

格子ボルツマン法を用いた岩盤亀裂内におけるシリカ析出の流体物理学的シミュレーション

水島 諒大^{1*}・三ヶ田 均¹・後藤 忠徳¹・武川 順一¹

¹京都大学大学院 工学研究科 社会基盤工学専攻 (〒615-8540 京都府京都市西京区京都大学桂C1-1棟)

*E-mail: akihiro-mizushima@tansa.kumst.kyoto-u.ac.jp

熱水に溶存した無機塩やシリカ析出による亀裂閉塞は、地殻中の熱水循環及びそれに起因する地熱貯留層や熱水鉱床の分布、その力学的・工学的性質に大きな影響を与えることが知られている。本研究では、単純なシリカの壁面吸着モデルを導入し、シリカ析出における反応速度論的プロセス及び物理的プロセスの重要性について評価した。そのため、格子ボルツマン法を用いて流速分布、温度分布および溶存シリカの濃度分布のシミュレーションを行い、化学的および物理学的プロセス双方からシリカの析出量を予測した。その結果、シリカ析出は反応速度論的プロセスのみでは説明が難しいこと、物理的プロセスが重要であることが示唆された。

Key Words : *silica precipitation, fracture, High-level radioactive waste, Lattice Boltzmann Method*

1. 序論

熱水に溶存した無機塩やシリカ析出による岩盤の亀裂閉塞は、地殻中の熱水循環構造を変化させ、それに起因する地熱貯留層や熱水鉱床の分布、またはその力学的・工学的性質に大きな影響を与えることが知られている。シリカは、地殻深部での熱水と周辺岩盤に含有している石英との反応によって、熱水に溶出する。シリカを溶存した熱水が地表に向かって上昇する過程で冷却され、シリカに関して過飽和状態となり、亀裂壁面にシリカの析出が生じる¹⁾。また、放射性廃棄物地層処分では、天然バリア母岩中の地下水の流れを把握し評価することが極めて重要となる。特に、地下水中に溶存している無機塩やシリカが、流動過程において沈殿し割れ目を閉塞させることで、放射性核種の移行を抑制する効果が期待されている²⁾。

このようにシリカ析出によって生じる岩盤透水性の変化を予測することは重要であり、いくつかの巨視的な数値シミュレーションが行われてきた^{3,4)}。シリカの析出速度では、比較的多くの研究^{5,6)}がなされ、石英の単純な溶解反応に基づいた反応速度論による記述⁷⁾がなされている。例えば、Rimstidtら⁷⁾は速度論的パラメータ値を文献や室内実験に基づき温度の関数として定義している。しかし、得られる析出速度は実際の熱水を用いた実験と比較して数オーダーも小さいことが指摘されている^{8,9)}。

流れの滞り箇所での急速なシリカ析出が観測されていることからシリカ析出には流速の不均質性が大きく影響していると考えられるが、亀裂内流れに伴うシリカの析出挙動はあまり検討されていない。

本研究では、数値シミュレーションを用いてシリカ析出量を予測し妥当性を検証することで、シリカ析出における反応速度式で記述される反応速度論的プロセスと流速に依存する物理的プロセスの双方の寄与を比較する。本研究は、岩盤の単一亀裂内流れに伴うシリカの析出挙動をプロセスの微視的機構まで遡り、単純なモデルで記述することで、それを取り入れたより正確なシリカ析出の巨視的シミュレーションの構築を目指すものである。

2. 手法

(1) 格子ボルツマン法

本研究では、流体解析手法として格子ボルツマン法を用いる。格子ボルツマン法は、仮想的な流体粒子の密度分布関数を定義して、その分布関数の発展方程式を解く手法である。本手法は境界条件処理が比較的単純であるため、複雑形状などでの非一様流れへの適用性が高く、粒子運動論的な取り扱いが可能であるため、溶質移動解析にも適用できるという特性がある。なお、この手法はNavier-Stokes方程式を取り扱わないが、その数値計算結

