



若手研究者・技術者の取り組みと将来の夢

## その場観察技術を駆使した 鉄の浸炭溶融反応理解への挑戦

Challenging Investigation about Iron Carburization Reaction by "in-situ" Observation Technique

大野光一郎 九州大学 大学院  
工学研究院材料工学部門 助教  
Ko-ichiro Ohno

急速な発展を遂げつつあるBRICsを筆頭とした工業新興国の台頭によって、世界的なエネルギーおよび資源の需要・供給バランスは大きく変化し、資源の高騰や、CO<sub>2</sub>問題が顕在化してきている。これらの問題は、化石燃料である石炭を加熱および還元剤として使用し、莫大なエネルギー消費とCO<sub>2</sub>の排出を伴う製鉄プロセスにおいては深刻である。著者が所属する材料反応制御学講座では、製鉄プロセスの低炭素化を目的として、プロセス内で生じる反応、流れ、伝熱などの基礎現象の解析を通した、鉄冶金反応の高速化・高効率化に取り組んでいる。製鉄プロセスを、酸化鉄から鉄を製造するプロセスであると捉えた際、鉄元素に対して炭材が関与する主な鉄冶金反応としては、「酸化鉄の還元反応」および「還元鉄の浸炭溶融反応」の2つが挙げられる。本稿では「その場観察技術」を駆使して、特に後者の還元鉄の浸炭溶融反応の理解に挑戦してきた筆者の研究成果を紹介すると共に、今後の研究姿勢について述べさせて頂く。

### 1 鉄の浸炭溶融反応理解への挑戦

鉄の浸炭溶融現象とは、還元鉄に炭素が供給され鉄中の炭素濃度が上昇し、鉄の固相線および液相線温度が低下することで、純鉄の融点よりもさらに低温から溶融鉄が生じる現象である。この鉄の浸炭溶融現象に初めて触れたのは、卒業論文研究時であった。当時著者に与えられたテーマは、鉄と石炭間の浸炭溶融反応のその場観察を行うという内容<sup>1)</sup>であり、高温で鉄が溶ける様子を直接見るという当時の自分には衝撃的な体験に感動したことを、鮮明に記憶している。

通常、1000℃を超える高温域での顕微鏡観察は、観察対象自身からの輻射の影響が大きいため困難である。そこで本研究では共焦点型レーザー顕微鏡を使用した。これは観察用光源に輝度の高いレーザー光を使用し、さらに共焦点光学系を

採用することによって、焦点以外の不要散乱光を遮断することで、高温域でのその場観察を可能とした顕微鏡である。このレーザー顕微鏡と赤外線イメージ加熱炉と組み合わせた高温その場観察装置<sup>2)</sup>を用いて研究を遂行した。高温場その場観察という技法は、対象とする現象を理解するための直感的な手掛かりを得ることが可能な優れた手法であるが、それと同時に観察された現象の正しい理解と定量化には工夫を要する。特に鉄冶金反応の解析に応用するためには、複雑な事象を複雑なまま取り扱うのではなく、対象となる現象をあらかじめ絞り込んだ上で、単純化する作業が必要不可欠である。

例えば、著者の研究成果の一つに、スラグを介した浸炭反応<sup>3)</sup>の発見というものがある。これは従来考えられてきた、炭材との直接接触による固体-固体間浸炭、COガスによるガス浸炭反応、これらに次ぐ第3の浸炭反応経路として、還元鉄と炭材が溶融スラグを介して間接的に接触している状況においても、スラグ融液相が浸炭反応のパスとして働いている現象を発見したという内容である。この現象の発想に至る研究背景には、鉬石中脈石成分および炭材中灰分が固相の状態では固体-固体間浸炭に対してネガティブな影響を与えるという報告<sup>4-6)</sup>に対し、製鉄プロセスにおける鉬石の最終的な溶融段階において、脈石成分および灰分起因で生じたスラグ融液が浸炭反応に対してどのように振る舞うのかが不明であった経緯がある。スラグを介して鉄と炭素が共存する状態のその場観察のためには、固体鉄と固体炭材の間にスラグ融液を挟み込んだサンドイッチ構造を形成する必要があったが、顕微鏡観察を行うために上部から観察が可能な形状であり、かつ赤外イメージ加熱方式を用いるため、直径10mmの空間に試料を作りこむ必要があった。思考錯誤の末、直径1mmの高純度鉄線と黒鉛棒の先端を約200μmの隙間を開けて空中に固定し、その隙間に模擬スラグを挟み込むという、図1に示すような特殊な形状の試料を作製した。この試

