セメント水和物の結晶構造と水の挙動に関する研究

国立大学法人 名古屋工業大学

説明者：安松 太陽　名古屋工業大学大学院 工学研究科博士前期課程 工学専攻 環境都市プログラム

研究目的

- CO_2排出削減に向けた**補助セメント系材料（SCM）**の使用増加
  - ↳ 体積変化が従来のものより著しい
- 放射線廃棄物処理にむけた**低アルカリセメント**の開発
  - ↳ 環境への影響が未知数



出典：セメント協会「セメントとは」（2026.8.19閲覧）

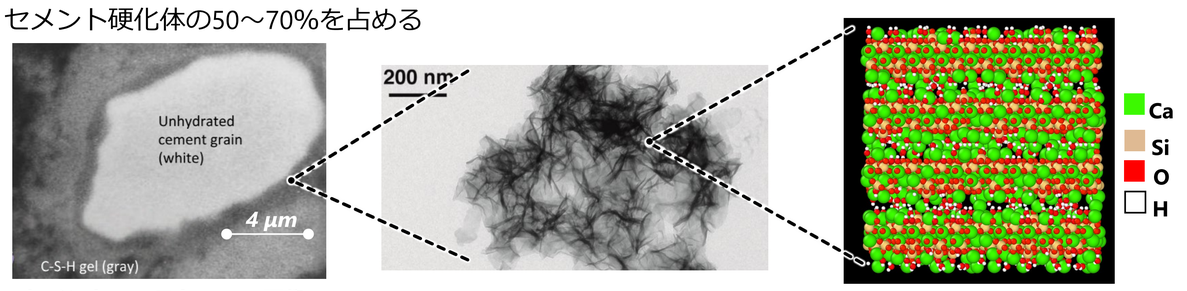
「経験工学」を超え、化学的根拠に基づく
「社会的要求に応じた予測可能な材料設計」へ

→ 実験では捉えられない**セメント系材料の原子レベルでの理解が必要不可欠**

C-S-H

Kumar et al. J. Phys. Chem. C 2017, 121, 17188–17196
Pinson et al. Phys. Rev. Applied 2015, 3, 064009.

- **Calcium Silicate Hydrate**：ケイ酸カルシウム水和物
- セメントの水和物、**低結晶性のゲル状の水和物**
- セメント硬化体の50～70%を占める
- **tobermorite**と類似性が高い
- **Ca/Si＝1.5~1.7**（tobermorite：**Ca/Si =0.8~1.2**）



セメントペーストのSEM画像　C-S-HのTEM画像　C-S-Hの原子構造

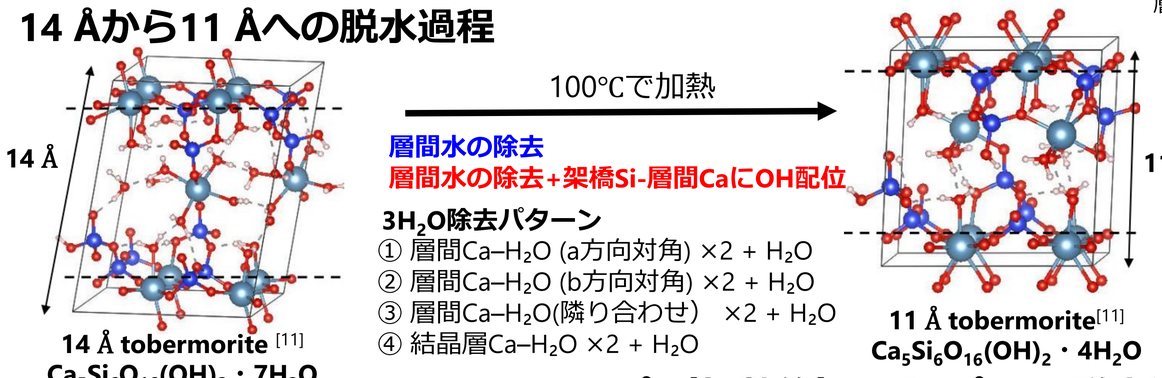
研究①：tobemoriteの脱水過程における架橋ケイ酸塩と水酸基の役割

Takinami, S., Yoshida, R., Kobayashi, R., Nawa, T., & Kishi, T., Construction and Building Materials, 470 (2025) 140561.

