

論文 インドにおける CO₂ 削減を目的とした無焼成フライアッシュレンガ作製方法の検討

斎藤 雄仁^{*1}・Sanjay・PAREEK^{*2}

要旨：本研究では、石炭灰のうち 9 割を占めるフライアッシュの多量使用、CO₂ 削減を目的とした無焼成製法でのレンガ作製における養生条件の違いが圧縮強さに及ぼす影響について検討を行った。結論として、無焼成製法で作製したレンガ試験体は、水分を多く与え、かつ高温養生を行うほどポズラン反応が促進され、圧縮強さが増加する傾向にある。さらに、本研究で提案した調合及び作成法によるフライアッシュの多量使用に関わらず十分な強度を得られた。

キーワード：フライアッシュ(石炭灰)、温水養生、蒸気養生、圧縮強度、ポズラン反応

1. はじめに

近年、温室効果ガスである CO₂ (二酸化炭素) 排出量の問題が各メディアで叫ばれている。2009 年 12 月に開催された温室効果ガス排出規制の国際会議である COP15 (第 15 回気候変動枠組条約締約国会議) で、インドは 2020 年までに国内総生産 (GDP) 当たり CO₂ 排出量を、2005 年比と比べて 20~25%削減するという目標値を掲げた一方で、今後も毎年 CO₂ 排出量は増えていく予想がされており、削減方法が課題となっている。

現在、インドにおける焼成レンガ製造数は、年間約 3600 億個であり、製造における燃焼 (900℃以上) 工程で使用する石炭は、年間約 1 億 4400 万 t、それに伴う CO₂ 排出量は年間約 1 億 8600 万 t と言われている¹⁾。インドで製造される多くのレンガは、非効率焼成であり、手作りのため品質も不安定で、労働条件もまた劣悪である。レンガに多量に使用する地下水により水資源の枯渇、荒地化の問題も発生している。

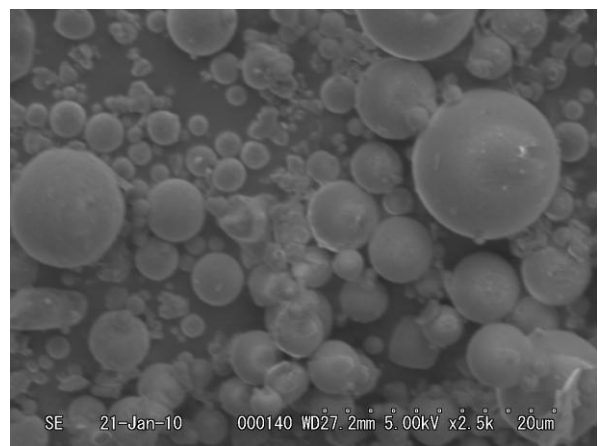
さらに、インドで火力発電所から多量に発生する石炭灰は、2006 年で約 1 億 1500 万 t と言われているが、再利用率は 39.1%に止まっている。今後、2020 年に発生量は 2 億 3000 万 t に達する見込みもあるとされている²⁾。以上のことから本研究では、インドでのレンガ製造において、CO₂ 削減を目的とした無焼成製法でのレンガ製造 (石炭の消費抑制)、材料に石炭灰の有効利用として、石炭灰のうち約 9 割を占めるフライアッシュの多量使用³⁾、機械化⁴⁾による品質の安定化、多量の水使用の抑制、作製コストの抑制、製造工期の短縮を目標とし、本論文では無焼成製法でのレンガ作製における養生条件、吸水率及び添加剤変更による調合設計が圧縮強さに及ぼす影響について検討を行う。

2. 実験概要

本研究では、無焼成製法で作製するレンガ試験体の養生条件の違いはどのような影響を及ぼすか検討を行う。

(1)使用材料

フライアッシュ II 種(能代火力発電所産)、高炉セメント B 種、消石灰、山形珪砂 5 号、添加剤 A(硫酸ナトリウム Na₂SO₄)を使用した。**Photo1** に、電子顕微鏡により観察したフライアッシュの微細構造(2500 倍)を示す。



(×2500)

