

「鉄と鋼」と私

「鉄と鋼」と歩んだ40年

Tetsu-to-Hagané and I Myself for Forty Years

碓井建夫

Tateo Usui

大阪大学 接合科学研究所 招聘教授
ブラジル・オーロプレット連邦大学 客員教授
大阪大学 名誉教授

1 はじめに

平成26年(2014年)に「鉄と鋼」が100巻を迎えるのを記念して、特集号が発刊されるめでたい機会に標記のタイトルで“「鉄と鋼」と合本の「ふえらむ」”に何か寄稿するようにと勧誘いただく名誉を受けた。本記事(1月号)が出版される時期に、筆者はたまたま、平成25年9月から半年間のブラジル・オーロプレット連邦大学滞在中と遭遇している。当地は、リオ・デジャネイロの北300キロに位置し、320年ほど前から200年近くゴールドラッシュで栄え、世界遺産にも登録された風光明媚な古都で、高低差がきつづく1060~1200メートルほどの高地にある。筆者を受け入れ中のAssis教授が日本鉄鋼協会協賛行事(図1には、ISIJのマークと文字が見える)である「第9回日本ーブラジルシンポジウム」の代表Chairmanであり、来伯直後の当地での開催と重なる幸運にも恵まれた。

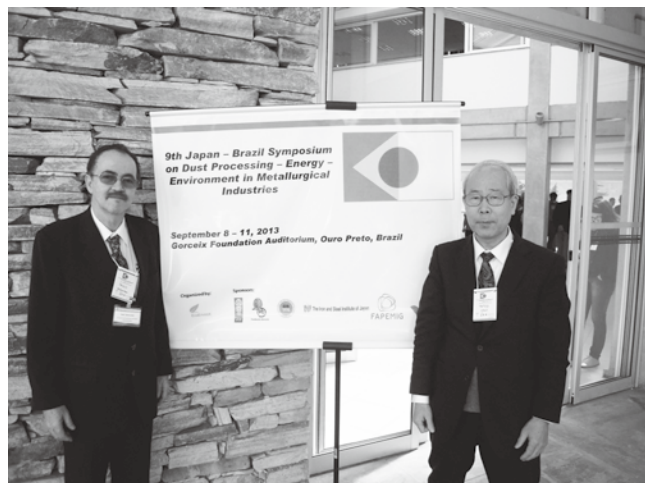


図1 オーロ・プレット連邦大学滞在中; 受け入れのAssis教授と当地で開催の「第9回日本ーブラジルシンポジウム」に参加の折

筆者の初期の研究経歴などと「鉄と鋼」とのかかわりのポイントは次章で述べるが、現役の研究者の間で筆者が最も若いころから論文や解説などを「鉄と鋼」に寄稿していたわけではなく、ましてや、掲載件数が非常に多いわけでもない。この点および、これと関連して今も格闘中の「鉄と鋼」と私自身の繋がり的一端も、最後に述べることにする。思い出話になるが、あえて自慢できることと言えば、「材料とプロセス」が昭和63年(1988年)に初めて発刊されるまでは、講演大会の講演概要は、「鉄と鋼」に掲載されていたが、当時、講演概要が外国で勝手に英訳・出版されていたために、講演者が希望すれば、講演者自らが講演概要を英訳して、Trans. ISIJに掲載されることになり、その英文版についての英文校閲委員を当時の編集委員会欧文会誌分科会 委員長 大森康男先生(現、東北大学 名誉教授)から承り、昭和54年8月から9年余り務めたことである。この間、毎春・秋の講演大会後に、10件内外の講演概要英文版を受け持ち、各種辞書・解説書などを参考に四苦八苦しながら英文校閲させていただき、お陰さまで自分自身の英作力が鍛えられた。ちなみに、筆者自身も、その間に17報の「鉄と鋼」掲載の講演概要から英文版を作成し、英文校閲を受けた後、Trans. ISIJに掲載されている。このような事業は、講演大会の講演概要が「材料とプロセス」に掲載されるようになった時期に終了している。

2 流体力学から還元反応速度論へ

2.1 脈動還元と収支抵抗

筆者は、昭和43年度の卒業研究、昭和44~45年度の修士論文研究、昭和46~48年度の博士論文研究では、大阪大学工学部冶金学科冶金設備工学講座において、近江宗一教授(現、大阪大学名誉教授)のご指導の下、円管内脈動流れ^{a)}(文末に専門用語説明添付)における圧力、速度に関する実験と理論解析を行ったが、途中から、脈動流れを酸化鉄ペレットの還

