

十和田凝灰岩のアルカリ環境下における 強度劣化メカニズムの解明

CLARIFICATION OF THE STRENGTH DETERIORATION MECHANISM
OF TOWADA TUFF IN AN ALKALINE ENVIRONMENT

今井忠男*、小玉聡**、木崎彰久***、山本茂樹****

by Tadao IMAI, Satoshi KODAMA, Akihisa KIZAKI and Sigeki YAMAMOTO

1. はじめに

秋田県大館市において、地下採掘を行なっている十和田凝灰岩の採石場では、岩盤の劣化が早く、**図1(a)**のように、坑口付近では多くの亀裂が確認されており、保安上の大きな問題となっている。そのため、2019年には、坑口に**図1(b)**のような支保枠を設置して、採石場の安全対策を進めている。

これまで凝灰岩の風化については、いくつかの研究例があるが、風化の速度について論じたものは少ない。日本国内には、大谷石をはじめとする緑色凝灰岩の建材が多く利用されており、石材の外壁が、建築年から比較的早い時期に風化が進んでいることが観察されている。構造物の安全上、石材としての緑色凝灰岩の風化については、より詳細に研究し、安全対策を進めなければならない。

そこで本研究では、風化による十和田凝灰岩の強度劣化メカニズムの解明を目的とし、凝灰岩の化学的劣化試験を行い、その強度および物性変化について調べた。具体的には、岩石試料をアルカリ溶液に浸漬し、シリカを溶脱させた。さらにシリカが溶脱した後の空隙の増加した岩石試料について、引張試験を行い、凝灰岩の強度劣化のプロセスについて解明した。



図1(b)の支保枠
管理状況

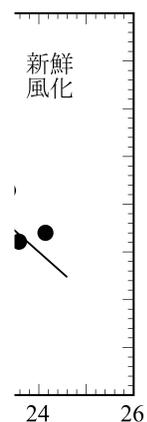


図2 空隙率との関係²⁾

が小さく、空隙率は約20%、圧縮強度は約65MPaであった。これに対し、風化試料では、空隙率と圧縮強度とに負の相関があることがわかった。この結果から、風化作用によって凝灰岩の空隙は増加し、強度が低下することがわかった。この実験データを線形近似すると、空隙率が約1%増加すると圧縮強度は約10%減少すると推定される。以上の結果から、短期間に凝灰岩の空隙率を増加させるような化学的風化作用が、強度劣化を引き起こしていると推察される。

2.2 強度と不均一な岩石組織との関係

図3に十和田凝灰岩の外観を示す。十和田凝灰岩は大部分を占める色の薄い組織(白色部)と濃い緑色に変質し緑泥石化した部分(斑状組織)から成って

いる。また、白色の点は方解石の結晶である。これまでの著者らの研究では、斑状組織の強度は極めて小さく、十和田凝灰岩の強度は、破断面における白色部と斑状組織の面積割合(斑状組織含有率)に従うことがわかってきている²⁾。よって、十和田凝灰岩の強度の評価においては、破断面の斑状組織含有率を測定し、その補正をする必要がある。

2.3 アルカリ溶液によるシリカの溶脱反応

表1に十和田凝灰岩の化学分析値を示す。岩石組織全体の70%以上が火山ガラスのシリカ(SiO₂)で構成されている。また、十和田凝灰岩には、Na、Ca、Kなどのアルカリ金属が多く含まれていることか

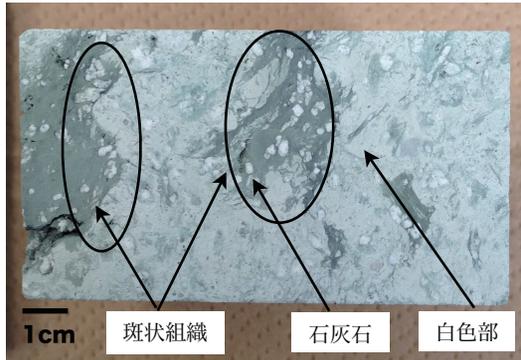


図3 十和田凝灰岩の岩石組織

表1 試料岩石の化学組成

化学組成	割合(%)
SiO ₂	72.1
Al ₂ O ₃	12.7
Na ₂ O	4.1
Fe ₂ O ₃	3.2
K ₂ O	2.3
CaO	1.3
MgO	1.0
TiO	0.5
その他	2.78
合計	100

