

特別企画



マイクロ波メタラジーによる 分散型リサイクルの可能性

A distributed recycling by microwave-based metallurgy

立命館大学理工学部 山末 英嗣, 柏倉 俊介, 光斎 翔貴

College of Science and Engineering, Ritsumeikan University

Eiji Yamasue, Shunsuke Kashiwakura, Shoki Kosai

〒525-8577 滋賀県草津市野路東 1-1-1,

e-mail: yamasue@fc.ritsumeai.ac.jp

1. はじめに

20 世紀後半の急激な都市化と人口増加の中で、大量生産・大量消費を基礎とする社会システムが形成された結果、大量の廃棄物が発生することとなった。これらの廃棄物をいかに有効活用するかが持続可能な社会にとって重要であることは言うまでも無い。昨今はサーキュラーエコノミーといった概念が社会に定着しつつあるが、そこでも製品と原材料の価値をなるべく維持したまま循環させるような社会システムへの転換が求められている。そこで鍵となるのが効率的なリサイクルである。

従来のリサイクルは「集中型」リサイクルシステムとあってよい。そこでは、消費者の分布に応じて薄く存在する使用済み製品を長距離の輸送を通して回収し、大規模リサイクル施設や場合によっては動脈プロセスに環流されることでリサイクルが実現される。大規模なリサイクル施設は高い熱効率と生産性を実現できるが、そのトレードオフとして長距離輸送を必要とすることが多く、エネルギーやコストの視点でリサイクルのインセンティブの阻害要因となる(Brambilla Pisoni et al. 2009)。例えばリサイクルにおける輸送のコストは全コストの 40~50%を占めることは重要な事実である(尹鍾進 2007)。

システムネットワークにおける集中化から分散化へのシフトは様々な分野で広く議論されている(例えば、

(Ackermann et al. 2001)。分散型リサイクルシステムの場合、廃棄物はその発生場所の近隣にある複数の小規模リサイクル施設で処理される。この場合、地域の収集場所からリサイクル施設までの移動距離が集中型リサイクルシステムよりはるかに短くなるため、輸送に必要なエネルギーが大幅に削減される。このようなシステムは消費者にリサイクルのインセンティブを与え、リサイクル率の向上にも寄与する。

分散型リサイクルにおける課題の 1 つは、システムの分散化による製錬プロセスの熱効率の低下である。ところが、興味深いことにマイクロ波による加熱は分散化(小型化)しても効率が落ちにくいという特徴があるため(El Khaled et al. 2018)、この性質をうまく利用することでリサイクルの分散化が視野に入ってくる。さらに、マイクロ波加熱を用いた還元プロセスでは、従来の加熱方式では説明できないほど高速に還元が進むことが報告されている(Mizuno et al. 2021a; Tanigami et al. 2021)。この真の原因については未だ議論のさなかであるが、局所加熱が大きな役割を果たしている可能性が高い。いずれにせよ、マイクロ波加熱を用いた還元プロセスは従来の方式とは異なる特徴的な挙動を示すことが多く、従来とは異なる反応経路、ひいてはプロセスを提案できる可能性を秘めている。このような視点から、筆者らはマイクロ波を用いた冶金プロセスを敢えて「マイクロ波メタラジー」と呼称している(Mizuno et al.

2021b).

繰り返しになるが、マイクロ波メタラジは分散型リサイクルシステムに適している可能性が高く、著者らは、ケーススタディとして使用済みアルカリ乾電池に注目した研究を進めてきた。アルカリ乾電池は、米国で 80%、EU で 73%、日本で 52%と電池市場の大半を占めている。その一方で、アルカリ乾電池の主材料である ZnO（負極材）と MnO₂（正極材）のリサイクル率は EU で 13.6%、日本で 20%、オーストラリアで 5%と著しく低い(Ebin et al. 2017)。使用済みアルカリ乾電池の多くは埋立てられるか、他の廃棄物とともに処分されることがほとんどである(Ferella et al. 2008)。

著者らはマイクロ波加熱によるアルカリ乾電池のリサイクルについて、まず実験科学的にその可能性を調査し、さらに社会科学的な視点から温室効果ガス (GHG) 削減量を定量化するというハイブリッド研究を進めてきた(Kosai et al. 2022)。本稿ではその結果の一部について紹介するものである。

2. 研究方法

2.1. マイクロ波を用いた模擬使用済みアルカリ乾電池電極からのマンガンと亜鉛の分離回収

使用済みアルカリ乾電池のリサイクルを検討するため 2 種類の試薬を同時に使用した。一つは使用済みアルカリ乾電池の正極に残存する Mn₃O₄ と黒鉛、もう一つは負極の ZnO であり、これらを混合して炭素還元することを試みた。

