

# レアアース蛍光体の材料リサイクル技術開発

## — 近未来型資源循環の先駆けとして —

大木 達也<sup>1\*</sup>、赤井 智子<sup>2</sup>、山下 勝<sup>2</sup>

材料を専門とする研究者と選別装置を専門とする研究者の連携によって、廃蛍光体から重レアアースのテルビウムを含む緑色蛍光体の、材料リサイクルを可能にする選別システムを実用化した。市中に出回った廃製品を元に、水平リサイクルよりさらに内側のループで、金属としてではなく、より高価な高機能材料の原料として金属循環を確立した例は、世界的にもほとんどない。これは欧州が推進する循環経済 (Circular Economy: CE) / 資源効率 (Resource Efficiency: RE) を基軸にした政策などでも、近未来の理想的循環と称されるリサイクルシステムである。今後、さまざまな廃製品の資源循環を確立し、我が国が都市鉱山開発で世界をリードする上で、近未来型資源循環の先駆けとなる成功例である。

キーワード: レアアース、リサイクル、蛍光体、高勾配磁選機、テルビウム、都市鉱山

## Materials recycling technology for recovering rare earth fluorescent powder from fluorescent lamp sludge

—Pioneering near-future resource circulation—

Tatsuya OKI<sup>1\*</sup>, Tomoko AKAI<sup>2</sup> and Masaru YAMASHITA<sup>2</sup>

A materials recycling technology to recover green phosphor, including terbium, which is a heavy rare earth, from fluorescent powder in waste lamp sludge was realized by collaborating with researchers who specialize in materials and powder sorting. There are few cases worldwide in which materials circulation from post-consumer waste has been established in loops further inside than horizontal recycling. This is a recycling system which is described as an ideal circulation system for the near future in Europe's circular economy (CE)/resource efficiency (RE) policies, *etc.* This study is a successful example of Japan leading the world in urban mine development to establish a resource circulation system of various waste products, and becoming a pioneer in near-future resource recycling.

Keywords: Rare earth, fluorescent powder, high gradient magnetic separation, magnetic matrix, terbium, urban mine

### 1 はじめに

我が国は金属資源の大部分を輸入に依存している。特にハイテク機器の製造に欠かせないレアメタルは世界最大の輸入国であり、レアメタル資源の輸入によって製造業が成立しているといっても良い。レアメタル供給の問題は、多くが副産物で生産コントロールが難しい点、消費量が少ないため寡占状態になりやすく、国際情勢に左右されやすい点にある。ゆっくりと枯渇に向かうベースメタルに比べ、産出国事情等人為的要素に影響されやすいレアメタルは、いつ、どの金属の供給が滞るかを予測することが難しい。

レアメタルの1種であるレアアース (17 元素) は、中国が市場を独占している。対日禁輸政策やその後の輸出量制限により、一時的だが、国内産業が大きな打撃を被った「レアアース危機」は記憶に新しい。レアアース資源は、

アメリカ、オーストラリア等世界中に存在し、我が国の排他的経済水域 (EEZ) 内の海底下にも堆積していることは近年話題にもなった。中国が現在の市場獲得に至った理由は、極めて有力な鉱山を有しているためである。一つは他のレアアース鉱山に見られる放射性不純物をほとんど含まないこと。このため、簡易な資源処理で生産が可能である。もう一つは、磁石や蛍光材料として利用されるディスプレイウムやテルビウム等、重レアアースに富んでいることである。特に低炭素化に向けた世界的な動きの中、高性能モーター等の製造に必要な重レアアース資源は、注目度が高い。

この研究は、レアアース危機が本格化する前に端を発する。2005 年頃、価格が徐々に上昇してきたことから、手付かずの国内都市鉱山資源が俄かに注目されてきた。著者は、その頃より、磁石やコンデンサ等の物理選別技術開発

1. 産業技術総合研究所 環境管理研究部門 〒305-8569 つくば市小野川 16-1 つくば西、2. 産業技術総合研究所 無機機能材料研究部門 〒563-8577 大阪府池田市緑丘 1-8-31 関西センター

1. Environmental Management Research Institute, AIST Tsukuba West 16-1 Onogawa, Tsukuba 305-8569, Japan \* E-mail: t-oki@aist.go.jp, 2. Inorganic Functional Material Research Institute, AIST Kansai, 1-8-31 Midorigaoka, Ikeda 563-8577, Japan

Original manuscript received January 8, 2018, Revisions received February 2, 2018, Accepted February 3, 2018

を実施してきたが<sup>11)</sup>、この研究では、廃蛍光ランプから、テルビウムを多く含むLAP（緑色蛍光体）を、高濃縮回収することが目的である。蛍光ランプは白色系と三波長系（レアアース系）に大別され、三波長系にはRGBに相当する3種の蛍光体を使用されている。この研究の課題は、白色・三波長廃蛍光体の混合スラッジから、ガラスや不純物、白色蛍光体を除去した上、緑色（G）のLAPのみを高濃縮して、再び蛍光体原料として利用することにある。

旧来、大学等で蛍光体選別が研究され、粒子密度や表面の親/疎水性を利用した選別が試されてきたが、白色系と三波長系すら選別することが困難であり、実用化に至ったケースはない。この研究の成功の発端は、一見して磁石に反応しないが、極めて強力な磁力下に置くと、LAPが選択的に磁着することを著者ら（赤井、山下）が見出したことである。この原理を工業的に利用するため、高勾配磁選機をLAP高濃縮装置へと改良した（大木）。この研究では、材料および選別を専門とする研究者の連携によって選別システムを開発し、実用化を果たすに至った。以下に、実用化に至る道筋を、特に選別装置開発の視点から記述する。

## 2 選別装置開発着手までの経緯

### 2.1 課題抽出以前の研究（2005年～2006年）

著者（大木）は、2005年末頃からレアメタルを含む廃製品のリサイクル技術の検討を開始していた。石油天然ガス・金属鉱物資源機構（JOGMEC）の調査事業で、小型燃料電池、自動車触媒、ネオジウム磁石、蛍光ランプの高度なりサイクル方法を模索した。当時からリサイクル工場では、直管型蛍光ランプの両端をカットし、ガラスやアルミを回収した上、水銀を含む廃蛍光体を適正処分する自動化技術が確立していた。その頃、我が国では、白熱灯から電球形蛍光ランプへ移行が目されており、リサイクル方法の確立が必要と考えられていたため、後続事業では、電球形蛍光ランプの選択破碎や蛍光体剥離方法を検討した。しかし、直管型に比べ、電球形蛍光ランプの種類は多様であり、網羅的な処理技術を開発する目途が立たずにいた。

他方、バイオ関連で磁気浮上の研究をしていた所内の研究者がその応用を模索しており、著者ら（赤井、山下）の研究に応用できないかと照会を受けた。当時、ガラスの研究をしていたが、超伝導磁石による磁気浮上（湿式法による吊下げ磁選に相当）を廃ガラスのリサイクルに適用することは資源価値的に見合いそうになく、より高価な対象として廃蛍光体を提案し、共同で検討を開始した。同時期に、所内のレアメタルタスクフォースで、ガラス化法によりLAPからテルビウムを回収する方法<sup>12)</sup>を検討したが、コス

ト的に厳しい印象があった。また、大手ランプメーカーの技術者から、LAPはほとんど劣化しないため、廃蛍光体から再利用可能なLAP回収技術について、社会ニーズがあることを認識していた。

### 2.2 課題抽出と研究開発の開始（2007年～2011年）

2007年に著者ら（赤井、山下）が、磁気浮上による蛍光体分離試験を行ったところ、適切な界面活性剤の添加により、LAPのみが磁気浮上することを確認した。さらに、さまざまな蛍光体の磁気浮上試験を実施し、磁気浮上による蛍光体の分離方法を確立させた<sup>13)</sup>。この頃には、レアアース価格が高騰しはじめ、ランプメーカーがこの技術に強い関心を示したため、プロジェクト提案に向けて本格的な準備を進めた。この準備の段階で、予てから蛍光ランプのリサイクル技術を検討しており、選別技術を専門とする著者（大木）に相談があり、実用化を目指すなら、磁気浮上より高勾配磁選の方が実現性が高いと回答、以後、高勾配磁選機の開発へと駒を進めた。

