

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7160271号
(P7160271)

(45)発行日 令和4年10月25日(2022.10.25)

(24)登録日 令和4年10月17日(2022.10.17)

(51)国際特許分類

F I

C 0 1 B 32/215(2017.01)

C 0 1 B 32/215

H 0 1 M 4/587(2010.01)

H 0 1 M 4/587

請求項の数 3 (全9頁)

(21)出願番号	特願2018-189154(P2018-189154)	(73)特許権者	509154420
(22)出願日	平成30年10月4日(2018.10.4)		株式会社N S C
(65)公開番号	特開2020-55723(P2020-55723A)		大阪府豊中市利倉1丁目1番1号
(43)公開日	令和2年4月9日(2020.4.9)	(72)発明者	板倉 寛
審査請求日	令和3年9月27日(2021.9.27)		大阪府豊中市利倉1丁目1番1号 株式
			会社N S C内
		(72)発明者	水谷 竜也
			大阪府豊中市利倉1丁目1番1号 株式
			会社N S C内
		審査官	磯部 香

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 黒鉛精製装置

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

粒状黒鉛から不純物を除去することによって高純度化された粒状黒鉛を回収するように構成された黒鉛精製装置であって、

粒状黒鉛および電解液を収容する筒状の収容部であって、粒状黒鉛の投入口と排出口とを有する収容部と、

前記収容部内において前記粒状黒鉛を前記投入口から前記排出口へ搬送するように構成された搬送スクリュと、

前記搬送スクリュに回転力を付与する駆動部と、

前記搬送スクリュおよび前記収容部に対して電流を通電するように構成された電源部と、

を少なくとも有し、

前記搬送スクリュは、前記電源部に接続された導電性のシャフトと、

前記シャフトの周面を被覆するように構成された非導電性のスクリュ部と、

を備えており、
前記スクリュ部の一部に前記シャフトを露出させるための開口部が設けられており、かつ、

前記スクリュ部は、前記シャフトの軸方向に沿って複数取り付けられており、

前記スクリュ部のそれぞれが、前記シャフトの周面に着脱自在に取り付けられる筒状部材であり、

前記スクリュ部のそれぞれの長さが、前記スクリュ部の外周面に形成された螺旋状スクリ

ユ羽根が周面を1周する長さであることを特徴とする黒鉛精製装置。

【請求項2】

前記収容部は、内壁面に導電性の第1のハウジングと、
前記第1のハウジングの外側に設けられた非導電性の第2のハウジングと、
を有することを特徴とする請求項1に記載の黒鉛精製装置。

【請求項3】

前記搬送スクリュは、前記収容部内に2本設けられており、
2本の前記搬送スクリュは、それぞれ別方向に回転することを特徴とする請求項1または2に記載の黒鉛精製装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、粉末状の黒鉛（グラファイト）から不純物を除去することによって高純度化された粒状黒鉛を回収するように構成された黒鉛精製装置に関する。

【背景技術】

【0002】

リチウムイオン二次電池の負極材料として、黒鉛が広く用いられてきた。リチウムイオン二次電池を高容量化するためには、使用する黒鉛を高純度化する必要がある。このため、従来、黒鉛の融点の高さを利用して、黒鉛を加熱することによって、不純物を昇華させて黒鉛の高純度化を実現する技術が開発されてきた。

【0003】

ところが、熱処理によって黒鉛を高純度化する場合、黒鉛を2000以上の温度になるように加熱する必要があるため、膨大なエネルギーが必要であった。また、そのような高温にも耐えうる設備が必要になるため、設備コストがかさむというデメリットがあった。

【0004】

そこで、従来技術の中には、電磁波を用いて粒状黒鉛を加熱することによって粒状黒鉛の高純度化を図るものがあった（例えば、特許文献1参照）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【文献】米国公開2017/0312730号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

しかしながら、上述の従来技術においては、電磁波を発生する設備および電磁波によって加熱された黒鉛を収容するのに十分な耐熱性を備えた反応炉が必要になる。このため、黒鉛を加熱するために必要な時間の短縮を図ることはできても、依然として高価で複雑な設備が必要になる。

