

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月25日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21560850

研究課題名（和文） 亜臨界水処理によるバイオマス+プラスチック混合廃棄物のクリーン燃料化

研究課題名（英文） Production of clean and high-calorific-fuel from waste mixture of biomass and plastic using hydrothermal treatment

研究代表者

佐古 猛 (SAKO TAKESHI)

静岡大学・創造科学技術大学院・教授

研究者番号：20324329

研究成果の概要（和文）：200℃、1.6MPaの亜臨界水中で、食品廃棄物または農作物非可食部+非塩素系廃プラスチックまたはポリ塩化ビニルという混合廃棄物を30分間、攪拌しながら水熱処理すると、粒径5mm以下、発熱量25～30MJ/kg、塩素含有率0.3wt%以下の複合燃料が生成した。この燃料は燃焼時に有害な排ガスを出さないクリーン燃料であり、その中のバイオマス成分は亜臨界水中で加熱殺菌され、表面が炭化しているので、長期保存が可能だった。

研究成果の概要（英文）：Mixtures of food waste or agricultural waste + waste plastics with or without chlorine atoms were treated in subcritical water at 200°C and 1.6MPa for 30 min with strong agitation. The produced composite fuel had the diameter of less than 5 min, calorific value of 25-30 MJ/kg and chlorine content of less than 0.3 wt%. The fuel was a clean fuel and it did not produce toxic exhaust gas when it burned in air. Furthermore it could be stored for a long time because it was sterilized and the surface was carbonized in subcritical water.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・リサイクル工学

キーワード：再資源化

1. 研究開始当初の背景

(1)低炭素社会を構築し、地球温暖化を抑制すると共に、石油依存型社会から脱却するために、未利用あるいは廃棄バイオマスをエネルギー資源として有効活用するための研究開発が注目されている。一方、エネルギー資源

としてのバイオマスは、含水率が高く単位体積当たりの発熱量が少ない、組成の変動が大きい、短期間で腐敗したりメタン発酵するために長期間の安定・安全な保存が困難なものが多いといった問題点を持っている。

(2)申請者らは、バイオマス資源が持つこれら

の問題点を克服するために、環境への悪影響がない亜臨界水を用いて、(a)400~450℃、10MPa で未利用あるいは廃棄バイオマスを完全かつクリーン燃焼し、その時に発生する燃焼熱を用いて発電する技術、(b)600℃、10MPa 付近でバイオマスを分解・ガス化し、水素含有率が高い燃料ガスを生成する技術、(c)200~250℃、2~4MPa でバイオマス中のセルロースを加水分解し、その後、酵素糖化によりバイオエタノール原料のグルコースを生産する技術等の開発を行っている。

(3)一方、これまで研究を行ってきた亜臨界~超臨界水技術は、400~600℃という高温水を用いているので、高価な反応器材料を使う必要がある(研究(a)と(b))、連続処理のためには10MPa という高压反応器中に固体あるいはスラリーを連続注入する高压ポンプを開発する必要がある(研究(a)と(b))、前処理として亜臨界水分解を使用し、その後、微生物処理を行う2段階プロセスのために、反応速度が遅い(研究(c))等の問題点がある。

2. 研究の目的

(1)本研究の目的は、亜臨界水を用いてできるだけ穏やかな条件で、あまりエネルギーを使わずに、未利用あるいは廃棄バイオマスを高収率で利用価値の高いエネルギー資源に変換する技術を開発することである。

(2)有機物を加水分解して粒子化する亜臨界水を用いると、溶解し分散したプラスチック粒子の回りにバイオマス由来の微粉末が付着した複合粒子が得られる。この粒子は、(a)高発熱量のプラスチックを含有しているので、発熱量は石炭並みに高い、(b)プラスチック粒子の回りのバイオマス微粉末が餅の回りのきな粉のような役割をしているので、複合粒子が互いに融着するのを抑制している、(c)亜臨界水によりバイオマスの組織や細胞壁の一部が加水分解されているので、後の加

