

大気汚染浄化型舗装の開発

— 木質炭化骨材の基礎的特性について —

中村俊彦* 明嵐政司**

1. はじめに

建設発生木材のリサイクル率は平成7年度の調査で40%と低迷している。今後、建築解体廃棄物の増加も予想されており、廃木材のリサイクルが重要な課題となっている。木質廃材の処理方法としてチップ化、堆肥化、炭化等が行われ、植栽基盤材、マルチング材(植栽周辺土壌の水分蒸発防止、霜害防止、雑草抑制等の目的で地面に広げるわら、木の葉、木材チップ等)、土壌改良剤等への利用が検討されているが、利用用途先が限られ必ずしも循環利用が進んでいない。リサイクル資材を資源循環の輪に安定的に組み込むためには、既存製品との競合は不利であり、新たな用途を開拓するか、高付加価値化が重要となる。

炭化は日本の伝統的な木材処理技術である。最近ではシックハウス対策や住宅の調湿材として、木炭の効用が見直されている。炭化材料の一つに、木材と熱硬化性樹脂との複合材料を炭化してできるウッドセラミックス¹⁾がある。樹脂との複合化後に炭化することにより材料強度の向上が図られ、これまで不可能と考えられてきた用途へ適用できる可能性をもっている。また、多孔質炭素材料であることを生かし、環境浄化材料としての機能付加が考えられる。

都市部の幹線道路周辺では、自動車排出ガスによる大気汚染が深刻な問題となっている。自動車から排出される有害物質としてNO_x(窒素酸化物)やSPMがあり、これらの排出ガス成分の除去方法として土壌吸着や光触媒による酸化除去が試みられているが、排出源に近い舗装面での対策がより効果的である。

本研究の目的は、多孔質炭素材料であるウッドセラミックスを道路舗装へ適用した大気浄化機能を有する舗装を開発し、木質材料の新たな用途開拓につなげると共に、都市部で問題となってい

る大気汚染の軽減を狙うものである。本稿では、ウッドセラミックスの舗装用骨材としての基本物性及びNO_x除去特性に関する調査結果について報告する。

2. 骨材としての特性²⁾

既往の研究により製造方法、力学特性等が比較的明らかにされている、MDF(Medium Density Fiberboard, 中質繊維板)を出発原料としたウッドセラミックスを対象に、舗装用骨材としての特性を調べた。以下、本材料を炭化骨材と称する。

2.1 製造方法

出発原料として表-1に示す仕様のMDFを使用し、以下に示す手順で炭化骨材を製造した。

まず、MDFを切断し15mm角程度の立方体に加工した。その後、立方体状に加工したMDFにフェノール樹脂を含浸、硬化させて800℃で炭化させた。フェノール樹脂の含浸は、超音波発振装置付きの真空含浸処理装置を使用した。炭化処理は、1次処理として600℃、2次処理として800℃の処理を行った。炭化処理装置は、間接加熱式真空炭化炉を使用した。炭化条件は、250℃までの昇温速度5℃/min、その後昇温速度3℃/minで800℃まで昇温し、800℃を4時間保持した後自然冷却とした。

表-1 MDFの物性値

項目	物性値
厚さ(mm)	15
密度(g/cm ³)	0.62
曲げ強さ(N/mm ²)	33
剝離強さ(N/mm ²)	0.7
吸水厚さ膨張率(%)	6.5
木ネジ保持力(N)	380

2.2 骨材試験方法

立方体状の炭化骨材をローラコンパクタで破碎し、4.75、2.36、0.6、0.3、0.15、0.075mmでふるい分けを行った。それらを、必要に応じて調整して骨材試験を行った。

(1) 密度及び吸水率

市販の6号、7号砕石、粗目砂、細目砂に相当する粒度に調整し、JIS A 1109「細骨材の密度及び吸水率試験方法」及びJIS A 1110「粗骨材の密度及び吸水率試験方法」に準じて密度及び吸水率を測定した。

