

論文 フライアッシュの物理特性がモルタルの流動性に与える影響

星 健太*1・久我 龍一郎*2・兵頭 彦次*3

要旨: フライアッシュの物理特性がモルタルの流動性に与える影響を解明することを目的に、14種類のフライアッシュの物理特性と、それを用いたモルタルの流動性の関係性を評価した。その結果、フライアッシュの粒子が細かいほど流動性に優れ、特に20~30 μm 以下の粒子に流動性改善の効果があるものと推察された。また、そのメカニズムについて、フライアッシュセメントの充填率等の観点から検討したところ、20 μm 以下のフライアッシュ粒子が多いほど、モルタルが所定の流動性を得るために必要なペースト量が少ないことがわかり、これを20 μm 以下の粒子の形状特性による影響と推察した。

キーワード: フライアッシュ, モルタル, 水結合材比, 粒度分布, 充填率, 粉体体積

1. はじめに

フライアッシュ (以下, FA) は, 石炭火力発電所等において石炭を燃焼した際に発生する副産物である。我が国における FA の発生量は年間で 1200 万 t 程度であり, 主にセメント原料やセメント混和材等として有効利用されている¹⁾。2050 年までのエネルギー源としての石炭の利用については, 先進国ではエネルギーシフトが進む一方で, インドや東南アジア等の新興国では石炭への依存が継続するとの予測がある²⁾。我が国においても, 現在の 1/3 程度の石炭の利用があるとの見通しであり²⁾, FA の発生も継続すると考えられる。このように FA の有効利用が依然として求められるなか, カーボンニュートラルの観点からセメントのクリンカ比率を低減する意味でも, FA のセメント混合材としての利用が望まれる。

混合材としての FA の利用による効果としては, 流動性改善, 水和発熱の低減, 長期強度の増進, アルカリシリカ反応等に対する耐久性向上等が挙げられる。このうち流動性改善に関する研究は古くから行われており, ボールベアリング効果や充填率の向上等によって流動性は向上する一方, FA 中の未燃炭素の影響により化学混和剤が吸着され, 流動性が低下する場合もある^{3,4)}。

これら FA による流動性改善に関する既往研究は, 化学混和剤を添加したマトリクスにおいて, FA の混和による流動性の変化を評価したものが多く, FA 中の未燃炭素も流動性に影響を与えている^{例え5)}。一方, FA 自体の幾何学特性等の物理特性がマトリクスの流動性に与える影響を評価することができれば, FA の選定基準や品質管理, FA コンクリートの配合設計, あるいは, 化学混和剤の最適化等に役立つ知見が得られる可能性がある。

そこで本研究では, FA の物理特性がマトリクスの流動性に与える影響を評価することを目的とした検討を行った。まず, 14 種類の FA を用い, ASTM C109 に準じてモルタルの流動性を調べた。ASTM C109 はセメント強さの試験方法である。水量一定でモルタルフローにより流動性を評価する JIS 法とは異なり, 同試験法は化学混和剤が無添加のモルタルフローの伸び率が $110 \pm 5\%$ となるように水量を調整するという特徴があり, モルタルの流動性は必要水量 (水結合材比) によって表される。次いで, FA の物理特性を調べ, モルタルの流動性との相関性を評価した。さらに, FA によるモルタルの流動性改善のメカニズムについて, FA セメントの充填率等の観点から考察した。

表-1 OPC および FA の物理特性

種類	記号	ig.loss (%)	かさ密度 (g/cm ³)	密度 (g/cm ³)	ブレン比表面積 (cm ² /g)	BET 比表面積 (m ² /g)	平均径 (μm)
OPC		2.6	1.65	3.15	3340	0.91	22.7
FA	A ₁ -1	3.1	1.27	2.22	3040	1.75	44.0
	A ₁ -2	3.0	1.29	2.22	3330	1.95	34.6
	A ₂ -1	3.0	1.06	2.22	2690	1.98	57.3
	A ₂ -2	3.2	0.94	2.27	3980	2.31	22.6
	A ₂ -3	3.2	0.93	2.30	4250	2.50	18.6
	A ₂ -4	2.8	0.93	2.34	4810	2.40	11.6
	B ₁	1.0	1.20	2.34	2910	0.83	29.7
	B ₂	1.0	1.17	2.41	3690	0.99	16.4
	B ₃ -1	2.3	0.92	2.20	2540	2.09	42.6
	B ₃ -2	2.3	1.20	2.21	2950	2.09	33.8
	C ₁	1.6	1.27	2.31	3540	1.93	26.2
	C ₂	1.0	1.34	2.28	2770	1.27	31.9
	C ₃ -1	0.7	1.37	2.35	2060	0.75	68.7
	C ₃ -2	1.0	1.30	2.30	2560	0.99	39.4

