

北海道, 日本海側北部の温泉資源 Geothermal water resources in northern Hokkaido on the Sea of Japan

鈴木 隆広・柴田 智郎
Takahiro Suzuki and Tomo Shibata

Abstract

The northern Hokkaido area on Sea of Japan is oil and natural gas deposits zone, and have been investigated on a view point of fuel deposits. The oil and natural gas are drained with saline waters. The geochemical investigation of the saline waters was done by Uzumasa and Nasu (1960a,b). They showed saline waters have characteristic halogen ratio compared with sea water and geothermal waters.

We analyzed chemical composition of the saline waters and incidental gas. We investigated their resources in this area on the based of reservoir stratigraphic horizon, chemical composition of geothermal water and incidental gas, isotope ratio of hydrogen and oxygen, and the difference between geothermal waters and sea water. The resources recognized as follows;

1) The ratio of Br/Cl geothermal waters are approximate to the sea water value of 3.4×10^{-3} . The geothermal waters which have higher Br/Cl ratio than sea water value tends to be rich in NH_4 . There is a possibility that geothermal waters have added Br, NH_4 of the organic origin.

2) From hydrogen and oxygen isotope ratio and Cl concentration, the origin of geothermal waters are divided into the group which can be explained as a simple mixing of local meteoric waters and altered sea water and impossible explaining group.

3) The thermal waters which can not be explained as a simple mixture system are located on the anticlinal axis, and there is a possibility that the geothermal waters are participated by the 3rd fluid which derive from deep underground.

4) The geothermal waters tend to increase concentration of HCO_3 and decrease concentration of SO_4 . The increase of HCO_3 is caused by organic chemical reaction, dissolution of carbonate mineral, and mixing of the 3rd fluid.

キーワード: 温泉水, 付随ガス, 塩素, 臭素, ヨウ素, 水素・酸素同位体比, 北海道

Key words: geothermal water, incidental gas, Chlorine, Bromine, Iodine, isotopic ratio of hydrogen and oxygen, Hokkaido

I はじめに

日本海側北部地域は北海道における石油・天然ガス賦存地帯であり, 燃料鉱床という観点からの研究が数多くなされている。一方, 石油・天然ガスに付随する塩水(油田塩水)に関する地球化学的な研究は, 太泰・那須(1960a, b)によっておこなわれており, そのなかで, 油田塩水は海水や温泉水と比較して特徴的なハロゲン比をしめすとされている。その後の水素酸素同位体比の研究から, 温泉水の起源は天水, 海水(化石海水), マグマ水の混合によるもので, 油田塩水も天水と化石海水(変質した海水)の混合系であるとされている(松葉谷, 1985;1991など)。また, 北海道中央部の高濃度塩水については, 松波(1993)によって, 化学組成, 水素酸素同位体比, 海成堆積物の続成作用の観点から総括されている。

地質研究所では, 平成14~17年度にかけて「坑井障害に関する研究」を行い, その研究の一環として, 日本海側北部の温泉水および付随ガスを採取して分析を行った。

本報告では, これらの採取した試料の分析結果についてしめし, 併せて, 日本海側北部の温泉資源について, 温泉水および付随ガスの化学組成, および水素酸素同位体比から考察した結果についてしめす。