(2) 粗骨材のすり減り減量

JIS A 1121「ロサンゼルス試験機による粗骨材のすりへり試験方法」に準拠した。粒度区分はCとし、5~10mm、10~15mmの骨材を2500gずつ使用した。

(3) 安定性

JIS A 1122「硫酸ナトリウムによる骨材の安定性試験方法」に準拠した。ただし、試験は粗骨材に相当する2.36~4.75mm、4.75~9.5mm、9.5~13.2mmについて各群ごとに実施し、繰返し回数は5回とした。

(4) 粗骨材の剝離抵抗性

石油学会規格JPI-5S-27「アスファルト被膜のはく離性試験方法」に準拠した。本試験はアスファルト被覆した粗骨材を80℃の温水中に30分間浸し、引き上げたときのアスファルトの剝離面積率を測定するもので、粗骨材とアスファルトの接着性を評価するものである。なお、アスファルトにはストレートアスファルト60/80を使用した。

2.3 骨材試験結果

表-2に密度及び吸水率の測定結果を示す。一般の骨材では密度が大きい方がすり減り等に強く耐久性に富むとされており、アスファルト舗装要綱では砕石の品質目標値として表乾密度2.45g/cm³以上、吸水率3.0%以下という数値が挙げられている。炭化骨材は、多孔質炭素材料であり上記数値は満足しなかった。一般的には細骨材の方が吸水率は大きい、炭化骨材では粗骨材の吸水率が60%前後と極端に大きかった。これは、炭化骨材が多孔質構造を有するためであり、細骨材で吸水率が低下したのは、粉碎により連続空隙が減少し

表-2 炭化骨材の密度及び吸水率測定結果

骨材種別	相当する粒度	表乾密度 (g/cm ³)	絶乾密度 (g/cm ³)	吸水率 (%)
粗骨材	6号砕石	1.386	0.851	62.8
	7号砕石	1.396	0.876	59.4
細骨材	粗目砂	1.656	1.450	12.3
	細目砂	1.638	1.421	13.1

たためと考えられる。そのことが、密度の測定結果にも現れている。また、吸水率については、炭化骨材内部に存在する微細空隙を完全に水で置換することは困難と考えられ、真の吸水率は今回測定された値よりも大きいものと思われる。密度についても、閉じた空隙が存在すると考えられることから、真の密度はガラス状炭素の密度(2g/cm³程度)に近いものと推察される。

表-3に炭化骨材のすり減り試験、安定性試験及び剝離抵抗性試験結果をまとめて示す。

すり減り減量は、砕石の目標値とされる30%以下となっているので、骨材の耐摩耗性については特に問題ない。

安定性試験により得られた粒度別骨材損失量率はどの粒径においても7%以下であり、砕石の目標値とされる12%以下を満足した。9.5mm以上の骨材損失量が6.7%と他の粒度の骨材に比べて高かった。試験前の骨材には粒径が9.5mmに近い骨材が多く含まれているので、この骨材にごく僅かの損失が生じてもふるいを通してしまうためである。

剝離抵抗性試験による剝離面積率は5%であった。通常骨材にストレートアスファルトを被覆した時、剝離面積率が10%以下であれば、骨材としては優れた性状であるとされる。また、骨材に対する被覆特性の高い高粘度改質アスファルトでも5%以下であれば良好な結果である。したがって、炭化骨材はストレートアスファルトとの接着性に優れているといえる。なお、炭化骨材の多孔質構造が多量のアスファルトを吸収したため、骨材を被覆するためには通常骨材に必要なアスファルト量5.5gの5倍を添加する必要があった。

以上の結果より、炭化骨材は多孔質であるために、一般の骨材と比較すると密度が小さく、吸水率が大きいことが明らかとなった。しかし、すり減り減量、安定性及び剝離抵抗性においては舗装に使用される砕石の目標値を満足しており舗装用

