

## 古紙スラッジのリサイクル

内山 智幸, 蓑嶋 裕典, 松嶋景一郎, 尾谷 賢  
鈴木 善人\*, 野田 良巳\*

## Recycling of Wastepaper Sludge

Tomoyuki UCHIYAMA, Hironori MINOSIMA, Keiichiro MATUSHIMA, Masaru OTANI  
Yoshihito SUZUKI, Yoshimi NODA

## 抄 録

本研究では、再生紙工場から大量に発生するペーパースラッジのリサイクル技術の確立を目的に、粒状炭化物の製造技術、物性評価及び用途開発についての検討を行った。粒状炭化物はマクロな細孔とミクロな細孔を有し、マクロポアは粒径数  $\mu\text{m}$  の填料と炭化されたパルプ繊維が形成する空隙に起因し、総細孔容積は  $1.7\text{cm}^3/\text{g}$  (空隙率換算で約 80%)、ミクロポアの最頻度細孔径は約 2nm、比表面積が約  $100\text{m}^2/\text{g}$  を示す多孔材料である事が確認された。

農業資材としての土壌物理特性評価は、高い孔隙率・透水性を有し、かつ保水性にも優れた資材である事が確認された。インゲンマメ施用試験においては、対照区に比べ出芽率、葉緑素含有量が大きく、葉面積、地上部および地下部乾物重量が大きく、処理区間に有意差が認められた。また、融雪促進材試験においては、粒状炭化物はハンドリング性に優れ、従来品と比較して同等の性能を示した。

## 1. 緒言

現在、日本で生産されている年間約 85 万トンのトイレットペーパーのうち古紙原料から作られているものは 65% の 55 万トンである。このリサイクルトイレットペーパーのほとんどは中小企業が担っている。古紙原料には主として上質古紙や牛乳パックが用いられているが、上質古紙には紙の不透明度と白色度を高めて印刷品質を向上させるために無機物(填料)が紙の表面に塗工されており、この填料は多いものでは重量比で 30% 以上にもなる。ペーパースラッジ(以下 P S と略す)は、これら古紙原料からトイレットペーパーを製造する際に発生する無機物と紙の短繊維である。

従来 P S は、主に埋立てにて処理されていたが、廃棄物問題が深刻化するとともに最終処分場の確保が困難になり、近年では焼却処理もされるようになってきた。しかし焼却炉の運転による環境問題の提起や、大量に発生する焼却灰の最終

処分場確保問題・処理費用の高騰等が、製造コストを圧迫している。

本研究では、再生紙工場から大量に発生する P S のリサイクル技術の確立を目的に、粒状炭化物の製造技術、物性評価および農業資材としての用途開発について検討を行った。

## 2. 試料および製造方法

## 2.1 ペーパースラッジ

再生紙の原料として「模造」や「色上」と呼ばれる種類の上質古紙や牛乳パックが、年間約 80 万トン使用されている。上質古紙である「模造」や「色上」は紙の不透明度と白色度を高めて印刷品質を向上させるためにカオリン ( $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$ )、タルク ( $\text{Mg}_3\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ ) および炭酸カルシウム ( $\text{CaCO}_3$ ) などの無機物(填料)が紙の表面に塗工してあり、古紙原料からトイレットペーパーを製造する工程ではこの填料を洗い落とす事が必要となる。

