

コークス炉化学原料化法による 廃プラスチックリサイクル技術の概要と展望

Overview and Future Outlook of Waste Plastic Recycling Technology Using Coke Ovens

日本製鉄(株)
技術開発本部
フェロー
野村誠治
Seiji Nomura

日本製鉄(株)
スラグ事業・資源化推進部
資源化企画室 上席主幹
松枝恵治
Keiji Matsueda

1 はじめに

我が国の鉄鋼業における廃プラスチックリサイクルは、従来、一般廃棄物として焼却、および埋立処理が行われてきた廃プラスチックを、リサイクル利用により廃棄物の減量と資源の有効活用手段として確保することで、経済と環境に大きく貢献し続けており、その根幹である容器包装リサイクル法が2000年に施行されてから20年目の節目を迎えている。中でも、「コークス炉化学原料化法による廃プラスチックリサイクル技術」は、2000年に日本製鉄(株)(以後、当社と記載)で実機化¹⁻³⁾されて以後、廃プラスチック処理量の累計は300万tを超え、SDGs(12つくる責任つかう責任、13気候変動に具体的な対策を、14海の豊かさを守ろう)の目標実現に大きく貢献している。

一方、特に近年、海洋プラスチック問題(海洋へのプラスチックごみの流出による海洋汚染)に関する注目が高まり、世界全体でプラスチック廃棄物のリデュース、リユース、リサイクル等を行うためのプラスチック資源循環体制の構築に向けた取り組みが強化されている。我が国においても、これまでの取組により廃プラスチックの有効利用率は85.8%に到達しているものの、ワンウェイの容器包装廃棄量(一人当たり)が世界で二番目に多いと指摘されていること、未利用の廃プラスチックが一定程度あること、アジア各国による輸入規制が拡大していること等から、プラスチック資源循環をさらに総合的に推進するための「プラスチック資源循環戦略」⁴⁾が策定されている。この戦略は、2019年6月に開催された大阪G20会議で提示され、この中で、「2030年までに容器包装の6割をリユース・リサイクル」、「2035年までに使用済みプラスチックを100%リユース・リサイクルで有効利用」がマイルストーンとして挙げられている。さらに直近では、重点

戦略の1つであるリデュース等の徹底に向けた取組の一環として、「レジ袋有料化義務化(無料配布禁止等)」⁵⁾が2020年7月1日よりスタートしたことで、プラスチック問題に対する一般消費者の関心はより高まっている。

以上のように、近年、SDGsに対する関心の高まりとともにプラスチックを取り巻く環境が大きく変化していることを背景に、本報では、まずはじめに「コークス炉化学原料化法による廃プラスチックリサイクル技術」の技術課題解決の経緯について概説し、これまで20年間の廃プラスチックの処理実績、再生利用率と環境負荷低減効果についてまとめ、今後の展望を最後に述べる。

2 コークス炉化学原料化法の 技術課題解決の経緯

2.1 コークス製造プロセスの概要

コークス炉化学原料化法の技術課題解決の経緯について述べる前に、まずコークス製造プロセスについて概要を説明する。図1、図2にコークス炉の外観とコークス製造プロセスのフローをそれぞれ示す。図1に示すように、石炭はコークス炉上の石炭装入孔から炉炭化室に装入され、酸素がない状態で約1000℃程度になるまで加熱(乾留)され、コークスに転換される。炭化室は、幅0.4-0.5m、高さ4.7m、奥行き13-17mの矩形の部屋で、ガスを燃焼させる燃焼室にはさまれており、燃焼室から珪石煉瓦を介して石炭に熱が供給される。

コークス製造用の石炭は「原料炭」と呼ばれ、石炭火力発電用の石炭(通称「一般炭」や「発電炭」と呼ばれる)とは大きく異なる。原料炭は、1-2mmに粉碎してからコークス炉に装入されるが、この粉状の石炭から約50mmの塊状のコークスを製造するには、石炭は加熱して軟化溶解する性質(これ

