

論文 遅延膨張型堆積岩系骨材のアルカリシリカ反応性の評価

蟹谷 真生^{*1}・山戸 博晃^{*2}・広野 真一^{*3}・鳥居 和之^{*4}

要旨: 堆積岩系骨材は反応性鉱物として隠微晶質石英や玉髄（カルセドニー）などを含有するが、このような骨材に対しては化学法（JIS A1145）やモルタルバー法（JIS A1146）により骨材のアルカリシリカ反応性を適切に評価できないとされている。このため、中部地方および近畿地方の代表的な 6 種類の堆積岩系骨材を選別し、岩石中の反応性鉱物の種類（隠微晶質石英や玉髄）とその含有形態を調べるとともに、現行の骨材のアルカリシリカ反応性試験や促進モルタルバー法より得られた判定結果とその問題点について 2, 3 の検討を行った。

キーワード: 堆積岩系骨材, 岩石・鉱物学的特徴, 骨材のアルカリシリカ反応性, 化学法, モルタルバー法

1. まえがき

当初、わが国での ASR 劣化構造物に使用された反応性骨材は主に安山岩などの火山岩系骨材であった。その後、ASR 劣化構造物は全国的に存在することがわかり、東海地方ではチャートや珪質粘板岩などの堆積岩系骨材による ASR 劣化構造物の事例も報告されている^{1), 2)}。

近年、良質な河川産骨材の枯渇により、地域で産出する堆積岩を砕石として使用する機会が増加している。その一方で、砂岩やチャートに代表される堆積岩系骨材は、安山岩などの火山岩系骨材と比較して、コンクリートの膨張がゆっくりと進行し、かつ長期間にわたって膨張が継続するという、遅延型の膨張挙動を示すことが指摘されている。このため、アメリカやカナダ、オーストラリアなどの諸国では、遅延膨張型骨材に対応した、新しい ASR 試験法（ASTM C1260 や CSA A23.2-25A）や判定基準値が提案されてきている³⁾。

一般に、堆積岩系骨材は、中生代・古生代の地層から採取される砂岩を主体とし、より泥質な頁岩や粘板岩あるいは石灰岩や珪質岩および火山岩起源の緑色岩等が混在することが多い。さらに断層や褶曲による変形や破砕を受けた脆弱な岩石も含まれることが知られている。また、堆積岩系骨材の反応性鉱物は、隠微晶質石英や玉髄などの微細な結晶粒の石英であるが、このような遅延膨張型を示す骨材の多くは現行の試験法（化学法（JIS A1145）やモルタルバー法（JIS A1146））によって骨材のアルカリシリカ反応性が適切に評価できないとされている⁴⁾。その一方で、骨材のアルカリシリカ反応性を調べる際には、骨材中の反応性鉱物の種類とその量を正確に把握することが基本であるが、わが国ではそれらを実際に実施できる試験機関がほとんどないのも事実であ

る。また、堆積岩系骨材では、所謂、硬質砂岩やチャート、石灰岩といった呼称が一般的に普及している。しかし、著者らが調べた範囲では、ミルシートなどのその呼称はかなり曖昧なものであり、必ずしも岩石・鉱物学的な試験結果と一致していないことも多いようである。さらに、骨材の採取地における岩体全体の不均一性や掘削時の他の岩石の混入の問題が骨材の ASR の判定結果のばらつきにも密接に関係している。

本研究は、6 種類の堆積岩系骨材を選別して、まず X 線回折分析や蛍光 X 線回折分析、偏光顕微鏡観察などにより骨材の岩石・鉱物学的特徴（反応性鉱物の種類とその含有形態）を調べるとともに、骨材のアルカリシリカ反応性試験（化学法（JIS A1145）、3 種類のモルタルバー法（JIS A1146, ASTM C1260, デンマーク法））を実施し、骨材間の ASR の判定結果の整合性について 2, 3 の検討