表-3 炭化骨材の物性評価結果

項目	測定値	目標値
すり減り減量率 (%)	20.0	30以下
骨材損失量率 (%)	13.2~9.5mm	6.7
	9.5~4.75mm	0.4
	4.75~2.36mm	2.4
剝離面積率 (%)	5	—

骨材へ適用できる可能性がある。

3. 炭化骨材の NO_x 除去特性³⁾

多孔質炭化骨材を道路舗装へ適用した場合に期待される効果として、都市部の大気汚染浄化が考えられる。多孔質材料であることから、その表面に NO_x や SPM を吸着し、さらに、光触媒作用を有する酸化チタンを表面に被覆することにより、効果的にこれら有害物質を酸化除去できるという予測に基づき、ここでは炭化骨材の NO_x 除去特性について調べた。

3.1 実験方法

(1) 試料の作製

1) 炭化骨材の作製

木質原料には、骨材試験に使用したのと同じ表-1に示す MDF を使用した。MDF は 15mm 角程度の立方体に切断した後、摩砕装置により球状に加工した。この時点で、木片の直径は 12~13mm となった。この球状木片にフェノール樹脂を含浸した。樹脂含浸は、真空下、超音波発信器の内蔵された含浸槽で行った。樹脂含浸後、130℃の乾燥炉で樹脂を硬化させた。もとの木片重量に対する重量増加率(樹脂含浸率)は約 60%であった。さらに、樹脂含浸した木片を、真空炭化炉を用いて 800℃で炭化した。炭化までの処理工程及び処理条件を表-4に示す。なお、製造装置が骨材試験に使用した炭化骨材と異なるため若干処理条件が異なる。このようにして得られた炭化骨材は直径約 10mm となった。

表-4 炭化骨材製造工程及び処理条件

工程	条件
フェノール樹脂含浸	超音波発振、減圧下で1時間
乾燥・硬化	70℃12時間保持→3時間で130℃→130℃2時間保持→自然冷却
炭化	真空加熱炉使用、800℃まで3℃/min→800℃4時間保持→自然冷却

2) 炭化骨材への酸化チタンの被覆

炭化骨材表面へ被覆する酸化チタンとして表-5に示すゾルを使用した。炭化骨材 1kg を耐酸性のポリエチレン繊維クロスに入れ、5分間酸化チタンゾルに浸漬した。その後、余分な酸化チタンを遠心分離機により取り除き、室内で約 15 時間乾燥させた。さらに、酸化チタンを炭化骨材に強固に担持するために、200℃で真空乾燥させた。酸

化チタンの担持条件を表-6に示す。これは、予備検討により浸漬時間、遠心分離時間を変えた骨材を製造し NO_x 除去能力を測定した結果、最適と判断された条件である。本条件での酸化チタン担持による重量増加率は 4.3%であった。

表-5 酸化チタンゾルの仕様

項目	物性値
TiO ₂ 含有量 (%)	30
pH	1.0
TiO ₂ 粒子径 (nm)	20
比重	1.28
粘度 20℃ (mPa·s)	10 以下

表-6 酸化チタンの担持条件

工程	条件
浸漬時間	5分間
遠心分離時間	1分間
真空乾燥	3時間で200℃→200℃を1時間保持→4時間で50℃

(2) NO_x 除去特性の評価方法

NO_x 除去特性を評価するための実験装置の概要を図-1に示す。混合容器内で所定の NO_x 濃度、湿度に調整された試験ガスを、炭化骨材が設置された反応セルに導入する。反応セル通過前後の NO_x 濃度を測定することにより、NO_x 除去特性を評価した。

反応セル内部の構造を図-2に示す。試験骨材は、幅 5cm、長さ 30cm の容器内に、道路舗装を想定して 5 段積みとした。上部の 5mm の隙間に試験ガスを流した場合、流れが層流になり骨材の機能を正しく評価できない恐れがあったため、穴の開いた通気制御板を通過した試験ガスが骨材の側面部から流入する方式を採用した。ただし、出口側はパイレックスガラス板との 5mm の隙間を通過して試験ガスを流出させた。