熱処理によりバイオマス成分は容易に脱水する、(d)200℃、2MPa 付近の亜臨界水中でバイオマスは加熱殺菌されて表面が少し変化するので長期間安定に保存できるという利点を得られ、現在のバイオマス由来の固体燃料が抱えている問題点をほぼ完全に解決可能である。

3. 研究の方法

(1)無害な亜臨界水を用いて、食品廃棄物や農作物非可食部等の未利用及び廃棄バイオマスと非塩素系及び塩素系廃プラスチックから、高発熱量で塩素含有率が低く、組成や粒径が均一な複合粉末燃料を生産するための基盤研究を行った。具体的には以下の4つの項目について検討した。

(2)亜臨界水による複合粉末燃料化の最適条件の決定

大型攪拌機を備えた亜臨界水粉末燃料化装置を用いて、バイオマス廃棄物と廃プラスチックの混合物から高発熱量の複合粉末燃料を生成する最適処理条件を決定した。装置の概要を図1に示す。内容積は約2リットル、内部に200数十℃の過熱水蒸気を注入して、亜臨界水の供給と対象物の加熱を行った。また比重差のあるバイオマスとプラスチック

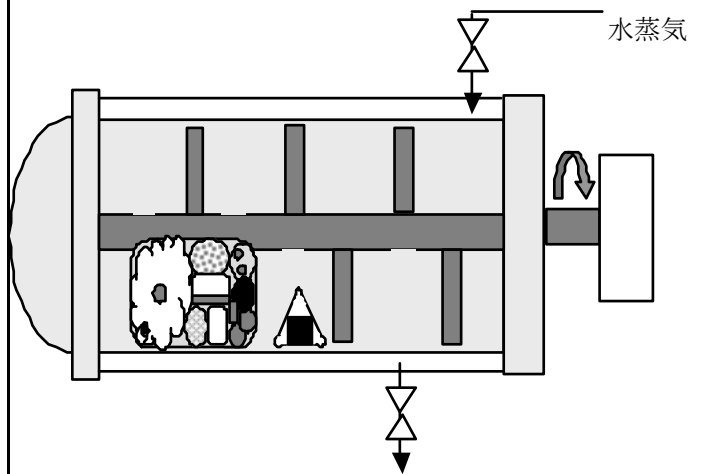


図1 亜臨界水粉末燃料化装置の概略

を均一混合し複合粒子にするために、大型で回転方向を途中で逆転できる攪拌機を設置してある。

混合廃棄物の粉末燃料化には多くの実験パラメータが関与しているが、とりわけ重要な処理温度、処理時間、バイオマス/プラスチック比、攪拌速度について検討した。本研究では、生成した複合粉末燃料の粒径が5mm以下で粒度分布が狭いこと、石炭並の発熱量を持っていることを目標にして、最適処理条件を決定した。

(3) 亜臨界水中での複合粒子化のメカニズムの解明

バイオマスとプラスチック混合物の複合粒子化のメカニズムを解析するために、1年目にのぞき窓と攪拌機付きの亜臨界水加水分解観測装置を製作し、亜臨界水中でバイオマスやプラスチックが加水分解し、更に強い攪拌により粒子化する過程を CCD カメラで観察した。そしてバイオマスやプラスチックのサイズの減少から粉末化速度を決定し、固体の表面反応モデルを用いて速度解析を行うことを計画した。

(4) バイオマス成分の高速乾燥に対する亜臨界水処理効果の解析

亜臨界水処理後の粉末燃料中のバイオマス成分は組織や細胞壁の一部が加水分解により破壊されているので、内部の水分が除去しやすくなっていると予想された。本研究では、細胞壁が堅い代表的なバイオマスである木質バイオマスを選び、亜臨界水の処理温度や時間と乾燥速度の関係の測定、光学顕微鏡による処理後の細胞壁の直接観察により、乾燥速度を増大させるための最適亜臨界水処理法と条件を決定した。