【0007】

本発明の目的は、設備の低コスト化および簡素化を実現することが可能な黒鉛精製装置を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明に係る黒鉛精製装置は、収容部、搬送スクリュ、駆動部および電源部を備えている。収容部は、粒状黒鉛および電解液を収容するように筒状を呈しており、粒状黒鉛を投入するための投入口および粒状黒鉛を排出するための排出口を有している。搬送スクリュは、粒状黒鉛を投入口から排出口を搬送するように構成される。駆動部は、搬送スクリュに回転力を付与する。電源部は、搬送スクリュおよび収容部に対して電流を通電するように構成される。搬送スクリュは、電源部に接続された導電性のシャフトおよびシャフトの周面を被覆するように構成された非導電性のスクリュ部を備えており、スクリュ部の一部

10

20

30

40

50

にシャフトを露出させるための開口部が設けられている。

【 0 0 0 9 】

黒鉛精製装置は、収容部内で電解液に粒状黒鉛を浸漬させた状態で搬送スクリュおよび収容部に電流を通電させることにより、電解研磨と同様の反応が発生し、不純物が金属イオンとして電解液中に溶出する。また、搬送スクリュによって粒状黒鉛を搬送することにより、不純物の除去反応を促進され、高純度の粒状黒鉛が得られる。

【 0 0 1 0 】

また、収容部は、内壁面に導電性を有する第 1 のハウジングおよび第 1 のハウジングの外側に設けられた非導電性の第 2 のハウジングを有することが好ましい。第 1 のハウジングは、導電性部材で構成されており、電解液を通じて粒状黒鉛に電流を通電させることができる。第 2 のハウジングは、第 1 のハウジングを外側から支持することで、収容部の強度を保つ。

【 0 0 1 1 】

また、搬送スクリュは、収容部内に 2 本設けられており、2 本の搬送スクリュは、それぞれ別方向に回転することが好ましい。搬送スクリュが 2 本設けられることにより、電解液をより攪拌させることが可能になり、不純物の除去効率が向上する。

【 発明の効果 】

【 0 0 1 2 】

本発明によれば、低コストかつ簡易に黒鉛の高純度化を図ることが可能な黒鉛精製装置を提供することが可能になる。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 1 3 】

【 図 1 】 本発明の一実施形態に係る黒鉛精製装置の概略図である。

【 図 2 】 黒鉛精製装置の収容部の構成を示す概略側面図である。

【 図 3 】 搬送スクリュの構成を示す図である。

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 1 4 】

ここから、図面を用いて本発明に係る黒鉛精製装置について説明する。図 1 は、本発明の実施形態に係る黒鉛精製装置 10 の概略を示した図である。黒鉛精製装置 10 は、収容部 12、第 1 の搬送スクリュ 20、第 2 の搬送スクリュ 22、駆動部 24、電源部 26、黒鉛回収部 30 を備えている。黒鉛精製装置 10 は、不純物が付着した状態の粒状黒鉛を収容部 12 内で電解研磨処理することにより、粒状黒鉛から不純物を除去し、高純度化を図るように構成される。

【 0 0 1 5 】

収容部 12 は、筒状を呈しており、粒状黒鉛および電解液を内部に収容するように構成される。また、収容部 12 は、粒状黒鉛を収容部 12 に投入するための投入口 14 および粒状黒鉛を収容部 12 から排出するための排出口 16 を有している。投入口 14 は、収容部 12 の長手方向の一方の端部側上面に配置されている。また、投入口 14 からは粒状黒鉛だけでなく電解液も投入される。この実施形態では、投入口 14 を介して収容部 12 に粒状黒鉛や電解液が手動で投入される例を説明しているが、粒状黒鉛収容部および電解液収容部から適量の粒状黒鉛および電解液をそれぞれ自動的に収容部 12 の投入口 14 近傍に供給する構成を採用することも可能である。

