

## 北海道南白老重晶石鉱床の鉱化・変質作用について

丸茂克美\* 藤貫 正\*\*

MARUMO Katsumi and FUJINUKI Tadashi (1993) Minerarization and hydrothermal alteration of the Minamishiraoui Kuroko-type barite deposit, Hokkaido. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 44 (2/3/4), p. 127-145, 16 fig, 2 tab.

**Abstract:** The Minamishiraoui Kuroko-type barite deposit is located in the Green Tuff region of Southwestern Hokkaido. The deposit is hosted by thick (up to 1,700 m) sequences of Middle Miocene andesitic to felsic lavas and pyroclastics with minor dacite and intercalated mudstone. The deposit consists of an upper massive stratiform barite orebody, lower barite-bearing silicified breccia, and a footwall alteration zone. The massive barite orebody is 100×100 m in size and an average of 5 m in thickness. The barite-bearing silicified breccia consists of networks, disseminations, and veins of barite, pyrite, marcasite and chalcopyrite.

The footwall alteration zone consists of clay minerals (Kaolinite, nacrite, dickite, montmorillonite, illite/montmorillonite mixed-layer minerals) and sulfides (pyrite, marcasite, chalcopyrite, sphalerite, tetrahedrite and galena). Nacrite, dickite, illite/montmorillonite mixed-layer minerals, which are associated with pyrite and chalcopyrite, are distributed in the central part below the barite-bearing silicified breccia, whereas kaolinite and montmorillonite, which are associated with marcasite and sphalerite, occur in the peripheral part. These clay-sulfide distributions indicate that the Kuroko-type mineralization and hydrothermal alteration proceeded simultaneously, or at least the time interval between both events was short enough to maintain similar geothermal gradients in the submarine hydrothermal system.

The contemporaneity of mineralization and hydrothermal alteration is supported by K-Ar age date of illite/montmorillonite mixed-layer minerals. The K-Ar age determination on the mixed layer minerals gives an age of 12.5±.6 Ma. This age falls within the range of K-Ar ages for mixed layer minerals from other Kuroko deposits in the Hokuroku district. The K-Ar age of the Minamishiraoui mixed-layer is convincing evidence that significant radiogenic argon was retained by the mixed-layer minerals, and also argue against a post depositional hydrothermal event which could have erased the age signature.

### 1. はじめに

浅熱水性金属鉱床に伴われる変質帯は、鉱液と本質的に同じ、または関連をもつ熱水によって形成された場合が多い。とくに硫化鉱物の鉱染の発達した変質帯は低品位鉱化帯とみなしうるものであり、鉱床の一部と考えることができる。

一方、鉱床周辺の変質帯でも、鉱化作用と直接関係のない変質作用によってできたものや、またいくつかの異

なる成因の変質作用が重複して形成された場合もある。

鉱化作用によって形成された変質帯をケイ酸塩鉱物の組み合わせによって分帯した場合、各帯の分布様式は鉱体のそれと調和するはずである。また、変質帯における硫化鉱物の含有量は鉱体に近づくほど増加することが予想される。

この報告では浅熱水性金属鉱床の1つである南白老黒鉱型重晶石鉱床を対象として、その下盤粘土化帯を粘土

Keywords: Kuroko deposit, Kuroko-type barite deposit, Alteration zone, Clay minerals, Kaolin, Illite/montmorillonite mixed-layer minerals, K-Ar age

\* 鉱物資源部

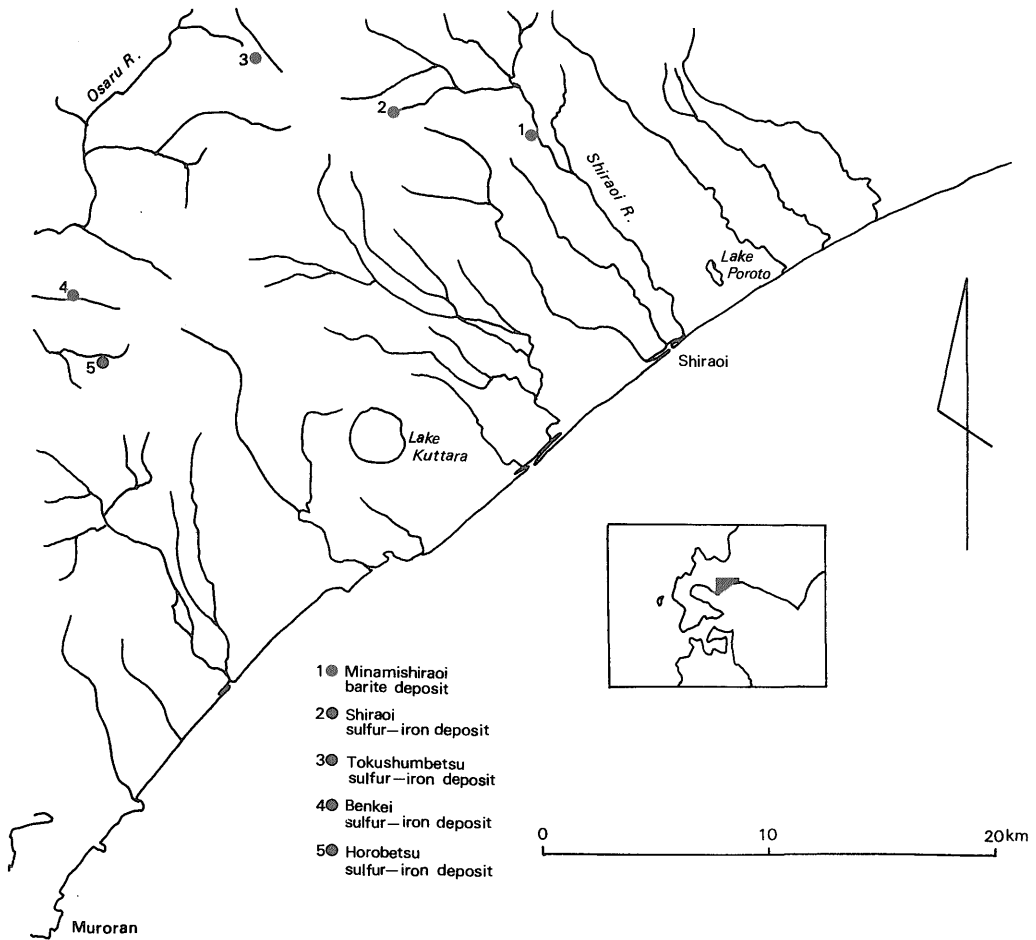
\*\* 元地殻化学部

鉱物の組み合わせによって変質分帯すると同時に、各帯に産する硫化鉱物種を同定した。また各帯を構成する変質岩の化学分析を実施し、銅・鉛・亜鉛含有量を見積るとともに、変質作用におけるアルカリ・アルカリ土類元素の挙動を追跡した。

## 2. 地質・鉱床の概要

南白老鉱床は北海道白老郡白老町字森野に位置する(第1図)。この鉱床の西方には白老、徳舜營、弁景及び幌別などの硫黄・鉄鉱床が分布する。

南白老鉱床周辺の地質・鉱床については松波・庄谷(1985)及び丸茂ら(1985)にそれぞれまとめられている。丸茂ら(1985)の地質層序区分に従えば、南白老鉱床周辺の地質は下位より新第三紀中新統美笛川層(安山岩質火山碎屑岩及び安山岩)\*<sup>1</sup>、それを覆う中新統ないし鮮新統の深沢層(流紋岩質凝灰岩)\*<sup>2</sup>、鮮新統のホロホロ火山噴出物(安山岩溶岩)、第四紀支笏火山噴出物(軽石流堆積物)及び河成段丘堆積物からなっている。鉱山露天採掘場の地質図を第2図に、また断面図を第3図にそれぞれ示した。第3図中の変質分帯については後

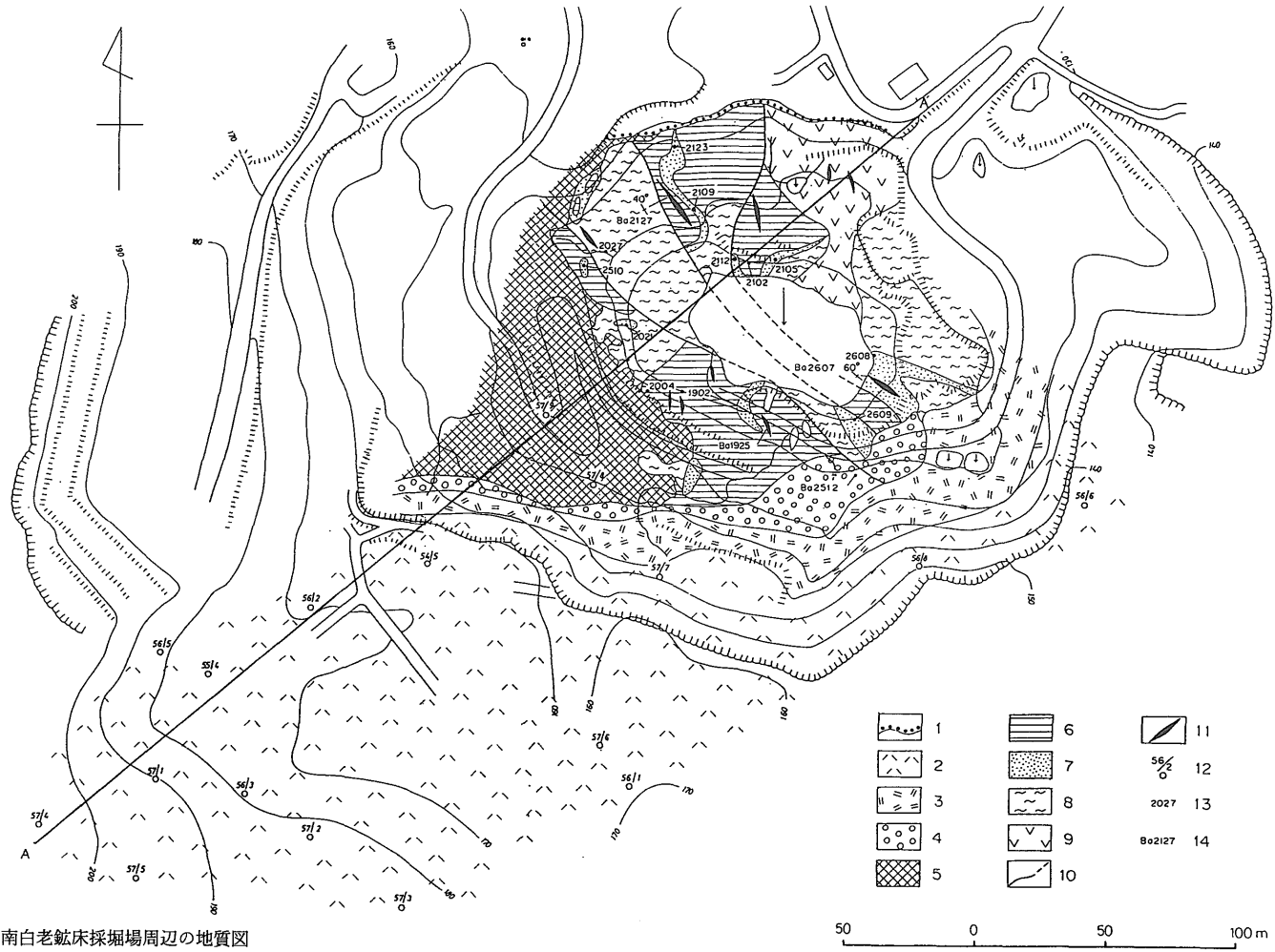


第1図 南白老鉱床位置図

Fig. 1 Locations of Kuroko-type barite deposit (Minamishiraoi) and sulfur-iron deposits (Shiraoi, Tokushumbetsu, Benkei and Horobetsu).

