

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 9 月 22 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26287132

研究課題名(和文) 岩石亀裂シーリング実験による鉱物脈形成過程の解明

研究課題名(英文) Fundamental study on mineral vein formation by sealing experiment of rock fracture

研究代表者

岡本 敦 (Atsushi, Okamoto)

東北大学・環境科学研究科・准教授

研究者番号：40422092

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：本課題では、地殻深部における高温高压条件下で岩石亀裂に熱水流通実験とX線CTによる亀裂内部観察を可能にする、新しい実験装置を開発した。亜臨界条件下での花崗岩亀裂の溶解実験では、亀裂に存在する鉱物の種類や破碎粉末の存在によって、亀裂内部が不均質に溶解すること、また、それにより大きな空隙や卓越流路が形成されることが明らかになった。一方、超臨界条件下でのシリカ析出実験では、安定である石英の結晶成長よりも、まずアモルファスシリカが析出し、亀裂を効果的に閉塞することが分かった。また、析出実験において、空隙の閉塞 - 流体圧の上昇 - 破壊という流体圧振動が観察され、地震サイクルにおけるシリカ析出の重要性が示唆された。

研究成果の概要(英文)：A new hydrothermal flow-through apparatus was developed, which enables us to investigate the dissolution and precipitation processes of fractured rocks at sub to supercritical conditions under confining pressure, and the evolution of aperture structures by X-ray CT. In the dissolution experiments of fractured granite, large pores and preferential flow paths were created by rapid dissolution of quartz and gauge parts, suggesting that formation of large fluid pockets induced by water-rock interaction within the crusts. In silica precipitation experiment at supercritical condition, amorphous silica precipitated at the inlet, which caused fracture sealing effectively, compared to quartz overgrowth from the fracture walls. The fracture sealing by silica precipitation produced a characteristic fluid pressure oscillation, which may indicate an importance analogue of the cycle of silica precipitation - fluid pressure rise (earthquake).

研究分野：岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：水熱実験 岩石亀裂 シリカ 石英脈 溶解・析出 浸透率 X線CT 振動

1. 研究開始当初の背景

地殻の物質・エネルギー移動、レオロジー、地震発生を考えるうえで、流体の挙動は重要なファクターである。現在、地震波速度や電気比抵抗などの地球物理学的な観測データにより地殻や沈み込み帯における「流体の分布」が示されるようになってきたが、ダイナミクスはよくわかっていない。

物質科学的には、亀裂を鉱物で充填した鉱物脈が、流体が流れた物理化石として研究がなされてきた。しかし、その形成のプロセスや環境条件（流体の移動方向、流体の移動速度、シリカ濃度、亀裂の間隙幅など）の解釈はできていない。鉱物脈組織には大きなバリエーションがあり、大きな情報を持っていると期待される。研究代表者も、これまでに天然の鉱物脈組織の解析やシリカ析出実験により、流体組成や基盤岩石が析出様式・速度・組織に与える影響を明らかにしてきた (Okamoto et al., 2010 など)。しかし、現実的な岩石亀裂を用いた実験ではなく、天然との対応や浸透率変化などはほとんどわかっていない。

2. 研究の目的

本研究では、地殻深部の亜臨界 - 超臨界流体が流通する亀裂を実験的に再現して、岩石 - 水相互作用（鉱物の溶解と析出）によって、どのように亀裂の間隙構造と浸透率の時間変化を作り出されるのかを明らかにすることを目的とする。また、亀裂でのシリカの析出様式を明らかにして、そのカインティックモデルを構築する。さらに、完全に亀裂が閉塞させる実験を行い、亀裂閉塞による間隙水圧の上昇過程を解析することで、亀裂閉塞流体圧上昇 破壊という地震発生サイクルにおける化学反応の役割について検討する。

3. 研究の方法

(1) 実験装置の開発 地殻深部での岩石-水相互作用と亀裂間隙構造の変化を観察するための、流通式水熱実験装置を開発する。特に、高温封圧下で実験を行い、X線CTを用いて内部を計測する仕組みを搭載する。

