# 報告

201

# 水銀圧入法による岩石の空隙寸法分布測定

# 林 為人\*·高橋 学\*\*·佐東大作\*\*\*·葉 恩肇\*\*\*\*·橋本善孝\*\*\*\*\*·谷川 亘\*\*\*\*\*\*

## 要 旨

岩石の空隙構造は透水係数等の物性値を大きく左右するため、その代表的なパラメータである有効空隙率および空隙寸法の分布特性を 定量的に評価することが重要である.世界各地から採取された15種類の岩石の計108個の試料について、水銀圧入法によりそれらの有効 空隙率と空隙寸法分布を測定したデータを取りまとめ、各種岩石の空隙構造の特徴を報告する.岩石の種類、年代と産地の違いによって、 有効空隙率と空隙の寸法分布特性が大きく異なり、かつ、その空隙寸法分布の特性は空隙率との相関性が必ずしもあるとは限らないこと が明らかになった.岩石の空隙寸法分布を測定する手段として、水銀圧入式ポロシメータは比較的実施簡便で、測定データの信頼性と再 現性も本研究により確認された.ただし、有効空隙率の小さい(例えば、1%未満)緻密な深成岩の場合は、空隙半径の大きい範囲にお ける測定結果が誤差を含む可能性がある.

# **Key words**:岩石 rock, 空隙率 porosity, 空隙寸法分布 pore size distribution, 水銀圧入法 mercury intrusion porosimetry

# 1. はじめに

岩石等の地質材料を構成要素から見ると斑晶やマトリク スなどの固体(鉱物)部分と空隙部分とに大きく分けられ る.この空隙部分の量や連続性,大きさなどが岩石の浸透 率等の物性を大きく左右することは誰しもが認めるところ である.岩石内部空隙の定量的な把握は種々のアプローチ があるが,筆者らは長年,水銀圧入式ポロシメータを用い

- \*京都大学大学院工学研究科 Graduate School of Engineering, Kyoto University 兼海洋研究開発機 構高知コア研究所 Kochi Institute for Core Sample Research, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology (会員)
- E-mail : lin@kumst.kyoto-u.ac.jp
- \*\* 産業技術総合研究所 National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST) (会員)
- \* \* Graduate School of International and Area Studies, Hankuk University of Foreign Studies, Seoul, Korea
- \*\*\*\*国立台湾師範大学 地球科学系 Department of Earth Sciences, National Taiwan Normal University, Taipei, Taiwan
- \*\*\*\*高知大学大学院総合人間自然科学研究科 Graduate School of Integrated Arts and Sciences, Kochi University
- \*\*\*\*\*海洋研究開発機構高知コア研究所 Kochi Institute for Core Sample Research, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology (JAMSTEC) (会員)

て、様々な岩石試料の空隙率とともに、その空隙の寸法分 布をも測定してきた.水銀圧入式ポロシメータのもっとも 重要な特徴は、比較的簡易に空隙の寸法分布を測定し得る ことである.それが故に、材料科学分野などにおいて多用 されてきたほか、岩石などの地質材料を対象とする地球工 学・地球科学の分野においても、頻繁に用いられてきた. 当該水銀圧入式ポロシメータによる空隙寸法分布の測定手 法は、米国のASTM(American Society for Testing and Materials)により基準化されている<sup>1)</sup>.

筆者らは,2000年頃までにカルロ・エルバ社のポロシメー タを用いた数種類の岩石試料の測定から、それらの内部空 隙構造を代表するパラメータである空隙率と空隙寸法分布 特性を実験的に評価してきた(例えば、林ほか<sup>2)</sup>,高橋ほ か<sup>3)</sup>,林・高橋<sup>4)</sup>,Lin<sup>5)</sup>).また,その空隙率と空隙寸法分 布データを用いて、等価管路モデルによる岩石の透水係数 の推定を試みた(林ほか<sup>6)~8)</sup>). その後, 産業技術総合研 究所において新規に米国マイクロメリティックス (Micromeritics Instrument Corporation) 社のポロシメー タAutopore IV 9520が導入された. それ以降, この新規装 置は測定の圧力範囲がより広い等の利点を有するため、筆 者らは主としてこれを用いて、各種岩石試料の空隙寸法分 布を測定してきた. これらのデータの一部は、学会の研究 発表会等で発表・公表されている(例えば、林ほか<sup>9)</sup>, Lin et al.<sup>10)</sup>)が,系統的に取りまとめられることがなかった. 本稿では、世界各地から採取された15種類の岩石の計108 個の試料について、水銀圧入式ポロシメータAutopore IV

9520を用いて、それらの空隙率と空隙寸法分布を測定した データを取りまとめ、各岩種の空隙構造の特徴を報告する.

# 2. 水銀圧入式ポロシメータの測定原理と装置

# 2.1 水銀圧入による空隙寸法の測定原理

水などの液体を岩石に浸潤させる場合は、真空引きによる 減圧を行いながら飽和させたり、空隙と液体の毛細管現象に よって浸透させることができる.しかし、接触角(濡れ角, contact angle)が90°以上ある液体は、表面張力のために自 分自身では小さな空隙へは入っていくことができない.

比重が13.546 (20℃)の水銀は、その融点が-38.86℃で あり、常温環境で液状を呈する唯一の金属である.水銀の 接触角は、接触する物質によって125°から150°前後までの 範囲において変化し、90°を大幅に上回る値を示す.また、 水銀の表面張力は接触する気体および温度に依存するが、 約480dyn/cm (1dyn=10<sup>-5</sup>N)である.この値は、水の表 面張力(約73dyn/cm)と比べると、大きな値であること が分かる.

