地熱帯の粘土鉱物と産状

林 正 雄*

Occurrence of Clay Minerals in Active Geothermal Fields

Masao HAYASHI*

Abstract

The formation temperature of principal clay minerals from geothermal fields has been estimated using reported data on temperatures measured in drillholes as well as homogenization temperatures of alteration minerals. In this case, only the data from very active wells with an activity index of 100 or nearly 100 were used. As a result, smectite will form at temperatures below 200°C, regular mixed-layers of chlorite-smectite and mica-smectite at a range from 200 to 220°C, chlorite from 220 to 325°C, K-mica from 245 to 325°C, and biotite above 325°C. These stability relations are considered to be principally temperature dependent, and therefore can be used as a geothermometer.

1. は じ め に

1973年のオイルショック以降、世界各国において地熱資源の調査開発が急速に進み、変質鉱物や温度測定データが多数報告されるようになった。また、筆者が地熱変質の研究に従事していた頃に比べて⁶⁾、温度測定の精度は格段に高まった。しかし、ボーリング孔内において各深度の温度が正確に測定されたとしても、変質鉱物の生成温度が明確になる訳ではない。その第1の理由は、ボーリング時に泥水を循環させながら孔内を冷やす結果、孔内温度は程度の差はあれ実際の温度より低くなるからである。特に、割れ目の多い貯留層内では、多量の泥水が逸水するので、温度の低下が著しい。この逸水部分の温度回復を待つため、ボーリング孔を長時間(数日~数十日)放置しておく、孔内において小さな対流が連続して発生し、浅部では実際の温度よりも高温になる場合も多い。第2に、地熱貯留層は、地熱流体圧と地下水圧とのバランスの上に成り立っている、掘削の結果、地下水系が乱され、孔内に冷たい地下水が流入して、実際よりも極端に低い実測温度を与えることもある。第3の理由は、地熱貯留層は生成時の高温状態から必ず冷却するので、現在の測定温度がどの段階のものであるか分からないからである。従って、温度測定データだけから変質鉱物の生成温度を推定するのは非常に危険である。

一方、最近になって地熱系において流体包有物の均質化温度が多数測定されるようになり、流体包有物温度計は過去の温度のみならず現在の地下温度をも正確に反映していることが明らかになった^{12,13)}。しかも、石英や硬石膏などの包有物温度測定に適した鉱物を多産する深度では、精密な実測温度よりも流体包有物温度の方が、より現実的な値を与えることがしばしばである。さらに、測定温度と流体包有物温度データの組み合わせから、地熱活動度指数の概念が生まれ^{7,8)}、地熱系の地下熱構造や熱史が議論できるようになった。以下、この活動度指数の考え方に基づいて、地熱帯産の主要な粘

1985年11月1日受理

* 九州大学生産科学研究所

Research Institute of Industrial Science, Kyushu University. Kasuga, Fukuoka 816.

土鉱物の生成温度と産状を考察する。

2. 活動度指数と地下熱構造

Fig. 1 は、世界の蒸気生産井の深度と地下温度との関係を示している⁷⁾。図中の一番右側の曲線は、地表に水位を設定した時の水の沸騰曲線で、高温になると飽和水の密度が小さくなる点を考慮している。この地表面沸騰曲線は、1 気圧下では水の温度は 100°C を超え得ないが、水面下 10m では 0.1MPa 分の静水圧が加わるため 119.3°C まで上昇する現象を、地下深部にまで応用したものである。

そうすると、水の臨界点 374.15°C, 22.12MPa は地下 3504m に位置する。一方、左側の直線は世界の平均的な地温勾配 (3°C/100m) を示している。後で述べるように、世界の地熱井の地下温度は、水の沸騰曲線を超えることは殆どないので、この沸騰曲線と平均的な地温勾配が示す直線との間にプロットされる。従って、各深度において地表面沸騰曲線が示す温度を 100 の基準とし、平均的な地温勾配が示す温度を 0 の基準とすれば、活動度指数 (activity index, AI) は次式のように定義される。

$$AI = (1 - (T_b - T_m) / (T_b - T_g)) \times 100$$

ここで、 T_m はボーリング内で測定された最高温度、 T_b および T_g はそれぞれ最高温度が記録された深度において地表面沸騰曲線および平均的な地温勾配が示す温度である。 T_b は、°C/m で表わすと、100/0, 156/50, 180/100, 209/200, 228/300, 242/400, 254/500, 264/600, 273/700, 281/800, 288/900, 295/1000, 321/1500, 340/2000, 354/2500, 366/3000 である。

