論 文

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*

土田 邦博**・牛 犇**・吉村 尚久**
大久保 進***・深澤 光****

(Received April 18, 1997 ; accepted November 26, 1997)

**The relationship between diagenetic changes of
illite/smectite interstratified minerals and
abnormal pressure zone in the test well "Tomikura"**

Kunihiro Tsuchida, Ben Niu, Takahisa Yoshimura,
Susumu Okubo and Hikaru Fukasawa

Abstract : The MITI exploratory test well "Tomikura" was drilled 6,000m in depth by Japan National Oil Corporation. The geology of this well is mainly composed of the middle Miocene sedimentary rocks. These rocks are very hard, and have undergone high grade diagenesis. Illite/smectite interstratified minerals (I/S) are well known indicators of diagenetic and/or burial metamorphic grade. Increase of illite layers depends on burial depth.

The experimental results show that the illite layers in I/S increase with increasing burial depth. The changes of I/S are divided into five steps as follows :

- I) slow conversion to illite layer with 20-30% I,
- II) rapid conversion from 20-30% I to 70% I,
- III) slow conversion with 70% I,
- IV) rapid conversion from 70% I to 80% I,
- V) slow conversion with 80% I.

The rapid conversion zones (II and IV) are important in the structural changes of I/S interstratification. In "Transition zone 1" (1,700-3,000m in depth), randomly interstratified structure (R0) has converted to the regular structure with R1 by transition, containing 30-70% I. Conversion of R1 to R3 interstratification occurred in "Transition zone 2" (3,400-4,000m in depth), containing 70-80% I.

As a result of conversion of smectite to illite, the released water from the interlayers has had an influence on the interparticle condition. Log interpretations suggest that the water dehydrated from the interlayer of smectite has had an effect on the interparticle pore. Especially, dehydrated water in "Transition zone 1" is associated with the formation of the abnormal pressure zone.

Key words : illite/smectite interstratified minerals, diagenetic change, illitization, abnormal pressure zone

* 平成 8 年 6 月 6 日, 平成 8 年度石油技術協会春季講演会地質・探鉱部門個人講演で講演 This paper was presented at the 1996 Technical Meeting of the JAPT, June 6, 1996.

** 新潟大学自然科学研究科 Graduate School of Science and Technology, Niigata University

*** 石油資源開発技術研究所 JAPEX Research Center, Japan Petroleum Exploration Co., Ltd.

**** 石油資源開発探鉱部 Exploration Department, Japan Petroleum Exploration Co., Ltd.

1. はじめに

Gulf Coast 地域の第三系中の粘土鉱物の研究から, イライト/スメクタイト混合層鉱物 (I/S) の続成過程における変化の詳細が明らかにされた (Burst, 1959 ; Perry and Hower, 1970 ; Hower *et al.*, 1976)。これらの研究によって, イライト/スメクタイト混合層鉱物の続成変化は, さまざまな因子に規制されるものの, 温

度依存性が高いことが示された。堆積盆の熱履歴評価にはビトリナイト反射率をはじめとする種々の有機物の変化が広く利用されているが、堆積岩中の変質鉱物や自生鉱物も熱指標として重要で、イライト/スメクタイト混合層鉱物の連続的な変化も古地温の推定手段として有効であることが報告されている (Pollastro, 1993; 吉村, 1994)。

Hower *et al.* (1976) はスメクタイトのイライト化を、
 スメクタイト+カリ長石=イライト+緑泥石+石英
 という反応で表した。この変化に伴って、スメクタイトに含まれる層間水が放出される。石油地質にとって重要な問題となるのは、このときの脱水が石油の一次移動に深くかかわるという考え方である。Burst (1969) は、イライト/スメクタイト混合層鉱物の続成変化が脱水過程であることから、スメクタイトの変化によって生じる水が石油の移動を促進すると考えた。

