

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：18001

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05100

研究課題名(和文)放電プラズマ焼結法による再生骨材をリサイクルしたセラミックスの開発

研究課題名(英文)Development of ceramics using recycled aggregate by spark plasma sintering

研究代表者

神田 康行 (Kanda, Yasuyuki)

琉球大学・工学部・准教授

研究者番号：10468069

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、廃コンクリートの新しいリサイクル法として、沖縄県産の廃コンクリートを砕いた再生骨材を粉末化し、放電プラズマ焼結法により高強度セラミックスの創製を検討した。セラミックスは、I. 再生細骨材粉末を用いたセラミックス、II. 再生粗骨材粉末を用いたセラミックス、III. 再生細骨材粉末とフライアッシュを用いた3種類を検討した。3種類のセラミックスの曲げ強度は、Porcelain stoneware tileを規定したISO 13006の曲げ強度35 MPaより高い値を示した。また、フライアッシュは、再生細骨材粉末を用いたセラミックスの強化粒子として作用することがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、廃コンクリートを砕いた再生骨材は粉末化することで、セラミックス原料としてリサイクル可能であることを示した。この結果は、循環型社会の構築や最終処分場の延命に資するため、社会的意義は高いといえる。また、再生骨材の粉末をセラミックス原料として利用した環境調和型材料の成形加工例を示したことは、材料加工学分野における学術的意義があると考えられる。

研究成果の概要(英文)：This study investigated the fabrication of ceramics using recycled aggregate powder from milled Okinawan waste concrete, which is a new recycling method for waste concrete. To fabricate high-strength ceramics, we employed a spark plasma sintering method. Three types of ceramics were prepared using 1) recycled fine aggregate powder, 2) recycled coarse aggregate powder, and 3) recycled fine aggregate powder and fly ash. The flexural strength of the three ceramics was higher than 35 MPa, which met the requirements of ISO 13006 standards. In addition, it was determined that fly ash plays a major role as reinforcement particles in ceramics that use recycled fine aggregate powder.

研究分野：粉末成形

キーワード：廃コンクリート リサイクル セラミックス 放電プラズマ焼結法 機械的性質

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 現在、日本では、高度経済成長期に建設されたコンクリート構造物の解体が進行中であり、年間 3000 万の廃コンクリートが排出されている。さらに、コンクリートは、汎用的な建設材料であり、世界中で用いられている。したがって、廃コンクリートは、世界中で発生している。廃コンクリートの主なリサイクル法は、路盤材としての利用である。しかし、今後、路盤材の需要低下は、道路工事の縮小から予測される。廃コンクリートを砕いた再生骨材を用いたコンクリートも、骨材周囲の廃セメント成分の除去コストの課題を有する。そのため、廃コンクリートのリサイクル技術開発は、循環型社会の構築、最終処分場の延命、持続可能な開発目標 (SDGs) などの観点から、世界中で求められている。

### 2. 研究の目的

(1) 本研究では、廃コンクリートの化学組成が  $\text{SiO}_2$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{CaO}$  などのセラミックス原料で構成されていることに着目し、廃コンクリートを微粉碎した粉末 (Waste Concrete Powder, 以降は WCP と称す) をセラミックス原料としてのリサイクルを検討する。その際、WCP の有する特性を十分に引き出すために、放電プラズマ焼結法 (Spark Plasma Sintering, 以降は SPS と称す) により高強度なセラミックスの創製を試みた。特に、本研究では、セラミックス焼結において重要な要因である焼結温度について検討した。

### 3. 研究の方法

(1) 本研究では、I. 再生細骨材粉末 (Waste Concrete Powder - Fine, 以降は WCP-F と称す) を用いた実験、II. 再生粗骨材 (Waste Concrete Powder - Coarse, WCP-C と称す) を用いた実験、III. WCP-F とフライアッシュ (Fly Ash, 以降は FA と称す) を用いた実験により、3 種類のセラミックスを SPS により作製した。

(2) 原料の廃コンクリートは、沖縄県リサイクル資材評価認定制度である「ゆいくる」の RC-40 を用いた。WCP は、RC-40 をジョークラッシャーによる粗粉碎後にふるい分けし、ふるいに留まった試料をポットミルにより微粉碎することで作製した。ポットミルは、1L のアルミナ製ポットにアルミナ製ボール ( $\phi 25$  mm を 15 個、 $\phi 30$  mm を 10 個)、300 g の WCP および 300 mL のイオン交換水を混合し、卓上型ポットミル架台により、200 rpm で 12 時間の湿式粉碎を行った。ポットミル粉碎により得られるスラリーは、再生粗骨材を含んでいる。そこで、再生粗骨材は、スラリーをろ過することで、取り出した。WCP-F はスラリーを 393 K で 4 時間の乾燥工程により作製した。WCP-C は、スラリーより取り出した再生粗骨材をディスクミルにより粗粉碎後、WCP-F と同様なポットミル粉碎と乾燥工程を経て得た。