料形状によって、坩堝等からの汚染を受けることなく鉄－スラグ－炭素の三相共存状態を再現し、炭素－スラグ界面において溶融還元に伴い生じる溶融Fe-C合金粒子が、スラグ相表面に生じたマランゴニ対流によって、スラグ－鉄界面へ運ばれるというスラグを介した浸炭現象の発見を可能とした。

さらに浸炭現象を単純化して研究を遂行した事例としては、CH<sub>4</sub>を熱分解して得たPureな気相析出炭素に異なる温度の熱処理を加え、固定炭素の質である炭素結晶性のみを変化させた炭素試料を準備し、鉄との浸炭反応その場観察に用いた研究成果<sup>7)</sup>が挙げられる。この成果からは、図2に示すように炭素の結晶構造が未熟な炭材ほど、浸炭反応が生じている反応場への炭素の供給が容易なため、等速昇温実験においてより低温から鉄融液生成が生じ、浸炭反応が高速に生じている可能性が示唆されている。現在、この成果に基づいて、一般的に炭素結晶構造が未熟なことで知られるバイオマス炭材を、製鉄プロセスへ高度利活用することを目標とした研究にも取り組んでいる。これは、現在製鉄プロセスで利用されている化石燃料の代替として、カーボンニュートラルであるバイオマス炭材を用いることで、プロセス全体の低炭素化を目指す技術であり、国内外の研究グループと共同研究を行っている<sup>8)</sup>。

## 2 研究に取り組む際の心掛け

これまでの著者の研究成果について、浸炭溶融反応をキーワードに数例紹介させて頂いたが、もちろんこれらの成果は

ご指導ご鞭撻頂いた諸先生方および諸先輩方と、各研究を共に遂行してくれた学生諸君の御助力あつての賜物である。

諸先生方に研究を計画する際の心構えとして叩き込まれたのは、研究対象を要素に分解し、その中で特に重要な要素を単純化した上で解析を行うことであった。これは、前述のその場観察を行う際の原則と相通ずるものであり、研究生活のごく初期から本手法に触れることができたのは、今振り返ると非常に良いトレーニングになっていたと思われる。このような所謂ラボスケールでの実験手法に習熟し改良を重ねるのは、学側研究者の使命であると自覚しているし、今後も研鑽を続ける所存であるが、その一方で、製鉄という実プロセスを研究対象とする以上、産側に歩み寄った手法での研究も遂行するべきである。幸い著者がこれまでに師事してきた諸先生方は、産側学側両面のバランスが良く、恵まれた環境で研究者として成長させて頂いたと感謝する次第である。

特に産学のバランスが良く、最近非常に良くお世話になった先生の一人であつて、これまでに著者が師事を仰いだ先生の中でおそらく最高齢だと思われる恩師に、RWTH Aachen University, IEHK (鉄冶金研究所) のHeinrich Wilhelm Gudenau先生がおられる。2010年に1年間在籍させて頂いた当時口酸っぱく仰っていたのが「自分の研究結果を検証する手段を持つ」ということであつた。この言葉には二つの意味があると著者なりに解釈をしている。IEHKの実験装置群<sup>9)</sup>

