

次世代型超省エネルギーリサイクル技術開発

研究代表者 大和田 秀二
(創造理工学部 環境資源工学科 教授)

1. 研究課題

本年度は、「アルミ水平リサイクルの合理化プロセス開発」について研究を行った。

2. 主な研究成果

アルミは多くの製品に使用される便利な素材だが、そのリサイクルのほとんどは展伸材を鋳造材として利用するカスケードリサイクルであり、これを水平化することが各種産業界で求められている。本研究では、①2015年に当研究室が世界に先駆けて開発した LIBS (Laser Induced Breakdown Spectroscopy, レーザー誘起ブレイクダウン分光法) 選別機を使用してスクラップアルミからの不純物除去とアルミ合金類の相互分離を行い、その後のアルミ製錬工程の高効率化を図る、②アルミ製錬から副次的に発生するアルミドロスを振動ロッドミルと渦電流選別を組み合わせ高濃度アルミドロスと低濃度アルミドロスに仕分け、前者を金属アルミ原料、後者を水酸化アルミ・水素・アンモニア・触媒担体の原料として利活用できるプロセスを開発する、③製造された上記両アルミドロスに対する LIBS 分析システムを開発することを念頭に置き、そのための課題抽出を行うことを目的とした。

2.1 LIBS ソーティングシステムの開発 (ADC12 相当アルミと展伸材アルミおよびその他不純物の相互分離)

2023年3月に Steinert 社テストセンターに設置の LIBS ソータ商用機にてミックスメタル (スクラップアルミ) の選別試験を行ったが、その後、研究室にてその際に使用したミックスメタルの LIBS ハンドヘルド分析および当研究室開発の LIBS ソータでの分析を行い、それぞれの結果を比較した。得られた知見を以下に記す。なお、ここに、各種用語を以下のように定義した。

“Steinert” : LIBS ソーティング@Steinert での識別

“Handheld” : LIBS ハンドヘルド内蔵のアルゴリズムでの識別

“H-Steinert” : LIBS ハンドヘルド組成識別結果を Steinert アルゴリズムで識別

“H-JIS” : LIBS ハンドヘルド組成識別結果を JIS 組成アルゴリズム (当研究室にて提案) で識別

なお、本報告では、後3者のいずれかを真値と見なし“Steinert”識別結果を、以下の二つの指標を用いて評価した。

識別一致率 = (比較した2種類の識別結果が一致した各素材および全体の粒子個数)
/ (“Steinert”以外の識別結果における各素材および全体の粒子個数)

識別正解率 = (比較した2種類の識別結果が一致した各素材および全体の粒子個数)
/ (“Steinert”識別結果における各素材および全体の粒子個数)

1. “Steinert”と9種素材（展伸材5種、ADC12、その他鋳造材、重金属、非金属）の識別結果とを比較したところ、素材全体として、“Handheld”との識別一致率（個数基準）は、54%、“H-Steinert”とは39%、“H-JIS”とは58%と、“Steinert”の個別粒子に対する識別の精度は決して高いとは言えなかった。
2. その原因としては、①粒子の表面汚れ（主としてFe、Si分）の影響、②”Steinert”と”Handheld”のアルゴリズムが異なる、こと等が考えられた。
3. “Steinert”の識別アルゴリズムは、JISの組成基準を踏まえながらも、これまでの選別経験が生かされたものと想定されるが、本事業としては、より適切な識別アルゴリズムを策定する必要があると判断された。
4. “Steinert”と“H-Steinert”を比較すると、「重金属」と「非金属」の識別一致率が特に低かった。“Steinert”の識別アルゴリズムは早大の推定によるもので、本事業では、特にこれら素材の識別アルゴリズムについて改善の余地があることが分かった。
5. 素材を上記1.の9種でなく4種（展伸材、ADC12、その他鋳造材、その他）に大別した場合の“Steinert”と素材全体としての識別一致率（個数基準）は、“Handheld”とは78%、“H-Steinert”とは84%、“H-JIS”とは82%と、9種素材の識別一致率に比べて向上した。
6. ただし、ADC12とその他鋳造材の識別一致率は他素材に比べて特に低かった。
7. そこで、素材を3種（展伸材、鋳造材、その他）に大別したところ、“Steinert”と素材全体の識別一致率（個数基準）は、“Handheld”とは83%、“H-Steinert”とは88%、“H-JIS”とは88%と、4種素材の識別一致率に比べても若干向上した。
8. “Handheld”に比べて“H-Steinert”や“H-JIS”識別結果は、“Steinert”のそれと近い値を示すことが分かった。
9. “Steinert”と“Handheld”の識別一致率の関係では、試料粒子重量の大きいものほど高い識別一致率が得られた。これは、重量（試料のサイズ）が大きいほどレーザーの照射回数が多く、スペクトルの信頼性が向上するためと推察され、LIBSソーティングにおいては、試料の長手方向とベルト進行方向を一致させる（レーザー照射回数を増やす）ことが肝要であることが分かった。
10. 一方、“Steinert”と“H-Steinert”の識別一致率は粒子重量とは明瞭な関係が認められなかった。これは、識別一致率の低い重金属や非金属粒子のサイズ（重量）が大きく、レーザー照射回数が十分であったためと考えられた。
11. Steinert製LIBSソータでの選別で実際に分離された各種素材産物（上記1.の9種）それぞれの平均組成は、JIS組成の範囲と凡そ一致したが、展伸材7000系、その他展伸材、ADC12の組成はJIS組成範囲から若干逸脱した。
12. つまり、Steinert製LIBSソータの選別では、個別粒子の識別一致率はあまり高くないが、得られた各種素材産物それぞれの平均組成はJIS組成の範囲と凡そ一致する。つまり、個別粒子の識別の間違いが求める組成の前後にうまく振れており、選別後の産物の組成は適切なものになった、と考えられた。
13. Steinert製LIBSソータでは識別後にエアジェットによる分離が行われていたが、全素材の分離正解率は85%（197/233個）であった。識別とともにその後の分離についても検討の余地のあることが分かった。

