

# 博士論文概要

## 論文題目

ポルトランドセメントの複合水和反応と  
組織形成モデルに関する研究  
Multi-Component Model for Portland cement  
Hydration Reaction and Structure Development

申請者

アグス サントーサ スジョノ

Agus Santosa SUDJONO

2002 年 9 月



コンクリートは鋼材と並ぶ構造材料の主役とし、20世紀に多くのコンクリート構造物が建設され、前世紀はコンクリートの時代であったともいわれる。コンクリートは高い耐久性を有した構造材料として信頼されてきたが、最近ではコンクリート構造物に様々な劣化が報告されている。コンクリートはメンテナンスフリーで「半永久的」な材料として信頼を得てきたが、コンクリートの耐久性が問題となる状況となっている。

資源・エネルギーの有限性、地球環境の悪化という時代も到来している。最も深刻な地球問題とは地球温暖化である。地球温暖化を防止するためには、CO<sub>2</sub>などの温暖化ガスの排出を低減することが重要である。しかし、コンクリートの主要素材であるセメントの製造時に発生するCO<sub>2</sub>の量は大きい。また、コンクリートの解体に伴うコンクリート廃材の処分の問題もある。コンクリートは地球環境への負荷量が大きいと考えることもできる。

上述のようにコンクリートは、耐久性の課題や地球環境の課題に直面する状況となっており、コンクリートは構造材料として厳しい状況になっていると考えられる。しかし、コンクリートに代わる新たな構造材料が出現する可能性は少なく、コンクリートは今後とも構造材料の主役の時代が続くことが予想される。コンクリートの信頼性を向上させるためには、耐久性の高いコンクリートの設計・施工法に関する技術開発がより求められる。すなわち、建設時点で耐久性の高いコンクリートとすることによって構造物の目標耐用年数を延伸させ、さらに、高耐久コンクリートとすることによって地球環境への負荷量、建設用資源、解体・処分に伴う問題などを低減することが可能になる。

一般に、コンクリート構造物の性能はコンクリート自体の物性と密接に関係している。耐久性を含めてコンクリートの物性は主にコンクリートの組織および空隙構造、すなわち骨材部分、セメントペースト部分および両者の界面部分の性質に依存している。したがって、物性の品質向上に対して、基本的にセメントペーストおよび骨材とセメントペーストの界面の組織および空隙構造の制御を行うことが必要である。

コンクリートの劣化の原因をみると、主にコンクリート中の物質移動、すなわちイオン透過性、透気・透水性（ガス・水）、コンクリートからの水分の移動による収縮、およびコンクリート中の水分凍結に分類される。コンクリートのイオン透過性に関するものはアルカリ骨材反応および塩害であり、透気・透水性に関するものは中性化（炭酸化）であり、水分移動による収縮は乾燥収縮とクリープであり、水分の凍結による現象は凍害である。これらの劣化はコンクリートの組織および空隙構造と密接な関連があるといわれる。

コンクリート構造物の寿命を考慮した計画・設計を行うためには、コンピュータ上でコンクリート使用材料の選定からコンクリートの性能が要求性能を満たすかどうかの照査を行うことが必要になる。セメントの水和反応と組織形成モデルは、コンクリート構造物の寿命の予測に大きな影響を与える。また、使用材料の組み合わせを適切に選定するために、任意の条件に対応できるセメントの水和反応と組織形成モデルを構築することが必要である。

上述のように、コンクリートの性能予測が大きな課題となっているのが現状である。また、セメントの水和反応と組織形成モデルはコンクリートの性能予測の基本となる。

本研究では、任意の条件に対応できるセメントの水和反応と組織形成モデルを構築することによってペーストの硬化体の組織を表現することを目的とした。このため、まず、使用材料の選定に対応できるように、各種のクリンカー鉱物の水和反応速度を定式化した。次に、組織形成モデルを構築するために、水和生成物の算定方法および水和生成物の配置方法の検討を行った。硬化体の品質は、そのフレッシュ時の品質が反映されるため、フレッシュ時のセメント粒子の凝集構造を実験的・理論的に検討した。これらの結果より、セルオートマトン法を用いたポルトランドセメントの複合水和反応と組織形成モデルを構築した。

本論文は6章より構成されており、その概要は次のとおりである。

第1章は「序論」である。本研究の背景と目的、セメントの水和反応と組織形成モデルにおける課題について述べるとともに本研究の方法論と既往の研究の概観、論文の構成について述べている。