表2 十和田凝灰岩の化学的風化プロセス

反応段階	反応式
アルカリ溶液の生成	$\begin{pmatrix} \text{Ca}^{2+} \\ \text{Na}^+ \\ \text{K}^+ \end{pmatrix} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \begin{matrix} \text{Ca(OH)}_2 \\ \text{NaOH} \\ \text{KOH} \end{matrix} + \text{H}_2$
シリカの溶脱	$\text{SiO}_2 + 2\text{NaOH} \rightarrow 2\text{Na}^+ + \text{SiO}_3^{2-} + \text{H}_2\text{O}$

ら、新鮮な十和田凝灰岩は、弱アルカリ(pH=9)を示すことがわかっている。ここで、本凝灰岩の主要骨格は、微細な繊維状の火山ガラスであり、空隙構造が極めて微細で、透水性が極めて低いことから、平均空隙径は約0.5μmと推定される³⁾。このような構造の凝灰岩が化学的に風化し、強度が低下するには、主要骨格である火山ガラスを溶解させる必要があると考えた。

そこで、我々は表2に示すような、十和田凝灰岩の化学的風化プロセスを仮定した。本試料は、坑内水や天水の浸透によって、岩石中からアルカリイオンが溶出し、アルカリ溶液を生成すると考えられる。このアルカリ溶液は、火山ガラスなどの非晶質シリカを溶解すると考えられる。以上のプロセスにより、アルカリ溶液が十和田凝灰岩の主骨格である非結晶のシリカを溶脱させ、空隙率が増加すると仮定した。本研究では、この化学風化のプロセスを迅速に反応させるため、岩石試料を高濃度および高温のアルカリ溶液に浸出させ、反応時間と岩石物性の変化を調べた。

3. 研究方法

3.1 岩石試料

実験には、表3に示すような新鮮試料と風化試料を用いた。風化試料の平均空隙率は29%であり、目視から、かなり風化が進んでいる試料と推察される。これらの岩石試料を、図4に示すような引張試験用の試験片に加工した(図4(a))。試験片の形状は四角柱とし、寸法は断面を10mm×10mm、長さを30mmとした(図4(b))。この試験片の両端を内径φ14mmのアルミ管に6mm挿入し樹脂で固定した(図4(c))。

3.2 一軸引張試験法

本研究では、岩石の強度特性を評価するために、単純引張試験をおこなった。単純引張試験は、ねじりや曲げ応力が生じやすく、難しい試験であるが、材料の欠陥(空隙、亀裂等)に最も敏感に反応するため、今回の実験には適している。本実験では、図5に示すように、試験片の両端部に固定したアルミパイプにシャックルを通し、チェーンを接続して材料試験機のチャックで固定した。このチェーンによって、ねじりは生じない。さらに、引張力の中心軸の精度を上げて、曲げ変形を抑えた。また引張試験の変位速度は0.01mm/sとし

表3 十和田凝灰岩の基礎物性値

岩石の状態	空隙率[%]	比重
新鮮	18.9	2.07
風化	29.0	1.86

た。

3.3 破断面の画像解析法

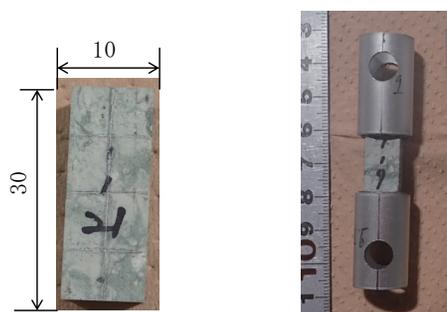
十和田凝灰岩の強度は、破断面における斑状組織の含有率に従うため²⁾、画像処理によって斑状組織含有率を測定した。はじめに、表4に示す撮影条件で、図6に示すように、破壊後の試験片(図6(a))の破断面を撮影し(図6(b)、(c))、画像解析ソフト「ImageJ」により、表4に示す条件で斑状組織(濃緑色部)を抽出して二値化し(図6(d))、黒色部の面積率を計算した。

