

論文 CO₂ 排出量削減を実現するセメントコンクリートの開発と評価

鈴木 南都*1・小林 紀行*1・小林 知大*1・西脇 智哉*2

要旨 : CO₂ 排出量削減のためセメント使用量を極力削減したコンクリートを開発し、普通コンクリートおよびジオポリマーコンクリートとの比較を行った。具体的には、圧縮強度と CO₂ 排出量による環境影響の評価を行い、XRD と SEM による化学分析を行った。その結果、セメントの 96 % を産業副産物で置換して得たセメントコンクリートでは、圧縮強度 58.4 MPa を確保しつつ、CO₂ 排出量を普通コンクリートの約 12 分の 1、ジオポリマーコンクリートの約 4 分の 1 に削減できることを確認した。加えて、このセメントコンクリートには、通常の C-S-H に加えて Si が Al に置換された C-A-S-H 水和生成物の 2 種類が存在することを確認した。

キーワード : セメントコンクリート, 低炭素, 産業副産物, 環境影響評価, C-A-S-H

1. はじめに

世界でカーボンニュートラルの達成が目標とされている現在、建築材料として最も普及しているが、CO₂ 排出量の多いセメントコンクリートについては、従来通り使用することに疑問の声もある。そのため、セメントを使用しないジオポリマーコンクリートや木構造への転換など、セメントを使用しない技術開発が活発に行われており、その期待も大きい。この一方で、例えば「グローバルセメント・コンクリート協会 (GCCA)」CEO は、一定のセメントやコンクリートを製造・使用しつつ、CO₂ 排出量削減を目指すべきと主張している。木材・木質材料はコンクリートの代替品として使用可能な範囲が大きいものの、大断面や剛性、耐火性の確保などに一定の制限があり、コンクリート構造物のすべてに代わるためには極めて大きいブレイクスルーが必須である。しかしながら、2050 年まで直近に世界全体で整備すべきインフラ設備のうち、約 4 分の 3 はまだ建設されていない現状¹⁾を踏まえると、完全な代替を直近の現実的な目標とすることはできない。また、

現状で年間約 40 億トンのセメント生産を急激に縮減することは社会経済的な影響が甚大である。これらのことから、一定量のセメントは使用を続けつつ、コンクリートの CO₂ 排出量削減を目指す方が現実的である。このような取り組みとして、たとえば松田ら²⁾は膨張材とフェロニッケルスラグ細骨材を用いた低収縮・低炭素コンクリートを提案している。また、小林ら³⁾は混和材 3 成分を用いた低発熱・低炭素コンクリートを提案している。材料の調達から生産までの CO₂ 排出量を見える化する中で、低炭素型 PCa コンクリートに対してエコリーフ環境ラベルを獲得する取り組みも見られる⁴⁾。しかし、これらのコンクリートの単位体積当たりの CO₂ 排出量は 60~260 kg/m³ と普通コンクリート

表-1 最終処分場に対する延命効果⁷⁾

	最終処分場残余年数
廃棄物を受け入れた場合	17.4 年
受け入れなかった場合	5.5 年
延命効果年数	11.9 年

表-2 試験体の配(調)合表

	単位質量 (kg/m ³)								
	C	FA	GGBS	SF	S	G	W	AA	SP
C100_30	410	/	/	/	700	1090	165	/	0
C100_60	490	/	/	/	700	1055	155	/	0
C4	15.9	167	119	95.3	794	1191	79.4	/	6.0
C3.5	13.9	169	119	95.3	794	1191	79.4	/	6.0
C3	11.9	171	119	95.2	794	1191	79.4	/	6.0
C2	7.9	171	119	99.2	793	1190	79.3	/	6.0
GP	/	264	70.4	17.6	704	1056	141	90.1	0
LGP	/	274	73.1	18.3	731	1096	146	12.8	0

*1 東北大学 工学部建築・社会環境工学科 (学生会員)

*2 東北大学 大学院工学研究科 都市・建築学専攻 准教授 博士(工学) (正会員)

