

金属を通して歴史を観る

34. 含Ti 砂鉄の「たたら製錬研究」の画期 —雀部論文・板谷論文そして久保論文—

新井 宏

元韓国国立慶尚大学招聘教授

1. はじめに

ヨーロッパにおける前近代鉄製錬技術の復元実験が始まったのは、1956年のドイツのジーガランドにおけるLa-Tene時代(BC500年頃)の自然通風直接製鉄竪炉である。以降1956年のベルギー人Sadzotの自然通風炉、1958年のイギリス人E.WynneおよびTylecoteの人工通風炉、同年のドイツ人J.Gillsの実験、考古学者チェコ人P.Pleinerらの実験、1961年のソ連の古代ルーシ時代(10~13世紀)の実験などが一斉に続いていた。

筆者は1977年、クルップ社との技術交流で、ドイツのジーゲン製鉄所を訪れた際に、ジーガランドの丘陵に作られた復元炉を見学し益々製鉄考古学に興味を抱いた。帰国後、中沢護人氏の名訳ベックの『鉄の歴史』を通読し、欧州の金属系学術誌で古代鉄製錬に関する論文を見つけては読んでいた。

それと同時に、その頃には専門誌『たたら研究』も20号(1973)を越えており常に多彩な論考がにぎわっていた。長谷川熊彦氏が12号(1965)にドイツのジーガランドの復元炉操業のことを載せているがその論考が『鉄と鋼』に載ったのは3年後の1968年である。当時、第一線の製鉄系研究者の解説も多くあり、後に川崎製鉄の副社長を勤めた村上英之助氏(いわゆる文系)が常連の執筆者として大活躍をしていた。

鉄鋼協会の社会鉄鋼工学部会に「前近代鉄の歴史フォーラム」ができて第1回公開講演会が開催されたのが1999年である。その頃から筆者も表に出て活動を始めた。それにしてもその時期、前近代製鉄に関して、専門学会を持ち研究活動をしている国は他には見当たらなかった。流石、粗鋼生産量の1位を占めていた日本の実力だと思った。

しかし、その頃から逆に、日本の研究がヨーロッパの研究とあまり拘わり合いを持たない傾向を見せはじめて

いた。その理由のひとつに、ヨーロッパの前近代製鉄の原料が、沼鉄、褐鉄鉱、菱鉄鉱、赤鉄鉱と非常に変化に富んではいたが、全てTiO₂を含まない原料ばかりなのでFeO-SiO₂二元系状態図ベースで済むのに対し、日本ではほとんどが砂鉄の世界でFeO-SiO₂-TiO₂の三元系ベースで対処しなければならない事情があったと思う。すなわち、日本にはもうヨーロッパに学ばなくても良いという雰囲気生まれていたのかも知れない。しかし本当に日本の研究水準が高ければ、三元系と二元系を統一する論文が生まれたはずであるが.....。

実は、その命題に対して、今回紹介する三論文がその回答を出したのである。そのことに筆者も若干関係していたこともあって、ぜひとも紹介したいと思いついた。

筆者は自らの知的生活の大部分を金属物理学と数理考古学の分野で過ごしたいわば「二刀流」である。したがって三論文の著者の業績を紹介するには、適切なキャリアの持ち主だと自惚れているのである。

2. 雀部論文³⁾「Fe₂SiO₄-TiO₂系酸化物の平衡状態図」

雀部論文が『鉄と鋼』に掲載された2005年、とても着想の良い論文だと思った。それは著者が金属工学科の教授なので先が読め、研究を手伝う学生達に実のある教育を実施できると思ったからである。先が読めるとの意味は、FeO-SiO₂系にTiO₂を少量添加すれば、必ず融点下がることを良く知っていたはずだからである。しかも当時、一般にはスラグにTiO₂が入ると高融点のTiO₂系酸化物が形成され、製錬が困難になるとの「通説」がかなり流布していた。

しかし「たたら製鉄」の文献史学では、近世の鉄の九割以上がTiO₂含有量の多い赤目砂鉄を利用し銚を造っていたことが良く知られており、一部研究者は通説に疑問を感じていた。

たまたま今回の三論文の結論とも関係するが、はたし

てTiO₂が「たたら製鉄」に有害との「通説」が生じたのは何故だったろうか。この機会にその根拠を調べて見ることにした。

しかし、各種の報告書に「通説」をしばしば見かけるが、論拠を示した論文がない。唯一、学問的にその根拠を紹介していたのが福田豊彦氏の論文「中世東国の鉄文化解明の前提」⁴⁾であり、「砂鉄はチタンを多く含み、これが鉄生産における歩留という経済問題と抵触することは、月の石分析にも携わった桂敬氏が理論的にも明確にされた」と述べていたことである。早速、その桂敬氏原論文「砂鉄製鉄の原理について」⁵⁾に当たってみた。

内容を見ると、Fe-Fe₂TiO₄-Fe₃O₄の三元状態図の説明から始まり、筆者が読んでなかなか手強い。ところが、結論は至って簡単なことであった。「チタンは鉄と反応し、ウルボスピネルとならなければならない。つまりチタンが多いと、それだけむだに鉄は消費され、製品鉄の量は少なくなる」とあったのである。

ウルボスピネルの化学式は2FeO・TiO₂である。要は磁鉄鉱 Fe₃O₄のFeの一部がTiに置き換わっているのがTiO₂を含む赤目砂鉄であるが、そのTiO₂はウルボスピネル(Fe₂TiO₄)までしか還元できないので、TiO₂を10%含む砂鉄で計算すれば、鉄の36%(ウルボスピネル分)がむだになるとの理屈になる。

しかし、これは砂鉄を固相還元する場合の話で、製錬滓の中で還元する場合は当然事情が異なる。1989年、下川義雄氏は『日本鉄鋼技術史』⁶⁾において、3頁にわたって桂敬氏説を紹介し、「極めて魅力的な理論」と述べながらも、「TiO₂の高い鉄滓は.....鉄と分離して出来たものではなく、砂鉄中のFe₃O₄がFeOSiO₂と結合、滓化熔融して生じたもので、鉄は出来ず単に滓に過ぎない.....従ってこの理論は古代製鉄.....には適用できない」と述べている。

筆者は、「通説」の始まりは戦前の1935年頃から日本では鉄源が逼迫して、砂鉄を利用して高炉銑をつくる研究をすすめていたが、結局、電炉銑としての生産に終わったことが影響していると思っている。高炉では高温と高還元

