

花崗岩中水分の測定

- 原爆中性子線量の再評価に関連して -

岩谷和夫* (広島県立保健福祉大学)

葉佐井博巳 (広島国際学院大学)

静間清 (広島大学大学院工学研究科)

星正治、遠藤暁 (広島大学原爆放射線医科学研究所)

岡隆光 (呉大学)

今中哲二 (京都大学原子炉実験所)

1. まえがき

私達は原爆中性子再評価研究の一つとして、広島爆心地から 128 m の距離にあった元安橋の橋柱岩石をくり貫いて、中性子誘導放射能 ^{152}Eu の岩石中深さ分布を測定した¹⁾。またその一方で中性子輸送計算コード MCNP を用いて、橋柱の場所での中性子分布を 1986 年線量システム DS86 で計算されたもので仮定して岩石中の ^{152}Eu の深さ分布を計算し、実測分布と比較検討した²⁾。この際、岩石の主組成成分量が計算に必要であるが、特に、水成分量(含水率)については、水素と中性子との反応断面積が大で水素の中性子減速効果が大いことから、正確に見積もる必要が生じた。この課題について、二、三の実験を基に岩石の基本的な含水特性を調べて含水率を見積もり、中性子輸送計算に供したので、その考え方と手法を報告する。

2. 見積もり方針の設定

長い年月屋外に置かれた橋柱について 50 年以上前に戻って含水率を推定すること、並びに、そのサイズが $82.5 \times 82.5 \text{ cm}^2$ の水平断面を持ち高さが 179 cm という大きな橋柱岩石の各部の含水率を推定すること、は極めて困難な課題である。

そこで私達は、次の 2 つの仮定を設けるとともに、地球化学分野での含水率の取り扱いを詳細に検討し、かついくつかの実験を行って含水率を推定することにした。

2.1 仮定

「橋柱岩石の含水特性はこの 50 数年間に変化していない。」

橋柱は一体の花崗岩から成っていて、雨水・露等による濡れと日射・風による乾燥を繰り返し経験しており、柱の極く表面では何らかの風化が進行している。しかし 50 数年という年月は岩石全体が風化作用を受けて変化する期間としては、無視できるほど短いと考える。また、被爆直後に元安橋周辺で起こった火災による橋柱の加熱変化も少なかったと仮定する。

2.2 仮定

「橋柱の一部小サンプル片に関するデータから橋柱ブロック全体の含水率を推定する。」

* IWATANI Kazuo, Hiroshima Prefectural College of Health Sciences; iwatani@hpc.ac.jp

含水率測定用サンプルには、 ^{152}Eu 線測定用の円盤状サンプルと主成分分析用の扇形サンプル(文献 1 に詳細な記述がある。)を用いた。これらのサンプルの外見観察と主成分分析結果によれば、橋柱岩石の組成はその内部でほぼ均一と考えてよい。含水率の橋柱深さ分布は求めず、複数の小サンプルの測定実験から含水率の上・下限を決めることにした。

2.3 吸着水と化合水

水分のうち、吸着水($\text{H}_2\text{O}^{(-)}$)と化合水($\text{H}_2\text{O}^{(+)}$)はその概念および測定法が地球化学研究分野で確立している^{3,4)}。前者は鉱物粒子に吸着している層間水などの水分、後者は OH^- イオン、 H^+ イオンの状態で構造的に結合している水分とされている。これらの合計量は岩石の地質年代的研究において風化度の指標となっている。また花崗岩は、安山岩や玄武岩などに比較してこの水成分が少なく一般に含水率が約 1 % またはそれ以下と報告されている^{5,6)}。この二つの水成分は、20 年前までは重量法で、現在ではカールフィッシャー滴定法(2 炉法)により精度よく測定され、測定手順の詳細は JIS や ISO で定められている^{7,8)}。吸着水と化合水の区別は脱水温度によりなされる。前者はサンプルを常温から 105 ± 2 まで加熱した時に遊離する水分、後者は 105 から 950 ± 20 に加熱する時に遊離する水分である。

