

論文 古紙リグニンを利用したボタニカルコンクリートに関する基礎研究

平城 有梨*1・富山 潤*2・谷中田 洋樹*3・中村 弘一*4

要旨：日本の古紙回収率は、1970年当初40%弱から2021年時点で81.1%と大幅に向上しており、世界でも上位の回収率である。また、利用率については、1970年当初36%程度から2021年時点で67.0%と年々高まっているが、33%程度の余剰分があり、その有効利用拡大が望まれている。そこで本研究では、古紙に含まれるリグニンを利用したボタニカルコンクリートを製作し、強度特性、リサイクル性、耐水性における基礎的検討を行った。その結果、強度特性、リサイクル性は良好な結果を示し、耐水性は課題が残った。

キーワード：古紙、曲げ強度、新材料、リサイクル

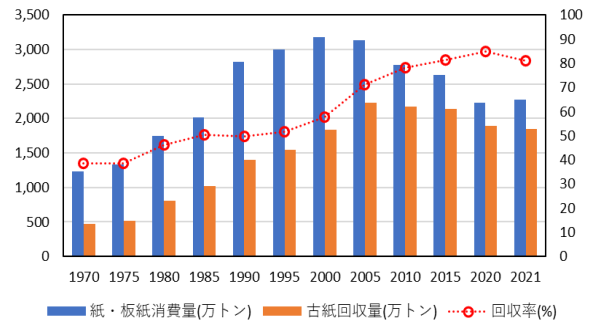
1. はじめに

日本の古紙回収率は、1970年当初40%弱から2021年時点で81.1%と大幅に向上しており、世界でも上位の回収率である。また、利用率については、1970年当初36%程度から2021年時点で67.0%と年々高まっているが、33%程度の余剰分がある。紙の原料は木材（パルプ用材）であり、不要になった紙のリサイクルは、貴重な森林資源の浪費を抑えることと、製紙原料の安定確保のために必要である。したがって、古紙のリサイクル・再資源化の拡大が望まれている¹⁾。一方で、脱炭素社会の構築に向け、建設業界においてもCO₂削減、環境負荷低減は必須の課題である。このような背景の中、CO₂発生量の削減、産業副産物の有効利用、重金属等の固定などを可能とすることから、環境問題解決の有力な手段のひとつとして期待されているセメントを使用しないジオポリマーコンクリートの研究が盛んに行われている²⁾。このことから、新聞紙の古紙をジオポリマーコンクリートに利用する研究を行ってきた³⁾。

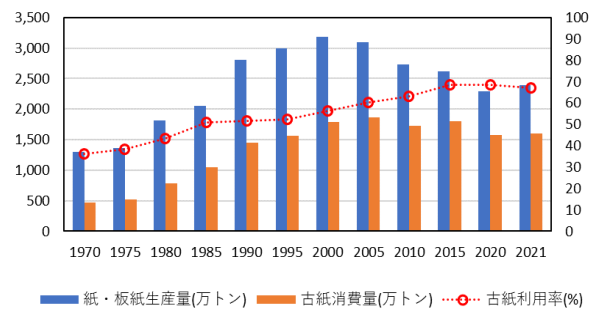
セメントを使用しないコンクリートの研究として、東京大学の酒井研究室で植物の廃木材のリグニンとコンクリートがれきを利用した、ボタニカルコンクリートの研究が行われている⁴⁾。本研究では、古紙のリグニンを利用したボタニカルコンクリートの力学的特性、リサイクル性および耐水性についての基礎的検討を行った。なお、通常、紙は退色や劣化を防ぐためにリグニンを除去するが、新聞紙の場合、リグニンを除去しないため、廃木材同様にリグニンを利用したボタニカルコンクリートの原料となり得る。

用パックがある。古紙はその品質や特徴に応じてそれぞれ異なる紙の原料になるため、分別して回収される。参考に、前述した古紙回収率と古紙利用率を図-1に示す。

本研究で使用した古紙は、新聞紙を破砕したもので、概ね幅1cm、長さは1cm~3cm程度である。写真-1に使用した破砕新聞紙（以下、古紙）を示す。また、古紙の成分分析の結果を図-2(a)に示す³⁾。参考のため、雑誌の成分分析の結果も図-2(b)に合わせて示す³⁾。この図より、使用した新聞紙にはリグニンが約6.5%残っていることが確認でき、ボタニカルコンクリートの素材として使用可能である。



