

レンガの塩類風化に関する一室内実験

A laboratory experiment on salt weathering of bricks

島田博明*・小口千明**・松倉公憲***

Hiroaki SHIMADA*, Chiaki T. OGUCHI** and Yukinori MATSUKURA***

I はじめに

近年、スフィンクスやモヘンジョダロ、アンコールワット等、石やレンガ造りの建造物（文化遺産）の風化・劣化が大きな社会的関心を呼んでいる（たとえば、Goudie and Vile, 1997）。このような例は我が国でも数多い。たとえば一例をあげる。栃木県野木町には1889（明治22）年に下野煉化製造会社（現社名：株式会社シモレン）が建築したホフマン式輪窯がある。80年間の稼働ののち、1971（昭和46）年にレンガ造りを休止した。1979（昭和54）年には重要文化財に指定されているが、最近特に建物自体の風化・劣化の進行が徐々に大きくなっていることが憂慮されている。この建物の劣化は塩類風化に起因することは徐々に判ってきた（Oguchi and Matsukura, 2000; Kuchitsu, 2000; Oguchi et al., 2002）が、レンガの塩類風化そのもののメカニズムに関してはまだまだ不明な点が多い。そこで本稿ではレンガを用いた塩類風化の二、三の実験を行い、レンガの塩類風化速度をコントロールするものは何かという問題にアプロー

チする。具体的には、3種類のレンガと4種類の塩溶液を用いて2つの室内実験を行った。一つは、柱状のレンガ試料に試料下部から飽和溶液を与えるというものであり、もう一つは、立方体のレンガ試料を各種の塩の飽和溶液に浸して乾燥させるというサイクルを繰り返すものである。本稿はその結果を報告する。

II 実験方法

1. 実験に用いたレンガとその特性

実験には3種類のレンガを使用した。一つは前述の野木町のホフマン式輪窯でつくられた赤色のレンガである。このレンガは実際に輪窯の建物に使用されていたものであり、それらの中から比較的風化程度が低いものを選んだ。このレンガを現在の社名をとり「シモレン」と呼ぶことにする。もう二つは市販されている赤色と白色のレンガである。それぞれを「赤レンガ」「白レンガ」と呼ぶことにする。これら3種のレンガの物性データ（有効間隙率、間隙径分布、乾燥単位体積重量、真比重、乾燥単位体積重量の値と真比重の値より求めた間隙率、引張

* 筑波大学自然科学類学生

** 日本学術振興会 科学技術特別研究員（国際農林水産業研究センター）

*** 筑波大学地球科学系

表 1. 各レンガの諸

	シモレン	赤レンガ	白レンガ
有効間隙率(%)	25.51	16.57	10.90
乾燥単位体積重量(g/cm ³)	1.73	1.96	2.12
V_{sum}	471.10	261.48	196.46
単位体積あたりの	V_1	298.56	178.65
間隙本積(mm ³ /cm ³)	V_2	158.31	74.21
	V_3	14.05	8.33
真比重(g/cm ³)	2.66	2.60	2.63
間隙率(%)	34.7	24.9	19.4
引張強度(kgf/cm ²)	14.6	23.0	54.5

$$V_{sum} = V_1 + V_2 + V_3$$

V_1, V_2, V_3 : 直径 d_1, d_2, d_3 における間隙体積

($10^{0.5} < d_1, 10^{-0.5} < d_2 < 10^{0.5}, d_3 < 10^{-0.5}$; 単位: μm)

強度)は表 1 に示されている。シモレンは3つのうちで最も間隙率・有効間隙率が大きく、大・中・小の間隙容量のいずれも多い。逆に引張強度は3つのうちで最も小さい。白レンガはシモレンとは逆に間隙率・有効間隙率が最も小さく、引張強度が大きい。また中間隙の容量が比較的大きいという特徴をもつ。

2. 塩溶液の性質

今回、20℃における溶解度の値をもとに MgSO₄ (25.5 g), Na₂SO₄ (16.0 g), NaCl (26.4 g), CaSO₄ (0.21 g) (カッコ内は蒸留水 100 ml に加えた塩の量) の飽和溶液をそれぞれ作成して実験に用いた。なお、塩によらない風化現象などが起こる可能性も考えられるため、比較として蒸留水による実験も行った。また特にことわりがない場合、以下では蒸留水と塩溶液を合わせて「溶液」と呼ぶ。

