

## 岩石間隙水中の拡散と間隙の構造

中嶋 悟(東京大学大学院理学系研究科)

岩石間隙水中の物質の拡散は、岩石中の物質移動、さらには岩石の流動特性を考える上で、評価すべき重要なパラメータである。しかしながら、このパラメータを定量的に求める努力はこれまであまりなされてこなかった。最近、放射性廃棄物の岩石中への埋設処分の安全性評価に関連して、この拡散現象の定量化の試みが始まった。しかし、これを岩石の間隙の構造や連続性と共に総合的に理論的に考え始めたのは、筆者らの一連の研究からだと思う。

筆者らは、まず深海底堆積物(北大西洋マデイラ深海平原)中の放射性トレーサ(テクネチウム $^{95}\text{mTc}$ )の拡散実験を行い、拡散係数と間隙率・粒度との関係を調べた。また比較のため、ベントナイト中のそれらの関係と比較した。その結果、拡散係数と間隙率は両対数グラフ上で

深海堆積物、ベントナイトそれぞれについて直線関係にあり、その傾きは粒度が小さい程大きいことがわかった<sup>1)</sup>。

そこで次に様々な岩石について、その間隙水中の $\Gamma$ の拡散係数を室温で測定してみた(Fig.1)。また、これらの岩石の有効間隙率を、水による強制湿潤時と強制乾燥時の重量差から測定した。これらの有効間隙率と有効拡散係数は両対数グラフ上で2つの直線に近似された(Fig.2)。水銀圧入法によるこれらの岩石の間隙孔径分布から、この2つの直線は、タイプA(大きな間隙)とタイプB(小さな間隙)に対応することがわかった。均質等方性岩石と考えられるものについて、水銀圧入法による5nm以上の間隙は連続性のよいTransport porosityであると考え、これと有効拡散係数とを両対数グ

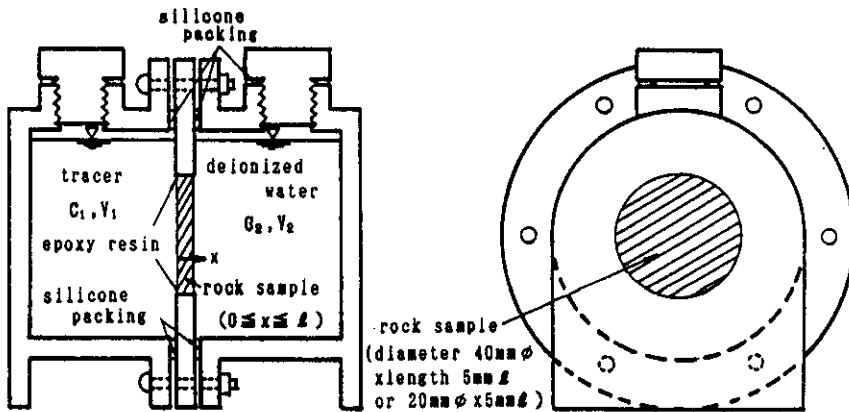


Fig. 1 Diffusion cell used in the experiment.

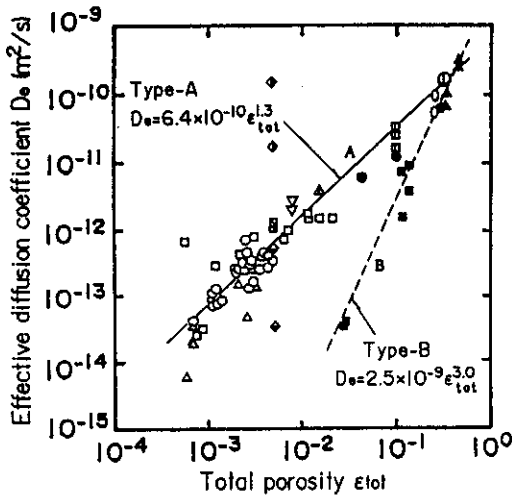


Fig. 2 Correlation between the effective diffusion coefficients  $D_e$  of iodide anion and the total porosities  $\epsilon_{tot}$  (= water saturation porosity  $\epsilon_w$ ) of various rocks.