図 1 に古紙原料からのトイレットペーパー製造フローを示す。洗浄後の古紙から分離された填料は、その他の微小な夾

\*道栄紙業株式会社

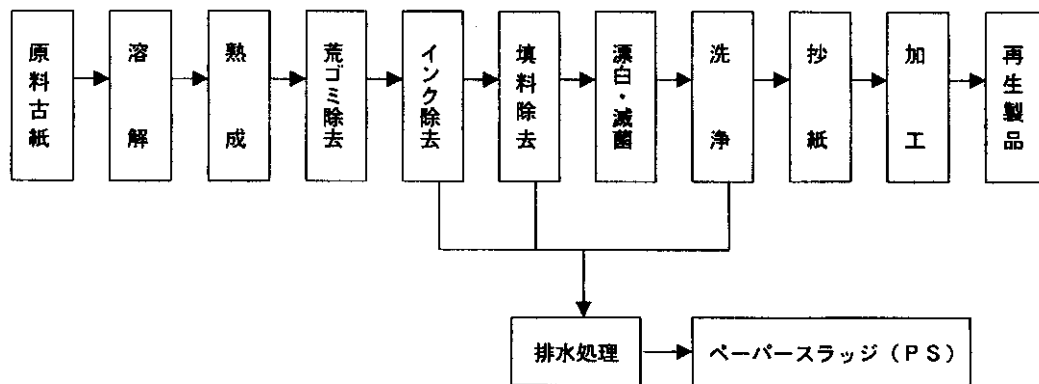


図1 古紙原料からのトイレトーパー製造工程

雑物や短くて紙にならない繊維等とともに水処理装置に送られて凝集沈殿された後、脱水され、その脱水ケーキがPSと云われる産業廃棄物となる。この総量は、トイレトーパーの製造に由来するものだけでも年間25万トンにも達する。古紙種類別比率は、季節を問わず変動は少なく、PSの組成比も年間を通じて概ね一定である。

2.2 試料

本研究に用いたPS(道栄紙業(株))の組成を蛍光X線分析装置(RIX3000, 理学電気工業(株))にて分析し、表1および図2に示した。

図2に示される様に、PSは約60%の水分を含み、絶乾重量のうち約半分が短くて漉ききれなかった紙繊維、残りの半分は填料に由来する無機物であった。

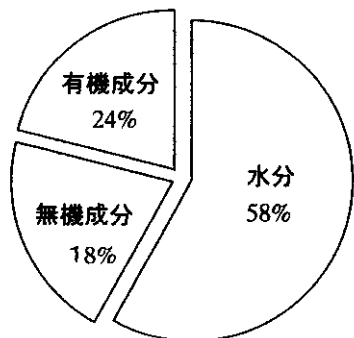


図2 ペーパースラッジ (PS) の組成

表1 ペーパースラッジ (PS) の化学組成

成分名	分析結果(wt.%)
強熱減量	56
SiO <sub>2</sub>	15.6
CaO	11.3
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	8.4
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5.2
MgO	2.3
その他	1.2

2.3 PS炭化物の製造方法

PS炭化物の製造方法を図3に示した。PSの造粒は、サイズの揃ったペレットを得るとともに、粒子密度の高い造粒を可能とする強製造粒法により行った。得られた造粒物は、そのままの水分率にて炭化を行うと強度が極端に低下するため、ロータリーキルンにて水分率約10%以下まで乾燥を行った。

PSの炭化実験に使用した炉(高砂工業(株)製)を図4に示した。本装置は連続外燃型炭化炉に属し、レトルトの全長はφ200(mm)×L2,300(mm)、有効長さは、L900(mm)

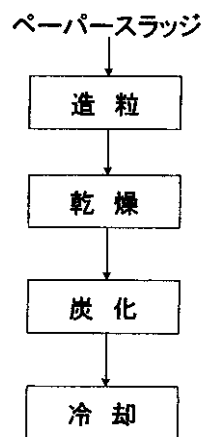


図3 PS炭化物の製造フロー

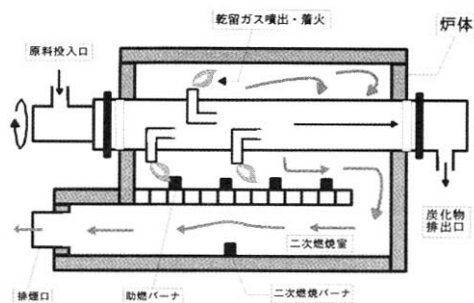
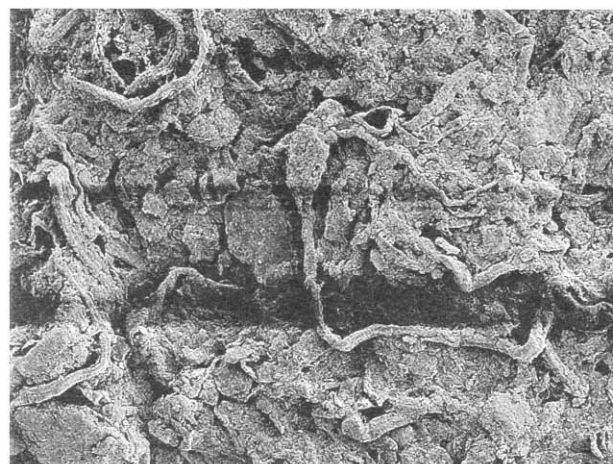