概要　**C-S-Hのモデルの基となるtobermoriteの脱水収縮過程における構造変化をDFT-MDを用いて解析**

Quantum ESPRESSO[16] [17], PBE-PAW[14] [15], 80 Ry, Γ-point, Δt = 1.45 fs

14 Åから11 Åへの脱水過程



14 Å tobermorite [11] $Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2 \cdot 7H_2O$

11 Å tobermorite[11] $Ca_5Si_6O_{16}(OH)_2 \cdot 4H_2O$

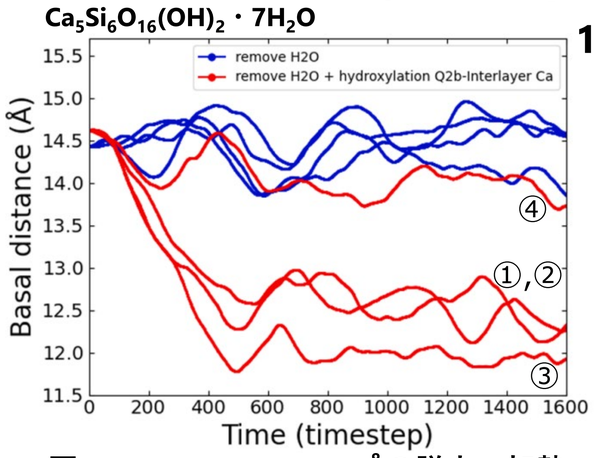


図 1.1　tobromorite14 Åの脱水・加熱におけるc軸の長さの変化

11 Å（加熱後）から9 Åへの脱水過程

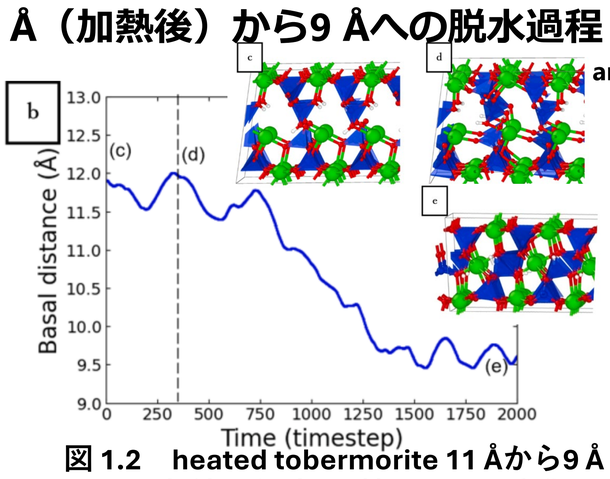
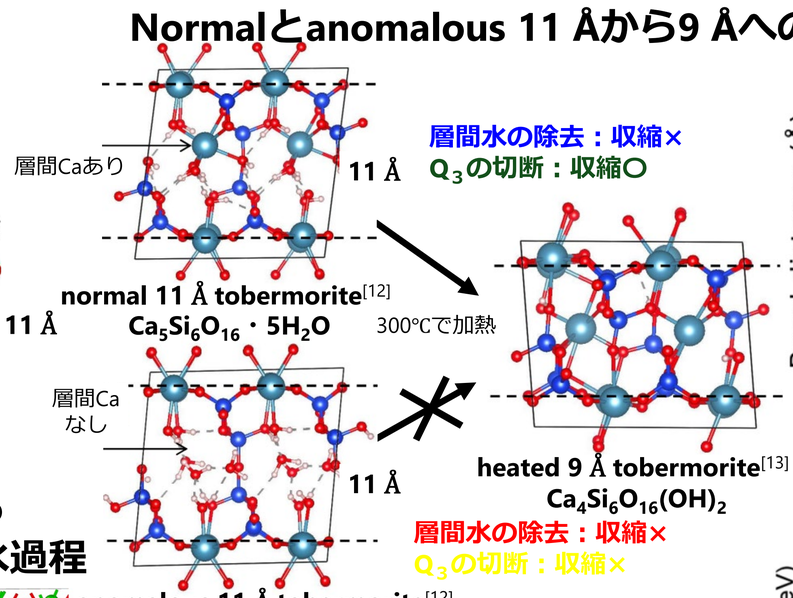


