

本邦の今後のコンクリート研究に関する雑感

東京大学 教授 丸山 一平



1. はじめに

コンクリートは、工業用水に次いで大量に使われている材料であり、社会インフラおよび建築構造物の多くで利用されている¹⁾。災害を多くうける日本では、地震、津波、台風、洪水・氾濫、竜巻、火災といったさまざまな外力に耐えうる建築物を作り、人口密度を上げて都市の効率化に努めてきた。さまざまな環境外力に対して人が生き抜くことができること、また、社会の安定のために資産・財産を適切に管理できることにおいて、鉄筋コンクリート造建築物は重要な役割を果たしてきた。例えば、戸籍や固定資産台帳が安易に燃えたり、流されたりしてしまう社会において、経済成長は可能だったであろうか。

このコンクリートは、砂、砂利、水、ポルトランドセメントからなり、適切な割合で混合して型枠の中に打込み、概ね1か月程度で目標の強度になるように調合することができる。セメントと水が反応して水和物をつくり、これが結合材の働きを果たすが、このプロセスをセメントの水和反応といい、他の化学製品よりも反応が緩やかであるために、1か月程度の期間がかかる。

ポルトランドセメントの原材料は石灰岩 (CaO 原料)、珪石 (SiO₂ 原料)、粘土 (Al₂O₃、SiO₂ 原料)、鉄屑 (Fe₂O₃ 原料) である。多くの工業製品が純度を上げて用いられるのに対して、セメントは前述の4つの氧化物組成が一定の範囲内に収まっていれば、1450℃程度に升温さえすれば、セメント鉱物の生成反応が生成して製造できる点で応用性が高い。そのため、原材料にさまざまな産業廃棄物を受け入れることが可能であり、本邦では都市から出てくる建設残土を始めとして、本来であれば埋め立て処理されるような無機系廃棄物を再資源化して用いている²⁾。焼成してできる鉱物はおもに4つあり、水硬性のエーライト、ビーライト、アルミン酸三カルシウム、鉄アルミン酸四カルシウムである。エーライト、ア

ルミン酸三カルシウムの水和反応性は高く、他の2つの水和反応は比較的緩やかに進行する。実のところ、これらの鉱物の同時進行する水和反応速度の予測も評価も、未だ完全には理解されていないが、ここ15年ほどで大幅な理解がすすんでいる状況にある。

ポルトランドセメントの水和反応によるコンクリートの硬化過程において、強度・剛性を生じさせるためには、カルシウムを含む低密度水和物の生成が必須条件である¹⁾。すなわち、水とセメントで反応した体積とほぼ同等の体積を有する水和物を製造しなくては、練り混ぜたコンクリートは反応により縮んでしまうことになる。

