論文　石川県産骨材のアルカリシリカ反応性の評価に関する研究

山戸　博晃*1・南　善導*2・大代　武志*3・鳥居　和之*4

要旨：石川県内で産出する反応性骨材としては，能登地方北部の安山岩砕石と一部地域での川砂，川砂利とがある。本研究では，それらの骨材の岩石・鉱物学的特徴とアルカリシリカ反応性を検討した。能登地方の安山岩砕石に含有される反応性鉱物の種類とその量は採取地によって相違があり，風化・変質過程でのスメクタイト化が骨材のアルカリシリカ反応性の正確な判定を困難なものにしていた。また，骨材からのアルカリ溶出量を考慮すると，現行の JIS A 5308 でのアルカリ総量規制値による抑制対策では不十分である可能性があった。

キーワード：反応性骨材，アルカリシリカ反応性，アルカリ溶出，モンモリロナイト

1．まえがき

石川県ではアルカリシリカ反応（ASR）による構造物の劣化が顕在化している。とくに，能登地方では，安山岩砕石を使用した構造物にて，鉄筋破断をともなう，大きな劣化が多数発生している。石川県のASR対策検討委員会では，2004年から2年間にわたり全橋梁のASR発生状況を調査した。その結果，1027の調査橋梁の内，約300の橋梁にASRによる劣化の兆候があることを確認し，奥能登地域では橋梁数の48%がASRによる劣化が発生していた[1)]。

石川県の代表的な反応性骨材は能登半島北部で産出される安山岩砕石が有名であるが，安山岩の岩体が白山麓にも存在するため，手取川水系の河川産骨材にも安山岩粒子が混入していることが知られている。また，能登産の安山岩には風化・変質作用の影響を受けているものがあり，現行のASR試験法により適切に評価できないことが問題であるとされている[2)]。一方，諸外国では骨材から溶出するアルカリの影響がすでに検討されており，RIREM TC 191-ARPでは骨材のアルカリ溶出試験（AAR-8）の規格化が進んでいる[3)]。さらに，わが国では，ASR抑制対策として，アルカリ総量規制値（3kg/m^3）を基本に据えているが，骨材から溶出したアルカリの影響により，ASRが長期にわたり進行する場合があることも指摘されている[4)]。

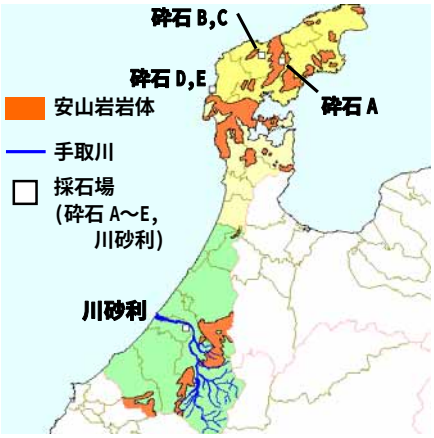
本研究では，石川県内で産出する骨材のアルカリシリカ反応性を調べることを目的として，5種類の安山岩砕石と1種類の川砂利に対して化学法と3種類の促進モルタルバー法を実施した。さらに，骨材からのアルカリ溶出量を調べるために，石灰飽和溶液中における骨材からのアルカリの溶出性状を比較検討した。

2．実験概要

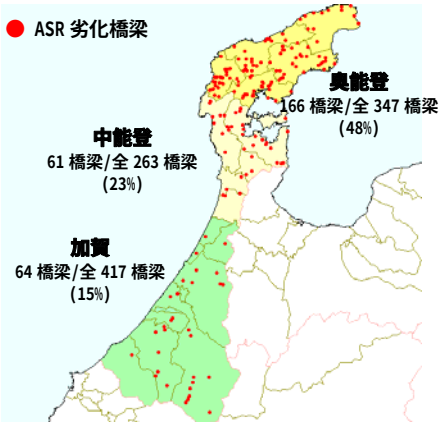
2.1 使用材料

本研究に使用した骨材は，5 種類の安山岩砕石（砕石 A（能登町），砕石 B（輪島市），砕石 C（輪島市），砕石 D（門前町），砕石 E（門前町））と 1 種類の川砂利 F（白山市）の計 6 種類である。石川県の安山岩岩体の分布状況を**図-1** に示す。能登半島の北部に安山岩の岩体が帯状に横断しており，この地域に多くの採石場がある。安山岩には，反応性鉱物としてクリストバライトと火山ガラスが含有されており，それらの量

