# 調査報告書

## 松本市奈川簡易水道における、ヒ素濃度水質基準値超過の原因

2008年9月30日

信州大学理学部地質科学教室 森清寿郎

- 1 緒言
- 2 奈川地域の地質
- 3 水質分析結果
- 4 河川堆積物の化学分析
- 5 ペグマタイト・石英脈に含まれるヒ素鉱物
- 6 考察
- 7 結論
- 8 提言

#### 1 緒言

平成 20 年 2 月 20 日、松本市奈川地区(旧奈川村)の奈川簡易水道において、水道水の水質 基準を上回るヒ素及びその化合物が検出された。ヒ素濃度超過が認められた古宿および正沢水 源池の近くには、第二次大戦終了時までタングステンが採掘された旧奈川鉱山がある。タング ステン鉱床のある型には、ビスマスやヒ素鉱物が伴われることが知られている。岐阜県の旧遠 ヶ根鉱山がその例で、ヒ素、ビスマス、タングステンが採掘されていた。この鉱床タイプは、 かって気成鉱床とよばれ(現在では高温熱水鉱床と呼ばれる)、花崗岩マグマが固結する際の残 液(高温熱水)に由来するとされている。事実、奈川地区においても、奈川東側の地域に花崗 岩(奈川花崗岩)が分布している。遠ヶ根鉱床の場合では、奈川花崗岩と同時代の苗木花崗岩 がある。

ヒ素びその化合物の水質基準値超過は、奈川東側の山中に水源をもつ水道水においてのみ認 められ、西側山中に水源をもつ水道には超過は認められなかった。奈川花崗岩は、奈川東側地 域にのみ分布し、西側には分布しない。したがって、奈川水道におけるヒ素濃度超過の原因は、 水源地付近の地質の特性-ヒ素鉱物を含む、奈川花崗岩起源の気成鉱床が存在する-によると の見通しがたてられる。本報告は、その見通しに基づき、おもに地質学的・地球化学的アプロ ーチにより、水道水のヒ素濃度基準値超過の原因を特定することを試みた結果である。

## 2 奈川地域の地質

(1) 地質概説

松本市奈川地区には、美濃帯に属する堆積岩(砂岩、頁岩(古い時代の頁岩で、剥離性の発達した頁岩)、チャート)が広く分布している。美濃帯は、石炭紀~ジュラ紀に遠洋で堆積した堆積物が、アジア大陸の縁に組み込まれた(付加した)地層群であり、付加した時代はジュラ紀(2~1.5 億年前)とされている。奈川地区の美濃帯堆積岩類は、時代と岩相から、味噌川コンプレックス(奈川東側に分布)と沢渡コンプレックス(奈川西側に分布)に分けられている(中野ほか、1995)。

奈川地区の東部(通称東山)では、美濃帯堆積岩類に白亜紀、0.7億年前の奈川花崗岩(K-Ar 法による固結年代は 6890 万年;中野ほか、1995))が貫入しており、堆積岩に対して明瞭な接触 変成作用を与えている(堆積岩類は花崗岩との接触部から 0.5-1km の範囲で、ホルンフェルス になっている)。奈川花崗岩は、東西約 2km、南北約 16km の細長い岩体で、分布の北限は梓川 の鵬雲崎付近、南限は境峠南方である。

奈川花崗岩は、岩相、年代、西南日本の地帯区分上の位置から、岐阜県中津川地域の苗木・ 上松花崗岩と対比される。苗木花崗岩体周辺には、恵比寿、遠ヶ根、福岡などのタングステン 鉱山があり、それら鉱床のタイプは気成鉱床である。前述したように遠ヶ根鉱山では、タング ステンのほかに、ヒ素(砒鉄鉱)も採掘された。

奈川地区の地質図を、中野ほか(1995)による「乗鞍岳地域の地質」から引用して図 2-(1)-1 に示した。

|        | 略号      | 岩石種   | 地質単元       |      |
|--------|---------|-------|------------|------|
| (黄白色)  | Ms      | 砂岩・頁岩 | 味噌川コンプレックス | 美濃帯  |
| ■ (灰色) | Sas     | 砂岩・頁岩 | 沢渡コンプレックス  | 堆積岩類 |
| ■ (橙色) | Sac     | チャート  | 沢渡コンプレックス  |      |
| ■ (桃色) | Gnh,Gnb | 花崗岩   | 奈川花崗岩      | 火成岩  |
| - (黒線) |         | 断層    |            |      |

地質図の凡例



図 2-(1)-1 松本市奈川地区の地質図 (中野ほか(1995)「乗鞍岳地域の地質」から引用)

<地質断面> 前頁地質図における E-F 線(八木沢鉱山の南をとおり、西北西―東南東方 向に大白川を横切る線)での地質断面図を以下に示す。



(2) 地質・岩石の各論

<奈川花崗岩>

奈川花崗岩は岩相変化が著しく、大きくわけて 3 種の岩相が認められる。奈川南部地区、野 麦峠スキー場付近では角閃石黒雲母花崗岩ないし花崗閃緑岩、奈川北部地区大白川流域では黒 雲母花崗岩、梓川流域では白雲母黒雲母花崗岩が分布している(中野ほか、1995)。これらは相 互に漸移し、異なった岩相間で明瞭な境界は認められない。したがって、これらの岩相変化は、 重力による花崗岩マグマ結晶分化作用によるものと考えられる。堆積岩層と花崗岩体との接触 関係、及び花崗岩の分布と地形との関係から、角閃石黒雲母花崗岩~花崗閃緑岩は奈川花崗岩 の深部相、黒雲母花崗岩は中部相、白雲母黒雲母花崗岩は花崗岩体の天井部付近の浅部相、を 表していると解釈できる。(下図、図 2-(2)-1)