の約 20～80 % であり、たとえば Factor 4⁵⁾ や Factor 10⁶⁾ を目指すためには更なる削減が必要である。

異なる視点から、セメント工場は広範な種類の産業廃棄物を受け入れて、燃料やクリンカーの成分として再利用してセメントを作製している。ジオポリマーコンクリートや木材への完全な代替が進み、もし仮にセメントがまったく作製されなくなった場合には、産業廃棄物の受け入れが停止し、これらの多くは最終処分場に送るようにならざるを得ない。新見ら⁷⁾によれば、表-1 に示すように、セメント工場の産業廃棄物の受け入れが停止すると、最終処分場の残余年数は 17.4 年から 5.5 年まで短くなると試算されている。すなわち、セメント工場は最終処分場の残余年数を延ばす観点からも重要な役割を果たしている。

これらの背景から、本論文ではセメントを最小限使用しつつも CO₂ 排出量を大きく削減可能なコンクリートの開発を目指す。このようにして得られたセメントコンクリートについて、力学性能を評価するとともに、XRD および SEM/EDS 観察を行って反応機構を確認する。また、力学性能と環境負荷の両側面を同時に評価する。

2. 実験概要

本論文では、以下に示す 2 つの実験を実施した。第一に、表-2 に示す 8 種類のコンクリートおよびジオポリマーを作製し、力学性能として圧縮強度試験を行うとともに、各材料のインベントリデータから CO₂ 排出量を試算した。第二に、圧縮試験の結果と XRD および SEM/EDS 分析から、ここで開発したコンクリートの反応機構を調査した。

2.1 使用材料と調合

結合材として、セメントに低熱ポルトランドセメント (C, 密度 3.22 g/cm³), 混和材にフライアッシュ (FA, 密度 2.20 g/cm³), 高炉スラグ微粉末 (GGBS, 密度 2.91 g/cm³) およびシリカフェーム (SF, 密度 2.20 g/cm³) を使用した。骨材は、細骨材に砕砂 (福島県相馬郡産, 表乾密度 2.66 g/cm³, 粗粒率 2.94) と陸砂 (宮城県亶理郡産, 表乾密度 2.60 g/cm³, 粗粒率 2.03) を混ぜ合わせたもの (S, 表乾密度 2.63 g/cm³, 粗粒率 2.49), 粗骨材に碎石 (G, 福島県相馬郡産, 表乾密度 2.68 g/cm³, 粗粒率 6.70, 最大寸法 20 mm) を使用した。また、アルカリ刺激剤として水酸化ナトリウム (AA, 密度 2.13 g/cm³) を水にとかした水溶液を、混和剤として高性能減水剤 (SP, ポリカルボン酸系, 密度 1.05 g/cm³) を使用した。

コンクリートの配 (調) 合表を表-2 に示す。まず、圧縮強度および CO₂ 排出量の基準として、混和材を用

いないセメントのみで作製した圧縮強度 30 MPa クラス (C100_30, W/C=0.4) および 60 MPa クラス (C100_60, W/C=0.34) のコンクリートを、原田らの配 (調) 合表⁸⁾を参考にして準備した。セメント使用量を大きく削減したセメントコンクリートとして、結合材にセメントを 2～4%, 混和材を 96～98% の割合で用いたもの (C2, C3, C3.5, C4) を設定した。これらのシリーズでは、水結合材比 (W/B) を 0.2 で一定とした。また、ジオポリマーコンクリート (GP) として、結合材にフライアッシュ 75%, 高炉スラグ微粉末 20%, シリカフェーム 5% を用いたものを作製した。ここでは佐藤らの配 (調) 合表⁹⁾を参考にして、アルカリ水モル比を 0.288 mol/mol, 単位水量を 141 kg/m³ と設定した。ただし、GP については、CO₂ 排出量を C2～C4 シリーズと同程度に設定するために、アルカリ水モル比を 0.04 mol/mol まで小さくした LGP を別途設定した。これら 8 種類のコンクリートを作製した。

