

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月 8日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21360450

研究課題名（和文）希少金属回収を目的とする廃小型電子機器の高度識別分離・  
選択粉碎システム研究課題名（英文）Advanced sorting and selective grinding system to recover rare metals  
from small domestic appliance scrap

研究代表者

古屋仲 茂樹（KOYANAKA SHIGEKI）

独立行政法人産業技術総合研究所・環境管理技術研究部門・主任研究員

研究者番号：60357035

研究成果の概要（和文）：廃小型電子機器に含まれる希少金属のリサイクル技術開発の一環として、代表者が開発したレーザー3次元解析法によるスクラップソーティング技術を携帯電話やデジタルカメラ等の選別に適用し、品目別に選別できること、Ta コンデンサを多く含む04年以前発売の機種を05年以降の機種から高精度に選別できることを明らかにした。また、希少金属の回収に適した携帯電話プリント基板の剥離粉碎法やリチウムイオン電池等の選択破砕法を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：In order to develop rare metal recycling from small domestic appliances (SDAs), the authors applied their scrap sorting technology based on laser 3D analysis to separate mobile phone and digital camera and so on. As the result, it was capable to concentrate Ta by the separation of SDAs according to their kind or year of manufacture. Moreover, preferable grinding or crushing techniques for printed circuit board and Li-ion batteries detached from SDAs were clarified.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	3,800,000	1,140,000	4,940,000
2010年度	2,800,000	840,000	3,640,000
2011年度	2,800,000	840,000	3,640,000
総計	9,400,000	2,820,000	12,220,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・リサイクル工学

キーワード：廃棄物再資源化、有価物回収、固固分離、希少金属、三次元計測、ソーティング  
分離、選択粉碎

## 1. 研究開始当初の背景

近年の一次資源価格の高騰を受け、貴金属、レアメタル等の非鉄金属資源のリサイクルの重要性が強く認識されるようになった。とりわけ、携帯電話、デジタルカメラ、携帯MDプレーヤー等の小型電子機器については、高濃度の有価金属を含有しているにもかかわらず破砕・埋立処分されているものが多いのが現状であり、効果的なリサイクルシステムの構築が喫緊の課題となっている。

現在の廃家電リサイクルにおいて活用されている、最終的に山元還元（非鉄製錬所において有価金属を再生）に至る金属回収システムでは、CuやAu、Ag等の貴金属類は回収可能であるが、Cuより卑な多くのレアメタル元素の回収は原理的に不可能であるため、中間処理の段階で特定のレアメタルを含む部品類などを非鉄製錬所投入物から分離しなければならない。また、レアメタルを回収するためには、最終的に山元還元ではなく湿式処理工程に供することが必要である。このような中間処理システムの開発において重要となるのは、レアメタル元素の含有情報に基づいて(1)製品、部品、素子を自動選別する技術、(2)部品・素子等の粉砕産物に含まれるレアメタル類を効果的に濃縮可能な固固選別技術であると考えられる。本研究では、こうした観点から小型電子機器の新しい中間処理システムに求められる要素技術の検討を行った。

## 2. 研究の目的

本研究では、製品、部品、素子を自動選別する技術として、代表者が開発した「レーザー3次元解析法による物体の識別分離技術」の適用を検討する。まず、レーザー3次元計測器と重量計を組み合わせた識別分離システムを製作し、市中から回収した種別や製造年の異なる雑多な小型電子機器を対象として、製品レベル、部品レベル、素子レベルで、各種金属、レアメタルの所在、重量、色、3次元形状を測定・記録し、これらをデータベース化する。また、各種小型電子機器の製品レベルでの選別、部品レベルでの選別、素子レベルでの選別を実現するために必要となる演算処理方法（識別アルゴリズム）を明らかにする。

一方、製品、部品等を自動選別できたとしても、レアメタルの濃縮は必ずしも十分でなく、湿式処理による金属回収工程に供する前に選択粉砕技術を適用して、レアメタル元素を可能な限り単体分離して物理的に濃縮することが求められる。そこで、本研究では小