II 調査地域の地質

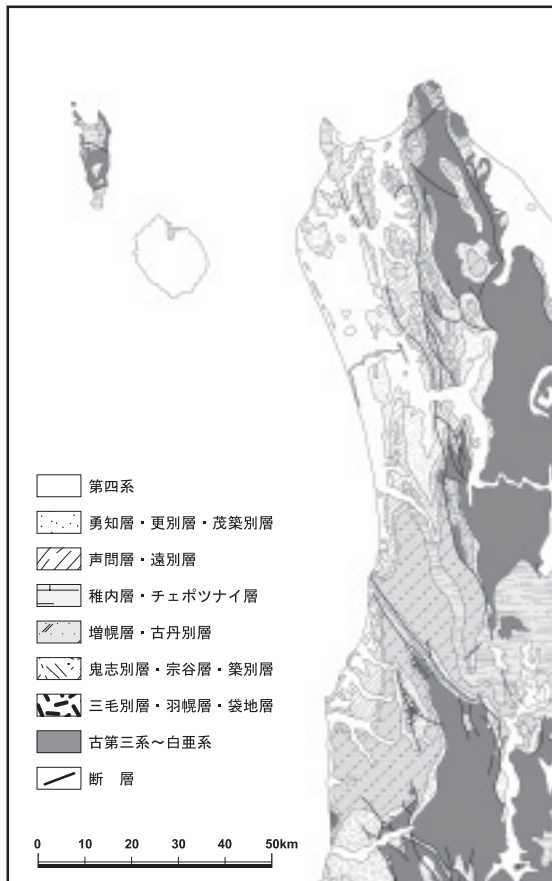
北海道北部の中新統から鮮新統にかけての地質層序を第1表(加藤ほか, 1990)に, 地質図を第1図(北海道立地下資源調査所, 1980)にそれぞれしめした。松波(1993)にもあるように, 第1表のうちの苫前層, 宗谷層, および築別層の基底部は, 炭層を挟むことから陸成層と考えられる。これらの地層を除けば, 堆積物の粒度の違いがあるものの, 基本的には海成層から構成されている。本地域は南北方向の地質構造が卓越しており, 褶曲軸に平行して断層が発達している。

第2図に温泉水採取地点をしめした。天然ガスをターゲットしている井戸(図中4, 6, 7)は, 背斜軸付近で掘削されているが, 温泉をターゲットにしている井戸(図中1, 2, 3, 5)は, 背斜軸から外れて掘削され

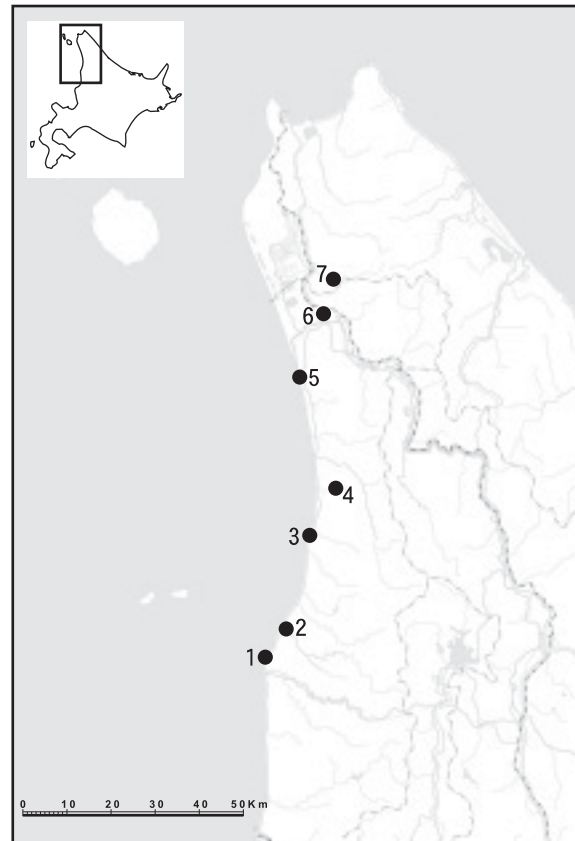
第1表 北海道北部の新第三系層序と温泉水貯留層準
Table 1 Stratigraphic sequence on Neogene and reservoir geothermal waters of northern Hokkaido.

		羽幌地区	遠別地区	天北地区	
新 第 三 紀	鮮新世	茂築別層	茂築別層	更別層 勇知層	
		遠別層	遠別層	声問層	
		チェボツナイ層	金駒内層	稚内層	
	中新世	後期	古丹別層	古丹別層	増幌層
			築別層	築別層	鬼志別層
		中期	苫前層		宗谷層

ている。温泉水の採取層準については一部不明な点があるが、そのほとんどが増幌層 (=古丹別層) ~稚内層の海成層である。この層準から湧出する温泉水には天然ガスが付随し、図中3の井戸以外はガスリフトによる自噴井である。



第1図 北海道北部の地質図
Fig. 1 Geological map of northern Hokkaido.



第2図 温泉水および付随ガスの採取地点
Fig. 2 Sampling points of geothermal waters and incidental gases.