*1 太平洋セメント (株) 中央研究所 セメント・コンクリート研究部海外技術チーム 研究員 修(工) (正会員)

*2 太平洋セメント (株) 中央研究所 セメント・コンクリート研究部海外技術チーム 研究員 修(工)

*3 太平洋セメント (株) 中央研究所 セメント・コンクリート研究部海外技術チーム リーダー 博(工) (正会員)

2. 実験概要

2.1 使用材料

実験には、3 か所の火力発電所から 8 つの原粉を採取し、内 4 つは強制渦型遠心分級機を用いて分級し、全 14 種類の FA を用意した。これにより FA の原粉種類および分級によるモルタルの流動性への影響を比較評価した。普通ポルトランドセメント（以下、OPC）および各 FA の物理特性を表-1 に、粒度分布を図-1 に示す。記号は、アルファベットが発電所の違いを、添え字が原粉の違いを、ハイフン以降の数字が分級処理の違い（この数字が大きいほど粉末度が高い）を示している。図-1 の通り粒度分布は原粉により大きく異なる。強熱減量（以下、ig.loss）、密度およびブレン比表面積は、それぞれ ASTM C311、ASTM C188 および ASTM C204 に準拠した方法、かさ密度は粉体特性評価装置（ホソカワミクロン株式会社 パウダーテスター PT-X）、BET 比表面積は流動式比表面積自動測定装置（株式会社島津製作所 フローソープ 2305）、粒度分布および平均径はレーザー回折粒度分布測定装置（マイクロトラック・ベル株式会社 マイクロトラック MT3300EX II）により測定した。なお本研究では、FA の物理特性の測定の一部を ASTM に準拠して行ったが、JIS 法と同等の値が得られることを事前に確認した。

細骨材は ASTM C109 および ASTM C778 に規定される標準砂を使用し、化学混和剤は使用しなかった。

2.2 モルタル配合および試験方法

結合材は、OPC に対して FA でそれぞれ 15、22.5、30 および 40 質量%を置換した FA セメントとした。モルタル配合については、ASTM C109 に準拠して、所定の質量の結合材および砂（砂結合材比は 2.75 で一定）に対し、ASTM C1437 に従い測定したモルタルフローの伸び率が $110 \pm 5\%$ となるように水量を調整した。練混ぜ方法は、ASTM C305 および ASTM C1437 に準じた。

