

# 燃えるごみの焼却残さを高付加価値材料に変換する技術開発

## — 「熔融スラグ」の高比表面積シリカへの変換と シリカを原料とするケイ素化学産業基幹原料の製造 —

深谷 訓久<sup>1\*</sup>、片岡 祥<sup>2</sup>、崔 準哲<sup>1</sup>

都市ごみ清掃工場から排出される熔融スラグを原料として、高い比表面積を持つシリカを製造する技術を開発した。この方法で得られるシリカは市販の合成シリカに匹敵する純度や比表面積を持ち、吸着剤やゴムの添加剤、コーティング剤等さまざまな用途への展開が期待できる。この研究成果は、これまでコンクリートやアスファルトの骨材としての利用に限定されていた熔融スラグを、新たに機能性材料として社会に循環させることを可能にするものである。この研究をスタートするきっかけとなった「シリカを原料とする機能性化学品の直接合成技術」の概略と研究シナリオおよび今後の展望について報告する。

キーワード: 熔融スラグ、シリカ、メソポーラスシリカ、ケイ素

## High-value materials from incineration residues of burnable garbage

### —Production of silica with high specific surface area from “molten slag” and direct transformation of silica to basic raw material for silicon chemical industry—

Norihisa FUKAYA<sup>1\*</sup>, Sho KATAOKA<sup>2</sup> and Jun-Chul CHOI<sup>1</sup>

We developed a technology for producing silica with high specific surface area from molten slag discharged by a garbage disposal plant. The obtained silica has purity and specific surface area comparable to commercially available synthetic silica. Therefore, this silica can be used in various applications, such as in adsorbents, rubber additives, and coating agents. Previous use of silica recycled from molten slag was limited to aggregate for concrete or asphalt. This research result means that silica recycled from molten slag can now be used as a functional material. We also report on “direct synthesis technology of functional chemicals using silica” as the starting point for this research, the research scenario, and future prospects.

Keywords: Molten slag, silica, mesoporous silica, silicon

### 1 はじめに

#### 1.1 この研究の概要

著者らは、株式会社三井 E&S エンジニアリング（以下、三井 E&S。この研究開始当初は三井造船株式会社。2018 年 4 月に分社化に伴い社名変更）と共同で、都市ごみ清掃工場から発生する熔融スラグを原料にして、高比表面積シリカを製造する技術を開発した。今回共同開発した技術を用いて得られた高比表面積シリカは、静脈産業（都市ごみ清掃工場）から発生する熔融スラグを動脈産業（化学産業や素材産業）の機能性材料として、有効利用することが可能となる。この論文では、開発の背景と熔融スラグ利用の

高度化を目指した技術の内容および今後の展望について報告する。

#### 1.2 この研究のシナリオ

図 1 に研究開始のきっかけとなった社会課題に基づいた技術シーズと産業ニーズのマッチングから技術の発明につながる過程、および今後の展望に関するシナリオの全体像を示す。熔融スラグから機能性材料を製造する技術開発は、産業技術総合研究所（以下、産総研）が、新エネルギー・産業技術総合開発機構（以下、NEDO）プロジェクトの中で社会課題である「ケイ素化学品製造の省エネルギー化」を目的に進めていたがこれとは別の社会課題である「自治

1 産業技術総合研究所 触媒化学融合研究センター 〒305-8565 つくば市東 1-1-1 中央第 5、2 産業技術総合研究所 化学プロセス研究部門 〒305-8565 つくば市東 1-1-1 中央第 5

1. Interdisciplinary Research Center for Catalytic Chemistry, AIST Tsukuba Central 5, 1-1-1 Higashi, Tsukuba 305-8565, Japan \* E-mail: n.fukaya@aist.go.jp, 2. Research Institute for Chemical Process Technology, AIST Tsukuba Central 5, 1-1-1 Higashi, Tsukuba 305-8565, Japan

Original manuscript received March 16, 2018, Revisions received July 15, 2018, Accepted July 18, 2018

体におけるごみ処理の高効率化（収益の改善）」や「分散型エネルギー施設のさらなる利用」などの解決を目指す、新しい研究課題への挑戦に発展したものである。図1のように整理し俯瞰してみると、研究の成果が次のステージに進む時は、異なる専門分野をもつ人的リソースとの連携が重要になる場合が多く、その連携のきっかけとして「成果の普及」の過程で、自身の研究成果の意義をわかりやすく発信し、広く社会に認知してもらうことがキーポイントになっていることがわかる。三井E&Sのごみ処理工程に係るプラント運営の課題について知見を有する専門家と、産総研触媒化学融合研究センターの化学反応および分子設計を専門とする研究者や、化学プロセス研究部門の化学工学あるいは表面化学を専門とする研究者とでは、専門フィールドがあまりにも異なるため、通常の学会発表や論文発表等の活動では、両者が直接意見交換する機会は得られない。研究開発の専門分野が細分化し、他分野あるいは科学技術全体を見渡すことがますます困難となりつつあるなか、産総研の保有する技術シーズを産業界の招待者に紹介するテクノブリッジフェアのような、産総研全体の研究を俯瞰し、体系的に外部発信しようとするイベントは非常に重要であると考えられる。振り返ってみると、全くの異分野の専門家同士がニーズとシーズのマッチングにより、双方が新しい課題に挑戦する共同研究をスタートできたこと自体