を粘結性という)が必要である。

炭化室に装入された石炭(原料炭)は、軟化熔融状態を経てコークスとなり、コークス化が終了するまでの時間は、おおよそ20から24時間である。石炭を乾留すると、コークスになるのはおおよそ70%であり、残りの30%は石炭が熱分解した高温のガス(コークス炉ガス; COG)となる。COGには、タール成分、アンモニア、水、軽油などが含まれる。図2に示すように、炭化室から出た約900℃のCOGは、上昇管出口部でアンモニアを含む安水が散布され、約80℃以下まで冷却される。さらにCOGは、ガスクーラーで約35℃まで冷却され、デカンターでタールと安水を分離回収する。軽油はガス精製処理工程でCOGから回収される。炭化室から押し出されたコークスは、冷却された後、高炉に搬送される。コークスの冷却には、水による消火(湿式消火)と窒素による冷却(乾式消火)があるが、後者はコークス顕熱をエネルギーとして回収できるメリットがあること、ダスト排出が抑制されて環境面でも優れていることから、現在主流となっている。コークスは高炉で鉄鉱石の還元材および熱源として使われ、軽油やタールは化学原料として、COGは製鉄所の燃料ガスとして使用され、安水はCOG冷却用フラッシングのため循環される。

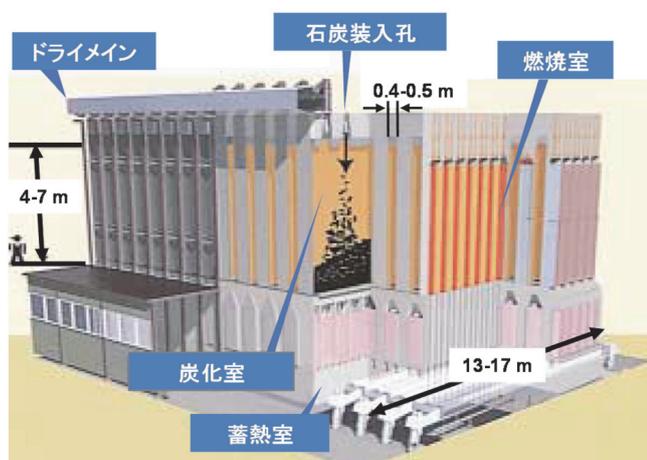


図1 コークス炉の外観

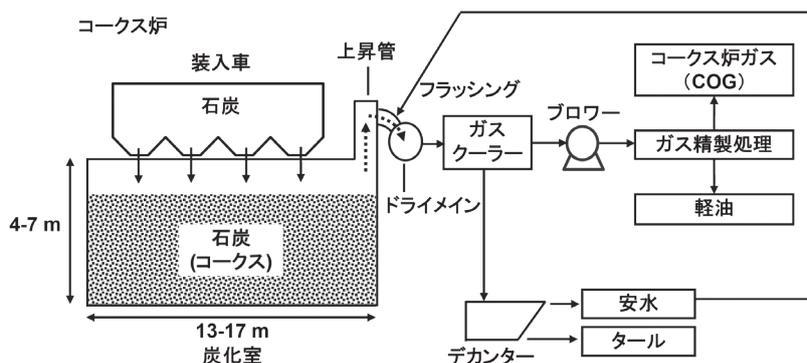


図2 コークス製造プロセスのフロー

2.2 コークス炉化学原料化法の技術課題解決の経緯

プラスチックも石炭も、主要構成元素はC, H, Oで同じであり、コークス炉で廃プラスチックを乾留すれば、石炭と同様にコークス、タールと軽油、COGに転換できると考えられる。一方、廃プラスチックをコークス製造プロセスでリサイクルする上での重要な技術課題は、コークス炉で廃プラスチックを乾留した時の生成物歩留まり、コークス品質に及ぼす廃プラスチック添加の影響、コークス炉での乾留過程における廃プラスチック中塩素の挙動であり、以下これら技術課題解決の経緯について説明する。