型電子機器から取り外した個々の部品、素子を対象とする選択粉砕技術、並びに粉砕産物の固固分離技術を用いたレアメタル元素の最適な物理的濃縮プロセスを明らかにする。

以上の検討によって、最終的に廃小型電子機器の最適な中間処理フローを明らかにすることが本研究の目的である。

## 3. 研究の方法

(1) レーザー3次元解析法による廃小型電子機器の識別分離技術

(試料)使用済み携帯電話の中間処理事業者から提供されたNTTドコモ社の携帯電話製品200種(未解体、バッテリー取り外し済み)及びつくば市内で販売されていたデジタルカメラ(4種)、CDプレーヤー(3種)、MDプレーヤー(5種)、カセットテープレコーダ(4種)、電子辞書(4種)、携帯ゲーム機(1種)を実験用試料とした。

(実験装置及び方法)従来、製品等の自動選別技術としては、透過X線や蛍光X線を活用したソーティング技術が有力視されているが、機器自体が高価、塗装・汚れ等の影響を受け易い等の問題がある。代表者が開発したレーザー3次元解析法による物体の識別分離技術は、物体の重量と1台のレーザー3次元計測器によって得られる見掛密度と立体形状に関する情報をニューラルネットワークを用いた独自の演算処理プログラムによって解析し、その結果に基づいて物体の種別を自動的に識別し分離する手法である。使用する計測器は線状のレーザー光で測定対象物を上方から走査して三角測距の原理で表面形状を測定するもので、物体の体積、投影面積、高さ、定方向径など独自に設定した複数の情報を数値データとして瞬時に取得可能である。

図1に、本研究の専用機として試作したレーザー3次元識別システムの写真を示す。本技術によれば、従来技術と比較して圧倒的に安価な装置構成が可能であり、バルクの特性の基づいた分離法であるため、表面の塗装や汚れの影響を受けないといった特長を有する。

試料とした廃小型電子機器について、重量、3次元形状(体積、投影面積、最大高、重心点高)を製作したレーザー3次元計測システムを用いて測定した。また、一部の試料について手作業により解体し、部品構成やレアメタルの所在を調査しこれらをデータベース化した。データベース化の過程で明らかになった特定のレアメタルを多量に含有する製品や部品を選別するための識別アルゴリズムを開発し、実際に識別・分離実験を行い、分離精度を確認した。

## (2) 電子部品類の選択粉碎技術

(試料) 使用済み携帯電話の中間処理事業者から提供された NTTドコモ社の携帯電話のプリント基板 50 枚、使用済み電池の中間処理事業者より提供された携帯電話や PC 用のリチウムイオン電池 10Kg およびニッケル水素電池 10Kg(ともに焼成処理済み)を実験用試料とした。

(実験装置及び方法) 携帯用プリント基板の選択粉碎では、衝撃式粉碎機 (ハンマークラッシュ) を用いて粉碎し、実装電子部品類を配線盤から効果的に剥離するとともに粉碎産物に含まれる電子部品類と配線盤の粒度差が拡大する粉碎条件を検討した。また、粉碎産物の分級と静電分離によるレアメタル元素の濃縮について検討した。リチウムイオン電池焼成物及びニッケル水素電池焼成物の選択粉碎では、作用力の異なる 3~4 種類の粉碎機を用いて粉碎し、粉碎産物に含まれるレアメタルを含有する電極材粒子、筐体、金属箔などの間で粒度差が拡大する粉碎条件を検討した。また、粉碎産物の分級と磁力選別によるレアメタル元素の濃縮について検討した。

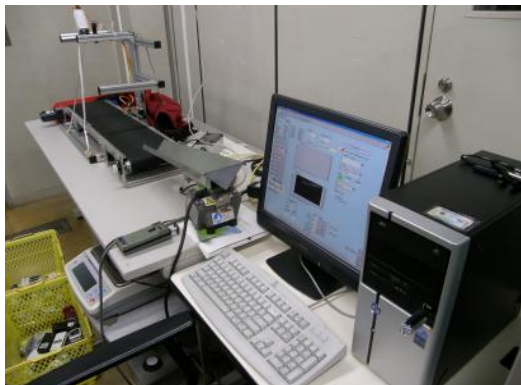


図1 レーザー3次元解析法による廃小型電子機器識別システム (試作機)

## 4. 研究成果

### (1) レーザー3次元解析法による廃小型電子機器の識別分離技術

携帯電話についてレアメタル類の回収を目的とした選別フローについて検討した結果、回収ターゲットとなり得るレアメタル元素は、主に振動モータ (W)、スピーカ磁石 (Nd)、液晶 (In)、カメラ (Ni)、部品実装プリント基板 (Ta 及び貴金属) といった部品に存在しており、これらを部品レベルで選別することが効果的であることが明らかになった。さらに、上記の7種類の廃小型電子機器を製品レベルで選別することを目的として、マルチニューラルネットを用いた識別アルゴリズムについて検討し、実際に識別精度を確認した