酸化チタンの光触媒作用は、紫外線によって発揮される。紫外線の照射は、パイレックスガラス板の上部に設置したブラックランプにより行った。なお、反応セル内には外部の光が入り込まない構造となっている。試験ガスを反応セルに導入してから最初の 1 時間は、紫外線未照射とした。その後紫外線照射を 130 分間行い、照射終了後 30 分後までの NO_x 濃度を測定した。

測定条件を表-7に示す。試験ガスの NO_x 濃度は、酸化チタンの光触媒効果を評価する試験とし

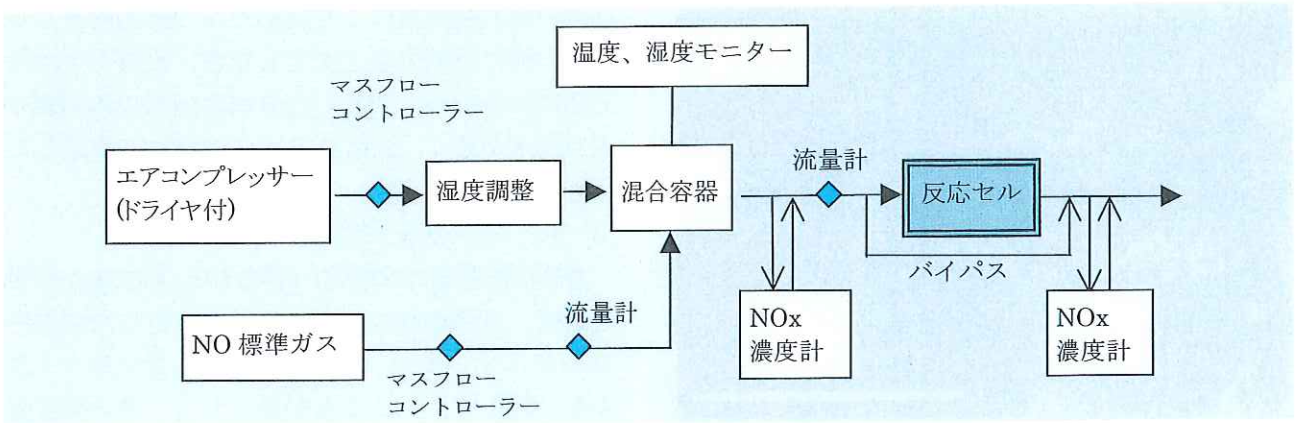


図-1 NO_x 除去特性評価装置の概要

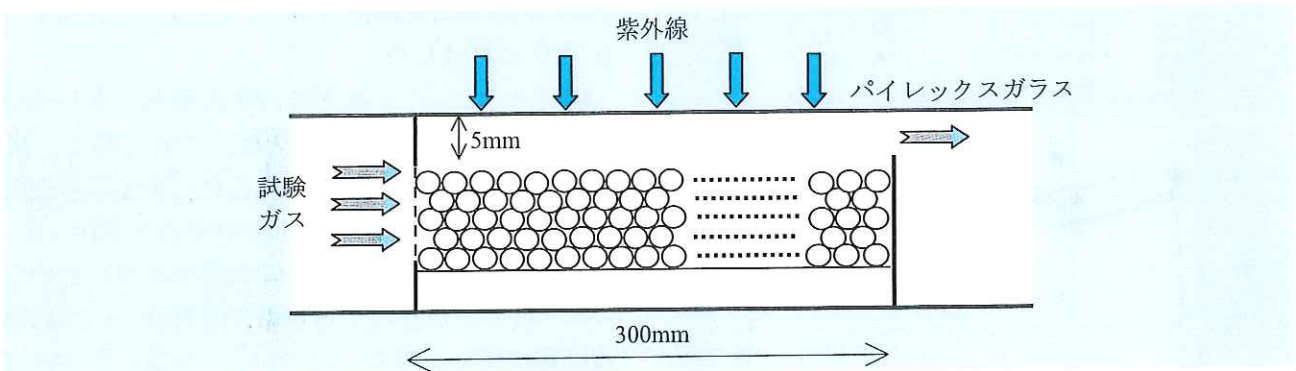


図-2 反応セル内部の模式図

表-7 NO_x 除去特性測定条件

項目	条件
入口 NO _x 濃度 (ppm)	90 (NO≒81~84、NO ₂ ≒6~9)
通気流量 (L/min)	4.0
紫外線強度 (mW/cm ²)	1.0 (UV-A)
相対湿度 (%)	50

では数 ppm 程度で行われることが多いが、ここでは、排出源である自動車の排気管出口に近い濃度として 90ppm を採用した。流量は、化学発光法による NO_x 濃度計に必要な流量として 4L/min を採用した。

実験ケースを表-8 に示す。反応セル内の炭化骨材の積層状態を変えた 5 ケースについて検討した。