果は Navier-Stokes 方程式の解と等しいことが理論的に裏付けられている。

格子ボルツマン法では、計算領域は格子によって空間離散化され、流体粒子の運動には規則的なモデルが用いられる。また、流れの保存則を満足する適切な衝突項を適用することが必要であり、様々な衝突項や速度モデルが用いられている。本研究では、衝突項及び速度モデルに対して、それぞれ Bhatnager-Gross-Krook (BGK) モデル¹⁰⁾と2次元9速度 (D2Q9) モデル¹¹⁾を適用する。各タイムステップでの密度分布関数 $f_i(\mathbf{x}, t)$ の発展方程式は、次のように定式化される。

$$f_i(\mathbf{x} + \Delta\mathbf{x}, t + \Delta t) - f_i(\mathbf{x}, t) = -\frac{1}{\tau} [f_i(\mathbf{x}, t) - f_i^{eq}(\mathbf{x}, t)] \quad (1)$$

ここで、 τ : 緩和時間係数、 $f_i^{eq}(\mathbf{x}, t)$: 平衡密度分布関数、 $\Delta\mathbf{x}$: 格子幅、 Δt : 離散化時間、 i ($= 0-8$): 流体粒子の速度方向であり、

$$f_i^{eq} = \omega_i \rho \left[1 + 3 \frac{(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{u})}{c^2} + \frac{9}{2} \frac{(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{u})^2}{c^4} - \frac{3}{2} \frac{\mathbf{u}^2}{c^2} \right] \quad (2)$$

と定義される。ここで、 $c = \Delta x / \Delta t$: 格子間移動速度、 ω_i : 重み係数、 ρ : 密度、 $\mathbf{u}$: 流速である。巨視的な流体変数である密度 ρ 、流速 $\mathbf{u}$ は以下のように表わされる。

$$\rho = \sum_{i=0}^8 f_i(\mathbf{x}, t) \quad (3)$$

$$\rho \mathbf{u} = \sum_{i=0}^8 f_i(\mathbf{x}, t) \mathbf{c}_i \quad (4)$$

また、流体の動粘性係数 ν は次のように表すことができる。

$$\nu = \frac{c^2 \Delta t}{3} \left(\tau - \frac{1}{2} \right) \quad (5)$$

また、上記の方法により得られた流速 $\mathbf{u}$ を用い、温度及び溶存シリカ濃度に対する以下のような移流拡散方程式を解くことで、熱移動及び物質移動解析を行なう。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) C = D \nabla^2 C + Q \quad (6)$$

ここで、 C : 温度及び濃度であり、 D : 熱及び濃度拡散係数、 Q : シリカ沈殿に伴う溶存シリカ濃度の減少項である。衝突項及び速度モデルに対して、それぞれ BGK、D2Q9 モデルを適用し、温度及び濃度の分布関数 $g_i(\mathbf{x}, t)$ の発展方程式は、次のように定式化される。

$$g_i(\mathbf{x} + \Delta\mathbf{x}, t + \Delta t) - g_i(\mathbf{x}, t) = -\frac{1}{\tau_s} [g_i(\mathbf{x}, t) - g_i^{eq}(\mathbf{x}, t)] + \omega_i \Delta t Q \quad (7)$$

ここで、 τ_s : 緩和時間係数、 $g_i^{eq}(\mathbf{x}, t)$: 平衡分布関数であり、

$$g_i^{eq} = \begin{cases} \omega_i C \left[\frac{3}{2} + \frac{3}{2} \frac{(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{u})}{c^2} + \frac{9}{2} \frac{(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{u})^2}{c^4} - \frac{3}{2} \frac{\mathbf{u}^2}{c^2} \right] & \text{for } i=0, 2, 4, 6 \\ \omega_i C \left[3 + 6 \frac{(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{u})}{c^2} + \frac{9}{2} \frac{(\mathbf{c}_i \cdot \mathbf{u})^2}{c^4} - \frac{3}{2} \frac{\mathbf{u}^2}{c^2} \right] & \text{for } i=1, 3, 5, 7 \\ 0 & \text{for } i=8 \end{cases} \quad (8)$$

と定義される。巨視的な流体変数である温度及び溶存シリカ濃度 C は以下のように表わされる。

$$C = \sum_{i=0}^8 g_i \quad (9)$$

(2) シリカ析出の計算手法

本研究では、各流体及び固体格子点を中心とし、各格子点での流速、温度及び溶存シリカ濃度を持つ正方形微小セルを定義し、壁面に接する流体セル内においてシリカの析出量を予測する。時間が経過するにつれ、流体セルのシリカ析出総量は増加していき、あるタイムステップで析出したシリカの体積分率が1となる。このシリカの体積分率が1となった流体セルは、次のタイムステップから、壁面として設定される。それ以降、析出したシリカの体積分率が1に達したかを判定するセルは、1つ外側の流体セルに移行する。このように、シリカ析出による壁面成長を記述する。