3. 実験結果および考察

3.1 モルタルの流動性

所定のフローを得るための水結合材比を図-2 に示す。

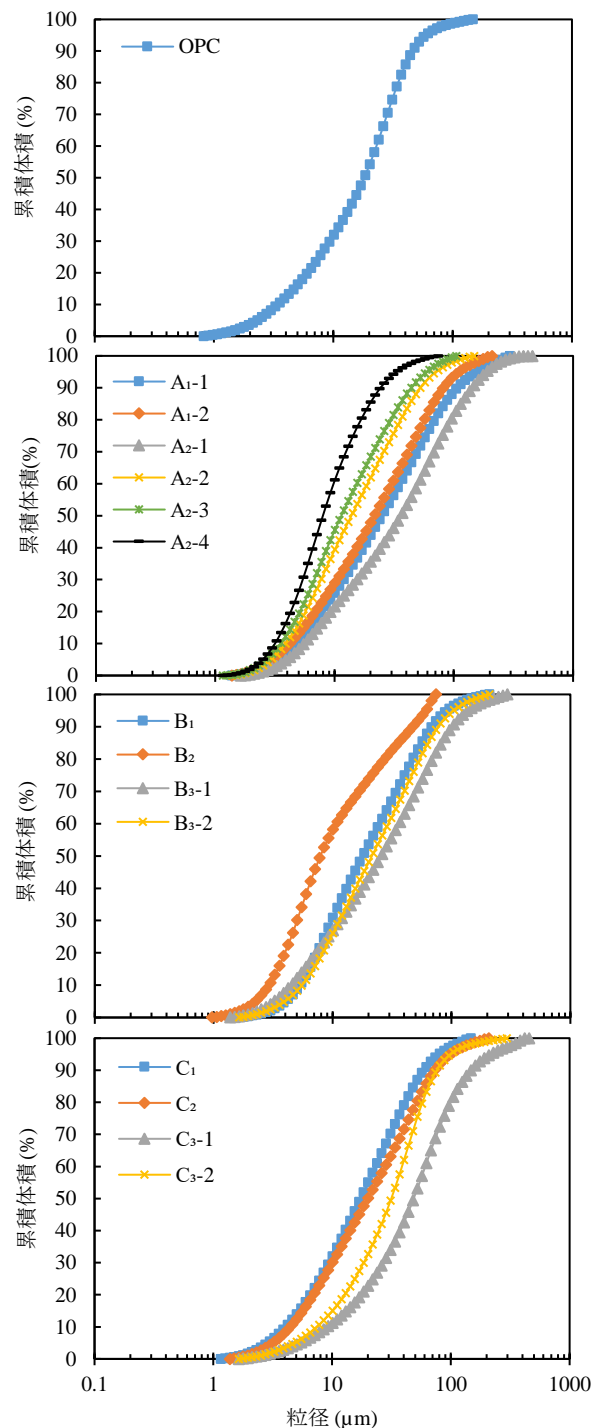


図-1 OPC および FA の粒度分布

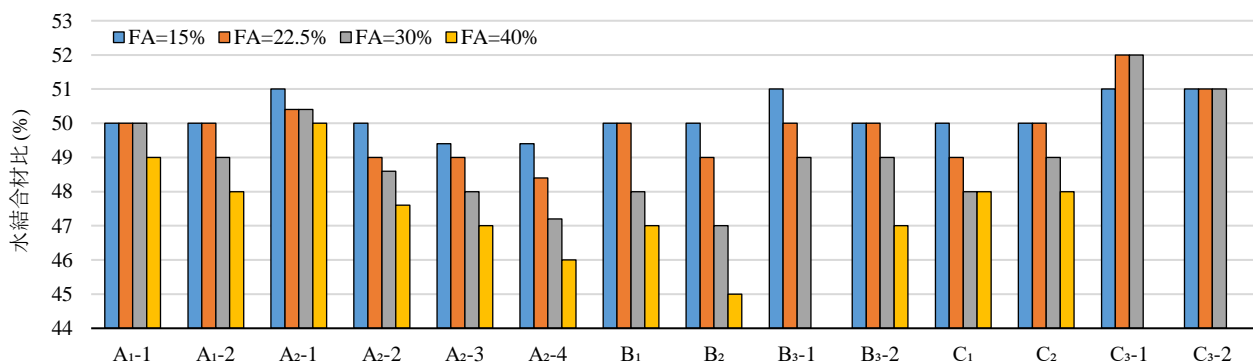


図-2 所定のモルタルフローを得るための水結合材比

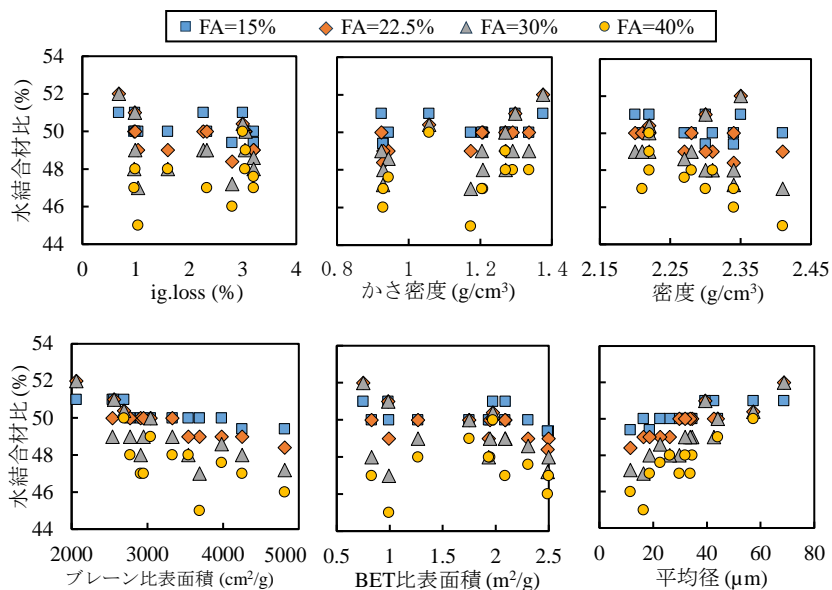


図-3 FAの物理特性と水結合材比の関係

同図より FA 置換率が増加すると水結合材比が小さくなる傾向がみられ、FA による流動性の改善が確認できる。ただし、C₃-1 および C₃-2 については、FA 置換率の増加に伴い水結合材比は増加したか、あるいは変化がなく、他 FA とは異なる傾向を示した。また、FA 置換率の増加に伴う水結合材比の低減効果はFA 種類により異なった。