が、この研究のブレークスルーポイントと言っても過言ではない。

さらにこの研究では、三井E&Sと産総研の共同研究の成果について双方共同でのプレスリリースという形で、対外発表を行った。その結果、研究期間の前半では、新たな課題に取り組む共同研究の開始につながり、後半では「熔融スラグから製造したシリカを使ってみたい」という複数の企業からの問い合わせを受け、サンプルワーク開始に向けたユーザー開拓へと展開できた。次節以降ではこのシナリオの流れに沿って、詳細を報告する。

## 2 開発の背景

### 2.1 都市ごみ処理の現状

東日本大震災以降、自立分散型エネルギーの利用・普及拡大の重要性が高まっている<sup>[1]</sup>。なかでも都市ごみ清掃工場は、ごみを処理する際に発生する熱エネルギーを活用することが可能であり、全国の地方自治体単位で設置された分散型のエネルギー回収施設として注目されている。一方で、清掃工場ではごみ焼却に伴って焼却灰が発生しており、主に最終処分場に埋められているが、一部の清掃工場では、焼却灰を減容するため、高温で熔融させた後に、水中で冷却して生じる「熔融スラグ」と呼ばれるガラス状固形物として回収する処理が行われている。2015年度の統

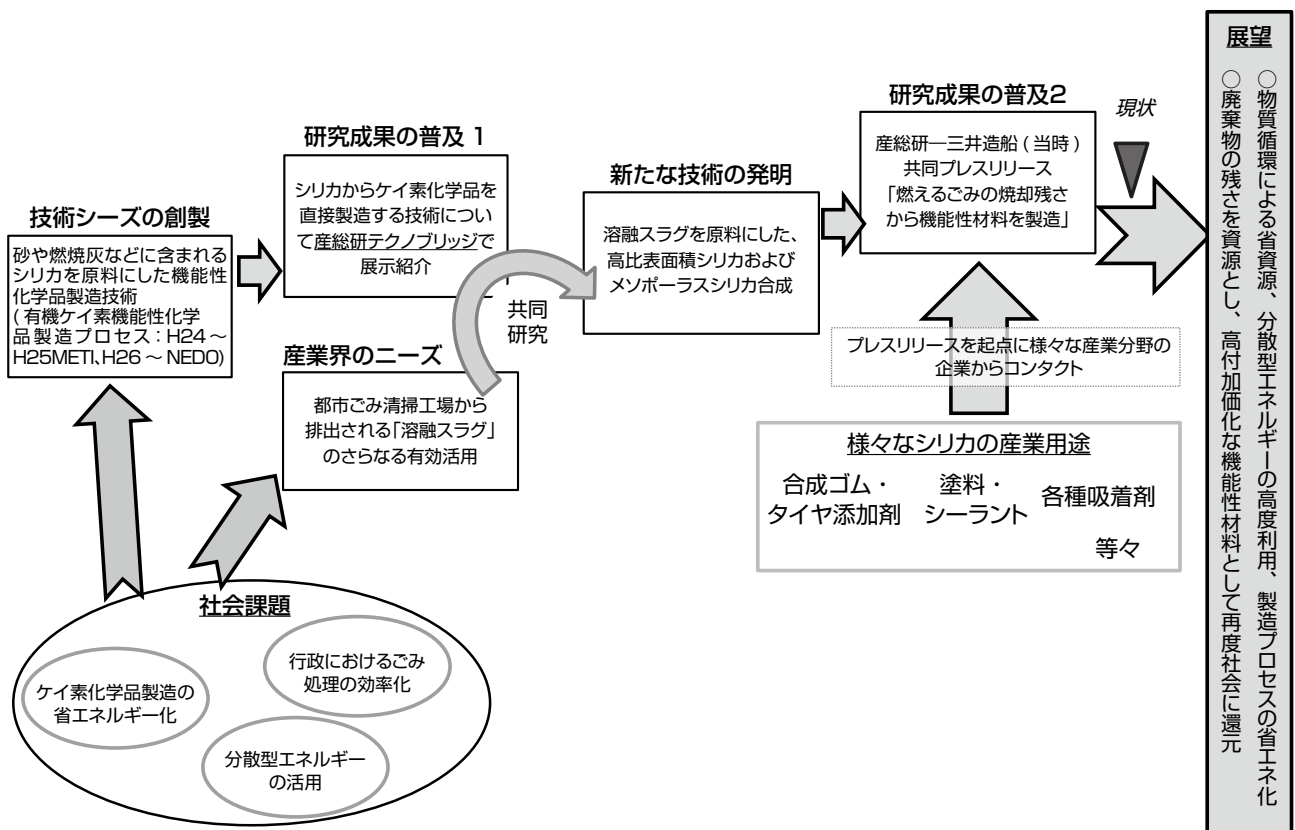


図1 この研究のシナリオと今後の展望

計では、都市ごみ清掃工場は日本全国で 1,141 施設あり、その処理様式はいくつか存在するが、溶融スラグを生産する溶融施設を有するタイプの施設は 220 施設となっている<sup>[2]</sup>。これは都市ごみ清掃工場施設全体の 20 % 弱だが、その発電電力量は、3,645 GWh であり、これは都市ごみ清掃工場の総発電電力量 8,175 GWh の約 45 % を占め、エネルギー施設としては重要な位置付けとなっている。

