



Title	ガスアトマイズ法によるNi基およびFe基高合金粉末の製造と粉末成形加工に関する研究
Author(s)	福田, 匡
Citation	大阪大学, 2000, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.11501/3178678
rights	
Note	

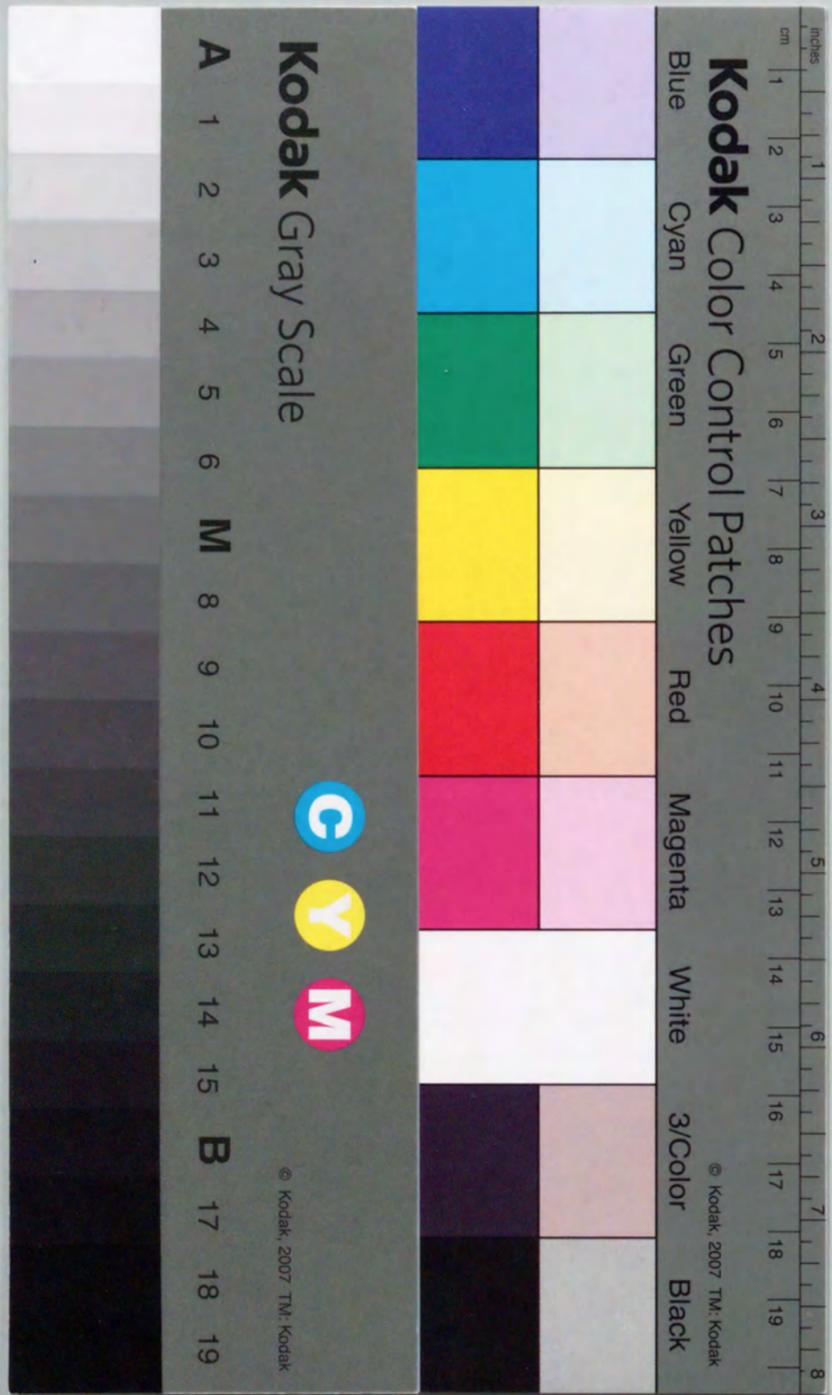
The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

ガスアトマイズ法によるNi基およびFe基
高合金粉末の製造と粉末成形加工
に関する研究

福田 匡



①

ガスアトマイズ法によるNi基およびFe基
高合金粉末の製造と粉末成形加工
に関する研究

福田 匡

目次

1. 緒論	1
1.1 本研究の目的	1
1.2 既往の研究	5
1.2.1 ノズルから噴出するガス流れの挙動	5
(1) 単孔ノズルのガス噴流	5
(2) 環状ノズルのガス噴流	5
(3) 合流噴流の挙動ならびに噴流相互の干渉	6
1.2.2 アトマイズノズルにおける噴射流体の挙動	6
(1) 溶湯供給管出口の負圧と溶湯供給管諸元の関係	6
(2) ガス流れの形態ならびにガス流速の分布	6
(3) 水アトマイズノズルの流動特性	7
1.2.3 アトマイズ粉末の粒度とアトマイズ条件の関係	7
1.2.4 ガスアトマイズ粉末の表面性状ならびに内包ガスの挙動	9
(1) 粉末表面の性状	9
(2) 粉末に捕捉されたガス成分	10
1.2.5 熱間押し出し法による粉末成形材料ならびにクラッド材料	10
(1) 高・超合金成形材の特性	10
(2) 粉末/溶製材クラッド材料の特性	11
1.3 本研究の概要	12
2. 一体型アトマイズノズルにおけるガス流れの挙動	14
2.1 緒言	14
2.2 実験装置および実験方法	15
2.2.1 供試ガスアトマイズノズル	15
2.2.2 ガス噴射実験装置	17
2.2.3 噴射ガスの特性量の測定方法	18
(1) 圧力測定プローブ	18
(2) ガス流量の測定	18
(3) ガス流速の測定	18
2.2.4 溶湯アトマイズの観察方法	21
2.3 噴射ガスならびに供給溶湯の流動特性	21
2.3.1 噴射ガス流れの挙動～シュリーレン法による可視化観察	21
2.3.2 溶湯供給管出口近傍の圧力分布およびガス流れ	23
2.3.3 溶湯アトマイズの挙動～VTR撮影・観察	24
2.4 溶湯供給管出口の圧力特性	28
2.4.1 溶湯供給管出口の圧力に対する突き出し長の影響	28

2.4.2	溶湯供給管出口の圧力に対する噴射角度の影響	29
2.4.3	溶湯供給管出口の負圧生成機構	30
(1)	溶湯供給管出口の負圧生成に関するモデル計算	30
(2)	溶湯供給管出口の圧力に関する影響因子	32
2.5	アトマイズノズルの噴射ガス流速分布の特性	34
2.5.1	B型(標準型)アトマイズノズルにおけるガス流速分布の特性	34
(1)	ノズル中心ガス流速の垂直方向変化	34
(2)	ガス流速の水平方向分布に与える溶湯供給管突き出し長の影響	34
(3)	噴射圧力の効果	40
2.5.2	C型(近接型)アトマイズノズルにおけるガス流速分布の特性	41
(1)	ノズル中心ガス流速の垂直方向変化	41
(2)	ガス流速の水平方向分布に与える溶湯供給管突き出し長の影響	42
(3)	テーパ型噴射孔による高流速化の検討	43
2.6	結 言	45
3.	アトマイズ粉末の粒度に影響する諸因子	47
3.1	緒 言	47
3.2	実験装置および実験方法	47
3.2.1	アトマイズ粉末の試作装置	47
3.2.2	供試アトマイズノズル	49
3.2.3	粒度分布測定装置と測定方法	49
3.3	アトマイズ粉末の粒度に影響を及ぼす因子	50
3.3.1	溶湯流の粉化状態観察による粒度影響因子の推定	50
3.3.2	アトマイズ粉末粒度に関するモデル式	51
3.4	粉末粒度と溶湯アトマイズ条件の関係	51
3.4.1	幾何焦点におけるガス流速	51
3.4.2	メジアン径と溶湯/ガス流量比との関係	52
3.4.3	粉末の平均粒度とガス平均流速との関係	53
(1)	ガス噴射孔と溶湯供給管との距離の影響	53
(2)	噴射角度の影響	53
(3)	噴射孔形状の影響	54
(4)	噴射ガス圧力の影響	54
3.4.4	粒度分布とガス流速分布の関係	56
3.5	結 言	58
4.	粉末の内包ガスならびに表面状態に及ぼす粉末製造条件の影響	60
4.1	緒 言	60
4.2	実験装置および実験方法	60

4.2.1	アトマイズ粉末の生成装置と生成方法	61
4.2.2	試料粉末の取扱い方法	62
4.2.3	粉末特性の測定方法	62
(1)	水分分析	62
(2)	表面分析	62
(3)	T I G 試験	63
(4)	粉末のA r含有量および断面形態	64
4.2.4	粉末成形方法および機械的特性の評価方法	64
4.3	A rアトマイズ粉末の性状	64
4.3.1	粉末のガス含有量	66
(1)	粒度とガス含有量の関係	66
(2)	溶湯/ガス比とガス含有量の関係	66
4.3.2	粉末ガス含有量と粒内ポロシティの関係	68
4.3.3	粉末成形体の性状	69
(1)	マイクロ組織	69
(2)	機械的特性	70
4.4	粉末表面性状と粉末冷却速度との関係 (N ₂ アトマイズ粉末に関して)	70
4.4.1	N ₂ アトマイズ粉末の断面形態	71
4.4.2	粉末の含有水分	71
4.4.3	粉末表面の生成物	72
(1)	N iの存在形態	72
(2)	C rの存在形態	73
(3)	M oの存在形態	73
(4)	N bの存在形態	73
4.4.4	溶接ブローホール	75
4.4.5	N ₂ アトマイズ粉末成形材のマイクロ組織と機械的特性	76
4.5	粉末成形材特性に及ぼすカプセル前処理方法の影響	76
4.5.1	マイクロ組織	76
4.5.2	機械的特性	79
4.6	結 言	80
5.	高合金粉末熱間押し成形材の特性ならびにクラッド鋼管の作製	81
5.1	緒 言	81
5.2	実験方法	81
5.2.1	供試粉末	81
5.2.2	粉末成形体の特性評価方法	83
(1)	固化成形方法	83
(2)	機械的特性の評価方法	84
(3)	耐食性の評価方法	84

5.3 粉末押し成形材の特性	85
5.3.1 密度および引張・衝撃特性	85
5.3.2 押しに伴うPPBの変化挙動	86
5.3.3 粒界腐食およびサワーガス中のSCC挙動	88
5.4 高合金粉末/低合金鋼界面の接合ならびに複層材料の同時押し	89
5.4.1 界面における成形挙動	89
5.4.2 複層管の限界押し比に及ぼす各因子の影響	91
5.5 高合金粉末/低合金鋼クラッド管の実製造装置による試作	95
5.5.1 試作方法ならびに特性評価方法	95
5.5.2 試作管の特性評価	95
(1) 熱間押し後の試作管の外観	95
(2) 寸法, 形状, マクロ組織	96
(3) 界面および母材の特性	96
(4) 高合金ライナー部(Alloy625クラッド部)の耐食性	100
5.6 結 言	101
6. 結 論	102
参 照 文 献	106
引 用 論 文	109
謝 辞	110

第1章 緒 論

第1章 緒 論

1.1 本研究の目的

金属材料に要求される性能はますます高度になってきており、成分ならびに加工法の改良による特性向上とともに、必要性能を満足する材料を複合化することによる高性能化がさかんに行われている。そのなかで、優れた耐食性とともに十分な強度を有する管材料が高温で腐食性が高い環境の油井プラント用あるいは化学工業用配管、またエネルギープラントの熱交換などの用途向けに求められている。このような素材の需要に対して、高強度低合金鋼に耐食性の優れた高合金を密着・複合化したクラッド材料は、特性面ならびに価格の点でも優れた素材になることが期待される。しかしながら一般に高合金は難加工材料であり、変形能が劣るうえに変形抵抗が高いため製造が困難である。さらにその加工性が低合金鋼とは大きく隔たっていることから、高合金管・棒の製造に用いられる熱間押し法によるクラッド製品の製造はきわめて困難であった。

そこでニアネットシェイプ成形と急冷凝固による成分偏析抑制という粉末冶金法の利点に着目して、低合金鋼ピレットと軟鋼カプセルとの環状間隙に高合金粉末を充填して組み立てた複層ピレットに熱間押しを施してクラッド管を製造することが試みられた。ここで用いられる高合金粉末は、熱間押し前の予熱工程で焼結が十分に進行し、その後の押し出し工程により緻密な固化成形層が生成されるよう微粒であること、高合金の特性が十分に発揮されるよう表面が清浄で内部にガスを含みしないことが必要である。さらに高合金粉末成形層と低合金鋼で構成されるクラッド材料を成形することができ、さらに粉末成形層が所定の特性を示すように、高合金クラッド鋼管の適正な加工条件を明らかにすることが求められる。

