

# 銅溶錬融体系における Mo, Sn, その他諸元素の分配関係

朴 文 璟\* 中澤 重厚\*\* 矢沢 彬\*\*

Distribution Behaviours of Molybdenum, Tin and Other Elements in Copper Smelting Systems. By Moon-gyung PARK, Shigeatsu NAKAZAWA and Akira YAZAWA.

The distribution ratios of molybdenum and tin between the slag, matte and copper in the silica-saturated copper smelting system were determined. The experiments were carried out under two conditions corresponding to oxidizing smelting (1), and reducing smelting (2):

- (1) the slag and matte were brought into equilibrium under a  $\text{SO}_2$  pressure of 0.1 and 0.01 atm,
- (2) the slag and matte were equilibrated with liquid copper.

Due to the high affinity of molybdenum with oxygen, most of the molybdenum was found in the slag phase, while tin was concentrated in the matte or copper phase. The distribution equilibria of tin were reasonably explained by thermodynamic analysis.

The distribution ratios for other elements were also summarized and compared with those obtained for molybdenum and tin.

(Received June 11, 1982)

## 1. 緒 言

著者らの研究室では、シリカ飽和下の銅溶錬融体系、すなわち溶銅、マット、シリケートスラグの間の諸元素の分配につき実験を重ね、Cu, Fe, S, O,  $\text{SiO}_2$  などの主要元素のほか、Pb, Ni, Co, As, Sb など微量随伴元素の挙動も明らかにしてきた<sup>1~5)</sup>。銅溶錬に伴なう微量元素としてはこの他多くのものが考えられるが、有価物として Mo, Sn の挙動もしばしば関心の的となる。そこで著者らはこの2元素のマット-スラグ2融体間、および溶銅-マット-スラグ3融体間における分配平衡を測定した。本報ではその結果を述べると共に、他の元素につき得られた結果とあわせ、考察を行なうこととする。

## 2. 実 験 方 法

分配平衡を定める際の実験条件の考え方や実験方法、データの表示法などについては、さきの報告<sup>1~5)</sup>で詳述しているので、手短かに述べることにする。Fig.1 に  $1300^\circ\text{C}$  における Cu-Fe-S-O- $\text{SiO}_2$  系の硫黄-酸素ポテンシャル図を再録したが、実験は AB, A'B' 線上と、rC'Cs 線上とで行なった。AB あるいは A'B' の実験ではマット 10g とシリカ飽和スラグ 12g を 0.1 あるいは 0.01atm の  $\text{SO}_2$  下で  $1300^\circ\text{C}$  に 45hr 保ち、平衡に到らしめた。気相としては  $\text{SO}_2$ -Ar または  $\text{SO}_2$ - $\text{CO}_2$ - $\text{H}_2$ -Ar 混合ガスを用いた。一方 rC'Cs 線上の実験では、シリカルツボ中で 6g

選鋳製錬研究所報告 第870号 日本鋳業会春期大会 (1982. 4. 5) にて発表

\* 韓国忠北大学校工科大学, さきに東北大学選鋳製錬研究所に研究滞在

\*\* 東北大学選鋳製錬研究所

- 1) 江口元徳, 沢口久雄, 矢沢 彬: 日本鋳業会誌, **93** (1977), 33.
- 2) 江口元徳, 鹿島 勝, 矢沢 彬: 日本鋳業会誌, **93** (1977), 191.
- 3) 鹿島 勝, 西川裕次, 江口元徳, 矢沢 彬: 日本鋳業会誌, **96** (1980), 907.
- 4) 渡辺堅治, G. H. Kaiura, 矢沢 彬: 日本鋳業会誌, **97** (1981), 957.
- 5) 矢沢 彬, 老田正道, 西川裕次: 日本鋳業会誌, **98** (1982), No. 1135.

