# 電動車の駆動用電池の リユース・リサイクル技術開発実証事業

報告書

平成31年2月28日中部電力株式会社

#### 1. 背景

昨今のハイブリッド自動車や電気自動車等の電動車の普及により、近い将来に大量の電動車の中古駆動用電池(以下、「電池」と記す。)の発生が見込まれる。現状、電池については、一部は小規模でリユースされているものの、限定的であり、大半はリユースされずリサイクルとして焼却処理後、残渣を製錬抽出することに留まっている。また、当社は電力系統においては、再生可能エネルギー(以下、「再エネ」と記す。)の大量導入に対して需給バランスの変動への的確な対応や、電力系統の更なる合理的運用に向けた取組みを推進している。

単体として性能が低下した電池であっても、多数の電池を組み合わせ適切に制御することにより、再エネ導入の拡大に伴う需給調整への活用や、周波数変動への対応などが可能となると同時に、火力発電所の合理的な運用も期待できる。

本実証事業では電池のリユースによる電力システムへの有効活用、経済性や環境負荷低減のための CO2 削減に配慮した焼却を伴わない新しいリサイクル技術の開発を通じて、電力を大量に扱う電気事業用で先駆的に電池が廃棄されずに循環する流れを確立することで、再エネ普及拡大を可能とする電力系統を実現し、低炭素型社会及び循環型社会の同時達成を目的とする。

#### 2. 実証事業の実施

#### 2-1. ニッケル水素電池リユース事業

需給調整等電力系統の課題解決に対応するため、リユース電池を活用した設備構成の大容量・最適化を行う必要がある。そこで実運用を想定した大容量蓄電池システムの最小単位をパイロット設備として開発し、各制御システムや機器を組み合わせて動作試験を実施した。開発した設備で使用する主な機器を表 S2.1.1 に、システム構成図を図 S2.1.1 に示す。リユース電池の実証設備は、6 モジュールを直列に接続したカートリッジ(DC43V)を制御の最小単位として、14 カートリッジをストリングとして構成し、16 ストリングを並列接続することで、50kW の蓄電システムとして構築した。また、電池は中古である故に劣化状態にバラツキがあり、これらを大容量として大量に組み合せた場合でも効率的に充放電できる蓄電池制御システムを開発した。各カートリッジの状態を監視し、使用するカートリッジ数を制御することで、劣化状態にバラツキのある電池を制御する。開発したこの制御機能を Sweep 機能と呼び、機能確認試験を実施した。

表 S2.1.1 各機器の役割

機器名称	役割
Power Conditioning System (PCS)	系統側 AC240V を電池電圧 DC400V に変換する双方向 ACDC コンバータ
統括制御 PLC	上位サーバとの双方向通信により下記を実施         ・上位サーバからの指令を PMU に発信         ・PMU からの各情報を上位サーバに通知         ・操作用タッチパネル搭載
Power Management Unit (PMU)	統括制御 PLC との双方向通信により下記を実施 ・統括制御 PLC からの指令を PCS 及び GCU に発信 ・GCU 及び PCS からの各情報を統括制御 PLC に通知
Group Control Unit (GCU)	上位システムとの双方向通信により下記を実施 ・グループ全体の状態を上位システムに通知 ・上位システムからの指令を各 SCU に指令 ・詳細データ収集機能(電力、温度、SOC など)
String Control Unit (SCU)	GCU との双方向通信により下記を実施 ・GCU から指令を受けた電力を実現する様に SU へ接続/切断信号を発信 ・SU からのカートリッジ情報(電池状態)に応じて切離す SU を決定 ・SCU 配下の各 SU の状態を統合して GCU に通知
Sweep Unit (SU)	SCU との双方向通信により下記を実施 ・SCU からの接続/切断信号に応じて、カートリッジの接続/切断を行う ・カートリッジ情報(電池状態)を監視 ・カートリッジ情報(電池状態)を SCU に通知

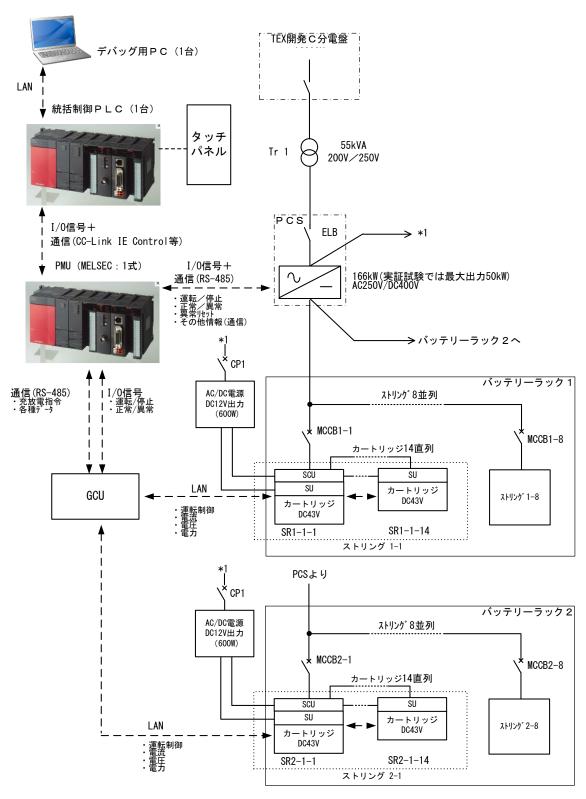


図 S2.1.1 実証設備システム構成図

実証試験では、電力系統への活用に対応すべく、短時間応動特性(∠kW)と長時間応動 特性(kWh)のそれぞれを検証した。また、Sweep機能確認試験を実施した。

#### (1) 短時間応動特性

(a)停止→充電、(b)充電→停止、(c)停止→放電、(d)放電→停止、(e)充電→放電、(f)放電 →充電の6パターンで指令値出力〜指令値到達の時間を計測した結果、全て2秒以内という短時間での応動速度で動作することを確認した。

#### (2) 長時間応動特性

一定の動作時間で充放電を繰り返す充放電試験を実施した。試験方法を表 S2.1.2、図 S2.1.2 に示す。なお、電池容量は同出力で充放電した場合、充放電損失により充電量が低下していくため、放電出力に対して充電出力を高くすることで充電量が一定となるように試験条件を設定した。

		., =,, . =	, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	* * **
条件	動作時間[s]	接続ストリング数	充電出力[kW]	放電出力[kW]
(ア)	300	8	50	45
(イ)	1,800	8	11.2	9

表 S2.1.2 充放電繰り返し試験条件(一定出力・一定時間)

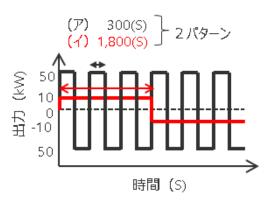


図 S2.1.2 充放電繰り返し波形イメージ図

試験結果を図 S2.1.3、図 S2.1.4 に示す。試験条件(P)、(T)ともに指令した時間で充放電を繰り返し、指令した充放電出力で動作することを確認した。ともに出力一定で保持できることも確認した。

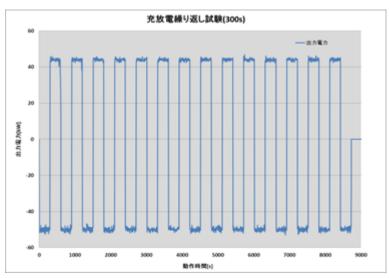


図 S2.1.3 充放電繰り返し試験 (300s)

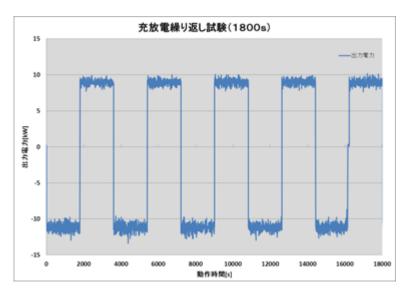


図 S2.1.4 充放電繰り返し試験(1,800s)

## (3)Sweep 機能確認試験

Sweep 機能ありなしの 2 パターンで満放電→満充電及び満充電→満放電の試験を行い、その充放電電力量(動作時間)について比較し、劣化状態にバラツキのある電池の制御性を確認した。なお、1 ストリングの最大出力 12kW で 3 サイクル試験した。使用した電池の劣化状態を表 S2.1.3 に示す。

表 S2.1.3 電池劣化状態

条件		ラン	クご	と使用	]数量	上[個]	カートリッジ配置内容	
木什	A	В	C	D	E	F	G	カードグラン配直的谷
(-)		9	9	4	0	0		各ランクのカートリッジが均等
(a)	-	3	3	4	2	2	-	になるようなパターン
(1.)			9	11				中ランクのカートリッジを集め
(b)	-	-	3	11	-	-	-	たパターン
(-)		0					_	ランクのバラツキ幅が最大のパ
(c)	-	9	-	-	-	-	5	ターン

試験結果を表 S2.1.4 に示す。充電及び放電において Sweep 機能ありの場合、Sweep 機能なしの場合に比べて動作時間が長くなる傾向が見られ、劣化状態にバラツキのある電池を効率的に充放電できることを確認した。

なお、Sweep機能なしの場合、ランクの低いカートリッジが含まれる(a)と(c)の動作時間が短くなっている。Sweep機能がないと、ランクの低いカートリッジが他のカートリッジより先に上下限判定値に到達し、動作停止したと考えられる。

表S2.1.4 Sweep機能比較試験 試験結果一覧表

条件		Sweep 杉	幾能あり	Sweep 杉	幾能なし	Δ時間[sec]		
	回数	動作時	間[sec]	動作時	間[sec]	(Sweep 機能あり-なし)		
		充電	放電	充電	放電	充電	放電	
	1	193	143	134	95	59	48	
(a)	2	198	164	131	105	67	59	
	3	223	183	137	112	86	71	
	1	199	150	150	118	49	32	
(b)	2	203	165	155	128	48	37	
	3	220	180	169	141	51	39	
	1	231	164	124	93	107	71	
(c)	2	234	190	123	103	111	87	
	3	262	215	133	111	129	104	

## 2-2. ニッケル水素電池リサイクル事業

ニッケル水素電池のリサイクルは、内部に蓄積したエネルギーを容易に低コストで無害化するため、専ら焼却処理後、有価金属を製錬抽出する手法が施されている。近い将来、電池が大量に発生することが見込まれるため、リサイクル技術の更なる高効率化が必要であると同時に、CO2削減の観点から、焼却を伴わないリサイクルプロセスの導入を検証した。具体的には、湿式法による新たなリサイクルプロセス(放電、切断、分解、分別)のパイロット設備を開発・導入し、本設備を模擬した試験運用を実施することにより、各設備の有用性や各リサイクル品の回収率を検証した。開発した設備を図 S2.2.1~図 S2.2.4 に示す。

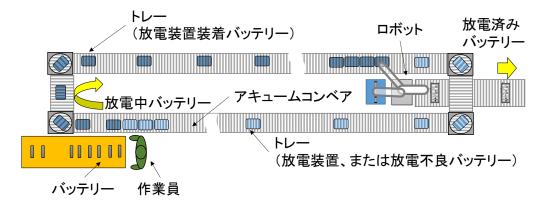


図 S2.2.1 省人力化を図った放電装置を運用するシステム

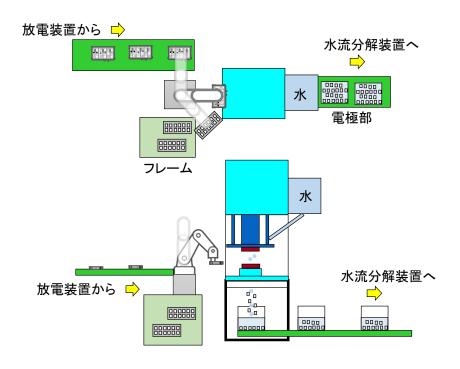


図 S2.2.2 プレス金型による切断装置の構想図

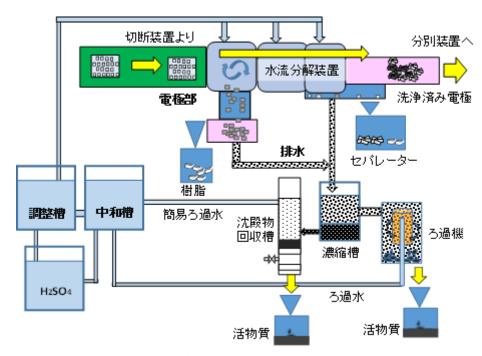


図 S2.2.3 考案した水流分解装置と活物質回収装置

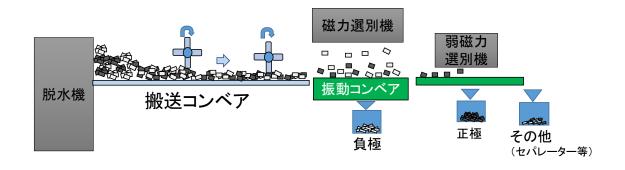


図 S2.2.4 考案した分別装置

本実証試験にて検証したプロセスは放電、切断、分解、分別の4プロセスである。検証の結果、投入量に対して正極、負極ともに100wt%を回収でき、CO2削減及び安全性に配慮したリサイクルプロセスを確立することができた。以下に、それぞれのプロセスでの実証試験結果及び活物質の安全性評価を記す。

## (1) 放電プロセス

抵抗を介して放電する方法を採用し、省人化で運用するシステムを開発した。また、同プロセスでは、安全性に配慮して電池の発熱なく到達することを前提として検証した。結果として、電池が無害化される電圧 6V 程度以下とするには約 4 時間の放電が必要であり、それを自動的に完了するプロセスとすることができた。

#### (2) 切断プロセス

プレス金型、丸鋸刃、平刃の3種類の方法を検証した。プレス金型の検証結果、電池の切断は可能であり、使用する主要な設備もプレス機とロボットの各1台だけと低コストで、処理速度も他の切断装置に比べて一番早いことから、本手法を用いることが一番合理的であることが分かった。また、安全性への配慮として、切断時に電極等を水没させ発熱を防止する構成とした。一方、丸鋸刃の検証結果、電池の切断は可能であるが、刃の欠損(耐久性)、切子による活物質回収への影響という大きな2つの課題があることが分かり、実用化には向かないことが分かった。平刃の検証結果、電池の切断は可能であるが、プレス機が2台必要になるだけでなく、自動化するためには多数のアクチュエータが必要になり、高コストになるという課題があることが分かった。

#### (3) 分解プロセス

前述の切断プロセスにて水没された電極部がそのまま水流分解装置に投入される。この時、投入された電極部の樹脂ケースは比重が軽いため、水流でオーバーフローさせることによって電極部から分離される樹脂ケースを回収する。樹脂ケース回収後、分離された電極部を次槽へ移し、水流等で分解すると同時に、電極に塗布された活物質とセパレーターに付着した活物質を洗浄し分離する。また、セパレーターは比重差によって浮上してくるので、それを樹脂ケースと同様にオーバーフローで回収する。なお、洗浄中に分離された活物質はろ過機によってろ過することで活物質を回収し、ろ過水は硫酸によって中和した後に再利用するプロセスとした。以上の結果より、電極部を水流で、樹脂ケース、正極、負極、セパレーター、活物質に分解できることを確認した。正極とセパレーターの分解率及び負極と活物質の分解率ともに、99%以上を達成できた。

#### (4) 分別プロセス

水流分解装置によって分別された正極、負極、及び5%程度のセパレーター等(以下、「電極類」と記す。)に付着した水分を、脱水機にて除去する。次に、次工程の磁力選別の精度を上げるため、脱水機から排出された電極類を、振動コンベアによって重なりを解消し、同時に排出量についても調整する。その後、磁性の違いにより正極と負極とをそれぞれ分別回収し、分別された非磁性体のセパレーター等は最後に回収される。

#### (5) 活物質の安全性評価

粉塵濃度を段階的に上げながら粉塵爆発性を確認した結果、一番高い濃度の 2000 mg/m³ において 5 回の繰り返し試験を実施し、粉塵爆発はないことを確認した。また、熱安定性評価を加えて実施した結果、100℃以上で自然発火する可能性があることが分かった。

#### 2-3. リチウムイオン電池リサイクル事業

現在、廃棄された電池のリサイクルは、焼却処理による有価金属回収が主流であるが、各回収物のリサイクル率や CO2 削減の観点から、新たなリサイクルフローの構築が求められている。本研究では将来増加が見込まれるリチウムイオン電池を対象とした新規のリサイクルフローの構築に向け、要素技術である水流分別法\*による材料分別の可能性を評価し、以下の主な成果を得た。

#### (1) リチウムイオン電池からの電解液の抽出除去

電池内に充填されている電解液には水と触れることで腐食性ガスを生じるフッ素化合物である電解質塩\*\*が含まれていることから、水流分別の前に除去する必要がある。電解液に可溶な有機溶媒を用い、裁断した電池部材から電解液及び電解質塩の除去を試みた結果、簡易な洗浄工程により98%以上を電池部材から除去できた。

#### (2) 水流分別によるリチウムイオン電池構成部材の分別(図 S2.3.1)

商用の食品用洗浄装置(洗浄水 200 L)を用い、電解質塩を除去した電池部材の水流分別を行った結果、正極においては集電体(アルミニウム箔)からおよそ全量の活物質(ニッケル、コバルトを含有)を剥離、回収できた。負極(銅)には洗浄後も少量の負極活物質(カーボン)が残留したが、超音波洗浄により容易に除去できた。回収された各素材は不純物の混入が少ないことから、後段の湿式精錬における前処理工程を簡素化できる可能性が示唆された。一方、水流分別後の洗浄水には、前処理において除去しきれなかった電解質塩の溶出が確認されたことから、水流分別の処理効率向上には、より精密な電解液と電解質塩の除去が必要であることが確認された。

今後は、CO2 削減効果のある経済的に合理的な電解液・電解質の除去技術を評価し、リチウムイオン電池を対象とした合理的なリサイクルプロセスを構築する。(図 S2.3.2)

- \* 水を洗浄液として裁断された電池を素材毎に分別回収する手法。ニッケル水素電池で有用性を確認済み。
- \*\* 六フッ化リン酸リチウム:水と反応してフッ化水素 (HF) やフッ化ホスホリル (POF3) を生じる。

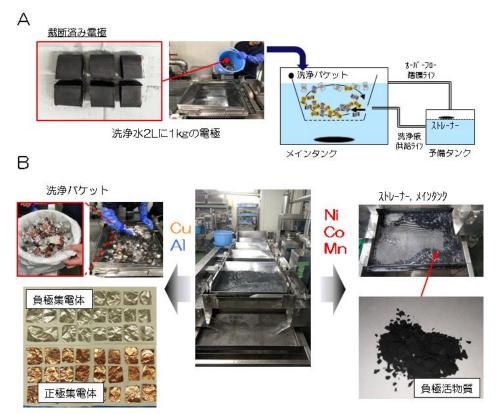


図 S2.3.1 裁断済みリチウムイオン電池電極の水流分別法

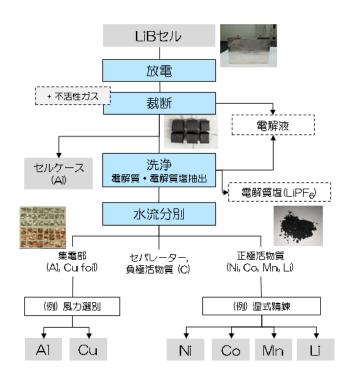


図 S2.3.2 水流分別法によるリチウムイオン電池リサイクルフロー

## 3. ライフサイクルアセスメント

ライフサイクルアセスメント評価を行うにあたり、電動車1万台分の新品ニッケル水素 電池相当を基準に以下の通り比較した。

## 3-1. ニッケル水素電池リユース事業

ベースラインとなる新品電池製造と今回のリユース事業である回収電池再利用の主な工程を図 S3.1 に示す。

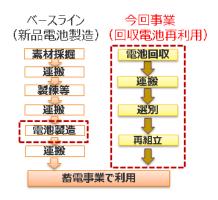


図 S3.1 新品電池製造及びリユース事業の各工程

ベースラインについては電池製造時の CO2 排出量を試算した結果、3,300t の CO2 排出量となる。一方、今回事業での CO2 排出量を試算した結果、50t の CO2 排出量となり、ベースラインに対する優位性を確認した。

#### 3-2. ニッケル水素電池リサイクル事業

ベースラインとなる焼却による従来の手法と今回のリサイクル事業である焼却によらない手法の主な工程を図 S3.2 に示す。

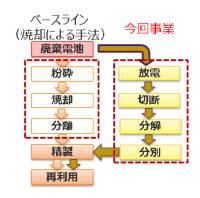


図 S3.2 ニッケル水素電池リサイクル事業の各工程

ベースラインについては粉砕、焼却、分離の工程で焼却による CO2 の排出と電力使用による CO2 の排出があり、それぞれ試算し合計すると 38.82t の CO2 排出量となる。今回事業については放電、切断、分解、分別の各工程で電力使用による CO2 の排出量を試算すると 29.74t となり、ベースラインに対する優位性を確認した。

#### 3-3. リチウムイオン電池リサイクル事業

ベースラインとなる焼却による手法と今回のリサイクル事業である焼却によらない手法の主な工程を図 S3.3 に示す。リチウムイオン電池のリサイクルについては、基礎検討のみにとどまったため、前述のニッケル水素電池の工程に前処理工程を追加し、CO2 排出量を試算した。

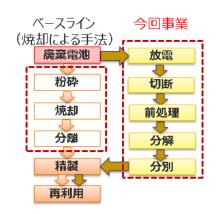


図 S3.3 リチウムイオン電池リサイクル事業の各工程

ベースラインについては前述の通り 38.82t の CO2 排出量となる。今回事業については前処理工程での CO2 排出量は軽微と考えられ、前述の 29.74t と同等と想定されることから、ベースラインに対する優位性を見込める。そのため、見込み通り CO2 削減効果のある設備構成となるよう検討する必要がある。

## 4. 今後の事業化見通し

リユース・リサイクルを大規模に事業化することで低炭素型社会及び循環型社会を同時 達成できると考えるが、課題として、大量の電池を回収するスキームを確立する必要があ る。回収スキームの確立にあたっては、今回のような大規模にリユース電池を有効活用で きる事業の事業化に向けた検討を推進すると同時に、リユース電池の供給元である自動車 メーカー等と一体となった検討が必要であり、引き続き関連企業と協調して早期解決を目 指す。

リユース事業について、最適化した設備構成の確認ができ、劣化状態の異なる電池の制御技術を確立し、技術面での課題を解決できた。事業化にあたっては、コスト削減等更な

る設備設計の最適化を図ることが必要である。また、再エネ導入拡大に伴う需給調整への活用や、周波数変動への対応が可能であるが、その活用や対応に対する適切な価値化が必要である。一方で、前述の回収スキームを確立することで更なる大規模化が可能となり、経済的に合理的な火力発電所の運用も期待できる。

ニッケル水素電池リサイクル事業について、焼却を伴わない新たなリサイクル技術を確立し、技術面での課題を解決できた。事業化にあたっては、コスト削減等更なる設備設計の最適化を図ることが必要である。また、今回の手法で得られる回収物の価値向上が必要であり、早期の事業化を目指す。

リチウムイオン電池リサイクル事業について、技術面では本実証試験で抽出された2つの課題を解決することで、リサイクルプロセスを確立できる見込みである。事業化にあたっては、CO2削減効果のある経済的に合理的な設備構成を行うとともに、回収物の価値向上により処理費用の圧縮を目指し、引き続き検討していく必要がある。

## Summary

#### 1. Background

The recent popularity of hybrid and electric vehicles is expected to produce a massive quantity of used batteries for use in EVs (hereafter referred to as the "batteries") in the near future. At the present, some batteries are reused on a small scale and in limited quantities. The majority are recycled without reusing. After incineration, residue is extracted for refinement. In addition, the company is involved in initiatives to make more effective use of the electric power system and take precise measures for adjusting to fluctuations in balance of supply and demand for introduction of renewable energy on a massive scale.

Even if the performance of the battery itself diminishes, it is hoped that proper control in combination with other batteries will enable more efficient use of thermal power stations as well as enabling adjustment to frequency fluctuations or adjustments in line with supply and demand along with expansion of renewable energy introduction.

The objectives of this verification project are to realize an electric power system that enables diffusion and expansion of renewable energy and at the same time realizing a low carbon and recycling-oriented society through effective utilization of electric power systems by reusing batteries and development of new recycling technologies that do not require incineration, taking into consideration CO2 reduction for economic efficiency and environmental impact reduction, by establishing a recirculation system instead of discarding batteries for electric businesses that deal with massive amounts of electric power.