## 2.2 溶融スラグの特徴

ごみ由来の溶融スラグの主成分は SiO<sub>2</sub>、CaO、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> であり、これらの組成比は地域や季節によっても変動はあるものの、概ねこの 3 成分の合計が組成中の約 70 wt% となっており、なかでも SiO<sub>2</sub> は 40 ~ 50 % 程度を占める。国内の一般廃棄物を処理する都市ごみ清掃工場での溶融スラグ生産量は、約 80 万トン/年 (2015 年度) に達している (図 2)。2006 年には、溶融スラグの安全性を明確にし、有効利用を促進することを目的として、二つの JIS 規格 (JIS A 5031 と JIS A 5032、それぞれコンクリート用骨材と道路用) が制定されている。品質項目として、物理的性質 (密度、吸水率、すりへり減量等)、化学的性質 (組成等) および安全性試験等 (有害物質の溶出量・含有量) がある。現在の溶融スラグの用途は主に、土木資材であり、道路用骨材が約 34 %、コンクリート用骨材が約 17 % とインフラ用途が大半を占める (図 3)<sup>[2]</sup>。

## 2.3 溶融スラグのさらなる有効活用に向けて

現在は、震災復興や 2020 年の東京オリンピック・パラリンピックに向けたインフラ整備工事に伴い、上記のような道路やコンクリート用骨材等の土木資材全般の需要が高い時期となっているが、それ以降は、ごみ清掃工場からの溶融スラグの排出量が需要に対して過剰になるのではないかと懸念されている。したがって、溶融スラグから高付加価値な材料を創出し、従来よりも幅広い分野での有効利用を



図2 溶融スラグ保管ヤード

図るための技術開発が求められている。三井 E&S は、エンジニアリング企業としてごみ処理清掃工場の建設、および建設後の施設の運営・メンテナンスを自治体等から受託することを事業としている。同社はこの事業展開のなか、上記の社会課題としての溶融スラグの有効活用手法開発について強いニーズを持ち、その解決に資する大学・公的研究機関等の技術シーズを探索していた。

一方、産総研触媒化学融合研究センターでは、NEDO のプロジェクト「有機ケイ素機能性化学品製造プロセス技術開発」(2012 年~2021 年予定) において、幅広い産業分野で使用されているシリコンをはじめとするさまざまな有機ケイ素材料の研究開発を行っている。著者らは、2015 年 10 月 22 ~ 23 日に行われた産総研テクノブリッジにおいて、上記 NEDO プロジェクトの研究成果についてポスター展示を行った。三井 E&S の研究開発責任者が、来所し、展示中の「シリカを原料とするケイ素基幹化学品の直接合成」の内容に高い関心を持った。その後コンタクトがあり、エネルギー施設から排出される燃焼灰や溶融スラグの有効活用の可能性について協議を重ね、共同研究を開始した。次節では、この共同研究を開始する前段となった NEDO プロジェクトの成果で創出した技術シーズの概要を説明する。

## 2.4 NEDO「有機ケイ素機能性化学品製造プロセス技術開発」の概要

ケイ素は、地球の表層を構成する成分のうち、酸素に次いで豊富に存在する元素であり、自然界では、岩石や砂の中の主成分としてシリカの状態が存在している。ケイ素を含む材料は、我々の身の回りで非常に多く、さまざまな形態で利用されている。シリコン、シランカップリング剤に代表される有機ケイ素化学品は、耐熱性、耐候性、耐薬品性、絶縁性等の観点で優れた物性を有し、自動車、航空

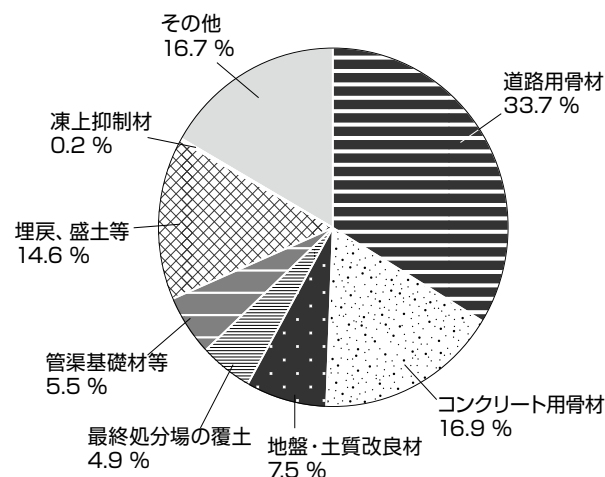


図3 溶融スラグ (ごみ由来および下水汚泥由来) の用途の現状<sup>[2]</sup>



表1 さまざまな天然原料からテトラエトキシシランを直接合成した結果

シリカを含む原料	原料中のシリカ純度	テトラエトキシシランの収率
砂 <sup>a</sup>	90 %	51 %
もみ殻燃焼灰	93 %	78 %
稲わら燃焼灰	84 %	72 %
産業副産物 <sup>b</sup>	95 % 以上	72 %

