(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012 年 1 月 12 日 (12.01.2012)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2012/005302 A1

(51) 国際特許分類:
C2SC 7/00 (2006.01) C2SC 1/20 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2011/065495

(22) 国際出願日: 2011 年 7 月 6 日 (06.07.2011)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2010-154404 2010 年 7 月 7 日 (07.07.2010) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 田中貴金属工業株式会社 (TANAKA KIKINZOKU KOGYO K.K.) [JP/JP]; 〒1006422 東京都千代田区丸の内 2 丁目 7 番 3 号 Tokyo (JP).

( ) 発明者; および
( ) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 鯖江 慶 (SABAE Yoshichika). 阿部 真司 (ABE Shinji). 鷲尾 孝行 (WASHIO Takayuki)

(74) 代理人: 小栗 昌平, 外 (OGURI Shohei et al); 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目 7 番 13 号 虎ノ門イーストビルディング 10 階 栄光特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, ML, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

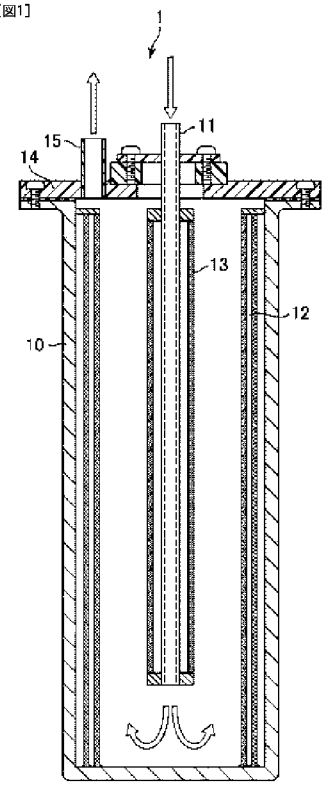
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT,

[続葉有]

(54) Title: PRECIOUS METAL RECOVERY DEVICE AND RECOVERY METHOD

(54) 発明の名称: 貴金属回収装置及び回収方法

[図1]




(57) Abstract: Provided is a recovery device and recovery method for recovering precious metals fixim waste liquid that contains precious metals using an electrolytic method. The disclosed recovery device and recovery method curbs the dispersion of precipitated particles and the amount of precipitate due to current anomalies, curbs short circuit failures due to anomalous deposition of precious metals resulting from electric-current constriction, and has even and stable deposition of precious metals. The precious metal recovery device is provided with a cylindrical expander cathode that is arranged along the inner circumference of a cylindrical metal container that forms an electrolytic cell and a cylindrical expander anode that is arranged along the exterior circumference of a pipe shaped anode. The upper part of the expander cathode is fixed to the upper shoulder of the metal container with a reverse L-shaped cross-section, the lower part of the expander cathode is fixed to the bottom of the metal container and both ends of the expander anode are fixed to the pipe shaped cathode with a C-shaped cross section.

(57) 要約: 貴金属を含む廃液から電解法により貴金属を回収するための回収装置であって、電流異常による析出量や析出粒子のばらつきや、電流集中に由来する貴金属の異常析出による短絡不良を抑制し、均一な貴金属を安定的に析出させることに優れる回収装置および回収方法を提供する。電解槽を構成する円筒状の金属製容器の内周に沿って配置される筒状の工キスパンダ陰極と、前記パイプ状陽極の外周に沿って配置される筒状の工キスパンダ陽極と、を備える貴金属回収装置であって、前記工キスパンダ陰極の上部は前記金属製容器の上肩部と断面逆 L 字形に接続固定されており、工キスパンダ陰極の下部は前記金属製容器の底部と接続固定されており、前記工キスパンダ陽極の両端は前記パイプ状陽極と断面コの字形に接続固定されていることを特徴とする。

WO 2012/005302 A1

NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TC).

添付公開書類：

- 国際調査報告（条約第21条(3)）

# 明　細　書

## 発明の名称　:貴金属回収装置及び回収方法

## 技術分野

[0001] 本発明は、貴金属を含む廃液から貴金属を電解法により回収するための回収装置及び回収方法に関する。

## 背景技術

[0002] 例えば、貴金属めつき液といった各種廃液中に残留する貴金属を回収する手段として、電解（還元）法が一般的に用いられている。この電解法による貴金属回収装置では、電解槽中に廃液を導入し、その廃液内に不溶性陽極及び陰極を浸漬させて通電することで液中の金属イオンを還元析出させる。

[0003] 貴金属回収装置の態様の一つとして、図3に記載する円筒状容器２１７（電解槽）を用いる貴金属回収装置２がある（特許文献１参照）。この回収装置２では、円筒状容器２１７と、その中心部に設けられる陽極２１１と、容器内周に沿って配置される円筒状陰極２１６とからなる。そして、貴金属回収の際には、廃液を容器下部の注入口から導入し、これを陽極２１１と円筒状陰極２１６とにより電解しつつ、陽極の開口より排出口を通って出るようになっている。そして、かかる工程により、陰極２１６の表面には回収目的の貴金属が電解還元されて析出し、回収可能な状態となる。

[0004] このような円筒状の回収装置は、絶えず廃液を流通させて使用することが可能である。それゆえ、作業効率に優れる他、例えば、板状の陽極と陰極とを連続的に積層させる従来形式の回収装置（日本国特開平７＿３００６９２号など）と比べると比較的コンパクトであるといった利点がある。

[0005] しかし、先の円筒容器を適用する特許文献１に記載の回収装置にも問題がある。即ち、析出した貴金属が陰極より剥離する場合があり、剥離した貴金属により陽極と陰極とが短絡し、陽極の消耗が促進されたり、電解の継続が不可能となったりする場合がある。この短絡は、特に析出貴金属が板状、箔状となる場合に生じ易い。

