

論文 軽量骨材のアルカリシリカ反応性とその試験法に関する提案

酒井 賢太^{*1}・杉山 彰徳^{*2}・石川 雄康^{*3}・鳥居 和之^{*4}

要旨：本研究では、各種軽量骨材の化学組成および内部組織がアルカリ溶出に及ぼす影響を調べるとともに、軽量骨材の密度を考慮した配合で作製したモルタルのアルカリシリカ反応による膨張量を各種促進養生条件下にて比較検討した。その結果、軽量骨材は内部の気孔から早期に多量のアルカリを溶出する可能性があること、軽量骨材のアルカリシリカ反応性の判定には軽量骨材の密度を考慮した容積比配合で、ASTM C1260 法を適用するのが有効であること、が明らかになった。

キーワード：軽量骨材, アルカリシリカ反応, JIS A1146, ASTM C1260, アルカリ溶出

1. はじめに

近年、軽量骨材を使用したコンクリート構造物でアルカリシリカ反応 (ASR 略記) の劣化とされる事例が報告されている¹⁾。一方、軽量骨材にモルタルバー法 (JIS A1146-2001) を適用した場合、規定に準拠した配合でモルタルを作製すると、モルタル中の骨材容積の増大により、モルタルの打設が困難になるなど、現行の JIS 規定では軽量骨材を対象とした場合の作製方法の詳細や判定基準値の妥当性が記載されていないのが問題とされている²⁾。また、廃棄ガラス起源のリサイクル骨材からのアルカリ溶出が報告されており、ASR に及ぼす影響が懸念されている³⁾。軽量骨材の一部は高温での焼成過程を経て製造されているので、骨材中にガラス相を含有しており、軽量骨材の化学組成や内部組織によっては同様にアルカリが骨材から溶出する可能性をもっている。さらに、軽量骨材のアルカリシリカ反応性の判定に化学法 (JIS A1145-2001) は適用できないとされているが、化学法で判定した際の問題点などについては詳細に検討されていないのが実状である。

本研究では、軽量骨材のアルカリ溶出性状に

ついて調べるとともに、軽量骨材の密度を考慮した配合で作製したモルタルの ASR による膨張量を各種促進養生条件下にて比較検討した。

2. 実験概要

2.1 使用材料

本実験に使用した軽量骨材は、市販されている、6 種類の人工軽量骨材と 1 種類の天然軽量骨材であり、それらの原材料の種類および物理的性質を表-1 に示す。骨材 E, F 以外は軽量粗骨材であるので、ロールミルで粉砕した後に、細骨材の粒度 (5mm 以下) に調整した。代表的な軽量骨材の鏡面研磨試料の SEM 像を写真-1 に示す。軽量骨材の内部組織はいずれも多孔質で

表-1 軽量骨材の原材料および物理的性質

| 骨材名 | 原材料 | 絶乾密度 (g/cm ³) | 吸水率 (%) |
|-------------|------|---------------------------|---------|
| 骨材 A: 人工(粗) | 膨張頁岩 | 1.38 | 15.7 |
| 骨材 B: 人工(粗) | 黄土 | 1.45 | 10.1 |
| 骨材 C: 人工(粗) | 石炭灰 | 1.43 | 22.1 |
| 骨材 D: 人工(粗) | 膨張頁岩 | 1.33 | 18.1 |
| 骨材 E: 人工(細) | 真珠岩 | 0.95 | 31.8 |
| 骨材 F: 人工(細) | ガラス | 0.70 | 7.8 |
| 骨材 G: 天然(粗) | 火山礫 | 1.37 | 27.6 |

*1 金沢大学 自然科学研究科社会基盤工学専攻 (正会員)

*2 太平洋マテリアル (株) 開発研究所建設技術グループサブリーダー 工修 (正会員)

*3 人工軽量骨材協会 (太平洋マテリアル (株) 建設技術グループリーダー) 博 (工) (正会員)

*4 金沢大学 自然科学研究科社会基盤工学専攻教授 工博 (正会員)