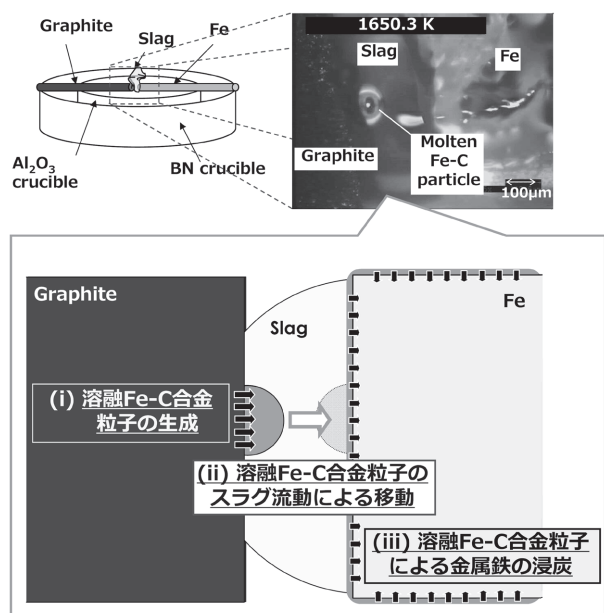


図1 スラグを介した浸炭反応をその場観察するための試料形状とその観察によって明らかにした浸炭メカニズムの概略

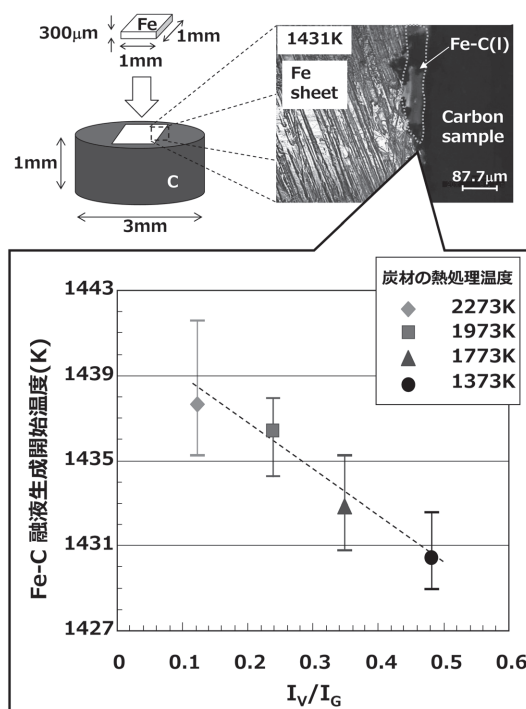


図2 ラマン分光分析から見積もった炭素結晶構造の未熟さの指標  $I_V/I_G$  値と高温その場観察から測定した Fe-C 融液生成温度との関係

はラボスケールと呼ぶには巨大で、特に図3に示した高炉羽口一式を模擬したコークベットシミュレーターには度胆を抜かれた。このような実プロセスを意識し、かつ産側研究機関も含め他に類を見ないオンリーワンの実験装置を駆使した検証をせよという意味が一点目。二点目は、産側との共同研究を通して実プロセスでの検証をせよという意味においてであると理解している。この実現には、当然産側との良好なコネクション（師は冗談交じりにMafiaという言葉を常用していた）が重要となる。

この上記二点の実現へ向けて、現在次のような取り組みを行っている。一点目に関して、新実験設備として、鉬石層の軟化溶融挙動の調査に特化した荷重軟化試験装置の導入を計画している。この装置の特徴は、試料層の急速加熱および急冷を可能とする点にあり、現在産側研究機関の諸先輩方からご助言を頂きつつ、鋭意作製中である。二点目に関しては、自分自身が真面目に研究を遂行し、その成果を広く分かりやすい形で発表することで著者のActivityを知っていただく努力（例えば、近年ISIJ Internationalに発表した論文はすべて鉄と鋼へ転載<sup>10-14)</sup>している）の継続と、まだまだ若輩の研究者である筆者に興味を持って接していただいている諸先輩方を、良い意味で利用させて頂くことで、自分のコネクションを拡大していこうと目論んでいる。

最後に、教育者としての人材育成に対する抱負を述べさせて頂く。基本的には学生諸君の良き模範となるように、自分自身が研究に対して真摯に向き合う研究生を送り、その模

倣をしてもらえる様な努力を続けると共に、プレゼンテーションのTipsやディスカッションの方法など、テクニックでカバーできる箇所は徹底的に叩き込んでいきたいと考えている。自分をよく見せるテクニックに関しては、昨今の就職活動などで“元気・覇気が無い”という理由で損をしている「優秀な」学生には特に有効な手段になるものと位置づけ、ゆくゆくは「あれは大野のところの学生だな」と一見して認識されるほどに育成することを目指している。

