

道路政策の質の向上に資する技術研究開発

【研究状況報告書（F S 研究対象）】

① 研究代表者	氏 名 (ふりがな)		所 属		役 職
	高津		淑人		准教授
② 研究 テーマ	名称	再生可能な水素を併産するバイオマスベースの舗装材に関する技術研究開発			
	政策テ ーマ	[主テーマ] テーマ 6		公募	実行可能性調査 (F S)
		[副テーマ]		タイプ	
③ 研究経費 (単位 : 万円) ※受託額を記入。	令和 4 年度 9 7 6 万円				
④ 研究者氏名	(研究代表者以外の主な研究者の氏名、所属・役職を記入。なお、記入欄が足りない場合は適宜追加下さい。)				
氏 名		所属・役職			
角田 雄亮		日本大学工学部物質応用化学科・准教授			
高橋 知		前田道路株式会社技術研究所技術課・課長代理			
⑤ 研究の目的・目標					
<p>本研究の目的は、再生可能な電力を生み出すバイオマス発電の副生タールを改質して道路舗装材の主要な原材料である石油アスファルトを代替すると共に、タール改質の副生物を再生可能な水素の製造にリサイクルすることでカーボンニュートラルの達成に貢献することである。</p> <p>目的の達成に向けて、まずは副生タールを石油アスファルト並みの品質にまで加熱改質するプロセスを設計する。続いて、適切に改質された副生タールのアスファルト性を確認し、石油アスファルトを代替した舗装材の試作と試作物に対する物理性状（密度、安定度など）の評価を行う。併せて、代替することへのコスト、カーボンニュートラルへの貢献度も試算する。さらには、改質による副生物を再生可能な水素の輸送キャリアにリサイクルする触媒反応の基本設計も行う。</p>					

⑥ FS研究の結果

1. ウッドピッチ改質の基本設計

ウッドピッチの改質方法には、フェノール性化合物の除去と重縮合による高分子化を同時に達成できることを期待して、減圧蒸留法を選定した。この操作によると、施工時の悪臭源であり、重縮合を妨げる可能性があるフェノール性化合物を低沸点成分として留去できる。アルカリ抽出法ではフェノール性化合物を選択的に除去できる一方で、フェノールト相の分離、フェノール性化合物への再生などで複数の工程を要する。これにより、改質に対する経済性が深刻に悪化すると懸念される。

続いて、減圧蒸留法によって得られる改質ピッチの針入度をストレートアスファルトの60/80グレード並みに改質するための操作条件を検討した。図1と表1より、200°C-50hPaで1.25時間の減圧蒸留を行うことで、改質ピッチの針入度が73となり基準を満たすことがわかった。ただし、水分値に大きな変化がなかったことから低沸点成分の留去が主に進行し、重縮合があまり起きていなかったと考えられる。以上のことから、FSにおいては、上述の操作条件で蒸留実験をスケールアップし、前田道路での試験に必要な改質ピッチを調製した。なお、スケールアップに伴う放熱速度の変化などで、同じ操作条件で改質ピッチを試作しても針入度は下がってしまった。しかし、研究期間を考慮して、スケールアップで得られた改質ピッチをバインダー適合性試験の検体とした。

表1 ウッドピッチ減圧蒸留実験の結果

Entry	1	2	3	4	5	6	7	8	9	(60/80)*
蒸留条件										
温度[°C]	180	200	200	200	190	200	200	200	180	-
時間[h]	0.5	1.0	1.5	1.5	1.5	1.5	1.0	1.25	1.5	-
圧力[hPa]	50	50	30	50	30	70	30	50	30	-
改質ピッチ										
収率[%]	72.8	63.1	54.6	57.1	57	66.9	53.2	60.3	61.4	-
針入度[1/10mm]	測定不能	125	17	27	34	168	7	73	118	65
タフネス[N/m]	0.2	2.1	1.2	1.0	1.4	0.3	0.6	6.7	2.4	6.5
テナシティ[N/m]	0.2	0.2	0.5	0.6	0.0	0.0	0.0	0.4	0.4	0.8

*60/80グレードのストレートアスファルト

2. 室内試験によるバイオマスベース舗装材の試作と評価

針入度73の改質ピッチを得た操作条件のスケールアップ実験で得られた改質ピッチは針入度が24であったため、別の操作条件で得た低粘度のピッチと混ぜ合わせて、針入度63のバインダー試験検体を調製した。この検体は表2で記されるように、伸度の測定で事前の養生中に破断したことに加えて、薄膜加熱後の針入度も大幅に低下した。

