

令和 3 年 6 月 1 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2020

課題番号：19K22003

研究課題名(和文)二酸化炭素低排出・吸収性能をもつジオポリマーの開発への挑戦

研究課題名(英文) Challenge of developing a geopolymer with low carbon dioxide emission and absorption properties

研究代表者

五十嵐 豪 (IGARASHI, Go)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・特任講師

研究者番号：10733107

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：二酸化炭素排出量の低減に着目したジオポリマーの製造、硬化プロセスの開発のための萌芽的研究として、主に、ケイ酸マグネシウムを原料としたジオポリマーの反応メカニズムおよび性能発現メカニズムの解明に取り組み、固化処理に適した高性能ジオポリマーの開発に利用できる材料物性の取得を行った。軽焼酸化マグネシウムの反応性試験、フレッシュペーストのフロー試験、圧縮試験、熱重量分析、粉末X線回折分析の結果から、軽焼酸化マグネシウムとシリカフェームの混合比によらず、材齢の進行に伴い、圧縮強度、ヤング率が増加することが確認され、その発現には、水酸化マグネシウムとM-S-H相の生成によることが推察された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現状のコンクリート工学(建築・建設材料学)分野において、セメントの使用量の削減は、建築・建設分野において二酸化炭素排出量の削減に大きく貢献できるため、産業副産物によるセメントの一部代替や、セメントフリーのジオポリマーの開発が取り組まれている。この現状を踏まえ、マグネシウムを原料とした硬化体は、ポルトランドセメントと比較して、二酸化炭素排出量の低減だけにとどまらず、二酸化炭素を吸収できる建築・建設材料の発明につながる可能性を見出せるという観点から今後のコンクリート工学(建築・建設材料学)分野における新たな材料開発・材料評価手法の飛躍的な発展に貢献できることが期待される。

研究成果の概要(英文)：As budding research for the development of geopolymer production and curing processes focusing on the reduction of carbon dioxide emissions, we have mainly worked on the elucidation of the reaction mechanism and performance expression mechanism of geopolymers made from magnesium silicate and obtained material and physical properties that can be used for the development of high-performance geopolymers suitable for solidification treatment. We obtained the physical properties of the geopolymer. From the results of reactivity test of lightly burnt magnesium oxide, flow test of fresh paste, compression test, thermogravimetric analysis, and powder X-ray diffraction analysis, it was confirmed that the compressive strength and Young's modulus increased with the progress of material age regardless of the mixing ratio of lightly burnt magnesium oxide and silica fume. The increase in compressive strength and Young's modulus was attributed to the formation of magnesium hydroxide and M-S-H phase.

研究分野：コンクリート工学

キーワード：低炭素建設材料 M-S-H 水酸化マグネシウム

## 1. 研究開始当初の背景

2011年に起こった東京電力福島第一原子力発電所の事故により生じた、従来の放射性廃棄物とは異なった、破損した燃料に由来した放射性核種や海水成分が含まれた大量の高線量の事故廃棄物を安全に処理・処分できる技術開発への取り組みが急速に進められている<sup>1)</sup>。その一方で、2015年に開催されたCOP21（国連機構変動枠組条約第21回締約国会議）においては、正式にパリ協定が採択され、京都議定書に代わり、2020年以降の温室効果ガス排出削減のための新たな国際枠組みが合意された。パリ協定が歴史上はじめてすべての国が参加する公平な合意であることから明らかなように、我が国にとっても、世界にとっても、気候変動問題への対応は、喫緊の課題である<sup>2)</sup>。

これらの背景から、コンクリート工学（建築・建設材料学）分野においては、ジオポリマーの実用化への取り組みが急速に進められている。ジオポリマーとは、アルミナシリカ粉末などの活性フィラーやアルカリシリカ溶液となる刺激剤との縮重合反応によって形成される固化体の総称である。ジオポリマーの最大の特長は、製造時の二酸化炭素排出量が少ないことや各種産業副産物が有効利用できることから、気候変動問題に対応できる点である。加えて、セメント・コンクリートの劣化原因となるアルカリシリカ反応、強酸、高温に対する抵抗性にも優れていることから、長期的な安定性が求められる用途、特に、放射性廃棄物の固化処分に利用することが検討されている。

## 2. 研究の目的

ジオポリマーの材料となる活性フィラーにはさまざまな選択肢があり、その中で、ケイ酸マグネシウムを原料とするジオポリマーは、その製造、硬化プロセスにおいて二酸化炭素排出量の低減が見込まれるだけでなく、吸収できる材料（カーボンネガティブマテリアル）となる可能性があるが、いまだその製造、硬化プロセスの実用化は実現されておらず、研究分野の成熟度としては萌芽期の段階といえる<sup>3)</sup>。これらの背景から、二酸化炭素排出量の低減に着目したジオポリマーの製造、硬化プロセスの開発のための萌芽的研究として、主に、ケイ酸マグネシウムを原料としたジオポリマーの反応メカニズムおよび性能発現メカニズムの解明に取り組み、固化処理に適した高性能ジオポリマーの開発に利用できる材料物性の取得を目的とした。

