

再生粗骨材への効果的なCO₂固定方法に関する検討

岩淵崇宏^{*1}・吉野 玲^{*2}・鈴木好幸^{*1}・福留和人^{*1}

セメントはその製造過程において多大なCO₂を排出する。一方で、セメントペーストはCO₂を吸収・固定するポテンシャルが非常に高いことが知られており、脱炭素社会への貢献が期待される。本研究では、戻りコンクリート・残コンクリートを硬化後に破碎して製造した再生粗骨材に着目し、付着するセメントペーストにCO₂を効果的に固定する方法を検討した。その結果、MNB水を再生粗骨材の吸水率を超えない範囲で噴霧し、CO₂濃度17%の雰囲気下で炭酸化養生および乾燥を繰り返すことで、最大で約37kg/tのCO₂が固定できることが示唆された。

キーワード：再生骨材、CO₂固定、炭酸化、マイクロナノバブル水、示唆熱重量分析

1. はじめに

近年、脱炭素社会の構築に向けた様々な取り組みが地球規模で進められている。全国地球温暖化防止活動推進センターの調査¹⁾によると、2019年において世界全体の二酸化炭素(CO₂)排出量の合計は約335億tであり、日本はそのうち3.2%の約10.5億tのCO₂を排出している。この排出量は、中国、アメリカ、インド、ロシアに次いで5番目に多く、日本は世界有数のCO₂排出国となっており、CO₂排出量削減へ取り組むべき課題が多いことを示している。また、2020年に、国内の温室効果ガスの排出量を2050年までに実質的にゼロとする、「2050年カーボンニュートラル」が宣言され、多種多様な分野で温室効果ガス削減に向けた技術開発がさらに加速している。

建設分野においては、コンクリートに使用されるセメントが製造段階でCO₂を多量に排出することが問題視されている。セメント製造時のCO₂排出は燃焼に使用されるエネルギー源によるものと、石灰石の脱炭酸等の原料によるものに分かれるが、両者を合計するとセメント製造によって排出されるCO₂は年間4000万tを超えることが報告されている²⁾。これは国内の産業部門において第4位の排出量となっており、セメント・コンクリート分野は、有効なCO₂排出量の削減に向けた解決策を早急に打ち出す必要がある。

一方で、セメント・コンクリートはCO₂を固定するポテンシャルが非常に高く、生成物が化学的に安定している。このことからCO₂を大量に吸収することが期待されており、国内のみならず、米国や欧州において研究開発・実証実験が進められている。コンクリートへのCO₂固定による脱炭素化への貢献に加え、構造物の解体・改修時に発生する廃コンクリートから製造される再生骨材を利

用することで、循環型社会の形成への貢献も期待される。さらに、再生骨材に付着するセメントペーストにもCO₂を固定することで更なる固定量の増大が期待できる。

以上の背景から、本報では再生骨材をCO₂固定可能な建材と捉え、効率的な固定方法の検討を目的として実験を行った結果³⁾⁴⁾を報告する。

2. 試験概要

2.1 CO₂固定方法検討概要

本検討は表-1に示すシリーズIからシリーズIIIの内容を検討した。

シリーズIでは、セメント水和物の炭酸化の進行は含水率に大きく影響されることから⁵⁾、MNB水への浸漬や乾湿繰返しなどを行い、効果的なCO₂固定方法を検討した。なお、ここでMNB水とは、CO₂を100μm以下の気泡(マイクロナノバブル)として水中に保持した溶液である⁷⁾。また、比較のためCO₂濃度5%雰囲気下での暴露による炭酸化試験⁶⁾も合わせて実施し、CO₂固定量を比較した。

シリーズIIでは、焼却施設などから排出される高濃度CO₂ガスの利用を想定してCO₂濃度17%の環境下への暴露試験を実施した。その際、含水率の影響を把握するために、湿度環境を変化させて実験を実施した。

シリーズIIIでは、高濃度CO₂ガス環境下に試料を暴露するとともに、MNB水を噴霧して乾湿繰返しを行いCO₂の固定量を確認した。

本試験では、MNB水を用いたが、これは、金ら⁷⁾が報告したCO₂ナノバブルを含む溶液にモルタルサンプルを繰返し浸漬させることで、炭酸化による空隙充填効果が得られる知見や、極微小な気泡により水の表面張力が

*1 脱炭素技術開発部 *2 構造・材料研究部

低下し⁸⁾、効果的にセメント硬化体へCO₂を浸透させることも期待できることから選定した。

ただし、金らはCO₂ナノバブルの炭酸化反応による空隙充填効果を確認するために、浸漬前のモルタルサンプルをアセトン置換、真空乾燥を行って絶乾状態にして実験を行っている。また、炭酸化の反応を促進するためにCa(OH)₂の供給も実施している。一方で、本検討においては社会実装を見据えているため、浸漬前の絶乾処理や、Ca(OH)₂の供給は行わずに試験を行った。

なお、MNB水は二相流旋回方式のノズルを有する発生装置を介して製造し、各実験シリーズで使用したMNB水はpHが5.1～6.2、CO₂濃度が1500～1580となった。

