

論文審査の結果の要旨

氏名：松浦 忠孝

博士の専攻分野の名称：博士（工学）

論文題名：石炭ガス化スラグ細骨材を用いたコンクリートの強度発現性および各種劣化機構に関する細骨材のキャラクタリゼーションに基づく考察

審査委員：（主査） 教授 岩城 一郎

（副査） 教授 子田 康弘

東京工業大学教授 岩波 光保

東北大学准教授 皆川 浩

本研究で対象とする石炭ガス化スラグ（Coal Gasification slag as fine aggregate [Sand]、以下、CGS という）は、クリーンコール技術として開発された石炭ガス化複合発電（Integrated coal Gasification Combined Cycle、以下、IGCC という）の副生スラグからなる新しいコンクリート用スラグ細骨材である。CGS の安定的な利用は、IGCC の安定稼働と普及を後押しし、国内はもとより石炭利用が欠かせない海外新興国におけるカーボンニュートラルにも貢献する。また、天然骨材の使用抑制によってコンクリートとしての環境負荷低減にも寄与するものである。そのため、市場に先行してCGS の規格化・標準化に向けた調査・研究が進められ、2020年10月にJIS A 5011-5「コンクリート用スラグ骨材—第5部：石炭ガス化スラグ骨材」が制定され、さらに、2023年には使用方法の標準を示す学会指針が土木学会、日本建築学会それぞれより刊行されることになっている。

これまでの調査・研究によって、CGS を用いたコンクリートは、長期的な強度増進や物質透過抵抗性の向上等、コンクリート構造物の高耐久化に資する有益な特徴を有することが確認されている。また、最新の研究では、留意すべき点として併用する無害でない骨材のアルカリシリカ反応（以下、ASR という）による膨張を促進する場合があることが指摘されている。これらの特徴はCGS のポゾラン反応性（本研究では、潜在水硬性に類する反応性を含めて、セメントの水和反応とともに進行する反応性をポゾラン反応性と称する）を含む化学的性質に伴うものと推察されるが、本格的な研究開始から間もないため、CGS の化学的性質に言及する研究事例は極めて乏しい。ゆえに、CGS がコンクリートの各種物性に及ぼす影響とその具体的な機構は解明されておらず、規格・指針においてもこれらを一般化するに至っていない。したがって、今後、CGS の普及を合理的に進めていくには、CGS の化学的性質がコンクリートの物性に及ぼす影響を体系的に整理する必要があると言える。

そこで本研究は、ポゾラン反応性を含む化学的性質等によってCGS をキャラクタリゼーションし、これに基づいてCGS を用いたコンクリートの強度発現性ならびに各種劣化機構に及ぼす影響について考察を行うこととした。この研究成果は、CGS を用いたコンクリートの品質・評価を一般化するに際して基礎になるものと考えている。本論文を要約すると、以下のとおりである。

第1章「序論」では、本研究の対象であるCGS の現状を概説し、本研究の目的、特徴および構成を示した。

第2章「既往の研究」では、CGS を用いたコンクリートの特徴を再整理すべく、既往の研究成果を総括して一連の品質について取りまとめるとともに、CGS のキャラクタリゼーションにあたって比較の対象となる高炉スラグ細骨材、鉍物系混和材（フライアッシュ、高炉スラグ微粉末）の品質・特徴を整理した。また、海外のIGCC ならびにCGS の技術開発動向についても整理し、これらをもって本研究の課題を再定義した。

第3章「石炭ガス化スラグ細骨材のキャラクタリゼーション」では、CGS の品質試験ならびに分析結果の整理を行い、反応性を含む化学的性質を中心に特徴を抽出した。本章によって得られた主な知見は以下のとおりである。

- (1) 化学成分、鉍物組成の分析結果より、CGS は SiO_2 、 Al_2O_3 、 CaO を主成分とする高炉スラグとフライアッシュの中間的な化学組成であり、ガラス化率は98%超の極めて高い状態であることを

明らかとした。また、化学組成に基づく非架橋酸素数の割合 NBO/T 等の反応性に関連する指標の算出結果より、CGS の溶解性はフライアッシュより高く、高炉スラグ微粉末に匹敵する性質を有するものもあることが示唆された。また、C-S-H (珪酸カルシウム水和物) の組成変化に影響を及ぼすと考えられるガラス相の Si/Ca 比、 Al/Ca 比が、高炉スラグ微粉末より高いことを明らかとした。

- (2) X線回折・リートベルト解析による水和反応解析結果より、CGS がセメントの水和を促進し、CH (水酸化カルシウム, $Ca(OH)_2$) の消費を伴う長期的な反応性を有することを明らかとした。さらにこの中で、定性的ではあるが CGS の反応率の高さは NBO/T 等の溶解性の高さと同傾向が符合することを確認した。
- (3) FTIR による水和生成物解析における C-S-H に起因する SiO_2 の伸縮振動の傾向から、CGS が C-S-H の Si 鎖を伸長し、フライアッシュの反応相と同様に低 Ca/Si 比の緻密な C-S-H を形成すること、また、Si-O-Si 内面偏角振動の傾向から、Si 鎖を湾曲し、物理的に複雑な C-S-H の層構造をもたらすことが示唆された。
- (4) 本研究の範囲において推定される CGS の水和反応として、①CGS への水酸化アルカリの作用、②CGS のガラス相の溶解、③CGS 成分によるセメントの水和促進、④CGS 界面を中心とする低 Ca/Si 比の C-S-H 層の形成という機構を整理して示した。