表-1 堆積岩系骨材の岩種および産地

骨材	岩種	産地	ASR 発生の有無
A	砂岩	岐阜(砕石)	無 ^{*3}
B	砂岩	和歌山(砕石)	無
C	頁岩	和歌山(砕石)	不明
D	チャート	岐阜 ^{*1}	不明
E	珪石	福井(砕石)	無 ^{*3}
F	砂岩, チャート などの混合物	岐阜(川砂利) ^{*2}	無 ^{*3}

*1 ASR の発生が懸念されるため、コンクリート用骨材としては使用されていない。

*2 A, D 付近を流れる河川産砂利。

*3 PC, PCa 用のコンクリート用骨材としての使用実績がある。しかし、ASR の発生は確認されていない。

*1 金沢大学大学院 自然科学研究科 社会基盤工学専攻 (正会員)

*2 金沢大学 理工研究域環境デザイン学系技術官 (正会員)

*3 (株) 太平洋コンサルタント ソリューション事業部 (正会員)

*4 金沢大学 理工研究域環境デザイン学系教授 工博 (正会員)

表-2 蛍光 X 線回折分析により測定した堆積岩系骨材の化学成分 (%)

骨材	Ig.loss	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Na ₂ O	Fe ₂ O ₃	K ₂ O	CaO	MgO	CI*
A	2.62	68.17	18.84	1.79	3.89	3.13	1.80	1.57	5.69
B	1.73	73.39	17.05	3.37	2.04	1.94	0.96	0.80	7.10
C	2.87	70.12	19.52	0.00	3.81	3.63	0.78	1.30	9.20
D	0.38	95.03	4.10	0.00	0.23	0.00	0.11	0.00	5.80
E	0.40	90.89	6.48	0.00	1.03	0.91	0.00	0.35	4.20
F	混合物のために測定不能								

*石英の5重線ピークから求めた結晶性指数 (Crystal Index)

を行った。

2. 実験概要

2.1 堆積岩系骨材の種類と産地

本研究で使用した堆積岩系骨材は、中部地方および近畿地方の代表的な原石山から採取された5種類と河川産の砂利1種類の計6種類である。6種類の堆積岩系骨材の岩種および産地を表-1に示す。本論文では、微細な石英粒子を潜晶質(5μm以下)と隠微晶質(2μm以下)とに区別している。骨材A(岐阜県産)は砂岩であるが、10%程度の粘板岩(または頁岩)が混入している。このため、骨材Aでは、目視による簡易識別により、2種類のもの(黒色(砂岩)と茶色(粘板岩, 頁岩))に分類した。それに対して、骨材B(和歌山県産)は砂岩のみから構成されている。骨材Aおよび骨材Bはともに実構造物でのASRの発生は報告されていない。また、骨材C(和歌山県産)は頁岩から構成されているが、実構造物でのASRの発生は調査されていない。一方、骨材D(岐阜県産)はチャートであり、ASRの反応性が高いものであると報告されている^{1), 2)}。しかし、コンクリート用骨材としての使用実績はないとされている。骨材E(福井県産)は骨材Dと同様に中部地方を縦断するチャートの鉱脈からであり、珪石(チャート)から構成されている。さらに、骨材F(岐阜県産)は骨材Aおよび骨材Dが産出する砕石場の付近を流れる揖斐川産の砂利であり、砂岩やチャートなどの堆積岩系岩石を多く含有しているのが特徴である。この中で、骨材Eおよび骨材Fは長年にわたりPCやPCa用の骨材として使用されてきたものであり、ASRの発生はこれまで報告されていない。

2.2 骨材のアルカリシリカ反応性試験

(1) 骨材の岩石・鉱物学的検討

骨材の粉末試料(90μm)以下を使用して、蛍光X線回折分析およびX線回折分析を実施し、骨材の化学成分の測定および構成鉱物の同定を実施した。X線回折分析では、石英の結晶性の相違をX線回折分析(2θ(Cu Kα)=67~69°C, d=1.38~1.37Å)における石英の5重線ピー