#### 2. Implementation of verification project

#### 2-1. Nickel-hydrogen battery reuse business

In order to solve issues concerning electric power systems such as supply and demand adjustment, equipment that utilizes reuse batteries must be reconfigured to handle larger volumes more efficiently. We therefore developed minimal scale pilot equipment of a large capacity storage battery system that could possibly be put to practical use and conducted test operation with a combination of various control systems and apparatus. The main devices of the equipment developed are given in Table S2.1.1 and the system configuration is shown in Fig. S2.1.1. The equipment for verification of reuse batteries employs system consisting of a string of 14 cartridges containing 6 modules connected in series (43VDC) and 16 strings connected in parallel to form a 50-kW storage battery system. Because the batteries have been used, they are in various degrees of deterioration. We therefore developed a battery control system capable of efficiently recharging the batteries, even if combined in large quantities to form a large capacity battery. The system monitors the status of each cartridge and you can control the number of cartridges to be used, giving you control over

batteries in various state of deterioration. The control function we developed is called the "Sweep function." The function was submitted to tests to verify its efficacy.

Table S2.1.1 Function of each device in the system

Name	Function					
Power Conditioning	Bidirectional AC-DC converter that converts 240VAC on the system side to 400					
System (PCS)	VDC of battery voltage					
	The following is implemented by interactive communication with the host server					
System Control PLC	Transmission of commands from host server to PMU					
	Notifies host server of data from PMU					
	Touch panel for operation					
	The following is implemented by interactive communication with the integrated					
Power Management Unit (PMU)	control PLC					
	Transmission of commands from integrated control PLC to PCS and GCU					
	Notifies integrated control PLC of data from GCU and PCS					
	The following is implemented by interactive communication with the host system					
Group Control Unit	<ul> <li>Notifies host system of state of group</li> </ul>					
(GCU)	Transmission of commands from host system to SCU					
	Detailed Data Collection Function (Power, Temperature, SOC, etc.)					
	The following is implemented by interactive communication with GCU					
	Transmission of connect/disconnect signals to SU to realize electric power when					
String Control Unit	command is received from GCU					
(SCU)	Determines SU to be cut off according to cartridge information (battery status)					
	from SU					
	■ Integrates status of SUs under SCU and notifies GCU					
	The following is implemented by interactive communication with SCU					
Cyyo am I Imit	Connects/disconnects cartridges according to connect/disconnect signals from					
Sweep Unit	SCU					
(SU)	Monitors cartridge information (battery status)					
	Notifies SCU of cartridge information (battery status)					

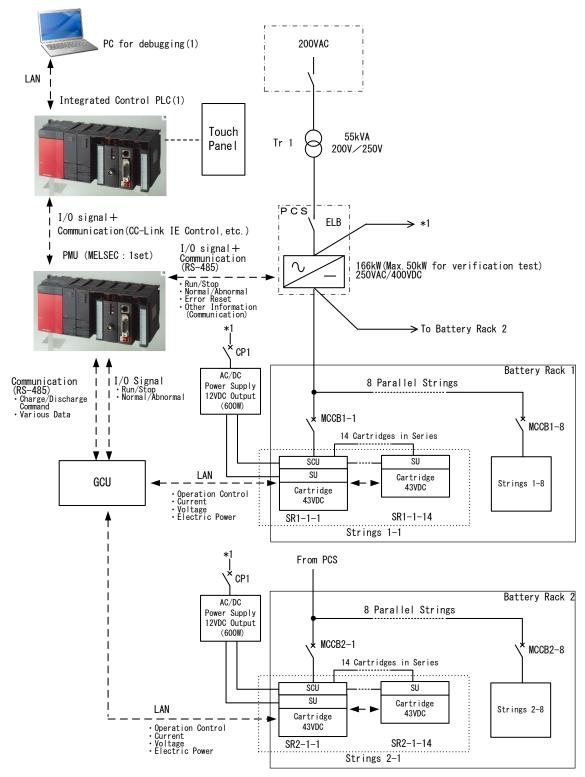


Fig. S2.1.1 Verification Facility System Configuration

Short time reaction characteristics ( $\angle$  kW) and long-time reaction characteristics (kWh) that should correspond to the electric power system were verified by testing. Sweep function was also verified by testing.

#### (1) Short time reaction characteristics

As a result of measuring time it takes for commands output to reach their destinations for 6 patterns (a) stop  $\rightarrow$  charge, (b) charge  $\rightarrow$  stop, (c) stop  $\rightarrow$  discharge, (d) discharge  $\rightarrow$  stop, (e) charge  $\rightarrow$  discharge, (f) discharge  $\rightarrow$  charge, it was confirmed that all reactions occurred in a short time of 2 seconds or less.

#### (2) Long time reaction characteristics

Charge/discharge test whereby batteries are charged and discharged repeatedly for a certain amount of operation time was conducted. Test method is given in Table S2.1.2 and Fig. S2.1.2. Because charge level is lower due to discharge power loss when charged and discharged by same output, test conditions for charging were made uniform by raising charge output relative to discharge output.

Conditions	Operating	No. of connected	Charge	Discharge
	time [s]	strings	output [kW]	output [kW]
(A)	300	8	50	45
(B)	1,800	8	11.2	9

Table S2.1.2 Repeated charge/discharge test conditions (fixed output / fixed time)

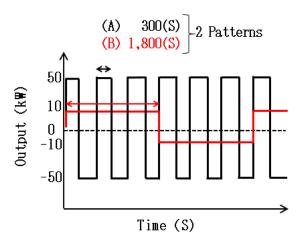


Fig. S2.1.2 Repeated charge/discharge waveform diagram

Test method is given in Figs. S2.1.3 and S2.1.4. Batteries were charged and discharged repeatedly in the commanded time for test conditions (A) and (B). The test confirmed operation by commanded charge/discharge output. The test also confirmed that a constant output could be sustained.

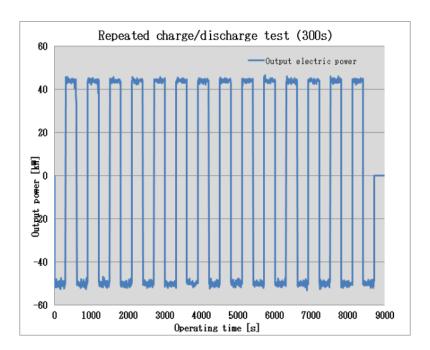


Fig. S2.1.3 Repeated charge/discharge test (300s)

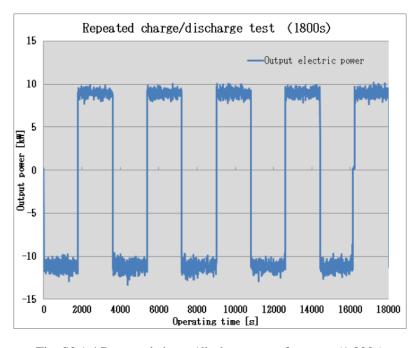


Fig. S2.1.4 Repeated charge/discharge waveform test (1,800s)

#### (3) Sweep function verification test

Test of full discharge  $\rightarrow$  full charge and full charge  $\rightarrow$  full discharge was conducted for 2 patterns: equipped and not equipped with Sweep function; the tests confirmed controllability of batteries in various states of deterioration compared with charge/discharge level (operating time). We also tested 3 cycles of maximum output 12 kW for 1 string. State of deterioration of batteries used is as given in Table S2.1.3.

Conditions	Qu A	anti B	•	eed for each rank units Average capacity  D E F G [Ah]			Cartridge array description		
(a)	-	3	3	4	2	2	-	4.6	Pattern whereby cartridges of each rank are uniform
(P)	-	-	3	11	-	-	-	4.6	Pattern with collected cartridges from middle rank
(c)	-	9	-	-	-	-	5	4.6	Pattern with maximum disparity in ranks

Table S2.1.3 Deterioration of batteries

Test results are given in Table S2.1.4. In a comparison of cases where batteries were equipped and not equipped with a sweep function for charging and discharging, operating time tended to be longer for those equipped with the function. The test confirmed that batteries in various states of deterioration could be efficiently charged and discharged.

In a comparison of various conditions, (a) and (b) had approximately the same operating time and (c) operated about 30 seconds longer in the case where batteries were equipped with sweep function. As long as capacity is the same, operating time should theoretically be the same. In the case (c) where operating time is longer, it is conjectured that there may have been some error in rank selection of cartridges resulting in differences in capacity. In the case where batteries were not equipped with sweep function, operating time was shorter for (a) and (c) which included cartridges of lower rank. If not equipped with sweep function, cartridges of lower rank could have reached upper/lower limit determination value before the other batteries, thereby causing them to stop operating.

Table S2.1.4 Sweep function comparison / Test results

Conditions		Equipped	with sweep	Not equi	pped with	Δ time [sec]		
		fun	ction	sweep	function	(Equipped / not equipped		
	Times	Operating	time [sec]	Operating	time [sec]	with sweep function)		
		Charge	Discharge	Charge	Discharge	Charge	Discharge	
	1	193	143	134	95	59	48	
(a)	2	198	164	131	105	67	59	
	3	223	183	137	112	86	71	
	1	199	150	150	118	49	32	
(b)	2	203	165	155	128	48	37	
	3	220	180	169	141	51	39	
	1	231	164	124	93	107	71	
(c)	2	234	190	123	103	111	87	
	3	262	215	133	111	129	104	

## 2-2. Nickel-hydrogen battery recycle business

In order to facilitate detoxifying stored energy at low cost, recycling of nickel-hydrogen batteries primarily involves removing/refining marketable metals following incineration. Because batteries are expected to be produced in large quantities in the near future, from the standpoints of need for technologies to make recycling more efficient and reduce CO2, a recycling process that does not involve incineration was adopted and verified. In specific terms, pilot equipment for a new wet recycling process (discharge, cutting, disassembly, sorting) was developed and adopted. Test operation of the equipment was simulated and proved efficacy of the equipment and collection rate of recycled goods. The equipment developed is shown in Figs. S2.2.1 to S2.2.4.

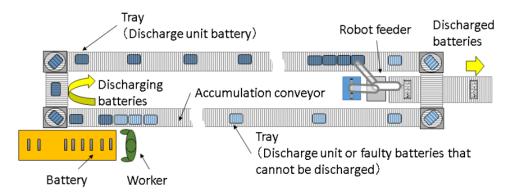


Fig. S2.2.1 System employing discharge equipment designed to save labor

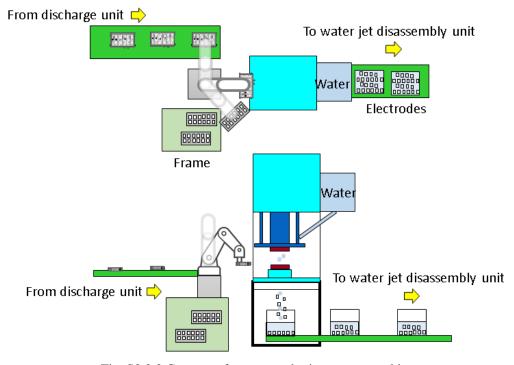


Fig. S2.2.2 Concept of cutter employing a press mold

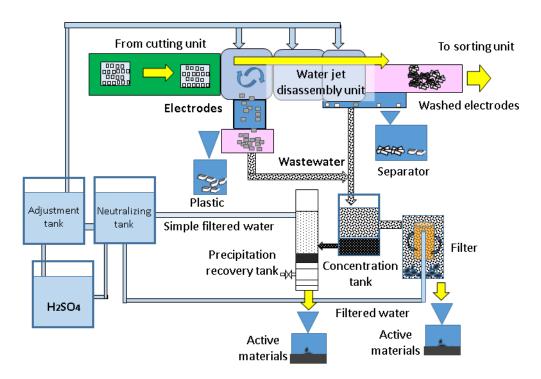


Fig. S2.2.3 Devised water jet disassembly unit and active material recovery unit

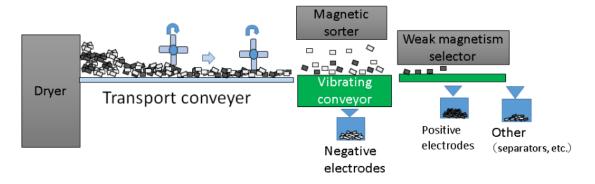


Fig. S2.2.4 Devised sorting device

The verification test consists of 4 processes: discharge, cutting, disassembly and sorting. The results of the test verified that 100wt% of introduced volume could be recovered for both positive and negative electrodes and a recycling process that offered CO2 reduction and safety was established. The verified results and safety evaluation of active material of the respective processes are as follows.

#### (1) Discharge process

A labor-saving system employing discharge through resistors was developed and adopted. It was also verified as a prerequisite that the process offered safety and was achieved without batteries emitting heat. As a result, it took about 4 hours to discharge batteries to be detoxified at voltage of approximate maximum of 6 V. The process was able to achieve this automatically.

#### (2) Cutting process

Three methods of cutting were verified: cutting by press mold, circular saw blade and flat-blade knife. The tests showed that press molds were capable of cutting batteries and that it was the most effective method in terms of cost and speed; it offered low cost because the only equipment needed was a press and a single robot feeder and was faster than any of the other methods. The process also ensured safety; it was designed to prevent heat emission by submerging the electrodes, etc., in water when cutting. In the case of cutting by circular saw blade, testing showed that while it was capable of cutting batteries, it presented two significant challenges: blade loss (durability) and recovery of active material cuttings. This method was therefore determined to be impractical. In the case of flat-blade knife, testing showed that while it was capable of cutting batteries, it not only required 2 presses, but required multiple actuators to automate the process. This method was burdened by the disadvantage of high cost.

#### (3) Disassembly process

During the previously mentioned cutting processes, electrodes were submerged in water and introduced to the water jet disassembly process. The plastic cases on the electrodes are light and could be recovered by detaching them from the electrodes by water overflow. After recovering the plastic cases, the separated electrodes are moved to the next tank where they are decomposed by water jets, etc., while active material applied to the electrodes and adhering to the separator are removed by washing. The separator rises to the top due to difference in specific gravity and is recovered together with the plastic cases by overflowing. Active materials are recovered by passing the material removed by washing through a filter. The filtered water is reused after being neutralized by sulfuric acid. The results of the tests confirm that by exposing electrodes to water jets the plastic cases, positive electrodes, negative electrodes, separator and active materials can be separated from each other. Disassembly ratio of positive electrode and separator and that of negative electrode and active material are 99% or higher.

#### (4) Sorting process

The water adhering to the positive electrodes, negative electrodes and approximately 5% of separators (hereinafter referred to as "electrodes") that were sorted by the water jet disassembly unit is removed by a dryer. To enhance precision of magnetic sorting in the next process, the electrodes discharged from the dryer are placed on a vibrating conveyor to break up overlapping and at the same time discharge volume is adjusted. Because of difference in their magnetic properties, the positive and negative electrodes are recovered separate of each other; the non-magnetic separators are recovered last.

#### (5) Safety assessment of active material

Potential for dust explosion was checked by raising dust concentration in stages and repeating the test 5 times at the maximum concentration of 2000 mg/m<sup>3</sup>. The test confirmed the material was not susceptible to dust explosion. Conducting the test while additionally assessing heat stability revealed the potential for spontaneous combustion at 100 degree C or higher.

#### 2-3. Lithium-ion battery recycle business

Recycling of discarded batteries is primarily achieved by recovering marketable metals from incineration. However, from the standpoint of CO2 reduction and the recycle ratio of all recovered materials, establishing a better recycling process is required. In order to establish a new recycling process for lithium-ion batteries which are expected to increase in the future, we assessed the potential for sorting materials employing jets of water\*, which is an underlying technology. The primary results of assessment are as follows.

#### (1) Extraction and removal of electrolyte from lithium-ion batteries

If the electrolyte in the batteries contains the electrolyte salts\*\*, which is a fluorine compound that produces corrosive gases if it comes in contact with water, it therefore must be removed prior to sorting by water jets. As a result of attempting to remove electrolyte salts and electrolyte from cut-up batteries, we succeeded in removing at least 98% of the electrolyte and electrolyte salts by simple washing with organic solvent that is soluble in the electrolyte.

#### (2) Sorting of lithium-ion components by water jets (Fig. S2.3.1)

As a result of sorting battery materials from which electrolyte salts were removed by water jets using a commercial food washing machine (200 L of washing water), we were able to separate and recover that total amount of active material (nickel and cobalt) from the current collectors (aluminum foil) of the positive electrodes. A small amount of active material (carbon) remained on the negative electrode (copper), but it was easily removed by ultrasonic cleaning. Recovered materials contain few impurities, suggesting that pretreatment can be simplified on hydrometallurgical process at a later stage. Electrolyte salt elution that could not be completely removed by pretreatment was however found in water used for washing following sorting by water jets. It was therefore determined that more precise removal of electrolyte and electrolyte salts would be required to enhance efficiency of sorting by water jets.

More cost-effective technologies for removing electrolyte and electrolyte salts that also reduce amount of CO2 produced will be subsequently assessed and a more cost-effective process will be established for recycling lithium-ion batteries. (Fig. S2.3.2)

- \* Method of sorting and recovering each component of cut-up batteries separately using water for washing. Utility has already been confirmed for nickel hydrogen batteries.
- \*\* Lithium hexafluorophosphate: Reacts with water to produce hydrogen fluoride (HF) and phosphoryl fluoride (POF3).

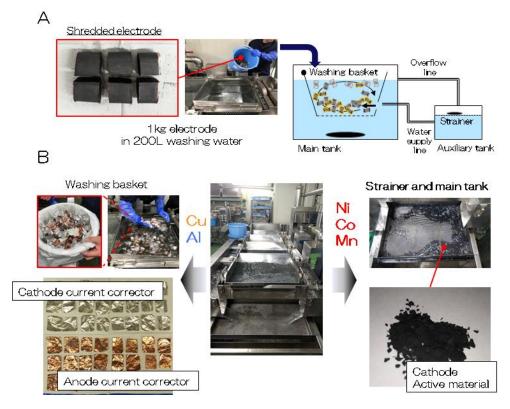


Fig. S2.3.1 Sorting cut-up lithium-ion battery electrodes by water jets

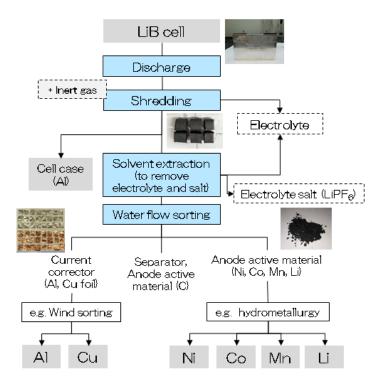


Fig. S2.3.2 Lithium-ion battery recycle process employing sorting by water jets

#### 3. Life cycle assessment

When performing life cycle assessment, the following comparisons were obtained based on assuming the equivalent of new nickel hydrogen batteries of 10,000 EVs.

#### 3-1. Nickel-hydrogen battery reuse business

The primary processes of new battery manufacturing as a baseline and those of reuse of recovered batteries in this project are shown in Fig. S3.1.

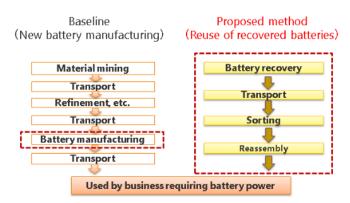


Fig. S3.1 Processes of new battery manufacturing and reuse of recovered batteries

The baseline would be 3300t of CO2 discharges as a result of calculating amount of CO2 discharged when new batteries are manufactured. As a result of calculating amount of CO2 discharged by this project, it would be 50t of CO2 discharged, thereby confirming it to be advantageous relative to the baseline.

#### 3-2. Nickel-hydrogen battery recycling

The primary processes of the conventional method of incineration as a baseline and those of the new recycling method that does not involve incineration are shown in Fig. S3.2.

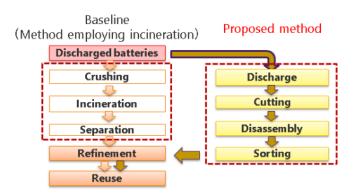


Fig. S3.2. Processes of nickel-hydrogen battery recycling

Concerning the baseline, the amount of CO2 discharged by incineration and electric power consumed for crushing, incinerating and separation would be a total of 38.82t of CO2 discharged in the respective calculations. The calculation of amount of CO2 discharged by electric power consumed for discharging, cutting, disassembling and sorting for the new method described herein would be 29.74t, thereby confirming it to be advantageous relative to the baseline.

#### 3-3. Lithium-ion battery recycle business

The primary processes of the conventional method of incineration as a baseline and those of the new recycling method that does not involve incineration are shown in Fig. S3.3. Only a fundamental study of recycling of lithium-ion batteries was conducted, so pretreatment was added to the previously mentioned nickel-hydrogen battery process and the amount of CO2 discharged was trial calculated.

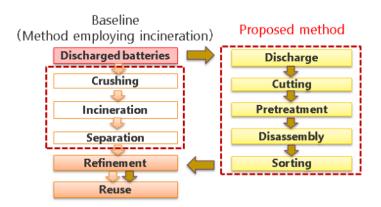


Fig. S3.3. Processes of Lithium-ion battery recycling business

Concerning the baseline, the amount of CO2 discharged would be 38.82t as previously mentioned. Because the amount of CO2 discharged by the pretreatment process would be minimal, assuming it to be the equivalent of 29.74t, it would probably be advantageous relative to the baseline. It is therefore necessary to consider the equipment configuration that would reduce CO2 as expected.

#### 4. Future commercialization

Preparing reuse and recycling for commercial use on a large scale would simultaneously realize a low carbon and recycling-oriented society. It would also however require establishment of a scheme to recover a massive quantity of batteries. Establishment of a recovery scheme would require studies of commercialization that can utilize a massive quantity of reuse batteries as well as include automobile manufacturers who are the source of reuse batteries supply and would seek to solve these problems early on by continuing to cooperate with related businesses.

The reuse business can determine the optimal equipment configuration and can solve the technical aspects of these issues by establishing technologies for controlling batteries in various states of deterioration. Commercialization would require further optimizing equipment design to reduce cost, etc. Utilization for adjusting to supply and demand along with expanding use of renewable energy and handling of frequency variation are possible, but it is necessary to establish a suitable price for these activities. Establishing the previously mentioned recovery scheme will further enlarge the scale, so more cost-efficient operation of thermal power stations can be expected.

The technical aspects of the problems involving recycling of nickel-hydrogen batteries have been solved by establishment of a new recycling technology that does not involve incineration. Commercialization would require further optimizing equipment design to reduce cost, etc. It will also be necessary to enhance value of recovered materials obtained by this technique and we are hoping to prepare it for commercial use as soon as possible.

A recycling process is expected to be established by solving the technical aspects of the two issues extracted by this project for the lithium-ion battery recycling business. Commercialization requires preparing a cost-efficient equipment configuration that reduces CO2 emission and continuing to conduct studies for contracting cost of processing by enhancing value of recovered materials.

