

博士學位論文要約

論文題目 熱分解法による難リサイクル性
高分子のフィードストックリサイクル
(Feedstock Recycling through the Thermal
Decomposition of Hard-to-Recycle Polymeric
Materials)

提出者 東北大学大学院環境科学研究科

環境化学・生態学 コース

学籍番号 B2GD1302

氏名 熊谷 将吾

第1章 緒論

博士學位論文の本章の一部は、以下の既往の報告を基に論じた。

- ◆ 熊谷将吾, 吉岡敏明, 廃棄物資源循環学会誌, **25**, 124 (2014).
- ◆ 熊谷将吾, 吉岡敏明, 化学経済2014 年7月号, 51 (2014), ISSN:0453-0683.

【本研究の背景】

我が国がプラスチックの工業生産を開始してから 100 年余り, 石油化学技術は飛躍的に発展し, 次々と新たなプラスチックが安価にかつ大量生産され, 私達の生活に欠かすことのできない素材となった. 廃プラスチックの年間排出量は 1980 年~1995 年の 15 年間で急激に増加し 880 万トンまで膨れ上がり, 現在は年間 900~1,000 万トンで推移している. このことを受け, 埋立処分場確保および資源有効利用の観点から, 1995 年の容器包装リサイクル法の制定を皮切りに, 家電リサイクル法, 食品リサイクル法, 建設リサイクル法, 自動車リサイクル法, および小型家電リサイクル法の関連 6 法が現在制定されており, 「大量生産・大量消費・大量廃棄」型の経済社会から脱却し, 廃棄物リサイクル対策を総合的かつ計画的に推進するための基盤確立を目指している.

国内の廃プラスチックは, 材料リサイクル, ケミカルリサイクル, およびエネルギー回収により有効利用されている. 材料リサイクルは, 廃プラスチックの洗浄, 破碎, 熔融等の物理的処理によりペレットやフレークを再生し, 再商品化する方法である. ケミカルリサイクルは, 廃プラスチックに化学的な組成変換を施した後にリサイクルする手法の総称である. エネルギー回収は, 廃プラスチックの焼却の際に発生する熱エネルギーを回収する手法である. 国内廃プラスチックの有効利用量は年々向上し, 埋立量および単純焼却量は減少している (Figure 1.1) [1]. しかし, およそ半数がエネルギー回収に留まっており, 本来のエネルギー回収の目的, ”材料リサイクルやケミカルリサイクルでは対応困難なプラスチックを減容化・処理する際に発生するエネルギーを少しでも有効利用する”に合致しているかは疑問である. 基本法では, ”発生抑制>再使用>再生利用>熱回収>適正処分”の順に優先順位を法制化しており, 本来, 材料リサイクルによる処理の難しいものはケミカルリサイクルにより処理されるべきであるが, 現実には, 材料リサイクル残渣の多くはエネルギー回収に留まっているのが現状である. また, 選別精度が向上しても, 臭素系難燃剤含有プラスチック, 異種プラスチックとのコンパウンド, 金属や木材等異種材料との複合製品等の物理的分離には限界があり, それらにも対応可能な再資源化技術の開発が社会的にも重要視されている.

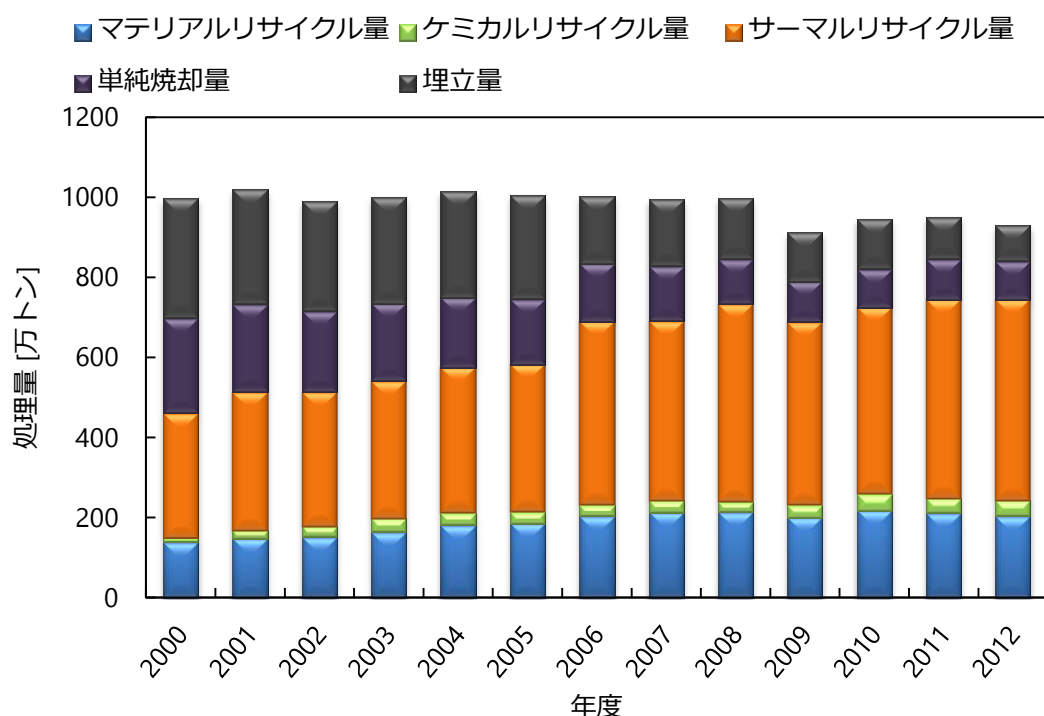


Figure 1.1 廃プラスチックの処理方法内訳の推移[1].