[0006] この問題を解消するため、他の態様として、図4に記載する電解槽を構成する円筒状容器３１０と、前記容器の中心に配置され、廃液を容器上部から容器底部へと流通させるように底部に開口を有するパイプ状の陽極３１１と、前記容器の内周に沿って配置される筒状の陰極３１２と、を備える貴金属回収装置３であって、前記陰極の内周に、陰極と電気的に接続される網状の第１の筒体が配置された貴金属回収装置３がある（特許文献２参照）。この回収装置３では、まず、陰極の内周に沿って、チタン製のパンチングメタルを巻いて筒状としたものを２重に重ねたものを第１の筒体として用いる。この第１の筒体は陰極として作用するため、析出貴金属は筒体にも付着するが、析出貴金属の形状は粉状、粒状のものとして筒体の表面及び孔の内壁に付着する。この析出貴金属は密着性の良好な状態で筒体に保持されており、剥離による陽極との短絡は生じ難くなっている。また、平滑な筒状の陰極に析出した貴金属については、剥離しても筒体と陰極との間隙で保持されるので、これによる陽極との短絡は生じない。また廃液の供給を陽極により行い、パイプ状の陽極底部を開口して、廃液が陽極上部から底部へ流通するようになっている。特許文献２に記載の技術においては、第１の筒体より粉状の析出貴金属が剥離し、容器底部に堆積した場合、容器底部と陽極とが短絡するおそれがある。そこで、廃液の供給を陽極底部から行い、絶えず通液することで、容器底部に堆積した析出貴金属粉を水流により容器底部の外周に押し流すことができこの短絡を防止できるようになる。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0007] 特許文献１：日本国特開２０００－４５０８９号公報

特許文献２：日本国特開２００６－２８５５５（日本国特許第４１５１９０４）号公報

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0008] しかしながら、この特許文献２に記載の技術においても、陰極として作用する第１の筒体のふらつきによる電流異常から析出量のばらつきや、筒体端部での電流集中に由来する貴金属の異常析出により金属粉として落下しそれによる短絡不良を完全に抑制することはできなかった。

[0009] そこで、本発明は、上記のような電流異常による析出量あるいは析出粒子のばらつきや、電流集中に由来する貴金属の異常析出による短絡不良を抑制することで、回収物の精製の際の溶解に都合の良い均一な貴金属を安定的に析出させることを可能にする貴金属回収装置および貴金属回収方法を提供することを目的とする。さらに本発明は、均一で安定に貴金属を析出させることを可能にし、貴金属を効率よく回収する貴金属回収装置及び貴金属回収方法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

[001 0] 本発明者等は、鋭意検討を行い、円筒状容器を適用する回収装置および回収方法において複数の改良を行い、上記課題を解決することのできる回収装置および回収方法を見出した。

[001 1] 本発明の態様をより詳細に説明すれば、以下のとおりとなる。

貴金属回収装置は、電解槽を構成する円筒状の金属製容器と、前記金属製容器を密閉し取外し可能な、廃液流出口を有する絶縁性蓋体と、前記絶縁性蓋体の中心を貫通し、廃液を上部から底部へと流通させるパイプ状陽極と、前記金属製容器の内周に沿って配置される筒状のエキスパンダ陰極と、前記パイプ状陽極の外周に沿って配置される筒状のエキスパンダ陽極と、を備える貴金属回収装置であって、前記エキスパンダ陰極の上部は前記金属製容器の上肩部と断面逆Ｌ字形に接続固定されており、前記エキスパンダ陰極の下部は前記金属製容器の底部と接続固定されており、前記エキスパンダ陽極の両端は前記パイプ状陽極と断面コの字形に接続固定されていることを特徴とする。

ここで、前記エキスパンダ陽極の長さは、前記エキスパンダ陰極の長さの０．５～０．９５を乗じた長さであることが好ましい。

前記金属性容器及び前記エキスパンダ陰極は、チタン、タンタル、ニオブ、ジルコニウムおよびハフニウムのうちの１種または２種以上の金属または合金よりなることが好ましい。

また、前記エキスパンダ陰極の中央部が前記エキスパンダ陽極側に膨出した形状であることが好ましい。

また、パイプ状陽極およびエキスパンダ陽極は、少なくともその表面が白金族の金属、合金または酸化物よりなることが好ましい。

他方、本発明の態様における貴金属回収方法は、電解槽を構成する、円筒状の金属製容器上に設けられた密閉し取外し可能な絶縁性蓋体の中心を貫通するパイプ状陽極と、金属製容器およびその内周に沿って配置されるエキスパンダ陰極と、パイプ状陽極外周に沿って配置される筒状のエキスパンダ陽極と、を準備し、貴金属を含む廃液を収容する回収廃液槽から廃液を送液する工程と、送液された廃液が前記パイプ状陽極内を上部から底部へと流通する工程と、その流通された廃液が前記エキスパンダ陰極と前記パイプ状陽極との間を底部から上部へ逆流しながら電解する工程と、その電解された廃液が廃液流出口から前記廃液を排出し、フィルターを通して前期回収廃液槽へ戻し循環させる工程と、を含む貴金属回収方法において、前記エキスパンダ陰極の上部は前記金属製容器の上肩部と断面逆Ｌ字形に接続固定されており、前記エキスパンダ陰極の下部は前記金属製容器の底部と接続固定されており、前記エキスパンダ陽極の両端は前記パイプ状陽極と断面コの字形に接続固定されていることを特徴とする。

ここで、前記エキスパンダ陽極の長さは、前記エキスパンダ陰極の長さの０．５～０．９５を乗じた長さであることが好ましい。

前記金属性容器及びエキスパンダ陰極は、チタン、タンタル、ニオブ、ジルコニゥムおよびハフニウムのうちの１種または２種以上の金属または合金よりなることが好ましい。

また、前記エキスパンダ陰極の中央部が前記エキスパンダ陽極側に膨出した形状であることが好ましい。

また、前記パイプ状陽極及び前記エキスパンダ陽極は、少なくとも表面が白金族の金属、合金または酸化物よりなることが好ましい。

## 発明の効果

[001 2] 本発明の態様における貴金属回収装置および貴金属回収方法によれば、電流異常による析出量や析出粒子のばらつきや、電流集中に由来する貴金属の異常析出による短絡不良を抑制することで、回収物の精製の際の溶解に都合の良い均一な貴金属を安定的に析出させることができる。さらに本発明の貴金属回収装置および貴金属回収方法によれば、均一で安定に貴金属を析出させることを可能にし、貴金属を効率よく回収することができる。