図4 炭化炉の概念図



PS乾燥物



PS炭化物

(×500)

図5 PS乾燥物とPS炭化物の表面状態

である。また、本装置の特徴として、キルン胴部に数カ所の乾留ガスを排気する管を有し、ここから排出される乾留ガスはレトルトを覆う燃焼室内で燃焼し、原料の保有熱量により自然も可能である。

### 3. 結果および考察

#### 3.1 PSおよびPS炭化物の物性評価

##### 3.1.1 外観および組成

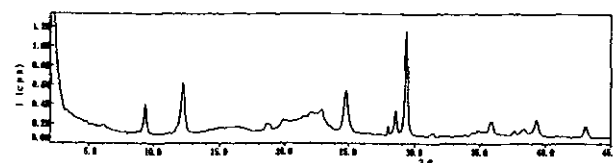
図5に、PSとPS炭化物の表面状態の電子顕微鏡写真(日本電子(株)製、5800-LV)を示した。図に示される様に、PSは、繊維質と無機填料の絡み合った緻密な構造を有しており、PS炭化物は、無数の空隙を有する構造であった。また、PS炭化物の組成を表2に示した。不燃分中の組成は、先に示したPS原料組成にほぼ一致し、紙に含まれる填料に由来するものであり、炭化後も組成上では大きな変化は認められない。図6に、PSおよびPS炭化物のX線回折チャートを示す。PSの填料に由来する、炭酸カルシウム、タルクおよびカオリンのピークが認められた。一方、PS炭化物では炭酸カルシウム及びタルクのピークは観察されるが、カオリンについては認められずスメクタイト等への構造変化が生じているものと推察された。

##### 3.1.2 比表面積及び細孔分布

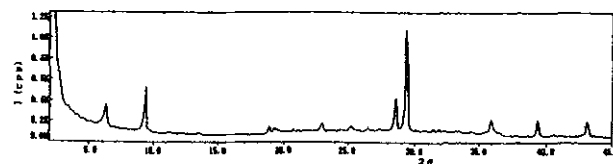
図7に、炭化温度とPS炭化物の比表面積の関係を示す。ここで、炭化温度には平均品温 $T_p$ を用い、比表面積の測定は窒素ガス吸着法(micromeritics社製、FLOW SORB II 2300)により行った。図7より、約400℃から炭化が開始し、炭化温度の上昇に伴い比表面積は増大し約100m<sup>2</sup>/gに達した。通常、炭化の進んだ高品質の木炭の比表面積は約500m<sup>2</sup>/gであり、PS炭化物の灰分が約80%あることを考慮すると、炭化は良好に行われたと判断される。また、炭化

表2 PS炭化物の組成

成分名	分析結果(wt.%)
強熱減量	16.1
SiO <sub>2</sub>	33.1
CaO	17.8
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	10.3
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	13.9
MgO	7.6
その他	1.2



(a) PS乾燥物



(b) PS炭化物

図6 PS乾燥物とPS炭化物のX線回折チャート

温度800℃、品温約600℃にて炭化したPS炭化物の細孔分布を測定した。マクロポアに対しては水銀圧入法(FISONS INSTRUMENTS社製、PASCAL 140, 440)で測定し図8に、ミクロポアは窒素ガス吸着法(FISONS INSTRUMENTS社製、SORPTMATIC 1990)により測定し図9にそれぞれ示した。図8および図9から、マクロな細