表－1 実験シリーズの概要

シリーズ	概要
I	MNB水への浸漬、MNB水での乾湿繰返し、CO ₂ 濃度5%雰囲気下での静置の3種類の炭酸化養生を実施
II	CO ₂ 濃度17%雰囲気下で湿度環境を変化させ、炭酸化養生を実施
III	試験①：吸水率を超えない範囲でMNB水を噴霧し、高濃度CO ₂ 雰囲気下で炭酸化養生を実施 試験②：実製造を見据え、試験①の結果を踏まえた、より効率的なCO ₂ 固定方法の検討

2.2 材料の選定

本報ではCO₂固定の対象を粒度5～20mmの再生粗骨材とした。JISでは再生粗骨材は、品質によってH、M、Lに等級分けされているが、より多くのCO₂固定を期待し、CO₂を固定するためのセメントペーストの付着量が多い再生粗骨材L、再生粗骨材Lと同等以下の低品質な再生粗骨材3種類を選定した。

2.3 材料の概要及び物性

表－2に使用した再生粗骨材3種類の概要を、表－3に使用した再生粗骨材の物性を示す。なお、付着するセメントペースト量の測定は、50倍に希釈した希塩酸を用いてセメントペースト分を溶解し測定している。

再生骨材は、構造物の解体によって発生する解体コンクリート（以下、解体ガラ）から製造されるものと、戻りコンクリート・残コンクリート（以下、戻りコンまたは残コン）を硬化させた後、破碎して製造されるものに分けられる。使用した再生粗骨材はA、Bが解体ガラ由来であり、Cが戻りコン・残コン由来である。A、Bの元となった構造物の供用期間は不明である。Aは40mm以下のコンクリート用再生粗骨材Lを製造するプラントで製造された骨材であり、それらを5～20mmに分級したものをを用いた。BおよびCは、再生路盤材RC40を製造するプラントで製造された骨材であり、Aと同様に5～20mmに分級し、試験に使用した。このことから、B、C

は吸水率や粒度分布の一部でJIS A 5023 附属書Aコンクリート用再生粗骨材Lの規格を満たさない項目があったが、本報では解体ガラや戻りコン・残コンなどの産業廃棄物から製造される骨材を対象に、効率的なCO₂固定方法の確立を目的としたため、本検討においてはB、Cは再生粗骨材Lと同等以下の品質を持つ、低品質な再生粗骨材と位置づけて検討を進めることとした。なお、本報で行った試験で使用した3種類の再生粗骨材は、それぞれ同じロットで採取されたものであるため、製造条件・骨材の物性はいずれの試験においても同条件である。

表－2 使用した再生粗骨材の概要

記号	原コンクリート	製造概要
A	解体ガラ (供用期間不明)	コンクリート用再生粗骨材Lとして製造された骨材を5～20mmに粒度調整
B	解体ガラ (供用期間不明)	再生路盤材RC40として製造された骨材を5～20mmに粒度調整
C	戻りコン・残コン (硬質砂岩砕砂、石灰砕砂、硬質砂岩碎石を使用する工場で作られたコンクリート)	戻りコン・残コン硬化させた後に粗砕し、再生路盤材RC40として製造された骨材を5～20mmに粒度調整

表－3 使用した再生粗骨材の物性

項目	再生粗骨材種類			JIS A 5023 規格値
	A	B	C	
表乾密度 (g/cm ³)	2.40	2.46	2.28	-
吸水率 (%)	6.91	5.11	8.99	7.0% 以下
絶乾密度 (g/cm ³)	2.25	2.35	2.09	-
微粒分量 (%)	1.30	1.60	0.50	3.0% 以下
粗粒率 (%)	6.61	6.37	6.37	-
セメントペースト量 (%)	26.40	17.5	32.2	50倍の希塩酸によって溶解

2.4 CO₂固定量の評価方法

各試験終了後は表－4に示す手順で試料調製を行い、示差熱重量分析（以下、TG-DTA）によってCO₂固定量およびCa(OH)₂量の定量を行った。昇温速度は20℃/minで1000℃まで計測した。また、実験条件ごとに試料数N=3で測定し、平均値で評価した。

CO₂含有率の定量は既往の文献を参考¹⁰⁾に、TG曲線の550～900℃の間の質量変化をCaCO₃の脱炭酸量として読み取ることで行い、下記に記す式(1)によって1tの再生粗骨材あたりに固定されたCO₂固定量を算出した。

$$CO_{2Fix} = 1000 \times \frac{(CO_2' - CO_2)}{100} \quad (1)$$

ここに、CO₂Fix：CO₂固定量 (kg/t)

CO₂'：試験後のCO₂含有率 (%)

CO₂：試験前のCO₂含有率 (%)

