

DOI:10.11918/202411001

微米气泡和超声波辅助湿法碳化再生 微粉及人造骨料试验

马永胜¹, 陈铁锋¹, 殷继伟², 张益豪², 刘琼³, 高小建¹

(1. 哈尔滨工业大学 土木工程学院, 哈尔滨 150090; 2. 建筑材料工业技术情报所, 北京 100020;
3. 上海理工大学 环境与建筑学院, 上海 200093)

摘要: 再生微粉具有优异的固碳潜力, 湿法碳化方法有助于更好地发挥其固碳性能。为此, 采用微米气泡和超声波辅助的方法改善湿法碳化的固碳效率, 对固碳后的再生微粉浆料通过压制成型的方法制备人造骨料, 进一步利用二次碳化方法驱动人造骨料强度提升, 并提出铝膜袋 CO₂ 体积法对再生微粉固碳量和碳化程度进行评价。最后, 对此产品进行碳足迹核算。结果表明: 提出的改进湿法碳化方法可以有效提高再生微粉碳化效率, 用铝膜袋 CO₂ 体积法对再生微粉进行固碳量评价的方法操作简单、实用; 再生微粉在常温、常压、100% CO₂ 体积分数的铝膜袋中 0.5 h 固碳量, 与本研究提出的湿法碳化方法的 5 min 固碳量基本相当; 未碳化再生微粉制成的人造骨料, 经碳化养护后抗压强度为 42.7 MPa; 经过湿法碳化处理的再生微粉再压制成人造骨料时, 碳化后强度相对对照组有所降低, 主要是由于碳化反应物减少。碳足迹核算显示, 碳化再生微粉人造骨料可以实现碳排放大幅降低。

关键词: 再生微粉; 湿法碳化; 固碳量; 人造骨料; 碳足迹

中图分类号: TU375

文献标志码: A

文章编号: 0367-6234(2026)02-0070-08

Experiment on micron bubbles and ultrasonic-assisted wet carbonation for recycled micro-powder and artificial aggregate

MA Yongsheng¹, CHEN Tiefeng¹, YIN Jiwei², ZHANG Yihao², LIU Qiong³, GAO Xiaojian¹

(1. School of Civil Engineering, Harbin Institute of Technology, Harbin 150090, China; 2. Building Materials Industry
Technical Information Institute, Beijing 100020, China; 3. School of Environment and Architecture,
University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

Abstract: Recycled micro-powder has excellent carbon sequestration potential, and the wet carbonation method enhances its carbon sequestration performance. In this study, micron bubbles and ultrasonic-assisted methods were used to improve the carbon sequestration efficiency of wet carbonation. Then the recycled micro-powder slurry after carbonation was compressed into artificial aggregate, and a secondary carbonation was further conducted to improve the mechanical strength of artificial aggregate. The CO₂ volumetric method of aluminum film bag was proposed to evaluate the carbon sequestration amount and carbonation degree of recycled micro-powder. Finally, the carbon footprints of this carbonated recycled micro-powder and artificial aggregate are calculated. The results indicate that the wet carbonation method proposed in this study can effectively improve the carbonation efficiency of recycled micro-powder. The use of aluminum film bag for CO₂ volumetric method of the carbon fixation in recycled micro-powder is straightforward and practical. The carbon sequestration amount of recycled micro-powder in aluminum film bag with 100% CO₂ concentration for 0.5 h is comparable to that of the wet carbonation method proposed in this study for 5 minutes. The compressive strength of the artificial aggregate made of non-carbonated recycled micro-powder is 42.7 MPa after carbonation curing. However, when recycled micro-powder treated with wet carbonation is remolded into artificial aggregates, the post-carbonation strength is relatively lower compared to the control group, mainly due to the reduction of carbonation reactants. Carbon footprint calculation shows that carbonized recycled micro-powder artificial aggregates can achieve a significant reduction in carbon emissions.

Keywords: recycled micro-powder; wet carbonation; carbon sequestration; artificial aggregate; carbon footprint

收稿日期: 2024-11-01; 录用日期: 2024-12-02; 网络首发日期: 2025-03-31

网络首发地址: <https://link.cnki.net/urlid/23.1235.T.20250331.1436.002>

基金项目: 国家自然科学基金(U23A20560); 浙江省科技计划(2024C03286(SD2))

作者简介: 马永胜(1974—), 男, 正高级工程师; 高小建(1976—), 男, 教授, 博士生导师

通信作者: 高小建, gaouxj@hit.edu.cn

随着工业的快速发展,大气中二氧化碳(CO₂)体积分数迅速增长,引起温室效益等一系列环境问题^[1]。水泥基材料作为建筑领域应用最广泛的建筑材料具有优异的固碳潜力^[2]。将废弃混凝土回收并进一步加工生产成再生骨料,按照粒径一般可划分成3种产品,即再生粗骨料、再生细骨料和再生微粉。其中,再生微粉资源化利用难度大^[3]。研究显示,通过碳化处理,再生粗骨料、再生细骨料和再生微粉固碳能力分别达7.9、20、190 kg/t^[4-5],在吸收固定CO₂的同时可改善再生骨料性能^[6]。再生微粉中的水泥石残留较多,固碳能力更加优秀,但颗粒结构缺陷也更加明显,相较于其他两种产品应用较少^[7]。

