

## 環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

研 究 区 分	：	環境問題対応型研究（ミディアムファンディング枠）
研 究 実 施 期 間	：	2022（令和4）年度～2024（令和6）年度
課 題 番 号	：	3MF-2202
体 系 的 番 号	：	JPMEERF20223M02
研 究 課 題 名	：	ワイヤーハーネス廃線の塩ビ被覆材及び銅線の高度湿式剥離及びリサイクルの社会実装に向けたパイロットスケールプロセス設計
Project Title	：	Design of Pilot-Scale Wet Milling Separation Process for Polyvinyl Chloride Coverings and Copper Recovery from Waste Wire Harness Cables Toward Practical Implementation
研 究 代 表 者	：	熊谷 将吾
研 究 代 表 機 関	：	東北大学
研 究 分 担 機 関	：	三菱マテリアル株式会社
キ ー ワ ー ド	：	湿式剥離法、ワイヤーハーネス、細線、銅リサイクル、塩ビリサイクル

2025（令和7）年5月



環境研究総合推進費  
Environment Research and Technology Development Fund



独立行政法人  
環境再生保全機構  
ERCA  
Environmental Restoration and Conservation Agency

## 目次

<b>環境研究総合推進費 終了研究成果報告書</b>	<b>1</b>
<b>研究課題情報</b>	<b>3</b>
<基本情報>	3
<研究体制>	4
<研究経費>	4
<研究の全体概要図>	5
<b>1. 研究成果</b>	<b>6</b>
1. 1. 研究背景	6
1. 2. 研究目的	7
1. 3. 研究目標	8
1. 4. 研究内容・研究結果	10
1. 4. 1. 研究内容	10
1. 4. 2. 研究結果及び考察	11
1. 5. 研究成果及び自己評価	33
1. 5. 1. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献	33
1. 5. 2. 研究成果に基づく研究目標の達成状況及び自己評価	35
1. 6. 研究成果発表状況の概要	42
1. 6. 1. 研究成果発表の件数	42
1. 6. 2. 主要な研究成果発表	42
1. 6. 3. 主要な研究成果普及活動	42
1. 7. 国際共同研究等の状況	43
1. 8. 研究者略歴	44
<b>2. 研究成果発表の一覧</b>	<b>45</b>
(1) 研究成果発表の件数	45
(2) 産業財産権	45
(3) 論文	45
(4) 著書	46
(5) 口頭発表・ポスター発表	46
(6) 「国民との科学・技術対話」の実施	47
(7) マスメディア等への公表・報道等	49
(8) 研究成果による受賞	49
(9) その他の成果発表	49
<b>権利表示・義務記載</b>	<b>49</b>

Abstract

## 研究課題情報

## &lt; 基本情報 &gt;

研 究 区 分 :	環境問題対応型研究（ミディアムファンディング枠）
研 究 実 施 期 間 :	2022（令和4）年度～2024（令和6）年度
研 究 領 域 :	資源循環領域
重 点 課 題 :	<p>【重点課題 11】ライフサイクル全体での徹底的な資源循環に関する研究・技術開発</p> <p>【重点課題 12】社会構造の変化に対応した持続可能な廃棄物の適正処理の確保に関する研究・技術開発</p>
行 政 ニ ー ズ :	(3-6) アスファルトやコンクリート等の建設資材やガラス・アルミ等のプラスチック以外の素材の水平リサイクル実現に向けたリサイクルの質向上に関する研究開発
課 題 番 号 :	3MF-2202
体 系 的 番 号 :	JPMEERF20223M02
研 究 課 題 名 :	ワイヤーハーネス廃線の塩ビ被覆材及び銅線の高度湿式剥離及びリサイクルの社会実装に向けたパイロットスケールプロセス設計
研 究 代 表 者 :	熊谷 将吾
研 究 代 表 機 関 :	東北大学
研 究 分 担 機 関 :	三菱マテリアル株式会社
研 究 協 力 機 関 :	塩ビ工業・環境協会、弘進ゴム株式会社

## &lt;研究体制&gt;

サブテーマ1「パイロットスケール湿式剥離装置設計及び塩ビ被覆材リサイクルの見通し策定」

&lt;サブテーマリーダー（STL）、研究分担者、及び研究協力者&gt;

役割	機関名	部署名	役職名	氏名	一時参画期間
リーダー	東北大学	大学院工学研究科	准教授	熊谷将吾	
分担者	東北大学	東北大学未来科学技術共同研究センター	准教授	石原真吾	
分担者	東北大学	大学院環境科学研究所	准教授	大野肇	

サブテーマ2「回収銅線評価法及び前処理法の開発による銅線リサイクルの見通し策定」

&lt;サブテーマリーダー（STL）、研究分担者、及び研究協力者&gt;

役割	機関名	部署名	役職名	氏名	一時参画期間
リーダー	三菱マテリアル株式会社	イノベーションセンター	上席研究員	小日向正好	
分担者	三菱マテリアル株式会社	イノベーションセンター	主任研究員	村岡弘樹	
分担者	三菱マテリアル株式会社	イノベーションセンター	研究員	伊藤祐未	2022年4月～2022年11月
分担者	三菱マテリアル株式会社	イノベーションセンター	主任研究員	仲家新太郎	2022年12月～2024年3月
分担者	三菱マテリアル株式会社	イノベーションセンター	研究員	平田洵子	2022年12月～2024年3月

## &lt;研究経費&gt;

&lt;研究課題全体の研究経費（円）&gt;

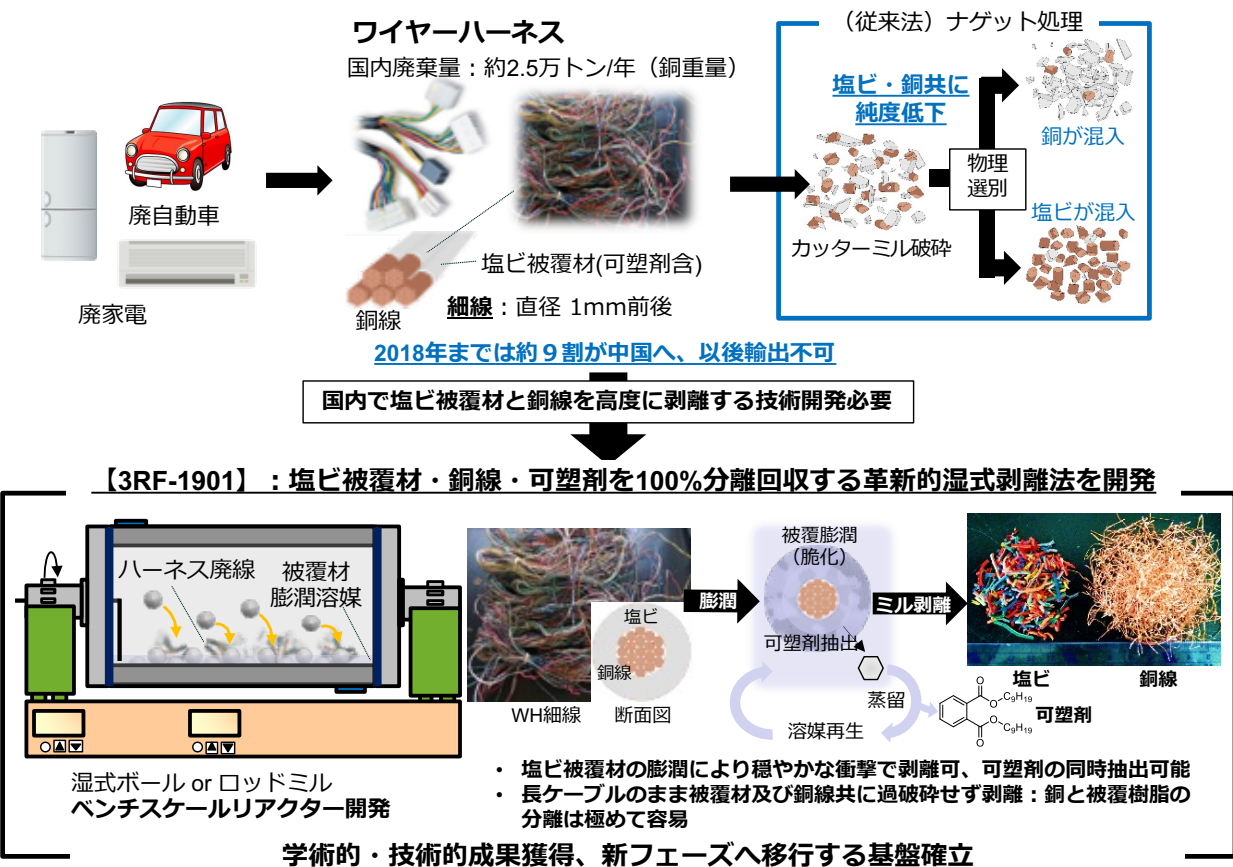
年度	直接経費	間接経費	経費合計	契約上限額
2022	14615386	4384614	19000000	19000000
2023	14615386	4384614	19000000	19000000
2024	14616197	4383803	19000000	19000000
全期間	43846969	13153031	57000000	57000000



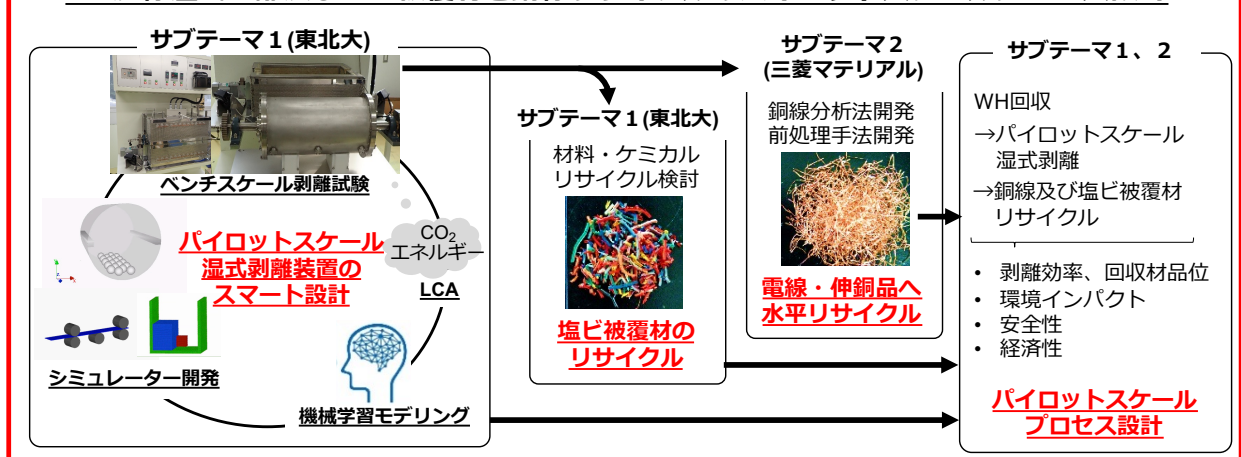
<研究の全体概要図>

**研究課題名：ワイヤーハーネス廃線の塩ビ被覆材及び銅線の高度湿式剥離及びリサイクルの社会実装に向けたパイロットスケールプロセス設計**

**研究代表機関：東北大学**



**WH廃線湿式剥離及び塩ビ被覆材と銅線リサイクルのパイロットスケールプロセス設計**



## 1. 研究成果

### 1. 1. 研究背景

自動車のワイヤーハーネス（WH）は、主に塩化ビニル樹脂（塩ビ）により銅線が被覆された直径1 mm前後の「細線」で構成され、WHの国内廃棄量は銅重量で年間約2万トン（矢野経済研究所, 2015）である。既存の電線剥離技術には剥線処理やナゲット処理が実用化されているが、剥線機ではWH細線は処理できず、またナゲット処理では銅品位の低下や国内リサイクルに見合う品質の塩ビが回収できないことが課題である。世界的な自動車生産量の増加、カーボンニュートラル（CN）に向けた自動車電動化に伴い、WH生産量および銅需要は増加の一途を辿っている。CNの達成には塩ビ被覆材のリサイクルが必要不可欠である。EUでは、プラスチックリサイクルの促進策として、自動車に対して、プラスチックのリサイクル材含有義務を設ける方向で新たな規則案を提案している。この規則案はEUに輸入される新車にも適用されることから、わが国の自動車メーカーも国内でのプラスチックリサイクル材の調達が今後必要になることが予想される。よって、使用済みWHの電線から、銅および塩ビ双方を効果的に国内資源として循環・利用するための技術開発が喫緊の課題である。

重点課題⑪として「ライフサイクル全体での徹底的な資源循環に関する研究・技術開発」および行政ニーズ3-6「アスファルトやコンクリート等の建設資材やガラス・アルミ等のプラスチック以外の素材の水平リサイクル実現に向けたリサイクルの質向上に関する研究開発」が設定されているが、WHを構成する素材（銅・塩ビ）は、原料のほとんどが海外の天然資源由来であり、資源採掘、輸送を含め、製品製造に要するエネルギーは莫大である。更に、重点課題⑫として設定されている「社会構造の変化に対応した持続可能な廃棄物の適正処理の確保に関する研究・技術開発」に関連して、塩ビ被覆材中に含有されるフタル酸エステル類（改正RoHS指令対象物質）は、塩ビ被覆材の資源循環の阻害要因となる可能性がある。

申請者は、2017～2021年度の若手枠推進費【3RF1701および3RF1901】において、塩ビ被覆材・銅線・フタル酸エステル可塑剤を100%分離回収する湿式剥離法を開発した（図1）。実際の使用済みWH細線（最長150 cm）の塩ビ被覆材を適切な溶媒で膨潤（脆化）させ、そこにボールまたはロッドミルで適切な衝撃力を加えることで高精度に塩ビ被覆材を剥離することに成功してきた。これまで推進費により得られた研究成果は、査読付国際誌へも多数発表し（Xu et al., 2018他）、出願した特許2件も権利化が完了している（高橋ら, 2017）。更に、若手枠推進費【3RF1901】では、WH細線を年間約500 kg処理可能なベンチスケール（BS）リアクターの開発に成功しており（事後評価S）、本研究開発においてパイロットスケールプロセス設計をする新フェーズへ移行する基盤を確立してきた。

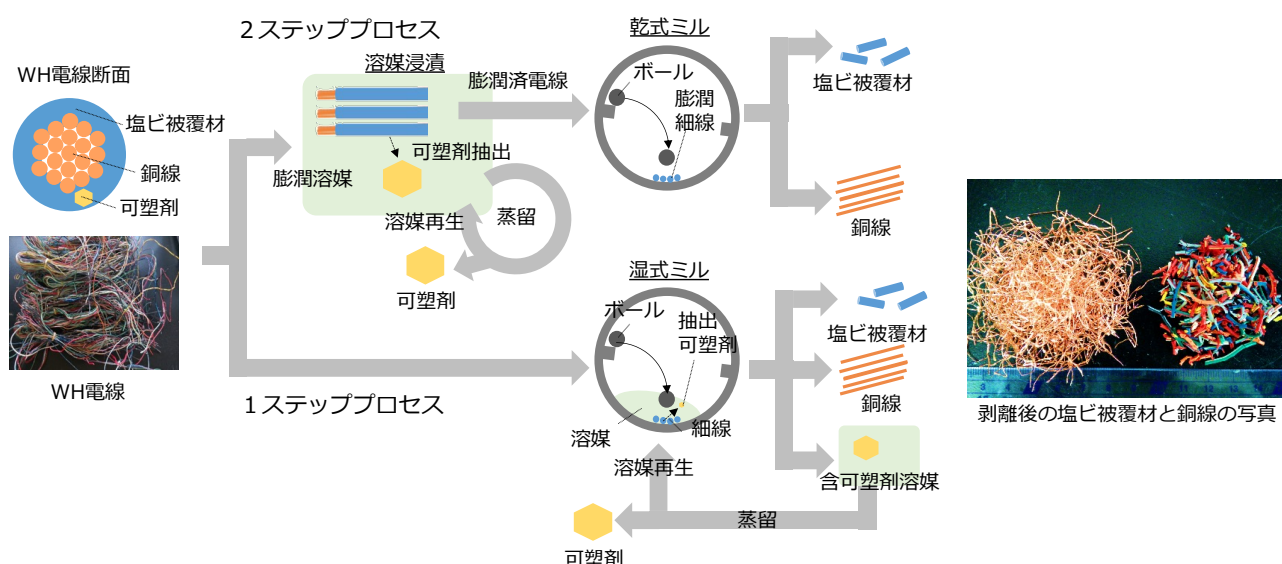


図1 これまで開発してきた湿式剥離法のイメージ図

【参考文献】(株)矢野経済研究所, 平成26年度使用済み自動車由来の金属資源循環実態調査事業報告書、Xu, Jing; Lu, Jiaqi; Kumagai, Shogo\*; Kameda, Tomohito; Saito, Yuko; Takahashi, Kenshi; Hayashi, Hiroshi; Yoshioka, Toshiaki. 2018. Validation of a deplasticizer-ball milling method for separating Cu and PVC from thin electric cables: A simulation and experimental approach. Waste Management, 82, p.220-320.

DOI: 10.1016/j.wasman.2018.10.032、 Xu, Jing; Tazawa, Naoki; Kumagai, Shogo\*; Kameda, Tomohito; Saito, Yuko; Yoshioka, Toshiaki. 2018. Simultaneous recovery of high-purity copper and polyvinyl chloride from thin electric cables by plasticizer extraction and ball milling, RSC Advances, 8, p.6893-6903. DOI: 10.1039/c8ra00301g、 Lu, Jiaqi; Xu, Jing; Kumagai, Shogo\*; Kameda, Tomohito; Saito, Yuko; Yoshioka, Toshiaki. 2019. Separation mechanism of polyvinyl chloride and copper components from swollen electric cables by mechanical agitation. Waste Management, 93, p.54-62. DOI: 10.1016/j.wasman.2019.05.024、 Xu, Jing; Kumagai, Shogo\*; Kameda, Tomohito; Saito, Yuko; Takahashi, Kenshi; Hayashi, Hiroshi; Yoshioka, Toshiaki. 2019. Separation of copper and polyvinyl chloride from thin waste electric cables: A combined PVC-swelling and centrifugal approach. Waste Management, 89, p.27-36. DOI: 10.1016/j.wasman.2019.03.049、 Kumar, Harendra; Kumagai, Shogo; Kameda, Tomohito; Saito, Yuko; Yoshioka, Toshiaki. 2020. Simultaneous recovery of high-purity Cu and poly(vinyl chloride) from waste wire harness via swelling followed by ball milling. Scientific Reports, 10, p.10754. DOI: 10.1038/s41598-020-67795-9、 Kumar, Harendra; Kumagai, Shogo\*; Kameda, Tomohito; Saito, Yuko; Yoshioka, Toshiaki. 2022. Bench-scale PVC swelling and rod milling of waste wire harnesses for recovery of Cu, PVC, and plasticizers. Journal of Material Cycles and Waste Management, 24, p.12-23. DOI: 10.1007/s10163-021-01312-6、 林浩志; 高橋憲史; 吉岡敏明; 熊谷将吾; 亀田知人. 2017. 被覆電線の分離方法. 特許第6832539号、 高橋憲史; 林浩志; 吉岡敏明; 熊谷将吾. 2019. 被覆電線の分離方法. 特許第7431412号

## 1. 2. 研究目的

本研究開発は、図2に示す産学コンソーシアムにより、パイロットスケール湿式剥離装置を設計し、銅線及び塩ビ被覆材のリサイクル技術基盤構築およびリサイクル見通しを策定し、最終的に安全・環境・経済の多角的評価に基づきプロセスデザインを行うことを目的とする。

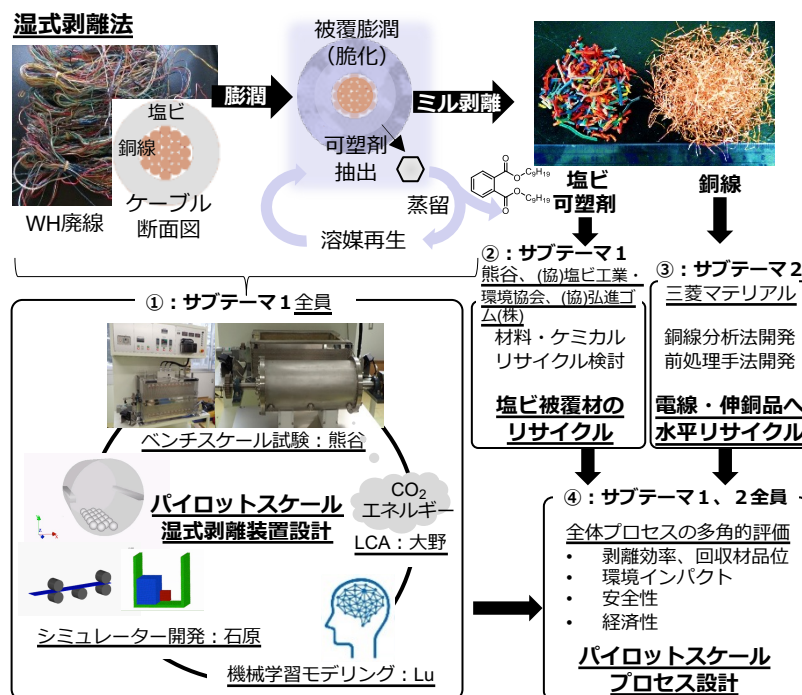


図2 本研究開発全体像のイメージ（研究概要①～④に対応）

また、対応する重点課題および行政ニーズに対する本研究開発の果たす目的は以下の通りである。

重点課題⑪「ライフサイクル全体での徹底的な資源循環に関する研究・技術開発」および行政ニーズ3-6「アスファルトやコンクリート等の建設資材やガラス・アルミ等のプラスチック以外の素材の水平リサイクル実現に向けたリサイクルの質向上に関する研究開発」への対応

本研究開発により、有効利用されてこなかった塩ビ被覆材のリサイクル、かつ回収銅線を製錬よりも下流

のプロセスでリサイクルすることを志向し、両材料の徹底的な資源循環の可能性を見出すことを目的とする。WHを構成する素材（銅・塩ビ）は、原料のほとんどが海外の天然資源由来であり、資源採掘、輸送を含め、製品製造に要するエネルギーは莫大である。国内に滞留する使用済みWHからこれらの素材を再資源化する本研究の果たす役割は大きい。

#### 重点課題⑫「社会構造の変化に対応した持続可能な廃棄物の適正処理の確保に関する研究・技術開発」への対応

塩ビ被覆材中に含有されるフタル酸エステル類（改正RoHS指令対象物質）は、塩ビ被覆材の資源循環の阻害要因となる可能性がある。本技術では、膨潤工程においてこれら可塑剤の抽出量のある程度制御可能であることから、社会動向や塩ビ被覆材のリサイクル性に応じたプロセスを柔軟に設計可能であり、その可能性について検討することも目的とする。

### 1. 3. 研究目標

#### <全体の研究目標>

研究課題名	ワイヤーハーネス廃線の塩ビ被覆材及び銅線の高度湿式剥離及びリサイクルの社会実装に向けたパイロットスケールプロセス設計
全体目標	<p>使用済みWHの回収～湿式剥離処理～回収銅線及び回収塩ビ被覆材のリサイクル、に至るパイロットスケールプロセス全体を、環境インパクト、安全性、及び経済性の観点から多角的に評価し、最適なWH回収量、パイロットスケールリアクター設計、最適剥離条件、回収銅線及び回収塩ビ被覆材に適するリサイクル手法、を提示する。</p> <p>本研究の2028～2030年社会実装に向けた位置付けは、2025年からのパイロット実証試験開始に向けて、パイロットスケールのプロセス設計を行うものである。</p>