a: 青森県夏泊半島産珪質頁岩を粉碎（株式会社アサカ理研より提供）

b: 合成石英製造時の副生シリカ（クアーズテック株式会社より提供）

宇宙、建設、エレクトロニクス、医療や化粧品等非常に幅広い産業分野で用いられる機能材料である。また、テトラアルコキシシランと呼ばれる化合物（例えばテトラエトキシシランは、TEOS/テオスという略称で良く知られている）は、主に無機ケイ素材料の原料として幅広く利用されていて、機能性セラミックス、ガラス、合成石英等の光学材料、電子デバイス用の保護膜等を作る際に欠かせない基幹物質である。

さまざまな製品の材料に用いられる含ケイ素化学品は、いずれも製造工程の第1段階において、出発原料である天然のケイ石を高温で炭素と反応させ、金属ケイ素に還元する必要がある。これは大量の電気エネルギーを消費し、同時に二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)も大量に排出する工程である。このことが、ケイ素という元素自体は地球上に豊富に存在する資源であるにもかかわらず、ケイ素を含む化学材料が比較的高価な製品となっていることの主要因である。国内にも豊富に存在し、かつ安価なシリカから含ケイ素化学品を直接合成する技術の開発が望まれている(図4)。

著者らは金属ケイ素を経由しない新たな有機ケイ素化学品製造方法の開発を目指して、シリカから直接テトラアルコ

キシシランを合成する技術の開発に取り組み、高効率な反応プロセスの開発に成功した。この技術の特徴は、非常に安定な酸化物で通常は化学変換を行うことが困難な物質であるSiO<sub>2</sub>に対して、反応システムの中に水を除去できるユニットを組み込んで反応中に継続的に水を除去できるプロセスを設計し、直接反応で有用化学品に変換できることである。使用する無機脱水剤であるモレキュラーシーブは固体状であるため、反応後の回収が容易で、加熱や減圧で再生して繰り返し使用できるため、製造コスト低減にもメリットがあると考えられる(図5)<sup>[3]-[6]</sup>。

シリカを含有する出発原料として、「砂(青森県夏泊半島産の珪質頁岩を粉碎して得られたもの)」、「燃焼灰(もみ殻や稲わらを燃焼させた後に残ったもの)」、「産業副産物(合成石英を製造する際に副生するシリカ)」を用いた。これらにエタノール、触媒として水酸化カリウムを加え、無機脱水剤としてゼオライトの一種であるモレキュラーシーブ3A(細孔径0.3 nm)の存在下で加熱し、3時間反応させた。反応結果を表1に示す。砂からは、含有するシリカ基準で51%の収率でTEOSが生成した。また農業副産物として未活用の資源とも言えるもみ殻や稲わらを燃焼させた後に



図4 砂(SiO<sub>2</sub>)からの有機ケイ素原料の製造と有機ケイ素材料を含む多様な製品群

残った灰は比較的高いシリカ純度を有しており、これらを原料として合成すると72～78%の高い収率でTEOSを得ることができる。また合成石英製造時の副産物を回収して原料として利用すると、72%の収率でTEOSが得られた。

この技術の開発過程で困難であった点は、モレキュラーシーブを本反応に適用可能にする発想の転換と反応装置の設計である。シリカとアルコールからテトラアルコキシシランを合成するための最も理想的なプロセスは、図5の上部に示したように極めてシンプルな化学反応式で記述できる。しかし実際には、この反応は化学平衡によって支配されており、シリカが熱力学的に安定な物質であるために生成したテトラアルコキシシランと水が反応して、原系のシリカとアルコールに戻る逆反応の方が圧倒的に進行しやすく、収率よくテトラアルコキシシランを得ることは困難である。化学平衡を望みの方向にシフトさせるためには、生成する水を反応系から逐次的に取り除く、脱水手段が鍵となる。モレキュラーシーブは汎用的に使用される脱水剤で、通常は脱水する対象(液体や気体)に対して直接接触させて用いられる。脱水力が強い一方で比較的容易に再生・再利用することも可能なため、これが利用できれば反応の高効率が期待される。しかしモレキュラーシーブは物質としては結晶性の「アルカリ金属アルミノシリケート(アルミナ

