



コンクリート硬化体におけるCO₂吸収固定による炭酸化反応の分析

朴 相俊¹, 藤本 真世², 宮島 朗³, 辛 軍青³, 石井 豪³
1 金城学院大学, 2 金城学院大学大学院, 3 株式会社 安部日鋼工業

キーワード：コンクリート, 炭酸化反応, XAFS, XRD, 小角散乱

1. 測定実施日

2023年10月10日 BL6N1 (1シフト)
2023年10月12日 BL8S1 (1シフト) BL8S3 (1シフト)
2023年11月13日 BL6N1 (1シフト)
2023年11月14日 BL8S1 (1シフト) BL8S3 (1シフト)

2. 概要

近年, 世界的に地球温暖化対策に関する取組みが加速しており, 日本でも2020年12月に経済産業省より「2050年カーボンニュートラルに伴うグリーン成長戦略」が策定され, カーボンニュートラル社会の実現に向けたCO₂削減・有効利用技術の研究開発が加速されている。

コンクリートは, その構成材料の一つであるセメントの製造時に大量のCO₂を排出する一方で, 硬化後コンクリート中の水酸化カルシウム (Ca(OH)₂) などがCO₂を吸収して炭酸カルシウム (CaCO₃) になることで, CO₂を再び固定できる特徴があり, CO₂削減の有効利用策として注目されている¹⁾。

そこで本研究は, セメント以外にガラス微粉末や高炉スラグ微粉末など各種結合材, 天然骨材以外にガラス細骨材などを使用したモルタルを対象に, 炭酸化進行を従来の手法に加え, シンクロトロン光による高精度の分析を行い, 定量的に測定することで, CO₂吸着のプロセスを評価することを試みた。

3. 背景と研究目的

1) 背景

コンクリートは世界全体において, 水に次いで使用量の多い物質であるが, CO₂排出量が多い分野として課題が多かった。コンクリートの主要材料であるポルトランドセメントの生産において, 原料である石灰石の熱分解による脱炭酸起源のCO₂および高温焼成に必要な化石燃料消費によるエネルギー起源のCO₂が大量に排出され, セメント1トンの生産でのCO₂排出量は789kgとなる。

これにより, 日本のセメント産業はCO₂国内総排出量の約4%を占めており²⁾, 電力, 鉄鋼に次いで排出量が多い産業の一つである。近年, 世界的に地球温暖化対策に関する取組みが加速しており, カーボンニュートラル社会の実現に向けて, セメント・コンクリートの分野におけるCO₂対策は緊急課題である。

また, 環境負荷低減のため再生可能エネルギーの活用が推進され, 国内の太陽光発電設備の設置は2012年以降に急増してきた³⁾。2030年代に寿命を迎えた太陽光パネルが大量に排出される見通しであり, 将来にわたって使用済み太陽光パネルの産廃処理は避けられない重要な課題になる。ガラスは太陽光パネル重量の約7割を占めており, 産業廃棄物処分場の増設が厳しい中, 廃ガラスの有効利用の検討は急務となっている。

そこで本研究グループは, カーボンニュートラルおよび自然環境保護などコンクリート産業が直面する課題解決と, 太陽光パネルの大量廃棄時代の到来に備え, 太陽光パネル由来の廃ガラスをコンクリート材料 (セメント及び細骨材の代替材料) として高度利用する技術の研究開発を行っている。

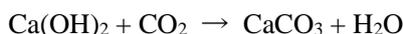
2) 研究目的

セメント以外にガラス微粉末や高炉スラグ微粉末など各種結合材、天然骨材以外にガラス細骨材などを使用したモルタルの炭酸化進行を定量的に測定することで、CO₂吸着のプロセスを評価することを研究目的とした。

4. 実験内容

ガラス骨材、ガラス微粉末、高炉スラグ微粉末など材料の組合せにより、JIS 試験方法を準じて計 12 種類のモルタル供試体を作成した。その後、過去の文献^{4), 5)}を参考し、濃度 95%以上の CO₂ ガスで満たした環境に供試体を保存し、炭酸化促進試験を行った。

なお、炭酸化の化学反応式は以下のように表される。



促進試験開始前、促進試験 4 週後にモルタル供試体の表層部から試料を切り出した。試料は完成させた後に、試験用粉末サンプルに加工し、あいちシンクロトロン光センターにて各種試験分析を実施した。Table 1 に、試験名および主な試験内容を示した。