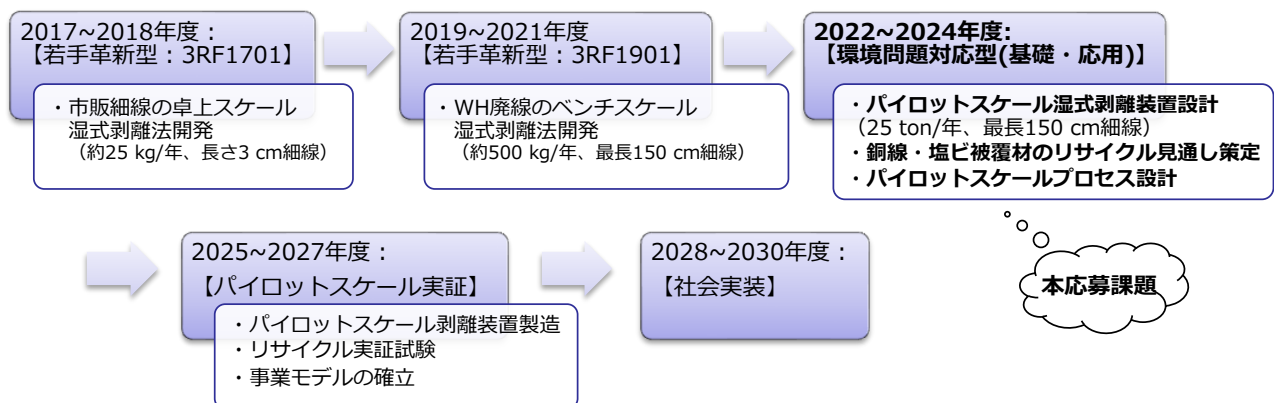


図3 社会実装に向けた本研究開発の位置付け



## &lt;サブテーマ1の研究目標&gt;

サブテーマ1名	パイロットスケール湿式剥離装置設計及び塩ビ被覆材リサイクルの見通し策定
サブテーマ1実施機関	東北大学、塩ビ工業・環境協会（協力協会）、弘進ゴム（協力企業）
サブテーマ1目標	<p>● パイロットスケール湿式剥離装置設計（熊谷、石原、大野、Lu）  既存ベンチスケールリアクター<sup>*1</sup>と同等以上の剥離性能<sup>*2</sup>を有し、かつ現在の処理量の約50倍（WH処理量：25トン/年）に相当するパイロットスケールリアクターを設計する（本処理能力は、現行稼働している小型ナゲット処理装置の約1/10の処理量に相当）。</p> <p><sup>*1</sup>既存ベンチスケールリアクター寸法及び処理能力：  内径26 cm、長さ60 cm、WH処理量：約500 kg/年  <sup>*2</sup>既存ベンチスケールリアクターの剥離性能：  1時間以内に、長さ数十cm以上のWH廃線を完全剥離</p> <p><u>装置設計達成に必要な個別目標：</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>✓ 湿式ミルシミュレーター開発及びLCA用実測データをBS試験により取得（剥離条件、剥離結果、剥離に要する衝突エネルギー、ボール・ロッド・ケーブルモーション、ミル消費電力）</li> <li>✓ ボール・ロッド挙動、衝突エネルギー・剥離率の関係、ケーブル挙動、を再現可能とする湿式ミルシミュレーター開発</li> <li>✓ BS試験結果に基づく湿式剥離プロセスのインベントリデータ作成、湿式剥離プロセスのLCA、LCAによる既存WH廃線処理プロセスとの比較</li> </ul> <p>● 塩ビ被覆材リサイクルの見通し策定（熊谷、塩ビ工業・環境協会、弘進ゴム）</p> <p><u>材料リサイクル</u>（熊谷、塩ビ工業・環境協会、弘進ゴム）  本技術により回収した塩ビ被覆材の、材料リサイクル原料としての材料価値を明らかにする。</p> <p><u>材料価値を示すための個別目標：</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>✓ 各剥離条件における回収塩ビ被覆材の化学性状（塩ビ量、添加剤組成・量、混入金属量）の解明</li> <li>✓ 回収塩ビ被覆材のオープンロール混錬試験による分散性の解明</li> </ul> <p><u>ケミカルリサイクル</u>（熊谷、塩ビ工業・環境協会）  本技術により回収した塩ビ被覆材の、ケミカルリサイクル原料としての材料価値を明らかにする。</p> <p><u>材料価値を示すための個別目標：</u></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>✓ 乾式または湿式脱塩素処理により90%以上の脱塩素率達成。</li> <li>✓ 複数脱塩素条件からなる脱塩素処理済被覆材を調製、その熱分解試験を実施し熱分解生成物組成を解明する。</li> </ul>

## &lt;サブテーマ2の研究目標&gt;

サブテーマ2名	回収銅線評価法及び前処理法の開発による銅線リサイクルの見通し策定
サブテーマ2実施機関	三菱マテリアル
サブテーマ2目標	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 本技術により回収した銅線の品位を評価する分析手法を確立する。 分析手法確立のための個別目標： <ul style="list-style-type: none"> <li>✓ 本技術で回収する銅線の酸溶解処理およびICP-OES分析法の確立</li> <li>✓ 回収銅線の付着有機物を評価するためのガス分析法の確立</li> </ul> </li> <li>● 電気銅相当品への水平リサイクル率を最大化するための前処理法を確立する。 前処理法確立のための個別目標： <ul style="list-style-type: none"> <li>✓ 回収銅線に混入する異種金属前処理法の確立</li> <li>✓ 溶融歩留まりを最大化する回収銅線の塊状化条件の確立</li> </ul> </li> <li>● 回収後WHからの銅線リサイクルに対する経済合理性評価</li> </ul>

## 1. 4. 研究内容・研究結果

## 1. 4. 1. 研究内容

本研究はサブテーマ1（東北大）とサブテーマ2（三菱マテリアル）からなる、コンパクトかつ高効率な研究体制を構築し、図4に示す研究開発連携図に従い研究開発を実施した。

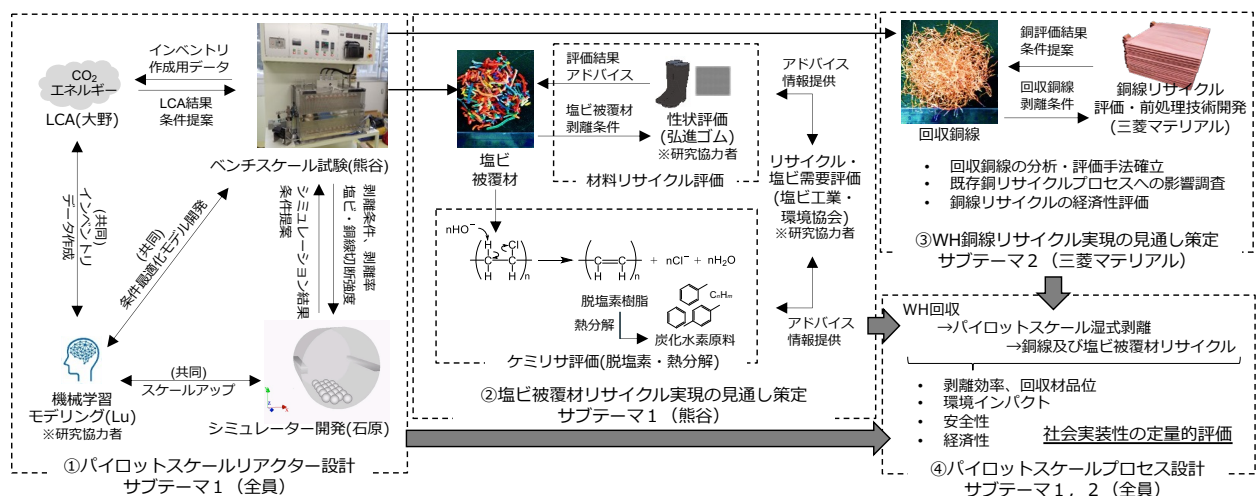


図4 研究開発全体像および研究開発連携図

サブテーマ1は、パイロットスケール湿式剥離装置を設計するため、湿式剥離試験－専用シミュレーター開発－LCA、を有機的に連動させることで、高精度かつ高効率に塩ビ被覆材と銅線を剥離するパイロットスケールリアクターのスマート設計を行った。また、研究協力者の弘進ゴム(株)と連携して回収した塩ビ被覆材の混練・シート成型評価並びに研究協力者である塩ビ工業・環境協会（VEC）との連携を通じて、回収被覆材の材料リサイクル原料としての材料価値を評価した。材料リサイクル評価と並行して、回収した塩ビ被覆材の脱塩素試験及び熱分解試験を実施し、ケミカルリサイクル原料としての評価も実施した。更に、Shanghai University of Engineering ScienceのLu先生との国際共同研究を通じて、多次元変数を有する複雑なケーブル剥離挙動の予測を可能とする非同期並列実行型リカレントニューラルネットワーク（RNN）の開発を実施した。

サブテーマ2は、WH廃線から回収した銅線の電気銅相当品への水平リサイクル実現に向け、BS試験から

得られる回収後銅線の分析・評価手法の確立、回収後銅線品位が既存の銅リサイクルプロセスに及ぼす影響調査、本技術を用いた使用済みWHからの銅線リサイクルの経済性評価、を実施した。

最終的に、サブテーマ1およびサブテーマ2共同で、使用済みWHの回収～湿式剥離処理～回収銅線及び回収塩ビ被覆材のリサイクル、に至るパイロットスケールプロセス全体を、環境インパクト、安全性、及び経済性の観点から多角的に評価し、最適なWH回収量、パイロットスケールリアクター設計、最適剥離条件、回収銅線及び回収塩ビ被覆材に適するリサイクル手法、を提示した。

上記の検討内容は、図5に示す個別検討項目および研究計画に基づき実施された。図5には併せて当初研究スケジュールに対する実施実績も示した。R5①、③、⑤、⑥、⑧に関しては、当初研究計画よりも前倒しで検討を開始することができ、R5⑧においては、当初研究計画以上に前処理法の検討内容を強化・充実させた（詳細は1. 4. 2 研究結果及び考察、R5⑧の成果参照）ため、研究期間を拡張した。

●→ : 当初計画通り実施、●---→ : 当初計画からの変更期間

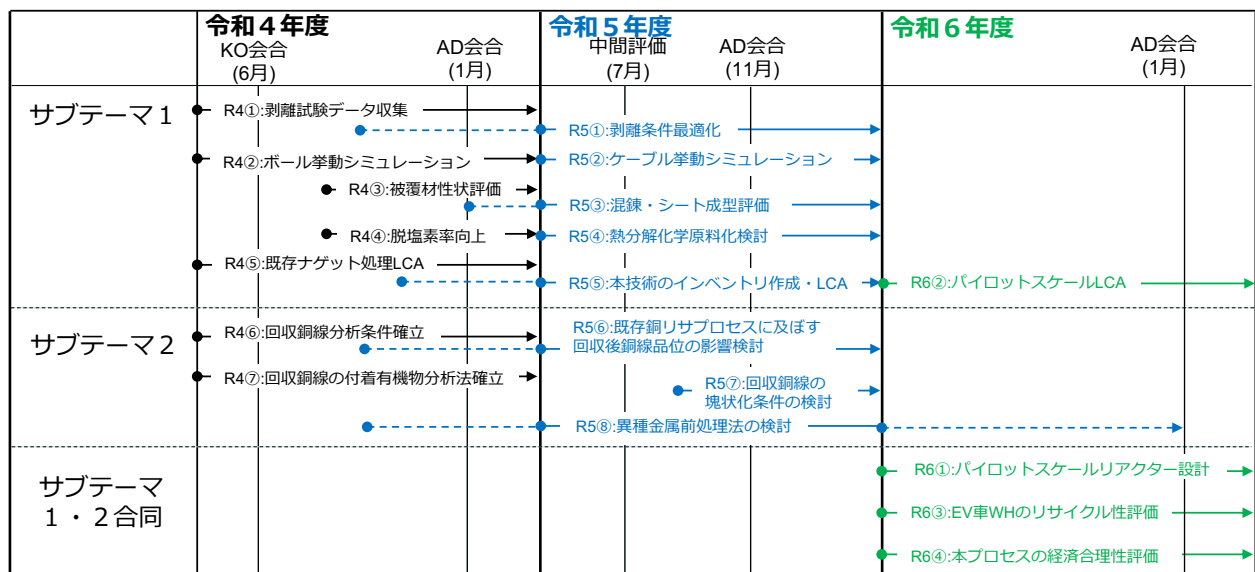


図5 研究計画線図および実施実績

#### 1. 4. 2. 研究結果及び考察

全体としては、使用済みWHから本湿式剥離処理技術に供給する細線回収前処理法（特許出願、成果1）、湿式剥離試験－専用シミュレーター開発－LCAを連動されたパイロットスケールボールミル設計（成果17）、および回収した塩ビ被覆材および銅線のリサイクル見通し策定、に至る一連の検討を完遂することで、研究全体の達成目標である、社会実装を念頭に置いたパイロットスケールプロセスの提案に至った。更に、研究開発フェーズから実用化済の電線リサイクル技術を総合的にreviewし、本湿式剥離技術開発の有効性を主張した論文をWaste Management誌に発表した（成果5）。

サブテーマ1では、ベンチスケール湿式剥離試験－専用シミュレーター開発－LCAを連動させることでパイロットスケールリアクターのスマート設計を行なった。ベンチスケール湿式剥離検討を通じて、塩ビ被覆材及び銅線ともに破断することなく高精度に剥離可能な条件を見出し（成果2、3、6－10、12－16）、得られた剥離試験結果をベースとしてDiscrete Element Method (DEM) を用いた専用シミュレーターを開発した。本シミュレーターによるアップスケール解析を実施し、研究開発目標である25トン/年のWH細線処理を余裕を持って可能とするパイロットスケールリアクター（内径：1,000 mm、長さ：2,300 mm、反応器容積：約1,800 L、処理能力：28.3 kg/h）の設計に成功した。さらに、目標以上であるその1.8倍の処理能力を誇るスケールアップ解析にも至った。更に、Shanghai University of Engineering ScienceのJiaqi Lu氏との国際共同研究を通じて、多次元変数を有する複雑なケーブル剥離挙動の予測を可能とする非同期並列実行型リカレントニューラルネットワーク（RNN）の開発にも成功した（成果4）。また、本湿式剥離法により回収された塩ビ被覆材の混錬・シート成型検討を通じて、2 wt%配合した土木シートがJIS規格物性をクリアすることを確認し、分散性には課題を残しつつも材料リサイクル原料としての有望性が示された。また、水酸化ナトリウム（NaOH）/エチレングリコール（EG）溶液を用いた湿式脱塩素処理により、剥離前被覆材の脱塩素率最大88%、剥離後被覆材の脱塩素率最大58%を達成し、かつ脱塩素工

程では可塑剤であるジイソノニルフタレート（DINP）がアルカリ分解されることも確認された。脱塩素処理後の塩ビ被覆材は、熱分解により芳香族化合物を主とする化学原料に転換されることも明らかとなった（成果11）。LCAでは、物質収支、ボールミルの消費エネルギー、溶媒消費・リサイクルデータ等の実測データから本湿式剥離法のインベントリを作成した。LCAの結果、塩ビ被覆材の大部分を埋立処分する既存ナゲット処理による温室効果ガス（GHG）排出の削減効果は $-0.58 \text{ kg-CO}_2/\text{kg-cable}$ に留まった一方、湿式剥離法による塩ビ被覆材の材料リサイクルと黄銅伸銅用電気銅の直接代替により、GHG排出の削減効果は $-1.25 \text{ kg-CO}_2/\text{kg-cable}$ となり、圧倒的な環境優位性を示した。更に、Break-even解析により、銅線のみを回収して塩ビ被覆材の大部分を埋立処分する既存手法と本湿式剥離法を比較すると、本手法において銅回収率50%以上・塩ビ被覆材の材料リサイクル率30%以上を達成すれば、既存処理を上回る環境優位性を維持できることが明らかとなった。

サブテーマ2では、湿式剥離技術を適用したWHリサイクルのプロセス設計において、銅線リサイクルの観点からの種々の評価を実施し、本技術での銅線リサイクル価値を最大化するための前処理法を開発することで、全体プロセスを最適化し、銅線リサイクルの見通しを策定した。具体的には、銅線の分析評価手法を確立し、プロセス評価を進めるための基盤を整備した。また、部材としてのWHのリサイクル性を評価し、銅線品質に影響を与える異種金属混入源の特定と、回収銅品位を最大化するための前処理法の指針を提示した。これを踏まえて、WHから剥離処理に適した状態の被覆電線を効率的に取り出すと同時に、銅品位を低下させる異種金属源である一部の特殊電線や端子を除去する破碎・選別手法を検討した。サブテーマ1と連携し、前処理～剥離処理～銅線回収を一貫したプロセスで試験し、歩留まりや回収銅線の品質を確認した。これらの結果を既存技術との比較も交えて評価し、本技術の優位性や課題を抽出した。提示したプロセスでは、剥離処理にかける被覆電線をふり分けして選別することで、一部の銅線は3N～4Nの高品位銅として回収でき、既存の銅製造プロセスにおいて伸銅品原料として直接利用できる可能性が示された。経済合理性評価においては、既存のナゲット処理とプロセスコストを比較し、開発技術の優位性を確保するためには、プロセス全体での歩留まりを向上し、高品位な銅を得られるメリットを最大化する必要があることを確認した。

一方で、社会情勢に大きく影響を受ける銅スクラップ市場における現状の素材価格で評価すると、処理技術によらず、原料仕入れ価格と回収材の売却価格の差は非常に小さいことが明らかとなった。よって、国内資源循環を促進するためには、WHリサイクル事業の経済合理性を担保するための仕組みづくりが重要であることを認識した。本研究開発全体を通じて、経済的な課題を認識しつつ、本技術の社会実装により既存技術では難しい塩ビ被覆材のリサイクルおよびWHからの高度な銅リサイクル実現の可能性が示され、大きな環境貢献が期待される見通しを得た。

各サブテーマの具体的な研究成果を以下にまとめる。

## サブテーマ1

### ● パイロットスケール湿式剥離装置設計

#### 湿式剥離試験（成果2、3、6、7、8-10、12-16）

#### 研究計画（R4①）ベンチスケール湿式剥離試験：シミュレーター開発、LCA、及び安全性・経済性評価用実測データの取得、銅線及び塩ビ被覆材の回収

シミュレーターにてボール挙動を再現するため、まずは図6に示すラボスケールミル（内径 $\phi 160 \text{ mm}$ 、長さ $160 \text{ mm}$ ）を用いてボールミル内部のボール挙動を動画撮影した（詳細は「（R4②）シミュレーター開発」にて解説）。

続いて、ステンレス球のサイズ（重量）および回転速度をパラメータとして、ノルマル酢酸ブチルにより膨潤させた長さ $20 \text{ cm}$ の細線の剥離試験を実施し、剥離率および回収銅線の長さに及ぼすそれらの影響を系統的に検討した。シミュレーター開発用に多数の剥離条件を検討する必要があることから、試験効率性を考慮し、ラボスケールミルによるデータ収集を行った。剥離試験に供した細線およびボールミルの様子は図6に示す通りである。剥離試験に供した細線は長さ $20 \text{ cm}$ にカットした細線 $13 \text{ g}$ であり、室温のノルマル酢酸ブチルに $80 \text{ min}$ 浸漬することで膨潤させた（図7）。ステンレス球として、s1: $\phi 9.5 \text{ mm}$ （ $3.6 \text{ g/球}$ ）、s2: $\phi 12.7 \text{ mm}$ （ $8.5 \text{ g/球}$ ）、s3: $\phi 15.9 \text{ mm}$ （ $16.6 \text{ g/球}$ ）、およびs4: $\phi 20.0 \text{ mm}$ （ $33.1 \text{ g/球}$ ）の4種類を選択し、ボールミルの回転速度を10、20、および $35 \text{ rpm}$ に設定した。ステンレス球の仕込み重量は $330 \text{ g}$ に統一



した。剥離試験における剥離率  $Y_{sep}$  の定義は式(1)に示す通りである。

$$Y_{sep} = \frac{w_{sep}}{w_I} \times 100\% \quad (1)$$

$Y_{sep}$ : 被覆材剥離率[%],  $w_{sep}$ : 剥離した被覆材+銅線重量[g],  $w_I$ : 全被覆材+銅線重量[g]

内径：160 mm、長さ：160 mm

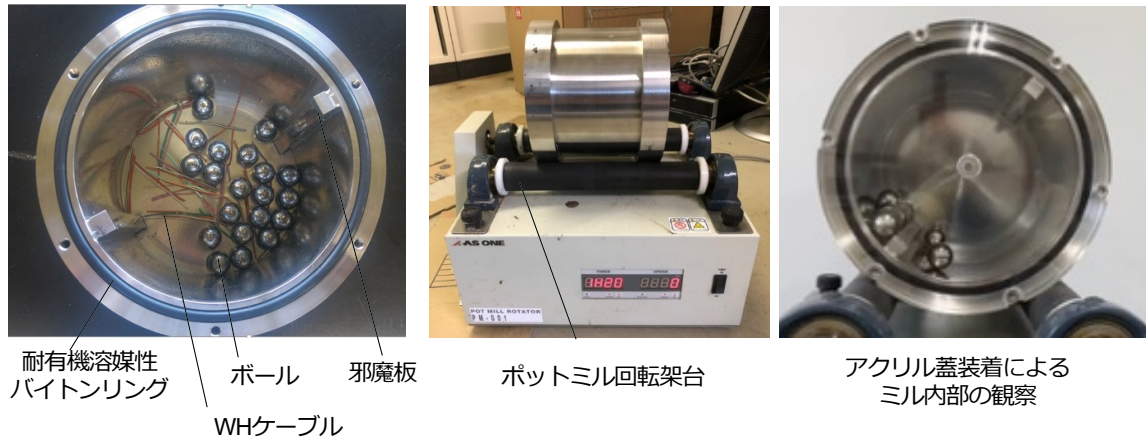


図6 ラボスケールミル内部および外観の写真

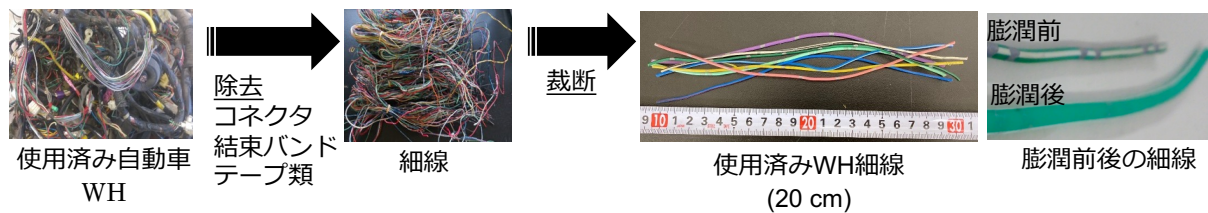


図7 剥離試験に用いたWH細線および酢酸ブチルによる膨潤前後の写真

90 minの剥離処理によって得られた剥離率と回転速度の関係を図8に示す。s2球を用いてミル回転速度を35 rpmに設定することで100%の剥離率を示した。一方、大きいサイズのs3およびs4球を用いた場合剥離率は低下した。これは球サイズが大きくなったことで、細線とステンレス球の接触効率が低下したためと考えられる。剥離成績の良かったs1およびs2球を用いて、剥離率に及ぼす剥離時間の影響を検討した（図9）。s1およびs2球を用いた場合、剥離率は回転速度の影響を大きく受けることが確認され、回転速度は主に剥離速度に直接関係していることが確認された。