3.2 FAの物理特性がモルタルの流動性に与える影響

所定のフローを得るための水結合材比と FA の物理特性との関係を図-3 に、両者の相関係数および決定係数を表-2 に示す。ig.loss, かさ密度, 密度および BET 比表面積は決定係数が最大でも 0.39 であり、水結合材比との間に明確な相関は認められず、モルタルの流動性にほとんど影響しないことがわかる。ig.loss については、FA 中の未燃炭素の増加に伴いペーストのフローも緩やかに減少するとの報告⁹⁾があるが、本研究で用いた FA の ig.loss は 0.7~3.1%と比較的小さく、この影響で水結合材比との間に相関がみられなかった可能性に留意する必要がある。

一方、ブレーン比表面積および平均径と水結合材比の間には、それぞれ正および負の相関が認められ、それらの決定係数はいずれも最大で 0.8 程度と高い。これらの関係性は、いずれも FA の粒子が細かいほど水結合材比が小さいと解釈でき、既往の研究^(例えば7)と同様に FA に含まれる小径の粒子が流動性を改善する効果があることが示唆される。

なお、水結合材比との関係性がブレーン比表面積と BET 比表面積で異なったのは、それぞれの測定機構の違いに起因して、FA に含まれる未燃炭素の影響で比表面積が異なったためと推察される。すなわち、ガス吸着法 (BET 理論) では、試料表面の微細な空隙までを含めた

表-2 FAの物理特性と水結合材比の相関係数および決定係数

FA 置換率 (%)	15	22.5	30	40
ig.loss	-0.34	-0.45	-0.18	0.38
	0.12	0.20	0.03	0.15
かさ密度	0.24	0.60	0.47	0.23
	0.06	0.36	0.22	0.05
密度	-0.23	-0.16	-0.31	-0.78
	0.05	0.02	0.10	0.60
ブレーン比表面積	-0.83	-0.90	-0.78	-0.58
	0.69	0.82	0.60	0.33
BET 比表面積	-0.43	-0.62	-0.37	0.16
	0.19	0.39	0.14	0.03
平均径	0.82	0.90	0.91	0.88
	0.67	0.81	0.83	0.77

※上段が相関係数, 下段が決定係数を示す

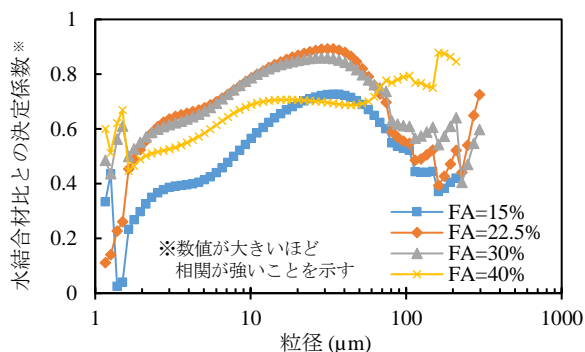


図-4 FAの累積体積と水結合材比の決定係数

比表面積が測定される一方で、ブレーン比表面積は空気透過法で求められる簡易的な比表面積である。そのため、FA の BET 比表面積は、微細空隙の多い未燃炭素の影響を強く受けるため、FA 自体の幾何学的な特徴の傾向が表れにくく、水結合材比との相関が弱いことが推察される。

3.3 FAの粒度分布がモルタルの流動性に与える影響

前節より、FA の粒子が細かいほどモルタルの流動性改善の効果がみられたことを受け、本節では流動性と粒度分布との関係を調べた。粒度分布から求まる特性値としては、ロジン・ラムラー線図における n 値、平均径、累積体積および球換算比表面積等がある。本研究では、これらの特性値とモルタルの水結合材比との相関関係を評価した結果、最も相関が強かった累積体積に着目し、以下の検討を行った。

まず、FA 置換率毎に、FA の粒度分布から求まる累積体積と水結合材比を対象に (例えば FA 置換率 15%の場合、それぞれのデータ数は FA 種類の異なる 14 水準)、粒径毎に両者の決定係数を算出した。決定係数は図-4 に示すように、FA 置換率によらず粒径 20~30μm 程度において極大となる傾向が認められた。したがって、20~30μm 以下の FA の累積体積が大きいほど、所定のフ