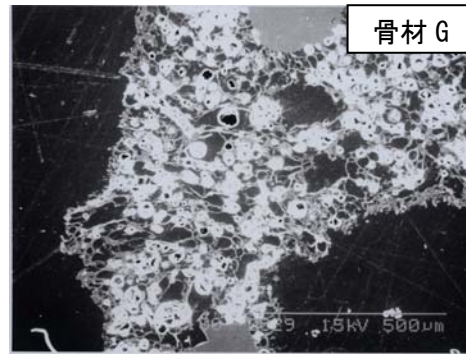
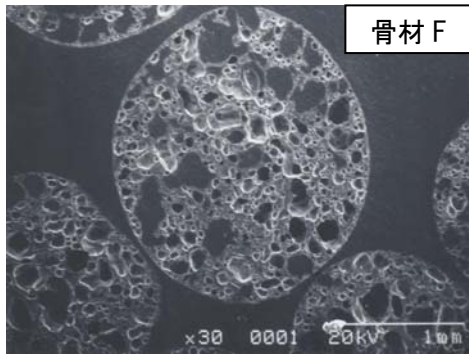


写真-1 軽量骨材のSEM像

あるが、空隙（気孔）の形状やその連続性は骨材ごとに大きく相違している。また、構造用軽量骨材（骨材 A, B, C および D）は独立した空隙による不連続性の確保と固い表面殻組織により骨材の吸水率を減少させているのが特徴である。モルタルバーの作製では普通ポルトランドセメント（密度： 3.16g/cm^3 , ブレーン値： $3330\text{cm}^2/\text{g}$, 等価アルカリ量： 0.68% ）を使用した。

2.2 実験方法

(1) 骨材の化学組成および鉱物組成

軽量骨材の化学組成を調べるために、骨材粒子の鏡面研磨試料（粒径： $1.2\sim 2.5\text{mm}$ ）の走査型電子顕微鏡とエネルギー分散型 X 線分析との組合せによる SEM-EDX 分析を実施した。また、骨材に含有する構成鉱物およびガラス相の同定を行うために、 $90\mu\text{m}$ 以下の粉末試料の粉末 X 線回折分析（XRD）を実施した。

(2) 骨材からのアルカリ溶出量

軽量骨材からのアルカリ溶出量⁴⁾を調べるために、骨材（粒径 5mm 以下）を 38°C に保持した飽和水酸化カルシウム溶液（骨材と溶液の質量比 $1:2$ ）に浸せきし、7, 28, 91, 182 日間経過後に、溶液中のアルカリイオン (Na^+ , K^+) の濃度を原子吸光光度分析法により求めた。骨材からのアルカリ溶出量 (mg/g) は骨材 1g 当たりの等価アルカリ溶出量 (mg , $\text{Na}_2\text{O}+0.658\text{K}_2\text{O}$) で表した。

(3) 骨材のアルカリシリカ反応性

骨材のアルカリシリカ反応性試験は、化学法および 3 種類のモルタルバー法（JIS A1146-2001

（温度 40°C , 相対湿度 100% ）, ASTM C1260（温度 80°C の $1\text{N}\cdot\text{NaOH}$ 溶液に浸せき）およびデンマーク法（温度 50°C の飽和 NaCl 溶液に浸せき）である。最初に、それぞれの規格に準拠した質量比配合にてモルタルバーを作製した。次に、軽量骨材と標準砂（通常の細骨材）との密度差を考慮した容積比配合（セメント：骨材 = $1:1.35$ とし、水セメント比は各試験法に準拠する）にて作製した。

(4) ASR ゲルの生成状況と化学組成

ASR ゲルの生成状況を酢酸ウラニル蛍光法により調べた。また、軽量骨材の内部およびその近傍に生成した ASR ゲルの形態およびその化学組成を SEM-EDX 分析により検討した。

3. 実験結果および考察

3.1 骨材の化学組成および鉱物組成

軽量骨材の化学組成（SEM-EDX 分析）を表-2 に示す。軽量骨材の化学組成は、原材料の種類や焼成方法により相違するとともに、軽量骨材の内部でも均一ではなく、微量成分が偏在することが確認された。軽量骨材の主要な化学組成は、シリカおよびアルミナであり、 10% 程度のアルカリを含有しているのが特徴である。

軽量骨材の粉末 X 線回折分析図（骨材 E, F および G）を図-1 に示す。軽量骨材にはすべて非晶質なガラス相の存在を示すハロー（halo）が存在した。とくに、骨材 E, F および G はハローのピークが大きいことから判断すると、ガラス相の量が多いものと推測される。また、骨材 E