目前,学者们普遍认为水泥基材料的碳化机制是环境中的CO₂扩散至孔隙溶液中形成碳酸根或碳酸氢根离子,并与孔隙溶液中的钙离子结合,生成稳定的碳酸钙(CaCO₃)沉淀,因此,水环境是碳化反应中不可或缺的一环。水泥基材料的碳化处理可根据水固比分为干法碳化和湿法碳化两种,其中,干法碳化的水固比多在0.2以下。Li等^[8]发现,在干法碳化过程中,再生骨料孔隙结构逐渐被碳化产物填充,CO₂较难与孔隙溶液接触发生反应,碳化效率逐渐降低。Zhu等^[9]和Shah等^[10]指出,传统的干式碳化方法存在一定的局限性,如碳化速率慢、碳化程度低等。近年来,湿法碳化被更多的研究和应用所采纳,即将再生微粉与水分充分拌合形成悬浊液,之后向其中通入CO₂气体^[11]。文献^[12]发现提高湿法碳化中的CO₂流量可以加速其溶解,进而促进再生微粉碳化,但CO₂的吸收利用效率会显著降低^[13-14]。

为了提升再生微粉的湿法碳化效率,提出了微米级CO₂气泡发生装置与超声波相结合的再生微粉

的湿碳化方法。针对湿法碳化后的再生微粉浆料,利用高压压制人造骨料,并进一步利用二次碳化的方法改善人造骨料力学强度,从而在充分发挥再生微分固碳潜力的同时制得力学性能良好的人造骨料。

1 试验

1.1 试验材料

废混凝土再生料来自上海某环保公司的自生产产品,符合JC/T 2548—2019《建筑固废再生砂粉》中A类建筑固废再生砂粉1级配区要求。对新生产的再生砂粉进行人工筛分,得到如图1所示粒径分布。将筛选后的再生砂粉放入烘干箱(110-3AB)内24 h,温度设置为105℃,以去除水分。利用球磨机对烘干再生砂粉进行研磨,研磨时间设置为45 min。研磨前的再生砂粉和研磨后制得的再生微粉颗粒级配见图1。水泥采用P. O. 42.5普通硅酸盐水泥,其化学组成见表1。CO₂采用商业纯CO₂(体积分数大于99.9%)。水为自来水。

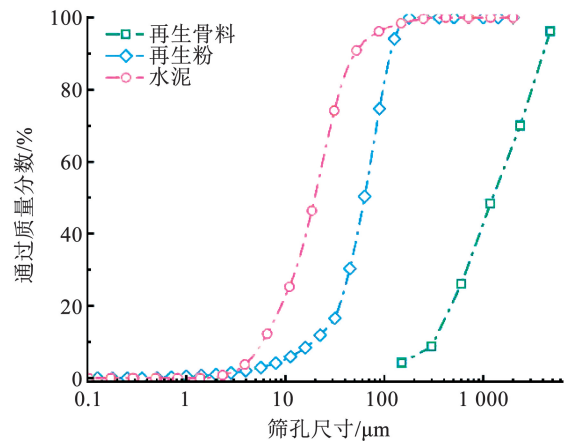


图1 颗粒级配

Fig. 1 Particle size distributions

表1 水泥和再生微粉的化学组成

Tab. 1 Chemical composition of cement and recycled micro-powder

材料	w/%								
	CaO	SiO ₂	Fe ₂ O ₃	Al ₂ O ₃	SO ₃	MgO	K ₂ O	Na ₂ O	LOI
水泥	63.80	20.78	5.12	4.57	2.63	1.52	0.65	0.23	1.31
再生微粉	17.86	43.85	6.15	12.64	2.01	2.58	2.05	1.10	4.25

1.2 湿法碳化

使用自制湿法碳化装置对再生微粉进行碳化处理,装置包括直径100 mm、高度650 mm的亚克力管容器、超声波发生器、电动搅拌机和微米气盘。首先在亚克力管容器中加入800 g水,打开搅拌机和超声波发生器,之后加入200 g再生微粉,搅拌均匀。固液质量比为1:4,接近工业清洗再生骨料时

的固液质量比。控制CO₂流量为1 L/min。CO₂经过微米气盘从亚克力管容器底部均匀进入溶液中。碳化时间分别为5、10、20 min,相应命名为C-5、C-10和C-20,不同碳化时间的再生微粉碳化过程均独立进行。碳化结束后,将溶液倒入密封袋内静置。使用pH测试仪分别测试碳化结束后10、40、120、480、1 440 min时密封袋内上清液的pH。测试完成

后,使用抽水器将上清液抽离,剩余浆料用于制备人造骨料。

1.3 人造骨料与水泥浆体试件制备

将碳化再生微粉浆料采用压制成型的方法制作成人造骨料,压制成型采用分瓣模具,模具内腔长边 20 mm,短边 10 mm,高度 40 mm。称取 4.5 g 碳化再生微粉浆料填充到模具内,然后设置万能压力机以 20 mm/min 的速度匀速压实,压力达到 50 kN 时卸载,按照人造骨料受压面积计算得压应力达 250 MPa,压制成型后试块高度 (10 ± 1) mm。人造

骨料压制成型过程多余水分被挤出。之后,以 1:1 的质量比称取碳化再生微粉浆料和水泥共 4.5 g,混合均匀后用同样的方法压实制成试块,再放入碳化箱内进行碳化养护。碳化箱内环境参数为:温度 20 ℃,湿度 70%, CO_2 体积分数 20%。试件编号记作 C-x-C,x 代表再生微粉湿法碳化时长(min)。此外,设置了两组对照组,分别以纯水泥和未碳化的再生微粉压制成试件,分别记作 C 组和 R 组。整体流程见图 2,其中,RCP 代表再生微粉,CRCP 代表碳化再生微粉。

