

## 国際会議報告

日米セミナー「製鉄製鋼の  
学問的進歩」会議報告

盛 利 貞\*

日米セミナーは日本学術振興会と米国の National Science Foundation とが両国間の科学協力事業として毎年大学等の学術研究機関を通じて申請を受け付け、両国でそれぞれ内容の審査が独立に行われたのち学振と NSF との協議を経て採否が決定される。本セミナーは 1981 年 8 月に筆者が京都大学在職中に申請書を提出し、翌年 4 月に採択の決定通知を受けた。

1976 年 9 月に米国 Massachusetts 州 Dedham 市にある MIT の Endicott House において Chemical Kinetics of Pyrometallurgy と題する日米セミナーが開催されたので、今回は 2 回目ということになる。開催場所は京都の比叡山国際観光ホテルで、会期中参加者全員が同ホテルに宿泊することにした。同ホテルは比叡山頂近くに位置して樹木の緑が美しく、他の宿泊客が少なく、都心へはかなりの道のりであるためミーティングの時間以外でもロビーでの会話を通じて、双方の親睦と緊密化をはかるには好都合と思われたからである。会期と日程は 1983 年 5 月 16 日 (月) 夕方に登録とレセプション、17 日 (火) から 20 日 (金) の 4 日間は午前 9 時から午後 6 時半 (最終日は午後 3 時) まで 8 セッションに分けてミーティングがあり、各講演 30 分、討論 30 分とし、セッションごとにさらにまとめの討論 30 分を設けた討論を主体とした会合であるのが特長である。討論を活発にするためフルペーパーのプレプリントをあらかじめ印刷のうえ出席者に郵送した。

米国側出席者は J. F. Elliott (MIT, Coordinator), J. W. Evans (Univ. of California), R. J. Fruehan (Carnegie-Mellon Univ.), D. R. Gaskell (Purdue Univ.), R. D. Pehlke (Univ. of Michigan), H. Y. Sohn (Univ. of Utah), T. Mukherjee (N. S. F.), W. O. Philbrook (Carnegie-Mellon Univ.), E. T. Turkdogan (U. S. Steel) の 9 名ならびに Gaskell, Pehlke, Philbrook 3 先生のご夫人で計 12 名、日本側は下地光雄 (北大), 不破祐, 大谷正康, 大森康男, 萬谷志郎 (東北大), 松下幸雄, 佐野信雄 (東大), 後藤和弘 (東工大), 加藤栄一 (早稲田大), 坂尾弘, 森一美 (名大), 一瀬英爾 (京大), 森田善一郎 (阪大), 盛利貞 (鉄鋼短大, Coordinator), 川合保治 (九大), 溝口庄三 (新日鉄), 宮下恒雄 (日本鋼管), 江見俊彦 (川崎製鉄), 池田隆果 (住友金属), 小山伸二 (神戸製鋼), 丸橋茂昭 (日新製鋼) の計 21 名である。16 日夕方のレ

セプションには近藤良夫京大工学部長夫妻の出席を得て歓迎の辞があり、また松下夫人ほか日本側から夫人 5 名が出席歓迎の意を表した。今回のセミナーは米国から 3 夫人が参加されたので、会議と併行してレディズプログラムも準備した。昼・夕食時は全員揃って会食し、野立御膳、僧兵焼き、バイキング等趣向をかえてなごやかな雰囲気醸成に努めたが、時には歌まで加わって親睦には効果的であつたと思われる。

本セミナーで論議されたテーマならびにその成果を 3 項目に大別して概説する。

## 1) 鉄鋼製錬反応の熱力学および速度論に関する基礎的研究

本セミナーではこの項目に属する論文が大部分であつた。森田は Fe-C-Ni, Fe-C-V 3 元合金についてオーステナイトと融体とを平衡させたのち急冷し、試料断面を EPMA 線分析法によつて C, Ni, V の濃度を求め、平衡分配係数を計算し、熱力学的検討を加えて既知の数値と比較考察した。

萬谷は鉄るつぼ中で溶融したりん酸塩スラグを  $H_2/H_2O$  混合ガスと平衡させ、スラグのカチオン成分についてほぼ正則溶液の関係が成り立つことを示し、カチオン間の相互作用エネルギーを計算し、新しい熱力学的数値を決定した。

