

論文 セメントペーストにおける水酸化カルシウムとケイ酸カルシウム水和物の炭酸化挙動

坂本 渉^{*1}・吉田 夏樹^{*2}・池尾 陽作^{*3}・新 大軌^{*4}

要旨：解体コンクリートから発生する再生微粉や再生細骨材に含まれるセメント水和物を CO_2 と反応させ、CCU 材料を製造する技術が検討されている。再生微粉に含まれる水酸化カルシウム (CH) およびケイ酸カルシウム水和物 (C-S-H) の炭酸化メカニズム解明に向け、合成 CH, 合成 C-S-H, これらを混合した粉末 (CH + C-S-H), 普通ポルトランドセメントペースト微粉末 (OPC) の炭酸化反応解析を行った。CH + C-S-H では CH のみに比べ、CH の炭酸化反応が促進しており、C-S-H 粒子により炭酸化反応が促進されるメカニズムを提案した。また、OPC 中の C-S-H は合成 C-S-H より炭酸化反応速度が遅いことが明らかとなった。

キーワード：CCU 材料, 再生微粉, 再生細骨材, 炭酸化, C-S-H, FT-IR, 炭酸カルシウム

1. はじめに

カーボンニュートラルな社会の構築を目指す動きの中、世界中で注目されている二酸化炭素の回収・有効利用 (CCU) は、セメント・コンクリート分野においても重要な概念となってきた。コンクリート産業では、解体コンクリートのリサイクル時に発生する微粉末 (以下再生微粉) や再生細骨材に CO_2 を固定化させ、CCU 材料としてコンクリートへ再利用する方法が検討されている¹⁾。著者らは、再生微粉や再生細骨材を利用した CCU 技術をカーボンネガティブコンクリート「CUCO (Carbon Utilized COncrete)」を実現するための方策のひとつと位置づけ、さまざまな産業で分離回収された高濃度 CO_2 を効率的に固定化させるための各種の検討をはじめている²⁾。再生微粉および再生細骨材への CO_2 固定化はセメントペーストの炭酸化反応によるものである。再生微粉や再生細骨材に含まれているような十分に水和したセメントペーストは、大部分が水酸化カルシウム (以下 CH) およびケイ酸カルシウム水和物 (以下 C-S-H) で構成されている。したがって、著者らは CH および C-S-H の炭酸化メカニズムおよび速度に関する知見は、再生微粉や再生細骨材に CO_2 を効率よく固定化させるための最適な炭酸化処理方法を考える上で重要と考えている。

CH および C-S-H の炭酸化メカニズム探求のため、試薬などから合成した純度の高い CH や C-S-H の炭酸化反応を解析した研究はこれまで数多く行われてきた。合成 CH の炭酸化について検討した既往の研究では、粒子表面に CaCO_3 の保護膜 (プロテクティブレイヤー) が形成されることで CH の炭酸化反応が途中から停滞することが報告されている³⁾。また、低結晶性であり、組成も様々なことから、分析が困難な C-S-H の炭酸化反応につ

いても、FT-IR や ^{29}Si MAS NMR などの測定を用いて合成した C-S-H の炭酸化を分析することで、理解が進んできている³⁾。一方で、これらの合成した CH および C-S-H の炭酸化に関する知見がセメントペースト内で起こる炭酸化とどの程度整合しているかは明確にされていない部分が多い。特に、セメントペーストでは CH と C-S-H が共存しており、その影響も考慮する必要がある。

そこで本研究では、合成 CH および合成 C-S-H, これらを混合した粉末 (CH + C-S-H), セメントペーストを作製し、炭酸化反応解析を行った。実験 I では、CH および C-S-H の炭酸化反応に及ぼす、CH と C-S-H の共存の影響を明確にすることを目的とし、合成 CH および合成 C-S-H, CH + C-S-H の炭酸化試験を行った。実験 II では、セメントペーストの炭酸化反応解析を行い、実験 I で行った合成 CH および C-S-H の炭酸化反応解析の結果との整合性を明確にした。