<古宿-入山地域の地質的位置>

ヒ素濃度超過が認められた水道の水源である、古宿、正沢地域には、美濃帯堆積岩層が分布 する。その堆積岩層は、下方において奈川花崗岩体の貫入をうける、花崗岩体上方の上盤とな っている。そのことは、前ページの地質断面の図において、Ms(砂岩・頁岩)が、花崗岩体の 上側に描かれていることから、理解できる。この上盤堆積岩層には、ペグマタイト脈や石英脈 が多数認められる(中村ほか、1995)。それらは、奈川花崗岩マグマが分化して生成した残液、 が固結したものである(図 2-(2)-1 の右図)。このペグマタイト脈や石英脈には、鉄マンガン重 石や蛍石、チンワルド雲母、トパーズなどが産することが報告されている(八木、1946;長島・ 長島、1960;長野県地学会、1962)。とくに宮沢に産するペグマタイト脈からは、タングステン 鉱石として鉄マンガン重石が第二次大戦終わりまで採掘された(奈川鉱山)。

奈川鉱山: 奈川村黒川渡の東、ミヤ沢にあったタングステン鉱山である。美濃帯砂岩が花崗 岩によって接触変成した部分の石英脈中に、鉄マンガン重石と蛍石を産した(長野県地学会、 1962)。また長島・長島(1960)によると、グライゼン化(高温熱水鉱化作用を受け、変質花崗岩 が生成)した鉱床を貫いてペグマタイトが網状に発達し、上記鉱物のほかに、トパーズやチン ワルド雲母(リチウムを含む雲母)が産する(中野ほか(1995)の記述に基づく)。

<ホルンフェルス>

ホルンフェルスは、美濃帯構成岩である頁岩・砂岩が、高温の花崗岩マグマの貫入により、 熱変成をうけてできた堅硬な変成岩である。接触熱変成鉱物としては黒雲母が最も普通である が、源岩の組成と変成度によっては、紅柱石や菫青石が生成している場合もある。接触熱変成 帯の範囲は、地質図(図 2-(1)-1)には示されていない。奈川花崗岩の場合、接触熱変成帯の幅 は概してせまく、おおよそ花崗岩との接触部から 500m~1000m 程度である。

<境峠断層>

奈川地区には、焼岳付近よりはじまり木祖村薮原までおよぶ延長約 50km の境峠断層(仁科、 1982)が通っている。境峠断層による破砕帯の幅は異常にひろく、東西 1km におよぶ(中島・ 大塚、2008)。

#### 3 水質分析結果

奈川簡易水道の水源地および配水池の位置を次ページの図 3-1 にしめした。入山、古宿、正沢 水源は、奈川の東側の山中に位置するので、まとめて奈川東側水源とよぶ。同様にして、駒ケ 原、川浦、二の沢(保平)水源を奈川西側水源、寄会渡、木曽路原水源を奈川南側水源とよぶ ことにする。奈川東側は、奈川花崗岩浅部相とその上盤をなす地層が分布する地域である。奈 川西側では、奈川花崗岩は分布しない。奈川南側は奈川花崗岩の深部相が分布する地域である。



図 3-1 奈川簡易水道の水源地および配水池位置図 (松本市提供)

(1) 水質検査結果

それぞれの水源地からの原水のヒ素濃度経年変化を下の表 3-(1)-1 にしめした。データは松本 市から提供された。原水の採取場所は水源地であることもあるが、多くは配水池からである。

|          |        |        |        |    | 0      |        | ,      |        |        |       |
|----------|--------|--------|--------|----|--------|--------|--------|--------|--------|-------|
|          | 入山     | 古宿     | 正沢     | 金原 | 木曽路    | 寄合渡    | 保平     | 川浦     | 駒ヶ原    | 曽倉    |
| 水源地      |        |        |        |    | 原      |        | (二の    |        |        |       |
|          |        |        |        |    |        |        | 沢)     |        |        |       |
| 位置       | 奈川東側   | IJ     |        |    | 奈川南側   | ]      | 奈川西側   | ]      |        |       |
| H9.5.28  | 0.008  | 0.008  | 0.007  |    | 0.001  | 0.002  |        | 0.001  | 0.001> | 0.002 |
| H10.5.26 | 0.007  | 0.008  | 0.007  |    | 0.001  | 0.002  |        | 0.001  | 0.008  | 0.002 |
| H11.5.27 | 0.009  | 0.009  | 0.007  |    | 0.001  | 0.002  | 0.001  |        | 0.001> |       |
| H12.7.10 | 0.007  | 0.006  | 0.007  |    | 0.001  | 0.001  | 0.001  |        | 0.001> |       |
| H13.7.9  | 0.001> | 0.001  | 0.001> |    | 0.001> | 0.002  | 0.001> |        | 0.001> |       |
| H14.7.8  | 0.001> | 0.001> | 0.002  |    | 0.001  | 0.001> | 0.001> | 0.001> | 0.001> |       |
| H15.7.14 | 0.001> | 0.001> | 0.002  |    | 0.001> | 0.001> | 0.001> | 0.001> | 0.001> |       |
| H16.7.13 |        |        | 0.001> |    |        |        |        |        | 0.001> |       |
| H17.7.11 |        | 0.001> |        |    |        |        |        | 0.001> |        |       |
| H17.8.8  |        |        |        |    |        | 0.001> |        |        |        |       |
| H18.7.13 | 0.004  |        |        |    | 0.001> | 0.002  | 0.001> |        |        |       |
| H19.7.26 |        |        | 0.009  |    |        |        |        |        |        |       |

