

論文 水和度に着目したセメント硬化体の二酸化炭素吸収量の定量化に向けた検討

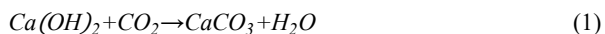
八尋 瑠奈*1・伊代田 岳史*2・西岡 由紀子*3・小島 正朗*4

要旨：近年、脱炭素社会の実現に向けコンクリート分野においても、炭酸化反応を利用した CO₂ の固定技術や、混和材の大量使用などの検討が行われている。そこでセメント硬化体の CO₂ 吸収量に与える材料や環境の影響を整理し、定量的に評価する必要があると考えられる。本研究では、セメントの水和の程度に着目し、高炉スラグ微粉末の置換率やブレン値が異なる配合において CO₂ の単位吸収能および深さ方向への CO₂ 吸収に与える影響を整理した。その結果、水和の増加により単位吸収能は増加することが分かった。一方、深さ方向を考慮すると CO₂ の浸透領域が大きいほどに CO₂ を吸収できる可能性が示唆された。

キーワード：炭酸化, CO₂ 吸収, 高炉スラグ微粉末, 水和

1. はじめに

近年、地球温暖化を原因とする海面上昇、干ばつ、異常気象などが発生しており、世界中で地球温暖化問題解決に向けた取り組みが講じられている。日本においても、2050 年までに地球温暖化の原因となる温室効果ガスの排出を全体としてゼロにする、カーボンニュートラルの実現を宣言しており、様々な分野で脱炭素社会に向けた検討が行われている。コンクリート業界においても積極的な取り組みが行われており¹⁾、コンクリートの炭酸化反応を利用することにより二酸化炭素（以下 CO₂ と称す）を吸収する性質が注目されている。コンクリートは中性化に知られるように、高アルカリであるコンクリートが空気中の CO₂ と反応することで、アルカリ性が低下していき中性へと近づいていく。この反応は式 (1)、(2) に代表されるような化学式により、CO₂ と反応し炭酸カルシウムを生成する反応（炭酸化反応）であることから、コンクリートをはじめとしたセメント硬化体では CO₂ を硬化体内に吸収・固定する性質をもつことが分かる。



また、コンクリート材料であるセメントはセメント原料であるクリンカの製造時に多量の CO₂ を排出するこ

とが知られており、クリンカ由来の CO₂ 排出量を減ずることを目的とし、高炉スラグ微粉末やフライアッシュなどの混和材料を混合したセメントの利用が期待されているものの、これらの混和材料を使用した場合の CO₂ 吸収について検討された事例は多くはない。

コンクリートの炭酸化に与える影響因子として、混和材料の種類や置換率、水セメント比、供試体の形状やサイズ、養生環境等が硬化体条件として挙げられる^{2), 3)}。さらに、炭酸化の環境条件としては温度・湿度、CO₂ 濃度、炭酸化期間、乾式・湿式等の炭酸化方式が考えられ、硬化体条件、環境条件が異なることで、CO₂ 吸収量のポテンシャルを示す単位吸収能に影響すると考えられる。このように炭酸化には様々な影響因子が考えられるが、CO₂ 吸収量の予測に向け各種諸条件が CO₂ 吸収量に与える影響を評価し CO₂ 吸収量を定量化する必要がある。本研究では式 (1)、(2) に立脚し水和の程度に着目し、高炉スラグ微粉末の置換率やブレン値が異なる配合において、単位吸収能に与える影響を整理した。また、コンクリート部材において、セメント種類や空隙構造によって単位吸収能の他に、CO₂ の拡散速度が異なることが知られており、両方の側面から CO₂ 吸収量を評価する必要がある。試験体の 1 面から炭酸化させることにより、CO₂ の浸透しやすさを加味した CO₂ 吸収量について検討を行った。

表ー1 OPC および GGBS の化学成分

	密度 (g/cm ³)	粉末度 (cm ² /g)	化学成分 (%)											
			SiO ₂	Al ₂ O ₃	FeO	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	TiO ₂	MnO	SO ₃	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅
OPC	3.14	3530	20.19	5.18	-	2.78	65.01	1.18	0.25	0.15	2.10	0.31	0.36	0.16
GGBS 3000	2.91	3240	34.50	13.87	0.31	-	43.68	5.58	0.61	0.15	-	0.23	0.30	0.03
GGBS 4000	2.91	4060	34.57	14.29	0.29	-	43.83	5.58	0.62	0.14	-	0.27	0.26	0.02
GGBS 8000	2.90	7990	34.48	14.01	0.30	-	44.25	5.55	0.56	0.14	-	0.22	0.28	0.02