さて粉末冶金法は鉄系の焼結機械部品の製造を中心に広く適用され、材料歩留りが高いことや製品形状に加工する工程が省略できること、ならびに切削工具や圧延ロール材料として優れた耐摩耗性や耐熱性等を示すことから、工業的製造法として着実な伸びを示している。また粉末冶金法は高速度鋼や高Ni合金鋼の素管材製造においても、溶製材法では実現できない偏析軽減あるいは脆性相の出現抑制等の利点を有するため、切削工具あるいは油井機器や航空機部品に適用されつつある。さらに最近では微粉末ペーストの良好な流動性を利用した射出成形法により、小型で複雑形状を呈する部品が数多く製造されている。

このような状況を反映して鉄系の原料粉末の製造量は最近約10年間に渡って年率約10%に近い高い伸びを示し、1995年度における国内出荷量は年間約10万トンに達している^{1) 2)}。鉄系粉末は還元法あるいは水アトマイズ法によって大部分が製造されているが、近年アトマイズ法による粉末の比率が増している。また銅系粉末も焼結機械部品を中心にその出荷量は年間約5000トンに達しており¹⁾、電解法ならびにアトマイズ法によって製造されているが、アトマイズ法によって製造される粉末の比率が増しつつある。

いっぽう高速度鋼をはじめとする工具鋼は多種類の成分を含むため、大部分は水あるいは不活性ガス等を噴霧媒とするアトマイズ法によって製造されており、偏析の軽減や析出

物の微細化が図られている。

このなかで酸化による特性劣化を避けるべき成分系の場合には不活性ガスを噴霧媒体に用いるガスアトマイズ法が適用されることが多く、噴霧媒には高純度の窒素ガスあるいはアルゴンガスが用いられる。高圧ガスの費用ないしはガスを昇圧して循環する設備費用が高額のため、ガスアトマイズ粉は水アトマイズ粉に比べると一般的に高価である。ガスアトマイズ粉末は市販品と内製によって消費されるものも合わせれば国内生産量は年間1000~1500tと見積られており、前述の鉄系や銅系粉末に比べると少量ではあるが、酸化物の生成が水アトマイズ粉に比べて格段に少なく清浄であること、球形で流動性ならびに充填性が良いことから、工具や化学プラント用素材等の用途にその製造量は増加する傾向にある。このため製造コストの低減ならびに品質の向上が求められており、粉末製造条件が生成粉末の特性に与える影響を明らかにすることが求められる。

またカプセル内への粉末充填密度の増大による成形性の向上ならびに焼結性の向上あるいは急冷凝固による偏析軽減などの観点から微粉末に対する需要が従来にも増して高まっており、粉末の安価供給に因るためにも微粉収率の向上が求められている。微粉生成には一般に噴射ガスの流量・圧力を増すことが有効とされており、とくにアトマイズノズルについて適正な設計を行い運転することが必要である。

ちなみに、国内外で公表されているガスアトマイズ粉末製造設備の概況は表1.1に示すとおりである。このように多数のプラントが稼働して製造能力は年間約35,000トンに達し、その用途から推して微細かつ高純度の粉末の生成が要望されていると考えられる。しかしながらガスアトマイズ粉末の製造プロセスに関して、高純度粉末ならびに微粉末の製造に関する系統的な研究結果は見当たらない。

とくに高Ni合金などきわめて高い品質が要求されるものは、市販されず内製により消費されている粉末が多いためか、その製造技術に関する研究は報告例が見当たらない。粉末材料は急冷凝固しており成分偏析に伴う脆性相の出現は抑制できるが、粉末表面の汚染によるPPB(旧粉末粒界)の残留ならびにこれに起因するマイクロ組織の異常は解消しなければならぬ課題である。このように高合金粉末材の特性を十分に活用するには、粉末材料の特性に与える粉末製造条件の影響を明らかにすることが強く求められる。

表1.1 国内外の商用ガスアトマイズ設備

国名	機 関	設備規模	品 種	主用途
スウェーデン	ANPAB	5 t/CH炉	ステンレス	製管素材, 工具鋼
	ASEA	2.5	ステンレス, 高合金	HIP用粉末
	Kloster	30	ハイス	工具
米	Hoganas	1, 0.25	超合金	溶射用粉末
	Crucible	2.3	超合金	航空機部品 油井部品
日本	UFP	1.2	ステンレス 各種	射出成形用粉末ほか
	山陽特殊製鋼	2	ハイス MnAl	工具 磁石
	神戸製鋼	0.5, 0.1	ハイス 超合金	工具 エネルギープラント部材
	日立金属	0.5	ハイス 磁性材	工具 軟磁性部品
	大同特殊鋼	1.2, 0.4	ステンレス, ハイス	フィルター 工具

つぎに粉末の固化成形については、従来から金型プレス成形-焼結ないしはHIP成形が用いられてきた。本研究の対象である高合金管・棒については生産性の観点から溶製材用の主幹設備である熱間押し装置が適用できる粉末カプセル充填-CIP-熱間押し法(CIP-押し法と呼称)が適している。この方法はANVAL社がステンレス管の製造に適用しているが³⁾、本研究の対象とする高合金粉末の熱間押し成形ならびにクラッド材料の生成については知見が限られているため、粉末材料の成形挙動を把握して品質の高い製品を生成するための適正条件を見いだす必要がある。

金型プレス成形材ならびにHIP成形材に比べて熱間押し材は塑性加工度がきわめて大きく、短時間に加工できる点が特徴である。したがって固化成形材の品質に影響を与えると考えられる。粉末相互あるいは高合金粉末と低合金鋼ピレットの接合の挙動、PPBを越える結晶粒成長の挙動、粉末に内包された不活性ガスの挙動を十分に把握・検討して原料粉末の適正仕様、粉末管製造の適正条件を求める必要がある。

このように現に商用に供されているガスアトマイズ粉末製造設備は相当数に上るが、ガスアトマイズ粉末を使用する製品への要求性能の高度化あるいは新しい製品分野への供給に適応した微粉末収率の向上ならびに粉末の清浄度の向上が課題となっている。また前述のとおりCIP-押し法によるステンレス管は生産されているが、高合金管あるいは高合金/低合金鋼クラッド管は製造されるまでには至っていない。すなわち、高合金粉末冶金の工業技術をより発展させて粉末製品の高性能化、溶製材法では生成できない新製品の製造、それらを通じての省資源、省エネルギー化に寄与するには次の課題がある。

(1) アトマイズノズル装置の適正設計：粉末製造の中心となる装置であるが、設計ならびに運転条件が不適正であると溶湯(熔融状態の合金)の吹き上げに伴うノズル閉塞を生じて運転停止の事態を招く。これは設備の補修を要する場合が多く生産上の大きな障害になるとともに原料溶湯の廃棄に伴う製造費用の増大を招来する。また、微粉末を製造するための既往の知見は実験範囲が限られているとともに実験結果のバラツキも大きく、かつアトマイズノズルの諸元が十分に開示されていないために、その設計方法についてはきわめて不明確である。したがって吹き上げの無い安定状態で微粉末を製造できるアトマイズノズルの諸元について十分な検討を加える必要がある。

(2) 生成粉末の特性向上：粉末の表面清浄度ならびに含有ガスは粉末成形材の性能に重大な影響を及ぼすが、表面分析の結果あるいは含有ガス成分値の例が報告されているのみであり、粉末製造装置ならびに製造方法との関係を解明して適正条件で粉末を生成することが必要である。

(3) 粉末成形条件の明確化：粉末高合金材料については急冷による偏析軽減、脆性相の析出を抑制する優れた特徴を活用して粉末成形材の特性向上ないしは溶製材で実現できない素材の提供を果たせる可能性が大きい。その特性を十分に発揮させるための粉末の仕様ならびに粉末成形の適正条件を明確にすることが求められる。

そこで本研究ではガスアトマイズ粉末ならびに粉末製品に求められている性能向上のた

めの基礎的知見を得るため、粉末製造については微粉末を高効率で生成するのに適したアトマイズノズルの設計ならびに運転条件を明らかにするとともに、粉末表面の汚染および内部に捕捉されるガスと粉末製造条件との関係を明らかにすることを目的とした。また粉末成形については粉末性状と成形材特性との関係ならびに適正な成形条件について検討し、高合金粉末成形層を低合金鋼に密着・複層化したクラッド管を作製する適正条件を求めることとした。すなわち本研究は次の諸点を明らかにしようとするものである。

(1) アトマイズノズルの粉化領域に生成するガス逆流と溶湯が吹き上げる挙動との関係ならびにアトマイズノズルの幾何焦点におけるガス流速を増大させる条件を明確にするため、溶湯流が噴射ガスによって粉化される領域におけるガス流れ場の特性を把握する。実験ならびにモデル解析により、溶湯供給管出口に生成する負圧の特性、溶湯供給管の下方に噴射ガスによって形成される逆円錐領域内の圧力分布ならびにアトマイズノズルの幾何焦点周りのガス流速分布を明らかにする。

(2) ガスアトマイズ粉末の粒度に関連する因子をモデル解析によって抽出したあと、生成粉末粒度に与えるガス/溶湯流量比の影響ならびにアトマイズノズルの諸元とガス噴射条件で定まる幾何焦点周りのガス流速分布の影響を実験により明らかにする。

(3) 高Ni合金粉末の表面吸着物、反応生成物あるいは析出物を明らかにするとともに、これらの粉末表面付着物に与える粉末生成条件の影響ならびに粉末成形材特性への影響を解明する。また粉末内部に捕捉される不活性ガス量と粉末生成条件との関係ならびに固化成形材の特性への影響を明らかにする。

(4) 高合金粉末の押し成形における粉末の変形および固化成形に関する挙動ならびに粉末材と溶製材の界面接合に関する挙動を明らかにする。また、これらの知見を総合的に活用して、CIP-押し法により高合金クラッド鋼管を試作し、本研究の粉末製造技術ならびに成形技術の有効性を実証する。

以上に述べたように本研究では高合金粉末成形材の製造技術に関する研究の一環として、粉末製造用アトマイズノズルによって生成されるガス流れ場の挙動を把握して、噴霧条件と生成粉末粒度との関係を求めるとともに、ガスアトマイズ粉末の品質と粉末製造条件との関係、ならびに押し加工における粉末相互および粉末と溶製材との接合挙動を明らかにしようとするものである。

1.2 既往の研究

ここでは本研究に関連すると考えられる、ノズル噴出ガスが集合したガス流れ挙動に関する研究、液体燃料の微粒化に関する研究およびアトマイズ粉末の粒度とアトマイズ条件との関係に関する研究、さらに合金粉末の表面性状ならびに粉末成形材の特性に関する既往の研究を概観する。

1.2.1 ノズルから噴出するガス流れの挙動

(1) 単孔ノズルのガス噴流

直円管ならびにラバルノズルより流出するガス噴流については圧縮性を考慮した非粘性流れと衝撃波および膨張波の理論によって説明されているが⁴⁾、実際の衝撃波はノズル内に発生する管壁境界層や噴流境界のせん断流層との干渉によって複雑な様相を呈することが児島ら⁵⁾によって指摘されている。直円管から流出する空気噴流に関して、児島ら⁶⁾は管内径が4~16mmの長い直円管を用いた実験的研究を行い、急膨張のために流れは管出口直前から加速されてマッハ数(Ma)が1~2の範囲で不足膨張超音速噴流となること、擬似衝撃波の長さ λ とMa、管内径との関係ならびに噴流の全圧および静圧の分布を明らかにするとともに流れの形態や擬似衝撃波の構造について言及している。さらに児島ら⁷⁾は直円管から噴出させた亜音速から超音速までの噴流の瞬間的流れ挙動を観察し、Maによるガス流れの挙動の変化を明らかにしている。すなわち、Maが約1よりやや大きい遷音速域から超音速域で流れは自励振動して非対称となり、とくにMa=1.2~1.3では連続したダイヤモンドセルの振動が増して流れが蛇行すること、Ma=1.35~1.5では拡散が助長されて噴流は亜音速に早く減衰して擬似衝撃波長さも減少するが、Ma>1.5ではMaの増大とともに流れの変動が減少して超音速域が下流側に延伸することを述べている。

いっぽう、永井⁸⁾はスロート径が10mmで出口径の異なるラバルノズルを用いて生成した空気噴流について、流れ挙動を観察するとともに全圧、静圧の分布を測定して局所質量流束の半径方向分布は非圧縮性軸対称噴流の拡散理論の相似解とほぼ一致すること、また擬似衝撃波の長さは直管内の擬似衝撃波に対して提案された拡散モデル式でほぼ表されることも明らかにしている。

