

**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ РАСТВОРИМОСТИ Ta₂O₅
ВО ФТОРИДНЫХ РАСТВОРАХ ПРИ T=550°C И P=1000 БАР****Котова Н.П. (ИЭМ РАН), Зарайский Г.П. (ИЭМ РАН)***kotova@iem.ac.ru*; Факс: 8(252) 4-4425; Тел.: 8(252) 4-4425

Ключевые слова: оксид тантала, гидротермальная растворимость, фторидные растворы, “апограниты”, гидротермальный массоперенос

Гидротермальный перенос и отложение тантала растворами в количествах достаточных для формирования его месторождений давно предполагался многими геологами. Однако возможность транспорта тантала водными растворами ранее никем не была доказана экспериментально. В литературе надежные данные о поведении тантала в гидротермальных растворах отсутствуют. Решение этого вопроса потребовало проведения специальных экспериментальных исследований в условиях температур, давлений и составов растворов, соответствующих физико-химическим параметрам постмагматических процессов в куполах литий-фтористых гранитов.

Исследование направлено на решение конкретной задачи экспериментального определения растворимости оксида тантала (Ta₂O₅–тантит) в водных растворах фторидного состава при повышенных температурах и давлениях с целью количественной оценки возможности гидротермального массопереноса и отложения тантала при образовании его месторождений, связанных с альбитизированными и грейзенизированными гранитами “апогранитами” [1].

Проведены эксперименты по изучению концентрационной зависимости растворимости оксида тантала (Ta₂O₅) при T=550°C: P=1000 бар в растворах HF, KF с концентрацией (0.01; 0.1; 0.3; 1.0 и 2.0 моль/кг H₂O), NaF с концентрацией (0.01; 0.2; 0.05; 0.1; 0.5; 1.0 моль/кг H₂O) и LiF с концентрацией (0.01; 0.03; 0.05; 0.1; 0.3 моль/кг H₂O) в присутствии кислородного буфера Co-CoO. Как было показано ранее [2], растворимость тантала в восстановительных условиях (буфер Co-CoO) заметно выше, чем в окислительных (буфер Ni-NiO). Опыты длительностью 15-20 суток проводили в платиновых пробирках d=8мм; L=80мм. Твердая навеска оксида тантала составляла 50 мг. Объем фторидных растворов, вводимых в пробирку, составлял 1 мл. Снаряженные пробирки помещали в гидротермальную установку. Для контроля потери веса во время экспериментов пробирки взвешивали до и после опытов на электронных весах “The Ohaus ANALYTICAL Plus Series balances”. Закалочный раствор после центрифугирования анализировали на содержание тантала и примесных элементов методом индукционно связанной плазмы ICP/MS и ICP/AES.

Результаты экспериментов показали, что при низких концентрациях фторидов (менее 10⁻² моль/кг H₂O) растворимость тантала очень невелика и находится на уровне 10⁻⁵-10⁻⁶ моль/кг H₂O. Гидротермальный транспорт тантала в таких растворах невозможен. Однако, с повышением концентрации фтора растворимость Ta₂O₅ сильно возрастает и при концентрации фторидов на уровне 1.0 моль/кг H₂O и выше достигает значительных величин (10⁻³-10⁻² моль/кг H₂O), вполне достаточных для реального массопереноса тантала гидротермальными растворами. Установлено, что при низких концентрациях F⁻ иона (0.01; 0.1 моль/кг H₂O) концентрационная зависимость растворимости оксида тантала во всех фторидных растворах (HF, KF, NaF, LiF) имеет сходные величины и носит ярко выраженный положительный характер. В области высоких концентраций фторидов (1.0 m и 2.0 m растворы), наиболее высокие значения имеют концентрации тантала в растворах HF (до 10⁻¹ моль/кг H₂O). При этом зависимость растворимости Ta₂O₅ от концентрации HF в логарифмическом масштабе имеет отчетливый линейный характер. Несколько ниже растворимость Ta₂O₅ в растворах KF (до 10⁻² моль Ta/кг H₂O в растворе 2.0 m KF).

