

東北地方産碎石のアルカリ反応性と判定法の検討

Alkali-Silica Reactivity of Crushed Stone Produced in TOHOKU District
and Considerations on Estimation to Alkali Aggregate Reaction

大塚 尚寛*・関本 善則**

by Naohiro OTSUKA, Yoshinori SEKIMOTO

1. はじめに

アルカリ骨材反応に起因するコンクリート構造物の劣化が、阪神地区を中心に報告されて以来、わが国でもこの問題が注目を集めるようになり、多くの調査、研究が行われてきている^{1)・2)}。現在では、コンクリート用骨材については、アルカリ反応性試験の実施が義務づけられており、東北地方産碎石のなかにもアルカリ反応性試験、特に化学法による試験の結果、有害と判定されるものはいくつかみられるようになってきた。しかし、それらの碎石の多くは、これまでコンクリート用骨材としての使用実績があり、実際に構造物に被害を生じている例は殆どみられない。

したがって、漸減し続ける良質の天然骨材資源事情を考慮すると、将来に向かってますます需要増加が見込まれる碎石のアルカリ反応性について、事前に調査を行い、実態を正確に把握しておくことが重要と思われる。また、限りある骨材資源を有効に利用するためには、現行の試験法のように、単に「無害・有害」の判定を行うだけでなく、コンクリート用骨材としていかに使用するかを示し得る評価法の確立が望まれる。

そこで本研究では、青森、岩手、秋田、宮城、福島、山形の東北6県で産出されている碎石のアルカリ反応性を調べるとともに、反応性の判定法についても若干の検討を行ったので、これらの結果について報告する。

2. 試料ならびに試験方法

2.1 試料

表1は、アルカリ反応性を調べた碎石の試料数を、県別、岩石名別に示したものである。今回試験に供した試料は、(社)日本碎石協会東北地方本部の協力を得て、東北6県下の事業所より送付された碎石試料である。各県別の試料数は、青森県23試料、岩手県24試料、秋田県44試料、宮城県21試料、福島県25試料、山形県8試料の合計145試料である。

岩石別の内訳は、東北地方では安山岩を稼行対象とする事業所が圧倒的に多いことから、アルカリ骨材反応で

表1 碎石試料の産地および岩石名

岩石名	青森県	岩手県	秋田県	宮城県	福島県	山形県	計
安山岩	17	8	38	7	7	7	84
砂岩	2	2	0	9	8	1	22
輝緑岩	2	6	0	1	1	0	10
玄武岩	0	0	2	2	2	0	6
粘板岩	0	3	0	2	0	0	5
角閃岩	0	1	0	0	2	0	3
ホルンフェルス	0	1	0	0	2	0	3
流紋岩	1	0	1	0	0	0	2
輝緑凝灰岩	1	1	0	0	0	0	2
橄欖岩	0	1	0	0	1	0	2
玢岩	0	0	0	0	2	0	2
花崗岩	0	0	1	0	0	0	1
石英斑岩	0	0	1	0	0	0	1
ケラトファイヤー	0	1	0	0	0	0	1
輝緑変成岩	0	0	1	0	0	0	1
合計	23	24	44	21	25	8	145

特に問題になることの多い安山岩が84試料を占めている。その他、砂岩22試料、輝緑岩10試料、玄武岩6試料、粘板岩5試料、角閃岩、ホルンフェルス各3試料、流紋岩、輝緑凝灰岩、橄欖岩、玢岩各2試料、花崗岩、石英斑岩、ケラトファイヤー、輝緑変成岩各1試料である。

2.2 試験方法

碎石試料のアルカリ反応性を判定する試験方法は、JIS A 5308 (骨材のアルカリシリカ反応性試験方法)の化学法およびモルタルバー法に準拠した。

JISのモルタルバー法では、セメント中のアルカリ量を、水酸化ナトリウムの添加により、等価酸化ナトリウム(Na₂O)当量で1.2%とすることとなっている。しかし本研究では、セメント中のアルカリ量を2.0%と多くし、反応を促進させる(以後、促進法と呼ぶ)ことによって、モルタルバー法の迅速化を図ることを試みた。

