

(様式第5号)

## XAFS を用いたタンタルおよびニオブの 新製錬プロセスに關与する非フッ酸系化合物の解明 Non-fluoride compounds involved in new smelting processes of tantalum and niobium by XAFS

久保 裕也・篠田 弘造  
Hironari Kubo・Kozo Shinoda

福岡工業大学・東北大学  
Fukuoka Institute of Technology・Tohoku universityxc

- ※1 先端創生利用（長期タイプ）課題は、実施課題名の末尾に期を表す（Ⅰ）、（Ⅱ）、（Ⅲ）を追記してください。
- ※2 利用情報の公開が必要な課題は、本利用報告書とは別に利用年度終了後 2 年以内に研究成果公開（論文（査読付）の発表又は研究センターの研究成果公報で公表）が必要です（トライアル利用を除く）。
- ※3 実験に参加された機関を全てご記載ください。
- ※4 共著者には実験参加者をご記載ください（各実験参加機関より 1 人以上）。

### 1. 概要（注：結論を含めて下さい）

利用者らは、Ta、Nb 鉱石を硫酸や塩酸などの一般的な酸に溶解可能にする画期的な手法を見出した。このプロセスで生成する熔融塩および白色沈殿の化学形態、つまり反応機構を明らかにすることを目的とした。白色沈殿を BL07 で XAFS 分析した結果、水酸化物と酸化物の中間の形態と推定された。

#### (English)

The users have discovered an innovative method to make Ta and Nb ores soluble in common acids such as sulfuric and hydrochloric acid. The purpose of this study was to clarify the chemical form of the molten salt and white precipitates produced in this process, i.e., the reaction mechanism. XAFS analysis of the white precipitates at BL07 revealed that the morphology of the precipitates was estimated to be intermediate between hydroxide and oxide.

### 2. 背景と目的

利用者らは、通常フッ化水素酸でしか溶解できない Ta、Nb 鉱石を硫酸や塩酸などの一般的な酸に溶解可能にする画期的な手法を見出した。鉱石と硫酸水素アンモニウムを加熱すると熔融塩が生成する。放冷後の熔融塩を水浸出すると白色沈殿が生成し、これが硫酸や塩酸などの各種酸に容易に溶解する。残された課題は、反応過程で生成する熔融塩および白色沈殿の化学形態、つまり反応機構が不明なことである。本提案の目的は XAFS 分析によってこれらの構成化合物を同定することである。これらの化合物を同定できれば、効率的なプロセス設計に有益な情報となるのみならず、Ta、Nb の化学に新たな知見を追記することになる。

### 3. 実験内容（試料、実験方法、解析方法の説明）

提案している製錬工程を図1に示す。試験管に0.05 gのTa、Nb鉱石と1.5 gのNH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>を添加し、ガスバーナで5分間加熱すると均一な熔融塩が形成された。生成した熔融塩を放冷した後に50 mLの水を加えると、白色の沈殿物が析出した。このスラリーを濾過し得られた白色の固体物質（図1中「Ta、Nb沈殿物」）を対象として、本実験ではNb K吸収端を中心にBL07においてXAFS測定を行