Ⅲ 温泉水の分析結果と化学組成

温泉水の試料採取時には、温度、電気伝導度(EC)、pHを測定し、水質の分析は後日実験室で行った。温泉水中のイオン (Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} , Cl^- , Br^- , I^- , SO_4^{2-}) の分析は、イオンクロマトグラフ (横河アナリティカルシステム社製IC7000S) を用いて行った。炭酸濃度 (HCO_3^- , 遊離 CO_2) は滴定法により行った。その結果を第2表にしめす。

温泉水中の陰イオンはClが83%以上を占め(うち6試料は90%以上)、 SO_4 をほとんど含んでいない。また、陽イオンはNa+Kが82%以上を占め、Ca+Mgが18%を超えることはない。これらの結果から泉質的には全てNa-Cl型となっている。第3図に温泉水のキーダイアグラムをしめした。地理的に南に位置する温泉水は比較的海水に近い範囲にプロットされるのに対し、北に位置する温泉水ほどNa, HCO_3 に富む傾向がある。

第4図にBr濃度およびI濃度とCl濃度の関係をしめした。これらのハロゲン元素比は、溶液中に比較的保持されやすいため、温泉水の起源を推定するのに有効とされている(太泰・那須, 1960a, b)。Br濃度とCl濃度の関係では、多くの試料が $\text{Br}/\text{Cl}=3.4 \times 10^{-3}$ の海水値

第2表 温泉水の化学組成
Table 2 Chemical composition of geothermal waters.

Sample No	Temp (°C)	E. C. (S/m)	pH	Na ⁺ (mg/kg)	NH ₄ ⁺ (mg/kg)	K ⁺ (mg/kg)	Mg ²⁺ (mg/kg)	Ca ²⁺ (mg/kg)	Cl ⁻ (mg/kg)	Br ⁻ (mg/kg)	I ⁻ (mg/kg)	SO ₄ ²⁻ (mg/kg)	HCO ₃ ⁻ (mg/kg)
1	48.9	4.69	7.0	10210	37	60	77	605	16770	33	27	1	278
2	33.0	2.93	7.2	5810	34	104	176	805	11015	29	16	4	128
3	24.2	2.39	7.6	5283	33	84	42	127	8295	28	10	3	521
4	31.3	2.72	7.1	5550	17	38	28	663	9950	24	21	2	198
5	32.7	4.86	7.3	11463	337	663	123	94	17527	153	79	2	3565
6	11.4	3.41	6.8	7415	237	235	117	153	11022	81	25	3	3721
7	29.7	1.99	7.2	4455	46	32	30	79	6075	17	13	2	1943

のライン付近にプロットされるが, 試料5と6は海水よりも大幅にBrに富む領域にプロットされる. I濃度とCl濃度の関係では, 多くの試料がI/Cl=1.0×10⁻³~2.0×10⁻³の領域にプロットされるが, 試料5はI/Cl=4.0×10⁻³のライン付近にプロットされる. 第5図にNH₄濃度とBr濃度の関係をしめした. 試料数は少ないが, NH₄濃度とBr濃度には正の相関が認められ, 第4図でBrに富む領域にプロットされた試料は, NH₄に富む傾向がある.

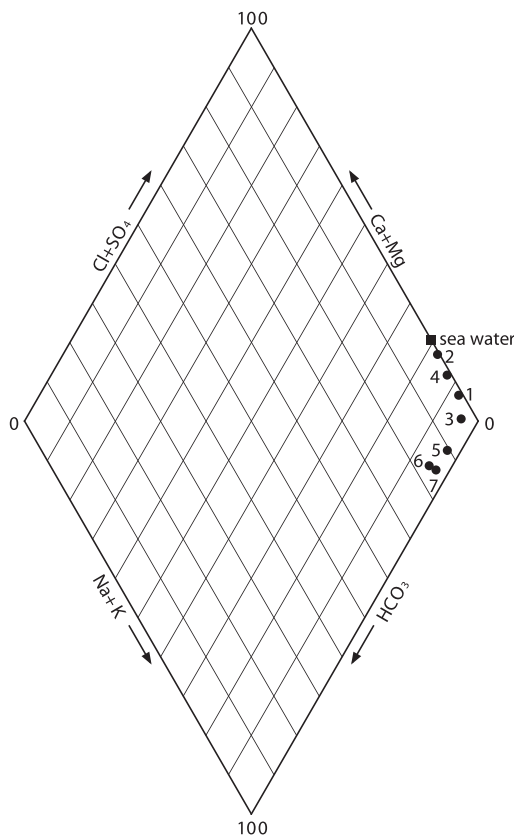
ハロゲン比から, 多くの試料は海水との混合, または海水起源として考えられるが, 試料5, 6のようにそれでは説明できないものもある. 上村ほか (1988) は,

Brに富む温泉水には生物起源のBrが付加していると説明しており, 本地域でBr, NH₄, Iに富む温泉水も同様に生物起源のものが付加している可能性が高い.

