

# 花崗岩不連続面の透水実験—拘束圧・温度条件に起因する鉱物溶解の影響

重永三郎<sup>1</sup>・西山曜平<sup>1</sup>・木下尚樹<sup>1\*</sup>・安原英明<sup>1</sup>

<sup>1</sup>愛媛大学大学院 理工学研究科生産環境工学専攻 (〒790-8577 愛媛県松山市文京町3番)

\*E-mail: kino@dpc.ehime-u.ac.jp

熱水貯蔵システムや高レベル放射線廃棄物地層処分においては、地下岩盤空洞を熱源として周辺岩盤に非定常の温度分布が生じ、それに伴う熱応力も発生するため、熱・水・応力・化学の相互作用を考慮した長期的安定性評価が必要である。これらの連成問題については種々の研究がなされているが、確立された評価手法がない現状にあり、熱・水・応力・化学の相互作用による岩石の透水・力学特性の経時的定量評価やそれを基にした構成モデルの構築、解析手法の開発が望まれている。そこで本研究では、花崗岩供試体を用いて拘束圧下において温度条件を変えた透水実験を行い、不連続面の透水性の経時変化と透過水中に溶出した元素の定量評価、また鉱物の溶解機構解析を行った。

**Key Words** : rock fracture, permeability, dissolution, ICP-AES, SEM

## 1. はじめに

ごみ焼却等の廃熱で得られた熱湯を多目的利用するための一時貯蔵施設である熱水貯蔵システムや放射線廃棄物の地層処分において、地下岩盤空洞の長期性能評価が重要な課題となる。これらの施設では、空洞を熱源として周辺岩盤に非定常の温度分布が生じ、それに伴う熱応力も発生するため、熱・水・応力・化学の相互作用を考慮した岩盤の挙動評価が必要である。これらの連成問題については、種々研究がなされているが、確立された評価手法がない現状にあり、熱・水・応力・化学の相互作用による岩石の透水・力学特性の経時的定量評価やそれを基にした構成モデルの構築、解析手法の開発が望まれている。

特に、結晶質性の硬岩では、不連続面が水理学・力学的な弱面になることが予想されるため、不連続面内の流れを時間的かつ空間的に把握することは重要であると考えられる。そこで本研究では、熱・応力に依存する岩石構成鉱物の溶解・沈殿現象等の化学作用が不連続面の透水特性に及ぼす影響を把握するため、単一不連続面を有する花崗岩供試体を拘束圧下において温度条件を変化させ、透水実験を行い、透水性の経時変化の評価をした。また、実験中の透過水中に溶解する物質の元素量を同定するため、ICP発光分析を実施した。さらに実験終了後に、走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて花崗岩不連続面表面の微視観察を行ない、溶解後に沈殿物として生成している二次鉱物を観察した。その後、エネルギー分散型

X線分光法 (EDX) により沈殿している二次鉱物の同定を試みた。

## 2. 不連続面透水実験

### (1) 実験に使用した供試体

実験に使用した岩石は岐阜県瑞浪市産の花崗岩である。予め測定した力学・物理特性を表-1 に示す。この岩石の気乾状態の有効空隙率は1.0%であり、後述する今回の実験条件では、岩石中にほとんど透水せず、不連続面である亀裂部分に支配的に透水するものと考えられる。現地 (地下200m付近) で採取されたボーリングコアφ85mmの円柱ブロックの半径方向で最もP波伝播速度が速い方向に割裂して人工的に不連続面を形成し、その不連続面が直径に近くなるように、さらにコアリングし供試体を作成した。端面整形後の供試体寸法はφ29.5mm×41.2mmであった。

表-1 使用した岩石の力学・物理特性

種類	花崗岩
産地	岐阜県瑞浪市
密度 [g cm <sup>-3</sup> ]	2.58
一軸圧縮強さ [MPa]	171
弾性係数 $E_{60}$ [GPa]	50.7
ポアソン比 [-]	0.28
有効空隙率 [%]	1.0

