



総 説

日本の油・ガス田におけるかん水の水質形成機構
—続成変質による間隙水の進化—

村 松 容 —¹⁾*

(平成 31 年 4 月 3 日受付, 令和元年 5 月 27 日受理)

Formation Mechanism of Brines from
the Oil and Gas Fields in Japan
—Diagenetic Evolution of Pore Water—

Yoichi MURAMATSU¹⁾*

Abstract

The chemical and stable isotopic compositions reported previously for brines from the oil and gas fields in the Niigata, Nagaoka, Sarukawa, Yabase, Yurihara, Amarume, Barato, Atsuma and Tenpoku areas, were analyzed to clarify the diagenetic evolution of pore water in the marine muddy sediments. The pore water originates through mixing of Na-HCO₃ type in local meteoric water origin and sea water. The brines have generally low concentrations of Ca²⁺, Mg²⁺ and SO₄²⁻, and higher concentration of Na⁺ than those of the present sea water, and also positive and negative relations between δ¹⁸O value and Cl⁻ concentration. The chemical compositions can be reasonably explained by the following diagenetic processes ; Sulphate reduction process, calcite precipitation, reaction of volcanic material to form smectite, ion exchange of smectite, and smectite-illite transition. The positive relation between δ¹⁸O value and Cl⁻ concentration reflects pervasive reaction of volcanic material to form smectite in the brines from the Niigata, Sarukawa and Yabase areas. Meanwhile, the negative relation results from smectite-illite transition in the brines from the Niigata, Nagaoka, Sarukawa, Yabase, Yurihara, Barato, Atsuma and Tenpoku areas. It is possible to apply the diagenetic evolution reported previously for the chloride hot spring waters from the Kanto Plain and the brines from the water-dissolved gas fields in Japan, to the oil and gas fields in Japan.

Key words : oil and gas fields, brine, pore water, diagenetic evolution, smectite, illite

¹⁾東京理科大学工学部教養科 〒278-8510 千葉県野田市山崎 2641. ¹⁾Department of Liberal Arts, Faculty of Science and Technology, Tokyo University of Science, 2641 Yamazaki, Noda, Chiba 278-8510, Japan. *Corresponding author : E-mail muramatu@rs.noda.tus.ac.jp, TEL & FAX : 047-347-0621.

要 旨

新潟、長岡、申川、八橋、由利原、余目、茨戸、厚真、天北地域の構造性油ガス田に産するかん水を対象に、主成分と安定同位体比の公表データを用いて水質形成機構を検討した。かん水は海水と $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水が混合したもので、総じて Ca^{2+} , Mg^{2+} , SO_4^{2-} に乏しく Na^+ にやや富む。新潟、長岡、申川、八橋、由利原地域の熱分解ガスを伴う多くのかん水の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度は明瞭な逆相関を示す一方、新潟、申川、八橋地域の一部の微生物ガスを伴うかん水には正相関が認められ、現海水付近の Cl^- 濃度における $\delta^{18}\text{O}$ 値はややマイナスである。これらの特徴は海底泥質堆積物の泥岩化過程で進行する埋没続成変質による間隙水の進化によって次のように合理的に説明され、地下変質鉱物と整合する。地下に浸透した降水が火山性物質の $\text{Na}-\text{スメクタイト}$ 化を受けて生成した $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水により海水が種々の程度に希釈され、有機物を含む海底泥質堆積物に閉じ込められた。その後、間隙水は微生物起源メタン生成期までに硫酸還元反応、方解石生成、火山性物質の $\text{Mg}-\text{スメクタイト}$ 化、イオン交換反応の影響を受けた。熱分解起源メタン生成期になると、新潟、長岡（椎谷・七谷層）、申川（一部）、八橋（女川層）、由利原（女川・西黒沢層）、茨戸（盤の沢層）、厚真、天北地域の間隙水はスメクタイトのイライト化の影響を受けた。このような構造性油ガス田かん水の水質形成機構は関東平野、石狩低地帯、新潟平野、糸魚川—静岡構造線南部、中央構造線地域の塩化物泉および水溶性ガス田かん水に共通し、有機物を含む海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水を起源にする塩化物泉、油ガス田かん水に広く適用可能である。

キーワード：油・ガス田、かん水、間隙水、続成変質、スメクタイト、イライト

1. はじめに

我が国の主要な油ガス田は新潟・秋田両県に分布しており、水溶性ガスは地下浅部に、構造性油ガスは深部にそれぞれ胚胎する（加藤，2014）。関東平野、石狩低地帯、新潟平野、糸魚川—静岡構造線南部、中央構造線地域に分布する非火山性塩化物泉の水質は有機物を含む海底泥質堆積物の間隙水が続成変質の進化過程で形成されたものであり、その水質形成機構は水溶性ガス田かん水にも適用できることが明らかにされている（村松ら，2016a, b, c；村松，2017, 2018）。一方、構造性油ガス田かん水の水質・同位体組成および起源に関しては多くの研究報告（加藤・梶原，1986；加藤ら，2000；加藤，1986, 2014 等）が行われているが、水質形成機構の十分な解明には至っていない。新潟平野では石油・天然ガスの掘削が温泉地の増加に大きな役割を果たしてきた。これらのエネルギー資源の確保を目的とした掘削によって採取された塩化物泉のなかには天然ガスを付随し、また石油臭もあることから、塩化物泉の水質形成機構は石油・天然ガスの成因と併せて検討する必要がある（佐藤，1973）。

本研究では、構造性の原油・天然ガスを生産している新潟県の新潟、長岡地域、秋田県の申川、八橋、由利原地域、山形県の余目地域、および探査・掘削によって油ガス田が発見されている北海道の茨戸、厚真、天北地域の油ガス田を対象に、かん水の主成分と安定同位体比に関する公表データを文献収集し、海底泥質堆積物の続成変質による間隙水の進化の視点で、かん水をもたらした根源岩における間隙水の水質形成機構を検討した。その結果、非火山性塩化物泉および水溶性ガス田かん水に共通する水質形成機構がこれらの油ガス田かん水においても成立することが明らかになったので報告する。なお、本論では、新潟県の岩船沖・阿賀沖・東新潟油ガス田、平木田・新胎内・紫雲寺ガス田からなる地域を新潟地域、見附油田、藤川・雲出・片貝ガス田、吉井油ガス田からなる地域を長岡地域、秋田県の申川・八森・橋本・西大湯・福川・福米沢油田、美野ガス田からなる地域を申川地域、黒川・八橋油田からなる地域を八橋地域、鮎川・由利原油ガス田からなる地域を由利原地域、山形県の余目・吹浦油田、東余目ガス田からなる地域を余目地域、北海道の茨戸・厚田・石狩油田からなる地域を茨戸地域、振老・軽舞（野安部を含む）油田からなる地域を厚真地域、

声間・勇知・増幌・目梨油田，豊富油ガス田（北豊富・福永・豊富油田，豊富ガス田）からなる地域を天北地域とそれぞれ呼称する。

2. 地質および貯留岩概要

新潟，長岡，申川，八橋，由利原，余目，茨戸，厚真，天北地域の構造性油ガス田の地質および貯留岩を概述する (Fig. 1).

新潟，長岡地域 (Fig. 1a) の地下地質は中新世の七谷層 (泥岩)，寺泊層，椎谷層 (砂岩泥岩互層)，鮮新世の西山層 (泥岩，砂岩)，魚沼層群，灰爪層 (砂岩，泥岩) からなり，各層は凝灰岩層を挟在する (小林・大野，1988)。このうち，地下浅部に胚胎する東新潟水溶性ガスは魚沼層群，灰爪層，西山層 (砂岩，礫岩) を主要貯留岩にする一方，地下深部の構造性油ガスは寺泊層～七谷層 (泥岩) を主要根源岩，西山層，椎谷層，七谷層 (砂岩，凝灰岩) を主要貯留岩にしている (関口ら，1984；小松，1988；徳橋・金子，2003；早稲田ら，2011)。岩船沖，東新潟，吉井油ガス田の累積産油量と累積産ガス量はそれぞれ約 536 万 kl と約 38 億 m³，約 355 万 kl と約 99 億 m³，約 227 万 kl と約 120 億 m³，また見附油田の累積産油量は約 183 万 kl，片貝ガス田の累積産ガス量は約 94 億 m³ と試算される (天然ガス鉱業会，2017)。

申川，八橋，由利原地域 (Fig. 1b) は秋田県八峰町から由利本庄市に位置し，地下地質は下位から中新世の西黒沢層，女川層，中新世～鮮新世の船川層，鮮新世～更新世の天徳寺層，更新世の笹岡層の順に堆積する (加藤，2014)。このうち，申川地域は下部天徳寺層，船川層，女川層 (田口，1989)，由利原地域は船川層最下部，女川層上部を主要根源岩にしている (早稲田・重川，1990)。

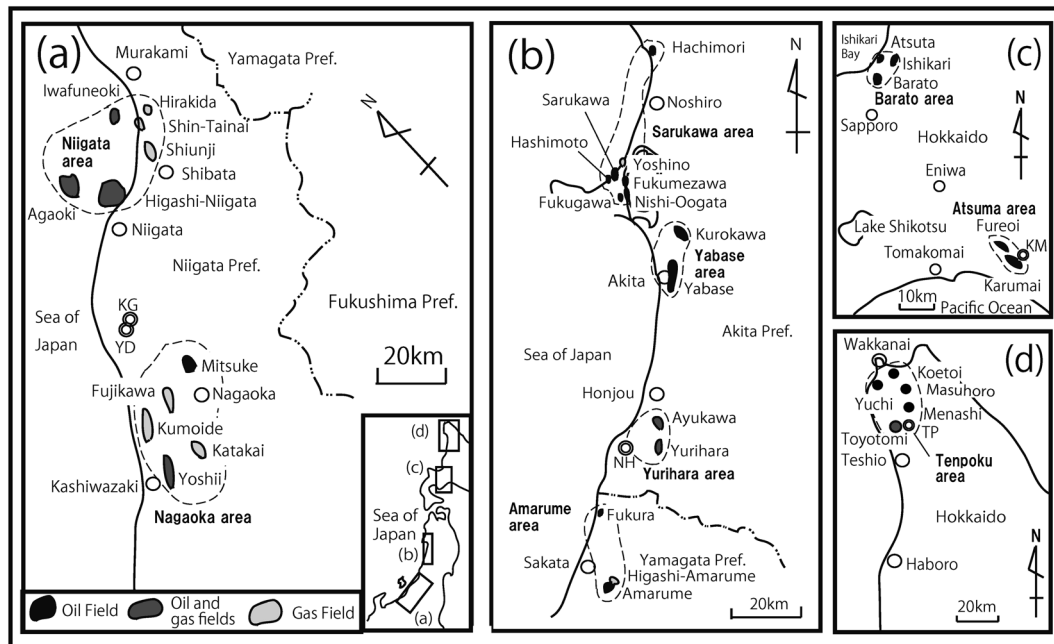


Fig. 1 Location of the oil and gas fields. (a) Niigata and Nagaoka areas, (b) Sarukawa, Yabase, Yurihara and Amarume areas, (c) Barato and Atsuma areas, (d) Tenpoku area. KG, Kambara GS-1 observation well ; YD, MITI Yoshida exploratory well ; NH, Nikaho exploratory well ; KM, MITI Karumai exploratory well ; TP, MITI Tenpoku exploratory well.