*1 芝浦工業大学大学院 理工学研究科社会基盤学専攻 (学生会員)

*2 芝浦工業大学 工学部 土木工学課程 教授 博士 (工学) (正会員)

*3 (株)竹中工務店 技術研究所 建設基盤技術研究部 研究主任 修士 (正会員)

*4 (株)竹中工務店 技術研究所 建設基盤技術研究部 主席研究員 博士 (工学) (正会員)

表-2 使用配合

	W/B (%)	GGBS 置換率 (%)	ブレン	単位量 (kg/m ³)			CaO 割合 (%)
				W	OPC	GGBS	
N50	50	0	-	612	1225	0	43.4
BA50		30	4000	606	849	364	39.1
30BB50		50	3000	602	602	602	36.4
40BB50		50	4000	602	602	602	36.2
80BB50		50	8000	602	602	602	36.2
BC50		70	4000	598	359	837	33.4

2. CO₂吸収量のポテンシャルの評価

2.1 使用材料と試験体諸元

本研究では普通ポルトランドセメント（以下 OPC）、高炉スラグ微粉末（以下 GGBS）を使用した。粉末度の違いによる影響を確認するため、粉末度が 3000, 4000, 8000 ブレーンの GGBS を使用した。また、GGBS には無水石膏を SO₃ 換算で 2% 内割添加した。OPC および GGBS の密度および粉末度、化学成分を表-1 に示す。

本研究ではセメント硬化体の CO₂ 吸収量のポテンシャルを評価するための基礎実験として、骨材の影響を排除するためセメントペーストの試験体を用いて検討を行った。表-2 に使用した配合および配合中の CaO 割合を示す。セメントは OPC、OPC に GGBS を置換して高炉セメント A 種相当（BA, 30% 置換）、B 種相当（BB, 50% 置換）、C 種相当（BC, 70% 置換）とした。試料は接水後、20℃、60%RH の恒温恒湿室で 2 分間手練りを行いブリーディングの影響を考慮して 1 時間ごとに攪拌し、6 時間経過したものを使用した。40×48mm のチャック付きポリ袋に試料を 4g ずつ打込み、厚さ 1.5mm 程度の供試体を作製した。

2.2 炭酸化条件

試験概要を図-1 に示す。作製したセメントペーストは所定の期間チャック付きポリ袋で封緘養生（20℃）を施した。また、水和度を変化させる目的で養生期間を 1, 3, 7, 28, 56 日とした。本章においては、炭酸化における空隙構造の違いによる CO₂ の浸透しやすさへの影響を排除するため、脱型後ミルを用いて粉砕し、粉体状の試料とした。

炭酸化条件としては、温度 20℃、相対湿度 60%RH、CO₂ 濃度 20% の環境下で 7, 28 日間炭酸化を行った。この際、既往の研究⁴⁾により炭酸化反応においては反応場において CO₂ が溶解するための水の存在が重要であることが報告されていることから、炭酸化前の試料質量に対して 70% の水を加えた。炭酸化後は水和停止のため大量のアセトンに浸漬したまま微粉砕し乾燥させた。測定までの試料の炭酸化を防ぐため、チャック袋に密閉し保管した。