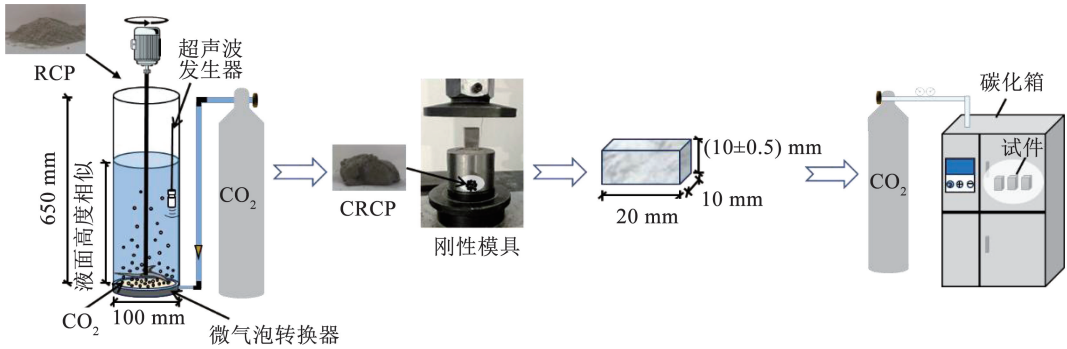


图 2 实验流程

Fig. 2 Experimental process

1.4 测试方法

1.4.1 物理性质

分别将新制作的人造骨料试件和碳化养护 28 d 后的试件置于水中完全浸没,24 h 后称取每个试件悬浮质量,记为 m_s (g)。随后取出试件,用棉布将试件表面水分擦干,称取试件饱和质量 m_w (g)。最后将试件置于烘箱内烘至恒质量,称取试件烘干质量 m_d (g)。试件的吸水率 A (%)、表观密度 T (g/cm^3) 和体积密度 B (g/cm^3) 分别由式(1)~(3)计算,即

$$A = \frac{m_w - m_d}{m_d} \quad (1)$$

$$T = \frac{m_d}{m_d - m_s} \cdot \rho_0 \quad (2)$$

$$B = \frac{m_d}{m_w - m_s} \cdot \rho_0 \quad (3)$$

式中 ρ_0 为水的密度 (g/cm^3)。

1.4.2 力学性能测试

对新制试件、碳化养护 3 d 和 28 d 时的试件分别进行抗压强度测试。将人造骨料试件竖直放置在压力机承载面上,保证试件的承载面和底面光滑。设置压力机以 0.3 kN/s 的加载速率对试件进行抗压强度测试,直至试件失效。每组测试 3 个人造骨料试件,并将其平均值记录为抗压强度结果。

1.4.3 固碳量和碳化程度

固碳率是评价材料碳捕获能力的关键指标,其

评价过程可分为固碳量评价和折算基准两部分。根据原理可将固碳量评价方法分为 3 类:1) 将碳化前后的质量总体差值作为固碳量的质量增加法;2) 通过热分析等方法对试件取得的微量样品 (5 ~ 30 mg) 中的碳酸盐质量分数进行测试,从而计算得到固碳量的取样分析法;3) 测量 CO_2 气体在碳化过程中通入气体和排出气体中 CO_2 体积分数的差值,获得试件的固碳量的气体计量法^[15]。在工业生产中,尤其是湿碳化过程,较难准确测量碳化前后的质量差值,现场环境也无法实现气体计量法所需的精密条件,故质量增加法和气体计量法较难运用于实际生产。取样分析法相较于以上两种方法具有精度高、易实现等特性,但对工业产品分析需通过有代表性的多点取样,操作相对复杂,耗时较长。

在本研究中试件固碳量使用两种不同评价方法进行计算。一种方法是烘至绝干法,原理是先假定在碳化反应过程中蒸发的水来自试件中的游离水,通过试件在 (105 ± 5) ℃ 下烘至恒质量后,测得质量的减少。然后近似得到该试件中的游离水质量,并通过养护前后试件中游离水质量的差值估计蒸发水量,即

$$m_{\text{CO}_2} = m_{\text{after}} - m_{\text{before}} + (m_{\text{before}} \times A_{\text{before}} - m_{\text{after}} \times A_{\text{after}}) \quad (4)$$

另一种方法是综合过去研究中不同固碳量评价

方法特点,进一步提出的体积法。研究表明,由于再生微粉粒径小,具有足够大的 CO_2 接触表面积,固碳效率相对较高,12 h 碳化程度能达到 90% 以上^[16-17]。本研究提出了铝膜袋 CO_2 体积法,首先将再生微粉装入铝膜袋内,排尽袋内残余空气后通入 CO_2 并密封,测量铝膜袋体积变化量,从而得到再生微粉的二氧化碳吸收量。使用密封夹将袋内气体推向一侧直至袋体表面饱和呈圆柱状,记录初始长度 L_0 。随后在 0.5、1、3、24 h 依次记录剩余气体在袋内长度 L_x 。利用式(5)计算再生微粉固碳体积:

$$Q_{\text{CO}_2} = \left(\frac{C}{2\pi} \right)^2 \pi (L_0 - L_x) \quad (5)$$

式中: Q_{CO_2} 为二氧化碳吸收量, mL; C 为铝膜袋周长, cm; L_0 为铝膜袋初始长度, cm; L_x 为某时刻长度, cm。

此外需要说明的是,24 h 后,若袋体表面呈真空状,则说明粉末将所有 CO_2 完全吸收,无法确定粉末是否完全碳化。若袋内仍有气体存在,且气体体积后续不再变化,说明粉末完全碳化。测量过程见图 3。