*1　金沢大学　工学部土木建設工学科技術官（正会員）
*2　東京コンサルタンツ㈱（正会員）
*3　金沢大学　自然科学研究科環境科学専攻（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）



図－1 反応性骨材(岩体)の分布状況



図－2 ASR が発生した橋梁の分布状況

は採取地によって大きな相違がある。すなわち，今回の試料に関しては，門前町産のものには火山ガラスが多く残存しているのに対して，風化・変質作用を受けた輪島市産のものには火山ガラスが少量しか含有されておらず，スメクタイト化（モンモリロナイト）が進行しているのが特徴である。

2.2 試験方法

(1) 骨材の岩石・鉱物学的特徴

骨材の粉末試料を使用して，蛍光X線分析により化学成分を測定するとともに，X線回折によりクリストバライトや火山ガラス，モンモリロナイトなどを同定した。

(2) 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を現行の化学法（JIS A1145-2001）およびモルタルバー法（JIS A1146-2001）により調べるとともに，外部よりアルカリが常に供給される，より厳しい養生条件である促進モルタルバー法（ASTM C1260（温度80℃の1N･NaOH溶液への浸せき）およびデンマーク法（温度50℃の飽和NaCl溶液への浸せき））を実施した。使用したセメントは普通ポルトランドセメント（密度：3.16g/cm^3，等価アルカリ量：0.68%）である。

(3) ASR ゲルの生成状況と化学組成

モルタルバー試験終了後，ASRゲルの生成状況を酢酸ウラニル蛍光法により調べるとともに，モルタルの破断面より断片を採取し，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。

(4) 骨材からのアルカリ溶出性状

骨材からのアルカリ溶出量を調べるために，骨材（50g）を38℃の飽和水酸化カルシウム溶液（100 ml）に浸せきし，骨材から溶出するアルカリ濃度（Na^+およびK^+イオン）を原子吸光光度分析により測定した。なお，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（Na_2O+0.658K_2O）で表示した。

3．実験結果及び考察

3.1 ASR の発生地域と反応性骨材の種類

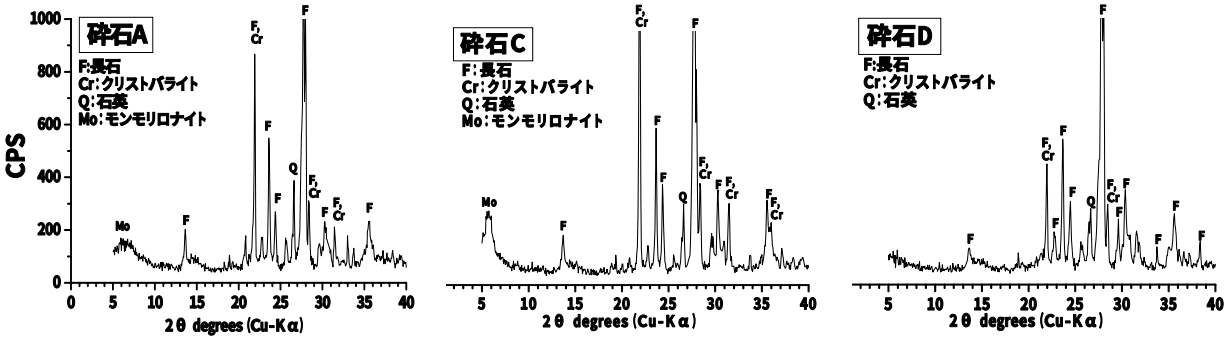
石川県内のASRが発生した橋梁の分布状況を**図-2**に示す。橋梁の規模やASR損傷度とは無関係にASR劣化橋梁の分布状況だけを見ると，奥能登地域にASR劣化橋梁が多く存在していることがわかる。奥能登地域のASRはすべて安山岩砕石によるものであることが明らかになっている。一方，中能登地域や加賀地域でもASRが発生しているが，これらの地域のASRは川砂および川砂利が原因であり，ASR損傷度も比較的軽微なものが多い。最近の調査では，金沢市近郊にて富山県の庄川水系や常願寺川水系の河川産骨材によるASRや，白山麓にて手取川水系の一部の河川産骨材によるASRが新たに発見されている。