【本研究の目的】

本研究は、ケミカルリサイクル一つである熱分解油化・ガス化に着目した。熱分解油化・ガス化は、材料リサイクルでは対応が困難な混合プラスチックや、不純物が多く樹脂純度の低いプラスチックへも対応可能として、世界各国で研究が進められている。その多くは、汎用プラスチックのポリエチレン (PE)、ポリプロピレン (PP)、および PS を対象としたものであり、現状でも、比較的高収率・高品質の化学原燃料を回収できるレベルに達している[2-14]。PVC に関しても、これまでに蓄積された研究成果・技術開発により、脱塩素処理の高度化や熱分解生成物の高品質化が進んでおり、再資源化に向けて着実に進歩している[15,16]。

一方、上述のプラスチック以外を対象とした研究、特に、熱分解に不向きとされるプラスチックや異種材料との混合物および複合物を対象とした研究においては、今後の学術的および技術的進展が期待されている。よって、本研究では、既存の材料リサイクルやケミカルリサイクル技術では、再資源化が極めて困難な性状のもの、即ち、難リサイクル性高分子を対象とした。特に、熱分解による生成物収率や純度の低いもの、熱分解により有害性の化合物を生成するプラスチックとして、ポリエチレンテレフタレート (PET)、廃電子・電気機器 (WEEE: Waste Electrical and Electronic Equipment) および自動車のシュレッダーダスト等を想定した金属・難燃剤含有プラスチック、建設廃棄物を想定したプラスチック・木材混合物を対象とした。

本研究では、これまで効果的なリサイクル手法が確立しておらずエネルギー回収、単純焼却、お

よび埋立処分に留まっていた上述の難リサイクル性高分子から，化石燃料および金属資源に相当する資源を回収する新規熱分解プロセスの開発を行う．本研究により，既存の石油・天然ガス精製や金属精錬に供給可能な資源を回収可能となれば，焼却・埋立処分量の削減および天然資源投入量の削減により，より効果的な資源循環システムが構築できると期待している（Figure 1.3）．

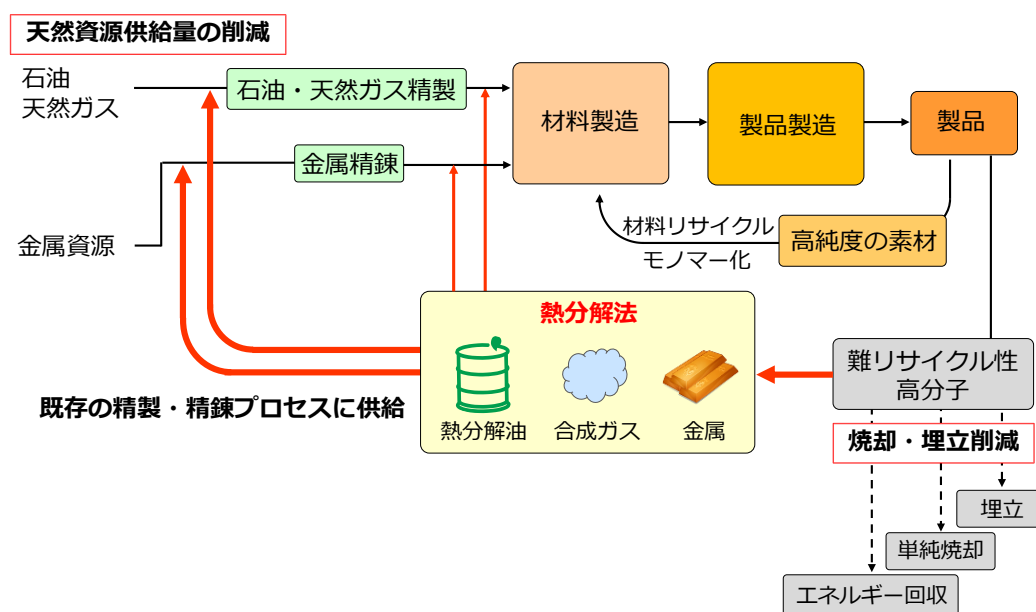


Figure 1.3 本研究の目的とする資源循環システムおよび本研究の位置付け．

第2章 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 添加による PET からのベンゼン回収

博士学位論文の本章の一部は、以下の既往の報告を基に論じた。

- ◆ S. Kumagai, G. Grause, T. Kameda, T. Yoshioka, *Chemistry Letters*, **43**, 5, 637 (2014), DOI:10.1246/cl.131109.
- ◆ S. Kumagai, G. Grause, T. Kameda, T. Yoshioka, *Journal of Material Cycles and Waste Management*, **16**, 2, 282 (2014), DOI:10.1007/s10163-013-0194-x.

【本章の背景】

ポリエチレンテレフタレート (PET) は、プラスチック生産量第5位の汎用プラスチックである。PET は熱分解法により有用な油やガスをほとんど生成しないばかりか[17]、高沸点および腐食性の有機酸であるテレフタル酸や安息香酸を生成し、プラント配管の腐食や閉塞をもたらす原因物質となっている[18]。したがって、これら有機酸を有用な成分へ転換する必要がある。当研究室ではこれまで、PET と $\text{Ca}(\text{OH})_2$ を混合して熱分解することで、テレフタル酸 (TPA) や安息香酸 (BA) を効果的に抑制すると同時に、石油化学原料として有用なベンゼンを選択的に回収可能であることを明らかにしている[19]。Figure 2.1 に PET/ $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 混合物の熱分解によるベンゼン生成フローを示す。まず、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ が脱水することにより水蒸気を生成し、生成した水蒸気により PET が加水分解され TPA へと分解する。生成した TPA は CaO と反応してテレフタル酸カルシウム (CaTP) を形成し、 CaTP が分解する際に TPA のカルボキシル基を脱炭酸して炭酸カルシウム (CaCO_3) とベンゼンを生成する。つまり、PET のベンゼン化は大きく、①PET の加水分解および② CaTP の生成・分解 (脱カルボキシル化) の2ステップで進行すると考えられている。PET のベンゼン化において、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ および CaO の固体塩基としての性質が、ベンゼン生成に有効であると考えられている。しかし、その塩基度がベンゼン生成の主要な反応過程である加水分解反応および脱カルボキシル化反応にどのような影響を及ぼすか未だ明らかになっていない。