この測定法において注意すべき点は測定サンプルの調整にある。すなわち、測定サンプルとしては岩石ブロック自体ではなく、それを摩砕(100 メッシュ以下)して粉末とし、さらに吸湿水を除いたものを用いる。吸湿水の除去には普通デシケータ中にて乾燥剤で乾燥させる。(例えばシリカゲルで 4 日間以上) このように調整されたサンプルを対象とすることにより、環境因子を可能な限り除去し、岩石種固有の含水特性を引き出す工夫がなされているのである。

2.4 対象とする岩石と方針

さて、私達が対象としているサンプルは岩石ブロック自体である。従って上に述べた水成分に加えて他に何らかの水成分がありそうである。あるとしたらどのような成分であろうか。またそれを定量する方法はあるだろうか。そこで私達は、これらに関するいくつかの実験を試みることにより水成分の種類を明確化し、その基礎に立って橋柱内水分全量を推定することにした。

3 . 特性実験とその結果

上記の仮定に基づいて行った含水特性実験とその結果について記述する。

3.1 岩石の吸湿特性

岩石の含水量は大気湿度の変化によってどの程度の影響を受けるであろうか。このことを調べる目的で、二つの円盤状サンプル(文献 1 の南北ぬきサンプル番号 No.3 と No.11 , 直径 6.8 cm 厚さ 1.8 cm) を空調していない室内に放置して重量変化を測定した。重量の測定には 1 mg 精度の電子天秤を用いた。測定期間は 11 日、この間の平均気温は 25 であった。測定は 1 サンプル当たり 10 回行い、この間の湿度変化 60% - 90% に対して重量変化は 0.007% と極めて少量であった。この結果から、ブロックサンプルを対象とする以下の実験・考察において、大気湿度の変化による影響は無視してよいことが判明した。ただし、粉末サンプルの場合には吸湿量は多く、他の水成分と比較して無視できない。