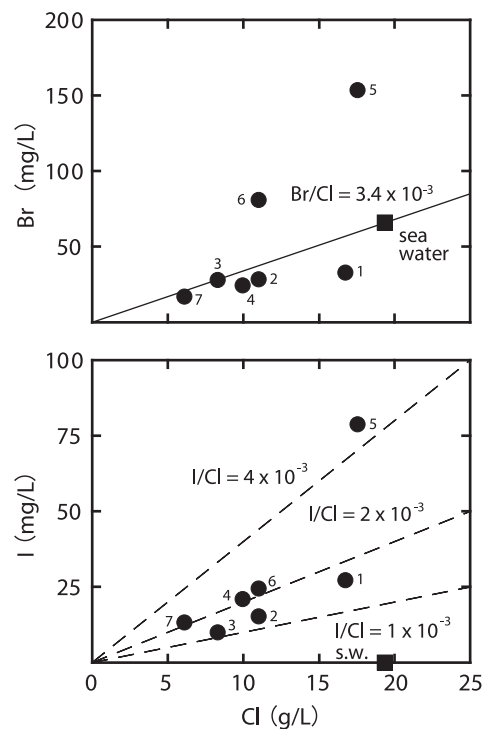
IV 温泉水付随ガスの分析結果と化学組成

付随ガス (N₂, CO₂, CH₄, C_mH_n) の分析は, ガスクロマトグラフ (ヒューレットパッカード社製GC6850) を用いて行った. その結果を第3表にしめす. なお, 試料3は断続湯を行っているため, 付随ガス試料を採取していない.

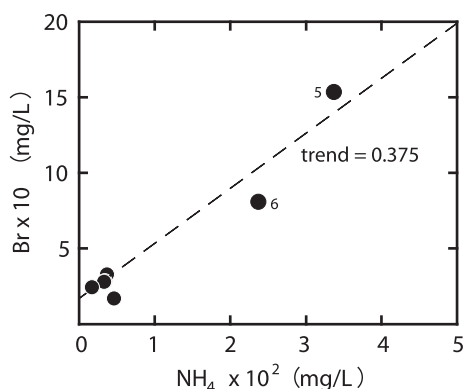
第4図に付随ガスのCH₄+C_mH_n, CO₂, およびN₂+etcガスの組成比をしめした. ほとんどの付随ガスには



第3図 温泉水のキーダイアグラム
Fig. 3 Key diagram of thermal waters.



第4図 Br濃度とCl濃度の関係 (上図) およびI濃度とCl濃度の関係 (下図)
Fig. 4 Relationship between Br and Cl concentration (upper), and between I and Cl concentration (lower).

第5図 NH₄濃度とBr濃度の関係Fig. 5 Relationship between NH₄ and Br concentration.

CH₄が含まれており, その大部分はCH₄+C_mH_nが90%以上であることから, 温泉水はCH₄を主体とする炭化水素系ガスと共存していると推定できる。

試料5, 6の付随ガスは他のグループと比較してN₂の割合が高く, 特に試料6にはCH₄が含まれていない。一般に, 新しい時代の堆積層から湧出する温泉付随ガスは, N₂が主となることが多いことから, 試料5の付随ガスには深部からのCH₄に浅部のN₂が混入していると考えられる。試料6の井戸は掘削後50年近く放置され, 井戸の内部状態については不明であるが, 深部からのCH₄の関与はないものと推定される。