マイクロ波炉として最大出力 7.5kW のマイクロ波伝搬発振器 (UM-1500-IS-B; Micro-Denshi, Japan) を使用した (周波数 2.45 GHz)。試料はアルミナるつぼに入れ、それを石英管内に設置した。石英管は蒸気状で発生する亜鉛を回収するために用いた。実験は大気圧の空気雰囲気で行った。実験パラメータとして、マイクロ波出力、加熱時間、炭素量の添加比を変化させた。

2.2. LCA による GHG 削減効果の定量化

ここではケーススタディとして、アルカリ乾電池の分散型リサイクルシステムを日本に導入した場合の GHG 削減効果をライフサイクル評価の視点から行った。比較対象として、現在のメインストリームである

電気炉を用いた集中型リサイクルシステムについての評価も行った。

具体的には日本国内の 1710 の自治体を対象とした。各自治体で発生した使用済みアルカリ乾電池は、自治体内で回収され、集中型リサイクルではそれらが自治体を超え、日本国内に現存する 4 カ所の集中リサイクル施設のうち最も近い施設へ輸送されると仮定した。分散型リサイクルの場合、回収された使用済みアルカリ乾電池は各自治体内でマイクロ波炉を用いてリサイクルされるとした。

集中リサイクルシステムに適用した電気炉のデータは、出力 6 kW で 30 分の加熱下で 62%の回収率を報告した Ebin らの研究成果から引用した(Ebin et al. 2017)。大型炉の連続運転により、加熱工程が効率化されていることに留意する必要がある。足立らによれば、単体加熱プロセスの場合、産業界では連続運転により 52%のエネルギー消費量の削減が達成されており(Adachi et al. 2015)、この数値は本研究の集中型リサイクルシステムにおいても仮定として考慮した。

分散型リサイクルシステムに適用したマイクロ波加熱炉の回収率や加熱時間に関するデータは、2.1 節の結果を反映した。分析のさらなる詳細は元文献(Kosai et al. 2022)を参照されたい。

3. 結果

3.1. 模擬使用済みアルカリ乾電池電極からのマンガンと亜鉛の回収実験結果

化学量論比 2 倍で炭素を混合した試料に 5.0 kW で 15 分間マイクロ波加熱したサンプルについて、実験前後の試料について XRD を行った結果を図 1 に示す。図中、Sample in the crucible はるつぼ中に残った試料、separated sample はるつぼから飛散し石英管表面に付着していた試料である。

図 1 よりマイクロ波加熱の過程で、酸化亜鉛は亜鉛に還元されて気体として分離され、装置下流部で再酸化されて酸化亜鉛として回収されることが分かる。一方、Mn₃O₄ は MnO まで還元されていた。これは、使用済みアルカリ電池電極に含まれる酸化マンガンと酸化亜鉛の混合物を分離回収できたことを意味している。

ここで亜鉛の回収率に注目すると、図 1 と同じ条件

の場合、加熱後 5 分以内では亜鉛はほとんど回収されなかった。加熱開始から 5 分以上が経過すると、亜鉛の回収率は徐々に向上し、さらに加熱時間が 10～15 分になると回収率が著しく上昇した。15 分以上の加熱で還元反応はほぼ終了し、亜鉛の回収率は最終的に約 92%～97% となった。それ以上の加熱時間では、回収率に変化は見られなかった。なお、添加する炭素量が化学量論比の 2 倍以上の時には同様の回収率を達成できたが、添加量が化学量論比の場合、30 分加熱しても亜鉛はほとんど回収できなかった。