(5) 複合粉末燃料の特性評価

得られた複合粉末燃料の粒径、粒度分布、燃焼熱、かさ密度、元素組成、含水率、灰

分含有率、脱水温度等の基本物性を測定し、燃料の元素組成から発熱量を計算する方法を開発した。

4. 研究成果

(1) 本研究により、排出量が多い食品や農業系のバイオマス廃棄物とポリ塩化ビニルを含む汎用プラスチック廃棄物から高発熱量で燃焼時に有害な排ガスを出さないクリーンな複合粉末燃料を生産するための基盤技術を開発した。以下に4つの研究項目に関する研究成果を示す。

(2) 亜臨界水による複合粉末燃料化の最適条件の決定

亜臨界水粉末燃料化装置を用いて、食品廃棄物+非塩素系廃プラスチック、食品廃棄物+ポリ塩化ビニル、農作物非可食部+非塩素系廃プラスチックの各混合物から高発熱量で塩素含有率が低い複合粉末燃料を生成するための最適処理条件を決定した。その結果、いずれの混合廃棄物も 200°C、1.6MPa、反応時間 30 分、攪拌速度 10rpm、バイオマス廃棄物：廃プラスチック：プラスチック分散材=10:2:5（重量比）の条件で水熱処理すると、粒径が 5mm 以下、発熱量が 25~30MJ/kg、塩素含有率 0.3wt%以下の複合粉末燃料が得ら

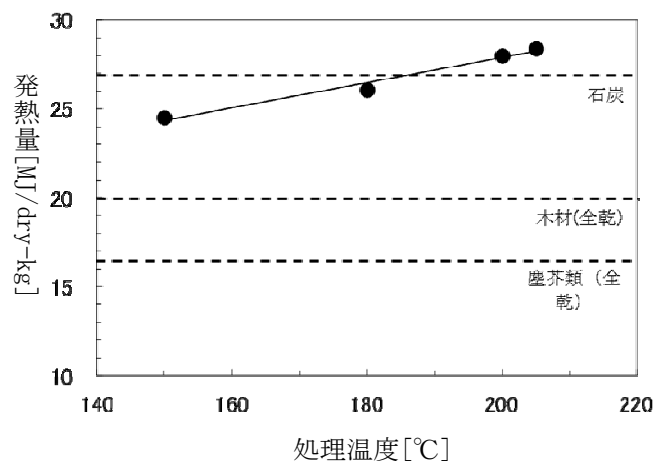


図2 水熱処理により生成した粉末燃料の発熱量と処理温度の関係 (30分)

れた。ここでプラスチックの粒子化を促進するために加えたプラスチック分散材には入手が容易なおがくずや剪定枝等を使用した。図2に示すように得られた複合燃料の発熱量は石炭の発熱量 27MJ/kg に匹敵し、塩素含有率は燃料としての上限の 0.3wt%以下であり、高発熱量のクリーン燃料として利用できることが明らかになった。

(3) 亜臨界水中での複合粒子化のメカニズムの解明

のぞき窓付きの亜臨界水加水分解観察装置を用いてキャベツとポリスチレンの粉末燃料化過程を観察した結果、180℃付近からキャベツの微粉化と炭化が起こり始めると共にプラスチックの溶融も進行することがわかった。しかしキャベツの炭化により装置内の熱水が黒く着色し、プラスチックの粒子化の過程を目視観測できなかった。

粉末燃料化の最後の減圧工程においても、大型攪拌機による反応器内の攪拌を続けることにより、粉末燃料中の大きなプラスチック塊がほとんどなくなり、サイズと発熱量の両面で安定した粉末燃料を生成可能なことを明らかにした。得られた粉末燃料を顕微鏡で観察したり、表面の分析を行ったところ、多くの粒子は図3に示すような2層構造を持つことが分かった。すなわち粉末燃料