\*<sup>1</sup> 松波・庄谷(1985)の深沢層下部に対応する。

\*<sup>2</sup> 松波・庄谷(1985)の深沢層上部に対応する。

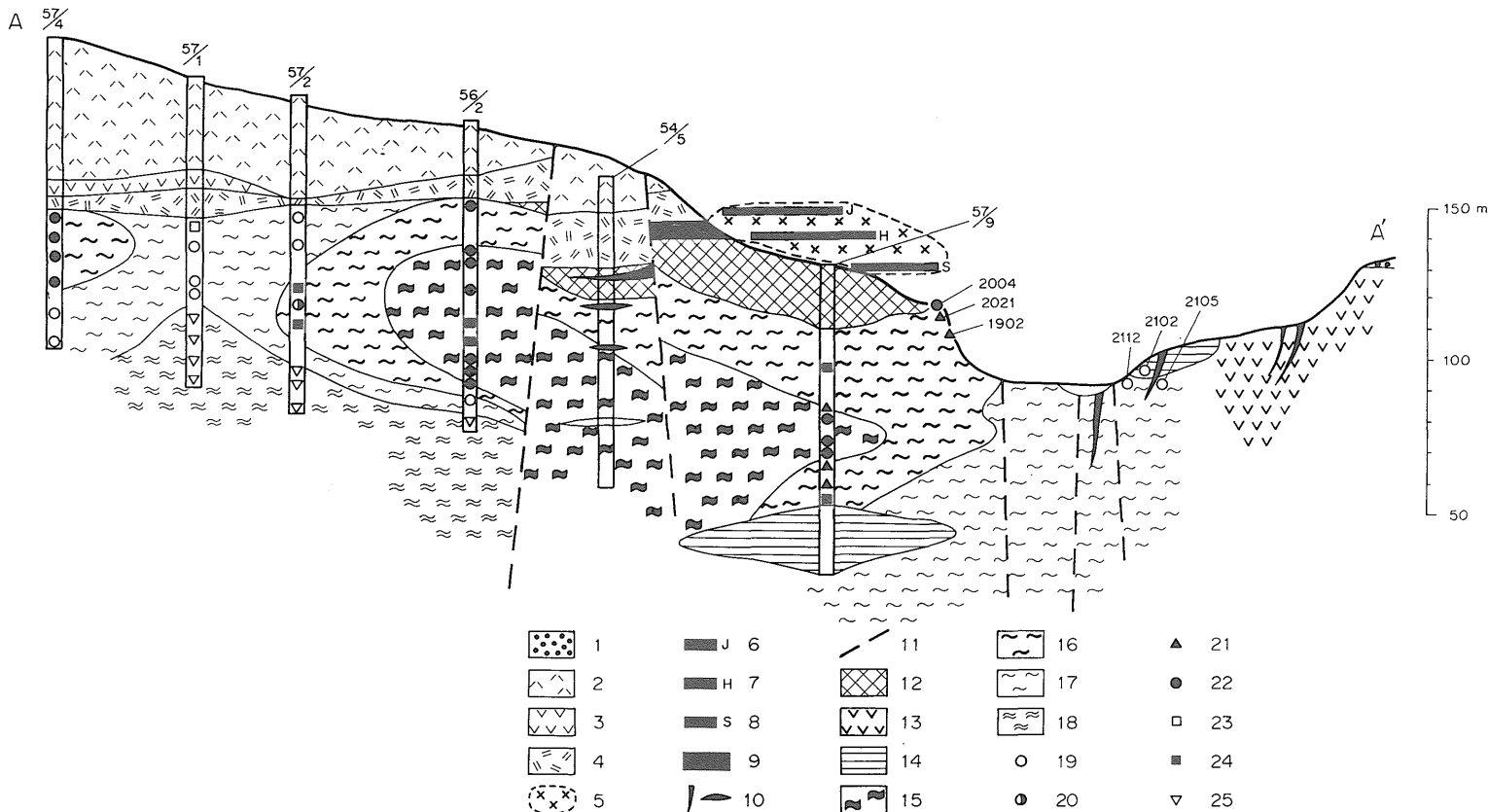


第2図 南白老鉱床採掘場周辺の地質図

1. 河成段丘堆積物 (洪積世) 2. 支笏火山噴出物 (洪積世) 3. 深沢層 (中新世ないし鮮新世) 4. 砂状重晶石層 5. 含重晶石ケイ化岩 (赤白色及び灰白色)
6. 含重晶石ケイ化岩 (暗黒色) 7. 粘性の小さな粘土化岩 8. 粘性の大きな粘土化岩 (粘性の小さな粘土化岩脈を伴う) 9. 変質安山岩 (中新世美笛川層)
11. 重晶石脈 12. 鉱山が実施したボーリング地点 13. 粘土化岩試料の採取地点と試料番号 14. 重晶石試料の採取地点と試料番号

Fig. 2 Geological map of the Minamishiraoui deposit

1. Terrace deposit (Pleistocene) 2. Shikotsu pumice tuff (Pleistocene) 3. Fukazawa felsic tuff (Late to Middle Miocene)
4. Barite bed 5. Barite-bearing silicified breccia (red to gray colored) 6. Ditto (dark gray colored) 7. Kaolin bearing clay
8. Mixed-layer bearing clay 9. Altered Bifuegawa andesite 10. Fault 11. Barite vein 12. Drill hole sites from which samples were obtained. 13. Sampling points for clay 14. Sampling points for barite



第 3 図 第 2 図の A-A' 断面における地質図及び変質分帯図

1. 河成段丘堆積物 2. 支笏火山噴出物 3. ホロホロ火山噴出物 4. 深沢層 5. 探掘済重晶石鉱床分布域 6. 旧上部坑道 7. 旧本坑道 8. 旧新坑道
9. 砂状重晶石鉱体 10. 重晶石脈 11. 推定断層 12. 含重晶石ケイ化岩 13. 変質安山岩 14. 暗黒色ケイ化岩 15. D-1 帯 (本文参照)
16. N (D)-I/M 帯 (同上) 17. K-M 帯 (同上) 18. CH/M 帯 (同上) 19. カオリナイト 20. カオリナイト+ディッカイト 21. ディッカイト+ナクライト
22. ディッカイト 23. モンモリロナイト 24. イライト/モンモリロナイト混合層鉱物 25. クロライト/モンモリロナイト混合層鉱物

Fig. 3 Northeast-southwest section (A-A') of the Minamishiraoui deposit

1. Terrace deposit (Pleistocene) 2. Shikotsu pumice tuff (Pleistocene) 3. Horohoro andesitic lava (Late Miocene)
4. Fukazawa felsic tuff (Late to Middle Miocene) 5. Barite orebody which had been mined out 6. Upper mine level
7. Main mine level 8. New mine level 9. Barite bed 10. Barite vein 11. Fault 12. Barite-bearing silicified breccia
13. Altered Bifuegawa andesite 14. Dark gray siliceous breccia 15. Dickite-illite/montmorillonite zone
16. Nacrite (dickite)-illite/montmorillonite zone 17. Kaolinite-montmorillonite zone 18. Chlorite/montmorillonite zone
19. Kaolinite 20. Kaolinite + dickite 21. Dickite + nacrite 22. Dickite 23. Montmorillonite
24. Illite/montmorillonite mixed-layer minerals 25. Chlorite/montmorillonite mixed-layer minerals

述する。

鉱床は深沢層を上盤として美笛川層中に胚胎し、上位から砂状重晶石鉱体、美笛川層を交代した含重晶石ケイ化岩及び下盤粘土化帯によって構成される。砂状重晶石鉱体は軟質砂状の高品位重晶石鉱石からなる偏平な塊状鉱体で、その規模は東西 100 m、南北 100 m、厚さ 5 m 程度である (丸茂ら, 1985)。松波・庄谷 (1985) は、砂状重晶石鉱体とその上部層とは整合一連であり、また鉱体と下位層とは不整合の間係をもつことを指摘し、この鉱体を重晶石の 2 次堆積物と判断した。

下盤粘土化帯はカオリナイト・ナクライト・ディッカイトを伴う粘土化岩や、モンモリロナイト・イライト/モンモリロナイト混合層鉱物を伴う粘土化岩よりなる。これらの粘土化岩の多くは硫化鉱物 (黄鉄鉱・白鉄鉱・閃亜鉛鉱・方鉛鉱等) の網状脈を伴い黒色を呈する。また石膏や重晶石の網状脈も伴われる。なお粘土化帯中のカオリンは製材用フィルター及びコート原料として活用できるため、重晶石とともに近藤鉱業 (株) によって露天採掘されている。

### 3. 実験方法

下盤粘土化帯の変質分帯を実施するために、露天採掘場から粘土化岩試料を採取した。また鉱山が実施した試錐を用いて粘土化岩試料を得た。

各試料に含まれる粘土鉱物・硫化鉱物の同定は、鏡下観察及び理学電機製 RAD-III 型ディフラクトメータを用いて行った。X 線回折は Cu 管球を用い、35 kV、20 mA の出力下でスリット系  $1^{\circ}-1^{\circ}-0.3$  mm、走査速度  $2^{\circ}/$ 分、時定数 2 秒で実施した。

粘土鉱物を同定する場合には試料を水ひ処理し、粘土分を抽出して定方位及び粉末 X 線回折を試みた。イライト/モンモリロナイト混合層鉱物中のイライト層の割合とその層継続の履歴 (Reichweite) を求める際には、エチレングリコール処理した定方位 X 線回折における  $5.1\sim 7.6^{\circ}$ 、 $8.9\sim 10.2^{\circ}$  及び  $16.1\sim 17.2^{\circ}$  (CuK $\alpha$ ) の 3 本の回折線 (低角よりそれぞれ  $l_1$ 、 $l_2$ 、 $l_3$  とする) の角度差  $l_2-l_1$ 、 $l_3-l_2$  を求め、それらの値を渡辺 (1981) のダイヤグラムにプロットした。

