



総 説

日本の水溶性天然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 —

村 松 容 —¹⁾*

(平成 30 年 3 月 8 日受付, 平成 30 年 5 月 31 日受理)

Formation Mechanism of Brines from the Water-dissolved
Gas Fields in Japan (Preliminary Study)
— Diagenetic Evolution of Pore Water —

Yoichi MURAMATSU¹⁾*

Abstract

The chemical and oxygen isotopic ($\delta^{18}\text{O}$) compositional data reported previously for the brines and chloride hot spring waters from the Southern Kanto, Oshamambe, Kisakata, Niigata, Nichinan/Miyazaki, Sadowara, Okinawa and Miyakojima water-dissolved gas fields, were analyzed to clarify the diagenetic evolutions of pore water in the marine muddy sediments. The waters have mostly lower concentrations of Ca^{2+} , Mg^{2+} and SO_4^{2-} , and originate through mixing of sea water and Na-HCO_3 water occurred by reaction of volcanic material to form Na-smectite in local meteoric water origin. The $\delta^{18}\text{O}$ value and Cl^- concentration in the waters have two kinds of positive and negative relations. These chemical and oxygen isotopic 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 $\delta^{18}\text{O}$ value and Cl^- concentration reflects pervasive reaction of volcanic material to form smectite in the waters from the Southern Kanto, Oshamambe, Kisakata, Niigata, Sadowara (Shallow reservoir) and Miyakojima (Shallow reservoir) fields. Meanwhile, the negative and positive relations result from smectite-illite transition in the waters from the Nichinan/Miyazaki, Sadowara (Deep reservoir), Okinawa and Miyakojima (Deep reservoir) fields. For the most part, it is possible to apply the diagenetic evolution reported previously for the chloride hot spring waters from the Kanto Plain to the brines from the water-dissolved gas fields in Japan.

Key words : water-dissolved gas fields, brine, chloride hot spring water, pore water, diagenetic evolution, smectite, illite

¹⁾ 東京理科大学理工学部教養科 〒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

南関東、長万部、象潟、新潟、日南・宮崎、佐土原、沖縄、宮古島水溶性ガス田に産するかん水、温泉水の主成分および酸素安定同位体比の分析データを文献収集し、水質形成機構を検討した。そのほとんどは Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 SO_4^{2-} に乏しいが、新潟ガス田のかん水は Ca^{2+} と Mg^{2+} にやや富む傾向を示し、これらをもたらした続成変質の影響を受ける前の間隙水は海水と $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水が混合したものである。かん水、温泉水の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度の関係をみると、日南・宮崎、佐土原 (深部貯留岩)、沖縄、宮古島 (深部貯留岩) ガス田は正および逆相関、南関東、長万部、象潟、新潟、佐土原 (浅部貯留岩)、宮古島 (浅部貯留岩) ガス田は正相関をそれぞれ示し、前者は熱分解ガス、後者は微生物ガスを伴う。これらの特徴は、次の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でき、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、間隙水は初期続成期の埋没過程で硫酸還元反応、方解石生成、火山性物質の $\text{Mg}-\text{スメクタイト化}$ 、 $\text{Na}-\text{スメクタイト}$ の $\text{Mg}-\text{スメクタイト化}$ (新潟ガス田を除く)、 $\text{Ca}-\text{スメクタイト}$ の $\text{Na}-\text{スメクタイト化}$ (新潟ガス田) を経験した。後期続成期になると、日南・宮崎、佐土原 (深部貯留岩)、沖縄、宮古島 (深部貯留岩) ガス田の間隙水はスメクタイトのイライト化を経験した。以上の結果から、既報の関東平野、石狩低地帯、新潟平野などの塩化物泉に共通する水質形成機構が日本の水溶性ガス田のかん水、温泉水についても概ね成立することが明らかとなった。

キーワード：水溶性ガス田、かん水、温泉水、間隙水、続成変質、スメクタイト、イライト

1. はじめに

関東平野の地下深部に広く分布する新第三紀以降の堆積岩に賦存する非火山性塩化物泉の水質は海底泥質堆積物の間隙水が続成変質過程で形成されたものであり、その形成機構は石狩低地帯、新潟平野、糸魚川静岡構造線南部、中央構造線地域においても成立することが報告されている (村松ら, 2016a, b, c; 村松, 2017)。このうち、関東平野、石狩低地帯、新潟平野などの堆積盆地に分布する塩化物泉に付随する水溶性天然ガスはエネルギー資源として利用されている (天然ガス鉱業会, 2017b)。この水溶性天然ガス田に賦存するかん水の水質形成機構の解明は温泉・天然ガス開発や温泉爆発事故を防ぐ行政上の対策 (国交省, 2007) に資するとともに、海底泥質堆積物の続成作用による泥岩化過程を地球化学的に理解する上で重要である。

わが国の水溶性ガス田は石狩平野、長万部、象潟、酒田、山形、南関東、新潟、日南・宮崎・佐土原、沖縄、宮古島などに分布しており、このうち南関東ガス田が原始埋蔵量の約 75% を占め、次いで新潟ガス田が約 12%、日南・宮崎・佐土原ガス田と沖縄ガス田が各約 4% の順となっている (地質調査所石油課, 1975; 天然ガス鉱業会, 2017a)。これらの主要ガス田に産するかん水、温泉水および付随ガスの化学・安定同位体分析は今日までに多数実施され、化学特性および起源に関する研究成果が報告されている (Maekawa *et al.*, 2006; 中井ら, 1974; 板谷, 1957, 1958, 1959; 福田, 1979; 金子ら, 2006; 加藤ら, 2012, 2016b など)。例えば、日南・宮崎・佐土原ガス田のかん水、温泉水および付随ガスに関する地球化学的研究報告は大沢ら (2010)、加藤ら (2011) によって行われている。大沢ら (2010) は主に深部貯留岩に賦存する温泉水と付随ガスの化学・安定同位体分析を実施し、天水起源地下水、堆積物間隙からの排出海水、スメクタイトの層間からの排出水からなる温泉起源流体の存在を推定し、また加藤ら (2011) は浅部・深部貯留岩に賦存するかん水と付随ガスの化学・安定同位体分析を実施し、それらの化学特性と起源を推定している。このように、日南・宮崎・佐土原ガス田のかん水、温泉水および付随ガスの地球化学的研究は詳細に実施されているが、海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水の埋没続成変質による進化の視点での水質形

成機構はほとんど検討されていない。

今回、原始埋藏量の約95%を占める南関東、新潟、日南・宮崎・佐土原、沖縄ガス田に長万部、象潟、宮古島ガス田を加えて、かん水、温泉水、地下水の主成分および酸素安定同位体比の分析データを文献収集し、埋没続成変質による間隙水の進化の視点で、天然ガスを溶存するかん水、温泉水、地下水の水質形成機構を予察的に検討した。その結果、既報の関東平野、石狩低地帯、新潟平野、糸川川静岡構造線南部、中央構造線地域の塩化物泉に共通する水質形成機構がこれらの水溶性ガス田においても概ね成立することが明らかになったので報告する。

2. 地質および貯留岩概要

南関東、長万部、象潟、新潟、日南・宮崎、佐土原、沖縄、宮古島水溶性ガス田の地質および貯留岩を概述する (Fig. 1)。

南関東水溶性ガス田は千葉県を中心とした南関東一帯 (大多喜、茂原、横芝、東金、九十九里、旭、成東、成田、千葉、習志野、船橋など) に分布し (Fig. 1a), 地下地質は鮮新世~更新世の上総層群 (砂岩と泥岩の互層) に更新世の下総層群が不整合に重なる。かん水および付随ガスは上総層群の砂岩を貯留岩、泥岩を根源岩にしており、地域により含まれる層準は異なる (楡井ら, 1986; 名取,

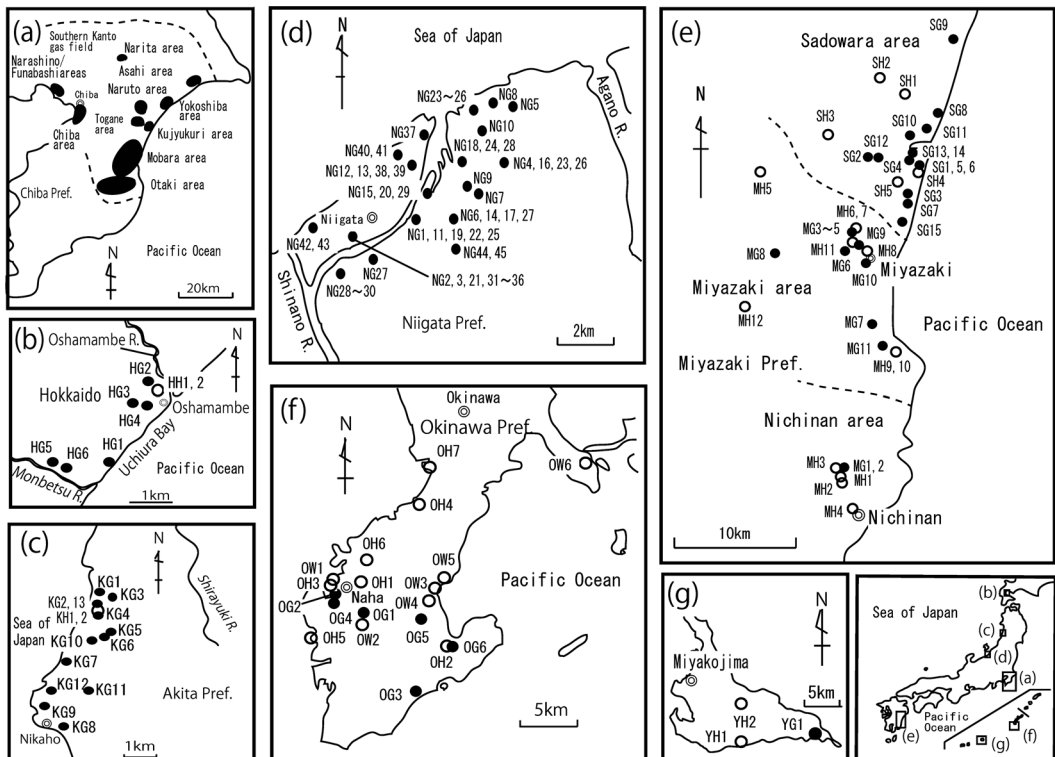


Fig. 1 Well location of the brines, hot spring and ground waters from the water-dissolved gas fields. (a) Southern Kanto field, (b) Oshamambe field, (c) Kisakata field, (d) Niigata field, (e) Nichinan/Miyazaki and Sadowara fields, (f) Okinawa field, (g) Miyakojima field. The well location numbers are the same as in Appendix 1. Solid and open circles show brine, and hot spring and ground waters, respectively.