クの高低差により結晶性指数(CI)を測定した。また、骨材の薄片研磨試料(厚さ:20μm)を作成し、偏光顕微鏡により骨材中に含有する構成鉱物の種類とその量を調べた。堆積岩系骨材の反応性鉱物としては、隠微晶質石英や玉髄(カルセドニー)が知られており、それらの含有形態に着目して偏光顕微鏡(単ニコル, クロスニコル)により観察した。

(2) 骨材のアルカリシリカ反応性の判定

モルタルバーの作製に使用したセメントは、普通ポルトランドセメント(T社製, 密度:3.16g/cm³, 等価アルカリ量:0.68%)である。

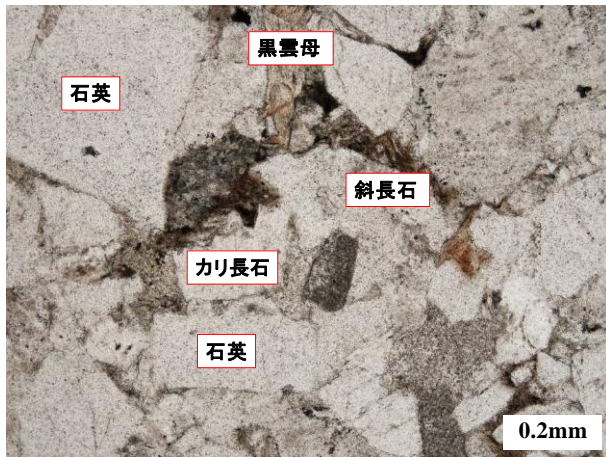
骨材のアルカリシリカ反応性は、現行の化学法(JIS A1145)およびモルタルバー法(JIS A1146)とともに、外部よりアルカリが常に供給されるより厳しい促進養生条件であるASTM C1260法(温度80°C, 1N・NaOH溶液浸漬)およびデンマーク法(温度50°C, 飽和NaCl溶液浸漬)を適用した。これらの試験法の中で、ASTM C1260法は遅延膨張型骨材にも有効とされているものであり、骨材のアルカリシリカ反応性の判定の標準的な試験法としてアメリカやヨーロッパの諸国で広く普及してきているものである。同試験では、14日材齢にて膨張率が0.1%未満を「無害」、0.1~0.2%を「無害と有害の両者が存在」、0.2%以上を「有害」と判定する。また、デンマーク法では、3ヶ月材齢にて0.1%未満を「無害」、0.1~0.4%を「不明確」、0.4%以上を「有害」と判定する。

3. 実験結果および考察

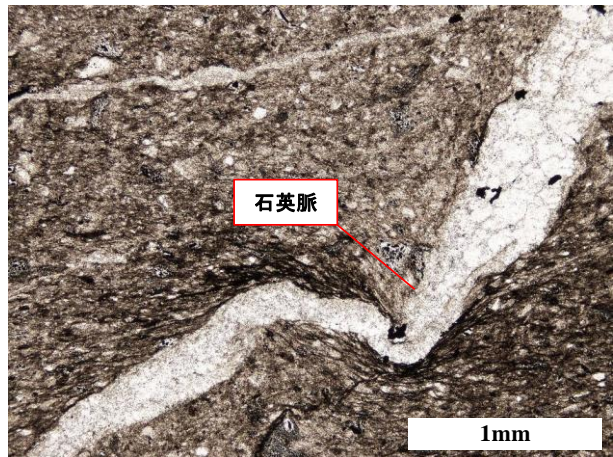
3.1 堆積岩系骨材の化学成分と反応性鉱物

(1) 化学成分およびX線回折分析の結果

堆積岩系骨材の化学成分を表-2に示す。堆積岩系骨材の主要な化学成分はシリカ分とアルミナ分であり、骨材A(不純物を含む砂岩)および骨材C(頁岩)と比較して、骨材B(砂岩)はシリカ分が多いという特徴があった。一方、骨材D(チャート), 骨材E(珪石)は、骨材A, 骨材Bおよび骨材Cと比較して、シリカ分が90%以上あり、粘土鉱物などの不純物を含まないため、アル