粘土化試料及びその母材となる美笛川層安山岩 (未変質なもの) の化学分析は、次に示す方法で行った。

**Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O, MgO, CaO:** 試料 0.1 g を白金皿に取り、硝酸、過塩素酸、ふっ化水素酸を加えて加熱し、蒸発乾固する。過塩素酸を加えて再び蒸発乾固後、塩酸を加えて溶解しメスフラスコ (100 ml) に移し入れ、ランタン溶液を加えて定容とする。この溶液の一部を取り、

必要ならば希釈液 (試料とはほぼ同量の酸化アルミニウムを含み、ランタン溶液及び塩酸濃度も試料溶液と同じもの) で希釈し、原子吸光分析装置でそれぞれの吸光度を測定した。

**Fe:** 試料 0.5 g に塩酸及び硝酸を加え、加熱して分解する。不溶解残分をろ過した後、塩化アンモニウム及びアンモニア水を加えて鉄などを沈殿させてろ別する。沈殿は塩酸に溶解し、濃縮後に塩化せず (II) で鉄を還元し、ジフェニルアミンスルホン酸ナトリウム溶液を指示薬として、ニクロム酸カリウム標準溶液で滴定した。

**Sr, Cu, Zn, Pb:** 試料 0.5 g を白金皿に取り、ナトリウム等の場合と同様に分解して定容とする。この一部を取り、原子吸光分析装置でそれぞれの吸光度を測定した。なお、原子吸光分析の場合、検量線作成にあたっての標準溶液は試料とはほぼ同量の酸化アルミニウムを含み、ランタン溶液及び塩酸濃度も試料溶液と同じ濃度とし、これに各成分の適当量を含むものを用いた。

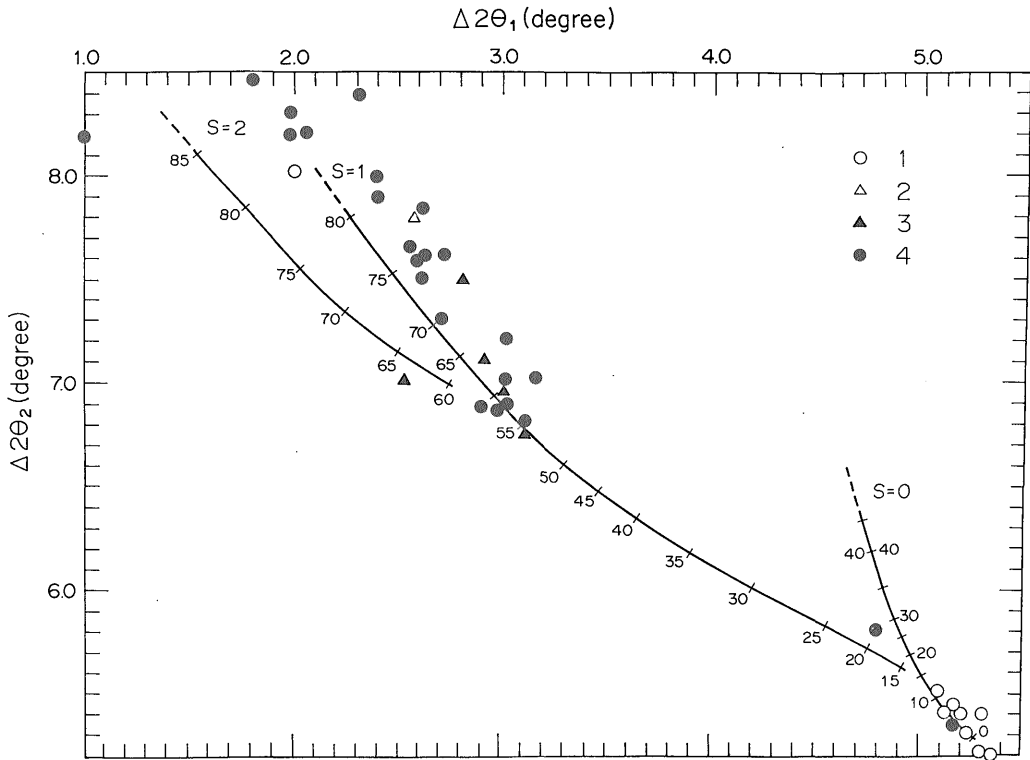
**Ba:** 試料 0.5~1.0 g を白金のつばに取り、炭酸ナトリウム (無水) 10 倍量を加えて融解する。温浸後に残さをろ過し、塩酸に溶解する。アスコルビン酸を加えて鉄を還元後、塩酸濃度を調節し、硫酸アンモニウム溶液を加えて硫酸バリウムを沈殿させ、温所に放置して熟成させる。沈殿をろ過し、その重量を計って求めた。

**H<sub>2</sub>O:** 試料 1 g を白金のつばに取り、105°C に調節してある空気浴中で 2 時間乾燥して減量を求めた。

### 4. 下盤粘土化帯の変質分帯

黒鉄鉱床に伴われる熱水変質帯では中心から周辺に向かって、酸性帯→中性帯→アルカリ帯の順に配列する累帯分帯が見いだされる場合が多い (歌田, 1977)。南白老鉱床においては、酸性帯にしばしば見いだされるカオリン鉱物と、中性帯に産するモンモリロナイトや混合層鉱物がしばしば相伴っている。

ここでカオリン鉱物と、モンモリロナイト・混合層鉱物が共存する地表及び試錐試料の鉱物組み合わせを整理すると、一例を除いてカオリナイトの共存相手はモンモリロナイトであり、またナクライト・ディッカイトはイライト/モンモリロナイト混合層鉱物と共存する傾向にある (第 1 表)。さらにイライト層の割合が 80% 以上の混合層鉱物はディッカイトと、その割合が 50~80% の混合層鉱物はディッカイト及びナクライトと共存する傾向にある (第 4 図)。モンモリロナイト・カオリナイトの両者を伴う粘土化岩は、その一方のみを含むものを近傍に伴う (第 5 図の 1)。イライト/モンモリロナイト混合層鉱物とナクライト・ディッカイトを含む粘土化岩は、



第4図 カオリン鉱物と共存するモンモリロナイト及びイライト/モンモリロナイト混合層鉱物のイライト層の割合  
 1. カオリナイト 2. ナクライト 3. ディッカイト+ナクライト 4. ディッカイト  
 $\Delta 2\theta_1$ ,  $\Delta 2\theta_2$ : エチレンジグリコール処理したイライト/モンモリロナイト混合層鉱物の  $5.1^\circ \sim 7.6^\circ$ ,  $8.9^\circ \sim 10.2^\circ$ ,  $16.1^\circ \sim 17.2^\circ$  ( $2\theta \cdot \text{Cu} \cdot \text{K}\alpha_1$ ) の3本の X線回折線をそれぞれ  $l_1$ ,  $l_2$ ,  $l_3$  とすると,  $\Delta 2\theta_1$  は  $l_2$  と  $l_1$ ,  $\Delta 2\theta_2$  は  $l_3$  と  $l_2$  の角度差を表す。  
 S: 層継続の履歴 (Reichweite). 曲線に添えた数字はイライト層の割合を示す (渡辺, 1981).

Fig. 4 Amount of illite layer in illite/montmorillonite mixed-layer minerals which coexist with kaolin minerals.  
 1. Kaolinite 2. Nacrite 3. Dickite + nacrite 4. Dickite  
 $\Delta\theta_1$ ,  $\Delta\theta_2$ : Three basal EG-treated XRD reflection peaks ( $l_1$  at  $5.1\text{--}7.6^\circ 2\theta$ ,  $l_2$  at  $8.9\text{--}10.2^\circ 2\theta$ , and  $l_3$  at  $16.1\text{--}17.2^\circ 2\theta$ ) are sensitive to the variation of the degree of ordering and illite-layer contents of illite/montmorillonite mixed-layer minerals. The angular differences are represented as  $\Delta\theta_1 = l_2 - l_1$  and  $\Delta\theta_2 = l_3 - l_2$ .  
 S: Degree of ordering of mixed-layer minerals (Reichweite)  
 The numerical values on the S=0 to S=2 curves represent illite layer ratios of mixed-layer minerals (Watanabe, 1981).

その一方のみを含む粘土化岩をその上・下に伴う (第5図の2). クロライト/モンモリロナイト混合層鉱物を伴う粘土化岩は, ディッカイトを含む例があるが, 一般にはカオリン鉱物を伴わない (第1表).

これらのことがらから, モンモリロナイト・混合層鉱物を伴う粘土化岩とカオリン鉱物を伴う粘土化岩の集合を1つの帯としてとらえ, 下盤粘土化帯を次のように分帯した.

i D-I 帯: この帯はディッカイト (D) を伴う粘土

化岩, イライト層の割合が80%以上の混合層鉱物 (I) を伴う粘土化岩, 及び両者を伴う粘土化岩を包括する.

ii N(D)-I/M 帯: この帯はナクライト (N), ディッカイト (D) を伴う粘土化岩, イライト層の割合が50~80%の混合層鉱物 (I/M) を伴う粘土化岩, 及び N, D, I/M を伴う粘土化岩を包括する.

iii K-M 帯: この帯はカオリナイト (K) を伴う粘土化岩, モンモリロナイト (M) を伴う粘土化岩, 及び両者を伴う粘土化岩を包括する.