Photo 1 SEM Photo of Fly-Ash

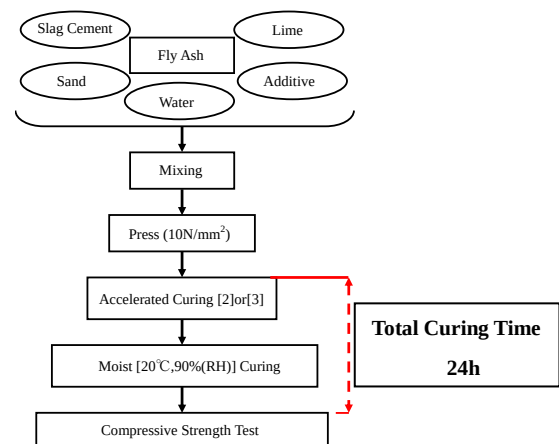


Fig.1 Flow Chart of Accelerated Test Method for Non-Burnt Bricks

*1 日本大学 大学院工学研究科建築学専攻 (正会員)

*2 日本大学 工学部建築学科准教授 工博 (正会員)

(2)試験体の作製

Fig.1 に実験手順, **Table 1** に材料の密度, 試験体の調合率(%)及び調合(kg/m³), **Fig.2** に調合比率を示す。なお, フライアッシュを全体重量比の約45%と多量に使用した。

まず, **Table 1** の調合で試料を練り混ぜ, 試験体が寸法 $\phi 50 \times 60\text{mm}$ になるようにアムスラー型万能試験機を用いて 10N/mm² でプレス形成した⁴⁾。

次に, 養生条件の違いが圧縮強さに及ぼす影響について検討を行うため, 以下の3項目について実験した。

[1].水中養生

1h 乾燥 (80℃) + 水中養生はそれぞれ 3d, 5d, 14d 及び 28d で 20℃水中+1d 乾燥 (80℃) 養生を行った。ただし, 全て最初の 1h 乾燥養生中 10min おきに少量の水の噴霧を行なった。

[2].乾燥 (80℃) +温水 (80℃) 養生の繰り返し

Fig.3 に各乾燥及び温水養生時間を示し, 合計 8h で, B, C, D, E, F 及び G の 7 通りを行った。ただし, 全て最初の養生中 10min おきに少量の水の噴霧を行った。

[3].蒸気養生

蒸気養生は Autoclave (栗原製作所) を使用し, 60, 80 及び 100℃で, それぞれ 1h, 2h, 3h, 5h, 8h, 12h 及び 16h 行った。また, ポズラン反応をより鮮明に調べるために 180℃で 3h 養生を行った。

なお, [2]及び[3]の養生したものについては, 総養生時間が 24h になるように, 湿空[20℃, 90% (RH)]養生を行い, 養生時間を調節した。

(3)圧縮強さ試験

[1]の養生した試験体については, それぞれ 3d, 5d, 14d 及び 28d で 20℃水中+1d 乾燥 (80℃) 養生を行った後すぐに, また, [2]及び[3]の養生した試験体については, 24h 養生後すぐに, JIS R 1250 (普通れんが) 圧縮強さ試験方法に従い, アムスラー型万能試験機を用いて圧縮強さ試験を行った。

3. 実験結果及び考察

3.1 レンガ品質基準

試験結果の比較基準として, インド規格 IS 1077 (Common Burnt Clay Building Bricks) 及び日本規格 JIS 1250 (普通れんが) の圧縮強さ及び吸水率の基準値を **Table 2** に示す。

3.2 水中養生[1]による圧縮強さ

養生条件[1]の水中養生をそれぞれ 3, 5, 14, 28d を行い作製した無焼成レンガ試験体の圧縮強さ試験の結果を **Fig.4** に示す。

1h 乾燥 (80℃) + 水中 (20℃) 養生後, 圧縮強さ試験を行ってみたものの圧縮強さが低い値を示したため,

Table 1 Mix Proportions and Physical Properties of Materials Used for Non-Burnt Bricks