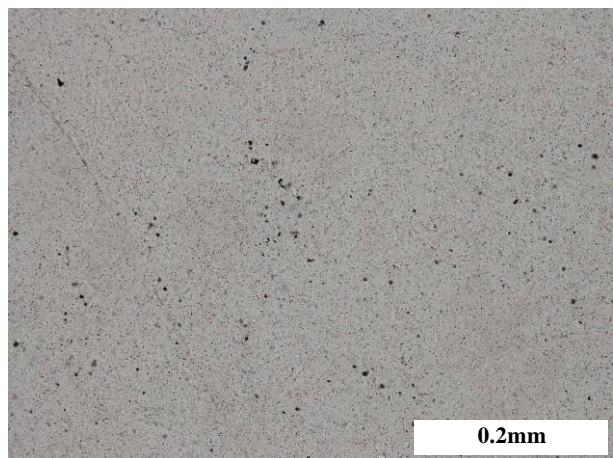
骨材 A



骨材 C



骨材 D



骨材 E

写真-1 偏光顕微鏡による岩石の観察結果 (単ニコル)

カリ分および強熱減量値がともに小さいという特徴があった。

X線回折分析より、骨材 A、骨材 B (砂岩)、骨材 C (頁岩) および骨材 F (川砂利) では、石英のシャープなピーク以外に、長石、雲母および緑泥岩などの造岩鉱物のピークが同定された。また、X線回折分析 (2θ (Cu-K α) = $67\sim 69^\circ$, $d=1.38\sim 1.37\text{\AA}$) における石英の 5 重線ピークの測定結果 (表-2 参照) より、砂岩 B および頁岩のもの結晶性指数 (CI) は $7\sim 9$ 程度となり、砂岩 A、珪石およびチャートのもの $4\sim 6$ 程度と比較して結晶性指数 (CI) が高くなった。既往の研究⁵⁾によると、後者の $4\sim 6$ 程度の値は隠微晶質石英や玉髓が存在しており、骨材がアルカリシリカ反応性を有する可能性があることが報告されている。

(2) 偏光顕微鏡による反応性鉱物の観察

偏光顕微鏡による薄片研磨試料 (骨材 A、骨材 C、骨材 D および骨材 E) の観察結果を写真-1 に示す。骨材 A は、石英粒子以外に、斜長石、カリ長石の結晶片からなっている。また、石英の砂粒中のチャートや頁岩

の岩片や基質に隠微晶質石英が含まれていた。それに対して、骨材 B は、比較的大きな粒径の石英粒子のみで構成されていた。また、骨材 C は、砂粒子やシルト粒子中の基質と脈状組織に隠微晶質石英や粘土鉱物を含有していた。骨材 D では、チャート粒子中に隠微晶質石英が存在するとともに、玉髓 (カルセドニー) に微量の非晶質シリカ (オパール) が含まれており、塵状微粒をともなっているのが特徴であった。骨材 E は、隠微晶質石英とともに球状の玉髓や石英脈が多く含まれるが、骨材 D に見られるような塵状微粒をともなわなかった。これらの観察結果より、骨材 (碎石) のアルカリシリカ反応性に関する反応性鉱物 (隠微晶質石英および玉髓) の量は、骨材 B < 骨材 A < 骨材 C < 骨材 E < 骨材 D の順番で増大することが推察できた。

3.2 堆積岩系骨材のアルカリシリカ反応性

(1) 化学法 (JIS A1145) による判定結果

堆積岩系骨材の化学法 (JIS A1145) による判定結果を図-1 に示す。化学法の結果より、骨材 A および骨材 F は「無害」と判定された。それに対して、その他の骨材