2009年に新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の希少金属代替材料開発プロジェクトに採択され、プロジェクトの一部として、高勾配磁選によるリサイクル技術開発が本格始動した。当初3年は、赤井、山下により、既存のバッチ式高勾配磁選機を用いたモデル試料による基礎試験を実施、同選別機によるLAP回収方法の基礎を確立し<sup>14)</sup>、2011年5月にプレスリリースを果たした。当時はレアアース危機の最中（価格ピークは2011年10月）にあり、ランプメーカー等から多くの問い合わせが寄せられた。このような実用化を急ぐ声の中で、実際の廃蛍光体処理と連続システムの構築が急務の課題となり、NEDOプロジェクト後年度（2012年～2013年）における装置開発へと展開した。

## 3 選別装置開発の課題

### 3.1 高勾配磁選機の機構

基礎研究を始めていたNEDOプロジェクトの要請に基づいて、著者（大木）も本格的な装置開発を実施した。まずは、高勾配磁選機の原理を解説する。磁選機の磁気捕捉の強さは、通常、磁石表面の磁束密度（B）（単位、T：テスラ、1 T = 10,000 ガウス）で表される。ネオジウム磁石の表面磁束密度は0.35 T程度だが、磁気回路を組むと局所的に1 T程度を発現できる。また、電磁石は熱減磁するため、通常は2 T程度である。これに対し、超伝導磁石は10 Tを越える磁束密度が発現可能である。多くの磁選機は開放系で、磁束密度は距離の2乗に反比例して減衰し、磁気勾配（2点間の磁束密度差）が制御できないた

めスペックとして記載されないが、実際に粒子を引き寄せる「磁力」は、磁束密度(B)と磁気勾配( $\Delta B$ )の積( $B \cdot \Delta B$ )である(図1上)。

一方、粒子側の磁石の付きやすさは単位体積当たりの磁化率(無次元数)で表される。これは物質の性質を表す指標であるが、磁石の付きやすさは粒子体積にも依存し、粒子が大きいほど磁石に着きやすくなる。また、鉱山やリサイクル等多種混合物を選別する場合、一般に50  $\mu\text{m}$ 以下の細粒子を、粒子バルクの性質(比重や磁性等)で高精度選別することは極めて難しい。このような細粒混合物を選別する際には、搬送や分散を容易にするため粒子を水に分散させたスラリーを対象とするが、細粒子では水の粘性や粒子表面の性質が支配的となり、粒子のバルク物性で粒子運動に差を生じさせることが難しくなる。しかし、著者ら(赤井、山下)の先の検討では、粒径5  $\mu\text{m}$ 程度の強磁性体でない蛍光体混合物から、超伝導磁石による磁気浮上で高精度なLAP回収が可能なのがラボ試験で確認された。この磁気浮上は吊下げ磁選機と同じ機構であり、開放系の磁選である。すなわち、開放系10 T程度に相当する磁力を以てすれば、5  $\mu\text{m}$ のLAPが選択回収できるといふことである。低コストな実用システム構築には、同じ磁力を常伝導で発現することが求められる。理論上は、開放

系の5倍の磁気勾配を発現すれば、開放系10Tに相当する磁力を発現可能であり、これを実現できる唯一の方法が高勾配磁選機である。

N極とS極を向かい合わせ、1Tの平行磁束が発現する場に磁性体を置いても、極めて強い磁場にありながら粒子は動かない。なぜなら磁気勾配がないからである(図1下)。逆に言えば、高い磁気勾配が発現できれば、低い磁束密度でも強い磁力が発現できる。このような解釈は古くからあったが、マサチューセッツ工科大学のH.H.Kolinらは、これを実現する高勾配磁選機の機構を1968年に提案した。物理選別機は近年も多くが開発されているが、選別機構自体を開発した例としては最も新しい事例である。彼らは、高透磁率細線の束(マトリックス)を平行磁束内に置くことで細線内に磁束を集中させ、細線周囲の空間に極めて高い磁気勾配を発現させることに成功した。この技術は、白色顔料にも使用されるカオリンの脱鉄(有色鉱物除去)法として実用化した。また、80年代には、石炭の脱硫選別(硫化鉄鉱物除去)等への応用研究も行われた。それまで、粒径50  $\mu\text{m}$ 以下の選別には、粒子表面性質を利用した浮選が主流であったが、この開発により粒子バルク性質を利用した選別技術でも、細粒選別の道が開かれた。

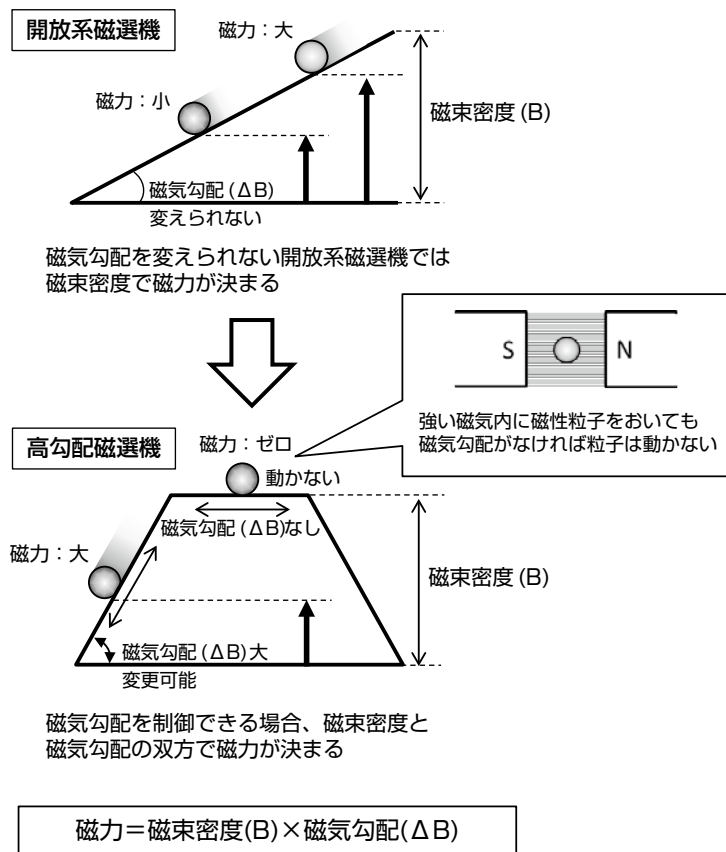


図1 開放系磁選機と高勾配磁選機の磁力イメージ

### 3.2 蛍光体選別の課題と開発目標

高勾配磁選機は蛍光体を常伝導で選別できる可能性があったが、実用機開発に向けて二つの課題があった。一つは、同磁選機では強い磁気勾配の付与はできても、その精密な制御はできないことである。マトリックスとしてエキスパンドメタル（金属板に切れ目を入れて引っ張り、菱形等の網目に加工したもの）等を使用するが、素材の透磁率、太さ、細線間の空間分布等により、磁束密度に応じて磁気勾配は固定される。つまり、電圧で任意の磁束密度に調整できるような制御ができない。さらに、空間内の磁力にはムラがあり、かつ、励磁によってマトリックスが収縮するため、ムラを正確に把握することもできない。マトリックスが粗な状態にあると、粒子の軌道により被る磁力が異なってしまうため、マトリックスを密な状態でスラリーを流し、すべての粒子をマトリックスに付着させたのち、励磁状態で非磁性粒子を洗い流す。しかし、粒子の抱き込みなどが解消できず、高精度な選別は難しい。二つ目は装置サイズである。同装置は鉱山ベースで開発されたため、連続式の商業機は大型装置であり、ベンチサイズ機はバッチ式のラボ機となる。蛍光体の処理量を考えれば、サイズ的にはラボ機で十分であるが、これをベースとした連続装置を新たに開発する必要があった。

また、そもそも、カオリンの脱鉄や石炭の脱硫は不純物除去（除去物を磁着回収）であり、極力強い磁力を発現させ、より細粒の鉄（硫化鉄）を回収することが目的であった。この時、多少のカオリンや石炭が誤って除去されても問題

はなく、選別の選択性が高くなくても目的を達成できた。一方、蛍光体の選別では、LAPを有価物として選択的に回収する（有価物を磁着回収）という発想である。LAPと他の粒子の僅かな透磁率差の間に選別境界を設定しなければならず、同時に小型の連続装置の試作を2年で達成するというのが、著者（大木）に課せられたNEDOプロジェクトのミッションであった。