したがって、本章では、まずベンゼン生成に及ぼす塩基度の影響を明らかにするため、塩基度の異なる金属水酸化物 (MOHs) である水酸化アルミニウム ($\text{Al}(\text{OH})_3$)、水酸化マグネシウム ($\text{Mg}(\text{OH})_2$)、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 、および水酸化バリウム八水和物 ($\text{Ba}(\text{OH})_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ 、以降 $\text{Ba}(\text{OH})_2$ と略記) 添加による PET の熱分解試験、および Al, Mg, Ca、および Ba からなるテレフタル酸金属塩の熱分解挙動を検討した[20]。 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 添加の有効性を確認した上で、実廃棄物である金属含有 PET からのベンゼン回収の可能性を検討した[21]。

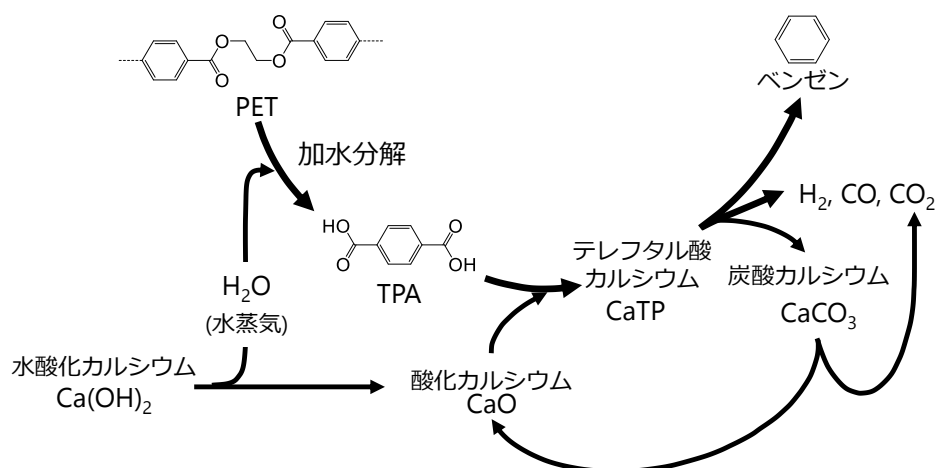


Figure 2.1 PET/Ca(OH)₂ 混合物の熱分解によるベンゼン生成フロー.

【要約】

Al(OH)₃, Mg(OH)₂, Ca(OH)₂, および Ba(OH)₂ を添加し, PET のベンゼン回収試験を行った. その結果, 塩基度の増加 (Al<Mg<Ca<Ba) に伴い水蒸気による PET の加水分解反応が促進され, 熱安定性の高いテレフタル酸金属塩 (MTPs) の形成によりベンゼン収率および純度が高まる新たな知見を見出した. ベンゼン収率は Ca(OH)₂ および Ba(OH)₂ 添加時に最大の 80.7%, ベンゼン純度は Ba(OH)₂ 添加時に最大の 90.2 wt% となった. 一方, カルシウムはバリウムよりも約 80 °C 低温でベンゼンを生成することが明らかとなった. さらに, カルシウムは豊富な国内資源を有する一方, バリウムは地域偏在性の高いレアメタルの一つであることが確認された. よって, ベンゼン収率, 純度, 分解温度, および資源埋蔵量の観点から, Ca(OH)₂ がベンゼン生成に最適であると判断した.

金属含有 PET として, X 線フィルム, 磁気テープ, および磁気カードを例に, Ca(OH)₂ 添加による金属含有 PET からのベンゼン生成に及ぼす含有金属の影響を検討した. その結果, これらに含まれる金属の影響を受けずベンゼン回収が可能であることを明らかにした. よって, これまで検討してきた Ca(OH)₂ 添加による PET のベンゼン化プロセスが, 含有金属の影響をほとんど受けない汎用性の高いプロセスであることを明らかにした.

第3章 ポリエステルの水蒸気分解における熱分解および加水分解の解析

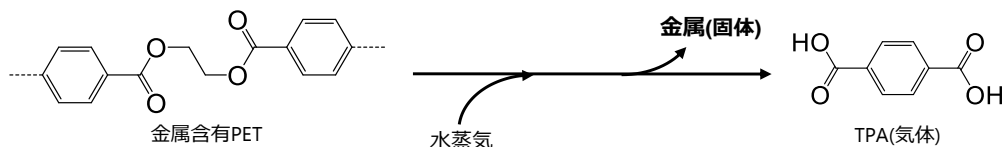
博士学位論文の本章の一部は、以下の既往の報告を基に論じる。

- ◆ S. Kumagai, Y. Morohoshi, G. Grause, T. Kameda, T. Yoshioka, *Chemistry Letters*, **42**, 3, 212 (2013), DOI:10.1246/cl.2013.212.

【本章の背景】

前章で検討した PET/Ca(OH)₂ 混合物の熱分解による一段プロセスは、PET と Ca(OH)₂ の接触効率が良いため高いベンゼン収率が得られる一方、金属含有 PET を対象とした場合、反応後に CaO 中に含有金属が混入する他、CaO を Ca(OH)₂ に再生するプロセスが必要となり、金属の分離回収および連続プロセスに不向きであることが確認された。したがって、本章および第4章では、これらのデメリットを考慮した二段プロセスを考案し、水蒸気と CaO を用いた二段プロセスを考案した。金属含有 PET を対象とした二段プロセスによるベンゼンおよび金属の同時回収フローを Figure 3.1 に示す。まず、水蒸気分解により PET を TPA へと分解すると同時に金属の分離回収を行う。一段目で生成した TPA は、二段目で CaO と接触させることでベンゼンに転化する。

① PETの水蒸気分解によるTPA生成および金属回収



② CaOによるTPAのベンゼン化

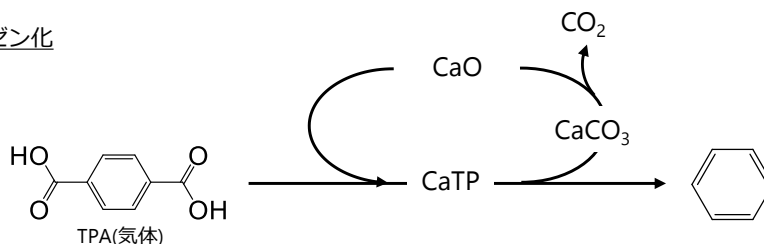


Figure 3.1 二段プロセスによるベンゼンおよび金属の同時回収フロー。

本章では、本プロセスにおける一段目の水蒸気分解に着目した。水蒸気分解は高温を要するため加水分解反応と同時に熱分解反応が併発する[22,23]。加水分解反応は TPA を選択的に生成するが、第2章において確認された通り熱分解反応は生成物が多様化するため、TPA 収率を低下する原因となる (Figure 3.2)。PET の熱分解や加溶媒分解の各々において、速度解析や反応メカニズムに関して数多く報告されている一方[24-32]、水蒸気分解を対象とした検討は極めて限られており[33]、水

