 | 3.25 | 4.07 | 5.63 | 4.01 | 4.39 | 4.24 | 2.90 | 3.43 |
| P ₂ O ₅ | 0.08 | 0.08 | 0.09 | 0.06 | 0.09 | 0.09 | 0.18 | 0.08 | 0.07 | 0.03 | 0.09 |
| L.O.I. | 1.64 | 2.40 | 1.83 | 1.80 | 2.95 | 2.97 | 2.28 | 2.46 | 1.72 | 2.46 | 1.22 |
| Total | 99.40 | 99.91 | 99.53 | 99.65 | 100.28 | 99.65 | 99.51 | 99.93 | 99.60 | 100.07 | 99.52 |
| As(ppm) | 6 | <4 | 19 | 8 | 74 | 81 | 97 | 66 | 5 | 80 | 8 |
| Ba | 1176 | 798 | 777 | 759 | 570 | 591 | 473 | 488 | 865 | 435 | 723 |
| Cr | 4 | 8 | 6 | 8 | 11 | 8 | 8 | 7 | 7 | 11 | <4 |
| Cu | 16 | 6 | <4 | 6 | 85 | 7 | 10 | 7 | 13 | 13 | 5 |
| Ga | 18 | 19 | 19 | 17 | 20 | 24 | 22 | 20 | 17 | 22 | 16 |
| Nb | 10 | 9 | 9 | 11 | 11 | 14 | 14 | 14 | 9 | 15 | 11 |
| Ni | 6 | 5 | 6 | 8 | 8 | 4 | 5 | 5 | 6 | 6 | 8 |
| Pb | 17 | 19 | 18 | 15 | 17 | 38 | 13 | 29 | 14 | 12 | 18 |
| Rb | 131 | 71 | 132 | 91 | 140 | 183 | 134 | 143 | 143 | 97 | 91 |
| S | 563 | 70 | 3088 | n.d. | 136 | 3829 | 2924 | 3640 | 8 | 53 | 378 |
| Sr | 298 | 359 | 256 | 266 | 102 | 113 | 266 | 173 | 331 | 131 | 178 |
| Th | 7 | 9 | 8 | 9 | 8 | 11 | 5 | 9 | 8 | 4 | 10 |
| V | 18 | 22 | 25 | 17 | 53 | 33 | 37 | 31 | 17 | 39 | 12 |
| Y | 10 | 9 | 11 | 11 | 10 | 12 | 13 | 10 | 8 | 6 | 10 |
| Zn | 30 | 50 | 44 | 40 | 41 | 33 | 9 | 37 | 80 | 12 | 26 |
| Zr | 182 | 179 | 161 | 216 | 150 | 253 | 193 | 185 | 138 | 191 | 214 |

L.O.I.: loss on ignition, n.d.: not detected.

Table 3. Whole-rock chemical compositions of fault gouge in NW-SE trending fault.

| Sample No. | Fault gouge | |
|--------------------------------|-------------|-------|
| | GDS75 | GDS63 |
| SiO ₂ (wt%) | 70.34 | 75.40 |
| TiO ₂ | 0.38 | 0.39 |
| Al ₂ O ₃ | 17.50 | 12.28 |
| Fe ₂ O ₃ | 0.63 | 4.70 |
| FeO | 0.21 | 0.31 |
| MnO | 0.01 | 0.04 |
| MgO | 0.25 | 0.25 |
| CaO | 0.15 | 0.07 |
| Na ₂ O | 1.95 | 0.51 |
| K ₂ O | 4.05 | 2.33 |
| P ₂ O ₅ | 0.01 | 0.00 |
| L.O.I. | 4.71 | 4.50 |
| Total | 100.19 | 99.44 |
| As(ppm) | 4 | 557 |
| Ba | 956 | 174 |
| Co | <5 | <5 |
| Cr | 4 | 11 |
| Cu | 13 | 9 |
| Ga | 24 | 22 |
| Nb | 12 | 9 |
| Ni | 10 | 5 |
| Pb | 9 | 16 |
| Rb | 169 | 94 |
| S | 19 | 401 |
| Sr | 146 | 26 |
| Th | 10 | 6 |
| V | 30 | 60 |
| Y | 27 | 41 |
| Zn | 83 | 21 |
| Zr | 248 | 112 |

L.O.I.: loss on ignition.

