

(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



(10) 国際公開番号

WO 2011/125510 A1

PCT

(43) 国際公開日
2011年10月13日(13.10.2011)

- (51) 国際特許分類:
C22B 34/24 (2006.01) C22B 7/00 (2006.01)
B09B 3/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/057119
- (22) 国際出願日: 2011年3月24日(24.03.2011)
- (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 2010-084726 2010年4月1日(01.04.2010) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 三井金属鉱業株式会社(MITSUI MINING & SMELTING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1418584 東京都品川区大崎一丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 吉田 麻美(YOSHIDA, Mami) [JP/JP]; 〒3620021 埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業株式会社 総合研究所内 Saitama (JP). 松崎 健嗣(MATSUZAKI, Kenji) [JP/JP]; 〒3620021 埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業株式会社 総合研究所内 Saitama (JP). 青木 達也(AOKI, Tatsuya) [JP/JP]; 〒3620021 埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業株式会社 総合研

究所内 Saitama (JP). 石井 林太郎(ISHII, Rintaro) [JP/JP]; 〒3620021 埼玉県上尾市原市1333-2 三井金属鉱業株式会社 総合研究所内 Saitama (JP).

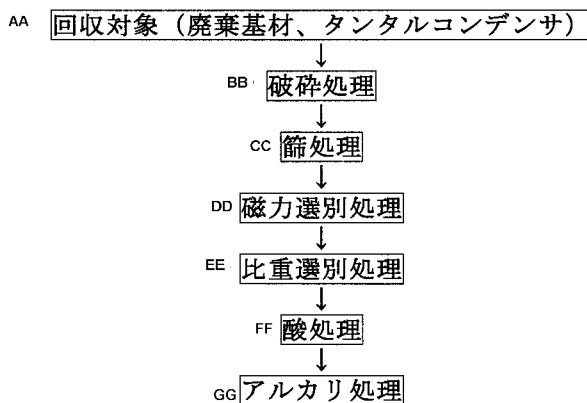
- (74) 代理人: 特許業務法人田中・岡崎アンドアソシエイツ(TANAKA AND OKAZAKI); 〒1130033 東京都文京区本郷3丁目30番10号 本郷K&Kビル Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, 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, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR RECOVERING TANTALUM

(54) 発明の名称: タンタルの回収方法

[図1]



AA Articles from which tantalum is to be recovered (waste substrates, tantalum capacitors)
BB Crushing
CC Sifting
DD Magnetic sorting
EE Specific gravity sorting
FF Acid treatment
GG Alkali treatment

(57) Abstract: Disclosed is a method for recovering high-quality tantalum from tantalum-containing waste, with which it is possible to reduce a variety of impurities such as antimony (Sb) and phosphorous (P), which hinder the reuse of tantalum in tantalum capacitors. The method for recovering tantalum from tantalum-containing waste is characterized in that tantalum-containing waste is subjected to acid treatment and then alkali treatment, thereby recovering tantalum. Acid treatment is preferably carried out using acid containing hydrochloric acid, and alkali treatment is preferably carried out by sodium hydroxide or potassium hydroxide. The tantalum-containing waste is preferably a tantalum sintered compact removed from tantalum capacitors.

(57) 要約: 本発明は、タンタルコンデンサへの再利用の際に不都合となる、アンチモン(Sb)、リン(P)などの種々の不純物を低減し、高品位のタンタルをタンタル含有廃棄物から回収する技術を提供する。本発明は、タンタル含有廃棄物からタンタルを回収するタンタル回収方法において、タ

ンタル含有廃棄物を酸処理し、その後アルカリ処理をして、タンタルを回収することを特徴とする。酸処理は塩酸を含む酸により行うことが好ましく、アルカリ処理は、水酸化ナトリウムまたは水酸化カリウムにより行うことが好ましい。本発明のタンタル含有廃棄物としては、タンタルコンデンサから取り出したタンタル焼結体であることが好ましい。

WO 2011/125510 A1

WO 2011/125510 A1



(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). 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： タンタルの回収方法

技術分野

[0001] 本発明は、タンタルの回収方法に関し、特に、タンタルコンデンサを含むプリント配線板などから得られるタンタル含有廃棄物、或いはタンタルコンデンサから取り出したタンタル焼結体からタンタルを効率的に回収する技術に関する。

背景技術

[0002] タンタルコンデンサは、大容量で安定性が高く、ノート型パソコンや通信機器や大型パソコン、音響系機器などに多く使用されている。そして、日本国内では年間約 3 8 億個ものタンタルコンデンサが製造されていると言われている。このようなタンタルコンデンサは、プリント配線板などの各種電子・電気基材に実装されて市場に流通するが、その後の使用済みとなったタンタルコンデンサについては、経済的、技術的な理由から積極的な回収やリサイクルが行われず、単なる産業廃棄物として処理されているのが現状である。

[0003] 近年、資源不足の問題から、廃棄される電子・電気機器などからレアメタルを回収して、再利用する取り組みが国家プロジェクトとして推進されている。そして、このレアメタルの一つであるタンタルを、プリント配線板などの廃棄基材や、使用済みタンタルコンデンサから高効率で回収することが期待されている。

[0004] 従来、使用済みのタンタルコンデンサからタンタルを回収する技術としては、例えば、使用済みタンタルコンデンサの被覆材、二酸化マンガン固体電解質を、酸浸出、炭素還元－酸浸出、塩素化－蒸留またはアルゴン－水素プラズマ法により除去した後、塩素化法、アルコキサイド化法、電子ビーム溶解法またはこれらの組み合わせにより精製するスクラップタンタルからタンタルを回収する方法が知られている（特許文献 1 参照）。

- [0005] また、タンタルコンデンサが実装された廃棄基材を、酸化雰囲気下550℃以上に加熱処理し、得られた加熱処理物を長軸長さにより選別してタンタルを回収する方法が知られている（特許文献2）。
- [0006] これら先行技術により、廃棄基材や使用済みタンタルコンデンサから、ある程度の品位の金属タンタルや酸化タンタルを回収することは可能である。しかしながら、これらの先行技術より得られたタンタルの回収物には、ケイ素（Si）、アンチモン（Sb）、リン（P）、マンガン（Mn）、錫（Sn）、鉛（Pb）、亜鉛（Zn）、鉄（Fe）、ニッケル（Ni）、銅（Cu）等の不純物が多く含有されているため、そのままでの再利用を行うことが困難といわれている。例えば、プリント配線板などの廃棄基材からのリサイクルを考えた場合、タンタル以外に銅線などの不純物が不可避免的に多量に混入するため、特許文献1のような先行技術では対応が困難であった。