	K	N	D+N	D
M	19	1	2	4
I/M	1	2	6	29
Ch/M				2

第1表 カオリン鉱物とモンモリロナイト、混合層鉱物の共存関係 (数字は試料数)

K. カオリナイト N. ナクライト D. ディッカイト M. モンモリロナイト  
I/M. イライト/モンモリロナイト混合層鉱物 CH/M. クロライト/モンモリロナイト混合層鉱物

Table 1 Summary of kaolin species which coexist with montmorillonite (M), illite/montmorillonite mixed-layer minerals (I/M), and chlorite/montmorillonite mixed-layer minerals (CH/M).  
K : Kaolinite N : Nacrite D : Dickite

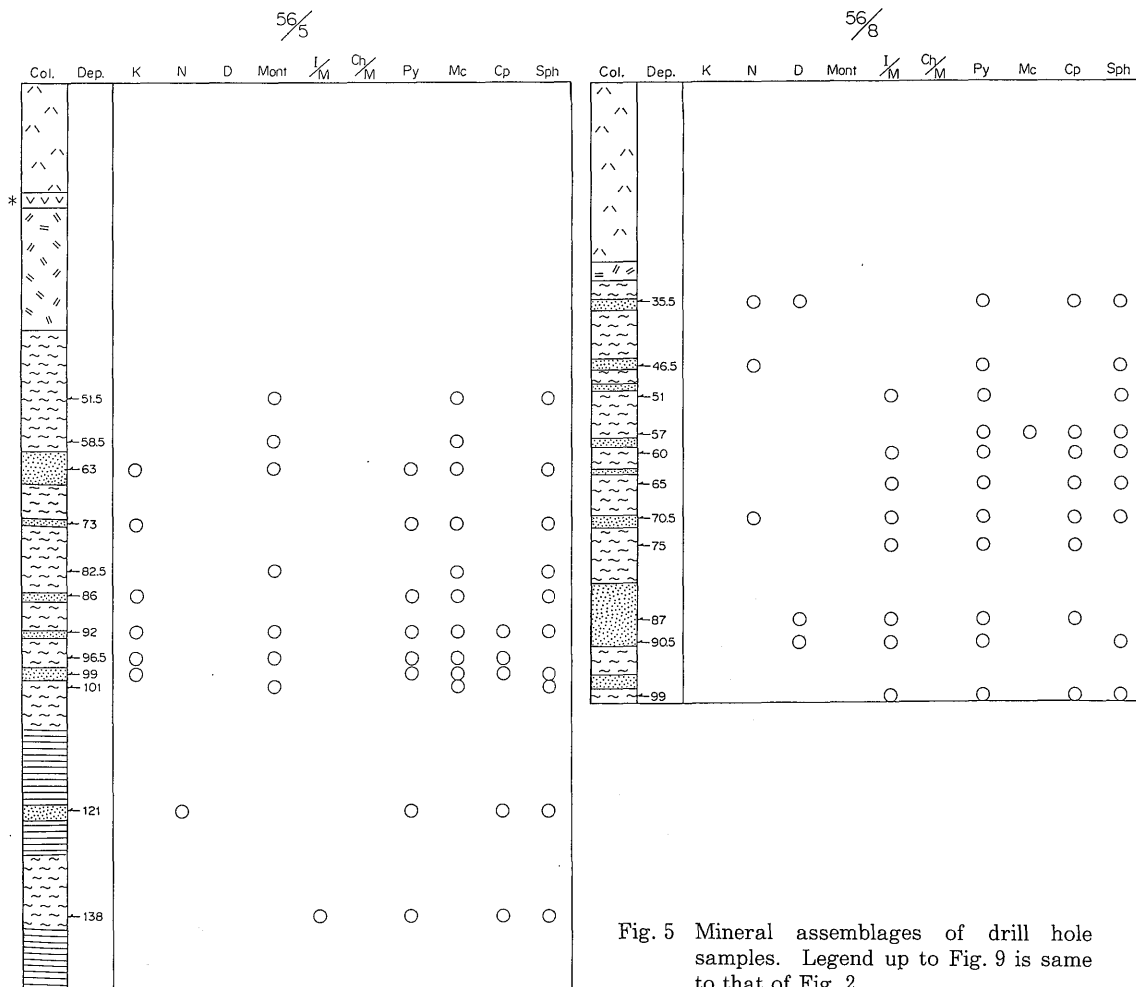
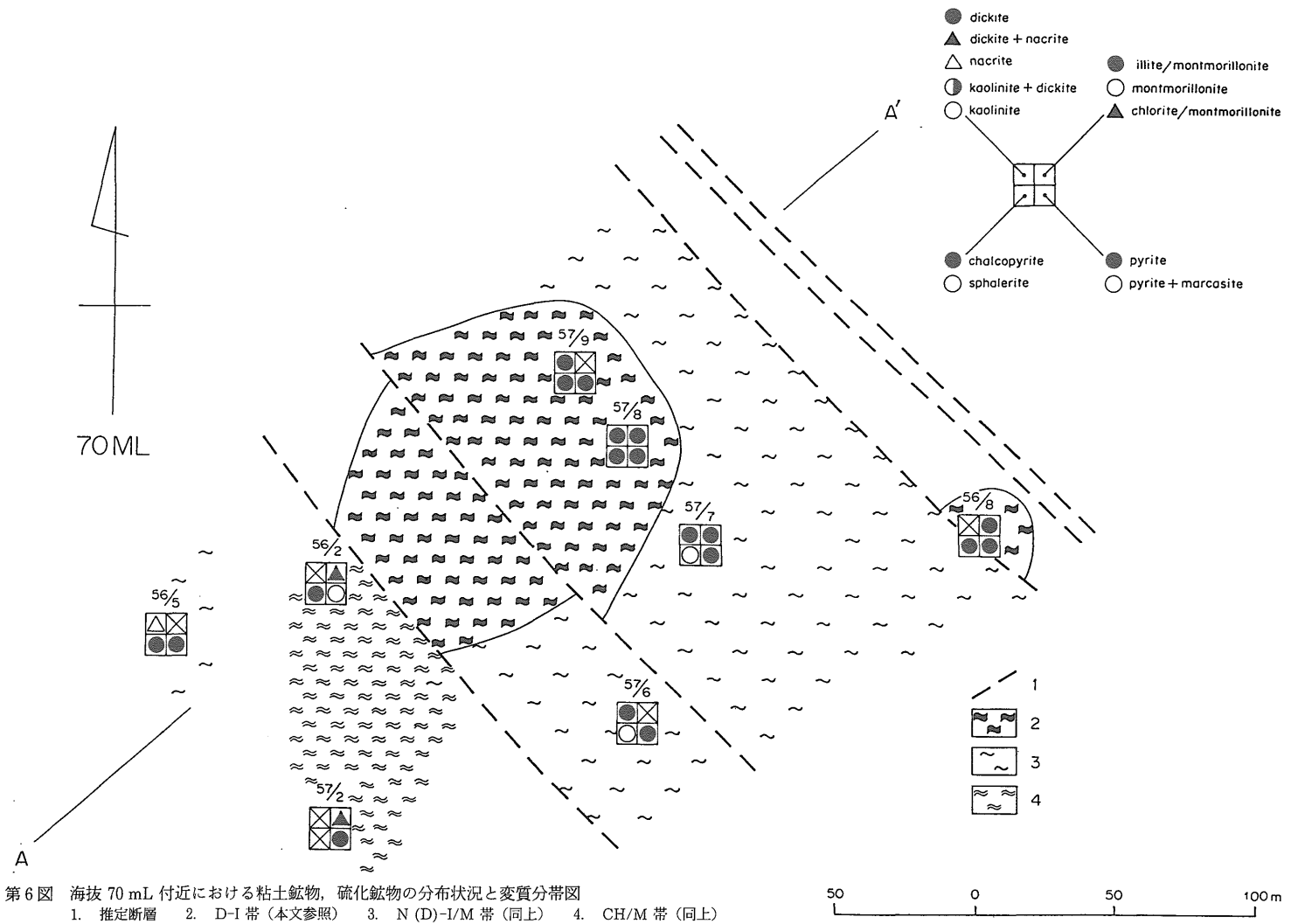


Fig. 5 Mineral assemblages of drill hole samples. Legend up to Fig. 9 is same to that of Fig. 2.

\* Horohoro andesitic lava (Late Miocene)

第5図 試錐試料における鉱物共存関係例

- K. カオリナイト
  - N. ナクライト
  - D. ディッカイト
  - Mont. モンモリロナイト
  - I/M. イライト/モンモリロナイト混合層鉱物
  - Ch/M. クロライト/モンモリロナイト混合層鉱物
  - Py. 黄鉄鉱
  - Mc. 白鉄鉱
  - Cp. 黄銅鉱
  - Sph. 閃亜鉛鉱
- 柱状図の凡例は第2図と同じ。\*印はホロホロ火山噴出物

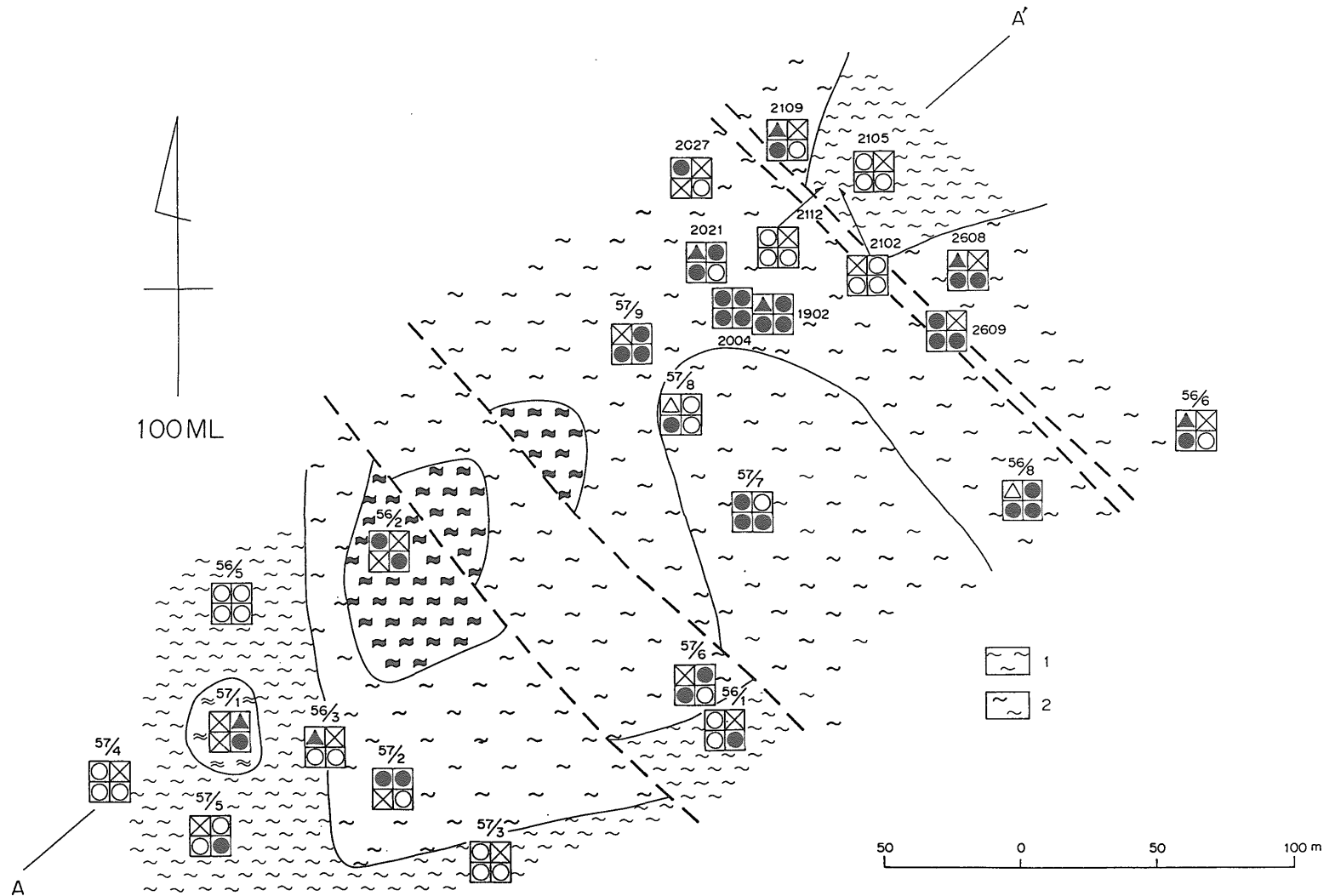


第6図 海拔70m付近における粘土鉱物、硫化鉱物の分布状況と変質分帯図  
 1. 推定断層 2. D-I帯 (本文参照) 3. N (D)-I/M帯 (同上) 4. CH/M帯 (同上)  
 A-A' は第2図中の断面線と同じ。

Fig. 6 Distributions of clay and sulfide minerals and alteration zoning map of the Minami-shiraai deposit at +70 m level. The line A-A' is same to that of Fig. 2.