3.4 岩石の劣化実験(シリカ溶脱実験)

風化状態を促進させるため、本試料を5mol/Lの水酸化ナトリウム水溶液を用いて、表5の条件で凝灰岩の基本骨格である火山ガラス(シリカ)を溶解させた。具体的には、新鮮試料の試験片1個を25mlのアルカリ水溶液中に浸し、温度80℃の恒温槽内で、1~48時間反応させ、シリカを溶脱させた。図



(a) 新鮮岩試験片の一覧(28個)



(b) 角柱試験片のサイズ

(c) 試験片の治具固定

図4 実験に用いた試験片

表4 画像の撮影および解析条件

レンズ	照度	f値	ss値	二値化閾値
35 mm	4000 lx	32	1/5	110

表5 アルカリ溶液による劣化試験の条件

アルカリ溶液 [mol/L]	容量[mL]	温度[℃]	時間[h]	岩石試料[g]
5 (水酸化ナトリウム)	25	80	2~48	約6

7(a)(b)に劣化試験における試験片および溶液の変化を示した。反応試験後、試験片は、80℃の温水中に浸し、アルカリ溶液を排出させたのち、室内で乾燥させ、自然状態にした。反応後の試験片は、乾燥質量の減量、空隙率、引張強度の測定を行った。ここで、100℃で24時間乾燥状態を乾燥質

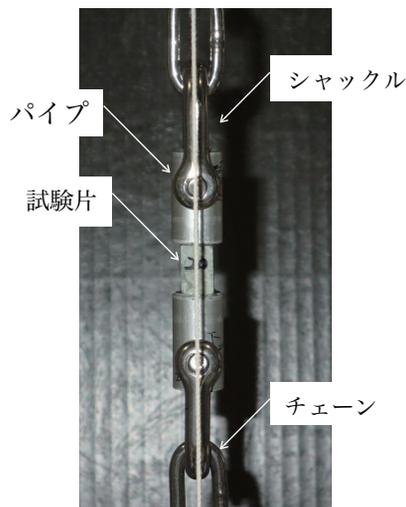
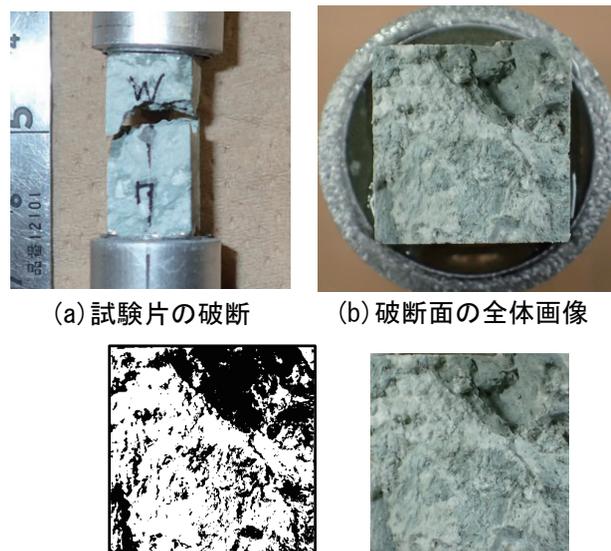


図5 一軸引張試験システム



(a) 試験片の破断

(b) 破断面の全体画像



(d) 破断面の二値化



(c) 破断面の切取り

図6 画像処理による斑状組織率の測定



(a) 劣化試験前(0h) (b) 劣化試験後(48h)

図7 劣化試験での試験片の変化

量とし、岩石の密度試験法(JGS 2132)によって試験片の空隙率を測定した。また、反応後のアルカリ溶液中については、モリブデン青比色法により溶解シリカの濃度を測定した。