表2 改質ピッチに対するバインダー適合性試験の結果

検体種		改質ピッチ	60/80*	標準的性状
針入度 (25°C)	[1/10mm]	63	63	60-80
軟化点	[°C]	43	47	44-52
伸度 (15°C)	[cm]	測定不能	100以上	100以上
トルエン可溶分	[%]	90.9	99.7	99以上
引火点	[°C]	206	363	260以上
薄膜加熱質量変化率	[wt%]	12.2	0	0.6以下
薄膜加熱後の針入度残留率	[%]	3	92	55以上
蒸発後の針入度比	[%]	89	97	110以下
密度 (15°C)	[g/cm3]	1.173	1.039	1.000以上

*60/80グレードのストレートアスファルト

表3 改質ピッチに対する混合物性状試験

		改質ピッチ①	改質ピッチ②	60/80*	標準的性状
		(pen63)	(pen24)		
かさ密度	[g/cm3]	2.346	2.33	2.36	-
空隙率	[%]	6.4	-	4.4	3~6
飽和度	[%]	64	-	75	70~85
安定度	[k/N]	4.6	6.7	9.7	4.90以上
フロー値	[1/100cm]	24	21	28	20~40
残留安定度	[%]	測定不能	-	100	75以上
動的安定度	[回/mm]	270	-	350	-

*60/80グレードのストレートアスファルト

この検体 (pen63) に対して混合物性状試験を行ったところ、表3が示すように安定度は標準性状を6%程度下回る結果であった。しかし、残留安定度の測定では60°C-48時間の水浸養生中に混合物検体が崩壊した。これは、針入度を合わせるために低粘度の改質ピッチを添加したことが原因と考えられる。低粘度の改質ピッチには水とのなじみが良いフェノール性化合物が多く残留しているので、耐水性が低くなっていたと考えられる。

一方、比較参照の検体としてスケールアップ実験で得られた改質ピッチ単体（pen24）を混合物性状試験に供してみると、安定度は標準性状に適合する結果となった。目標針入度の改質ピッチを試作できれば、強度面の問題を解決できる可能性は高いと考える。残るFS期間では、目標針入度に改質された検体に対するバインダー適合性と混合物性状の評価に努めたい。また、配合設計に基づく混合物検体の試作と物理性状の測定も鋭意進めていく。続いて、前年度の最終審査で受けたコメントへ対応するため、改質ピッチをバインダーとするグリーンな道路舗装材に対する製造コストとカーボンニュートラルへの貢献度合いを試算した。

コストについては、バインダーの製造に注目した。比較対象とした60/80グレードのストレートアスファルトは「建設物価2022年12月号に掲載されている単価が120円/kgである。一方、本格研究を想定した減圧蒸留試験の外注先候補からは、1000kgのウッドピッチの蒸留費用が350万円になるとの見積もりを受けた。この見積もりに基づいて、改質ピッチを60%の収率で生産する前提では、製造コストは5833円/kgになる。生産規模の蒸留であれば単価が下がるのは確実であるものの、蒸留コストを低減するための工夫を検討することも今後の研究では必要と考える。念のために改質ピッチを用いて道路舗装材を製造する際の輸送コストも試算した。先に記した減圧蒸留試験の外注における物流を基準にすると、ウッドピッチ発生元（山形県）から蒸留外注先までのJR貨物輸送と蒸留外注先から合材工場までのタンクローリー輸送のいずれもが15円/kgと見積もられた。なお、原料であるウッドピッチの単価は15円/kgであることを発生元から聞き取っている

カーボンニュートラルへの貢献度合いとして、まずは改質ピッチをバインダーに用いた道路舗装材の製造に伴うCO₂排出量を試算した。舗装の環境負荷低減に関する算定ガイドブック（平成26年1月に日本道路協会が発行）に基づくと、1tの製造に112.8kgのCO₂を排出することが表4よりわかる。