Ca(OH)₂の定量は450℃付近の脱水反応による質量変化を読み取った。DTA（示差熱）曲線上における450℃付近の吸熱・発熱前後に引いた接線の交点を、それぞれ反応開始温度T1、反応終了温度T2とし、TG（熱重量）曲線上で求められるT1、T2間の差をCa(OH)₂の脱水による質量変化とした（図-1）。この質量変化を基に化学反応式からCa(OH)₂量を定量した。なお、CO₂固定量およびCa(OH)₂の定量は、アセトン置換後の真空乾燥による絶乾状態として行った。また、試験に供する再生粗骨材は気乾状態とし実験を行った。

表-4 試料調製手順

手順	
1	1mm以下程度まで微粉碎*
2	アセトンに6時間以上浸漬し、自由水除去
3	真空デシケータにて6時間以上存置
4	約100μm程度までボールミルで細粉碎
5	真空凍結乾燥し、分析まで密封容器で保管
6	熱分析

*試料は全量粉碎した。

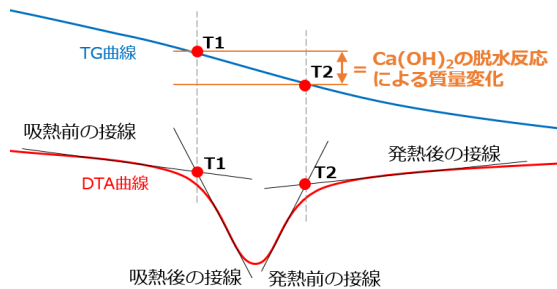


図-1 Ca(OH)₂脱水反応の質量変化の測定概要

2.5 使用した骨材の初期評価

試験を開始するにあたり、3つの再生粗骨材のCO₂含有率を確認した。結果を表-5に示す。BはAに次いでCa(OH)₂量が少ない結果となった。A、Bは解体ガラから製造された骨材であるため、構造物の供用期間中あるいは再生粗骨材の製造過程で多くのCO₂を吸収・固定しており、特に、Aにおいてその傾向が著しいことが分かった。A、Bは残コン・戻りコンから製造されたCと比べると、新たなCO₂を固定するポテンシャルが低いと考えられる。また、Cは原コンクリートの製造工場が石灰砕砂を使用しているため、TG-DTAの結果に天然由来のCaCO₃が含まれている可能性がある。そのため、CO₂固定量は試験前後のCO₂含有率の差し引きから評価した。各シリーズで用いた3種類の再生粗骨材は、それぞれ同一のロットで製造されたものである。

表-5 試験前の各再生粗骨材のTG-DTAによる分析結果

再生粗骨材種類	CO ₂ 含有率 (%)	Ca(OH) ₂ 量 (%)	CaCO ₃ 量 (%)
A	7.53	0.00	17.11
B	3.54	1.26	8.05
C	7.00	2.81	15.90

3. シリーズ I

3.1 試験方法

シリーズIでは表-6に示す3つの方法で各種再生粗骨材へのCO₂固定を試みた。試験①では、MNB水へ再生粗骨材を浸漬することで、CO₂を固定できるかを確認した。手順としては、再生粗骨材とMNB水を1:5の割合でバケツに投入し、24時間ごとにCO₂濃度が飽和状態のMNB水に入れ替えた。CO₂固定量の確認は1、3、7日で試料を採取し行った。試験②では、炭酸化の促進を期待して乾湿繰り返しによるCO₂固定量の確認を行った。手順としては、再生粗骨材とMNB水を1:5の割合でバケツに投入し6時間以上静置後、MNB水から再生粗骨材を取り出し、105℃の乾燥炉で一晩乾燥する手順を1サイクルとして繰り返し行った。試験③では、温度20℃、60%RH、CO₂濃度5%の中性化促進槽内で再生粗骨材を炭酸化養生し、本検討で使用している材料へのCO₂固定量を確認した。

表-6 シリーズI 各試験の詳細

試験① MNB水への浸漬試験	再生粗骨材：MNB水＝1：5の割合でMNB水に浸漬し、24時間ごとに飽和状態のMNB水に入れ替える。浸漬中は20℃、60%RHの恒温恒湿室に静置。1、3、7日で試料を採取。
試験② MNB水への浸漬＋乾燥繰り返し試験	MNB水へ6時間以上浸漬後、105℃の乾燥炉で一晩乾燥を1サイクルとし、5サイクル実施。各サイクル終了時に試料を採取。
試験③ CO ₂ 濃度5%雰囲気下における炭酸化養生試験	20℃、60%RH、CO ₂ 濃度5%の中性化促進槽に静置。MNB水の浸漬は行わない。1、3、7日間炭酸化養生後に試料を採取。

3.2 分析結果

表-7～9、図-2に、試験①～③のCO₂含有率および固定量の推移を示す。試験①では多くの水準でCO₂の固定量がマイナスとなり、試験②においても、固定量がマイナスとなるケースが見られた。図-3に、各試験におけるCa(OH)₂量の推移を示す。試験①、②ではCa(OH)₂量の増減はほとんど見られないことから、MNB水中ではCa(OH)₂のCaCO₃への反応はほとんど生じていないことが推察される。これは、金ら⁷⁾は絶乾状態のモルタル