同様に高いが、硫黄含有量は白色変質花崗閃緑岩の半分以下と、低いものが多い (Fig. 5; Tables 1, 2). 白色変質花崗閃緑岩と褐色化した白色変質花崗閃緑岩を比較すると、鉄の全量はほぼ同じである (Table 2). しかし、白色変質花崗閃緑岩では2価鉄が多い傾向にあるが、褐色化した白色変質花崗閃緑岩では3価鉄が多い傾向にある (Table 2). また、北西-南東方向の断層に伴われる断層ガウジのうち1試料は、557ppmという高いヒ素含有量を示す (Table 3). しかし、この値は検量線の範囲をはるかに超えているので、参考値程度であるが、極めて高いヒ素含有量を示すことにはかわりはない。

考 察

早良花崗岩の白色変質花崗閃緑岩は、イライトと黄鉄鉱の出現で特徴づけられる。新鮮な花崗閃緑岩および変質花崗閃緑岩から白色変質花

崗閃緑岩へ、鉄、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウムの減少と、硫黄の増加が生じている (柚原・祐徳, 2005). 今回新たに測定したヒ素含有量は硫黄と同じく、白色変質花崗閃緑岩で富む傾向にある (Fig. 5). そこで、柚原・祐徳 (2005) と同様に、大野探鉱跡鉱口 (A) 周辺のヒ素の含有量の変化を検討した (Fig. 6). 変質花崗閃緑岩のヒ素含有量が5 ppm以下であるのに対し、白色変質花崗閃緑岩では10ppm以上が大部分を占め、最大79ppmに達する。この傾向は、硫黄の含有量の変化傾向 (Fig. 6) と同じである。さらに、褐色化した白色変質花崗閃緑岩を除くと、ヒ素と硫黄含有量の間に明瞭な正の相関が認められること (Fig. 7) から、白色変質花崗閃緑岩のヒ素は黄鉄鉱中に含まれていると考えられる。

大野探鉱跡周辺の白色変質花崗閃緑岩には表面ならびに断層に沿って、厚さ数 mm~1.5cm の褐色帯が認められる (Fig. 4). さらに、小川内探鉱跡周辺や断層沿いに分布する白色変質花崗閃緑岩の多くも褐色化している。褐色化した白色変質花崗閃緑岩で3価鉄が多いことから、これは、地表ならびに断層に沿って流れる水から鉄の酸化・水酸化物が沈殿したためであると考えられる。白色変質花崗閃緑岩の褐色帯や褐色化した白色変質花崗閃緑岩のヒ素含有量は、白色変質花崗閃緑岩のそれとほぼ同じであるが、硫黄含有量は低い傾向にある (Fig. 5). これは、ヒ素-硫黄の関係図 (Fig. 7) で、低硫黄含有量側にシフトしていることから示される。大野探鉱跡周辺の白色変質花崗閃緑岩 (GDS176, 177, 179) とその褐色化帯 (GDS176b, 177b, 179b) を比較すると、GDS176と177では硫黄含有量が半減し、ヒ素含有量がわずかに増加する (Table 2). GDS179では、硫黄含有量は同様に減少するが、ヒ素含有量は約5倍に増加する (Table 2). 黄鉄鉱は、酸素濃度の高い地下水や地表水中では不安定であり、酸化分解され、硫黄やヒ素を水中に溶出する (島田, 2003; 丸茂, 2003). したがって、硫黄含有量の減少は、黄鉄鉱の分解を示していると考えられる。ヒ素は、鉄の酸化・水酸化物 (フェリハイドライトや針鉄鉱) の表面に吸着される (丸茂, 2003). ヒ素含有量が変化しない、ないしは増加するの