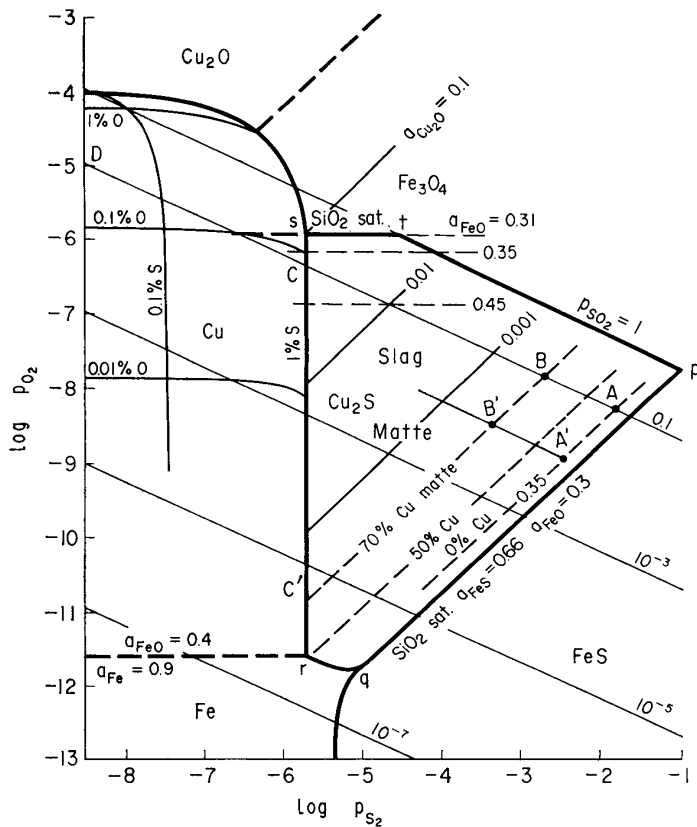


Fig.1 Sulfur-oxygen potential diagram for Cu-Fe-S-O-SiO<sub>2</sub> system at 1300°C.

### 3. 実験結果

#### 3.1 マット-スラグ2融体平衡の場合

銅精鉱の酸化溶錬に対応する条件として Fig.1 の AB, A'B' 線上, すなわち 0.1 および 0.01 atm の SO<sub>2</sub> 気流下でマット品位を変え, Mo, Sn のスラグ-マット間の分配関係を調査した。前報<sup>5)</sup> にならい微量元素 X の分配比  $L$  を次式のように表わすことにする。

$$L_X^{s/m} = \frac{\% X \text{ in slag}}{\% X \text{ in matte}} = \frac{(\% X)}{\{\% X\}} \quad (1)$$

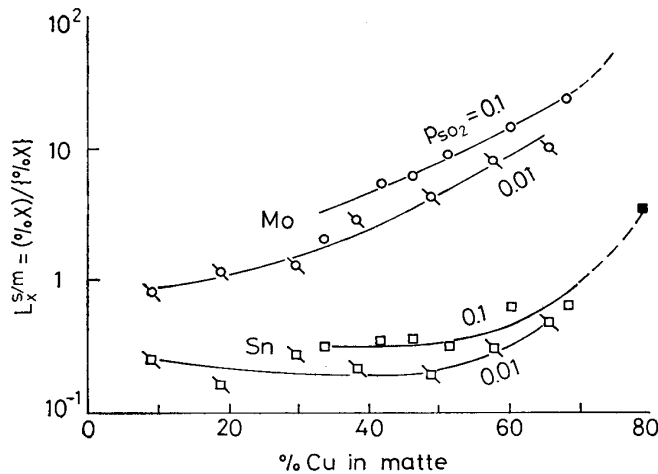


Fig.2 Distribution ratios of Mo and Sn between slag and matte under current of SO<sub>2</sub>.

の溶銅, 10g のマット, 12g のスラグを, 1300°C に保ち平衡させた。C 点近傍の酸素ポテンシャルの高い範囲では SO<sub>2</sub> 分圧が相当大きくなるので, SO<sub>2</sub>-Ar 混合気流下で熔融したが, rC' 近傍のように低酸素ポテンシャル域で SO<sub>2</sub> 分圧制御ができない場合は中性気流下で 8hr 熔融を行ない, 得られたマットの銅品位から対応する O<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub> 分圧を知ることにした。

得られた各試料中の Mo, Sn の濃度は, 酸分解に続く原子吸光分析により決定した。Mo は概してスラグ, Sn は銅相またはマット中に濃縮するが, 微量の元素という建前と分析精度を勘案し, 濃縮相中でも 1% 以下の濃度になることを目安として実験を行なった。

得られた分配比を縦軸にとり, マット品位に対し示すと Fig.2 のようになる。この結果から Mo は概してスラグ相に, Sn は概してマット相に濃縮することがわかるが, なお, SO<sub>2</sub> 分圧が高いほど, またマット品位が高いほど概してスラグに移行しやすくなる傾向がうかがわれる。これは第一義的には Fig.1 から看取されるように, 酸素ポテンシャルの上昇により酸化しやすくなるためと説明されようが, なお後に詳論する。Fig.2 の右端の黒塗りの点は 0.1 atm SO<sub>2</sub> で溶銅

