

課題番号 : 2022A-E06
利用課題名 (日本語) : 複合酸化物化を利用した Ru(VI)選択浸出法の開発
Program Title (English) : Developments for selective leaching method of ruthenium with the formation of complex oxide
利用者名 (日本語) : 鈴木智也¹⁾, 粕谷亮¹⁾, 本間諒¹⁾, 成田弘一¹⁾, 小林徹²⁾, 塩飽秀啓²⁾
Username (English) : T. Suzuki¹⁾, R. Kasuya¹⁾, R. Honma¹⁾, H. Narita¹⁾, T. Kobayashi²⁾, H. Shiwaku²⁾
所属名 (日本語) : 1) 国立研究開発法人産業技術総合研究所
2) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

キーワード : 白金族浸出プロセス、XAFS、メカニズム

1. 概要 (Summary)

通常、HDD や燃料電池用触媒から Ru と Pt を分離精製するには、塩酸/塩素ガスによりそれらを浸出し、中和及び酸化剤による Ru(VIII)への調整を経て、まず、蒸留法により Ru を選択的に回収する。そして、HCl の添加による酸性度の調整の後、溶媒抽出等により Pt が分離される。しかし、この手法では毒性や腐食性の高い RuO₄ ガスを生成させること、また特殊な蒸留設備を用いるという課題がある。故に、我々は白金族金属分離精製プロセスを高度化する独自技術として、複合酸化物を用いる Ru の浸出分離法の開発を進めている。これまでの研究から、Ru の金属粉末と炭酸ナトリウムを焼成した際に生成する Ru(VI)が浸出に関与することがわかっている。一方、廃材中の Ru 及び Pt への炭酸ナトリウムの反応性は不明である。そこで、本課題では、モデル廃材として燃料電池用触媒を用い、本法を適用した際の Ru 及び Pt に関する価数変化について XAFS 法により検討した。

2. 実験方法 (Experimental)

表 1 に燃料電池用触媒の成分を示す。燃料電池用触媒は、炭酸ナトリウムと混合し、空气中で焼成することで反応させた。得られた試料は、Ru または Pt 濃度が最大で 10mass%になるように窒化ホウ素で希釈し、ペレット化することで、測定試料とした。BL-22XU にて透過法により、Ru K edge

表 1. 本研究で用いた試料の組成

燃料電池用触媒	
Ru/mass%	17.1
Pt/mass%	32.9
その他の成分	カーボン

(22.17 keV) 及び Pt L_{III} edge (11.56 keV) XAFS の測定を行った。XAFS スペクトルの解析には ARTHEMIS (ソフトウェア, version 0.8.012) を用いた^[1]。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

炭酸ナトリウムとの反応前後の燃料電池用触媒の Ru K edge 及び Pt L_{III} edge の XANES スペクトルを図 1 に示す。反応前の燃料電池中の Ru は、XANES スペクトルが Ru(0)のそれと似ており、大部分が 0 価の状態が存在していることがわかる。反応後は、22115 eV 付近に、プレッジピークが見られ^{[2], [3]}、Ru(VI)が主成分になる。この結果は、Ru(0)と炭酸ナトリウムを反応させた結果と同様である。燃料電池用触媒中の Pt に関しては、炭酸ナトリウムとの反応前の XANES スペクトルは Pt(0)のスペクトルとは異なっている。この結果は、触媒中の Pt が II 価や IV 価等の酸化状態を含んでいることを示唆している^[4]。反応後は、Pt(0)のスペクトルと一致しており、II 価や IV 価等の酸化状態の Pt が還元されたことがわかる。この結果は、Na₂PtO₃を生成する Pt(0)と炭酸ナトリウムを反応させた結果と異なっている。これは、触媒中に含まれるカーボンが還元剤として働いた可能性がある。