とシリカの複合物のアルカリ金属塩)」であり、その構造中にシリカのユニットを持つ。したがって、シリカを分解することを目的とする反応系にモレキュラーシーブを直接投入すると、その構造自体が崩壊するため、研究開始当初は、本反応には使用できないという先入観を持っており、反応系に直接投入可能な有機脱水剤の探索を行っていた<sup>[4]</sup>。

一方で、NEDOプロジェクトでの研究の進捗に伴い、実験室レベルではなく工業的な規模で新しい反応プロセスを適用するためには、目的物との分離と再生・再利用が容易で脱水剤を使用可能な、よりシンプルなプロセスの開発の必要性を強く意識するようになり、発想を転換して反応条件では崩壊してしまうモレキュラーシーブを使いこなすためのアイデアを追求した。反応装置を工夫して、図6の様に水酸化カリウム触媒存在下でシリカとアルコールを反応させる容器(下部)とモレキュラーシーブが脱水剤として機能する容器(上部)を分離した。この反応装置では、下部容器からアルコールと水が気化して、上部のモレキュラーシーブに移行して、水のみが吸着除去されながら還流する。したがって、シリカのSi-O-Si結合の切断を促進する水酸化カリウム触媒とモレキュラーシーブは接触することがないので、構造崩壊することなく逐次的に水を除去することができるようになった。



図5 シリカを原料とする有機ケイ素原料の直接合成

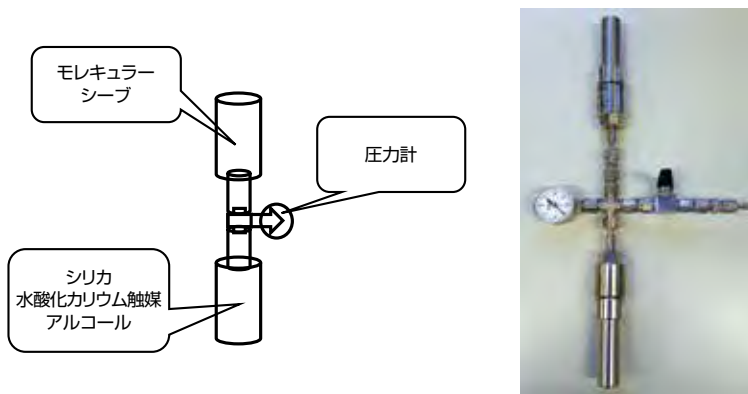


図6 テトラアルコキシシラン合成の反応容器の模式図とその写真<sup>[3]</sup>

### 3 溶融スラグを原料とする高付加価値材料の製造

#### 3.1 溶融スラグから高比表面積シリカを製造する技術

三井E&Sは、上述のNEDOプロジェクトにおける研究成果が「溶融スラグの主要構成成分でもあるシリカを高度に利用」しつつ、グリーンサステナブルケミストリー（GSC）の実現を指向するものであることに着目し、溶融スラグのさらなる有効利用、特にコンクリート用骨材等のいわゆる「静脈産業」での活用でなく、新たな価値を付与した機能性素材等の「動脈産業」での活用を目指した研究を産総研と共同で開始した。

都市ごみ清掃工場から発生した溶融スラグを、特定の条件下で酸性の溶液を用いて化学的に処理することで、溶融スラグ中に含まれるシリカ成分が、白色の固体として沈降することを新たに見いだした。この白色固体をろ過等により回収すると、純度93～98%を超えるシリカが容易に得られる（図7）。

この反応について推定されるメカニズムを考察する。2.2節で述べた通り、溶融スラグは、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{CaO}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ を主成分としており、ケイ素成分は純粋なシリカではなく「ケイ素とアルミニウムの複合酸化物のカルシウム塩」として存在していると推定される。このカルシウム塩は、酸による中和作用を受け、アルミニウムやカルシウムはイオンとして酸水溶液中に可溶化するとともに、ケイ素はオルトケイ酸もしくはシリカゾルという状態の低分子シリカ状態を経由し、酸による触媒作用で脱水縮合反応によって高分子量化が進み、シリカがゲル化して不溶な白色固体として沈降するものと考えられる。すなわち本反応系において、酸はシリカ以外の成分をイオンとして可溶化する作用と、ゾル-ゲル反応によるシリカ生成の触媒としての作用という二つの役割を果たしている。ゾル状態という低分子量かつ高分散なシリカ状態を経由してから縮合が進むため、最終的にゲル化して得られるシリカは高い比表面積を持つことが予想される。

実際に窒素ガス吸着測定の結果より、算出した比表面積はおおよそ  $600 \text{ m}^2/\text{g}$  であり、これは高比表面積材料として市販されている合成シリカ材料と同等以上の値である。したがって、この技術によって得られる溶融スラグ由来の高比表面積シリカについても、現在工業的に合成シリカが使用されている各種吸着剤、タイヤや合成ゴム等の添加剤、触媒担体、化粧品、研磨剤等さまざまな用途展開が期待できる。またシリカが高い比表面積を有することは、化学反応の原料として考えた場合、アルコールや塩基触媒等の反応対象物と接触できる反応点を多く持つこととなるため、2.4節で述べたテトラアルコキシシラン製造の原料としての有用性も期待できる。

