

報告 生コンクリート由来の粒状化再生骨材への CO₂ 固定に関する検討

安部 弘康*1・山内 和宏*2・白岩 誠史*3・鈴木 好幸*3

要旨：本研究では、現場から生コン工場に返送された残コンをフレッシュコンクリートの状態から造粒処理することにより製造される粒状化再生骨材製造技術に着目し、粒状化再生骨材の品質を確認するとともに、粒状化再生骨材への効果的な CO₂ 固定化を目的とし、実験的検討を行った。その結果、使用する粒状化材料によって粒状化再生骨材の物性に違いがみられたが、物理的性質および粒度といった側面では、それぞれ通常の再生骨材 M, L に近い品質であることが確認できた。また適度なマイクロバブル水の供給と CO₂ 環境下での乾燥を繰り返すことで、効率的に CO₂ が固定できることが示唆された。

キーワード：粒状化再生骨材, CO₂ 固定, 炭酸化, 示差熱-熱重量同時分析

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おり、我が国においても 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は、クリンカの製造過程で多くのエネルギーが必要なことに加え、原料である石灰石を大量に使用するため、地球温暖化の主要因である二酸化炭素（以下、CO₂）を多く排出することが知られている。そのため、コンクリート分野における CO₂ 削減の取組みにおいては、クリンカの使用量を減らすために高炉スラグやフライアッシュなどの副産物を積極的活用した低炭素型コンクリートの展開が進められている。

一方で、セメント・コンクリートは CO₂ を固定化するポテンシャルが非常に高く、コンクリート構造物は供用期間中に大気に接している表面が炭酸化することで二酸化炭素（CO₂）を吸収・固定している。供用を終えたコンクリート構造物は、解体され、破碎、粒度調整などの再資源化の過程を経て、コンクリート用の再生骨材や道路舗装用の路盤材として再利用されている。この再資源化の過程では、新しく大気に接する面が大きくなることから、さらに CO₂ を吸収・固定すると考えられている。そのような観点から、再生骨材を対象に付着するモルタル中に含まれるカルシウム分に人為的に CO₂ を固定化させることで、資源循環と同時に CO₂ 削減への貢献も期待されている。しかしながら、再生骨材はコンクリート解体ガラから製造されるため、原コンクリートの品質や供用された期間、どのような環境で使用されているかを完

全に把握することは困難であり、使用する原コンクリートによって CO₂ 固定化できるポテンシャルは大きく異なることが想定される。

そこで本研究では、現場から生コン工場に返送された残コンをフレッシュコンクリートの状態から造粒処理することにより製造される粒状化再生骨材製造技術に着目し、その基本特性と CO₂ 固定量のポテンシャルについての検討を行った。

2. 粒状化再生骨材の概要

2.1 粒状化再生骨材の定義・位置づけ

“再生骨材”は、構造物の解体時および生コン工場の戻りコンから発生するコンクリート塊から製造され、JIS A 5201 再生骨材用コンクリート H および JIS A 5202, 5203 における再生骨材コンクリート M, L の附属書として規定されている。それらの規定における再生骨材は、十分に硬化してないものを対象にしないために、“運搬車から排出後 1~3 日で砂利状に砕いたものは除く”さらに“原コンクリートに対し、破碎などの処理を行って製造した骨材”と記載されている。そのため、本報告で対象とする粒状化再生骨材は、材齢 0 日において、破碎することなく、生コンから直接砂利状（粒状）にし、その後硬化させて製造するため、現在の再生骨材の規格に当てはまらない。

今後、粒状化技術が社会に広まることで、粒状化再生骨材の名称や規格化、定義が議論されていくと考えているが、本報告では、“粒状化再生骨材は、材齢 0 日のフレッシュ状態の生コンに、粒状化材料等を混ぜ込むことで、生コンの流動性を低下させ粒状とした骨材”と定義する。粒状化再生骨材の原コンクリートとなる生コンは、ほとんどの場合 JIS A 5308 “レディーミクストコンクリート”