V 温泉水の水素・酸素同位体比

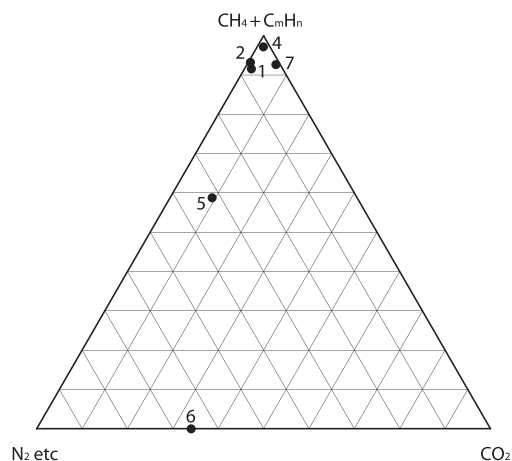
第4表にUEDA et al. (2006)による温泉水の水素・酸素同位体比を, 第6図に δD と $\delta^{18}O$ の関係および δD とCl濃度の関係をそれぞれしめた。一般に, δD と $\delta^{18}O$ の関係では, 油田塩水の水素・酸素同位体比は天水ライン($\delta D=8 \times \delta^{18}O+10$)から外れて傾き2~5の相関をしめし, $\delta^{18}O$ が高くシフトした位置にプロットされる。これは温泉水が岩石と酸素同位体交換をするためと考えられている(松葉谷, 1985;1991など)。

一方, δD とCl濃度の関係では, 天水(天塩川)と海水を結んだライン付近におおむねプロットされるが, 試料4や7は δD が高くシフトした位置にプロットされ

第3表 付随ガスの化学組成

Table 3 Chemical composition of incidental gases.

Sample No	N ₂ (%)	CO ₂ (%)	CH ₄ (%)	C ₂ H ₆ (%)	C ₃ H ₈ (%)	other (%)	Total (%)
1	6.9	1.6	88.4	3.0			100.0
2	6.4	0.5	90.8	2.1	0.3		100.0
4	1.2	1.3	97.5				100.0
5	32.0	9.3	58.7				100.0
6	65.4	34.0				0.6	100.0
7	0.8	6.3	91.4	1.5			100.0



第6図 付随ガスの三角ダイアグラム

Fig. 6 Triangular diagram of incidental gases.

る。このため, 変質した化石海水と天水の混合系では説明がむずかしく, 他の起原水を考える必要がある。

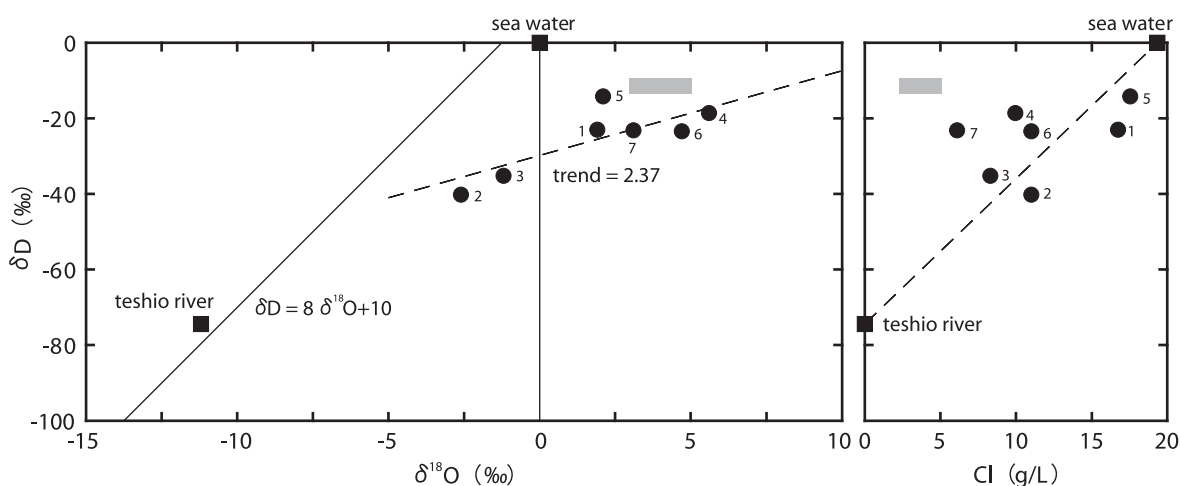
UEDA et al. (2006)は, 採取した温泉水付随ガスのHe同位体比から, 深部に由来する地下水の関与をしめしている。また, 大木ほか(1992;1999)は, 新潟県の石油・天然ガスに伴って存在する異常高圧の温泉水をジオプレッシャー熱水系としてとらえ, その水の起源を地層堆積中に取り込まれた化石海水, および粘土鉱物の変成作用による脱水した水の混合物とした。大沢ほか(2006)は, 堆積物が地層になる過程で得られる脱水流体(続成流体)が温泉水の起原水になるとし, その流体の δD を $-6 \sim -10\%$, $\delta^{18}O$ を $+3 \sim +5\%$ としている(第6図の灰色の範囲)。