蒸気分解において併発する熱分解および加水分解の反応挙動は未だ明らかになっていない。二段プロセスによる効果的なベンゼン回収に向けて、水蒸気分解により効果的に TPA を生成するためには、TPA 生成に及ぼす熱分解および加水分解挙動の解明が必要である。

よって、本章では、 ^{18}O 同位体標識水を用いた PET の水蒸気分解における熱分解および加水分解の反応割合を定量化する手法を開発し[23]、PET の水蒸気分解によるモノマー生成に及ぼす熱分解および加水分解の反応割合の影響を検討した。さらに、PET の水蒸気分解の速度解析を行い、モノマー生成に及ぼす反応速度の影響を検討した。同様の検討を、同じポリエステルであるポリブチレンテレフタレート (PBT) およびポリエチレンナフタレート (PEN) にも行い、モノマー収率、熱分解および加水分解の反応割合、分解速度等に及ぼす樹脂構造の影響を検討した。

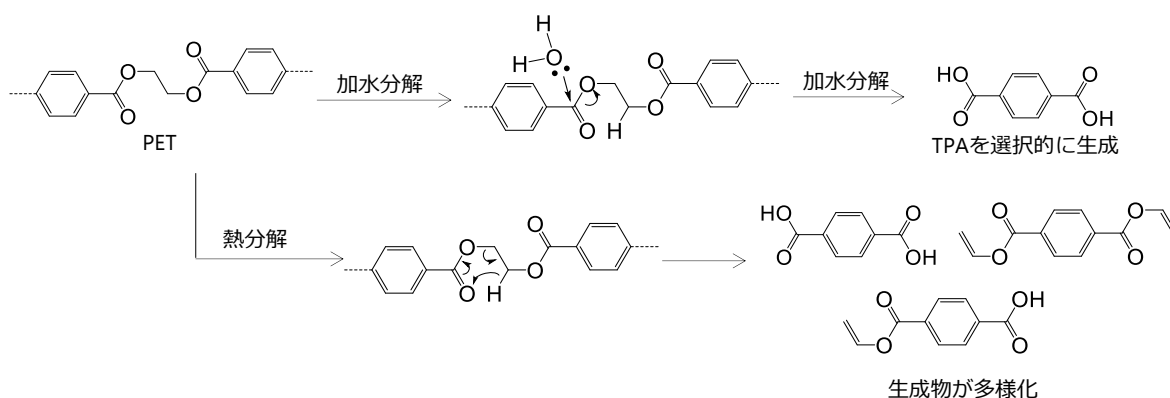
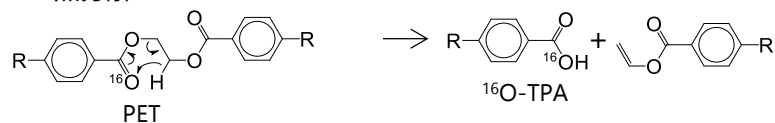


Figure 3.2 PET の加水分解および熱分解反応.

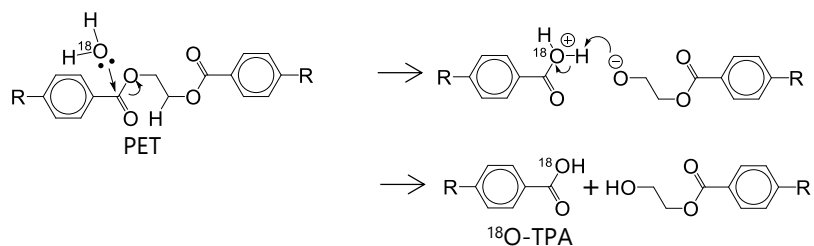
【要約】

水蒸気分解における熱分解と加水分解の反応割合を算出するため、 ^{18}O 同位体標識水の水蒸気を用いた熱分解および加水分解の反応割合算出手法を開発した[23]。PET は、熱分解および加水分解のいずれの反応においても主生成物として TPA を生成し、通常の水蒸気ではどちらの反応に由来するか識別することが難しい。しかし、 H_2^{18}O の水蒸気を用いることで加水分解由来の ^{18}O 標識を含む TPA、および熱分解由来の ^{18}O 標識を含まない TPA を生成するため識別が可能となる (Figure 3.2 (a), (b))。加水分解は水分子による求核付加反応であり、生成物のカルボキシル基に ^{18}O が存在する。一方、熱分解は、エステル結合-アルキル鎖間の β 開裂によって進行するため水蒸気と関与せず、分子内に ^{18}O を含まない。よって、生成する TPA をジアゾメタンによりエステル化した後、分子量の違いをガスクロマトグラフィー質量分析装置 (GC-MS) により測定し、そのマススペクトル強度を基に反応割合の算出が可能となる。PBT は PET と同じく TPA が主生成物であり (Figure 3.2 (c), (d))、PEN は熱分解および加水分解のいずれにおいても主生成物としてナフタレンジカルボン酸 (NDC) を生成するため (Figure 3.2 (e), (f))、PET と同様の原理で解析可能であることが明らかとなった。