(2) 花崗岩亀裂の溶解実験 亜臨界条件で花崗岩亀裂の溶解実験を行い、流体圧をモニターすることで、浸透率の時間変化を計測する。また、X線CTによる内部間隙構造の変化、XGTによる亀裂表面の元素分布測定による鉱物分布の推定、ICP-AESによる溶液組成の測定を合わせることで、何がどのように溶けることで間隙や浸透率が変化したかを明らかにする。実験に用いたのは、比較的細粒な庵治花崗岩である。また、温度や、封圧を変えることによる応答からそのメカニズムを評価する。

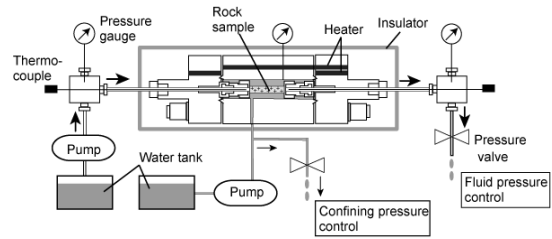


図1 水熱実験装置概略図

(3) 亀裂におけるシリカ析出実験 主に超臨界条件において、シリカ過飽和流体を花崗岩亀裂に流通させることにより、シリカ析出による間隙の閉塞過程を明らかにする。また、シールしたシリカがブレイクすることによる流体圧振動の発生が起こるかどうかを確認する。

(4) カインティックなモデリング シリカの析出には基盤石英からの結晶成長と、準安定なアモルファスシリカの析出とその後の続成変化が考えられる。前者については、フェーズフィールド法、後者ではモンカルロ法によるモデリングを行い、そのプロセスが石英脈の組織に与える影響を明らかにする。

(5) 考察 実験やモデリングをもとに、亀裂における鉱物の溶解や析出過程が、地殻の水理学的特性、機械的特性に与える影響について、総合的に検討する。

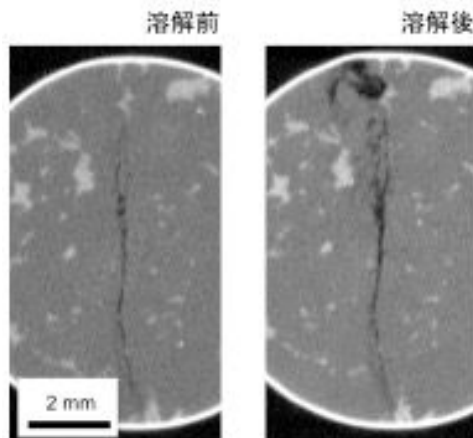


図2 花崗岩亀裂溶解実験前後のCTイメージ

4. 研究成果

(1) 実験装置の開発 超臨界条件（最大 450 °C, 45 MPa）にまで対応する流通式実験装置を開発した。花崗岩コア試料（直径 10 mm, 長さ 40 mm）を薄いステンレススチール（肉厚 0.1 mm）のジャケットで覆うことにより、高温・封圧条件と、X線CTの観察を可能とする。

(2) 花崗岩亀裂の溶解実験 地熱地帯の深部貯留層に対応する亜臨界条件（350 °C, 20 MPa, 封圧 40MPa）において、蒸留水を流通させる溶解実験を行った。コア試料には、引張亀裂を導入した。比較として花崗岩の平行平板を用いた溶解実験を行った。溶液組成から、斜長石やカリ長石では不一致溶解が起こること、また、石英は長石の5倍以上溶けるこ

とが明らかになった。また、石英表面に粒子サイズのポケットが形成され、長石表面は多くのナノ間隙を持つ変質層によって覆われていた。亀裂を用いた実験は、ステージ1は常温で流通、ステージ2は350で密封状態で保持、ステージ3では350で流通させた。ステージ1と2では亀裂が均質に閉塞し浸透率が低下し、これは亀裂内の細粒の破碎粒子(ガウジ)の圧密が原因と考えられる。ステージ3では、浸透率の上昇が観察され、亀裂内部には多くの不均質な空隙が形成した。溶解は石英の場所に集中し、一部にはガウジが溶解した大きな空隙が観察された。間隙構造をもとに流動シミュレーションを行い、ガウジ部分の溶解によって特徴的な卓越流路が形成されることが明らかとなった(図3)。