相が共存するとき、すなわち Fig.1 の上では C 点に相当する条件下でのスラグ-マット間の Sn の分配比を示すものである。

### 3.2 溶銅-マット-スラグ 3 融体平衡の場合

Fig.1 の rC'C 線に対応する溶銅-マット-スラグの 3 融体共存の場合には、(1) 式の他に次の 2 つの分配比も導かれる。なお記号は式から自明のとおりである。

$$L_X^{s/c} = \frac{\% X \text{ in slag}}{\% X \text{ in copper}} = \frac{(\% X)}{[\% X]} \quad (2)$$

$$L_X^{m/c} = \frac{\% X \text{ in matte}}{\% X \text{ in copper}} = \frac{(\% X)}{[\% X]} \quad (3)$$

さきの報告<sup>3)</sup>にならい、横軸に  $\log p_{O_2}$  をとり、スラグと溶銅間の Mo と Sn の分配比を示すと Fig.3 のようになる。横軸は  $\log p_{SO_2}$  に換算でき、またおよそのマット品位との関係も示し得ることは Fig.1 の rC'C 線から暗示されるとおりである。実際に得られた点は Fig.3 にみるようにならばらついており、とくに Mo の場合が著しいが、一応図に示したような線を与えてみた。Mo の場合は微量 Mo の分析にも問題があり、とくに信頼性が低いと思われる高酸素ポテンシャル域の  $SO_2$  気流下の実験は棄却した。

さきの報告<sup>3)</sup>で述べたように、この図の線の傾斜はスラグ中の X 元素の溶存形態に関する知見を与えるはずであるが、ここに示した Mo, Sn の線からは断定的なことは言えない。Sn については高酸素ポテンシャル域で SnO、低酸素ポテンシャル域で SnO と Sn の両形態の混在と考えられるような曲線を与えており、後出の熱力学的解析でもそのような仮定をしている。ただしスラグ中微量 Sn の分析精度に問題があるとすれば、スラグ中に金属態 Sn の溶存を考えることに疑念が残ることになる。スラグ中の Mo の価数はさらに不確かであり、図に与えた線から強いて言えば、3 価 ( $Mo_2O_3$ ) あるいは 4 価 ( $MoO_2$ ) の溶存も考え得るという程度である。

マットと溶銅間の分配比を  $\log p_{O_2}$  に対し示すと、Fig.4 にみるように、Mo, Sn についてもほぼ水平線、すなわち酸素分圧依存性が無いことが認められ、これはさきの報告<sup>3)</sup>でも述べたように、マットや溶銅相の中で酸化態の Mo, Sn の溶存が無視できるとした場合に熱力学的に期待されるとおりの結果である。ただし Mo は著しくマット相に濃縮する傾向を示し、逆に Sn は他元素の場合と較べても溶銅相に濃縮しやすいことがわかる。Mo がとくに溶銅相に入り難いことは Fig.3 の Mo の分配比が他元素とかけ離れ大きいことにも表われている。これは Mo が酸化しやすい上に、本来的に W や Mo は Cu と溶け合わぬものとされていることから当然とも言えるかも知れない。

スラグ-マット間の分配比を同様な方法で示したのが Fig.5 である。当然のことながら  $L_X^{s/m}$

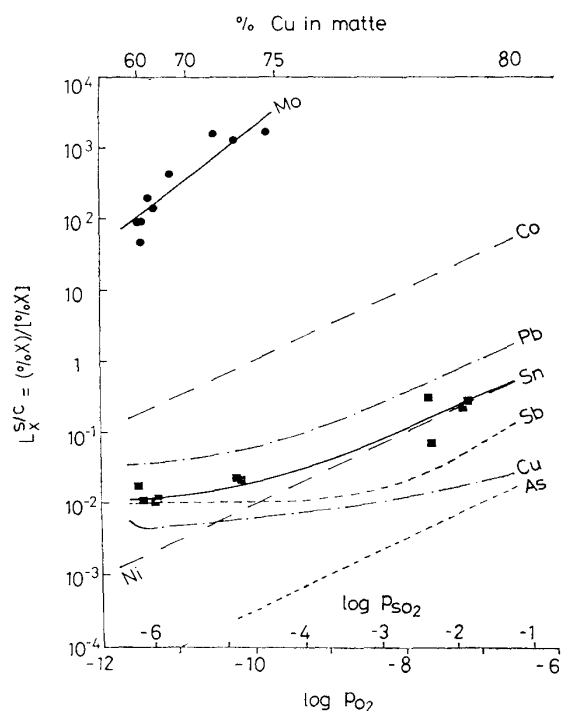


Fig.3 Distribution ratios of various elements between slag and liquid copper under coexistence of matte.