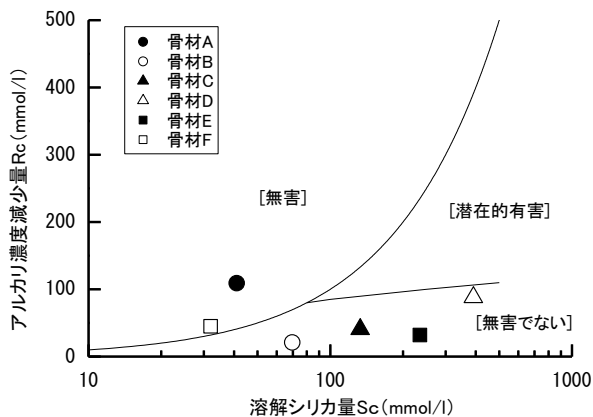


図-1 堆積岩系骨材の化学法 (JIS A1145) の結果

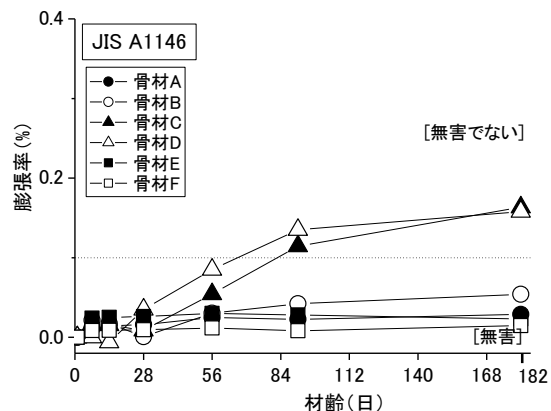


図-2 堆積岩系骨材の JIS A1146 の結果

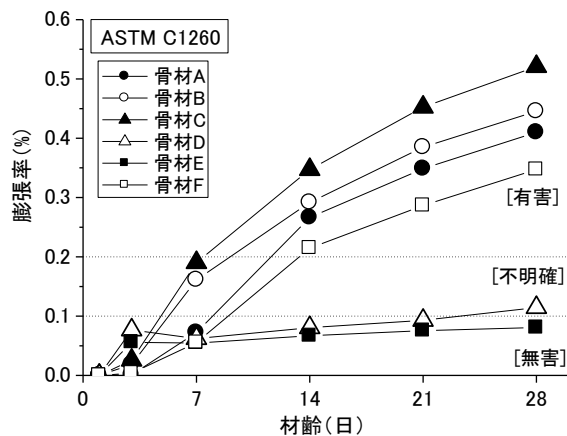


図-3 堆積岩系骨材の ASTM C1260 の結果

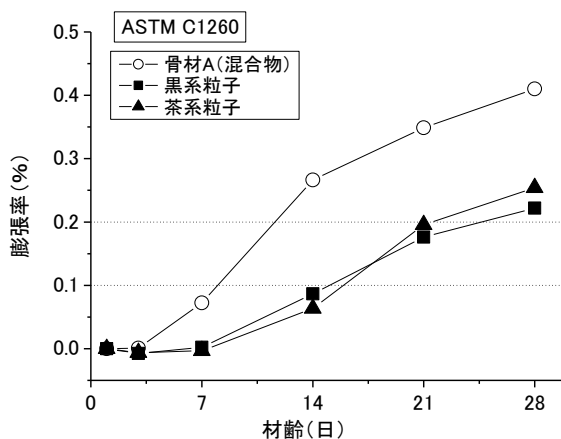


図-4 骨材 A の ASTM C1260 の結果

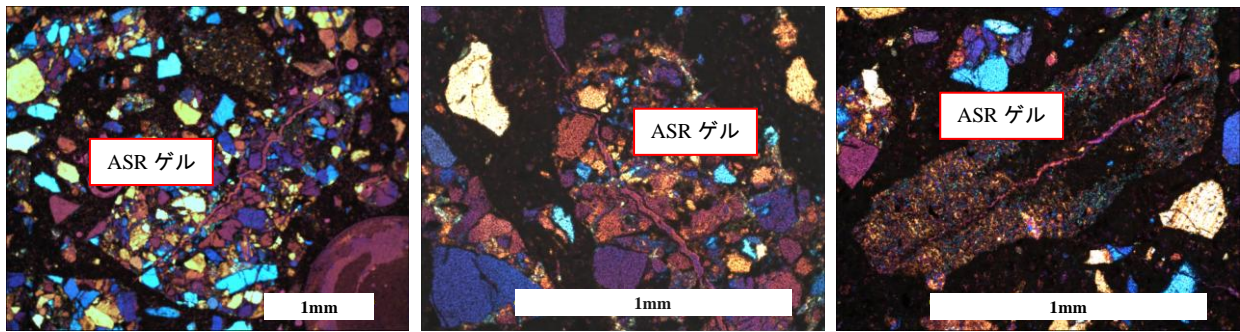
は「無害でない」と判定された。チャート系の2種類の骨材は Sc の値が大きく、かつ化学法による判定結果が明確であるが、骨材 B や骨材 C は判定基準の境界線付近に分布しており、砕石山からの採取場所によってはばらつきが生じることも予想された。また、骨材 A は Sc および Rc とともに小さく、「無害」と判定されているが、偏光顕微鏡による観察では少量の隠微晶質石英が確認されている。

(2) 堆積岩系骨材のモルタルバー法による判定結果

堆積岩系骨材のモルタルバー法 (JIS A1146) の結果を図-2 に示す。骨材 C と骨材 D は、材齢 28 日以後に膨張を開始し、6 カ月にて 0.1% を超える膨張率となり、「無害でない」と判定された。両骨材は典型的な、遅延型の膨張挙動を示している。それに対して、その他の骨材はモルタルバーの膨張量が小さく、「無害」と判定された。骨材 C および骨材 D は、現行の化学法およびモルタルバー法でともに「無害でない」と判定されており、両骨材は「アルカリシリカ反応性を有する」ものとして取り扱うべきであると考えている。