望月ら⁹⁾はテーパ管ならびにテーパ管と円筒部を有するノズルを用いて高圧Arガスの噴流を生成し、セル長さの増加が噴射圧力に比例することを示している。

(2) 環状ノズルのガス噴流

A. Unal¹⁰⁾は外径が10mmの円筒(溶湯供給管に相当)の外周を囲む末広がりな環状の間隙から、Ar, N₂, Heの不活性ガスを圧力が約2.5MPaで噴出させ、上昇する環状噴流についてシュリーレン法で可視化をしている。噴流内に発生する衝撃波の形態ならびに噴流全体の挙動を観察し、噴流内に生成する膨張波と圧縮波ならびに環状噴流と管端部で囲まれる円錐状領域に循環渦(recirculation vortex)が生成することを述べている。これらのガス流れの挙動はペンシル型アトマイズノズル(多数の独立した噴射孔を溶湯供給管を囲む円周上に配したアトマイズノズルの方式)のガス流れ形態と同様であるが、溶湯供給管の突き出し長による負圧の変化は少ないことを示している。

(3) 合流噴流の挙動ならびに噴流相互の干渉

不足膨張噴流の干渉に関して、平行な噴流ならびに衝突噴流に関する研究が児島ら¹¹⁾、¹²⁾、¹³⁾によって実施され、平行噴流については干渉のために単一噴流の自励振動よりも顕著な振動現象が生じ、Maが大きいほど噴流の拡散、減衰が著しいこと、衝突角度が45°~90°の範囲の衝突噴流では衝突角度が大きいほど噴流の速度減衰が著しいことを明らかにしている。

望月ら¹⁴⁾は60°の角度で軸心が交差する2個のラバルノズルあるいはテーパ状ノズルから高圧Arガスを噴出させて衝突域のガス流れをパターン分類した結果、噴流中の第3ないし第4セルより上流の位置で噴流が衝突すると圧縮された密度の高い領域が円錐状に広がり、第4セルより下流のガス流速が音速に近い位置で噴流が衝突すると、ほぼ同直径で密度の高い流れがある長さに渡って生成することを明らかにしている。

以上のように単一もしくは複数のノズルから噴出するガス流れについて、その挙動が明らかにされ発生衝撃波の種類や位置、全圧ならびに静圧の分布については明らかになっている。

1.2.2 アトマイズノズルにおける噴射流体の挙動

金属粉末生成用のアトマイズノズルについてガス流動特性を検討した例として次の研究が見受けられる。

(1) 溶湯供給管出口の負圧と溶湯供給管諸元の関係

Figliolaら¹⁵⁾は18個の直円孔ノズルを有し、その軸心が頂角45°で交差するよう配置されたペンシル方式アトマイズノズルについて、溶湯供給管先端の形状と発生負圧との関係を検討し、溶湯供給管の先端が直円筒状あるいは噴射孔軸心が交差する頂角45°と同一の頂角を有する円錐形の場合に負圧が発生するとしている。またVeistinenら¹⁶⁾はガス噴射孔の流路が交差部分を有し超音波を発生するとされるアトマイズノズル(超音波アトマイズノズル)について、溶湯供給管先端の45°部分が長いと溶湯供給管位置によらず負圧が発生しないこと、溶湯供給管先端の角度が大きいほど発生負圧の値が大きいこと、Arガスに比べて窒素ガスのほうが発生負圧が大きいことを述べている。さらに、Baramら¹⁷⁾は超音波アトマイズノズルについて先端形状の異なる溶湯供給管を用いた実験の結果、溶湯供給管先端部とガスジェットのコア部とに間隙がある場合に負圧が発生することを述べている。

(2) ガス流れの形態ならびにガス流速の分布

関野ら¹⁸⁾は環帯からガス噴射する方式のフリーフォール(Free-fall)型アトマイズノズルによって生成するガス流速の分布を測定し、環状噴流が環状リングに衝突する位置を調整してガス流れが焦点を結ばないような円筒形の流速分布とした場合に溶湯の吹き上げが無くなることを述べている。

Figliolaら¹⁵⁾は前記(1)のアトマイズノズルについて噴射ガス圧力を変化させてガス流れを観察した結果、6.0~12.4MPaの場合にウエスト部分に明瞭なマッハディスクが形成され、12.4MPa以上の高圧では拡散して消滅したと述べている。またRidderら¹⁹⁾はペンシル

方式で溶湯供給管とガス噴射器が一体配置されて溶湯の自由流下域が無いコンファインド型アトマイズノズルのガス流れを可視化してIncident/Reflected衝撃波の発生ならびにマッハディスクの生成を明らかにしている。

Andersonら²⁰⁾はペンシル方式コンファインドノズルの流れ挙動を浅底水槽を用いた可視化手法によって検討し、溶湯供給管の先端に渦流が生成しており後流(wake)が形成されることを示している。

(3)水アトマイズノズルの流動特性

金属微粉末生成用の高圧水アトマイズノズルの流れ挙動について皆川ら²¹⁾は水ジェット内に挿入したプローブに作用する引っ張り力から幾何焦点下流の一定区間で水流に垂直な方向の速度成分が存在すると述べている。また、武田ら²²⁾、皆川ら²³⁾は環状の水噴射によって生成する逆円錐コーン内の負圧分布を、またSekiら²⁴⁾はV字状水ジェットによって生成される三角柱状コーン内の負圧分布をそれぞれ調べている。さらに新田ら²⁵⁾は水ジェットの噴出角 $9.7^\circ \sim 30^\circ$ 、水圧が6~15MPaの場合について衝突点の水流速を測定し環帯幅および噴出角が大きいほど衝突点での流速が増し、形成される円柱状水流の径も増すと述べている。

以上のようにペンシル方式ないしは円環式アトマイズノズルについて生成されるガス流れ場については、可視化や圧力分布測定によって流れ挙動の概略が把握されているのみであり、溶湯の吹き上げに影響するガス流れや噴霧領域のガス流速および流速分布等に関する十分な知見が得られていない。また高圧水アトマイズノズルが生成する流れの挙動については検討されているが、溶湯流の吹き上げとの関係は調べられていない。

1.2.3 アトマイズ粉末の粒度とアトマイズ条件の関係

溶湯のアトマイズに近い技術すなわち流体ジェットを吹き付けることによって別の流体を微粒化する方法について、工業炉やエンジンなどに用いられる燃料噴霧装置あるいは農薬散布用のノズルに関して、噴霧条件と生成粒子の特性との関係について多数の検討が為されている^{26) 27) 28)}。前記用途に用いられるノズルは高圧の被噴霧液体をノズルから噴出させる場合と補助手段を用いて噴霧する場合があるが、噴霧する液体流に気流を噴射して微粒化する2流体ノズルが溶湯噴霧に類似している。

抜山ら²⁹⁾は同軸噴射器を用いてアルコール、グリセリン、水の混合溶液を空気噴霧した実験結果から面積平均径を与える(1-1)式を示しており、多数の論文に引用されている。

$$d_{vs} = \frac{585}{V_{rel}} \left(\frac{\sigma_1}{\rho_1} \right)^{0.5} + 597 \left(\frac{\mu_1}{\sqrt{\rho_1 \cdot \sigma_1}} \right)^{0.45} \cdot \left(\frac{1000Q_1}{Q_a} \right)^{1.5} \quad (1-1)$$

d_{vs} : 平均径	(μm)	Q_a : 空気の体積流量	(cm^3/s)
Q_1 : 液体の体積流量	(cm^3/s)	V_{rel} : 空気と液体の噴出速度差	(m/s)
μ_1 : 液体の粘度	($\text{dyne} \cdot \text{s}/\text{cm}^2$)	ρ_1 : 液体の密度	(g/cm^3)

σ_1 : 液体の表面張力 (dyne/cm)

稲村ら^{30) 31)}はフラッシュ形同軸気流噴射弁の噴霧特性を空気-水系で研究し、平均粒径および粒子速度の分布を明らかにしている。さらに空気流速と分裂形態との関係を調べるとともに、液滴の数密度分布が上流では中心に鋭いピークを有するが下流では平均化されて一様な分布になることを明らかにしている。またKihmら³²⁾は二次元のフラッシュ形噴射弁を用い噴出空気の出口Maが1.5までの実験結果から、加速と減速を繰り返す衝撃波セルの流れにおいてはザウタ平均粒径は減少しないことを示している。

燃料油類や薬液類の噴霧装置は、高温かつ凝固を伴う溶湯用のアトマイズノズルとはその構造が異なるとともに、溶湯と燃料油や薬液類とは表面張力や粘度などの流動特性に関わる物性値が大きく異なるため、燃料油類について得られた生成粒子径などを与える実験式を溶湯アトマイズの場合にそのまま適用することはできない。

いっぽう、溶湯をアトマイズして金属粉末を生成する場合については、粉末製造条件が粉末粒子径に与える影響について、式(1-2)~(1-5)に示す経験式、半理論式が提出されている。いずれも噴霧媒体の流速については対象とするアトマイズノズルについて測定したものではなく計算値あるいはガス噴流の流速減衰のデータを援用している。

(a)岸高ら³³⁾は水アトマイズ(2ジェット)で1550°Cの溶鉄を噴霧して粉末生成し次式を得ている。

$$d_p = K_1 \cdot D_1 \cdot \left(\frac{D_1 \cdot \rho_1 \cdot V_w}{\mu_1} \right)^{-0.57} \cdot \left(\frac{\rho_1 \cdot D_1 \cdot V_w^2}{\sigma_1} \right)^{-0.22} \cdot \left(\frac{M_w}{M_1} \right)^{-0.043} \quad (1-2)$$

(b)Smallら³⁴⁾はHaynes Stellite No.31をガスアトマイズで生成し次式を得ている。

$$d_p = K_2 \cdot \ln(P_g/K_3) \quad (1-3)$$

(c)Grandzol³⁵⁾はAISI4620鋼、304ステンレス等の粉末を水アトマイズで生成し次式を得ている。

$$d_p = \frac{2750}{V_w \cdot \sin(\alpha/2)} \quad (1-4)$$

(d)Lubanska³⁶⁾はガスアトマイズにより鉄系、銅系等の粉末を生成し次式を得ている。

$$\frac{d_p}{D_1} = K_4 \cdot \left[\left(1 + \frac{M_1}{M_g} \right) \cdot \frac{v_1}{v_g} \cdot \frac{\sigma_1}{\rho_1 \cdot D_1 \cdot V_g^2} \right]^{0.5} \quad (1-5)$$

K_1, K_2, K_3, K_4 : 実験定数

d_p : 粉末の平均径	(μm)	D_1 : 溶湯供給管の内径	(μm)
M_1 : 溶湯の質量流量	(kg/s)	M_g : ガスの質量流量	(kg/s)
M_w : 水の質量流量	(kg/s)	P_g : ガスの噴霧圧力	(Pa)
V_g : ガスの流速	(m/s)	V_w : 水の流速	(m/s)
v_1 : 溶湯の動粘度	(m^2/s)	v_g : ガスの動粘度	(m^2/s)
σ_1 : 溶湯の表面張力	(N/m)	ρ_1 : 溶湯の密度	(kg/m^3)

α : 噴霧媒の交角 (apex angle)

We : ウェーバー数 ($= \rho l \cdot D l \cdot V g^2 / \sigma l$)

このうち、Lubanskaの実験式(1-5)はペンシル型ノズルを使ったガスアトマイズ実験から得られたものであるが水アトマイズにも適用できると報告されている³⁷⁾。(1-5)式はアトマイズ粉末の平均径とアトマイズ条件との関係を広い範囲で相関できるがバラツキも大きく、噴霧ガス流量が多い場合等について適切でないとの報告例がある³⁸⁾。また、アトマイズ法で生成された粉末の粒度分布は対数正規分布に合致するとした報告例が多い³⁹⁾。

いっぽう、回転電極法については電極外周上での遠心力と表面張力との釣り合いを解いた(1-6)式が実験結果とよく一致することを奥野⁴⁰⁾が示している。このことから溶湯を微細に分裂させる場合には溶湯滴のサイズを決定する溶湯物性として表面張力が重要であることが分かる。

$$dp = \frac{1}{\omega} \left[\frac{6 \cdot \sigma l}{\rho l \cdot R} \right]^{0.5} \quad (1-6)$$

R : 電極の半径 (m) ω : 電極の回転角速度 (rad/s)

以上のことからアトマイズ法で生成する粉末の粒子径について種々の実験式が提案され、関連する因子と寄与の程度はほぼ推定できるが、ガス流れ場はアトマイズノズルの諸元ならびに運転条件によって異なるため、生成粉末の粒度を精度よく推定するためには噴霧領域におけるガス流速の特性を考慮した検討が必要と考えられる。

1.2.4 ガスアトマイズ粉末の表面性状ならびに内包ガスの挙動

粉末冶金製品は一般にプレス成形と焼結工程によって製造されているが、ガスアトマイズ粉末は球形であるため金型プレスでなく、熱間静水圧成形(HIP)あるいは熱間押し成形によって真密度化して製品化される。ガスアトマイズを適用する粉末成形品は酸化を嫌う高合金が多く、とくにマイクロ組織的に欠陥の無いことが求められる。