1. Fault
2. Dickite-illite/montmorillonite zone
3. Nacrite (dickite)-illite/montmorillonite zone
4. Chlorite/montmorillonite zone

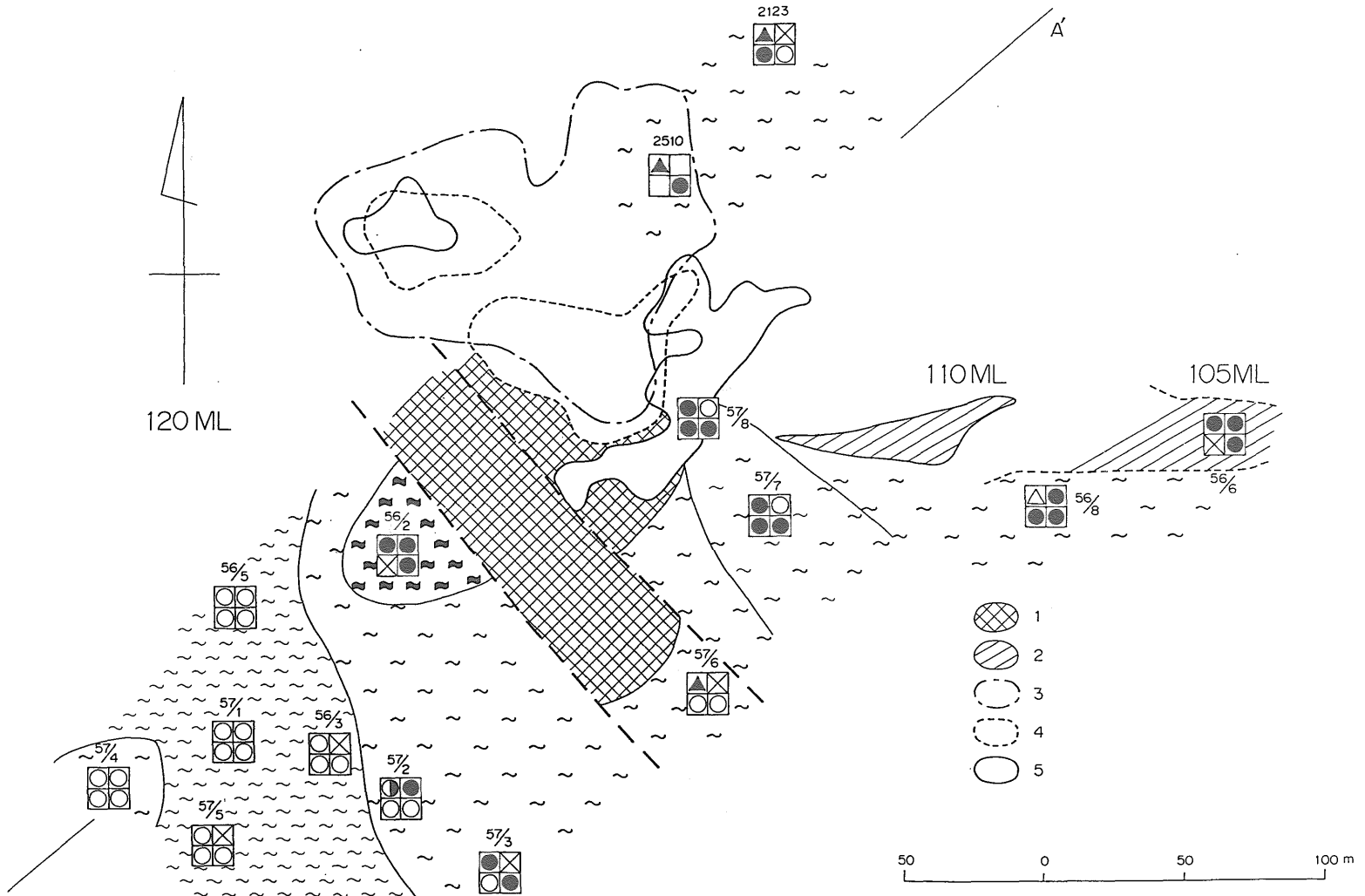




第7図 海拔 100 m 付近における粘土鉱物、硫化鉱物の分布状況と変質分帯図  
 1. K-M 帯 (本文参照) 2. N (D)-I/M 帯の中で、ディッカイトとモンモリロナイトが共存している部分  
 他の記号は第6図に同じ。

Fig. 7 Distributions of clay and sulfide minerals and alteration zoning map of the Minami-shiraoi deposit at +100 m level. The line A-A' is same to that of Fig. 2.

1. Kaolinite-montmorillonite zone
2. Nacrite (dickite)-illite/montmorillonite zone, where dickite and montmorillonite coexist.



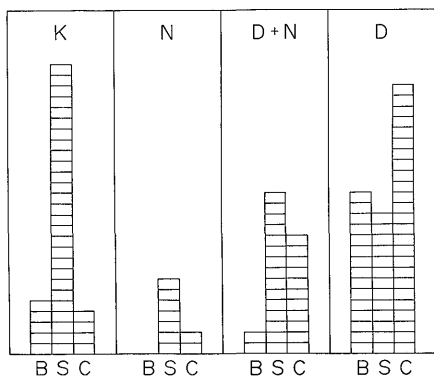
第8図 海拔120 mL付近における粘土鉱物、硫化鉱物の分布状況と変質分帯図

1. 含重晶石ケイ化岩 2. 砂状重晶石鉱体 3. 旧上部坑レベル(海拔150 mL)の重晶石鉱体 4. 旧本坑レベル(海拔140 mL)の重晶石鉱体  
 5. 旧新坑レベル(海拔130 mL)の重晶石鉱体 他の記号は第6図と同じ。

Fig. 8 Distributions of clay and sulfide minerals and alteration zoning map of the Minamishiraoui deposit at +120 m level.

The line A-A' is same to that of Fig. 2.

1. Barite-bearing silicified breccia 2. Barite bed 3. Upper mine level (+150 mL) barite ore  
 4. Main mine level (+140 mL) barite ore 5. New mine level (+130 mL) barite ore

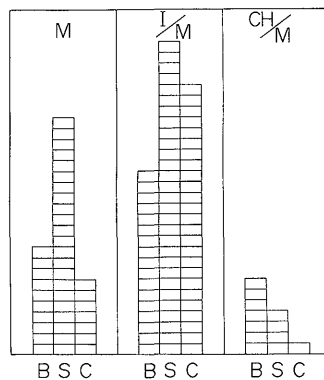


第9図 カオリン鉱物と硫化鉱物種との共存関係

- K. カオリナイト
- N. ナクライト
- D. ディッカイト
- B. Bタイプの硫化鉱物組み合わせ (本文参照)
- S. Sタイプの硫化鉱物組み合わせ (同上)
- C. Cタイプの硫化鉱物組み合わせ (同上)

Fig. 9 Histogram of kaolin species which coexist with B type, S type, and C type sulfide assemblages.

- K : Kaolinite
- N : Nacrite
- D : Dickite
- B : Barren type (pyrite±marcasite)
- S : Sphalerite type (sphalerite±galena±pyrite±marcasite)
- C : Chalcopyrite type (chalcopyrite±sphalerite±galena±pyrite±marcasite)

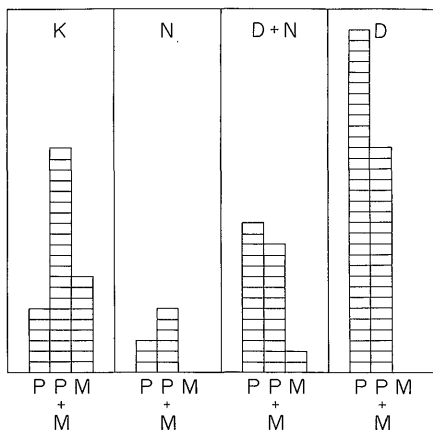


第11図 モンモリロナイト、混合層鉱物と硫化鉱物種との共存関係

- M. モンモリロナイト
- I/M. イライト/モンモリロナイト混合層鉱物
- CH/M. クロライト/モンモリロナイト混合層鉱物
- B, S, C. 第9図に同じ

Fig. 11 Histogram of mixed-layer mineral species which coexist with B type, S type, and C type sulfide assemblages.

- M : montmorillonite
- I/M : illite/montmorillonite mixed-layer minerals
- CH/M : Chlorite/montmorillonite mixed-layer minerals
- B : Barren type (pyrite±marcasite)
- S : Sphalerite type (sphalerite±galena±pyrite±marcasite)
- C : Chalcopyrite type (chalcopyrite±sphalerite±galena±pyrite±marcasite)



第10図 カオリン鉱物と黄鉄鉱、白鉄鉱との共存関係

- K, N, D. 第9図に同じ
- P. 黄鉄鉱
- M. 白鉄鉱

Fig. 10 Histogram of kaolin species which coexist with pyrite and marcasite.