## 図面の簡単な説明

[001 3] [図1]図１は、本発明の貴金属回収装置の一実施形態を示す断面概略図。

[図2]図２は、本発明の貴金属回収方法にかかる一実施形態を示す概略図。

[図3]図３は、従来の貴金属回収装置（特許文献１）の断面構造を示す図。

[図4]図４は、従来の貴金属回収装置（特許文献２）の断面構造を示す図。

## 発明を実施するための形態

[0014] 以下、本発明の実施の形態を、貴金属を含む廃液から電気分解により貴金属の回収処理を行う貴金属回収装置の断面の図面（図１）と共に説明する。本実施形態における貴金属回収装置１は、エキスパンダ陰極１２の上部を金属製容器１０の上肩部と断面逆Ｌ字形に接続固定し、その下部を金属製容器１０の底部と接続固定することで、陰極のふらつきによる陽極との短絡、あるいは電流異常による異常析出や析出物の落下による短絡を抑制できる。また工キスパンダ陰極１２の両端部はそのままでは電流が集中してしまうが、両端が金属製容器１０に電気的に接続されるため、陰極両端部への電流集中を抑制でき、それに由来する貴金属の異常析出による短絡を抑制できる。その接続固定は、工キスパンダ陰極１２の上部及び下部と金属製容器１０との間の全周あるいは一部でも良い。接続固定は工キスパンダ陰極１２を直接溶接してもスペーサーを介して溶接してもどちらでも良い。スペーサーを介して全周の接続固定を行う場合は廃液の流通を考慮し、スペーサーに孔を有す

る形状が好ましい。一部の接続固定の場合はふらつき抑制を考慮し上部及び下部それぞれ2箇所以上固定することが好ましい。接続様式としては通常のスポット溶接や圧接などで行うことができるが、電気的に接続が可能であれば前記様式に限られない。本実施形態における エキスパンダ陰極１２は、単層であっても多層であっても良い。ただし回収効率を考慮すると、エキスパンダ陰極１２は多層であることが好ましい。更に、装置の製造コストや運転コストを考慮すると、エキスパンダ陰極１２は２～５層がより好ましい。

[001 5] 本実施形態における エキスパンダ陽極１３は、その両端をパイプ状陽極１１と断面コの字形に接続固定することで、陽極のふらつきによる電流異常を回避できる。接続固定は、エキスパンダ陽極１３の両端とパイプ状陽極１１との間の全周あるいは一部でも良い。接続固定はエキスパンダ陽極１３を直接溶接してもスペーサーを介して溶接してもどちらでも良い。全周の接続固定の場合は廃液の流通を考慮し、上部および下部のパイプ状陽極１１との接続間に孔を有する形状が好ましい。一部の接続固定の場合はふらつき抑制を考慮し両端それぞれ2箇所以上固定することが好ましい。エキスパンダ陽極１３下部とパイプ状陽極１１下部は電解層底部から等距離であることが好ましい。

[001 6] 本実施形態における エキスパンダ陽極１３の長さは、エキスパンダ陰極１２の長さの０．５～０．９５を乗じた長さであることが好ましい。エキスパンダ陽極１３の長さがエキスパンダ陰極１２の長さの０．９５を乗じた長さを超える場合は、析出した粉末状の貴金属が金属製容器１０底部に堆積し短絡が起こりやすくなるばかりか、エキスパンダ陰極１２底部での異常析出が発生してしまう。エキスパンダ陽極１３の長さがエキスパンダ陰極１２の長さに０．５を乗じた長さ未満の場合は陰極上の電流分布に大きな偏りができ、析出量や析出金属形状が不均一となり精製のための溶解時間が長時間になってしまうなどの回収効率の低下の原因となる。更に、回収効率の低下の抑制を考慮した場合、エキスパンダ陽極１３の長さはエキスパンダ陰極１２の長さに０．７～０．９５を乗じた長さであることがより好ましい。

[001 7] 本実施形態における金属性容器１０および工キスパンダ陰極１２は、チタン、タンタル、二オブ、ジルコ二ウムおよびハフ二ウムのうちの1種または2種以上の金属または合金よりなるものが好ましい。前記金属以外の金属または合金を用いた場合、金属性容器１０および工キスパンダ陰極１２に電解析出した貴金属 (金や白金など) を回収後の精製のために電極から溶解回収する際に多用される王水を用いると、金属性容器１０および工キスパンダ陰極１２が溶解する場合がある。あるいは、ステンレスなどの不溶性金属を用いた場合でも、回収分からの分離が困難な微量の鉛成分が溶出してしまい後の精製に問題となる。更に、安価であって高い加工性と王水への不溶性を考慮するとチタン金属またはその合金であることがより好ましい。

[001 8] 本実施形態における工キスパンダ陰極１２は、中央部が膨出した形状とすることで、より均一な析出を可能にし、電流異常を抑制し高い回収効率で貴金属を析出させることができる。膨出した形状とは、工キスパンダ陰極１２中央部がもっとも陽極に近くなるように切断面が円弧を描く形状である。この形状を採用する理由は、陰極端部の電流の偏りを更に抑制し、より均一な電気分解が可能となることに起因する。

[001 9] 本実施形態におけるパイプ状陽極１１及び工キスパンダ陽極１３は、不溶性の材料が好ましくその材質としては、少なくとも表面が白金族の金属、合金または酸化物よりなるものが好ましい。更に、チタン等のバルブ金属に白金または白金合金をめつきしたものあるいは酸化イリジウムまたは酸化ルテ二ゥムを被覆したものがコス卜的にも耐久性においてもより好ましい。

[0020] 工キスパンダ陰極１２および工キスパンダ陽極１３の菱形孔の対角線の長軸と短軸の長さがそれぞれ4 X 2 ~ １６X８ｍｍのものが好ましい。長さを４Ｘ２ｍｍ未満とすると電着による孔の目詰まりが早期に生じ、また長さが１６Ｘ８ｍｍを超えると表面積が小さくなるため回収効率が低下するからである。