性で安定酸化物のTiO₂までが還元され、極めて粘性の強いTiNやTiCが生成され炉壁に固着し棚吊現象を起こす等の欠陥があったからである。

さて、雀部論文の結論はTiO₂の添加が製錬滓の融点を反って下げることがを示している。製錬は固相反応のようにのんびりした反応ではなく、スラグの流動性が反応速度を制するので、TiO₂含有の滓が比較的に低融点で流動性も高いことが、その他の欠点を補い、高TiO₂砂鉄が有利な原料ともなり得ることを示したのである。

雀部論文の2FeOSiO₂-TiO₂の状態図は現在でもしばしば引用されている。たたら製鉄の研究には不可欠なのは、含TiO₂のスラグの流動性が、時によってはFeO-SiO₂系よりも優れていることを示しているからなのである。

その点で、筆者がこの論文を非常に高く評価するのは、その状態図の左側の基準を2FeOSiO₂と定めたことである。なぜか、FeO-SiO₂系のスラグは前近代製鉄の宿命であるが、そのFeO-SiO₂系にあっても2FeOSiO₂(Fayalite Fe₂SiO₄)は、もうこれ以上SiO₂を増やせば、超高融点のCristobalite(SiO₂)が生じて操業が続けられなくなる組成なのである。

それならSiO₂の代わりに嫌われ者のTiO₂を増やしたらどうなるか。その回答が図1の雀部状態図Fe₂SiO₄-TiO₂なのである。図1にはFe₂SiO₄-SiO₂(FeO-SiO₂)の状態図から①②③の液相線の部分を追記した。

Fe₂SiO₄-SiO₂系の液相線①②③がFe₂SiO₄-TiO₂系の液相線④⑤よりも大幅に高融点であることを示してい

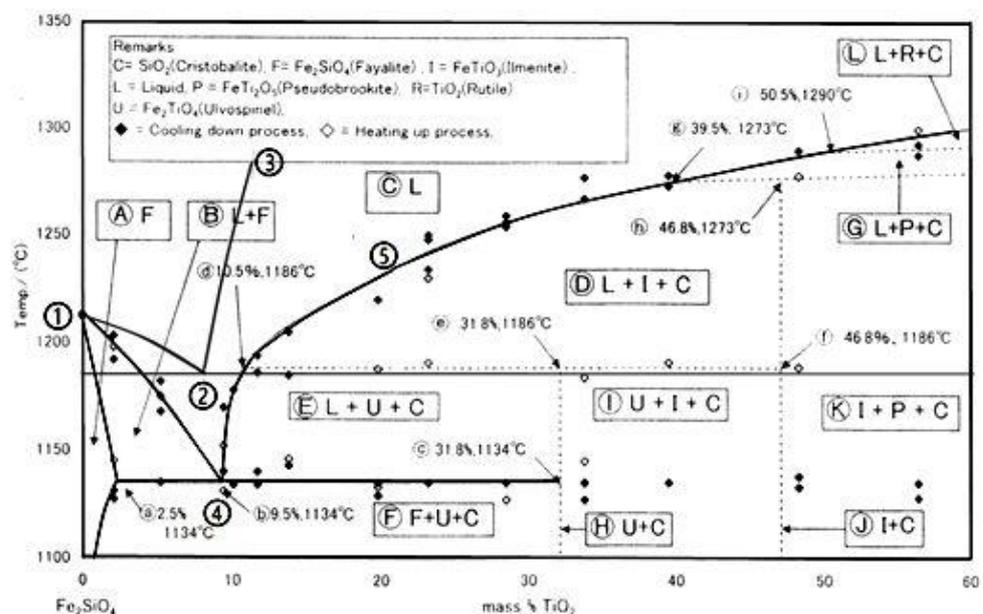


図1 雀部論文状態図にFe₂SiO₄-SiO₂の液相線(①②③)追記

る。それだけ $\text{Fe}_2\text{SiO}_4\text{-TiO}_2$ 系が有利だということである。雀部論文だけを見ているとそのことに気付かなかった方もいるであろう。そこが雀部論文の奥ゆかしさなのであるが、金属系の研究者なら判っても、たたら遺跡の調査に携わる多くの考古学系の研究者には判りにくかったかも知れない。しかし、この雀部論文の存在によって「通説」から自由になれた方も多いと思う。

雀部実氏は昨年 2022 年 6 月ご逝去された。

3. 板谷論文 7)「Phase Diagram of $\text{FeO-TiO}_2\text{-SiO}_2\text{-5\%Slag}$ 」

英文の板谷論文ではまず 1995 年に Slag Atlas に載った $\text{FeO-TiO}_2\text{-SiO}_2$ の三元状態図⁸⁾に日本の製鉄遺跡で発掘された低 TiO_2 、中 TiO_2 、高 TiO_2 の製錬滓の例を図 2 として載せているが、高 TiO_2 で FeO が低目の場合は、状態図上で融点が 1500°C を越えている場合もかなりある。日本の考古学資料を活用しているとあるが、おそらく後述の福島県横大道遺跡のデータであろう。

古代製鉄では製錬温度が 1500°C をこえることはあり得ないので、使った Slag Atlas の三元状態図が純粋な三元系で Al_2O_3 、 CaO 、 MgO 、 K_2O 、 Na_2O などの脈石成分が考慮されていないことなどに原因はあるだろう。

そのため板谷論文では改良三元系として Al_2O_3 を一律 5% 加えた小ルツボ(内径 9mm、高さ 25mm)溶解により

33 種の成分のサンプルを作り、X 線回折や EPMA の組織観察を併用して示差熱分析により共晶点と融点を測定している。共晶点は鉱物組成を U(ウルボスピネル Fe_2TiO_4)、W(ウスタイト FeO)、F(ファヤライト Fe_2SiO_4)、I(イルメライト FeTiO_3)、C(クリストロバイト SiO_2)、Ps(シュードブルッカイト Fe_2TiO_5) と略記すると、U-W-F、U-F-C、I-U-C、P-I-C の 4 点である。

図 3 には図 2 の三元状態図に 5%Al を添加した 33 件のサンプル溶解の分析値を載せている。図 3 の右辺側が示されていないのは、5%Al を除いた 95%の状態図だからであるが、この工夫により、33 件のデータは、図 2 の遺跡出土データと比較して左側にシフトし、融点の食い違いが大幅に減少している。しかし例えば $\text{TiO}_2=37.5\%$ 、 $\text{SiO}_2=23.8\%$ のサンプル(A5)の図 3 上の融点はまだ 1500°C 付近にある。融点の実測値は $1214\sim 1217^\circ\text{C}$ とあるのでまだ違いがある。