表 3-(1)-1 原水のヒ素濃度 単位は mg/l

(松本市提供データ)

上表の網掛けの部分は、A 社による分析結果、網掛けのない部分は B 社による分析結果であ る。平成 9 年から平成 11 年の A 社による分析結果をみると、奈川東側に位置する入山、古宿、 正沢水源からの原水においてヒ素含有量が高く、一方、奈川西側および南側の水源からの原水 では、ヒ素含有量が奈川東側水源の原水の 1/9~1/7 であり、奈川東側水源の原水より常に低い ことが明らかである。

B社の分析結果、とくに平成13年以降の値は、疑わしい。その理由は、天然水の水質がある 年を境にして突然変わることは考えにくいにもかかわらず、平成13年以降(B社分析)の入山、 古宿、正沢水源地のヒ素含有量が、平成12年までの値(A社分析、平成12年はB社分析)の 約1/9に低下しているからである。また、平成12年までの分析値は、奈川東側の水源と奈川西 側の水源とでヒ素含有量に違いがあることを示しているが、平成13年以降は東側と西側の水源 とで差が現れていない。ヒ素含有量に違いがあった水質が、ある年を境にして違いがなくなる、 ということも、自然現象としては考えにくい。したがって、平成13年以降のB社の分析結果は 疑わしく、平成11年までのA社の分析結果を基に検討を進めることが適当である。

そのように考えると、入山、古沢、正沢地点など奈川東側に位置する水源からの水は、奈川

西側や南側に位置する水源からの水と違って、もともとヒ素濃度が高いこと、その傾向は水質 基準値超過が判明した平成 20 年 2 月より以前から存在していた、と推定される。

#### 4 河川堆積物の化学分析

(1) 目的

奈川花崗岩分布地域(すなわち奈川の東側地域)の河床堆積物のヒ素含有量が、奈川西側 の河床堆積物のそれより、系統的に高いかどうかを調べる目的で、細粒河川堆積物を採取し、 化学分析をおこなった。河床に堆積している砕屑物(岩塊や礫、砂)は、試料採取地点より上 流に分布する岩石が削剥・混合したものである。それらのうち細粒物質(粘土〜細粒砂)の総 化学組成は、比較的少量でも、上流域の地質・岩石構成をよく反映するものとされている(産 総研、2004)。

今回分析した元素は、ヒ素のほかに、ビスマス、タングステン、スズ、亜鉛の計5元素であ る。ビスマス、タングステン、スズは、一般に花崗岩マグマの分化の際、残液に濃集するとさ れており、これら元素はヒ素と同じ地球化学的挙動をとることが予想されるからである。また、 亜鉛は、ミヤ沢入り口において閃亜鉛鉱の転石が認められたため、ヒ素が閃亜鉛鉱に由来する 可能性をも考え、分析をおこなった。

(2) 試料採取法、化学分析法

試料採取は、次にようにしておこなった。

スコップで、河床にある細粒の堆積物(最大粒径 3mm)約1kg を採取する。それを室内で風 乾させ、60メッシュの篩をとおして、0.25mm 以下の砕屑粒子のみを回収し、それを分析試料 とした。0.25mm 以下の試料の収量はほとんどが200g 以上であったが、奈川地区は標高の高い 山岳地帯であるため、採取場所が傾斜の急な小沢である場合があり(例えば、地点番号14、入 山宿)そのような地点から採取された試料では、0.25mm 以下の粒子の収量が少なかった。そ の場合、分析結果がその地点の平均的な値とはみなしえないことに留意すべきである。

化学分析は、(株)環境技術センターに依頼した。分析法は以下のとおりである。また試料分 解、濃度測定にいたる操作のフローチャートを図 4-(2)-1 に示した。

|        | 分解法                    | 定量法         |
|--------|------------------------|-------------|
| ヒ素     | マイクロウェーブ酸分解(硝酸+フッ化水素酸) | 水素化物発生原子吸光法 |
| ビスマス   | マイクロウェーブ酸分解(硝酸+塩酸)     | ICP-MS 法    |
| タングステン | マイクロウェーブ酸分解(硝酸+塩酸)     | ICP-MS 法    |
| スズ     | マイクロウェーブ酸分解(硝酸+塩酸)     | ICP-MS 法    |
| 亜鉛     | マイクロウェーブ酸分解(硝酸+フッ化水素酸) | 原子吸光法       |