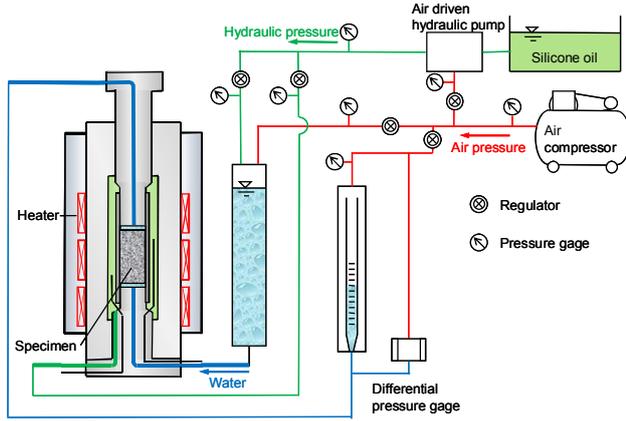


図-1 高温高圧三軸透水試験装置の模式図

## (2) 透水実験結果

透水実験は図-1に示す高温高圧三軸透水試験装置を用いた<sup>1)</sup>。本実験では拘束圧を10MPa、透水差圧を0.5MPaとし、雰囲気温度を常温20°Cに設定し実験を開始した。透水流体には、pH-7の超純水を使用した。透水試験開始210時間後に、透水を停止させることなく温度を90°Cに上昇させ、最終的に連続550時間透水実験を実施した。不連続面の透水性は、いわゆる三乗則<sup>2)</sup>が成り立つと仮定し、水理学的開口幅と透過率を用いて評価した。水理学的開口幅 $b$ は次式で表される。

$$b = \left\{ \frac{12\mu Ql}{w(P_0 - \rho_w g l)} \right\}^{\frac{1}{3}} \quad (1)$$

ここで、 $\mu$ : 粘性係数 [Pa·s],  $\rho_w$ : 流体密度 [kg/m<sup>3</sup>],  $g$ : 重力加速度 [m/s<sup>2</sup>],  $Q$ : 流量 [m<sup>3</sup>/s],  $w$ : 不連続面の幅 [m],  $P_0$ : 透水差圧 [Pa],  $l$ : 供試体長さ [m]である。また、透過率  $K$  [m<sup>2</sup>]は次式で定義される。

$$K = \frac{b^2}{12} \quad (2)$$

式(1)に含まれる流体の密度、粘性係数は温度に依存する物性であり、得られる結果を評価するためには、セル内の温度を精度よく制御する必要がある。そのため本実験では、セル内供試体の上部と下部に温度計を2本設置し、常時計測することにより、セル内の温度を管理し、最大でも1°C程度の誤差に抑えられていることを確認した。

透水実験より得られた水理学的開口幅および透過率の経時変化を図-2に示す。図中のプロットは得られた値を記したもので、実線は24時間に得られた値の移動平均を6時間ごとに結線したものである。実測値には変動があるが、これは実験装置の軸圧、側圧、透水圧などの条件が気温の影響を受けているためと考えられ、今後は室温の制御も考慮して実験を行う必要がある。

不連続面開口幅（透過率）は、実験開始時およそ2.5  $\mu\text{m}$  ( $5.2 \times 10^{-13} \text{ m}^2$ )を示し、時間の経過と共に減少してい