もちろん板谷論文でも、5%Al の補正の他に、 $\text{CaO}+\text{MgO}$ などによる誤差問題を指摘している。そのため板谷論文では、 $\text{FeO-TiO}_2\text{-SiO}_2$ 状態図融点の等高線の位置をシフトする方法を併用して図 4 を作っている。遺跡出土の製錬スラグの調査の利便を考えたアイデアとして高く評価する。しかし図 4 の状態図 FeO の値の代わりに図 5 のように $\text{FeO}+\text{CaO}+\text{MgO}$ を用いる方法も一考に値するだろう。

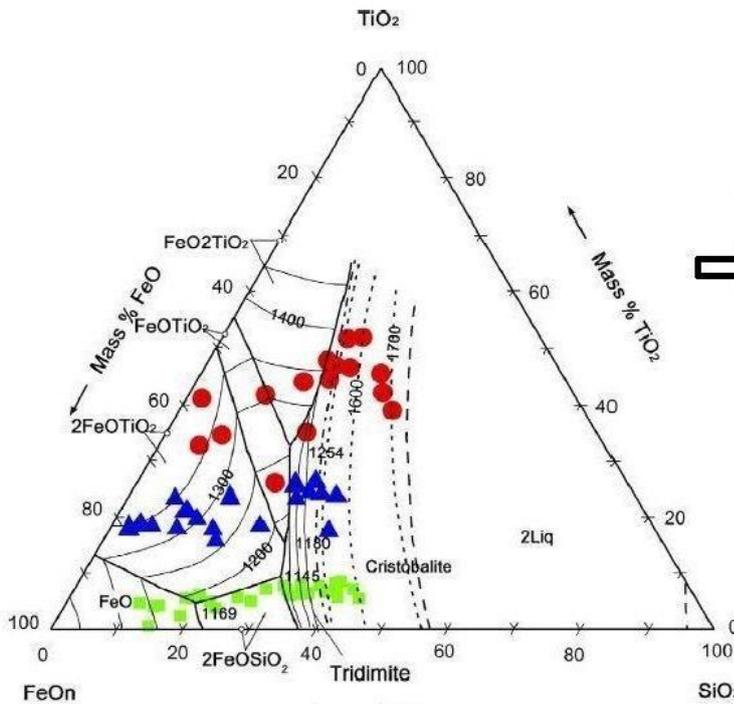


図 2 $\text{FeO}_n\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ 図上の遺跡出土鉄滓成分例 (原論文 Fig. 1)

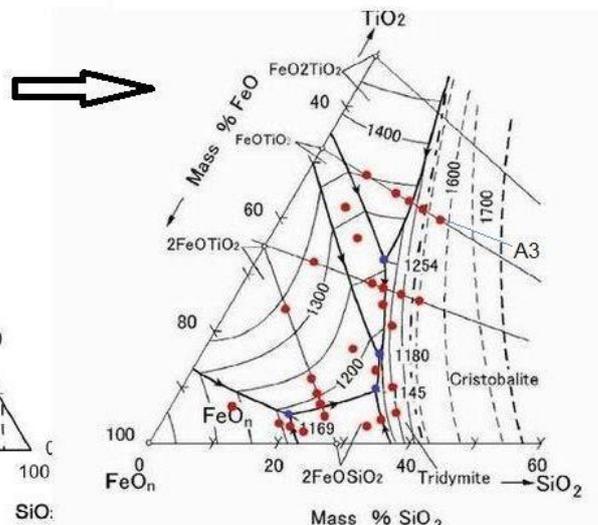


図 3 $\text{FeO}_n\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2$ 図上の試験溶解の成分(原論文 Fig. 2)

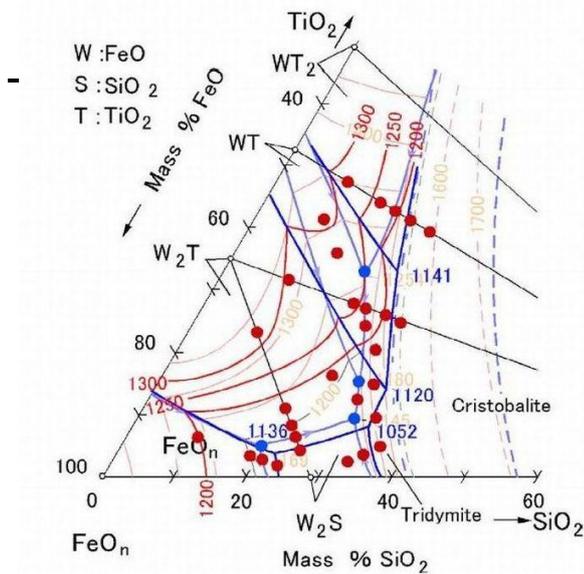


図4 板谷論文の $\text{FeO}_n\text{-SiO}_2\text{-TiO}_2\text{-5\%Al}$ 状態図

それは FeO 、 CaO 、 MgO はいずれも塩基性スラグで、 CaO 、 MgO が増えれば FeO が減少する関係にあるからである。日本国内ばかりでなく、欧州の製錬スラグなどと比較する場合、 $\text{CaO}+\text{MgO}$ が 10% 近くなる場合もあるから、このような補正は有効な方式となるであろう。以下、 $\text{CaO}+\text{MgO}$ を脈石と呼称する。

実は、図5は板谷氏らが、その後の論文⁹⁾で図4を改変して用いているものである。図5にプロットしたデータは筆者の私設ホームページのデータベース編²⁾に収集した日欧合計約600件の遺跡出土製錬滓の分析値を TiO_2 の値を 5% 巾に区分してそれぞれの平均値を採った表1による。

板谷論文に示された共晶点を結ぶラインに日本の遺跡データ(●)もヨーロッパの遺跡データ(◎)も実に良く載っているのである。いずれのデータも、時代、地域、原料、炉形式がバラバラであるがその平均値を採ると板谷