現在工業的に広く用いられている高比表面積シリカは、四塩化ケイ素を高温の水素炎中で気相反応させて製造されるヒュームドシリカや、ケイ酸ナトリウムと硫酸との反応を液相で行って製造される沈降法シリカ（ホワイトカーボンと呼ばれることもある）などが知られている。これらの製造方法は四塩化ケイ素やケイ酸ナトリウムといったエネルギーを多く消費し、一定のコストのかかる工程で製造される物質を原料としている。一方、今回開発した技術では、我々の生活で排出される燃えるごみを処理する際に、不可避免的に発生する残さを原料として利用することができ、またその価格は、JIS規格を満足する品質のものであっても200円/トン前後で圧倒的に安価である。したがって、従来の工程に比べ、シリカの製造時における省エネルギー化や、二酸化炭素排出削減、シリカ製品の低コスト化への貢献が期待できる。

#### 3.2 溶融スラグから規則性ナノ多孔体メソポーラスシリカを製造する技術

近年、メソポーラスシリカと呼ばれる規則的で均一な孔径  $2 \sim 50 \text{ nm}$  の細孔（メソ孔）を持つシリカ多孔体材料が注目されている。メソポーラスシリカは、一般的に溶液中で界面活性剤が自己集積してできる構造をメソ孔の鋳型



図7 原料の溶融スラグ（左）と合成した高比表面積シリカ（右）



として利用し、その周囲にゾルーゲル反応によってシリカを形成することによって合成される。メソポーラスシリカは、規則性構造を有し、均質なナノ空間が材料内部に構築されていることから、既存の多孔質材料では実現できないような高選択的反応場として期待され、高機能調湿剤、薬物伝達システム、酵素担体としての応用展開について世界中で盛んに研究が行われている高付加価値な材料である<sup>[7]</sup>。

前節で述べた溶融スラグから得られるシリカは、高い比表面積を有しているが、特定の細孔構造を持たない。そこで溶融スラグをさらなる高機能・高付加価値な材料に変換する技術の開発を目的としてメソポーラスシリカの合成に取り組んだ。

前節の高比表面積シリカ得るための化学的処理を、空孔をつくるための鑄型となる界面活性剤を共存させた状態で行い、得られた白色固体を550℃で焼成して鑄型を焼き飛ばすことで、規則的なナノサイズの空孔を有するメソポーラスシリカを得ることができた。溶融スラグから生成したメソポーラスシリカの比表面積は675 m<sup>2</sup>/g、平均細孔径は9.2 nmであった。図8に得られたメソポーラスシリカの電子顕

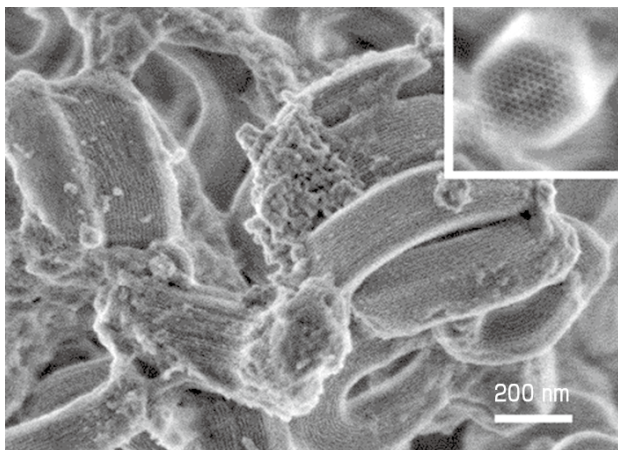


図8 溶融スラグから合成したメソポーラスシリカの電子顕微鏡写真

微鏡写真を示す。従来知られているメソポーラスシリカは、コロイダルシリカやテトラアルコキシシラン等元々純度の高い、比較的高価なケイ素原料から合成されている。一方、今回の技術では、溶融スラグを前処理せず、カルシウムやアルミニウム等の不純物を多く含んだ状態のままであっても、反応時間や反応温度の工夫によって、鑄型となる界面活性剤の自己集積が進む条件を見だし、従来知られているメソポーラスシリカと同様の比表面積、細孔径等の品質を持つ材料を合成することに成功した。

産総研と三井E&Sは、これらの共同研究に基づく成果を2017年7月25日に、双方からプレスリリースを行った(図9)<sup>[8][9]</sup>。このプレスリリースの内容を見て興味を持った複数の化学産業、非鉄金属産業、窯業や商社等多様な分野の企業からコンタクトがあり、一部の企業とは高比表面積シリカのサンプルワーク等に向けた準備が進んでいる。

#### 4 今後の展望

今回開発した技術は、現在利用が限られている溶融スラグに対して、高比表面積シリカを含む幅広い応用につながり、今後の溶融スラグの高度利用の可能性を拡大することができる。今後は、さらなる製造プロセスの改良とともに、製造のスケールアップに取り組み、数年後の実用化を目指す。この技術の実用化により、廃棄物残さの有効活用による高付加価値化、物質循環による省資源化等のアウトカムに繋げていきたいと考えている。