水銀が有するこのような特性から,岩石試料中の空隙に 水銀を入れるためには外部から圧力を加える必要がある. 水銀を試料の空隙に浸入させる条件は,圧入圧力Pが水銀 の表面張力σによる抵抗を超えることである(図-1を参 照).Washburnは1921年に水銀圧入式ポロシメータによ る多孔質材料の空隙寸法の測定原理および測定手順を提案 した.Washburn(1921)<sup>11)</sup>によれば,空隙の形状を円筒 形とした場合,その半径Rと圧入圧力Pとの関係は次式で 表される.

```
R = -2\sigma \cos \theta / P \tag{1}
```

ここで, σは水銀の表面張力, θは水銀の接触角である. 岩石中の空隙の形状は不規則ではあるが, 堆積岩の場合, 内部空隙のほとんどは直交する3つの寸法がオーダー的に 異なることがなく, 球形に近似できると考えられるので, (1) 式を用いることが妥当と考えられる.一方, 花崗岩な



図-1 水銀圧入法原理の模式図

どの深成岩の場合は、内部空隙がほとんどき裂であるため、 空隙の形状は円筒形よりむしろ平行板状のものとして仮定 するほうが実状に近い.ここで、き裂状の空隙の断面形状 を長方形とし、き裂の幅がその長さに比べてはるかに小さ いと仮定すると、き裂幅Wと圧入圧力Pとの関係は次式で 近似的に表すことができる<sup>20</sup>.

 $W = -2\sigma \cos \theta / P \tag{2}$ 

水銀圧入式ポロシメータはこの原理を利用して, 圧入圧 力と水銀の圧入量を測定することにより, 試料内部の空隙 率およびそれらの寸法分布を得ることができる. ポロシ メータで測定される空隙の寸法は, その形状により幾何学 的パラメータの意味が異なるが, (1) 式と (2) 式との右 辺が等しいので,本稿では円筒形空隙の半径Rおよびき裂 状空隙の開口幅Wの両者とも空隙半径と称する.

平均的な値として,水銀の表面張力σを480dyn/cm,接 触角θを141.3°とすると,(1)式から次の近似式が得られる. R=0.749/P (3)

ここで、Pの単位はMPa、Rの単位は $\mu$ m (1 $\mu$ m = 10<sup>-6</sup>m) である。例えば、圧入圧力をP=414MPaと仮定すると、こ のとき水銀を圧入した空隙の半径は(3)式よりR=1.8× 10<sup>-3</sup> $\mu$ mと求められる。

また,Rootare and Prenzlow (1967)<sup>12)</sup>によれば,内部 空隙の幾何学形状についての仮定をせずに,ポロシメータ による水銀圧入の圧力~圧入量の関係から内部空隙の比表 面積を求めることができるとされている.具体的には,圧 力Pが水銀を圧入する仕事量と,空隙の内部表面を水銀で 濡れさせるために水銀の表面張力による抵抗を克服する仕 事量とが等しいとして,次式に示す比表面積Sv(単位質 量あたりの表面積,次元は [L<sup>2</sup>/M])の算出式を導いた.

$$Sv = -\frac{1}{M\sigma\cos\theta} \int_{0}^{V_{\text{max}}} PdV$$
(4)

比表面積Svは水銀圧入全過程(圧入圧力: 0~414MPa, 圧入量: 0~Vmax)におけるPdVの積分,水銀の定数 $\sigma$ ,  $\theta$ および試料の質量Mから求められる.

# 2.2 測定装置, 試料と基本的な測定手順

本稿で報告する測定データは、すべて産業技術総合研究 所地質調査総合センターが保有している水銀圧入式ポロシ メータAutopore IV 9520を用いて測定したものである.こ の装置の基本的な構成は写真(図-2)と模式図(図-3)に 示すとおりである.ポロシメータは非常に広範囲にわたっ て圧入圧力を精度よく測定する必要があるために、現存の 各メーカーの装置は一般的に低圧部と高圧部に分けて測定 を行っている.ポロシメータAutopore IV 9520も、低圧部 と高圧部からなり、低圧部では、試料の真空脱気および試 料セルへの水銀注入などの準備作業と、低圧領域における 水銀の圧入量と圧入圧力の測定を行う.この低圧領域での 測定は、真空~1大気圧の圧力範囲においてはバルブの解

放により行われるが、1大気圧~345kPa(約3.5大気圧、 ただし本研究では約200kPaとした)の圧力範囲では窒素 またはヘリウムガスボンベを用いて加圧して行われる。図-2 と図-3に示したように、低圧部では試料セルがほぼ水平に 設置してある.これは、試料セルのキャピラリー内の水銀 柱の高さにより、試料に加えられる圧力負荷を避けるため である. すなわち, 測定はなるべく真空状態に近い低い圧 力から行うための工夫である.したがって、ポロシメータ Autopore IV 9520で測定できる空隙半径の上限は約500µm である.一方,低圧部で測定される空隙半径の下限値は, 圧力上限の345kPaに対応して,約2.2µmとなる.ポロシメー タAutopore IV 9520の高圧部では、1大気圧~414MPaの



9520の写真

圧力範囲において水銀の圧入を行い、空隙半径の測定範囲 は約1.8×10<sup>-3</sup>~7.4 $\mu$ mである.

水銀そのものは圧入圧力を受けると体積が収縮するため. 岩石試料に圧入した水銀の体積量の測定結果は、水銀のみ を満たした試料セルで取得したブランクデータで補正しな ければならない、本研究では、すべての試料セルの水銀ブ ランクデータを取得して, 圧力による体積の補正に実測と 同一試料セルのブランクデータを用いた.また、本研究で は解析に用いた水銀の表面張力をσ=480dyn/cm, 接触角  $e\theta = 141.3°$ とした.

ポロシメータ測定は、試料の空隙に水銀を圧入するので、 間隙水が含まれない状態の乾燥試料を使用する、本研究で は比較的軟らかくて、粘土鉱物が富む試料(南海トラフ掘 削の試料)について凍結乾燥、比較的硬い岩石試料(上記 以外の試料)は、110℃で24時間の炉乾燥とした.凍結乾 燥法の詳細としては、tert-ブチルアルコール(融点25度) を45度の恒温器内でサンプルに浸透(交換しながら1週間 程度)させた後,25℃以下をキープしたやや低圧のデシケー ター内でtert-ブチルアルコールを昇華させることによっ て乾燥した.測定試料の形状は、基本的に1 cm<sup>3</sup>ほどの不 定形のものとし、表面の凹凸が測定結果に影響を及ぼす恐 れもあるため、岩石切断機等でカットして作製する、試料 の大きさは、装置の測定できる空隙量と試料の空隙率との 兼ね合いから決める。例えば、空隙率の大きい試料の測定 はサイズの小さいものを、空隙率の小さい試料は大きいも のを用いる.