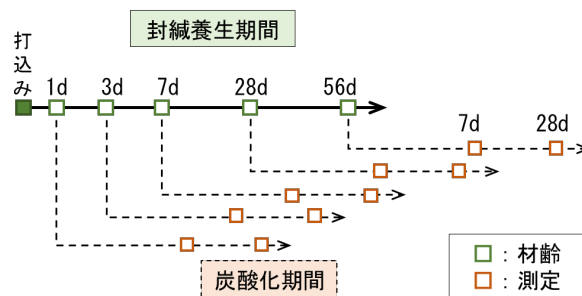


図-1 養生と炭酸化期間の概要

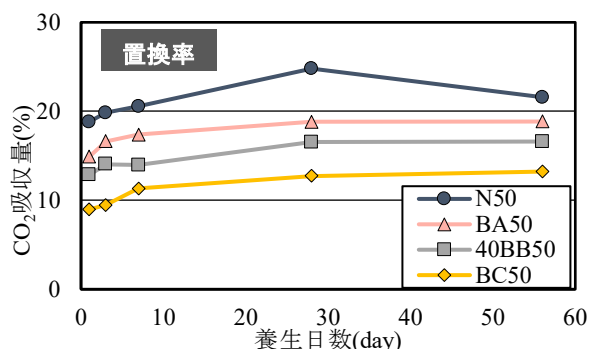


図-2 養生期間による CO₂ 吸収量（置換率）

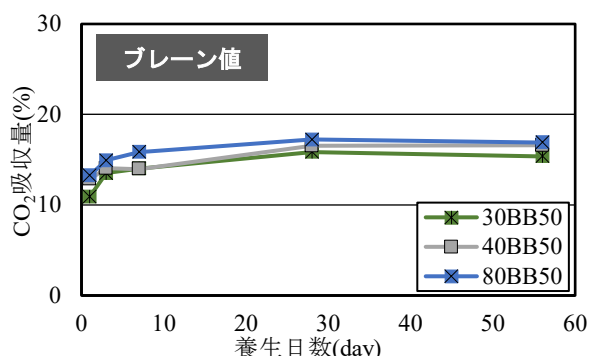


図-3 養生期間による CO₂ 吸収量（ブレン値）

2.3 炭酸カルシウムの定量と CO₂ 吸収量の算出

水和停止、微粉砕を行った試料を用いて、示差熱重量分析を行った。測定条件は室温から 1000℃まで、昇温速度 20℃/min、N₂ フロー環境下とした。炭酸カルシウム量は DTA 曲線のピークの変曲点が不明瞭なものがあつたことから、550～850℃の質量減量から算出した。測定開始前に測り取った質量に対する質量減量を脱炭酸量、炭酸化前後での差分を CO₂ 吸収量として算出した。

また水酸化カルシウム量は DTA 曲線のピークの変曲点間における質量減量から算出した。

2.4 試験結果

(1) 養生期間の違いによる CO₂ 吸収量

図-2（GGBS 置換率の違い）、図-3（GGBS ブレン値の違い）に養生期間と炭酸化 7 日の CO₂ 吸収量の関係を示す。全体の傾向として、GGBS の置換率、ブレン

ン値の別によらず養生期間が長くなるほどにCO₂吸収量が増加することが明らかになった。養生期間を延長することにより、セメントやGGBSの水和が進行し、水和物が増加したことが要因であると考えられる。図-2よりGGBSの置換率の増加に伴い、CO₂吸収量は減少していることが分かる。これは置換率が高い配合では粉体に含まれるCaO量が少ないためであると考えられる。

また、図-3よりGGBSのブレン値の違いでは40BB50および30BB50では同程度のCO₂吸収量を示したのに対して、80BB50ではやや大きい値を示した。ブレン値が高い場合にはGGBSの反応が大きくなることが知られており、同じ養生期間においては80BB50の水和がより進行していたためであると考えられる。したがって、配合が同じ場合においては、水和の進行程度に影響を受けやすく、養生日数などの養生環境や炭酸化条件が同様である場合では、CO₂吸収量はCaO量により影響を受けやすいことが考えられる。

(2) 炭酸化期間の違いによるCO₂吸収量

養生7日の試料を7、28日間炭酸化させた場合のCO₂吸収量の結果を図-4、5に示す。炭酸化前後での水酸化カルシウムの減少量から、水酸化カルシウムの炭酸化に由来するCO₂吸収量とそれ以外の水和物、鉱物のCO₂吸収量を分離して示した。配合の別によらず、炭酸化期間が増加することでややCO₂吸収量が増加した。しかし増加は微量であり、本研究における炭酸化条件では7日以上以上の炭酸化はその期間の影響が少ないと考えられるが、さらに長期間の炭酸化ではCO₂吸収量も増加することが考えられるため検討する必要がある。