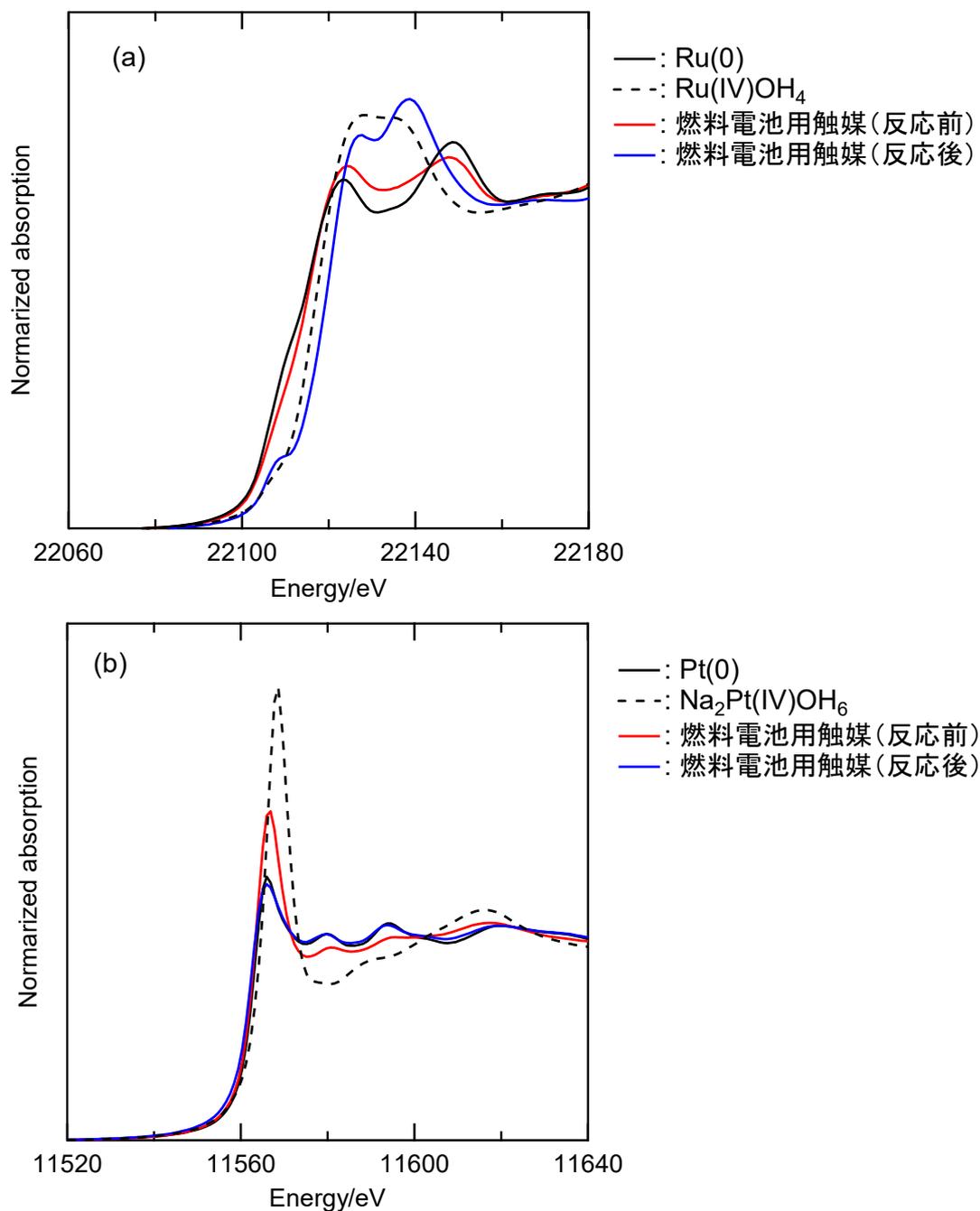


図 1. 反応前後の燃料電池用触媒の Ru K edge (a) 及び Pt L_{III} edge (b) XANES スペクトル

4. その他・特記事項 (Others)

参考文献

- [1] B. Ravel, M. Newville, *J. Synchrotron Radiat.*, **2005**, 12, 537.
 [2] C. I. Hiley, M. R. Lees, J. M. Fisher, D. Thompsett, S. Agrestini, R. I. Smith, R. I.

Walton, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2014**, 53, 4423.

- [3] K. Sardar, E. Petrucco, C. I. Hiley, J. D. B. Sharman, P. P. Wells, A. E. Russell, R. J. Kashtiban, J. Sloan, R. I. Walton, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2014**, 53, 10960.
 [4] W. E. O'Grady, P. L. Hagans, K. I. Pandya, D. L. Maricle, *Langmuir*, **2001**, 17, 3047.