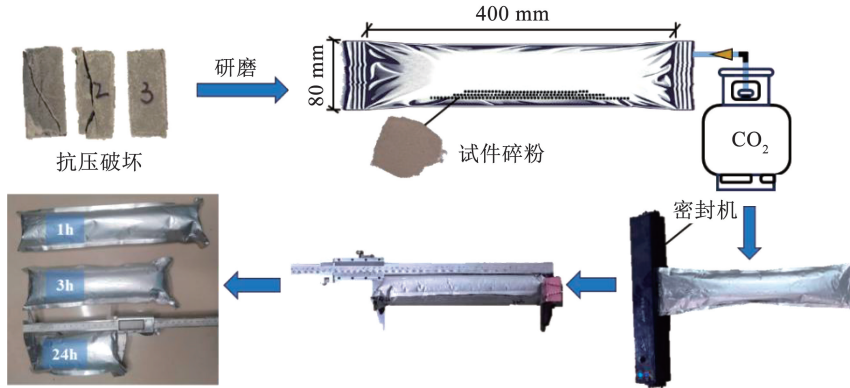


图3 固碳量评价方法(铝膜袋 CO_2 体积法)

Fig. 3 Carbon sequestration evaluation method (aluminum film bag CO_2 volumetric method)

正式试验前进行两个预实验以验证此方法可行性。1) 将完全烘干的再生微粉置于铝膜袋内,充满 CO_2 。一个星期后,铝膜袋体积无明显变化。2) 向铝膜袋内放置再生微粉共 100 g,充满 CO_2 后密封,24 h 后袋体外表面呈被抽真空状。以上两个预实验证明铝膜袋密闭性良好,密封后袋内环境中不含水分,碳化反应所需的水分子由再生微粉内的孔隙水提供。而本研究中的再生微粉均含水,在此环境内可以有效碳化。

本研究使用的折算基准为 Zhan 等^[18] 在 Steinour 公式基础上提出的针对再生骨料的计算方法,即

$$\Delta M = \frac{M_c M_{\text{CO}_2\text{max}}}{(M_c + M_s + M_a + 0.23M_c)(1 + Q)} \quad (6)$$

$$M_{\text{CO}_2\text{max}} = 0.785(\omega_{\text{CaO}} - 0.7\omega_{\text{SO}_3}) + 1.091\omega_{\text{MgO}} + 1.42\omega_{\text{Na}_2\text{O}} + 0.93\omega_{\text{K}_2\text{O}} \quad (7)$$

式中: ΔM 代表再生骨料对 CO_2 的实际吸收量, M_c 、 M_s 、 M_a 分别代表水泥、沙子、粗骨料在母混凝土中的比例(按质量计算), Q 为碳化前再生骨料的含水量, $M_{\text{CO}_2\text{max}}$ 代表再生骨理论论上捕获的最大 CO_2 量。

1.4.4 碳足迹

对再生微粉湿法碳化、人造骨料试件制备过程和碳化养护人造骨料工序的碳足迹计算主要根据试验结果或相关文献、数据库和本地厂商资料。由于制备的碳化再生微粉人造骨料产品并没有实际应用

先例,基于从“摇篮”至“大门”的系统边界,共考虑 3 个阶段,按照时间流程分别为原材料生产、原材料运输、产品制备,对本研究内容进行碳足迹核算。

2 试验结果和讨论

2.1 pH 变化

将再生微粉与水混合以后,大量 OH^- 离子释放到悬浊液中,导致悬浊液 pH 提高,测得初始 pH 为 12.01。图 4 为湿法碳化结束后,分别在 10、40、120、480、1 440 min 测试溶液 pH 的结果。图 4 中曲线的第一个点为湿法碳化结束后 10 min 时悬浊液 pH,此时悬浊液已经发生沉淀,上层液体逐渐变清。随湿法碳化进行,pH 逐渐降低,碳化 5 min 后,悬浊液 pH 降低至 8.5;碳化 10 min 后,pH 接近中性,约 7.5;在湿法碳化的中后期 pH 变化幅度变小,碳化 20 min 后,悬浊液 pH 为 6.2,接近碳酸的 pH。随着碳化的进行, CO_2 流量不变而再生微粉碳化放缓,说明在湿法碳化过程中存在 CO_2 损耗,湿碳化时间越长,碳吸收率越低。

在随后的静置过程中,溶液 pH 缓慢上升。碳化 20 min 的试样,pH 从弱酸性变成弱碱性,最终 pH 为 7.6。其他组 pH 均保持在弱碱性状态并有小幅上升。这可能是由于再生微粉颗粒内部的碱性物质持续缓慢溶出,继续与碳酸发生反应,使溶液 pH