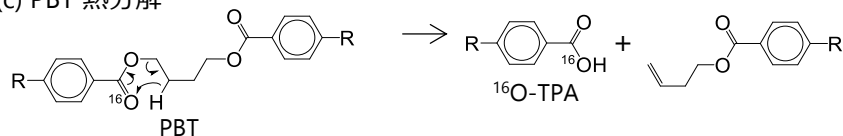
(a) PET 熱分解



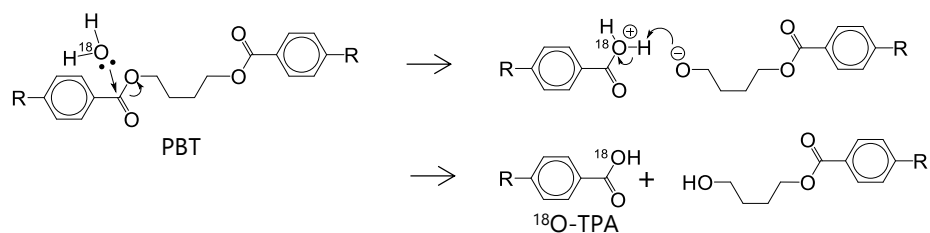
(b) PET 加水分解



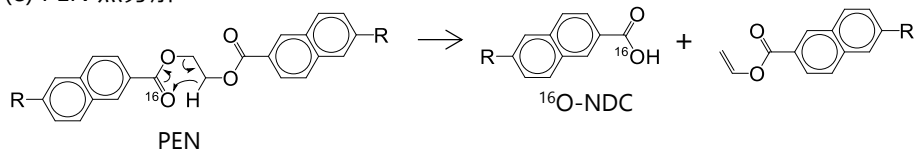
(c) PBT 熱分解



(d) PBT 加水分解



(e) PEN 熱分解



(f) PEN 加水分解

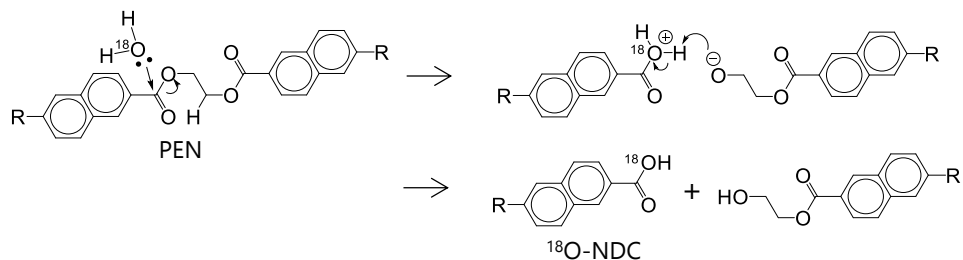


Figure 3.3 H_2^{18}O を用いた水蒸気分解における (a) PET の熱分解, (b) PET の加水分解, (c) PBT の熱分解, (d) PBT の加水分解, (e) PEN の熱分解, および (f) PEN の加水分解.

本手法を用いて PET の水蒸気分解におけるモノマー収率および反応割合に及ぼす反応温度および水蒸気濃度の影響を検討した結果、水蒸気濃度の増加および分解温度の低下に伴い、加水分解割合が増加することを明らかにした。また、PET の水蒸気分解の速度解析により、反応温度の増加に伴う熱分解速度の増加量は、加水分解速度の増加量を上回ることが明らかとなった。したがって、低温では加水分解の影響が相対的に強い点でモノマー回収率を向上する点で有利となるが、遅い分解速度が欠点となり、一方、高温では熱分解の影響が相対的に強い点で分解速度が速い点で有利となるが、低いモノマー回収率が欠点となることが明らかとなった。よって、目的に応じたモノマー回収率および分解速度となる条件設定が重要であることが確認された。また、他のポリエステルであるポリブチレンテレフタレート（PBT）およびポリエチレンナフタレート（PEN）と比較することで、樹脂の耐熱性および疎水性が分解速度、反応割合、およびモノマー収率に大きく影響を及ぼすことが確認された。

第4章 金属含有 PET からのベンゼンおよび金属の同時回収

博士学位論文の本章の一部は、以下の既往の報告を基に論じた。

- ◆ S. Kumagai, G. Grause, T. Kameda, T. Takano, H. Horiuchi, T. Yoshioka, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **50**, 4, 1831 (2011), DOI:10.1021/ie101457k.
- ◆ S. Kumagai, G. Grause, T. Kameda, T. Takano, H. Horiuchi, T. Yoshioka, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **50**, 11, 6594 (2011), DOI:10.1021/ie102423m.
- ◆ S. Kumagai, G. Grause, T. Kameda, T. Yoshioka, *Environmental Science & Technology*, **48**, 6, 3430 (2014), DOI: 10.1021/es405047j.

【本章の背景】

第2章では、金属含有 PET/Ca(OH)₂ 混合物の熱分解による一段プロセスにより、金属含有 PET から効果的にベンゼン回収が可能であることを明らかにした。本章では、金属の分離回収および連続プロセスを想定した二段プロセスにおける一段目の水蒸気分解挙動を検討した。本章では、二段プロセスの二段目の TPA と CaO の反応によるベンゼン生成機構[34]、およびベンゼン生成に及ぼす反応温度および TPA と CaO の接触効率を検討し[34,35]、ベンゼンおよび金属の同時回収を可能とする二段プロセスを構築した[36] (Figure 4.1)。さらに、二段プロセスを金属含有 PET に応用し、ベンゼンおよび金属の同時回収を検討した。

【要約】

本章では、二段目プロセスの CaO による TPA のベンゼン化、および二段プロセスによるベンゼンおよび金属の同時回収を検討した。まず、TPA と CaO の反応によるベンゼン生成機構を検討した。その結果、TPA と CaO は 310 °C 以上で反応して塩である CaTP を形成し、550 °C 以上で分解してベンゼンおよび CaCO₃ を生成、590 °C 以上で CaCO₃ が脱炭酸して CaO を再生することが明らかとなった (Figure 4.2)。

ベンゼン化に及ぼす反応温度および CaO と TPA の接触効率の影響を検討した結果、反応温度が高く、かつ TPA と CaO の接触効率が高くなることで、ベンゼン収率は大幅に改善した。これは、反応温度が高い程、CaO を再生するサイクルが速やかに進行し、TPA と再生した CaO の接触頻度が増加するためと考えられる。また、接触効率が高い程、充填層においてテレフタル酸カルシウム中間体 (CaTP) が分散して形成されるため、ベンゼン生成に有利となることが確認された。以上、本結果および第3章の結果を統合することで、二段プロセスを構築した。

