

# 大谷石類似石との比較に基づく徳次郎石の工学的性質と風化

堀内 泰我 (宇都宮大学)  
清木 隆文 (宇都宮大学)  
中村 洋一 (宇都宮大学)

## 1. はじめに

### 1.1 背景

大谷石には「ミソ」と呼ばれる、褐色物質や緑色物質が濃集している箇所が存在する。ミソは大谷石の趣を引き出す一方、非常に脆く崩れやすいため、剥離や欠落のような経年劣化が発生する。さらに褐色物質や緑色物質が風雨によって流出したことを起因とする色調変化が課題となっている。本研究では色調変化のプロセスを明らかにするため、大谷石とその類似石について粉末X線回折分析(X-Ray powder Diffraction test、以下XRD)による結晶相の同定や、誘導結合プラズマ(Inductively Coupled Plasma、以下ICP)発光分光分析装置を用いた溶液の元素測定、走査型電子顕微鏡での表面観察を行い、考察を行った。さらに大谷石と類似石の異なる点について比較を行い、違いが出る原因を確認することを目的とした。

## 2. 大谷石の類似石

本節では、大谷石と同じ凝灰岩であり、形成された年代が同時期<sup>1)</sup>であると考えられている類似石について紹介する。なお(1)、(2)及び(4)の石材については産出量が少ない、あるいは採掘場の閉鎖に伴って商業的な採石を終了している。

### (1) 徳次郎石

徳次郎石(とくじらいし)は、栃木県宇都宮市徳次郎町から採石される。大谷石と比較すると細粒物質で構成されており、やや青みを帯びた灰白色で薄層からなる成層構造を持つこともある。大谷石と比較すると風化による岩質劣化が少ない。

### (2) 板橋石

板橋石は、栃木県日光市板橋付近で採石される。板橋石にはミソがなく、全体が均一な灰白色であり、緻密な構造をしている。日光石とも呼ばれる(図-1(a))。

### (3) 虎空大谷石

大谷石は地下水位より低い位置で採石されるが、虎空(とらもく)大谷石は地下水位より高い位置から採石される。虎空大谷石は採石した後に色調が変化しない石材であり、一般に大谷石より強度が高いとされている(図-1(b))。

### (4) 田下石

田下石(たげいし)は、栃木県宇都宮市の多気山のふもとに参する凝灰岩で肌理が細かく、ミソが無いのが一般的である。一部にクサレと呼ばれる固結度の低い固まりが見られる。希に色調が茶褐色に変わるものもある。見かけ上他の大谷石類似石に比べて均質で近年まで産出して来たので岩石試験によく用いられて来た(図-1(c))。



(a) 板橋石



(b) 虎空大谷石



(c) 田下石(下半分は砂岩層)

図-1 類似石の例

### 3. 日本工業規格における石材の位置づけ

J I S 規格<sup>2)</sup> に準じて分類の検討をすすめると、一軸圧縮強さは10MPa 程度、吸水率は15%以上なので軟石と分類される。J I S 規格による岩石呼称は、(産地又は固有名称)・(岩石の種類)・(物理的性質による種類)・(等級)・(寸法厚さ×幅×長さ)または(寸法区分の種類)で分類される。(寸法厚さ×幅×長さ)または(寸法区分の種類)は、石材の用途によって異なるとともに、石材によっては現在生産されていないために、切り出される石材の主要な寸法や寸法区分が不明なため、この記述は除くものとする。

- i) 大谷石：凝灰岩類・軟石・一等品～三等品（ミソを“はん点”あるいは“むら”と区別する時、その量により判断）
  - ii) 徳次郎石：凝灰岩類・軟石・一等品
  - iii) 板橋石：凝灰岩類・軟石・一等品
  - iv) 虎杓大谷石：凝灰岩類・軟石・二等品～三等品
  - v) 田下石：凝灰岩類・軟石・一等品
- と分類される。

### 4. 大谷石を中心とした試験項目

#### 4.1 類似石の成分と大谷石との比較

本試験では、大谷石の類似石について基本的物理特性の測定と、構成されている成分の特定を行い、大谷石と異なる点について考察を行った。乾燥密度は、60±5℃の炉乾燥を48時間行った石材の質量を体積で除すことで求めた。吸水率及び有効間隙率は、内部の気体を水道水で置換し飽和質量を測定することで求めた(表-1)<sup>3),4)</sup>。

表-1 大谷石およびその類似石の基本的物理特性<sup>3),4)</sup>

岩石名	乾燥密度 (g/cm <sup>3</sup> )	吸水率 (%)	有効間隙率 (%)
大谷石	1.42	22.51	31.88
徳次郎石	1.44	27.03	38.86
板橋石	1.77	13.28	23.49
虎杓大谷石	1.33	24.89	33.05