結果、今回のサンプルでは 90%以上の確率でこれらを識別可能であることが分かった。

1998 年~2007 年に掛けて発売された NTTドコモ社用の携帯電話製品 50 機種を解体して内部のプリント基板に使用されている Ta コンデンサの数を発売年代別に調査した結果を図2に示す。1999~2000年にかけて、および2004~2005年にかけての2度にわたり使用数が急減していることが分かる。1999~2000年については棒状から折り畳み式の携帯電話への設計変更がなされたことによる減少、2004~2005年については Ta コンデンサからセラミックコンデンサへの代替が進んだことによる減少であると考えられる。2004~2005年かけてのこうした傾向は、Ta コンデンサを比較的多く使用しているデジタルカメラについても同様に確認された。これらを混合した状態で中間処理することは、Ta の回収に向けて効率的とは言えない。そこで、レアメタル回収を目的とする新規中間処理ルートに供給すべき廃小型電子機器として、Ta コンデンサが多用されている 2004 年以前に発売された携帯電話を、既設の非鉄製錬ルートで処理すべきものとして、Ta コンデンサの使用量が激減した 2005 年以降に発売された携帯電話を想定し、レーザー3次元解析法にこれらの選別を検討した。

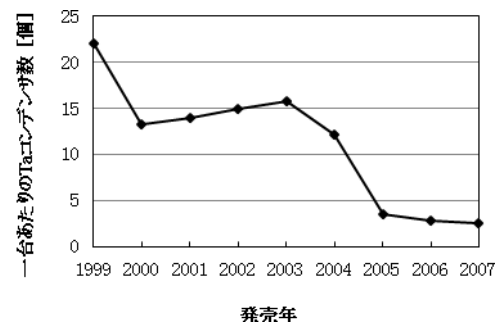


図2 携帯電話一台当たりの Ta コンデンサ数

図3にはレーザー3次元計測システムで測定した携帯電話 (200 機種) の見掛密度の頻度分布を示す。本分布は1機種につきコンペア上で配向を変えながら各8回測定を行った際のデータによるものである。2001年頃までは棒状のタイプが多く販売され、2003年頃からは次第に折り畳み式の携帯電話が市場では主流となったことは記憶に新しいが、いずれについても2004年頃までの携帯電話は液晶画面のサイズが小さいために全体の重量が軽くなる傾向が見られる。一方、2005年以降に販売された携帯電話は、多機能化の進展に伴い各種部品の実装密度が高まり液晶画面のサイズもさらに拡大している。こうした理由により、2004年以前に発売されたモデルが、2005年以降のモデルと比較して見掛密度

が小さくなる傾向につながったと考えられる。

図 4、5 には試作した廃小型電子機器識別システムで測定した携帯電話の 3 次元形状パラメータと見掛密度値の関係を示す。図 4 では垂直上方への投影面積値を、図 5 では最大高さを示している。これらの図では見掛密度区間 ( $0.1\text{g/cm}^3$ ) ごとの平均値をプロットしている。これら図より、2004 年以前の機種と 2005 年以降の機種の 3 次元形状に異なる特徴があることが分かる。本識別分離技術では、ニューラルネットワークを用いてこうした統計的な 3 次元形状の違いを抽出することで、種別を識別するアルゴリズム構造を採用した。廃携帯電話のサンプル数を 200 機種として携帯電話のソーティング分離試験を実施した結果、3 次元形状データベースを用いて作成した識別アルゴリズムによって、データベースに未登録のサンプルについても 70~80% の識別精度が得られること、識別に失敗したデータを抽出してニューラルネットワークを再学習させることによって、識別精度が 90% 以上に向上可能であることが確認された。