*1 (株)安藤・間 技術研究所脱炭素技術開発部 (正会員)

*2 灰孝小野田レミコン(株) (正会員)

*3 (株)安藤・間 技術研究所脱炭素技術開発部 工博 (正会員)

認証工場から出荷されるため、全ての材料のトレーサビリティが把握でき、アルカリ骨材反応などが担保できると考える。

2.2 製造方法・原コンクリートの諸元

粒状化再生骨材を製造するにあたり、原コンクリートの使用材料を表-1に、調合を表-2に示す。原コンクリートは、呼び強度 24、スランプ 15cm のコンクリートとし、0.5m³ 製造して 4t のアジテータ車に投入し、残コンを模擬した。このコンクリートに、表-3に示すタイプ・主成分が異なる 2 種類の粒状化材料を投入し、所定の製造方法によって粒状化再生骨材を製造した。各粒状化材料による粒状化再生骨材の製造方法を表-4に示す。また、製造時の写真を写真-1に示す。

粒状化再生骨材の製造作業を行った後、アジテータ車のドラム内を水洗いし、ドラム内の確認を行ったところ、粒状化材料 A は約 10kg 程度の樹脂の付着があり、水洗いのみでは洗浄できないことが判明した(写真-2)。一方、粒状化材料 B については残渣が無く、水洗いのみで洗浄が完了できることを確認した。粒状化材料 A について、糸を引くような樹脂の塊はアジテータ車から排出後の粒状化再生骨材の中にも散在し、養生終了時においても少ないながら存在した。1 日養生後の解砕作業においては粒状化材料 A のほうがやや労力を要した。

ふるいによって 5~25mm に分級した粒状化再生骨材を写真-3に示す。粒の目視では粒状化材料 A を用いた骨材は、同 B よりも粒形が大きい傾向にあり、袋詰した嵩については 5% 程度、B のほうが多くなった。

表-1 原コンクリートの使用材料

材料	記号	種類・仕様
水	W	上水道水
セメント	C	普通ポルトランドセメント 密度=3.16g/cm ³
細骨材	S	山砂(城陽産) 表乾密度=2.55 g/cm ³ , 絶乾密度=2.50 g/cm ³ , 吸水率=2.00%, 粗粒率=2.75
粗骨材	G	碎石 2005(土山産) 表乾密度=2.67g/cm ³ , 絶乾密度=2.66 g/cm ³ , 吸水率=0.65%, 粗粒率=6.69
混和剤	Ad	AE 減水剤(リグニル硫酸化合物とホリカルボン酸エーテルの複合体)

表-2 原コンクリートの調合

呼び強度 (N/mm ²)	単位量(kg/m ³)				
	W	C	S	G	Ad
24	174	335	792	969	2.68

表-3 使用した粒状化材料

品名	タイプ	主成分
粒状化材料 A	樹脂	高分子吸水剤
粒状化材料 B	セルロース	古紙

表-4 各粒状化再生骨材の製造方法

粒状化材料 A	粒状化材料 B
高分子剤をアジテータ車に投入	粒状化材料をアジテータ車に投入
ドラムを 30 秒高速攪拌	ドラムを 2 分中速攪拌
急結剤をアジテータ車に投入	ドラムを 2 分高速攪拌
ドラムを 3 分高速攪拌	
コンクリート土間に排出	
排出した粒状化再生骨材を広げ、ブルーシートを掛け 24 時間養生	
ハンスコップ等で粉砕し、粒同士を分離	
ブルーシートを掛け 3 日間養生	
ふるいにより、5~25mm に分級	