堆積岩系骨材のモルタルバー法 (ASTM C1260) の結果を図-3 に示す。骨材 B および骨材 C は、材齢 3 日から、骨材 A および骨材 F は材齢 7 日から膨張を開始し、材齢 14 日ではいずれも膨張率が 0.2% を超えており、「有害」と判定された。それに対して、チャート系の2種類の骨材は大きな膨張が発生せず「無害」と判定された。チャート系の骨材 D および E は ASTM C1260 の養生条件で粒子の溶解 (シリカゲルの形で溶出する) が生じるので、本測定法はチャート系骨材に適用できないことが報告されている⁹⁾。

骨材 A に含まれる岩種 (黒系粒子と茶系粒子) の影響を確認する目的で、骨材 A、黒系粒子および茶系粒子それぞれのモルタルバー法 (ASTM C1260) を実施した。その結果を図-4 に示す。また、ASTM C1260 試験の終了後 (28 日材齢) にモルタルの薄片研磨試料を作製し、モルタルのひび割れと ASR ゲルの生成状況を観察した。その結果を写真-2 に示す。図-4 に示すように、骨材 A、黒系粒子および茶系粒子のいずれのものも材齢 28 日まで直線的に膨張が継続しており、それらの膨張率は、黒



骨材 A 黒系粒子 茶系粒子
写真-2 偏光顕微鏡によるモルタル薄片の観察結果（クロスニコル，石膏フィルター）

系粒子のみ＝茶系粒子のみく骨材 A となった。モルタルバーの膨張挙動は薄片の観察結果による ASR ゲルの生成とひび割れの発生状況とも一致した。すなわち、写真-2 に示すように、骨材 A では、隠微晶質石英を含有する黒系粒子および茶系粒子がともに反応しており、それらの粒子からひび割れ（ひび割れは ASR ゲルが充填されている）がモルタル内の組織に進展している様子が観察された。同様に、黒系粒子および茶系粒子のみの場合も骨材 A と比較して微細なひび割れが多くなっているが、ASR による反応の痕跡が明瞭に認められた。当初、骨材 A ではペシマム現象との関係から茶系粒子の方が黒系粒子よりも良く反応することを予想していたが、両粒子が同等に ASR の発生に関与することが明らかになった。