## 4 小型高勾配磁選機の自動連続運転化

### 4.1 自動連続運転システムの概要とバッチ式プロセスとの比較

市販のバッチ式小型高勾配磁選機（Jones型湿式強磁力磁選機、最大1 T）をベースとして、自動連続運転を実現しつつ、高精度にLAPを回収できる磁選システムの開発を目指した。図2にバッチ式プロセスと、新規開発した自動連続運転フローを示す。バッチ式と異なる点が幾つかあるが、大きな違いはバッチ式では消磁・励磁の繰り返して非磁着物を水相に解放していたのに対し、連続システムでは、水流のみで非磁着物を洗い流す点である。その後、スラリー流速を最適化するとリンス効果が発現し、リンス工程をすべて省略しても十分な選別精度が維持できることを見出した。このシステムの検証のため、3組の自動・定量給排水システムとその制御機構を組み込んだ、自動連続運転式高勾配磁選機を試作した（図3）<sup>[5]</sup>。その最適化に当たり、まずは、連続システムがバッチ式と遜色ない選別精度となるかを、予察検証した。ここで、バッチ式では前処

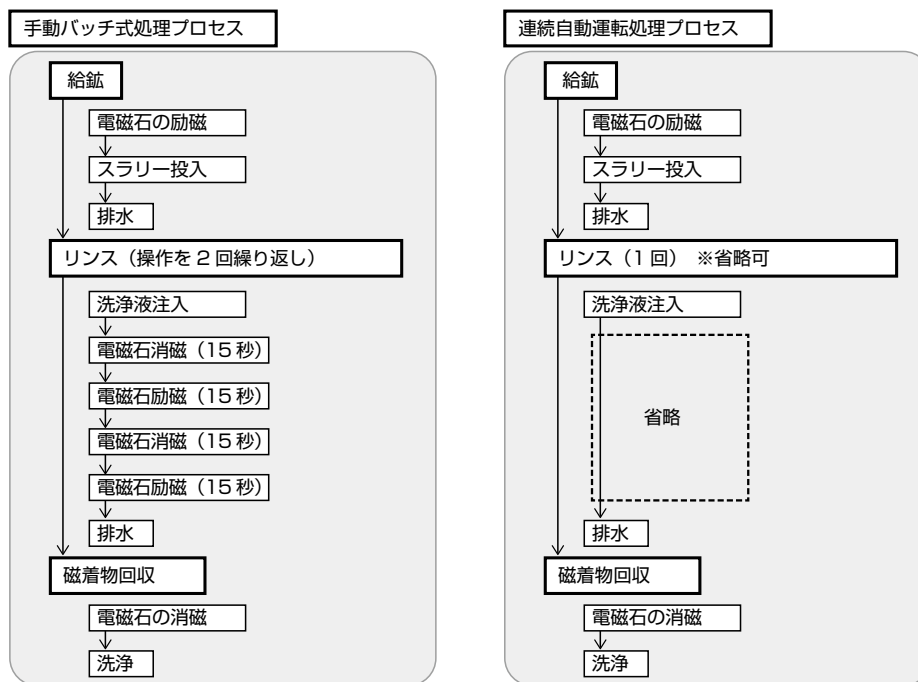


図2 従来のバッチ式プロセスと新規開発した自動連続運転フロー



表1 バッチ試験機と自動連続システム機の予察選別試験の結果

	回収率 <分配率 (%)>				純度 <品位 (%)>				前処理として、 ①38 μm篩分け(篩下回収) ②鉄除去磁選 (0.05 T 磁選-非磁着物回収) ③沈殿洗浄(上層部除去)3回 の3工程を実施		
	磁着物	リンス物	非磁着物	合計	磁選前	磁着物	リンス物	非磁着物			
手動 バッチ 試験	全体(歩留)	18.0	20.5	61.5	100						
	LAP	86.4	4.8	8.7	100	LAP	12.0	60.7	3.0	1.8	
	BAM+CAT	23.6	17.9	58.5	100	BAM+CAT	4.0	5.1	3.4	3.7	
	SCA	4.9	18.2	76.9	100	SCA	6.5	1.9	6.2	8.7	
	YOX	9.5	21.2	69.3	100	YOX	13.6	8.0	15.7	17.1	
	ハロリン酸	7.2	24.7	68.1	100	ハロリン酸	60.7	23.4	70.9	64.9	
	ガラス	5.5	6.2	88.4	100	ガラス	3.2	0.8	0.8	3.8	
	酸化鉄	66.4	0.0	33.6	100	酸化鉄	0.2	0.5	0.0	0.1	
自動 連続 運転 試験	全体(歩留)	17.9	0.0	82.1	100					前処理として、 ①20 μm篩分け(篩下回収) の1工程のみを実施	
	LAP	79.8	0.0	20.2	100	LAP	13.9	62.9	0.0		3.5
	BAM+CAT	27.7	0.0	72.3	100	BAM+CAT	7.3	9.7	0.0		5.5
	SCA	4.9	0.0	95.1	100	SCA	4.7	1.5	0.0		6.4
	YOX	7.0	0.0	93.0	100	YOX	16.9	7.7	0.0		22.3
	ハロリン酸	5.8	0.0	94.2	100	ハロリン酸	54.7	17.0	0.0		60.0
	ガラス	6.4	0.0	93.6	100	ガラス	2.3	0.7	0.0		2.2
	酸化鉄	66.4	0.0	33.6	100	酸化鉄	0.2	0.5	0.0		0.1

いずれもマトリックスにエキスバンドメタルを使用

※LAP (LaPO<sub>4</sub>: Ce,Tb)、BAM (BaMgAl<sub>10</sub>O<sub>17</sub>: Eu<sup>2+</sup>)、CAT (CeMgAl<sub>11</sub>O<sub>19</sub>: Tb<sup>3+</sup>)、SCA ((SrBaCa)<sub>10</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>6</sub>Cl<sub>12</sub>: Eu)、YOX (Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: Eu<sup>3+</sup>)

理として、① 38 μm 篩下回収、② 鉄除去磁選、③ 沈殿洗浄3回の3工程を施していた。一方、自動連続システムでは、供給流量や供給時間の精密制御により、前処理の大幅な簡略が可能であることが分かり、① 20 μm 篩下回収のみを実施した。表1に、エキスバンドメタルを用いて、バッチ式で試験した結果と自動連続システムでの結果を示す。②と③の工程を省略したにもかかわらず、自動連続システムの鉄や結着剤、アルミナ微粉の残留量は極僅かであった。両者の選別結果を比較すると、回収率は、自動連続システムの方が6.6%低い、磁着物中のLAP純度(品位)は、自動連続システムの方が2.2%高く、前処理を大幅に省略した同システムでも、バッチ式と概ね同等の選別性能が得られることが確かめられた。

#### 4.2 従来型マトリックス(エキスバンドメタル)を用いた制御最適化

市販のエキスバンドメタル・マトリックスを図4に示す。マトリックス内のどこかでスラリー流路を遮蔽するよう、積層させたエキスバンドメタルをカラム内に挿入して使用する。粒子はほぼ例外なく細線に衝突し、磁着物はそのまま磁気捕捉される。非磁着物も多くは細線上あるいは磁着物に挟まれる形でマトリックスに付着するが、スラリーやリン

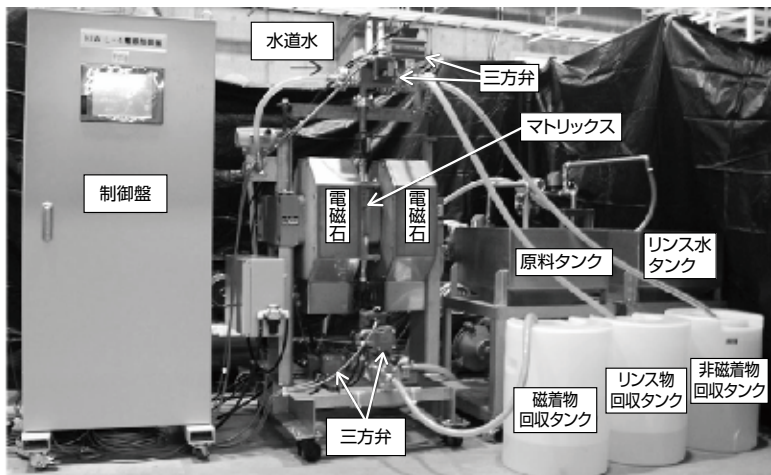


図3 自動連続運転式高勾配磁選機(試作機)