2. 実験概要

2.1 実験 I の炭酸化試験に用いる試料の調製

CH は、不純物の影響を最小限とするために、高純度で合成された水酸化カルシウムの試薬 (特級) を用いた。C-S-H は既往の研究⁴⁾で報告されているゾル-ゲル法に従って合成した。 SiO_2 成分としてテトラエチルオルトシリケート ($\text{C}_8\text{H}_{20}\text{O}_4\text{Si}$, TEOS, 和光純薬) を用い、これにエタノール, 水, 塩酸を添加した。この方法で合成可能な C-S-H の Ca/Si (モル比) は 0.8~1.23 であることが示されている⁴⁾。本研究と同様の炭酸化手法で検討を行っている既往の研究⁵⁾に倣い、本研究では Ca/Si = 1.0 となるよう、TEOS を添加し、TEOS, エタノール, 水および塩酸のモル比は 1 : 4 : 2 : 0.01 とした。この SiO_2 成分

*1 島根大学 大学院自然科学研究科 (学生会員)

*2 大阪大学 大学院工学研究科 特任准教授 博士(工学) (正会員)

*3 (株)竹中工務店 技術研究所 (正会員)

*4 島根大学 学術研究院環境システム科学系 教授 博士(工学) (正会員)

表－1 SEM-EDS による点分析結果より算出した
合成 C-S-H の Ca/Si

	CaO (mol%)	SiO ₂ (mol%)	Ca/Si	平均 Ca/Si
点 1	48.2	51.8	0.93	0.97
点 2	50.3	49.7	1.01	
点 3	49.5	50.5	0.98	

の水溶液に水酸化カルシウムの水溶液を撹拌しながら混合したのち、不純物の混入を防ぐため、1-ブタノールで表面を覆って2日間撹拌した。混合後の沈殿物をろ過、真空乾燥させ、得られた粉末を合成 C-S-H の試料とした。合成した C-S-H の Ca/Si について SEM-EDS による点分析（加速電圧：15.0 kV）を行った結果を表－1 に示す。任意の3点を分析して算出した Ca/Si はいずれの点においても1.0に近く、その平均値は0.97であった。水酸化カルシウムの試薬および合成後の C-S-H の窒素吸着による BET 比表面積はそれぞれ $3.17 \times 10^2 \text{ m}^2/\text{g}$ 、 $1.54 \times 10^2 \text{ m}^2/\text{g}$ であった。また、水酸化カルシウムの試薬、合成 C-S-H、アセトンを混ぜ合わせ、スラリー状にした後、アセトンが蒸発して粉末状になるまでメノウ乳鉢で撹拌した。その後、混合物を0.02 MPaで24時間減圧乾燥し、得られた粉末状の試料を CH+C-S-H とした。なお、CH と C-S-H の混合比率は、普通ポルトランドセメントのペースト中の比率を模擬し、質量比 3:7 とした。

2.2 実験 II の炭酸化試験に用いる試料の調製

表－2 に実験 II で使用した研究用普通ポルトランドセメントの物理的特性および化学組成を示す。セメントに対して水の質量比が 0.5 となるように、セメントと水を混合し、ブリーディングがなくなるまで1時間ごとに練り返しを続けた。厚さの薄い（3 mm 厚）型枠にペーストを打ち込み、脱型後の硬化体を $\text{Ca}(\text{OH})_2$ の飽和水溶液中で 91 日間水中養生した。水中養生後の硬化体をハンマーで粉砕してから、アセトンを用いて自由水を除去し、24時間減圧乾燥（0.02 MPa）することで水和停止を行った。本実験では、再生微粉（粒径 150 μm 以下）⁹⁾ のような粉末状の試料の炭酸化を想定しているため、水和停止後のセメントペースト試料をアルミナ乳鉢を用いて 150 μm 以下（篩：100 メッシュ）の粒径まで粉砕して炭酸化試験に用いるペースト試料（以下、OPC）とした。

2.3 炭酸化試験

2.1 および 2.2 節にて作製した粉末状の試料を厚さ 2

mm 程度になるようシャーレに薄く広げた。その際、合成 CH、合成 C-S-H、CH+C-S-H および OPC の試料の質量はそれぞれ、約 3 g、約 0.4 g、約 0.5 g、約 1.5 g であった。そのシャーレを小型デシケーター（容量 1620 cm^3 ）に入れ、デシケーターに付いているガス置換用の2つの金属管を開放し、直ちに片方の管から CO_2 濃度 100% ガスを 200 mL/min で 30 分間通流して置換したのちに両方のコックを閉じてから所定時間静置することで炭酸化させた。その間、温度は 20°C、相対湿度は 66%RH とし、また静置時間は 3、6、12、24 時間とした。なお、調湿は塩化コバルトの飽和水溶液を用いて行った。

