The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	硫化物相の形成を利用した低品位二次原料からのニッケルおよびコバルトの回収プロセスの研究
Author(s)	門前, 兼廣
Citation	大阪大学, 2016, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/55920
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　門前　兼廣　）	
論文題名	硫化物相の形成を利用した低品位二次原料からの ニッケルおよびコバルトの回収プロセスの研究

論文内容の要旨

廃棄物等の二次原料からの非鉄金属の回収は、非鉄金属の多くが硫化物を作りやすく、硫化物からの個々の非鉄金属の抽出には既に稼働している非鉄製錬プロセスが適用できるため、二次原料中の非鉄金属を硫化してマットを製造する硫化製錬が適用されている。現状のプロセスでは、マット中のニッケルやコバルトは後工程の銅製錬においてスラグへと溶解しほとんど回収されていない。本論文では、硫化製錬と既存のニッケル・コバルト精製プロセスを活用した、低品位二次原料からニッケルおよびコバルトを効率的に回収するプロセスを研究した。

第1章では、金属リサイクルの社会的背景、金属リサイクルプロセスのあるべき姿と現状を俯瞰し、本研究の目的について述べた。

第2章では、硫化製錬の実操業データを鉄のマット中の濃度に対するスラグ中の濃度の比を指標として解析し、各種非鉄金属のマットースラグ間の分配に及ぼす酸素ポテンシャルの影響を研究した。銅や鉛の分配比はマット品位が上がると増大することを見出し、硫化製錬において非鉄金属の分配比を向上する操業条件があることを示した。

第3章では、実操業よりもマット品位が広い範囲での硫化製錬をるつぼ試験により模し、非鉄金属のマットースラグ間の分配を研究した。硫化製錬の条件下で酸化物よりも硫化物が安定な銅、鉛、ニッケルの分配比は、70%までのマット品位においてマット品位の上昇に伴い増大し、高品位マットの溶製により銅、鉛、ニッケルの分配比を通常操業の1.5～4倍に向上できることを見出した。また、二次原料中に不可避的に共存するナトリウムは、それを含まない場合に比べ、銅、鉛、ニッケルの分配比を約2倍向上させること、珪酸度の低いスラグの使用により銅、鉛、ニッケル、コバルトのスラグ中への溶解が抑制されることなどを見出し、硫化製錬において高品位銅マットを溶製することで、ニッケルおよびコバルトをマット中に高い効率で回収できることを示した。

第4章では、ニッケルおよびコバルトを含有する高品位銅マットから、ニッケルとコバルトを抽出するプロセスを研究した。高品位銅マットに銅を添加し溶融すると、ニッケルとコバルトの濃度が高品位銅マット中よりも高く硫黄濃度の低いメタル相と、ニッケルとコバルトの濃度が高品位銅マット中よりも低く硫黄濃度の高いマット相の2液相に分離することを見出した。メタル相中のニッケルとコバルトの濃度は、いずれもマット相中の5倍程度であるものの、メタル相およびマット相の組成の解析により得た回帰式に基づき考案した、2液相分離を繰り返す乾式並流多回溶媒抽出によりメタル相中の鉄の濃度を大幅に低下できることを見出した。この方法によれば、鉄をほとんど含まずにニッケルを約1.2%、コバルトを約0.18%含有する銅を主成分とするメタル相が製造できることを示した。

第5章では、ニッケルおよびコバルトを濃縮したメタル相から、ニッケルおよびコバルトを含有する酸化物相の製造方法とその浸出方法を検討した。第4章の方法で得られるメタル相の酸化吹錬により得られる酸化物と、それに随伴する銅を酸化したのちに併せて再溶融することで、水砕による細粒化が可能なコバルトおよびニッケルを含有する低融点酸化物相の製造が可能なこと、酸化物相は既存のHPAL法により浸出が可能で、浸出液を既存のニッケル・コバルト精製プロセスへ供給することでニッケルとコバルトの分離回収が可能であることを示した。

