

令和 3 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H01284

研究課題名(和文)カルシウムシリケート系水和物の特性に基づく無機材料と構造のマルチスケールモデル

研究課題名(英文) Multiscale Modeling of Cementitious Materials and Structures based on Properties of Calcium Silicate Hydrates

研究代表者

石田 哲也 (Ishida, Tetsuya)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授

研究者番号：60312972

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 34,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、結合材の種類によって相違するカルシウムシリケート系水和物の特性を考慮したマルチスケール型熱力学モデルと時間依存構成則を構築し、セメント系材料の微視的特性と構造物の巨視的な挙動を直結して評価する数値解析技術の構築を目的とした。様々な物理化学組成を有するフライアッシュの水和反応を統一的な枠組みで記述するモデルを構築し、人工ポゾランと天然ポゾランの両者を含む一般化モデルの構築に成功した。さらに、空隙構造の連結性に着目して、微細構造中における水・イオンの移動機構の解明に試み、空隙率の大小によらず、連結性を担保する限界水量(連結限界水量)が一意に定められることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、ポゾランのガラス組成や物理化学特性に着目し、反応プロセスの一般化モデルを構築して、その空隙構造特性や長期耐久性に関わる物質移動特性を明らかにした。フライアッシュといった産業副産物、火山灰、焼成粘土、メタカオリンに代表される人工ポゾランの積極活用など、世界各国固有の文脈で出現している様々な次世代型建設材料を統一的に扱う研究の方法論は、高い工学的有用性を有するとともに、当該分野の知の体系化に資する他を大きくリードする研究と言える。

研究成果の概要(英文)：The objective of this study was to construct a multiscale thermodynamic model and a time-dependent constitutive law that take into account the properties of calcium silicate hydrates, whose characters are different depending on the type of binder, and to develop a numerical analysis scheme to directly evaluate both the microscopic properties of cementitious materials and the macroscopic behavior of structures. A model describing the hydration reaction of fly ash with various physico-chemical compositions was developed in a unified framework, and a generalized model including both artificial pozzolans and natural pozzolans was successfully constructed. In addition, we focused on the connectivity of pore structures and attempted to elucidate the mechanism of water and ion transport in microstructures, and found that the threshold value of water content that ensures pore connectivity can be uniquely determined regardless of the porosity.

研究分野：工学

キーワード：コンクリート カルシウムシリケート水和物

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年、建設分野において更なる低炭素化・省資源化を図るために、新たなセメント系材料の開発競争が活況を呈している。特に海外では、高炉スラグやフライアッシュの大量使用によるセメントクリンカーの使用量削減、焼成粘土・メタカオリンなどの人工ポゾランの積極活用、アルカリ刺激剤による新たな硬化メカニズムの利用等、国境を越えた研究開発拠点の連携により、これまでに無い新たな建設材料の開発と適用が進みつつある。既存のセメントの概念を大きく変える新材料(結合材)が様々に出現している状況であるが、従来とは異なる化学組成および硬化メカニズムによって非晶質・結晶質の水和物が形成されるということは、新たな機能や性能の付与が期待される反面、長期の耐久性や安定性の検証が未だ十分とは言えず、実構造物への適用に懸念が残る面がある。

そこで、多様化する新材料の特性を構造レベルでの性能・応答評価に直接反映するために、既往の取り扱いから一段掘り下げた理論的・実験的検討によって、主要水和物であるカルシウムシリケート水和物(C-S-H)の微視的キャラクターを直接反映可能なモデル群へと再構築することが必要不可欠である。結合材の化学組成が大きく変わる系において、C-S-Hの特性に関わるマクロなパラメータをその都度修正するといった方法では、もはや対処できない局面を迎えているためである。同時に、ポゾランの系を取り扱うために、C-S-Hに加えカルシウムアルミネートシリケート水和物(C-A-S-H)を対象としてモデルの適用範囲を拡大することが必要となっている。