筆者らは基礎試錐「富倉」から得られた坑井試料を用いて、イライト/スメクタイト混合層鉱物の続成変化を詳細に追跡した。その結果、本地域にみられるイライト/スメクタイト混合層鉱物の変化がこれまでに報告されているものとは異なった経路で進行していることが明らかとなった。また、物理検層に現れたトレンドの変化がイライト/スメクタイト混合層鉱物の変化に対応していることを見いだした。すなわち、混合層鉱物の変化が物理検層データから推測される異常高圧層の形成に深くかかわっていると判断される。本稿は、続成作用におけるイライト/スメクタイト混合層鉱物の変化に関する検討結果をもとに、これに伴う脱水作用と異常高圧層の関係について報告するものである。

2. 坑井および地質の概要

基礎試錐「富倉」は第7次国内石油および可燃性天然ガス資源開発5カ年計画の一環として、通商産業省資源エネルギー庁により計画・掘削された。本試錐は新潟県の頸城地域南部、新井市東南方約7kmの富倉背斜上において実施されたものである (図1)。地表には椎谷・川詰期の堆積物が広く分布し、その地下には七谷階およびグリーンタフ層の存在が予想されていた (石油公団, 1996)。

本坑井の地質については石油公団 (1996) に詳しく述べられており、ここではその概要に触れるにとどめる。石油公団 (1996) によれば、本坑井の地質は下位からA, B, C, Dの4層に区分され、それぞれ七谷層、難波山層、下部寺泊層、上部寺泊～椎谷層に対比される (図2)。七谷層は5,072m以深 (掘止め深度6,000m) に認められ、主に砂岩・泥岩からなる互層で、ときに細粒の

図1 坑井位置図

凝灰質砂岩を挟む。難波山層は深度1,782.5～5,072mに分布し、下位の七谷層と同様に砂岩泥岩互層からなる。上部は砂岩が優勢、下部は泥岩が優勢である。下部寺泊層は深度1,192～1,782.5mで、泥岩を主体とし、まれに砂質凝灰岩を挟在する。1,192m以浅の上部寺泊～椎谷層も泥岩主体で砂質凝灰岩を伴う。底生有孔虫から推定された堆積環境は半深海性で、坑井全体を通してあまり変化がない。また、深度1,630～1,670mにはドレライトの貫入が、深度2,100～2,300m付近には安山岩の存在が確認されている。3,000m以浅にはいくつかの断層が存在し、層序の繰り返しが認められる。

3. イライト/スメクタイト混合層鉱物の続成変化

3.1 試料および分析方法

検討に用いた試料はコアおよびカッティングス試料で、カッティングス試料は深度1,000～5,600m間を200mおきに分析した。同一深度の試料を泥質岩と砂質岩に分け、さらに粒度による変化の違いを考察するため、遠心分離器によりそれぞれ0.2μm以下と0.2～2μmの粒子に分離した。イライト/スメクタイト混合層鉱物の変化は温度依存性が高いが、反応溶液の化学的性質や母岩の孔隙率や浸透率なども重要な規制因子となりうる。したがって、同一地域であっても岩質の違いによって異なる変化経路を示すことがある。イライト/スメクタイト混合層鉱物の続成変化における岩質の影響については多くの報告がある (例えば Howard, 1981; Sucha *et al.*, 1993; 牛ほか, 1994)。また一般に、自生鉱物は他

図2 東西方向地質断面図 石油公団(1996)に加筆

生(碎屑性)鉱物に比べ、粒子が小さいという傾向がある。したがって、 $0.2\sim 2\mu\text{m}$ の粒子は碎屑物を含有する率が高く、 $0.2\mu\text{m}$ 以下の粒子は碎屑物をわずかしかな含せず、自生鉱物の含有率が高いものと思われる。

鉱物組成の検討はX線回折を利用した。粘土鉱物組成は定方位法を用いて同定を行い、解析にはエチレングリコール処理を併用した。この処理によって、スメクタイトおよび混合層鉱物中のスメクタイト層は $17\text{\AA}$ に膨潤する。したがって、これらの鉱物の同定はエチレングリコール処理の前後の回折パターンの比較、検討が必要となる。エチレングリコール処理は、定方位試料をエチレングリコールの蒸気で充満したデシケーター中に24時間放置することによって行った。この方法はエチレングリコールを直接滴下するよりも回折強度が強くなるという利点がある。

