類似石との比較に基づく大谷石の風化因子の検討

宇都宮大学 学生会員 ○花井裕也
 宇都宮大学大学院 正会員 清木隆文

1. はじめに

(1) 大谷石について

大谷石は、栃木県宇都宮市北西部の大谷町付近で東西 4 km、南北 6 km にわたって採掘される軽石火山礫凝灰岩である。耐火性・耐震性に優れていると言われており、柔らかい性質による加工性の高さから、一般住宅の蔵や外壁から、インテリアまで幅広く利用されている。

(2) 大谷石の風化現象について

大谷石は、地上環境下での風化の進行が早く、それに伴う褐色系への変色、強度低下や岩石表面の剥離や欠落といった経年劣化が課題とされている。実際に風化した大谷石の外壁や擁壁を観察すると、同じ大谷石でも白系、肌色、褐色、笠石部では黒色など様々な色に変化したものがある。

(3) 本研究の目的

大谷石はミソ、岩石片、軽石などの火砕物により構成されており、様々な鉱物が含有されている。これらの中には、物理的作用に弱い物質、色調変化しやすい物質が含まれている。そこで、本研究では、どのような物質が風化因子であるかを明らかにするために、風化再現試験を行った。加えて大谷石の類似石との比較を通じて、大谷石の化学的、岩石学的な特徴を考察する。

2. 屋外における色調変化防止実験

(1) 試験概要

本実験では、大谷石（約 30 mm×100 mm×50 mm）を防水加工し、大谷石中の Fe 成分と水分が化学的に反応することを抑えることで、色調変化の防止を試みた。既往の研究¹⁾では防水剤を塗布しているが、今回の試験では防水剤を十分岩石内に浸透させることで、より対候性の高い状態で大谷石風化防止効果の確認を試みた。大谷石は無加工のもの、防水剤に 24 時間浸漬させたもの、石表面に防水剤を塗布したものをそれぞれ 3 つずつ用意した（以下、それぞれ無加工、浸漬、塗布）。宇都宮大学陽東キャンパス 10 号館屋上の日光や雨が直接石材に当たる、屋根のない場所に設置し 2021 年 10 月 22 日から 12 月 20 日の期間で観察した。

(2) 時間経過による色調変化結果

大谷石試料の a* 値の経時変化を図-1 に示す。+a* は赤、-a* は緑の色方向を示す。各大谷石試料は、11 日目では肉眼により色調の差が確認できるほどであった（図-1）。このことから防水剤による色調変化抑制効果を確認できた。実験中、19 日目の無加工の大谷石試料は、表面が白っぽくなった。また、その試料の底面には、緑色の物質が付着していた（図-3）。無加工と塗布は、天候により質量が変化するが、浸漬は、一定程度に保たれており、水分の浸透を防いでいた（図-2）。

図-1 a* 値の変化

図-2 質量変化

図-3 大谷石底面の緑色物質の溶出状況

(3) 表面成分分析の結果について

新鮮な大谷石、緑色物質、今回試験に用いた無加工、浸漬、塗布の実験開始から 6 週間経過したものの表面について、電界放射型走査電子顕微鏡(Field Emission Scanning Electron Microscope, 以下 FE-SEM)とエネルギー分散型 X 線分析装置(Energy Dispersive X-ray spectrometry, 以下 EDX)を用いて SEM で観察した大谷石の表面領域を設定し、EDX によって構成元素の特定後、定量分析を行った。結果を表-1 に示す。

表-1 各試料の原子数濃度 (%)

元素	Na	Mg	Al	Si	S	K	Ca	Ti	Fe	Ni
無加工新鮮	4.51	0.36	12.92	73.63	0.47	4.79	1.58	0.05	1.57	0.11
緑色物質	1.30	3.23	12.80	60.62	0.49	6.98	0.90	0.53	12.03	1.11
無加工 6 週間	4.87	0.37	11.98	69.52	3.14	3.87	5.39	0.04	0.46	0.37
浸漬 6 週間	4.96	0.47	12.80	75.32	0.47	3.88	1.50	0.00	0.42	0.19
塗布 6 週間	4.12	0.83	12.27	75.02	0.40	3.93	1.66	0.08	1.48	0.21

