#### 研究成果報告書 科学研究費助成事業



今和 元 年 6 月 10 日現在

機関番号: 17102

研究種目: 基盤研究(B)(一般)

研究期間: 2016~2018

課題番号: 16H04438

研究課題名(和文)都市ごみ焼却灰中の金属アルミニウムからの水素ガス発生特性の解明とエネルギー回収

研究課題名(英文)Study on hydrogen generation mechanism and energy recovery from metal aluminum in municipal solid waste incineration residues

#### 研究代表者

島岡 隆行(Shimaoka, Takayuki)

九州大学・工学研究院・教授

研究者番号:80202109

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 14.000.000円

研究成果の概要(和文):本研究は、都市ごみ焼却灰と水の混合に伴い発生する水素ガスをエネルギー源として 積極的に有効活用することを図るものである。水素ガス発生に及ぼす反応温度、液固比、撹拌強度の影響、及び 短時間で大量の水素ガスを回収するための水素ガス発生促進方法として、焼却灰の粉砕、金属アルミニウムの添加、水酸化ナトリウムの添加の検討を行った。さらに、一般廃棄物焼却灰からの水素回収システムの環境経済評 価を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義 都市ごみ清掃工場の灰ピットにおける爆発事故の原因物質としても知られる焼却残渣から発生する水素ガスに着目し、その水素ガスをエネルギー源として積極的に有効利用することを図る点に特色がある。我が国が脱化石燃料、脱泉がであり、都市ごみからの水素ガス回収と再生可料、脱泉が、カースをもします。 能エネルギーの有効利用の実用化を目指す本研究の意義は極めて大きい。

研究成果の概要(英文): This study aimed to utilize the hydrogen gas generated from municipal solid waste incineration bottom ash with water as an energy source. The influence of reaction temperature, liquid-solid ratio, and stirring speed on the hydrogen gas generation was clarified, and the effectiveness of grinding of bottom ash, addition of metal aluminum, and addition of sodium hydroxide on enhancement of hydrogen gas generation was examined. Moreover, the environmental and economic evaluation of hydrogen recovery from municipal solid waste incineration bottom ash was carried out.

研究分野: 廃棄物資源循環学

キーワード: 廃棄物 都市ごみ 焼却灰 金属アルミニウム 水素

# 様 式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19(共通)

# 1.研究開始当初の背景

焼却処理は、中間処理技術の中で重要な役割を果たしている。日本において都市ごみの約75%が焼却処理されており、可燃性廃棄物の全量が焼却処理されていると言っても過言ではない。一方で焼却処理に伴って、大量の焼却残渣(=焼却灰+飛灰)が発生し、最終処分される廃棄物の約80%を焼却残渣が占有するに至っている。また、第3次循環型社会基本計画では、2010年度の最終処分量2,800万トンを2015年度に2,300万トンへと削減させる目標値が掲げられている。焼却残渣の有効利用が望まれる。

一方、都市ごみ焼却灰には金属アルミニウムが高濃度(平均 4.0 %、N=23)で含有されており、焼却灰の風化過程において、高 pH 下で水素ガスが発生し、その濃度は相当に高いことが確認されている。金属アルミニウムからの水素ガス発生メカニズムについては、燃料電池や工業利用の理想的な水素供給源として、多くの研究者らによって議論されている。都市ごみ焼却灰からの水素ガス発生についても、研究がなされている。アメリカ、日本、ドイツ、スウェーデン、スイスの研究者らによるもので、清掃工場や埋立地での水素爆発の危険性に焦点をあてた研究である。焼却灰をコンクリートの骨材や道路の路盤材として利用した場合の水素ガス発生現象についても報告がなされている。以上、水素ガス発生に伴う危険性や問題点は、以前から知られており、危険や問題を回避するための検討はなされている。しかし、焼却残渣からの水素ガスの発生特性や影響因子の検討、有効利用を意図した水素ガス回収のための研究は見られない。