	Fly Ash	Slag Cement	Lime	Sand	Water	Additive A
Specific Gravity (g/cm ³)	2.30	3.04	2.21	2.63	1.00	2.66
By Weight (%)	44.0	8.8	6.2	29.0	11.0	1.1
By Volume (kg/m ³)	758.6	200.5	102.0	572.5	109.9	21.1

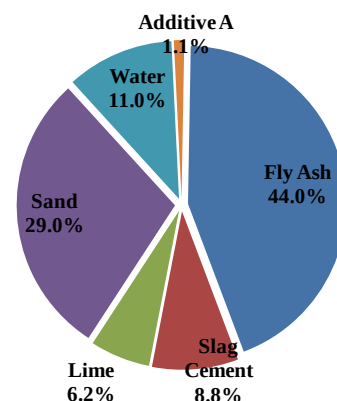


Fig.2 Mix Proportions of Non-Burnt Bricks

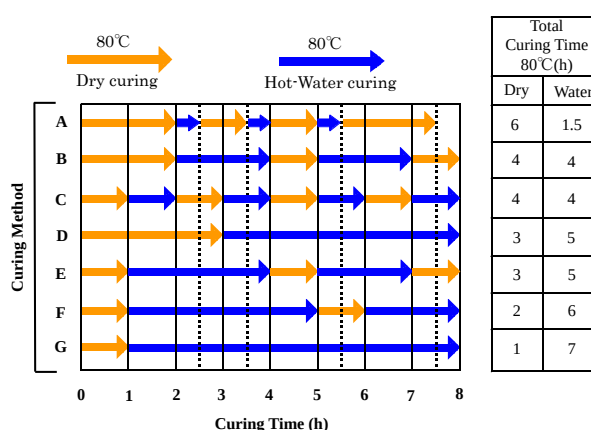


Fig.3 Dry (80℃) and Hot-Water (80℃) Curing Method for Non-Burnt Bricks

Table 2 Quality Standard of Common Bricks Used in India and Japan

	Type	Average Compressive Strength (N/mm ²)	Water Absorption (%)
India IS	—	≥ 7	≤ 20
	2	≥ 15	≤ 15
Japan JIS	3	≥ 20	≤ 13
	4	≥ 30	≤ 10

水中養生させた後, 全てにおいて 1d 乾燥 (80℃) 養生をし, 圧縮強さ試験を行った。圧縮強さは, 浸水時間の経過に伴い 5d でやや低下し, その後, 緩やかに増加する傾向を示した。5d 以降の圧縮強さが, 水中養生時間の

経過に伴って増加する要因として、ポゾラン反応の活性化によるものと推察される。また、[14d 水中 (20℃) 養生]試験体は、JIS R 1250 レンガ品質 3 種の圧縮強さを上回る結果となった。28d 水中養生試験体の重量変化は、1h 乾燥 (80℃) +28d 水中 (80℃) 養生をすることで養生前に比べ平均的に増加し、その後の 1d 乾燥 (80℃) 養生で減少し、結果的に養生による総重量変化は減少した。本研究の目標である無焼成レンガ製造を考えたとき、養生工程で蒸気養生及び温水養生をすることが出来ない場合、水中養生+1d 乾燥養生として養生工程として、推奨できる可能性がある。ただ、インドでは年間気温が高温のため電力をほとんど使用しなくても 50℃以上の水中養生+乾燥養生は出来ると考えられる。そのような現地条件を利用して無焼成レンガの養生に必要な加熱に関わるエネルギー消費量の削減を目指す。

