



TALLINNA TEHNIKAÜLIKOO

INSENERITEADUSKOND

Ehituse ja arhitektuuri instituut

ASFALTSEGUDES SISALDUVA BITUUMENSIDEAINE ASENDAMINE LIGNIINIGA

REPLACEMENT OF BITUMINOUS BINDER WITH LIGNIN IN ASPHALT CONCRETE MIXTURES

MAGISTRITÖÖ

Üliõpilane: Johannes Kukebal

Üliõpilaskood: 192172EAXM

Juhendaja: Kristjan Lill,
TalTech Teede ja liikluse teadus- ja
katselaboratoorium kvaliteedijuht

Tallinn 2022

AUTORIDEKLARATSIOON

Olen koostanud lõputöö iseseisvalt.

Lõputöö alusel ei ole varem kutse- või teaduskraadi või inseneridiplomit taotletud. Kõik töö koostamisel kasutatud teiste autorite tööd, olulised seisukohad, kirjandusallikatest ja mujalt pärinevad andmed on viidatud.

"....." 20.....

Autor: Johannes Kukebal

/ allkiri /

Töö vastab magistritööle esitatud nõuetele

"....." 20.....

Juhendaja: Kristjan Lill

/ allkiri /

Kaitsmisele lubatud

"....." 20.....

Kaitsmiskomisjoni esimees

/ nimi ja allkiri /

Lihtlitsents lõputöö reprodutseerimiseks ja lõputöö üldsusele kättesaadavaks tegemiseks¹

Mina Johannes Kukebal (sünnikuupäev: 19.07.1993)

Annan Tallinna Tehnikaülikoolile tasuta loa (lihtlitsentsi) enda loodud teose

ASFALTSEGUDES SISALDUVA BITUUMENSIDEAINE ASENDAMINE LIGNIINIGA

mille juhendaja on Kristjan Lill,

1.1 reprodutseerimiseks lõputöö säilitamise ja elektroonse avaldamise eesmärgil, sh Tallinna Tehnikaülikooli raamatukogu digikogusse lisamise eesmärgil kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni;

1.2 üldsusele kättesaadavaks tegemiseks Tallinna Tehnikaülikooli veebikeskkonna kaudu, sealhulgas Tallinna Tehnikaülikooli raamatukogu digikogu kaudu kuni autoriõiguse kehtivuse tähtaja lõppemiseni.

2. Olen teadlik, et käesoleva lihtlitsentsi punktis 1 nimetatud õigused jäävad alles ka autorile.

3. Kinnitan, et lihtlitsentsi andmisega ei rikuta teiste isikute intellektuaalomandi ega isikuandmete kaitse seadusest ning muudest õigusaktidest tulenevaid õigusi.

_____ (kuupäev)

_____ (allkiri)

¹ Lihtlitsents ei kehti juurdepääsupiirangu kehtivuse ajal vastavalt üliõpilase taotlusele lõputööle juurdepääsupiirangu kehtestamiseks, mis on allkirjastatud teaduskonna dekaani poolt, välja arvatud ülikooli õigus lõputööd reprodutseerida üksnes säilitamise eesmärgil. Kui lõputöö on loonud kaks või enam isikut oma ühise loomingu tegevusega ning lõputöö kaas- või ühisautor(id) ei ole andnud lõputööd kaitsvale üliõpilasele kindlaksmääratud tähtajaks nõusolekut lõputöö reprodutseerimiseks ja avalikustamiseks vastavalt lihtlitsentsi punktidele 1.1. ja 1.2, siis lihtlitsents nimetatud tähtaja jooksul ei kehti.

Ehituse ja Arhitektuuri Instituut

LÕPUTÖÖ ÜLESANNE

Üliõpilane: Johannes Kukebal, 192172EAXM
Õppekava, peeriala: EAXM15/15 - Hooned ja rajatised, teedehitus
Juhendaja(d): Kristjan Lill, TalTech Teede ja liikluse teadus- ja katselaboratoorium kvaliteedijuht

Lõputöö teema:

ASFALTSEGUDES SISALDUVA BITUUMENSIDEAINE ASENDAMINE LIGNIINIGA
REPLACEMENT OF BITUMINOUS BINDER WITH LIGNIN IN ASPHALT CONCRETE MIXTURES

Lõputöö põhieesmärgid:

1. Tutvustada ligniini kui alternatiivset sideainet asfaltsegudesse.
2. Anda ülevaade maailmas tehtud laboratoorsetest ja täiemahulistest katsetustest ligniiniga.
3. Katsetada laboratoorselt ligniini asfaltbetoonsegus, kasutades selleks Eestis kehtivaid standardeid ning täitematerjale.
4. Hinnata ligniini sobivust Eesti kliimaatilistesse tingimustesse.

Lõputöö etapid ja ajakava:

Nr	Ülesande kirjeldus	Tähtaeg
1.	Teoreetilise osa kirjutamine, andmete kogumine, täitematerjalide terakoostise määramine seguretsepti koostamiseks	05.04.2022
2.	Asfaltsegude seguretsepti koostamine	07.04.2022
3.	Ligniini sisaldavate asfaltsegude laboratoorsete segamiste lõpp Segude suunamine Taltech teedelaborisse seguomaduste hindamiseks.	22.04.2022
4.	80% valmis, lõputöö kaitsmistaotluse esitamine	09.05.2022
5.	Kogu katsetulemuste info saamine, tulemuste analüüsiga alustamine	13.05.2022
6.	Töö valmis, ettevalmistused kaitsmiseks, töö esitamine retsenseerimiseks	23.05.2022
7.	Lõppkaitsmine	02.06.2022

Töö keel: Eesti

Lõputöö esitamise tähtaeg: 23.05.2022

Üliõpilane: Johannes Kukebal

/allkirjastatud digitaalselt/

Juhendaja: Kristjan Lill

/allkirjastatud digitaalselt

SISUKORD

EESSÕNA	7
SISSEJUHATUS	8
1.BITUUMENI KUI TOORAININE ASENDAMINE (PÕHJUSED JA VÕIMALUSED)	9
1.1 Põhjused bituumeni asendamiseks	9
1.2 Bituumeni asendamist raskendavad asjaolud.....	10
1.3 Bituumeni asendamise võimalused.....	11
2.LIGNIIN.....	13
2.1 Üldine info ligniini kohta	13
2.2 Tootmine	14
2.2.1 Väävlit sisaldavate ligniinide tootmine	14
2.2.2 Väävlivabade ligniinide tootmine.....	15
2.3 Ligniini omadused	16
2.3.1 Kraft ligniin.....	16
2.3.2 Lignosulfonaadid	16
2.3.3 Leeliselised ligniinid (soda/alkali).....	17
2.3.4 Organosolv ligniin (orgaanilise lahustiga eraldatud)	17
2.3.5 Steam explosion ligniin (kõrgtemperatuuril ja -rõhul eraldamine)	17
2.3.6 Happelise hüdrolyüsi ligniin (acid hydrolysis)	17
2.4 Ligniini kasutus ja potentsiaal.....	18
2.4.1 Tootmismahud	18
2.4.2 Kasutus.....	20
3.LIGNIIN TEEDEEHITUSES – KATSETUSKOGEMUSED ÜLE MAAILMA	23
3.1 Laboratoorsed tööd	23
3.2 Katselõikude paigaldamiseni jõudnud uurimistööd.....	31
3.2.1 FPInnovations arendustöö Kanadas.....	31
3.2.2 Chaplin (XL) programm Hollandis	38
3.2.3 Rootsi kogemus.....	40
4.LABORATOORSED KATSETUSED LIGNIINIGA.....	42
4.1 Kasutatud materjalide kirjeldus	43
4.2 Teostatud laboratoorsed tööd ja katsete kirjeldused	45
4.2.1 Täitematerjalide tööd laboris.....	45
4.2.2 Sideaine segamise protsess	46
4.2.3 Asfaltsegude segamine ning katsetamine.....	50
4.3 Tulemused ja analüüs	58
4.3.1 Bituumeni katsetuste analüüs	58

4.3.2 Asfaltsegude katsetulemuste analüüs.....	59
4.3.3 Järeldused	67
4.3.4 Ettepanekud järgnevateks uurimistegevusteks	68
KOKKUVÕTE	69
SUMMARY.....	70
KASUTATUD KIRJANDUSE LOETELU	71
LISAD	75

EESSÕNA

Soovin tänada TalTech Teede ja liikluse teadus- ja katselaboratoorium kvaliteedijuhti Kristjan Lille, kes ajendas antud lõputöö teemat valima ning toetas mind kirjutamise vältel. Sama suure kummarduse soovin teha ka laborimeeskonnale, kelle kaasabil teostati ajamahukad katsed.

Tahan kiidusõnad öelda ka Verston OÜ meeskonnale, kes toetas mind moraalselt. Tänan ka juhatust, kelle finantsilisel toel toimusid asfaltsegude segamised.

Viimasena soovin tänada oma elukaaslast, kes suutis ära kannatada pingelise lõputöö kirjutamise perioodi.

Võtmesõnad: asfaltsegud, ligniin, bituumen, laboratoorsed katsetused, lignosulfonaadid, Chaplin (XL), sideaine, alternatiivne sideaine, sideaine asendamine, magistritöö

SISSEJUHATUS

Hinnanguliselt on üle 90% Euroopa 5,2 miljonist kilomeetrist kattega teedest ja kiirteedest asfaltkattega. Samuti veetakse ELis maanteed mööda umbes 44% kaupadest; nende seisundi säilitamine transiidi ajal on majanduse jaoks ülioluline. Uue tee rajamine avaldab keskkonnale mitmeid mõjusid, kulutades palju materjale ja energiat. Samuti on viimastel aastatel oluliselt tõusnud toornafta hind, mis on peamine bituumensideaine allikas. See on kaasa toonud asfaldisegude koguhinna tõusu [1].

Bituumensideained on teedehituses üheks kallimaks komponendiks. Teede korrasolek, sõidumugavus jm. sõltuvad bituumenite omadustest ja kvaliteedist, pikaealiste teede saavutamiseks on bituumeni omadustel suur roll [2]. Bituumeni eesmärk asfaltbetoonis on siduda täitematerjal homogenseks seguks, millel on vastavalt asfaltsegutüübile kindel terastikuline koostis ning materjalile omased omadused.

Kui kasutatav bituumen osutub pärast tee valmimist mittesobivaks või halvakvaliteediliseks, on tagajärjed majanduslikus mõttes rasked nii tee omanikule kui selle kasutajatele. Bituumen on ääretult kompleksne materjal koosnedes väga paljudest erinevatest keemilistest ühenditest, mille sisaldus ja proportsioonid sõltuvad bituumeni tootmiseks kasutatud toornafta päritolust ja tootmisprotsessidest [2].

Tänaseks päevaks oleme jõudnud oma ühiskonna arengus punkti, kus tuleb vaadata visioonide seadmisel kaugemale kui lähitulevik, sellest annab ka ilmet 195 ÜRO liikmesriigi ühiselt 2015. aastal allkirjastatud Pariisi kliimakokkulepe, millele sisaldub säästva arengu eesmärgid ja tegevuskava aastani 2030 [3]. Kuigi see dokument hoomab eneses rohkemat kui rohelist maailmavaadet, siis tuleb meeles pidada, et teedehitus on pigem seotud maavarade kasutamise ning nende väärindamisega – rajades erinevaid tartistuvõrgustikke paremate transpordiühenduste tagamiseks. Seetõttu teedeinseneridena peaksime endale ülesandeks võtma teha kõik enesest olev, et kasutada Maa ressursse otstarbekalt ja nutikalt ning anda järeltulijatele edasi jätkusuutlik planeet. Sellest tulenevalt on antud lõputöö tugevalt seotud rohelse mõttemalliga ning üritab leida lahendust bituumeni osakaalu vähendamiseks asfaltsegudes, kasutades selleks biomassist kättesaadavat alternatiivi.

1. BITUUMENI KUI TOORAININE ASENDAMINE (PÕHJUSED JA VÕIMALUSED)

1.1 Põhjused bituumeni asendamiseks

Üheks väljakutseks, millega ehitajad silmitsi seisavad, on üha tõhusamad naftarafineerimisprotsessid, mis vähendavad bituumeni tootmiskogust ja kättesaadavust kõrgema väärtusega toodete tõttu, mis omakorda tõstab bituumeni hinda [4]. Samuti tähendab rafineerimisprotsesside paranemine seda, et turul oleva bituumeni kvaliteet langeb, kuna põhimõtteliselt on tegemist jääkproduktiga, kust muud tarvilikud ühendid on eemaldatud. Samas kui pakkumus turul väheneb, siis nõudlus bituumeni järele kasvab seoses era- ja ettevõtetesõidukite arvu iga-aastase kasvuga. Kasvav sõidukite arv sunnib jällegi infrastruktuurivõrgustikke laiendama [5]. Kuid samas ei tohi ära unustada, et lisaks laienevale teedevõrgule vajab olemasolev infrastruktuur taastamist, mida mõjutavad üha suuremate teljekoormustega veokid ja suurenev liikluskoormus, mis põhjustavad selliseid kahjustusi nagu väsimuspraod, roobaste tekkimine [6].

Seoses hetkel valitsevale geopoliitilisele olukorrale, oleme jõudnud Eestis olukorda, kus meie teedeehitus on tugevalt mõjutatud bituumeni kättesaadavusest ja selle hinnast. Põhjuseks on asjaolu, et umbest 60% Euroopas rafineeritavast toornaftast pärineb Venemaalt. Kuigi lõputöö kirjutamise ajaks pole Venemaalt tulenevat bituumenit sanktsioneeritud toodete nimekirjas, siis solidaarsusest keelduvad asfalditehased seda kasutamast ning isegi soovi korral seda tarnida oleks see äärmiselt keerukas tänu olematutele tarneahelatele.

Veel tooksin põhjusena välja, et hinnanguliselt on alles umbes 40-45 aasta toornafta varud, kuigi töö käib uute maardlate tuvastamiseks, peaksime otsima alternatiivseid lahendusi bituumeni asendamiseks taastuvate toorainete või taaskasutatavate materjalidega, mida on võimalik Eestis toota. Selle esmane eesmärk vähendada sõltuvust teistest riikidest ning suurendada tarnekindlust. Teisalt parandaks see keskkonna jalajälge.

Nagu enamike tööstusharude puhul, on ka asfaldi puhul näha vajadust bituumeni jätkusuutliku ja keskkonnasõbraliku asendamise järele [7]. Bituumenile asenduse leidmine on oluline põhjusel, et selle puhul on tegemist taastumatu loodusvaraga. Seda toodetakse toornaftast, mille ümbertöötlemisel on märkimisväärne mõju keskkonnale

emissioonide kaudu. Peale töötlemist rafineerimistehases liigub osa bituumenist (bituumenil on ka muid kasutusotstarbeid) asfalditehasesse, kus see segatakse täitematerjalidega, et saada asfaltbetooni, mida üldjuhul tehakse kõrgetel temperatuuridel. Olenevalt asfaltsegu koostisest ning veomaast jäävad kuumalt segatud segude segamistemperatuurid Eestis enim kasutatud bituumeni margi 70/100 puhul vahemikku 140 kuni 170°C, mille saavutamiseks kasutatakse põleteid, mis samuti töötavad enamasti fossiilsetel kütustel. Sellest tulenevalt on kuumsegatud asfaltbetooni tootmine ja paigaldamine äärmiselt energiamahukad tegevused, millega koos paiskub atmosfääri suurel hulgal CO₂.

Viimase põhjusena tooksin välja, et arenenud riikides on aktuaalne teema jäätmete ringlussevõtt ja taaskasutamine, et riigid suudaksid täita endale võetud keskkonna- ja kliimakoostusi vähendades CO₂ heitkoguseid nagu näiteks sissejuhatuses mainitud ÜRO säästva arengu tegevuskava. Sellest tulenevalt nõudlus jätkusuutlike ning vähem saastavate alternatiivide järele kasvab, et vähendada süsiniku heitkoguseid.

1.2 Bituumeni asendamist raskendavad asjaolud

Asfaltbetoon on kõige levinum tänavate ja teede katend, mille lahutamatuks sideaineks hetkel on bituumen. Teede-ehitussektor on pigem konservatiivne ja seda mõjutab kindlalt reguleeritud standardid. Need eeskirjad on toonud kaasa palju takistusi uute materjalide integreerimiseks asfaldisse - ka teede-ehitussektorisse üldisemalt.

Uute lahenduste rakendamine juba väljakujunenud turul nõuab suuri jõupingutusi. Kuna uute kontseptsioonide arendamine nõuab palju uurimistööd ning korduvaid laboratoorseid katsetusi, enne kui jõutakse tootearendusega faasi, kus on õigustatud katselõikude paigaldamine. Eelpool mainitud arendustööga kaasnevad suured esialgsed investeerimis- ja ajakulud. Sellest tulenevalt on tasuvusaeg tavaliselt määramatu või võtab palju aega ning materjali käitumine välitingimustes võib oluliselt erineda laboris saadud tulemustest. Ebakindlus või usalduse puudumine innovatiivse tehnoloogia suhtes on tavaliselt faktorid, mis takistavad ettevõtetel selliste investeeringutega seotud riske võtmast.

Oluliseks asjaoluks on ka see, et praegusel hetkel on Transpordiamet lõpetanud materjale käsitletavate uuringute tellimise ülikoolidelt – põhjenduseks rahanappus. Kuid minu hinnangul peaks käituma vastupidiselt ning tagama teadus- ja arendustegevuse rahastuse ka rasketel aegadel, kuna uute teadmiste abil on võimalik ehitada kuluefektiivsemalt ja keskkonna-säästlikumalt.

1.3 Bituumeni asendamise võimalused

Kuigi bituumenile on otsitud võimalikke asendustooteid juba aastakümneid siis kahjuks tänaseni pole jõutud materjalini, mis suudaks 100-protsendiliselt vahetada välja bituumeni kasutuse teedehituses. See on olnud tingitud bituumeni ainulaadsetest viskoelastsetest omadustest ning sellest, et kuni hiljutise ajani on olnud bituumen suhteliselt odav ning kergesti kättesaadav. Seetõttu pole olnud sektoril ka majanduslikku survet otsida toimivat alternatiivi ning see on mõjutanud arendustegevuse rahastust.

Kuigi bituumenile täiemahulist asendust pole, siis põhiline küsimus, millele vastus tuleb leida on, kuidas optimeerida bituumeni sisaldust asfaltsegudes. Selline tegevus aitab vähendada teede asfalteerimisega seotud negatiivset keskkonnamõju. Bituumeni koguse vähendamiseks on olemas erinevaid võimalusi, mis esmapilgul võivad tunduda marginaalsed, kuid tegemist on siiski sammuga ökoloogilise jalajälje vähendamise suunas.

Esimese võimalusena tooksin välja plastjäätmete kasutuse asfaltsegudes, millele on heakskiidu andnud ka Transpordiamet, lubades enda objektidel kasutada MacReburi poolt toodetud MR8 lisandit, mis on valmistatud plastijääkidest, kuni 3% ulatuses bituumensideaine massist. Esialgu on seda lubatud kasutada ainult AC bin ja AC base tüüpi asfaltsegudes ning maksimaalse liiklussagedusel kuni 6000 a/ööp. Transpordiameti poolt saadetud selle teemalist juhist on võimalik lugeda lisade peatükis nime all Lisa 1: Plastjäätmete kasutamine asfaldisegudes. Lisaks Transpordiameti objektidele on paigaldatud antud lisandit sisaldavaid asfaltsegusid ka Tallinnas ja Viimsis.

Järgmiseks variandiks, kuidas on võimalik vähendada lisatava bituumeni kogust ning samas vähendades keskkonnamõju on kasutada asfaltsegudes freesasfalti, mida minu hinnangul kasutatakse tänasel hetkel ebaproportsionaalselt palju aluste ehituses või stabiliseerimisprotsessides. See on seletatav suuresti sellega, et kihtidele esitatavad nõuded on madalamad, kui asfaltsegudele. Samuti võib-olla osaliseks põhjuseks, et enne teede rekonstrueerimist ei hinnata olemasolevat katendit piisaval määral ning puudub teadmised materjali omadustest, potentsiaalset ning töödele ettenähtud graafik ei võimalda asfaldis taaskasutamist väärivat materjali eraldi freesida. Sellise tegevuse probleemiks on, et freesasfaldis sisalduvate kõrgkvaliteetset tooraine (nagu seda on bituumen ja tardkivimkillustik) potentsiaal jääb ära kasutamata asfaldisegudes. Minu hinnangul võiks Transpordiamet rohkem propageerida kvaliteetse freesasfaldi taaskasutamist asfaltsegudes. Seda oleks võimalik teha läbi nõuete sisse kirjutamise

rekonstrueerimisobjektidele, kus katendikihtides sisaldub kvaliteetset materjali. Nendel objektidel võiks olla kohustus kasutada saadud freespuru asfaldi alumistes kihtides.

Bituumeni kasvava nõudluse rahuldamiseks ja keskkonnasaaste vähendamiseks on veel üheks võimaluseks propageerida naftapõhise bituumeni asendamist biopolümeeri sisaldava bituumeniga, millel on kasutamata mahuline ressurss ning väiksem ökoloogiline jalajälg. Üheks enim räägitud biopolümeeriks on ligniin, mis on viimastel aastatel asfalditööstusele eriti huvipakkuvaks muutunud bituumeni osalise asendajana või bituumeni modifikaatorina [4]. See biopõhine kõrvalprodukt on asfalditööstuses pälvinud palju tähelepanu tänu sideaine omaduste parandamisele ja keskkonnasäästlikkuse suurendamisele, samas aidates liikuda fossiilsetelt ressurssidelt biopõhistele. Selle kasutegur ilmneb jätkusuutlikkuse seisukohast: see võib aidata vähendada sektori mõju kliimamuutustele, kuna kasvuhoonegaasid püütakse atmosfäärist kinni algses taimses allikas toimuva fotosünteesi tulemusena [4]. Seetõttu võib ligniini kombineerimine bituumeniga olla potentsiaalselt trendikas turg.

2. LIGNIIN

Antud peatükis antakse põgus ülevaade ligniinist – kus seda leidub, kuidas toodetakse, milliseidprodukte sellest valmistatakse ning miks seda peetakse tulevikus üheks võimalikuks naftakemikaalide asendajaks.

2.1 Üldine info ligniini kohta

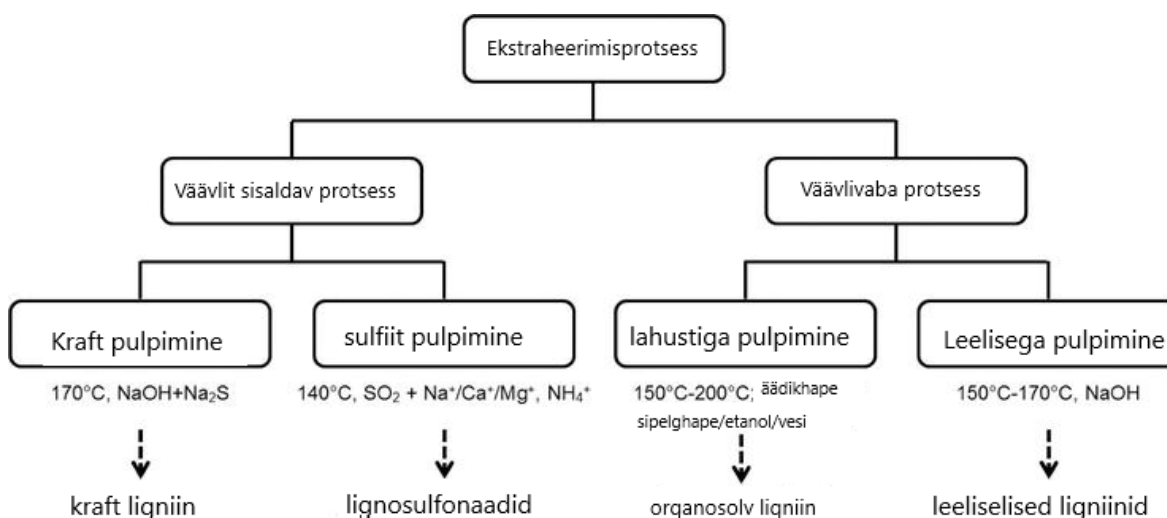
Ligniin on biopolümeer, mis kuulub koos tselluloosi ja hemitselluloosiga taimede rakukestade koostisesse. Erinevalt tselluloosist ja hemitselluloosist on ligniin varieeruva struktuuriga, koosnedes aromaatsete tsüklitega monolignoolidest. Tselluloosi järel on ligniin kõige levinum biopolümeer meie planeedil. Esimesena kirjeldas ligniini Šveitsi botaanik Augustin de Candolle 1813. aastal. Tema tuletas ka ladina keelest selle aine nime – lignum, mis tähendab puitu [8].