吸湿および乾燥の時間的速さはブロックサンプルの 表面積 / 体積 比にほぼ比例すると考えられる。

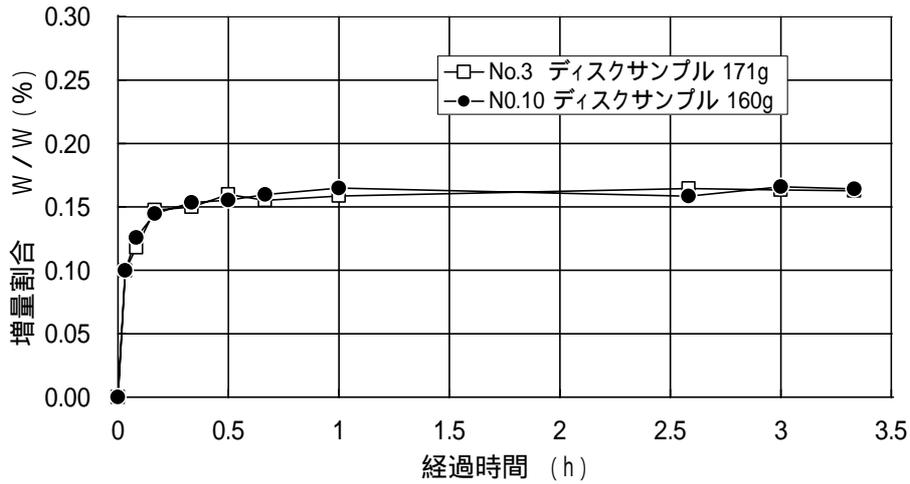


図1 浸水増量テスト - 元安橋橋柱サンプル -

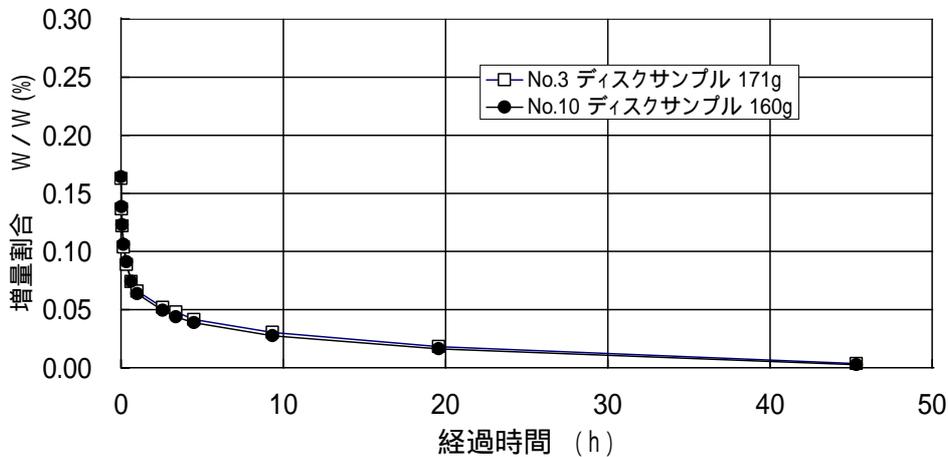


図2 浸水後室内放置乾燥テスト

従って測定に用いたサンプルに比較して圧倒的に大きな橋柱の場合には、表面積 / 体積 比 はより小さく(約 1/20)、大気湿度の影響はさらに微小であると考えられる。

3.2 岩石の吸水・乾燥特性

雨・露などにより岩石表面が濡れたときの吸水特性、およびその後の乾燥過程について調べるため、簡単なモデル実験を行った。その方法は、円盤状のブロックサンプル全体を水に浸し、その後室内に放置して変化を見るというものである。サンプル No.3 と No.11 を水に浸した時の経過時間毎の重量変化(吸水量)を図 1 に示す。図の曲線から、浸水開始より 1 時間後にはほとんど飽和していることが分かる。そして飽和値は 2 つのサンプルについて同量で $0.16 \pm 0.01\%$ であった。ここで特徴的なことは、浸水開始の 5 分後にはすでに飽和値の 75%、10 分後には 90% に達している点である。この吸水特性は、水が毛細管現象により急速に岩石のひび・割れ目に浸透したことを示している。岩石のひび・割れ目は岩石生成時においてすでに存在し(特に石英の場合)その後の風化によっても発生するとされている。以下この水のことを浸透水と呼ぶことにする。

次に、浸水開始から 3 時間 20 分後にこのサンプルを水から引き上げ、室内(気温 26、湿度 65%)で放置した時の重量変化を図 2 に示す。吸水特性と同様この場合も 2 つのサンプルで全く同一の乾燥特性を示した。このことから仮定 に述べた岩石組成の均一性が確かめられる。

放置開始後 3 時間で約 70% の浸透水が大気中に逃げる事が図より分かる。また、このあと長時間放置したままにしたところ、数日でほぼ浸水前の状態に戻った。

吸水または乾燥の 70% の変化に要する時間を時定数と呼ぶことにすれば、乾燥時定数はこの場合吸水時定数の 30 倍以上である。両時定数のサンプルサイズ依存性を調べるため、このサンプルと同種類の重量の異なる(約 1:2)非被爆花崗岩で同様の実験をした。結果は、両サンプルで吸水時定数はほとんど変化しないのに対し、乾燥時定数は重量にほぼ比例した。このことから、橋柱全体については、両時定数の比はさらに大きな値(数 100 以上)をとるものと考えられる。これらの事実から、次のような定性的ではあるが重要な知見が得られた。

「雨や露などが橋柱表面に付着した時、岩石内部に浸透する速度は速く、乾燥は遅い、つまり浸透水が内部で保持される傾向が存在する。その保持量は降雨、降雪の頻度に依存する。」