図 4-(2)-1

測定フローシート

(1) ヒ素、亜鉛



(2) ビスマス、タングステン、スズ



河川堆積物分析試料リストを表 4-(2)-1 に、採取地点を図 4-(2)-2 に示す。

| 表 4-(2)-1 | 河川堆積物分析試料 | リスト |
|-----------|-----------|-----|
|           |           |     |

| 試料番号 | 地点         | 標本番号     |
|------|------------|----------|
| 1    | ミヤ沢        | 08050404 |
| 2    | 熊沢         | 08050901 |
| 3    | 五領沢        | 08050902 |
| 4    | ニゴリ沢       | 08051401 |
| 5    | 正沢         | 08051402 |
| 6    | 正沢         | 08051403 |
| 7    | 庚申沢        | 08051404 |
| 8    | ソグラ沢       | 08051405 |
| 9    | 栃洞沢        | 08051406 |
| 10   | 月夜沢        | 08051407 |
| 11   | カンバ沢       | 08051408 |
| 12   | 大白川        | 08051409 |
| 13   | 東電発電所前     | 08051501 |
| 14   | 入山宿        | 08051502 |
| 15   | ヤギ沢        | 08051503 |
| 16   | ニゴリ沢対岸の沢   | 08051504 |
| 17   | ナラオ沢       | 08051505 |
| 18   | 魚イラズ川      | 08051506 |
| 19   | 大寄合川       | 08051507 |
| 20   | 黒川本流上流     | 08051801 |
| 21   | 黒川支流       | 08051802 |
| 22   | 上セト沢       | 08051803 |
| 23   | 大黒川        | 08051804 |
| 24   | ニゴリ沢一古宿間の沢 | 08051805 |
| 25   | 田ノ萱        | 08051806 |
| 26   | 水殿川        | 08051807 |
| 27   | 境川         | 08051508 |
| 28   | ミヤ沢鉱山下     | 08052704 |
| 29   | 赤田沢        | 08052705 |
| 30   | 奈川上流、川浦西方  | 08052706 |
| 31   | 大檜沢        | 08052707 |
| 32   | 大唐沢        | 08052708 |
| 33   | 天ヶ沢        | 08052709 |
| 34   | 稲核         | 08060801 |
| 35   | 栃沢         | 08060802 |
| 36   | 風穴         | 08060803 |



(3) 化学分析結果

得られた結果を下の表 4-(3)-1 に示す。

| 表 4-(3)-1 | 化学分析結果    | 単位          | はppm。 (    | )の値は参考値   | <u>「</u> である。 |
|-----------|-----------|-------------|------------|-----------|---------------|
| 試料番号      | ヒ素        | ビスマス        | タングステン     | スズ        | 亜鉛            |
|           | (ppm)     | (ppm)       | (ppm)      | (ppm)     | (ppm)         |
| 1         | 150(159)  | 2.7(2.77)   | 7.1(7.12)  | 14(14.0)  | 180(183)      |
| 2         | 49(49.5)  | 1.9(1.93)   | 3.7(3.72)  | 16(16.1)  | 590(592)      |
| 3         | 30(30.9)  | 1.6(1.65)   | 3.3(3.34)  | 16(16.1)  | 340(341)      |
| 4         | 29(29.2)  | 1.0(1.02)   | 2.8(2.84)  | 16(16.8)  | 100(100)      |
| 5         | 29(29.4)  | 1.0(1.01)   | 6.4(6.47)  | 17(17.4)  | 70(70.3)      |
| 6         | 20(20.4)  | 0.96(0.969) | 3.6(3.62)  | 15(15.6)  | 58(58.6)      |
| 7         | 32(32.0)  | 1.1(1.17)   | 5.9(5.93)  | 20(20.8)  | 79(79.4)      |
| 8         | 13(13.0)  | 0.66(0.666) | 2.0(2.03)  | 25(25.1)  | 39(39.1)      |
| 9         | 16(16.4)  | 0.64(0.645) | 2.4(2.48)  | 18(18.2)  | 73(73.3)      |
| 10        | 9.0(9.07) | 0.45(0.451) | 0.7(0.787) | 13(13.9)  | 69(69.0)      |
| 11        | 13(13.0)  | 0.44(0.446) | 0.9(0.976) | 17(17.8)  | 79(79.7)      |
| 12        | 17(17.5)  | 0.41(0.413) | 1.6(1.60)  | 16(16.9)  | 60(60.7)      |
| 13        | 40(40.8)  | 1.6(1.68)   | 11(11.3)   | 19(19.6)  | 150(158)      |
| 14        | 360(366)  | 1.8(1.85)   | 3.2(3.24)  | 21(21.3)  | 200(202)      |
| 15        | 30(30.0)  | 0.61(0.619) | 2.4(2.46)  | 15(15.2)  | 130(135)      |
| 16        | 8.5(8.57) | 0.40(0.400) | 0.8(0.882) | 14(14.1)  | 62(62.2)      |
| 17        | 10(10.2)  | 0.41(0.411) | 0.7(0.742) | 12(12.9)  | 80(80.9)      |
| 18        | 23(23.8)  | 0.38(0.385) | 2.9(2.97)  | 14(14.6)  | 38(38.7)      |
| 19        | 21(21.5)  | 0.47(0.472) | 3.9(3.92)  | 13(13.5)  | 44(44.7)      |
| 20        | 7.8(7.80) | 0.31(0.317) | 0.7(0.735) | 13(13.4)  | 59(59.8)      |
| 21        | 11(11.0)  | 0.72(0.726) | 1.2(1.27)  | 11(11.8)  | 98(98.6)      |
| 22        | 13(13.5)  | 0.37(0.372) | 0.7(0.738) | 9.9(9.91) | 56(56.7)      |
| 23        | 13(13.7)  | 0.57(0.575) | 0.6(0.637) | 11(11.6)  | 130(134)      |
| 24        | 31(31.5)  | 0.48(0.483) | 9.2(9.26)  | 11(11.9)  | 130(135)      |
| 25        | 33(33.0)  | 0.68(0.682) | 3.0(3.02)  | 12(12.1)  | 140(140)      |
| 26        | 17(17.3)  | 0.51(0.517) | 1.2(1.29)  | 11(11.4)  | 89(89.2)      |
| 27        | 12(12.6)  | 0.90(0.906) | 1.5(1.57)  | 12(12.4)  | 50(50.1)      |
| 28        | 160(161)  | 1.1(1.12)   | 12(12.7)   | 17(17.5)  | 130(132)      |
| 29        | 6.7(6.73) | 0.29(0.297) | 0.4(0.474) | 11(11.1)  | 100(106)      |
| 30        | 5.5(5.55) | 0.23(0.232) | 0.7(0.794) | 11(11.9)  | 110(111)      |
| 31        | 11(11.8)  | 0.33(0.338) | 0.9(0.995) | 10(10.6)  | 100(107)      |
| 32        | 6.1(6.14) | 0.22(0.226) | 0.3(0.370) | 10(10.2)  | 59(59.3)      |
| 33        | 7.4(7.47) | 0.23(0.232) | 1.3(1.39)  | 8.7(8.75) | 76(76.6)      |
| 34        | 54(54.3)  | 1.1(1.12)   | 4.5(4.54)  | 13(13.2)  | 100(109)      |
| 35        | 27(27.0)  | 0.47(0.472) | 1.0(1.05)  | 10(10.1)  | 100(103)      |
| 36        | 33(33.9)  | 0.49(0.497) | 0.6(0.634) | 9.7(9.73) | 110(113)      |