Ligniin on termoplastiliste omadustega. Külmana on see kõva, ent soojendamisel pehmeneb. Puidu plastiline painutamine põhinebki sellel omadusel. Puidu biomassist hõlmab ligniin 20-30%. Okaspuit sisaldab veidi rohkem ligniini kui lehtpuit. Ligniin on justkui liim, mis hoiab tselluloosi koos. Tselluloosi- ja paberi tootmiseks tuleb puidus leiduv tselluloos ligniinist lahutada. Tänapäeval toodetakse tselluloosi peamiselt kraft-ehk sulfaattehnoloogia abil. Selle tehnoloogia peamised etapid on puidu ettevalmistamine, selle keemiline töötlemine ligniini eraldamiseks (nn keetmine) ning tselluloosi pleegitamine. Töötlemisel kasutatakse naatriumhüdroksiidi ja naatriumsulfiidi. Kõnealune meetod leiutati juba 135 aastat tagasi, ent edaspidi on seda korduvalt täiustatud. Näiteks on tänaseks loobutud pleegitamise etapis kloori kasutamisest, tänu millele enam ei teki mürgiseid jääkaineid [8].

Tööstuse jaoks on ligniin tootmisprotsessi kõrvalprodukt. Ligniini sisaldav paber on ebakvaliteetne ja muutub aja jooksul õhu käes kollaseks. Tehased, mis tegelevad tselluloosi tootmisega, kasutavad biomassist eraldatud ligniini sageli kütusena põletamisel, et iseenda tarbeks energiat toota. Ligniini potentsiaalseteks kasutusalaudeks on ka näiteks liimid, õlid, vaigud ja plastid. Biomaterjalina omab ligniin suurt tulevikupotentsiaali, kuid hetkeseisuga pole see tööstuses veel laialdaselt kasutusel. Seetõttu ongi aktuaalseks muutunud ligniini väärimine ja selle kui taastuva biopolümeeri jaoks uute kasutusvõimaluste leidmine. Muuhulgas võiks ligniin pakkuda huvi ehitusmaterjalide ja kosmeetikakaupade tootjatele ning keemiatööstusele [8].

2.2 Tootmine

Enamikku praegu maailmaturul olevast tehnilisest ligniinist saab väävlisisalduse (vt. Joonis 2.1) alusel kategoriseerida. Väävlivaba ligniin on väävli puudumise ja tootmisprotsesside tõttu keskkonnasõbralikum ja sellel on rohkem kasutusvõimalusi kui väävli sisaldaval ligniinil. Ligniini algallikas ja kasutatav ekstraheerimisprotsess võivad mõjutada selle omadusi ja seega ka väärimise võimalusi, kuna kõik tootmisprotsessid nõuavad ka erinevaid tingimusi (temperatuur, erinevad lisatavad keemilised ühendid) reaktsioonide esile kutsumiseks.



Joonis 2.1: Tehniliste ligniinide eraldamine ja jagunemine [9]

2.2.1 Väävli sisaldavate ligniinide tootmine

Väävli sisaldavate ligniinide hulka kuuluvad kraft ligniin ja lignosulfonaadid, mida toodab peamiselt tselluloosi- ja paberitööstus ning see pärineb enamjaolt tselluloosi ja ligniini üksteisest eraldamise protsessist.

Kraft-protsessis kasutatakse kemikaalide segu, sealhulgas naatriumhüdroksiidi (NaOH) ja naatriumsulfiidi (Na₂S), mida tuntakse valge leelisenä, mis purustab sidemed, mis seovad ligniini tselluloosiga. Põhimõtteliselt muundab see puidu hakke tselluloosiks ja mustaks leeliseks, millele seejärel lisatakse hapet ligniini eraldamiseks. Arvestades kraft ligniini ekstraheerimiseks kasutatavat kõrge väävlisisaldusega keskkonda, on üsna üllatav, et jääkväävlisisaldus on nii madal, tavaliselt alla 2–3% [10]. Kraft ligniini arvkeskmine molaarmass (M_n) on üldiselt madal, vahemikus 1000–3000 g mol⁻¹ [11]. 2017. aasta seisuga toodeti maailmas kraft protsessil baseeruvalt umbes 180 miljonit tonni tselluloosi, mis tähendab potentsiaalselt 55 miljonit tonni

ligniini, mis sisaldub kõrvalproduktina toodetud mustas leelises [12]. Kuid sellest potentsiaalset väärindati ära vaid 265 tuhat tonni ligniini, ülejäänud läks tehaste energia vajaduse rahuldamiseks. Antud hetkel on tööstuslikus mastaabis kasutusel kaks peamist patenteeritud protsessi ligniini eemaldamiseks mustast leelisest:

- LignoBoost®
- LignoForce™

Sulfiit-protsess käigus toodetakse sulfoonitud ligniini (lignosulfontaate), mis on kõige levinum kaubanduslikult saadaolev ligniini. See põhineb puidumassi keetmisel vääveldioksiidi vesilahusega, millele lisatakse reaktsiooni lõpule viimiseks kas kaltsiumi, naatriumi, magneesiumi või ammoniumi. Lignosulfontaadid sisaldavad märkimisväärset hulgal väävlit – keskmiselt 4-8%. Lignosulfontaadid on erinevalt kraft ligniinist vees lahustuvad. Nende keskmine molaarmass on suurem kui kraftligniiniil [13]. Tasub ära märkimist, et tavaliselt on need aga saastunud tselluloosi tootmisel ja taaskasutamisel kasutatud kationidega. Nende reaktsioonivõime sõltub teatud määral kationist. Kaltsiumi- ja ammoniumipõhistel toodetel on vastavalt madalaim ja kõrgeim reaktsioonivõime, samas kui naatriumi- ja magneesiumipõhistel lignosulfontaatidel on keskmine reaktsioonivõime [14].

2.2.2 Väävlivabade ligniinide tootmine

Väävlivabad ligniinid on viimasel kümnendil esile kerkinud ligniini klass, millel on pärast fraktsioneerimisetappe madalam molekulaarne suurus. Nende ligniinide struktuur on lähedane looduslike ligniinide omale. Nende suur puhtus ning omadused muudavad need atraktiivseks fenooli või aromaatsete ühendite allikaks [9]. Just aromaatsete ühendid osakaal ligniinis muudab selle asfaltsegude jaoks atraktiivseks materjaliks. Väävlivabad ligniinid võib jagada kahte põhikategooriasse – orgaaniliselt lahustatud ligniinid (organosolv ligniin) ja leeliselise ehk tugeva alusega reageerides saadud ligniin (soda/alkali ligniin) [9].

Lisaks on välja töötatud mitmesuguseid alternatiivseid ligniini isoleerimise protsesse, nagu hüdrotermiline (hydrothermal), auruplahvatus (steam explosion), ioonsete vedelikega eraldamine (ionic liquids), ensümaatilise eraldamine (enzymatic), hüdrolüüsi meetod. Kahjuks erinevatel põhjustel ei ole õnnestunud neid veel tööstuslikuks või suuremahuliseks rakendamiseks kasutada [15]. Kuid tehakse suuri jõupingutusi leidmaks uusi lähenemisviise innovatiivsete tehnoloogiate leidmiseks ning olemasolevate arendamiseks.

Üheks tehnoloogia arendajaks on Eesti ettevõtte, mis on ka ühtlasi maailma suurim pelleti tootja AS Graanul Invest, kelle tütarfirma Fibenol (endine Graanul Biotech) Sweetfoodsi projekti raames on loonud Imaverre puidurafineerimis demotehase, mis ühe produktina toodab ka kõrgkvaliteetset ligniini.

2.3 Ligniinide omadused

Antud peatükis toon välja erinevalt produtseeritud ligniinide põhilised omadused.

2.3.1 Kraft ligniin

Kuigi kraft ligniini täpne keemiline struktuur sõltub suuresti töötlemis- ja isoleerimistingimustest ning kasutatavast lähteainest, võib välja tuua mõned ühised omadused. Üldiselt saadakse kraft ligniin happelise sadestamise protsessi kaudu mustast leelisest. Niiskussisaldus materjalis on võimalik kuivatamisega viia kuni 2%-ni, selle väävlisisaldus on vahemikus 1-2%, sellel on kõrge puhtusaste (>90% Klasoni ligniinisalduse põhjal), M_w vahemikus 1000-5000 (g mol^{-1}), jääktuha sisaldus 2-6% ja [OH] fenoolisisaldus vahemikus 2,6-4,5%. Sulfonaatrühmad puuduvad ja seetõttu ka need ligniinid lahustuvad ainult leeliselises vesilahuses ($\text{pH} > 10$). Kraft ligniin on tugevalt kondenseerunud, st. omab palju alamstruktuure, mis on ühendatud C-C-sidemetega (süsink-süsink) ja puuduvad algupärased sidemed, mis takistab ulatuslikult selle (kontrollitud) depolümeerisatsiooni. [16].

2.3.2 Lignosulfonaadid

Lignosulfonaatide omadused sõltuvad samuti biomassi lähteainest. Lehtpuu puidust saadud lignosulfonaadi kaalutud keskmine molekulmass (M_w UV-tuvastusega) on 7200-11000 g mol^{-1} dispersiooniväärtustega 3,0-5,3, samas kui okaspuu lignosulfonaadi M_w on 35 000-50 000 g mol^{-1} , dispersiooniväärtustega 8,2-12,3 [17]. Jääktuha sisaldus 4-8% ja [OH] fenoolisisaldus vahemikus 2,0-2,5% [16]. Sellel on madal kuni keskmine puhtuseaste (ligniinisaldus alates 75%). Lignosulfonaadid on vees lahustuvad [18].

2.3.3 Leeliselised ligniinid (soda/alkali)

Nagu kraft ligniinid, on ka leeliselised ligniinid tugevalt kondenseerunud st. omab palju alamstruktuure, mis on ühendatud C-C-sidemetega ja neil puuduvad algupärased sidemed. Sellel tehnilisel ligniinil on mõõdukas puhtusaste, M_w on vahemikus 2000–10 000 g mol^{-1} , jääktuhasisaldus on 2–6% ja [OH] fenoolisisaldus on vahemikus 2,0–5,0%; väävel puudub ja kõige levinumad funktsionaalrühmad on metoksürühmad, mis on teevad sellest hea tooraine fenoolvaikude ja muude erinevat tüüpi bioplastide ja biokomposiitide sünteesiks [16].

2.3.4 Organosolv ligniin (orgaanilise lahustiga eraldatud)

Organosolv ligniin on madala molekulaarmassiga $M_w=1000-5000 \text{ g mol}^{-1}$, suhteliselt madala dispersiooniga, väävlivaba ja madala tuhasisaldusega (<1%). Võrreldes kraftligniini ja lignosulfonaadiga on see ligniin hüdrofoobsem ja sellel on madalam klaasisiirdetemperatuuri. Seda kasutatakse kõrge väärtusega biokeemiliste toodete jaoks, nagu elastomeerid, süsinikkiud, polüuretaanid, polüestrid, kattevaigud ja sideained [16].

2.3.5 Steam explosion ligniin (kõrgtemperatuuril ja -rõhul eraldamine)

See ligniin sarnaneb algupärasele taimsele ligniinile rohkem kui teised tehnilised ligniinid, hoolimata sellest, et tegemist on endiselt väga erineva ligniiniga võrreldes taimedes sisalduva ligniiniga. Võrreldes teiste tehniliste ligniinidega on keemilisi struktuurimuutusi vähem tänu leebematele protsessitingimustele. Suhkrusisaldus on vahemikus 2,4-4%, Tänu mõõdukale ekstraheeritavatele jääkainete kogusele ning väävli puudumisele või väga väikesele väävlisisaldusele (<0,5%), on võimalik seda töödelda katalüüsi teel ilma katalüsaatorit kahjustamata. M_w on vahemikus 3500–15 000 g mol^{-1} , jääktuhasisaldus on 5-8% ja [OH] fenoolisisaldus vahemikus 4,7-7% [16].

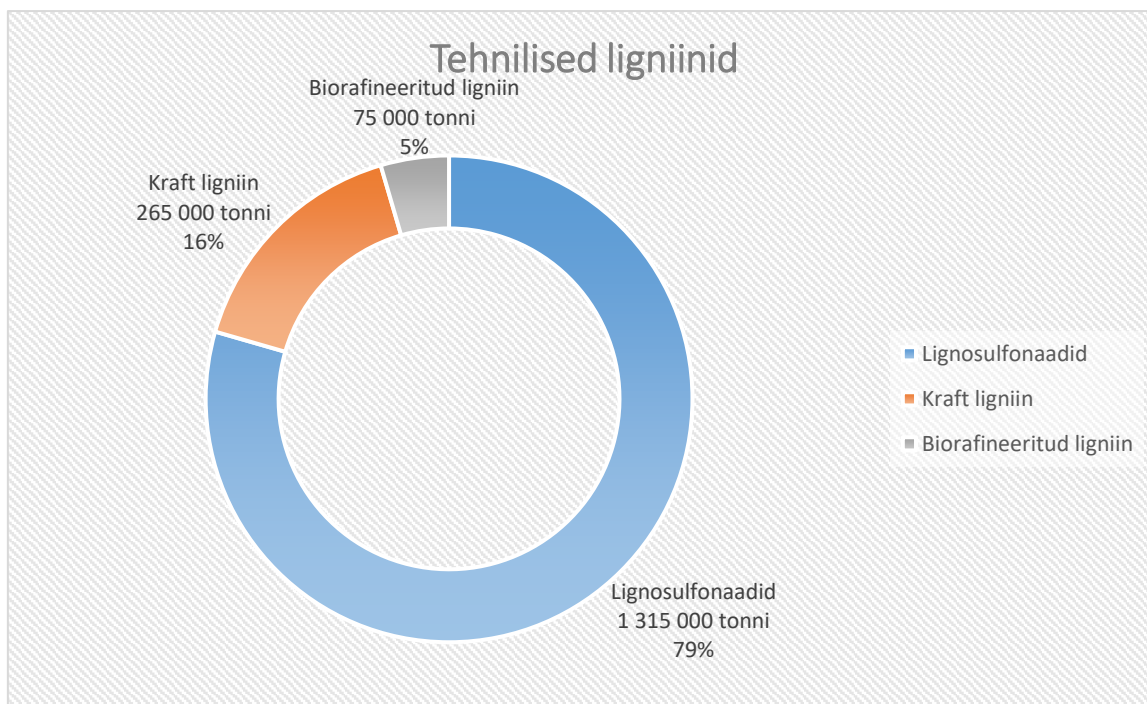
2.3.6 Happelise hüdrolüüsi ligniin (acid hydrolysis)

Happelise hüdrolüüsiga ligniini molekulaarmass on vahemikus 2000–5000 (g mol^{-1}), omadused olenevalt tugevalt eeltöötamise tüübist. Väävlisisaldus vahemikus 0–1%, jääktuhasisaldus on 1–3% ja [OH] fenoolisisaldus on vahemikus 3,0–9,0%, madala kuni keskmise puhtusega. Võrreldes teiste tehniliste ligniinidega on selles suurem hulk metoksürühmi (ligi 19%), mis teeb selle eriti sobivaks erinevat tüüpi polümeeride sünteesiks [16].

2.4 Ligniini kasutus ja potentsiaal

2.4.1 Tootmismahud

Tehnilise ligniini kommertstoodang (va. energia tootmine) maailmas on kokku ligikaudu 1,65 miljonit tonni aastas, millede hulgas domineerivaks on lignosulfonaadid, mille osakaal turust on 79% ehk kogutoodanguga 1,315 miljonit tonni [19].



Joonis 2.2: Tehnilise ligniini tootmine 2018. aasta seisuga [19]

Lignosulfonaatide kõrvale aga tasub ära märkida, et vahemikus 2014-2018 kasvas kraft ligniini tootmine 150%. Kuigi on näha ka tulevikus kraft ligniini tootmismahude suurenemist, siis jääb see lühi- ja keskpikas perspektiivis siiski bioenergia allikaks kraft tehnoloogial töötavatele tehastele, kust ülejääv ligniin suunatakse biokemikaalide ja biomaterjalide valmistamiseks [19]. Ligniini esiletõusu oodatakse vahemikus 2023-2028 [20].

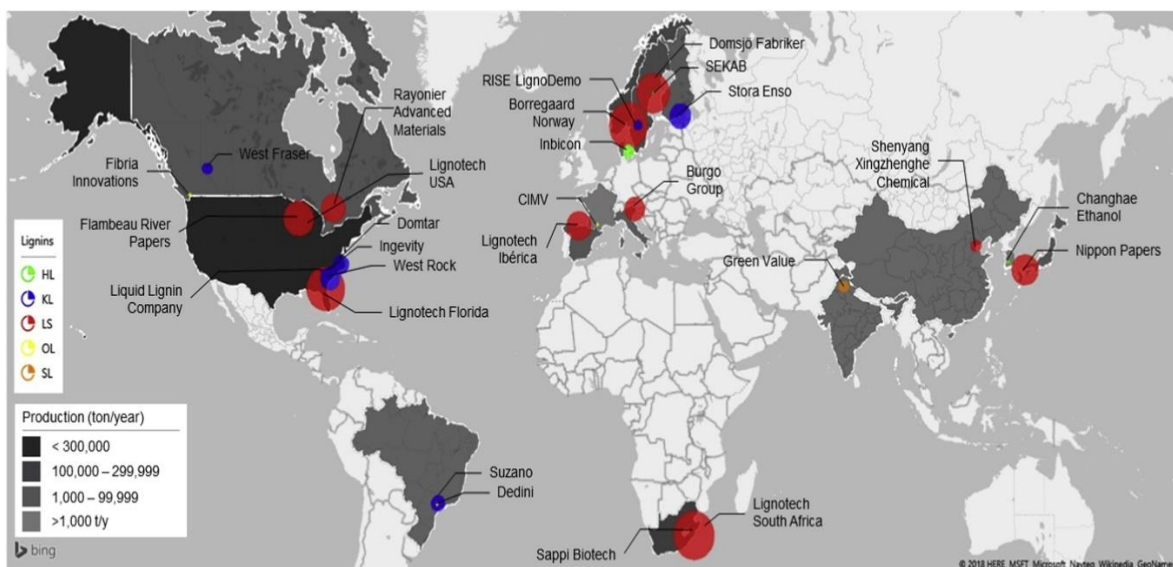
Erinevate turuanalüüside põhjal võib välja tuua 3 eeldatavat trendi:

- Euroopalt oodatakse maailmaturu domineerimist, kuna Euroopa riikide eestvedamisel toimub nii teadus- ja rakendustöö. Rahastus on tekkinud tänu karmistunud regulatsioonidele ning kliimaneutraalsuse poole pürgimise, mis omakorda on tekitanud nõudluse biopõhiste materjalide ning süsinikneutraalse tootmise järele.
- Hiina turu kasvu eeldatavaks põhjuseks peetakse ligniini kasvavat rakendamist sideainete tootmises; säilitusainetes; dispergantides. Antud tooteklasside toormaterjalide peamiseks tarnijaks arenenud maadesse on Hiina ning sellest tulenevalt sunnivad regulatsioonid ning Euroopa kliimaneutraalsuse siht Hiinat tootma materjale/aineid, mida on võimalik turustada arenenud riikidesse.

Joonis 2.3 tutvustab ligniini tootmist kogu maailmas, vastavalt riigi ja ligniini tüübi järgi. Ringiga tähistatud alad on proportsionaalsed ettevõtte toodetud ligniini kogusega ja värvid vastavad ligniini tüüpidele [21]:

- (HL) happelise hüdrolyüsi ligniin ehk inglise keeles acid hydrolysis
- (KL) kraft ligniin
- (LS) lignosulfonaadid
- (OL) orgaanilise lahustiga eraldatud ehk inglise keeles organosolv ligniin
- (SL) leeliselised ligniinid ehk inglise keeles soda/alkali

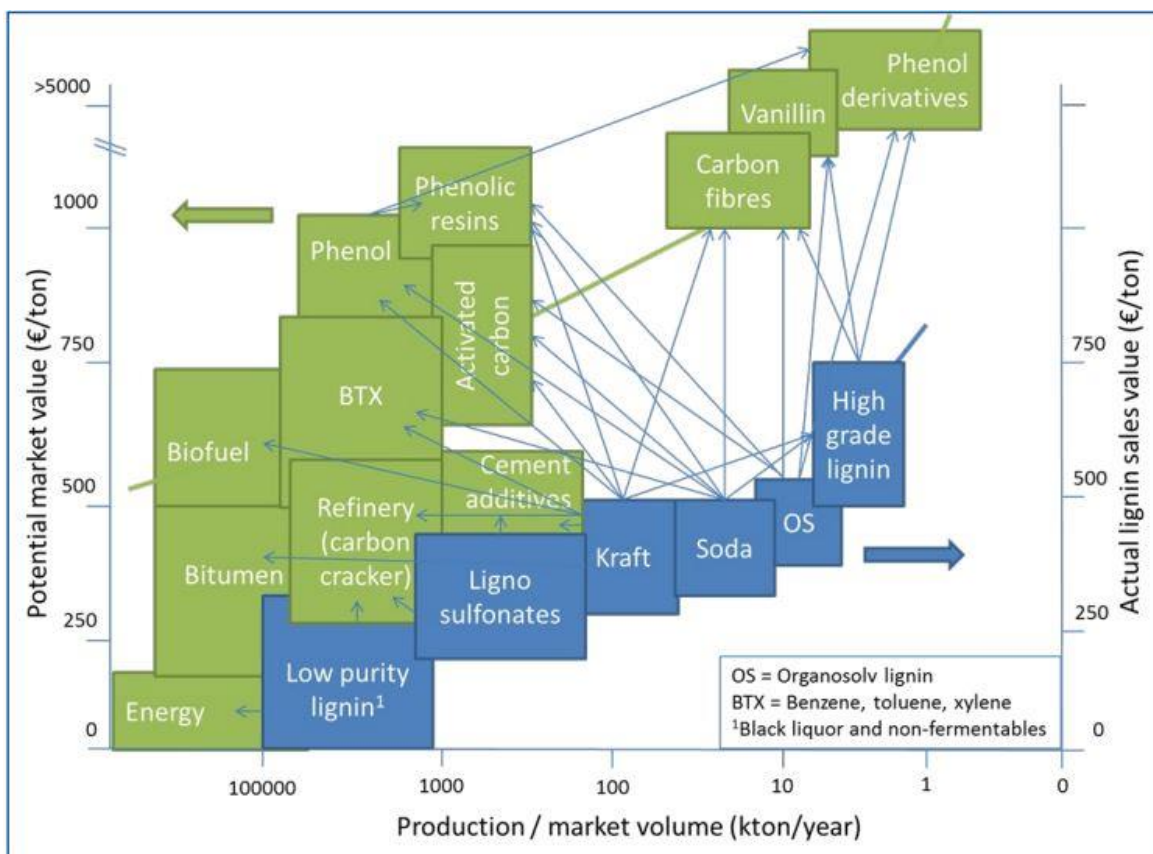
Ameerika Ühendriigis paiknevad ettevõtted on peamised ligniini tootjad, kuid nende ettevõtete enamusosalused kuuluvad Euroopas registreeritud ettevõtetele. Põhja-Euroopa riigid koondavad erinevat tüüpi ligniini tootmist [21].