[0021 ] 次に、前記のように構成された貴金属回収装置1を用いた貴金属回収方法について図1および図2と共に説明する。本実施形態の貴金属回収方法にお

いて、貴金属を含む廃液を収容する回収廃液槽２０から廃液をポンプ２１などで送液し、送液された廃液がパイプ状陽極１１内を上部から底部へと流通し、その流通された廃液がエキスパンダ陰極１２と上記パイプ状陽極１１との間を底部から上部へ逆流しながら電解され、廃液流出口１５から廃液が排出され、フィルター２２を通して回収廃液槽２０へ戻され、その戻された廃液が循環される。この時、エキスパンダ陰極１２の上部は金属製容器１０の上肩部と断面逆Ｌ字形に接続固定され、またエキスパンダ陰極１２の下部は金属製容器１０の底部と接続固定されることで、陰極のふらつきによる陽極との短絡、あるいは電流異常による異常析出や析出物の落下による短絡を抑制できる。またエキスパンダ陰極１２の両端部はそのままでは電流が集中してしまうが、金属製容器１０に接続固定することで、陰極両端部への電流集中を抑制でき、それに由来する貴金属の異常析出による短絡を抑制できる。エキスパンダ陽極１３の両端はパイプ状陽極１１と断面コの字形に接続固定されていることで陰極との短絡を抑制できる。廃液流出口１５から廃液と共に流出した金属粉は、次の工程に設けられたフィルター２２によりトラップされ、更に電極間の短絡を抑制できる。

[0022] 本実施形態の貴金属回収方法において、エキスパンダ陽極１３の長さは、エキスパンダ陰極１２の長さの０．５～０．９５を乗じた長さであることが好ましい。エキスパンダ陽極１３の長さがエキスパンダ陰極１２の長さの０．９５を乗じた長さを超える場合は、析出した粉末状の貴金属が金属製容器１０底部に堆積し短絡が起こりやすくなるばかりか、エキスパンダ陰極１２底部での異常析出が発生してしまう。エキスパンダ陽極１３の長さがエキスパンダ陰極１２の長さに０．５を乗じた長さ未満の場合は陰極上の電流分布に大きな偏りができ、析出量や析出金属形状が不均一となり精製のための溶解時間が長時間になってしまうなどの回収効率の低下の原因となる。更に、回収効率の低下の抑制を考慮した場合、エキスパンダ陽極１３の長さはエキスパンダ陰極１２の長さに０．７～０．９５を乗じた長さであることがより好ましい。

[0023] 金属性容器１０及びエキスパンダ陰極１２は、チタン、タンタル、ニオブ、ジルコニウムおよびハフニウムのうちの１種または２種以上の金属または合金よりなることが好ましい。前記金属以外の金属または合金を用いた場合、金属性容器１０および工キスパンダ陰極１２に電解析出した貴金属 (金や白金など) を回収後の精製のために電極から溶解回収する際に多用される王水を用いると、金属性容器１０および工キスパンダ陰極１２が溶解する場合がある。あるいは、ステンレスなどの難溶性金属を用いた場合でも、回収分からの分離が困難な微量の鉛成分が溶出してしまい後の精製に問題となる。更に、安価であって高い加工性と王水への不溶性を考慮するとチタン金属またはその合金であることがより好ましい。

[0024] 工キスパンダ陰極１２は、中央部が膨出した形状であることが好ましい。それにより均一な析出を可能にし、電流異常を抑制し高い回収効率で貴金属を析出させることができる。膨出した形状とは、工キスパンダ陰極１２中央部がもつとも陽極に近くなるように切断面が円弧を描く形状である。この形状を採用する理由は、陰極端部の電流の偏りを更に抑制し、より均一な電気分解が可能となることに起因する。

[0025] パイプ状陽極１１及び工キスパンダ陽極１３は、少なくとも表面が白金族の金属、合金または酸化物よりなることが好ましい。更に、チタン等のバルプ金属に白金又は白金合金をめつきしたものあるいは酸化イリジウムまたは酸化ルテニゥムを被覆したものがコスト的にも耐久性においてもより好ましい。

[0026] 本実施形態の貴金属回収装置において、回収廃液の貴金属回収装置内の送液速度は対象となる廃液中の金属イオン種、電解条件等により異なるが、５~３０Ｌ/ ｍｉｎであることが好ましい。送液速度が５Ｌ/ ｍｉｎ未満の場合は電解室内の貴金属濃度に偏りができ不均一な析出が起こりやすくなり、３０Ｌ/ ｍｉｎを超える場合は電解回収効率が低下し回収に長時間を要してしまうため不適当である。金属性容器および工キスパンダ陰極の電流密度は０．０５～０．３０Ａ/ ｄｍ2で行うことが好ましい。金属性容器およびエ

キスパンダ陰極の電流密度が０．０５Ａ/ ｄｍ２未満の場合は回収に長時間要し、０．３０Ａ/ ｄｍ２を超える場合は回収効率が向上しないばかりかコストが嵩んでしまう。

[0027] 本実施形態の貴金属回収方法において、金属性容器１０またはエキスパンダ陰極１２に付着した貴金属、金属製容器１０底部に堆積した貴金属およびフィルター２２にトラップされた貴金属は、異常析出などが抑制されているため容易に剥離溶液である王水又はＫＣＮ溶液により剥離溶解し、貴金属の純度を1桁程度に高めるための精製を行うことができる。剥離溶液としては、各種貴金属を同時に溶解できる王水を用いることが好ましい。