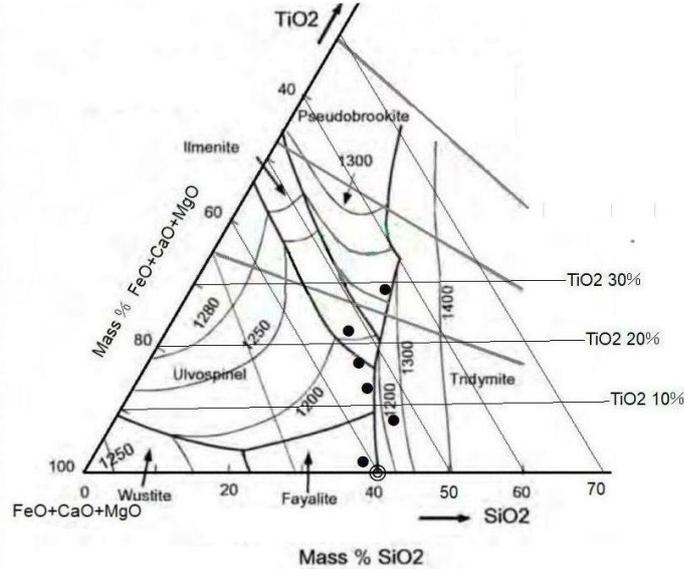


図5 修正板谷状態図に表1の遺跡製錬滓を記入

論文に一致しているのは、板谷論文の有効性を示すと同時に、雑多の製錬滓の統計であっても、有効な解析が可能なことを示している。

板谷論文の成果を活用した論文には、既に板谷氏自身の論文「製錬技術の視点から見た横大道・館越遺跡の操業技術」⁹⁾や門脇秀典氏の「鉄滓の山から読みとく歴史」¹⁰⁾があるが、いずれも状態図上で遺跡データを解析しており、かつてのヨーロッパの論文に比肩できる出色の論文となっている。なお、遺跡データの整理にあたり、数多く状態図が表示されているが、論文著者による「白・三元状態図」を公開して利用者の便をはかると良いと思う。

過去の日本における製錬滓を状態図上で示した論文を調べてみると、意外に少ない。板谷論文以前には、実用できる $\text{FeO-SiO}_2\text{-TiO}_2$ がなかったのであるから当然ではあるとしても、1989年に清水欣吾氏らが発表した『大成

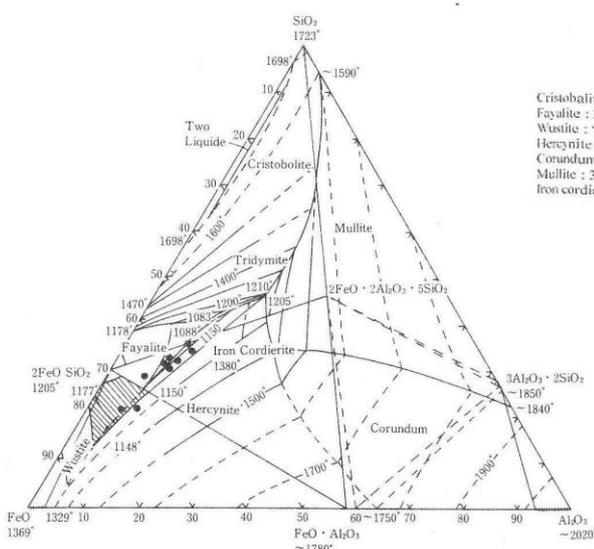


図6 清水欣吾氏らの1989年「大成遺跡」¹¹⁾

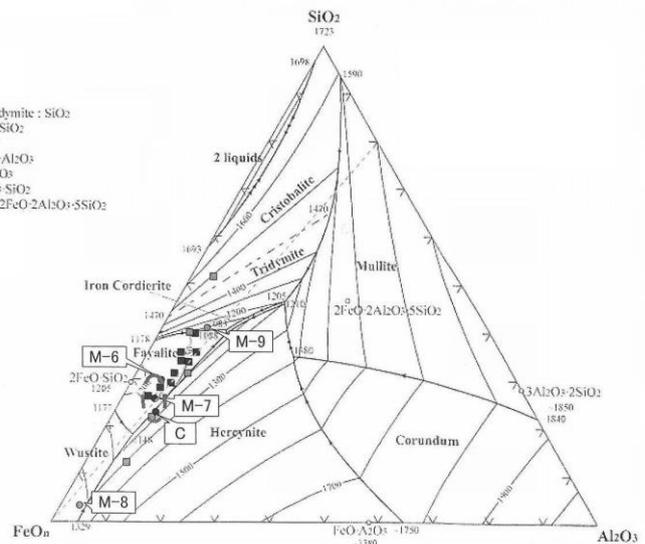


図7 鈴木瑞穂氏らの2013年「スーダン国メロエ遺跡」¹²⁾

遺跡』¹¹⁾の後には2013年の鈴木瑞穂氏らのスーダン共和国メロエ遺跡の例¹³⁾まで24年間もめばしい例を見ないのである。いずれもFeO-SiO₂-Al₂O₃状態図の例であるが、共晶線との関係が綺麗に示されているので図6、図7で紹介する。「はじめに」で日本の研究がヨーロッパの研究と疎遠になってきていたことを述べたが、このような事例のひとつなので紹介した。

4. 久保論文¹³⁾「たたら製鉄の銑生成に及ぼす砂鉄TiO₂の影響」

現代の刀匠、久保善博氏が「令和の名刀・名工展」(令和4年8月)で、作刀の部の大賞に輝いた。各部門合わせて70名ほどの応募者の内、実質第一席の荣誉であった。この名刀・名工展が、次代の人間国宝(重要無形文化財保持者)を選定する試みでもあったので、いわば人間国宝にノミネートされたわけである。

筆者は昭和24年疎開先の新潟県長岡から帰京し、中学生になった頃から、神保町の古本屋や銀座の刀剣店をしげしげ訪れていた。それが私にとっての「東京」であり、「青春」であった。子供心にも「名刀」にあこがれ、その後、金属への道に進んでからは、ずっと趣味のようにしていたので久保善博氏の受賞をとっても喜んだ。しかし、本稿は「名刀」の話ではない。

その久保善博氏が、10年以上温めていた論文「たたら製鉄の銑生成に及ぼす砂鉄TiO₂の影響」¹³⁾が遂に今年1月号の『鉄と鋼』に掲載されたのである。

最初の実験報告¹⁴⁾(『たたら研究』50号2010年)から10年以上も経ってやっと『鉄と鋼』に掲載されることになったのには事情がある。それは最初の実験結果について、周辺から多くの疑問点が指摘されていたからだとい

う。その回答を兼ねて、久保氏は2013年に奈良で開催された金属の歴史に関する国際会議(BUMA4)に、修正論文を発表した。しかし「TiO₂がズク生成に関与している」という結論が認められず、論文を取り下げざるを得なかった。