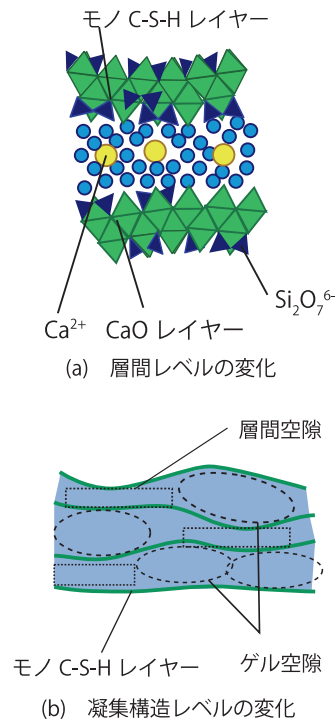


図-1 C-S-Hの概念図

一般のポルトランドセメントの水和反応において、低密度水和物は珪酸カルシウム水和物 (C-S-H) であり、

CaOによって形成される平面構造を基盤としてSiO₂の二量体がこの平面構造の上下面に取り付くことによって層状珪酸塩の基盤が構築される(図-1)。CaOとSiO₂でできた各層(C-S-Hモノレイヤーと称す)は、表面にマイナスの電荷を持つので、C-S-Hモノレイヤー2層の間にCa²⁺イオンが入ると電荷バランスを保つことができ、2つのC-S-Hモノレイヤーの構造は安定化する。この形は粘土鉱物に見られる層状構造に似た構造になる。一方で、このCa²⁺イオンは容易に水和する(Ca原子のまわりに水分子を引き付ける)こと、また、表面の電荷のバランスを補償するCa²⁺イオンの結合形態が多様性をもつことから、ポルトランドセメントと水の反応において、きれいな積層構造はつくらないことが一般的である³⁾。CaOによる基盤はきれいな平面構造にはならず波打った歪んだ構造を持ち、さらに低密度な構造体を形成することになる。C-S-Hモノレイヤーはミルフィーユのお菓子のようによろめいた形状をもち、層間の狭い部分(1nm以下)の部分から、層間の広い部分(4nm程度)まで、さまざまな幅を有するとともに、この層間において水分とイオンの移動を許容することができる。この水を多く含む低密度水和物がコンクリートの高い強度を達成することに大きく貢献する。C-S-Hの構造は、700m²/g程度の比表面積を持つものとされ⁴⁾、この高い比表面積が、水素結合やファンデルワールス力によって緩やかに束ねられ、全体として高い剛性、強度を発揮する。このように密度の低い構造をとること、比表面積が高い水和物をつくること、といった特徴はカルシウム(CaO)を有する構造だから達成できるものであり、そのためにカルシウムを用いた材料設計が基盤となって、コンクリート産業を発展させてきた。産業廃棄物を有効利用する上でも、CaOを用いることが前提となっていたのはそのためである。

この重要なCaOであるが、国内においては石灰岩(CaCO₃)を起源とし、昇温による分解(CaO+CO₂)を経由して得られる。日本における石灰岩は、3億年前から2.5億年前に現在の赤道付近でできたサンゴ礁などからなる石灰岩がプレートとともに移動し、2.3億年前から1.5億年前ごろに大陸プレートに衝突して、陸側に付加されたものであり、生物起源で純度の高いものが多く、国内で自給可能な鉱物資源となっている。日本における確定埋蔵量は112億トンといわれ、年間生産量がおおよそ1億7千万トンであり、約66年で枯渇するといわれている(2007年時点)⁵⁾。そのため、CaO資源について、今後適切に利用していくことが求められている。

また、石灰石を分解してカルシウムを得るためには常にCO₂の発生を伴う。日本のポルトランドセメントの生産工程においては、6割程度が煅焼由来のCO₂であり、残りはセメントを焼成するためのエネルギーや粉砕・運搬の動力源によるCO₂となっている。現在までの地球上における人工のCO₂発生総量のうち、6%程度がセメント製造に由来するものであると指摘されている¹⁾。このことから、建設分野、とくにコンクリートセクターにおいてはCO₂発生に対する適切な対応をしなくては、今後、カーボンニュートラルを達成した他の建設材料への代替がすすみ、需要が低減すると危惧感から多くの技術開発研究を行っているのが現状である。セメント、あるいはコンクリート業界におけるカーボンニュートラル化はさまざまな手法の組み合わせで達成が期待されている⁶⁾。

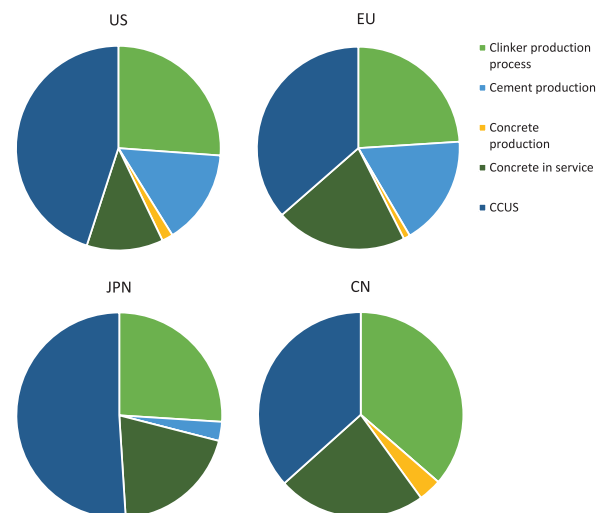


図-2 米国(US)、欧州(EU)、日本(JPN)および中国(CN)における今後のコンクリートセクターのカーボンニュートラル達成のためのCO₂削減手法とその割合⁷⁾

