

論文 灰の粉碎および構成比率の調整による木灰コンクリートの強度増進

綿貫 開^{*1}・植田 裕理^{*2}・山本 亜美^{*2}・大内 雅博^{*3}

要旨: 木質バイオマス発電の副産物である 3 種類の木灰を水のみで練混ぜて硬化させた、セメント不使用の木灰コンクリートの強度増進を図った。炭酸カルシウムの生成を硬化メカニズムと仮定し、その生成量の増大のため、酸化カルシウムを含む飛灰の混合比率の増加による効果を調べた。その結果、発電の際の発生比率よりも飛灰比率を高めるほど炭酸カルシウム生成量は増加したが、強度発現には最適値が存在した。粉碎主灰を用いた木灰コンクリートの強度は増加した。また、主灰の全量を二酸化ケイ素試薬に置換したものの強度も増進した。木灰コンクリートには炭酸カルシウム生成とは別の強度発現メカニズムの可能性を得た。

キーワード: 木灰コンクリート, 飛灰, 主灰, 炭酸カルシウム, 粉碎主灰, 二酸化ケイ素

1. はじめに

専ら鉱物資源由来の材料から成る、セメントを用いる現在のコンクリートは自然エネルギーによる分解が不可能であり、物質循環の行き止まりとなっている。将来、最終処分場の容量や資源供給の問題が生じる懸念がある。

高知工科大学では、この問題解決のため、木質バイオマス発電の副産物である木材の燃焼灰（以下「木灰」と称する）を水と練混ぜることにより、セメントを使用せずに常温常圧下で硬化する木灰コンクリートの開発に 2015 年に着手し、2018 年にプロトタイプが完成した¹⁾。植物由来材料のみから成る建設材料である。木灰は土壌改良剤として酸性度を下げるために畑に散布されることから、木灰コンクリートにも物質循環性を付与可能であると想定している。

しかし、木灰コンクリートの実用化には強度面での課題が残っている。既往研究において、消石灰置換率を高めていくと炭酸カルシウム含有量と強度との間に相関があったため²⁾、木灰コンクリートの強度発現メカニズムが炭酸カルシウムの生成によるものと仮定した。本研究では、木灰コンクリートの強度増進のため、その硬化メカニズムであると仮定した炭酸カルシウム生成量増大のため、酸化カルシウムを多く含む飛灰の構成比を高める

ことと、反応性を高めるための木灰を粉碎することによる効果を調べた。

なお、本研究で取り扱った「木灰コンクリート」は、一般のコンクリートの定義するところの粗骨材に相当する大きさの径の材料を含んでいないが、固体材料を水で練混ぜて硬化することの共通性からこのように呼称する。

2. 使用する木灰と想定した硬化メカニズム

本研究で使用する木灰は、宿毛バイオマス発電所（高知県宿毛市）から産出されるものを使用した（図-1）。この木灰は発生過程により 3 種類に分類される。燃焼時に舞い上がり、集塵機で回収されるものが飛灰、炉の隙間から落下した木灰がリドリング灰、そして、燃え残りが主灰である。飛灰は集塵機で回収し、主灰とリドリング灰は混合し回収されている。なお、本研究では、通常の発生プロセスに対して加湿処理を行わなかった飛灰を使用した。

木灰の発生比率は、飛灰：リドリング灰：主灰がおおよそ 15：15：70 である。以降、主灰とリドリング灰をまとめて「主灰」と称する。飛灰：「主灰」の発生比率はおおよそ 15：85 となる。

数年間にわたって行った本研究で使用した各木灰の



図-1 使用する 3 種類の木灰（うち主灰とリドリング灰を合わせて「主灰」と称する）

*1 高知工科大学大学院修士課程 基盤工学専攻社会システムコース (学生会員)

*2 高知工科大学 システム工学群 建築・都市デザイン専攻

*3 高知工科大学 システム工学群教授 博士 (工学) (正会員)

化学組成および物理的特性値を示す。産出・入荷時期の違い、加えて改良を重ねた保存方法の違いから、「第一期木灰」「第二期木灰」と区別した（表-1, 2）。第一期木灰は、2021年度に入荷し、屋外倉庫でペール缶内に保存していた。第二期木灰は2023年度に入荷し、恒温恒湿室（温度20℃、相対湿度60%）にて、密閉容器内で保存した。成分の違いは、その間に行われた発電プラントのシステム改良によるものである可能性がある。第二期飛灰のpHは12.4、主灰のpHは9.2程度であった。

