

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2020-7579

(P2020-7579A)

(43) 公開日 令和2年1月16日(2020.1.16)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C 2 5 C 7/06 (2006.01)	C 2 5 C 7/06 3 0 2	4 K 0 5 8
C 2 5 C 3/26 (2006.01)	C 2 5 C 3/26	

審査請求 有 請求項の数 9 O L (全 14 頁)

(21) 出願番号	特願2018-126757 (P2018-126757)	(71) 出願人	317015294 東芝エネルギーシステムズ株式会社 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地34
(22) 出願日	平成30年7月3日(2018.7.3)	(74) 代理人	110001380 特許業務法人東京国際特許事務所
(11) 特許番号	特許第6602921号 (P6602921)	(72) 発明者	中村 等 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地34 東芝エネルギーシステムズ株式会社内
(45) 特許公報発行日	令和1年11月6日(2019.11.6)	(72) 発明者	大森 孝 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地34 東芝エネルギーシステムズ株式会社内
(出願人による申告) 文部科学省研究開発局、平成29年度エネルギー対策特別会計委託事業「MA入りPu金属燃料高速炉サイクルによる革新的核廃棄物燃焼システムの開発」に係る委託研究、産業技術力強化法第19条の適用を受ける特許出願		(72) 発明者	高橋 優也 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地34 東芝エネルギーシステムズ株式会社内

最終頁に続く

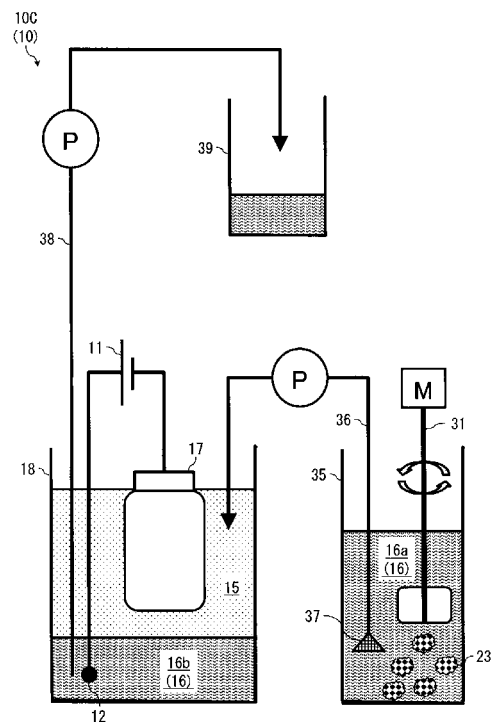
(54) 【発明の名称】 電解精製方法および電解精製装置

(57) 【要約】

【課題】金属混合物から回収される目的金属の純度低下及び精製効率低下を抑制する電解精製技術を提供する。

【解決手段】電解精製方法において、少なくとも目的金属を溶解させることができる溶融金属16aを溶解槽35に収容する収容ステップと、固体の金属混合物23を溶解槽35に投入する投入ステップと、陽極12、陰極17及び溶融塩電解質15を収容する電解槽18に目的金属を溶解させた溶融金属16bを移送する移送ステップと、溶融金属16bに陽極12が浸漬された状態でかつ溶融塩電解質15に陰極17が浸漬された状態で電位を制御しこの陰極17に目的金属を析出させる陰極析出ステップと、を含む。

【選択図】 図4



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも目的金属を溶解させることができかつ前記目的金属よりもイオン化傾向の小さな溶融金属を、溶解槽に収容する収容ステップと、

目的金属及びこの目的金属よりもイオン化傾向の小さな目的外金属が混合する固体の金属混合物を、前記溶解槽に投入する投入ステップと、

陽極、陰極及び溶融塩電解質を収容する電解槽に、前記目的金属を溶解させた前記溶融金属を、移送する移送ステップと、

前記溶融金属に前記陽極が浸漬された状態でかつこの溶融金属と界面を形成して二相分離する前記溶融塩電解質に陰極が浸漬された状態で電位を制御し、この陰極に前記目的金属を析出させる陰極析出ステップと、を含むことを特徴とする電解精製方法。

10

【請求項 2】

請求項 1 に記載の電解精製方法において、

複数の前記溶解槽から、一つの前記電解槽に、前記目的金属を溶解させた前記溶融金属を移送させる電解精製方法。

【請求項 3】

請求項 1 又は請求項 2 に記載の電解精製方法において、

前記溶解槽から前記電解槽までの移送経路のいずれかの位置においてフィルタを配置させ、前記溶融金属に含まれる固形成分を除去する電解精製方法。

20

【請求項 4】

請求項 1 から請求項 3 のいずれか 1 項に記載の電解精製方法において、

前記陰極析出ステップの後に、前記溶融金属を、前記陽極の系外に排出する排出ステップをさらに含む電解精製方法。

【請求項 5】

請求項 4 に記載の電解精製方法において、

前記排出ステップの後に、前記陽極の系外に排出された前記溶融金属を蒸留して、固形成分から分離して回収する分離回収ステップをさらに含む電解精製方法。

【請求項 6】

請求項 5 に記載の電解精製方法において、

前記蒸留により回収された溶融金属を前記溶解槽に再収容させる再収容ステップをさらに含む電解精製方法。

30

【請求項 7】

請求項 1 から請求項 6 のいずれか 1 項に記載の電解精製方法において、

前記溶融金属の移送は、前記陽極としての機能を果たすルツボに前記溶融金属を収容し、前記溶解槽と前記電解槽との間で輸送させることにより実行する電解精製方法。

【請求項 8】

少なくとも目的金属を溶解させることができかつ前記目的金属よりもイオン化傾向の小さな溶融金属を収容する溶解槽と、

目的金属及びこの目的金属よりもイオン化傾向の小さな目的外金属が混合する固体の金属混合物を前記溶解槽に投入する投入部と、

40

陽極、陰極及び溶融塩電解質を収容するとともに前記目的金属を溶解させた前記溶融金属が移送される電解槽と、

前記溶融金属に前記陽極が浸漬された状態でかつこの溶融金属と界面を形成して二相分離する前記溶融塩電解質に陰極が浸漬された状態で電位を制御し、この陰極に前記目的金属を析出させる電源と、備えることを特徴とする電解精製装置。