缓慢回升。本研究使用的碳化装置通过将 CO₂ 以微米级气泡的形式通入溶液中,且辅以超声波促进 CO₂ 溶解,提高了 CO₂ 气体的利用效率。

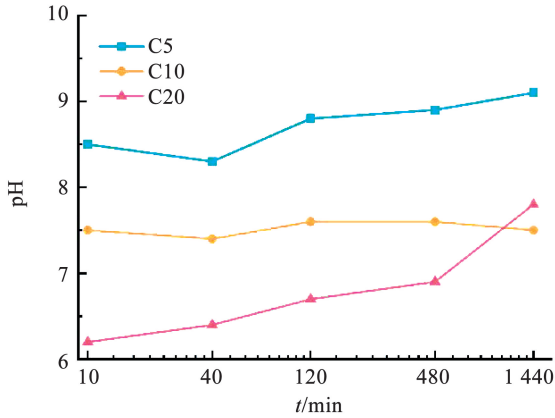


图 4 湿法碳化后 pH 变化

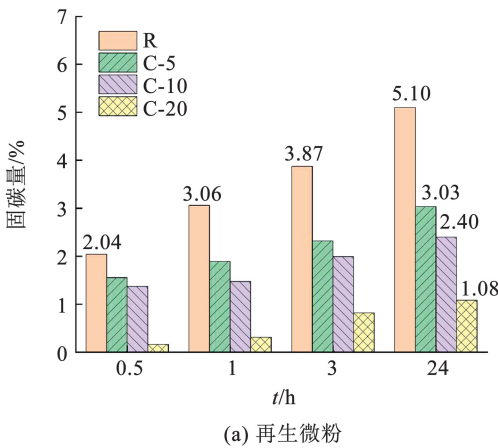
Fig. 4 pH changes after wet carbonation

2.2 固碳量

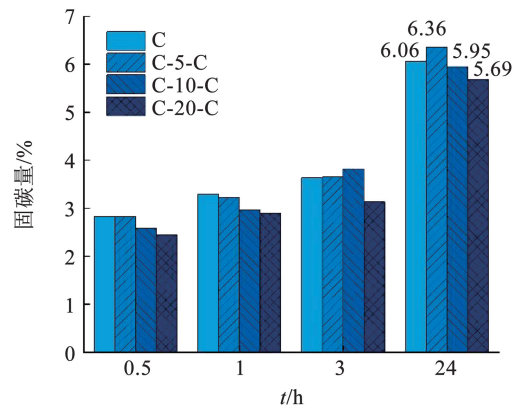
通过将再生微粉人造骨料捣碎并研磨成粉体,采用铝膜袋 CO₂ 体积法进行固碳量测试,同时测试未经湿碳化的原状再生微粉的固碳量,结果见图 5。可以看出,未经湿碳化的原状再生微粉固碳量最高,

将其置于铝膜袋中 24 h 后,铝膜袋体积不再变化,此时最大固碳量达 5.10%,该值可以作为再生微粉固碳量的基准,反算湿碳化过程中的固碳量。由图 5(a)中数据可以计算得到湿碳化 5、10、20 min 的固碳量分别为 2.07%、2.70%和 4.02%。也可以看出,对于未经湿碳化的原状再生微粉,采用铝膜袋 CO₂ 体积法测得固碳量,0.5、1、3 h 的固碳量分别为 2.04%、3.06%和 3.78%。不难发现,0.5 h 固碳量与湿法碳化 5 min 固碳量基本相当,这也证明湿法碳化的固碳效率高于干法碳化,尤其是本研究借助了微米气泡和超声波辅助,这可能促进了固碳效率的提升。

对于再生微粉和水泥掺和并制得的人造骨料,测试其抗压强度,然后也采用铝膜袋 CO₂ 体积法测试其固碳量。如图 5(b)所示,各组试件的固碳量总体而言高于再生微粉组。对于纯水泥试件,置于铝膜袋中 24 h 后其固碳量为 6.06%。而再生微粉和水泥掺和的试件固碳量为 6.36%,高于纯水泥试件,这可能是再生微粉和水泥复掺时二者的碳化反应相互影响并提升了固碳量^[19-20]。



(a) 再生微粉



(b) 碳化再生微粉人造骨料

图 5 固碳量

Fig. 5 Carbon sequestration content

2.3 物理性质

表 2 为各组人造骨料试件新制成时的物理性能。可以看出,未碳化的原状再生微粉制得的人造骨料体积密度最小,为 2.26 g/cm³,吸水率也最高。而采用纯水泥制备的人造骨料的密度更大,为 2.43 g/cm³。这是因为再生微粉颗粒相对水泥颗粒稍大,再生微粉压制的人造骨料密实程度相对较低。再生微粉碳化后,压制的人造骨料密度均大于对照组,且随着碳化时长的增加,人造骨料密度增大、吸

水率降低,表观密度也呈增大趋势。这是由于碳化过程中再生微粉颗粒的孔隙被碳化产物填充,吸水率降低^[21];再生微粉碳化后生产微小颗粒,在高压压制人造骨料过程中,这些微小颗粒具有微填充效应,使得人造骨料更加密实。再生微粉和水泥颗粒之间也存在相互填充的效应,所以,再生微粉和水泥复掺时,制得的人造骨料密实度更高,尤其是 C-5-C 组,其体积密度和表观密度是所有人造骨料中最大的,分别达 2.64、3.04 g/cm³。

表 2 人造骨料试件物理性质

试件	体积密度/($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)	吸水率/%	表观密度/($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)
R	2.26	25.26	2.83
C	2.43	21.10	2.94
C-5	2.27	23.09	2.79
C-10	2.40	18.22	2.83
C-20	2.50	17.20	2.93
C-5-C	2.64	15.15	3.04
C-10-C	2.40	14.90	2.76
C-20-C	2.43	17.22	2.85

