

～ 廃 LED 照明を中心としたガリウム化合物のリサイクル  
と貴金属回収の効率化に関する実証 ～

報告書

令和2年2月

ハリタ金属株式会社

## 目次

1	業務概要 .....	8
1.1	背景と目的.....	8
1.1.1	本実証の背景・社会的課題 .....	8
1.1.2	本実証の目的 .....	11
1.2	業務の概要.....	12
1.3	業務の体制.....	13
1.4	業務のまとめ .....	14
1.4.1	直管型 LED 照明から回収される Ga 化合物を含む素子（以下、LED 素子）の 単体分離・濃縮技術の検証 .....	14
1.4.2	単体分離・濃縮した LED 素子からの Ga 濃縮・精製技術の検証 .....	14
1.4.3	LED 素子の単体分離・濃縮技術と Ga 濃縮・精製技術による連携・最適化要 件の明確化 .....	14
1.4.4	本実証事業の経済的な実現可能性の評価および今後の課題・対応策 .....	15
1.4.5	Ga パワー半導体に関わる本実証技術の横展開可能性.....	15
1.5	スケジュール .....	16
2	Ga 化合物を含む素子の単体分離・濃縮技術の検証 .....	17
2.1	Ga 化合物を含む素子の単体分離検証 .....	17
2.1.1	事前分析と KPI .....	17
2.1.2	使用済み直管型 LED 照明のリサイクルに関する弊社の取組.....	20
2.1.3	縦型破砕機.....	22
2.1.4	クロスフローシュレッダー（CFS） .....	26
2.1.5	電気パルス粉砕（ED） .....	40
2.1.6	縦型破砕機・クロスフローシュレッダー・電気パルスの各方法の比較.....	48
2.1.7	単体分離・濃縮技術検証のまとめ.....	51
2.2	単体分離した LED 素子からの Ga 濃縮・精製技術の検証 .....	52
2.2.1	単体分離・濃縮した LED 素子からの Ga 濃縮・精製装置と改修 .....	53
2.2.2	LED 素子からの Ga 濃縮・精製技術の処理量増加に向けた検証方針 .....	54
2.2.3	LED 素子からの Ga 濃縮・精製技術の連続化に向けた検討 .....	59
2.2.4	LED 素子の Ga 濃縮・精製に要する電力量の評価結果 .....	62
3	本実証の事業化検討 .....	65
3.1	LED 素子の単体分離・濃縮技術と Ga 濃縮・精製技術による連携・最適化要件の 明確化 .....	65
3.1.1	単体分離された LED 素子からの Ga 濃縮・精製.....	65
3.1.2	LED 素子の単体分離・濃縮技術と Ga 濃縮・精製技術の連携.....	71

3.2	使用済製品からの Ga リサイクルの可能性 .....	73
3.2.1	Ga 製錬の状況 .....	73
3.2.2	Ga リサイクルの状況.....	76
3.2.3	本実証事業で回収した Ga 化合物の出口検討.....	79
3.3	Ga パワー半導体に関わる本実証技術の横展開可能性.....	81
3.3.1	Ga パワー半導体製品の拡大見込み.....	81
3.3.2	本実証事業による Ga パワー半導体への横展開の可能性 .....	84
3.3.3	本実証事業の商用化に向けた検討.....	86
3.4	商用化に向けたマイルストーン .....	87
3.5	本実証事業の経済的な実現可能性の評価（既存技術との比較） .....	89
4	環境影響評価 .....	91
4.1.1	インベントリ・バウンダリの考え方 .....	91
4.1.2	評価結果 .....	97
4.1.3	LCA 改善・商用化に向けた更なる高効率化の検討.....	100
4.1.4	環境影響評価のまとめ .....	102
5	参考資料 .....	103
5.1	共同実施者との打合せ .....	103
5.2	現地視察会の開催 .....	103
5.3	評価審査委員会及び最終報告会への出席 .....	103

## 要旨

低炭素製品として普及している LED 照明については、廃製品の回収・リサイクルの取組が一部で開始されているものの、それらに含まれるガリウム（以降、Ga）のリサイクルが行われていない状況にある。

一方、電気自動車等の低炭素製品に使用されるパワー半導体では、Ga 化合物を用いたパワー半導体が従来のシリコン半導体に比べて高効率かつ省エネルギーに寄与する。今後、5G ネットワーク等の情報通信機器、自動車の DC-DC コンバータやオンボードチャージャー、太陽光発電設備のパワコン等での Ga パワー半導体需要の拡大とともに、廃棄量の増加が見込まれる。

このため、Ga を含有する低炭素製品の廃棄量が増加していくことを想定し、それらの廃製品を回収して Ga をリサイクルできる技術・システムを整備することが解決すべき重要な社会課題の一つである。

弊社では、既に使用済み直管型 LED 照明の回収スキームを構築し、アルミニウム、銅、鉛、貴金属を濃縮し、精錬所へ売却することに成功している。

そこで本実証事業は、直管型 LED 照明から付加価値の高い貴金属や Ga 等をより多くリサイクルし、リサイクルの事業性向上、社会システムとしての実装・普及に貢献を目指すものである。

直管型 LED 照明には Ga 化合物を含む LED 素子が使われており、その単体分離・濃縮技術として、堅型破砕機 (VS)、クロスフローシュレッダー (CFS)、電気パルス粉砕 (ED) といった既存の技術を組み合わせて使用済み直管型 LED 照明を破砕・物理選別を行い、LED 素子の単体分離・濃縮のための複数方式を検証し、最適なプロセス及び条件を検討した。

また、既に弊社にて大量処理用として商用化されている堅型破砕機、各種素材の非破壊単体分離に実績があるクロスフローシュレッダー、効率的な非破壊単体分離のために極めて高いポテンシャルを有する電気パルス破砕の 3 種類の破砕・選別装置によって単体分離された LED 素子を、乾式プロセスにて濃縮・精製できるように、乾式プロセスの処理量の増加の検証と、連続化に向けた装置の改修を行なった。なお、処理量の増加に関しては、現行の 50 倍程度を目標とした。

結果として、各方式による処理の最適条件を明確にすることができ、乾式プロセスとの連携に適する方式として、電気パルスが最も適していること、商用化に向けてはクロスフローシュレッダーが現実的であることが分かった。

また、乾式プロセスについては、目標である現行の処理量 50 倍程度と、連続化を実現することができ、商用化に向けた更なる大型化の可能性を見出したと同時に破砕プロセスで回収された LED 素子に含まれる金属に酸素を奪われることから、最適なガス雰囲気の実現と、更なる熱効率向上に向けた内熱式の実現が課題になることが分かった。

一方で、商用化に向けては、回収可能となった Ga 化合物の販売先候補を探索できたものの、現状の使用済み直管型 LED 照明回収量だけでは、十分な量の Ga 化合物を回収できないことから、今後、Ga パワー半導体の普及に伴う回収ルート構築により、LED 素子だけでなく、Ga パワー半導体等の工程スクラップ、Ga パワー半導体を含む使用済み製品などから Ga を回収することで、Ga 化合物の回収量増加が見込める可能性があることが分かった。

ただし、商用化に向けた経済性については、本実証事業の検証結果では既存事業よりも悪化しており、課題が残る結果となった。本実証事業を通じて、Ga 関連製品の市場拡大に伴う回収量増加や市況の変化を継続的にモニタリングし、更に乾式プロセスの課題解決、単体分離・濃縮技術の実用化等により経済性は改善する余地が期待できることが分かったため、商用化に向けたマイルストーンを整理した。

また、低炭素効果について検証を行った結果、商用化に向けて乾式プロセスの高度化により、使用済み製品において未回収元素である Ga の回収実現と低炭素化の実現が両立する可能性に関する示唆が得られた。

## SUMMARY

For LED lighting, which is widely used as a low-carbon product, efforts to collect and recycle waste products have been started in part, but Gallium (Ga) contained in these products has not been recycled yet.

On the other hand, in a power semiconductor used for a low carbon product such as an electric vehicle, a power semiconductor using a Ga compound contributes to high efficiency and energy saving compared to a conventional silicon semiconductor. In the future, the amount of waste is expected to increase along with an increase in demand for Ga-power semiconductors in information and communication equipment such as 5G networks, DC-DC converters and on-board chargers for automobiles, and power converters for photovoltaic power generation facilities.

Therefore, it is an important social problem to solve the problem of developing a technology and system capable of recovering and recycling Ga by assuming that the amount of waste of low carbon products containing Ga will increase.

We have already constructed a recovery scheme for used straight-tube LED lighting, and have successfully concentrated aluminum, copper, lead, and precious metals and sold them to refineries.

Therefore, this demonstration project aims to recycle more precious metals, Ga, etc. with high added value from straight tube type LED lighting, to improve the business efficiency of recycling, and to contribute to mounting and popularization as a social system.

The LED element containing Ga compound was used for the straight tube type LED illumination, and as the simple separation and concentration technique, the used straight tube type LED illumination was crushed and physically sorted by combining existing technologies such as vertical crusher (VS), cross flow shredder (CFS) and electric pulse crushing (ED), and the plural methods for single separation and concentration of LED element were verified, and the optimum process and condition were examined.

In addition, in order to concentrate and purify the LED elements separated by three types of crushing and sorting equipment, i.e., vertical crusher, which has already been commercialized for mass treatment, cross-flow shredder, which has a track record in non-destructive single-body separation of various materials, and electric pulse crushing equipment, which has extremely high potential for efficient non-destructive single-body separation, in the dry process, the increase of the throughput of the dry process was verified, and the equipment for continuation was renovated. Incidentally, an increase in the throughput was targeted at about 50 times the current level.

As a result, it was found that the optimum condition of the treatment by each method can be clarified, that the electric pulse is most suitable as a method suitable for the cooperation with the dry process, and that the cross flow shredder is realistic for commercialization.

As for the dry process, it was found that it was possible to realize continuation with a target of about 50 times the current throughput, and further increase in size for commercialization. At the same time, oxygen was deprived of the metal contained in the LED element recovered by the crushing process. Therefore, it was found that realization of an optimum gas atmosphere and realization of an internal thermal process for further improvement of thermal efficiency became problems.

On the other hand, in order to commercialize Ga compounds, it was possible to search for potential customers who could recover Ga compounds. However, it is not possible to recover a sufficient amount of Ga compounds using only the current amount of recovered used straight-tube LED lighting. Therefore, it is possible to increase the recovery amount of Ga compounds by recovering Ga from not only LED elements but also process scraps such as Ga power semiconductors and used products including Ga power semiconductors by constructing recovery routes along with the spread of Ga power semiconductors in the future.

However, the economic efficiency toward commercialization was worse in the verification results of this demonstration project than in the existing projects, and problems remained. Through this demonstration project, we have continuously monitored the increase in recovery volume and changes in market conditions due to the expansion of the market for Ga-related products, and further, we have found that there is room for economic improvement by solving the problems of dry process and commercialization of single-unit separation and enrichment technologies. Therefore, we have arranged a milestone for commercialization of Ga-related products.

As a result of examining the low carbon effect, the possibility that the realization of recovery of Ga, which is an unrecoverable element, and the realization of low carbon in the used product can be compatible by the improvement of the dry process for commercialization was obtained.

## 1 業務概要

### 1.1 背景と目的

#### 1.1.1 本実証の背景・社会的課題

低炭素製品として普及している LED 照明については、廃 LED 照明からのアルミニウム、銅、鉛、貴金属の回収は一部で実施されているものの、LED 照明に含まれている付加価値の高い貴金属やガリウム（以下、Ga とする）等をより多くリサイクルできれば、リサイクルの事業性が高まり、社会システムとしての実装・普及の進展が期待される。

また、今後、情報通信機器、電気自動車等の低炭素製品に使用されるパワー半導体、パワーコンディショナー等での Ga パワー半導体需要の拡大とともに、廃棄量の増加が見込まれる。そのため本実証では、これらの廃製品を回収して Ga をリサイクルできる技術・システムを構築する必要性が高まっている。

LED 照明では、廃製品の回収・リサイクルの取組が一部で開始されているものの、それらに含まれる Ga のリサイクルが行われていない状況にある。

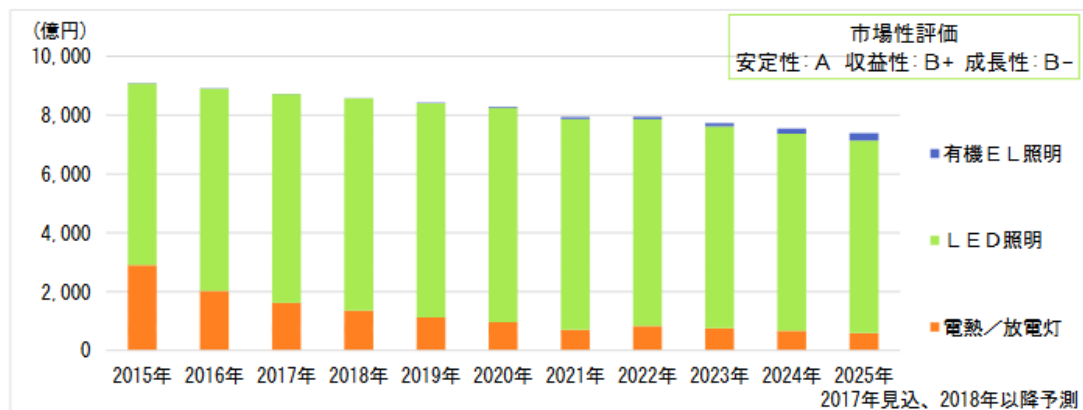
一方、電気自動車等の低炭素製品に使用されるパワー半導体では、Ga 化合物を用いたパワー半導体が従来のシリコン半導体に比べて高効率かつ省エネルギーに寄与する。今後、5G ネットワーク等の情報通信機器、自動車の DC-DC コンバータやオンボードチャージャー、太陽光発電設備のパワコン等の多様な分野・用途での Ga パワー半導体需要の拡大とともに、廃棄量の増加が見込まれる。

このため、Ga を含有する低炭素製品の廃棄量が増加していくことを想定し、それらの廃製品を回収して Ga をリサイクルできる技術・システムを整備することが解決すべき重要な社会課題の一つである。

現在、ハリタ金属では、先行的に廃 LED 照明（業務用）の回収スキームを構築し、アルミニウム、銅、鉛、貴金属を濃縮し、精錬所へ売却することに成功している。LED 照明から付加価値の高い貴金属や Ga 等をより多くリサイクルできれば、リサイクルの事業性が高まり、社会システムとしての実装・普及に貢献できる。

Ga は主に LED 照明機器等で利用されており、広く一般に普及している。今後、LED 照明の市場規模は、2018 年以降に約 7,000 億円程度で安定し、以降も同程度の需要が続くと予想される。



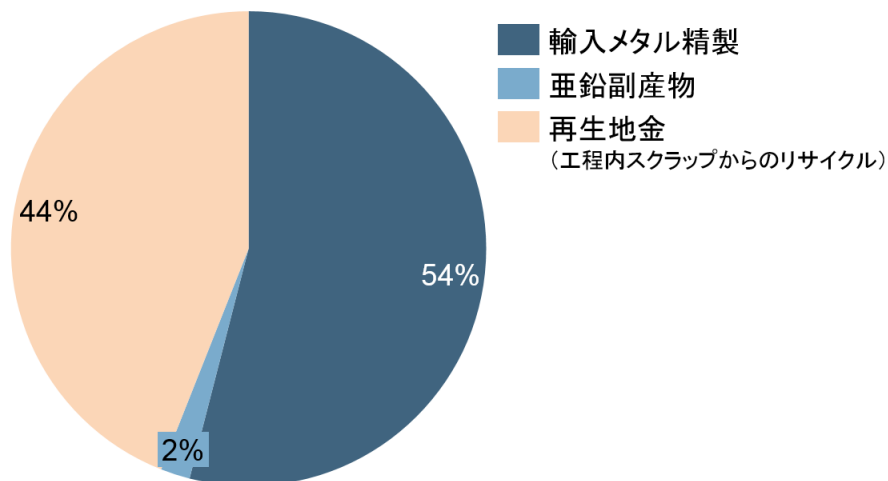


出所) 富士経済「Special Appli. 光源/照明市場実態・技術・予測 2018年版」

図 1.1.1-1 照明製品 国内市場

環境に配慮した企業活動の遂行や恒常的な節電需要の高まりを受け、従来の蛍光灯に比べ CO2 排出量や消費電力の削減につながる LED 照明の導入を推進する企業や団体が急速に拡大している。また、LED チップの高性能化が進む中で、より高効率な LED 照明への買い替えも急速に進んでいる。

既に、廃 LED 照明の回収・リサイクルの取組は一部で開始されている。しかしながら、廃 LED 照明だけでなく、Ga のリサイクル自体が工程内スクラップ由来のみで行われており、廃製品からの Ga リサイクルは現在行われていない。



出所) JOGMEC「鉱物資源マテリアルフロー 2017 16. ガリウム (Ga)」

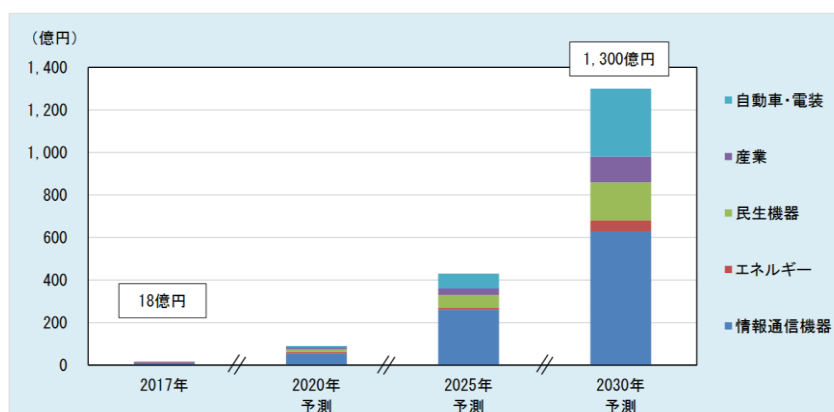
図 1.1.1-2 Ga 国内供給 (2016年)

このような中、Ga の化合物である窒化ガリウム (GaN) や酸化ガリウム (Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) は高効率・エネルギー低損失な「次世代パワー半導体」として市場規模が拡大しており、富士経

済「2018年版 次世代パワーデバイス&パワエレ関連機器市場の現状と将来展望」によると2019年以降には本格的に需要が増加し、2030年には GaN の世界市場規模が 1,300 億円（2017年比 72.2倍）程度見込まれる。5G ネットワーク等の情報通信機器、自動車の DC-DC コンバータやオンボードチャージャー、太陽光発電設備のパワコン等での Ga パワー半導体の需要の増加が予想される。

Ga 化合物を用いたパワー半導体は、従来のシリコン半導体に比べて高効率かつ省エネルギー化に寄与するため、市場規模は着実に拡大しており、2019年以降に本格的に需要が増加すると予想される。

- GaN 系パワー半導体は、今後、情報通信機器、太陽光発電用パワコン、自動車・電装分野、工作機械・医療機器等の様々な用途分野で採用が進むと見られ、2030年には 1,300 億円程度の世界市場規模になる見通しである
- Ga2O3 系パワー半導体は、2018 年後半から需要が増加し、2030年には 1,450 億円程度の世界市場規模になる見通しである。今後は、民生機器分野や情報通信機器分野以外にも、自動車・電装分野等の様々な用途での展開が期待される。



出所) 富士経済「2018年版 次世代パワーデバイス&パワエレ関連機器市場の現状と将来展望」

図 1.1.1-3 GaN パワー半導体 世界市場需要予測

このため、まずは廃 LED 照明について Ga をリサイクルできる技術・システムを整備し、Ga を含有する低炭素製品の廃棄量の増加へ対応するための足がかりとすることが解決すべき重要な社会課題の一つである。

対象とするGa含有製品	解決すべき社会課題	本実証事業のテーマとねらい
LED照明	<ul style="list-style-type: none"> <li>・廃製品の排出量が増えつつあり、回収・リサイクルの取組みが始まっている</li> <li>・しかし、Gaリサイクルは実現できていない</li> </ul>	<p>①Ga素子の単体分離・濃縮に関わる技術検証</p> <p>単体分離による物理的な濃縮を目指す。既存設備を使ったラボ実験でGa回収を確認済</p> <p>②Ga濃縮・精製に関わる技術検証</p> <p>素子の単体分離・濃縮技術との連携による貴金属回収の効率化、プロセス最適化をねらう</p>
Gaパワー半導体	<ul style="list-style-type: none"> <li>・従来のシリコン半導体に比べて省エネであるため、今後、需要の増大が見込まれる</li> </ul>	<p>③事業性評価</p> <p>①②の事業性評価に加えて、単体分離・濃縮技術に関わる知見を活用して、他製品からのGa回収・リサイクルへの横展開の可能性を探る</p>

図 1.1.1-4 廃LED照明を中心としたGa化合物のリサイクルの社会課題とテーマ

### 1.1.2 本実証の目的

本実証事業は、Gaリサイクルにおける事業性を高めるため、以下を実証することを目的とする。

- ① Ga化合物を含む素子の単体分離技術・濃縮技術の検証、Ga濃縮・精製技術の検証
- ② 上記技術の連携による貴金属回収の効率化・プロセス最適化
- ③ Gaパワー半導体等の他製品への上記技術の適用可能性、Ga・貴金属等の回収・リサイクル可能性の検討

## 1.2 業務の概要

本実証事業では、「Ga化合物を含む素子の単体分離・濃縮」と「Gaの濃縮・精製」を実証し、その結果も踏まえて、環境改善効果の考え方を検討したものである。

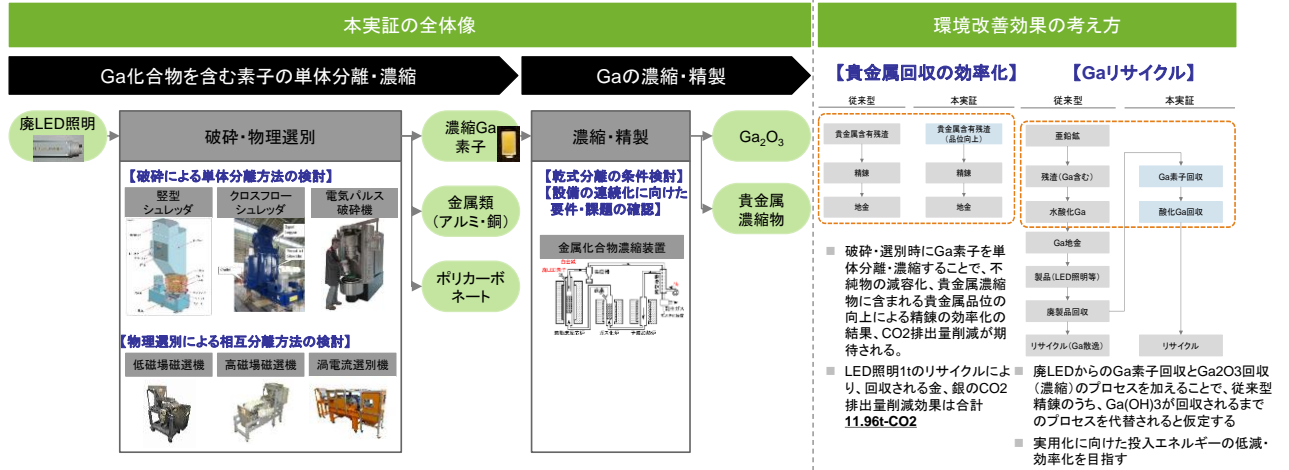


図 1.2-3 実証概要イメージ

### 1.3 業務の体制

本実証事業では、以下の体制で業務を実施した。

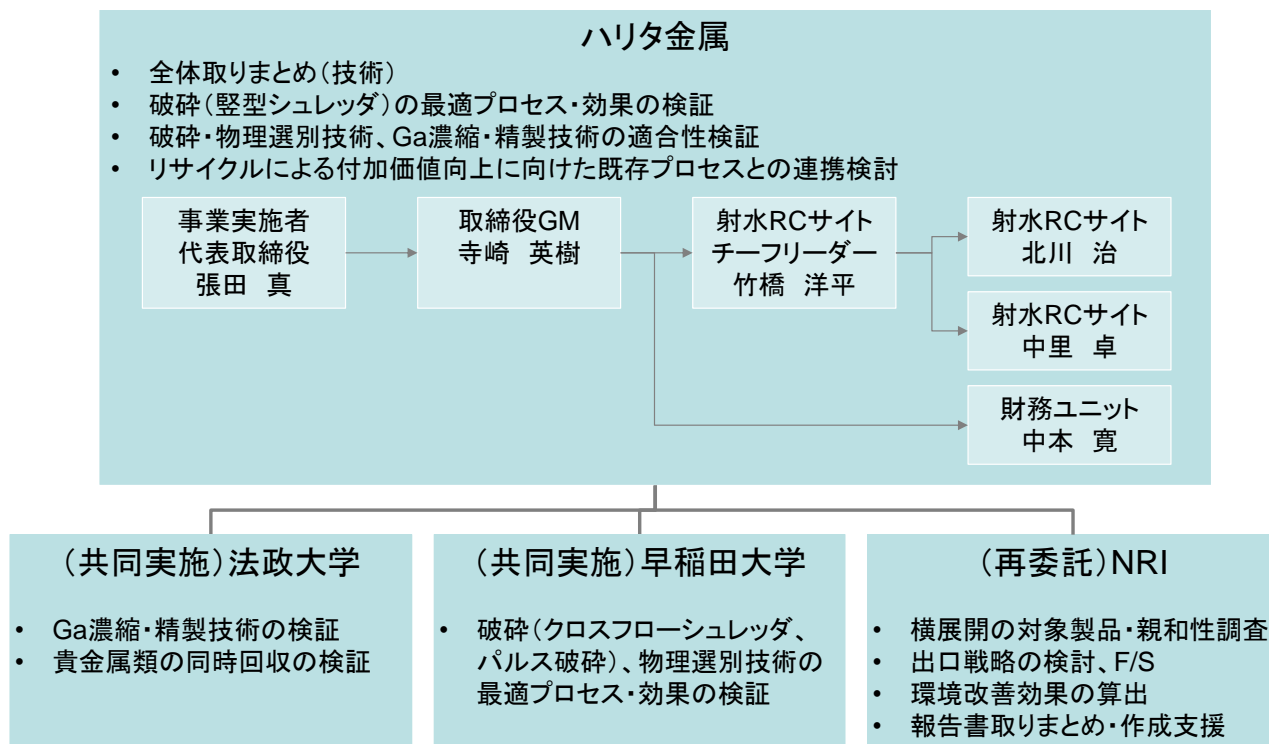


図 1.3-1 業務の実施体制

## 1.4 業務のまとめ

### 1.4.1 直管型 LED 照明から回収される Ga 化合物を含む素子（以下、LED 素子）の単体分離・濃縮技術の検証

- 堅型破砕機・クロスフローシュレッダー・電気パルス粉砕機にて、それぞれの最適条件およびその際の LED 素子の剥離率・非破壊率を把握し、その原因を追究し、成果を得た。
- 堅型破砕機は、大量処理用としてすでに商用化されており、他のシュレッダーに比べて各種構成素材の単体分離が向上するとの実績があるが、LED 素子の非破壊剥離・濃縮には不向きであった。クロスフローシュレッダーは、すでに商用化され各種素材の非破壊単体分離に実績があり、LED 素子の非破壊剥離にも好適であるが、バッチ式の少量処理機であり、大量処理には課題が残る。また、現状では直径 1250 mm のものが最大で、直管型 LED 蛍光灯を処理する場合には、事前に破断する必要がある。電気パルス粉砕は、LED 素子の非破壊剥離にはベストの成績であったが、リサイクルプラントへの導入実績は世界的にも 1 例しかなく、商用化には実績不足と考えられる。

### 1.4.2 単体分離・濃縮した LED 素子からの Ga 濃縮・精製技術の検証

- 乾式プロセスの処理量増加に向けて、従来は 1 g を 5 時間で処理していたものを、5 g を 1 時間で処理した（現行の 25 倍で実施）。さらに、熱処理時間を 30 分以下にまで短縮できることを示唆するデータを得ており、現行の 50 倍の目標を達成できることを明らかにした。連続化に関しては、1 日の連続運転を可能にするための残渣連続排出機構を開発し、一定の成果を得た。
- 本技術は、Au の濃縮と Ga の分離・濃縮を同時に行うことが商用化に向けた課題であった。実際の破砕サンプルを用いた場合にも、Au の濃縮と Ga の分離・濃縮に関する効果はみられた。しかし、商用化を目指した場合、Ga の純度を更に高める必要があることが分かった。また、処理量増加の対策を取ったものの、投入エネルギー（使用電力量）は、依然として大きかった。これは、現行の装置で赤外線加熱方式を採用していることが大きな要因であり、加熱方式を抵抗加熱方式に変更すれば、一定の改善がなされる。

### 1.4.3 LED 素子の単体分離・濃縮技術と Ga 濃縮・精製技術による連携・最適化要件の明確化

- 単体分離の結果、CFS または ED による単体分離から得られる原料が最も乾式プロセスに適していることが分かった。ただし、いずれも Al 等の金属類を含むため、ガス雰囲気中の酸素を吸着する問題が発生し、Ga の収率低下につながった。
- 単体分離後の原料における Al 等の金属類と、Ga の収率の相関性を明確にし、Ga 収率向上に向け、十分な酸素を供給するためのガス雰囲気調整が必要。

#### 1.4.4 本実証事業の経済的な実現可能性の評価および今後の課題・対応策

- 酸化 Ga の購入企業候補を 3 社見出し、1 社については、購買条件を確認している。金 (Au)・銀 (Ag) については、それぞれ、乾式プロセスの残渣と、噴流床炉から回収管の間に濃縮されており、Au、Ag、Ga の選択的回収が可能であることが分かった。
- 購買条件における希望量 (5kg) に対して、商用化時の回収量が見合うか要検討である。Ga・貴金属の回収量については、本実証では貴金属ロス拡大可能性と乾式プロセスにかかるコストの影響で、収益が悪化する。今後の更なる改善余地が期待される。

#### 1.4.5 Ga パワー半導体に関わる本実証技術の横展開可能性

- Ga パワー半導体の将来展望として、窒化ガリウム及び酸化ガリウムの普及見通しを調査し、需要が高まる可能性を示した。また、窒化ガリウムの用途と利用拡大の動きを調査し、本実証で検討した単体分離技術のうち、CFS が適用可能であることを示唆出した。
- Ga パワー半導体を乾式によって濃縮・精製できるかは試験できていないため、今後要検証である (ただし、LED 素子と組成が近いため適用可能性はあると考えられる)。商用化に向けては、Ga パワー半導体の回収ルート構築、濃縮・精製プロセス検証、濃縮・精製後に回収される酸化ガリウム製錬技術との連携など、複数課題への対応と更なる事業性検証の余地が残る。

## 1.5 スケジュール

本実証事業では、以下のスケジュールで業務を実施した。

番号	業務内容	実施月	前月の結果												備考	
			4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3		
1	Ga化合物を含む素子(以下、Ga素子)の単体分離・濃縮技術の検証	予定														
		進捗														
2	単体分離・濃縮したGa素子からのGa濃縮・精製技術の検証	予定														
		進捗														
3	Ga素子の単体分離・濃縮技術とGa濃縮・精製技術による連携・最適化要件の明確化	予定														
		進捗														
4	本実証事業の経済的な実現可能性の評価および今後の課題・対応策	予定														
		進捗														
5	Gaパワー半導体に関わる本実証技術の横展開可能性	予定														
		進捗														
6	報告書の作成	予定														
		進捗														
7		予定														
		進捗														
8		予定														
		進捗														
9		予定														
		進捗														

図 1.5-1 業務の実施スケジュール



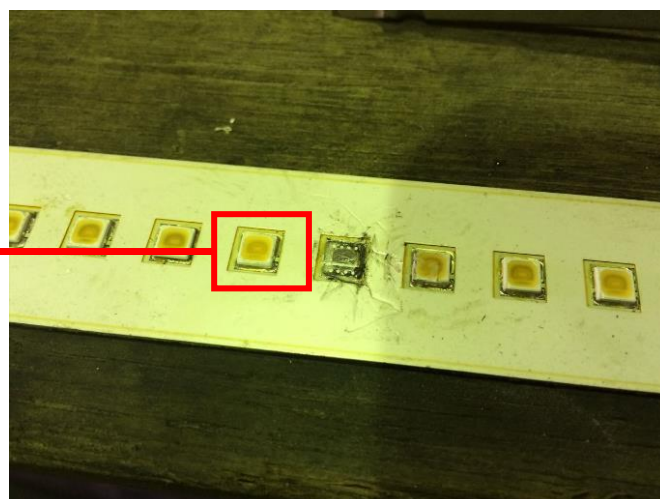
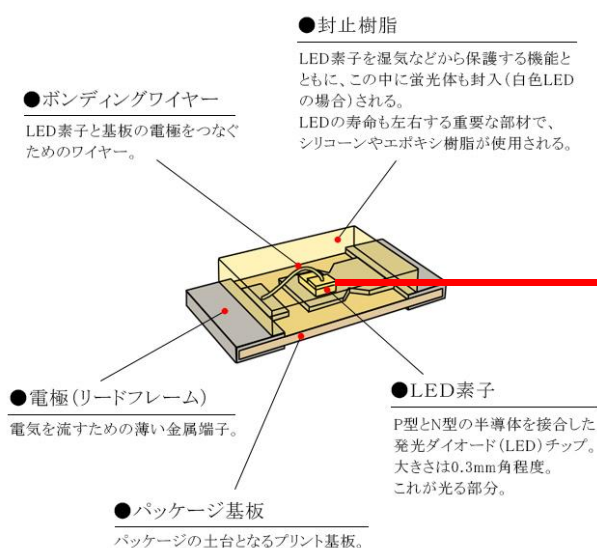
## 2 Ga 化合物を含む素子の単体分離・濃縮技術の検証