ローを得るための水結合材比が小さく、モルタルの流動性を改善する効果があるものと推察される。

次に、20~30 μm 以下のFAの累積体積とモルタルの流動性(すなわち、所定のフローを得るための水結合材比)の相関関係を統計的に評価した。まず、本研究では便宜的に20 μm 以下のFAの累積体積を取り出し、水結合材比の関係を調べた。両者の関係は図-5に示すとおりであり、FA置換率毎に直線的な強い相関性がみられる。また、FA置換率が增大するに従い、近似直線の傾きが減少するという交互作用効果が認められる。すなわち、FA置換率が高いほど、20 μm 以下のFAによる水結合材比の低減効果が大きいといえる。続いて、20 μm 以下のFAの累積体積により統計的に水結合材比をどの程度説明可能かを調べるために、水結合材比を目的変数、FA置換率および20 μm 以下のFAの累積体積を説明変数とし、前述した交互作用効果を考慮した重回帰分析を行った。出力された回帰式を式(1)に示す。

$$Y = -0.002 \cdot (X_1 \cdot X_2) + 52.016 \quad (1)$$

ここに、Y:水結合材比(%), X_1 :20 μm 以下のFAの累積体積(%), X_2 :FA置換率(%)

図-6に水結合材比の実測値と回帰式による予測値の関係を示す。本研究の範囲では決定係数は0.87であり、モルタルが所定の流動性を得るために必要な水結合材比の変動の8割以上を、FAの置換率および20 μm 以下の累積体積で説明できるという結果が得られた。

以上の検討より、FAに含まれる小径の粒子が流動性を改善する効果があり、特に20~30 μm 以下の粒子の累積体積が強く影響することが判明した。FAの粒径と形状の関係に関する報告^{8,9)}に基づけば、FAの44 μm 以下の粒子のほとんどは完全球状粒子であり、さらに小径であるほど完全球形に近いとされている。これと既往研究^{3,4)}に鑑みると、本研究において20~30 μm 以下のFAの累積体積とモルタルの流動性に強い相関が認められたのは、完全球状粒子の増加による粒子間の摩擦力の低減(ボールベアリング効果)³⁾や、小径粒子が大径粒子の間に入り込むことによるFAセメントとしての充填率の向上⁴⁾によるものと推察される。本研究では、主に後者の要因について、以降に考察を加えることとした。

3.4 FAセメントの充填率および体積が流動性に与える影響

FAセメントとしての充填率を、粉体工学に立脚した数値シミュレーションである鈴木らのモデル¹⁰⁾を用いて計算した。鈴木モデルは、粒度分布を有する複数の粉体から構成される混合物の空隙率を算出するものであり、