試料4と7の井戸は背斜軸付近で掘削されている。本地域では背斜構造に平行して断層が発達しており, その断層に沿って地下深部から流体が上昇してくる可能性は高い。試料4や7に第三の流体の関与があるかどうかは, 現在のところ不明であるが, 微量成分の分析などから, その可能性はある。今まで天水-海水(化石海水)の二成分の混合系で説明できなかった温泉水の起源について, 天水-海水(化石海水)-第三の流体

第4表 温泉水の水素・酸素同位体比

Table 4 Hydrogen and oxygen isotopic ratios of geothermal waters.

Sample No	δD (‰)	$\delta^{18}O$ (‰)
1	-23.0	1.9
2	-40.2	-3.1
3	-35.1	-1.7
4	-18.6	5.6
5	-14.2	2.1
6	-23.4	4.7
7	-23.4	3.1
teshio river	-74.3	-11.2

第7図 δD と $\delta^{18}O$ の関係(左図)および δD とCl濃度の関係(右図)Fig. 7 Relationship between δD and $\delta^{18}O$ (left), and between δD and Cl concentration (right).

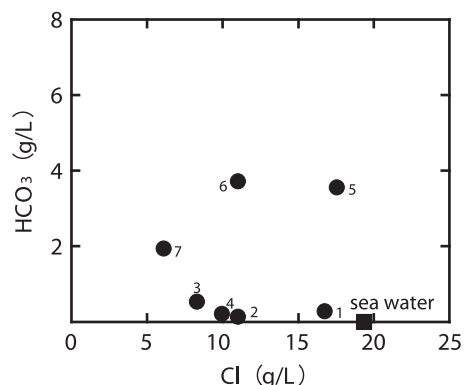
の三成分の混合系で説明できるかは、今後の課題である。

VI 温泉水と海水の比較

温泉水の化学組成と海水の化学組成とが大きく異なることは、さきに述べた。これらの温泉水全てに共通してみられる成分変化は、 HCO_3^- の増加と SO_4^{2-} の減少である。松波(1993)は、 ΔHCO_3^- と ΔNa の関係について、 ΔHCO_3^- の増加につれて ΔNa が指数関数的に増加する傾向があり、特に地理的に北に向かうほど顕著であるとしている。第8図に HCO_3^- 濃度とCl濃度の関係についてしめした。今回の分析でも北部(天北地域)の温泉水の方が、南部(羽幌～遠別地域)と比較して HCO_3^- 濃度が高い結果となった。北に位置する温泉水には油を伴うことから、続成作用がより進化した段階であると考えられ、 ΔHCO_3^- の増加の要因は、 $CO_2 + H_2O \rightarrow HCO_3^- + H^+$ の反応によるものとしている(松波, 1993)。

吉村(2001)によれば、堆積岩(特に泥質岩)中の有機物の続成変質作用によって生成したケロジェンは、熱熟成によって有機酸を生じ、埋没温度が $80^\circ C$ 付近から発生量が飛躍的に増加する。この有機酸と岩石(鉱物)が相互作用を起こしたり、有機酸そのものが成分移動の役割を果たしているとしている。よって ΔHCO_3^- の増加は、有機酸による炭酸塩鉱物の溶解で生成する HCO_3^- についても考慮する必要があると考える。いずれにしても、石油・天然ガスと油田塩水を考える上で、有機-無機相互作用が重要な要素であると考えられる。

一方、水素・酸素同位体比の項で述べた第三の流体の関与があるとすれば、第三の流体の化学組成は重要な要素である。仮に第三の流体が HCO_3^- に富んでいるとすれば、 HCO_3^- の増加の要因が有機的な化学反応や炭酸塩鉱物の溶解によるものではない可能性がある。

第8図 Cl濃度と HCO_3^- 濃度の関係Fig. 8 Relationship between Cl and HCO_3^- concentration.