本節では、堅型破砕機 (VS)、クロスフローシュレッダー (CFS)、電気パルス粉碎 (ED) といった既存の技術を組み合わせて廃 LED 照明を破砕・物理選別を行い、LED 素子の単体分離・濃縮のための複数方式を検証し、最適なプロセス及び条件を検討した。

### 2.1 Ga 化合物を含む素子の単体分離検証

#### 2.1.1 事前分析と KPI

本実証実験では直管型 LED 照明を対象としており、LED 照明のうち、Ga・貴金属を含有するのは、LED 素子であり、直管型 LED 照明 1 本あたり約 100 個の LED 素子のはんだ付けされている。

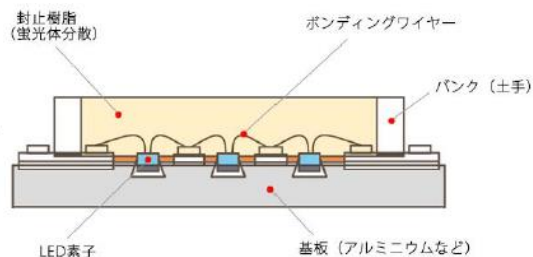


出典) <http://www.my-craft.jp>

図 2.1.1-1 LED 素子（表面実装型）の構造と直管型 LED 照明（はんだ付けされている LED 素子）

破砕試験前の EDS 搭載走査型電子顕微鏡(SEM-EDS)による分析では、弊社で集荷した直管型 LED 蛍光灯から取り出した LED 素子について、電子線にて励起された特性 X 線を検出することにより、含有元素、およびその組成比について、LED 素子構造例(図 2.1.1-2) との比較により特定した。

LED 素子は樹脂に埋め、研磨をしたものを使用した。



出典) <http://www.my-craft.jp>

図 2.1.1-2 LED 素子構造例

SEM-EDM による LED 素子の成分マッピングから半導体の部分に Ga, その周辺にボンディングワイヤーの断面とみられる点状の金が認められた。(図 2.1.1-3)

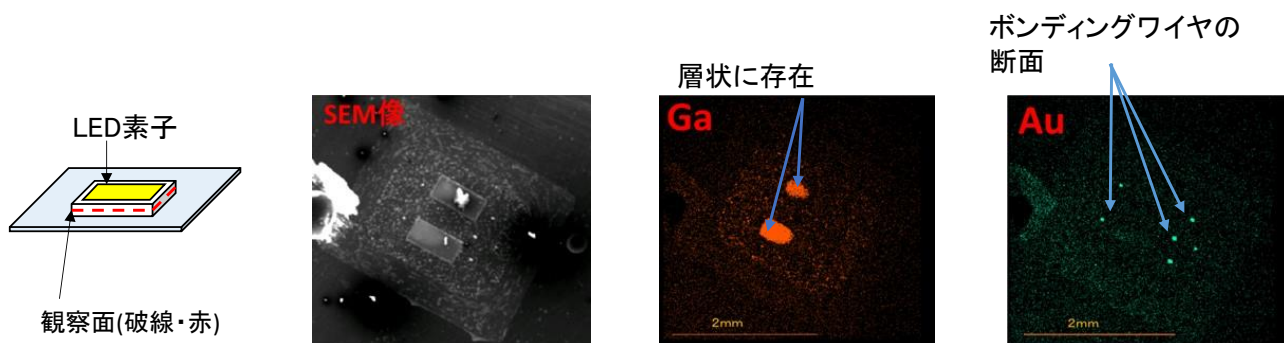


図 2.1.1-3 走査電子顕微鏡 (SEM) での LED 素子のマッピング

このことから、本実証実験では直管型 LED 照明から LED 素子を効率よく単体分離し、回収するだけでなく、極力 LED 素子を破壊せずに単体分離することが、Ga・貴金属の回収効率を向上させることに繋がるものと推測される。

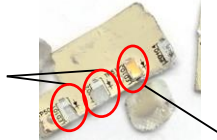
本実証実験で実施される縦型破砕機 (VS)、クロスフローシュレッダー (CFS)、電気パルス粉砕 (ED) の各手法を比較・評価するための指標として、LED 照明からの LED 素子の剥離率・破壊率・非破壊剥離率を図 2.1.1-4 の通り定義する。

$$\text{剥離率} = \frac{\text{素子の総数} - \text{非剥離物}}{\text{素子の総数}}$$

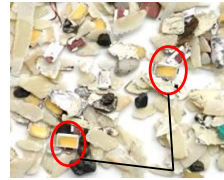
$$\text{破壊率} = \frac{\text{素子の総数} - \text{非剥離物} - \text{非破壊剥離物}}{\text{素子の総数}}$$

$$\text{非破壊率} = \frac{\text{非破壊剥離物}}{\text{素子の総数}}$$

LED素子が剥離したあと



非剥離物



非破壊剥離物

図 2.1.1-4 LED 素子の剥離率・破壊率・非破壊剥離率の定義

## 2.1.2 使用済み直管型 LED 照明のリサイクルに関する弊社の取組

弊社では直管型 LED 照明メーカーや大手小売と連携して、商業施設・店舗等から排出される使用済み直管型 LED 照明を全国から回収するスキームを構築済みであり、使用済み直管型 LED 照明からの資源回収を目的として、商用ベースでリサイクルを進めている。

全国で集められた使用済み直管型 LED 照明は専用のプラスチック段ボール（プラダン BOX）に入れ、コンテナ詰めの上、鉄道により弊社工場の最寄まで輸送され、トラックで弊社工場に搬入される。

弊社に搬入されたコンテナの荷下ろし作業は表 2.1.2 及び図 2.1.2 の流れとなっている。

作業No.	作業内容	作業人数	作業時間
1	計量（荷降ろし前）	0名	3分
2	LEDの入ったコンテナを積んだトラックを第2工場建屋内へ誘導し、フォークリフトでコンテナを荷降ろしする。	1名	8分
3	コンテナを開け、LEDの入ったプラダンの箱、パレットをすべて手降ろしで出す。	5名	9分
4	空のコンテナを再びリフトでトラックに積む（誘導は運転手にしていただく）。	1名	2分
5	荷降ろし後の計量および検収を行う。	1名	3分
6	LEDを空けるためのボックスを用意する。	1名	5分
7	プラダンを開封し、中に入っているLEDをすべて7. のボックスにあける（別紙のリストにない型番があればサンプルとして3本抜き取っておく）	2名	52分
8	箱にLEDが一杯になったら第2工場の5tスケールで計量し、別のNo.1ボックスを用意する。	1名	5分
9	空のプラダンは折り畳み、運搬用コンテナに所定の枚数分戻す。	2名	24分
実作業人数および実作業時間		5名	97分

※ 9は7,8と同時進行で行ったため、実作業時間は**97分であった**。

表 2.1.2 作業工程および作業人員

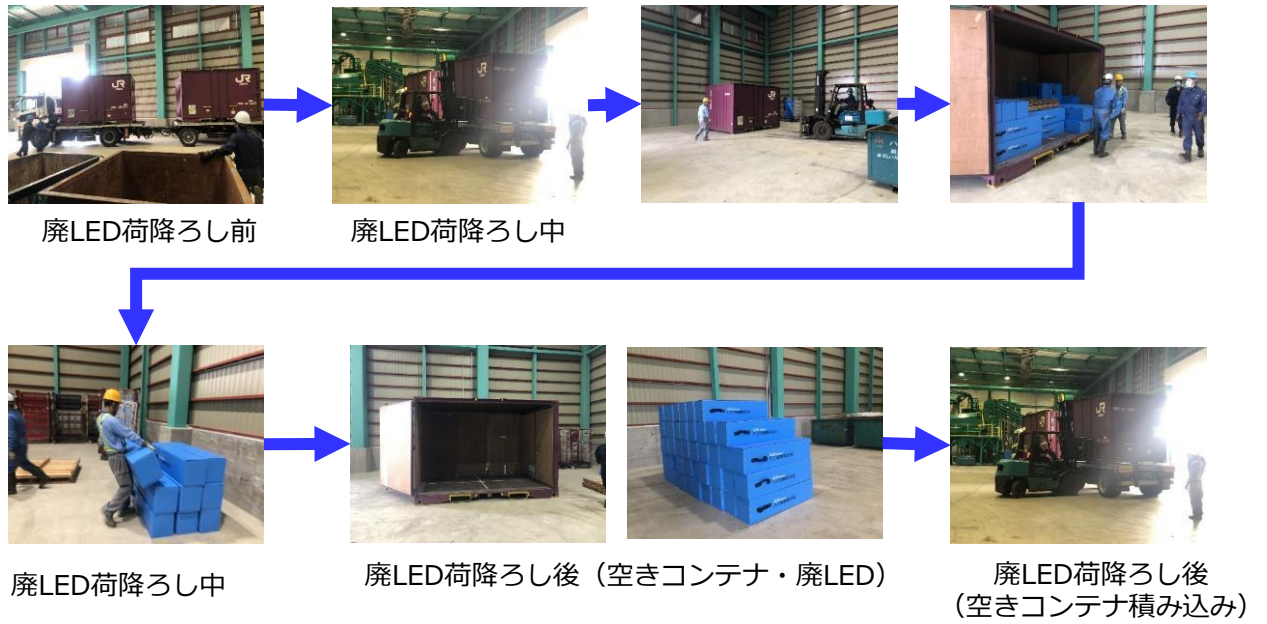


図 2.1.2 廃LED 荷降ろし手順

### 2.1.3 縦型破砕機

#### (1) 縦型破砕機による破砕方法

弊社では、使用済み直管型 LED 照明について縦型破砕機及び破砕物の選別設備を導入しており、工場に搬入されたコンテナから荷降ろし後のプラダン BOX を開梱し、使用済み直管型 LED 照明を縦型破砕機に投入している（図 2.1.3-1 参照）。

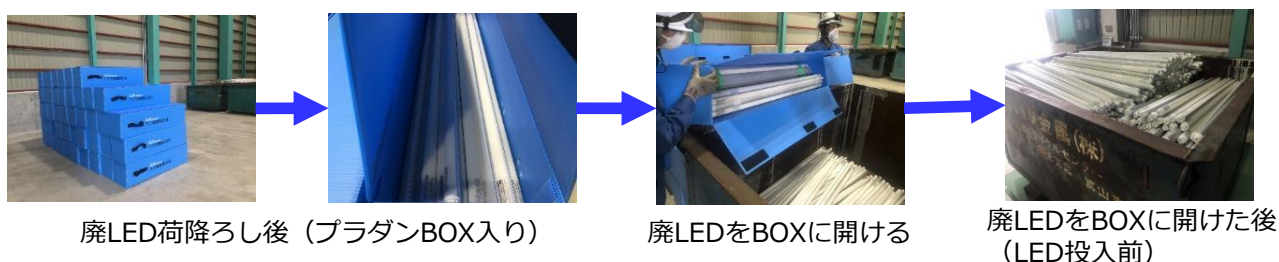
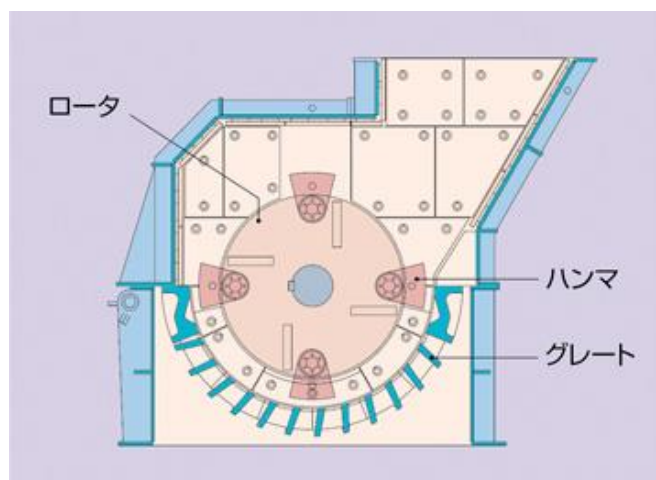


図 2.1.3-1 プラダン BOX に入った使用済み直管型 LED 照明

縦型破砕機を導入した理由は、過去に早稲田大学の和田研究室が関与した事業（JOGMEC 事業、2012~2015 年度）において、各種部品や素材の単体分離にはせん断力支配の破砕機が適していることが分かっており、一般的な衝撃式シュレッダーでは、対象物に主として圧縮力と衝撃力が与えられ、基本的にランダムな破壊のみとなるためである。

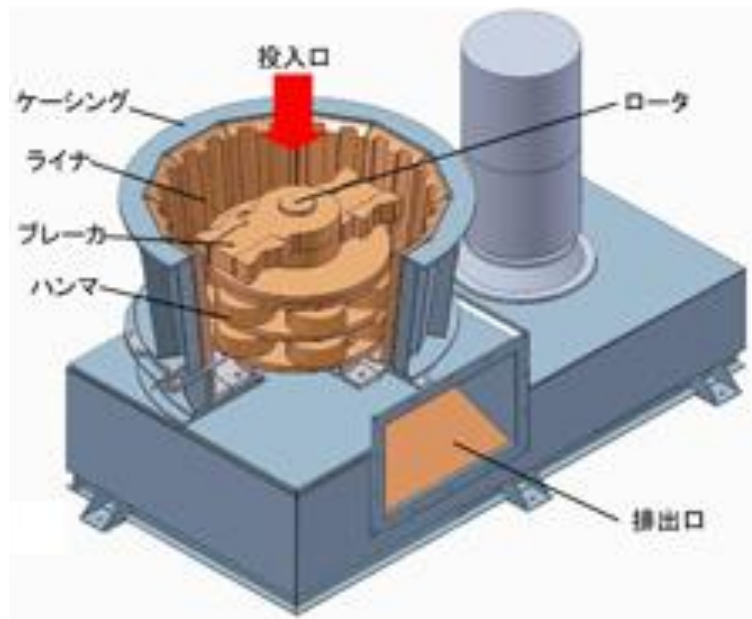
縦型破砕機では対象物に主としてせん断力と衝撃力が与えられるため、各種の複合素材の単体分離が可能となり、直管型 LED 照明のリサイクルに適していることが分かっている。

本実証事業を通じて、弊社の縦型破砕機及び選別設備と法政大学の乾式プロセス（後述）を組み合わせることで、Ga 回収の実現及び貴金属の回収効率化により、使用済み直管型 LED 照明リサイクルの更なる経済性向上、低炭素化の可能性を検証する。



出典) アーステクニカ (株) HP

図 2.1.3-2 衝撃式シュレッダーの構造 (例)



出典) 川崎重工 (株) HP

図 2.1.3-3 縦型破碎機の構造 (例)

使用済み直管型 LED 照明のリサイクルフローは図 2.1.3-4 の通りであり、使用済み直管型 LED 照明を縦型破碎機に投入後、複数工程の選別を行っている。本実証事業では単体分離の対象となっている LED 素子が非破壊状態で粒度が約 4mm となっているため、選別プロセスから回収可能な 6mm アンダーの回収物に着目する。

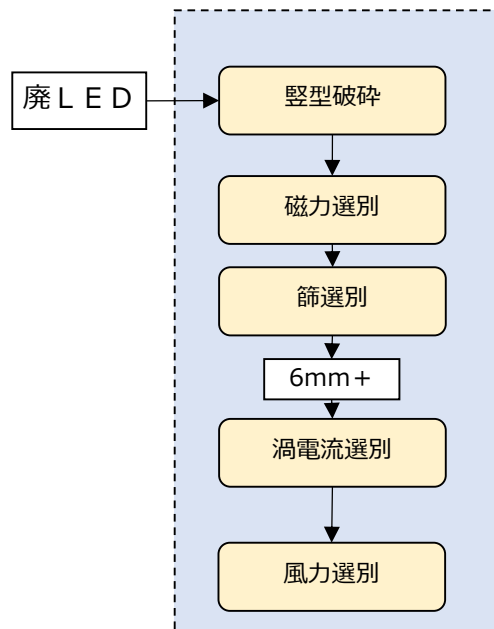


図 2.1.3-4 使用済み直管型 LED 照明のリサイクルフロー

(2) 縦型破砕機による破砕結果

本実証事業において、縦型破砕機のチョークリング幅を 50mm、30mm のそれぞれについて比較検討を行い、剥離率、非破壊率を概算した。

縦型破砕機による破砕結果は下表のとおりである。弊社では商用ベースの効率性のため、1 度に使用済み直管型 LED 照明を数千本破砕処理しているため、1 本 1 本調べる手法が採れない。

そこで、縦型シュレディングした実績に基づき、6mm アンダー内に含まれる LED 素子の重量から、剥離率、破壊率、非破壊率を下記のように概算した。

(概算手順)

- ① LED (直管形) 1 本を手解体したときの LED 素子の重量比を算出
- ② LED 縦型破砕物 1kg あたりに含まれる LED 素子 (きれいな状態のもの、破壊されたものを含む) の比率を算出。  
(①と②が同値であれば剥離率は 100%となる)
- ③ LED 縦型破砕物中に含まれる LED 素子の中で、きれいな状態で残っているものの比率を重量比で算出  
(この値が非破壊率に該当する)
- ④ ②-③から破壊率を算出

表 2.1.3-1 縦型破砕機(縦型)の試験結果

	チョークリング30mm				チョークリング50mm			
	LED回収量		サンプリング重量		LED回収量		サンプリング重量	
	重量[g]	含有率[%]	重量[g]	含有率[%]	重量[g]	含有率[%]	重量[g]	含有率[%]
4~6mm	1.0	0.10	96	9.32	1.0	0.10	133	13.7
2~4mm	13	1.26	389	37.77	36	3.71	316	32.6
1~2mm	13	1.26	202	19.62	8.3	0.86	183	18.9
~1mm	x	???	343	33.30	x	???	338	34.8
total	27+x	2.62 ~	1030	100.0	45.3+x	4.67 ~	970	100.0



表 2.1.3-2 チョークリング 30mm/50mm における剥離率・破壊率・非破壊率の結果比較

KE-600 チョークリング幅設定値		30mm	50mm
実測値	サンプリング重量[g]	ア 1030	イ 970
実測値	サンプル中に含有しているLED重量[g]	イ 27	ウ 45.3
実測値	サンプル中に含有している非破壊LED重量[g]	ウ 2.928	エ 2.2
実測値	投入LED母材重量[kg]	エ 1370	オ 1964
実測値	母材から得られた6mmアンダー製品重量[kg]	オ 66	カ 130
	(オ) × 1000 ÷ (ア) × (イ) 6mmアンダー中に含有しているLED重量[g] (推定値)	カ 1730	キ 6071
実測値	直管型LEDにおけるGa素子含有率	キ 0.0083	ク 0.0083
	(エ) × (キ) × 1000 直管型LEDに含まれるGa素子重量[g] (推定値)	ク 11371	ケ 16301.2
	(カ) ÷ (ク) 剥離率 (重量換算)	ケ <b>15.21%</b>	コ <b>37.24%</b>
	(オ) × 1000 ÷ (ア) × (ウ) 非破壊LED素子の重さ (推定値)	コ 187.6	サ <b>294.8</b>
	(コ) ÷ (ク) 非破壊率 (重量換算)	サ <b>1.65%</b>	シ <b>1.81%</b>
	(ケ) - (サ) 破壊率 (重量換算)	シ <b>13.57%</b>	ス <b>35.44%</b>

チョークリング 30mm とチョークリング 50mm の場合の LED 素子回収物を比較すると、封止した樹脂がとれた電極が多数あることで、剥離率と破壊率を押し上げた要因になったことと、この違いが 30mm と 50mm における剥離率・破壊率に違いが見られた結果となった。また、非破壊率については、大きな差が無いことが分かった。

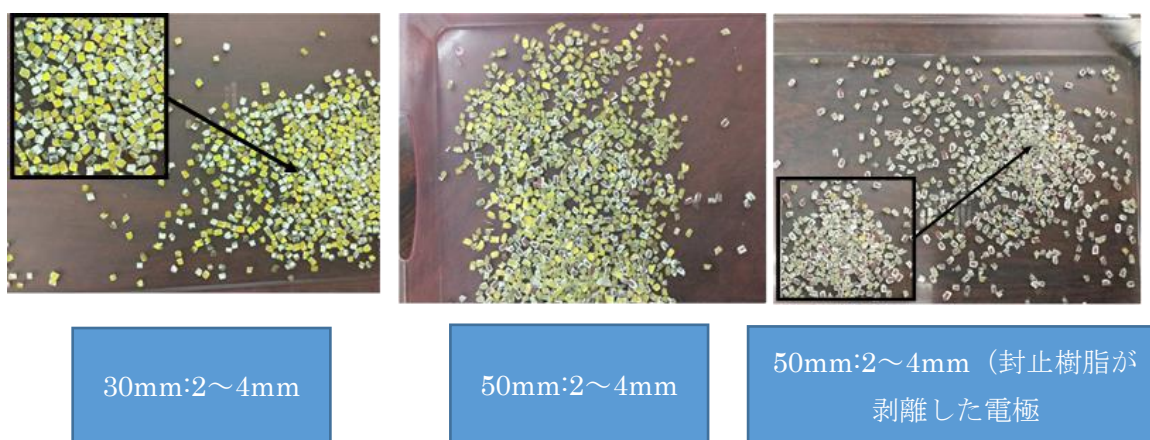


図 2.1.3-5 チョークリング 30mm とチョークリング 50mm の場合の LED 素子回収物の比較

【チョークリング 30mm:2~4mm】

回収した LED 素子のうち、封止樹脂が剥離した電極はほとんど確認されなかった。

【チョークリング 50mm:2~4mm】

回収した LED 素子のうち、3%は封止樹脂が剥離し電極だけになっている。

## 2.1.4 クロスフローシュレッダー（CFS）

乾式プロセスに供する LED 素子はなるべく非破壊のものが望ましいが、同素子を含む使用済み直管型 LED 照明からこれらを非破壊で単体分離する技術は未開発であり、ここではそれを目的とした単体分離技術の開発を行った。使用する単体分離機は、従来、早稲田大学大和田研究室の実績にて、各種小型家電からの基板およびその実装素子の非破壊剥離に適した、力学的粉碎機であるクロスフローシュレッダー（以下 CFS）および電気的な粉碎機である電気パルス粉碎機（以下 ED）の 2 種類についてその適用性を検討した。

使用済み直管型 LED 照明から LED 素子を非破壊で剥離することを目的として、クロスフローシュレッダーを用いた粉碎実験を行った。チェーンの回転速度と粉碎時間を変動させ、LED 素子をなるべく非破壊で剥離する最適条件を検討した。

### （1） クロスフローシュレッダーによる粉碎方法

#### 粉碎試験で使用する試料：

使用済み直管型 LED 照明の試料としては、いずれも弊社より提供したアイリスオーヤマ社製 LDFL25ASWF-H40K 型を粉碎試料とした。粉碎実験を行う前に、ねじを外して口金部分を分離し、LED 照明内部に格納されている電源装置部分を取り除いた。これは、LED 蛍光管の粉碎産物を素材別に分析する際に、素材構成が複雑になることを避けるために行った。次に、バンドソーを用いて蛍光管を 4 等分に切断した。LED 蛍光管の処理方法を以下の図 2.1.4-1、切断後の試料を以下の図 2.1.4-2 にそれぞれ示す。

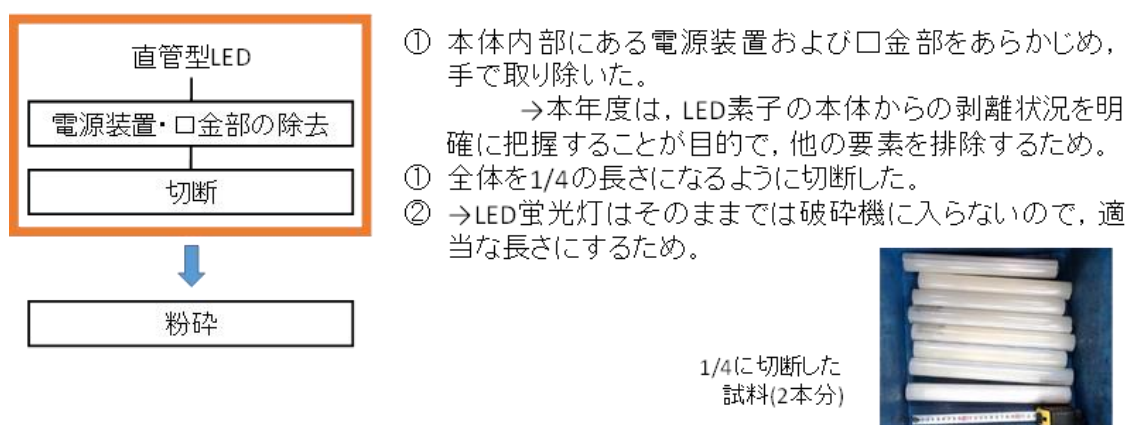


図 2.1.4-1 直管型 LED 蛍光灯の粉碎実験前の処理



図 2.1.4-2 等分に切断された使用済み直管型 LED 照明

実験装置・条件：

クロスフローシュレッダー（以下、CFS）は佐藤鉄工株式会社製のクロスフローシュレッダー、s-1000 型 である。その外観を図 2.1.4-3 に示す。試料は試料箱に入れられて CFS 上部から投入され、一旦ゲート上にとどまり、粉砕機底部に設置された鎖が所定速度で回転した状態になったところでゲートを開いて試料を粉砕室に投入する。所定時間経過後に粉砕機下部の排出口を開いて粉砕産物を排出した。大凡の試料が排出されたことを確認したのちに鎖の回転を止め、粉砕室に残った産物を人の手によって掃き出し回収した。粉砕時間は、ゲートを開いて試料を粉砕室に投入してから排出口を開き始めるまでの時間とした。

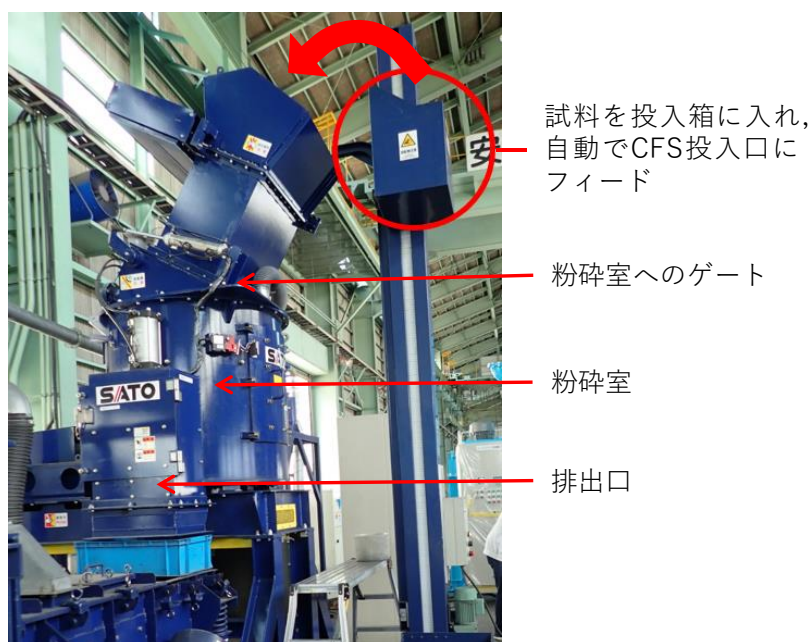


図 2.1.4-3 CFS の外観

今回行った実験条件を表 2.1.4-1 に示す。

表 2.1.4-1 CFS 実験条件

鎖回転速度(rpm)	粉砕時間(s)	フィード重量(g)	試料長さ
785	10	0.72	1/4
785	40	0.69	1/4
785	80	0.68	1/4
1046	0	0.70	1/4
1046	10	0.70	1/4
1046	20	0.69	1/4
1046	40	0.70	1/4
1046	80	0.68	1/4
1046	160	0.70	1/4
1308	0	0.70	1/4
1308	10	0.72	1/4
1308	20	0.69	1/4
1308	40	0.69	1/4
1308	80	0.71	1/4
1308	160	0.69	1/4
1569	0	0.72	1/4
1569	10	0.70	1/4
1569	20	0.71	1/4
1569	40	0.70	1/4
1569	80	0.70	1/4
1569	160	0.69	1/4

(2) クロスフローシュレッダーによる粉砕結果および考察

粉砕産物の粒度分布:

CFS による粉砕を行った産物を 1、2、4、8、16、31.5 mm のふるいを用いてふるい分けを行い、7 粒群に分けた。得られた粒度分布を回転速度ごとに図 2.1.4-3 に示す。回転速度 785 rpm の条件では粉砕時間は 10、40、80 s の 3 条件のみで行った。

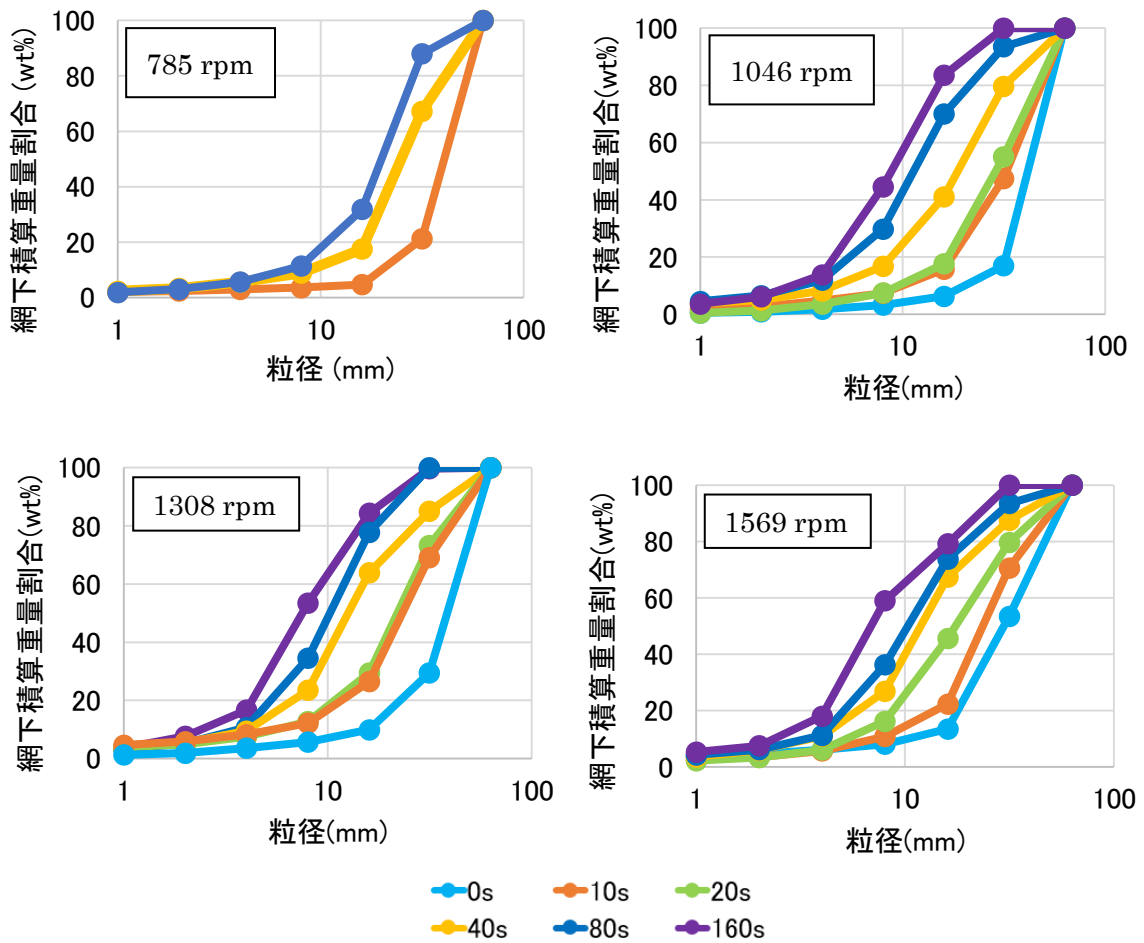


図 2.1.4-3 各回転速度における CFS 粉碎産物の粒度分布

以上より、粉碎時間および回転速度の増加とともに粒度分布は次第に細粒側にシフトし、粉碎が進むことが分かる。大凡の傾向としては、いずれの回転速度においても、粉碎時間 40 s 以下での粒度分布は Gaudin-Schumann 式に、それ以上では Rosin-Rammler 式に近い分布を示すことも認められた。

**LED 素子の剥離率および破壊率の定義:**

各種条件下で得られた粉碎産物中の LED 素子について、目視および手選によりその剥離と破壊状況を把握した。粉碎産物中にて、以下の 4 パターンの状態の LED 素子の数を数え、その値から式(2-1、2-2)のように剥離率・破壊率を算出した。

- ① 基板部分から剥離して非破壊である LED 素子の数
- ② 基板部分に残存して非破壊である LED 素子の数
- ③ 基板部分から剥離して破壊された LED 素子の数

④ 基板部分に残存して破壊されている LED 素子の数

$$\text{剥離率} = \frac{\text{①} + \text{③} + \text{④}}{\text{LED 素子総数}} \times 100 \text{ (個数\%)} \quad \dots\dots (2-1)$$

$$\text{破壊率} = \frac{\text{③} + \text{④}}{\text{LED 素子総数}} \times 100 \text{ (個数\%)} \quad \dots\dots (2-2)$$