先行技術文献

特許文献

- [0007] 特許文献1：特開昭64-75632号公報
特許文献2：特開2009-221514号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0008] 以上のような事情の背景の下に、本発明は、タンタルを含有する廃棄物から効率的にタンタルを回収する技術を提供するものであり、特に、タンタル含有廃棄物や、使用済みタンタルコンデンサから取り出されるタンタル焼結体から、再利用の際に不都合となるアンチモン（Sb）、リン（P）、マンガン（Mn）、錫（Sn）、鉛（Pb）、亜鉛（Zn）、鉄（Fe）、ニッケル（Ni）、銅（Cu）などの各種不純物を低減し、高い回収率でタンタルを回収できる技術を提供する。

課題を解決するための手段

- [0009] 上記課題を解決するため、本発明は、タンタル含有廃棄物からタンタルを

回収するタンタル回収方法において、タンタル含有廃棄物を酸処理し、その後アルカリ処理をして、タンタルを回収することを特徴とする。

[0010] 本発明におけるタンタル含有廃棄物とは、タンタルを含む廃棄物であれば特に制限されないが、例えば、タンタルコンデンサを実装したプリント配線板などの廃棄基材や、この廃棄基材を粉砕して得られたチップ状廃棄物、コンデンサ製造における工程不良品などが回収対象として好ましい。そして、本発明のタンタル含有廃棄物は、本発明の酸処理やアルカリ処理が効率的に行われるよう、廃棄基材そのままの状態よりも、粉砕して得られたチップ状廃棄物であることが好ましい。さらに、本発明のタンタル含有廃棄物には、タンタルコンデンサから取り出されるタンタル焼結体も含まれる。

[0011] 本発明のタンタル回収方法では、タンタル含有廃棄物に対し、酸処理とアルカリ処理との二段階湿式処理を行うことにより、不純物の低減を行うと共に、高回収率でタンタルを回収するものである。また、本発明のタンタル回収方法では、タンタル含有廃棄物から酸化物或いは金属としてタンタル回収することができる。

[0012] 本発明における酸処理は、塩酸、硫酸、硝酸などの酸により行うことができる。この酸処理により、不純物となるアンチモン（Sb）、マンガン（Mn）、錫（Sn）、鉛（Pb）、亜鉛（Zn）、鉄（Fe）、ニッケル（Ni）、銅（Cu）などをタンタル含有廃棄物から除去することができる。そして、本発明の酸処理では、塩酸を含む酸により行うことが特に好ましい。塩酸を用いると、タンタル含有廃棄物に含まれる、アンチモン、マンガン、錫、鉛、鉄、ニッケル、銅を容易に溶解して除去することができる。具体的な酸処理としては、塩酸や王水（塩酸と硝酸との混酸）を含む溶液に、タンタル焼結体を接触させることにより行うことができる。

[0013] 銀（Ag）がタンタル含有廃棄物に含まれている場合には、酸処理後にろ過した際のろ液から塩化銀として銀を回収することが可能である。酸処理に塩酸を用いた場合、タンタル含有廃棄物に銀が含有されていると、銀（Ag）は塩化銀（AgCl）に変化している。これは、タンタル含有廃棄物に含

まれる二酸化マンガン (MnO_2) が塩酸に溶解する際に発生する塩素ガスとの反応によるものであり、生成した塩化銀の一部は塩酸に溶解した状態となる。塩酸に溶解した銀については、酸処理後にろ過を行い、そのろ液を希釈すると、塩化銀として沈殿するため、再度、ろ過することで銀を回収することができる。

[0014] そして、本発明のタンタル回収方法では、上記酸処理後に、アルカリ処理を行うことにより、更なる不純物の除去を行い、高品位のタンタルを回収するものである。本発明におけるアルカリ処理は水酸化ナトリウムまたは水酸化カリウムにより行うことが好ましい。このアルカリ処理は、不純物となるリン (P) を効率的に除去でき、酸処理後にも残存している錫 (Sn)、鉛 (Pb)、鉄 (Fe)、ニッケル (Ni) などをさらに除去することができる。前記した酸処理によっても、リンはある程度除去できるものの、タンタル含有廃棄物内に取り込まれているリンは酸処理だけでは除去が難しい。また、錫、鉛、鉄、ニッケルについても酸処理でその多くは除去できるものの、少量は残存している場合がある。本発明において、水酸化ナトリウムまたは水酸化カリウムによるアルカリ処理を行うことによって、タンタル含有廃棄物内に取り込まれているリンを効率的に除去し、あわせて錫、鉛、鉄、ニッケルなどの不純物をさらに低減することができる。このアルカリ処理としては、例えば、水酸化ナトリウムまたは水酸化カリウムを含む溶液に、酸処理後のタンタル含有廃棄物を接触させることにより行うことができる。また、酸洗処理後に水洗処理を行ってアルカリ処理することが好ましい。水洗処理を行うことにより直前の酸の影響を低減して、アルカリ処理を効率的に行うことができるためである。

[0015] 本発明におけるタンタル含有廃棄物は、タンタルコンデンサから取り出したタンタル焼結体であることが好ましい。タンタルコンデンサから取り出したタンタル焼結体であると、より高品位のタンタルを容易に回収することができるからである。尚、タンタル焼結体には、樹脂などのタンタルコンデンサの構成成分が不可避免的に含まれるものである。

[0016] 本発明のタンタル回収方法において、タンタルコンデンサから取り出したタンタル焼結体に適用する場合、この対象となるタンタルコンデンサは、使用済みのタンタルコンデンサのみならず、未使用のタンタルコンデンサも含まれる。未使用のタンタルコンデンサとは、例えば、コンデンサ製造において不良品として使用されないタンタルコンデンサがあげられる。また、タンタルコンデンサの種類には特に制限はなく、例えば、CuやZnなど金属により外装を覆った金属ケース型のタンタルコンデンサ、エポキシ樹脂などの有機樹脂にディッピングすることにより外装を覆った樹脂ディップ型のタンタルコンデンサ、また、エポキシ樹脂を用いて外装をモールドにより形成した樹脂モールド型のタンタルコンデンサやチップ型のタンタルコンデンサなど種々のものを対象とすることができる。

[0017] 本発明におけるタンタル回収方法では、タンタルコンデンサからのタンタル焼結体を取り出す方法に特に制限はない。タンタルコンデンサは、各種類に応じて、その外装や電極などに様々な金属や樹脂などを構成材料としているが、すべての種類のタンタルコンデンサにおいてタンタル焼結体をその必須構成材料としている。そのため、本発明を適用する場合、タンタルコンデンサからタンタル焼結体以外の構成材料を、すなわち、不純物となる物質を予め除去して、タンタル焼結体がある程度濃縮された状態で取り出すことが望ましい。

