

令和元年5月29日現在

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06442

研究課題名(和文)石炭灰を活性フィラーとするジオポリマーの最適配合設計法への品質工学的アプローチ

研究課題名(英文) Quality engineering approach to optimization of mix design of geopolymer with fly ash as active filler

研究代表者

尾上 幸造 (ONOUE, Kozo)

熊本大学・大学院先端科学研究部(工)・准教授

研究者番号：50435111

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：ジオポリマーは次世代コンクリートとして期待されているが、設計パラメータが多岐にわたることや品質のばらつきが実用化への障壁となっている。本研究では、タグチメソッドにおける動的パラメータ設計を適用し、九州内2箇所の石炭火力発電所で生産されるフライアッシュを用いたジオポリマーモルタルの配合および製造条件の最適化を検討した。直交表を用いた比較的少数回の実験とシグナルノイズ比を指標とした最適化により、ばらつきの少ないジオポリマーを製造するための条件を見出した。さらに、最適化されたジオポリマーは、長期にわたる強度安定性、優れた耐硫酸性、乾燥収縮に対する抵抗性を有することを明らかとした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ジオポリマーの実用化に際し、設計パラメータが多岐にわたることや硬化後品質のばらつき等が障壁となっている。これらの問題を同時に解決する手段として、本研究ではタグチメソッドに着目した。同手法は、実験計画法をベースにばらつきや劣化をなくすための方法として田口玄一博士により構築された一連の予防設計技術である。過去に海外において静特性(入力と出力が固定)のパラメータ設計を用いたジオポリマーの最適化が数編報告されていたが、本研究では新規に動特性(入力に応じて出力が変動)のパラメータ設計を適用した。本研究の成果は、ジオポリマーの配合設計段階における省力化ならびに当該研究の活発化につながるものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：Geopolymer is expected as a next-generation construction material. However, the wide variety of design parameters and the variation in quality are the barriers to its practical use. In this study, by using the dynamic approach of the Taguchi method, the optimization of mix design and manufacturing conditions of geopolymer mortar with fly ash produced at two coal-fired power plants in Kyushu region was examined. As a result, optimal combinations of conditions for manufacturing geopolymer mortars with less variation were found by relatively small number of experiments using orthogonal tables and optimization based on the signal-to-noise ratio. Furthermore, it has been revealed that the optimized geopolymer mortars have long-term strength stability, excellent sulfuric acid resistance, and resistance to drying shrinkage.

研究分野：建設材料学, コンクリート工学

キーワード：ジオポリマー フライアッシュ タグチメソッド SN比 最適化 圧縮強度 耐硫酸性

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

建設分野における環境負荷低減の観点から、セメントに依存しないジオポリマー（GP）による固化技術が世界的に注目され、国内外で研究が活発に行われている。GPは、Davidovitsにより考案された無機ポリマーであり、建設分野においては、ケイ酸ナトリウム水溶液（水ガラス）および水酸化ナトリウム（NaOH）をベースとするアルカリ溶液、GP反応に必要なシリカやアルミナといった金属イオンの供給源となる粉体（活性フィラー）および骨材を混合し、活性フィラーから溶出した金属イオンと水ガラス成分のポリマー反応により固化したものをジオポリマーと称し、研究が進められている。

セメントコンクリートの配合設計においては、セメント水比-強度間の線形関係、単位水量一定の法則、最適細骨材率の存在といった基本的な法則が知られている。一方、GPの製造工程においては、NaOH水溶液の濃度、水ガラスとNaOH水溶液の比率、活性フィラーとアルカリ溶液の比率、加熱養生時の保持温度や積算温度等、考慮すべき設計パラメータが多岐にわたり、その設計方法に関しては未だ手探りの段階にある。

