

論文

[1152] 石灰石骨材のアルカリ反応性早期判定試験方法の開発に関する基礎的研究

斎藤広志*1・田村 博*1・松浪良夫*2

1. はじめに

石灰石骨材のアルカリ反応性試験方法は我国では未だ確立されていないが、石灰石のコンクリート用骨材としての使用量が近年急激に増大しており、同試験方法を早急に確立する必要がある。当試験所では5年程前から同研究に取り組んでおり、まずその第一段階として、カナダ産でアルカリ反応性が既に確認されている石灰石と本邦産の代表的な石灰石との基本的な比較試験を終了した。本論は、その結果を報告すると共に、今後の課題について述べたものである。

2. 試験用試料

試験用試料は計12試料(試料記号:A~L)であり、試料Aの石灰石(ドロマイト質石灰岩)はカナダ産のもので、すでにアルカリ反応性が確認されている岩石である。これと比較検討するために採取した試料B~Lは、すべて本邦産のものであり、これらはほぼ同一地域のものであるが、各種類の岩質のものを選別した(表-1参照)。

表-1 化学分析結果

(単位:%)

試料記号	岩石名	強熱減量	酸化カルシウム	酸化マグネシウム	酸化アルミニウム	酸化第二鉄	二酸化ケイ素
A	ドロマイト質石灰岩	39.0	46.8	4.2	1.19	0.52	7.82
B	石灰質ドロマイト	44.8	34.6	17.6	0.06	0.15	0.04
C	ドロマイト質石灰岩	40.3	55.8	2.4	0.26	0.28	0.46
D	ドロマイト質石灰岩	42.9	46.0	9.5	0.29	0.19	0.65
E	ドロマイト質石灰岩	43.0	46.4	8.0	0.06	0.11	0.02
F	石灰岩	40.7	54.5	0.8	0.36	0.31	2.83
G	石灰質ドロマイト	44.8	37.1	16.2	0.05	0.21	0.31
H	石灰岩	40.2	52.9	0.7	0.19	0.38	5.12
I	石灰岩	38.9	51.2	1.2	0.96	1.10	6.24
J	石灰質ドロマイト	45.1	34.7	16.3	0.09	0.06	0.09
K	石灰質ドロマイト	44.5	35.6	16.8	0.07	0.27	0.09
L	石灰岩	41.1	58.0	0.3	0.04	0.02	0.06

3. 試験項目および試験方法

試験実施項目および試験方法を以下に示す。

(1) 化学分析

J I S M 8 8 5 0 「石灰石分析方法」および J I S M 8 8 5 1 「ドロマイトの分析方法」により行った。

(2) ロックシリンダー法

A S T M C 5 8 6 「POTENTIAL ALKALI REACTIVITY OF CARBONATE ROCKS FOR CONCRETE AGGREGATES (ROCK CYLINDER METHOD)」により行った。

* 1 (財) 日本建築総合試験所 材料試験室 (正会員)

* 2 (財) 日本建築総合試験所 材料試験室

(3)モルタルバー法

J I S A 5 3 0 8 附属書 8 「骨材のアルカリシリカ反応性試験方法（モルタルバー法）」により行った。

(4)偏光顕微鏡による観察

各試料について薄片を製作し、偏光顕微鏡で観察した。また材令3年を終了したロックシリンダー供試体（以下、RC供試体）についても供試体軸に垂直に薄片を製作し、同様に観察した。

(5)粉末X線回折

以下に示す計3種類の試料について、粉末X線回折により含有鉱物の同定を行った。

- ①原石試料を微粉碎したもの（以下、原石試料）
- ②ロックシリンダー供試体(材令：3年)を微粉碎したもの（以下、RC供試体試料）
- ③原石試料を酸処理(酢酸：10%)したもの（以下、酸処理試料）

(6)示差熱分析

ドロマイト質石灰岩の原石試料について、示差熱分析を行った。

4. 試験結果

各試験の結果は以下のとおりであった。

(1)化学分析

試験結果を表-1に示す。化学分析試験結果の特徴としては、試料Aおよび試料I（ドロマイト質石灰岩および石灰岩）は他のものに比べ、酸化アルミニウムおよび二酸化ケイ素の含有量が多かった。また、試料Hおよび試料F（いずれも石灰岩）についても、二酸化ケイ素の含有量が多かった。