- K : Kaolinite
- N : Nacrite
- D : Dickite
- P : Pyrite
- M : Marcasite

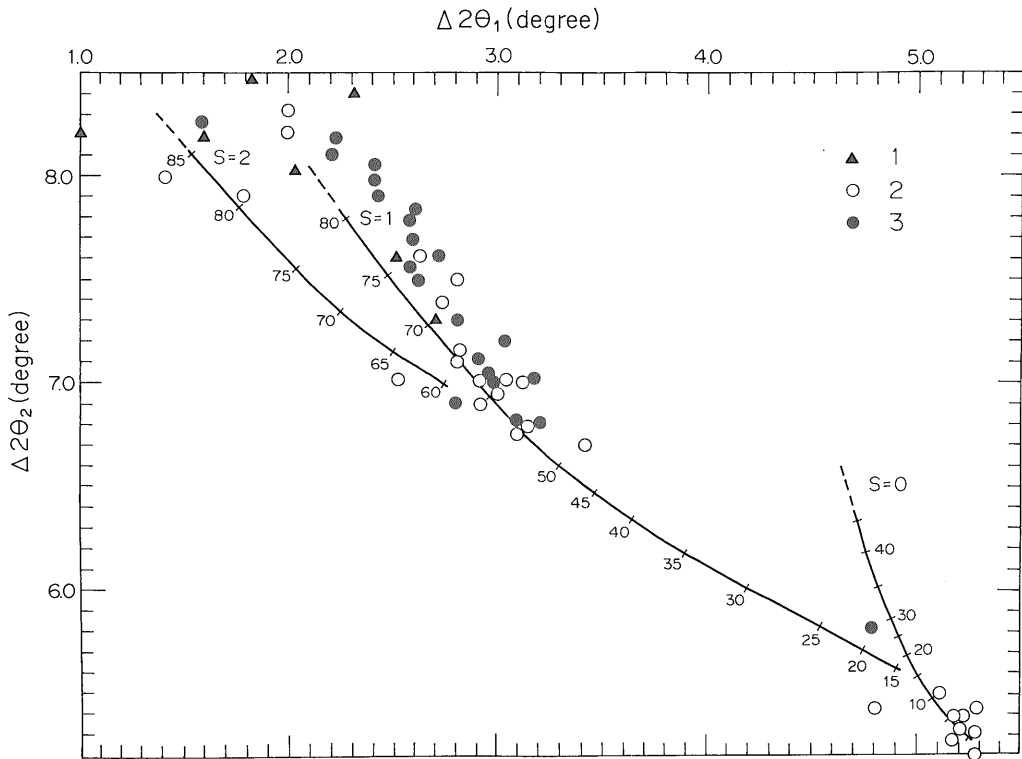
iv CH/M帯：この帯はクロライト/モンモリロナイト混合層鉱物 (CH/M) を伴う粘土化岩からなる。

N(D)-I/M帯には、ディッカイトとモンモリロナイトを伴う粘土化岩や、カオリナイトとディッカイトを伴うものも包括される。また K-M帯にはクリストバライトや石英が、他の帯には石英が伴われる。

第6, 7, 8及び第3図はそれぞれ標高70 mL, 100 mL, 120 mL 付近及び第2図の A-A' 断面付近における各帯の分布状況を取りまとめたものである。D-I帯は重晶石鉱体の下位50 m以深に位置し、この帯の外側にはN(D)-I/M帯が、さらにそれを包んでK-M帯が分布する。CH/M帯はK-M帯の下位に見られる。重晶石鉱体はN(D)-I/M帯中に胚胎している。これらの図には粘土化岩試料に含まれる粘土鉱物種もあわせ記した。

### 5. 各変質帯に伴われる硫化鉱物種

粘土化岩には黄鉄鉱、白鉄鉱、閃亜鉛鉱、方鉛鉱、黄



第12図 各タイプの硫化鉱物組み合わせと共存するモンモリロナイト、イライト/モンモリロナイト混合層鉱物のイライト層の割合  
 1. Bタイプ(黄鉄鉱のみ) 2. Sタイプ 3. Cタイプ  
 $\Delta 2\theta_1, \Delta 2\theta_2, S$ . 第4図に同じ

Fig. 12 Amount of illite layer in illite/montmorillonite mixed layer minerals which coexist with B type, S type, and C type sulfide assemblages.

銅鉱, 四面銅鉱, コペリン, ルソン銅鉱が伴われる。しかしこれらすべての硫化鉱物が同一試料中に含まれることはまれで, 大半の粘土化岩は以上のどれかの硫化鉱物組み合わせを有する。

i B (Barren) タイプ: 黄鉄鉱あるいは白鉄鉱のみを含むもの

ii S (Sphalerite) タイプ: B の組み合わせに閃亜鉛鉱, 方鉛鉱が加わったもの

iii C (Chalcopyrite) タイプ: S の組み合わせに黄銅鉱, 四面銅鉱が加わったもの

ここでは182個の粘土化岩試料(地表試料40個, 試験試料142個)に含まれる硫化鉱物と粘土鉱物の共存関係を整理し, 各タイプの硫化鉱物組み合わせがどの変質帯に属するかを検討した。

### 5.1 カオリン鉱物と硫化鉱物の共存関係

カオリナイトはSタイプの硫鉄鉱物組み合わせと共存する傾向にある。ディッカイトはCタイプに伴われる

例が多いものの, BタイプとSタイプにも伴われる。特記すべきことはカオリナイト→ナクライト→ディッカイト+ナクライト→ディッカイトの順にSタイプの共存比率が減少し, Cタイプが増加している点である。(第9図)。

第10図はカオリン鉱物の黄鉄鉱, 白鉄鉱との共存関係を整理したものである。カオリナイト→ナクライト→ディッカイト+ナクライト→ディッカイトの順に黄鉄鉱の出現頻度が高くなる傾向にある。

### 5.2 モンモリロナイト・混合層鉱物と硫化鉱物との共存関係

モンモリロナイトはSタイプの硫化鉱物組み合わせと共存する傾向にあり, イライト/モンモリロナイト混合層鉱物はSタイプに伴われる例が多いものの, BタイプとCタイプにも伴われる。クロライト/モンモリロナイト混合層鉱物はBタイプと共存する例が多く, Cタイプに伴われるものは一例にすぎない(第11図)。

第12図は各タイプの硫化鉱物組み合わせと共存するモンモリロナイト及びイライト/モンモリロナイト混合層鉱物のイライト層の割合を示したものである。イライト層の割合の多い混合層鉱物は、Cタイプと共存する例が多い。

第13, 14図はモンモリロナイト・混合層鉱物と、黄鉄鉱・白鉄鉱との共存関係を整理したものである。モンモリロナイトは白鉄鉱と共存する傾向にあり、イライト/モンモリロナイト混合層鉱物は黄鉄鉱と共存する例が多い。

### 5.3 各変質帯に産する硫化鉱物種

上記の鉱物共存関係は閃亜鉛鉱，方鉛鉱，黄銅鉱がカオリン鉱物を含む粘土化岩にも，またモンモリロナイトや混合層鉱物を含む粘土化岩にも伴われることを示している。各変質帯に見いだされる硫化鉱物種は次の通りである。

- i D-I 帯：黄鉄鉱，黄銅鉱，閃亜鉛鉱，方鉛鉱
  - ii N(D)-I/M 帯：黄鉄鉱（白鉄鉱），黄銅鉱，閃亜鉛鉱，方鉛鉱
  - iii K-M 帯：白鉄鉱（黄鉄鉱），閃亜鉛鉱，方鉛鉱
  - iv CH/M 帯：黄鉄鉱，黄銅鉱，閃亜鉛鉱，方鉛鉱
- 各帯における硫化鉱物の分布様式は第5～8図に示した。

## 6. 粘土化岩の化学組成

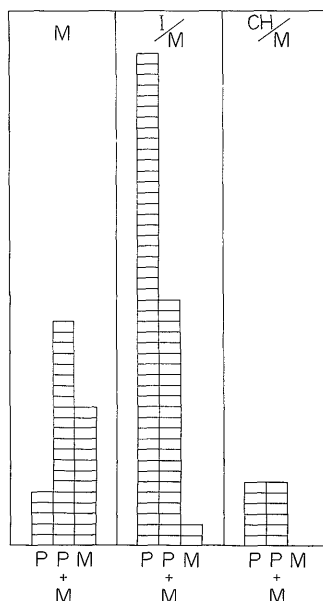
未変質な美笛川層安山岩及び各種粘土化岩試料の化学分析値を第2表に，また分析に用いた試料の粉末 X 線回折例を第15図にそれぞれ示す。

バリウム，ストロンチウムを除いたアルカリ，アルカリ土類元素は変質過程で溶脱している場合が多い。しかしイライト/モンモリロナイト混合層鉱物を伴う粘土化岩は，カリウムを混合層鉱物の層間に固定させているため，高いカリウム含有量を示す。またクロライト/モンモリロナイト混合層鉱物を伴う粘土化岩は，マグネシウムを混合層鉱物の8面体陽イオンとして固定させるため，そのマグネシウム含有量が高い。

バリウムは未変質安山岩から検出されていないが，粘土化岩には0.04～10.66%含まれる。このバリウムは重晶石として固定されているものと考えられる。

各試料のストロンチウム含有量は，バリウムやカルシウムのそれらとは相関を示さない。ストロンチウムがどのような形で岩石中に含まれているかは不明である。

粘土化岩試料中の鉄，銅，亜鉛及び鉛含有量はいずれも未変質な美笛川層安山岩のそれらに比べ増加している。また鉄を規準とした銅，亜鉛及び鉛の濃集率（それぞれ



第13図 モンモリロナイト・混合層鉱物と，黄鉄鉱・白鉄鉱の共存関係  
M, I/M, CH/M. 第11図に同じ  
P, M. 第10図に同じ

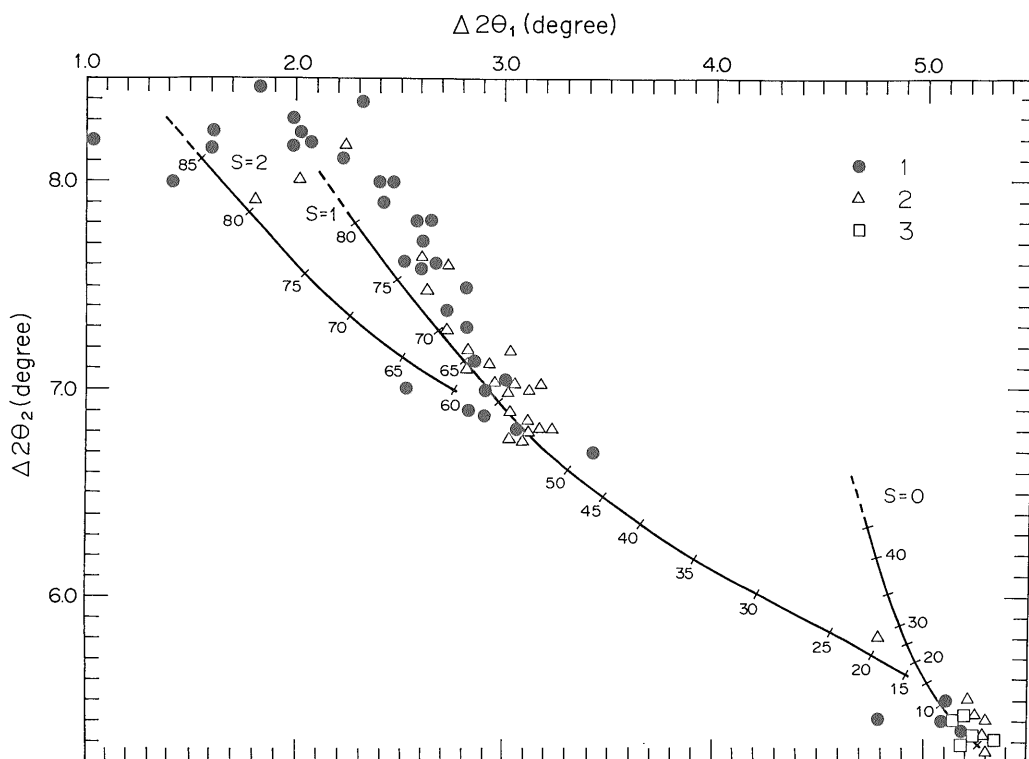
Fig. 13 Histogram of mixed-layer mineral species which coexist with pyrite and marcasite.