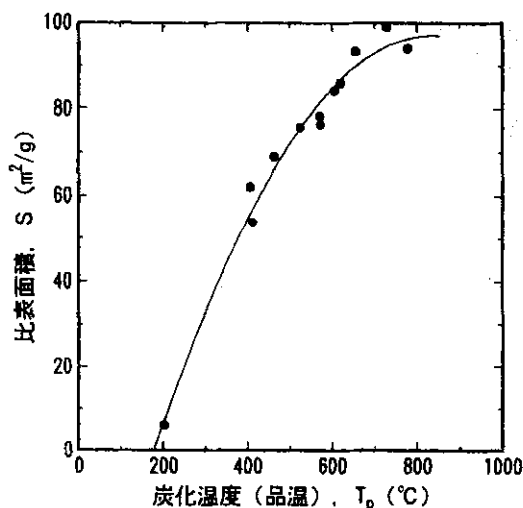


図7 比表面積と炭化温度の関係

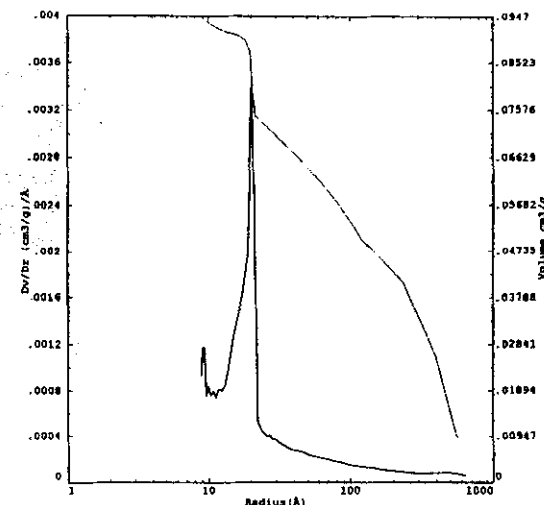


図9 PS炭化物のマイクロポア分布

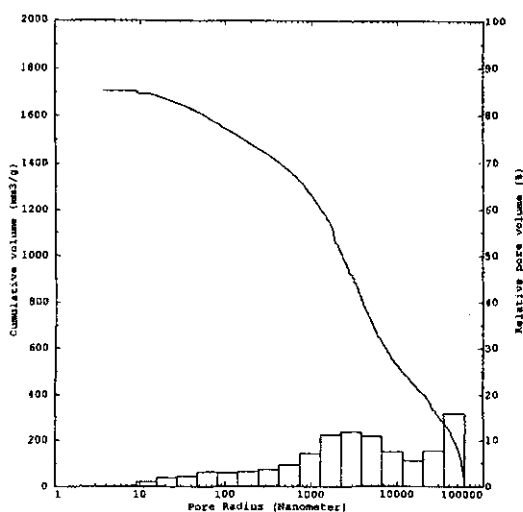


図8 PS炭化物のマクロポア分布

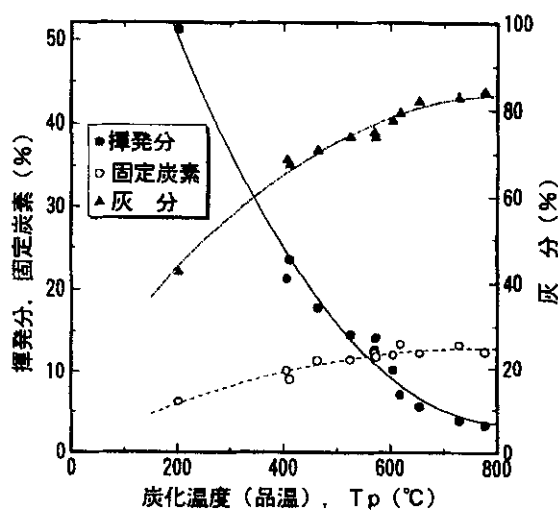


図10 揮発分、固定炭素及び灰分と炭化温度の関係

孔が多く、その総細孔容積は  $1.7\text{cm}^3/\text{g}$  (空隙率換算で約80%) に達し、マイクロポアの最頻度細孔径は約  $2\text{nm}$  を示した。マクロな細孔は、前述した粒径数  $\mu\text{m}$  の填料と炭化されたパルプ繊維が形成する空隙に起因するものと考えられる。

### 3.1.3 揮発分、固定炭素及び灰分

図10に、PS炭化物の揮発分、固定炭素及び灰分と炭化温度の関係を示した。測定は石炭類及びコークス類工業分析法 (JIS M8812) に従った。図10より、炭化温度の上昇に伴い、揮発分は低下し固定炭素及び灰分は増加した。炭化温度約  $600^\circ\text{C}$  においては、揮発分約8%、固定炭素約12%、灰分約80%を示した。

### 3.1.4 pH

図11に、PS炭化物のpHと炭化温度の関係を示した。PS炭化物のpHの測定は活性炭試験方法 (JIS K1474) により行った。図11より、炭化温度の上昇に伴いアルカリ度が増大し約  $650^\circ\text{C}$  において  $\text{pH} \approx 11$  と極大値を示した後、減少することが認められた。なお、炭化温度によりpH