### 2. 研究の目的

以上の背景をふまえ、本研究は、結合材の種類によって相違するカルシウムシリケート系水和物の特性を考慮したマルチスケール型熱力学/力学モデルと時間依存構成則を構築し、様々な水硬性無機材料の微視的特性と構造物の巨視的な挙動(変形・応答・損傷・劣化)を直結して評価する数値解析技術の構築を目的とした。天然・人工ポゾランや潜在水硬性材料(高炉スラグ)の積極的活用により、これまでに無い省資源・省エネルギー・低炭素型の新材料が世界各国で開発されつつあるが、水和物レベルから記述される数値モデル群と構造工学の融合により、新材料を用いた構造挙動を統一的な枠組みで評価するものである。さらに、水和物制御による新材料の機能・性能を数値解析によってシミュレーションすることで、高い耐久性を有するなど、優れた材料開発につながる機構解明と知見の蓄積を図ることを目的とした。

### 3. 研究の方法

(1) 様々な物理化学組成を有するフライアッシュのポゾラン反応モデルの構築と、水和反応モデルの高度化を行うために、SEM-EDSを用いた相組成分析とアルカリ溶出試験を行い、異なるガラス相の反応特性を定量する。

(2) C-S-H、C-A-S-Hの特性に基づく空隙構造形成モデルを構築するために、温度やpHを変化させた系における水和物のモフォロジーを観察・測定するとともに、FIB-SEMを用いて三次元空隙構造の観察を行う。

(3) 水和物の特性によって変化する空隙構造の連結性に着目して、微細構造中における水・イオンの移動機構の解明とモデル化を行う。水銀圧入法やX線CT等の手法によって連続空隙とインクポトル空隙の分離を試みる。

### 4. 研究成果

(1) 様々な物理化学組成を有するフライアッシュのポゾラン反応モデルと水和反応モデルの高度化

異なる火力発電所から排出されたフライアッシュを入手し、フライアッシュのキャラクターリゼーション結果から、ポゾラン反応過程を追跡する一般化モデルの構築に成功した。フライアッシュのキャラクターリゼーションとして、SEM-EDSを用いた新たな相組成分析手法を開発した(図1)。元素マッピングの結果に対してSi, Ca, Alなどの閾値を設けることで、石英、ムライトなどの結晶質、ならびに非晶質としてSiリッチなアモルファス成分、Alリッチなアモルファス成分に分離することに成功した。さらに、窒素吸着法により測定される比表面積は未燃カーボン量によって大きく相違することを突き止め、画像解析による比表面積測定法の優位性について検討を行った。以上の手法により同定されるフライアッシュの特性をパラメータとして水和反応モデルに取り込み、従来は説明ができなかった異なる種類のフライアッシュに対して、ポゾラン反応を精度良く推定することが可能であることを示した。

また、解析パラメータの妥当性を検証するために、成分を制御して合成ガラスを作製しアルカリ溶解試験を行った。さらに、JISフライアッシュII種灰から大きく異なる組成を有するインドで流通するフライアッシュ8種類について、解析モデルが適用可能か検討を行った。その結果、SiリッチおよびAlリッチなアモルファスの反応速度および温度依存性について妥当性が検証されるとともに、ガラス相の種類と割合を適切に入力することで、多様な品質のパラツキを有するフライアッシュの反応プロセスを概ね評価できることを確認した。また、探索的な検討ではあるが、天然ポゾランである火山灰の反応についても、フライアッシュと同様、ガラス相の割合と粉体粒径を入力した解析によって追跡可能であることを突き止めた。提案モデルの高い一般性を示す結果を得ることが出来た。