(a) 粒状化材料投入



(b) アジテータ車からの排出



(c) ハンスコップ等による粉砕

写真-1 粒状化再生骨材の製造



写真-2 粒状化材料 A ドラム壁面の付着物



粒状化再生骨材 A



粒状化再生骨材 B

写真-3 養生終了後の各粒状化再生骨材

2.3 粒状化再生骨材の品質・物性

粒状化材料 A, B を用いて、表-4 に示した手順で粒同士を分離後、ブルーシートを掛け 3 日間養生した各粒状化再生骨材を、フレコンバックに詰めて室内環境で材齢約 4 週まで静置し、5~25mm の範囲に分級して粗骨材としての品質・物性を確認した。試験は、絶乾密度・吸水率試験は JIS A 1110、粒度分布は JIS A 1102、破碎値試験と推定吸水率の計算は JIS A 5023 附属書 C に従い、付着ペースト率は塩酸溶解により測定した。

表-5 に物理的性質とペースト率、図-1 に各粒状化再生骨材の粒度分布、表-6 に破碎値と推定吸水率の試験結果、図-2 に付着ペースト率と吸水率の関係を示す。吸水率と絶乾密度は、粒状化材料 A を用いたものでは JIS A 5022 附属書 A コンクリート用再生粗骨材 M に、B では JIS A 5023 附属書 A コンクリート用再生粗骨材 L の規格に適合する範囲であった。また、粒度分布は事前に粒度調整したため、A, B のいずれも再生粗骨材 M2505 に適合する範囲であった。今回対象とした粒状化材料 A, B では、製造した粒状化再生骨材の物性に違いがみられたが、物理的性質および粒度といった側面では、それぞれ通常の再生骨材 M, L に近い品質であることが確認された。

一方、JIS A 5023 附属書 C では再生粗骨材 L の吸水率の推定試験方法として、破碎試験の方法とこれより得られた 100kN 破碎値から推定吸水率を算出する方法として以下の(1)式が示されている。

$$Q = 0.85C_g + 1.50 \quad (1)$$

ここに、 Q : 再生粗骨材 L の推定含水率(%), C_g : 100kN 破碎値(%)

破碎値試験から算出した再生粗骨材 L の推定含水率は JIS A 1110 により実測した吸水率と比べ粒状化材料 A を用いたもので 80%, B では 70%程度といずれも小さく、今回試験した粒状化再生骨材ではいずれも通常の再生骨材 L に比べ、吸水率に比して破碎値が小さいと考えられた。その要因としては、粒状化材料の影響で付着しているモルタル (ペースト) の付着力が強いこと、粒状化再生骨材の製法では通常の再生骨材の製造で用いられる破碎などによる余計な力に加えられないこと、などが考えられた。また、付着ペースト率は A に比べ B の方が 7%程大きく、A は文献¹⁾に示される再生粗骨材 L のペースト率 18%に近い値であるが、B では吸水率に比してペースト率が大きい結果であった。

3. CO₂ 固定化試験

3.1 炭酸化養生・評価方法

粒状化材料 A, B を用いてそれぞれ製造した粒状化再生骨材 A, B に対して、CO₂ の微細気泡を含む水分を供

表-5 粒状化再生骨材の物理的性質とペースト率

項目	粒状化材料種類		JIS A 5022 規格値	JIS A 5023 規格値
	A	B		
表乾密度 (g/cm ³)	2.47	2.38	-	-
吸水率 (%)	4.79	6.18	5.0 以下	7.0 以下
絶乾密度 (g/cm ³)	2.36	2.24	2.3 以上	-
微粒分量 (%)	0.00	0.00	2.0 以下	3.0 以下
ペースト率 (%)	18.5	25.6	-	-