【請求項 9】

請求項 8 に記載の電解精製装置において、

前記溶解槽から前記電解槽に前記溶融金属を移送させる移送経路に、前記溶融金属に含まれる固形成分を除去するフィルタが配置される電解精製装置。

【請求項 10】

50

請求項 8 又は請求項 9 に記載の電解精製装置において、
前記電解槽は、收容される前記溶融金属を系外に排出する排出経路を有し、
前記排出された前記溶融金属を蒸留して、固形成分から分離して回収する蒸留器をさらに備える電解精製装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明の実施形態は、金属混合物から目的金属を回収する電解精製技術に関する。

【背景技術】

【0002】

10

電解精製法を用いて金属混合物から目的金属を回収するに際し、この金属混合物を固体のまま電解質に浸漬し、この金属混合物を直接的に陽極溶解するのが一般的である。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献 1】特開 2008 - 266662 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

20

しかし上述の電解精製法によると、目的金属の電解質への溶解は、金属混合物の固体表面において優先的に進行する。そして未溶解の目的外金属が、金属混合物の固体表面付近に露出し、さらに目的金属との固体拡散層が形成される。これにより陽極の電気抵抗が増加して目的金属の溶解電位は維持できなくなると、目的外金属の溶解が始まり、回収される目的金属の純度低下及び精製効率低下とが懸念される課題があった。

【0005】

本発明の実施形態はこのような事情を考慮してなされたもので、金属混合物から回収される目的金属の純度低下及び精製効率低下を抑制する電解精製技術を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0006】

30

実施形態に係る電解精製方法において、少なくとも目的金属を溶解させることができかつ前記目的金属よりもイオン化傾向の小さな溶融金属を溶解槽に收容する收容ステップと、目的金属及びこの目的金属よりもイオン化傾向の小さな目的外金属が混合する固体の金属混合物を前記溶解槽に投入する投入ステップと、陽極、陰極及び溶融塩電解質を收容する電解槽に前記目的金属を溶解させた前記溶融金属を移送する移送ステップと、前記溶融金属に前記陽極が浸漬された状態でかつこの溶融金属と界面を形成して二相分離する前記溶融塩電解質に陰極が浸漬された状態で電位を制御しこの陰極に前記目的金属を析出させる陰極析出ステップと、を含むことを特徴とする。

【発明の効果】

【0007】

40

本発明の実施形態により、金属混合物から回収される目的金属の純度低下及び精製効率低下を抑制する電解精製技術が提供される。

【図面の簡単な説明】

【0008】

【図 1】本発明の第 1 実施形態に係る電解精製装置の概略図。

【図 2】目的金属の電解精製の進行に伴う電極電位の制御を示すグラフ。

【図 3】第 2 実施形態に係る電解精製装置の概略図。

【図 4】第 3 実施形態に係る電解精製装置の概略図。

【図 5】第 4 実施形態に係る電解精製装置の概略図。

【図 6】第 5 実施形態に係る電解精製装置の概略図。

50

【図 7】第 5 実施形態に係る電解精製装置の発展型の概略図。

【図 8】各実施形態に係る電解精製方法を説明するフローチャート。

【発明を実施するための形態】

【0009】

(第 1 実施形態)

以下、本発明の実施形態を添付図面に基づいて説明する。

図 1 は本発明の第 1 実施形態に係る電解精製装置 10 A の概略図である。このように電解精製装置 10 A は、溶融塩電解質 15 及び溶融金属 16 を収容する電解槽 18 と、電源 11 に接続され溶融塩電解質 15 に浸漬される陰極 17 と、電源 11 に接続され溶融金属 16 に浸漬される陽極 12 と、から構成されている。なお電解槽 18 には、図示を省略しているが、溶融塩電解質 15 及び溶融金属 16 を液相のまま維持させるための加熱炉が設けられている。

10

【0010】

図 8 は各実施形態に係る電解精製方法を説明するフローチャートである（適宜、図 1 参照）。後段において、このフローチャートの全体を説明するが、第 1 実施形態に係る電解精製方法では、目的金属 21 及びこの目的金属 21 よりもイオン化傾向の小さな目的外金属 22 が混合する金属混合物 23 を少なくとも目的金属 21 を溶解させることができかつこの目的金属 21 よりもイオン化傾向の小さな溶融金属 16 に固体のまま投入する投入ステップ（S12）と、目的金属 21 を溶解させた溶融金属 16 に陽極 12 を浸漬する陽極浸漬ステップ（S14）と、溶融金属 16 と界面を形成する溶融塩電解質 15 に陰極 17 を浸漬し（S15）、この陰極 17 に目的金属 21 を析出させる陰極析出ステップ（S16）と、を含む。

20

【0011】

溶融塩電解質 15 は、代表的なモル比で 6 : 4 の LiCl と KCl の混合塩（ $\text{LiCl} - \text{KCl}$ 共晶塩、融点：352）が用いられるが、特に限定はなく、低融点のイオン性液体であれば適宜用いられる。

【0012】

金属混合物 23 の成分元素は、ジルコニウム； Zr 、プルトニウム； Pu 、ウラン； U 、その他のマイナーアクチノイド（ネプツニウム； Np 、アメリシウム； Am 、キュリウム； Cm ）等である。

30

【0013】

目的金属 21 は、金属混合物 23 に含まれる元素のうち、ジルコニウム； Zr （融点 1852）である。そして目的外金属 22 は、金属混合物 23 に含まれる元素のうち、設定された目的金属 21 よりもイオン化傾向が大きい元素全部である。これら目的金属 21 と目的外金属 22 とが、固溶体や焼結体の形で混合され金属混合物 23 を形成している。