1997). 南関東ガス田の天然ガス埋蔵量は約 6,610 億 m^3 と試算される (地質調査所石油課, 1975).

長万部水溶性ガス田は道南の長万部町に分布し (Fig. 1b), 地下地質は中新世~鮮新世の黒松内層 (シルト岩, 砂岩) に鮮新世~更新世の瀬棚層 (砂岩, 礫岩) が不整合に重なり (久保ら, 1983; 福田, 1985), かん水および付随ガスは黒松内層下部の砂岩に富む泥岩中の砂岩を主要貯留岩にしている (福田, 1985). 長万部ガス田の天然ガス埋蔵量は約 3.7 億 m^3 と試算される (地質調査所石油課, 1975).

象潟水溶性ガス田は秋田県にかほ市の金浦・象潟地域に分布し (Fig. 1c), 地下地質は中新世の船川層 (黒色泥岩), 下部および上部天徳寺層 (泥岩と砂岩の互層), 鮮新世~更新世の笹岡層 (砂質シルト岩), 更新世の西目層からなり, 笹岡層は南関東ガス田の上総層群にほぼ対比される. かん水と付随ガスは笹岡層と上部・下部天徳寺層を主要貯留岩にしている (矢島, 1967; 福田, 1985). 象潟ガス田の天然ガス埋蔵量は約 1.6 億 m^3 と試算される (地質調査所石油課, 1975).

新潟水溶性ガス田は新潟平野の新潟市周辺とその北方域に分布し, 地下地質は中新世の七谷層 (泥岩), 寺泊層 (泥岩), 鮮新世の椎谷層 (砂岩と泥岩の互層), 西山層 (泥岩), 更新世の灰爪層 (泥岩; 魚沼層群と同時異相), 魚沼層群 (砂岩, 礫岩, 泥岩の互層) からなる (小林ら, 1986; 徳橋・金子, 2003). 本研究で対象にした新潟市内の地下浅部に賦存するかん水と付随ガスは魚沼層群, 灰爪層, 西山層上部の砂岩, 礫岩を貯留岩にしている (Fig. 1d; 徳橋・金子, 2003). このうち, 灰爪層と西山層上部は上部浅海~半深海堆積物, 魚沼層群は潟および上部浅海堆積物でそれぞれ構成され, 海進・海退を繰り返しながら陸地環境に変化していく過程で堆積したと推定されている (石和田・本島, 1958; 小林ら, 1986). 新潟ガス田の天然ガス埋蔵量は約 1,057 億 m^3 と試算される (地質調査所石油課, 1975).

宮崎県には南から日南, 宮崎, 佐土原水溶性ガス田が分布し (Fig. 1e), 地下地質は中生代の四万十層群と古第三紀の日南層群 (砂岩と頁岩の互層) を基盤とし, 新第三紀中新世の宮崎層群が傾斜不整合に重なる (菅原, 1965). 宮崎層群の岩相は地域により大きく異なり, 日南ガス田は青島相 (双石層, 家一郷層, 郷之原層, 蛇ノ河内層, 青島層), 宮崎ガス田は宮崎相 (田野層, 綾層, 鹿村野層, 生目層) からそれぞれなり, かん水と付随ガスは最下位の双石層と田野層 (砂岩, 礫岩) を主要貯留岩にしている (相原・首藤, 1992). 一方, 佐土原ガス田の宮崎層群は妻相からなり, 下位より川原層 (砂岩, 礫岩), 妻層 (泥岩), 本庄層, 瓜生野層, 新名爪層, 佐土原層 (砂岩と泥岩の互層), 高鍋層 (泥岩, 砂岩) に細分される (遠藤・鈴木, 1986). 孔明管挿入区間, ガス水比, かん水の水温によれば, かん水と付随ガスは主に宮崎層群上部の佐土原層 (砂岩) からなる浅部貯留岩 (深度約 300~650 m; SG6a, 7, 7a 井などの採水層) と新名爪層以深の層準 (砂岩) からなる深部貯留岩 (深度約 650 m 以深; SG3, 5, 6a, 7, 7a 井などの採水層) に賦存し, ほとんどは浅部貯留岩にあると推定されている (木野ら, 1984; 加藤ら, 2011). 日南・宮崎, 佐土原ガス田の天然ガス埋蔵量は約 349 億 m^3 と試算される (地質調査所石油課, 1975).

沖縄水溶性ガス田は那覇市以南の沖縄本島南部に分布し (Fig. 1f), 地下地質は西南日本の四万十帯南帯に対比される付加体堆積物からなる始新世の嘉陽層に相当すると推定される基盤岩 (硬質砂岩と粘板岩の互層) に中新世の島尻層群豊見城層 (砂岩, 泥岩, 砂礫岩) が不整合に重なる (中江, 2007; 加藤ら, 2016b). かん水と付随ガスは豊見城層 (砂岩卓越層, 基底砂礫岩層) と基盤岩を貯留岩にしており (加藤ら, 2016b), 沖縄ガス田の天然ガス埋蔵量は約 347 億 m^3 と試算される (地質調査所石油課, 1975).

宮古島水溶性ガス田は宮古島南部に分布し (Fig. 1g), 地下地質は中新世の八重山層群 (砂岩と泥岩の互層) に鮮新世~更新世の島尻層群 (砂岩, 泥岩) が不整合に重なると推定される (加藤ら, 2016a). 試掘井 YG1 のかん水と付随ガスは島尻層群下部と八重山層群の砂岩層を, また周辺に分

布する温泉水 (YH1, 2) は島尻層群をそれぞれ貯留岩にしていると考えられる (加藤ら, 2016a). 宮古島ガス田の天然ガス埋蔵量は約 68 億 m^3 と試算される (地質調査所石油課, 1975).

3. 研究方法

本研究では, 南関東, 新潟水溶性ガス田のかん水, 長万部, 象潟, 日南・宮崎, 佐土原, 宮古島水溶性ガス田のかん水, 温泉水 (一部はガス付随), 沖縄水溶性ガス田のかん水, 温泉水, 地下水 (ガス付随) を対象にしており, 主成分および酸素安定同位体比の分析データの出典と坑井位置を Appendix 1 と Fig. 1 にそれぞれ示す. なお, 南関東ガス田における坑井位置は公表論文で示されていないので, 各ガス田地区を示した (Fig. 1a). これらのかん水, 温泉水, 地下水, およびそれらの起源を検討する上で必要となる最小限の炭酸水素塩泉 (4 地点) を対象に, 公表論文および温泉施設等から入手した温泉分析値, 酸素安定同位体比, 地下変質鉱物データを解析に供した. かん水の一部は温泉に利用されているが, ここでは公表論文での区分を踏襲した. 南関東ガス田の水分析データの公表論文は亀井 (2001), Maekawa *et al.* (2006), 今橋ら (1996), 杉崎ら (1963), 長万部ガス田は福田 (1985), 島田ら (1955), 松波 (1995), 松葉谷ら (1978), 象潟ガス田は矢島 (1967), 加藤 (2014), 新潟ガス田は板谷 (1957, 1958, 1959), 福田 (1979), 中井ら (1974), 日南・宮崎ガス田は福田 (1979), 木野ら (1984), 大沢ら (2010), 加藤ら (2011), 高谷 (2011), 佐土原ガス田は福田 (1979), 福田・永田 (1982), 大沢ら (2010), 加藤ら (2011), 遠藤・鈴木 (1986), 木野ら (1984), 高谷 (2011), 沖縄ガス田は本島・牧野 (1974), 福田 (1979), 沖縄県 (2014), 加藤ら (2016b), 宮古島ガス田は加藤ら (2016a) をそれぞれ用いた. なお, かん水, 温泉水, 地下水の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, 温泉水, 地下水の水質特性

南関東, 長万部, 象潟, 新潟, 日南・宮崎, 佐土原, 沖縄, 宮古島ガス田のかん水, 温泉水, 地下水のトリリニアダイアグラムを Fig. 2 に示す. 新潟ガス田の NG23 井, 日南・宮崎ガス田の MG8, MH12 井, および沖縄ガス田の OH7 井が $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型であるのを除けば $\text{Na}-\text{Cl}$ 型に属し, Ca^{2+} , Mg^{2+} , SO_4^{2-} に乏しいが, 新潟ガス田のかん水では Ca^{2+} と Mg^{2+} にやや富む傾向が認められる. ほとんどのかん水, 温泉水, 地下水の Na^+/Cl^- 比は現海水付近ないしそれより高いが, 新潟ガス田のかん水等ではやや低く, また SO_4^{2-} は日南・宮崎, 佐土原および沖縄ガス田の一部 (MH8a, 12, SH3a, OH1, OW6) を除けばほとんどないし全く含まれない (Fig. 3).