2. 研究の目的

品質工学的アプローチにより、フライアッシュ（FA）を活性フィラー（GP反応に必要なシリカ、アルミナ等の金属イオン供給源となる粉体）とするフライアッシュベースジオポリマー（FAGP）の配合設計システムを提案する。具体的には、粉体とアルカリ溶液の容積比を「入力値」、FAGPの作業性と強度を「出力値」とするシステム（図-1）を想定し、タグチメソッドにおける動特性のパラメータ設計を導入することで、再現性・経済性・環境負荷低減性・ロバストネス（ノイズ耐性）の観点からシステムの最適化を図る。さらに、将来的なプレキャスト製品への適用を視野に入れ、システムに基づいて設計・製造されたFAGPの長期的な耐久性を明らかにする。

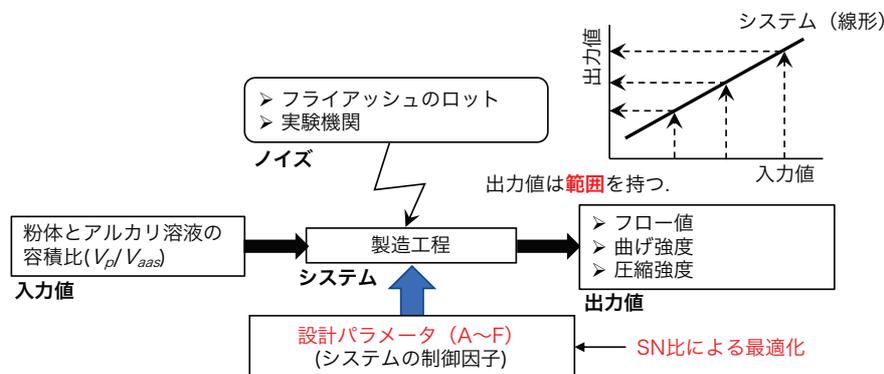


図-1 本研究で想定したシステム

3. 研究の方法

(1) 使用材料

フライアッシュとして、九州地方の2つの発電所で生産される低カルシウム型のJIS II種フライアッシュ（FA1、FA2）を用いた。タグチメソッドによる最適化では、システムのノイズ耐性を高めることを目的に、ノイズ条件をさまざまに振って実験を行うことが一般的である。本研究では、ノイズ条件としてフライアッシュのロットと実験機関を取り上げた。そのため、FA1とFA2のそれぞれについて2つのロットを実験に用いた。その他の使用材料として、高炉スラグ微粉末（4000 ブレーン）、標準砂、JIS K 1408の3号水ガラス、および水酸化ナトリウムを用いた。

(2) 設計パラメータとノイズ条件

表-1に本研究で考慮した設計パラメータと水準を示す。A~Fの設計パラメータを取り上げた。実験の組合せを作成するにあたり、FA1を用いたシリーズではL₁₈直交表(表-2)を用い、FA2を用いたシリーズではL₉直交表(表-3)を用いた。表-4にノイズ条件を示す。実験回数は、FA1を用いたシリーズでは18(直交表の組合せ数)×3(入力値)×2(ノイズ条件)=108回、FA2を用いたシリーズでは9(直交表の組合せ数)×3(入力値)×4(ノイズ条件)=108回であった。

表-1 設計パラメータと水準

FAの種類	FA1	FA2
入力値 (V_p/V_{ass})	0.9, 1.0, 1.1	0.6, 0.75, 0.90
A: 水ガラスと水酸化ナトリウム水溶液の質量比	0.5, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3.0	1.0, 2.0, 3.0
B: 水酸化ナトリウムの濃度 (M)	3, 6, 9	6
C: FAに対する高炉スラグ微粉末の置換率	0.05, 0.15, 0.25	0.15
D: 練混ぜ時間 (分)	4, 6, 8	4, 6, 8
E: 加熱養生時の保持温度 (°C)	60, 75, 90	60, 75, 90
F: 加熱養生時の積算温度 (°C·h)	640, 1000, 1360	640, 1000, 1360

表-2 L₁₈直交表

No.	A	B	C	D	E	F
1	1	1	1	1	1	1
2	1	2	2	2	2	2
3	1	3	3	3	3	3
4	2	1	1	2	2	3
5	2	2	2	3	3	1
6	2	3	3	1	1	2
7	3	1	2	1	3	2
8	3	2	3	2	1	3
9	3	3	1	3	2	1
10	4	1	3	3	2	1
11	4	2	1	1	3	3
12	4	3	2	2	1	1
13	5	1	2	3	1	3
14	5	2	3	1	2	1
15	5	3	1	2	3	2
16	6	1	3	2	3	1
17	6	2	1	3	1	2
18	6	3	2	1	2	3