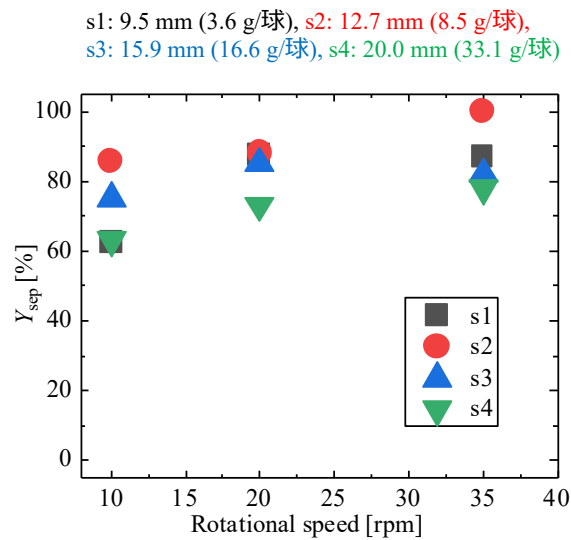


図8 種々のステンレス球を用いた剥離率に及ぼす回転速度の影響

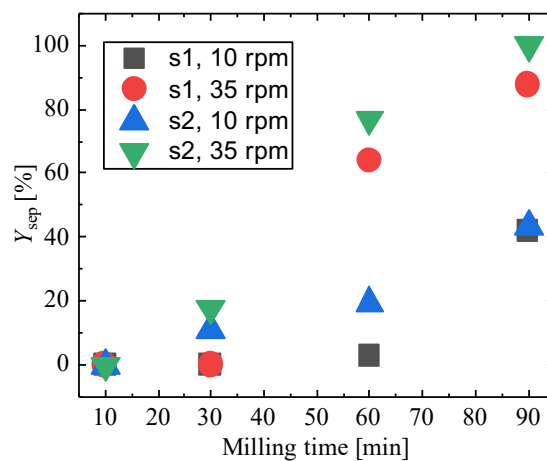


図9 s1およびs2球を用いた剥離率に及ぼす剥離時間の影響

各剥離条件において回収した塩ビ被覆材、銅線、および未剥離電線の写真を図10に示す。写真の左上に剥離された塩ビ被覆材、右に未剥離または部分的に剥離した電線、下または左下に剥離された銅線をいずれも配置した。写真からも確認できる通り、ステンレス球のサイズおよびミル回転速度が大きくなればなるほど剥離した塩ビ被覆材や銅線が細かく破断されることが明らかとなった。一方、s1およびs2のステンレス球を用いてミル回転速度を20~35 rpmに設定することで、塩ビ被覆材および銅線が破断されずに回収できることが明らかとなった。

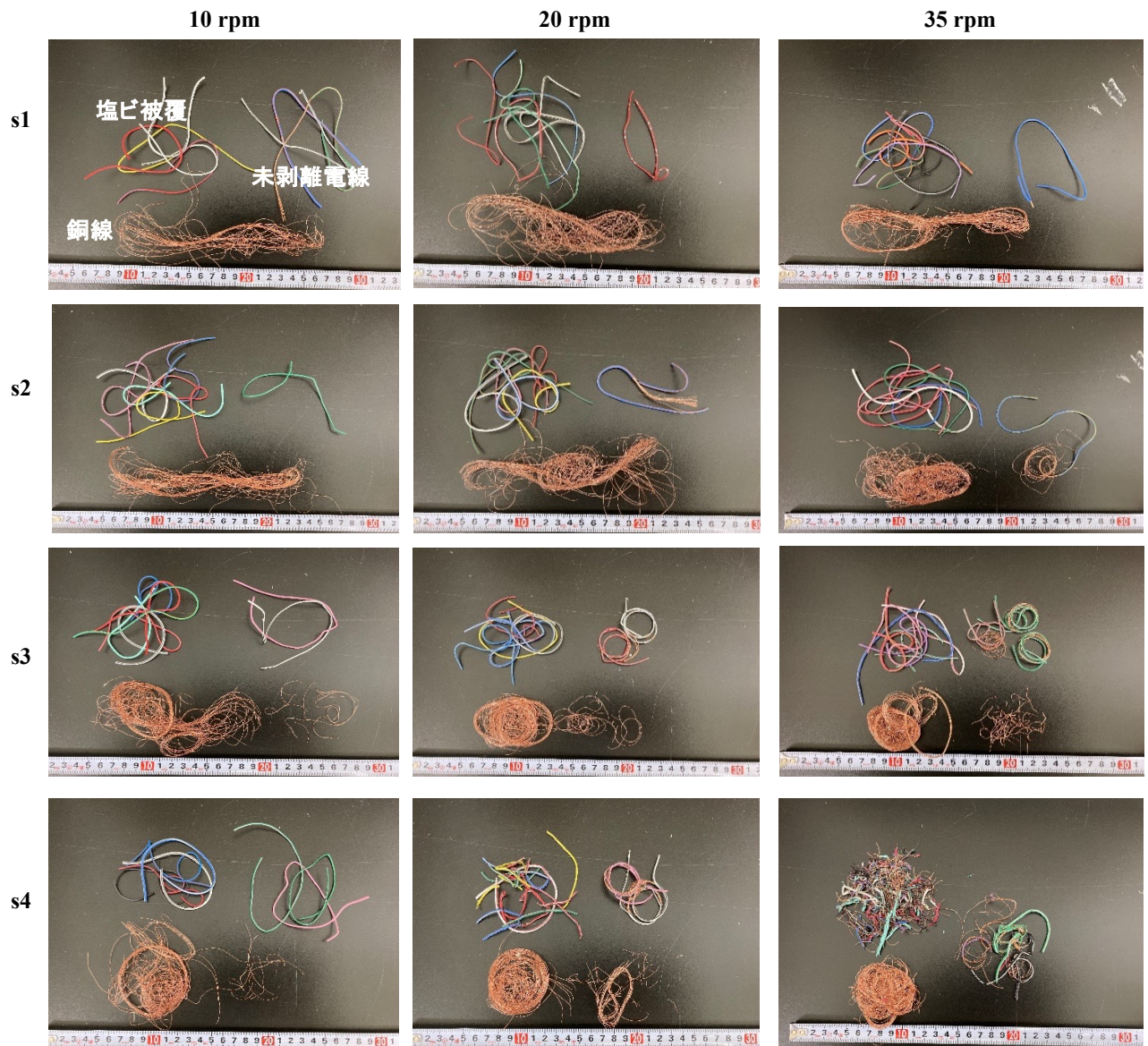


図10 各ステンレス球およびミル回転速度で回収した塩ビ被覆材、銅線、および未剥離電線の写真

回収された塩ビ被覆材の平均長さおよび回収銅線の長さ分布を図11に示す。ミル回転速度を10 rpmに設定した場合、いずれのステンレス球を用いた場合も被覆材が破断することなく回収された。一方、ミル回転速度およびステンレス球が大きくなることで、塩ビ被覆材が破断された。s3やs4球を用いて、かつミルの回転速度を大きくした場合、銅線が細かく破断されることが確認された。ステンレス球が大きくなりかつミルの回転速度が大きくなることで、銅線に加わる衝撃力が増加し、その結果銅線が破断されたと考えられる。一方、s1やs2球を用いた場合には、ほぼ全量の銅線が破断されることなく回収できることが明らかとなった。塩ビ被覆材および銅線が細かく破砕されずに剥離できることで、双方を高純度回収できるため有意義な結果と言える。なお、これまで実施してきた若手枠[課題番号3RF1701および課題番号3RF1901]においては、銅線および塩ビ被覆材の破断を防ぐことが出来なかったため、本研究で今回得られた結果は大きな進歩であると考えている。



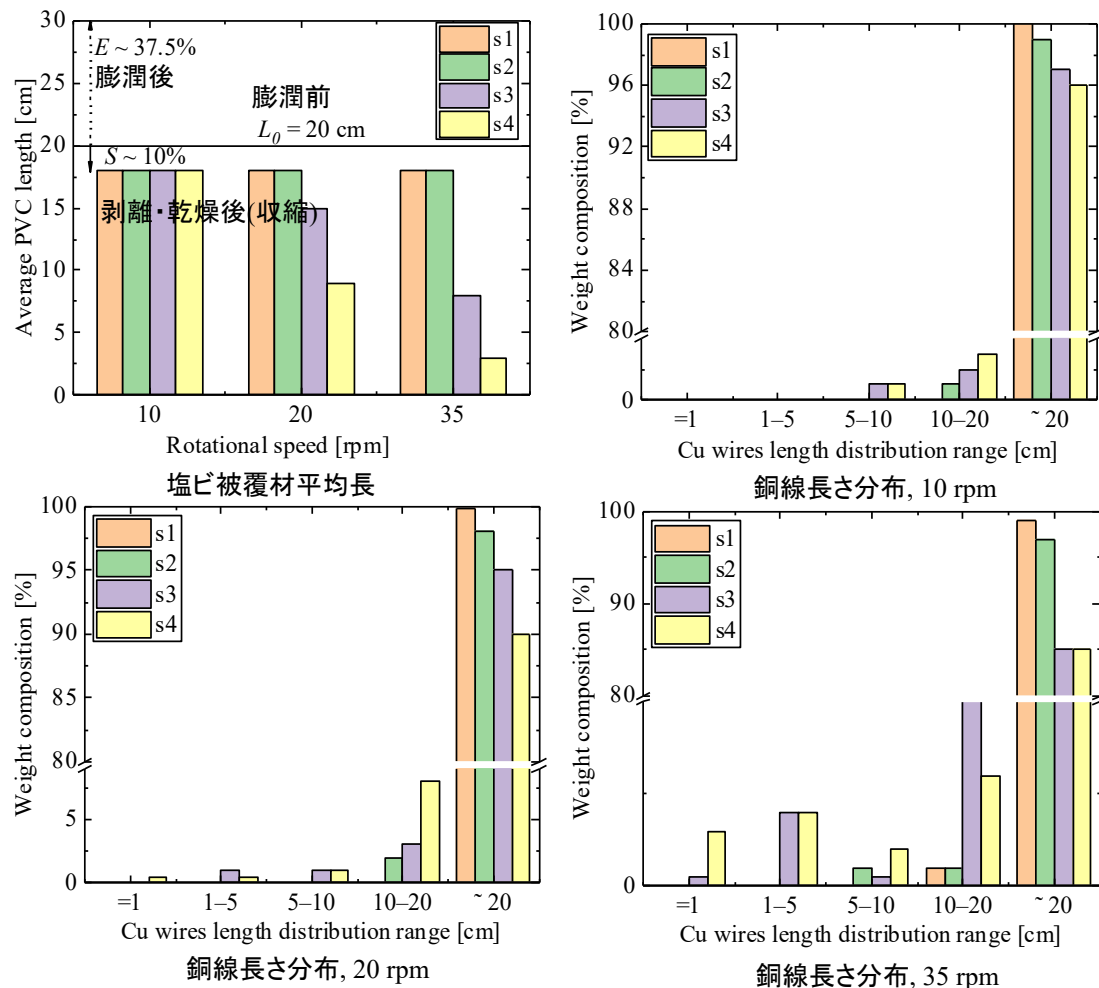


図11 回収塩ビ被覆材の平均長さおよび回収銅線の長さ分布

ここで得られた剥離条件および剥離試験結果は、シミュレーター開発における衝撃エネルギーを推算するための結果として活用した（詳細は「(R5②) シミュレーター開発」にて解説）。

また、LCAにより本技術进行评估するために必要な種々の実測データを取得した。まず、溶媒の繰り返し使用による使用済みWHから回収した電線の膨潤試験を実施し、本技術の膨潤工程における溶媒消費量および可塑剤であるジソノニルフタレート（DINP）の抽出量を検討した。その結果、細線1 g（銅重量含む）の膨潤に消費されるn-酢酸ブチル量は0.77 mL/g-cableであることが明らかとなった。つまり、細線1 gあたりに0.77 mLのn-酢酸ブチルが随伴して剥離試験に供されることとなる。被覆材に取り込まれたn-酢酸ブチルは、60 °Cで4 h乾燥することで全量を回収できることも実験的に確認した。更に、上記の繰り返し膨潤工程において得られた膨潤電線の剥離試験を実施したところ、繰り返し回数4回目以降、剥離率が徐々に低下することが確認された。この時、n-酢酸ブチルに蓄積したDINPの濃度は17 mg/mLであり、この濃度を閾値として剥離率が減少した。なお、DINPの蓄積により膨潤性能が低下した溶媒は、蒸留処理によってDINPを分離回収することで再び膨潤性能がバージンのn-酢酸ブチルと同等に回復することも確認している。よって、蒸留による溶媒リサイクルならびにDINPの分離回収が可能であることを明らかにした。さらに、剥離試験における消費電力を明らかにするため、ベンチスケールリアクターを用いて種々の試料・ステンレス球仕込量および回転速度における消費電力を測定した。これらの結果をLCAの評価用実測データとして供した（詳細は「(R5⑤) LCA」にて解説）。

#### **(R5①) ベンチスケール剥離試験：銅線のリサイクル及び塩ビ被覆材の材料またはケミカルリサイクルに適する剥離条件の探索**

検討項目R4①において得られた湿式剥離条件をベースとして、ベンチスケールミルにおいても塩ビ被覆材および銅線の破断を防ぎながら剥離が可能か検証した。ベンチスケールリアクターの写真および装置仕様

を図12に示す。小型ミル試験において塩ビ被覆材および銅線の破断を防ぎながら剥離することに成功したs1球を用いて、小型ミル試験時の仕込量の約25～40倍に相当する320 gおよび500 gの細線の剥離試験を実施した。試験結果のうち、細線仕込量500 gとして試料長さを2～5 cm、5 cm、および10 cmとした際の剥離試験結果（剥離時間60 min、回転速度26 rpm）のまとめを図13に示す。細線長さが5 cm以下の時は60 min以内に剥離率が100%に達した一方、10 cmの時は剥離率が86%に留まった。また、剥離された銅線同士がボールミル中に塊状になることも明らかになり、仕込細線長さが長ければ長いほど塊状状態を形成しやすいことが明らかとなった。いずれの剥離試験条件においても塩ビ被覆材および銅線の破断を防ぐことが可能であったことから、得られた塩ビ被覆材には銅粉末が混入せず、材料リサイクル材としての検討およびケミカルリサイクル材としての検討に適する状態であることが確認された。一方、銅線が塊状となることは、剥離試験後の銅を分離回収する観点ではメリットとなる一方、これらの剥離試験からは確認されなかったが、ボールミル中に剥離した塩ビ被覆材が塊状銅線に巻き込まれる懸念も示唆された。回収した塊状銅線およびバラ銅線はサブテーマ2における銅線分析用試料に供した。



図12 ベンチスケールミル外観および内観写真、および装置仕様

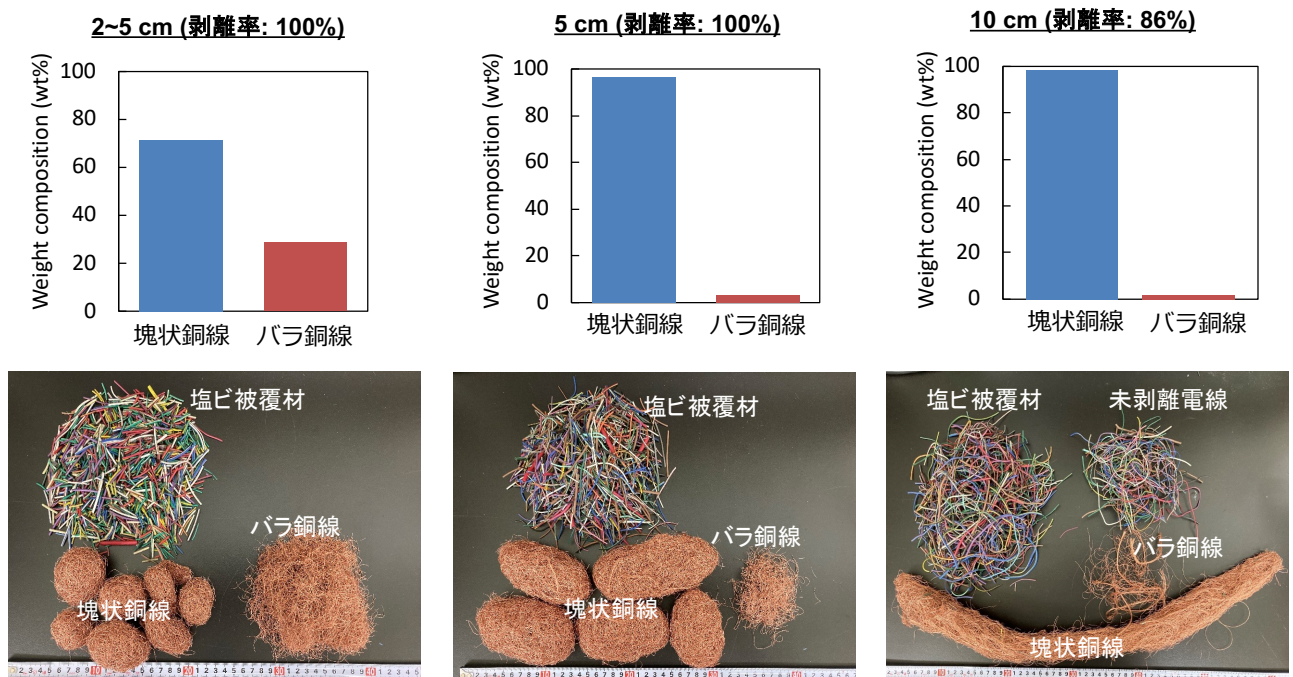


図13 ベンチスケール試験により得られた回収塩ビ被覆材および銅線の写真、銅線の塊状化率

サブテーマ2において、使用済みWHを二軸破碎機およびハンマークラッシャーを用いた破碎後、更にふるいおよび風力選別にかけることで、WHから電線を選択的に回収する前処理方法を検討した（詳細な検討結果は「(R5⑧) 回収銅線に混入する異種金属前処理法の検討」を参照）。本前処理検討において採用した破碎方法およびふるい目の大きさを表1、得られた電線試料①～③の写真を図14に示す。最もふるい目開き



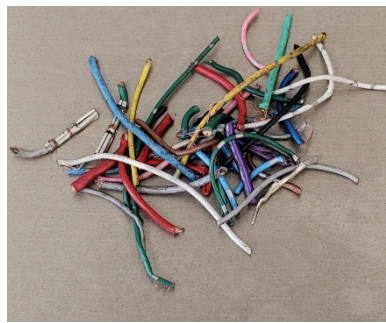
が小さい1.00~2.36 mmの試料①においては、選択的に電線が回収できていることを確認した。一方、ふるい目開きが2.36~4.00 mmの電線試料には、末端に金具がついた電線も確認された。最もふるい目開きが大きい4.00~6.70 mmの試料には電線の他、末端に金具がついた電線、塩ビテープが残った電線、コネクタやコルゲートの破砕物等、が混入していることが確認された。いずれの電線試料も5 cm未満程度に裁断されており、湿式剥離試験に供するには適切な長さであることを確認した。

表1 湿式剥離試験用試料の試料番号および前処理条件の一覧

試料No.	破碎方法	ふるい目開き
①	二軸破碎×2+ハンマークラッシュ×1	1.00mm~2.36mm
②	二軸破碎×2+ハンマークラッシュ×1	2.36mm~4.00mm
③	二軸破碎×2+ハンマークラッシュ×1	4.00mm~6.70mm
④	二軸破碎×3+ハンマークラッシュ×1	4.00mm~6.70mm



試料①



試料②



試料③

図14 前処理条件の異なる試料①~③の写真

試料①および試料②をラボスケールミルにより剥離（試料量 13 g、n-酢酸ブチルによる膨潤時間80 min、s2ステンレス球、ミル回転速度 35 rpm、ミル処理時間60 min）した結果、剥離率はそれぞれ91%および72%となることが確認された。試料①および試料②の剥離試験後の試料写真をそれぞれ図15および図16に示す。電線を選択的に回収できた試料①では高い剥離率となることが確認されたが、破碎処理時に大きく変形した電線が剥離されずに残ることが確認された。また、粒度の大きい試料②においては、試料①でも未剥離であった大きく変形した電線の加え、末端に金具が付いている電線も剥離されないことが確認された。本湿式剥離技術は、塩ビ被覆材を膨潤させることで被覆材と銅線の間に隙間を形成し、ボールミルによって衝撃を与えることによって、銅線を被覆材から滑りだすことによって高度な剥離を可能としている。大きく変形した電線からは銅線がスムーズに滑り出す、また金具が末端に残っている電線は銅線が金具によって固定されるために銅線を滑り出すことが出来なかった。



塩ビ被覆材



銅線



未剥離電線

図15 湿式剥離試験後の試料①の写真



図16 湿式剥離試験後の試料②の写真

続いて、ベンチスケールミルを用いて試料②の剥離試験を実施した。試料②を約460 gをn-酢酸ブチルにより80 min膨潤し、膨潤処理した電線をベンチスケールミルに仕込み、s2ステンレス球、ミル回転速度26 rpm、ミル処理時間60 minの条件においてボールミル剥離を実施した。剥離後の膨潤塩ビ被覆材は水よりも比重が小さいため水に浮き、銅線、未剥離電線、および端子等は水に沈むため、剥離試験後の試料は水を張ったバットに投入し浮沈分離を行った。浮沈分離によって回収した銅線と未剥離電線は更にふるい分け（ふるい目開き~1.00 mm）し、バラ銅線を回収した。剥離試験後および浮沈分離前後に得られた試料の写真を図17に示す。処理量を増大したベンチスケール試験により、様々な課題が確認された。手作業により回収した5 cm電線のベンチスケール剥離試験においては、塊状銅線に剥離後の塩ビ被覆材が巻き込まれることは無かったが（図13）、本前処理によって回収した電線は被覆材形状が変形していることから、塊状銅線に剥離後の塩ビ被覆材や未剥離電線が一部巻き込まれることを確認した。更に、大きく変形した電線や末端に金具が残った電線は剥離されず、浮沈分離によってバラ銅線とともに沈降した。そこからふるい分けによってバラ銅線と未剥離電線や端子等を分離したが、一部の銅線がそれらに付随して分離されロスとなることが確認された。

WH電線を取り出すための前処理手法の検討は当初計画には含んでいなかったが、本検討を実施したことにより、本技術の社会実装に向けた前処理技術開発の重要性が明らかとなった。使用済みWHから本湿式剥離技術に適する電線を使用済みWHから回収する際には、電線を破砕するときに電線をできるだけ変形させずに回収することが重要である。