以上の定義により算出した剥離率と破壊率の関係を、各種粉砕条件ごとにプロットをしたグラフを図 2.1.4-4 に示した。

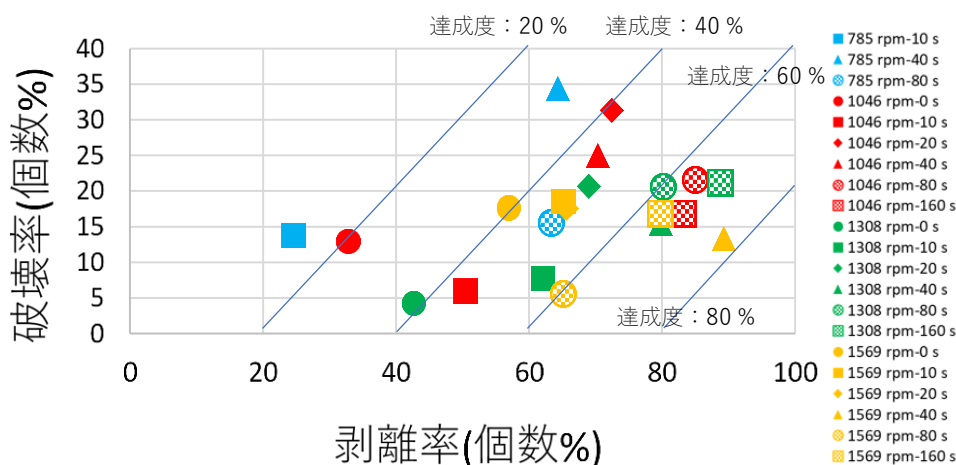


図 2.1.4-4 CFS 粉砕における剥離率と破壊率の関係

LED 素子の剥離率と破壊率の関係:

本研究での理想は 100 %剥離、0 %破壊であるが、各種の回転速度・粉砕時間で得られた結果のうち、最もその領域に近かったのは、回転速度 1569 rpm、粉砕時間 40 s の条件で、この際の剥離率は 89 %、破壊率は 13 %であった。図 2.1.4-4 において右上がりの細線は、剥離率および破壊率の等達成度線を示している。

回転速度、粉砕時間の剥離率および破壊率への影響:

ここでは回転速度をパラメータとして剥離率および破壊率に対する粉砕時間の影響を探った。そのグラフを図 2.1.4-5 に示す。

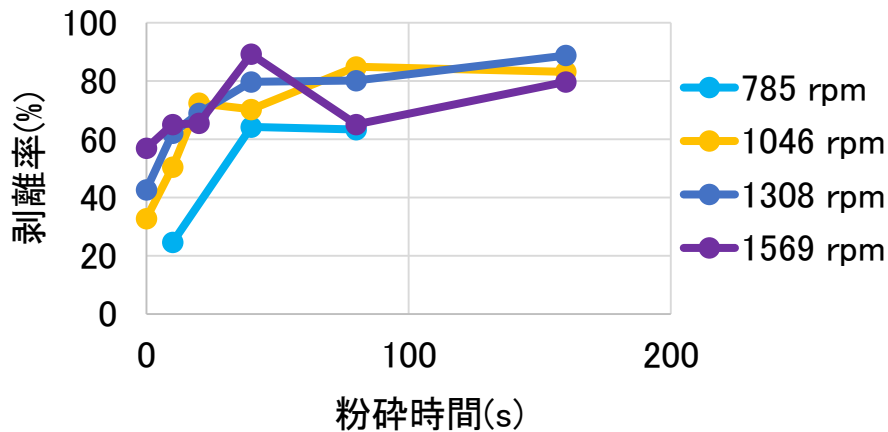


図 2.1.4-5 粉砕時間と剥離率の関係

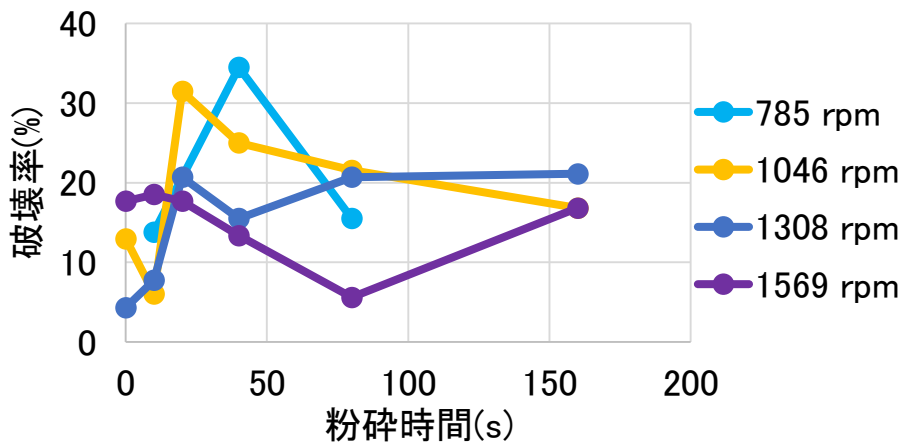


図 2.1.4-6 粉砕時間と破壊率の関係

図 2.1.4-5 より、いずれの回転速度においても、剥離率は粉砕時間の増加とともにまずは急激に上昇するが、大凡 40 s 以降ではほぼ飽和に達する傾向にある。また、回転速度 785 rpm では他の回転速度よりも剥離率は低いが、1046 rpm 以上ではほぼ同様の剥離率を示した。

図 2.1.4-6 より、いずれの回転速度においても、破壊率は粉砕初期では上昇の傾向を示すが、粉砕時間の破壊率への影響は明瞭な傾向を示さなかった。また、回転速度の破壊率への影響は、むしろ回転速度が上昇するにしたがって低下の傾向を示した。これは、CFS では回転速度が上昇するにつれて粉砕機側面近傍では上昇気流が生ずることが知られており、この影響で剥離された LED 素子が舞い上がり、回転する鎖への衝突確率が低下したことが考えられる。

### 粉碎後の各種素材の各粒群への分配:

各条件における CFS 粉碎産物を 7 粒群にふるい分け、直管型 LED 照明を主として構成するポリカーボネート製カバー(以後、ポリカバー)、アルミニウム製ケース(以後、アルミケース)、LED 素子を実装する基板(以後、基板部分)の3つ素材について手選を行い、各素材の各粒群への分配率分布を作成した。粉碎産物における図 2.1.4-7、図 2.1.4-8、図 2.1.4-9 には各素材の外観を示した。

なお、これらの素材は、未粉碎の状態ではその幅と長さはほぼ同一であることを、ここに記しておきたい。



図 2.1.4-7 ポリカバー



図 2.1.4-8 アルミケース

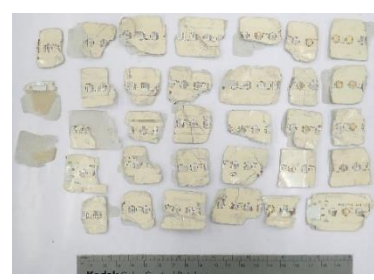


図 2.1.4-9 基板部分

#### (a) ポリカバーの分配率分布

ポリカバーの各粒群への分配率分布を図 2.1.4-10 に示した。

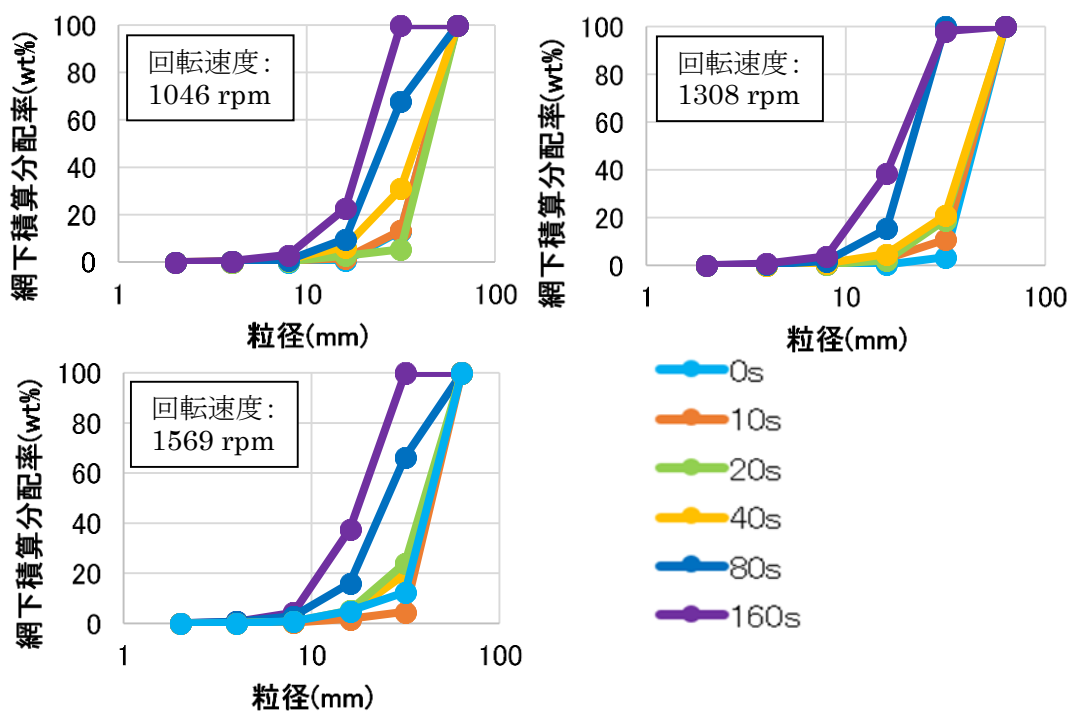


図 2.1.4-10 ポリカバーの各粒群への分配率分布



ポリカバーは、いずれの回転速度においても、粉碎時間 40 s までは+32 mm 粒群に存在しておりほとんど粉碎がされておらず、粉碎時間が 80 s を超えて初めて 16-32 mm粒群の割合が増え、次第に粉碎が進むことが分かる。その粉碎の度合いは回転速度にはほぼ無関係と思われる。

(b) アルミケースの分配率分布

アルミケースの各粒群への分配率分布を以下に図 2.1.4-11 に示した。

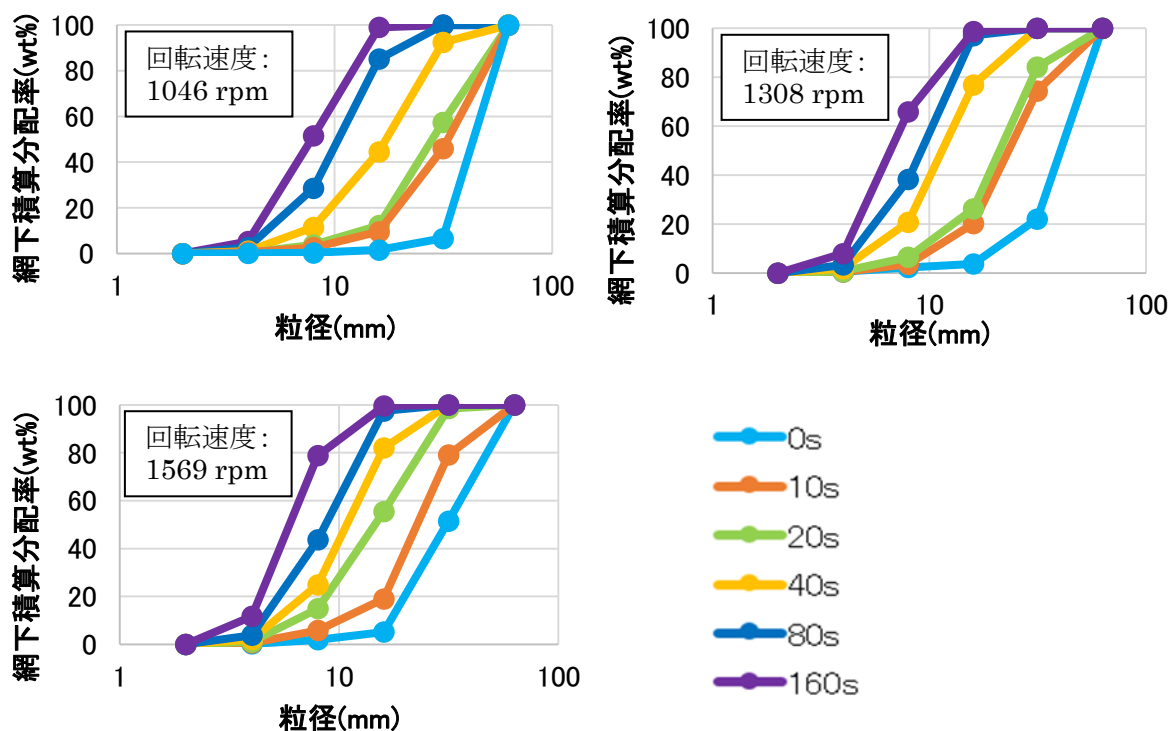


図 2.1.4-11 アルミケースの各粒群への分配率分布

アルミケースは、いずれの回転速度においても、粉碎時間の増加とともに次第に粉碎が進むことが分かる。また、回転速度の上昇とともに粉碎の進行が早まってゆくことも確認された。

(c) 基板部分の分配率分布

基板部分の各粒群への分配率分布を図 2.1.4-12 に示した。この際、LED 素子も基板部分を構成する一部と考え、LED 素子が基板から剥離された(その分細粒側に存在することになる)場合も、これらは基板部分として扱った。

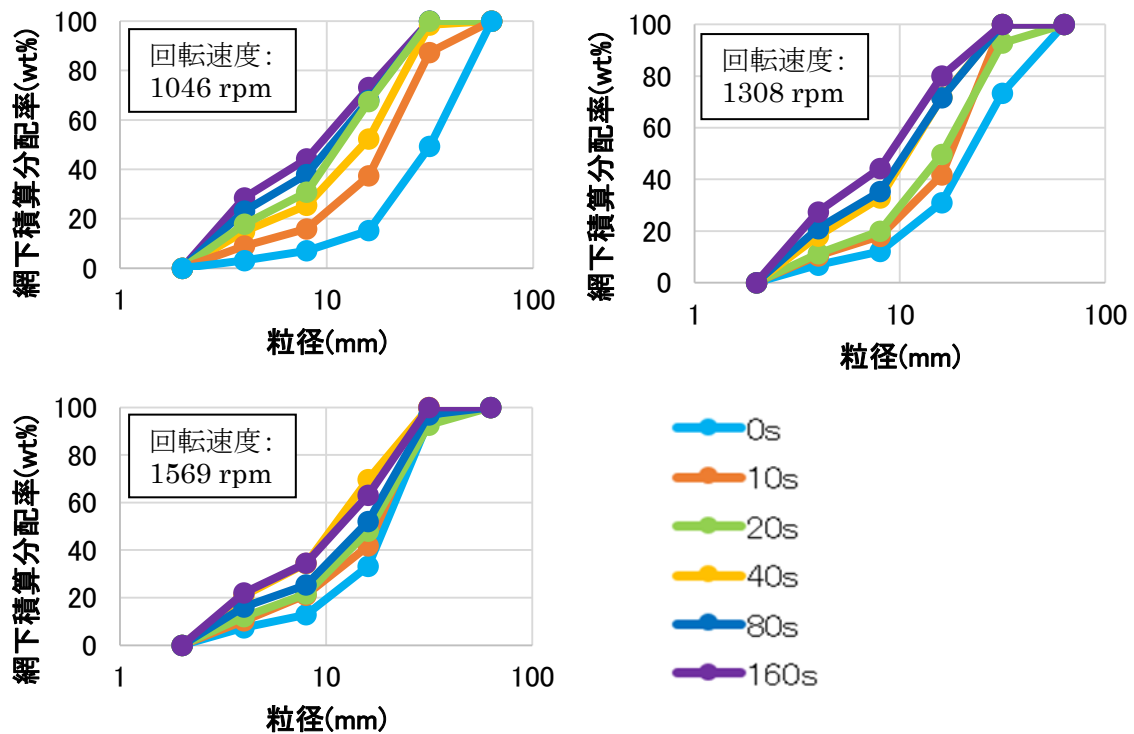


図 2.1.4-12 基板部分の各粒径への分配率分布

基板部分は、いずれの回転速度においても、粉碎時間の増加とともに次第に粉碎が進行してゆくが、他素材と比較して細粒への移行速度が小さいことが分かる。これは他素材がバルキーな形状であるのに対して基板部分は板状であり、既述した CFS 内の上昇気流に乗って舞い上がりやすく、回転鎖部分への衝突確率が低下したものを推測される。また、いずれの回転速度においても、粉碎初期では細粒への移行幅が比較的大きいが、粉碎時間 40 s を超えたあたりからその移行速度が低下して行くことも認められる。これも板状である基板部分破壊されて小さくなると、上述した上昇気流への追従(緩和時間の低下)がより進行するものと考えられる。この上昇気流への追従による回転鎖との衝突確率の低下傾向は、図 2.1.4-12 において、回転速度が増加するほど細粒側への移行傾向が低下することからも裏付けられる。

(d)各素材の各粒径への分配率 80 %粒径の変化

前節までに示した各素材の各粒径への分配率分布から、その 80 %粒径の粉碎時間に対する変化を図 2.1.4-13 に示した。なお、実験方法にて既述のように、粉碎時間 0 s の場合でも試料は回転鎖に衝突してから排出口から出されるので、ある程度の粉碎が起こっていることを断っておく。

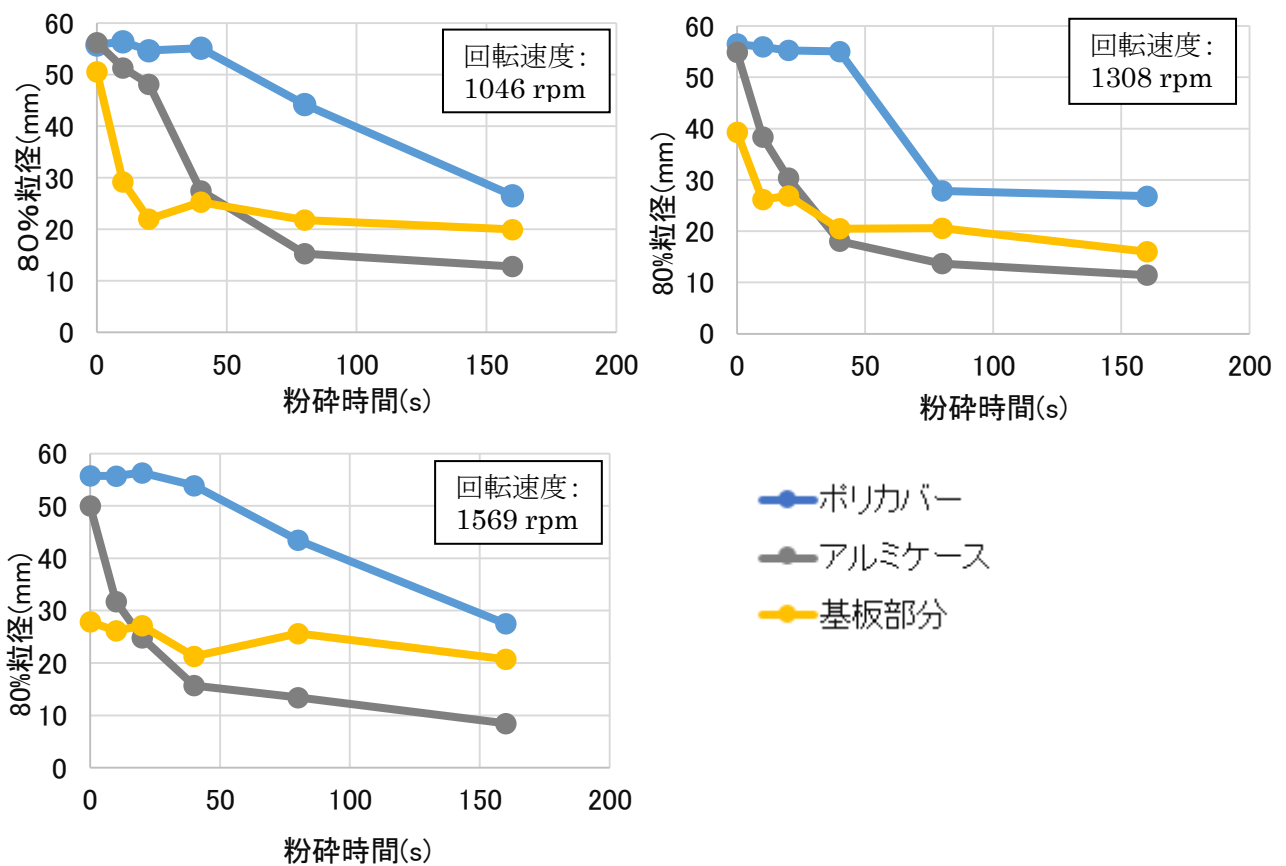


図 2.1.4-13 各素材の各粒群への分配率 80 %粒径の粉砕時間による変化

ポリカバール、アルミケース、基板部分の分配率 80%粒径は、粉砕時間によって特徴的な変化をとることが分かる。以下にそれぞれの特徴を記した。

ポリカバール:

いずれの回転速度においても、粉砕時間 40 s 以内ではほとんど破壊が進行せず、それ以上となって初めて破壊が進行することが明瞭である。

アルミケース:

いずれの回転速度においても、粉砕時間 40 s 以内で破壊が大きく進行し、それ以上では緩やかになる傾向も認められた。

基板部分:

こちらも粉砕初期において破壊がより進む傾向にあるが、他の素材に比べて、粉砕後期では破壊が進まないことが明瞭である。特に回転速度が速いほどその変化は小さくなり、既述の粉砕セル

内での上昇気流の影響が顕著に認められる。また、アルミケースと比べると、粉砕初期では破壊の進行がより早い、後期では破壊がほとんど進まず、分配率 80% 粒径はアルミケースよりも大きい状態で推移している。

### 粉砕後の LED 素子の各粒径への分配:

各条件における CFS 粉砕産物をふるい分けしたのちに、2 mm 以上の粒径について、LED 素子の手選を行い、各粒径中の分配率を算出した。結果を、図 2.1.4-14 に示した。非破壊で単体分離した LED 素子はふるい分けではすべて 2-4 mm 粒径に存在することになるので、+4 mm 粒径に存在するものは基板から剥離していない(片刃粒子状態である)ことを示している。また、-2 mm 粒径では目視での手選ができないので、それらの重量割合は、フィード中の LED 素子の重量から+2 mm 粒径に存在する LED 素子の重量を引くことで求めた。

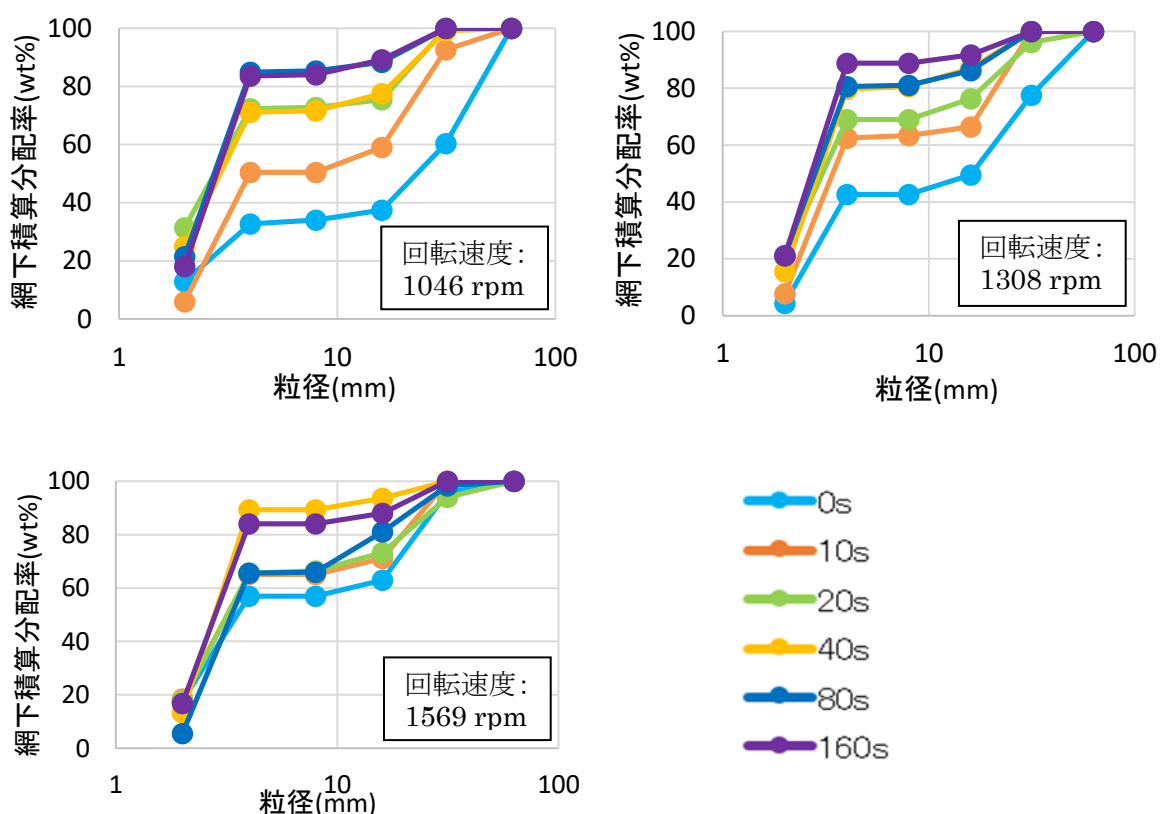


図 2.1.4-14 LED 素子の各粒径への分配率分布

各回転速度において、粉砕時間が長い条件ほど、LED 素子の分配は細粒側に進んでおり、粉砕時間の増加に伴って、LED 素子が基板から剥離されていることが分かる。剥離して単体分離した非破壊の LED 素子は 2-4 mm 粒径に集まっており、剥離しない LED 素子は主に 16-32 mm

粒群に集まっている。また、4-8 mm 粒群には LED 素子はほとんど存在せず、8-16 mm 粒群ではどの条件においても一定数の LED 素子が存在していた。

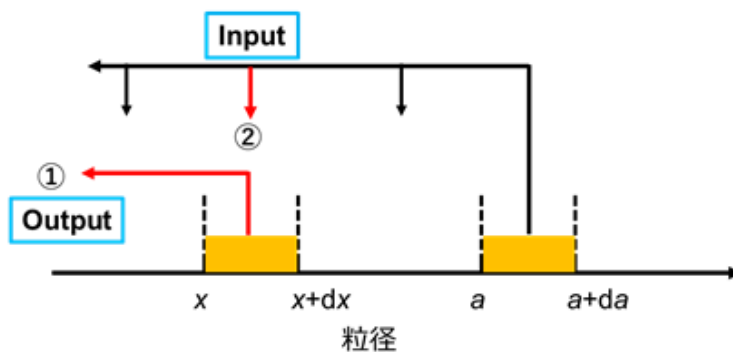
**ポピュレーションバランスモデルを用いた各素材の粉砕挙動解析:**

既述した CFS 粉砕における各素材の粒群別分配率分布の時間変化を、ポピュレーションバランスモデルを使って解析し、それぞれの粉砕速度定数を求めることで粉砕挙動の違いを明確にすることとした。

**(a)ポピュレーションバランスモデル**

ポピュレーションバランスモデルは、粉砕においてある粒群に着目し、その粒群から破壊されてより細粒群に移動してゆく割合(式 2-3 における①の項)と、当該粒群より大きな粒群から破壊されて当該粒群に移動してくる割合(式 2-3 における②の項)の時間変化を、選択関数  $S(x, t)$ (上記①の割合)と破壊関数  $B(a, x)$ (上記に②の割合)を使用し、その収支を考慮して粉砕速度定数を決定する方法である(図 2.1.4-15 参照)。

これでは、選択関数・破壊関数として、それぞれ一般的な  $S(x, t) = kx^n$  および  $B(a, x) = \left(\frac{x}{a}\right)^m$  (ここでは簡便のために  $m=n=1$  とした)を用い、実験値にこの関数を最小二乗法にてフィッティングして粉砕速度定数  $k$  を決定した。



$$\underbrace{\frac{\partial^2 D(x, t)}{\partial x \partial t} dx dt}_{\text{①}} = \underbrace{-S(x, t) dt \frac{\partial D(x, t)}{\partial x} dx + \int_x^{x_{max}} S(a, t) dt \cdot \frac{\partial D(a, t)}{\partial a} da \cdot \frac{\partial B(a, x)}{\partial x} dx}_{\text{②}}$$

..... (2-3)

図 2.1.4-15 ポピュレーションバランスモデル説明図

図 2.1.4-16、図 2.1.4-17、図 2.1.4-18 に、回転速度 1046、1308、1569 rpm とした際の粉碎速度定数  $k$  の粉碎時間による変化を示した。前述したように、これまでの粉碎時間は、鎖が一定速度で回転している粉碎室に試料を投入してから排出口を開き始めるまで時間としていたが、実際に粉碎が開始される時刻は粉碎時間 0 s の平均的に 12.5 s 前であるため、この速度論ではその点を補正している。

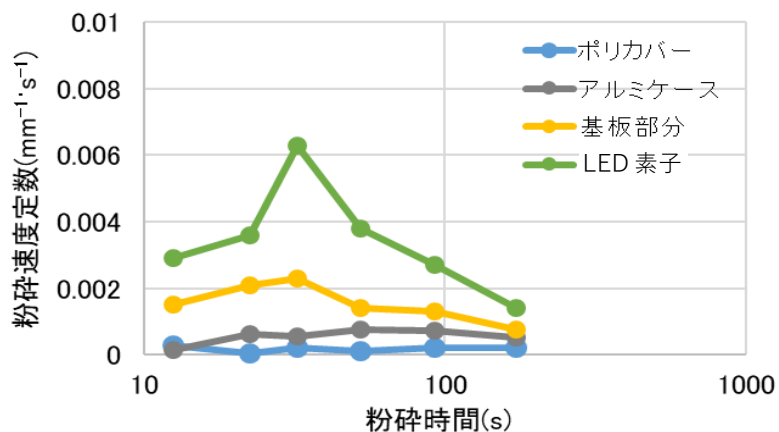


図 2.1.4-16 粉碎速度定数  $k$  の粉碎時間に対する変化(1046 rpm)

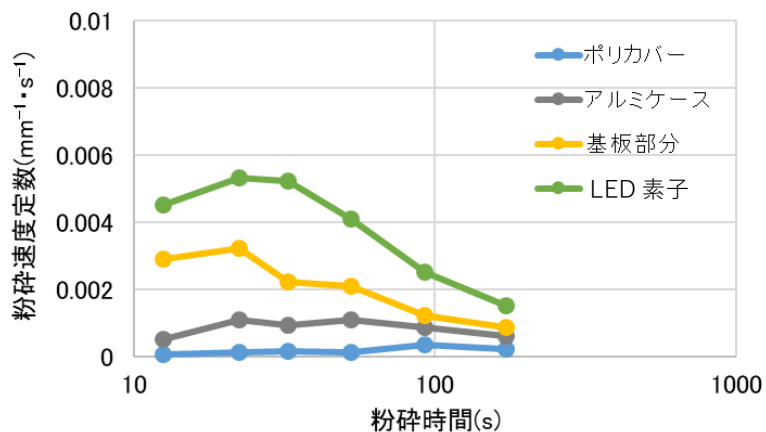


図 2.1.4-17 粉碎速度定数  $k$  の粉碎時間に対する変化(1308 rpm)

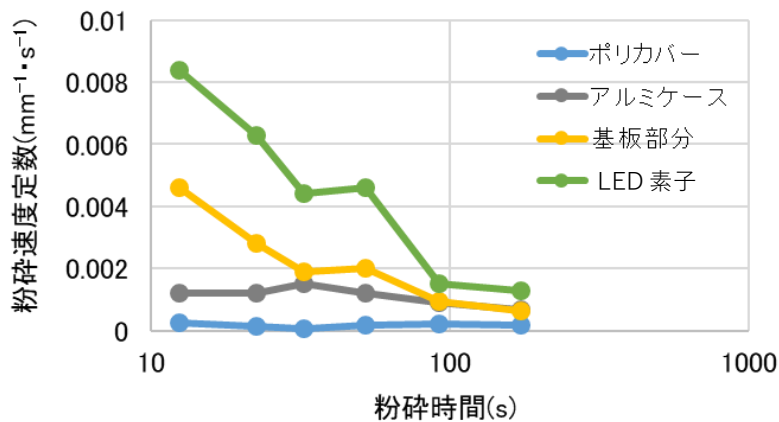


図 2.1.4-18 粉砕速度定数  $k$  の粉砕時間に対する変化(1569 rpm)

いずれの回転速度において、粉砕速度定数 $k$ は、LED 素子>基板部分>アルミケース>ポリカバとなった。回転速度 1046 rpm (図 2.1.4-16) においては、いずれの素材においても(特に LED 素子と基板部分では)粉砕初期よりも粉砕中期において粉砕速度が大きく、その後、後期にて小さくなる。通常の粉砕においては、粉砕速度定数は粉砕初期で最も大きく(破壊しやすい弱部のみが破壊され)、その後(破壊しにくい部分のみが残るため)次第に小さくなってゆくが、粉砕媒体が比較的低回転速度の状態では、粉砕初期では各素材を破壊するだけの十分なエネルギーを試料に与えることができないため試料の破壊は進行せず、粉砕中期になって初めて試料に蓄積されたエネルギーにより破壊が進んで粉砕速度定数が大きくなり、そして粉砕後期では通常の粉砕のように次第に粉砕速度が低下してゆくことになる。

回転速度 1308 rpm (図 2.1.4-17) においては、最も粉砕しにくい LED 素子のみが回転速度 1046 rpm の場合とほぼ同様の傾向を示すが、それ以外の素材では粉砕初期から後期になるに従って粉砕速度が低くなる。また、回転速度 1569 rpm (図 2.1.4-18) においては、回転鎖から試料に対して十分なエネルギーが与えられるため、通常の粉砕と同様に、粉砕初期で最も粉砕速度が大きく後期になるに従って次第に小さくなってゆく。粉砕初期の粉砕速度定数は、いずれの素材においても、回転速度が大きくなるに従って大きくなっていることから、上記の考察が裏付けられる。