(a) 回収率



(b) 利用率

図-1 古紙の回収率および利用率

2. 使用材料

2.1 古紙(新聞紙)

古紙には、一般に新聞、段ボール、雑誌、雑紙、飲料

*1 琉球大学大学院 理工学研究科 博士前期課程 社会基盤デザインプログラム 学士 (工学) (学生会員)

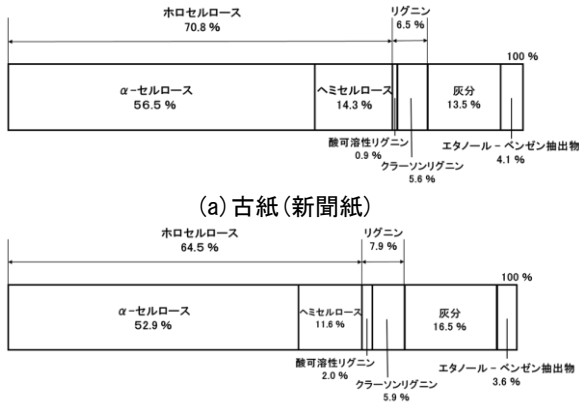
*2 琉球大学 工学部工学科 社会基盤デザインコース 教授 博士 (工学) (正会員)

*3 琉球ブリッジ株式会社 代表取締役

*4 株式会社バイオアパタイト 代表取締役



写真-1 破碎した古紙



(a) 古紙 (新聞紙)

(b) 雑誌

図-2 古紙の成分分析結果 (wt%)³⁾

2.2 廃コンクリート

本研究で使用した廃コンクリート粉末は、廃コンクリートを粉砕し、500μmふるいを通過したものをを用いた。使用した廃コンクリート粉末を写真-2に示す。



写真-2 使用した廃コンクリートの粉末

3. 実験方法

3.1 古紙のみを原材料としたボタニカル素材の強度特性

古紙と廃コンクリートを原料としたボタニカルコンクリートの強度特性の評価を行う前に、古紙のみを原材料としたボタニカル素材を用いた検討を行った。

3.1.1 試験体作製方法

古紙の準備方法を以下に示す。はじめに写真-1に示す破碎した古紙 50g と 1L の水を食材用のジューサー (写真-3: TESCOM, TM805) に入れ、30 秒間粉砕・攪拌しペースト状 (写真-4) とする。その後バットに移し、温度 110°C の温風乾燥機を用いて 7 日間乾燥させた古紙 (写真-5) をスピードミル (写真-6: ラボネク

ト(株), MS-05, 回転数 25,000rpm) を使用して粉末状 (写真-7) にした。粉末化した古紙の SEM 画像 (500 倍) を写真-8 に示す。これより粉末化した後でも繊維が残っているのが確認できる。また、古紙の含水率は 5.6~7.1%を示した。準備した粉末状の古紙を金型に入れ、熱プレスすることで形成体 (以下、試験体) を作製する。使用した熱プレス機 (AS ONE, H300-15, 0~15t) を写真-9 に示す。メス側 (縦横 65mm×45mm), オス側 (縦横 64mm×44mm) の金型を使用し、写真-10 に示す形状で厚さが約 3mm になるように約 10.5g の試料を金型に詰め作製した。作製した試験体の厚さは最大 3.75mm, 最小 2.4mm となり、1.35mm の厚さの幅があった。



写真-3 ジューサー



写真-4 ペースト状の古紙



写真-5 乾燥後の古紙



写真-6 スピードミル



写真-7 粉末状の古紙

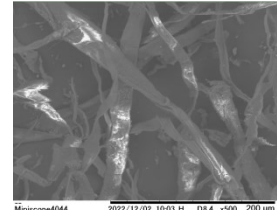


写真-8 SEM 画像 (500 倍)



写真-9 熱プレス機

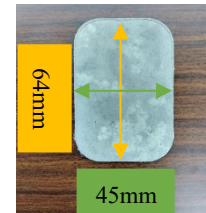


写真-10 作製した試験体

3.1.2 強度特性評価 (曲げ強度)