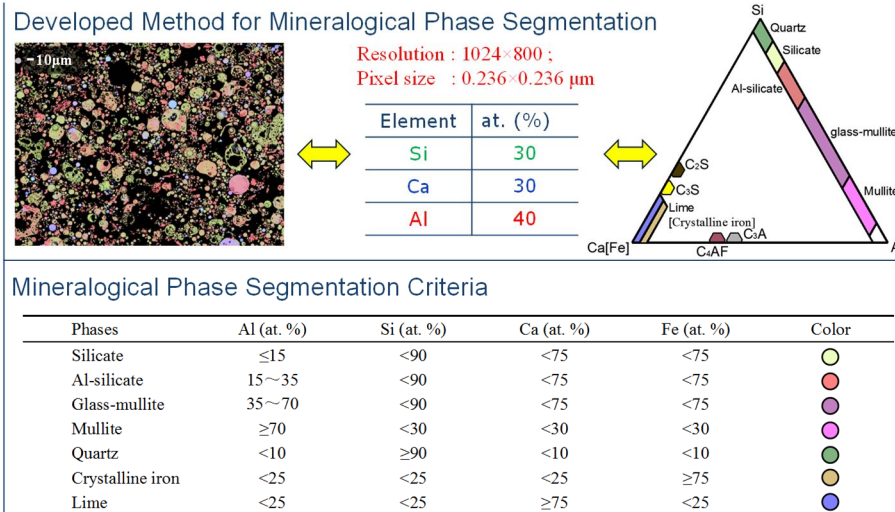


図 1

( 2 ) C-S-H、C-A-S-H の特性に基づく空隙構造形成モデルの構築

水和途上の条件によって二次元的・三次元的に形成される C-S-H の相違を、pH を変化させた溶液中で成長する C-S-H の SEM 画像により把握することに成功した。pH が比較的低い条件においては、セメント粒子表面での二次元的な成長が、また高い条件では三次元的な形態を取ることを確認した。この知見に基づき、普通ならびに低熱ポルトランドセメントとフライアッシュの相互作用を加味した水和反応モデルを構築した。またフライアッシュ近傍における C-S-H の化学組成と空隙構造を把握するために、SEM-EDS および FIB-SEM を用いた測定を実施した。SEM-EDS 分析により、場所によってカルシウムシリカ比が大きく相違すること、また FIB-SEM による観察から、内部ポゾラン反応相と外部 C-S-H の三次元構造が異なることを確認した。

( 3 ) 空隙構造の連結性に着目した微細構造中における水・イオンの移動機構の解明とモデル化

実際の塩害環境に暴露されたコンクリート供試体を対象とした解析を実施し、コンクリート内部への塩分浸透量を過小評価している点が明らかとなった。そこで、空隙の連結性に関する最新の知見を網羅的に収集し、水銀圧入法と X 線 CT スキャンの結果より全空隙率と連続空隙率の関係を再整理し、空隙連結度を毛細管空隙とゲル空隙の和である空隙率の関数として定式化した。また、塩化物イオンのクラスターサイズや空隙壁面の影響などの微視的メカニズムの観点から、塩分移動限界となる閾空隙半径を 1.5nm と再設定した。続いて、空隙内の液状水の連結性を考慮するために、格子ボルツマン法を用いた既往の解析結果を再吟味し、飽和度と空隙率の積と連続空隙中の連続した液状水の比の関係として整理することで、空隙率の大小によらず、連結性を担保する限界水量（連結限界水量）が一意に定められることを見出した（図 2）。