#### 2.研究の目的

本研究は、年間約600万トン排出される都市ごみ焼却残渣から発生する3,600万㎡(実験値による試算)の水素ガスを再生可能なエネルギー源として活用しようとするものである。清掃工場灰ピットでの水素ガス爆発に伴う死亡事故、焼却残渣主体の埋立地からの水素ガスの排出など、国内外において焼却残渣から水素ガスが発生する事実は知られている。しかし、水素ガスの発生特性の解明、水素ガス発生に及ぼす影響因子、さらには焼却残渣からの水素ガスをエネルギー源として有効利用することを意図した研究は限られている。本研究では、都市ごみ焼却残渣からの水素ガス発生特性、発生に及ぼす影響因子を解明し、短時間に大量に水素ガスを回収し得る手法を見出し、水素ガスのエネルギー源としての有効活用を目指すものである。

#### 3.研究の方法

# (1) 一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生に及ぼす影響因子

一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生の影響因子の解明及び水素ガス発生促進処理としての 粉砕処理の有効性について検討した。

清掃工場から排出された焼却灰を一日風乾し、さらに 65 で 1 日乾燥させ、実験に供した。また、焼却灰粒子に含まれる金属アルミニウムの粒径は 50 μm 程度であることを踏まえ、水素ガス発生促進の方法として、焼却灰を粒径 50 μm 以下に粉砕することで、焼却灰粒子中の金属アルミニウムを露出させ、水との接触を促すことを考え、振動ミルを用いて粒径 45 μm 以下に粉砕した焼却灰も用いた。

焼却灰と純水を混合、撹拌し、水素ガス発生量を測定した。水素ガス発生の影響因子として、温度、液固比、撹拌強度を考慮した。さらに粉砕の有無のケースも設定した。上記をパラメータとした7ケースの実験を実施した。実験期間は水素ガスの発生が停止したと判断されるまでとした。

# (2) 一般廃棄物焼却灰からの水素回収システムの環境経済評価

焼却灰からの水素ガス回収と有効利用に資することを目的とし、金属アルミニウム(金属 AI)のマテリアルフロー分析と水素ガス回収システムのライフサイクルアセスメント(LCA)を行った。具体的には、分析対象を福岡市のクリーンパーク西部(西部清掃工場、西部資源化センター)とし、金属 AI のフローを明らかにし、水素ガス回収システムを導入した場合のライフサイクルコスト(LCC)とライフサイクル二酸化炭素排出量(LC-CO2排出量)を評価した。

西部清掃工場に搬入された可燃ごみを展開し、組成別の重量及び金属 AI 含有量を調査した。また、西部リサイクルセンターにおいて、不燃ごみ及び粗大ごみの破砕残渣(可燃)と破砕残渣(不燃)を採取し、金属 AI 含有量を測定した。さらに、西部清掃工場から排出された焼却灰及び飛灰を採取し、金属 AI 含有量を測定した。以上で求めた、金属 AI 含有量に年間廃棄物処理フローを乗じることで、金属 AI のマテリアルフローを推計した。

焼却灰から水素を発生させて回収、精製、圧縮貯蔵するシステムを清掃工場に導入した場合の、水素回収量、設備のイニシャルコスト、ランニングコスト、二酸化炭素排出量に関する推計を行った。ここでは、焼却炉から排出された焼却灰の水冷過程における水素ガス回収、水素ガスの精製、水素ガスの圧縮貯蔵までをシステム境界とした。ここでの LCA は、水素ガスの発生から回収に至るコストやライフサイクル環境負荷を明らかにすることを目的としていることから、一般廃棄物の焼却処理や粗大ごみ、不燃ごみの破砕選別処理等のプロセスは LCA の計算範囲から除外した。

# (3) 一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生促進

焼却灰から発生する水素ガス回収システムの実用化には短時間で大量の水素ガスを発生させる必要がある。焼却灰からの水素ガス発生を促進させ、焼却灰単位質量当たりの水素ガス発生量及び発生速度を増加させる方法として、(1)燃焼後に水と接触することなく空冷された焼却灰(乾灰)を用いる方法、(2)水素ガスの発生源である金属アルミニウム(循環利用されていない金属アルミニウム屑)を添加する方法、(3)金属アルミニウムの水和反応を促進させるために溶液のpHを上昇させる方法、(4)水素ガスの発生量が少ない粒径区分の焼却灰を除去する方法が考えられた。