3.3 乾燥+温水養生[2]の繰り返しによる圧縮強さ

養生条件[2]の乾燥+温水養生の繰り返しを行い作製した無焼成レンガ試験体の圧縮強さ試験の結果を Fig.5 に示す。

乾燥+温水養生を繰り返した試験体の圧縮強さは、温水養生時間を長くするほど増加する傾向を示した。B と E の種類では、最初の乾燥養生で噴霧なしと噴霧ありの実験を行ったが、10 分ごとに噴霧を行うことでやや圧縮強さが増加する結果となった。乾燥養生中にも試験体に水分を与えたために圧縮強さは増加したと考えられる。C は、合計温水養生時間 4h であるが温水と乾燥のサイクル数が他より多く、圧縮強さ 22.1N/mm² の高い値を示した。これは、サイクル数を増やすことで蒸気養生に近い養生方法ができたため高い値を示したと考えられる。D は、合計温水養生時間 5h であるが圧縮強さは 16.8N/mm² の低い値を示した。これは、最初の乾燥養生が 3h で、最初に試験体の水分を蒸発させ過ぎたことが低い値の圧縮強さを示す原因となったと考えられる。また D は、3h 乾燥 (80℃) +5h 温水 (80℃) 養生を 2 回繰り返すことで圧縮強さ 2.8N/mm², 3 回繰り返すことで 8.1N/mm² 増加した。これは、温水養生時間を長くし、試験体に水分を多く与えたため圧縮強さが増加したと考えられる。圧縮強さが、温水養生時間を長くするほど増加する要因として、ポゾラン反応の促進が考えられる。また、[1h 乾燥+7h 温水養生]試験体は、インド規格 IS 1077 のレンガ圧縮強さの基準より 3 倍以上、JIS R 1250 3 種を上回る結果となった。インドでの無焼成レンガ製造を考えた場合、圧縮強さ、養生時間、効率性、コスト、CO₂ 排出量を配慮した時、G の養生方法が妥当ではないかと考えられる。インドは、平均気温が高いためその温度を利用した乾燥+温水養生を行えるのでコスト、CO₂ 排出量を抑

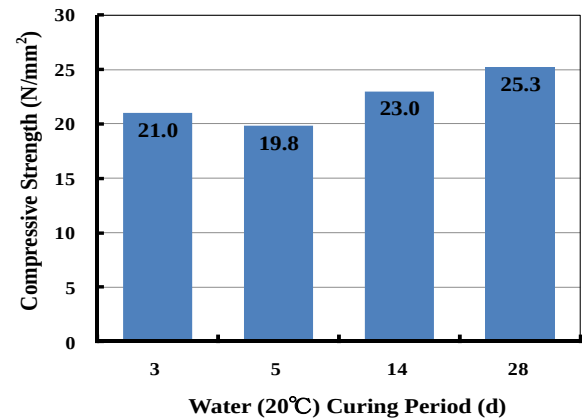


Fig.4 Compressive Strength of Water Cured Non-Burnt Brick Specimens

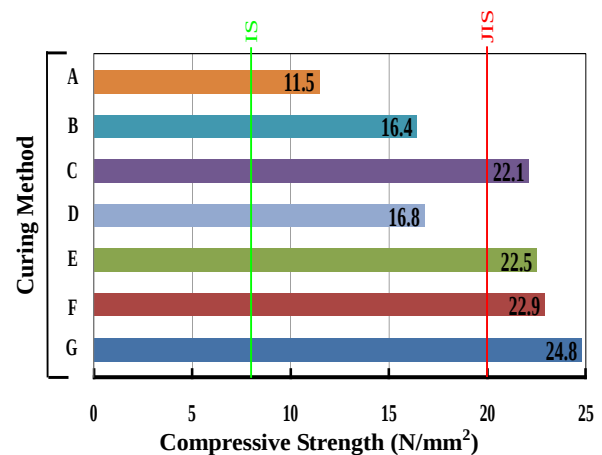


Fig.5 Compressive Strength of Dry(80℃) and Hot-Water (80℃)Cured Specimen of Non-Burnt Brick Specimens

えられる。最初の乾燥養生については、10 分おきに噴霧を行っていたが噴霧は、噴霧機を使用して手で行っているため、それぞれの試験体にかかる水分の量が若干ばらつくと考えられる。また、いかに初期段階で試験体を溶けさせずに、温水養生の段階まで持っていけるかが今後の課題である。

3.4 蒸気養生[3]による圧縮強さ

養生条件[3]の蒸気養生を行い作製した無焼成レンガ試験体の圧縮強さ試験の結果を Fig.6 に示す。また、得られた各養生条件下の試験結果の標準偏差及び変動係数を Table 3 から Table 5 に示す。