Joonis 2.3: Suuremad tootjad ning toodetav ligniini liik [21]

2.4.2 Kasutus

Ligniini toksilisuse puudumine ja mitmekülgus loob sellele palju erinevaid potentsiaalseid tööstuslikke rakendusviise. Üldiselt võib ligniinirakendused jagada madala või keskmise väärtusega ja kõrge väärtusega rakendusteks vastavalt nende hinnale. Joonis 2.4 kirjeldab peamisi ligniini liikide hinnangulisi maksumusi, turumahtu ning sellest saadavaid tooteid.



Joonis 2.4: Hinnangulised ligniini ja sellest saadavate saaduste hinnad [16]

On olemas rohkesti teaduskirjandust ja patente, mis kirjeldavad ligniini rakenduste mitmekesisust. Ligniini põhiste ühendite levinumad kasutusala on välja toodud Tabel 2.1, mis loetleb peamised biopõhised tooted, mida saab toota ligniinidest, koos tootmistehnoloogiate, sihtturu sektorite, eelistatud ligniini toorme ja TRL-iga [16]. TRL näitab tehnoloogia kasutusküpsust (ehk inglise keeles Technology Readiness Level ning hinnatakse vahemikus 1-9)

Tabel 2.1 Põhilised ligniinist saadavad tooted ning selleks kasutatav ligniinitüüp ning kasutusvaldkond ning kasutusküpsust [16]

Põhirühm	Toote-kategooria	Toode	Kasutusvaldkond	Ligniini-tüüp	TRL
Polümeersed materjalid	Dispergeerivad ained	ligniini asfalt	ehitus	LS;KL	5
		betooni lisandid			5
		puurimislahus	naftatööstus	LS	5
		põllumajandus kemikaalid	põllumajandus	LS;KL	7
		värvid	tekstiili- / kosmeetikatööstus		
		carbon black akude elektrootodid	autotööstus		
	Fenoolvaigud	paneelid	ehitus / mööbel		8
		vineer, laminaat	ehitus / mööbel		
		toidu pakendid	pakendid		
	Polüuretaan	vahud	ehitus / mööbel / autotööstus	LS;OL;SL	6
		paneelid	ehitus		
		kattematerjalid	ehitus / elektroonika		
		kummi asendaja	tekstiilitööstus		
	Segud koos polüetüleeni (PE), polüpropüleen (PP), Polüetüleentereftalaatiga (PET) jne.	displayd	elektroonika		9
		kattematerjalid, plastik	toidutööstus / põllumajandus		
Elektrokemikaalsed kasutused	Energiasalvestid	lisand elektrootodid, flow-akud, superkondensatorid	ehitus / autotööstus	LS	5
BTX (benseen; toluen; ksüleen)	Kemikaalid	lahustid, monomeerid, kütused	keemia- / autotööstus / transpordisektor	KL (biomass)	4-6
Kütus	Süsivesinikud	autokütused	autotööstus / transport	KL;OL;SL (Biomass)	5
		lennuki kütused	lennundus/ transport		5
	Aromaatsete ühendite rikas pürolüüsõli		rafineerimistehased		5
	Syngas (CO, H ₂ , CH ₄)		energiasektor		9

Põhi- rühm	Toote- kategooria	produkt	kasutusvaldkond	Ligniini- tüüp	TRL
Süsinik- kiud	Süsinikkiud		autotööstus	KL;OL;SL	5
Aktiivsüsi / biosüsi	Lisandid	pinnaste omaduste parendamine	põllumajandus	LS:KL:OL SL	6-8
Aromaatsed monomeerid	Kinoonid	lahustid, polümeersed ehitusplokid	keemiatööstus	KL;OL;SL	3-5
	bensüülaldehüüdi d	lahustid, polümeersed ehitusplokid	keemiatööstus		5
	fenool	lahustid, polümeersed ehitusplokid	keemiatööstus		5-7
	aromaatsed alkoholid	lahustid, polümeersed ehitusplokid	keemiatööstus		5
	vanilliin	maitseaine	toidutööstus	LS	9
Orgaanilis- te hapete segud	lühikese ahelaga happed	lahustid, polümeersed ehitusplokid	keemiatööstus	KL;OL;SL	5

3. LIGNIIN TEEDEEHITUSES – KATSETUSKOGEMUSED

ÜLE MAAILMA

Ligniini on soovitud juba aastakümneid kasutada bituumensideaine asendajana või modifikaatorina ning seetõttu on ka teemakohast kirjandust suurel hulgal. Kuid takistuseks on saanud bituumeni odav hind võrreldes ligniiniga, mis on pärssinud liikumist laboratoorsetest katsetest edasi reaalsete katselõikudeni. Tänapäevaks on olukord muutunud.

Antud peatükis tuuakse eraldi välja tööde, mida on teostatud vaid laboritingimustes ja projektid, kus on jõutud ka katselõikude paigaldamiseni.

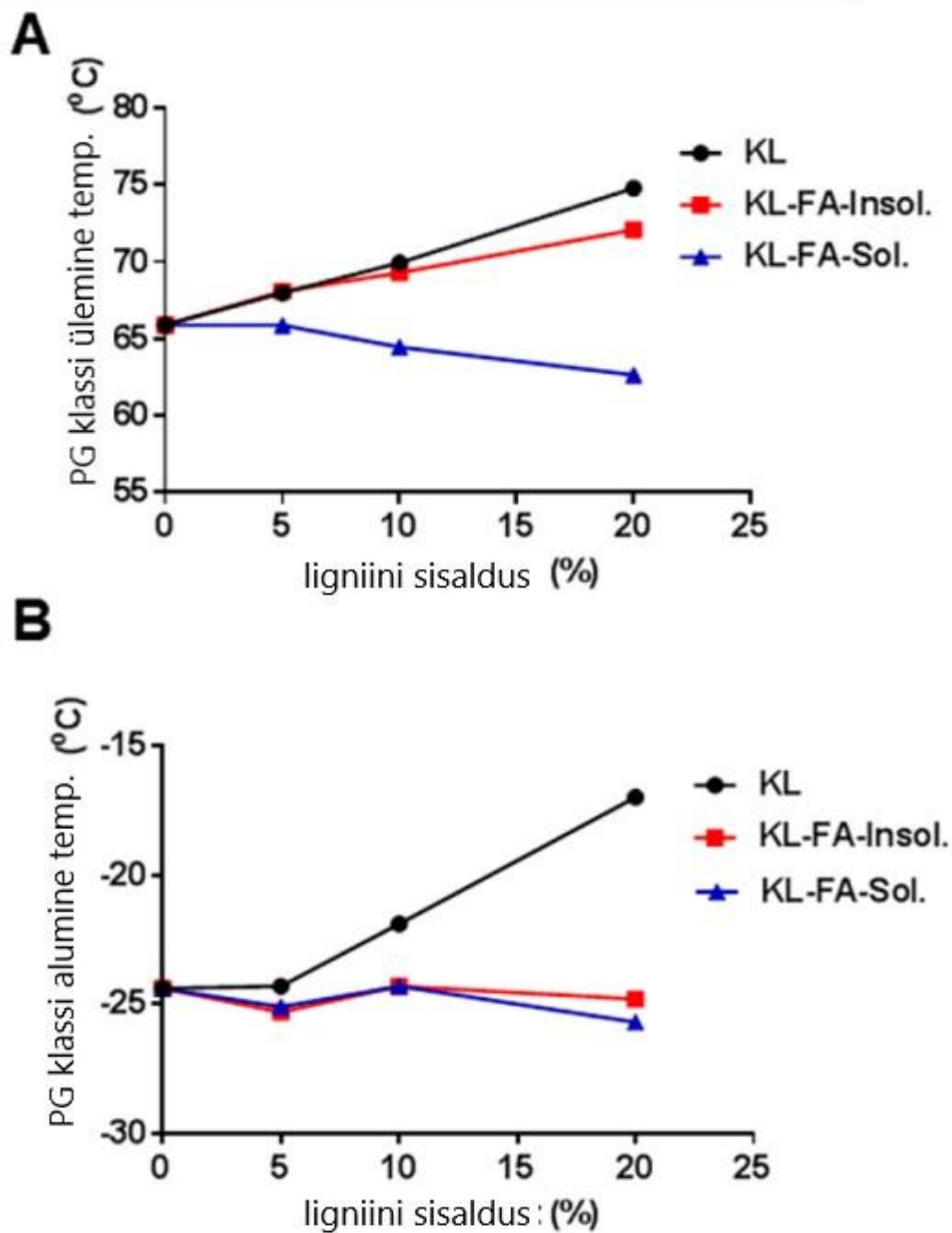
3.1 Laboratoorsed tööd

Antud alapeatükis on ülevaatlilikud väljavõtted teadusartiklitest, kus on kirjeldatud laboratoorseid katsetusi, mis on teostatud bituumeni asendamiseks ligniiniga.

T. Pan väitis, et koniferüülalkoholi monomeer ligniinis saab edukalt kasutada bituumeni antioksidandina, kuid ligniini oksüdeerumise vältimiseks tuleks bituumeni ja ligniini segamisel siiski kontrollida temperatuuri ning hoida seda alla 130 °C [22].

Vastavalt Xu seisukohale, kui puidust saadud ligniinipulbrit (ei selgu, mis tüüpi ligniiniga tegu, kuid eeldatavasti lignosulfonaat, kuna väevli sisaldus 4% ning keskmine molekulaarmass 10 000 g mol⁻¹) segada puhtasse bituumenisse 5% või 10% ligniini, siis kaasneb sellega modifitseeritud sideaine jäigastumine. Samuti kirjeldasid autorid ligniiniga modifitseeritud bituumeni paremat vastupanu roobaste tekkele kõrgetel temperatuuridel, paranenud vananemisomadusi ja halvemat väsimuskindlust [4].

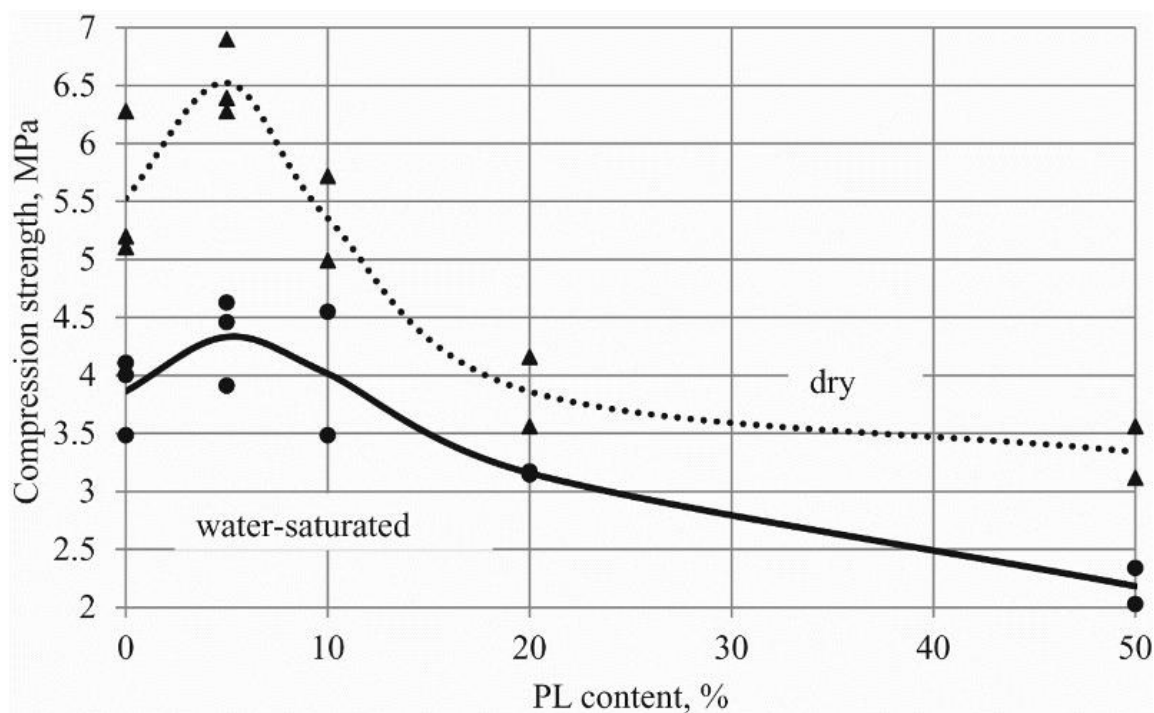
Xie jt. jõudsid seisukohale, et kraft ligniiniga modifitseeritud bituumen vähendab roopa tekkimist, kuid suurendab temperatuuripragude teket madalatel temperatuuridel. Lisaks leidsid nad, et mõned ligniinifraktsioonid parandasid modifitseeritud bituumeni Performance Grade'i temperatuurinäitajaid ja vananemisomadusi (Joonis 3.1) [23].



Joonis 3.1 Bituumeni Performance Grade klasside jaotus erinevalt fraktsioneeritud ligniinide lisamisest vastavalt lisamise protsendile. *KL - töötlemata kraft ligniin; *KL-FA-Insol. - veeslahustumatu fraktsioon peale kraft ligniini sipelghappega töötlemist; *KL-FA-Sol. - veeslahustuv fraktsioon peale kraft ligniini sipelghappega töötlemist [23]

Batista oma meeskonnaga järeldasid, et bituumen, millele on lisatud 1%, 4% või 6% ulatuses kaubanduslikku kraft ligniini, viis modifitseeritud sideaineteni, millel on kõrgetel temperatuuridel väiksem roopa tekkeoht, väiksem tõenäosus temperatuuripragudele madalal temperatuuril ja suurem vastupidavus fotodegradatsioonile [24].

Zabelkini uurimisrühm tuvastas, et pürolüütilist ligniini sisaldavas sideaines toimub oluline (ka korduvalt reprodutseeritav) mahu suurenemine temperatuuril 100–140 °C. 15%-lise pürolüütilise ligniini sisalduse juures – oli mahu suurenemine 38% esialgsest mahust. See võib seega vähendada asfaltbetooni tootmisel vajalikku sideaine kulu kuni 4 korda ja võimaldab alandada töötlemistemperatuuri. Samuti leiti antud uuringus, et modifitseeritud asfaltbetooni omaduste uurimise tulemused näitavad, et pürolüütiliselt töödeldud ligniini kasutamise soovituslikuks piirmääraks on kuni 5%. Tuvastati ka, et pürolüütilise ligniini kasutamine suurendab asfaltbetooni survetugevust [25].

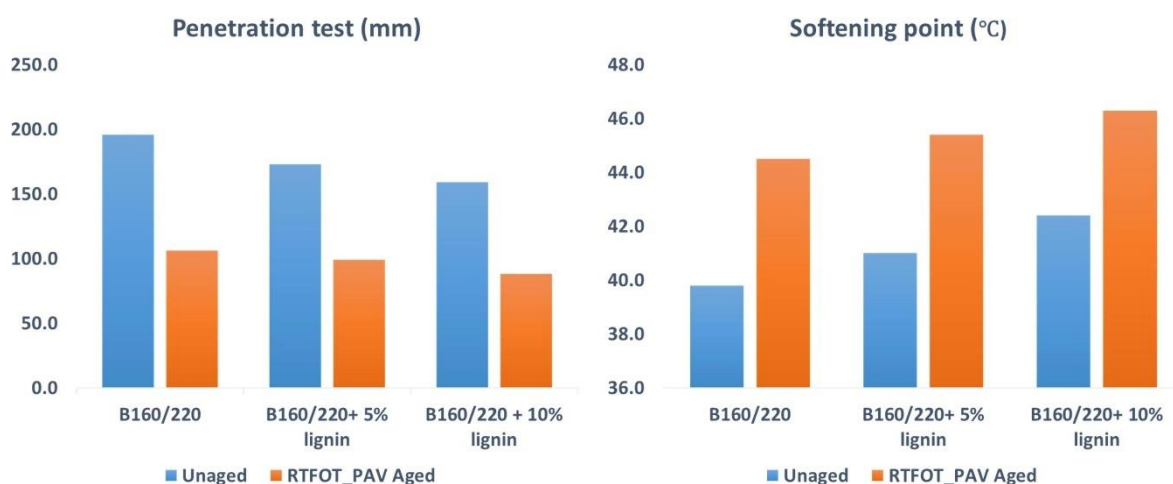


Joonis 3.2: Modifitseeritud asfaltbetooni kuivade ja veega küllastunud proovide survetugevuse sõltuvus komposiitsideaine pürolüüs ligniini sisalduse protsendist [25]

Gao jt. analüüsisid 2%, 4%, 6% ja 8% hakkpuidujäätmetest pärit ligniiniga (ilmselt on tegemist lignosulfonaatidega) modifitseeritud bituumeni PG 58–28 reoloogilisi omadusi ja väsimust kõrgel temperatuuril. Täheledatai paranenud vastupidavust jäävdeformatsioonile ja aeglustunud oksüdatsioonireaktsioone. Ligniini lisamine suurendas bituumeni viskoossust, kuid see siiski vastas USA vastavatele viskoossus nõuetele. Teiseks välja toodud faktiks oli see, et ligniin muutis sideaine jäigemaks ja parandas deformatsioonitaluvust kõrgetel temperatuuridel.

Ligniini lisamine asfaldisse võib aeglustada oksüdatsioonireaktsioone, kuid võib halvendada bituumeni väsimuskindlust, aga kui lisatud ligniini sisaldus oli alla 8% oli vähenemine marginaalne [26].

Norgbey meeskond kasutas bioetanooli tehasejääke (eraldasid sellest ligniini) bituumenis nii modifikaatorina kui ka asendusainena. Baasbituumenina kasutati teebituumenit margiga 160/220. Nad leidsid, et ligniiniga modifitseeritud bituumenil on suurem viskoossus, parem täitematerjali ja sideaine nakkuvus ja parem roopakindlus, samuti toodi välja, et ligniinisisalduse suurenemine korreleerub penetratsiooni vähenemisega (vt. Joonis 3.3), mida võib tõlgendada kui materjali jäigastumisena. Tulemustest järeldus ka väsimuskindluse vähenemine ligniini lisamisega. Üllataval kombel ei täheldatud madalatel temperatuuridel olulist pragunemist [27].



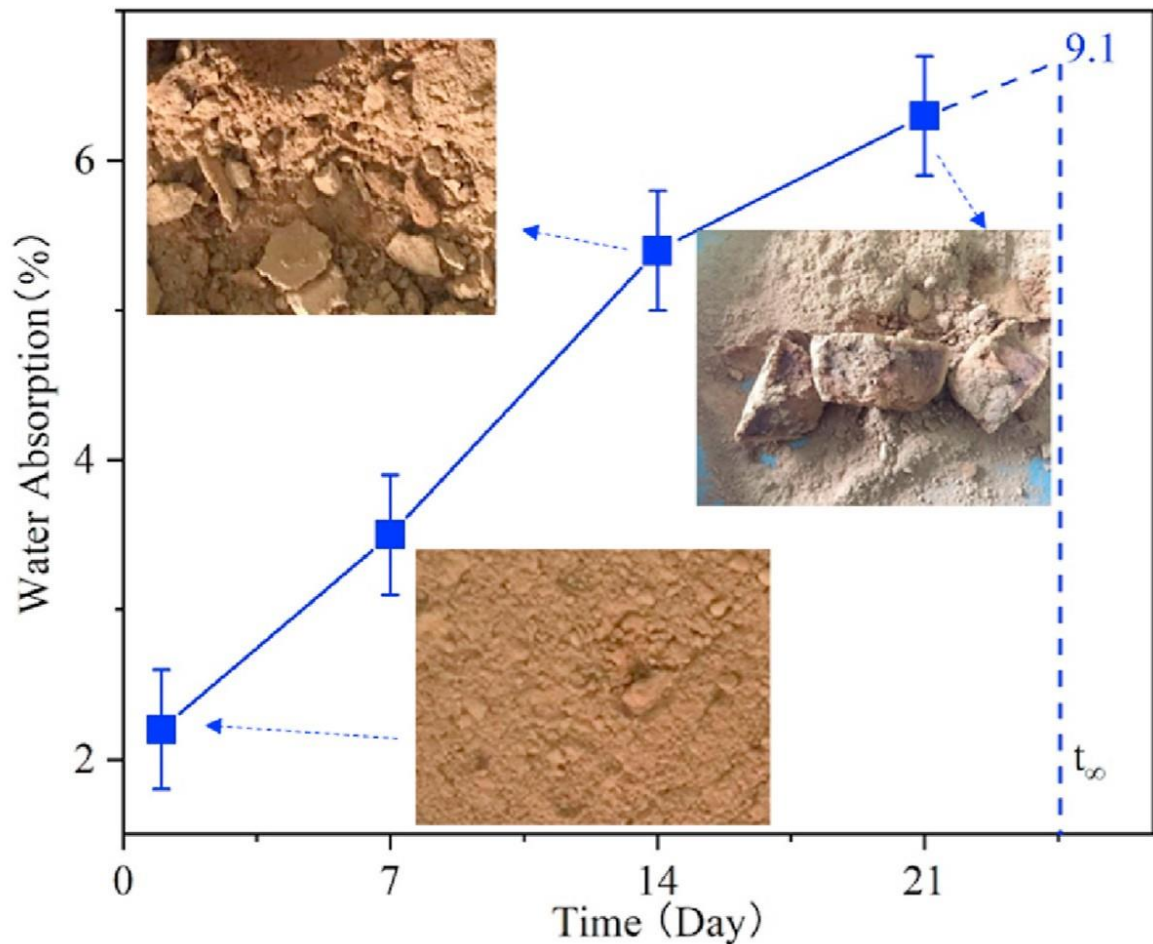
Joonis 3.3: peamised bituumenile määratavad omadused, nimelt penetratsioon ja pehmenemistäpp [27]

Pengi tiim leidis, et ligniinipõhise polüuretaaniga on võimalik parandada bituumeni nakkeomadusi ehk neil õnnestus läbi bituumeni modifitseerimise parandada täitematerjali katvust sideainega [28].

Yu jt. väitsid, et 5%, 10%, 15% ja 20% ligniinipulbriga (nende väitel oli tegemist sooda ligniiniga, kuid mina defineeriks antud ligniini siiski lignosulfonaadiks, sest puhtuseaste oli 72%) modifitseeritud asfaldisideainetel oli suurem väsimuskindlus ja roopakindlus. Kasutatud bituumeni penetratsioon oli 60/70. Autorite doseerimissoovitus on vahemikus 10-20% ning optimaalseks peavad 15% [29].