また、岩石・鉱物学的試験として、粉末X線回折法により骨材中のアルカリ反応性鉱物の同定を行った。

3. 試験結果ならびに考察

3.1 化学法による試験結果

図1は、東北地方産碎石145試料について実施した化学法の結果を、アルカリ骨材反応性有害度の判定図にプロットしたものである。

化学法における判定区分は、従来、図中の点線で示した判定基準線(1986年10月JIS制定)が用いられていた。

* 岩手大学工学部 建設環境工学科 助教授(〒020 盛岡市上田4丁目3-5)

** 同 教授

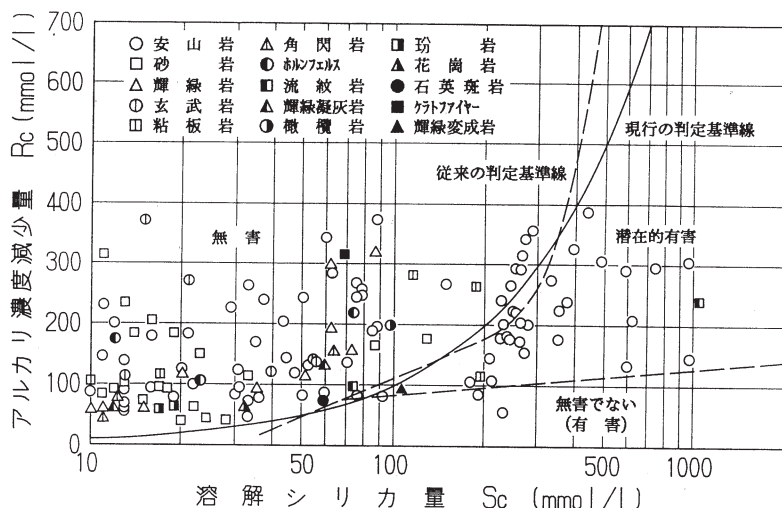


図1 アルカリ骨材反応性有害度の判定図

この判定基準によれば、115試料が無害、28試料が潜在的有害、2試料が有害と判定された。潜在的有害と判定された28試料の内訳は、安山岩25試料、粘板岩、流紋岩、輝緑変成岩各1試料であり、有害と判定された2試料はともに安山岩である。

しかし、従来の判定基準線は、米国のASTM規格をそのまま適用したものであり、わが国の骨材には必ずしも合致しないことが指摘されてきた^{3), 4)}。そこで、1989年12月にJISの判定基準の改正が行われた。従来の規格との主な相違点は、溶解シリカ量 $Sc \geq 10$ (mmol/l)でアルカリ濃度減少量 $Rc < 700$ (mmol/l)のとき、 $Sc \geq Rc$ の場合を「無害でない(有害)」とし、それ以外を「無害」と判定すること、また、潜在的有害と有害とに区分する判定線を削除し、無害と有害だけに区分することである。

現行の判定基準によれば、145試料中113試料が無害、32試料が有害と判定される。なお、新判定基準により、安山岩3試料が無害から有害へ、1試料が潜在的有害から無害へと判定結果が変わった。

表2は、化学法の試験結果を、試料数の多い5岩種について比較したものである。溶解シリカ量 Sc についてみると、安山岩が他の岩種よりかなり大きいことが特徴的である。例えば、堆積岩系骨材である砂岩と比較すると、最大値で8倍、平均値でも7倍程度大きく、アルカリに溶解し易いシリカ鉱物等が多く含まれているものと思われる。一方、アルカリ濃度減少量 Rc では、安山岩と他の岩種との相違はあまりみられず、いずれの岩種もほぼ同程度の値であることがわかる。これは、アルカリ濃度減少量には、シリカの溶解に関与せず、骨材への吸着等に消費されるアルカリ量が含まれていることを意味しているものと思われ、化学法の問題とされている点⁵⁾である。

したがって、 Sc/Rc の比で反応性を判定すると、 Sc の値が他の岩種に比べて大きい安山岩が、84試料中

29試料も有害と判定されることになる。アルカリ骨材反応を起こし易い岩石としては、従来より安山岩が挙げられているが、化学法による判定結果からだけみれば、東北地方産砕石についてもこの傾向がみとめられた。