表-3 L₉直交表

No.	A	D	E	F
1	1	1	1	1
2	1	2	2	2
3	1	3	3	3
4	2	1	2	3
5	2	2	3	1
6	2	3	1	2
7	3	1	3	2
8	3	2	1	3
9	3	3	2	1

表-4 ノイズ条件

	実験機関	FAのロット
FA1	M	熊本大学
	N	九州大学
FA2	M	熊本大学
	N	九州大学
	N	熊本大学

(3) モルタルの練混ぜ、養生方法および強度試験の方法

モルタルの練混ぜには容量2Lのモルタルミキサを用いた。15打フロー値を測定後、40×40×160(mm)の鋼製型枠にモルタルを流し込み、ラッピングをして約3時間前置きしたのちに、プログラム制御可能な恒温器に入れて加熱養生した。養生後、24時間20°C、相対湿度60%の室内に静置したのち、万能試験機を用いて曲げ強度と圧縮強度を測定した。

(4) システム最適化の方法

結果の整理にあたっては、15打フロー値、曲げ強度および圧縮強度のそれぞれについて実験番号ごとのSN比を算定し、設計パラメータの水準ごとにSN比の平均値を求めた。SN比を算定する際の入力-出力の理想機能としては、基準点比例式またはゼロ点比例式を採用した。最適化は、圧縮強度を優先し、SN比が高くなる水準を組み合わせることで行った。

(5) 最適条件で作製した FAGP の長期強度および耐硫酸性試験

最適条件下で作製した FAGP の材齢 91 日までの圧縮強度および 10%硫酸水溶液中における耐硫酸性について調べた。入力値 V_p/V_{aas} を FA1 については 1.0, FA2 については 0.75 とした。供試体は直径 50 mm, 高さ 100 mm の円柱とした。比較用として水：セメント：標準砂=0.5：1：3 の普通モルタルを作製し、同様の試験を実施した。

4. 研究成果

(1) 設計パラメータの最適水準

図-2, 3に FA1 および FA2 を用いた実験により得られた SN 比の要因効果図を示す。図中の 1~6 あるいは 1~3 の数字は、表-1における水準を表す。例えば、設計パラメータ B の 2 とは、水酸化ナトリウム水溶液の濃度が 6 M であったことを意味する。図-2において、**と*は分散分析により 1%有意および 5%有意であったことを表している。なお、FA2 を用いた実験においては、自由度がなく分散分析ができなかった。基本的に圧縮強度を優先し、SN 比の高くなる組合せを最適水準として選定した結果、表-5に示す組合せが得られた。本研究の範囲において、フライアッシュの種類によらず、設計パラメータの最適水準はほぼ一致した。

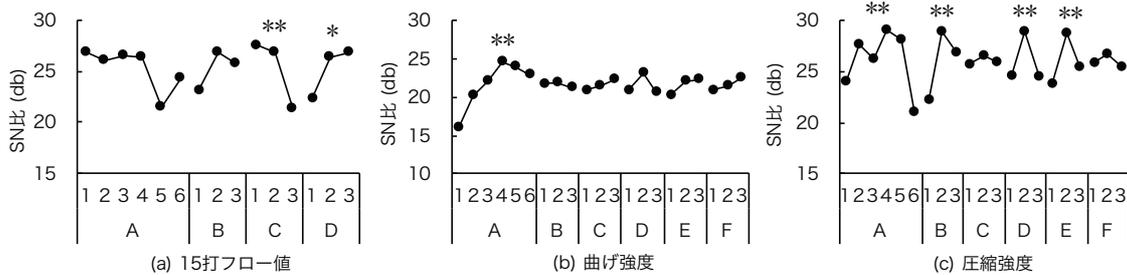


図-2 SN 比に関する要因効果図 (FA1 を用いた実験)