(4) 実験結果に関する考察

防水剤を浸透または塗布した大谷石は、無加工に比べて表面の色調変化を抑制する効果を示した。さらに、浸漬は水分の浸透を防ぐ傾向を示した。防水剤は揮発物質で間隙を埋める撥水効果を発揮し、水の浸透を防ぐ仕組みである。大谷石表面は凹凸しているため、塗布するだけでは石全体の構造を緻密化することが難しい。そのため、防水剤に 24 時間浸漬させたことで、間隙部への水分の浸透を防ぐ効果を向上できたと考える。EDX による元素分析の結果から、緑色物質は新鮮な大谷石に比べて Ti 成分は約 10.7 倍、Mg 成分は約 9 倍、Fe 成分は約 7.6 倍多く含んでいた（表-1）。これらの元素を含む緑色鉱物としては、緑泥石((Mg,Fe,Al)₁₂(Si,Al)₈O₂₀(OH)₁₆)などであると推察される。

3. 実物石材に近い大型サイズ大谷石の実験について

(1) 試験概要

本実験では、大谷石が屋外で石材として使われている建物壁面、外壁、擁壁などに起こる風化現象の再現するため、異なる環境条件下（屋外、日陰、木陰）で大谷石表面の経時変化を観察する。大谷石の色調変化のひとつに黒色変化があるが、これは擁壁の笠石部分に見られることが多い。これまでも黒色変化の再現を目的とした実験が行われてきたが、屋内環境下での実験であったことなど、雨水など環境の影響を考慮できていなかったと考える。今回は従来よりも大きい大谷石を擁壁部（約 30cm×15cm×15 cm）と笠石部（約 15 cm×15 cm×18 cm）に切り分け、重ね合わせたモデルを使用する。

(2) 時間経過による色調変化結果

笠石部の a*値、b*値の経時変化を図-4 と図-5 に示す。+b*は黄、-b*は青の色方向を示している。

図-4 笠石上面 a*値の変化

図-5 笠石上面 b*値の変化

(3) 考察

図-5 より笠石部の a*値は、どの条件下でも増加傾向であるが、日陰と比較すると屋外、木陰の増加は緩やかである。図-6 より b*値は、日陰部は測定開始から一週間で大きく増加し、その後増加傾向は見られない。屋上と木陰は、11月17日地点から減少傾向にある。褐色化が進む場合、a*値と b*値はともに増加する。目視での観察結果と合わせると、これは表面の白色化が進んでいることを示す。また、屋上と木陰に配置した大谷石表面から、前章の実験結果でも確認された緑色物質が同様に流れ出していた。この結果から、笠石上面は雨水の影響を強く受けるため、緑色物質やミソなどの構成物質が失われやすい状況にある。そのために大谷石表面に凹凸が増すため、新鮮な面に比べて水はけも悪くなる。結果、岩石に付着した汚れが水によって流れ落ちにくくなり、その窪みに蓄積され黒っぽくなる。また、雨水が多く流れる表面は湿潤状態を保つ時間が長く、汚れの付着量が多くなる。この汚れの蓄積が黒色変化の要因の一つだと推察する。

4. 虎杓、十和田、徳次郎石との比較

(1) 試験概要

本研究では、大谷石の類似石として、大谷石虎杓、十和田石、徳次郎石（青灰色と灰白色の2種類）を用意した。これらは大谷石と同様の堆積凝灰岩で、風化抵抗性が高く色調変化しにくいと言われているため、類似石と大谷石との比較を目的として、基本物理特性及び元素分析を行った。