[0018] 本発明において、回収対象となるタンタル含有廃棄物を準備する手法或いは、タンタルコンデンサからタンタル焼結体を取り出す手法としては、破碎処理、粉碎処理、磁力選別処理、比重選別処理、篩選別処理、焙焼処理、渦電流選別処理、静電選別処理、色彩選別処理などの公知の処理法を採用することができ、これらの処理を適宜組み合わせる適用することができる。これらの前処理により、タンタルコンデンサを実装したプリント配線板などの廃棄基材から、不純物となる物質をできるだけ除去し、タンタルが濃縮されたタンタル含有廃棄物を準備することが好ましい。また、タンタルコンデンサからタンタル焼結体を取り出す場合にも、これらの前処理により、不純物を

できるだけ除去しておくことが好ましい。本発明のタンタル回収方法を適用するタンタルコンデンサを実装したプリント配線板などの廃棄基材には、銅や亜鉛、アルミニウム、樹脂などの有機材料などの不純物となる物質が非常に多いので、本発明に係るタンタル回収方法を適用する前に、これらの不純物を予め十分に除去しておくことが望ましい。同様に、タンタルコンデンサから取り出されるタンタル焼結体についても、銅や亜鉛、樹脂などの有機材料を予め十分に除去しておくことが望ましい。また、本発明に係るタンタル回収方法において、タンタル焼結体を回収対象とする場合にはタンタル焼結体のタンタル含有率が50wt%以上であることが好ましい。タンタル含有率が50wt%以上であると、より高品位のタンタルを容易に回収することができる。さらに、本発明に係るタンタル回収方法は、タンタル含有廃棄物に、マンガン、アンチモン、リンのいずれかを含む場合に特に有効なものである。

[0019] 本発明において、不純物となる物質を効率的に除去するために、例えば、前処理として、破碎処理して廃棄基材やタンタルコンデンサをまず分解する。この破碎処理によりタンタルコンデンサを破碎する場合、タンタルを含む微粉が発生することがある。そこで、破碎処理後、篩選別処理をして微粉を回収し、その微粉からもタンタルを回収することが好ましい。

[0020] また、タンタルコンデンサの外装が有機樹脂で構成されている場合には、焙焼処理をして樹脂を粉化させて、タンタル焼結体と粉化樹脂とを篩選別処理をして分離する手法も好ましい。焙焼条件は400～500℃、1～5時間とすることが好ましい。この焙焼条件より加熱が弱い場合、例えば、低温度であると樹脂の粉化が不十分になり、高温度であると、樹脂のみならずタンタル焼結体までもが粉化される傾向となり、その後の篩選別処理でタンタル焼結体と粉化樹脂とを分離することが難しくなる。特に好ましいのは400℃～450℃で、3～5時間、450℃超～500℃で1～5時間である。

[0021] そして、廃棄基材から得られたタンタル含有廃棄物やタンタル焼結体には

、外装や電極などに鉄などの磁着物が不純物として含まれるので、このような磁着物の不純物は磁力選別処理により除去することが好ましい。

[0022] また、本発明において、タンタル含有廃棄物としてタンタル焼結体を回収対象とする場合、タンタル焼結体と他の不純物とに、その大きさや比重の相違がある場合には、篩選別処理や比重選別処理を行うことにより、タンタル焼結体以外の不純物を除去することが好ましい。

[0023] 本発明において、タンタル含有廃棄物としてタンタル焼結体を回収対象とする場合、タンタルコンデンサからタンタル焼結体を取り出す好ましい手法は、例えば、破碎処理を行って、タンタル焼結体から外装の構成材料を剥離し、破碎処理により発生した微粉を篩処理により分離し、磁力選別処理によりFeなどの構成材料を除去し、その後比重選別処理をしてタンタル焼結体を取り出すことができる。篩処理により分離された微粉については、湿式比重選別等の物理処理を行って、本発明に係るタンタル回収方法を適用してタンタルを回収することができる。

[0024] 本発明のタンタル回収方法によって回収されたタンタルは、溶媒抽出法などにより、さらに高純度のタンタルに濃縮し、再利用に供することができる。本発明のタンタル回収方法によれば、溶媒抽出処理に悪影響を及ぼすMn、P、Sbなどの不純物が除去されているため、高純度のタンタルを効率的に濃縮して得ることができる。

発明の効果

[0025] 本発明によれば、再利用の際に不都合となる不純物を低減し、高品位のタンタルをタンタル含有廃棄物から効率的に回収することができる。

図面の簡単な説明

[0026] [図1]本実施形態におけるタンタル回収方法に関する工程フロー図。

発明を実施するための形態

[0027] 本発明の実施形態について説明する。以下に示す第一実施形態～第五実施形態においては、回収対象として使用済みタンタルコンデンサを用いた場合について説明し、第六実施形態では、回収対象としてタンタルコンデンサ等

が実装された廃棄基材（プリント配線板）上の実装部品類を用いた場合を説明する。

[0028] まず、第一実施形態～第六実施形態における、回収対象として使用済みタンタルコンデンサ或いはタンタル含有廃棄物を用いた場合のタンタル回収方法について、図1に示す工程フローを概説する。尚、以下に説明する破碎処理、篩処理、磁力選別処理はあくまで一例であり、回収対象によっては必須ではない場合があり、これらの処理の適用、手順などは回収対象にあわせて適宜変更することができる。

[0029] 破碎処理：まず初めに、タンタルの回収対象となるタンタルコンデンサの破碎処理を行った。この破碎処理は市販の破碎機を使用することができるが、せん断破碎型のカッターミルタイプの破碎機を用いることが好ましい。このカッターミルタイプの破碎機は、コンデンサの外装部分を破碎して分離しやすいためである。本実施形態では、市販のプラスチック破碎機（吉田製作所社製、型式1005）を用いて行った。この破碎機により、2～30mmのタンタルコンデンサを0.001～2mmの大きさに破碎した。

[0030] 篩処理：破碎処理後には、電磁式ふるい振とう器（（株）レッチェ社製、AS200）による篩処理を行う。この篩処理は、破碎処理によって発生した微粉と、比較的大きな塊片を区別することが目的である。本実施形態では、網目開口径150 μ mの篩を用いた。

[0031] 磁力選別処理：篩処理により、篩上に残った塊片に対し、磁力による選別処理を行う。この磁力選別処理は、コンデンサの外装、電極やリード線などに用いられた鉄などの磁着物を除去する目的で行うものである。この磁力選別処理は、市販の磁選機を用いることができる。本実施形態では、ドラム式のフェライト磁石を利用したドラム磁選機（マグネットプラン社製、MDS-250 BDD-HH）を用いて行った。この磁選機により、磁束密度（ドラム表面）約3000G、ドラム回転数38rpmの条件で磁力選別処理をした。