そのため久保氏は更に2014年の鉄鋼協会「鉄の技術と歴史」研究フォーラムに「C3%以上のズクを安定して流し取るためにはなぜTiO₂が必要か」¹⁵⁾および2018年の同フォーラム「ズク押したたたらにおける砂鉄の酸化焙焼効果について」¹⁶⁾で追加検討を行い、その間にも2017年『たたら研究』56号に「クスリコガネの具備する性質について」¹⁷⁾を発表、やっとのことで2020年1月に『鉄と鋼』に投稿したのである。

しかし第一次の査読で、論文のTable 4の内容について、再び疑義が指摘され再検討含みで却下されてしまった。久保氏はこの査読に対して誤解があるとの視点で逐一反論をしたが、大きな進展がなく不受理との判定結果は覆らなかった。

編集委員の中には「専門家を共著者として再投稿」を薦める見解もあったと言うが、論文の基本に拘わる問題だけに久保氏は暫く動けなかった。

筆者は2014年の久保氏の「鉄の技術と歴史」研究フォーラムの発表¹⁵⁾を聞いており、高く評価して同席者にその感想を話した記憶があるが、それが久保氏に伝わっていたらしい。2022年3月になって、突然「自分の能力だけでは限界があるのでアドバイスしてほしい」とのメールを投稿論文と査読結果とともに郵送してきた。

論文の基本問題でもあるので、久保論文中のTable 4の内容に筆者の補足を加えた表2を作成して示す。表2にセルを灰色にした部分が筆者の補足部分であるが、まず各実験についてFe₂O₃/FeOを計算して示し、その上で、銑が生じたI III V VIIのグループと鉬が生じたII IV VI

表2 久保論文Table 4 (銑鉬およびスラグの化学成分)に灰色部を追記

実験No.	砂鉄	銑鉬 C(%)	スラグ組成(%)								Fe ₂ O ₃ /FeO	晶出物
			TiO ₂	T.Fe	M.Fe	FeO	Fe ₂ O ₃	SiO ₂	Al ₂ O ₃			
I	①	銑 2.89	25.89	18.72	0.68	13.66	10.61	27.94	7.45	0.78	I Ps	
II	②	鉬 1.17	8.67	30.02	0.67	37.54	0.24	30.20	9.58	0.01	U	
III	③	銑 3.11	29.08	19.84	2.45	19.59	3.10	21.48	8.96	0.16	I U	
IV	④	鉬 1.14	12.84	36.08	0.66	45.05	0.60	25.57	6.31	0.01	U F	
V	⑤	銑 3.00	27.01	20.82	3.01	20.76	2.40	22.91	8.88	0.12	I U	
VI	⑥	鉬 0.97	9.16	37.01	0.56	45.82	1.22	31.69	3.25	0.03	U F	
VII	⑦	銑 3.49	26.63	17.97	1.10	12.83	10.42	29.71	3.07	0.81	I Ps	
VIII	⑧	鉬 1.33	13.31	37.15	0.58	45.04	1.56	25.21	4.64	0.03	U F	
I III V VII	①③⑤⑦	銑 3.12	27.15	19.34	1.81	16.71	6.63	25.51	7.09	0.40	I Ps U	
II IV VI VIII	②④⑥⑧	鉬 1.15	11.00	35.07	0.62	43.36	0.91	28.17	5.95	0.02	U F	

I: ilmenite FeOTiO₂

Ps: Pseudbrookite Fe₂O₃TiO₂

U: ulvospinel 2FeOTiO₂

F: fayalite 2FeOSiO₂

VIIIのグループに分けて、スラグ組成の平均値を示した。

査読者の指摘は、Table 4において銑を生じた TiO₂の高いスラグのグループと鉬を生じた TiO₂の低いグループの間にはFe₂O₃/FeOの値に平均で20倍もの大差があり、銑を生じたグループではFe₂O₃が異常に高いということである。スラグ中のFe₂O₃/FeO比が高いことは、常識的にはスラグの酸化性が高いことを意味するのに、そのグループの方がより多く還元された銑が生じているのはおかしいというのが査読者の指摘であった。論文であるかぎり、少なくともその理由を提示すべきではないかというのが主旨であったのだろう。

この論理は高校生でも直ぐに判るレベルであり、それだけに編集委員会でも「合理的な理由」を提示することを要求することになったと思われる。

筆者はその理由について論文を一読して想定できた。あるいは査読者も理由がある程度承知していたのかも知れない。

スラグ組成について酸化還元などを検討する場合には、擬似的にスラグと生成鉄が平衡状態にあると仮定することはしばしばある。しかし、反応系の中心にあるスラグが平衡に達しているわけがない。その証拠はFe₂O₃が最も多く存在するスラグに、かえって金属Feが最も多く存在していることでも判る。もしFe₂O₃と金属Feが多量に共存していれば、平衡状態では相殺されてしまうはずではないか。これを査読者は「定常状態」と「平衡状態」の差を問題として投げかけたのかも知れない。

「平衡状態」を仮定して、熱力学的な検討を行う場合には、便宜的にFe₂O₃や金属鉄(M.Fe)の存在を無視してFeOの活量を使うはずである。スラグ組成が時間経過で変化しないのは「平衡状態」なのではなく「定常状態」だからなのである。しかし、FeOの活量を計算するのに必要な資料が手元にはすぐ揃わなかった。

そこで、久保善博氏にメールで示唆したのは、次の三点である。

- ① Fe₂O₃の存在が10%を越える異常な実験はNo. IとNo.VIIのみである。そのいずれにも晶出物に大

量のPs(Pseudobrookite)を認め、その他にはない。Psは化学式表示で通常Ferri-Ps(Fe₂O₃·TiO₂)とFerro-Ps(FeO·2TiO₂)の全率固溶体とされており、分析表に示されているFe₂O₃はFe₂O₃·TiO₂として固定され反応系に寄与していないのではないかと。

- ② そもそもFe₂O₃を多く含んでいるスラグの方が、スラグ中に金属Feを多く含むのは、スラグが「平衡状態」とは異なる「定常状態」にある証拠である。
- ③ スラグの酸化還元力を熱力学的に評価するにはFeOの活量によるのが金属学の常識である。これらの議論を経ずに、いきなりFe₂O₃/FeOの比をもって、ズク操業の酸化還元度を評価するのは、鉄鋼協会の査読に疑義を生ずる怖れがある。

久保氏は筆者の示唆を受けて、早速、審査委員会にかなりストレートに意見を伝えたという。その一方で、筆者はいずれにしても今後査読者との議論があるかと思いい準備をはじめていた。