表4 改質ピッチを用いた道路舗装材製造のCO₂原単位

【密粒度アスファルト混合物】の製造におけるCO ₂ 原単位計算表								【入力説明】	
混合物製造量(t)								任意の値を設定	
800.00								技術標準配合	
								最新情報を入力	
								ダンプ:0.0575 ローリー:0.0340	
								○合材工場までの材料輸送距離を入力	
								○合材工場過去実績より	
								総換元を必ず記入しておくこと	
原単位根拠									
舗装の環境負荷低減に関する算定ガイドブック 平成26年1月 (公)日本道路協会									
名称	混合物の配合(内割100%)	運搬総荷量(t)	運搬1当たり燃料消費量(L/t/km)	輸送距離(km)	単位	数量	原単位(kg-CO ₂ /単位)	排出量(kg-CO ₂)	数量根拠
素材	6号砕石	33.9			t	271.20	7.98	2164.18	配合設計書
	7号砕石	15.1			t	120.80	7.98	963.98	
	砕砂	26.4			t	211.20	7.98	1685.38	
	粗砂	8.5			t	68.00	11.54	784.72	
	細砂	5.7			t	45.80	11.54	526.22	
	石粉	4.7			t	37.60	5.41	203.42	
	改質ピッチ	5.7			t	45.80	1071	48837.80	
輸送	軽油(砕石輸送)		603.20	0.0575	L	693.88	4.18	2906.52	改良トンキロ法
	軽油(砕砂輸送)		113.60	0.0575	L	130.84	4.18	547.38	
	軽油(石粉輸送)		37.60	0.0575	L	43.24	4.18	181.18	
	軽油(アスファルト輸送)		45.60	0.0340	L	372.10	4.18	1559.10	
製造	電力				kWh	9520.00	0.46	4379.20	アスファルトプラント消費実績
	軽油				L	6648.00	2.91	19345.88	
	軽油				L		2.95	0.00	
他	未集計分等見込み値				t	800.00	7.72	6176.00	算定ガイドブック
計								90260.56	
1tあたり								112.83	

排出量(kg)
2.4
1.1
1.9
0.9
0.6
0.2
54.1
3.2
0.6
0.2
1.7
4.9
21.4
0.0
6.8
100.0

表5からは、ストレートアスファルトを用いるときはCO₂排出量が半分程度の57.9kgとなった。「国総研原単位2005」によるとストレートアスファルトのCO₂排出原単位が107kg-CO₂/tである一方、減圧蒸留によって改質ピッチ1トンを製造することに921kgのCO₂排出があると見込まれた。原料のウッドピッチを減圧蒸留する場所へ運搬する際のCO₂排出を含めると、改質ピッチの原単位は1071kg-CO₂/tになる。経済性を試算したときと同様に、生産規模になればCO₂排出原単位は少なくなるが、蒸留方法の工夫によるCO₂排出の低減も必要である。

表5 改質ピッチを用いた道路舗装材製造のCO₂原単位

【密粒度アスファルト混合物】の製造におけるCO ₂ 原単位計算表										【入力数値】	
混合物製造量(t)		原単位の参照		国産の標準炭素含有率に関する算定ガイドブック 平成26年1月 (公)日本道路協会		国産の標準炭素含有率に関する算定ガイドブック 平成26年1月 (公)日本道路協会		国産の標準炭素含有率に関する算定ガイドブック 平成26年1月 (公)日本道路協会		国産の標準炭素含有率に関する算定ガイドブック 平成26年1月 (公)日本道路協会	
名称	混合物の割合 (内数100%)	標準消費量 (t)	運輸1当たり 燃料消費量 (L/t/km)	輸送距離 (km)	単位	数量	原単位 (kg-CO ₂ /単位)	排出量 (kg-CO ₂)	数量移別	排出量(t)	
原料	0号砕石	30.9			t	271.25	7.99	2164.19	配合設計者	4.7	
	7号砕石	15.1			t	129.80	7.99	983.98		2.1	
	砕砂	29.4			t	211.20	7.99	1689.39		3.6	
	粗砂	9.5			t	69.90	11.54	794.71		1.7	
	細砂	5.7			t	45.90	11.54	529.21		1.1	
	石粉	4.7			t	37.90	5.47	208.43		0.4	
	2H-1727s計	5.7			t	45.90	107.9	4959.54		10.6	
輸送	軽油(砕石輸送)		809.29	0.0679	L	543.98	4.19	2268.50	改質トンキ口法	6.3	
	軽油(砕砂輸送)		112.60	0.0679	L	76.24	4.19	318.63		1.2	
	軽油(石粉輸送)		37.60	0.0679	L	25.54	4.19	107.19		0.4	
	軽油(727s輸送)		45.60	0.0640	L	29.28	4.19	122.78		3.4	
製造	電力				kWh	9539.00	0.45	4297.20	アスファルト プラント 消費実績	9.5	
	L重油				L	6649.30	2.91	19345.98		41.8	
	軽油				L	2.95	0.00	0.00		0.0	
総消費量計分等見込み値					t	809.90	7.72	6179.90	算定ガイドブック	12.3	
計								46329.52		108.8	
1tあたり								57.91			