ポロシメータを用いた岩石の内部空隙の寸法分布測定手

順は次のとおりとした.



図-2 本研究で使用した水銀圧入式ポロシメータAutopore IV

図-3 本研究で使用した水銀圧入式ポロシメータAutopore IV 9520の構成模式図

- 乾燥状態の岩石試料を入れた試料セルを低圧測定部に セットし、真空脱気を行う.試料の透気特性により、 脱気時間が異なるが、一定の真空度になったら、自動 的に脱気が終了する.実績としては、5分~24時間程 度であった.
- 2) 試料セルに水銀を満たす.
- 3) 真空から徐々に大気圧まで開放して、そして窒素また はヘリウムガスを段階的に注入し、セル内の圧力を真 空状態から約200kPaまで上昇させながら、水銀の圧入 量と圧入圧力を測定する、この低圧部での測定には10 分程度を要する(測定条件の設定による)。
- 4) 試料セルを低圧部から高圧部に移設する.油圧ポンプ と圧力増幅器により、一定の昇圧速度で大気圧から最 高圧力414MPaまで上昇させながら、水銀の圧入量と 圧入圧力を測定する.この昇圧過程の所用時間は、設 定の昇圧速度および試料の空隙量によって異なるが、 1~2時間程度である.
- 5) データ解析を行う. 試料の空隙率の算出に必要な試料 の体積(かさ体積)は、ポロシメータAutopore IV 9520により同時に測定される.

水銀圧入式ポロシメータ測定結果の一例として、ベレア 砂岩の低圧部と高圧部の測定結果を統合した水銀の累積圧 入量と圧入圧力の関係、ならびに圧入量と空隙半径との関 係を図-4に示す、圧入圧力と空隙半径が式(1)に示すよ うに対応しているので、圧入量〜圧入圧力曲線と圧入量〜 空隙半径曲線は、完全に重なる、また、圧入量〜空隙半径 のデータから、各空隙半径における圧入量、すなわち各々 のサイズにおける空隙の絶対量ならびに相対比率(%)が 求められる(図-5<sup>13</sup>).

水銀圧入式ポロシメータは, 試料の空隙(体積と寸法) が圧入過程において変形しないという基本仮定を持って成 り立っている.実際には,ある圧力において水銀が圧入さ れた空隙が,有効応力の原理により,当該圧力による変形



図-4 ベレア砂岩(試料名:Be-1)の低圧部と高圧部による測定 データを統合した水銀の累積圧入量と圧入圧力の関係,な らびに圧入量と空隙半径との関係



図-5 図-4に示したベレア砂岩の水銀の累積圧入量と空隙半径の 関係から求めた空隙半径の寸法分布(Lin et al. 2011<sup>13)</sup>)

がないと考えられるが、水銀が圧入されていないより小さ い空隙は当該圧力により、容積が小さくなると共に、空隙 の寸法も小さくなることがあり得ると考えられる。した がって,水銀ポロシメータによる測定は,変形しやすい空 隙(例えば、結晶質岩試料の閉じやすいき裂および変形し やすい軟質な堆積岩試料の空隙)を過小評価することがあ る、一方、岩石試料の固体部分(鉱物など)は、水銀注入 圧力により圧縮変形が生じると思われるため、水銀の圧縮 変形データ(ブランクデータ)を用いてこれを補正してい る.したがって、ポロシメータによる空隙の測定は、水銀 を圧入する圧力による空隙の変形と、固体部分の変形の補 正誤差(固体の圧縮変形量とこれの補正に使用する水銀の 変形データとの差)をすべて空隙の量として扱っている. この影響については、水銀ポロシメータによる岩石試料の 有効空隙率が、試料の含水飽和状態と乾燥状態の質量差か ら求められる有効空隙率よりも若干過小評価されていると の報告(林ほか, 1998<sup>14)</sup>)があるが,系統的な研究がなさ れていない現状である.

# 3. TCDPの試料とその測定結果

# 3.1 試料

1999年9月21日に発生したマグニチュードMw7.6の台湾 集々地震の震源断層をボーリングで調査する「台湾チェル ンプ断層掘削プロジェクト(Taiwan Chelungpu-fault Drilling Project, TCDP)」が行われた. このプロジェクト では, Hole-A, Hole-Bと呼ばれる2本のボーリングを実 施した. TCDPのボーリングサイト付近の地質構造の概要 を図- $6^{15}$ に示す. メインボーリング孔のHole-Aでは約 2,000mまでボーリングを行い, コアリングの試験区間を 含めて, 深度約450mから孔底まで連続的にボーリングコ アを採取した<sup>15)</sup>.

TCDPプロジェクトの一環として行われた地下深部の微 生物に関する研究では、微生物個体のサイズと空隙寸法と の関係による微生物の移動・起源に関する検討が行われる ため, 岩石の空隙寸法測定がキーポイントになるとされて いた<sup>16)</sup>. そこで, 本研究では, Hole-Aで得られたすべて の岩種のコア試料からサブサンプリングを行い, 水銀圧入 式ポロシメータAutopore IV 9520を用いて空隙率ならび に空隙半径の寸法分布などを測定した.