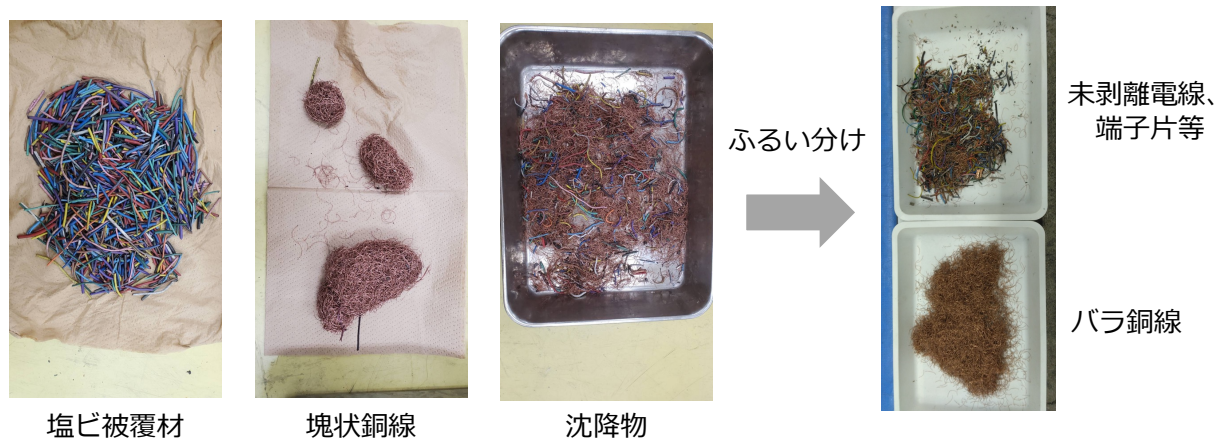


図17 試料②のベンチスケール剥離および浮沈分離後の試料写真

### シミュレーター開発（成果17）

#### （R4②）シミュレーター開発：ボール及びロッド挙動を再現、衝突エネルギーと剥離率の関係性把握

リアクター内のボール挙動を再現し、WHケーブル剥離の最適化および予測のためのシミュレーター開発を実施した。離散要素法（Discrete Element Method: DEM）を用いて、小型ミル試験機で観察されたボール挙動のシミュレーションでの再現のための検討を行った。ボール径12.7、15.9、及び20.0 mmのボールを用い、回転速度を10、30、及び50 rpmとして観察実験を実施した。ビデオ撮影されたボール挙動にParticle Tracking Velocimetry（PTV）を適用してボール挙動を評価した。シミュレーションでは、ボール挙動に大きな影響を及ぼすことが知られている摩擦係数および反発係数を変化させ、実験結果を再現するパラメータ



の探索を行った。図18(a)に観察動画にPTVを適用しボール挙動の軌跡を追跡した結果の一例と、再現シミュレーションのスナップショットを示す。また、図18(b)に実験とシミュレーションで得られたボールのX方向（水平方向）座標の時間変化を示す。リアクター内壁に取り付けられたリフターによって持ち上げられたボールが落下し、円筒形状の内壁を揺動した後に再度リフターで持ち上げられる挙動が繰り返されていることがわかる。シミュレーションでは、摩擦係数は揺動時の移動距離に、反発係数は落下時の跳ね返り距離に大きく影響することがわかり、実験を再現するパラメータを探索し、摩擦係数0.2、反発係数0.4に決定した。決定したパラメータを用いることで、いずれのボール径、回転速度でも実験挙動を再現可能であることを確認し、シミュレーターの妥当性を確認した。

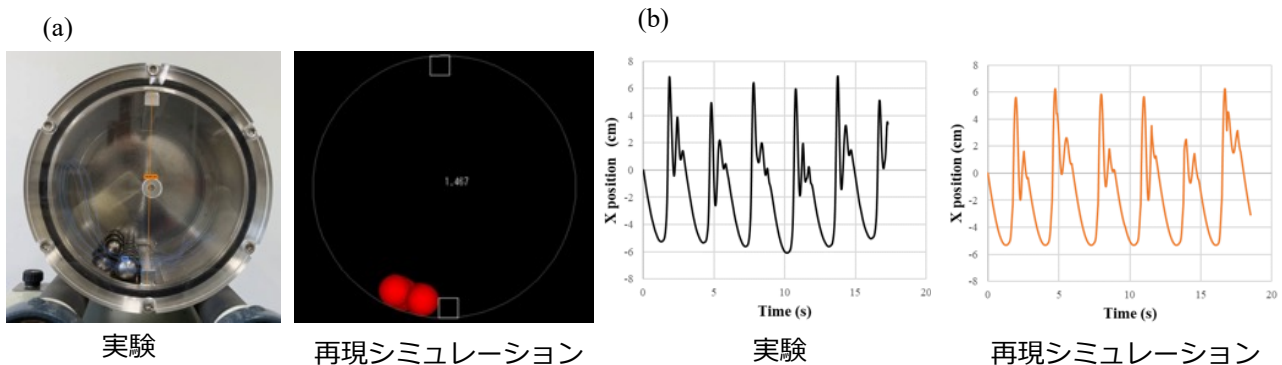


図18 (a)小型ミル試験機によるボール挙動の観察実験とシミュレーターによる再現シミュレーションの様子、(b)実験とシミュレーションにおけるボール挙動のX方向座標時間変化の比較

#### (R5②) シミュレーター開発：衝突エネルギーと剥離率の関係性把握、ケーブル挙動を表現するモデル開発

開発したシミュレーターでリアクター内ボール挙動の再現が可能であることが確認できたため、それを用いてリアクター内のボール運動によって生じる衝突エネルギーの算出を行った。衝突エネルギー $E$ は次式であらわされる。

$$E = \sum_{j=1}^n \frac{1}{2} m v^2 \quad (2)$$

ここで $n$ は衝突回数、 $m$ は被粉碎物の重量、 $t$ は時間、 $v$ はボール重量、 $v$ は衝突時の相対速度である。「R4①：湿式剥離試験」に記載の実験条件と同様の条件でシミュレーションを行い、得られた衝突エネルギーの頻度分布を検討した。計算結果から、ボール径の増加および回転速度の増加に伴い1回の衝突あたりに発生する衝突エネルギーが大きくなることがわかり、衝突頻度は、ボール径の減少および回転速度の増加に伴い増加することがわかった。R4①およびR5①における湿式剥離試験結果と衝突エネルギーの計算結果から、WHケーブルの破断や損傷をさせず、剥離のみを進行させるために適切なエネルギーレベルが存在することが明らかとなった。ここで得られた剥離の進行に適切な衝突エネルギーレベルを基準として、リアクターのスケールアップが可能であると考えられる。

リアクター内のボール挙動を再現することができたため、続いてリアクター内のケーブル挙動を再現するシミュレーションモデル開発を実施した。ケーブルは形状が非球形かつ弾塑性変形を示す複雑な挙動を示すため、通常のDEMでは挙動を再現することはできない。ここでは連続体挙動を計算するためにDEMを拡張したAdvanced Discrete Element Method (ADEM) を使い、ケーブル挙動の再現を試みた。ADEMでは球形の構成粒子の集合体で任意形状のクラスターを形成し、構成粒子同士を連結バネで接続して粒子間相互作用力を計算することで連続体の移動、変形、応力を表現することが可能である。

ボールの衝突によるケーブルの剥離および損傷を評価するため、ボール自由落下試験を行った。ケーブルを床に設置した鉄板上に静置し、260 mmの高さからボールを落下衝突させた。ボール重量は材質およびボール径を変更して重量が異なる4条件（s1～s4球）とし、ボールを25回落下衝突させた後のケーブルの状態を観察した。続いて、実験で得られた落球試験結果をシミュレーションで再現することを試みた。シミュレーションではケーブルの計算モデルを径5.0 mm（銅線径2.5 mm）、長さ40 mmとし、これを構成粒子2470個（構成粒子径0.6 mm）でクラスターを構成した。中心部に銅線粒子、周囲に塩ビ被覆粒子を配置した。なお、構成粒子の配置はランダム配置とした。このランダム配置は球形粒子を十分に広い円筒容器内に自由落下させて粒子充填構造を作成し、その一部を抽出することで得た。ADEMでは計算対象の性質に影響を及



ばすパラメータとして連結バネ定数、最大ひずみ、降伏ひずみが挙げられる。連結バネ定数はクラスター粒子の固さに相当するパラメータであり、値が大きいと固く変形しにくくなる。最大ひずみは連結バネが外力に応じて伸びた際に結合が切れる破断の閾値であり、結合が切れた粒子間では連結バネによる相互作用力は失われる。降伏ひずみは塑性変形が始まるひずみ量を表す。予備検討によりケーブル挙動を表現するパラメータの探索を行い、降伏ひずみ0.1、最大ひずみ0.3を用いることとした。降伏ひずみおよび最大ひずみの値を固定し、連結バネ定数を0.1～10 N/mの範囲で変更してボール落下試験のシミュレーションを行った。ボール落下試験では、ケーブルに対して25回ボールを落下させているが、実験で毎回同じ位置にボールを衝突させることは困難であり、衝突位置は実験操作に伴うランダム性を含んでいる。シミュレーションでは衝突位置のランダム性を表現するため、ボール径の1.2倍の範囲を衝突領域と定義し、乱数を用いて領域内で衝突させる位置を衝突毎にランダムに設定した。衝突位置のランダム性を考慮し、落下シミュレーションを1条件につき50回実施し、被覆材および銅線の双方が破断した各バネ定数における衝突回数の頻度分布を検討することで、ケーブル挙動を再現するシミュレーターの開発に成功した。

## ● 塩ビ被覆材リサイクルの見通し策定

### 塩ビ材料リサイクル

#### (R4③) 塩ビ材料リサイクル：材料リサイクル原料に求められる塩ビ性状の調査、各種剥離条件で回収した塩ビ被覆材の性状評価

材料リサイクル原料に求められる塩ビ性状の調査として、軟質塩ビ製品へのリサイクルを想定し、本手法で回収した塩ビ被覆材とバージン塩ビ樹脂のオープンロール練り試験を実施した。ロール練り条件および得られたシートの写真を図19に示す。まずは、回収した塩ビ被覆材（塩ビ被覆材中の可塑剤含有量約7%）をチューブ状（長さ10 cm）のまま破碎等の前処理をせず、バージンPVC樹脂に1～2%添加した。さらに可塑剤を60 phr添加してオープンロール練り試験（3 min）を実施した。その結果、写真に示すようにシートに塩ビ被覆材に由来する細かい粒が分散し、滑らかなシートは成型されなかった。原因としては二つ考えられ、一つ目はロール練りだけでは塩ビ被覆材がそもそも粉碎されないこと、二つ目は本剥離プロセスの工程の中で可塑剤が抽出されるため、今回の軟質配合（可塑剤 60 phr）では相溶性が悪かったこと、が考えられた。そこで、回収した塩ビ被覆材を凍結粉碎により数mmサイズまで破碎し、ロール練り試験における可塑剤量を40 phrに下げ、ロール練り時間を15 minに延長した。その結果、写真に示すように塩ビ被覆材由来の樹脂がシートに均一に分散可能であることが明らかとなった。

10 cm塩ビ被覆材を直接ロール練り

ベース配合	練条件
重合度＝1300	分離PVC添加量1～2%程度
可塑剤量＝60phr	ロール練時間＝約3min



粉碎塩ビ被覆材をロール練り

ベース配合	練条件
重合度＝1300	分離PVC添加量1～2%程度
可塑剤量＝40phr	ロール練時間＝約15min



図19 回収塩ビ被覆材を添加したオープンロール練り試験条件およびシート写真

#### (R5③) 塩ビ材料リサイクル：剥離条件と回収塩ビ性状の関係性整理

軟質塩ビ製品への配合可能性を検討するため、東北大学にて膨潤条件制御により可塑剤残存量が前項で示したオープンロール試験の約2倍となる塩ビ被覆材（塩ビ被覆材中の可塑剤含有量約14%）を調製した。本検討では、回収した塩ビ被覆材を土木シートのリサイクル材として利用することを想定して検討を実施した。具体的には、バージン塩ビ樹脂を原料とした土木シートおよび回収した塩ビ被覆材2 wt%を含む土木シートを作成し、その物性および外観評価を実施した。いずれもラボオープンロールにて試料を混練後、実機製品と同じ0.40 mm厚にシーティングした。得られた土木シートの写真を図20に示す。通常配合の土木シー

トは滑らかで凹凸のないシートであったが、塩ビ被覆材2%を含む土木シートの場合には凹凸が見られ、製品としての外観上の問題が見られた。

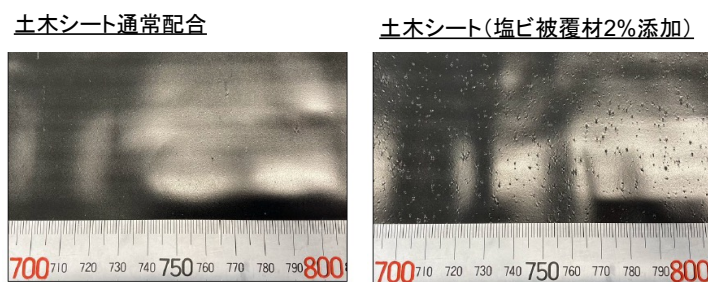


図20 通常配合土木シートおよび塩ビ被覆材2 wt%配合土木シートの外観写真

続いて、JIS K6251ダンベル3号形による引張試験およびJIS K6252切り込み無しアングル形による引裂試験を各試料のタテヨコ方向 $n=3$ で実施し、通常配合土木シートおよび塩ビ被覆材2 wt%配合の土木シートの物性を比較した。物性評価結果を表2に示す。塩ビ被覆材配合の引張強度は通常配合に比べて4~7%の強度低下が確認されたものの、製品規格である1570 N/cm<sup>2</sup>以上の物性を保持可能であることが明らかとなった。伸びは塩ビ被覆材配合により3~10%程度の低下が確認されたが、2%の被覆材配合であれば製品規格をクリアすることが確認された。引裂強度は3~5%の低下に留まり、製品規格を十分に満たすことが確認された。以上より外観上の課題は残しつつも、土木シートへの材料リサイクルをケーススタディとして、本技術により回収した塩ビ被覆材の材料リサイクル原料としての可能性を見出すことができた。

表2 通常配合土木シートおよび塩ビ被覆材2 wt%配合の物性評価結果

項目	方向	通常配合 (再生材無)	回収被覆材 2 wt%添加	製品規格
引張強度 [N/cm <sup>2</sup> ]	タテ	1961	1835	1570以上
	ヨコ	1785	1710	
伸び [%]	タテ	350	316	300以上
	ヨコ	325	316	
引裂強度 [N/cm]	タテ	588	560	440以上
	ヨコ	545	527	
外観		○	×	異常の無いこと

上記の通り、混錬試験やシート成形試験により、本技術により回収した塩ビ被覆材の材料リサイクル原料としての可能性が見出された。

### 塩ビケミカルリサイクル（成果11）

#### （R4④）塩ビケミカルリサイクル：各種剥離条件で回収した塩ビ被覆材の乾式・湿式脱塩素試験、脱塩素率を向上する反応条件の探索

湿式剥離法により回収した塩ビ被覆材に対するEG/NaOH反応系における湿式脱塩素の効果を検討した。湿式剥離法により回収した塩ビ被覆材を粉碎処理（150  $\mu$ m未満、150~250  $\mu$ m、250~500  $\mu$ m、及び500  $\mu$ m以上に分画）し、EG/NaOH（0~2 M）溶液を仕込んだ三口フラスコ内において湿式脱塩素処理した。得られた脱塩素率の結果を図21に示す。湿式剥離前の塩ビ被覆材の脱塩素率はNaOH濃度0.1 Mにおいて最大の88.3%、湿式剥離後の塩ビ被覆材の脱塩素率はNaOH濃度0.5Mにおいて最大の57.8%に達した。湿式剥離処理前の被覆材において高い脱塩素率を示した理由として、湿式剥離処理前の被覆材はDINPがPVC主鎖間に挿入されていることで可塑性を有しているため、EGおよびNaOHがPVC内部まで浸透しやすかったためと考えられる。一方、湿式剥離処理の膨潤工程においてDINPが抽出されたことでPVC鎖間が緻密化するため、EGおよびDINPがPVC内部に浸透しにくく脱塩素率が低下したと考えられる。脱塩素反応は、図22に示す通り、E2脱離およびS<sub>N</sub>2置換反応の両方が進行すると考えられている。特に、E2脱離反応によって生成するポリエー構造はNaOHやEGの試料内部への浸透を阻害すると考えられ、試料サイズの増大に伴い脱塩素率

が大きく低下することを確認した。湿式脱塩素処理用のボールミル反応器を本研究にも導入し、設定目標90%以上の脱塩素率を目指す当初計画だったが、本反応器の修理を研究実施期間中に完了できず、本研究では三口フラスコを使用した湿式脱塩素処理に留まった。研究代表者らの過去の研究（Lu, 2019）において、ボールミル中で湿式脱塩素処理を行うと、表面のポリエン構造（脱塩素反応が進行したPVC表面）を削り取ることでPVC内部まで脱塩素反応が進行し、種々塩ビ製品の脱塩素率が90%以上に達することを確認している。本研究で対象とした塩ビ被覆材に関しても、将来的にボールミルを用いた脱塩素処理法を導入することにより脱塩素率90%以上を達成可能であると考えている。

【参考文献】 Lu, Jiaqi; Borjigin, Siqingaowa; Kumagai, Shogo\*; Kameda, Tomohito; Saito, Yuko; Yoshioka, Toshiaki. 2019. Practical dechlorination of polyvinyl chloride wastes in NaOH/ethylene glycol using an up-scale ball mill reactor and validation by discrete element method simulations. Waste Management, 99, p.31-41. DOI: 10.1016/j.wasman.2019.08.034.

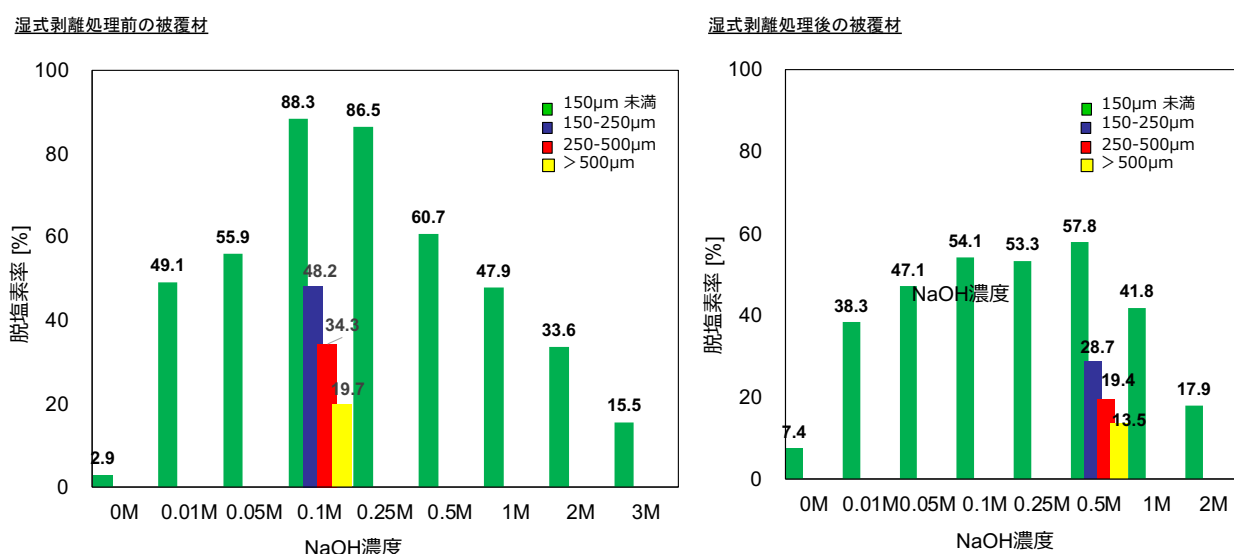
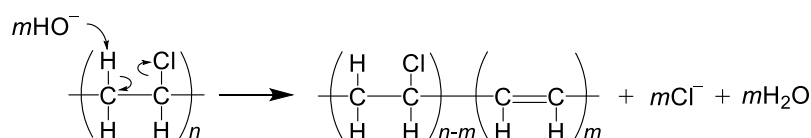


図21 塩ビ被覆材の脱塩素率に及ぼすNaOH濃度および試料サイズの影響

E2 elimination



S<sub>N</sub>2 substitution

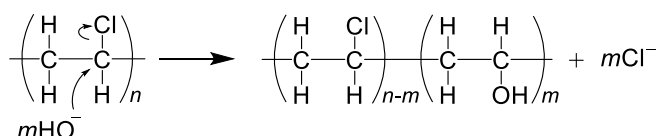


図22 湿式脱塩素処理により進行するE2脱離反応およびS<sub>N</sub>2置換反応

#### (R5④) 塩ビケミカルリサイクル：脱塩素処理した塩ビ被覆材の熱分解による化学原料化試験、脱塩素率と化学原料組成の関係性整理

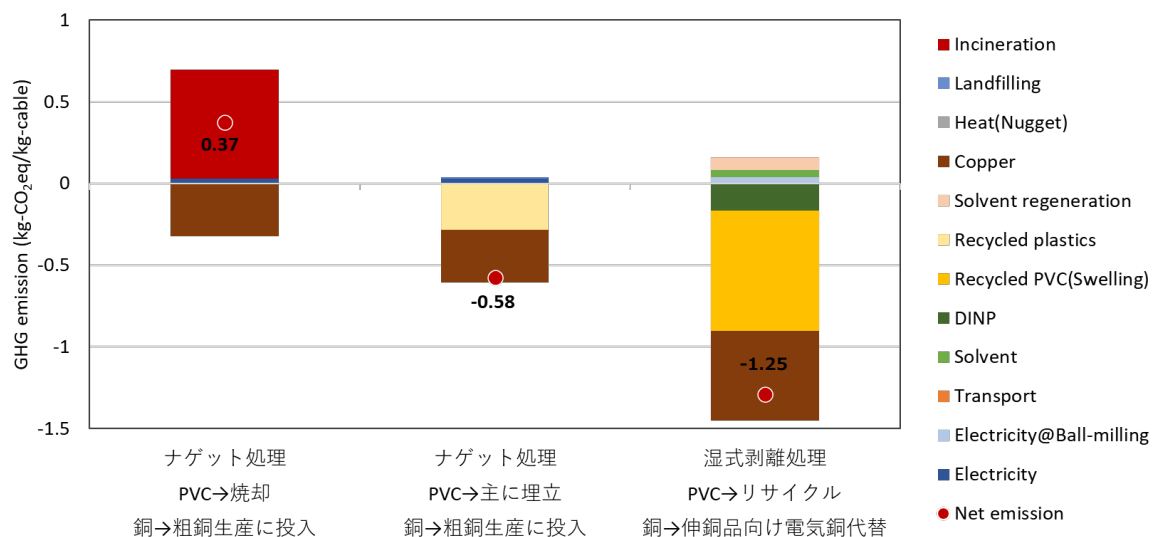
湿式剥離処理後の試料に対する湿式脱塩素処理前の試料および最も脱塩素率が最も高かった0.5 M脱塩素処理試料の熱重量分析を実施した。更に、発生ガス分析法（EGA-MS法）により塩ビ被覆材の主要な熱分解生成物である塩化水素の生成挙動および可塑剤であるDINPの揮発挙動を観察した。湿式脱塩素処理前の試料に着目すると、150~300 °CにおいてDINPの揮発が進行し、次いで250~350 °Cにおいて脱塩化水素反応が進行することが確認された。湿式脱塩素処理の結果、塩化水素のピーク温度は高温側にシフトすることが明らかとなり、湿式脱塩素処理において除去しきれなかった塩素はより安定性の高い位置に結合していること