ところが、その半月後の4月初旬の編集委員会からの返信は、再投稿であれば、受け付けるとの返信で、受理する意向があるように思えた。

査読審査はほぼ予想通りに進み、筆者としてはそれ以上かかわる必要はあまりなかった。

しかし、もし何か問題が生じたら、筆者にも責任がある。そのため、熱力学的な検討については、あり合わせの資料ではあるが、雰囲気、スラグ、そしてC量などについて計算してみた。酸化還元性の指標としては酸素分圧P_{O2}を用いたが、FeOの活量を基に計算した結果では、銑押し操業の場合、4.7×10⁻¹⁴、鉬押しの場合、1.4×10⁻¹³であり、銑や鉬のC量からの計算では銑押し操業で2.6×10⁻¹⁷、鉬押し操業では1.0×10⁻¹⁵であった。その要約を表3に示すが、スラグ中のFeOの活量は、雰囲気、C量などと全て整合的であった。

これで理論的な対応の準備ができたが、もう一点検討してみたのが、筆者の私設ホームページに600件ほど取

表3 酸素分圧の計算結果

	実験番号	スラグ[FeO]と酸素分圧						銑鉬Cと酸素分圧		
		(FeO)	[FeO]	P _{O2}	(FeOx)	[FeO]	P _{O2}	C %	[C]	P _{O2}
銑押し操業平均	I III V VII	24.0	0.09	2.8×10 ⁻¹⁴	30.7	0.11	4.7×10 ⁻¹⁴	3.12	0.24	2.6×10 ⁻¹⁷
銑押しA	III V	19.1	0.08	2.2×10 ⁻¹⁴	29.9	0.11	4.1×10 ⁻¹⁴			
銑押しB	I VII	28.7	0.10	3.5×10 ⁻¹⁴	31.3	0.12	5.0×10 ⁻¹⁴			
鉬押し操業平均	II IV VI VIII	52.7	0.28	2.7×10 ⁻¹³	42.8	0.20	1.4×10 ⁻¹³	1.15	0.04	1.0×10 ⁻¹⁵

集してある製錬滓²⁾についての解析である。既に板谷論文の項に図5として紹介したが、共晶点を繋いだ線と遺跡組成平均値がほぼ一致したのである。

すなわち共晶線を理論的な製錬滓組成とすれば、図5によるTiO₂とFeO+脈石(CaO+MgO)の関係は次のように整理される。

TiO ₂	SiO ₂	FeO+脈石	FeO
0%	40%	60%	54%
10%	34%	56%	50%
20%	31%	49%	43%
30%	27%	43%	37%
40%	21%	39%	33%

久保論文が永年にわたって主張してきた高TiO₂スラグ系ではFeOが少なくなり、逆に低TiO₂系スラグで多くなるとの結論が、ここでも検証されたわけである。

そもそも前近代製鉄は、宿命的にFeO-SiO₂系のスラグを使わなければならなかった。その中でスラグの融点を下げ、流動性を維持するためには、スラグ中のFeOを増やさなければならぬ。しかしスラグ中のFeOを増やせば、製品としてのFeがその分減少して不採算になる。15世紀の英国の製鉄産業の中心地Weald地方で初期高炉が建設され始めた頃のBloomery(塊鉄炉)と初期高炉のスラグの成分(%)を見ると次のようになっている¹⁸⁾。

	FeO	Fe ₂ O ₃	SiO ₂	Al ₂ O ₃	CaO	MgO
Bloomery	52.0	10.0	25.2	8.7	0.6	0.2
Blast Furnace	1.7	0.3	49.6	17.5	18.9	5.1
現代高炉	0.6		33.0	17.0	40.0	7.0

このように初期の高炉でさえ、スラグ中のFeOを2%まで下げている。いわばスラグ中のFeOを下げて安定操業することが製鉄炉の技術的な目標なのである。

その意味で、TiO₂の含有はFeOを下げて安定操業を可能にしていたわけである。しかし久保論文の前には「TiO₂」がむしろ有害と認識されていたようで、実験的に証明することも過去の操業遺跡で論証することも、行われていなかった。

もうひとつ、大分古いデータであるが、TiO₂の多い鉄滓の場合、TiO₂が13%を越すとスラグ中のFe₂O₃が急増する資料を見つけた。丸山益輝氏の「鉄滓によるたたら炉内反応の解析」『たたら研究』22号¹⁹⁾である。データは1969年に鉄鋼協会の手で実施された「たたら復元実験」²⁰⁾の一連の操業記録・表5-9 鉄滓分析値のNo.1~No.97からNo.1~No.32を抜き出したものであるが、復元実験の報告にも丸山氏の論考にもFe₂O₃とTiO₂の関係のことは一言もふれられていない。第一、原データにはT.Fe(全Fe)とFeOの値しかなくFe₂O₃の数値は載っていない。これは当時鉄滓の分析には鉄鉱石の分析法が準用されたため、Fe₂O₃の分析は、T.FeからFeOのFe分を差し引きそのFe分に相当するFe₂O₃を計算で求める方式であったからである。丸山論文の表にFe₂O₃の値を計算して追加し、作成したのが表4である。

この他、「たたら復元操業」のNo.33~No.97のデータを加えて、図8にTiO₂とFe₂O₃/FeOの関係を整理して示す。TiO₂が13%を越えるとFe₂O₃/FeOの値が急激に増大している状況が判

表4 鉄鋼協会「たたら復元実験」の記録より(Fe₂O₃は計算値)