堆積岩系骨材のモルタルバー法（デンマーク法）の結果を図-5 に示す。骨材 D は材齢 14 日以後にモルタルが膨張し、「有害」と判定された。それに対して、他の 5 種類の骨材はモルタルの膨張がほとんど発生せず、いずれも「無害」と判定された。元来、デンマーク法は海砂中のフリント（クリストバル石）を対象にした試験法であり、クリストバライトやトリディマイト、オパールなどの、反応性のあるシリカ鉱物を含有する、火山岩系の骨材の判定に有効であることが報告されている⁷⁾。今回

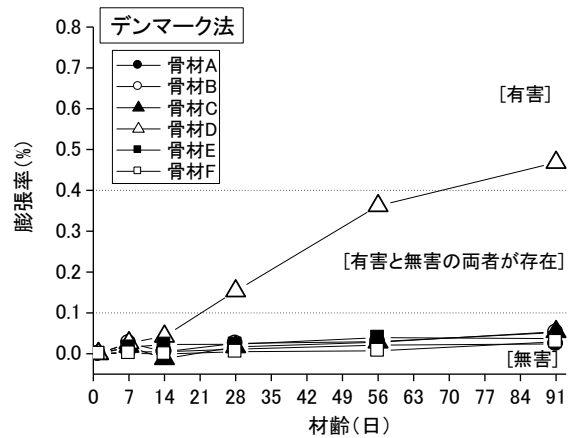


図-5 堆積岩系骨材のデンマーク法の結果

の堆積岩系の骨材には、骨材 D（玉髄中に非晶質シリカ（オパール）を含有する）以外には反応性のシリカ鉱物が含まれておらず、反応性鉱物として隠微晶質石英や玉髄を含有する骨材の判定にはデンマーク法が適していないと判断された。

3.3 堆積岩系骨材のアルカリシリカ反応性の判定の課題

堆積岩系骨材のアルカリシリカ反応性の判定結果をまとめて、その整合性を表-3 に示す。この表より、骨

表-3 堆積岩系骨材のアルカリシリカ反応性の判定結果のまとめ

骨材	骨材種類	反応性鉱物の種類	化学法	モルタルバー法		
			JIS A1145	JIS A1146	ASTM C1260	デンマーク法
A	砂岩	隠微晶質石英	無害	無害	有害	無害
B	砂岩	不明（同定されず）	無害でない	無害	有害	無害
C	頁岩	隠微晶質石英	無害でない	無害でない	有害	無害
D	チャート	玉髄，隠微晶質石英，オパール	無害でない	無害でない	不明確	有害
E	珪石	玉髄，隠微晶質石英	無害でない	無害	無害	無害
F	川砂利	不明（同定できず）	無害	無害	有害	無害

材の各種 ASR 試験間の判定結果の整合性は不十分であり、偏光顕微鏡により反応性鉱物（隠微晶質石英や玉髄）が同定されたものでも、反応性鉱物の含有量が少ない場合やその含有形態によっては養生条件（アルカリ雰囲気）が最も厳しい ASTM C1260 法でしか「有害」と判定されていないのがわかる。本来、骨材のアルカリシリカ反応性は、どのような骨材（反応性鉱物の種類とその量）が、どのような使用・環境条件で使用された際に、実際に ASR が発生しているのかを把握し、それに対応するような骨材の ASR 試験での「無害」、「有害」の判定基準値を設けることが重要である。しかし、化学法を偏重してきたわが国では、試験の実績が不足しているので、とくに ASR 調査事例の少ない堆積岩系骨材や変成岩系骨材では ASR 試験結果の蓄積に努めるべきである。