#### 5 謝辞

この論文の内容の中で、シリカを原料とした有機ケイ素原料の直接合成に関わる研究は、NEDO「有機ケイ素機能性化学品製造プロセス技術開発」(平成26年度～現在)の一環として行われたものである。



図9 燃えるごみの焼却残さである溶融スラグを高付加価値材料に変換

## 参考文献

- [1] 資源エネルギー庁：総合エネルギー調査会 長期エネルギー需給見通し小委員会資料，2015年4月。
- [2] エコスラグ利用普及委員会：エコスラグ有効利用の現状とデータ集(2016年度)，一般社団法人日本産業機械工業会(2016)。
- [3] N. Fukaya, S. J. Choi, T. Horikoshi, S. Kataoka, A. Endo, H. Kumai, M. Hasegawa, K. Sato and J.C. Choi: Direct synthesis of tetraalkoxysilanes from silica and alcohols, *New Journal of Chemistry*, 41 (6), 2224–2226 (2017).
- [4] N. Fukaya, S. J. Choi, T. Horikoshi, H. Kumai, M. Hasegawa, H. Yasuda, K. Sato and J.C. Choi: Synthesis of tetramethoxysilane from silica and methanol using carbon dioxide and an organic dehydrating reagent, *Chemistry Letters*, 45 (7), 828–30 (2016).
- [5] T. T. H. Nguyen, S. Kataoka, N. Fukaya, K. Sato, J.C. Choi and A. Endo: Feasibility study of new synthesis route of tetraethoxysilane from rice hull ash, *Computer Aided Chemical Engineering*, 40, 703–708 (2017).
- [6] T.T.H. Nguyen, N. Fukaya, K. Sato, J.C. Choi and S. Kataoka: Technoeconomic and environmental assessment for design and optimization of tetraethyl orthosilicate synthesis process, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 57 (6), 2192–2199 (2018).
- [7] X. Ma, H. Feng, C. Liang, X. Liu, F. Zeng and Y. Wang: Mesoporous silica as micro/nano-carrier: From passive to active cargo delivery, a mini review, *Journal of Materials Science & Technology*, 33 (10), 1067–1074 (2017).
- [8] 産総研プレスリリース(2017): 燃えるごみの焼却残さから機能性材料を製造, [http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2017/pr20170725/pr20170725.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2017/pr20170725/pr20170725.html), 閲覧日2018-03-16.
- [9] 三井E&Sプレスリリース(2017): 燃えるごみの焼却残さから機能性材料を製造, <https://www.mes.co.jp/archive-news/press/2017/20170725.html>, 閲覧日2018-03-16.

## 執筆者略歴

深谷 訓久（ふかや のりひさ）

2002年4月筑波大学大学院博士課程化学研究科修了（博士（理学））。キャンノン株式会社を経て、2007年4月産総研に入所。入所後、分子触媒の固定化技術、砂を原料とする有用化学品の直接製造技術の開発に従事。専門は、有機金属化学、触媒化学。この論文では、熔融スラグから高比表面積シリカの合成と共同研究全体の統括を担当した。



片岡 祥（かたおか しょう）

2003年5月ウィスコンシン大学—マディソン校環境化学工学専攻博士課程修了（Ph.D.）。テキサス A&M 大学化学科博士研究員を経て、2006年4月産総研に入所。入所後、シリカを含む無機酸化物の多孔質材料・機能性材料の開発に従事。専門は、化学工学、表面化学。この論文では、熔融スラグからメソポーラスシリカの合成と評価を担当した。



崔 準哲（ちえー じゅんちよる）

1998年3月東京工業大学総合理工学研究科博士課程修了（博士（理学））。日本学術振興事業団科学技術特別研究員を経て、2000年4月物質工学工業技術研究所（2001年4月、産総研へ組織変更）に入所。入所後、二酸化炭素の変換技術、固定化触媒設計・合成技術、砂から有用化学品への変換技術の開発に従事。専門は、有機金属化学、有機合成化学、触媒化学。この論文では、熔融スラグから高比表面積シリカの合成実験を担当した。



## 査読者との議論

### 議論1 全体について

コメント（小林 直人：早稲田大学）

この論文は、ごみ焼却場から生成される熔融スラグの有用活用を目指して、技術開発とその応用、さらには産業界との連携による実用化の観点から極めて意義深い研究成果を示していると言えましょう。また「静脈産業」から「動脈産業」への変換という概念も極めて魅力的です。一方、要素技術の詳細とその相互の関係が初稿では明確ではありませんでしたが、最終稿ではそれらが明らかになり全体が分かりやすくなりました。