八橋地域の黒川油田は女川層(凝灰岩)を主要貯留岩にしている(加藤, 2014; 本島, 1955)。一方, 八橋油田は下部天徳寺層(砂岩)と船川層(凝灰岩)を浅部貯留岩, 女川層(凝灰岩)を深部貯留岩とし, これらの貯留岩より深部にある熟成の進んだ女川層, 西黒沢層の泥質岩を根源岩にしている(平井ら, 1990)。申川油田の累積産油量は約 254 万 kl, 由利原油田は約 169 万 kl, 黒川油田は約 122 万 kl, 八橋油田は約 572 万 kl (日本一)と試算される(天然ガス鉱業会, 2017; 金子, 2009)。

余目地域 (Fig. 1b) は山形県庄内平野に位置し, 地下地質は下位から中新世の青沢層(西黒沢層相当層; 玄武岩), 草薙層(女川層相当層; 泥岩), 中新世~鮮新世の北俣層(船川層相当層; 泥岩), 鮮新世~更新世の楯山層(下部天徳寺層相当層; 泥岩), 更新世の丸山層(上部天徳寺層相当層; 泥岩)が整合で重なり, さらに更新世の観音寺層(笹岡層相当層; 砂岩)が不整合に覆う(佐藤ら, 1989; 佐賀・加藤, 1992; 加藤ら, 2013)。余目地域の油ガス田は北俣層, 丸山層を主要貯留岩にし(鬼塚, 1964; 加藤ら, 2000), 累積産油量は約 71 万 kl, 累積産ガス量は約 3 億 m³と試算される(天然ガス鉱業会, 2012)。

茨戸地域 (Fig. 1c) は北海道石狩低地帯に位置し, 下位より中新世の厚田層(泥灰岩球を含み, 砂岩を挟む泥岩), 盤の沢層(砂岩を挟む泥岩), 望来層(泥灰岩球を含む泥岩; 石村ら, 2005), 鮮新世の当別層(泥岩砂岩互層), 滝川層(砂岩, 礫岩)に第四系が覆う。茨戸油田は望来層最上部(深度 400m 層の泥灰岩を含むシルト岩・硬質頁岩を挟む砂岩), 石狩・厚田油田は盤の沢層最上部(深度 1,180m 層の砂岩)をそれぞれ主要貯留岩にしており, $\delta^{13}\text{C}$ によるケロジェンと原油の対比によれば, 望来層, 盤の沢層, 厚田層の大部分の層準が茨戸油田の根源岩となり, 石狩, 厚田油田も同様である(重川ら, 1990)。茨戸油田の累積産油量は約 8.5 万 kl と試算される(吾妻, 1966; 重川ら, 1990)。

厚真地域 (Fig. 1c) は北海道勇払平野にあり, 勇払油ガス田の東方約 20 km に位置する。地下地質を石油公団が掘削した基礎試錐「軽舞」(Fig. 1c の KM) でみると, 中新世の軽舞層(頁岩, 砂岩泥岩互層)が地表から深度 960 m まで, 振老層(川端層準; 砂岩泥岩互層)が深度 1,769 m まで続く(吉田ら, 2007)。振老油田は約 70~600 m, 軽舞油田は深度 350~750 m の軽舞層および振老層(砂岩)を主要貯留岩にしており, 振老・軽舞油田の累積産油量はそれぞれ約 5.9 万 kl, 約 6.5 万 kl と試算される(松野・石田, 1960)。

天北地域 (Fig. 1d) は北海道北部に位置する。地下地質は中新世の増幌層(砂岩泥岩礫岩互層), 稚内層(頁岩泥岩互層), 声問層からなり, 石油公団が掘削した基礎試錐「天北」(孔底深度 5,050 m; Fig. 1d の TP) では声問層が地表から深度 248 m まで, 稚内層が深度 1,271 m まで, 増幌層が深度 2,247 m まで続く(栗田・小布施, 1997)。稚内・声問・増幌・目梨・勇知・北豊富油田の総累積産油量は約 1.6 万 kl, 豊富ガス田の累積産ガス量は約 2 億 m³と試算され, 増幌層(頁岩, 泥岩)を主要根源岩, 増幌層(砂岩, 凝灰岩)を主要貯留岩にしている(広岡, 1962; 長尾, 1969)。

以後, 各地域で貯留岩の層準を限定する場合には由利原地域(女川・西黒沢層), 東新潟油ガス田(西山・椎谷層)の如く, 地域および油ガス田の後に括弧付きで対象層準を記載する。

3. 研究方法

新潟, 長岡, 申川, 八橋, 由利原, 余目, 茨戸, 厚真, 天北地域の油ガス田に産するかん水の主成分および安定同位体比の分析データの典拠と油ガス田の位置を Appendix 1 と Fig. 1 にそれぞれ示す。新潟, 長岡地域の公表論文は加藤・梶原(1986), 加藤ら(2014), 加藤(2018), 申川地域は加藤ら(2000), 加藤(2014), 八橋地域は本島ら(1960), 加藤(2014), Shigeno and Abe(1982), 由利原地域は加藤ら(2000), 加藤(2014), 余目地域は加藤ら(2000), 茨戸地域は吾妻(1966),

太秦・那須 (1960), 二間瀬 (1974), 厚真地域は太秦・那須 (1960), 二間瀬 (1974), 天北地域は太秦・那須 (1960), 二間瀬 (1974), 松波 (1993), 松葉谷ら (1978) 等をそれぞれ用いた. かん水の主成分分析値は電荷バランス 8% 以下のデータを使用した.

4. かん水の水質特性

新潟, 長岡, 申川, 八橋, 由利原, 余目, 茨戸, 厚真, 天北地域の油ガス田に産するかん水のトリリニアダイアグラムを Fig. 2 に, SO_4^{2-} と Cl^- 濃度および Na^+ と Cl^- 濃度の関係を Fig. 3 に示す. これらのかん水は Mg^{2+} と SO_4^{2-} に乏しく, 多くは SO_4^{2-} を含まず, また長岡・由利原地域を除けば Ca^{2+} に乏しい傾向にある. ほとんどのかん水の Na^+/Cl^- 濃度比は現海水付近ないしそれより高い.

5. 続成変質による間隙水の進化

5.1 海底泥質堆積物における間隙水の形成

新潟県西蒲原で掘削した蒲原 GS1 井 (Fig. 1a の KG; 孔底深度 3,701 m) の深度 1,029~3,701 m (魚沼層群, 和名津層, 灰爪層, 西山層, 椎谷層) の泥質岩コアから Cl^- 濃度 3,390~13,430 mg/L の間隙水が得られている (石和田ら, 1964). このような海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水の Cl^- 濃度が現海水より低くなる要因として, 降水起源水による希釈, スメクタイトーイライト変

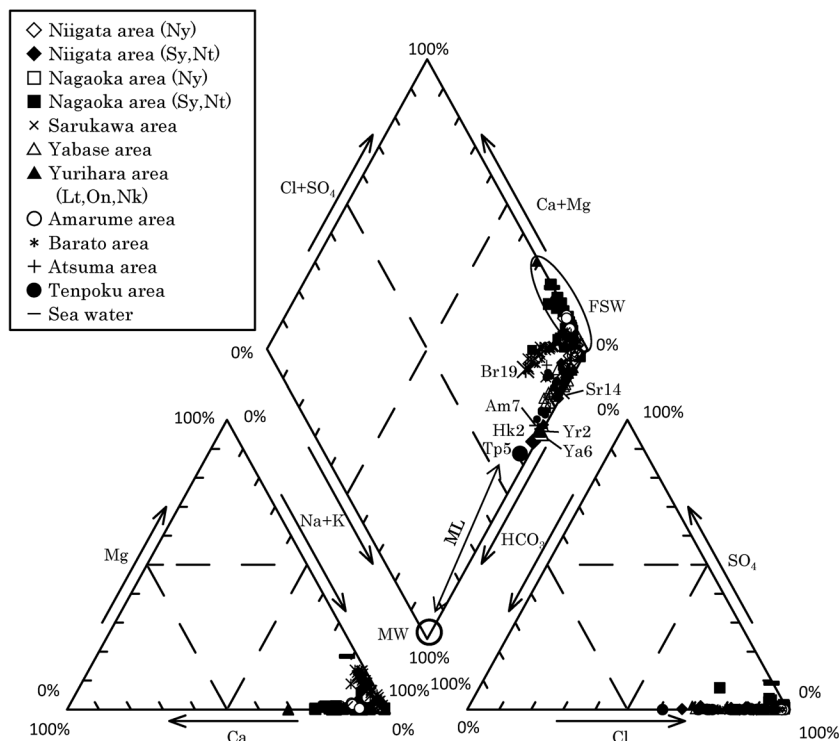


Fig. 2 Trilinear diagram for the brines from the oil and gas fields. The ML shows the fossil sea water (FSW)- $\text{Na}-\text{HCO}_3$ type water (MW) mixing line. The well location numbers and Ny, Sy, Nt, Lt, On and Nk are the same as in Appendix 1.