碳化养护后人造骨料的体积密度和表观密度都明显提升,见表 3,吸水率也均表现出下降的趋势。对照组 R 和 C 的体积密度分别提升到 2.41 、 2.60 g/cm^3 , 提高幅度分别为 6.6% 和 6.9% 。C5 组的密度增加幅度最大,达 11.0% ,其吸水率的降低幅度和表观密度的提高幅度也最大。

表 3 碳化后人造骨料试件物理性质

试件	体积密度/($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)	吸水率/%	表观密度/($\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$)
R	2.41	21.23	2.92
C	2.60	18.51	3.08
C-5	2.52	16.65	2.94
C-10	2.44	17.23	2.86
C-20	2.55	16.12	2.96
C-5-C	2.67	14.25	3.04
C-10-C	2.55	13.32	2.89
C-20-C	2.62	14.45	3.00

2.4 抗压强度

图 6 为各组人造骨料试件在新制成时(即碳化养护 0 d)、碳化养护 3 d 和碳化养护 28 d 时的抗压强度。观察新制试件强度可以看出,新制成时对照组 R 强度最高,达 10.0 MPa,而 C 组强度仅为 1.1 MPa。由于此时水泥水化程度极低,尚未发挥出胶结特性,试件的强度主要来源于颗粒之间相互的摩擦、咬合和填充。水泥是由熟料碾磨而成,颗粒多为烧结晶体,表面较为光滑,且级配相对单一,因此,在压制成型后颗粒间摩擦、填充效果较弱,新制成时的抗压强度较低。而再生微粉颗粒级配跨度更大,颗粒表面相对粗糙,因此,新制成时的抗压强度高于纯水泥压制成型的试件。而在碳化养护后,水泥压制人造骨料的强度上升幅度最大,28 d 时其抗压强度达 110 MPa。原状再生微粉再生骨料经过

28 d 碳化驱动强化,其抗压强度达 42.7 MPa。经过湿法碳化处理的再生微粉再压制成人造骨料时,碳化后强度相对对照组有所降低,这是因为在碳化驱动强化过程中,如果先对再生微粉施以湿法碳化,则用于驱动强度形成的碳化反应物减少,强度相对减低。碳化再生微粉人造骨料试件强度平均为 3.8 MPa,混合试件强度平均为 5.6 MPa。另外,对于湿法碳化再生微粉,先碳化 10 min 后制得人造骨料, C-10 组和 C-10-C 组,然后再碳化驱动人造骨料强化,得到的人造骨料的强度高于湿法碳化 5 min 和 20 min 的试件,这可能是因为 10 min 湿法碳化后的再生微粉,既得到的较优的级配,又保留了足够多的尚未碳化的物质,以保证在后续碳化驱动强度的过程中发挥作用。

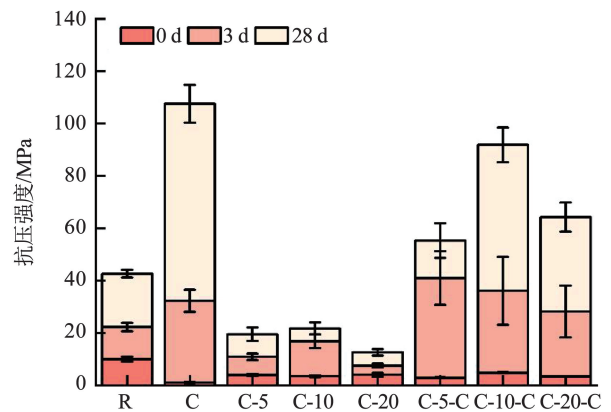


图 6 抗压强度

Fig. 6 Compressive strength

观察各组试件 28 d 强度可以看出,不含水泥的人造骨料试件强度最低,混合试件强度得到明显增强。不含水泥的试件后期强度主要由再生微粉碳化反应产物提供,而混合试件后期强度由碳化产物和水化产物共同提供。人造骨料试件在碳化养护过程中,碳化反应产物可以改善试件内部结构,提高试件抗压强度。而湿法碳化消耗了再生微粉的碳化能力,导致在试件养护过程中无法进行充分碳化反应,抑制了试件后期强度的提升。故对于高压压制人造骨料,预碳化程度过高不利于试件强度的发展。纯水泥人造骨料试件 28 d 抗压强度为 107.6 MPa,远高于其他组,说明水化作用和碳化的耦合作用对压实试件提供的强度效益远大于碳化作用。

2.5 碳足迹

制作试件使用的原材料为水泥和再生微粉。水泥的生产包括破碎、混合以及煅烧等多个环节。其中,因为目标煅烧温度较高,煅烧环节产生大量的二氧化碳排放和能源消耗以及化石燃料消耗。据统

计,生产每吨水泥会产生 735 kg 的 CO_2 排放量^[22-23]。再生材料的碳排放主要来自破碎废混凝土并去除携带的钢筋和金属连接件,之后进行粒度筛分等环节。本文使用的再生砂粉来自上海某公司,其生产每吨再生砂粉约产生 48.8 kg 的 CO_2 排放量,其中,由烧煤烘干产生的直接 CO_2 排放量为 32.5 kg/t,综合电耗产生的间接 CO_2 排放量为 16.3 kg/t。