イライト/スメクタイト混合層鉱物の成分比は渡辺(1981)の判定法とReynolds(1985)のシミュレーションプログラムを併用して推定した。渡辺(1981)の判定法はイライト/スメクタイト混合層鉱物の成分比を知るとともに、その積層構造を推定することが可能である。イライト/スメクタイト混合層鉱物の積層構造はReichweite(R)を用いて表現することができる。すなわち、R0はイライト層とスメクタイト層が不規則に重なり合った積層状態を示し、R1とR3はそれぞれIS(Iはイライト層を、Sはスメクタイト層を指す)とISIIという重なりを基本構造とする混合層鉱物を表す。一般

に、イライト/スメクタイト混合層鉱物の変化は、イライト層の増加に伴って、R0型からR1型を経てR3型構造をとるとされている(吉村, 1994)。

3.2 実験結果

粘土鉱物組成はほとんどすべての試料からイライト/スメクタイト混合層鉱物、緑泥石、イライト、カオリン鉱物、石英が検出される。イライト/スメクタイト混合層鉱物は深度の増加に伴ってイライト層の割合が増加する傾向がある。このような組み合わせは泥質岩、砂質岩に共通することであり、岩質による粘土鉱物組成の相違は認められない。 $0.2\mu\text{m}$ 以下の粒子にはイライト/スメクタイト混合層鉱物が多く含まれ、緑泥石やイライトがわずかに含まれる。カオリン鉱物の回折線は緑泥石のピークと重複するため、カオリン鉱物の有無は塩酸処理をしないと一般には確認できない。 $0.2\sim 2\mu\text{m}$ の粒子には緑泥石、イライト、カオリン鉱物および石英が多く含まれ、ときに斜長石を伴う。

図3にX線回折パターンの例を示す。 $0.2\mu\text{m}$ 以下の粒子の定方位試料にエチレングリコール処理を施したもので、すべてコア試料を分析したものである。この回折パターンからイライト/スメクタイト混合層鉱物の変化を追跡すると、浅部では $17\text{\AA}$ をピークとするスメクタイトに類似したパターンを示しているが、深度2,400m付近では長周期反射が観察されるとともに、 $17\text{\AA}$ を示していたピークが高角度側にシフトしていることがわかる。深度が4,000mを超えるとX線回折パターンは $10\text{\AA}$ 付

図3 X線回折パターンの変化

試料はすべてコアから分離した $0.2\mu\text{m}$ 以下の粒子で、エチレングリコール処理を施したものである。I/S：イライト/スメクタイト混合層鉱物、Ill：イライト、Chl：緑泥石

近にピークをもつイライトに類似したものとなる。このような変化は泥質岩、砂質岩ともに認められる。また、緑泥石やイライトが含まれるが、これらは浅部ではごく微量かもしれないがほとんど検出されず、深度が増すほど多くなる傾向がある。

3.3 イライト/スメクタイト混合層鉱物の変化

基礎試錐「富倉」に産出するイライト/スメクタイト混合層鉱物を渡辺（1981）の判定図にプロットしたものが図4である。2,400mより浅部ではイライト/スメクタイト混合層鉱物はR0ライン上にプロットされる。このとき深度が増加するにしたがってイライト層を多く含むようになり、イライト層の含有率が20%から50%程度まで増える。そして、イライト層を50%以上含むとR1にプロットされる。その後、イライト層を増加させながら70~80%付近でR3へと変化する。イライト/スメクタイト混合層鉱物の成分比と混合層構造はこの図を用いて推測し、Reynolds（1985）によるシミュレーションプログラムを利用して確認することにより決定した。