【 0 0 1 6 】

排出口 16 は、投入口 14 が設けられた側と反対側の端部側下面に配置されており、収容部 12 内で処理された粒状黒鉛および電解液を収容部 12 から排出するように構成される。

【 0 0 1 7 】

排出口 16 の下部には、黒鉛回収部 30 が配置されている。黒鉛回収部 30 は、回収フィルタ 32 および回収槽 34 を有している。回収フィルタ 32 は、粒状黒鉛の粒径に応じた空隙を有するフィルタである。粒状黒鉛の粒径は、100 ~ 200 μm 程度であるため

10

20

30

40

50

、回収フィルタ 3 2 のメッシュ径は、5 0 ~ 1 0 0 μ m であれば、粒状黒鉛を回収することが可能である。

【 0 0 1 8 】

回収槽 3 4 は、上方に開口部を有し、収容部 1 2 から排出された電解液を収容するように構成される。回収フィルタ 3 2 は、回収槽 3 4 の開口部に配置されており、収容部 1 2 から排出される粒状黒鉛を回収する。また、回収槽 3 4 にて回収された電解液は、投入口 1 4 に送液され、粒状黒鉛の高純度化処理に再利用される。

【 0 0 1 9 】

ここから、収容部 1 2 の構成について、図 2 (A) および図 2 (B) を用いて説明する。なお、図 2 (A) は、収容部 1 2 の概略側面図であり、図 2 (B) は、収容部 1 2 の概略平面図である。収容部 1 2 は、導電性の第 1 の筐体 1 8 1 と非導電性の第 2 の筐体 1 8 2 を有している。また、収容部 1 2 の上部は、蓋体 1 9 によって覆われている。蓋体 1 9 は、透明樹脂によって形成されており、電解液に耐性を有する素材であれば、特に制限はない。

10

【 0 0 2 0 】

第 1 の筐体 1 8 1 は、収容部 1 2 の側面部および底面部の内壁面に当たり、電解液と接するように構成される。第 1 の筐体 1 8 1 は、電解液に耐性を有する導電性部材であれば特に制限はない。本実施形態では、カーボン部材を使用しているが、ステンレス材や銅材等を使用することも可能である。

【 0 0 2 1 】

20

第 2 の筐体 1 8 2 は、第 1 の筐体 1 8 1 の外部に配置されている。第 2 の筐体 1 8 2 は、電解研磨処理を行う際の電解液の温度に耐えうるものであれば、特に制限はなく、例えば、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂等の樹脂素材を使用することができる。第 1 の筐体 1 8 1 は、第 2 の筐体 1 8 2 の内部に接合剤等により固定されることが好ましい。第 1 の筐体 1 8 1 と第 2 の筐体 1 8 2 を有することにより、収容部 1 2 の側面および底面は、二重構造となり、強度が向上する。

【 0 0 2 2 】

収容部 1 2 は、長さ方向に沿って第 1 の搬送スクリュ 2 0 および第 2 の搬送スクリュ 2 2 が回転自在に挿通されている (図 2 (A) および図 2 (B) 参照) 。第 1 の搬送スクリュ 2 0 および第 2 の搬送スクリュ 2 2 は、実質的に同一の構成であるため、ここからは第 1 の搬送スクリュ 2 0 について説明し、第 2 の搬送スクリュ 2 2 については、第 1 の搬送スクリュ 2 0 と相違する部分のみについて説明する。

30

【 0 0 2 3 】

第 1 の搬送スクリュ 2 0 は、図 3 (A) および図 3 (B) に示すように、導電シャフト 3 8 およびスクリュ部 4 0 を備えている。導電シャフト 3 8 は、導電性部材で構成されており、本実施形態では、カーボンシャフトが使用されている。導電シャフト 3 8 は、収容部 1 2 内に挿通されており、一端が収容部 1 2 の壁面において回転可能に支持されており、他端が黒鉛精製装置 1 0 の筐体から突出している。