そこで、短時間で大量の水素ガスを発生させることができる方法を検討した。焼却灰としては乾灰を用い、焼却灰と水の混合撹拌における、循環利用されていない金属アルミニウムの添加、並びに水酸化ナトリウムの添加による水素ガスの発生促進について検討した。また、水素ガス回収システムにおける廃液量を減少させるために、焼却灰と水の混合撹拌における液固比の検討を行った。また、水素ガス発生量の少ない粒径区分の焼却灰を除去することによる焼却灰単位質量からの水素ガス発生量の増加を図るために、粒径区分別の水素ガス発生量の把握を行った。

アルミニウム添加による水素ガス発生量増加実験、水酸化ナトリウム水溶液による水素ガス発生促進実験および水酸化ナトリウム水溶液を用いた場合の液固比による水素ガス発生への影響の検討では、恒温撹拌装置を用いた。恒温撹拌装置のガラス容器内で焼却灰と純水もしくは水酸化ナトリウム水溶液を焼却灰に対して液固比5で混合したものを、反応温度50、撹拌強度600 rpmで撹拌し、水素ガス発生量を測定した。実験期間は水素ガスの発生が止まるまでとした。

各粒径区分の水素ガス発生量の調査では、バイアルを用いた実験を行った。約470 mlのガラス製バイアルに焼却灰20gおよび純水もしくは1 mol/L 水酸化ナトリウムを液固比5になるように加えて密閉し、35 の恒温器内で振とう器を用いて200 rpm で振とうした。バイアル内の圧力を測定し、気体の状態方程式を用いて圧力をモル数に換算し、モル数の変化から水素ガス発生量を算出した。実験期間は水素ガスの発生が終了するまでとした。

#### 4. 研究成果

#### (1) 一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生に及ぼす影響因子

焼却灰と純水を混合、撹拌し、水素ガス発生量を測定した。水素ガス発生量は反応温度が高いほど増加する傾向が示されたが、水素ガス発生量が最大となったのは反応温度 50 においてであった。水素ガス発生においては最適な反応温度が存在し、それは本研究では 50 であった。液固比が少なく、かつ撹拌速度が遅い場合では、水素ガス発生量は比較的少なかった。それは、焼却灰と水が十分に撹拌されなかったためと考えられた。十分に撹拌された場合では、液固比3 と液固比 5 で水素ガス発生量に大きな違いはみられなかった。水素ガス回収後の廃液量削減の観点から、液固比は3の方が良いと考えられた。焼却灰を粒径 45 μm 以下に粉砕した実験を行った結果、水素ガス発生量の大幅な増加は見られなかったが、水素ガス発生時間(水素ガスの発生が停止するまでの時間)を大幅に短縮できることが示された。

#### (2) 一般廃棄物焼却灰からの水素回収システムの環境経済評価

福岡市クリーンパーク西部を対象とした一般廃棄物処理における金属アルミニウムのマテリアルフロー推計の結果、焼却残渣に含有する金属アルミニウムは焼却灰 529 t、飛灰 130 t であり、合計 659 t であった。その由来は可燃ごみ由来が 90 %、不燃ごみ由来が 10 %であることが分かった。焼却灰からの水素回収システムを対象としたライフサイクルアセスメントの結果、水素製造量は 15,435  $Nm^3/4$ 年であり、LCC は 291 万円/年であった。ここから水素製造単価を導出した結果、189 円/ $Nm^3$ であり、現在の一般的な水素販売価格 103 円~113 円/ $Nm^3$ の 1.7~1.8 倍であった。焼却灰からの時間当たりの水素の発生量を現在の 4.5 倍に引き上げることができれば、市場価格と同等のコストでの製造が可能となる。水素回収システムの導入による環境負荷を評価するために、水素回収システム導入に伴う二酸化炭素排出量を算出した結果、1.36 kg- $CO_2/Nm^3$ - $H_2$ であった。一般的に環境負荷が小さいと言われている天然ガスからの水素製造は 0.90 kg- $CO_2/Nm^3$ - $H_2$ であり、この値と比較して本システムの LC- $CO_2$  は約 1.51 倍であった。