圧縮強さは、蒸気養生時間の経過に伴って増加し、高温で養生を行うことでさらに著しい増加傾向を示した。なお、(蒸気+湿空)養生による重量変化量も同様な傾向を示した。16h 蒸気養生の圧縮強さは、1h と比べて各温度 1.5 倍から 2.9 倍になり増加傾向を示した。また、蒸気養生 100℃の圧縮強さは、60℃と比べて各時間約 2.0 倍から 3.8 倍となりさらに著しい増加傾向を示した。[16h

蒸気（80℃）養生]試験体でも，[3h 蒸気（100℃）養生]試験体の圧縮強さを上回ることができない。いかに，蒸気養生の温度が圧縮強さに影響を及ぼしているかが分かる。圧縮強さが，蒸気養生時間及び高温養生により増加する要因として，ポゾラン反応の促進が考えられる。また，短時間養生である[3h 蒸気（100℃）養生]試験体は，インド規格 IS 1077 のレンガ圧縮強さの基準より 3 倍以上，JIS R 1250 3 種を上回る結果となった。[3h 蒸気（180℃）養生]試験体の圧縮強さは，51.4MPa の高い値を示し，[3h 蒸気（100℃）養生]試験体に比べ約 2 倍の値となった。笠井ら⁵⁾の論文は，フライアッシュ：普通セメント＝50：50，蒸気養生 200℃で作製した試験体は，蒸気養生 180℃の試験体に比べ，急激な圧縮強さの増加傾向があるということを示した。また，Table 3 から Table 5 に示した表より，標準偏差が 2.0 以下，変動係数が 10%以下であることから，この実験結果の正確性を裏付けている。さらに，S MAITRA⁶⁾らの論文は，フライアッシュ：石灰＝9：1 の調合で，蒸気養生を 600℃まで行った試験体は，蒸気養生 250℃が最大圧縮強さであることを示した。これらより，本実験の蒸気養生の温度をさらに上昇させるとことによって，短時間で圧縮強さを増加させられる可能性はある。しかし，本研究の目標である無焼成レンガ製造を蒸気養生 100℃以上の養生で考えた場合，Autoclave 内に高い圧力がかかる。60℃及び 80℃ではほぼ無圧力のため，養生条件を整えるために，100℃についても圧力を抜くという作業を行った。

3.5 蒸気養生試験体の電子顕微鏡写真によるポゾラン反応考察

Photo2 及び Photo3 に電子顕微鏡により観察した 60℃及び 180℃でそれぞれ 3h 蒸気養生した試験体の微細構造（10000 倍）を示す。

球体状のものはフライアッシュを示す。[3h 蒸気（60℃）養生]試験体は，空隙が多くみられることから結合状態が悪く，圧縮強さの強度発現にあまりつながらなかったと考えられる。

それに対し，[3h 蒸気（180℃）養生]試験体は，フライアッシュの周りを多くの針状のものが覆っているのが分かる。これはエトリンガイト硬化体であり，結合状態を緻密にし圧縮強さ増加につながったと推察される。

さらに，Ogawa ら⁷⁾は，ポゾラン反応とは，フライアッシュから溶出した Na^+ ， K^+ が粒子表面の反応性を高め，フライアッシュから遊離した SiO_4^{4-} 及び AlO_2^- が，セメントの水和反応により生成した C-S-H 硬化体から遊離した Ca^{2+} と接することで，Ca-Si 系及び Ca-Al 系水和物を生成する現象であるとした。また，山本ら⁸⁾は，ポゾラン反応の進行に伴い 3～20nm 区分の細孔容積率が増加し，20～

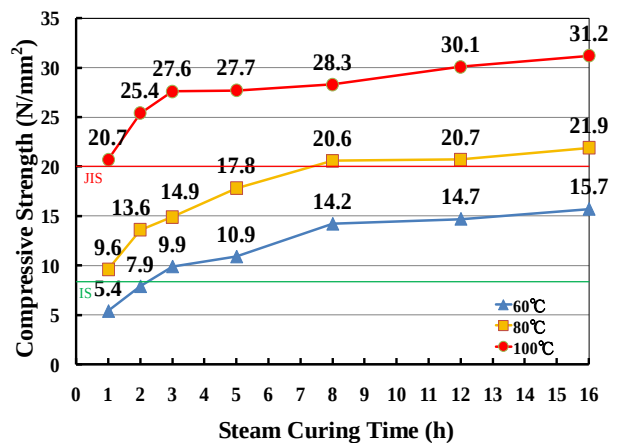


Fig.6 Effect of Temperature and Steam Curing Period on Compressive Strength of Non-Burnt Brick Specimens