ただし、カーボンニュートラルへの貢献度合いを評価するには、改質ピッチそのものが再生可能な原材料であることを考慮すべきと考える。炭素含有量を85%として計算したストレートアスファルトのCO₂排出係数は3116kg-CO₂/tである。

3. 改質副生物をリサイクルする触媒反応に好適な操作条件の選定

水素発生に及ぼす操作条件の影響を調べた反応実験の結果を表6に示す（反応温度：260℃）。クレゾールの供給比率を増やすほどグルコースから発生した水素の収率は高くなったが、その半分はメタンの副生に浪費されていた。しかし、原料の供給量そのものを増やすことでメタンの副生は著しく抑制され、クレゾール水素化への選択性が高まった。なお、操作条件によらずクレゾール水素化の主要な生成物はトルエンであり、目的生成物のメチルシクロヘキサンが白金触媒によって脱水素されたと考えられる。

表6 水素発生に及ぼす操作条件の影響（260℃）

Entry	①	②	③	④	⑤
触媒*[g]	1	1	1	1	3
グルコース水溶液[g]	3	6	9	27	27
クレゾール[g]	9	6	3	9	9
発生水素の収率[%]	9.0	18.9	42.6	13.9	20.6
選択性					
①クレゾール水素化	22.2	36	36.9	59.6	70.1
②ガス相散逸	14.4	11.6	11.5	6.6	5.5
③メタン副生浪費	63.4	52.4	51.6	33.8	24.4
水素化クレゾール選択性[%]					
メチルシクロヘキサノール	0.8	1.8	1.5	1.2	0.4
メチルシクロヘキサノン	1.2	2.7	2.0	2.3	0.4
トルエン	88.6	78.5	85.3	89.2	96.1
メチルシクロヘキセン	2.7	9.9	1.5	1.6	0.9
メチルシクロヘキサン	6.7	7.1	9.7	5.7	2.2

*多孔性アルミナに固定した微粒子状態の白金

表7 触媒の組成が水素発生に及ぼす影響（240℃）

Entry	①	⑥	⑦	⑧	⑨
触媒					
活性金属	白金	パラジウム	白金	白金	白金
担体物質	アルミナ	アルミナ	チタニア	シリカ	活性炭
発生水素の収率[%]	17.8	10.7	12.7	11.5	17.6
クレゾール水素化の選択性[%]	38.9	26.1	20.3	19.5	11.4

グルコース水溶液6g、クレゾール6g、触媒 1 g、1時間の反応

表7に触媒の組成が水素発生に及ぼす影響を示す。パラジウムを活性金属に用いると、メチルシクロヘキサンへの選択性が高まったものの（34%）、水素の発生は少なくなった。活性炭を担体物質にしたときはアルミナと同程度に水素を発生したが、クレゾール水素化への選択性は低くなった。従って、アルミナが担体物質に好適だと言える。

⑦ 本格研究の見通し

バイオマスペースの舗装材を実現しようとする本研究の見通しを、「製造技術」、「製造コスト」、および「カーボンニュートラルへの貢献度」に基づいて自己評価し、本格研究における主要な課題を挙げる。

製造技術： 低沸点のフェノール性化合物を除去しながら、ウッドピッチの針入度と軟化点を60/80グレードのストレートアスファルト並みに改質できる減圧蒸留法は、バイオマスペースの道路舗装材の製造に有効な工業技術である。また、バインダーとしての適性を調べる試験では、実験の都合で針入度が24の改質ピッチを対象としたが、成形した測定検体の安定度とフロー値が標準の性状に適合していたことは、今後の研究による品質向上へ期待が持てる。減圧度を高めるなどの操作条件を制御することで減圧蒸留による重縮合を促進させ、改質ピッチの耐水性を改善することが今後の研究で取り組むべき重要な課題であると考えている。

