

論文 炭酸化収縮ひび割れが透気係数に及ぼす影響に関する研究

北村 咲乃*1・寺本 篤史*2・丸山 一平*3

要旨：炭酸化反応に伴い生じる細孔構造の変化の一例として炭酸化収縮による微細ひび割れの発生が挙げられる。しかしコンクリート構造物で炭酸化が生じる際にはほとんどの場合で乾燥収縮も同時に発生している。そのため、炭酸化収縮ひび割れが表層透気係数に及ぼす影響を確認するためにはこれらのひび割れの影響度合いを分離して考慮する必要がある。そこで本研究では、AE 波特性による乾燥収縮ひび割れと炭酸化収縮ひび割れの分離定量を試み、乾燥期間、炭酸化期間に生じるひび割れ特性とその特性を持つひび割れが透気係数に及ぼす影響を考察した。

キーワード：微細ひび割れ、炭酸化収縮、乾燥収縮、AE 波、透気係数、CO₂ 固定

1. はじめに

地球温暖化問題への取り組みとしてコンクリート分野では、CO₂ 排出量の少ない材料の使用に併せて、大気中の CO₂ とコンクリート内の Ca(OH)₂ やケイ酸カルシウム水和物 (C-S-H) との炭酸化反応を活用した CO₂ 固定があり、その固定量を炭酸化度や中性化深さから予測する手法が提案されている¹⁾。また、中性化速度係数と透気係数には相関があるとされており²⁾、コンクリート表層の透気係数を取得することで CO₂ 固定量の予測精度の向上が見込める。しかしコンクリートは炭酸化反応に伴い細孔構造が変化することが明らかにされており³⁾、炭酸化反応そのものが透気係数に影響を与える可能性が考えられるがその検討事例はほとんどない。

炭酸化反応に伴い生じる細孔構造の変化の一例として炭酸化収縮による微細ひび割れの発生が挙げられる³⁾。しかしコンクリートで炭酸化が生じる際にはほとんどの場合、乾燥による含水率の低下や収縮も同時に発生しており、炭酸化収縮ひび割れが表層透気係数に及ぼす影響を確認するためには、これらのひび割れの影響度合いを分離して考慮できることが望ましい。

コンクリートの炭酸化進行時に生じるひび割れには、主として乾燥収縮ひび割れと炭酸化収縮ひび割れがある。

乾燥収縮により生じるひび割れは、無筋コンクリートでは、表層から収縮が進行する際の表層部とコンクリート内部とのひずみ差を原因とする内部拘束ひび割れと骨材がセメントペーストの収縮を拘束することで生じる骨材拘束によるひび割れ⁴⁾に分けられる。

一方、炭酸化収縮は、ケイ酸カルシウム水和物 (C-S-H) が炭酸イオンと反応する際に層間の Ca²⁺ を失いシリカ鎖の縮重合が生じることによる収縮反応であり、乾燥収縮より数倍程度大きい³⁾。炭酸化収縮時にも乾燥収縮

と同様に、未炭酸化部や骨材の拘束を受け引張応力が作用していると考えられるが、ひび割れに至るメカニズムの詳細はほとんど議論されていない。

以上から、乾燥収縮と炭酸化収縮は発生機構や駆動力に違いがあり、それぞれの収縮に起因するひび割れの特性にも差がある可能性がある。

そこで本研究では、乾燥養生と炭酸化養生を組み合わせることで乾燥収縮ひび割れと炭酸化収縮ひび割れが同時に発生する試験体を作製し、AE 波特性により乾燥収縮ひび割れと炭酸化収縮ひび割れの分離定量を試みた。また、所定の材齢ごとに表層透気係数を取得し、それぞれのひび割れ特性と透気係数との相関性について考察を行った。