Table 3 Standard Deviation and Coefficient of Variation of Steam (60℃) Cured Non-Burnt Brick Specimens

Steam Curing Time (h)	60℃		
	Average Compressive Strength (N/mm ²)	Standard Deviation (N/mm ²)	Coefficient of Variation (%)
1	5.4	0.5	8.7
2	7.9	0.5	6.7
3	9.9	0.6	6.0
5	10.9	1.0	9.5
8	14.2	1.2	8.3
12	14.7	0.4	3.0
16	15.7	0.6	3.5

Table 4 Standard Deviation and Coefficient of Variation of Steam (80℃) Cured Non-Burnt Brick Specimens

Steam Curing Time (h)	80℃		
	Average Compressive Strength (N/mm ²)	Standard Deviation (N/mm ²)	Coefficient of Variation (%)
1	9.6	0.6	5.8
2	13.6	0.8	6.1
3	14.9	1.5	9.8
5	17.8	0.9	5.0
8	20.6	1.7	8.0
12	20.7	1.9	8.7
16	21.9	1.8	9.7

Table 5 Standard Deviation and Coefficient of Variation of Steam (100℃)Cured Non-Burnt Brick Specimens

Steam Curing Time (h)	100℃		
	Average Compressive Strength (N/mm ²)	Standard Deviation (N/mm ²)	Coefficient of Variation (%)
1	20.7	1.8	8.5
2	25.4	1.5	5.8
3	27.6	1.8	6.5
5	27.7	1.1	3.9
8	28.3	1.7	6.0
12	30.1	1.9	6.3
16	31.2	1.7	5.5

330nm 区分の細孔容積率は減少することを示した。

写真からフライアッシュの周りをポゾラン反応によ

り生成した C-S-H 硬化体, エトリンガイト硬化体(針状のもの)で密に覆われていることが確認できる。これが結合状態を高め、圧縮強さの強度発現につながったと推察される。

4 結論

- 1) 水中養生については、5d 以降の圧縮強さが、水中養生時間の経過に伴って増加する要因として、ポゾラン反応の活性化によるものと推察される。また、[14d 水中 (20℃) 養生]試験体は、JIS R 1250 レンガ品質 3 種の圧縮強さを上回る結果となった。
- 2) 乾燥+温水養生の繰り返し水中養生については、圧縮強さが、温水養生時間を長くするほど増加する要因として、ポゾラン反応の促進が考えられる。また、[1h 乾燥+7h 温水養生]試験体は、インド規格 IS 1077 のレンガ圧縮強さの基準より 3 倍以上、JIS R 1250 3 種を上回る結果となった。
- 3) 蒸気養生については、圧縮強さが、蒸気養生時間及び高温養生により増加する要因として、ポゾラン反応の促進が考えられる。また、短時間養生である [3h 蒸気 (100℃) 養生]試験体は、インド規格 IS 1077 のレンガ圧縮強さの基準より 3 倍以上、JIS R 1250 3 種を上回る結果となった。
- 4) 無焼成製法で作製したレンガ試験体は、水分を多く与え、かつ高温養生を行うほどポゾラン反応が促進され、圧縮強さが増加する傾向にある。

以上から、無焼成レンガは、作製に 7d~14d 以上要する焼成レンガに比べ、1d 養生で IS の基準を著しく上回り十分な強度が得られ、提案した調合及び作製方法を用いて無焼成レンガ作製が可能のため大幅な作製工期短縮ができる。今後は、インドでの製造をより実現化するために、インド産の材料を使用して実験を行う必要がある。