2.2.1 コークス炉で廃プラスチックを乾留した時の生成物歩留り

実験室規模(試料100g)の試験装置を用いて、種々のプラスチックを乾留した時の生成物歩留りを測定した結果を図3に示す²⁾。図に示すように、プラスチック種類により生成物の歩留りは異なることがわかる。さらに、廃プラスチック減容成形物(詳細は後で記載)を石炭に1~2%添加し、実機コークス炉で乾留した時の生成物歩留り測定結果を同じ図に示す²⁾。廃プラスチックを石炭とともにコークス炉で乾留した場合、

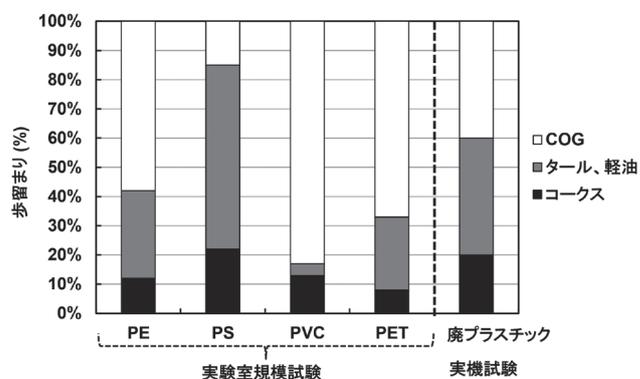


図3 コークス炉でプラスチックを乾留した時の生成物歩留り (PE: ポリエチレン、PS: ポリスチレン、PVC: 塩化ビニル、PET: ポリエチレンテレフタレート)

コークス約20%、タールと軽油約40%、COG約40%の有用な化学原料に転換されることがわかった。

2.2.2 コークス品質に及ぼす廃プラスチック添加の影響

コークス品質に及ぼすプラスチック添加の影響に関しては、プラスチックの種類、サイズ(大きさ、粒度)、添加率の影響が検討すべき課題である。ここでは、プラスチックサイズおよび添加率がコークス冷間強度(DI¹⁵⁰₁₅、以下DIと略記する)に及ぼす影響について述べる。なお、プラスチック種類の影響に関しては、PS(ポリスチレン)やPET(ポリエチレンテレフタレート)が石炭の粘結性を阻害することが確認されている⁶⁾。

プラスチックサイズとDIの関係を検討した結果、図4に示すようにDIはあるプラスチックサイズで極小値を示し、サイズが大きいと低下代は小さくなることがわかった⁷⁾。プラスチックの熱分解は石炭よりも低温で起こり、石炭が軟化溶解して膨張する前にプラスチックは熱分解して、その痕に空隙が生成する。プラスチック周囲の石炭は、その空隙に向かって自由膨張し、発泡した脆弱なコークス層が生成する。ここで、添加するプラスチックが全て均一な球状粒子と仮定すると、[添加プラスチックの総表面積] = 3 × [添加プラスチック質量] / ([添加プラスチックの密度] × [プラスチック粒子の半径]) で表現され、添加プラスチック質量一定の条件では、添加プラスチックの総表面積はプラスチック粒子の半径に反比例する。したがって、プラスチックと石炭の界面に生成する脆弱コークス層の厚みが条件によらず一定であると仮定すると、プラスチックサイズが大きいくほど総表面積が減少し、脆弱コークス層の量も減少し、コークス強度低下要因が減ることとなる。

この検討結果に基づき、プラスチックのハンドリング性を考慮したうえで、当社は実機コークス炉において、図5に示すような直径20-30mmの廃プラスチック減容成形物を使用することに決定した。そして実機コークス炉で廃プラ