#### 参考文献

- 1) Heru Wibow, K.Ohno, T.Nagasaka and M.Hino : CAMP-ISIJ, 15 (2002) , 98.
- 2) K.Tsutsumi, T.Nagasaka and M.Hino : ISIJ Int., 39 (1999) , 1150.
- 3) K.Ohno, T.Miki and M.Hino : ISIJ Int., 44 (2004) , 2033.
- 4) S.Kondo and K.Ishii : Tetsu-to-Hagané, 70 (1984) , A1.
- 5) T.Matsui, N.Ishiwata, Y.Hara and K.Takeda : ISIJ Int., 44 (2004) , 2105.
- 6) M.W.Chapman, Brian J.Monaghan, S.A.Nightingale, J.G.Mathieson and R.J.Nightingale : ISIJ Int., 47 (2007) , 973.
- 7) K.Ohno, T.Maeda, K.Nishioka and M.Shimizu : ISIJ Int., 50 (2010) , 53.
- 8) K.Ohno, A.Babich, J.Mitsue, T.Maeda, D.Senk, H.W.Gudenau and M.Shimizu : ISIJ Int., 52 (2012) , No.8へ掲載決定
- 9) H.W.Gudenau, D.Senk, A.Babich, G.Böttcher, C.Fröhling, O.S.Kweon, S.Wang and T.Wieting : ISIJ Int., 44 (2004) , 1469.
- 10) K.Nishioka, N.Suura, K.Ohno, T.Maeda and M.Shimizu : Tetsu-to-Hagané, 98 (2012) , 104.
- 11) K.Nishioka, T.Fujiwara, K.Ohno, T.Maeda and M.Shimizu : Tetsu-to-Hagané, 97 (2011) , 541.
- 12) K.Ohno, T.Maeda, K.Nishioka and M.Shimizu : Tetsu-to-Hagané, 96 (2010) , 475.
- 13) K.Ohno, T.Miki, Y.Sasaki and M.Hino : Tetsu-to-Hagané, 95 (2009) , 531.
- 14) N.Takeuchi, Y.Nomura, K.Ohno, T.Maeda, K.Nishioka and M.Shimizu : Tetsu-to-Hagané, 94 (2008) , 115.

(2012年5月21日受付)

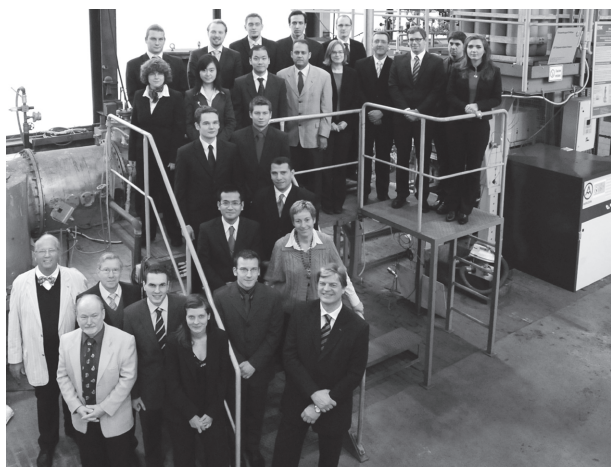


図3 コークベットシミュレーター前におけるIEHK鉄冶金研究グループの集合写真(2010年12月撮影、左端Gudenau先生、筆者階段中央)

## 先輩研究者・技術者からのエール

東京藝術大学 大学院美術研究科文化財保存学専攻 教授

永田 和宏

大野光一郎君は、勢いのある若手研究者の一人です。彼が私の友人の東北大学の日野光兀先生の指導で学位を取られ、さらに九州大学からドイツ・アーヘン工科大学のグーデナウ教授の所に留学されたと聞いたときは因縁を感じました。グーデナウ教授とは、私が東京工業大学の博士課程学生の頃、大学に1年間留学されておられた時からの付き合いです。大野君が博士課程の研究をされている頃、私は、たたら製鉄と炭材内装ペレットの還元・溶融に共通する銑鉄の溶融現象の研究を行っており、炭材との直接接触により微小溶融点が発生し、マランゴニ対流が生じて急速に浸炭溶融が起こることを発表していました。その頃、スラグを介在させても浸炭溶融が起こるという大野君の研究発表があり、いい点をついているなど感心しました。その後の彼の研究は製鉄現場と密接なテーマでやっておられ、グーデナウ教授の所でさらにその重要性を認識してこられました。