1.	はじめに	1
1.1.	背景と目的	1
1.2.	事業実施体制	2
1.3.	共同実施者との打合せ	3
2.	実証事業の実施	4
2.1.	ニッケル水素電池リユース事業	4
2.1.1	1. 背景	4
2.1.2	2. 実証試験要領	5
2.1.2	2.1. システム構成	5
2.1.2	2.2. PCS 応動試験	9
2.1.2	2.3. 充放電繰り返し試験(一定出力・一定時間試験)	9
2.1.2	2.4. 短周期応動試験	10
2.1.2	2.5. 組合せ試験	10
2.1.2	2.6. 周波数応動試験	11
2.1.2	2.7. Sweep 機能比較試験	11
2.1.3	3. 実証試験結果	11
2.1.3	3.1. PCS 応動試験	11
2.1.3	3.2. 充放電繰り返し試験(一定出力・一定時間試験)	13
2.1.3	3.3. 短周期応動試験	16
2.1.3	3.4. 組合せ試験	18
2.1.3	3.5. 周波数応動試験	19
2.1.3	3.6. Sweep 機能比較試験	21
2.1.3	3.7. 試験結果のまとめ	24
2.1.4	4. 考察および今後の展開	25
2.2.	ニッケル水素電池リサイクル事業	26
2.2.1	1. 背景	26
2.2.2	2. 目的	27
2.2.3	3. 結果と考察	27
2.2.3	3.1. 放電装置の設計	27
2.2.3	3.2. 放電の実証試験	30
2.2.3	3.3. 切断方法の検討	33
2.2.3	3.3.1. 丸鋸刃の仕様検討	34
2.2.3	3.3.2. 平刃の仕様検討	35
2.2.3	3.3.3. プレス金型の仕様検討	36

2.2.3.4.	切断方法の実証試験	37
2.2.3.4.1.	丸鋸刃の実証試験	37
2.2.3.4.2.	平刃の実証試験	38
2.2.3.4.3.	プレス金型の実証試験	40
2.2.3.5.	水流分解装置と活物質回収装置の設計	43
2.2.3.6.	水流分解装置と活物質回収装置の実証試験	44
2.2.3.7.	分別装置の設計	48
2.2.3.8.	分別方法の実証試験	49
2.2.3.9.	活物質の安全性評価	50
2.2.4. 結	論	53
2.3. リチ!	ウムイオン電池リサイクル事業	55
2.3.1. 背	景と目的	55
2.3.2. 車	載用リチウムイオン電池の解体時リスクの評価	55
2.3.2.1.	方法と材料	55
2.3.2.2.	結果	57
2.3.2.3.	考察	59
2.3.3. 車	載用リチウムイオン電池の構造調査と構成部材の把握	59
2.3.3.1.	方法と材料	59
2.3.3.2.	リチウムイオン電池の構造調査	59
2.3.3.3.	リチウムイオン電池構成部材の把握	61
2.3.3.4.	考察	62
2.3.4. リ	チウムイオン電池を対象とした水流分別の基礎検討	
2.3.4.1.	集電体からの活物質剥離性の確認	62
2.3.4.2.	超音波・水流等の剥離性への影響評価	63
2.3.4.3.	考察	65
2.3.5. U	チウムイオン電池に含まれる電解液・電解質塩の除去	66
2.3.5.1.	溶媒洗浄法	67
2.3.5.1.1.	電極部材からの電解液の除去	67
2.3.5.1.2.	洗浄後の残留電解液量の見積り	68
2.3.5.2.	イオン交換法を用いた水流分別排水からの PF <sub>6</sub> イオン除去	69
2.3.5.3.	考察	70
2.3.6. 溶	媒洗浄法・水流分別法の検証	70
2.3.6.1.	材料と方法	70
2.3.6.2.	集電体からの活物質の剥離	72
2.3.6.3.	正極活物質の回収率	75
2.3.6.4.	洗浄水の性状	76

2.3.6	5.5.	考察	77
2.3.7	7. 結請	論と今後の課題	78
3.	ライフ	'サイクルアセスメント	80
3.1.	ニッケ	ル水素電池リユース事業	80
3.2.	ニッケ	ル水素電池リサイクル事業	82
3.3.	リチウ	・ムイオン電池リサイクル事業	83
4.	経済性	:評価と事業化の見通し	84
4.1.	リユー	-ス事業の経済性評価	84
4.2.	リサイ	クル事業の経済性評価	84
4.3.	経済性	:向上の可能性	85
4.4.	事業普	·及の見通し	87
4.5.	今後の	事業化見通し	87

#### **1.** はじめに

#### 1.1. 背景と目的

昨今のハイブリッド自動車や電気自動車等の電動車の普及により、近い将来に大量の電動車の中古駆動用電池(以下、「電池」と記す。)の発生が見込まれる。現状、電池については、一部は小規模でリユースされているものの、限定的であり、大半はリユースされずリサイクルとして焼却処理後、残渣を製錬抽出することに留まっている。また、当社は電力系統においては、再生可能エネルギー(以下、「再エネ」と記す。)の大量導入に対して需給バランスの変動への的確な対応や、電力系統の更なる合理的運用に向けた取組みを推進している。

単体として性能が低下した電池であっても、多数の電池を組み合わせ適切に制御することにより、再エネ導入の拡大に伴う需給調整への活用や、周波数変動への対応などが可能となると同時に、火力発電所の合理的な運用も期待できる。

本実証事業では電池のリユースによる電力システムへの有効活用、経済性や環境負荷低減のための CO2 削減に配慮した焼却を伴わない新しいリサイクル技術の開発を通じて、電力を大量に扱う電気事業用で先駆的に電池が廃棄されずに循環する流れを確立することで、再エネ普及拡大を可能とする電力系統を実現し、低炭素型社会及び循環型社会の同時達成を目的とする。

## 1.2. 事業実施体制

事業実施体制図及び役割を図1.2.1 に示す。

## **----** <共同実施者> (A) 中部電力(株) (B) トヨタ自動車(株) ・プロジェクト全体総括 ・電池制御システムの開発 実証試験計画の策定 ・システム連携に関する助言 ・パイロット試験設備の設計・導入 ・電動車の駆動用電池の提供 ・ 実証試験の実施 ・その他電池全般に係る助言 (C) 柴田科学(株) ・リサイクルプロセス機器の詳細 設計 ・リサイクルプロセスの実証試験 ・リサイクルプロセスの実証試験 のとりまとめ - <外注先> -(D) 日鉄住金テックスエンジ(株) ・リユース設備の詳細設計・組立 調整 ・リユース設備の実証試験 ・リユース設備の実証試験のとり

図 1.2.1 事業実施体制図及び役割

まとめ

の基礎研究

(E) (一財) 電力中央研究所

リチウムイオン電池リサイクル

・リサイクル回収物価値の調査

### 1.3. 共同実施者との打合せ

共同実施者であるトヨタ自動車 (株) と月に1~2回、合計9回の打合せを行った。主な打合せ内容はリユース事業、各電池のリサイクル事業とともに、実証試験の進め方及び今後の事業化についてである。主に名古屋市にて打合せを行ったが、外注先である日鉄住金テックスエンジ (株) が構築したリユース設備の現物の状況を踏まえた議論を行うため、福岡県北九州市でも打合せを行った。

また、同じく共同実施者である柴田科学(株)と月に  $1\sim2$  回、合計 10 回の打合せを行った。打合せ内容はリサイクル事業の設備の詳細設計および実証試験全般についてであり、主に草加市にて打合せを行った。

また、外注先との打合せも適宜行った。

#### 2. 実証事業の実施

### 2.1. ニッケル水素電池リユース事業

#### 2.1.1. 背景

今後、電動車の更なる普及が見込まれており、電動車から回収した電池を蓄電池システムとしてリユースすることを目指している。電動車から回収した電池は、単体として性能が低下した電池であっても、多数の電池を組み合わせた蓄電システムとして利用することにより、電力系統の課題解決に加え、火力発電所の合理的な運用も期待できる。

これらの電力系統での課題を解決するためには大規模な蓄電システムが必要であるが、 リユース電池を活用した蓄電システムは技術面やコストの観点から小規模な設備構成に限 定されており、リユース電池を活用した設備構成の大容量・最適化を行う必要がある。また、 電池は中古である故に劣化状態にバラツキがあり、これらを大量に組み合せた場合の制御 技術が確立されていないことが課題である。

本実証試験は、小規模の電池リユース設備システムを構築し、各機器の組合せによる動作 検証を行い、システムとしての問題点を洗い出し、設備の最適化とリユース電池の制御方法 の確立を目的とする。また、事業性を見出す為、本実証試験を通じてシステムのコストダウ ンについても検討を行う。

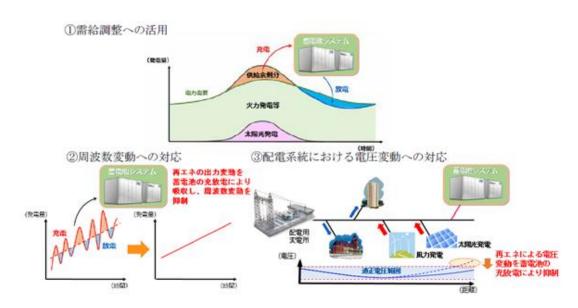


図 2.1.1 蓄電池システムによる電力系統における課題解決例(イメージ)

(出典) 中部電力(株) HP プレスリリース 2018 年 1 月 31 日

 $https://www.chuden.co.jp/corporate/publicity/pub\_release/press/3266975\_21432.html\\$ 

### 2.1.2. 実証試験要領

#### 2.1.2.1. システム構成

本実証試験に使用する主な機器の役割について表 2.1.1 に示す。また、システム構成図を図 2.1.2、使用した機器の外観写真を図 2.1.3 に示す。

Power Conditioning System (以下、「PCS」と記す。) ~ String Control Unit (以下、「SCU」と記す。)及び Sweep Unit (以下、「SU」と記す。) ~ リユース電池の構成となっている。 リユース電池の構成はカートリッジ (DC43V) を 14 直列 (以下、「ストリング」と記す。) とし、SCU 及び SU により各カートリッジの状態を監視し、使用するカートリッジ数を制御しながら動作を行う。本実証試験では、1 台の PCS に対して 16 ストリング分の設備を用意した。

システム全体の動作としては、統括制御 PLC からの指令を受けた Power Management Unit (以下、「PMU」と記す。)が PCS 及び Group Control Unit (以下、「GCU」と記す。)に動作指令を出すことにより、リユース電池の充放電動作を行う。充電動作については、系統側 AC 電圧を PCS により DC 電圧 400V へと変換し、リユース電池へ電力を供給する。放電動作については、充電動作の逆で、電池電圧 DC400V を PCS により AC 電圧へと変換し、リユース電池から系統側へ電力を返す動作を行う。

本設備での PCS の DC 側出力定格は 166kW としているが、本実証試験においては試験場の容量制限により DC 側出力は最大 50kW で試験を行うこととした。

表 2.1.1 各機器の役割

機器名称	役割					
Power Conditioning System (PCS)	系統側 AC240V を電池電圧 DC400V に変換する双方向 ACDC コンバータ					
	上位サーバとの双方向通信により下記を実施					
統括制御 PLC	・上位サーバからの指令を PMU に発信					
	・PMU からの各情報を上位サーバに通知					
	・操作用タッチパネル搭載					
Power Management Unit	統括制御 PLC との双方向通信により下記を実施					
(PMU)	・統括制御 PLC からの指令を PCS 及び GCU に発信					
(I WO)	・GCU 及び PCS からの各情報を統括制御 PLC に通知					
	上位システムとの双方向通信により下記を実施					
Group Control Unit	・グループ全体の状態を上位システムに通知					
(GCU)	・上位システムからの指令を各 SCU に指令					
	・詳細データ収集機能(電力、温度、SOC など)					
	GCU との双方向通信により下記を実施					
String Control Unit	・GCU から指令を受けた電力を実現する様に SU へ接続/切断信号を発信					
(SCU)	・SU からのカートリッジ情報(電池状態)に応じて切離す SU を決定					
	・SCU 配下の各 SU の状態を統合して GCU に通知					
	SCU との双方向通信により下記を実施					
Sweep Unit	・SCU からの接続/切断信号に応じて、カートリッジの接続/切断を行う					
(SU)	・カートリッジ情報(電池状態)を監視					
	・カートリッジ情報(電池状態)を SCU に通知					

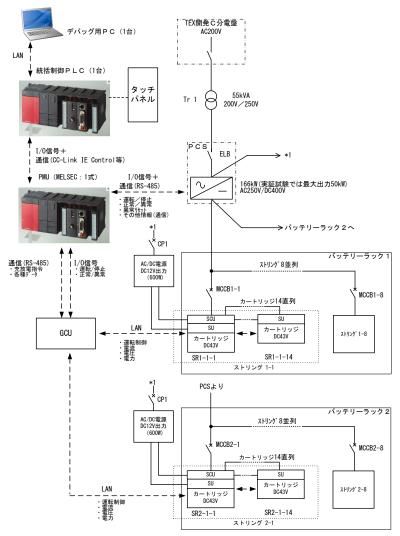


図 2.1.2 実証試験システム構成図



図 2.1.3 使用機器外観写真

また、本実証試験でのストリングごとの使用カートリッジランク構成を表 2.1.2 に示す。 試験条件に特に記載が無い限り、表 2.1.2 の構成で試験を行うこととした。ただし、ストリ ング内のカートリッジ容量調整のために、一部試験内容においては、カートリッジを入替え て試験を行った。

表 2.1.2 各ストリングのカートリッジランク構成

ストリング No		ラン	ランクごと使用数量[個]			カートリッジ配置内容		
A F y Z Z NO	A	В	С	D	Е	F	G	ガードケッシ配直的谷
ストリング 1	ı	3	3	4	2	2	-	各ランクのカートリッジが均等 になるようなパターン
ストリング 2	ı	3	-	-	7	5	-	ランクの高いカートリッジが少 数派となるパターン
ストリング 3	-	-	14	-	-	-	-	ランク C のカートリッジで統 一
ストリング 4	-	7	7	-	-	-	-	ランクの高いカートリッジを集 めたパターン
ストリング 5	1	5	9	-	-	-	-	ランクの高いカートリッジを集 めたパターン
ストリング 6	i	-	7	7	-	-	•	中ランクのカートリッジを集め たパターン
ストリング 7	-	9	-	-	-	-	5	ランクのバラツキ幅が最大のパ ターン
ストリング8	-	-	14	-	-	-	-	ランク C のカートリッジで統 一
ストリング 9	-	4	6	4	-	-	-	ランクの高いカートリッジを集 めたパターン
ストリング 10	-	3	3	2	2	2	2	各ランクのカートリッジが均等 になるようなパターン
ストリング 11	-	-	14	-	-	-	-	ランク C のカートリッジで統 一
ストリング 12	-	14	-	-	-	-	-	ランク B のカートリッジで統 一
ストリング 13	-	7	7	-	-	-	-	ランクの高いカートリッジを集 めたパターン
ストリング 14	i	4	4	2	2	2	-	各ランクのカートリッジが均等 になるようなパターン
ストリング 15	-	-	14	-	-	-	-	ランク C のカートリッジで統 一
ストリング 16	-	14	-	-	-	-	-	ランク B のカートリッジで統 一

### 2.1.2.2. PCS 応動試験

周波数変動抑制制御として活用する場合には、電力需要の急峻な変動に対応するための 瞬発性が必要であることから、PCS 応動速度が重要となってくる。PMU から指令値が送信 され、PCS 出力が指令電力値に到達するまでの時間を測定することで、現状のシステムでの PCS 応動速度を把握する。図 2.1.4 に波形イメージ図を示す。

- ①指令値送信~立上り開始
- ②立上り開始~指令値到達
- ③PCS 応動速度 = ① + ②

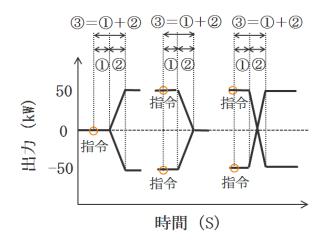


図 2.1.4 PCS 応動速度波形イメージ

### 2.1.2.3. 充放電繰り返し試験(一定出力・一定時間試験)

一定出力・一定時間で充放電を繰り返し行い、リユース電池の基本性能(電力、温度)の変化を測定する。また、充放電の繰り返しでの電池容量の変化による、充放電の繰り返し可能時間の確認を行う。動作時間については、調整力としての活用を想定した 300s と供給力としての活用を想定した 1,800s とする。図 2.1.5 に波形イメージ図を示す。

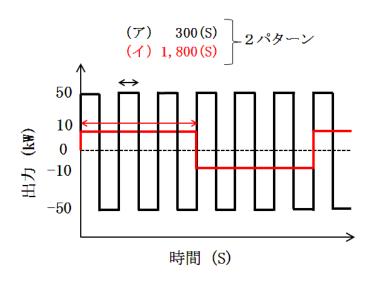


図 2.1.5 充放電繰り返し試験波形イメージ

# 2.1.2.4. 短周期応動試験

短周期(周期は「PCSの応動速度」の結果による)で充放電を繰り返し行い、リユース電池の基本性能(電力、温度)の変化を測定する。また、充放電の繰り返しでの電池容量の変化による、充放電の繰り返し可能時間の確認を行う。図 2.1.6 に波形イメージ図を示す。

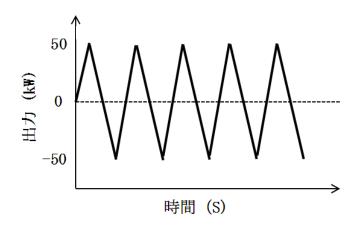


図 2.1.6 短周期応動試験波形イメージ

# 2.1.2.5. 組合せ試験

充放電繰り返し試験と短周期応動試験を組み合わせ、電池の基本性能(電力、温度)の変化を測定する。また、充放電の繰り返しでの電池容量の変化による、充放電の繰り返し可能時間の確認を行う。図 2.1.7 に波形イメージ図を示す。

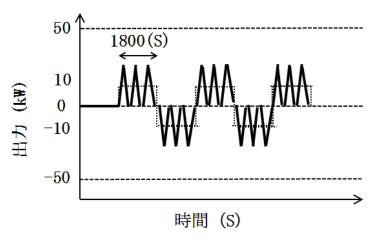


図 2.1.7 組合せ試験波形イメージ

#### 2.1.2.6. 周波数応動試験

外部から統括制御 PLC に擬似周波数信号を送り、擬似的に周波数変動を発生させることで、その変動に合わせた充放電出力を行うことを確認する。周波数が大きくなれば、周波数を小さくする方向(充電方向)、周波数が小さくなれば、周波数を大きくする方向(放電方向)の動作を行うことを確認する。

#### 2.1.2.7. Sweep 機能比較試験

Sweep 機能あり/なしで充放電試験を行い、Sweep 機能の有効性について検証を行う。 Sweep 機能とは、ストリング内の各カートリッジの状態(電圧、SOC、温度)を見ながら、 使用するカートリッジの接続/切断を行う機能のことを指す。

Sweep 機能ありの場合は、複数カートリッジが切離され電圧維持が困難と判定されるまで動作を続けるが、Sweep 機能なしの場合は、ひとつのカートリッジでも切離し対象に到達した時点で動作を終了してしまうという機能差がある。

#### 2.1.3. 実証試験結果

### 2.1.3.1. PCS 応動試験

図 2.1.8 の測定回路で試験を行った。試験条件は(1)停止→充電、(2)充電→停止、(3)停止→ 放電、(4)放電→停止、(5)充電→放電、(6)放電→充電の 6 パターンとした。試験結果を表 2.1.3 に示す。

試験結果から、全て 2 秒以内という短時間での応動速度で動作することを確認した。なお、①指令~立上り開始の時間については、差異が大きくなっていることがわかる。これは、PMU-GCU 間の通信周期の影響を受けていると考えられる。PMU-GCU 間は 1s 周期で信号

の送受信を行っており、送受信のタイミングによって最大 1s の差異が発生すると考えられるため、送受信周期の改善により応動速度の高速化が可能となる。

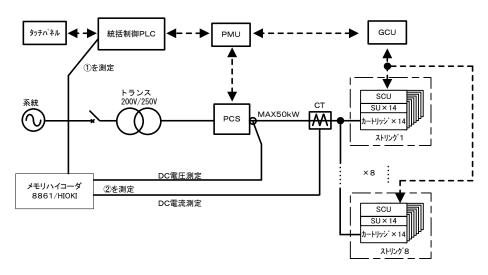


図 2.1.8 PCS 応動試験測定回路

表 2.1.3 PCS 応動試験 各条件での試験結果一覧

条件	①指令~立上り開始の時間[s]	②応答時間[s]	③合計時間[s]
(1)停止→充電	1.182	0.160	1.342
(2)充電→停止	1.599	0.160	1.759
(3)停止→放電	1.110	0.170	1.280
(4)放電→停止	1.522	0.175	1.697
(5)充電→放電	1.430	0.240	1.670
(6)放電→充電	0.940	0.220	1.160

#### 2.1.3.2. 充放電繰り返し試験(一定出力・一定時間試験)

図 2.1.9 の測定回路で試験を行った。試験条件として、300s の充放電試験においては最大出力での動作とするため、充電 50kW、放電 45kW で動作させた。1,800s の充放電試験においては、1,800s の連続運転可能な充電 11.2kW(各ストリング電流 3.5A)、放電 9kW で動作させた。充電電力については、定格電力量が 1 ストリング当たり 1.27kWh となっており、8 ストリングで 1,800s の連続運転では計算上は電力値 20.4kW となるが、実際には電池容量が足りなかったため、1,800s で連続運転可能な電力値 11.2kW で動作させた。また、電池の容量は同出力の充放電であれば、充放電損失により放電過多となってしまうため、充電と放電で出力に差をつけて測定を行った。放電電力値については、実際に動作させる出力でフル充電/フル放電を行い、それぞれの動作時間の割合から算出した。

図 2.1.10 に 300s の充放電繰り返し試験の結果を示す。図 2.1.10 の左図は、動作時間に対する出力電力の波形であり、この結果から 300s 間、設定電力値で充放電の繰り返しが可能なことを確認できた。

また、図 2.1.10 の右図は各ストリング内の最大温度上昇(カートリッジ温度-周囲温度により算出)のあったカートッリッジの温度推移を示しており、その中でも最も温度上昇が大きかったのはストリング 2 とストリング 7 のカートリッジであった。これらのカートリッジの温度上昇は 30 分で約 8.2℃であり、電池使用温度が最大 45℃のため、25℃から使用したとすると約 2 時間 30 分の連続運転で動作終了してしまうこととなる。また、これらの温度上昇が最も大きかったカートリッジの容量ランクはストリング 2 のカートリッジがランク  $\mathbf{F}$ 、ストリング 7 のカートリッジがランク  $\mathbf{G}$  であった。このことから、容量ランクの低いカートリッジの温度が上昇する傾向にあることが確認できた。

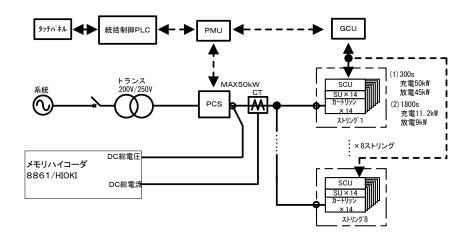


図 2.1.9 充放電繰り返し試験測定回路

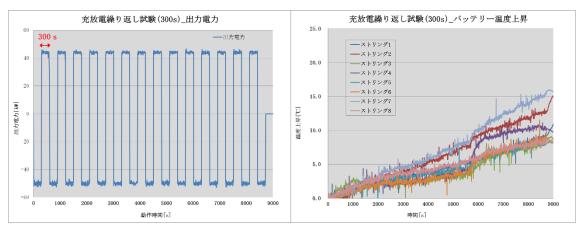


図 2.1.10 充放電繰り返し試験(300s) 測定波形(出力電力、温度)

図 2.1.11 に 1,800s の充放電繰り返し試験の結果を示す。図 2.1.11 は、動作時間に対する出力電力の波形であり、この結果から 1,800s 間、設定電力値で充放電の繰り返しが可能なことを確認できた。しかし、放電過多防止のために、充電と放電で出力差をつけたことで、5回目の充電動作時に 1,800s 間充電を続けることができなくなっていた。これは、電池状態を見ながらの補充電/放電が必要であるが、充放電の出力差を固定の補正値で調整したためである。

また、図 2.1.12 は各ストリング内の最大温度上昇(カートリッジ温度-周囲温度により算出)のあったカートリッジの温度推移を示す。カートリッジの接続/切断に伴い温度が上昇あるいは下降する傾向が認められた。図 2.1.13 にストリング 1 のみの出力電力、カートリッジ 12 の温度上昇及び接続/切断のタイミングを示す。この波形から、温度はカートリッジの接続/切断に対して遅れて変化しているが、カートリッジの接続/切断により温度が上昇あるいは下降する傾向が見られる。全体の温度上昇としては、最も上昇が大きいカートリッジでも 1 時間あたり約 1℃となっており、1,800s 動作で出力を抑えた場合は、電池の温度上昇も抑えられていることがわかる。

上記結果から、本設備においては、充放電の出力差を調整することは困難であるため、放 電過多防止のために電池状態を見ながらの補充電機能の検討が必要となる。また、電池の温 度上昇を考慮した範囲での使用(出力電力の調整、電池温度上限の見直しなど)を検討する 必要がある。

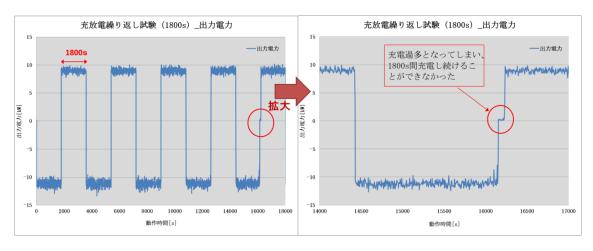
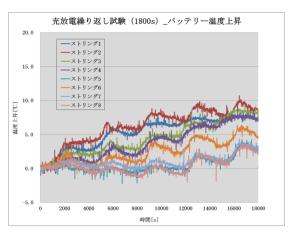


図 2.1.11 充放電繰り返し試験(1,800s) 測定波形(出力電力)



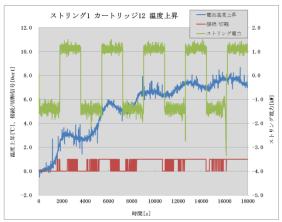


図2.1.12 充放電繰り返し試験(1,800s)温度推移 図2.1.13 ストリング1波形(出力電力、温度)