(1) 粉末表面の性状

Olefjordら^{41) 42)}は窒素アトマイズ法によって生成した25Crフェライト系ステンレス鋼粉末の表面にはFe, Cr, Mn, Siの酸化物が、マルテンサイト系ステンレス鋼粉末の表面には主としてFeの酸化物等が島状に生成しその厚みはいずれも5~10nmであることを示している。また、Nyborgら^{43) 44)}はREP装置のチャンバークロウ中の酸素ガス濃度を変えて

(10, 100, 1000ppm)マルテンサイト系ステンレス鋼粉を作製し、高酸素濃度雰囲気中で生成した粉末表面の酸化物厚みが増すこと、生成した酸化物Cr₂O₃, MnO, SiO₂は粉末表面の25~40%を占め、残りは鉄の酸化物であることを示している。さらにNyborgら⁴⁵⁾は水アトマイズ法によって生成したtype304L鋼粉の表面が5~50nmの厚みのSi, Fe, Crの酸化物で覆われること、酸化物の厚みは粉末粒度の増大に伴って増すことを示し、粗粒子では冷却速度が小さいため酸化物の厚みが増すと考察している。

以上のように、粉末表面生成物の形態や量について詳しい分析が為されているが、粉末製造条件との関係についてはわずかに雰囲気中酸素濃度の影響や冷却速度との関連について考察されているのみであり、粉末製造条件と表面酸化物との関連について十分な検討はされていない。

(2) 粉末に捕捉されたガス成分

粉末内部に捕捉された不活性ガスは、気孔と認められる数 μ mサイズの比較的大きなものとマイクロボイドと呼ばれる数nmサイズの比較的小さいものに分けることができる。

このうち、マイクロボイドについてFlinnら^{46) 47) 48)}は押し成形材ないしはHIP成形材の微細組織の特徴を調べるとともに結晶粒成長の抑制、引張強度やクリープ強度の向上について論じている。

いっぽう気孔に関しては、粉末粒子内に含まれる不活性ガス成分について、Rabinら⁴⁹⁾がHeを冷却媒とした遠心アトマイズ法で作製したSUS304鋼粉のHe含有量と粒子内の気孔量とに相関があることを示している。滝川ら⁵⁰⁾は航空機用のNi基超合金材料について粉末粒度とAr量との関係を示すとともに、微粉末を使用することにより実質的に含有ガスの影響が無いようにすることが可能であることを述べている。

以上のように粉末中の気孔については存在の形態が述べられているにすぎず、粉末製造条件との関係ならびに固化成形材の特性に与える影響については検討例が見受けられない。

1.2.5 熱間押し法による粉末成形材料ならびにクラッド材料

(1) 高・超合金成形材の特性

Gilman⁵¹⁾はINCONEL alloy 625, HASTELLOY alloy G, IN-748のArアトマイズ粉末をカプセル充填ののち、熱間押し、熱間圧延、冷間圧延した成形材の熱間での引張特性、孔食発生の有無、溶接性を調査している。その結果INCONEL alloy 625粉末材の特性は溶製材と同等であるが、HASTELLOY alloy G粉末材は溶接性と耐食性が、IN-748粉末材は溶接性がそれぞれ相当する溶製材よりも劣ると報告している。しかしながら粉末材の特性が溶製材に対して劣る理由ならびに成形条件との関連については考察されていない。なお噴霧ガスの捕捉を抑制するため少量のMgを添加した溶湯を調製している。

Rizzoら⁵²⁾はAlloy625のHIP成形材に関して、成形前のカプセル脱気が不十分であるとAl酸化物のPPBが形成されて低延性となること、溶体化と時効の各種熱処理を施した場合の粒界の炭化物挙動について述べている。Flinnら⁵³⁾はHeアトマイズ法によって作製し、平均径が20~120 μ mに粒度分けしたAlloy718粉末を熱間押し成形した試料の引張特性を調べ、粉末粒度による特性値の差が無いこと、粉末材は結晶粒が微細であることに起因して鍛造材に比べて高強度で延性は同様であることを述べている。

その他、Loria⁵⁴⁾は熱間押し・圧延によって溶接用の粉末成形Alloy625線材を試作して、溶金部が均一微細な組織になること、隙間腐食特性は溶製材と同等としている。またLoria⁵⁵⁾はAlloy718アトマイズ粉末を用いて熱間押しによって航空機タービン部品向けのL型材を試作して、十分な機械的特性を有することを示している。

このように高Ni合金粉末の成形材について特性評価ならびに溶製材との特性相違要因について検討されているが、粉末特性および成形条件と成形材特性との関係の解明は端緒に

ついた状態である。

(2) 粉末/溶製材クラッド材料の特性

宮坂ら⁵⁶⁾はHIP+熱間押しによってHASTELLOY C-276粉末成形管を低合金鋼管の内面に密着接合した油井管用の二重管を試作し特性を調べている。この方法はHIPによって超合金粉末層の緻密化ならびに低合金鋼との密着をさせたのちに熱間押しによって二重管を製造するので、両者の変形抵抗の比が約3.5と大きく異なる素材を組み合わせた二重管も製造できることを示している。また、二重管を組立ビレット方式で同時押しできるのは素材の変形抵抗比が2以下であることも述べている。

またRizzoら⁵⁷⁾は炭素鋼製の部品の内面に高耐食材料のライナーをHIP法により接合した油井用配管部品を製造して性能を調べているが界面の接合状態については検討していない。

上述のように高合金の粉末成形材ならびに粉末クラッド材料の特性が調べられているが、押し成形における粉末相互および粉末と溶製材との接合・成形挙動ならびに生成した固化成形材の特性について十分な知見は得られていない。このため高合金の優れた特性(耐食性、耐熱性など)を発現するとともに優れた界面密着性を有する高合金/低合金鋼クラッド材料を製造するための基本的知見として、高合金粉末クラッド材の固化成形条件と耐食性ならびに機械的特性との関連および粒子相互あるいは粉末と溶製材の接合および界面密着性と成形条件との関連を明確にすることが求められる。

以上のように、ガス噴流の流動特性、アトマイズ粉末の粒度、粉末の表面状態、粉末内部に捕捉されたガス成分の挙動およびガスアトマイズ高合金粉末の成形挙動とクラッド材料の作製に関連する既往の研究の概要を述べたが、清浄で微細な粉末をガスアトマイズ法によって生成し、高性能な固化成形材料を作製するためには、ガスアトマイズノズルからの高圧ガス噴射によって生成されるガス流れ場について詳細な流動解析を行って、生成粉末の粒度特性と粉末製造条件との関係を明確にすること、表面の清浄度ならびに内包されるガス量と粉末製造条件の関係を求めること、および粉末材の適正な固化成形方法ならびにクラッド材料の製造条件に関して検討を加えることが必要である。

したがって、著者は次節に述べる内容に従って本研究を進めることとした。

1.3 本研究の概要

第1章においては、本研究の意義と目的を述べ、かつ本研究に関連する既往の研究を概観するとともに、本研究の内容を明らかにしている。

第2章においてはガスアトマイズ法における噴霧安定性ならびにガスアトマイズノズルが生成するガス流れの流動特性に関する研究について述べている。

すなわち、溶湯供給管とガス噴射器をほぼ一体に配設したアトマイズノズルを用いて、多数のガスジェットによる逆円錐形の流れ場を形成し、シュリーレン法により可視化されたガス流れならびに溶湯の噴霧状況の観察から、吹き上げ現象の検討に必要なガス流動特性について検討している。その検討結果を用いて、溶湯供給管出口ならびに溶湯供給管の下方域の圧力変化挙動あるいは溶湯供給管とガス噴射器との環状間隙部のガス流れ特性に与えるアトマイズノズル諸元の影響を検討し、吹き上げの要因を検討している。また、溶湯供給管出口に負圧が生成する機構についても検討している。

つぎに、幾何焦点周りのガス流速分布とガス噴射器の諸元ならびにガス噴射条件との関係を検討している。とくに吹き上げを発生しない安定した噴霧と高流速ガス流れを両立する条件を検討している。

第3章においてはガスアトマイズ法により生成する金属粉末の粒度特性に関する研究について述べている。

すなわち、ガスの運動エネルギーが粉末表面エネルギーに部分的に変換されるとして導いたモデル式から、アトマイズ粉末の平均径に対して噴射ガスの平均流速、溶湯/ガス流量比が影響すると分析し、ガス噴射孔と幾何焦点の近接度あるいは噴射角度が異なるアトマイズノズルを用いるとともに、溶湯流量、ガス流量などを変えた実験により各因子の影響度を求めている。

また高角度でガス噴射した場合に得られる凹形ガス流速分布の場合と通例の凸形ガス流速分布の場合とについて、生成する粉末の粒度分布とガス流速分布との関係を求め、ガス流速分布が粒度分布に与える影響を検討している。

第4章においては粉末に捕捉された噴霧媒体ガスの成形材特性への影響ならびに粉末の表面性状に及ぼすアトマイズ粉末生成条件の影響に関する研究について述べている。

すなわち、Arガスアトマイズ粉末のAr量と粒内ポロシティーとの関係ならびにAr量とアトマイズ条件との関係を検討している。また噴霧媒体ガスが粉末成形材のマイクロ組織に与える影響を検討している。

つぎに、粉末冷却速度を変化させて高Ni合金粉末を生成し、粉末表面の酸化物・水酸化物ならびに水分との関連を検討している。またアトマイズ粉末表面の酸化物・水酸化物が成形材の特性に及ぼす影響を検討するとともに、TIG試験を用いた定量的評価方法を検討している。

第5章においては粉末成形材の組織と粉末性状、成形条件との関係ならびに粉末押し法による高合金クラッド材料の特性に関する研究について述べている。

すなわち、粉末成形材のマクロ組織、ミクロ組織に及ぼす成形条件（押出し比、加工温度）ならびに粉末性状（表面生成物、内包ガス）の影響を検討するとともに、機械的特性・耐食性・熱間加工性など粉末成形材の特性評価結果を示している。

また、高Ni合金粉末層を低合金鋼管の内面に密着させた高合金クラッド鋼管を作製して、粉末性状、成形条件がクラッド管の特性に与える影響を検討し、高合金クラッド鋼管製造に関して本研究で得られたガスアトマイズ粉末の製法ならびにCIP-押し出し法の工業的な有用性を検証している。

第6章は結論であり、本研究の内容を総括している。

第2章 一体型アトマイズノズルに おけるガス流れの挙動

2.1 緒言

ガスアトマイズ法はガス媒体を吹き付けることにより溶湯流を粉砕、冷却して粉末を生成する方法であり、工業生産には目標粒度の粉末を安定して生成することができるガス噴射装置（アトマイズノズル）が重要である。アトマイズノズルの安定運転には、噴射ガスから派生した逆流ガスが溶湯流から分裂した溶湯滴を吹き上げ、アトマイズノズルに沈着、成長させることによるノズル閉塞（Blockage もしくは Freeze-off と呼ばれる現象）を発生させないことが第一に求められる。しかしながら一般に微粉末の生成を目指して大流量、高流速のガスを溶湯流に吹き付けると上記のノズル閉塞が発生しやすい。したがってガス流動の点からは、溶湯滴を吹き上げる逆流ガスが許容範囲内であること、ならびに溶湯が溶湯供給管内を流下してガス流れ場に供給されるよう溶湯供給管出口が周囲と比べて低圧になることが求められる。

ノズル閉塞ないしはアトマイズ操作の安定性に関する公表された知見は限定されており、1.2.2項に述べたように、関野ら¹⁸⁾はフリーフォール（Free-fall）型の環帯式アトマイズノズルについて、噴射ガスの主流が焦点を結ばないような円筒形速度分布にした場合には溶鋼の吹き上げが無いとしている。Andersonら²⁰⁾はコンファインド（Confined）型アトマイズノズルについて、溶湯供給管出口が負圧であれば安定したアトマイズ状態になっている。これに関連して Veistinenら¹⁹⁾は溶湯供給管先端の形状と発生する負圧との関係を検討している。しかしこれらのガス流れの研究では溶湯供給管の下方域に生成する、溶湯を吹き上げようとするガス渦流れとノズル閉塞との関連については議論されておらず、溶湯吹き上げの限界条件ならびにその理由は明らかにされていない。したがってアトマイズノズルから噴射されるガス流れについて溶湯吹き上げを生じない安定運転条件を明らかにすることが必要である。

またアトマイズ粉末の粒度に関して、溶湯流の粉砕には流量と流速によって決定される噴霧媒体の運動エネルギーが強く影響するため、微粉末を効率的に生成するには溶湯流に噴射するガス噴流の流速を高くすることが重要と考えられる。ガス噴流の特性については1.2.1項および1.2.2項に従来の知見を述べたが、アトマイズノズルが生成するガス流れの形態観察がなされているのみであり^{18, 19)}、ガス流速についての詳細は言及されていない。よって溶湯吹き上げを生じない条件のもとで、ガス流れの流速特性とアトマイズノズル諸元およびガス噴射条件との関係を明らかにすることが必要である。