表-2 軽量骨材の化学組成 (SEM-EDX 分析, wt%)

| | SiO ₂ | Al ₂ O ₃ | Fe ₂ O ₃ | CaO | MgO | Na ₂ O | K ₂ O | SO ₃ | total |
|------|------------------|--------------------------------|--------------------------------|-----|-----|-------------------|------------------|-----------------|-------|
| 骨材 A | 52.3 | 18.6 | 4.1 | 3.1 | 4.0 | 8.7 | 2.0 | 0.1 | 92.9 |
| 骨材 B | 65.5 | 14.1 | 0.5 | 2.0 | 2.3 | 11.0 | 1.9 | 0.3 | 97.6 |
| 骨材 C | 55.9 | 22.4 | 1.3 | 0.3 | 4.0 | 10.5 | 1.5 | 0.3 | 96.2 |
| 骨材 D | 59.1 | 17.0 | 1.7 | 0.1 | 3.2 | 10.4 | 1.9 | 0.3 | 93.7 |
| 骨材 E | 68.4 | 13.2 | 0.0 | 0.2 | 1.3 | 10.2 | 2.8 | 0.1 | 96.2 |
| 骨材 F | 50.4 | 20.2 | 0.0 | 4.6 | 2.1 | 14.9 | 0.6 | 0.1 | 92.9 |
| 骨材 G | 65.9 | 12.9 | 1.1 | 1.5 | 2.0 | 11.8 | 1.0 | 0.5 | 96.7 |