No.	T.Fe	FeO	Fe ₂ O ₃	SiO ₂	Al ₂ O ₃	TiO ₂	Fe ₂ O ₃ /FeO	No.	T.Fe	FeO	Fe ₂ O ₃	SiO ₂	Al ₂ O ₃	TiO ₂	Fe ₂ O ₃ /FeO
1	39.52	46.79	4.99	25.04	5.62	10.41	0.107	17	35.19	38.01	8.47	26.82	6.30	14.21	0.223
2	38.19	44.62	5.48	27.32	6.63	10.58	0.123	18	39.10	45.84	5.44	25.60	5.44	13.06	0.119
3	40.46	47.71	5.32	26.08	6.31	11.66	0.112	19	37.56	43.74	5.55	27.84	6.15	12.08	0.127
4	33.65	39.23	4.92	31.74	7.48	12.11	0.125	20	37.14	43.83	4.85	27.88	2.08	10.20	0.111
5	35.88	41.48	5.63	27.20	6.68	12.00	0.136	21	39.65	47.42	4.48	25.68	2.06	10.65	0.095
6	31.42	34.56	6.88	29.60	7.60	13.05	0.199	22	37.35	44.48	4.43	27.00	2.40	10.80	0.100
7	36.30	42.97	4.59	26.98	6.84	12.01	0.107	23	41.75	48.14	6.69	22.36	2.30	11.49	0.139
8	31.63	32.91	8.99	31.12	7.74	12.98	0.273	24	41.75	50.58	4.01	24.12	2.32	9.87	0.079
9	38.19	45.34	4.69	25.38	6.39	13.14	0.103	25	45.52	54.82	4.73	22.44	1.78	8.63	0.086
10	30.93	30.75	10.37	30.78	7.98	14.76	0.337	26	46.87	55.90	5.47	21.38	1.62	8.41	0.098
11	37.84	39.09	11.07	26.38	5.84	13.27	0.283	27	47.75	56.98	5.54	19.80	1.70	8.49	0.097
12	34.14	31.69	13.92	29.88	7.18	13.37	0.439	28	42.68	50.67	5.24	23.96	2.70	8.76	0.103
13	36.37	32.55	16.17	27.20	6.24	14.67	0.497	29	46.99	55.97	5.57	20.36	1.77	8.87	0.099
14	31.49	30.18	11.80	31.70	7.68	13.68	0.391	30	40.07	48.79	3.58	25.64	2.51	9.34	0.073
15	39.10	40.88	10.90	25.40	6.17	13.34	0.267	31	46.71	55.68	5.48	22.30	1.59	7.99	0.099
16	32.88	27.88	16.32	30.50	7.28	13.12	0.585	32	42.87	52.31	3.70	24.98	1.83	9.24	0.071

る。

これは久保論文の表 2 が示すように、鉄滓中に TiO_2

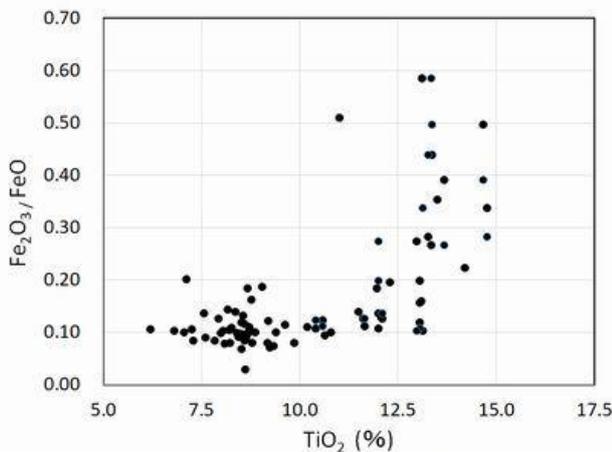


図8 鉄鋼協会「たたら復元実験」記録より

が一定量以上存在すると、分析上 Fe_2O_3 が異常に増大することが、決して久保論文のみの現象ではないことを示している。

これらのデータにより、第一次査読者の久保実験に対する「疑問」は解けたと思うが、なぜそのようなことが生ずるかの原因については、 $\text{Ferri-Ps}(\text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot \text{TiO}_2)$ の融点が高く初晶であり、鉄滓に非平衡(半熔融)で存在する砂鉄成分(Fe_2O_3)を拾いながら晶出するからだと考えている。

すなわち、初晶が $\text{Ps}(\text{Pseudobrookite})$ であるか $\text{U}(\text{Ulvospinel})$ であるかに大きな影響を与えるのは TiO_2 比率とともに、鉄滓中に存在する半熔融・非平衡の砂鉄(Fe_2O_3)の量であると考えられる。

久保論文が極めてユニークなのは、現代の刀匠として、自ら使用する素材鉄の製作を通して、この重要な事実を久保氏自身が紹介したことである。だからその業績は「たたら製錬研究」の画期と賞讃しても良いと思う。現代社会では、生産過程での研究開発を通じて、発展することは当たり前であるが、過去のいわば考古学的な研究のために、刀匠が製錬技術まで改善した例は皆無だと思ふ。

だからこそ、久保論文を大きく評価したいのである。

5. おわりに

「はじめに」でヨーロッパと日本の鉄滓研究が近年乖離してきているのではないかと述べた。それは日本における「たたら研究」がともすれば文献史学と金属考古学で乖離してきている流れにも見られると思う。「おわりに」にあたり、いくつか私見を述べたい。

5-1 三論文の成果に見られた研究体制の不調和

実は、久保論文の最も重要な部分は本報の表 2 に示した原論文 Table 4 の実験結果であり、その内容は、既に『たたら研究』第 50 号(2010 年)¹⁴⁾に報告されていたものである。しかし、その結論を数多くの傍証をつけて 2020 年に『鉄と鋼』に投稿したが、「不採用」となった経過については既に述べた。

一言で言えば、おそらく「 TiO_2 有害」という根強い「通説」がその背景にあったと思われる。文献史研究者の間では、赤目砂鉄がズク押しに有利なことは「定説」であった²⁴⁾が、理系の研究者が「異論」を持っていたという構造のように思える。

しかし、今回紹介した理系の三論文によって、このような研究面の乖離は解決されるであろう。そしてヨーロッパの研究と独立した道を歩みはじめていた日本の研究も再びより密接な関連を持つであろう。

その象徴的な意味で、日本においても板谷論文の Al_2O_3 添加の $\text{FeO-TiO}_2\text{-SiO}_2$ 図が考古学における標準的な表現手段となることを望みたい。

5-2 ヨーロッパで 15 世紀までズク押しがなかったか

英語では銑(ズク)のことを **Pig Iron** と卑語で表現すると聞いていた。ヨーロッパでは高炉法が導入されるまで銑(ズク)が出来ても利用しなかったとも聞いた。はたしてヨーロッパでは本当に銑をつくらなかったのであろうか。

調べて見ると **Pig Iron** の語源は「鑄鉄を小型の枠に流し込む様子が子ブタに乳を与える母豚に似ていたことに由来する」とあり銑を流し取るようになってから生まれた言葉のようである。

銑(ズク)を生成する反応は熔融しているスラグと熔融しているズクが反応する液体と液体の反応である。液体のスラグと固体の鉬(ケラ)の間の反応に較べれば、速度論的に大きな利点がある。その有利さを導入できなかったヨーロッパでは、望んでも銑押し操業ができなかったのではなかろうか。

久保氏は「どうしても真砂砂鉄ではズクを流せなかった」と述べている。しかし、文献史学では、真砂砂鉄を使っても、半分以上はズク押しをしていたというのが常識である。久保氏の結論は小規模の個人たたらによる操炉の限界があったためで、江戸末期の企業たたらでは大きな障害にならなかったのではなかろうか。また江戸時代の真砂砂鉄の場合、磁力選鉱はできなかったため、現在の感覚よりも倍以上 TiO_2 が多かったため、その所為もあるかも知れない。