【 0 0 2 4 】

第 1 の搬送スクリュ 2 0 は、収容部 1 2 内において、スクリュ部 4 0 を備えている。スクリュ部 4 0 は、導電シャフト 3 8 の周面に取り付けられる筒状部材であり、スクリュ羽根 4 2 を有している。スクリュ部 4 0 は、スクリュ羽根 4 2 が周面を 1 周する程度の長さであり、シャフトの軸方向に沿って複数取り付けられている。

40

【 0 0 2 5 】

スクリュ部 4 0 は、非導電性の樹脂部材で形成されている。樹脂部材は、電解液に耐性を有するものであれば特に制限はなく、例えば、ポリエチレン系樹脂、ポリプロピレン系樹脂を使用することが可能である。スクリュ部 4 0 は、導電シャフト 3 8 の周面に対して着脱自在の部材であり、導電シャフト 3 8 の周面に対して固定ネジ等で固定することが可能である。本実施形態では、電解液に耐性を有する固定ネジ 4 4 によって固定される。

【 0 0 2 6 】

50

スクリュ羽根 4 2 は、スクリュ部 4 0 の外周面に形成された螺旋状の羽根部材である。スクリュ羽根 4 2 は、第 1 の搬送スクリュ 2 0 が回転することで、電解液に対して投入口 1 4 側から排出口 1 6 側へ液流を発生させ、収容部 1 2 内で粒状黒鉛を搬送するように構成される。スクリュ羽根 4 2 の形状に特に制限はないが、第 1 の筐体 1 8 1 とスクリュ羽根 4 2 の端部の隙間は、1 ~ 5 mm 程度設けられることが好ましい。スクリュ羽根 4 2 の収容部 1 2 の壁面部に間隔が空きすぎると、電解液が壁面付近で滞留してしまい、粒状黒鉛の搬送不良や不純物の反応が阻害されるおそれがある。

【 0 0 2 7 】

また、スクリュ部 4 0 は、外周面に開口部 4 6 が形成されている。開口部 4 6 は、導電シャフト 3 8 の外周面が露出するように形成された孔部である。開口部 4 6 は、略楕円形状を呈しており、第 1 の搬送スクリュ 2 0 の長さ方向に沿って一定間隔に形成されている。なお、開口部の形状は、楕円形状以外にも矩形状であったり線状であったりしても良い。

10

【 0 0 2 8 】

第 1 の搬送スクリュ 2 0 は、収容部 1 2 の側壁面に形成された開口部を貫通して収容部 1 2 に導入されている。第 1 の搬送スクリュ 2 0 は収容部 1 2 の開口部において、転がり軸受により支持されており、開口部の周囲にはシール材 5 4 が配置されている。シール材 5 4 は、電解液に耐性を有する樹脂材を使用することが可能である。シール材 5 4 を配置することにより、収容部 1 2 の密閉性が向上する。なお、シール材 5 4 は、第 1 の搬送スクリュ 2 0 の他端側を支持する壁面部においても配置されている。

20

【 0 0 2 9 】

第 1 の搬送スクリュ 2 0 は、収容部 1 2 の外部において駆動ギア 5 0 を備えている。駆動ギア 5 0 は、駆動部 2 4 からの駆動力が伝達され、第 1 の搬送スクリュ 2 0 に回転力を付与するように構成される。駆動ギア 5 0 は、収容部 1 2 の外において導電スクリュ 3 8 の外周面に設けられている。駆動ギア 5 0 の形状や寸法は、適宜選択することが可能である。

【 0 0 3 0 】

駆動ギア 5 0 の下部には、電解液排出口 5 6 が設けられている。電解液排出口 5 6 は、万が一、シール材 5 4 が配置されている開口部から電解液が収容部 1 2 外に漏出した場合に、電解液を筐体内から排出するように構成される。電解液排出口 5 6 から排出された電解液は、不図示の回収槽によって回収され、高純度化処理に使用するために、投入口 1 4 に送液される。

