

氏名(本籍地)	山下牧生
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第 9795 号
学位授与年月日	令和 3年 3月 25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	廃セッコウボードを利用したクリンカー中の三酸化硫黄がセメントの諸特性に与える影響

主査	筑波大学教授(連係大学院)	Ph.D.	土谷浩一
副査	筑波大学教授(連係大学院)	博士(理学)	森 孝雄
副査	筑波大学准教授	博士(工学)	鈴木義和
副査	筑波大学准教授(連係大学院)	博士(工学)	渡邊育夢
副査	東京工業大学名誉教授	工学博士	坂井悦郎

論 文 の 要 旨

ポルトランドセメントは、我々の生活のインフラ整備に不可欠なコンクリートの基礎材料として汎用的に使用されている。石灰石、粘土、けい石および鉄原料を一定の比率で調整した調合原料を、約 1000℃の予熱炉(プレヒーター)と約 1450℃のロータリーキルン内で化学反応させた焼結体がセメントクリンカーである。セメント製造には、クリンカーの焼成に 700 Mcal/t、粉碎等に 105kWh/t という多大なエネルギーを要する。セメントクリンカーは、主にエーライト(Ca_3SiO_5)、ビーライト(Ca_2SiO_4)、アルミネート $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ 、フェライト($\text{Ca}_2(\text{Al}, \text{Fe})_2\text{O}_5$)の 4 種類の鉱物で構成されており、これにセッコウ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$)を添加して粉碎することでポルトランドセメントとなる。各々のクリンカー鉱物は水と反応して固化するが、反応速度や強さ発現性に各々特性があり、主としてこの量比がセメント全体の水和特性や物性に影響する。

セメント産業は、その製造工程の特徴を生かして、石炭灰や建設汚泥など各種産業廃棄物を原料として積極的に利用している。本研究は建築物の内装材として用いられ、その廃棄物処理が問題となっているセッコウボードをセメントクリンカーの原料として利用するために、クリンカー中の三酸化硫黄(SO_3)がクリンカー自体の特性や水和により生成するセメントの諸特性に与える影響について調べたものである。

第 1 章ではクリンカー鉱物やその水和反応の特徴について説明した後、セメント産業における二酸化炭素削減への取り組みと、廃棄物処理の現状、さらに廃セッコウボードをクリンカー原料として使用する際の問題点と既往の研究について述べ、本研究の目的について説明している。

第 2 章では実験室レベルで SO_3 を増加させた原料を電気炉で焼成したクリンカーについて、その水和反応の特徴とセメントの特性について調べた結果について述べている。クリンカー中の SO_3 が増加するとエーライトの水和が促進されること、クリンカー中の SO_3 が増加しても添加セッコウ量やアルミネート量によって強度や乾燥収縮などのセメントの特性を調整可能な事が示されている。

第 3 章ではクリンカー中のフッ素(F)や三酸化硫黄(SO₃)量を高める事による焼成温度低下の可能性について調べた結果について述べられている。クリンカー中のフッ素、塩素や硫黄は鉍化剤と呼ばれ、焼成工程で生成する液相の生成温度と粘度を低下させ反応速度を促進させる事が知られている。ここではクリンカー中の F を 670mg/kg、SO₃ を 2.2%と高める事で現行の焼成温度 1450℃よりも 100℃低下できるとしている。

第 4 章では実機のカムルンに廃セッコウボードを投入して三酸化硫黄(SO₃)濃度を高めたクリンカーの特性について調べている。クリンカー中の各鉍物相の量と各成分濃度の関係を与える Bogue 式についてシリケート中の SO₃ の固溶を考慮に入れた修正 Bogue 式を提案している。また三菱マテリアル株式会社九州工場のロータリーカムルンで焼成したクリンカーを用いたセメントについて、硬化時間、強度、乾燥収縮などが電気炉で実験的に焼成したクリンカーを用いたものと同様である事を明らかにしている。

第 5 章ではクリンカー中の三酸化硫黄(SO₃)がその粉砕特性、および二酸化炭素排出量に及ぼす影響について調べた結果について述べている。第 3 章で述べた鉍化剤添加により焼成温度は低下するが、SO₃ 量が多いクリンカーは粉砕により多くのエネルギーを要する事が知られている。その原因としては SO₃ 添加により粉砕性の悪いビーライトの量の増加やビーライト相自体の強度が増加する事が考えられる。ここでは SO₃ 量を変化させたクリンカー中のビーライト相の強度をマイクロビッカース硬さ試験を用いて測定する事で、ビーライトの強度は SO₃ に依存せず、粉砕性低下はクリンカー中のビーライト量が増加するためである事が示されている。

第 6 章では各章の内容を総括するとともに、廃棄物処理、二酸化炭素排出量削減の観点からの考察が加えられている。廃セッコウボードの処理量をクリンカー1 トンあたり 24.4kgとすると焼成温度が 100℃低下する。これによる二酸化炭素の排出削減量はクリンカー1 トンあたり 4.1～6.9kgであり、クリンカー生産量を勘案すると年間 21～34 万トンの二酸化炭素削減が可能であると結論づけている。

審 査 の 要 旨

〔批評〕

本論文はセメント産業における二酸化炭素排出量の削減と廃セッコウボードという廃棄物処理の促進に関連して、セメントクリンカー中の三酸化硫黄(SO₃)濃度増加がクリンカーの鉍物組成、水和反応に与える影響、さらにセメントの強度、乾燥収縮などの物理的特性について調べたものである。

まず実験室レベルで三酸化硫黄(SO₃)濃度を増加させた電気炉を用いて焼成したクリンカーの水和反応の特徴とセメントの強度について、添加セッコウ量やアルミネート量の調整で強度などのセメントの物性を維持できる事を明らかにした。また、鉍化剤としてフッ素を添加する事で、クリンカー焼成温度を 100℃低下出来る事を示した。さらに工場におけるロータリーカムルンの実機に廃セッコウボードを投入して焼成したクリンカーについて、主要な各相の格子定数や質量分率の SO₃ 依存性を明らかにし、鉍物組成の算出法である Bogue 式の修正を提案するとともに、工業的に安定してクリンカー中の三酸化硫黄(SO₃)濃度を高める事ができる事を示した。三酸化硫黄(SO₃)を現状より 1%高めると年間 122 万トンもの廃セッコウボード処理が可能になり、これによる二酸化炭素の排出削減量クリンカー1 トンあたり 4.1～6.9kgであり、年間 21～34 万トンの二酸化炭素削減が可能であると結論づけている。

以上、本論文で述べられている研究成果は学術的にも、工業的にも重要であり、さらにセメント産業における廃棄物処理の促進及び二酸化炭素排出量削減という喫緊の環境問題にも関連した重要な知見が得られている。

〔最終試験結果〕

令和3年2月10日、数理物質科学研究科学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。