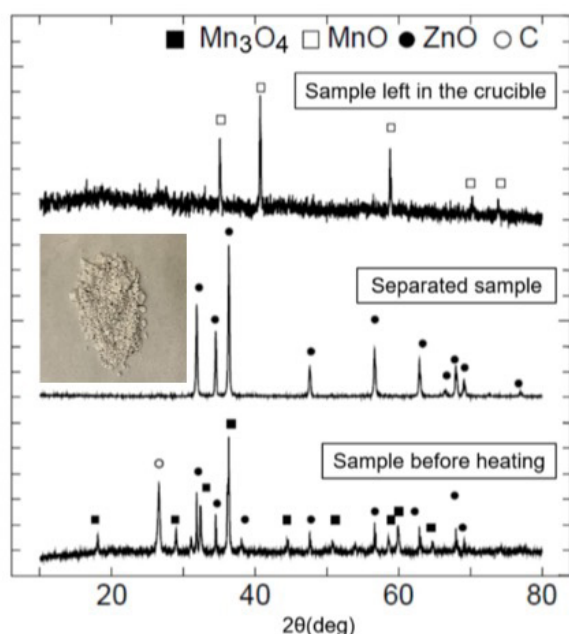


図 1: 2 倍の化学量論比で炭素を混合し、5.0kW のマイクロ波で 15 分間加熱前後の試料の XRD パターン
ここで得られた亜鉛の回収率 (92～97%) は従来の電気炉による加熱に比べ著しく高いことが分かった。Ebin ら (2017) は、本研究とほぼ同じ条件下で電気炉を用いて 30 分間処理しているが、亜鉛の最大回収率は 62% であった。つまり、マイクロ波を用いた本研究では、電気炉を用いた加熱に比べて、半分以下の加熱時間でより高い亜鉛の回収率を実現できたことが分かる。

3.2. 日本における分散型リサイクルシステムの有効性

集中型リサイクル施設は、適切な条件のもとに稼働すると高いエネルギー効率を実現できるが、システム全体としてみると、輸送距離がネックとなって効率が低下することはすでに述べた。

GHG 削減量に注目すると、自治体を超えての輸送距離が約 206km を超える場合、分散型リサイクルの方が GHG 排出量を削減できることが分かった。さらに分散型リサイクルシステムの GHG 削減効果は、人口が多い自治体 (例: 100 万人以上) でも、輸送距離が短ければ (例: 150km)、その効果は限定的であり、輸送距離が長い場合 (例えば 600km) でも、自治体内の人口が少ない場合 (例えば 10 万人以下) は同様に削減効果が小さくなる。

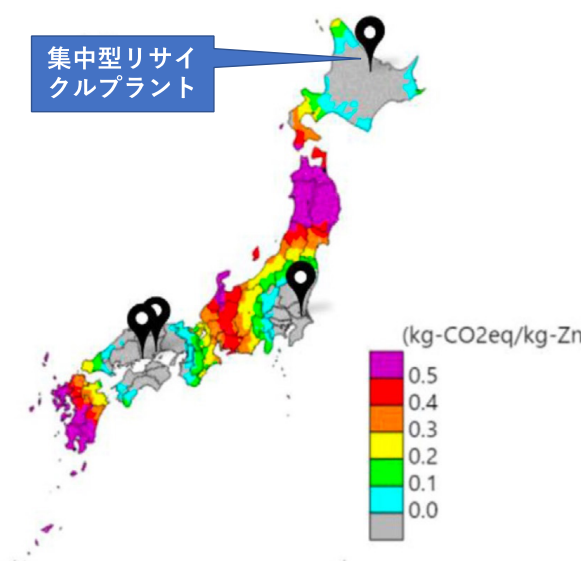


図 2: 分散型リサイクルの導入効果

図 2 は、分散型リサイクルの導入効果 (亜鉛 1kg 回収あたりの GHG 排出削減量) を日本全体で可視化した結果である。図中の黒いシンボル(4箇所)は、実際に使用済み電池を処理している集中型リサイクルプラントの位置を意味している。図から分かるように、集中型リサイクルプラントから 206km 以内に存在する自治体では、分散型リサイクルを導入してもその GHG 削減効果はむしろマイナスである一方、それ以上の距離では、輸送距離が長いほど、そして自治体の人口が大きいほど効果が大きくなる。

この結果に基づき、日本における使用済みアルカリ乾電池の集中型と分散型のリサイクルシステムをバランスよく調和させると、年間 26,500GJ のエネルギー消費と 1.54Gg-CO₂eq の GHG 排出を削減できることが分かった。

4. 考察

本研究で提案した分散型リサイクルシステムについて、マイクロ波技術、輸送エネルギー計算、適用可能国、社会的効果、将来展望の観点からさらに考察を加える。

4.1. マイクロ波技術

本研究では、分散型リサイクルシステムを実現するための技術としてマイクロ波装置を検討した。実証研究では、実験室規模のマイクロ波装置を出力 5.0kW で使用した。予備実験において、2.5 kW の出力で実験を行ったが、この出力では十分に還元が進まなかった。したがって、分散型リサイクルシステムの実用化を考える場合、現状の家電用のマイクロ波ではなく、より高出力な業務用マイクロ波装置を採用することが望ましい。また、マイクロ波装置を用いた鉄鉱石の還元に着目した他の研究では、連続式のシステムが開発されているが(Nagata et al. 2019), 本研究ではバッチ式での評価に留まっている。本研究成果についても、連続化を進めることで、使用済みアルカリ乾電池の処理に必要なエネルギーがさらに減少すると考えられる