コンクリートの練り混ぜにはオムニキサー (容量 5 L) を使用した。結合材と細骨材を入れ 30 秒間、さらに粗骨材を入れて 30 秒間の空練りの後、水と混和剤 (GP, LGP の場合はこれに加えてアルカリ刺激剤) を入れて 3 分間練り混ぜた。試験体は直径 100 mm 高さ 200 mm の円柱試験体 2 本ずつとした。打ち込み後 3 日で脱型し、その後の養生として 90℃ で 3 日間の蒸気養生を施したものと、28 日間の水中養生を施したものを準備した。水中養生を行ったものについては、C4w, GPw のようにシリーズ名の後ろに「w」を付記して区別する。

2.2 圧縮強度試験と CO₂ 排出量による環境影響評価

圧縮強度試験は JIS A 1108 を参考に、載荷速度を 0.6 MPa/s として行った。

CO₂ 排出量は以下の式(1)を用いて計算した。

$$E = \sum(w \times e / 1000) \quad (1)$$

ただし、E : CO₂ 排出量 (kg/m³)

w : 各材料の単位質量 (kg/m³)

e : 各材料の CO₂ 排出量原単位 (kg/t)

表-3 CO₂ 排出量原単位^{10),11)}

材料	CO ₂ 排出量原単位 (kg/t)
C	766.6
FA	19.6
GGBS	26.5
SF	19.6
S	3.7
G	2.9
AA(NaOH)	1143
SP	100

単位質量は表-2の値を、CO₂排出量原単位は表-3の値を用いた。ただし、輸送・練混ぜ・蒸気養生などのCO₂排出量はここでの試算には含まず、材料のみでの比較としている。これは、輸送によるCO₂排出量は地域や経路の特定が困難であり、また、蒸気養生によるCO₂排出量は約2%と十分に小さいとの試算⁴⁾があるためである。これらの詳細な検討は今後の課題である。

環境影響評価は、Fantilliら¹²⁾の報告を参考に、以下の式(2)から力学性能評価値(MI_x)を、式(3)から環境負荷評価値(EI_y)を算出した。これらの値は、基準となる力学性能・環境負荷との相対比較を行うもので、いずれの値も大きいほど優れた評価となる。図-1に示すように、横軸をMI_x、縦軸をEI_yとすることで領域区分による性能評価を行うことができる。また、基準の材料と比較することで評価を行うため、原点を(1,1)とする。すなわち、図-1中の領域[3]に含まれるものが両側面で優れているということが出来る。また、環境負荷評価値当たりの力学性能評価値EMIを式(4)で求めた。

$$MI_x = MI/MI_{inf} \quad (2)$$

$$EI_y = EI_{sup}/EI \quad (3)$$

$$EMI = MI/EI \quad (\text{MPa} \times \text{m}^3/\text{kg}) \quad (4)$$

ただし、MI_{inf}: 基準圧縮強度 (C100, 30 MPa)

MI: 圧縮強度 (MPa)

EI_{sup}: 基準CO₂排出量 (C100, 320 kg/m³)

EI: CO₂排出量 (kg/m³)

2.3 XRD および SEM/EDS 分析による反応機構の調査

XRD によって X 線のピークをもとに試料に含まれる成分を調べた。また、SEM/EDS によって構成元素や元素の分布を調べた。試料には、表-2の C100_30, C4, GP の3種類について、骨材を除いたペースト部分を乳鉢で細かくしたものを XRD に使用した。また、別途作製した直径 50 mm、高さ 100 mm の円柱試験体をカッターで 1 cm 角に切り分けた後、観測の妨げとなる汚れや傷などを除くためにニッパーで半分にし、その直後に切断面を SEM/EDS に観察に用いた。

3. 実験結果と考察

3.1 圧縮試験と CO₂ 排出量による環境影響評価

(1) 圧縮強度

作製した 8 種類のコンクリートについて、圧縮試験結果の平均値を図-2に示す。C100_30 と C100_60 の強度は、それぞれ概ね設定通りの値となった。C4 の強度は 58.4 MPa で、C4w の強度は 35.2 MPa と、水中養生では蒸気養生と比較して 60.3% の強度発現に留まった。また、セメント 4% から 3% では、強度が 20 MPa 近く下がり、セメント 2% では硬化しない結果となっ