Wu jt. kasutas tselluloosi- ja paberitööstusest pärit ligniini (enne lisamist, viidi eeltöötlemisega puhtuseaste 96%-ni) bituumeni asendusainena massisuhtega 1:4 (20% ligniini) ning täheldati, et ligniini lisamine muutis bituumeni kõvemaks, millele viitab penetratsiooni ja elastsuse vähenemine ning pehmenemistäpi ja kompleksmooduli tõus. Vananemiskindluse vähenemist lühikeses perspektiivis, aga pikema aja vältel täheldati

selles paranemist võrreldes bituumeniga. Ligniini kasutamisel asendusainena on vaja tösta segamistemperatuuri, et parandada töödeldavust. Üldiselt hindasid nad enda segamisprotseduuri heaks, segregeerumine toimus pikema aja vältel – ehk peale segamist saavutati ühtlane segu ilma segregeerumiseta. Pikema ajaliseks säilivuse parandamiseks lisati polüetüleenglükooli (PEG). Samuti uuriti ligniini veemavust, mille tulemusi on Joonis 3.4 võimalik hinnata. [30]



Joonis 3.4: Ligniini veemavus tulemused [30]

Hobson analüüsis kahte kaubanduslikku ligniini (okas- ja lehtpuidust) kui asfaltsegudes (HMA e. Hot-Mix Asphalt) antioksidante, jõudes järeldusele, et selle uuringu tulemused ei toeta teooriat, et ligniin toimib asfaltsegudes antioksidandina. Sellegipoolest kasutas ta ligniini peene täitematerjalina, mitte ei lisanud seda bituumenile enne segamist [31].

Hobsoni välja toodud leiud ligniini sisaldavate ja kontrollsegude vahel [31]:

- Erimass (Gmm) – Erinevused puuduvad
- Jäävpoorsus (Va) – Ligniini segudel väiksemad (ilmselt tingitud suuremast sideaine kogusest)
- Hamburgi Wheel Tracker (HWT) katseandmed - Puuduvad ilmsed erinevused
- Sideaine penetratsioon - Kõik ligniinisegud on kõvema konsistentsiga (jäigemad)
- DSR-i testiandmed - Kõik ligniin segud jäigemad
- Viskoossus temperatuuril 60 °C - Ligniini segudel oli suurem voolamiskindlus (jäigemad)
- BBR-testi andmed (-12 °C juures) - Kolm neljast ligniini segust on jäigemad ja üks sama.

Yuliestyani meeskond katsetas keemiliselt modifitseeritud kraft ligniini katioonse emulgaatorina bituumenemulsioonide jaoks, seda lisati sooja asfaltsegusse (HWMA – half warm mix asphalt), mis oli valmistatud 100%-liselt regenereeritud asfaltkattest (RAP – re Claymed asphalt pavement). Antud lähenemine võimaldab oluliselt vähendada CO₂ eraldumist tootmis- ja ehitustegevuste käigus. Vaatamata segu headele mehaanilistele omadustele ei võrrelnud nad seda tavalise bituumenemulsiooniga valmistatud soojade segudega [32]. Seejärel avaldasid Yuliestyan jt. jätku-uuringu, milles tõdeavad, et 100% RAP täitematerjalist valmistatud HWMA segud, mille bituumenemulsioonis on kasutatud modifitseeritud ligniini vastavad Prantsusmaal ettenähtud nõuetele. Segusid segati 80–130 °C juures [33].

Pérez jt. analüüsisid võimalust kasutada puitkiudplaaditööstuse ligniinirikkaid tööstusjäätmeid kuumades asfaltsegudes bituumeni asendajana. Nad katsetasid segusid, milles asendasid 5%; 10%; 20%; ja 40% bituumenist ning samuti segati kontrollsegu 0% ligniini sisaldusega. Nad jõudsid järeldusele, et optimaalne asendusmäär oli 20% bituumeni massist. Antud määr parandas bituumensegude veetundlikkust ligniini lisamise ja bituumeni vahutamise tõttu. Samuti tegid nad jätkuuring, kus nad keskendusid modifitseeritud bituumeni omadustele ja väitsid, et 20% tööstusjäätmete kasutamine parandas modifitseeritud asfaldi väsimuskindlust keskmistel ja roopakindlust kõrgetel temperatuuridel [34]. Edasi on neil eesmärgiks uurida, kuidas jääk käitub segudes kui eemaldada vesi tööstusjäätmetest.

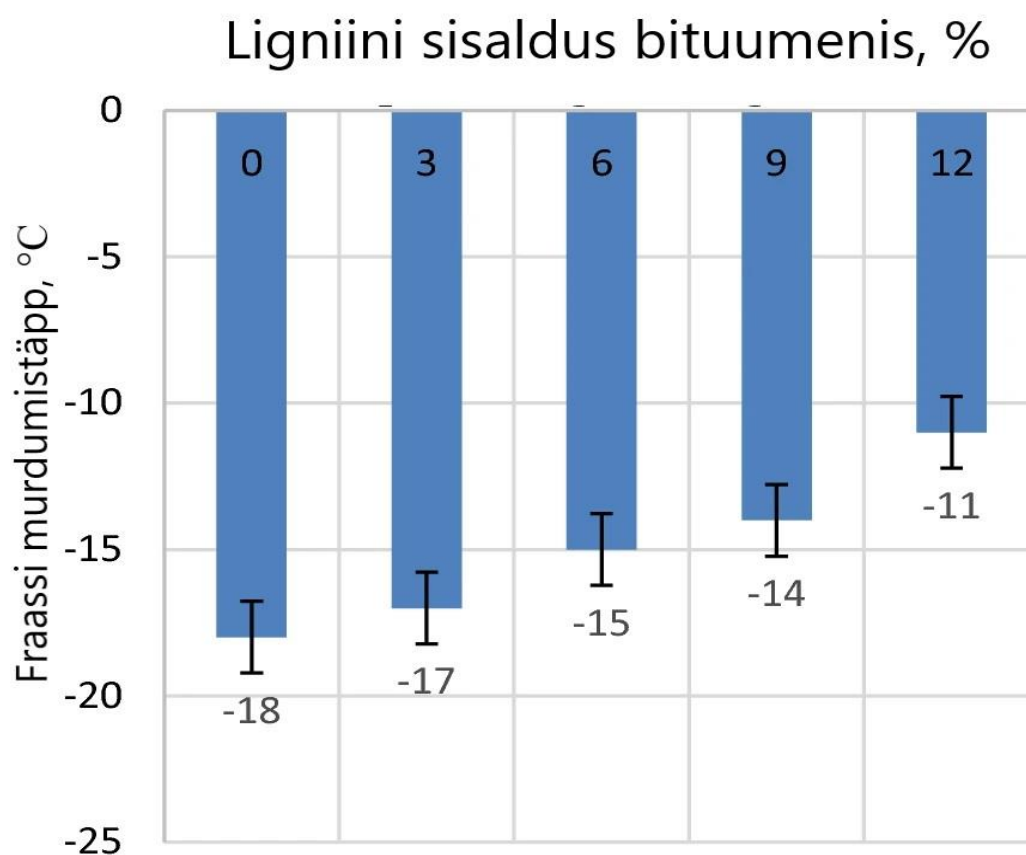
Arafat jt. järeldasid, et 6% ligniini lisamine puhtale bituumenile tõi kaasa kuumalt segatud asfaltsegu parema roopakindluse ja sarnase niiskustundlikkuse. Autorid uurisid ka ligniiniga modifitseeritud bituumeni käitumist ja jõudsid järeldusele, et sellel on pikaajaline vananemist parandav toime. Nad katsetasid kokku 3 sorti ligniini (vt. Joonis 3.5) – esimese puhul oli tegemist tavalise mustast leelisest saadud kraft ligniiniga, teise puhul oli tegemist sisseostetud kraft ligniiniga ning kolmas saadi kui lahustati ligniin välja riisi kestadest [35].



Joonis 3.5 Uuringus kasutatud ligniinid pulbrina [35]

Zhang enda tiimiga katsetas SMA-13 segusid, mida modifitseeriti kahel erineval meetodil – ühel juhul segati bituumenisse 10% ligniinipulbrit, teisel juhul lisati bituumenit modifitseerimata SMA segule ligniinikiudu, mis moodustas segu kogumassist 0.62%. Nad uurisid segust valmistatud proovikehade lagunemist, roobaste teket, temperatuuritundlikkust, väsimuspragude teket ning niiskustundlikkust. Nad järeldasid, et ligniini pulber parendab kokkuvõttes SMA mehaanilisi omadusi, samas kui ligniinikiudude lisamine pärsib teatud mehaanilisi omadusi. Sellest tulenevalt tuleb ettevaatlik olla kui soovitakse kasutada ligniinikiudu asfaltsegudes. [36]

Zahedi ja ta meeskond järeldas, et kuni 6% ligniini kasutamine parandas testitud kuumsegu Marshalli stabiilsust. Nad kasutasid mustast leelisest ekstraheeritud ligniini, kuumutades seda maksimaalsel temperatuuril kuni 110 °C ning seejärel sõeludes ja jahvatades jäägi. Sideainena kasutati penetratsiooniga 60/70 bituumenit. Nad said töö käigus aru, et alla 3 protsendi ligniini lisamine bituumenile ei mõjuta oluliselt bituumeni omadusi ning selle sisalduse suurendamine üle 3% tõi kaasa penetratsiooni vähenemise ning pehmenemistäpi ja bituumeni viskoossuse suurenemise. Kasutades vähem kui 6% ligniini, ei avalda see olulist mõju bituumeni käitumisel temperatuuril alla 0°C. Küll aga vaadates Joonis 3.6 tuleb välja tuua Fraassi murdumistäpi väärtuse tõus, kui suurendati ligniini sisaldust üle 6%. [37]



Joonis 3.6: Ligniini mõju bituumeni käitumisele madalatel temperatuuridel [37]

Xu ja teised kasutasid kuumsegude tootmisel bituumeni osalise asendajana kahte tüüpi kaubanduslikku ligniini. Nad lisasid 5% ligniini bituumeni massist, mille tulemusena leidsid, et ligniiniga modifitseeritud bituumeniga valmistatud segudel oli suurem vastupidavus niiskuskahjustustele, parem püsivus deformatsioonide vastu ja positiivne mõju vananemisomadustele. [38]

3.2 Katselõikude paigaldamiseni jõudnud uurimistööd

Antud alapeatükis tuuakse välja kolme riigi projektid, kus on tänaseks päevaks alustatud täiemahuliste ligniini sisaldavate asfaltsegude katsetamisega teedel ja tänavatel. See annab reaalingimustes võimaluse nende segude omaduste hindamiseks ning võrdlemiseks tüüpiliste asfaltsegudega. Need projektid paiknevad Kanadas, Hollandis ja Rootsis.

Kliimaatiliste tingimuste sarnasuse tõttu on väga huvipakkuvad just Kanada ja Rootsi teadmised, sest nende tulemuste põhjal oleks võimalik luua just Eesti tingimustele vastavad seguretseptid vähendades sellega uurimistöösse kulutatavat aega ning rahalisi ressursse. Kuid kindlasti tuleb silma peal hoida ka Hollandis toimuval, kuna nende ligniini sisaldava asfaldi paigaldamise kogemus on kõige suurem. Esimesed katselõigud paigaldati Hollandis juba 2015. aastal ning samuti on nende poolt läbi viidud hulgaliselt laboratoorseid katseid. Tänapäevaks on Hollandis ehitatud umbes 15 ligniinasfalt kattega objekti.

3.2.1 FPIinnovations arendustöö Kanadas

FPIinnovations on mittetulundusettevõtte, mis keskendub Kanada metsandussektori jätkusuutlikusurkuse säilitamisele läbi erinevate teadus- ja arendustegevuste. Nende eesmärgiks on kiirendada Kanada metsandussektori kasvu ning suunata ettevõtteid saavutama paremaid tulemusi, pakkudes neile tipptasemel tehnoloogilisi lahendusi keerukatele probleemidele, mis võimaldaksid metsandussektoril pakkuda oma toormest saadavaid tooteid võimalikult laialdasele tarbijaskonnale. Ühe arendussuunana on nad võtnud eesmärgiks ligniini kasutamise bituumensideaine asendamiseks.

Laboratoorsed katsed

Laboratoorsed katsed viidi läbi *École de Technologie Supérieure*'i (ETS) laborites. Katsetused hõlmasid esiteks optimaalse ligniini-bituumeni suhte leidmist, segamisaega ja -temperatuuri ning segamiseks parima seadme leidmist. Esimesed testi faasid viidi läbi kasutades kraft ligniini, mida saadi *West Fraser Mills*'i tehases, antud ettevõtte kasutab ligniini saamiseks *Ligno-Force*TM tehnoloogiat. Bituumenitena kasutati Kanadas laialdaselt kasutuses olevat PG 58-28 ja vähema kasutust leidvat PG 52-34. Katseid tehti asendades 30%, 20%, 10%, lisaks tehti täiendavaid teste asendades 50% bituumeni mahust ligniiniga. Loomulikult lisaks tehti katsetus 0% ligniini sisaldavate kontrollsideainetega ning kontrollsegudega. Segude lühi- ja pikaajaliseks hindamiseks

viidi läbi testimised, mis käsitlesid viskoossust ning reoloogiliste omaduste mõõtmist kõrgetel ja madalatel temperatuuridel jne. Esiolgsed tulemused näitasid ligniini-bituumeni sideaine väga head homogeensust, mille segamiseks kasutati tavapäraselt bituumeni mikserit temperatuuril 140 °C. Seejärel asuti kogutud info põhjal asfaltsegusid valmistama [39].

Kuumade segude katsetamine keskendus roobaste tekkele, termilisele pragunemisele, segu tihenemisele ja niiskuskindlusele. Tihenemisele tuginedes otsustasid teadlased, et optimaalne oleks segudes kasutada 5% ligniini – kuna suuremal sisaldusel on sel degradeeriv mõju tihenemisele [39].

Laborikatsete järel tõid uuringute läbiviijad välja alljärgneva [39]:

- Ligniini segamiseks bituumenisse ei ole vaja spetsiaalset segamiseadet ning homogeense segu saamiseks piisab 15 minutilisest segamisest.; aga ligniiniga modifitseeritud bituumeni puhul tuleb arvestada kõrgemate segamis- ja tihenemistemperatuuridega.
- Ligniinigal modifitseeritud bituumen ja ligniiniga modifitseeritud asfaldid ei adsorbeerid õhust niiskust.
- Ligniin suurendab bituumeni jäikust.
- Ligniin parandab bituumeni vastupidavust kõrgel temperatuuril ja vähendab roopa teket.
- Ligniinigal modifitseeritud bituumeni käitumine madalatel temperatuuridel oli halvem kui puhtal PG 58-28. Kehtis reegel, et iga asendatud 10% kohta tõusis madala temperatuuri PG ühe kraadi võrra.

Katselõikude seguretsept

Laboratoorsele infole toetudes töötati välja seguretsept, mida kasutati 2021. aasta välikatse katendis. Kulumiskihi seguretsept sisaldas vaid 5% ligniini asendust bituumeni massist. Suhteliselt väikese koguse ligniini lisamise eesmärk on esialgsete välikatsete käigus säilitada rahuldavat töödeldavust ja tagada paigaldatava katendi toimivus. Järgnevate proovilõikudega soovitakse ligniini asendusemäära suurendada, eeldusel, et leitakse lahendused laborikatsetes esinenud küsimustele. Tabel 3.1 illustreerib Kanadas levinud ESG-10 katteseгу modifikatsiooni, mis sisaldab 5% ulatuses kraft ligniini [39].

Tabel 3.1 Välja pakutud ligniiniga modifitseeritud ESG-10 kulumiskihi seguretsept [39]

Materjal	Mass segust (%)
5-10 mm täitematerjal	34,1
0-5 mm pestud täitematerjal	35,1
0-5 mm pesemata täitematerjal	14,2
0-1,25 mm liiv	8,5
Filler	2,8
Bituumen PG 58-28	5,0
Kraft ligniin	0,3

Katselõikude ehitus

Suurema mahuliste katsetustega alustas FPInnovations 2021. aastal ning seda tehti koostöös Laval'i ülikooliga, kelle juures on võimalik katselõike laboritingimustes katsetada – nimelt on ülikoolis loodud simulatsioonkeskkond imiteerimaks raskeveokite mõju katenditele ning konstruktsioonidele. See võimaldab vaid mõne nädalaga simuleerida mitmete aastate jooksul korduvate koormuste mõju konstruktsioonidele. Samuti on seal võimalik tänu temperatuurikontrollisüsteemile mõjutada testitava konstruktsioonile avalduvaid kliimatilisi tingimusi. Laboratooriumi süvend (vt. Foto 3.1) võimaldab vastavalt vajadusele katetasandil reprodutseerida katendi konstruktsioone ning teostada täpset füüsiliste, termiliste ja veetingimuste kontrolli [40].



Foto 3.1 Üks Laval'i ülikooli laboris olevatest konstruktsiooni katsetuskanalitest [41]

Allolevatel piltidel on näha, kuidas antud juhul pandi proovile ainult katendid. Asfaldikihtide alla paigutati mõõtevahendid hindamaks katendi käitumist. Katse koosnes kahest 3 meetrisest lõigust, kuhu paigaldati kahekihiline asfaltbetoon. Ühele lõigule paigaldati tavapärasest modifitseerimata Quebeci linnas kasutusel olevat asfaltbetoonsegusid ja teisel puhul sama skeletiga segusid, kuid milles sisalduvat bituumen asendati osaliselt kraft ligniiniga. Quebecis kasutusel olev base segu nimetuseks on GB20, kihipaksusega 80 mm ning katsetatavas segus asendati 20% bituumeni massist ligniiniga. Surf seguks on ESG-10, kihipaksusega 60 mm, kus asendumääraks valiti 10%. Selle testimise põhjal on inseneridel võimalik ära määrata aastatepikkuse korduva suure liikluskoormuse mõju ligniiniga modifitseeritud asfaltkatte roopa tekkele. Kuid lõputöö kirjutamise hetkeks pole antud katsetulemusi veel avalikustatud [40].

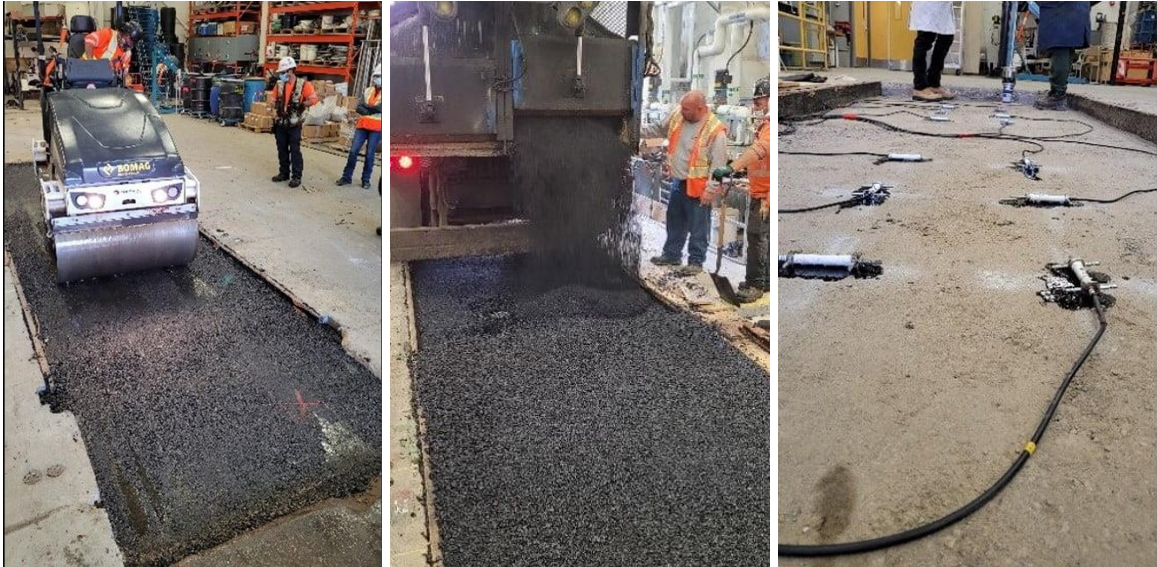


Foto 3.2 Modifitseeritud segude katselõik Lavali ülikoolis [40]

Pärast esimest laboratoorsete katsete etappi viidi lisaks suuremamahulistele laborikatsetele läbi ka katselõikude paigaldamine kolmes Kanada linnas vahemikus 2021. aasta suvi kuni sügis. Nende eesmärk on laboris saadud ligniinipõhise asfaldi potentsiaali kinnitamine või ümber lükkamine. Katselõigud aitavad valideerida ligniinipõhise asfaldi kasutamist mitmesugustes kliima- ja paigaldustingimustes, lisaks pakuvad tegelikke andmeid kasvuhoonegaaside heitkoguste, ehituskulude, segamismetoodika ja ligniinisisaldusega asfaldisegude käitlemise kohta [40]. Selle põhjal on võimalik tulevikus koostada näiteks elukaareanalüüsi ning sellest tulenevalt vajadusel ellu viia vajalikke muudatusi protsessides, mis puudutavad ligniiniga modifitseeritud asfaldite tehnoloogilisi lahendusi alates ligniini optimaalse sisalduse leidmisest kuni võimalikke arusaamadeni, et ligniini sisaldavad asfaltbetoonist katted vajavad spetsiifilist hooldamist vms.



Foto 3.3 Quebeci linnas läbiviidud pilootprojekt, kus asendati 10% bituumenit [40]



Foto 3.4 Sturgeoni maakonnas asendati 5% ligniiniga [40]

Tabel 3.2 FPInnovationsi poolt Kanadas paigaldatud proovilõigud [40]

Asukoht (paigaldusaeg)	Sturgeoni maakond; Alberta (august 2021)	Thunder Bay; Ontario (september 2021)	Quebec; Quebec (oktoober 2021)
Segutüüp	10mmHT	HL4	ESG10
Paigalduspartner	Park Paving	Pioneer Construction	Eurovia
Katselõigu andmed	140 m, 2 rida, 65 mm	215 m, 2 rida, 50 mm	250 m, 1 rida, 50 mm
Sideaine asendusmäär	5%	5%	10%
Muu info	PG58-28 bituumen Tasandusfreesimine ja kulumiskihi paigaldus 10% RAP	PG52-34 bituumen Uus katend	58H-34 bituumen Tasandusfreesimine ja kulumiskihi paigaldus

Igal katselõigul oli lisaks ligniini sisaldavale asfaldisegu lõigule ka tavaliste asfaldiseguga paigaldatud referentslõik. Kõigi kolme koha puhul kestab seire mitu aastat, et hinnata ligniiniga modifitseeritud katete toimivust erinevates kliimatingimustes, lisaks on võimalik Québeci linnas oleval katselõigul vaadelda, kuidas avaldab mõju suur liiklussagedus ja sage talvine teede hooldus [40].

3.2.2 Chaplin (XL) programm Hollandis

Holland on hetkel juhtiv riik maailmas, kus on paigaldatud tänaseks enam kui viieteistkümmel objektile ligniini sisaldavat asfaldi. Eriti märkimisväärne on selle juures - asendusmäär, mis on teadaolevalt kuni 50%. Esimene Hollandi paigaldatud bioasfaldi testlõik, pikkusega 70 meetrit, asukohaga Sas van Gentis. See paigaldati juba 2015. aastal ning asendati pool bituumeni mahust ligniiniga. Kuna ligniinasfaldi tehnoloogias nähti potentsiaali, siis sooviti luua Chaplini (lühend programmi inglise keelsest nimest Collaboration in aspHalt APplications with LIgnin in the Netherlands) nimeline programm sektorite ülese väärtusahela tekitamiseks ning ligniinasfaldi arendamiseks. Tänapäevaks peaks olema lõppenud antud programmi teine faas, mis kandis nime Chaplin XL (XL – eXtra Lignin).