本研究ではシリカ析出速度は、反応速度論的プロセス及び物理的プロセスそれぞれについて、定式化したものを用いる。双方において溶存シリカ濃度の低下分が析出量に等しいものとする。

反応速度論的プロセスでは、シリカと水との化学反応を速度論的に考慮し、シリカ析出速度は溶存シリカの過飽和度に依存するものとする。以下の Rimstidt ら⁷⁾によって提案されたシリカの沈殿速度式を用いる。

$$\frac{\partial R}{\partial t} = -\frac{\partial m_{\text{Si(OH)}_4}}{\partial t} M_{\text{SiO}_2} = k_+ \frac{A}{M} M_{\text{SiO}_2} \left(\frac{m_{\text{Si(OH)}_4}}{K_{eq}} - 1 \right) \quad (10)$$

ここで、 R : 1 m² 当たりの壁面に析出するシリカの質量、 M_{SiO_2} : シリカの分子量、 $m_{\text{Si(OH)}_4}$: 溶存シリカ濃度、 A : 反応表面積、 M : 溶媒の質量である。 k_+ 及び K_{eq} は、それぞれ溶解速度定数及び平衡定数であり、以下のように温度 T (K) の関数として定義される。

$$\log k_+ = -0.369 - 7.890 \times 10^{-4} T - 3438/T \quad (11)$$

$$\log K = 0.3380 - 7.889 \times 10^{-4} T - 840.1/T \quad (12)$$

また、物理的プロセスでは、シリカ析出速度は、流速の不均質性に依存するものとし、シリカの析出速度を以下のように設定する。

$$\frac{\partial R}{\partial t} = -\frac{\partial m_{\text{Si(OH)}_4}}{\partial t} M_{\text{SiO}_2} = \psi (S^{-0.630}) M_{\text{SiO}_2} m_{\text{Si(OH)}_4} \quad (13)$$

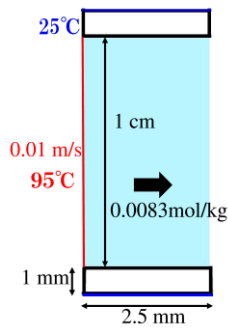


図-1 Model A とその初期条件

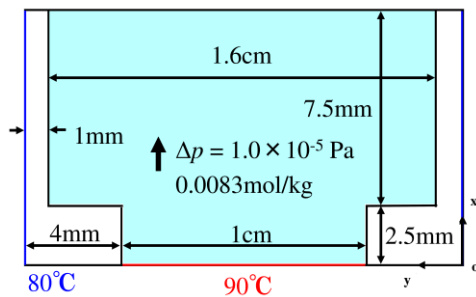


図-2 Model B とその初期条件

表-1 24時間後のガラス管壁におけるシリカ析出の平均量

細井・今井(1982)	0.42-1.7 g/m ²
反応速度論的プロセス	5.18×10^{-5} g/m ²
物理的プロセス	11.0 g/m ²

ここで、 S ：壁面でのせん断速度である。 ϕ ：壁面せん断速度と壁面に付着するシリカ粒子の個数に関する係数であり、Gentile ら¹²⁾の実験に基づき定式化したものである。

3. シミュレーションモデル

本研究では、2つのシミュレーションモデルを用いる。人工熱水によるガラス管へのシリカ析出試験¹³⁾で測定されたシリカ析出量と反応速度論的プロセス及び物理的プロセスに基づいて予測された析出量との妥当性を定量的に比較するために、ガラス管断面の一部を模擬した二次元の平行平板モデル (Model A, 図-1) を設定する。

また、反応速度論的プロセス及び物理的プロセス双方に基づいたシリカ析出シミュレーションにおいて流れの激む箇所での急速なシリカ析出の特徴を再現できるかを検証するため、急拡部を有する二次元平行平板内流れモデル (Model B, 図-2) を設定する。このモデルは地熱生産井の配管継手部での管断面の形状を模擬し、実際に観