基礎試錐「富倉」におけるイライト/スメクタイト混合層鉱物のイライト層の割合と深度の関係を図5に示す。この図から明らかなように、イライト/スメクタイ

ト混合層鉱物のイライト層の含有率と深度には正の相関が存在する。イライト層の含有率を同一深度でみたとき、岩質や粒度によって異なった構成比を示している。例えば、深度1,200m付近の泥質岩をみると、 $0.2\mu\text{m}$ 以下の粒子にはイライト層を30%程度含むのに対し、 $0.2\sim 2\mu\text{m}$ の粒子ではイライト層は20%程度しか含まれない。さらに、深度1,800m付近の泥質岩と砂質岩を比べると、 $0.2\mu\text{m}$ 以下の粒子で泥質岩は40%程度イライト層を含むのに対し、同一粒度で砂質岩は30%程度しか含まない。このような違いが堆積時の分級によって生じたとは考えにくい。したがって、イライト/スメクタイト混合層鉱物が碎屑物として初生的に存在したのではなく、埋没深度の増加に伴って続成過程で変化したものと推測される。

図5からはイライト化の進行の程度を推定することが可能である。その結果、イライト/スメクタイト混合層鉱物の変化は大きく5つの段階に分けることができる。すなわち、

- I) イライト層が20~30%程度含まれ、深度が増加してもイライト層の含有率にはあまり変化がない段階、

図4 イライト/スメクタイト混合層鉱物の判定
図(渡辺, 1981)へのプロット

- II) イライト層が30%から70%まで急激に増加する段階,
- III) イライト層が70%前後とほぼ一定で深度が増加する段階,
- IV) イライト層が70%から80%まで急激に増加する段階,
- V) イライト層が80%以上含まれる段階,

である。イライト/スメクタイト混合層鉱物の変化が急激に進行しているIIとIVの段階を、それぞれ Transition zone 1 (深度1,700~3,000m), Transition zone 2 (深度3,400~4,000m) とする。Transition zone という言葉は Hoffmann and Hower (1979) において、不規則混合層構造 (R0) から規則型構造 (R1) への転換帯に対して用いられたが、ここではイライト層が急激に増加するゾーンに対して用いる。混合層構造は2つの Transition zone で、R0 から R1, そして R1 から R3 へと変化していることがわかる。Transition zone は岩

質や粒度の違いによって異なった深度になるが、Reichweite の変化はほとんど同じ深度で起こっている。このことは混合層構造の転換がイライト層の含有率の増加よりも、温度に敏感な反応である可能性を示唆する。0.2 μm 以下の粒子については I ~ V の段階が明瞭に認められるが、とくに砂質岩は、Transition zone においてイライト層が急激に増加した後に Reichweite の転換が認められる。

埋没深度の増大によるスメクタイトのイライト化の変化曲線は粒子の大きさや岩質によっていくらか異なるが、どの粒子をとってみても先に述べたような5つの段階を経てイライト層が増加している。それぞれの粒子による違いが顕著なのは、R0 あるいは R1 型のイライト/スメクタイト混合層鉱物においてである。泥質岩と砂質岩では、泥質岩が10~15%程度多くイライト層を含有する。また、0.2 μm 以下の粒子に含まれるイライト/スメクタイト混合層鉱物は0.2~2 μm のものに比べて、10~15%程度イライト層が多い。

4. 物理検層データにみられる変化

図6に基礎試錐「富倉」で実施された物理検層の比抵抗 (R_{ltd}), 音波走行時間 (Δt) および掘削時に採取されたカッティングス試料の岩石比重を示す (石油公団; 1996)。

Δt は孔隙率を示す物理検層データであり、埋没深度を増すに伴い圧密により孔隙率が減少することから、 Δt 値は次第に小さくなる。比抵抗値 (R_{ltd}) は孔隙率や地層水の塩分濃度などの要因で変化するが、埋没深度を増すに従って徐々に高くなるのが一般的なトレンドである。これに対し、本坑井では深度1,200~2,100 m (ゾーン“A”) および深度3,400~3,900 m (ゾーン“B”) に顕著な R_{ltd} および Δt の変化が認められる。