化学法は、試験条件や判定基準の適合性など多くの問題点が指摘されており⁶⁾、前述のように判定基準の改正が行われたが、改正された判定基準も従来の基準と本質的には殆ど変わらない。しかし、化学法はその迅速性がゆえに現在最も多く採用され、かつ単独で行われる場合が多い。化学法による判定結果が絶対的なものでないにも関わらず、化学法で

有害と判定されたものは、即、反応性骨材として排除されているのが現状である。

表2 岩種別の化学法による試験結果の比較

岩 石 名	安山岩	砂 岩	輝 綠 岩	玄 武 岩	粘 板 岩	
試 料 数	84	22	10	6	5	
Sc (mmol/l)	最 大	973	127	85	55	194
	最 小	8	8	10	13	10
	平 均	171	25.6	41.9	32.8	103
	標準偏差	192	27.1	25.9	17.5	78.5
Rc (mmol/l)	最 大	392	313	318	371	281
	最 小	49	40	58	113	104
	平 均	186	123	147	192	175
	標準偏差	86.5	68.4	90.9	96.0	79.0
Sc/Rc	最 大	6.66	0.72	0.45	0.40	1.70
	最 小	0.04	0.04	0.17	0.04	0.10
	平 均	0.92	0.25	0.28	0.23	0.61
	標準偏差	1.06	0.21	0.10	0.15	0.59
判定結果	無 害	55	22	10	6	4
	有 害	29	0	0	0	1

3.2 モルタルバー法による試験結果

モルタルバー法の最大の欠点である判定期間の短縮化を図る目的で、反応が早期に進行し、骨材の潜在的な反応性も顕在化し易いように、セメント中のアルカリ量を2.0%と多くした試験を行った。試料は、化学法で有害と判定された32試料および無害と判定された19試料の計51試料を用いた。

図2は、モルタルバー促進法による膨張量の経時変化の一例を示したものである。

図中、A1～A7は安山岩で、化学法で有害と判定されたものである。安山岩では、A1、A3、A4のように初期より急激な膨張が始まり、材令2週ですでに膨張量が0.1%を越え、材令3ヶ月ではJISの判定基準をはるかに上回るもの(TYPE I)。A2、A5のように材令初期には顕著な膨張は示さないが、1～2ヶ月目に急激な膨張を示し、材令3ヶ月目ではJISの判定基準をはるかに上回るもの

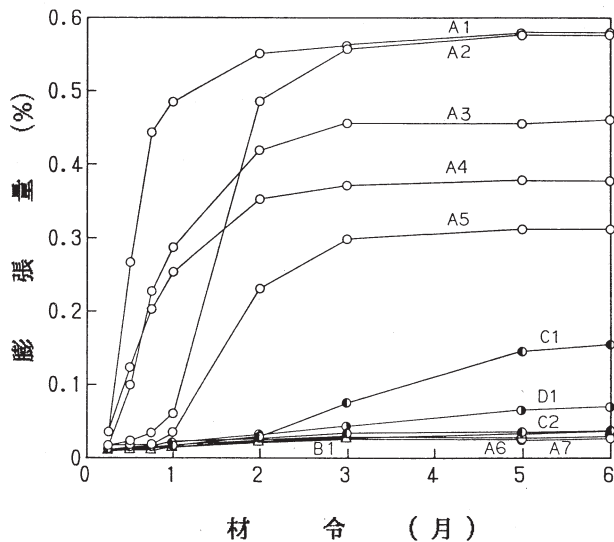


図2 モルタルバー促進法による膨張量の経時変化

(TYPE II)。A6、A7のように膨張量の増加は緩やかで、材令6ヶ月での膨張量も0.1%未満で、JISの判定基準を満たすもの (TYPE III) の3タイプに分類される。なお、いずれのタイプも、材令3ヶ月を過ぎると膨張量の増加は殆どみとめられない。