3.2 骨材の岩石・鉱物学的特徴

能登産の安山岩砕石の化学成分を**表-1**に示す。

表－1　安山岩砕石の化学成分（%）

	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	CaO	Na_2O	K_2O	MgO	TiO_2	P_2O_5	MnO	Total
砕石 A	60.7	20.1	5.9	4.8	3.2	1.8	2.3	0.7	0.2	0.1	99.8
砕石 B	63.1	20.2	5	4.6	3.2	1.5	1.4	0.7	0.2	0.1	100
砕石 C	62.2	19.6	4.7	5.5	2.6	0.8	3.4	0.6	0.2	0.1	99.7
砕石 D	58.4	23.2	5.1	5.9	3.1	2.2	0.9	0.7	0.2	0.1	99.8



図－3　安山岩砕石のＸ線回折の結果

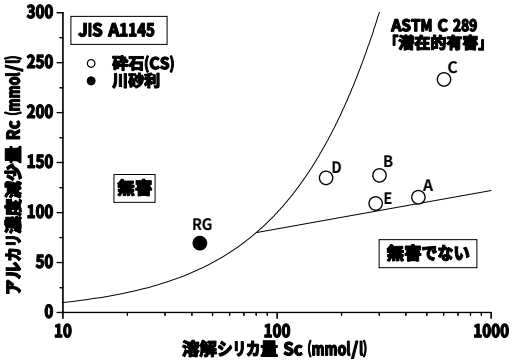
安山岩の主要な化学成分は，シリカ分(60%)およびアルミナ分(20%)であり，モンモリロナイトを含有するもの（灰色または渇色）はガラス質のもの（黒色）と比較すると，シリカ分が多くなり，アルミナ分が少なくなるという，化学成分の特徴があった。また，安山岩には5%程度のアルカリ分が含有されており，マグネシウム量には採取地による相違が顕著に認められた。

能登産の安山岩砕石のＸ線回折分析の結果を**図-3** に示す。安山岩砕石は反応性鉱物としてクリストバライトと火山ガラスを含有していた。また，採取地により安山岩砕石に含有するクリストバライトの回折強度が相違した。X 線回折分析より，安山岩砕石の中で，スメクタイト化が最も進行しているものは砕石 C であり，ガラス質の砕石Ｄはクリストバライトの含有量が最も少なかった。骨材の ASR 試験法ではクリストバライトおよび火山ガラスの反応性とその量的関係が正確に反映されているものが望ましい。

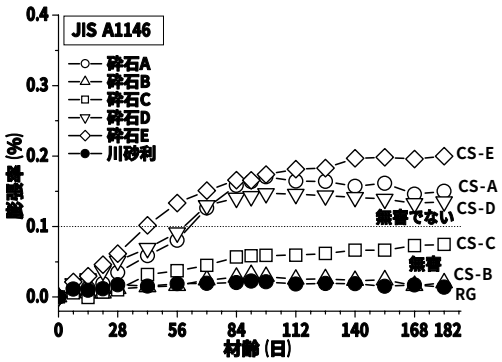
3.3 骨材のアルカリシリカ反応性

化学法（JIS A1145）による判定結果を**図-4**に示す。すべての安山岩砕石は化学法（JIS A1145）により「無害でない」と判定されるとともに，化学法（ASTM C289）における「潜在的有害」の判定領域にプロットされた。とくに，スメクタイト化の進んだ砕石Cは，モンモリロナイトによるアルカリ吸着作用により，アルカリ濃度減少量が大きくなった。能登産の安山岩砕石を使用したコンクリートは60%から80%の範囲にペシマム混合率をもつことが確認されており，これは化学法（ASTM C289）における「潜在的有害」に判定される結果とも一致している。それに対して，手取川産の川砂利は，アルカリ濃度減少量および溶解シリカ量ともに少なく，「無害」と判定された。