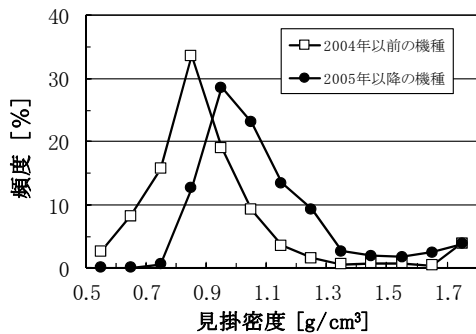


図 3 携帯電話の見掛密度分布

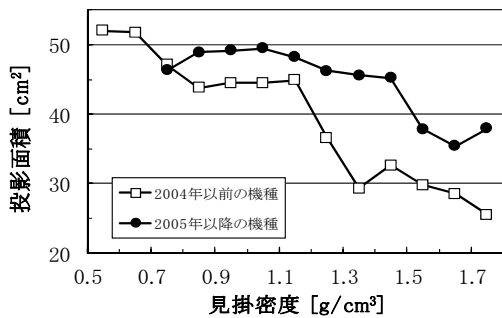


図 4 携帯電話の見掛密度と投影面積の関係

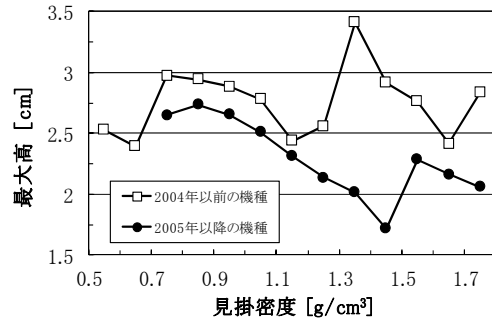


図 5 携帯電話の見掛密度と最大高の関係

## (2) 電子部品類の選択粉碎技術

携帯電話プリント基板の粉碎試験の結果、衝撃式粉碎機（ハンマークラッシャ）を用いて粉碎した場合、粉碎産物に含まれる配線板と電子部品類の粒度には顕著な違いが生じ、高効率な選択粉碎が可能であることが確認された。図 5 にこの破碎産物の一例の写真を示す。目開き 5mm 篩いを用いて分級することで電子部品と配線盤を簡単に分離可能である。このときレアメタルや貴金属の大部分が 5mm 以下の粒子群に濃集すること、さらにドラム式静電選別機によって選別を行うことで Ta 品位を 2.0wt% 程度まで濃縮できることが分かった。なお、衝撃式粉碎機のハンマーの回転速度を実時間的に制御して破碎を試みたが、顕著な選択破碎効果の改善は見られなかった。

リチウムイオン電池焼成物の粉碎試験の結果、切断力を作用力とする一軸カッターミルは選択粉碎には適していないこと、衝撃力を作用力とするハンマークラッシャでは、1mm 以下の粒度域における電極材粒子 ( $\text{LiCoO}_2$ , グラファイト) とその他の素材の間の選択粉碎性には最も優れているが、1mm 以上の粒度域における銅箔と筐体 (Fe, Al) の間の選択粉碎性は低いこと、2 軸圧縮せん断式破碎機と高速ハンマーミルを用いた 2 段階の破碎によって電極材、金属箔、筐体を構成する各種金属粒子にバランス良く選択粉碎が可能であることが明らかになった。

図 6 に携帯電話用のリチウムイオン電池焼成物を 2 軸圧縮せん断式破碎機で粗破碎したものを高速ハンマーミル（ハンマー周速度 10m/s、矩形穴スクリーンを使用）で二次粉碎した際の粉碎産物を、JIS 標準スクリーンで分級した後、各粒径区間に含まれる金属元素の含有量を ICP 分析によって定量して得られた、金属元素の分配率の積算篩い下粒度分布を示す。本図に見られるように、白抜きでプロットした正極材に含まれる Li、Co、負極材に含まれるグラファイト (Residue) など、黒点でプロットしたその他の金属元素と

の間では、顕著な粒度差が生じる。また、金属箔として負極で用いられる Cu と筐体に用いられる Al との間でも比較的大きな粒度差が生じていることが分かる。また、粉碎産物の分級と磁力選別によって Co を回収率 99.2%、品位 49.2% で回収可能であることが分かった。この値は湿式処理の前工程として十分な値であると考えられる。

ニッケル水素電池焼成物の粉碎試験では、正極構造が異なる 2 種類の試料を対象に、粉碎及び磁力選別特性について検討した。その結果、発泡メタル式の正極構造からなるニッケル水素電池では、衝撃力を主体とする粉碎機を用いることで、Ni、Co と Fe の粉碎物間の選択粉碎効果が発現し、乾式分級によって Ni、Co と Fe の高効率な分離の可能性が示唆された。一方、焼結式の正極構造からなるニッケル水素電池では、Ni と Fe の粉碎物間の選択破碎性を拡大することは困難であった。しかし、焼成条件を調整することで正極板の磁性を変化させることが可能であり、弱い磁場雰囲気下を瞬時に通過させるなど磁力選別機時の操作条件を適正化することで、粒度の類似した Fe と Ni を分離回収できる可能性が示唆された。