炭酸化28日時点で全配合において水酸化カルシウムが確認されなかったことから、生成した水酸化カルシウムは炭酸化により消費されたと推測される。図-4よりN50ではCO₂吸収量の1/2程度が水酸化カルシウムの炭酸化に由来するのに対し、BC50では1/5程度となった。これはOPC量が減少することで、OPCの水和により生成される水酸化カルシウム量が減少したためであると考えられる。また、ブレン値による違いは僅かであった。

(3) 配合中のCaO量とCO₂吸収量の関係

配合中に含まれるCaO量が炭酸化により全てCO₂と反応したと仮定した場合のCO₂吸収量を推定最大値として算出し、推定値に対するTG-DTAの測定結果より得られたCO₂吸収量をCO₂吸収率として算出した。N50、BA50、40BB50、BC50の炭酸化7日におけるCO₂吸収率の結果を図-6に示す。いずれの配合養生期間においてもCO₂吸収率は100%には達しておらず、試料中のCaOは一部CO₂吸収の寄与度が低いCaOとして試料中に存在することが考えられる。GGBS置換率で比較すると、置換率が大きくなるに従いCO₂吸収率は小さくなること

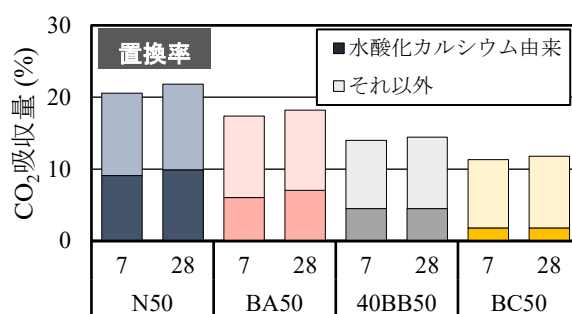


図-4 炭酸化期間によるCO₂吸収量（置換率）

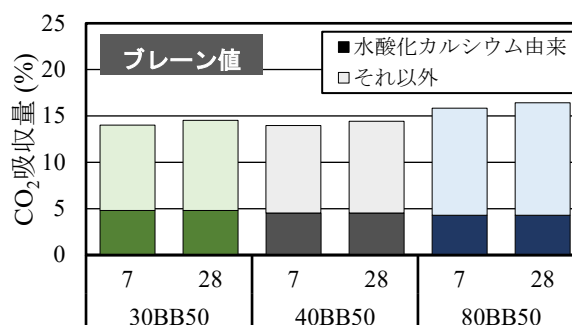


図-5 炭酸化期間によるCO₂吸収量（ブレン値）

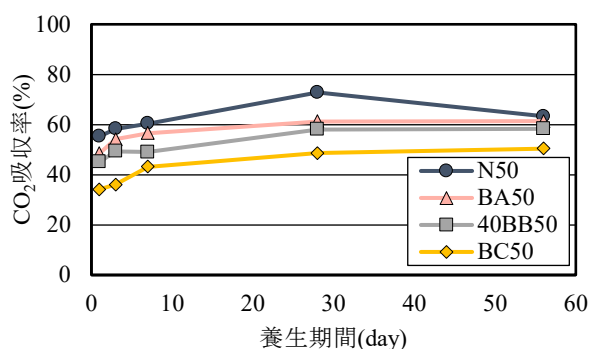


図-6 養生期間によるCO₂吸収率

が認められ、配合中のCaOがよりCO₂を吸収しにくいことが分かる。また、配合によらず養生期間が増加することでCO₂吸収率も増加する傾向が認められた。水和が進行することで、配合中のCaOがよりCO₂吸収の寄与度が高いCaOになっていることが示唆された。

3. 水和度とCO₂吸収量の関係

前章で示したように、養生期間が増加することによりCO₂吸収量が増加することが明らかとなり、養生の延長つまり、水和反応が進行し、生成した水和物が増加したことが要因であると考えられる。そこで、本章では水和物中に含まれるCaO量をOPCおよびGGBSの反応率から推定し、CO₂吸収量との関係性を整理した。