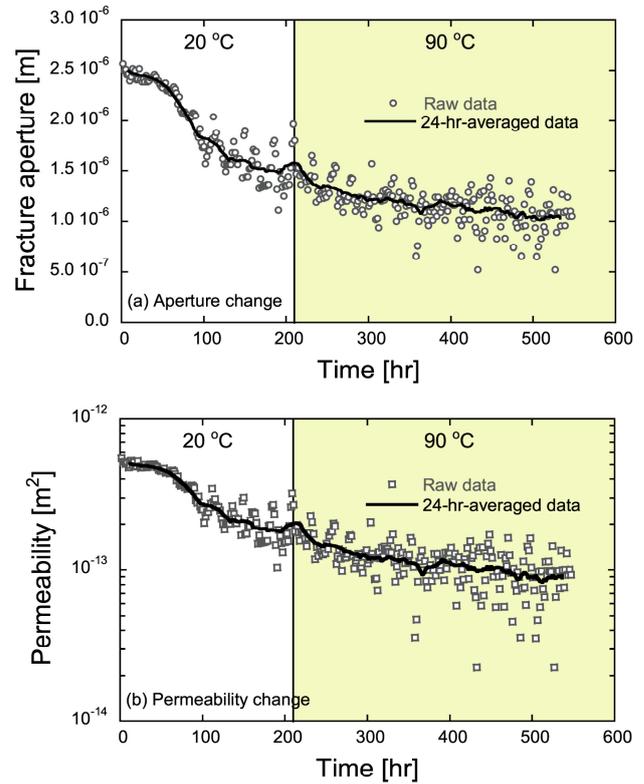


図-2 不連続面開口幅と透過率の経時変化

る。温度20°Cの時、210時間程度で約1.5  $\mu\text{m}$  ( $2.0 \times 10^{-13} \text{ m}^2$ )まで低下し、ほぼ定常状態に達している。その後、90°Cに上昇させると、更なる透水性の低下が観察され、実験終了550時間まで単調的に減少している。これは、温度上昇による溶解・沈殿現象等の化学作用が影響を及ぼしているものと考えられる。透水試験終了時の開口幅（透過率）は約1.0  $\mu\text{m}$  ( $8.3 \times 10^{-14} \text{ m}^2$ )であり、550時間の間に透水性がほぼ1桁低下する現象が観察された。

## (3) 化学分析結果

透水実験中には、一日に一回の頻度で流出口より溶液を採取し、流出溶液のpH変化を観察すると共に、ICP発光分析により流出物質の定量評価を行った。実験期間中のpHの平均値は7.39(±0.34)であり、鉱物の溶解等によるpHの大きな変化は観察されなかった。実験に使用した花崗岩の構成鉱物は、X線回折の結果より、石英、長石、黒雲母が主鉱物であることが同定できた。

本研究では、構成主元素であるSi, Al, K, Fe, Ca, Na, Mgの7種類について評価を行った。ICP発光分析による各元素の定量分析結果を図-3に示す。溶解物質濃度に着目すると、Si, Ca, Naの濃度が比較的高く、特にSi濃度は温度を90°Cに上昇させた後、濃度も大きく上昇していることが確認できる。さらに90°Cでは、Feを除きすべての物質で、20°Cよりも濃度が高くなっていることが確認された。これは、温度の上昇により鉱物の溶解性が増加したためである。