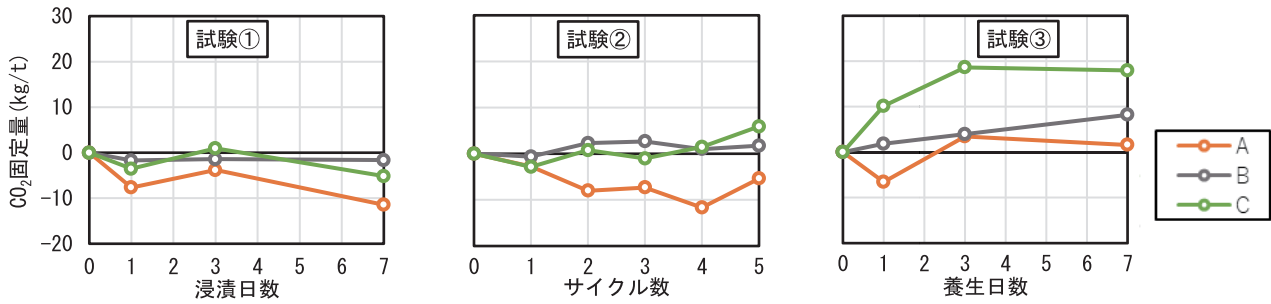


図-2 各試験のCO₂固定量の推移

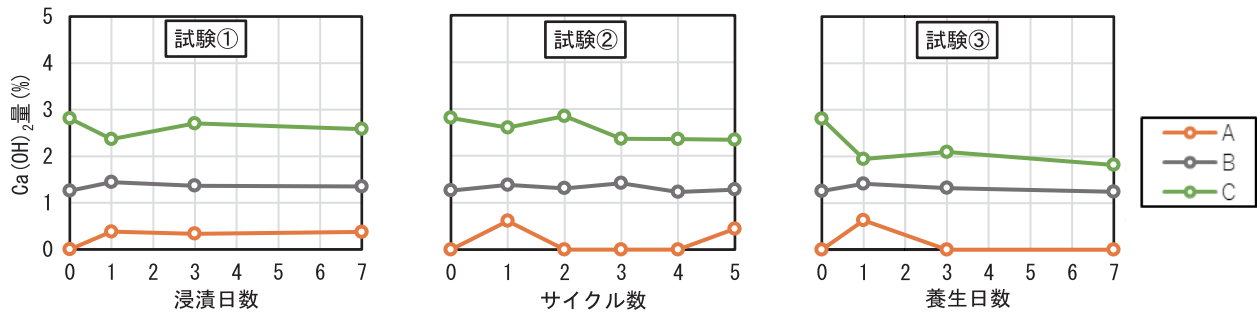


図-3 各試験のCa(OH)₂の推移

で試験しているが、本検討では社会実装を見据え絶乾処理をしていないため、MNB水が細孔中に行き渡らず、炭酸化反応が効果的に生じなかったことが考えられる。さらに、低pHのMNB水に曝されることによってCaCO₃が重炭酸カルシウムに変化し、水中に溶出した可能性が考えられる。

試験③では、炭酸化養生日数の増加に伴ってCO₂固定量が増える傾向を確認できた。特に、残コン・戻りコンから製造された再生粗骨材Cが炭酸化養生日数7日で約18kg/tのCO₂を固定していた。解体ガラから製造された再生粗骨材A, Bは固定量が小さく、前述したように、供用期間中や再生粗骨材の製造過程で多くのCO₂を固定していることから、CO₂固定のポテンシャルが低いことが示された。また、炭酸化養生日数が3日を超えると反応が停滞する現象を再生粗骨材A, Cにおいて確認した。これはCaCO₃の生成によってCa(OH)₂の炭酸化が阻害され、鈍化したことが影響していると考えられる。

試験の結果、再生粗骨材に対して多量のMNB水の浸漬は骨材へのCO₂固定を阻害すること、CO₂濃度5%の雰囲気下ではCO₂固定が進行するが、炭酸化養生期間3日を超えると反応が停滞することを確認した。また、残コン・戻りコンから製造され、セメントペーストの付着量が多い再生粗骨材Cが、新たなCO₂固定のポテンシャルが高いことが示唆されたため、シリーズⅡおよびシリーズⅢでは、再生粗骨材Cを用いて検討することとした。

表-7 試験① CO₂含有率および固定量

浸漬日数	CO ₂ 含有率(%)			CO ₂ 固定量(kg/t)		
	再生粗骨材種類			再生粗骨材種類		
	A	B	C	A	B	C
0	7.53	3.54	7.00	0		
1	6.76	3.37	6.64	-7.65	-1.69	-3.51
3	7.15	3.40	7.09	-3.79	-1.41	0.96
7	6.38	3.38	6.48	-11.44	-1.62	-5.14

表-8 試験② CO₂含有率および固定量

サイクル数	CO ₂ 含有率(%)			CO ₂ 固定量(kg/t)		
	再生粗骨材種類			再生粗骨材種類		
	A	B	C	A	B	C
0	7.53	3.54	7.00	0		
1	7.25	3.48	6.71	-2.75	-0.63	-2.85
2	6.73	3.77	7.07	-8.01	2.28	0.76
3	6.80	3.81	6.89	-7.33	2.66	-1.03
4	6.36	3.64	7.14	-11.67	1.00	1.44
5	6.99	3.72	7.59	-5.38	1.75	5.91