2. 実験概要

試験体の配(調)合条件を表-1、使用材料を表-2に示す。AE 波特性および表層透気係数を取得するため 100×100×400 mm の角柱試験体を作製した。

コンクリートの炭酸化が透気係数に及ぼす影響として、炭酸化収縮ひび割れによる透気係数の増大と plugging effect⁶⁾による透気係数の減少のいずれもが予想される。そのため、炭酸化以前にコンクリートに微細ひび割れを与える目的で、「強制乾燥あり(記号:H-DC)」のパラメータを設けた。この試験体では、材齢1日の脱型後すぐに40℃の乾燥炉内に設置し強制乾燥を行い、微細ひび割れを誘発した。その後、「強制乾燥あり」、「強制乾燥なし(記号:DC)」の試験体をいずれも7日間飽和水酸化カルシウム水溶液中で20℃水中養生を行い、乾燥収縮ひび割れを誘発させる環境として20℃、60% RH で乾燥養生を14日間、その後、炭酸化収縮ひび割れを誘

*1 広島大学大学院 先進理工系科学研究科 (学生会員)

*2 広島大学大学院 先進理工系科学研究科 准教授・博(工)(正会員)

*3 東京大学大学院 工学系研究科建築学専攻 教授・博(工)(正会員)

表-1 使用したコンクリートの配(調)合

単体量(kg/m ³)							
水	セメント	細骨材		粗骨材			混和剤
W	C	S1	S2	G1	G2	G3	A
191	360	348	483	313	132	455	3.6

発させる環境として 20℃, 60% RH, CO₂ 濃度 20% の炭酸化養生を 14 日間実施した。

それぞれの期間中, 連続して AE 波を測定する試験体と所定の材齢で透気係数を測定する試験体を用意した。試験体概要を表-3 に示す。なお本実験では側面 1 面を乾燥, 炭酸化試験面とし, それ以外の面はアルミテープで覆った。

本実験で使用したコンクリートの標準養生材齢 28 日における圧縮強度は 30.0N/mm² であり, 40℃強制乾燥後水中養生 28 日における圧縮強度は 32.5N/mm² であった。

2.1 AE 法

本研究では, 乾燥収縮ひび割れと炭酸化収縮ひび割れを誘発させた試験体を対象に AE 法にてひび割れ検出を行い, 検出した AE 波形パラメータから各収縮ひび割れの特徴を考察する。

AE 法とは材料が変形または亀裂が発生する際に材料から放出されるひずみエネルギーを弾性波として検出する手法である⁷⁾。

AE 法により検出される AE 波形の概要図を図-1 に示す⁸⁾。検出された AE 波形はひび割れの特性により変化し, 本研究では乾燥収縮ひび割れと炭酸化収縮ひび割れのそれぞれの特性を, AE カウント数, 振幅, RA 値 (式(1)で表す), 周波数重心 (式(2)で表す) によって評価する。

$$RA = T/A_{max} \quad (1)$$

$$F = \frac{1}{P} \sum f_i A_i \quad (2)$$

ここで, T : 立ち上がり時間 (s), A_{max} : 振幅最大値 (V), F : 周波数重心, P : 各周波数成分のパワースペクトルの総和, f_i : i 番目の周波数, A_i : i 番目の周波数におけるパワースペクトル値である。RA 値は波形の最大振幅までの平均的な傾きの逆数⁷⁾であり, 周波数重心は FFT 出力から逆算する振幅加重平均周波数となる。

本実験では, AE 計測装置として AE アナライザ (エヌエフ回路設計ブロック社製), AE センサは AE-901 (エヌエフ回路設計ブロック社製) を使用し, 恒温槽および促進中性化槽に設置した防振シート上に静置した試験体に AE センサを取り付け, AE モニタリングを実施した。