30

【 0 0 3 1 】

駆動部 2 4 は、モータ 2 4 1 および伝達ギア 2 4 2 を備えている。モータ 2 4 1 は、所定の回転数で回転するように制御される。伝達ギア 2 4 2 は、モータ 2 4 1 に接続されたシャフトに配置されたギアである。伝達ギア 2 4 2 は、駆動ギア 5 0 の上部に配置され、駆動ギア 5 0 にモータ 2 4 1 の駆動力を伝達するように構成される。本実施形態では、伝達ギア 2 4 2 と駆動ギア 5 0 が噛合されており、伝達ギア 2 4 2 の回転力を駆動ギア 5 0 に伝達している。モータ 2 4 1 の回転数や駆動ギア 5 0 および伝達ギア 2 4 2 のギア比率は、適宜調整することが可能である。

【 0 0 3 2 】

40

第 2 の搬送スクリュ 2 2 は、第 1 の搬送スクリュ 2 0 と平行に配置されており、第 1 の搬送スクリュ 2 0 と実質的に同一の構成である。第 2 の搬送スクリュ 2 2 に設けられたスクリュ羽根 4 2 は、第 1 の搬送スクリュ 2 0 に設けられたスクリュ羽根 4 2 と同一の構成であるが、第 1 の搬送スクリュ 2 0 のスクリュ羽根 4 2 と接触しないように設けられている。

【 0 0 3 3 】

第 2 の搬送スクリュ 2 2 は、第 1 の搬送スクリュ 2 0 の駆動ギア 5 0 と対応する位置に従動ギア 5 2 を備えている。従動ギア 5 2 は、駆動ギア 5 0 からの駆動力が伝達され、第 2 の搬送スクリュ 2 2 に回転力を付与するように構成される。従動ギア 5 2 は、駆動ギア 5 0 と噛合されており、第 2 の搬送スクリュ 2 2 は、第 1 の搬送スクリュ 2 0 と逆方向に

50

回転するように構成される。第 1 の搬送スクリュ 2 0 と第 2 の搬送スクリュ 2 2 が別方向に回転することにより、収容部 1 2 内の電解液が攪拌され、粒状黒鉛の高純度化を効率的に行うことが可能になる。

【 0 0 3 4 】

電源部 2 6 は、駆動部 2 4 の側面部に配置されている。電源部 2 6 は、第 1 の搬送スクリュ 2 0、第 2 の搬送スクリュ 2 2 および第 1 の筐体 1 8 1 に電流を通電するように構成される。電源部 2 6 は、第 1 の搬送スクリュ 2 0、第 2 の搬送スクリュ 2 2 および第 1 の筐体 1 8 1 を電氣的に接続するための導線部 2 6 2 を有している（図 1 参照）。導線部 2 6 2 は、第 1 の搬送スクリュ 2 0 および第 2 の搬送スクリュ 2 2 の導電シャフト 3 8 において、黒鉛精製装置 1 0 の筐体から突出した部分に接続されている。また、本実施形態では、第 1 の搬送スクリュ 2 0 および第 2 の搬送スクリュ 2 2 が陽極側となるように接続される。第 1 の筐体 1 8 1 は、導線部 2 6 2 によって電源部 2 6 の陰極側と接続されている。

10

【 0 0 3 5 】

ここから、黒鉛精製装置 1 0 の使用方法について説明する。最初に、所定量の電解液および粒状黒鉛が投入口 1 4 より収容部 1 2 に収容される。電解液は、粒状黒鉛に付着した不純物に電流が通電させることが可能であれば制限はなく、塩化ナトリウム水溶液等を使用することが可能である。また、粒状黒鉛にシリコン系の不純物が付着している場合は、フッ酸を含む電解液を使用することが好ましい。粒状黒鉛に付着する不純物としては、酸化アルミニウム (Al_2O_3)、酸化鉄 (Fe_2O_3)、シリコン (SiO_2) 等があり、フッ酸を含む電解液を使用することにより、さらに効率的に高純度化が図れる。また、フッ酸を含む電解液として、ガラス基板のエッチング廃液や半導体基板のエッチング廃液を使用することも可能である。