試験体の強度は、熱プレス時の温度、圧力、時間に影響を受ける。このため、熱プレス時の温度、圧力、時間のそれぞれをパラメータに試験体を作製し、図-3 (a) に示す曲げ試験器 (卓上型圧縮引張試験機: 最大荷

重 500N) で曲げ強度試験を行った。図-3(b)に曲げ試験模式図を示す。また、荷重速度は 10mm/min と設定した。以下に検討ケースを詳しく示す。同水準に対してそれぞれ試験体は 3 体作製し、曲げ強度に対する基礎的検討を行った。

a) 温度をパラメータとした条件 (ケース 1)

熱プレス時の圧力と時間を固定し、温度を 6 水準とした検討を行った。試験体製作条件を表-1 に示す。

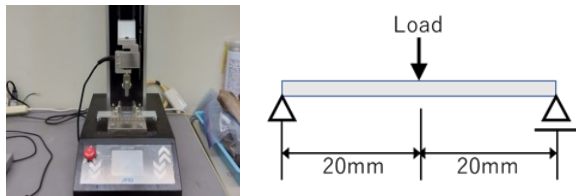
b) 圧力をパラメータとした条件 (ケース 2)

熱プレス時の温度と時間を固定し、圧力を 3 水準とした検討を行った。試験体製作条件を表-2 に示す。

c) 時間をパラメータとした条件 (ケース 3)

熱プレス時の温度と圧力を固定し、時間を 3 水準とした検討を行った。試験体製作条件を表-3 に示す。

なお、ケース 1~3 の圧力の管理は、荷重制御のため 3t, 5t, 10t で載荷した。



(a) 曲げ試験機 (最大荷重 500N) (b) 曲げ試験模式図

図-3 曲げ試験の概要

表-1 試験体作製条件 (ケース 1)

温度 (°C)	圧力 (MPa)	時間 (分)
30	35.1 (10t)	5
50		
100		
160		
200		
220		

表-2 試験体作製条件 (ケース 2)

温度 (°C)	圧力 (MPa)	時間 (分)
160	10.5 (3t)	5
	17.5 (5t)	
	35.1 (10t)	

表-3 試験体作製条件 (ケース 3)

温度 (°C)	圧力 (MPa)	時間 (分)
160	35.1 (10t)	3
		5
		10

3.1.3 リサイクル性評価

ボタニカルコンクリートの特徴として、接着効果に利用しているリグニン⁵⁾は、生分解が起こりにくく⁵⁾、粉碎および熱プレスすることで比較的何度も再利用できるため、リサイクル性に優れているということである⁶⁾。

そこでリサイクル性評価として、曲げ試験が終了した

試験体を利用し、上記に示した試験体作製および曲げ試験を何度か繰り返し、曲げ強度に与える影響を調べた。しかし、本検討は短期間での評価のため、長期間使用された後のリサイクル性については今後の課題とする。

リサイクル性評価用試験体の再作製は、写真-11 に示すように曲げ試験後の試験体を水中に約 15 分間に浸し、柔らかくなったことを確認し、3.1.1 と同様にジュースーを使用してペースト状にした。ペースト状の試料をウェスに包み水気を切り、70°Cの温風乾燥機で7時間乾燥、スピードミルで粉末状にした。試験体作製条件は、後述する 3.1.2 で行った曲げ強度試験が最も高くなった条件、温度 160°C、圧力 35.1MPa、時間 5 分の条件を採用し、厚さは約 3mm となるように試験体を作製した。その後、再度曲げ強度試験を行った。これをリサイクル性評価における試験体作製の 1 サイクルとし、5 回繰り返した。乾燥後の古紙、粉末化した古紙をそれぞれ写真-12、写真-13 に示す。再粉碎した状態 (写真-13) と 1 回目の粉碎の状態 (写真-7) からボリュームが異なることがわかる。これは何度もジュースーにかけることによって繊維質が細くなり、ウェスを使って水気を切る作業で細かい粒子が流れてしまったためだと考えられる。しかし、再作製した試験体の表面の状態の違いは目視では確認できなかった。写真-14 にリサイクル 5 回目の試験体を示す。