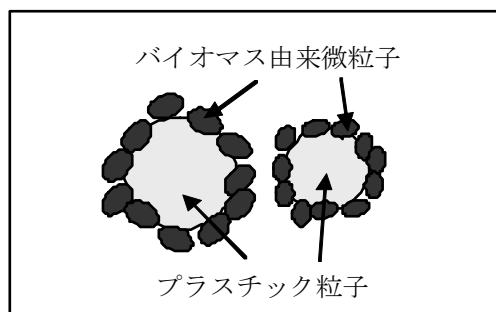


図3 複合燃料の断面図

の中心核はプラスチック粒子であり、その周りに微粉化したバイオマス成分が付着し、互いに融着することを抑制していた。

(4) バイオマス成分の高速乾燥に対する亜臨界水処理効果の解析

項目(2)で説明した3種類の混合廃棄物から水熱処理により生成したすべての複合燃料について、含水率をほぼゼロにするために必要な乾燥時間や乾燥エネルギーは、水熱処理する前の廃棄物に比べて 1/3~1/5 になることがわかった。例として米飯+おがくずを水熱処理したものとし、乾燥した時の重量変化を図4に示す。完全に乾燥するまでの時間（重量減少率がほぼ横ばいになる時間）は、未処理では3時間、一方、水熱処理した場合は1時間と 1/3 になった。

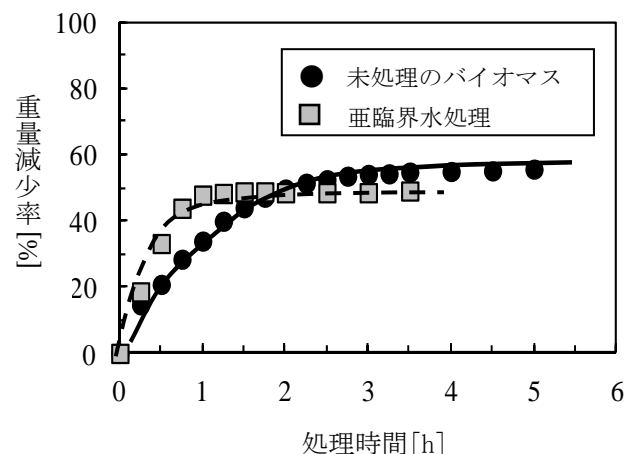


図4 未処理と亜臨界水処理した米飯+おがくずの乾燥速度の比較

(5) 複合粉末燃料の特性評価

項目(2)で示した最適条件で3種類のバイオマス+プラスチック混合廃棄物から複合粉末燃料を生成すると、25~30MJ/kgの高発熱量、粒径が5mm以下、粒度分布が比較的狭い、塩素含有率が0.3wt%以下の粉末燃料を生成出来ることがわかった。

複合燃料の元素組成から発熱量を計算したところ、ごみの発熱量の計算に提案された Scheuer-Kestner-Meunier の式が 5~10%の誤

差内で良好に計算できることがわかった。複合燃料の粒径ごとの計算値と実測値の比較を図5に示す。

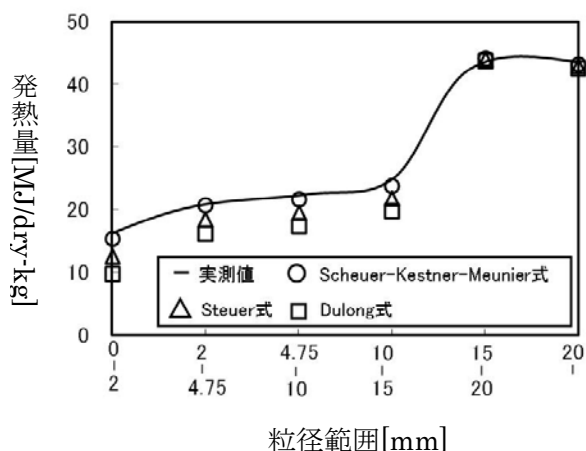


図5 複合燃料の粒径ごとの発熱量の実測値と計算値の比較

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 11 件)