ところでこの結論に拘わらず、この吸水・乾燥実験はもう一つの知見を与える。それは、岩石が再び濡れない限り、浸透した水は常温常湿環境中でその全量が脱水されることである。これは、浸透水が以下に述べるような岩石ブロックを構成するに必要な吸着水とは基本的に異なることを意味し、たんに岩石のひび・割れ目に浸透した水であるとする描像の適切さを証明している。

3.3 サンプルのデシケータ中乾燥実験

円盤状サンプル(文献 1 の東西ぬきサンプル番号 No.15 と No.24 ,直径 6.8 cm 厚さ 1.8 cm)をデシケータに入れてシリカゲルで強制的に乾燥させ経過時間毎の重量変化を調べた。ただしこのサンプルは、この実験開始前の少なくとも 100 日間室内に放置していたので、浸透水は含まれていないと考えられる。

実験結果は両サンプルで同一で、5 日間で 0.05%、18 日間で 0.08% 脱水された(図 3)。この方法では容易に完了しないことが分かった。

次に、脱水したサンプルを室内に放置すると、脱水中止時の重量からほとんど変化は無く、50 日間経ても 0.005% の重量変化しか認められなかった。つまり、18 日間の強制脱水により 0.08% の水が失われ、常温常湿環境中では脱水前の状態に回復しないという結果になった。なお、粉末サンプルについて同様の脱水・吸湿実験を行って相違を見た。脱水・吸湿量はいずれも約 0.10% で、この間に失われる水は 0.01% 以下であり、関与した水の大部分は吸湿水であったことがわかる。

さて以上のことから、ブロックサンプルについてここで問題としている水成分が浸透水や H_2O (・)

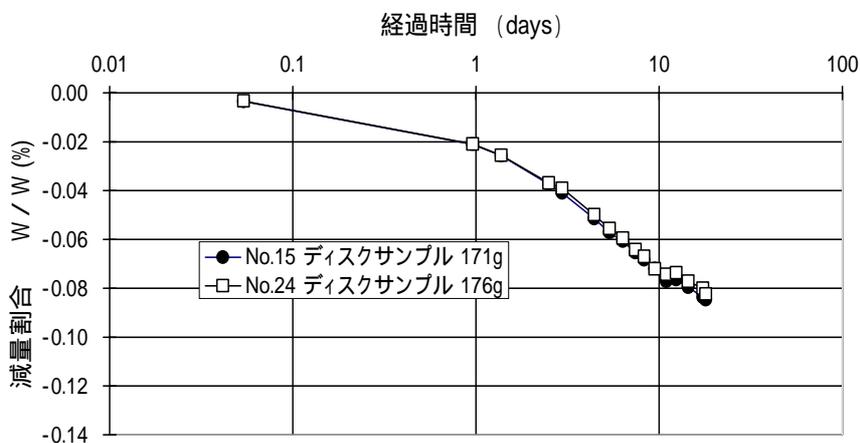


図3 デシケータ乾燥テスト

とも性質を異にするものであることは明らかである。 $H_2O^{(-)}$ が微粉末鉱物結晶などに含まれるミクロな層間水とすれば、この水成分は粗粒鉱物または鉱物間に存在するマクロな層間水と考えることができよう。この種の水成分を以後粗粒吸着水と呼ぶ。他のサンプルを用いたデシケータ中乾燥実験から、橋柱サンプルの粗粒吸着水の下限は 0.10% であった。

4 . ブロックサンプルに含まれる水の種類分け

以上3つの実験・考察の結果をまとめると次のように要約することができる。

- 1) ブロックサンプルについて、吸湿水は少量で無視できる。
- 2) ブロックサンプルに含まれる水の大部分は次の4種類、すなわち、浸透水、粗粒吸着水、吸着水($H_2O^{(-)}$)、化合物($H_2O^{(+)}$)で構成される。あるサンプルについてこれらの重量をそれぞれ順に、 W_p, W_b, W_-, W_+ とし、その和を W_{H_2O} 、水以外の成分の重量を W_s 、サンプル全重量を W_0 とすれば、次式が近似的に成り立つ。

$$W_0 = W_s + W_{H_2O}$$

$$W_{H_2O} = W_p + W_b + W_- + W_+$$

- 3) 橋柱サンプルについて浸透水 W_p の被爆時の量を推定することは至難である。ここでは飽和浸透水の測定量が分かっている(3.2節)ので、 W_{H_2O} としてこの値を加えない場合と加える場合の2値を示し、それぞれ下限と上限を与えることとする。