20

【 0 0 3 6 】

収容部 1 2 内に投入された粒状黒鉛は、第 1 の搬送スクリュ 2 0 および第 2 の搬送スクリュ 2 2 を回転させることにより発生する液流により排出口 1 6 側に搬送される。本実施形態における粒状黒鉛の搬送速度としては、排出口 1 6 まで 1 0 ~ 1 5 分で到達する程度に調整される。また、処理中に第 1 の搬送スクリュ 2 0 および第 2 の搬送スクリュ 2 2 を逆回転させることにより、粒状黒鉛が投入口 1 4 側に向かうように液流を発生させても良い。いずれにせよ、収容部 1 2 内で搬送された粒状黒鉛は、排出口 1 6 から電解液とともに排出される。また、粒状黒鉛の処理中は、排出口 1 6 が閉鎖されることが好ましい。

30

【 0 0 3 7 】

収容部 1 2 内に粒状黒鉛および電解液が収容されると、電源部 2 6 から第 1 の搬送スクリュ 2 0、第 2 の搬送スクリュ 2 2 および第 1 の筐体 1 8 1 に電流が通電させる。本実施形態では、それぞれ 3 0 ~ 1 8 0 A の範囲で電流を通電させる。第 1 の搬送スクリュ 2 0 および第 2 の搬送スクリュ 2 2 に開口部 4 6 が設けられることにより、導電シャフト 3 8 を介して電解液が通電された状態となる。粒状黒鉛は、陽極側となる第 1 の搬送スクリュ 2 0 および第 2 の搬送スクリュ 2 2 から電解液を通じて通電されることにより、粒状黒鉛に付着した不純物がイオンとして電解液に流出し、高純度の黒鉛が得られる。

【 0 0 3 8 】

また、電解研磨のみでは除去が困難なシリコン系の不純物については、電解液に含まれるフッ酸とのエッチング反応によって除去される。粒状黒鉛は、複数の層が積層された鱗状黒鉛であり、層間に存在する不純物を効率的に除去するために超音波振動を印加しても良い。超音波を印加することで、グラファイトの層間に電解液が侵入し易くなり、短時間で不純物の除去が可能になる。

40

【 0 0 3 9 】

所定時間処理された粒状黒鉛は、排出口 1 6 から排出され、回収フィルタ 3 2 により回収される。黒鉛精製装置 1 0 で処理された粒状黒鉛は、洗浄処理や乾燥処理等の後処理が行われた後に、製品化処理が行われる。

【 0 0 4 0 】

上述の実施形態の説明は、すべての点で例示であって、制限的なものではないと考えら

50

れるべきである。本発明の範囲は、上述の実施形態ではなく、特許請求の範囲によって示される。さらに、本発明の範囲には、特許請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

