

パルス放電噴流床を用いたLED素子からの酸化ガリウムの分離・回収

小林, 稔 / KOBAYASHI, Minoru

(出版者 / Publisher)

法政大学大学院理工学研究科

(雑誌名 / Journal or Publication Title)

法政大学大学院紀要. 理工学研究科編

(巻 / Volume)

65

(開始ページ / Start Page)

1

(終了ページ / End Page)

2

(発行年 / Year)

2024-03-24

(URL)

<https://doi.org/10.15002/00030650>

パルス放電噴流床を用いた LED 素子からの 酸化ガリウムの分離・回収

SEPARATION AND RECOVERY OF GALLIUM OXIDE FROM LED ELEMENTS USING A SPOUTED BED
HEATED BY PULSED DISCHARGE

小林稔

Minoru KOBAYASHI

指導教員 明石孝也

法政大学大学院理工学研究科応用化学専攻修士課程

A novel spouted bed was developed to separate and recover gallium oxide from gallium nitride in LED elements. In the spouted bed, LED elements were pulverized and heated by pulsed electric discharging and a burner. After heat-treatment in the spouted bed, black substance was adhered to the inner wall of the spouted bed. Chemical analysis by ICP-AES confirmed that the most gallium was contained in the black substance at higher discharging frequency of 250 Hz, demonstrating that gallium can be separated and recovered from the LED elements by the spouted bed.

Key Words : LED, Gallium, Recovery, Recycle, Pulsed discharge, Spouted bed

1. はじめに

LED(Light Emitting Diode)照明は、高い発光効率を持ち長寿命であるため、省エネルギーの観点から広く普及している。また、それに伴い旧型の LED 照明の多量廃棄も行われている。現在、LED 照明を構成する原料のうちアルミニウムや銅などに関しては再資源化がなされているが、LED 素子の発光部に用いられるレアメタルのガリウム(Ga)の再資源化に関しては未だ研究段階である。しかし、今後はさらに GaN パワー半導体や Ga₂O₃ パワー半導体が普及すると予想されるため、Ga の資源確保の問題はますます重要となり、Ga の供給量は今後の需要に対して不足する可能性も想定される。よって、LED 素子から Ga を回収する技術を開発することは、近い将来に予想される資源リスクを回避する上で極めて重要である。

当研究グループでは、現在までの研究で、還元噴流床を用いて廃 LED 素子から Ga を Ga₂O(g)として分離し、Ga₂O₃(s)として回収できることを実証してきた。しかし、還元噴流床の加熱方式が外熱式の赤外線加熱であるために投入エネルギーが大きく、事業化に向けて経済性の課題を解決する必要がある。

そこで、本研究ではこの課題を解決すべく、内熱式のパルス放電とバーナーを用いた噴流床を新たに開発した。以下、この噴流床をパルス放電噴流床と呼ぶ。パルス放電を用いることにより LED 素子の破碎と効率的な Ga の分離がなされることを期待している。本発表では、パルス

放電とバーナーを用いた噴流床炉によって、LED 素子から Ga を分離・回収できることを実証し、パルス放電条件を最適化することを目的とする。

2. 実験方法

LED 素子(4 mm×1 mm×0.5 mm) 200 個を石英製の噴流床内に入れ、噴流床内部の気体を上部から吸引することによって、噴流床底部に備えた 1.5 mmφの噴出口からバーナーの燃焼ガスを吸引した。この状態で噴流床内に設置した電極間(電極間距離 20 mm)にパルス電圧を印加した。パルス出力の繰り返し周波数を 100, 150, 200, 250 Hz と変えて、10 min のパルス放電を行った。また、パルス放電中における噴流床底部の温度は、放射率を $\epsilon = 0.90$ に設定した放射温度計により測定した。

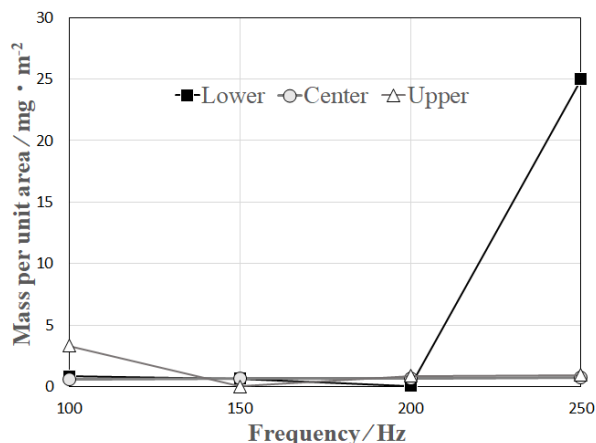
LED 素子のパルス放電処理の後、噴流床内部の残渣を取り除き、石英製噴流床(管状)の大気中焼成を 700 °C で 1 h 行った。石英製噴流床の内壁の上部、中部、下部のそれぞれに付着した物質とその質量を、高周波誘導結合プラズマ発光分光分析法(ICP-AES)を用いて評価した。噴流床内部の残渣は、ふるい分けを行い、走査型電子顕微鏡観察(SEM)とエネルギー分散型 X 線分析(EDS)を行った。

3. 結果

各周波数でパルス放電を行い石英製の噴流床の内壁に付着した物質の ICP-AES 分析の結果を Fig. 1 に示す。Ga

は噴流床に付着して回収されたことが ICP-AES から分かった。また、Ga の質量は石英製噴流床を上部・中部・下部の三部位で大きく異なり、放電部近くの下部において回収量が多いことが分かった。周波数で比較すると、250 Hz の下部で最も多くの質量を回収でき、200 Hz の場合と比較すると約 570 倍であった。また、Ga の質量は 100 Hz から 250 Hz にかけて増加する傾向が見られた。

Fig. 1 Mass of recovered gallium per unit inner-surface



area of spouted bed at each position (top, middle, and bottom).