その手法としては、1) セメント製造プロセスにおける、CO₂を排出しないCaO資源の利用、バイオマス燃料やリニューアブルエネルギーによるクリンカー焼成、キルン効率の改善、CO₂排出量の小さいクリンカーの開発、2) セメント販売時におけるセメント系混和材置換率の増大、粉砕などでの効率増大、輸送におけるカーボンニュートラル化、3) コンクリート調合における最適化(たとえば、過剰な強度を求めない)、輸送におけるカーボンニュートラル化、4) 建設・施工における最適化、ならびに炭酸化反応の有効利用、5) カーボンキャプチャによる有効利用および貯蔵、が考えられる。図-2には、先進的な取り組みをしている各国、領域の今後のセメント製造のCO₂削減方針の構成要素の違いを示す。このグラフは2013年をベースとしての今後の

技術開発項目が異なっており、たとえば、エネルギー利用効率化をすでに検討していた国については、相対的に縮減余地は少なくなり、寄与率が低くなる点について留意しておく必要がある。

2. さまざまな研究開発

2.1 セメントの混和材研究

欧州を中心に、引き続きポルトランドセメントの利用量を削減し、混和材の形でシリカ、アルミ、その他の元素を含有する材料の利用が検討されている。鉄鋼業分野が鉄鉱石を今後どのように取り扱っていくかという不透明な部分もあるが、吸熱反応であるので水素還元がすぐにはできとも思えないが、従来の高炉による製造からは変化するので、高炉スラグはなくなるかあるいは性質は変化していくものと考えられる。そのため、品質の変化した高炉スラグの有効利用方法についてあらためて検討をしていく必要があるだろう。フライアッシュについても石炭火力発電所が欧州のルールによって利用されなくなっていくことを想定した場合にはなくなっていくことになり、従来、大量に利用されていた混和材は生産されなくなっていく⁸⁾。この観点から、欧州を中心に焼成カオリン、あるいは焼成粘土を混和材とする研究が大規模に行われており、欧州、インド、南アジアおよび南米の一部で規格化がすすみ利用にはずみがついている⁹⁾。

一方、粘土が自然物であり組成に変動があること、それに応じて反応性をたかめる焼成温度が変化すること、焼成後の反応パスが多数あること、混和材を混合した系全般の問題ではあるが初期強度発現に課題があること、などについて多くの研究が進められている。特に焼成温度は、低温であればただの脱水になってしまい、温度が高すぎると別の鉱物が生成してしまうため、メタ化させて反応性を高める温度帯は想定よりも狭く、工業的な応用を考えると焼成炉の中の温度分布や滞留時間なども相当に制御しなくてはいけない印象を受ける。しかしながら、これらの研究が将来性あるものであるとの印象は欧州およびアジア各国で共有されており、今後10年は、少なくとも多くの研究リソースが注がれると推察される。なお、類似の焼成粘土の混和材利用は日本でも戦前にはなされているが¹⁰⁾、材料設計の観点で未熟でカルシウム、シリカ、アルミの役割についての知見がすくなくったため、現在の配合とは大分異なった領域で研究した結果が残っている。現在は、ヘミカーボネート、モノカーボネートというアルミ・カルシウム・水からなる水和物に一部 CO_3^{2-} が入り込んだ結晶を合目的に生成さ

せる反応経路を考えることで強度発現を大幅に改善することが理解されており、反応経路を詳細に検討して材料配合を検討している^{11), 12)}。

地質的な特性から日本にも当然ながら一部に粘土が存在し、多くの場合、それらは焼き物の街として発展してきたが、それらをセメント混和材へ応用するのは難しそうである。それよりも、大量に存在する火山灰の有効利用の方が合理的なように思われる。そのため日本においては火山ガラスの利用が進められている¹³⁾。周知のように小樽築港時より火山灰の利用は研究されており、日本のコンクリート工学分野においても古くから存在する研究である¹⁴⁾。火山灰の中にはガラス質の他、いくつかの鉱物、風化によってできる二次鉱物が存在するため、反応性は産地や場所によってさまざまである。この中からガラス質分を抽出することによって反応性を高める技術も開発され、近年ではさらに多くの産地の火山灰の有効利用が研究されつつある¹⁵⁾。同じくシリカ、アルミナ資源としては、珪藻土の利用も検討できると考えられ、日本は日本の特性に準じた研究をしていくべきであるが、今後の人口減少とインフラ規模の緩やかな減少を想定するのであれば、国際化を念頭に研究開発の方向性を意識していく必要がある。