表-2 使用材料

材料名	種類及び物性値
セメント	C:普通ポルトランドセメント (密度=3.16g/cm ³)
細骨材	S:広島県東広島市黒瀬町小多田産砕砂 (密度=2.57g/cm ³)
粗骨材	G1:広島県呉市広町産砕石 2010 (密度=2.65g/cm ³)
	G2:広島県呉市広町産砕石 1505 (密度=2.65g/cm ³)
	G3:大分県津久見産石灰石砕石 2005 (密度=2.71g/cm ³)
混和剤	AE 減水剤 (リグニンスルホン酸塩ポリカルボン酸系化合物)

表-3 試験体概要

	強制乾燥	養生方法		
	1日	7日	14日	14日
強制乾燥あり H-DC	→	水中	乾燥	炭酸化
強制乾燥なし DC		水中	乾燥	炭酸化

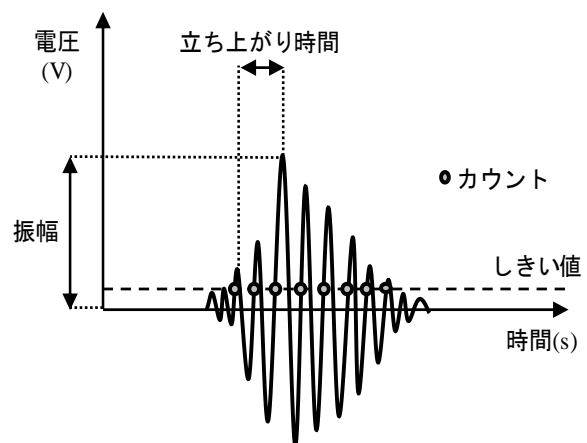


図-1 AE 波形パラメータ

本実験では, 強制乾燥の 24 時間と乾燥養生 14 日間, 炭酸化養生 14 日間にわたり連続的に AE 波形の測定を行った。

2.2 透気試験

透気係数測定用の試験体を用いて非破壊透気試験（トレント法）を実施した。乾燥期間0, 1, 3, 7, 14日、および炭酸化開始後の0, 1, 3, 7, 14日に測定を行った。試験点は3点とし、その平均を代表値とした。また、透気試験直前の表層含水率も取得した。含水率が5.5%以上の領域では、含水率が試験結果に影響を与えることが報告されているが、本実験では試験体の連続的な変化を測定するため、含水率5.5%以上の場合も含めて考察に使用した。

3. AE法の実験結果および考察

3.1 AE波形パラメータに基づくひび割れの分類

図-2にすべての期間におけるAE波累積発生数（以下、AEカウントと称す）の結果を示す。横軸は乾燥開始時間を0日とし、0-13日が乾燥期間、14-28日が炭酸化期間であり、強制乾燥は乾燥開始材齢の7日前に実施している。縦軸のAEカウントは振幅が40mVを超えたひび割れの発生数を表す。

強制乾燥ありのH-DC試験体では、24時間の強制乾燥期間中に594回のAEカウントが発生していた。その後、H-DC、DCの両方の試験体で乾燥養生開始直後から急激にAEカウント数が増加しその後停滞していくが、炭酸化養生に変更した直後に傾きが再び大きくなる傾向が見られた。炭酸化養生に変更する前後で温度と相対湿度は

変化していないため、この期間にAEカウントが急激に増加しているのは炭酸化収縮ひび割れの発生によるものと推察される。

また、強制乾燥も含めたすべての養生期間終了後にH-DCはDCに比べてAEカウント数が500回程度少ない結果であった。圧縮強度試験の結果から脱型直後に強制乾燥を与えたH-DCでは未水和セメントの水和により自己修復⁹⁾が生じていると考えられるが、その後の乾燥および炭酸化によって自己修復部分に再び生じる微細ひび割れはカイザー効果により、検出されなかったと考えられる。

既往研究では、RC梁における構造ひび割れをRA値と平均周波数から「引張型」と「せん断型」に分類・評価する報告¹⁰⁾があり、本研究でもこの研究を参考にRA値による乾燥収縮ひび割れと炭酸化収縮ひび割れでの分類を試みた。図-3にRA値を示す。図-3より、H-DC、DCの両方の試験体でRA値の傾向に差異は見られず、養生期間中、一様に低下傾向にあることが確認できる。このことから炭酸化収縮によるひび割れの形態は乾燥収縮と同様であることが示唆される。