なお、金属であるアルミケースは延性・展性を有するため粉砕速度はポリカバより低いことが想定されたが、粉砕速度定数はいずれの回転速度においても前者の方が大きかった。これは、既述したように、CFS セル内の側面近傍では常に上昇気流が起こっており、ポリカバに比べて密度の大きいアルミではそれに追従する確率が低く、回転鎖との衝突確率が大きいためと推測される。

## 2.1.5 電気パルス粉砕 (ED)

使用済み直管型 LED 照明から LED 素子を非破壊で剥離することを目的として、各種構成成分の単体分離促進に効果の高い電気パルス粉砕を用いた粉砕実験を行った。印加電圧は一定として、パルスの印加回数を変化させ、LED 素子をなるべく非破壊で剥離する最適条件を検討した。

### (1) 電気パルス粉砕による破砕方法

#### 粉砕試験で使用する試料：

使用した使用済み直管型 LED 照明試料は、CFS 粉砕と同様、いずれも弊社より提供したアイリスオーヤマ社製 LDFL25ASWF-H40K 型である。粉砕実験を行う前に、ねじを外して口金部分を分離し、LED 照明内部に格納されている電源装置部分を取り除き、ここでは、今回試料する ED 装置の試料セルに入るように、ここでは 1 本の LED 照明を 16 分割した。直管型 LED 照明の 1 本あたりの LED 素子数は 116 個であり、16 分割する際に LED 素子の数を全くの同数にすることはできず、今回は 16 分割された各試料に LED 素子が 8、7、7、7、8、7、7、7.....と分配されるように切断した。切断された試料の外観を図 2.1.5-1 に示した。

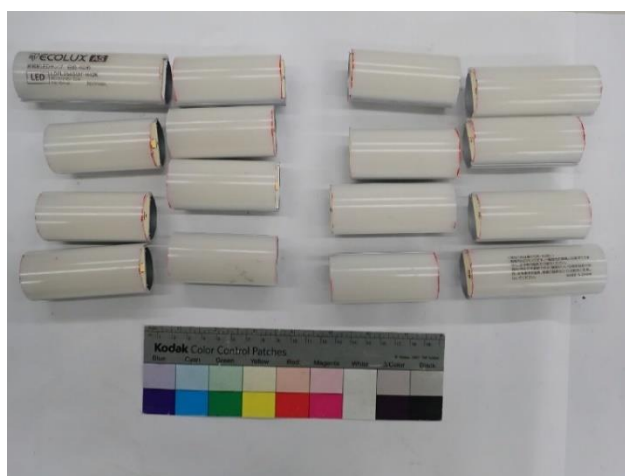


図 2.1.5-1 16 分割された直管型 LED 照明

#### 実験装置・条件：

本実験で使用した ED 装置は東北大学所有の SELFLAG. Lab である。粉砕機の外観を図 2.1.5-2 示す。粉砕セルに 16 分割した試料 8 本(LED 照明 1/2 本分)と 3 L の水を入れ ED 装置にセットした。粉砕終了後、ED 装置から粉砕セルを取り出し、水流により粉砕セル内の粉砕産物を回収し、その後、圧縮濾過器を使用して固液分離を行った。濾過後の試料は乾燥機にて脱水した。





図 2.1.5-2 電気パルス粉砕機(SELFLAG Lab)の外観

今回の実験における固定条件を表 2.1.5-1 に示した。なお、パルス印加回数は 10、40、160、320、450、640 回の 6 条件とした。

表 2.1.5-1 ED 実験における固定条件

電極間距離(mm)	試料重量(g)	試料サイズ	印加電圧(kV)	印加速度(Hz)
40	175	16 分割×8	150	5

(2) 電気パルス粉砕による粉砕結果および考察

**LED 素子実装基板 1 個の電気パルス粉砕実験:**

使用済み直管型 LED 照明自体を電気パルス粉砕に供する前に、まず、一つの LED 素子が実装された基板について、ED がどのような効果を示すかを調べた。使用した装置は熊本大学所有の電気パルス装置(図 2.1.5-3 参照)であり、上部・下部の両電極を任意の位置に設置できるようになっている。

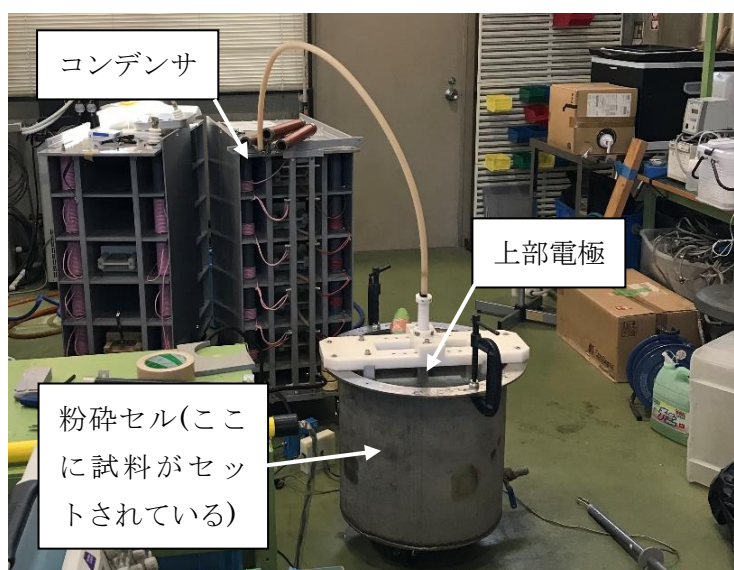


図 2.1.5-3 熊本大学所有の電気パルス粉碎装置

今回の実験では、LED 素子一つに対して電気パルス粉碎を行い、電極と試料の間隔が無い条件と、間隔をあけた条件に分けて実験を行い、電極と試料間の間隔の有無が粉碎結果へ与える影響を確認した。実験条件を表 2.1.5-2 に示した。なお、各条件での実験は 3 回ずつ実施した。

表 2.1.5-2 電気パルス粉碎小規模実験の条件

コンデンサ容量 ( $\mu\text{F}$ )	電極・試料上面間距離 (mm)	印加電圧 (kV)
0.16	0	150
	10	

得られた結果の概要を表 2.1.5-3 に示した。

表 2.1.5-3 電気パルス小規模実験結果の概要

No.	印加電圧 (kV)	電極間距離 (mm)	LED 素子破壊 までの印加回数	結果
1	150	0	2	LED 素子が基板から剥離するが破壊された
2	150	0	2	LED 素子が基板から剥離するが破壊された
3	150	0	2	LED 素子が基板から剥離するが破壊された
4	150	10	2	LED 素子の一部が欠けたが基板から剥離した
5	150	10	1	LED 素子の一部が欠けたが基板から剥離した
6	150	10	2	LED 素子の一部が欠けたが基板から剥離した

電極試料間距離が 0 mm つまり上部電極と下部電極のいずれも試料に接触した状態では、いずれの条件においても、3 回中いずれも LED 素子は基板から剥離されたが、素子自体も破壊されてしまった。電極試料間距離が 10 mm つまり上部電極と試料の間に水の相が存在する場合は、いずれも条件においても、3 回中いずれも LED 素子がほとんど破壊されずに基板から剥離されることが確認された。LED 素子筐体の角等では若干の破損は認められたが、内部の窒化ガリウムパワー半導体や金線が露出することはなくほぼ非破壊とすることができる。

つまり、上部電極が試料に接している場合は、電気パルスは LED 素子内部の金属・半導体類まで到達して破壊が起こるが、上部電極と試料間に水の相がある場合は、電気パルスは電場の大きい LED 素子と基板の境界面に沿って流れて LED 素子の基板からの剥離が起こる。その際、水相にもパルスが通るため水のブレイクダウンによって発生する衝撃波が LED 素子筐体の一部を破壊するが、その破壊は内部にまでは到達しないものと推測された。

### 使用済み直管型 LED 照明切断片集合体の電気パルス粉碎実験:

#### (a)電気パルス粉碎産物の粒度分布

ED 実験の産物を 1、2、4、8、16、31.5 mm のふるいを用いてふるい分けを行い、7 粒群に分けた。得られた粒度分布を印加回数ごとに図. 2.1.5-4 に示す。

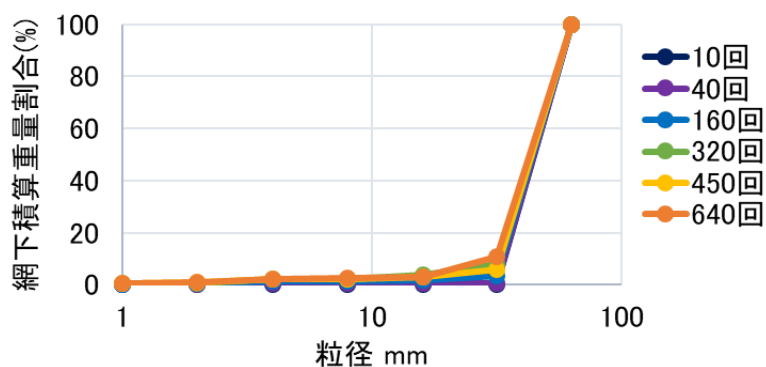


図. 2.1.5-4 ED 産物のパルス印加回数別粒度分布

ED 産物の粒度分布は、CFS のそれに比べて、細粒の発生が極端に少ないことが分かる。図 2.1.5-5 には、積算重量分布の変化を分かりやすいように縦軸のスケールを小さくしたグラフを示した。

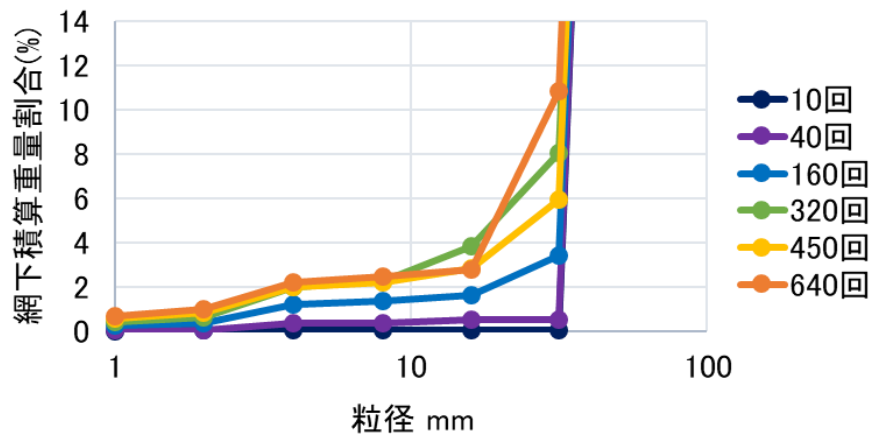


図 2.1.5-5 ED 産物のパルス印加回数別粒度分布 (詳細)

(b)LED 素子の剥離率と破壊率の関係

同図より、印加回数 320 あたりまでは若干ながら粒度分布は細粒側にシフトしているが、それ以降ではほとんど変わらないことが分かる。

クロスフローシュレッダー (CFS) 粉砕と同様に、LED 素子の基板からの剥離率・破壊率および達成度を定義し、それらの関係を図 2.1.5-6 に示した。

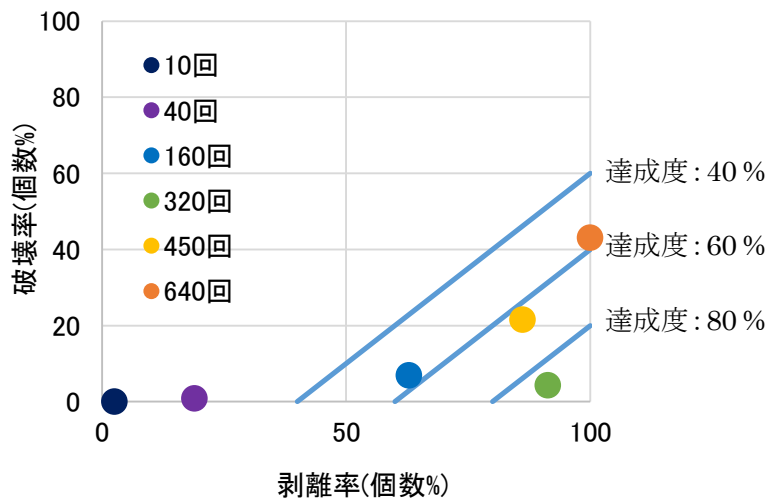


図 2.1.5-6 ED における剥離率と破壊率の関係

パルス印加回数 320 まではその増大とともに、破壊率を非常に低く抑えながら剥離率が向上する様子が認められる。しかし、回数を 640 まで増やすと、剥離率は 100 %となるが破壊率も 41 %ま

で増加してしまう。LED 素子はなるべく非破壊で剥離したいので、ED におけるパルス印加回数の最適値は 320 であり、その際の剥離率は 91 %、破壊率は 4.3 %となった。

(c)パルス印加回数の剥離率・破壊率への影響

印加回数と剥離率・破壊率との関係を図 2.1.5-7 および図 2.1.5-8 に示した。

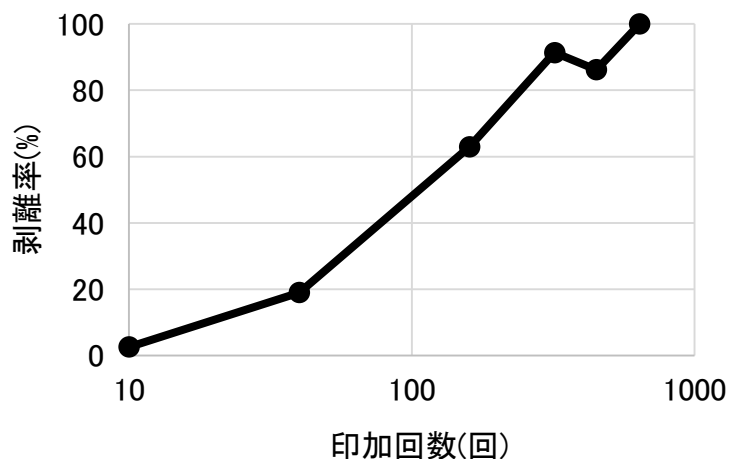


図 2.1.5-7 パルス印加回数と剥離率の関係

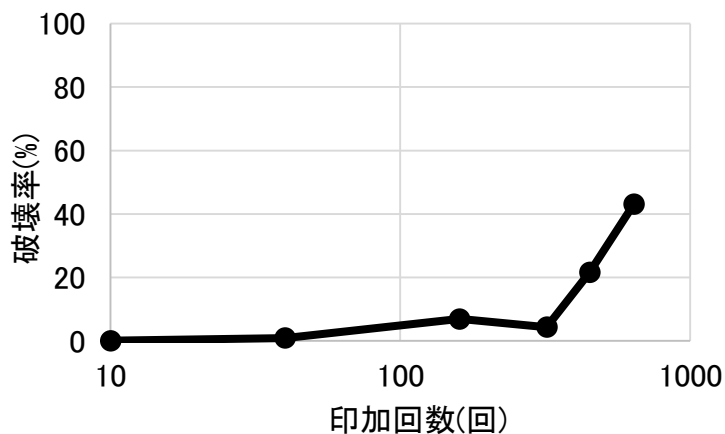


図 2.1.5-8 パルス印加回数と破壊率の関係

両図より、剥離率は印加回数の増加とともに向上して 320 回では 91 %に、640 回では 100 %に達することが分かる。破壊率は、印加 320 回まではほとんど上昇しないが、450・640 回では次第に上昇することが分かる。つまり、剥離率の上昇傾向と併せて考えると、印加 320 回まではパルス印加のほとんどのエネルギーは LED 素子の剥離に使われるが、それ以降では LED 素子の破

壊に使われるとすることができる。以上の結果と考察より、ED における最適パルス印加回数は 320 と決定することができる。

(d)ポピュレーションバランスモデルを用いた各素材の粉砕挙動解析

CFS と同様に、ED 実験の結果から、LED 蛍光管を構成する各素材についてポピュレーションバランスモデルを用いて印加回数ごとに各素材の粉砕速度定数 $k$ を求めた。ED の場合は、印加速度が 5 Hz であることを考慮して粉砕時間としている。ポリカバー、アルミケース、基板部分、LED 素子の各粉砕時間における粉砕速度定数  $k$  の変化を図 2.1.5-9 に示した。

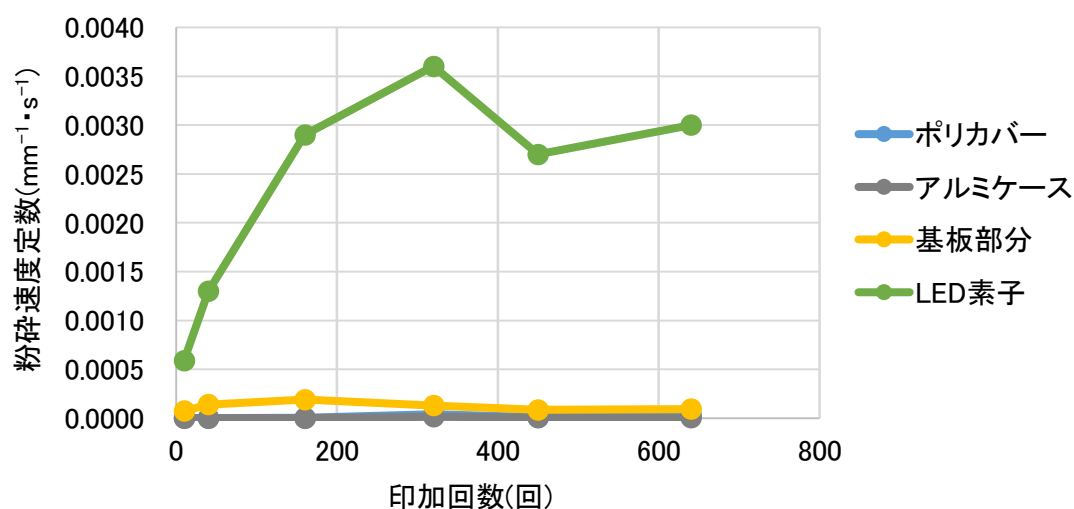


図 2.1.5-9 印加回数ごとの各素材の粉砕速度定数

同図より、ポリカバー・アルミケース・基板部分の粉砕速度定数  $k$  はパルス印加回数の増加に拘わらず非常に低い値で推移するが、LED 素子のそれは印加回数の増加に伴って 320 回までは増加しそれ以上の印加では若干低下することが分かる。元々LED 素子は基板に接触しており、この粉砕速度定数の増加は、LED 素子が基板から剥離してサイズが小さくなったことを意味している。剥離された LED 素子はほとんど破壊されていないので、LED 素子については粉砕速度定数は剥離速度定数と考えてよい。つまり、ED では、ポリカバー・アルミケース・基板部分・LED 素子はほとんど破壊されず、パルス印加のエネルギーは少なくとも印加 320 回までは LED 素子の剥離にのみ使われており、前節の結果と併せて考えると、それ以降の印加では同エネルギーは LED 素子の破壊に使われるとすることができる。

なお、粉砕速度定数の僅かな変化を詳細に見ると、ポリカバーのそれは印加回数の増加に伴って上昇している。ポリカーボネートは不良導体でありほとんど異相境界面を持たないため、粉砕が起こりにくいですが、パルス印加回数が増加すると、ごく低い確率だが、パルスがポリカーボネート表面の傷や突起部分等の不規則部分を通り僅かに破壊されるものと考えられる。アルミケースはパルス印

加が増加してもほとんど破壊されないが、これは、アルミ素材が良導体であり、電気パルスはここに到達するが内部に電流が流れるのみで破壊が起こらないことは容易に推測される。基板部分には、元々LED素子が実装されているが、LED素子と基板との異相境界面にパルスが選択的に通ることによってLED素子の剥離が起っている。つまり、基板部分にはこのようなパルスの衝撃を常に受けており、他の素材に比べて破壊が起こりやすい状態にあるとすることができる。

## 2.1.6 堅型破砕機・クロスフローシュレッダー・電気パルスの各方法の比較

ここでは、LED 素子の非破壊剥離を目的に行なった、堅型破砕機 (VS)、クロスフローシュレッダー (CFS)、電気パルス粉砕機 (ED) 3 種の最適条件での結果を比較する。なお、堅型破砕機は、弊社にて実際に稼働している実用規模の破砕機であり、通常のシュレッダーに比べて構成素材の単体分離に適しているとされるものである。今回は実作業における経験から定められた最適と思われる条件にて実施した粉砕の結果を他の 2 粉砕機と比べることとする。

### (a) 粉砕産物中の 4 mm アンダー粒群への Ga・Au の分配

上記 3 種粉砕機における最適条件で得られた産物のうち、-4 mm 粒群を 2-4 mm、1-2 mm、-1 mm の 3 粒群に分けて各粒群 1 g について Ga・Au の分析を行った。結果を図 2.1.6-1 に示す。

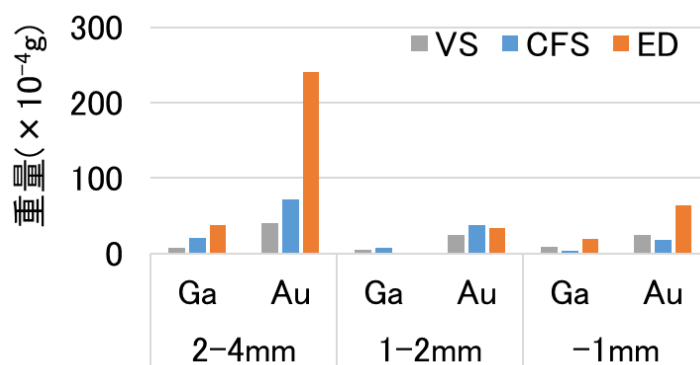


図 2.1.6-1 -4 mm 粒群における Ga・Au の重量

元々の LED 素子のサイズは 1.0 × 2.8 × 5.0 mm であり、ふるい分けでは 2-4 mm 粒群に濃縮される。Fig. 2-28 より、この粒群の Ga・Au の量を比べるといずれも VS < CFS < ED の順であり、化学分析の結果からも、LED 素子の非破壊剥離がこの順で行なわれていることが理解される。また、-4mm 粒群全体に存在する Ga・Au の重量は、最も低い VS を 1 とすると、CFS で Ga が 1.5 倍、Au が 1.4 倍、ED では Ga が 2.8 倍、Au が 3.7 倍であり、LED 素子の剥離の VS < CFS < ED の順に向上していることも分かる。ただし、ED では -1 mm 粒群にも Ga・Au の存在量が多く、仮にこの粒群が後段の Ga 回収プロセスに不向きとすると、この分がロスになる可能性があることを付記する必要がある。ED にこれら元素の -1 mm 粒群への分配が多くなった原因は、Ga が脆性素材である GaN として存在すること、ボンディングワイヤーである Au が LED 素子から単体分離するとそのすべてが -1mm 粒群に入ること、が考えられる。



(b)LED 素子の剥離率と破壊率

図 2.1.6-2 に、既述 3 種粉砕機における最適条件での剥離率と破壊率の関係を示した。

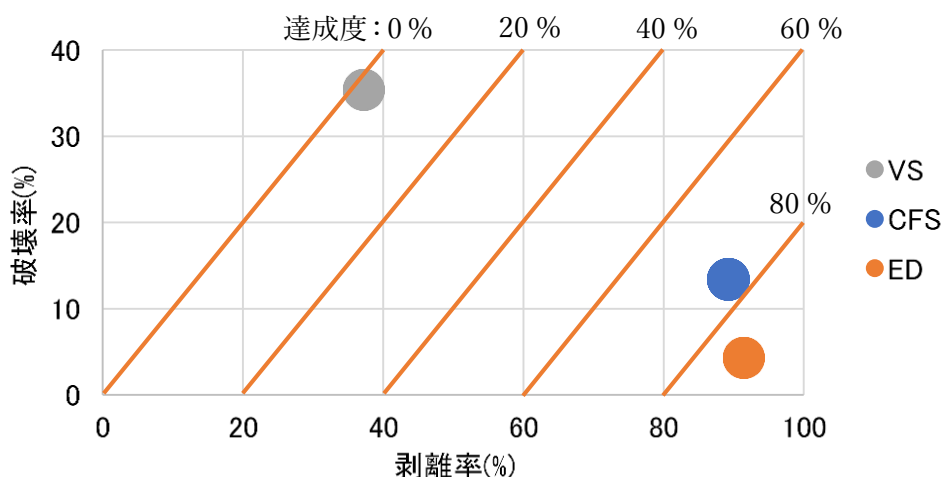


図 2.1.6-2 各粉砕結果の剥離率と破壊率の分布

CFS と ED では両者とも剥離率 80 %以上、破壊率 15 %以下とほぼ良好な結果であったが、VS では剥離率 37 %、破壊率 35 %となり、非破壊剥離の達成度も非常に低い値となった。VS は大量処理が可能で実装業での実績も多々ある粉砕機だが、CFS・ED に比べると、使用済み直管型 LED 照明からの LED 素子の非破壊剥離には不向きであることが証明された。

(c)粉砕速度定数の比較

CFS と ED の最適条件における各種素材の粉砕速度定数を表 2.1.6-1 にまとめた。

表 2.1.6-1 最適条件における粉砕速度定数

素材	粉砕速度定数 $k$ ( $\text{mm}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )		
	CFS	ED	$k_{\text{CFS}}/k_{\text{ED}}$
ポリカバール	0.00017	0.000042	4.0
アルミケース	0.0012	0.000015	80
基板部分	0.0020	0.00013	15
<b>LED 素子</b>	<b>0.0046</b>	<b>0.0036</b>	1.3
$k_{\text{LED 素子}}/k_{\text{基板}}$	2.3	28	12

\*赤字の  $k$  は剥離速度定数に相当する。

ポリカバール・アルミケース・基板部分の各素材において、CFS では ED に比べて非常に大きい粉砕速度定数となり、 $k_{\text{CFS}}/k_{\text{ED}}$  は、それぞれ、4.0 倍、80 倍、15 倍であった。ポリカバールの粉砕速度は CFS・ED とともに非常に小さく、金属(良導体)であるアルミケースのそれは CFS に比べて ED

が圧倒的に小さく、基板部分の粉碎速度も桁違いに ED の方が小さくなっている。LED 素子は基板部分から剥離するとサイズの小さくなるので、ここでの  $k$  は粉碎速度定数でなく剥離速度定数と考えてよいが、この場合の  $k_{CFS}/k_{ED}$  は ED が CFS の 1.3 倍であり、CFS でも (破壊率は若干高いが) Ga の基板部分からの剥離は比較的速やかに進行することが分かる。

## 2.1.7 単体分離・濃縮技術検証のまとめ

使用済み直管型 LED 照明からなるべく非破壊で LED 素子を単体分離する(基板から剥離する)ことを目的として、クロスフローシュレッダー(CFS)、電気パルス粉砕機(ED)の2種粉砕機を比較し、以下の結果を得た。なお、構成素材の単体分離を促進させる実用機として実績の高い堅型破砕機(VS)についても補足的に検討した。

- ① LED 素子の基板からの剥離率および破壊率を比較した結果は以下のようであった。

表 2.1.7-1 各粉砕機の最適条件における LED 素子の剥離率・破壊率

粉砕機	最適粉砕条件	剥離率(個数%)	破壊率(個数%)
VS	(実操業での経験による)	37	35
CFS	回転速度: 1569 rpm 粉砕時間: 40 s	89	13
ED	印加回数: 320	91	4.3

- ② LED 照明を構成する各種素材の粉砕速度定数を算出した結果は以下のようであった。

表 2.1.7-2 CFS・ED の最適条件における各種素材の粉砕速度定数

素材	粉砕速度定数 $k$ ( $\text{mm}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ )		
	CFS	ED	$k_{\text{CFS}}/k_{\text{ED}}$
ポリカバー	0.00017	0.000042	4.0
アルミケース	0.0012	0.000015	80
基板部分	0.0020	0.00013	15
<b>LED 素子</b>	<b>0.0046</b>	<b>0.0036</b>	1.3
$k_{\text{LED 素子}}/k_{\text{基板}}$	2.3	28	12

\* 赤字の  $k$  は剥離速度定数に相当する

- ③ LED 素子の基板からの非破壊剥離を目的とする場合、ED は CFS に比べてより良い粉砕機であることが判明した。また、VS では LED 素子の多くは破壊されてしまい、また非剥離で基板上に残存する割合が高いことも分かった。ただし、実用化の実績と導入費用を考慮すると、CFS の選択が合理的であると結論付けられた。
- ④ ただし、CFS の最大径は 1250 mm と比較的小さく、実際に使用済み直管型 LED 照明を処理する場合には、事前に 50~60 mm 以内にカットする必要があることを付記する。

## 2.2 単体分離した LED 素子からの Ga 濃縮・精製技術の検証

法政大学明石教授の従来研究においては、廃 LED 素子（200 個、約 1 g）中に窒化ガリウムとして含まれる Ga を、低酸素雰囲気中で 5 時間熱処理することによって  $Ga_2O(g)$  として気相に分離し、これを酸化して  $Ga_2O_3(s)$  の固体として高い収率（最大値 93%）で回収できることを実証していた。この実証は、既に国際特許出願を行なった基本特許に基づいて図 2-2 に示す装置を設計し、卓上型の装置を製作して行なった。

本事業では、既に大量処理用として商用化されている堅型破砕機、各種素材の非破壊単体分離に実績があるクロスフローシュレッター（以降 CFS）、効率的な非破壊単体分離のために極めて高いポテンシャルを有する電気パルス破砕の 3 種類の破砕・選別装置によって、LED 素子を単体分離・濃縮する。本章では、この 3 種類の破砕・選別装置によって単体分離された LED 素子を、図 2.2 に示す装置（乾式プロセス）にて濃縮・精製できるように、乾式プロセスの処理量の増加の検証と、連続化に向けた装置の改修を行なった。なお、処理量の増加に関しては、現行の 50 倍程度を目標とした。

【基本特許】 “Method for Concentrating metal Compound by Reduction and Oxidation”, Hosei University

国際特許： PCT WO2014/034925

国内移行： 特願2014-533147号 (PCT/JP2013/73500)

米国移行： Patent No.: US10,378,084 B2

【装置特許】 「金属化合物濃縮装置」法政大学、特開2017-119914

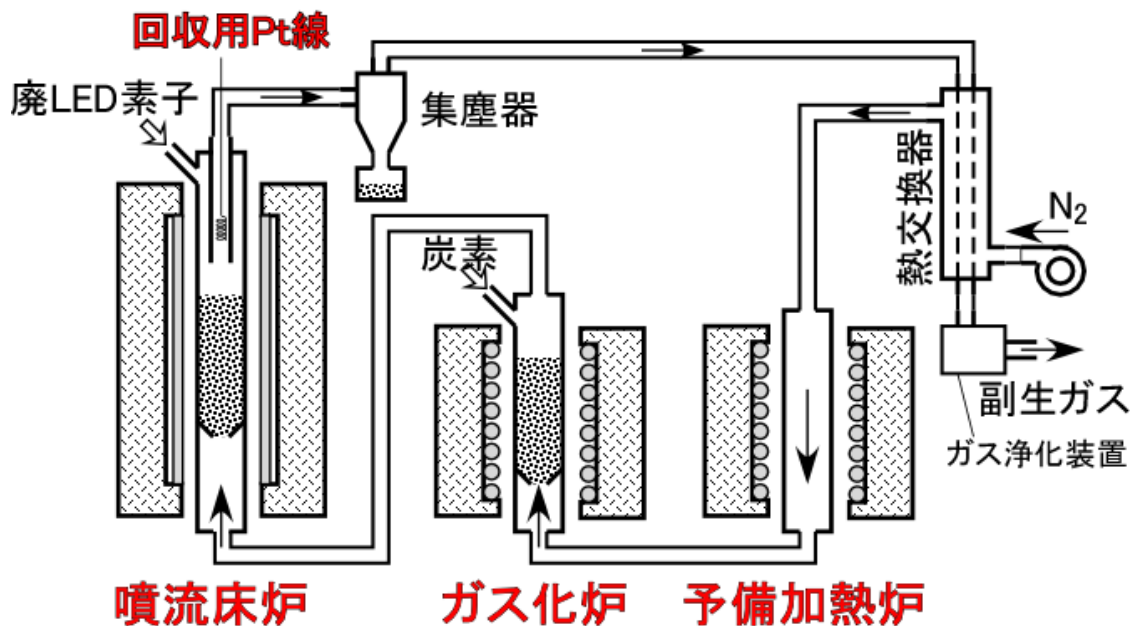


図 2.2 廃 LED 素子等の Ga 含有物からの Ga 濃縮・精製の装置の模式図

## 2.2.1 単体分離・濃縮したLED素子からのGa濃縮・精製装置と改修

LED素子からGaを濃縮するために、図2.2.1-1の噴流床炉を用いた。予備加熱炉で窒素ガスを600°Cに熱し、ガス化炉で700°Cに加熱し、炭素を一酸化炭素にガス化させ、噴流床炉を1150°Cに加熱し、LED素子に含まれるGaN(s)を還元させ、GaO<sub>2</sub>(g)の状態に気化させ、噴流床炉上部の回収管の部分で酸化され、β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(s)の形で回収管に付着させ回収される。回収管内部の棒はφ5mmの石英ガラス製の棒で、回収管内の気流を乱してβ-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(s)を回収しやすくするために、5mmの間隔で、5本の溝を刻んだ。