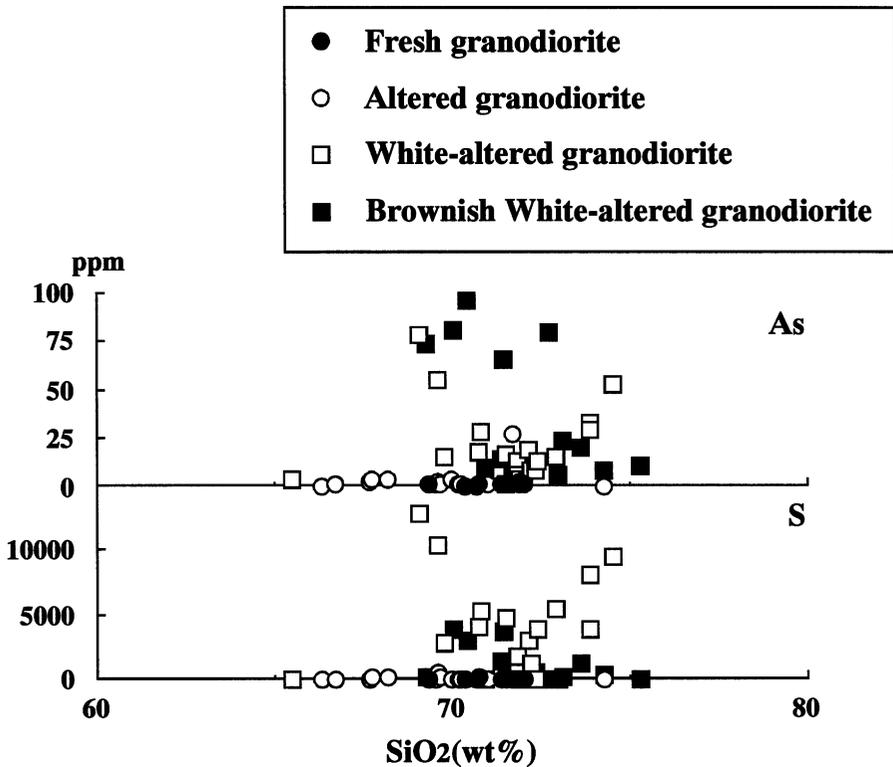


Fig. 5. SiO₂-arsenic and sulfur diagrams of the Sawara Granite in the Gokayama area.

は、黄鉄鉱の分解によって溶出したヒ素の大部分が、鉄の酸化・水酸化物に吸着し、拡散しなかったためであると考えられる。さらに、GDS 179で大幅にヒ素含有量が増加するのは、より深部で涵養された地下水や地表水に含まれるヒ素も吸着したためである可能性が高い。これらの鉄酸化・水酸化物表面へ吸着したヒ素は、酸化還元電位や pH が変化しない環境では比較的長時間捕捉されているが、環境が変化すると共に移動・拡散してしまう (丸茂, 2003)。この環境変化は微生物活動によっても生じるとされる。さらに拡散したヒ素は、環境の異なる場所に蓄積され、一部の堆積物中に濃集する場合もある (川嶋ほか, 1978; 中島, 1982; 中島・森井, 1982など)。したがって、白色変質花崗閃緑岩の周辺環境が現在の状況のままならば、黄鉄鉱が河川堆積物中へ物理的に移動することによってヒ素の移動・拡散が進行するが、そのような黄鉄鉱や岩石中の黄鉄鉱の分解によってヒ

素が溶出しても、鉄の酸化・水酸化物に吸着されるため、ヒ素の移動・拡散は比較的緩やかであると考えられる。しかし、ダム建設に伴って環境が大きく変化すると、そのヒ素が多量に溶出し地下水や河川水へ移動する可能性が極めて高い。さらに、北西-南東方向の断層に伴う断層ガウジの一部は極めて高いヒ素含有量を示す (Table 3)。この断層ガウジは白色変質花崗閃緑岩を源岩とすると考えられるが、ヒ素含有量は白色変質花崗閃緑岩よりもはるかに高い。3価鉄に富むことから、この高いヒ素含有量は、周囲の破碎帯を通過した地下水から鉄酸化・水酸化物がヒ素を吸着したためであると考えられる。ダム建設に伴う周辺環境の変化が想定されるため、これらのヒ素を高濃度に含む岩石の管理は極めて重要であろう。