そこで著者はアトマイズノズルの安定運転条件ならびに高流速のガスジェットを生成する条件を明らかにするため、ガスアトマイズノズルにおける噴射ガスの流動特性に関する研究を行うことにした。本章では、溶湯供給管とガス噴射器をほぼ一体に配設し、多数のガスジェットが逆円錐形の流れ場を形成するアトマイズノズルについて、シュリーレン法により可視化したガス流れならびに溶湯の噴霧状況を観察することにより、吹き上げ現象の検討に必要なガス流動特性について検討した。また吹き上げ現象と密接に関連する溶湯供給管の出口近傍に負圧域が生成する機構についても検討した。それらの検討結果により、溶湯供給管の出口近傍における圧力分布ならびにガス流れが吹き上げに関連することを明

らかにして、圧力分布とガス流れに与えるアトマイズノズル諸元の影響を検討した。

つぎにアトマイズノズルが生成するガス流れについて、中心軸に沿った垂直方向ならびに幾何焦点周りの水平方向におけるガス流速分布の特性を検討した。とくに幾何焦点周りのガス流速に与えるアトマイズノズルの噴射角度、溶湯供給管と噴射孔との距離などの設計諸元および噴射孔の断面形状、ガス圧力、流量などの噴射条件の影響を検討した。

このように本章では吹き上げを発生させず微粉末を高効率で生成できるように、アトマイズノズルから噴射されるガス流れについて逆流ガス抑制と高流速化を目的として、アトマイズノズルの諸元とガス流れとの関係について検討する。

2.2 実験装置および実験方法

供試アトマイズノズルから噴射されるガス流れの可視化観察ならびに溶湯の噴霧状態の観察を行い、それらの観察結果から溶湯滴の吹き上げに強く影響すると考えられる溶湯供給管の出口近傍の圧力分布を測定した。また、溶湯流が粉砕される幾何焦点周りのガス流速を測定してアトマイズノズル諸元との関係を検討した。

2.2.1 供試ガスアトマイズノズル

実験に供した代表的なアトマイズノズルの断面図を Fig.2-1 (1)に、各アトマイズノズルの主要寸法を Table2-1 に示す。ここで Fig.2-1 (2)に示すとおりアトマイズノズル typeC は typeB に比べて溶湯供給管とガス噴射器の間隙を狭くし、ガス噴射孔を溶湯供給管に近づけて幾何焦点との距離を減じたものである。また typeCL ではガス噴射孔の断面をテーパ状に加工した。N はガス噴射孔の数である。

Table 2-1 Dimensions of atomization nozzle used in this study.

No.	type	α	Dn (mm)	Dc (mm)	dn (mm)	N
① -1	B	20°	22	16	1.0	20
① -2	B	40°	22	16	1.0	20
① -3	B	50°	22	16	1.0	20
① -4	B	65°	22	16	1.0	20
① -5	B	90°	22	16	1.0	20
① -6	B	100°	22	16	1.0	20
① -7	B	120°	22	16	1.0	20
② -1	B	20°	21	16	0.7	18
② -2	B	20°	21	16	1.0	18
② -3	B	20°	21	16	1.2	18
③	B	30°	22	16	1.2	20
④ -1	C	30°	13	12	1.2	20
④ -2	CL	30°	13	12	1.2x1.6	20

N : number of gas nozzles

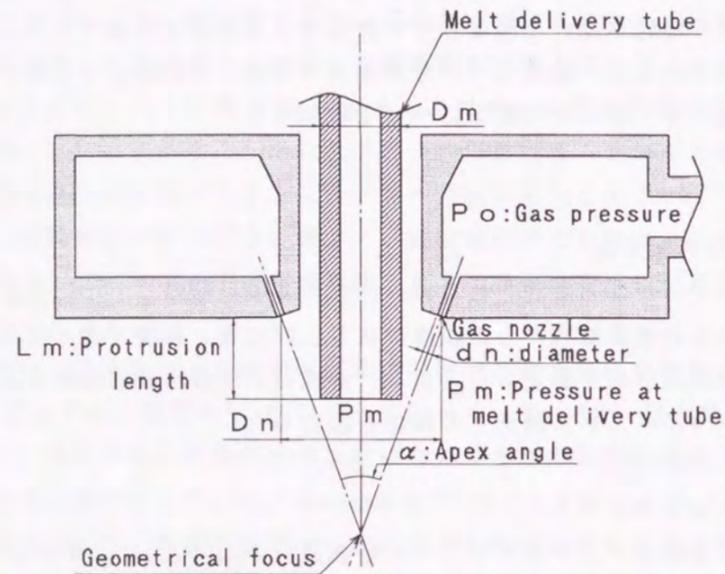


Fig.2-1(1) Schematic of atomization nozzle used in this study.

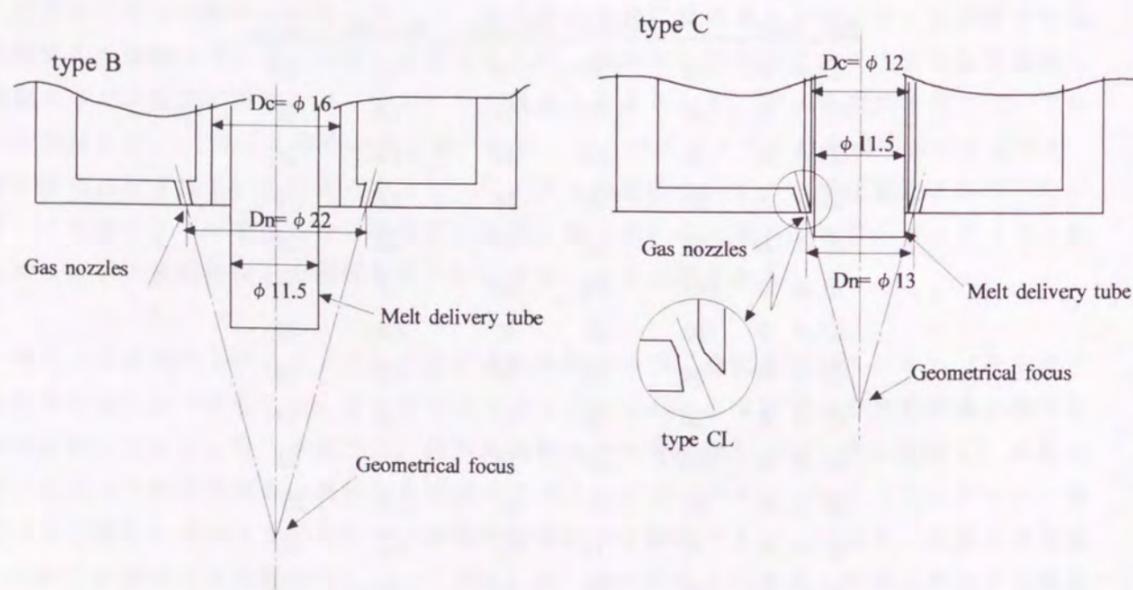


Fig.2-1(2) Typical dimensions of the atomization nozzle type B and type C.

Fig.2-1(1) に示すとおり供試アトマイズノズルでは原料の溶湯をガス流れ場に供給する溶湯供給管 (Melt delivery tube) が噴射ガスの流れ場に直接開口しており、溶湯は溶湯供給管出口から自由流下しないままガス流れによって粉碎されることが観察されるので、コンファインド型の一類に類別できる。本アトマイズノズルではガス噴射器から高圧のガスを、複数の独立した噴射孔を通して斜め下向きに一定の角度で幾何焦点 (Geometrical focus) に向かって噴射するとともに、噴射ガスの流れ場に溶湯供給管端部を突き出すことにより、2.4 節に後述するように溶湯供給管の出口近傍に負圧域を生成して、溶湯の円滑な流下を促す作用を有している。

2.2.2 ガス噴射実験装置

実験装置の概略構成を溶湯供給管出口の圧力を測定する場合について Fig.2-2 に示す。高圧ガスの集合容器から配管、減圧弁を介してアトマイズノズルに不活性ガスを供給した。アトマイズノズルから噴出させるガス圧力はアトマイズノズル上流に設けた弁によって調整し、この圧力調整弁の下流に設けた圧力計によって測定した。

アトマイズノズルから噴射するガスと同種のガスで内部がほぼ置換されたタンク内にアトマイズノズルを固定し、微動装置を用いて圧力測定プローブを測定範囲内の任意の点に移動してアトマイズノズルから噴射されるガス流れ場の状態を測定した。タンク底部は導管を通じて大気開放されており、ガス噴射実験においてタンク内圧は大気圧にほぼ等しかった。

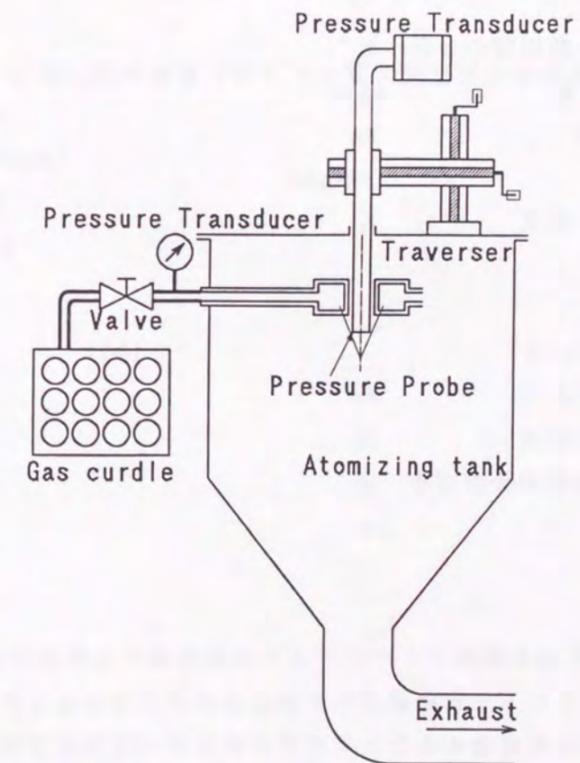


Fig.2-2 Schematic of pressure probe experiment for gas atomization.

2.2.3 噴射ガスの特性量の測定方法

(1) 圧力測定プローブ

溶湯供給管出口の圧力を測定するには、熱間でのアトマイズ粉末生成に用いる溶湯供給管と外径が同一のステンレス管を圧力測定プローブ I として微動装置に取り付け、Fig.2-1 (1) に示すようにガス噴射器の中央に挿入して、プローブ I の先端位置とガスアトマイズノズルのガス噴射孔との垂直方向距離である突き出し長 L_m が所定の値になるよう調整した。さらにまた溶湯供給管を所定位置に固定したまま、その内側に細い直管の圧力プローブ II を溶湯供給管中心の貫通孔との気密を保ちつつ溶湯供給管の中心軸上を移動させて、各点の圧力を測定した。圧力プローブ I, II は片端を圧力導管によって差圧計の測定孔に接続して大気との圧力差を記録した。

(2) ガス流量の測定

実験範囲内ではアトマイズノズルの噴射孔内でチョークした状態であったため、ガス流量は噴射孔の断面積の合計と供給ガス圧力から (2-1) 式^{7.3)} に従って算出するとともに、上記のガス集合容器の容量と一定圧力でガスを噴射した実験における当該容器内のガス圧力の減少量から (2-2) 式でガス流量を計算して両者がほぼ一致することを確認した。

$$M_g = \frac{P_0 A^*}{(RT_0)^{0.5}} \left\{ \kappa \cdot \left(\frac{2}{\kappa+1} \right)^{\frac{\kappa+1}{\kappa-1}} \right\}^{0.5} \quad (2-1)$$

A^* : 噴射孔の最小断面積の合計	m^2
M_g : ガスの質量流量	kg/s
P_0 : 噴射ガス圧力	Pa
R : ガス定数	$J/(kg \cdot K)$
T_0 : 噴射前のガス温度	K
κ : 比熱比	

$$M_g = (P_1 - P_2) \cdot V / (R \cdot T_0) / t \quad (2-2)$$

P_1 : 噴射前のガス圧力	Pa
P_2 : 噴射後のガス圧力	Pa
V : 集合容器と配管の合計容積	m^3
t : 噴射時間	s

(3) ガス流速の測定

2.3.1 項 に後述するとおり供試アトマイズノズルが生成する噴流の主流は垂直下向きであるので、Fig.2-3 に示すピトー管を動圧孔が垂直上向きになるように微動装置に固定し、Fig.2-4 に示すように幾何焦点を中心として左右方向あるいは垂直方向に移動して所定位置において、ガス流れの全圧を測定した。Fig.2-2 に示すように上端の閉じた溶湯供給管が所定位置に配置された供試アトマイズノズルを、出口が大気開放され内部がほぼ噴射ガスと

同種のガスで置換された内径 600mm のタンク内に固定し、所定圧力の Ar ガスを供給して流速測定を行った。対象とする流れは断熱的であるとしてガス流速を (2-3) 式^{7.4)} を用いて計算した。