著者は、本稿で定義した2種類の木灰を発生比率で混合しても、または飛灰単体でも、水と練混ぜて強度発現することを確認した。しかし、主灰単体では強度発現しないことも確認している。未加湿飛灰には比較的多くの酸化カルシウムが含まれているため、これが水と接すると水酸化カルシウムが生成され、さらに空気中の二酸化炭素と反応して炭酸カルシウムが生じることが木灰コンクリートの強度発現のメカニズムであると仮定した。飛灰のみを結合材と見なし、「水セメント比」に相当する「水飛灰比」を配合の指標とした。

以上、本研究では、木灰中に占める飛灰の比率を高めることによる、炭酸カルシウム生成量の増大を意図した。

表-1 使用した2種類の木灰の化学組成（単位%；もとの主灰とリドリング灰を「主灰」として統合）

	第一期		第二期	
	飛灰	主灰	飛灰	主灰
CaO	26.2	37.5	24.5	9.6
SiO ₂	8.1	34.2	28.6	57.8
Al ₂ O ₃	2.7	7.0	9.8	12.2
Fe ₂ O ₃	1.7	2.9	5.0	4.8
MgO	3.2	6.2	2.9	2.8
SO ₃	7.7	0.1	0.5	0.1
Na ₂ O	1.2	0.6	0.9	1.5
K ₂ O	30.0	5.9	5.4	5.4
その他	4.5	3.8	2.3	1.7
強熱減量	14.0	1.6	19.8	4.1

表-2 2種類の木灰の物理的特性値

時期	種類	表乾密度 (g/cm ³)	吸水率 (%)
第一期	飛灰	2.30	—
	主灰(未粉碎)	2.33	10.3
	主灰(粉碎)	2.34	13.3
第二期	飛灰	2.30	—
	主灰(粉碎)	2.33	13.3

3. 飛灰の増量による炭酸カルシウム生成量の増大と強度増進化効果

二酸化炭素と反応して炭酸カルシウムを生成する飛灰の構成比率を高めることによる、炭酸カルシウム生成量増加と木灰コンクリートの強度増進効果を調べた。

第一期の各木灰を使用した（表-1の左列）。両者とも5mmのふるいを通過したものを使用した。

飛灰と主灰の構成比率を変化させた木灰コンクリートの各配合を示す（表-3）。飛灰構成比を発生比率である15%から10%刻みに100%まで高めた。木灰コンクリートの水飛灰比は飛灰に対する水の質量比として定義した。練混ぜには水道水を用いた。

練混ぜ手順は、モルタルミキサ（JIS R 5201 適合品）にて1バッチ当りの練上りを1.5Lとした。飛灰と主灰を合わせて30秒間空練りした後に水を投入して120秒間練混ぜた。練混ぜた木灰コンクリートを直径50mm、高さ100mmの円柱形のプラスチック製モールドに充填する際、締固めを3層に分け、突き棒で突いた後に振動機を用いて十分に締固めて充填した。供試体は恒温恒湿室（温度20℃、相対湿度60%）に静置し、圧縮試験直前に脱枠した。

炭酸カルシウム量を測定するサンプルは、養生後に鋸やすりで削り取り、すり鉢ですり潰すことで粉末状にした。これを熱分析装置（TG-DTA）（図-2）で熱重量測定を行い、質量減少量より木灰硬化体中の炭酸カルシウム含有量を求めた。

表-3 木灰コンクリートの配合

飛灰構成比 (%)	水飛灰比 (%)	単位量 (kg/m ³)		
		水	飛灰	主灰
15	70	196	280	1,589
25		289	413	1,238
35		362	518	961
45		422	603	737
55		471	673	551
65		512	732	394
75		748	783	261
85		578	826	146
100		617	881	0



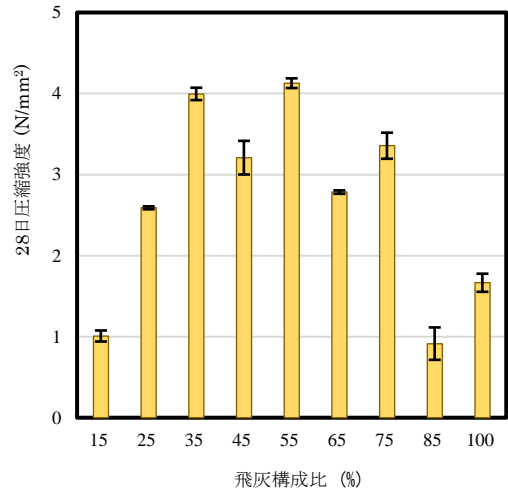
図－2 熱分析装置

材齢 28 日の圧縮強度の試験結果を示す (図－3)。飛灰構成比を 15%から 55%の間では、比率が高くなるにしたがって強度が高くなった。しかし、飛灰構成比がそれ以上になると強度が低下した。強度発現の観点からは、飛灰構成比には最適値が存在している可能性を得た。