2.2 新しいセメントの研究

すでに1980年代にフランスで水ガラス、アルカリ金属、焼成メタカオリンを用いた硬化体としてジオポリマーが提唱されている¹⁶⁾。これらは新しい軽元素による硬化体という観点で革新的材料になりえたが、製造上のいくつかの課題があるために応用の範囲は限られている。コストも大きな要因の一つである。近年では、カルシウムとシリカからなる鉱物で、水と CO_2 と反応することで炭酸カルシウムとシリカゲルになるものをセメントの混和材利用^{17), 18), 19)}、あるいはセメントとして利用する研究が日本・欧州で行われ一部実用化されている。これらは、セメント反応時に CO_2 を再度固定化ができるという点でカーボン・オフセット技術として考えられるとされている。

その他には、カルシウムと似た挙動をする材料としてマグネシウムがある。このマグネシウムは、炭酸塩として存在する以外にも、海水を淡水化処理した結果得られたり、あるいは、蛇紋岩などから特殊な工程を経て取り出したりすることで CO_2 を排出せずに取り出すことができる可能性があるとしており、これを炭酸化させつつ固体化させる研究や、あるいはマグネシウムを用いた水硬性セメントの研究もなされている²⁰⁾。

2.3 再利用

日本においては、完全リサイクルコンクリート²¹⁾、セメント回収型完全リサイクルコンクリート²²⁾、骨材回収型リサイクルコンクリート²³⁾、などを皮切りにリサイクルコンクリートの研究が行われてきた。再生骨材に関する研究も歴史が古く²⁴⁾、骨材という有限資源を有効利用することからも再生骨材の社会実装は重要である。フランスでは、再生骨材にCO₂を吸着させてコンクリートに用いる研究が行われ、粉砕、輸送、CO₂固定のエネルギーを考慮しても、CO₂固定量が実質的に上回り、コンクリート中にCarbon Capture Utilization and Storage (CCUS) として可能であることを確認した実証プロジェクトが行われた²⁵⁾。強度、耐久性とのバランスを考慮した調合設計手法も提案されており、カーボンプライシングが現実となっている今、このような研究は大きな動機をもっている。日本にもエコタンカルといった技術があり普及し始めているが²⁶⁾、可能な限りカルシウムをもとの炭酸カルシウムに戻す、あるいは、カルシウムを循環させる研究が重要となる。この観点で、筆者は、C₄S研究開発プロジェクト²⁷⁾の中で炭酸カルシウムコンクリートを提唱した²⁸⁾。これは廃コンクリートを炭酸化させるとともに、その過程でコンクリートを炭酸カルシウムを用いて結合して硬化体を製造する技術であり、実現されれば炭酸カルシウムコンクリートとして永遠に再利用が可能となる循環システムが達成可能となる。

2.4 長期利用

構造物を長く利用することで資源の投入量を減らすことができ、それだけでもカーボンニュートラルに貢献ができる。その観点では引き続き、耐震、台風、疲労に対応する技術開発が重要であり、とくに材料変質と構造的な性能、すなわち、構造物の時間依存性性能変化予測技術、ならびに、劣化した構造物の補修・改修技術が重要となる。建築物に関して建物寿命は商業上の理由によるものが多く、法律、あるいは構造的な性能で寿命決定する場合は必ずしも多くは無い。そのため、欧米のようにゆとりのあるストックとしての建築を設計することの普及が重要である。鉄筋コンクリート建築物については、塗装や仕上げと内部のコンクリートの変質の相関、あるいは塗装や仕上げの劣化とそのモニタリング技術なども躯体保護技術の基幹研究として重要になる。また、中古市場の普及を考えると、構造物の実力評価手法、すなわち、非破壊、微破壊、モニタリング、数値計算技術を総合した建物性能評価システムの構築が喫緊の課題である。建築

物の真の性能が理解されないまま、劣化、補強が行われても、結局、どれだけの性能を保持しているかがわからないのでは、素晴らしい技術にみあうコスト負担を建物所有者等に要求することは難しい。従来の工学としての建築設計だけではなく、科学としての建築構造物の理解が、長期利用の観点から必要となる。一般の環境においても鉄筋コンクリート構造物の耐震性能は日々変化していることはあまり材料に興味をもっていない構造工学者には理解されていない。たとえば、20℃、60%RH程度の乾燥環境において、鉄筋コンクリート構造物の剛性が半分になりうることなど^{29), 30)}は性能評価上重要な課題になると著者は考えている。