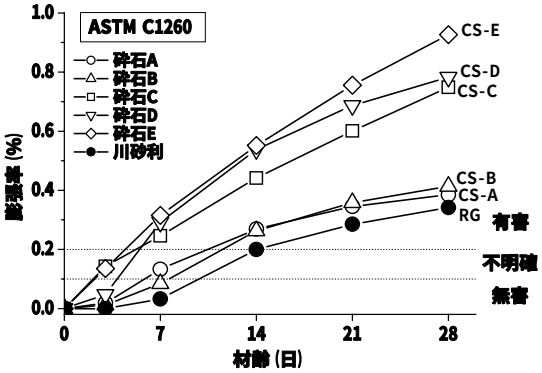
モルタルバーの膨張挙動（JIS A1146）を**図-5**に示す。モルタルバー法（JISA 1146）では，砕石中の火山ガラス，クリストバライトおよびモンモリロナイトの含有量により膨張挙動が大きく相違した。すなわち，砕石A, DおよびEは0.1%以上の膨張量が発生し，「無害でない」と判定されたのに対して，スメクタイト化が進んだ砕石BおよびCは川砂利と同様に大きな膨張が発生せず，「無害」と判定された。モルタルバー法（JISA 1146）では，アルカリ（セメント質量の1.2%）がモルタルの打設時に添加されており，養生期間中に比較的多量のアルカリが漏出する影響で，モルタルの膨張が材齢60日以後に停止



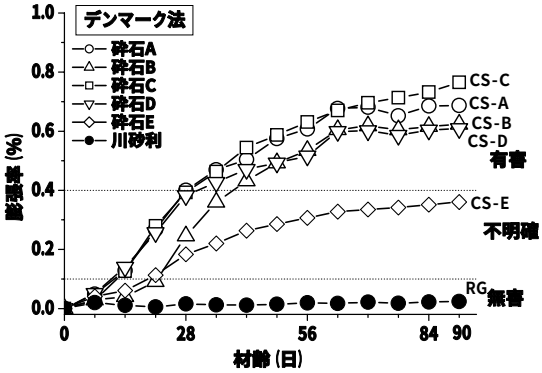
図－4　化学法(JIS A 1145)による判定結果



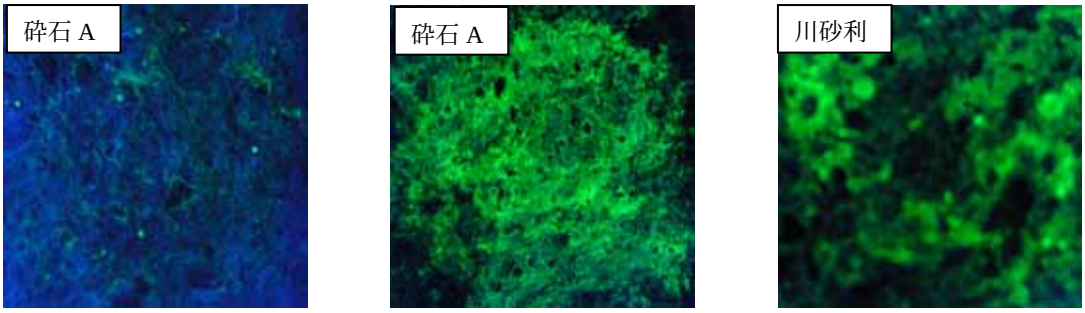
図－5　モルタルバーの膨張挙動(JIS A 1146)



図－6　モルタルバーの膨張挙動
(ASTM C 1260)



図－7　モルタルバーの膨張挙動
(デンマーク法)



JIS A 1146(40mm 角)　　デンマーク法(40mm 角)　　ASTM C 1260(25mm 角)

写真－1　モルタルバー試験終了後の ASR ゲルの生成状況

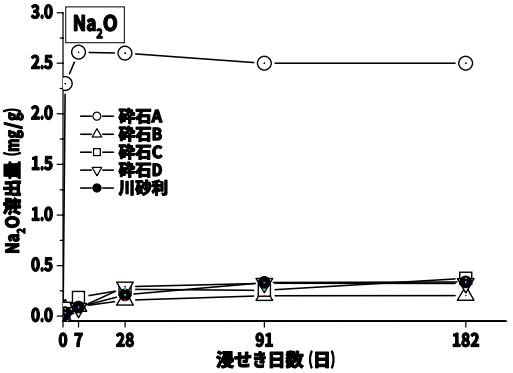
した。

モルタルバーの膨張挙動（ASTM C 1260）を**図-6**に示す。モルタルバー法（ASTM C 1260）では，安山岩砕石はすべて「有害」と判定された。また，非反応性の骨材である川砂利も膨張しており，「不明確」と判定された。ASTM C 1260では，川砂利の中にごく少量の火山岩系の岩石が含有している場合にもそれらがASTM C 1260の条件では実際に反応するために，モルタルの膨張が発生しているものと推察された（**写真-1** 参照）。北陸地方の火山岩系の岩石を含有する川砂や川砂利には，ASTM C1260の判定基準をそのまま適用することは不適当であった。