一方、骨材の ASR 試験は、骨材の岩石・鉱物学的性質の把握が基本にあることは明白であり、わが国でも反応性骨材のスクリーニング試験として偏光顕微鏡や X 線回析による岩石・鉱物学的試験を積極的に取り入れることが必要である。同時に、JIS A5308（レディミクストコンクリート）などにおいて、骨材の岩石名の記載を正確にしていくことにも務めるべきである。また、著者らは、堆積岩系骨材のアルカリシリカ反応性の大小が骨材の粒径によって大きく相違することを経験している。すなわち、堆積岩骨材は、粒径の大きい砕石のサイズでは反応しないが、砕いて細かくした場合にのみ反応することが実際に存在する。したがって、堆積岩系骨材の ASR の判定には、まず岩石・鉱物学的試験（偏光顕微鏡観察）と ASTM C1260 を実施することを推奨する。さらに、それらの両試験のいずれかにて「有害」と判定されたものは、実際のコンクリートの配合でのコンクリートバー法による促進試験（RILEM 基準）などを実施するのが良いと考えている。

4. まとめ

本研究で得られた主要な結果をまとめると、以下に示すようである。

- (1) 堆積岩系骨材のアルカリシリカ反応性を調べる際に、骨材の岩石・鉱物学的試験を併用することが有効であった。
- (2) 薄片研磨試料の観察結果より、反応性鉱物（隠微晶質石英および玉髄）の量は、骨材 B < 骨材 A < 骨材 C < 骨材 E < 骨材 D の順番で増大した。
- (3) 化学法（JIS A1145）の結果より、骨材 A, F は「無害」と判定され、骨材 B, C, D, E は「無害でない」と判定された。また、モルタルバー法（JIS A1146）の結果より、骨材 C および骨材 D は「無害でない」と判定された。両者の結果を合わせて判定することが有効であり、骨材 C および D は実際に ASR が発生する可能性がある」と判定できた。

- (4) モルタルバー法（ASTM C1260）の結果より、チャート系の骨材 D および骨材 E 以外の堆積岩系骨材はすべて 0.2% を超える膨張率であり、「有害」と判定された。
- (5) モルタルバー法（デンマーク法）の結果より、反応性の高いオパールを含有する骨材 D 以外の堆積岩系骨材は膨張せず、デンマーク法の養生条件は堆積岩系骨材の判定には適さなかった。
- (6) 堆積岩系骨材（ただし、チャートを除く）のアルカリシリカ反応性の判定には、岩石・鉱物学的試験とより厳しい養生条件である ASTM C1260 法を組み合わせて実施することが望ましかった。

参考文献

- 1) 岩月栄治, 森野奎二: 珪質堆積岩のアルカリシリカ反応の特徴, 材料, Vol.57, No.10, pp.967-972, 2008
- 2) 岩月栄治, 平林文明: チャート及び珪質粘板岩のアルカリシリカ反応に関する研究, 骨材資源, Vol.57, No.164, PP.167-176, 2010
- 3) 鳥居和之ほか: 作用機構を考慮したアルカリ骨材反応の抑制対策と診断研究委員会報告書, (社)日本コンクリート工学協会, pp.105-107, 2008
- 4) 山戸博晃, 尾花祥隆, 鳥居和之: 堆積岩系骨材の岩石・鉱物学的特徴とアルカリシリカ反応性, セメント・コンクリート論文集, No.62, pp.326-333, 2008
- 5) T.Katayama and T.Futagawa: Diagenetic Changes in Potential Alkali-Aggregate Reactivity of Siliceous Sedimentary Rocks in Japan Interpretation, Proc. of 8th International Conference on Alkali-Aggregate Reaction, Kyoto, pp.525-530, 1989
- 6) 岩月栄治, 森野奎二: NaOH 溶液に浸漬したチャート質骨材使用供試体の ASR 膨張挙動に関する研究, コンクリート工学年次論文集, Vol.28, No.1, pp.827-832, 2006
- 7) 鳥居和之, 野村昌弘, 本田貴子: 北陸地方の反応性骨材の岩石学的特徴と骨材のアルカリシリカ反応性試験の適合性, 土木学会論文集, No.767/V-64, pp.185-197, 2004