【符号の説明】

【 0 0 4 1 】

1 0 -黒鉛精製装置

1 2 -収容部

1 4 -投入口

1 6 -排出口

2 0 -第 1 の搬送スクリュ

10

2 2 -第 2 の搬送スクリュ

2 4 -駆動部

2 6 -電源部

4 4 -スクリュ羽根

4 6 -開口部

20

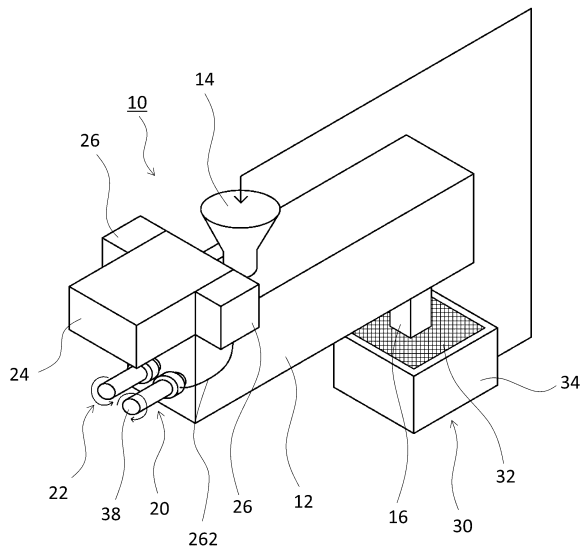
30

40

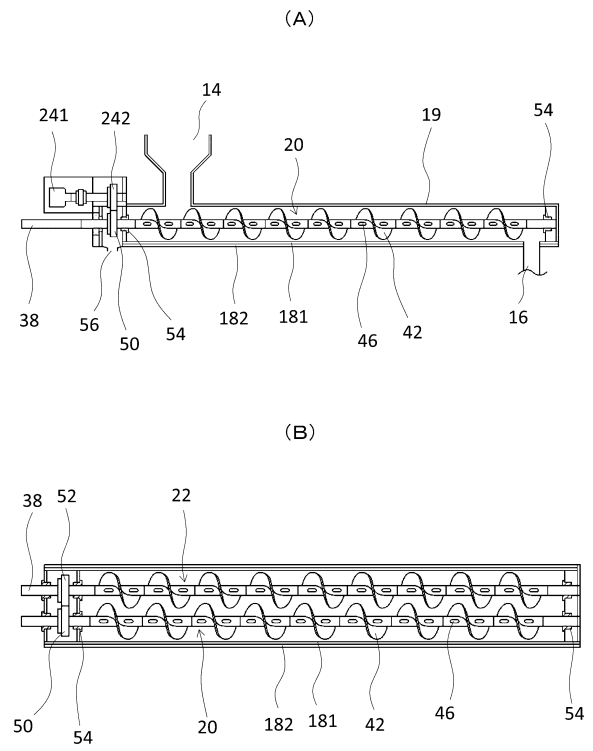
50

【図面】

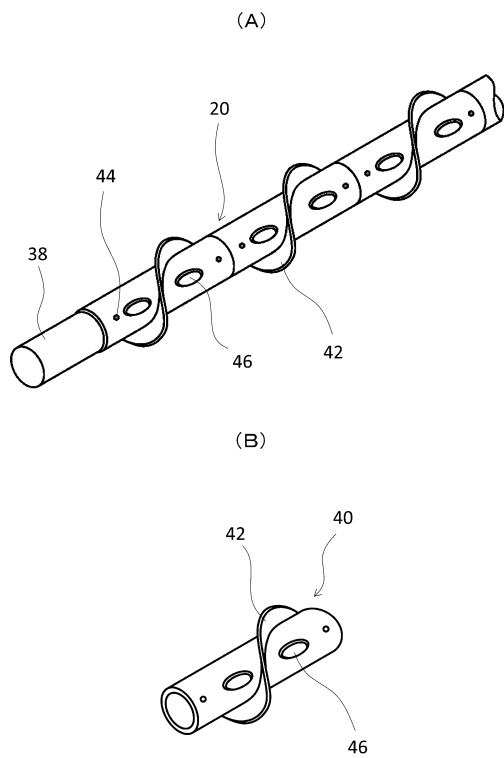
【図 1】



【図 2】



【図 3】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

- (56)参考文献 特開 2 0 1 0 - 1 3 8 0 3 9 (J P , A)
国際公開第 2 0 1 4 / 0 1 0 5 4 0 (W O , A 1)
特開昭 6 2 - 0 3 0 9 0 0 (J P , A)
実開昭 5 7 - 1 2 1 6 8 3 (J P , U)
特開平 0 1 - 0 8 3 6 9 9 (J P , A)
米国特許出願公開第 2 0 1 7 / 0 3 1 2 7 3 0 (U S , A 1)
特開 2 0 0 4 - 0 1 9 0 2 0 (J P , A)
特開平 0 6 - 1 7 1 9 1 9 (J P , A)
特開 2 0 1 7 - 0 6 1 7 4 4 (J P , A)
- (58)調査した分野 (Int.Cl. , D B 名)
C 0 1 B 3 2 / 2 1 5
H 0 1 M 4 / 5 8 7