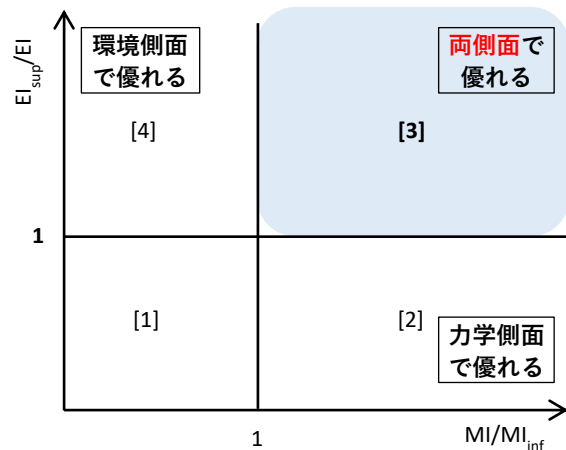


図-1 環境影響評価の手法

た。セメントコンクリートの結合材には、セメントが 3% 以上必要であると考えられる。一方で、GP の強度は 45.9 MPa で、GPw の強度は 12.8 MPa と、水中養生では蒸気養生と比較して 27.9% の強度発現に留まった。水中養生による強度発現の結果から、C4 はセメントが少ないものの、GP とは異なり、普通コンクリートのように強度が発現しやすいコンクリートと考えられる。また、LGP の強度は 20.4 MPa で、GP と比較して 44% の強度となった。

(2) CO₂ 排出量試算値

CO₂ 排出量を計算した結果を図-3に示す。この結果から、低セメントシリーズ及び GP は、普通コンクリートと比較して大幅に CO₂ 排出量削減を実現できることが確認された。また、セメントを使用しない GP と比較しても、セメントを使用した C4 の方が CO₂ 排出量を大きく削減できることを確認した。この原因として、アルカリ刺激剤として使用した NaOH の CO₂ 排出量原単位が 1143 kg/m³ とセメントの CO₂ 排出量原単位である 766.6 kg/m³ よりも大きい点が挙げられる。GP では 90.1 kg/m³ の AA 使用量が必要な一方で、C2~C4 では 7.9~15.9 kg/m³ のセメント使用量となり CO₂ 排出量を大幅に削減することが可能である。その一方で、GP では強度発現に必要なアルカリ水モル比を確保する必要がある。AA 使用量を減らして CO₂ 排出量を同程度に設定した LGP の場合では、圧縮強度が 20.4 MPa と GP の半分以下となっている。そのため、AA 使用量の極端な削減は困難であると考えられる。

(3) 環境影響評価

環境負荷評価値当たりの力学性能評価値 EMI の値を図-4に示す。低セメントシリーズがすべて 1 MPa×m³/kg を超えており、GP よりもはるかに環境負荷が少なく、強度を発現させることが可能であると確認した。また、3.1(1)、3.1(2)の結果から、C100_30 を基