#### 2.1.3.3. 短周期応動試験

図 2.1.14 の測定回路で試験を行った。最大出力(50kW)での充放電切替可能時間を検証するために 1s、2s、3s 周期での充放電切替動作を行った。図 2.1.15~図 2.1.17 に測定結果を示す。

測定結果から、1s 周期の動作では指令電力に到達する前に次の指令電力に切替る箇所が多々見られた。これは2.1.3.1 の PCS 応動試験の結果からもわかるように、PCS の応動自体が1s~2s 必要なので1s 周期の指令に対しては反応できないことが確認できた。2s 周期の動作では、タイミングによっては完全に指令電力に到達できていないケースが見られた。3s 周期の動作では、安定して指令電力が出力できていることが確認できた。現状のシステムでは、3s 周期の充放電であれば、安定した出力が可能であることが確認できた。2.1.3.1 の PCS 応動試験の内容と重複するが、周波数変動抑制制御に対応するためには、更なる応動速度の改善が必要となる。

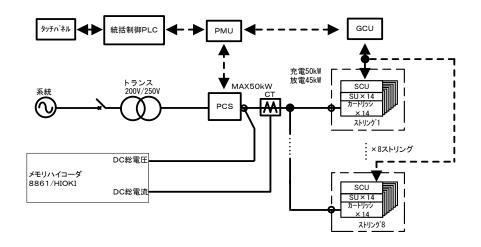


図 2.1.14 短周期応動試験測定回路

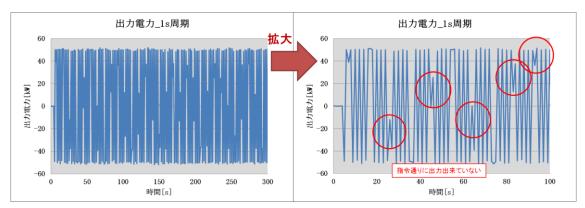


図 2.1.15 1s 周期での動作測定波形

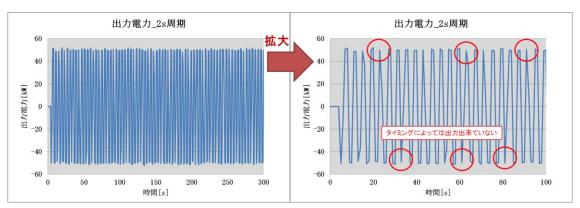


図 2.1.16 2s 周期での動作測定波形

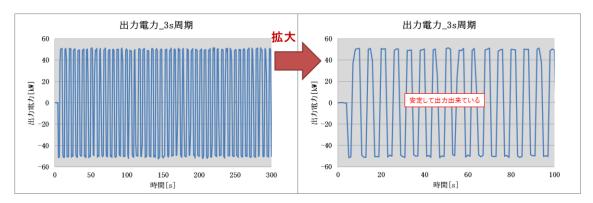


図 2.1.17 3s 周期での動作測定波形

#### 2.1.3.4. 組合せ試験

図 2.1.18 の測定回路で試験を行った。2.1.3.2 の充放電繰り返し試験と 2.1.3.3 の短周期応動試験を組合せた条件で、短周期応動の周期は充電(放電) 3s→休止 3s とし、出力電力は充電(放電) 動作後に休止が入るため、2.1.3.2 充放電繰り返し試験(1,800s)の倍の電力値で充電 22.4kW とした。放電電力値については、倍の 18kW で動作させた際に、放電電力が足りずに充電過多となったため、19kW とした。

図 2.1.19 に測定結果を示す。図 2.1.19 の上図は動作時間に対する出力電力の波形で、設定電力値で 1,800s での充電及び放電の短周期応動が可能なことが確認できた。また、図 2.1.19 の下図は各ストリング内の最大温度上昇(カートリッジ温度-周囲温度により算出)のあったカートリッジの温度推移を示す。全体の温度上昇としては、最も上昇が大きいカートリッジでも 1 時間あたり約 1℃となっており、温度上昇は抑えられていることが確認できた。

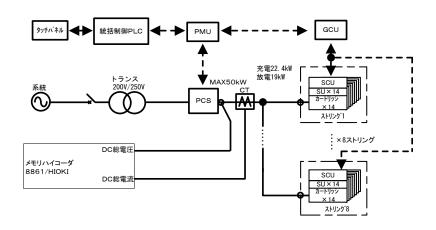


図 2.1.18 組合せ試験測定回路

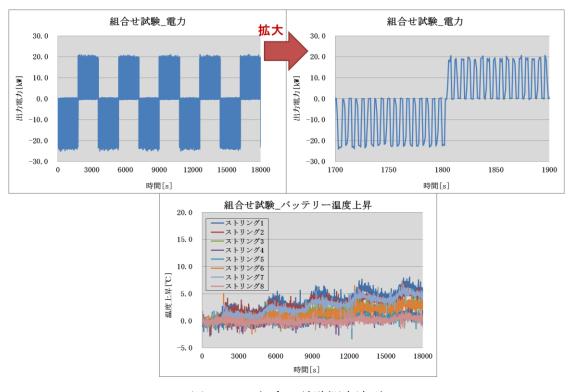


図 2.1.19 組合せ試験測定波形

### 2.1.3.5. 周波数応動試験

図 2.1.20 の測定回路で試験を行った。本試験は系統周波数の変動に合わせた充放電動作の確認となるが、以下の 2 点の理由から統括制御 PLC に周波数擬似信号を入れ、その値に合わせた充放電動作の変動を確認することとした。

- ・本試験の最大出力 50kW では、系統周波数を変動させるほどの影響力がないこと
- ・システム構成上、周波数変動に対応できる応動速度がないこと

動作条件としては、事前に測定した系統周波数の変動を模擬した周波数設定値の変動パターン(図 2.1.21)を作成し、そのパターンに応じた充放電動作を行う。周波数変動パターンは 3s 周期で値を変えるものとし、式(2.1.1)を用いて出力電力を周波数で制御することとする。

$$P = \alpha \times \Delta f + \beta$$
  $\sharp (2.1.1)$ 

P: 電力設定値、 $\Delta f:$  周波数設定値 – 現在周波数値

 $\alpha$ 、 $\beta$ :制御用パラメータ

本実証試験では、0.1Hz の周波数変動に対して、10kW の出力を行うようにパラメータの設定を行った。

図 2.1.22 に測定結果を示す。試験結果から、読込んだ周波数パターンに応じて(指令電力に合わせて)、周波数が下がれば放電動作、周波数が上がれば充電動作を行うことが確認できた。

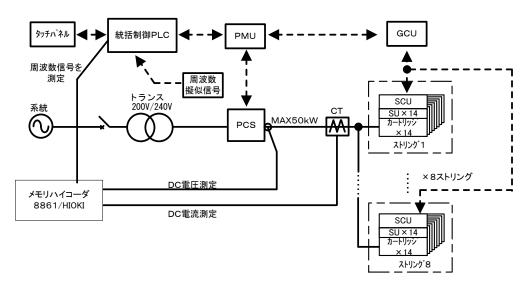


図 2.1.20 周波数変動試験測定回路

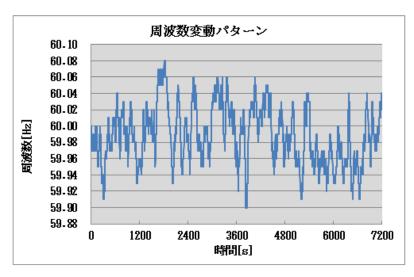


図 2.1.21 周波数変動パターン

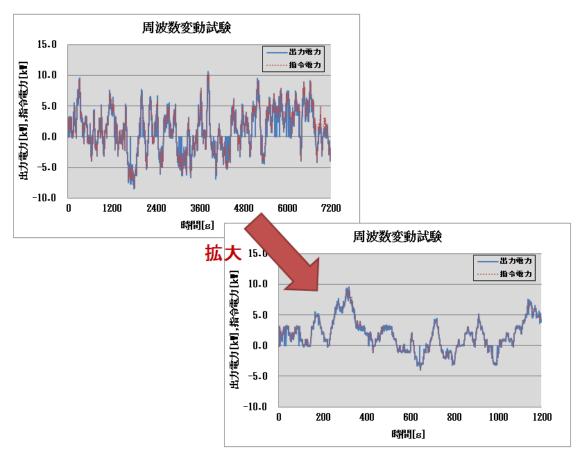


図 2.1.22 周波数変動試験測定波形

# 2.1.3.6. Sweep 機能比較試験

図 2.1.23 の測定回路で試験を行った。また、表 2.1.2 のストリング 6 のカートリッジランク構成を変更したため表 2.1.4 に示す。試験結果を表 2.1.5、図 2.1.24、図 2.1.25 に示す。充電及び放電において Sweep 機能ありの場合、Sweep 機能なしの場合に比べて動作時間が長くなる傾向が見られ、劣化状態にバラツキのある電池を効率的に充放電できることを確認した。

なお、Sweep機能なしの場合、ランクの低いカートリッジが含まれると動作時間が短くなっている。Sweep機能がないと、ランクの低いカートリッジが他のカートリッジより先に上下限判定値に到達し、動作停止したと考えられる。

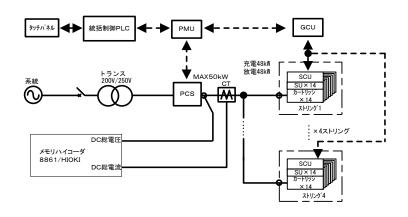


図2.1.23 Sweep機能比較試験測定回路

表 2.1.4 変更したカートリッジランク構成

ストリング No	ランクごと使用数量[個]						カートリッジ配置内容	
ストリンク No	A	В	С	D	Е	F	G	カートリツン配直内谷
ストリング 6	-	-	3	11	-	-	-	中ランクのカートリッジを集めたパターン

表 2.1.5 Sweep 機能比較試験 試験結果一覧表

	衣 Z.1.3 Sweep 機能比較內缺 內歇和木 見衣						
211111		Sweep 杉	幾能あり	Sweep 核	幾能なし	Δ時間[sec]	
ストリング	回数	動作時	間[sec]	動作時	間[sec]	(Sweep 機能あり-なし)	
No		充電	放電	充電	放電	充電	放電
っしけいが	1	193	143	134	95	59	48
ストリング	2	198	164	131	105	67	59
1	3	223	183	137	112	86	71
ストリング	1	140	101	93	75	47	26
2	2	142	115	98	82	44	33
2	3	154	128	100	84	54	44
ストリング	1	299	212	221	165	78	47
3	2	287	232	218	179	69	53
3	3	321	265	220	185	101	80
っし 川 いんが	1	346	252	261	205	85	47
ストリング	2	357	291	269	223	88	68
4	3	407	334	279	233	128	101
ストリング	1	394	299	266	208	128	91
5	2	410	339	263	220	147	119
3	3	478	389	286	241	192	148
ストリング	1	199	150	150	118	49	32
	2	203	165	155	128	48	37
6	3	220	180	169	141	51	39
ストリング	1	231	164	124	93	107	71
	2	234	190	123	103	111	87
7	3	262	215	133	111	129	104
ストリング	1	261	187	181	144	80	43
	2	267	216	194	160	73	56
8	3	288	238	200	169	88	69

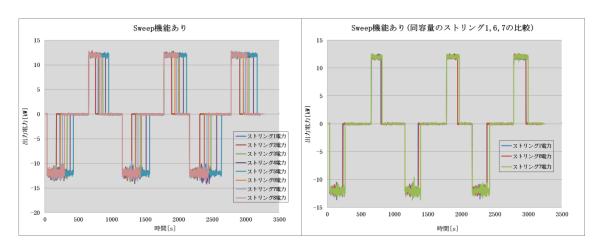


図 2.1.24 Sweep 機能ありでの測定波形

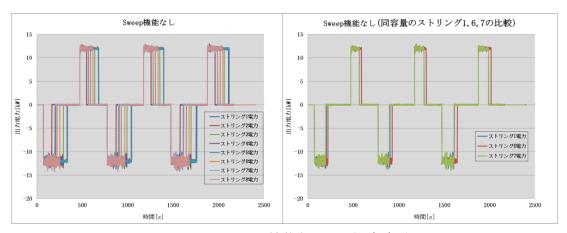


図 2.1.25 Sweep 機能なしでの測定波形

### 2.1.3.7. 試験結果のまとめ

本実証試験の結果から見えた今後の課題について表 2.1.6 に示す。

まず、本実証試験において、小規模の電池リユース設備システムを構築しその基本動作について確認することができた。

PCS の応動速度として、現状のシステムでの最善の応動速度は実現できたが、 $1s\sim2s$  となっており周波数変動抑制制御に対応するためには、更なる応動速度の改善が必要となる。改善案としては、現状は PMU-GCU 間の通信応答速度が 1s となっているため、PMU と GCU を統合することでこの通信時間の削減を今後検討する。

充放電繰り返し試験、短周期応動試験、組合せ試験を行い充放電動作が可能であることが確認できた。しかし、充放電するにあたって、使用電力の調整が必要であったため、電池に対する使用可能電力、使用温度範囲については更なる検証が必要となる。また、充放電の出力差を固定の補正値で調整することは困難であるため、充電過多/放電過多防止のためにはシステム側で電池状態を見ながらの補充電/放電機能の検討が必要となる。

また、容量ランクの低いカートリッジの温度が上昇する傾向にあることが確認できた。 周波数変動については、読込んだ周波数パターンに応じて(指令電力に合わせて)、周波 数が下がれば放電動作、周波数が上がれば充電動作を行うことが確認できた。

Sweep機能ありの場合の方が Sweep機能なしの場合に比べて動作時間が長くなっており、ストリング内でカートリッジ容量を有効に使用できることが確認できた。

表2.1.6 本実証試験の結果から見えた今後の課題

## 今後の課題

- ・システムとしての応動速度の改善
- ・電池使用条件の検討(電力、時間、温度など)
- ・補充電/放電機能の検討

### 2.1.4. 考察および今後の展開

本実証事業を通じて、将来的な電力系統の課題解決のための活用を想定した場合、今回開発したリユース設備が問題なく機能することが確認できたとともに、大規模システム化に向けた技術的な課題解決を図ることができ、最適なリユース電池設備構成とすることができた。また、Sweep機能の開発および検証により、劣化状態にバラツキのあるリユース電池の制御技術を確立した。

事業化の蓋然性を高めるため、本設備化に向けたリユース電池による蓄電システムの更なるコストダウンの深掘りが必要であると考えられる。コストダウンに向けては、コストの大半を占めることになる主要機器の台数を減らす事が最も効果があると考えられるため、引き続き検討していく。

### 2.2. ニッケル水素電池リサイクル事業

#### 2.2.1. 背景

昨今のハイブリッド自動車や電気自動車等の電動車の普及により、近い将来に大量の電動車の電池の発生が見込まれる。現状、これらの電池をリサイクルする手法としては、容易に内部に蓄積したエネルギーを無害化するため、専ら焼却処理後、有価金属を製錬抽出する手法が施されている。一方で、近い将来の電池の大量発生に備え、リサイクル技術の更なる高効率化が必要であると同時に、CO2 削減の観点から、焼却を伴わないリサイクルプロセスの確立が必要である。

ハイブリッド車等に搭載されている電池にはニッケル水素電池とリチウムイオン電池があるが、至近では使用済みニッケル水素電池が大量に発生することが見込まれることから、今回のリサイクル対象とした。電池の写真を図 2.2.1、主要仕様を表 2.2.1 に示す。ニッケル水素電池は 6 つの電極部 (セル)で構成されており、そのセル同士を接続するための集電部がそれぞれの間、及び両端にある構造となっている。

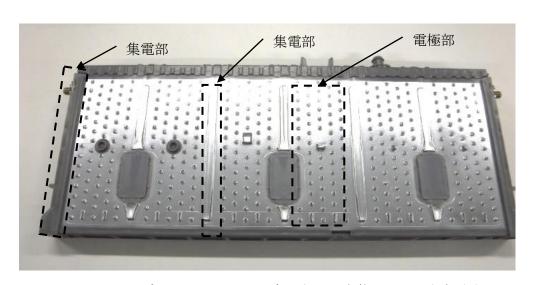


図 2.2.1 今回のリサイクル対象となった車載ニッケル水素電池

Д 2.2.1	
品名	電池モジュール NP2
公称電圧	7.2 V
公称容量	6.5 Ah
出力	1350 W
エネルギー密度	46 Wh/kg
質量	1040 g
外形寸法	19.6(W)×106(H)×285(L) mm

表 2.2.1 今回のリサイクル対象ニッケル水素電池

この電池を焼却せずにリサイクルするプロセスフローを考案した。その概略を図 2.2.2 に示す。電池を放電により無害化し、切断することで集電部を回収する。次に、電極部を水槽に投入し比重の軽い樹脂ケースを回収するとともに、電極部材等を水流で洗浄分解することで活物質を電極表面から分離回収する。さらに洗浄を継続することで、セパレーターに付着した活物質を回収するともに、活物質の剥離によりセパレーター比重が軽くなるため、浮力を活用して回収する。最後に、正極(ニッケル)および負極(鉄)は磁性の違いにより分別回収する方法である。

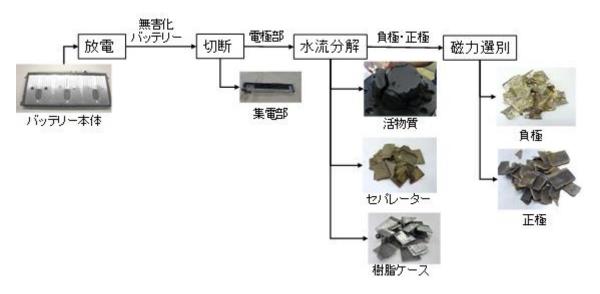


図 2.2.2 焼却を伴わない電池リサイクルプロセスフロー

各工程におけるラボテストでは実現可能であることは確認済みであるが、商業化にあたっての実現性を検証するためには、本リサイクルプロセス要素(放電、切断、水流分解、ろ過、及び脱水後の磁力選別)における実証設備を設計し、実証試験を実施する必要がある。また、本プロセスで回収する正負極活物質の混合物は、微細な金属粒子であることから、その安全性及び安全な取扱方法を調査する必要がある。

#### 2.2.2. 目的

焼却を伴わない電池のリサイクルプロセスについて、実証設備の設計を行うとともに、動作検証も実施する。また、実証設備で回収した活物質の安全性評価も実施する。

### 2.2.3. 結果と考察

### 2.2.3.1. 放電装置の設計

電池を無害化するための放電方法の検討を行った。電池を放電する装置としては、一般的に電子負荷装置による放電が知られており、電界効果トランジスタ(Field effect transistor:

FET)などの直流増幅機能を使って流れる電流(放電電流)を制御する装置である。定電流 放電が可能というメリットがある一方、電子負荷装置を駆動させるための電源が必要とい うデメリットがある。

一方で、本実証試験で採用した方法は、電源を使用せずに放電する方法であり、抵抗を介して放電する方法である(図 2.2.3)。その抵抗には、不燃性で耐熱性、耐電圧性に優れ、放熱性にも優れたメタルクラッド抵抗(放電電流 1A で設計)を採用した。また、万が一の過電流を防止するため、リセッタブルヒューズ( $40^{\circ}$ C 1A で設計)を設置した。さらに、電池の放電が正常に開始することを目視で確認するため、通電チェック LED も組み込んだ。

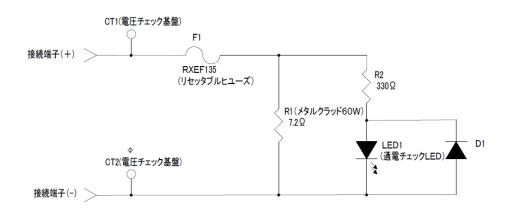


図 2.2.3 電源不要な放電回路

抵抗を介した放電手法を踏まえ、高効率かつ省人化が可能となる放電システムを設計した。その概略図を図 2.2.4 に示す。図中の左下で作業員が電池に放電装置をセットし、それをコンベア上で搬送物を一時的に貯めるとともに必要量だけを切り出すことができるコンベア(以下、「アキュームコンベア」と記す。)上にあるトレーに乗せる。そして、アキュームコンベア上で放電をしながらロボットのより設置されている場所まで運ばれる。一定時間経過後、ロボットによって放電完了を確認し、放電が完了した電池のみ、そのトレー上にある放電装置を外した後、電池のみを取出して次工程へ排出するシステムである。その後、取り外した放電装置はもう一度トレーへ戻し、アキュームコンベアで所定の場所に戻す設計とした。また、放電が未完了の電池が検出された場合は、そのまま電池と放電装置はトレーに残して所定の場所まで戻す設計とした。これによって、作業員は定位置での作業を可能とした。

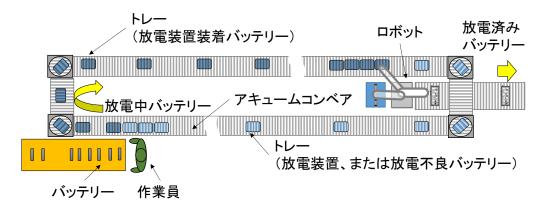


図 2.2.4 省人力化を図った放電装置を運用するシステム

本設計において、放電装置とトレーの数、およびアキュームコンベアの長さを調整することでバッテリーの同時並行処理が可能であることから、放電工程の処理能力はロボットの放電完了確認から排出までの時間に依存する。そこで、電池の放電後の取出を自動化する設計を実施した。ロボット動作の概略(ジェネラルフローチャート)を図 2.2.5 に示す。初めに、放電装置が装着された 10 モジュールの電池がトレーに搭載された状態の物を定位置に固定する。次に、ロボットが電池の残電圧をチェックする。放電が未完了である判断した場合は次の電池の残電圧をチェックする作業へ移行するが、放電完了と判断した場合は、電池から放電装置を取外し、所定の場所に仮置きする。そして、放電装置が取り外された電池を所定の位置へ排出する。その後、仮置きした放電装置をピックアップして、電池が無くなったトレーの空きスペースに放電装置を戻す。この作業を電池 10 モジュール(1 トレー)分が終わるまで繰り返し、1 トレー分が完了する。

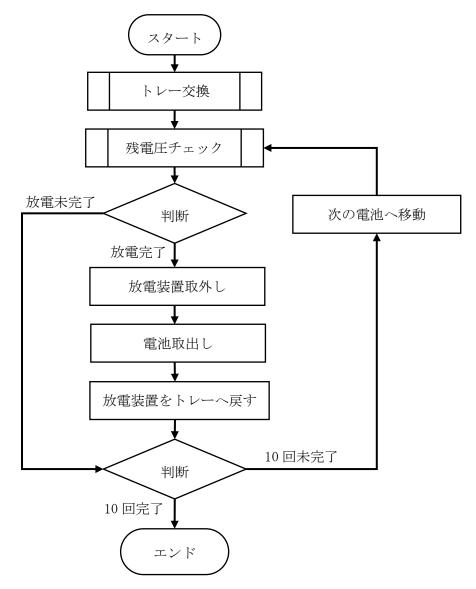


図 2.2.5 1トレーのロボット作業のジェネラルフローチャート

### 2.2.3.2. 放電の実証試験

今回設計した放電システムの検証を実施するにあたって、電装置、トレー、アキュームコンベア、及びロボットを試作した(図 2.2.6)。実際のプラントにはアキュームコンベアは放電に必要な時間分の長さが必要になるが、今回は実証試験であるため、ロボットの動作に影響する長さ(2 m)とした。



図 2.2.6 試作した放電装置と自動取出装置

今回設計して試作した放電装置による電池の放電試験を実施した。今回の最大想定残量 (4.6 Ah 程度) の電池を放電させた場合における放電経過時間と電圧の関係を図 2.2.7 に示す。ただし、放電時の周囲環境は真夏時のエアコン無し(換気あり)の室内を想定して 40℃ とした。また、放電に伴いメタルクラッド抵抗が発熱することから、放電装置中央付近に設置してあるリセッタブルヒューズへの影響についても確認するため、放電装置中央部の表面温度も測定した。