しかし、久保氏が「どうしても真砂砂鉄ではズクを流せなかった」と懐述していることを「ヨーロッパの原料ではどうしてもズク押しができなかった」と読み替えた

いのである。

ベックの『鉄の歴史』によれば、レン炉(低シャフト炉)でルッペやブルーム(錳)をつくる直接製鉄法から間接製鉄法に移行するのは高炉が普及する 15 世紀頃である。その頃、シュタイエンマルクでは、レン炉と高炉の間、すなわち鋳押しと銑押しの中間的な Stuckofen 炉が作られていた。有名なノリクムに近いこの地では高品質な鉄に対する要求が強く、一気に効率の良い銑押しに進んだわけではないが、同じ炉を用いて銑も鋳も作れる時代が始まった。逆に言えば、15 世紀までは、レン炉で銑が出来ても歓迎されなかったのは事実のようである。かくして、久保氏の叫び声は「ヨーロッパには TiO_2 の含まれる製鉄原料がなかったから銑押しが遅れた」ということを意味していると思う。ここにヨーロッパの製鉄史における大きな疑問「なぜヨーロッパでは銑押しが遅れたか」が解決できそうなのである。そして何時の日にかインドとかアフリカから砂鉄による銑押し遺跡が出現することも期待したい。

5-3 弥生時代には日本で製鉄はおこなわれていなかったか

日本では弥生中期(紀元前 2~3 世紀頃)には既に鉄を知っていた。しかし古墳時代中期(5~6 世紀頃)まで確実な製鉄炉跡は見つかっていないとも言う。

筆者は 30 年も前から、弥生人は鉄の存在を知りながら、なぜ 800 年間も鉄を作らなかったか、その理由を明かすのが歴史学の責任だと唱えていた。あるいは、永い伝統を持つアフリカの製鉄がヨーロッパからの安価な鉄くずの流入により一気に廃れてしまったようなことが起こっていたのではないか。ヨーロッパでも、製鉄炉としても鍛冶炉としても使えるボール炉の歴史をもっている。江戸末期には「野たたら」で少量の鉄をつくり、村の鍛冶屋に持参して、農機具の補修を行っていたとも聞く。そんな視点での研究も始まっている。事実を検証するまでは慎重な態度を採る考古学系や理系研究者も、そんな視点で遺物や遺跡を求めて貰いたい。

なお、最後になるが、今回紹介した「三論文」はいずれも鉄鋼協会の『鉄と鋼』に載った立派な論文である。格式高い論文ではあるが、古代製鉄に興味を持つ者の大部分が、読む機会のない論文誌なのである。かく言う筆者は鉄鋼協会会員として既に 60 年以上在籍しているが、今は『鉄と鋼』を購読していない。鉄鋼協会の「鉄の技術と歴史」研究フォーラムに参加している鉄鋼協会会員の中でも、『鉄と鋼』を購読している者はごく少数なのである。

本稿は当初投稿先に『たたら研究』を選ぶ予定であったが途中で気が変わった。

本稿を収録した『金属を通して歴史を観る』は、いわば金属の歴史をエッセイ風にアレンジしたシリーズなので、今では筆者のホームページに載せてある。

インターネットで金属について質問すると、この『金属を通して歴史を観る』のシリーズにヒットすることが多らしく、しばしば記事に関する質問を受ける。今回の論文紹介もあるいは、こんな気楽な記事の方が良いかもしれないと感じている。

注

- 1) 長谷川熊彦「欧州における古代直接製鉄の復元操業実験」『鉄と鋼』54 巻(1968)11 号
- 2) <http://arai-hist.jp/database/iron-slag/index.html>
- 3) 雀部実、山下智司、宇津野伸二、館充「 $\text{Fe}_2\text{SiO}_4\text{-TiO}_2$ 系酸化物の平衡状態図」『鉄と鋼』91 巻(2005)1 号
- 4) 福田豊彦「中世東国の鉄文化解明の前提—和鉄生産における「常識」の点検を中心に」『国立歴史民俗博物館研究報告』84 巻(2000.3)
- 5) 桂敬「砂鉄製鉄の原理について」『古代日本の鉄と社会』平凡社選書(1982)
- 6) 下川義雄『日本鉄鋼技術史』アグネ技術 (1989) P.6~9
- 7) H.Itaya, T.Watanabe, M.Hayashi and K.Nagata: ISIJ, Vol. 54(2014), No.5
- 8) Slag Atlas, 2nd ed., VdEh, Verlag Sthleisen, (1995), p.148
- 9) 板谷宏「製鉄技術の視点から見た横大道・館越遺跡の操業技術」『鉄の道をたどる』福島県文化財センター白河館シンポジウム予稿集(2020.7.23~24)
- 10) 門脇秀典「鉄滓の山から読み解く歴史」『鉄の道をたどる』福島県文化財センター白河館シンポジウム予稿集(2020.7.23~24)
- 11) 清水欣吾、佐藤豊「大成遺跡出土鉄滓及び鉄器の調査」『大成遺跡.....庄原市三日市町所在遺跡』1989
- 12) 鈴木瑞穂、関広尚世「スーダン共和国メロエ遺跡における製鉄技術研究事始」『たたら研究』52 号(2012)
- 13) 久保善博「たたら製鉄の銑生成に及ぼす TiO_2 の影響」『鉄と鋼』105 巻(2023)1 号
- 14) 久保善博、久保田邦親「真砂砂鉄と赤目砂鉄の分類」『たたら研究』50 号(2010)
- 15) 久保善博「C3%以上のズクを安定して流し取るためにはなぜ TiO_2 が必要か」鉄鋼協会「鉄の技術と歴史」研究フォーラム(2014)

-
- 16) 久保善博「ズク押したたらにおける砂鉄の酸化焙焼効果について(II)」鉄鋼協会「鉄の技術と歴史」研究フォーラム(2018)
 - 17) 久保善博「クスリコガネの具備すべき性質について」『たたら研究』56号(2017)
 - 18) Wealden Iron Research Group:
www.wealdeniron.org.uk
 - 19) 丸山益輝「鉄滓によるたたら炉内反応の解析」『たたら研究』22号(1978)
 - 20) 日本鉄鋼協会『たたら製鉄の復元とその鋳について』たたら製鉄復元計画委員会報告(1971)
 - 21) 代表例として高橋一郎「出雲の近世企業たたら歴史—錬鉄が主要製品であった」『ふえらむ』1巻(1996)11号を挙げる。