元反応に適用した場合の反応促進効果について、一界面未反応核モデル^{b)}による解析を行い、理論的な説明を試みた。その頃までに、内外で、脈動還元^{c)}の有効性を実験的に明らかにした報告が幾つかあったが〔文献1) 参照〕、一界面未反応核モデルの取り扱いについては議論の真ただ中にあり、これを用いた脈動還元の速度論的解析¹⁾は、筆者らが最初であったと思う。

まず一界面未反応核モデルの取り扱いについては、化学反応律速^{d)}、粒内拡散律速^{d)}、両者の混合律速^{d)}、さらにはガス境膜内拡散^{e)}も考慮した3過程の混合律速まで進歩していた〔文献2) 参照〕。その時点で、反応管を出ていく還元済みのガス(水素還元の場合、 H_2 - H_2O 混合排ガス)が、反応を抑制する効果(Clair³⁾が最初、the resistance due to the rate of gas flowと呼び、国内では原ら⁴⁾が、「収支抵抗」と意識した)について、ガス側の抵抗として、ガス境膜内物質移動係数^{e)}に屋上屋を重ねるようだとの受け止めもあり⁵⁾、国内では賛否両論ゆえ、直ちには認知されていなかった。筆者らも当初、収支抵抗を考慮しない3過程の混合律速の一界面未反応核モデルを用いて脈動還元速度の解析を行い、ガス境膜内物質移動係数については、既報の定常流れ中で試料を正弦振動させた場合の式を借用して、脈動流れのガス境膜内拡散促進効果を評価していた。ところが、この計算方式で、低流量域で脈動流れの周波数と振幅を大きくしていくと、還元反応がどんどん促進され、ついには水素ガス供給速度[mol H_2 /s]以上の還元反応速度[mol H_2 /s]にまでなってしまうという矛盾が生じ、やはり、収支抵抗を考慮する必要があることを痛感した^{1,2)}。収支抵抗を考慮した場合、ウスタイト/鉄還元平衡以上には、水素は消費されないという合理的な解析結果が低流量域で得られ、既報の複数の実験値との比較においても矛盾のない結果となることを証明した²⁾。これは、収支抵抗を考慮しない場合、ガス側の抵抗はガス境膜内拡散に基づくもののみとなり、ガス境膜内物質移動係数の相関式中の拡散の項〔(1)式中の“2”〕が、低流量域($Re \rightarrow 0$)における極限值として残ってくるため、ガスの供給がなくとも、無限遠から水素が拡散してくるという理論上の仮定が、有限の反応管に対してそのまま反映されてしまう結果、現実にはそぐわなくなると説明できる。以上、脈動還元の解析上の極限という特殊な状況を考えることにより、一般的に(定常流れ下の)反応管内の気/固反応には、収支抵抗というmass balance上付加すべき抵抗が存在することが明らかとなった。

ところで、最初に述べた“円管内脈動流れにおける圧力、速度の研究”を、卒業研究、修士論文研究以来、先行して進めていたが、上記の収支抵抗の取り扱いを中心とした「定常流れ下での還元速度式」²⁾についての基礎的解析と、その結果を用いた「脈動流れ下での還元反応促進効果」についての解

析¹⁾が、昭和48年12月の博士学位論文発表会の月に「鉄と鋼」に2報同時掲載となり、コース博士の基準には1報足りないものの、日本機械学会論文集に5報投稿中であったこともあり、無事、年限内に工学博士の学位を取得した。これは、日本機械学会論文集が投稿から掲載まで2、3年かかったのに対し、「鉄と鋼」の場合、1年未満と速かったことが関係しており、洋の東西、今昔を問わず、投稿から掲載までが速いことは、このようなタイムリミットのある学位の取得や研究のプライオリティ上も非常に重要なことで、当時、「鉄と鋼」の速さに感謝した。