- (4) 分析結果についての検討
- (a) ヒ素 (図 4-(4)-1)

河川堆積物のヒ素濃度は 10ppm 以下 (最低値 5.5ppm、試料 30、川浦西方) から最高 360ppm (試料 14、入山宿) までの値が見られるが、70ppm 以下の濃度がほとんどである。図 4-(4)-1 は、ヒ素濃度を 10 ppm 以下(<10 ppm)、10-30 ppm、30-70 ppm、70-100 ppm、100ppm 以 上(>100ppm)の 5 段階に分け、試料採集地点が、そのどれに属するかを示した図である。それ ぞれの濃度区分の出現頻度は、次のとおりである。

| 濃度区分       | 試料数 (総計 36) | 割合    |
|------------|-------------|-------|
| <10 ppm    | 8           | 22.2% |
| 10-30 ppm  | 16          | 44.4% |
| 30-70 ppm  | 9           | 25%   |
| 70-100 ppm | 0           | 0%    |
| >100 ppm   | 3           | 8.3%  |

ヒ素濃度の特に高い地点は、入山宿(試料 14)、ミヤ沢の旧奈川鉱山下(試料 1、試料 28) である。奈川東側、とくに庚申沢(試料地点 7)以北の地点では、いくつかの例外をのぞき、30ppm 以上の値を示す。一方、奈川西側地域からの試料はすべて 30ppm 以下であり、とくに<10ppm の試料は奈川西側地域にだけに限られる。したがって、奈川東側の庚申沢以北は、奈川西側地 域より、ヒ素濃度が系統的に高い、といえる。

奈川東側の庚申沢以北の場所は、奈川花崗岩体中・浅部相と花崗岩体上盤の美濃帯頁岩・砂 岩層が分布している。その頁岩・砂岩層には、奈川花崗岩マグマより分化したペグマタイト脈 と石英脈が多数貫入している。そのような地質学的事実と、奈川東側庚申沢以北の地点のヒ素 濃度が高い、という結果から、河川堆積物のヒ素は、ペグマタイトや石英脈にふくまれていた ヒ素鉱物に由来する可能性が高い。

図 4-(4)-1 から、奈川東側の庚申沢以北のヒ素濃度は西側地域にくらべると高いけれども、ヒ 素濃度が上記5区分のうちの70-100ppm にはいる試料地点が認められない。このことは、100 ppm 以上の試料地点(入山宿、ミヤ沢)が、むしろ例外的で特殊であることをあらわしている。

今後、本報告書において「奈川東側地区」、「西側地区」、「南部地区」の呼称をもちいるが、 それぞれの地理的範囲を次々ページの図 4-(4)-2 に示す。





図 4-(4)-2 本報告で用いる「奈川東側地区」、「西側地区」、「南部地区」の地理的範囲

(b) ビスマス (図 4-(4)-3)

河川堆積物のビスマス濃度は、0.22ppm(試料 32、大唐沢)から最高 2.7ppm(試料 1、ミヤ 沢)の範囲の値をとる。本報告では、試料を、ビスマス濃度 0.5 ppm 以下(<0.5 ppm)、0.5-1.0 ppm、1.0-1.5ppm、1.5ppm 以上(>1.5ppm)、の基準で、四分した。それぞれの出現頻度は、次 のとおりである。

| 濃度区分        | 試料数 (総計 36) | 割合    |
|-------------|-------------|-------|
| <0.5 ppm    | 17          | 47.2% |
| 0.5-1.0 ppm | 9           | 25%   |
| 1.0-1.5ppm  | 5           | 13.9% |
| >1.5ppm     | 5           | 13.9% |