ケース 4 で使用したアルミナ骨材は直径 10mm

である。酸化チタンの担持条件は、炭化骨材と同様とした。なお、炭化骨材の直径にばらつきがあるため、1 段当りの骨材数は 94~102 個、1 ケースに使用した骨材合計数は 476~491 個となった。骨材の直径を 10mm とした時の見かけの酸化チタン総被覆面積を表-8 の右端に示した。

3.2 実験結果

(1) 炭化骨材への酸化チタンの被覆

図-3 に酸化チタンを被覆処理した炭化骨材の電子顕微鏡写真を示す。写真は、骨材表面付近の破断面である。骨材表面全体が 5μm 程度の厚さの酸化チタンで被覆されていることが分かる。

(2) NO_x 除去率

入口側と出口側の NO_x 濃度の減少率を NO_x 除

表-8 実験ケース

実験ケース	骨材設置状況	使用骨材合計数 (個)	見掛けの TiO ₂ 被覆面積 (cm ²)
ケース 1	炭化骨材のみ 5 段重ね	487	0
ケース 2	最上段: TiO ₂ 被覆炭化骨材 下 4 段: 炭化骨材	476	298
ケース 3	最上段: 炭化骨材 下 4 段: TiO ₂ 被覆炭化骨材	490	1,224
ケース 4	最上段: TiO ₂ 被覆アルミナ骨材 下 4 段: 炭化骨材	491	298
ケース 5	TiO ₂ 被覆炭化骨材を 5 段重ね	476	1,494