(2)ロックシリンダー法

膨張率と材令の関係を図-1に示す。試料Aは材令2週で早くも同試験の規定値（0.1%）を上回り、材令9ヶ月までに著しい膨張を示した。その膨張率は原石試料からのRC供試体の採取方向により異なり、堆積層に垂直に採取したものが最大値を示した。以後材令5年までほとんど変化は認められず、最大膨張率は約1.6%であった。

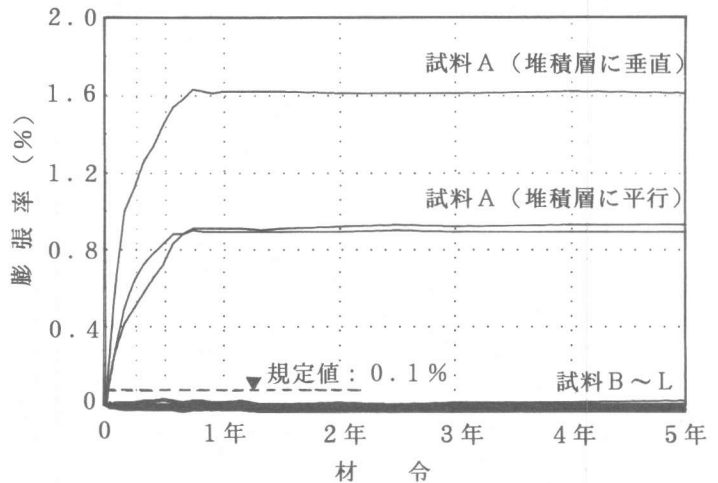


図-1 ロックシリンダー法・膨張率と材令の関係

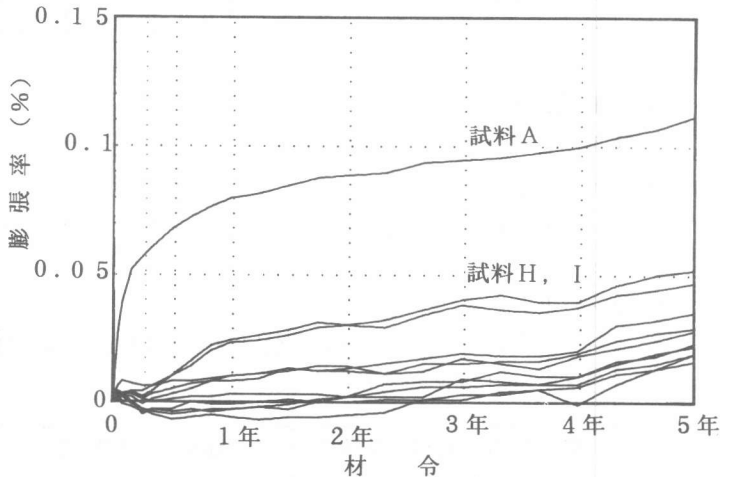


図-2 モルタルバー法・膨張率と材令の関係

他の本邦産試料B～Lは、いずれも同様で、初期材令よりほとんど膨張を示さず、また、供試体の採取方向による傾向も認められなかった。

(3)モルタルバー法

膨張率と材令の関係を図-2に示す。いずれの試料も同試験の規定値(材令6ヶ月で0.1%)を下回り、「アルカリ反応性なし」と判定されたが、試料Aの膨張量は、初期材令より他の試料に比べ大きく(材令3カ月:0.057%, 材令6カ月:0.068%), 以後も緩慢ではあるが材令と共に膨張し、材令5年においてもなおその傾向であった(材令5年:0.112%)。他の本邦産試料B～Lについては、試料Aに比べると膨張量は少ないが、材令と共に徐々に膨張する傾向を示し、二酸化ケイ素が比較的多く含有していた試料Iおよび試料H(いずれも石灰岩)において顕著であった。