今回、促進法による試験を行った安山岩33試料のうち、化学法で無害と判定された4試料はすべてTYPE IIIに、また、有害と判定された29試料のうち11試料がTYPE I、6試料がTYPE II、12試料がTYPE IIIに分類された。

一方、B1の砂岩、C1、C2の粘板岩、D1の輝緑凝灰岩などの堆積岩系の骨材では、膨張量に差はあるものの増加傾向はいずれも緩やかで、材令6ヶ月の膨張量も、C1の粘板岩を除いて、0.1%未満である。しかし、安山岩と異なり材令3ヶ月以降も膨張量が増加する傾向がみられる。したがって、堆積岩系の骨材に関しては、有害な膨張を示すまでの期間が安山岩よりも長期にわたるということも考えられ、有害性の判定には注意を要すると思われる。

モルタルバー法は、反応性骨材を用いたモルタル供試体の膨張量を計る試験法であり、比較的信頼性は高いが、判定結果を得るのに長期間を要するという問題がある。例えば、JIS規格では、材令3ヶ月で0.05%以上の膨張を示した場合は有害としてもよいが、3ヶ月で0.05%未満のものは6ヶ月まで試験を続け、0.1%未満の場合は無害、それ以上の場合は有害と判定することになっている。つまり、無害と判定するまでに6ヶ月もの時間を要することになる。しかし、今回実施した促進法では、安山岩に関しては、膨張は早期に進行し、材令3ヶ月以降では膨張量の増加が殆どみられなくなる傾向がみとめられた。

図3は、安山岩の材令3ヶ月の膨張量と6ヶ月の膨張量とを比較したものである。図のように、材令3ヶ月の膨張量と6ヶ月の膨張量は良い相関を示し、その関係は次式で表される。

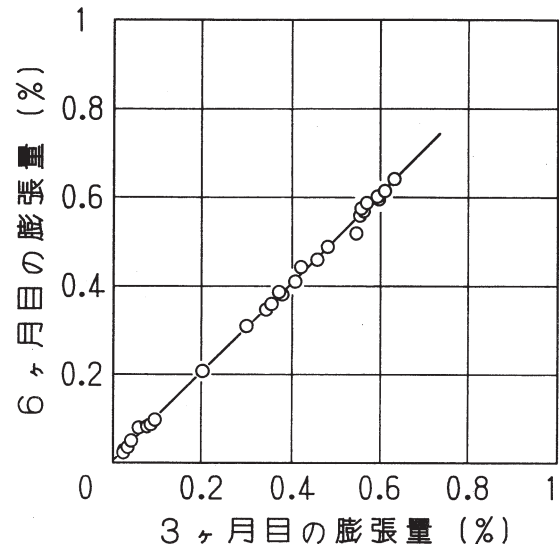


図3 材令3ヶ月と6ヶ月の膨張量の比較

$$E_6 = 1.001E_3 + 0.0055$$

$$(r = 0.999 : n = 33)$$

ここで、

E_6 : 材令6ヶ月の膨張量(%)

E_3 : 材令3ヶ月の膨張量(%)

また、輝緑岩に関しても、膨張量そのものは小さいが、安山岩と同様の傾向がみとめられた。すなわち、これらの骨材については、促進法を用いれば反応が早期に進行し、材令3ヶ月で膨張はほぼ収束するものと思われる。したがって、今回試験した安山岩および輝緑岩に関しては、化学法で有害と判定された骨材でも、材令3ヶ月における膨張量が0.05%未満であれば、この時点で無害と判定して良いものと考えられる。このことから、無害の判定結果を得るまでの期間を、現行の6ヶ月から3ヶ月に短縮できる可能性が示唆されたといえる。

3.3 化学法とモルタルバー法との判定結果の比較

図4は、モルタルバー促進法による材令3ヶ月の膨張量を、0.05%未満、0.05~1.0%、0.1~0.3%、0.3~0.5%、0.5%以上の5段階に区分して、化学法の判定図にプロットしたものである。