[0032] 比重選別処理：磁力選別処理により、非磁着物として選別されたものに対し

て、比重選別処理を行い、タンタル焼結体を取り出した。この比重選別処理は、市販の比重選別機を用いることができる。本実施形態では、風力と振動により、タンタル焼結体となる重量物と、樹脂などの軽量物とに選別する、比重選別機（（株）原島電機鋳業社製、HH-310）を用いて行った。比重選別条件は、振動数10Hz、風速1.6m/s、傾斜7°、投入速度0.7kg/minとした。この比重選別処理より選別された重量物側の回収物を、処理対象のタンタル焼結体とした。

[0033] 酸処理：得られたタンタル焼結体に対して、塩酸による酸処理を行った。

[0034] アルカリ処理：酸処理後、水洗処理を行って、水酸化ナトリウム溶液によるアルカリ処理を行った。

[0035] アルカリ処理後、水洗を行い、その残渣を大気雰囲気中900℃、4時間の焙焼をして、酸化タンタル（ Ta_2O_5 ）を回収した。尚、この焙焼処理は、必須の工程ではなく、単に乾燥処理を行うことでも、酸化タンタルを回収することができる。

[0036] 第一実施形態：この第一実施形態では、図1の工程フローにおける酸処理工程の条件を検討した結果について説明する。検討した酸の種類は、塩酸、王水、硫酸で行った。

[0037] ここでは酸処理条件を検討するため、使用済みタンタルコンデンサとして、樹脂ディップ型のものを使用した。この樹脂ディップ型のタンタルコンデンサは、エポキシ樹脂の有機樹脂にディッピングして形成された外装を備え、電極のリード線にFeやNiが使用されたものである。また、有機樹脂には、Si、Sb、Brが含まれていることが多い。この樹脂ディップ型タンタルコンデンサの構成成分について、分析した結果を表1に示す。

[0038]

[表1]

樹脂ディップ型		
成分	含有量	単位
T a ₂ O ₅	6 2 . 2	wt%
S i	5 . 7 5	wt%
S b	0 . 5 0	wt%
P	1 7 5	ppm
M n	5 . 5 8	wt%
S n	5 . 6 7	wt%
P b	3 . 2 5	wt%
Z n	0 . 0 5	wt%
F e	2 . 7 3	wt%
N i	0 . 0 2	wt%
C u	0 . 8 8	wt%
T i	0 . 0 4	wt%
N a	N D	wt%

(ND : 検出無し)

[0039] 表1に示す成分分析結果は、分析対象のタンタルコンデンサを、大気中900℃、4時間で焙焼し、その焙焼後粉碎したものを、誘導結合プラズマ発光分光分析法または原子吸光分析法により、その構成成分を測定したものである。表1に示すように、樹脂ディップ型では、Mn、Sn、Pb、Feなどの金属が多く含まれ、Si、Sbもかなり含有されていた。この樹脂ディップ型の使用済みコンデンサを約4.0kg準備し、これを回収対象として図1で示した工程フローに従い、比重選別処理まで行い、タンタル焼結体1.4kgを取り出した。このタンタル焼結体の成分は、Ta₂O₅ 79.3wt%、Sb 40ppm、Mn 11wt%であった。

[0040] サンプルとしてのタンタル焼結体(5g)を、表2に示す各条件(濃度、浸漬時間、液温、液量を変化)により酸処理を行い、その酸処理後の成分分析を行った。また、王水(塩酸：硝酸＝3：1)による酸処理は、王水を希釈して使用した。尚、表2のNo. 14の王水2倍希釈では、塩素濃度が4.5mol/Lであり、No. 15の王水4倍希釈では、塩素濃度が2.3mol/Lである。

[0041]

[表2]

No	酸	濃度 mol/L	時間 hr	液温 ℃	液量 mL/g	残存量			判定
						Ta ₂ O ₅ wt%	MnO wt%	Sb ppm	
1	塩酸	1 mol/L	1	90	4	92.1	6.7	35.1	○
2	塩酸	3 mol/L	1	30	4	90.6	8.2	34.4	○
3	塩酸	3 mol/L	1	60	4	91.7	7.9	23.6	◎
4	塩酸	3 mol/L	1	90	2	95.2	4.5	36.1	○
5	塩酸	3 mol/L	1	90	4	96.8	3.0	23.6	◎
6	塩酸	3 mol/L	1	90	6	96.6	3.3	13.5	◎
7	塩酸	3 mol/L	2	90	4	99.3	0.3	19.9	◎
8	塩酸	3 mol/L	5	90	4	99.5	ND	18.7	◎
9	塩酸	6 mol/L	1	90	1	96.9	2.8	23.6	◎
10	塩酸	6 mol/L	1	90	2	99.5	0.2	10.5	◎
11	塩酸	6 mol/L	1	90	4	99.7	0.1	8.6	◎
12	塩酸	6 mol/L	1	90	4	99.7	0.2	18.0	◎
13	硫酸	3.5 mol/L	1	90	4	88.2	8.6	30.1	○
14	王水	2倍希釈	1	90	4	99.4	ND	12.4	◎
15	王水	4倍希釈	1	90	4	95.0	4.5	32.4	○

(ND : 検出無し)

[0042] 表2に示す残存量とは、酸処理後水洗処理をし、ろ過して得られた残渣を900℃、4時間の焙焼をしたものを蛍光X線分析法により半定量を行ったものである。また、Sbに関しては、酸処理することにより除去されたSb量を、誘導結合プラズマ発光分光分析法により定量し、残存量に換算したものである。判定基準は、Sb残存量からSbの除去効果が認められたものを○とし、特に、Sb残存量が $Sb \leq 25 \text{ ppm}$ になっているものを◎とした。

[0043] 表2に示すように、塩酸を含む酸で処理を行うと、Sb、Mnを除去することができることが判明した。そして、塩酸濃度が1mol/LではSbの除去効果が低かった。また、液温は30℃のように低い温度よりも、高温の方が除去効率が高い傾向となった。浸漬時間としては、1時間以上あれば十分な効果があった。表2の結果より、塩酸濃度は3mol/L以上が好ましい。3mol/L未満であると、反応速度が遅くなりすぎる傾向となり、一

方、 12 mol/L を超えると処理コストが増加して実用的でなくなり、取り扱いが悪くなる傾向となるので、実用的な上限は 12 mol/L と考えられる。液温は、 40°C 以上が好ましく、特に $60^\circ\text{C}\sim 100^\circ\text{C}$ が好ましい範囲であった。 40°C 未満であると、反応速度が遅くなりすぎる傾向となり、 100°C を超えると、酸処理の溶液の揮発が過剰に進行する傾向になる。浸漬時間は、 0.5 時間以上が好ましい。 0.5 時間未満であると、反応が十分に進行しない傾向となり、 50 時間より長時間であると生産性が低くなるため、実用的な上限は 50 時間と考えられる。