2.2 振動ロッド・ボールミルによる選択粉砕の最適条件（粉砕・ふるい分け）の検討および連続式粉砕機の選定

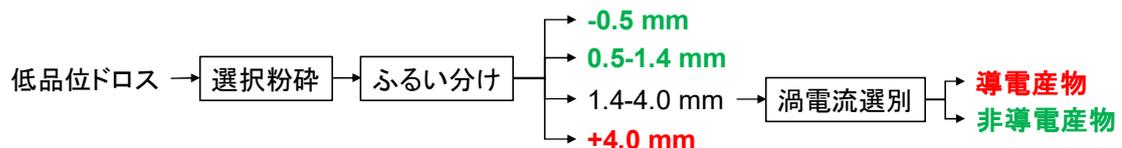
アルミ製錬で排出されるアルミドロスをフィードとして、振動ロッドミルおよび振動ボールミルを用いて、金属アルミ（M-Al）以外の酸化物・窒化物を選択粉砕することを目的として各種条件にて実験を行い、以下の知見を得た。

1. フィードの粒度分布は（通常の粉砕産物の典型的な下に凸の）Gaudin-Schumann 的であったが、振動ロッドミル粉砕産物のそれは（粉砕されにくい M-Al が粗粒側に残存するため）上に凸の選択粉砕特有の分布となった。
2. 各鉱物相の粉砕されやすさの順は、 $MgAl_2O_4 > AlN > MgF_2 > MgCl_2 > Al_2O_3 > SiO_2 > M-Al$ であり、M-Al 以外の酸化物・窒化物の選択粉砕が進行することが分かった。
3. フィードの M-Al 品位は 17.6 wt% と非常に低い値であり、粉砕産物後の各粒群で M-Al 品位が 70 wt% 以上（二次高濃度アルミドロスの要件）となったのは 2.8-4.0 mm 粒群のみであり、その際の M-Al 回収率は 21.4 wt%、2.8 mm 以上の粒群全体における重量割合は 5.18 wt% であった。
4. 本選択粉砕における M-Al のその他全成分に対する最大分離効率は 48.3 wt% であり、それを実現するカットサイズは 0.36 mm であった。なお、M-Al の各種個別鉱物相に対して最大分離効率を示すカットサイズもほぼ 0.36 mm と同様であった。
5. M-Al の各種個別鉱物相に対する最大分離効率は、 $MgAl_2O_4 > AlN > MgF_2 > MgCl_2 > Al_2O_3 > SiO_2 > Others$ であり、選択粉砕性の高い順番と一致した。
6. 選択粉砕産物のうち、M-Al 品位 10 wt% 以下である 0.5 mm 以下の粒群はそのまま二次低濃度アルミドロスとし、0.5-1.4 mm および 1.4-4.0 mm の両粒群を渦電流選別に供して、さらなる仕分けを行うことがよいと判断された。
7. なお、本試験で使用した振動ロッドミルは連続式の商用機であり、また、その処理量によって粉砕機のサイズが種々設定されており、本機種が本アルミドロスの選択粉砕に適すると判断された。
8. 振動ボールミルについても各種条件にて実験を行ったが、選択粉砕性は振動ロッドミルに比べて非常に低く、この原因として、使用するボールの重量がロッドのそれに比べて小さく、今回のような細粒の粉砕には適正な応力を与えることができないことが分かった。