$=L_X^{s/c}/L_X^{m/c}$  で, Fig. 3 と 4 を組合わせた結果となる. 同じスラグ-マット間分配でも, Fig. 2 と較べると, 同じマット品位の場合は Fig. 5 の方が分配比は小さい. すなわち  $\text{SO}_2$  気流下よりも溶銅共存下の方がスラグへ入り難いわけで, これは溶銅共存下の方が酸素ポテンシャルが低いことから当然予測されるとおりで, Fig. 1 でいえば  $rC'$  と  $AB$  の差に相当する.

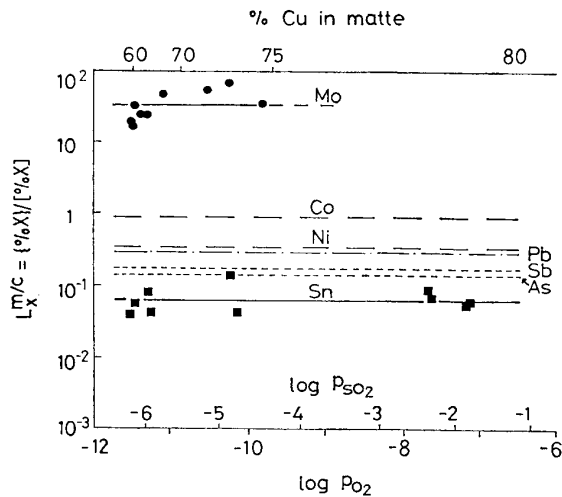


Fig. 4 Distribution ratios of various elements between matte and liquid copper under coexistence of slag.

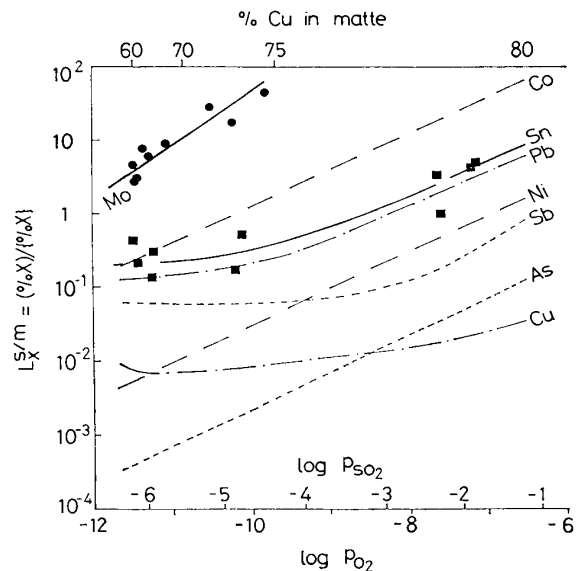


Fig. 5 Distribution ratios of various elements between slag and matte under coexistence of liquid copper.

## 4. 考 察

### 4.1 文献値との比較

Mo については分配平衡の測定値は見あたらないが, 現場所見としては酸化しやすく, 結局ほとんど全部スラグに入るとされている.

Sn のスラグ-マット間の分配比は小池ら<sup>6)</sup>が  $0.05 \sim 0.2 \text{atm SO}_2$  の下で  $1250^\circ\text{C}$  で測定している. 結果は Fig. 2 に較べ大差ないものの, 著者らの値よりやや大きい. 白カワ-溶銅間の Sn の分配比としては浅野ら<sup>7)</sup>が  $L_{\text{Sn}}^{m/c}$  にあたる値として  $0.11$ , Nagamori ら<sup>8)</sup>が約  $0.1$  と報じており, Fig. 4 に示す著者らの値は  $0.06$  程度で僅かに小さい. 一方, スラグ-溶銅間の分配は武田ら<sup>9)</sup>がまとめているが, 本研究の結果とおよそ合致する.