ボーリングHole-Aの概略柱状は、図-6(b)の地質断面 図にも示したように、地表から順に、更新統~鮮新統上部 の卓蘭(Cholan)層(0~1,027m)、鮮新統下部の錦水 (Chinshui)層(1,027~1,268m)、鮮新統下部~中新統上 部の桂竹林(Kueichulin)層(1,268~1,712m)、と卓蘭層 (1,712m~孔底)からなる<sup>17)</sup>.浅部と深部に卓蘭層が2度 出現しているのは、三義(Sanyi)断層などの断層すべり による極めて大きな累積変位のためである.本研究では, 約460~1,980mの深度区間において,合計32深度分の測定 試料をサンプリングした.原則として一つの深度につき, それぞれ2試料を採取したが,試料中に含まれるき裂等に より妥当性に欠ける測定の失敗例があったため,有効な データは61個である.測定した試料の岩質分類は,頁岩, シルト岩,砂岩および生物擾乱を受けた砂岩・シルト岩で あり,すべて堆積岩である(**表-1**).

# 3.2 測定結果

水銀圧入式ポロシメータAutopore IV 9520により測定 されるパラメータは、乾燥状態のバルク密度、粒子密度、 有効空隙率、空隙半径のメジアンおよび空隙半径のヒスト



図-6 (a) 地上で確認された台湾集々地震の震源断層であるチェルンプ断層(Chelungpu Fault),地質分布およびTCDPボーリングサイトの位置●と,(b) ボーリングサイトの地質予想断面図(N85W方向)<sup>15)</sup>

表-1	各種試料の岩種,	採取地,	測定個数,	乾燥状態の/	ベルク密度,	粒子密度,	有効空隙率,	空隙半径のメジアン

Sedimentary / Crystalline Rocks	Sample Locations			Number	Bulk density, dry (g/cm <sup>3</sup> )			Grain density (g/cm <sup>3</sup> )			Porosity (%)			Median pore radius (µm)		
	Region	Site / Hole	Lithology	of specimens	Min value	Average	Max value	Min value	Average	Max value	Min value	Average	Max value	Min value	Average	Max value
Sedimentary Rocks	TCDP, Taiwan	Hole-A	Shale	17	2.52	2.57	2.63	2.65	2.68	2.73	3.13	3.98	4.95	0.0058	0.0105	0.179
			Siltstone	20	2.46	2.54	2.61	2.64	2.67	2.71	3.37	4.88	7.40	0.0124	0.0228	0.0369
			Sandstone with bioturbation	10	2.31	2.46	2.59	2.61	2.65	2.69	3.73	7.32	11.64	0.014	0.133	0.477
			Sandstone	14	1.98	2.16	2.26	2.58	2.62	2.67	14.4	17.8	24.9	1.61	3.15	4.97
	NanTroSEIZE, Japan	C0001	Silty Clay	23	1.03	1.33	1.38	2.36	2.55	2.69	46.6	47.6	59.4	0.040	0.059	0.317
		C0006	Silty Clay	2	1.42	1.45	1.47	2.65	2.66	2.67	42.9	43.3	43.7	0.038	0.039	0.040
	Wakayama, Japan	n Shirahama Sandstone		2	2.29	2.29	2.29	2.65	2.66	2.67	13.8	14.0	14.1	0.215	0.263	0.31
	Ohio, US	Berea Sandstone		2	2.13	2.13	2.14	2.65	2.67	2.68	19.4	20.0	20.6	8.38	8.44	8.51
	Rajasthan, India		Rajasthan Sandstone	2	2.34	2.34	2.35	2.61	2.62	2.63	10.5	10.5	10.5	2.97	2.99	3.02
	Tochigi, Japan		Tage Welded Tuff	2	1.73	1.74	1.75	2.39	2.42	2.45	27.7	28.1	28.6	0.123	0.130	0.135
	Java Island, Indonesia	UKF*	Limestone	4	1.43	1.47	1.51	2.60	2.71	2.83	44.3	45.9	48.2	3.02	3.67	4.31
		LKF*	Limestone	2	2.23	2.29	2.35	2.74	2.74	2.74	14.4	16.5	18.6	0.182	0.354	0.525
Crystalline Rocks	Kagawa, Japan		Aji Granite	2	2.63	2.63	2.63	2.65	2.65	2.65	0.66	0.66	0.66	8.1	14.5	20.1
	Fukuoka, Japan		Karatsu Basalt	2	2.74	2.74	2.75	2.97	2.97	2.97	7.48	7.71	7.94	0.83	1.16	1.49
	Carrara, Italy		Carrara Marble	2	2.69	2.69	2.69	2.71	2.71	2.71	0.61	0.66	0.71	1.82	2.39	3.00
	Belfast, South Africa		Belfast Gabbro	2	2.93	2.94	2.94	2.95	2.95	2.95	0.35	0.35	0.35	62.1	64.6	67.0

UKF: Upper part of Kujung formation; LKF: Lower part of Kujung formation

グラム(頻度分布)である(表-1,図-5).前述の通り, 空隙の半径とは、本来不規則な岩石の内部空隙の形状を円 筒形と仮定した場合の半径である.これは真の形状におけ る寸法パラメータではなく、一種の等価寸法である.また, 空隙半径のメジアンは、水銀の圧入体積の中央値における 圧入圧力から算出される空隙半径である.

TCDPのHole-Aから採取した試料で測定した有効空隙 率と試料の採取深度との関係は図-7に示したとおりである. 同図から,有効空隙率には深度との相関が認められず,地 層とも明瞭な対応関係が認められなかった.データの個数



図-7 TCDP試料の有効空隙率の深度プロファイル

はやや不十分ではあるが,深度範囲1,712-2,000mの卓蘭層 の砂岩とシルト岩の有効空隙率は,400-1,027mの卓蘭層 の同じ岩種と比べると,やや高い傾向があるように思われ る.これは,1,712-2,000mの部分が卓蘭層の上部,400-1,027mが卓蘭層の下部に相当するための可能性があると 考えられる.

4つの岩質区分における各パラメータの平均値, その岩 質区分におけるパラメータの最大値・最小値を表-1にまと めた.これらのパラメータには岩質と明確な対応関係が認 められ,砂岩,シルト岩,頁岩の順で岩種が細粒になるほ ど,乾燥バルク密度が高く,有効空隙率が低く,空隙半径 のメジアンが小さくなり,すなわち,緻密な岩石の特性を 示すことが判明した.一方,粒子サイズの大きい砂岩は, ルーズな特性を示した.生物擾乱を受けた砂岩の場合は, 生物擾乱を受けない同種の岩石より,有効空隙率が小さく なり,乾燥バルク密度が高くなった.