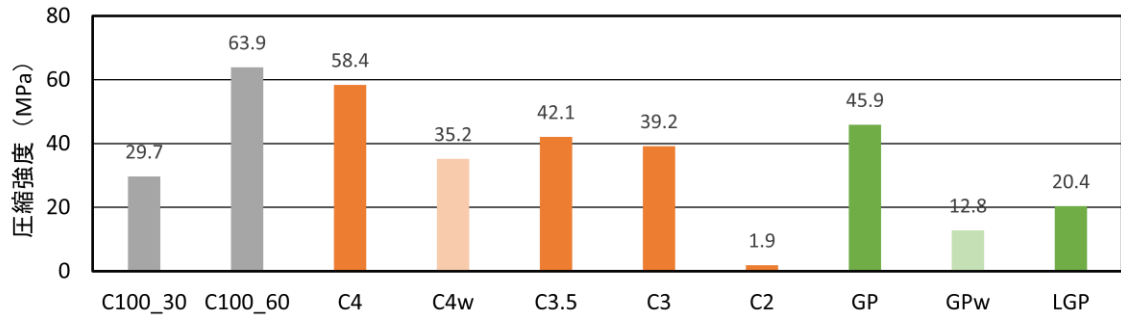


図-2 圧縮強度

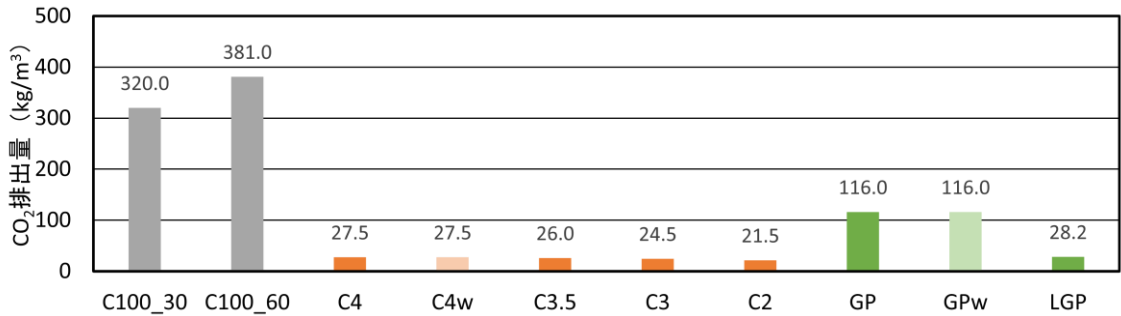


図-3 CO₂ 排出量

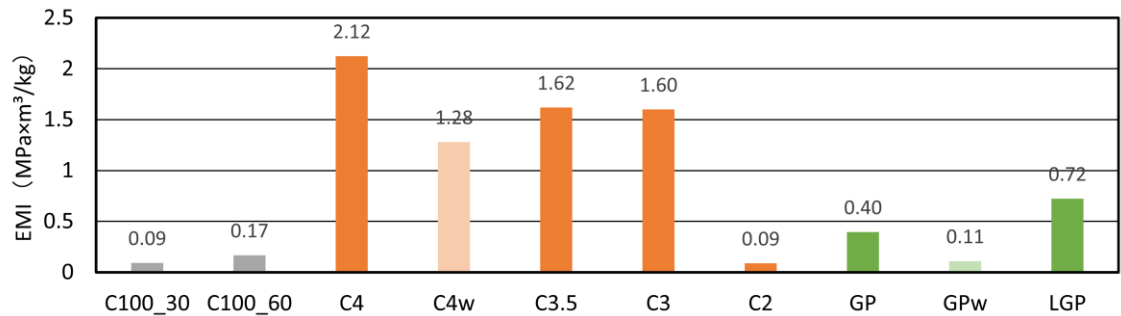


図-4 EMI

準とした環境影響評価の結果を図-5に示す。図-5について領域区分で見ると、C100_60が[2]に位置している一方で、GPwとLGP以外は[3]に位置しているため、低セメントシリーズやGPが両側面で優れていることが分かる。特にC4は、C100_30の2倍近い圧縮強度を確保し、CO₂排出量を約12分の1まで削減することを可能としている。C3.5やC3についても、C4と比較すると圧縮強度は小さいものの、一般的な設計基準強度の範囲となる約40MPaを実現している。これらの結果から、輸送・練混ぜ・蒸気養生などのCO₂排出量を除き、材料のみのCO₂排出量で比較した場合について、低セメントシリーズは環境負荷、力学性能の両立が可能であると考えられる。

3.2 反応機構調査

3.1 (1)の結果からC4wとGPwの比較により、C4はGPよりも水中養生で強度が発現しやすいことを確認した。セメントは水和反応で硬化することに対して、GPはポリマー体が縮重合反応して硬化するため、この