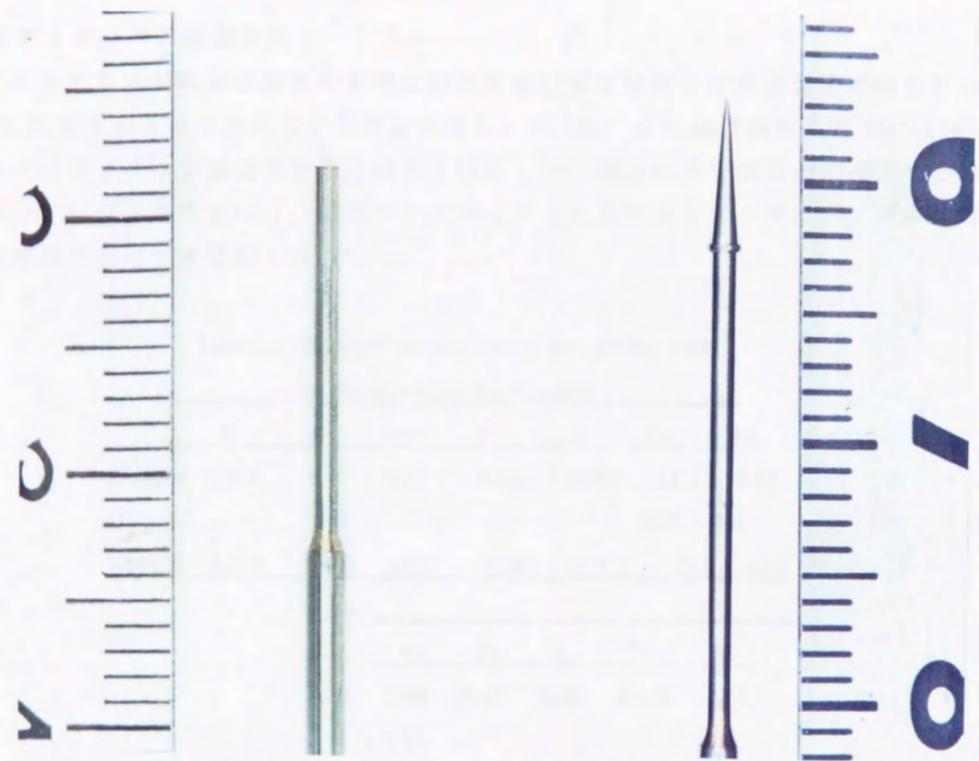
$$V_g = M_1 \left\{ \kappa RT_0 \right\}^{0.5} \left\{ 1 + \frac{(\kappa-1)}{2} M_1^2 \right\}^{-0.5} \quad (2-3)$$

ここでガス流れが亜音速の場合は (2-4) 式でマッハ数 M_1 を求め、超音速流れの場合は (2-5) 式に示す Rayleigh のピトー管公式によって M_1 を求めた^{7.4)}。なお全圧測定と同条件でガス噴射し、Fig.2-3 に示す円錐形の先端部を有するプローブで静圧 P_s を測定したところ大気圧との差はたかだか 10kPa であり、 P_s を大気圧として算出したガス流速 V_g の誤差は大きくとも 4% であった。なお本実験条件で Ar ガスを噴射した場合、 V_g が約 272m/s より大きい場合に超音速となる。

$$M_1 = \left[\frac{P_t}{P_s} \left(\frac{\kappa-1}{\kappa} \right) - 1 \right] \cdot \frac{2}{\kappa-1} \right]^{0.5} \quad (2-4)$$

$$\frac{P_t}{P_s} = \left\{ \frac{(\kappa+1)M_1^2}{2} \right\}^{\frac{\kappa}{\kappa-1}} \cdot \left\{ \frac{\kappa+1}{2\kappa M_1^2 - (\kappa-1)} \right\}^{\frac{1}{\kappa-1}} \quad (2-5)$$

P_t : 全圧	Pa (但し超音速域ではピトー管で測定する離脱衝撃波後の値)
P_s : 静圧	Pa
R : ガス定数	$J/(kg \cdot K)$
T_0 : 温度	K
V_g : ガス流速	m/s
κ : 比熱比	-



(a) dynamic pressure probe

(b) static pressure probe

Fig.2-3 The pitot tube used in this study.

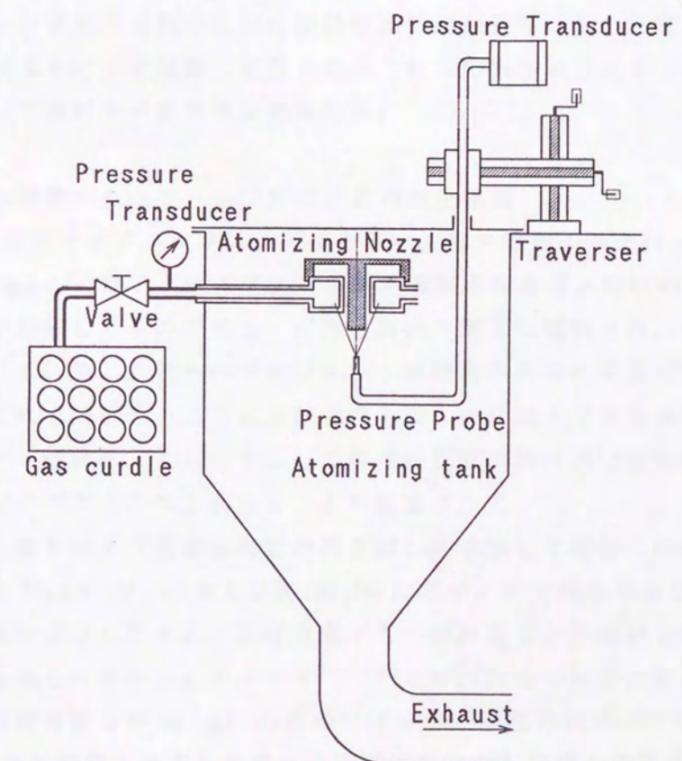


Fig.2-4 Schematic of total pressure measurement for gas atomization.

2.2.4 溶湯アトマイズの観察方法

Fig.2-2 に示すガス噴射実験装置の上部に溶湯供給装置を接続して粉末製造実験を行った。Table2-2 に代表成分を示す合金塊を高周波溶解し、約 1500 °C に温度調節して Fig.2-1 (1) に示すアトマイズノズルの溶湯供給管に溶湯を供給した。溶湯供給管出口から流出する溶湯に約 4MPa の Ar ガスを吹き付け、溶湯がアトマイズされる状況をアトマイズノズル側方に設けた観察窓からビデオ撮影・録画した。

Table2-2 Chemical composition of the melting stock
for the atomizing experiments.

	C	Si	Mn	P	S	Cr	Mo
Product	0.004	0.45	0.47	0.002	0.002	21.1	8.84
UNS						20.0	8.0
N06625	<0.015	<0.5	<0.5	<0.015	<0.015	-23.0	-10.0

	Nb	Fe	Al	Ti	Ni
	3.66	3.45	0.06	0.005	59.5
	3.15				
	-4.15	<5.0	<0.4	<0.4	>58.0

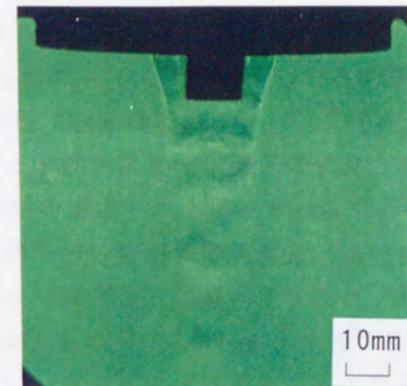
2.3 噴射ガスならびに供給溶湯の流動特性

アトマイズノズルから噴射されるガスジェットの流れ挙動を把握するため、ガスのみを噴射してシュリーレン写真の撮影ならびに溶湯供給管出口近傍の圧力測定を行うとともに、溶湯のアトマイズ状況をビデオ録画し観察した。これらの実験結果をもとにアトマイズの安定運転条件に関して検討すべき事項を把握した。

2.3.1 噴射ガス流れの挙動～シュリーレン法による可視化観察

Table2-1 の③に諸元を示すアトマイズノズルを用い、ガス噴射のみを行ってガス流れの特性を観察した。Fig.2-5 (a) はアトマイズノズルから噴射されるガス流れの状況を側方からシュリーレン法で撮影したものである。ガスは斜め下向きに噴射され、各ジェットには擬似衝撃波が発生している。これらのガスジェットは溶湯供給管の端部が流路の延長線上に存在するため、これを回避するように流動方向を滑らかに変えて溶湯供給管の端部を通過し、ほぼ垂直下方へ流れる。このようにして溶湯供給管の出口側に噴射ガスジェット群で囲まれた逆円錐状のガス流れが生成することが観察された。

噴射角度が異なる場合および溶湯供給管の突き出し長を増した場合におけるガスジェット群の流れの状況を Fig.2-5 (b), (c) および同 (d), (e) に示す。いずれの場合もガスジェットは溶湯供給管の端部を通過したあと、ほぼ垂直下方へ流れることが観察されるが、合流したガスジェットに認められるマッハディスク^{19), 20)}と呼ばれる平板状の高密度な部分が認められる領域は、噴射角度 α が 50°, 65° の場合では $\alpha=30^\circ$ の場合に比べて短い。児島ら¹³⁾による2個の噴流が衝突・合流した流れの研究においても同様の観察結果が得られている。



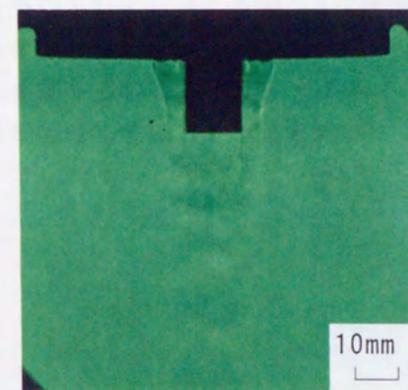
(a) typeB $\alpha = 30^\circ$ $L_m = 10\text{mm}$



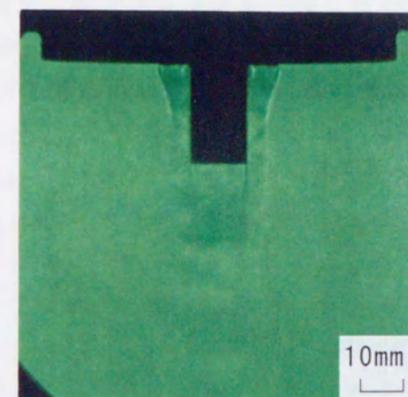
(b) typeB $\alpha = 50^\circ$ $L_m = 6\text{mm}$



(c) typeB $\alpha = 65^\circ$ $L_m = 6\text{mm}$



(d) typeB $\alpha = 30^\circ$ $L_m = 15\text{mm}$



(e) typeB $\alpha = 30^\circ$ $L_m = 20\text{mm}$

Fig.2-5 Schlieren photograph of gas only flow for atomization nozzle.

2.3.2 溶湯供給管出口近傍の圧力分布およびガス流れ

溶湯供給管出口の圧力とアトマイズノズルの安定運転条件との関係を検討するため、溶湯供給管の端面とガスジェットで囲まれた領域内のガス流れについて調べた。中心に内径 2.2 mm の貫通孔を有する外径 11.5mm の円柱状の溶湯供給管が所定の突き出し長となるように、Table2-1 の③に諸元を示したアトマイズノズルの中心に固定し、圧力 1.1MPa の Ar ガスを噴射した。外径 2mm、内径 1.6mm の圧力プローブ II を前記の貫通孔内を移動させることによりプローブ II の先端と溶湯供給管の端面との垂直方向距離 Z_1 を変化させて、各点の圧力の大気圧に対する差 P_z を測定した結果を Fig.2-6 に示す。

通常の溶湯アトマイズを行う状態での溶湯供給管位置 ($L_m=15\text{mm}$) では、 P_z は溶湯供給管出口から下流に進むにしたがって増大し、溶湯供給管出口 ($Z_1=0$) での -12kPa から幾何焦点 ($L_m+Z_1=41\text{mm}$) の約 15mm 上方の点 ($Z_1=11\text{mm}$) で極大値 $+12\text{kPa}$ の正圧を示したあと減少して再び負圧値を示す。いっぽう吹き上げ現象が発生する場合の溶湯供給管突き出し長 ($L_m=10\text{mm}$) では、前述の通常のアトマイズ状態に比べて、溶湯供給管出口の圧力が上昇して、幾何焦点の約 23mm 上方の点 ($Z_1=8\text{mm}$) で極大値 $+12\text{kPa}$ の正圧を示し、さらに Z_1 が増すと P_z は減少する。すなわち前記の通常アトマイズの状態に比べて圧力の極大値はほぼ等しいものの、溶湯供給管出口の圧力が高く下方に向かって圧力は増加し、溶湯供給管出口から幾何焦点近傍までの間で正圧を示す領域が広い。なお前記二者の中間的な溶湯供給管突き出し長 ($L_m=12\text{mm}$) の場合は、正圧を示す領域の広さは前記二者のほぼ中間の値を示した。また正圧の極大値を示す位置より下方で P_z と Z_1 の関係は L_m によらずほぼ同一の曲線で表された。