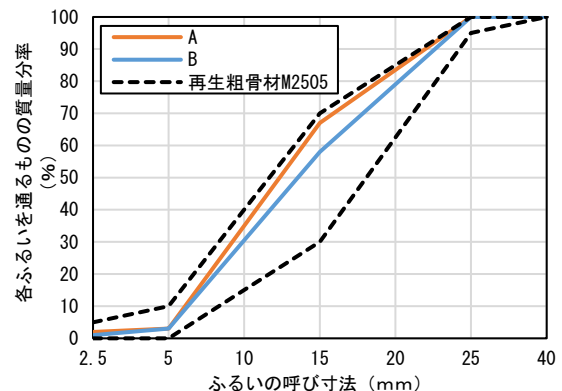


図-1 粒状化再生骨材の粒度分布

表-6 粒状化再生骨材の破碎値と推定吸水率

粒状化材料種類	100kN 破碎値 (%)	再生粗骨材 L の推定吸水率 (%)	JIS A 1110 による吸水率 (%)	推定吸水率/JIS 吸水率 (%)
A	2.9	3.97	4.79	82.9
B	3.4	4.39	6.18	71.0

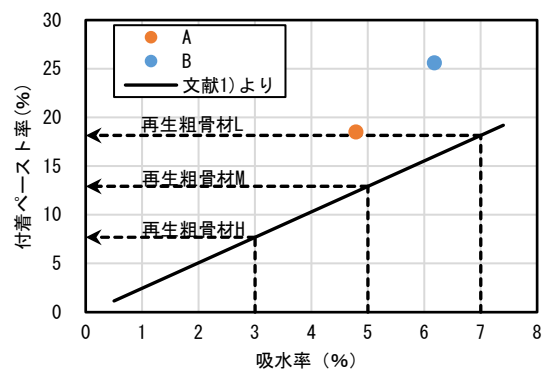


図-2 付着ペースト率と吸水率の関係

給して高濃度 CO₂ 雰囲気化で養生を行う方法で CO₂ の固定化を検討した。供給する水分には CO₂ を 100 μm 以下の気泡 (マイクロバブル・ナノバブル) として水中に保持した溶液 (以下、MNB 水) を用いた。金ら²⁾は、CO₂ ナノバブルを含む溶液にモルタルサンプルを繰り返し浸漬させることで、効果的に炭酸化による空隙充填効果が得られることを報告している。また、極微小な気泡によ

って水の表面張力が低下し³⁾、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、本報においてもMNB水を使用することとした。MNB水は、二相流旋回方式のノズルを有する発生装置を用いて、水量20L/minに対しCO₂は1L/minの流量で混合し製造した。MNB水の供給量は、空隙内が水で満たされるような含水状態ではCO₂の硬化体内部への拡散が阻害されると考えられたことから、表-6に示すJIS A 1110により実測した各骨材の吸水率と同程度を上限とした。

表-7に試験水準、表-8に試験手順を示す。試料は2.3で示した材齢約4週の表乾状態にある骨材約1tを縮分し、各2kgとした。MNB水の供給は噴霧器で行い、スプーンで再生骨材を攪拌しながら試料全体に水分が供給されるように行った。その後、CO₂濃度17%、温度20℃、湿度60%の中性化促進槽に静置した。この手順を1日2サイクル、合計で4サイクル(2日間)行い、2,4サイクルでCO₂固定量を確認した。また、試験前と2,4サイクルにMNB水を供給した直後、2,4サイクル終了時の含水率も計測した。なお、計4回噴霧したMNB水のCO₂濃度は平均で1690(ppm)、pHは平均で5.25であった。

CO₂固定量の分析は示差熱-重量同時分析(TG-DTA、以下、熱分析)によって行った。熱分析ではCO₂含有量の測定に加え、Ca(OH)₂量を推定することを目的とした。昇温速度は20℃/minで、1000℃まで計測した。なお、CO₂固定量およびCa(OH)₂の算出は、アセトン置換後の真空乾燥による絶乾状態として行っている。

Ca(OH)₂の測定は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量とした(図-3)。この質量変化量を基に化学反応式からCa(OH)₂量を推定した。CaCO₃量の推定は、既往の文献⁴⁾を参考に、TG曲線の550~900℃の間の質量変化を脱炭酸量として読み取り、化学反応式から推定した。また、CO₂の固定量については、1tの粒状化再生骨材あたりに固定されたCO₂として式(2)によって算出した。