第6章では、本研究で提案した条件での硫化製錬の操業、ニッケルおよびコバルトを濃縮したメタル相の製造とその酸化と、既存の銅およびニッケル・コバルト製錬プロセスとからなる、一連のニッケルおよびコバルト回収プロセスを提案した。このプロセスにより二次原料中のニッケルの99%、コバルトの71%を回収できることから、国内消費量の35～40%のニッケルおよびコバルトが新たに回収可能となることを示すとともに、その実現に向けた課題を整理した。

第7章では、本研究で提案する低品位二次原料からのニッケルおよびコバルトの回収プロセスの、循環型社会における有用性について述べ、本研究を総括した。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　門前　兼廣　）	
論文審査担当者	（職）　氏　名 主 査　（准教授）　小俣　孝久 副 査　（教授）　田中　敏宏 副 査　（教授）　竹内　栄一 副 査　（教授）　藤本　愼司

論文審査の結果の要旨

金属のリサイクルは、環境保全や資源確保に欠かせない技術として期待されている。近年では、資源確保の強い要請を受け、リサイクル原料中の濃度が低いニッケル、コバルトなどの非鉄金属を効率よく回収する技術が求められている。現在、銅、亜鉛、貴金属などの非鉄金属は、それらを硫化して濃縮する硫化製錬により回収されているが、現状ではニッケルやコバルトは殆ど回収されていない。本論文は、硫化製錬と既存のニッケル・コバルト精製プロセスを活用し、ニッケルおよびコバルトの高効率な回収について研究したものであり、主な成果は以下のとおりである。

(1)硫化製錬の実操業における各種非鉄金属のマットースラグ間の分配挙動を研究し、銅や鉛の分配比（スラグ中の濃度に対するマット中の濃度）はマット品位（マット中の銅濃度）とともに増大することを明らかにしている。さらに、実操業よりも広範囲なマット品位における分配挙動をるつぼ試験により研究し、マット品位が 70%までの範囲においては、銅、鉛、ニッケルの分配比はマット品位とともに増大することを明らかにし、高品位マットの溶製により銅、鉛、ニッケルの分配比を、通常の銅マット溶錬での分配比の 1.5～4 倍に向上できることを見出している。

(2) リサイクル原料では混入を避けられないナトリウムが硫化製錬における非鉄金属の分配比に及ぼす影響を研究し、ナトリウムの共存は銅、鉛、ニッケルの分配比を約 2 倍に向上することを明らかにしている。また、使用するスラグの性状が分配比に及ぼす影響を研究し、珪酸度の低いスラグの使用により銅、鉛、ニッケル、コバルトのスラグ中への溶解が大幅に抑制されることを見出している。これらの効果を利用しつつ銅品位 70%のマットを溶製することで、リサイクル原料中のニッケルの約 99%、コバルトの約 56%をマット中に回収できることを示している。

(3)ニッケルおよびコバルトを含有する高品位銅マットから、ニッケルとコバルトを抽出するプロセスを研究し、高品位銅マットに銅を添加し溶融すると、ニッケルとコバルトの濃度が高品位銅マット中よりも低いマット相と、マット相に比べてニッケルは 4 倍、コバルトは 6 倍程度に濃縮されたメタル相の、2 液相に分離することを見出している。この 2 液相分離を繰り返す並流 2 回溶媒抽出により、ニッケルを約 1.2%、コバルトを約 0.18%含有し鉄の濃度が非常に低い銅を主成分とするメタル相を製造でき、このメタル相の酸化吹錬により得られる酸化物相を商業稼働中のニッケル・コバルト製錬プロセスで精製すれば、国内消費量の 35～40%のニッケルおよびコバルトが新たにリサイクル可能となることを提案している。

以上のように本論文では、ニッケルおよびコバルトの高効率な回収に適した硫化製錬の操業条件を見出し、新たなニッケルおよびコバルトの濃縮プロセスを開発しているとともに、それらのプロセスの設計に関する重要な知見を提示しており、今後のリサイクルの拡大に資するだけでなく、材料工学の発展に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。