ク添加がコークス品質に及ぼす影響を調査し、1%添加まではDIに影響しないことを確認し、廃プラスチックのコークス炉化学原料化法が実用化された。

プラスチックの総表面積は [添加プラスチックの密度] × [プラスチック粒子の半径] に反比例するので、プラスチックサイズ増大だけでなく、密度増大により表面積を低下すれば脆弱コークス量を低減することができる。これは、廃プラスチック減容成形物を高密度化することにより、コークス強度に影響を与えずに、より多量の廃プラスチックを石炭に添加できる可能性があることを示唆している。

2.2.3 コークス炉での乾留過程における廃プラスチック中塩素の挙動

廃プラスチック中には、ポリ塩化ビニル(PVC)やポリ塩化ビニリデンなどの塩素を含むプラスチックが含まれるので、コークス炉で廃プラスチックを石炭とともに乾留した時の塩素の挙動について調査を実施した^{8,9)}。塩素濃度450ppmの石炭に、塩素濃度約3%の廃プラスチックを2%添加し、実機コークス炉で乾留し、製品中の塩素濃度を測定した。その結果、図6に示すように、廃プラスチックを添加してもコー



図5 廃プラスチック減容成形物の外観

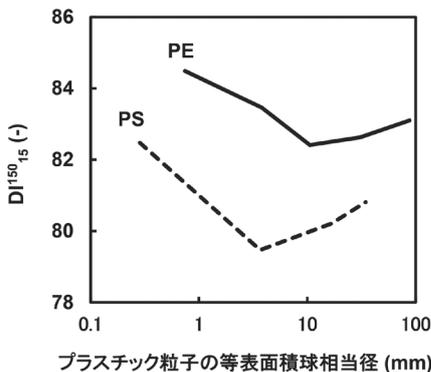


図4 プラスチックサイズがコークス強度に及ぼす影響 (PE: ポリエチレン, PS: ポリスチレン)

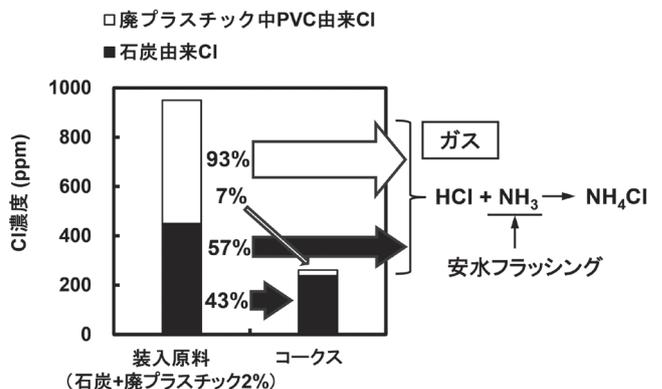


図6 石炭と廃プラスチックをコークス炉で乾留した時の塩素の挙動 (廃プラスチック中塩素濃度2.5%、石炭中塩素濃度450ppm、PVC: 塩化ビニル)

クス中塩素濃度の増加は僅かであることが明らかとなった。廃プラスチックと石炭に含まれる塩素別にコークスとガスへの分配率を精査すると、廃プラスチック中の塩素はコークスとガスにそれぞれ7%、93%で分配され、石炭中の塩素はそれぞれ43%、57%で分配された。廃プラスチック由来塩素のコークス中残留率が石炭由来塩素よりも低い理由は、塩素の存在形態によると考えられる。廃プラスチック中塩素の多くはPVCであり、石炭に添加されたPVCが乾留されて熱分解する速度は、石炭中に含まれる塩素が石炭熱分解により放出されるよりも早い。また、放出された塩素のほとんどは、高温のCOGを冷却するためにフラッシングされる安水に吸収され、化学反応 ($HCl + NH_3 = NH_4Cl$) により塩化アンモニウムとして固定された。最終的に、廃プラスチック中の塩素はコークス、アンモニア水、COGにそれぞれ7%、92%、1%で分配され、石炭中の塩素は、43%、56%、1%で分配された。アンモニアの由来は石炭中に含まれるNであり、天然資源である石炭由来のNが廃棄物である廃プラスチック中の塩素の補足に役立っており、コークス炉での石炭と廃プラスチックの乾留は絶妙の組み合わせといえる。