第4章「石炭ガス化スラグ細骨材がコンクリートの強度発現性に及ぼす影響」では、CGS のキャラクター化を基に、化学組成に基づく指標を用いてコンクリートの強度試験結果等の考察を行った。本章によって得られた主な知見は以下のとおりである。

- (1) モルタルおよびコンクリートの圧縮強度試験結果より、CGS を用いたコンクリートの強度発現性は、材齢初期において NBO/T 等が示す溶解性の高さが影響を及ぼし、長期材齢においては C-S-H の組成に変化をもたらすと考えられるガラス相の Si/Ca 比、 Al/Ca 比が影響を及ぼす可能性を見出した。
- (2) 本研究では、(1)の傾向から NBO/T 、 Si/Ca 比および Al/Ca 比の関数によるロジスティック曲線によって CGS を用いたコンクリートの圧縮強度の予測式を整理し、実際の強度試験結果を一定の範囲で再現した。
- (3) 細孔径分布の測定結果より、CGS は、材齢経過に伴う細孔容積の減少、すなわち緻密化を一層進行させることが示唆された。また、細孔容積の減少は、長期材齢の強度発現性と同様にガラス相の Si/Ca 比、 Al/Ca 比が影響を及ぼす可能性を見出した。

第5章「石炭ガス化スラグ細骨材がコンクリートの各種劣化機構に及ぼす影響」では、水分の浸透、中性化、塩化物イオンの浸透、ASR を対象とするコンクリートの各種劣化機構に対し、強度発現性に及ぼす影響に関する考察と同様に、CGS のキャラクター化を基に、化学組成に基づく指標を用いてそれぞれの促進試験結果を考察した。本章によって得られた主な知見は以下のとおりである。

- (1) 水分浸透速度係数試験の結果より、CGS は、CGS 混合率の増大に伴ってコンクリートの水分浸透速度係数を低下させる、すなわち水分浸透抵抗性を向上させることが示唆された。なお、本研究における CGS 試料別の水分浸透速度係数の低下率は、供試体の水中養生期間が 28 日までであったため、 Si/Ca 比、 Al/Ca 比との統一的な傾向は認められず、材齢初期の強度発現と同様に NBO/T の影響が卓越したものと推察された。
- (2) 促進中性化試験の結果より、CGS は、CGS 混合率の増大ならびに材齢経過によってコンクリートの中性化深さを小さくする、すなわち中性化抵抗性を向上させることが示唆された。本研究において、中性化速度係数の低下率は、試験開始材齢が 28 日の場合、 NBO/T 等が示す溶解性の高さが影響を及ぼし、試験開始材齢が 182 日の場合は、長期材齢の強度発現等と同様に Si/Ca 比、 Al/Ca 比が影響を及ぼす、あるいは CGS に含まれる Na_2O 、 K_2O といったアルカリ量が影響を及ぼす可能性を見出した。
- (3) 各種塩化物イオンの拡散係数試験の結果より、CGS は、CGS 混合率の増大ならびに材齢経過によって各種塩化物イオンの拡散係数を低下させる、すなわち塩分浸透抵抗性を向上させることが示唆された。また、この結果から、各種塩化物イオンの拡散係数の低下率は、長期材齢の強

度発現や細孔容積の減少に及ぼす影響と同様に、C-S-H の組成に変化をもたらすと考えらえる Si/Ca 比、 Al/Ca 比が影響を及ぼす可能性を見出した。さらに、CGS を用いることによる塩化物イオンの拡散係数の低下は、フライアッシュ、高炉スラグ微粉末等鉱物系混和材を併用した場合においても認められることを確認した。

- (4) ASR 促進試験ならびに細孔溶液の分析結果より、CGS は、コンクリート中の細孔溶液の水酸化イオン (OH^-) 濃度を高め、無害でない骨材の膨張に影響を及ぼすことを明らかとした。また、膨張率の推移に与える影響は、CGS に含まれるアルカリ量 (Na_2O_{eq})、 NBO/T 等が示す CGS の溶解性の高さ、ならびに CGS 混合率 (CGS の使用量) が影響することが示唆された。本研究では、この膨張率と Na_2O_{eq} 、 NBO/T および CGS 混合率の関係から、反応性骨材に影響を及ぼさない CGS 混合率の算定方法を提案した。

第 6 章「結論」では、本研究の成果を取りまとめるとともに、今後の課題と展望を示した。このような研究成果が得られたことは、論文提出者の豊富な学識と優れた研究能力を裏付けるものである。

よって本論文は、博士 (工学) の学位を授与されるに値するものと認められる。

以 上

令和 5 年 9 月 21 日