## 実施例

[0028] 以下、本発明の貴金属回収装置の実施形態の一態様を図面1および図２と共に説明する。電解槽となる円筒状の金属製容器１０（寸法 :内径１５０ｍｍ、高さ７００ｍｍ）と、金属製容器１０の内周に沿って一層目の筒状のエキスパンダ陰極１２（寸法 :直径１４０ｍｍ、板厚１ｍｍ、長さ６８５ｍｍ、菱形孔の対角線の長さ６（長軸）Ｘ３（短軸）ｍｍ）、更に金属製容器１０の内周に沿って二層目の筒状のエキスパンダ陰極１２（寸法 :直径１３０ｍｍ、板圧１ｍｍ、長さ６８５ｍｍ、菱形孔の対角線の長さ６（長軸）Ｘ３（短軸）ｍｍ）が配置されている。一方、金属製容器１０の中心部にはパイプ状陽極１１（寸法 :外径２２ｍｍ、長さ６９０ｍｍ、板厚２ｍｍ）が挿入されており、パイプ状陽極１１の外周に沿って筒状のエキスパンダ陽極１３（寸法 :外径３８ｍｍ、板厚１ｍｍ、長さ５９０ｍｍ、菱形孔の対角線の長さ８（長軸）Ｘ４（短軸）ｍｍ）が配置されている。パイプ状陽極１１の底部は開口されており、金属製容器１０の底面より一定の距離（９５ｍｍ）をおいている。この場合のエキスパンダ陽極１３の長さは、エキスパンダ陰極１２の長さの０．８６を乗じた長さである。

[0029] エキスパンダ陰極１２の上部は金属製容器１０の上肩部と4枚の連接金属板（寸法 :８ｍｍズ１２ｍｍ、板厚１ｍｍ）により溶接で一体的に接続固定され、全体として断面逆Ｌ字形に形成される。エキスパンダ陰極１２の下部

は、上部と同様に金属製容器１０の底部と4か所接続固定されている。エキスパンダ陽極１３の両端はパイプ状陽極１１とリング状の連接金属板（寸法:外径３８ｍｍ、内口径１８ｍｍ、板圧１ｍｍ）により溶接で一体的に接続固定され、全体として断面コの字形に形成される。

[0030] 金属性容器１０、エキスパンダ陰極１２及び陰極の連接金属板はチタン製であり、パイプ状陽極１１、エキスパンダ陽極１３及び陽極の連接金属板はチタンを基材としてイリジウムめっきしたものを用いている。

[0031] 本実施形態にかかる貴金属回収方法の一態様としては、金を含む廃液を収容する回収廃液槽２０からポンプ２１により廃液を送液し、送液された廃液はパイプ状陽極１１上部から底部へと流通され、金属製容器１０底部まで通液するようになっている。その通液された廃液は、陰極と陽極との間を底部から上部へ逆流しながら電解される。その電解された廃液は金属製容器１０上部の絶縁性蓋体１４に空けられた廃液流出口１５から排出され、糸巻きフィルター２２を通して回収廃液槽へ戻し循環される。この循環の送液速度は、対象となる廃液中の金属イオン種、電解条件により異なるが、金を含むめつき液５００Ｌ（金濃度１．５ｇ/ Ｌ）からの金の電解回収においては、送液速度１０～２０Ｌ/ ｍｉｎで実施されている。また回収作業時の電解条件は、電流密度０．１～０．２Ａ/ｄｍ２で行った。１回の回収作業に要する時間は、上記送液速度、電解条件では、１２～１８時間となる。

[0032] 金を含むめっき廃液からの金の回収において、電解後の貴金属回収装置１は、金が析出したエキスパンダ陰極１２を含む金属製容器１０、及び場合により金粉末が付着したフィルター２２とともに取り外される。析出した金は、精製のための溶解液として王水等が用いられる。チタンは王水等に溶解することがない。溶解液は金属製容器１０内に注入し、回収装置内で攪拌により金を溶解させることができる。また、金が析出したエキスパンダ陰極１２を含む金属製容器１０を溶解液の槽の中に投入し金を溶解させることもできる。析出した金は、王水等で容易に溶解する。

[0033] 本発明の貴金属回収装置を用いた金を含むめっき廃液からの前記金回収に

おいて、満足な結果が得られた。具体的には、陰極両端部への電流集中に由来する金の異常析出による短絡は全く生じなかった。また、析出金属の厚さは０．５～３．０ｍｍで均一に析出し、容易に回収物の精製の際の王水溶解を行うことができた。回収廃液からの回収金の収率は９９．９％であった。

# 請求の範囲

[請求項1] 電解槽を構成する円筒状の金属製容器と、前記金属製容器を密閉し取外し可能な、廃液流出口を有する絶縁性蓋体と、前記絶縁性蓋体の中心を貫通し、廃液を上部から底部へと流通させるパイプ状陽極と、前記金属製容器の内周に沿って配置される筒状のエキスパンダ陰極と、前記パイプ状陽極の外周に沿って配置される筒状のエキスパンダ陽極と、を備える貴金属回収装置であって、

前記エキスパンダ陰極の上部は前記金属製容器の上肩部と断面逆L字形に接続固定されており、前記エキスパンダ陰極の下部は前記金属製容器の底部と接続固定されており、前記エキスパンダ陽極の両端は前記パイプ状陽極と断面コの字形に接続固定されていることを特徴とする貴金属回収装置。

[請求項2] 請求項１に記載の貴金属回収装置であって、

前記エキスパンダ陽極の長さは、前記エキスパンダ陰極の長さの０．５～０．９５を乗じた長さである貴金属回収装置。

[請求項3] 請求項１に記載の貴金属回収装置であって、

前記金属性容器及び前記エキスパンダ陰極は、チタン、タンタル、ニオブ、ジルコニウムおよびハフニウムのうちの１種または２種以上の金属または合金よりなる貴金属回収装置。

