

# コンクリート廃棄物を利用した二酸化炭素の有効利用技術

## Carbon Dioxide Utilization Techniques Using Concrete Wastes

飯塚 淳<sup>1\*</sup>, 山崎 章弘<sup>2</sup>

Atsushi Iizuka<sup>1</sup> and Akihiro Yamasaki<sup>2</sup>

### Abstract

Concrete is widely used as a construction material worldwide. Effective recycling and utilization of concrete waste are of great importance to improve our society. Approximately one third of concrete is chemically reactive and strongly alkaline hydrate cement, which can be used for fixation of CO<sub>2</sub> as stable carbonate compounds. In this article, the reaction mechanism and advantages of concrete carbonation are summarized, and an indirect carbonation process for concrete sludge and a direct carbonation process for demolished concrete waste are introduced.

### I. はじめに

コンクリートは、我々の社会において大量に使用されている重要な建設・土木材料の1つである。我が国では、構造物に使用されたコンクリートは取り壊され、破碎、粒度調整された上で、現状ではほぼ全量が路盤材等として再利用されている。しかしながら、今後コンクリート廃棄物の発生量は増加が見込まれている一方、路盤材需要は減少が予測されていることから、効率的な処理、再利用技術の開発が求められている。

コンクリートを化学的に見てみると、その重量の大部分が不活性な骨材（砂利と砂）であり、残りの30%程度が、強アルカリのセメント水和物部分となっている。この部分は、前稿のように水質浄化技術への利用が期待されるが、一方で、地球温暖化の原因となる二酸化炭素（CO<sub>2</sub>）の有効利用に利用することも可能である。本稿では、各種のコンクリート廃棄物を利用したCO<sub>2</sub>の有効利用技術について紹介する。

### II. コンクリート系材料を利用したCO<sub>2</sub>の有効利用

近年、脱炭素社会の構築を目的として、様々なCCU (Carbon dioxide capture and utilization)

---

<sup>1</sup> 東北大学多元物質科学研究所

Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials (IMRAM), Tohoku University

<sup>2</sup> 成蹊大学理工学部 Faculty of Science and Technology, Seikei University

技術が検討されている。これらのCCU技術の1つとして、塩基性のカルシウムやマグネシウムの化合物を含有する材料をCO<sub>2</sub>と反応させ、炭酸塩鉱物としてCO<sub>2</sub>を固定化する炭酸塩鉱物化技術が注目を集めている。CO<sub>2</sub>の炭酸塩鉱物化技術は、プロセスに水素を必要としないことや生成物の市場規模が比較的大きいこと等、様々な特徴を有し、早期の社会実装が望まれている技術分野である。コンクリート廃棄物は、この炭酸塩鉱物化技術の有用な原料として利用可能である。単純化した反応式を以下に示す。



コンクリート中に含有される水酸化カルシウム (Ca(OH)<sub>2</sub>) やケイ酸カルシウム水和物類がCO<sub>2</sub>と反応し、安定な炭酸塩である炭酸カルシウム (CaCO<sub>3</sub>) が生成する。このCO<sub>2</sub>の炭酸塩鉱物化は、他の多くのCCU技術とは異なり、自発的に進行する (Gibbsエネルギー変化が負の) 反応を利用している。そのため、プロセスの構築の仕方によっては、エネルギー投入量の少ないプロセスで実施できる可能性がある。また、反応に必ずしも純度や圧力の高いCO<sub>2</sub>を必要としないという利点も有する<sup>1,2)</sup>。

## 1 コンクリートスラッジの間接炭酸化プロセス

コンクリートスラッジとは、生コンクリートの使用に伴って発生する固化する前のコンクリートの廃棄物である。コンクリートスラッジの具体例としては、残コンや戻りコン、コンクリート二次製品の製造過程で発生する余剰コンクリート、生コン関連設備の洗浄水等が挙げられる。コンクリートスラッジは水和しつつあるセメント粒子、水、骨材等から構成される。そのためセメントの水和反応に由来するCa(OH)<sub>2</sub>やケイ酸カルシウム水和物類等のアルカリ性のカルシウム化合物を多く含有する。

これらのカルシウム分を二酸化炭素と反応させることで炭酸カルシウムを製造し、二酸化炭素の再利用が可能である。総括の反応式は反応式 (1) や (2) となる。コンクリートスラッジは完全に固化する前の廃棄物であるので、構造物の取り壊しで発生するコンクリート廃棄物と比較すると反応性が非常に高いことが特徴である。図1にコンクリートスラッジの間接炭酸化プロセスの模式図を示す。