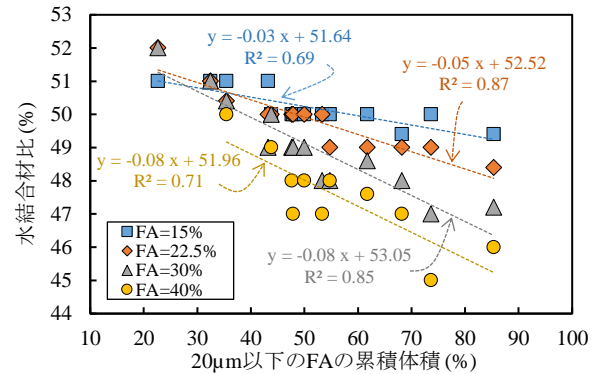


図-5 20 μm 以下のFAの累積体積と水結合材比の関係

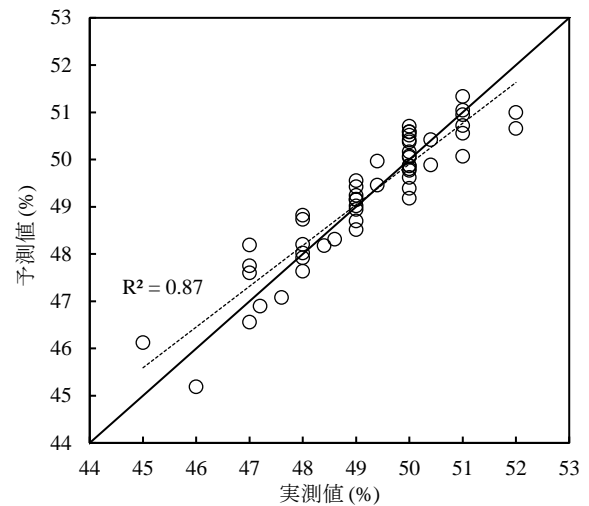


図-6 水結合材比の実測値と予測値の比較

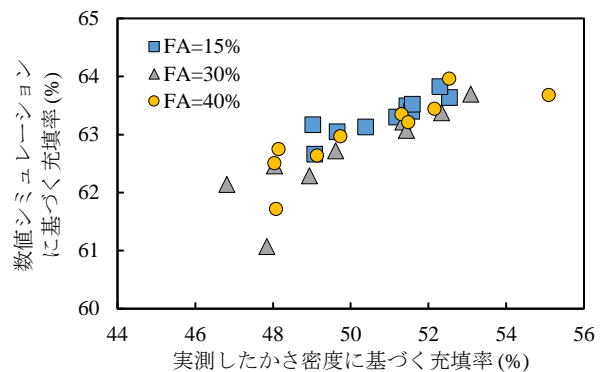


図-7 FAセメントの充填率の比較

100%から空隙率を減じた値をFAセメントの充填率とした。なお、2.2節にて作製した一部のFAセメントについて、粉体特性評価装置を用いて測定したかさ密度を基に式(2)により充填率を求め、この値と鈴木モデルに基づく充填率が直線的な相関関係にあることを事前に確認している(図-7参照)。この結果から、FAセメントの充填率は、鈴木モデルに基づき算出した値により評価できるものと判断した。