(2) 各種岩石における基本物理特性の測定の結果

各種岩石試料の飽和質量、絶乾質量、有効間隙率、乾燥密度を表-2 に示す。

(3) EDX による元素分析の結果

EDX による元素の定量分析結果を表-3 に示す。観察面は、各岩石に衝撃を加えて生じた破壊面の基質部分である。

表-2 各岩石試料における基本物理特性

岩石名	飽和質量 (g)	絶乾質量 (g)	有効間隙率 (%)	乾燥密度 (g/cm ³)
大谷石	315.76	257.74	31.88	1.42
大谷石：虎杓	296.48	237.42	33.05	1.33
十和田石	400.65	368.51	17.73	2.03
徳次郎石：青灰	138.69	109.18	38.86	1.44
徳次郎石：灰白	146.68	121.79	31.86	1.56

表-3 EDX 定量分析結果② (%) (赤字は成分最大値)

岩石名	Na	Mg	Al	Si	S	K	Ca	Ti	Mn	Fe	Ni
大谷石	4.51	0.36	12.92	73.63	0.47	4.79	1.58	0.05	0.00	1.57	0.11
虎杓	0.78	0.73	12.42	77.12	0.58	4.65	2.62	0.05	0.00	0.98	0.08
十和田	4.67	2.68	13.53	69.89	0.56	3.81	0.34	0.11	0.15	4.13	0.11
徳次郎：青灰	2.86	1.62	11.79	73.60	1.66	3.18	2.13	0.00	0.00	3.15	0.00
徳次郎：灰白	2.34	0.65	16.88	70.98	0.23	5.85	0.84	0.00	0.00	2.23	0.00

(4) 結果と考察

表-2 より、乾燥密度は十和田石が 2.03 g/cm³ と最も高く、虎杓が 1.33 g/cm³ と最小値となった。有効間隙率は、徳次郎石青灰が 38.86 % と最も高く、十和田石が 17.73 % で最小値となった。表-3 より、十和田石は、他の岩石より Fe 成分をはじめ金属元素の割合が高いことから、一見酸化しやすく風化しやすいと思われる。一方で緻密な構造で、透水性も低いことから物理的風化作用に強く、酸化や溶解しにくさと大きく関係する因子の一つであると考えられる。徳次郎石の有効間隙率は比較的大きい結果となった。粒径が細粒で整って淘汰がよく、ミソや岩片をほとんど含有しない石と言われているが、基質部分だけで比較すると、大谷石の方が緻密な構造と考えられる。また、徳次郎石も Fe 成分や Mn などの割合が大谷石より高い。それでも大谷石よりも風化に強いことからこれらの成分がより化学的に安定な状態で含まれている事がわかる。この結果を踏まえて、それぞれの岩石構造や鉱物組成についてさらに理解を深める必要がある。

5. まとめ及び今後の課題

本研究では、大谷石内のどのような物質が風化因子であるかを明らかにすることを目的とした。屋外における色調変化防止実験では、大谷石に防水剤を浸透させることで水分の浸入を防ぐ効果を確認した。また、無加工大谷石から緑色物質の溶出が確認された。この物質は大谷石の弱い構造であり、Fe 成分が多く含まれていたことから褐色変化に寄与するものであると考えられる。この物質が溶出することで大谷石の内部構造が疎になるので、風化による強度低下の影響因子の一つである。また、大型サイズ大谷石試料を日陰と屋外、木陰に置き、それぞれの色調変化の様子から汚れ付着の観点で黒色変化のメカニズムを検討した。さらに、大谷石、虎杓、十和田、徳次郎石について基本物理特性と表面の元素分析を行った。

今後の課題としては、緑色物質は緑泥石などと考えられるがさらに詳細を調べる必要がある。また、大型サイズ大谷石は黒色変化の再現に至っていないため、風化についてより長期的な観察が必要である。さらに類似石の生成環境や構造や鉱物組成についてより深く理解を深め、大谷石類似石が風化しにくい理由をさらに追求する。

参考文献

- 徳留雄太, 清木 隆文, 飯村 淳 : 大谷石の風化による表面変化と強度の関連に関する検討, 第 48 回岩盤力学に関するシンポジウム講演集, 土木学会, pp. 264-269, 2022. 1.