- ① 佐古猛、岡島いづみ、藤森祐耶、清水達祥、亜臨界水を用いる塩分を含んだがれきの燃料変換技術、紙パルプの技術、査読有、62 巻、2012、50-54
- ② 岡島いづみ、藤森祐耶、丹羽秀明、佐古猛、亜臨界水を用いる高発熱量の粉末燃料の生産技術、Jasco Report 超臨界最新技術特集、査読無、11 巻、2012、22-26
- ③ 佐古猛、岡島いづみ、亜臨界水を用いる塩素分を含んだ「被災地がれき」の燃料変換技術、マテリアルステージ、査読無、11 巻、2012、10-13
- ④ 佐古猛、岡島いづみ、亜臨界水を用いるゴミや瓦礫の粉末燃料化技術、OHM、査読無、98 巻、2011、2-3
- ⑤ 佐古猛、岡島いづみ、亜臨界水を用いるバイオマス廃棄物の利活用技術の開発、化学工学、査読無、75 巻、2011、772-775
- ⑥ 佐古猛、超臨界・亜臨界流体を用いた環境保全技術、化学と教育、査読無、58 巻、2010、218-219
- ⑦ 佐古猛、岡島いづみ、超臨界・亜臨界流体を利用した環境保全技術、応用物理、査読無、79 巻、2010、599-604
- ⑧ 佐古猛、岡島いづみ、亜臨界水を用いるバイオマス廃棄物からの高効率エネルギー生産技術、高圧力の科学と技術、査読

無、20 巻、2010、26-32

- ⑨ 佐古猛、岡島いづみ、超臨界・亜臨界流体を用いる廃棄物の適正処理と資源化技術、LETTER、査読無、27 巻、2009、1-22
- ⑩ 佐古猛、岡島いづみ、亜臨界水を用いるバイオ燃料の生産技術、21 世紀の環境とエネルギーを考える、査読無、39 巻、2009、19-32
- ⑪ 岡島いづみ、亜臨界・超臨界流体を利用した廃棄物のリサイクル技術、日本エネルギー学会誌、査読有、88 巻、2009、1055-1059

[学会発表] (計 22 件)

- ① 佐古猛、エネルギー・環境問題にチャレンジする超臨界・亜臨界水技術、新化学技術推進協会 環境技術部会講演会(招待講演)、2012.1.25、キャンパスプラザ京都(京都)
- ② 佐古猛、熱水を用いる東日本大震災のがれきの燃料化技術、日本学術会議中部地区会議学術講演会(招待講演)、2011.11.11、静岡大学(静岡)
- ③ Takeshi Sako、Challenge of supercritical fluid technology to energy and environmental problems、The 9th International Conference on Separation Science and Technology (招待講演)、2011.11.3、Grand Hotel, Jeju (韓国)
- ④ 佐古猛、超臨界流体を用いるプラスチックリサイクル技術、第26回グリーンケミストリー研究会講演会(招待講演)、2011.10.9、日本大学(東京)
- ⑤ Takeshi Sako、Idzumi Okajima、Yuya Fujimori、Tatsuyoshi Shimizu and Iwao Kimura、Production of clean and high-calory powder fuel from mixture of waste plastics and waste biomass using subcritical water、6th International Symposium on Feedstock Recycling of Polymeric Materials、2011.10.7、Hotel Beatriz Toledo (スペイン)
- ⑥ 藤森祐耶、岡島いづみ、清水達祥、佐古猛、亜臨界水を用いるバイオマス+プラスチック混合廃棄物の粉末燃料化、化学工学学会第43回秋季大会、2011.9.15、名古屋工業大学(愛知)
- ⑦ 丹羽秀明、藤森祐耶、岡島いづみ、清水達祥、佐古猛、亜臨界水による農業系バイオマス+プラスチック廃棄物の粉末燃料化、第48回化学関連支部合同九州大会、2011.7.9、北九州国際会議場(福岡)
- ⑧ 佐古猛、超臨界・亜臨界流体を用いる環境・エネルギー技術、産学官マッチング