5. 続成変質による間隙水の進化

5.1 海水と $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水の混合による海底泥質堆積物中の間隙水の形成

南関東ガス田の川崎 GS 観測井で掘削時に回収された上総層群の凝灰質泥岩コアに含まれる間隙水の水質分析結果によれば, 現海水より低い Cl^- 濃度 (610~11,550 mg/L) が報告されている (福田ら, 1976). 同様に, 長万部ガス田の HG2 井における黒松内層の泥岩にも 2,922~4,905 mg/L (島田ら, 1955), 新潟ガス田では信濃川の河口から上流約 9 km の舞潟 R-1 井における魚沼層群の泥岩にも 4,000~10,960 mg/L (石和田・本島, 1958), 佐土原ガス田 (浅部貯留岩) の SG1 井における宮崎層群佐土原層の泥岩にも 16,200 mg/L の間隙水がそれぞれ得られている (本島・永田, 1973). このように Cl^- 濃度が現海水より低くなる一因として, スメクタイト→イライト変換による層間水

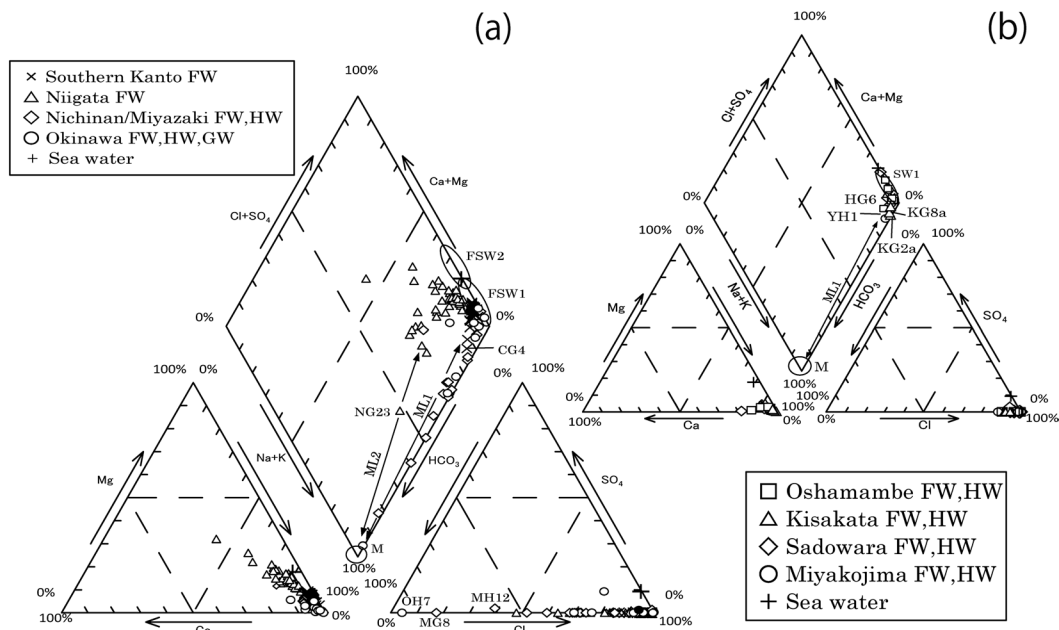


Fig. 2 Trilinear diagrams for the brines, hot spring and ground waters from the water-dissolved gas fields. FW, brine ; HW, hot spring water ; GW, ground water. The well location numbers are the same as in Appendix 1. The ML1 and ML2 show the fossil sea waters 1, 2 (FSW1, 2) —Na-HCO₃ type water (M ; Large open circle) mixing lines, respectively.

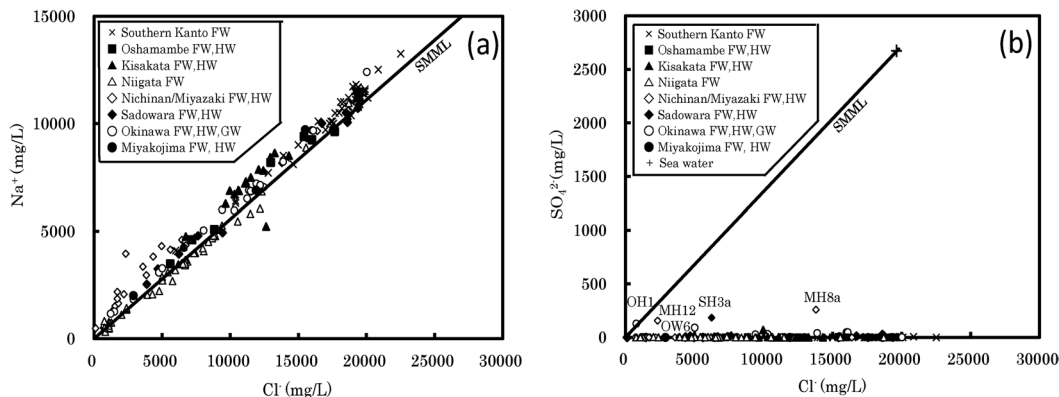


Fig. 3 (a) Na⁺—Cl⁻ (b) SO₄²⁻—Cl⁻ diagrams for the brines, hot spring and ground waters from the water-dissolved gas fields. The well location numbers are the same as in Appendix 1. The FW, HW and GW are the same as in Fig. 2. The SMML shows the sea water-meteoric water mixing line.

の脱水反応 (Dählmann and Lange, 2003) があげられるが、これらのガス田では本反応は行われていない (後述)。したがって、これらのガス田では、降水起源水により種々の程度に海水が希釈されて埋没過程で海底泥質堆積物に閉じ込められた後、この間隙水が断層等を介して貯留岩に移動したと推察され、その他のガス田でも同様である可能性が高い。

川崎 GS 観測井の上総層群から回収された凝灰質泥岩に含まれる間隙水の水質分析結果によれ

ば、続成変質の影響を受ける前の間隙水は海水と Na—HCO₃ 型降水起源水の混合からなることが報告されている (村松, 2017). トリリニアダイアグラムからわかるように, 新潟ガス田の NG23 井, 日南・宮崎ガス田の MG8, MH12 井, および沖縄ガス田の OH7 井は Na—HCO₃ 型であり, 南関東, 長万部, 象潟, 宮古島ガス田の Na—Cl 型に属するかん水・温泉水・地下水の一部 (CG4, HG6, KG2a, 8a, YH1) は HCO₃ にやや富む (Fig. 2). さらに, 本研究で対象とした炭酸塩泉のデータ数は極めて少ないが, 南関東, 長万部, 象潟, 日南・宮崎, 沖縄, 宮古島ガス田のかん水は化石海水 (FSW1) と Na—HCO₃ 型降水起源水 (M) の混合ライン ML1 付近, 新潟ガス田のかん水の多くは化石海水 (FSW2) と Na—HCO₃ 型降水起源水 (M) の混合ライン ML2 付近に概ねプロットされることがわかる. これらのことから, 本研究対象のガス田においても海底泥質堆積物に閉じ込められた続成変質の影響を受ける前の間隙水は海水と Na—HCO₃ 型降水起源水が混合したものと考えられる (Fig. 2).

5.2 続成変質による間隙水の進化

かん水, 温泉水, 地下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⁻ は海水起源であると考えられるので, 次式より試料の過剰・欠損する M 成分の濃度を算出した.

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

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, $[M/Cl]_{sea}$: 海水の Cl⁻ に対する M 成分の濃度, $[Cl]$: 試料の Cl⁻ 濃度.

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, 南関東, 長万部, 象潟, 新潟, 日南・宮崎, 佐土原, 沖縄, 宮古島ガス田のかん水, 温泉水, 地下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する. 海底泥質堆積物の続成作用による泥岩化過程には, 微生物の活動, 有機物の分解, 海底風化変質作用, 粘土鉱物の変化, 間隙水の移動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

初期続成期の埋没過程で有機物を含む海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水は硫酸還元菌による硫酸還元反応を経験する (平, 2004; 村松ら, 2010). Cl⁻—SO₄²⁻ 濃度相関図からわかるように, 今回研究対象にした全ガス田のかん水, 温泉水, 地下水は SO₄²⁻ を殆どないし全く含まず, 硫酸還元反応の進行が示唆される (Fig. 3b).



この硫酸還元菌活動期に, (2)式で生成した間隙水中の HCO₃⁻ は Ca²⁺ と反応してコンクリーションの核などになる方解石の生成に消費されると考えられる (平, 2004; 赤崎, 2015).



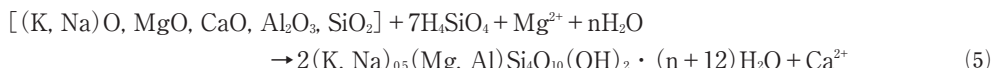
SO₄²⁻ が消費されて硫酸還元菌の活動が終り, 微生物起源メタン生成期に入ると間隙水はメタン生成菌が活発な環境におかれる. 堆積物中に残っている有機物はさらに他の微生物により分解されて二酸化炭素と水素を出し, メタン生成菌がこれらを使って微生物起源メタンを生成する (平, 2004).



炭化水素および炭素安定同位体組成によれば、南関東、新潟ガス田の付随ガスは微生物起源メタン生成期に生じた微生物起源 (佐脇ら, 2016; 早稲田ら, 2011), 象潟, 佐土原ガス田, および宮古島ガス田の深度 1,550 m 以浅の鳥尻層群からなる浅部貯留岩の付随ガスは主に微生物起源であるとそれぞれ推定されている (早稲田・重川, 1988; 加藤ら, 2011, 2016a).

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. カリブ海の海底から深度 400 m 間におけるコア間隙水の Mg^{2+} 濃度は深部に向けて減少する一方, Ca^{2+} 濃度は増加傾向を示しており, 海底泥質堆積物中の火山性物質の Mg—スメクタイト化が一因にあげられている (Lawrence *et al.*, 1975; Scholz *et al.*, 2013).



硫酸還元反応および方解石生成後の過剰 Ca^{2+} 量を ΦCa^{2+} ($\Phi Ca^{2+} = \Delta Ca^{2+} - \Delta SO_4^{2-}$) とおくと, 全ガス田のかん水, 温泉水, 地下水の ΦCa^{2+} と ΔMg^{2+} 濃度間に概ね逆相関が認められており (Fig. 4a), 初期続成期に海底泥質堆積物中の間隙水は硫酸還元反応と方解石生成に加えて, 火山性物質の Mg—スメクタイト化を経験したと判断される.