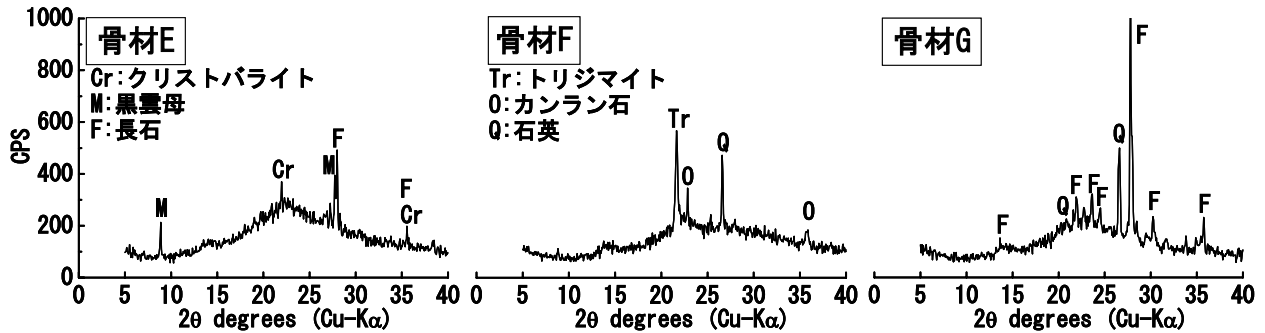


図-1 粉末 X 線回折分析図

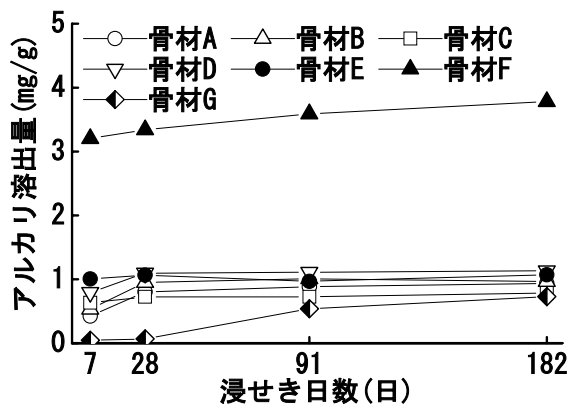


図-2 軽量骨材からのアルカリ溶出量

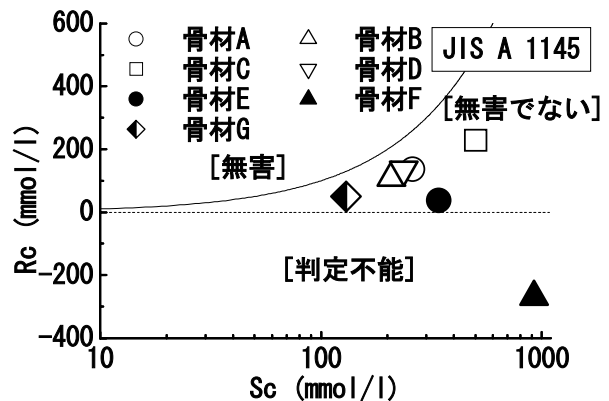


図-3 化学法の結果

にはクリストバライトおよび黒雲母、骨材 F にはトリジマイトの反応性鉱物が存在した。したがって、軽量骨材は反応性鉱物を含有しているので、ASR が発生する可能性がある。

3.2 骨材からのアルカリ溶出

軽量骨材からのアルカリ溶出量を図-2 に示す。人工軽量骨材は初期より比較的多くのアルカリが溶出するが、アルカリ溶出は浸せき 28 日までにほぼ終了しているのが特徴である。とくに、廃棄ガラスより製造された骨材 F は他の人工軽量骨材と比較して顕著なアルカリ溶出が認められる。一方、天然骨材 G は浸せき 28 日までのアルカリ溶出量は少ないが、浸せき日数と

もにアルカリ溶出量が増大している。これは、軽量骨材のガラス相のアルカリ含有量が高いこと、内部組織が多孔質であり、溶液と接する面積が大きくなること、によるものである。これらの結果より、軽量細骨材の種類によってはアルカリ溶出に留意する必要がある。

3.3 化学法によるアルカリシリカ反応性の判定

化学法による判定結果を図-3 に示す。化学法では軽量骨材は「無害でない」と判定された。その中で、骨材 F のみがアルカリ濃度減少量が負の値となり、現行の判定基準によると「判定不能」となった。この結果は、化学法の試験中に ASR により消費されるよりも多いアルカリが

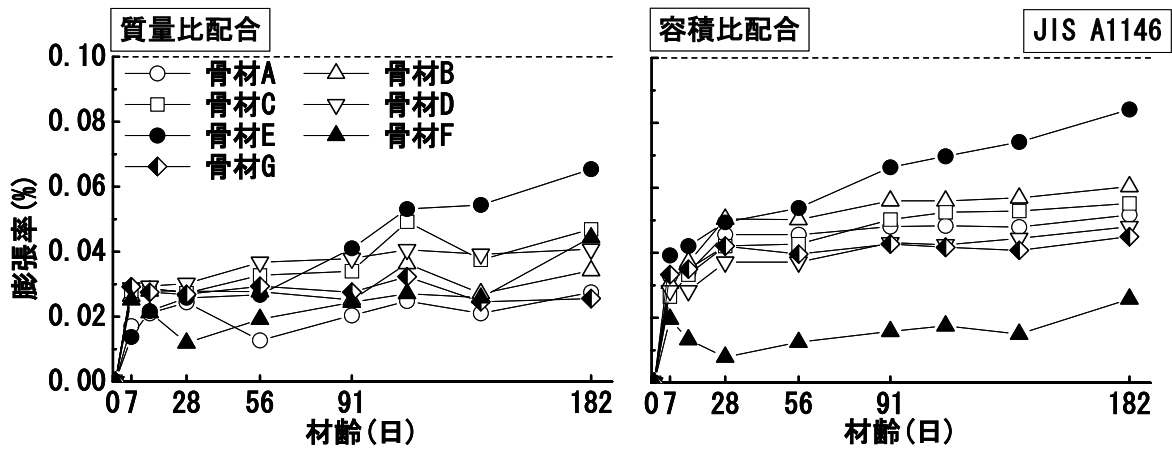


図-4 モルタルの膨張挙動の比較 (JIS A1146)