3.1 反応率の測定

(1) 養生期間の違いによるCO₂吸収量

炭酸化前の試料を大量のアセトンに浸漬し、乾燥

させることにより水和停止を行った試料を OPC の反応率の測定に用いた。OPC の反応率は、クリンカ 4 鉱物の反応率の合計とし、既往の研究^{5), 6)}を参考に算出したピーク位置、積分強度を用いて式 (3) により算出した。粉末 X 線回折の測定は、試料に内部標準物質として、コランダム ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$) を内割で 10% 添加して行った。粉末 X 線回折の測定条件は、X 線源 Cu-K α 、管電圧 30kV、管電流 10mA、捜査範囲 $2\theta=5\sim 60^\circ$ 、ステップ幅 0.025° 、スキャンスピード $0.025^\circ/\text{min}$ とした。解析には、ソフトウェア TOPAS4.2 により WFPF 法を用いて多重ピーク分離を行い、隣接または重なり合うピークを分離し、分離されたクリンカ 4 鉱物のピークにおける回折線の積分強度 (波面面積) を算出した。コランダムに対する鉱物の積分強度を積分強度比として使用した。

OPC の反応率 (%) = 100 -

$$\frac{\text{水和試料中のクリンカ 4 鉱物の積分強度比の合計}}{\text{未水和セメント中のクリンカ 4 鉱物の積分強度比の合計}} \quad (3)$$

(2) 高炉スラグ微粉末の反応率

高炉スラグ微粉末の反応率の測定には、サリチル酸・アセトン・メタノール溶液による選択溶解法を用いた。炭酸化前の試料を大量のアセトンに浸漬し、乾燥させることにより水和停止を行い、試験に用いた。試験ではサリチル酸・アセトン・メタノール溶液に試料を加え、1 時間攪拌した後 23 時間静置、不溶残分から未反応スラグを定量した。式 (4) によりスラグの反応率を算出した。なお、不溶残分には OPC 由来のアルミネート相やフェライト相の間隙相などを含んでしまうため、文献⁷⁾より OPC からの不溶残分を 0.211 とし補正した。

$$a(t) = 100 - \frac{x(t) \cdot (100 - Ig'(t)) - mk_1 k_2 (100 - Ig(t))}{mk_3 k_4 (100 - Ig(t))} \cdot 100 \quad (4)$$

ここに、t : 材齢 (day)

a(t) : GGBS の反応率 (%)

x(t) : 不溶残分量 (g) m : 試料質量

Ig(t) : 水和試料の強熱減量 (%)

Ig'(t) : 不溶残分の強熱減量 (%)

k₁ : 無水物換算した OPC の含有量 (%)

k₂ : OPC のみの不溶残分率 (%) $\cdots 0.211^{7)}$

k₃ : 無水物換算した GGBS の含有率 (%)

k₄ : GGBS のみの不溶残分率 (%)

なお、GGBS の酸化による質量増加を考慮し、700℃で焼成を行った。

3.2 試験結果

水和物中の CaO 量は式 (5) を用いて算出した。

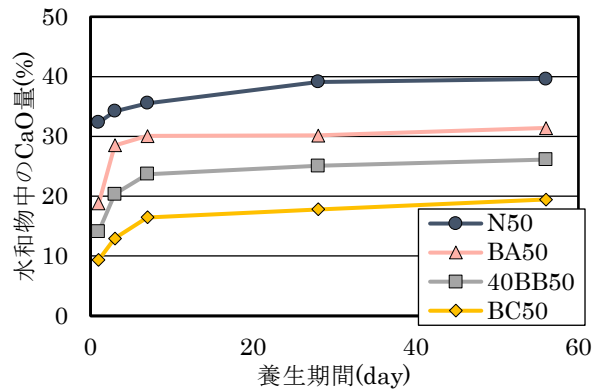


図-7 養生期間による水和物中の CaO 量

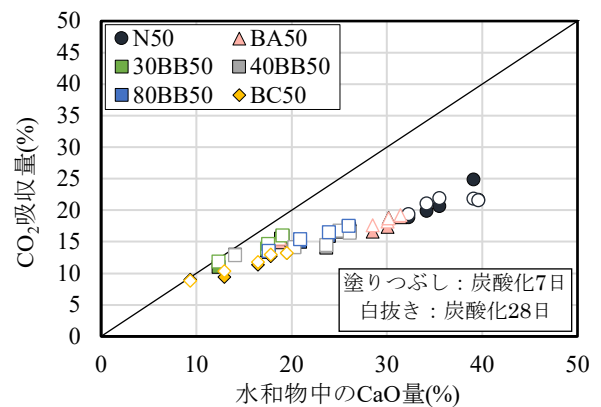


図-8 水和物中の CaO 量と CO₂ 吸収量の関係

$$\text{水和物中の CaO 量} = m_1 \times y_1 \times a(t)_1 + m_2 \times y_2 \times a(t)_2 \quad (5)$$