謝辞

財団法人 JFE21 世紀財団より、助成を受けて実験を行いました。ここに、記して謝意を表します。

本研究を進めるに当たり、実験を進めて頂いた株式会社太平エンジニアリング 安保亮さんには、心から感謝の意を表します。

また、適切なお指導、ご鞭撻を賜りました東北大学大学院国際文化研究科 Dinil PUSHPALAL 先生にはお礼申し上げます。

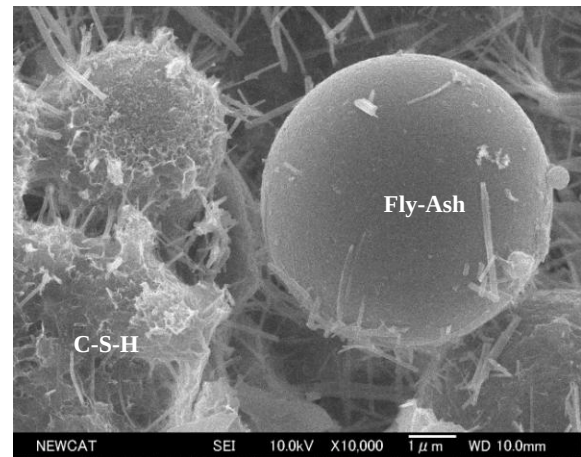


Photo 2 SEM Photo of [3h Steam(60℃) Cured] Non-Burnt Brick Specimen (×10000)

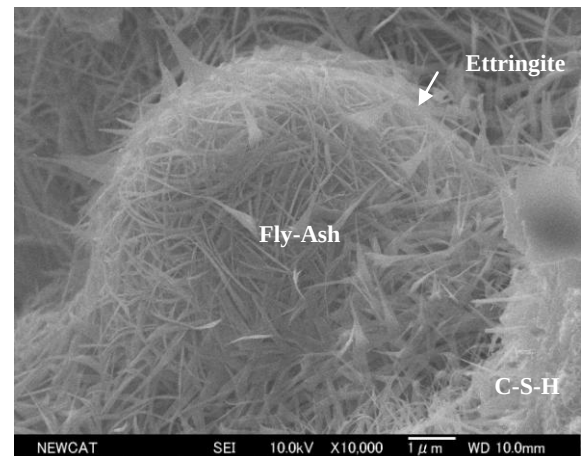


Photo 3 SEM Photo of [3h Steam(180℃) Cured] Non-Burnt Brick Specimen (×10000)

参考文献

- 1) CDM : インド・未利用資源を有効利用した無焼成レンガ製造事業調査, 亀井製陶(株), pp1-39, Mar.2007
- 2) NEDO : インドにおける石炭燃料灰事業実施可能性調査, 独立行政法人 新エネルギー・産業技術開発機構, pp1-2, Mar.2007
- 3) ディニル・プシュパラル, 松本年史 : フライアッシュを大量に用いたエコ煉瓦開発に関する調査, 第 64 回セメント技術大会講演要旨, pp.192-193, 2010
- 4) Yin-Sung Hsu, Bing-Jean Lee and Henry Liu : Mixing Reservoir Sediment with Fly Ash to Make Bricks and Other Products, 2003 International Ash Utilization Symposium, Center for Applied Energy Research, University of Kentucky, p89, 2003
- 5) 笠井芳夫, 松井勇, 長野基司, 嵩英雄 : 各種フライ

アッシュー普通ポルトランドセメントー水系オートクレーブ養生，第7回コンクリート工学年次講演会論文集，Vol.7，No.1，pp201-204，1985

- 6) S MAITRA , S DAS , A K DAS and A BASUMAJUMDAR : Effect of heat treatment on properties of steam cured fly ash-lime compacts , Bulletin of Materials Science , Vol.28 , No.7 , pp697-702, Dec.2005

- 7) Ogawa K, Uchikawa H, and Takemoto K : The mechanism of the hydration in the system C3S-pozzolan, Cement and Concrete Research, Vol.10, p683-696, 1980

- 8) 山本武志，金津努：フライアッシュのポゾラン反応に伴う組織緻密化と強度発現メカニズムの実験的考察，土木学会論文集 E, Vol.63, No.1, pp52-65,2007