3. 実験方法

(1) A 実験

A 実験は以下の方法で行われた。

- 1) 底面が一辺 5 cm の正方形で、高さ 15 cm の直方体に整形した 3 種類のレンガサンプル (以後、単にサンプルと略称) ごとに 5 個ずつ作成した (合計 15 個)。
- 2) 溶液の入った容器 (タッパーウェアを使用)

の蓋の部分に穴 (5 x 5 cm²) を開け、その穴に下部 3 cm が常に溶液に浸るようにサンプルを立てた。サンプルに溶液を吸収させた状態のまま、50℃のオーブンに入れて乾燥させた。

3) 溶液の高さを保つため、ほぼ毎日溶液の補充を行った。そして補充した溶液の重量を計測した。

4) 時々写真撮影をして塩の析出状態を記録した。

5) 3) の作業が 106 日目になるまで実験を続けた。

(2) B 実験

B 実験は以下の方法で行われた。

- 1) 1 辺 5 cm の立方体に整形した 3 種類のサンプルを各々 5 個ずつ作成した (合計 15 個)。
- 2) 15 個のサンプルを 105℃で 2 日間乾燥させ、その後各サンプルの乾燥重量を計測した。
- 3) 20℃の室内で、サンプルごとに用意された溶液に浸した。その際、サンプルを 6 ミリメートルメッシュの金属網に乗せた状態で、溶液中に完全に浸した。
- 4) 24 時間後、サンプルを網ごと溶液から取り出し、乾燥炉中で、50℃で 2 日間乾燥させた。
- 5) 乾燥後、重量を測定し、写真を撮影した。
- 6) 3) から 5) までの過程を 1 サイクル (所要 3 日間) として繰り返し行った。また、サンプル表面の剥落を初めて確認した時を風化開始サイクルとして記録した。
- 7) 24 サイクル終了後、蒸留水に浸したものを以外の各サンプルを蒸留水に浸して塩を溶脱させたあと、金属網上にある最大のサンプルを 105℃で 2 日間乾燥させたのち重量を計測した。

III 実験結果

1. 溶液吸収量

A 実験において補充した溶液量を、サンプルへの溶液吸収量とした。溶液吸収量の積算値と実験開始からの日数との関係を示したのが図 1 である。すべてのサンプルにおいて、日数が経

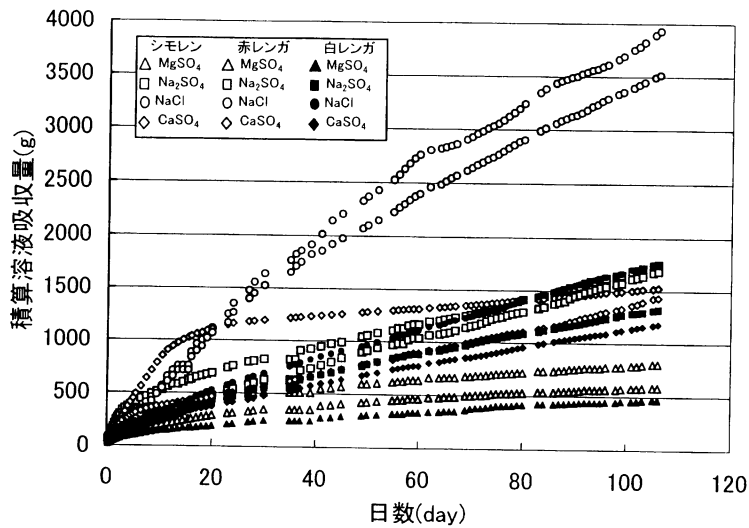


図1. 塩溶液吸収量の積算

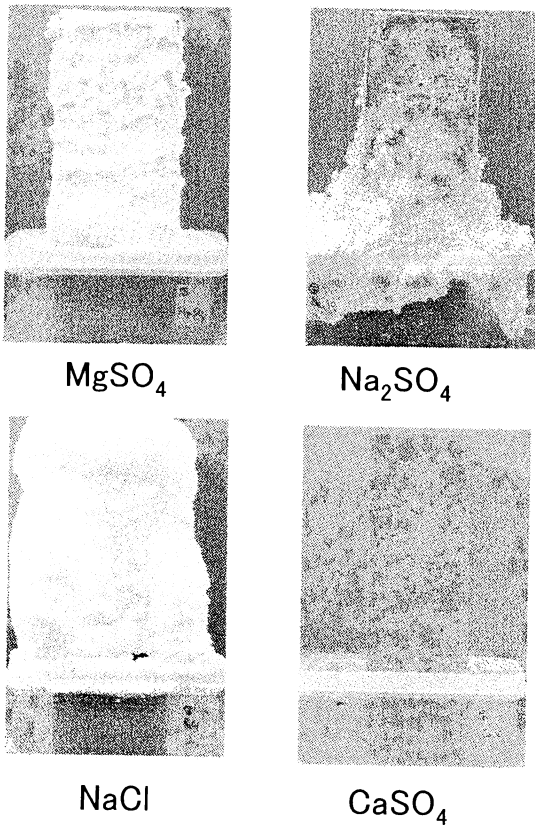


図2. 塩の析出の様子 (シモレン、75日目)