図 5 衝撃粉碎後の携帯電話プリント基板の一例

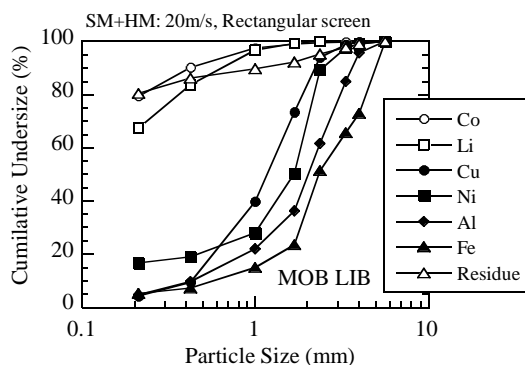


図 6 リチウムイオン電池焼成物の粉碎産物に含まれる金属元素分配率の粒度分布の一例

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 5 件)

- ① 古屋仲茂樹、蓬萊賢一、河合秀将、加藤彰悟、芝田隼次、村山憲弘、大木達也、増田康次、使用済みリチウムイオン電池焼成物の選択破碎・物理選別特性に関する実験的検討、Journal of MMIJ、査読有、掲載決定、2012
- ② 古屋仲茂樹、小林賢一郎、A study on the kinetics of impact grinding of copper and phenol resin in printed circuit board scrap、Resources Processing、査読有、2011、22-27  
[https://www.jstage.jst.go.jp/browse/rpsj/58/1/\\_contents/-char/ja/](https://www.jstage.jst.go.jp/browse/rpsj/58/1/_contents/-char/ja/)
- ③ 大木達也、古屋仲茂樹、西須佳宏、林直人、希少金属リサイクルのための物理選別技術開発、環境資源工学、査読有、2011、95-100  
[https://www.jstage.jst.go.jp/browse/rpsj/58/3/\\_contents/-char/ja/](https://www.jstage.jst.go.jp/browse/rpsj/58/3/_contents/-char/ja/)

〔学会発表〕(計 9 件)

- ① 古屋仲茂樹、蓬萊賢一、河合秀将、加藤彰悟、芝田隼次、村山憲弘、大木達也、増田康次、使用済みリチウムイオン電池焼成物の選択破碎・物理選別特性に関する実験的検討、資源・素材学会秋季大会、2011 年 9 月、大阪府、大阪府立大学
- ② 加藤彰悟、河合秀将、蓬萊賢一、村山憲弘、芝田隼次、古屋仲茂樹、Separation and recovery of valuable materials from spent lithium-ion batteries with dry method、9th Japan/Korea International Symposium on Resource Recycling and Material Science、2011 年 5 月、大阪府、関西大学
- ③ 古屋仲茂樹、大木達也、携帯電話基板の選択破碎と静電選別による希少金属の濃縮、資源・素材学会秋季大会、2010 年 9 月、福岡県、九州大学
- ④ 大村友希、村山憲弘、芝田隼次、上原子征治、辻寛之、古屋仲茂樹、蓬萊賢一、山田圭一、焼成廃リチウムイオン電池粉碎物の粒度分布とレアメタルの組成、資源・素材学会秋季大会、2010 年 9 月、福岡県、九州大学
- ⑤ 古屋仲茂樹、小林賢一郎、高速ハンマーマル粉碎における粉碎速度の解析法に関する一考察、資源・素材学会秋季大会、2009 年 9 月、北海道、北海道大学

〔図書〕(計 2 件)

- ① 古屋仲茂樹 (共著)、産業調査会、リサイクル・廃棄物事典、2011 年、468-469
- ② 古屋仲茂樹 (共著)、NGT、粉碎技術と

[その他]

<http://staff.aist.go.jp/s-koyanaka/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

古屋仲 茂樹 (KOAYNAKA SHIGEKI)

独立行政法人産業技術総合研究所・環境管  
理技術研究部門・主任研究員

研究者番号：60357035

(3) 連携研究者

芝田 隼次 (SHIBATA JUNJI)

関西大学・環境都市工学部・教授

研究者番号：70067742