なお、品質向上の程度が現段階では予測できないことから、ストレートアスファルトの一部を代替することも検討すべきと考えている。これに加えて、様々な針入度グレードのストレートアスファルトを代替対象に含めることで、バイオマスペースの舗装材に対する実装性の幅を広げることにも今後の研究では検討したい。なお、ストレートアスファルトの一部代替については、既に予備検討を始めている。

改質副生物のリサイクルについては、外部発生した再生可能な水素の輸送キャリアとして有機ハイドライド法で利用することも念頭に入れ、今後の研究では実装性の向上を試みる。

製造コスト： ストレートアスファルトの単価（120円/kg）と比較すると、現状では製造コストの面で改質ピッチは歯が立たない。しかし、ストレートアスファルトは経済的に洗練された石油大量精製技術の産物である。改質ピッチのコスト試算は、実証規模の舗装材試作に必要な改質ピッチの量的な確保のために予定している減圧蒸留試験の見積もりに基づいたものなので、経済性を改善できる余地は大きいと考える。減圧蒸留外注試験で得られたデータによって実装段階を想定した改質ピッチの大量製造を前提にすると試算が改まり、製造コストが大幅に下がる可能性は高い。また、減圧蒸留試験では多様な依頼元に対応するために高価な設備が使用されている。ウッドピッチの改質だけに専用するのであれば、蒸留設備の簡素化は可能である。蒸留設備を簡素化できると、操作に要する人員を削減することもできる。

カーボンニュートラルへの貢献度： 経済性と併せてCO₂排出量についても、石油大量精製技術の産物であるストレートアスファルトに改質ピッチは敵わないことがわかり、減圧蒸留に対する工夫が「インフラ分野の脱炭素化」に貢献しようとする本研究の重要な課題であることが浮き彫りになった。減圧蒸留は成熟した工業技術であり、目的に応じて設備・操作方法を選択することに自由度が大きい。経済性の改善とCO₂排出の低減を両立した、ウッドピッチ改質に合理的な減圧蒸留の適切な姿を今後の研究で明らかにしたい。

⑧ 特記事項

本FS研究から得られた知見、内外へのインパクト

カーボンニュートラルが達成されると、舗装道路のバインダーに欠かせない石油アスファルトの入手が困難を極めると想定される。持続的な舗装道路の改修・新設を可能とするために本研究は、石油アスファルトをバイオマスで代替したグリーンな道路舗装材によって解決を目指している。舗装材製造の副生物を再生可能な水素の製造にリサイクルしようとするもう1つの目的と併せて、本研究は前例のない独創的な試みだと言える。また、石油アスファルトを代替するバイオマスには、バイオマス発電で発生する不要なウッドピッチを充てることは、資源リサイクルの観点から極めて有用である。

現在までに、減圧蒸留法によって施工時の悪臭源となるフェノール性化合物を除去しながら、同時にウッドピッチを針入度ベースで60/80グレードのストレートアスファルト並みに改質できることを示している。また、改質したピッチを用いたバインダー性能評価の試験では、安定度とフロー値で標準の性状を示す検体が得られている。再生可能な水素の製造については、効率良く水素を発生し、副反応への浪費を抑制できる操作条件を明らかにしている。

以上のように本研究は、再生可能な水素の生産／輸送に貢献しながらバイオマスベースのグリーンな道路舗装材を実装することに向けて着実に歩みを進めている。

研究成果の見通しと進捗の達成度

本研究は当初の計画に沿って進捗しており、成熟した工業技術である減圧蒸留によってグリーンな道路舗装材のバインダーを製造できる目途が得られた。新年明けにはこれまでの研究成果に基づいて、バイオマスベースの道路舗装材を屋内規模で試作する。改質したウッドピッチに対して一部の物理性状がストレートアスファルトに劣っている点については、改質操作の条件を絞り込むなどで今後の改善が期待できる。併せて、ストレートアスファルトの部分的な代替、代替対象グレードの追加を検討し、研究成果の早期実装を目指したい。

審査時に指摘された経済性については、減圧蒸留のコストを低減することが大きな課題になることを試算したが、設備面・操作面の工夫などによってコスト改善できる余地は大きい。また、適切な設備と操作で減圧蒸留することは、無視できないレベルにあるCO₂排出を低減し、グリーンな道路舗装材の実装によるカーボンニュートラルへの貢献が際立つための大きな課題であることも試算された。

以上のように、FSを経ることで本研究の具体像が明らかとなり、本格展開するための準備が整った。