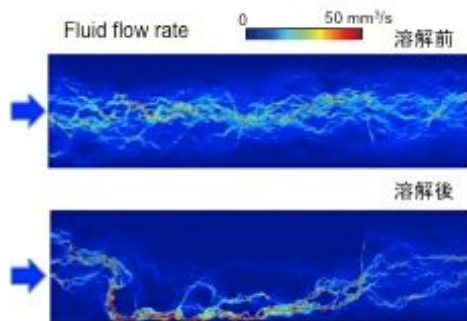


図3 花崗岩亀裂溶解実験前後の2次元間隙構造を元にした流体流動シミュレーション

(3) 亀裂におけるシリカ析出実験 地熱地帯の深部の透水-不透水境界に対応する超臨界条件(400, 25 MPa)においてシリカ析出実験を行った。10時間程度で、浸透率が 10^{-11} から 10^{-12} まで1桁低下した。亀裂面の石英の表面からの成長はわずかで局在化している。一方で、アモルファスシリカの析出が入り口付近2mmにおいて、基盤鉱物に関係なく起こることにより効果的に閉塞させることが明らかとなった。また、亀裂が閉塞する際に複数回の流体圧の急降下が観察された。このような変化は、亀裂の閉塞-流体圧の上昇-破壊というプロセスであると考えられる。

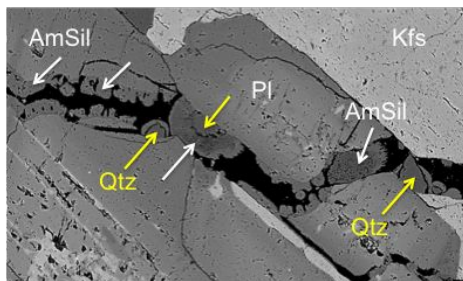


図4 アモルファスシリカ(AmSil)と石英(Qtz)の析出による花崗岩亀裂の閉塞

(4) カイネティックモデリング 基盤からの石英の結晶成長では、フェーズフィールド法を用いて、石英の異方成長速度と全体とし

ての析出速度を考慮したモデルを作成した。これにより、水熱実験による石英の基盤からの成長をうまく再現することに成功した。このモデルにより、流体の過飽和度が異なると、脈の組織が変わることが示された。また、過飽和な流体からは、準安定なアモルファスシリカが析出し、より安定な石英へと変化する(図4)。この水溶液中での核形成プロセスについて、統計物理のミクロなモデルを用いて表現し、モンテカルロ法でシミュレーションし、アモルファスシリカとして凝集し、既存のシリカ相の界面を使うことで、より安定な鉱物が核形成する様子を再現することに成功した。また、交換モンテカルロ法により、核形成は自由エネルギーの谷に沿って、極小値(準安定鉱物)を経由しながら起こることが明らかになった。その結果は、主要な国際誌Physical Review Eに掲載されている。

(5) 考察 葛根田地熱地帯では、石英の溶解度が、350°C付近で溶解度の極大値を取り、400°C付近で極小値を取る(Saishu et al., 2014)。本研究の溶解実験は、極大値の深さに対応しており、鉱物の溶解に伴って流体のポケットが作られて維持されることは、葛根田で観察される反射面と調和的である。一方で、シリカ溶解度の極小値では、シリカが析出する。そのような条件においては、主にアモルファスシリカとして析出することで、効果的に不透水層を形成するであろう。本研究は、その不透水層はかなり薄い可能性を示唆し、より深部では超臨界の地熱貯留層が形成されている可能性がある。本実験により、高温の水熱条件では、ガウジは選択的に溶解し、大きな空隙や卓越流路を形成するのに大きな役割を果たすことが明らかになった。このように、高温の地殻深部において、岩石-水相互作用は非常に特徴的な水理学的、力学的な影響を与えることが明らかにされた。

引用文献

Okamoto A., Saishu, H., Hirano, N., Tsuchiya, N., 2010. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 74, 3692-3706..