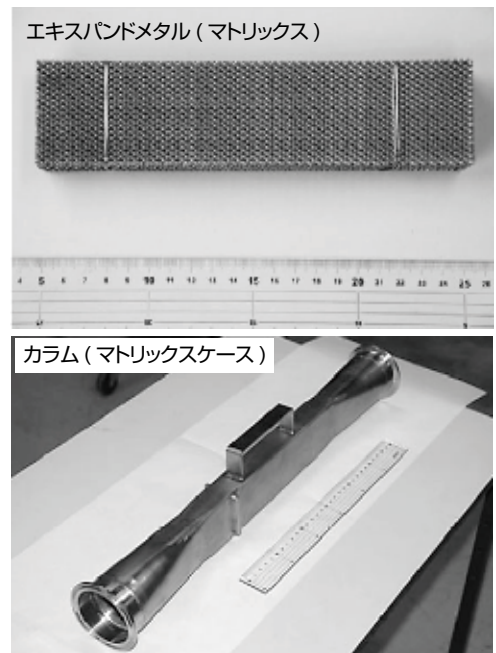


図4 エキスバンドメタル(マトリックス)とカラム(マトリックスケース)

ス水で洗い流すことで選別される。すなわち、粒子がマトリックスに留まり「磁着物」として回収されるか、脱着して「非磁着物」として回収されるかは、磁力と水の流速の関係で決まる。しかし、そもそも磁性不純物を除去する装置として発展したため、磁着物の純度向上のためのリンス流速制御という認識が低く、市販装置にこの機能は組み込まれていない。磁化率の僅かに異なる粒子を、適切に磁着物と非磁着物に分けるには、磁束密度と流体速度・時間の双方を厳密に制御することが必要となる。知財の関係で詳しい検討過程は省略するが、種々の試験を繰り返したのち、次に1サイクルの最適磁着量を決める試験を行った。図5は1磁選サイクルにおけるマトリックスの磁着量と、LAPとLAP以外の分離効率を示したものである。分離効率は磁着量50g前後で最大となる。マトリックスの磁力分布は非常にムラが大きく、初めは磁力が極めて強い特異部にLAP以外も磁着して、選択性がやや低くなる。その後、一定量が磁着すると磁力が均一なサイトへの磁着が起り、選択性が改善される。しかし、さらに磁着量が増えると、マトリックスに磁着物と非磁着物が積層して磁力が低下し、本来、磁着させたいLAPが磁着しなくなって分離効率は再び低下する。

以上の結果、本試験で用いたエキスバンドメタルでは、1サイクルで磁着すべき量は50g程度と判断された。磁着量を50gとしたときの系統的選別試験結果を図6にまとめる。1回目の磁選（粗選）でLAP純度は16.5%から61.9%に向上する。このときのLAP回収率は79.4%、次いでBAM + CATが27.3%、酸化鉄が15.2%である。他の成分はいずれも8%以下で、この時点で92~95%が非磁着物として除去される。磁着物にもう1度磁選（精選）を施すと、積算のLAP回収率は64.2%に低下するが、LAP純度は82.0%まで向上する。さらにもう1度繰り返すと（再精選）、積算LAP回収率は56.4%に低下するが、

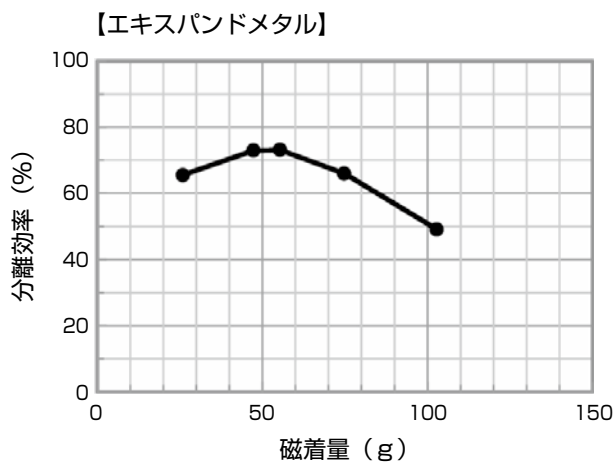


図5 磁着量とLAPの選別性（エキスバンドメタル使用）

LAP純度は85.9%まで向上し、SCA、YOX、ハロリン酸系蛍光体の除去率は99%以上となる。以上の結果から、LAP回収率優先条件として「磁選1回」を、LAP純度優先条件としては、回収率の低下を考慮して「磁選2回」が適当であると判断し、自動システムのプログラムとして組み込んだ。

## 5 高選択性マトリックスの開発

### 5.1 高選択性マトリックス概要

前章では、従来型マトリックスを利用して、その性能を最大限に引き出すための自動連続運転システムを開発したが、このシステムを以てしても、選別精度不足となる場合に備え、選択性の高いマトリックスを開発した。一般的な磁選適用例では、磁着物と非磁着物の磁化率差は非常に大きく、事実上、磁性粒子と非磁性粒子の分離となることが多い（図7）。高勾配磁選機でも、強い磁力で磁性微粒子を極力除去することに意識が置かれ、マトリックス内の磁力のムラは配慮されない。一方、蛍光体はLAPの磁化率が最も高いもののいずれも弱い磁性体であり、他の蛍光体との磁化率の差は僅かである。そこで、選別性を改善するために、新たな思想のマトリックス開発に着手した。この研究で開発したマトリックス<sup>16)</sup>は、従来のように粒子を機械的に衝突させるのではなく、流路に均一な磁力を発現させ、粒子が障害物のない流路を通過する間に所定の磁化率を持つ粒子だけが磁力でマトリックスに引き寄せられ、磁着するものである。これにより、一定の閾値より磁化率が小さい粒子はマトリックスを素通りするので、選択性の高い分離を達成することが期待できる。開発したマトリックス（図8）は、有限要素法磁界シミュレーションにより、内部の磁力分布を最適化して設計した。剛性の高い、高低差1mm以下の波形磁性体壁を向かい合わせた構造を持ち、マトリックス空間に規則的かつほぼ均一な磁力を発現できる。磁着した磁性粒子が脱着しないよう、壁面近傍のみ磁力が強くなるよう設計した。計算結果の一例として、装置磁束密度0.9Tにおける、マトリックス周辺の磁束密度(B)分布と、マトリックス内の磁力(B・ΔB)分布を図9に示す。NEDOプロジェクト中は、磁力分布に規則的な濃淡が残っていたが、その後開発した最新マトリックスでは、ほぼ均一な磁力の発現に成功し、極めて精密な選別閾値設定が可能となっている。

### 5.2 新規高選択性マトリックスの選別性能

新規マトリックスの選別特性を把握するため、前章のエキスバンドメタルと同様にして、1サイクルの最適磁着量を検証した。新規マトリックスの磁着量と、LAPとLAP以外の分離効率を図10に示す。エキスバンドメタルに比べ粒