对于人造骨料的生产,生产能耗包含预碳化阶段产生的能耗。对于运输阶段,该环保公司具备试件制备条件,原料统一运输至此加工处理。废弃混凝土平均运输距离为 25 km,水泥产地距此 75 km。其中,废混凝土用重型卡车运输(排放当量 0.111 kg/(t·km)),水泥用中型卡车运输(排放当量 0.235 kg/(t·km))^[20]。制备试件时,平均每压制 1 m³ 试件液压机功耗为 5 kWh。根据体积法和质量增加法分别计算再生微粉湿碳化和试件碳化养护两个阶段各自的固碳量。基于区域生命周期清单数据以及本研究中再生微粉来源地的实际能耗^[24-25],本研究中碳化再生微粉人造骨料试件碳足迹见图 7。

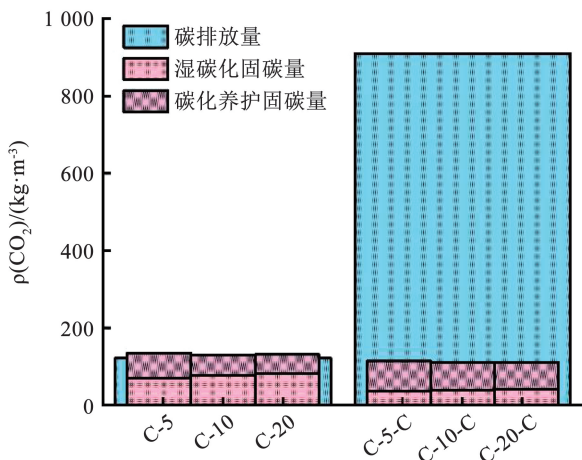


图 7 碳足迹

Fig. 7 Carbon footprint

在本研究中,再生微粉作为建筑固废,认为其拆除过程产生的碳排放属于母混凝土全生命周期的坟墓阶段,再生微粉的摇篮阶段从废弃混凝土运输至产地开始。可以看出在本文的系统边界中,设计的碳化再生微粉人造骨料实现负碳,其排放量为 121.2 kg/m³,碳吸收量平均值为 131.7 kg/m³。虽然水泥的加入增强了混合试件的强度,但同时大大增加了试件的碳排放量,约占碳排放总量的 96.1%。水泥的加入令试件碳化养护过程中固碳量提高,但整体固碳量平均值为 111.8 kg/m³,仍略低于再生微粉试件的固碳量。

3 结论

1) 通过使用长径比较大的容器,同时减小 CO_2 气泡尺寸,辅以超声波促进碳化反应,可以有效提高再生微粉的湿法碳化效率。铝膜袋 CO_2 体积法测试再生微粉固碳量操作简单,可实时测量固碳量和碳化程度。再生微粉在常温、常压、100% CO_2 体积分数的铝膜袋中,0.5 h 固碳量为 2.04%,而计湿法碳化 5 min 固碳量为 2.07%。

2) 碳化养护能提高本研究中高压压制的人造骨料的密实度及强度。未碳化再生微粉制成的人造骨料,经碳化养护后抗压强度为 42.7 MPa。经过湿碳化处理的再生微粉再压制成人造骨料时,碳化后强度相对对照组有所降低,是由于驱动强度形成的碳化反应物减少。掺入水泥后制作的人造骨料试件强度则明显提升。

3) 本研究的碳化再生微粉人造骨料实现负碳,其排放量为 121.2 kg/m³,碳吸收总量为 131.7 kg/m³。而混合试件由于加入水泥碳排放量倍增,达 909.9 kg/m³,固碳量则略微降低,为 111.8 kg/m³。后续研究须在水泥用量上进行调整,以寻找抗压强度和碳足迹两者之间的最优效益,并开展微米气泡和超声波辅助提升碳化效率的定量化研究。

参考文献

- [1] HABERT G, MILLER S A, JOHN V M, et al. Environmental impacts and decarbonization strategies in the cement and concrete industries[J]. *Nature Reviews Earth & Environment*, 2020, 1(11): 559. DOI: 10.1038/s43017-020-0093-3
- [2] SAADE M R M, YAHIA A, AMOR B. Is crushed concrete carbonation significant enough to be considered as a carbon mitigation strategy? [J]. *Environmental Research Letters*, 2022, 17(10): 104049. DOI: 10.1088/1748-9326/ac9490
- [3] ULSEN C, KAHN H, HAWLITSCHKE G, et al. Separability studies of construction and demolition waste recycled sand [J]. *Waste Management*, 2013, 33(3): 656. DOI: 10.1016/j.wasman.2012.06.018
- [4] XUAN D, ZHAN B, POON C S. Assessment of mechanical properties of concrete incorporating carbonated recycled concrete aggregates[J]. *Cement and Concrete Composites*, 2016, 65: 67. DOI: 10.1016/j.cemconcomp.2015.10.018
- [5] HO H J, IIZUKA A, SHIBATA E, et al. CO_2 utilization via direct aqueous carbonation of synthesized concrete fines under atmospheric pressure[J]. *ACS Omega*, 2020, 5(26): 15877. DOI: 10.1021/acsomega.0c00985.s001
- [6] PRADHAN S, TIWARI B R, KUMAR S, et al. Comparative LCA of recycled and natural aggregate concrete using Particle Packing Method and conventional method of design mix [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2019, 228: 679. DOI: 10.1016/j.jclepro.2019.04.328