なお、本実証以前においては、化学成分分析の容易さを最重視して、回収部にコイル状のPt線を用いていた。また、省スペース化の観点から、ガス化炉と噴流床炉を横に並べて設置していた。しかし、本実証では図2.2.1に示すように、Pt線ではなく、コストと成分分析の容易さの両方を考慮して、前述のように溝を付けた石英管を用いた。本事業前の基礎研究において、石英管に溝を付けることにより、溝周辺にGa<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(s)を効率的に回収できるという知見を得ており、これは気流の乱れによるフラクチュエーションによる核生成が促進されたためであると考察している。また、従来研究の装置では、ガス化炉と噴流床炉の間の配管が長く、その配管部分でのガス温度の低下が懸念されていた。しかし、噴流床炉の設置位置を変更し、ガス化炉と噴流床炉の間の配管を極力短くするように改修を行なった。なお、リボンヒーターによる配管の加熱は、本実証以前においても行っていたが、今回の改修によってリボンヒーターの加熱はより効果的に行えたと考えられる。

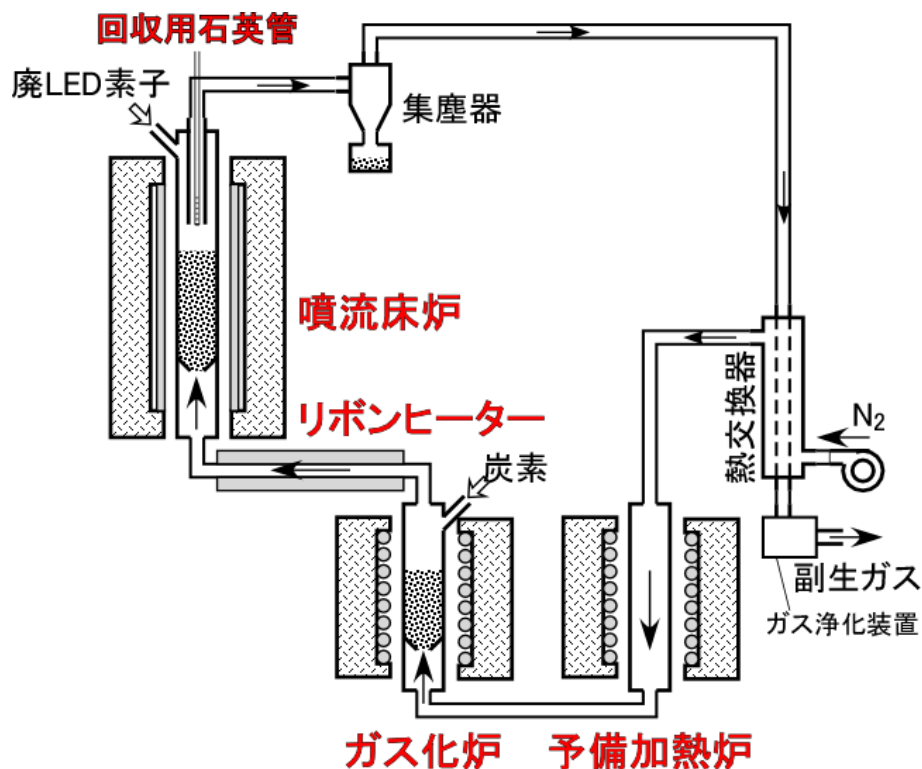


図 2.2.1 単体分離・濃縮したLED素子からのGa濃縮・精製装置の模式図

## 2.2.2 LED 素子からの Ga 濃縮・精製技術の処理量増加に向けた検証方針

商用化を目指すため、最終的には堅型破砕機、CFS、電気パルス破砕の各方式による破砕後の試料による検証が必要である。よって、図 2.2.2-1 に示すように、各方式の破砕において最適条件による試料作製の期間中は、従来研究と同じ試料を使用し、処理量増加・連続化の検討を優先した。各方式による破砕後試料の提供を受けて、処理量増加の検討結果を踏まえた Ga 等回収を検証した。

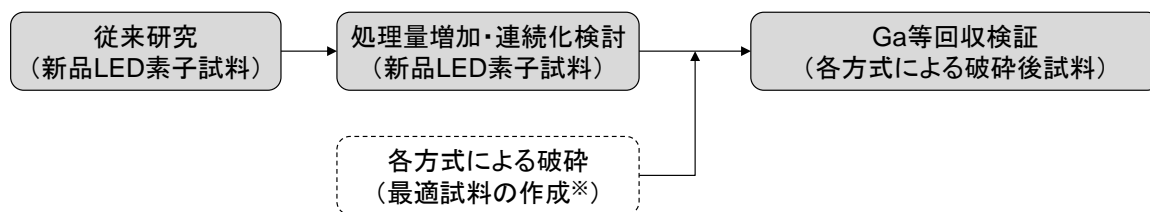


図 2.2.2-1 単体分離・濃縮した LED 素子からの Ga 濃縮・精製技術の検証の方針

まず、廃 LED 素子の処理量増加に向けて、一度の処理量を現有装置の最大量 5g として、処理時間をどこまで短縮できるかの検証を行った。なお、本実証以前においては、試料 1g に対して 300 分 (5 時間) の熱処理で Ga の濃縮・精製をすることで、収率 93% を達成していた。

廃 LED 素子中に Ga は、サファイア基板上に GaN 膜として存在している。本実証では、この GaN がサファイア基板上から気相へ分離する時間によって、熱処理時間の短縮の検証を行った。熱処理前にサファイア基板表面に存在する Ga の濃度をエネルギー分散型分光分析(EDS)により評価するために、GaN の熱分解が起こらない 900°C で 10 分の熱処理を噴流床炉内で行い、残渣中からサファイア基板を取り出した。サファイア基板以外の部分に関しては、金属部を取り除き、その残渣を粉砕した後に 300 μm の篩上と篩下に分け、それぞれに対して、EDS による成分分析を行なった。表 2.2.2-1 に示すように、サファイア基板の表面部分には多くの Ga 分析されたため、900°C の焼成では GaN は熱分解せずに残存したと判断できる。よって、この Ga 濃度を 1150°C における噴流床熱処理前のサファイア基板上の Ga 濃度とした。

表 2.2.2-1 LED 素子を 900℃で 10 分間噴流床焼成した残渣の各部の化学成分 (mass%)

元素	基板部	金属部	篩上部	篩下部
C	0.00	0.00	0.00	27.71
O	17.21	4.90	40.71	41.59
Al	1.59	1.17	7.41	0.69
Si	9.06	0.50	26.66	19.71
Ti	0.00	0.00	0.00	10.08
Fe	0.98	0.00	10.16	0.00
Cu	9.80	39.30	9.81	0.01
Ga	55.45	0.03	1.04	0.20
Ag	3.11	54.02	0.64	0.00
Lu	0.00	0.00	3.19	0.00
Au	2.79	0.08	0.38	0.00

検証①として、試料 5g に対し、120 分、60 分と従来に対して大幅な短縮を試み、Ga 分離に影響がないかどうかを検証した。1150℃の噴流床炉で 60 分間と 120 分間 LED 素子を熱処理した残渣から取り出したサファイア基板表面において、EDS 分析により濃度分析を行なった結果を表 2.2.2-2 に示す。1150℃の熱処理を行なう前は 57.08 mass%であったものが、60 分間と 120 分間の噴流床熱処理によって、1.93 mass%と 1.13 mass%となり、この値を元に Ga が分離した割合を計算すると、96.6%と 98.0%となった。よって、60 分間の熱処理によってもほとんどの Ga が気相に分離され、その結果としての収率にも大きな影響を与えないことが判明した。よって、堅型破砕機、CFS、電気パルス破砕の各方式による破砕して単体分離・濃縮した試料を噴流床による熱処理を行なう場合には、1150℃で 60 分間の噴流床熱処理で行うことにした。これにより、従来研究の 25 倍の処理量を達成できることになる。

表 2.2.2-2 LED 素子を 900°C で 60 分および 120 分で焼成した残渣の各部の化学成分  
(mass%)

	熱処理時間 (1150°C)		
	0 min	60 min	120 min
	mass%	mass%	mass%
C	0	4.31	0
N	0	20.43	27.35
O	21	19.85	21.5
Al	2.01	6.18	13.6
Si	8.86	40.64	36.1
Ti	0.33	0.42	2.06
Cu	4.22	3.4	5.6
Ga	57.08	1.93	1.13
Ag	2.47	0.56	1.88
Au	4.03	2.28	1.21

その上で、検証②において、40分、20分、10分とさらに熱処理時間を短縮する実験を継続した。表 2.2.2-3 に示すように、1150°C の熱処理を行なう前のさファイア基板表面におけるは 57.08 mass%であったものが、10分間、20分間、40分間の噴流床熱処理によって 12.24 mass%、5.41 mass%、2.27 mass%となり、この値を元に Ga が分離した割合を計算すると、78.6%と 90.5%と 96.0%となった。

以上、検証①と検証②の結果をまとめ、図 2.2.2-2 に図示した。この図より、最初の約 15分間まで直線的に Ga 濃度が急速に減少しており、GaN 薄膜表面における Ga<sub>2</sub>O(g) の生成が Ga 分離の律速段階であることを示唆した。一方、15分以上の熱処理ではファイア基板表面における Ga 濃度の減少は時間と共に遅くなっており、Ga の分離は固相における拡散が律速段階である可能性を示唆した。よって、商用化を目指した場合には、30分間の熱処理時間で十分であり、30分間の熱処理によっても、従来の 300分と比較して十分な収率が得られることが分かった。



表 2.2.2-3 LED 素子を 900°C で 60 分および 120 分で焼成した残渣の各部の化学成分 (mass%)

	熱処理時間 (1150°C)			
	0 min	10min	20min	40min
	mass%	mass%	mass%	mass%
C	0	0	0	0
N	0	15.23	19.62	22.48
O	21	19.31	19.47	17.67
Al	2.01	5.59	4.35	6.24
Si	8.86	40.89	41.9	38.97
Ti	0.33	0	0.2	0.97
Cu	4.22	3.22	4.21	6.66
Ga	57.08	12.24	5.41	2.27
Ag	2.47	0.2	0.68	1.5
Au	4.03	3.32	4.14	3.24

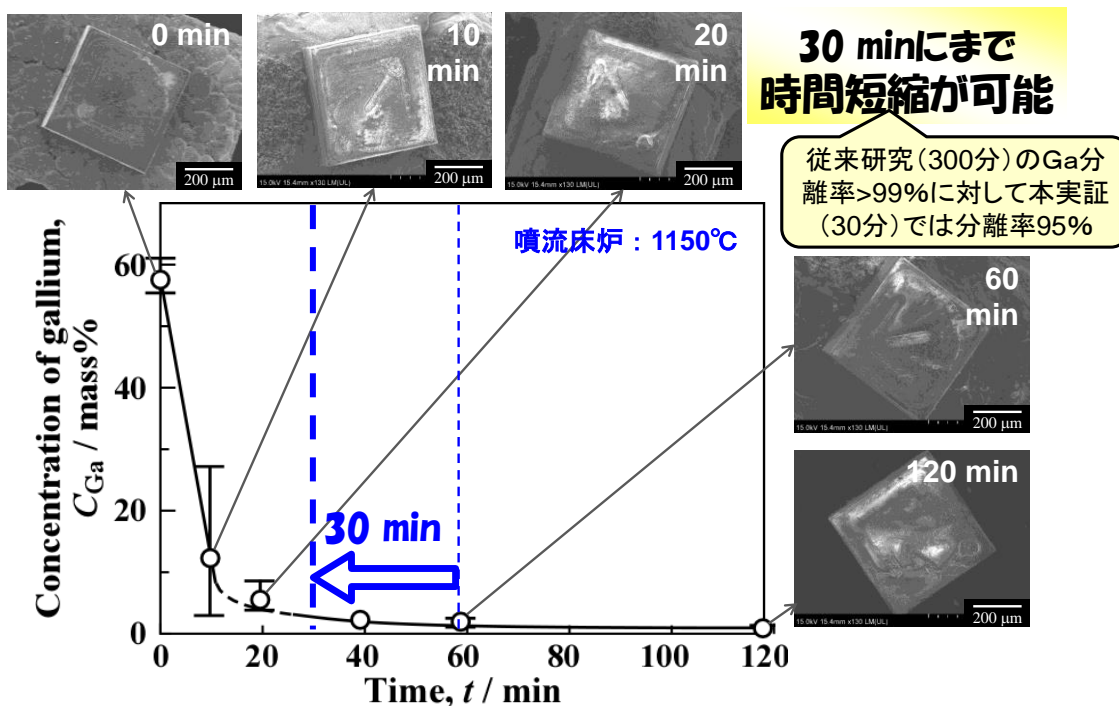


図 2.2.2-2 処理量と処理時間の実験結果

以上、処理量増加に向けた取り組みを図 2.2.2-3 にまとめる。本実証における検証①によって、処理量は従来技術の 25 倍を達成し、これ条件を用いて、堅型破砕機、CFS、電気パルス破砕の各方式によって単体分離・濃縮した LED 素子の噴流床による熱処理を行なうこととした。さらに検証②によって本実証で用いている噴流床装置は従来研究の 50 倍も達成できることを実証した。本実証研究において、ガス化炉と噴流床炉の間の配管を極力短くするように改修を行い、リボンヒーターによる配管の加熱を効率的に行なえるようにしたことが影響した可能性がある。

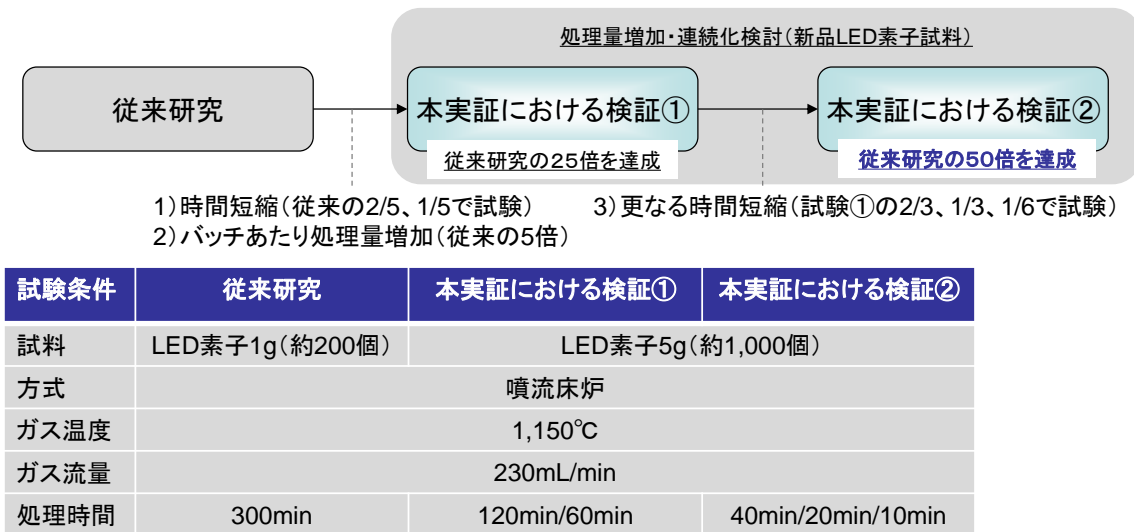


図 2.2.2-3 処理量増加に関する検証

### 2.2.3 LED 素子からの Ga 濃縮・精製技術の連続化に向けた検討

本実証事業では、豎型破碎サンプル、クロスフローシュレッター(CFS)破碎サンプル、電気パルス破碎サンプルの3種類のサンプルと、Ga 濃縮・精製装置との組み合わせの効果を検証することに重点を置いた。そのため、従来通りのバッチ式(回分式)装置による Ga 濃縮・精製実験を行った。

一方、実用化の検討のために、装置の連続化に向けた検討も必要である。さらなる処理量の増加のためには、連続化の機構を設けることが必要となる。そこで、本実証では連続化に向けた改修も行った。

現状のバッチ式(回分式)の噴流床炉を連続化に改修するうえで、噴流床部の反応管に関する設計案として図 2.2.3-1 に示す二つの案を設計した。一般に、噴流床や流動床の連続化を行う場合、焼成残渣の排出を横方向に行う設計となっている。しかし、本実証で用いている装置の加熱装置の制約のために、横方向への排出は難しく、噴流床の下方に排出する方法として A 案を考案した。A 案では反応部の底部の中心から噴上ノズルによって、ガスを上方に噴出させる噴流床の構造を維持している。排出残渣を噴上ノズルの周辺から下方に排出する構造となっており、反応部の断面積よりも排出部の断面積が小さくなる。その結果、焼成残渣が固結した場合には、排出がなされなくなるリスクがある。そのため、連続化を行うためには、B 案の移動床炉を採用することが妥当であると考えた。この設計であれば、反応部の断面と排出部の断面形状は同じであるため、焼成残渣を排出することが容易である。周囲の熱いガスを巻き込みながら上方に熱風を噴き上げるという噴流床の利点を失うことにはなるが、移動床炉は対向流式となっており、気体と固体の間の熱交換に優れるという特徴を有しているために、Ga 分離には大きな影響を与えずに、残渣排出が可能になると考えられる。

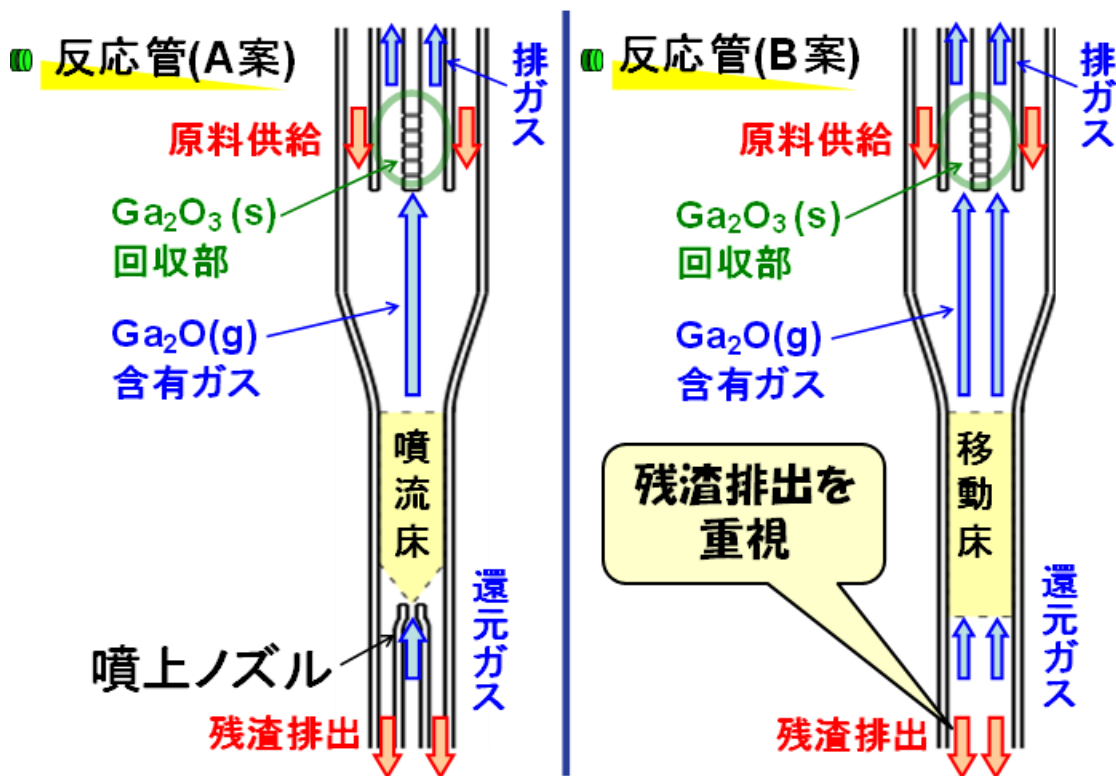


図 2.2.3-1 処理連続化に向けた連続排出機構の検討

次に、焼成残渣を排出するための機構に関する装置開発を行った。焼成残渣は、部分的に固結した状態であるため、破碎と排出を同時に行うことが必要であると考えられる。また、排出機構には密閉性も必要とされ、排出速度を制御する必要もある。しかし、機械的構造としては単純であることが望まれる。以上を考慮して、図 2.2.3-2 に示す排出機構を設計し、試作した。攪拌機用の低速モーターに切削工具のドリルを取り付け、上部から降下してきた残渣がかき出され、丸底フラスコに蓄積される構造となっている。丸底フラスコの容量を大きくすれば、1日の連続運転が可能となる。なお、既存の装置規模のバッチ式で熱処理する場合には、5 g の LED 素子を 30~60 分で処理することを想定している。図 2.2.3-2 には、本排出機構の試運転をした様子も示している。写真 1~8 から、LED 素子を破碎しながら、左斜め下方向に排出できることが分かる。なお、ここでは試料として未焼成の LED 素子を用いた。焼成残渣の粒度等に合わせて、管径を変えるなどの調整を行なって、排出速度を制御するための調整は必要ではあるが、この機構を用いて、試料の連続排出が可能であることを実証した。これにより、1日 8 時間の運転により、80 g の LED 素子を処理できる性能を有する（1時間あたり 10g 程度の性能を有する）ことになる。また、例えば、残渣の排出部に 500 mL の丸底フラスコを設置すれば、40 時間で 400 g 程度の LED 素子の連続処理が可能である。

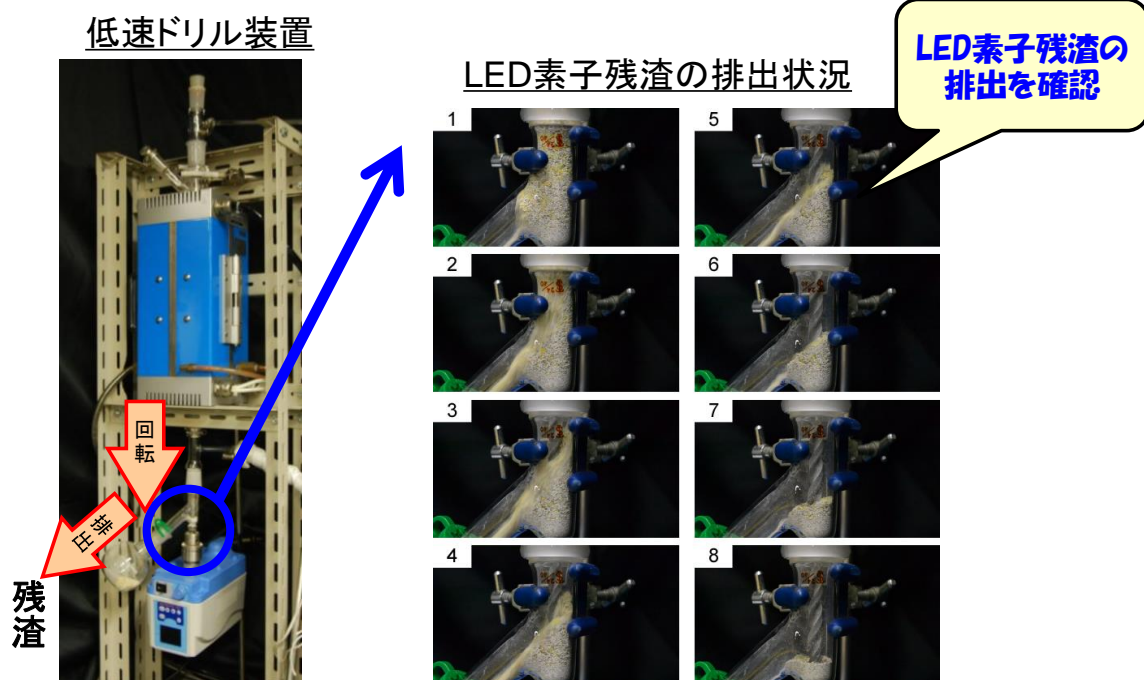


図 2. 2. 3-2 低速回転ドリルによる連続排出の試運転の様子

以上、商用化に向けて、本実証で得られた示唆は以下の通りである。

- 処理量の増加については、温度を均一に与えることができ、十分な酸素量を供給できることができれば、商用向け大型装置により kg 単位の処理が実現できる見込みが立った。
- また、商用向け大型装置の設計においては、現在の噴流床炉を移動床炉にする検討余地があると考えられる。移動床方式の場合、本実証で試験した連続排出機構が適合する。

## 2.2.4 LED 素子の Ga 濃縮・精製に要する電力量の評価結果

本実証で用いた実験装置では、予備加熱炉とガス化炉には抵抗加熱式の電気炉を、噴流床反応炉には赤外線ゴールドイメージ炉を用いた。また、ガス化炉と噴流床安納炉の間の配管にはリボンヒーターを取り付けた。CFS 破砕サンプル (2.0 mm~4.75 mm、約 5 g) を床噴流反応炉内に入れ、流量 230mL/min で窒素ガスを流しながら、60 分の熱処理を行った。予備加熱炉、ガス化炉、噴流床反応炉の温度は、それぞれ、600℃、700℃、1150℃とし、炭素源としてはガス化炉内に活性炭を 25 g 投入した。使用電力量は、各装置の電源部にクランプメータを取り付け、30 s 毎の電流値をロギングメータにて記録し、力率を 1 として電力および電力量を算出した。

使用電力の測定結果を図 2.2.4-1 に示す。昇温初期においては、噴流床炉とガス化炉の使用電力の変動が激しかったが、徐々に使用電力の変動はなくなった。特に、噴流床炉の使用電力が最高値を示すところでは、ほぼ電力値は一定となった。150 min 経過後に予備加熱炉の使用電力の減少が見られたが、これは電気炉の蓄熱あるいは熱交換器の影響であると考えられる。

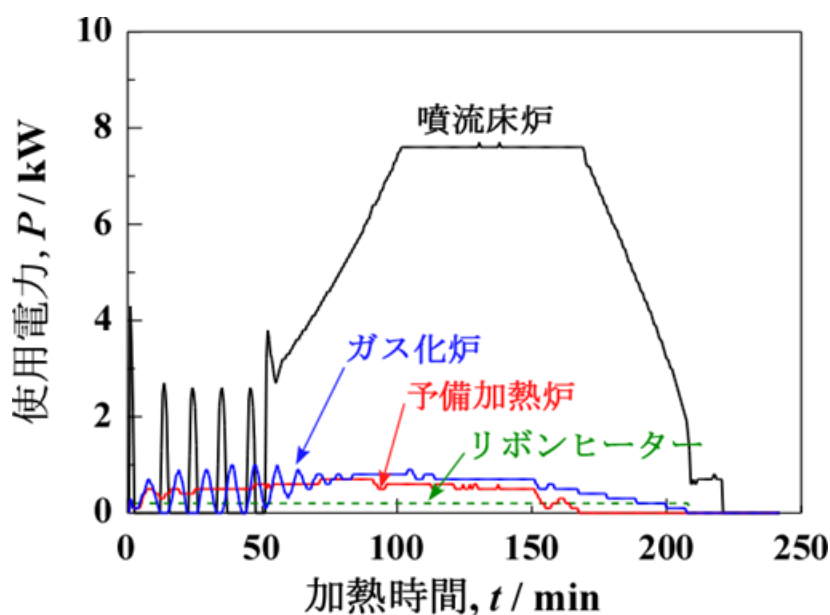


図 2.2.4-1 新たな金属化合物濃縮装置の電力消費量の時間変化

また、表 2.2.4-1 には、各加熱装置部分において使用した電力量を、昇温過程、高温保持過程、降温過程に分けてまとめた。抵抗加熱式電気炉を用いた予備加熱炉とガス化炉では、昇温過程において多くの電力量 (それぞれ、0.902 kWh、0.904 kWh) を使用し、その後の高温保持過程では使用する電力量が少なくなり、降温過程では殆ど電力量を使用していないことが分かった。また、同様の加熱形態であるリボンヒーターでも同様の傾向が見られた。一方、赤外線ゴールドイメージ炉を用いた噴流床反応炉では、他の加熱装置と比べて多く

の電力量を使用していた。昇温過程よりも高温保持過程の方が、より多くの電力量を使用しており、赤外線ゴールドイメージ炉の断熱が不十分であることによる影響が顕著に表れた。全加熱装置と全過程の使用電力量の合計 20.570 kWh のうち、16.495 kWh(80.2%)を噴流床炉で使用しており、投入エネルギー削減のためには、噴流床炉の加熱方式を検討する必要があることが明白となった。なお、噴流床炉の赤外線加熱炉（電力 8.0 kW）には断熱材は用いられていないため、シリコニット発熱炉（電力 4.4 kW）を用いて断熱をすれば、大幅な使用電力量削減（1/3 以下）が見込まれる。

表 2.2.4-1 新たな金属化合物濃縮装置の電力消費量

装置	使用電力量, $E$ / kWh			小計
	昇温	保持	降温	
予備加熱炉	0.902	0.506	0.000	1.408
ガス化炉	0.904	0.760	0.174	1.838
リボンヒーター	0.404	0.267	0.158	0.829
噴流床炉	4.644	8.516	3.335	16.495
小計	6.854	10.049	3.667	20.570

表 2.2.4-2 には、本装置における使用電力削減のためのシミュレーションの結果を示す。使用電力量測定時に、熱処理時間（保持時間）は 60 分で行った。それを 30 分に時間短縮をした場合、昇温と降温の過程での使用電力量は変化せずに保持時間に使用する電力量のみが半減するとした。また、連続化により LED 素子の処理量を 5 g から 80 g に変えた場合にも、昇温と降温の過程での使用電力量は変わらずに保持時間に使用する電力量のみが増えるとした。さらに、連続化のみでなく、赤外線加熱方式を抵抗加熱式に変えた場合の使用電力量も推定した。本実験で用いた赤外線加熱装置の電力(8.0 kW)と同等の加熱能力を持つシリコニット発熱体の電力(4.4 kW)を参考にするとともに、抵抗加熱炉においては、断熱の効果のために、温度保持過程の使用電力量が昇温過程における使用電力量と比べて少ないことも参考にして、推定を行なった。

表 2.2.4-2 使用電力量削減のシミュレーション

	保持時間	排出機構	噴流床/移動床加熱方式	使用電力量※				備考
				昇温	保持	降温	小計	
現状	60 min	回分式	赤外線加熱 8.0 kW	6.854	10.049	3.667	20.570	5 g処理
時間短縮	30 min	回分式	赤外線加熱 8.0 kW	6.854	5.025 (計算)	3.667	15.546	5 g処理
連続化	480 min	連続式	赤外線加熱 8.0 kW	6.854	80.392 (計算)	3.667	90.913	80 g処理
連続化 & 抵抗加熱	480 min	連続式	抵抗加熱 4.4 kW	2.6 (推定)	17.2 (推定)	0.5 (推定)	20.3 (推定)	80 g処理

注) 噴流床炉/移動床炉の加熱と、予備加熱炉、ガス化炉、リボンヒーターを含む

商用化に向けた更なる低 CO2 化の要件は以下の通りである。

- 本実証では、60 分処理において、電力を 20.570kWh 消費し、そのうち、約 80% (16.495kWh) を噴流床炉の加熱で使用していることが分かった
- 現在の赤外加熱式では熱効率が低いため、抵抗加熱式に変更することで、全体の消費電力を 1/3 以下に抑えられると考える。

図 2.2.4-2 に本検討の流れを示す。商用化に向けた処理装置設計の示唆と更なる低 CO2 化の要件を検討する必要がある。検討内容については後述する。

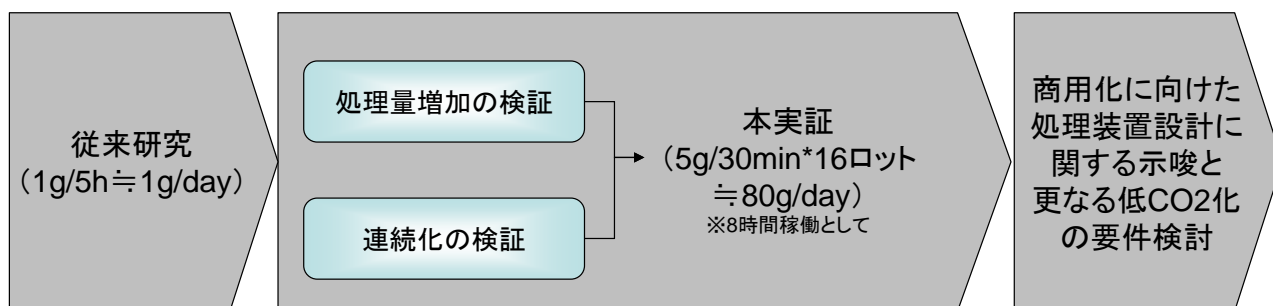


図 2.2.4-2 処理連続化に向けた連続排出機構の検討



### 3 本実証の事業化検討

#### 3.1 LED 素子の単体分離・濃縮技術と Ga 濃縮・精製技術による連携・最適化要件の明確化

本事象実験の結果から以下の LED 素子の単体分離・濃縮技術と Ga 濃縮・精製技術による連携・最適化要件が明らかにする。

##### 3.1.1 単体分離された LED 素子からの Ga 濃縮・精製

図 3.1.1-1 に、廃棄された LED 照明から、堅型破碎機、クロスフローシュレッダー、電気パルス破碎の 3 種類の破碎・選別方法により分離・濃縮された LED 素子 (<4 mm) を示す。本節では、これらを、それぞれ、堅型破碎試料、CFS 破碎試料、電気パルス破碎試料と呼ぶこととする。これらの試料から導線を分けた後に、850  $\mu\text{m}$ 、2.8 mm の篩で篩分けし、それぞれの粒群別の試料の外観を示している。ただし、堅型破碎試料には、導線が多く含まれており、Ga を含む LED 素子は 850  $\mu\text{m}$ ~2.8 mm の粒群に多く分別されていることが分かる。CFS 破碎試料には、850  $\mu\text{m}$  以下の粒群に濃い灰色の微粉が多く含まれており、LED 素子は 850  $\mu\text{m}$ ~2.8 mm の粒群に多く分別されていることが分かる。電気パルス破碎試料には、850  $\mu\text{m}$  以下の粒群には、金属光沢のあるやや粗めの粒子が含まれていた。電気パルス破碎試料の 850  $\mu\text{m}$ ~2.8 mm の粒群には、他の試料と比べて特に多くの LED 素子が選別された。