この活動度指数を用いると地熱帯の熱的階級を数量的に表わすことができる。即ち、活動度指数が 100 を超えるものを AA, 100~80 を A タイプ, 80~60 を B タイプ, 60~40 を C タイプ, 40~20 を D タイプ, 20~0 を E タイプ, 0 以下を F タイプとすれば、深さを考慮した地熱帯の温度条件が簡単に表現できる。Fig. 1 から明らかなように、現在世界中で地熱発電が行なわれている蒸気生産井の殆どは A タイプであり、少数が B タイプに属する。AA タイプのものは非常に稀である。

以上のように非常に活発な地熱系においても、地下温度は地表面沸騰曲線が示す温度を超えることは非常に稀である。この事実は、地熱流体圧はその深度に対応する静水圧を超えないことを意味しており、同時に、活発な地熱系の地下温度勾配は一般的に浅所では大きい、深部に向かって急に小さくなることを示している。例えば、地表面沸騰曲線が示す地温勾配は、深度 0~50m 間は 1.12°C/m, 100~150m 間は 0.32°C/m, 500~550m 間は 0.11°C/m, 1000~1050m 間は 0.06°C/m, 2000~2050m 間は 0.03°C/m, 3450~3500m 間は僅かに 0.014°C/m である。つまり、流体が豊富に存在すればいかなる地熱系においても、2000m 以深では平均的な地温勾配を超えて温度は上昇し得ない。

次に、流体包有物温度計を地熱帯に応用した結果、不活発な地熱系の多くは冷却の過程にあることが明らかになった¹³⁾。しかも地熱系は、地表面沸騰曲線で示される最高の温度状態から、等活動度指数的に冷却する。地熱系が等活動度指数的に冷却する理由は、一般に地下水位がさがると同時に、地熱流体が飽和水から圧縮水となるからである。冷却に伴って地下水位が下がるだけであると、冷却の程度は浅部で大きく、深部で少ないはずである。しかし、地熱流体が飽和水から圧縮水になると、深部ほど地下温度が沸騰曲線より低温側に移動するので、全体として地熱系は等活動度指数的に冷却する。ただし、やや冷却した地熱系のなかの 1 本のボーリングに注目すると、圧縮した地熱流体が上昇する結果、貯留層深度から沸騰を開始する深度までは、温度が殆ど下がらず、ほぼ垂直の温度勾配を示す。また、地熱流体が多量の不凝縮ガスを含むと、沸騰曲線の下部がより急傾斜となる。

3. 粘土鉱物の生成温度と産状

地熱系において、実測温度あるいは流体包有物温度を用いて粘土鉱物の生成温度を推定する場合、活動度指数が 100 に近いような A タイプの孔井データが最も価値がある。なぜならば、地下温度は水

Fig. 1 Depth-temperature data of steam production wells drilled at geothermal fields in the world. The data are plotted on the geothermal activity diagram by Hayashi (1982).

Table 1 Occurrence of smectite in geothermal fields.

Field Country	Chemical type	Temper. (*C)	Depth (m)	Water pH	Starting material	Ref. No.
Reykjanes, Iceland	CaFe-Mo	90-200	50-850	7.65	basalt	14
Otake, Japan	Ca-Mont.	<195	0-300	8.15	andesite	6
Aso, Japan	Ca-Mont.	50-205	20-260	7.4	andesite	10
Yellowstone, USA	Na-Mont.	100-185	20-120	8.05	obsidian	1
Wairakei, N. Z.	Ca-Mont.	<160	0-160	8.4	tuff	11

Table 2 Occurrence of regular chlorite-smectite in geothermal fields.

Field Country	Chemical type	Temper. (*C)	Depth (m)	Water pH	Starting material	Ref. No.
Otake, Japan	FeMg-Ch/Mo	196-210	160-512	8.4	andesite	6
Hatchobaru, Japan	FeMg-Ch/Mo	200-220	350-520	7.3	andesite	6
Hatchobaru, Japan	Al-Ch/Mo	215	415	3.38	andesite	--
Aso, Japan	FeMg-Ch/Mo	200-216	260-395	7.4	andesite	10
Wairakei, N. Z.	Ch/Mo	228	375-400	8.4	pumice	11

の沸騰曲線が示す温度を超え得ないので、活動度指数が 100 の孔井では冷却を考慮の必要がない。従って、ある鉱物が出現する深度における測定温度が、その鉱物の生成温度とみなしてよい。さらに、ある鉱物が最も浅く出現する深度に対応する沸騰温度は、その鉱物の最低生成温度を暗示している。この場合、鉱物生成後に侵食の事実がないことが必要である。一方、活動度指数の小さい B あるいは C タイプの孔井では、殆どの場合冷却しているので、温度測定がなされていても鉱物がどの段階で生じ

Table 3 Occurrence of regular mica-smectite in geothermal fields.