が変化する事は木炭でも認められており、 $600\sim 700^\circ\text{C}$  において電子の変移点があることに起因するためと推察される。

### 3.1.5 安全性

「産業廃棄物に含まれる金属等の検出方法 (環境庁告示87号)」に基づく、PSの重金属溶出試験結果を表3に示した。また「肥料取締法に基づく基準値」と比較した、PSおよびPS炭化物中の重金属含有量を表4に示した。PSは、表3に示す様に、産業廃棄物としての重金属溶出試験に十分適合している。また、PS炭化物の利用にあたっては溶出試験のみならず、重金属の含有率が問題となる。表4より、PS炭化物に含有する重金属は肥料の規制値を十分に満足する値を示した。

### 3.2 PS炭化物の土壌改良資材としての特性評価

土壌改良資材とは主に土壌の物理性、化学性および生物性を改善する農業資材である。土壌改良資材を排水不良な土壌や通気性の悪い土壌に施用すると土壌の物理性が改善され、

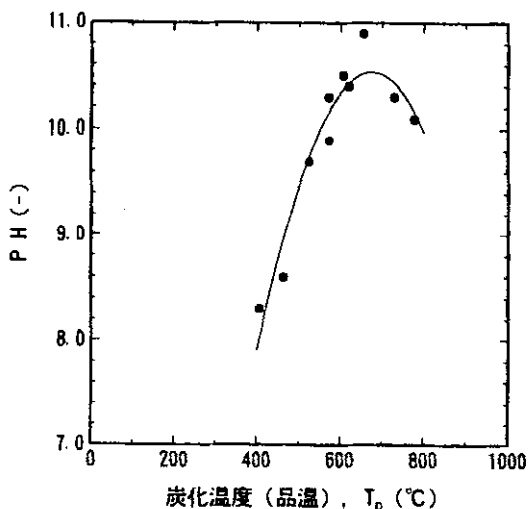


図11 pHと炭化温度の関係

表3 PSの重金属溶出試験結果

項目	PS mg/L	基準値 mg/L
カドミウム	< 0.005	< 0.3
鉛	< 0.005	< 0.3
砒素	< 0.005	< 0.3
六価クロム	< 0.04	< 1.5
シアン	< 0.01	< 1
有機リン	< 0.1	< 1
水銀	< 0.0005	< 0.005
アルキル水銀	< 0.0005	ND
PCB	< 0.0005	< 0.003

表4 PS炭化物の重金属含有量

項目	P S ppm	PS炭化物 ppm	基準値 ppm
カドミウム	1.27	0.71	< 5
鉛	19	27	—
砒素	4.9	3.9	< 50
水銀	0.02	0.001	< 2

それに伴い作物の生育や収量が向上する。したがって、PS炭化物を土壤改良資材として利用するためには、土壤改良資材としての物性を評価するとともに土壤施用時の、土壤物理性の評価が必要となる。本試験では、PS炭化物の土壤改良資材としての物性を市販の土壤改良資材と比較評価し、さらにPS炭化物施用に伴う土壤物理性と作物の生育に及ぼす影響について検討を行った。

3.2.1 土壤物理特性の評価

(1) 孔隙率と飽和透水係数

表5にPS炭化物および現在市販されている代表的な土壤改良資材の土壤物理特性を示した。PS炭化物の孔隙率は、粒径が5mmのものは85.4%、粒径が3mmのもので88.2%を示した。これはパーライト（三井金属（株））、ゼオライト（ジークライト（株））および、なら材木炭と同等、もしくはそれ以上の値であった。以上の結果より、PS炭化物を土壤に施用すると市販の土壤改良資材と同程度もしくは、それ以上に孔隙率が増加するものと推察された。

飽和透水係数は、変水位透水性測定器（DIK-4050，大起理化学工業（株））にて評価を行った。飽和透水係数とは、材料中を水分が移動する速度であり、透水性の指標である。PS炭化物を含め実験に供試した土壤改良資材のうち飽和透水係数が最も大きかったのは、なら材木炭でパーライトの約10倍の値を示した。一方、PS炭化物の飽和透水係数は粒径が5mmのものは $5.9 \times 10^{-2} \text{cm/s}$ 、3mmのものは $4.8 \times 10^{-2} \text{cm/s}$ で、PS炭化物の透水性はなら材木炭には及ばないが、パーライトやゼオライトより優れていることが示された。