図-8では、上記4岩種の空隙寸法分布において一般性を 有する代表的な試料の空隙半径のヒストグラムを示した. それぞれの岩種はそれぞれの分布特徴を有しており、特に、 頁岩と砂岩の空隙半径ヒストグラムが対照的であり、最頻 値(図-8のaとd、ピークにおける空隙半径)やメジアン (表-1)が約二桁異なっていることが確認された.

測定結果に及ぼすサンプルの不均質性の影響を検討する ために、図-9(a)の写真に示した砂岩・シルト岩互層の サンプルを測定してみた.その空隙半径のヒストグラムは 同図の(b)右に示した.その形状から、図-8中に示した 砂岩(d)とシルト岩(b)の重ね合わせであると理解す



 図-8 TCDPのHole-Aで認められた4種類の岩石の空隙半径の寸法分布ヒストグラム: (a) 頁岩,
 (b) シルト岩, (c) 生物擾乱を受けたシルト質砂岩, (d) 砂岩;なお, 試料番号のつけ 方について, たとえばa)のSample No. 1033-2は深度1,033mから採取された2個目の試 料という意味である

ことが て居 沿隊 21 このデータはどの岩質区分にも対応し 4 寸法分布の測定には十分な再現性があると判断する 11 \$  $\boldsymbol{\varkappa}$ 表-1のまとめには使用していない. in 北口 ~P の図から 1) NO できる.無識, とができ €. ∮. N 2

~

の測定 で採取した2試料の測定結 空隙半径のヒストグ N したがって ても. 一致した. 果は、各パラメータの数値にし なお、同一深度(同一岩質) ラムにしても非常に良く の再現性は高いと言える

# 4. NanTroSEIZEの堆積軟岩試料とその測定結果

# 4.1 試料

4 1 207 ラシアプレ の下にフィリピン海プレートが沈み込んでいる。 -H 西南日本沖合にある南海トラフでは,



いわまぐ れつ フ地震発生帯掘削計画(Nankai Trough 掘削サイトC0001<sup>19</sup>の海底下深度約67~447mbsf (meters でも を行ってきた<sup>18)</sup>.本研究では半遠洋性堆積軟岩の空隙構造 below seafloor)の範囲内において10深度で計22個の試料 スの巨大地震 その震源断層の特性を解明するために、地 統合国際深海掘削計画(IODP)の一環として,2007年か に、NanTroSEIZEは紀伊半島沖において,10数本の掘削 巨大分岐断層を掘り抜いた - ト境界断層を掘り抜いた掘削サイトC0006<sup>20)</sup>の 球深部探査船「ちきゅう」を用いた海洋科学掘削プロジェク 略称NanTroSEIZE) が, らはすべて堆積軟岩(シルト岩またはシルト質泥岩) 海底下深度約476mから2試料を採取した(図-10). 現在まで断続的に実施されている. 15 100~200年の間隔でM8ク Seismogenic Zone Experiment, の基本的特徴を調べるために、 ト境界断層では, が発生している. 1N ら開始され, :南海ト プレ . Kr

# 測定結果 4.2 2.0

海底下深度約67m付近の60%弱から約476m付近の40%強 この有効空隙率の深 それ以深が付加体 南海トラフ掘削のサイトC0001とC0006から採取された 度変化は堆積物の埋没深度による圧密の効果であると考え (不整合) 試料の採取深度が深くなるにつれ, 海底下深度207m付近は地層境界 それ以浅が海溝斜面堆積物で, までほぼ単調的に低下した(図-11). 試料の有効空隙率は, また、 られる. であり.





である<sup>19)</sup>. そのため,海底下深度200m付近では有効空隙 率の急変が認められた (図-11).

図-12にサイトC0001のいくつかの深度から採取された 堆積物の空隙寸法分布の結果を示す.すべての試料の空隙 寸法分布は,よく似通った形状の分布を呈しているが,空 隙半径の最頻値やメジアンが深度の増加に伴い,徐々に小 さくなる傾向が確認された.埋没深度の増加に伴って,圧 密による堆積物の有効空隙率の減少とともに,空隙半径も 小さくなることが確認された.なお,南海トラフの試料も,







図-12 NanTroSEIZEの堆積軟岩試料(シルト質泥岩)の異なる海底下深度(mbsf)から採取 された試料 [a) 67mbsf, b) 172mbsf, c) 372mbsf, d) 447mbsf ]の空隙半径分布ヒ ストグラム

TCDP試料と同様に同一深度(同一岩質)で2試料を測定 しており,各パラメータの数値,空隙半径のヒストグラム ともに良く一致した.

# 5. その他の岩石試料とその測定結果

# 5.1 試料

TCDPおよびNanTroSEIZEで得られた掘削コア試料以 外では、陸上露頭や採石場等から各種岩石試料を採取して、 それらの有効空隙率と空隙寸法分布を測定した.堆積岩類 としては、これまでも研究用試料として多用されてきた和 歌山県産の白浜砂岩(例えば、林ほか<sup>22)</sup>)、米国オハイオ 州産のベレア砂岩(例えば、藤井・高橋<sup>23)</sup>)、インド産の ラジャスターン砂岩(例えば、Lin et al.<sup>13)</sup>)、栃木県産の 田下熔結凝灰岩(例えば、長田<sup>24)</sup>)、インドネシアジャバ 島産の石灰岩を用いた.ジャバ島の石灰岩は、Tanikawa et al.<sup>25)</sup>と同じ試料で、Kujung Formationの上部と下部の 地質露頭よりそれぞれ採取した(それぞれUKF、LKFと 略記する)、上部の試料は多孔質で、下部の試料は比較的 緻密である(図-13のX線CTイメージ<sup>25)</sup>を参照).