抽出反応槽では、コンクリートスラッジが水で希釈されることで、含有されるアルカリ性のカルシウム分が水に抽出される。水で希釈されることでコンクリートスラッジの固化も抑制さ

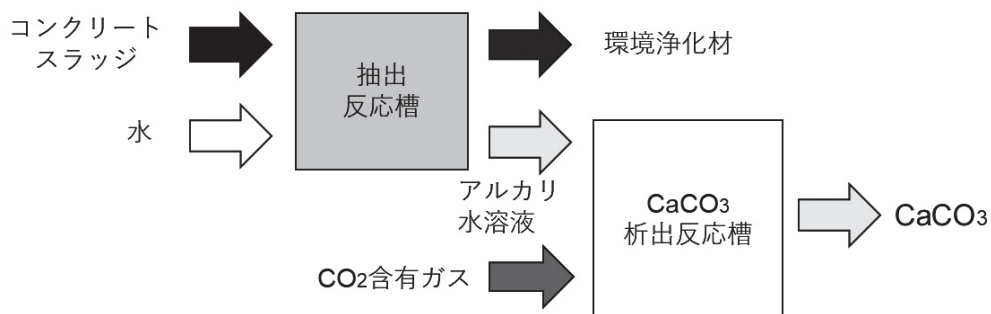


図1. コンクリートスラッジの間接炭酸化プロセスの模式図

れる。固液分離によって得られる固体分は環境浄化材として、前稿で紹介したような用途に利用可能である。CaCO<sub>3</sub>析出反応槽では、カルシウムを含むアルカリ性の抽出水に二酸化炭素を含む排ガスが導入され、気相から液相に溶解したCO<sub>2</sub>が溶液中でカルシウムイオンと結合し、CaCO<sub>3</sub>が析出する。このプロセスの利点としては、粉碎処理等の前処理が不要なこと、常温・常圧でプロセスの運転が可能であること、水のみを用い、他に化学物質の消費が無いこと、低濃度のCO<sub>2</sub>を直接利用可能であること等が挙げられる。

著者らは、このプロセスの検証のため、民間企業と共同で、コンクリート二次製品製造時に発生するコンクリートスラッジを対象とし、ラボでの基礎試験<sup>3)</sup>を実施した。また、得られた成果に基づき、スケールアップを進め、ベンチスケール試験<sup>4)</sup>やパイロットスケール試験<sup>5)</sup>を行った。現在は、これらの試験から得られた成果を元に商業プロセスの操業が開始されている<sup>6-8)</sup>。

## 2 廃コンクリートの直接炭酸化プロセス

コンクリート構造物の取り壊し時に発生するコンクリート廃棄物（以下、廃コンクリート）を利用したCO<sub>2</sub>の有効利用技術に関しても検討を進めた。廃コンクリートは、CO<sub>2</sub>との反応性がコンクリートスラッジと比較して相対的に低い。また、コンクリート重量の7割程度を占める不活性な骨材の分離がより困難である。そこで、純度の高いCaCO<sub>3</sub>を回収することを諦め、廃コンクリートから回収したセメント水和物部分の微粉末を水中で直接CO<sub>2</sub>と反応させる手法<sup>9-10)</sup>について基礎検討を行った。図2に、想定される廃コンクリートの直接炭酸化技術の概要を示す。

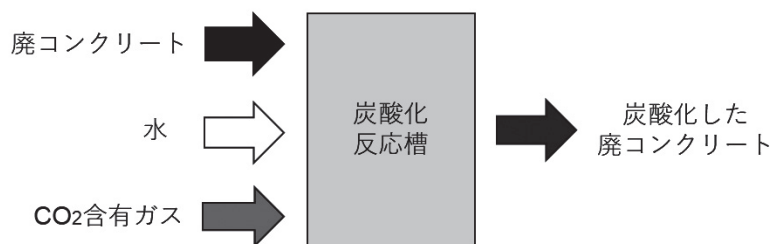


図2. 廃コンクリートの直接炭酸化プロセスの模式図

廃コンクリートの微粉末を水中に分散させ、CO<sub>2</sub>含有ガスを流通させて反応を行った。CO<sub>2</sub>の濃度は5～30%とした。このプロセスでは純粋なCaCO<sub>3</sub>は得られないものの、反応は概ね1時間以内に終了し、最大で廃コンクリート重量の1割以上のCO<sub>2</sub>を炭酸カルシウムとして、炭酸化した廃コンクリート内に固定することが可能であることが分かった。この技術においては、今後、炭酸化した廃コンクリート微粉末の有効利用方法を開発していくことが重要であると考えられる。尚、本手法は、中国でも多く存在する石炭火力発電所から排出される石炭飛灰 (Coal fly ash) にも適用可能である。石炭飛灰について基礎検討を行ったところ、そのCO<sub>2</sub>固定化率は石炭飛灰重量の1.6%程度となった<sup>11)</sup>。