次に、ひび割れの周波数重心はひび割れ特性と関連があるとされており¹¹⁾、骨材収縮によるひび割れは高周波数領域（300~400 kHz）に分布し、セメント硬化体のひび割れは低周波数領域（100~350 kHz）に分布する傾向があることが報告されている¹²⁾。また、平均周波数100

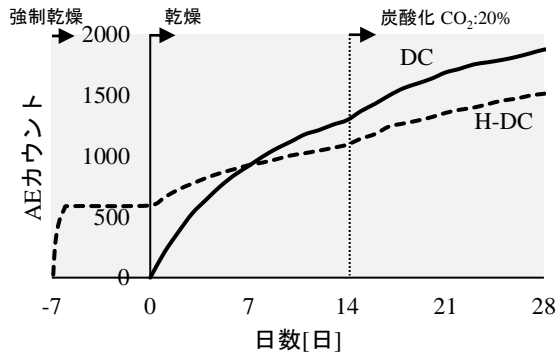


図-2 AE波累積発生数

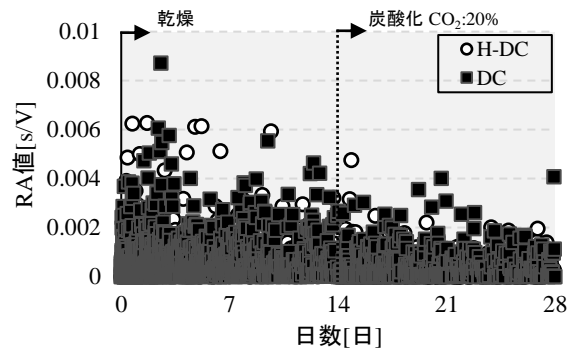


図-3 RA値

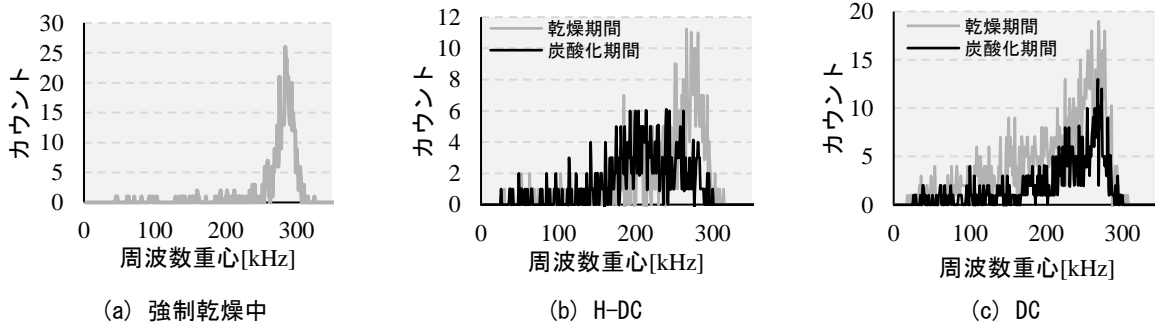


図-4 周波数重心分布

kHz 以下の AE 波は水和反応時の空隙形成のプロセスで発生するという報告がある^{13), 14)}。

そこで本実験で生じた各試験体の AE 波の周波数重心の分布を図-4 に示す。図より、検出した AE 波は、強制乾燥中、H-DC、DC すべての期間で 300 kHz 以下に分布しており、ほとんどがセメント硬化体の収縮ひび割れを検出していると考えられる。また、わずかながら周波数重心 100 kHz 以下の AE 波も検出されており、水和反応に伴う AE 波を検出した可能性がある。