【0014】

溶融金属 16 は、カドミウム； Cd （融点 320.9）が挙げられるが、ガリウム； Ga （融点 29.8）、ビスマス； Bi （融点 271.3）、亜鉛； Zn （融点 419.5）、アルミニウム； Al （融点 660.3）、インジウム； In （融点 156.6）等が挙げられる。

40

【0015】

溶融金属 16 と目的金属 21（及び目的外金属 22）とが、共晶系合金の組み合わせとなる場合は、目的金属 21（及び目的外金属 22）は固有の融点よりも低温で溶融金属 16 に溶解して液相になる。なお溶融金属 16 には、予め目的金属 21 の金属イオンがドーブされている。

【0016】

図 2 は、目的金属 21 の電解精製の進行に伴う電極電位の制御を示すグラフである。

電源 11（図 1）は陽極 12 と陰極 17 との間の電極電位を設定するものである。この電源 11 による設定電位 25（実施例）は、目的金属 21 の電解電位 26 よりも大きく、目的外金属 22 の電解電位 27 よりも小さくなるように設定される。これにより、目的金

50

属 2 1 のみを選択的にイオン化して溶融塩電解質 1 5 に移行させ陰極 1 7 に析出させることができる。

【 0 0 1 7 】

ところで、図 2 において示される一点鎖線（比較例）は、金属混合物 2 3 を固体のまま溶融塩電解質 1 5 に浸漬させて電解した場合の電源 1 1 の電位制御を示している。比較例では、金属混合物 2 3 を固体のまま電解精製をすると目的金属 2 1 が固体表面で枯渇し目的外金属 2 2 が表面に露出することになる。この場合、陰極 1 7 における目的金属 2 1 の析出を維持させるには、図 2 の一点鎖線（比較例）で示されるように、電極電位をシフトさせる必要がある。この事象は金属混合物 2 3 の固体表面に生成する、目的金属 2 1 の欠乏層が厚くなると、電気抵抗が増大するためである。そして、この電極電位が目的外金属 2 2 の電解電位 2 7 に到達する直前で目的金属 2 1 の電解精製の維持が不可能になる。

10

【 0 0 1 8 】

一方において各実施形態では、目的金属 2 1 が溶解している溶融金属 1 6 と溶融塩電解質 1 5 との界面では、溶融金属 1 6 にそのような目的金属 2 1 の欠乏層が生じることがない。このため各実施形態では、陽極 1 2 と陰極 1 7 との間の電極電位は一定値の設定電位 2 5 のまま、溶融金属 1 6 に含まれる目的金属 2 1 が枯渇するまで、陰極 1 7 における析出物の支持が耐えられるまで、永続的に電解精製の維持することができる。

【 0 0 1 9 】

（第 2 実施形態）

図 3 は第 2 実施形態に係る電解精製装置 1 0 B の概略図である。第 2 実施形態に係る電解精製装置 1 0 B は、第 1 実施形態に係る電解精製装置 1 0 A の構成に加えて、溶融金属 1 6 の攪拌器 3 1 と、金属混合物 2 3 の粉碎器 3 2 と、溶融金属 1 6 の循環器 3 3 とを、さらに備えている。なお、図 3 において図 1 と共通の構成又は機能を有する部分は、同一符号で示し、重複する説明を省略する。

20

【 0 0 2 0 】

図 8 のフローチャート（適宜、図 3 参照）に示すように、第 2 実施形態に係る電解精製方法は、前処理として、粉碎器 3 2 で金属混合物 2 3 を機械的に粉碎処理した後に（S 1 1）、溶融金属 1 6 に投入する（S 1 2）。その後、攪拌器 3 1 を動作させ溶融金属 1 6 の攪拌を行い（S 1 3）、金属混合物 2 3 の溶融金属 1 6 への溶解を促進させる。そして、陽極 1 2 と陰極 1 7 を浸漬させた状態で目的金属 2 1 を析出させつつ（S 1 4 ~ S 1 6）、循環器 3 3 を動作させ溶融金属 1 6 を溶融塩電解質 1 5 の反対側に投入しその浴中を通しながら循環させる（S 1 7）。そして、目的金属 2 1 の陰極 1 7 への析出が進行し溶融金属 1 6 に含まれる目的金属 2 1 が枯渇したところで（S 1 8 No Yes）、金属混合物 2 3 を溶融金属 1 6 に再投入する（S 1 1）。

30

【 0 0 2 1 】

金属混合物 2 3 に含まれる全ての金属（目的金属 2 1 及び目的外金属 2 2）が溶融金属 1 6 に溶解する場合は特に問題はないが、少なくとも一種の目的外金属 2 2 が溶融金属 1 6 に溶解しない場合は、この目的外金属 2 2 が被膜を形成し、目的金属 2 1 の溶融金属 1 6 への溶解の進行を滞らせることになる。

【 0 0 2 2 】

そこで溶融金属 1 6 に供給する金属混合物 2 3 を粉碎することにより、溶融金属 1 6 との接触面積を増大させて溶解速度を向上させることが可能となる。一方において、目的金属の 2 1 の溶融金属 1 6 に対する飽和溶解度が低い場合は、溶融金属 1 6 の接触面の近傍に濃度勾配が発生し溶解速度の低下が懸念される。この場合も、溶融金属 1 6 を粉碎して接触面積を増大させことにより溶解速度を速く維持することが可能になる。

40

【 0 0 2 3 】

さらに循環器 3 3 により溶融金属 1 6 が溶融塩電解質 1 5 の浴中を通しながら循環することにより、溶融金属 1 6 と溶融塩電解質 1 5 との接触界面が拡大され、目的金属 2 1 の溶融塩電解質 1 5 への移行を促進させることができる。なお、この S 1 7 に相当する工程は必須の構成ではない。目的金属 2 1 の溶融塩電解質 1 5 への移行速度が十分高いとき