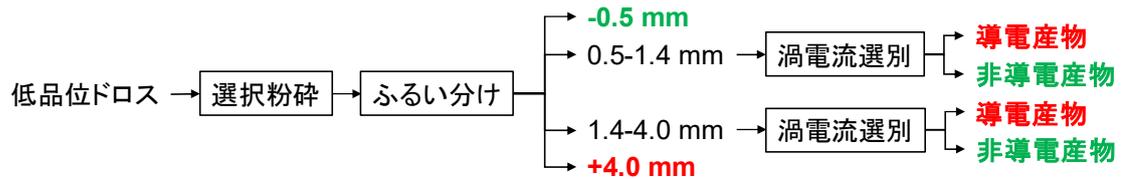
2.3 選択粉砕産物の渦電流選別における最適条件の検討

前項で得られた知見（7.）をもとに、0.5-1.4 mm および 1.4-4.0 mm の両粒群について渦電流選別を施し、金属アルミ（M-Al）を導電産物、その他酸化物・窒化物を非導電産物に濃縮することを試みた。ここに、選択粉砕を含めた処理フローにおいて、以下の 3 つのケースを想定してそれぞれの評価を行った。

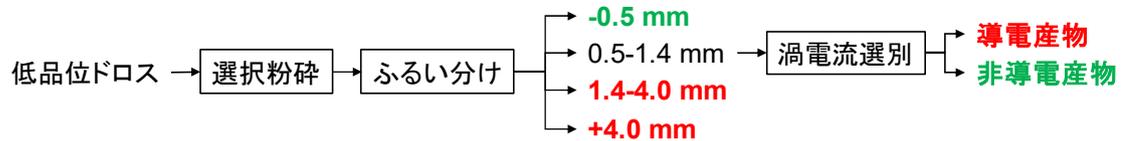
ケース 1：



ケース 2：



ケース 3 :



ここに、赤字： M-Al 回収原料， 緑字： H₂・NH₃ 製造原料である。

1. 渦電流選別において、ロータ回転を逆回転（導電粒子が飛びにくい際の条件），分離板の位置を通常よりもロータ近傍に設置することにより，通常条件よりも精度の高い分離が行われ，本試料にはこの条件設定が最適と判断された。
2. ただし，0.5-1.4 mm は（細粒での分離も可能な新型機を使用した）本渦電流選別機の粒度下限を下回っており，この粒径での分離制度は非常に低かった。因みに，M-Al のその他全成分に対する分離効率は，0.5-1.4 mm，1.4-4.0 mm についてそれぞれ，9.3%，33.5%であった。
3. ケース 1 では，M-Al 品位の最高で 75.6 wt%となり，その際の M-Al 回収率は 36.0%であった。ケース 2・3 では，順次，M-Al 品位が低下し回収率が向上するが，二次高濃度アルミドロソの要件である M-Al 品位 70 wt%以上にはならず，本試料ではケース 1 の処理フローが適切と判断された。
4. また，いずれのケースでも，二次低濃度アルミドロソの M-Al 品位は 20%以下であり，ほぼ適正であった。

3. 共同研究者

所 千晴（創造理工学部・環境資源工学科・教授）

4. 研究業績

4.1 学術論文

1. K. Shimizu, and S. Owada: Mineral resources policy for a circular flow of critical minerals: An input-output approach to the case of their final destination in Japan, Sustainability, vol.16, no.726, Jan., 2024
2. S. Owada: Technical and Process Innovation in Resources Recycling by Applying Intelligent Comminution and Physical Separation, Ecology, Pollution and Environmental Science: Open Access (EEO), vol.6, no.171, Apr.10, 2023:
<https://www.hendun.org/viewJournal/RAS61-454/Technical-and-Process-Innovation-in-Resources-Recycling-by-Applying-Intelligent-Comminution-and-Physical-Separation>

4.2 総説・著書

1. 大和田秀二：「次世代に向けた環境エネルギーの最新動向とその有効活用，今後の展望—多様高パネルのリサイクル技術展望—」, AndTech, pp.25-34, (分担執筆), 2023 年 6 月