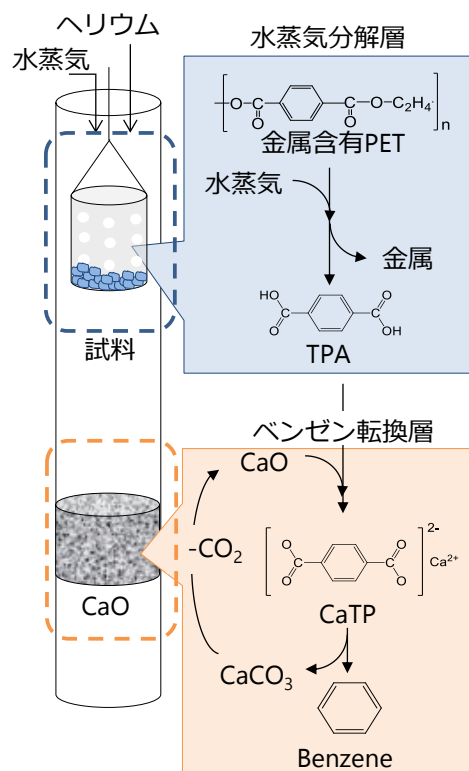


Figure 4.1 水蒸気分解および TPA のベンゼン転換による二段プロセス.

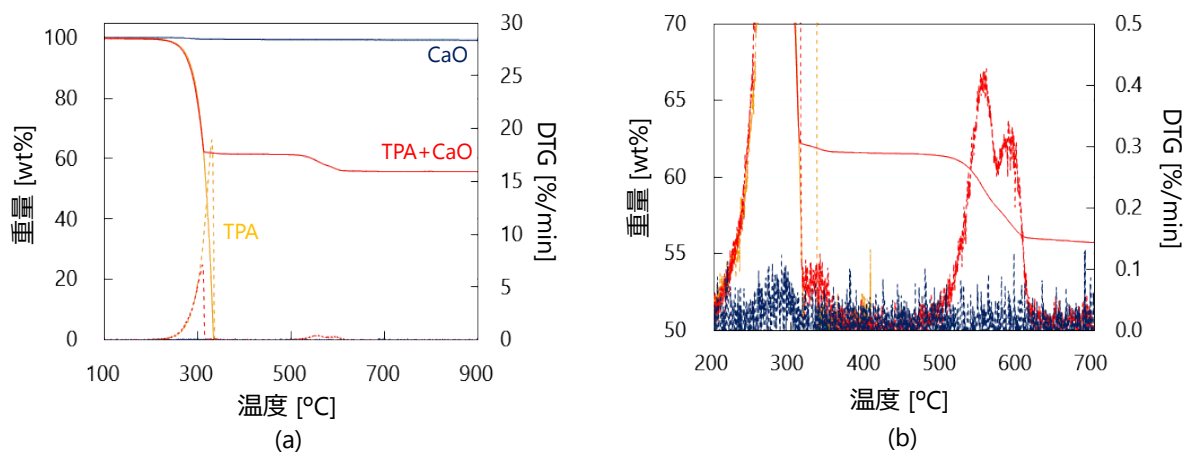


Figure 4.2 TPA, CaO, および TPA/CaO 混合物の TG/DTG 曲線: (a) 温度域 100~900 °C および(b) グラフ(a)の 200~700 °C の拡大図.

二段プロセスを金属含有 PET である, X 線フィルム, 磁気テープ, および磁気カードに応用した. まず, 水蒸気分解における含有金属および種々添加剤の影響を検討した. 磁気テープおよび磁気カードに含まれる $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ が TPA の脱カルボキシル化を僅かに促進し, BA を生成することが確認された. しかし, 生成した TPA および BA は CaO により全てベンゼンに転化されたため, いずれの

試料も収率 34%前後を示した。Al を含む磁気カードからは僅かに水素を生成した。それ以外の金属の触媒作用および添加剤の影響は確認されなかった。よって、これら含有金属および種々添加剤はベンゼン回収に影響を及ぼさないことが明らかとなった。X 線フィルムからは Ag, 磁気テープからは $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$, 磁気カードからは $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ および TiO_2 が, 水蒸気分解前後で結晶構造を維持し, いずれの金属もほぼ定量的に回収された。よって, 構築した二段プロセスによりベンゼンおよび金属の同時回収が達成された。

以上, 金属回収が主であり, かつ熱分解による油化が困難と言われていた金属複合 PET から, 金属とベンゼンの回収を可能とする新規熱分解プロセスを構築した。本プロセスは, 金属の高い沸点と PET 分解生成物の沸点の差を利用した分離プロセスであるため, 物理的分離の困難な複合物や混合物, さらに他プラスチック種にも対応可能な高い汎用性を有する。さらに, 本研究で明らかにした PET のベンゼン化プロセスの知見は, 他プラスチック種にも応用可能であることが示唆された。

第5章 金属・難燃剤含有プラスチックおよびプラスチック・木材混合物の化学原燃料化

博士学位論文の本章の一部は、以下の既往の報告を基に論じた。

- ◆ J. Alvarez, S. Kumagai, C. Wu, T. Yoshioka, J. Bilbao, M. Olazar, P. T. Williams, *International Journal of Hydrogen Energy*, **39**, 21, 10883 (2014), DOI:10.1016/j.ijhydene.2014.04.189.
- ◆ S. Kumagai, J. Alvarez, P. H. Blanco, C. Wu, T. Yoshioka, M. Olazar, P. T. Williams, *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis* in press, DOI:10.1016/j.jaap.2014.09.012.