過するにつれて積算の塩溶液吸収量は徐々に増加した。ただし、シモレンに吸収されるCaSO₄溶液のみが、他と異なった吸収パターンをみせている。すなわち、実験12日目頃までは毎日80 gほどと、他のサンプルに比較して最も多かったが、それ以降は10 g/日程度に急激に減少した。

3種類のレンガで実験終了時の吸収量を比較すると、シモレンの吸収量が最も多く、次に赤レンガ、そして白レンガの順に吸収量が少なくなる。また吸収された塩溶液の量を4種類の塩溶液で比較したところ、いずれのレンガにおいても、NaCl溶液が最も多く吸収され、次にNa₂SO₄溶液、CaSO₄溶液、そしてMgSO₄溶液の順に吸収量が少なくなる。

2. 表面に析出した塩

A 実験においては、実験日数の経過とともに、サンプル表面には塩の結晶が徐々に拡大していくのが観察された。シモレンの場合を例にしてその様子を図2に示した。サンプル表面への塩の析出は4種類の塩溶液の中ではNaCl溶液に浸したサンプルに最も顕著に見られた。すなわち、容器(高さ5 cm)から出ている部分のほぼ

全面を塩が完全に覆いつくすように析出している。MgSO₄ 溶液に浸したのも、NaClほどの量ではないが、全面に析出した。Na₂SO₄ 溶液に浸したサンプルでは、サンプルの下部（容器のふたから3 cmほどの高さまでの範囲）にとくに塩が集中して析出しており、上部にいくほど析出量が減少する。CaSO₄ 溶液に浸したサンプルは、写真では塩の析出がないようにも見えるが、実際にはサンプル全体で薄く塩が析出している。

NaCl, Na₂SO₄ 溶液については、赤レンガ、白レンガの塩の析出状態はシモレンと全く同様であった。MgSO₄ 溶液に浸した場合、赤レンガはシモレンと同じように全面に塩の析出が見られたが、白レンガではサンプルの下部と中央の一部に塩の析出があっただけである。また、CaSO₄ 溶液に浸した赤レンガと白レンガの表面では塩の析出は確認できなかった。

3. 風化開始サイクル

B 実験においては、実験サイクルを繰り返すことにより、サンプルのエッジ（稜）の部分が徐々に欠け落ちていくというような、劣化・破壊の様子が観察された。そこで実験中に、サンプル表面の剥落が初めて確認されたサイクルを、「風化開始サイクル」として定義した。Na₂SO₄ 溶液に浸したサンプルのうち、シモレンと赤レンガには 8 サイクルで剥落が見られ、白レンガにも 11 サイクルで剥落が見られた。MgSO₄ 溶液に浸したサンプルでは、シモレンには 12 サイクルで、赤レンガには 14 サイクルで剥落が見られた。MgSO₄ 溶液に浸した白レンガと NaCl 溶液および CaSO₄ 溶液に浸したサンプルでは、24 サイクルまでに剥落を確認できなかった。

IV 考察およびまとめ

1. 溶液吸収量と塩の析出との関係

図 1 の結果から、NaCl 溶液はMgSO₄ 溶液や Na₂SO₄ 溶液と比較して、いずれのレンガにも吸

表 2. 塩の結晶圧 (P)、各レンガにおける結晶圧(P_c)、易風化指標 (WSI) の値

		P (MPa)	P_c (MPa)	WSI
シモレン	MgSO ₄	10.03	32.98	22.98
	Na ₂ SO ₄	44.50	146.26	101.94
	NaCl	24.10	79.19	55.19
	CaSO ₄	1.18	3.88	2.71
赤レンガ	MgSO ₄	10.03	17.60	7.82
	Na ₂ SO ₄	44.50	78.05	34.69
	NaCl	24.10	42.26	18.79
	CaSO ₄	1.18	2.07	0.92
白レンガ	MgSO ₄	10.03	28.79	5.39
	Na ₂ SO ₄	44.50	127.70	23.91
	NaCl	24.10	69.14	12.95
	CaSO ₄	1.18	3.39	0.63