Table 1 試験名および主な試験内容

試験名	ビームライン名	試験内容	試料の種類
蛍光 XAFS 試験	BL6N1	炭酸化したモルタルの化学状態の分析	炭酸化促進試験 開始前と 4 週後
XRD 試験	BL8S1	炭酸化したモルタルの結晶構造の分析	
小角散乱試験	BL8S3	炭酸化カルシウムの結晶成長を計測	

以上の試験結果から、炭酸化の発生と進行を総合的に評価した。

5. 結果および考察

1) 蛍光 XAFS 試験による炭酸化したモルタルの化学状態分析

炭酸化促進試験開始前、促進試験 4 週後のモルタル供試体から試料を切り出し、粉末サンプルを調製して蛍光 XAFS 試験を実施した。

Fig.1 に、結合材種類に分類された (1) セメント 100%, (2) セメント 80%+ガラス微粉末 20%, (3) セメント 60%+高炉スラグ微粉末 40%, (4) セメント 40%+高炉スラグ微粉末 40%+ガラス微粉末 20% の蛍光 XAFS の測定結果例を示した。ガラス骨材の使用割合は 0%とし、各グラフでは炭酸化促進試験開始前と促進試験 4 週後に実施した 2 回のデータを示している。また、参考するため標準物質 CaCO₃、Ca(OH)₂ の測定値も表示している。

ガラス骨材の使用割合または結合材種類を変化させたケースの比較結果では、炭酸化によって発生したと見られる波形の変化が確認できた。

(1) では、4,050eV 付近の波形は強度が減少したものの、ピークの位置の変化はあまり見られない。しかし、(2) と (4) のケースは波形の変化が大きく、4,050eV 付近の波形が CaCO₃ に近い位置に移動している。また、4,055~4,070eV あたりの波形の変化からも、CaCO₃ に近づいていることが分かり、CaCO₃ が増加しているといえる。(2), (4) の変化が大きいことについては、(1) に比べセメント量が少ないことが影響している可能性がある。

(3) の変化は (2), (4) のケースと比較し小さい結果となった。これは、高炉スラグ微粉末を用いるとモルタルが緻密になり、CO₂ の侵入が抑制されたことが要因として考えられる。

また、ガラス細骨材の割合が大きくなるにつれて、変化が大きくなった。ガラス細骨材の使用により、

炭酸化が発生しやすく、 CO_2 をより吸着することが分かった。今後も継続して実験する予定である。

2) XRD 試験による炭酸化したモルタルの結晶構造の分析

炭酸化促進試験開始前、促進試験 4 週後のモルタル供試体から試料を切り出し、粉末サンプルを調製して XRD 試験を実施した。Fig.2 に、結合材がセメント 40%+高炉スラグ微粉末 40%+ガラス微粉末 20%、細骨材がガラス細骨材 0%の測定結果例を促進試験前、促進試験 4 週後に分けて示した。

CaCO_3 の変化のばらつきが大きい結果となり、炭酸化が起こり Ca(OH)_2 が減少したが、 CaCO_3 にまで化学組成の変化が進んでいない可能性がある。今後は促進試験を継続して、より炭酸化を進行させ、併せて計測を行う予定である。