が示唆された。一方、湿式脱塩素処理によりDINPに由来する $m/z = 149$ のピークが消失したことから、湿式脱塩素処理の過程でDINPはNaOHによりアルカリ分解されたと考えられる。脱塩素処理前の試料からは、DINPの熱分解生成物に由来するピークや含塩素化合物が複数確認されたが、湿式脱塩素処理によりこれらのピークは消失し、芳香族炭化水素を主成分とする熱分解生成物が得られることが明らかとなった。

**（R4⑤）LCA：既存WHナゲット処理プロセスのLCA、（R5⑤）LCA：ベンチスケール剥離試験結果に基づく湿式剥離プロセスのインベントリデータの作成、銅線リサイクル及び塩ビリサイクルのインベントリデータ収集、これらのLCA**

これまでの検討結果を踏まえ、被覆電線の湿式剥離法に対するLCAを実施し、そのGHG排出削減効果を評価した。湿式剥離法において、回収された銅のみならずPVCやDINPもリサイクル可能と想定した場合のGHG排出量を定量化し、既存ナゲット処理との比較を行った（図23）。湿式剥離処理法において得られた銅は伸銅品材料（黄銅系製品）の電気銅を代替するものとして利用可能であると仮定し、既存ナゲット処理法において得られた銅は粗銅生産に投入されると仮定した。その結果、両技術の大きな差はPVCの処理の部分であった。既存ナゲット処理において分離されたPVCを焼却すると、炭素鎖部分由来のCO<sub>2</sub>に加え、発生する塩素を中和するための水酸化カルシウムの製造由来の排出が大きい。ナゲット処理で回収したPVCを一部埋め立て、残りをリサイクルしたとしても、湿式剥離処理でPVCのリサイクル可能量を最大化した状況に比べて排出削減効果が小さいことが明らかとなり、湿式剥離処理において銅のみならずPVCもリサイクル可能となる点が重要であることが明確化された。また、処理方法の違いにより、回収された銅をどの材料の素材として利用できるかに差異が生じる可能性も示され、銅の利用による排出控除量に差が出れば、既存ナゲット処理に対してさらに優位性を持つことが可能であると考えられる。



さらに、排出削減に向けたホットスポットであるPVCのリサイクル率と銅の回収率について、それぞれが変動した際にどの程度優位性を保てるかをBreak-even解析により演繹的に求めた（図24）。横軸に湿式剥離処理における銅の回収率、縦軸にPVCのリサイクル率を取り、それぞれの値がどの組み合わせの時に既存ナゲット処理の排出量と同等になるかを検討した。実際のボールミルによる剥離試験などの結果を加味し、どの程度銅が単体で回収不能になってしまっても湿式剥離処理の優位性が保てるかを検討していると言い換えることができる。PVCのリサイクル率も同様に、PVCが理想的にマテリアルリサイクルできなかったことを想定した場合に、どの程度まで有効利用可能率が下がっても良いかを判断することができる。結果として、既存ナゲット処理に対しては、銅の回収率が50%になったとしても、PVCのリサイクル率が30%を超えれば優位性を担保できることが明らかとなった。さらに目標を高く設定し、銅のリサイクル率が70%超かつPVCのリサイクルが90%超となれば、従来ナゲット処理の2倍の排出削減効果を達成できることも明らかとなった。

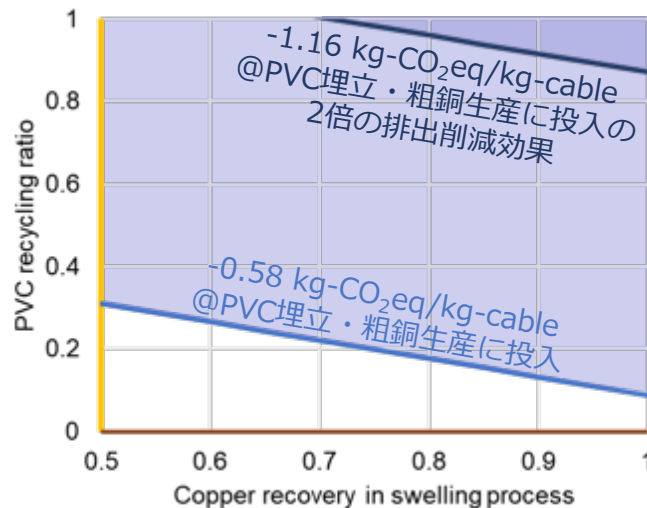


図24 Break-even解析による銅回収率とPVCリサイクル率の許容範囲分析

### パイロットスケール湿式剥離装置・プロセス設計（成果 1 7）

**（R6①）パイロットスケール湿式剥離装置設計、（R6②）LCA：パイロットスケールプロセス全体のLCA、（R5⑥）既存銅リサイクルプロセスに及ぼす回収後銅線品位の影響検討、（R5⑧）回収銅線に混入する異種金属前処理法の検討**

これまで得られた成果を基にパイロットスケール湿式剥離装置の設計を行った。パイロットスケールボールミルでは発生する衝突エネルギーに影響を及ぼす操作因子が多数存在することが知られているが、本技術の装置設計において重要な因子を特定するため、各因子が衝突エネルギーに及ぼす影響について解析を行った。これまでのR4①②およびR5①②の検討により、ケーブル剥離においてはケーブルが損傷しない範囲で衝突エネルギーを印加することが重要であることが判明したため、リアクター内で発生する衝突エネルギーの最大値に影響を及ぼす因子の特定を試みた。多数ある操作因子の中からボール径、回転速度、投入ボール総量に着目し、これらを変更した場合の衝突エネルギーの値を算出した結果、衝突エネルギーの最大値に最も大きな影響を及ぼすパラメータはボール径であることがわかった。パイロットスケール装置設計のため、既存ベンチスケールミルの最大約200倍の容積までスケールアップ解析を実施し、パイロットスケールミルの内径、ケーブルが損傷しない衝突エネルギーを印加可能な最大ステンレスボール径、および処理量、を推定した（図25）

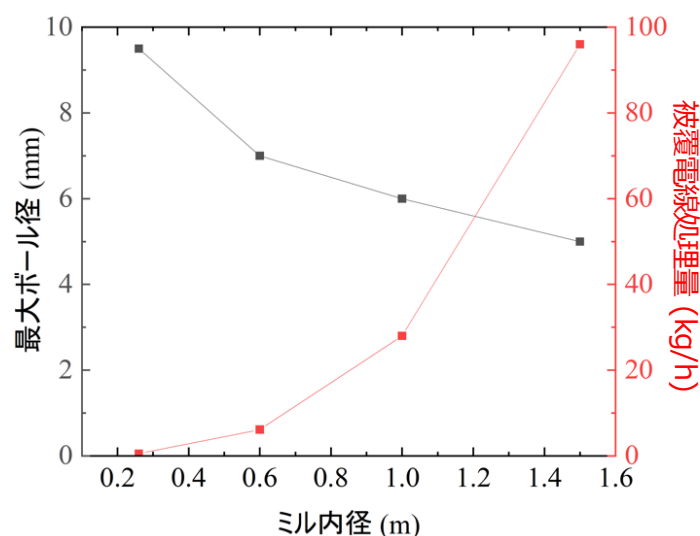


図25 スケールアップ解析によるミル内径と最大ボール径の関係および処理量の推定

上記解析結果を参考に、実現妥当なパイロットスケール装置（内径：1,000 mm、長さ：2,300 mm、反応器容積：約1,800 L、処理能力：28.3 kg/h）を設計した。さらに、本パイロットスケールリアクターを想

定してWHリサイクルプロセス全体の設計を行った。本湿式剥離技術をWH細線に対して適用するために、WHから細線を取り出す前処理プロセスを考案した。また、剥離後の試料をボールミルから取出し、銅線と被覆材をそれぞれ回収するプロセスについても検討し、図26に示す全体プロセスを提示した。想定したパイロットスケール装置の被覆電線処理量は、28.3 kg/hである。この処理量を基準に、前処理等に必要な設備を見積った。このように設計したパイロットスケールプロセスで、年間のWH処理量は91トン、WH1トンあたりの処理かかるランニングコストは、処理規模の近い市販の湿式ナゲットプロセスのコスト試算と比較しコストは上回るが、今後、自動化・連続化等の工夫による省力化や処理量増加、各工程での歩留まりを向上し、高品位な回収物を得られるメリットを最大化することが重要であると示された。提示したプロセスにおける安全上のリスクとして、有機溶媒の漏洩、作業員と有機溶媒の接触、破砕機への原料投入時の挟まれ・巻き込まれ、作業員の重量物運搬作業などが想定される。一方、ノルマル酢酸ブチルを膨潤溶媒とした際の剥離処理中のベンチスケールリアクター内の温度および圧力変化をモニタリングした結果、1時間の剥離処理における温度上昇は2℃未満で圧力変化は確認されなかった（Kumar et al., 2022）。よって本剥離プロセスは、従来の粉碎を目的としたボールミル処理で想定されるような大きな発熱を伴わない安全性の高いプロセスであると言える。今後の実証試験においては、有機溶媒の取扱いや各設備の運転、各工程間での処理物の移送などが安全に実行されるよう、適切な作業環境の整備、安全装置等の設置、設備配置や動線のレイアウト最適化などを考慮した設計を行う必要がある。

#### 全体プロセスフロー

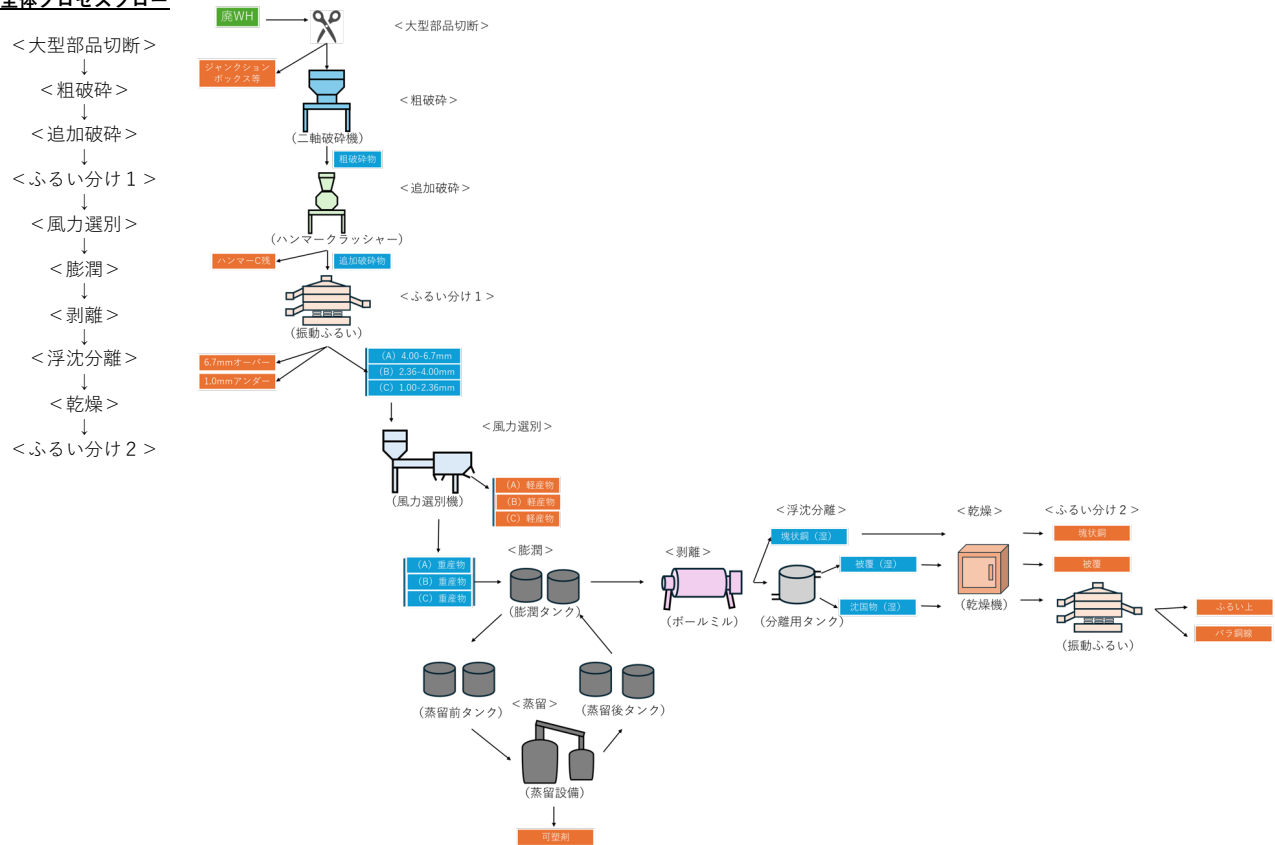


図26 全体プロセスフロー

また、回収物のリサイクル性を評価し、環境インパクトと経済性の観点から本技術の有用性を検証した。本技術で回収される銅は、上記プロセスフロー（図26）のふるい分け1及び2で適切に異種金属を分離することで、一部を高品位銅として回収することが可能である。既存技術でWHから回収される銅は低品質で銅製錬原料となるのに対し、本技術で高品位銅として回収した銅はより川下工程の伸銅品原料としての利用が可能と考えられる。また、既存のナゲット処理では、塩ビ被覆を含むWH中のプラスチック類はすべて混合してチップ状となるため、再利用は難しく、埋め立て処分されることが一般的である。これに対し、本技術では被覆材の塩ビはリサイクル可能な品質で回収できることに加え、その他のプラスチックは塩素負荷を低減して回収することができるため、例えば銅製錬所などでの燃料代替として十分利用価値があり、今後の研究開発次第ではケミカルリサイクルにおける油化・ガス化原料としての利用可能性も開拓できると期待される。このように、プロセス全体を通して発生する全回収物の行先のシナリオを設定し、環境インパクトと経

済性の観点からプロセスを評価した。具体的には、WH破碎試験の結果を基準に銅線の径によって処理方法に差異を持たせた2つのシナリオを用意した。1つ目「本技術：現前処理実績」は、現行のWH破碎試験結果に基づき、太径被覆電線が十分に破碎分離できず銅混じりプラとしてロスし熱回収に向かうシナリオであり、2つ目「本技術：前処理改善」は、前処理手法が改善されて太径電線も細径電線とともに回収され、湿式剥離処理可能であるとしたシナリオである。これらのシナリオと既存ナゲット処理の比較を行った結果を図27に示す。「本技術：現前処理実績」では、被覆の燃料としての利用量が多くなるため、熱の有効利用による排出控除量が大きくなる。一方で、太径電線を分離回収する「本技術：前処理改善」では、熱の有効利用量は減少するものの、太径電線を剥離処理可能となったために、高品位の銅およびPVCのリサイクルの量が増加することに伴う排出控除量が増大した。熱の有効利用を含めた正味の排出削減ポテンシャルでも、太径電線をロスする想定よりも太径電線を分離回収するシナリオの方が排出削減ポテンシャルが大きく算出されたが、実際にPVCが混じった銅混じりプラを熱利用できるかどうかは未知数である。熱の有効利用の控除分を考慮しない正味の排出ポテンシャル（NET（銅混じりプラ熱回収なし））では、太径電線を回収し湿式剥離処理を行うシナリオが大きく優位であり、より多くの被覆電線を湿式剥離処理に供することの重要性が示された。

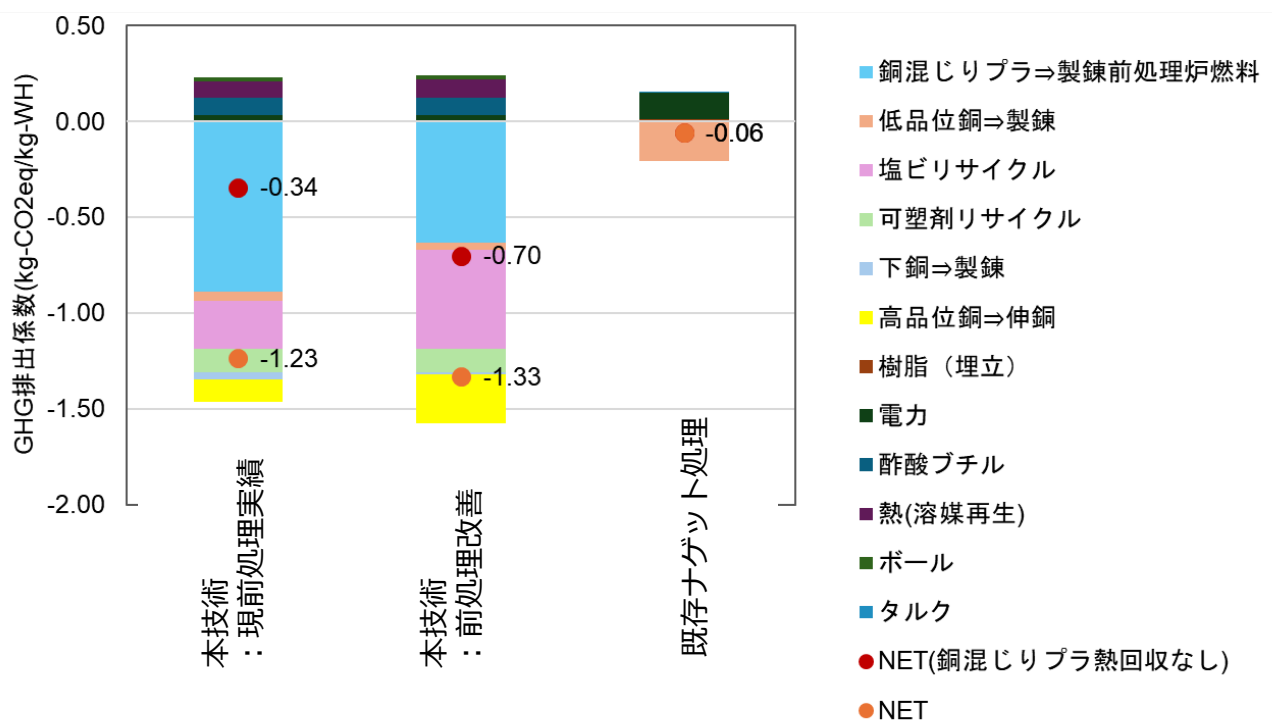


図27 WH処理全体を通したLCAのシナリオ別結果比較

このように本技術は既存技術と比較し、塩ビのリサイクルと高品位銅の川下リサイクルによって、環境負荷低減効果における優位性が示された。

【参考文献】 Kumar, Harendra; Kumagai, Shogo\*; Kameda, Tomohito; Saito, Yuko; Yoshioka, Toshiaki. 2022. Bench-scale PVC swelling and rod milling of waste wire harnesses for recovery of Cu, PVC, and plasticizers. Journal of Material Cycles and Waste Management, 24, p.12-23. DOI: 10.1007/s10163-021-01312-6.

## サブテーマ2

- 本技術により回収した銅線の品位を評価する分析手法を確立する

### 回収銅線の分析手法

（R4⑥）回収後銅線の酸分解処理およびICP-OES分析条件の検討、（R4⑦）回収銅線の付着有機物を評価するガス分析法の検討



本技術で回収される銅線の品質を評価するための分析方法を検討した。サブテーマ1にて廃WHから手解体で取り出した被覆電線を剥離試験に供して回収した銅線について、銅純度と含まれる無機不純物元素、付着有機物を評価する手法を決定し、分析を実施した。付着有機物は、燃烧-赤外線吸収法で付着C量、燃烧-イオンクロマトグラフィ法により付着Cl量を測定し、本技術で回収される銅線には0.1%程度のPVCが付着することを確認した。また、付着有機物の影響を除去して銅品位を評価するために回収銅線を焙焼-酢酸エッチング処理した試料を酸溶解し、銅電解重量法にて銅純度を、ICP-OES（Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectroscopy；誘導結合プラズマ発光分光分析、65元素定性分析）にて含有不純物元素を分析したところ、銅純度99.9%以上、素線に由来するAgなどの元素の微量含有を確認した。前処理を含むプロセス全体を考慮した場合、WH中の一部の電線導体に含まれる異種金属や末端端子由来の金属片の混入が銅品位に与える影響を平均的に評価する必要性を認識し、前処理から剥離処理まで一貫した試験で回収した銅線については、試料全体を溶解鑄造して分析用の均一試料（鑄塊）を作製し、GD-MS（Glow Discharge Mass Spectrometry；グロー放電質量分析、72元素定量/半定量分析）にて含まれる不純物元素を測定し、差数法で銅純度を求める手法を選定した。また、電線を始めとする銅製品は導電率が重要な品質指標となる場合が多いため、作製した鑄塊の導電率も簡易的に測定した。

### ● 電気銅相当品への水平リサイクル率を最大化するための前処理法を確立する

#### ガソリン車及びEV車のWHのリサイクル性の評価、（R6③）EV車に搭載されるWHのリサイクル性評価

使用済みWHに含まれる部材のリサイクル性を把握するために、自動車WHの部材構成、またEV車等に搭載されるWHの将来動向を調査した。自動車解体業者で廃車から回収したWH試料（2007年、2017年モデルのガソリン車2台分）を入手し、手解体して含まれる部品構成を調査した（図28）結果、被覆電線は重量ベースでWH全体の約6割を占めており、うち6割は外径2 mm以下の細径電線であった。また新しい車体のWHではさらに細線化が進んでいることが分かった。既存のナゲット処理では、電線径や導体径が小さくなるほど処理効率や剥離率、選別精度が低下することが知られており、細線に対応する高い処理技術が今後ますます求められると予想された。また、被覆電線のほとんどは銅導体のより線が被覆された単純な構造の電線（一般線と分類した）であるが、一部シールド線や同軸ケーブルなどの構造の異なる電線種が5%程度含まれており（特殊線と分類した）、これらの電線にはスズめっき銅線が多く含まれていた（図29）。また、近年動向は燃費向上のための軽量化、コスト対策のための銅使用量削減、配線増加に伴う省スペースのための電線細線化などの要求により、導体にアルミ線や銅合金線を使用した電線が増加していることが分かった。高品位銅を回収するためには、これらの異種金属含有導体を使用した電線を選別する前処理技術が必要であると認識した。また、図28に示す通り、WHは様々な種類の被覆電線がビニルテープ、コルゲートチューブで束ねられ複雑に分岐した構造となっており、本剥離技術適用のためにはこれらの外装部品から被覆電線を取り出す必要があることを認識した。また多数存在する電線末端には黄銅等の合金素材でできた端子が圧着されている（図30）。端子素材は回収銅線に混入すると銅品位の低下を招くため、高品位銅回収のためには除去する必要がある。複雑な構造のWHを手作業により解体することは現実的ではなく、本剥離技術を適用し、高品質な回収物を得るためには、適切な前処理手法の開発が必要であると考えられた。