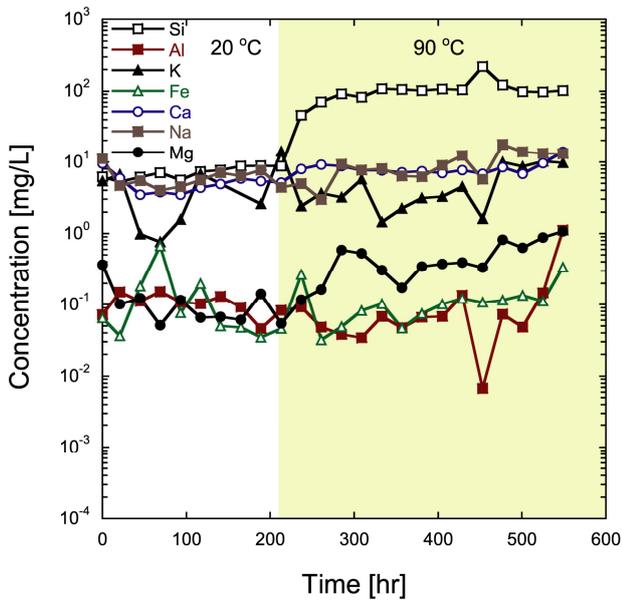


図-3 不連続面間隙内の物質濃度の経時変化

### 3. 微視構造観察

不連続面透水実験およびICP分析結果より、岩石構成鉱物の溶解現象が透水性の変化に大きく影響を及ぼしていることが確認された。透水性の変化（特に、低下）を及ぼす誘因として、溶解した鉱物の再沈殿による二次鉱物の生成も想定される。そこで、走査型電子顕微鏡（SEM）を用い、透水実験後の岩石供試体の不連続面表面を微視的に観察すると共に、沈殿している二次鉱物の同定を、エネルギー分散型X線分光法（EDX）を用いて試みた。EDXは、電子線を試料に照射し、発生する特性X線を検出して試料を構成している元素とその量を測定することが可能である。つまり、沈殿している二次鉱物をSEMで撮影し、その被写体のスペクトル分析をEDXで行うことにより、構成元素の定性・定量分析を行え、さらに構成鉱物の推定も行うことが可能である。

SEM・EDX観察の結果、沈殿物質が不連続面表面に点在していることがわかった（図-4）。EDX分析の結果、沈殿鉱物は主に、何らかの炭酸塩（図-4a）、炭酸カルシウム（図-4bc）、シリカ鉱物（図-4d）の3種類が同定できた。形状としては、球状の物体が、最も多く観察された（図-4ab）。炭酸カルシウムについても、球状の物が多く観察されたが、図-4cのように不定形の物も一部確認できた。シリカ鉱物については、図-4dのように針状の物体のみ観察された。沈殿鉱物の寸法は、 $1\mu\text{m}$ 以下の物から数 $10\mu\text{m}$ 規模の物まで様々であったが、観察されている不連続面の水理的開口幅（ $1\sim 2.5\mu\text{m}$ ）を考慮すると、これら沈殿物質が、不連続面の透水性に影響を及ぼすことを否定できない。今後は、沈殿物質の同定のみならず、全体的な沈殿量の把握も必要であると考える。

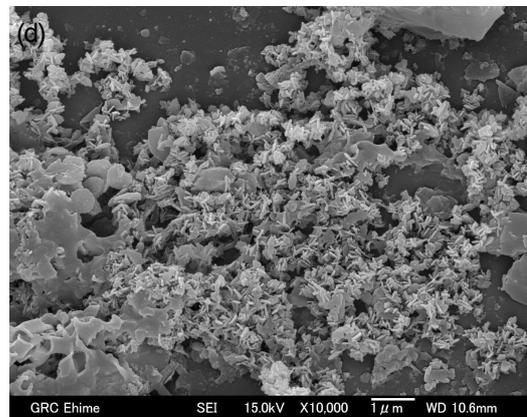
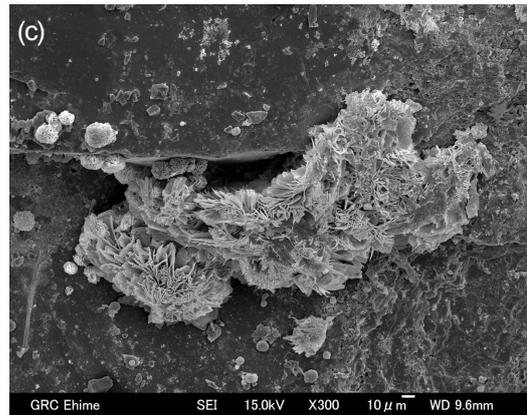
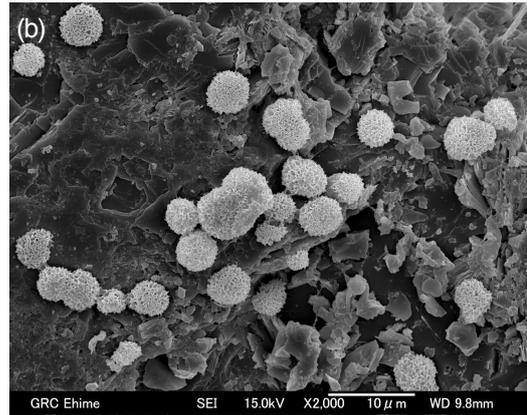
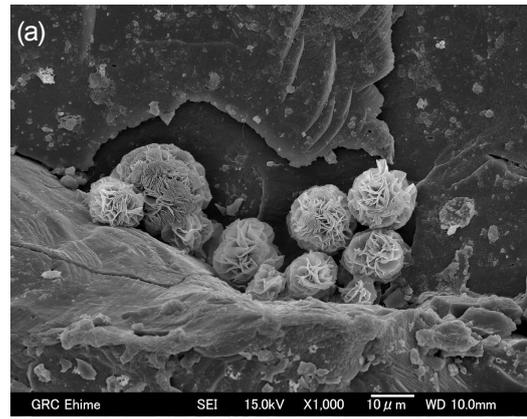