本研究に用いた結晶質岩類としては,香川県産の細粒庵 治花崗岩 (例えば,工藤ほか<sup>26)</sup>),福岡県産の唐津玄武岩 (例 えば,青山<sup>27)</sup>),イタリア産のカララ大理石 (例えば, Herz and Dean<sup>28)</sup>),南アフリカ産のベルファスト斑糲岩 (例えば, Togo et al.<sup>29)</sup>)がある.

# 5.2 測定結果

白浜砂岩,ベレア砂岩とラジャスターン砂岩は,約10~20%の有効空隙率を有しており,また似通っている形状の

\_\_\_\_\_

208

寸法分布ヒストグラムを呈している(図-14). 空隙半径の 最頻値でみれば、ベレア砂岩はもっとも大きくて約13μm, もっとも小さい白浜砂岩の約0.6μmの20倍以上であった.



図-13 インドネシアJAVA島のKujung Formationの下部(a, b)
 と上部(c, d)の地質露頭より採取した試料のX線-CTイメージ(Tanikawa et al.<sup>25)</sup>);空隙の部分(密度がゼロに近い空気)は、X線CTバリューが大きく、イメージでは
 黒色の斑点となっている

また、メジアンも同様な岩種間の大小関係であった(表-1 を参照).田下熔結凝灰岩の有効空隙率がこの3種類の砂 岩より大きいが、空隙半径のメジアンはこの3種類の砂岩 より小さい結果であった.したがって、岩石の有効空隙率 と空隙の寸法分布は、必ずしも相関関係があるとは限らな い、上記の3種類の砂岩だけで見ても、同様なことがいえ る.インドネシアジャバ島のKujung層石灰岩の空隙寸法 は図-14 (eとf) に示す通りである。上部の試料は、有効 空隙率が大きく、特に空隙半径10μm付近の大きな空隙が 多い、一方、下部の試料は、有効空隙率が比較的小さく、 半径が1μm以下の空隙が多い、これらの空隙半径寸法分 布の特徴はX線CTイメージとよく一致した。

4種類の結晶質岩試料のポロシメータによる空隙寸法の 測定を行った(図-15). そのうち, 庵治花崗岩, カララ大 理石とベルファスト斑レイ岩は有効空隙率が1%未満で, 非常に緻密な岩石である. これら測定結果は, いずれもバ イモダル(Bimodal)な空隙半径分布のヒストグラムとなっ た. しかし, このような岩石には非常に微細なマイクロク ラックのような空隙があるが, 寸法の大きな空隙(例えば, 100µm)は考えにくい. したがって, 100µm付近の測定結 果は, 試料表面の凹凸などによる影響の可能性が高く, 真 の空隙ではないと考えられる. この表面の凹凸による影響 は, 有効空隙率の大きい岩石試料の測定結果にも含まれて



図-14 代表的な堆積岩試料 [a) 白浜砂岩,b) ベレア砂岩,c) ラジャスターン砂岩,d) 田 下凝灰岩,インドネシアJAVA島のKujung Formationのe) 上部の石灰岩とf) 下部の 石灰岩]の空隙半径分布のヒストグラム



図-15 代表的な結晶質岩試料 [a) 庵治花崗岩, b) 唐津玄武岩, c) カララ大理石, d) ベルファ スト斑レイ岩]の空隙半径分布のヒストグラム

いるが、相対的には小さい、すなわち比較的大きな水銀の 圧入量に対して小さいので無視できる。しかし、試料表面 の凹凸による影響は、空隙率の小さい岩石の場合では顕在 化したと考えられる。これらの緻密岩石試料の場合、寸法 の小さい方の分布(<10µm)が真の空隙の寸法であると 推測される。唐津玄武岩は約8%の有効空隙率を有し、空 隙半径の寸法分布は比較的ブロードで、バイモダルの特徴 を呈した(図-15-b)、なお、この章で述べた各種岩石試 料も、他の試料と同様に同一岩質で2試料の測定を行って おり、両試料の結果は良く一致していた。

林ほか(1999)<sup>30</sup>は,稲田花崗岩と白浜砂岩の2種類の 岩石試料を用いて,それぞれ5種類の方法で整形した(ハ ンマーで分割、ダイヤモンドカッターで切断,切断後にそ れぞれ120#,600#,2.000#研磨紙で仕上げ)試料のポ ロシメータ測定を実施した.その結果,有効空隙率の小さ い花崗岩に整形方法の影響が比較的顕著に認められ、その 影響の度合いは表面仕上げが良くなるにつれ、小さくなる ことが判明した.また、白浜砂岩の場合でも、ハンマー分 割による影響が若干認められたが、カッター切断以上の仕 上げの場合は表面仕上げの影響がほとんど無視できるレベ ルとなった.

# 6.まとめ

岩石の空隙構造は,透水係数等の流体移動特性や圧縮強 度・変形係数等の力学特性を大きく左右するので,その代 表的なパラメータである有効空隙率および空隙寸法の分布 特性を評価することが重要である.本稿では,まず水銀圧 入式ポロシメータを用いて岩石の空隙率および空隙の寸法 分布を測定する手法の原理,装置の概要,測定手順などを 紹介した.次いで,世界各地から採取された15種類の岩石 の計108個の試料について,水銀圧入式ポロシメータ Autopore IV 9520を用いて,それらの有効空隙率と空隙半 径の寸法分布を測定したデータを取りまとめ,各岩種の空 隙構造の特徴を報告した.

岩石の種類,地質年代と産地の違いによって,有効空隙 率と空隙の寸法分布特性が大きく異なり,かつ,その空隙 寸法分布の特性は空隙率との相関性が必ずしもあるとは限 らないことが明らかになった.岩石の透水性などの物性値 と内部空隙との関連性を検討する際,空隙の寸法分布は有 効空隙率とともに重要な情報となる.空隙半径の寸法分布 を測定する手段として,水銀圧入式ポロシメータは比較的 実施簡便で,データの信頼性と再現性が確認されたので, 大いに活用することが望まれる.ただし,有効空隙率の小 さい(例えば,1%未満)緻密な深成岩の場合は,試料の 表面凹凸と思われる影響で,空隙半径の大きい範囲におけ る測定結果が誤差を含む可能性があることや,変形しやす い堆積軟岩の場合は水銀圧入圧力によって空隙が変形する ことがあることに注意が必要である.

