

(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 関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。水酸化ニオブまたはニオブ酸試薬を BL07 で XAFS 分析した結果、いずれも結晶性に大きな差はなかった。白色沈殿の波形とも一致しており、 $Nb_2O_5 \cdot nH_2O$ に類似の化合物と推定された。

(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 niobium hydroxide or niobate reagent at BL07 showed no significant difference in crystallinity in either case. It was also consistent with the waveshape of the white precipitation, and was estimated to be similar to $Nb_2O_5 \cdot nH_2O$.

2. 背景と目的

利用者らは、通常フッ化水素酸を用いなければ溶解しないTa、Nb鉱石を硫酸や塩酸などの一般的な酸に可溶とする画期的な手法を見出した。これは、従来のTa、Nb製錬プロセスにおいて問題であった含フッ化水素酸廃液処理の不要化による生産コスト削減、省エネルギー促進、さらにはTa、Nb含有廃棄物からの簡易かつ高効率回収プロセス実現につながると期待される。本手法は、鉱石と硫酸水素アンモニウムを加熱したときに生成する熔融塩を放冷後、水浸出することにより白色沈殿を得るという極めてシンプルなプロセスである。この白色沈殿は、硫酸や塩酸などの各種酸に易溶である。

現在残されている課題は、反応過程で生成する熔融塩および白色沈殿の化学形態変化、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。これまでの分析で、Nbは $Nb(OH)_5$ 、Taは微結晶に近いことが分かってきたが、そもそも参照可能な酸化物や水酸化物のデータがなく特定には至っていない。Nb、Taの水酸化物は生成条件によって様々な形態になることが知られている。今回は市販品と合成した水酸化物をXAFS分析し、これまでの測定データと照合することによって生成化合物を同定

したい。

3. 実験内容 (試料、実験方法、解析方法の説明)

三井金属社製水酸化ニオブ1種、TANIOBIS社製ニオブ酸3種 (モイスト、クラッシュド、ミルド) を用意した。また、関東化学社製の酸化ニオブ粉末 Nb_2O_5 を参照試薬として用意した。これらに対し、BL07においてNb K吸収端におけるXAFS測定を実施した。分光結晶はSi(220)、測定試料はBNで混合、圧粉成形して透過法により測定した。

4. 実験結果と考察

試薬のNbのK端EXAFSスペクトルを図1に示す。Nbは生成条件によって水酸化物も含め $Nb_2O_5 \cdot nH_2O$ (図2(b))が生成することが知られているが、いずれの水酸化ニオブ、ニオブ酸も結晶性に大きな差はなかった。本プロセスにより得られた白色沈殿の以前測定したEXAFSスペクトルとも一致していることが確認された。一方で、 Nb_2O_5 試薬とはEXAFSスペクトルとは明確に異なった。したがって、鉱石中の Nb_2O_5 が本プロセスによって $Nb(OH)_5$ もしくは $Nb_2O_5 \cdot nH_2O$ に変化することでフッ酸以外の酸に溶解したことが裏付けられた。

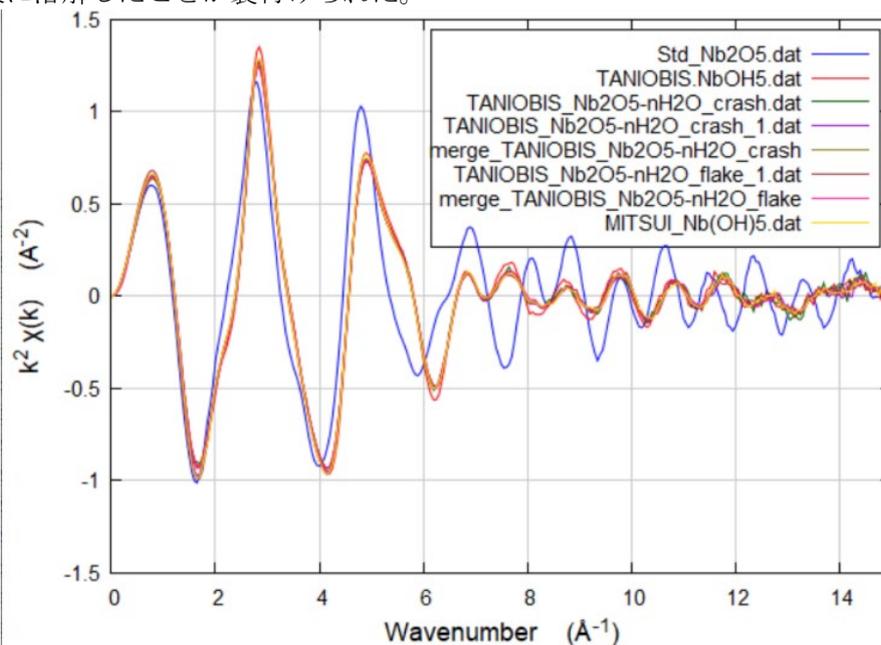


図1 各種試薬のNb K EXAFS スペクトル

5. 今後の課題

白色沈殿に含まれるNbの形態については結論が出たが、Taの形態については明らかになっていない。水酸化物および酸化物微粒子を調達してXAFS測定を実施し、比較することによりTa周囲の詳細な局所環境構造解析を進める。

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(2018年度実施課題は2020年度末が期限となります)。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。

① 論文(査読付)発表の報告

(報告時期: 2024年 11月)