図 1.2　heated tobermorite 11 Åから9 Åへの収縮過程時のc軸の長さの変化

Normalとanomalous 11 Åから9 Åへの脱水過程



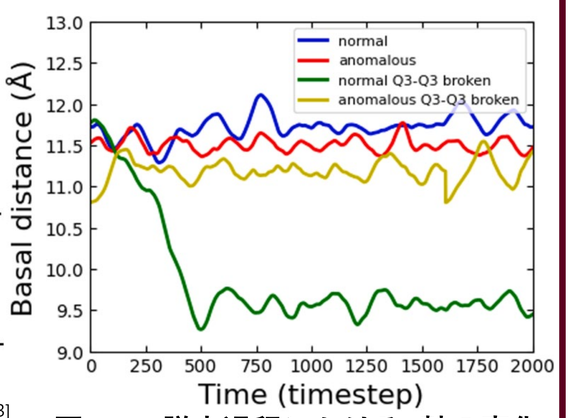


図 1.3　脱水過程におけるc軸の変化

まとめ

- 14 Å→11Å：層間の水分子の脱離と架橋Si-OにHの配位による結合低下で収縮
- heated11 Å→9 Å：Q_{2b}-結晶層Ca からQ_{2b}-層間CaにHの再配置により収縮
- 11Å→9Å：層間Caの存在(normal)とQ_3の切断により収縮

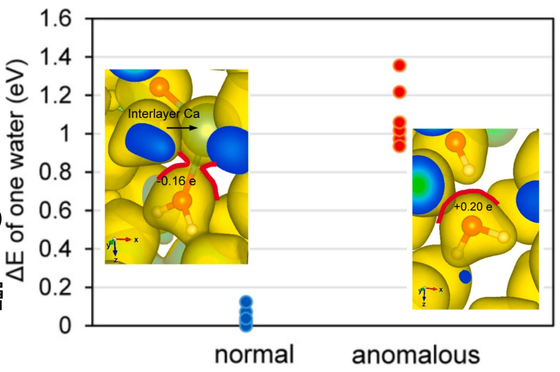


図 1.4　水分子のエネルギー差

[12] Merlino et al. Am. Mineral. 1999, 84, 1613–1621.
[14] Perdew et al. Phys. Rev. Lett. 1996, 77, 3865–3868.
[16] Giannozzi et al. J. Phys.: Condens. Matter 2009, 21, 395502.
[17] Giannozzi et al. J. Phys.: Condens. Matter 2017, 29, 465901.
[18] Stukowski, Modell. Simul. Mater. Sci. Eng. 2010, 18, 015012.
[11] Richardson, Acta Crystallogr. Sect. B 2014, 70, 903–923.
[13] Merlino et al. Eur. J. Mineral. 2000, 12, 411–429.
[15] Blöchl, Phys. Rev. B 1994, 50, 17953–17979.
[19] Momma and Izumi, J. Appl. Crystallogr. 2011, 44, 1272–1276.

研究②：低アルカリ性セメントの開発に向けたC-S-Hの構造解析

齊藤 秀幸・原 宏明・吉田 亮・名和 豊春，コンクリート工学年次論文集，Vol. 48, No. 1, pp.78-83, 2026.

概要

C-S-H、C-A-S-Hの層間CaをNaに置換、H原子による電荷補償[21]**を行い、第一原理計算（DFT）による原子構造の安定性を計算**

Quantum ESPRESSO 6.4.1[22] [23]
PBEsol[24] + DFT-D3[25]
Cutoff: 90 Ry / 900 Ry
k-points: 3 × 3 × 1
Variable-cell optimization