Field Country	Chemical type	Temper. (*C)	Depth (m)	Water pH	Starting material	Ref. No.
Hatchobaru, Japan	K-Mi/Sm	200-225	240-670	4.6	andesite	6
Hatchobaru, Japan	Na-Mi/Sm	205	510	3.38	andesite	--
Aso, Japan	K-Mi/Sm	210-225	290-390	7.4	andesite	10
Yellowstone, USA	Il/Mo	185-200	115-160	8.05	obsidian	1
Wairakei, N. Z.	Il/Mo	220	352	8.4	pumice	11

Table 4 Occurrence of chlorite in geothermal fields.

Field Country	Chemical type	Temper. (*C)	Depth (m)	Water pH	Starting material	Ref. No.
Otake, Japan	FeMg-Ch	>220	>264	8.4	andesite	6
Hatchobaru, Japan	Al-Ch	230	550	4.22	andesite	--
Aso, Japan	FeMg-Ch	>215	>440	7.4	andesite	10
Reykjanes, Iceland	Chlorite	230-280	---	7.2	basalt	14
Yellowstone, USA	Chlorite	>180	>103	8.05	obsidian	1
Salton Sea, USA	FeMg-Ch	190-325	439-1135	5.2	sandstone	9

Table 5 Occurrence of mica in geothermal fields.

Field Country	Chemical type	Temper. (*C)	Depth (m)	Water pH	Starting material	Ref. No.
Hatchobaru, Japan	K-mica	>245	>390	4.6	andesite	6
Yellowstone, USA	illite	>185	>160	8.05	obsidian	1
Salton Sea, USA	illite	>243	600-820	5.2	sandstone	9
Salton Sea, USA	muscovite	>295	820-1135	5.2	sandstone	9
Salton Sea, USA	biotite	>325	>1135	5.2	sandstone	9
Cerro Prieto, Mex.	biotite	>325	>1200	7.9	sandstone	5

たものか判定できない。以上の理由から、この論文では冷却の恐れのない非常に活発な孔井のデータか、流体包有物温度分布から熱史が明らかなデータを選んで議論を進める。

(1) スメクタイト

スメクタイトは、地表および地下浅所の低温部に生成している。Table 1 に示すように、スメクタイトは 160°C~200°C 以下の部分に出現している。しかし、測定温度および流体包有物温度が完備しているデータのなかで、最も高温部に出現するものは、阿蘇湯ノ谷の Ca-モンモリロナイトである(深度 260m の 200°C)¹⁰⁾。その他メキシコの Cerro Prieto でも 200°C を超えた部分にモンモリロナイトが認められており⁹⁾、アイスランドの Reykjanes では 200°C 以下の部分に CaFe-モンモリロナイトが普遍的であるとされている¹⁴⁾。ところが、アメリカの Yellowstone では、上部の 160°C 以下の部分に Ca-モンモリロナイトが、下部の 185°C 以下の部分に Na-モンモリロナイトが生成している¹⁾。またニュージーランドの Wairakei では、Ca-モンモリロナイトが 160°C 以下で生成するとされている¹¹⁾。なお、スメクタイトを生成する地熱流体の pH は、Table 1 では全てアルカリ性であるが、酸性のことも多い⁶⁾。

(2) 規則型緑泥石-スメクタイト

規則型緑泥石-スメクタイトは、スメクタイトが消滅するすぐ下位に生成している。非常に活発な地熱系では、スメクタイトから同混合層への移行はシャープであり、両者の確実な共生は認められない¹⁰⁾。Table 2 から、FeMg 緑泥石-スメクタイト規則型混合層鉱物の生成温度範囲は、かなり狭く、200~220°C 程度と推定される。また、共存する流体の pH は中性~アルカリ性が殆どである。ただし、八丁原地熱帯では A1 緑泥石-スメクタイトの規則混合層が酸性変質帯から見いだされた。その温度条件は 170°C 以上であることは確実であるが詳細は不明である。

(3) 規則型雲母-スメクタイト

規則型雲母-スメクタイトは、規則型緑泥石-スメクタイトと殆ど同じ温度範囲に出現する。その生成温度は 200~225°C と推定されるが、流体包有物温度が測定されている阿蘇湯ノ谷では 210°C から生成し始めている。一方、Yellowstone では 185°C の最低生成温度を示す¹⁾。八丁原地熱帯では、K 雲母-スメクタイト混合層の密集帯のなかに、Na 雲母-スメクタイト型が EPMA で検知できる程度の局所に認められる。なお雲母-スメクタイトは、アルカリ性環境下でも生成しているが、酸性変質帯に卓越している。