[0044] 尚、表2に示すNo. 10の試料について、酸処理に使用した塩酸を3倍希釈して、ろ過したところ、白色の沈殿物が得られた。この白色の沈殿物をXRDにより調べたところ、塩化銀であった。

[0045] また、表2に示すように、王水による酸処理によっても、SbやMnを十分に除去できることが判明した。

[0046] さらに、 3.5 mol/L の硫酸により酸処理を行った（表2 No. 13）ところ、硫酸によっても、ある程度の効果は認められたものの、塩酸の方が好適であることが分かった。

[0047] 第二実施形態：この第二実施形態では、図1の工程フローにおけるアルカリ処理工程の条件を検討した結果について説明する。検討したアルカリの種類は、水酸化ナトリウムと水酸化カリウムである。

[0048] アルカリ処理条件を検討するため、上記第一実施形態で説明した樹脂ディップ型の使用済みコンデンサを準備し、これを回収対象として図1で示した工程フローに従い、比重選別処理まで行い、タンタル焼結体を取り出した。そして、このタンタル焼結体を、塩酸濃度 6 mol/L （浸漬時間1時間、液温 90°C 、液量 2 mL/g （尚、この mL/g はタンタル焼結体1gあたりの液量である）の酸処理を行い、これをアルカリ処理のサンプルとした。この酸処理後のサンプルの成分は、 Ta_2O_5 99.5wt%、P 220ppmであった。

[0049] サンプルとしてのタンタル焼結体（5g）を、表3に示す各条件（アルカ

り種類、濃度、浸漬時間、液温、液量を変化）によりアルカリ処理を行い、その処理後の成分分析を行った。

[0050] [表3]

N o	種類	濃度 w t %	時間 h r	液温 ℃	液量 m L / g	T a ₂ O ₅ w t %	P ppm	判定
101	N a O H	5	1	90	4	99.7	182	△
102		10	1	90	4	98.6	13	◎
103		10	1	30	4	99.8	190	△
104		10	1	60	4	99.8	167	△
105		10	0.5	90	2	98.6	20	◎
106		10	1	90	1	97.7	26	◎
107		10	1	90	2	98.2	20	◎
108	K O H	5	1	90	4	99.5	206	△
109		10	1	90	4	99.4	120	○

[0051] 表3に示す判定基準は、Pが60ppm以下を◎、61～150ppmを○、151～219ppmを△とした。

[0052] 表3に示すように、水酸化ナトリウムと水酸化カリウムを用いたアルカリ処理により、Pを除去できることが分かった。特に、水酸化ナトリウムを用い、好適なアルカリ処理条件を採用すると、Pを60ppm以下まで低減できることが判明した。

[0053] 表3に示す結果より、水酸化ナトリウムを用いたアルカリ処理条件としては、水酸化ナトリウム濃度を5wt%～15wt%にすることが好ましく、特に10～15wt%であることが好ましい。また浸漬時間は、0.5時間以上、特に0.5時間～1時間が好ましい。液温は、60℃以上が好ましく、特に90～100℃であることが好ましいことが判明した。この条件をはずれると、Pが残留する傾向となる。また、アルカリ処理の処理時間が長すぎると、回収したタンタルにNaが多く混入する傾向となる。

[0054] 上記した図1の工程フローに従い、各種の使用済みタンタルコンデンサから酸化タンタルを回収した結果について、第三～五実施形態で説明する。

[0055] 第三実施形態：この第三実施形態では、使用済みタンタルコンデンサとして、上記第一実施形態と同じ樹脂ディップ型のものを使用した。この樹脂ディ

アップ型のタンタルコンデンサの構成成分については、表 1 に示している。

[0056] この樹脂ディップ型の使用済みコンデンサを約 4.0 kg 準備し、これを回収対象として図 1 で示した工程フローに従い、比重選別処理まで行い、タンタル焼結体 1.4 kg を取り出した。

[0057] 得られたタンタル焼結体を、6 mol/L（モル／リットル）の塩酸溶液（液温 100℃）に一時間浸漬し、酸処理を行った。その後、塩酸溶液から取り出し、水洗処理を行った。その水洗処理したタンタル焼結体を、10 wt % 水酸化ナトリウム溶液（液温 90℃）に、1 時間浸漬し、アルカリ処理を行った。そして、アルカリ処理後、残留物を水洗、ろ過して、その残渣を大気中 900℃、4 時間の焙焼をして、酸化タンタル（ Ta_2O_5 ）として回収した。上記した樹脂ディップ型の使用済みタンタルコンデンサから酸化タンタル（ Ta_2O_5 ）を回収した手順に関し、比重選別処理、酸処理、アルカリ処理（焙焼後の回収物）の各工程終了後における構成成分の分析結果を表 4 に示す。

[0058] [表 4]

成分		比重選別	酸処理	アルカリ処理
Ta_2O_5	wt%	82.6	99.8	98.8
Si	ppm	< 100	< 100	< 100
Sb	ppm	20	< 10	< 10
P	ppm	160	180	20
Mn	wt%	7.9	590 (ppm)	600 (ppm)
Sn	wt%	0.23	60 (ppm)	20 (ppm)
Pb	wt%	0.34	70 ppm	20 (ppm)
Zn	ppm	10	< 10	< 10
Fe	ppm	50	20	10
Ni	ppm	< 10	< 10	< 10
Cu	ppm	280	< 10	< 10
Ti	ppm	< 10	< 10	< 10
Na	ppm	20	< 10	1.1 (wt%)
タンタル回収率	%	100	99.9	97.0

[0059] 表 4 に示す成分分析において、酸化タンタル（ Ta_2O_5 ）以外の成分は、蛍光 X 線分析法と、誘導結合プラズマ発光分光分析法または原子吸光分析法により行った。具体的には、成分の Sb、P に関しては、フッ酸（HF）を

用いて分析対象物を溶解後、誘導結合プラズマ発光分光分析装置または原子吸光分析装置にて定量した。尚、表4における比重選別後の Ta_2O_5 、Sb、Mnの成分分析値が、上記第一実施形態の成分分析値（段落0039）と異なるのは、この第三実施形態では、第一実施形態のものとは別に樹脂ディップ型タンタルコンデンサを準備して使用したためである。