50

は、この工程（S 1 7）を省いても良い。

【0024】

（第3実施形態）

図4は第3実施形態に係る電解精製装置10Cの概略図である。第3実施形態に係る電解精製装置10Cは、少なくとも目的金属21（図1）を溶解させることができかつこの目的金属21よりもイオン化傾向の小さな溶融金属16aを収容する溶解槽35と、目的金属21及びこの目的金属21よりもイオン化傾向の小さな目的外金属22（図1）が混合する固体の金属混合物23を溶解槽35に投入する投入部（図示略）と、陽極12、陰極17及び溶融塩電解質15を収容するとともに目的金属21を溶解させた溶融金属16aが移送される電解槽18と、溶融金属16bに陽極12が浸漬された状態であつこの溶融金属16bと界面を形成して二相分離する溶融塩電解質15に陰極17が浸漬された状態で電位を制御しこの陰極17に目的金属21を析出させる電源11と、を備えている。

10

【0025】

このように第3実施形態に係る電解精製装置10Cは、第1実施形態に係る電解精製装置10Aの構成に加えて、陽極12、陰極17及び溶融塩電解質15を収容する電解槽18とは別個に設けられた溶解槽35と、溶解槽35から溶融金属16を電解槽18に移送させる移送経路36と、移送経路36に配置され溶融金属16aに含まれる固形成分を除去するフィルタ37と、溶融金属16bを陽極12の系外に排出する排出経路38と、排出された溶融金属16bを収容する収容部39とを、さらに備えている。なお溶解槽35には、図示を省略しているが、溶融金属16を液相にするための加熱炉が設けられている。

20

【0026】

図8のフローチャート（適宜、図4参照）に示すように、第3実施形態に係る電解精製方法は、溶解槽35において、金属混合物23の溶融金属16aへの投入（S12）、及び溶融金属16aの攪拌（S13）が実施される。そして、陽極12を浸漬させた溶融金属16b（S14）と、陰極17を浸漬させた溶融塩電解質15（S15）とを収容した電解槽18に、目的金属を溶解させた溶融金属16を、溶解槽35から移送させる。なお、溶解槽35から電解槽18に移送される過程で、フィルタ37において、溶融金属16に含まれる固形成分が除去される。

30

【0027】

そして、目的金属21の陰極17への析出が進行し溶融金属16に含まれる目的金属21が枯渇したところで（S18 No Yes）、排出経路38により溶融金属16bを、陽極12の系外に排出し収容部39に収容させる。そして、溶解槽35の溶融金属16aを、電解槽18に移送して溶融金属16の交換を行って（S20）、目的金属の陰極17への析出を再開する。

【0028】

なお、図4において溶解槽35は一つのみ例示されているが、一つの電解槽18に対し、複数の溶解槽35から目的金属21を溶解させた溶融金属16aを移送させてもよい。また、図4において記載が省略されているが循環器33（図3）を配置してもよい。

40

【0029】

金属混合物23に含まれる目的金属21の溶融金属16への溶解速度と電解精製における目的金属21の陰極17への析出速度とは必ずしも一致せず、前者は後者に遅れることが一般的である。このような目的金属21の溶融金属16への供給と陰極17におけるその回収との間のバランスの崩れが生じると、溶融塩電解質15において目的外金属22の溶解が始まる。そうすると、陰極17に析出する目的金属21の純度が低下してしまう。

【0030】

第3実施形態に係る電解精製装置10Cによれば、電解槽18とは別個に溶解槽35が設けられており、目的金属21を溶解させた溶融金属16を常に十分な量だけ確保している。これにより、目的金属21を含む溶融金属16aの供給量と目的金属21の枯渇した

50

溶融金属 16 b の排出量とを調節することにより、陰極 17 における目的金属 21 の析出回収を安定させることができる。

【0031】

金属混合物 23 を溶融金属 16 に溶解した場合、未溶解成分は、固体のまま残留するかもしれない。もしくは金属間化合物を形成したうえで固形状の微細粒子として溶融金属 16 内に拡散することになる。溶融金属 16 に含まれる未溶解残渣が増加すると、溶融金属 16 の陽極界面付近に高濃度の未溶解金属相が形成されてしまい、目的金属 21 の電解電位を維持することが困難となる。そこで、フィルタ 37 を設けることにより、電解槽 18 への未溶解成分の混入を防止し、電解効率の低下を防止する。このフィルタ 37 は、焼結金属や金属メッシュ、多孔質セラミック等の材料で構成することができる。

10

【0032】

(第4実施形態)

図5は第4実施形態に係る電解精製装置 10 D の概略図である。第4実施形態に係る電解精製装置 10 D は、第3実施形態に係る電解精製装置 10 C の構成の収容部 39 に代えて、溶融金属 16 b の蒸留器 40 を、備えている。なお、図5において図4と共通の構成又は機能を有する部分は、同一符号で示し、重複する説明を省略する。

【0033】

この蒸留器 40 は、排出経路 38 により電解槽 18 から排出された溶融金属 16 b を一時蓄積する蓄積部 43 と、この蓄積部 43 に蓄積された溶融金属 16 の温度を調整するヒータ 42 と、気化した溶融金属 16 が凝集して液化したものを回収する回収部 45 と、蓄積部 43 及び保持部 45 が配置される空間を密閉状態で保持する密閉容器 41 と、この密閉容器 41 の内部空間を減圧する減圧器 46 とが設けられている。

20

【0034】

図8のフローチャート(適宜、図5参照)において、第4実施形態に係る電解精製方法は、(S20)において、陽極 12 の系外に排出された溶融金属 16 b は蒸留器 40 に移送される。ここで溶融金属 16 b は蒸留され、目的外金属 22 を主成分とする固形分 14 から分離され、精製された溶融金属 16 が回収部 45 に回収される。

【0035】

陰極 17 における目的金属 21 の回収が進むと、電解槽 18 に収容されている溶融金属 16 b における目的外金属 22 の濃度が上昇していく。そのまま放置しておくと、陰極 17 で回収される目的金属 21 の純度が低下していくために、適当なタイミングで溶融金属 16 b を電解槽 18 の系外に排出する必要がある。