### 4.2 種々の元素に対する分配比の比較

著者らの研究室では, 既に種々の元素の分配関係を同様な方法で定めているので, ここにまとめてみることにする. 溶銅-マット-スラグの3融体が共存する場合の分配比は, 既に Fig. 3, 4, 5 にまとめて示してある. Fig. 3 のスラグ-溶銅間の分配をみると, As, Sb のような有害元素は溶銅中に濃縮しやすく, Co, Mo のような有価金属がスラグへ逃げてしまいやすいことが注目を惹く. Sn, Ni, Pb はその中間に在るといえよう. Fig. 5 の溶銅共存下のスラグ-マット間の分配関係もほぼ同様といえる.

6) 小池一男, 田口正美, 栗原二郎: 日本鉱業会春期大会講演要旨集, (1982), 445.

7) 浅野檜一郎: 非鉄冶金第69委員会シンポジウム資料, (1977), 40.

8) Nagamori, M.; Mackey, P. J.: Met. Trans. B, **8B** (1977), 39; **9B** (1978), 567.

9) 武田要一, 矢沢 彬: 日本鉱業会誌に投稿中, 日本鉱業会秋期大会資料 (1981), K 2 に一部掲載.

ところでスラグ-マット間の諸元素の分配比は、実用上はマット品位を横軸として示した方が便利なので、Fig.5 の結果（金属相共存）を整理し直し、0.1atm SO<sub>2</sub> の下（酸化溶錬に対応）でのスラグ-マット間の分配比と対応させ、まとめてみた。煩雑になるのを防ぐために、Fig.6 に Mo, Co, Sn, Ni, Fig.7 に Pb, Cu, Sb, As というように2枚の図に分け、実線で0.1atm SO<sub>2</sub> 下の分配比、破線で金属相共存時の分配比を示した。Fig.1 の上でいえば、実線はABC線上、破線はqrC'C線上のスラグ-マット間分配比を示すことになり、概していえば前者が酸化溶錬、後者が還元溶錬に対応することになる。実線の場合の方が酸素ポテンシャルの大きな条件であるだけに、分配比  $L_{X/m}^{s/m}$  は破線で示すものより大きく、スラグに入りやすいことを示している。しかし Cu, Pb, Sn, Co, Mo については実線と破線の差はそれほど大きくはなく、概してこの順序でスラグ除去が進みやすくなる。すなわちマットに一番濃縮しやすいのは Cu で、一番スラグに入りやすいのは Mo である。

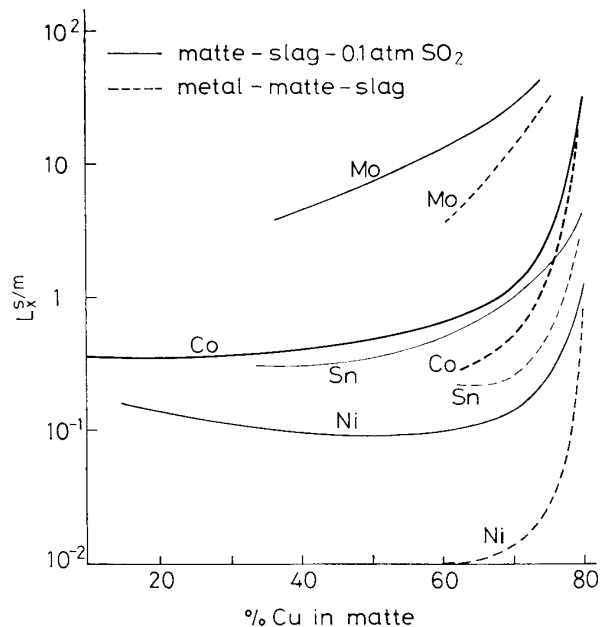


Fig. 6 Distribution ratios of Mo, Co, Sn and Ni between slag and matte plotted against copper grade in matte.