[0060] また、表4において、酸処理、アルカリ処理工程終了後の酸化タンタルの分析値の結果は、不純物元素として検出された表1に示すSi、Sb、P、Mn、Sn、Pb、Zn、Fe、Ni、Cu、Ti、Naに加え、Mo、W、Ca、K、Bのそれぞれの定量分析を行い、その定量分析値の総合計を100wt%から引くことによって算出している。この算出の際には、Si、Sb、Mn、Sn、Pb、Fe、Cuの分析値を、それぞれ SiO_2 、 SbO_2 、 MnO_2 、 SnO_2 、 PbO 、 Fe_2O_3 、 CuO の酸化物として換算した。また、比重選別処理工程終了後の酸化タンタルの分析値は、誘導結合プラズマ発光分光分析法により測定したものである。そして、タンタル回収率（%）については、各処理後のタンタル焼結体のタンタル重量と、各処理前のタンタル焼結体のタンタル重量を調べ、各処理後タンタル重量／各処理前タンタル重量×100により算出した。この分析値に関しては、以下の第四及び第五実施形態に関しても同様である。

[0061] 表4に示すように、比重選別までの処理で得られたタンタル焼結体には、Siはほぼ除去されているものの、Mn、Fe、Sb、Pが含有されていた。そして、酸処理によって、Mn、Sbが多く除去された。また、アルカリ処理によりPが多く除去された。その結果、樹脂ディップ型の使用済みタンタルコンデンサから、酸化タンタル（ Ta_2O_5 ）が98wt%以上の品位で回収でき、不純物として特に問題となるSbを10ppm以下、Pを60ppm以下にすることができた。

[0062] 第四実施形態：この第四実施形態では、使用済みタンタルコンデンサとして、樹脂モールド型のものを使用した。この樹脂モールド型のタンタルコンデンサは、エポキシ樹脂により外装をモールド形成されており、電極端子にF

eやN i、C uが使用されたものである。この樹脂モールド型タンタルコンデンサの構成成分について、分析した結果を表5に示す。

[0063] [表5]

樹脂モールド型		
成分	含有量	単位
T a ₂ O ₅	3 5 . 6 0	wt%
S i	2 2 . 4 4	wt%
S b	1 . 7 7	wt%
P	1 7 5	ppm
M n	4 . 6 5	wt%
S n	0 . 7 9	wt%
P b	3 . 2 5	wt%
Z n	0 . 0 5	ppm
F e	2 . 7 3	wt%
N i	0 . 0 2	wt%
C u	0 . 8 8	wt%
T i	0 . 0 4	ppm
N a	6 0	ppm

[0064] 表5に示すように、樹脂モールド型でも、M n、S n、P b、F eなどの金属が多く含まれ、S i、S bもかなり含有されていた。この樹脂モールド型の使用済みタンタルコンデンサを約3. 3 k g準備し、これを回収対象として図1で示した工程フローに従い、比重選別処理まで行い、タンタル焼結体0. 7 k gを取り出した。

[0065] 上記第三実施形態と同様に、得られたタンタル焼結体を、6 m o l / Lの塩酸溶液（液温1 0 0 °C）に1時間浸漬し、酸処理を行った。その後、塩酸溶液から取り出し、水洗処理を行った。その水洗処理したタンタル焼結体を、1 0 w t %水酸化ナトリウム溶液（液温9 0 °C）に、1時間浸漬し、アルカリ処理を行った。そして、アルカリ処理後、残留物を水洗、ろ過して、その残渣を大気中9 0 0 °C、4時間の焙焼をして、酸化タンタル（T a₂O₅）として回収した。上記した樹脂モールド型の使用済みタンタルコンデンサから酸化タンタル（T a₂O₅）を回収した手順に関し、比重選別処理、酸処理、アルカリ処理（焙焼後の回収物）の各工程終了後における構成成分の分析結果を表6に示す。

[0066] [表6]

成分		比重選別	酸処理	アルカリ処理
T a ₂ O ₅	wt%	8 0 . 3	9 9 . 5	9 7 . 0
S i	ppm	4 5 0	< 1 0 0	< 1 0 0
S b	ppm	2 0	< 1 0	< 1 0
P	ppm	4 7 0	5 3 0	6 0
M n	wt%	9 . 9 0	0 . 2 8	0 . 3 0
S n	ppm	9 8 0	3 0	< 1 0
P b	ppm	9 1 0	6 0	2 0
Z n	ppm	4 0	< 1 0	< 1 0
F e	ppm	7 0	3 0	2 0
N i	ppm	1 5 0	1 0	< 1 0
C u	ppm	0.11 (wt%)	< 1 0	< 1 0
T i	ppm	< 1 0	< 1 0	< 1 0
N a	ppm	2 0	< 1 0	2 . 5 (wt%)
タンタル回収率	%	1 0 0	9 9 . 9	9 9 . 9

[0067] 表6に示すように、比重選別までの処理で得られたタンタル焼結体には、S iはかなり多く除去されているものの、M n、F e、S b、Pが含有されていた。そして、酸処理によって、M n、S bが多く除去された。また、アルカリ処理によりPが多く除去された。その結果、樹脂ディップ型の使用済みタンタルコンデンサから、酸化タンタル (T a ₂ O ₅) が9 7 w t %以上の品位で回収でき、不純物として問題となるS bを1 0 p p m以下、Pを6 0 p p m以下にすることができた。

[0068] 第五実施形態：この第五実施形態では、使用済みタンタルコンデンサとして、金属ケース型のものを使用した。この金属ケース型のタンタルコンデンサは、C uやZ nなど金属により外装を覆った金属ケースを備え、電極のリード線にF eやN i、S n、P bが使用されたものである。この金属ケース型タンタルコンデンサの構成成分について、分析した結果を表7に示す。

[0069]

[表7]

金属ケース型		
成分	含有量	単位
T a ₂ O ₅	4 5 . 5 0	wt%
S i	0 . 0 1	wt%
S b	N D	wt%
P	1 0 0	ppm
M n	3 . 6 4	wt%
S n	1 3 . 7 0	wt%
P b	9 . 6 5	wt%
Z n	6 . 3 5	wt%
F e	4 . 8 3	wt%
N i	0 . 3 9	wt%
C u	4 . 9 5	wt%
T i	N D	wt%
N a	N D	wt%

(ND : 検出無し)

[0070] 表7に示すように、金属ケース型では、有機樹脂がほとんど使用されていないためS i、S bはほとんど含まれていないものの、M n、S n、P b、F eに加え、C u、Z nがかなり含有されていた。この金属ケース型の使用済みタンタルコンデンサを約6. 2 k g 準備し、これを回収対象として図1で示した工程フローに従い、比重選別処理まで行い、タンタル焼結体0. 4 k g を取り出した。