表-9 試験③ CO₂含有率および固定量

養生日数	CO ₂ 含有率(%)			CO ₂ 固定量(kg/t)		
	再生粗骨材種類			再生粗骨材種類		
	A	B	C	A	B	C
0	7.53	3.54	7.00	0		
1	6.87	3.73	8.01	-6.55	1.84	10.13
3	7.87	3.94	8.86	3.46	3.94	18.63
7	7.69	4.36	8.79	1.58	8.21	17.97

4. シリーズⅡ：高濃度 CO₂ 雰囲気下における炭酸化養生試験（湿度変化）

4. 1 試験方法

既往の研究¹¹⁾から W/C 0.34 のコンクリートでは、コンクリート中に存在する空隙対して 70% の水分量で CO₂ 固定効率が大幅に向上することが報告されている。一方で、従来の中性化速度に及ぼす環境条件の影響で明らかに、空隙内が水で満たされるような含水率では CO₂ の硬化体内部への拡散が阻害され、著しく炭酸化の進行が遅くなることが分かっている。このことから、骨材中の含水率が CO₂ 固定量との密接な関係があると考えられる。そこで、湿度環境を変化させ、試料の含水率の影響を把握するとともに、高濃度 CO₂ 雰囲気下で炭酸化養生を行い、炭酸化の効率化が図れるか検討を試みた。

炭酸化養生日数は実機での骨材製造を見据えて 3 日と設定した。試験には再生粗骨材 C を使用し、湿度以外の炭酸化養生条件は同一とし、温度 20℃、CO₂ 濃度は焼却施設などから排出される高濃度 CO₂ ガスを想定し、17% とした。

4. 2 分析結果

炭酸化養生前後の含水率の測定結果を図-4 に示す。含水率の測定は試料数 N=2 で行い、平均値で評価した。試験の結果、炭酸化養生後は湿度条件が高くなるにつれて含水率が增加しているが、いずれの湿度環境においても、炭酸化養生前よりも乾燥している状態となった。これは、本試験では、所定の温度、湿度および CO₂ 環境を再現するために促進中性化槽を用いているが、所定の環境維持を槽内の空気循環により行っているため、空気循環による乾燥を受け炭酸化養生前よりも含水率が低下したと推測される。

CO₂ 固定量を表-10、図-5 に示す。CO₂ 固定量は約 25 ~ 26kg/t となり、シリーズ I の最大値である約 18kg/t と比べて約 1.4 倍程度大きくなった。したがって、高濃度 CO₂ 環境下とすることで CO₂ 固定量が増加することが分かった。一方で、各湿度条件において含水率に差があったにもかかわらず、CO₂ 固定量には差がみられなかった。また、表-10 から、60, 80, 95%RH の場合は炭酸化養生後であっても Ca(OH)₂ が 1% 以上残存しており、まだ CO₂ を新たに固定できる余地があることを確認した。一方で、40%RH は他と比較して残存する Ca(OH)₂ が 2.40% と大きい。文献¹⁰⁾では高濃度 CO₂ 雰囲気下では Ca(OH)₂ よりも C-S-H の炭酸化が先行することが報告されており、低湿度の環境においてその傾向がより顕著に生じた可能性などが考えられる。このことより、含水率のみの指標で CO₂ の固定量の大小を示唆することはできないことが分かった。

5. シリーズⅢ：高濃度 CO₂ 雰囲気下における MNB 水噴霧＋乾燥繰返し試験

5. 1 試験①

(1) 試験方法

シリーズ I において、MNB 水への浸漬のみでは炭酸化反応が効率的に生じないことが分かった。一方で、既往の研究ではセメントペーストへの CO₂ 固定の効率化を図るには適切な含水率が有効であると報告されている¹¹⁾。しかし、シリーズⅡの結果より、含水率のみの指標で CO₂ の固定量の大小を示唆することはできないことが分かった。

以上の知見を活かし、再生粗骨材 C に対して吸水率（約 9%、表-3 参照）を超えない程度の MNB 水を噴霧によって直接供給し、所定の含水率を有する試料を作製するとともに高濃度 CO₂ 雰囲気下で乾湿を繰り返す方法を検討した。

表-10 炭酸化養生後の TG-DTA による分析結果

条件	CO ₂ 固定量 (kg/t)	Ca(OH) ₂ 量 (%)
40%	25.8	2.40
60%	25.9	1.36
80%	26.3	1.29
95%	24.9	1.47