図-4 透水実験終了後のSEMによる不連続面表面観察結果  
 (a)炭酸塩, (b)炭酸カルシウム (球状),  
 (c)炭酸カルシウム (不定形), (d)シリカ.

#### 4. 溶解機構の考察

本章では、実験中に計測された元素濃度から透水性を表す指標である水理的開口幅の時間的な変化率を予測し、実験結果との比較検討を行う。これまで記述してきたように、透水性の低下は鉱物の溶解に起因することがわかった。そこで、実験で用いた試料が石英、正長石、灰長石、曹長石、黒雲母のみで構成されていると想定し、沈殿の影響が無視できると仮定すると、鉱物の溶解質量変化率 $\dot{M}$ は、流量 $Q$ との関係より次式で定義できる。

$$\dot{M} = Q \sum_i C_i \quad (3)$$

ただし、 $i = \text{SiO}_2, \text{KAlSi}_3\text{O}_8, \text{NaAlSi}_3\text{O}_8, \text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8, \text{K}(\text{Mg,Fe}^{2+})_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH,F})_2$ である。これは、時系列で計測された元素濃度を用いて以下のように近似できる。

$$\dot{M} \approx Q \sum_j C_j \quad (4)$$

ここで、 $C_j$ ：計測された元素濃度を酸化物に換算した濃度[mg/L]である ( $j = \text{SiO}_2, 1/2(\text{Al}_2\text{O}_3), \text{FeO}, \text{MgO}, \text{CaO}, 1/2(\text{Na}_2\text{O}), 1/2(\text{K}_2\text{O})$ )。

鉱物の溶解は、不連続面内のアスペリティ接触部における圧力溶解と空隙内における自由表面溶解の2種類がある。つまり、鉱物溶解質量変化率は、以下で示される。

$$\dot{M} = \dot{M}_c + \dot{M}_f \quad (5)$$

ここで、 $\dot{M}_c$ ：圧力溶解に起因する質量変化率[kg/s]、 $\dot{M}_f$ ：自由表面溶解に起因する質量変化率である。圧力溶解は不連続面を圧縮させる誘因となり、透水性を低下させる。また、自由表面溶解は、不連続面の間隙を大きくさせ、結果として透水性を増加させる作用がある(図-5 参照)。圧力溶解による不連続面の圧縮速度は、 $\dot{M}_c$ を用いて次式で表すことができる。

$$\dot{u} = \frac{\dot{M}_c}{\rho_{rock} A_f R_c} \quad (6)$$

ここで、 $\dot{u}$ ：圧縮速度(圧縮を正とする)[m/s]、 $\rho_{rock}$ ：岩石のかさ密度[kg/m<sup>3</sup>]、 $A_f$ ：不連続面のみかけの表面積[m<sup>2</sup>]、 $R_c$ ：不連続面内の接触率[-]である。つまり、圧力溶解に起因する開口幅の変化率は次式で定義できる。

$$\begin{aligned} \dot{b}_c &= -(1-R_c)\dot{u} \\ &= -(1-R_c)\frac{\dot{M}_c}{\rho_{rock} A_f R_c} \end{aligned} \quad (7)$$