コメント（池上 敬一：産業技術総合研究所）

この論文は、ごみの焼却残さという負の価値を有するモノ（処分費用が必要）を原料として、有価物、それも静脈産業の中での価値ではなく動脈産業において価値を持つ高機能材料を産み出す技術の開発について述べています。従来のPET再生や貴金属回収とは異なり、単に分別し高純度化するのではなく、化学平衡理論に基づいて賢く合成を行うところが革新的です。著者が述べているように、「研究の成果が次のステージに進む時は、異なる専門分野をもつ人的リソースとの連携が重要になる」ことを示す好例であり、シンセシオロジー誌に掲載する十分な価値があると考えられます。

### 議論2 異分野人材との連携

コメント（池上 敬一）

「研究の成果が次のステージに進む時は、異なる専門分野をもつ人的リソースとの連携が重要になる」というのは、重要な指摘だと思います。この「異なる専門分野をもつ人的リソースとの連携」について、該当する各小節においてもう少し具体的にご説明いただくと、読者の興味が増すと思います。

回答（深谷 訓久）

「1.2 この研究のシナリオ」の節に以下の追記を行いました。「三井E&Sのごみ処理工程に係るプラント運営の課題について知見を有する専門家と、産総研触媒化学融合研究センターの化学反応および分子設計を専門とする研究者や、化学プロセス研究部門の化学工学あるいは表面化学を専門とする研究者とでは、専門フィールドがあまりにも異なるため、通常の学会発表や論文発表等の活動では、両者が直接意見交換する機会を得られない。（中略）産総研の保有する技術シーズを産業界の招待者に紹介するテクノブリッジフェアのような、産総研全体の研究を俯瞰し、体系的に外部発信しようとするイベントは非常に重要であると考えられる。振り返ってみると、全くの異分野の専門家同士がニーズとシーズのマッチングにより、双方が新しい課題に挑戦する共同研究をスタートできたこと自体が、この研究のブレイクスルーポイントと言っても過言ではない。」



### 議論3 要素技術の関係

コメント (小林 直人)

「2.4 NEDO「有機ケイ素機能性化学品製造プロセス技術開発」の概要」の趣旨は、シリカからのテトラアルコキシランの生成であって、必ずしも初稿の副題の「高比表面積シリカ」の製造に寄与しているのではないようです。そうすると今回の副題の内容に寄与したのは、「3 熔融スラグを原料とする高付加価値材料の製造」のみとなります。あえて両者の要素技術の成果を記述するなら、副題や研究目的を変更すべきですし、前者が後者への大きな寄与をしているのであれば、その関係を記述すべきだと思います。

回答 (深谷 訓久)

ご指摘に沿って、熔融スラグからケイ素化学産業のテトラアルコキシラン (ケイ素化学産業基幹原料) までをフォーカスに含む副題にしました。また、その関係性を明瞭にするため、3.1 節の最後に、「またシリカが高い比表面積を有することは、化学反応の原料として考えた場合、アルコールや塩基触媒等の反応対象物と接触できる反応点を多く持つこととなるため、2.4 節で述べたテトラアルコキシラン製造の原料としての有用性も期待できる。」を追記しました。(実験的なエビデンスもあるのですが、NDA があるので、コンセプトのみの記述とさせていただきます)

### 議論4 詳細戦略

コメント (池上 敬一)

「都市ごみ清掃工場から発生した熔融スラグを、特定の条件下で酸性の溶液を用いて化学的に処理することで、熔融スラグ中に含まれるシリカ成分が、白色の固体として沈降することを新たに見いだした。」とありますが、いささか唐突感があります。すべてを明かすことはできないでしょうが、どのような戦略で実験を進めていったこの発見に

至ったかについて、少し触れることはできないでしょうか？

回答 (深谷 訓久)

3.1 節の冒頭付近に、「この反応について推定されるメカニズムを考察する。(中略) すなわち本反応系において、酸はシリカ以外の成分をイオンとして可溶化する作用と、ゾル-ゲル反応によるシリカ生成の触媒としての作用という二つの役割を果たしている。ゾル状態という低分子量かつ高分散なシリカ状態を経由してから縮合が進むため、最終的にゲル化して得られるシリカは高い比表面積を持つことが予想される。」として、この化学的処理に関する反応機構の考察を追記致しました。

### 議論5 技術高度化

コメント (池上 敬一)

3.2 節でさらに技術を高度化させていますが、この際のニーズと課題は何だったのでしょうか？ 言い換えると、高比表面積というだけではなく、多孔質を狙わなければならなかった理由は何でしょうか？ (比表面積の向上は1割強にとどまっていますが、多孔質となったことで売価の大幅向上が期待できるのでしょうか?) また、化学的処理は酸性溶液中で行われるとのことですが、高イオン強度化で界面活性剤を機能させるためには技術的にも壁があったのではないのでしょうか？

回答 (深谷 訓久)

メソポーラスシリカに関する課題・ニーズが分かるよう、メソポーラスシリカの材料としての期待について追記し、それらが記載されている総説を引用に追加致しました。また熔融スラグを原料とする場合には、界面活性剤を機能させるためにノウハウが必要である旨のコメントを追記致しました。