次に、養生方法ごとに比較すると、強制乾燥中はほぼすべての AE 波が 275~300kHz に集中していることがわかる。その後の乾燥養生期間中も同様に周波数重心が 275~300kHz の AE 波が最も多く発生している。一方、H-DC の炭酸化期間に発生したひび割れの周波数重心は明らかに低下しており、高周波数のひび割れが発生しにくい状況であったことがわかる。粗大空隙がある環境では、ひび割れ付近に炭酸カルシウムが析出しやすく¹⁵⁾、DC と比較して、H-DC では炭酸化期間中の新たなひび割れの発生が抑制された可能性が考えられる。

以上のことから、乾燥収縮ひび割れは高周波数 (250~300kHz) を有するのに対し、炭酸化収縮ひび割れは炭酸カルシウムの析出場所に応じて周波数帯の異なる AE 波が生じている可能性が示唆された。

それぞれの周波数成分を有する AE 波の発生時期とエネルギー量をより詳細に検討するために、図-5 に乾燥期間中と炭酸化期間中の振幅と周波数重心の関係を示す。図中の赤い点線は各測定期間の周波数重心の最頻値を表す。

図より、H-DC の乾燥期間中において発生するひび割れは、時間の経過とともに高周波数重心かつ低振幅を主体としたものから、低周波数重心側へと移行することが確認された。一方、炭酸化期間中に発生するひび割れは、低周波数重心かつ低振幅を主体としたものから高周波数重心側へと移行する傾向が確認された。DC においては乾燥期間初期に発生したひび割れは低周波数重心かつやや高い振幅を示す傾向があるが、それ以外は H-DC と同様の傾向を示すことが確認された。これらの結果から、乾燥初期に発生するひび割れは比較的大きなエネルギーを放出し、その後に小さなエネルギーを伴うひび割れが進展するメカニズムが示唆される。また、炭酸化期間において養生後半に高周波数重心の AE 波が発生する現象については、炭酸化反応が生じる場所がより内部へと変化していく状況を表していると推測される。

DC では、乾燥期間中に 100kHz 以下の周波数重心をもつ AE 波が比較的多く観察されている。水和反応中に観察される 100kHz 以下の AE 波の原因が自己乾燥に伴う気液界面の消失により発生していると考えられると、乾燥期