ここで、 $\dot{b}_c$ ：圧力溶解に起因する開口幅変化率[m/s]である。

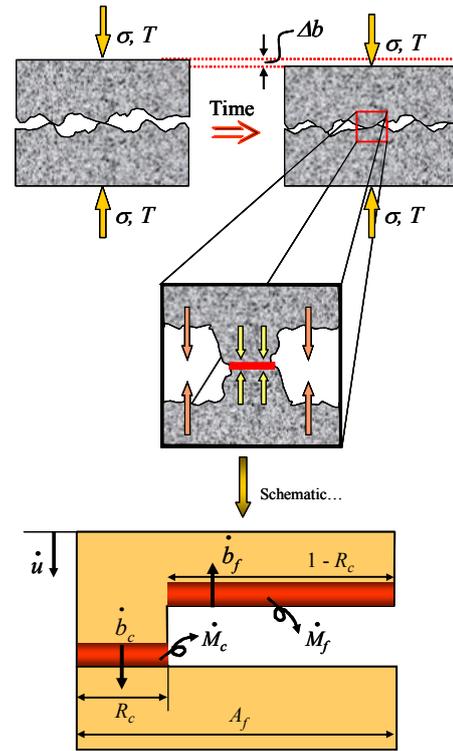


図-5 不連続面間内の溶解機構の概念図

同様に、自由表面溶解に起因する開口幅変化率は次式で表すことができる。

$$\dot{b}_f = \frac{\dot{M}_f}{\rho_{rock} A_f} \quad (8)$$

ここで、 $\dot{b}_f$ ：自由表面溶解に起因する開口幅変化率[m/s]である。従って、圧力溶解および自由表面溶解の両方の現象を考慮した開口幅変化率は、最終的に次式のようになる。

$$\begin{aligned} \dot{b} &= \dot{b}_c + \dot{b}_f \\ &= \frac{1-R_c}{\rho_{rock} A_f} \left( -\frac{\dot{M}_c}{R_c} + \frac{\dot{M}_f}{1-R_c} \right) \end{aligned} \quad (9)$$

式(4)、(5)、(9)より開口幅変化率を推定することができるが、そのためには、不連続面内のアスペリティ接触率と、圧力溶解および自由表面溶解の全溶解質量に寄与する割合の2つを想定しなければならない。そこで、これらのパラメータを変動させ、実験結果の同定を試みた。入力値として設定した全溶解質量変化率 $\dot{M}$ は、実験結果より求められた平均値  $2.03 \times 10^{-11} \pm 1.55 \times 10^{-11}$  [kg/s]を用いた。得られた解析結果を図-6に示す。図中の「C」および「F」は、全溶解量に対する圧力溶解および自由表面溶解に寄与する割合を表している。解析結果より、想定接触率が増加するに伴い、また、自由表面溶解の寄与度が上がるにつれて、開口幅変化率が減少していることが

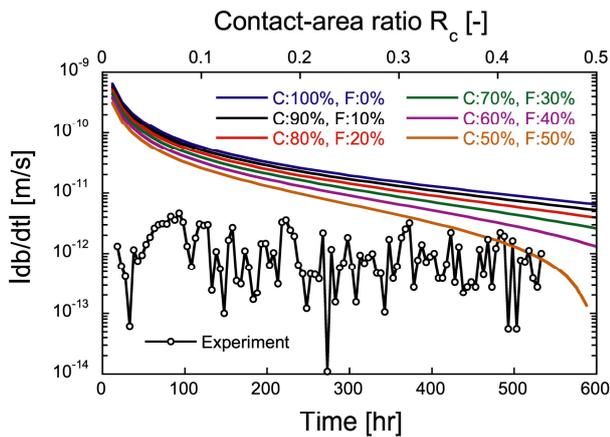


図-6 開口幅変化率の関係 (実験：経時変化, 解析：接触率)