その後、収支抵抗を実験的に証明するため、低流量域で、内径を大きく変えた2種類の反応管を用いて還元実験を行ったところ⁶⁾、昇温中から反応開始直前まで流していた窒素ガスから水素ガスへの4方コックによる瞬時の切り替え($H_2/(H_2 + N_2) = 0 \rightarrow 1$)が、低流量のため試料位置では非常にゆっくりと進行し⁷⁾(H_2 と N_2 が混じり合うことが原因しており、このような現象は、他の反応系においても起こりうる)、還元曲線はシグモイド形となった。この初期ガス組成変化をあるモデルにより理論的に評価・推算した上で、収支抵抗の効果について調べた結果、収支抵抗なし(0%)とあり(100%)の間にあることが判明した⁶⁾。

2.2 ガス境膜内物質移動係数

2.2.1 酸化鉄ペレットの場合

定常流れおよび脈動流れにおいて酸化鉄ペレット単一球の還元反応を行う場合のガス境膜内物質移動係数を理論的解析⁸⁾ならびにナフタレンコーティング球を用いた実験⁹⁾により評価した。まず、定常流れ下のガス境膜内物質移動係数について、境界層理論ⁱ⁾に基づき次式を導いた⁸⁾。

$$Sh = 2 + 0.654 \cdot Sc^{1/3} Re^{1/2} \dots\dots\dots (1)$$

ただし、 Re : レイノルズ数 $= u d_p \rho / \mu$ [—]、 Sc : シュミット数 $= \mu / (\rho D)$ [—]、 Sh : シャーウッド数 $= k_g d_p / D$ [—]、 D : 拡散係数 [m²/s]、 d_p : 試料球直径 [m]、 k_g : ガス境膜内物質移動係数 [m/s]、 u : 流速 [m/s]、 μ : 粘性係数 [Pa·s]、 ρ : 密度 [kg/m³]。ここで、0.654という係数値は、「後流域」(こうりゅういき。流れが淀んでいることから「死水域」とも言う。)では物質移動が起こらないと仮定して、既報の球の周りの速度の解から決定している。幾つかの仮定の下で導かれているので、ナフタレンコーティング球を用いた実験により係数値を再評価した結果、次式を得た⁹⁾。

$$Sh = 2 + 0.58 \cdot Sc^{1/3} Re^{1/2} \dots\dots\dots (2)$$

この0.58という係数値は、Frössling¹⁰⁾が報告した0.55とRanz & Marshall¹¹⁾が報告した0.60の間にあり、妥当な値と考えられるが、データ数が多く、よく引用されるRanz & Marshallの値に従わなかったことが、のちに功を奏した(2.2.2項参照)。意地を張っていると言われれば、半分は当たっているかもしれないが、この0.58という係数値には、その時点でもっと重要な意味があった。すなわち、脈動流れ下のガス境膜内物質移動係数についても、境界層理論に基づいて、まず、球の周りの変動流れ^{a)}の解を定常流れの解と重ね合わせて流れ場を評価し、ガス境膜内物質移動係数の無次元相関式を導いた^{b)}。つぎに、実験^{c)}により係数値や指数値を補正したが、脈動流れ下の非常に多くの実験データからも、低周波数、低振幅の極限值が、定常流れのこの0.58という値に漸近することから、0.55や0.60ではなく、0.58が最適であると、定常流、脈動流の二重の評価で自信を持って決まっていた。

2.2.2 焼結鉍の場合¹²⁾

その後、焼結鉍のガス還元速度の解析においても、ガス境膜内物質移動係数の評価方法を確立する必要に迫られ、非常にいびつな非球形粒子に対する相関式を導いた。2.2.1項で述べた球に対する(2)式に、等体積球相当直径^{g)}: d_p^* とLevaの形状係数^{h)}を加味して半理論的に導出した相関式を、実験的に確認のうえ、ある修正を加えて半理論的実験式を提案した。長くなり、かつ専門的すぎるため、ここに示せないことは残念であるが、その内容は当該の「鉄と鋼」¹²⁾に譲り、研究の醍醐味とも言えるべき1点だけ触れておきたい。すなわち、(2)式においてこだわっていた0.58という係数値のゆえに、数年後に、整合性のある半理論的実験式が得られたことである。