# (3) 一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生促進

金属アルミニウムを添加することで水素ガス発生量は増加した。金属アルミニウム添加率を10 %以上にすると、水素ガス発生量は 100 m³/t - ash を超えることが確認された。ただし、金属アルミニウムの反応効率を求めた結果、反応効率は金属アルミニウム添加率 10 %で最大であった

水酸化ナトリウムを添加することで、水素ガス発生量に大幅な増加は見られなかったが、水素ガス発生速度は大幅に増加した。具体的には、実験開始から1日間における水素ガス発生量は約3倍に増加した。

金属アルミニウムを 8 %添加し、1 mol/L 水酸化ナトリウム水溶液を用いたケースでは、1 日で 82.2 m³/t-ash の水素ガスが発生した。

水酸化ナトリウム水溶液を用いた場合、液固比を小さくすると水素ガス発生量が減少した。

液固比3のケースの水素ガス発生量は液固比5のケースの約1/3であった。水酸化ナトリウム 水溶液を用いる場合、液固比3では不十分であることが示された。

1 mol/L 水酸化ナトリウム水溶液を用いた場合、粒径 4.75 mm 以上の焼却灰からの水素ガス発生量は、他の粒径区分に比べて極めて少ないことが示された。焼却灰単位質量当たりの水素ガス発生量の増加を図る上で、粒径 4.75 mm 以上を除外することが望ましいと考えられた。

#### 5 . 主な発表論文等

## 〔雑誌論文〕(計3件)

中山裕文、鎌野剣士朗、島岡隆行、一般廃棄物焼却灰からの水素回収システムの環境経済評価、土木学会論文集 G (環境) 査読有、Vol.73、2017、 \_213- \_220
Arumugam Nithiya、Amirhomayoun Saffarzadeh、Takayuki Shimaoka、Hydrogen Gas Generation from Metal Aluminum-Water Interaction in Municipal Solid Waste Incineration (MSWI) Bottom Ash、Waste Management、査読有、Vol.73、2018、342-350 Masayasu Miyake、Teppei Komiya、Amirhomayoun Saffarzadeh、Takayuki Shimaoka、Evaluating the Crucial Factors Affecting Hydrogen Gas Generation from Municipal Solid Waste Incineration Bottom Ash (MSWIBA)、Detritus、査読有、Vol.2、2018、150-154

# [学会発表](計18件)

Amirhomayoun Saffarzadeh、Nithiya Arumugam、Takayuki Shimaoka、Enhancing Hydrogen Production from Municipal Solid Waste Incineration (MSWI) Bottom Ash by Adding Metal Aluminum as a Promoter、7th International Conference on Hydrogen Production、2016 Nithiya Arumugam、Amirhomayoun Saffarzadeh、Takayuki Shimaoka、Effect of Municipal Solid Waste Incineration Bottom Ash Cooling Methods on Hydrogen Evolution、The International Conference on Combustion, Incineration/Pyrolysis, Emission and Climate Change (9th i-CIPEC)、2016

Amirhomayoun Saffarzadeh, Nithiya Arumugam, Takayuki Shimaoka, Hydrogen Generation from Aluminum-Water Reactions in Municipal Solid Waste Incineration (MSWI) Bottom Ash, 6th International Symposium on Energy from Biomass and Waste, 2016

三宅雅靖、小宮哲平、島岡隆行、一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生に及ぼす影響因子 に関する基礎的研究、平成 28 年度土木学会西部支部研究発表会、2017

鎌野剣士朗、中山裕文、島岡隆行、一般廃棄物焼却残渣からの水素回収システムを対象とした MFA および LCA、平成 28 年度土木学会西部支部研究発表会、2017

松尾翼、小宮哲平、中山裕文、島岡隆行、眞鍋和俊、焼却残渣主体埋立廃棄物からの水素 発生特性に関する研究、平成 28 年度土木学会西部支部研究発表会、2017

Tsubasa MATSUO, Teppei KOMIYA, Hirofumi NAKAYAMA, Takayuki SHIMAOKA, Kazutoshi MANABE, Characteristics of Landfilled MSW Incineration Residues on Hydrogen Gas Generation, 2017 Spring Scientific Conference by Korea Society of Waste Management, 2017