2.4 フーリエ変換赤外分光光度（FT-IR）測定

実験 I および II で得られた試料について FT-IR 測定を行った。FT-IR 測定は、FT/IR-4600（日本分光株式会社製）を用いて KBr 法にて行った。測定条件について、積算回数を 64 回、測定範囲を 4000 ~ 400 cm^{-1} とした。

2.5 無機体炭素分析（IC）による炭酸化率の算出

固体試料燃焼装置を備えた TOC 計（株式会社島津製作所製、TOC-L 型、SSM-5000A 型）を使用し、実験 I および実験 II で炭酸化試験を行った後の試料について IC 測定を行った。測定は燃焼触媒酸化-非分散型赤外線ガス分析法とし、リン酸酸性化によって二酸化炭素抽出を行い、200°C の炉内で加熱して NDIR 検出器で無機体炭素の測定を行った。炭酸カルシウムの測定によって作成した検量線から、試料 1 g に含まれる無機体炭素量 X (mg/g) を得た。炭酸化速度について議論するにあたり、粒子の CaO 含有率に依存しない値として、各試料の無水物中の CaO 量を分母にとった炭酸化率を式(1)により算出した。

$$\alpha(t) = \frac{X(t) \times \frac{1}{1000} \times \frac{1}{M_C}}{\frac{100 - \text{Ig.loss}(t)}{100} \times \frac{A}{100} \times \frac{1}{M_{\text{CaO}}}} \times 100 \quad (1)$$

ここに、

$\alpha(t)$: t 日間炭酸化した試料の炭酸化率 (%)

$X(t)$: 無機体炭素量 (mg/g)

M_C : 炭素(C)の原子量

A: 試料の無水物中の CaO の割合 (wt%)

CH: A = 100, C-S-H: A = 47.5, OPC: A = 65.0

M_{CaO} : 酸化カルシウム(CaO)の分子量

Ig.loss(t): 試料を 1000°C で 2 時間加熱した際の質量減少率 (wt%)

表－2 研究用普通ポルトランドセメントの物理的特性および化学組成

材料	ブレン比表面積 (cm^2/g)	強熱減量 (%)	密度 (g/cm^3)	化学組成 (wt%)					
				SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃
研究用普通ポルトランドセメント	3260	0.97	3.16	21.4	4.80	3.20	65.0	1.08	2.02

2.6 粉末X線回折（XRD）測定 / リートベルト解析

実験Ⅰおよび実験Ⅱの試料について、XRD測定を行った。X線源はCu-K α 、管電圧30 kV、管電流10 mA、走査範囲 $2\theta=2\sim 80^\circ$ とした。また、標準物質としてMgOを10wt%内割添加し、内部標準法を用いたリートベルト解析による定量を行った。解析ソフトは、TOPAS（Bruker AXS 社製）を使用した。C₃S、 β -C₂S、C₃A、C₄AF、二水石膏、水酸化カルシウム、エトリンガイト、モノサルフェート、カルサイト、バテライト、アラゴナイトのうち、各試料の定性分析でピークが確認できたものを定量対象とした。なお、OPCの炭酸化によりモノカーボネートおよびヘミカーボネートのピークは出現しなかった。CHの含有率は式(2)を用いて、無水物であるCaOの割合として算出した。

$$Q_t = Q_{IR} \times \frac{100}{100 - Ig.loss(t)} \times \frac{M_{CaO}}{M} \quad (2)$$

ここに、

Q_t : t時間炭酸化後のCHの含有率 (wt%)

Q_{IR} : リートベルト法で得られたt時間炭酸化後のCHの定量値 (wt%)

$Ig.loss(t)$: t時間炭酸化後の試料を1000°Cで2時間加熱した際の質量減少率 (wt%)

M : CHの分子量 (74)

M_{CaO} : 酸化カルシウム(CaO)の分子量

また、CHの炭酸化率は式(3)にて算出した。

$$\alpha(t) = \frac{Q_0 - Q_t}{Q_0} \times 100 \quad (3)$$

ここに、

$\alpha(t)$: t時間炭酸化後のCHの炭酸化率 (%)

Q_t : t時間炭酸化後のCHの含有率 (wt%)

Q_0 : 未炭酸化時のCHの含有率 (wt%)

