

1. 序論

建造物の解体により発生する廃コンクリート（廃コン）の発生量は年間約 3500 万トン（平成 12 年）で、これは国内の産業廃棄物排出量の約 42% を占める。発生した廃コンは路盤材等に再利用されており、建設リサイクル法の完全施行などを受け、リサイクル率は 96%（平成 12 年度）に達している。しかし、今後廃コンの発生量が増大していくと予測されている^[1]のに対し、路盤材の需要は伸び悩む傾向にあること、また、廃棄物処分場の残存容量が逼迫していることから、将来を見越した廃コンの新たな再資源化ルートの確立が現在急務となっている。一方で、コンクリート重量の約 7 割を占める粗骨材（砂利）および細骨材（砂）について見ると、環境への配慮、資源の枯渇から質の高い骨材の確保が課題となっており、廃コンから再びコンクリートに使用可能な高品質な骨材の再生技術の研究開発が進められている。すでに、廃コンからの粗骨材再生にはすりもみ法などの技術が開発されているが、建造物解体時や粗骨材再生処理時に 20~70% 発生する廃コンの小粒径成分（粒径 5 mm 以下）から細骨材を再生することは既存技術では困難となっている。ここで廃コンの成分に着目すると、セメント水和物はカルシウムを含むアルカリ性化合物であるので、酸処理により成分の除去が可能である。主成分であるカルシウムが抽出された結果、セメント水和物の微細構造が破壊されて強度が低下し、容易に粉砕除去が可能になると推測される。本研究では、これまで細骨材再生が困難であった廃コン小粒径成分に対して、酸処理を含むプロセスを行うことで、セメント水和物含有量の少ない高品質な再生細骨材の製造可能であると考えた。酸としては炭酸水を用いることで、環境負荷が小さく、処理と同時に二酸化炭素固定が行えるプロセスとなることが期待される。

2. 本研究の目的

本研究では、炭酸水処理と機械的処理を組み合わせることで、すりもみ法など従来の骨材再生技術では困難であった廃コンの小粒径成分から、再び建材として使用可能な高品質な細骨材を再生するプロセスの開発を目指す。またプロセス最適化のためのツールとしてプロセスのコスト/エネルギーの評価手法の構築を行い、処理条件最適化の方向性を示す。

3. 試料のキャラクタリゼーションと品質評価手法

本研究では廃コンを原料とするが発生経路が異なる 2 種類の小粒径成分試料を骨材再生試験に用いた。これらは処理前の吸水率が異なり、既存の機械すりもみ式骨材再生装置より得られた低吸水率(3.7%)のものを試料 A、廃コン塊の破碎により得られた高吸水率(15.5%)のものを試料 B とした。粒度分布はそれぞれ 0.3-5 mm、0.6-5 mm である。再生細骨材の品質は吸水率を指標として評価した。吸水率は(試料を水に浸漬させた時の吸水量)/(試料乾燥重量)で定義される指標であり、セメント水和物の含有量に大きく依存すると考えられる。骨材として再利用するためには JIS が定める 3.5% を下回ることが必要である。吸水率測定は試料の水蒸気吸着量を指標とする測定法により行った。吸水率測定に先立ち、試料はふるいがけることにより処理前の粒径以下の成分を除去した。また収率は、骨材再生処理後に回収・乾燥させた 0.15-5 mm の成分の投入試料に対する重量割合と定義した。

4. 5 mm アンダーからの細骨材再生試験

4.1 実験装置および処理条件

炭酸水処理は、 Hastelloy 製高圧反応容器（内容積 1 L）を用いて行った。容器内に所定量の試料(10 g)とイオン交換水(800 mL)を導入した後、系内を高圧炭酸ガスで満たし、液相部分を羽根型攪拌機で攪拌することでセメント成分の抽出反応を進行させた。気相の炭酸ガスの圧力および反応温度はそれぞれ 3 MPa と 323 K で一定に保った。抽出を 60 分以上行う場合は、60 分毎に水を交換し微粉(0.15 mm 以下)を篩で除去してバッチ処理を繰り返した。また、カルシウム分の抽出状況を解析するため、高圧炭酸水処理中に、水相を随時サンプリングし、溶存カルシウム濃度を ICP-AES を用いて測定した。ボールミル処理は、試料 10 g と水 50 mL および粒径 10