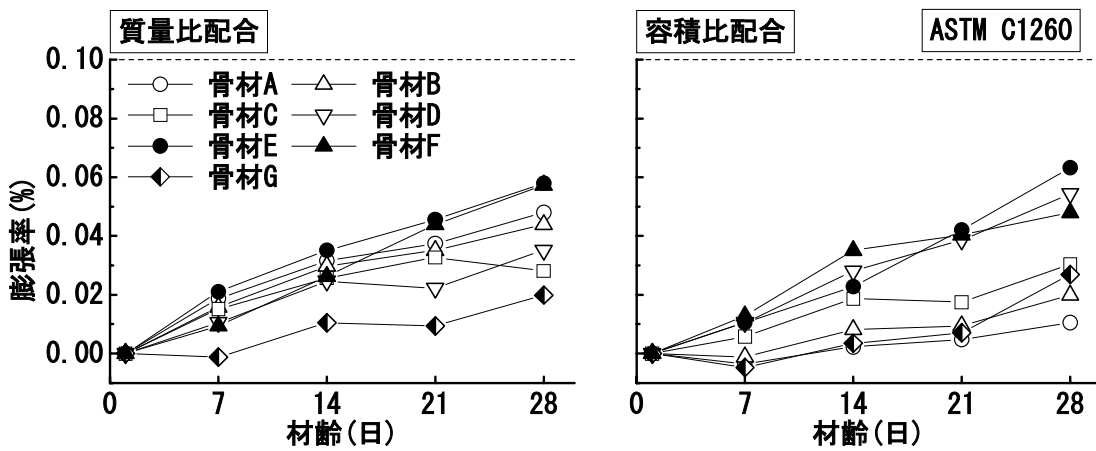


図-5 モルタルの膨張挙動の比較 (ASTM C1260)

骨材から溶出していることを示している。また、骨材 E も溶解シリカ量に比べてアルカリ濃度減少量が小さいことから判断すると、同様に化学法の試験中にアルカリが溶出している可能性がある。骨材 E および F は軽量細骨材であり、これらの混合使用には注意が必要である。以上の結果より、軽量骨材の ASR 判定に化学法を適用することは妥当でないと判断された。

3.4 モルタルバー法によるアルカリシリカ反応性の判定

各種促進養生試験 (JIS A1146, ASTM C1260 およびデンマーク法) におけるモルタルバーの膨張量の比較を図-4, 図-5 および図-6 に示す。JIS A1146 では、質量比配合と容積比配合のモルタルの膨張量に大きな相違はなく、いずれも「無害」とされる 0.1% 以下の膨張量であった。また、質量比配合と容積比配合との比較に関して、容積比配合のモルタルの膨張量は、骨材間

の膨張量の差異が大きくなるとともに、3 本の試験体間の変動が小さくなった。一方、外部からアルカリが供給される、厳しい高温促進環境下における ASTM C1260 では、質量比配合と容積比配合のモルタルの膨張量に大きな相違はなく、材齢 14 日で「無害」と判定される 0.1% 以下の膨張量ではあったが、浸せき材齢の増加に伴い、膨張量が増加した。ASTM C1260 でも、JIS A1146 と同様に両配合のモルタルの膨張量に大きな相違がないが、容積比配合のものは骨材の種類による膨張挙動の相違が明確であった。JIS A1146 および ASTM C1260 に関して、反応性鉱物としてクリストバライトおよびガラス相を含有している骨材 E は他の軽量骨材と比べてモルタルの膨張量が長期材齢にて増大した。しかし、デンマーク法では容積比配合にてモルタルが収縮するなど、JIS A1146 および ASTM C1260 の傾向とは大きく相違した。デンマーク法では、NaCl の