Saishu, H., Okamoto, A., Tsuchiya, N., (2014) *Terra Nova*, 26, 253-259.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 10件)

Watanabe N., Numakura, T., Sakaguchi, K., Saishu, H., Okamoto, A., Ingebritsen, S., Tsuchiya, N., 2017. Potentially exploitable supercritical geothermal resources in the ductile crust. *Nature Geoscience*, 10, 140-144.

Doi: 10.1038/ngeo2879 査読あり

Kameda, J., Okamoto, A., Sato, K., Fujimoto, K., Yamaguchi, A., Kimura, G., 2017. Opal-CT in chert beneath the toe of the Tohoku margin and its influence on the seismic aseismic transition in subduction zones. *Geophys. Res. Lett.*, 44, 687-693. 査読あり

Uno, M., Okamoto, A., Tsuchiya, N., 2017. Excess water generation during reaction-inducing intrusion of granitic melts into ultramafic rocks at crustal P-T conditions in the Sør Rondane Mountains of East Antarctica. *Lithos* in press. 査読あり

Okamoto, A., Yamada, R., Saishu, H., Tsuchiya, N., 2017. Porosity and permeability evolution induced by precipitation of silica under hydrothermal conditions. *Procedia Earth and Planetary Science*, 17, 249-252. 査読あり

最首花恵, 岡本敦, 土屋範芳, 2016. 地熱地域の透水 - 不透水境界と水の状態変化にともなう鉱物析出の関係性. *日本地熱学会誌*, 38巻, 1号, 17-25. 査読あり

Burenjargal U., Okamoto A., Tsuchiya T., Uno M., Horie K., Hokada T., 2016. Contrasting geochemical signatures of Devonian and Permian granitoids from the Tseel terrane, SW Mongolia. *J. Geosci.*, 61, 51-66. 査読あり

Okamoto, A., Shimizu, H., 2015. Contrasting fracture patterns induced by volume-increasing and -decreasing reactions: implications for the progress of metamorphic reactions. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 415, 9-18. 査読あり

Wendler, F., Okamoto, A., Blum, P., 2015. Phase-field modeling of epitaxial growth of polycrystalline quartz veins in hydrothermal experiments. *Geofluids*, doi: 10.1111/gfl.12144. 査読あり

Okamoto, A., Kuwatani, T., Omori, T., Hukushima, K., 2015. Free-energy landscape and nucleation pathway of polymorphic minerals from solution in a Potts lattice-gas model. *Physical Review E*, 92, 042130. 査読あり

岡本敦, 最首花恵, 2014. 地熱地帯の脆性-延性遷移領域近傍における岩石-水相互作用. *月刊地球*, 36, 63-67. 査読無し

[学会発表](計 20件)

岡本敦, 田中 寛人, 渡邊 則昭, 花崗岩亀裂におけるシリカの溶解・析出と深部地熱貯留層の間隙変化. 日本地球惑星科学連合大会, 2017年5月21日-5月24日, 幕張メッセ(幕張).

Atsushi Okamoto, Silica-water interaction under sub- to supercritical conditions and its impacts on porosity evolution in fractures. 14th International symposium on Water Dynamics, 2017年3月17日, 東北大学(仙台).

大坪誠, 最首花恵, 岡本敦, 宮川歩夢 鉱物の溶解析出から見積もられる沈み込み帯地震発生領域での鉱物脈形成に必要な流体綾とその形成速度: 延岡衝上断層の例. 2016年9月10日-9月12日, 日本大学(世田谷).

田中寛人, 岡本敦, 渡邊則昭, 土屋範芳 花崗岩き裂におけるシリカ溶解・析出による透水率と間隙構造変化. 日本地熱学会, 2016年10月19日-10月21日, 郡山市中央公民館(郡山).

田中寛人, 岡本敦, 渡邊則昭, 土屋範芳 水熱条件下における花崗岩き裂表面でのシリカ溶解・析出による透水率変化. 日本鉱物科学会 2016年年会, 2016年9月23日-9月25日, 金沢大学(金沢).

Okamoto A., Yamada, R., Saishu, H., Tsuchiya, N., Porosity and permeability evolution induced by precipitation of silica under hydrothermal conditions. 15th Water-rock interaction symposium,

2016年10月16日-10月21日、エボラ(ポルトガル).

