

Title	Characterizations of drying-infiltration and reaction processes in water-unsaturated sandstone
Author(s)	西山, 直毅
Citation	大阪大学, 2014, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/34033">https://doi.org/10.18910/34033</a>
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

## 論文内容の要旨

氏名 ( 西山 直毅 )

## 論文題名

Characterizations of drying-infiltration and reaction processes in water-unsaturated sandstone  
(不飽和砂岩中の乾燥-浸透と反応過程のキャラクタリゼーション)

## 論文内容の要旨

地球表層環境において、岩石間隙に水が浸透すると、鉱物の溶解・沈殿、イオンの吸脱着等の反応と、流れによる物質輸送が起こる。このような岩石-水相互作用を定量的に扱う上で、岩石の反応や輸送特性のキャラクタリゼーションが不可欠である。地下水面より上方の不飽和帯では、間隙中に水と空気が混在し、降水や乾燥の過程で水飽和率（間隙を水が占める割合）が変化する。本研究では、水飽和率の変化に伴って、(1)水と空気の分布、(2)透水係数（岩石中の水の流れやすさ）、(3)反応（鉱物-水接触）表面積がどのように変化するかを評価した。

はじめに、間隙水をガス圧で押し出して各サイズの間隙中の水量を定量する「水押し出し法」を用いて、乾燥-浸透過程における間隙水径分布と空気径分布の変化を調べた。試料にはフランス産フォンテーヌブロー砂岩（間隙率：6.3%、間隙直径：2-43  $\mu\text{m}$ 、構成鉱物： $\sim$ 100%石英）を用いた。乾燥過程では、乾燥の進行と共に、太い間隙から順次水が失われていった。これは、細かい間隙ほど大きい毛管圧（吸引圧）が働き、太い間隙から細かい間隙へと水の移動が起こった結果と解釈できる。浸透過程では、様々な乾燥度合いの試料に水を流し、透水係数と間隙水径分布を調べた。その結果、間隙径によって水の浸透しやすさ（間隙中の空気が浸入した水で置き換えられる割合）が異なり、特に直径11-17  $\mu\text{m}$ の間隙には選択的に空気がトラップされ、透水係数の減少を引き起こしていることが明らかとなった。

次に、水飽和率と反応表面積の関係を評価するために、岩石コア中に水を流して溶解量を調べる「透水溶解実験」を様々な水飽和率で行った。あらかじめ水飽和率を100、51、0%に調整したフォンテーヌブロー砂岩に一定水圧をかけて水を流し、Siの溶解量を評価した。その結果、水飽和率が減少しても溶解量にほとんど変化は見られず、反応表面積が水飽和率の影響を受けないことが明らかとなった。この結果は、間隙が空気で満ちていてもその壁面には濡れが進行しており、水膜を介して溶解が進行したことを示している。さらに、水膜からSiを洗い流す速度は、水膜中のSi濃度を石英の平衡濃度よりも十分低くできるほど速いことも分かった。

透水溶解実験の結果を理論的に裏付け、さらに他の岩石の不飽和溶解特性の予測にまで発展させるために、間隙壁面の水膜厚さを見積もるモデルと、水膜中の反応-輸送現象を定量的に扱うモデルを構築した。その結果、水膜厚さは、間隙径、鉱物の種類、間隙水の組成によって決まることが分かった。特に、石英粒子が希薄な間隙水と接している場合、水膜厚さは間隙径に支配され、太い間隙ほど水膜が厚くなる。また、水膜中の溶出イオン濃度は、水膜厚さ、拡散距離（ $\sim$ 粒子径）、溶解速度定数、平衡濃度、表面粗さによって決まる。このモデルをフォンテーヌブロー砂岩の場合に適用すると、水膜厚さは7-18 nmと見積もられた。そのような水膜中の溶出Siの洗い流しは十分に速く、砂岩の溶解量は水飽和率の影響を受けないことが示され、実験結果の妥当性が理論的に裏付けられた。さらに、得られたモデルを他の岩石の場合にも拡張し、様々な鉱物組成、粒径、間隙直径をもつ岩石の不飽和溶解特性を予測できるダイアグラムを得た。