写真-11 浸漬した状況



写真-12 リサイクル 5 回目の乾燥後の古紙



写真-13 リサイクル 5 回目の粉末化した古紙



写真-14 リサイクル 5 回目の試験体

3.2 古紙と廃コンクリート粉末を原材料としたボタニカルコンクリートの強度特性評価 (曲げ強度)

3.1 で行った実験結果をもとに、粉末化した古紙に廃コンクリート粉末を混合したボタニカルコンクリートの強度評価を行った。廃コンクリート粉末の粒度は、先に示したように 500µm 以下のものを使用した。古紙と廃コンクリートの混合比率は、重量比 10 : 0, 7 : 3, 5 : 5,

6 : 4 , 3 : 7 の5配合とした。試験体作製の温度、時間、圧力の条件は、3.1の結果を参考に強度が最も高かった温度 160°C、時間 5 分、圧力 35.1MPa とした。試験体作製時、乾燥させた古紙をスピードミルで粉末にする前に、廃コンクリート粉末を混合した後、粉末状にした。比較に用いた古紙のみの 10 : 0 の配合の曲げ強度の結果は、3.1 の試験で得た温度、時間、圧力が 160°C、5 分、35.1MPa の9つのデータを使用した。写真-15 に作製した古紙ボタニカルコンクリート試験体を示す。



写真-15 作製したボタニカルコンクリート試験体

3.3 吸水試験

ここでは、古紙で作製したボタニカル素材の耐水性の検討として吸水試験を実施した。温度 160°C、圧力 35.1MPa、時間 5 分で試験体を作製した。未処理の試験体 3 個に対して、200mL の水を入れた、500mL のビーカーの中に 1 時間浸した。途中、試験開始から 3 分後、5 分後、10 分後、15 分後、20 分後、30 分後、60 分後に試験体を水中から取り出して試験体の厚さを計測した。防水効果を期待し、水性ウレタンニスを試験体に一様に塗布した試験体 3 個についても比較のために同様の試験を行った。試験体は、60 分の浸漬終了後、曲げ試験を行った。試験前の試験体の厚さを t_1 、試験後の試験体の厚さを t_2 、吸水厚さ膨張率を t とし、式(1)より求めた。

$$t = \frac{t_2 - t_1}{t_1} \times 100 \quad (1)$$

4. 結果および考察

4.1 古紙のみを原材料としたボタニカル素材の強度特性

4.1.1 強度特性評価 (曲げ強度)

a) 温度をパラメータとした条件 (ケース 1)

曲げ強度試験結果を図-4 に示す。160°Cでの作製時に曲げ強度が 58.2N/mm² と最も高くなった。しかし、160°Cおよび 200°Cで作製した試験体の曲げ強度のバラ

ツキが大きいことがわかる。これは、リグニンの溶解の程度によるものと考えられる。なお、220°Cで作製した試験体には焦げ目を確認された。

図-5 に示した密度と曲げ強度の関係からは密度が高くなるに従い曲げ強度が高くなり、ほぼ線形関係が見られる結果を得た。

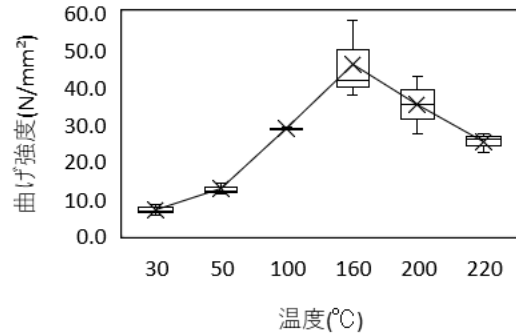


図-4 曲げ強度試験結果 (ケース 1)

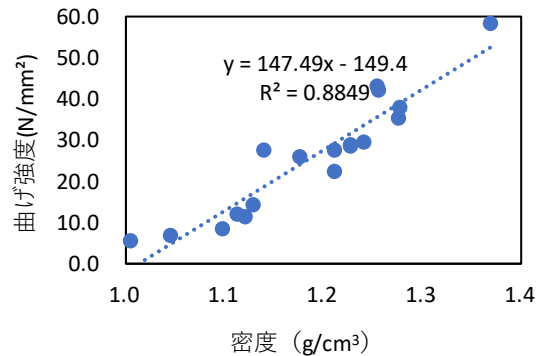


図-5 密度-曲げ強度 (ケース 1)

b) 圧力をパラメータとした条件 (ケース 2)