次に各周波数でパルス放電を行った際の噴流床底部の温度を Fig. 2 に示す。放射温度計により、250 Hz で平均温度は 804 °C、200 Hz では 763 °C、150 Hz では 750 °C、100 Hz では 704 °C であった。また、最高温度は 250 Hz では 902 °C、200 Hz では 870 °C、150 Hz では 857 °C、100 Hz では 845 °C であった。平均温度、および最高温度は、周波数が高くなるほど上昇した。

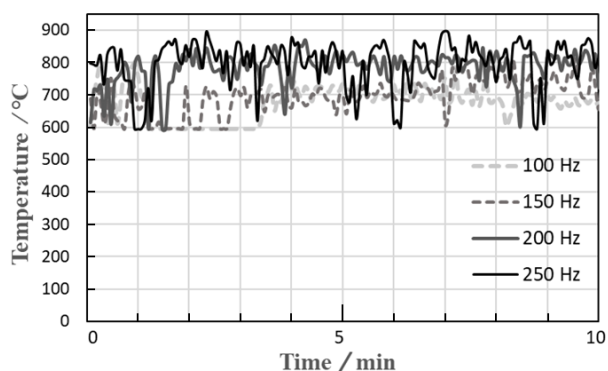


Fig. 2 Temperature of spouted bed during pulsed discharging at various frequencies.

また、Fig. 1 に示した結果と比較すると、250 Hz の周波数において Ga の回収量は多く、噴流床部の温度も高いことから、Ga の回収に影響を及ぼす要因の 1 つは、噴流床部の温度であると考えられる。

次に 250 Hz と 100 Hz の焼成残渣外観を Fig. 3 に示す。250 Hz 及び 100 Hz の条件では、2 mm 以上の焼成残渣は存在しなかった。850 μm ~ 300 μm の粒群に関して、構

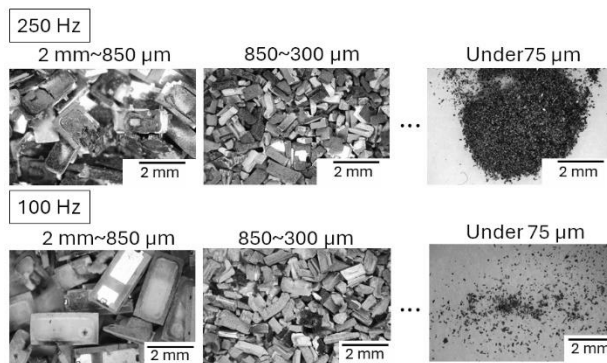


Fig. 3 Appearance of residue with different particle size after pulsed discharging (250 Hz and 100 Hz).

成している残渣は、試料の LED 素子を覆っているカバーが破碎されたもの、LED 素子の基板が砕けた金属部分であった。また、75 μm 未満の焼成残渣は両試料ともほぼ粉末状になっていた。

250 Hz の焼成残渣について、2 mm ~ 850 μm の粒群では元の試料である LED 素子が破碎され、亀裂も生じ、一部溶けたり、結合している部分も確認できた。また、焼成残渣の色は黒くなっており、試料が炭化していることが分かった。850 μm ~ 300 μm に関しては、残渣に結合している箇所は見られなかったが、残渣の色は黒くなっており、炭化していた。

100 Hz の焼成残渣について、2 mm ~ 850 μm の粒群では LED 素子に亀裂・破碎は見られたが、250 Hz と比べるとほとんど破碎されていなかったことが分かる。残渣の色も少し茶色く焦げ付いた色になっており、250 Hz のように黒く炭化している状態ではなかった。また、850 μm ~ 300 μm の焼成残渣は炭化していなかった。75 μm 未満の焼成残渣は 250 Hz と比べると残渣の量が大きく異なり 100 Hz の残渣は少なかったことが分かる。

上記のように、高い周波数において、LED 素子が多く破碎されたことから、Ga の回収に及ぼすもう 1 つの要因は、パルス放電による LED 素子の破碎であると言える。

4. まとめ

LED 素子から Ga を分離・回収するために新たに開発したパルス放電噴流床を用いた実証実験を行い、Ga が回収できることを確認した。

Ga は石英製噴流床の放電部である下部に多く集まっており、250 Hz のパルス放電条件で最も多く、200 Hz と 250 Hz での回収量の差は、約 570 倍であった。また、パルス放電中の噴流床部の温度には周波数依存性が見られ、周波数が高いほど高かった。焼成残渣は、250 Hz の高周波数で黒く炭化しており、2 mm ~ 850 μm の残渣には LED 素子が破碎し、亀裂が入っていた。一方、100 Hz の低周波数での残渣は、ほとんど炭化しておらず、ほぼ原型を留めていた。