収されやすいといえる。また実験の経過とともに徐々にではあるが、溶液吸収量が減少する傾向が認められる。特にシモレンのCaSO₄ 溶液ではこの傾向が顕著であった。実験経過とともに溶液吸収量が減少する原因としては、サンプル内に浸入した塩溶液から析出した塩が(1)レンガの表面で析出しコーティングの役目をする事により、蒸発が抑えられる、(2)レンガ内の間隙を徐々に埋めていくことにより、溶液の進入が徐々に阻害されてしまう、ということなどが考えられる。シモレンのCaSO₄ 溶液はこの(1)のケースに相当すると考えられる。

溶液吸収量の測定と塩の析出の様子とを併せて考察すると、両者の関係は以下のように考えられる。まず、NaCl であるが、NaCl の塩は他の塩よりトータルの析出量は多いが、レンガ内部では塩が析出しにくく、サンプル表面で多量に析出すると考えられる。Rodriguez-Navarro and Doehne (1999) は実験結果から NaCl の結晶は溶液と空気の界面で析出すると述べており、この考えと調和的である。Na₂SO₄ と MgSO₄ との塩はレンガの表面でも析出するが、レンガ内部の間隙内でも析出しやすいのではないだろうか。このことは、B 実験において、レンガ表面の劣化・破壊がこの二つの溶液で顕著にみられたことから推定される。CaSO₄ は前述したように

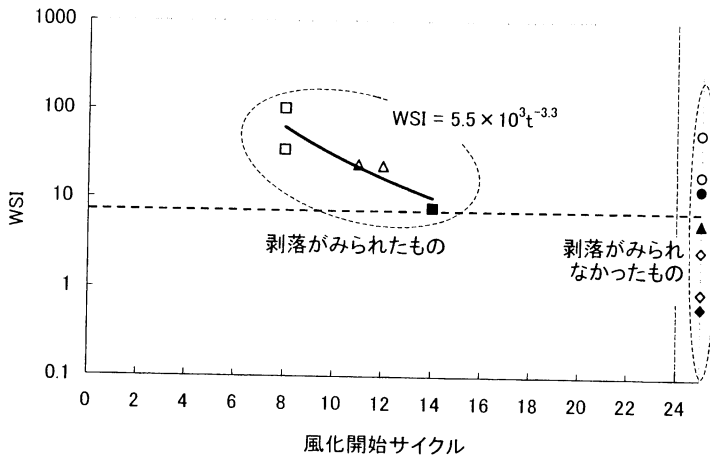


図3. 風化開始サイクルと WSI との関係

4つの溶液の中では飽和濃度が最も小さい、従って同じ溶液吸収量であっても他の塩に比較して析出する塩の量は極めて少ないことになる。したがって、このような析出する塩の量が少ないことが、劣化・破壊を引き起こしにくい一つの原因と考えられる。

2. 易風化指標 (WSI) の算出と提示

Correns (1949), Winkler and Singer (1972) などにより、間隙内で塩の結晶ができるときの間隙壁への圧力 (結晶圧) は以下の式で表されることが知られている。

$$P = \frac{RT}{V_c} \ln \frac{C}{C_s} \quad (1)$$

この式において P は結晶圧, R は気体定数 ($8.31 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$), T は温度 (K), V_c は固体塩のモル体積 ($\text{cm}^3 \text{ mol}^{-1}$), C は実際に結晶化したときの塩溶液の濃度, C_s は飽和溶液の濃度である。 C_s には本実験で用いた 20°C の飽和溶液の濃度である。 50°C まで飽和溶液の温度が上昇するとき, 20°C から 50°C までの間における飽和溶液濃度の最大値を超えた濃度に

なれば析出が起こるので, C には 20°C から 50°C までの間における飽和溶液濃度の最大値を用いた。 Fitzner and Sneath (1982) や, Matsukura and Matsuoka (1996) では, 間隙内で発生する結晶圧は間隙径の大きさに反比例するとしている。そこで (1) の式に間隙径分布の要素を加えることにより, 間隙内での結晶圧を計算することにした。ポアサイザーにより測定した間隙径分布を, 間隙径の大きさ (d) で分類して, その間隙径をもつ間隙の体積 (V) を求めた。間隙径の分類は, 大 ($d_1 > 10^{0.5} \mu\text{m}$), 中 ($10^{0.5} \mu\text{m} > d_2 > 10^{-0.5} \mu\text{m}$), 小 ($d_3 < 10^{-0.5} \mu\text{m}$) とし, それぞれの間隙径をもつ間隙の体積を V_1, V_2, V_3 として表 1 に示した。間隙内での結晶圧は以下の式で求めた。

$$P_c = P \sum_{i=1}^3 \left(\frac{d_{\max}}{d_i} V_i \gamma_d \right) \quad (2)$$