$$P = \rho_b / \rho_d \quad (2)$$

ここに、P:FAセメントの充填率(%), ρ_b :FAセメン

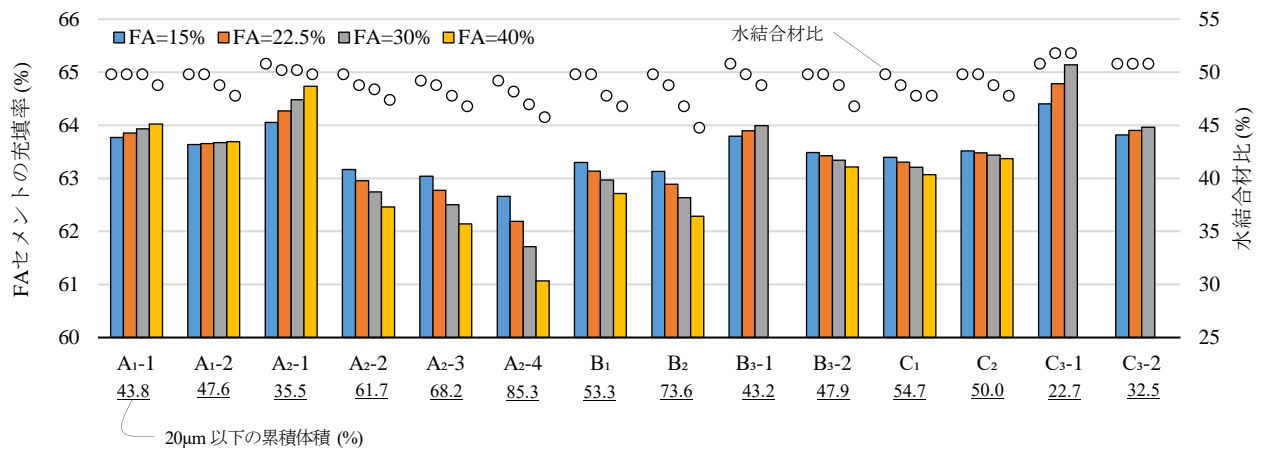


図-8 FAセメントの充填率と水結合材比の関係

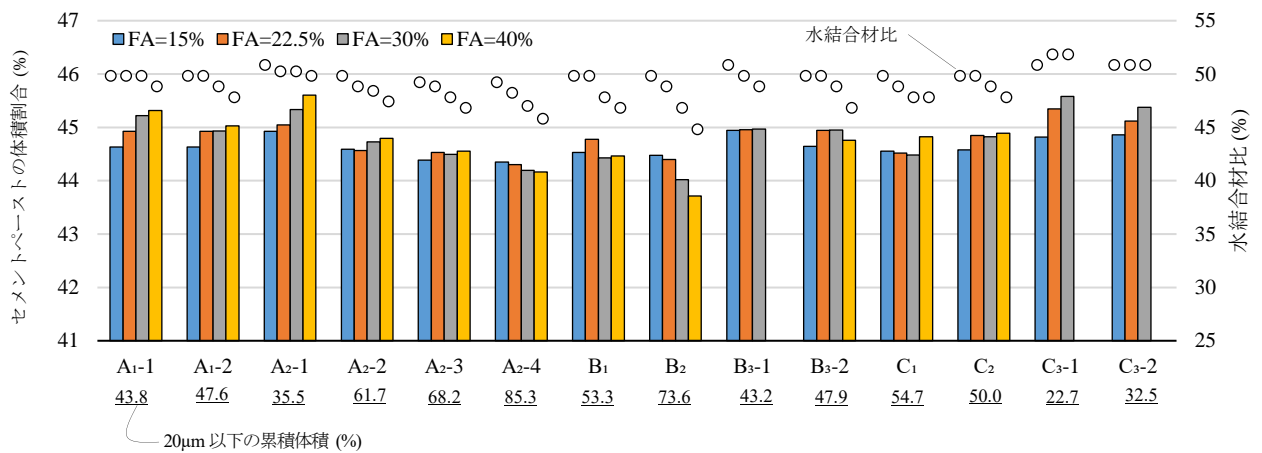


図-9 モルタルに占めるセメントペーストの体積割合と水結合材比の関係

トのかさ密度 (g/cm^3), ρ_d : OPC および FA の密度と構成比率により算出した FA セメントの密度 (g/cm^3)

FAセメントの充填率と水結合材比の関係を図-8に示す。FA 置換率の増大に伴う充填率の変動は FA 種類により異なった。すなわち、図中下部に下線とともに併記した $20\mu\text{m}$ 以下の FA の累積体積に着目すると、その累積体積が 47.9%以上である FA は置換率の増大に伴い充填率は低下し、逆に、累積体積が 47.6%以下である FA は置換率の増大に伴い充填率が向上する傾向がみられた。これは、粒子は小径であるほど凝集しやすく、見かけ上、充填率が低下することによるものと推察される¹¹⁾。また、本研究においては、OPC と FA の粒径は近く、小径粒子が大径粒子の間に入り込むことによる充填の作用がみられなかった可能性も考えられる。凝集体の内部には水が拘束されやすいこと¹²⁾を考慮すると、FA セメントの充填率が低いほど水結合材比が大きくなるものと考えられるが、そのような関係性はみられなかった。以上より、本研究の範囲では、FA による流動性改善については、FA セメントとしての充填率の向上以外の要因の影響を受けたことが推察される。

ここで、本研究では FA を OPC の質量に対して置換した。したがって、FA は OPC に比べて密度が小さいことから、FA の置換率の増加に伴い粉体体積が増加し、モルタルの流動性に影響している可能性が考えられる。そこで、セメントペーストの体積割合が流動性に与える影響を検討した。モルタル配合から算出したセメントペーストの体積割合と水結合材比の関係を図-9に示す。FA 置換率の増加に伴うセメントペーストの体積割合の変化は FA 種類により異なり、 $20\mu\text{m}$ 以下の累積体積が 61.7%以下の FA では増加または横ばい傾向である一方、 $20\mu\text{m}$ 以下の累積体積が 73.6%以上の FA では減少傾向であった。このことから、FA 置換率の増加に伴い FA の粉体体積は増加するものの、A2-4 および B2 は所定の流動性を得るための必要水量が小さいため、セメントペーストの体積割合が小さくなったと考えられる。したがって、本研究の範囲では、FA の置換率の増加に伴う粉体体積の増加よりも、それ以外の要因によるモルタルの流動性改善の効果が卓越したことが推察される。

以上の結果から、 $20\sim 30\mu\text{m}$ 以下の FA 粒子がモルタルの流動性改善に及ぼす影響については、FA セメントの充填率や体積には表れない要因によるものと推察される。

参考までに、20 μm 以下のFAの累積体積とモルタルに占めるセメントペーストの体積割合の関係を図-10に示す。これによると、20 μm 以下のFAの累積体積が大きいほど、セメントペーストの体積割合が小さい傾向がみられる。これより、FA中の20 μm 以下の粒子が多いほどセメントペーストの流動性が改善され、少ないペースト量で所定の流動性が得られたものと考えられる。このような傾向を示した要因については、現時点で解明するに至っていないが、一因として前述したFAの粒子形状が考えられる。すなわち、既往知見⁸⁾⁹⁾に基づけばFA中の20 μm 以下の粒子のほとんどは完全球状粒子と考えられ、粒子は球状に近いほど摩擦係数が小さいことから¹³⁾、FA中の20 μm 以下の粒子により摩擦係数が低減され、少ないペースト量でも所定の流動性が得られたと推察される。

4. まとめ

本研究では、14種類のFAの物理特性を調べ、ASTM C109に準じてモルタルの流動性との相関性を評価した。さらに、FAによるモルタル流動性改善のメカニズムについて、FAセメントの充填率等の観点から考察した。その結果、大要以下の知見が得られた。