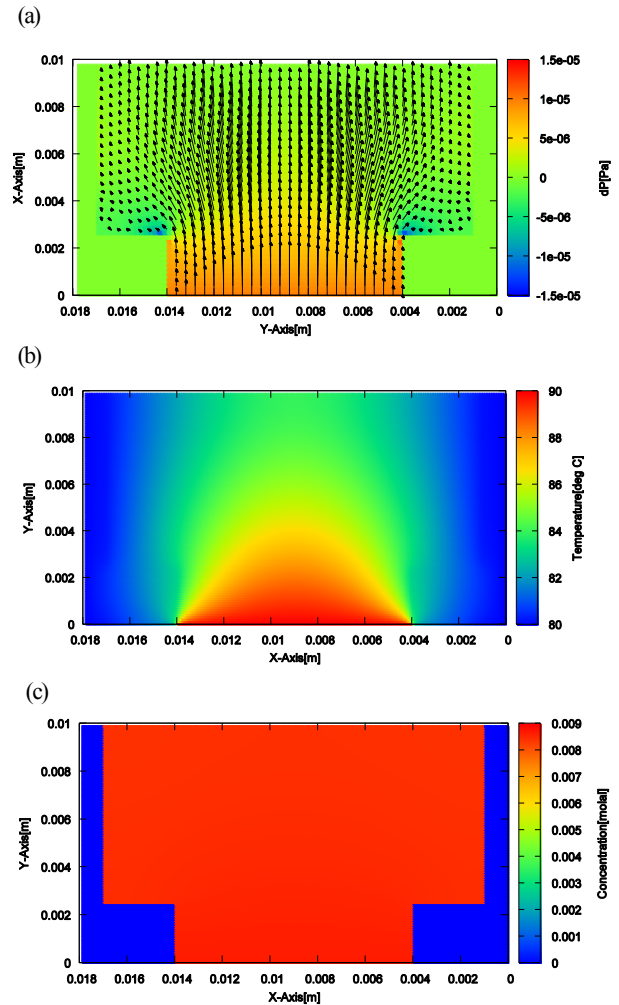


図-3 定常状態での Model B における流速分布(a), 温度分布(b), 溶存シリカ濃度分布(c)

測されたスケール形状¹⁴⁾との定性的な比較を行なう。

4. 結果

Model A で反応速度論的プロセス及び物理的プロセスによるシリカ析出量をそれぞれ予測したところ、反応速度論的プロセスでの析出量は文献値¹³⁾よりも数オーダー小さな値となった。一方、物理的プロセスでの析出量は文献値¹³⁾よりも一桁程度大きな値となった。表-1 に各プロセス及び文献値での 24 時間経過時におけるガラス管壁面 1 (m²) におけるシリカ析出の平均量を示す。なお、計算の安定性確保のためタイムステップ間隔を小さくとる必要があり、本研究においては流れが定常状態となるまでの析出量を予測し、その後シリカ析出量は直線的に増加すると仮定し 24 時間経過時のシリカ析出量を算出した。