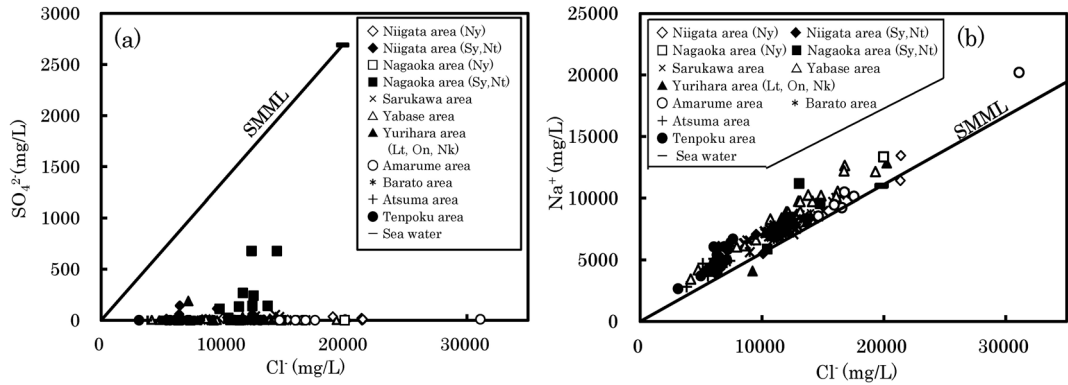


Fig. 3 (a) SO_4^{2-} - Cl^- (b) Na^+ - Cl^- diagrams for the brines from the oil and gas fields. The well location numbers and Ny, Sy, Nt, Lt, On and Nk are the same as in Appendix 1. The SMML shows the sea water-meteoric water mixing line.

換による層間水の脱水反応 (Dählmann and Lange, 2003) があげられる. このうち, 新潟地域の基礎試錐「吉田」(同 YD; 同 5,006 m) では地表から深度 4,000 m までスメクタイトが分布しており (佐々木ら, 1982), その近くの蒲原 GS1 井でコア間隙水が採取された深度範囲にもスメクタイトが分布すると予想され, 後者は要因にならない. 同様に, 八橋地域の黒川油田の R144 号井 (孔底深度約 450 m) でも深度 350 m (女川層) の珪質頁岩コアから Cl^- 濃度 9,180 mg/L の間隙水が得られているが (本島, 1955), Kr3 井でスメクタイトのイライト化は進行していない (5.2.2 項). 以上の結果, およびこれらの現海水より低い Cl^- 濃度の間隙水が閉じ込められている層準は新潟, 長岡, 申川, 八橋, 由利原地域の根源岩になっていることから, 降水起源水により種々の程度に海水が希釈された間隙水が埋没過程で海底泥質堆積物に閉じ込められた後, 断層等を介して貯留岩に移動・貯留されたと推察される.

次に, この降水起源水の水質を検討する. トリリニアダイアグラムによれば, 全かん水のなかで比較的 HCO_3^- に富む新潟 (稚谷・七谷層), 申川, 八橋, 由利原 (女川・西黒沢層), 茨戸, 厚真, 天北地域の一部のかん水 (Hk2, Sr14, Ya6, Yr2, Br19, Am7, Tp5 等) は化石海水 (FSW) と $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水 (MW; 大白丸) の混合ライン (ML) 付近にプロットされ (Fig. 2), 海水を希釈した降水起源水は $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型であることがわかる. このようなかん水への $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水の関与は新潟, 長岡, 申川, 由利原, 余目地域で報告されており (加藤・梶原, 1986; 加藤ら, 2000), $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水は高標高地域から地下に涵養された降水が火山性物質の Na -スメクタイト化を受けて生成したと推察される (村松ら, 2016a, b).

以下には, 埋没続成変質作用による間隙水の進化の視点で, 全地域のかん水をもたらしした海底泥質堆積物 (根源岩) に閉じ込められた間隙水の水質形成機構を検討する.

5.2 続成変質による間隙水の進化

かん水に含まれる化学成分の起源を検討するにあたっては, 海水の当該成分に対する過剰・欠損量を求める必要がある. 試料の Cl^- は海水起源であることから, 次式より試料の過剰・欠損する M 成分の濃度を算出した.

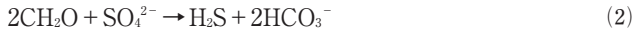
$$\Delta[M] = [M] - [M/\text{Cl}]_{\text{sea}} \times [\text{Cl}] \quad (1)$$

ここで, $\Delta[M]$: 試料の過剰・欠損する M 成分量, $[M]$: 試料の M 成分の濃度, $[M/\text{Cl}]_{\text{sea}}$: 海水の Cl^- に対する M 成分の濃度, $[\text{Cl}]$: 試料の Cl^- 濃度.

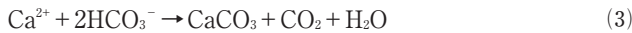
海底泥質堆積物の続成作用による泥岩化には、間隙水の移動のほか、微生物の活動、有機物の分解、海底風化変質作用、粘土鉱物の変換が深く関わっている。

5.2.1 硫酸還元反応および方解石生成

かん水の多くは SO_4^{2-} を含まないことから、埋没過程で海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水は初期続成期に硫酸還元菌による硫酸還元反応によって SO_4^{2-} が消費されて硫酸還元菌の活動を総じて終えたと判断される。



この硫酸還元菌活動期に、(2)式で生成した間隙水の HCO_3^- は Ca^{2+} と反応してコンクリーションの核等になる方解石の生成に消費される (平, 2004; 石村ら, 2005)。



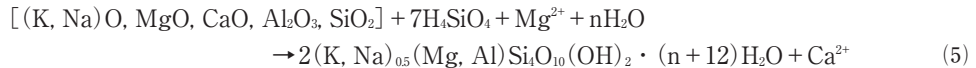
さらに埋没が進んでメタン生成菌が活発な環境になると、堆積物に残っている有機物は他の微生物により分解されて二酸化炭素と水素を出し、メタン生成菌によって使われて微生物起源メタンが生成する (平, 2004)。



炭化水素および炭素安定同位体組成によれば、新潟地域の新胎内ガス田、東新潟油ガス田 (西山・椎谷層)、紫雲寺ガス田 (西山・七谷層)、申川地域の申川・西大湯・福米沢油田、美野ガス田、八橋地域の八橋油田のメタンは微生物起源と熱分解起源の混合、および熱分解起源からなり、新潟地域では浅部ほど微生物起源の割合が高い (Igari and Sakata, 1988; 早稲田・重川, 1988, 1990; 早稲田・岩野, 2007; 早稲田ら, 2011)。

5.2.2 火山性物質の Mg—スメクタイト化

海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水は海底風化変質作用の影響を受ける。硫酸還元反応および方解石生成後の Ca^{2+} 過剰量を ΦCa^{2+} ($\Phi Ca^{2+} = \Delta Ca^{2+} - \Delta SO_4^{2-}$) とおくと、全地域のかん水の ΦCa^{2+} と ΔMg^{2+} 濃度間に逆相関が認められ (Fig. 4a), 火山性物質の Mg—スメクタイト化の影響を受けたことが示唆される (Lawrence *et al.*, 1975; Scholz *et al.*, 2013)。



新潟、長岡地域 (雲出, 見附・藤川, 吉井・片貝) の油ガス田かん水における $\delta^{18}O$, δD 値, Cl^- 濃度の関係を、新潟水溶性ガス田かん水 (中井ら, 1974) と併せて Figs. 5a, 6a に示す。現海水付近

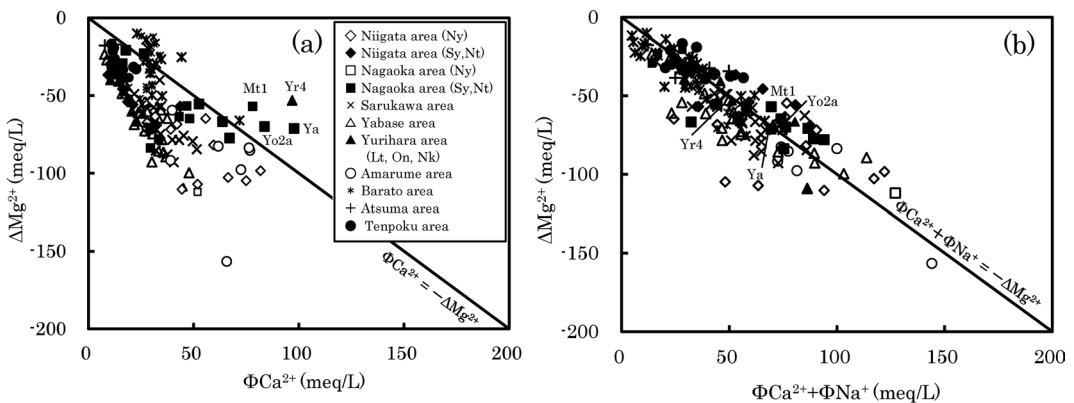


Fig. 4 (a) $\Phi Ca^{2+} - \Delta Mg^{2+}$ (b) $(\Phi Ca^{2+} + \Phi Na^+) - \Delta Mg^{2+}$ diagrams for the brines from the oil and gas fields. The well location numbers and Sy, Ny, Nt, Lt, On and Nk are the same as in Appendix 1.