30

【0036】

排出された溶融金属 16 b は、目的金属 21 の残渣と目的外金属 22 を含有したままの状態である。このような溶融金属 16 b を蒸留器 40 にかけることで、より低沸点の成分から回収部 45 に分離回収されていく。この結果、蒸留精製された溶融金属 16 は再び溶解槽 35 に戻し再利用することが可能となる。

【0037】

(第5実施形態)

図6は第5実施形態に係る電解精製装置 10 E の概略図である。第5実施形態に係る電解精製装置 10 E は、第3実施形態に係る電解精製装置 10 C (図3)の構成に加えて、溶融金属 16 を内部に収容することができ陽極 12 としての機能を果たすルツボ 12 x と、このルツボ 12 x を電解槽 18 と溶解槽 35 との間に行き来させ溶融金属 16 を輸送させる輸送機 50 とを、さらに備えている。この輸送機 50 は、ルツボ 12 x を垂直方向に移動させる垂直移動部 52 と、ルツボ 12 x を水平方向に移動させる水平移動部 51 とから構成されている。なお、図6において図1と共通の構成又は機能を有する部分は、同一符号で示し、重複する説明を省略する。

40

【0038】

溶融金属 16 b を電解槽 18 の底面に直接収容した場合、溶融塩電解質 15 との比重差のため、減圧容器を設置したり高温で動作可能なポンプを設置したり、さらに移送配管の

50

加熱するための多くの付加設備が必要となったりする。さらに溶融金属 16 を溶解槽 35 から電解槽 18 に移送する場合についても同様の課題が生じる。

【0039】

第5実施形態に係る電解精製装置 10E では、ルツボ 12x に陽極電極の機能を担わせこの中に溶融金属 16b をくみ上げ方式で装荷させ、電解槽 18 の溶融塩電解質 15 に浸漬する。なお溶融金属 16b と電氣的接続のため、垂直移動部 52 には、コンタクトリードとしての機能を担わせる。なお、ルツボ 12x は、単数に限定されることはなく、複数のものが電解槽 18 と溶解槽 35 とを行き来するようにしてもよい。

【0040】

さらには第5実施形態の発展型として、図7に示される電解精製装置 10F のように、蒸留器 40 の蓄積部 43 まで、ルツボ 12x を輸送できるように輸送機 50 を構成させてもよい。

10

【0041】

図8のフローチャートに基づいて各実施形態に係る電解精製方法を説明する。

まず、金属混合物 23 の固体を粉碎器 32 (図3) 等により機械的に粉碎する (S11)。次に、金属混合物 23 を、電解槽 18 (図1, 図3) 又は溶解槽 35 (図4, 図5, 図6, 図7) に投入し (S12)、攪拌器 31 で攪拌し (S13)、金属混合物 23 を溶融金属 16 に溶解させる。なお、金属混合物 23 が粉碎されていることにより溶融金属 16 との接触面積が大きくなり、金属混合物 23 を溶融金属 16 に短時間で溶解させることができる。

20

【0042】

そして、第3実施形態 (図4)、第4実施形態 (図5)、第5実施形態 (図6, 図7) においては、溶解槽 35 から電解槽 18 に、目的金属 21 が溶解した溶融金属 16 が、移送経路 36 により移送又は輸送機 50 により輸送される。そして、全ての実施形態における電解槽 18 において、溶融金属 16 に陽極 12 が浸漬され (S14)、溶融塩電解質 15 に陰極 17 が浸漬される (S15)。

【0043】

次に、目的金属 21 の電解電位 26 (図2) よりも大きく目的外金属 22 の電解電位 27 よりも小さい設定電位 25 となるように電源 11 を調整し、陰極 17 に目的金属 21 を析出させる (S16)。なお期間中、循環器 33 (図3) により溶融金属 16 を溶融塩電解質 15 の浴中を通過させながら循環させることにより (S17)、目的金属 21 の溶融塩電解質 15 への移行を促進させることができる。なお、このS17に相当する工程は必須の構成ではない。目的金属 21 の溶融塩電解質 15 への移行速度が十分高いときは、この工程 (S17) を省いても良い。

30

【0044】

次に、第1実施形態 (図1)、第2実施形態 (図3) において、電解槽 18 に収容されている溶融金属 16 に含まれる目的金属 21 が枯渇し (S18 No Yes)、目的外金属 22 の量がまだ上限に達していない場合は (S19 No)、電解槽 18 の溶融金属 16 に金属混合物 23 を投入し (S11, S12)、電解処理を続ける。そして、電解槽 18 に収容されている溶融金属 16 に含まれる目的外金属 22 の量が上限に達したところで (S19 Yes)、電解槽 18 の溶融金属 16 の交換を行う (S20)。

40

【0045】

また第3実施形態 (図4)、第4実施形態 (図5)、第5実施形態 (図6, 図7) においては、溶融金属 16 に含まれる目的金属 21 が枯渇するか (S18 Yes) もしくは目的外金属 22 の量が上限に達した (S19 Yes) という条件が満たされた所で、電解槽 18 に収容されている溶融金属 16b を外部に排出し、その後、溶解槽 35 から新しい溶融金属 16a を移送することで、溶融金属 16 の交換を行う (S20)。なお、外部に排出された溶融金属 16 は、蒸留器 40 等により精製され、目的外金属 22 を分離した後、再利用される。

【0046】

50

そして、上述した (S 1 1) から (S 2 0) までのフローが、陰極 1 7 における目的金属 2 1 の析出量が上限を迎えるまで繰り返される (S 2 1 N o)。そして、陰極 1 7 における目的金属 2 1 の析出量が上限を迎えたところで (S 2 1 Y e s)、陰極 1 7 を交換し (S 2 2)、再び (S 1 1) から (S 2 2) までのフローを、電解精錬の一連の作業が終了するまで繰り返す (S 2 2 N o Y e s E N D)。