曲げ強度試験結果を図-6 に示す。35.1MPa での作製時に曲げ強度が最も高くなった。10.5MPa と 17.5MPa での曲げ強度の差は同程度である。3 通りともバラツキが大きくなった。これは圧力調整が手動のため、圧力が高くなるに従い、固定のための調整が難しくなることが原因の一つと考えられる。また、図-7 に示した密度と曲げ強度の関係もケース 1 と同様に一般的な結果となった。

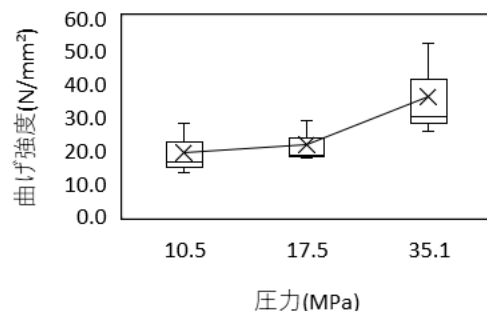


図-6 曲げ強度試験結果 (ケース 2)

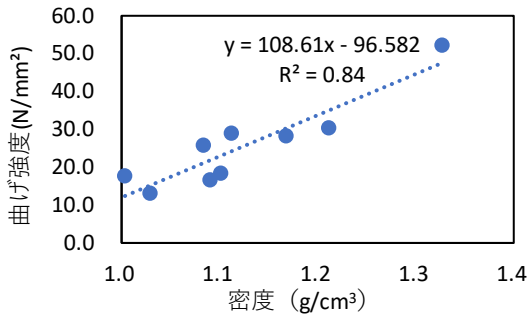


図-7 密度-曲げ強度 (ケース 2)

c) 時間をパラメータとした条件 (ケース 3)

曲げ強度試験結果を図-8 に示す。熱プレス時間 5 分で作製した試験体の曲げ強度がわずかに高くなったが、全体的な大きな差は見られない。これより、古紙に熱プレスをかける時間は、3 分程度でも十分な曲げ強度が得られることが分かった。また、図-9 の密度と曲げ強度の関係は、曲げ強度がほぼ同じであるため密度もほぼ同じ結果であった。以上 3 ケースの検討より、以降の検討では、曲げ強度が最も高くなった温度 160℃、圧力 35.1MPa、時間 5 分を試験体作製条件とした。

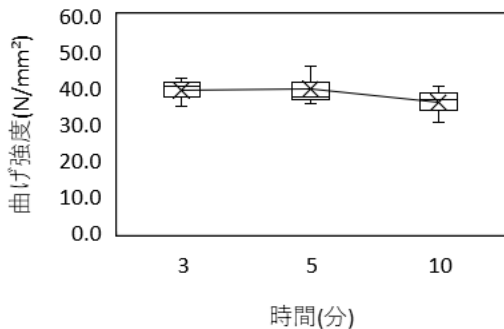


図-8 曲げ強度試験結果 (ケース 3)

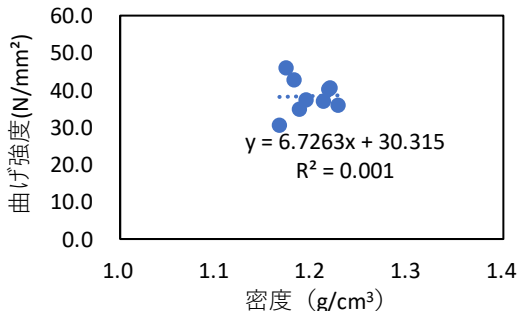


図-9 密度-曲げ強度 (ケース 3)

4.1.2 リサイクル性評価

試験体作製回数ごとの曲げ強度を図-10 に示す。曲げ強度の平均値は 1 回目のものが最も高くなり、回数を追うごとに徐々に減少したが、6 回目では 5 回目の曲げ強度よりも高くなった。以上のことから、それぞれの回数で強度のバラツキはあるものの、それほど強度低下は