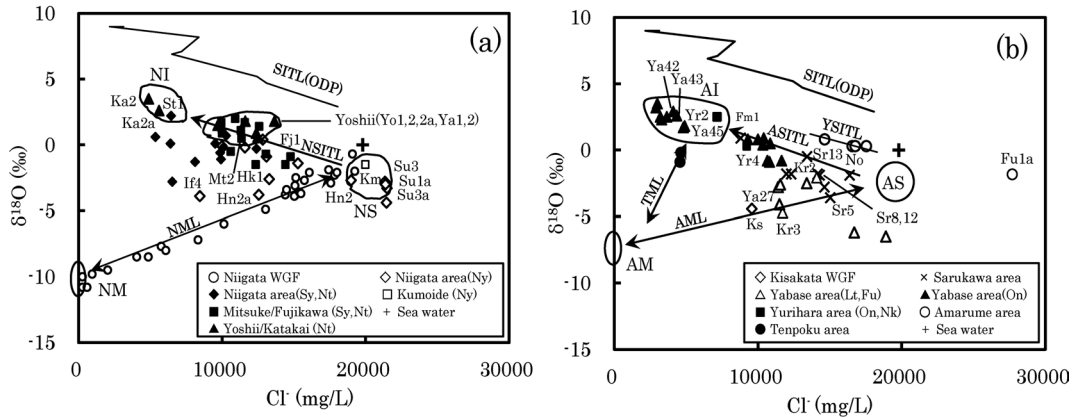


Fig. 5 $\delta^{18}\text{O}-\text{Cl}^-$ diagrams for the brines from the oil and gas fields. (a) Niigata and Nagaoka areas, (b) Sarukawa, Yabase, Yurihara, Amarume and Tenpoku areas. The well location numbers and Ny, Sy, Nt, Lt, Fu, On and Nk are the same as in Appendix 1. The NM and AM show the meteoric waters from the Niigata, and saruka and Yabase areas, respectively. The NS and AS show the fossil sea water equilibrated with smectite in the Niigata, and Sarukawa and Yabase areas, respectively. WGF, water-dissolved gas field. The NI and AI show the fossil sea water equilibrated with illite predominant interstratified illite/smectite minerals or illite in the Niigata and Nagaoka areas, and Sarukawa, Yabase and Yurihara areas, respectively. The NML and AML show the mixing lines of the meteoric water and the fossil sea waters equilibrated with smectite in the Niigata area, and Sarukawa and Yabase areas, respectively. The TML shows the mixing line of the meteoric water and the fossil sea water equilibrated with illite predominant interstratified illite/smectite minerals or illite in the Tenpoku area. The SITL (ODP), NSITL, ASITL and YSITL show the transitional trends of smectite to illite in the ODP project (Dählmann and Lange, 2003), Niigata and Nagaoka areas, Sarukawa, Yabase and Yurihara areas, and Amarume area, respectively.

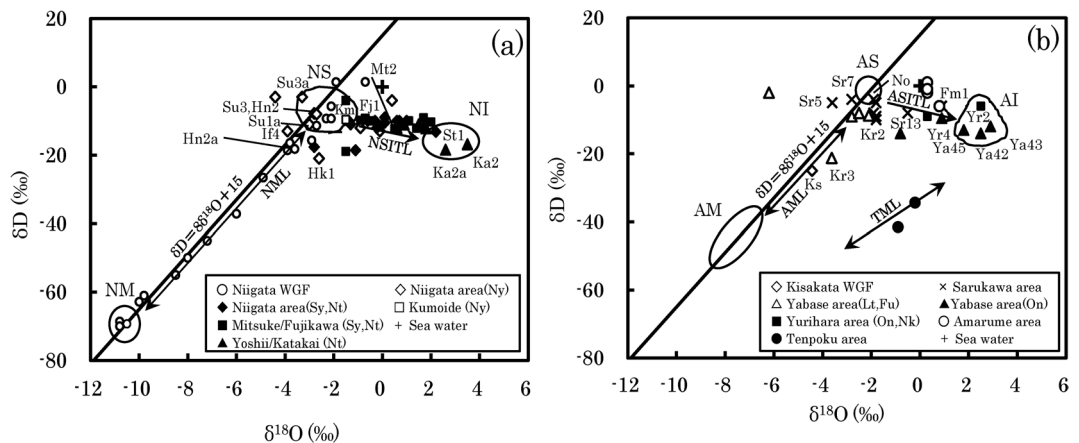


Fig. 6 $\delta^{18}\text{O}-\delta\text{D}$ diagrams for the brines from the oil and gas fields. (a) Niigata and Nagaoka areas, (b) Sarukawa, Yabase, Yurihara, Amarume and Tenpoku areas. WGF is the same as in Fig. 5. The well location numbers and Ny, Sy, Nt, Lt, Fu, On and Nk are the same as in Appendix 1. The NM, AM, NS, AS, NI, AI, NML, AML, TML, NSITL and ASITL show the same as in Fig. 5.

の Cl^- 濃度をもつ新潟水溶性ガス田のかん水に認められるややマイナスの $\delta^{18}\text{O}$ 値 ($-2.9\sim-0.7\text{‰}$) は、海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水 (海水) が周辺の堆積物を構成する火山性物質の ^{18}O に富む Mg—スメクタイト化の影響を受けたことに起因することが報告されている (Fig. 5a; 村松, 2018). Figure 5a からわかるように、現海水付近の Cl^- 濃度をもつ紫雲寺ガス田 (西山層), 東新潟油ガス田 (西山層), 雲出ガス田 (西山層) のかん水 (Su1a, 3, 3a, Hn2, Km; 端成分 NS) の $\delta^{18}\text{O}$ 値もややマイナスを示しており、同様の解釈が成り立つ. $\delta^{18}\text{O}-\delta\text{D}$ 値の関係でみると、これらの油ガス田かん水は新潟水溶性ガス田とともに天水線 ($\delta\text{D}=8\delta^{18}\text{O}+15$) 付近にプロットされる (Fig. 6a).

間隙水を閉じ込めた海底泥質堆積物に含まれるスメクタイトは $58\sim142^\circ\text{C}$ でイライトに変換する (Freed and Peacor, 1989). かん水をもたらした間隙水がスメクタイトのイライト化の影響を受けたか否かは $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度および ΔK^+ と Cl^- 濃度の関係を調べることによってクロスチェックできる (村松ら, 2016a, b; 村松, 2017). 微生物ガスを溶存する新潟水溶性ガス田かん水, および東新潟油ガス田 (西山層) かん水 (Hn2a) の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度は現海水付近の Cl^- 濃度をもつ端成分 NS と Na— HCO_3^- 型降水起源水の端成分 NM を結ぶ直線 NML 付近に、また $\delta^{18}\text{O}$ と δD 値はこの直線と同じ天水線 ($\delta\text{D}=8\delta^{18}\text{O}+15$) 付近にそれぞれプロットされ、間隙水は両端成分が混合したものである (Figs. 5a, 6a; 村松, 2018). このうちの端成分 NS にある油ガス田かん水をもたらした間隙水は海底泥質堆積物に閉じ込められた海水が火山性物質の Mg—スメクタイト化の影響を受けて変質したものであり、 ΔK^+ 濃度に認められる分散傾向は間隙水がスメクタイトのイライト化の影響を受けていないことを示唆する (Figs. 5a, 6a, 7a). 紫雲寺ガス田 (西山・七谷層), 東新潟油ガス田 (西山・椎谷層) のメタンは微生物起源と熱分解起源の混合からなり、上位層ほど微生物起源の割合が高くなるので (早稲田ら, 2011), 西山層のかん水は主に微生物ガスを付随すると考えられる. これらのことから、微生物ガスを溶存する新潟地域 (西山層) の油ガス田かん水をもたらした、スメクタイトと化学平衡な間隙水が直線 NML の端成分 NS 付近にプロットされることがわかる (Figs. 5a, 6a).

Figures 5b, 6b は申川, 八橋, 由利原, 余目, 天北地域のかん水 (Shigeno and Abe, 1982; 加藤ら, 2000; 加藤, 2014; 松葉谷ら, 1978) の $\delta^{18}\text{O}$, δD 値, Cl^- 濃度の関係を、象潟水溶性ガス田 (加藤, 2014), 地表水 (早稲田・中井, 1983) とともに示したものである. 申川, 八橋地域の一部のか

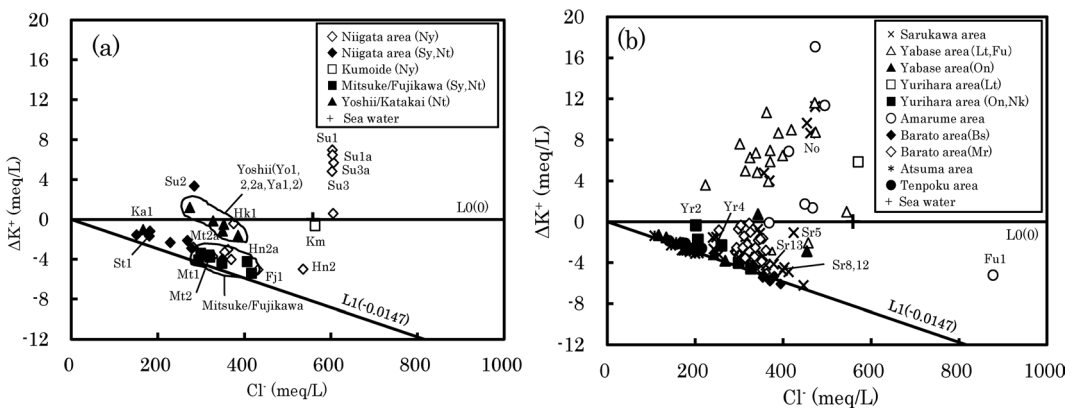


Fig. 7 $\Delta\text{K}^+-\text{Cl}^-$ diagrams for the brines from the oil and gas fields. (a) Niigata and Nagaoka areas. (b) Sarukawa, Yabase, Yurihara, Amarume, Barato, Atsuma and Tenpoku areas. The well location numbers and Ny, Sy, Nt, Lt, Fu, On, Nk, Bs and Mr are the same as in Appendix 1. The L0 (0) and L1 (-0.0147) see in text.