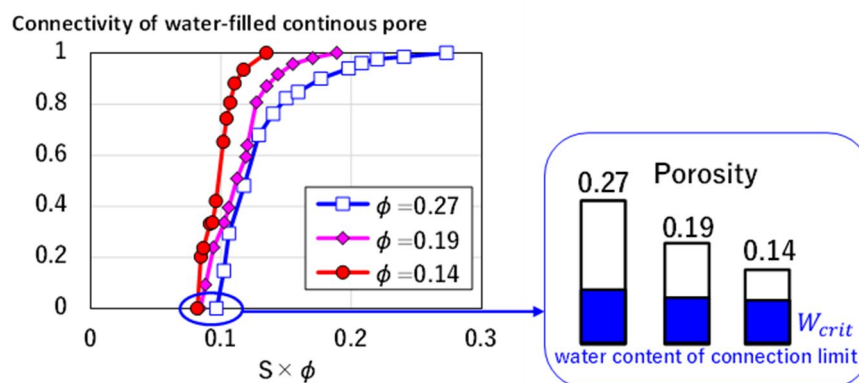


図 2

( 4 ) 水和反応と空隙構造に立脚した膨張コンクリートのポロメカニクス

収縮ひび割れリスクを低減するために、膨張材の活用が実設計・施工で進みつつある。エトリンサイト系、石灰系膨張材の両者の化学反応をモデル化し、ポロメカニクスを援用した構成則を新たに定式化することで、鉄筋比の異なる拘束試験体に対して、数値計算により膨張挙動を捉えることに成功した。既存の複合水和発熱モデルに、アウイン、無水石膏、遊離石灰の反応を追加

し、セメントと膨張材の反応を一括して解くシステムを整備したうえで、反応した膨張材の体積から膨張圧を計算した。その圧力を、収縮駆動力などと重ね合わせる形で既存の時間依存構成則に組み込み、異方性を考慮したポロメカニクスモデルを援用することによって、様々な拘束条件下にある膨張コンクリートの挙動を妥当に評価することに成功した（図3）

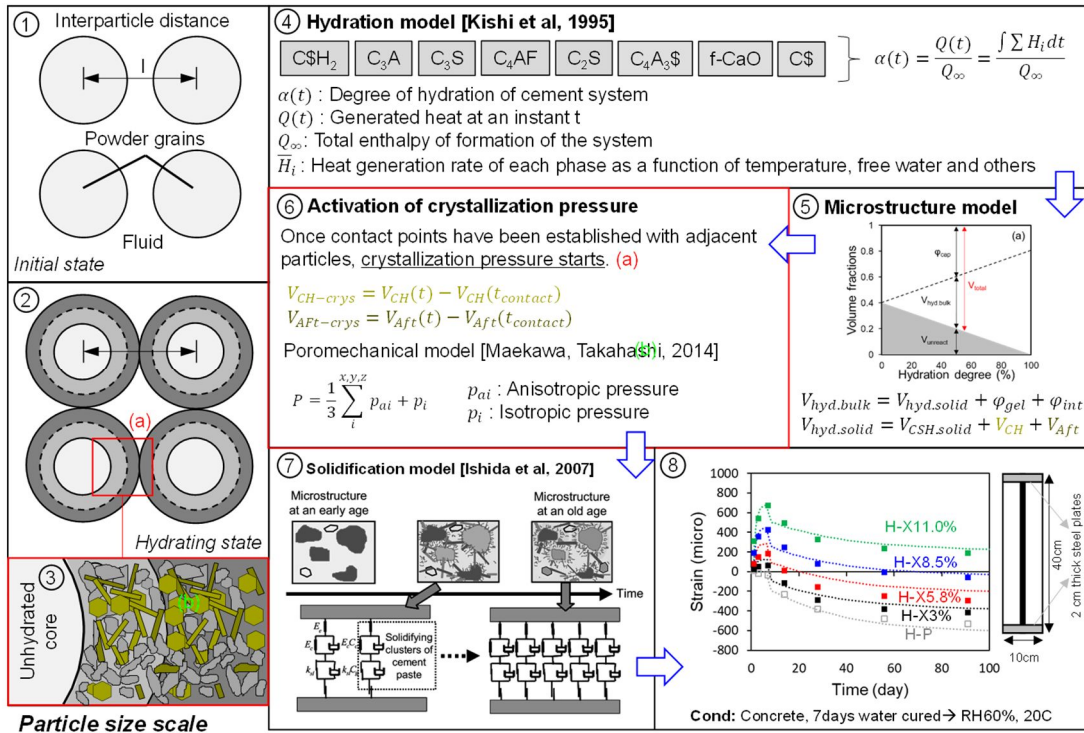


図 3

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計15件（うち査読付論文 15件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 12件）