[請求項4] 請求項１に記載の貴金属回収装置であって、

前記エキスパンダ陰極の中央部が、前記エキスパンダ陽極側に膨出した形状である貴金属回収装置。

[請求項5] 請求項１に記載の貴金属回収装置であって、

前記パイプ状陽極および前記エキスパンダ陽極は、少なくともその表面が白金族の金属、合金または酸化物よりなる貴金属回収装置。

[請求項6] 貴金属回収方法において、

電解槽を構成する、円筒状の金属製容器上に設けられた密閉し取外し可能な絶縁性蓋体の中心を貫通するパイプ状陽極と、

金属製容器およびその内周に沿って配置されるエキスパンダ陰極と、

ノ《イプ状陽極外周に沿つて配置される筒状のエキスパンダ陽極と、を準備し、

貴金属を含む廃液を収容する回収廃液槽から廃液を送液する工程と、

送液された廃液が前記/くイプ状陽極内を上部から底部へと流通する工程と、

その流通された廃液が前記エキスパンダ陰極と前記/くイプ状陽極との間を底部から上部へ逆流しながら電解する工程と、

廃液流出口から前記廃液を排出し、フィルターを通して前記回収廃液槽へ戻し、その電解された廃液を循環させる工程と、

を含む貴金属回収方法において、

前記エキスパンダ陰極の上部は前記金属製容器の上肩部と断面逆L字形に接続固定されており、前記エキスパンダ陰極の下部は前記金属製容器の底部と接続固定されており、前記エキスパンダ陽極の両端は前記パイプ状陽極と断面コの字形に接続固定されていることを特徴とする貴金属回収方法。

[請求項7] 請求項６に記載の貴金属回収方法であって、

前記エキスパンダ陽極の長さは、前記エキスパンダ陰極の長さの０．５～０．９５を乗じた長さである貴金属回収方法。

[請求項8] 請求項６に記載の貴金属回収方法であって、

前記金属性容器及び前記エキスパンダ陰極は、チタン、タンタル、ニオブ、ジルコニウムおよびハフニウムのうちの１種または２種以上の金属または合金よりなる貴金属回収方法。