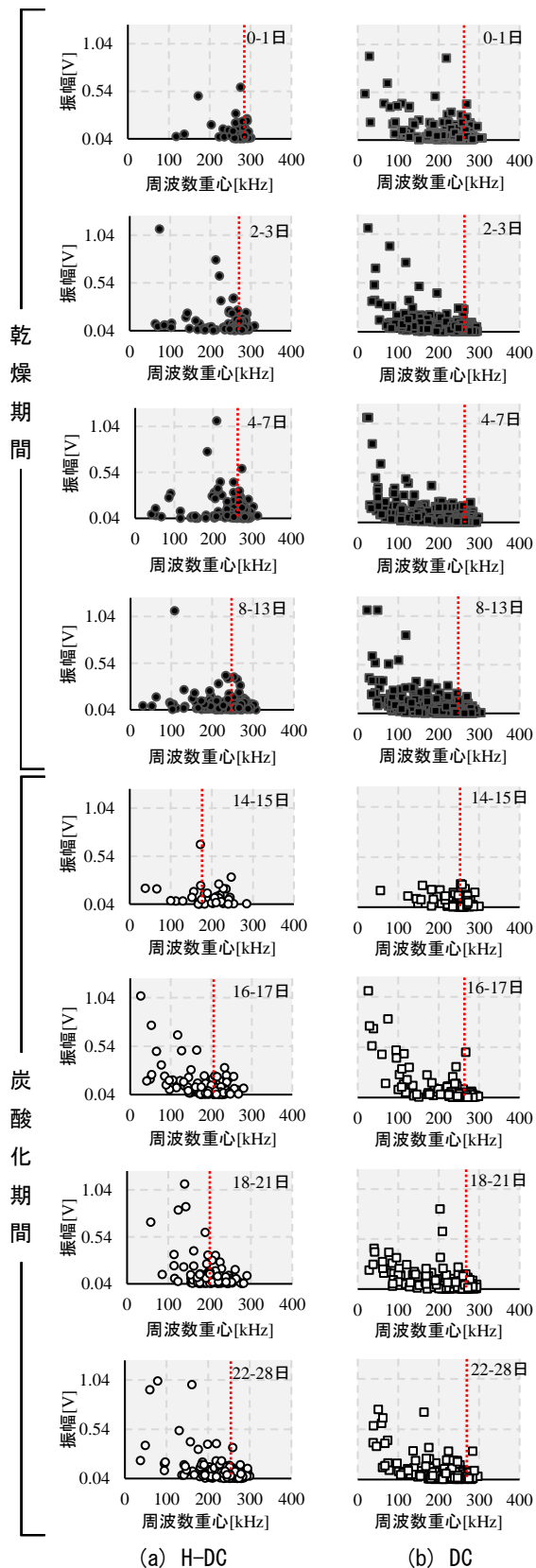


図-5 振幅と周波数重心の関係

間中にも同様の現象が生じており、その波形を検出した可能性が考えられる。対して H-DC では強制乾燥時の高温養生により、未水和セメント量が減少し、粗大な空隙構造を有していることから 100kHz 以下の周波数重心をもつ AE 波がほとんど発生しなかったと推測される。

以上より、乾燥収縮によって生じるひび割れの特性は高 RA 値、低振幅、高周波数重心であり、炭酸化収縮ひび割れの特性は低 RA 値、低振幅、低周波数重心との結果が得られた。

4. 各種ひび割れと透気係数の関係

図-6 に乾燥期間と炭酸化期間中の透気係数の経時変化を示す。

H-DC, DC 両方の試験体で乾燥 0-3 日まで急激に透気係数が増加し、その後、増加傾向が緩やかになっている。乾燥期間開始直後の 0 日目から 3 日目にかけて透気係数の変化率が DC より H-DC の方で大きくなっているのは、強制乾燥による微細ひび割れの存在により含水率の影響をより受けやすい状態であったと考えられる。図-7 に各試験体の透気係数と表層含水率の関係を示す。H-DC, DC 両方で乾燥期間中は透気係数と含水率に負の相関がみられ、含水率の低下に伴い透気係数が増加していること

が確認でき、既往研究¹⁶⁾と同様の結果となった。比べて、炭酸化期間は透気係数と含水率に負の相関は見られず、乾燥期間とは違う要因により透気係数が増加している。

また図-6 より、H-DC, DC 両方で炭酸化開始直後にわずかに透気係数が増加したのち、H-DC では緩やかな減少傾向、DC では減少したのち再び増加する傾向が確認された。炭酸化期間初期の透気係数の増加および減少傾向は、炭酸化収縮による新たなひび割れの発生（透気係数の増加に寄与）と、ひび割れ付近の水酸化カルシウムが優先的に CO₂ と反応し、表層に炭酸カルシウムが析出することで根詰まりを起こす plugging effect（透気係数の低下に寄与）が原因であると考えられる。

AE 法によって確認されたそれぞれのひび割れが持つ振幅領域と周波数重心領域の発生数との相関を確認するために、比較的高いエネルギーを放出したひび割れを表すものとして周波数重心を高周波数から低周波数にかけて 275~350kHz, 225~275kHz, 175~225kHz, 100~175kHz と区分し、それぞれの低振幅 (0.05V 以下) を持つ AE 波の累積発生数とその間の透気係数の変化率の関係を表したものが図-8 である。