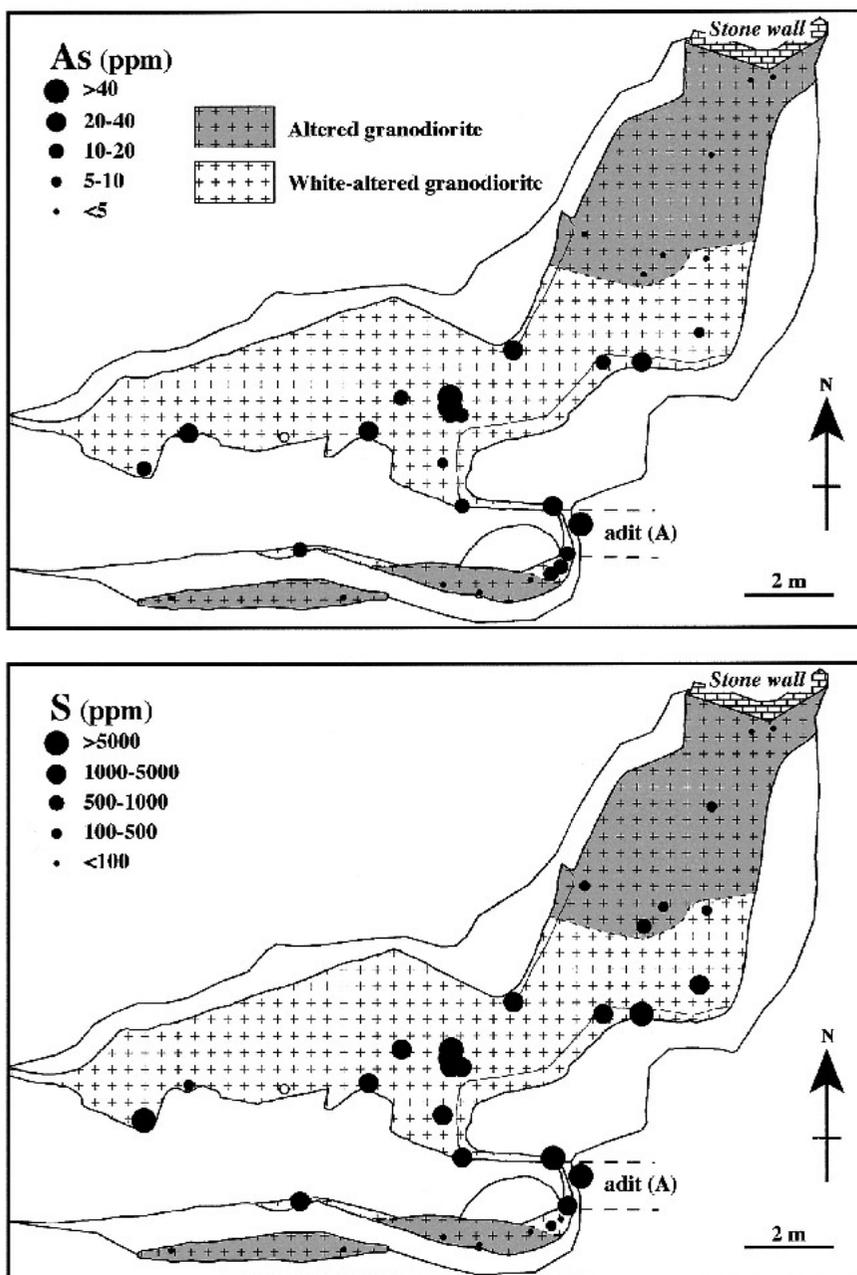


Fig. 6. Distribution of arsenic and sulfur contents of the Sawara Granite around the adit (A) of the Ono gold prospects.