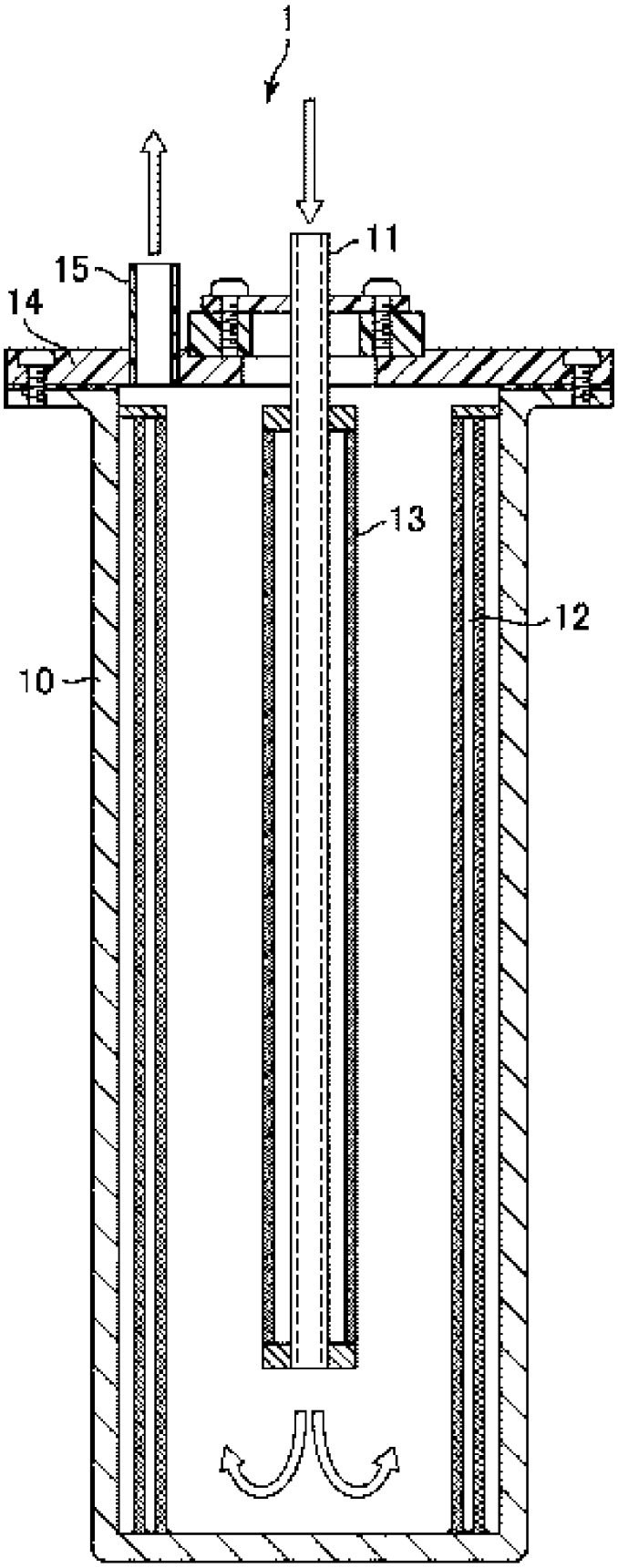
[請求項9] 請求項６に記載の貴金属回収方法であって、

前記エキスパンダ陰極の中央部が、前記エキスパンダ陽極側に膨出した形状である貴金属回収方法。

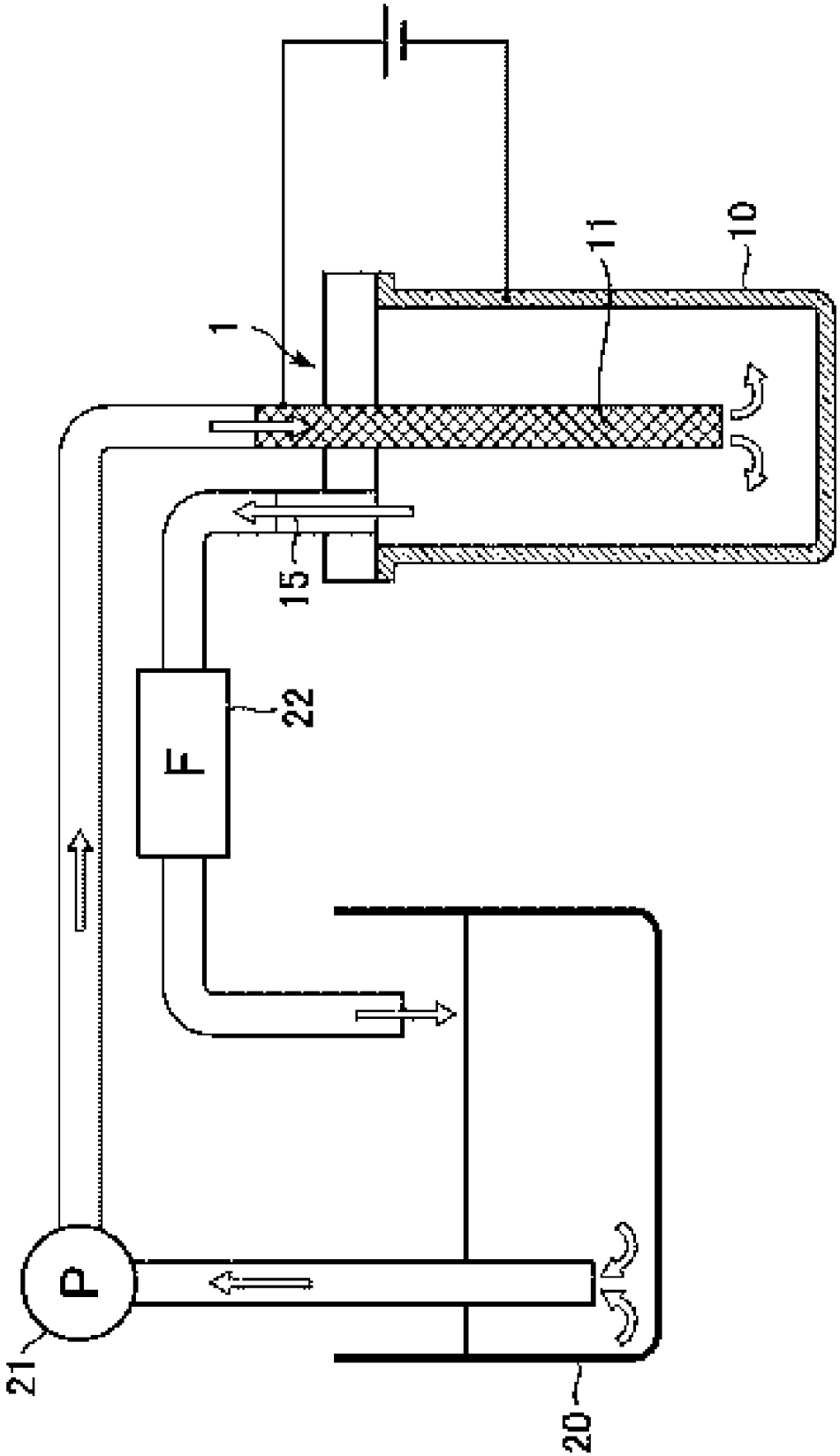
[請求項10] 請求項6に記載の貴金属回収方法であって、

前記パイプ状陽極及び前記エキスパンダ陽極は、少なくともその表面が白金族の金属、合金または酸化物よりなる貴金属回収方法。

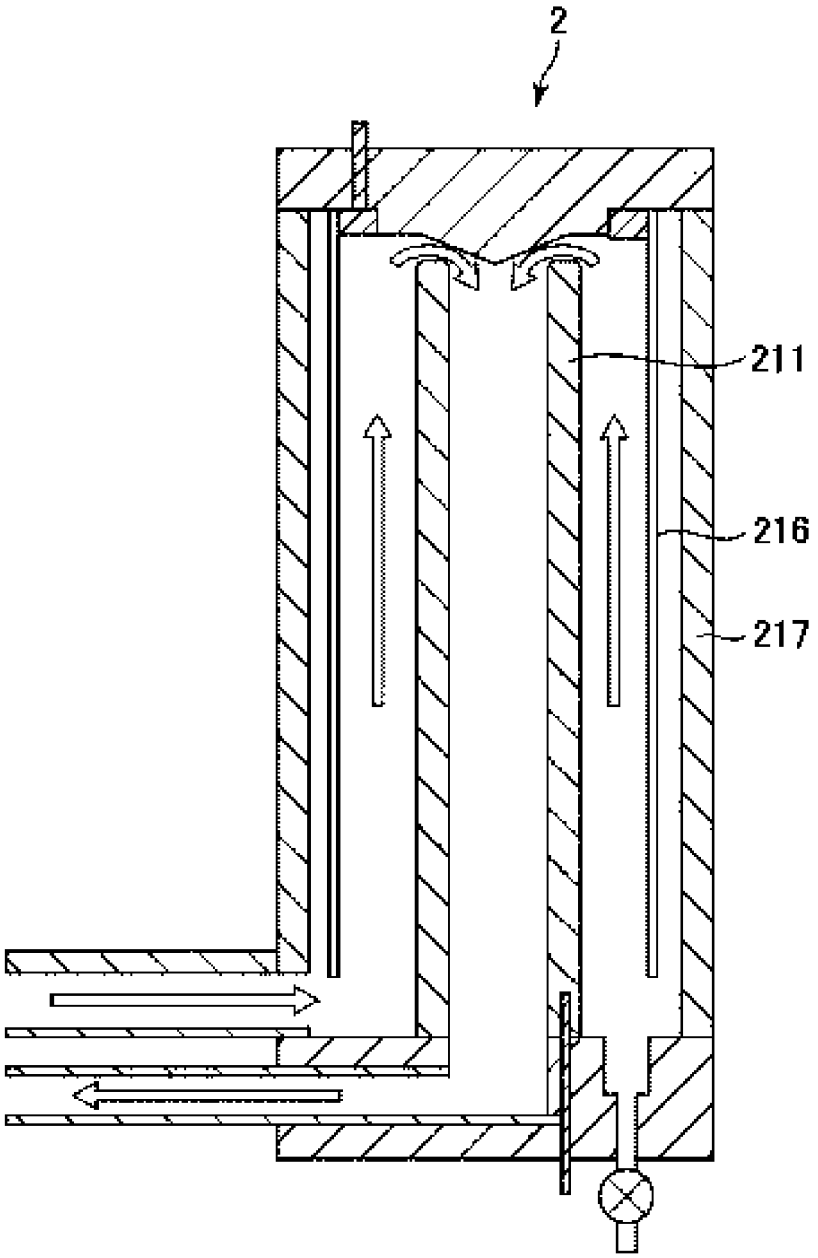
[図1]