縮・梱包され、ボール状態で製鉄所に搬入される。製鉄所では、廃プラスチックをコークス炉での乾留に適した品質、形状とするため、異物除去、破碎した後、摩擦熱で固形状に減容成形する。減容成形された廃プラスチック造粒物は、コークス製造用原料炭に混合してコークス炉に装入される。廃プラスチックは熱分解され、固体(コークス;20%)、気体(コークス炉ガス;40%)、液体(炭化水素油;40%)として回収される。コークスは鉄鉱石の還元材として高炉で使用され、コークス炉ガスは製鉄所内の発電所や加熱炉等で燃料として利用される。炭化水素油(軽質油、タール)はプラスチック原材料等の化学原料として再商品化され、様々なプラスチック製品としてリサイクルされる。

3 コークス炉化学原料化法の概要と処理実績

3.1 コークス炉化学原料化法の概要

図7にコークス炉化学原料化法による廃プラスチックリサイクル技術のプロセスフローを示す¹⁰⁾。一般家庭で分別排出された廃プラスチックは、自治体によって収集された後に圧

3.2 コークス炉化学原料化法による廃プラスチックの処理実績

当社は2000年に廃プラスチック処理を開始して以降、順次その能力を拡大して2008年度には現在の約25万t/yレベルへ到達している。廃プラスチック事前処理設備は全国5地区(室蘭、君津、名古屋、八幡、大分)で10基が稼働し、鹿島、和歌山を含めたコークス炉を保有する7ヶ所で継続処理している(図8)。また2019年度の当社における容器包装用廃プラスチック処理実績(図9)は約21万t/yで、これは用途別構成比率で約32%のリサイクル処理に相当しており、過去10年間をほぼ同等のレベルで安定的に処理を行ってきた。2018年11月には当社のコークス炉化学原料化法で処理した廃プラスチック量は累計300万tに到達し、2019年度末実績で328万tと、更なる前進を継続している。なお、累計廃プラ



図7 コークス炉化学原料化法の概要

ク処理量は当社ホームページ「発見！製鉄所のプラスチックリサイクル」¹¹⁾のカウンターで日々更新されている。

4 コークス炉化学原料化法による廃プラスチックの再生利用率と環境負荷低減効果

当社のコークス炉化学原料化法による廃プラスチックリサイクル実績では、ボールでの受入れ廃プラスチックを減容成形した再商品化率は平均90~93%と高く、水分、異物（金属等）の残渣の比率は数%であり、プラスチック回収率は高い。回収されたプラスチックは、先に述べたように100%（コークス20%、コークス炉ガス40%、炭化水素油40%）有効利用されるので、コークス炉化学原料化法は資源節約効果が高い

と評価される。容器包装プラスチックの再生利用率を再生利用処理法と比較すると（図10）、材料リサイクル法による再生利用率が約50%であるのに対して、コークス炉化学原料化法に高炉法、ガス化を加えたケミカルリサイクル法による再生利用率は約85%と高い。

また、廃プラスチックボール単位投入量あたりの環境負荷削減効果は、材料リサイクル法が残渣利用を含めて2.2t-CO₂/tであるのに対して、ケミカルリサイクル法では3.1 t-CO₂/t、コークス炉化学原料化法では3.2 t-CO₂/tと高く（図11、図12）、極めて有効なプラスチックのリサイクル手法であるといえる。なお、2019年度末までの当社のプラスチックリサイクルによるCO₂削減累計量は1000万tを超えており、足元のCO₂削減累計量は当社ホームページ¹¹⁾で確認できる。