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

ここに、CO_{2Fix}: CO₂固定量(kg/t)、CO₂': 試験後のCO₂含有率(%), CO₂: 試験前のCO₂含有率(%)

本来は、試験前後のCO₂含有率(%)の差の計算では、試験を行うことで新しく固定されたCO₂による質量増加を考慮して固定量を計算する必要があるが、本報ではその影響は極僅かであるため、除外することとした。また、

表-7 試験水準

記号	MNB水噴霧量	備考
0%	噴霧無	2,4サイクル終了時に試料採取 試験前および各サイクル終了後、MNB水噴霧後の含水率を計測
3%	粒状化再生骨材A,B共に 粒状化再生骨材質量の3%	
A: 5% B: 6%	JIS A 1110により実測した各粒状化再生骨材の吸水率と同程度 A: 粒状化再生骨材質量の5% B: 粒状化再生骨材質量の6%	

表-8 試験手順

手順	備考
1	MNB水の供給 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 CO ₂ 濃度17%、温度20℃、湿度60%の中性化促進槽に静置する

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

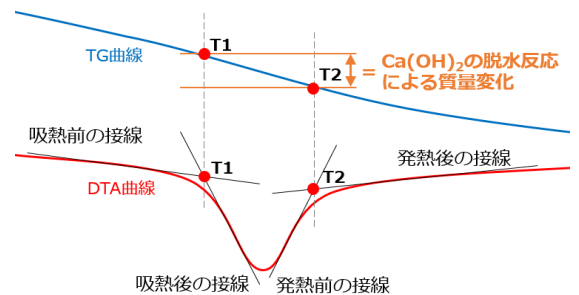


図-3 Ca(OH)₂の脱水反応の質量変化の推定方法

表-9 試料調整手順

手順	概要
1	1mm以下程度まで微粉砕
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	100μm程度までボールミルで細粉砕
5	真空凍結乾燥し、分析まで密封容器で保管
6	熱分析

表-10 試験前の各粒状化再生骨材の熱分析結果

粒状化材料種類	CO ₂ 含有率(%)	Ca(OH) ₂ 量(%)	CaCO ₃ 量(%)
A	2.40	1.73	5.45
B	3.21	2.27	7.30

熱分析では、今回使用した粒状化材料のような有機系材料を含む試料の評価において、分析中に有機系材料から発生するCO₂がCa(OH)₂と反応することでCaCO₃を生成するなどといった現象によりCO₂の定量結果に影響を及ぼす懸念があり、正しいCO₂固定量を捉えられていない可能性があることに留意が必要である。

分析にあたっては、試験終了後、表-9に示す手順で試料調製を行った。試験を開始するにあたり、2種類の粒状化再生骨材のCO₂含有量を熱分析によって確認した。熱分析の結果を表-10に示す。Aに比べBの方が、製造

表-11 含水率の推移

サイクル数	粒状化再生骨材 A			粒状化再生骨材 B		
	0%	3%	5%	0%	3%	6%
0	1.86	1.86	1.86	2.75	2.75	2.75
2 サイクル水供給後	-	4.78	6.55	-	5.51	8.31
2 サイクル終了後	1.03	1.29	1.29	1.24	1.48	1.38
4 サイクル水供給後	-	4.57	6.29	-	5.30	7.75
4 サイクル終了後	1.08	1.30	1.30	1.16	1.50	1.50

後に多くの CO₂ を吸収・固定化しているが、Ca(OH)₂ 量も B の方が多い。また、付着ペースト率も A に比べ B の方が大きいことから、粒状化材料 B を用いた方が、人為的な CO₂ 固定化のポテンシャルが高いと考えられた。