Chaplin (XL) programm on väga hea näide sektorite ülesest koostöö projektist, kuhu on koondatud terve väärtusahel loomaks süstemaatilist tootearendust ning toimivat ärimudelit. Autorile teadaolevalt on projekti eestvedajaks Circular Biobased Delta. Kaasatud on tegevusse Rijkswaterstaat ehk Hollandi Infrastruktuuri ja Veeteede ministreerium ning arvukalt kohalikke omavalitsusi. Arendustegevused on koordineeritud erinevate ülikoolide ja teaduskeskustega: Utrecht ülikool, Wageningen ülikool, TNO uuringukeskus, Q8Research, Roelofs Wegenbouw bv, Praj. Samuti tehakse koostööd mitme asfalditootja ja (teede)ehitus ettevõtetega nagu Dura Vermeer, H4A, NTP, Latexfalt. Lisaks on kaasatud ka teistest sektoritest ettevõtteid, kes tegelevad biotehnoloogia propageerimise ning alternatiivsete lahenduste otsimisega nagu näiteks Biondoil ja Boskalis. Bituumenile lisatava ligniini peamisteks arenduspartneriteks on Vertoro ja Avantium Chemicals BV. Viimane ka toodab antud programmi jaoks ligniini, mis kannab nimetust Avantium Dawn Technology ligniin. Kraft ligniin katsetuste jaoks saadi Stora Ensost. Siinkohal soovib autor märkida, et nimekiri ettevõtetest on ajas muutuv ning koostööpartnereid programmis on kindlasti rohkem kui mainitud.

Chaplin XL eesmärgid:

Chaplin (XL) programmide põhieesmärgiks oli saavutada tööstusliku süsinikdioksiidi heitkoguse vähendamine, kasutades ligniini bituumeni asendajana asfaltsegudes ning arendada edasi algselt väljatöötatud tehnoloogiat kuni TRL tasemeni 6/7 [42].

Lisaks peamisele eesmärgile oli lahti kirjutatud ka väiksemad eesmärgid, mida sooviti täita XL programmi käigus [42]:

- Avantium Dawn Technology ligniini tootmine ja testimine, (2. põlvkonna biorafineerimistehase protsess) modifitseerimata Kraft-ligniini testimine (tavapärasest paberitehasest pärinev) kasutades neid neljas testlõigus.
- Omandada kogemusi ringlusesse võetud asfaldi (freesasfaldi) koostoimivuse kohta ligniiniga nii tootmisprotsessi, kui ka paigaldamise käigus.
- Väiksemõõtmelise katselõigu valmistamine, kus testitakse 50% ligniini sisaldava freesasfaldi, millele on lisatud värsket ligniinsideainet tootmist ja paigaldamist.
- Asfaltsegude ja testlõikude konstruktsiooni katsetamine ning nendele eeldatava eluea määramine.
- Ligniini sisaldavate asfaltsegude tervise, ohutuse ning keskkonnamõjude kindlaksmääramine tootmisel, selle töötlemisel, paigaldamisel ja konstruktsioonis tee ekspluatatsioon vältel.
- Ligniini kasutamisega vähendatud CO₂ heitkoguse määramine ja üksikasjalik biopõhise ja ringlusessevõetava asfaldi jätkusuutlikkuse hindamine võrrelduna tavalise asfaltbetooniga kogu kasutusaja vältel, kasutades elukaareanalüüsi (LCA), tehnomajanduslik hindamine (TEA) ja elutsükli kuluarvestus (LCC).

Chaplin XL programmi tulemid, järeldused ning edasised tegevused

Covid-19 haiguspuhang mõjutas nende tegevust ning sellest tulenevalt pidid nad tegema oma tegevuskavas muudatusi, kuid lõppraporti põhjal võib järeldada, et CHAPLINi peamine eesmärk - saavutada tööstusliku CO₂ vähendamine, kasutades asfaldis bituumeni asendajana ligniini ja edasi arendada asfaltsegusid kuni TRL taseme 6-7 saavutati [42].

Olemasolevate teadmistega on programmis osalejate hinnangul võimalik saada maksimaalselt 50% sideainet asendusmäär ligniiniga, mille tulemuseks on CO₂ kokkuhoid 35-70% katendikihtides ja 25-50% alumiste asfaldikihtides võrreldes tavapärase asfaldiga. Järeldati, et ligniini sisaldavad asfaltsegud on hästi töödeldavad ja tihendatavad kasutades tavalisi asfalditöötlemismasinaid [42].

Negatiivse poole pealt toodi välja, et ligniiniga, kui alternatiivse sideainega, ei ole võimalik täielikult asendada bituumenit. Samuti jõuti seisukohale, et hetkel ei ole ligniini kasutamine suures mahus bituumeni asendajana veel majanduslikult otstarbekas. See võib pikemas perspektiivis muutuda, kuna bituumen muutub raskemini kättesaadavaks ning kallimaks ja/või ligniinipõhise asfaldi eelised kliima ja keskkonna seisukohast kaaluvad üle majanduslikud tegurid [42].

Edasiste tegevustena toodi välja soov arendada ligniini sisaldavate asfaltsegude arendamist Skandinaavias ning Lõuna-Euroopas, kuna siamaani on tegeletud ainult Hollandi teedel ning kliimavõtmes. Selleks otsivad nad edaspidi koostööpartnereid ka väljaspoolt Hollandit [42]. Minule teadaolevatel andmetel on ka Eestis tehtud kokkusaamisi, kus on arutatud võimalikke koostöövorme.

3.2.3 Rootsi kogemus

Rootsi kohta puuduvad kättesaadavad teaduslikud tekstid arendustegevuse kohta, seega antud alapeatükis on informatsioon, mis tugineb meedias ning ettevõtete kodulehtedel leitavale.

Rootsis alustati ligniini sisaldavate asfaltsegude paigaldamist 2020. aastal. Esimeseks katselõiguks oli Sundsvall linnas olev tänav, kus asendati 10% bituumeni massist ligniiniga. Seda segu kasutati siduvkihis ning omaduste kontrollimiseks laotati kõrval olev sõidurada referentsseguga, kus ei sisaldunud ligniini. Antud katselõigu teeb huvitavaks asjaolu, et seal lisati ligniini asfalditehases fillerina, kuna laboris saadud tulemused indikeerisid, et bituumeni ja ligniini segamisel tekib mõne päeva möödudes kämpumine. Ligniinitootjaks selle objekti raames oli Sekab.

2021. aastal paigaldati 10% ligniini bituumeni mahust sisaldavat asfaltsegu Brätvågeni tänavale, mis asub Forshaga asulas. Lisaks ligniinile kasutati seal 30% freesasfalti. Ligniinitootjaks antud objektile oli Stora Enso.

Stora Ensoga teeb koostööd ka teine Rootsi teedehitus ettevõtte nimega Svevia AB, kes on samuti tänaseks päevaks kasutanud ligniini sisaldavat asfaltsegu teede asfalteerimiseks. Nende esimene 2020. aastal paigaldatud katselõiguks asus Sandbrink ning Gnesta linna ühendaval teel 224, kokku tehti tööd 15 km pikkusel lõigul, millest paarisaja meetrine osa paigaldati ligniini sisaldava asfaltseguga. Tööde teostamine on nähtav Foto 3.5.



Foto 3.5 Tee 224 ligniini sisaldava asfaldi paigaldamine [Svevia]

4. LABORATOORSED KATSETUSED LIGNIINIGA

Käesoleva töö peamiseks eesmärgiks sai seatud katsetada laboratoorselt ligniini asfaltbetoonsegus, kasutades selleks Eestis kehtivaid standardeid, leiduvaid täitematerjale ning võrrelda ligniini sisaldavate segude omadusi referentsseguga. Sellele tuginedes teha järeldusi selle sobivuse ning edasiste uurimissuundade kohta.

Algselt oli plaan katsetada mitmeid erinevaid asfaltsegusid võrdlemaks nii surf kui base kihi asfaltsegude käitumist. Kuid samas oli soov näha, millist mõju avaldavad erinevad ligniini sisaldusprotsendid asfaltsegu deformatsioonikindlusele, seetõttu tuli ajalisel ja rahalistel kaalutlustel langetada otsus ühe kindla asfaltsegu kasuks.

Katsetatavaks seguks sai valitud AC20 base ning seda kahel põhjusel: esmalt oli soov võrrelda segu käitumist MacRebur MR8 lisandit sisaldava asfaltseguga, mis tänaseks on lubatud kasutada Transpordiameti objektidel AC bin ja AC base asfaltsegudes, mille liiklussagedus ei ületa 6000 a/ööp ning teiseks ajendiks oligi antud fakt, et MacReburit lubatakse kasutada alumistes kihtides.

Kuid kahjuks töötades läbi erinevaid teadusartikleid ning -uuringuid selgus, et ligniiniil on suure tõenäosusega bituumenit jäigastav efekt. Sellele infole tuginedes otsustasime juhendajaga koos, et kasutame 160/220 penetratsiooniga bituumenit 70/100 asemel, mis omakorda tähendas seda, et MR8 segudega võrdlusi enam ei ole võimalik antud lõputöös käsitleda, kuna plaan oli kasutada juba varasemaid labori katsetusandmeid.

Lõpuks nii saigi katsetatavaks seguks valitud AC 20 base ning sideaineks 160/220 penetratsiooniga bituumen.

Katseplaani sai üles ehitatud järgnevalt:

1. Materjalide hankimine
2. Täitematerjalid kuivatamine ja terastikulise koostise määramine
3. AC 20 base seguresepti koostamine vastavalt terastikulisele koostisele
4. Täitematerjalide eelnev kokku segamine vastavalt segureseptile
5. Sideaine segamisplaani koostamine
6. Ligniini ning bituumen sideaine kokku segamine
7. Bituumeni katsetused
8. Täitematerjali ja sideaine segamine asfaltseguks
9. Asfaltsegude katsetamine
10. Tulemuste hindamine ning järelduste tegemine

4.1 Kasutatud materjalide kirjeldus

Täitematerjalidena sai kasutatud Eesti leiduvaid materjale: liiv ja paekivi killustik. Täitematerjalide valikul lähtuti esialgsest plaanist võrrelda segatud asfaltsegusid T-25 maanteele paigaldatud plastisandit MR8 sisaldava asfaltseguga. Seetõttu kasutati samasid toormaterjale nagu T-25 objektile paigaldatud segus. Liiv pärines Karude III liivakarjäärast, kuid oli seisnud üle talve Verstoni asfalditehase platsil. Killustik pärines Väo karjäärast ning kasutatud fraktsioonideks oli 0/4; 4/16 ning 8/20. Viimane neist oli samuti üle talve seisnud Verstoni asfalditehase platsil, kuna tegemist on erifraktsiooniga, mida Väos igapäevaselt ei toodeta.

Sideainena kasutati penetratsiooniga 160/220 bituumenit, mille tootjaks Naftan. Tootjapoolne informatsioon on nähtav Tabel 4.1.

Ligniini Foto 4.1 pärineb Fibernolilt, mis kasvas välja Graanul Invest grupist, ning nende tegevusvaldkonnaks on biomaterjalide tootmine ja kasutusvõimaluste leidmine. Nende poolt pakutud toote nimeks on Lignova™, mille näol on tegemist hüdrolüüsitud ligniiniga, mis on eelnevalt termomehaaniliselt töödeldud, et saadud materjal oleks võimalikult sarnane looduses esinevale ligniinile. Nende poolt toodetud Lignova™ jaguneb veel omakorda oma puhtuse poolest Crude ja Pure tooteks. Katsetused on läbi viidud Crude tootega, mille andmed on toodud Tabel 4.2

Tabel 4.1 Naftani kodulehelt info nende poolt toodetud 160/220 bituumeni kohta [43]

#	Omadus	160/220
1	Penetratsioon 25 °C, 0.1 mm	160–220
2	Pehmenemistäpp rõngas ja kuul meetodil, °C	35–43
3	RTFOT 163 °C	
	– Jääkpenetratsioon,%, min	37
	– Pehmenemistäpi väärtuse tõus (level 1), °C, max	11
	– massimuutus (abs. väärtus),%, max	1
4	Leektäpp °C, min	220
5	Lahustuvus,%, min	990
6	Penetratsiooni indeks	-1.5 kuni+0.7
7	Dünaamiline viskoossus 60 °C, Pa·s, min	30
8	Fraassi murdumistäpp, °C, max	miinus 15
9	Kinemaatiline viskoossus 135 °C, mm ² /s, min	135



Foto 4.1 Katsetes kasutatud ligniin [erakogu]

Tabel 4.2 Lignova™ Crude tootjapoolne keskmine koostis [44]

Lignova™ Crude	
Ligniin,%	88
Monomeersed süsivesikud, %	1
Polümeersed süsivesikud,%	5
Tuhk,%	1
Lämmastik,%	<1
Väävel,%	0.15
Molekulmass	12 000

4.2 Teostatud laboratoorsed tööd ja katsete kirjeldused

4.2.1 Täitematerjalide tööd laboris

Täitematerjalidega seotud tööd tehti Taltechi teede ja liikluse teadus- ja katselaboratooriumis.

Esmalt toimus materjalid terakoostise määramine vastavalt standardile EVS-EN 933-1, mis kätkeb endas esmalt materjali pesemist, mille põhjal määratakse peenosise sisaldus. Seejärel toimub materjali kuivatamine ning kuivisõelumise. Sõelumisega jaotatakse materjal sõeltekomplektide abil erinevateks fraktsioonideks ning igale sõelale jäänud materjalide massi võrreldakse almassiga, mille väärtused esitatakse numbriliselt terastikulise koostisena [45]. Katse käigus määratud terastikulised koostised on leitavad Tabel 4.3

Tabel 4.3 Määratud terastikulised koostised täitematerjalidele

sõel, mm	Sõela läbind, %			
	Fr. 8/20	Fr. 4/16	Fr. 0/4	Liiv
0,063	3,1	1,1	13,5	3,5
0,125	4	1	17	12
0,25	4	1	21	26
0,5	4	1	27	47
1	5	1	36	70
2	5	1	53	91
4	6	2	84	100
6,3	6	7	99	
8	8	18	100	
12,5	32	63		
14	45	96		
16	62	100		
20	93			
25	100			

Terastikulise koostise määramine oli aluseks seguretsepti koostamisele, kuna annab ülevaate materjali skeletist ning võimaldab katses tagada, et meie poolt valmistatud asfaltsegu sõelkõver vastaks Eestis kasutatava AC 20 base sõelkõvera nõudele. Koostatud seguretsept on leitav lisade peatükist ning kannab nime Lisa 2. AC 20 Base seguretsept.

Järgmiseks tegevuseks oli materjalide kaalumine (Foto 4.2) vastavalt välja arvutatud kogustele, eesmärgiga kiirendada asfaltsegude segamist Trev-2 Grupi laboris.



Foto 4.2 Jämetäitematerjali kaalumise protsess [erakogu]

4.2.2 Sideaine segamiseprotsess

Bituumeni ja ligniini kokku segamine ühtseks sideaineks, oli kahtlemata selle lõputöö üks kõige olulisemaid protsesse. Segamistingimused said välja töötatud tuginedes kolmele erinevale teadusartiklile, kus oli täpsemalt lahti kirjutatud, segamisprotsessi tööloogika - need on leitavad: [35, p. 459]; [30, p. 4] ja [37, p. 3]. Lisaks tuli info tootja poolt, et liiga kõrgel temperatuuril segades hakkab ligniin degradeeruma.

Järgides saadud teadmisi otsustasime segada sideaine kokku järgides plaani:

1. Kuumutada bituumen ahjus 140 kraadini (eesmärk temperatuuri valikul vältida segamisprotsessi käigus ligniini degradeerumist)
2. Valada segamiskoosse, mis asetatakse kuumutusplaadile (ehk terve segamise vältel hoida temperatuuri)
3. Käivitada segur madalatel pööretel (ca. 1500 p/min.)
4. Ligniini tasapisi lisamine, et kämpumist vältida
5. Kui ligniin on silmaga nähtavalt bituumenisse segunenud, siis tõsta pöörded 5000 peale
6. Segamist jätkata 30 min.

Segude segamiseks kasutati laboratoorset *high shear* mikserit - selle eesmärk on bituumeni ja ligniini võimalikult homogeense segu saavutamine, kuna *high-shear* mikserid tekitavad segatavates viskoossetes ainetes suuremaid nihkepingeid ehk liigutavad vedelikke efektiivsemalt muutes segamisprotsessi kiiremaks ning ühtlasemaks. Foto 4.3 on näha mikseri segamisotsik.



Foto 4.3 High shear mikseri lõikepea (ehk segamisotsik) [erakogu]

Kokku otsustasime teha 6 proovi - segada viis sideainesegu ligniiniga ning ühe näol oli tegemist kontrolliga, kuhu ligniini ei lisatud. Ligniini asendamine toimus protsentväärtusena kogu sideaine mahust.

Substitutsiooni määrad olid:

- 0% - Kontroll
- 2,5% - Segunes, homogeenne sideaine
- 5% - Segunes, homogeenne sideaine
- 10% - Segunes, homogeenne sideaine
- 25% - Segunes, homogeenne sideaine
- 50% - Ei segunenud

Edasi suunati saadud segud bituumeni katsetustesse, nende teostati nõelpenetratsioon vastavalt EVS-EN 1426:2015.

Katse põhimõtteks on määrata bituumeni viskoosust. Katsetulemused saadakse kui mõõdetakse koormatud standardse nõela läbitungimist bituumeni katseproovi. Olenevalt bituumeni margist on ettenähtud erinevate parameetritega katsed. Antud juhul oli tegemist 160/220 bituumeniga ning penetratsioonide puhul väärtustega kuni 330 mm × 0,1 mm on katseparameetriteks temperatuur 25 °C, rakendatav koormus 100 g ning koormamisaeg 5 s [46].

Samuti määrati pehmenemistäpp, kasutades selleks kuuli ja rõnga meetodit, mida teostati EVS-EN 1427:2015 põhjal.

Katse eesmärk on iseloomustada kõrget temperatuuri, kus bituumeni toimivus teekattes lakkab ning see pole võimeline vastu võtma koormusi ehk selle abil on võimalik hinnata vastupidavust plastsetele deformatsioonidele.

Katset teostatakse järgnevalt: esmalt kuumutatakse bituumen, seejärel valatakse kahte õlgnikuga messingrõngasse, kerge liiaga. Seejärel lastakse nendel jahtuda. Kui katseproovid on jahtunud, siis lõigatakse liig tasaseks rõnga servaga. Rõngad asetatakse spetsiaalsesse hoidjasse ning asetatakse vedelikuvanni, mille temperatuuri on võimalik kontrollida. Siis asetatakse 3,5g teraskuulid tsentreerimisrõnga abil bituumenile ning alustatakse vedeliku kontrollides temperatuuri ja kuulide vajumist kuni saavutatakse vajum $25,0 \pm 0,4$ mm, mis tähendab katse lõppu. Pehmenemistäpp esitatakse temperatuuride keskmisena, mille juures kaks bituumenketast pehminevad piisavalt, mis võimaldab kummalgi bituumenisideainest ümbritsetud kuulil vajuda alla etteantud ulatuses [47].

4.2.3 Asfaltsegude segamine ning katsetamine

Asfaltsegude kokku segamiseks viidi täitematerjalid ja sideained TalTechi laborist Trev-2 Grupi laborisse, kus on võimekus vastavalt standardile segada laboratoorselt kuni 60 kg asfaltsegu lähtematerjalidest. Kokku segati 6 segu, järgides standardit EVS-EN 12697-35.

Standardijärgne protseduuri kirjeldus [48]:

Enne segamist kuivatatakse vajadusel täitematerjal. Segamistemperatuuri valimiseks tuleb fikseerida kasutatava bituumeni mark. Antud juhul valiti baasbituumeni penetratsiooni põhjal segamistemperatuuriks 135°C, ligniini sisaldavate sideainete muutus penetratsioon piisavalt, et neid tuli segada vastavalt bituumeni margile 100/150 ehk temperatuuril 140°C. Seejärel viiakse täitematerjal segamistemperatuurini (hälbega $\pm 5^\circ\text{C}$). Samaaegselt viiakse ka sideaine segamistemperatuurile selleks ettenähtud eraldis anumas. Kui koostisosad on temperatuuri saavutanud, kuumutatakse ka segamistrummel õigele temperatuurile. Esmalt lisatakse trummelisse täitematerjal ning seejärel sideaine. Segamisprotsess kestab kuni segu on saavutanud homogeensuse, kuid mitte kauem kui 3 minutit. [48]

Ühe asfaltsegu segamisel tehti erisus võrreldes teistega. Selleks oli AC 20 base + 50% lig. Erisuse tegemise põhjuseks oli asjaolu, et Taltech laboris ei õnnestunud kokku segada homogeenset sideainesegu, kus bituumeni asendusemäär ligniiniga oli 50%. Kuna huvi oli siiski katsetada eelpool nimetatud segu, siis lisati proportsionaalne kogus ligniini otse segurisse, et vaadata, milline on tulem. Tulemuseks oli materjal, mis on nähtav Foto 4.4, kahjuks ei olnud edasised katsetused antud materjaliga võimalikud. Samal fotol ilmneb ka probleem 25% ligniini sisaldaval seguga – sellel segul on täitematerjali sideainega kaetuse ning sideainesisese kohesiooni probleem.



Foto 4.4 Valmis segatud asfaltsegud. Segu 5 - 25% ligniini; Segu 6 - 50% ligniini lisatuna otse segurisse

Valmis segatud segud toodi tagasi Taltech'i teedelaborisse, kus viidi läbi Tabel 4.4 nimetatud katsed.

Tabel 4.4 Asfaltsegudega tehtud katsed

Erimass, Mg/m ³		EVS-EN 12697-5:2018 (Meetod A)
Mahumass, Mg/m ³		EVS-EN 12697-6:2020 (Meetod B)
Jäävpoorsus, %		EVS-EN 12697-8:2018
Rattaroopa katse	Roobastumise tõus WTSair mm/1000 tsükli kohta	EVS-EN 12697-22 Meetod B, väike seade õhus, katsetemp. 50 kraadi
	Suhteline roopasügavus PRD air, %	
	Roopasügavus RDair, mm	
Lahustuva sideaine sisaldus, %		EVS-EN 12697-1:2020
Terastikulise koostise määramine,		EVS-EN 12697-2:2015+A1:2019

Erimass on õhupoorideta asfaltsegu mass mahuühiku kohta. Mahumass on asfaltsegu mass mahuühiku kohta koos proovikeha õhupooridega. Mahumassi määramiseks laboris valmistatud proovikeha on nähtav Foto 4.5. Erimassi koos mahumassiga kasutatakse tihendatud proovikeha poorsuse ja tihendatud asfaltsegude muude mahuliste omaduste määramiseks [49].



Foto 4.5 Mahumassi määramiseks valmistatud proovikeha [erakogu]

Jäävpoorsus näitab asfaldi pooride mahtu proovikehas ning see esitatakse protsentväärtusena üldmahust.

Rattaroota katse põhimõte on asfaltsegu deformatsioonitundlikkuse hindamine läbi koormatud ratta poolt tekitatud roopa sügavuse mõõtmise [50]. Foto 4.6 on näha rattaroota läbi teinud katsekeha.