- 三宅雅靖、小宮哲平、島岡隆行、一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生特性に関する研究、 平成29年度廃棄物資源循環学会研究発表会九州支部ポスター発表会、2017
- 三宅雅靖、小宮哲平、島岡隆行、一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生特性に関する基礎 的研究、第 28 回廃棄物資源循環学会研究発表会、2017
- M. Miyake, T. Komiya, A. Saffarzadeh, T. Shimaoka, Evaluating the Crucial Factors Affecting Hydrogen Gas Generation from Municipal Solid Waste Incineration Bottom Ash (MSWIBA), The 16th International Waste Management and Landfill Symposium (Sardinia 2017), 2017
- 三宅雅靖、小宮哲平、島岡隆行、一般廃棄物焼却灰の微粉砕による水素ガス発生促進効果 に関する基礎的研究、平成 29 年度土木学会西部支部研究発表会、2018
- 松尾翼、小宮哲平、中山裕文、島岡隆行、眞鍋和俊、焼却残渣主体埋立廃棄物中のアルミの腐食反応による水素ガス発生の pH 依存性に関する研究、平成 29 年度土木学会西部支部研究発表会、2018
- 三宅雅靖、小宮哲平、島岡隆行、一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生促進方法の検討、 平成 30 年度廃棄物資源循環学会九州支部研究ポスター発表会、2018
- 三宅雅靖、Amirhomayoun Saffarzadeh、小宮哲平、島岡隆行、一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生促進方法の検討、平成 30 年度廃棄物資源循環学会九州支部研究ポスター発表会、2019
- M. Miyake, A. Saffarzadeh, T. Komiya, T. Shimaoka, Effors to Promote the Recovery of Hydrogen Gas from Municipal Solid Waste Incineration Bottom Ash (MSWIBA) by Using Catalysis, The 4th International Conference on Recycling and Reuse, 2018
- 三宅雅靖、Ami rhomayoun Saffarzadeh、小宮哲平、島岡隆行、一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生促進における TiO<sub>2</sub>添加及び NaOH 水溶液の有効性、第 29 回廃棄物資源循環学会研究発表会、2018
- 三宅雅靖、小宮哲平、島岡隆行、アルミニウムおよび水酸化ナトリウム添加による一般廃棄物焼却灰からの水素ガス発生促進の検討、平成30年度土木学会西部支部研究発表会、

#### 2019

Xiang Wan、Amirhomayoun Saffarzadeh、Teppei Komiya、Takayuki Shimaoka、Influencial Factors and Mechanism of Hydrogen Gas Generation from Municipal Solid Waste Incineration Bottom Ash Reacted with Water、平成 30 年度土木学会西部支部研究発表会、2019

# [図書](計0件)

# 〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計1件)

名称:焼却灰からの水素ガス回収方法およびそのシステム

発明者:藤川宗治、奥村拓也、島岡隆行、アミルホマユンサファルザデ

権利者:株式会社タクマ

種類:特許

番号:特許第 6490621 号

取得年:2019 国内外の別:国内

[その他]

ホームページ等

http://env.doc.kyushu-u.ac.jp/

#### 6.研究組織

# (1) 研究分担者

研究分担者氏名:中山 裕文

ローマ字氏名:(NAKAYAMA, Hirofumi)

所属研究機関名:九州大学

部局名:工学研究院

職名:准教授

研究者番号(8桁):60202109

研究分担者氏名:小宮 哲平

ローマ字氏名:(KOMIYA, Teppei)

所属研究機関名:九州大学

部局名:工学研究院

職名:助教

研究者番号 (8桁): 20457451

研究分担者氏名:サファルザデ アミルホマユン

ローマ字氏名:(SAFFARZADEH, Amirhomayoun)

所属研究機関名:九州大学

部局名:工学研究院 職名:特任准教授

研究者番号(8桁):00727381

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名:三宅 雅靖

ローマ字氏名:(MIYAKE, Masayasu)

研究協力者氏名:万 翔 ローマ字氏名:(WAN, Xiang) 研究協力者氏名:鎌野 剣士朗 ローマ字氏名:(KAMANO, Kenshiro)

研究協力者氏名:松尾 翼

ローマ字氏名:(MATSUO, Tsubasa)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。