Okamoto, A., Yamada, R., Tanaka, H., Saishu, H., Watanabe, N., Tsuchiya, N., 2016. Preferential flow paths developed by mineral dissolution and precipitation in a fracture under hydrothermal conditions. 13th International workshop on Water Dynamics, 2016年3月15日-3月17日、東北大学(仙台).

岡本敦、山田綾、最首花恵、土屋範芳 岩石-水相互作用によるき裂閉塞と流体流動. 日本地熱会、2015年10月21日-10月23日、別府国際コンベンションセンター(別府).

最首花恵、岡本敦、土屋範芳 世界の深部掘削井の透水-不透水境界とシリカ溶解特性. 日本地熱会、2015年10月21日-10月23日、別府国際コンベンションセンター(別府).

最首花恵、岡本敦、土屋範芳 深部掘削データからみえる地熱地帯のシリカ溶解度特性. 日本地球惑星科学連合大会、2015年5月24日-5月28日、幕張メッセ(幕張).

Saishu H., Okamoto A., Tsuchiya N., The role of silica precipitation in the permeable-impermeable boundary within the Earth's crust. World Geothermal Congress 2015, 2015年4月19日-4月25日、メルボルン(オーストラリア).

岡本敦、桑谷立、大森敏明、福島孝治 溶液中の多形鉱物の核形成経路に関するミクロなモデル. 日本地球惑星科学連合大会、2015年5月24日-5月28日、幕張メッセ(幕張).

岡本敦、山田綾、田中寛人、最首花恵、土屋範芳 シリカ溶解・析出による透水率変化. 日本地球惑星連合大会、2015年5月24日-5月28日、幕張メッセ(幕張).

田中寛人、岡本敦、渡邊則昭、土屋範芳 き裂の鉱物溶解にともなう空隙構造変化と透水率減少. 日本地球惑星連合大会、2015年5月24日-5月28日、幕張メッセ(幕張).

田中寛人、岡本敦、渡邊則昭、土屋範芳 高温・封圧下における花崗岩き裂の溶解による透水率と間隙構造変化. 日本地質学会、2015年9月11日、信州大学(長野).

Okamoto, A., Yamada, R., Tanaka, H., Saishu, H., Watanabe, N., Tsuchiya, N. Fracture sealing induced by mineral dissolution and dynamic change in permeability. 12th international

symposium on Water Dynamics, 2015年3月9日-3月10日、東北大学(仙台).

岡本敦、福島孝治 岩石-水相互作用によるオストワルド段階則のダイナミクス. 日本鉱物科学会、2014年9月17日、熊本大学(熊本).

山田綾、岡本敦、最首花恵、中村美千彦、奥村聡、佐々木理、土屋範芳 地殻流体からのシリカ析出によるき裂閉塞: 水熱実験とモデリングからの考察. 日本鉱物科学会、2014年9月17日、熊本大学(熊本).

最首花恵、岡本敦、土屋範芳 シリカ鉱物析出による地殻の透水-不透水境界の発展. 日本鉱物科学会、2014年9月17日、熊本大学(熊本).

Atsushi Okamoto, Ryo Ymada, Hiroto, Tanaka, Hanae Saishu, Noriyoshi Tsuchiya, Silica transport, deposition and porosity evolution in a fracture: Insights from hydrothermal flow-through experiments. Fall meeting of American Geophysics Union, 2014年12月15日-12月19日、サンフランシスコ(アメリカ合衆国).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡本敦 (Okamoto Atsushi)
東北大学・大学院環境科学研究科・准教授
研究者番号: 40422092

(2) 研究分担者

渡邊 則昭 (Watanabe Noriaki)
東北大学・大学院環境科学研究科・准教授
研究者番号: 60466539

(3) 連携研究者

武藤 潤 (Muto Jun)
東北大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号: 4054787

(4) 研究協力者

山田 綾 (Yamada Ryo)
最首 花絵 (Saishu Hanae)
田中 寛人 (Tanaka Hiroto)
Frank Wendler