(4) 緑泥石

緑泥石は、規則型緑泥石-スメクタイトが消失し始める少し下位から見いだされ、黒雲母が生成し始める高温まで安定である。非常に活発な地熱系では、緑泥石は不規則型雲母-スメクタイト (Mi>Sm) とは共存しているが⁶⁾、規則型混合層鉱物とは共生していない。その最低晶出温度は Yellowstone では 180°C¹⁾、Salton Sea では 190°C であるが⁹⁾、その他では 215°C 以上である。一方、その最高生成温度は Reykjanes では 280°C⁴⁾、Salton Sea では 325°C である⁹⁾。FeMg 緑泥石は通常中性~アルカリ条件下で生成するが、A1 緑泥石は酸性帯に見いだされる。

(5) 雲母

雲母は地下深部の高温帯に普遍的であり、酸性~アルカリ性の広範囲の pH 条件下で生成する。面間隔 $d=10.5\text{\AA}$ 以下のものを対象とすると、一般に K 雲母は 243°C 以上で生成している。しかし、Yellowstone では 185°C から生成している。自形を示す白雲母は 295°C 以上に、黒雲母は 325°C 以上の最高高温帯に認められる⁹⁾。八丁原では、Na 雲母が K 雲母の密集部に局部的に認められた。

(6) その他の粘土鉱物

以上の他に、地熱帯から種々の粘土鉱物が報告され総括されている³⁾。それらは、ハロイサイト、カオリン、タルク、プレーナイト、パイロフィライト、セラドナイト、バーミキュライトや膨潤層の割

合の異なる混合層鉱物である。しかし、これらの鉱物は温度を明示した報告例が少ないか、分布が小規模であるので、生成条件を議論できる段階ではない。

4. 討 論

従来、地熱系において変質鉱物の生成温度を推定する場合、その鉱物が出現している深度での測定温度を、そのまま生成温度とすることが多かった。しかし、このような方法を用いるには、地熱系が冷却していないと言う保証が必要である。最近の地熱系における流体包有物の研究の結果^{12,13)}、地熱系の最高温度状態は地表に水位を設定した沸騰曲線によって示される温度で表わされ、地熱系は等活動度指数に冷却することが明らかとなった。従って、活動度指数が 100 に近い孔井では、冷却を考慮する必要がなく、測定温度を鉱物の生成温度とみなしてよい。さらに、地下温度は地表面沸騰曲線が示す温度を超え得ないので、ある鉱物が最も浅く出現する深度に対応する沸騰温度は、その鉱物の最低生成温度を暗示している。本論文では、このような観点からデータを収集し、代表的な粘土鉱物の生成条件、特に温度条件の推定を試みる。

(1) スメクタイトの分解温度

スメクタイトは低温で安定な粘土鉱物であるが、地熱系ではかなり高温部まで認められる。Table 1 のなかで、流体包有物温度が測定されている大岳と阿蘇のデータが最も信頼できるので、スメクタイトは恐らく $200 \pm 5^\circ\text{C}$ 付近までは安定であると考えられる。アメリカの Yellowstone およびニュージーランドの Wairakei では、やや低温であるが、両者とも出発物質がガラス質であることが低温の原因であるかも知れない。しかし、Yellowstone ではスメクタイトの生成後に 40m の侵食(あるいは氷の氷解)があったとすれば、かつて温度が 199°C まで上昇していたことになる。Wairakei では、多数の孔井のなかでスメクタイトが最も浅く分解する深度が 160m である¹¹⁾。この深度での沸騰温度は 199°C であり、 $200 \pm 5^\circ\text{C}$ と一致する。

(2) 規則型混合層粘土鉱物の温度範囲

規則型の緑泥石-スメクタイトと雲母-スメクタイトは、ほぼ同じ温度範囲で生成しており、両者の温度差は識別できない。Table 2 と 3 のなかで、Yellowstone のイライト-モンモリロナイトの値だけがやや低温を示すが、その他はほぼ $200 \sim 220^\circ\text{C}$ の間に出現している。また、大岳における最も浅い深度 160m (沸騰温度 199°C) と矛盾しない。

Fig. 2 Schematic stability relations of clay minerals in active geothermal fields.

Ch = Sm regular chlorite-smectite,

Mi = Sm regular mica-smectite,

Mi > Sm interstratified mica-montmorillonite rich in mica,

MPa shows fluid pressure estimated.