なお、上記の試験において比較的強度が高かった、飛灰構成比 35%、55%の配合について、試験で用いた水飛灰比を変化させ (表－4)、圧縮強度を比較した。その結果、70%が最適値であることを確認した (図－4)。これは、振動機による締固めが可能な範囲では最も低い水飛灰比であった。

次に、これら水飛灰比 70%の各試料について、熱分析により炭酸カルシウム含有量の質量比を求めた。飛灰構成比が高まるにつれて炭酸カルシウム含有量が大きくなった。すなわち、飛灰が多くなると炭酸カルシウムの生成量が大きくなるものと考察した。しかし、飛灰構成比を 55%以上に高めても、炭酸カルシウム生成量の増加はわずかであった (図－5)。

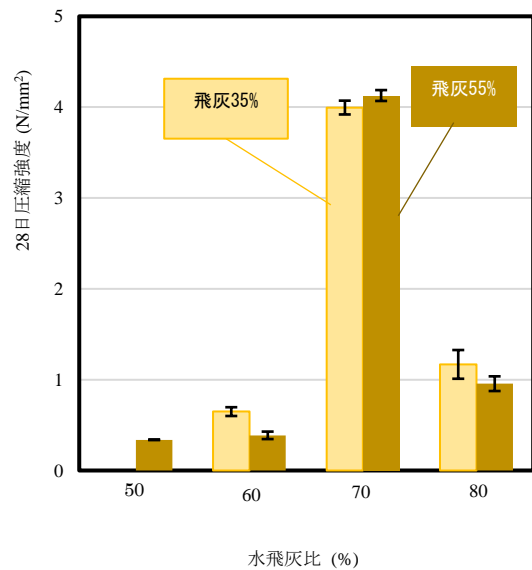
以上、得られた飛灰構成比と炭酸カルシウム含有量との関係、および、飛灰構成比と木灰コンクリートの圧縮強度との関係を合わせると、炭酸カルシウム含有量と木灰コンクリートの圧縮強度との間には相関が見られなかった (図－6)。木灰コンクリートの強度増進に対して、炭酸カルシウム生成量の増加による寄与は顕著ではない、または寄与していない可能性を得たと言える。



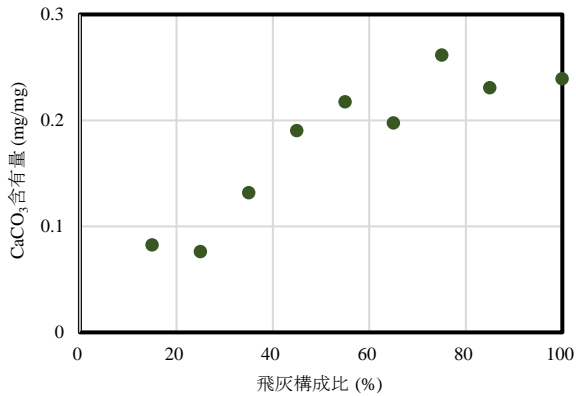
図－3 飛灰構成比の調整による強度の変化

表－4 水飛灰比を変化させた木灰コンクリートの配合

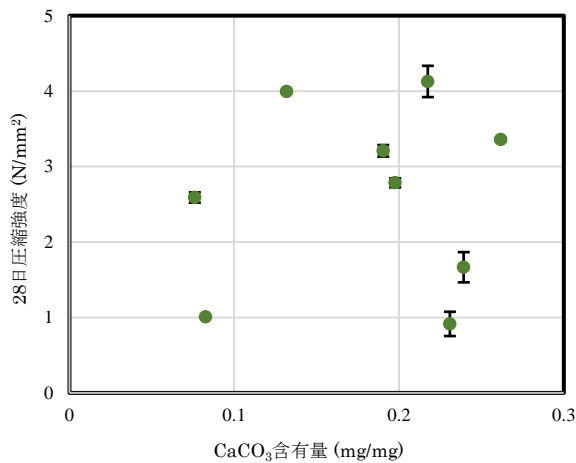
飛灰構成比 (%)	水飛灰比 (%)	単位量(kg/m ³)		
		水	飛灰	主灰
35	50	289	577	1072
	60	328	546	1014
	70	362	518	961
	80	394	492	914
55	50	389	636	778
	60	433	721	590
	70	471	673	551
	80	504	631	516