VII まとめ

日本海側北部の温泉資源について、温泉水の貯留地質層準、温泉水および付随ガスの化学組成、水素・酸素同位体比、および海水組成との違いにもとづいて考察した。それらをまとめると以下ようになる。

- 1) 温泉水の多くは $Br/Cl = 3.4 \times 10^{-3}$ の海水値に近い。海水値よりも Br/Cl 比が高い温泉は NH_4^+ に富む傾向があり、生物起源の Br 、 NH_4^+ が温泉水に付加されている可能性が高い。
- 2) 水素・酸素同位体比、およびCl濃度から、温泉水の起源は天水と化石海水の二成分混合系で説明できるグループと説明できないグループに分かれる。
- 3) 二成分混合系で説明できないグループは、背斜軸付近で掘削された井戸から湧出するものであり、温泉水には地下深部に由来する第三の流体が関与している可能性がある。
- 4) 海水と温泉水の化学組成を比較すると、全ての温

泉水に共通して, HCO_3^- が増加し, SO_4^{2-} が減少する。 HCO_3^- が増加する要因としては, 有機的な化学反応, 炭酸塩鉱物の溶解, 第三の流体の混合が考えられる。

謝 辞

泉源管理者の方々には, 現地調査の際に多大なご協力をいただいた, ここに記して謝意を表する。

参考文献

- 北海道立地下資源調査所 (1980): 北海道の地質, 北海道の地質と地下資源1, 北海道立地下資源調査所, 113p.
- 加藤 誠・勝井義雄・北川芳男・松井 愈 (編)(1990): 日本の地質1, 北海道地方, 共立出版, 337p.
- 松葉谷治 (1981): 水素および酸素同位体比からみた温泉水の起源: 温泉科学, 31, 47-36.
- 松葉谷治 (1991): 熱水の地球化学, 裳華房, 139p.
- 松波武雄 (1992): 北海道の高濃度塩化物泉について, 地下資源調査所報告, 64, 17-30.
- 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.
- 大木靖衛・佐藤 修・青木 滋 (1992): 北部フォッサマグナのジオプレッシャー熱水系に起因する地震と地すべり, 月刊地球, 号外No. 5, 121-125.
- 大木靖衛・徐 輝竜・石坂信之・河内一男 (1999): 信濃川地震帯のジオプレッシャー熱水を伴う活断層と歴史被害地震, 温泉科学, 48, 163-181.
- 大沢信二・網田和宏・山田 誠・風早康平 (2006): 宮崎県の大深度掘削温泉から流出する続成流体, 第59回日本温泉科学大会講演要旨集, 34.
- 柴田智郎・秋田藤夫・鈴木隆広・高橋徹哉 (2005) 札幌市とその周辺地域における温泉資源, 北海道立地質研究所報告, 76, 79-82.
- 須藤能光 (1967): 日本における油田・天然ガス塩水の地球化学的研究, 石油技術協会誌, 32, 286-296.
- 土田邦博・牛 犇・吉村尚久・大久保進・深澤 光 (1998): 基礎試錐「富倉」にみられるイライト/スメクタイト混合層鉱物の続成変化と異常高圧層の関係, 石油技術協会誌, 63, 221-228.
- A.UEDA, S.SHIMODA, K.NAGAO, T.SHIBATA, T.SUZUKI (2006): Stable and noble gas isotopic study of geothermal and ground waters in North Hokkaido, Japan. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70, A678.
- 上村京子・高橋信樹・今橋正征 (1988): 食塩泉のBr/Cl比について, 温泉科学, 38, 111-119.
- 太泰康光・那須義和 (1960a): 温泉の化学的研究, 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.
- 太泰康光・那須義和 (1960b): 温泉の化学的研究, 第53報, 温泉水中の塩素, 臭素, ヨウ素について, 日本化学雑誌, 81, 405-413.
- 吉村尚久 (編著)(2001): 粘土鉱物と変質作用, 地学団体研究会, 293p.