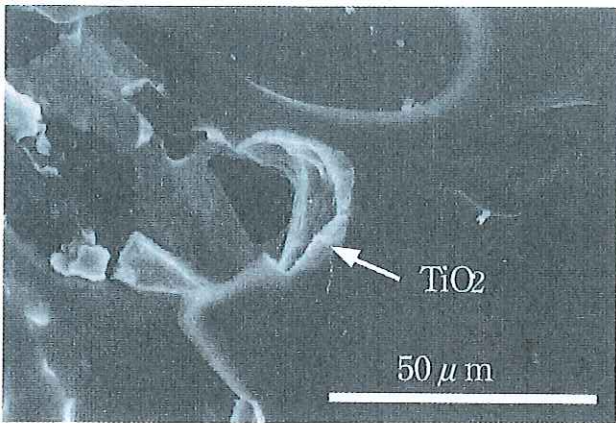


図-3 酸化チタン被覆炭化骨材の電子顕微鏡写真

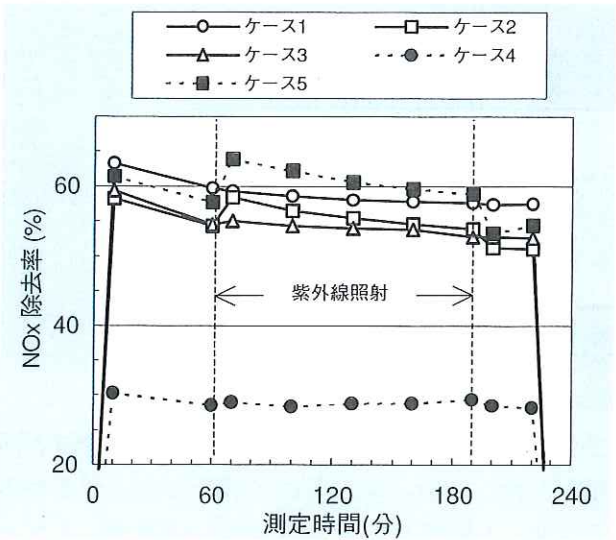


図-4 NO_x 除去率評価結果

除去率として整理した。結果を図-4に示す。また、紫外線照射時の70分後から190分後までに測定された2時間の平均NO_x除去率を表-9に示す。

いずれのケースとも紫外線照射前の60分間において、高いNO_x除去率を示した。このことは、炭化骨材そのもののNO_x除去能力が大きいことを示している。事実、紫外線照射前のNO_x除去率は、酸化チタンを被覆しない炭化骨材を使用したケース1が最も大きかった。また、NO_x除去率は時間と共に僅かずつ低下する傾向が認められた。

紫外線照射時の酸化チタンによるNO_x除去率の上昇は、全体の除去能力の0.3~10%と小さかった。酸化チタンを被覆した骨材を使用したケースの中では、全段を被覆骨材としたケース5の除去率が2時間平均で61.0%と最も大きかった。最上段のみを酸化チタンを被覆したアルミナ骨材としたケース4の除去率は、他の4ケースの半分程度であることから、最上段の炭化骨材による除去効果が大きく寄与しているものと考えられる。入り

口側の通気制御板により反応セルの断面内をなるべく一様に通気する工夫をしたが、出口がセルの上部にあるため、設置した骨材の内部での試験ガスの流通が悪く、表層部のガスの流れが卓越したためと考えられる。

(3) NO_x 除去量及び酸化チタンの効果

紫外線照射時の2時間の平均NO_x除去率から単位面積、単位時間当りの除去量を算定した結果を表-9に示す。また、紫外線照射時の除去率の上昇分を、酸化チタンによる効果として、その除去量を推定した結果を同表右端に示す。ここで、単位面積は試験体設置面積(0.05m × 0.3m=0.015m²)を1m²に換算した。

酸化チタンによるNO_x除去量は、0.1~3.9 mmol/m²·hrと見積もられた。これに対し、炭化骨材そのものの除去効果を含めた全体の除去量は18.3~39.1 mmol/m²·hrと非常に大きかった。多孔質炭化骨材の吸着による効果が大きいものと考えられる。吸着による効果であれば、いずれ吸着飽和に達し、吸着したNO_xを処理しなければ効果は持続しないと予想される。また、物理的な吸着であれば、脱着も予想されることから、酸化チタンによる酸化処理が必要となる。

本実験では、全段に酸化チタン被覆炭化骨材を使用したケース5の場合に、紫外線照射時のNO_x除去量が39mmol/m²·hrと最も大きくなった。

下部4段に酸化チタン被覆炭化骨材を使用したケース3においては、酸化チタンの効果が小さかった。また、最上段のみを酸化チタン被覆炭化骨材としたケース2では、酸化チタンの効果が比較的大きかった。したがって、下段への紫外線の到達は少ないことが考えられる。

最上段に酸化チタン被覆アルミナ骨材を使用したケース4では、紫外線照射による一時的なNO₂濃度の上昇が認められた。そのため、紫外線照

表-9 NO_x 除去率平均値及びNO_x 除去量の試算結果

実験ケース	2時間平均NO _x 除去率 (%)	NO _x 除去量 (mmol/m ² ·hr)	酸化チタンによるNO _x 除去量 (mmol/m ² ·hr)
ケース1	58.2	37.2	—
ケース2	55.7	35.5	1.9
ケース3	54.0	34.6	0.1
ケース4	28.8	18.3	0.1
ケース5	61.0	39.1	3.9