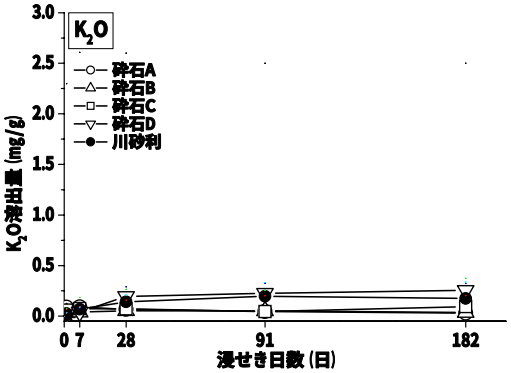
モルタルバーの膨張挙動（デンマーク法）を**図-7** に示す。デンマーク法では，すべての安山岩砕石が膨張しており，「有害」または「不明確」であると判定された。デンマーク法におけるモルタルの膨張量はX線回折におけるクリストバライトの回折強度や酢酸ウラニル蛍光法による ASR ゲルの生成状況ともよく一致していた（**写真-1** 参照）。また，アルカリが外部から常に供給されるため，材齢が経過するとともにモルタ

表－2　骨材の ASR 試験法の判定結果の整合性

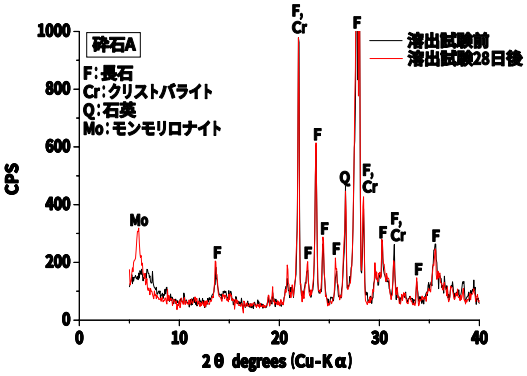
骨材の種類	化学法				JIS A 1146		ASTM C1260		デンマーク法	
	Sc (mmol/l)	Rc (mmol/l)	Sc/Rc	判定結果	膨張量 (%)	判定結果	膨張量 (%)	判定結果	膨張量 (%)	判定結果
砕石 A(能登)	458	115	3.98	無害でない	0.15	無害でない	0.27	有害	0.69	有害
砕石 B(輪島)	301	137	2.2	無害でない	0.02	無害	0.26	有害	0.62	有害
砕石 C(輪島)	603	233	2.59	無害でない	0.08	無害	0.44	有害	0.77	有害
砕石 D(門前)	170	135	1.26	無害でない	0.14	無害でない	0.54	有害	0.61	有害
砕石 E(門前)	289	109	2.65	無害でない	0.2	無害でない	0.55	有害	0.36	不明確
川砂利(白山)	44	69	0.64	無害	0.01	無害	0.19	不明確	0.02	無害



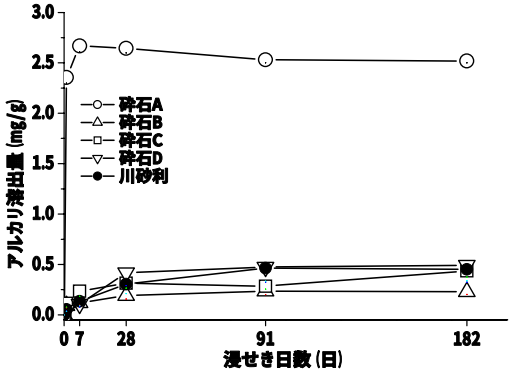
図－8　骨材からのナトリウムの溶出性状



図－9　骨材からのカリウムの溶出性状



図－10　アルカリ溶出試験後の X 線回折図



図－11　骨材からのアルカリ総溶出量

ルの膨張量が大きく増大しており，判定が容易となる利点もあった。それに対して，川砂利の場合は，ASTM C 1260 では膨張が発生したが，デンマーク法では，ASR ゲルが生成しておらず，モルタルの膨張もまったく発生しなかった。

