様　式　Ｃ－４１

科学研究費助成事業　研究成果報告書

令和　　２年　　７月　　10 日現在

機関番号：11301
研究種目：奨励研究
研究期間：2019
課題番号：　19H00276
研究課題名：多成分系酸化物の非平衡状態を活用する凝固プロセス制御

研究代表者
田代　公則（Tashiro, Masanori）
東北大学・多元物質科学研究所・技術一般職員

交付決定額（研究期間全体）（直接経費）：540,000 円

研究成果の概要：
三元系 CaO-Na_2O-SiO_2 の代表的組成である Na_2O-2CaO-3SiO_2(NC2S3)と 2Na_2O-CaO-3SiO_2 (N2CS3)ガラスを作成し、白金基板上での過冷却液体からの凝固過程の直接観察を行った。両組成ともに、近年の NMR 測定より SiO_4 四面体周囲のケイ素イオンの数に分布があり、安定相と準安定相が晶出することが予想されたが、安定相のみ結晶化した。また、最大過冷度は N2CS3 で 100 K 程度だったが、 NC2S3 では 320 K と大きく過冷した。

研究成果の学術的意義や社会的意義
近年、金属製錬スラグや火力発電プラントから排出される石炭灰などの酸化物系副生成物の資源化が切望される時代となり、金属だけでなく酸化物融体の凝固制御技術の確立が不可欠となった。
既存の熱力学のデータから導かれた状態図だけでは、多成分系酸化物の凝固の高精度予測は困難である。そこで、界面現象の影響を利用して核生成を制御するアプローチは、安定相と準安定相の晶出過程の解明に前進をもたらすであろうと考える。この過程の解明を足掛かりとして、非平衡状態で行われている金属製錬スラグ凝固組織制御技術を進展させ、実工業プロセスに応用させることを目指す。

研究分野：材料工学、化学工学およびその関連分野

キーワード：金属精錬、スラグ、凝固、過冷却温度

１．研究の目的

金属製錬プロセスで使用されるスラグは、CaO と SiO_2 を主成分とし、Na_2O などを含む多成分系であり、その凝固プロセスは複雑である。製錬後のスラグ凝固体は、肥料や路盤材などとして一部は資源化されているが、凝固体を構成する結晶相の種類や組織の制御技術が確立されていないため、用途が限定されている。本課題では、金属製錬スラグの基本組成からなる CaO-Na_2O-SiO_2 融体の冷却過程において晶出する結晶相の種類および凝固開始温度に及ぼすコンタクトマテリアルとの界面現象の影響について調査し、スラグ資源化さらには用途拡大のための結晶化挙動の制御を目的とする。

２．研究成果

所定の割合に混合した炭酸ナトリウムと炭酸カルシウム、二酸化ケイ素の粉末を白金るつぼに入れた後、電気炉で溶融し、Na_2O-2CaO-3SiO_2(NC2S3)と 2Na_2O-CaO-3SiO_2 (N2CS3)ガラスを作成した。このガラスを用いて、独自に開発した高温直接観察装置により、白金基板上での両組成の過冷却液体からの結晶化挙動と接触角の同時観察を、乾燥大気と Ar の雰囲気下で行った。試料の評価は、X 線回折による測定を行った。
NC2S3 と N2CS3 組成の融体中では、 SiO_4 四面体周囲のケイ素イオンの数に分布があり、ほぼ同様の局所構造を有するケイ素イオンが存在していることが知られている。本研究より、両組成とも雰囲気の違いで凝固した結晶相は変わらなかった。 また、N2CS3 の過冷度は 100 K 程度だったが、 NC2S3 の過冷度は最大で 320 K にまで達した。このことから液体の Si の局所構造は同様でも、粘性や Na と Ca カチオンの働きが過冷却温度に影響を与えていると考えられる。

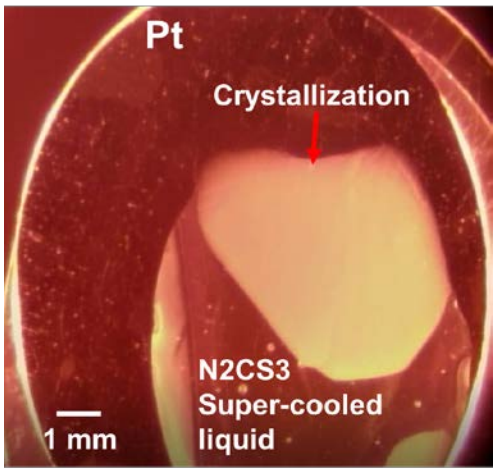

図 1 N2CS3 過冷却液体の結晶化の直接観察

３．主な発表論文等
〔雑誌論文〕（計　1　件）
Masanori Tashiro, Sohei Sukenaga, Sakiko Kawanishi, Yohei Sato, Yuji Takakuwa, and Hiroyuki Shibata, Experimental determination of solidified lithium disilicate crystal bandgap energy using EELS and XPS, Journal of the American Ceramic Society, 査読有, Volume 103, Issue 9, 2020, Pages 5139-5144, DOI:10.1111/jace.17221

〔学会発表〕（計　0　件）

〔図書〕（計　0　件）

〔産業財産権〕
○出願状況（計　0　件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

○取得状況（計　0　件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

４．研究組織

研究協力者
研究協力者氏名：柴田　浩幸、助永　壮平

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。