見られないため、古紙を使ったボタニカル素材は、回数ごとに強度にバラツキはあるものの、繰り返し使用できる可能性があると考えられる。

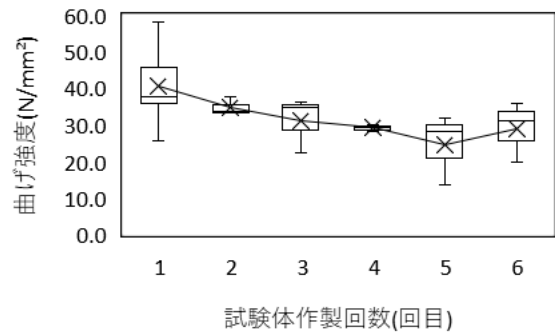


図-10 試験体作製回数別の曲げ強度試験結果

4.2 古紙と廃コンクリート粉末を原材料としたボタニカルコンクリート

4.2.1 強度特性評価 (曲げ強度)

古紙と廃コンクリートを混合した試験体の曲げ強度試験結果を図-11 に示す。廃コンクリートの混合比率が高くなるにつれ、曲げ強度は減少し、想定通りの結果であったが、古紙と廃コンクリートが 3:7 では曲げ強度が高くなった。この理由については現在検討中である。また、廃コンクリートの混合比率が高くなるにつれ、曲げ強度の差はバラツキが小さくなる傾向を示した。このことから曲げ強度のバラツキは、熱プレス時の古紙の成分の変性などの影響の可能性がある。強度のバラツキについては、作製方法も含め継続して検討する。

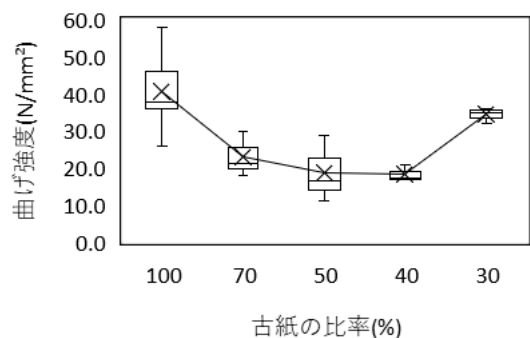


図-11 廃コン混合試験体の曲げ強度試験結果

4.3 吸水試験

写真-16 に吸水試験の様子を示す。また、吸水試験前後の試験体の様子を写真-17 に、時間経過毎の試験体の厚さの変化を図-18 に示す。無加工の試験体は急激に吸水し膨張し、耐水性に課題があることがわかる。一方で水性ウレタンニス塗布した試験体は、水圧を受けるため多少吸水膨張しているが急激な膨張はない。ま

た、無加工およびニス塗布両試験体の厚さ変化は収束している。表-4 に各試験体の最終的な吸水厚さ膨張率を示す。無加工のものは全て 200%を超え、ニスを塗布したものは 150%以下であった。これらより、熱プレスで作製した試験体は急激に吸水し、簡易的であるがニスなど防水性の材料を塗布することで、厳しい浸漬条件において吸水を抑制することができる。素材自体の耐水性については今後の課題である。