- , ○ : siliceous sedimentary rock from Onnagawa
- ▲ : siliceous sedimentary rock from Kamanosawa
- : andesite from Kushikino
- ◇ : schist from Iwaki whose schistosity is parallel to the diffusion direction.
- ◇ : schist from Iwaki whose schistosity is perpendicular to the diffusion direction.
- △ : limestone from Kitaibaraki
- ▽ : granite from Inada, ○ : tuff from Izu (KITA et al., 1989)
- , △ : granite and gneiss from Sweden (SKAGIUS and NERETNIEKS, 1986)
- , □ : sandstone and anhydrite from United Kingdom (BRADBURY et al., 1986)
- : granite from United Kingdom (BRADBURY et al., 1982)

ラフ上にプロットすると、ほぼ1つの直線に収束し、25℃での水中(間隙率100%)での拡散係数  $2 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  から始まる直線的な関係に近い(Fig. 3)。この直線の延長上にスウェーデンの花崗岩・片麻岩についての文献値等がある。従って、均質等方性の岩石については、有効間隙率を測定すれば有効拡散係数のオーダーを推定できることが期待される<sup>2,3)</sup>。これはまた、岩石と水が反応しながら物質移動が起きる時、

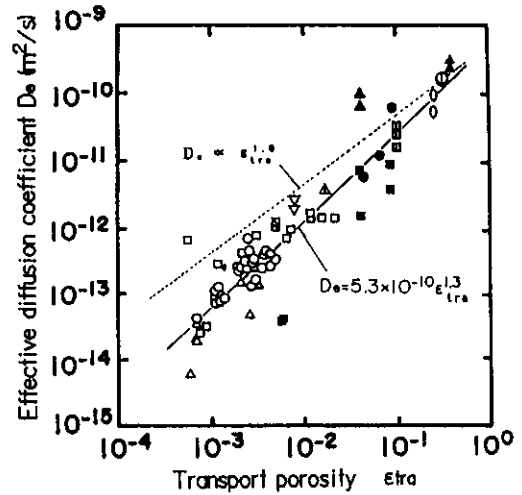


Fig. 3 Correlation between the effective diffusion coefficients  $D_e$  of iodide anion and the transport porosities  $\epsilon_M$  of various rocks.

- , ○ : siliceous sedimentary rock from Onnagawa
- ▲ : siliceous sedimentary rock from Kamanosawa
- : andesite from Kushikino
- △ : limestone from Kitaibaraki
- ▽ : granite from Inada, ○ : tuff from Izu (KITA et al., 1989)
- , △ : granite and gneiss from Sweden (SKAGIUS and NERETNIEKS, 1986)
- , □ : sandstone and anhydrite from United Kingdom (BRADBURY et al., 1986)
- : granite from United Kingdom (BRADBURY et al., 1982)

間隙率が時間的空間的に変化することが想定されるが、その際の拡散係数の時間的空間的な変化を第1次近似関数として扱えることを示す。

一方、異方性の岩石については、例えば、緑色片岩では、片理面に平行な方向への拡散係数が、これに垂直方向へのそれより約3桁大きい(Fig. 2)<sup>3)</sup>。

さて、物質移動経路としての岩石間隙の連続性については、間接的に想定されていたものの、

実測事実は殆どなかった。そこで、花崗岩のように間隙の少ない岩石において間隙が連続しているかどうかを調べるため、様々の長さのコアと、側面を樹脂でコーティングしたコアの有効間隙率を測定し、比較した。有効間隙率は約0.7%で一定であり、間隙はコア全体に様に連続していることがわかった(Fig.4)。また、花崗岩に過マンガン酸カリウム溶液をしみこませ間隙を染色してみると、間隙は主として長石を含む結晶粒界と長石内部の不連続面に存在し、網の目状に連続していることが観察された。ペグマタイトの石英、長石、黒雲母の有効間隙率を測定してみると、長石で最も大きく、およそ2%程度であり、長石自身の内部にもかなりの間隙があることが確認された(Table 1)。花崗岩中の物質の拡散経路は、鉱物粒界のみならず長石内部の不連続面に存在する間隙水も重要であることがわかる<sup>4)</sup>。