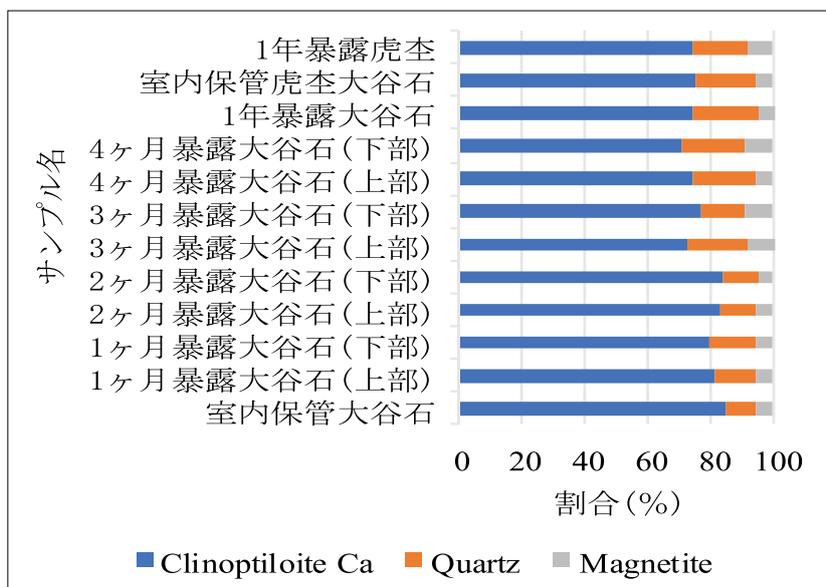


図-2 参照強度比法による結晶相の重量比

その結果は、吸水率、有効間隙率の最も低い板橋石が、乾燥密度すなわち見かけの密度が最も高い傾向を示した。一方で徳次郎石は、板橋石に次いで見かけの密度が高いが吸水率、有効間隙率が最も高い傾向を示した。このことから岩石固体部分を構成する鉱物の密度が大谷石や他の類似石に比べて高い事が分かる。虎杓大谷石は、最も見かけ密度が低く大谷石よりも有効間隙率が大きく間隙の体積が多い。これが見た目にミ

ソのない大きな凹凸を含む表面構造を呈していることが裏付けられる。

#### 4. 2 構成鉱物の観点から見た大谷石と類似石との違い<sup>4)</sup>

XRDによる鉱物の同定を行った。同定の結果、大谷石と類似石の大きな違いは灰斜プチロル沸石 (Clinoptilolite - Ca) か曹長石 (Albite) が含まれている点であると特定した。Clinoptilolite - Ca 及び Albite はどちらも SiO<sub>4</sub>四面体が三次元的に連結し立体的な網目構造を成しているテクトケイ酸塩鉱物の一種として分類される。両者の違いはカルシウム (Ca) に富むかナトリウム (Na) に富むかの違いである。既往の研究<sup>1)</sup>から、大谷層においては貝化石やサンゴ化石が産出したことがわかっている。これにより、火山灰質の物質が海水中に堆積する際に、サンゴや貝殻等の遺骸と共に堆積し Ca が富む環境で生成されたものが大谷石となり、一方で海水が卓越し Na に富む環境で生成されたものが類似石となったと事が一因として考えられる。

#### 4. 3 大谷石の色調変化プロセスの調査試験<sup>4)</sup>

本試験では、縦横50mm高さ60mmの直方体にカットした大谷石サンプルを金属製のバットに入れ、1ヶ月ごとに期間を分け最大4ヶ月継続して屋外で暴露した。暴露した大谷石について上部と下部からサンプルを採取し、分析を行った。上部は雨水を直接受ける位置にあり、下部はバットに溜まった雨水に接触し続ける位置にある。まずXRDを行い、得られたX線回折強度のデータから、参照強度比法を用いて結晶相の重量比の測定を行った (図-2)。なおX線回折分析の原理上、非晶質で、SiO<sub>4</sub>四面体が二次元的に連結し層状構造を成しているフィロケイ酸塩鉱物の重量は考慮していない。得られた結果から暴露を継続することにより、多孔質で吸水性の高い Clinoptilolite - Ca が乾湿繰り返し作用で抜け落ち、固結度が高く硬度も高い石英 (Quartz) 等で構成される基質部分が残ったと考えられる。