(4)偏光顕微鏡による観察

岩石名を表-1に示す。試料Aおよび試料E(いずれもドロマイト質石灰岩)は、非常に微晶質のマトリックス中に小径のドロマイトや方解石の結晶を伴う組織である。他の試料については、再結晶性のドロマイト粗晶のモザイク状組織を主とするものや、微晶質のマトリックス中に多量の粗晶を晶出する岩石である(写真-1.1, 1.2参照)。材令3年を終了したRC供試体の一部について観察した結果、試料Aの供試体断面全面にひびわれが認められ、また、部分的に粗結晶部分(おそらくドロマイトの結晶)で顕著なひびわれも観察された。他の本邦産試料のものについては、特に異常は認められなかった(写真-1.3, 1.4参照)。

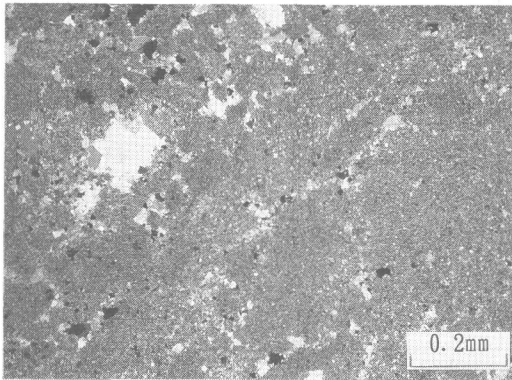


写真-1.1 試料A:クロスニコル

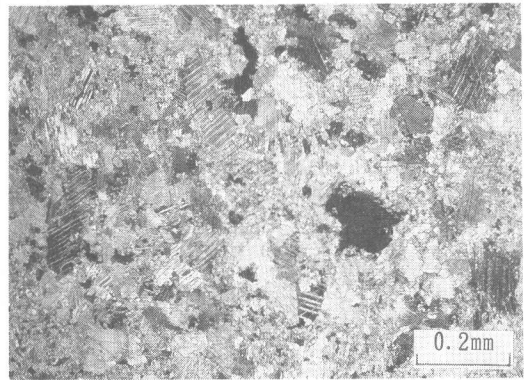


写真-1.2 試料C:クロスニコル

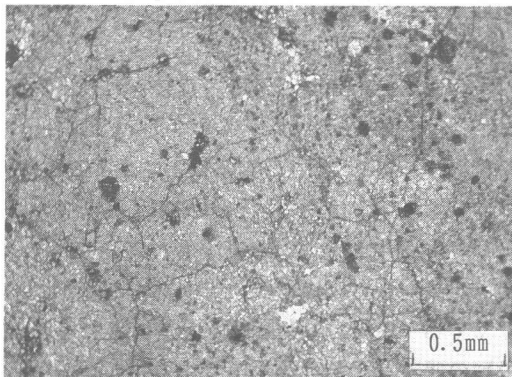


写真-1.3 RC供試体断面

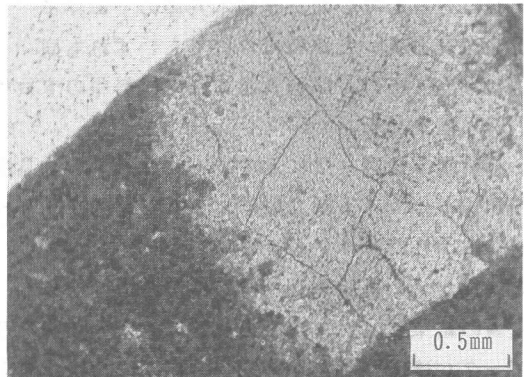


写真-1.4 ドロマイト結晶のひびわれ

(5) 粉末X線回折

試料Aの分析パターン図を図-3に、各原石試料中の方解石およびドロマイトの含有量の程度をX線の回折強度により図-4に示す。また、各原石試料中およびRC供試体試料中の方解石およびドロマイトの含有量の程度をX線の回折強度により図-5に示す。