4. 実験結果

4.1 新鮮試料の一軸引張強度と斑状組織含有率

新鮮試料について、斑状組織が少ない試験片から斑状組織のみの試験片まで、出来るだけ斑状組織の含有率が幅広く分布するように試験片を作成し、一軸圧縮試験をおこなった。その結果、図8に示すように、破断面における斑状組織含有率の増加にしたがって、引張強度は指数関数的に低下することがわかった。とくに、斑状組織含有率は、最も少ない試験片でも22%程度で、その最大強度は6MPa程度であった。また、斑状組織含有率100%の試験片の引張強度は0.2MPa程度であることから、十和田凝灰岩においては、斑状組織の引張強度は無視できる程度に小さいことがわかった。

このように、十和田凝灰岩の強度は、斑状組織含有率に影響を受けて大きく変化するため、十和田凝灰岩の強度を評価するには、図8のような強度特

性曲線を利用する必要がある。

4.2 劣化試験における試験片の状態変化

アルカリ溶液中において、新鮮試料の劣化試験を48時間おこなった後の試験片の観察結果を図9に示す。図9(a)は試験前の初期状態で、図9(b)は48時間試験後の画像である。試験後の試験片は、斑状組織周辺が赤茶色に変色し、図9(c)に示す風化試験片と同様な変色をしていることがわかる。この変色は、アルカリ環境下で溶出しやすい元素(例えばアルミニウム)が斑状組織から溶出し、茶色の水酸化物を生成したものと考えられる。また、図9(a)の破線部を拡大した劣化試験前後の試験片の顕微鏡画像(図9(d)、図9(e))を比較すると、試験後の試験片は、画面中央の斑状組織の一部が剥離していることがわかる。さらに、画面上部の斑状組織には亀裂が発達していることがわかった。このことから、実体顕微鏡レベルの観察では、本劣化試験における試料の変化は、斑状組織の変化と変色のみが見られた。