製鉄研究は、今大きな転換点に来ています。我が国工業で発生する炭酸ガスの4分の1を排出している高炉を中心とする生産方法は、世界的に見ても21世紀の持続可能な社会の技術とは言えない状況になりつつあります。製鉄は4000年の歴史の中で、唯一、木炭や石炭の燃焼により生成する高温ガスをエネ

ルギーとして使い続けてきました。その技術の精華が高炉です。一方、19世紀から反射炉による輻射熱の利用技術が発達し平炉に集約されましたが、現在では再び高温ガスを用いる転炉になっています。20世紀になり電気炉が発展しスクラップ溶解に使われていますが、キュボラによる溶解技術も近年発展し、高温ガス利用が進んでいます。高温ガス利用は大量生産に有利だからです。戦前から戦後、高度成長期を経て現在に至る我が国製鉄の発展を辿るとこのことが良く分かります。企業の第一線を退職された先輩の話聞くことが重要です。

しかし、世界の原料事情や製品の需要状況が現在のまま21世紀に続くとは思えません。例えば、ミニミルなど局地的生産と消費による輸送コストの削減など、省エネルギーや炭酸ガス発生量抑制などの観点から、工業のあり方が変化することも考えられます。新しい技術の開発は、異分野との学際的な交流から起こることは歴史の示すところです。19世紀中頃に転炉を発明し「鋼の時代」(中澤護人先生)を切り開いたベッセマーは冶金の専門家ではありませんでした。ものづくりは、幅の広い知識を要求します。研究においても同様です。若い感性で、ますます研鑽されることを期待しています。

JFE スチール(株) スチール研究所 製鉄研究部長

佐藤 道貴

大野先生と初めてお会いしたのは、先生がまだ大学院生か、大学の職員になりたての頃の、とある研究会の場であったと思う。高炉の還元効率や通気性を抜本的に改善してCO<sub>2</sub>発生量を大幅に低下させる研究開発の一環として、産学協同行っていた研究会であり、各先生方がご自分の分担されている研究テーマの成果を披露する場であった。

そこに颯爽と登場した先生のプレゼンテーションを聞いて、度肝を抜かれた。兎に角流麗である。図や動画を多用し、まるで映画を見ているように聴衆を引き込む。いつの間にか時間を忘れて聞き惚れ、最後にはこの研究は凄いいんじゃないかと思わせる。新しい時代の新しい人が出てきたなあと強く感じたシーンである。

先生の最初の研究分野は、先生ご自身も書かれているように、高炉炉下部の現象の一つである「浸炭溶融」現象の解明に関わることである。高温下での現象であるため、従来から実験そのものが難しく、状況証拠を積み重ねながら現象を推定するしかなかったが、先生はこの領域における「現象の可視化」に果敢にチャレンジした。試行錯誤を重ねての装置の開発や測定手法も斬新なら、結果も驚愕すべきものであった。今まで想像

もできなかった現象(スラグ層を介しての浸炭)を「見る」ことによって、やおらこの現象が現実となった。反対に「見せられる」と誰にも反論できない。これは凄いことだと思う。工夫さえすれば、シンプルな装置からでも世の中を変える発見があるということを見せてもらった一幕であった。

先生には常に興味を持ち続け情熱を失わないアグレッシブさと、産・学界の長老達の意見に素直に耳を傾ける謙虚さを有している。我々産業界の人間からすると、親しみやすく、会話も心地良い。このような姿勢があったからこそ、先の発見に繋がったのだと思う。年齢を重ねても、そのような姿勢は忘れないでいて欲しいと思う。

製鉄分野における学側の講座が減少する中、中国や韓国などの新興国に負けないためには、日本オリジナルの技術を発信し、育て、実用化していくしかない。これを実現するためには、先生のような若く、アイデアに溢れる研究者が不可欠である。これからもどしどし新しい技術の芽を提案していただきたいと思う。また教育者として、学生に少しでも製鉄の面白さを伝えていただき、一人でも多くの優秀な学生を鉄鋼業に送り込んでいただけることを願ってやまない。