2.3 ダブルメジャーの教育と研究

ここまでの研究紹介が、研究生生活を開始した頃からの、まさしく「鉄と鋼と私」の良い思い出話ともなっており、脈動流れから脈動還元へと、流体力学(機械)と反応速度論(冶金)のダブルメジャーで研究生生活をスタートしたことの直接的なメリットであり、ドクター論文研究(学位論文題目:「円管内脈動流れとそれによる酸化鉄ペレット還元反応促進効果に関する基礎的研究」、学位授与:1974年3月)のうち「円管内乱流脈動流れの理論解析を中心とする一連の研究¹³⁾」に対して、1977年4月、日本機械学会賞、ドクター論文研究から展開していった「還元反応の速度論的解析と関連する輸送現象の研究」に対して、1989年4月、本会・西山記念賞のように、両学協会から栄誉を受けた。また、その後の大阪大学における教育でも、「流れ学」、「熱・物質移動論」(あるいは「輸

送現象論」、「冶金反応工学」(後に、「反応制御工学」、さらに、「反応プロセス工学」と改称)、「鉄鋼製錬学」、「資源・環境学概論」などの科目を、自らの研究経験を織り込みながら教える(これこそが大学の講義の醍醐味であると思う)ことが出来、また福井工業大学でも機械工学科において、「流れ学」、「流体力学」、「伝熱工学」、「工業熱力学」などのクラスを受け持つ機会を得た(平成22年3月末 大阪大学定年退職後、福井工業大学で2年間 教鞭を執った)。これも、ダブルメジャーで過ごしてきたことのメリットであった。ただし、「熱力学」については、研究を進めるうえでのバックボーンとして活用する立場にはあったが、阪大時代に講義を受け持ったことはなく、福井工大でいきなり「工業熱力学」を担当することとなり、材料系と機械系での数式や記号、単位系の取り扱い方・対象の違いもあり、まさしく“Teaching is to learn twice.”(教えることは2度学ぶこと)以上の収穫となった。

3 補足とむすび

まず、1章で触れた「鉄と鋼」掲載論文数については、現在のところ30編であるが、その内8編は欧文誌に再投稿して、当時厳しい審査を受けて掲載されている(Trans. ISIJに6編、ISIJ Int.に2編)。また、30編の内の3編は、先にISIJ Int.に掲載されたものを和文に直したものとなっており、おもしろい掲載方法だと思い、感心している。なお、2章で述べた研究成果や論争などのほとんどが「鉄と鋼」に掲載された論文内容であることを付記したい。その他、講演大会・討論会講演論文(4頁)で「鉄と鋼」誌に掲載されたものが1編、「鉄と鋼」掲載の解説が3編ある。つぎに、この解説について若干詳述する。

1章、2章で述べたように、筆者は「鉄と鋼」と密接に関わりながら研究活動を開始し、その後も研究活動を展開してきたが、「塊成鉍のガス還元速度論」という、ライフワークとも言えるテーマで、故 村山武昭先生(当時、九州大学)、同門の内藤誠章氏(当時、新日本製鐵(株))との共著の解説3部作¹⁴⁻¹⁶⁾が「鉄と鋼」誌の方に掲載された。当時、解説記事は、「ふえらむ」と「鉄と鋼」に振り分けられていたように思うが、そのルールについては、理解していない。同じ掲載されるなら、「鉄と鋼」の方がネームバリューも高く、かつ論文誌であるため、よいのかなと思った。

現在、筆者が代表著者の研究成果(カルシウムフェライトの還元過程を考慮した焼結鉍に対する6界面未反応核モデル)を「鉄と鋼」に投稿中であるが、内容的には上記ライフワークの線にある。ただし、平成24年秋の講演大会・討論会で講演発表していたために、「材料とプロセス」に掲載の講演論文4頁¹⁷⁾との重複についての指摘を受けており、この

荒波を乗り越えることができれば、次号100巻2号の製鉄特集号が平成26年(100巻)中にて31編目の論文が掲載されるであろうと期待している時期に、本記事を書き終える。一言、本紙面を借りて希望を述べると、“論文投稿前の講演論文と、厳格な査読付き論文の間には、何か区別があり、同列には扱わない”ような何かうまいルールを編集委員会にて考えて頂けると幸いである。今後、「鉄と鋼」がますます評価が高まり、発展していくことを願い、かつまた、本記事が読者諸兄に何らかの参考になることを願って筆を置く。