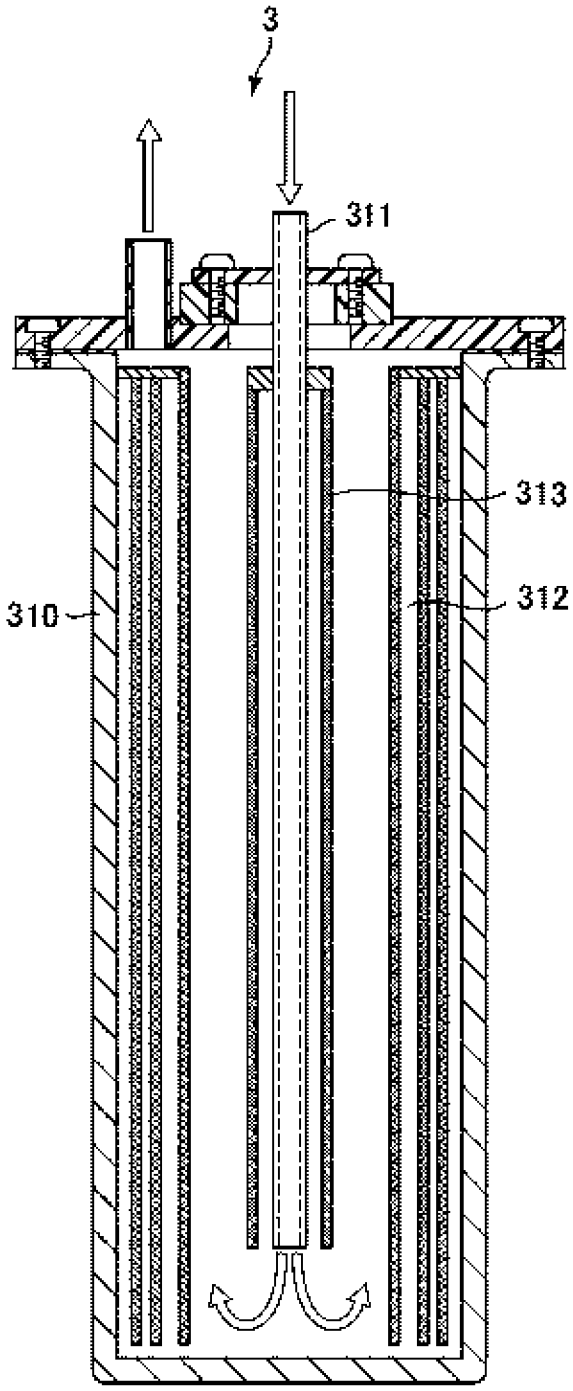
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2011/065495

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C25C7/00 (2006.01)i, C25C1/20 (2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C25C7/00, C25C1/20

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2011
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2011 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2011

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|---|---|---|
| A | JP 2006-28555 A (Tanaka Kikinzoku Kogyo Kabushiki Kaisha), 02 February 2006 (02.02.2006), (Family: none) | 1-10 |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibnion or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying tiie invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

| Date of the actual completion of the international search | Date of mailing of the international search report |
|---|---|
| 04 October, 2011 (04.10.11) | 11 October, 2011 (11.10.11) |
| Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office | Authorized officer |
| Facsimile No. | Telephone No. |

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 2009)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2011/065495

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|---|---|---|
| A | JP 2002-513860 A (Eltech Systems Corp.), 14 May 2002 (14.05.2002),<br>& WO 1999/057338 A1 & AU 3486599 A<br>& US 6139705 A & EP 1076731 A<br>& CA 2311724 A & US 6352622 B1<br>& WO 2002/018676 A1 & AU 7719500 A<br>& AT 214110 T & US 6368489 B1<br>& DE 69900985 D & TW 483951 B<br>& DE 69900985 T & ES 2174599 T<br>& US 2003/0019760 A1 & EP 1313894 A<br>& MX PA0 3001010 A & AU 766037 B<br>& AR 34247 A & AT 262054 T<br>& DE 60009172 D & ES 2215072 T<br>& DE 60009172 T | 1-10 |

国際調査報告

国際出願番号 PCT／JP2011/065495

A． 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C25C7/00 (2006.01)i , C25C1/20 (2006.01)i

B． 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C25C7/00, C25C1/20

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922—1996年
日本国公開実用新案公報 1971—2011年
日本国実用新案登録公報 1996—2011年
日本国登録実用新案公報 1994—2011年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C． 関連すると認められる文献

| 引用文献のカテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する請求項の番号 |
|---|---|---|
| A | JP 2006-28555 A (田中貴金属工業株式会社) 2006.02.02, (ファミリーなし) | 1-10 |
| A | JP 2002-513860 A (エルテック・システムズ・コーポレーション) 2002.05.14, & WO 1999/057338 A1 & AU 3486599 A & US 6139705 A & EP 1076731 A & CA 2311724 A & US 6352622 B1 & WO 2002/018676 A1 & AU 7719500 A & AT 214110 T & US 6368489 B1 & DE 69900985 D & TW 483951 B & DE 69900985 T & ES 2174599 T & US 2003/0019760 A1 & EP 1313894 A & MX PA03001010 A & AU 766037 B & AR 34247 A & AT 262054 T & DE 60009172 D & ES 2215072 T & DE 60009172 T | 1-10 |

☐ c欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

| 国際調査を完了した日 | 国際調査報告の発送日 |
|---|---|
| 04.10.2011 | 11.10.2011 |

| 国際調査機関の名称及びあて先 | 特許庁審査官 (権限のある職員) | 4E | 3032 |
|---|---|---|---|
| 日本国特許庁 (ISA／JP)<br>郵便番号100—8915<br>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 | 瀧口 博史<br>電話番号 03—3581—1101 内線 3425 | | |