3. 実験Ⅰの実験結果および考察

3.1 CHとC-S-Hの炭酸化速度の違い

ICより算出した粒子に含まれるCaO分の炭酸化率の経時変化を図-1に示す。24時間までの炭酸化率はC-S-Hの方がCHよりも高く、C-S-Hに含まれるCaO分の方がCHに含まれるCaO分より速く炭酸化したといえる。これは一般的に自然環境（CO₂濃度：0.04%）におけるポルトランドセメント硬化体の中性化で指摘されている溶解度の高いCHの方がC-S-Hと比較して炭酸化が速いという説⁷⁾と異なる。一方で、高濃度CO₂（5%や10%）を用いたセメント硬化体の促進炭酸化試験では、CHとC-S-Hの炭酸化は同時に進行することも報告されており^{7),8)}、本研究も超高濃度CO₂（100%）を用いた促進環境であることから、CHとC-S-Hの炭酸化は同時に始まっ

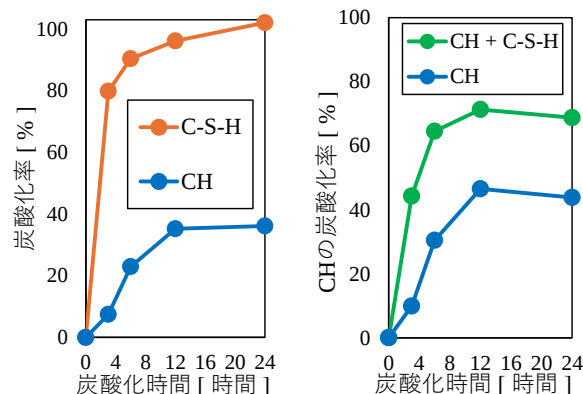


図-1 IC結果より算出した炭酸化率の経時変化

図-2 リートベルト解析の定量値より算出したCHの炭酸化率の経時変化

たものと推察される。後藤らは、CHとC-S-Hが同時に炭酸化するときの炭酸化速度についてJanderの式で計算して議論しており、C-S-Hの粒子径がCHの粒子径より非常に小さいことから、C-S-H粒子の炭酸化速度はCH粒子より1000倍程度速い計算になると主張している⁹⁾。また、1.1節でも述べたとおり、CHの炭酸化（CO₂濃度：100%）ではCH粒子表面に形成されたプロテクティブレイヤーにより炭酸化反応が阻害されることも報告されている²⁾。以上のような理由から、C-S-Hに含まれるCaO分の炭酸化速度はCHよりも速くなったと考えられる。

3.2 CHの炭酸化速度に及ぼすC-S-Hの共存の影響

リートベルト解析の定量値より算出したCHの炭酸化率の経時変化を図-2に示す。CHの炭酸化反応は12時間以降停滞しており、これはCH粒子表面に形成されたプロテクティブレイヤーにより、炭酸化反応に必要なイオンの拡散が阻害されたことが要因であると考えられる²⁾。また、CH + C-S-Hに含まれるCHの炭酸化率の方がCHのみの炭酸化率より高い。この要因は、CH + C-S-Hの系ではCHのみに比べ炭酸化反応を阻害するプロテクティブレイヤーの形成が抑制されたためと考えることができる。共存するC-S-H粒子がプロテクティブレイヤーの形成を抑制すると考え、ここでは図-3に示すようなメカニズムを提案することとした。

CHより溶出したCa²⁺と炭酸ガス由来のCO₃²⁻から炭酸カルシウムが生成する反応において、C-S-H粒子が炭酸カルシウムを析出させる結晶核として働くことで、炭酸カルシウムがCH粒子表面よりもC-S-H粒子表面に優先的に析出する。これによりイオンの拡散を阻害するプロテクティブレイヤーの形成が抑制されたと考えられる。このような現象は、C-S-H早強剤や石灰石微粉末によりセメント中のC₃Sの水和反応が促進されるメカニズムに

