

## 論文の内容の要旨

論文題目     コンクリート用火山ガラス微粉末の製造・性能・標準化・利用に関する研究

氏     名     友寄   篤

本研究は、天然の火山性堆積物を原料としながら、工業製品としてセメントに置換される低炭素型コンクリート用混和材の製造方法を確立し、製造された混和材の特性・性能を明らかにした上で、実用化のために調合および規格を提案したものである。

これまで、火山性堆積物は粉碎や篩い分けという物理的改質により利用・研究されてきたが、本研究では、エアテーブルと呼ばれる乾式比重選別により混和材としての有効成分である火山ガラスと結晶鉱物や粘土と選別した上で粉碎するという製造方法にオリジナリティがある。

世界で水に次いで消費量が多い物質とされるコンクリートは、そのスケールメリットから極めて安価に流通している。日本国内の工場で製造されるコンクリートは概ね 1m<sup>3</sup> 当たり 1 万数千円、地域や時期によっては 1 万円以下で取引されることもあり、ペットボトル水より安い 1 リットルあたり 10 円程度という金額である。近年その国内生産量は減少してきているが、水の様に安いコンクリートは、今後もインフラ整備の基盤材料として利用されることが見込まれ、大量資源投資の状況は依然として継続していくと考えられる。

コンクリートの主要材料であるポルトランドセメントは、エネルギー消費および工業プロセス関連で、国内の二酸化炭素量の約 4% を占める。世界的に見てもこのままでは 2050 年に世界の総排出量の 25% を占めると試算され、セメント使用量を削減するために、これに置換される反応性を持つ混和材として、世界中で産業副産物や天然資源の研究が進められている。天然か人工かによらずこれらの混和材は全てポゾランと呼ばれ、急冷された非晶質のシリカやアルミナを主成分とするが、ポゾランの語源がポッツォラーナ（ポッツォリの火山灰）となっている様に、非晶質シリカを含む火山噴出物や火山性堆積物は、ポゾラン反応性を持ちコンクリートの耐久性を向上させることは広く認識されている。しかし、天然由来であるため産業副産物に比べると物性が安定せず、品質も低いとされることが多く、火山地帯である日本でも現代においては利用されていない。

しかしながら火山地帯である日本には、災害の要因ともされる火山灰土壌や火山性堆積物が各地に未利用資源として堆積しており、これを焼成せずに低炭素型の混和材として利用できるようになれば、環境負荷だけでなく、将来的には他産業の動向にも影響を受けないインフラの基盤材料としての地産地消コンクリートの製造に貢献すると考えられる。

これまでもコンクリート分野では多くの天然資源、未利用資源に関する研究があるが、それらが普及するためには、品質が低いという課題だけでなく、各種法令や規格というハードルがある。建設材料としてのコンクリートは日本工業規格 (JIS) によりその材料や品質および性能が規定され、工業製品として製造されるレディーミクストコンクリートが主流である。砂および砂利は天然物ではあるが、骨材として JIS A 5308 附属書においてその品質が規定されている。どのような砂や砂利を使っても良いということではなく、例えば海砂であれば塩分の除去などのプロセスを経て利用されている。ただし、現状ではその品質を満たす天然骨材は枯渇し、工業製品である碎石砕砂が骨材として使われることが多くなっている。骨材と同じ様に、火山性堆積物から工業的なプロセスにより不純物を取り除き、混和材として主要な反応成分である非晶質シリカを多く含む粒分を取り出し、これを粉砕することでコンクリート用混和材を製造することは可能であると思われる。

ここで、本研究では火山灰などに含まれる 1000°C を超える地下のマグマが噴出後に急冷された非晶質のアルミノけい酸塩を火山ガラスと呼ぶ。焼成の必要がなく環境負荷のない自然エネルギーとも言える地球の火山活動による産物である。また、この火山ガラスを主成分とし、コンクリート用混和材として粉砕された粉末を火山ガラス微粉末と呼ぶ。

本研究では、これらの状況を踏まえ、以下の 4 項目により構成される。

- 1：原鉱となる火山性堆積物の性質・特性を既往研究より整理
- 2：混和材の製造方法を比較検討し、製造される混和材の粉体特性を分析・考察
- 3：混和材としての基本的な流動特性・強度発現特性を実験的に明らかにする
- 4：実用化を見据えたコンクリートによる検証および規格（案）を提示する。

具体的な本研究の構成と内容は以下の通りである。

第 2 章では「コンクリート用混和材としての火山ガラスに関連する既往の研究と現状」と題して、これまでにコンクリート分野で研究されてきた火山ガラスを含む天然ポゾランについてその特徴や分類を確認し、さらに工業資源としての火山ガラス、その風化、風化物がコンクリートに与える影響についても整理し、その利用に関する現状を述べ、本研究を位置づけた。特に、南九州に堆積する火砕流堆積物（シラス）は、その堆積メカニズムから降下火山灰や降下軽石などその他の火山性堆積物に比べ、物理的・鉱物的に不純物が多い堆積物であることが明らかになっているため、本研究で対象として扱った入戸シラスから安定してコンクリート用火山ガラス微粉末を製造する手法を明らかすれば、その他のメカニズムによる火山堆積物にも適用可能性が高いことを示した。