Turkdogan はライムで安定化したジルコニアるつぼに Fe-C-S 溶体を入れ、CaO-CaS-MgO (40:40:20) 混合圧縮ペレットを接触させ、CO+Ar 混合ガスと 1600°C で平衡させて溶鉄-スラグ間の脱硫反応の平衡を測定し、熱力学的検討を加えた。

加藤は 1600 および 1700°C において MgO-SiO<sub>2</sub> 2 元系の各成分の活量をクヌーゼンセル質量分析法によつて求めた。これらの活量値から  $MgSiO_3(l)$ ,  $Mg_2SiO_4(s)$  の標準生成自由エネルギーを計算すると文献値に一致するが、 $Mg_2SiO_4$  と平衡する液相線は既知の状態図に一致しないと述べた。

佐野は 41%CaO-59%Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> スラグおよび CaO-CaF<sub>2</sub> スラグについて、巧妙な方法で O<sub>2</sub>, P<sub>2</sub> 分圧を一定に保持し、1550°C で PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>, P<sup>3-</sup> が安定となる O<sub>2</sub> 分圧を決定し、phosphate および phosphide capacity を計算し、熱力学的に検討している。

Philbrook は Na<sub>2</sub>O-SiO<sub>2</sub>, Na<sub>2</sub>O-CaO-SiO<sub>2</sub>, Na<sub>2</sub>O-MgO-SiO<sub>2</sub> および高炉型スラグについて、塩基度を変化させて 1200 ないし 1400°C で特殊なキャリアガス法およびカプセル法を用いて Na<sub>2</sub>O の活量を求め、Na capacity と塩基度との関係を求め、高炉型スラグからアルカリを除去するための基礎的知見を示した。

後藤はジルコニア固体電解質を用い、冶金用スラグの局部酸素分圧を測定し、その数値は冶金反応の機構解明に役立つことを示し、また Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> による溶銑脱りん時の酸素分圧や Na<sub>2</sub>O の活量を測定した。さらに溶銑の

\* 鉄鋼短期大学学長 京都大学名誉教授 工博

酸素分圧も電子伝導補正をすれば起電力法によつて測定可能であることを成功率とともに示している。

盛・一瀬は P, S, O を含む溶鉄に NaF を添加すると、同時に脱りん・脱硫および脱酸が起こることを示し、るつぼ材質 (CaO または MgO)、共存元素の影響などについて述べ、NaF による脱りんの機構について論議した。

以上の 8 件は鉄鋼製錬反応に関する基礎研究あるいは熱力学的平衡論的研究である。アルカリ、アルカリ土類金属の酸化物、弗化物は最近製鉄製鋼反応のいずれにおいても注目されているが、上記の論文はいずれも新しい熱力学的数値あるいは新知見を与え、とくに溶鉄の脱りん・脱硫が清浄高級鋼の製造に重要視されている今日、スラグ中の酸素分圧、 $\text{Na}_2\text{O}$ 、りん酸塩の活量などが決定され、phosphate ならびに phosphide capacity に関する熱力学的数値が得られたことは注目される。

次に速度論的研究は 6 件であった。Gaskell は固体 CaO および CaO 飽和の FeO(l) スラグによる溶鉄の脱硫について研究結果を発表し、脱硫反応の律速段階は溶鉄中での S およびその他の反応に関与する成分元素の拡散と考えられるが、S の滓化に見合つて O は増加せずに一定値を示し、対応するアノード反応として  $\text{Fe} \rightarrow \text{Fe}^{2+} + 2e$  なる反応が考えられること、さらに溶鉄表面での S、O などの低下が局部的に表面張力を増加させて溶鉄の攪拌を誘起し、脱硫が促進されるのではないかと述べた。

川合は Fe-P(-S) 溶鉄の  $\text{CaF}_2$  系フラックスによる脱りん反応を速度論的に研究し、 $\text{CaF}_2$  を主成分として CaO,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , MgO,  $\text{MgF}_2$  のいずれかと混合したフラックス 10 種類を溶鉄に FeO とともに添加し、脱りん速度パラメータを求めている。また脱りん速度は脱硫反応によつて助長される傾向を認め、P 分配比に及ぼす  $\text{CaF}_2$  の影響を定量化し、phosphate capacity とフラックス組成との関係を論議した。

