Osaka University Knowledge Archive

Title	トリウム窒化物の作成およびその酸化挙動に関する研究
Author(s)	宇埜, 正美
Citation	大阪大学, 1988, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/2177
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

【28】

氏名・(本籍)	宇　埜　正　美（うの まさよし）
学位の種類	工　学　博　士
学位記番号	第　8179　号
学位授与の日付	昭和63年3月25日
学位授与の要件	工学研究科原子力工学専攻 学位規則第5条第1項該当
学位論文題目	**トリウム窒化物の作成およびその酸化挙動に関する研究**
論文審査委員	(主査) 教授　三宅　正宣 教授　井本　正介　　教授　山本　忠史　　教授　住田　健二 教授　関谷　全　　教授　岡田　東一

論文内容の要旨

本論文は，トリウム窒化物の作成と，それに密接に関連する問題としてのトリウム窒化物の酸化挙動に関する研究結果を取りまとめたもので，6章より構成されている。

第1章は緒論で，本論文の研究に関係するトリウム窒化物および酸化物の諸性質をまとめ，これに関する研究の現状を説明して本研究の背景を示すとともに，本研究の目的と意義を明らかにしている。

第2章では，トリウム窒化物作成の初段階として水素化による金属トリウムの微粉末化について研究し，70℃におけるTh_4H_{15}の生成反応により粉末化が進行することを明らかにするとともに，Th－H系の平衡相状態についての検討結果も述べている。

第3章では，トリウム窒化物の作成について研究し，Th_4H_{15}を一旦脱水素化してトリウム微粉末とした後にこれを窒化するよりも，Th_4H_{15}粉末と気流窒素を直接800℃で反応させることにより，最も窒素含有量が高く，結晶化度の高いTh_3N_4が得られること，および，このTh_3N_4を真空中で熱分解させることにより，ほぼ純粋なThNを作成できることを示している。また，Th－N－O系に存在する固相の熱力学的安定性を考察した結果，酸化物を全く含まないThNの作成の困難さが熱力学的には示されたが，反応速度の点を考慮して，ThN作成のための実際的な作成条件を実験的に検討，提案している。

第4章では，Th_3N_4の酸化挙動について研究し，Th_3N_4の空気中，室温酸化により非常に結晶化度の低いThO_2が得られること，および，その結晶化度は，酸化温度の上昇とともに増加することを示している。

第5章では，ThO_2の結晶化度についてさらに詳しく研究し，Th_3N_4の室温酸化により得られた非常に結晶化度の低いThO_2を，200から1400℃の温度で熱処理することにより，これまで報告されていない

様々な結晶化度をもつThO_2が得られ，その結晶化度は，熱処理の温度とともに増加することを述べている。結晶化度の評価をX線ライン・ブロードニング法を中心に行い，X線回折ピークにおける広がりは結晶子サイズと不均一歪の両方に起因することを明らかにし，また動径分布解析により原子配列の局所的規則性を評価した結果，Th_3N_4の室温酸化により得られたThO_2は，非晶質性が極めて高く，アモルファスであることを明らかにしている。

第6章では，本研究で得られた主な結果を総括するとともに，今後の課題について述べている。

論文の審査結果の要旨

原子炉における核燃料資源をウランに限らず多様化し，その有効利用を図ることは，特に，わが国における長期的なエネルギー源確保の点から大変重要な課題である。トリウム窒化物はトリウム酸化物等とともに，この課題に応える有力な核燃料成分の一つであり，新しい核燃料としての開発が望まれている。本論文は，この視点から，トリウム窒化物の作成と，これに密接に関連する問題としてのトリウム窒化物の酸化挙動に関する研究結果をまとめたもので，その主要な成果は以下の通りである。

まず，トリウム窒化物の作成については，金属トリウムより出発し，これを水素化法により微粉末にした後，窒素と反応させて窒化物とする方法を詳しく検討している。その結果，微粉末化は低温70℃におけるTh_4H_{15}の生成によりはじめて効果的に進行すること，更に，窒化物Th_3N_4の生成にはTh_4H_{15}を一旦脱水素化して金属トリウム微粉末とした後でこれを窒素と反応させるよりも，Th_4H_{15}を気流窒素と高温800℃で直接反応させる方がより窒素含有量の高い窒化物の得られることを見い出している。窒化物ThNの作成はTh_3N_4の真空中の熱分解によるが，その際トリウム酸化物も生成する。この酸化物は非常に安定で，酸化物を含まない窒化物の作成は熱力学的平衡論からは困難であることが示されている。そこで反応速度を考慮し，酸化物を含まぬThN作成のための適当な熱分解条件と方法を実験的に検討し，ほぼ純粋なThNを得る方法を確立している。

これに関連し，トリウム窒化物の酸化挙動については，室温程度の空気中酸化により，窒化物から非常に結晶化度の低いトリウム酸化物（トリア：ThO_2）が生成し，その結晶化度をX線ライン・ブロードニング法や動径分布解析により評価した結果，この室温酸化によるトリアはアモルファス状態にあること，および，このアモルファストリアのより高温での熱処理により従来報告のない種々の結晶化度を持つトリアが生成することを見いだしている。

このように本論文は，トリウム窒化物の生成とその酸化挙動に関する詳しいデータを実験により集積して検討を行っており，トリウム燃料の開発の上で極めて有用な知見を与えるもので，核燃料工学の発展に寄与するところ大である。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。