第 3 章では「火山ガラス微粉末の製造と粉体特性」と題して南九州堆積する膨大な未利用資源である「シラス」を対象として、シラスの物性を確認した上で、2 種類の火山ガラス微粉末の製造方法を比較検討し、エアテーブルと呼ばれる乾式比重選別装置を用いると、不純物を含む入戸シラスから結晶質や軽石、風化した粘土質分を除去した上で、高純度な火山ガラスを選別できることが示された。製造された火山ガラス微粉末や不純物の粉体特性を明ら

かにすることで、一般の火山性堆積物から製造するためには、含有される粘土質微粉を除去した上で粉砕することが重要であることを示した。

以下、4章～5章では入戸シラスを原鉱として3章で示した方法で製造された火山ガラス微粉末の混和材としての性能を実験的に明らかにした。

第4章では「流動特性に及ぼす火山ガラス微粉末の影響」として、粉末度や粒度分布、置換率や不純物が流動性に及ぼす影響をペーストやモルタル実験により明らかにした。粉末度の高い微粉（BET比表面積  $10\text{m}^2/\text{g}$  以上、以下同じ）は、低水結合材比（超高強度域）に用いた場合に、セメントに15%程度置換するとマイクロファイラー効果が最も発揮されるため流動性の向上に寄与することが示された。一方の粉末度の高く無い粗粉（BET比表面積  $3\text{m}^2/\text{g}\sim 5\text{m}^2/\text{g}$  程度、以下同じ）は、水結合材比30%以上の水準で30%程度までセメントに置換しても流動性を向上することが示され、「ハイパフォーマンスコンクリート」の製造に適した粉体だと考えられる。天然ボゾランは一般に流動性が低下するとされるものの、第3章で示した通り粘土質分や軽石などの不純物を取り除くことでその性能が改善され、むしろ流動性を向上させる性能を持つことを明らかにした。

第5章では「強度発現に及ぼす火山ガラス微粉末の影響」としてモルタル実験により強度発現に及ぼす影響を明らかにした。粉末度と強度発現には強い相関が見られ、粉末度の高い微粉は超高強度コンクリートの製造に必須である全量が輸入されているシリカフューム同等以上の強度発現性能を持つことを示し、シリカフュームより高置換率で性能を発揮することを明らかにした。一方で粉末度が低下するほどに強度発現性能も下がるものの、粉末度とセメント置換率のバランスにより、初期材齢からセメント単味と同等の強度発現を示すため、天然ボゾラン全般に指摘される反応の遅さは選別と粉砕により解決できることを明らかにした。

以下、6章～7章ではこの結果を踏まえ、実用化に向けてコンクリートによる検証を行い、粉体特性や性能を考慮した規格（案）を提案した。

第6章では「コンクリートによる検証」を実施し、粉末度の高い微粉は、水結合材比20%の超高強度コンクリートでシリカフュームと比較すると、同程度の練混ぜ性が得られ、より少ない化学混和剤量で目標スランプフローが得られ、初期材齢における強度発現は上回り、材齢4週以降は同等の強度が得られた。普通コンクリートにおいては、置換率が上がるほどにセメント単味を上回る材齢28日のC/W～F関係式が得られ、塩化物イオン浸透抵抗性が極めて優れ、中性化抵抗性が低下しないという結果が得られた。また、一般的な化学混和剤使用量で分離抵抗性を有するスランプフロー60cmのコンクリートが製造可能であることが示された。これらの性質は、幅広いコンクリートにおける強度、流動性、耐久性に対して粉末度の高い火山ガラス微粉末は極めて優れた性能を発揮する結果と言える。

粉末度が小さくなると、超高強度コンクリートにおける練混ぜ性改善効果が見られず、粘性も高いフレッシュコンクリートになったため、いずれも実用的ではない結果が示された。普通コンクリートにおいては、粉末度が小さくなるほど流動性が向上し、一般的な化学混和

剤使用量で分離抵抗性を有するスランプフローが70cmを得られた。また粉末度が小さくなるほど強度発現性能は低下するものの、4章での結果の通り、粉末度と置換率によってはセメント単味を上回る関係式が得られ、セメント使用量の削減効果も検証した。生産性向上のためにフロー管理によるコンクリートの普及が見込まれる中、低炭素型のコンクリート用混和材としての性能を示したと言える。

第7章では、3章の粉体特性の結果から試験方法を定め、4～6章の結果を踏まえて粉末度に応じて3種類にクラス分けをした火山がガラス微粉末の規格（案）を示した。

第8章では、火山性堆積物を原鉱とした工業製品である低炭素型コンクリート用混和材「火山ガラス微粉末」の製造方法を確立し、その特性・性能を明らかにした上で、実用化のために調合および規格についてまとめた。