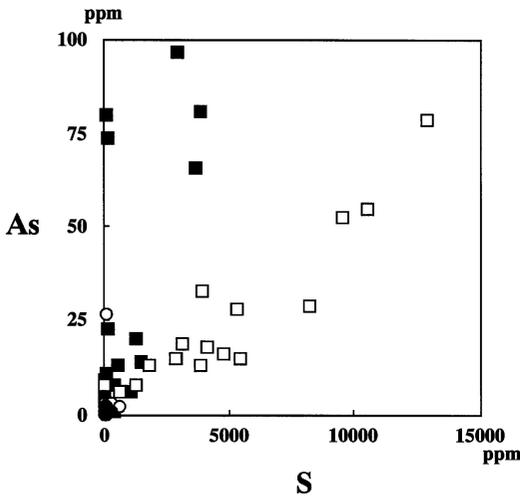


Fig. 7. Arsenic vs. Sulfur diagram of the Sawara Granite in the Gokayama area. Symbols are the same as those in Figure 5.

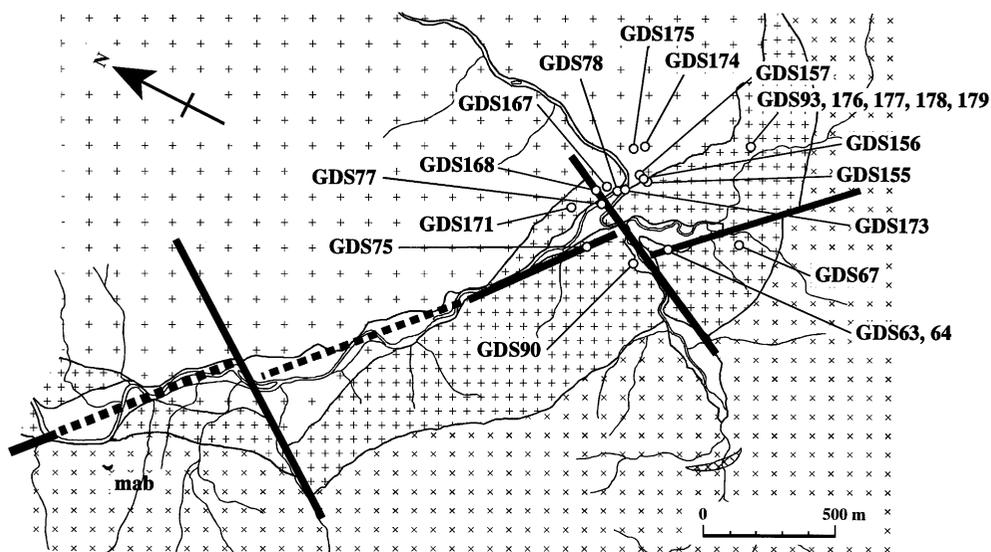
謝 辞

福岡県五ヶ山ダム建設事務所ならびに福岡県教育庁総務部文化財保護課文化財保護係の伊崎俊秋氏には、現地調査の機会を与えていただいた。さらに地元である福岡県筑紫郡那珂川町大野の築地蔵次氏、佐賀県神埼郡東脊振村小川内の武廣邦敏氏には現地調査に同行していただいた。佐賀大学文化教育学部の川野良信助教授には粗稿を読んでいただき、有益な討論をいただいた。匿名の査読者には、本論文を査読していただき、有益な助言をいただいた。以上の方々には心から感謝いたします。