図 3.1.1-1 各方式破碎試料 (<4 mm) の外観 (粒群別)

表 3.1.1-1 に、3 種類の破碎試料の化学成分を示す。参考のために、LED 素子の化学成分を示す。LED 素子は、密閉系酸溶解により試料調整を行ない、Ga, Au, Ag, Zn, Lu に関しては ICP 定量分析を行い、その他の元素に関しては ICP 定性分析を行なった。一方、破碎試料に関しては、密閉系酸溶解により試料調整を行ない、Ga, Au, Ag, Zn, Al に関しては ICP 定量分析を行い、その他の元素に関しては ICP 定性分析を行なった。LED 素子中には Ga と Au と Ag が含まれていた。LED 素子中に Al が含まれていたが、これはサファイア基板の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> として存在していたと考えられる。その他、Ti, Fe と Cu なども含有していた。

堅型破碎試料、CFS 破碎試料、電気パルス破碎試料のいずれにも、Ga と Au と Ag が含有しているが、その含有量は LED 素子に比べて減少していた。ただし、これらの 3 試料の中では電気パルス破碎試料の中に Ga と Au と Ag が含有しており、LED 素子の単体分離・濃縮に対する高い可能性を有していることが分かった。また、これらの 3 試料には Al と Fe が多く混入したことが分かる。LED 照明には放熱のために金属 Al が用いられているため、Al の混入はこれに起因するものと推定される。

表 3.1.1-1 各種破碎試料(<4 mm)の元素濃度 (ICP 分析)

	LED素子(参考)	堅型破碎	CFS破碎	電気パルス破碎	単位: mg/kg
<b>Ga</b>	1100 (GaN)	59	65	390	Ga, Au, Ag の一部が 選別
<b>Au</b>	4800	160	130	750	
<b>Ag</b>	29000	1200	960	9400	
<b>Zn</b>	310	15000	4000	590	Al混入
<b>Al</b>	9300 (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 基板)	110000	140000	46000	
<b>Ti</b>	22000	11000	5100	8900	Fe混入
<b>Fe</b>	11000	23000	190000	22000	
<b>Cu</b>	700000	160000	120000	560000	
<b>Sr</b>	1400	480	290	1100	
<b>In</b>	20	50	14	49	
<b>Sn</b>	<10	24000	1800	940	
<b>Lu</b>	700	810	980	6700	

注) 破碎試料の Ga, Au, Ag, Zn, Al と LED 素子の Ga, Au, Ag, Zn, Lu は ICP 定量分析値、その他は ICP 定性分析値

図 3.1.1-2 に、噴流床部に投入した各種破碎試料(<4 mm)と噴流床熱処理後に噴流床に残った残渣の外観を示す。堅型破碎試料、CFS 破碎試料、電気パルス破碎試料の 3 種の破碎試料 5 g を噴流床部に入れ、流量 230mL/min で窒素ガスを流しながら、60 分の熱処理を行った。予備加熱炉、ガス化炉、噴流床反応炉の温度は、それぞれ、600℃、700℃、1150℃とし、炭素源としてはガス化炉内に活性炭を 25 g 投入した。使用電力量は、各装置の電源

部にクランプメータを取り付け、30 s 毎の電流値をロギングメータにて記録し、力率を1として電力および電力量を算出した。

噴流床焼成前の試料では、それぞれ 5.0284 g, 5.0136 g, 5.0467 g であったものが、噴流床焼成によって 3.0837 g, 3.3894 g, 3.5495 g となり、61.3 %, 67.6 %, 70.3 %に重量が減少した。破碎試料に含有していた Au のほとんどは、そのまま残渣にのこったため、焼成によって金品位が高まったことを意味する。一方、噴流床焼成によって気相に分離された成分は、噴流床上部に設置された石英回収管および石英棒に付着する。なお、LED 素子を原料に用いた場合には、石英回収管に Ga が  $\text{Ga}_2\text{O}(\text{g})$ として分離され、 $\text{Ga}_2\text{O}_3(\text{s})$ として回収されている。

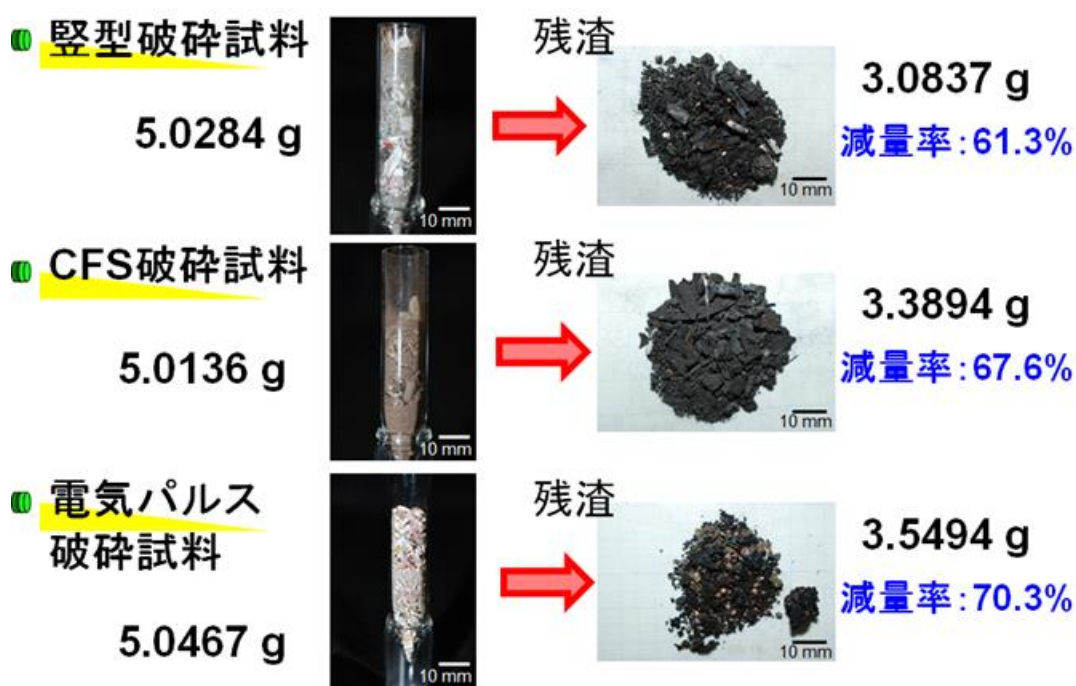


図 3.1.1-2 各種破碎試料(<4 mm)とその熱処理残渣

表 3.1.1-2 には、噴流床焼成前に試料中に存在していた各元素が、どの程度残渣に残り、どの程度石英管上に回収物に移動したかのマテリアルバランスを示す。焼成残渣については灰化・酸分解による試料調整を行ない、回収物については密閉系酸溶解により試料調整を行なった。Ga, Au, Ag, Zn, Al に関しては ICP 定量分析を行い、その他の元素に関しては ICP 定性分析を行なった。なお、LED 素子を原料とした場合と異なり、破碎試料を原料とした場合には、破碎試料から回収物への Ga の移動は少なかった。3 種類の破碎試料の中では、CFS 破碎試料を用いた場合に回収物に Ga の移行している割合が多かった。CFS 破碎試料には濃い灰色の微粉が存在しており、電気パルス破碎試料には金属光沢のあるやや粗めの粒子が含まれていた。すなわち、CFS 破碎試料に混入した各種金属は酸化されていた可能性があり、電気パルス破碎試料には酸化していない金属 Al はが多量に混入したと見られ

る。LED 素子中に GaN として含まれる Ga 成分を Ga<sub>2</sub>O(g)として分離するためには、低い分圧の酸素を供給する必要がある。しかし、金属 Al が共存することにより、Al の酸化のために酸素が用いられ、Ga<sub>2</sub>O(g)として分離を阻害したと考察できる。一方、CFS 破碎試料でこの影響が相対的に小さかったのは、破碎試料中に存在する Al は微粉であり、破碎中に Fe や Cu などの金属と共に酸化したためだと考えられる。

Au に関しては、回収物中にわずかに検出されたが、その量は 1%以下であった。ほとんどの Au は残渣中に残ったと言える

Ag に関しては、そのほとんどは残渣及び回収物のどちらにも移動していなかった。その移動先については、噴流床と回収管の間であると言える。この詳細については後述する。

表 3.1.1-2 試料および焼成後の残渣と回収物におけるマテリアルバランス

単位:mg

	豎型破碎			CFS破碎			電気パルス破碎		
	焼成前 5028.4	残渣 3083.7	回収物	焼成前 5013.6	残渣 3389.4	回収物	焼成前 5046.7	残渣 3549.4	回収物
<b>Ga</b>	<b>0.3</b>	<b>0.3</b>	<b>0.009</b>	<b>0.3</b>	<b>0.5</b>	<b>0.048</b>	<b>2.0</b>	<b>1.1</b>	<b>0.058</b>
<b>Au</b>	0.8	0.5	0.006	0.7	0.9	0.008	3.8	3.0	0.006
<b>Ag</b>	6.0	0.0	0.12	4.8	0.0	0.26	47.4	0.1	0.40
<b>Zn</b>	75.4	0.7	43	20.1	0.1	5.8	3.0	0.0	6.7
<b>Al</b>	553.1	709.2	0.9	701.9	745.7	1.0	232.1	134.9	0.9
<b>Ti</b>	55.3	55.5	<0.3	25.6	29.1	<0.3	44.9	88.7	<0.3
<b>Fe</b>	115.6	132.6	1.4	952.6	745.7	1.6	111.0	74.5	0.9
<b>Cu</b>	804.5	616.7	<0.3	601.6	745.7	<0.3	2826.1	2520.0	<0.3
<b>In</b>	0.3	0.2	<0.3	0.1	0.3	<0.3	0.2	0.5	<0.3
<b>Sn</b>	120.7	46.3	0.7	9.0	67.8	0.6	4.7	102.9	<0.3

注) Ga, Au, Ag, Zn, Al は ICP 定量分析値、その他は ICP 定性分析値

表 3.1.1-3 には、噴流床焼成前による貴金属資源としての品位の変化を示す。3 種類の全ての破碎試料において、Au が濃縮されていることを確認した。これは、噴流焼成により減量化がなされたためである。

表 3.1.1-3 各種破碎試料の焼成による Ga および貴金属品位の変化 (ICP 分析)

単位:mg/kg

	縦型破碎		CFS破碎		電気パルス破碎	
	焼成前	残渣	熱処理前	残渣	熱処理前	残渣
<b>減量率</b>	100%	61.3%	100%	67.6%	100%	70.3%
<b>Ga</b>	59	110	65	160	390	310
<b>Au</b>	<b>160</b>	<b>170</b>	<b>130</b>	<b>260</b>	<b>750</b>	<b>840</b>
<b>Ag</b>	1200	13	960	13	9400	15
<b>Zn</b>	15000	220	4000	26	590	<5
<b>Al</b>	110000	230000	140000	220000	46000	38000
<b>Ti</b>	11000	18000	5100	8600	8900	25000
<b>Fe</b>	23000	43000	190000	220000	22000	21000
<b>Cu</b>	160000	200000	120000	220000	560000	710000
<b>Sn</b>	24000	15000	1800	20000	940	29000
<b>In</b>	50	63	14	86	49	130

図 3.1.1-3 に LED 素子の噴流床焼成による Ga の濃縮を行なった際の回収管の様子を示す。この結果は本実証で用いたものとは異なる装置で得られた結果である。本実証装置とは、炉内の温度分布が異なるため、回収位置の上下方向の順番は同じであるが、回収位置は異なっている。これにより、気相に分離された金属を、回収管に付着する位置によって選択的に回収することが可能である。なお、Ag は、Ga の下方（上流側）に銀が回収されていることが分かる。

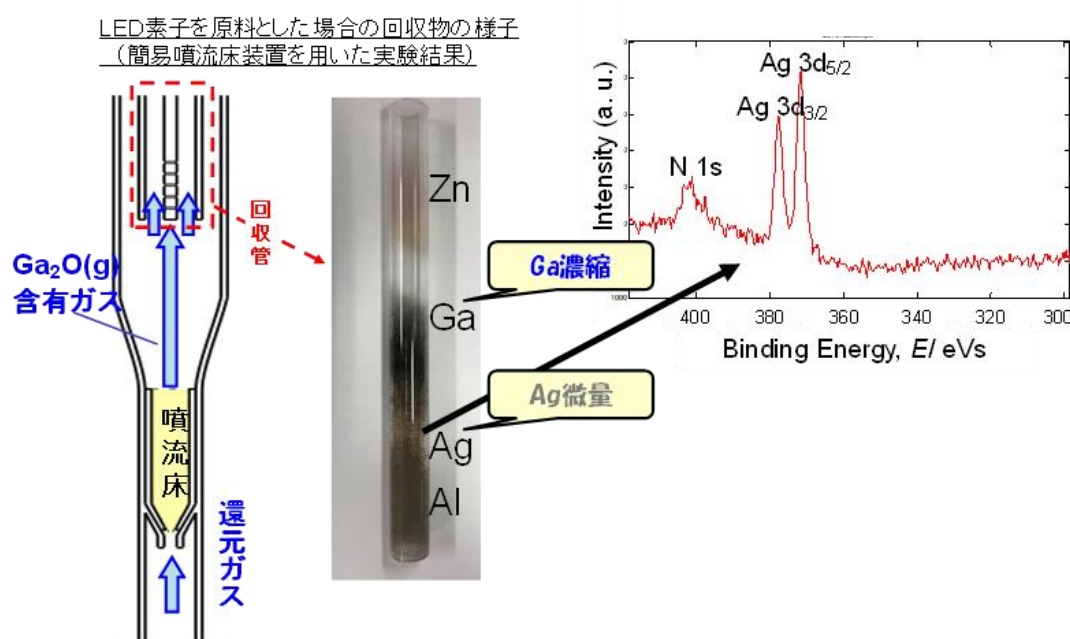


図 3.1.1-3 Ag と Ga の選択的回収の方法

図 3.1.1-4 に、本実証での残渣と回収物の分析箇所を示す。噴流床焼成後に残渣にも回収物にもほとんど存在していなかった Ag は、噴流床と回収管の間に分離された。写真に反応管に多くの付着物がみられ、この部分に Ag が飛散して濃縮されている。

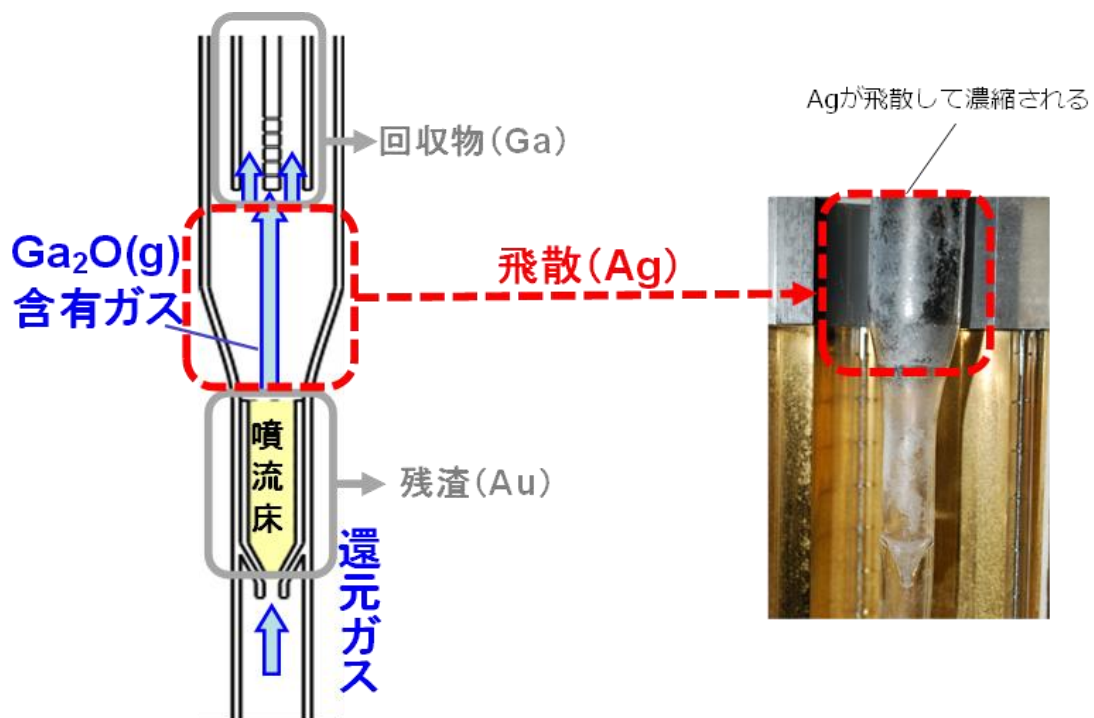


図 3.1.1-4 焼成後試料の分析箇所

### 3.1.2 LED 素子の単体分離・濃縮技術と Ga 濃縮・精製技術の連携

本実証事業により、LED 素子の単体分離・濃縮技術としては、非破壊剥離を目的とする場合、電気パルスはクロスフローシュレッダーに比べてより良い粉碎機であることが判明した。また、堅型破砕機では LED 素子の多くは破壊されてしまい、また非剥離で基板上に残存する割合が高いことが分かり、実用化の実績と導入費用を考慮すると、クロスフローシュレッダーの選択が合理的であると結論付けられた。

クロスフローシュレッダーと Ga 濃縮・精製技術である乾式プロセスの連携においては、破砕回収物に含まれる金属類 (Al、Fe 等) の影響により、ガス雰囲気における酸素を奪ったため、乾式プロセスの原料について金属含有状況に合わせたガス雰囲気の最適条件検討が必要であることが分かった。

また、本実証の事業化検討において、経済性を左右する貴金属の回収については、以下のようなことが分かった。

- 乾式プロセスにおいて、Au は回収物への移動量が 1%以下であり、ほとんどが LED 素子残渣に残留したため、乾式処理による減容化効果 (60~70%減量) により、CFS 破砕試料の Au 品位 (130 mg/kg) から残渣の金品位 (260 mg/kg) となった。
- Ag は Ga と共に噴流床上部の管内に付着し、高純度で回収できることが分かった。管内での Ag と Ga の付着位置が異なる (Ag は Ga の上流側(下部)に付着する) ため、Ga と分離した状態で回収できることが分かった。

これらの結果により、クロスフローシュレッダーで非破壊剥離された LED 素子は乾式プロセスにより、Ga、Au、Ag のそれぞれを高品位で回収できる可能性があると考えられる。

特に、既存の堅型破砕機による破砕プロセスでは、Ga 回収ができなく、更に Au についても、総含有量のうち約 2.5%が破砕物に散逸した結果、品位が低下し、製錬で評価できない状況となっていた。

ただし、クロスフローシュレッダーは現状バッチ処理であることから、運用にかかる人件費の削減に向けた連続化等の検討が必要であるとともに、クロスフローシュレッダーの回収物に一定量含まれる金属類などから、LED 素子を選別する必要の有無など、乾式プロセスの前処理として効率化の必要性について、乾式プロセスとの連携も踏まえた上で検討する必要があると考える。

また、本実証事業では、サンプルを縮分したため、CFS、ED とも Au の収率が高くなかったが、両方式による破砕の結果として、LED 素子の非破壊剥離率により、Au の約 9 割が LED 素子と共に乾式プロセスで選択的回収が可能となり、残り 1 割についても十分製錬で評価できる濃度として回収が見込め、既存の破砕プロセスに比べてロスが減少すると考えられる。(表 3.1.2 参照)

表 3.1.2 CFS および ED 産物の粒群別歩留りと Au・Ga の品位・分配率

CFS産物	粒群(mm)	歩留り(wt%)	Au品位(ppm)	Au分配率(%)		Ga品位(ppm)	Ga分配率(%)
	+32	12.5	0.0	0.00		0.00	0.00
	16-32	20.2	5.8	6.03	} 製錬で評価可能	1.54	6.59
	8-16	40.5	1.8	3.72		0.45	3.88
	4-8	15.9	0.0	0.00		0.00	0.00
	2-4	4.9	199.6	50.56	} 90.25	55.45	58.01
	1-2	2.4	221.0	27.00		41.30	20.84
	-1	3.6	69.7	12.69		14.20	10.68
	合計	100.0	19.5	100.00		4.72	100.00
ED産物	粒群(mm)	歩留り(wt%)	Au品位(ppm)	Au分配率(%)		Ga品位(ppm)	Ga分配率(%)
	+32	94.8	1.9	15.76	} 製錬で評価可能	0.85	33.08
	16-32	2.2	0.0	0.00		0.00	0.00
	8-16	0.8	0.0	0.00		0.00	0.00
	4-8	0.2	0.0	0.00		0.00	0.00
	2-4	1.1	614.3	59.96	} 84.24	94.96	43.79
	1-2	0.3	344.0	8.27		6.70	0.76
	-1	0.6	332.0	16.01		98.20	22.37
	合計	100.0	11.44	100.00		2.42	100.00

- 歩留り： ED 産物では CFS 産物に比べて、+32 mm 粒群の歩留りが非常に多く、蛍光灯の各種構成素材が非破壊で残存することが分かる。
- Au： ED 産物では CFS 産物に比べて、非破壊剥離された LED 素子が存在する 2-4 mm 粒群で、Au 品位が高く、Au 分配率も高くなっている。また、-1 mm 粒群の歩留りは低いですが Au 品位が高く、Au 分配率が比較的高くなっており、単体分離した Au が細粒に存在することが分かる。
- Ga 品位： ED 産物では CFS 産物に比べて、非破壊剥離された LED 素子が存在する 2-4 mm 粒群で、Ga 品位は高いが、Ga 分配率は低くなっている。また、-1 mm 粒群の歩留りは低いですが Ga 品位が高く、Ga 分配率は比較的高くなっており、単体分離した窒化ガリウム (GaN) が細粒に存在することが分かる。

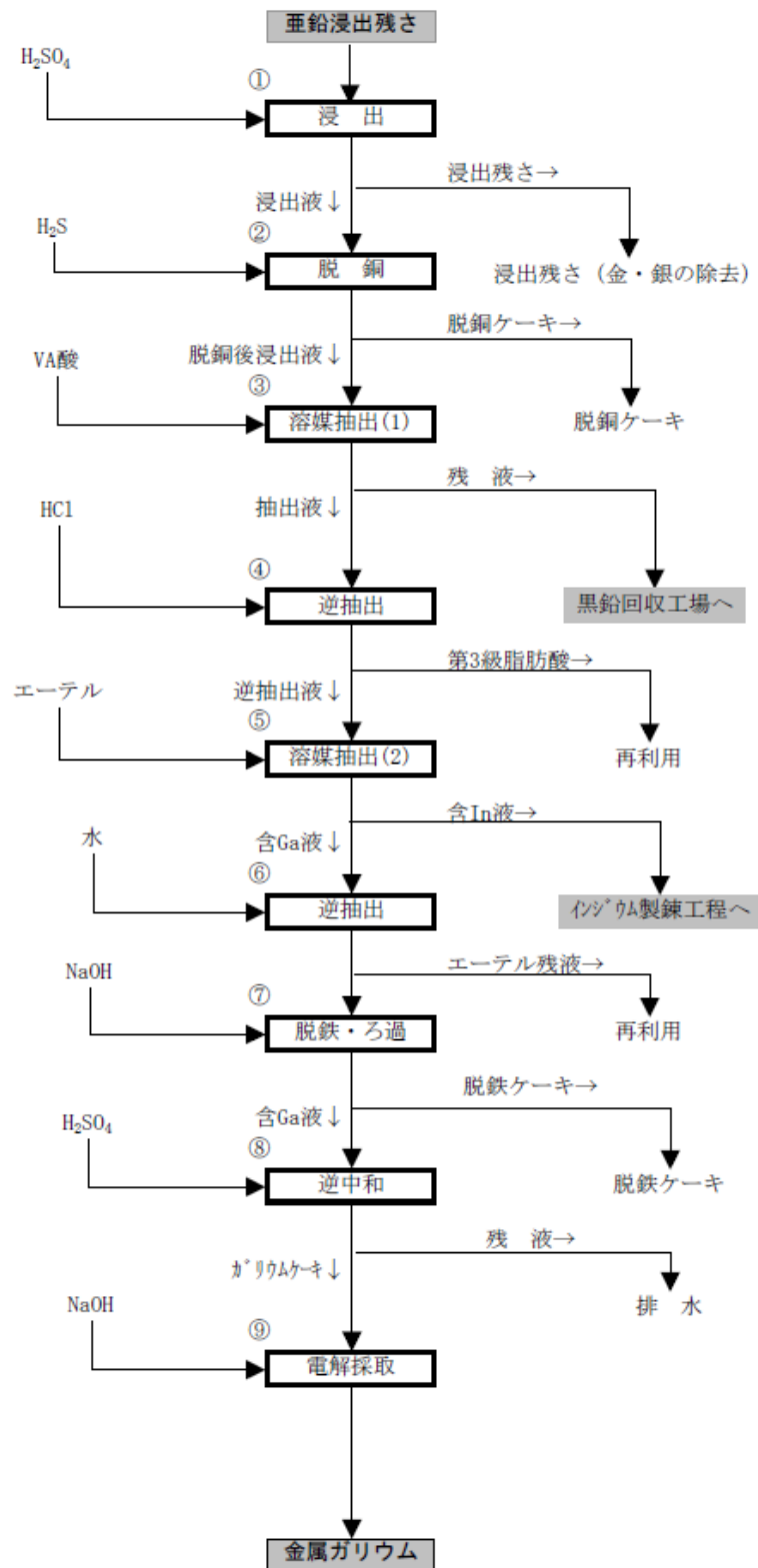


## 3.2 使用済製品からの Ga リサイクルの可能性

本実証事業では、Ga リサイクルの経済的な実現可能性を評価するにあたり、まず Ga 製錬、Ga リサイクルの現状について調査し、理解を深めた。

### 3.2.1 Ga 製錬の状況

Ga は独自の鉱石が無く、金属 Ga の主な原料としては、アルミの原料であるボーキサイト（アルミナ製造工程で発生するバイヤー液）、或いは亜鉛鉱由来の原料（湿式製錬で発生する残さ）がある。亜鉛浸出残さから Ga を製錬するプロセスフローを以下の図 3.2.1-1 に示す。



出典) 阿部 秀来, "ガリウム,インジウムの製錬", 日本鉱業会誌 93 1070 ('77-4) 323-

図 3.2.1-1 亜鉛浸出残さからの Ga 製錬プロセスフロー

また、現状ではバージンアルミ地金は輸入に頼っており、ボーキサイトからのアルミ製錬は行われていない。また、以下の表 3.2.1-1 によると、金属 Ga の生産量は 2017 年時点の総生産量 165t に対し、亜鉛鋅製錬による生産量は 3t と微量であることが分かる。

表 3.2.1-1 世界及び日本の Ga 地金生産量

		2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016	2017	17/16比	構成比	
世界 <sup>1)</sup>	新地金※1	95	78	106	216	273	-	-	-	-	-	-	-	
	再生地金	135	118	161	310	354	-	-	-	-	-	-	-	
	低純度地金※2	-	-	-	-	-	350	435	470	274	315	115%	-	
	高純度地金 (低純度地金を精錬)※3	-	-	-	-	-	(200)	(170)	(160)	(180)	(180)	(100%)	-	
	合計※4	230	196	267	526	627	350	435	470	274	315	115%	-	
日本 <sup>2)</sup>	新地金	亜鉛副産物	5	5	5	8	8	8	8	6	3	3	100%	2%
		輸入地金を精錬	73	62	92	97	58	72	70	82	87	94	108%	57%
	再生地金	93	83	85	72	75	85	81	75	70	68	97%	41%	
	合計	170	150	182	177	141	165	159	163	160	165	103%	100%	

出典: 1) United States Geological Survey 「Mineral commodity Summaries」

※1: world primary production (estimated)

※2: 2013年はworld primary production (確定値)、

2014～2016年はworld low-grade primary gallium production (確定値)、

2017年はworld low-grade primary gallium production (estimated)

※3: 2013～2014年はrefined gallium production (estimated)、

2015年はrefined gallium production (from low-grade primary sources only, not recycled) (estimated)

2016～2017年はprimary refined high-purity gallium production

※4: 2008～2012年はrefined gallium production (include some scrap refining) (estimated)

2) 工業レアメタルNo.125～134 (No.134 P25 表. 輸入通関統計「日本のガリウム供給推移」)

出典) JOGMEC 鉱物資源マテリアルフロー 2018 17.ガリウム(Ga)

Ga の用途はガリウム砒素 (GaAs) として太陽電池、窒化ガリウム (GaN) として青色発光ダイオードなどに使われている。また、太陽電池に使用される CIGS (Copper Indium Gallium DiSelenide : 銅・インジウム・ガリウム・セレンの化合物を材料とする薄膜物質) や、LCD で使用される IGZO (Indium Gallium Zinc Oxide : インジウム・ガリウム・亜鉛酸化物の略称) などがある。

### 3.2.2 Ga リサイクルの状況

Ga のリサイクルに関しては、使用済製品からのリサイクルは行われておらず、Ga 製品を製造する過程で発生する工程内スクラップ (IGZO 等) のリサイクルが主体である。以下の表 3.2.2-1 によると、国内の Ga 地金生産量のうち、約 4 割が再生地金のリサイクル由来となっている。

表 3.2.2-1 Ga のリサイクル状況

区分	内訳		2013	2014	2015	2016	2017	
見掛消費量	国内生産 <sup>1)</sup>	新地金	亜鉛副産物	8	8	5	3	3
			輸入メタル精製	72	70	82	87	94
			再生地金	85	81	75	70	68
	合計①		165	159	162	160	165	
リサイクル量(再生地金生産②) <sup>1)</sup>			85	81	75	70	68	
リサイクル率(②/①)			52%	51%	46%	44%	41%	

出典: 1) 工業レアメタルNo.134 2018、P25 「日本のガリウム供給推移」

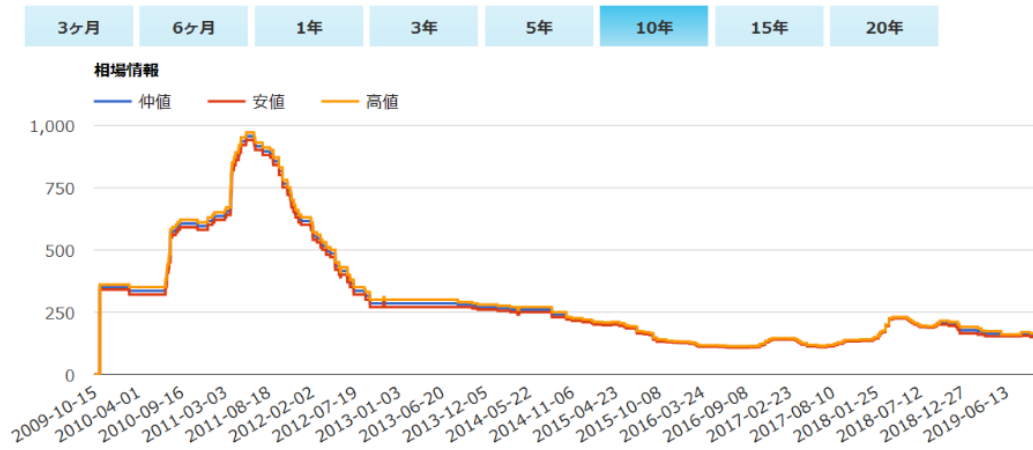
注) ガリウムの輸入はGa,Hf,Nb,Reの合計値、輸出はGe,V,Ga,Hf,In,Nb,Reの合計値のため、表2-1の業界統計の輸入(合計①)を記載

出典) JOGMEC 鉱物資源マテリアルフロー 2018 17.ガリウム(Ga)

国内で亜鉛鋅から Ga 回収を行っているのは同和鋅業、ガリウム砒素(GaAs)の工程内スクラップリサイクルは住友金属鋅山、それ以外にアジア物性材料、ラサ工業が IGZO、窒化ガリウム (GaN) 等の工程内スクラップリサイクルを行い、いずれも 6N、7N グレードの高純度金属 Ga を生産している。

IGZO などの工程内スクラップは、資源価値の高いインジウムを含有していることや、Ga の品位が 40%~50%程度と高く、品位が安定していることから、それに適したリサイクルプロセスが構築されている。

Ga の市況は 2010 年頃に CIGS や IGZO の需要の伸びが期待され、相場が最高値\$955/kg まで上昇したが、CIGS、IGZO のいずれも想定されたほど市場が伸びず、且つガリウム砒素(GaAs)など高周波デバイスでシリコン(Si)系材料にシフトしたことにより、供給過剰となり、現在は\$160/kg 程度となっている (図 3.2.2-1 参照)。