В растворах NaF и LiF растворимость Ta₂O₅ также достаточно высока. Зависимость растворимости Ta₂O₅ от концентрации NaF в области низких концентраций F⁻ иона (0.01-0.2 моль/кг H₂O) носит линейный характер, а затем, достигнув значения 10⁻² моль/кг H₂O при концентрации NaF, равной 0.5 моль/кг H₂O, практически перестает изменяться с увеличением концентрации NaF, что, по-видимому, объясняется ограниченной растворимостью NaF при параметрах экспериментов.

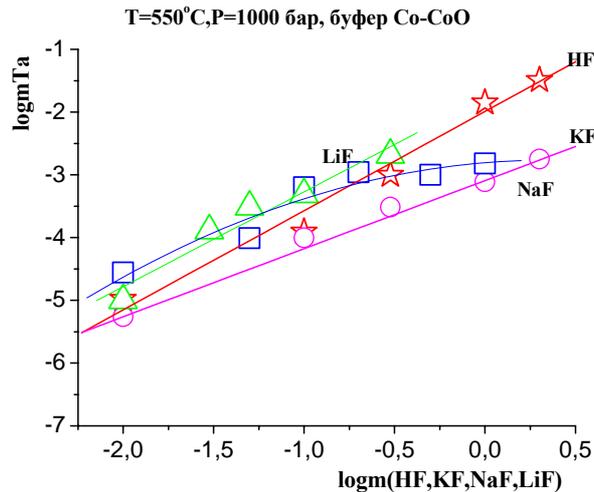


Рис. 1 Концентрационная зависимость растворимости Ta_2O_5 при $T=550^\circ C$, $P=1000$ бар во фторидных растворах HF, KF, NaF, LiF (буфер Co-CoO)

В растворах LiF содержание тантала в области низких концентраций F^- иона (0.1 моль/кг H_2O) достигает величины $0.5 \cdot 10^{-3}$ моль/кг H_2O , что сопоставимо с растворимостью Ta_2O_5 в растворах 0.1 m HF ($0.1 \cdot 10^{-3}$ моль/кг H_2O).

Можно сделать вывод о том, что во фторидных растворах различного катионного состава (HF, KF, NaF, LiF) концентрационная зависимость растворимости Ta_2O_5 при $T=550^\circ C$; $P=1000$ бар; буфер Co-CoO носит положительный характер, достигая максимума в $2,0$ m HF (10^1 моль/кг H_2O).

Данные, приведенные на рис.1 показывают в общем близкую и однотипную зависимость растворимости Ta_2O_5 во всех изученных фторидных растворах - HF, KF, NaF и LiF. Все кривые могут быть неплохо аппроксимированы прямыми линиями, имеющими близкий наклон, расхождение в значениях растворимости Ta_2O_5 в разных растворах не превышает одного порядка величины, излом прямой у NaF на уровне концентрации 0.1 моль/кг H_2O хорошо объясняется его ограниченной растворимостью при высоких температурах. В целом, представленная на рис.1 картина позволяет сделать довольно уверенный вывод о решающем значении F-иона в растворимости Ta_2O_5 и, следовательно, о ведущей роли комплексообразования тантала с фтором.

Финансовая поддержка: грант РФФИ 05-05-652333 и Научная школа грант НШ-7650.2006.5

Литература

1. Беус А.А., Северов Э.А., Ситнин Ф.Ф., Субботин К.Д. Альбизированные и грейзенизированные граниты (апограниты) // М.: Изд-во АН СССР. 1962. 196 с.
2. Зарайский Г.П., Коржинская В.С. Экспериментальное исследование растворимости колумбита во фторидных, хлоридных и карбонатных растворах при $T=300, 400, 500^\circ C$, $P=500$ и 1000 бар в присутствии кислородных буферов NiO и Co-CoO // Международная конференция "Новые идеи в науках о Земле." Мат. докл. Том 2.-М.: МГГРУ. 2005. с.86.

Вестник Отделения наук о Земле РАН - №1(24) 2006

Информационный бюллетень Ежегодного семинара по экспериментальной минералогии, петрологии и геохимии 2004 года (ЕСЭМПГ-2006)

URL: http://www.scgis.ru/russian/cp1251/h_dgggms/1-2006/informbul-1_2006/hydroterm-10.pdf

Опубликовано 1 июля 2006 г

© Вестник Отделения наук о Земле РАН, 1997 (год основания), 2006

При полном или частичном использовании материалов публикаций журнала, ссылка на «Вестник Отделения наук о Земле РАН» обязательна