#### 【解体手順】

ジャンクションボックス、コネクタボックス、グローメット、端子など末端付属部品を切断



結束バンド、ウレタンカバー、コルゲートチューブ、結束テープ等を除去



ジョイント（圧着連結部）を切断



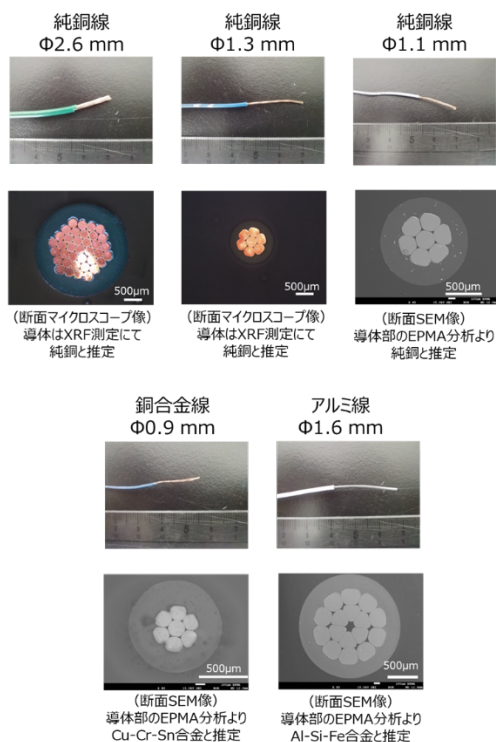
被覆電線を径・種類ごとに分類



図28 WHの解体手順



### 【一般線】



### 【特殊線】

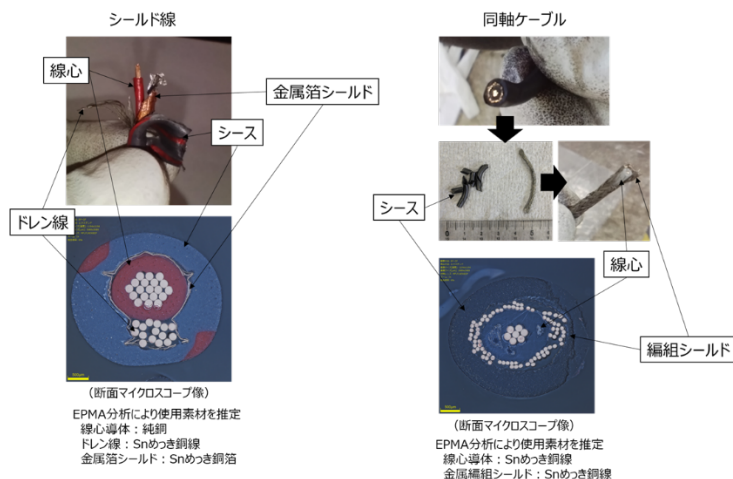


図29 WHに含まれる被覆電線の観察

### 端子（コネクタボックス内）



#### XRF分析値（一例）：

- Cu82%、Zn13%、Sn4%
- Cu69%、Zn28%、Sn3%
- Cu93%、Sn7%
- Cu81%、Ni11%、Sn8%

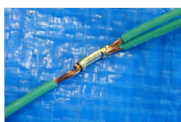
### 丸型端子



#### XRF分析値（一例）：

- Cu66%、Zn34%

### 圧着ジョイント



#### XRF分析値（一例）：

- Cu69%、Zn29%、Sn2%

図30 圧着端子、ジョイントの組成

## 前処理手法の開発（成果 1、17）

### （R5⑧）回収銅線に混入する異種金属前処理法の検討

WHの構造体から被覆電線を剥離処理に適した形状で取り出す効率的かつ現実的な前処理方法を検討した。確立した前処理フローを図31に示す。はじめにジャンクションボックスや鋳物等の大型部品が含まれていれば、これらを手作業により切断除去することとした。これは、後段の破碎機への負荷を低減するため

ある。続いて、大型部品を切除したWHを二軸破碎機に投入した。二軸破碎機は、低速・高トルクで軸が回転し強いせん断力で試料を破碎する装置であり、WHをそのまま入れても容易に破碎することができた。二軸破碎機で2～3回処理することにより試料長さ約5 cmに切断された破碎物を得た。次に粗破碎した試料をハンマクラッシャーに供した。ハンマーの衝撃により、テープやコルゲートチューブで束ねられた状態の被覆電線が解砕された。また、コネクタボックスのケーシングが破壊され、プラスチック片と端子付属電線に分解した。このようにして破碎した試料を振動ふるいにかけて、大きいプラスチック片をふるい上に、被覆電線試料をふるい下へ選別した。この時、ふるい目開きのサイズによって被覆電線の回収率、後段の剥離挙動、剥離後に回収される銅線品質に違いが出るかを確認するために、目開きの小さい順に1.00 mm、2.36 mm、4.00 mm、6.7 mm、9.5 mmのふるいを重ねてふるい分けを実施した。各粒度範囲での回収物を観察すると、6.7 mm以上では主にプラスチック片が、1.00-6.7 mmに被覆電線が、1.00 mm以下には細かくなった銅線屑が移行していた（図32）。1.00-6.7 mm間の各粒度範囲の回収物は、最後にそれぞれ風力選別に供し、混入した微細なプラスチック片を選別除去することで、被覆電線試料を回収し、サブテーマ1での剥離試験原料とした。なお、本前処理手法では、先端に細い端子が圧着された被覆電線は、その他の被覆電線と同様に移行し、剥離試験原料に含まれる。被覆電線はふるい分け時に3つの粒度（①1.00-2.36 mm、②2.36-4.00 mm、③4.00-6.7 mm）に分けて回収し、それぞれサブテーマ1にて剥離試験を実施した。

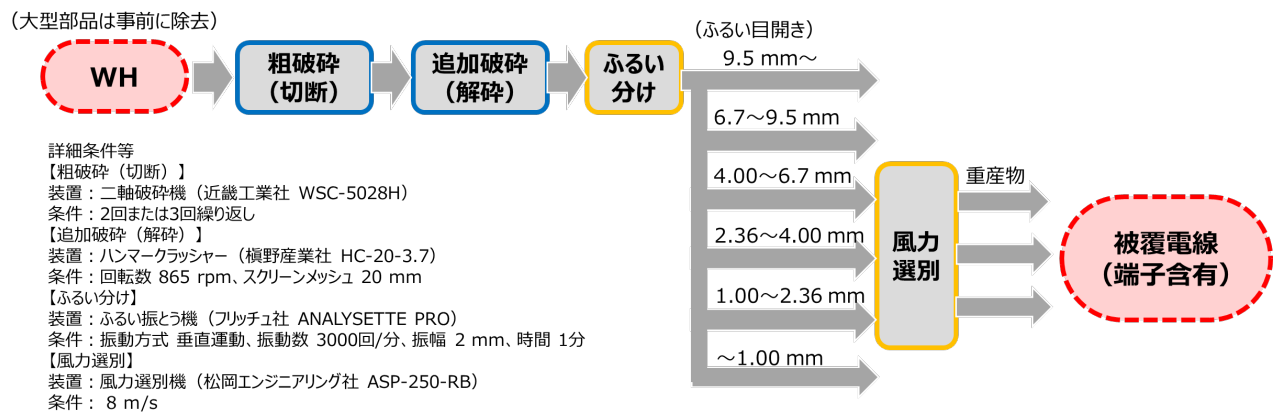


図31 前処理フロー

9.5mmオーバー	6.7-9.5mm	4.00-6.7mm	2.36-4.00mm	1.00-2.36mm	1.00mmアンダー
コルゲート・その他ブラ：0.32kg 被覆線（結束未解離）：0.055kg 被覆線（解離）：0.027kg 端子片等金属類：0.023kg コネクタ片：0.003kg 合計：0.428kg	コルゲート・その他ブラ：0.13kg 被覆線（結束未解離）：0.042kg 被覆線（解離）：0.088kg 端子片等金属類：0.018kg コネクタ片：0.002kg 合計：0.280kg	ブラ片：0.10kg 被覆線（結束未解離）：0.021kg 被覆線（解離）：0.091kg 端子片等金属類：0.024kg 剥き出し導線：0.004kg 合計：0.237kg	被覆線（解離）*少量のブラ片含む：0.64kg 端子片等金属類：0.033kg 合計：0.673kg	被覆線（解離）*少量のブラ片含む：0.50kg 端子片等金属類：0.004kg 合計：0.504kg	剥き出し導線*少量のブラ片含む：0.035kg 合計：0.035kg

## 主に外装部品のプラスチック

- 一部テープ等での結束が解けない電線束を含む
- 一部被覆電線（太物・長物・屈曲）を含む

## 主に被覆電線+端子片

## 銅線屑など

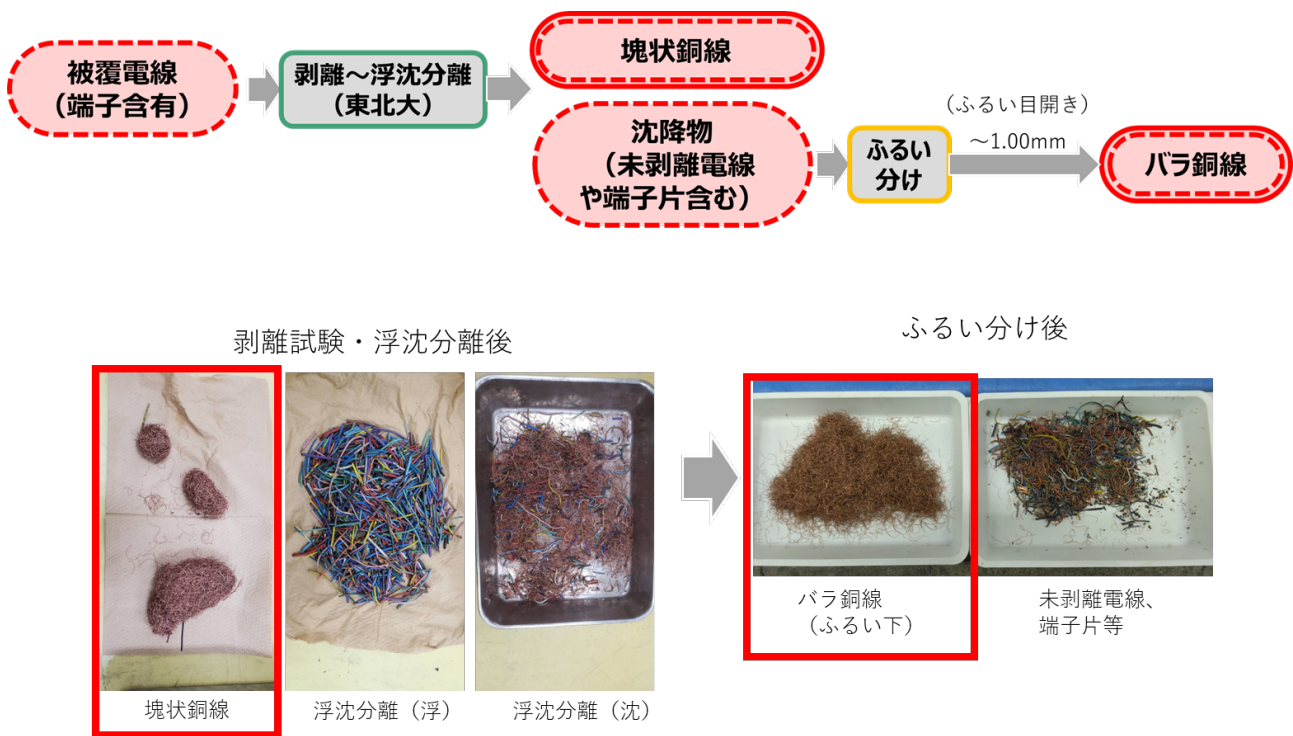
風力選別にて細かなプラスチック片を除去し、  
剥離試験へ

図32 ふるい分け後の各粒度回収物

自動車1台分のWHのリサイクルプロセスを前処理から剥離処理まで一貫して試験し、回収銅の品質や回

収率等を評価して、本開発技術の課題を抽出することとした。前処理試験において1.00-6.7 mmの粒度に分配した被覆電線量から銅の回収率を見積もると83%と計算された。太径の被覆電線や長く折れ曲がった状態の被覆電線が6.7 mm以上のふるい上にロスすることが課題であり、銅の回収率を向上するためには、破碎条件の最適化やふるい上回収物から被覆電線を回収するための追加工程を検討する必要があると分かった。

①1.00-2.36 mm、②2.36-4.00 mm、③4.00-6.7 mmの粒度範囲で回収した被覆電線試料について、サブテーマ1のベンチスケールリアクターを用いて東北大にて剥離試験を実施した。その結果、いずれの試料も剥離処理後の銅線は塊状と非塊状の2種の形態で得られた。塊状銅線はボールミル処理後に取り出し、それ以外の全試料は水に入れて被覆材（浮遊物）と銅線（沈降物）に分離した。沈降物には、剥離後の銅線の他、未剥離の被覆電線が混合していた。塊状銅線、浮遊物、沈降物をそれぞれ乾燥させた後、沈降物はふるい目開き1.00 mmの振動ふるいに供し、ふるい上に未剥離電線や端子片を、ふるい下に非塊状のバラ銅線を回収した。図33に剥離試験以降のフローを示す。剥離試験にかけた被覆電線から塊状銅線とバラ銅線として回収できた銅量を算出すると、銅の回収率は69%と計算された。回収できずにロスした銅としては、未剥離電線中の銅線および水沈降物をふるい分けした際にふるい目やふるい上試料に絡まった剥離銅線と考えられる。未剥離電線には、端子が圧着されたものとそうでないものがあり、端子圧着以外の未剥離電線には折れ曲がりや激しいものや被覆に銅線が突き刺さったものなどが観察された。これらの剥離不良は前処理の破碎時に被覆電線が曲がったり損傷したりすることで引き起こされると考えられるため、剥離率向上のためには破碎条件の改良が必要であることが分かった。



\* 2.36～4.00 mmクラス（②）の回収物の様子

図33 剥離試験後の処理フロー

EV車等のWHでは今後アルミ導体の被覆電線が増加することが分かっている。アルミ電線と銅電線を分離する選別手法についても検討した。アルミと銅の密度差により透過X線を利用すれば被覆の付いた状態でアルミ電線と銅電線を識別可能であることが分かった。トムラソーティング社の選別機（X-TRACT）では3 cm程の長さがあればアルミ電線を高精度で除去できる試験結果を得た。

### 回収銅線の品質評価（成果17）

#### （R5⑥）既存銅リサイクルプロセスに及ぼす回収後銅線品位の影響検討

モデル車体1台分の廃WHから上記のとおり提案した前処理を適用して被覆電線（①1.00-2.36 mm、②2.36-4.00 mm、③4.00-6.7 mm）を取出し、サブテーマ1でベンチスケールリアクターにて剥離試験を実施して回収された銅線の品質を評価した。①～③のそれぞれで塊状銅線とバラ銅線を回収したが、②の塊状銅



線をはぐして確認したところ、未剥離の被覆電線や端子片などが絡まって混入していた。このような状態では品質が安定しないことが明らかなため、①③の塊状銅線については分析を実施しないこととした。また、比較のために同型式の車体1台分の廃WHをナゲット処理して得た試料（ナゲット銅）も用意した。

それぞれの試料の分析結果を表3にまとめた。ナゲット処理では最後にふるい工程を通したとしても、細かく破碎された端子由来成分の銅線への混入は防ぎきれないため、端子（スズめっき黄銅が多く使用されている）に由来するZn、Snの含有量が多く、銅純度は99.9%に満たない結果となった。一方、開発技術で回収した①～③のバラ銅線では、Znの含有量は比較的少なく、端子成分の混入が防げていることが分かった。分析結果を詳細に確認すると、①～③の順でSnの含有量が増加していることが分かる。これは、太径の被覆電線にはシールド線などの特殊線が多く含まれることが原因だと考えられる。これらの特殊線にはスズめっき銅線などが多く使用されているため、回収銅中のSnが多く検出されたと推測される。この結果より、被覆電線を粒度別に回収することで、一部の銅を高品位な銅として回収できることが分かった。また、開発技術で回収した銅線のいずれも、ナゲット処理品と比較しFeとCrの含有量が多いことから、ボールミルでの剥離工程で容器やボール素材の摩耗によりSUS成分が混入していることが示唆された。①②のバラ銅線では銅純度が99.98-99.99%と高い水準にあるにもかかわらず、導電率が94-95%IACSと低いのは、銅の導電率への影響が比較的大きい不純物であるFeの影響が大きいと考えられる。銅の水平リサイクルを目指す上では、Feの含有量を低減することが求められるため、ボールミル素材の改良などが今後の課題と考えられる。

表3 銅の分析評価結果

		開発技術で回収した銅線				Ref.ナゲット	
		①1.00-2.36 mm	②2.36-4.00 mm		③4.00-6.7 mm	未ふるい	ふるい下
		バラ銅線	塊状銅線	バラ銅線	バラ銅線		
導電率		95.37%IACS	91.02%IACS	93.62%IACS	92.78%IACS	79.13%IACS	94.51%IACS
不純物* [ppm]	Si	4	4	5	5	31	11
	Al	0.8	0.5	0.4	0.4	3	1
	P	0.6	0.5	0.6	0.5	6	1
	S	11	11	12	9	10	12
	Cr	6	8	12	6	0.2	0.2
	Mn	1	1	2	1	2	0.4
	Fe	54	100	79	41	21	23
	Ni	8	9	12	6	77	11
	Zn	3	530	9	97	9900	960
	As	0.8	0.8	0.9	0.8	1	1
	Ag	10	10	10	10	17	12
	Sn	6	20	21	350	570	170
	Sb	2	2	2	2	2	2
	Pb	0.8	0.9	2	1	32	7
	O	1	2	1	1	1	1
銅純度** [%]		<b>99.99</b>	<b>99.93</b>	<b>99.98</b>	<b>99.95</b>	<b>98.93</b>	<b>99.88</b>

\*GD-MSで72元素の不純物元素について定量/半定量分析し、いずれかのサンプルに1 ppm以上含まれる元素を抽出。Oはガス分析による定量結果。

\*\*不純物元素の含有率を100から引いて求めた値

ナゲット処理でWHから回収する銅は、今回の分析結果で98-99%の品位であり、伸銅品原料として使用することは難しく通常製錬（製銅炉）原料となる。伸銅製品には、純銅だけでなく、黄銅などの合金素材の製造も含まれるため、目的の合金種によって、原料に求められる銅品質は異なるが、電線導体としての水平リサイクルを実現するためには、電気銅並の品質（銅品位99.99%、各不純物の含有量は10 ppm以下）が求められる。今回①②のバラ銅線では非常に高い水準の銅純度が確認できたが、電線用途への水平リサイクルを想定するとFe混入の低減は必須と考えられる。一方、黄銅伸銅品原料などを想定すれば、原料への要求スペックは、銅純度99.9%以上、各不純物の含有量は100 ppm以下が指標となるため、今回の①②バラ銅線試料は十分使用可能な品質と言える。伸銅品には、棒、板、条の形状があるが、特に厚さが薄い条は原料の不純物許容が比較的厳しい。今回の①②バラ銅線品質は、黄銅条原料としても使用可能な品質であり、自動車WH用の端子など様々な用途に使用できる可能性がある。

## ● 回収後WHからの銅線リサイクルに対する経済合理性評価

### 経済合理性評価

#### (R6④) 回収後WHからの銅線リサイクルに対する、経済合理性評価

前処理を含めた本技術のプロセス全体で発生する全回収物、およびナゲット処理での回収物について、内容や品質を考慮して利用先等を仮定し、WHリサイクルのシナリオを立てた。このシナリオはサブテーマ1にもフィードバックし、前述のとおり経済性とLCAの両軸でプロセスの優位性を評価した。商社等へのヒアリングにより、原料であるWHの単価、および回収銅線の売却価格を調査したところ、銅系スクラップの売却価格は世情の影響を強く受け変動しており、現状では特に世界的な銅需要の高まりや中国の銅資源確保の動きを受け、スクラップ価格は一律して高く推移し、原料の廃WHや低品位と高品位の銅スクラップの価格差は小さいことが分かった。

プロセスコストについては、前述の通り、サブテーマ1で設計したパイロットスケールの装置モデルや処理量をベースに前処理を含めたプロセス全体で評価し、市販のナゲット処理設備のコスト情報と比較した。ナゲット処理を上回る試算結果ではあったものの、今後、自動化・連続化等の工夫による省力化や処理量増加、各工程での歩留まりを向上し、高品位な回収物を得られるメリットを最大化することが重要であることが示された。一方で、社会情勢に大きく影響を受ける銅スクラップ市場における現状の素材価格で評価すると、処理技術によらず、原料仕入れ価格と回収材の売却価格の差は非常に小さいことが明らかとなった。よって、国内資源循環を促進するためには、WHリサイクル事業の経済合理性を担保するための仕組みづくりが重要であることを認識した。

本研究開発全体を通じて、本技術により既存技術では難しい塩ビ被覆材のリサイクルおよびWHからの高度な銅リサイクル実現の可能性が示され、WHはリサイクル性の高い資源が得られるポテンシャルのある廃棄物であることが確認された。一方で、資源循環や脱炭素等の環境貢献と経済性をどう両立させるかが課題であることも明らかとなった。

#### 1. 5. 研究成果及び自己評価

#### 1. 5. 1. 研究成果の学術的意義と環境政策等への貢献

### <得られた研究成果の学術的意義>

物理的な電線剥離技術として剥線処理法やナゲット処理法が実用化されているが、本研究が対象とする自動車WH由来の細線は細すぎて剥線機では処理できず、また細線を更に細かく破碎するナゲット処理では銅品位の低下や国内リサイクルに見合う品質の塩ビが回収できないことが課題となっている。化学的手法としてこれまで商業化された技術にSolvay社が開発したVinyLoop法がある。本技術は有機溶媒により選択的にPVCを溶解・再沈殿させることで高純度のPVC回収を目指す技術である。電線被覆材も対象となっており、技術的には銅線と塩ビ被覆材からのPVC回収が可能である。しかし、可塑剤を多く含む電線被覆材に対しては、溶解工程においてPVCと可塑剤のどちらも溶解するため、再沈殿工程でPVCと可塑剤を高度に分離回収することが難しい。また複数の有機溶媒を使用するため溶媒管理や溶媒再生プロセスが複雑である

(Ondrey, 2004; Ondrey 2018)。その他、塩ビ被覆材の熱処理による銅線のみ回収 (Szczepaniak et al., 2015)、加熱超音波剥離法 (Liu, 2013)、凍結超音波剥離法 (Yong, 2015) が提案されているが、加熱・冷却等の追加設備や腐食性塩化水素・ダイオキシン類の処理が必要である点が課題である。

これら従来の手法に対して、本湿式剥離法は、常温・常圧の極めて穏やかな条件でWH細線を完全剥離する点で革新的である。これまで推進費 (3RF1701および3RF1901) の支援を受けて、各種有機溶媒による塩ビ被覆材の膨潤率とハンセン溶解度パラメータ (HSP) のケミストリーについて明らかにし (Kumar et al., 2020)、関連高分子分野への知の貢献も果たしてきた。更に、本研究開発では、これまで成し得なかった~20 cm程度の塩ビ被覆材と銅線を破断することなく高精度に剥離することに成功し、塩ビ被覆材と銅線の更なる高純度回収に成功した。剥離試験結果を活用した専用シミュレーターならびに非同期並列実行型RNNモデルは、本研究でしか開発できない独創性の高い成果である。非同期並列実行型RNNモデル開発に関する成果はCommunications Engineering誌に発表済みであり (成果4)、シミュレーターを活用した剥離条件探索の成果は特許出願の準備を進めている。

実験とシミュレーションの協働により、被覆材へのダメージおよび被覆材剥離に至る衝突エネルギーの関係性を明らかにし、パイロットスケールリアクターを設計できたことで、本技術の社会実装に向けた反応器