図－4 水飛灰比の調整による強度変化



図一五 飛灰構成比の調整による炭酸カルシウム含有量の変化



図一六 炭酸カルシウム量と圧縮強度の関係

4. 主灰の粉砕による強度増進効果

前章において、飛灰単体で硬化した場合よりも、主灰と飛灰が混在した場合のほうの強度が高くなったため、主灰の役割にも着目した。正体は未解明であるが、主灰の反応性を高めるため、粉砕して表面積を上げることによる強度増進効果を調べた。

粉砕にはボールミルを用いた(図一七)。絶対乾燥状態(105°Cの乾燥機により24時間乾燥)の主灰1kgにつきボールを50個入れて60分間回転させた。粉砕前後の粒度分布をJIS_A1102「骨材のふるい分け試験方法」により求めた(図一八、九)。粉砕により、粗粒率が5.6から3.6になった。

飛灰構成比25~55%について、粉砕主灰を用い、飛灰水比を60%~90%の範囲で変えた木灰コンクリートの材齢28日圧縮強度を求めた。未粉砕のものと同様、最適な飛灰水比は70%であった。粉砕主灰を用いたものの強度は、飛灰構成比が35%~55%のものでは未粉砕主灰を用いたものより1.5倍程度に高くなった。強度発現における最適な水飛灰比は、未粉砕主灰を用いたものと同様、

70%であった(図一十)。

粉砕主灰を使用したものの強度を未粉砕のものと同様と比較した。飛灰構成比25%では主灰粉砕による強度増進効果は皆無であったが、35%で3割程度、45%で9割、55%で6割程度強度が増進した(図一十一)。

主灰の粉砕により、練上がった試料の型枠内への締固めによる充填率が高まったことが強度を高めた可能性に鑑み、強度増進効果の見られた飛灰構成比35%~55%について、主灰未粉砕と粉砕における、充填率と強度との関係を比較した。ここでの充填率は、配合から求めた質量に対する型枠内充填後の測定質量との比である。数割もの強度増加率に対して、充填率の向上はわずか数%であった(図一十二)。充填率の向上が圧縮強度の顕著な増加に寄与したとは言い難い。

以上から、木灰コンクリートの強度発現には、主灰が寄与している可能性を得たと言える。ただし、第2章で述べたように、主灰と水のみを練混ぜたものは硬化しないことを確認している。木灰コンクリートの硬化には、飛灰と水による反応と、飛灰と主灰と水の反応によるものの両方のメカニズムが存在する可能性があると考えした。