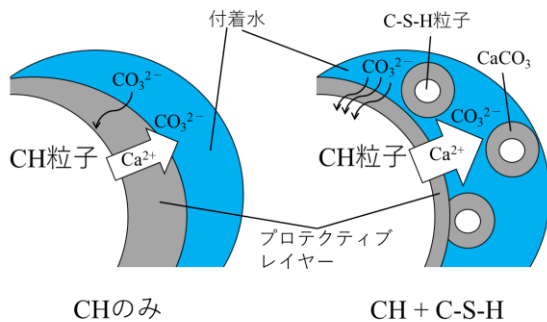


図-3 C-S-H が共存した際に CH のプロテクティブレイヤーの形成が抑制されるメカニズム

類似するものであり^{10),11),12)}, いずれも結晶核として働く粒子はナノサイズの細かい粒子である。本研究で合成した C-S-H においても, BET 比表面積 S_{BET} の値と C-S-H の密度 ρ (文献値¹³⁾: 1.94 g/cm^3) から次式(4)により計算された粒子径 d は, 20.1 nm であり, ナノオーダー(球状粒子と仮定して計算)である。

$$d = \frac{6}{\rho \cdot S_{BET}} \quad (4)$$

さらに, CH の炭酸化反応は C_3S の水和反応と同様に溶解-析出反応²⁾であることから, 図-3 に示すメカニズムで CH の炭酸化反応が促進されたものと考えた。

3.3 FT-IR による C-S-H の炭酸化挙動の分析

図-4 に C-S-H および CH + C-S-H の FT-IR の吸収スペクトルを示す。炭酸化前の吸収スペクトルにおける C-S-H の Si-O 結合の伸縮振動に由来する 950 cm^{-1} 付近の吸収帯から, C-S-H が合成されたことを確認した。いずれの試料においても炭酸化 3 時間で, C-S-H に由来する吸収帯がほとんど消失し, 同時にシリカゲル由来の Si-O 伸縮振動による 1080 cm^{-1} の吸収帯および炭酸カルシウム由来の CO_3^{2-} による吸収帯 (877 cm^{-1} 付近および 1450 cm^{-1} 付近) が出現しており, 炭酸化が進行した。炭酸カルシウム由来の 1450 cm^{-1} 付近の吸収帯は 2 つに分かれており, 低波数側がカルサイト由来, 高波数側がバテライトやアラゴナイト由来であると報告されている³⁾。いずれの試料においても炭酸化 24 時間の吸収スペクトルの様子は, 3 時間と比較して, 大きくは変化していないことから, 炭酸化ごく初期の 3 時間で C-S-H の大部分が炭酸化していると考えられ, 図-1 の C-S-H の炭酸化率の結果と一致する。また, 炭酸化後の C-S-H 由来の吸収帯やシリカゲル由来の吸収帯の様子は, C-S-H のみと CH + C-S-H でほとんど変わらない。そのため, CH + C-S-H に含まれる C-S-H の炭酸化は, C-S-H のみを炭酸化させた時と同様に進行していると推察される。したがって, 図-3 に示すメカニズムにおいて, CH と C-S-H の共存は, CH の炭酸化を促進させる一方で, C-S-H の