4.3 劣化試験における反応時間と物性値の変化

図10に劣化試験における溶解シリカ濃度と試験

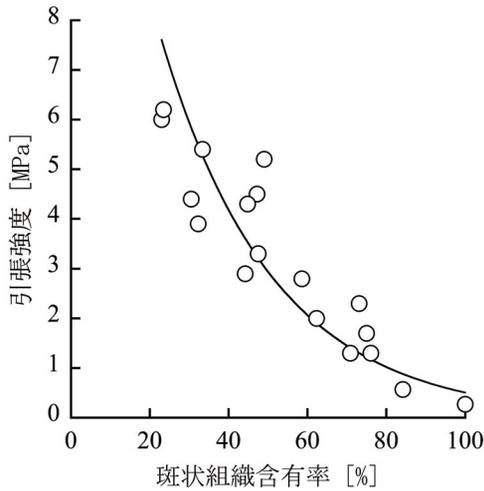


図8 新鮮岩における引張強度と斑状組織含有率の関係

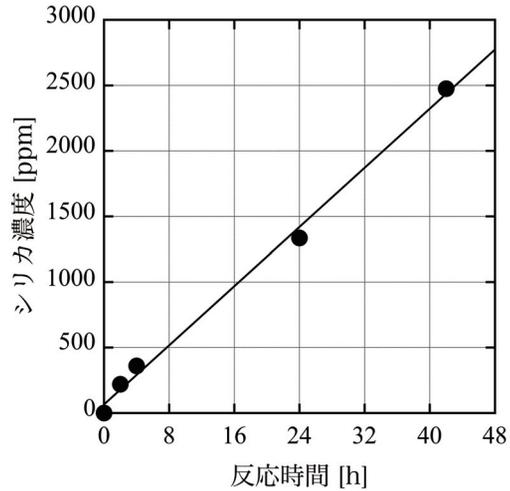


図10 劣化試験における溶解シリカ濃度と反応時間との関係

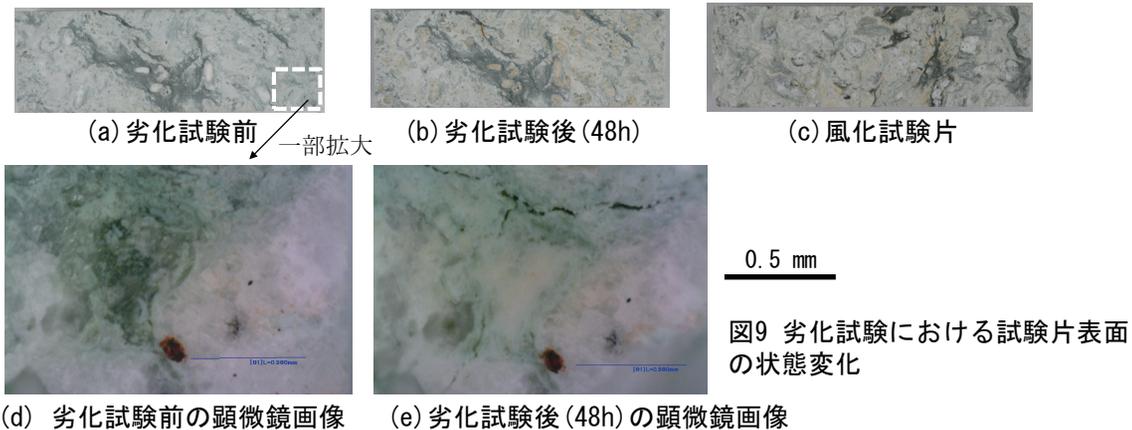


図9 劣化試験における試験片表面の状態変化

時間との関係を示す。図より、溶解シリカ濃度は、反応時間に対して直線的に増加していることから、本劣化試験によって、試料からシリカが溶脱していることがわかった。なお、反応した溶液には析出物も多く存在していた。この析出物は、水溶液中ではケミカルガーデンを生成し、乾燥させると白色粉になり、これを水で溶かすと粘性のある液体となることから、ケイ酸ナトリウムと推定した。このことから、溶解シリカ以上にシリカが溶脱していたと考えられる。

次に、図11に劣化試験における試験片の質量と試験時間との関係を示す。試験片質量は、反応時間にしたがって直線的に減少し、初期質量が約6.3gの試験片は、48時間の反応で約1g(16%)減少した。さらに、図12に劣化試験における空隙率と試験時間との関係を示す。空隙率は、反応時間にしたがって直線的に増加し、初期値の約19%から反応48時間後には約31%になり、12ポイント増加した。このことから、十和田凝灰岩は、風化過程と同様に劣化試験によ