- (1) FAの物理特性のうち、ig.loss、かさ密度、密度およびBET比表面積は水結合材比との間に相関がみられず、モルタルの流動性への影響は小さいと考えられる。
- (2) FAの物理特性のうち、ブレン比表面積および粒度分布(平均径)は水結合材比との相関がみられ、特に20~30 μm 以下のFAの累積体積がモルタルの流動性を改善する効果があるものと推察された。
- (3) 20 μm 以下のFAの累積体積およびFA置換率を説明変数、モルタルの水結合材比を目的変数とした重回帰分析を行ったところ、本研究の範囲における決定係数は0.87であった。
- (4) FAセメントの充填率は、20 μm 以下のFAの累積体積が大きいほど、FA置換率に伴い増大した。このことから、FA中の小径の粒子の増加によるモルタルの流動性改善は、充填率の低減によるものではないと考えられた。
- (5) モルタルに占めるセメントペーストの体積割合は、20 μm 以下の粒子が多いFAほど小さく、少ないペースト量で所定の流動性が得られた。

参考文献

- 1) 石炭フロンティア機構：石炭灰全国実態調査報告書(2022年度実績)、2024年3月
- 2) International Energy Agency: World Energy Outlook 2024, pp.245-288, Oct.2024
- 3) (社)土木学会：フライアッシュを用いたコンクリ

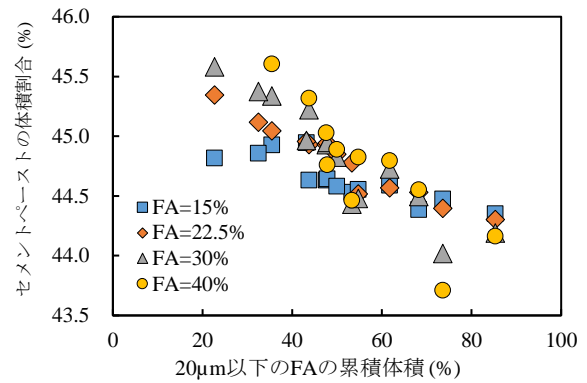


図-10 20 μm 以下のFAの累積体積とモルタルに占めるセメントペーストの体積割合の関係

ートの施工指針(案)、コンクリートライブラリー、No.94、2010

- 4) 長瀧重義, 大賀宏行, 越智康介, 中村武夫: フライアッシュの品質とその評価に関する研究, コンクリート工学年次論文集, Vol.7, No.1, pp.197-200, 1985
- 5) 西祐宜, 西田朗, 戸田和敏, 名和豊春: 簡易測定法を用いたフライアッシュコンクリートの流動性予測に関する研究, コンクリート工学年次論文集, Vol.30, No.1, pp.177-182, 2008
- 6) 松田陽介, 名和豊春: フライアッシュ中の未燃カーボンが粉体の充填率およびペーストの流動性に及ぼす影響の検討, セメント・コンクリート論文集, Vol.57, pp.414-420, 2003
- 7) P. Chindaprasirt, S. Homwuttiwong and V. Sirivivananon: Influence of fly ash fineness on strength, drying shrinkage and sulfate of blended cement mortar, Cement and Concrete Research, Vol.34, No.7, pp.1087-1092, Jul.2004
- 8) 土肥浩大, 白浜暢彦, 山下牧生: 分級により粒度調整したフライアッシュの諸特性, セメント・コンクリート論文集, Vol.71, pp.626-632, 2017
- 9) 小沼利光, 菊地正, 古谷佳一: 粒径-密度分離を行った石炭フライアッシュ粒子の形態特性化, 大気汚染学会誌, Vol.19, No.1, pp.35-46, 1984
- 10) 鈴木道隆, 市場久貴, 長谷川勇, 大島敏男: 粒度分布のある多成分粒子ランダム充填層の空間率, 化学工学論文集, Vol.11, No.4, pp.438-443, 1985
- 11) 緑川猛彦, 丸山久一, 下村匠, 桃井清至: 粉体特性の定量化手法に基づくペーストの流動性評価方法, 土木学会論文集, No.578/V-37, pp.99-110, 1997
- 12) 太田顕, 名和豊春, 大沼博志: セメント粒子の凝集構造とセメントペーストの流動性の関係, コンクリート工学年次論文集, Vol.23, No.2, pp.271-276, 2001
- 13) 廣田満昭, 石原隆博, 菅井惇, 大島敏男: 粉体層の摩擦特性に及ぼす粒子形状および粒径の影響, 粉体工学会誌, Vol.23, No.9, pp.661-664, 1986