原石試料の試験結果において、試料Aとほぼ同様の結果であったのは試料C、Dおよび試料Eであり、いずれもRC供試体試料では、試料A同様、アルカリ溶液によりドロマイトが分解したため、原石試料に比べ、ドロマイトの含有量は低下した(ただし、岩種により低下量は異なる傾向であった)。この傾向は他の試料においてもほぼ同様に認められた。また、原石試料中にドロマイトが含有されていたいずれの試料においても、RC供試体試料中には、新たにブルーサイトの生成が確認され、さらに方解石の含有量が若干増加する傾向であった。このような傾向は、以前より確認されている[1, 2および3]。

試料Aの酸処理試料については、石英あるいはイライトや緑泥石等の粘土質鉱物が多く確認され、他の試料については、試料E、Fおよび試料Iが同様であった。これらの内、試料Fと試料I(いずれも石灰石)は、試料A同様、化学分析において酸化アルミニウムあるいは二酸化ケイ素の含有量が他の試料より多かったものである。また、試料D(ドロマイト質石灰岩)の酸処理試料についての分析パターン図を図-6に示す。試料Aは酸処理により、ドロマイトが溶解していたが、試料Dは残存していた。他の本邦産のドロマイトを含有していた試料についてもいずれも同様の傾向であり、試料Aと本邦産試料中のドロマイトの結晶性は異なるものと推察された。

(6) 示差熱分析

分析結果を図-7に示す。ドロマイトの結晶性を検討する目的でCO₂雰囲気でのDTAを測定した。ドロマイトは2段階で分解し、約700~800℃の第1段階での分解時に生じる吸熱ピークにより、ドロマイトの結晶性あるいは結晶粒子の大きさが比較検討できるとされている[4]。結晶性がよい程吸熱ピークの生じる温度は高く、結晶粒子が小さいほど鋭いピークであるが、本試験の結果では、本邦産の試料は約760~780℃で第1段階の分解ピークと判断される吸熱ピークが確認されたが、試料Aにおいては、第1段階の明確な吸熱ピークは認められなかった。これについては、今後さらに検討が必要であると判断された。