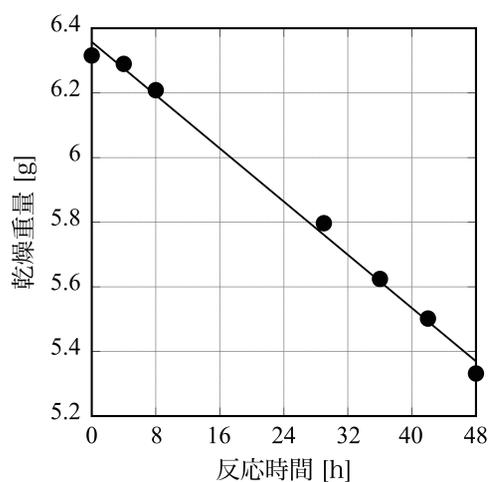


図11 劣化試験における質量減量と反応時間との関係

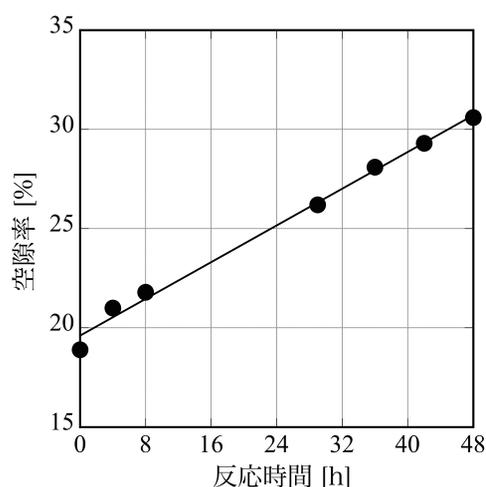


図12 劣化試験における空隙率と試験時間との関係

て空隙率は、著しく増加することがわかった。

4.4 シリカの溶脱による引張強度の低下

劣化試験によって空隙が増加した試験片を用いて一軸引張試験をおこなった。図13に新鮮試料、風化試料および48時間劣化試料における引張強度と斑状組織含有率との関係を示す。新鮮試料と同様に風化試料も劣化試料も、斑状組織含有率が増加すると強度は低下する傾向にある。なお、風化試料のデータにおいて、斑状組織含有率が23%付近のデータの強度が低く、全体の傾向からずれている。この原因は、試験片に潜在的な亀裂を有していた可能性が考えられる。ここで、同程度の斑状組織含有率で、新鮮試料と風化試料および劣化試料の引張強度とを比較すると、新鮮試料に比較し、風化試料は約50%、48時間劣化試料は80%の強度低下がみられた。この結果から、48時間劣化試料は、風化試料以上に劣化が進んでいることがわかった。

実体顕微鏡レベルの観察では、48時間の反応後の試験片には斑状組織の劣化と変色しか見られなかったが、シリカの溶出によって質量が16%減少し、引張強度が80%減少した。この原因は、実体顕微鏡レベルの観察では可視化できない微細な空隙の表面が溶解し、岩石の主要骨格が劣化したためと考えられる。

以上の研究成果から、著者らが提案した、十和田凝灰岩はアルカリ環境下でシリカが溶脱し、空隙率が増加することによって強度が低下するという、化学風化のプロセスについて、高温・高アルカリ下の実験条件においては再現されたと考えられる。今後は、自然条件に近い低温・低アルカリ下においても、同様の反応が進むことを確認し、仮説の実証を進めたいと考えている。

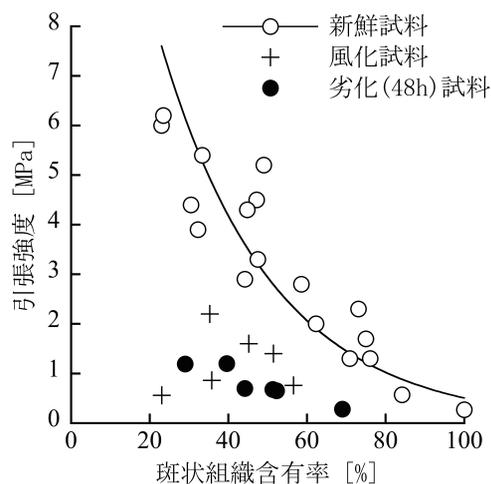


図13 新鮮岩・風化岩・劣化試料における引張強度と斑状組織含有率の関係

表6 各状態の岩石試料の平均物性値

岩石状態	平均引張強度 [MPa]	平均空隙率 [%]	平均斑状組織含有率 [%]
新鮮試料	3.6	18.9	51.2
風化試料	1.2	29.0	41.3
劣化試料(24h)	1.7	23.1	45.7
劣化試料(48h)	0.78	29.0	47.6