図8 日本製鉄（株）におけるコークス炉を利用した廃プラスチック処理体制

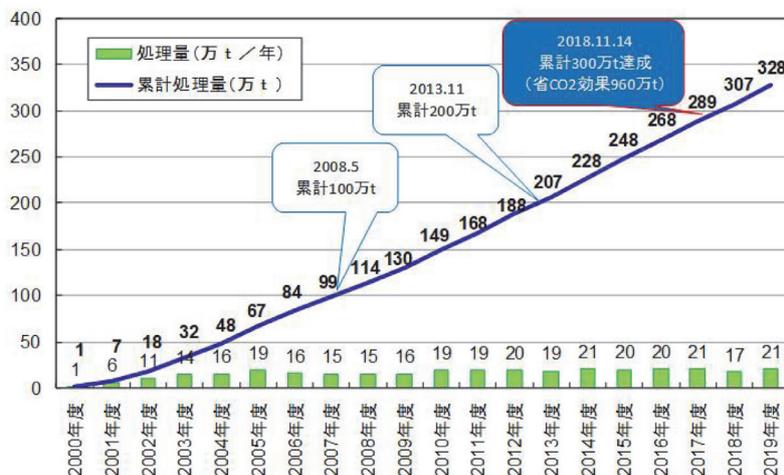


図9 日本製鉄（株）における廃プラスチック処理量および累計処理量の推移

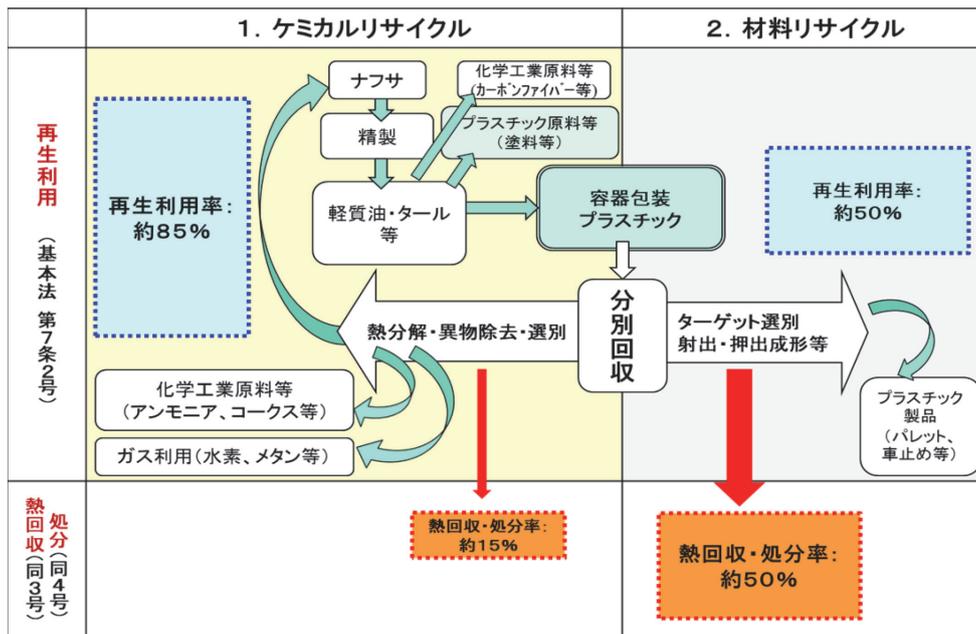


図10 容器包装プラスチックの再生利用処理法による再生利用率の比較

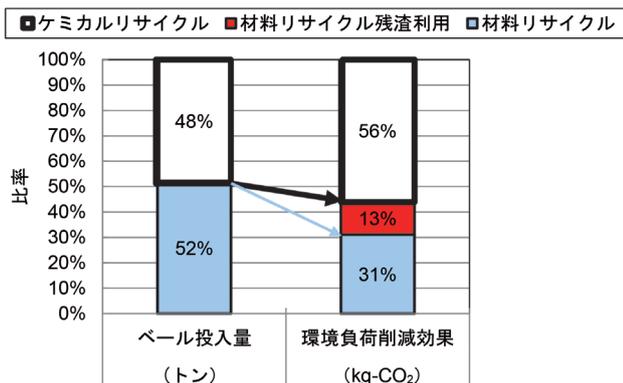


図11 容器包装プラスチックの再生利用処理法による環境負荷削減効果の比較

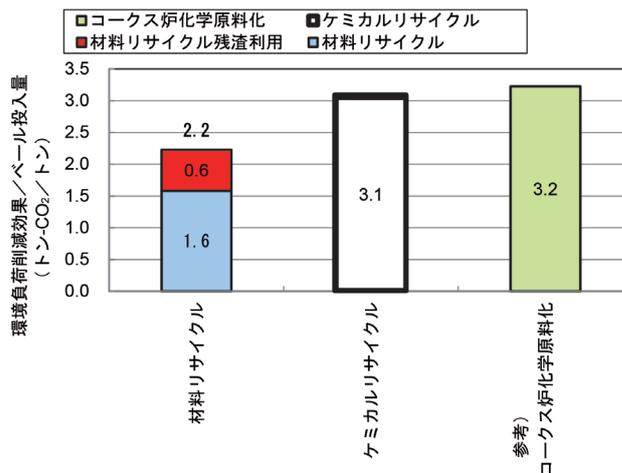


図12 容器包装プラスチックの処理法別環境負荷削減効果

5 おわりに

製鉄用コークス炉を活用して、一般廃プラスチックを石炭と共に熱分解処理するべく開発したコークス炉化学原料化法は、既設の大型インフラを上手く活用し、資源の適正処理、資源枯渇問題にも高効率に対応する非常に有効な手段として社会的に認知されて定着し20年余りが経過した。これまで当社のコークス炉化学原料化法による廃プラスチックリサイクル技術に対して戴いた主な受賞歴を表1に示す。

冒頭述べたように、足元は新たに海洋プラスチックをはじめとした世界のプラスチック問題への注目が集まっており、地球温暖化対策の一環として3RやSDGs等の考え方や活動の指針も具体的に示されてきている。併せて新型コロナによる世界の人々の生活様式の急激な変化に伴う足元の廃

棄プラスチック量の増加など、今後はより環境に配慮された更なるプラスチック処理ニーズが高まる事は必至である。一方、現在まで容器包装プラスチックの集荷・処理量は年間66-67万tと横ばいが継続しており、且つこのほぼ50%は材料リサイクルに有利な入札制度となっていることから、日本鉄鋼連盟は、国による廃プラ集荷量拡大策の早期具体化と入札制度の抜本的な見直しを要望している。また、2020年6月8日、経団連は「チャレンジ・ゼロ」(チャレンジネット・ゼロカーボンイノベーション)の開始を発表し、日本政府と連携し、脱炭素社会の実現に向けた企業等のチャレンジするイノベーションのアクションを発信、後押ししていくイニシアティブがスタートした¹²⁾。当社は、コークス炉に入れる前