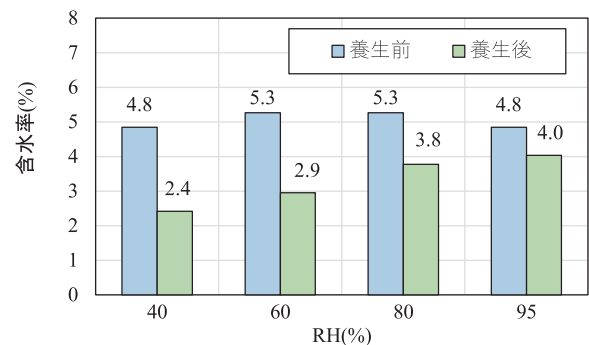


図-4 炭酸化養生前後の含水率測定結果

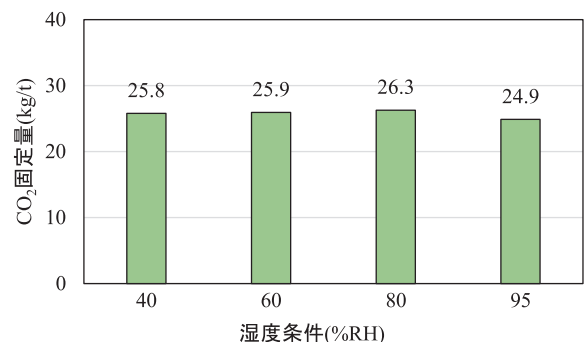


図-5 CO₂ 固定量の結果

表-11 に試験条件、表-12 に試験手順を示す。水の供給は噴霧器で行い、スプーンで再生粗骨材を攪拌しな

がら試料全体に水が掛かるように行った。噴霧の際、最も噴霧量が多いMNB水9%において、骨材に吸水されなかった余剰水が容器に残る様子を確認したが、その他の試験条件では余剰水は見られなかった。MNB水を噴霧後は20℃、60%RH、CO₂濃度17%の中性化促進槽に静置した。この手順を1日1サイクルで実施し、1、3サイクル経過時にCO₂固定量の推移を確認した。

(2) 分析結果

表-13に含水率の推移を示す。試験開始前は4.4～5.5%程度の含水率であったが、各サイクル終了時はMNB水の噴霧の有無に関わらず、1.4～2.5%となっており、中性化促進槽内で乾燥が進んでいることを確認した。

表-14、図-6にCO₂含有率とCO₂固定量の推移を示す。また、図-7にCa(OH)₂量の推移を示す。1サイクル時点では噴霧量が固定量に与える影響を確認することが出来なかったが、MNB水0%は1～3サイクル目にかけて固定量の増進が滞っている様子が確認できた。これは1サイクル目終了時点で含水率1.5%まで乾燥が進行しており、炭酸화에寄与する水分が減少したこととCaCO₃の生成によってCa(OH)₂の炭酸化が鈍化したことによる影響だと考えられる。しかし、1～3サイクル目ではCa(OH)₂量の低下が見られないにもかかわらず、CO₂の固定量が増加している。これは乾燥に伴い、高濃度CO₂雰囲気下においてC-S-Hの炭酸化が起こったと推察される。

結果としては、MNB水9%が全サイクルを通じて最も多量にCO₂を固定し、3サイクルで約37kg/tのCO₂を固定した。MNB水6%とMNB水3%においてはCO₂固定量に大きな差は見られなかった。Ca(OH)₂量の推移を見ると、すべての水準において3サイクル終了時に未反応のCa(OH)₂量が1%以上残存していることから、CO₂固定の検討の余地はまだあるといえる。次の試験ではよりCO₂固定量の増加に効果的な方法を見出すために、MNB水の噴霧サイクルを増やして試験を行った。

表-11 試験条件

記号	MNB水噴霧量	備考
MNB水0%	噴霧なし	1、3サイクル終了時に試料採取(N=3)。試験前および各サイクル終了後の含水率を計測。
MNB水9%	骨材質量の9%	
MNB水6%	骨材質量の6%	
MNB水3%	骨材質量の3%	

表-12 試験手順

手順	備考
1 MNB水の噴霧	攪拌しながら噴霧器で所定の水量を全体的に噴霧する。
2 炭酸化	20℃、60%RH、CO ₂ 濃度17%の中性化促進槽に静置する。

1～2を1日1サイクルとし、所定のサイクル数でサンプルを採取して分析を行う。

表-13 含水率の推移

サイクル数	含水率(%)			
	MNB水0%	MNB水9%	MNB水6%	MNB水3%
0	4.38	4.38	5.47	5.47
1	1.47	1.96	2.02	2.48
3	1.40	1.95	1.90	1.87

表-14 CO₂含有率および固定量の推移

サイクル数	CO ₂ 含有率(%)			
	MNB水0%	MNB水9%	MNB水6%	MNB水3%
1	8.9	9.3	8.7	8.7
3	9.2	10.3	9.1	9.5

サイクル数	CO ₂ 固定量(kg/t)			
	MNB水0%	MNB水9%	MNB水6%	MNB水3%
1	22.8	27.0	20.6	21.4
3	25.8	36.8	25.2	29.3