この式で d_{\max} は最大の間隙径 ($10 \mu\text{m}$) である。 d_{\max} と d の比は間隙が小さいほど結晶圧が大きく働くことを示している。 γ_d はサンプルの乾燥単位体積重量であり, V と γ_d の積は単位

体積中に含まれる間隙の体積を示している。また P_c / P は間隙内での塩の結晶圧の有効性を示す値をとり、間隙径のパラメータを表している。間隙内での結晶圧 (P_c) に対してサンプルの引張強度 (S_t) が抵抗力として働くことが知られている (例えば Wellman and Wilson, 1968)。(2)式での結晶圧 P_c と引張強度 S_t の比を易風化指標 WSI (weathering susceptibility index: Matsukura and Matsuoka, 1996) として求めた。

$$WSI = \frac{P_c}{S_t} \quad (3)$$

式(1)から計算されるそれぞれの塩の結晶圧, P の値, 式(2)から計算された各塩によって各サンプルの間隙内に発生する結晶圧 P_c の値, この P_c と S_t の値 (表 1) から式(3)で計算された WSI の値をまとめて表 2 に示した。

3. 風化開始サイクルと WSI との比較

サンプルからの剥落を初めて確認した風化開始サイクルと WSI との関係を図 3 に示した。その結果, NaCl を用いたサンプルを除き, WSI の値が大きいくほど風化開始時期が早いという結果が示された。すなわち, 風化開始サイクルは WSI という風化しやすさの指標によって表されることがわかった。NaCl の塩による風化が WSI によって説明できない理由は, NaCl は岩石の表面で析出し, レンガ内部では析出しにくい, すなわち岩石を破壊させるような圧力がレンガ内部では発生しないことによるものと考えられる。

謝 辞

レンガの間隙径分布の計測には, 産業技術総合研究所深部地質環境研究センターのカルボ・エルバ社製のポロシメータを使用させていただいた。同センターの高橋 学・林 為人の両氏に深く感謝申し上げる。

文献

- Correns, C. W. (1949): Growth and dissolution of crystals under linear pressure. *Discussions of the Faraday Society*, 5, 267-271.
- Fitzner, B. and Snethlage, R. (1982): Einfluss der Porenradienverteilung auf das Verwitterungsverhalten ausgewählter Sandsteine. *Bautenschutz und Bausanierung*, 5, 97-103.
- Goudie, A. S. and Viles, H. A. (1997): *Salt Weathering Hazards*. John Wiley and Sons, Chichester, 241p.
- Kuchitsu, N. (2000): Process of salt weathering observed at a brick building, Shimoren Kiln, central Japan. *Transactions, Japanese Geomorphological Union*, 21, 261-276.
- Matsukura, Y. and Matsuoka, N. (1996): The effect of rock properties on rates of tafoni growth in coastal environments. *Zeitschrift für Geomorphologie, Supplement Bd.*, 106, 57-72.
- Oguchi, C. T. and Matsukura, Y. (2000): Spatial distribution of salt efflorescence on brick walls in the Shimoren Kiln, central Japan. *Annual Report of the Institute of Geoscience, the University of Tsukuba*, 26, 25-29.
- Oguchi, C. T., Matsukura Y. and Kuchitsu, M. (2002): Environmental and seasonal influence on the spatial distribution of salt efflorescence and weathering on brick kiln walls. *Transactions, Japanese Geomorphological Union*, 23, 335-348.
- Rodriguez-Navarro, C. and Doehne, E. (1999): Salt weathering: influence of evaporation rate, super-saturation and crystallization pattern. *Earth Surface*

Processes and Landforms, 24, 191-209.

Wellman, H. W. and Wilson, A. T. (1968):
Salt weathering or fretting. Fairbridge, R.
W. ed.: *The encyclopedia of geomorphology*,
Reinhold Book Co., New York, 968-970.

Winkler, E. M. and Singer, P. C. (1972):
Crystallization pressure of salts in stone
and concrete. *Geological Society of
America Bulletin*, 83, 3509-3514.