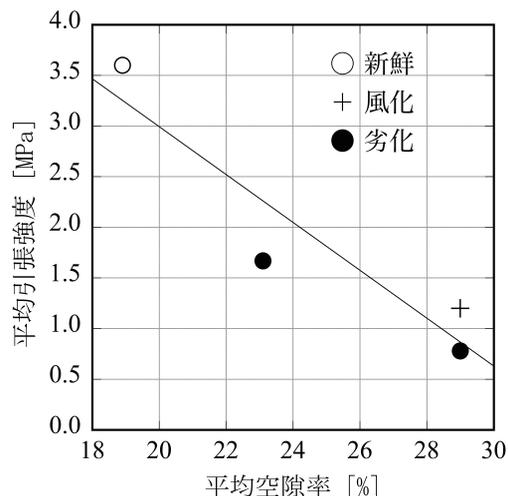


図14 各試料における平均引張強度と平均空隙率との関係

5. 考察

表6に各状態の岩石試料における平均物性値を示す。この表の平均物性値は、図13のデータの平均値である。表より、新鮮試料に比較し、風化試料、24時間劣化試料および48時間劣化試料の平均強度は低下し、平均空隙率は増加していることがわかる。なお、試験片表面の斑状組織は剥がれ落ちやすいため、風化および劣化試料では、平均斑状組織含有率は、減少している。この表における平均引張強度と平均空隙率との関係を図14に示した。この図のように引張強度を平均化することによって、大きくバラつく引張強度と空隙率との関係性が明確となる。図より、平均引張強度は平均空隙率の増加に対して直線的に減少することがわかった。ここで、図12の空隙率と反応時間との関係について、図14の関係をを用いて、劣化試料の反応時間と平均引張強度との関係にまとめ、図15に示した。図より、平均強度は反応時間に対して直線的に低下し、1時間あたり、0.06MPa(1.7%)の減少割合で低下すると推定された。このグラフに風化試料の平均強度1.2MPaを当てはめると、劣化時間が約32時間に相当する。この採石場は、採掘が

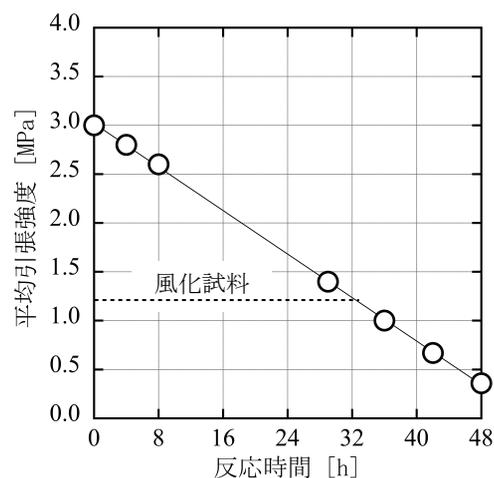


図15 劣化試料における平均引張強度と劣化時間との関係

始まってから40年程度経過しており、露頭面から数m掘削された坑口付近の岩盤も、掘削してから40年程度の風化試料と考えられる。よって、おおよそ劣化時間1時間が風化時間0.8年に対応すると推察される。よって、風化に対する本劣化試験の時間スケールの倍率は、約1万倍と考えられる。

以上のような風化プロセスを防止するには、十和田凝灰岩の岩盤表面におけるアルカリ化を防ぐ必要がある。具体的には、岩盤表面に酸性材を塗布するなどの対策によって、劣化が抑制できる可能性を示すことができた。なお、岩盤を酸性した場合、十和田石に含まれる方解石(炭酸カルシウム)が溶解する可能性があるが、方解石の割合は極めて小さく、多少、溶解しても岩石強度にほとんど影響しないことがわかっている¹⁾。

6. まとめ

シリカの溶脱実験により、十和田凝灰岩の空隙率は増加し、一軸引張強度が低下することがわかった。よって、十和田凝灰岩の主な強度劣化プロセスは、岩石自体が生成させるアルカリ溶液による、非晶質シリカの溶脱であると考えられる。

本研究の結果を要約すると、以下のようであ

る。

- (1) 十和田凝灰岩はアルカリ水溶液(5mol/L, 80° C)により、主成分である火山ガラス由来のシリカが溶脱し、劣化時間1時間あたり、空隙が0.25%増加する。
- (2) 本実験試料の平均引張強度は、新鮮試料の値と比較し、劣化時間48時間の試料では約80%低下し、風化試料では約50%の低下が見られた。
- (3) 本実験の劣化時間1時間あたりの引張強度の低下は、実際の風化時間の約0.8年に相当すると推測される。

引用文献

- 1) 西山孝・楠田啓：凝灰岩の風化プロセスと評価、資源地質、第44巻、第1号、pp. 25-31 (1994)
- 2) 今井忠男・伊藤麻也・木崎彰久・山元茂樹：十和田凝灰岩の力学特性に及ぼす造岩鉱物の影響、骨材資源、Vol. 53、No. 211、pp. 131-135 (2021)
- 3) Imai, T., Kamoshida, N., Yamaguchi, S. and Sugimoto, F.: New Permeability Test Based on Falling Head Method in Rock Core, Int. J. Soc. Mater. Eng. Resour., Vol. 17, No. 1, pp. 78-85 (2010)

(2021年10月12日受付 2022年2月4日受理)