ガラス細骨材 0%

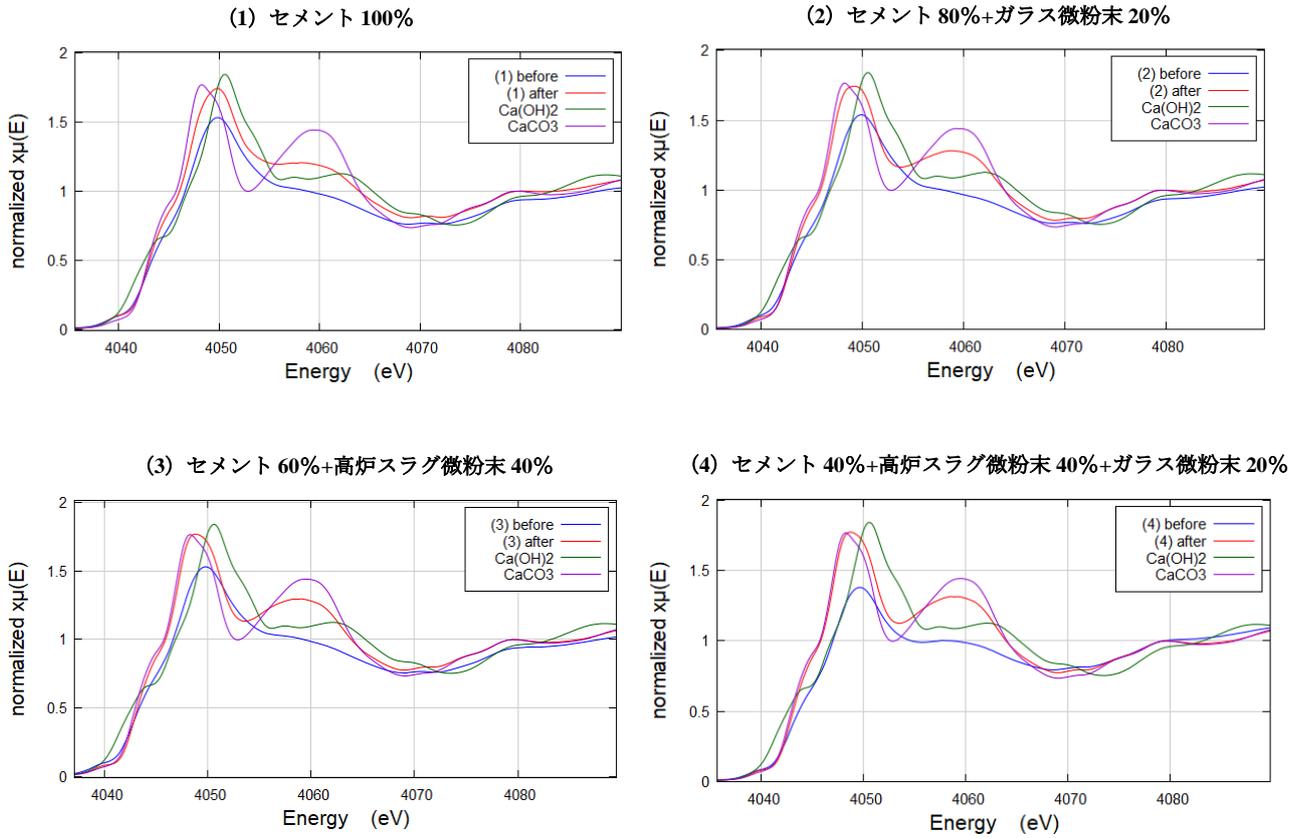


Fig.1 XAFS 試験の測定結果例 (炭酸化促進試験前, 4 週後の比較)

セメント 40%+高炉スラグ微粉末 40%+ガラス微粉末 20%, ガラス細骨材 0%

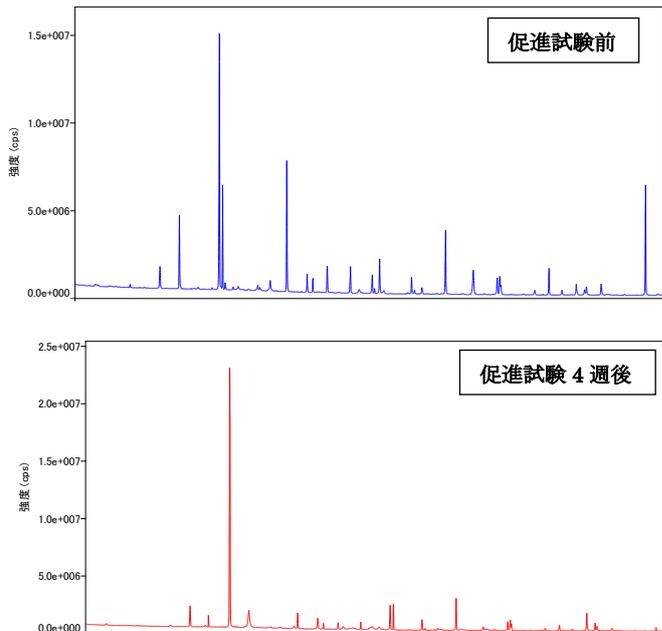


Fig.2 XRD 試験の測定結果例 (炭酸化促進試験前, 4 週後の比較)