Fruehan は製鋼時のガス-メタル反応について、表面活性元素の反応速度に及ぼす影響を中心にして、主として基礎的研究論文を対象にレビューし、N, H,  $\text{CO}_2$ , CO ガスと合金溶鉄との反応を述べ、著者が実験中の Sieverts 法およびアイソトープ交換反応法による溶鉄の吸窒、脱窒の研究結果を紹介しているが、アイソトープ交換法の実験手法自体については記述はない。実測値から吸窒速度式の物質移動係数は表面活性元素が含まれないときおよび飽和したときにいずれも一定値になるのではないかと述べている。

Pehlke は溶鋼の脱酸と再酸化に関する従来の反応速度論的研究論文をレビューし、実験手法として Sieverts 法、溶滴落下法、浮揚溶解法の特長を比較した。溶鉄の酸素吸収に関する速度論についても文献をレビューし、溶鉄の再酸化に関してはさらに研究が必要であると述べ

た。

以上の 4 論文では反応速度パラメータ、スラグ成分としての  $\text{P}_2\text{O}_5$  の活量係数に及ぼす  $\text{CaF}_2$  の影響の定量化、溶鉄の脱硫、脱窒反応に関する新しい知見が注目される。

Sohn は酸化鉄の還元モデルとガス圧脈動による還元速度論的研究を発表し、まず数値計算に必要な諸式を提示し、鉄鉱石のガス還元において 0.5 atm の幅でかつ 0.5 cps の低サイクルで脈動するガスによると 20 min で還元率が 25% 向上し、反応速度が増大することを計算で示し、脈動還元はガス拡散の影響を克服する手段として見込みがあると述べ、脈動幅と脈動数を増大すると初期還元速度は 3 倍にもなるであろうと述べた。

Evans は多孔質固体中のガス拡散の研究について、カリフォルニア大学で実施中の「多孔質固体中のガス拡散速度を予測するためのコンピュータによる数値計算」の結果をまとめて紹介し、多孔質固体の断面形状とその気孔率、平均粒径との関係を示し、多孔板の片側が一定圧力で、この側の気体分子が多孔板に衝突して圧力がゼロの反対側へ移動する個々の分子の軌道をコンピュータで多数個計算すると通過するガス分子の分率は壁厚に逆比例し、この関係直線の傾斜からクヌーゼン拡散係数が求められることを述べ、さらに構造パラメータ、平均気孔径、気孔率、迷宮度などの関係式を示している。

以上の 2 論文は数値計算のみであるが、ガス拡散に関する基本的な考え方としてとくに後者の論文は多くの示唆に富んでおり、多孔質固体とガスとの反応を取り扱う場合に参考にならう。

## 2) 金属元素の熱力学的諸性質に関する理論的研究

下地は前回の日米セミナーで発表した剛体球モデル (HS) に代わつて、一成分プラズマモデル (OCP) を用いて液体遷移金属元素 (Sc ないし Cu) のエントロピ (S)、定容分子熱 ( $C_V$ )、等温圧縮率 ( $\chi_T$ ) を求め、d-電子の影響を考慮に入れると S,  $C_V$  の値は実測値によく一致し、とくに  $\chi_T$  については HS モデルよりも OCP モデルのほうが実測値に近い値が得られることを示した。この項目に属する論文は 1 件のみであったが、この発表は金属の構造モデルに関する進歩といえよう。

## 3) 鉄鋼製錬に関する応用研究

大森は粗粒または微粉の集合粒子からなる核粒子の周囲に微粉を造粒した 2 重構造の 'Duplex pellet' を用いる新しい焼結法を研究した結果について述べ、この焼結法は低融点組成の造粒微粉を用い低温焼結するため、成品はシャッター強度、還元粉化指数、被還元性が良好であった。EPMA で調査した結果、成品はカルシウムフェライト結合であり通気性も良いことなどを述べた。