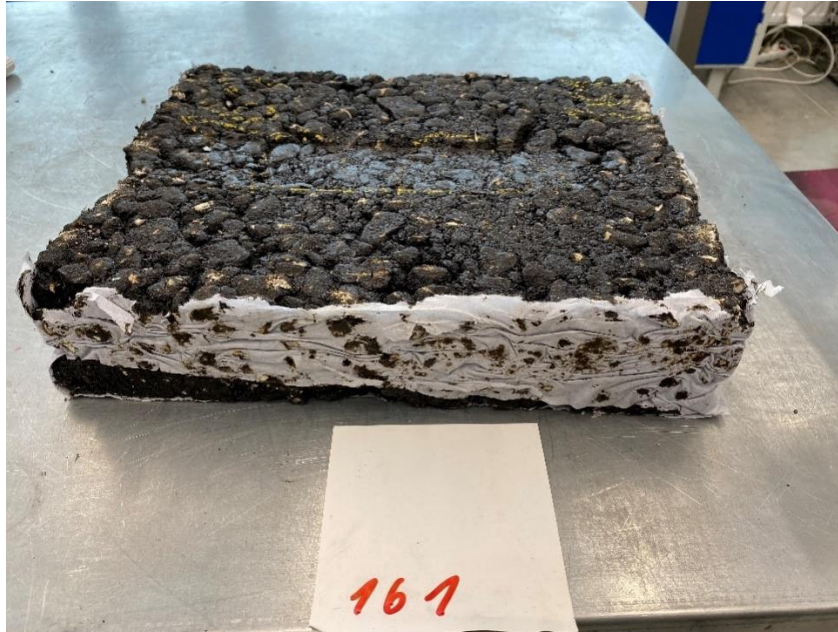


Foto 4.6 Rattaroopa katse läbi teinud proovikeha [erakogu]

Lahustunud sideaine sisalduse abil on võimalik hinnata asfaltsegusse doseeritud bituumeni hulga vastavust segureseptiga, lisaks on võimalik hinnata lisandite käitumist sideaines.

Asfaltsegudele teostatud katsetuste läbiviimise kirjeldused:

- Erimass meetodil A (mahuline)

Katset alustatakse püknomeetri (standardanum teadaoleva mahuga V_p) kaalumisega koos ülaosaga (m_1), seejärel asetatakse sinna sisse katseproov ning kaalutakse uuesti (m_2). Seejärel tuleb anum täita veega nii, et vedeliku tase oleks 30 mm või enam ülaosa ühenduskohast allpool. Õhu eemaldamiseks segupooridest, rakendatakse vaakumit rõhuga 4 kPa või vähem 15 minuti vältel. Õhuosakeste eraldumise hõlbustatakse on soovituslik kasutada vibroalust. Kui õhk on väljunud, lisatakse selle eemaldunud õhu võrra õhuvaba vett ning püknomeeter suletakse uuesti. Seejärel asetatakse püknomeeter eevanni vähemalt 30-minutiks, et viia proov uuesti katsetemperatuurile $\pm 1,0^\circ\text{C}$. Katse lõpus tuleb tagada, et vedeliku tase on sama mõõtemärgiga. Lõpuks võetakse püknomeeter vannist välja kuivatatakse selle välispind ning kaalutakse püknomeeter koheselt (m_3). Seejärel arvutatakse välja erimass [49].

Esmalt tuleb välja arvutada vee tihedus valitud katsetemperatuuril [49]:

$$\rho_w = 1,00025205 + \left(\frac{7,59xt - 5,32xt^2}{10^6}\right) \quad (4.3)$$

kus ρ_w on vee tihedus katsetemperatuuril (Mg/m³)
t on vee temperatuur Celsiuse järgi (°C)

Seejärel on võimalik arvutada välja erimass [49]:

$$\rho_{mv} = \frac{(m_2 - m_1)}{10^6 \times V_p - (m_3 - m_2) / \rho_w} \quad (4.4)$$

kus ρ_{mv} on mahulise meetodiga määratud asfaltsegu näiv erimass (Mg/m³);
 m_1 on püknomeetri ja selle ülaosa mass (g);
 m_2 on püknomeetri, selle ülaosa ja katseproovi mass (g);
 m_3 on püknomeetri, selle ülaosa, katseproovi ja vee mass (g);
 V_p on püknomeetri maht (m³);
 ρ_w määratud veetihedus (Mg/m³).

- Mahumass meetodil B (immutatud ja kuivatatud pinnaga SSD)

Mahumassi määramise eelduseks on proovikehade valmistamine ning seda tehakse EVS-EN 12697-30 Standardi järgi:

Proovikehade valmistamine lööktihendajaga – proovikehade valmistamine algab asfaltsegu kuumutamise, et viia see tihendamistemperatuurile, mis peab vastama bituumeni penetratsioonile. Enne esimese proovikeha valmistamist tuleb kuumutada ka vorm ja tihendamisvasar. Kui on jõutud vajalike temperatuurideni, siis täidetakse vorm ühtlaselt asfaltseguga vältides segregeerumist. Tihendatakse tihendusvasaraga ning see töötab langevaraskusena olenevalt kasutus olevast mehhanismist vahemikus 457±5 mm kuni 460±3 mm. Tavaliselt sooritatakse 50 lööki mõlemale proovikehale avatud otsale. Peale tihendamist lastakse proovikehal ja vormil jahtuda vähemalt 40 °C enne proovikeha eemaldamist vormist [51].

Kui proovikeha on valmis, siis alustatakse mahumassi määramisega vastavalt standardile EVS-EN 12697-6:

Esmalt määratakse sellele kehale kuivmass (m_1). Siis arvutatakse välja vee tihedus katsetemperatuuril (Valemi ρ_w). Peale neid tegevusi riputatakse proovikeha veevanni ning lastakse sellel veega küllastuda, mis toimub tavaliselt 30 minuti kuni 3 tunni jooksul. Seejärel määratakse vees oleva küllastunud proovikeha mass (m_2). Immutatud ja kuivatatud pinna määramiseks (m_3) võetakse proovikeha veest välja ning kuivatatakse pind niisutatud seemisnahast lapiga ning kaalutakse [52].

Mahumassi määramiseks teostatakse arvutus [52]:

$$\rho_{bssd} = \frac{m_1}{m_3 - m_2} \times \rho_w \quad (4.5)$$

kus ρ_{bssd} on (SSD) proovikeha mahumass (Mg/m³);
 m_1 on kuiva proovikeha mass (g);
 m_2 on proovikeha mass vees (g);
 m_3 on immutatud ja kuivatatud pinnaga proovikeha mass (g);
 ρ_w on vee tihedus katsetemperatuuril (Mg/m³).

- Jäävpoorsus

Kui proovikeha mahumassid ning asfaltsegu erimass on määratud, saab arvutada iga keha jäävpoorsuse vastavalt valemile [53]:

$$V_m = \frac{\rho_{mv} - \rho_{bssd}}{\rho_{mv}} \times 100 \quad (4.6)$$

kus V_m on puurkeha jäävpoorsus (protsentides);
 ρ_{mv} on asfaltsegu erimass (Mg/m³);
 ρ_{bssd} on puurkeha mahumass (Mg/m³).

- Rattaroopa katse (meetod B – väike seade, õhus, 50 °C)

Rattaroopa katse läbiviimiseks on vaja ka andmeid mahumassi, erimassi ning jäävpoorsuse kohta.

Proovikehade valmistamine toimub vastavalt standardile EVS-EN 12697-33:

Asfaltsegu kuumutatakse vastavalt bituumeni penetratsioonile ning asetatakse katsevormi, mis on ristküliku kujuline. Tihendamiseks pannakse spetsiaalsesse tihendusmasinasse ning teostatakse tihendamine. Peale tihendamist lastakse proovikehal jahtuda. soovitatavalt jäetakse need samasse vormi rattaroopa katse teostamiseks.

Rattaroopa katset teostatakse järgides standardit EVS-EN 12697-22 [50]:

Katse teostamiseks B meetodil väikse seadmega on vähemalt vaja 2 proovikeha, mille nimipaksus vastaks suurimale teramõõdule. Antud katsetustes oli vastavaks nimipaksuseks 60 mm kuna segu sisalduv suurim teramõõt oli 20 mm. Enne katseseadmesse asetamist on vaja kontrollida nimipaksuse vastavust, lubatud hälve mõõdetuna 4 külje keskelt on maksimaalselt 2,5 mm. Proovikehad peavad enne rattaroopa katse teostamist tahenema vähemalt 48 tundi temperatuuril alla 25 °C. Peale seda tuleb katsekeha viia katsetamistemperatuurile, antud juhul 50 °C, ning hoida ühtlast temperatuuri minimaalselt 4 tunni vältel (maksimaalselt 24 tundi). Peale seda kinnitatakse proovikeha katsemasinasse, masin käivitatakse märkides üles ratta vertikaalpaigutuse lugem ning lugemit tuleb esimese tunni vältel kontrollida 6-7 korda ning edasi iga 500 koormustsükli tagant. Katse lõppeb kui on rakendatud 10 000 koormustsükli või roopasügavus saavutab 20 mm.

Iga proovikeha roobastumise tõus õhus arvutatakse järgnevalt [50]:

$$WTS_{AIR} = \frac{(d_{10\ 000} - d_{5000})}{5} \quad (4.7)$$

kus WTS_{AIR} on roobastumise tõus 1000 koormustsükli kohta (mm);

$d_{10\ 000}$ on vertikaalne paigutus peale 10 000 koormustsükli;

d_{5000} on vertikaalne paigutus peale 5000 koormustsükli.

Iga proovikeha suhteline roobastumise tõus õhus arvutatakse järgnevalt [50]:

$$PRD_{AIR} = 100x \frac{(d_n - d_0)}{h} \quad (4.8)$$

kus PRD_{AIR} on i-nda paralleelproovi suhteline roopasügavus (%);
 d_n on vertikaalne paigutus peale n koormustsüklit (mm);
 d_0 on algne vertikaalne paigutus (mm);
 h on proovikeha paksus (mm).

Keskmine roopasügavus RD_{AIR} õhus väljendatakse kahe (või enama) proovikeha roopasügavuste keskmisena, täpsusega $\pm 0,1$ mm [50].

- Lahustuva sideaine sisaldus (massierinevuse meetodil)

Lahustuva sideaine katset teostatakse standardi EVS-EN 12697-1 põhjal:

Katse alguses kaalutakse asfaltsegu mass, seejärel pestakse lahustiga segust mineraalmaterjal välja. Katse lõpus kaalutakse allesjäänud täitematerjal ning massikao järgi lahustunud bituumeni mass. Kasutades esialgse asfaltsegu ja lahustunud bituumeni massi, leitakse sideaine sisaldus [54].

Lahustuva sideaine sisaldus massierinevuse meetodil arvutuskäik [54]:

$$S = \frac{100x [M - (M_1 + M_w)]}{M - M_w} \quad (4.9)$$

kus S on lahustuva sideaine sisaldus (%);
 M on kuivatamata katsekoguse mass (g);
 M_1 on eraldatud mineraalmaterjali mass (g);
 M_w on vedeliku mass kuivatamata katsekoguses (g).

- Terastikulise koostise määramine

Terastikulise koostise määramine teostatakse standardit EVS-EN 12697-2 põhjal [55]:
Katse eelduseks on sideaine eraldamine asfaltsegust. Seejärel jätkatakse standardi EVS-EN 933-1 järgset protseduuri, mille kirjeldus on võimalik lugeda alapeatükis 4.2.1 Täitematerjalide tööd laboris.

4.3 Tulemused ja analüüs

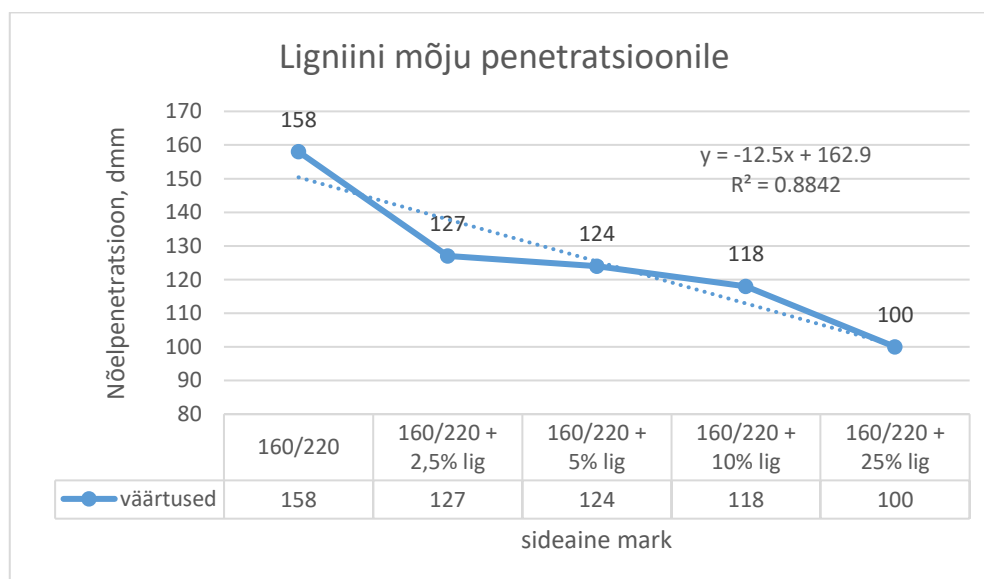
Kõik katsetuste tulemused on tabelina nähtavad lisade peatükis nimega Lisa 3. Katsetulemuste tabel.

4.3.1 Bituumeni katsetuste analüüs

Bituumenina kasutati 160/220 Naftani bituumenit, mille tootjapoolne info on leitav Tabel 4.1. Bituumeni katsetuste võrdlusest jääb välja sideaine margiga 160/220 + 50% lig., kuna ei õnnestunud katsetuse käigus bituumenit ja ligniini kokku sega homogeeniseks sideaineks, mida oleks võimalik katsetada.

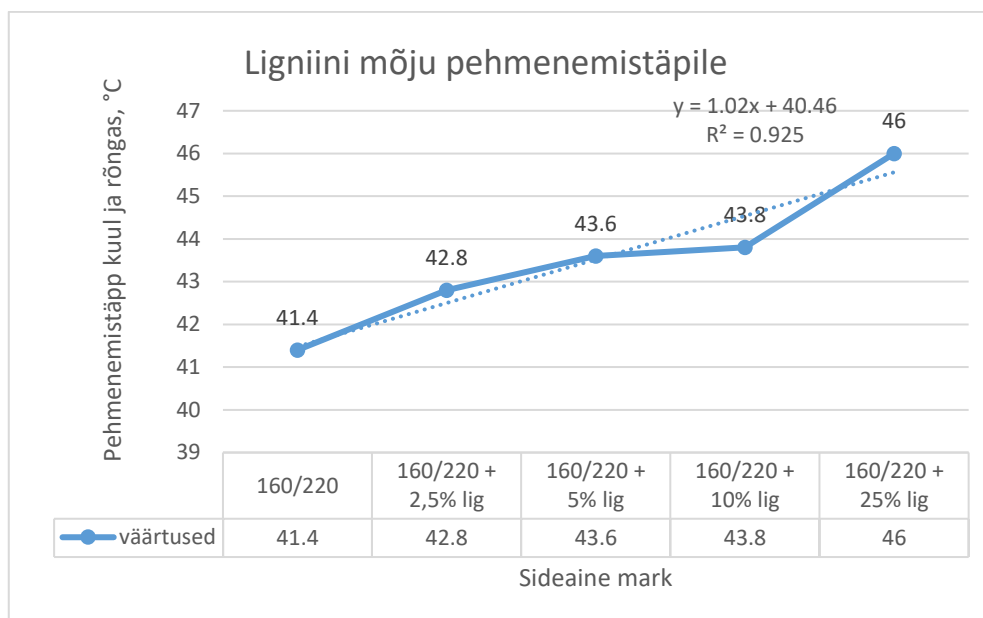
Teemakäsitlust peaks minu hinnangul alustama sellest, et vaadates Joonis 4.1 Ligniini lisamise mõju sideaine penetratsiooni väärtusele, selgub, et modifitseerimata bituumeni penetratsioon oli 158 x 0,1 mm enne ligniini lisamist, mis ei vasta bituumenimargile ette nähtud vahemikule 160-220 x 0,1 mm. See tekitas esialgu küsimuse - kas tegemist võib-olla vananenud bituumeniga ehk on toimunud oksüdeerumine või on sattunud ebakvaliteetne partii, mis omakorda mõjutab katsetulemuste usaldusväärsust. Kuid selgus, et tegemist on bituumeniga, mis tarniti TalTechi laborisse 2020. aastal ning varasemalt pole selle omadusi hinnatud. Seetõttu pean tõenäoliseks, et tegemist on siiski oksüdeerumisega, kuigi bituumen oli seisnud suletud anumal.

Vaadates Joonis 4.2, siis pehmenemistäpi tulem oli 41,4 °C, mis on täiesti kooskõlas tootjapoolse etteantud vahemikuga 35–43 °C.



Joonis 4.1 Ligniini lisamise mõju sideaine penetratsiooni väärtusele

Joonis 4.1 on võimalik tuua välja, et ligniinil on bituumenit jäigastav toime, kuna ligniini lisamisega toimub penetratsiooni väärtuse langemine. Seda kinnitavad ka erinevad teadustööd, mis on täheldanud samasugust seost. Ligniini lisamisega on muutunud bituumeni standardi kohane mark, kui baasbituumen puhul on see 160/220, siis ligniini sisaldavate puhul kuuluksid need vahemikku 100/150.



Joonis 4.2 Ligniini lisamise mõju pehmenemistäpile, mõõdetuna kuul ja rõngas meetodil

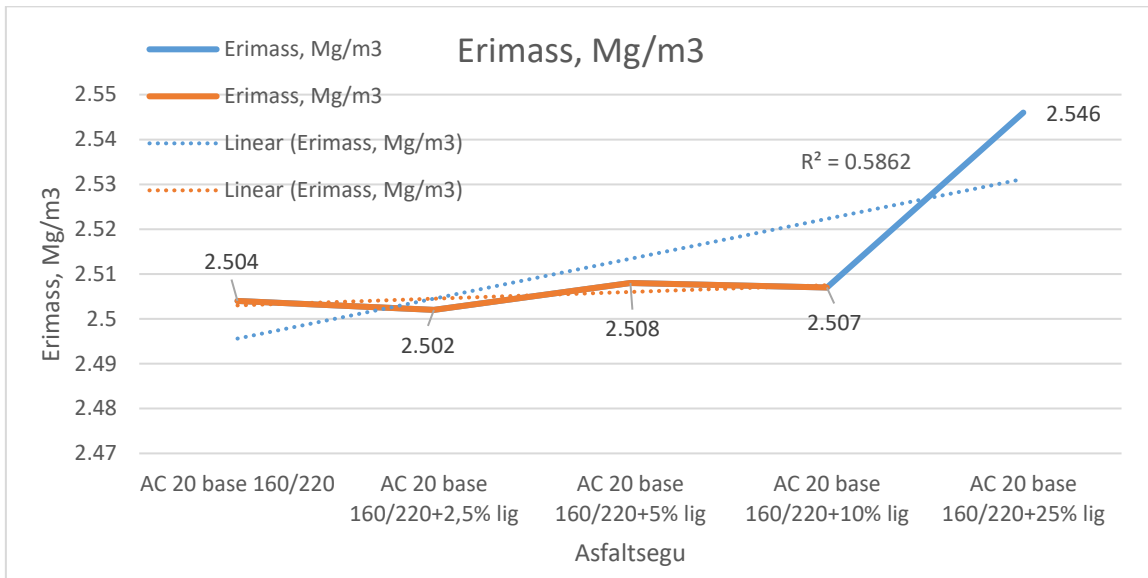
Joonis 4.2 näitab, et ligniinil on pehmenemistäpile positiivne mõju ehk lisades juurde ligniini tõuseb pehmenemistäpi väärtus, mis omakorda viitab sellele, et bituumeni käitumisomadused paranevad kõrgetel temperatuuridel. Nendele katsetulemustele tuginedes võib öelda, et ligniin parandab vastupidavust plastsetele deformatsioonidele. Bituumeni pehmenemistäpp iseloomustab temperatuuri, mille juures eeldatakse, et bituumen muutub teekattes kasutuks ja ei ole võimeline vastu võtma liikluse poolt tekitatud jõudusid. [2]

4.3.2 Asfaltsegude katsetulemuste analüüs

Antud alapeatükis analüüsitakse ligniini mõju asfaltsegule omadustele tuginedes Tabel 4.4 välja toodud katsetele.

Siinkohal mainin ära, et 50% ligniini sisaldavat katsesegu ei ole analüüsi kaasatud, kuna selle omadused ei võimaldanud katsetuste tegemist.

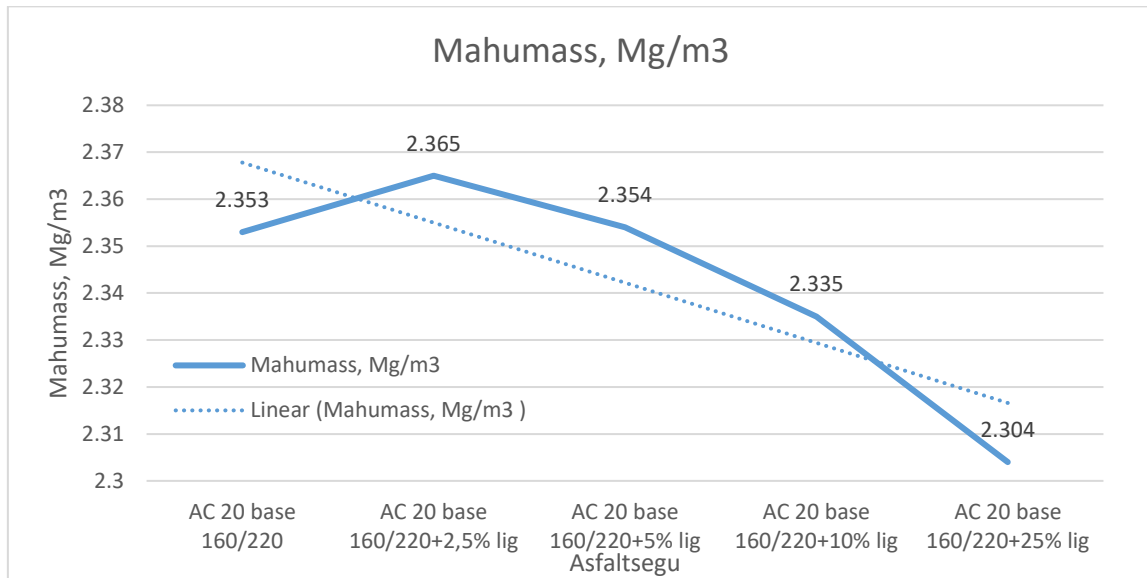
Erimass



Joonis 4.3 Erimassi muutus

Joonis 4.3 on võimalik tuvastada järsk erimassi muutus asfaltsegu, kuhu on lisatud 25% ligniini bituumeni massist. Sellel võib olla mitmeid hüpoteetilisi põhjuseid – esmalt võib olla tegemist katseveaga. Teine võimalik põhjus võib seisneda segu kuivuses, millest tingituna esinesid ka täitematerjali kaetuse nagu Foto 4.4 näha oli. Viimane hüpotees baseerub kokku segatud erimassidel: paekivil on ca. 2,65 ning bituumenil 1 Mg/m³. Kuid kui me põhineme ainult olemas andmetele tuleb öelda, et vahemikus 10 – 25% lisatud ligniin bituumeni mahust toimub asfaltsegu tiheduse omaduste oluline muutumine. 2,5% ligniini lisamisel on tuvastav väike tiheduse paranemine, kuid see on marginaalne, seega saab üldistada, et vahemikul 2,5 – 10% pole ligniinil erilist mõju segu erimassile, võrreldes baasbituumeniga.