3.2 試験結果

3.2.1 含水率の推移

表-11 に含水率の推移を示す。含水率の初期値は、A に比べ B の方が大きく、MNB 水供給後も同じ傾向である。MNB 水供給直後の含水率は、吸水率と同程度供給した場合で A が 6%強、B が 8%前後、質量の 3%供給したものではいずれも吸水率より若干小さい値で推移している。サイクル終了後の含水率は、MNB 水を供給したものは、供給していないものより 0.2~0.3%大きい程度であり、中性化促進槽内での炭酸化するに乾燥が進んでいることが確認された。また、2 サイクルと 4 サイクル終了時で含水率の差は小さく、より乾燥させる余地はあるものの、吸水率程度の水分の付与は今回の試験環境とサイクル数では過剰な量ではないと考えられた。

3.2.2 CO₂ 固定量

表-12、図-4、図-5 に、熱分析によって確認した CO₂ 含有量と固定量の推移を示す。

2 サイクルの時点における CO₂ 固定量は、MNB 水を供給していないもので 8~9kg/t、3%および吸水率程度供給したものでは、ばらつきはあるものの 12kg/t 程度あり、MNB 水付与による固定量の増加が確認された。2~4 サイクルでは 0~2 サイクルに比べ、CO₂ 固定量の増加は鈍化するものの、A では MNB 水を供給していないものも含め 3kg/t 程度、B では供給なしで 1kg/t、3%および吸水率程度供給したものでは、それぞれ 2.5、4.3kg/t 増加した。4 サイクルの時点の CO₂ 固定量は MNB 水を供給したものは 15kg/t 前後であり、A と B では、A の固定量が 1kg/t 程度多い。いずれも 3%供給のものより吸水率程度供給したもの固定量が多いことから、吸水率程度の MNB 水の付与が、今回の試験環境においては炭酸化するを阻害しないことが、CO₂ 固定量の面からも確認できた。

従来、一般的なコンクリート構造物が降雨に曝される場合、材料表面が飽水状態になることで気体の CO₂ 拡散

表-12 CO₂ 含有率と固定量の推移

サイクル数	CO ₂ 含有率 (%)					
	粒状化再生骨材 A			粒状化再生骨材 B		
	0%	3%	5%	0%	3%	6%
0	2.40	2.40	2.40	3.21	3.21	3.21
2	3.22	3.57	3.62	4.11	4.40	4.26
4	3.54	3.89	3.98	4.22	4.65	4.68
サイクル数	CO ₂ 固定量 (kg/t)					
	粒状化再生骨材 A			粒状化再生骨材 B		
	0%	3%	5%	0%	3%	6%
0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
2	8.2	11.7	12.2	9.0	11.9	10.4
4	11.4	14.9	15.8	10.0	14.4	14.7