Elliott は高温製錬のさいに生成する廃ガス中でサブミクロンのオーダーの微粒子が生成する現象に対し、この過程で生成する金属酸化物、硫化物、硫酸塩などはま

ず高度の過飽和状態からの不可逆反応で起こると考え、実験的にはある一定分圧の金属ガスをジェットとして噴出させ、これと層流をなして  $O_2$  ガスを流し、その間に金属ガスと  $O_2$  とが拡散して衝突し、反応生成物を形成するという条件のもとでまずモノマーが生成し、このモノマーが凝縮して成長し、さらにこれらが互いに衝突して集合するという過程を考えた。大粒への集合は主としてブラウン運動に支配されるとして、これらの考え方を数式化し、諸式を用いて生成粒子の大きさと分布を時間の関数として示した。以上のモデルが実際の現象に合うかどうかを Zn ガスの酸化について実験し、計算による平均粒子径  $0.01\sim 0.1\ \mu\text{m}$  が実測値によく一致すると述べた。導いた諸式を用いると廃ガスの温度、ジェットの径、キャリアーガスの流速、酸素分圧が変化した場合に反応生成物の大きさや分布を計算によつて求めることができるこの論文は、問題の取り上げ方、理論的解析方法、実験的研究手法ならびにその成果が新鮮で印象に残るものであつた。

坂尾はムライトとアルミナに対する7種類のスラグの浸透状況を、Ar 中において耐火物の細管(内径  $0.4\sim 2.0\ \text{mm}$ ) を用いて調査し、スラグとしては  $FeO$ 、 $SiO_2$ 、 $CaO$ 、 $Al_2O_3$ 、 $Na_2O$  のうち2または3成分を配合し、 $1250$  ないし  $1450^\circ\text{C}$  の温度範囲で浸透性を調べ、浸透時間と浸透高さとの関係を実験式で与えた。この研究は耐火物が浸食性スラグによつて浸透される現象の定量的解析手法として示唆に富んでいる。

以上をまとめると、今回提出された日本側の論文は鉄鋼製錬の基礎となるスラグ、スラグ-メタル間反応の熱力学、速度論が多く、米国側の論文は固体反応を含む広範囲の主題を対象としていた。種々の角度から突つ込んだ論議が行われ、新知見が得られ、未解決の問題点が明らかにされたことは大きな成果である。また日米双方の研究上の問題点を補間する意味においても有意義であつたと思われる。

6月15日に整理会を開催して今回のセミナーに関する総まとめを行つたが、日本側参加者の意見、要望等を

要約すると次のとおりである。

(1) 参加者の数が討論に適した人数であり、両国の同じ学問分野の研究者が会期中起居を共にし、学問的また人間的交流の両面で密な接触を持つことができた。そのため学問上の成果のみならず両国における金属関係の教育、鉄鋼業界の現状についても互いに問題点を理解することができた。

(2) 今回のセミナーは前回のそれに比較して内容がより充実していたという意見が大部分であつた。なおこの種のセミナーにはオリジナルの論文のほうが討論に適しているという意見が多かつた。

(3) 語学の達者なかつ若手の研究者の参加数をさらにふやし、日本側の企業からの参加者も討論参加だけでなく論文発表を考慮してはどうかという意見もかなりあつた。

(4) 討論の時間を各論文ごとに30分と十分にとり、さらに各セッションごとにまとめの討論時間を設けた時間的配分が非常に効果的で、これらの討論を通じて問題点が明らかになつた。

(5) 会期中英語のみの討論は非常に疲れた。同時通訳かあるいは通訳を通じて討論をしたいという参加者の希望もかなりある。

(6) 日本側企業からの参加者の討論は、基礎研究と生産現場とを結びつけるのに一定の役割を果たしていることが印象づけられたが、米国側参加者はとくにこの点に強い関心を示し、次回米国で開催のさいには新技術に関する講演発表を要望していた。

終わりに本セミナーの申請と実施にあたり、何かとご援助いただいた京都大学工学部に厚く御礼申し上げます。また種々の有意義な資料を準備して討論に加わり、あるいはコメントを提供されたオブザーバー参加者各位のご協力に感謝します。なお本セミナーは日本学術振興会からの交付金のほか、日本鉄鋼連盟を通じて新日本製鉄(株)、日本鋼管(株)、川崎製鉄(株)、住友金属工業(株)、(株)神戸製鋼所、日新製鋼(株)から援助金を受けて実施しました。ここに深甚の謝意を表します。