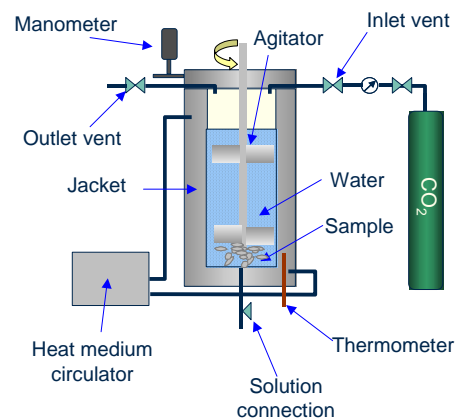


Fig. 1 Apparatus for the high-pressure CO₂ treatment.

mmのYTZ(ジルコニア)ボール340gを内容積0.4Lのポットに仕込み100rpmで回転させて行った。

4.2 試料Aからの細骨材再生試験

まず、セメント水和物の付着量が少ない試料Aに対しては炭酸水処理のみを行った。1時間抽出処理することでJIS吸水率3.5%を満たす再生細骨材を得ることができた(Table 1, A-1)。この結果より、既存の機械すりもみ式骨材再生処理でセメント水和物の大部分を除去した後の仕上げとして炭酸水処理が有効であることが示唆された。

4.3 試料Bからの細骨材再生試験

試料Bの場合、炭酸水処理のみ(B-1)では長時間の抽出を行っても吸水率は10%程度にしか低下しなかった。処理前試料中のカルシウム量と抽出炭酸水中のカルシウム濃度から推算したCa抽出率は、炭酸水処理だけの試料B-1の場合で90%以上となっていることから、吸水はカルシウム分が抽出された後のセメント水和物残渣が大きく寄与しているものと推察された。カルシウム抽出後のセメント水和物残渣はボールミル処理により破壊され、再生骨材の吸水率が大幅に低下するものと推察された。一方、ボールミル処理のみ(B-2)では吸水率は5%程度まで低下したが収率も大幅に低下し、ボールミル処理のみでは細骨材の再生は困難であるとするFumotoら^[2]の報告と同様の結論を得た。次に、炭酸水処理とボールミル処理を組み合わせた骨材再生試験を行った。炭酸水処理の後にボールミル処理を行った場合吸水率は5.2%まで低下した(B-3)が、処理後試料には目視によりカルシウムが抽出されていない白色のセメント水和物が確認された。このセメント水和物をボールミル処理で除去すること、およびカルシウム抽出のために炭酸水処理時間をさらに延長することは両者とも非効率的である。そこで試料B-4では、あらかじめボールミル処理を行ってある程度セメント水和物を除去した後に、炭酸水処理を行い、再びボールミル処理を行うことで吸水率2.6%のJIS吸水率を満たす再生細骨材が得られた。炭酸水処理前に先立ってある程度セメント水和物を除去することで、粒子内部のセメント水和物からのカルシウムが抽出され易くなったものと考えられる。以上の結果から「ボールミル処理 炭酸水処理 ボールミル処理」というプロセスによる廃コンからの再生細骨材の高品質化の可能性が示された。

5. カルシウム抽出速度式の構築

Table 1, B-5では細骨材再生が可能ではあるものの炭酸水処理時間が長く、エネルギー消費量の観点から今後短縮していく必要があると考えられる。炭酸水処理におけるCa抽出率はセメント水和物の強度に影響すると考えられ、プロセスにおける重要なパラメータである。このため試験条件の検討を行う際にはCa抽出率を常に念頭におく必要性があり、これを計算で予測するため未反応殻モデルを用いたCa抽出速度式を構築した。炭酸水処理の試験条件のうち二酸化炭素分圧、攪拌速度、粒子粒径については固定し、試料/水比、バッチ処理回数およびバッチ処理時間をパラメータとしている。未知の定数である粒子の形状係数および未反応殻内拡散係数については、実験結果とのフィッティングにより決定した。本計算手法をいすることで炭酸水処理におけるバッチ処理時間(水交換までの抽出時間)、バッチ処理回数(水を交換して行う処理の回数)、5mmアンダー/水比の3つのパラメータの変化に対して実験結果の予測が概ね可能であることを実験データとフィッティングさせ確認した。