った。

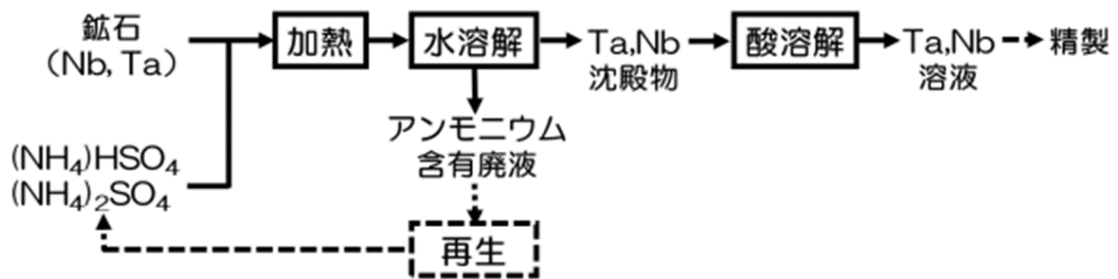


図1 利用者が提案している製錬方法

#### 4. 実験結果と考察

鉱石から作製した白色沈殿の Nb K 吸収端における XANES スペクトルを図2に示す。試料とあわせて測定した参照物質や既報の文献に示されたスペクトル形状と比較した結果、水酸化物と酸化物の中間の形態と推定された。水酸化物であれば、硫酸や塩酸など様々な酸に可溶である理由として整合する。

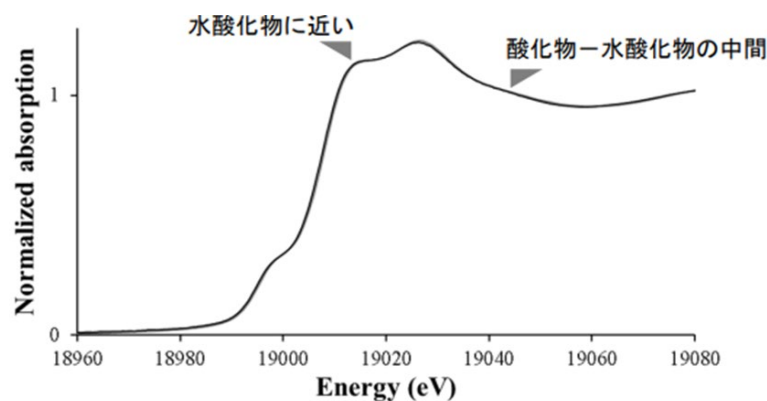


図2 白色沈殿の Nb の K 線 XANES スペクトル

#### 5. 今後の課題

本トライアル実験では、測定試料である Ta, Nb 白色沈殿物に対して Nb K 吸収端に加え、Ta L<sub>3</sub> 吸収端においても XAFS 測定実験を実施した。しかし測定条件を確定するための予備測定に時間を要したため、Ta L<sub>3</sub> 吸収端での実験においては解析に必要な測定数を予定通り実施することができなかった。それでも測定時の試料条件や手法（透過法、蛍光収量法の選択等）については解析に堪える測定データを得るための条件が定まったので、今後の実験に対する有用な予備実験となった。一方 Nb K 吸収端での実験においては、当該未知試料中の存在形態を検討するためにいくつかの参照物質を用意したものの、今回の実験結果から推測される水酸化物としての存在形態について、さらに参照物質試料を用意し同様の条件で測定したスペクトルと比較する必要がある。今回の BL07 におけるトライアルでは、特に Nb K 端 XAFS 測定が Nb 生成物中の Nb 存在形態分析に十分活用できることが確認されたので、今後継続して生成物の同定、さらに反応プロセス全体の理解を目指す。

#### 6. 参考文献

なし

#### 7. 論文発表・特許（注：本課題に関連するこれまでの代表的な成果）

久保裕也, 西田拓翔, 増田彩香: ニオブ, 及びタンタルの液化処理方法,  
特願 2021-041753, 特許第 6910690 号, PCT: JP2022/005190.

#### 8. キーワード（注：試料及び実験方法を特定する用語を2～3）

タンタル・ニオブ鉱石、硫酸水素アンモニウム、フッ化水素酸

**9. 研究成果公開について**（注：※2に記載した研究成果の公開について①と②のうち該当しない方を消してください。また、論文（査読付）発表と研究センターへの報告、または研究成果公報への原稿提出時期を記入してください。提出期限は利用年度終了後2年以内です。例えば2018年度実施課題であれば、2020年度末（2021年3月31日）となります。）

長期タイプ課題は、ご利用の最終期の利用報告書にご記入ください。

**トライアルにつき免除**