5 . W_{H_2O} の定量

5.1 $W_b + W_-$ の定量

粗粒吸着水(W_b)がデシケータ乾燥の方法ではその下限しか求まらないことをすでに述べた。そこで W_b を定量する代わりに次に述べる W_b と W_- との和で求める乾燥方法を採用した。

これは、ブロックサンプルを粉碎して全量を 105 加熱乾燥し、その前後の重量変化を測定するものである。まず、ブロックサンプルは 60 日以上室内で放置乾燥させる。これにより浸透水は全量除去されたと考える。このサンプルの重量 W_1 を測定したあと厚いビニール袋中で粉碎し、注意深い操作によりサンプル全量を秤ピンにとる。秤ピンに入れた微粒サンプルを高温加熱槽で 105 に熱し、減量が恒量となった時(約 4 時間)のサンプル重量を測定する。これを W_2 とする。 W_1 と W_2 はそれぞれ次式で表される。

$$W_1 = W_s + W_b + W_- + W_+$$

$$W_2 = W_s + W_+$$

従って両者の差は

$$W_1 - W_2 = W_b + W_- \quad (1)$$

と計算され、粗粒吸着水と吸着水($H_2O^{(\cdot)}$)の和が求まることになる。

実際には、サンプルを粉砕する過程でビニール袋に強く付着して秤ビンに移せない微量の粉末があるので、その量を測って初期重量 W_1 にその分の補正を行った。また、粉砕は最大粒径 0.3 mm 程度になるまでしか行っていないため、 $H_2O^{(\cdot)}$ 測定時のサンプル調整の状態(100 メッシュ以下)とは異なる。従って (1) 式には系統的誤差が含まれていると考えられる。

以上の手法を用いて 2 つの扇形サンプル(文献 1 のサンプル番号 E12 と E19 , 幅 2.0 cm 厚さ 1.8 cm)について行った測定の結果は次のとおりである。

$$\frac{W_b + W_-}{W_0} \times 100 \approx \frac{W_b + W_-}{W_1} \times 100 = 0.39\% \quad (E12)$$

$$= 0.23\% \quad (E19)$$

このデータを平均して、 $0.31 \pm 0.10\%$ を粗粒吸着水と吸着水($H_2O^{(\cdot)}$)の和とする。ただし、誤差は重量測定誤差と粒径に関する系統的誤差を含む。

5.2 W_b の定量

5.1 節の結果から、次に述べる 5.3 節の W_- データを差し引くと粗粒吸着水(W_b)は 0.18% となる。

この量は下限値 0.10% と矛盾しない。

5.3 W_- と W_+ の定量

3 個の扇形サンプル(文献 1 のサンプル番号 W3, W12, W19)について、カールフィッシャー滴定法による W_- と W_+ の測定を、川鉄テクノリサーチ(株)(千葉市)に依頼した。その結果、3 個のサンプルについてそれぞれ順に、 $W_- (H_2O^{(\cdot)})$ が $0.12, 0.13, 0.13\%$ 、 $W_+ (H_2O^{(+)})$ が $0.19, 0.20, 0.22\%$ であった。3 個のデータを平均して、橋柱のデータとして前者が $0.13 \pm 0.01\%$ 、後者が $0.20 \pm 0.01\%$ を得た。誤差は 1 つのデータに関する測定誤差 0.01% をそのまま平均値にも適用した。