【 0 0 4 7 】

以上述べた少なくともひとつの実施形態の電解精製方法によれば、目的金属を溶解させた溶融金属に陽極の機能を担わせることにより、金属混合物から回収される目的金属の純度低下及び精製効率低下を抑制することが可能となる。

【 0 0 4 8 】

本発明のいくつかの実施形態を説明したが、これらの実施形態は、例として提示したものであり、発明の範囲を限定することは意図していない。これら実施形態は、その他の様々な形態で実施されることが可能であり、発明の要旨を逸脱しない範囲で、種々の省略、置き換え、変更、組み合わせを行うことができる。これら実施形態やその変形は、発明の範囲や要旨に含まれると同様に、特許請求の範囲に記載された発明とその均等の範囲に含まれるものである。

【 符号の説明 】

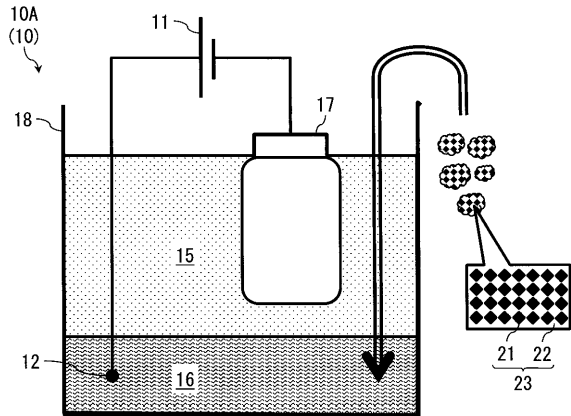
【 0 0 4 9 】

1 0 (1 0 A , 1 0 B , 1 0 C , 1 0 D , 1 0 E , 1 0 F) ... 電解精製装置、 1 1 ... 電源、 1 2 ... 陽極、 1 2 x ... ルツボ、 1 4 ... 固形成分、 1 5 ... 溶融塩電解質、 1 6 (1 6 a , 1 6 b) ... 溶融金属、 1 7 ... 陰極、 1 8 ... 電解槽、 2 1 ... 目的金属、 2 2 ... 目的外金属、 2 3 ... 金属混合物、 2 4 ... 密閉容器、 2 5 ... 設定電位、 2 6 ... 目的金属の電解電位、 2 7 ... 目的外金属の電解電位、 3 1 ... 攪拌器、 3 2 ... 粉碎器、 3 3 ... 循環器、 3 5 ... 溶解槽、 3 6 ... 移送経路、 3 7 ... フィルタ、 3 8 ... 排出経路、 3 9 ... 収容部、 4 0 ... 蒸留器、 4 1 ... 密閉容器、 4 2 ... ヒータ、 4 3 ... 蓄積部、 4 5 ... 保持部、 4 5 ... 回収部、 4 6 ... 減圧器、 5 0 ... 輸送機、 5 1 ... 水平移動部、 5 2 ... 垂直移動部。