6. プロセスの最適化

6.1 プロセスの評価手法の構築

次に処理条件最適化を行うため試料Bの実験結果を基にプロセスのエネルギー/コスト評価手法を構築した。想定するプロセスの範囲をFig.5に示す。5mmアンダーの処理量は年間60000万トン、これは国内で一年間に発生する廃コン3500万トンを都道府県ごとに三箇所骨材再生処理したと仮定したに発生する5mmアンダーの量である。5mmアンダーは発生地より処理フィールドである火力発電所周辺まで輸送し、実験での収率と同じ30%の18000万トンが細骨材として再生され供給地域に輸送されるとした。CO₂は発電所からalkanol amineによる化学吸着法により分離/回収し、抽出操作に必要な圧力まで圧縮する。炭酸水処理条件はTable 1, B-4と同

Table 1 Result of aggregate recovering treatment on waste concrete

Sample No.	Treatment methods C: CO2 solution B: Ball-mill crushing	Water absorption	
		before treatment [%]	after treatment [%]
A-1	C (1 hr)	3.7	2.7
B-1	C (6 hr)	15.5	10
B-2	B (6 hr)	15.5	4.9
B-3	C (6 hr) B (1 hr)	15.5	5.2
B-4	B (0.5 hr) C (6 hr) B (0.5 hr)	15.5	2.6

様としバッチ処理回数と同数の抽出塔(=6基)で並列処理を行うとした。水の加熱は廃熱を利用するため0とした。プロセスのエネルギー消費量は工程別に計算し、再生細骨材1トンあたりの値とした(Table 2)。これより炭酸水処理とCO₂圧縮に必要なエネルギーが全体の9割近くを占めることが示された。

プロセスのコスト試算についても Fig.5 のフローを用いた。検討ケースとして細骨材のみを再生するケース 以外に、Iizuka ら^[3]が提案している廃セメント微粉から高圧炭酸水でCaを抽出して高純度炭酸カルシウム(27000yen/t)を製造するプロセスにより、ボールミル処理で発生する微粉が炭酸カルシウムを製造販売し、同時に固定される二酸化炭素に対して炭素税(6000 yen/C-t)による収益を得るケースを想定した。再生細骨材は2000 yen/tで売却し、原料・生成物の輸送費は1500 yen/tとした。ケースで発生する微粉の処理費用は計上しなかった。それぞれの工程は設備費、運転費、水/廃水処理費、保守費で構成される。設備費はプラント建設費をべき乗則等を使って算出し減価償却期間を15年として計上した。保守費は設備費の25%を毎年計上した。運転費は電気代を10 yen/kWhとして計算した。水は上水道(60 yen/m³)を使用し、排水は205 yen/m³で処理するとした。ケースの試算結果をTable 3に示す。“骨材再生工程”のうち炭酸水処理の設備費が59%、水道排水処理費が29%を占めた。これは試料/水比が小さく使用水量が多いこと、および抽出処理時間が長く時間あたりの5mmアンダー仕込み量が増大することで反応塔が大型化するためである。ケースでは炭酸カルシウムの収益が225 million yen/yr 発生し、その製造コストを差し引くと全体収支は809 million yen/yrの赤字となりやや改善された。これらの試算結果は処理条件検討を行うことで改善させることを目指す。