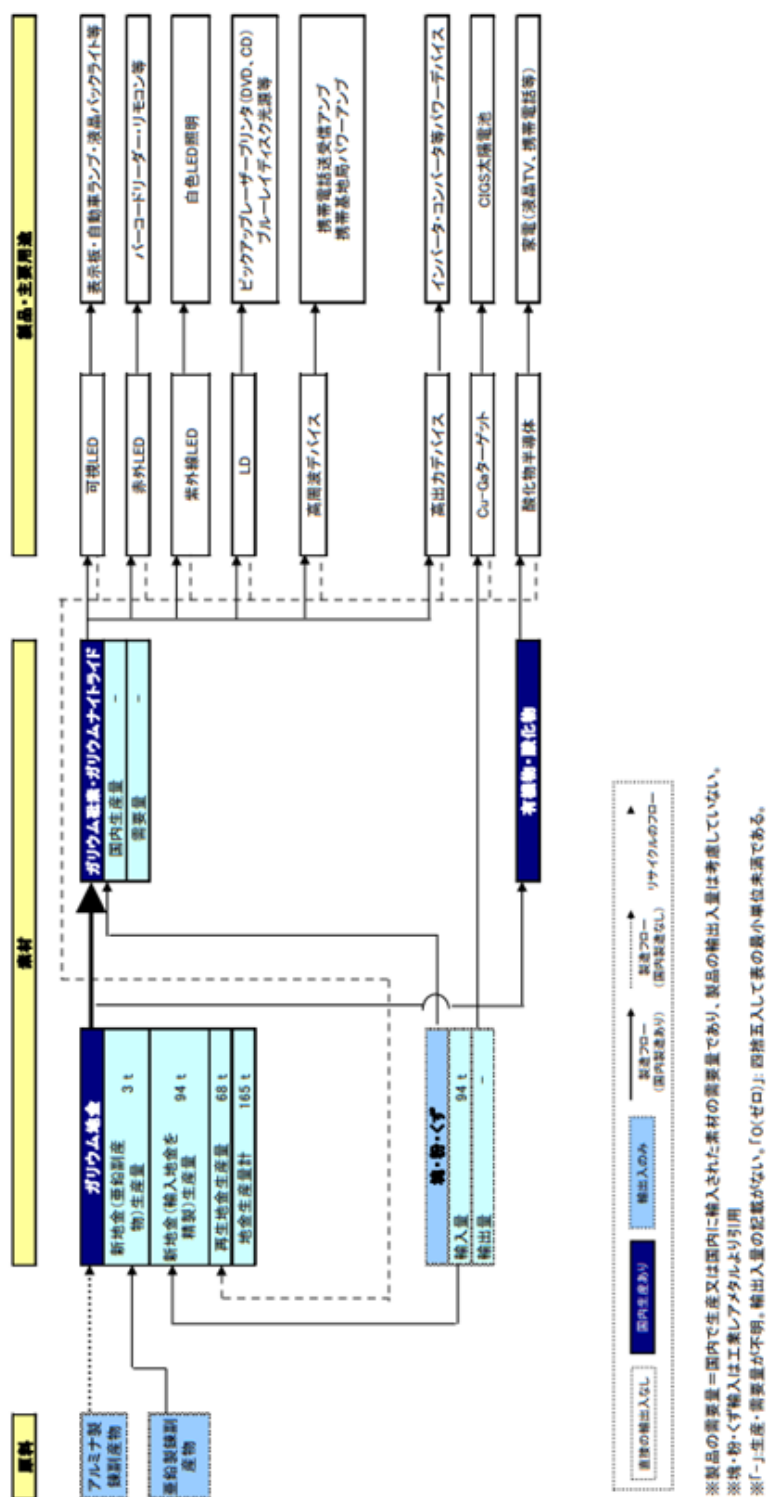


出典) IRUNIVERSE

図 3.2.2-1 Ga 相場推移

また、参考までに Ga のマテリアルフローを図 3.2.2-2 に示す。

図 3.2.2-2 ガリウムのマテリアルフロー (2017年)



出典) JOGMEC 鉱物資源マテリアルフロー 2018 17.ガリウム(Ga)

### 3.2.3 本実証事業で回収した Ga 化合物の出口検討

本実証事業では、LED 素子を乾式プロセスにより、酸化ガリウム ( $\text{Ga}_2\text{O}_3$ ) と炭素 (C) を中心とした Ga 化合物が品位約 50%程度で回収できる見込みである。(試験サンプルのバラツキ、ガス雰囲気の状態により最適条件の探索が課題として残っている)

回収物の出口検討として、Ga 化合物の需要について調査を行った。表 3.2.3-1 に主な Ga 化合物の出口候補として、今後普及が見込まれる窒化ガリウムパワー半導体、酸化ガリウム半導体及び民生品 (A 社) の各用途別の製法と関連企業、原料について調査した。

表 3.2.3-1 ガリウム化合物の出口候補

用途	製法	関連企業	原料
窒化ガリウム パワー半導体	HVPE 法	沖電気、IHI	金属 Ga
	アモノサーマル法	日本製鋼所、旭化成	GaN 粉末
	フラックス法	リコー、豊田合成	金属 Ga
$\text{Ga}_2\text{O}_3$ 半導体	るつぼによる結晶化	ノヴェルクリスタル	$\text{Ga}_2\text{O}_3$ 粉末
	アドバンスト ・ペDESTAL 法	アドバンスト・キー ・テクノロジー研究所	不明
民生品	粉砕	A 社	金属 Ga 粉末または $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 粉末

出典) 公開情報から NRI 調べ

各用途の原料に対して本実証事業で回収される Ga 化合物の適合性を検討した。窒化ガリウムパワー半導体、酸化ガリウムパワー半導体のいずれも、半導体の特性をコントロールするため、現状では高品位 (5N、6N など) の金属 Ga または Ga 化合物を使用しており、本実証事業の回収物そのままでは需要側の品質要求に合わないことが分かった。

一方で、民生品で金属 Ga または酸化ガリウムを使用する A 社では本実証事業の回収物をそのまま使用できる可能性があることが分かり、本実証事業では A 社の購買条件も確認している。

結果として、本実証事業の回収物を Ga リサイクル事業者へ販売する場合、金属 Ga 相場が \$160/kg 程度となっていることから、リサイクル事業者の購買価格は A 社を下回る可能性もあることが分かった。

ただし、A 社の購買条件には購入ロット量に関するものもあり、1 本あたりの使用済み直管型 LED 照明から回収できる Ga 量は最大で約 1,100mg/本と微量であり、現在弊社の回

収状況から鑑みると、回収量を約 28 倍（予想される全国の年間排出量の 3/4 程度）まで拡大しなければ、A 社の購買条件に見合う Ga 化合物の回収量が確保できないものと試算している。

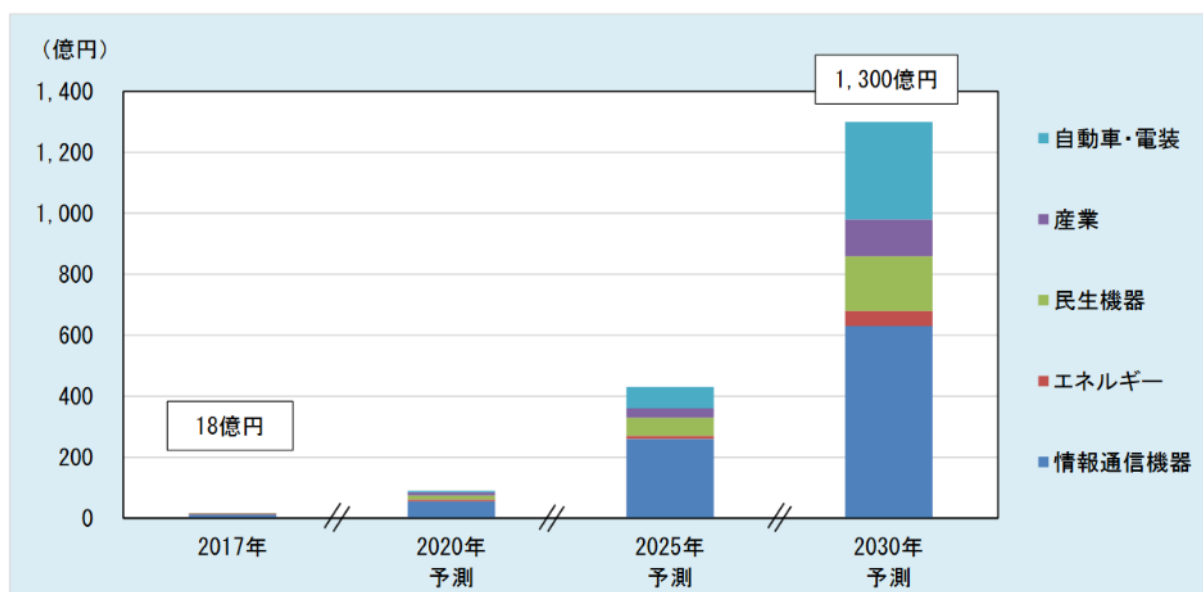


### 3.3 Ga パワー半導体に関わる本実証技術の横展開可能性

今後 Ga パワー半導体の使用が見込まれる製品が拡大する見込みがあることから、対象製品、Ga 含有部品の特徴、回収の可能性、などを調査し、本実証で検証する LED 単体分離・濃縮・精製の各プロセスとの親和性を検討し、本実証技術の将来的な他製品への横展開などを検討した。

#### 3.3.1 Ga パワー半導体製品の拡大見込み

Ga 化合物を用いたパワー半導体は、従来のシリコン半導体に比べて高効率かつ省エネルギー化に寄与するため、市場規模は着実に拡大しており、2019 年以降に本格的に需要が増加すると予想される。窒化ガリウムパワー半導体は、今後、情報通信機器、太陽光発電用パソコン、自動車・電装分野、工作機械・医療機器等の様々な用途分野で採用が進むと見られ、2030 年には世界の市場規模が 1,300 億円程度になる見通しである（図 3.3.1-1 参照）。



出典) 富士経済「2018 年版 次世代パワーデバイス&パワエレ関連機器市場の現状と将来展望」

図 3.3.1-1 窒化ガリウムパワー半導体 世界市場需要予測

既に SiC 半導体は実用化されているが、窒化ガリウム (GaN) については半導体部品用の結晶化技術の確立、低コスト化が必要となっている。今後、通信技術の向上・ネットワーク社会の拡大に伴い、物流、エネルギー、情報の流れが大容量化することが確実であり、SiC 半導体よりも高効率な GaN ワイドバンドギャップ半導体エレクトロニクスの実用化が見込

まれる (図 3.3.1-2 参照)



出所) 東芝デバイス&ストレージ株式会社

図 3.3.1-2 各種ワイドバンドギャップ半導体エレクトロニクスの特性

また、既に窒化ガリウムパワー半導体を搭載した製品の普及が始まっており、電車のモーター制御機器やサーバ電源、太陽光発電システムのパワーコンディショナーなどでの採用が始まっており、更なる用途の拡大が見込まれている (図 3.3.1-3 参照)。

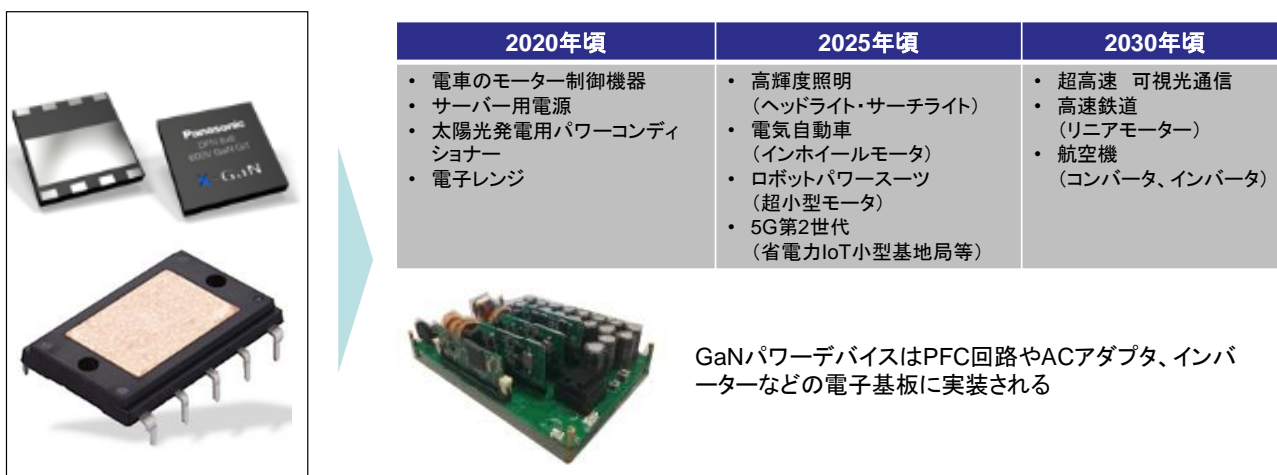


図 3.3.1-3 窒化ガリウムパワー半導体実装の想定時期

また、窒化ガリウムの次に普及する可能性がある酸化ガリウムの特徴として、酸化ガリウムの理論的な損失はシリコンの 1/3,000、炭化ケイ素の 1/6、窒化ガリウムの 1/3 と高効率であり、サファイア基板製造と同じ製造方法が採用できる可能性があるため、安価に製造できる可能性があることから、酸化ガリウム系パワー半導体は、2018 年後半から需要が増加し、2025 年には酸化ガリウムが窒化ガリウムの市場を超え、2030 年には世界の市場規模が 1,450 億円程度まで拡大する見通しである。今後は、民生機器分野や情報通信機器分野以外

にも、自動車・電装分野等の様々な用途での展開が期待される（図 3.3.1-4 参照）。



出所) 富士経済

図 3.3.1-4 次世代 (SiC、GaN)、次々世代 (酸化ガリウム系) パワー半導体の世界市場

### 3.3.2 本実証事業による Ga パワー半導体への横展開の可能性

本実証事業の調査により、Ga パワー半導体が 2020 年から普及拡大を迎えていることが分かったため、本実証事業の技術の横展開による使用済み製品等からのリサイクル拡大の可能性について検討した。

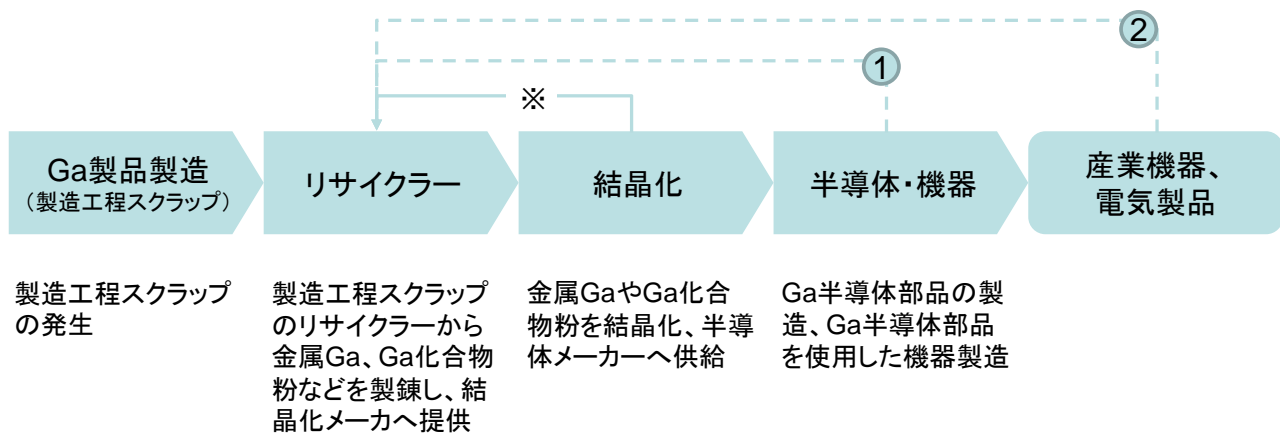
Ga パワー半導体のバリューチェーンにおいて、既存の Ga 製品製造から発生する工程スクラップをリサイクルする仕組みがあるため、今後増加する Ga 地金または Ga 化合物 (GaN、Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 等) をパワー半導体の原料とするための結晶化工程において発生する工程スクラップは、その製造者=排出者となっているため回収がしやすく、且つ品位が高いことが予想されるため、既存リサイクルの仕組みによって回収、製錬されることが最も効率的であると考えられる。

一方で、結晶化された Ga パワー半導体部品の原料は、半導体メーカーや機器メーカーで部品化・製品化される中で、更に工程スクラップが発生する可能性がある。ここで発生する工程スクラップの多くはパワー半導体としての部品に組み込まれたものとなることが想定され、既存リサイクルの仕組みではそのままリサイクルできない可能性もある。且つ、製造者=排出者となるため、使用済み製品と比べて回収しやすいと考えられる。

上記を踏まえ、Ga パワー半導体部品の工程スクラップが本実証事業の乾式プロセスによってリサイクルが可能であり、Ga パワー半導体部品が組み込まれた製品の工程スクラップについても、本実証事業で検証したクロスフローシュレッダーまたは電気パルス技術によって、部品の単体分離、回収できる可能性があることから、本実証事業の横展開が可能であると考えられる。

また、現状では Ga パワー半導体は普及し始めた時期であり、Ga パワー半導体を使用した製品が使用済み製品となって排出されるまで、一定の期間が想定されるため、事業の時間軸からも、まずは Ga パワー半導体部品或いはそれを使用した製品の工程スクラップを回収・リサイクルするためのルート探索・商流構築が優先されるものとする (図 3.3.2-1 ①参照)。

将来的には図 3.3.1-3 のように Ga パワー半導体が使用された産業機器や電気製品が、使用済み製品として排出される際に、弊社の使用済み直管型 LED 照明と同様に回収ルートの構築を進め、本実証事業の横展開により、クロスフローシュレッダー粉砕 (必要に応じて事前に解体) 及び、Ga パワー半導体部品の単体分離・リサイクルを進める余地があるものとする (図 3.3.2 ②参照)。



※結晶化工程でスクラップが発生した場合、既存リサイクラーでリサイクルされる可能性が高い

図 3.3.2 Ga パワー半導体に関わる本実証技術の横展開イメージ

### 3.3.3 本実証事業の商用化に向けた検討

本実証事業により回収可能となった Ga 化合物は前述 3.2.3 の通り、その出口となる候補は探索できているものの、現状の使用済み直管型 LED 照明回収量だけでは、十分な量の Ga 化合物を回収できないことから、3.3.2 のように、今後 Ga パワー半導体の普及に伴う回収ルート構築により、LED 素子だけでなく、Ga パワー半導体等の工程スクラップ、Ga パワー半導体を含む使用済み製品などから Ga を回収することで、Ga 化合物の回収量増加が見込める可能性があることが分かった。

更に現時点では、本実証事業で回収された Ga 化合物は経済的観点から、製錬等の加工を経ず、民生品用途へ供給することが望ましいように考えられるが、将来的に酸化ガリウムパワー半導体が普及した場合、本実証事業で回収された Ga 化合物（酸化ガリウム）を酸化ガリウムパワー半導体の原料とするためのリサイクルシステム構築の可能性もあると考える。酸化ガリウムの用途開発などを進める国立研究開発法人情報通信研究機構（NICT）によると、7N レベルの酸化ガリウムであれば、比較的簡易且つ安価に製錬・精製できる見込みがあり、今後、金属 Ga の需要が拡大した場合に、使用済み製品からの Ga 回収も含めたサーキュラーエコノミーに適応したリサイクルシステムが必要となるか可能性があり、本実証事業において将来的なリサイクルシステム構築に資する基礎検討が進められた。

今後、GaN 半導体・製品の工程スクラップや、廃製品の排出が増加するタイミングを見据えて、乾式技術のブラッシュアップと市場動向把握を継続し、本格的なリサイクルシステム構築に向け、Reserve to Stock（資源備蓄、以降 R2S とする）や商用化の可能性を模索していく必要があると考える。

本実証事業の商用化に向けた展開イメージを以下の図 3.3.3 に示す。

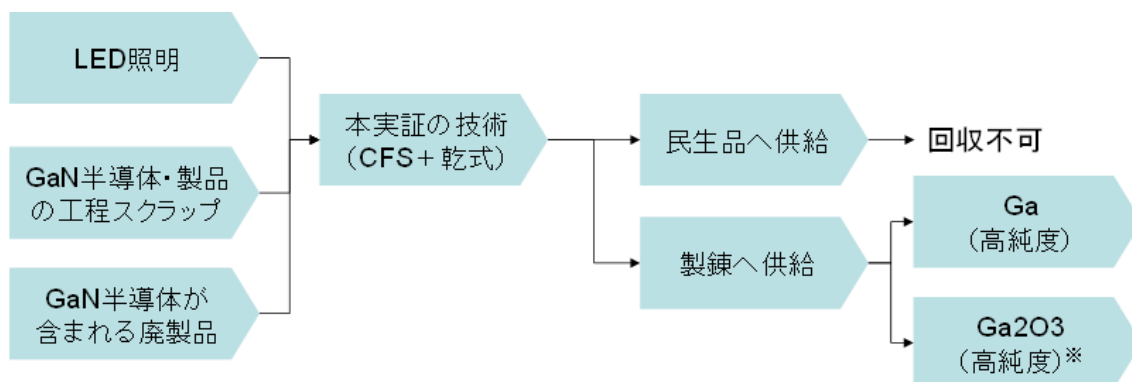


図 3.3.3 本実証事業の商用化に向けた展開イメージ

### 3.4 商用化に向けたマイルストーン

本実証事業により、現時点では使用済み直管型 LED 照明だけでは商取引に十分な量の Ga を回収できなく、且つ経済的には Ga の資源売却価値よりも金・銀等の貴金属の売却価値が大きいこと、更に乾式プロセスの商用向け大型化において継続的な開発が必要であることから、すぐに Ga 回収を実現するプロセスの導入は難しいものであり、既存プロセスの堅型破砕から回収される貴金属渣の売却を継続せざるを得ないと考える。特に、使用済み直管型 LED 照明から LED 素子を単体分離する設備を導入したとしても、将来的な Ga の回収を見越して、LED 素子を R2S することは可能だが、貴金属渣が売却できないことによる収益減や保管コストなどにより、既存事業に支障が出るものである。

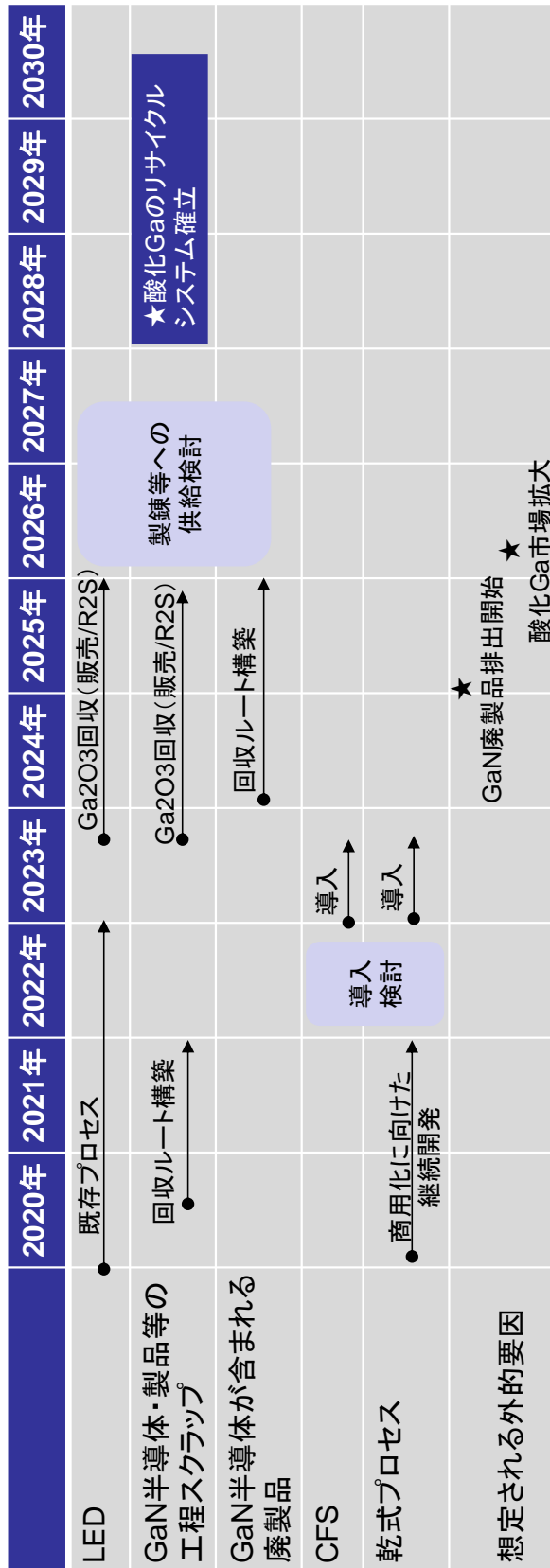
Ga 回収量を増やすため、2020 年から窒化ガリウムパワー半導体・機器等が普及することを見越して、窒化ガリウムパワー半導体の製造から発生する工程スクラップの回収ルート構築し、処理規模の拡大を狙うと同時に、乾式プロセスの商用化に向けた開発（共同実施者である法政大学にて検討）を進める必要がある、その上で、将来的に CFS と合わせた導入の検討をすることになる。

また、窒化ガリウムパワー半導体・機器等の使用済み製品が排出されるタイミングを見越して、使用済み製品の回収ルート構築、使用済み製品からの窒化ガリウムパワー半導体単体分離・濃縮なども検討していく余地があるものとする。具体的には、窒化ガリウムパワー半導体が電子部品として、電子基板等に搭載されていることから、製品解体による電子基板の取り外し、クロスフローシュレッダーを活用した電子基板からの電子部品剥離、選別による窒化ガリウムパワー半導体部品の単体分離、乾式プロセスによる窒化ガリウムパワー半導体部品の Ga 濃縮・回収に向けた連携余地を想定している。また、乾式プロセスにおいて濃縮された Ga 化合物（酸化 Ga）について、将来的な需要増加・市況変化を見越した R2S の事業性検討も視野に入れることが可能と考える。

将来的には、酸化ガリウムの需要拡大に向け、使用済み製品からの Ga 回収も含めたオープンループリサイクルシステム確立を目指していくのと同時に、Ga のサーキュラーエコノミー型ビジネスの実現を目指すものである。

以下の表 3.4 において、商用化に向けたマイルストーン及び、2025 年、2030 年時点における本実証事業の普及見通しを示す。

表 3.4 商用化に向けたマイルストーン：普及見通し（2025年、2030年）





### 3.5 本実証事業の経済的な実現可能性の評価（既存技術との比較）

既存技術（堅型破碎＋選別）により、金、銀を含有する破碎物・シュレッダーダスト等を製錬に売却している。

ただし、金はLED素子が破碎されたことによる散逸で、2.5%のロスが発生していた。

LED素子の金含有量が1100mg/kgのため、27.5mg/kgがロスとなり¥165.0/kg（¥6,000/g-Au）に相当する計算。

一方で、本実証では最もLED素子の非破壊剥離率が高い電気パルス破碎において回収された金の品位は $3\text{mg}/3549.4\text{mg} \div 845.2\text{mg/kg}$ であり、254.8mgとロスが¥1,528.8/kgと拡大することを意味している。

よって、現時点では経済性が悪化したと言わざるを得ない。

また、試料80gの乾式プロセスにかかる20.3kWh（本実証における最大効率案）の電気料金¥345.1（高圧電力約¥17/kWh）がかかるため、¥4,313.8/kgのコストにより、経済性を更に悪化させることになる。

#### 経済性改善余地に関する推察：

- ① CFSで破碎後に本実証の乾式プロセスへ投入するLED素子に含まれるAuは全体の90.25%（表3.1.2の粒群-1mm,1-2mm,2-4mmに該当）であり、乾式プロセスにおけるロスは1%未満（表3.1.1-2のCFS破碎及び電気パルス破碎の回収物におけるAu残存量の平均を見ると約0.5%程度となる）、また乾式プロセスに入れない破碎物（表3.1.2の粒群8-16mm,16-32mmに該当）は製錬で評価が可能な品位となっており、総じて弊社にとってのロスは約0.5%まで低下すると考えられる。よって、金含有量1100mg/kgの0.5%にあたる5.5mg/kgがロスとすると、ロスは¥33.0/kgまで圧縮され、132.0円/kgの収益向上が期待できる。（Agについても、同様な理由から収益向上に繋がる余地があると考え）
- ② 乾式プロセスの大型化・低CO<sub>2</sub>化（消費電力低下）により、乾式プロセスのコストを低減する余地が期待できる。
- ③ 上記①②と、将来的なガリウムパワー半導体の単体分離・濃縮、Ga回収量の増加・販路構築が進むことで、Ga回収も含めた事業収益が既存プロセスを上回るものと期待される。

(再掲) 表 3.1.2 CFS および ED 産物の粒群別歩留りと Au・Ga の品位・分配率

CFS産物	粒群(mm)	歩留り(wt%)	Au品位(ppm)	Au分配率(%)		Ga品位(ppm)	Ga分配率(%)
	+32	12.5	0.0	0.00		0.00	0.00
	16-32	20.2	5.8	6.03	} 製錬で評 価可能	1.54	6.59
	8-16	40.5	1.8	3.72		0.45	3.88
	4-8	15.9	0.0	0.00		0.00	0.00
	2-4	4.9	199.6	50.56	} 90.25	55.45	58.01
	1-2	2.4	221.0	27.00		41.30	20.84
	-1	3.6	69.7	12.69		14.20	10.68
	合計	100.0	19.5	100.00		4.72	100.00
							89.53
ED産物	粒群(mm)	歩留り(wt%)	Au品位(ppm)	Au分配率(%)		Ga品位(ppm)	Ga分配率(%)
	+32	94.8	1.9	15.76	} 製錬で評 価可能	0.85	33.08
	16-32	2.2	0.0	0.00		0.00	0.00
	8-16	0.8	0.0	0.00		0.00	0.00
	4-8	0.2	0.0	0.00		0.00	0.00
	2-4	1.1	614.3	59.96	} 84.24	94.96	43.79
	1-2	0.3	344.0	8.27		6.70	0.76
	-1	0.6	332.0	16.01		98.20	22.37
	合計	100.0	11.44	100.00		2.42	100.00
							66.92

(再掲) 表 3.1.1-2 試料および焼成後の残渣と回収物におけるマテリアルバランス

単位:mg

	豎型破碎			CFS破碎			電気パルス破碎		
	焼成前	残渣	回収物	焼成前	残渣	回収物	焼成前	残渣	回収物
	5028.4	3083.7		5013.6	3389.4		5046.7	3549.4	
<b>Ga</b>	0.3	0.3	0.009	0.3	0.5	0.048	2.0	1.1	0.058
<b>Au</b>	0.8	0.5	0.006	0.7	0.9	0.008	3.8	3.0	0.006
<b>Ag</b>	6.0	0.0	0.12	4.8	0.0	0.26	47.4	0.1	0.40
<b>Zn</b>	75.4	0.7	43	20.1	0.1	5.8	3.0	0.0	6.7
<b>Al</b>	553.1	709.2	0.9	701.9	745.7	1.0	232.1	134.9	0.9
<b>Ti</b>	55.3	55.5	<0.3	25.6	29.1	<0.3	44.9	88.7	<0.3
<b>Fe</b>	115.6	132.6	1.4	952.6	745.7	1.6	111.0	74.5	0.9
<b>Cu</b>	804.5	616.7	<0.3	601.6	745.7	<0.3	2826.1	2520.0	<0.3
<b>In</b>	0.3	0.2	<0.3	0.1	0.3	<0.3	0.2	0.5	<0.3
<b>Sn</b>	120.7	46.3	0.7	9.0	67.8	0.6	4.7	102.9	<0.3

注) Ga, Au, Ag, Zn, Al は ICP 定量分析値、その他は ICP 定性分析値

## 4 環境影響評価

### 4.1.1 インベントリ・バウンダリの考え方

本実証事業における CO2 削減効果を測定するにあたり、使用済み直管型 LED 照明について、一般的に産業廃棄物として回収され、Ga 回収を含まないリサイクルプロセスをベースラインとして設定し、本実証において比較するバウンダリは、①回収輸送及び 3 つの方式による破碎等、②LED 素子中に含まれる貴金属の濃縮、③Ga の濃縮・回収、について検討した。

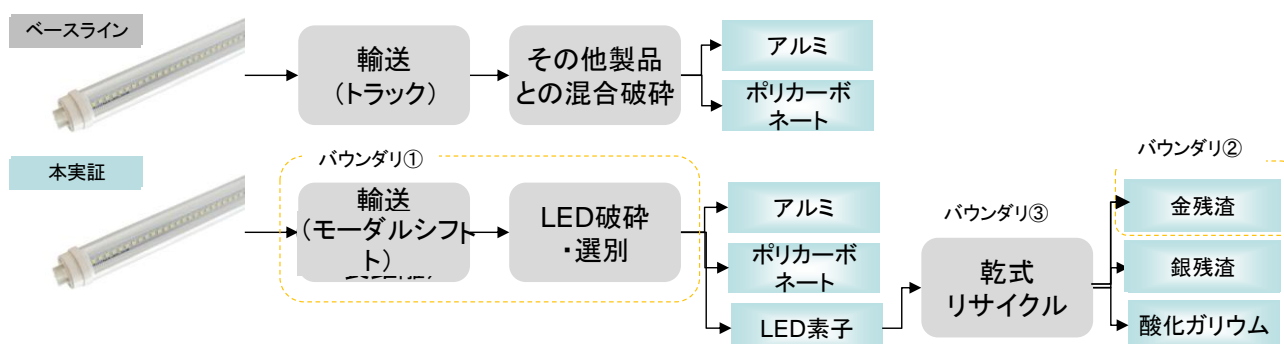


図 4.1.1 インベントリにおけるベースラインと比較対象のバウンダリ

#### (1) バウンダリ①：回収輸送及び 3 つの方式による破碎等

本実証事業において、使用済み直管型 LED 照明を回収し、破碎等によりリサイクルすることについて、使用済み直管型 LED 照明を一般的な産業廃棄物と比較した場合の CO2 低減効果を把握する。

#### ベースラインシナリオ：

一般的には使用済み直管型 LED 照明は産業廃棄物としてトラックにより回収され、その他廃製品等と混合破碎（比較対象となるシナリオと同じ堅型破碎機と仮定）にかけられているため、本実証事業でも、全国からトラック輸送で弊社工場まで搬入し、破碎するものとする。

#### 比較対象となる本実証事業のシナリオ：

本実証事業では、使用済み直管型 LED 照明を収集し、コンテナ詰めの上、モーターシフト（鉄道）による回収を行っている。トラックによる輸送は鉄道の最寄拠点から弊社工場までラストワンマイルのみとなる。