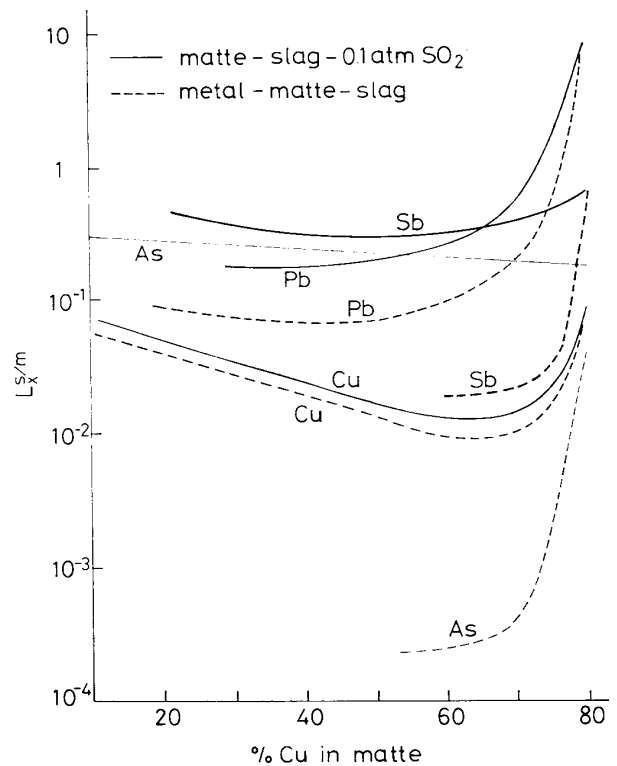


Fig. 7 Distribution ratios of Pb, Sb, As and Cu between slag and matte plotted against copper grade in matte.

一方、Ni, Sb, As の曲線をみると、実線と破線の差がかなり大きく、これらの元素は酸素ポテンシャルの変化によりスラグ-マット間の分配関係がかなり大幅に変わることを示している。とくに As の分配比は3オーダーもの差があり、還元溶錬の場合の As は酸化溶錬のときの1000倍もマットに濃縮しやすいことが暗示されている。このことは As のマット中の活量係数が酸素ポテンシャルに大きく左右され、還元性で金属鉄や金属銅の活量が大きくなると極端に小さくなるため<sup>10)</sup>と考えられ、銅溶錬における As の分配挙動については別に詳論する<sup>11)</sup>。

なお Fig. 6, 7 の Ni, Cu などに認められるように、分配比が極小値を経る現象は一見奇異に

10) Itagaki, K.; Hino, M.; Yazawa, A.: *Erzmetall*, **35** (1982), to be published.

11) 板垣乙未生, 矢沢 彬: *選研彙*, **38** (1982), 63.

感ぜられるが, 前報<sup>5)</sup>にも述べたように, スラグ中にこれら元素が酸化態と硫化態の双方の形で溶存するためとして説明することができる。

#### 4.3 Sn の分配の熱力学的解析

さきの報告<sup>4,5)</sup>において, Pb, Cu, Ni などの分配関係を複合溶存形態を仮定して熱力学的に解析し, 一応の説明を与えることができたので, Sn の分配につき類似の考え方を適用してみよう。いま金属態, 酸化態, 硫化態の Sn をそれぞれ  $\text{Sn}^\circ$ ,  $\text{SnO}$ ,  $\text{SnS}$  で表わし, 各相中の Sn 濃度が次のように表わし得るものとする。

$$\text{溶銅中} : [\% \text{Sn}] = [\% \text{Sn}^\circ] \quad (4)$$

$$\text{マット中} : \{\% \text{Sn}\} = \{\% \text{Sn}^\circ\} + \{\% \text{SnS}\} \quad (5)$$

$$\text{スラグ中} : (\% \text{Sn}) = (\% \text{Sn}^\circ) + (\% \text{SnO}) \quad (6)$$

スラグ中の Cu, Pb, Ni などの場合は硫化態と酸化態の複合溶存を考えたが<sup>4,5)</sup>, Sn の場合は硫化態の寄与はスラグ中では無視できる程度と考え, むしろ低酸素ポテンシャル領域では金属態の寄与があるものと考え, (6) 式のように仮定した。

一般にはこれら金属態, 硫化態, 酸化態の Sn の活量  $a$  はその濃度,  $\% \text{Sn}$  と次式の関係で結ばれる。

$$a = \frac{\gamma \cdot \% \text{Sn}}{119n_T} \quad (7)$$

$\gamma$  は活量係数,  $n_T$  は金属元素 1 原子あたりを基準とし全構成成分を表わしたときの試料 100g 中の総モル数である。各相について金属態の溶存を考えているが, 共存平衡にある場合はもちろんその活量値は各相同一の値をとる。