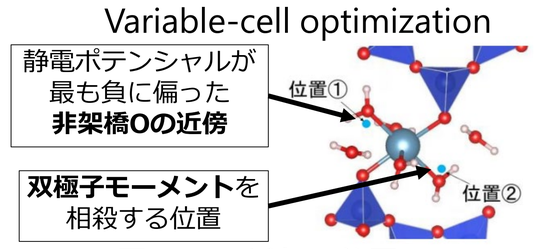


図 2.1　H添加の位置

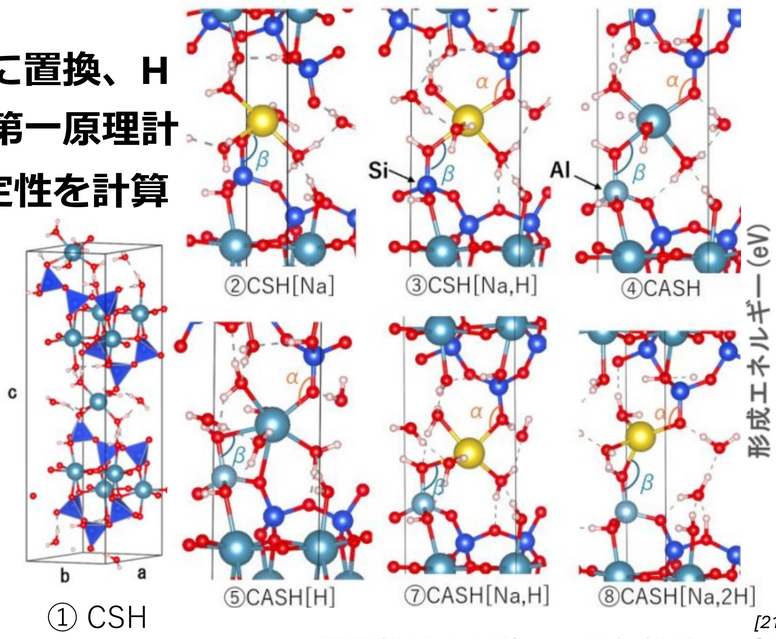


図 2.2　C-S-Hの原子構造と置換・H添加構造

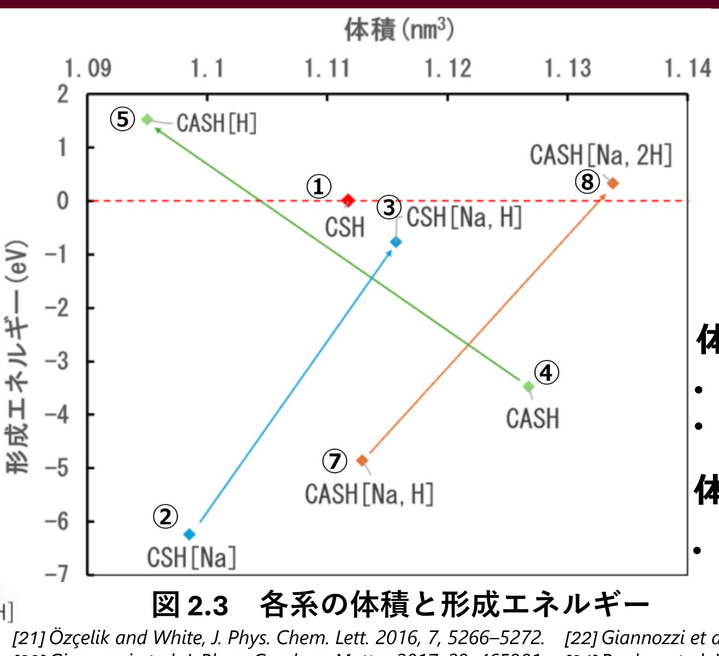


図 2.3　各系の体積と形成エネルギー

電荷補償と構造安定性

全ての系で**H原子による電荷補償を行った構造の方がより安定性**が向上した

層間イオンと体積変化

体積膨張：②→③,⑦→⑧

- 一価のイオンによる弱い拘束
- H添加による静電引力の遮蔽

体積収縮：④→⑤

- H添加による**Alサイトと層間Ca二座配位的な構造に起因**

[21] Özçelik and White, J. Phys. Chem. Lett. 2016, 7, 5266–5272.
[22] Giannozzi et al. J. Phys.: Condens. Matter 2009, 21, 395502.
[23] Giannozzi et al. J. Phys.: Condens. Matter 2017, 29, 465901.
[24] Perdew et al. Phys. Rev. Lett. 2008, 100, 136406.
[25] Grimme et al. J. Chem. Phys. 2010, 132, 154104.
[26] Momma and Izumi, J. Appl. Crystallogr. 2011, 44, 1272–1276.

研究③：C-S-Hに存在する水分子の振動解析

安松 太陽・原 宏明・吉田 亮・小林 亮，コンクリート工学年次論文集，Vol. 48, No. 1, pp. 84-89, 2026.