4.2. 他国への適用可能性

日本は国土面積が 197 カ国中 61 位であり、本研究で考慮した都市間輸送の最長距離は 800km に過ぎない。また、日本は南北方向に長い島国であり、鉄道輸送システムが発展している。このような状況では、集中型リサイクルも一定の効果を発揮するが(Kosai et al. 2021), それでも分散型リサイクルシステムを最適に導入することで GHG を削減できる可能性を見いだせた。この結果は分散型リサイクルのポテンシャルが高いことを意味する。すなわち国土が広く、自動車社会で人口が分散している国(例: 米国)では、分散型リサイクルシステムの採用により、GHG 削減効果がより高くなる可能性があるであろう。

また、マイクロ波装置を利用した分散型リサイクルシステムは、発展途上国での利用にも適している。E-waste の処理は、先進国と途上国とは全く異なる。ほとんどの先進国では、e-waste は中央集権的な施設に搬入され、トップダウン方式で十分に規制されたガバナンスの下、工業化された技術でリサイクルされる(Ilankoon et al. 2018)。しかし、ほとんどの途上国では法規制の枠組み(Ilankoon et al. 2018), 行政ガバナンス(Sepúlveda et al. 2010), 経済資金や支援(Ferronato et al.

2019)がないため、廃棄物の管理は十分に行われていない。この問題に対処するために、途上国においてインフォーマルセクターへの支援が必要であることが認識されている(Ferronato et al. 2019)。途上国の E-waste リサイクルでは、地域レベルで実行されるインフォーマルセクターの活動が支配的であり(Shittu et al. 2021), このインフォーマル活動に関わる人々の地域経済にとって重要である(Gall et al. 2020; Gu et al. 2016)。

発展途上国の廃棄物管理におけるインフォーマルセクターが直面する主な課題の 1 つは、野外焼却による大気汚染、酸や化学物質の溶出による水質・土壌汚染など、非効率または旧式の技術を採用している地域を直撃することである(Rautela et al. 2021)。分散型リサイクルを効果的に導入した場合、インフォーマルセクターにおいてもこのような影響を最小限に抑えることができるであろう。

4.3. 社会的効果

マイクロ波装置を用いた分散型リサイクルシステムの採用により、天然資源のない地域が二次資源の供給源となる機会を得ることができる。従来の大企業ではなく、中小企業や地方行政が供給者として地域処理の一翼を担うことが求められる。小規模企業は、廃棄物処理に様々なアプローチを取り入れることで、循環型経済の問題に取り組むことができる可能性がある(Higgs and Hill 2019)。これは、先進国の地方だけでなく、途上国でも重要な廃棄物分野での新たな雇用を生み出すことになる(Godfrey et al. 2017)。特に日本では、人口の不均衡を抑制し、地方経済を活性化するために、地方創生が国家目標の一つとなっている。

5. まとめ

本研究では、マイクロ波を用いた使用済みアルカリ乾電池からの亜鉛とマンガンのリサイクルについて実験的アプローチとそれに基づく社会科学的アプローチの両側面からハイブリッド的に検討した。

ケーススタディとして日本の 1710 自治体について分析を行った所、分散型リサイクルシステムの導入によるエネルギー削減効果が最も大きい自治体・地域を特定することができた。そして、使用済みアルカリ乾電池について集中型と分散型のリサイクルシステムをバラ