1. 著者名 Ishida Tetsuya, Wang Tiao	4. 巻 3
2. 論文標題 Future of multiscale modelling of concrete - Toward a full integration of cement chemistry and concrete structural engineering	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 RILEM Technical Letters	6. 最初と最後の頁 17~24
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.21809/rilemtechlett.2018.60	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Wang Tiao, Ishida Testuya, Gu Rui	4. 巻 190
2. 論文標題 A comparison of the specific surface area of fly ash measured by image analysis with conventional methods	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Construction and Building Materials	6. 最初と最後の頁 1163~1172
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.conbuildmat.2018.09.131	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 温品達也、高橋佑弥、石田哲也	4. 巻 41
2. 論文標題 塩化物イオンの長期浸せき浸透特性および見掛けの拡散係数の低減度予測	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 コンクリート工学年次論文集	6. 最初と最後の頁 737~742
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Pakpoom LIMTONG、石田哲也、渡邊賢三	4. 巻 41
2. 論文標題 AN EXPERIMENTAL STUDY OF THE COMBINED EFFECT OF BINDER TYPES AND CURING METHODS ON CHLORIDE INGRESS UNDER ACTUAL ENVIRONMENTAL CONDITION	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 コンクリート工学年次論文集	6. 最初と最後の頁 785~790
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kinomura Koji, Ishida Tetsuya	4. 巻 9
2. 論文標題 Extensive Modeling of Peculiar Hydration in Fine Micro-Pore Structures Applicable to Integrated Thermodynamic Analysis for Portland Cement	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 2137 ~ 2137
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/app9102137	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 木ノ村 幸士、石田 哲也	4. 巻 71
2. 論文標題 長期材齢後の高温環境がフライアッシュ混合モルタルの諸物性に及ぼす影響	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 セメント・コンクリート論文集	6. 最初と最後の頁 161 ~ 168
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.14250/cement.71.161	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ishida Tetsuya, Pen Kolneath, Tanaka Yasushi, Kashimura Kosuke, Iwaki Ichiro	4. 巻 8
2. 論文標題 Numerical Simulation of Early Age Cracking of Reinforced Concrete Bridge Decks with a Full-3D Multiscale and Multi-Chemo-Physical Integrated Analysis	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 394 ~ 394
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/app8030394	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Y. Luan, S. Asamoto and T. Yoneda	4. 巻 39
2. 論文標題 An experimental study of shrinkage behavior of bulk hydrophobic mortar	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 コンクリート工学年次論文集	6. 最初と最後の頁 409-414
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Asamoto Shingo, Furuta Haruka, Luan Yao, Yoneda Taiju	4. 巻 29
2. 論文標題 撥水材を混入したセメント系材料の内部撥水性と材料特性の検討	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 コンクリート工学論文集	6. 最初と最後の頁 11～19
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3151/crt.29.11	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Wang Tiao, Ishida Tetsuya	4. 巻 122
2. 論文標題 Multiphase pozzolanic reaction model of low-calcium fly ash in cement systems	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Cement and Concrete Research	6. 最初と最後の頁 274～287
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cemconres.2019.04.015	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 石井 博典、石田 哲也、細田 暁、田中 泰司、佐藤 和徳	4. 巻 66A
2. 論文標題 高炉セメントを用いた高耐久RC床版の開発, 性能検証および現場実装	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 構造工学論文集 A	6. 最初と最後の頁 800～812
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11532/structcivil.66A.800	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ueda Hiroshi, Sakai Yuya, Kinomura Koji, Watanabe Kenzo, Ishida Tetsuya, Kishi Toshiharu	4. 巻 18
2. 論文標題 Durability Design Method Considering Reinforcement Corrosion due to Water Penetration	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Advanced Concrete Technology	6. 最初と最後の頁 27～38
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3151/jact.18.27	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Wang Tiao, Ishida Tetsuya, Gu Rui	4. 巻 243
2. 論文標題 A study of the influence of crystal component on the reactivity of low-calcium fly ash in alkaline conditions based on SEM-EDS	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Construction and Building Materials	6. 最初と最後の頁 118227 ~ 118227
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.conbuildmat.2020.118227	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kinomura Koji, Ishida Tetsuya	4. 巻 114
2. 論文標題 Enhanced hydration model of fly ash in blended cement and application of extensive modeling for continuous hydration to pozzolanic micro-pore structures	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Cement and Concrete Composites	6. 最初と最後の頁 103733 ~ 103733
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cemconcomp.2020.103733	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Wang Tiao, Ishida Tetsuya, Gu Rui, Luan Yao	4. 巻 267
2. 論文標題 Experimental investigation of pozzolanic reaction and curing temperature-dependence of low-calcium fly ash in cement system and Ca-Si-Al element distribution of fly ash-blended cement paste	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Construction and Building Materials	6. 最初と最後の頁 121012 ~ 121012
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.conbuildmat.2020.121012	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 7件)