奈川東側の庚申沢(試料地点7)以北の地区では、ビスマス濃度が1.0-1.5 ppmと1.5ppm以上の試料がほとんどであるが、一方、奈川西側地区と、奈川南側地区及び奈川東側のソグラ沢(資料地点8)以南では0.5ppm以下(<0.5 ppm)の濃度がほとんどである。奈川東側庚申沢以北は、奈川のほかの地区と、際だった違いを示している。ビスマス濃度がとくに高い地点は、ミヤ沢(試料1)、入山宿(試料14)、奈川渡一風穴間の梓川南岸地区(試料2,3,13)で、これらの地点はすべて、奈川花崗岩体の上盤域に相当している。また、ビスマスの高濃度域(1.0-1.5ppmと1.5ppm以上)は、ヒ素の高濃度域(30-70ppm,70-100ppm,100ppm以上)と一致している。



(c) タングステン (図 4-(4)-4)

河川堆積物のタングステン濃度は、最低 0.3ppm(試料 32、大唐沢)から最高 12ppm(試料 28、ミヤ沢奈川鉱山下)までの値をとる。試料をタングステン濃度 1.0ppm 以下(<1.0ppm)、1.0-5.0ppm、5.0-10ppm、10ppm 以上(>10ppm)、に四区分し、図 4-(4)-4 に示した。それぞれの出現頻度は、次のとおりである。

| 濃度区分       | 試料数 (総計 36) | 割合    |
|------------|-------------|-------|
| <1.0ppm    | 12          | 33.3% |
| 1.0-5.0ppm | 18          | 50%   |
| 5.0-10ppm  | 4           | 11.1% |
| >10ppm     | 2           | 5.6%  |

奈川東側、西側、南部域という区分でみると、タングステン濃度は、奈川西側地区で最も低 く、次いで奈川南部地域であり、奈川東側地域はもっとも高い。すなわち、奈川西側地域から の試料はタングステン濃度がほとんど 1ppm 以下であるのに対し、奈川東側地域からの試料は 1ppm 以上(1.0-5.0ppmと5.0-10ppm)である。とくにタングステン濃度が高い地点は、ミヤ 沢(試料地点1)を中心とした南北約1.5kmの地帯と、奈川渡と風穴の中間地点(地点13、東 電発電所前)である。これらの地帯・地点は、地質構造の上からは、奈川花崗岩の上盤部分に 相当する。

タングステン高濃度域の分布範囲は、ヒ素およびビスマス高濃度域より狭いけれども、ヒ素 およびビスマス高濃度域内に含まれている。



(5) ヒ素、ビスマス、タングステン含有量の相関関係

(a) ビスマスーヒ素関係 (図 4-(5)-1)

下の図は、河川堆積物のビスマス濃度を縦軸に、ヒ素濃度を横軸にとった図である。 図 4-(5)-1



この図から、ヒ素が 360ppm と異常に高い試料(地点 14、入山宿)をのぞくと、 ビスマスーヒ素間には、顕著な正の相関があることが読み取れる。

地点 14、入山宿の試料は、急勾配の小さな沢から採取されたもので、堆積物はほとんどが礫 からなり、現地で採取した試料を篩にかけて分離回収できた分析用の細粒砕屑粒(粘土および 細粒砂)の量は非常に少なかった。そのため、たまたまヒ素鉱物粒が分析用試料中に混入する と、試料の示すヒ素含有量が高くなる。したがって、地点 14 のデータは、当該地域の平均的な 組成とはみなしがたい。 b タングステンーヒ素関係 (図 4-(5)-2)

下の図は、河川堆積物のタングステン濃度を縦軸に、ヒ素濃度を横軸にとった図である。 図 4-(5)-2



すでに述べたように、ヒ素濃度 360ppm の試料 14 は、試料地点の平均値とはみなしがたい。 したがってそのデータをのぞくと、タングステンーヒ素間には、ビスマスーヒ素間と同様に、 正の相関が認められる。 c タングステンービスマス関係 (図 4-(5)-3)
 河川堆積物のタングステンービスマス濃度関係を、下の図に示す。
 図 4-(5)-3



以上の結果から、奈川地域河川堆積物中のヒ素、ビスマス、タングステン濃度の間には、顕 著な正の相関があることが結論される。

ヒ素、ビスマス、タングステンは花崗岩マグマの分化の際、固結末期に花崗岩マグマから分離した高温の熱水に濃集することが知られている(藤本・柴田、1966;調査地質所、1976)。したがって、奈川東側の庚申沢(試料地点7)以北の河川堆積物におけるヒ素、ビスマス、タングステン高含有量は、奈川花崗岩マグマに由来するペグマタイト〜高温熱水性石英脈にふくまれていた鉱物に由来する、と推定できる。このことは、古宿一入山間に分布する美濃帯堆積岩層は奈川花崗岩体の上盤となっていること、その堆積岩層には花崗岩の分化物であるペグマタイト脈や石英脈がしばしば見出されること、それらの脈の中に、蛍石、トパーズ、チンワルド雲母、鉄マンガン重石などの気成鉱物が含まれること、という地質学的・岩石学的事実とも一致している。

高温熱水鉱床(従来の気成鉱床)