さて、均質等方性岩石での Transport porosity  $\epsilon_{tra}$  と有効拡散係数との両対数グラフ上での直線的な関係の傾きは1ではなく1.3である<sup>3)</sup>。この事は、屈曲度  $\tau$  は間隙率  $\epsilon_{tra}$  と独立ではないことを意味し、我々の実験からは  $\tau^2 = \epsilon_{tra}^{-0.3}$  に近い(Fig.3)。そこで、この拡散経路の屈曲度なるものを定量化できないかと考えた。その第一歩として、花崗岩中のマイクロクラックの分布を、偏光顕微鏡下の薄片で観察し、異なる倍率の視野で、様々な方向のマイクロクラックを、コントロール集合法による1次元(方向依存)フラクタル幾何学的解析を行なった<sup>5)</sup>。その結果、石英中のまっすぐで連続性のよいマイクロクラックのフラクタル次元は約0.4(0.23-0.54)で、長石中の細かくてぐねぐねしたそれは約0.2(0.1-0.3)であった。一方、同じ試料で IDEMITSU et al. (1991)らが測定した  $U^{233}$  のみかけの拡散係数は  $10^{-12} \sim 10^{-15} m^2/s$  の2つがあった。これは、花崗岩中の拡散経路には、主に石英中の“高速道路”による速いものと、主に長石中の“街路”による遅いものと解釈できる。そこで、この2つの経路の屈曲度のフラクタル次元の比を計算すると1.3となり、拡散係数の比から求まる屈曲度の比から得られ

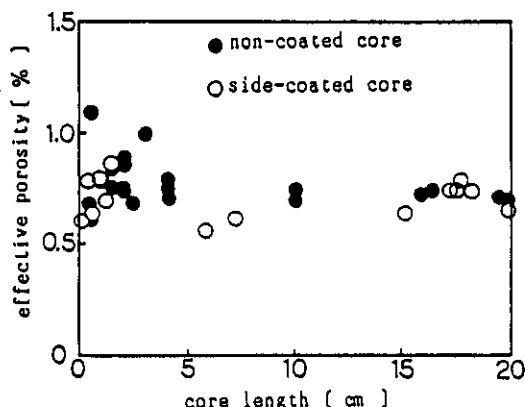


Fig. 4 Differences in effective porosities of granite between the side coated cores and the non-coated ones.

Table 1 Effective porosities (%) of some pegmatite minerals: quartz and K-feldspar from Kurosaka, Ibaraki, Japan; biotite from Andra Pradesh, India

mineral	sample 1	sample 2	sample 3
quartz	0.39	0.26	0.32
K-feldspar	1.89	2.48	2.09
biotite	U. D	U. D	U. D

U. D: Under the detection limit.

るフラクタル次元の比と一致する<sup>6)</sup>。従って、岩石のマイクロクラックのフラクタル次元から、岩石間隙を介しての拡散等の物質移動を定量的に予測することが可能となろう<sup>7,8)</sup>。

## 文献

- 1) NAKASHIMA, S. and KITA, H., 1989, Diffusion and fixation of a mobile radionuclide in deep-sea sediments. In: *Disposal of Radioactive Wastes in Seabed Sediments* (ed. T. J. Freeman), p.151-164, Graham and Trotman, London.
- 2) 喜多治之, 岩井孝幸, 中嶋 悟, 1989, 花

- 崗岩および凝灰岩間隙水中のイオンの拡散係数の測定. 応用地質, 30, 84-90.
- 3) 西山勝栄, 中嶋 悟, 多田隆治, 内田 隆, 1990, 岩石間隙水中のイオンの拡散と間隙の性質. 鉱山地質, 40, 323-336.
  - 4) 鈴木隆次, 中嶋 悟, 永野哲志, 喜多治之, 1989, 花崗岩中における物質移動経路としての微小間隙の存在状態. 鉱山地質, 39, 349-354.
  - 5) MERCERON, T., VELDE, B., NAKASHIMA, S., BADRI, A. and TOUCHARD, G., 1991, Fractal analysis of fractures and microstructures in rocks. Proc. 3rd Intl. Symp. on Advanced Nuclear Energy Research "Global Environment and Nuclear Energy", 283-291, JAERI, Tokai, Japan.
  - 6) MERCERON, T., NAKASHIMA, S., VELDE, B., BADRI, A. and TOUCHARD, G., Fractal analysis of microstructures in granites: new evidence on diffusion pathways. in preparation
  - 7) NAKASHIMA, S., Diffusivity of ions in pore water as a quantitative basis for rock deformation rate estimates. *Tectonophysics*, accepted
  - 8) 中嶋 悟, 1990, 地球表層の地球化学的動的過程の解析と予言. 鉱物学雑誌, 19, 289-293.