[0071] 第三実施形態と同様に、得られたタンタル焼結体を、6 m o l / L の塩酸溶液（液温1 0 0 °C）に一時間浸漬し、酸処理を行った。その後、塩酸溶液から取り出し、水洗処理を行った。その水洗処理したタンタル焼結体を、1 0 w t % 水酸化ナトリウム溶液（液温9 0 °C）に、1 時間浸漬し、アルカリ処理を行った。そして、アルカリ処理後、残留物を水洗、ろ過して、その残渣を大気中9 0 0 °C、4 時間の焙焼をして、酸化タンタル（T a ₂ O ₅）として回収した。上記した金属ケース型の使用済みタンタルコンデンサから酸化タンタル（T a ₂ O ₅）を回収した手順に関し、比重選別処理、酸処理、アルカリ処理（焙焼後の回収物）の各工程終了後における構成成分の分析結果を表8に示す。

[0072] [表8]

成分		比重選別	酸処理	アルカリ処理
T a ₂ O ₅	wt%	79.2	99.9	99.5
S i	ppm	<100	<100	<100
S b	ppm	20	<10	<10
P	ppm	180	200	60
M n	wt%	5.3	80 (ppm)	60 (ppm)
S n	wt%	0.2	290 (ppm)	80 (ppm)
P b	wt%	0.79	70 (ppm)	210 (ppm)
Z n	wt%	0.31	<10	<10
F e	ppm	30	10	10
N i	ppm	60	<10	<10
C u	wt%	0.56	210 (ppm)	180 (ppm)
T i	ppm	<10	<10	<10
N a	ppm	<10	<10	0.45 (wt%)
タンタル回収率	%	100	99.9	99.9

[0073] 表8に示すように、比重選別までの処理で得られたタンタル焼結体には、Mn、Fe、Pが含有されていた。そして、酸処理によって、Mnが除去された。また、アルカリ処理によりPが多く除去された。その結果、金属ケース型の使用済みタンタルコンデンサから、酸化タンタル（T a₂O₅）が99wt%以上の品位で回収でき、不純物として特に問題となるSbを10ppm以下、Pを60ppm以下にすることができた。

[0074] 以上の第三～第五実施形態で示した結果より、本発明のタンタル回収方法は、Mn、Fe、P、Sbの少なくともいずれかを含有するタンタルコンデンサを回収対象とすることが好適であることが判明した。具体的には、回収対象に含まれるMnやFeの場合で15wt%以下の含有量であり、PやSbの場合で1wt%以下の含有量である。

[0075] 第六実施形態：この第六実施形態では、回収対象としてタンタルコンデンサなどを実装したプリント配線板（廃棄基材）上の実装部品類を使用した。この実装部品類は、タンタルコンデンサを実装したプリント配線板に破碎処理などの各種物理選別処理を施し、タンタルコンデンサ含有量を約40%に濃縮したものである。この実装部品類には、タンタルコンデンサ以外に、銅線、ICチップ、コネクタ、各種金属片などが含まれていた。なお、この実装部

品類の構成成分を分析した結果を表 9 に示す。

[0076] [表9]

実装部品類		
成分	含有量	単位
T a ₂ O ₅	1 2 . 3 0	wt%
S i	3 1 . 2 3	wt%
S b	0 . 8 7	wt%
P	2 1 8	ppm
M n	2 . 2 1	wt%
S n	0 . 6 6	wt%
P b	0 . 5 6	wt%
Z n	0 . 2 9	wt%
F e	1 . 9 5	wt%
N i	0 . 4 3	wt%
C u	7 . 6 5	wt%
T i	0 . 3 7	wt%
N a	ND	wt%

(ND : 検出無し)

[0077] 表 9 に示すように、実装部品類には、S i、C u、M n、S b が多く含まれていた。また、タンタル品位が上記した第一～第五実施例で示した場合よりも低いものであった。

[0078] 廃棄基材から得られた実装部品類 0 . 6 k g を図 1 で説明した工程フローに従い、比重選別処理まで実施し、タンタル焼結体 0 . 1 5 k g を得た。このタンタル焼結体を、6 m o l / L (モル／リットル) の塩酸溶液 (液温 1 0 0 °C) に一時間浸漬し、酸処理を行った。その後、塩酸溶液から取り出し、水洗処理を行った。その水洗処理したタンタル焼結体を、1 0 w t % 水酸化ナトリウム溶液 (液温 9 0 °C) に、1 時間浸漬し、アルカリ処理を行った。そして、アルカリ処理後、残留物を水洗、ろ過して、その残渣を大気中 9 0 0 °C、4 時間の焙焼をして、酸化タンタル (T a ₂ O ₅) として回収した。上記したタンタル焼結体から酸化タンタル (T a ₂ O ₅) を回収した手順に関し、比重選別処理、酸処理、アルカリ処理 (焙焼後の回収物) の各工程終了後における構成成分としての T a ₂ O ₅、C u、C l を分析した結果を示す。

[0079]

[表10]

成分		比重選別処理	酸処理	アルカリ処理
Ta_2O_5	wt%	66.6	93.7	94.9
Cu	wt%	11.0	4.1	2.1
Cl	wt%	ND	0.2	0.001
タンタル回収率	%	100	85.8	75.1

(ND：検出無し)

[0080] 表10に示すように、低いタンタル品位の廃棄基材上の実装部品類を回収対象とした場合において、酸化タンタルが90wt%以上の高品位で回収することができた。また、廃棄基材上の実装部品類を回収対象とする場合は、Cuなどの配線材料の混入は不可避であるが、Cuは塩酸を含む酸処理により、塩化銅となり、不純物としては無視できない含有量になるものの、その後のアルカリ処理により不純物なるCuの含有量を半減できることが判明した。