以上のような仮定からスラグ, マット中の各形態の Sn 濃度は次のように表わされる。

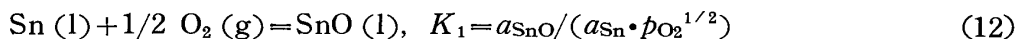
$$(\% \text{Sn}^\circ) = \frac{[\gamma_{\text{Sn}^\circ}] (n_T)}{(\gamma_{\text{Sn}^\circ}) [n_T]} [\% \text{Sn}^\circ] \quad (8)$$

$$(\% \text{SnO}) = \frac{K_1 [\gamma_{\text{Sn}^\circ}] (n_T) p_{\text{O}_2}^{1/2}}{(\gamma_{\text{SnO}}) [n_T]} [\% \text{Sn}^\circ] \quad (9)$$

$$\{\% \text{Sn}^\circ\} = \frac{[\gamma_{\text{Sn}^\circ}] \{n_T\}}{\{\gamma_{\text{Sn}^\circ}\} [n_T]} [\% \text{Sn}^\circ] \quad (10)$$

$$\{\% \text{SnS}\} = \frac{K_2 [\gamma_{\text{Sn}^\circ}] \{n_T\} p_{\text{S}_2}^{1/2}}{\{\gamma_{\text{SnS}}\} [n_T]} [\% \text{Sn}^\circ] \quad (11)$$

ここに  $K_1$ ,  $K_2$  はそれぞれ次の (12), (13) 式の平衡定数である。



したがって Sn の各相間の分配比は次のようになる。

$$L_{\text{Sn}}^{\text{s/c}} = \frac{[\gamma_{\text{Sn}^\circ}] (n_T)}{(\gamma_{\text{Sn}^\circ}) [n_T]} + \frac{K_1 [\gamma_{\text{Sn}^\circ}] (n_T) p_{\text{O}_2}^{1/2}}{(\gamma_{\text{SnO}}) [n_T]} \quad (14)$$

$$L_{\text{Sn}}^{\text{m/c}} = \frac{[\gamma_{\text{Sn}^\circ}] \{n_T\}}{\{\gamma_{\text{Sn}^\circ}\} [n_T]} + \frac{K_2 [\gamma_{\text{Sn}^\circ}] \{n_T\} p_{\text{S}_2}^{1/2}}{\{\gamma_{\text{SnS}}\} [n_T]} \quad (15)$$

実測の分配比  $L_{\text{Sn}}^{\text{s/c}}$  を  $p_{\text{O}_2}^{1/2}$  に対しプロットし, (14) 式から予想される直線関係をあてはめる

と次の(16), (17)式を得る.  $p_{O_2}$ ,  $p_{S_2}$  とマット品位の関係は, さきの報告<sup>4)</sup>に示した値を用いた.

$$\frac{[\gamma_{Sn^{\circ}}] (n_T)}{(\gamma_{Sn^{\circ}}) [n_T]} = 0.012 \quad (16)$$

$$\frac{K_1 [\gamma_{Sn^{\circ}}] (n_T)}{(\gamma_{SnO}) [n_T]} = 1200 \quad (17)$$

この結果を利用すると

$$L_{Sn}^{s/m} = \frac{L_{Sn}^{s/c}}{L_{Sn}^{m/c}} = \frac{0.012 + 1200 p_{O_2}^{1/2}}{L_{Sn}^{m/c}}$$

であるから, この分母に(15)式の形を考え, 実測の  $L_{Sn}^{s/m}$  を用い  $p_{S_2}^{1/2}$  に対して  $(0.012 + 1200 p_{O_2}^{1/2})/L_{Sn}^{s/m}$  なる量をプロットすると, その直線関係から(15)式の各項に対応する値として次式を得る.

$$\frac{[\gamma_{Sn^{\circ}}] \{n_T\}}{(\gamma_{Sn^{\circ}}) [n_T]} = 0.10 \quad (18)$$

$$\frac{K_2 [\gamma_{Sn^{\circ}}] \{n_T\}}{\{\gamma_{SnS}\} [n_T]} = 2.2 \quad (19)$$