全ガス田におけるかん水, 温泉水の $\delta^{18}O$ 値と Cl^- 濃度の関係を, 南関東ガス田の河川水 (KM; Nakai *et al.*, 1974; Maekawa *et al.*, 2006), 日南・宮崎, 佐土原ガス田の河川水 (MM, SM; 大沢ら, 2010; 加藤ら, 2011), 沖縄ガス田の湧水, 地下水 (OM; 川満ら, 2011; 加藤ら, 2012), 宮古島ガス田の地下水 (YW; Agata *et al.*, 2011) のデータとともに Fig. 5 に示す. 現海水に近い Cl^- 濃度 (18,500~20,100 mg/L) をもつ南関東, 新潟, 佐土原ガス田の端成分 S, SS 内のかん水の $\delta^{18}O$ 値はそれぞれ -2.0~-0.7%, -2.1~-1.0%, -2.5~-1.9% を示す. カリブ海の海底から深度 400 m 間におけるコア間隙水 (前述) の $\delta^{18}O$ 値は深部で -3% 程度低下していることを踏まえると, これらのガス田では海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水 (海水) は周辺の海底泥質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と推察される (Hoefs, 1973). Figure 5 からわかるように, 南関東ガス田, 象潟ガス田 (KG13), 宮古島 (浅部貯留岩) ガス田 (YH1, 2) のかん水, 温泉水は端成分 S と端成分 KM を結ぶ直線 KML 付近, 新潟ガス田と長万部ガス田 (HH2)

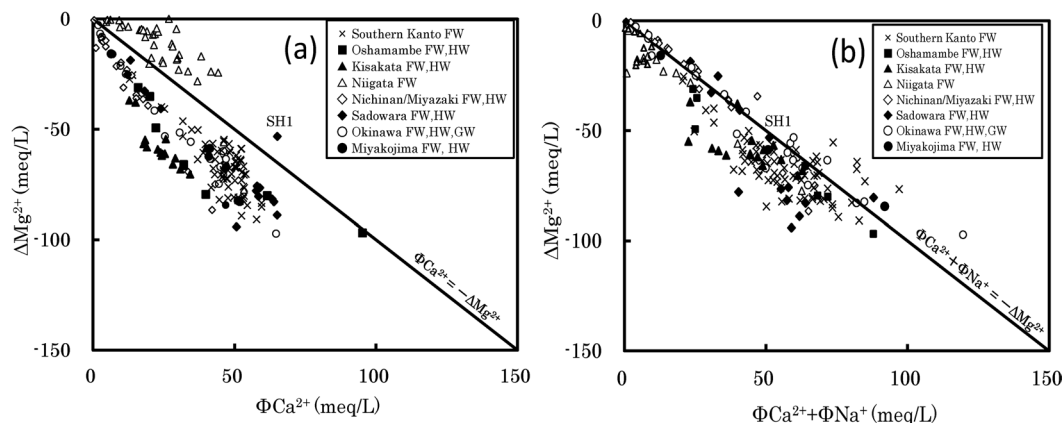


Fig. 4 (a) $\Phi Ca^{2+} - \Delta Mg^{2+}$ (b) $(\Phi Ca^{2+} + \Phi Na^+) - \Delta Mg^{2+}$ diagrams for the brines, hot spring and ground waters from the water-dissolved gas fields. The well location is the same as in Appendix 1. The FW, HW and GW are the same as in Fig. 2.

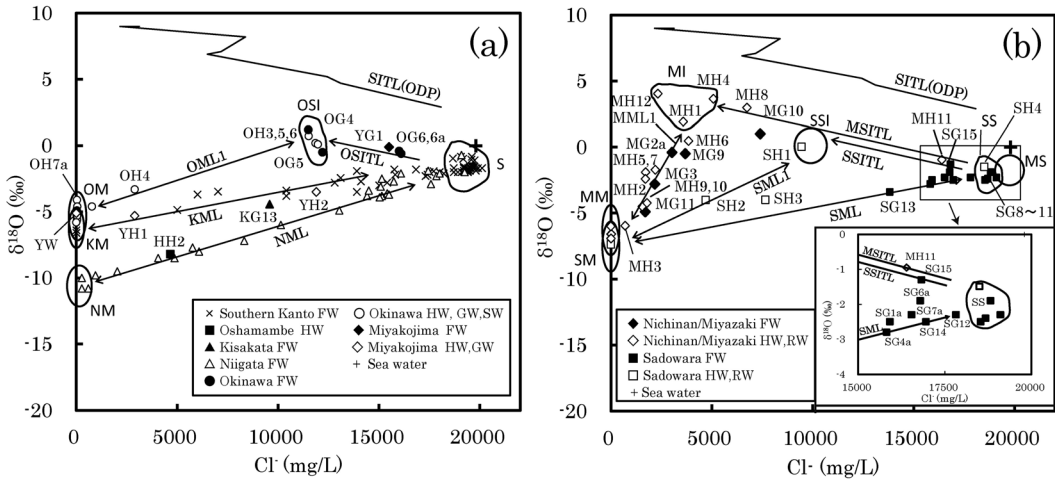


Fig. 5 $\delta^{18}\text{O}$ — Cl^- diagrams for the brines, hot spring and ground waters from the water-dissolved gas fields. The well location numbers are the same as in Appendix 1. The FW, HW and GW are the same as in Fig. 2. SW, spring water ; RW, River water. The S, MS and SS show the fossil sea waters equilibrated with smectite in the Southern Kanto and Niigata, Nichinan/Miyazaki, and Sadowara gas fields, respectively. The OM, KM, NM, MM and SM show the meteoric waters from the Okinawa, Southern Kanto, Niigata, Nichinan/Miyazaki and Sadowara gas fields, respectively. The OSI, MI and SSI show the fossil sea waters equilibrated with illite predominant interstratified illite/smectite minerals in the Okinawa, Nichinan/Miyazaki and Sadowara gas fields, respectively. The KML, NML and SML show the mixing lines of the meteoric water and the fossil sea water equilibrated with smectite in the Southern Kanto, Kisakata and Miyakojima, Niigata and Oshamambe, and Sadowara gas fields, respectively. The OML1, MML1 and SML1 show the mixing lines of the meteoric water and the fossil sea water equilibrated with illite predominant interstratified illite/smectite minerals in the Okinawa, Nichinan/Miyazaki and Sadowara gas fields, respectively. The SITL (ODP), OSITL, MSITL and SSITL show the transitional trends of smectite to illite in the ODP project, Okinawa, Nichinan/Miyazaki and Sadowara gs fields, respectively.

のかん水、温泉水は端成分 S と端成分 NM を結ぶ直線 NML 付近、佐土原ガス田 (SG4a, 12~14) のかん水は端成分 SS と端成分 SM を結ぶ直線 SML 付近にそれぞれプロットされる。これらのことから、 $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水 (端成分 KM, NM, SM に相当) により海水が種々の程度に希釈された間隙水は火山性物質の Mg—スメクタイト化を受けて進化したと推察される。

南関東、新潟ガス田の付随ガスは純粋な微生物起源 (佐脇ら, 2016 ; 早稲田ら, 2011), 象潟、宮古島 (浅部貯留岩) ガス田は主に微生物起源 (早稲田・重川, 1988 ; 加藤ら, 2016a) であると推定されていることを勘案すると、 $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度の関係図で微生物ガスを溶存するかん水、温泉水をもたらした間隙水は直線 KML, NML 付近にプロットされることがわかる (Fig. 5)。また、佐土原ガス田の付随ガスは主に宮崎層群の泥質岩で生成された微生物起源 (加藤ら, 2011) であると推定されており、 $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度が直線 SML 付近にプロットされるかん水と付随ガスは浅部貯留岩 (主に宮崎層群佐土原層の砂岩) に賦存しているのであろう (Fig. 5b)。

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 58~142°C でイライトに変換する (Freed and Peacor, 1989)。イライトの生成には K^+ の供給量が関係し (吉村, 2001), 変換が進行すると ΔK^+ と Cl^- 濃度間に逆相関関係が認められるようになる (村松ら, 2016a)。 ΔK^+ と Cl^- 濃度の関係を見ると、南関東、長万部、象潟、新潟ガス田のかん水、温泉水は直線 L0 (傾き 0) を挟むように分散しており、これらをもたらした海底泥質堆積物中の間隙水はスメクタイトのイライト化を経験していないことがわかる (Fig. 6a)。例外的に、宮古島 (浅部貯留岩) ガス田 (YH1, 2)

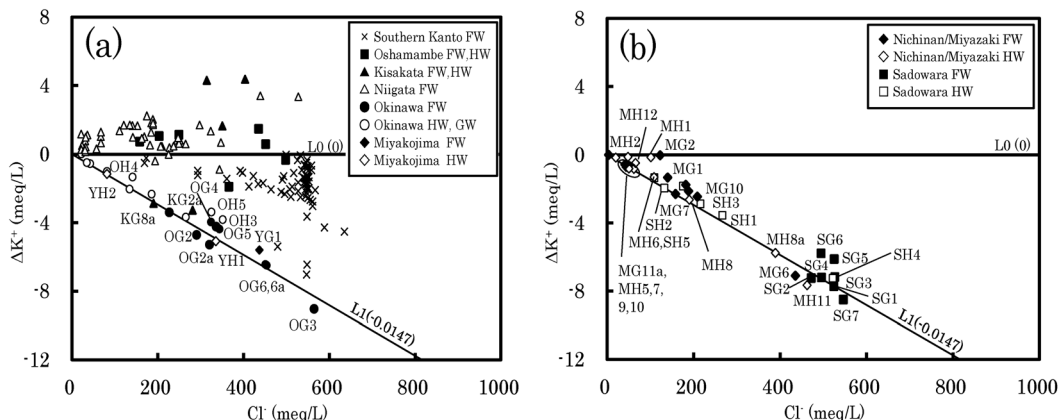


Fig. 6 $\Delta K^+ - Cl^-$ diagrams for the brines, hot spring and ground waters from the water-dissolved gas fields. The well location numbers are the same as in Appendix 1. The FW, HW and GW are the same as in Fig. 2. The L0 and L1 see in text.