Cu/Fe, Zn/Fe, Pb/Fe とする) は未変質安山岩→K-M 帯→N(D)-I/M 帯の順に増加する。D-I 帯及び CH/M 帯にはN(D)-I/M 帯より濃集率の高いもの(57/8号試錐の深度54.5mや, 97m)と, それより低いものが存在する(第16図)。

## 7. 考察と結論

### 7.1 下盤粘土化帯に伴われるカオリン鉱物の晶出時期

南白老重晶石鉱床を含む西部北海道鉱床区には多数の硫黄・鉄鉱床，鉱化帯が分布している。これらの鉱床の周囲にはしばしばカオリン，モンモリロナイト及び混合層鉱物を伴う変質帯が発達している(丸茂，投稿中)。また南白老鉱床の西方6kmに位置する白老硫黄・鉄鉱床の変質帯でも，カオリンの産出が報告されている(舟橋，1983)。従って南白老鉱床の下盤粘土化帯に産するカオリン鉱物は，重晶石・銅・鉛・亜鉛鉱化作用後の硫黄・鉄鉱化作用によって形成された可能性がある。松波・庄谷(1985)は，南白老鉱床周辺の白老川とその支流域にカオリンを伴う変質帯が発達していることに着目し，白老地域には重晶石・銅・鉛・亜鉛をもたらした鉱化作用と，カオリン化作用を主体とする鉱化作用が存



第14図 黄鉄鉱、白鉄鉱と共存するモンモリロナイト及びイライト/モンモリロナイト混合層鉱物のイライト層の割合

1. 黄鉄鉱 2. 黄鉄鉱+白鉄鉱 3. 白鉄鉱  
 $\Delta 2\theta_1, \Delta 2\theta_2, S$ . 第4図に同じ

Fig. 14 Amount of illite layer in illite/montmorillonite mixed-layer minerals which coexist with pyrite and marcasite

1. Pyrite 2. Pyrite + marcasite 3. Marcasite

在し、南白老鉱床は両者の鉱化作用が重複したものであると結論した。

しかし南白老鉱床下盤粘土化帯のディッカイト・ナクライトは重晶石鉱体の下位に、カオリナイトは鉱体から離れた地点に産し、かつこれらはしばしば黄銅鉱・方鉛鉱・閃亜鉛鉱を伴っている。こうした産状は重晶石・銅・鉛・亜鉛鉱化作用とカオリン化作用が同時に進行したことを示唆するものである。またイライト/モンモリロナイト混合層鉱物の K-Ar 年代値は  $12.5 \pm 6$  Ma であり(丸茂・沢井, 1986), その値は従来報告されている黒鉱鉱床の形成時期(Ohmoto, 1983)に対比される。もしカオリン化作用と重晶石・銅・鉛・亜鉛鉱化作用との活動時期が異なるものであるならば, K-Ar 年代値

はカオリン化作用の影響で若返ってしまうはずである。

さらに硫黄・鉄鉱床の変質帯に産するカオリン鉱物は天水起源の熱水から晶出したもので、その構造水の水素同位体比は -90‰ (SMOW) 程度であるが、南白老鉱床のカオリンのそれはこれらの値より 60‰ ほど重い(丸茂, 松葉谷, 1985)。

こうした事実はいずれも南白老鉱床のカオリン鉱物が、重晶石・銅・鉛・亜鉛鉱化作用に関与した熱水と母岩との反応によって形成されたことを示すものである。

## 7.2 重晶石・銅・鉛・亜鉛鉱化作用の地球化学的特徴

南白老鉱床で現在までに採掘された重晶石の総量は 21 万トンに達している。これらの重晶石の硫酸イオンは、

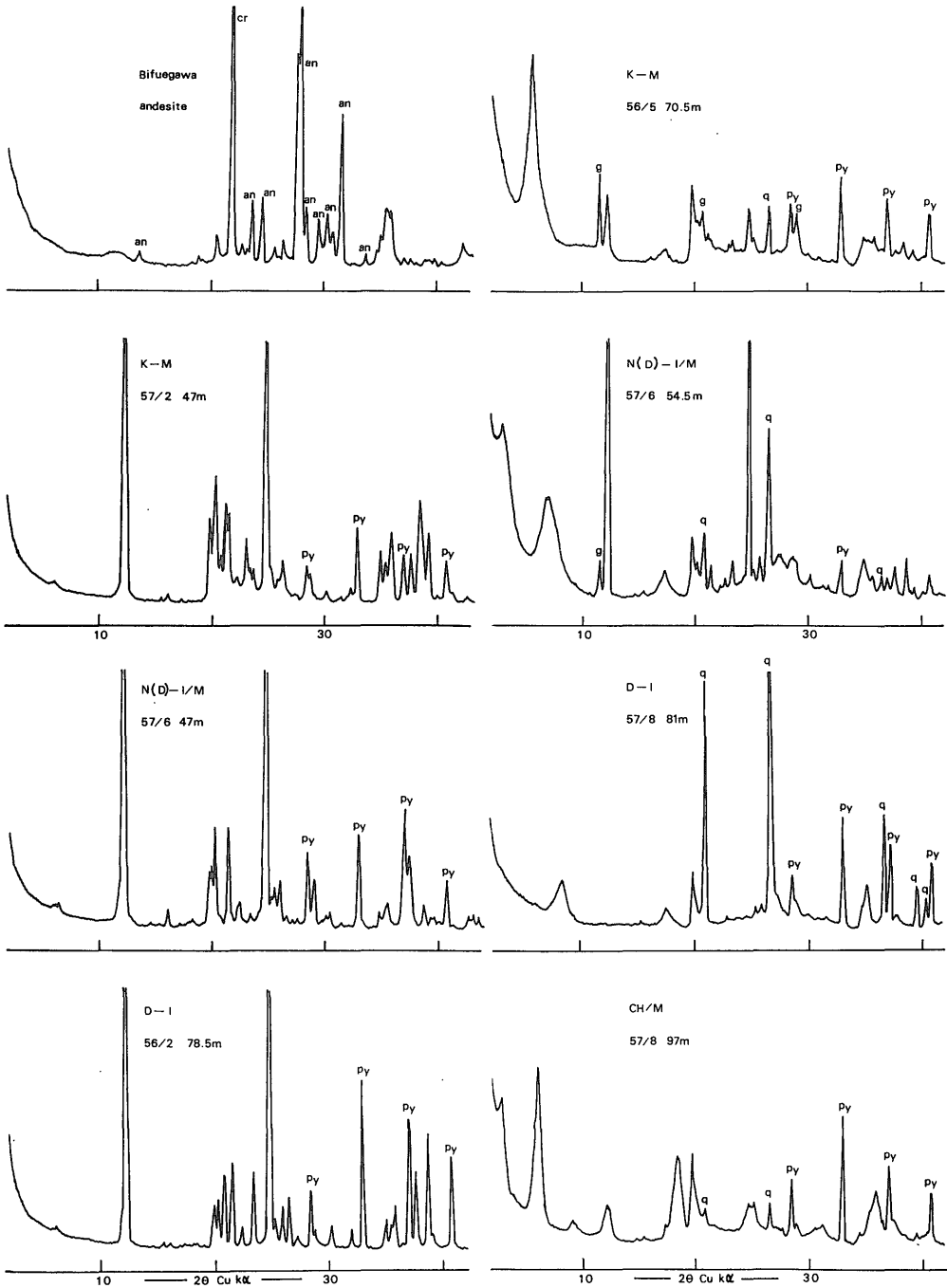
第2表 粘土化岩試料の化学分析値

黒抜きの丸印のついた試料はカオリン鉱物を主とするもの、白抜きの丸印の試料はモンモリロナイトや混合層鉱物を主とするもの、半黒抜きはカオリン鉱物とモンモリロナイト・混合層鉱物を伴う試料を示す

Table 2. Chemical compositions of clay.

Solid circles represent kaolin rich clays, open circles are mixed-layer minerals rich clays, and semi-open circles represent clays which contain both kaolin and mixed-layer minerals.

Sample	Na <sub>2</sub> O (%)	K <sub>2</sub> O (%)	MgO (%)	CaO (%)	Sr (ppm)	Ba (%)	Fe* (%)	Cu (ppm)	Zn (ppm)	Pb (ppm)	H <sub>2</sub> O <sup>-</sup> (%)
Bifuegawa andesite	2.74	1.19	3.14	7.81	185	0.00	2.10	4	79	8	0.36
K-M											
56/5 ○70.5m	0.03	0.30	0.05	0.06	735	0.08	12.44	98	55	114	2.47
57/1 ○44m	1.22	0.61	1.43	3.23	205	0.44	7.06	216	1413	163	5.15
57/2 ●47m	0.02	0.00	0.10	0.06	230	1.73	5.66	40	1447	116	2.81
N(D)-I/M											
57/2 ○61m	0.14	0.98	0.33	0.47	290	1.78	11.48	100	1665	224	3.90
57/6 ●47m	0.09	0.08	0.10	0.08	145	0.77	11.10	257	3008	602	4.66
57/6 ●54.5m	0.06	3.22	1.17	0.53	905	1.76	3.50	107	1568	223	5.07
D-I											
57/8 ●54.5m	0.04	0.14	0.17	0.15	250	3.46	7.86	1250	5002	836	2.68
56/2 ○60m	0.04	1.06	0.18	0.09	105	0.22	6.80	48	199	44	1.63
56/2 ○78.5m	0.12	0.06	1.96	0.97	165	0.03	7.14	28	120	18	10.13
57/8 ○81m	0.06	3.13	0.20	0.02	60	1.22	6.55	559	78	186	1.86
57/9 ●47m	0.03	0.03	0.04	0.03	40	10.66	14.10	50	206	44	4.64
CH/M											
57/1 ●84m	0.04	0.41	2.13	0.24	40	0.07	7.46	10	40	26	2.86
57/8 ○97m	0.02	0.20	8.66	0.03	300	0.04	6.83	915	9123	1220	5.41