高アルカリ条件下にある促進法においても、化学法で無害と判定された試料は、材令3ヶ月の膨張量はすべて0.05%未満である。また、有害と判定された試料のうちでも7試料が、0.05%未満である。これらの骨材はアルカリ量が相当高いセメントと組み合わせて使用しても安全と考えられる。一方、化学法で有害と判定された32試料のうち、安山岩23試料、粘板岩、流紋岩各1試料の計25試料が、材令3ヶ月で0.05%以上の膨張を示した。

化学法とモルタルバー促進法による判定結果を比較すると、有害・無害の区分のみでみる限りは、比較的よい

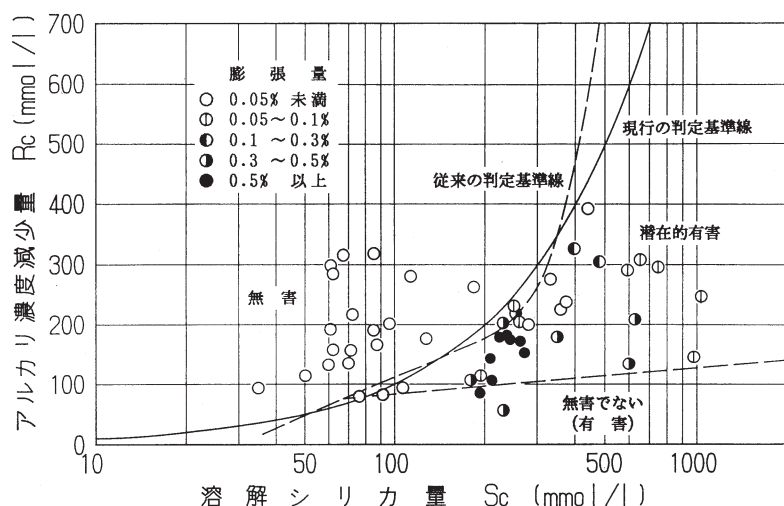


図4 促進法による材令3ヶ月の膨張量

一致を示している。しかし、化学法で有害と判定された試料の膨張量をみると、溶解シリカ量の大きい試料が必ずしも、より大きな膨張量を示す傾向はみられない。なお、 $Sc = 200 \sim 300$ (mmol/l)、 $Rc = 100 \sim 200$ (mmol/l) の付近に、0.5%以上の大きな膨張量を示す試料がみられるが、これらはいずれも安山岩で、同一地域で産出されているものである。

図5は、安山岩について、溶解シリカ量とモルタルバー促進法における材令3ヶ月の膨張量との関係を示したものである。図より、ばらつきは大きいが全体的には、 Sc が大きくなるほど膨張量が小さくなる傾向がみられる。このことは、化学法とモルタルバー促進法の結果を数字で比較すると相反する評価を得ることになり、有害・無害程度の一致はあっても、化学法から反応性を定量的に評価することは難しいことを示唆しているものと考えられる。

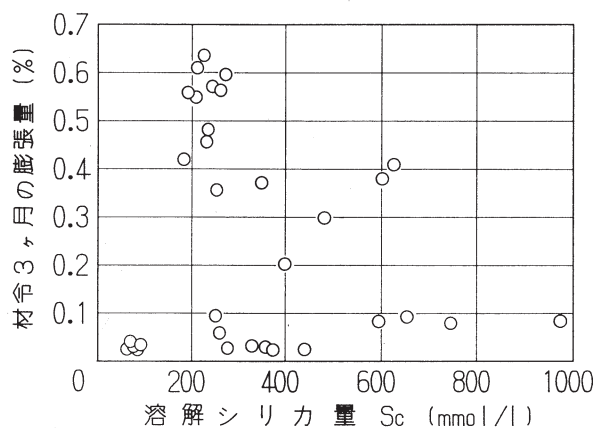


図5 溶解シリカ量と材令3ヶ月の膨張量との関係

今回行った促進法は、アルカリ量が2.0%と高いので、材令3ヶ月で0.05%以上の膨張を示したからといって、直ちにこれらの骨材を有害と判定できない。

図6は、これらの試料について無添加法で試験を行った結果を、化学法の判定図にプロットしたものである。安山岩1試料が材令6ヶ月で0.1%以上の膨張量を示し有害と判定されたが、他の試料はすべて材令6ヶ月の膨張量が0.1%未満であった。また、促進法では材令3ヶ月で0.5%以上の大きな膨張を示した試料も、無添加法では材令6ヶ月の膨張量はすべて0.05%未満であった。これらの試料は、高アルカリ条件下では反応性が顕