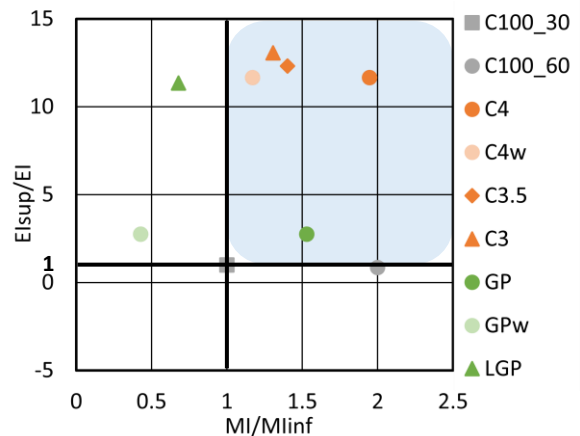


図-5 環境影響評価 (C100_30 を基準)

ような結果となったと考えられる。

XRDによる分析結果を図-6に、SEM/EDSによる分析結果を図-7~9に示す。なお、図-7~9の左側の画像中における+印はEDS分析の測定箇所を示しており、その結果が右側のグラフである。図-6において、C4とGPのグラフを比較して、ピークの位置が概ね一

致していること、C4 と C100 のグラフを比較して、ピークの位置が異なっていることを確認した。したがって、C4 は石英 (Q) やムライト (M) のピークが存在することから、GP に近い結晶成分を持つコンクリートであると考えられる。一方で、回折角度 15 deg~25 deg の間でC4のハローがGPよりも山なりであることが分かる。GPと同じ量のAAを加えて作製したC4(C4+AA)のグラフがGPのように平らに変化したことから、非結晶成分を含めたC4の生成物はGPと異なると考えられる。また、回折角度 29 deg においてC100ではC-S-Hが存在していることを確認した。ここで、GPでは高炉スラグ微粉末の置換に伴い、Siの一部をAlが置換するC-S-H (以下、C-A-S-H) が生成されることが知られている¹³⁾。また、GPのC-S-HおよびC-A-S-Hと、セメントのC-S-Hは、どちらもSiO₄四面体およびAlO₄四面体からなる2つの鎖がCa-Oを挟むように接続されたトモライト構造で構成されている^{14),15)}。さらに、湊らによってC-A-S-HとC-S-Hのピークが現れる回折角度は概ね同一であることが確認されている¹⁶⁾。したがって、Alを多く含み、セメントとGPの硬化体を持つ組織構造が似ていることから、C4はC-S-Hに加えてC-A-S-H水和物を生成していると考えられる。

図-7~9において、C4はNaが含まれていない点、Caのピークが存在する点でGPと異なる。GPはケイ酸塩イオンとアルミン酸イオンが縮重合反応したアルミノケイ酸塩に、ナトリウムイオンやカリウムイオンが取り込まれた生成物によって固化する。また、高炉

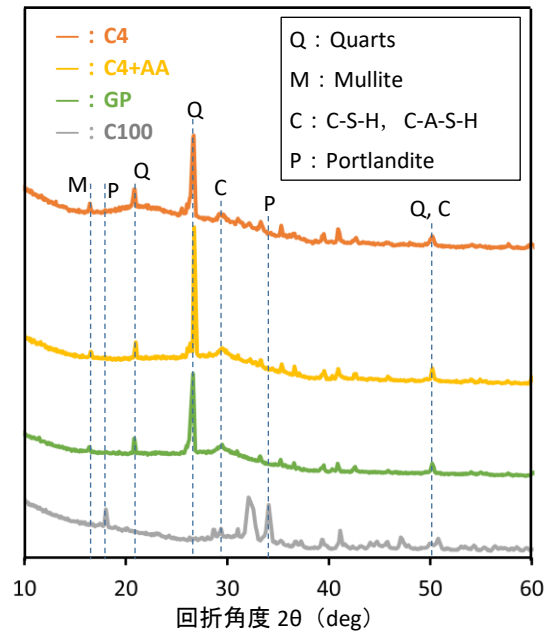


図-6 XRDによる分析結果¹⁶⁾

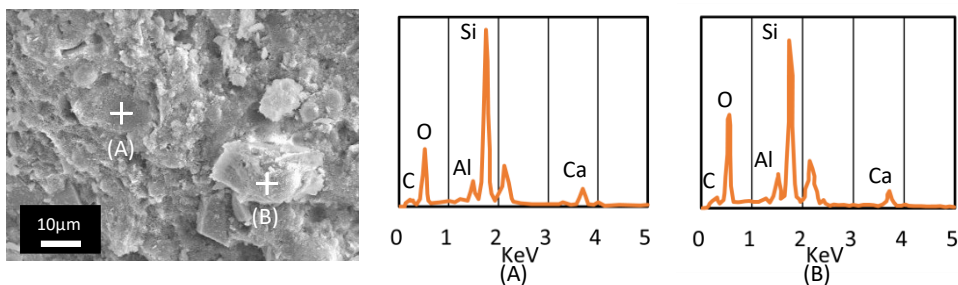


図-7 SEM/EDS 解析 (C4)