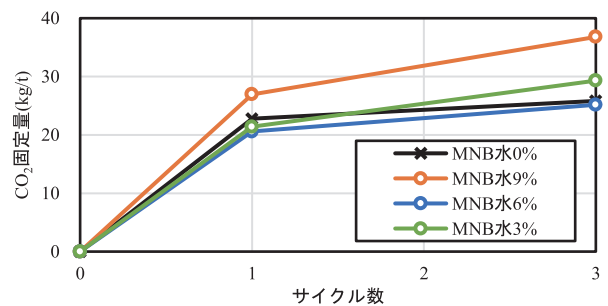


図-6 CO₂固定量の推移

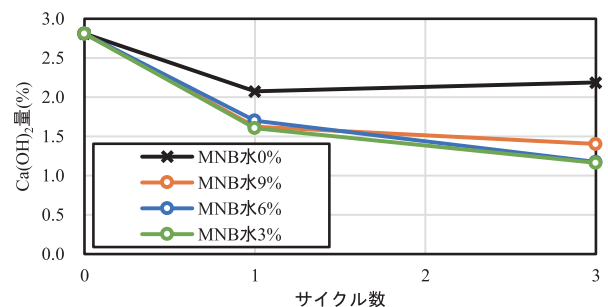


図-7 Ca(OH)₂量の推移

5.2 試験②

(1) 試験方法

試験②では試験①の結果を反映させるとともに、より効率的なCO₂固定方法を検討するためにMNB水の噴霧サイクルを変更して試験を行った。具体的には試験①で行った試験を1日2サイクルとし、MNB水の噴霧と高濃度CO₂雰囲気下での炭酸化養生を3日間で6サイクル行った。表-15に試験条件を示す。CO₂固定量の確認は2、4、6サイクルで実施した。試料はサイクルごとに2つ採取し、分析結果は2つの値を平均した値によって評価した。含水率の計測は試験前と各サイクル終了時に行い、MNB水9%のみ、2、4、6サイクルにMNB水を噴霧した直後の含水率も計測した。

(2) 分析結果

表-16に含水率の推移を示す。MNB水9%は、MNB水噴霧直後に7~9.5%程度、各サイクル終了後は3%程度の含水率であった。MNB水3%も各サイクル終了後の含水率は3~4%程度であり、試験①と同様に中性化促進槽内における炭酸化養生中の乾燥を確認したが、乾燥時間を短くしたことで、試験①と比較すると大きい含水率であった。

表-15 試験条件

記号	MNB水噴霧量	備考
MNB水9%	骨材質量の9%	2, 4, 6サイクル終了時に試料採取(N=2). 試験開始前に2, 4, 6サイクル終了後の含水率を確認. MNB水9%のみ、MNB水噴霧直後の含水率を確認.
MNB水3%	骨材質量の3%	

表-16 含水率の推移

サイクル数		(1)MNB水9%	(2)MNB水3%
0サイクル		4.40	4.40
2サイクル	MNB水噴霧後	9.51	-
	終了後	3.01	4.26
4サイクル	MNB水噴霧後	7.26	-
	終了後	3.13	3.33
5サイクル	MNB水噴霧後	9.12	-
	終了後	2.94	3.19

図-8に、CO₂固定量の推移を示す。CO₂固定量は、MNB水9%とMNB水3%が4サイクル目まではほとんど同等の固定量で推移していたが、4~6サイクル目では試験①と異なり、MNB水9%の反応が停滞し、MNB水3%の反応が進んだ結果となった。この結果に関しては、炭酸化時間を短期間としたため、乾燥が十分に進んでいない状態の再生粗骨材にMNB水を噴霧したこととなり、結果として過剰な水分供給となったと考えられる。一方で、噴霧した量の少ないMNB水3%は再生粗骨材中の水分量と供給したMNB水が炭酸化に適当な関係となり、CO₂固定量が安定して増加したと考えられる。

試験①の結果とCO₂固定量の最大値を比較すると、試験②の方が約10kg/t小さい結果となり、試験①よりも噴霧回数を増やすことでCO₂固定量の増加を期待したが、あまり効果はなかった。しかし、試験①においては本報で使用した残コン・戻りコンを硬化後に破碎して製造した再生粗骨材に約37kg/tのCO₂を固定できる結果を確認できたため、一定の湿度に保つよりも、乾湿を繰り返す方が効果的にMNB水へのCa²⁺の溶脱や細孔中へのCO₂の供給が進むのではないかと考えられる。

今後は、更なる効果的なCO₂固定技術の確立のために、最適なCO₂固定条件の検討を行っていくとともに、C-S-H

の定量分析なども行い炭酸化メカニズムの解明を行っていく所存である。

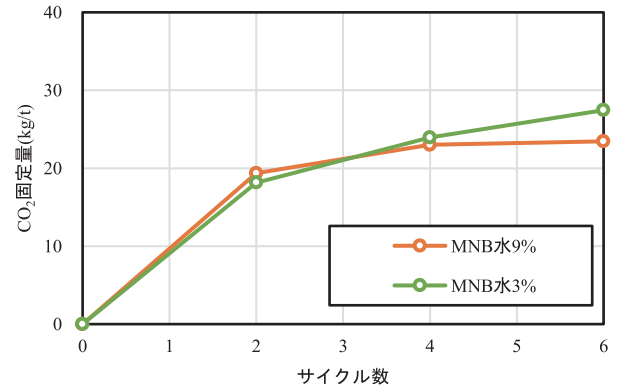


図-8 CO₂固定量の推移

6. まとめ

本報では、再生粗骨材への効果的なCO₂固定を目的とし、効果的に骨材へCO₂を浸透させられることが期待されているMNB水での浸漬や乾湿繰り返し、高濃度CO₂雰囲気下での炭酸化養生などの実験的検討を行った。その結果、以下の知見を得た。