ここに m₁ : OPC 単位量 (kg), y₁ : OPC の CaO 割合 (%)

a(t)₁ : OPC 反応率 (%), m₂ : GGBS 単位量 (kg)

y₁ : GGBS の CaO 割合 (%), a(t)₂ : GGBS 反応率 (%)

図-7 に N50, BA50, 40BB50, BC50 における水和物中の CaO 量を示す。配合によらず、養生期間の増加に伴い水和物中の CaO 量は増加した。養生 7 日以降は CaO 量の増加は緩やかであり、反応が緩やかに進行していることが分かる。また、GGBS 置換率が大きくなることで水和物中の CaO 量が少なくなることが認められた。一方で、その関係性は養生期間の違いによる大きな差は認められず、異なる配合においても概ね同様に反応が進行していることが考えられる。

図-8 に水和物の CaO 量と CO₂ 吸収量の関係を示す。全体の傾向として両者の間には水和物中の CaO 量の増加に伴い CO₂ 吸収量が増加する一定の関係が確認できた。このことから、水和物増加つまり、水和の進行によって CO₂ 吸収量が増加することが示唆された。

炭酸カルシウムを生成する炭酸化反応において、CaO と CO₂ が 1 : 1 で反応することを考えられる。図-8 中

に水和物中の CaO 量と CO₂ 吸収量が 1 : 1 となる線を示した。GGBS 置換率が小さいほど 1 : 1 からの乖離が大きいことが分かり、水和中に存在している CaO であっても CO₂ 吸収の寄与度が低いことが考えられる。既往の研究⁸⁾より、GGBS を置換した硬化体においては、OPC を使用した場合に比較して Ca/Si 比が小さいことが知られており、Ca/Si 比の違いの影響や、試料中に含まれる C-S-H の炭酸化度の影響が考えられる。また、図-9 に N50 養生 1 日における炭酸化前後の XRD チャートを示す。炭酸化によってカルサイトのピークが確認された。一方で β -C₂S を示すピークが炭酸化によって僅かに小さくなった。 β -C₂S 中の Ca が直接反応し、炭酸カルシウムを生成している可能性も考えられるが、C-S-H を含む各種水和物の違いやクリンカ鉱物が CO₂ 吸収に与える影響に関しては今後検討を進める必要がある。

4. CO₂ の浸透領域と CO₂ 吸収量の関係

4.1 使用材料と試験体諸元

表-3 に使用した配合を示す。GGBS は 4000 ブレーン、置換率は 0, 50, 70% とし、それぞれ N100, BB100, BC100 とした。N 配合において炭酸化が進行しにくいことを考慮し、水結合材比を 100% とした。打込み時のブリーディングの影響を軽減するため、界面活性作用を付与するアクリル系の増粘剤を水に対して 2.5% 使用した。20°C、60%RH の環境下で 2 分間手練りを行い、5×10×100mm の型枠に打込み角柱試験体を作製した。材齢 3 日まで型枠存置（封緘、20°C）、その後所定の材齢（3, 28 日）まで封緘養生を施した。水和物中の CaO 量や空隙率を変化させることを目的として養生期間を変化させた。養生終了後は試験体の内部の水分状態を一定にするため 20°C、60%RH、N₂ フロー環境下にて 35 日間調湿した。なお、調湿中の質量減少が恒量となったことを確認し調湿を終了した。また、本検討では調湿中は乾燥状態であることから、調湿中に水和は進行しないものとした。

4.2 炭酸化条件と CO₂ 吸収量の測定

図-10 に試験概要を示す。調湿後の試験体を用いて炭酸化を行った。深さ方向への CO₂ 吸収量を評価するため、5×10mm の一面以外をアルミテープにてシールし、解放面以外からの CO₂ の侵入を防いだ。炭酸化条件は 20°C、60%RH、CO₂ 濃度 20% にて 14 日間実施した。

炭酸化後は、表層から 10mm 間隔にニッパーでカットし、大量のアセトンと共に粉碎し乾燥させることにより水和停止を行った。示差熱重量分析の測定条件および、CO₂ 吸収量の算出については 2.3 節に示す通りとした。