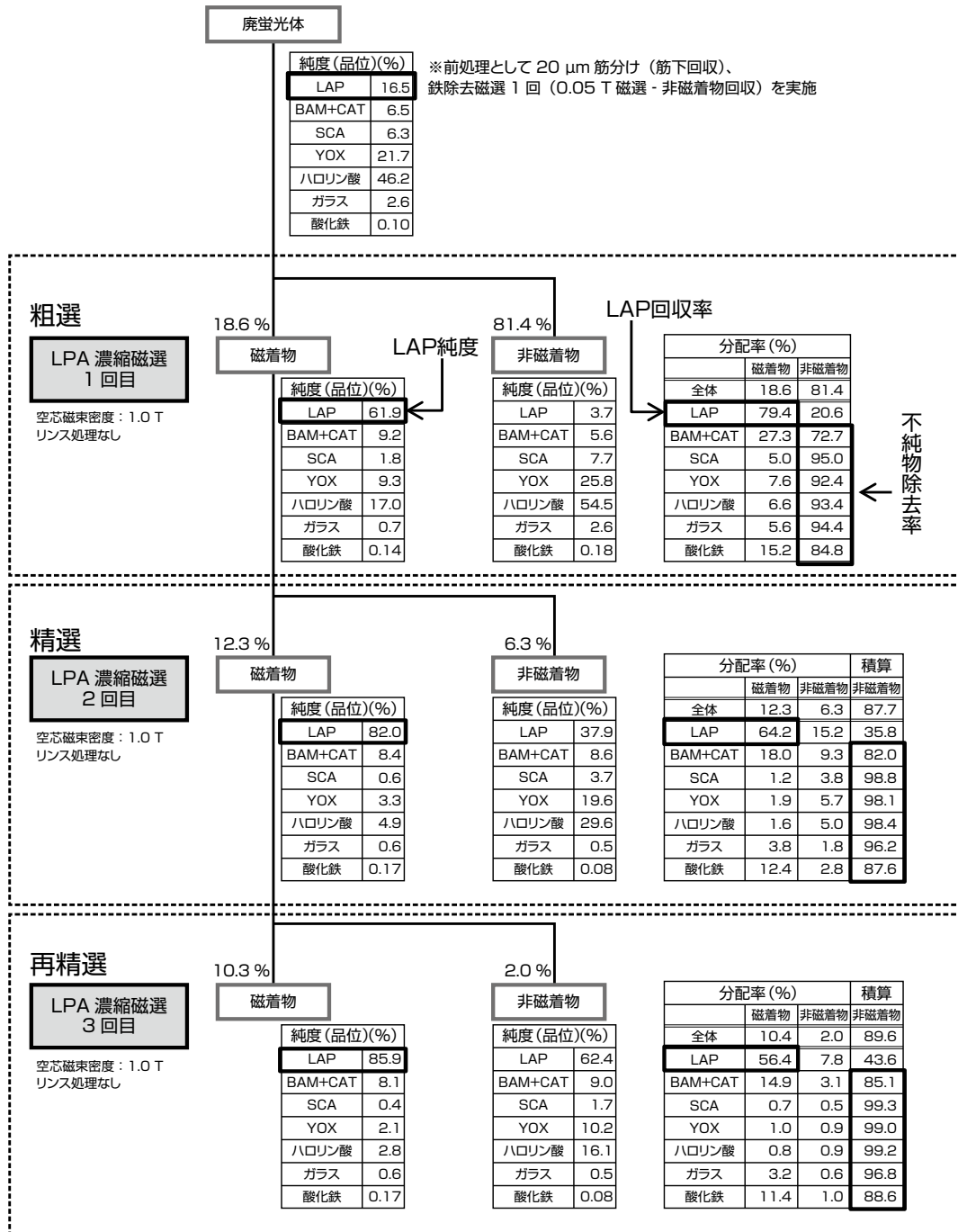


図6 エキスパンドメタルによるLAP高純度化磁選の結果

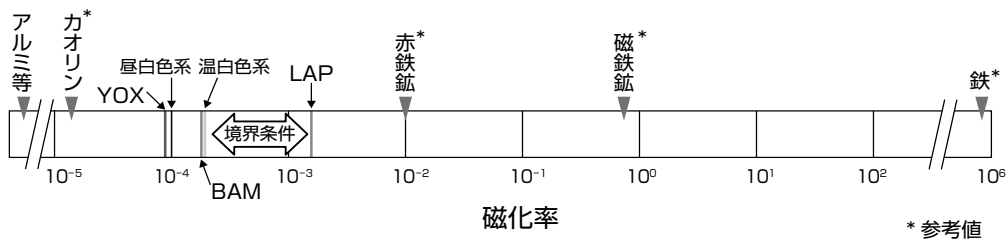


図7 各物質の磁化率と本研究の選別境界条件



子との接触機会が少ないことから、磁着量が少ない時の分離効率はやや低い値となる。しかし、磁着量が 50 g 以上となっても分離効率はほとんど低下せず、180 g 付近でも 70 % 近くを推移している。これは、マトリックス空間のどこに粒子がいても、壁面に引き寄せられる一定の遠達磁力が発現し、また、壁面近傍の強い磁力によって、壁面上に磁着物層が形成されても LAP の脱着が起きないためと考えられる。表 2 に従来型エキスパンドメタルと新規マトリックスの選別結果を比較した。予備試験の結果から、両マトリックスにおいて回収率優先条件～純度優先条件の 3 例挙げた。両者の回収率、分離効率が大きく異なるが、LAP 純度および LAP 濃縮比は、いずれも新規マトリックスの方が 1～3 割程度良い結果となった。

一方、このマトリックスには原理上の弱点が存在する。

従来は流体が粒子を搬送するが、新規マトリックスでは、粒子自体の運動によってマトリックスに到達しなければならない。したがって、粒子速度が遅い細粒子ほど、1 サイクルに要する時間が増大する。通常の磁選対象である数十  $\mu\text{m}$  以上の粒子ではほとんど影響はないが、廃蛍光体は 5  $\mu\text{m}$  程度と磁選粒径としては極めて小さいため、スラリー流速をエキスパンドメタルの 1/20 程度にする必要がある。しかし、新規マトリックスには、これを補う二つの可能性がある。1 つは、1 回の磁着量を多くできること。既述のように、同一サイズなら、エキスパンドメタルの 4 倍程度の磁着物を捕捉・回収可能である。もう一つは、発生した磁束を無駄なくマトリックス空間に分配できるため、LAP の捕捉に必要な電磁石の出力を大幅に低減できる点である。表 2 で示したように、ほぼ同等の選別結果を得るのに、エキ