(3) SPS 成形は、黒鉛製の焼結型 (パンチ ( $\phi 50$  mm) およびダイス (外径  $\phi 90$  mm, 内径  $\phi 50$  mm)) に原料粉末を詰めた後に、焼結温度 1073 ~ 1223 K, 加圧力 20 MPa, 保持時間 5 分の条件で行った。焼結体は、曲げ強度を測定するために切削加工により 3 点曲げ試験片へ加工した。3 点曲げ試験は、スパン 40 mm, クロスヘッドスピード 0.5 mm/min で行った。

### 4. 研究成果

(1) まず、基礎的なデータとして、エネルギー分散型蛍光 X 線分析装置 (EDX-XRF) により WCP-F と WCP-C の化学組成を測定した。その結果、WCP-F は、66.9% の  $\text{CaO}$ 、21.9% の  $\text{SiO}_2$ 、3.74% の  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、WCP-C は、79.4% の  $\text{CaO}$ 、11.7% の  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  を含むことがわかった。すなわち、本研究で用いた廃コンクリートは、カルシウム質な特徴を有する。これは、沖縄県産のコンクリートは、石灰石砕砂や海砂を含むためである。

(2) WCP-F を用いた焼結体の曲げ強度と焼結温度の関係を図 1 に示す。図中には、ISO 13006 に規定されている Porcelain stoneware tile の曲げ強度 35 MPa も追記してある。図 1 より、曲げ強度は焼結温度 1173 K で最大値を示した後に低下している。すなわち、WCP-F を用いた SPS の最適な焼結温度は 1173 K であることがわかった。また、いずれの焼結温度における曲げ強度は、ISO 13006 よりも高い値を示した。

(3) 図 2 に WCP-C を用いた焼結体の曲げ強度と焼結温度の関係を示す。曲げ強度は、焼結温度 1123 K で最大値を示した後に低下した。すなわち、WCP-C を用いた SPS の最適な焼結温度は、WCP-F よりも 50 K 低いことがわかった。なお、WCP-C の曲げ強度は、焼結温度を 1123 K よりも高くすると ISO 13006 よりも高くなることがわかった。したがって、WCP-F および WCP-C は、SPS に適用することでタイルなどの建設材料の原料として、有望であると考えられる。

(4) WCP-F のさらなる曲げ強度の向上を目的として、FA との複合材料を検討した。すなわち、

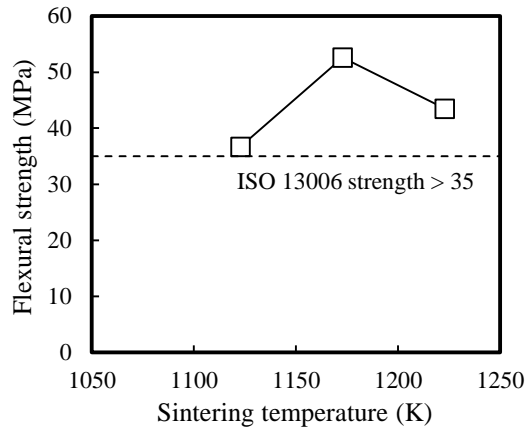


図1 WCP-Fを用いた焼結体の  
曲げ強度と焼結温度の関係

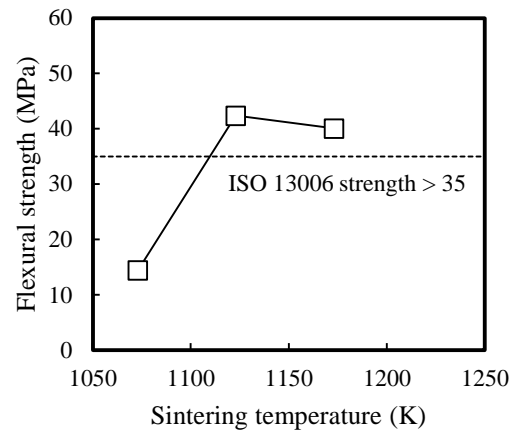


図2 WCP-Cを用いた焼結体の  
曲げ強度と焼結温度の関係

FAを用いたSPS成形体のHVは、WCP-Fよりもカルシウム成分の少ないWCPを用いたSPS成形体よりも高いこと、FAのSPSにおける焼結温度は1473KとWCP-Fよりも高いことに着目し、FAのWCP-Fにおける強化粒子としての作用を期待した。まず、基礎的なデータとして、図3にWCPとFAの粉末X線回折パターン(XRD)の比較を示す。図3より、WCPはクォーツとカルサイト、FAは、クォーツ、ムライトおよびカルサイトが主な結晶構造となっている。SPS成形は、図1の結果より、WCP-Fの曲げ強度が最も高まる1173Kで実施した。WCP-FとFAの混合は、遊星ボールミル装置を用いて、90分間(30分の正転を2回、30分の反転を1回)行った。図4に曲げ強度とFA含有量の結果を示す。図4より、FAを含有することで曲げ強度が向上している。すなわち、FAは、WCP-F内に分散することで強化粒子として作用することがわかった。