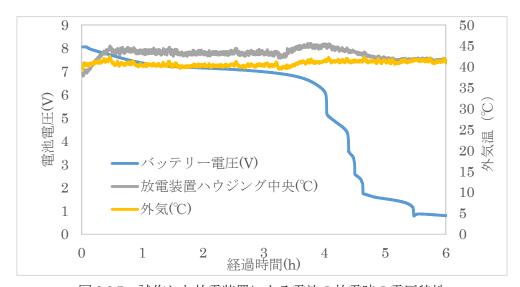


図 2.2.7 試作した放電装置による電池の放電時の電圧特性

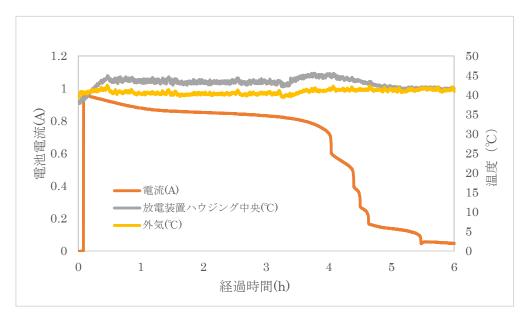


図 2.2.8 試作した放電装置による電池の放電時の電流特性

図 2.2.7 に示すとおり、放電開始当初 8 V あった電圧は約 1 時間で 7 V 程度となり、その後電圧はゆるやかに減少した。約 4 時間後に 6 V から 5 V に急激に降下し、その後 5 段階(最初の急降下と合わせて 6 段階)電圧が降下し、その後は 1 V 以下で一定となった。その間の放電装置ハウジングの最大温度は 45.6 C であり、外気温から 5 C 程度上昇した。一方、放電電流は図 2.2.8 に示すように、放電開始直後は約 1 A であったが、その後電池電圧の降下に伴い放電電流も緩やかに低下し、約 5.5 時間後に 6 段階目の放電電圧降下を終え、その後は 0.05 A 程度の微弱の放電で安定した。

放電中の電池の状態について、放電電圧と放電電流の相関関係から確認を実施した。結果を図 2.2.9 に示す。電池電圧に対する放電電流は比例関係であることが確認できた。これは、放電装置が周囲の温度影響等を受けずに、常に一定の負荷で放電できていることを示している。 したがって、本実証試験により、放電装置は  $40^{\circ}$ C環境下においても 4.6 Ah 程度の残量を持つ電池を問題なく放電できることが確認できた。なお、電池が無害化される電圧は 6 V 程度以下であることから、今回の放電装置を使えば約 4 時間で放電が完了することになる。

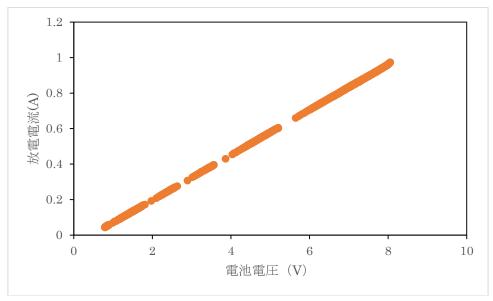


図 2.2.9 試作した放電装置による電池放電時の電圧電流特性

放電が完了した電池の自動判別および取出す時間を確認し、その結果を表 2.2.2 に示す。 なお、放電未完了電池が存在すると作業時間を過小評価してしまうため、正常に放電完了し た電池のみ対象とした。

表 2.2.2 自動で放電完了確認及び取り出しに要する時間

順番	自動作業内容	所要時間(s)
1	トレーの受け取りから固定まで	11
2	電池 10 モジュールの放電完了確認及び	200
	取り出し完了まで**	300

※10 個全でが正常に放電完了状態

トレーの受け取りから固定までに11秒程度、電池10モジュールの放電チェック、放電装置取外しと仮置き、電池の取出し、および放電装置へ戻すまでの時間は300秒程度であり、電池1モジュール当たりの処理時間は約31秒であった。

### 2.2.3.3. 切断方法の検討

電池の無害化(放電)完了後のプロセスとして、切断手法の検討を実施した。電池切断の目的としては、電池を後段の水流分解プロセスにかける電極部と水流分解にかけない集電部(図 2.2.10)を切り離すとともに、集電部を回収することである。

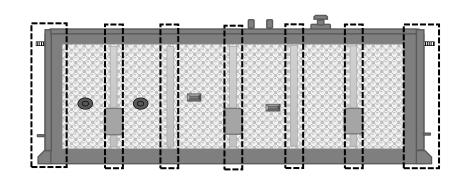


図 2.2.10 電池の集電部の位置(破線枠内)

- 一般的な切断方法としては、大きく以下の3種類に分類される。
- ①物体の一部を削ることで切り離す方法(丸鋸、ウォーターカッター等)
- ②物体の一部を溶かしながら吹き飛ばすことで切り離す方法 (レーザーカット)
- ③物体に刃物等を圧力で挿入して分断する方法(平刃、プレス金型等)
- ①後段のプロセス(水流分解工程)に適合すること
- ②処理速度が 108 秒/モジュール以下であること

後段のプロセス(水流分解工程)への適合性を考慮しつつ、安全、迅速、安価に実現できる手法として、①の丸鋸、③の平刃とプレス金型の3種類を選定し、電池の切断に対して最適な仕様をそれぞれ検討した。

### 2.2.3.3.1. 丸鋸刃の仕様検討

丸鋸刃とは、円盤にチップソーが複数個溶接されたものであり、これを回転させることにより、切断対象物の一部を切削しながら分離することが可能であるが、切粉が発生する方法である。

電池を切削するための丸鋸刃の性能を大きく作用する設計要因は大きく 3 つあり、①母材となる円盤の外径、②チップソーの枚数、及び③チップソーの形状である。まず、円盤の外径は小さければ小さいほど回転時の刃のブレが抑えられるため安定した切削が可能であるが、外径が小さくなるためにディスク 1 枚当たりの刃数が減ってしまうだけでなく、1 枚のチップソーにおける単位時間当たりの切削回数が増えてしまうことでチップソーが高温になってしまうため、耐久性が悪くなるという問題がある。そこで、本実証試験では、一般的に流通している大きさである  $\phi$  190 mm を選定した。

一方で、チップソーの種類については、今回はトリプル刃を採用した(図 2.2.11)。トリプル刃とは、台形の刃の先端部で切削対象物を削り始めることで切れ目を作り、次にストレー

ト刃の両側面面で切れ目を広げることで、切削性を良くする仕組みである。この方法は直進安定性に優れており、金属や厚みのある切削対象物に多く採用されている方法であることから、今回の電池に適した仕様であると考えた。チップソーに使う刃の材質については、一般的に硬い方が寿命を長くできるため、一般的な刃物でよく使われている超硬材(K-30 ロックウェル硬さ HRC で 75 程度以上)を選定した。

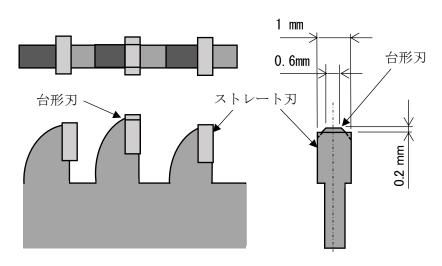


図 2.2.11 トリプル刃のイメージ

#### 2.2.3.3.2. 平刃の仕様検討

平刃は、刃の材質の板材を刃の形状に加工した後、焼入れし研磨した刃であり、切断対象物の一部を破断しながら分離することが可能であり、切粉は発生しない。

本実証試験の対象とした平刃の形状は大きく3種類であり、鋸刃、波刃、及びストレート 刃である(図 2.2.12)。鋸刃は尖らせた先端で電池を突き刺し、その後その刃を押し進める ことで切断点を一定の割合で広げながら破断していくことができる。波刃は鋸刃とほぼ同 様であるが、最初に突き刺す部分が無いことから、切断面が鋸刃より滑らかになることが期 待される。ストレート刃は刃が一直線であるため、電池に対して点ではなく線で当たりなが ら切断することになるが、電池に対して刃を斜めに当てながら破断することによって、鋸刃 と同じ様に切断点を一定の割合で広げながら破断できる。

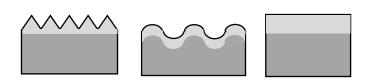


図 2.2.12 平刃のイメージ(左から鋸刃、波刃、ストレート刃)

一方で、刃先の種類については、刃先の形状(片刃、両刃)と鎬の形状(片鎬、両鎬)の組み合わせで4種類の形状がある。これらの組み合わせで刃の種類は最大12通りのパターンがあり、刃の厚みや角度を考慮すると大量のパターンが発生するが、今回は刃先の形状は刃の種類に合わせてそれぞれ適切だと思われる各1種類(鋸刃は両刃両鎬、波刃は両刃片鎬、両刃片鎬のストレート刃)に絞って検討した(図2.2.13)。

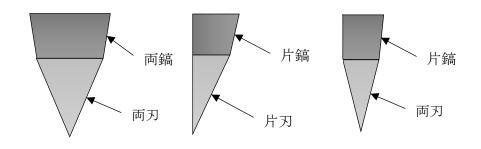


図 2.2.13 今回実証対象にした刃先の種類

#### 2.2.3.3.3. プレス金型の仕様検討

プレス金型は、プレス機械の上下運動を利用して電池から電極部を打ち抜く工具であり、その概略図を図 2.2.14 に示す。具体的には、パンチ部をプレス機のスライド (上下に稼動する部分) にセットし、ストリッパーとダイプレートをプレス機のボルスター (固定テーブル) にセットして、プレス機の上下運動を利用して電池の電極部のみを打ち抜いて下に落とす工具である。これは平刃と同様に切粉は発生しない。

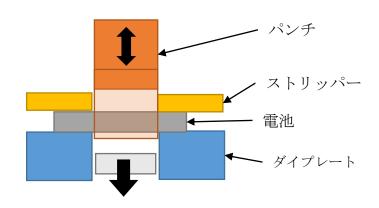


図 2.2.14 プレス金型のイメージ図

### 2.2.3.4. 切断方法の実証試験

#### 2.2.3.4.1. 丸鋸刃の実証試験

電池を丸鋸刃で切断した様子を図 2.2.15 に示す。切断に要した時間は 5 秒間であった。 切断面はきれいであったが、切断した樹脂部分に若干のバリが発生したとともに、切粉も大量に発生した。また、切断を繰り返し実施した結果、800 ストローク(約 53 モジュール分)の切断でチップソーが 3 個欠損した。切断能力に影響はなかったが、このペースで刃の欠損が発生した場合、丸鋸刃を頻繁に交換する必要があるため、チップソーの溶接固定方法の見直し等が必要である。また、切粉を減らすため、円盤を薄くする工夫も必要であるが、これは丸鋸のブレを発生させる要因につながる。



図 2.2.15 丸鋸刃で切断した後の電池の様子

この手法を用いて、電池を水流分解に適合させるための切断箇所を検討した。結果を図2.2.16に示す。電池の集電部には鉄心があるため、この部分を避けるために、集電部と電極部を切断する(図2.2.16の赤線)。次に、容易に水流分解するために、電極部の中央(図2.2.16の青線の①)を切断する方法である。しかし、この方法での水流分解では、樹脂ケースに電池が挟まり、分解不可となった(図2.2.17)。そこで、電池電極部の上下(図2.2.16の青線②)も切断して水流分解を実施した結果、電極部が分解しため、この切断箇所が必要であることが判明した。なお、水流分解時には樹脂の切粉が大量に水中に浮遊したため、活物質との分別回収が困難になることもわかった。

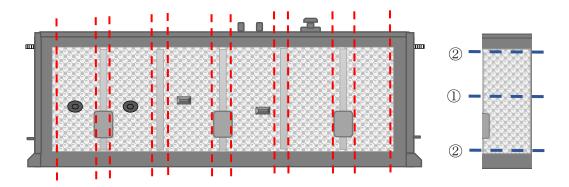


図 2.2.16 電池の切断箇所 (左図が最初の切断、右図が電極部の切断)



図 2.2.17 電極部中央のみを切断した場合の水流分解後の様子

以上の結果から、丸鋸による電池の切断は可能ではあるが、刃の欠損(耐久性)、切粉による活物質回収への影響という大きな 2 つの課題があることが分かり、実用化には向かないことがわかった。

### 2.2.3.4.2. 平刃の実証試験

電池を鋸刃、波刃、ストレート刃での切断を試みた。結果を図 2.2.18 に示す。ただし、切断速度は全て 41 mm/s とし、切断後、切断対象物(電池)の底面に対して刃を 10 mm 出す設定とした。また、ストレート刃については電池に対して 3 の傾斜をつけた状態で切断した。

いずれの刃についても切断は可能であったが、鋸刃による切断面には缶切りで切ったような突起があり、波刃による切断面には鋸刃のような突起までには至らないが、凹凸が表れた。一方、ストレート刃については鋸刃、波刃と異なり、凹凸もないきれいな切断面であっ

た。

これらの部材を水流分解にかけたところ、丸鋸と同様の手順で切断箇所を検討したが、結果も同様で、電池の高さ方向で3箇所の切断が必要であった(図2.2.16)。また、電池の高さ方向で3箇所切断した電極部について水流分解を実施した結果、鋸刃と波刃については電極部の分解能(正極、負極、活物質、セパレーター、及び樹脂ケースに分解されること)が低かった。この原因は切断面に現れた突起や凹凸が水流分解中に悪影響を及ぼしたためであると推察する。一方、ストレート刃で切断した電極部を水流分解した結果については、良好に分解が可能であった。これらの結果を表2.2.3にまとめる。



図 2.2.18 鋸刃 (上)、波刃 (中)、ストレート刃 (下) で切断した様子

表 2.2.3 検討した平刃の種類

刃の種類	刃厚	刃の傾斜	評価	
鋸刃	3mm	_	切断は良好だが、水流分解への適応性が懸念	
波刃	3mm	_	切断は良好だが、水流分解への適応性が懸念	
ストレート	2mm	3 °	切断は良好で、水流分解も比較的良好	

これらの結果を踏まえ、切断刃を用いた切断装置のシステムを検討した(図 2.2.19)。このシステムは、プレス機が 2 台必要であること、電池や電池切断後のセルを持ち替える煩雑な作業が多数発生する等のデメリットが挙げられる。以上の結果から、平刃(ストレート)による電池の切断は可能ではあるが、プレス機が 2 台必要になるだけでなく、自動化にあたっては多数のアクチュエータが必要になり、高コストになるという課題があることがわかった。

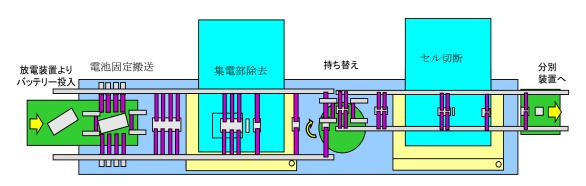


図 2.2.19 プレス刃による切断装置のシステム図

# 2.2.3.4.3. プレス金型の実証試験

電池の集電部を避け、電極部だけを打ち抜くための金型を設計した。プレス金型では電極部を取り除くことになるため、前述の丸鋸やプレス平刃とは設計思想が異なる。具体的には、丸鋸やプレス平刃の場合には電極部が樹脂ケースに挟まり(図 2.2.18)、電池高さ方向に 3 箇所の切断が必要であったが、プレス金型では図 2.2.20 に示すように電極部のみの打ち抜きが可能なため、打ち抜き後の電極部が樹脂ケースに挟まる懸念はない。装置の簡略化、工程の簡略化を図るために、電池の電極部を1回で打ち抜く設計とした。

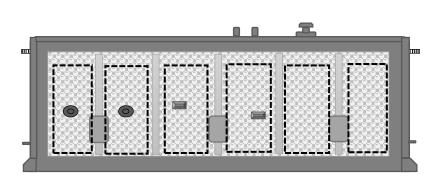


図 2.2.20 電池の電極部の位置(破線枠内)

上述の設計思想に基づいて設計した金型の写真を図 2.2.21、打ち抜き後の電極部の写真を図 2.2.22、打ち抜き後の集電部の写真を図 2.2.23 に示す。ただし、金型の送り速度は 50 mm/s に設定し、打ち抜き後、金型が切断対象物(電池)の底面に対して 4~5 mm 突き出る設定

にした。

プレス金型の特性上、切断後に電極部は打ち抜き方向に落下するため、丸鋸刃や平刃のように電極部の切断面を確認することは困難であったが、切断後の樹脂容器、セパレーター、正極、及び負極は前述の平刃のストレートと同様な状態あった。また、図 2.2.23 に示すように、電池の電極部全面をプレスで加圧しながら打ち抜くため、切断線を加圧する平刃の場合と比較して、電解液が多く排出された。また、このプレス金型で打ち抜いた電極を水流分解した結果、良好に分解することができた。



図 2.2.21 電池の電極部を 6 箇所同時抜きするための金型

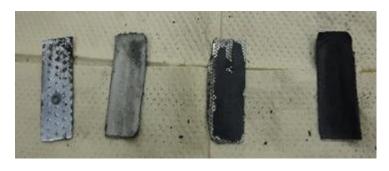


図 2.2.22 プレス金型で打ち抜いた電極部



図 2.2.23 プレス金型で打ち抜いた後の集電部を含むフレーム

前述の結果を踏まえ、プレス金型を用いた自動切断装置のシステムを検討した(図 2.2.24)。 放電装置によって無害化された電池をロボットがピックアップし、プレス機で打ち抜き、打ち抜かれた集電部を含むフレームを別容器に回収する。一方、打ち抜かれた電極部は下の容器に落下して水流分解装置へ送り出されるシステムとした。なお、安全対策の観点から、電池切断中には電池と金型周囲に水を供給することとし、切断後の電極部についても水中容器内に落下させるシステムとした。

このシステムにおいて電池を電極部と集電部に分ける処理能力は、電池をセットする時間、電池の電極部をプレス抜きする時間、及び抜いた後の集電部を含むフレームを取り除く時間に依存する。本実証試験結果より、電池をロボットが掴み金型に設置する時間を 10 秒、プレス抜きする時間を 10 秒、その後の抜け殻を抜き取る時間を 10 秒と想定すると、1 つの電池が電極束に分解されるまでの時間は 30 秒程度となることが見込める。

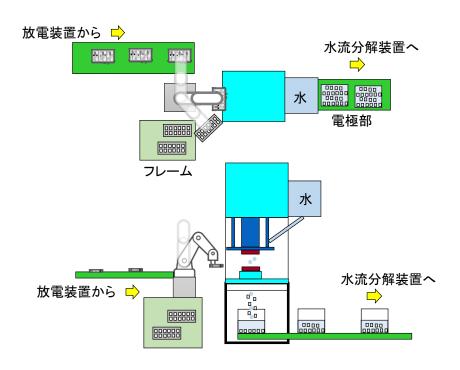


図 2.2.24 プレス金型による切断装置のシステム図

以上の結果から、プレス金型を使った電池の切断は有用であり、使用する主要な設備もプレス機とロボットの各 1 台だけと低コストで、処理速度も他の切断装置に比べて最も早いことから、本手法を用いることが最も合理的であることがわかった。

# 2.2.3.5. 水流分解装置と活物質回収装置の設計

電池の切断(集電部の回収)が完了した後、電極部の水流分解プロセスに移行する。電極部の水流分解の目的としては、①積層された電極部を各素材(樹脂ケース、正極、負極、活物質、セパレーター)に分解する、②水流分解中に樹脂ケースとセパレーターを分別回収する、③水流分解によって分解された活物質を分別回収することである。

上記目的を満足する水流分解プロセスを設計した。設計した概略図を図 2.2.25 に示す。 切断プロセスにて水没された電極部がそのまま水流分解装置に投入される。この時、投入された電極部の樹脂ケースは比重が軽いため、水流でオーバーフローさせることによって電極部から分離される樹脂ケースを回収する。樹脂ケース回収後、分離された電極部を次槽へ移し、水流等で分解すると同時に、電極に塗布された活物質とセパレーターに付着した活物質を洗浄し分離する。また、セパレーターは比重差によって浮上してくるので、それを樹脂ケースと同様にオーバーフローで回収する。なお、洗浄中に分離された活物質はろ過機によってろ過することで活物質を回収し、ろ過水は硫酸によって中和した後に再利用するプロセスとした。

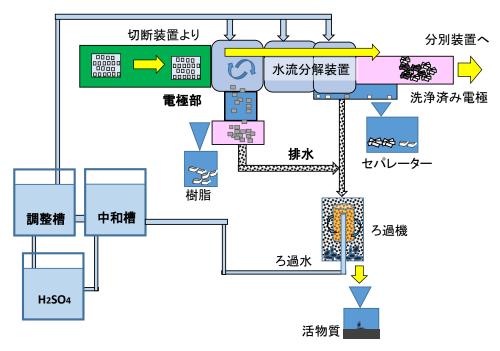


図 2.2.25 考案した水流分解装置と活物質回収装置

## 2.2.3.6. 水流分解装置と活物質回収装置の実証試験

切断方法の検討において、①の「束になった電極部を各素材(樹脂ケース、正極、負極、活物質、セパレーター)に分解する」については検証済みであるため、②水流分解の洗浄能力(主に負極に付着している活物質の分離)、③オーバーフローによる樹脂ケースとセパレーターの回収能力、④ろ過機等による活物質の回収能力について検証した。

まず、②水流分解の洗浄能力(主に負極に付着している活物質の分離)について検証した。 水流分解の洗浄時間を 5 分ずつ段階的に増加し、それぞれの負極活物質の付着量を目視で 確認した。15 分間洗浄した場合までは活物質が付着している負極が散見されたが、20 分間 洗浄した場合には活物質が付着した負極はほとんど見当たらなかった。

そこで、洗浄時間 20 分後の負極に付着した活物質の重量を測定することで、水流分解による負極活物質の剥離率を算出した。ただし、洗浄前に付着した活物質量については、他のプレス金型抜きした電池の電極部を測定した値とした。結果を図 2.2.26 に示す。洗浄後に負極に付着していた活物質量は 3%程度であった。これ以上の水流分解時間の延長は費用に対する効果が見込めないことから、水流分解における洗浄時間は 20 分間とした。

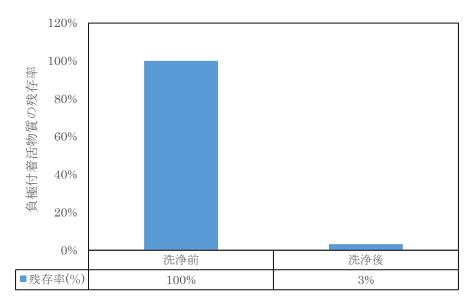


図 2.2.26 洗浄前後の負極活物質付着量

③樹脂ケースとセパレーターの回収能力を実機の試験によって確認した。結果を図 2.2.27 に示す。最初の 5 分間のオーバーフローでは約 90%の樹脂ケースが排出されるが、セパレーターは約 7%程度しか排出されなかった。その後 20 分間の洗浄を経て、25 分後から 5 分間オーバーフロー排出させたところ、樹脂ケースの回収率はほぼ 100%になり、セパレーターは約 56%に急増した。これは 20 分間の洗浄によってセパレーターに付着した活物質が分離されたことを示唆している。さらに 5 分間、10 分間とオーバーフロー排出することによって、合計約 95%のセパレーターを回収した。

当初の設計通り、最初の洗浄前の5分間では大半の樹脂ケースを回収することができ、セパレーターも最初の5分間と洗浄後の15分間をかければ95%以上の回収が可能であることが確認できた。したがって、オーバーフローによる樹脂ケースとセパレーターの回収には合計20分間の時間を要することがわかった。

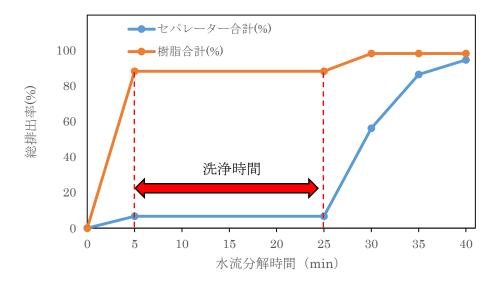


図 2.2.27 水流分解装置のオーバーフローによるセパレーター

最後に、④ろ過機による活物質の回収能力を確認した。電極部を洗浄した洗浄液をろ過した結果、ろ過後の洗浄液中の活物質がほぼ完全に除去できるを確認した(図 2.2.28)。したがって、洗浄液中の活物質はろ過により回収可能であることがわかった。



図 2.2.28 活物質を含む原液(左)とろ過水(右)

今回の電極部を洗浄した場合のろ液中に含まれる活物質濃度は 0.05 wt%程度であり、ろ 過機にかける濃度としては低濃度である。また、今回の活物質は沈降性が高いため、重力沈 降を利用することで濃縮することが可能であり、それによって装置台数を削減できる見込みがある。

上記を踏まえ、当初設計した水流分解装置と活物質回収装置のシステムを再検討した(図 2.2.29)。本システムでは排水を濃縮槽によって濃縮し、活物質を沈殿物回収槽で回収する。また、濃縮槽の上澄み液のみをろ過機にかけることで、ろ過機の台数を減らすことが可能である。