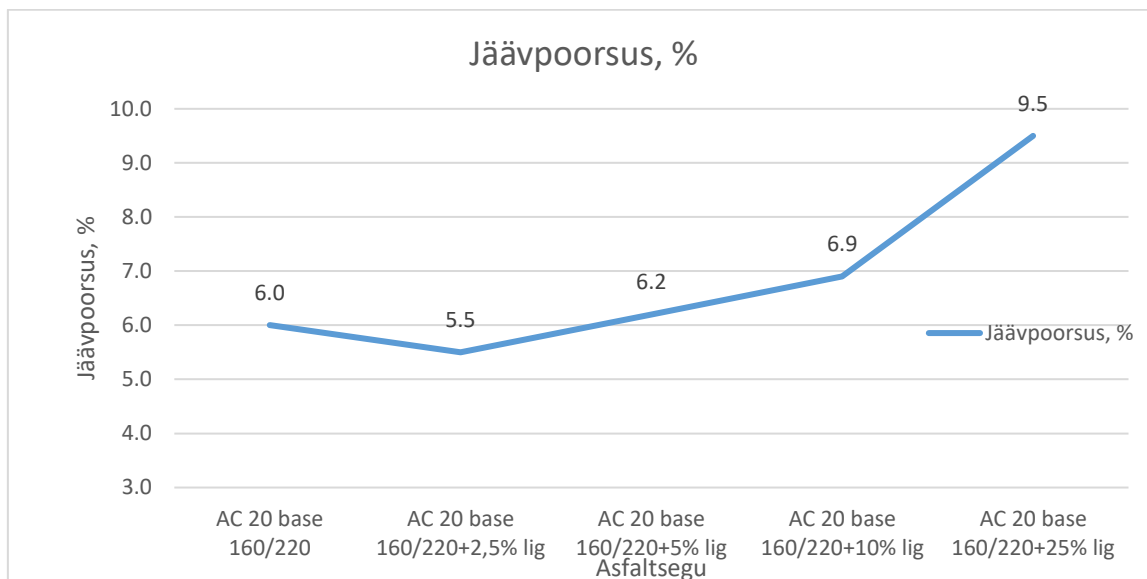
Mahumass



Joonis 4.4 Mahumassi muutus

Joonis 4.4 alusel on võimalik öelda, et AC 20 base + 2,5% lig. segu korral suureneb mahumassi näitaja ning 5% ligniini sisaldava segu puhul jääb mahumass samaks nagu see on baasbituumeniga segul. AC 20 base + 10% lig. segu korral toimub väike mahumassi vähenemine ning AC 20 base + 25% lig. puhul on toimunud juba oluline mahumassi kadu võrreldes baasbituumen seguga. Kuid üldiselt tuleb välja tuua, et trend ligniini lisades on allpoole kaldu, ehk mida rohkem ligniini segatakse segusse, seda raskem on selle tihendamine. Lisaks tuleb arvestada, et ligniini sisaldavate sideainega segude tihendamine on toimunud 140 °C juures võrreldes baasbituumeni 135 °C, tulenevalt sideaine penetratsiooni näitajast.

Jäävpoorsus



Joonis 4.5 Jäävpoorsuse muutus

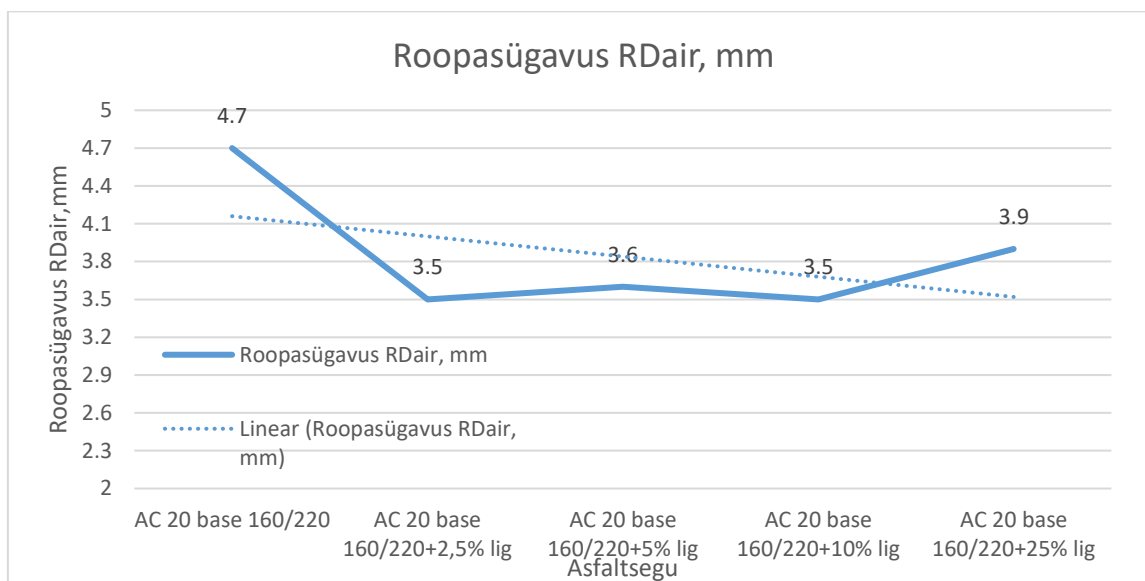
Joonis 4.5 näitab seda, et 2,5% ligniini sisaldaval segul on 0,5% väiksem jäävpoorsus, kui AC 20 base 160/220 baassegul. Segudel sideaine markidega 160/220 ja 160/220+5% lig. jäävpoorsuse vahe on 0,2% ning vahe 160/220 ja 160/220+10% lig. vahel on 0,9%. Nende nelja segu näitajad iseenesest tähendavad seda, et segude jäävpoorsused on samaväärsed.

Vahemikus 10-25% lisatavat ligniini võib eeldada, et toimub selge muutus segu tihendatavuses ning jäävpoorsuses, kuna segu puhul kuhu on lisatud 25% ligniini on jäävpoorsuse näitaja vahe baasbituumeniga 3,5%.

Erisusena tuleb välja tuua, et ligniini sisaldavate sideainega segude tihendamine on toimunud 140°C juures võrreldes baasbituumeni 135°C, tulenevalt sideaine penetratsiooni näitajast.

Riiklike kvaliteedi nõuete kohaselt täidavad kõikide segude jäävpoorsusele esitatavad tingimused. AC 20 base segude puhul peab jäävpoorsus jääma vahemikku 5-14%.

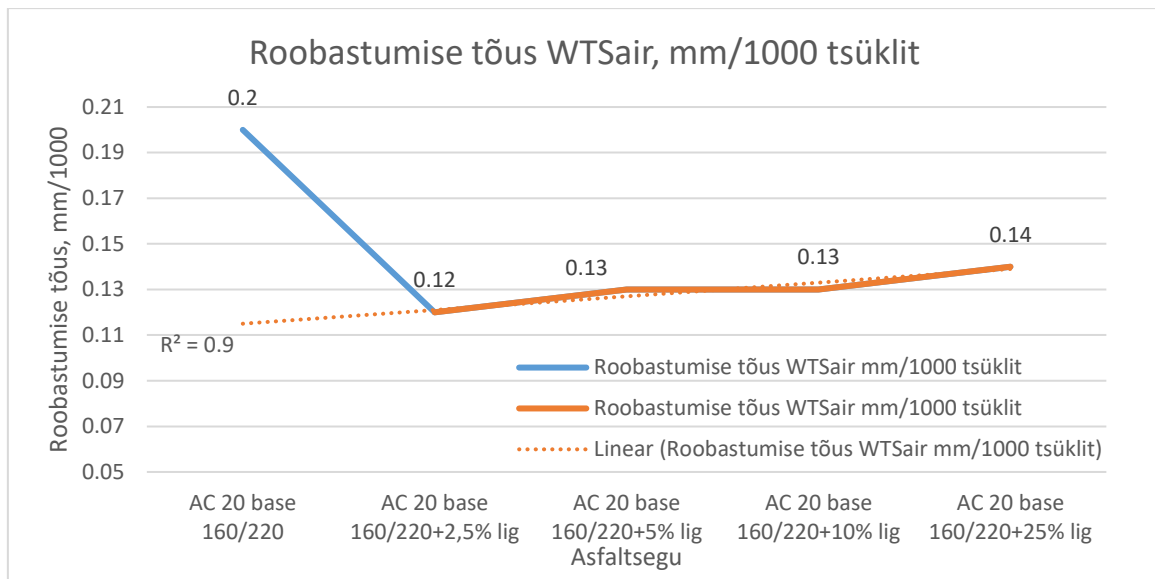
Rattaroopa katse



Joonis 4.6 Roopasügavuse muutus

Joonis 4.6 vaadates, on selgesti arusaadav, et ligniini lisamine muudab segu deformatsiooni kindlamaks. Kõikide ligniini sisaldavate proovikehade roopasügavus oli märkimisväärselt väiksem. Kõige kehvemini esinenud AC 20 base + 25% lig. roopasügavus paranes 17% võrrelduna ilma lisandita baasseguga. Teistel segudel oli veel parem deformatsioonikindlus:

- AC 20 base + 2,5% - erinevus 25,5% baasseguga võrreldes;
- AC 20 base + 5% - erinevus 23,4% baasseguga võrreldes;
- AC 20 base + 10% - erinevus 25,5% baasseguga võrreldes.



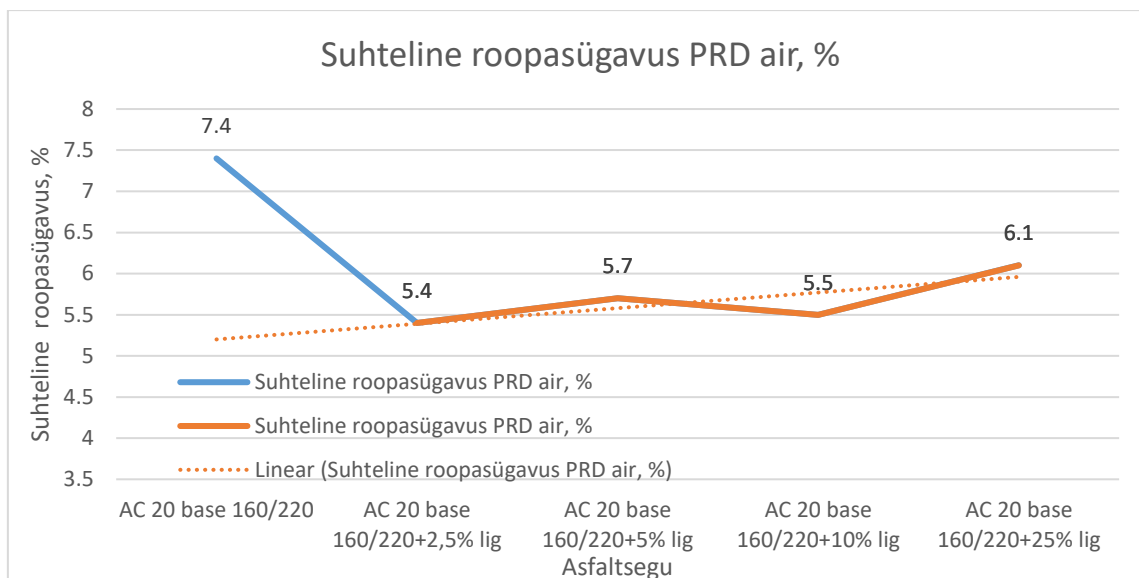
Joonis 4.7 Keskmine roopastumise muutus

Joonis 4.7 põhjal on võimalik aru, kuidas käitub asfaltsegu peale järeletihenemist. Peale järeletihenemise toimumist on ligniini sisaldavad segud endiselt deformatsioonikindlamad, kui seda on baassegu. Erinevus kõige kehvema tulemusega ligniinsegu AC 20 base + 25% lig. näitaja ja baasbituumeniga segu vahel on 30%.

Ülejäänud segude erinevused:

- AC 20 base + 2,5% - erinevus 40% baasseguga võrreldes;
- AC 20 base + 5% - erinevus 35% baasseguga võrreldes;
- AC 20 base + 10% - erinevus 35% baasseguga võrreldes.

Kuigi ligniin parandab nähtavalt võrreldes baasbituumeniga deformatsioonikindlust peale järeletihenemist, siis ligniini sisaldavate segude omavahelise võrdluse puhul avaldub kerge negatiivne trend (nähtav Joonis 4.7 oranži trendijoonena) ligniini sisalduse suurenemise ja deformatsioonikindluse vähenemise vahel, kuid selle trendi kinnitamine vajaks rohkemate katsesegude katsetamist.



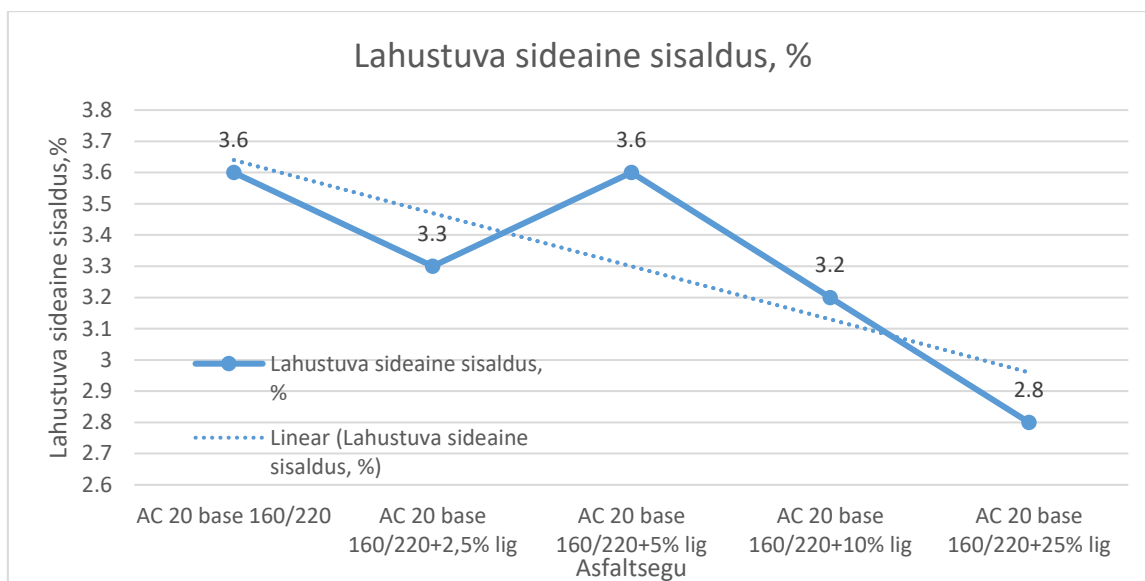
Joonis 4.8 Suhtelise roopa muutus

Joonis 4.8 näitab meile roopasügavuse ja proovikeha paksuse vahelist suhet protsendina. Siin on ka näha ligniini lisamise positiivset mõju deformatsioonikindlusele ning kerget negatiivset trendi ligniini sisalduse kasvades.

Eestis kehtiva standardi EVS 901-3 kohaselt määratakse siin kasutatavatele asfaltsegude deformatsioonikindlust just suhtelise roopasügavuse alusel. AC 20 base korral on nõutud AKÖLi ≤ 1499 väärtus 9,0 ning kõikide suuremate AKÖLide puhul 7,0 [56].

Selle põhjal saab öelda, et ligniini sisaldavad AC 20 base segud vastavad ka deformatsiooni standarditele Eestis.

Lahustuva sideaine sisaldus



Joonis 4.9 Segudest lahustunud sideaine protsent

Joonis 4.9 põhjal on katsetulemustes anomaalia, kuid selle põhjust on raske hinnata, kuna segud segati teises laboris ning seal võis juhtuda midagi, millest me teadlikud ei ole. Antud katsetulemused on esitatud kahe paralleelproovi keskmistena ning täpsema hinnangu andmiseks oleks paralleelproove rohkem vaja.

Üldistades on võimalik öelda, et ligniini sisalduse kasvades lahustuva sideaine kogus väheneb. See võib tuleneda mitmetest asjaoludest, kuid kõige tõenäolisem on, et see ei tööta otseselt sideainena, vaid modifitseerib bituumenit ning vajab toimivuse asfaltsegu tagamiseks siiski bituumenit või mõnda lisaainet, mis on oleks bituumenilaadsed omadused.

Terastikulise koostise määramine

Tabel 4.5 Terastikuline koostis peale sideaine ekstraheerimist asfaltsegudest

Sõel	Bituumeni mark	AC 20 Base					Proj. sisend normkoostis	min normkoostis	Max. normkoostis
		160/220	160/220 +2,5% lig	160/220 +5% lig	160/220 +10% lig	160/220 +25% lig			
31.5	Sõelkõver, sõela läbind %	100	100	100	100	100	100	100	100
20		99	98	99	99	97	100	100	100
16		92	89	92	92	91	98	90	100
12.5		73	71	74	73	74	-		
8		44	42	46	42	43	43	40	67
6.3		39	36	43	37	39	-		
4		34	31	39	33	34	33	23	47
2		28	26	31	27	28	25	14	33
1		21	20	23	21	22	19	8	23
0,5		16	16	18	16	17	14	5	17
0,25		12	12	13	12	13	9	4	13
0,125		9	9	10	9	10	6	3	10
0,063		6.7	6.4	7.4	6.6	7.2	4.3	2.0	8.0

Tabel 4.5 Tabel 4.5 Terastikuline koostis peale sideaine ekstraheerimist asfaltsegudest vaadates on võimalik öelda, et kõigi asfaltsegude peentäitematerjalide sõela läbindid on paigast ära võrreldes projekteeritud sisendnormkoostisega. See tuleneb peenosise sisalduse märgatavalt suuremast osakaalust võrreldes sisendiga. Järeldada saab siit seda, et enne asfaltsegude segamist tehtud terastikulise koostise põhjal koostatud segureseptiga alahinnati fraktsiooni 0/4 peenosise sisaldust. Arvestades sõelkõvera normkoostise vahemikke, siis ükski asfaltsegu sõelkõver ei vasta nõuetele. Katsetulemused on võrreldavad, kuna sõelkõverad on sarnased, ainukene selgelt eristuva peentäitematerjali sisaldusega segu oli AC 20 base + 5% lig. ning see võib mõjutada katsetulemusi.

4.3.3 Järeldused

Tuginedes läbiviidud katsetustele saab öelda, et ligniini lisamine mõjutab bituumeni omadusi nii pehmenemistäpi kui ka penetratsiooni osas. Ligniini sisalduse suurenedes muutub bituumen jäigemaks ning viib penetratsiooni alla. Pehmenemistäpile katsetulemustest joonistub välja, et sideaine, millele on lisatud ligniini omab paremaid käitumisomadusi kõrgetel temperatuuridel. Ligniini sisalduse suurendamine üldiselt vähendab lahustuva sideaine sisaldust asfaltsegudes, mis 25% asendusmäärakorral tekitab nakkeprobleeme ning 50% puhul ei võimaldanud segu segamist.

Asfaltsegude katsete põhjal saab öelda, et ligniinil on deformatsiooni selgelt parandavad omadused. Ligniini oli asfaltsegu jäävpoorsusele selgelt negatiivne mõju, kuid autori hinnangul võib see olla tingitud sellest, et asfaltsegu muutub kuivemaks ligniini koguse suurenedes sideaines ning mõju tekib sel põhjusel. Teostatud katsete põhjal julgen väita, et kuni 10% asendusmäära korral on õigustatud ligniini kasutamine asfaltsegudes, kuna sellel on paremad või vähemalt sama heade omadused võrreldes baasbituumen seguga.

4.3.4 Ettepanekud järgnevateks uurimistegevusteks

Asfaltbetoon on pealtnäha väga lihtne materjal, mis koosneb bituumenist ja täitematerjalidest ja nende kokku segamisel ongi asfaltsegu valmis, kuid reaalsus on see, et väikesed muutused bituumenis ja/või täitematerjalide omadustes võivad oluliselt muuta selle iseloomulikke omadusi, millele viitavad antud töös tehtud katsetused. Seetõttu soovin autorina siinkohal ära mainida, et antud lõputöö lähenemine ei olnud tagantjärele täiesti korrektne, kuna ligniini käsitletakse kui bituumenit asendavat ainet. Kuigi asfaltsegude katsetamise tulemused andsid lootustandvaid tulemusi, siis edaspidistes uurimistegevustes peaks esmalt keskenduma bituumeni ning ligniini sisaldava komposiitsideaine uurimisele.

Autori ettepanekud järgnevateks uurimistegevusteks:

- Kaasata uurimistegevusse keemiainsenere/materjaliteadlasi, kes aitaksid teha järeldusi ning seletada toimuvaid muutusi sideaines ning vajadusel suunata arendustegevust.
- Kontakteeruda teiste ettevõtetega, keda on siin lõputöös mainitud peatükis 3.2 Katselõikude paigaldamiseni jõudnud uurimistööd, et uurida koostöövõimalusi ning saada uusi teadmisi nende kogemustest.
- Uurida põhjalikumalt, kuidas muudab ligniin bituumeni omadusi erinevate asendusmäärde juures.
- Teha komposiitsideainele katsetusi, millega iseloomustada sideaine käitumist madalatel temperatuuridel ning samuti tuleks katsetada väsimusomadusi nagu duktiilsus.
- Seejärel kui sideaine katsetulemused näitavad positiivseid tulemusi, siis alustada tegevusi asfaltsegude katsetamisega, mis sisaldavad meie kliimasse sobilikku komposiitsideainet.

KOKKUVÕTE

Käesoleva magistritöö eesmärgiks oli katsetada laboratoorselt ligniini käitumisomadusi asfaltbetoonsegus, kasutades selleks Eestis kehtivaid standardeid ning kasutatavaid täitematerjale. Eesmärk sai valitud seoses huviga propageerida rohelisemat maailmavaadet. Hetkel asfaltsegudes sideainena kasutataval bituumenil on keskkonnale märkimisväärne negatiivne mõju. Bituumenit toodetakse toornaftast ning keskkonnamõjud avalduvad kogu väärtusahela vältel – kuna bituumeni töötlemine nõuab kõrgeid temperatuure ning selle käigus eraldub suurel hulgal heitgaase. Ligniini näol on tegemist biomassist eraldatava loodusliku sideainega. Ligniini iseenesest on kõrge süsiniku sisaldusega termoplastiliste omadustega biopolümeeriga. Selle kasutuselevõtt aitaks vähendada asfaltsegude tootmisega tekkivat keskkonna kahjusid ning seeläbi aitaks liikuda Eestis kliimanetraalsuse poole.

Lõputöös antakse põgus ülevaade ligniini olemusest, kuidas toimub selle eraldamine biomassist ning millised enimlevinud variandid selleks on. Tutvustatakse ka ülevaatlikult teedeehitust mittepuudutavaid kasutusvõimalusi. Süvitsi käsitletakse teedeehitusega seotud uuringuid ligniiniga bituumenis ning asfaltsegudes. Laboratoorsete tööde analüüsi andmed pärinevad peamiselt Aasiast, Euroopast ning Kanadast. Katselõikudest kõnelev peatükk tugineb Hollandi, Kanadas ning Rootsi kogemustel, kuna nende kliimaatilised tingimused sarnanevad Eestile kõige rohkem. Hollandis on arendustegevusega jõutud tänaseks kõige kaugemale tänu kogu väärtusahelat hõlmavale CHAPLIN-programmile.

Autori enda laboratoorsetest töödest järeldatakse, et asendades kuni 10% bituumeni massist ligniiniga ei oma asfaltsegule negatiivset mõju vaadeldud omaduste põhjal. Asfaltsegu katsetuste faasis hinnati asfaltsegude deformatsioonikindlust, erimass ja mahumass ning määrati segudele jäävpoorsused. Lisaks katsetati ka sideaine penetratsiooni ning pehmenemistäppi. Penetratsiooni tulemused näitasid, et ligniini lisamisega kaasneb sideaine omaduste muutumine. Eeskätt peab arvestama sideaine penetratsiooni vähenemisega, seetõttu tuleb sideaine segamisel arvestama kõrgema margi baasbituumeniga. Pehmenemistäppi tulemused näitava ligniini lisamisega tõuseb pehmenemistäpi väärtus.