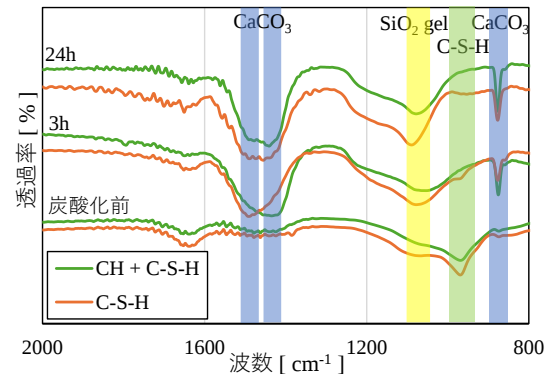


図-4 C-S-H および CH + C-S-H の炭酸化による FT-IR スペクトルの変化

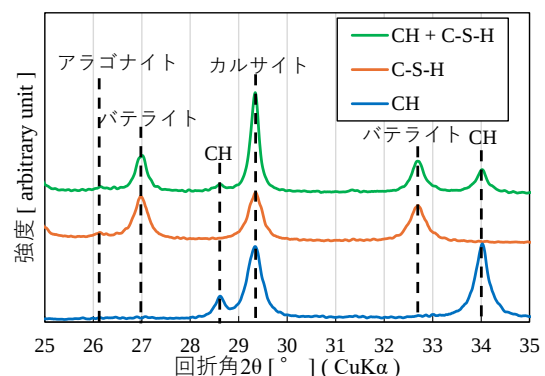


図-5 24 時間炭酸化した試料の XRD パターン

炭酸化速度にはほとんど影響を及ぼさないと考えられる。

図-3 の微粉末効果のようなメカニズムを考える場合, 結晶核として働く C-S-H 粒子の炭酸化に関する情報も反映させた上で議論していくことが今後の課題となる。

3.4 炭酸化生成物

図-5 に 24 時間炭酸化した試料の XRD パターンを示す。CH に着目すると, 結晶性の炭酸カルシウムのピークはカルサイトのみのものに対し, C-S-H では, カルサイトに加え, バテライトのピークと小さなアラゴナイトのピークが認められた。この結果は, 同様の炭酸化条件で検討した既往の研究結果⁵⁾と一致する。CH + C-S-H の XRD パターンでは, CH と C-S-H それぞれの結果が反映されており, カルサイト, バテライトおよびアラゴナイトのピークが認められた。また, 図-4 の FT-IR スペクトルにおける炭酸化カルシウム由来の 1540 cm^{-1} 付近の吸収帯では, CH + C-S-H の方が C-S-H のみに比べ, カルサイト由来の低波数側の吸収帯の比率が大きくなっており, これは炭酸化によりカルサイトを生成する CH が共存しているためと考えられる。

4. 実験 II の実験結果および考察

4.1 OPC の炭酸化率

図-6 に IC より算出した OPC の炭酸化率の経時変化

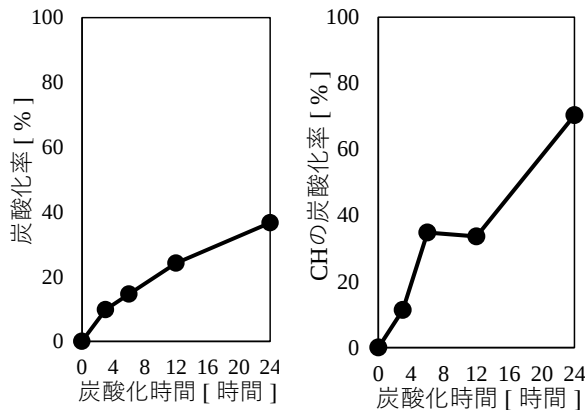


図-6 IC 結果より算出した OPC の炭酸化率の経時変化

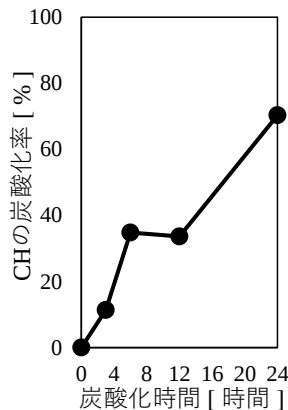


図-7 リートベルト解析の定量値より算出した OPC 中の CH の炭酸化率の経時変化

を示す。炭酸化率は時間経過とともに緩やかに増加しており、12 時間から 24 時間の間も増加傾向を示している。また、24 時間後の炭酸化率は約 40%であり、未炭酸化の CaO を多く残した状態となっている。

4.2 OPC 中の CH の炭酸化挙動

図-7 にリートベルト解析の定量値より算出した OPC 中の CH の炭酸化率の経時変化を示す。OPC 中の CH の炭酸化率は 6 時間から 12 時間で一度停滞したように見えるが、12 時間から 24 時間にかけて再び増加しており、24 時間時点で炭酸化率は約 70%まで増加した。この値は、実験 I の純合成 CH の 43% (図-2) と比較するとかなり大きい。このことから OPC 中の CH においても CH + C-S-H と同様に、CH 周囲の C-S-H が炭酸カルシウムを析出させる結晶核として働き、プロテクティブレイヤーの形成を抑制したことが考えられる。

4.3 FT-IR による C-S-H の炭酸化挙動の分析

図-8 に OPC の FT-IR スペクトルの結果を示す。OPC においても C-S-H の Si-O 結合の伸縮振動に由来する 950 cm^{-1} 付近の吸収帯が確認された。6 時間までで C-S-H に由来する吸収帯は大きくは変化しておらず、シリカゲルの吸収位置 (1080 cm^{-1}) にも変化はほとんど見られない。このことから、6 時間の時点では C-S-H の炭酸化反応は大きくは進行していないと推察される。しかし、3 時間から 6 時間にかけて炭酸カルシウム由来の CO_3^{2-} による吸収帯 (877 cm^{-1} 付近および 1450 cm^{-1} 付近) が大きくなっており、これは C-S-H ではなく、主に CH の炭酸化により炭酸カルシウムが生成したためと考えられる。6 時間から 24 時間にかけては C-S-H に起因する吸収ピークが小さくなっており、同時にシリカゲルの吸収位置に吸収ピークが出現しており、C-S-H の炭酸化が徐々に進行しているものと考えられる。以上より、OPC 中の C-