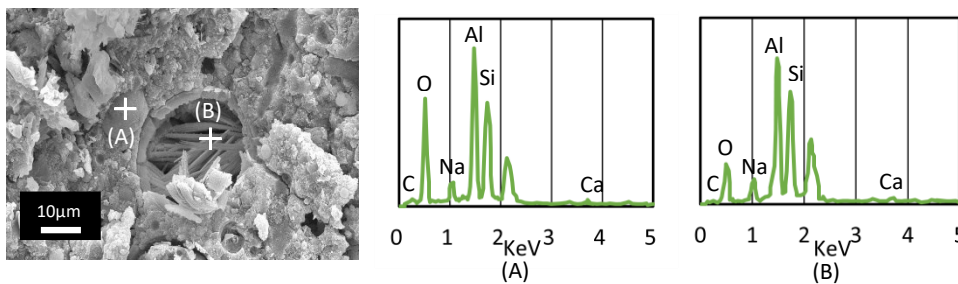


図-8 SEM/EDS 解析 (GP)

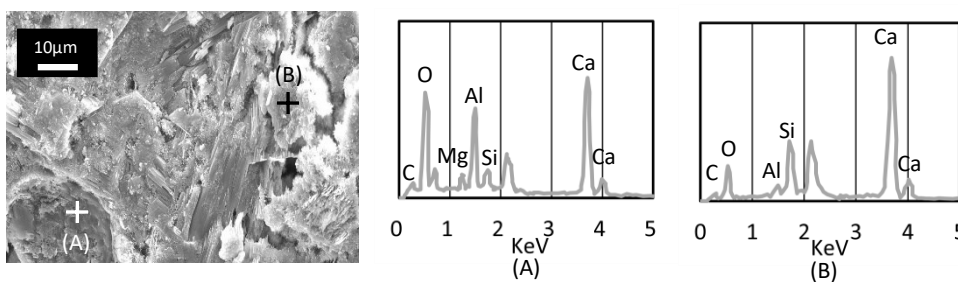


図-9 SEM/EDS 解析 (C100)

スラグ微粉末による Ca が含まれると、ポリマー体よりも C-S-H や C-A-S-H を生成しやすくなる¹³⁾。したがって、C4 は縮合重合によるポリマー体ではなく、セメント由来の水和物を生成して硬化していると考えられる。

以上から、セメントの Ca による C-S-H 水合物に加えて、高炉スラグ微粉末の Ca による C-A-S-H 水合物が生成されることで、C4 が作製されることが考えられる。

4. 結論

カーボンニュートラルの達成に向け、国内の最終処分場の現状を考慮した CO₂ 排出量を大きく削減したセメントコンクリートの開発のため、セメント 4% のコンクリートを作製し、環境影響評価及び化学分析を用いた実験を行った。以下に得られた知見を示す。

- 1) C4 は、力学面と環境負荷面の両面において非常に優れたコンクリートであることを確認した。
- 2) セメントを 4% から減らすと強度が急激に下がり、3% までは十分な強度が発現したが、2% では硬化が厳しい配 (調) 合であることを確認した。
- 3) C4 は、高炉スラグ微粉末で置換した GP のように C-A-S-H 水合物が生成されており、その硬化組織は通常の C-S-H と共に作られると考えられる。

今回の実験では C4 の配 (調) 合表を基準に低セメントシリーズを作製したが、C2 も見直すことで十分な強度を発現するコンクリートとなり得る。今後は、C4 のような低 CO₂ 排出量の材料が主に使用されるようになり、2050 年にカーボンニュートラルを達成できる世界に移り変わっていくことを期待する。

謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 JP21K18759 の助成を受けたものである。ここに記し深謝する。また、本研究の実施にあたり、三井住友建設の松田拓様、大林組の神代泰道様、安藤ハザマの鈴木好幸様に多くの助言をいただいた。ここに記し深謝する。

参考文献

- 1) dezeen, "The world needs cement" says concrete industry decarbonization chief 参照：
<https://www.dezeen.com/2022/12/15/global-cement-concrete-association-thomas-guillot-net-zero-decarbonisation-interview/> (閲覧日:2023年3月27日)
- 2) 松田 拓, 篠崎裕生, 佐々木亘, 野並優二: 持続可能性に貢献する超低収縮・低炭素コンクリート, コンクリート工学, Vol.58, No.1, pp.84-89, 2020
- 3) 小林利充, 一瀬賢一: 二酸化炭素排出量を低減するコンクリート「クリーンクリート®」, 生産と技

術, Vol.67, No.1, pp.58-60, 2015

- 4) エコリーフ, 安藤ハザマ低炭素型 PCa 製品 (Fc = 54 MPa) 参照：
https://ecoleaf-label.jp/pdf_view.php?uuiid=38e799d3-19d7-4493-8996-13c1edf0fcd1.pdf&filename=JR-BH-22005E_JPN.pdf (閲覧日:2023年3月27日)
- 5) E.U. Von Weizsäcker, A.B. Hunter, L.H. Lovins: Factor 4: doubling wealth – halving resource use, Earthscan Publications Ltd., 1997
- 6) Friedrich Schmidt-Bleek: Factor 10: The future of stuff, Sustainability: Science Practice and Policy, 2008
- 7) 新見龍男, 桐野裕介, 加藤弘義, 河合研至: セメント中の混合材の使用量増加が管理型処分場の残余年数に及ぼす影響, コンクリート工学, Vol.60, No.10, pp.909-915, 2022
- 8) 原田耕司, 一宮一夫, 津郷俊二, 池田 攻: ジオポリマーの諸特性に関する一考察, コンクリート工学年次論文集, Vol.34, No.1, pp.1894-1899, 2012
- 9) 佐藤隆恒, 上原元樹, 山崎淳司: 低アルカリ/水比, 高ケイ素/アルカリ比のケイ酸アルカリ溶液を使用したジオポリマー硬化体の諸性質, コンクリート工学年次論文集, Vol.39, No.1, pp.2035-2040, 2017
- 10) 社団法人土木学会: コンクリートの環境負荷評価, コンクリート技術シリーズ, No.62, p.39, 2004
- 11) 現状把握に基づく課題の整理, 表-II-1-10 薬品のエネルギー原単位と CO₂ 排出係数 参照：
<https://www.mhlw.go.jp/topics/bukyoku/kenkou/suido/jouhou/kankyuu/dl/090729-1f.pdf>
(閲覧日:2023年3月27日)
- 12) Fantilli, A. P., Chiaia, B.: The Work of Fracture in the Eco-Mechanical Performances of Structural Concrete, Journal of Advanced Concrete Technology, Vol.11, pp.282-290, 2013
- 13) 上原元樹, 南浩輔, 平田紘子, 山崎淳司: ジオポリマー硬化体の配合・作製法と諸性質, コンクリート工学年次論文集, Vol.37, No.1, pp.1987-1992, 2015
- 14) 李 柱国: ジオポリマーおよびその建材分野における実用化に向けてその 1 硬化機構および反応生成物, 建材試験情報, Vol.52, pp.2-7, 2016
- 15) Thi Hai Yen Nguyen: Microstructure and composition of fly ash and ground granulated blast furnace slag cement pastes in 42-month cured samples, Construction and Building Materials, Vol.191, pp.114-124, 2018
- 16) 湊 大輔, 渡邊禎之, 原澤修一, 山田一夫: C-A-S-H への Cs の吸着挙動の評価, セメント・コンクリート論文集, Vol.69, pp.53-60, 2015