ん水 (Sr5, Ya27, Kr3) は Fig. 5b で現海水付近の Cl^- 濃度をもつ端成分 AS (仮想) と $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水の端成分 AM (仮想) を結ぶ直線 AML 付近に, またかん水 (Sr5, Kr3) は Fig. 6b でこの直線と同じ天水線 ($\delta\text{D}=88^{18}\text{O}+15$) 付近に, 象潟水溶性ガス田かん水 (Ks) とともにそれぞれプロットされ, 間隙水は両端成分が混合したものである. 端成分 AS (仮想) にある油ガス田かん水をもたらした間隙水の解釈は端成分 NS と同様であり, 端成分 AS はスメクタイトと化学平衡な状態にある. 申川, 八橋地域 (下部天徳寺・船川層), 茨戸 (望来層) 地域の多くのかん水における ΔK^+ と Cl^- 濃度の関係は直線 L1 (傾き -0.0147) から外れて直線 L0 (同 0) を挟むように分散しており (Fig. 7b), これらのかん水をもたらした間隙水は象潟水溶性ガス田 (村松, 2018) と同様に, スメクタイトのイライト化の影響を受けていない.

八橋油田 (女川層) のメタンは熱分解起源主体で微生物起源を僅かに混入していることから (Igari and Sakata, 1988), Figs. 5b, 6b で直線 AML 付近にプロットされる浅部の八橋油田 (下部天徳寺・船川層) かん水は主に微生物ガスを付随していると考えられる. 以上のことから, 直線 NML, AML 付近にプロットされる新潟, 秋田地域の油ガス田かん水をもたらした微生物起源メタンを溶存する間隙水はスメクタイトのイライト化の影響を受けていない.

5. 2. 3 イオン交換反応

硫酸還元反応および方解石生成の影響を受けている全地域のかん水の ΦCa^{2+} と ΔMg^{2+} 濃度間には逆相関が認められ, かん水をもたらした間隙水は火山性物質の Mg—スメクタイト化の影響を受けたことが示唆されたが, ほとんどのかん水は直線 $\Phi\text{Ca}^{2+} = -\Delta\text{Mg}^{2+}$ より ΦCa^{2+} に欠損する (Fig. 4a). 前述したように, 海底泥質堆積物中の間隙水は $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水と海水が混合したものであり, 全地域のほとんどのかん水の Na^+/Cl^- 濃度比は現海水より高い ($\Delta\text{Na}^+ > 0$; Fig. 3b). そこで, ΦCa^{2+} に火山性物質の Na—スメクタイト化後の Na^+ 量 ($\Phi\text{Na}^+ = \Delta\text{Na}^+ - \Delta\text{HCO}_3^-$) を加えた ($\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) と ΔMg^{2+} の関係をみると, 直線 ($\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) = $-\Delta\text{Mg}^{2+}$ 付近にプロットされる (Fig. 4b). したがって, 当該かん水をもたらした間隙水は $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水が関与した火山性物質の Na—スメクタイト化, 初期続成期における硫酸還元反応と方解石生成, 火山性物質の Mg—スメクタイト化に加えて, 海底泥質堆積物に含まれる Na—スメクタイトの陽イオン交換反応による Mg—スメクタイト化の影響を受けている.

一方, 長岡, 由利原, 茨戸地域の一部のかん水 (Mt1, Yo2a, Ya, Yr4 等) は ΦCa^{2+} と ΔMg^{2+} 間の関係で直線 $\Phi\text{Ca}^{2+} = -\Delta\text{Mg}^{2+}$ より ΦCa^{2+} にやや過剰である (Fig. 4a). 当該かん水の ΦNa^+ はマイナスを示し, ($\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) と ΔMg^{2+} の関係をみると直線 ($\Phi\text{Ca}^{2+} + \Phi\text{Na}^+$) = $-\Delta\text{Mg}^{2+}$ 付近にプロットされる (Fig. 4b). このことから, 間隙水は $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水が関与した火山性物質の Na—スメクタイト化, 硫酸還元反応と方解石生成, 火山性物質の Mg—スメクタイト化に加えて, 陽イオン交換反応による Ca—スメクタイトの Na—スメクタイト化の影響を受けている.

5. 2. 4 スメクタイトのイライト化作用

埋没深度が増加して地温が 70°C 近くの後期続成期になると微生物の活動は除々に低下し, 海底泥質堆積物の有機物はカルボキシル基を除去する熱分解反応を受けるようになり, 酢酸 CH_3COOH の場合にはメタンが生成される (平, 2004).



長岡地域 (藤川, 雲出, 吉井, 見附), 余目地域 (余目, 吹浦) のメタンは熱分解起源, 新潟地域 [新胎内, 東新潟 (西山・椎谷層), 紫雲寺 (西山・七谷層)] は深部ほど微生物起源に比して熱分解起源の割合が高い. また, 由利原地域 (女川・西黒沢層) は主に熱分解起源, 申川地域 (申川, 西大潟, 福米沢) と八橋地域 (八橋) は熱分解起源, および熱分解起源と微生物起源の混合からなる (Igari and Sakata, 1988; 早稲田・重川, 1988, 1990; 早稲田ら, 2011). 埋没深度がさらに増すと, 有機

物は熱的に熟成して原油になる (平, 2004).

1) 新潟, 長岡地域

新潟, 長岡地域 (見附・藤川, 吉井・片貝) における多くのかん水の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度は端成分 NS と NI (St1, Ka2, 2a が相当) を結ぶ直線 NSITL 付近にプロットされる (Fig. 5a). このような逆相関関係は加藤・梶原 (1986), 加藤 (2018) によって報告されており, 安田 (1996) は粘土鉱物の変換時に排出された水による希釈で説明している. 東地中海の泥火山で掘削回収された海底から深度 41.80 m 間のコア間隙水の Cl^- 濃度と $\delta^{18}\text{O}$ 値間には直線 SITL (ODP) の傾向が認められ, 主にスメクタイト→イライト変換に伴う層間水の脱水反応に起因する (Dahlmann and Lange, 2003). 直線 NSITL の勾配はそれに近いことから, 当該かん水をもたらした間隙水 (化石海水) はこの脱水反応の影響を受けている (Fig. 5a). すなわち, 埋没に伴う地温の上昇過程で, 海底泥質堆積物 (根源岩) 中の間隙水はスメクタイトに化学平衡な端成分 NS の間隙水 (化石海水) を出発点とし, イライト/スメクタイト (I/S) 混合層鉱物に化学平衡な間隙水 (吉井油ガス田の Yo1, 2, 2a, Ya1, 2 等) を経て最もイライトに卓越した I/S 混合層鉱物ないしイライトに化学平衡な端成分 NI の間隙水に進化した. $\delta^{18}\text{O}$ と δD 値の関係でみると, スメクタイトのイライト化が進行するに伴って間隙水は, 端成分 NS から NI に向けて直線 NSITL に沿って $\delta^{18}\text{O}$ 値を増加, δD 値を減少させる方向に進化した (Fig. 6a; 加藤・梶原, 1986; 加藤, 2018).

長岡地域の Km (西山層), Fj1 (椎谷層), Mt2 (七谷層) のかん水の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度の関係を見ると, この順に $\delta^{18}\text{O}$ 値の増加と Cl^- 濃度の減少傾向が認められ (Fig. 5a), 間隙水は地温上昇に起因したスメクタイトのイライト化の影響を下位層準ほど一層受けている. 新潟地域の新胎内, 東新潟油ガス田 (椎谷層), 紫雲寺ガス田 (七谷層), および長岡地域の吉井油ガス田, 藤川ガス田, 見附油田のメタンは熱分解起源と考えられている (早稲田・重川, 1988; 早稲田ら, 2011). したがって, 直線 NSITL 付近にプロットされるかん水をもたらした間隙水は熱分解起源メタン生成期にスメクタイトのイライト化の影響を受けたことが示唆される.

スメクタイトのイライト変換には地温勾配, 埋没速度, 同一温度の保持時間とともに K^+ の供給量が関係する (吉村, 2001).



かん水をもたらした間隙水がスメクタイトのイライト化の影響を受けると, かん水の ΔK^+ と Cl^- 濃度間には逆相関が認められる (村松ら, 2016a, b; 村松, 2017). Figure 7a からわかるように, 新潟地域 (椎谷・七谷層と一部の西山層) と長岡地域 (見附油田・藤川ガス田) のかん水 (Su2 を除く) の ΔK^+ と Cl^- 濃度には直線 L1 に近い逆相関が認められ, 間隙水がスメクタイトのイライト化の影響を受けていることを支持する. 例外として, 長岡地域の吉井油ガス田で ΔK^+ と Cl^- 濃度の逆相関が認められない理由は, 七谷層下位の吉井凝灰岩層 (貯留岩) に含まれるカリ長石 (氷長石) の溶解による間隙水への K^+ の付加が行われたためであろう (八幡・稲葉, 2014).

新潟, 長岡地域の間隙水におけるスメクタイトのイライト化の影響はスメクタイト, イライトの地下分布と整合する. すなわち, 新潟地域 (西山・椎谷層) に産する熱分解起源のメタンは寺泊層下部~七谷層 (泥岩) で生成した後, 上方移動してきたと考えられている (早稲田・重川, 1988). 東新潟油ガス田の NS-13 号井の掘削時に回収されたコアの X 線分析によれば, 産ガス能力が高い深度 2,900 m 付近の椎谷層 (凝灰岩, 砂岩) はイライトを主としスメクタイトは僅かに過ぎないことから, さらに深部の熱分解ガスを溶存した間隙水をもたらした根源岩にはイライトが分布すると予想される (保泉, 1968). また, 吉井油ガス田の Yo2 井は七谷層 (深度 2,483~2,590 m) を坑井仕上げ区間にしており (加藤・梶原, 1986), 近傍の坑井 (SK-9D) の七谷層 (深度約 2,370~2,462 m) にイライトおよび I/S 混合層鉱物が確認されている (八幡・稲葉, 2014).