【本章の背景】

本章では、第2章～第4章で構築したPETのベンゼン化プロセスで得た知見を、他のプラスチック種の熱分解による原燃料回収に応用した。金属および難燃剤含有プリント基板の熱分解に及ぼす $\text{Ca}(\text{OH})_2$ の添加効果を検討し、さらに、熱分解-水蒸気改質からなる二段プロセスを応用し、プラスチック・木材混合物からの水素回収を検討した。

【要約】

本章では、第2章～第4章において構築したPETのベンゼン化の知見を活かし、廃電子・電気機器を想定した金属・難燃剤含有プラスチック、および建設廃棄物を想定したプラスチック・木材混合物からの原料回収を検討した。まず、金属・難燃剤含有プラスチックとして、臭素系難燃剤、リン系難燃剤、三酸化アンチモン (Sb_2O_3)、および銅を含むフェノールおよびエポキシ樹脂製プリント基板を選択した。これらの熱分解においても、TPAの除去に効果を発揮した $\text{Ca}(\text{OH})_2$ が、臭化水素ガスの除去、難燃剤および樹脂の分解へ効果を示すことが予想された。結果、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ は樹脂の分解にほとんど影響を及ぼさなかった一方で、液体生成物中の臭素化フェノールおよびリンをそれぞれ最大98%および93%除去し、さらに気体生成物中の臭化水素を最大94%除去した。また、臭化水素の捕捉により金属の臭化揮発反応が抑制されることも確認した。したがって、PETのベンゼン化に効果を発揮した $\text{Ca}(\text{OH})_2$ は、金属・難燃剤含有プラスチックの熱分解生成物品位および金属回収率を向上する添加剤としても応用できる新たな可能性を見出した。

さらに、熱分解-水蒸気改質からなる二段プロセスをプラスチック・木材混合物に応用した。プラスチックおよび木材は熱分解特性および熱分解生成物が大きく異なるため、これらの熱分解生成物をさらに水蒸気改質して水素を回収する二段プロセスが有効であると考えた。特に、水素収率の低い木材に、水素収率の高いプラスチックが混合した本廃棄物は、廃木材よりも適した原料となる

ことが予想された．そこで，二段プロセスを用いたおが屑のガス化における種々プラスチックの添加効果を検討した結果，プラスチック添加およびニッケル系触媒添加の相乗効果により，水素収率および H_2/CO 比が劇的に改善され，効果的な原燃料回収が行われていなかったプラスチック・木材混合物が，むしろ，水素回収に適した原料となる可能性を見出した．しかし，新たにプラスチックを添加することで触媒表面へのコーク析出量が増加した．よって，コーク析出抑制効果に加え，同一触媒上で水蒸気改質反応および水性ガスシフト反応を促進して水素収率を向上する新しいコンセプトの触媒である Ni-Mg-Al-Ca oxide を合成し，その評価を行った．その結果，コーク析出の減少および水性ガスシフト反応の促進により水素生成が促進されることが明らかとなった．

第6章 総括

以上、効果的なリサイクル手法が確立していない難リサイクル性高分子から、天然資源を代替可能な金属および化学原燃料を回収する新規熱分解プロセスを開発した。本研究では、金属複合 PET、金属・難燃剤含有プリント基板、プラスチック・木材混合物に着目したが、これらに対して得られた成果および概念が、将来的に、他の異種材料の複合物および混合物からの無機・有機資源回収プロセス構築のプラットフォームになる汎用性の高いものと考えている。例えば、PET からの金属およびベンゼンの同時回収に関する知見は、他のポリエステル、アミド、イミド等から成る複合物の化学原燃料化に応用できる。金属・難燃剤含有プリント基板の結果は、金属や難燃剤を含む廃電子・電気機器や自動車シュレッダーダスト等へ、プラスチック・木材混合物は、木材以外のバイオマスとプラスチックの混合物等へ応用可能である。本研究が、多くの難リサイクル性高分子から資源を回収し、焼却・埋立処分量および天然資源消費量を抑制する基盤となり、より効果的な資源循環型システムの構築に貢献すると期待している。また、リサイクルをベースにした化学反応プロセスの構築や、有機物間および有機・無機物質間の相互作用を明らかにすることで、合成反応の視点からは発見できない、新しい分解機構や概念を提唱できる可能性があり、今後、有機化学、無機化学、および触媒化学等の関連する学問分野の進展にも貢献することが期待される (Figure 6.1)。