花崗岩質マグマの固結末期には、珪酸塩鉱物の大部分が晶出をおわり、マグマの残液はホ ウ素、フッ素、塩素、リチウム、ベリリウム、スズ、タングステンに富んだ高温の熱水と なる。その熱水から、白雲母、チンワルド雲母、石英、トパーズ、蛍石、緑柱石、錫石、 鉄マンガン重石、輝水鉛鉱、ビスマス鉱物などの特徴的な鉱物が晶出する。これらの鉱物 はかっては気成鉱物とよばれ、この種の鉱床は気成鉱床とよばれていた。現在では、高温 熱水鉱床とよばれる。 (6) 堆積物中のスズ、亜鉛分析結果について

スズ:ある種の花崗岩、とくにSタイプ花崗岩には、気成期にタングステンとともにスズの 鉱化作用を伴うことが知られている。そのために奈川花崗岩においても、スズの鉱化作用が生 じた可能性が疑われ、そのことを確かめるためにスズの分析を試みた。しかし、全試料をとお して、スズ含有量の変動が極めて小さく(最低値 8.7ppm、最高値 25ppm)、花崗岩分布域と非 分布域とで差が認められなかった。結論として、奈川花崗岩はスズの鉱化作用をともなわなか った、といえる。このため、スズについては、以後の検討・考察対象から除く。

亜鉛: ミヤ沢入り口において閃亜鉛鉱をふくむ転石を認めたため、閃亜鉛鉱がヒ素の供給源 である可能性を疑い、河川堆積物の亜鉛含有量の分析を試みた。しかし、ヒ素含有量と亜鉛含 有量には相関がなく、かつ堆積物中の亜鉛濃度の地理的分布にも、規則性がなかった。そのた め、亜鉛は、ヒ素鉱化作用とは無関係と結論され、以後の検討・考察対象から除く。

#### 5 ペグマタイト・石英脈に含まれるヒ素鉱物

(1) ペグマタイト~石英脈の分布

古宿地区に分布する美濃帯堆積岩層は、奈川花崗岩の上盤という構造位置にある。

その堆積岩層には、奈川花崗岩に由来する、ペグマタイト脈・石英脈、がしばしば見出される。ペグマタイト脈の産状の写真を図 5-(1)に示す。

中野ほか(1995)にも「貫入面から 500m の範囲内の母岩中に小規模なアプライト・ペグマタイト脈や石英脈が多数見いだされ」と記されている。

図 5-(1) ミヤ沢におけるペグマタイト脈の産状



このペグマタイト、石英脈には、鉄マンガン重石、蛍石、リシア雲母、トパーズを産することが八木(1946)、長島・長島(1960)、長野県地学会(1962)によってすでに報告されている。

- (2) ペグマタイト脈、石英脈に出現する鉱物
- (a) 砒鉄鉱

奈川鉱山付近のペグマタイト脈・石英脈には、砒鉄鉱(FeAs2)がかなりの頻度で見出される。 砒鉄鉱は単結晶というより塊状の集合体として産し、径3mmから大きいものになると2cmま での塊が認められた。(下写真参照、試料の上側、茶色の部分はトパーズ)。砒鉄鉱は多くの場 合、チンワルド雲母と共生する。鉄マンガン重石一砒鉄鉱一石英からなるという奈川鉱山の鉱 化作用は、岐阜県遠ヶ根鉱山(河田、1961)のそれとよく似ている。



砒鉄鉱 loellingite 砒毒砂ともいう。化学組成は FeAs2 銀白色、金属光沢を示す結晶で 硫砒鉄鉱 FeAsS に似ており、肉眼では区別できない。ペグマタイト、スカルン鉱床、鉱脈鉱床 に出現する。岐阜県遠ヶ根鉱山は、砒鉄鉱と鉄マンガン重石を採掘していた。

本鉱物が硫砒鉄鉱ではなく砒鉄鉱であることは、粉末X線回折実験により確かめられた。 砒鉄鉱の粉末X線回折プロファイルを下の図 5-(2)-1 に示す。

実験条件

対陰極:銅 加速電圧 30kV 電流強度 15mA 走査角度(2 θ) 60 度-20 度 走査速度 2 度/分 時定数 1 秒

図 5-(2)-1 砒鉄鉱の粉末X線回折プロファイル



(b) トパーズ

トパーズであることは、粉末X線回折実験により確かめられた。トパーズの粉末X線回折プロファイルを図 5-(2)-2 に示す。実験条件は、砒鉄鉱の場合と同じである。

図 5-(2)-2 トパーズの粉末X線回折プロファイル



(c) チンワルド雲母

ごく淡い褐色をおびた雲母であり、砒鉄鉱と共生する。下の写真のように、ペグマタイト中 に、径 5mm 程度、C軸方向に厚く重なった結晶として産する。褐色部分は砒鉄鉱である。



(d) 蛍石

ペグマタイト中に、淡青色の結晶として産する。蛍石であることは、粉末X線回折法により 確かめられた。蛍石の粉末X線回折プロファイルを図 5-(2)-3 に示す。

図 5-(2)-3 蛍石の粉末X線回折プロファイル



(e) 鉄マンガン重石

今回の調査では、採集できなかった。

これらの鉱物は、花崗岩マグマ固結のときの気成期に特徴的、とされている(藤本・柴田、 19;新版地学事典、1996)。したがって、奈川鉱山周辺のペグマタイト脈、石英脈は、奈川花崗 岩マグマの結晶分化により生成した残液が固結したものである。このペグマタイト脈、石英脈 は、奈川鉱山周辺域に限らず、奈川花崗岩の上盤を構成する堆積岩層の中に、広く存在してい るものと推定される。事実、河床堆積物における高ヒ素濃度・高ビスマス濃度が入山宿から奈 川渡一稲核間の梓川南岸地域に認められる(図 4-(4)-1、図 4-(4)-3)。

