

【3K163007】炭酸型 Mg-Al 系層状複水酸化物を利用した廃棄物焼却排ガスの新規処理技術の開発（2016～2018 37,830 千円）

研究代表者 亀田 知人（東北大学）

1. 研究開発目的

申請者は、環境省科研費の助成により炭酸型Mg-Al 系層状複水酸化物 ($\text{CO}_3\cdot\text{Mg-Al LDH}$) (Fig. 2.1) による新しいHCl の処理法、さらには SO_x 及び NO_x の処理法を開発した。 $\text{CO}_3\cdot\text{Mg-Al LDH}$ のように一剤で同時にHCl、 SO_x 、 NO_x 処理できる技術は無く、回収・再生が可能な素材であるため、資源循環できるのも大きなメリットである。すなわち、本研究では、 $\text{CO}_3\cdot\text{Mg-Al LDH}$ を利用した廃棄物焼却排ガス（HCl、 SO_x 及び NO_x ）の新規処理技術を開発する（Fig. 2.2）ことを目的とする。本技術に期待する特徴は、①従来の技術（消石灰）ではできない、HCl、 SO_x 、 NO_x の同時処理が可能、② $\text{CO}_3\cdot\text{Mg-Al LDH}$ は、イオン交換体であるため、サンプルの回収・再生が可能（循環再利用）、③消石灰とSCR法を用いないことから、廃棄物量および処理コスト削減と発電効率の向上が可能なことである。Fig. 2.3 に、従来と新規の酸性ガス処理プロセスを比較する。新規プロセスでは、 $\text{CO}_3\cdot\text{Mg-Al LDH}$ 反応装置を設置するだけで良い。Fig. 2.4 に、 $\text{CO}_3\cdot\text{Mg-Al LDH}$ を利用した廃棄物焼却排ガスの処理プロセスを示す。① $\text{CO}_3\cdot\text{Mg-Al LDH}$ で酸性ガスを処理する、②生成物を回収し、生成物中のCl、S、N 分は CO_3^{2-} とのアニオン交換で脱着する、③ $\text{CO}_3\cdot\text{Mg-Al LDH}$ が再生する、④ $\text{CO}_3\cdot\text{Mg-Al LDH}$ を廃棄物焼却排ガスの処理に再利用するサイクルが成立する。

2. 本研究により得られた主な成果

（1）科学的意義

申請者は、Mg-Al 酸化物の LDH 構造再生反応が、LDH の層間にアニオンを固定し且つ OH^- を生成する特徴に着目し、Mg-Al 酸化物が塩酸排水の処理に、酸の中和剤及び Cl^- 固定剤として機能することを世界で初めて見出した。平成 19-20 年度 廃棄物処理等科学研究費補助金の助成により、「マグネシウム-アルミニウム複合酸化物を利用した塩化水素排ガスの新規乾式処理方法の開発」を研究し、Mg-Al 酸化物が気相中においても HCl を処理できることを明らかにした。水蒸気量の増加に伴って HCl 除去率も増加し、Mg-Al 酸化物の LDH 構造再生反応がより選択的に進行することがわかった。平成 22-24 年度 循環型社会形成推進科学研究費補助金の助成により、「マグネシウム-アルミニウム酸化物を利用した新規排煙脱硫法、脱硝法の開発」を研究し、Mg-Al 酸化物による気固反応、気固液反応、固液反応での SO_x 及び NO_x の処理が可能であることを見出した。申請者の開発したこれらの独創的技術を実用化に向けて展開するためには、Mg-Al 酸化物の前駆体である $\text{CO}_3\cdot\text{Mg-Al LDH}$ の利用を検討する必要がある。Mg-Al LDH 及び Mg-Al 酸化物は、水溶液中の有害な無機アニオンや有機アニオンの除去に応用する研究が盛ん

に行われている。しかし、Mg-Al LDH 及び Mg-Al 酸化物を、酸性ガスの処理剤として応用する研究は、現在までに行われていない。本研究により、 $\text{CO}_3 \cdot \text{Mg-Al LDH}$ が酸性ガス ($\text{HCl-SO}_2\text{-NO}_2$) の同時除去に有効であることを明らかにした。また、 CO_3^{2-} を用いた湿式法、及び半乾式法により、酸性ガス処理後の Mg-Al LDH を $\text{CO}_3 \cdot \text{Mg-Al LDH}$ へ再生できることを明らかにした。また、再生後の $\text{CO}_3 \cdot \text{Mg-Al LDH}$ を酸性ガス処理へ循環利用可能であることを示した。さらに、ベンチスケールでのカラム試験によって、 $\text{CO}_3 \cdot \text{Mg-Al LDH}$ が HCl 及び NO_x を除去できることを示した。HCl 及び NO_x 破過後の Mg-Al LDH は、 CO_3^{2-} を用いた湿式法により $\text{CO}_3 \cdot \text{Mg-Al LDH}$ へ再生できることを明らかにした。一方、 $\text{CO}_3 \cdot \text{Mg-Al LDH}$ で NO を処理するためには、NO を NO_2 に酸化する必要がある。 MnO_2 が NO の酸化触媒として有効であることを明らかにした。