開発を大きく加速することが期待される。また、回収される銅線品質を既存技術と差別化された高品位銅とするための前処理手法を検討し、既存技術では実現し難いWHの高度なりサイクルに対する全体のプロセスフローを提示した初めての成果であり、銅の高度なりサイクルの観点からも高い先導性を有する。提示したプロセスでは、剥離処理にかかる被覆電線をふるい分けして選別することで、一部の銅線は3N～4Nの高品位銅として回収でき、既存の銅製造プロセスにおいて伸銅品原料として直接利用できる可能性を示した。自動車WH由来の細線からこれだけの高純度の銅回収を実現した事例は存在せず、革新性・先導性ともにこれまでの成果とは一線を画す。塩ビ被覆材に関しても、混錬・シート成型検討を通じて材料リサイクル原料としての有望性や脱塩素処理と熱分解を組み合わせた化学原料化の可能性が示された。これまで大部分が埋立処分されていた塩ビ被覆材のリサイクルの実現可能性を見出したことは意義のある大きな一歩である。

提案したパイロットスケール装置の処理量は、市場投入されている小型ナゲット処理装置の40%処理量に匹敵するものである。被覆電線の剥離処理に対するLCAの結果、塩ビ被覆材の大部分を埋立処分する既存ナゲット処理による温室効果ガス（GHG）排出の削減効果は-0.58 kg-CO<sub>2</sub>/kg-cableに留まった一方、湿式剥離法による塩ビ被覆材の材料リサイクルと黄銅伸銅用電気銅の直接代替により、GHG排出の削減効果は-1.25 kg-CO<sub>2</sub>/kg-cableとなり、圧倒的な環境優位性を示した。更に、Break-even解析により、銅線のみを回収して塩ビ被覆材の大部分を埋立処分する既存手法と本湿式剥離法を比較すると、本手法において銅回収率50%以上・塩ビ被覆材の材料リサイクル率30%以上を達成すれば、既存処理を上回る環境優位性を維持できることが明らかとなった。パイロットスケール機をベースとして試算された本提案プロセスのランニングコストは既存ナゲット処理の1.8倍程度となったが、今後の更なるスケールアップや連続化・自動化プロセスが開発されれば、既存ナゲット処理に匹敵すると考えており、今後の社会実装に向けての発展性もある。本研究開発を通じて、使用済みWHは適切に処理することで、純銅に近い高品位な銅スクラップを始めリサイクル性の高い資源が得られるポテンシャルのある廃棄物であることが確認され、資源循環や脱炭素等の環境貢献と経済性をどう両立させるかを社会全体で考える呼び水としての発展性も期待できる。

【参考文献】 Ondrey, G. PVC recycling technology commercialized. 2004. Chemical Engineering, 118, 19; Ondrey, G. End of the line for the VinyLoop PVC recycling plant. 2018. Chemical Engineering, May 2018; SZCZEPANIAK, Włodzimierz; ZABŁOCKA-MALICKA, Monika; ZIELIŃSKA, Amelia; RUTKOWSKI, Piotr. 2015. STEAM GASIFICATION OF MULTIWIRED LiCY TYPE ELECTRICAL CABLE. Ecological Chemistry and Engineering A, 22, p. 103–112. DOI: 10.2428/ecea.2015.22(1)10; Liu, Z. 2013. CN103676382A; Yong, Y. 2015. CN104826105A; Kumar, Harendra; Kumagai, Shogo; Kameda, Tomohito; Saito, Yuko; Yoshioka, Toshiaki. 2020. Simultaneous recovery of high-purity Cu and poly(vinyl chloride) from waste wire harness via swelling followed by ball milling. Scientific Reports, 10, p.10754. DOI: 10.1038/s41598-020-67795-9

#### ＜環境政策等へ既に貢献した研究成果＞

特に記載する事項はない

#### ＜環境政策等へ貢献することが見込まれる研究成果＞

3年間の研究開発を通じて、自動車WHの細線に対して、これまで以上に高精度に塩ビ被覆材と銅線を剥離することに成功した。具体的には、金属混入せずに塩ビ被覆材を回収することに成功し、今後、材料リサイクル材としての利用が期待される。従来のナゲット処理では被覆材の大部分が埋立処分されていたため、材料リサイクル材として利用可能性が見出されたことは大きな前進である。また、銅線の一部は3N～4Nの高品位銅として回収でき、既存の銅製造プロセスにおいて伸銅品原料として直接利用できる可能性も示された。さらに、市場投入されている小型ナゲット処理装置の40%処理量に匹敵するパイロットスケールリアクター（内径：1,000 mm、長さ：2,300 mm、反応器容積：約1,800 L、処理能力：28.3 kg/h）を設計した。また、回収される銅線品質を既存技術と差別化された高品位銅とするための前処理手法を検討し、既存技術では実現し難いWHの高度なりサイクルに対する全体のプロセスフローを提示した初めての成果であり、銅の高度なりサイクルの観点からも高い先導性を有する。以上より、使用済みWHは適切に処理することで、塩ビ被覆材の材料リサイクルも可能であり、純銅に近い高品位な銅スクラップが得られるポテンシャルのある廃棄物であることも確認された。これらの成果は、第五次循環型社会形成推進基本計画・資源循環領

域における中長期的（～2050年頃）に目指すべき社会像「ライフサイクル全体での徹底的な資源循環の達成による循環型社会形成に向けた循環経済への移行」に向けた先導的成果として貢献する。

被覆電線の剥離処理に対するLCAの結果、塩ビ被覆材の大部分を埋立処分する既存ナゲット処理によるGHG排出の削減効果は-0.58 kg-CO<sub>2</sub>/kg-cableに留まった一方、湿式剥離法による塩ビ被覆材の材料リサイクルと黄銅伸銅用電気銅の直接代替により、GHG排出の削減効果は-1.25 kg-CO<sub>2</sub>/kg-cableとなり、圧倒的な環境優位性を示した。更に、Break-even解析により、銅線のみを回収して塩ビ被覆材の大部分を埋立処分する既存手法と本湿式剥離法を比較すると、本手法において銅回収率50%以上・塩ビ被覆材の材料リサイクル率30%以上を達成すれば、既存処理を上回る環境優位性を維持できることが明らかとなった。これらの成果は、徹底的な資源循環がGHG排出削減に極めて効果的であることを実証した先行事例であり、徹底的な資源循環とカーボンニュートラルを目指すわが国の進むべき道の妥当性を支持する成果である。

日本国内で回収されたWHの大部分は、日本国内でナゲット処理された後、銅線の大部分が雑ナゲットとして中国や東南アジアに流出するか、ハーネス屑としてそのまま海外に流出している。その一方で、国内銅需要を賄うため銅製錬向けスクラップとして海外から銅スクラップを輸入しており、わが国の目指すべき方向性と現状は全く一致していない。本研究開発は「資源循環の促進のための再資源化事業等の高度化に関する法律」が目指す再資源化事業高度化と資源循環産業の発展に大きく寄与することが期待され、製造業者等が必要とする質と量の再生材を供給する技術として、環境産業に活用されることが期待される。

WHは自動車部品の中でも最もリサイクルの難しい部品であり、本研究開発はWH重量の半分以上を占める細線から塩ビ被覆材を高精度に回収し、材料リサイクル原料として使用できる可能性を見出した。欧州では新車製造における再生材の含有義務を設けるELV規則案が提案されている。わが国の自動車メーカーも、国内でのプラスチックリサイクル材の調達が今後必要になると予想される。本技術は、これまで難しいとされていたWHからのプラスチック回収量を向上し、ELV規則対応の一助となることが期待される。

## 1. 5. 2. 研究成果に基づく研究目標の達成状況及び自己評価

<全体達成状況の自己評価> . . . . .

### 1. 目標を大きく上回る成果をあげた

「ワイヤーハーネス廃線の塩ビ被覆材及び銅線の高度湿式剥離及びリサイクルの社会実装に向けたパイロットスケールプロセス設計」（東北大学、熊谷 将吾）

全体目標	全体達成状況
<p>使用済みWHの回収～湿式剥離処理～回収銅線及び回収塩ビ被覆材のリサイクル、に至るパイロットスケールプロセス全体を、環境インパクト、安全性、及び経済性の観点から多角的に評価し、最適なWH回収量、パイロットスケールリアクター設計、最適剥離条件、回収銅線及び回収塩ビ被覆材に適するリサイクル手法、を提示する。</p> <p>本研究の2028～2030年社会実装に向けた位置付けは、2025年からのパイロット実証試験開始に向けて、パイロットスケールのプロセス設計を行うものである。</p>	<p><u>パイロットスケールリアクター・プロセス提示</u></p> <p>市場投入されている小型ナゲット処理装置の40%処理量に匹敵するパイロットスケールリアクター（内径：1,000 mm、長さ：2,300 mm、反応器容積：約1,800 L、処理能力：28.3 kg/h）を設計した。更に前処理まで考慮したパイロットプロセス全体を提示した。</p> <p>パイロットスケールプロセス全体のLCAの結果、塩ビ被覆材の大部分を埋立処分する既存ナゲット処理によるGHG排出の削減効果は-0.06 kg-CO<sub>2</sub>/kg-WHに留まった一方、湿式剥離法による塩ビ被覆材の材料リサイクルと黄銅伸銅用電気銅の直接代替により、GHG排出の削減効果は-0.70 kg-CO<sub>2</sub>/kg-WHとなり、圧倒的な環境優位性を示した。</p> <p><u>最適なWH回収量・最適剥離条件提示</u></p> <p>設計したパイロットスケールリアクターの最適処理量28.3 kg/hおよび最適剥離条件（回転数13 rpm、仕込ボールサイズ6 mm φ・仕込量187 kgなど）を設定した。これらの条件は、ベンチスケール試験において、塩ビ被覆材から高純度の塩ビ被覆材</p>

	<p>と銅線回収を実現した処理量および運転条件から決定した。</p> <p><u>回収銅線に適するリサイクル手法提示</u> 適切なWH前処理と剥離処理後の選別を組み合わせることで、銅線の一部は3N～4Nの高品位銅として回収でき、既存の銅製造プロセスにおいて伸銅品原料として直接リサイクルできる可能性を示した。伸銅品原料品質に満たない銅は製錬原料としてリサイクル可能であると判断した。</p> <p><u>回収塩ビ被覆材のリサイクル手法提示</u> 混錬方法の工夫により材料リサイクル原料としての利用可能性が示された。本研究開発ではシート製品へのリサイクル可能性を示した。また塩ビ被覆材の湿式脱塩素処理と熱分解を組み合わせることで芳香族炭化水素が得られることを示し、ケミカルリサイクル原料としての利用可能性も示した。</p> <p><u>目標を大きく上回る成果をあげたと考える理由</u> サブテーマ1およびサブテーマ2それぞれの個別設定目標の大部分において、目標を上回る成果を得た（以下、サブテーマごとの「目標を大きく上回る成果をあげたと考える理由」、参照）。 その結果、当初の想定よりも、大型のパイロットスケールリアクター設計、詳細な全体パイロットスケールプロセス提示、本プロセスの環境優位性、経済性評価による本技術のボトルネック発見と研究開発の方向性決定、及び本研究開発を通じた具体的な政策提案に至り、目標を大きく上回る成果をあげたと考えた。</p> <p><u>研究体制の工夫</u> 研究連携図に示すように、研究代表者・分担者・協力者が密に連携する仕組みを設定した。産学でコンソーシアム体制を構築し、研究成果の社会実装化を常に念頭に置いて研究開発を進めた。また、研究協力者である塩ビ工業・環境協会を通じて研究成果を関連企業や団体に発信した。</p> <p><u>課題管理の工夫</u> サブテーマ1,2合同の実務者会合を定期的を実施し、最新の研究成果を研究者間でいつでも確認できるよう、データ共有ルールを設定した。</p> <p><u>研究資金運用の工夫</u> 東北大学工学部の外部資金係、所属部局会計係、代表者、代表者研究室の秘書の連携により資金を適正管理・運用した。また予算繰越制度を利用し、研究進捗に応じた柔軟な資金運用を行なった。</p>
--	---



<サブテーマ1達成状況の自己評価>…………… 1. 目標を大きく上回る成果をあげた

「パイロットスケール湿式剥離装置設計及び塩ビ被覆材リサイクルの見通し策定」（東北大学、熊谷将吾）

サブテーマ1目標	サブテーマ1達成状況
<p>● パイロットスケール湿式剥離装置設計（熊谷、石原、大野、Lu）</p> <p>既存ベンチスケールリアクター*1と同等以上の剥離性能*2を有し、かつ現在の処理量の約50倍（WH処理量：25トン/年）に相当するパイロットスケールリアクターを設計する（本処理能力は、現行稼働している小型ナゲット処理装置の約1/10の処理量に相当）。</p> <p>*1既存ベンチスケールリアクター寸法及び処理能力： 内径26 cm、長さ60 cm、WH処理量：約500 kg/年</p> <p>*2既存ベンチスケールリアクターの剥離性能： 1時間以内に、長さ数十cm以上のWH廃線を完全剥離</p> <p>装置設計達成に必要な個別目標：</p> <p>✓ 湿式ミルシミュレーター開発及びLCA用実測データをBS試験により取得（剥離条件、剥離結果、剥離に要する衝突エネルギー、ボール・ロッド・ケーブルモーション、ミル消費電力）</p> <p>✓ ボール・ロッド挙動、衝突エネルギー・剥離率の関係、ケーブル挙動、を再現可能とする湿式ミルシミュレーター開発</p> <p>✓ BS試験結果に基づく湿式剥離プロセスのインベントリデータ作成、湿式剥離プロセスのLCA、LCAによる既存WH廃線処理プロセスとの比較</p>	<p><u>パイロットスケール湿式剥離装置設計</u></p> <p>市場投入されている小型ナゲット処理装置の40%処理量に匹敵するパイロットスケールリアクター（内径：1,000 mm、長さ：2,300 mm、反応器容積：約1,800 L、処理能力：28.3 kg/h）を設計した。</p> <p><u>個別目標：</u></p> <p><u>湿式ミルシミュレーター開発及びLCA用実測データをBS試験により取得</u></p> <p>シミュレーター開発に必要な、ミル内部の動画を種々の運転条件で取得。ケーブル破断挙動のシミュレーションに必要な落球試験結果を取得した。ラボスケールおよびベンチスケールリアクターを用いて、剥離挙動に及ぼすボールサイズ及びミル回転速度の影響を実験的に明らかにした。</p> <p>LCAのインベントリ作成に必要な、膨潤工程における溶媒消費量と可塑剤バランス、膨潤電線からのノルマル酢酸ブチル除去検討、溶媒のリサイクル性検討、及びベンチスケールリアクターの消費電力測定を実施した。</p> <p><u>湿式ミルシミュレーター開発</u></p> <p>ボール挙動、衝突エネルギーと剥離率の関係、ケーブル挙動を再現可能とするシミュレーターの開発に成功した。更に、本シミュレーターにより、パイロットスケールリアクターのサイズおよび最適なステンレスボールサイズを推算可能とした。</p> <p><u>LCA</u></p> <p>複数のインベントリと銅のリサイクル先の組み合わせに対して湿式剥離処理の優位性を示すことができた。また、実験結果を評価に反映するとともに、ベンチスケールの剥離試験結果を元とした重要な操</p>

<p>● 塩ビ被覆材リサイクルの見通し策定（熊谷、塩ビ工業・環境協会、弘進ゴム） 材料リサイクル（熊谷、塩ビ工業・環境協会、弘進ゴム） 本技術により回収した塩ビ被覆材の、材料リサイクル原料としての材料価値を明らかにする。 材料価値を示すための個別目標：</p> <p>✓ 各剥離条件における回収塩ビ被覆材の化学性状（塩ビ量、添加剤組成・量、混入金属量）の解明</p> <p>✓ 回収塩ビ被覆材のオープンロール混練試験による分散性の解明</p> <p>ケミカルリサイクル（熊谷、塩ビ工業・環境協会） 本技術により回収した塩ビ被覆材の、ケミカルリサイクル原料としての材料価値を明らかにする。 材料価値を示すための個別目標：</p> <p>✓ 乾式または湿式脱塩素処理により90%以上の脱塩素率達成。</p>	<p>作変数の決定とそれを軸に取ったBreak-even解析を行うことができ、目標の排出削減を達成するために求められる処理のスペックについての議論を可能とした。</p> <p><u>塩ビ被覆材リサイクルの見通し策定</u> 以下の個別目標達成により、材料リサイクル原料としての有望性やケミカルリサイクルによる化学原料化の可能性が示された。これまで大部分が埋立処分されていた塩ビ被覆材のリサイクルの実現可能性を見出した意義ある成果である。</p> <p><u>個別目標：</u> <u>各剥離条件における回収塩ビ被覆材の化学性状（塩ビ量、添加剤組成・量、混入金属量）の解明</u> ノルマル酢酸ブチルを使用した膨潤処理における被覆材の可塑剤含有量評価及び膨潤電線からのn-酢酸ブチル除去検討により化学性状を把握した。また、いずれの試料からも金属探知機によるチェックをパスした。</p> <p><u>回収塩ビ被覆材のオープンロール混練試験による分散性の解明</u> 軟質塩ビ製品へのリサイクルを想定し、本手法で回収した塩ビ被覆材とバージン塩ビ樹脂のオープンロール練り試験を実施した。回収した塩ビ被覆材を凍結粉碎により数mmサイズまで破碎し、ロール練り試験における可塑剤量を40 phrに下げ、ロール練り時間を15 minに延長した。その結果、塩ビ被覆材由来の樹脂がシートに均一に分散することが明らかとなった。</p> <p><u>乾式または湿式脱塩素処理により90%以上の脱塩素率達成</u> 湿式剥離前の塩ビ被覆材の脱塩素率はNaOH濃度0.1 Mにおいて最大の88.3%、湿式剥離後の塩ビ被覆材の脱塩素率はNaOH濃度0.5Mにおいて最大の57.8%に達した。当初想定していたボールミル湿式脱塩素用ボールミル反応器の修理が開発期間中に完了せず、当初設定目標90%以上を達成できなかった。研究代表者らの過去の研究（Lu, 2019）において、ボールミル中で湿式脱塩素処理を行うと表面のポリエン構造（脱塩素反応が進行したPVC表面）を削り取ることでPVC内部まで脱塩素反応が進行し、種々塩ビ製品の脱塩素率90%以上を達成している。今回の塩ビ被覆材に関しても、将来的に、ボールミルを用いた脱塩素処理により脱塩素率90%以上を達成可能であると考えている。</p>
---	---

<p>✓ 複数脱塩素条件からなる脱塩素処理済被覆材を調製、その熱分解試験を実施し熱分解生成物組成を解明する。</p>	<p><u>複数脱塩素条件からなる脱塩素処理済被覆材を調製、その熱分解試験を実施し熱分解生成物組成を解明する</u></p> <p>異なるNaOH/EG溶液濃度において調製した湿式脱塩素処理後の塩ビ被覆材の熱分解挙動を熱重量分析および熱分解ガスクロマトグラフィーにより検討した。その結果、熱分解により芳香族化合物を主とする化学原料に転換されることが明らかとなった。</p> <p><u>目標を大きく上回る成果をあげたと考える理由</u></p> <ol style="list-style-type: none"> <li>1. シミュレーター開発およびLCAインベントリ作成のために実施していた剥離試験において、塩ビ被覆材および銅線を破断せずに剥離する事に成功し、当初想定よりも高純度の塩ビ被覆材と銅線を回収することに成功した。</li> <li>2. 計画当初では、スケールアップ解析においてケーブル挙動まで含めた解析が必須であると見込んでいたが、ボール挙動の解析から算出する衝突エネルギーによって剥離率を予測できることが明らかとなったため、低計算負荷でスケールアップ解析が可能となり、短時間での計算結果出力を可能とした。</li> <li>3. スケールアップ解析により、本研究開発目標達成に必要なリアクター内径の1.5倍に相当する内径1500 mmのリアクターサイズ及び適切なステンレスボール径（5.0 mm）も算出した。本リアクターで想定される細線処理量は約50 kg/hであり、一日の稼働時間を8時間、稼働日数年間240日を仮定すれば、当初達成目標とする細線処理量の4倍となる約100トン/年の処理が可能であることを見出した。</li> <li>4. シート成型検討を通じて、回収塩ビ被覆材を2 wt %配合した土木シートが、分散製には課題を残しつつも、JIS規格物性をクリアすることを確認した。さらに、ヒアリングや統計調査を元に、リサイクル塩ビの市場価値についても考察した。</li> </ol>
--	---

<サブテーマ2達成状況の自己評価>…………… 1. 目標を大きく上回る成果をあげた

「回収銅線評価法及び前処理法の開発による銅線リサイクルの見通し策定」（三菱マテリアル株式会社、小日向正好）

サブテーマ2目標	サブテーマ2達成状況
<p>● 本技術により回収した銅線の品位を評価する分析手法を確立する。</p> <p>分析手法確立のための個別目標：</p>	<p><u>本技術により回収した銅線の品位を評価する分析手法を確立する</u></p> <p>回収銅線品位を評価する分析手法として、銅線試料を酸溶解してICP-OESにより不純物元素を特定する手法、銅線試料を燃焼して発生するガス分析により付着有機物を評価する手法を確立できた。また、前処理を含むプロセス全体を通して回収する銅</p>

<p>✓ 本技術で回収する銅線の酸溶解処理およびICP-OES分析法の確立</p> <p>✓ 回収銅線の付着有機物を評価するためのガス分析法の確立</p> <p>● 電気銅相当品への水平リサイクル率を最大化するための前処理法を確立する。 前処理法確立のための個別目標：</p> <p>✓ 回収銅線に混入する異種金属前処理法の確立</p> <p>✓ 溶融歩留まりを最大化する回収銅線の塊状化条件の確立</p>	<p>については、試料全体を鋳込んで均一試料を作製し、含まれる不純物元素をGD-MSにて測定することで、異物の混入を正確に評価する方針へと変更し、本プロセスで回収する銅スクラップの品質をより正確に評価する手法を確立した。</p> <p><u>個別目標：</u> <u>本技術で回収する銅線の酸溶解処理およびICP-OES分析法の確立</u> 回収銅線を焙焼-酢酸エッチング処理して付着有機物を除去した試料を酸溶解し、銅電解重量法にて銅純度を、ICP-OESにて含有不純物元素を抽出する手法を確立した。</p> <p><u>回収銅線の付着有機物を評価するためのガス分析法の確立</u> 燃焼-赤外線吸収法で付着C量、燃焼-イオンクロマトグラフィ法により付着Cl量を測定する手法を確立し、0.1%程度のPVC付着という本技術特有の現象も明らかにした。</p> <p><u>電気銅相当品への水平リサイクル率を最大化するための前処理手法を確立する</u> 車1台分のWHを解体し部材情報を収集することで、回収銅に混入する可能性のある異種金属等の不純物源を把握し、高品位銅を回収するために必要な前処理技術を提案した。今後搭載が進むアルミ線等にも着目し、様々な視点で必要な前処理選別技術を検討した。</p> <p><u>個別目標：</u> <u>回収銅線に混入する異種金属前処理法の確立</u> 破碎・物理選別手法を組み合わせ、WHから被覆電線を取り出す現実的かつ効率的な前処理手法、および剥離後試料から銅線を分離回収する選別手法を提案した。ふるい分けにより、主な異種金属混入源である端子と特殊線を適切に選別除去して、銅線の一部を3N～4Nと非常に高い純度の銅として回収することに成功した。</p> <p><u>溶融歩留まりを最大化する回収銅線の塊状化条件の確立</u> 品質安定性を確保できれば塊状化せずに銅線の状態で十分利用可能であることが分かったため、塊状化については検討しないこととし、上記のように剥離処理の前後で適切に異種金属を除去し、最終的な銅品質を確保するための検討に注力した。</p>
---	--