5.4 合計含水率

浸透水を除く含水率は以上のデータを合計することにより $0.51 \pm 0.10\%$ と求められる。浸透水の最大値は吸水特性実験から $0.16 \pm 0.10\%$ であった。前にも述べたように、橋柱内における浸透水の保持量は環境因子で大きく変化し、また表面からの深さによっても異なるものと見られ、被爆当時の状態を再現して考察することは困難である。このため、被爆当時の橋柱の含水率として、上限・下限を設定するという考えに立てば、下限値は $0.51 \pm 0.10\%$ 、上限値は $0.67 \pm 0.10\%$ となる。中性子輸送計算には、結局、含水率としてこれらの中間値 0.59% を用いた。

6. 考察

岩石ブロック中の水分に関し、従来から知られていた鉱物中の水成分 2 種、吸着水($\text{H}_2\text{O}^{(-)}$)と化合水($\text{H}_2\text{O}^{(+)}$)に加えて、岩石表面が水に濡れたときに内部に浸透して保持される浸透水と、ブロック状態から粉末になる過程で遊離するマクロな吸着水(粗粒吸着水)を考慮する必要があることを示した。文献 2) で記述したように、この含水率を使った中性子輸送計算結果は、元安橋の ^{152}Eu 深さ分布について実測分布を完全には再現せず、実測凹分布よりやや浅い傾向を示した。著者の一人今中の予備的な計算によると、この分布の形は含水率に依存して変わり、たとえば含水率が 1.5 %程度であれば計算分布は実測分布をかなりよく再現することが分かっている。しかし今回の推定値 0.59 % は 1.5 % より十分小さく、また推定誤差もそう大きくないことから、計算と実測の違いは他の因子によるものと考えられる。例えば、岩石組成中計算で考慮した主組成成分 11 元素以外の中性子反応断面積が大きい微量元素の影響などである。

ここで取りあげたような岩石中の水分分析手法に関して、クロスチェックができる新たな手法開発を含め、さらなる発展が望まれる。

7. あとがき

広島原爆中性子の再評価研究に関連して、爆心地付近にあった大型花崗岩被爆試料(元安橋・橋柱)の中性子誘導放射能の深さ分布から中性子量を推定しようという試みがなされ、その過程で、岩石中の水分量をはかる必要が生じた。そこで、従来から地球化学分野で知られ確立している水分分析手法($\text{H}_2\text{O}^{(-)}$ と $\text{H}_2\text{O}^{(+)}$)を詳細に検討するとともに、さらにその範疇に入らない別の、この研究で浸透水、粗粒吸着水と名付けた、2 種の水成分があることを、橋柱岩石片を用いた含水特性実験により導びき出した。この手法で求めた含水率値は中性子誘導放射能 ^{152}Eu の深さ分布計算に用いられた。

参考文献

- 1) H. Hasai et al., Health Physics, Vol. 53, No.3, pp. 227-239, 1987.
- 2) S. Endo et al., J. Radiat. Res., Vol. 40, pp. 169-181, 1999.
- 3) 日本鉱物学会編、「実験鉱物学」、共立出版 1966 年。
- 4) W.M. Johnson, J.A. Maxwell, Rock and Mineral Analysis 2nd ed., John Wiley & Sons, New York, 1981.
- 5) 柴田秀賢編、「日本岩石誌 深成岩(2)」、朝倉書店 1967 年。
- 6) 地学団体研究会編、「新地学教育講座 4 岩石」、東海大学出版会、1984 年。
- 7) 日本工業規格、鉄鉱石中の化合水定量方法、JIS M8211, 日本規格協会、1984 年。
- 8) 日本工業規格、マンガン鉱石中の化合水定量方法、JIS M8231, 日本規格協会、1982 年。

Measurement of Water Component in the Granite Rock

K. Iwatani, H. Hasai, K. Shizuma, M. Hoshi, T. Oka, S. Endo, T. Imanaka

Abstract: Concerning reevaluation research of the Hiroshima atomic bomb neutron, there was the necessity of measuring amount of moisture in the exposure rock. The moisture analysis technique which is ever known in the geochemistry field is examined in detail and the water-content characteristic experiments were carried. It was deduced that there were other two kinds of component of the conventional water content as a result.