3.4 ASR 試験法の判定結果の適合性

骨材の ASR 試験に関しては，JIS A 1146 では判定までに 6 ヶ月かかることから，実際のコンクリートの品質管理に適用しにくいことが問題とされている。それに対して，ASTM C 1260 およびデンマーク法では，それぞれ 14 日および 91 日で判定できる点が有利であるが，わが国での両試験法の試験実績は少なく，促進養生条件が実構造物での使用・環境条件との関係が不明確であるとされている [2)]。骨材の ASR 試験法の判定結果の整合性を**表-2** に示す。モルタルバー法の判定に関して，JIS A 1146 はスメクタイト化の進行した安山岩砕石にて，ASTM C 1260 では火山岩系の岩石を含有する川砂利にて，適切に判定できない場合があった。一方，デンマーク法は石川県内の安山岩と川砂利の両者に適用が可能であり，また試験自体が ASTM C 1260 と比較して安全かつ簡便であることから，骨材の ASR 試験法として適当であると判断された。

3.5 骨材からのアルカリ溶出性状

骨材からのNa^+およびK^+イオンの溶出量を**図-8**および**図-9**に示す。ナトリウムの溶出性状に関して，砕石Aからは浸せき1日より多量のNa^+イオンが溶出したが, 浸せき7日以後にほぼ一定になった。これは，砕石Aに含有されるモンモリロナイトのNa^+イオンと水酸化カルシウム溶液中のCa^{2+}イオンとのイオン交換反応により，モンモリロナイトのNa^+イオンが放出されたものと推察された。砕石Aのアルカリ溶出試験の前後でのX線回折図を**図-10**示す。砕石A以外のものは試験の前後で明確なピークの変化が認められなかった。それに対して，砕石Aは溶出試験後にモンモリロナイトのピーク高さが大きく増大していた。したがって，モンモリロナイトが含有する陽イオンの種類については骨材からのアルカリ溶出との関係で十分な注意を払う必要があった。

骨材からのアルカリ総溶出量を**図-11**に示す。砕石A のアルカリ溶出量は2.7mg/gとなり, それ以外のものは0.5mg/g以下となった。単純に，砕石A が砕砂として使用される場合（800 kg/m^3として計算）を想定すると，砕石Aからは2.2kg/m^3のアルカリが溶出することになる。この値は，セメントから供給されるアルカリ量とほぼ同量であり，骨材からのアルカリがASRの発生とその持続に大きな影響を及ぼしている可能性がある。現行のJIA A5308のアルカリ総量規制値には海砂および海砂利に含有するNaClのみが考慮されているが, この結果から判断すると, 能登産の安山岩砕石にアルカリ総量規制によるASR抑制対策を適用することは適当ではなく，混合セメント（フライアッシュセメントまたは高炉セメント）の使用による抑制対策を積極的に推奨すべきであると考えている。

4．結論

石川県内で産出する骨材のアルカリシリカ反応性と岩石・鉱物学的特徴との関係を調べることを目的として，5 種類の安山岩砕石と 1 種類の川砂利を対象に各種 ASR 試験法を実施した。

本研究より得られた主要な結果をまとめると次のようである。

（1）安山岩砕石には，ガラス質のもの（黒色）と風化・変質したもの（灰色または褐色）との 2 種類があり，とくにモンモリロナイトを含有するものには現行の JIS 法（化学法およびモルタルバー法）による判定が困難であった。

（2）安山岩砕石は化学法（ASTM C298）の判定図における「潜在的有害」の領域にプロットされた。

（3）安山岩砕石および川砂利のアルカリシリカ反応性の判定にはモルタルバーの促進養生試験（飽和 NaCl 溶液浸せき）が最も適していた。

（4）安山岩の一部には，アルカリ（Na^+イオン）を多量に溶出するものがあり，抑制対策に骨材からのアルカリ溶出の影響を考慮する必要があった。

謝辞：本研究は日本学術振興会科学研究費補助金(番号：18919016,研究者：山戸博晃)により実施したものである。本研究の実施にあたり，ご協力いただいた石川県生コンクリート工業組合に感謝いたします。

参考文献

1）鳥居和之，樽井敏三，大代武志，平野貴宣：能登半島のASR 劣化構造物に関する一考察，コンクリート工学年次論文集，Vol．28，No．1，pp．779-784，2006．

2）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．

3）M.A. Berube et al. : Alkali Releasable by Aggregates in Concrete-Significance and Test Methods, Proc. of the 12th Inter. Conf. on Alkali-Aggregate Reaction in Concrete, pp.17-30,2004.

4）鳥居和之，野村昌弘，南善導：北陸地方の川砂のアルカリシリカ反応性とアルカリ溶出性状、セメント・コンクリート論文集、No.60 ,2006.