- 会in豊橋、2011.1.28、豊橋商工会議所（愛知県）
- ⑨ Takeshi Sako, Yuya Fujimori, Hideaki Niwa, Idzumi Okajima, Production of clean and high-calory powdery fuel from mixture of waste plastics and garbage using subcritical water, International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, 2010.12.18、ハワイコンベンションセンター（米国）
- ⑩ 後藤敏晴、河瀬信彦、岡島いづみ、清水達祥、佐古猛、水熱反応によるプラスチック+食品廃棄物の燃料化技術のEPR-プラスチック由来廃棄物の燃料化に関するライフサイクルエナジーアセスメント、第59回高分子討論会、2010.9.17、北海道大学（北海道）
- ⑪ 佐古猛、革新的エネルギー技術がつくるサステナブルな社会、工学フォーラム2010、2010.9.11、大阪ビジネスパーク円形ホール（大阪府）
- ⑫ 佐古猛、超臨界・亜臨界流体を用いる廃棄物の有効利用技術の実用化に向けて、化学工学会第42回秋季大会、2010.9.7、京都大学（京都府）
- ⑬ 藤森祐耶、岡島いづみ、清水達祥、佐古猛、亜臨界水を用いるバイオマス+プラスチック混合廃棄物の粉末燃料化、化学工学会宇都宮大会、2010.8.20、宇都宮大学（栃木県）
- ⑭ Idzumi Okajima, Takeshi Sako, Utilization of biomass for fuel and energy production with subcritical water, 3rd International Conference on Engineering for Waste and Biomass Valorisation, 2010.5.18、プロセス工学研究所(北京・中国)
- ⑮ T.Sako, Application of supercritical and subcritical water to biomass utilization, Pusan National University-Shizuoka University Joint Symposium and Graduate Students Forum for Promotion of the DDP, 2010.2.5、浜松
- ⑯ 佐古猛、超臨界流体を用いる高分子の合成とリサイクル技術、東海シンポジウム、2010.1.15、名古屋
- ⑰ 岡島いづみ、亜臨界～超臨界流体を用いるプラスチック廃棄物のリサイクル、第39回石油・石油化学討論会、2009.10.22、浜松
- ⑱ T.Sako, Conversion of biomass to energy resources using subcritical water, Supergreen 2009, 2009.10.15、仙台
- ⑲ 佐古猛、水と二酸化炭素を用いる環境保全・もの作り技術、新化学発展協会第86

回研究主幹者フォーラム、2009.8.27、東京

- ⑳ 佐古猛、水と二酸化炭素とアルコールを用いる環境保全・もの作り技術、分離技術会第37回夏季研究討論会、2009.8.20、伊豆長岡
- ㉑ 岡島いづみ、亜臨界～超臨界流体を利用した廃棄物のリサイクル技術、第18回日本エネルギー学会大会、2009.7.31、札幌
- ㉒ T.Sako, Utilization of biomass for fuel and energy productions using large-scale plants with sub- and supercritical water, 9th International Symposium on Supercritical Fluids, 2009.5.20、フランス

〔図書〕（計1件）

- ① 佐古猛、岡島いづみ、七條保治、岡崎奈津子、シーエムシー出版、海藻バイオ燃料、2011、138-149

〔その他〕

ホームページ等

- ・ <http://cheme.eng.shizuoka.ac.jp/~sakolab>
- ・ 新聞報道 「廃プラスチック+生ゴミから石炭並みの燃料製造技術を開発」 毎日新聞、日経新聞、中日新聞、静岡新聞、中部経済新聞（2010年3月3日報道）、日刊工業新聞（2010年3月15日報道）、読売新聞（2010年4月3日報道）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐古 猛 (SAKO TAKESHI)
静岡大学・創造科学技術大学院・教授
研究者番号：20324329

(2) 研究分担者

岡島 いづみ (OKAJIMA IDZUMI)
静岡大学・工学部・助教
研究者番号：40436910