ゾーン“A”においては、深度1,200~1,800 m で泥質岩の R_{ltd} が次第に小さくなり、 Δt は大きくなる。また、深度1,800~2,100 m では逆に R_{ltd} が次第に大きくなり、 Δt は小さくなる。これは、上位層と比べて孔隙率がより大きく、比抵抗が小さいという異常高圧層の特徴を示している。掘削中、坑口から泥水比重を次第に上げないとマッドガスの上昇を抑えられなかったこと、およびマッドガス測定でプロパン (C_3) が1,200 m 以深で検出され始めていることなども異常高圧層の存在を示唆している。

ゾーン“B”においては、深度の増加に伴い泥質岩の R_{ltd} が大きくなり、 Δt が小さくなる。このゾーンより上位では、 R_{ltd} が6~8 Ω-m, Δt が75~80 μs/ft の一定値を示すのに対して、下位では、 R_{ltd} が40~50 Ω-m,

図5 イライト/スメクタイト混合層鉱物のイライト層の含有率と深度の関係

Δt が $60 \sim 70 \mu\text{s}/\text{ft}$ の一定値を示し、岩石の密度も $2.6 \text{ g}/\text{cm}^3$ 以上を示すことから、この区間に何らかの岩石物性の変化が存在するものと推定される。

5. 混合層鉱物と物理検層データの比較

イライト/スメクタイト混合層鉱物の続成変化は脱水反応であるから、イライト層が増加することによって、鉱物中に含まれていた層間水は間隙に排出される。Transition zone の存在は、イライト/スメクタイト混合層鉱物の脱水が、これらの深度で急激に進行することを示唆する。イライト化が急激に進行している深度の近くで物理検層データに変化がみられることは、イライト

化の進行が物理検層データに反映されていることを示すと考えられる。

異常高圧層の特徴を示す深度 $1,200 \sim 2,100 \text{ m}$ (ゾーン“A”) に分布する地層は下部寺泊層から上部難波山層であり、両者の境界は深度 $1,782.5 \text{ m}$ にある。下部寺泊層は泥岩を主体とする地層で、深度 $1,630 \sim 1,670 \text{ m}$ にはドレライトが存在する。上部難波山層は凝灰質の砂岩が卓越する砂岩泥岩互層である。深度 $1,700 \sim 3,000 \text{ m}$ には Transition zone 1 が分布し、ここでは急激なイライト化の進行により大量の層間水が間隙に排出され、間隙水は圧力がより小さい上方へ移動したと考えられる。基礎試錐「富倉」の $1,800 \text{ m}$ 以浅には泥質岩が厚く

図6 物理検層記録（データは石油公団（1996）による）

斜線部は検層記録に変化が認められるゾーン。ゾーン“A”は異常高圧層と推定されゾーン“B”においても岩石物性の明らかな変化が認められる。

堆積していることから、これらの地層がシールとなって排出された間隙水が滞留され、異常高圧層が形成された可能性が強い。

深度3,400～3,900 m（ゾーン“B”）には砂岩泥岩互層からなる難波山層が分布している。このゾーンは Transition zone 2 が認められる深度と一致し、イライト/スメクタイト混合層鉱物の変化が急激に進行している。しかしながら、ここでのイライト化は70%から80%までの変化であり、層間水の脱水は Transition zone 1 と比べて少ないものである。したがって、この深度では異常高圧層を形成するほどの層間水の脱水はなかったが、岩石物性の変化と対応しているものと考えられる。

6. ま と め

基礎試錐「富倉」において、イライト/スメクタイト混合層鉱物の続成変化が認められた。この変化は深度の増加に伴ってイライト層の割合が増加するものである。その変化経路を詳細に検討すると、本坑井でのイライト/スメクタイト混合層鉱物の続成変化には、急激なイライト化が起こる2つの Transition zone が存在することが明らかとなった。

Transition zone 1 は深度1,700～3,000 m に分布する。イライト層の含有率は20～30%から70%まで増加し、不規則型混合層構造（R0）から1:1規則型混合層構造（R1）への転換帯に相当する。R0からR1への転換は深度2,300～2,500 m に認められる。