6.2 プロセスの評価と最適化の方向性

構築したコスト/エネルギー評価手法を用いて炭酸水処理の種々の条件がプロセス全体に与える影響を検討したところ、炭酸水抽出処理時間およびの試料/水比の寄与が非常に大きかった。そこでまずプロセス「ボールミル処理 炭酸水処理 ボールミル処理」においてボールミル処理条件を固定して炭酸水処理時間を検討する実験を行った。結果、6時間行なっていた抽出処理は2時間程度まで短縮してもJIS吸水率を満たす再生細骨材が得られることが示された(Fig.3)。このときCa抽出率()、再生細骨材の収率()および吸水率()はそれぞれ相関関係にあり次のように表せる(Fig.4, Fig.5)。

$$= -0.344 + 7.34 \quad [\text{Eq.1}]$$

$$= 0.630 - 16.05 \quad [\text{Eq.2}]$$

まずCa抽出率()と吸水率()の相関について考察する。ボールミル処理で除去されるセメント水和物は、炭酸水処理でカルシ

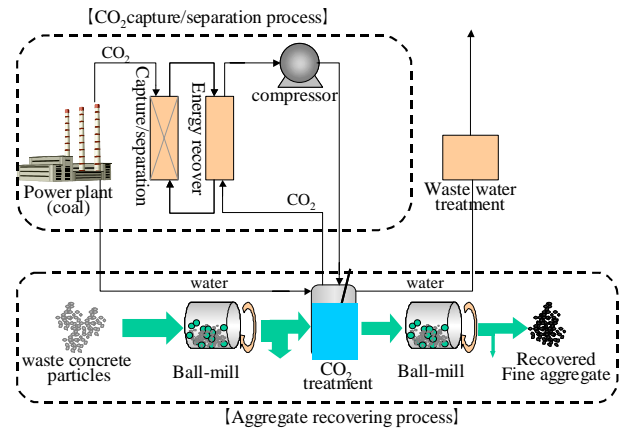


Fig.2 Fine aggregate recovering process from waste concrete particles

Table 2 Energy consumption of each treatment in the fine aggregate recovering process.

Unit process	electricity [MJ/aggretate-t]	heat
CO ₂ capture/separation	-	56
CO ₂ compression	536	-
CO ₂ treatment	638	0
Ball-mill crushing	96	-
Net power consumption	665	56

Table 3 Cost estimation of each treatment in the fine aggregate recovering process.

Unit process	Case [million yen/yr]
Aggregate recovering	577
CO ₂ capture/separation	142
Others (transport, labor cost, etc)	230
Aggregate sales (income)	-36
Balance	913

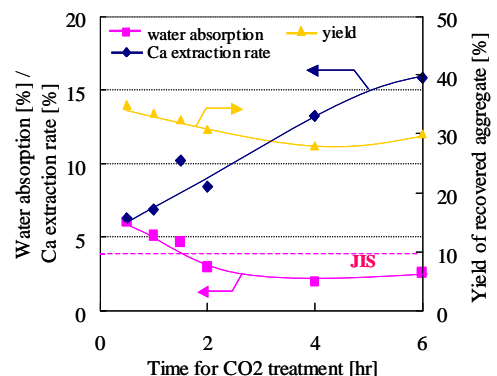


Fig.3 Time of CO₂ treatment is varied in a process “Ball milling (30 min) CO₂ solution Ball milling(30 min)”. The “Ca extraction” is of during only CO₂ treatment. The “Water absorption” and “Yield” is of recovered fine aggregates after all the treatments in the process.

ウムが抽出され強度が低下した部分であると考えられる。このため、カルシウム抽出率が小さければ、ボールミル処理後に残存するセメント水和物の量が多くなるから、吸水率が大きくなる。次に Ca 抽出率()と再生細骨材の収率()の相関について考察する。5 mm アンダー中の骨材成分はボールミル処理によってある割合で失われるものの、その割合は炭酸処理時間の影響を受けないと考えられる。つまり炭酸水処理時間を変えたときに生じる収率の差は、残存しているセメント水和物の量に起因し、収率が大きいほどセメント水和物の含有割合が高い。このため収率と吸水率は正に相関するものと考えられる。