破碎等については、堅型破碎機、クロスフローシュレッダー（CFS）、電気パルス（ED）の 3 方式による破碎・選別プロセスとそれぞれ比較するものとする。

### バウンダリの設定

一般的な直管型 LED 照明の重量は 350g/本であるため、1,000 本あたり 350kg に梱包材 10kg を加えた 360kg を輸送重量と設定する。また、全国から弊社工場までの輸送距離を平均 300km と設定し、モーダルシフトの場合は鉄道の輸送距離 300 kmに加え、鉄道の最寄拠点から弊社工場まで 10 kmのトラック輸送が発生するものと設定する。

破碎等については、本実証で行う 3 方式についてそれぞれ下表のように条件を設定した。

**表 4.1.1-1 堅型破碎機の処理能力及び消費電力（ベースラインと同じ）**

No.	処理工程	装置名	電気出力		処理能力	
			定格値	単位	数値	単位
1	シュレッダー-破碎工程	ベルトコンベア	7.5	kW	2	t/h
2		堅型シュレッダー	630	kW	2	t/h
3		ベルトコンベア	5.5	kW	2	t/h
4	選別工程 1	振動フィーダ	1.7	kW	2	t/h
5		磁選機	3.7	kW	2	t/h
6		搬送コンベヤ(1)	3.7	kW	2	t/h
7		トロンメル	3.7	kW	2	t/h
8		搬送コンベヤ(1)	5.5	kW	2	t/h
9		アルミ選別機	9.7	kW	2	t/h
10		第3搬送コンベヤ	2.2	kW	2	t/h
11		サイクロン(1)	1.5	kW	2	t/h
12		電気集塵機	17.3	kW	2	t/h
13		排風機(1)	75.1	kW	2	t/h
14	選別工程 2	直投ホッパ	0	kW	1	t/h
15		直投コンベヤ	5.5	kW	1	t/h
16		定量コンベヤ(1)	3.7	kW	1	t/h
17		風力選別機(1)	0.75	kW	1	t/h
18		風力選別機(2)	0.75	kW	1	t/h
19		サイクロン(2)	0	kW	1	t/h
20		バグフィルタ(2)	0.75	kW	1	t/h
21		排風機(2)	90.1	kW	1	t/h
22		定量コンベヤ(2)	3.7	kW	0.5	t/h
23		風力選別機(3)	0.75	kW	0.5	t/h
24		サイクロン(3)	1.5	kW	0.5	t/h
25		バグフィルタ(3)	0.75	kW	0.5	t/h
26		排風機(3)	45.1	kW	0.5	t/h
27		振分コンベヤ	2.2	kW	0.5	t/h

堅型破碎機による破碎後に、2 段階の選別工程を経て、剥離した LED 素子を回収できる見込みとなっている。

表 4.1.1-2 クロスフローシュレッダーの処理能力及び消費電力

No.	処理工程	装置名	電気出力		処理能力	
			定格値	単位	数値	単位
1	シュレッダー破砕工程	ベルトコンベア	7.5	kW	n	t/h
2		CFS	22	kW	0.4	t/h
3		ベルトコンベア	5.5	kW	2	t/h
4	選別工程 1	振動フィーダ	1.7	kW	2	t/h
5		磁選機	3.7	kW	2	t/h
6		搬送コンベヤ(1)	3.7	kW	2	t/h
7		トロンメル	3.7	kW	2	t/h
8		搬送コンベヤ(1)	5.5	kW	2	t/h
9		アルミ選別機	9.7	kW	2	t/h
10		第3搬送コンベヤ	2.2	kW	2	t/h
11		サイクロン(1)	1.5	kW	2	t/h
12		電気集塵機	17.3	kW	2	t/h
13		排風機(1)	75.1	kW	2	t/h
14	選別工程 2	直投ホッパ	0	kW	1	t/h
15		直投コンベヤ	5.5	kW	1	t/h
16		定量コンベヤ(1)	3.7	kW	1	t/h
17		風力選別機(1)	0.75	kW	1	t/h
18		風力選別機(2)	0.75	kW	1	t/h
19		サイクロン(2)	0	kW	1	t/h
20		バグフィルタ(2)	0.75	kW	1	t/h
21		排風機(2)	90.1	kW	1	t/h
22		定量コンベヤ(2)	3.7	kW	0.5	t/h
23		風力選別機(3)	0.75	kW	0.5	t/h
24		サイクロン(3)	1.5	kW	0.5	t/h
25		バグフィルタ(3)	0.75	kW	0.5	t/h
26		排風機(3)	45.1	kW	0.5	t/h
27		振分コンベヤ	2.2	kW	0.5	t/h

CFS による破砕後に、堅型破砕機と同じく 2 段階の選別工程を経て、剥離した LED 素子を回収できる見込みとなっている。

表 4.1.1-3 電気パルスの処理能力及び消費電力

No.	処理工程	装置名	電気出力		処理能力	
			定格値	単位	数値	単位
1	シュレッダー破砕工程	ED	5	kW	0.1	t/h

ED による破砕後、選別工程無しで LED 素子を回収できる見込みとなっている。

(2) バウンダリ②：LED 素子中に含まれる貴金属の濃縮

本実証事業において、単体分離した LED 素子を乾式プロセスで処理した際、LED 素子に含まれる金・銀等の貴金属が濃縮された状態で回収できることが分かった。特に金について、濃縮した金残渣を製錬する場合と金鉱石製錬を比較し、CO2 低減効果を評価・把握する。

ベースラインシナリオ：

本実証事業において、剥離した LED 素子を乾式プロセスで処理した際、金が濃縮され、

処理残渣に残留することが分かったため、この残渣を製錬原料とすることで、金鉱石の製錬と比較する。

比較対象となる本実証事業のシナリオ：

本実証事業において、3つの方式による破碎を行った結果、それぞれの非破壊剥離率と乾式処理プロセスで回収できる金の品位に相関関係があることが分かった。よって、3つの方式それぞれから回収できる金残渣の含有量の違いに着目し、方式ごとのCO2排出量を評価する。

バウンダリの設定

下表のように、金鉱石及び3種類の残渣に含まれる金の濃度をもとに評価する。

**表 4.1.1-4 金鉱石及び3方式の残渣に含まれる金濃度**

バウンダリ②	鉱石	豎型残渣	CFS残渣	ED残渣
金濃度 (mg/kg)	20	170	260	840

(3) バウンダリ③Gaの濃縮・回収

本実証事業において、単体分離したLED素子を乾式プロセスで処理した際、噴流床炉に繋がる回収管において、酸化ガリウム ( $Ga_2O_3$ ) が濃縮された状態で回収できることが分かったため、亜鉛精錬時の副産物としてGaを製錬するプロセスと比較し、CO2低減効果を評価・把握する。

ベースラインシナリオ：

亜鉛精錬時の副産物として、浸出残さからGaを製錬している。本実証事業の乾式プロセスで酸化ガリウム ( $Ga_2O_3$ ) が濃縮・回収できるため、亜鉛浸出残さからGaを製錬する下記工程のうち、水酸化Gaが品位34%で回収されるまで、下表赤枠の①浸出から⑦脱鉄・ろ過までを評価対象と設定する。

表 4.1.1-5 亜鉛浸出残さからの Ga 製錬に関する物質収支等データ

プロセス	INPUT		OUTPUT		備考
	投入物等	投入量	生成物	生成量	
①浸出	亜鉛浸出残さ (うち Ga) 硫酸  電力 【硫酸製造】	323 t (291 kg) 969 kL  24.9 GJ 1.4 GJ*	浸出液 (うち Ga) (Gaを除く浸出量) 浸出残さ  【CO <sub>2</sub> emission】 (うち硫酸製造)	969 kL (262 kg) (291 t) 32 t  1.02 t (0.11 t*)	残さ中 Ga 品位 0.09% 浸出率 90%と仮定 浸出液中 Ga 濃度: 0.27g/L 遠心分離機 1 基 (55kW とする) 攪拌機 2.2 kW 使用と仮定 25 日/月(1 日 24 時間)稼働とする 硫酸製造の環境負荷を考慮
②脱銅	浸出液 (うち Ga) 硫化水素  電力	969 kL (262 kg) 2.1 t  14.7 GJ	脱銅後浸出液 (うち Ga) 脱銅ケーキ  【CO <sub>2</sub> emission】	969 kL (262 kg) 5.8 t  0.54 t	Ga の損失はゼロと仮定 銅を硫化物として除去 攪拌機 2.2 kW 使用と仮定 フィルタプレス 0.4kW 使用と仮定 25 日/月(1 日 24 時間)稼働とする
③溶媒抽出 (1)	脱銅後浸出液 (うち Ga) VA 酸 アンモニアガス  電力	969 kL (262 kg) 94 kL +α  12.5 GJ	抽出液 (うち Ga) 抽出尾液  【CO <sub>2</sub> emission】	94 kL (236 kg) 969 kL  0.46 t	VA 酸: パーサスチック酸 抽出率: 90% 亜鉛が除去される 攪拌機 2.2 kW 使用と仮定 25 日/月(1 日 24 時間)稼働とする VA 酸製造の環境負荷は考慮せず
④逆抽出	抽出液 (うち Ga) 塩酸 電力 【塩酸製造】	94 kL (236 kg) 75 kL 5.1 GJ 0.4 GJ*	逆抽出液 (うち Ga) 逆抽出尾液  【CO <sub>2</sub> emission】 (うち塩酸製造)	75 kL (224 kg) 94 kL  0.22 t (0.03 t*)	抽出率 95%と仮定 攪拌機 1.5kW 使用と仮定 15 日/月(1 日 24 時間)稼働とする 塩酸製造の環境負荷を考慮
⑤溶媒抽出 (2)	逆抽出液 (うち Ga) エーテル  電力	75 kL (224 kg) 7.1 kL  3.4 GJ	エーテル液 (うち Ga) 抽出尾液  【CO <sub>2</sub> emission】	7.1 kL (213 kg) 75 kL  0.12 t	抽出率 95%と仮定 エーテル中 Ga 濃度 30g/L と仮定 攪拌機 1.5kW 使用と仮定 10 日/月(1 日 24 時間)稼働とする エーテル製造の環境負荷は考慮せず
⑥逆抽出	エーテル液 (うち Ga) 水 電力	7.1 kL (213 kg) 5.9 kL 1.7 GJ	逆抽出液(水相) (うち Ga) エーテル液  【CO <sub>2</sub> emission】	5.9 kL (206 kg) 7.1 kL  0.06 t	エーテル: IPE(イブプロピルエーテル) 抽出率 97%と仮定 攪拌機 1.5kW 使用と仮定 5 日/月(1 日 24 時間)稼働とする
⑦脱鉄・ろ過	逆抽出液(水相) (うち Ga) 苛性ソーダ 電力 【苛性ソーダ製造】	5.9 kL (206 kg) 1.7 t (不明) 19.6 GJ	含 Ga 液 (うち Ga) 脱鉄ケーキ  【CO <sub>2</sub> emission】 (うち苛性ソーダ製造)	5.9 kL (206 kg) 1.2 t  1.60 t (1.60 t)	Ga の損失はゼロと仮定 高温・高圧下で脱鉄される。除去されるのは鉄のみ 苛性ソーダは 20%過剰 苛性ソーダの生産に係るエネルギーを考慮
⑧逆中和	含 Ga 液 (うち Ga) 硫酸 電力	5.9 kL (206 kg) +α (不明)	水酸化ガリウム (うち Ga) 残液  【CO <sub>2</sub> emission】	606 kg (206 kg) 5.9 kL + (不明)	pH 調整により Ga(OH) <sub>3</sub> を沈澱分離 水酸化 Ga 中の Ga 品位:34% Ga の損失はゼロと仮定
⑨電解採取	水酸化ガリウム (うち Ga) 電解液  電力	606 kg (206 kg) 1.5 kL  28.3 GJ	金属ガリウム その他  【CO <sub>2</sub> emission】	200 kg 406 kg  1.04 t	金属ガリウム品位: 99.99% Ga 収率 97%と仮定 電解液: 苛性ソーダ 槽電圧 3.5V,電流密度 2,000A/m <sup>2</sup> ,電流効率平均 30%,電解温度 45~50℃ 電解消費電力:15,000kWh/t-電解 Ga
合計	【energy】 (うち原料製造)	112 GJ (21 GJ*)	【CO <sub>2</sub> emission】 (うち原料製造)	5.1 t (1.7 t*)	

出所) 独立行政法人 物質・材料研究機構エコマテリアル研究センター「金属元素の精錬・精製段階における環境負荷算定に関する調査 報告書 平成 15 年 3 月」

比較対象となる本実証事業のシナリオ：

本実証事業で乾式プロセスの処理量増加・連続化検討について、検討した結果として、下記4つの方式について、それぞれのCO2排出量を評価する。乾式プロセスから回収された酸化ガリウムの品位は電気パルスの結果から0.57%（本実証事業において、最も金属類が酸素に与える影響が少ないため）と設定する。

- ① 処理量を試料5g/バッチに増加し、処理時間を30分に短縮
- ② 処理量を試料5g/連続式とする
- ③ 処理量を試料5g/連続式とし、噴流床炉の加熱を赤外線から抵抗加熱に変更
- ④ 処理量を試料500kg/バッチとし、噴流床炉の加熱を内熱式に変更

バウンダリの設定

各方式における消費電力またはCO2排出量については、本報告書の2章で詳述しており、下表にその結果をまとめる。

**表 4.1.1-6 処理方式別の消費電力またはCO2排出量**

処理方式	消費電力 (kWh)	CO2 排出量※ (kg-CO2)
亜鉛浸出残さ	-	4020.00
①試料 5g/バッチ、30分	15.546	7.07
②試料 5g/連続式(総試料重量:80g)	90.913	41.37
③試料 5g/連続式、抵抗加熱(総試料重量:80g)	20.3	9.24
④試料 500kg/バッチ、内熱式	-	640.00

※電力 1kWh にかかる CO2 排出係数は東京電力の 2018 年度実績である 0.455kg-CO2/kWh としている。



#### 4.1.2 評価結果

(1) バウンダリ①：回収輸送及び3つの方式による破碎等

使用済み直管型 LED の回収輸送について、1,000 本あたりにかかる CO2 排出量は下表の通りとなった。

表 4.1.2-1 回収輸送による CO2 排出量

バウンダリ①	使用済み直管型 LED (1000 本あたり)			輸送方法	輸送距離 (km)	CO2 排出係数 (kg-CO2/tkm)	CO2 (kg)
	LED 重量 (kg)	梱包重量 (kg)	総重量 (kg)				
ベースライン	350	10	360	トラック	300	0.161	
本実証				鉄道	300	0.032	
				トラック	10	0.161	

※CO2 排出係数は IDEAv2.3 の下記製品コードを使用

トラック 製品コード: 441111404 トラック輸送サービス, 10 トン車, 積載率\_平均

鉄道 製品コード:421211000 鉄道輸送サービス, 貨物

使用済み直管型 LED について、1,000 本 (360kg) の破碎等にかかる CO2 排出量は下表の通りとなった。

表 4.1.2-2 堅型破碎機の破碎・選別による CO2 排出量

No.	処理工程	装置名	電気出力		処理能力		消費電力 (kWh)
			定格値	単位	数値	単位	
1	シュレッダー-破碎工程	ベルトコンベア	7.5	kW	2	t/h	1.35
2		堅型シュレッダー	630	kW	2	t/h	113.4
3		ベルトコンベア	5.5	kW	2	t/h	0.99
4	選別工程 1	振動フィーダ	1.7	kW	2	t/h	0.306
5		磁選機	3.7	kW	2	t/h	0.666
6		搬送コンベヤ(1)	3.7	kW	2	t/h	0.666
7		トロンメル	3.7	kW	2	t/h	0.666
8		搬送コンベヤ(1)	5.5	kW	2	t/h	0.99
9		アルミ選別機	9.7	kW	2	t/h	1.746
10		第3搬送コンベヤ	2.2	kW	2	t/h	0.396
11		サイクロン(1)	1.5	kW	2	t/h	0.27
12		電気集塵機	17.3	kW	2	t/h	3.114
13		排風機(1)	75.1	kW	2	t/h	13.518
14	選別工程 2	直投ホツバ	0	kW	1	t/h	0
15		直投コンベヤ	5.5	kW	1	t/h	0.99
16		定量コンベヤ(1)	3.7	kW	1	t/h	0.666
17		風力選別機(1)	0.75	kW	1	t/h	0.135
18		風力選別機(2)	0.75	kW	1	t/h	0.135
19		サイクロン(2)	0	kW	1	t/h	0
20		バグフィルタ(2)	0.75	kW	1	t/h	0.135
21		排風機(2)	90.1	kW	1	t/h	16.218
22		定量コンベヤ(2)	3.7	kW	0.5	t/h	1.332
23		風力選別機(3)	0.75	kW	0.5	t/h	0.27
24	サイクロン(3)	1.5	kW	0.5	t/h	0.54	
25	バグフィルタ(3)	0.75	kW	0.5	t/h	0.27	
26	排風機(3)	45.1	kW	0.5	t/h	16.236	
27	振分コンベヤ	2.2	kW	0.5	t/h	0.792	
28					計	175.797	

消費電力 175.80kWh × CO2 排出係数 0.455kg-CO2/kWh = 79.99kg-CO2

表 4. 1. 2-3 CFS の破碎・選別による CO2 排出量

No.	処理工程	装置名	電気出力		処理能力		消費電力
			定格値	単位	数値	単位	
1	シュレッダー破碎工程	ベルトコンベア	7.5	kW	2	t/h	1.35
2		CFS	22	kW	0.4	t/h	19.8
3		ベルトコンベア	5.5	kW	2	t/h	0.99
4	選別工程 1	振動フィーダ	1.7	kW	2	t/h	0.306
5		磁選機	3.7	kW	2	t/h	0.666
6		搬送コンベヤ(1)	3.7	kW	2	t/h	0.666
7		トロンメル	3.7	kW	2	t/h	0.666
8		搬送コンベヤ(1)	5.5	kW	2	t/h	0.99
9		アルミ選別機	9.7	kW	2	t/h	1.746
10		第3搬送コンベヤ	2.2	kW	2	t/h	0.396
11		サイクロン(1)	1.5	kW	2	t/h	0.27
12		電気集塵機	17.3	kW	2	t/h	3.114
13		排風機(1)	75.1	kW	2	t/h	13.518
14		選別工程 2	直投ホツバ	0	kW	1	t/h
15	直投コンベヤ		5.5	kW	1	t/h	0.99
16	定量コンベヤ(1)		3.7	kW	1	t/h	0.666
17	風力選別機(1)		0.75	kW	1	t/h	0.135
18	風力選別機(2)		0.75	kW	1	t/h	0.135
19	サイクロン(2)		0	kW	1	t/h	0
20	バグフィルタ(2)		0.75	kW	1	t/h	0.135
21	排風機(2)		90.1	kW	1	t/h	16.218
22	定量コンベヤ(2)		3.7	kW	0.5	t/h	1.332
23	風力選別機(3)		0.75	kW	0.5	t/h	0.27
24	サイクロン(3)		1.5	kW	0.5	t/h	0.54
25	バグフィルタ(3)		0.75	kW	0.5	t/h	0.27
26	排風機(3)		45.1	kW	0.5	t/h	16.236
27	振分コンベヤ		2.2	kW	0.5	t/h	0.792
28					計	82.197	

消費電力 82.20kWh×CO2 排出係数 0.455kg-CO2/kWh=37.40kg-CO2

表 4. 1. 2-4 ED 破碎による CO2 排出量

No.	処理工程	装置名	電気出力		処理能力		消費電力
			定格値	単位	数値	単位	
1	シュレッダー破碎工程	ED		5 kW	0.1	t/h	18

消費電力 18.00kWh×CO2 排出係数 0.455kg-CO2/kWh=8.19kg-CO2

これにより、回収輸送と破碎等を通じた CO2 排出量の比較結果は下表の通りとなった。

表 4. 1. 2-4 バウンダリ①における CO2 排出量の比較結果

バウンダリ①	CO2 排出量(kg-CO2)		
	輸送	破碎等	合計
ベースライン	17.39	79.99	97.38
縦型	4.04	79.99	84.03
CFS	4.04	37.40	41.44
ED	4.04	8.19	12.23

(2) バウンダリ②：LED 素子中に含まれる貴金属の濃縮

本実証事業では、金鉱石の製錬にかかる CO2 排出量について、各方式残渣に含まれる金の濃度と比較する。

金鉱石の金濃度及び製錬にかかる CO2 排出係数は IDEAv2.3 製品コード:241912000 金地金（金鉱石原料）をもとにしている。

表 4.1.2-5 バウンダリ②における CO2 排出量の比較結果

バウンダリ②	鉱石	豎型残渣	CFS 残渣	ED 残渣
金濃度 (mg/kg)	20	170	260	840
乾式製錬における CO2 排出量 (kg-co2/kg-鉱石または残渣)	0.193	0.023	0.015	0.005

(3) バウンダリ③Ga の濃縮・回収

各処理方式による CO2 排出量と回収可能な Ga 化合物量を計算し、Ga 化合物を 1g あたり回収するのにかかる CO2 排出量を算出した。

計算式：

処理方式にかかる CO2 排出量 kg-CO2/Ga 化合物回収量 g-Ga

=Ga 化合物回収にかかる CO2 排出量 (kg-CO2/g-Ga)

※Ga 化合物回収量 g-Ga は試料重量 g×濃度%により計算

表 4.1.2-6 バウンダリ③における CO2 排出量の比較結果

バウンダリ③の 処理方式	消費電力 (kWh)	CO2 排出量 (kg-CO2)	Ga 化合物 回収量 (g-Ga)(%)	回収にかかる CO2 排出量 (kg-CO2/g-Ga)
亜鉛浸出残さ (試料 206kg)	-	4020.00	70,040.00 (34%)	0.06
①5g/バッチ、30 分 (試料 5g)	15.546	7.07	0.03 (0.57%)	247.91
②5g/連続式 (試料 80g)	90.913	41.37	0.46 (0.57%)	90.61
③5g/連続式、抵抗加熱 (試料 80g)	20.3	9.24	0.46 (0.57%)	20.23
④500kg/バッチ、内熱式 (試料 500kg)	-	640.00	2,853.21 (0.57%)	0.22

#### 4.1.3 LCA 改善・商用化に向けた更なる高効率化の検討

本実証事業の結果により、現状の使用済み直管型 LED 照明から LED 素子が回収できた場合、既存プロセスの更なる大型化と、十分なガス雰囲気を維持しつつ、熱効率の向上が課題となることが分かった。そのため、噴流床炉によるバッチ処理を前提としつつ、更なる高効率化と CO<sub>2</sub> 排出量の削減に向け、外熱式から内熱式へ変更し、乾式プロセスの改良案を以下の図 4.1.3-1 のように検討した。

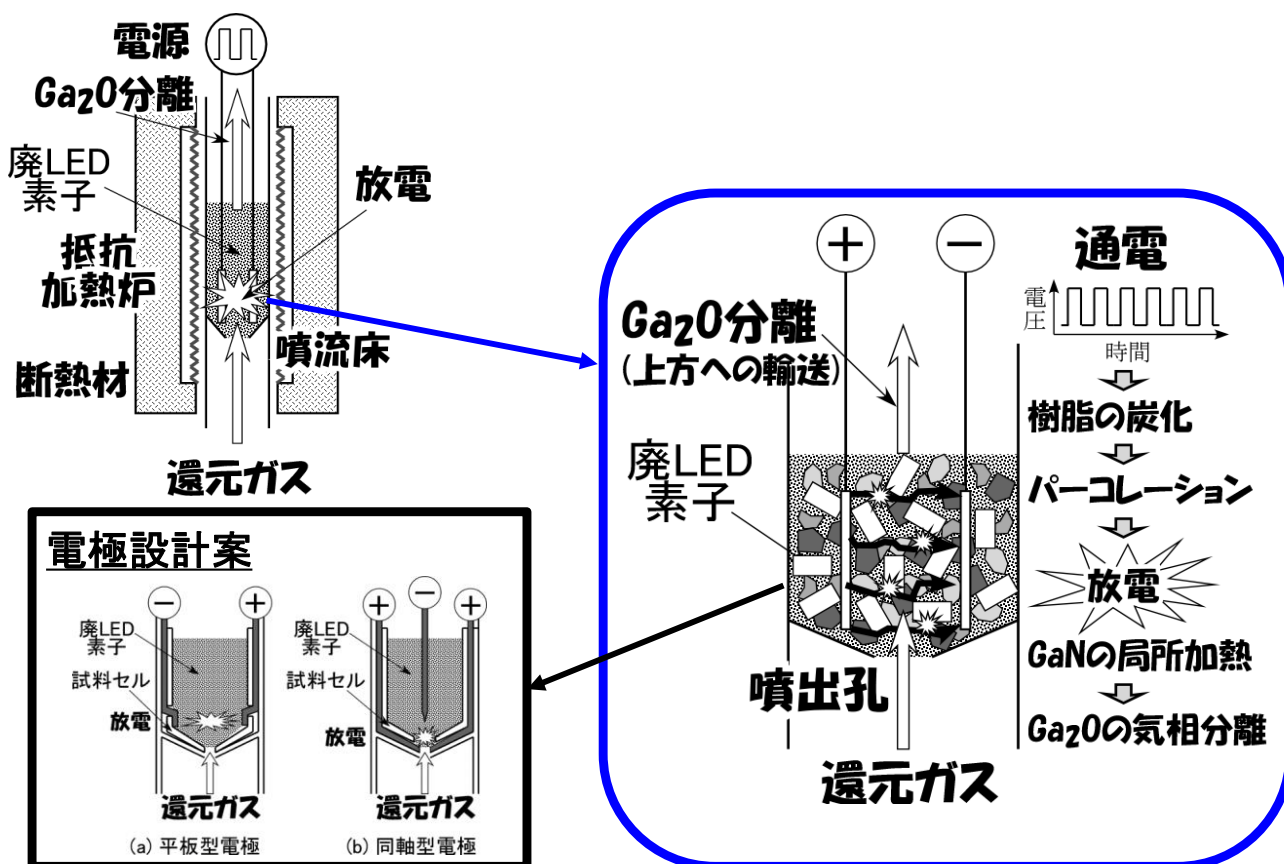


図 4.1.3-1 内熱式である通电加熱方式のプロセスイメージ

また、処理量は弊社の現在の使用済み直管型 LED 照明回収量をもとに、クロスフローシユレッターによる得られる 4mm アンダーの重量から、乾式プロセスの処理量 0.5t/バッチのプロセスイメージを以下の図 4.1.3-2 のように設計した。

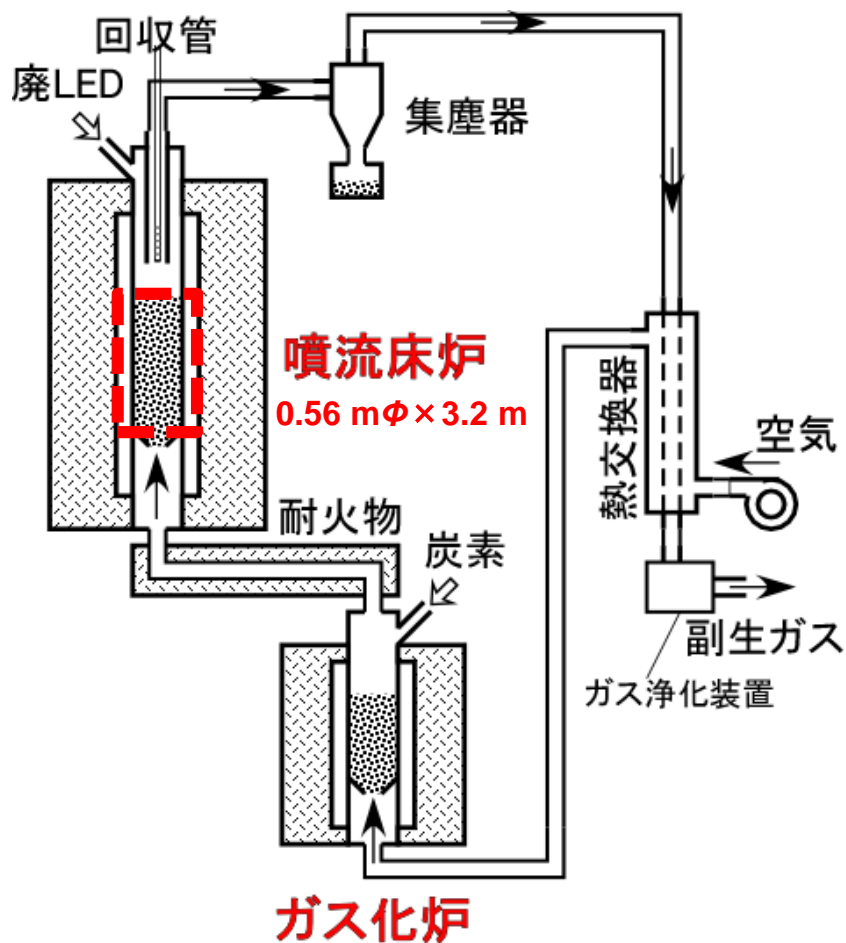


図 4.1.3-2 乾式プロセスの大型化イメージ (0.5t/バッチ)

0.5t/バッチであれば、弊社の既存回収量だけでなく、今後、他の Ga パワー半導体等の回収が実現した場合でも、ある程度対応できる規模である。

大型化した内熱式プロセスの CO<sub>2</sub> 排出量は以下のように試算する。

表 4.1.3-1 内熱式プロセスにおける噴流床炉・ガス化炉の CO<sub>2</sub> 排出係数

保持時間	排出機構	加熱方式	CO <sub>2</sub> 排出係数(kg-CO <sub>2</sub> /kg-対象物)	
			噴流床※1	ガス化炉※2
30 min	回分式	内熱式	0.94	0.34

※1 IDEAv2.3 製品コード:851612206 焼却処理・灰溶融サービス, 一般廃棄物, 流動床 電気式より

※2 ガス化炉の CO<sub>2</sub> 排出係数は CFS 破碎試料 (Al : 140000 mg/kg, Ga : 65 mg/kg) を酸化するための二酸化炭素量から算出

噴流床炉の CO<sub>2</sub> 排出量 :  $0.94\text{kg-CO}_2 \times 500\text{kg} = 470\text{kg-CO}_2/\text{バッチ}$

ガス化炉の CO<sub>2</sub> 排出量 :  $0.34\text{kg-CO}_2 \times 500\text{kg} = 170\text{kg-CO}_2/\text{バッチ}$

これにより、CO<sub>2</sub> 排出量は  $640\text{kg-CO}_2/0.5\text{t}$  バッチとなり、 $0.224\text{kg-CO}_2/\text{g-Ga}_2\text{O}_3$  と、大きく改善できる見込みである。

#### 4.1.4 環境影響評価のまとめ

本実証では Ga 回収にかかる CO<sub>2</sub> 排出量が製錬を上回る結果となったが、乾式プロセスにおいて、以下の課題に対応することで、商用化に向けた収益性や CO<sub>2</sub> 削減効果の実現が期待できることが分かった。

- i. 内熱式の大型化による熱効率向上 (前頁の実現)
- ii. Ga・貴金属の回収量に必要なガス雰囲気の実現

また、Ga 回収にかかる CO<sub>2</sub> 排出量と、金・銀等貴金属の濃縮効果による CO<sub>2</sub> 削減効果のトータル収支で CO<sub>2</sub> 削減となる可能性がある。

概算ベースで、本実証における CFS の結果と内熱式を組み合わせた場合の試料 1kg にかかる CO<sub>2</sub> 排出量は  $0.23\text{kg-CO}_2$ 、含有成分である Ga・金を製錬するのにかかる CO<sub>2</sub> 排出量は  $0.50\text{kg}$  となり、CO<sub>2</sub> 削減効果が見込めることが分かった。

ただし、本実証事業では LCA の比較対象を亜鉛浸出残さからの製錬プロセスにおける公開情報を対象としているものの、当該プロセスの LCA が亜鉛精錬における CO<sub>2</sub> 排出量とどのように按分しているかにより、比較することが妥当か、議論が残るものであることと、一般的な LCA では、製造、流通、使用、リサイクルといった製品ライフサイクルの段階ごとに評価しているものが多く、特にサーキュラーエコノミー型ビジネスを実現するにあたり、製品ライフサイクルの多様化への適応や製品ライフサイクルを通じた LCA 評価の仕方を検討する必要があること、更にはリサイクルをすることによる環境価値を定義し、社会システムとして定着させていく必要があると考えるものであり、ここに付記する。

## 5 参考資料

### 5.1 共同実施者との打合せ

本業務は、P13 に示した実施体制で実施しており、業務実施に当たっては、以下の通り、共同実施者である学校法人 早稲田大学及び学校法人 法政大学と単体分離・濃縮技術の検証について7回の打合せを行った。

表 5.1 共同実施者等との打ち合わせ

日時	場所	参加者	打ち合わせ概要
20190621	早稲田大学	法政大学、早稲田大学、ハリタ金属	キックオフミーティング
20190903	ハリタ金属 (射水 RC)	法政大学、早稲田大学 (電話参加)、ハリタ金属	進捗共有
20190930	電話会議	法政大学、早稲田大学、ハリタ金属	進捗共有
20191021	ハリタ金属 (射水 RC)	ハリタ金属、早稲田大学、法政大学	進捗共有
20191111	電話会議	ハリタ金属、早稲田大学、法政大学	中間報告について
20191223	電話会議	ハリタ金属、早稲田大学、法政大学	残課題について
20200130	電話会議	ハリタ金属、早稲田大学、法政大学	最終報告について

### 5.2 現地視察会の開催

業務実施期間内において、審査評価委員1名、事務局1名程度による現地視察会を2019年10月21日に1回開催した。

### 5.3 評価審査委員会及び最終報告会への出席

業務実施期間内において開催する評価審査委員会及び最終報告会（中間報告 2019年12月05日、最終報告 2020年02月13日）に出席し、業務の進捗状況についてプレゼン形式で報告を行った。