SUMMARY

The aim of this Master's thesis was to test the behavioral properties of lignin in an asphalt concrete mixtures in the laboratory, using the standards valid in Estonia and the aggregates most commonly used. The main aim was chosen to promote the resource-efficient worldview in mind. Bitumen, which is currently used as a binder in asphalt mixtures, has a significant negative impact on the environment. Bitumen is produced from crude oil and has an environmental impact throughout the value chain - as bitumen processing requires high temperatures and emits large amounts of exhaust fumes. Lignin, however, is a natural binder that can be obtained from biomass. Lignin itself is a biopolymer with high carbon content and with thermoplastic properties. Its introduction would help reduce the environmental damage caused by the production of asphalt mixtures and thus help to move towards climate neutrality in Estonia.

The thesis gives a brief overview of the nature of lignin, how it is separated from biomass and what are the most common methods used. Non-road construction applications are also briefly introduced. Researches related to lignin use in road construction are discussed in depth. The Data that was used in the section that spoke about works carried out in the laboratory tests in other countries came mainly from Asia, Europe and Canada. The chapter on test sections is based on the experiences of the Netherlands, Canada and Sweden, as their climatic conditions are most similar to Estonia. In the Netherlands, R&D is far more advanced than that of other countries using lignin in asphalt concrete and it is thanks to the CHAPLIN program, which covers the entire value chain.

The author's own laboratory work concludes that replacing up to 10% of the bitumen by weight with lignin does not have a negative effect on the asphalt mixture based on the observed properties. During the testing phase of the asphalt mix, the deformation resistance, specific gravity and bulk density of the asphalt mixes were evaluated and the porosities of the mixes were determined. In addition, the penetration and softening point of the binder were tested. The penetration results showed that the addition of lignin results in a change in the properties of the binder. In particular, the reduction in the penetration of the binder must be taken into account, therefore a higher grade of base bitumen must be taken into account when mixing the binder. The addition of lignin to bitumen increases the value of the softening point.

KASUTATUD KIRJANDUSE LOETELU

- [1] K. J. Kowalski ja teised, „Eco-friendly Materials for a New Concept of Asphalt Pavement,“ *Transportation Research Procedia*, kd. 14, pp. 3582-3591, 2016.
- [2] TTÜ Teedeinstituut, "Uued viisid bituumensideainete kvaliteedimaduste määramiseks ja võimalused nende rakendamiseks, pidades silmas konkreetsele objektile vastavaid kriteeriume sideaine eeldatavast elueast ja kasutuskohast lähtuvalt," Tallinna Tehnikaülikooli teedeinstituut, Tallinn, 2015.
- [3] European Union, "Paris Agreement," *Official Journal of the European Union*, no. L 282, pp. 4-18, 2016.
- [4] X. Guangji, H. Wang and H. Zhu, "Rheological properties and anti-aging performance of asphalt binder modified with wood lignin," *Construction and Building Materials*, vol. Volume 151, pp. 801-808, 2017.
- [5] Shell Bitumen, "The Shell bitumen industrial handbook," Shell, 1995.
- [6] J. Zhu, B. Birgisson and N. Kringos, "Polymer modification of bitumen: Advances and challenges," *European Polymer Journal*, vol. 54, no. 0014-3057, pp. 18-38, 2014.
- [7] D. S. T. G. C. H. I. van Vliet, "Lignin as a green alternative for bitumen," in *Proceedings of the 6th Euroasphalt & Eurobitume Congress*, Prague, 2016.
- [8] Tartu Ülikooli Süsteemibioloogia ja sünteetilise bioloogia töörühm, "Tartu Ülikool ja Graanul Biotech teevad koostööd puidu väärindamise nimel," Tartu, 2018.
- [9] A. C. F. R. S. G. F. S. G. M. a. J.-P. G. Neeraj Mandlekar, "An Overview on the Use of Lignin and Its Derivatives in Fire Retardant Polymer Systems," 2017.
- [10] S. Laurichesse and L. Avérous, "Chemical modification of lignins: Towards biobased polymers. Progress in Polymer Science," *Progress in Polymer Science*, vol. 39, no. 7, pp. 1266-1290, 2014.
- [11] J. Marton and T. Marton, "Molecular weight of kraft lignin," *Tappi Journal*, vol. 47, no. 8, pp. 471-476, 1964.
- [12] M. Kienberger, S. Maitz, T. Pichler and P. Demmelmayr, "Systematic Review on Isolation Processes for Technical Lignin," Institute of Chemical Engineering and Environmental Technology, Graz, 2021.
- [13] A. G. Vishtal and A. Kraslawski, "Challenges in industrial applications of technical lignins," *BioResources*, vol. 6, no. 3, pp. 3547-3568, 2011.
- [14] N.-e. El Mansouri, A. Pizzi and J. Salvadó, "Lignin-based wood panel adhesives without formaldehyde," *European Journal of Wood and Wood Products*, no. 65, pp. 65-70, 2007.
- [15] I. Adorjan, Z. Zhou, A.-S. Jääskeläinen, A. Potthast and T. Vuorinen, "Influence of carbonyl groups on the brightness reversion of eucalyptus kraft pulp," in *9th European Workshop on Lignocellulosics and Pulp*, Vienne, 2006.
- [16] S. Mastrolitti ja teised, „Sustainable lignin valorization, Technical lignin, processes and market development,“ IEA BIOENERGY, 2021.
- [17] L. T. Funkenbusch ja t. , „Technoeconomic assessment of hydrothermal liquefaction oil from lignin with catalytic upgrading for renewable fuel and chemical production,“ *Wiley Interdisciplinary Reviews: Energy and Environment*, nr 1, pp. 1-12, 2018.

- [18] J. Miller ja teised, „Lignin: Technology, Applications, and Markets,“ 1 *RISI Latin American Pulp & Paper*, Sao Paulo, 2016.
- [19] L. Dessbesell ja teised, „Global lignin supply overview and kraft lignin potential as an alternative for petroleum-based polymers,“ *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, kd. 123, nr 109768, 2020.
- [20] G. Johansen, "Lignin first: the Borregaard approach to lignocellulosic sugars and bioethanol," in *EU-India Conference on Advanced Biofuel*, New Dehli, 2018.
- [21] L. A. Z. Torres ja teised, „Lignin as a potential source of high-added value compounds: A review,“ *Journal of Cleaner Production*, kd. 263, 2020.
- [22] T. Pan, "A first-principles based chemophysical environment for studying lignins as an asphalt antioxidant," *Construction and Building Materials*, vol. 36, pp. 654-664, 2012.
- [23] X. Shangxian ja teised, „Lignin as renewable and superior asphalt binder modifier,“ *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, kd. 5, nr 4, pp. 2817-2823, 2017.
- [24] R. P. T. C. C. S. M. A. L. L. V. P. V. L. K.B. Batista, "High-temperature, low-temperature and weathering aging performance of lignin modified asphalt binders," *Industrial Crops and Products*, vol. 111, pp. 107-116, 2018.
- [25] S. Zabelkin ja teised, „Modification of bitumen binder by the liquid products of wood fast pyrolysis,“ *Road Materials and Pavement Design*, kd. 20, nr 5, pp. 1182-1200, 2019.
- [26] J. Gao ja teised, „High-temperature rheological behavior and fatigue performance of lignin modified asphalt binder,“ *Construction and Building Materials*, kd. 230, 2020.
- [27] E. Norgbey ja teised, „Unravelling the efficient use of waste lignin as a bitumen modifier for sustainable roads,“ *Construction and Building Materials*, kd. 230, 2020.
- [28] C. Peng ja teised, „Effect of a lignin-based polyurethane on adhesion properties of asphalt binder during UV aging process,“ *Construction and Building Materials*, kd. 247, 2020.
- [29] J. Yu ja teised, „Experimental study of soda lignin powder as an asphalt modifier for a sustainable pavement material,“ *Construction and Building Materials*, kd. 298, 2021.
- [30] J. Wu ja teised, „Investigation of lignin as an alternative extender of bitumen for asphalt pavements,“ *Journal of Cleaner Production*, kd. 283, 2021.
- [31] C. Hobson, "Evaluation of Lignin as an Antioxidant in Asphalt Binders," Kansas Department of Transportation Bureau of Research, Kansas, 2017.
- [32] A. Yuliestyan, M. García-Morales, E. Moreno, V. Carrera and P. Partal, "Assessment of modified lignin cationic emulsifier for bitumen emulsions used in road paving," *Materials & Design*, vol. 131, pp. 242-251, 2017.
- [33] A. Yuliestyan, T. Gabet, P. Marsac, M. García-Morales and P. Partal, "Sustainable asphalt mixes manufactured with reclaimed asphalt and modified-lignin-stabilized bitumen emulsions," *Construction and Building Materials*, vol. 173, 2018.
- [34] I. Pérez, A. R. Pasandín, J. C. Pais and P. A. A. Pereira, "Feasibility of Using a Lignin-Containing Waste in Asphalt Binders," *Waste and Biomass Valorization*, no. 11, pp. 3021-3034, 2020.
- [35] S. Arafat ja teised, „Sustainable lignin to enhance asphalt binder oxidative aging properties and mix properties,“ *Journal of Cleaner Production*, kd. 207, pp. 456-468, 2019.

- [36] Z. Yi ja teised, „Mechanical Performance Characterization of Lignin-Modified Asphalt Mixture,“ *Applied Sciences*, kd. 10, nr 9, pp. 1-12, 2020.
- [37] M. Zahedi, A. Zarei, M. Zarei and O. Janmohammadi , "Experimental determination of the optimum percentage of asphalt mixtures reinforced with Lignin," *Applied Sciences*, vol. 2, no. 2, p. 258, 2020.
- [38] C. Xu ja teised, „Effect of Lignin Modifier on Engineering Performance of Bituminous Binder and Mixture,“ *Polymers*, kd. 13, nr 7, 2021.
- [39] Transportation Association of Canada, "Development of lignin-modified asphalt for use in Canada," in *Transportation Association of Canada 2021 Conference and Exhibition - Recovery and Resilience: Transportation after COVID-19*, 2021.
- [40] FPInnovations, "FPInnovations," [Online]. Available: <https://web.fpinnovations.ca/tackling-climate-change-one-road-at-a-time/>. [Accessed 19 04 2022].
- [41] J. Yi, G. Doré and J.-P. Bilodeau, "Monitoring and Modeling the Variations of Structural Behavior of a Flexible Pavement Structure during Freezing," *Journal of Cold Regions Engineering*, 2016.
- [42] M. Junginger and teised, "Collaboration in aspHalt APplications with LIgnin in the Netherlands - eXtra Lignin (CHAPLIN XL) - Openbaar eindrapport," Universiteit Utrecht, Utrecht, 2022.
- [43] JSC «Naftan», "Naftan," [Online]. Available: <https://www.naftan.by/en/Product/Bitumens>. [Accessed 16 05 2022].
- [44] Fibenol, "Fibenol," [Online]. Available: https://fibenol.com/uploads/Lignova_TDS.pdf. [Accessed 2022].
- [45] Eesti Standardikeskus, "EVS-EN 933-1: Täitematerjalide geomeetristeomaduste katsetamine. Osa 1: Terastikulise koostise määramine. Sõelumismeetod Standard.," Eesti Standardimis- ja Akrediteerimiskeskus MTÜ, 2012.
- [46] Eesti Standardikeskus, "EVS-EN 1426.: Bituumen ja bituumensideained. Nõelpenetratsiooni määramine," Eesti Standardimis- ja Akrediteerimiskeskus MTÜ, 2015.
- [47] Eesti Standardikeskus, "EVS-EN 1427.: Bituumen ja bituumensideained. Pehmenemistäpi määramine. Kuuli-rõnga meetod," Eesti Standardimis- ja Akrediteerimiskeskus MTÜ, 2015.
- [48] Eesti Standardikeskus, "EVS-EN 12697-35, Asfaltsegud. Kuuma asfaltsegu katsemeetodid. Osa 35: Segu valmistamine laboris," Eesti Standardimis- ja Akrediteerimiskeskus MTÜ, 2016.
- [49] Eesti Standardikeskus, "EVS-EN 12697-5.: Asfaltsegud. Katsemeetodid. Osa 5: Erimassi määramine," 12697-35, 2018.
- [50] Eesti Standardikeskus, "EVS-EN 12697-22.: Asfaltsegud. Katsemeetodid. Osa 22: Rattaroopa katse," Eesti Standardimis- ja Akrediteerimiskeskus MTÜ, 2020.
- [51] Eesti Standardikeskus., "EVS-EN 12697-30.: Asfaltsegud. Katsemeetodid. Osa 30: Proovikehade valmistamine lööktihendajaga," Eesti Standardimis- ja Akrediteerimiskeskus MTÜ, 2018.
- [52] Eesti Standardikeskus, "EVS-EN 12697-6.: Asfaltsegud. Katsemeetodid. Osa 6: Asfaltproovikehade mahumassi määramine," Eesti Standardimis- ja Akrediteerimiskeskus MTÜ, 2020.

- [53] Eesti Standardikeskus., "EVS-EN 12697-8:, Asfaltsegud. Katsemeetodid. Osa 8: Asfaltsegust proovikehade poorsusomaduste määramine," Eesti Standardimis- ja Akrediteerimiskeskus MTÜ, 2018.
- [54] Eesti Standardikeskus, "EVS-EN 12697-1:, Asfaltsegud. Katsemeetodid. Osa 1: Lahustuva sideaine sisaldus," Eesti Standardimis- ja Akrediteerimiskeskus MTÜ, 2020.
- [55] Eesti Standardikeskus, "EVS-EN 12697-2:, Asfaltsegud. Katsemeetodid. Osa 2: Terastikulise koostise määramine," Eesti Standardimis- ja Akrediteerimiskeskus MTÜ, 2019.
- [56] Eesti Standardikeskus, "EVS 901-3 Tee-ehitus. Osa 3: Asfaltsegud," Eesti Standardimis- ja Akrediteerimiskeskus MTÜ, 2021.

LISAD

Lisa 1: Plastjätmete kasutamine asfaldisegudes

Lisa 2. AC 20 Base seguretsept

Lisa 3. Katsetulemuste tabel

Lisa 4. Ekstraheeritud materjali terastikuline koostis

Lisa 1: Plastjätmete kasutamine asfaldisegudes

Vastavalt „Asfaldist katendikihtide ehitamise juhise“ (AKEJ) punktile 2.6 võib taaskasutatavaid materjale asfaltsegudes kasutada eeldusel, et need on tellijaga kooskõlastatud ning on tõestatud kasutuskõlblikus asfaltsegudes. Viimase aasta jooksul on TRAM teinud paar katselõiku, kus on uuritud asfaltsegudes plastikjätmete kasutuselevõtu võimalusi. Konkreetselt on olnud selleks McReburi plastikjätmed ja Ida üksuse objektid. Hinnangu andmisel kaasati ka TalTechi teadlased ning tuginedes nende poolt läbiviidud katsetustele ja kokkuvõttele (vt manust) leiti, et teatud tingimustel võib McRebur lisandit TRAM objektidel kasutada.

Kasutamine on TRAM objektidel lubatud juhul, kui on täidetud kõik allpool toodud tingimused:

1. Kasutada võib ainult McRebur lisandit MR8;
2. MR8 lisandit võib kasutada ainult AC bin ja AC base asfaltsegudes;
3. Objekti liiklussagedus on kuni 6000 a/ööp;
4. Maksimaalne asendatav MR8 ogus on kuni 3% asfaltsegu kasutatavast bituumensideaine massist;
5. MR8 ei halvenda AC omadusi;
6. Asfaltsegu retseptis tuleb MR8 lisandi kasutamine selgelt kirjeldada;
7. Tootja peab tagama, et asfaltsegu tootmisel MR8 lisand sulandub ja seguneb täielikult asfaltbetoonsegus bituumensideainega.

MR8 lisandi arvutusnäide sideaine asendamisel:

- AC 20 base retsepti järgne doseeritav bituumensideaine kogus on näiteks 4,0%.
- Asendades 3% bituumenist MR8 lisandiga, tuleb retsepti järgseks bituumensideaine doseeritavaks koguseks 3,88%.
- 0,12% sideainest läheb retseptile kirja MR8 lisandiga.

NB! MR8 lisandit kasutades ei saa muuta retseptijärgse lahustuva sideaine sisaldust.

Lisa 2. AC 20 Base seguretsept

Tootja Labor
Tehas

Kooskõlastanud
omanikujärelevalve

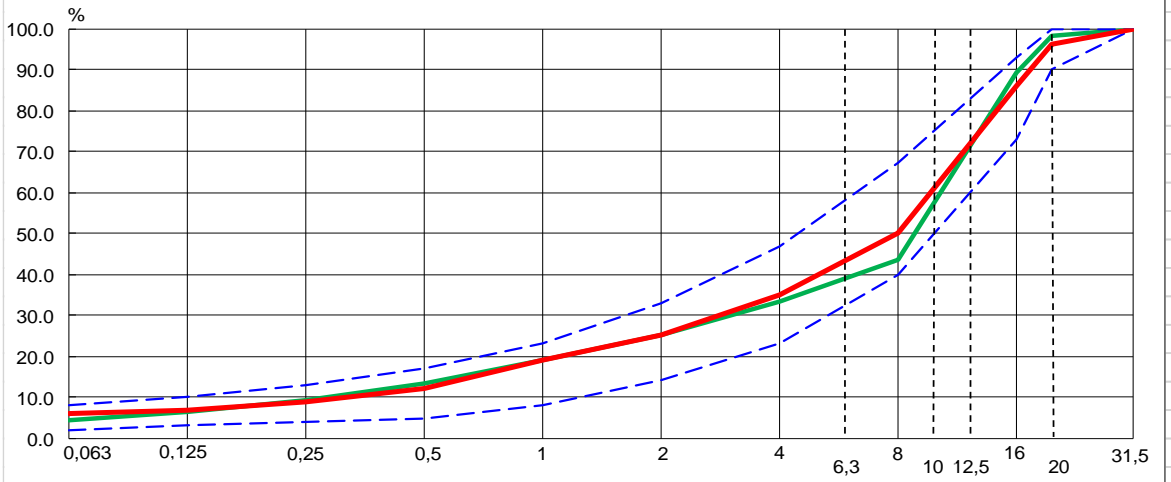
AC 20 base 160/220 + ligniin

(nimi, allkiri, kuupäev)

Segu paigaldamise koht
Seguretsept

Lõputöö
nr.:

Täitematerjalid														
Nr	fr	Tüüp	Tootja, dekl / karjäär	Ter tih Mg/m ³	Lamin	A _N	f	MB _F	C	Fl _{min}	F	F _{NaCl}		
1	liiv	liiv	Tariston AS / Karude III	2.62	NR	NR	4	NR	NR	NR	NR	NR		
2	0/4	lubjakivi	PTT/Väo	2.64	NR	NR	16	10	NR	NR	NR	NR		
3	4/16	lubjakivi	PTT/Väo	2.73	30	NR	4	NR	100/0	20	2	NR		
4	8/20	lubjakivi	PTT/Väo	2.73	30	NR	4	NR	100/0	20	2	NR		
5														
6														
Lisandid	Mark			%	Projekteeritud segu koostis.									
					Materjal				Materjali osakaal %				Materjali vajadus kg/t	
Sideaine	Tootja			Naftan	1	liiv	15	14.4						144.5
	Mark			160/220	2	0/4	19	18.3					183.0	
	Nake				3	4/16	42	40.4					404.5	
					4	8/20	24	23.1					231.1	
					5	0	0	0.0					0.0	
					6	0	0	0.0					0.0	
Sideaine lisandid	Mark			Tootja	%	0		B doseeritav		3.7				37.0
	Ligniin			Fibenol	muutu v	0		B katseline		3.6				36.0
Terastikuline koostis				SUMMA				100				100.0		
Nr	Materjal	0.063	0.125	0.25	0.5	1	2	4	8	16	20	31.5	45	
1	liiv	3.5	12	26	47	70	91	100	100	100	100			
2	0/4	13.5	17	21	27	36	53	84	100	100	100			
3	4/16	1.0	1	1	1	1	1	2	18	96	100			
4	8/20	3.1	4	4	4	5	5	6	8	62	93	100		
5	0													
6	0													
Sidendnormkoostis		4.3	6	9	14	19	25	33	43	89	98	100	100	
Norm	min	2.0	3	4	5	8	14	23	40	73	90	100	100	
	max	8.0	10	13	17	23	33	47	67	93	100	100	100	
Normkoostis		6.0	7	9	12	19	25	35	50	86	96	100	100	
Projekteeritud segu omadused														
Mahu-mass	Eri-mass	VMA %	V %	VFB %	V10G % *	WTS mm *	PRD % *	D %	ITSR % *	Abr _A ml *				
2.333	2.510	15.5	7.1	54.3	17.7	0.11	6.8	NR	83	NR				
Nõue		>14	6,0-12	DV	DV	DV	7	NR	≥ 80	NR				



Koostanud J.Kukebal

Lisa 3. Katsetulemuste tabel

Bituumeni katsed							
Katseniimetus	Standard	160/220	160/220+2,5% lig	160/220+5% lig	160/220+10% lig	160/220+25% lig	160/220+50% lig
Nõelpenetratsioon, dmm	EVS-EN 1426:2015	158	127	124	118	100	Ei olnud võimalik
Pehmenemistäpp kuul ja rõngas, oC	EVS-EN 1427:2015	41.4	42.8	43.6	43.8	46	kokku segada
Asfaltsegu katsed (AC 20 base)							
Katseniimetus	Standard	160/220	160/220+2,5% lig	160/220+5% lig	160/220+10% lig	160/220+25% lig	160/220+50% lig
Erimass, Mg/m3	EVS-EN 12697-5:2018 (Meetod A)	2.504	2.502	2.508	2.507	2.546	
Mahumass, Mg/m3	EVS-EN 12697-6:2020 (Meetod B)	2.353	2.365	2.354	2.335	2.304	
Jäävpoorsus, %	EVS-EN 12697-8:2018	6.0	5.5	6.2	6.9	9.5	
Roobastumise tõus WTSair mm/1000tsükliit	EVS-EN 12697-22 Meetod B, väike	0.2	0.12	0.13	0.13	0.14	
Suhteline roopasügavus PRD air, %	seade õhus, katsetemp 50 kraadi	7.4	5.4	5.7	5.5	6.1	
Roopasügavus RDair, mm		4.7	3.5	3.6	3.5	3.9	
Lahustuva sideaine sisaldus, %	EVS-EN 12697-1:2020	3.6	3.3	3.6	3.2	2.8	
Sõel	Standard						
31.5		100	100	100	100	100	
20		99	98	99	99	97	
16		92	89	92	92	91	
12.5		73	71	74	73	74	
8		44	42	46	42	43	
6.3		39	36	43	37	39	
4	EVS-EN 12697-2:2015+A1:2019	34	31	39	33	34	
2		28	26	31	27	28	
1		21	20	23	21	22	
0,5		16	16	18	16	17	
0,25		12	12	13	12	13	
0,125		9	9	10	9	10	
0,063		6.7	6.4	7.4	6.6	7.2	
Sõelkõver, sõela äbänd %							Ei olnud võimalik katsetada

* proovikehad tihendatud EVS-EN 12697-30 (2x50 lööki) - tihendamistemp vastavalt bituumeni penetraatsioonile

** proovikehad tihendatud EVS-EN 12697-33 p7.3.2 - tihendamistemp vastavalt bituumeni penetraatsioonile