2) 申川, 八橋, 由利原, 余目地域

申川, 八橋, 由利原地域のかん水における $\delta^{18}\text{O}$, δD 値, Cl^- 濃度の関係を Figs. 5b, 6b に示す. これらのかん水の端成分は SITL (ODP) に似た勾配をもつ直線 ASITL における化石海水の両端成分であるスメクタイトに化学平衡な AS (仮想) と最もイライトに卓越した I/S 混合層鉱物ないしイライトに化学平衡な AI (Ya42, 43, 45, Yr2 が相当), および $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水の端成分 AM (仮想) からなる (Fig. 5b). 由利原地域 (女川・西黒沢層), および申川, 八橋地域 (女川層) のかん水の多く (Yr4, Sr8, 12, 13 等) の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度は直線 ASITL 付近に (Fig. 5b; 加藤ら, 2000; 加藤, 2014), また ΔK^+ と Cl^- 濃度は直線 L1 付近にプロットされる (Fig. 7b). したがって, これらのかん水をもたらしした間隙水はスメクタイトのイライト化の影響を受けていると判断され, 由利原油・ガス田の北西約 15 km に位置する基礎試錐「仁賀保」(Fig. 1b の NH) の女川層 (深度 2,700 m 以深) に I/S 混合層鉱物が分布することと整合する (高倉, 2004). 例外として, 由利原地域 (女川・西黒沢層) の Yr2 の ΔK^+ 濃度はゼロ付近にある (Fig. 7b). この解釈として, Yr2 井の地下深部に分布する西黒沢層 (由利原玄武岩) には女川期の熱水変質帯であるカリ長石帯が縦断層沿いに存在することから (八幡ら, 2016), かん水をもたらしした間隙水が貯留岩に移動した後, カリ長石の溶解によって K^+ が付加した可能性が考えられる. なお, 余目地域のかん水は直線 SITL (ODP) に似た勾配をもつ直線 YSITL ないしその延長付近にプロットされるが, ΔK^+ と Cl^- 濃度間に逆相関関係は認められず, 間隙水がスメクタイトのイライト化の影響を受けているか否かは明らかでない (Figs. 5b, 7b; 加藤ら, 2000; 加藤, 2014).

八橋地域 (女川層) と由利原地域 (女川・西黒沢層) の付随ガスは熱分解主体であると推定されており (Igari and Sakata, 1988; 早稲田・重川, 1990), これらの地域でも熱分解起源メタン生成期にスメクタイトのイライト化が進行している.

3) 茨戸, 厚真, 天北地域

茨戸 (盤の沢層), 厚真, 天北地域のかん水の ΔK^+ と Cl^- 濃度は直線 L1 付近にプロットされ,

Table 1 Summary for the diagenetic evolution of pore water trapped in the marine muddy sediments of the oil and gas fields. The Ny, Sy, Nt, Lt, Fu, On, Nk, Bs and Mr are the same as in Appendix 1. Kr, Kurokawa oil field. Triangular, partly.

Dia-genetic stage	Diagenetic process	Compositional change of pore water	Oil and gas areas						
			Niigata	Nagaoka	Sarukawa	Yabase	Yurihara	Amarume, Atsuma, Tenpoku	Barato
Early stage	•Sulphate reduction	•Decrease of SO_4^{2-} concentration	○	○	○	○	○	○	○
	•Calcite precipitation	•Decreases of Ca^{2+} and HCO_3^- concentrations	○	○	○	○	○	○	○
	•Reaction of volcanic material to form Mg-smectite	•Decrease of Mg^{2+} concentration •Increase of Ca^{2+} concentration •Negative shift of $\delta^{18}\text{O}$ value	○	○	○	○	○	○	○
	•Ion exchange of Na-smectite to Mg-smectite	•Increase of Na^+ concentration •Decrease of Mg^{2+} concentration	○	○	○	○	○	○	○
	•Ion exchange of Ca-smectite to Na-smectite	•Increase of Ca^{2+} concentration •Decrease of Na^+ concentration	×	× (Ny) △ (Sy,Nt)	×	×	× (Lt) △ (On,Nk)	×	△
Late stage	•Smectite-illite transition	•Decreases of K^+ and Cl^- concentrations •Positive shift of $\delta^{18}\text{O}$ value	○	× (Ny) ○ (Sy,Nt)	△	× (Lt,Fu) ○ (On) × (Kr)	× (Lt) ○ (On,Nk)	? (Amarume) ○ (Atsuma, Tenpoku)	× (Mr) ○ (Bs)

間隙水はスメクタイトのイライト化の影響を受けていることが示唆される (Fig. 7b). Figures 5b, 6b からわかるように, 天北地域の豊富温泉における $\delta^{18}\text{O}$, δD 値, Cl^- 濃度 (松葉谷ら, 1978) は最もイライトに卓越した I/S 混合層鉱物ないしイライトに化学平衡な化石海水 (図示していない) と $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水 (同) を結ぶ直線 TML 付近にプロットされ, その解釈は次のようである. 海水と $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水の混合流体が海底泥質堆積物に閉じ込められた後, 間隙水は火山性物質の Mg -スメクタイト化を受けた. その結果, $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水 (同) とスメクタイトに化学平衡な化石海水 (同) を結ぶ直線 (同: AML に類似) 付近にプロットされた間隙水の $\delta^{18}\text{O}$, δD 値, Cl^- 濃度が, 埋没の進行に伴う地温上昇に起因した海底泥質堆積物中のスメクタイトのイライト化に伴う脱水反応を受けて, 直線 TML 付近にシフトした. 厚真地域では, 基礎試錐「軽舞」の地表から深度約 1,700m まではスメクタイト, それ以深では I/S 混合層鉱物が分布しており, 振老・軽舞油田のかん水をもたらした間隙水は深度約 1,700m 以深の振老層の海底泥質堆積物 (根源岩) に閉じ込められた間隙水が軽舞層・振老層砂岩 (貯留岩) へ上方移動したのであろう (佐々木ら, 1982).

最後に, 海底泥質堆積物の泥岩化過程で進行する埋没続成変質による間隙水の進化の視点で, 研究対象地域のかん水の水質形成機構をまとめると, Table 1 のとおりである. 全地域のかん水をもたらした間隙水は初期続成作用の影響を受けた後, 後期続成期に新潟, 長岡 (椎谷・七谷層), 申川 (一部), 八橋 (女川層), 由利原 (女川・西黒沢層), 茨戸 (盤の沢層), 厚真, 天北地域の間隙水はスメクタイトのイライト化の影響を受けた.

6. ま と め

新潟, 長岡, 申川, 八橋, 由利原, 余目, 茨戸, 厚真, 天北地域の構造的油ガス田かん水を対象に, 主成分および安定同位体比の分析データを文献収集し, 埋没続成変質過程における間隙水 (海水) の進化の視点に立って, かん水をもたらした海底泥質堆積物 (根源岩) における間隙水の水質形成機構を検討し, 以下の結果が得られた.

(1) これらのかん水は海水と $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水が混合したものであり, 総じて Ca^{2+} , Mg^{2+} , SO_4^{2-} に乏しく Na^+ にやや富む傾向が認められる. 新潟, 長岡, 申川, 八橋, 由利原, 余目地域で熱分解ガスを伴う多くのかん水の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度間に明瞭な逆相関が認められる一方, 新潟, 申川, 八橋地域で微生物ガスを伴う一部のかん水の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度間には正相関が認められ, 現海水付近の Cl^- 濃度をもつかん水の $\delta^{18}\text{O}$ 値はややマイナスを示す.

(2) かん水の主成分および安定同位体比の特徴は海底泥質堆積物の泥岩化過程で進行する埋没続成変質による間隙水の進化によって合理的に説明される. すなわち, 地下に浸透した降水が火山性物質の Na -スメクタイト化を受けて生成した $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水により海水が種々の程度に希釈され, 有機物を含む海底泥質堆積物に閉じ込められた. その後, 間隙水は微生物起源メタン生成期までに硫酸還元反応, 方解石生成, 火山性物質の Mg -スメクタイト化, イオン交換反応 (主に Na -スメクタイトの Mg -スメクタイト化) の影響を受け, さらに熱分解起源メタン生成期に新潟, 長岡 (椎谷・七谷層), 申川 (一部), 八橋 (女川層), 由利原 (女川・西黒沢層), 茨戸 (盤の沢層), 厚真, 天北地域の間隙水はスメクタイトのイライト化の影響を受けた.

(3) 関東平野, 石狩低地帯, 新潟平野, 糸魚川-静岡構造線南部, 中央構造線地域に分布する非火山性塩化物泉および水溶性ガス田かん水の水質形成機構は構造的油ガス田かん水に共通しており, 有機物を含む海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水を起源にする塩化物泉および油ガス田かん水に広く適用できる.

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、(株)地球科学総合研究所の加藤 進氏には最新の論文を紹介して頂き、また匿名の2名の査読者には懇切丁寧なご指摘を頂いた。以上の方々に深く感謝いたします。