の温泉水は逆相関を示しており、その理由は明らかでない。南関東ガス田でスメクタイトのイライト化が進行していないことは地下変質鉱物の分布と整合的である。すなわち、茂原地域でかん水を汲み上げている上総層群の泥質岩にスメクタイトは少量含まれるがイライトはごく微量に過ぎず、東京湾岸地域の上総層群でも同様である（亀井，2001；村松ら，2016a）。このように、微生物起源メタン生成期に安定な粘土鉱物はスメクタイトであり、イライト化は進行していない。

5. 2. 3 イオン交換反応

硫酸還元菌による硫酸還元反応を経験している全ガス田のかん水、温泉水、地下水の ΦCa^{2+} と ΔMg^{2+} 濃度間には概ね逆相関が認められたが、ほとんどが直線 $\Phi Ca^{2+} = -\Delta Mg^{2+}$ から外れ、新潟ガス田のかん水と佐土原（深部貯留岩）ガス田の温泉水（SH1）を除けば、直線 $\Phi Ca^{2+} = -\Delta Mg^{2+}$ より ΦCa^{2+} に欠損する（Fig. 4a）。前述したように、全ガス田のかん水、温泉水、地下水をもたらしした海底泥質堆積物中の間隙水には $Na-HCO_3$ 型降水起源水が関与している。 $Na-HCO_3$ 型降水起源水は関東平野に分布する塩化物泉の形成に関与し、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されたことが村松ら（2016a, b）によって報告されており、本研究対象の水溶性ガス田のかん水、温泉水、地下水においても同様であろう。そこで、火山性物質の Na -スメクタイト化後の過剰 Na^+ 量 ($\Phi Na^+ = \Delta Na^+ - \Delta HCO_3^-$) を求めると多くはプラスになることから、 $(\Phi Ca^{2+} + \Phi Na^+)$ と ΔMg^{2+} の関係をみると直線 $(\Phi Ca^{2+} + \Phi Na^+) = -\Delta Mg^{2+}$ 付近にプロットされる（Fig. 4b）。粘土鉱物に対する主要な陽イオンの吸着力の大きさは $Ca^{2+} > Mg^{2+} > Na^+$ であることを踏まえれば（白水，1988）、埋没過程で $Na-HCO_3$ 型降水起源水により種々の程度に海水が希釈されて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 -スメクタイト化を経験したと推察される。

一方、新潟ガス田のかん水と佐土原（深部貯留岩）ガス田の温泉水（SH1）は直線 $\Phi Ca^{2+} = -\Delta Mg^{2+}$ より ΦCa^{2+} に過剰であり、これらの Ca^{2+} に富むかん水と温泉水の ΦNa^+ はマイナスを示す（Fig. 4a）。そこで、 $(\Phi Ca^{2+} + \Phi Na^+)$ と ΔMg^{2+} の関係をみると、新潟ガス田のかん水の過半数と佐土原（深部貯留岩）ガス田の温泉水（SH1）は直線 $(\Phi Ca^{2+} + \Phi Na^+) = -\Delta Mg^{2+}$ 付近にプロットされ、当該かん水と温泉水における Ca^{2+} の増加は Ca -スメクタイトの陽イオン交換反応による Na -スメクタイト化に起因することがわかる（Fig. 4b）。海水と堆積物・岩石の相互作用に関する実験によれば、

海水が浸入するような Cl^- 濃度が増加する環境では、粘土層の Ca^{2+} に富むイオン交換体と海水の陽イオン交換反応によって Ca^{2+} に富む塩水化地下水と Na^+ に富むイオン交換体が形成される (池田, 1985)。この実験結果によれば、新潟ガス田では埋没過程で $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水により種々の程度に海水が希釈されて魚沼層群の海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水は硫酸還元反応と方解石生成、火山性物質の Mg -スメクタイト化を経験した後、魚沼層群の陸成堆積物に移動して Ca -スメクタイトの Na -スメクタイト化を受けたと推察される。

5.2.4 スメクタイトのイライト化作用

後期続成期になり、埋没深度が増加して地温が 70°C 近くになると微生物の活動は徐々に減少し、海底泥質堆積物中の有機物は熱分解によってカルボキシル基を除去する反応を受けるようになり、酢酸 CH_3COOH の場合には次の反応でメタンが生成される (平, 2004)。

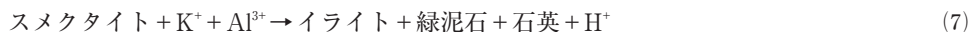


日南・宮崎、沖縄ガス田、および宮古島ガス田の深度 1,600 m 以深の島尻層群と八重山層群からなる深部貯留岩の付随ガスは熱分解起源メタン生成期に生じた熱分解起源を主とする と推定されている (大沢, 2010; 加藤, 2011; 金子ら, 2006; 加藤ら, 2012, 2016a, b)。

(1) 日南・宮崎ガス田

スメクタイトは $58\sim 142^\circ\text{C}$ でイライト/スメクタイト (I/S) 混合層鉱物を経てイライトに変換する。Figure 5b からわかるように、日南・宮崎ガス田のかん水、温泉水 (MH8, 11, MG10) の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度は直線 MSITL 付近に、温泉水 (MH1, 4, 12; 端成分 MI) はその外挿線上にそれぞれプロットされる。大沢ら (2010) によれば、温泉水 (MH1, 12) は現海水に比して ^{18}O に富み Cl^- 濃度に乏しいことで特徴づけられることから、起源流体はスメクタイト-イライト変換に伴うスメクタイト層間からの脱水流体であると推定されている。また、直線 MSITL のような逆相関関係は新潟油・ガス田のかん水、温泉水でも認められており、岩石との反応、粘土鉱物の層間水による希釈などによってもたらされたことが報告されている (加藤・梶原, 1986; 伊藤ら, 2004)。東地中海の泥火山で掘削回収されたコアに含まれる間隙水の深度に伴う $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度の変化には逆相関 (Fig. 5 の SITL (ODP)) 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ことが報告されている (Dähmann and Lange, 2003)。日南・宮崎ガス田の直線 MSITL は SITL (ODP) に似た傾きをもち、当該かん水、温泉水をもたらしした間隙水は本脱水反応を経験していると推察される。

かん水、温泉水をもたらしした間隙水がスメクタイトのイライト化を経験したか否かは $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度の関係に加えて、 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。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)。



イライトないしイライトに卓越する I/S 混合層鉱物が分布する温泉貯留層から採水している関東、新潟平野の塩化物泉における ΔK^+ と Cl^- 濃度には逆相関が認められる (村松ら, 2016a, b; 村松, 2017)。新潟平野の椎谷層、寺泊層を温泉貯留層とする塩化物泉では、この逆相関は直線 L1 (傾き -0.0147) を示すことが報告されており (村松, 2017)、日南・宮崎ガス田のかん水、温泉水 (MH8, 8a, 11, 12, MG1, 6, 10) の ΔK^+ と Cl^- 濃度も直線 L1 付近にプロットされる (Fig. 6b)。

以上の結果から、これらの日南・宮崎ガス田のかん水、温泉水をもたらしした間隙水の進化は次のようにまとめられる。海底泥質堆積物 (宮崎層群田野層, 双石層) に閉じ込められた間隙水 (海水)

は埋没過程で火山性物質の Mg—スメクタイト化を受け、スメクタイトと化学平衡にある端成分 MS に進化した (Fig. 5b). その後、間隙水は埋没に伴う地温上昇に起因するスメクタイト—イライトの変換に伴う層間水の脱水反応を継続的に受けて、I/S 混合層鉱物と化学平衡にあるかん水、温泉水 (MH11, MG10, MH8) をもたらした間隙水を経て、最終的にイライトに極めて富む I/S 混合層鉱物ないしイライトと化学平衡にある端成分 MI の間隙水へ直線 MSITL に沿って進化した後、圧密により宮崎層群の砂岩層に移動・貯留された。日南・宮崎ガス田の付随ガスは主に熱分解起源であり、有機変成度から判断して日南層群で生成したと推定されていることを勘案すると、日南層群で生成したガスが上昇して宮崎層群の砂岩層中のかん水に溶け込んだのであろう (松下ら, 1961; 加藤, 2011)。

日南・宮崎ガス田のかん水、温泉水 (MG2a, 3, 9, 11, MH2, 3, 5~7, 9, 10) の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度は端成分 MI と Na— HCO_3 型降水起源水の端成分 MM を結ぶ直線 MML1 付近に、またかん水、温泉水 (MG11a, MH5~7, 9, 10) の ΔK^+ と Cl^- 濃度は直線 L1 付近にそれぞれプロットされる (Figs. 5b, 6b). これらのことから、海水と Na— 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に火山性物質の Mg—スメクタイト化を受けて直線 SML 付近に本来プロットされた間隙水の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度は、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、これらのかん水、温泉水の各値にシフトしたと推察される (Fig. 5b)。

(2) 佐土原 (深部貯留岩)、沖縄、宮古島 (深部貯留岩) ガス田

Figure 5b からわかるように、佐土原ガス田のかん水、温泉水 (SG8~11, SH4; 端成分 SS), かん水 (SG15), 温泉水 (SH1; 端成分 SSI) は直線 SITL (ODP) に似た傾きをもつ直線 SSITL 付近ないし外挿線上にプロットされ、温泉水 (SG1~7, SH1, 4) の ΔK^+ と Cl^- 濃度は直線 L1 付近にプロットされる (Fig. 6b). 孔明管の挿入深度に基づけば、少なくとも SG2, 3, 5, 6, 15, SH1 井は深部貯留岩からかん水、温泉水を採取していることを勘案すると、佐土原 (深部貯留岩) ガス田においてスメクタイトのイライト化が進行したと判断される。一方、かん水 (SG1a, 6a, 7a) の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度は直線 SSITL と SML の間にプロットされることから、浅部貯留岩と深部貯留岩に由来するかん水の関与が予想される (Fig. 5b). このうち、SG7a 井は深度 369~549 m (浅部貯留岩) と深度 648~1,188 m (深部貯留岩) に孔明管を挿入していることから (木野ら, 1984)、両貯留岩 (宮崎層群の砂岩) に賦存するかん水が生産時に孔井内に流入混合したものと解釈でき、SG1a, 6a 井も同様である。