これらのことから、幾何焦点の近傍から上方に向かう逆流を含む渦流れが生成しており、通常のアトマイズ条件では渦流れ域は小さく溶湯供給管出口では負圧であるのに対して、吹き上げ状態の場合は渦流れ域が大きく形成されるため溶湯供給管出口の圧力が高くなると解釈できる。なお、Fig.2-5 のシュリーレン写真では上記の渦流れを撮影できなかった。溶湯供給管の出口近傍のガス流れは周囲流体との密度差がほとんど無いためと考えられる。2.3.3 項に後述する溶湯アトマイズで観察される溶湯の吹き上げは、この幾何焦点近傍から上方に向かうガス渦流れに起因するものと考えられる。同様の渦流れが生じる現象について、Anderson ら²⁰⁾ は噴射ガスジェットと溶湯供給管の先端部の位置関係によって変化することを示している。また Unal¹⁰⁾ は鉛直方向に噴出する環状ジェットが内側に曲がってよどみ点を生成し、環状ジェットと溶湯供給管の端面で囲まれた領域に循環渦流れが生成することを述べており、本アトマイズノズルにおいても溶湯供給管の出口近傍に逆流を含む渦流れが生成していると考えられる。

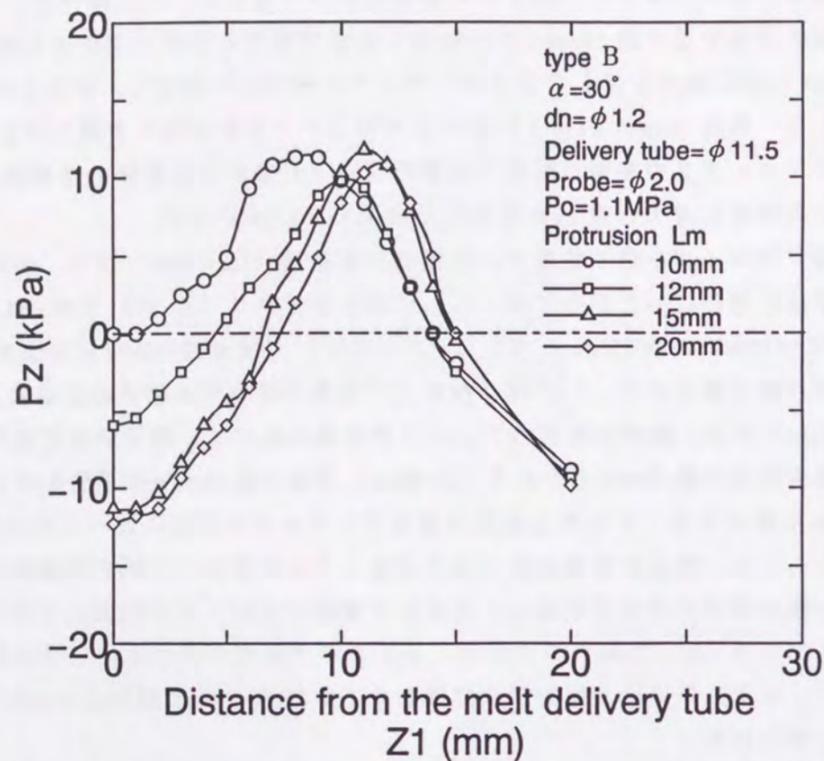


Fig.2-6 Pressure distribution in gas jet cone region
 (pressure probe II measurement).

2.3.3 溶湯アトマイズの挙動～VTR撮影・観察

Table2-1の③に諸元を示すアトマイズノズルを用いて溶湯のアトマイズを実施し、側方からアトマイズ現象を撮影したビデオ画像の例を Fig.2-7(1) に示す。溶湯は溶湯供給管の出口からおおむね溶湯供給管の外周と幾何焦点を結ぶ逆円錐状の領域に広がって赤色を呈し、幾何焦点付近から下方では暗赤色となることが観察された。ビデオ画面を一コマずつ送って溶湯の動きを観察した結果から、溶湯供給管出口から流出した溶湯は溶湯供給管出口の水平端面上を溶湯供給管端部に向かって移動し、上記の逆円錐状領域に広がったのち、幾何焦点付近で微細に分裂して、ほぼ垂直下向きに流れることが分かった。

溶湯供給管の突き出し長を小さくして溶湯供給管出口が周囲圧力とほぼ同じかあるいは正圧を示して吹き上げが発生する場合には、溶湯流が溶湯供給管端部へ比較的多く流れ、吹き上げられた溶湯滴がまず溶湯供給管外周部に付着して凝固し、さらに新たな溶湯滴が付着、凝固を繰り返して溶湯供給管の中心部へ向かって凝固した合金材料が成長しやがてノズル閉塞に至ることが観察された (Fig.2-7(2), Fig.2-7(3))。これは幾何焦点近傍から上方へ逆流するガス流れによって、溶湯滴が溶湯供給管端部においてガスジェットの間隙から溶湯供給管の外周面へ押し上げられることが原因と推定される。

以上のことから、溶湯供給管出口の圧力は、溶湯滴の吹き上げならびに溶湯供給管外周部への溶湯付着を促すような、幾何焦点近傍から生じる上向きの逆流ガスと強い関連性を有しており、アトマイズ操作の安定性と緊密に関連していると考えられる。すなわち Fig.2-7(4) の模式図に示すように溶湯供給管出口の負圧が小さい (圧力が高い) 場合は、逆流ガスが強く生成し、溶湯供給管出口の端面を水平に移動する溶湯が多く、溶湯滴が溶湯供給管の外周部に付着・成長してノズル閉塞が発生するが、Fig.2-7(5) の模式図に示すような溶湯供給管出口の負圧が大きい (圧力が低い) 場合は、逆流ガスの生成は微弱なため溶湯滴の吹き上げは生じないと考えられる。加えて溶湯供給管出口の圧力は溶湯供給管内を流下する溶湯流量に影響を及ぼす。したがって溶湯供給管出口の圧力に与えるアトマイズノズルの諸元の影響を明らかにして溶湯の安定アトマイズ条件を検討することとした。

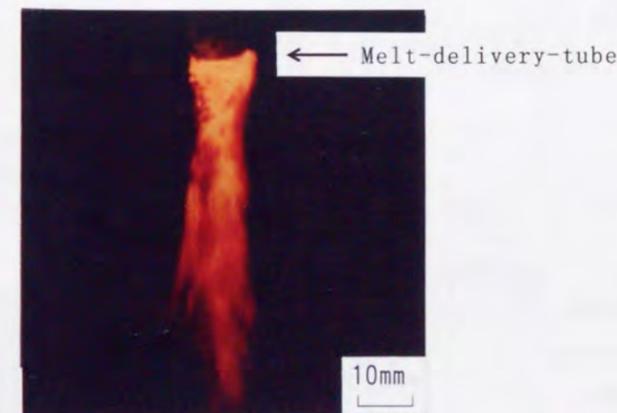


Fig.2-7(1) Photograph of molten metal atomization taken using high-speed VTR of 0.1ms duration.

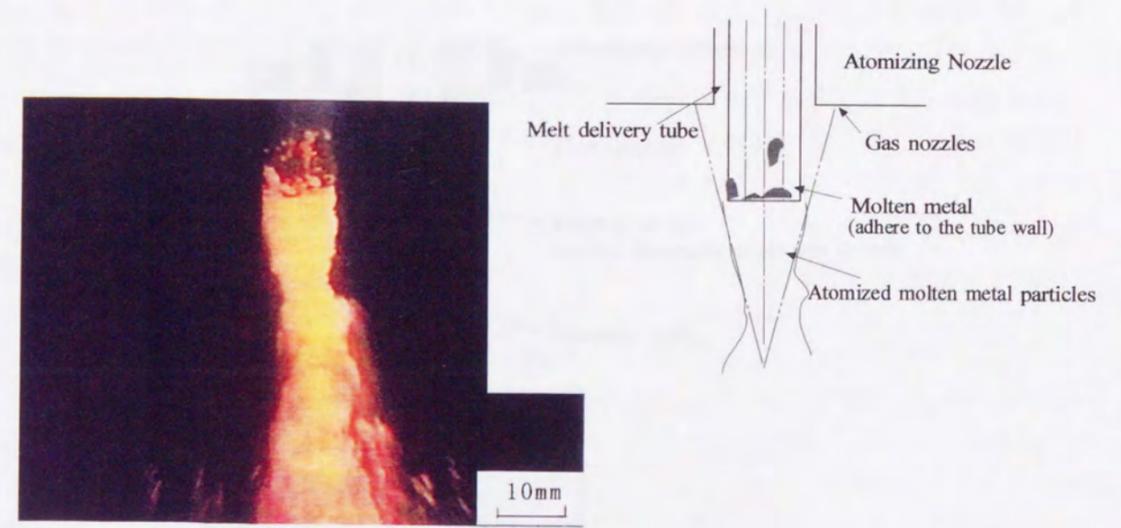


Fig.2-7(2) Photograph of molten metal atomization -- molten metal adhere to the melt delivery tube wall--

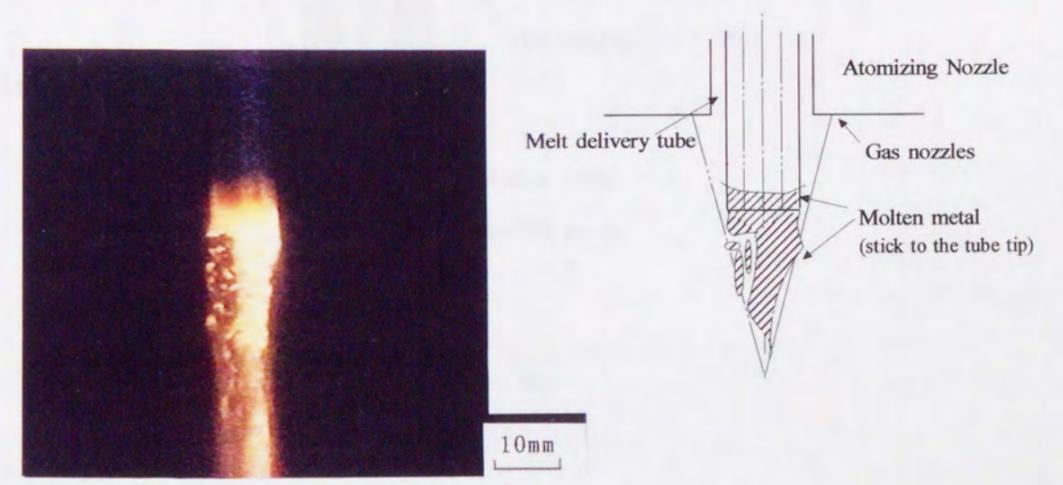


Fig.2-7(3) Photograph of molten metal atomization -- an example of blockage --

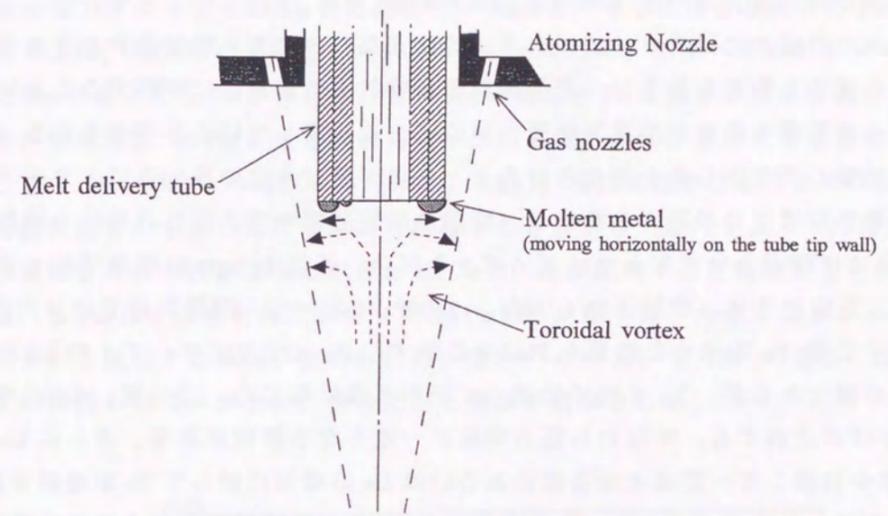


Fig.2-7(4) Schematic illustration of molten metal atomization operating under higher P_m (melt orifice pressure) condition.