#### 4. 4 大谷石表面処理剤を用いた調査試験<sup>4)</sup>

本試験では、色調変化に影響を及ぼす可能性がある成分を調査した。まず、大谷石表面処理剤を大谷石サンプルに浸漬及び塗布する。次に表面処理剤を十分に自然乾燥させた後、大谷石サンプルを雨水に1週間浸漬させる。その後、色調変化に影響を及ぼす成分が溶けだしたと考えられる浸漬液をICPで分析した (図-3)。試験により大谷石表面処理剤によって Mn の流出が抑制されていると判明した。雨水により溶けだした Mn イオンは、空気に触れると酸化し、溶性の Mn 酸化物が析出する。析出した Mn 酸化物は褐色を呈するため、色調変化に与える影響は大きい。

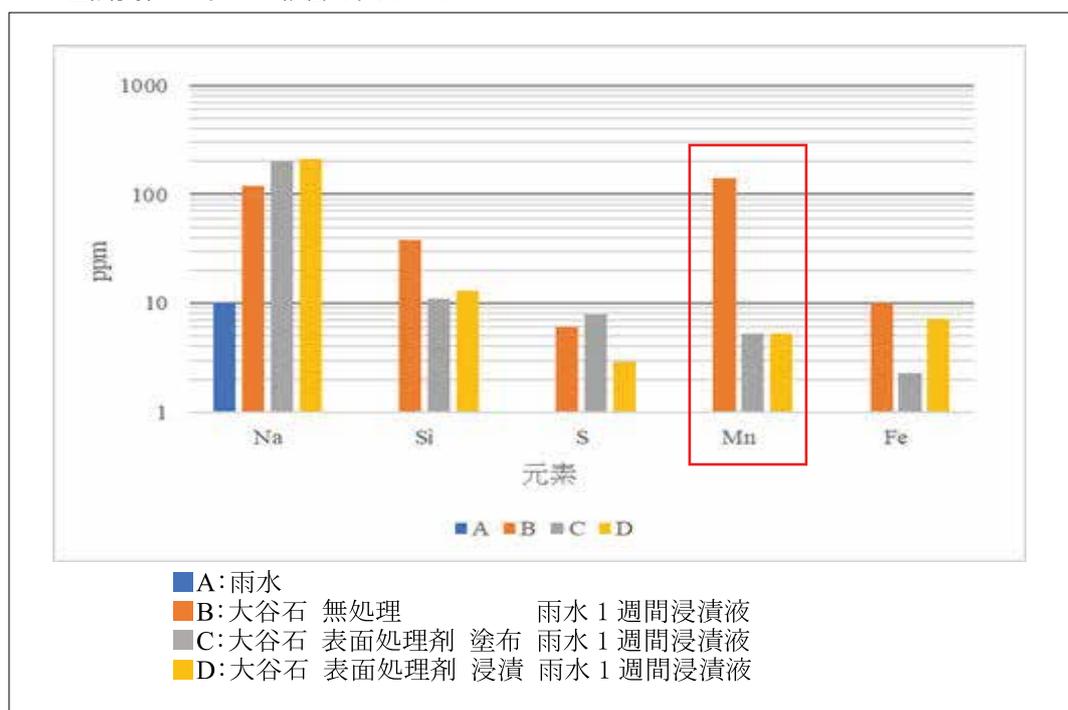


図-3 ICP分析による溶液中の元素の濃度<sup>4)</sup>

## 5. まとめ

大谷石類似石と徳次郎石を比べた結果、風化を起こしやすい大谷石に比べて有効間隙率が大きく見かけの密度も大きい結果を示した。この事は、徳次郎石を構成する造岩鉱物の種類には大きな違いは無いが、間隙のつながりが多い状態でかつ、間隙周囲の岩石構造がち密であると推定される。これが大谷石に比べて徳次郎石が風化しにくい一因と考えられる。

本報告で実施した実験により、大谷石を風雨に暴露すると、テクトケイ酸塩鉱物の Clinoptilolite - Ca が流出することが判明した。また ICP による試験から、雨水によって Mn 化合物が流出し、色調変化に影響を与えていると考えられる。

## 参考文献

- 1) 独立行政法人産業技術総合研究所地質調査総合センター、吉川敏之、山本孝弘、中江訓、地域地質研究報告、5万分の1地質図幅、新潟(7)第103号、N J - 54 - 30 - 1 宇都宮地域の地質、pp. 32, 2010.
- 2) JISA5003:1995 石材、日本標準基準調査会、1995.
- 3) 花井祐也、清木隆文、飯村淳、大谷石の色調変化に影響する構成物質に関する検討、第49回岩盤力学に関するシンポジウム講演論文集、講演番号41、pp. 231-236、土木学会、2023. 1.
- 4) 堀内泰我、清木隆文、中村洋一、大谷石の色調変化プロセスの原因究明及び類似石との比較検討、第50回土木学会関東支部技術研究発表会、(投稿済)、2023. 3.