図一七 磁製ボールミルと回転台



図一八 主灰の粉砕

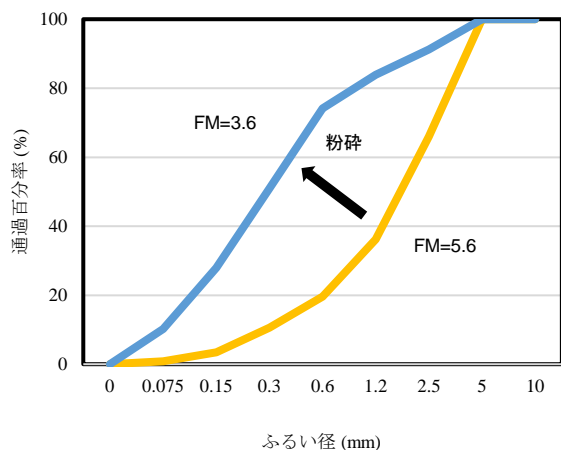


図-9 粉砕主灰と未粉砕主灰の粒度の比較

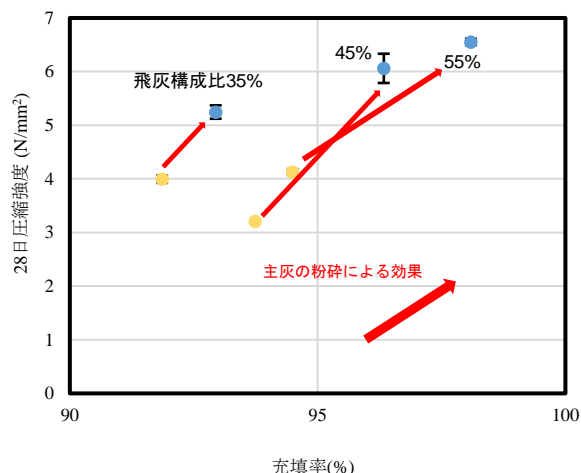


図-12 主灰の粉砕による充填率の向上と強度増進との関係

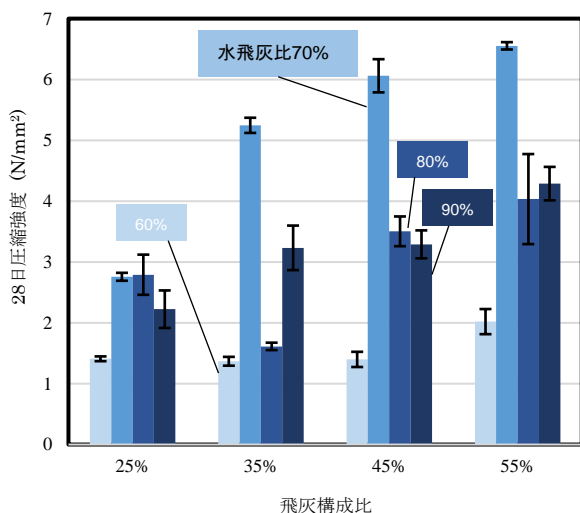


図-10 粉砕主灰を用いた木灰コンクリートの材齢28日圧縮強度

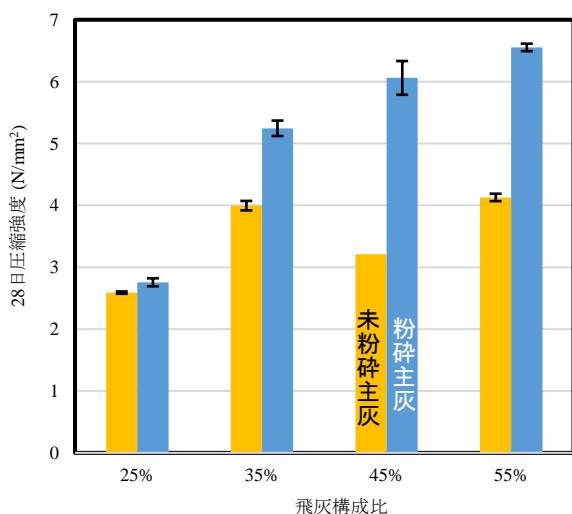


図-11 主灰の粉砕による圧縮強度増進効果 (いずれも水飛灰比70%)

5. 主灰を二酸化ケイ素試薬に置換した強度発現

主灰が木灰コンクリートの強度発現に寄与している可能性が得られたことから、それを検証するため、飛灰には少なく、一方で主灰には多く含まれる、主成分である二酸化ケイ素に着目した。主灰を、純度の高い二酸化ケイ素の試薬に置換して、強度増進効果を調べた。

配合を以下に示す(表-5)。主灰(粉砕)を用いたものをNo.1、主灰の代わりに二酸化ケイ素(SiO₂)試薬(密度2.19g/cm³)を用いたものをNo.2および3とした。なお、当試験では第二期の木灰を使用した。木灰の特性の変化に伴い、充填可能な最低の水飛灰比が、第一期木灰を使用した際の70%から75%に高くなった。二酸化ケイ素試薬で置換したものは、それぞれこれまでの締固め手法で充填可能な最低の水飛灰比とした。

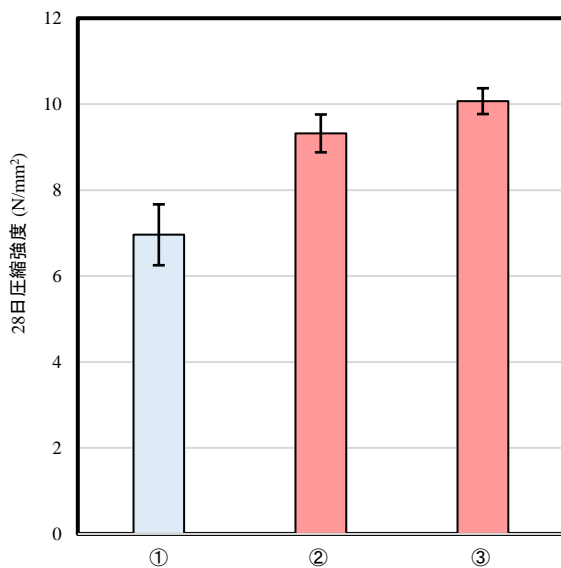
材齢28日圧縮強度試験の結果、主灰(粉砕)使用のもの(No.1)に対して、二酸化ケイ素試薬に置換したもの(No.2)は、水飛灰比が75%から80%に若干高くなったにもかかわらず、強度が約3割高くなった。さらに、飛灰構成比を前二者の55%から75%に高めたもの(No.3)は、さらに強度が主灰使用のものよりも4割高くなった(図-13)。なお、充填率が97.5%であったNo1に対して、主灰を試薬に置換したNo2、No3はそれぞれ97.9%と98.4%であった。試薬への置換により向上した充填率が強度を数割高めたとは言い難い。