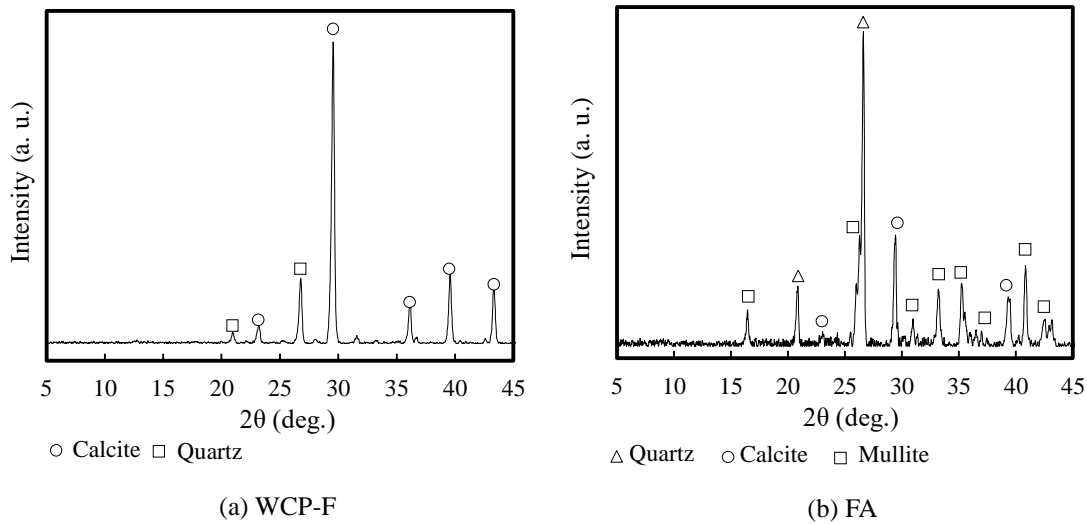


図3 WCP-FとFAのXRDパターン

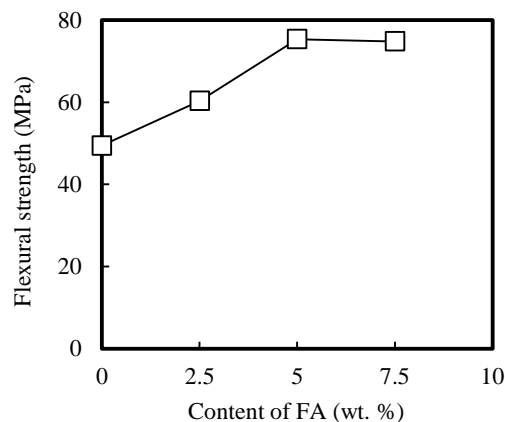


図4 曲げ強度とFA含有量の関係

以上のことから、沖縄県産の廃コンクリートは、粉末後に SPS 成形に供することで、セラミックス原料として有望であることが明らかになった。すなわち、本研究の成果として、廃コンクリートの新しいリサイクル法のひとつを示すことができたと考えられる。

<引用文献>

Yasuyuki Kanda, Satori Harada, Synthesis of zeolites from calcareous waste concrete powder, *Results in Materials*, Vol. 13, 100250, 2022.

Isao Fukumoto and Yasuyuki Kanda, Mechanical properties of composite material using coal ash and clay, *Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering*, Vol.3, No.5, 2009, 739 – 747

Mohammed Abass, Yasuyuki Kanda, Ceramics based on concrete wastes prepared by spark plasma sintering, *Processing and Application of Ceramics*, Vol. 15, No. 1, 2021, 100 – 109

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Abass Mohammed, Kanda Yasuyuki	4. 巻 15
2. 論文標題 Ceramics based on concrete wastes prepared by spark plasma sintering	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Processing and Application of Ceramics	6. 最初と最後の頁 100 ~ 109
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2298/PAC2101100A	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Mohammed ABASS, Yasuyuki KANDA
2. 発表標題 Fabrication of Spark Plasma Sintered Body using Recycled Fine Aggregate Powder
3. 学会等名 The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PACRIM 13) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 神田康行, Mohammed ABASS
2. 発表標題 再生細骨材粉末を用いた放電プラズマ焼結の基礎的検討
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会講演概要集2019年度秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 神田康行
2. 発表標題 放電プラズマ焼結法による石灰質廃コンクリート粉末を用いたセラミックス作製の基礎的検討
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会講演概要集2021年度春季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 神田康行, 新城友秀
2. 発表標題 廃コンクリート粉末とフライアッシュを用いた放電プラズマ焼結の基礎的検討
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会講演概要集2022年度春季大会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------