4.3 招待講演

1. S. Owada: Technical and Process Innovation in Resources Recycling by Applying “Intelligent Comminution” and “Intelligent Separation”, Fall Meeting, Korea Institute of Resources Recycling, Daejeon, Korea, pp. Nov. 16, 2023
2. S. Owada, K. Tsutsumi, Y. Fueki, S. Kawakami, and S. Tahata: Concentration of Precious Metals from PCBs by Combining Low Temperature Roasting, Selective Grinding and Magnetic Separation, MAT2023, Dubai, pp. , Oct. 23rd, 2023
3. S. Owada, M. Sugawara, T. Mizutani, H. Yasuga, N. Shimoda, and M. Muraoka: Development of Next-Generation Process for Effective Utilization of Low-Grade Aluminum Dross to Achieve Carbon Neutrality, MAT2023, Valencia, pp. , Sept. 26, 2023
4. 大和田秀二: 破碎・選別技術の変遷と今後の発展, 循環経済協会座談会, 循環経済協会 pp.1-41, 2024年3月
5. 大和田秀二: 賢く壊して, 賢く分けるーIntelligent Comminution & Intelligent Separationー, 早稲田大学最終講義, 早大理工・63号館2階03/04/05室, pp.1-40, 2024年3月
6. 大和田秀二: アルミ資源水平リサイクルのためのセンサー選別プロセス開発, 早稲田大学・循環バリューチェーンコンソーシアムセミナー, 早稲田大学・コマツ100周年記念ホール, pp.1-16, 2024年2月
7. 大和田秀二: 太陽光発電パネルのリサイクル技術, ツネインカムテックス, pp.1-31, 2024年1月
8. 大和田秀二: リチウムイオン電池(LIB)のリサイクル技術の展望, 第44回 廃棄物処理施設技術管理者中央研究集会, テーマ「今なぜ GX なのかー廃棄物処理の脱炭素化」, pp.1-24, 2023年11月
9. 大和田秀二・川邊渉: 低濃度アルミドロスの有効利用のための要素技術の開発・早稲田大学報告ーSteinert・LIBSソーティングとLIBSハンドヘルド分析の識別結果の比較ー, 環境省令和5年度地域共創・セクター横断型カーボンニュートラル技術開発・実証事業「カーボンニュートラルに向けた次世代型低濃度アルミドロスの有効利用技術開発」技術検討会, pp.1-19, 2023年7月
10. 大和田秀二: リチウムイオン電池のリサイクル技術および発火事故の現状, エコ計画, pp.1-22, 2023年7月
11. 大和田秀二: 資源循環における分離・選別技術, セイコーエプソン招待講演, セイコーエプソン, pp.1-38, 2023年5月

4.4 受賞・表彰

(特になし)

4.5 学会および社会的活動

1. 渡邊伊織・大和田秀二: 粒子径および粒子密度を考慮した湿式比重選別における最適条件決定法の開発, 資源・素材学会 春季大会, 千葉工業大学, p.1-6, 2024年3月
2. 大和田秀二: 未利用資源開発から資源循環へ, 資源・素材学会春季大会 粉体精製工学部門委員会分科会, 千葉工業大学, pp.1-24, 2024年3月
3. 大和田秀二: 太陽光発電パネル・モジュールのリサイクル技術と将来展望, AndTech セミナー講演, pp.1-31, 2023年6月
4. 大和田秀二: センサー選別によるアルミニウム合金類の相互分離, 軽金属学会, 貸会議室「内海」, pp.1-15, 2023年5月
5. 大和田秀二: 次世代型資源循環プロセス, 第22期「フォーラム環境塾・環境技術講座」, pp. 1-32, 2023年12月

学外での役職 (大和田秀二)

学外での役職（大和田秀二）

1. 経産省「産業構造審議会産業技術環境分科会廃棄物・リサイクル小委員会小型家電リサイクルWG」 座長
2. 経産省リサイクル推進課「平成 26 年度エネルギー使用合理化技術開発費補助金（資源循環実証事業）審査委員会」委員
3. 経産省リサイクル推進課「平成 26 年度エネルギー使用合理化技術開発費補助金（省エネ型リサイクルプロセス実証支援事業）審査委員会」委員
4. 経産省 JOGMEC「深海底鉱物資源探査等検討委員会」委員
5. 環境省「平成 26 年度低炭素型 3R 技術・システム実証事業評価検討会」委員
6. 環境省「平成 28 年度二酸化炭素排出抑制対策事業費等補助金（省 CO2 型リサイクル高度化設備導入 促進事業）審査委員会」委員
7. 自動車リサイクル高度化財団 代表理事, 「選考委員会」委員
8. 産業環境管理協会「資源循環技術・システム表彰審査委員会」委員
9. 日本産業機械工業会「優秀環境装置表彰事業審査委員会」委員
10. 日本産業機械工業会 環境ビジネス委員会「3R リサイクル研究会」アドバイザー
11. 環境資源工学会 理事
12. 秋田大学 客員教授, 等

5. 研究活動の課題と展望

本研究では、既述のように、固相の分離技術である物理選別の核をなす粉碎・選別両技術の改善により、資源循環 プロセスの更なる高度化と省エネルギー化を目指している。物理的分離は液相での分離技術である化学分離に比較して圧倒的に省資源・省エネルギー的であり、この技術の推進により CE (Circular Economy) を CN (Carbon Neutral) の下に実現できると考えている。我々はこのような技術を”Intelligent Comminution”, ”Intelligent Separation”と呼んでおり、今後、これらの各種技術開発および適用性の拡大に尽力し、真の環境調和型資源循環型社会を構築したい。