1. 発表者名 Rungrawee Wattanapornprom and Tetsuya Ishida
2. 発表標題 COMPREHENSIVE NUMERICAL SYSTEM FOR PREDICTING AIRBORNE CHLORIDE PENETRATION IN CONCRETE WITH DIFFERENT CURING CONDITION UNDER ACTUAL ENVIRONMENTAL CONDITIONS
3. 学会等名 RILEM week 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 Tiao Wang and Tetsuya ISHIDA
2. 発表標題 Two-phase model for predicting temperature-dependent pozzolanic reaction of siliceous fly ash in cement systems
3. 学会等名 RILEM week 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Tetsuya ISHIDA, Kolneath Pen, Yasushi Tanaka, Kosuke Kashimura, Ichiro Iwaki
2. 発表標題 Numerical Simulation Of Early Age Cracking Of Reinforced Concrete Bridge Decks With A Full-3D Multi-Scale And Multi-Chemo-Physical Integrated Analysis
3. 学会等名 RILEM week 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Tetsuya ISHIDA and Ichiro IWAKI
2. 発表標題 Multi-scale and multi-chemo-physical modeling of cementitious composite and its application to early age crack assessment of reinforced concrete slab decks (Plenary)
3. 学会等名 Second International RILEM/COST Conference on Early Age Cracking and Serviceability in Cement-based Materials and Structures (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 WANG Tiao, Tetsuya ISHIDA and Yuya TAKAHASHI
2. 発表標題 Modelling of temperature-dependent pozzolanic of fly ash in blended cement paste
3. 学会等名 10th ACI/RILEM International conference on cementitious materials and alternative binders for sustainable concrete (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 木ノ村幸二, 石田哲也
2. 発表標題 長期的な熱作用がフライアッシュ混合モルタルの硬化後物性に及ぼす影響
3. 学会等名 土木学会第72回年次学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Tomoya Furukawa, Tetsuya Ishida, Eissa Fathalla, Jie Fang
2. 発表標題 A proposal of data driven maintenance of RC decks focusing on deterioration mechanism
3. 学会等名 EASEC16 (国際学会) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Koichi Maekawa, Zhao Wang and Tetsuya Ishida
2. 発表標題 Lifetime assessment of structural concrete: Multi-scale and multi-chemo-mechanistic approach
3. 学会等名 IALCCE 2020 (国際学会) (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	高橋 佑弥  (Takahashi Yuya)  (10726805)	東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・講師   (12601)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	浅本 晋吾  (Asamoto Shingo)  (50436333)	埼玉大学・理工学研究科・准教授    (12401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関