- [7] CANTERO B, BRAVO M, DE BRITO J, et al. Mechanical behaviour of structural concrete with ground recycled concrete cement and mixed recycled aggregate[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2020, 275: 122913. DOI: 10.1016/j.jclepro.2020.122913
- [8] LI Long, ZIYABEK N, JIANG Yi, et al. Effect of carbonation duration on properties of recycled aggregate concrete [J]. *Case Studies in Construction Materials*, 2023, 19: e02640. DOI: 10.1016/j.cscm.2023.e02640
- [9] ZHU Chenhui, FANG Yonghan, WEI Hua. Carbonation-cementation of recycled hardened cement paste powder [J]. *Construction and Building Materials*, 2018, 192: 224. DOI: 10.1016/j.conbuildmat.2018.10.113
- [10] SHAH V, SCRIVENER K, BHATTACHARJEE B, et al. Changes in microstructure characteristics of cement paste on carbonation[J]. *Cement and Concrete Research*, 2018, 109: 184. DOI: 10.1016/j.cemconres.2018.04.016
- [11] JIANG Yi, LI Long, LU Jianxin, et al. Mechanism of carbonating recycled concrete fines in aqueous environment: the particle size effect[J]. *Cement and Concrete Composites*, 2022, 133: 104655. DOI: 10.1016/j.cemconcomp.2022.104655
- [12] ZAJAC M, SKIBSTED J, DURDZINSKI P, et al. Kinetics of enforced carbonation of cement paste [J]. *Cement and Concrete Research*, 2020, 131: 106013. DOI: 10.1016/j.cemconres.2020.106013
- [13] ZAJAC M, SKIBSTED J, SKOCEK J, et al. Phase assemblage and microstructure of cement paste subjected to enforced, wet carbonation [J]. *Cement and Concrete Research*, 2020, 130: 105990. DOI: 10.1016/j.cemconres.2020.105990
- [14] MAO Yuguang, HE Pingping, DRISSI S, et al. Effect of conditions on wet carbonation products of recycled cement paste powder[J]. *Cement and Concrete Composites*, 2023, 144: 105307. DOI: 10.1016/j.cemconcomp.2023.105307
- [15] 郭若楠, 易臻伟, 王涛, 等. 二氧化碳养护混凝土活性组分固碳率评价方法[J]. *化工进展*, 2022, 41(5): 2722
- GUO Ruonan, YI Zhenwei, WANG Tao, et al. Assessment method of CO₂ uptake ratio of carbonation-cured concrete based on reactive compositions[J]. *Chemical Industry and Engineering Progress*, 2022, 41(5): 2722. DOI:10.16085/j.issn.1000-6613.2021-1082
- [16] KOU Shicong, ZHAN Baojian, POON C S. Use of a CO₂ curing step to improve the properties of concrete prepared with recycled aggregates[J]. *Cement and Concrete Composites*, 2014, 45: 22. DOI: 10.1016/j.cemconcomp.2013.09.008
- [17] LUO Surong, YE Shichang, XIAO Jianzhuang, et al. Carbonated recycled coarse aggregate and uniaxial compressive stress-strain relation of recycled aggregate concrete [J]. *Construction and Building Materials*, 2018, 188: 956. DOI: 10.1016/j.conbuildmat.2018.08.159
- [18] ZHAN Baojian, POON C S, LIU Qiong, et al. Experimental study on CO₂ curing for enhancement of recycled aggregate properties[J]. *Construction and Building Materials*, 2014, 67: 3. DOI: 10.1016/j.conbuildmat.2013.09.008
- [19] 姜义, 马梓涵, 申培亮, 等. 废弃混凝土碳化资源化技术研究进展[J]. *硅酸盐学报*, 2023, 51(9): 2433
- JIANG Yi, MA Zihan, SHEN Peiliang, et al. Research progress on carbonation technologies for valorising waste concrete: a review[J]. *Journal of the Chinese Ceramic Society*, 2023, 51(9): 2433. DOI:10.14062/j.issn.0454-5648.20230106
- [20] 刘赞, 曹万智, 刘东升. 再生微粉碳捕集材料研究现状[J]. *新型建筑材料*, 2024, 51(7): 17
- LIU Yun, CAO Wanzhi, LIU Dongsheng. Current research status of carbon capture material from recycled fine powder [J]. *New Building Materials*, 2024, 51(7): 17
- [21] XUAN D, ZHAN B, POON C S. Development of a new generation of eco-friendly concrete blocks by accelerated mineral carbonation [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2016, 133: 1235. DOI: 10.1016/j.jclepro.2016.06.062
- [22] DING Tao, XIAO Jianzhuang, TAM V W Y. A closed-loop life cycle assessment of recycled aggregate concrete utilization in China [J]. *Waste Management*, 2016, 56: 367. DOI: 10.1016/j.wasman.2016.05.031
- [23] 莫媛媛, 唐薇, 占宝剑, 等. 碳化再生微粉水泥基材料的性能及其碳足迹评价[J]. *建筑材料学报*, 2023, 26(11): 1207
- MO Yuanyuan, TANG Wei, ZHAN Baojian, et al. Performance and carbon footprint evaluation of cement-based materials incorporating carbonated recycled fine powder [J]. *Journal of Building Materials*, 2023, 26(11): 1207
- [24] MARINKOVIĆ S, RADONJANIN V, MALEŠEV M, et al. Comparative environmental assessment of natural and recycled aggregate concrete[J]. *Waste Management*, 2010, 30(11): 2255. DOI: 10.1016/j.wasman.2010.04.012
- [25] XIAO Jianzhuang, WANG Chunhui, DING Tao, et al. A recycled aggregate concrete high-rise building: structural performance and embodied carbon footprint [J]. *Journal of Cleaner Production*, 2018, 199: 868. DOI: 10.1016/j.jclepro.2018.07.210

(编辑 刘 彤)