深部貯留岩におけるスメクタイトのイライト化は、SG1 井で①深度 849, 1200 m の泥岩コアに I/S 混合層鉱物が出現する ②深度 849 m の泥岩コアから Cl^- 濃度 13,100 mg/L の間隙水が得られていることから支持される (本島・永田, 1973). なお、SG1 井の深度 849, 1,200 m, SG2 井の 1,060, 1,340 m の泥岩コアには緑泥石が I/S 混合層鉱物と共存しており、スメクタイトのイライト化に伴って間隙水中に放出された Mg^{2+} は緑泥石の生成 ((7)式) に消費されたと考えられる (本島・永田, 1973; 吉村, 2001). 佐土原ガス田のかん水に付随するガスには宮崎層群の続成過程で生成された低熱成度の熱分解起源が少量含まれると推定されていることから (加藤ら, 2011)、深部貯留岩で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たことが示唆される。

次に、沖縄、宮古島 (深部貯留岩) ガス田を検討しよう。沖縄ガス田のかん水、温泉水 (OG4, 5, OH3, 5, 6; 端成分 OSI) とかん水 (OG6, 6a), 宮古島 (深部貯留岩) ガス田のかん水 (YG1) をほぼ通る直線 OSITL の傾きは SITL (ODP) に似ており、これら (K^+ 濃度が不明の OH6 を除く) を含むかん水と温泉水 (OG2a, 2~6, 6a, OH3, 5, YG1) の ΔK^+ と Cl^- 濃度は直線 L1 付近にプロットされる (Figs. 5a, 6a). 沖縄ガス田のかん水、温泉水 (OG4, 5, OH3, 4, 6) に付随するガスは熱分

解起源（金子ら，2006；加藤ら，2012，2016b），宮古島（深部貯留岩）ガス田のかん水に付随するガスは熱分解起源が主体である（加藤ら，2016a）と推定されており，両ガス田において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たことが示唆される．沖縄ガス田ではスメクタイトのイライト化は地下変質鉱物の分布とも整合的である．すなわち，I/S 混合層鉱物が OG2 井（孔底深度 978 m）の深度 620 m および 820 m の島尻層群豊見城層の泥岩コアに確認されており（本島・永田，1973），その北西約 1.2 km の OH3 井（同 800 m）の産出層準である基盤岩（約 750 m 以深）にも出現すると予想される（加藤ら，2012）．なお，OG2 井の深度 620，820 m の島尻層群豊見城層の泥岩コアに緑泥石が I/S 混合層鉱物と共存しており，佐土原（深部貯留岩）ガス田と同様にスメクタイトのイライト化によって間隙水に放出された Mg^{2+} は緑泥石の生成に消費されたのであろう（本島・永田，1973）．

象潟ガス田の付随ガスには熱分解起源が微量混合しており，象潟ガス田の東方には院内・桂坂油田があることを勘案して，深部で生成した熱分解ガスの一部が上方移動してきた可能性が考えられている（早稲田・重川，1988）．Figure 6a からわかるように，本ガス田のかん水（KG2a，8a）の ΔK^+ と Cl^- 濃度は直線 L 1 付近にプロットされることから，当該かん水をもたらした間隙水は深部の海底泥質堆積物中でスメクタイトのイライト化を経験した後，上方の貯留岩に移動した可能性が考えられる．

以上の結果から，佐土原（深部貯留岩），沖縄，宮古島（深部貯留岩）ガス田における間隙水の進化は日南・宮崎ガス田と同様である．すなわち，海底泥質堆積物に閉じ込められた間隙水（海水）は火山性物質の Mg -スメクタイト化を受けて端成分 SS，S に変質した後，スメクタイト→イライトの変換に伴う脱水反応を継続的に受けて I/S 混合層鉱物と化学平衡にあるかん水（SG15，OG6，6a，YG1）をもたらした間隙水に進化した（Fig. 5）．さらに，佐土原（深部貯留岩），沖縄ガス田ではイライトに富む I/S 混合層鉱物と化学平衡にあるかん水，温泉水（SH1，OG4，5，OH3，5，6）をもたらした間隙水（端成分 SSI，OSI）に進化した．なお，端成分 SSI と OSI の $\delta^{18}O$ 値は端成分 MI より小さく，佐土原（深部貯留岩），沖縄ガス田におけるスメクタイトのイライト化は日南・宮崎ガス田より進行していないと判断される（Fig. 5）．その後，間隙水は圧密により移動して宮崎層群新名爪層以深の砂岩，島尻層群豊見城層～基盤岩，島尻層群下部と八重山層群にそれぞれ貯留されたと推察される．

佐土原ガス田の温泉水（SH2，3）の $\delta^{18}O$ 値と Cl^- 濃度は端成分 SSI と SM を結ぶ直線 SML1 付近に，沖縄ガス田の温泉水（OH4）は端成分 OSI と OM を結ぶ直線 OML1 付近にそれぞれプロットされる（Fig. 5）．当該温泉水の ΔK^+ と Cl^- 濃度は直線 L1 付近にプロットされることを勘案すると， $\delta^{18}O$ 値と Cl^- 濃度の解釈は日南・宮崎ガス田の直線 MML1 付近のかん水，温泉水と同様である（Figs. 5，6）．

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，全水溶性ガス田のかん水，温泉水，地下水の水質形成機構をまとめると，Table 1 のとおりである．全ガス田のかん水，温泉水，地下水をもたらした間隙水は初期続成作用を経験した後，後期続成期に日南・宮崎，佐土原（深部貯留岩），沖縄，宮古島（深部貯留岩）ガス田の間隙水はスメクタイトのイライト化も経験した．

6. ま と め

南関東，長万部，象潟，新潟，日南・宮崎，佐土原，沖縄，宮古島水溶性ガス田のかん水，温泉水，地下水を対象に，主成分および酸素安定同位体比の分析データを文献収集し，海底泥質堆積物

Table 1 Summary for the diagenetic evolution of pore water trapped in the marine muddy sediments of the the water-dissolved gas fields.

Diagenetic stage	Diagenetic process	Compositional change of pore water	Water-dissolved gas fields			
			Southern Kanto, Oshamambe, Kisakata	Niigata	Nichinan/Miyazaki, Okinawa	Sadowara, Miyakojima
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	○	×	○	○ (Except for well SH1)
	・Ion exchange of Ca-smectite to Na-smectite	・Increase of Ca^{2+} concentration ・Decrease of Na^+ concentration	×	○	×	×
Late stage	・Smectite-illite transition	・Decreases of K^+ and Cl^- concentrations ・Positive shift of $\delta^{18}\text{O}$ value	×	×	○	×

SR, Shallow reservoir ; DR, Deep reservoir.

の泥岩化過程で進行する埋没続成変質過程における海水起源の間隙水の進化の視点に立って水質形成機構を検討した。その結果、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で得られた水質形成機構がこれらのガス田のかん水、温泉水、地下水でも概ね成立することが明らかとなった。得られた結果は以下のとおりである。

(1) 全水溶性ガス田のかん水、温泉水、地下水のほとんどは Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 SO_4^{2-} に乏しいが、新潟ガス田のかん水は Ca^{2+} と Mg^{2+} にやや富む傾向を示しており、これらをもたらした続成変質の影響を受ける前の間隙水は海水と $\text{Na}-\text{HCO}_3$ 型降水起源水が混合したものである。かん水、温泉水の $\delta^{18}\text{O}$ 値と Cl^- 濃度の関係を見ると、日南・宮崎、佐土原（深部貯留岩）、沖縄、宮古島（深部貯留岩）ガス田は正および逆相関を、南関東、長万部、象潟、新潟、佐土原（浅部貯留岩）、宮古島（浅部貯留岩）ガス田は正相関をそれぞれ示し、前者は熱分解ガス、後者は微生物ガスを伴う。

(2) このような主成分および $\delta^{18}\text{O}$ 値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でき、地下構成鉱物と整合的である。すなわち、地下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、間隙水は初期続成期の埋没過程で硫酸還元反応、方解石生成、火山性物質の Mg -スメクタイト化、 Na -スメクタイトの Mg -スメクタイト化（新潟ガス田を除く）、 Ca -スメクタイトの Na -スメクタイト化（新潟ガス田）を経験した。後期続成期になると、日南・宮崎、佐土原（深部貯留岩）、沖縄、宮古島（深部貯留岩）ガス田の間隙水はスメクタイトのイライト化を経験した。

謝 辞

匿名の 2 名の査読者には懇切丁寧なご指摘を頂きました。ここに記して深く感謝いたします。

引用文献

Agata, S., Satake, H. and Zhang, J. (2011) : Isotopic characteristics of hydrogen and oxygen for groundwater of Nansei Islands, Japan. *Radioisotopes*, **60**, 203–213.