3. まとめ

最近のニーズに即して、現在実施されている世界的動向を踏まえ、日本において必要となる研究について取りまとめた。非常に大きなテーマであるため、それぞれの詳細をつめていくと、それだけでレビュー論文ができてしまうような内容であるため、議論の粒度については、重要性や理解の観点、社会からのニーズの大小を多少反映させて判断した。そのため、それぞれのトピックでの議論はやや飛躍がある部分もあるが、その点をご容赦いただきたい。今後、日本は高齢化と人口減少を迎え、研究投資が少なくなっていく。そのため、国際的には研究開発分野が広がっていくなか、国内の研究機関のみで研究開発をしていくのは難しくなっている。そのため、英語で議論を発信していきながら、国際的な研究機関とシナジーを得ながら、国内の利益も誘導しつつ研究開発をしていくことで、レバレッジを効かせて投資対効果が高い研究開発に努めることが必要になる。そういった活動になんらかの貢献ができるのであれば望外の喜びである。

4. 付記

本稿執筆にあたり、著者の過去の文献も参考にし、一部の文章について改変して用いた^{31), 32), 33)}。

【参考文献】

- 1) Scrivener K., John V., Gartner E : Eco-efficient cements: Potential economically viable solutions for a low-CO₂ cement-based materials industry. *Cement and Concrete Research*, Vol.114, pp.2-26, 2018. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2018.03.015>
- 2) セメント協会：循環型社会構築に向けた取り組み <https://www.jcassoc.or.jp/seisankankyo/seisan01/seisan01a.html>, 2023年7月29日確認