表5 PS炭化物および各種土壤改良資材の土壤物理特性

試料名	孔隙率 (%)	飽和透水係数 (cm/S)	易効性有効水量 <sup>1)</sup> (%)
PS炭化物(5mm)	85.4	$5.9 \times 10^{-2}$	12.9
PS炭化物(3mm)	88.2	$4.8 \times 10^{-2}$	23.2
パーライト	80.1	$8.6 \times 10^{-3}$	15.5
ゼオライト	87.4	$1.8 \times 10^{-2}$	18.3
なら材木炭	75.8	$7.2 \times 10^{-2}$	3.5

1)：易効性有効水量はpF1.8の時の体積水分率からpF3.0の時の体積水分率を引いたもの。

(2) 保水性試験 (pF 値)

多容量土壤pF測定器（DIK-3420，大起理化学工業（株））にて評価を行った各種資材の保水性試験の結果を表5に示した。

土壤中の水分は吸着力や毛管力などによって保持されているが、土壤が水分を保持する力は土壤の種類や含水量により異なる。したがって、植物は含水量が同じでも水分を保持する力が強い土壤から水分を吸収できないが、保持する力が弱い土壤からは水分を吸収できる。土壤の含水量と水分保持力の関係を示すものにpF-水分曲線がある。pFとは水分が土壤に引きつけられている強さを水柱の高さ(cm)の対数で表した数値で、植物の吸水に対する難易度を示すものである。植物が比較的容易に吸収できるpFの範囲は1.8~3.0で、この範囲の水を易効性有効水という。極端に言えば植物は易効性有効水しか吸収できない。従って、植物の吸水にとって良い土壤とは、易効性有効水pF1.8~3.0に相当する体積水分率の範囲が広い土壤である。表5にPS炭化物ならびに各種土壤改良資材の易効性有効水量をpF1.8~3.0に相当する体

積水分率で示した。粒径が3mmのP S炭化物の易効性有効水量は23.2%と5種類の資材の中では最も大きな値を示した。ただし、同じP S炭化物でも粒径が5mmになると易効性有効水量は12.9%と3mmのものに比べほぼ半減した。これは粒径が大きくなったことによってP S炭化物の粒間の孔隙が大きくなり、水分の保持力が低下したことが主な原因であると考えられる。

(3) 透水性試験

図12に透水性の実験結果を示した。実験方法は、粒径3mmのP S炭化物、ゼオライトおよびパーライトをそれぞれ黒ボク土壌に50%混合後、縦21.5cm、横11.5cm、高さ10.0cmの育苗箱に充填し、その上から1.5Lの蒸留水を静かに注いだ。その後、育苗箱を30℃、暗黒条件にした恒温器内に置き、各区の土壌水分の減少経過を比較した。なお、対照区には黒ボク土壌のみを充填した。

その結果、ゼオライト、またはP S炭化物を混合させると、いずれの調査日においても対照区に比べ水分率が低くなった。しかし、飽和透水係数の低いパーライトは土壌水分を低下させる効果がほとんど認められなかった。

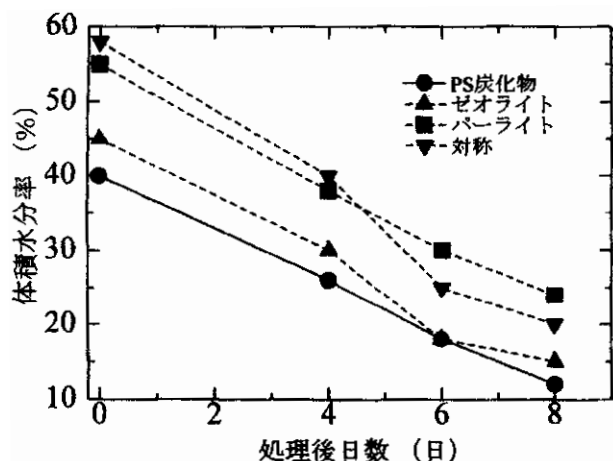


図12 PS炭化物及び土壌改良資材の施用が土壌水分の減少に及ぼす影響

3.2.2 施用試験

(1) P S炭化物施用がインゲンマメの出芽および生育に及ぼす影響

インゲンマメの根は酸素要求量が高く、耐水性が低い作物のひとつである。そこで高土壌水分条件下でP S炭化物施用の有無がインゲンマメの出芽とその後の生育に及ぼす影響について検討を行った。以下に実験方法を示す。