尚、廃コンクリートは反応性が比較的穏やかであるものの、炭酸化反応を加速するための様々な間接炭酸化プロセスの構築も可能であると期待される。今後の研究開発が重要であると考えられる。

### III. 結言

本稿では、コンクリート中に含有される反応性の高いアルカリ性のカルシウム化合物を利用して、CO<sub>2</sub>の固定と有効利用を行う技術についてまとめた。特にコンクリートスラッジを利用した間接炭酸化プロセスと廃コンクリートの直接炭酸化プロセスについて紹介を行った。CO<sub>2</sub>の鉱物化による固定と得られる炭酸塩の利用を考えた場合、コンクリート廃棄物は比較的反応性の高い対象である。しかしながら、合理的なプロセス構築のためには、プロセス内での化学物質消費を避け、合理的に反応を加速するような工夫が必要となる。また、抽出残渣や純度の低い直接炭酸化生成物の有効活用も実用化に当たっての重要な課題となる。今後も、この分野の研究開発が進展することが望まれる。

### 利益相反について

本論文に関して、開示すべき利益相反関連事項はない。

### 参考文献

- 1) Ho, H.J., Iizuka, A. and Shibata, E. 2019. "Carbon Capture and Utilization Technology without Carbon Dioxide Purification and Pressurization: A Review on Its Necessity and Available Technologies," *Industrial and Engineering Chemistry Research*, Vol. 58, No. 21: 8941-8954.
- 2) Ho, H.J., Iizuka, A. and Shibata, E. 2021. "Chemical Recycling and Use of Various Types of Concrete Waste: a Review." *Journal of Cleaner Production*, Vol. 284, Article:124785: 1-14.
- 3) 飯塚 淳, 山崎 章弘, 本間 雅人, 早川 康之, 柳沢 幸雄 2012年「コンクリートスラッジを利用した二酸化炭素排出量削減プロセス構築のためのカルシウム抽出速度測定」『化学工学論文集』第38巻第2号：129-134.
- 4) Iizuka, A., Sakai, Y., Yamasaki, A., Honma, M., Hayakawa, Y. and Yanagisawa, Y. 2012, "Bench-Scale Operation of a Concrete Sludge Recycling Plant," *Industrial & Engineering Chemistry Research*, Vol. 51, No. 17: 6099-6104.
- 5) Iizuka, A., Sasaki, T., Honma, M., Yoshida, H., Hayakawa, Y., Yanagisawa, Y., and Yamasaki, A. 2017. "Pilot-Scale Operation of a Concrete Sludge Recycling Plant and Simultaneous Production of Calcium Carbonate," *Chemical Engineering Communications*, Vol. 204, No. 1: 79-85.
- 6) 佐々木 猛 2021年「コンクリートスラッジを利用した二酸化炭素の鉱物化と環境浄化材の製造」『化学工学』第85巻第3号：192-195.
- 7) 大竹 久雄編 2017年「9-2 再利用技術, 9-2-3 コンクリートスラッジの利用」『リンの事典』東京：朝倉書店
- 8) Iizuka, A., Yoshida, H., and Hayakawa, Y. 2018, "High-Performance Phosphorus Adsorbent Based on Concrete Sludge." In Ohtake, H., and Tsuneda, S. ed. *Phosphorus recovery and*

- recycling engineering, Singapore: Springer Nature Singapore Pte Ltd.: pp.449-456,
- 9) Ho, H.J., Iizuka, A., Shibata, E., Tomita, H., Takano, K., and Endo, T. 2020, "CO<sub>2</sub> Utilization via Direct Aqueous Carbonation of Synthesized Concrete Fines under Atmospheric Pressure," *ACS Omega*, Vol. 5: 15877-15890.
  - 10) Ho, H.J., Iizuka, A., and Shibata, E. 2021, "Utilization of CO<sub>2</sub> in Direct Aqueous Carbonation of Concrete Fines Generated from Aggregate Recycling: Influences of the Solid-liquid Ratio and CO<sub>2</sub> Concentration," *Journal of Cleaner Production*, Vol. 312, Article 127832.
  - 11) Ho, H.J., Iizuka, A., and Shibata, E. 2021, "Utilization of Low-Calcium Fly Ash via Direct Aqueous Carbonation with a Low-energy Input: Determination of Carbonation Reaction and Evaluation of the Potential for CO<sub>2</sub> Sequestration and Utilization," *Journal of Environmental Management*, Vol. 288, Article 112411.