4.3 試験結果

図-11 に養生を 3 日間施した場合、図-12 に養生を 28 日間施した場合における CO₂ 吸収量の結果をそれぞ

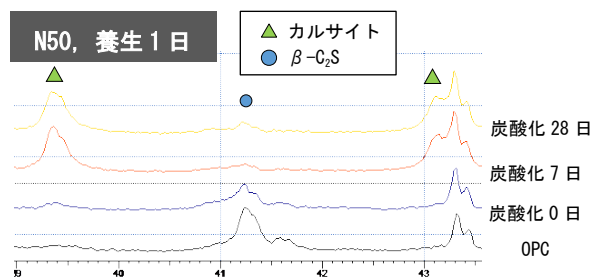


図-9 炭酸化の変化による XRD チャート

表-3 使用配合

	W/B (%)	GGBS 置換率 (%)	単位量 (kg/m ³)		
			W	OPC	GGBS
N100	100	0	760	760	0
BB100		50	752	376	376
BC100		70	748	224	524

打込み・養生・調湿

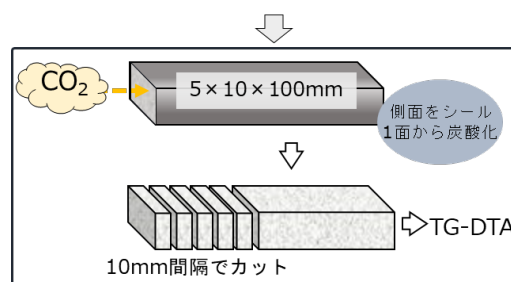


図-10 試験概要

れ配合ごとに示す。N100 においては表層から 30mm 程度までしか CO₂ を吸収していない一方で、BC100 では養生 3 日の場合 80mm 程度まで CO₂ の吸収が認められた。このことから、中性化の進行しやすさに知られるように、養生期間によらず GGBS 置換率が高いほどより奥まで CO₂ が浸透し、吸収していることが明らかになった。同じ配合における養生期間の違いでは、配合によらず養生 3 日に比較して養生 28 日で CO₂ を吸収した領域が小さいことが分かる。一般に養生を行うことで水和反応の進行、水和物の析出により硬化体内の総空隙量が減少することが知られており、空隙率の減少により CO₂ が浸透しにくくなったためであると考えられる。また、1 層当たりの CO₂ 吸収量を比較すると、養生によらず、N100, BB100, BC100 の順に大きい値を示した。これは 2 章で示したように CaO 量の違いが影響していると考えられる。一方で、養生 3 日と 28 日では一層当たりの CO₂ 吸収量は、僅かに養生 28 日が多かったがその差は 2 章で得られた結果より小さいことが分かる。空隙が緻密なことや水分状態に影響を受け、ポテンシャルを十分に発揮できていないことなどが考えられる。同一期間炭酸化を行った場合には混和材の使用や空隙が多く存在することにより CO₂ が深部まで浸透することで、硬化体全体としてより多くの CO₂ を吸収することができると示唆された。