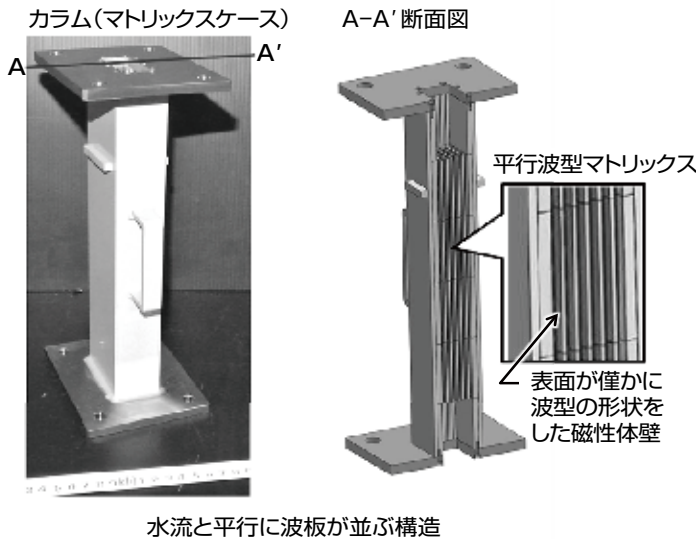


図 8 新規開発した高選択性マトリックス

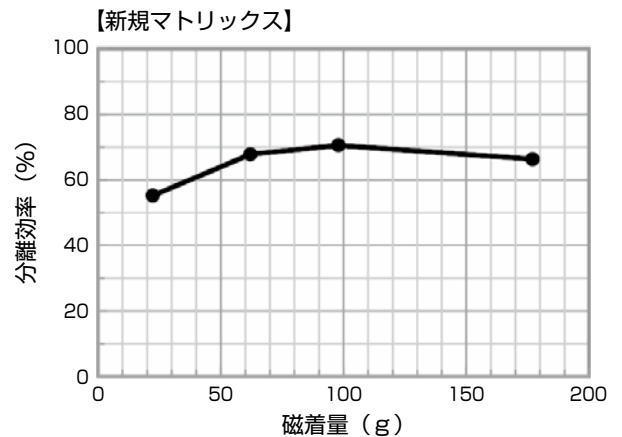


図 10 磁着量と LAP の選別性（新規マトリックス）

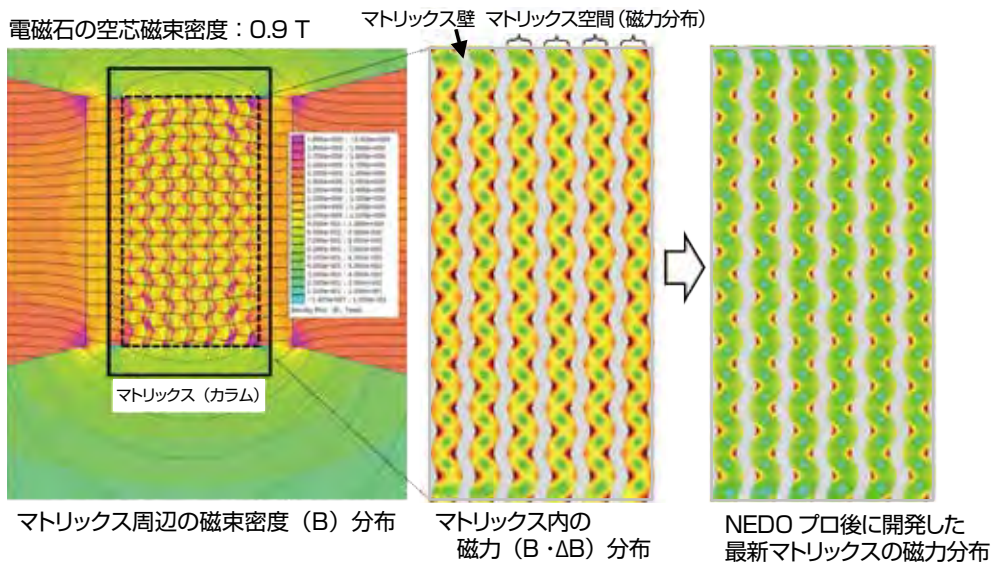


図 9 高選択性マトリックス周辺の磁束密度とマトリックス内磁力のシミュレーション結果一例



表2 エキスパンドメタルと新規マトリックスのLAP高純度化磁選の結果

エキスパンドメタル					新型マトリックス					
処理条件	空芯磁束密度 (T)	1.0			空芯磁束密度 (T)	0.4				
	給鉱流速比	1	1.2	1.45	給鉱流速比	0.05				
	リンス流速比	リンスなし			リンス流速比	なし	1.0	2.9		
歩留まり (%)		20.6	17.9	16.3	歩留まり (%)		15.4	13.8	13.4	
LAP 回収率 (%)		84.2	79.8	78.8	LAP 回収率 (%)		83.1	79.7	73.0	
LAP 分離効率 (%)		73.1	72.0	72.1	LAP 分離効率 (%)		76.2	74.1	68.4	
LAP 濃縮比		4.1	4.5	4.8	LAP 濃縮比		5.4	5.8	5.5	
純度 (品位) (%)		選別前	磁選後 磁着物				選別前	磁選後 磁着物		
	LAP	13.9	53.0	62.8	64.2	LAP	13.9	60.2	64.5	70.1
	BAM+CAT	7.3	10.3	9.7	10.0	BAM+CAT	7.3	9.7	9.8	9.6
	SCA	4.7	1.8	1.5	1.4	SCA	4.7	1.6	1.5	1.1
	YOX	16.9	8.8	7.7	6.9	YOX	16.9	6.9	6.5	5.2
	ハロリン酸	54.7	24.5	17.0	16.2	ハロリン酸	54.7	19.5	15.9	12.3
	ガラス	2.3	1.0	0.7	0.7	ガラス	2.3	1.5	1.3	1.1
	酸化鉄	0.2	0.6	0.5	0.6	酸化鉄	0.2	0.6	0.6	0.6

← 回収率優先      品位優先 →

← 回収率優先      品位優先 →

LAP 濃縮比 = LAP 回収率 / 歩留まり

スパンドメタルでは 1.0 T (出力 73 %) が必要であるが、新規マトリックスでは 0.4 T (出力 15 %) で済む。すなわち、前者と同等の 1.0 T を発生させれば、もっと容積の大きなマトリックスが利用できる。1 時間当たりの蛍光体処理量は、エキスパンドメタルの 12.9 kg/h に対し、新規マトリックスでは約 1/12 の 1.1 kg/h だが、容積を 12 倍にすれば同等の処理量を得ることができる。

以上、新規マトリックスは開発途上にあるものの、すでに、従来型マトリックスとは異なるさまざまな特徴、優位性が示された。また、上述したように、NEDO プロジェクト後にさらなる高精度型の開発に成功し、すでに、海底熱水鉱床や銅鉱石脱砒素等の国のプロジェクトでも、その実力を発揮している。従来型マトリックスと違い、僅かな磁化率の差でも選別可能である性質を利用すれば、今後、さまざまな用途での活用が期待される。

## 6 まとめ～選別システムの実用化と近未来の資源循環の展望～

NEDO プロジェクトの後年度において、著者 (大木) を中心に小型高勾配磁選機の自動連続運転化を実施し、その後、磁選機メーカーと実施契約を締結した。この間、著者ら (赤井、山下) では、前・後処理工程の検討を実施した。また、市中回収廃蛍光体を対象に LAP のランプ試作試験を実施したところ、98.9 % の光束が発現する結果も得られている。光束維持率は問題なく、不純物を除去した LAP は新品 LAP とほぼ等しい輝度を示し、再利用可能であることを見出した。この技術について、我が国の水銀処理を

担う、廃蛍光ランプ処理最大手の野村興産株式会社が、2014 年に NEDO 助成事業に採択され、同社イトムカ鉱業所へ開発技術の導入が進められた。原型バッチシステムから、連続システム開発を経て、2015 年 2 月実用化導入された蛍光体選別システムの全容を図 11 示す。また、この研究の発端から、実用化に至る流れを図 12 にまとめた。この間、2013 年 10 月に「水銀に関する水俣条約」が採択、2016 年 2 月に条約が締結され、同社の水銀処理機能が大きい期待された。一方、2015 年 11 月に政府は、照明機器の省エネを進める方針を発表、その後、照明機器メーカーが次々と蛍光灯照明器具の生産終了を発表している。蛍光ランプ自体の生産は継続するが、国内では徐々に縮小傾向となるであろう。このように、廃製品を取り巻く環境は時々刻々と変化しており、リサイクル技術は時代の変化に適合してゆくことが求められる。さらに言えば、製品の省エネ性は、製造時・使用時だけでなく、資源再利用の可能性や、廃棄時の消費エネルギーも加味されるべきであり、リサイクル技術が確立されているからこそ、安心して新製品を開発できるという時代も訪れるであろう。

一方、本報では、選別装置開発の視点からその経緯をまとめたが、リサイクルのされ方についても特筆すべき点がある。一般にリサイクルと呼ばれるものには 2 種類ある。一つは製造工程内リサイクル (工程内廃材)、もう一つはポストコンシューマーリサイクル (市中廃製品) である。この研究では両者ともに実現可能だが、一般的には前者に比べ後者のハードルは非常に高い。図 13 に示すように、製造工程内リサイクルは、工程管理された端材の再利用であり、

ある程度純度が確保されている場合が多い。生産性改善プロセスとしては重要であるが、1度も製品として社会利用されておらず、資源循環の確立には寄与しない。一方、後者は、不特定多数の廃製品が混濁とした状態に始まり、ここから資源を再利用することは難しい。後者は資源利用方法によって、さらにカスケードリサイクルと水平リサイクルに大別できる。我が国が長年取り組んできた廃棄物処理は、廃棄物にしないことを目的とした処理であり、再利用の用途を問うものではない。極めて高いリサイクル率を達成しているが、そのほとんどはカスケードリサイクルである。特に金属の場合は無害化することに主眼が置かれ、路盤材に利用するなど、本来、金属が持つ価値を全く利用していな

い例も多い。カスケードリサイクルが増えても、天然金属資源の輸入量を削減する効果はほとんどなく、廃製品を都市鉱山として利用するには、水平リサイクルを進めることが必須条件である。幸い金属は有機物と異なり、製錬原料とすることができれば、ほぼ完全に元の金属に戻ることができる。しかし、貴金属や銅を除くその他の金属は、手間のかかるリサイクル処理をしても、原料としての価格はそれほど高くなく、コスト的に不採算となることが多い。この研究の注目すべき点は、廃蛍光体からテルビウム金属を回収するだけでなく、LAPという高性能材料の原料とした点にある（図14）。廃蛍光体を再利用可能にした選別プロセス自体が世界初であるが、それ以上に、水平リサイクルよりさらに内側