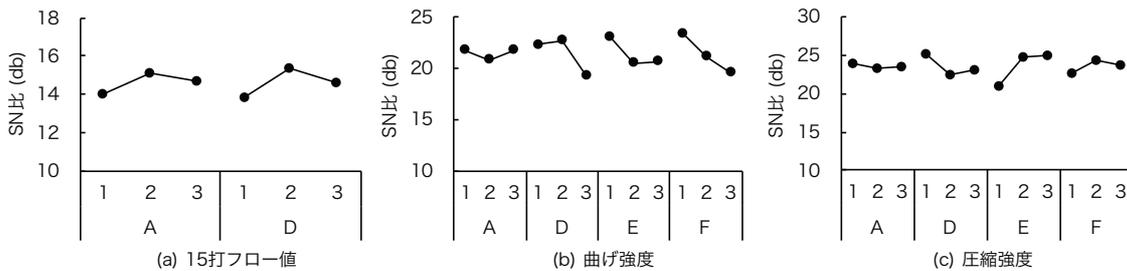


図-3 SN 比に関する要因効果図 (FA2 を用いた実験)

表-5 設計パラメータの最適水準

設計パラメータ	FA1	FA2
A: 水ガラスと水酸化ナトリウム水溶液の質量比	2.0	2.0
B: 水酸化ナトリウムの濃度 (M)	6	6
C: FA に対する高炉スラグ微粉末の置換率	0.15	0.15
D: 練混ぜ時間 (分)	6	4
E: 加熱養生時の保持温度 (°C)	75	75
F: 加熱養生時の積算温度 (°C·h)	1000	1000

(2) 最適条件下における入力値と出力値の関係式

最適水準の組合せの下で入力値 V_p/V_{aas} を変化させて実験を行い、図-4、5に示す入力-出力の関係式を得た。なお、15打フロー値に関しては、アルカリ溶液量が増えるほど15打フロー値も増大することを考慮し、入力値を V_{aas}/V_p として結果を整理した。これらの式を用いることで、任意の強度や15打フロー値に応じたFAGPを造ることが可能となる。

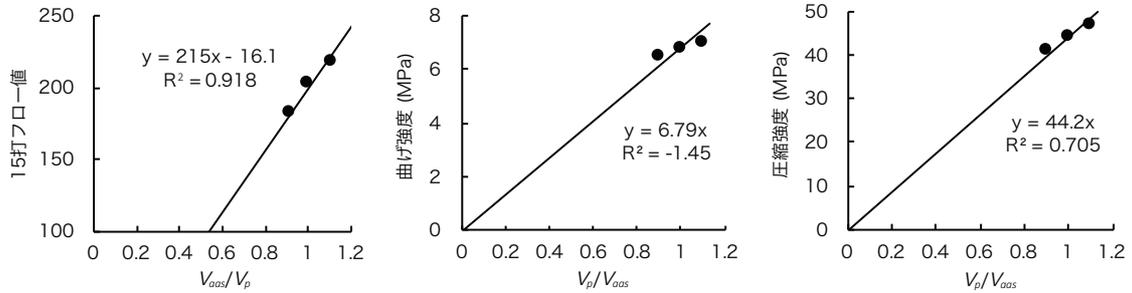


図-4 入力値と出力値の関係 (FA1)

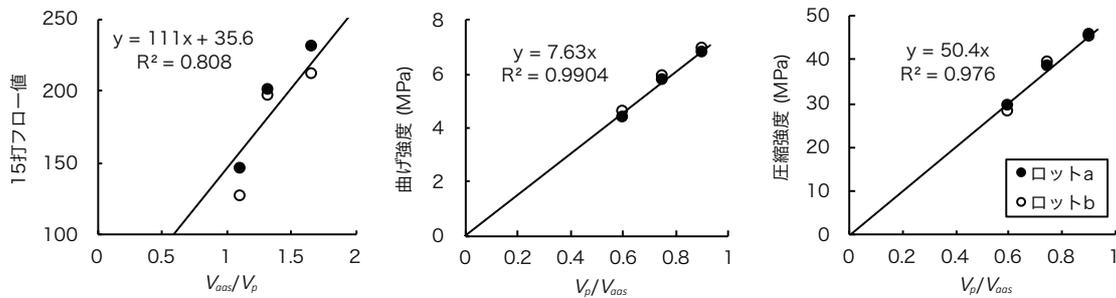


図-5 入力値と出力値の関係 (FA2)