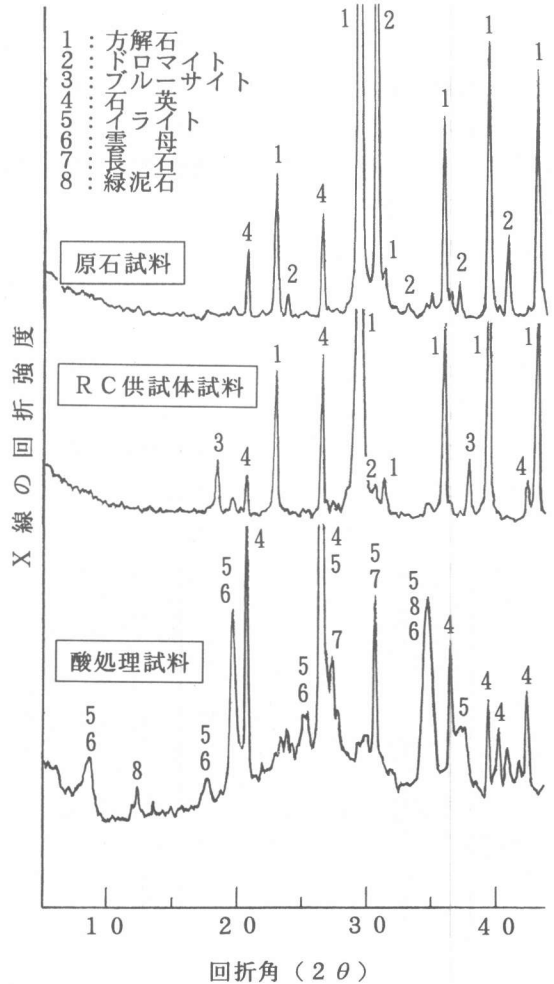


図-3 試料A: 粉末X線回折パターン

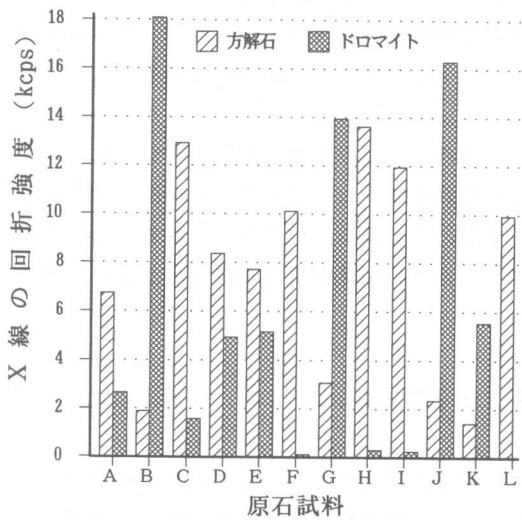


図-4 方解石およびドロマイトの含有量

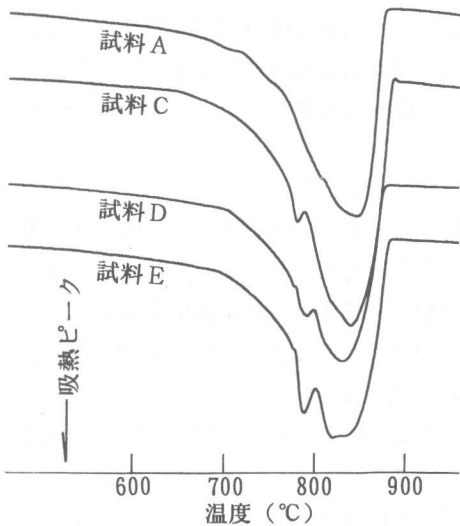


図-7 示差熱分析結果

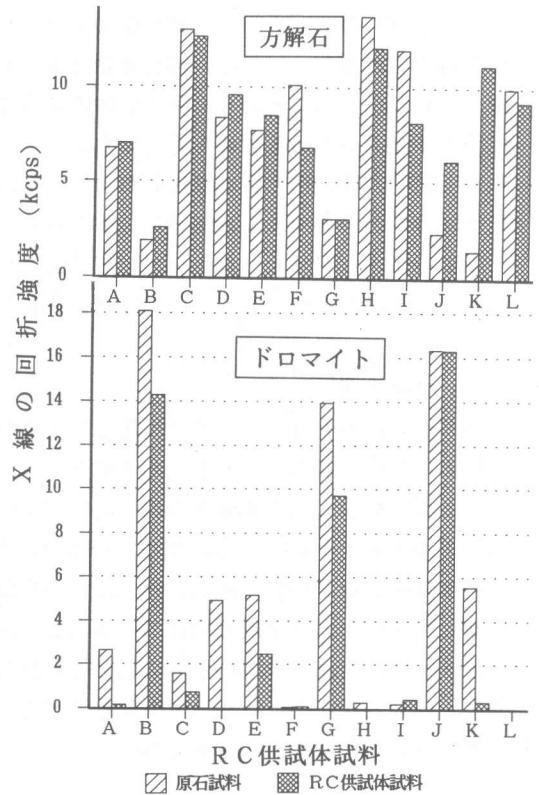


図-5 方解石およびドロマイトの含有量

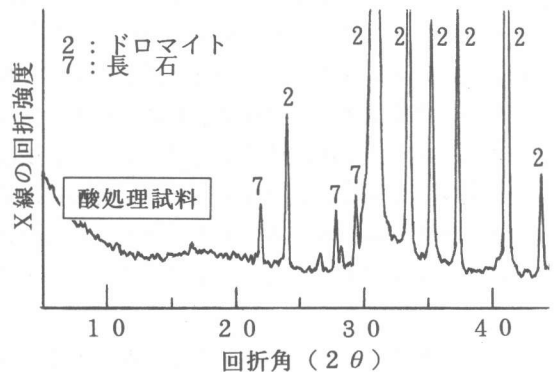


図-6 試料D：粉末X線回折パターン

5. まとめおよび考察

- 1) 試料A石灰石のアルカリ骨材反応性の有無は、JIS化学法では無論のこと、JISモルタルバー法においても判定できないと判断された。
- 2) 試料Aと本邦産試料との比較において、ロックシリンダー法の膨張量で明らかに違いが認められた。その要因について、岩石学的に試料Aと本邦産試料との相違点を検討してみると、試料Aは、概ね次の①～④をすべて満たしていることが考えられた。