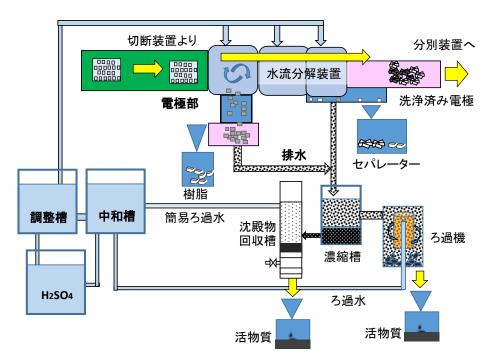


図 2.2.29 再検討した水流分解装置と活物質回収装置の組み合わせ

活物質の回収能力については今回未検証であるため論点から除外するが、前述の水流分解試験結果から、これらの装置の処理能力を推察した。水流分解装置は、樹脂回収工程に5分間、負極やセパレーターの活物質を洗い落とすための洗浄工程に20分間、及びセパレーターを回収する工程に15分間の時間を要する。しかしながら、これら3つの工程は同時並行作業が可能であるため、最も処理時間の長い洗浄工程の20分間がボトルネック工程となる。今回設計した水流分解装置1槽には電極部が5個分入る設計としているが、この設計条件とした場合、洗浄工程に3槽が必要になる。同様に考えると、樹脂回収工程は1槽、セパレーター回収工程は2槽が必要になり、合計6槽が最低必要個数であることがわかった。

6 槽仕様の装置イメージを図 2.2.30 に示す。この各槽の処理時間が同一かつ最短にするため、1 槽当たりの必要最低時間を算出したところ、1 槽目は 5 分間、2 から 4 槽目は約 6.7 分間、 $5\sim6$  槽目は 7.5 分間であったため、1 槽あたりの運転時間を 7.5 分とした。この結果を表 2.2.4 にまとめる。

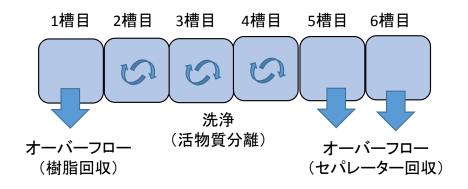


図 2.2.30 6 槽仕様の水流分解装置のイメージ

·						
槽 No.	1	2	3	4	5	6
単位滞留時間(min)	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5
合計(min)	7.5		22.5		15	5.0
必要滞留時間(min)	5.0		20.0		15	5.0

表 2.2.4 水流分解装置の洗浄時間等

この条件で運転した場合、電池 5 モジュール分を 7.5 分間で処理できることになるが、実際には各槽に移し変える時間が 0.5 分間程必要になるため、この装置の処理能力は 1.6 分/モジュール程度となることがわかった。

#### 2.2.3.7. 分別装置の設計

電池電極部の水流分解が完了後、電極部の正極および負極の分別回収を実施する。この分別回収の目的は負極および正極の回収率、およびその処理速度である。

分別装置を設計した概略図を図 2.2.31 に示す。水流分解装置によって分別された正極、負極、及び 5%程度のセパレーター等(以下、電極類と略す)は、まず脱水機によって脱水する。これは、含水状態である電極類の多数は、水の表面張力等の影響でそれぞれ密着状態となっており、分別回収性能に大きく影響するためである。脱水された電極類は脱水機の底面をゆっくり上昇させることによって、脱水機の上面から徐々に排出する仕組みとした。一方で、排出された電極類は重なった状態で排出される場合があるため、搬送コンベアによってその重なりをある程度解消して再度排出量を調整する。一部(2~3 枚程度)の電極類の重なりについては振動コンベア上で搬送させることにより、電極類を振動させながら磁性の違いを利用して負極のみを先に回収する。その後段で、磁性が比較的小さい正極は、磁力の強い磁石を近接させることにより回収する。正極および負極を分別回収後、磁石に反応しないセパレーター等をコンベアの終点位置にて回収するシステムである。

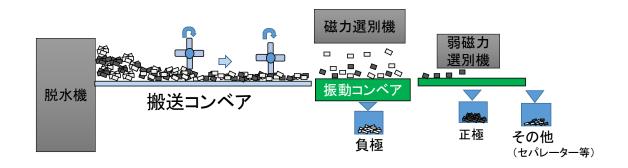


図 2.2.31 考案した分別装置

# 2.2.3.8. 分別方法の実証試験

本実証装置により電極類の分別回収試験を実施した。結果を表 2.2.5 に示す。最初に、5 モジュール分の電極類 1210gを投入し、650 rpm の速度で 2 分間脱水した。次に、脱水機の底面を 100 mm/s の速度で 0.5 秒間上昇させた後、3 秒間停止する動作を 5 回繰り返し、少量ずつ次工程の搬送コンベアへ排出させた。その後、搬送コンベアを 720 mm/s の速度で電極類を送りながら均し機構を逆回転させて電極類を均一化した。振動コンベアによって振幅幅 11 mm 程度で電極類を振動させながら 260 mm/s 程度の速度で搬送し、その上に設置した磁力選別機によって回収したところ、負極の全量回収(233g)することができたとともに、弱磁力選別機のコンベアを 170 mm/s の速度で搬送することで正極の全量回収(968g)することができた。ただし、この時に正極に絡まった一部のセパレーターは、弱磁力選別機によって誤回収された。

		投入量	磁力選別機	弱磁力選別機	通過回収	分別回収
		(g)	回収量 (g)	回収量 (g)	回収量 (g)	率 (%)
	正極	968	0	968	0	100
	負極	233	233	0	0	100
セノ	ペレーター	9	0	2	7	78
	合計	1,210	233	970	7	-

表 2.2.5 電極類の自動分別回収結果

今回、水流分解装置によって分解された電極類 5 モジュール分の電極類 1210 g の脱水から分別完了までに要した時間は 266 秒間であり、これを電池 1 モジュールあたりの処理に要する時間(処理能力)に換算すると、53.2 秒/モジュールであることが確認できたとともに、この装置の組み合わせにより、電極等の自動分別は実現可能だと考える。

本実証試験の一連のリサイクル行程における電池 1 モジュールの各素材のマテリアルバランスを図 2.2.32 に示す。切断工程ではフレーム (集電部等)、分別工程では電極活物質、セパレーター、樹脂ケースおよび電解液、分解工程では各極材およびセパレータ (少量)がそれぞれ回収され、素材毎の分別回収できる手法であることを確認した。各回収物の回収率については、合計 100wt%の回収率が実現できた。また、今回は焼却を伴わない手法であるため、酸化等の化学反応は発生せず、各回収物は電池構成時と同等の状態で回収できると想定されることから、従来型の手法と比較して回収物の選択性および純度が高く、素材としての高い価値が見出されると期待される。

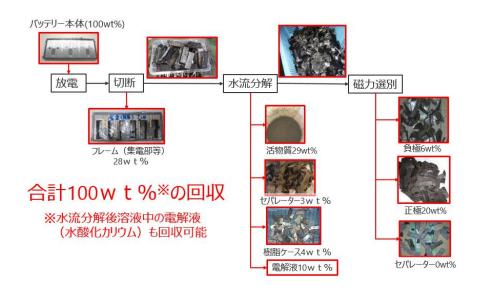


図 2.2.32 各プロセスにおける単位処理時間

## 2.2.3.9. 活物質の安全性評価

電池中に含まれる微細な金属粒子の取扱上の安全性を評価した。一般的に、金属粒子の危険性は、着火性の有無、粉塵爆発性の有無、自然発火性の有無の3点で評価されている。

活物質の着火性については、一般的な手法である BAM 着火試験を実施した。BAM 着火性試験は、①セリウム-鉄火花、②赤熱鉄棒、③導火線及び④小ガス炎の 4 種類の着火源により着火性を試験する手法である。

4種の試験のうち、着火源の大きさが最も小さい①と最も大きい④での着火性および着火 感度を確認した。結果を表 2.2.6、表 2.2.7 に示す。①の試験ではセリウム-鉄火花を 50 回吹 き付けた試験を、サンプルを変えて 5 回の試験を実施したが、着火性は確認されなかった。 一方で、小ガス炎法による試験では、5 つのサンプル全てが 6 秒以内に着火した。したがっ て、火花では着火しないが、6 秒間程の炎が接触すると引火する物質であることがわかった。

表 2.2.6 活物質のセリウム-鉄火花法による着火性試験

No.	判定 (火花拭き付け回数[回])
1	着火しない [50]
2	着火しない [50]
3	着火しない [50]
4	着火しない [50]
5	着火しない [50]

着火確立 0/5

表 2.2.7 活物質の小ガス炎法による着火性試験

No.	判定(炎接触時間[s])
1	着火する [6]
2	着火する [5]
3	着火する [4]
4	着火する [5]
5	着火する [6]

着火確立 5/5

粉塵爆発性について、粉塵爆発の下限界濃度測定試験で確認した。粉塵爆発の下限界濃度 測定試験は、容器内で粉体を圧縮空気により飛散させ、電気火花によってサンプルが着火す るか否かについて、粉塵濃度を段階的に上昇させながら、粉塵爆発の限界濃度を確認する試 験である。試験の結果を表 2.2.8 に示す。粉塵濃度を 100 から 2000 mg/m³ まで段階的に上げ て粉塵爆発性を確認し、最も高濃度である 2000 mg/m³ において 5 回の繰り返し試験を実施 したが、粉塵爆発は認められなかった。したがって、粉塵爆発の危険性は非常に低いことが 考えられる。

表 2.2.8 活物質の粉塵爆発下限界濃度測定試験

粉塵濃度(g/m³)	結果 (試験回数)
100	爆発しない (1)
200	爆発しない (1)
500	爆発しない (1)
1000	爆発しない (1)
2000	爆発しない (5)

活物質の自然発火性について、Systag 社製の恒温壁熱量計(RADEX)による熱安定性評価によって確認した。RADEX による熱安定性評価は、RADEX 中にサンプルを設置し、一定の割合で昇温させていく過程において、空気流通下と不活性ガス(窒素)流通下の2種類で昇温させた場合の温度変化を比較することで、酸素の有無において熱反応の生じ得る温度を確認する手法である。

電極活物質について実施した結果を図 2.2.33 に示す。図に示すように、窒素雰囲気よりも空気雰囲気の方が 100℃付近でより温度が上昇する傾向を確認した。したがって、100℃以上に上昇すると自然発火する可能性があることがわかった。100℃以上の環境下においては活物質を扱わないと想定されることから、通常の取扱いでは活物質の自然発火が発生しないと考えられる。

一方で、自然発火に至るまでのプロセスとしては、高温環境下にさらされるだけでなく、 わずかな化学反応等による発熱反応が自身の温度を上昇させ、そのスパイラルによって自 然発火に至るという場合がある。本プラントでは活物質を回収した後、ある程度の期間保管 する運用が想定される。特に、真夏に空調設備が無い倉庫に保管する場合、室内温度は 40℃ 程度になることが予想される。

そこで、このスパイラル反応が  $40^{\circ}$ C環境下で生じるか否かを確認するために、SIT (Spontaneous Ignition Tester:自然発火装置) 試験を実施した。SIT 試験は、サンプルを一定 温度環境下に 1 週間放置し、温度変化を測定して自然発火性の有無を確認する試験である。 今回は電極活物質を、 $40^{\circ}$ Cの環境下に 7 日間放置した。なお、実用化にあたっては  $40^{\circ}$ C以上の環境が昼夜間わず 7 日間連続になることは考えられないため、本試験は通常の運用と 比較して過酷な条件での試験である。

結果を図 2.2.34 に示す。図に示すように、7 日間放置した場合においても、活物質の外気との温度変化は認められなかった。したがって、40℃以下であれば、活物質の高温下での保管時における危険性は非常に低いといえる。一方で、トラック等によって搬送する場合は40℃を超えることも考えられるため、温度管理には十分注意が必要である。

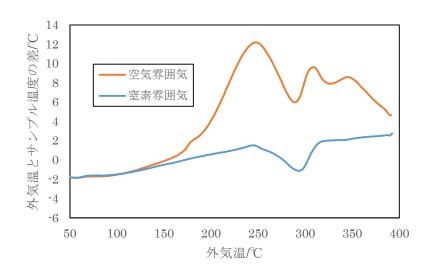


図 2.2.33 恒温壁熱量計 (RADEX) による熱安定性評価

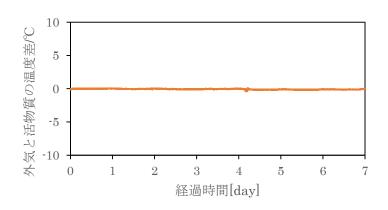


図 2.2.34 SIT 試験による熱安定性評価

# 2.2.4. 結論

本実証試験を通じて、焼却を伴わない電池リサイクル手法が実用化可能であることを検証することができた。また、全工程における最大処理能力は、分解装置の96秒/モジュールに律速することも検証することができた(図2.2.35)。メンテナンス等の設備停止による影響を考慮し、年間349日(24時間/日運転)稼動と仮定すると、処理可能なモジュール数は、314,100モジュールとなり、仮に28万モジュール(ニッケル水素電池1万台分)を処理する場合は、約311日必要であると算出できる。

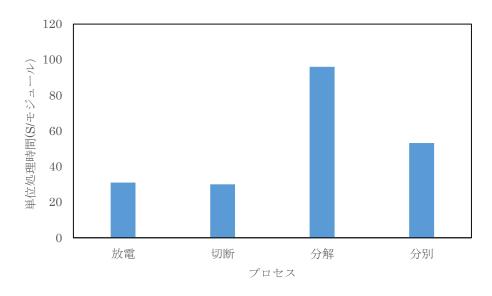


図 2.2.35 各プロセスにおける単位処理時間

電解液を含めた各物質を系外排出することはないため、基本的に 100%の回収が可能である。今後、これら回収した材料を有効に活用することが重要である。

一方で、マテリアルバランス観点から、正極への若干量のセパレーター混入や回収精度、 負極の活物質除去が不十分であること等については課題が残るが、今後実用化に向けた詳 細設計の中で課題解決が可能であると見込む。

活物質については、粉塵爆発性および自然発火性はないが、引火性物質であるため、取扱エリアや保管エリアでは火気厳禁とする配慮が必要である。また、40℃以下の長期保管等では発火性が無いことを確認できたが、真夏の日中にトラック等で輸送する場合は 40℃を超える可能性がある。そのため、40℃以下になるような温度管理か、含水または水没させる等した安全対策も考慮する必要がある。

#### 2.3. リチウムイオン電池リサイクル事業

#### 2.3.1. 背景と目的

本実証事業は、水流分別法によるリチウムイオン電池からの有価物回収の可能性評価を 目的とする。これまで研究、実証が進められてきた多くのリチウムイオン電池を対象とした リサイクル技術は、加熱処理を行うことが一般的であった。このうち、焼却処理の場合は、 電池焼却物から篩分により分離された有価金属を多く含む材料は、抽出/逆抽出や電解精錬 により構成される湿式精錬により処理され、銅、ニッケル、コバルトとして回収される。溶 融処理の場合は、電池は合金とスラグに分離され、有価金属を多く含むスラグからは湿式精 錬により有価金属を回収する。これらの手法では、加熱処理の際に生じる材料物性の変化に より、回収物に不純物が含まれることになり、結果的に精錬の際の手間とコストが増大する 問題があった。

水流分別法は、現在の車載用蓄電池の主流であるニッケル水素電池を対象として、焼却によらないリサイクルプロセスの要素技術として有望視されている技術であり、水流により樹脂、金属電極、活物質を簡便に分別回収することが可能である。また、本法で回収した材料は、電池を構成していた状態から変化していないことから、後段の精錬工程における不純物除去工程の簡素化が期待できる。

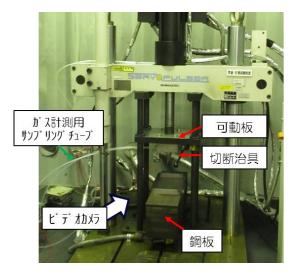
そこで、本研究ではリチウムイオン電池を対象とした場合の水流分別法の適用可能性を評価する。ニッケル水素電池での事例と同様、前処理としての解体を要すると想定されるが、リチウムイオン電池は可燃性の電解液や水と接触することで腐食性ガスを生じる電解質塩が使用されていることを前提として、解体時のリスクの評価、電解液と電解質塩の有効な除去技術等についても検討を行った。

#### 2.3.2. 車載用リチウムイオン電池の解体時リスクの評価

リチウムイオン電池を安全に解体するためには、十分に放電することで内部に貯蔵したエネルギーを減じ、解体時の発火などのリスクを低減ことが不可欠である。本研究では高容量の車載用電池(25Ah、トヨタプリウス PHV)を対象とするが、当該電池を物理的に解体した事例が報告されていない。そこで、充電された状態での切断を試行することで、当該電池の解体に際してのリスクを評価した。

### 2.3.2.1. 方法と材料

リチウムイオン電池の切断には、切断刃物を装着した飛散防止隔壁内に設置した貫通・圧壊試験装置(SERVO PULSER、島津製作所)を用いた(図 2.3.1)。切断時には、可動板に装着した切断刃物を 1.0 mm/s の速度で降ろし、電池側面をケース外から切断し、短絡させることとした。切断時の温度、セル電圧は計測ユニット(NR-TH08、キーエンス)を用い、発生する水素ガスと一酸化炭素濃度は、それぞれ吸引式水素ガス検知器(XP-314、新コスモス電機)と複合ガス検知器(QRAEII、RAE Systems)を用いて連続的に測定を行った。



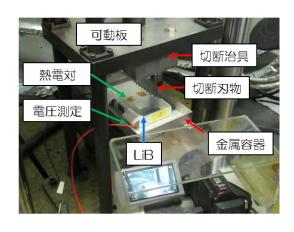


図 2.3.1 電池切断試験装置の構成

切断対象のリチウムイオン電池は可搬型充放電試験装置(HJ1260SM1A、北斗電工)を用いて任意の充電状態に設定した。切断試験対象として、使用済みのトヨタ社プリウス PHV用リチウムイオン電池(25Ah,3 時間率)を用いた。SOC調整のための充電は、容量規程により行った。具体的には、セル容量を全て定格 25Ah と想定し、3.0V まで 8A の定電流で放電後、SOC 50%は 12.5Ah、SOC 20%は 5Ah を充電した。SOC 0%については放電のみで充電は実施しなかった。切断試験に供したリチウムイオン電池の初期と試験前における SOC と端子電圧を表 2.3.1 に示した。各 SOC 値は、メーカー提供の SOC-OCV 線図より算出した。

表 2.3.1 リチウムイオン電池の試験前充電結果

	初期	状態	試験前状態		
	SOC (%)	電圧 (V)	SOC (%)	電圧 (V)	
LiB_1(試験1)	10.6	3.478	0.8	3.087	
LiB_2 (試験2)	10.8	3.478	21.4	3.548	
LiB_3 (試験3)	11.7	3.482	53.0	3.686	
LiB_4 (試験4)	10.8	3.483	0.9	2.092	
LiB_5 (試験5)	11.0	3.479	21.4	3.548	
LiB_6 (試験6)	11.0	3.479	50.9	3.671	

### 2.3.2.2. 結果

全ての切断試験において、リチウムイオン電池のセル電圧はケース切断直後に 0V となった。図 2.3.2 に空気中、水没中における切断直後の様子を示す。どちらの周囲環境条件においても、SOC 0%では発煙は見られなかったが、SOC 20%以上においては発煙が確認された。また、SOC50%ではより多くの発煙が確認された。空気中と水没中の比較から、水没中のほうが煙の拡散が抑制されることが確認できた。

表 2.3.2 に各切断試験後の発煙の有無、セル側面の温度、水素濃度、CO 濃度の最大値を示した。総じて、SOC が高いほどセル温度は高くなった。また、空気中よりも水没中の方が温度が低いことが確認できた。水素濃度については、SOC 50%(試験 3 及び試験 6)において検出され、空気中では最大 1.5 vol%程度、水没中では最大 8 vol%であった。CO 濃度については温度と同様に SOC が高いほど高い濃度が確認され、SOC 50%(試験 3 及び試験 6)において測定レンジを超えて 500 ppm 超となった。

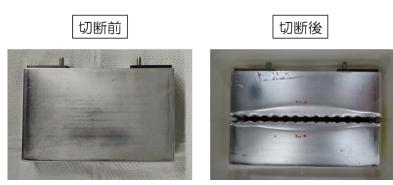


図 2.3.2 切断前後のリチウムイオン電池の側面

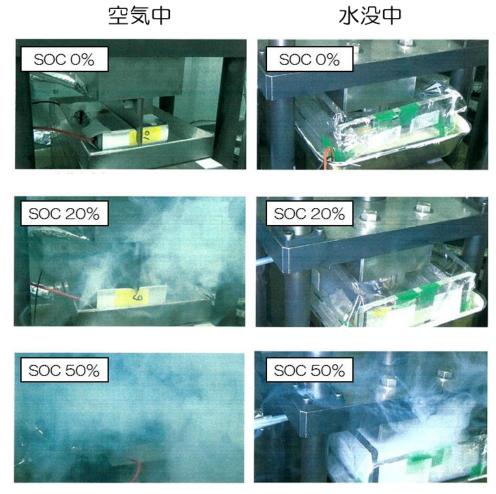


図 2.3.3 切断直後の切断装置周囲

表 2.3.2 リチウムイオン電池切断後の監視項目の測定値

	周囲 環境	SOC (%)	発煙の 有無	最大 温度 (℃)	最大 水素濃度 (vol%)	最大 CO濃度 (ppm)
試験1	空気	0.8	無し	47.2	<1	165
試験2		21.4	有り	96.2	<1	670
試験3		53.0	有り	117.4	1.5	>500
試験4	水	0.9	無し	34.5	<1	<10
試験5		21.4	有り(微量)	54.2	<1	69
試験6		50.9	有り	67.9	8	>500

#### 2.3.2.3. 考察

充電状態が SOC 20、10%で実施した試験において生じた煙とガスは、短絡時の熱発生によるセパレーターや電解液の熱分解によると推定された。一方、SOC 0%での試験結果において、発煙やガス発生はなかったことから、リチウムイオン電池を対象とした場合においても、十分に放電することで切断時の危険性を低減できることが示された。但し、本試験のSOC 0%条件においても電池側部の温度上昇があったことを鑑み、以降の試験に用いる電池は、さらに深い放電を行うこととした。具体的には、リチウムイオン電池を解体する際には0.7Vまで放電を行うこととし、放電後速やかに解体を行うよう徹底した。

# 2.3.3. 車載用リチウムイオン電池の構造調査と構成部材の把握

ラミネート型を除く電池は金属や樹脂製のケースに格納されており、これらを対象に水流分別を実施する際には、前処理として解体や裁断が必要となる。本試験においても、リチウムイオン電池を適切な方法で裁断し、水中で部材が容易に分離するための加工が必要と想定される。

本項では、本研究において試験対象とする車載用電池セルを対象として、内部構造を把握 するとともに水流分別の前処理としての解体手順の整理に有益な知見を得た。

#### 2.3.3.1. 方法と材料

試験対象の車載用リチウムイオン電池(25Ah、プリウス PHV 用)は、10M  $\Omega$  固定抵抗を用いて所定のセル電圧(0.7 V)まで放電することで、解体時の発熱やそれに伴う発火のリスクを低減した上で試験に供した。アルミニウム製の外ケースの切断には卓上丸鋸(K-210、ホーザン)を用い、電池中身の接続部、巻回型電極の切断等はバンドソー(K-100、ホーザン)で行った。解体により分別された各部材の重量は電子天秤により秤量した。集電部に付着する両極活物質に含まれる金属量は、集電体から剥離した試料を酸分解した後、試料溶液を誘導結合プラズマ発光分析(Agilent 720-ES、Agilent Technologies, Inc)を用いて定量した。全ての定量分析は検量線法で行った。

### 2.3.3.2. リチウムイオン電池の構造調査

リチウムイオン電池は図 2.3.4 に示す手順で解体を行った。はじめに、電池外ケースの端子側上部の全周を丸鋸で切断した(図 2.3.5 ①)。電池中身は接続板を介して上蓋の端子に接続されていることから、ケースから容易に取り出すことができた(図 2.3.5 ②)。電極は巻回型の構造を有しており、活物質が塗布された正極集電体(アルミニウム箔)と負極集電体(銅箔)、樹脂薄膜のセパレーターで構成されていた。接続板と集電部は、バンドソーにより容易に切断が可能であった(図 2.3.5 ③④)。図 2.3.6 に巻回型の電極部材(以下、電極部材)の積層を剥離した様子を示した。