- ・インゲンマメ (品種:セリーナ) を縦 21.5cm, 横 11.5cm, 高さ 10.0cm のプランター (底は網状で水分は透過可能) で育成した。
- ・試験区は、対照区 (黒ボク土壌のみ) とP S炭化物区 (土壌体積の50%にP S炭化物を混合) を設けた。

- ・灌水は、自動灌水装置で6時間おきに400mLとした。
- ・インゲンマメの育成は昼温(6-18時)28℃,夜温(18-6時)20℃にセットした自然日長型人工気象室で行った。

(a) P S炭化物の施用がインゲンマメの出芽に及ぼす影響

図13に播種後10日目における各区の出芽率を示した。対照区の出芽率は22.2%であったが、P S炭化物施用区では77.8%とほぼ正常な出芽率を示した。これは両区とも6時間おきに400mLの水が供給されるが、P S炭化物施用区では、過剰な水がプランター外に排出され土壌水分が速やかに低下したため、インゲンマメの出芽が阻害されなかったと推察される。

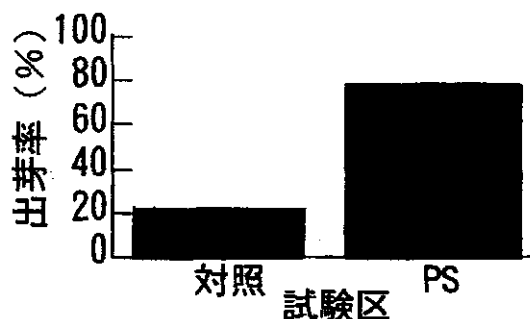


図13 PS炭化物の施用がインゲンマメの出芽に及ぼす影響

(b) P S炭化物の施用がインゲンマメの生育に及ぼす影響

表6にP S炭化物の施用がインゲンマメの生育に及ぼす影響を示した。表に示す様に、播種後30日目の調査においてSPAD値、茎の太さ、主莖節数および分枝数の各項目で処理区間に有意差は認められなかったが、P S炭化物施用区のインゲンマメは対照区に比べ葉緑素含有量 (SPAD値) が高く、茎が太くなり、主莖の節数や分枝数が増加した。さらに、葉面積、地上部および地下部乾物重が増大し、これらの処理区間に有意差が認められた。葉緑素含有量や葉面積が増大すると個体当りに固定される同化産物量が増加し、結果的に子実収量の増大につながると考えられる。また、マメ科作物は節の部位に莢が形成されることから、主莖節数や分枝数の増加によって個体当りに形成される莢数が増加すると推察される。この様に、常に灌水をして土壌に水分が供給される条件でもP S炭化物を施用すれば、優れた透水性の結果、インゲンマメはほぼ正常な生育を示すことが分かった。

表6 PS炭化物の施用がインゲンマメの生育に及ぼす影響

試験区	SPAD値	茎の太さ (mm)	主莖節数	分枝数	葉面積 (cm <sup>2</sup> /個体)	地上部乾物重 (g/個体)	地下部乾物重 (g/個体)
対照	27.7	3.04	2.8	0.5	166.6	0.47	0.26
P S	30.9	3.43	3.4	1.0	401.6	1.37	0.71
有意性	NS	NS	NS	NS	***	***	***

NS, \*\*\*はそれぞれ有意差なし、0.1%レベルで有意差があることを示す。



散布表面



ブロードキャスター散布



ブロードキャスター散布



散布9日後

図14 融雪促進材散布状況（倶知安町）

### 3.3 融雪促進材としての検討

融雪時の農地における融雪速度の促進は、農作業の開始時期を早め、その結果、作物の収穫時期を早め、さらには収穫量にも大きな影響を及ぼす。そこで、積雪量の多い倶知安町、沼田町にてP S炭化物の融雪促進効果の検討をフィールド試験により行った。

#### 3.3.1 散布試験および評価方法

本試験では、ブロードキャスターにてP S炭化物（5mmφ）を、従来の融雪促進材の散布量に従い、1反部（1000m<sup>2</sup>）当たり3袋（30L / 袋）とし、1町部（10000m<sup>2</sup>）散布を行った。