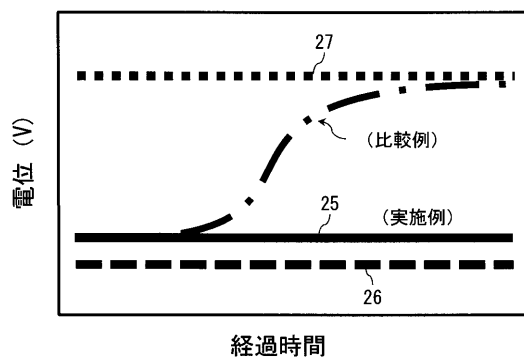
10

20

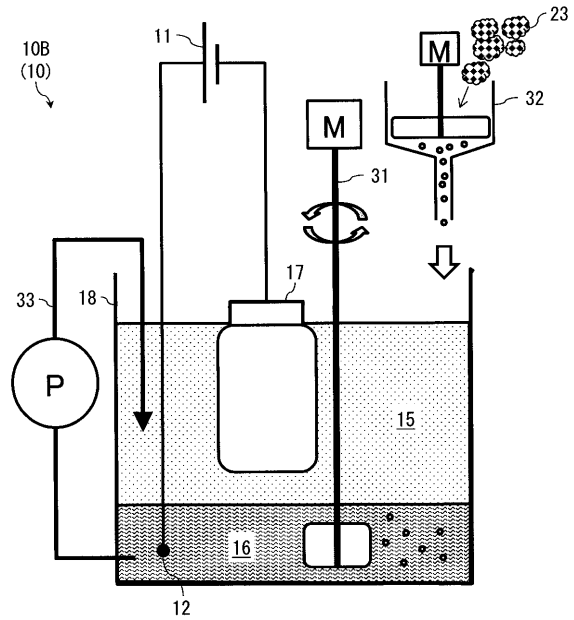
【図 1】



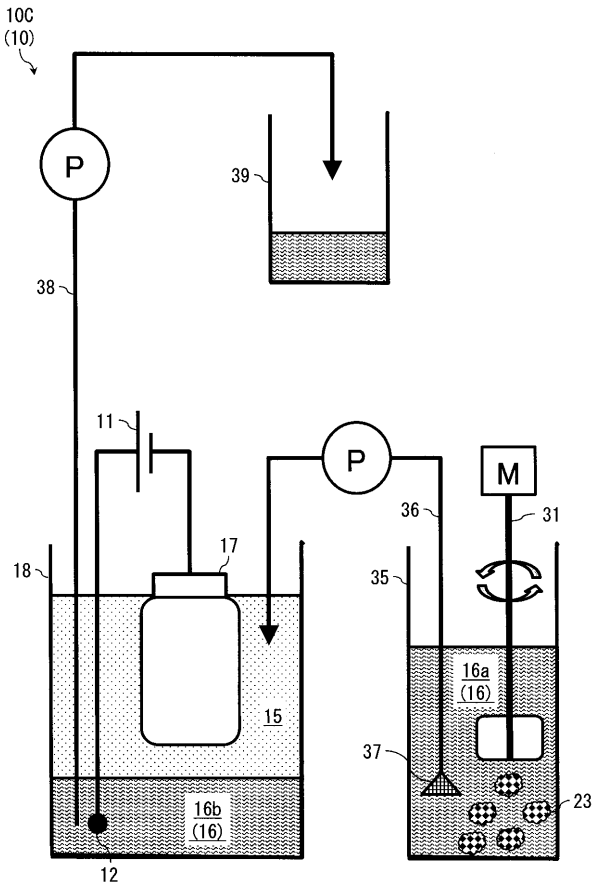
【図 2】



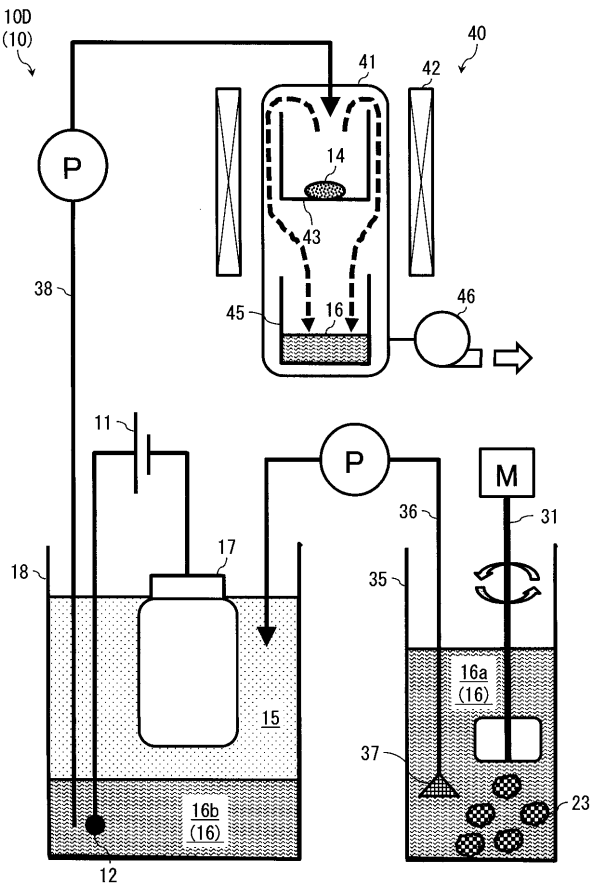
【図 3】



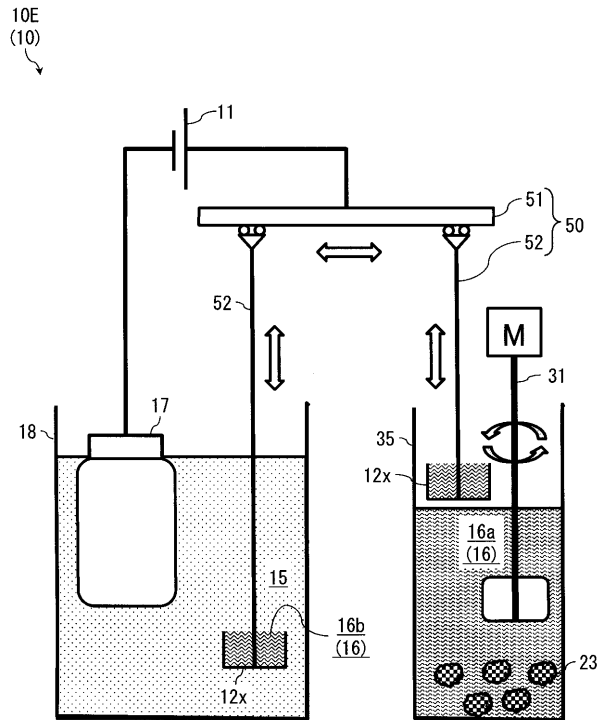
【図 4】



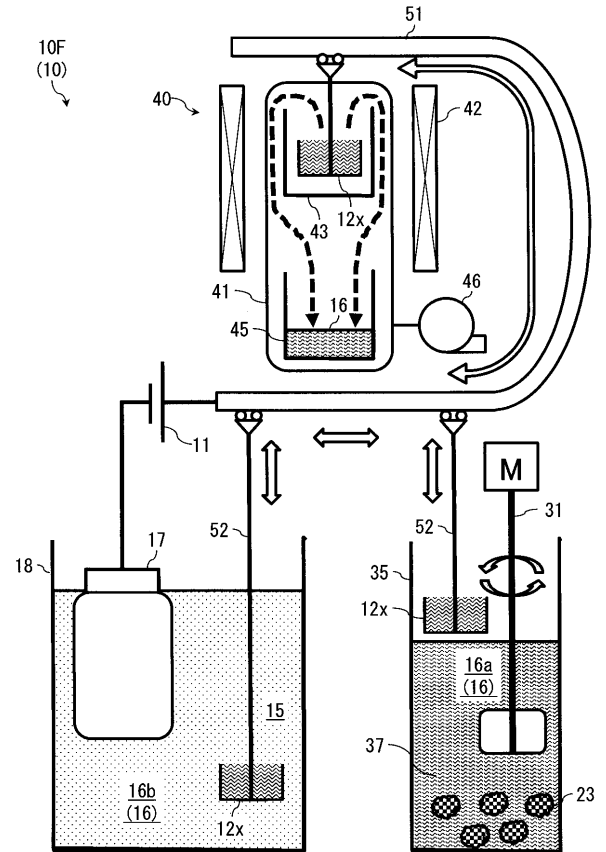
【図 5】



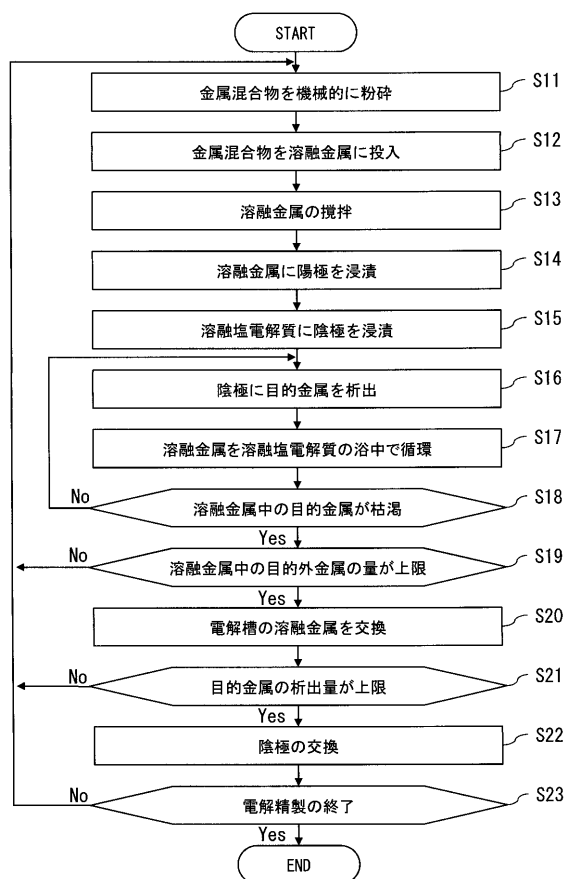
【図 6】



【図 7】



【図 8】



【手続補正書】

【提出日】令和1年7月26日(2019.7.26)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも目的金属を溶解させることができかつ前記目的金属よりもイオン化傾向の小さな溶融金属を、溶解槽に収容する収容ステップと、

目的金属及びこの目的金属よりもイオン化傾向の小さな目的外金属が混合する固体の金属混合物を、前記溶解槽に投入する投入ステップと、

陽極、陰極及び溶融塩電解質を収容する電解槽に、前記目的金属を溶解させた前記溶融金属を、移送する移送ステップと、

前記溶融金属に前記陽極が浸漬された状態でかつこの溶融金属と界面を形成して二相分離する前記溶融塩電解質に陰極が浸漬された状態で電位を制御し、この陰極に前記目的金属を析出させる陰極析出ステップと、を含み、

前記溶融金属の移送は、前記陽極としての機能を果たすルツボに前記溶融金属を収容し、前記溶解槽と前記電解槽との間で輸送させることにより実行することを特徴とする電解精製方法。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の電解精製方法において、

複数の前記溶解槽から、一つの前記電解槽に、前記目的金属を溶解させた前記溶融金属を移送させる電解精製方法。

【請求項 3】

請求項 1 又は請求項 2 に記載の電解精製方法において、

前記溶解槽から前記電解槽までの移送経路のいずれかの位置においてフィルタを配置させ、前記溶融金属に含まれる固形成分を除去する電解精製方法。

【請求項 4】

請求項 1 から請求項 3 のいずれか 1 項に記載の電解精製方法において、

前記陰極析出ステップの後に、前記溶融金属を、前記陽極の系外に排出する排出ステップをさらに含む電解精製方法。

【請求項 5】

請求項 4 に記載の電解精製方法において、

前記排出ステップの後に、前記陽極の系外に排出された前記溶融金属を蒸留して、固形成分から分離して回収する分離回収ステップをさらに含む電解精製方法。