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 (西山 直毅)		
	(職)	氏 名
論文審査担当者	主 査	教 授 中嶋 悟
	副 査	教 授 近藤 忠
	副 査	教 授 佐々木 晶
	副 査	教 授 寺田 健太郎
	副 査	准教授 湯川 諭

論文審査の結果の要旨

地球表層環境において、岩石間隙に水が浸透すると、鉱物の溶解・沈殿、イオンの吸脱着等の反応と、流れによる物質輸送が起こる。このような岩石-水相互作用を定量的に扱う上で、岩石の反応や輸送特性のキャラクターゼーションが不可欠である。地下水面より上方の不飽和帯では、間隙中に水と空気が混在し、降水や乾燥の過程で水飽和率（間隙を水が占める割合）が変化する。西山直毅氏は、水飽和率の変化に伴って、(1)水と空気の分布、(2)透水係数（岩石中の水の流れやすさ）、(3)反応（鉱物-水接触）表面積がどのように変化するかを評価した。

はじめに、間隙水をガス圧で押し出して各サイズの間隙中の水量を定量する「水押し出し法」を用いて、乾燥・浸透過程における間隙水径分布と空気径分布の変化を調べた。試料にはフランス産フォンテーヌブロー砂岩（間隙率：6.3%、間隙直径：2-43 μm、構成鉱物：～100%石英）を用いた。乾燥過程では、乾燥の進行と共に、太い間隙から順次水が失われていった。これは、細い間隙ほど大きい毛管圧（吸引圧）が働き、太い間隙から細い間隙へと水の移動が起こった結果と解釈できる。浸透過程では、様々な乾燥度合いの試料に水を流し、透水係数と間隙水径分布を調べた。その結果、間隙径によって水の浸透しやすさが異なり、特に直径 11-17 μm の間隙には選択的に空気がトラップされ、透水係数の減少を引き起こしていることが明らかとなった。

次に、水飽和率と反応表面積の関係を評価するために、岩石コア中に水を流して溶解量を調べる「透水溶解実験」を様々な水飽和率で行った。あらかじめ水飽和率を 100、51、0%に調整したフォンテーヌブロー砂岩に一定水圧をかけて水を流し、Si の溶解量を評価した。その結果、水飽和率が減少しても溶解量にほとんど変化は見られず、反応表面積が水飽和率の影響を受けないことが明らかとなった。この結果は、間隙が空気で満ちていてもその壁面には濡れが進行しており、水膜を介して溶解が進行したことを示している。さらに、水膜から Si を洗い流す速度は、水膜中の Si 濃度を石英の平衡濃度よりも十分低くできるほど速いことも分かった。

さらに、透水溶解実験の結果を理論的に裏付け、他の岩石の不飽和溶解特性の予測にまで発展させるために、間隙壁面の水膜厚さを見積もるモデルと、水膜中の反応-輸送現象を定量的に扱うモデルを構築した。その結果、水膜厚さは、間隙径、鉱物の種類、間隙水の組成によって決まることが分かった。特に、石英粒子が希薄な間隙水と接している場合、水膜厚さは間隙径に支配され、太い間隙ほど水膜が厚くなる。また、水膜中の溶出イオン濃度は、水膜厚さ、拡散距離（～粒子径）、溶解速度定数、平衡濃度、表面粗さによって決まる。このモデルをフォンテーヌブロー砂岩の場合に適用すると、水膜厚さは 7-18 nm と見積もられた。そのような水膜中の溶出 Si の洗い流しは十分に速く、砂岩の溶解量は水飽和率の影響を受けないことが示され、実験結果の妥当性が理論的に裏付けられた。さらに、得られたモデルを他の岩石の場合にも拡張し、様々な鉱物組成、粒径、間隙直径をもつ岩石の不飽和溶解特性を予測できるダイアグラムを得た。

以上のように、西山直毅氏は、水に不飽和な岩石の間隙径分布測定と透水溶解実験により、反応表面積は水飽和率の影響を受けず、間隙壁面には水膜が存在し、これを介して溶解が進行したことを世界で初めて定量的に示した。また、岩石の不飽和溶解特性の予測のため、水膜厚さと反応-輸送現象を定量化するモデルを構築した。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。