専門用語説明

- a) 脈動流れ、変動流れ：血液の流れのように、時間的に一定の流れ(定常流れ)に周期的に変化する流れ(これを変動流れと呼ぶ)が重なった流れを脈動流れと呼ぶ。
- b) 一界面未反応核モデル：気/固(一段)反応速度を記述する反応モデルで、通常は気孔率のあまり大きくない球形粒子の反応に適用される。反応途中では、内部(球形)が未反応で、外側の球殻は反応済みとなり、その境目はシャープな反応界面を形成すると仮定している。
- c) 脈動還元：脈動流れを酸化鉄ペレット等のガス還元反応に適用して反応を促進する。
- d) 化学反応律速、粒内拡散律速、混合律速：多孔質な固体と気体の反応系において、固体/気体間の化学反応(又は、粒内拡散)のみが全体の反応速度を律すると考えられる場合が化学反応律速(又は、粒内拡散律速)、両者ともに複合して全体の反応速度を律すると考えられる場合が混合律速と言う。ここで、粒内拡散とは、多孔質な固体の内部へ気体が拡散することを指す。
- e) ガス境膜内拡散、ガス境膜内物質移動係数：気/固反応において、バルクガス(ガス本体)から固体表面への拡散をガス境膜内拡散と言う。その拡散速度は、固体表面とバルクガスの濃度の差に比例し、その比例係数としてガス境膜内物質移動係数が定義される。
- f) 境界層理論：固体周りの粘性流体の流れを取り扱う際に、固体表面近傍では粘性の影響は大きい、ある距離(この厚さを境界層厚さと言う)離れると無視しうるので、ここには簡易な非粘性の流体力学方程式を用い、境界層厚さのところで、粘性流体と非粘性流体に対する流体力学方程式の解を繋ぎ合わせるという理論(2013年のノーベル化学賞受賞の化学システムの取り扱いも、この理論と発想が似ていて、興味深い)。
- g) 等体積球相当直径(d_p^*)：いびつな非球形粒子と同じ体積を持つ球の直径。
- h) 形状係数：球の場合が1であり、形状が球から遠のくほど小さくなる。定義は幾つかあるが、筆者の研究¹²⁾では、次式で定義されるLevaの形状係数 ϕ_L を用いた。

$$\phi_L = \frac{\text{(粒子と同じ体積を持つ球の表面積)}}{\text{(粒子の表面積)}}$$

参考文献

- 1) 近江宗一, 碓井建夫：鉄と鋼, 59 (1973), 1902.
- 2) 近江宗一, 碓井建夫：鉄と鋼, 59 (1973), 1888.
- 3) H.W.St.Clair : Trans. Met. Soc. AIME, 233 (1965), 1145.
- 4) 原行明, 土屋勝, 近藤真一：鉄と鋼, 55 (1969), 1297.
- 5) 高橋礼二郎, 八木順一郎, 大森康男：鉄と鋼, 57 (1971), 1596.
- 6) 近江宗一, 碓井建夫, 内藤誠章, 南出行信：鉄と鋼, 67 (1981), 1943.
- 7) T.Usui, M.Ohmi and I.Miyatake : Technology Reports of the Osaka University, 38 (1988) 1934, 229.
- 8) 近江宗一, 碓井建夫：鉄と鋼, 63 (1977), 1633.
- 9) 近江宗一, 碓井建夫, 松本義朗, 増山嘉一：鉄と鋼, 64 (1978), 1105.
- 10) N.Frössling : Gerl. Beitr. Geophys., 52 (1938), 170.
- 11) W.E.Ranz and W.R.Marshall : Chem. Eng. Prog., 48 (1952), 141; 173.
- 12) 碓井建夫, 近江宗一, 平嶋成晃, 北川伸和：鉄と鋼, 73 (1987), 1956.
- 13) 近江宗一, 碓井建夫, ほか：日本機械学会論文集, 41 (1975), 546; 2030; 2043; 2632; 3542.
- 14) 碓井建夫, 内藤誠章, 村山武昭, 森田善一郎：鉄と鋼, 80 (1994), 431.
- 15) 村山武昭, 碓井建夫, 内藤誠章, 小野陽一：鉄と鋼, 80 (1994), 493.
- 16) 内藤誠章, 村山武昭, 碓井建夫：鉄と鋼, 80 (1994), 581.
- 17) 碓井建夫, 中室泰浩, 西雅宏, 内藤誠章, 小野英樹, P.S.Assis : 材料とプロセス, 25 (2012), 603.

(2013年9月13日受付)