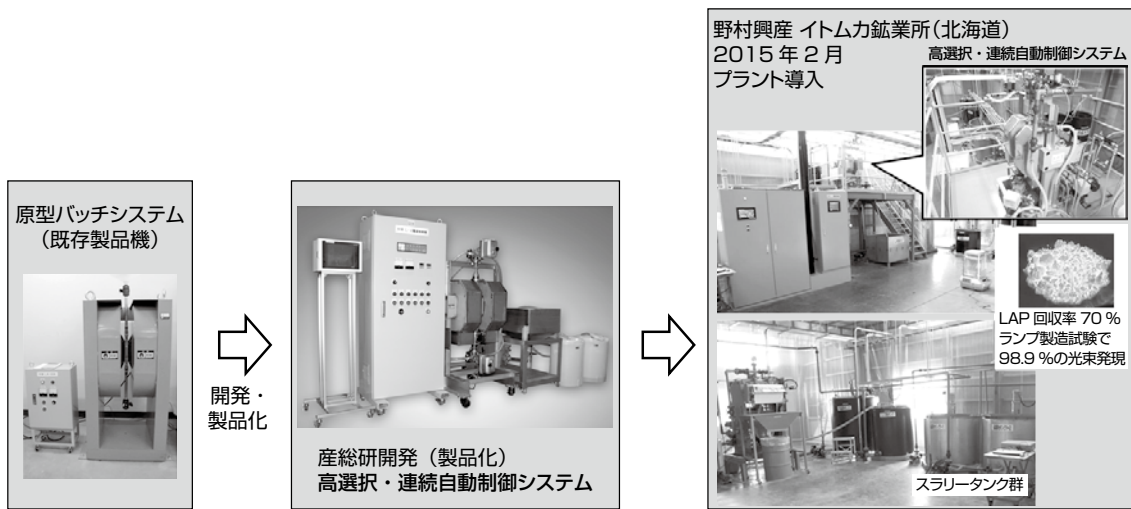


図 11 原型バッチシステムから実用化導入された蛍光体選別システムまでの装置全容

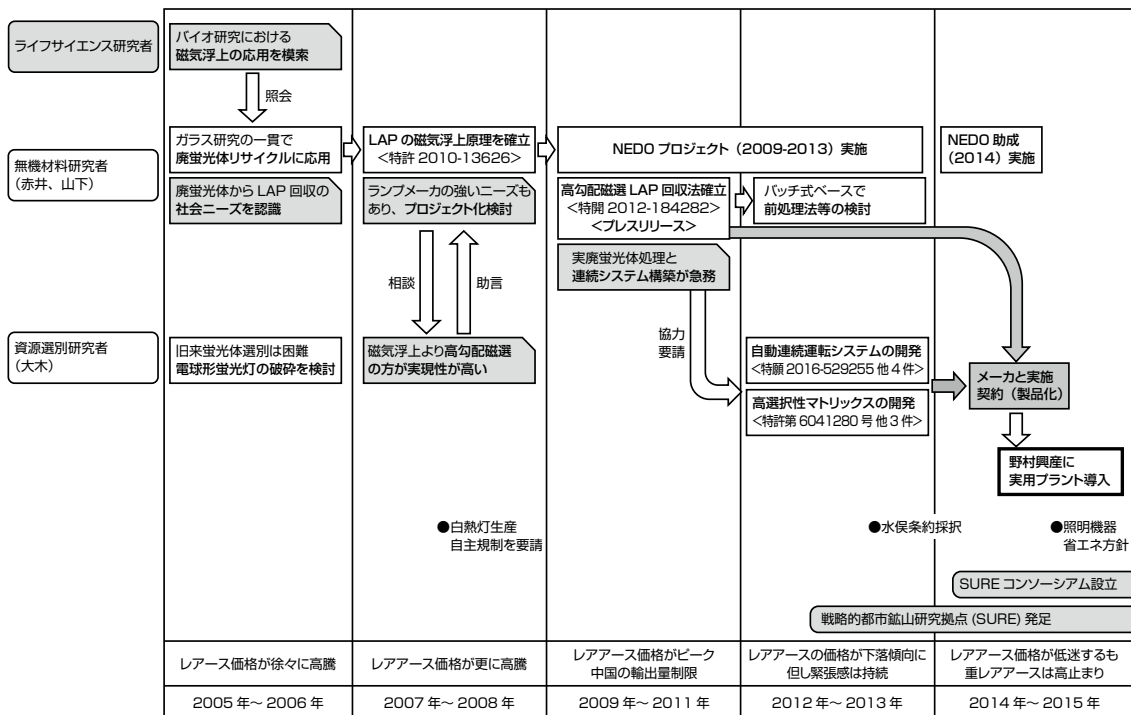


図 12 本研究の発端から実用化に至るまでの流れ

のループで金属循環を確立した例は、世界的にもほとんどなく、欧州の CE/RE 政策等でも近未来の理想循環とされるシステムの先駆けでもある。

本報で記した廃蛍光体の高度リサイクル技術は、紆余曲折を経ながらも、幾つかの好条件が重なることにより実用化を達成できた。一方、未来の都市鉱山確立には、より多くの廃製品について、少なくとも水平リサイクルに乗せる必要がある。それにはコストの問題が大きいですが、リサイクルの低コスト化には、リサイクル技術の革新だけでなく、

動 - 静脈が連携した社会システムそのものの変革が必要である。著者らは 2012 年に所内融合組織 SURE (戦略的都市鉱山研究拠点) を立ち上げ、翌 2013 年には、官民連携の SURE コンソーシアムを設立した。現在、産総研研究者 35 名と民間企業 61 社、公的機関 26 機関が会員となり、動 - 静脈連携による近未来の都市鉱山構築に向けて活発な活動を行っている。今後、我が国が都市鉱山開発で世界をリードする上で、この研究の成果が近未来型資源循環の先駆けとして参考になれば幸いである。

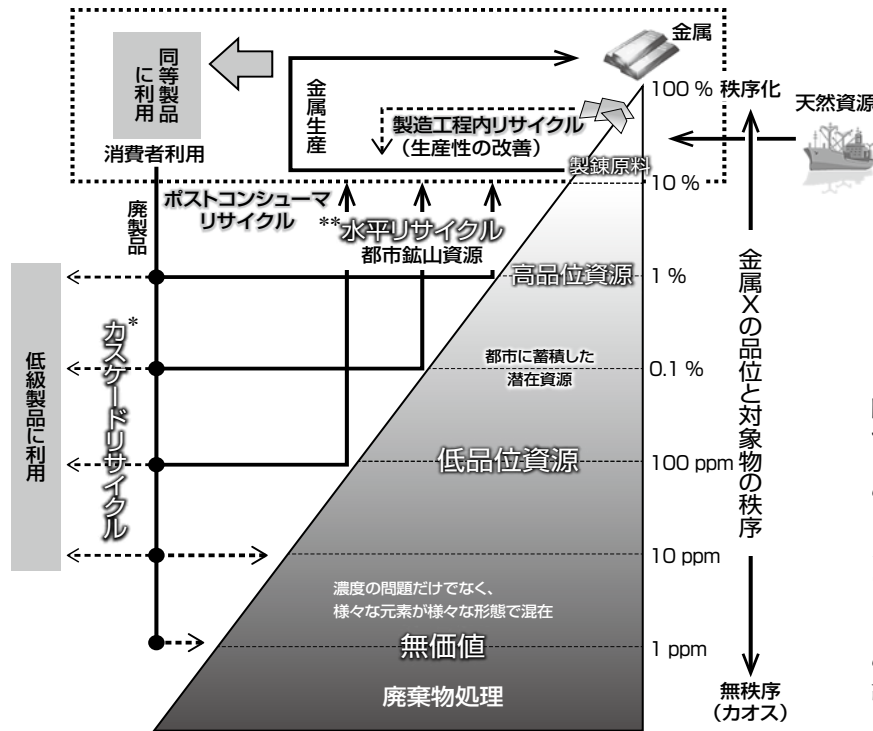


図 13 資源ポテンシャルと水平リサイクルによる都市鉱山の確立  
 \*カスケードリサイクルは、金属を元の製品よりも低級の製品に利用すること。主として無害化を目的としてセメントや路盤材に混ぜるなどもこれに該当。  
 \*\*水平リサイクルは、元の製品と同じグレードで再利用すること。金属の場合は、主として製錬原料化して高純度の金属として再利用することを指す。