在化するが、通常のセメント中のアルカリ量では有害な膨張は示さないものといえる。

図7は、安山岩について、溶解シリカ量とモルタルバー無添加法による材令6ヶ月の膨張量との関係を示した

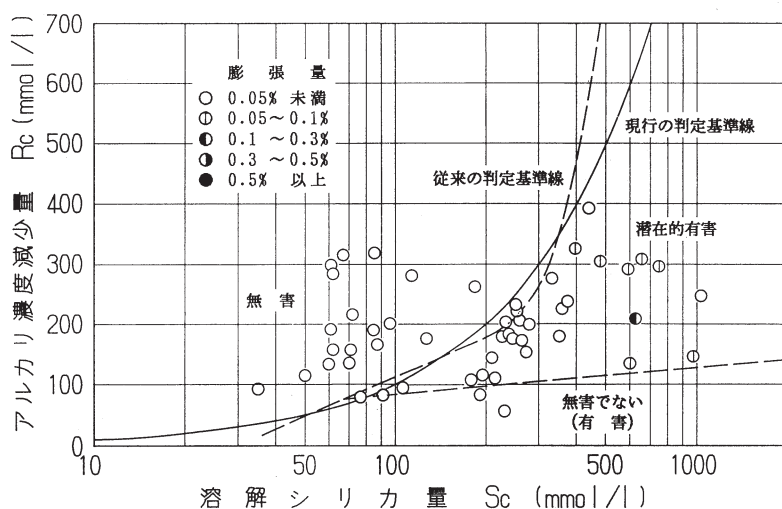


図6 無添加法による材令6ヶ月の膨張量

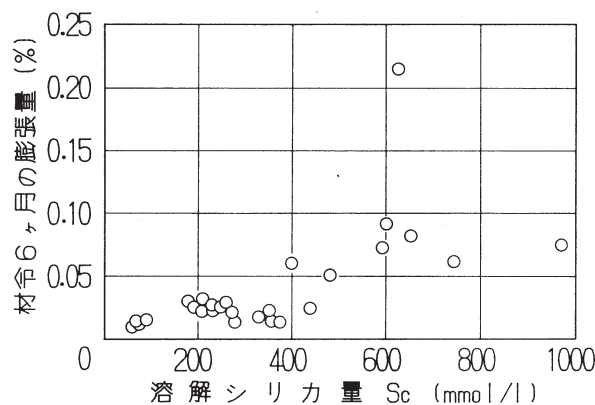


図7 溶解シリカ量と材令6ヶ月の膨張量との関係

ものである。

図より、ばらつきはあるものの、溶解シリカ量が大きくなるほど膨張量が大きくなる傾向がみられる。今回モルタルバー無添加法による試験を行った安山岩に関しては、溶解シリカ量から材令6ヶ月の膨張量のある程度推定することが可能であると考えられる。例えば、溶解シリカ量が500(mmol/l)程度以上のものは、材令6ヶ月の膨張量が0.1%以上になり、有害と判定される可能性が高いと思われる。

3.4 岩石・鉱物学的試験結果

粉末X線回折法により反応性シリカ鉱物を同定した結果、モルタルバー促進法において材令3ヶ月で0.05%以上の膨張を示した25試料のうち、安山岩23試料すべてにアルカリと反応して溶解し易い不安定なシリカであるクリストバライトやトリジマイトの存在がみとめられた。

表3は、シリカ鉱物のなかでもアルカリ反応性を支配するといわれるクリストバライトについて、含有量の目安を+++>++>+および±(同定されない)に分類し、化学法の結果と比較したものである。

表より、クリストバライトの含有量が多いほど、溶解シリカ量が大きい傾向がみられ、溶解シリカ量にクリストバライトが大きく関与していると考えられる。一方、アルカリ濃度減少量については、クリストバライト含有量の大小による差が少ない。この点からも、アルカリ濃度減少量にはシリカ鉱物の溶解に関与せず、骨材への吸着等に消費されるアルカリ量が含まれていることが推察される。