## 3. 研究の方法

### (1) 軽焼酸化マグネシウムの反応性試験

硬化体を作製するための原料となる工業用軽焼酸化マグネシウムを選定するために、0.07Mクエン酸との反応性試験を行った。

### (2) フレッシュ性状試験

硬化体を作製するための粉体組成を選定するために、軽焼酸化マグネシウムとシリカフェュームの混合比（2:3, 1:1, 3:2）を変えた水粉体比0.55のフレッシュペーストのフロー試験を行った。

### (3) 硬化体の圧縮試験

硬化体の機械的性質を取得するために、フレッシュ性状と同一の調合の半径50mm×高さ100mmの円柱供試体を作製し、圧縮試験を行った。

### (4) 硬化体の反応率分析

硬化体中の粉体の反応率を分析するために、小片の硬化体を作製し、材齢1, 3, 7日において水和停止を行い、機器分析に供した。水和停止は、小片を1mm程度に粉砕し、イソプロパノールに30分浸漬した後、吸引ろ過により固液分離を行い、固体分を再度イソプロパノールに7日間浸漬し、吸引ろ過により再度固液分離を行った。得られた固体分を7日間真空乾燥を行った。

## 4. 研究成果

軽焼酸化マグネシウムの反応性試験の結果を図1に示す。図に示されるように、MgO<sub>7</sub>が著しく反応性が低いのが確認できる一方、その他のMgOについては、あまり差が出ない傾向が確認された。この結果から、ペーストのフレッシュ性状の確認には、MgO<sub>7</sub>とMgO<sub>4</sub>を使用することとした。フレッシュペーストのフロー値の結果を図2に示す。凡例の%については、高性能減水剤の粉体質量に対する添加率である。図に示されるように、反応性試験において反応性の低かったMgO<sub>7</sub>については、十分なフロー値が得られ、減水剤の増量によってフロー値が増加する一方、MgO<sub>4</sub>については、十分なフロー値が得られなかった。この結果から、硬化体の物性の評価にはMgO<sub>7</sub>を用いた調合を用いることとした。圧縮試験から得られた圧縮強度、ヤング率の経時変化を図3、図4にそれぞれ示す。図に示されるように、本検討における軽焼酸化マグネシウムとシリカフェュームの混合比ではすべて、若材令において増加する傾向が確認された。もっとも高い圧縮強度、ヤング率を示すのは、混合比1:1の調合であった。この調合における熱重量分析、粉末

X線回折の測定結果を図5、図6にそれぞれ示す。図5に示されるように、材齢の進行に伴って、200°C付近において分解する水和物が生成していることが推察される。一方、図6に示されるように、主要な結晶相は、水酸化マグネシウム (Brucite) が確認できる。両図から、材齢1日未満において水酸化マグネシウムの生成によって硬化し、その後 M-S-H 相の生成によって強度増進すると推察された。