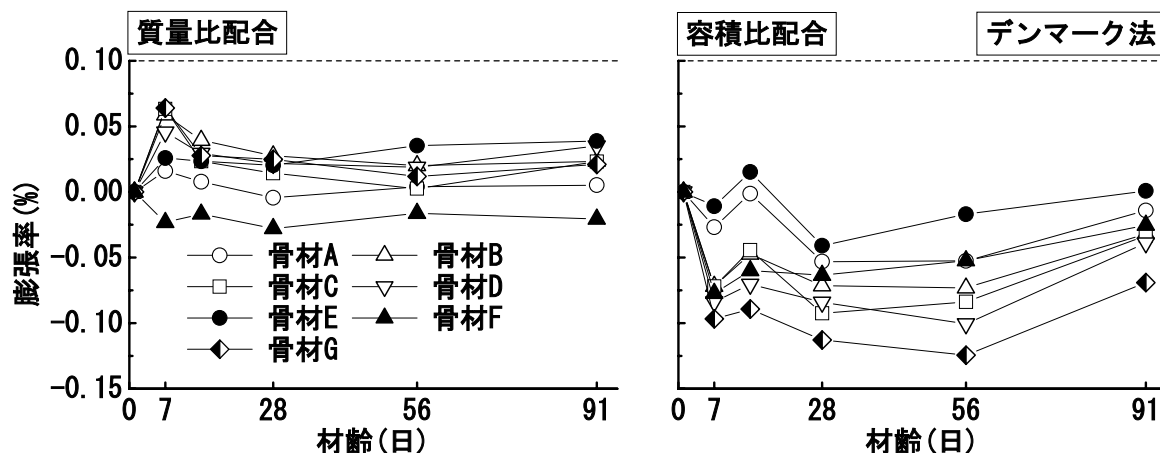


図-6 モルタルの膨張挙動の比較 (デンマーク法)

浸透過程で、フリーデル氏塩の生成と水酸化カルシウムの分解により、ASR が発生するアルカリ雰囲気形成される⁵⁾。デンマーク法のアルカリ雰囲気は JIS A1146 および ASTM C1260 ほど厳しい条件にはならないので、軽量骨材に本試験法を適用するのは困難であると考えられた。

3.5 ASR ゲルの生成状況と化学組成

酢酸ウラニル蛍光法により測定したモルタル破断面の蛍光発色面積率 (ASR ゲルの生成領域) を表-3 に示す。JIS A1146 および ASTM C1260 では骨材 B 以外のもので蛍光発色が観察された (写真-2 参照)。JIS A1146 および ASTM C1260 では、質量比配合および容積比配合の発色面積率はほぼ同じであり、配合の相違は ASR ゲルの生成量には影響を及ぼさないことが明らかになった。また、ASTM C1260 は蛍光発色が薄く拡がっており、ASR ゲルの流動化が生じた痕跡が認められた。一方、デンマーク法ではクリストバライトを含有する骨材 E とトリジマイトを含有する骨材 F のみにごく僅かな ASR ゲルの生成が確認できた。

各種促進養生終了後のモルタル破断面の SEM 像を写真-3, 4 に示す。ASR ゲルは骨材の殻周辺や内部空隙だけでなく、モルタル中の気泡に生成していた (写真-3 参照)。ASTM C1260 における ASR ゲルの化学組成は、シリカ分が 45~54%、アルカリ分 ($\text{Na}_2\text{O} + 0.658\text{K}_2\text{O}$) が 16~26%、カルシウム分が 13~22% であり、ASR 膨張性を有するゲルが生成していた⁶⁾。また、JIS

表-3 酢酸ウラニル蛍光法によるモルタル破断面の蛍光発色領域の面積率 (%)

| | JIS A1146 | | ASTM C1260 | |
|------|-----------|------|------------|------|
| | 質量比 | 容積比 | 質量比 | 容積比 |
| 骨材 A | 1.2 | 2.3 | 19.5 | 23.7 |
| 骨材 B | 0.0 | 0.0 | 0.0 | 0.0 |
| 骨材 C | 0.3 | 5.3 | 1.2 | 8.8 |
| 骨材 D | 0.0 | 1.6 | 11.5 | 14.6 |
| 骨材 E | 8.5 | 16.0 | 69.6 | 72.4 |
| 骨材 F | 12.8 | 7.4 | 55.5 | 61.1 |
| 骨材 G | 0.6 | 0.5 | 8.4 | 11.4 |

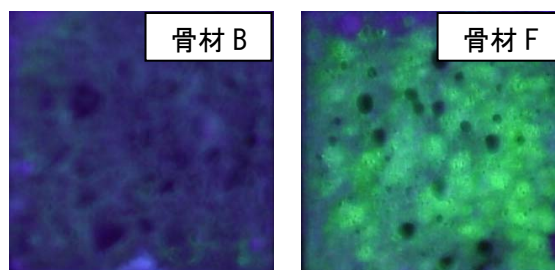


写真-2 ASR ゲルの発色状況 (ASTM C1260)

A1146 終了後のものでは骨材の内部空隙に生成した ASR ゲルが観察された (写真-4 参照)。JIS A1146 の ASR ゲルの化学組成は、シリカ分が 27~50%、アルカリ分が 9~15%、カルシウム分が 26~54% であった。