化学法で有害と判定された試料は、+++が24試料と圧倒的に多く、クリストバライトが反応性試験の結果に影響を与える要因であることが明かである。しかし、+++のなかでも19試料が無害と判定されていることや、±の方が+より溶解シリカ量が全体的に大きいなど、ク

表3 クリストバライト含有量と化学法の結果との比較

クリストバライト		+++	++	+	±	
試料数		43	47	12	43	
Sc (mmol/l)	最大	1030	625	29	194	
	最小	21	11	8	4	
	平均	244	123	15.5	33.0	
	標準偏差	227	163	5.8	36.0	
Rc (mmol/l)	最大	392	374	226	347	
	最小	57	49	73	40	
	平均	200	171	123	138	
	標準偏差	80.3	92.9	47.3	83.2	
Sc/Rc	最大	6.66	4.49	0.21	1.70	
	最小	0.08	0.04	0.07	0.04	
	平均	1.30	0.66	0.13	0.28	
	標準偏差	1.22	0.79	0.04	0.30	
化学法の 判定結果		無害	19	40	12	42
		有害	24	7	0	1

注) 含有量の目安として、+++>++>+>±

リストバライト以外のシリカ鉱物や他の共存鉱物が、反応性に影響を及ぼしていることが考えられる。

粉末X線回折によるクリストバライトの同定は、骨材のアルカリ反応性を知る上で有効な方法である。しかし、回折線のメインピークと斜長石のピークが $2\theta=22^\circ$ 付近で重なり判別が難しい場合があり、特に安山岩にこの例が多い。そこで、クリストバライトが水酸化ナトリウムに溶解する性質を利用して、化学法による反応操作を行ったあとの残滓について粉末X線回折を行い、メインピークの回折強度の減少から、クリストバライトの含有量の大小を求めてみた。

図8は、シリカ鉱物の回折強度比と反応処理時間との関係を示したものである。なお、回折強度比とは、未処理試料の回折強度に対して、所定時間反応処理した試料の回折強度の比を百分率で示したものである。

図をみると、アルカリに溶解し易い不安定なシリカといわれるクリストバライトやトリジマイトの回折強度比は、反応処理時間が3時間ですでに80%程度に低下し、クリストバライトについては6時間、トリジマイトについても12時間で回折強度比の低下は収束する傾向がみられる。これに対して、石英は小さなばらつきはあるものの回折強度に低下はみとめられない。

これらのことから、通常の化学法での反応処理時間24時間では、骨材に含まれるクリストバライトはほぼ溶解しており、回折強度比の減少から含有量の大小をより正確に推定することが可能と考えられる。

表4は、クリストバライトの回折強度減少量により、モルタルバー促進法における安山岩試料の膨張タイプを分類したものである。

表より、材令初期より膨張が急激に進行するが、早期材令で膨張が収束するTYPE Iに属するもののほとんどは、クリストバライトの回折強度比の減少量が大であることがわかる。また、材令初期には顕著な膨張は示さないが、1~2ヶ月目に急激な膨張を示すTYPE IIでは、

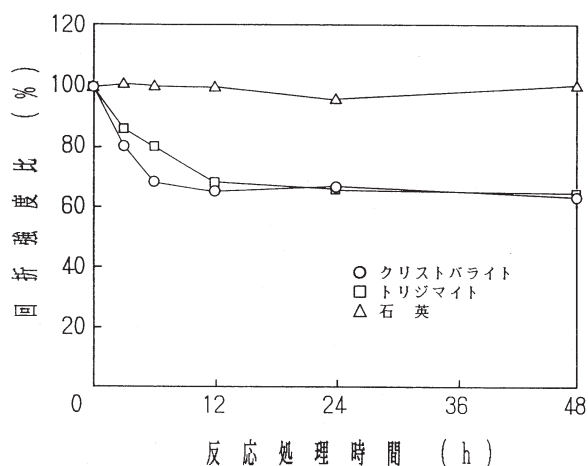


図8 回折強度比と反応処理時間との関係

表4 回折強度減少量による膨張タイプの分類

回折強度減少量		大	中	小	なし
膨張タイプ	TYPE I	10	1	0	0
	TYPE II	3	3	0	0
	TYPE III	4	8	1	3

注) 回折強度減少量 回折強度比
 大 ～ 70(%)
 中 70～ 90(%)
 小 90～100(%)