確認できる。これは、相対的に接触部での溶解の寄与度が下がるためである。開口幅実験での開口幅変化率は、おおそ  $10^{-13} \sim 10^{-11}$  の間にあるが、解析結果は概ね過大評価する結果が得られた。SEM の結果より、不連続面内の自由表面上に二次鉱物が沈殿していることが確認された。沈殿現象は、透水性を低下させると考えられるが、本モデルでは沈殿による影響を考慮しておらず、その結果として実験結果よりも過大評価することになった可能性も考えられる。また、2 種類の溶解機構のうち透水性を低下させる圧力溶解現象のみが作用しているとは考えられず、自由表面溶解も働いていることが推測される。しかしながら、実験結果で得られた透水性の低下は圧力溶解に大きく影響を受けていることが明らかとなった。

## 5. まとめ

本研究では、不連続面を有する花崗岩供試体を用いて拘束圧、温度を制御して透水実験を行い、透水性の経時変化を検討した。また、実験中透過した水に溶出した元

素の定量評価を行った。その結果、常温では時間の経過に伴い透水性は低下し定常状態に近づくが温度を上昇させることにより再び透水性が低下し、その後定常状態に近づくことが分かった。また透過中の Si, Ca, Na の濃度が比較的高く、特に Si 濃度は温度を上昇させると濃度も大きく上昇していることが確認され、透水性との関連を推測できた。また、走査型電子顕微鏡 (SEM) およびエネルギー分散型 X 線分光法 (EDX) を用いて微視観察を行うことにより、透水性の変化の要因と推測される沈殿による二次鉱物の生成を確認することができた。

最後に鉱物の溶解機構解析では、アスペリティの接触率と、圧力溶解および自由表面溶解の寄与度を仮定することにより、開口幅変化率の予測解析を行ったが、実験結果を過大評価する結果となった。不連続面内の開口幅分布あるいは変化率を実験前に獲得できればより精度の高い評価が可能であり、今後の課題である。今後種々の温度および拘束圧条件にて透水実験を実施することにより、データを蓄積する予定である。

**謝辞：**本研究は、平成19, 20年度愛媛大学研究開発支援経費および科学研究費補助金(No.20760315)の助成により遂行された。また、SEMおよびEDXの分析では、愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センター・大藤弘明氏にご協力を頂いた。ここに記して謝意を表す。

## 参考文献

- 1) 木下尚樹, 安原英明, 中島伸一郎, 岸田潔 : 拘束圧および温度を制御した花崗岩不連続面の透水性経時変化の実験による検討, 第12回岩の力学国内シンポジウム講演論文集, pp.965-969, 2008.
- 2) Witherspoon, P. A., Wang, J. S. Y., Iwai, K. and Gale, J. E. : Validity of cubic law for fluid flow in a deformable rock fracture, *Water Resour. Res.*, 16, pp.1016-1024, 1980.

## FLOW-THROUGH EXPERIMENTS IN A GRANITE FRACTURE: INFLUENCES OF DISSOLUTION EXERTED ON STRESS AND TEMPERATURE

Saburo SHIGENAGA, Youhei NISHIYAMA, Naoki KINOSHITA,  
and Hideaki YASUHARA

A flow-through experiment in an induced fracture in granite has been conducted at a constant confining pressure of 10 MPa, differential water pressure of 0.5 MPa, and temperatures of 20 and 90 °C prescribed. Throughout the experiments, permeability has monotonically decreased with time, and ultimately reduced by roughly one order of magnitude. This may be attributed to a dominant dissolution process at the contacting asperities, rather than free-face dissolution in pore space within the fracture. After the experiments ceased, coupled SEM and EDX analyses were conducted to examine precipitated microstructures of the fracture surfaces. Silica and carbonate minerals are identified from the analysis.