

審査の結果の要旨

氏名 竹田 修

金属チタンは優れた特性と豊富な資源を有しているにもかかわらず、その普及は限定的である。工業生産が始まってから半世紀以上も経った現在でも未だチタンがレアメタルの域にとどまっている主な理由は、現行の金属チタンの製造プロセスであるクロール法の生産性が低いためである。本論文は、クロール法の最大の特長である高品質なチタンを確実に製造できる塩化物製錬法を利用して、連続化・高速化が可能な新しい還元プロセスの可能性を検討することを第一の目標とし、チタンの低級塩化物（サブハライド）、二塩化チタン (TiCl_2) あるいは三塩化チタン (TiCl_3)、のマグネシウム熱還元法（サブハライド還元法）を基盤とする生産性の高いチタンの高速・（半）連続製造プロセスの開発を行ったものである。本論文は以下の6章よりなる。

第1章では、チタンの発見から工業生産までの歴史、過去のチタンの製造プロセスの研究やその特徴、問題点などを解析し、サブハライド還元法の原理と特長について論じ、本研究の位置付けと目的を明確化している。

第2章では、サブハライド還元法の原料であるチタンの低級塩化物の効率の良い製造プロセスを開発するために、金属チタンと四塩化チタン (TiCl_4) の反応について基礎的な実験による検討を行っている。ガス流通型反応容器を設計・製作し、低級塩化物の合成実験を行い、ガスの流通経路がある場合は TiCl_3 の生成・散逸により生成物の析出位置が分散し、低級塩化物の合成反応の効率（金属チタン原料の消費率）が 13~44%と低いことを報告している。そこで、反応容器内でのガス流を制御するために閉鎖型反応容器を新たに設計・製作して生成物の析出位置をある程度限定することに成功している。しかし、反応の効率（金属チタン原料の消費率）は 42~45%と依然として低く、反応の効率を高めるためには、生成した TiCl_2 をチタン表面の反応界面から除去すると同時に、さらに TiCl_4 との反応を防ぐ必要があることを明らかにしている。

第3章では、第2章の結果を踏まえて、熔融塩を反応媒体として用いる、より効率の良い低級塩化物の製造プロセスについて検討を行っている。熔融塩化マグネシウム (MgCl_2) 中で TiCl_4 と金属チタンを反応させる低級塩化物の合成プロセスの検討を行い、 TiCl_4 ガスを直接金属チタンに供給する方法に比べ、反応の効率（金属チタン原料の消費率）を 75~93% に大幅に向上させることに成功している。さらに、 TiCl_2 の熔融 MgCl_2 への溶解度の温度依存性を利用した低級塩化物の濃縮実験を行い、チタンの低級塩化物を含む熔融 MgCl_2 中で、 TiCl_2 を濃縮し、サブハライド還元法の原料として利用できることを明らかにしている。

第4章では、チタン製反応容器を用いた TiCl_2 のマグネシウム熱還元反応によるチタンの高速製造プロセスの可能性の検証を行っている。予め合成した TiCl_2 のマグネシウム熱還元

反応の解析を行い、現行のクロール法におけるチタンの生成速度が $0.06 \text{ kg/m}^3\cdot\text{s}$ 程度であるのに対し、本研究のサブハライド還元法におけるチタンの生成速度が $0.76 \text{ kg/m}^3\cdot\text{s}$ 程度と格段に速く、高速な還元プロセスに適していることを明らかにしている。また、クロール法では用いることができない、チタン製の反応容器を本プロセスでは使用可能であることを実験的に示した。これは、反応容器からの鉄の汚染を防御する新しい要素技術の可能性を示している点で特筆すべきことである。さらに、反応生成物の真空分離プロセスを組み合わせることによって、条件によっては純度 99%以上のチタンを効率良く得ることに成功している。

第 5 章では、第 4 章の結果を踏まえて、還元効率は高いがチタン製反応容器に対して負荷が大きい TiCl_3 のマグネシウム熱還元反応によるチタンの製造プロセスを検討している。その結果、 TiCl_3 のマグネシウム熱還元反応が高速な還元プロセスに適していることを実証し、純度 99%以上のチタンを効率良く得ている。また、 TiCl_3 を用いるプロセスでも、実験条件によってはチタン製の反応容器の使用が可能であることを示し、チタン製錬における新しい要素技術を導入したことは特筆すべき点である。さらに、機械的分離法（ドレイン）と真空分離を組み合わせた反応生成物の高速分離プロセスを新たに開発し、真空分離のみの場合に比べて反応生成物をより効率よく除去できることを明らかにしている。

第 6 章では本研究で得られた成果を総括している。

以上要するに、本論文は、低級塩化物を原料として利用するサブハライド還元法が原理的に可能であることを示し、同時にチタンの高速・(半)連続製造プロセスに応用できることを実証したものであり、従来型のチタンの製錬法では利用することができなかったチタン製の反応容器を使った新しい還元手法を開発することに成功している。これら一連の研究成果は、材料工学の発展に大きく寄与するものである。

よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。