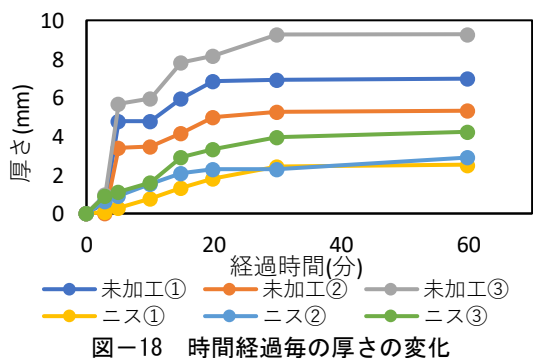
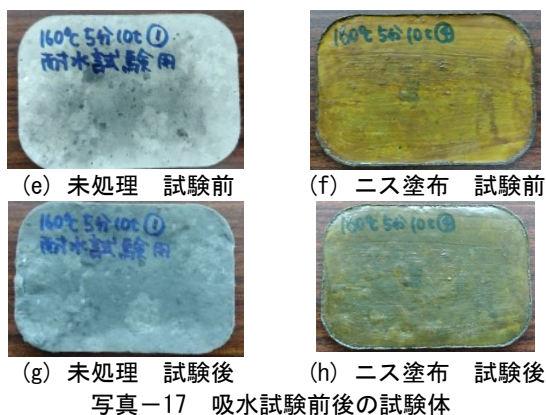
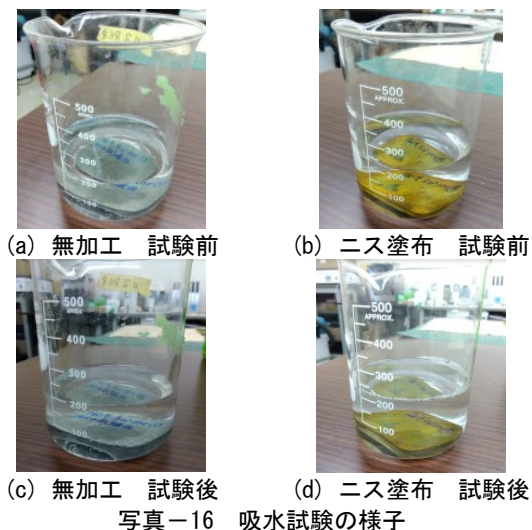


表-4 各試験体の最終的な吸水厚さ膨張率(単位%)

	①	②	③	平均
ニス無塗布	247.5	202.3	336.2	262.0
ニス塗布	86.6	98.0	143.9	109.5

5. まとめ

本研究では、古紙を使用したボタニカルコンクリートの開発を目指し、力学的特性、リサイクル性、および吸水性における基礎的検討を行った。得られた知見と今後の課題を以下に示す。

- (1) 古紙のみで作製したボタニカル素材の曲げ強度は、温度 160℃、圧力 35.1MPa、時間 5分が最も高い値を示した。
- (2) リサイクル性について、短期的な評価であるが、大きな強度低下はなく、良好な結果を得た。
- (3) 古紙と廃コンクリートを混合した試験体は、廃コンクリートの割合が高くなるにつれ強度の低下が見られたが、古紙と廃コンクリートの割合が 3:7 の時に、10:0 の試験体と同程度の強度が得られた。この理由は不明であるため、今後の課題とする。
- (4) 耐水性に課題があることが確認できた。ニスなどの防水効果のある材料を用いることで、簡易的ではあるが耐水性を確保できる可能性がある。
- (5) 強度のバラツキについては、今後の課題とする。

謝辞：本研究を遂行するにあたり、東京大学生産技術研究所の酒井雄也准教授にボタニカルコンクリートに関する知識や製作方法をご教授頂いた。琉球大学須田裕哉准教授にご助言頂いた。学部 4 年の地頭代拓海さん、仲村渠駿さんに研究のサポートを頂いた。明和製紙原料(株)代表取締役の駒津慎様に古紙や古紙の成分分析の結果をご提供頂いた。ここに記して感謝の意を表す。

参考文献

- 1) 公益財団法人古紙再生促進センターHP：
http://www.prpc.or.jp/recycle/waste_paper/ (2022.12.21 閲覧)
- 2) 一宮一夫：低炭素で高機能バインダーとしてのジオポリマー～セメント産業への期待～，セメント・コンクリート，No.890，pp.20-23，2020.4
- 3) 平城有梨，富山潤，原田耕司，駒津慎：古紙を混和したジオポリマーモルタルの諸性質に関する基礎的研究，コンクリート工学年次論文集，Vol.44，No.1，p.1108-1113，2022.
- 4) 皆川佳惟，酒井雄也，勝木太：コンクリートがれきと木材を原料とする建設材料の開発，生産研究，研究速報，72 巻，2 号 p.213-217，2020
- 5) 一般社団法人日本植物生理学会 HP：
https://jspp.org/hiroba/q_and_a/detail.html?id=2234(2022.12.21 閲覧)
- 6) ～紙の知識と雑学～ 元製紙会社社員が語る紙コンサル：
<https://kamiconsal.jp/sinbunsigenryo/#> (2022.12.21 閲覧)