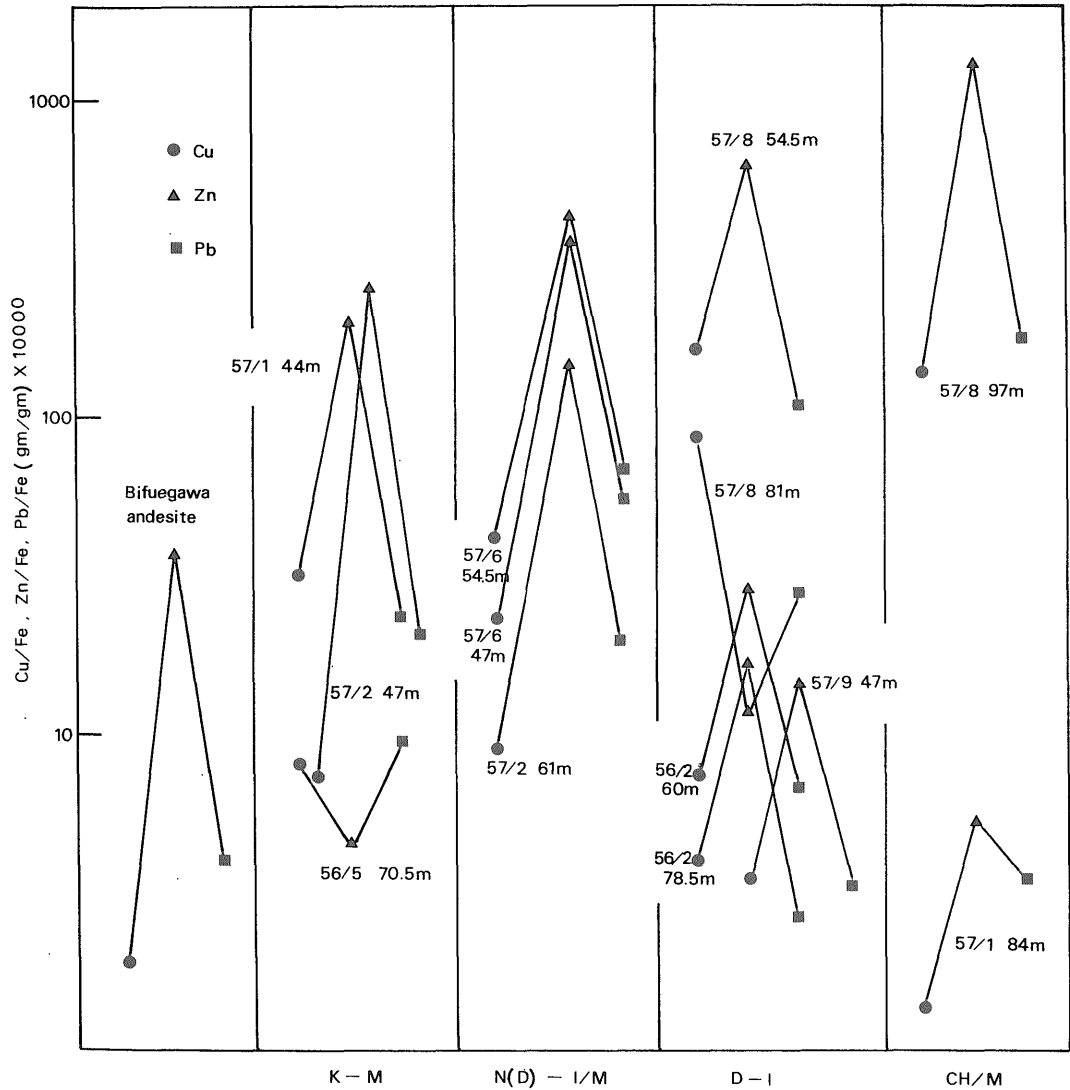
第15図 化学分析に用いた試料のX線回折例

an. 斜長石, Cr. クリソバライト, g. 石膏, q. 石英, py. 黄鉄鉱・白鉄鉱

Fig. 15 XRD patterns of samples for chemical analyses

an : plagioclase      q : quartz  
 cr : cristobalite    py : pyrite, marcasite  
 g : gypsum





第 16 図 鉄を規準とした銅, 鉛, 亜鉛の濃集率

Fig. 16 Degree of concentration of Cu, Pb, and Zn in clays.  
The values are normalized by Fe contents.

他の黒鉱鉱床のそれと同様に海水に起源を求めることができよう (鹿園, 1983). しかし重晶石のバリウムイオンの供給源を海水に求めた場合, 約  $6 \times 10^{12}$  トンの海水に含まれるバリウムイオンが全部沈殿しなくては鉱床は形成できないことになる\*. これだけの量の海水からバリウムイオンを抽出して狭い範囲に沈殿させるメカニズムは考え難い.

\* 海水のバリウムイオン濃度として  $2.1 \times 10^{-5}$  g/kg (Turekin, 1969) を用いた.

また鉱床の母岩の一部となる美笛川層安山岩のバリウム含有量はきわめて少ないため, 母岩の変質過程で溶脱されるバリウムイオンの量も鉱床を形成するには不十分であろう. 従ってバリウムイオンの供給源は, 鉱床の形成に関与した火成岩体等に求めなくてはならないことになる.

南白老鉱床の周辺には鉱床の関係火成岩類と考えられる貫入岩は見いだされていない. また白老川上流域には石英安山岩の貫入相が分布しているが, その活動時期は

K-Ar年代測定法により6.2Maと推定されている(金属鉱業事業団, 1979)。従ってこの岩体は鉱床関係火成岩の一部ではない。いずれにせよ、鉱床の下位にはカリウム及びそれと類似した挙動を示すバリウムに富んだ酸性岩体の存在が示唆される。

南白老鉱床の下盤粘土化帯に産する黄銅鉱・黄鉄鉱はディッカイト・ナクライト・イライト/モンモリロナイト混合層鉱物と共存する傾向にあり、閃亜鉛鉱・方鉛鉱・白鉄鉱はカオリナイト・モンモリロナイトに伴われる場合が多い。ここで硫化鉱物の晶出が粘土鉱物のそれとほぼ同時であったと仮定すると、黄銅鉱・黄鉄鉱は100~200°Cで、また閃亜鉛鉱・方鉛鉱・白鉄鉱は100°C以下で形成された(丸茂ら, 1985)ことになる。

これらの温度は黒鉱床の流体包有物の充填温度の測定値(Marutani and Takenouchi, 1978)や、East Pacific Rise at 21°Nにおけるそれら(Styrt, *et al.* 1981)に比べて低いものの、黄銅鉱が閃亜鉛鉱より高温で晶出している点では符号している。

南白老鉱床を含む西南北海道の塊状重晶石鉱床は重晶石に比べ硫化鉱物の割合が著しく少ないことで特徴づけられると報告されていた(Igarashi *et al.* 1974)。南白老鉱床では硫化物の塊状鉱体が見いだされず、また下盤粘土化帯にしばしば産する拳大の硫化鉱体の分析結果はAu, tr, Ag 26 g/t, Cu 1.35%, Pb 1.11%, Zn 10.14% (金属鉱業事業団)であり、その値は他の黒鉱の平均鉱石品位(Tanimura *et al.* 1983)と同程度でしかない。

しかし下盤粘土化帯を構成する粘土化岩の銅・鉛・亜鉛の含有率は、秋田県深沢鉱床の変質岩のそれら(Green *et al.* 1983)のそれらよりも高い。従って南白老鉱床の銅・鉛・亜鉛鉱化作用では塊状鉱体が形成されず、硫化鉱物の多くが粘土化帯に分散してしまったものと考えられる。

鉱化作用に関与した貫入岩が深所にあった場合、鉱液は周囲の水と混合する過程で低温となり、その銅・鉛・亜鉛濃度は低くなってしまふ。この鉱液はそれらの元素を多量に沈殿させることができないことになる。南白老鉱床に硫化物の塊状鉱体が見いだされない原因は、鉱床母岩の透水率が高かったこと(丸茂ら, 1985)と合せて、鉱液が低温であったことが挙げられる。

## 文 献

舟橋三男(1983) グリーンタフ地域にみられる変質作用について。日本応用地質学会北海道支部ニュース。no. 9.

Green, G.R., Ohmoto, H., Date, J. and Takahashi, T. (1983) Whole-Rock oxygen isotope distribution in the Fukazawa-Kosaka area, Hokuroku district, Japan, and its potential application to mineral exploration. *Econ. Geol. Monogr.*, vol. 5, p. 395-411.

Igarashi, T. Okabe, K. and Yajima, J. (1974) Massive barite deposits in west Hokkaido. In Ishihara, S. ed., *Mining Geol., Spec. Issue.* no. 6, p. 39-44.

金属鉱業事業団(1979) 昭和53年度広域調査報告書, 千歳地域。資源エネルギー庁。

丸茂克美・松葉谷治(1985) 千歳-洞爺-白老地域の浅熱水性金属・非金属鉱床に産する粘土鉱物の水素同位体比(演旨)。鉱山地質, vol. 35, p. 85.

———・羽坂俊一・宮崎純一・池田国昭(1985) 北海道南白老鉱床下盤粘土化帯の鉱物組成。鉱山地質, vol. 35, p. 331-344.

———・沢井長雄(1986) 西南北海道グリーンタフ地域のいくつかの鉱床変質岩のK-Ar年代。鉱山地質, vol. 36, p. 21-26.

Marutani, M. and Takenouchi, S. (1978) Fluid inclusion study of stockwork siliceous orebodies of Kuroko deposits at the Kosaka mine, Akita, Japan. *Mining Geol.*, vol. 28, p. 349-360.

松波武雄・庄谷幸夫(1985) 白老地域のカオリン資源。地下資源調査報告, vol. 56, p. 1-22.

Ohmoto, H. (1983) Geologic setting of the Kuroko deposits, Japan. Part I. *Geologic history of the Green tuff region.* *Econ. Geol. Monogr.*, p. 9-24.

鹿園直建(1983) 黒鉱床硫酸塩鉱物の成因。鉱山地質特別号第11号, p. 229-249.

Styrt, M.M., Brackmann, A.J., Holland, H.D., Clark, B.C.D., Clark, B.C., Pisutha-Arnond, V., Eldridge, C.S. and Ohmoto, H. (1981) The mineralogy and the isotopic composition of

- sulfur in hydrothermal sulfide/sulfate deposits on the East Pacific Rise, 21°N latitude. *Earth Planet. Sci. Lett.*, vol. 53, p. 382-390,
- Tanimura, S., Date, J. and Takahashi, T. (1983) Geologic setting of the Kuroko deposits, Japan. Part II. Stratigraphy and structure of the Hokuroku district. *Econ. Geol. Monogr.*, p. 24-38.
- Turekin, K.K. (1969) Handbook of geochemistry (Wedepohl, K.H. ed.), Springer Verlag, Berlin. p. 309-311.
- 歌田 実(1977) 鉱床母岩の変質作用. 現代鉱床学の基礎 (立見辰雄編), p. 145-159. 東京大学出版会.
- 渡辺 隆(1981) イライト/モンモリロナイト混合層鉱物の混合層構造の判定. 鉱物雑, vol. 15, p. 32-41.

(受付: 1992年6月12日; 受理: 1992年12月17日)