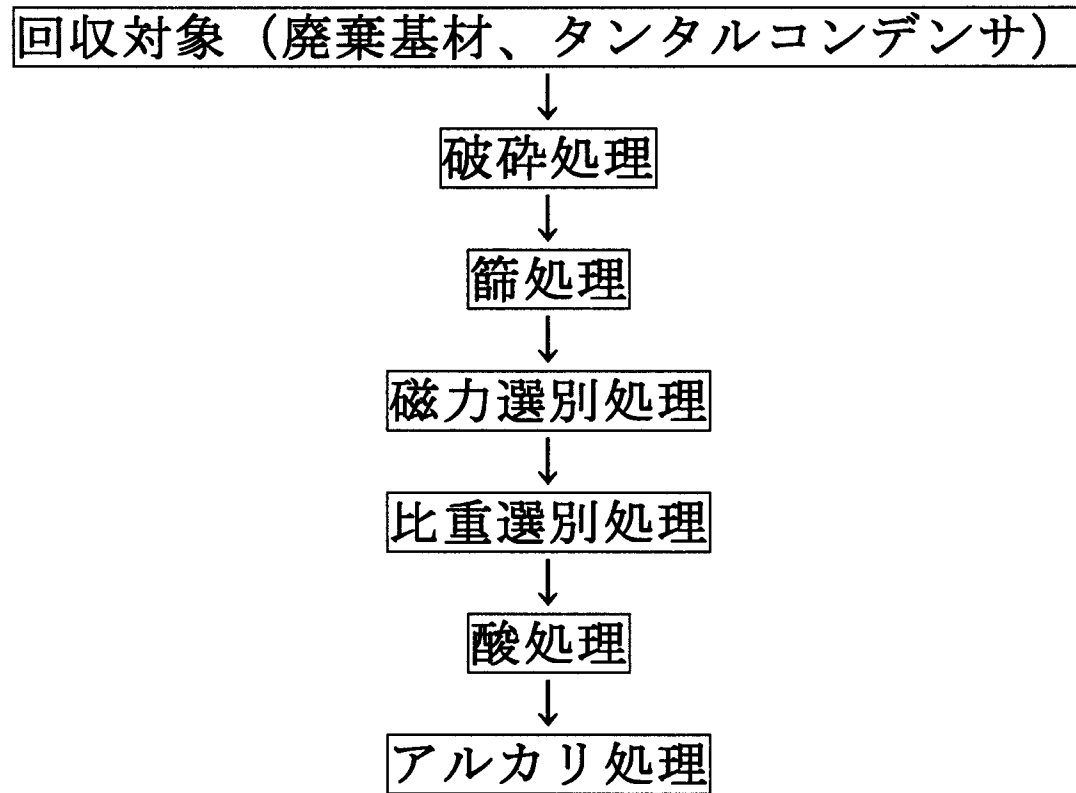
産業上の利用可能性

[0081] 本発明によれば、タンタル含有廃棄物から高回収率でタンタルを回収することが可能となり、特にタンタルコンデンサの再利用の際に特に問題となりやすい、ケイ素(Si)、アンチモン(Sb)、リン(P)、マンガン(Mn)、錫(Sn)、鉛(Pb)、亜鉛(Zn)、鉄(Fe)、ニッケル(Ni)、銅(Cu)などの不純物を除去できるので、資源のリサイクル活動の促進に大きく貢献するものである。また、本発明により回収されたタンタルは、より高純度のタンタルを得るための溶媒抽出等の精製処理に用いることができる。

請求の範囲

- [請求項1] タンタル含有廃棄物からタンタルを回収するタンタル回収方法において、
- タンタル含有廃棄物を酸処理し、その後アルカリ処理をして、タンタルを回収することを特徴とするタンタル回収方法。
- [請求項2] 酸処理は、塩酸を含む酸により行う請求項1に記載のタンタルの回収方法。
- [請求項3] アルカリ処理は、水酸化ナトリウムまたは水酸化カリウムにより行う請求項1または請求項2に記載のタンタルの回収方法。
- [請求項4] タンタル含有廃棄物は、タンタルコンデンサから取り出したタンタル焼結体である請求項1～請求項3いずれかに記載のタンタル回収方法。
- [請求項5] タンタル焼結体は、タンタル含有率が50wt%以上である請求項4に記載のタンタルの回収方法。
- [請求項6] タンタル含有廃棄物は、マンガン、アンチモン、リンのいずれかを含有請求項1～請求項4いずれかに記載のタンタル回収方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/057119

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C22B34/24(2006.01)i, B09B3/00(2006.01)i, C22B7/00(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)

C22B1/00-61/00, B09B3/00

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.
X	JP 2004-2927 A (Mitsui Mining & Smelting Co., Ltd.), 08 January 2004 (08.01.2004), claims 1 to 10; paragraphs [0020], [0032] (Family: none)	1-3
X Y	JP 2000-7338 A (Mitsui Mining & Smelting Co., Ltd.), 11 January 2000 (11.01.2000), claims 1, 2; paragraphs [0003], [0007] (Family: none)	1-3 4-6

☒ 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, exhibition 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 the 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
02 June, 2011 (02.06.11)Date of mailing of the international search report
14 June, 2011 (14.06.11)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/057119

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 64-75632 A (Tosoh Corp.), 22 March 1989 (22.03.1989), page 1, left column, line 20 to page 2, upper left column, line 7; page 3, upper left column, line 8 to upper right column, line 11 (Family: none)	4-6
A	JP 2002-327221 A (Mitsui Mining & Smelting Co., Ltd.), 15 November 2002 (15.11.2002), claims; paragraphs [0004], [0005] (Family: none)	6
A	JP 53-1104 A (Nippon Steel Corp.), 07 January 1978 (07.01.1978), page 1, left column, line 16 to right column, line 1 (Family: none)	6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/057119

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The inventions in claims 1 - 3, and claim 6 which does not refer to claims 4, 5 relate to tantalum collection method for collecting tantalum from a tantalum-containing waste matter.

The inventions in claims 4, 5, and claim 6 referring to claims 4, 5 relate to tantalum collection method for collecting tantalum from a waste matter in a tantalum condenser.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C22B34/24(2006.01)i, B09B3/00(2006.01)i, C22B7/00(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（I P C））

Int.Cl. C22B1/00-61/00, B09B3/00

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 1 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 1 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 1 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
X	JP 2004-2927 A（三井金属鉱業株式会社）2004.01.08, 請求項 1-10, 【0020】, 【0032】 (ファミリーなし)	1-3
X Y	JP 2000-7338 A（三井金属鉱業株式会社）2000.01.11, 請求項 1, 2, 【0003】, 【0007】 (ファミリーなし)	1-3 4-6

☒ 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

0 2 . 0 6 . 2 0 1 1

国際調査報告の発送日

1 4 . 0 6 . 2 0 1 1

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

河口 展明

4 K

3 7 7 0

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 3 5

C (続き) . 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
Y	JP 64-75632 A (東ソー株式会社) 1989.03.22, 第1 ページ左欄第20 行-第2 ページ左上欄第7 行, 第3 ページ左上欄第8 行-右上欄第11 行 (ファミリーなし)	4-6
A	JP 2002-327221 A (三井金属鉱業株式会社) 2002.11.15, 特許請求の範囲, 【0004】, 【0005】 (ファミリーなし)	6
A	JP 53-1104 A (新日本製鉄株式会社) 1978.01.07, 第1 ページ左欄第16 行-右欄第1 行 (ファミリーなし)	6

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求項 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、
2. ☐ 請求項 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求項 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

請求項1-3, 請求項4, 5を引用しない請求項6に係る発明は、タンタル含有廃棄物からタンタルを回収するタンタル回収方法の発明に関するものである。

請求項4, 5, 請求項4, 5を引用する請求項6に係る発明は、タンタルコンデンサの廃棄物からタンタルを回収するタンタル回収方法の発明に関するものである。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- ☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。