<p>● 回収後WHからの銅線リサイクルに対する経済合理性評価</p>	<p><u>回収後WHからの銅線リサイクルに対する経済合理性評価</u></p> <p>WHをリサイクルする全体プロセスを確立することで、全回収物の行先シナリオを示した。銅スクラップ市場の経済構造上の課題が大きく経済合理性を確保することは難しい試算結果となったが、既存のナゲット処理とプロセスコストを比較し、開発技術の優位性を確保するためには、プロセス全体での歩留まりを向上し、高品位な銅を得られるメリットを最大化する必要があることを確認した。環境貢献や資源戦略としての価値を経済的に評価する必要性にも言及した。</p> <p><u>目標を大きく上回る成果をあげたと考える理由</u></p> <ol style="list-style-type: none"> <li>1. 湿式剥離技術をWHに適用するために必要な処理手法を当初予定以上に綿密に検討し、WHリサイクル全体のプロセス設計を行った。その結果、プロセス全体のLCAや経済性評価を可能とし、多角的かつ総合的なプロセス評価へと繋げた。</li> <li>2. 部材としてのWHのリサイクル性を年式の異なる車体やEV車等のWH解体や種々の調査により評価し、特に銅線品質に影響を与える異種金属混入源を特定してプロセス設計への指針を示した。湿式剥離処理のメリットを最大限生かすプロセス設計により、一部の銅線を既存技術では実現が難しい高品位銅として回収することに成功した。</li> </ol>
-------------------------------------	---



## 1. 6. 研究成果発表状況の概要

## 1. 6. 1. 研究成果発表の件数

成果発表の種別	件数
産業財産権	1
査読付き論文	2
査読無し論文	3
著書	1
「国民との科学・技術対話」の実施	2
口頭発表・ポスター発表	8
マスコミ等への公表・報道等	4
成果による受賞	2
その他の成果発表	0

## 1. 6. 2. 主要な研究成果発表

成果 番号	主要な研究成果発表 (「研究成果発表の一覧」の査読付き論文又は著書から10件まで抜粋)
4	Lu, J., Han, M., Kumagai, S., Li, G., Yoshioka, T. (2023) Communications Engineering, 2, 27. <a href="https://doi.org/10.1038/s44172-023-00079-y">https://doi.org/10.1038/s44172-023-00079-y</a>
5	Kumar, H., Kumagai, S., Saito, Y., Yoshioka, T. (2024) Latest trends and challenges in PVC and copper recovery technologies for End-of-Life thin cables. Waste Management, 174, 400-410. <a href="https://doi.org/10.1016/j.wasman.2023.12.012">https://doi.org/10.1016/j.wasman.2023.12.012</a>

注：この欄の成果番号は「研究成果発表の一覧」と共通です。

## 1. 6. 3. 主要な研究成果普及活動

本研究課題での成果普及活動のうち、国民との科学・技術対話として合計2件行った。1件目は、2025年2月19日～21日に開催されたサーキュラーエコノミーEXPO～2024年度～への出展である。来場者への開発技術の説明およびERCAミニセミナーにおいて2回講演を行った。2件目は、2025年2月26日に研究代表者が主催した「電線リサイクルシンポジウム」（図34）である。本シンポジウムは、本研究開発の成果報告ならびに電線リサイクルに携わる企業・協会の方々からの話題提供からなるプログラム構成とした。大学、関連協会、関連社団法人、および民間企業35社から101名が出席し、参加申込終了の2週間前に募集枠が埋まり、大変高い注目を集めた。シンポジウムの様子は2025年3月5日の日刊産業新聞にて「東北大、被覆材を湿式剥離 電線リサイクルでシンポ」と題して紹介された。

**電線リサイクルシンポジウム**

開催地  
東北大学大学院  
環境科学研究科  
本館 大講義室

開催日  
2025年  
**2/26水**  
13:00-18:00

参加費  
**無料**  
(定員100名)

**開催主旨**  
電線リサイクルにおいて、銅および被覆材の両方のリサイクルに大きな注目が寄せられています。双方を効果的にリサイクルするためには、様々な業界の連携が必要不可欠です。  
東北大学では、自動車等のワイヤーハーネスに使用される銅線を対象として、銅線と塩化被覆材を高度に処理する湿式剥離技術を開発して参りました。本シンポジウムは、これまでの研究開発成果の報告、更には、電線リサイクルに関連する多方面の方々から活発な議論を促していただきます。本シンポジウムを通じて、電線リサイクルの可能性や課題の共有、業界を超えたネットワーク形成を図ります。

**プログラム**

- 13:00-13:05 開会挨拶・主旨説明  
熊谷将吾 (東北大学大学院工学研究科)
- 13:05-13:30 ERCA推進成果報告  
「ワイヤーハーネス廃棄物の処理技術の開発とリサイクルの社会実装に向けたパイロットスケールプロセス設計」  
熊谷将吾、石原真希、大野肇 (東北大学)、平田海子 (三菱マテリア株式会社イノベーションセンター)
- 13:30-13:50 「サーキュラーエコノミーに向けた塩素循環および電線リサイクル」  
高橋優子 (東北大学大学院環境科学研究科)
- 13:50-14:10 「自動車用ワイヤーハーネスにおけるリサイクル技術について」  
加藤孝幸 (矢崎部品株式会社電線外装開発設計センター先行開発部)
- 14:10-14:30 「国内銅スクラップ循環の現状と課題」  
長谷川卓也 (豊田通商株式会社リソースサプライチェーン事業部CEイノベーション室)
- 14:30-14:50 「三菱マテリアの銅リサイクル事業」  
古賀沙織 (三菱マテリア株式会社金属事業カンパニー資源循環事業部事業開発部)
- 14:50-15:10 休憩
- 15:10-15:30 「塩化業界のリサイクルへの取り組み」  
鈴木紀之 (塩化工業・環境協会環境・広報部)
- 15:30-15:50 「使用済みワイヤーハーネス被覆材の再資源化検討」  
斉藤優哉 (リケンテクノス株式会社新規事業開発準備室)
- 15:50-16:10 「鉄道事業者がリサイクルに挑戦する意義」  
藤沼龍太 (東急電鉄株式会社鉄道事業本部電装部)
- 16:10-16:40 質疑応答・総合討論
- 16:40-16:50 総評  
吉岡敏明 (東北大学大学院環境科学研究科)
- 16:50-16:55 閉会挨拶  
熊谷将吾 (東北大学大学院工学研究科)
- 16:55-18:00 名刺交換会 (参加任意)

**備考**  
※本シンポジウムは、環境研究総合推進費3MF-2202「ワイヤーハーネス廃棄物の処理技術の開発とリサイクルの社会実装に向けたパイロットスケールプロセス設計(OPMERF20223M02)」の成果に基づき、社会との対話イベントとして開催いたします。

**参加申込方法**  
下記URLもしくはQRコードからFormへ入力  
<https://forms.gle/4Tw251yNUE7E5iNGA>

**問い合わせ**  
東北大学 熊谷将吾  
kumagai@tohoku.ac.jp  
022-795-7210

図34 電線リサイクルシンポジウムのポスター

また、ミヤギテレビ OH!バンドス4部「情熱Labo」にて、「プラ再利用へ 東北大が開発 新たなリサイクルの形とは？」と題して、本研究開発に関する特集が放送された

(<https://news.ntv.co.jp/n/mmt/category/society/mmddd3d88c41e84786bb81b97c3ba6c1ce>)。また、本研究開発について、2025年2月28日に日刊工業新聞にて「車ハーネス効率再生 東北大、銅線・被覆材分離」と題して紹介され、2025年3月31日に日刊工業新聞「For Future先端技術」でも大きく取り上げられた。

## 1. 7. 国際共同研究等の状況

### <国際共同研究の概要>

中国のShanghai University of Engineering ScienceのJiaqi Lu先生との共同研究により、東北大学で取得したWHケーブルの湿式剥離試験の実験結果を教師データとして活用し、剥離効率を予測する機械学習モデルの開発に成功した。本共同研究では、Lu先生保有の設備を用いて機械学習やシミュレーションを実施したため、本共同研究に対する外部からの資金提供は無い。

### <相手機関・国・地域名>

機関名（正式名称）	（本部所在地等の）国・地域名
Shanghai University of Engineering Science	中華人民共和国・上海

注：国・地域名は公的な表記に準じます。

## 1. 8. 研究者略歴

&lt;研究者（研究代表者及びサブテーマリーダー）略歴&gt;

研究者氏名	略歴（学歴、学位、経歴、現職、研究テーマ等）
熊谷将吾	研究代表者及びサブテーマ1リーダー 東北大学大学院環境科学研究科 環境科学専攻 博士後期課程修了 博士（環境科学） 東北大学大学院環境科学研究科助教を経て、 現在、同大学大学院工学研究科准教授 専門は環境化学、主な研究テーマは高分子廃棄物の化学原料化技術の開発 主な受賞歴：日本学術振興会第5回育志賞、文部科学大臣表彰若手科学者賞
小日向正好	サブテーマ2リーダー 東北大学大学院工学研究科 材料物性学専攻 博士前期課程修了 修士（工学） 三菱マテリアル㈱中央研究所研究員を経て、 現在、同社イノベーションセンター センター長補佐 主に電子材料等の精製技術開発および製品開発に従事

## 2. 研究成果発表の一覧

注：この項目の成果番号は通し番号です。

## (1) 研究成果発表の件数

成果発表の種別	件数
産業財産権	1
査読付き論文	2
査読無し論文	3
著書	1
「国民との科学・技術対話」の実施	2
口頭発表・ポスター発表	8
マスコミ等への公表・報道等	4
成果による受賞	2
その他の成果発表	0

## (2) 産業財産権

成果番号	出願年月日	発明者	出願者	名称	出願以降の番号
1	2025年3月31日	平田洵子、伊藤祐未、村岡弘樹、熊谷将吾、吉岡敏明	三菱マテリアル株式会社、国立大学法人東北大学	ワイヤーハーネスからの被覆電線回収方法	特願2025-040087

## (3) 論文

<論文>

成果番号	発表年度	成果情報	主たるサブテーマ	査読の有無
2	2022	熊谷将吾, 吉岡敏明. (2022) 金属・プラスチック複合製品のリサイクルワイヤーハーネス分離技術を例としてー, 成型加工, 34, 246-249.	1	無
3	2022	熊谷将吾, 吉岡敏明. (2022) 化学的手法を用いた難リ	1	無



		サイクル性プラスチックの資源化, 日本包装学会誌, 31, 289-302.		
4	2023	Lu, J., Han, M., Kumagai, S., Li, G., Yoshioka, T. (2023) Neural network based prediction of the efficacy of ball milling to separate cable waste materials. Communications Engineering, 2, 27. <a href="https://doi.org/10.1038/s44172-023-00079-y">https://doi.org/10.1038/s44172-023-00079-y</a>	1	有
5	2023	Kumar, H., Kumagai, S., Saito, Y., Yoshioka, T. (2024) Latest trends and challenges in PVC and copper recovery technologies for End-of-Life thin cables. Waste Management, 174, 400-410. <a href="https://doi.org/10.1016/j.wasman.2023.12.012">https://doi.org/10.1016/j.wasman.2023.12.012</a>	1	有
6	2025	熊谷将吾, 吉岡敏明. (2025) 複合材料・製品の化学的手法による素材分離, 分離技術, 55, 25-33.	1	無

## (4) 著書

&lt;著書&gt;

成果 番号	発表 年度	成果 情報	主たる サブテーマ
7	2023	熊谷将吾, 吉岡敏明. (2023) 「第4章 第6節」ワイヤーハーネス細線の被覆樹脂および銅の分離技術, EV用モータの資源対策, S&T出版, 178-184, ISBN: 978-4-911146-01-9.	1

## (5) 口頭発表・ポスター発表

&lt;口頭発表・ポスター発表&gt;

成果 番号	発表 年度	成果 情報	主たる サブテーマ	査読 の有無
8	2023	Kumagai S. Recovery of high-purity Cu and PVC from waste wire harness via swelling followed by ball-milling. 第72回高分子学会年次大会 2023年5月25日. 口頭発表、 <b>依頼講演</b>	1	無
9	2023	Kumar H., Kumagai S., Saito Y., Yoshioka T. (2023) Shape-Specific Recovery of Copper and Poly(vinyl chloride) from Waste Wire Harness Cables using Swelling and Subsequent Ball Milling. 第33回廃棄物資源循環学会研究発表会. 2023年9月11日. 口頭発表	1	無
10	2023	Kumar H., Kumagai S., Saito Y., Yoshioka T. (2023) Effective Recovery of High-Purity Copper and Poly(vinyl chloride) from End-of-Life Wire Harness Cables. International Symposium on Feedstock Recycling of Polymeric Materials (ISFR 2023). 2023年11月6日. ポスター発表	1	無
11	2023	Kumar H., Kumagai S., Saito Y., Yoshioka T. (2024) Pyrolysates Selectivity in Fast Pyrolysis of Plasticized Waste Wire Harness Cable PVC. Frontiers in Analytical and Applied Pyrolysis for	1	無

		Energy & Environment, 2024年2月26日. 口頭発表、 <b>Invited talk</b>		
12	2024	熊谷将吾. 高分子リサイクルへの期待と可能性. 日本ゴム協会第58回夏季講座. 2024年8月9日. 口頭発表、 <b>招待講演</b>	1	無
13	2024	矢嶋大揮, Harendra Kumar, 熊谷将吾, Borjigin Siqingaowa, 齋藤優子, 吉岡敏明. 湿式膨潤剥離法による廃ワイヤーハーネス細線の被覆樹脂と銅線の高度剥離. 第35回廃棄物資源循環学会研究発表会 2024年9月9日. 口頭発表.	1	無
14	2024	Taiki Yashima, Shogo Kumagai, Borjigin Siqingaowa, Yuko Saito, Toshiaki Yoshioka. High-purity Cu and PVC coating recovery from waste wire harness by PVC swelling followed by bench-scale milling. 令和6年度化学系学協会東北大会. 2024年9月14日. ポスター発表	1	無
15	2025	【発表予定】Taiki Yashima, Shogo Kumagai, Junko Hirata, Hiroki Muraoka, Siqingaowa Borjigin, Yuko Saito, Toshiaki Yoshioka. Simultaneous recovery of copper and polyvinyl chloride coating from wire harness cables through combined pretreatment, swelling, and ball milling. The 11th 3R International Scientific Conference on Material Cycles and Waste Management. 2025年5月11日. 口頭発表	1	無

## (6) 「国民との科学・技術対話」の実施

成果 番号	発表 年度	成果 情報	主たる サブテーマ
16	2024	サーキュラーエコノミーEXPO ～2024年度～ ERCAブースにおける展示・説明を通じて、一般の方々との対話を実施。	1
17	2024	参加費無料の「電線リサイクルシンポジウム」を主催し、一般の方を含む100名以上が参加。シンポジウムの中で本研究開発成果を紹介し、本技術開発に興味を持つ方々との対話を実施。	1



図35 サーキュラー・エコノミーEXPOにおける展示の様子

# 電線リサイクルシンポジウム

開催地  
**東北大学大学院  
環境科学研究科  
本館 大講義室**

開催日  
**2025年  
2/26水  
13:00-18:00**

参加費  
**無料  
(定員100名)**

開催主旨  
電線リサイクルにおいて、銅および被覆樹脂双方のリサイクルに大きな注目・期待が寄せられています。双方を効果的にリサイクルするためには、様々な業界の連携が必要不可欠です。  
東北大学では、自動車等のワイヤーハーネスに使用される銅線を対象として、銅線と塩ビ被覆材を高度に分離する湿式剥離技術を開発して参りました。本シンポジウムは、これまでの研究開発成果の報告、更には、電線リサイクルに関連する多方面の方々から活発な議論を促すことを目的とします。本シンポジウムを通じて、電線リサイクルの可能性や課題の共有、業界を超えたネットワーク形成を図ります。

プログラム

- 13:00-13:05 開会挨拶・主旨説明  
熊谷将吾 (東北大学大学院工学研究科)
- 13:05-13:30 ERCA推進費成果報告  
「ワイヤーハーネス銅線の塩ビ被覆材剥離技術の高度化とリサイクルの社会実装に向けたパイロットスケールプロセス」  
熊谷将吾、石原真高、大野肇 (東北大学)、平田海子 (三菱マテリアル株式会社イノベーションセンター)
- 13:30-13:50 「サーキュラーエコノミーに向けた塩素循環および電線リサイクル」  
高橋優子 (東北大学大学院環境科学研究科)
- 13:50-14:10 「自動車用ワイヤーハーネスにおけるリサイクル技術について」  
加藤孝幸 (矢崎総業株式会社電線外装開発センター先行開発部)
- 14:10-14:30 「国内銅スクラップ循環の現状と課題」  
長谷川卓也 (豊田通商株式会社リバースサプライチェーン事業部CEイノベーション室)
- 14:30-14:50 「三菱マテリアルの銅リサイクル事業」  
古賀沙織 (三菱マテリアル株式会社金属事業カンパニー資源循環事業部事業開発部)
- 14:50-15:10 休憩
- 15:10-15:30 「塩ビ業界のリサイクルへの取り組み」  
鈴木紀之 (塩ビ工業・環境協会環境・広報部)
- 15:30-15:50 「使用済みワイヤーハーネス被覆材の再資源化検討」  
斉藤健哉 (リケンテクノス株式会社新規事業開発準備室)
- 15:50-16:10 「鉄道事業者がリサイクルに挑戦する意義」  
藤沼龍太 (東急電鉄株式会社鉄道事業本部電気部)
- 16:10-16:40 質疑応答・総合討論
- 16:40-16:50 総評  
吉岡敏明 (東北大学大学院環境科学研究科)
- 16:50-16:55 閉会挨拶  
熊谷将吾 (東北大学大学院工学研究科)
- 16:55-18:00 名刺交換会 (参加任意)

備考  
※本シンポジウムは、環境研究総合推進費3MF-2202「ワイヤーハーネス銅線の塩ビ被覆材剥離技術の高度化とリサイクルの社会実装に向けたパイロットスケールプロセス」(JPMEEF20223M021)の成果に基づき、社会との対話イベントとして開催いたします。

参加申込方法  
下記URLもしくはQRコードからFormへ入力  
<https://forms.gle/4Tw251yNUE7E5INGA>

問い合わせ  
東北大学 熊谷将吾  
kumagai@tohoku.ac.jp  
022-795-7210

図34 (再掲) 電線リサイクルシンポジウムのポスター

## (7) マスメディア等への公表・報道等

成果 番号	発表 年度	成果 情報	主たる サブテーマ
18	2024	ミヤギテレビ OH!バンデス4部「情熱Labo プラ再利用へ 東北大が開発 新たなリサイクルの形とは？」にて本研究開発および電線リサイクルシンポジウムの様子が放送。2024年2月27日放送	1
19	2024	日刊工業新聞「車ハーネス効率再生 東北大、銅線・被覆材分離」にて本研究開発の成果が紹介。2025年2月28日掲載	1
20	2024	日刊産業新聞「東北大、被覆材を湿式剥離 電線リサイクルでシンポ」にて本研究開発の成果および電線リサイクルシンポジウムの様子が紹介。2025年3月5日掲載	1
21	2024	日刊工業新聞「For Future 先端技術」にて、本研究開発の成果が紹介。2025年3月31日掲載	1

## (8) 研究成果による受賞

成果 番号	発表 年度	成果 情報	主たる サブテーマ
22	2022	熊谷将吾 令和4年度文部科学大臣表彰若手科学者賞、文部科学省	1
23	2023	熊谷将吾 令和4年度廃棄物資源循環学会奨励賞、一般社団法人廃棄物資源循環学会	1

## (9) その他の成果発表

成果 番号	発表 年度	成果 情報	主たる サブテーマ
		特に記載する事項はない。	

## 権利表示・義務記載

特に記載する事項はない。

この研究成果報告書の文責は、研究課題に参画した研究者にあります。  
この研究成果報告書の著作権は、引用部分及びERCAのロゴマークを除いて、原則的に著作者に属します。  
独立行政法人環境再生保全機構（ERCA）は、この文書の複製及び公衆送信について許諾されています。



**Abstract****[Project Information]**

Project Title : Design of Pilot-Scale Wet Milling Separation Process for Polyvinyl Chloride Coverings and Copper Recovery from Waste Wire Harness Cables Toward Practical Implementation

Project Number : JPMEERF20223M02

Project Period (FY) : 2022-2024

Principal Investigator : Shogo Kumagai

(PI ORCID) : ORCID 0000-0002-5046-372X

Principal Institution : Tohoku University  
Sendai City, Miyagi, JAPAN  
Tel: +81227957210  
E-mail: kumagai@tohoku.ac.jp

Cooperated by : Mitsubishi Materials Corporation

Keywords : ELV, Wire harness, Recycling, poly(vinyl chloride), Copper

**[Abstract]**

The goal of this project is to design a pilot-scale process—based on the combined poly(vinyl chloride) (PVC) swelling by *n*-butyl acetate and moderate impact ball-milling technique—to recycle high purity copper conductors and PVC coatings from end-of-life wire harnesses (WH).

Sub-theme 1 (Tohoku University): This workstream focused on designing a pilot-scale ball-mill reactor. Bench-scale experiments, a purpose-built simulator, life-cycle assessment (LCA), and machine-learning-based optimization were seamlessly integrated to derive a high-precision, high-efficiency reactor configuration. In parallel, we evaluated the material value of the recovered PVC coatings as feedstock for mechanical recycling through detailed characterization. In addition, dechlorination treatment of the recovered PVC coatings and subsequent pyrolysis was conducted to assess their potential for chemical-feedstock recovery.

Sub-theme 2 (Mitsubishi Materials Corporation): This workstream evaluated the feasibility of closed-loop recycling of copper conductors to electrolytic-grade copper. We established analytical and evaluation protocols for bench-scale samples, assessed the influence of recovered-copper quality on existing recycling processes, investigated crushing and sieving pretreatments to collect cables from WH, and carried out an economic analysis of copper and PVC recovery from end-of-life WH using the new technology.

By integrating the outcomes from two sub-themes, this project achieved a comprehensive pilot-scale process design encompassing pretreatment of end-of-life WH for cable collection; separation of PVC coatings and copper conductors via the newly developed combined PVC swelling and ball-milling

method; and recycling potential of both streams. Through combined experimental work and simulations (discrete-element modelling and machine learning), we identified optimal swelling and ball-milling conditions that enable high-purity recovery of both copper and PVC coatings without comminution. A pilot-scale reactor capable of treating 25 t/year of WH cables was subsequently designed. The studies further demonstrated that the recovered PVC coatings are suitable for mechanical recycling and that the recovered copper can be recycled to electrolytic-grade quality. These outcomes provide a robust technical and economic foundation for scaling up the combined PVC swelling and ball-milling technology and for advancing circular-economy practices in WH recycling.

### **[References]**

Lu, J., Han, M., Kumagai, S., Li, G., Yoshioka, T. (2023) 'Neural network based prediction of the efficacy of ball milling to separate cable waste materials', *Communications Engineering*, 2, p.27  
DOI:10.1038/s44172-023-00079-y

Kumar, H., Kumagai, S., Saito, Y., Yoshioka, T. (2024) 'Latest trends and challenges in PVC and copper recovery technologies for End-of-Life thin cables', *Waste Management*, 174, p.400-410.  
DOI:10.1016/j.wasman.2023.12.012

This research was performed by the Environment Research and Technology Development Fund (JPMEERF20223M02) of the Environmental Restoration and Conservation Agency provided by Ministry of the Environment of Japan.