- 1) 骨材を絶乾状態にせず行ったMNB水での浸漬実験においては、Ca(OH)₂のCaCO₃への反応はほとんど生じないという結果を得た。むしろCaCO₃量がマイナスとなる水準も見られ、低pHのMNB水に曝することによってCaCO₃が重炭酸カルシウムに変化し、水中に溶出する可能性が示唆された。
- 2) CO₂濃度5%雰囲気下における炭酸化養生試験においては、炭酸化養生日数7日で約18kg/tのCO₂の固定を確認できた。
- 3) 高濃度CO₂雰囲気下における炭酸化養生試験(湿度変化)において、CO₂固定量はいずれも約25~26(kg/t)となり、シリーズIの最大値である約18kg/tと比べて約1.4倍程度大きくなる結果となった。ただし、湿度条件によるCO₂固定量の増減は確認できなかった。
- 4) MNB水噴霧+乾燥繰り返し試験においてはMNB水を再生粗骨材の吸水率を超えない範囲で噴霧し、高濃度CO₂雰囲気下で炭酸化養生および乾燥を繰り返すことで、CO₂固定量の増進が促進できることを確認した。この方法を用いることで、本報で使用した残コン・戻りコンを硬化後に破碎して製造した再生粗骨材に約37kg/tのCO₂を固定できることを示した。

謝辞

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) の業務委託 (JPNP21023) の一環として行ったものです。東京大学の野口教授、東京都立大学の上野准教授には、考察に関するご助言を頂きました。関係各位に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 全国地球温暖化防止活動推進センター : <https://www.jccca.org/> (閲覧日 : 2023 年 1 月 6 日)
- 2) 一般社団法人セメント協会 : https://www.jcassoc.or.jp/cement/4pdf/220324_01.pdf (閲覧日 : 2023 年 1 月 6 日)
- 3) 吉野ほか : 高濃度 CO₂ 雰囲気下における湿度条件が再生粗骨材の CO₂ 固定量に与える影響に関する検討, 学術講演梗概集 DVD, pp. 1397-1398, 2023
- 4) 吉野ほか : 再生骨材への効果的な CO₂ 固定方法に関する検討, コンクリート工学年次論文集, Vol. 45, 2023
- 5) コンクリートの炭酸化に関する研究の現状, 炭酸化研究委員会報告書, 日本コンクリート工学協会, 1993. 6
- 6) 松田 信広, 伊代田 岳史 : 炭酸化による低品質再生骨材の改質技術の提案と改質再生骨材がコンクリートに与える影響, コンクリート工学年次論文集, Vol. 30, pp. 65-76, 2019
- 7) 金 志訓, 北垣 亮馬, 割田 聖洋 : CO₂ ナノバブルを用いた炭酸化反応による空隙充填効果に関する研究, コンクリート工学年次論文集, Vol. 37, No. 1, pp. 1543-1548, 2015
- 8) 柘植 秀樹 : マイクロバブル・ナノバブルの基礎, 日本海水学会誌, Vol. 64, No. 1, pp. 4-10, 2010
- 9) 安田 遼介, 島崎 大樹, 七澤 章, 森 泰一郎 : 炭酸化を受けたセメント系材料中の CO₂ 含有率評価に向けた分析方法の検討, セメント・コンクリート論文集, Vol. 75, No. 1, pp. 442-447, 2021
- 10) 伊代田ほか : セメントペーストの炭酸化機構の検討 - 実環境と促進環境の相違について -, セメント・コンクリート論文集, Vol. 72, 2018
- 11) Ke-yu Chen et al : An overview on the influence of various parameters on the fabrication and engineering properties of CO₂-cured cement-based composites, Journal of Cleaner Production, p. 8, 2022

Study on CO₂ fixation of granulated recycled aggregate derived from ready-mixed concrete

Takahiro IWAFUCHI, Rei YOSHINO, Yoshiyuki SUZUKI and Kazuto FUKUDOME

Cement emits a large amount of CO₂ during its production. However, hardened cement has a very high potential to absorb and fix CO₂, and is expected to contribute to a decarbonized society. In this study, we focused on recycled aggregate produced by crushing returned concrete and residual concrete after curing, and investigated how to effectively fix CO₂ to hardened cement attached to the recycled aggregate. As a result, that the fixation of CO₂ to the recycled aggregate requires an adequate supply of microbubble water and a highly concentrated CO₂ environment where a large amount of CO₂ can be absorbed during the drying process, suggesting that under appropriate conditions, a maximum of about 37 kg/t CO₂ can be fixed.