## 6 考察

奈川簡易水道の水に認められたヒ素濃度の基準値超過は、水源地周辺にヒ素を高濃度に含む岩石(ペグマタイトや石英脈)が分布している、という地質特性によることが明らかである。

それは

①ヒ素濃度基準値超過の水道の水源地が、奈川東側の入山、古宿、正沢水源地に限られること。

②入山、古宿、正沢地域の地質は、奈川花崗岩体の上盤に位置する堆積岩層からなり、それ らは奈川花崗岩由来のペグマタイト脈、石英脈の貫入をうけていること。

③それらペグマタイト・石英脈は、ヒ素、ビスマス、タングステンの鉱化作用をともない、 砒鉄鉱などのヒ素鉱物を産すること。

④奈川東側の入山、古宿、正沢地域の河川堆積物のヒ素濃度は、奈川西側、南部地域と比較 して、明瞭に高いこと。

水源地から湧出する原水にヒ素が混入するにいたる具体的なプロセスは、水の移動・集 水経路が不明なため明らかではないが、おそらくヒ素を高濃度に含む岩石の裂罅や堆積物内を 移動する過程で、ヒ素を溶かし込んだものと推定される。

奈川東側地域には砒鉄鉱を含むペグマタイト、石英脈が分布する、という地質特性に加えて、 ヒ素の、鉱物から水への溶解を一層促進させた原因として、断層破砕帯の存在が考えられる。 奈川東側地区、古宿付近には大活断層である境峠断層(仁科、1982)が南北に走っている。境 峠断層にそって、破砕帯が幅広く(断層の前後1km程度)発達している(中島・大塚、2008)。 破砕帯では岩石の破壊が著しいため、岩石中の砒鉄鉱が変質し、鉱物からヒ素が溶脱しやすく なっているものと推測される。

## 7 結論

奈川簡易水道におけるヒ素濃度基準値超過は、水源地の地質の特性に帰される。

すなわち、水源のある奈川東山では、奈川花崗岩体が分布している。花崗岩マグマ固結時に マグマの残液である高温熱水が、花崗岩の上方に位置する頁岩・砂岩中に貫入し、ペグマタイ ト脈や石英脈を生成した。それらの脈には、砒鉄鉱などのヒ素を含む鉱物がふくまれていた。

その砒鉄鉱などのヒ素鉱物が、風化により分解して水に溶けこみ、水道水のヒ素濃度基準値 超過の原因となったと推定される。

#### 8 提言

奈川地域簡易水道の水源として最も安全で利用が望ましいのは、奈川花崗岩が分布しない、 奈川西側にある水源地(川原、二の沢(保平)、駒ヶ原水源地)である。それらの水源利用に対 して、水量や配水距離上の難点がある場合は、次善策としては、奈川南部の木曽路原、寄合渡 水源を利用することが考えられる。奈川南部地域(寄合渡以南)にも奈川花崗岩が分布してい るが、その地域の花崗岩は奈川花崗岩のなかの深部相(すなわち、花崗岩マグマから早期に晶 出・固結した岩石)なので、ヒ素やタングステンの鉱化作用を伴っていない。花崗岩地域にも かかわらず、木曽路原、寄合渡水源からの原水のヒ素濃度が高くないのは、そのためと考えら れる。

入山、古宿、正沢水源に関しては、水源地が奈川花崗岩体の上盤となる堆積岩層に位置して いる。その堆積岩層は、ヒ素とビスマス、タングステンの鉱化作用をともなうペグマタイト脈 と石英脈の貫入をうけている。それらペグマタイト・石英脈は、ミヤ沢の旧奈川鉱山周辺にと どまらず、おそらく奈川花崗岩体の上盤部分の全域に分布していると推定される。これら水源 地から原水へのヒ素の混入は微量ではあるが今後も続くと予想され、したがって入山、古宿、 正沢水源の利用再開には慎重な検討と対策が必要である。

## 文献

- ・地学団体研究会(1996)新版地学事典 平凡社、1443p.
- ・藤本治義・柴田秀賢(1966) 地質学ハンドブック 朝倉書店、601p.
- ・河田清雄(1961) 5万分の一地質図幅「付知」および同説明書 地質調査所、69p.
- ・工業技術院地質調査所(1976)地球科学的試料の化学分析法1 地質調査所
- ・長野県地学会(1962) 20万分の1長野県地質図説明書
- ・長島乙吉・長島弘三(1960) 日本希元素鉱物 長島乙吉先生祝賀記念事業会
- ・中野俊・大塚勉・足立守・原山智・吉岡敏和 (1995) 乗鞍岳地域の地質
  地域地質研究報告(5万分の1地質図幅)、地質調査所、139p.
- ・中島由記子・大塚勉(2008) 境峠断層屈曲部における大規模破砕帯の構造と形成過程 信州大学環境科学年報 30 号、103-112.
- ・仁科良夫 (1982) 境峠断層について 長野県地学研究報告集、No2、31-34.
- ・産業技術総合研究所地質調査総合センター(2004)日本の地球化学図 209p.
- ・八木貞助 (1946) 概説信濃の地下資源 信濃毎日新聞社