Model B での定常状態での流速 (図-3a), 温度 (図-

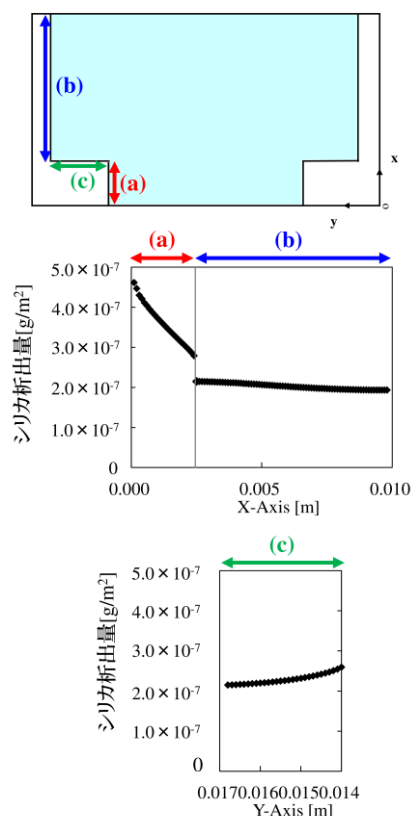


図-4 反応速度論的过程での 200 (s)後の壁面に沿った 1(m²)当たりのシリカ析出量

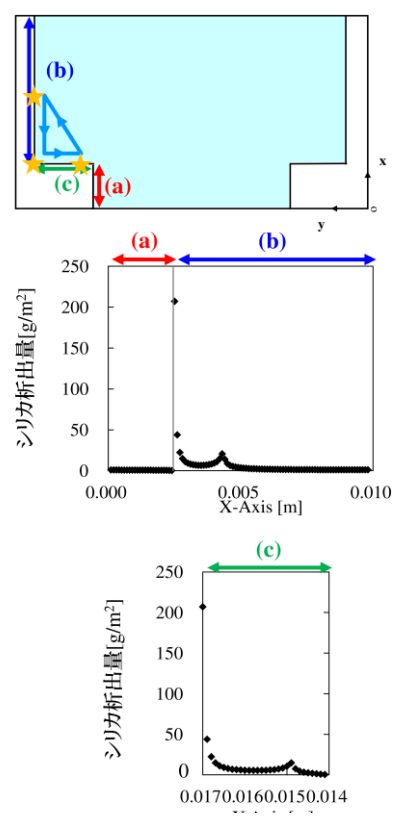


図-5 物理的过程での 200 (s)後の壁面に沿った 1(m²) 当たりのシリカ析出量

3b) 及び溶存シリカ濃度分布 (図-3c) を示す。これらを基に反応速度論的过程及び物理的过程でのシリカ析出量をそれぞれ予測した。双方的过程での 200 (s)経過時の壁面に沿ったシリカ析出量をそれぞれ図-4 及び図-5 に示す。反応速度論的过程では、流入口付近から壁面に沿って緩やかな析出量の減少が見られた。物理的过程では、特に急拡大部などの澱み点 (図-4, 星印) において析出量の急激な増加が見られた。

また, Model B においてスケール析出による壁面成長の経時変化をシミュレーションしたところ, 物理的过程においてのみ, 澱み点で急速に析出が進み, その後澱み点の間を埋めるように析出していき, 最終的には地熱生産井の配管で観察されたスケール形状¹⁴⁾と同様の, 急拡大部の急速な析出及び急拡大部から流れ方向に緩やかに減少していくようなスケール形状が見られた (図-6)。なお, シリカ析出速度はタイムステップや流速の変化に比べ非常に遅く, 定性的に流速変化に伴う壁面形状の変化を観察するために, シリカ析出速度のみを 10^6 倍に加速させシミュレーションを行なった。

5. 結論

Model A では, 反応速度論的过程によって予測されるシリカ析出量は, 実際のシリカ析出量よりもはるかに小さな値となった。一方で, 物理的过程によって予測されるシリカ析出量は, 反応速度論的过程に基づく予測析出量よりも大きく, 実際のシリカ析出量に近い値となった。Model B において, 反応速度論的过程では, 実際のシリカ析出に観察されるような流速の澱み部分での析出量の増加を再現できなかったのに対し, 物理的过程では, 定性的に地熱生産井の配管でのスケール形状をある程度再現することができた。従って, シリカと水との反応のみを反応速度論的に考慮した単純な过程だけでは, 実際のシリカ析出現象を十分に記述することができないことが確認された。一方で, シリカ析出現象において流速の不均質がより大きな影響を与えていることが示され, シリカ析出挙動の把握における流速に依存した物理的过程の重要性が示唆された。