引用文献

- 吾妻 穰 (1966) : 茨戸油田史. 石技誌, **31**, 102-113.
- Dählmann, A. and De Lange, G.J. (2003) : Fluid-sediment interactions at Eastern Mediterranean mud volcanoes : a stable isotope study from ODP Leg 160. *Earth and Planetary Science Letters*, **212**, 377-391.
- Freed, R.L. and Peacor, D.R., (1989) : Variability in temperature of the smectite/illite reaction in Gulf Coast sediments. *Clay Minerals*, **24**, 171-180.
- 二間瀬 洌 (1974) : 石油・天然ガス付随水の化学組成について. 北海道地下資源調査所報告, **46**, 47-62.
- 平井明夫, 佐藤時幸, 高島 司 (1990) : 八橋油田における油の根源岩と生成・移動・集積. 石技誌, **55**, 37-47.
- 広岡悦郎 (1962) : 北海道店北地方の石油地質学的研究. 石技誌, **27**, 113-134.
- 保泉忠夫 (1968) : 貯留層の孔げき率および粘土 (けつ岩) 分の含有率に関する研究—東新潟 NS-13 号井のコアおよび検層資料に基づいて—. 石技誌, **33**, 351-362.
- Igari, S. and Sakata, S. (1988) : Chemical and isotopic compositions of natural gases from the Japanese major oil and gas fields : Origin and compositional change due to migration. *Geochemical Journal*, **22**, 257-263.
- 石村豊穂, 井尻 暁, 阿部恒平, 角皆 潤 (2005) : 北海道, 中新統望来層におけるシロウリガイ属化石をともなう石灰質団塊の特徴. 地質学雑誌, **111** (3), VII-VIII.
- 石和田靖章, 小林才智, 民部田喜代四, 柳下秀晴, 菊池良樹 (1964) : 新潟県下の層序試錐井, 蒲原 GS-1 の試鑿について. 石技誌, **29**, 130-139.
- 金子信行 (2009) : 地質情報展 2008 あきた 秋田県の石油・天然ガス資源. 地質ニュース, **658**, 27-30.
- 加藤 進 (1986) : 新潟地域油・ガス田の同位体組成. *Res. Org. Geochem.*, **5**, 25-28.
- 加藤 進 (2014) : 秋田地域の油・ガス田地層水の地球化学. 地下水学会誌, **56**, 299-307.
- 加藤 進 (2018) : 新潟地域の油・ガス田地層水の地球化学. 石技誌, **83**, 257-266.
- 加藤 進, 梶原義照 (1986) : 新潟地域油・ガス田付随水の酸素および酸素の同位体組成. 石技誌, **51**, 113-122.
- 加藤 進, 三輪美智子, 岩野裕継 (2014) : 新潟県小千谷油田周辺における油・ガスの移動・集積. 石技誌, **79**, 180-189.
- 加藤 進, 安田善雄, 西田英毅 (2000) : 秋田・山形地域油・ガス田の地層水の地球化学. 石技誌, **65**, 229-237.
- 加藤 進, 早稲田周, 西田英毅, 岩野裕継 (2013) : 山形県余目油田の石油地質と地球化学. 石技誌, **78**, 265-275.
- 小林巖雄, 大野隆一郎 (1988) : 1. 新潟油田地域. 65-71. 日本の地質 4 中部地方 I, 日本の地質「中部地方 I」編集委員会編. 共立出版, 東京.
- 小松直幹 (1988) : 8.3 石油・天然ガス資源. 238-240. 日本の地質 4 中部地方 I, 日本の地質「中部地方 I」編集委員会編. 共立出版, 東京.

- 栗田裕司, 小布施明子 (1997): 北海道北部, 基礎試錐「天北」における第三系～上部白亜系有機物微化石層序 (渦鞭毛藻化石・花粉孢子化石). 石技誌, **62**, 13-24.
- Lawrence, J.R., Gieskes, J.M., and Broecker, W.S. (1975): Oxygen isotope and cation composition of DSDP pore waters and the alteration of layer II basalts. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **27**, 1-10.
- 松葉谷治, 酒井 均, 上田 晃, 堤 真, 日下部実, 佐々木昭 (1978): 北海道の温泉ならびに火山についての同位体化学的調査報告. 岡山大学温泉研究所報告, **47**, 55-67.
- 松波武雄 (1993): 北海道中央部新第三系堆積盆の塩水について. 地下資源調査所報告, **65**, 55-72.
- 松野久也, 石田正夫 (1960): 5 万分の 1 地質図幅説明書 早来 (札幌—第 43 号). 北海道開発庁, 35 p.
- 村松容一 (2017): 関東平野南西部, 石狩低地帯, 新潟平野における塩化物泉の水質形成機構 (予察) —続成変質による間隙水の進化—. 温泉科学, **67**, 64-78.
- 村松容一 (2018): 日本の水溶性ガス田におけるかん水の水質形成機構 (予察) —続成変質による間隙水の進化—. 温泉科学, **68**, 66-83.
- 村松容一, 谷口無我, 大場 武 (2016a): 関東平野中央部における塩化物泉の水質形成機構—続成変質による間隙水の進化—. 温泉科学, **65**, 216-233.
- 村松容一, 谷口無我, 大場 武 (2016b): 関東平野北部における温泉の水質および安定同位体比とその地質鉱物学的解釈. 温泉科学, **66**, 4-20.
- 村松容一, 谷口無我, 千葉 仁, 奥村文章, 大場 武 (2016c): 糸魚川—静岡構造線南部およびその東域における高塩化物泉の成因—中央構造線に分布する鹿塩高塩化物泉の成因の類似性—. 温泉科学, **66**, 70-88.
- 本島公司 (1955): 秋田県黒川油田 R144 号コア一試験について. 石技誌, **20**, 111-122.
- 本島公司, 牧 真一, 牧野登喜男, 柴田 賢 (1960): 八橋油田鹹水の地球化学. 地調報告, 186, 81 p.
- 長尾捨一 (1969): 北海道の構造性天然ガスについて. 地下資源調査所報告, **40**, 1-59.
- 中井信之, 吉田 裕, 安藤直行 (1974): 石油, 天然ガス鉱床の同位体地球化学. 地球化学, **8**, 87-98.
- 鬼塚 貞 (1964): 庄内地域油・ガス田と鉱床生成の時期. 石技誌, **29**, 341-349.
- 佐賀 肇, 加藤 進 (1992): 第 II 編 B.2. 秋田・山形地域. 改訂版日本の石油・天然ガス資源, 53-80.
- 佐々木詔雄, 藤岡展价, 藤岡一男 (1982): 北海道・秋田・新潟油田地域における堆積岩中の自生鉱物帯と有機熟成との関係. 石技誌, **47**, 158-167.
- 佐藤幸二 (1973): “非火山性”温泉に関する研究. 温泉科学, **24**, 55-64.
- 佐藤比呂志, 山路 敦, 土谷信之, 大口健志, 田口一雄 (1989): 5.14. 庄内地域, 169-175. 日本の地質 2 東北地方, 日本の地質「東北地方」編集委員会編. 共立出版, 東京.
- 関口嘉一, 重川 守, 平井明夫, 宮本泰行 (1984): 地化学的見地からみた長岡・柏崎地域のグリーンタフ油・ガス鉱床の形成. 石技誌, **49**, 56-64.
- 重川 守, 近藤和也, 早稲田周 (1990): 北海道石狩北部地域の油・ガス田—その地球化学と地質的背景—. 石技誌, **55**, 23-36.
- Shigeno, H. and Abe, K. (1982): Oxygen and hydrogen isotope geochemistry of “connate” formation waters in Yabase oil field, Japan. Fifth International Conference on Geochemistry and Isotope Geology, 344-345.

- Scholz, F., Hensen, C., Schmidt, M. and Geersen, J. (2013) : Submarine weathering of silicate minerals and the extent of pore water freshening at active continental margins. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **100**, 200-216.
- 田口一雄 (1989) : 1. 石油・天然ガス鉱床. 207-209. 日本の地質 2 東北地方, 日本の地質「東北地方」編集委員会編. 共立出版, 東京.
- 平 朝彦 (2004) : 地質学 2 地層の解説. 岩波書店, 東京, 441 p.
- 徳橋秀一, 金子信行 (2003) : 新潟県と石油・天然ガス. 地質ニュース, **583**, 18-24.
- 高倉伸一 (2004) : 高密度電気・電磁探査法による比抵抗構造の調査と解釈に関する研究, 博士論文, 京都大学工学部, 348 p.
- 天然ガス鉱業会 (2012) : 天然ガス資料年報一含石油, LNG—平成 23 年版. 134 p.
- 天然ガス鉱業会 (2017) : わが国の石油・天然ガスノート. 21 p.
- 太秦康光, 那須義和 (1960) : (第 52 報) 油田塩水と温泉水の化学成分の比較. 日本化学雑誌, **81**, 401-404.
- 早稲田周, 重川 守 (1988) : 本邦油・ガス田地帯における天然ガスの起源に関する地球化学的考察. 石技誌, **53**, 213-222.
- 早稲田周, 重川 守 (1990) : 由利原油・ガス田における炭化水素の生成・移動・集積. 石技誌, **55**, 233-244.
- 早稲田周, 岩野裕継 (2007) : ガス炭素同位体組成による貯留層評価. 石技誌, **72**, 585-593.
- 早稲田周, 中井信之 (1983) : 中部日本・東北日本における天然水の同位体組成. 地球化学, **17**, 83-91.
- 早稲田周, 岩野裕継, 浅利康介 (2011) : ガス炭素同位体組成からみた北蒲原地域における炭化水素の移動・集積. 石技誌, **76**, 43-51.
- 八幡正弘, 稲葉 充 (2014) : 西山—中央油帯および片貝ガス田における流紋岩質貯留岩の二次孔隙と変質作用について. 石技誌, **79**, 326-338.
- 八幡正弘, 稲葉 充, 州崎照夫 (2016) : 由利原油ガス田および鮎川油ガス田における中新世玄武岩質貯留岩の二次孔隙と変質作用について. 石技誌, **81**, 169-182.
- 安田善雄 (1996) : 新潟地域油田水の深度変化に伴う塩化物イオン濃度減少の原因について. 日本地球化学会年会講演集, 160.
- 吉田邦一, 吉見雅行, 鈴木晴彦, 森野道夫, 滝沢文教, 関口春子, 堀川晴央 (2007) : 長周期地震動計算のための石狩平野および勇払平野の 3 次元堆積盆地構造モデル. 活断層・古地震研究報告, **7**, 1-29.
- 吉村尚久編著 (2001) : 粘土鉱物と変質作用. 地学双書 32. 地学団体研究会, 東京, 293 p.

Appendix 1 Well location and data source of the brines from the oil and gas fields in the Niigata, Akita, Yamagata and Hokkaido. *1 Parenthesis shows strainer zone or feed point. Abbreviations : OF, oil field ; GF, gas field ; OGF, oil and gas fields ; Ny, Nishiyama F. ; Sy, Shiya F. ; Nt, Nanatani F. ; Fu, Funagawa F. ; Lt, Lower-Tentokuji F. ; On, Onnagawa F. ; Nk, Nishi-Kurosawa F. ; Yt, Yabase tuff ; Kt, Kitamata F. ; Ma, Maruyama F. ; Mr, Morai F. ; Bs, Bannosawa F. ; Km, Karumai F. ; Wn, Wakkanai F. ; Mh, Masuho F. ; Kt, Koetoi F.. References : (1) Kato (2018), (2) Kato and Kajiwara (1986), (3) Kato (2014), (4) Kato *et al.* (2000), (5) Motojima *et al.* (1960), (6) Shigeno and Abe (1982), (7) Futamase (1974), (8) Azuma (1966), (9) Uzumasa and Nasu (1960), (10) Matsunami (1993), (11) Matsubaya *et al.* (1978), (12) Unpublished data, (13) Kato *et al.* (2014).