- 相原安津夫, 首藤次男 (1992): 7.4 燃料資源 (2) 天然ガス. 日本の地質 9 九州地方, 296-297. 日本の地質「九州地方」編集委員会編. 共立出版, 東京.
- 赤崎広志 (2015): みやざき地質ガイド—郷土宮崎を知るツールとしての地質学—. 宮崎県文化講座研究紀要, 42, 1-22. 宮崎県立図書館.
- 地質調査所石油課 (1975): 水溶型ガス鉱床の埋蔵量. 石油技術協会誌, 40, 183-185.
- 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.
- 遠藤秀典, 鈴木祐一郎 (1986): 妻及び高鍋地域の地質. 地域地質研究報告 (5 万分の 1 地質図幅), 鹿児島 (15), 第 68・69 号, 地質調査所, 105 p.
- 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.
- 福田 理 (1979): 共水性ガスとその鉱床 (その 2). 地質ニュース 296, 6-18.
- 福田 理 (1985): 日本のホウ素資源と水溶型ホウ素鉱床—その 2. 地質ニュース, 371, 40-55.
- 福田 理, 永田松三 (1982): 日本の水溶型ヨウ素鉱床. 石油技術協会誌, 47, 168-185.
- 福田 理, 永田松三, 垣見俊弘 (1976): 川崎地区水位・水質観測井について (その 2 坑井編②). 地質ニュース, 260, 1-9.
- Hoefs, J. (1973): Stable Isotope Geochemistry. Springer-Verlag Berlin Heidelberg. 同位体地球化学の基礎. 和田秀樹, 服部陽子訳. pp 383. シュプリンガー・ジャパン, 東京.
- 池田喜代治 (1985): 海岸平野における塩水化地下水の水・堆積物相互作用と化学組成. 陸水学雑誌, 46, 303-314.
- 今橋正征, 加藤尚之, 高松信樹, 相川嘉正 (1996): 千葉県を中心とした地域の温鉱泉水およびガス田付随水中の臭化物およびヨウ化物イオン含量. 温泉科学, 46, 69-78.
- 石和田靖章, 本島公司 (1958): 新潟ガス田舞瀧深掘井調査報告. 地質調査所月報, 9, 117-122.
- 板谷実平 (1957): 新潟市内天然ガス付随水の化学的研究 (第 1~3 報) (第 1 報). 日本化学雑誌, 78, 430-434.
- 板谷実平 (1958): 新潟市内天然ガス付随水の化学的研究 (第 4 報) 層の深浅による溶存成分の変化について. 日本化学雑誌, 79, 900-907.
- 板谷実平 (1959): 新潟市内天然ガス付随水の化学的研究 (第 5 報) 層の深浅による溶存成分の変化とそれらの関係について (その 2). 日本化学雑誌, 80, 145-151.
- 伊藤俊方, 小松原岳史, 佐藤 修 (2004): 北部フォッサマグナ地域における深層地下水の水質特性. 応用地質, 45, 22-30.
- 亀井玄人 (2001): 茂原ガス田の地下水に含まれるヨウ素の起源と挙動. 資源地質, 51, 145-151.
- 金子信行, 猪狩俊一郎, 中川 洋, 平良直秀, 石原金盛 (2006): 沖縄本島南部の温泉付随可燃性天然ガスの地球化学. 日本地質学会第 113 年学術大会講演要旨, 89.
- 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, 梶原義照 (1986): 新潟地域油・ガス田付随水の水素および酸素の同位体組成. 石油技術協会誌, 51, 113-122.
- 加藤 進, 早稲田 周, 岩野裕継 (2011): 宮崎県の水溶性天然ガス田における地球化学. 石油技術協会誌, 76, 244-253.
- 加藤 進, 本多孝安, 大見謝恒慈路 (2012): 沖縄県南城 R1 の石油地質. 石油技術協会誌, 77, 86-95.

- 加藤 進, 根本欣典, 侯 建勇 (2016a): 沖縄県宮古 R-1 の石油地質. 石油技術協会誌, **81**, 302-311.
- 加藤 進, 根本欣典, 侯 建勇 (2016b): 沖縄本島南部の水溶性天然ガス. 石油技術協会誌, **81**, 312-321.
- 川満一史, 島野安雄, 藪崎志穂 (2011): 名水を訪ねて (94) 沖縄本島中部の名水. 地下水学会誌, **53**, 309-316.
- 木野義人, 影山邦夫, 奥村公男, 遠藤秀典, 福田 理, 横山勝三 (1984): 宮崎地域の地質. 地域地質研究報告 (5 万分の 1 図幅), 鹿児島 (15), 第 76 号, 地質調査所, 100 p.
- 小林巖雄, 立石雅昭, 安井 賢, 風岡 修, 黒川勝己, 油井 裕, 渡辺其久男 (1986): 新潟積成盆地における西山・灰爪累層, 魚沼層群の層序と古環境. 地質学雑誌, **92**, 375-390.
- 国交省 (2007): 施設整備・管理のための天然ガス対策ガイドブック. 営繕工事における天然ガス対応のための関係管公庁連絡会議編, 国土交通省関東地方整備局東京第二営繕事務所発行. 100 p.
- 久保和也, 石田正夫, 成田英吉 (1983): 長万部地域の地質. 地域地質研究報告 (5 万分の 1 図幅), 札幌 (4), 第 48 号, 地質調査所, 76 p.
- 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.
- Maekawa, T., Igari S. and Kaneko, N. (2006): Chemical and isotopic compositions of brines from dissolved-in-water type natural gas fields in Chiba, Japan. *Geochem. J.*, **40**, 475-484.
- 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 (1995): 北海道の海岸地域に分布する高濃度塩水について. 地下資源調査所報告, **67**, 41-58.
- 松下久道, 吉田 稔, 蓑原 稔, 石和田靖章, 牧野登喜男 (1961): 宮崎県日南地区調査報告 (地質および地化学調査). 九州地方天然ガス開発利用調査報告, 187-209.
- 本島公司, 永田松三 (1973): 海底泥質岩の含水率とその炭化水素鉱床の地球化学との関連. 石油技術協会誌, **38**, 268-281.
- 本島公司, 牧野登喜男 (1974): 琉球の天然ガス資源. 地質調査所月報, **16**, 193-216.
- 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, 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, 近藤史也, 千葉 仁, 早稻田 周, 長島秀行 (2010): 関東山地北縁における非火山性温泉の水質および安定同位体比とその地質学的解釈. 温泉科学, **60**, 4-21.
- 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.
- 中江 訓 (2007): 琉球弧先第三系基盤岩の層序区分と西南日本との対比. 地質ニュース, **633**, 11-21.
- 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, **7**, 8, 87-98.

- 名取博夫 (1997) : 茂原型天然ガス鉍床はメタンハイドレート起源か. 地質ニュース, **510**, 59-66.
- 楡井 久, 近藤精造, 品田芳二郎 (1986) : 5.4 燃料資源. 日本の地質 3 関東地方, 246-247. 日本の地質「関東地方」編集委員会編. 共立出版, 東京.
- 沖縄県 (2014) : 平成 26 年度 天然ガス資源活用促進に向けた試掘調査事業. 沖縄県商工労働部産業政策課試掘事業共同企業体, 120 p.
- 大沢信二, 網田和宏, 山田 誠, 三島壮智, 風早康平 (2010) : 宮崎平野の大深度温泉井から流出する温泉水の地化学特性と成因—温泉起源流体としての続成脱水流体—. 温泉科学, **59**, 295-319.
- 佐崎貴幸, 金子信行, 前川竜男, 猪狩俊一郎 (2016) : 燃料資源図「関東地方」について. 地質ニュース, **5**, 45-49.
- 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.
- 島田忠夫, 矢崎清貫, 狛 武 (1955) : 北海道長万部町における天然ガス試掘井 (長万部 R-1 号) のコア—試験およびリフト試験について. 石油技術協会誌, **20**, 164-171.
- 白水晴雄 (1988) : 粘土鉍物学—粘土科学の基礎—. pp. 185, 朝倉書店, 東京.
- 菅原通敬 (1965) : 宮崎ガス田 (とくに宮崎市西方地区) のガス鉍床について. 鉍山地質, **15**, 26-35.
- 杉崎隆一, 吉本泰介, 加藤喜久雄, 杉浦 孜 (1963) : 南関東ガス田の地球化学的考察—とくにガス成分と鉍床の存在状態との関連について—. 地質学雑誌, **69**, 67-81.
- 平 朝彦 (2004) : 地質学 2 地層の解説. pp 441, 岩波書店, 東京.
- 高谷精二 (2011) : チャレンジする宮崎の応用地質. 宮崎県文化講座研究紀要 (平成 23 年度), **38**, 43-56.
- 天然ガス鉍業会 (2017a) : わが国の石油・天然ガスノート. 21 p.
- 天然ガス鉍業会 (2017b) : わが国の天然ガス鉍業. <http://www.tengas.gr.jp/natural-gas.html> (2017. 10. 25 閲覧).
- 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.
- 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. 石油技術協会誌, **53**, 213-222.
- 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. 石油技術協会誌, **76**, 43-51.
- 矢島正一郎 (1967) : 象潟ガス田の開発. 石油学会誌, **10**, 196-207.
- 吉村尚久編著 (2001) : 粘土鉍物と変質作用. 地学双書 32. 地学団体研究会. 東京. 293 p.

Appendix 1 1 Well location and data source of the brines, hot spring and ground waters from the water-dissolved gas fields.

*1 : Parenthesis shows strainer zone. References : (1) Maekawa *et al.* (2006), (2) Kamei (2001), (3) Imahashi *et al.* (1996), (4) Sugisaki *et al.* (1963), (5) Fukuda (1979), (6) Itaya (1957), (7) Itaya (1958), (8) Nakai *et al.* (1974), (9) Fukuda and Nagata (1982), (10) Kato *et al.* (2011), (11) Kino *et al.* (1984), (12) Osawa *et al.* (2010), (13) Endo and Suzuki (1986), (14) Okinawa Pref. (2014), (15) Kato *et al.* (2016b), (16) Motojima and Makino (1974), (17) Unpublished data, (18) Takatani (2011), (19) Yashima (1967), (20) Kato (2014), (21) Kato *et al.* (2016a), (22) Fukuda (1985), (23) Shimada *et al.* (1955), (24) Matsunami (1995), (25) Matsubaya *et al.* (1978), (26) Itaya (1959).