- 3) Gartner E, Maruyama I, Chen J : A new model for the C-S-H phase formed during the hydration of Portland cements. *Cement and Concrete Research*, Vol.97, pp.95-106, 2017. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2017.03.001>
- 4) S. Brunauer, I. Odler, M. Yudenfreund : The new model of hardened Portland cement paste, *Highw. Res. Rec.* pp.89-101, 1970
- 5) 杉田隆 : 石灰石鉱業の現状と課題, *Journal of the Society of Inorganic Materials, Japan*, 14巻, 329号, pp.226-231, 2007
- 6) Global Cement and Concrete Association, Our path to net zero -past, present and future actions, <https://gccassociation.org/concretefuture/our-path-to-net-zero/> (2023年1月5日確認)
- 7) Maciej Zajac, Ipeei Maruyama, Atsushi Iizuka, Jorgen Skibsted, Enforced carbonation of cementitious materials, *Cement and Concrete Research* (accepted)
- 8) Glasgow Financial Alliance for Net Zero : Financial Institution Net-zero Transition Plans - Fundamentals, Recommendations, and Guidance, 2022
- 9) ICR Research : LC3 in codes and standards, <https://www.cemnet.com/Articles/story/172916/lc3-in-codes-and-standards.html> (2023年7月29日確認)
- 10) たとえば、永井章一郎 : セメントに対する諸種の人工珪酸物質の混用に就て (第一報), *大日本窯業協会雑誌*, Vol.37, No.441, pp.361-370, 1929.9
- 11) Matschei T, Lothenbach B, Glasser FP : The role of calcium carbonate in cement hydration. *Cement and Concrete Research*, Vol.37, pp.551-558, 2007. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2006.10.013>
- 12) Matschei T, Lothenbach B, Glasser FP : The AFm phase in Portland cement. *Cement and Concrete Research*, Vol.37, pp.118-130, 2007. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2006.10.010>
- 13) 小川八助, 内海三貞 : セメント要論, *工業化学雑誌*, Vol.3, No.11, pp.754-767, 1900
- 14) たとえば、大日本窯業協会 : 混合セメントに関する座談會, *大日本窯業協会雑誌*, Vol.48, No.576, pp.576-588, 1940
- 15) 友寄篤, 野口貴文, 袖山研一, 東和朗 : 火山ガラス微粉末の粉末度と置換率が強度発現に及ぼす影響, *セメント・コンクリート論文集*, Vol.73, pp.465-470, 2020
- 16) Davidovits, J. US Patent No.4509985, 1982
- 17) Meyer, V., Sahu, S., & Dunster, A. : Properties of solidia cement and concrete. In *Proceedings of the 1st International Conference on Innovation in Lowcarbon Cement & Concrete Technology*, London, UK, pp.24-26, 2019, June
- 18) Saito, T., Sakai, E., Morioka, M., & Otsuki, N. : Carbonation of γ -Ca₂SiO₄ and the Mechanism of Vaterite Formation. *Journal of Advanced Concrete Technology*, 8 (3), pp.273-280, 2010
- 19) 取違剛, 横関康祐, 吉岡一郎, 中本健二, 盛岡実, & 樋口隆行 : CO₂排出量ゼロ以下の環境配慮型コンクリート「CO₂-SUICOM (スイコム)」, *セメント・コンクリート*, No.786, pp.26-31, 2012
- 20) E. Gartner, M. Gimenez, V. Meyer, A. Pisch : A. Novel Atmospheric, Pressure approach to the mineral capture of CO₂ from industrial point sources, *Proceedings of the CCUS 2014-Carbon Capture, Utilization and Storage Conference*, Pittsburgh, PA, USA, 2014, <https://doi.org/10.13140/2.1.1092.9600>.
- 21) 友澤史紀, 野口貴文 : 完全リサイクルコンクリート, *コンクリート工学*, 35巻7号, pp.57-60, 1997
- 22) 田村雅紀, 野口貴文, 友澤史紀 : セメント回収型完全リサイクルコンクリートの完全リサイクル住宅 (SPRH) への実施工検討 (材料施工), *日本建築学会技術報告集*, 11巻21号, pp.27-32, 2005
- 23) 辻埜真人, 野口貴文, 北垣亮馬, 長井宏憲 : マイクロ波加熱を利用した骨材回収型完全リサイクルコンクリートに関する研究, *日本建築学会構造系論文集*, Vol.76, No.660, pp.223-229, 2011
- 24) 建設廃棄物処理再利用委員会 : 再生骨材コンクリートに関する研究, *コンクリート工学*, Vol.16, No.7, pp.18-31, 1978.7
- 25) Torrenti, J. M., Amiri, O., Barnes-Davin, L., Bougrain, F., Braymand, S., Cazacliu, B., ... & Turcry, P. : The FastCarb project: Taking advantage of the accelerated carbonation of recycled concrete aggregates. *Case Studies in Construction Materials*, Vol.17, e01349, 2022. <https://doi.org/10.1016/j.cscm.2022.e01349>
- 26) 日本コンクリート工業株式会社 : エコタンカル® <https://www.ncic.co.jp/products/environment/ecocaco3.html> (2023年7月29日確認)
- 27) 野口貴文 : コンクリートによる CO₂の吸収固定・循環技術の方向性 : ムーンショット「C4S 研究開発プロジェクト」の概要, *配管技術 The piping engineering/配管技術編集委員会 編*, 63 (14), pp.18-23, 2021
- 28) Maruyama, I., Kotaka, W., Kien, B. N., Kurihara, R., Kanematsu, M., Hyodo, H., ... & Noguchi, T. : A new concept of calcium carbonate concrete using demolished concrete and CO₂. *Journal of Advanced Concrete Technology*, 19 (10), pp.1052-1060, 2021
- 29) Sasano H, Maruyama I, Nakamura A, et al : Impact of drying on structural performance of reinforced concrete shear walls. *Journal of Advanced Concrete Technology*, Vol.16, pp.210-232, 2018. <https://doi.org/10.3151/jact.16.210>
- 30) Maruyama I : Impact of drying on concrete and concrete structures. *RILEM Technical Letters* 7:1-11, 2022. <https://doi.org/10.21809/rilemtechlett.2022.154>
- 31) 丸山一平 : CO₂が原料の完全リサイクル可能なコンクリート製造技術, *月間ファインケミカル*, Vol.52, No.3, pp.5-11, 2023年3月
- 32) 丸山一平, 吉田英一, 山本鋼師, 野口貴文 : コンクリーション生成メカニズムの工学的応用事例, *地質学会誌*, Vol.128, No.1, pp.281-285, 2022
- 33) 丸山一平 : 鉄筋コンクリート構造の技術的変遷 第13回, *鉄筋コンクリートの長期挙動, ビルディングレター*, No.654, pp.21-32, 2020.6