図より、H-DC, DC ともに乾燥期間 14 日まで、透気係数の変化率はプラス（透気性が増加している）であるこ

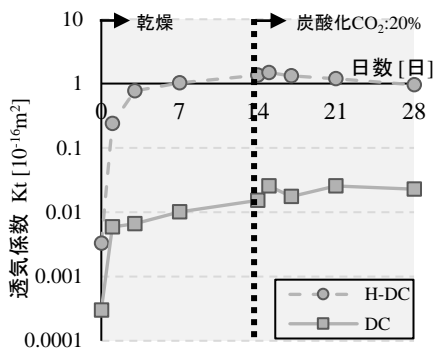
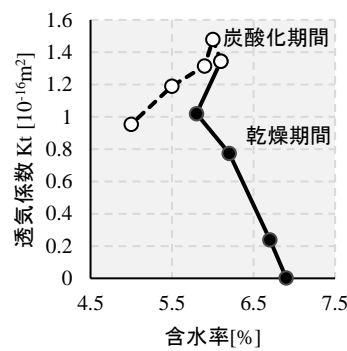
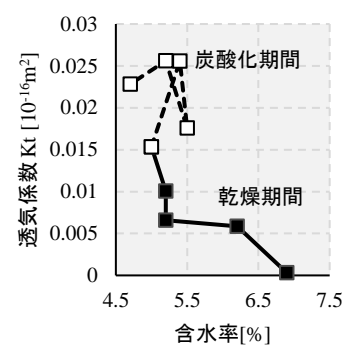


図-6 透気係数

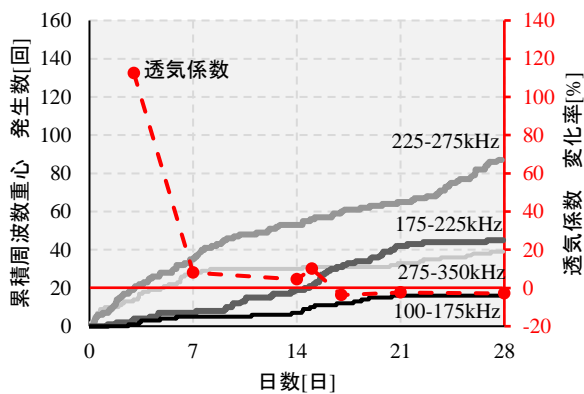


(a) H-DC

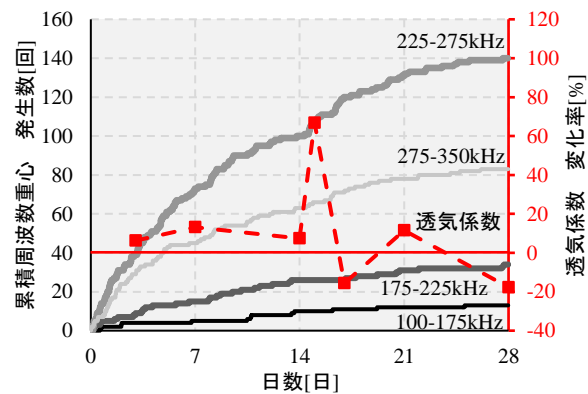


(b) DC

図-7 透気係数と表層含水率



(a) H-DC



(b) DC

図-8 各試験体における低振幅の各周波数重心の累積発生数と透気係数の変化率の関係

とがわかる。この間、225kHz以上の高周波数重心のAE波は顕著に増加しており、この周波数帯のAE波の発生が透気係数の増加に寄与している可能性がある。

炭酸化期間では、H-DCとDCで傾向が異なり、微細ひび割れが多く、既に透気係数が大きいH-DCでは、炭酸化期間開始後から175~225Hz、100~175Hz程度の中・低周波数重心のAE波が顕著に増加していることが分かる。この間の透気係数が増加していることからplugging effectに関与している可能性がある。一方、DCの炭酸化期間では、すべての周波数重心帯域のAE波で継続的に発生している結果であり、透気係数も増加、低下を繰り返す複雑な挙動を示していた。このことから、微細ひび割れが少ないコンクリートで炭酸化反応領域が拡大する場合、微破壊と閉塞が同時に進行している可能性が示唆された。