謝辞 本研究に用いた岩石試料について、台湾チェルンプ 断層掘削プロジェクト(TCDP)と統合国際深海掘削計画 (IODP)の南海トラフ掘削プロジェクト(NanTroSEIZE) より提供を受けた、測定試料の準備について株式会社マリ ンワークジャパンの多田井修博士より多大な協力をいただ いた、執筆の段階においては財団法人深田地質研究所の藤 井幸泰博士と日本大学の竹村貴人博士から貴重な助言をい ただいた、また、2名の査読者の丁寧な査読と貴重な意見 により本稿は大いに改善された、なお、本研究の一部は JSPS科研費25287134と16H04065の助成をうけて実施した、 以上の関係者各位に感謝の意を申し上げる。

# 211

# 引用文献

- American Society for Testing and Materials (1999) : Standard test method for determination of pore volume and pore volume distribution of soil and rock by mercury intrusion porosimetry, Designation D 4404-84 (Reapproved 1992), Annual Book of ASTM Standards, Vol.04.08, pp.588-592.
- 2) 林 為人・高橋 学・杉田信隆 (1995):稲田花崗岩の温度 上昇に伴ったマイクロクラックの開口幅について、応用地質、 Vol.36, pp.300-304.
- 高橋 学・林 為人・西田 薫・蓑由紀夫 (1999):水銀圧 入式ポロシメーターによる岩石の内部空隙の寸法分布測定, 土と基礎, Vol.47, No.4, pp.30-32.
- 4) 林 為人・高橋 学(2000):水銀圧入式ポロシメーターお よび岩石の内部空隙寸法分布の測定への適用,地質ニュース, No.549, pp.61-68.
- 5) Lin, W. (2002) : Permanent strain of thermal expansion and thermally induced microcracking in Inada granite, J. Geophysical Res., Vol.107, No.B10, 2215, doi : 10.1029/2001JB000648.
- 林 為人、高橋 学・西田 薫・張 銘 (1999): 透水挙動
   に関する等価管路モデルおよび堆積岩への適用例,応用地質, Vol.39, pp.534-540.
- 林 為人・高橋 学 (1999):高温履歴を有する稲田花崗岩 の透水係数と等価管路モデルに基づく評価,応用地質, Vol.40, No.1, pp.25-35.
- 林 為人・廣野哲朗・高橋 学 (2003):水の粘性係数変化 を考慮した等価動水半径モデルによる花崗岩の透水係数の推 定,土と基礎, Vol.51, No.4, pp.29-31.
- 9) 林 為人・高橋 学・佐東大作・漆松雪彦・葉 恩肇・林 立虹 (2007):台湾チェルンプ断層掘削から得られた更新世 ~中新世堆積岩の空隙分布特性,第36回岩盤力学に関するシ ンポジウム講演論文集,pp.357-360.
- 10) Lin, W., Tadai, O., Takahashi, M., Sato, D., Hirose, T., Tanikawa, W. (2010) : Comparison of bulk densities and porosities of various rock samples measured by different techniques, Geologically Active (Proceedings of the 11th International Association for Engineering Geology and the Environment (IAEG) Congress), Eds: A. L. Williams, G. M. Pinches, C. Y. Chin, T. J. McMorran & C. I. Massey : Taylor & Francis Group, ISBN 978-0-415-60034-7, pp.2081-2086.
- Washburn, E. W., (1921) : Note on a method of determining the distribution of pore sizes in a porous material, *Proc. National Academy Science*, Vol.7, pp.115–116.
- Rootare, H. M. and Prenzlow, C. F. (1967) : Surface areas from mercury porosimeter measurements, J. Physical Chemistry, Vol.71, pp.2733–2736.
- 13) Lin, W., Tadai, O., Hirose, T., Tanikawa, W., Takahashi, M., Mukoyoshi, H. and Kinoshita M. (2011) : Thermal conductivities under high pressure in core samples from IODP NanTroSEIZE drilling site C0001, *Geochem. Geophys. Geosyst.*, 12, Q0AD14, doi : 10.1029/2010GC003449.
- 14)林 為人・高橋 学・西田 薫・友田雅展 (1998):岩石の 有効間隙率測定について、日本応用地質学会平成10年度研究 発表会講演論文集, pp.249-252.
- 15) Yeh, E-C, Sone, H., Nakaya, T., Ian, K-H., Song, S-R., Hung, J-H., Lin, W., Hirono, T., Wang, C-Y., Ma, K-F., Soh, W. and

Kinoshita, M. (2007) : Preliminary Results of Core Description from the Hole-A of the Taiwan Chelungpu-Fault Drilling Project, *Terrestrial Atmospheric and Ocean Sciences*, Vol.18, pp.327-357, doi: 10.3319/TAO.2007.18.2.327 (TCDP).