以上から、ここでの強度増進は、試薬への置換により主灰の主成分である二酸化ケイ素純度が高くなったことがもたらした効果である可能性がある。飛灰構成比を高めたことにより強度が一層高くなったことから、飛灰と主灰と水により生じた反応は、主灰に含まれている二酸化ケイ素と、飛灰に含まれる酸化カルシウムの両方が寄

与している可能性を得たと言える。

表－5 木灰コンクリートの配合

No	飛灰構成比(%)	水飛灰比(%)	単位量(kg/m ³)			
			水	飛灰	主灰	SiO ₂ 試薬
1	55	75	489	652	533	—
2	55	80	497	622	—	509
3	75	70	544	777	—	259



図－13 主灰を二酸化ケイ素試薬に置換することによる木灰コンクリートの強度増進効果

6. 結論

本研究では、木質バイオマス発電の副産物である3種類の木灰を水のみで練混ぜて硬化させた、セメント不使用の木灰コンクリートの強度増進を目指した。炭酸カルシウムの生成を硬化メカニズムと仮定し、その生成量の増大のため、酸化カルシウムを含む飛灰の混合比率の増加の効果を調べた。さらに、反応性を高めるための主灰の粉砕による効果を調べ、その検証のため主灰を二酸化ケイ素試薬に置換して強度を求めた。その結果以下のような結果を得た。

(1) 発電の際の発生比率よりも飛灰構成比を高めていくと炭酸カルシウム生成量は増加したが、強度発現には最適値が存在した。

(2) 粉砕した主灰を用いることにより、明らかな強度増進効果が得られた。型枠内への充填率の向上はわずかであったことから、木灰コンクリートの強度発現に主灰の反応が寄与している可能性を得たと言える。ただし、主灰と水のみでは硬化しないことに鑑みると、飛灰もそのメカニズムに関与している可能性があると言える。

(3) 主灰の代替として、主灰の主成分である二酸化ケイ素試薬を使用すると、強度が高くなった。

以上から、木灰コンクリートの強度発現は、飛灰に含まれている酸化カルシウム、ひいては水酸化カルシウムの炭酸化反応以外のメカニズムの存在、例えば、酸化カルシウムと二酸化ケイ素の反応による生成物によるものの可能性を示唆していると言える。

謝辞

本研究にて使用した木灰は(株)グリーン・エネルギー研究所 宿毛バイオマス発電所よりご提供いただきました。熱分析による炭酸カルシウム含有量測定は高知県工業技術センターに委託しました。同所 資源環境課 堀川晃玄氏には多大なるご指導と御協力を賜りました。高知工科大学コンクリート研究室技術指導員 曾我部敏郎氏 (株)CDR コンサルタンツ専務取締役)には実験全般に際して御指導を頂きました。心より御礼申し上げます。

本研究の一部は一般社団法人カーボンリサイクルファンド 2022 年度研究助成「木灰を用いたバイオマスコンクリートの実用強度化」、および公益社団法人カシオ科学振興財団研究助成第 36 回研究助成テーマ「地球環境を課題とする問題解決に向けた研究」の「物質循環サイクル確立による林業と木質バイオマス発電活性化のための地還元型自己崩壊コンクリートの開発」(2018～19 年度)により行ったものです。

参考文献

- 1) 山地陽大, 鈴木麻由, 大内雅博: 炭酸カルシウム生成量が木灰コンクリートの強度に及ぼす影響, コンクリート工学年次論文集, Vol.43, No.1, pp.1313-1318, 2021 年 6 月
- 2) 綿貫 開: 木灰の混合比率の調整と粉砕による木灰コンクリートの強度増進, 令和 4 年度第 77 回土木学会年次学術講演会講演概要集, 第 5 部門, V-525, 2022 年 9 月