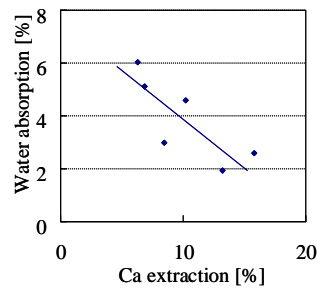


Fig.4 Relation between water absorption and Ca extraction in Fig.3. $R^2=0.548$

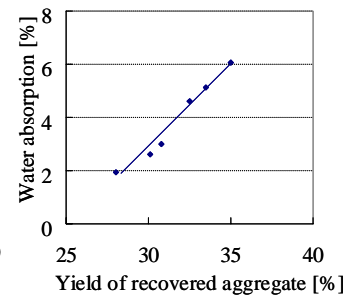


Fig.5 Relation between yield of recovered aggregate and Ca extraction in Fig.3. $R^2=0.964$

7. カルシウム抽出率を指標とした最適化プロセスの設計

Eq.1 によれば、プロセスの炭酸水処理における Ca 抽出率を変えることで任意の吸水率を持つ再生細骨材が得られる。ここでは Eq.1 に基づき処理条件の最適化を行うが、これに先立って再生細骨材の品質がコスト/エネルギーに与える影響を定量評価した(Table 3)。まず Eq.1 を用いて吸水率 2、3.5、5%それぞれの再生細骨材を得るための Ca 抽出率を算出し、これを達成するための処理条件を Ca 抽出速度式から予測した。得られた試験条件からプロセスのコスト/エネルギーを計算して、Eq.2 から計算した収率を用いて再生細骨材 1 トンあたりの値とした(Table 3)。これよりプロセスのコスト/エネルギーは再生細骨材の品質に大きく左右されることが示された。

Table 4 Calculated experimental conditions for recovering fine aggregate having a specific water absorption and estimated energy consumption and cost for each condition.

Water absorption of recovered aggregate [%]	Yield of recovered aggregate [%]	Ca extraction rate in CO2 treatment [%]	Number of batch treatment	Energy consumption [MJ/aggregate-t]	Cost [yen/aggregate-t]
2	29	16	6	1374	61,117
3.5	32	11	3	554	36,354
5	34	7	1.5	270	25,072

次に水仕込み量のみを 400 mL に変更して同様に計算すると、吸水率 2、3.5、5%の再生細骨材に対してそれぞれ消費エネルギーが 1294、557、290 [MJ/細骨材-t]、コストが 44910、29020、21883 [yen/細骨材-t]となり、800 mL 時と比較してコストが低下することが示された。このように Ca 抽出速度式と Eq.1、Eq.2 を用いることで、目標の吸水率を達成するプロセスのコスト/エネルギーを改善するような炭酸水処理条件の設計が可能であることを示した。今後はこれを実験的に実証し、結果をフィードバックすることでより精度の高い設計が可能になると考えられる。

8. 結論

炭酸水処理とボールミル処理を組み合わせたプロセスで二種類の廃コン小粒径成分から JIS 吸水率 3.5%を満たす再生細骨材が得られることを示した。このプロセスの評価を行い、炭酸水処理がコスト/エネルギーに及ぼす寄与が極めて大きく、炭酸水処理時間を短縮することでプロセス全体コスト/消費エネルギーを大幅に低下せられることを示した。また、炭酸水処理における Ca 抽出率、再生細骨材の収率および吸水率の三者は互いに相関関係にあることを実験的に示し、これらの関係式 Eq.1 と Eq.2 および Ca 抽出速度式を用いて任意の吸水率の再生細骨材が得られる試験条件が設計できることを示した。

参考文献 [1] 友澤史紀; コンクリートのリサイクル; セラミックス, 37 (2002) 946-951 [2] 麓隆行, 妹背吉彦, 山田優; 再生細骨材の品質がモルタルの性状に及ぼす影響についての検討; コンクリート工学年次論文集, 22 (2000) 1111-1116 [3] 飯塚淳, 藤井実, 山崎章弘, 柳沢幸雄; 廃コンクリートを用いた新規な二酸化炭素固定プロセス; 化学工学論文集 28 (2002) 587-592