第2章は「各種クリンカー鉱物の水和反応速度の定式化」について述べたものを記述した章である。セメントの水和反応モデルを確立するために、セメントの水和反応過程を明確にすることが必要である。既往の研究から各種のクリンカー鉱物における実験結果をまとめて、クリンカー鉱物の水和反応過程を模式化した。各種のクリンカー鉱物の水和反応速度は、未水和クリンカー鉱物の粒子の表面への外部の水の補給の速度あるいはセメント粒子から外部への水和生成物の移動速度と、未水和クリンカー鉱物の表面における反応速度に依存するため、各種のクリンカー鉱物の水和反応速度は各種のクリンカー鉱物への水の浸透速度と等しいと仮定することとした。粒子は球状と単純化し、各種のクリンカー鉱物への水の浸透速度を定式化することができた。浸透速度の基本式は、基礎浸透速度に比例しており、与えられた因子の定数によって時間の経過に伴い浸透速度が減少していく。因子の定数は、浸透深さ、温度、水分の存在、粒子間の相互作用である。

第3章は「ポルトランドセメントの水和反応過程に伴う水和生成物の算定」について述べたものを記述した章である。ポルトランドセメントに着目し、ポルトランドセメントにおける予想される化学水和反応を定式化することとした。このために、各種の水和生成物のキャラクターを検討することが必要である。既往の研究における各種の水和生成物のキャラクター、すなわち組成と構造を調査し、ポルトランドセメントの主な水和物の種類は CSH, CH, AFt および AFm であり、各種のクリンカー鉱物の化学反応式を定式化することができた。次に、水和生成物を算定するために、各種のクリンカー鉱物および水和生成物の密度を定量化することを試みた。既往の研究の調査より、各研究者が使用したクリンカー鉱物と水和生成物の密度が相違しており、セメント水和反応と組織形成モデルの信頼性・再現性・精度を確認するためには、今後はクリンカー鉱物と水和生成物の化学組成および密度を標準化することが必要であることに言及した。

第4章は「水和反応および組織形成に及ぼすセメント粒子の凝集構造の影響」について述べたものを記述した章である。第2章において、理論的な検討から粒子間の相互作用はセメントの水和反応および組織形成に影響を与えることがわかった。水中で粒子が良好に分散する状態と仮定することにより理論を導いたが、セメントを水で混ぜると、必ずしもセメント粒子が水

中によく分散するとは限らない。これより、セメント粒子の凝集構造を考慮したセメントの水和反応と組織形成モデルを構築するために、フレッシュ時のセメント粒子の分散性とセメントの水和反応と組織形成への影響を検討することが必要であることがわかった。そこで、異なる練混ぜ方法を実験要因として、フレッシュ時におけるセメント粒子の凝集構造の機構を理論的に検討し、異なるセメント粒子の凝集構造で製造したセメントペーストとモルタルの諸性質を実験的に検討した。また、理論より4種の粒子の凝集構造があることが明らかにした。セメント粒子がよく分散すると、ブリーディング率が減少し、水和反応速度が速くなり、均一な組織を持つことを明らかにすることができた。

第5章は「ポルトランドセメントの複合水和反応および組織形成のシミュレーション」について述べたものを記述した章である。セメントの水和反応と組織形成モデルに関する最大の課題は、セメントペースト硬化体の組織を再現する方法である。水和生成物はランダムに析出するため、水和生成物の空間的な配置方法を考えることが必要である。セルオートマトン法(CA法)は自己組織の解析手法であるため、単純なモデルによって複雑な現象を表現することができる。これより、セルオートマトン法を用いてセメントペースト硬化体の組織を再現することが可能である。そこで、セルオートマトン法を用いたポルトランドセメントの複合水和反応と組織形成を検討した。セメントペーストの解析対象の寸法は $100 \times 100 \times 100$ セルと設定し、セルの寸法は $1 \times 1 \times 1 \mu\text{m}$ である。1セルへの水の浸透深さは、第2章で提案した式を用いて計算し、1セルが水で満たされると反応が生じるものとした。化学反応式は第3章で提案したものである。解析および既往の実験結果から、任意の条件で水和率をほぼ再現することができた。しかし、水和生成物の水酸化カルシウムおよび空隙率においてはシミュレーション結果と計測結果の誤差は、水セメント比が大きいほど若干大きくなった。この原因は、粒子の凝集構造とブリーディングの現象の他に、空隙質の化学反応の定め方によると思われる。しかし、セルオートマトン法を用いることによってセメント硬化体の組織を再現することが可能であることを示した。コンピュータの性能の限界があり、セメントペースト硬化体の組織はnmのレベルであるため、セメント硬化体の組織を微視に再現することが困難で、特に、セメントペースト硬化体の空隙構造を分布的に表現するには至らなかった。しかし、コンピュータの進化により、今後はセルの寸法はnmのレベルで解析することができるものと思われる。

第6章は「結論」である。本研究で得られた結論をまとめたものであり、ポルトランドセメントの水和反応と組織形成に関連する知見を総括している。

以上のように本研究は、コンクリート構造物のライフサイクルエンジニアリング(LCE)に立脚して計画・設計をすることを念頭において、時間軸を考慮してコンクリート中のペースト硬化体の組織の変化を再現する手法を検討したものである。コンクリート構造物の設計時点における耐用年数の設定、既存施設における残存年数の推定などに関しても基礎的な手法を提示したものである。