- 16) Wang, P-L., Lin, L-H., Yu, H-T., Cheng, T-W., Song, S-R., Kuo, L-W., Yeh, E-C., Lin W. and Wang, C-Y. (2007) : Cultivation-based characterization of microbial communities associated with deep sedimentary rocks from the Taiwan Chelungpu Drilling Project drilled cores, *Terrestrial Atmospheric and Ocean Sciences*, Vol.18, pp.395-412, doi: 10.3319/TAO.2007.18.2.395 (TCDP).
- 17) Lin, W., Yeh, E-C., Hung, J-H., Haimson, B. and Hirono, T. (2010) : Localized rotation of principal stress around faults and fractures determined from borehole breakouts in hole B of the Taiwan Chelungpu-fault Drilling Project (TCDP), *Tectonophysics*, Vol.482, pp.82–91, doi: 10.1016/j. tecto.2009.06.020.
- 18) Lin, W., Byrne, T., Kinoshita, M. McNeill, L., Chang, C., Lewis, J., Yamamoto, Y., Saffer, D., Moore, J.C., Wu, H.-Y., Tsuji, T., Yamada, Y., Conin, M., Saito, S., Ito, T., Tobin, H., Kimura, G., Kanagawa, K., Ashi, J., Underwood, M. and Kanamatsu, T. (2016) : Distribution of stress state in the Nankai subduction zone, southwest Japan and a comparison with Japan Trench, in-press, available on line now, *Tectonophysics*, in-press, http://dx.doi.org/10.1016/j. tecto.2015.05.008.
- 19) Expedition 315 Scientists (2009) : Expedition 315 Site C0001. In Kinoshita, M., Tobin, H., Ashi, J., Kimura, G., Lallemant, S., Screaton, E. J., Curewitz, D., Masago, H., Moe, K. T., and the Expedition 314/315/316 Scientists, Proc. IODP, 314/315/316: Washington, DC (Integrated Ocean Drilling Program Management International, Inc.). doi:10.2204/iodp.proc.314315316.123.2009.
- 20) Expedition 316 Scientists (2009) : Expedition 316 Site C0006. In Kinoshita, M., Tobin, H., Ashi, J., Kimura, G., Lallemant, S., Screaton, E. J., Curewitz, D., Masago, H., Moe, K. T., and the Expedition 314/315/316 Scientists, Proc. IODP, 314/315/316: Washington, DC (Integrated Ocean Drilling Program Management International, Inc.). doi:10.2204/iodp.proc.314315316.134.2009.
- 21) Moore, G. F., Park, J.-O., Bangs, S. P., Gulick, S. P., Tobin, H. J., Nakamura, Y., Sato, S., Tsuji, T., Yoro, T., Tanaka, H., Uraki, S., Kido, Y., Sanada, Y., Kuramoto, S. and Taira, A. (2009) : Structural and seismic stratigraphic framework of the NanTroSEIZE Stage 1 transect Expedition 316. In Kinoshita, M., Tobin, H., Ashi, J., Kimura, G., Lallemant, S., Screaton, E. J., Curewitz, D., Masago, H., Moe, K. T., and the Expedition 314/315/316 Scientists, Proc. IODP, 314/315/316: Washington, DC (Integrated Ocean Drilling Program Management International, Inc.) . doi:10.2204/iodp. proc.314315316.102.2009.
- 22) 林 為人・高橋 学・李 小春・鈴木清史 (1999):異なる 方法で被覆した白浜砂岩供試体の透水係数測定結果の比較, 応用地質, Vol40, No.5, pp.299-305, doi.org/10.5110/jjseg. 40.299.
- 23) 藤井幸泰・高橋 学(2015):ベレア砂岩の地質・堆積環境・ 物性について、応用地質、Vol.56, No.3, pp.105-109, doi.

org/10.5110/jjseg.56.105.

- 24) 長田昌彦(2012):田下凝灰岩の力学的異方性と飽和度の変 化に伴う弾性波速度および変形の変化傾向,第41回岩盤力学 に関するシンポジウム講演集,pp.300-304.
- 25) Tanikawa, W., Sakaguchi, M., Wibowo, H. T., Shimamoto, T. and Tadai, O. (2010) : Fluid transport properties and estimation of overpressure at the Lusi mud volcano, East Java Basin, *Engineering Geology*, Vol.116, pp.73-85, doi: 10.1016/j.enggeo.2010.07.008.
- 26) 工藤洋三・橋本堅一・佐野 修・中川浩二 (1991):花崗岩 内に発生するクラックと鉱物粒の関係, 資源と素材, Vol.107, No.7, pp.423-427, doi.org/10.2473/ shigentosozai.107.423.
- 27) 青山信雄(1942):唐津高島産玄武岩中の巨晶輝石に就て, 地質學雑誌, Vol.49, pp.206-207.
- 28) Herz, N. and Dean, N. E. (1986) : Stable isotopes and

archaeological geology: the Carrara marble, northern Italy, *Applied Geochemistry*, Vol.1, pp.139–151. doi: 10.1016/0883-2927 (86) 90045-4.

- 29) Togo, T., Shimamoto, T., Ma, S. and Hirose, T. (2011) : High-velocity frictional behavior of Longmenshan fault gouge from Hongkou outcrop and its implications for dynamic weakening of fault during the 2008 Wenchuan earthquake, *Earthquake Science*, Vol.24, pp.267-281.
- 30) 林 為人・高橋 学・李 小春・西田 薫・小松原琢(1999): 水銀圧入式ポロシメーターによる岩石の空隙寸法測定につい て、資源・素材学会1999年春季大会講演集,(I) 資源編, pp.68-69.

(2016年2月25日受付, 2016年7月28日受理)

Jour. Japan Soc. Eng. Geol., Vol.57, No.5 pp.201-212, 2016

# Pore Size Distribution of Rocks Determined by Mercury Intrusion Porosimetry

# Weiren LIN, Manabu TAKAHASHI, Daisaku SATO, En-Chao YEH, Yoshitaka HASHIMOTO and Wataru TANIKAWA

### Abstract

Pore structure of rocks strongly influences permeability and other physical properties, therefore quantitative measurements of porosity and pore size distribution of rock samples are necessary and important in engineering geology. We collected total 108 rock samples of 15 rock types and measured their porosity and pore size distribution by the mercury intrusion porosimetry method and report the data and characterize the pore size distribution in this paper. Porosity and pore size distribution of rocks significantly vary with rock type, geological age and their locality. Moreover, the characteristics of pore size distribution did not show a unique correlation with the porosity of the same rock sample. Therefore, to evaluate pore size distribution of rocks is essential and useful for discussing fluid transportation related with rock pore structure. Mercury intrusion porosimetry is a useful method for pore size distribution measurements, and its reliability and repeatability were confirmed through this experimental study. For low-porosity (e.g. <1 %) rocks, however, measured results of pore size distribution in large-size range (e.g. around 100  $\mu$  m) might have some error probably due to roughness of rock sample surfaces.

Key words : rock, porosity, pore size distribution, mercury intrusion porosimetry