以上のように、基礎成果は得られている。今後は、本研究成果の実用化を目的とした環境研究総合推進費（補助金）次世代事業を活用して、研究に取り組む意向である。

既存技術と比較した本研究成果の環境影響

焼却施設の排ガス処理に伴う環境影響を大気、最終処分場の側面で既存技術と比較すると以下のように考察される。

まず、大気については、より低い排出濃度を達成するために、既存技術においては塩化水素や硫黄酸化物の消石灰による中和除去では、化学当量を上回る添加をもってしても限界性能があるのに対し、本研究成果では、LDH の反応装置の設計により、より高い除去性能が期待できる。これにより、既存技術に比べより低い排出濃度の処理が可能となり、環境影響を大幅に下げることが可能である。

最終処分場について、既存技術では規制物質の高除去率を維持するため、消石灰の添加量が多くなり、結果として焼却残さ（飛灰）量の増加により、最終処分場の残余期間を短くする、最終処分場の浸出水の塩類濃度や COD 負荷を高めるなどの環境影響がある。本研究成果では、消石灰を用いず塩類特に塩素の含有の少ない飛灰の排出が可能となり、既存技術の課題を克服し、より環境影響の低い処分が可能となる。また、飛灰の塩素含有量が少ないことから、塩素含有量がネックとなっているセメント原料への利用も可能であり、より廃棄物量の削減やリサイクルが可能である。

本研究において、今後の課題であるが、再生工程で、イオン交換した塩類（塩素、硫酸、硝酸イオン）は、濃縮することで効率的な処理をおこなったり、リサイクルすることが可能と考えている。

（２）環境政策への貢献

＜行政が既に活用した成果＞

特に記載すべき事項はない。

＜行政が活用することが見込まれる成果＞

本研究成果は、大気汚染防止法に基づく排ガス規制の対象となっているが、既存技術と比べ、経済性や環境影響の側面で、利活用できる技術と思われる。具体的には、既存技術に比べ処理材の循環再利用が可能な技術であり、コストや廃棄物の削減に大きく寄与しうる技術である。また、既存技術において環境負荷となる（たとえば、消石灰などアルカリ剤）物質は本技術では使用しない。また、飛灰の再利用（たとえばセメント化）にとって大きな技術課題である高塩素含有も避けられ、より飛灰の再資源化が進むことが期待できる。HCl、SO_x 及び NO_x について、排ガス基準を満たすための経済的な処理技術の開発に貢献することができる。本研究は、廃棄物焼却排ガス中の HCl、SO_x 及び NO_x ガスを、CO₃・Mg-Al LDH を用いて同時に処理することを特徴としている。従来、単独のガスについては効果的な処理法が開発されている。例えば、SO_x については排煙脱硫法として石灰-石こう法が有名であり、電気事業用の大型ボイラーの主力プロセスとなっている。また、NO_x については排煙脱硝法として選択的触媒還元法が有名であり、遷移金属を触媒として用い NO_x を N₂ に還元する。HCl についても、消石灰を使用するプロセスが確立している。しかし、廃棄物焼却排ガス中の HCl、SO_x 及び NO_x 混合ガスを処理する場合には、多段プロセスを設けなければならない。それは、HCl・SO_x は消石灰による中和処理、NO_x は触媒による還元処理を行う必要があるためである。一方、CO₃・Mg-Al LDH は、廃棄物焼却排ガス成分を同時に処理できる優れた吸着剤であり、実用化した場合においても工程はシンプルである。また、吸着剤は循環利用できるため、消石灰等の使い捨てに伴う薬剤にかかる高いコストや遷移金属に比べ、非常に安価である。以上、本研究成果は、安価な吸着剤を使って、簡便な工程によって廃棄物焼却排ガス成分を処理することができるため、非常に優位性がある。

3. 委員の指摘及び提言概要

現在の排ガス処理は、以前とは比較にならないほど向上し高性能化、シンプル化が進んでいる。したがって現在の焼却施設の排ガス処理の実情を十分に把握して、既存技術と性能、コスト、資源循環性などを比較しながら、研究を進めていくことが望まれる。

基礎研究としては十分な成果が得られたが、今回の結果を具体的に実用化する道筋が明確になっていない。実施者は焼却施設の排ガス処理に多くのメリットがあると報告しているが、協力する企業が出ていないのが問題である。PR 不足なのか実施者が把握していないプロセス構築上の課題があるのかも明確でない。

研究代表者の所属する機関の3名で成果発表がなされており、他の分担者は1件の口頭発表の共著者となっているだけである。全体として3年間で、6名の研究体制として成果公表が5件の口頭発表のみでは非常に少ないと判断する。

4. 評点

総合評点：B