ンスよく導入することで、エネルギー消費を年間 25,300 GJ、GHG 排出量を 1.54 Gg-CO₂eq 削減できることが明らかになった。

参考文献

- Ackermann, T., G. Andersson, and L. Söder. 2001. Distributed generation: a definition. *Electric Power Systems Research* 57(3): 195–204.
- Adachi, M., T. Oosawa, K. Azeyanagi, and H. Yonemori. 2015. Considerations on Induction Heating Type Indirect Heating System. *Journal of the Japan Society of Applied Electromagnetics and Mechanics* 23(1): 99–104.
- Brambilla Pisoni, E., R. Raccanelli, G. Dotelli, D. Botta, and P. Melià. 2009. Accounting for transportation impacts in the environmental assessment of waste management plans. *International Journal of Life Cycle Assessment* 14(3): 248–256.
- Ebin, B., M. Petranikova, B.-M. Steenari, and C. Ekberg. 2017. Investigation of zinc recovery by hydrogen reduction assisted pyrolysis of alkaline and zinc-carbon battery waste. *Waste Management* 68: 508–517.
- El Khaled, D., N. Novas, J.A. Gazquez, and F. Manzano-Agugliaro. 2018. Microwave dielectric heating: Applications on metals processing. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 82: 2880–2892.
- Ferella, F., I. De Michelis, and F. Vegliò. 2008. Process for the recycling of alkaline and zinc-carbon spent batteries. *Journal of Power Sources* 183(2): 805–811.
- Ferronato, N., E.C. Rada, M.A. Gorrity Portillo, L.I. Cioca, M. Ragazzi, and V. Torretta. 2019. Introduction of the circular economy within developing regions: A comparative analysis of advantages and opportunities for waste valorization. *Journal of Environmental Management* 230: 366–378.
- Gall, M., M. Wiener, C. Chagas de Oliveira, R.W. Lang, and E.G. Hansen. 2020. Building a circular plastics economy with informal waste pickers: Recyclate quality, business model, and societal impacts. *Resources, Conservation and Recycling* 156: 104685.
- Godfrey, L., A. Muswema, W. Strydom, T. Mamafa, and M. Mapako. 2017. Co-operatives as a development mechanism to support job creation and sustainable waste management in South Africa. *Sustainability Science* 12(5): 799–812.
- Gu, Y., Y. Wu, M. Xu, H. Wang, and T. Zuo. 2016. The stability and profitability of the informal WEEE collector in developing countries: A case study of China. *Resources, Conservation and Recycling* 107: 18–26.
- Higgs, C.J. and T. Hill. 2019. The role that small and medium-sized enterprises play in sustainable development and the green economy in the waste sector, South Africa. *Business Strategy & Development* 2(1): 25–31.
- Ilankoon, I.M.S.K., Y. Ghorbani, M.N. Chong, G. Herath, T. Moyo, and J. Petersen. 2018. E-waste in the international context - A review of trade flows, regulations, hazards, waste management strategies and technologies for value recovery. *Waste Management* 82: 258–275.
- Kosai, S., D. Kurogi, K. Kozaki, and E. Yamasue. 2022. Distributed recycling system with microwave-based heating for obsolete alkaline batteries. *Resources, Environment and Sustainability* 9(100071): 100071.
- Kosai, S., H. Noguchi, M. Fuse, and E. Yamasue. 2021. Transport energy efficiency in domestic long-distance travel in Japan. *Transportation Research Record*: 036119812110447.
- Mizuno, N., S. Kosai, and E. Yamasue. 2021a. Microwave-Based Approach to Recovering Zinc from Electric Arc Furnace Dust Using Silicon Powder as a Non-carbonaceous Reductant. *JOM Journal of the Minerals Metals and Materials Society* 73(6): 1828–1835.
- Mizuno, N., S. Kosai, and E. Yamasue. 2021b. Microwave-based extractive metallurgy to obtain pure metals: A review. *Cleaner Engineering and Technology* 5: 100306.
- Nagata, K., K. Hara, and M. Sato. 2019. Continuous Process of Pig Ironmaking using Focused Microwave Beams at 2.45 GHz. *ISIJ International* 59(6): 1033–1040.
- Rautela, R., S. Arya, S. Vishwakarma, J. Lee, K.-H. Kim, and S. Kumar. 2021. E-waste management and its effects on the environment and human health. *The Science of the Total Environment* 773: 145623.
- Sepúlveda, A., M. Schluep, F.G. Renaud, M. Streicher, R.

Kuehr, C. Hagelüken, and A.C. Gerecke. 2010. A review of the environmental fate and effects of hazardous substances released from electrical and electronic equipments during recycling: Examples from China and India. *Environmental Impact Assessment Review* 30(1): 28–41.

Shittu, O.S., I.D. Williams, and P.J. Shaw. 2021. Global E-waste management: Can WEEE make a difference? A review of e-waste trends, legislation, contemporary issues and future challenges. *Waste Management* 120: 549–563.

Tanigami, S., S. Kosai, S. Kashiwakura, and E. Yamasue. 2021. A Novel Recycling Process of Lead from Lead-acid Batteries using Microwave Heating. In *Pacificchem 2021*.

尹鍾進. 2007. 循環型社会の形成のための 静脈物流システムの構築に関する研究. 第83回運輸政策コロキウム.

<https://www.jttri.or.jp/kenkyusyo/product/tpsr/bn/pdf/no36-05.pdf>. Accessed 2022 年 12 月 28 日.