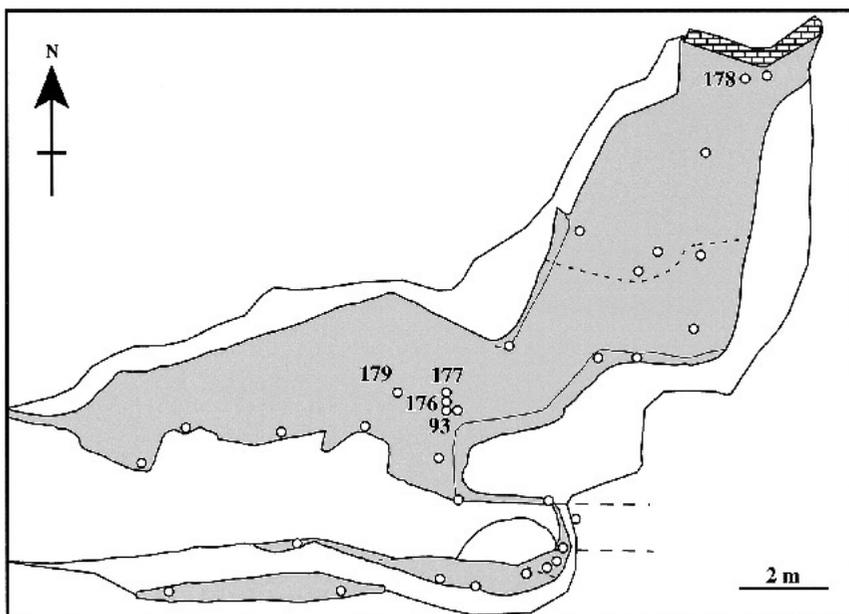
引用文献

唐木田芳文, 1985, 北九州花崗岩の地質学的分類. 日本応用地質学会西日本支部会報, no. 6, 2-12.
 唐木田芳文・富田宰臣・下山正一・千々和一豊, 1994, 福岡地域の地質. 地域地質研究報告書 (5万分の1地質図幅), 地質調査所, 192p.
 川野良信・柚原雅樹, 2005, 福岡県五ヶ山周辺に分布する花崗岩類. 佐賀大学文化教育学部研究論文集, 10, 143-149.
 川嶋宗継・中川利宏・中嶋美栄子・塩田 晃・谷

口孝敏・板坂 修・高松武次郎・松下録治・小山陸夫・堀 太郎, 1978, 琵琶湖堆積物における種々の元素の鉛直分布と化学的性質. 滋賀大紀要, no. 28, 13-29.
 久保和也・松浦浩久・尾崎正紀・牧本 博・星住英夫・鎌田耕太郎・広島俊男・中島和敏, 1993, 20万分の1地質図 福岡. 地質調査所.
 九州活構造研究会, 1989, 九州の活構造. 東京大学出版会, 553p.
 丸茂克美, 2003, 鉱物を用いた地質汚染浄化. 資源地質学会編, 資源環境地質学, 393-398.
 中島 進, 1982, 琵琶湖柱状堆積物中の重金属元素 (マンガン, 鉄, ヒ素, カドミウム, 鉛, 銅, 亜鉛, コバルト, ニッケル) の形態分別. 陸水学雑誌, 43, 67-80.
 中島 進・森井ふじ, 1982, 琵琶湖湖底堆積物中のマンガン, 鉄, ヒ素の蓄積機構. 農学研究, 59, 189-201.
 大和田正明・亀井淳志・山本耕次・小山内康人・加々美寛雄, 1999, 中・北部九州, 白亜紀花崗岩類の時空分布と起源. 地質学論集, no. 53, 349-363.
 島田允堯, 2003, ヒ素に汚染された地下水. 資源地質学会編, 資源環境地質学, 369-372.
 高本のぞみ・柚原雅樹・古川直道, 2005, 福岡県東部, 今川・祓川流域の元素濃度分布. 福岡大学理学集報, 35, (2), 41-66.
 柚原雅樹・古川直道・田口幸洋, 2004, 粉末ベレット法による珪酸塩. 炭酸塩岩石の微量元素の蛍光 X 線分析. 福岡大学理学集報, 34, (1), 43-49.
 柚原雅樹・田口幸洋, 2003a, 蛍光 X 線分析装置 ZSX100e による, 珪酸塩岩石の主成分および微量元素の定量分析. 福岡大学理学集報, 33, (1), 25-34.
 柚原雅樹・田口幸洋, 2003b, ガラスビード法による珪酸塩岩石の Co および S の蛍光 X 線分析. 福岡大学理学集報, 33, (2), 77-81.
 柚原雅樹・宇藤千恵・小路泰之・川野良信, 2006, 那珂川上流, 五ヶ山地域の白亜紀花崗岩類に発達する断裂系. 福岡大学理学集報, 36, (1), 55-67.
 柚原雅樹・祐徳信武, 2005, 那珂川上流, 五ヶ山地域の金探鉱跡周辺に認められる早良花崗岩の変質. 福岡大学理学集報, 35, (1), 49-73.



Appendix 1. Sample locations of the Sawara Granite.
Legend is the same as that in Figure 2.



Appendix 2. Sampling points of the Sawara Granite around the adit (A) of the Ono gold prospects.