表1 コークス炉化学原料化法による廃プラスチックリサイクル技術の主な受賞実績

表彰年月日	賞名	表彰業績名	表彰主催団体
2002年10月30日	グッドデザイン金賞	新日鐵の廃プラスチック再資源化プロジェクト	(財)日本デザイン振興会
2002年11月26日	ウェステック大賞(環境大臣賞)	コークス炉化学原料化法によるプラスチックリサイクルの推進	ウェステック実行委員会
2003年6月9日	全国発明表彰発明賞	製鉄用コークス炉を活用した塩素を含むプラスチックの再資源化方法	(社)発明協会
2003年10月9日	AIME - Robert Earl McConnell Award	For significant contributions in leading a research effort on the successful commercial recycling of collected plastics in coke ovens without degrading the quality of coke.	AIME (The American Institute of Mining, Metallurgical, and Petroleum Engineering)
2003年11月27日	第13回日経地球環境技術賞	廃プラスチック循環資源化の開発と普及(コークス炉による廃プラスチックの有効活用)	(株)日本経済新聞社
2004年2月24日	日本エネルギー学会賞(技術部門)	製鉄用コークス炉を活用した廃プラスチック化学原料化技術の開発	(社)日本エネルギー学会
2012年3月23日	大河内記念生産賞	コークス炉化学原料化法による一般廃プラスチックの再資源化技術	(財)大河内記念会
2013年6月10日	プラスチックリサイクル化学研究会技術功績賞	コークス炉化学原料化法による廃プラスチックの再資源化技術	プラスチックリサイクル化学研究会
2014年4月15日	科学技術分野の文部科学大臣表彰科学技術賞	コークス炉による廃プラスチックの再資源化技術の開発	文部科学省研究振興局 振興企画課 奨励室

の廃プラスチックを圧縮する工程で出る摩擦熱の温度をコントロールすることにより、廃プラスチックを高密度化する技術の開発実用化にチャレンジする¹³⁻¹⁶⁾。この技術により、コークス炉で化学原料化する廃プラスチックの処理量20%増を目指しており、現状からさらに△12万t/yのCO₂削減と廃プラスチックの有効利用量拡大が見込まれる。今後も、SDGs目標実現のためのプラスチック問題解決に資する技術であるコークス炉化学原料化法への期待は大きく、我々は更なる社会への貢献を果たすべく努力していく所存である。

参考文献

1) 加藤健次, 古牧育男, 植松宏志: 金属, 71 (2001), 331.
 2) K.Kato, S.Nomura and H.Uematsu: ISIJ Int., 42 (2002), Supplement S10.
 3) 加藤健次, 近藤博俊: ふえらむ, 13 (2008), 657.
 4) 環境省「プラスチック資源循環戦略」の策定について (2019.5.31), <https://www.env.go.jp/press/106866.html>, (accessed 2020-08-04)
 5) 経済産業省「プラスチック製買物袋の有料化」, https://www.meti.go.jp/policy/recycle/plasticbag/plasticbag_top.html, (accessed 2020-08-04)
 6) S.Nomura, K.Kato, T.Nakagawa and I.Komaki: Fuel, 82 (2003), 1775.

7) S.Nomura and K.Kato: Fuel, 85 (2006), 47.
 8) S.Nomura: J. Sustainable Metallurgy, 1 (2015), 85.
 9) 加藤健次, 野村誠治: 鉄と鋼, 90 (2004), 776.
 10) 日本製鉄サステナビリティレポート2019, <https://www.nipponsteel.com/common/secure/csr/report/nsc/pdf/report2019.pdf>, (accessed 2020-07-15)
 11) 日本製鉄「発見! 製鉄所のプラスチックリサイクル」, <https://www.nipponsteel.com/csr/plastic-recycle/>, (accessed 2020-08-04)
 12) 経団連「チャレンジ・ゼロ」, <https://www.keidanren.or.jp/policy/2020/052.html>, (accessed 2020-08-04)
 13) Challenge Zero「イノベーション事例 廃プラスチック再資源化の効率性向上」, <https://www.challenge-zero.jp/jp/casestudy/217>, (accessed 2020-08-04)
 14) 日本製鉄 コークス炉での廃プラ再資源化 処理量2割増を目指す, 鉄鋼新聞, (2020/6/10)
 15) 日鉄, 廃プラを原料・樹脂に 処理能力2割増 出光も参入, 日本経済新聞, (2020/7/24)
 16) 鉄鋼大手, 技術開発加速 容器包装プラ, 再資源化進む, 日刊工業新聞, (2020/7/27)

(2020年8月31日受付)