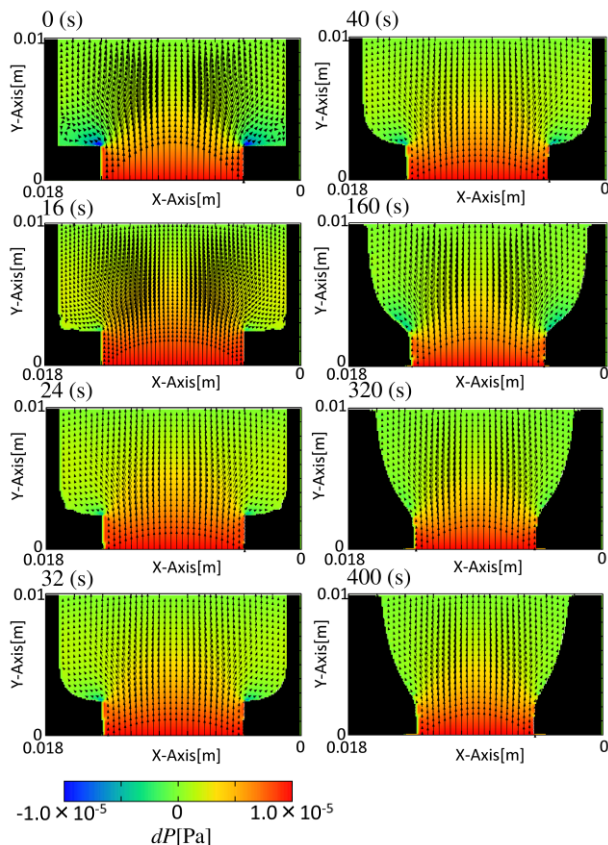


図-6 スケール成長の経時変化

参考文献

- 1) Martin, T. and Lowell, P. : Precipitation of quartz during high-temperature, fracture-controlled hydrothermal upflow at ocean ridges: Equilibrium versus linear kinetics. *Journal of Geophysical Research*. 105 (B1), pp. 869-882, 2000.
- 2) 千木良雅弘 : 放射性廃棄物施設における岩盤割れ目のシーリング (その 1) —シリカによるセルフシーリングの可能性検討—, 電力中央研究所報告, 1991.
- 3) Bolton, E. W., Lasaga, A. C. and Rye, D. M. : Long-term flow/chemistry

- feedback in a porous medium with heterogeneous permeability; kinetic control of dissolution and precipitation, *American Journal of Science*, 29, pp. 1-68, 1999.
- 4) Takeno, N., Ishida, T. and Pritchett, J. W. : Alteration zonation of silica minerals in a geothermal system - a numerical simulation based on reaction-transport model: *Proceedings 20th NZ Geothermal Workshop*, pp. 259-264, 1998.
- 5) Fleming, B. A. : Kinetics of reaction between silicic acid and amorphous silica surfaces in NaCl solutions, *Journal of Colloid and Interface Science*, 110(1), pp. 40-64, 1986.
- 6) Weres, O. and Tsao, L. : Chemistry of silica in Cerro Prieto brines, *Geothermics*, 10, pp.255-276, 1981.
- 7) Rimstidt, J. D. and Barnes, H. L. : The kinetics of silica-water reactions, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 44, pp. 1683-1699, 1980.
- 8) Malate, R. C. M. and O'Sullivan, M. J. : Mathematical modeling of silica deposition in a porous medium, *Geothermics*, 21(3), pp. 377-400, 1992.
- 9) Weir, G. J. and White, S. P. : Surface deposition from fluid flow in a porous medium, *Transport in Porous Media*, 25, pp. 79-96, 1996.
- 10) Qian, Y. H., d'Humières, D., and Lallemand, P. : Lattice BGK Models for Navier-Stokes Equation, *Europhysics Letters*, 17(6), pp.479-484, 1992.
- 11) Succi, S., d'Humières, D., Qian, Y., and Orszag, S. A. : On the small-scale dynamical behavior of lattice BGK and lattice Boltzmann schemes, *Journal of Scientific Computing*, 8(3), pp.219-230, 1993.
- 12) Gentile, F., Chiappini, C., Fine, D., Bhavane, R. C., Peluccio, M. S., Ming-Cheng Cheng, M., Liu, X. and Decuzzi, P. : The effect of shape on the margination dynamics of non-neutrally buoyant particles in two-dimensional shear flows, *Journal of Biomechanics*, 41, pp. 2312-2318, 2008.
- 13) 細井 学, 今井 秀喜 : 地熱熱水からのシリカスケール付着防止のための基礎研究, 日本地熱学会誌, 4(3), pp.127-142, 1982.
- 14) Mercado, M., Bermejo, F., Hurtado, R., Terrazas, B. and Hernandez, L. : Scale incidence of production pipes of cerro prieto geothermal wells, *Geothermics*, 18(1/2), pp.225-232, 1989.

Fluid-physical simulation of silica precipitation formation using lattice Boltzmann method.

Akihiro MIZUSHIMA, Hitoshi MIKADA, Tada-nori GOTO and Junichi TAKEKAWA

The formation of inorganic sparingly-soluble salts, anhydrite and silica from brine is important phenomena in the understanding of subsurface hydrothermal system. Our goal is to evaluate the importance of chemical kinetic or hydrodynamic effects on silica precipitation. To meet this goal, we compare the simulation results from chemical kinetic and hydrodynamic processes with the data from the experiments in term of the quantity and the distribution of silica precipitation. Our results tell that the chemical kinetic process is not sufficient for reproducing the real silica deposition. It is emphasized that the hydrodynamic effects play a major role in silica precipitation and should be taken into account.