これらの式の中で  $(n_T)$ ,  $\{n_T\}$ ,  $[n_T]$  の値はさきの報告<sup>4,5)</sup>にならいそれぞれ 1.47, 1.22, 1.53 ととることができ, 自由エネルギーデータ<sup>12)</sup> から  $K_1 = 15400$ ,  $K_2 = 22.9$  と算出される. また  $[\gamma_{Sn^{\circ}}]$  が本実験条件下で一定値をもつものとし, 溶銅中の無限希薄 Sn の活量係数として妥当と思われる 0.11 なる値<sup>13)</sup>を用いることにする. かくて残りの4つの活量係数  $(\gamma_{Sn^{\circ}})$ ,  $(\gamma_{SnO})$ ,  $\{\gamma_{Sn^{\circ}}\}$ ,  $\{\gamma_{SnS}\}$  が条件により変わらず一定値と見なし得るなら, (16)~(19)式からその値を求め得ることになる. さきの報告<sup>4,5)</sup>ではスラグ中の硫化態成分の活量係数  $(\gamma_{PbS})$ ,  $(\gamma_{CuS_{0.5}})$ ,  $(\gamma_{NiS_{0.67}})$  などはマット品位に対し大幅に変化したが, その他の活量係数の変化は比較的小さなものであった. 今回の Sn の場合はスラグ中の硫化態溶存を無視しているので, 上記4つの活量係数を一定値と見なすことは, 近似的には許されそうに思われる. かくて(16)~(19)式から次のような活量係数が算出される.

$$\text{スラグ中} : (\gamma_{Sn^{\circ}}) = 9, \quad (\gamma_{SnO}) = 1.4$$

$$\text{マット中} : \{\gamma_{Sn^{\circ}}\} = 0.9, \quad \{\gamma_{SnS}\} = 0.9$$

スラグ中の SnO の活量係数については, Nagamori ら<sup>9)</sup>が 1200°C, 1250°C でそれぞれ 1.88, 1.20, 武田ら<sup>9)</sup>が 1250°C で 1.6 と報じており, 上の  $(\gamma_{SnO}) = 1.4$  とおおよそ合致する. またマット中の SnS の活量については小池ら<sup>14)</sup>の測定があり, マットを FeS-CuS<sub>0.5</sub> 系とみなすと FeS 側ではほとんど理想溶液に近く, CuS<sub>0.5</sub> 側でやや負偏倚という結果を出しているので, 上の  $\{\gamma_{SnS}\} = 0.9$  はおおよそ妥当なところといえよう. 当然のことではあるが, これらの数値を用い Sn の分配比を計算してみると, Fig. 2~5 と合致した曲線が得られる.

以上に示したように, このような熱力学的解析は比較的大胆な仮定の上に展開されているにもかかわらず, 納得できる説明を与えていることは, さきの報告<sup>4,5)</sup>と同様である. ただし二三付言するならば, ここに導かれた数値の信頼度はそれほど高いものとはいえず, また今回の解析は

12) 講座・現代の金属学, 製錬編2: 非鉄金属製錬, (1982), 315, 日本金属学会.

13) 阿座上竹四, 矢沢 彬: 日本鉱業会誌, 86 (1970), 381.

14) 小池一男, 栗原二郎: 日本鉱業会春期大会講演要旨集, (1979), 267.

Sn が他の溶存形態をとる可能性を否定するものではない。なおスラグ中の溶存形態を  $\text{Sn}^{2+}$ ,  $\text{SnO}_i^{(2i-2)-}$  などのイオン種 ( $i=2, 3, \dots$ ) と考える場合, それらの (% Sn) への寄与は, もしそれらイオン種の活量係数が一定で, かつスラグ中の  $\text{O}^{2-}$  イオンの活量が一定であるならば,

$$(\text{const.}) p_{\text{O}_2}^{1/2} [\% \text{Sn}^0]$$

なる形をとり, 分子論的解析に基づく (9) 式と類似になる。

## 5. 総 括

シリカ飽和下の銅溶錬融体系について,  $1300^\circ\text{C}$  で Mo と Sn の分配平衡を測定した。実験は酸化溶錬に対応するものとして  $\text{SO}_2$  気流下のマット-スラグ2融体間, 還元溶錬に対応するものとして溶銅-マット-スラグ3融体間について分配比を求めたが, Mo はスラグに, Sn は概してマットあるいは溶銅に濃縮する傾向を示した。Sn の分配平衡につき熱力学的解析を行ない, ほぼ妥当な説明を与えることができた。またその他の元素について得られた分配比の結果もあらためてまとめて提示し, 総合的な考察を行なった。

本研究は著者の1人, 朴文環が文部省国費留学生として研究滞在中に行なわれたものであり, 滞在につきご高配を賜わった日韓両国関係各位のご厚意に深甚なる謝意を表す次第である。