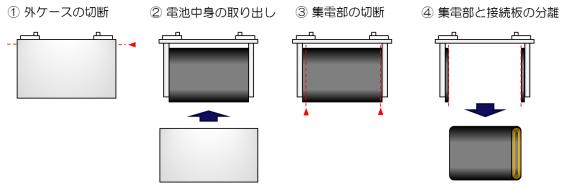
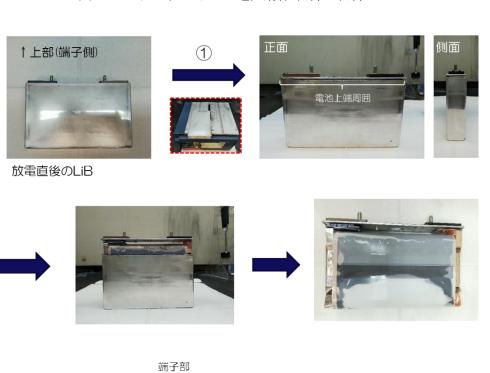


図 2.3.4 リチウムイオン電池解体手順の手順



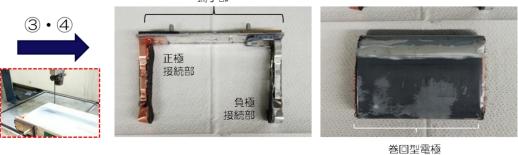


図 2.3.5 リチウムイオン電池解体の様子



図 2.3.6 電極部材の積層部

# 2.3.3.3. リチウムイオン電池構成部材の把握

表 2.3.3 に構成部材毎の材料と重量を示した。部材重量は解体物を実測し、電解液量は切断時に回収した電解液量と、巻回型電極の溶媒洗浄で回収した電解液重量を加算した値を示した。有価物を多く含む正極活物質は、別途機器分析により測定した金属含有量(表 2.3.4)を基に金属毎の重量を記載した。

表 2.3.3 車載用リチウムイオン電池の部位別の材料と重量

	部位		材料	重量 (g)	重量比 (%)
外ケース			アルミニウム	118	16.6
絶縁ケース			ポリプロピレン等	4.9	0.7
		接続部	銅	12.5	1.8
	負極	集電体	銅箔	65.8	9.2
		負極活物質	カーボン、導電助材、バインダ	87.9	12.4
		接続部	アルミニウム	7.6	1.1
		集電体	アルミニウム箔	66,6	9.4
電極			Li	13.5	1.9
	正極		Mn	32.8	4.6
		正極活物質	Co	39,6	5.6
			Ni	38.0	5.3
			その他(導電助材、バインダ)	59.2	8.3
	セパレー	-ター	ポリエチレン等	47.1	6.6
電解液 <sup>注)</sup>			有機電解液、無機リチウム塩	118	16.6

注) 裁断した電極から抽出した電解液量から算出した値。

表 2.3.4 両極活物質の金属含有量

(wt%)

	Li	Mn	Со	Ni	その他
正極活物質	5,89	14,3	17,3	16,6	45,91
負極活物質	0.05	0.27	0,29	0,28	99.11

### 2.3.3.4. 考察

試験対象の車載用リチウムイオン電池を解体し、内部構造を解析することで、当該電池を 水流分別法に供する際の切断手順が整理された。具体的には、放電後速やかにケース上部を 切断開放し、接続板と巻回型電極を切断する事で電極部材を分離する。電極部材は集電体、 活物質、セパレーターで構成される積層構造を有することから水流分別の適用は合理的で あると考えられた。一方、アルミ、銅、樹脂等で構成される部材(外ケース、接続部等)は、 従来の金属リサイクル技術により容易に分別可能であると考えられた。

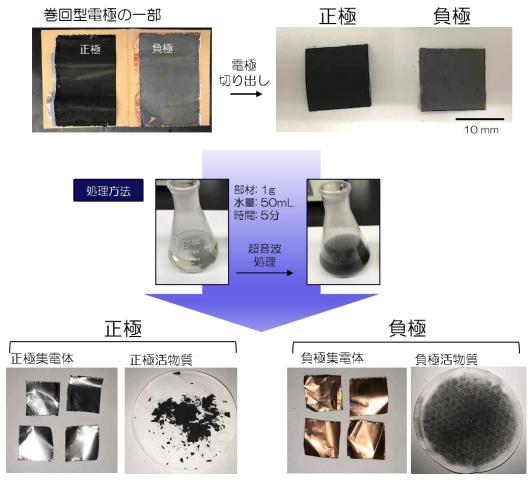
# 2.3.4. リチウムイオン電池を対象とした水流分別の基礎検討

水流分別法をニッケル水素電池に適用した場合、裁断された電池は洗浄水中での攪拌により金属電極、活物質、セパレーターに分離される。リチウムイオン電池を対象とした場合についても、同様に金属集電体(アルミニウム箔、銅箔)からの活物質の剥離が期待される。本項では、大型試験装置での水流分別の試行に向けて、水中でのリチウムイオン電池電極部材の分別可否と適切な条件設定について検討した。

# 2.3.4.1. 集電体からの活物質剥離性の確認

リチウムイオン電池の電極部を正極・負極部に分離し、両極から 15~mm 四方の試験片を採取した。採取した電極約 1g ( $3\sim4$  枚) は 50mL 純水に浸漬し、常温で  $5~\text{分間の超音波処理を行った (図 <math>2.3.7$ )。

両極の活物質は、水中での超音波処理により集電体から容易に剥離することを確認した。 剥離した活物質のうち、正極活物質はフレーク状として沈降するため回収は容易であった。 一方、負極活物質については水中に分散したため、回収には濾過が必要であった(図 2.3.7)。



2.3.7 水中での集電体と活物質の剥離性の確認

### 2.3.4.2. 超音波・水流等の剥離性への影響評価

基礎検討の結果から、水中において集電体と活物質の剥離が可能であることが確認された。そこで、試料量を増加し、超音波処理に加えて、水流、加温、洗剤添加の効果についても評価を行った。

試料として、リチウムイオン電池の巻回型電極 1/4 セル分を 9 分割した電極部材(約 110 g)を作製し、洗浄水 1.0 L と共に、洗浄槽(2.0L ガラスビーカー)に投入した。水温は、常温(約 25°C)か高温(約 70°C)に設定し、中性洗剤(ヤシノミ洗剤、サラヤ)を添加する場合の濃度は 0.5 vol%とした。分別試験の概要と攪拌中の洗浄槽内の様子を図 2.3.8 に示した。集電体からの活物質剥離の度合いは、試料表面における活物質剥離部位の面積を画像から数値化して評価した。

図 2.3.9 に試験で分別された各部材の写真を示した。セパレーターは洗浄中に浮遊物として洗浄水の上部から回収された。集電体であるアルミニウム箔と銅箔、正極活物質は、洗浄終了後に金属性の篩いで容易に分離できた。吸引濾過により回収した洗浄液中の微粒子は、負極活物質と超音波処理で微細化した正極活物質で構成されると推定された。

表 2.3.5 に各試験条件(試験 1~試験 6)における、両極の活物質剥離率を示した。いずれの条件においても正極における集電体と活物質の剥離性は良好であった(97.2-99.9%)。一方、負極については超音波、加温、中性洗剤の添加が剥離性に与える正の影響が確認できた。

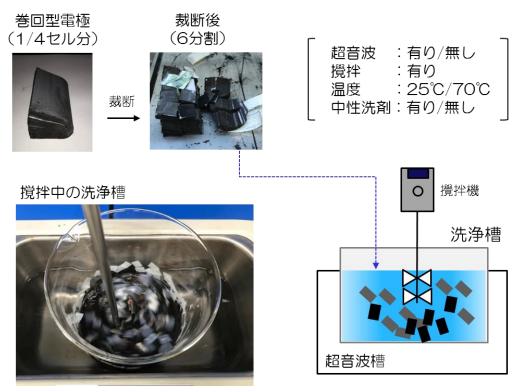


図 2.3.8 水中での分別条件の基礎検討

セパレーター



集電体



正極活物質



活物質混合物



図 2.3.9 水中において分別された部材(試験 2)

表 2.3.5 各処理条件における活物質剥離率

	攪拌	超音波	中性 洗剤	温度 (℃)	正極剥離率(%)	負極剥離率 (%)
試験1	有り	無し	無し	25.4	97.2	32.4
試験2		有り	無し	25.4	98.5	99.4
試験3		無し	無し	70.5	99.4	39.4
試験4		有り	無し	71.5	99.5	98.7
試験5		無し	有り	24.9	99.9	45.6
試験6		有り	有り	25.0	99.9	98.7

# 2.3.4.3. 考察

リチウムイオン電池から採取した電極部材を水中で処理することで、集電体(金属箔)と活物質(微粒子)が容易に剥離できることを確認した。諸条件で実施した試験結果(2.3.4.2)から、有価金属を多く含む正極活物質の剥離には水中での攪拌のみで充分な剥離効果が得られることを確認した。この場合、負極集電体である銅箔にはカーボンを主成分とする負極活物質が付着するが、銅精錬工程を考慮すれば、完全な除去は必ずしも必要ではない。

## 2.3.5. リチウムイオン電池に含まれる電解液・電解質塩の除去

リチウムイオン電池の電解液に含まれる電解質塩である「六フッ化リン酸リチウム  $(LiPF_6)$ 」は、水と接触した場合、以下の反応式で示す加水分解反応により腐食性ガス  $(HF \times PFO_3)$  を生じる。

$$LiPF_6 + H_2O \rightarrow LiF \cdot HF + HF \uparrow + POF_3 \uparrow$$

水を洗浄液として用いる水流分別法をリチウムイオン電池に適用する場合、処理前後にLiPF<sub>6</sub>あるいは、LiPF<sub>6</sub>に由来するフッ素化合物を適切に除去する必要がある。

式 (2.3.1)

非焼却プロセスによるリチウムイオン電池に含まれる電解液の除去には、アセトニトリ ル、ジエチルカーボン、ピロリドン等の有機溶媒を利用する洗浄法が、電池材料研究やリサ イクル研究において一般的である。例えば、LithoRec Process では裁断した電池をアセトニ トリルで洗浄することで電解液と電解質塩を除去し、乾燥後に材料分別のための篩分を行 う。また、本田技研工業による電池リサイクル研究では、電池セル内に新しい電解液を循環 する事で、電解質塩を低減することで後段の解体作業の安全性を向上している。水流分別の 後段で電池から洗浄液に浸出した電解質塩を処理する手法としては、産業分野利用されて いる排水処理技術が適当である。リチウムイオン電池のリサイクルでは、有価金属回収後の 廃液を対象として、住友金属鉱山は弱塩基性陰イオン交換樹脂を用いることで水溶液中の PF<sub>6</sub>イオンの吸着回収を提案している。また、三菱マテリアルズは熱分解後の工程において、 フッ化リチウムとなったフッ素を水酸化カルシウム添加により有価物である蛍石 CaF2 とし て回収する手法を提案している。また、PF6は単独では水溶液中において安定である事から、 電気浸透等により PF6イオンや対イオンである Li を選択除去することで腐食性ガスの発生 を低減できる可能性があるが、これまでに検討はなされていない。表 6.1 に既知のリチウム イオン電池リサイクルにおける電解液・電解質塩の除去技術と、水流分別との接続の可否判 断を整理した。

本研究では、水流分別法との親和性が高いと思われる、水流分別前に実施する溶媒洗浄法と、分別後の洗浄液から PF<sub>6</sub>イオンを除去するイオン交換法について評価試験を行った。

表 2.3.6 電解液に含まれる電解質塩 (LiPF<sub>6</sub>) への対応技術

手法	除去原理	実施者の例	水流分別法 との接続可否
焼却 熱分解	焼却で生じたフッ素含有排ガスとし て高度処理	多数	× 不可
セメント培焼	熱分解したフッ素含有排ガスをセメント 製造プロセスにおいて吸収	太平洋セメント	× 不可
加熱気化	蒸発した電解液からフッ素含有ガス を発生させてCaF <sub>2</sub> として固定	三菱マテリアルズ	△ 未検討
溶媒洗浄	電解液と混合する有機溶媒で洗浄し た後に濃縮分離して処理	本田技研等	〇 未検討
イオン交換	電池の水浸出液に含まれるPF <sub>6</sub> -イオンをイオン交換吸着、濃縮して処理	住友金属鉱山	△ 未検討

### 2.3.5.1. 溶媒洗浄法

# 2.3.5.1.1. 電極部材からの電解液の除去

リチウムイオン電池から採取した電極部材(図 2.3.10)約5g(1cm 四方/片)を50 mL 有機溶媒に浸漬、続いて撹拌することで電極内に含まれる電解液の抽出を試みた。抽出は3回行い、洗浄毎に新たな溶媒に交換した。洗浄溶媒としてエタノール、2-プロパノール、アセトン、n-メチル-2-ピロリドン(表 2.3.7、富士フィルム和光)を用いた。抽出後の洗浄溶媒は、エバポレーター(R-100、柴田科学)により蒸留し、含有する電解液の回収を試みた。回収した電解液は電子天秤で秤量し、積算量を計算した。

いずれの洗浄溶媒を用いた場合でも、回収された積算電解液量は同程度 (0.92-0.95~g) であった (表 2.3.8)。回収された電解液量から計算した、洗浄前電極部材の電解液含有率は 18.5~wt% であった。

表 2.3.7 洗浄抽出に用いた有機溶媒

使用溶媒	示性式	沸点 (℃)
エタノール	CH₃CH₂OH	78.3
2-7° an° <i>J-1</i> l	CH <sub>3</sub> CH(OH)CH <sub>3</sub>	82.4
アセトン	CH₃COCH₃	56.5
N-メチル-2-ピロリドン	CH <sub>3</sub> NC₄H <sub>6</sub> O	202

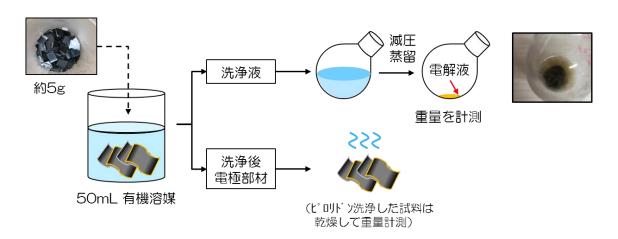


図 2.3.10 有機溶媒による電解液に抽出と回収

表 2.3.8 回収された電解液量と洗浄前の電解液含有率

使用溶媒	洗浄した電極 部材量(g)	回収した 電解液量(g)	洗浄前の電解液 含有率(%)	
エタノール	5.02	0.93	18.5	
2-7° =11° /-11	5.00	0.91	18.2	
アセトン	4.92	0.95	19.3	
N-メチル-2-ピロリドン	5,11	<sup>注)</sup> 0.92	18,0	

注)ピロリドンでは洗浄液から電解液を蒸留回収できなかったので、洗浄前と洗浄・乾燥後の電極部材の重量差を電解液量とした。

## 2.3.5.1.2. 洗浄後の残留電解液量の見積り

電解質塩に含まれるリンを指標として洗浄による電解液と電解質塩の除去率を見積もった。上記(2.3.5.1.1)で洗浄した電極部材を水と接触させ、電解質塩を溶出させ、未洗浄の場合と比較を行った。具体的には、溶媒洗浄後の電極部材を20mLの純水に2時間浸漬し、水溶液に含まれる全リン量を簡易水質測定キット(パックテスト、共立化学)で定量した。

未洗浄の場合、洗浄水には電解質塩の移行により 794.3 mg/L のリンが溶出した。一方、溶媒洗浄を行った場合は、洗浄水の全リン濃度は 5.9 – 10.8 mg/L であった。従って、溶媒抽出による電解液の除去率は 98%以上と計算された (表 2.3.9)。

	洗浄溶媒	試料量 (g)	洗浄水量 (mL)	洗净水P濃度 (mg/L)	洗净除去率 <sup>注)</sup> (%)
未洗浄	_	5.09	50	794.3	-
洗浄1	エタノール	5.02	50	9.1	98.9
洗浄2	2-7° 011° 1-11	5.00	50	10.8	98.6
洗浄3	アセトン	4.92	50	5.9	99.3

表 2.3.9 電極部材の洗浄水に含まれる全リン濃度と電解液の洗浄除去率

注)試料への電解液の残留は、洗浄水に含まれるリン量(LiPF6由来)を指標として評価し、未洗浄の場合の洗浄水リン濃度をもとに百分率として示した。

### 2.3.5.2. イオン交換法を用いた水流分別排水からの PF<sub>6</sub>イオン除去

電解液の除去等を実施せずにリチウムイオン電池を水流分別した場合を模擬し、裁断した電極部材 (5 g) を 50 mL の水に投入し、5 分間の超音波処理後に得られた洗浄液を試験水とした。PF<sub>6</sub>イオンの吸着材として、文献で有用性が示されている弱塩基性イオン交換樹脂(ダイヤイオン WA-20、三菱化学)を用いた。電極部材浸出水とイオン交換樹脂はガラスビーカー内で反応させ、室温において約 2 時間反応させた後 (図 2.3.11)、水溶液に含まれる全リン濃度を測定した。

表 2.3.10 に処理前後の洗浄液の全リン濃度を示した。試験水に含まれる微粒子を遠心濾過しない場合(試験 1)、イオン交換樹脂による吸着処理後の試料水の全リン濃度は 114 mg/Lまで低減された。一方、微粒子を除去した場合(試験 2、試験 3)、処理後の試料水の全リン濃度は、どちらも 35 mg/L であった。以上から、弱塩基性陰イオン交換樹脂を吸着剤とすることで、水流分別法でリチウムイオン電池を処理した際に発生する、電解質塩の PF<sub>6</sub>イオンを除去できることが示された。

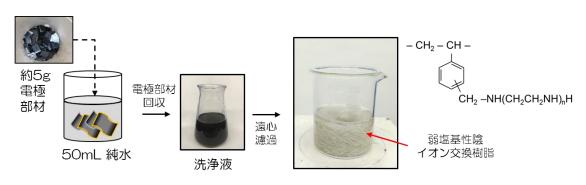


図 2.3.11 電池由来の電解質塩対象としたイオン交換処理

処理前P濃度 処理後P濃度 <sup>注)</sup>除去率 微粒子の 遠心濾過 (mg/L)(mg/L)(%) 試験1 無し 840 86.4 114 有り 試験2 798 35 95.6 試験2 有り 822 35 95.7

表 2.3.10 イオン交換処理による電解質塩の除去効果

注)除去率は、処理後P濃度を処理前P濃度で除することで算出した。

#### 2.3.5.3. 考察

水流分別法に接続可能な電解液、電解質塩の除去処理について既存技術を調査した結果、水流分別前の有機溶媒による洗浄除去と、水流分別後の排水のイオン交換処理が抽出された。試験結果から、洗浄法では裁断した電極部材から 98%以上の電解液を除去できることが示され、裁断方法や洗浄方法を精査することで、より高い電解液除去率を得ることが可能であると考えられた。また、洗浄溶媒の種類によっては電解液を容易に蒸留回収可能であることを確認した。イオン交換法による吸着処理では、洗浄水に含まれる PF<sub>6</sub>イオンを吸着低減できたが、同量の電極部材を処理した洗浄法と比較して除去率は低い値となった。イオン交換樹脂の場合、洗浄水に含まれる微粒子や電解液成分による閉塞や劣化なども想定されることから、プロセスへの実装には多くの課題を有すると推定された。

以上の結果を踏まえ、水流分別法の前段として溶媒洗浄を行うことが妥当であると判断 した。従って、次項の大型洗浄装置を用いた検討においては、水流分別法の前処理として溶 媒を用いた洗浄法を用いる。

## 2.3.6. 溶媒洗浄法・水流分別法の検証

これまでの検討結果を踏まえ、溶媒洗浄による電解液・電解質塩の除去と、水流分別法による材料分別を連続して行った。本検証での水流分別は大型の洗浄装置を用い、実プラントを想定した1バッチ約200Lの洗浄水での循環洗浄を行う。試料には、1セル分以上の電池を1回の分別に供することとした。電解液の抽出には、前項において有用性が確認できた有機溶媒から、試験実施箇所において調達と保管が容易であった2-プロパノールを用いた。

#### 2.3.6.1. 材料と方法

リチウムイオン電池の電極部材はポータブル洗濯機 (CENTARC、推奨水量 2L) を用いて洗浄し、電解液を洗浄除去した。具体的には、 $1 \, \mathrm{kg}$  の裁断済み電極部材に対し、約  $2 \, \mathrm{L}$  の溶媒 (2-プロパノール) を用いた。洗浄は  $2 \, \mathrm{回行}$ い、それぞれの洗浄時間は  $5 \, \mathrm{分とした}$  (図 2.3.12)。水流分別は、野菜洗浄装置(細田工業)を用いた。洗浄には異なる構造をもつ装置 A (図 2.3.13、水量  $220 \, \mathrm{L}$ )、装置 B (図 2.3.14、水量  $180 \, \mathrm{L}$ ) を用いた。装置 A での洗浄はジ

ェット水流(200 L/min)とエアレーションの(0.5  $\sim$  0.6 m³/min)いずれかで行い、装置 B での洗浄はジェット水流(200 L/min)により行った。表 2.3.11 に水流分別の試験条件の一覧を示した。

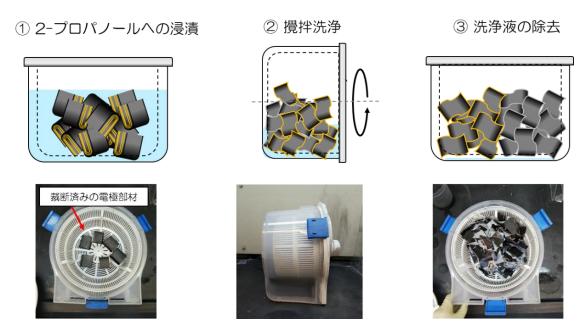


図 2.3.12 電極部材の洗浄による電解液の除去

# ジェット水流 オーバーフロー 洗浄バケット 循環ライン 洗浄液 供給ライン 予備タンク メインタンク エアレーション水流 オーバーフロー 洗浄バケット 洗浄液ライン ストレーナー エアレーションライン 予備タンク メインタンク 圧縮空気

図 2.3.13 洗浄装置(装置 A)の洗浄模式図と洗浄槽写真

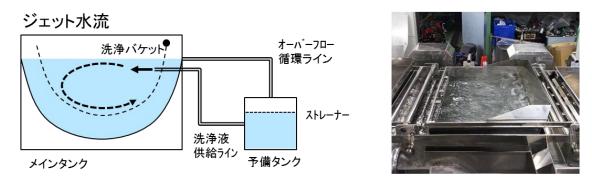


図 2.3.14 洗浄装置(装置 B)の洗浄模式図と洗浄槽写真

表 2.3.11 水流分別試験の諸条件

	部材量 (kg)	洗浄液量 (L)	装置	水流	エアレー ション
試験1	1.0	220	А	有り	無
試験2	1.0	220	Α	無	有り
試験3	2.0	220	Α	有り	無
試験4	1.0	180	В	有り	無
試験5	1.0	220	A	有り	無

注)装置Aの流量は200L/min、装置Bの空気流量は0.5~0.6m<sup>3</sup>/min

# 2.3.6.2. 集電体からの活物質の剥離

図 2.3.15 に装置 A で実施した水流分別の結果 (試験 1) の様子を示した。洗浄槽に投入された電極部材のうち、セパレーターは早期に剥離し、活物質が付着した集電体からは徐々に活物質が剥離した。集電体から剥離した活物質のうち、粒径が比較的小さいものは洗浄タンク下部に堆積し、大きいものはストレーナーに捕捉された。活物質が剥離した集電体 (アルミニウム箔、銅箔) は洗浄バケット内に保持された。

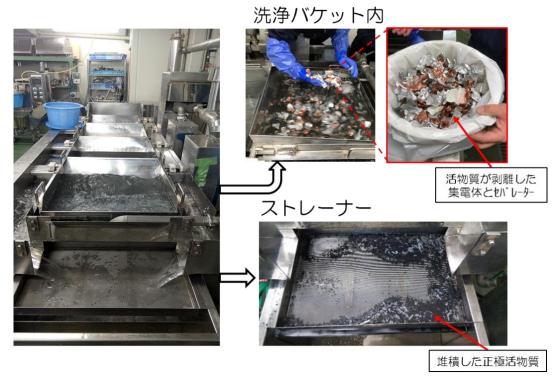


図 2.3.15 水流分別による部材分別の様子(試験 1:装置A,投入部材料 1kg 時)

