

## 風化の反応・輸送モデリングの最近の研究動向 Recent trend of reactive transport modeling of rock weathering

横山 正<sup>1\*</sup>Tadashi Yokoyama<sup>1\*</sup><sup>1</sup> 大阪大学大学院理学研究科宇宙地球科学専攻<sup>1</sup>Department of Earth and Space Science, Osaka University

岩石の風化は、岩石表面および内部における溶解・沈殿等の反応と、間隙中の物質移動により進行する。これらの過程を定量的に理解するために、反応・輸送方程式を用いた解析（反応・輸送モデリング）が行われる。以下は、一次元の反応・輸送方程式の一例である：

$$\frac{dc}{dt} = D \frac{d^2c}{dx^2} - v \frac{dc}{dx} + Ar_0 f(c)$$

ここで、 $c$ は溶液中の元素濃度、 $t$ は時間、 $x$ は距離、 $\theta$ は間隙率、 $D$ は有効拡散係数、 $v$ は間隙中の流速、 $A$ は岩石の単位体積あたりの表面積、 $r_0$ は速度定数、 $f(c)$ は溶解速度の濃度依存性を表す関数である。反応・輸送方程式を解くことにより、岩石内部の元素濃度や溶解速度の分布、およびその時間変化が分かる。計算に必要な各パラメーターを求める方法としては、例えば $D$ については、直接実験により測定する方法 (Yokoyama and Nakashima, 2005) や、試料の間隙率から経験式 (Archie's law) により推定する方法などがある。反応速度の濃度依存性に関しては、[1] 遷移状態理論に基づき平衡からのずれに線形依存の形で表すもの (Aagaard and Helgeson, 1982; Lasaga, 1984), [2] Al の阻害効果を考慮するもの (Oelkers et al., 1994), [3] 平衡濃度に近い場合と遠い場合とで溶解速度の濃度依存性を分けて考えるもの (Hellmann and Tisserand, 2006) などがある。石英の反応を扱う場合は、 $f(c) = (1 - c/c_{eq})$  ( $c_{eq}$ は平衡濃度) となる (Lasaga, 1998)。反応・輸送方程式を用いた計算結果と、実際の天然における風化状態とを比較することで、風化のメカニズムの議論や、天然と室内実験とで得られる風化速度が最大 5 桁食い違う (White and Brantley, 2003) 原因の検討などが行われる。

近年の反応・輸送モデリングに関する研究では、例えば、Maher et al. (2009) は、実験結果から見積もった常温での速度定数と類似した $r_0$ 値を用いてモデル計算を行い、上述 [2] および [3] の速度則を適用した場合に土壤中で観察された風化プロファイルをよく再現できることを示すと共に、二次鉱物の沈殿が一次鉱物の溶解を支配する重要な因子であることを指摘した。Maher (2010) は、風化速度が流体の滞留時間または流速に強く依存することを指摘した。Navarre-Sitchler et al. (2011) は、玄武岩の風化のモデリングにおいて、 $\theta$ ,  $D$ ,  $A$ の経時変化を計算に組み込むことによって、実際に観察される風化殻の厚さ、生成速度、鉱物組成を再現できることを示した。Moore et al. (2012) は、花崗岩の風化プロファイルを計算で再現するためには、平均流速や反応面積を測定値よりも小さく設定する必要があることを指摘した。

現状の風化の反応・輸送モデリングでは、常温より高い温度 (150 °C など) の実験で得られた反応速度の濃度依存性をそのまま常温での反応の解析に用いている場合が多いが、この妥当性は自明ではない。また、二次鉱物の沈殿速度はモデリングの結果に大きく影響するが、対象とする二次鉱物 (低結晶性のアルミノケイ酸塩など) の沈殿速度の知見が不足している場合が多い。さらに、一般に地表付近では、岩石間隙が完全には水で満たされていない不飽和状態になるが、不飽和状態の反応面積がどの程度飽和状態と異なるかについてもよく分かっていない。これらの点を改善していくことが、反応・輸送モデリングの精度の向上において重要と考えられる。

キーワード: 風化, 反応・輸送モデリング

Keywords: Weathering, Reactive transport modeling