Field	Well No.	Well name	Reservoir	Depth(m) ¹⁾	References	Field	Well No.	Well name	Reservoir	Depth(m)	References	
(1) Niigata area												
Iwafuneeki OGF	If1	SIM-B5	Ny	(1600)	(1)		Ya19	YC77	Fu	(537)	(5)	
	If2	SIM-B7	Ny	(1900)	(1)		Ya20	YR17	Fu	(848)	(5)	
	If3	SIM-B6	Ny	(2000)	(1)		Ya21	YR24	Fu	(894)	(5)	
	If4	SIM-B1	Ny	(2050.2481-2534)	(1)		Ya22	YR42	On	(1062)	(5)	
	If5	SIM-B8	Ny	(2100)	(1)		Ya23	KR11	On	(1100)	(5)	
Hirakida GF	Hk1	SK-11D	Ny	(536-542.680)	(1)	(5) Yurihara area						
	Hk2	SK-7	Sy	(750)	(1)	Yurihara OGF	Yr1	SK-6D	Lt	-	(4)	
Shin-Tainai GF	St1	NS-3D	Sy	-	(2)		Yr2	SK-14D	On	-	(4)	
	St2	NS-5D	Sy	-	(2)		Yr3	-	On	-	(3)	
	St3	NS-9	Sy	(SD)	(1)		Yr4	SK-9D	Nk	-	(4)	
Shunji GF	Su1.1a	SK-1	Ny	(600.628-633)	(1)(2)	Ayakawa OGF	Ay1	A1	On	-	(3)	
	Su2	SK-23	Nt	(2914)	(2)		Ay2	-	On	-	(3)	
	Su3.3a	SK-25	Ny	(519)	(1)(2)	(6) Amarume area						
Agaoki OGF	Ao1	SF-A12	Ny	(N1)	(1)	Fukura OF	Fu1.1a	SK-1	Kt	1300(874-897)	(4)	
	Ao2	SF-A6	Sy	(S1)	(1)	Amarume OF	Ar1	SK-8D	Kt	886(853-856)	(4)	
Higashi-Niigata OGF	Hn1	NS-2D	Ny	(1450)	(1)		Ar2	SK-20D	Kt	1091(939-943)	(4)	
	Hn2	NS-4	Ny	(2340)	(1)		Ar3	SK-27D	Kt	915(821-840)	(4)	
	Hn2a	NS-4D	Ny	(2640)	(2)		Ar4	SK-55D	Kt	SK-53	(4)	
	Hn3	NS-9D	Sy	(2900B)	(2)		Ar5	SK-71aD	Kt	-	(4)	
	Hn4	NS-37	Sy	(2900A)	(1)	Higashi-Amarume GF	Ha	SK-5	Ma	-	(4)	
	Hn5	NS-33	Sy	(2900B-3522-3548)	(1)	(7) Barato area						
(2) Nagasaki area	Mitsuke OF	Hn6	NS-13	Sy	(2900D)	(1)	Barato OF	Br1	SK-2.1	Mr	524	(7)
		Hn6a	NS-13DL	Sy	-	(2)		Br2	SK-2.2	Mr	466	(7)
		Hn7	NS-10	Sy	(3100)	(1)		Br3	SK-3.3a	Mr	395(348-395)	(7)
								Br4	SK-7	Mr	552(520-552)	(7)
								Br5.5a	SK-8.8a	Mr	405(371-405)	(7)(8)
								Br6.6a	SK-9.9a	Mr	382(358-382)	(7)(8)
								Br7	SK-10	Mr	-	(8)
Fujikawa GF	Mt1	SK-12D	Nt	-	(2)		Br8	SK-11.11a	Mr	388(370-388)	(7)	
	Mt2.2a	SK-40	Nt	(I)	(1)(2)		Br9.9a	SK-12.12a	Mr	379(355-379)	(7)(8)	
	Mt3	SK-38	Nt	(II)	(1)		Br10	SK-13	Mr	388(363-388)	(7)	
	Mt4	SK-7aGR	Nt	1772	(2)		Br11	SK-14.14a	Mr	284(281-284)	(7)	
	Mt5	SK-11D	Nt	1762	(2)		Br12.12a	SK-15.15a	Mr	398(368-398)	(7)(8)	
	Mt6	SK-14	Nt	-	(2)		Br13.13a	SK-17.17a	Mr	384(354-384)	(7)(8)	
	Mt7	SK-16D	Nt	-	(2)		Br14	SK-21.1	Mr	404(384-404)	(7)	
	Mt8	SK-19	Nt	-	(2)		Br15	SK-21.2	Mr	365(285-295.320-365)	(7)	
Kumoide GF	Km	SK-5	Ny	-	(2)		Br16.16a	SK-22.22a	Mr	365(345-365)	(7)(8)	
	Yo1	SK-1D	Nt	2952(2739~2824)	(1)		Br17.17a	SK-23.23a	Mr	433(415-433)	(7)(8)	
Yoshi OGF	Yo2	SK7D	Nt	2598(2483~2590)	(2)		Br18.18a	SK-24.24a	Mr	388(369-388)	(7)(8)	
	Yo2a	SK-7aD	Nt	(G1)	(1)		Br19.19a	SK-25.25a	Mr	397(377-397)	(7)(8)	
Katakai GF	Ya	Yasuda(SK-3D)	Nt	(G1)	(1)		Br20	SK-26	Mr	383(370-383)	(7)	
	Ka1	SK-1	Nt	(1137-1167)	(13)		Br21.21a	SK-27.27a	Mr	402(382-402)	(7)(8)	
(3) Sarukawa area	Ka2.2a	Sakuramachi(SK-1D)	Nt	-	(2)		Br22.22a	SK-28.28a	Mr	472(433-472)	(7)(8)	
							Br23	SK-29.29a	Mr	398(389-398)	(7)	
Hachimori OF	Hc1.2	-	Fu	-	(3)	Ishikari OF	Is1	C47	Bs	(1180)	(9)	
Sarukawa OF	Sr1~3	-	Fu	-	(3)		Is2	R69	Bs	(1180)	(9)	
	Sr4	SK-59D	Fu	-	(4)		Is3	R84	Bs	(1180)	(9)	
	Sr5	SK-26aD	Fu	-	(4)	Atsuta OF	At1	C2	Bs	(1180)	(9)	
	Sr6	SK-16D	Fu	-	(4)		At2	R3	Bs	(1180)	(9)	
	Sr7	SK-74D	Fu	(990-1037)	(4)		At3	R4	Bs	(1180)	(9)	
	Sr8	SK-76D	Fu	-	(4)	(8) Atsuma area						
	Sr9	SK-11D	Fu	-	(4)	Karumai OF	Am1	R13	Km	-	(9)	
	Sr10	SK-10D	Fu	-	(4)		Am2	R20	Km	-	(9)	
	Sr11	SK-68D	Fu	-	(4)		Am3	R30	Km	-	(9)	
	Sr12	SK-12aD	Fu	-	(4)		Am4	R77	Km	-	(9)	
	Sr13	SK-79D	Fu	-	(4)		Am5	-	Km	-	(7)	
	Sr14	SK-65D	Fu	-	(4)		Am6	Noyasube OF	Km	-	(7)	
	Hashimoto OF	Hm1	SK-10D	Fu	-	(4)	Fureoi OF	Am7	K7	Km	-	(9)
	Hm2	SK-9D	Fu	-	(4)		Am8	C4	Km	-	(9)	
Yoshino GF	Ys	SK-4D	Fu	-	(4)		Am9	R9	Km	-	(9)	
Fukumezawa OF	Fm1	SK-17D	On	-	(4)	(9) Tenpoku area						
Nishi-Oogata OF	No	SK-6D	Fu	-	(4)	Koetoi OF	Tp1.1a	R2.2a	Wn,Mh	-	(7)(9)	
Fukukawa OF	Fk1.1a	SK-7D	Lt	(718-726)	(3)(4)		Tp2	R5	Wn,Mh	-	(7)	
(4) Yabase area												
Kurokawa OF	Kr1~3	-	On	-	(3)		Tp3.3a	R8.8a	Wn,Mh	-	(7)(9)	
Yabase OF	Ya1.2	-	Lt	-	(3)	Yuchi OF	Tp4.4a	R11.11a	Wn,Mh	-	(7)(9)	
	Ya3	-	Fu	-	(3)		Tp5	R13	Kt, Wn	-	(9)	
	Ya4~7	-	On	-	(3)	Masuhoro OF	Tp6	C17	Mh	-	(9)	
	Ya8	OC25	Lt	(226)	(5)	Menashi OF	Tp7	R6	Mh	-	(9)	
	Ya9	YR18	Lt	(266)	(5)	Toyotomi OGF	Tp8.8a	R12.12a	Mh	-	(7)(9)	
	Ya10	KC2	Lt	(263)	(5)		Tp9	Kitatoyotomi-R2	Mh	1507	(7)	
	Ya11	OC36	Yt	(302)	(5)		Tp10	Kitatoyotomi-R3	Mh	1149	(7)(10)	
	Ya12	YC50	Lt,Yt	(307)	(5)		Tp11	Fukuunaga-R2	Mh	864	(7)	
	Ya13	KR20	Yt	(405)	(5)		Tp12	Toyotomi-R1	Mh	961	(7)	
	Ya14	OR30	Yt	(380)	(5)		Tp13	Toyotomi-R2	Mh	864(765-852)	(7)	
	Ya15	OR7	Lt	(220)	(5)		Tp14	Toyotomi-R8	Mh	908(696-908)	(10)	
	Ya16	AR9	Yt,Fu	(470)	(5)		Tp15	Toyotomi-R4	Mh	958(720-938)	(10)	
	Ya17	AC3	Fu	(693)	(5)		Tp16.16a	Toyotomi-R1a	Mh	966(674-966)	(10)(12)	
	Ya18	YC94	Fu	(410)	(5)		Tp17.18	Toyotomi	Mh	-	(11)	