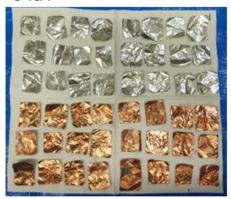
表 2.3.12 正極・負極における活物質の剥離率

	*活物質の剥離率		備考
	正極	負極	
試験1	99.6	96.4	分別性は最も良好。
試験2	92.4	92.7	分別性は良好。
試験3	98.5	96.5	分別性は良好。
試験4	7.5	76.8	分別性は不良。
試験5	100	98.5	分別性は最も良好。

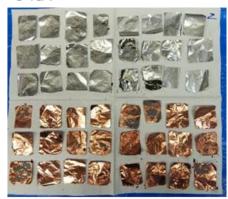
<sup>\*</sup>剥離率は代表試料の表面に残る活物質の被覆面積から算出。

各試験における剥離率を表 2.3.12 に、各試験で分別された集電体を図 2.3.16 に示した。装置 A を用いた試験区では、正極の剥離率は 92%以上であり、特にジェット水流を用いた試験 1、3 及び 5 では 98%以上(98.5-100%)に達した。一方、装置 B を用いた試験 4 では、正極の剥離率は 7.5%に留まった。

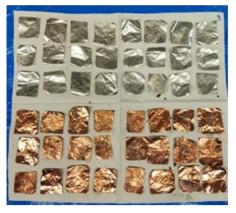
# 試験1



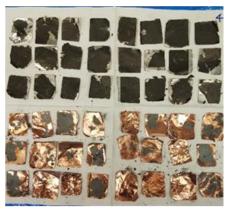
# 試験2



試験3



試験4



試験5

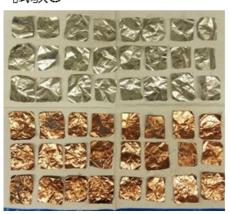


図 2.3.16 水流分別した電極部材から取り出した正極・負極集電体

負極の剥離率は、正極の剥離率が不良であった試験 4 を除き、正極と比較して低い値となった (92.7-98.5%)。負極に残存する負極活物質については、水中に浸漬し、超音波処理することで剥離が可能であることを別途確認した (図 2.3.17)。

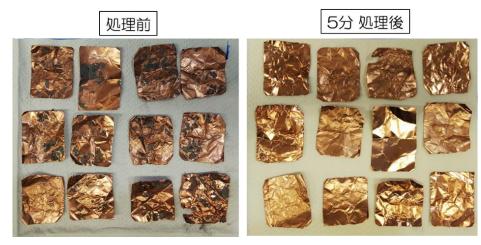


図 2.3.17 超音波処理による負極残留活物質の除去

# 2.3.6.3. 正極活物質の回収率

両極の集電体から剥離した活物質のうちニッケルやコバルトを多く含む正極活物質について、回収率を試算した。水流分別に供した電極部材に含まれる正極活物質量は、表 2.3.3 に示した電極構成材料のマスバランスから 283.3 g/kg-電極部材と仮定した。水流分別により回収された活物質のうち、ストレーナーに捕捉された正極活物質は乾燥して重量を計測した。また、タンク下部に堆積するものは負極活物質と正極活物質の混合物であるため、風乾後に 100 メッシュで篩分し、上篩側を正極活物質として重量を計測した。

表 2.3.13 に各試験における正極活物質の回収率を示す。特に、剥離が良好であった試験 1 及び 5 において優れた回収率であった。

	正極活物質	回収した正極活物質 (kg)		回収率
	(kg)	タンク下部	ストレーナー	(%)
試験1	283.3	169.0	95.8	93.5
試験2	283.3	241.0	_	85.1
試験3	566.6	409.9	92.62	88.7
試験4	283.3	_	_	_
試験5	283.3	212.8	72.1	100

表 2.3.13 水流分別法による正極活物質の回収率

<sup>\*</sup>回収された微粒子のうち、分散性が低いものを200メッシュの金属篩いで分離したものを正極活物質と見なした。

# 2.3.6.4. 洗浄水の性状

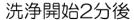
洗浄水に含まれるフッ素が全てLiPF<sub>6</sub>に由来するものと仮定し、処理水のフッ素濃度を全リン濃度から算出した。全リン濃度はJIS 法を簡易化した測定キット(共立化学)で測定し、pH は電極法で測定した。

各試験で発生した処理水のフッ素濃度及び pH を表 2.3.14 に示した。電極部材を 2kg 投入した試験 3 を除き、排水のフッ素濃度は一律排水基準値 (8 mg/L)以下であった。 pH は処理前の 8.5 からわずかに上昇することが確認された。また、電極部材 2kg を試料として投入した試験 3 では、洗浄開始数分後には顕著な発泡がみられ、洗浄液全面を覆った。他試験区との比較から、発泡は電極部材に残留する電解液によるものと推定された(図 2.3.18)。

	洗浄液 pH	洗浄液P 濃度(mg/L)	<sup>注)</sup> 洗浄液F 濃度(mg/L)	備考
試験1	8.6	1.8	6.6	発泡なし。
試験2	8.5	1.7	6.3	発泡あり。
試験3	8.9	3.3	12.1	多量の発泡あり。
試験4	8.6	2	7.4	発泡あり。
試験5	8.6	1.7	6.3	発泡なし。

表 2.3.14 水流分解の洗浄水 pH とリン及びフッ素濃度

注)フッ素濃度はリン濃度から推算した値(排水基準:8 mg-F/L)。





洗浄終了後



図 2.3.18 水流分別時(試験 3) の発泡の様子

次に、水流分別で生じた洗浄水に含まれる全リン濃度(表 2.3.14)から、各試験に供した 電極部材からの電解液の抽出除去率を見積もった。 電解液未抽出の電極部材を用いた場合の洗浄水全リン濃度は、先に実施した電解液の抽出基礎実験(表 2.3.8)の結果から、39.0 mg/L と過程した場合、各試験において水流分別の前段で実施した溶媒抽出による電解液の抽出率は、いずれの試験区においても同程度(94.9-95.8%)であった。

	試料量 (kg)	洗浄水量 (L)	洗净水P濃度 (mg/L)	<sup>注1</sup> 電解液の抽出 除去率(%)
(未抽出)	1.0	220	注2)39.0	-
試験1	1.0	220	1.8	95.4
試験2	1.0	220	1.7	95,6
試験3	2.0	220	3.3	95.8
試験4	1.0	180	2.0	94.9
試験5	1.0	220	1.7	95,6

表 2.3.15 溶媒洗浄による電解液の除去率推算結果

#### 2.3.6.5. 考察

装置 A と装置 B による試験結果から、比重が大きい活物質が付着しているリチウムイオン電池の集電体を対象として水流分別を行う際には、部材の撹拌効果の大きい下部からの上昇流の利用が有用であることが示唆された。また、試験 1 と試験 2 の比較から、比較的温和なエアレーションによる循環より、ジェットによる洗浄の方が活物質の剥離には有用であった。

試料 2kg を用いた試験 3 において顕著な発泡が観察されたことから、有機溶媒である電解液成分が水流分別の洗浄水と混合すると、界面活性効果により洗浄水が発泡することが示された。さらに、同試験区 3 では、洗浄水のフッ素濃度は排水基準を超過すると推定された。これら発泡現象と、フッ素濃度の測定結果から、本試験で実施した電解液の洗浄除去はでは水流分解での洗浄水の繰り返し利用や、電極部材量の増加による処理効率の向上は困難であることが示唆された。

以上の結果から、リチウムイオン電池を対象とした水流分別の実プロセスへの実装には、 本試験に供した電極部材からの電解液と電解質塩の除去は不十分であり、電極部材の裁断 方法、適切な洗浄溶媒と洗浄方法について、更なる検討が必要であると考えられた。

注1) 試料への電解液の残留は、洗浄水に含まれるリン量(LiPF<sub>6</sub>由来)を指標として評価し、未洗浄の場合の洗浄水リン濃度をもとに百分率として示した。注2) 電解液を未抽出の場合の洗浄水リン濃度は、表5.3の結果から推算した値を用いた。

# 2.3.7. 結論と今後の課題

本研究では、リチウムイオン電池を対象とした焼却処理によらないマテリアルリサイクルの要素技術として、水流によるリチウムイオン電池の部材分別を評価した。試験には、車載用リチウムイオン電池を用い、水流分別法を行うために必要となる前処理(解体、電解液・電解質塩の除去)についても併せて検討を行った。以下に、主な成果を示す。

- ①車載用リチウムイオン電池を短絡、放電した後に解体することで、内部の構造と構成材料を明らかにした。解体で得られた部材を水中で処理した結果、有価金属を多く含む正極・セパレーター・負極で構成される巻回型電極については水流分別法の対象となることを確認した。
- ②リチウムイオン電池に含まれる電解液と電解質塩の除去技術を調査し、他の非焼却リサイクルプロセスにおいても利用される溶媒洗浄が有効であることを試験結果から確認した。 ③大型の洗浄装置を用いて、電解液を除去した電極部材を水流分別した結果、活物質が集電体(アルミニウム箔、銅箔)から効率よく剥離することを確認した。

以上の成果から、水流分別法がリチウムイオン電池のリサイクルにおける要素技術として利用可能であると判断できる。一方、水流分別の洗浄水の性状分析の結果から、実プロセスへの実装において必要となる洗浄水の循環利用、処理部材量の増加を行うには、本試験条件による電解液の洗浄除去は不十分であることが確認できた。従って、今後は電極部材の洗浄除去率に向けた洗浄条件や溶媒の最適化を進めることが必要となる。また、水流分別法を軸としたリチウムイオン電池リサイクルのプロセスフロー(図 2.3.19)について、全体としての経済性や環境負荷について精査を進める必要がある。

# 本実証事業範囲

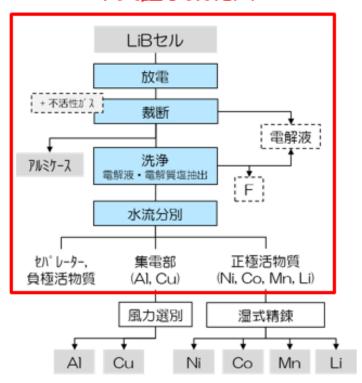


図 2.3.19 水流分別法を軸としたリサイクルプロセスフローの例

# 3. ライフサイクルアセスメント

ライフサイクルアセスメント評価を行うにあたり、電動車 1 万台分の新品ニッケル水素 電池相当を基準に以下の通り比較した。使用したデータを表 3.1 に示す。

No	項目	値	出典
1	燃料電池車に搭載されているニッケル水素電池 製造時の CO2 排出量	0.6[t]	<b>%</b> 1
2	燃料電池車に搭載されているニッケル水素電池 の電池容量	1.84[kWh]	<b>%</b> 1
3	軽油の CO2 排出量	0.00258[t/l]	<b>※</b> 2
4	プロパンガスの排出係数	3.41[t/t]	<b>%</b> 2、 <b>%</b> 3
5	中部電力 (株) の排出係数	0.000472[t/kWh]	<b>※</b> 4

表 3.1 使用データー覧

(出典)

- ※1 走行条件によるエネルギー消費の違いを考慮した代替燃料車の LCCO2 排出量の算出
- ※2 算定方法及び排出係数一覧表
- ※3 LP ガスの環境側面の評価 (日本工業大学)
- ※4 電気事業者別排出係数 (特定排出者の温室効果ガス排出量算定用)

# 3.1. ニッケル水素電池リユース事業

ベースラインとなる新品電池製造と今回のリユース事業である回収電池再利用の主な工程を図3.1.1 に示す。

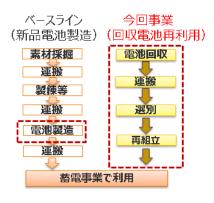


図 3.1.1 新品電池製造及びリユース事業の各工程

ベースラインについては電池製造時の CO2 排出量を試算した結果、式(3.3.1)、式(3.3.2) の通り、3,300t の CO2 排出量となる。一方、今回事業については電池回収・選別・再組立

は無視できるほど軽微であるため、運搬時の CO2 排出量を試算した結果、式(3.3.3)、式(3.3.4)の通り、50t の CO2 排出量となり、ベースラインに対する優位性を確認した。

条件として、リユース電池は新品電池と比較し劣化していることから電池容量を 40%とし、回収台数を 25,000 台分とすることで、電動車 1 万台分の新品ニッケル水素電池相当とした。輸送トラックは 10 トン車である日野プロフィアとし、燃費はカタログ値に 0.8 を乗じて 3.12km/l とした。輸送距離として名古屋一東京間 350km を想定した。なお、名古屋は設備設置場所として選定し、東京は回収量が多く名古屋から各地への距離の平均としても妥当な地点として選定した。10 トン車 1 台あたりのプリウス電池の最大積載台数は 144 台とした。

# <ベースライン>

排出係数[t/kWh]=燃料電池車に搭載されているニッケル水素電池製造時の CO2 排出量[t] ・燃料電池車に搭載されているニッケル水素電池の電池容量[kWh]

 $=0.6[t] \div 1.84[kWh]$ 

=0.33[t/kWh] ੜ(3.3.1)

新品電池製造時の CO2 排出量[t]=設備電力量[kWh]×排出係数[t/kWh]

 $=10,000[kWh]\times0.33[t/kWh]$ 

=3,300[t]  $\stackrel{?}{\Rightarrow}(3.3.2)$ 

#### <今回事業>

排出係数[t/台]=軽油の CO2 排出量[t/l]÷燃費[km/l]×輸送距離[km]÷積載台数[台]

 $=0.00258[t/l] \div 3.12[km/l] \times 350[km] \div 144[台]$ 

=0.002[t/台] 式(3.3.3)

運搬に伴う CO2 排出量[t]=回収台数[台]×排出係数[t/台]

=25,000[台]×0.002[t/台]

=50[t] ੜ(3.3.4)

# 3.2. ニッケル水素電池リサイクル事業

ベースラインとなる焼却による従来の手法と今回のリサイクル事業である焼却によらない手法の主な工程を図 3.2.1 に示す。

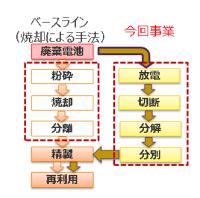


図 3.2.1 ニッケル水素電池リサイクル事業の各工程

ベースラインについては粉砕、焼却、分離の工程で焼却による CO2 の排出と電力使用による CO2 の排出があり、それぞれ試算し合計すると式(3.3.5)~式(3.3.7)の通り 38.82t の CO2 排出量となる。今回事業については放電、切断、分解、分別の各工程で電力使用による CO2 の排出量を試算すると式(3.3.8)の通り 29.74t となり、ベースラインに対する優位性を確認した。

# <ベースライン>

焼却による CO2 排出量[t]=消費プロパンガス量[t]×プロパンガスの排出係数[t/t]  $=10[t]\times 3.41[t/t]$  =34.1[t] 式(3.3.5)

使用電力による CO2 排出量[t]=消費電力量[kWh]×中部電力(株)の排出係数[t/kWh]  $=10,000[kWh]\times0.000472[t/kWh]$  =4.72[t] 式(3.3.6)

焼却による CO2 排出量[t]+使用電力による CO2 排出量[t]=34.1[t]+4.72[t]  $=38.82[t] \qquad \qquad 式(3.3.7)$ 

# <今回事業>

使用電力による CO2 排出量[t]=消費電力量[kWh]×排出係数[t/kWh]  $=63,000[kWh]\times0.000472[t/kWh] \\ =29.74[t] 式(3.3.8)$ 

# 3.3. リチウムイオン電池リサイクル事業

ベースラインとなる焼却による手法と今回のリサイクル事業である焼却によらない手法の主な工程を図3.3.1 に示す。リチウムイオン電池のリサイクルについては、基礎検討のみにとどまったため、前述のニッケル水素電池の工程に前処理工程を追加し、CO2 排出量を試算した。

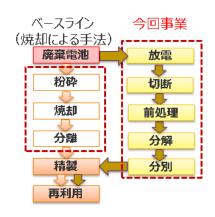


図 3.3.1 リチウムイオン電池リサイクル事業の各工程

ベースラインについては前述の通り 38.82t の CO2 排出量となる。今回事業については前処理工程での CO2 排出量(主に電解液除去のために用いる有機溶媒より算出)は軽微と考えられ、前述の 29.74t と同等と想定されることから、ベースラインに対する優位性を見込める。今回の基礎検討を踏まえ、事業化に向けて残った課題を解決するとともに最適な設備構成を検討していくにあたり、以下の点に留意しながら、CO2 削減効果を達成できるよう検討を進めていく。

# ①有機溶媒の選択

電解液の除去に用いられる有機溶媒は回収して再利用することを基本とするため、環境への排出量は限定的である。しかしながら、ドライクリーニング等の他産業分野における溶剤回収型の洗浄事例から、使用する溶媒については電解液の除去効果だけでなく、CO2 排出及び大気汚染の観点から適切な溶媒を選択することが望ましい。

#### ②溶媒回収工程

溶媒再生型の洗浄工程では、溶媒再生工程における CO2 排出と経済性への配慮が必要となることから、効率的な熱利用が可能な省エネ型設備の利用が望ましい。

#### 4. 経済性評価と事業化の見通し

#### 4.1. リユース事業の経済性評価

ニッケル水素電池に係るリユース事業の経済性について、費用面については、リユース電池システム運用時に必要となる設備運営費(電池回収・運搬費、リパッケージ費用)、人件費、諸経費等を算出し、収入面については、一般送配電事業者が公募している調整力相当の対価が得られると仮定した場合の経済性を検証した。前提条件としては、リユース蓄電システムの設備規模を45MW、事業の評価期間を20年として試算した。試算結果、費用については90百万円/年程度であり、収入面については380百万円/年程度となった。

以上より、収支としては+270 百万円/年程度と見込まれる。一方で、20 年間での設備構築費の回収は困難な可能性が高く、事業成立のためには更なる収入の増加および設備構成のコストダウンに努めることが必要であり、引き続き検討を実施する。なお、今後調整力公募は市場化され、調整力の商品も細分化されることから、収入の見極めが必要であると考えられる。

# 4.2. リサイクル事業の経済性評価

ニッケル水素電池に係るリサイクル事業の経済性について、リサイクル時に必要となる設備運営費(電気代、水道代、薬液代、電池運搬費、メンテナンス代)、人件費、諸経費等を算出するとともに、回収物の市場価値に基づき試算を実施した。前提条件としては、年間で処理を行う電池の処理台数を1万台、事業の評価期間を20年として試算した結果、費用については50百万円/年程度となった。収入面については、ニッケル水素電池の構成材料のうち、市場価値かつ構成比率が高いニッケルの売却価格を基準として算出した。図4.2.1に示す通り、ニッケルは近年10,000~20,000US\$/tで取引されており、今回の試算では市場リスクを加味し10,000 US\$/t(1US\$=110 円で換算)とした結果、収入については30百万円/年程度となった。

以上より、収支としては▲20 百万円/年程度と処理台数1万台での事業成立は困難な見通しである結果となった。一方で、処理台数を増やすことにより、スケールメリットによる設備運営費用や人件費の削減が見込まれ、おおよそ3万台以上の処理台数とすることにより収支がプラスに転じるという試算結果となった。一方で、20年間での設備構築費の回収は困難であるため、事業成立のためには更なる収入の増加および設備構成のコストダウンに努めることが必要であり、引き続き検討を実施する。

なお、リチウムイオンについては、本実証事業にてプロセスフローが確定していないことから、経済性の試算は困難であるが、ニッケル水素電池と比較して回収物の価値が乏しいことから、電解液中リチウムの回収等による回収物の価値向上に向けた検討を引き続き実施する。

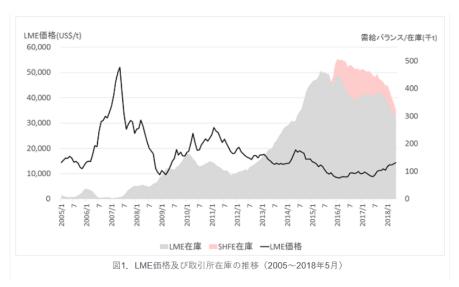


図 4.2.1 ニッケルの市場価格推移

(出典: JOGMEC HP URL: http://mric.jogmec.go.jp/reports/mr/20180628/87222/)

### 4.3. 経済性向上の可能性

リユース事業については本実証事業を通じて、最適化した設備構成の有用性を確認できたとともに、劣化状態の異なる電池の制御技術を確立できたことから、技術面での課題を解決できた。事業化にあたっては、コスト削減等更なる設備設計の最適化を図る必要がある。具体的には、主に以下の項目について検討する。

# ①電池使用条件の検討

劣化状態にバラツキのあるリユース電池使用を前提としているため、使用条件を適切に 設定し、取替時期を最適化することで、リユース電池を最大限活用するとともに効率的な 運用を図る。

# ②主要機器の台数削減

主要機器の仕様変更等に伴う台数削減により、個々の機器単価は上がるものの、台数削減に伴うコストダウン効果が大きいと考えられる。詳細設計を行いその効果を見定めるとともに、技術的問題が発生しないことを確認する。

ニッケル水素電池リサイクル事業については本実証事業を通じて、焼却を伴わない新たなリサイクル技術を確立し、技術面での課題を解決できた。事業化にあたっては、今回の手法で得られる回収物の価値向上を目指すとともに、コスト削減等更なる設備設計の最適化を図る必要がある。具体的には、主に以下の項目について検討する。

①電池処理数量(設備規模)の見直しによるスケールメリットの検討 本実証事業におけるリサイクル設備は、電池処理数量を1年間あたり電動車1万台として試算しているが、実際の電池処理数量にて検討する。

# ②イニシャルコスト及びランニングコストの精査

各リサイクル工程における設備構成の簡素化や合理化により、更なるイニシャルコストの削減を目指す。また、設備の自動化範囲の精査による人件費の削減等、ランニングコストが最適となる設備設計を図る。

リチウムイオン電池リサイクル事業について、技術面では本実証事業で抽出された 2 つの課題を解決することで、リサイクルプロセスを確立できる見込みである。具体的には、以下の項目について実証を行う必要がある。

#### ①効率的な水流分別処理の実現

- ・安全かつ効率的に分別するための裁断/破砕方法の評価。 リサイクル分野における危険物破砕技術に関する事例調査及びリチウムイオン電池の破砕評価を行う。
- ・裁断/破砕された電極からの電解液抽出方法の評価。 含浸物(電解液)除去のための工業的洗浄プロセスの調査及びリチウムイオン電池破砕物 からの電解液抽出試験を行う。
- ・水流分別した素材の適切なリサイクル方法の検討。 既存の非鉄金属分別プロセスでの水流分別結果物の分別試験を行う。
- ・提案プロセスの環境・経済性評価。

先行するリチウムイオン電池リサイクルプロセスの調査及び提案プロセスと先行事例の 比較により課題を抽出する。

# ②リサイクル範囲の拡大

・電解液に含まれるリチウムの回収技術の評価。 選択的リチウム回収技術(電気透析法・吸着法)によるリチウム回収技術の評価を行う。

事業化にあたっては、CO2 削減効果のある経済的に合理的な設備構成を行うとともに、 回収物の価値向上により処理費用の圧縮を目指し、引き続き検討していく必要がある。

# 4.4. 事業普及の見通し

本実証事業により、本リユース蓄電システムは需給調整や周波数変動に対応できる機能を有することが確認できたため、本リユース蓄電システムを電力系統に接続することで、今後、再エネ導入量の拡大により生じ得る電力系統の課題解決に対して有用であると考えられる。また、ニッケル水素およびリチウムイオン双方での設備構成も可能であることから、将来的なリユース電池の発生量を勘案するとともに、事業者や時代のニーズに合わせた設備構成とすることも可能であり、事業普及の可能性が見込めると考えられる。

また、焼却の伴わない電池リサイクル手法の確立および素材回収率向上により、自動車メーカーや電池メーカー等は電池の製造に必要となる素材 (コバルトやニッケル等)を安価かつ安定的に調達することが可能となる。また、従来の手法と比較して CO2 排出量が削減できることから、今後 E V シフトを志向している自動車業界に関係するリサイクル事業者全体に展開できる可能性があり、素材の国内還流の促進および国産電池の普及拡大に貢献することが見込める。

# 4.5. 今後の事業化見通し

リユース・リサイクルを大規模に事業化することで低炭素型社会及び循環型社会を同時達成できると考えるが、課題として、大量の電池を回収するスキームを確立する必要がある。昨今、自動車業界においては、自動車メーカー各社によるリチウムイオン電池の共同回収網を立ち上げる等、車載用電池回収スキーム構築に向けた検討が加速しており、将来的に車載用電池回収の蓋然性が高まるとともに国内還流の促進が見込まれる。このような環境の変化を踏まえ、供給元である自動車メーカー等と一体となり、今回のような大規模にリユースしてリサイクルする社会システムの確立に向けた検討を推進することで早期の事業化を目指す。