Well No.	Name/Locality	Depth(m) ¹⁾	Type	References	Well No.	Name/Locality	Depth(m) ¹⁾	Type	References
(1) Southern Kanto water-dissolved gas field									
Otaki-Mobara areas									
CG1~19	MK-M1~18		Na-Cl	(1)	NG33	Teiseki-34	(582-625)	Na-Cl	(26)
CG23	No.4	(852-1302)	Na-Cl	(2)	NG34	Teiseki-36	(741-777)	Na-Cl	(26)
CG26~27	Mobara 1,2		Na-Cl	(3)	NG35	Teiseki-35	(733-771)	Na-Cl	(26)
CG28	NTG NR1	1511	Na-Cl	(4)	NG36	Teiseki-33	(679-704)	Na-Cl	(26)
CG31	Godō 615	1365	Na-Cl	(4)	NG37	Hokuriku-3	(165-195)	Na-Cl	(26)
CG32	Godō 617	1536	Na-Cl	(4)	NG38	Hokuriku-7	(177-214)	Na-Cl	(26)
CG33~35	Otaki1~3		Na-Cl	(3)	NG39	Hokuriku-6	(636-666)	Na-Cl	(26)
Yokoshiba area									
CG36~40	MK-Y1~5		Na-Cl	(1)	NG40	Hokuriku-18	(183-220)	Na-Cl	(26)
CG41	Y-13	1224	Na-Cl	(4)	NG41	Hokuriku-16	(660-697)	Na-Cl	(26)
Togano/Kujukuri areas									
CG42~44	MK-K1,MK-T1,2		Na-Cl	(1)	NG42	Hokuriku-26	(644-682)	Na-Cl	(26)
CG45	Togano R2	1050	Na-Cl	(4)	NG43	Hokuriku-25	(726-774)	Na-Cl	(26)
(5) Nichinan/Miyazaki water-dissolved gas fields									
Asahi area									
CG46,47	Asahi 1,2		Na-Cl	(3)	NG44	Ishiyama-1.2	(688-745)	Na-Cl	(26)
Narutoh area									
CG48~52			Na-Cl	(1)	NG45	Ishiyama-1.1	(1079-1139)	Na-Cl	(26)
CG53	C4	(1351-1947)	Na-Cl	(2)	Nichinan area				
CG55	W35	(1234-1791)	Na-Cl	(2)	MG1	Nichinan-1	unknown	Na-Cl	(5)
CG56	Z41	(1427-1800)	Na-Cl	(2)	MG2,2a	Kitago-R1	810	Na-Cl	(5)(10)
CG57	BB43	(1450-1800)	Na-Cl	(2)	MH1	Nichinan-12	800	Na-Cl	(12)
CG58	BD47	(1492-1492)	Na-Cl	(2)	MH2	Nichinan-13	1200	Na-Cl	(12)
Miyazaki area									
Narita area									
CG59~64	Noa.37~42		Na-Cl	(1)	MH3	Nichinan-14	1000	Na-Cl	(12)
CG65	Narita-2	815	Na-Cl	(4)	MH4	Nichinan-15	1300	Na-Cl	(12)
Chiba/Narashino/Funabashi areas									
CG66~69	MK-H1,MK-C1,2,3		Na-Cl	(1)	MG3	Sumiseki-R2	851(714-829)	Na-Cl	(10)
CG70	Kenei	900	Na-Cl	(4)	MG4	Miyazaki-HS	unknown	Na-Cl	(5)
CG71	FR2	1711	Na-Cl	(4)	MG5	Junwakai	1084(1009-1081)	Na-Cl	(11)
CG72	K6	1993	Na-Cl	(4)	MG6	Miyachi-R1	402(233-402)	Na-Cl	(11)
CG73~78	Narashino 1~6		Na-Cl	(4)	MG7	Akao-R3	802	Na-Cl	(11)
CG79	FR10	1305	Na-Cl	(4)	MG8	Yunotani	0	Na-HCO ₃	(11)
CG80	FR11	970	Na-Cl	(4)	MG9	Sumiseki-R4	1054	Na-Cl	(10)
(2) Oshamambe water-dissolved gas field									
HG1	Ohama R-1	718	Na-Cl	(22)	MG10	Ohyodo	1301	Na-Cl	(10)(18)
HG2	OR-1	613	Na-Cl	(23)	MG11,11a	Kyukamura	750	Na-Cl	(10)(17)
HG3	OR-6	893	Na-Cl	(22)	MH5	Miyazaki-4	480	Na-Cl	(12)
HG4	OR-10	754	Na-Cl	(24)	MH6	Miyazaki-5	1000	Na-Cl	(12)
HG5	OR-2	936	Na-Cl	(24)	MH7	Miyazaki-6	800	Na-Cl	(12)
HG6	OR-4	985	Na-Cl	(24)	MH8	Miyazaki-7	1300	Na-Cl	(12)
HH1	ORR-2	621	Na-Cl	(17)	MH8a	Gokurakuyu	1000	Na-Cl	(10)(18)
HH2	Oshamambe	unknown	Na-Cl	(25)	MH9	Miyazaki-8	750	Na-Cl	(12)
(3) Kisakata water-dissolved gas field									
KG1	Konoura-14	360	Na-Cl	(19)	MH10	Miyazaki-9	1300	Na-Cl	(12)
KG2,2a	Konoura-10	1000	Na-Cl	(17)(18)	MH11	Miyazaki-10	300	Na-Cl	(12)
KG3	Konoura-29	320	Na-Cl	(19)	MH12	Miyazaki-16	1500	Na-HCO ₃	(12)
KG4	Konoura-23	1000	Na-Cl	(19)	(6) Sadowara water-dissolved gas field				
KG5	Konoura-31	500	Na-Cl	(19)	SG1	SR1	1260(565-1251)	Na-Cl	(9)
KG6	Kisakata-18	313	Na-Cl	(19)	SG1a	Ooida	1447	Na-Cl	(10)
KG7	Kisakata-9	351	Na-Cl	(19)	SG2	SR2	1344(874-1301)	Na-Cl	(5)
KG8,8a	Kisakata-RA	303	Na-Cl	(19)(20)	SG3	SR3	1343(699-1300)	Na-Cl	(9)
KG9,9a	Kisakata-RB	366	Na-Cl	(19)(20)	SG4	SR4	1352(299-1154)	Na-Cl	(9)
KG10	Kanmanji-18	603	Na-Cl	(19)	SG4a	SR4b	1200	Na-Cl	(10)
KG11	Kanmanji-2	300	Na-Cl	(19)	SG5	SR5	1367(913-1359)	Na-Cl	(5)
KG12	Kisakata	637	Na-Cl	(19)	SG6	Myojin-I22	1331	Na-Cl	(11)
KG13	Konoura	1000	Na-Cl	(20)	SG6a	Myojin	1400	Na-Cl	(10)
KH1	Konoura	unknown	Na-Cl	(17)	SG7	H.Shimoyama-I26	1170(430-1106)	Na-Cl	(11)
KH2	Konoura	unknown	Na-Cl	(17)	SG7a	H.Shimoyama-I23	1207(369-549, 648-1188)	Na-Cl	(10)
(4) Niigata water-dissolved gas field									
NG1	Shinko-7	440	Na-Cl	(5)	SG8	ST1	1361	Na-Cl	(10)
NG2	Teiseki/Sekiya-20	656	Na-Cl	(5)	SG9	ST2	1502	Na-Cl	(10)
NG3	Teiseki/Sekiya-16	773	Na-Cl	(5)	SG10	ST5	1307	Na-Cl	(10)
NG4	Teiseki-39	(505-519)	Na-Cl	(6)	SG11	ST6	960	Na-Cl	(10)
NG5	Teiseki-33	(511-524)	Na-Cl	(6)	SG12	Tsujia-Q2	1170	Na-Cl	(10)
NG6	Kyoei-1	(542-572)	Na-Cl	(6)	H5	H5	1275	Na-Cl	(10)
NG7	Hokuetsu-12	(531-532)	Na-Cl	(6)	SG14	Futatsudate	1372	Na-Cl	(10)
NG8	Teiseki-24	540-563)	Na-Cl	(6)	SG15	Shioji-Y3	830	Na-Cl	(10)
NG9	Teiseki-37	(547-565)	Na-Cl	(6)	SH1	Shintomi-1	1700	Na-Cl	(12)
NG10	Teiseki-41	(548-574)	Na-Cl	(6)	SH2	Shintomi-2	1200	Na-Cl	(12)
NG11,11a	Kotsu-15	(615-654)	Na-Cl	(6)(7)	SH3,3a	Saito-3	30	Na-Cl	(12)(13)
NG12,12a	Hokuriku-6	(637-666)	Na-Cl	(6)(7)	SH4	Miyazaki-17	1200	Na-Cl	(12)
NG13	Kotsu-12	(341-360)	Na-Cl	(7)	SH5	Miyazaki	unknown	Na-Cl	(18)
NG14	Kotsu-3	(360-433)	Na-Cl	(7)	(7) Okinawa water-dissolved gas field				
NG15	Teiseki-116	(436-465)	Na-Cl	(7)	OG1	Ryusei-1	(405-435)	Na-Cl	(5)
NG16	Kotsu-18	(511-553)	Na-Cl	(7)	OG2	Ryusei-2	(336-340)	Na-Cl	(5)
NG17	Teiseki-114	(493-512)	Na-Cl	(7)	OG2a	Ryusei-2	(312-364)	Na-Cl	(5)
NG18	Kyoei-5	(545-575)	Na-Cl	(7)	OG2b	Ryusei-2	(832-936)	Na-Cl	(5)
NG19	Hokuriku-1	(554-599)	Na-Cl	(7)	OG3	Gushikami-R1	1241	Na-Cl	(5)
NG20	Kotsu-16	(598-634)	Na-Cl	(7)	OG4	Naha-R1	1243	Na-Cl	(14)
NG21	Watanabe-K2	151	Na-Cl	(26)	OG5,5a	Ohzato-R1	1800	Na-Cl	(14)
NG22	Imaizumi-K5	152	Na-Cl	(26)	OG6,6a	Nanjo-R1	2119	Na-Cl	(15)
NG23	Nisaku-12	(229-261)	Na-HCO ₃	(26)	OW1	Naha-1	568	Na-Cl	(16)
NG24	Nisaku-11	(354-379)	Na-Cl	(26)	OW2	Haebaru-7	244	Na-Cl	(16)
NG25	Nisaku-10	(456-489)	Na-Cl	(26)	OW3	Nishihara-9	288	Na-Cl	(16)
NG26	Nisaku-9	(562-606)	Na-Cl	(26)	OW4	Yonabaru-14	128	Na-Cl	(16)
NG27	Kotsu-20	(254-298)	Na-Cl	(26)	OW5	Yonabaru-15	317	Na-Cl	(16)
NG28	Keikin-17.4	(210-239)	Na-Cl	(26)	OW6	Yonashiro-22	291	Na-Cl	(16)
NG29	Keikin-17.2	(611-651)	Na-Cl	(26)	(8) Miyakojima water-dissolved gas field				
NG30	Keikin-17.1	(722-778)	Na-Cl	(26)	YH1	Miyako R-1	2437	Na-Cl	(21)
NG31	Teiseki-38	(263-301)	Na-Cl	(26)	YH2	Shigira	1250	Na-Cl	(21)
NG32	Teiseki-37	(587-655)	Na-Cl	(26)					