射後の NO 濃度の減少量が、NO₂ 濃度の増加により相殺され、酸化チタンによる NO_x 除去量は小さく見積もられた。酸化チタンによる NO の酸化は酸化チタンの表面で起きる反応である。平滑なアルミナ球の場合、骨材及び酸化チタンの表面積が小さく、NO_x の吸着サイトが少なくなるため、NO₂ の状態で脱着する分子が増えたことが考えられる。

(4) 道路における排出量と除去量との比較

実際の道路上で自動車から排出される NO_x の量を以下の仮定により試算した。すなわち、道路幅員 3.5m、走行速度 60km/h、大型車混入率 30%、車頭間隔 2 秒、大型車 NO_x 排出係数 1.9g/台・km、小型車 NO_x 排出係数 0.226g/台・km として、舗装単位面積、時間当りの NO_x 排出量を求めると 8.1mmol/m²・h となった。

一方、本実験結果より、紫外線照射時の 2 時間平均 NO_x 除去率をもとに見積った NO_x 除去量は最大で 39.1mmol/m²・h であった。したがって、本骨材を舗装材料として利用することにより、効果的に自動車から排出される NO_x を除去できる可能性がある。

4. まとめと今後の課題

木質材料の処理方法の一つとして炭化処理に着目し、環境浄化機能を有する舗装用骨材としての炭化骨材(ウッドセラミックス)の基本的な物性を調査した。

舗装用骨材としての物性を調べた結果、MDF を原料として製造した炭化骨材は多孔質炭素材料であることから、一般の骨材と比較すると密度が小さく、吸水率が大きかった。しかし、すり減り減量、安定性及びアスファルトの剝離抵抗性に関しては、舗装に使用される碎石の目標値を満足しており舗装用骨材へ適用できる可能性が認められた。

炭化骨材に期待される付加機能として環境浄化作用が考えられる。ここでは、光触媒作用を有する酸化チタンとの複合化を試み、炭化骨材への被覆方法や都市部で問題となっている NO_x の除去特性を調べた結果以下のことが分かった。

(1) MDF を原料とした炭化骨材表面に、酸化チタンを 5μm 程度の厚さで被覆した骨材を製造することが可能であった。

(2) 炭化骨材そのものの NO_x 除去能力が非常に大きいことが明らかとなった。道路上で自動車から排出される NO_x 量と比較して、炭化骨材の NO_x 除去量は 1 桁大きく、効果的に大気中の NO_x を除去できる可能性が示された。

現在、炭化骨材の特性を生かした舗装構造体、すなわち、骨材の表面が極力大気と接触するような多孔質舗装の構築方法について検討している。舗装の構築方法が確立した段階で、より実態に近い評価を予定している。さらに、NO_x 除去効果の持続性、舗装としての耐久性等についても検討を加える予定である。

参考文献

- 1) 岡部敏弘監修:木質系多孔質炭素材料 ウッドセラミックス, 内田老鶴圃, 1996.
- 2) S. Meiarashi: Application of Carbonized Waste Wood for Construction Engineering, Transactions of the Materials Research Society of Japan, Vol.25, No.3, pp.681-683, 2000.
- 3) T. Nakamura and S. Meiarashi: Nitrogen Oxides Removal Performance of Carbonized Aggregate Coated with Titanium Dioxide, Transactions of the Materials Research Society of Japan, Vol.26, No.3, pp.837-840, 2001.

中村俊彦*



独立行政法人土木研究所
材料地盤研究グループ新
材料チーム主任研究員
Toshihiko NAKAMURA

明嵐政司**



同 材料地盤研究グループ
新材料チーム上席研究
員, 工博
Dr.Seishi MEIARASHI