ガラス細骨材 0%

(1) セメント 100%

(4) セメント 40%+高炉スラグ微粉末 40%+ガラス微粉末 20%

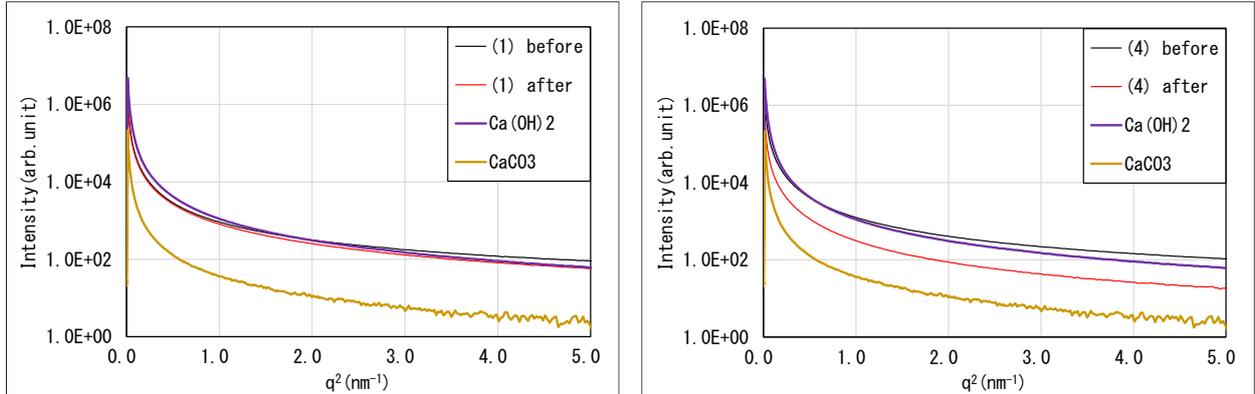


Fig.3 小角散乱試験の測定結果例（炭酸化促進試験前，4 週後の比較）

3) 小角散乱試験によるモルタルの微細構造変化の分析

炭酸化促進試験開始前，促進試験 4 週後のモルタル供試体から試料を切り出し，粉末サンプルを調製して小角散乱試験を実施した。Fig.3 に，細骨材は 0% で，(1) 結合材はセメント 100% と，(4) セメント 40%+高炉スラグ微粉末 40%+ガラス微粉末 20% の 2 つの結果を示す。

(1) と (4) を比較すると，(4) の変化が大きいことから，ガラス微粉末および高炉スラグ微粉末を使用したことで， CO_2 の吸収が多くなったことが分かる。また，試薬の CaCO_3 と比較して傾きが小さく Ca(OH)_2 に近いことから，前項で述べた，炭酸化により Ca(OH)_2 が減少したが， CaCO_3 にまで化学組成の変化が進んでいない可能性がある結果と一致する。

6. 今後の課題

本研究では，シンクロトロン光を用いた計測の結果，迅速で高精度な試験データを得られた。その結果， Ca(OH)_2 の減少が確認され，各種材料の使用により CO_2 の吸収性能の変化を確認することができた。シンクロトロン光による分析は，評価方法として有効であり，評価結果の信頼性が向上した。

今回の分析では，炭酸化促進試験 4 週後の供試体から試料を作成したが，この時点では炭酸化の発生は大きくなかったため， CaCO_3 にまで化学組成の変化が進んでいなかったと思われる。今後は，促進試験を継続し，進行に合わせて追加の計測を行い，さらに詳細な分析を行う予定である。

7. 参考文献

- [1] 野口貴文：コンクリートのライフサイクルを通じたカーボンニュートラル化，コンクリート工学，Vol.59，No.9，pp730-736，2021
- [2] 細谷俊夫：セメント産業における CO_2 排出削減の取組み，コンクリート工学，Vol.48，No.9，pp.51-53，2010.9
- [3] 環境省：太陽光発電設備のリサイクル等の推進に向けたガイドライン(第二版)，環境再生・資源循環局総務課リサイクル推進室，平成 30 年
- [4] 梅津真見子・黒川大亮・森泰一郎・坂井悦郎：セメント硬化体の CO_2 吸収と生成物の変化，セメント・コンクリート論文集，Vol.75，pp.34-41，2021
- [5] セメント協会 セメント化学専門委員会：セメント硬化体の炭酸化，セメント・コンクリート，No.574，pp.26-32，1994