5. まとめ

本研究では、乾燥収縮ひび割れと炭酸化収縮ひび割れを誘発させた試験体でAE法にて検出したAE波形パラメータからそれぞれのひび割れの特性と透気係数との相関性の評価を試みた。その結果、乾燥期間中には低振幅、高RA値、高周波数重心のAE波が、炭酸化期間中には低振幅、低RA値、低周波数重心のAE波が比較的多く確認された。また、中・低周波数重心のAE波は炭酸化時に起こる透気係数の増加傾向と相関性がある可能性が考えられた。

謝辞

この成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)委託業務(JPNP21023)の結果得られたものです。

参考文献

- 1) 兵頭彦次ほか：ライフサイクルを通じたコンクリートのCO₂吸収量算定に関する研究，セメント・コンクリート論文集，Vol.74，pp.333-340(2020)
- 2) 庭野究ほか：非破壊透気試験を用いた仕上げ材を有するコンクリートの中性化速度の評価方法に関する研究，日本建築学会構造系論文集，Vol.81，No.722，pp.655-663(2016)
- 3) E. Kangni-Foli et al.: Carbonation of model cement pastes: The mineralogical origin of microstructural changes and shrinkage, Cement and Concrete Research, Vol. 144, 106446 (2019)
- 4) B. Šavija and M. Luković: Carbonation of cement paste: Understanding, challenges, and opportunities,

Construction and Building Materials, Vol. 117, pp.285-301 (2016)

- 5) I. Maruyama and H. Sasano: Strain and crack distribution in concrete during drying, Materials and Structures, Vol. 47, pp.517-532 (2014)
- 6) L. Cheng et al: Plugging effect of fine pore water in OPC and LC3 paste during accelerated carbonation monitored via single-sided nuclear magnetic resonance spectroscopy, Cement and Concrete Research, Vol.186, 107688 (2024)
- 7) 大津政康：AE法による鉄筋コンクリート構造物の耐久性診断，コンクリート工学，Vol. 38，pp.10-16(2000)
- 8) Radhika V., J.M. Chandra Kishen: A comparative study of crack growth mechanisms in concrete through acoustic emission analysis: Monotonic versus fatigue loading, Construction and Building Materials, Vol.432, 136568 (2024)
- 9) Hearn, N.: Self-sealing, autogenous healing and continued hydration: What in the difference?, Materials and Structures, Vol.31, pp.563-567 (1998)
- 10) P.R. Prem et al.: Damage characterization of reinforced concrete beams under different failure modes using acoustic emission, Structures, Vol.30, pp.174-187 (2021)
- 11) Xiaoyang Yu et al.: Cluster analysis of acoustic emissions signals for the damage pattern recognition of polymer concrete, Applied Acoustic, Vol.211, 1.9533 (2023)
- 12) Yaghoob Farnam et al.: Acoustic emission waveform characterization of crack origin and mode in fractured and ASR damaged concrete, Cement and Concrete Composites, Vol.60, pp.135-145 (2015.7)
- 13) Eleni Korda et al.: Acoustic signatures of hydration and microcracking in early-age concrete, Development in the Build Environment, Vol.17, 100353 (2024)
- 14) Pietro Lura et al.: Early-age acoustic emission measurements in hydrating cement paste: Evidence for cavitation during solidification due to self-desiccation, Cement and Concrete Research, Vol.39, pp.861-867 (2009)
- 15) Simon Emmanuel et al.: Interfacial energy effects and the evolution of pore size distributions during quartz precipitation in sandstone, Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol.74, pp.3539-3552 (2010)
- 16) 蔵重勲，廣永道彦：透気係数の含水依存率を考慮したコンクリートの表層品質の非破壊評価法の一提案，セメント・コンクリート論文集，Vol. 65，pp.225-232，(2011)