クリストバライトの回折強度比の減少量は、大、中が半々である。

これらのことから、クリストバライトの含有量は、モルタルバーの膨張に大きく関与していると考えられる。しかし、膨張量の増加が緩やかである TYPE III では、回折強度比の減少量が大きいものから減少しないものまでみられる。モルタルバーの膨張量や膨張パターンに影響を与える因子は、クリストバライトの含有量ばかりでなく、その他の鉱物の含有率や結晶度などのほか、火山ガラスの存在も大きいと考えられる。

4. まとめ

東北地方産砕石のアルカリ反応性について調べ、反応性の判定法についても検討を行った。その結果を要約すると以下のとおりである。

- (1) 東北地方産砕石 145試料について、アルカリ反応性を調べた結果、化学法では、113試料が無害、32試料が有害と判定された。
- (2) アルカリ量を 2.0%としたモルタルバー促進法を用いれば、安山岩および輝緑岩に関しては、無害の判定結果を得るまでの期間を、現行規格の6ヶ月から3ヶ月に短縮できる可能性が示唆された。
- (3) モルタルバー法による結果は、促進法では有害な膨張を示すものがみられたが、無添加法では安山岩 1試料のみが最終的に有害と判定された。
- (4) 化学法とモルタルバー法の結果を比較したところ、促進法では有害・無害の区分のみでみた限りでは比較的良い一致を示した。一方、無添加法では化学法の判定基準は安全側に判定し過ぎるものと判断された。
- (5) 岩石・鉱物学的試験では、化学法やモルタルバー促進法で有害と判定された試料の多くに、クリストバライトやトリジマイト等の不安定シリカが存在が確認された。しかし、これらを含まない試料にも反応性を示すものがあり、不安定シリカ以外にも火山ガラスなど、アルカリ骨材反応に関連する鉱物が存在する可能性を否定できない。

以上のように、化学法やモルタルバー促進法では、安山岩が反応性鉱物を含む確率が高いため、有害と判定さ

れるものが多くみられた。しかし、潜在的な反応性を有する骨材でも、通常の使用状態では有害な膨張を示さないことが、モルタルバー無添加法の結果からも明らかである。したがって、東北地方産砕石に関しては、過去の使用実績からもコンクリート構造物に損傷を与えているものではなく、アルカリ骨材反応による被害を生じる可能性があるものは僅少であるといえる。

【参考文献】

- 1) 小林一輔：「コンクリート構造物の早期劣化と耐久性診断」，コンクリート構造物の耐久性診断シリーズ第1巻，森北出版，1991
- 2) 小林一輔・丸 章夫・立松英信：「コンクリート構造物の早期劣化と耐久性診断」，コンクリート構造物の耐久性診断シリーズ第2巻，森北出版，1991
- 3) 森野奎二：アルカリ反応性骨材の判定試験実施時の注意と問題点，骨材資源，No.67，pp.123～132，1985
- 4) 池崎浩三・山田 優・真嶋光保：骨材のアルカリ反応試験におけるモルタルバー法と化学法の関係，骨材資源，No.77，pp.10～17，1988
- 5) 佐々木孝彦・水野 清：化学法における判定と問題点，資源・素材学会関係学協会合同秋季大会講演要旨集，0-11，pp.39～42，1988
- 6) 立松英信、佐々木孝彦：コンクリート用骨材評価法の問題点と改良 -改良化学法の開発-，JREA，Vol.32，No.12，pp.40～43，1989
- 7) 立松英信、佐々木孝彦、水野清：コンクリート用骨材の有効利用について -改良化学法の活用-，建設用原材料，Vol.1，No.2，pp.7～13，1991