概要

tobermorite の結晶構造[31]**を起点としてC-S-Hをして定義して，層間（interlayer）空間に存在する水分子由来の H および Si-OH 基由来の H 原子の振動状態を定量的に解析**[32]

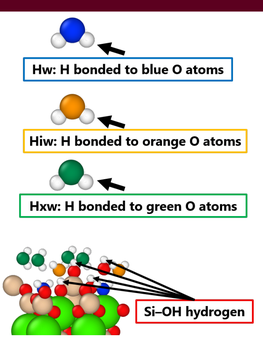
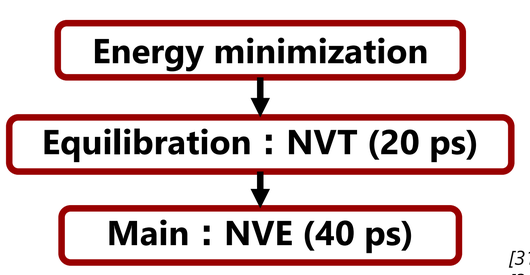


図 3.1 水素原子のラベリング

計算ソフト： LAMMPS[33]
力場： ClayFF[34]
境界条件：PBC
温 度：300 K
timestep：0.2 fs



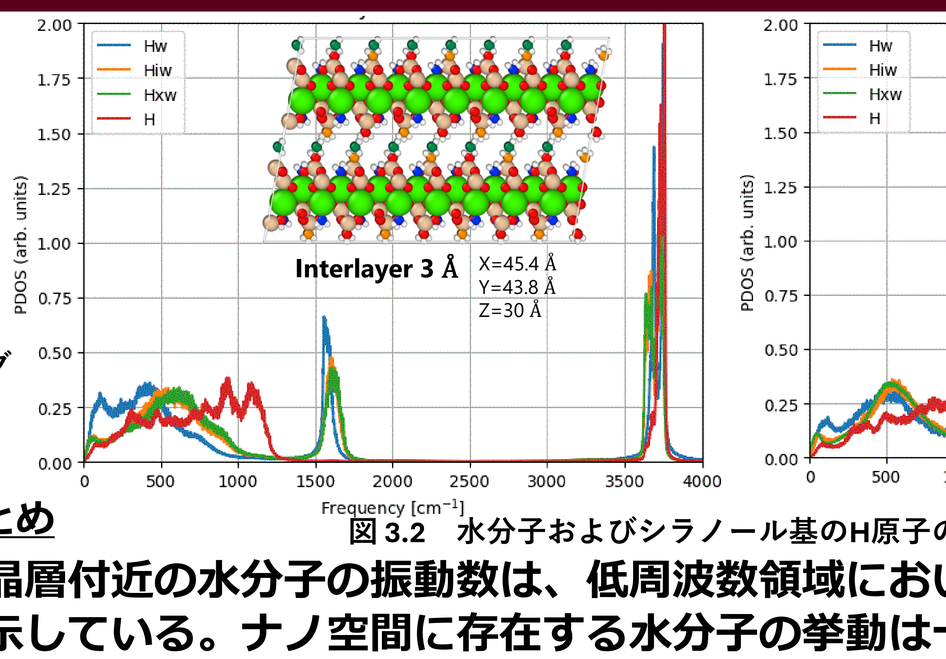


図 3.2　水分子およびシラノール基のH原子の振動スペクトル

まとめ

結晶層付近の水分子の振動数は、低周波数領域において特徴的なスペクトルを示している。ナノ空間に存在する水分子の挙動は一様ではない。

[31] Richardson, Acta Cryst. B 2014, 70, 903–923.
[32] Schmerler, Zenodo 2024, v1.3.0, 10.5281/zenodo.13128303.
[33] Thompson et al. Comput. Phys. Commun. 2022, 271, 108171.
[34] Cygan et al. J. Phys. Chem. B 2004, 108, 1255–1266.
[35] Stukowski, Modell. Simul. Mater. Sci. Eng. 2010, 18, 015012.

本研究は、原子力規制庁の令和6年度（研究①）および令和7年度（研究②，③）原子力規制研究技術基盤構築事業費補助金（原子力規制研究の強化に向けた技術基盤構築事業）の補助を受けたものである。