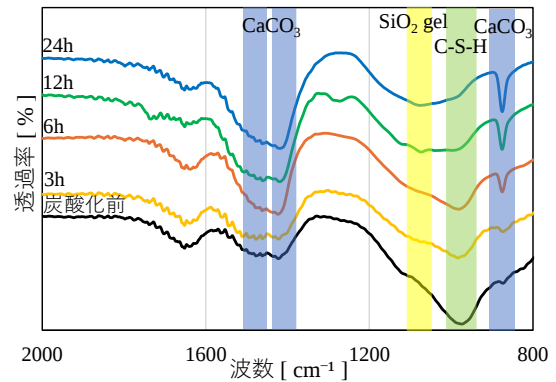


図-8 OPC の炭酸化による FT-IR スペクトルの経時変化

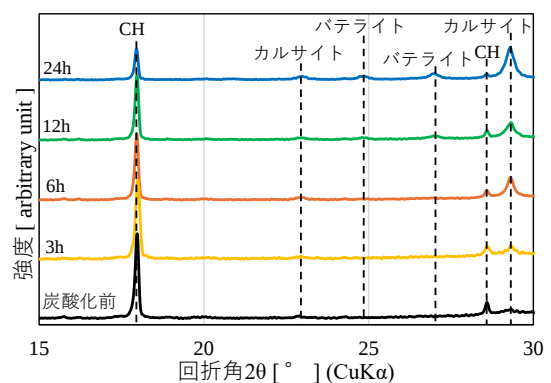


図-9 OPC の炭酸化による XRD パターンの変化

S-H は、3 時間で炭酸化が大きく進行していた合成 C-S-H と比較し、炭酸化速度が遅いことが示された。OPC 中の C-S-H の炭酸化速度が遅いことは、24 時間炭酸化後も OPC 中で未炭酸化のカルシウムが多く残っていた結果 (図-6) に大きく関係していると考えられる。OPC 中の C-S-H と合成 C-S-H で炭酸化速度が異なる要因として、C-S-H の粒子径が異なることや、OPC 中の他の水和物や炭酸化生成物が C-S-H の炭酸化を阻害したことなどが要因として考えられる。

4.4 炭酸化生成物

図-9 に OPC の炭酸化による XRD パターンの変化を示す。24 時間までの XRD パターンでは、バテライトおよびカルサイトのピークが認められた。カルサイトは CH や C-S-H などの水和物の炭酸化により生成したと考えられる。バテライトのピークは、6 時間まででは確認されなかったが、6 時間から 24 時間にかけて出現しており、このタイミングは FT-IR における C-S-H に由来する吸収ピークが小さくなったタイミングと一致する。また、実験 I にて合成 C-S-H を炭酸化するとバテライトが生成したことから、バテライトは主に C-S-H の炭酸化により生成したと推察される。しかし、合成 C-S-H の炭酸化ではアラゴナイトも生成したが、OPC の炭酸化では C-S-H が炭酸化していたにもかかわらず、アラゴナイトの

ピークは認められなかった。これには OPC 中の環境が影響していると考えられるが、OPC においても 80℃ のような高温条件で炭酸化するとアラゴナイトが生成するとの報告もある¹⁴⁾。アラゴナイトが再生微粉に含まれるセメントペーストの機械的性質を改善する可能性を示唆した報告もあるため¹⁵⁾、アラゴナイトの生成機構について、今後明確していくことも重要と考えている。

5 まとめ

合成 CH および合成 C-S-H、これらを混合した粉末 (CH + C-S-H)、セメントペースト微粉末 (OPC) を作製し、炭酸化反応解析を行った。得られたデータから、CH および C-S-H の炭酸化挙動が、CH と C-S-H が共存した場合や OPC 中に存在する場合でどのように異なるのかを明確にした。得られた知見を以下に示す。