散布試験の評価として、散布時に雪面表面をシート（10m×10m）にて被覆し、無散布区を作成し、散布区との融雪差を比較評価した。なお、試験日は最終降雪日以降とし、倶知安町は平成11年4月12日、沼田町は平成11年3月20日に行った。

#### 3.3.2 散布状況と融雪効果

図14に、P S炭化物の散布状況を示す。P S炭化物はペレット状造粒物のため、ブロードキャスターのホッパーへの供給において、粉塵がなく取り扱い性において良好であった。また、散布操作はホッパー下部のプロペラにて行われるため、衝撃によりP S炭化物は一部粉碎され微粒から粗粒の状態で雪面を被覆した。図15に、散布後5日の、散布区と無散布

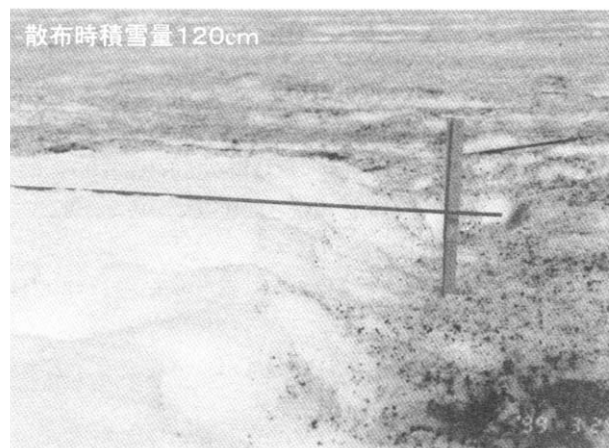


図15 融雪促進材の効果

区の融雪状況を示す。散布区と無散布区においては、融雪量で約10cmの差が認められた。この効果は、同時に散布した市販の融雪促進材と同等の能力を示す良好な結果であった。

## 4.まとめ

- (1) P S炭化物は、マクロな細孔とミクロな細孔を有し、マクロポアは粒径数μmの填料と炭化されたパルプ繊維

が形成する空隙に起因し総細孔容積は  $1.7\text{cm}^3/\text{g}$  (空隙率換算で約 80%)、ミクロポアの最頻度細孔径は約 2nm、比表面積が約  $100\text{m}^2/\text{g}$  を示した。

- (2) P S 炭化物は、市販されている土壌改良資材との比較において、高い孔隙率・透水性を有し、かつ保水性にも優れた土壌改良資材である事が確認された。
- (3) P S 炭化物のインゲンマメ施用試験において、対照区に比べ出芽率、葉緑素含有量(SPAD 値)が高く、茎が太くなり、主茎の節数や分枝数が増加した。さらに、葉面積、地上部および地下部乾物重量が増大し、これら調査項目では処理区間に有意差が認められた。
- (4) P S 炭化物の融雪促進材としての性能は、従来品と比較して同等のレベルを示した。また、P S 炭化物は粒状で取り扱いに優れ、散布時に微粒化する事が確認された。

## 5. 謝辞

本研究を進めるに当たり、農業資材としての実験および評価におきまして多大なご協力を頂きました日本大学生物資源科学部植物資源科学科 講師 磯部勝孝氏に深く感謝の意を表します。

## <引用文献>

- (1) 日本製紙連合会，紙・パルプハンドブック，日本製紙連合会，1998
- (2) 越島哲夫，セルロース資源，学会出版センター，1991
- (3) 大江礼三郎，古紙増配に対処する技術的課題，紙パルプ技術タイムス，1991
- (4) 生田圭司，環境対策，紙パルプ技術タイムス，1991
- (5) 井上茂樹，廃棄物対策の現状と問題点について，紙パルプ技術タイムス，1997
- (6) 大江礼三郎，ライフサイクルからみた古紙，紙パルプ技術タイムス，1991
- (7) 泥谷直大，エネルギー対策，紙パルプ技術タイムス，1991
- (8) 大江礼三郎，古紙利用促進の課題と今後，紙パルプ技術タイムス，1998
- (9) 土壌標準分析・測定法委員会，土壌標準分析・測定法，博友社，1996
- (10) 星川清親，新編食用作物，養賢堂，1980
- (11) 位田藤久太郎，蔬菜の根の生理に関する研究，園学雑，21(4)：202-207，1953
- (12) Kramer, P.J. 著，橋本康他訳，水環境と植物，養賢堂，1986
- (13) 三好洋他，土壌肥料用語辞典，農文協，1992