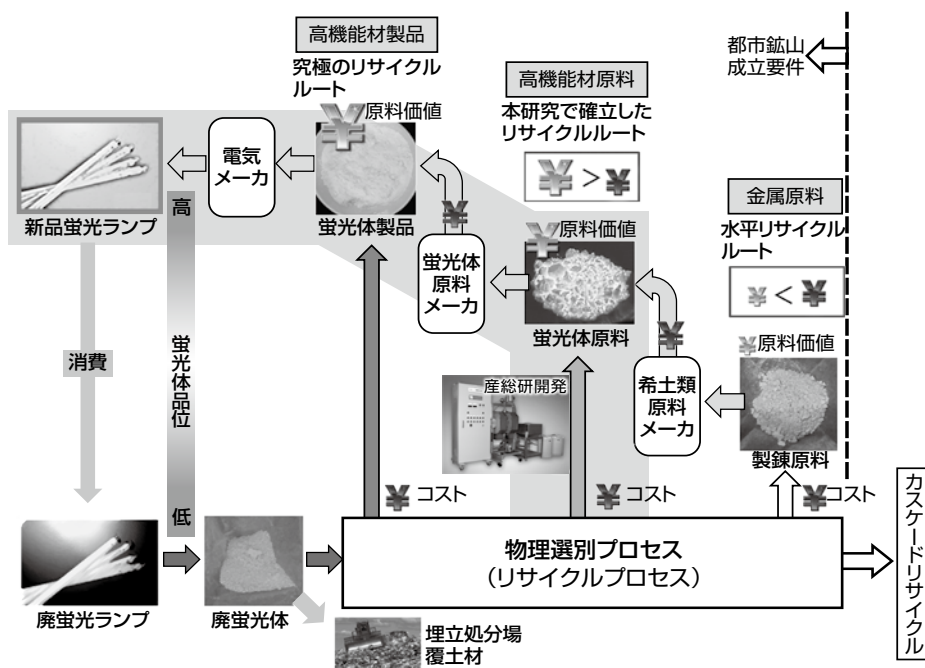


図 14 水平リサイクルとより高度な材料リサイクルループ



## 参考文献

- [1] 大木達也: 都市鉱山の戦略的な開発を支える物理選別技術—未利用・難処理資源の開発と我が国の資源ビジョン—, *Synthesiology*, 6 (4), 238–245 (2013).
- [2] 赤井智子: 蛍光体からの希土類元素の回収方法, 特開2009-96902, (2009).
- [3] 赤井智子, 安宅光雄, 山下勝: 廃蛍光体のリサイクル方法, 特開2010-13626, (2010).
- [4] 赤井智子, 山下勝, 大木達也: 蛍光体混合物の分離方法及び分離装置, 特許第5674142号, (2015).
- [5] 大木達也, 野口智弘, 羽澄妙子: 特願2016-529255 (他、外国出願4件), (2016).
- [6] 大木達也, 野口智弘, 羽澄妙子: 磁選機用マトリックス及び磁選機, 特許第6041280号 (他、外国出願3件), (2016).

## 執筆者略歴

大木 達也(おおき たつや)

1994年早稲田大学大学院理工学研究科博士課程修了、博士(工学)。早稲田大助手を経て、1995年工業技術院資源環境技術総合研究所入所。2015年より産総研環境管理研究部門総括研究主幹。タンタルコンデンサをはじめとするレアメタルリサイクル技術開発、海底熱水鉱床の選鉱技術開発等に従事。資源処理技術に関する多数のNEDO、JOGMECプロジェクトに参画。2013年産総研内に戦略的都市鉱山研究拠点(SURE)を、2014年にSUREコンソーシアムを設立。現在、SUREコンソーシアム会長。この論文では、高勾配磁選機・マトリックスの開発及び全般に渡る構成を担当した。



赤井 智子(あかい ともこ)

1990年大阪大学理学研究科無機物理化学専攻博士前期課程修了。1991年同後期課程中退。工業技術院大阪工業技術研究所(現産総研関西センター)入所。1997年理学博士(大阪大学)。1997年科学技術庁長期在外研究員(アイオワ州立大学材料工学科)。2000年～2004年JSTさきがけ研究員併任。2004年環境化学技術研究部門高機能ガラスグループ長。組織再編を経て現在に至る。専門は、ガラス材料、無機材料、蛍光材料。この論文では、研究開発・プロジェクトの経緯、ランプ性能試験等を担当した。



山下 勝(やました まさる)

1981年神戸大学理学部化学科卒。1983年京都大学工学研究科工業化学専攻修士課程終了。同年工業技術院大阪工業技術試験所(現産総研関西センター)入所。以降ガラス材料に関する研究に従事。2008年博士(工学)。現在無機機能材料研究部門研究主幹、高機能ガラスグループに在籍。この論文では、プロジェクトの経緯・磁選前後の処理等を担当した。



## 査読者との議論

### 議論1 全体について

コメント(四元 弘毅: 産業技術総合研究所)

レアアース蛍光体のリサイクル技術を開発するにあたり、資源工学分野で用いられている高勾配磁選機の適用を試み、リサイクル技術

の実用化に成功しています。異なった分野の研究者が協力し、目標を明確に定め、研究を段階的に着実に進めて、新しいリサイクル技術を開発したことに意義があると考えます。

コメント(栗本 史雄: 産業技術総合研究所)

現代社会において、材料のリサイクルは最重要課題のひとつです。この論文はレアアース蛍光体の材料リサイクルの実用化について、材料を専門とする研究者と選別装置を専門とする研究者の連携による高度な知見の統合の成功例を紹介しています。論文の構成が明解で、詳細な図表も提示されていて、研究開発から実用化、さらに将来展望に至るシナリオを適切に記述しています。このことから、この論文はシンセシオロジーの趣旨に十分適っており、掲載にふさわしいと判断します。

### 議論2 シナリオについて

コメント(四元 弘毅)

異なった専門分野の研究者が協力したというのは重要なのは理解できますが、内部の固有情報の記述が目につきます。その辺を整理してはいかがでしょうか？

また、ライフサイエンス研究者の考え方や常識が、無機材料研究者と資源技術研究者のそれらとどのように反発・あるいは融合していったのかという情報が紹介される方が、読者にとっては価値があると思いますが、そのような記述はできないでしょうか？

回答(大木 達也)

まず、本誌は結果を淡々と記載する通常の論文誌と異なり、そこに引き着くための役割、構成、思想や戦略を記載するものと理解しました。その上で、ご指摘に合わせて、全面的に修正を行いました。

一方、後半のご指摘については、実態として各研究者のすべての意見を集約して、最適解を求めたわけではなく、各研究者の手におえない部分を、ライフサイエンス→無機材料→資源技術の順にパトパスし、実用化に向けた検討内容を、資源技術→無機材料にフィードバックしたため、反発に相当することは発生しませんでした。課題を1人で抱え込まずに、適材適所の役割を行った点が融合になるかと思えます。

コメント(栗本 史雄)

先に公表した大木(2013、シンセシオロジー)からの研究戦略の展開について、例えば「1章はじめに」の中で大木(2013)を引用して論じると、より論旨が明確になると思います。

回答(大木 達也)

「著者は、その頃より、磁石やコンデンサ等の物理選別技術開発を実施してきたが[1]、…」を追加いたしました。

コメント(栗本 史雄)

図12はこの論文のシナリオの流れを示しており、重要な図と思います。上記コメント2とも関連しますが、日本(あるいは産総研)の動向として、SUREの設立等を追加してはいかがでしょうか。

回答(大木 達也)

この論文記載のSUREおよびSUREコンソ等について、図に追加いたしました。

コメント(四元 弘毅)

要旨の「市中に出回った～世界的にもほとんどない。」という記述ですが、金や白金のリサイクルがすでに存在しているのと矛盾しないでしょうか？それら貴金属のリサイクルとはカテゴリーが異なるなら、その説明を記述しないと読者は理解できないと思います。

回答(大木 達也)

銅や貴金属のリサイクルは、元の「金属」と同等の価値で(インゴツ



トとして) 再利用する「水平リサイクル」に相当します。この研究では、「水平リサイクルよりさらに内側のループで金属循環を確立した例」(図 14 参照) に相当します。つまり、廃蛍光体を「レアアース金属」としてではなく、より付加価値の高い「蛍光体原料」として再利用可能にしました。元の製品に戻すという意味では、これも「水平リサイクル」と思われるかもしれませんが、通常は、元の「金属」に戻すの

が最上位のリサイクル概念であり、今回は、それを越えた価値物として再生したという点で、世界的にも稀な例と言えます。

ご指摘の箇所は「水平リサイクルよりさらに内側のループで、金属としてではなく、より高価な高機能材料の原料として、金属循環を確立した例は」に修正しました。