Transition zone 2 は深度3,400～4,000 m に認められた。イライト/スメクタイト混合層鉱物に含まれるイライト層は70%から80%に増加し、R1規則型構造からR3規則型構造への転換を伴う。R1からR3への転換は深度4,000 m 付近と考えられる。

物理検層データはイライト/スメクタイト混合層鉱物の続成変化に対応して変化している。イライト化、すなわちスメクタイトの脱水が急激なところでは物理検層データの変化が顕著であり、このことは2つの Transition zone で排出されるイライト/スメクタイト混合層鉱物の層間水が何らかの影響を与えていることを示唆している。とくに Transition zone 1 で排出される層間水は異常高圧層の形成に深くかかわっているものと考えられる。異常高圧層の形成にはイライト/スメクタイト混合層鉱物の脱水のみならず、間隙水の外部への排出を停滞させる構造が関与している。Transition zone 2 で排

出される層間水は量的にもそれほど多くなく、異常高圧層を形成するほどのものではない。これには排出された層間水の分散・移動を妨げるような構造がなかったことも影響している可能性がある。

謝 辞

基礎試錐「富倉」の試資料を提供され、公表を許可された通商産業省資源エネルギー庁ならびに石油公団に深く感謝いたします。新潟大学自然科学研究科の Tad James Choi 氏には英文要旨作成にあたり有益な助言をいただきました。ここに記してお礼申し上げます。

SI 単位換算係数

$$\text{\AA} \times 1.0^* \quad E-10 = \text{m}$$

$$\text{ft} \times 3.048^* \quad E-01 = \text{m}$$

* は正確な値

引 用 文 献

- Burst, J. F., 1959: Post diagenetic clay mineral-environmental relationships in the Gulf Coast Eocene. *Clays Clay Miner.*, **6**, 327-341.
- Burst, J. F., 1969: Diagenesis of Gulf Coast clayey sediments and its possible relation to petroleum migration. *AAPG Bull.*, **53**, 73-93.
- Hoffman, J. and Hower, J., 1979: Clay mineral assemblages as low grade metamorphic geothermometers: Application to the thrust faulted disturbed belt of Montana, U. S. A., *SEPM Special Pub.*, **26**, 55-79.
- Howard, J., 1981: Lithium and potassium saturation of illite/smectite clays from interlaminated shales and sandstones. *Clays Clay Miner.*, **29**, 136-142.
- Hower, J., Eslinger, E. V., Hower, M. E. and Perry, E. A., 1976: Mechanism of burial metamorphism of argillaceous sediment: 1. Mineralogical and chemical evidence. *Bull. Geol. Soc. Am.*, **87**, 725-737.
- 牛 犇・吉村尚久・平井明夫, 1994: 新潟平野西部における石油探査試錐カッティングス試料中の粘土鉱物. 平成6年度石油技術協会春季講演会要旨集, 81.
- Perry, E. D. and Hower, J., 1970: Burial diagenesis in Gulf Coast pelitic sediments. *Clays Clay Miner.*, **18**, 165-177.
- Pollastro, R. M., 1993: Considerations and applications of the illite/smectite geothermometer in hydrocarbon-bearing rocks of Miocene to Mississippian age. *Clays Clay Miner.*, **41**, 119-133.
- Reynolds, R. C., Jr., 1985: *NEWMOD® A computer program for the calculation of one-dimensional diffraction patterns of mixed-layered clay*. Reynolds, R. C., Jr., 8 brook Dr., Hanover, N. H.
- 石油公団, 1996: 平成6年度国内石油・天然ガス基礎調査・基礎試錐「富倉」調査報告書. 140p.
- Sucha, V., Kraus, I., Gerthofferova, H., Petes, J. and Sereokova, M., 1993: Smectite to illite conversion in bentonites and shales of the East Slovak Basin. *Clay Miner.*, **28**, 243-253.
- 吉村尚久, 1994: 鉱物の変化からみた堆積盆の熱履歴評価. 石技誌, **59**, 271-278.
- 渡辺 隆, 1981: イライト/モンモリロナイト混合層鉱物の混合層構造の判定. 鉱物学雑誌, **15**, 特別号, 32-41.