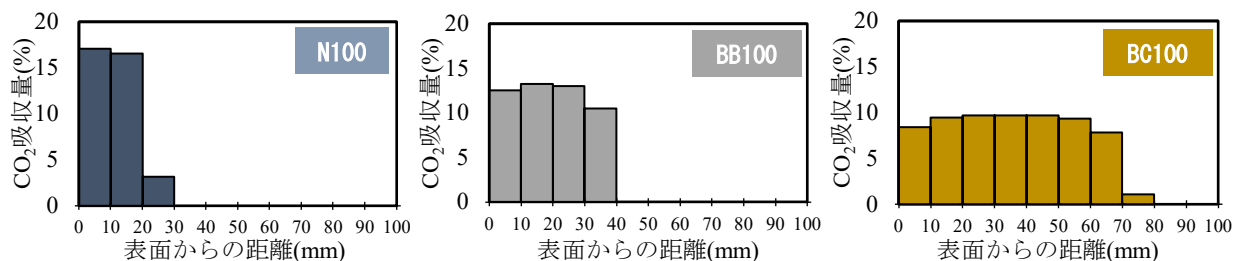


図-11 深さ方向へのCO₂吸収量（養生3日）

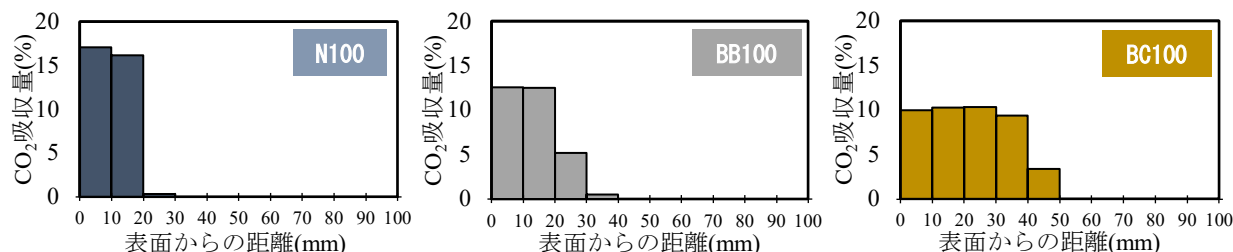


図-12 深さ方向へのCO₂吸収量（養生28日）

5. まとめ

本研究で得られた結果を以下に示す。

- (1) 同一材齢の試料を同一環境下で炭酸化を行った場合、CO₂吸収量は GGBS 置換率が高いほど小さくなる結果が得られた。また、GGBS のブレン値が大きいと CO₂吸収量は大きくなる傾向を示した。
- (2) CO₂吸収量は炭酸化前の養生期間の増加に伴い増加する結果が示された。
- (3) CO₂吸収量は水和物中の CaO 量と正の相関が確認され、水和により試料中に含まれる CaO が CO₂吸収の寄与度が高い形で存在することが推察された。
- (4) 一面からの炭酸化によって深さ方向への CO₂吸収量を評価した。単位吸収能は CaO が少ない GGBS 高置換の配合で小さく、全体での CO₂吸収量は CO₂の浸透領域が大きいほど大きくなる結果が示され、空隙等の影響を受けやすいと考えられる。

謝辞

芝浦工業大学工学部 4 年根岸隼人氏には実験の協力をいただきました。心より感謝申し上げます。

また、本成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の委託業務（JPNP21014）を受け、革新的カーボンネガティブコンクリートの材料・施工技術及び評価技術の開発プロジェクトで得られたものです。関係各位に感謝いたします。

参考文献

- 1) 取達剛，森泰一郎，小島正朗：革新的カーボンネガティブコンクリートの材料・施工技術及び品質評価技術の開発：CUCO-Carbon Utilized Concrete，

コンクリート工学，Vol.61，No.6，pp.520-527，2023

- 2) T. Iyoda, E. Ishikawa, Y. Ikeo: Experimental study on quantification of carbon dioxide absorption by different cement types mix proportions, Eighth International Symposium on Life-Cycle Civil Engineering, pp.3436-3443, 2023
- 3) R. Yahiro, M. Kojima, T. Iyoda : Effect of Mix Proportion as W/C and Amount of GGBS Contents on CO₂ Adsorption 16th International Congress on the Chemistry of Cement 2023, pp.541-544, 2023
- 4) 坂井一貴，池尾陽作，伊代田岳史：セメント硬化体の水分保持状態による CO₂吸着メカニズムの一考察，第 76 回セメント技術大会講演要旨，pp.36-37，2022
- 5) 原沢蓉子，亀山敬宏，伊代田岳史：消費水分量に着目した高炉セメントの水和反応の解明に関する一検討，コンクリート工学年次論文集，Vol.37，No.1，pp.67-72，2015
- 6) 五十嵐豪，丸山一平：普通ポルトランドセメントを用いたセメント硬化体の相組成と力学的性質の関係，日本建築学会構造系論文集，Vol.76，pp.213-222，2011
- 7) 近藤連一，大沢栄也：高炉水砕スラグの定量およびセメント中のスラグの水和反応速度に関する研究，窯業協会誌，77 巻，882 号，pp.39-46，1969
- 8) 須田 裕哉，斎藤 豪，佐伯 竜彦：各種セメント硬化体の相組成と圧縮強度に関する研究，セメント・コンクリート論文集，Vol.66，No.1，pp.159-166，2012