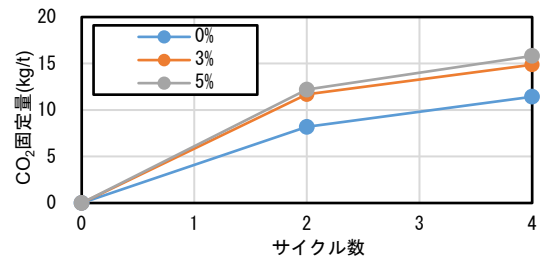


図-4 A の CO₂ 固定量

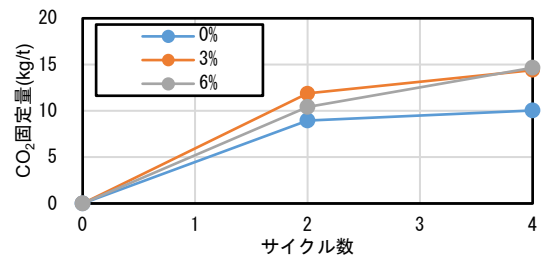


図-5 B の CO₂ 固定量

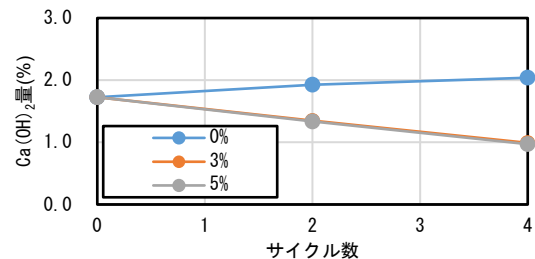


図-6 A の Ca(OH)₂ 量の推移

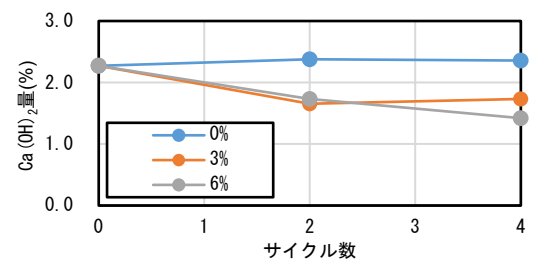


図-7 B の Ca(OH)₂ 量の推移

が抑制され、中性化の進行が遅くなると考えられている⁵⁾。また、既存建物の実態調査においても雨がかりが有る箇所が雨がかりのない箇所に比べて中性化速度が遅いことが報告されている⁶⁾。今回、粒状化再生骨材を17%濃度のCO₂環境下で炭酸化養生した場合に水分付与がCO₂固定量を増加させるメカニズムに関しては今後の課題とするが、モルタル破砕片を用いた曝露試験において乾燥環境よりも乾湿繰返し環境のほうが炭酸化の速度が速くなる報告もあり、その要因として、乾湿繰返し条件下では、炭酸化反応によるCa(OH)₂の消費を補うため、内部から表面に向かってCa(OH)₂が拡散し、Ca(OH)₂の消費が促進されることが挙げられている⁷⁾。本実験においても図-6、図-7に示すように、水分供給を行わないものではCa(OH)₂量が減少しないのに対して、水分供給を行ったものではサイクル数の増加に伴いCa(OH)₂量が減少しており、水分供給によりCa(OH)₂の消費が促進されていることが確認できる。また、pH5.6以下の酸性雨がコンクリート内部に透水した場合に、液中中に溶解したCO₂が移流により直接コンクリート内部に運ばれて中性化の進行を促進させる可能性があることを解析により示している報告⁸⁾もあることから、今回使用したMNB水中のCO₂が炭酸化促進に寄与している可能性も考えられる。

4. まとめ

本報では、粒状化再生骨材の品質を確認するとともに、粒状化再生骨材への効果的なCO₂固定化を目的とし、実験的検討を行った。MNB水を粒状化再生骨材の吸水率程度供給し、高濃度CO₂雰囲気下で養生および乾燥を繰り返すことで、CO₂固定量を増加できることを確認した。この方法を用いることで、本報で使用した粒状化材料で製造した粒状化再生骨材に約15kg/t程度のCO₂を固定化できたが、CO₂固定量の最大化、より効率的で安定したCO₂固定化に向け、最適なMNB水の供給量やサイクル

数、養生温度条件の調整など、更なるデータの蓄積、検討が必要と考えている。

謝辞

本研究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。関係各位に感謝いたします。

参考文献

- 1) 日本建築学会：再生骨材を用いるコンクリートの設計・製造・施工指針(案)p.62, 2014
- 2) 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
- 3) 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
- 4) 安田 遼介ほか：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, 2021
- 5) 佐伯竜彦ほか：「降雨により水分の供給を受けるコンクリートの中性化」, コンクリート工学年次論文集, Vol.19, No.1, pp.609-614, 1991.
- 6) 嵩英雄ほか：既存RC構造物におけるコンクリートの中性化と鉄筋腐食について その1～その3, 日本建築学会大会, 1983
- 7) 土木学会：コンクリート構造物の補修・解体・再利用におけるCO₂削減を目指してー補修における環境配慮および解体コンクリートのCO₂固定化ー, コンクリートライブラリー134, p.82, 2012
- 8) 岸本嘉彦ほか：コンクリートの透水性が中性化の進行に及ぼす影響, コンクリート工学年次論文集, Vol.29, No.1, 2007