【請求項 6】

請求項 5 に記載の電解精製方法において、

前記蒸留により回収された溶融金属を前記溶解槽に再収容させる再収容ステップをさらに含む電解精製方法。

【請求項 7】

少なくとも目的金属を溶解させることができかつ前記目的金属よりもイオン化傾向の小さな溶融金属を収容する溶解槽と、

目的金属及びこの目的金属よりもイオン化傾向の小さな目的外金属が混合する固体の金属混合物を前記溶解槽に投入する投入部と、

陽極、陰極及び溶融塩電解質を収容するとともに前記目的金属を溶解させた前記溶融金属が移送される電解槽と、

前記溶融金属に前記陽極が浸漬された状態でかつこの溶融金属と界面を形成して二相分離する前記溶融塩電解質に陰極が浸漬された状態で電位を制御し、この陰極に前記目的金

属を析出させる電源と、備え、

前記溶融金属の移送は、前記陽極としての機能を果たすルツボに前記溶融金属を収容し、前記溶解槽と前記電解槽との間で輸送させることにより実行することを特徴とする電解精製装置。

【請求項 8】

請求項 7 に記載の電解精製装置において、

前記溶解槽から前記電解槽に前記溶融金属を移送させる移送経路に、前記溶融金属に含まれる固形成分を除去するフィルタが配置される電解精製装置。

【請求項 9】

請求項 7 又は請求項 8 に記載の電解精製装置において、

前記電解槽は、収容される前記溶融金属を系外に排出する排出経路を有し、

前記排出された前記溶融金属を蒸留して、固形成分から分離して回収する蒸留器をさらに備える電解精製装置。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0006

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0006】

実施形態に係る電解精製方法において、少なくとも目的金属を溶解させることができかつ前記目的金属よりもイオン化傾向の小さな溶融金属を溶解槽に収容する収容ステップと、目的金属及びこの目的金属よりもイオン化傾向の小さな目的外金属が混合する固体の金属混合物を前記溶解槽に投入する投入ステップと、陽極、陰極及び溶融塩電解質を収容する電解槽に前記目的金属を溶解させた前記溶融金属を移送する移送ステップと、前記溶融金属に前記陽極が浸漬された状態でかつこの溶融金属と界面を形成して二相分離する前記溶融塩電解質に陰極が浸漬された状態で電位を制御しこの陰極に前記目的金属を析出させる陰極析出ステップと、を含み、前記溶融金属の移送は、前記陽極としての機能を果たすルツボに前記溶融金属を収容し、前記溶解槽と前記電解槽との間で輸送させることにより実行することを特徴とする。

フロントページの続き

(72)発明者 三浦 涼介

神奈川県川崎市幸区堀川町7番地34 東芝エネルギーシステムズ株式会社内

Fターム(参考) 4K058 AA21 BA09 BB06 CB08 FA02