最適条件下で作製したFAGPおよび普通モルタルの材齢91日までの圧縮強度の変化を図-6に、10%硫酸水溶液中における質量変化を図-7に示す。フライアッシュの種類によらず、最適化されたFAGPは安定的な強度発現性および優れた耐硫酸性を有することが明らかとなった。

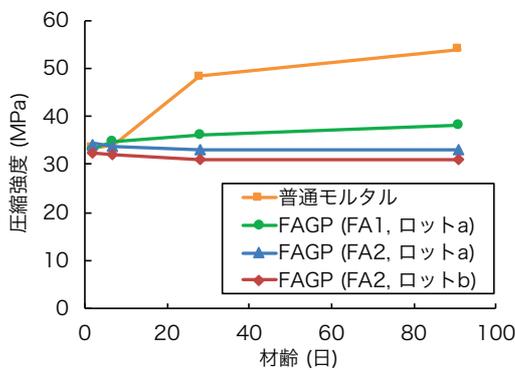


図-6 最適化されたFAGPの圧縮強度の経時変化

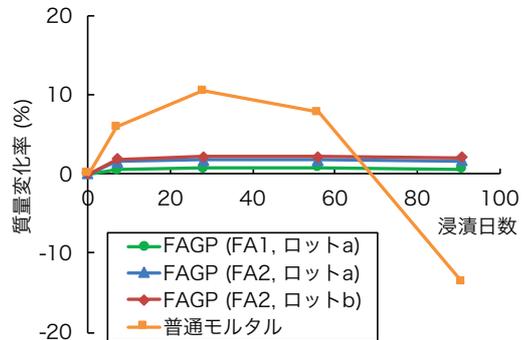


図-7 最適化されたFAGPの10%硫酸水溶液中の質量変化

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

- 1) K. Onoue, T. Iwamoto, Y. Sagawa: Optimization of the design parameters of fly ash-based geopolymer using the dynamic approach of the Taguchi method, Construction and Building Materials, in press (accepted on May 28, 2019)
- 2) 岩本崇臣, 尾上幸造, 佐川康貴: タグチメソッドによるフライアッシュベースジオポリマーの製造条件の最適化に関する研究, 第 6 回九州橋梁・構造工学研究会シンポジウム論文集, 2018
- 3) 岩本崇臣, 尾上幸造, 佐川康貴, 上野貴行: 品質工学的手法を用いたフライアッシュベースジオポリマーの製造条件の最適化, コンクリート工学年次論文集, Vol. 40, No. 1, pp. 1863-1868, 2018
- 4) Iwamoto T, Onoue K, Sagawa Y, Tsutsumi R: Optimization of fly ash based geopolymer using a dynamic approach of the Taguchi method, Proceedings of the International Congress on Polymers in Concrete 2018 (ICPIC2018), pp. 517-524, 2018

〔学会発表〕(計 2 件)

- 1) 山口瑤一郎, 尾上幸造, 岩本崇臣, 佐川康貴, 上野貴行, 浅田純: タグチメソッドを用いたフライアッシュベースジオポリマーの配合および製造条件の最適化に関する基礎的検討, 平成 29 年度土木学会西部支部研究発表会, 2018 年 3 月
- 2) 岩本崇臣, 尾上幸造, 佐川康貴, 太田周, 堤亮祐: タグチメソッドによるフライアッシュベースジオポリマーの配合最適化, 土木学会第 72 回年次学術講演会, 2017 年 9 月

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名: 佐川 康貴

ローマ字氏名: SAGAWA Yasutaka

所属研究機関名: 九州大学

部局名: 大学院工学研究院

職名: 准教授

研究者番号 (8 桁): 10325508

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。