- 1) CH 単味に比べ、CH + C-S-H では、24 時間までの CH の炭酸化速度は速かった。これに対し、共存する C-S-H 粒子が炭酸カルシウムを析出させる結晶核として働き、炭酸カルシウムの保護膜 (プロテクティブレイヤー) の形成が抑制されるメカニズムを提案した。
- 2) OPC 中の C-S-H の炭酸化反応速度は CH + C-S-H 中の C-S-H に比べて遅かった。
- 3) 合成 C-S-H の炭酸化ではカルサイトとバテライトに加え、アラゴナイトの生成が確認されたが、OPC の炭酸化では C-S-H が炭酸化しているにもかかわらず、アラゴナイトは生成しなかった。

謝辞

本成果は、NEDO (国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構) の委託業務 (JPNP21023) を受け、革新的カーボンネガティブコンクリートの材料・施工技術及び評価技術の開発プロジェクトで得られたものです。関係者各位に心より感謝申し上げます。また、測定やデータ整理にご協力いただいた島根大学大学院自然科学研究科の高塚稜氏、河野嘉人氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) 取違 剛, 森泰一郎, 小島正朗: 革新的カーボンネガティブコンクリートの材料・施工技術及び品質評価技術の開発状況 2023—CUCO-Carbon Utilized COConcrete—, コンクリート工学, Vol.62, No.4, pp.300-307, 2024
- 2) Galan, I et al.: Assessment of the protective effect of carbonation on portlandite crystals, Cement and Concrete Research, Vol.74, pp.68-77, Apr.2015
- 3) Steiner, S et al.: Effect of relative humidity on the

carbonation rate of portlandite, calcium silicate hydrates and ettringite, Cement and Concrete Research, Vol.135, pp.106-116, May.2020

- 4) 金 尚奎ほか: 水酸化カルシウムおよびケイ酸カルシウム水和物の炭酸化反応, 無機マテリアル, vol.2, No.254, pp.18-25, 1995
- 5) 高塚 稜, 吉田夏樹, 門田浩史, 新 大軌: 相対湿度が $\text{Ca}(\text{OH})_2$ および C-S-H の炭酸化生成物の生成過程に及ぼす影響, セメント・コンクリート論文集, Vol.77, pp.467-474, 2023
- 6) 宗 佳弘, 江本幸雄, 尾上幸造, 吉里哲郎: 造粒した再生骨材を用いたモルタルの諸性質, コンクリート工学年次論文集, Vol.29, No.1, pp.177-182, 2007
- 7) 伊代田岳史, 中村絢也, 後藤誠史: セメント硬化体の炭酸化機構の検討—実環境と促進環境の相違について—, セメント・コンクリート論文集, Vol.72, pp.225-232, 2018
- 8) Morandea, A., Thiéry, M. and Dangla, P.: Investigation of the carbonation mechanism of CH and C-S-H in terms of kinetics, microstructure changes and moisture properties, Cement and Concrete Research, Vol.56, pp.153-170, 2014
- 9) 後藤誠史, 中村絢也, 伊代田岳史: 炭酸化反応の速度論的考察—自然環境と促進環境の違いは何か—, セメント・コンクリート論文集, Vol.73, pp.38-42, 2019
- 10) 安達 丈, 新 大軌, 井元晴丈: 高炉水砕スラグ微粉末の水和反応に及ぼすナノ粒子からなる C-S-H 早強剤の効果, 無機マテリアル, Vol.29, pp.308-314, 2022
- 11) 小山広光, 井元晴丈, 小泉信一, 土谷 正: C-S-H ナノ粒子を含有する早強剤の特性と効果について, コンクリート工学, Vol.53, No.7, pp.614-621, 2015
- 12) 盛岡 実: 石灰石微粉末, コンクリート工学, Vol.52, No.5, pp.405-408, 2014
- 13) 田中洋介, 佐伯竜彦, 佐々木謙二, 須田裕哉: C-S-H の密度に関する基礎的検討, セメント・コンクリート論文集, Vol.63, pp.70-76, 2009
- 14) 吉田夏樹, 高塚 稜, 新 大軌, 池尾陽作: セメントペースト微粉末の短時間強制炭酸化に及ぼす温湿度の影響, コンクリート工学年次論文集, Vol.46, No.1, pp.1447-1452, 2024
- 15) Radha, A. V. et al.: Transformation and crystallization energetics of synthetic and biogenic amorphous calcium carbonate, PNAS, Vol.107, No.38, pp.16438-16443, 2010