- ① ドロマイト質石灰岩
- ② 粘土鉱物を多く含有している
- ③ 岩石の組織が隱微晶質～微晶質
- ④ ドロマイトの結晶性が関与する（結晶性が悪い）。

3) 上記②は、原石試料の化学分析および酸処理試料の粉末X線回折の結果、試料Aは本邦産試料に比べ、粘土鉱物あるいはその主成分であるケイ素およびアルミニウムが多く確認された。従

って、試料Aのロックシリンダー法における膨張要因の一つとして、粘土鉱物が関与しているものと判断されるが、同様に、粘土鉱物を多く含んでいた本邦産試料（但し、石灰岩）では膨張が認められなかったことから、粘土鉱物の結晶性あるいはドロマイトとの関連について、より詳細に検討する必要があるものと考えられた。

4) 上記③④は、例えば本邦産試料Dは、上記①～④の内、②のみを満たしていなかったが、RC供試体中のドロマイトが完全に分解されていたにも関わらず、ロックシリンダー法ではまったく膨張を示さなかった。従って、岩石学的に反応性を確認するには、総合的に判断する必要があるが、さらに反応性（膨張）の程度と岩質あるいは結晶性との関係をより明確にする必要がある。

6. 今後の課題

本邦産石灰石骨材のアルカリ反応性に関する試験方法を確立するためには、以下に示す3点が今後の主な検討課題であると考えられた。

- 1) 本試験に供した本邦産試料は一部の地域に限られたものであり、全国的な試料の採取および産出量は極めて少量であると考えられるが、粘土分を多く含む試料についての検討も必要である。
- 2) 本邦産石灰石の反応性は、特殊なものを除いて本試験結果とほとんど同様であると予想されるが、反応性と岩石学的な性質の関係あるいは促進法によってその有害度を判定するためには、反応性が既に確認されているさらに多くの何種類かの石灰石を採取し検討を加える必要がある。
- 3) 一部の石灰石中には、ケイ酸鉱物を多く含有している可能性もあり、アルカリシリカ反応に関する検討も必要であると考えられる。

以上のことを踏まえ、既に、全国13採石場より59種類、カナダ国オンタリオ州の2採石場よりアルカリ反応性が既に確認されている試料10種類、計69種類の試料を直接現地にて切羽の状況を調査し採取して（国内3採石場計15種類程度追加する予定）、各試験を開始した。

なお、本論文では、早期判定試験方法の手法等の詳細については特に触れなかったが、現段階では、次の3通りの試験手法をベースにし、検討を進める予定である。

- ①当試験所が開発したGBRC促進法を基に制定されたJIS A 1804「コンクリート生産工程管理用試験方法—骨材のアルカリシリカ反応性試験方法（迅速法）」をベースにする。
- ②粉末X線回折、偏光顕微鏡観察および熱分析等による岩石学的な試験手法あるいは化学分析手法をベースにする。
- ③JISモルタルバー法試験方法の改良あるいは有害度判定のための規定値を検討する。

最後に、本研究を実施するに際し、石灰石試料の採取に関して多大なるご協力をいただいた石灰石鉱業協会および関係各位に深く感謝の意を表します。

[参考文献]

- 1) Hadley, D. W.: Alkali Reactivity of Carbonate Rocks—Expansion and Dedolomitization, HRB Proc. 40, pp. 462~474, 1961
- 2) Sherwood, W. C. and Newlon Jr., H. H., Highway Res. Record, 45, 41-56(1964)
- 3) Pooie, A. B., Proceedings of the Concrete S252/34, Cape Town(1981)
- 4) Otsuka, R., Tanabe, S., Iwafuchi, K and Ozao, R., Proc. 6th ICTA, Beyreuth, 1980