(3) 緑泥石の温度範囲

FeMg 緑泥石は、規則混合層鉱物が消滅する深度の少し下位から現われ始める。低温部では膨潤層に乏しい雲母-ス멕タイトと共生し、高温部では K-雲母と共生している。しかし、緑泥石と規則混合層鉱物が共生(共存ではない)している確実な証拠は見当たらない。従って、Table 4 のなかで 220°C 以下で生成している緑泥石は、いわゆる膨潤性のものか、あるいは、やや冷却した温度データを使用した結果であるかも知れない。緑泥石の最も浅い出現が、Yellowstone を除いて、大岳の 264m (沸騰温度 221°C) であることも、これを支持している。一方、緑泥石の分解温度は Salton Sea と Cerro Prieto で確認された 325°C である^{3,9)}。以上のことから、FeMg 緑泥石は 220~325°C の温度範囲で生成すると考えられる。

(4) 雲母の最低生成温度

K-雲母は、従来雲母に富む混合層鉱物と厳密に区別されていなかったため、正確な生成温度を指示するデータに乏しい。しかし、Salton Sea の 243°C 以上と、八丁原の 245°C 以上とは殆ど一致しており、八丁原の最浅部の出現深度 390m が示す沸騰温度 241°C とも矛盾しない。従って、K-雲母の最低生成温度は $240 \pm 5^\circ\text{C}$ と推定される。また、自形を示す白雲母は 295°C 以上で⁹⁾、黒雲母は 325°C 以上で安定であるとされている^{3,9)}。

以上の討論から、ス멕タイトは 200°C 以下、規則混合層は 200~220°C、FeMg 緑泥石は 220~325°C、K-雲母は 245~325°C、黒雲母は 325°C 以上で安定であると結論される。このデータを活動度指数図に記入すると Fig. 2 のようになる。図のなかで、各相の境界が深部に向かって高温側にやや傾斜しているのは、脱水反応が高圧下における水の収縮率に依存するからである。言い換えれば、高温での固相のエントロピーを標準状態と同じとしたときの、近似的な相境界を意味している。一方、ほぼ水平の破線は等流体圧力線を示している。このように地熱系における流体圧は、高温部ではその温度における水の飽和圧に等しく、低温部では水の密度を 1 とした静水圧にほぼ等しいと考えられる。従って、地熱系を含めて地下浅所における含水鉱物の安定関係は、pH などの化学的な諸条件を除けば、流体圧よりもむしろ温度に主として支配されていると言える。また、地熱系の地下では水の沸騰曲線が示す温度より高温低圧の条件は存在しないので、含水鉱物の安定関係は Fig. 2 のようになり、その最低生成温度は各相境界と沸騰曲線が交わった点であると言える。従って、活発な地熱系において、ある鉱物が最も浅く出現する深度は、その最低生成温度を指示するデータとして貴重である。また各粘土鉱物は、化学組成や結晶学的性質がほぼ同じであれば、地質温度計として使用できる。

文 献

- 1) Barger, K. E. and Beeson, M. H.: Amer. Miner. **66**, 473 (1981).
- 2) Browne, P. R. L.: Ann. Rev. Earth Planet. Sci. **6**, 229 (1978).
- 3) Browne, P. R. L. and Ellis, A. J.: Amer. Jour. Sci. **269**, 97 (1970).
- 4) Elderfield, H., Gunnlaugsson, E., Wakefield, S. J. and Williams, P. T.: Miner. Mag. **41**, 217 (1977).
- 5) Elders, W. A., Hoagland, J. R., McDowell, S. D. and Cobo, J. M.: Geothermics **8**, 201 (1979).
- 6) Hayashi, M.: Jour. Japan Geoth. Energy Assoc. **10**, 9 (1973).
- 7) 林 正雄: 地熱学会誌 **4**, 81 (1982).
- 8) Hayashi, M., Taguchi, S. and Yamasaki, T.: GRC Transactions **5**, 705 (1981).
- 9) McDowell, S. D. and Elders, W. A.: Amer. Miner. **68**, 1146 (1983).
- 10) Parmentier, P. P.: Master Th. of Kyushu Univ. (1980).
- 11) Steiner, A.: Clays Clay Miner. **16**, 193 (1968).

- 12) 田口幸洋：地熱学会誌 **3**, 165 (1981).
- 13) Taguchi, S. and Hayashi, M. : GRC Transactions **7**, 199 (1983).
- 14) Tomasson, J. and Kristmannsdottir, H. : Contr. Miner. Petrol. **36**, 123 (1972).