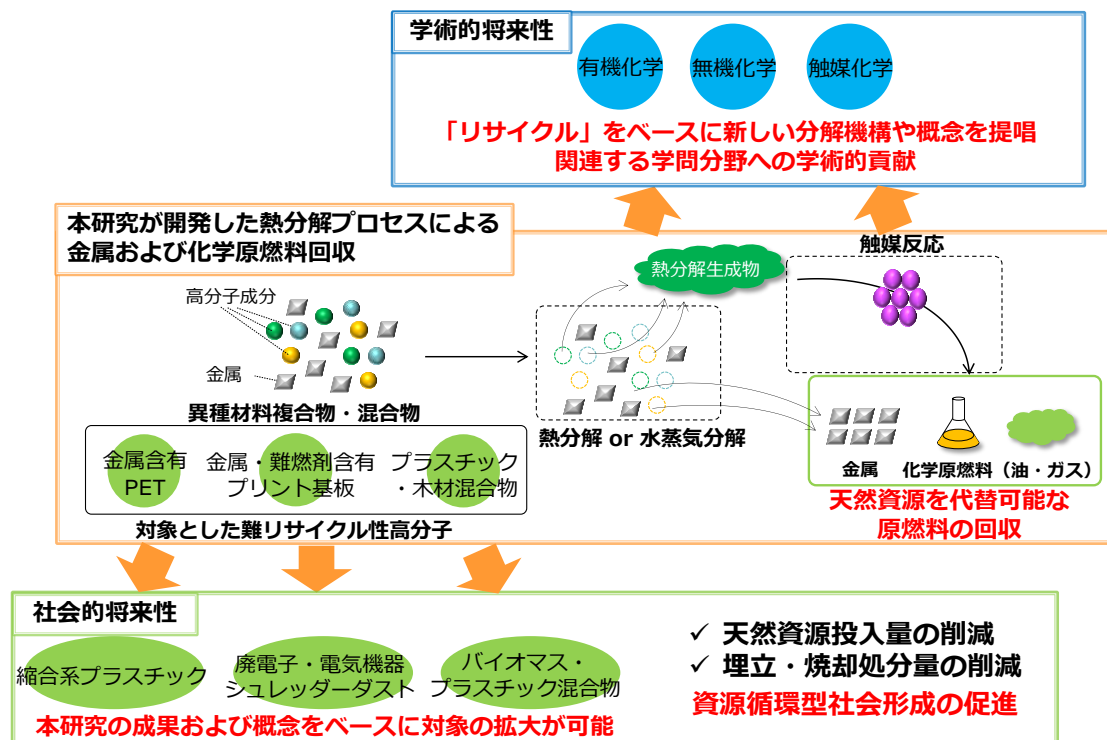


Figure 6.1 本研究が開発した熱分解プロセスによる金属および化学原燃料回収フローおよび本研究の社会的および学術的将来性。

参考文献

- [1] 一般社団法人プラスチック循環利用協会, プラスチックリサイクルの基礎知識 2014, <http://www.pwmi.or.jp/pdf/panf1.pdf> (閲覧日 2014 年 11 月 12 日).
- [2] E. A. Williams, P. T. Williams, *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, **40-1**, 347 (1997).
- [3] P. T. Williams, E. A. Williams, *Energy & Fuels*, **13**, 188 (1999).
- [4] C. M. Simon, W. Kaminsky, B. Schlesselmann, *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, **38**, 75 (1996).
- [5] T. Bhaskar, M. A. Uddin, J. Kaneko, T. Kusaba, T. Matsui, A. Muto, Y. Sakata, K. Murata, *Energy & Fuels*, **17**, 75 (2003).
- [6] M. Fukushima, B. Wu, H. Ibe, K. Wakai, E. Sugiyama, H. Abe, K. Kitagawa, S. Tsuruga, K. Shimura, E. Ono, *Journal of Material Cycles and Waste Management*, **12**, 108 (2010).
- [7] H. Ino, Y. Matsumoto, R. Takahashi, K. Takami, J. Nishino, M. Itoh, *Journal of Material Cycles and Waste Management*, **10**, 129 (2008).
- [8] C. Vasile, H. Pakdel, B. Mihai, P. Onu, H. Darie, S. Ciocalteu, *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, **57**, 287 (2001).
- [9] P. Friengfung, E. Jamkrajang, S. Sunphorka, P. Kuchonthara, L. Mekasut, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **53**, 1909 (2014).
- [10] J.-W. Kim, T.-Y. Mun, J.-O. Kim, J.-S. Kim, *Fuel*, **90**, 2266 (2011).
- [11] W. Tongamp, Q. Zhang, F. Saito, *International Journal of Hydrogen Energy*, **33**, 4097 (2008).
- [12] C. Wu, P. T. Williams, *Applied Catalysis B: Environmental*, **87**, 152 (2009).
- [13] C. Wu, P. T. Williams, *International Journal of Hydrogen Energy*, **35**, 949 (2010).
- [14] M.-H. Cho, T.-Y. Mun, J.-S. Kim, *Energy*, **53**, 299 (2013).
- [15] T. Bhaskar, M. Tanabe, A. Muto, Y. Sakata, *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, **77**, 68 (2006).
- [16] J. Yanik, M. A. Uddin, Y. Sakata, *Energy & Fuels*, **15**, 163 (2001).
- [17] E. A. Williams, P. T. Williams, *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, **70**, 9 (1997).
- [18] M. Fukushima, M. Shioya, K. Wakai, H. Ibe, *Journal of Material Cycles and Waste Management*, **11**, 11 (2009).
- [19] T. Yoshioka, E. Kitagawa, T. Mizoguchi, A. Okuwaki, *Chemistry Letters*, **33**, 282 (2004).
- [20] S. Kumagai, G. Grause, T. Kameda, T. Yoshioka, *Chemistry Letters*, **43**, 637 (2014).
- [21] S. Kumagai, G. Grause, T. Kameda, T. Yoshioka, *Journal of Material Cycles and Waste Management*, **16**, 282 (2014).
- [22] T. Masuda, Y. Miwa, A. Tamagawa, S. R. Mukai, K. Hashimoto, Y. Ikeda, *Polymer Degradation and Stability*, **58**, 315 (1997).
- [23] S. Kumagai, Y. Morohoshi, G. Grause, T. Kameda, T. Yoshioka, *Chemistry Letters*, **42**, 212 (2013).

- [24] S. R. Mohammadi, H. A. Khonakdar, M. Ehsani, S. H. Jafari, U. Wagenknecht, B. Kretzschmar, *Journal of Polymer Research*, **18**, 1765 (2011).
- [25] P. E. Sánchez-Jiménez, L. A. Pérez-Maqueda, A. Perejón, J. M. Criado, *Polymer Degradation and Stability*, **95**, 733 (2010).
- [26] R. Arai, K. Zenda, K. Hatakeyama, K. Yui, T. Funazukuri, *Chemical Engineering Science*, **65**, 36 (2010).
- [27] B. Saha, A. K. Ghoshal, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **45**, 7752 (2006).
- [28] A. S. Goje, Y. P. Chauhan, S. Mishra, *Polymer-Plastics Technology and Engineering*, **43**, 95 (2004).
- [29] A. S. Goje, Y. P. Chauhan, S. Mishra, *Chemical Engineering Technology*, **27**, 790 (2004).
- [30] T. Yoshioka, T. Motoki, A. Okuwaki, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **40**, 75 (2001).
- [31] I. Martin-Gullon, M. Esperanza, R. Font, *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, **58-59**, 635 (2001).
- [32] T. Yoshioka, N. Okayama, A. Okuwaki, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **37**, 336 (1998).
- [33] T. Masuda, Y. Miwa, K. Hashimoto, Y. Ikeda, *Polymer Degradation and Stability*, **61**, 217 (1998).
- [34] S. Kumagai, G. Grause, T. Kameda, T. Takano, H. Horiuchi, T. Yoshioka, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **50**, 1831 (2011).
- [35] S. Kumagai, G. Grause, T. Kameda, T. Takano, H. Horiuchi, T. Yoshioka, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **50**, 6594 (2011).
- [36] S. Kumagai, G. Grause, T. Kameda, T. Yoshioka, *Environmental Science & Technology*, **48**, 3430 (2014).