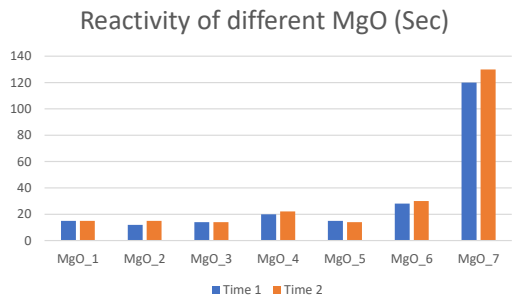


図1 軽焼酸化マグネシウムの反応性

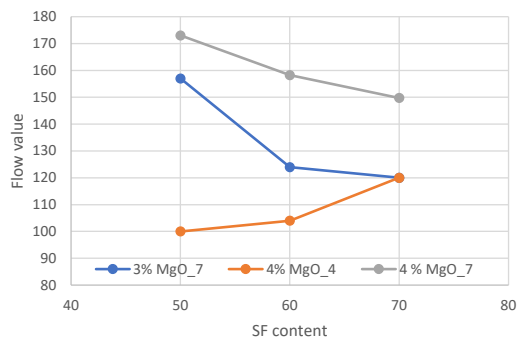


図2 フレッシュペーストのフロー値

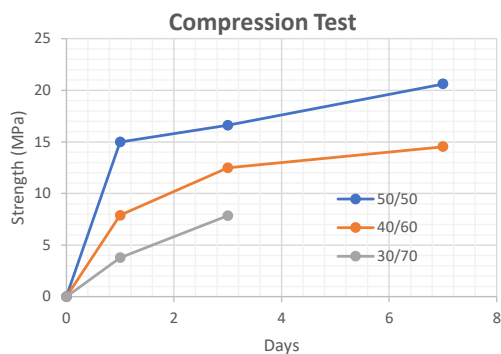


図3 硬化体の圧縮強度

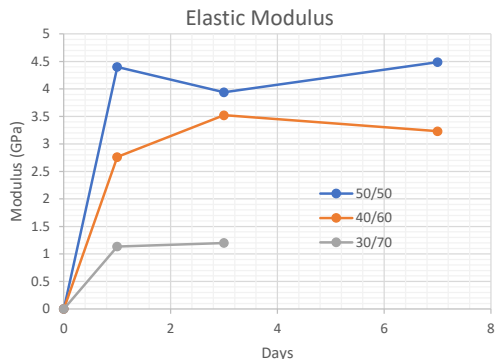


図4 硬化体のヤング率

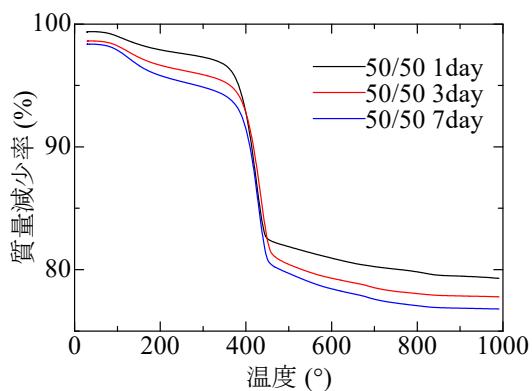


図5 熱重量曲線

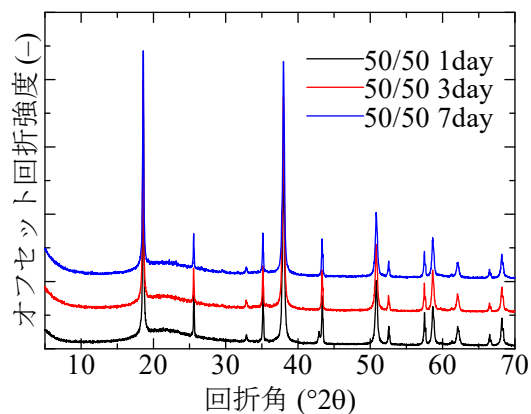


図6 XRD パターン

現状のコンクリート工学（建築・建設材料学）分野において、セメントの使用量の削減は、建築・建設分野において二酸化炭素排出量の削減に大きく貢献できるため、産業副産物によるセメントの一部代替や、セメントフリーのジオポリマーの開発が取り組まれている。この現状を踏まえ、マグネシウムを原料とした硬化体の作製および諸物性の取得への挑戦は、ポルトランドセメントと比較して、二酸化炭素排出量の低減だけにとどまらず、二酸化炭素を吸収できる建築・建設材料の発明につながる可能性を見出せるという観点から今後のコンクリート工学（建築・建設材料学）分野における新たな材料開発・材料評価手法の飛躍的な発展に貢献できることが期待される。

参考文献

- 1) 国際廃炉研究開発機構 (2016), 固体廃棄物の処理・処分に関する研究開発中間報告,  
[http://irid.or.jp/\\_pdf/201509to10\\_12.pdf](http://irid.or.jp/_pdf/201509to10_12.pdf)
- 2) 環境省 (2016) , COP21 の 成 果 と 今 後 ,  
[http://www.env.go.jp/earth/ondanka/cop21\\_paris/paris\\_conv-c.pdf](http://www.env.go.jp/earth/ondanka/cop21_paris/paris_conv-c.pdf)
- 3) E. Gartner et al. (2014), A Novel Atmospheric Pressure Approach to the Mineral Capture of CO<sub>2</sub> from Industrial Point Sources, Thirteenth annual conference on carbon capture, utilization and storage

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Kolneath Pen, Tetsuya Ishida, Yuya Takahashi, Go Igarashi, Shinya Ito   |
| 2. 発表標題<br>Development of expansive agent model in a multi-scale thermodynamic framework based on hydration and microstructure formation |
| 3. 学会等名<br>International RILEM Conference on Early-age and Long-term Cracking in RC Structures (国際学会)                                    |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Mayank Gupta, Go Igarashi, Jose Granja, Miguel Azenha, Tetsuya Ishida   |
| 2. 発表標題<br>Effect of expansive additives on the early age elastic modulus development of cement paste by ambient response method (ARM) |
| 3. 学会等名<br>International RILEM Conference on Early-age and Long-term Cracking in RC Structures (国際学会)                                  |
| 4. 発表年<br>2021年  |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

|       | 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号)                     | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号)                             | 備考 |
|-------|---|---|----|
| 研究分担者 | 山田 一夫<br><br>(YAMADA Kazuo)<br><br>(30590658) | 国立研究開発法人国立環境研究所・福島支部・主任研究員<br><br><br><br>(82101) |    |

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 |
|---------|---------|