ASTM C1260 では軽量骨材を使用したモルタルの ASR ゲルの生成量に明確な相違が存在することから、軽量骨材のアルカリシリカ反応性の評価に本方法の適用が可能であると判断された。その一方で、軽量骨材を使用したモルタルでは ASR ゲルによる膨張圧が骨材の内部空隙により

大きく緩和されることが判明した。したがって、軽量骨材では、ASTM C1260 の判定基準に、より厳しい値を適用するのが妥当であり、例えば 0.05%以下（無害）、0.05–0.1%（無害と有害の両者が存在）、0.1%以上（有害）として当面運用することが望ましいと考えられた。

4. 結論

本研究で得られた主要な結果は以下の通りである。

- (1) 軽量骨材は反応性鉱物（ガラス相、クリストバライト、トリジマイト、など）を含有していた。
- (2) 廃棄ガラスを使用した軽量骨材は早期に多量のアルカリを溶出する可能性があった。
- (3) 化学法の結果より、軽量骨材のアルカリシリカ反応性は「無害でない」または「判定不能」と判定され、軽量骨材に化学法を適用するのは妥当ではなかった。
- (4) JIS A1146 および ASTM C1260 では、質量比配合と容積比配合のモルタルの膨張量に大きな相違は認められなかった。また、デンマーク法では容積比配合にてモルタルが収縮するなど、全体的に膨張量が小さくなった。
- (5) 酢酸ウラニル蛍光法の結果より、質量比配合と容積比配合のモルタルにおける ASR ゲルの生成量に大きな相違はなかった。
- (6) 軽量骨材のアルカリシリカ反応性の判定には軽量骨材の密度を考慮した容積比配合で、ASTM C1260 法を適用するのが有効であった。

謝辞：本研究の実施にあたり、ご協力いただいた人工軽量骨材協会ならびに金沢大学自然科学研究科清水和博氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) 松田芳載ほか：軽量コンクリートを用いた実構造物の調査報告，コンクリート構造物の補修，補強，アップグレード論文報告集，

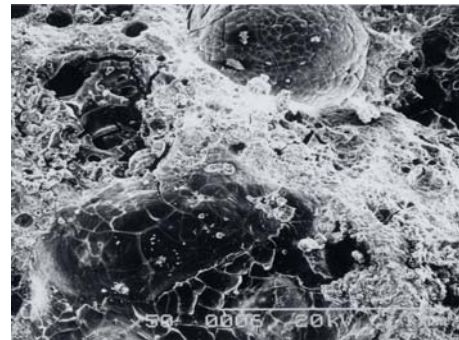


写真-3 骨材 F 周囲に生成した ASR ゲル (ASTM C1260)

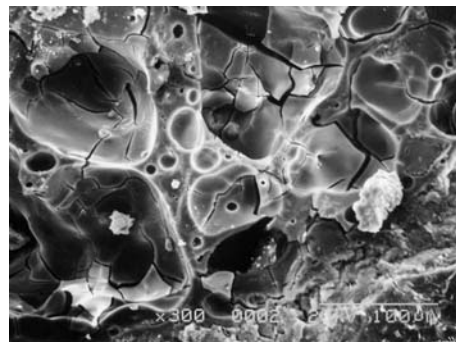


写真-4 骨材 F 内部に生成した ASR ゲル (JIS A1146)

第 4 巻，pp.183-188，2004

- 2) 杉山彰徳ほか：人工軽量骨材のアルカリシリカ反応性，コンクリート工学年次論文集，Vol.27，No.1，pp.1381-1386，2005
- 3) 山戸博晃ほか：ガラス破碎砂の化学組成とアルカリシリカ反応性：コンクリート工学年次論文集，Vol.27，No.1，pp. 1429-1434，2005
- 4) M. Kawamura et al：Release of Alkalies from Reactive Andesitic Aggregates and Fly Ashes into Pore Solution in Mortars，Proc. of the 8th Inter. Conf. on Alkali-Aggregate Reaction in Concrete，pp.271-278，1989
- 5) 川村満紀ほか：外部から供給される NaCl がアルカリシリカ反応によるモルタルの膨張に及ぼす影響のメカニズム，土木学会論文集，No.502/V-25，pp.93-102，1994.11
- 6) 川村満紀ほか：コンクリートの材料科学，森北出版，pp.178-182，2002