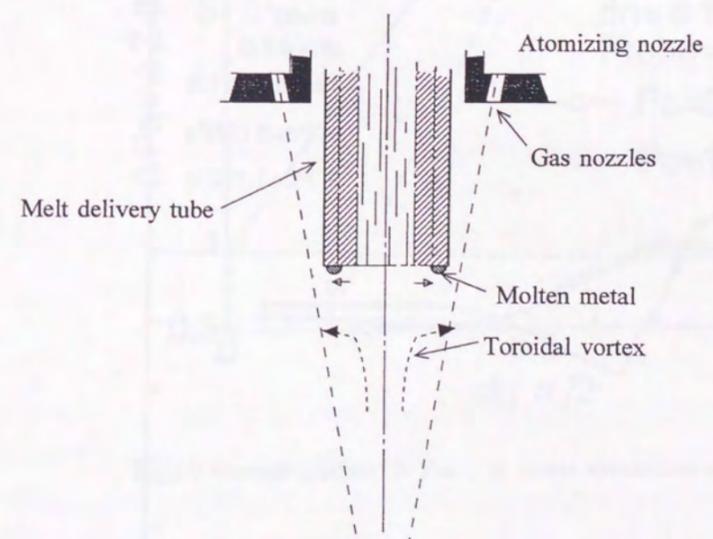


Fig.2-7(5) Schematic illustration of molten metal atomization operating under lower P_m (melt orifice pressure) condition.

2.4 溶湯供給管出口の圧力特性

前節での検討結果から、アトマイズ操作の安定性を溶湯供給管出口の圧力の挙動から推定できることが分かり工業的に有効な判定方法になると期待される。本節では溶湯供給管出口の圧力特性とアトマイズノズル諸元との関係を検討した。

2.4.1 溶湯供給管出口の圧力に対する突き出し長の影響

溶湯供給管出口の圧力にはアトマイズノズルの諸元ならびにガス噴射条件のさまざまな因子が影響を及ぼすと考えられるが、溶湯供給管が噴射ガス流路内に存在することによる噴射ガス流れへの影響の程度が溶湯供給管出口の圧力を決定していると考えられる。したがって溶湯供給管の突き出し長を変化させるとともに、噴射角度の異なるアトマイズノズルを用いて溶湯供給管出口の圧力を測定し、溶湯供給管近傍のガス流れの特性を検討した。

Table2-1の①-2に諸元を示すアトマイズノズルを用い、外径11.5mmの圧力プローブIの突き出し長 L_m を変化させ、噴射圧力1.1MPa、3.0MPaにおいて、溶湯供給管出口の圧力の大気圧に対する差 P_m を求めた結果をFig.2-8に示す。 P_m は圧力プローブIの L_m が小さい状態では正の値であるが、 L_m を増すに従って正から負に転じる。この間、 L_m の増加と P_m の減少がほぼ比例する、すなわち圧力勾配が一定となる領域がある。さらに L_m を増すと P_m が多少回復して一定値となる場合あるいは L_m の増加に従って P_m が増減を繰り返したあと一定値となる場合がある。このような P_m の変化挙動は噴射圧力によらず同様であるが、Fig.2-8に示すように噴射圧力が高いほど、正圧および負圧の極大値ならびに圧力勾配は大きい。また P_m が正から負に転じる L_m の値は噴射圧力が高いほど小さくなる結果が得られた。

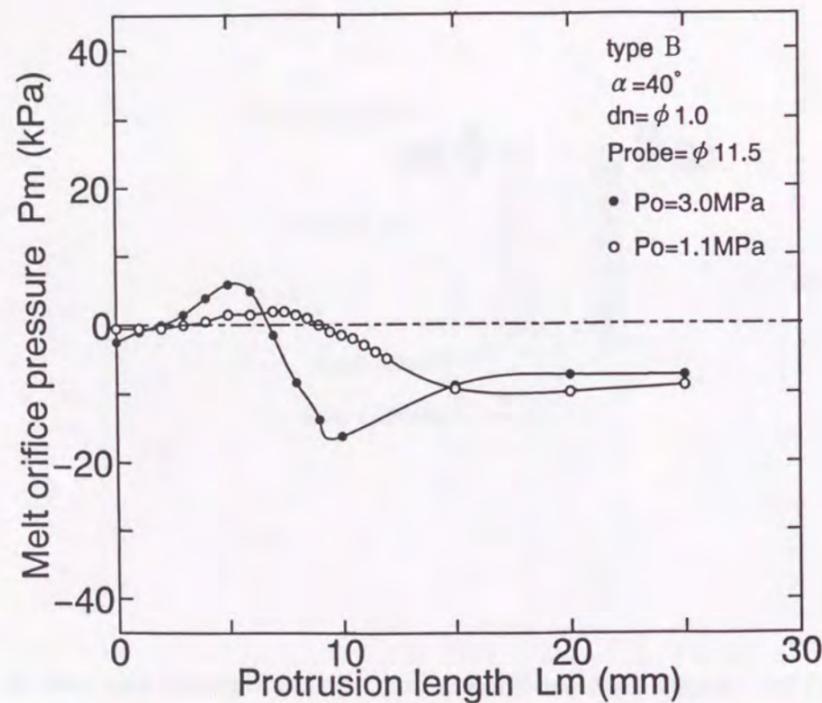


Fig.2-8 Effect of melt delivery tube protrusion on the melt orifice pressure.

2.4.2 溶湯供給管出口の圧力に対する噴射角度の影響

噴射角度 α が大きいほど噴射孔と溶湯流との距離が減るため、高流速のガスを溶湯に吹き付けて微細に粉碎できると考えられるが、いっぽう噴射ガスジェットとの衝突により生じる逆流ガスによる溶湯吹き上げの発生を考慮する必要がある。

Table2-1の①-1～①-7に示す α が 20° から 120° までのアトマイズノズルを用い、外径11.5mmの圧力プローブIの L_m を変化させてFig.2-8に示した場合と同様に P_m の変化を噴射圧力1.1MPa、3.0MPaにて測定した。 α が 20° から 120° のすべてのアトマイズノズルについて P_m が負となる L_m が存在し、また L_m の増加と P_m の減少がほぼ比例する領域が存在した。圧力勾配 $\Delta P_m/\Delta Z$ と噴射角度 $\alpha/2$ の正弦との関係を求めた結果をFig.2-9に示す。ここで $\sin(\alpha/2)$ との関係をみたのは、2.4.3(1)項に後述するようにガスジェットに対する溶湯供給管の干渉の程度すなわち直進すると仮定したガスジェットの流路断面に占める溶湯供給管側面の投影面積の割合と $\sin(\alpha/2)$ とが比例すると見なすことができるためである。 $\Delta P_m/\Delta Z$ は噴射角度が増して $\sin(\alpha/2)$ が増すほど大きくなるが α が $50^\circ \sim 65^\circ$ より大きいと飽和する傾向が認められた。また、 α が 100° と 120° の場合には、圧力プローブIの周囲からガスが上方に吹き上がる現象が観察された。

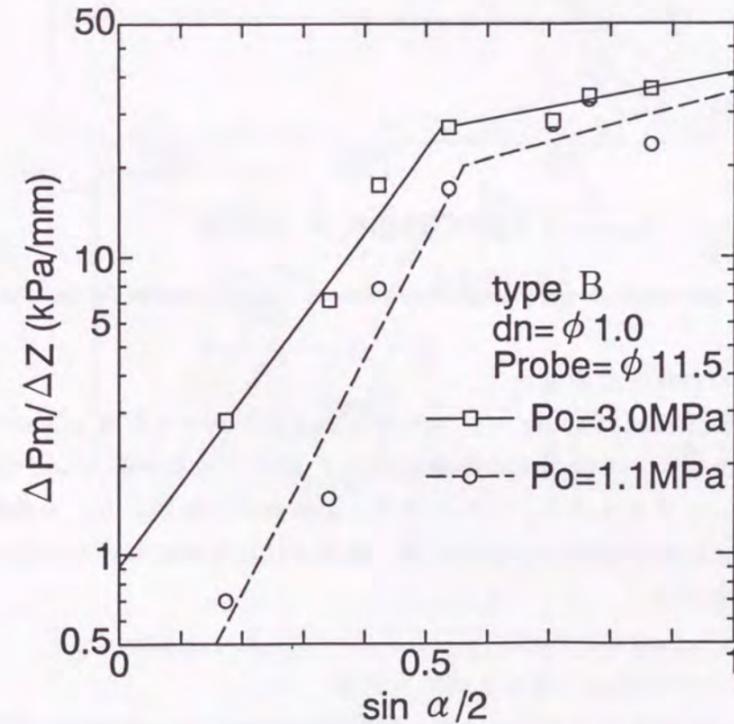


Fig.2-9 Pressure gradient $\Delta P_m/\Delta Z$ versus atomization nozzle apex angle.

前記の現象に関して溶湯供給管周囲のガス流れ特性を調べるため、供試ノズルの上部を円板を用いて気密に保ち、圧力が1.1～3.0MPaのArガスを噴射して、溶湯供給管とガス噴射治具との環状間隙の圧力の大気圧に対する差 P_A を測定した。その結果をFig.2-10に示す。 α が約 50° より大きい場合、 P_A は噴射圧力によらず正の値を示しており、噴射ガ

スは斜め下向きに流れて溶湯供給管の出口近傍に負圧域を生成すると同時に、一部は溶湯供給管に沿って上方に吹き上げ、 P_A が正になる。すなわち噴射角度が約 50° より大きいと噴射ガスの一部が溶湯供給管端部から外周表面を上方に吹き上がり、噴射ガスの一部が溶湯アトマイズに有効に使われない傾向のあることが分かった。

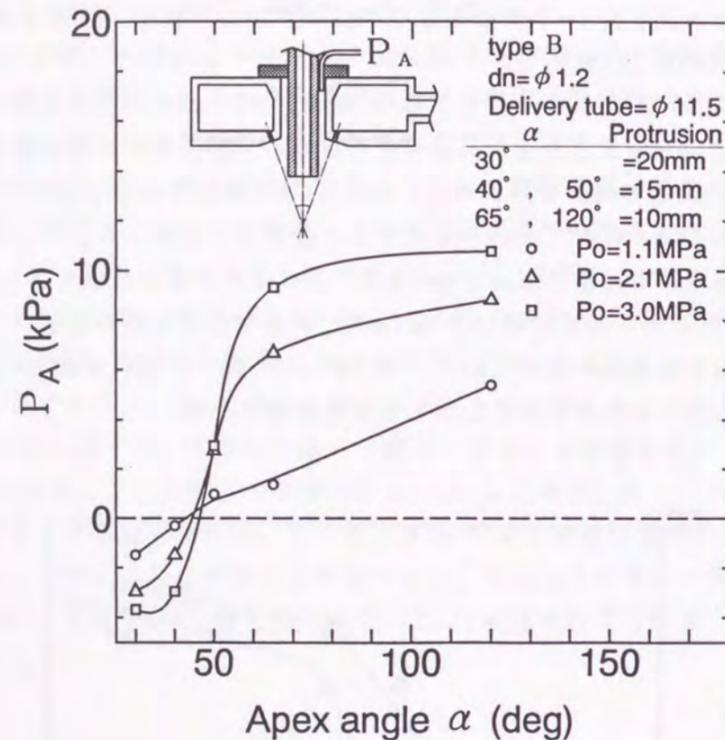


Fig.2-10 Effect of apex angle and gas pressure on the annular space pressure of the atomization nozzle.

2.4.3 溶湯供給管出口の負圧生成機構

溶湯供給管出口の圧力はアトマイズノズルの安定運転に大きく影響を及ぼすことを 2.3 節に述べ、これを決定する各種因子の影響を 2.4.1, 2.4.2 の両項で検討したが、溶湯供給管出口の圧力に対してアトマイズノズルの諸元と運転条件が影響を与える機構は、アトマイズノズルの設計に必要な基礎的知見である。本項では溶湯供給管出口の圧力が決定される機構について考察する。

(1) 溶湯供給管出口の負圧生成に関するモデル計算

溶湯供給管出口に負圧が生成されるのは、溶湯供給管の端部が噴射ガス流れに干渉するような位置関係にある場合であり、ガスジェットが溶湯供給管の端部を回避して流れるので、溶湯供給管の影響を受けない場所を流れるガス流れに比べて流速が増加して溶湯供給管出口の圧力が低下するためと考えられる。溶湯供給管の突き出しによる流速の増加と圧力低下の関係を検討するため、噴射ガスジェットが溶湯供給管によって受ける干渉割合を求める。

Fig.2-5 に示したガス流れの形態から、Fig.2-11 に示すように噴射ガスジェットは直径 d_n

の噴射口から外径 d_n を保ったまま溶湯供給管近傍まで直進すると近似する。このガスジェットの溶湯供給管軸方向すなわち鉛直方向の断面は短径 $d_n/2$ 、長径 $d_n/2 / \sin(\alpha/2)$ の楕円と近似して面積 S_0 は (2-6) 式で与えられる。この楕円上への溶湯供給管の投影面積が溶湯供給管の突き出し長の増分 ΔZ によって変化する値 ΔS は、楕円の中心に溶湯供給管端部が一致する位置を中心とする区間では、横を楕円の短径 $d_n/2$ 、縦を ΔZ とする矩形として (2-7) 式で示される。(2-6), (2-7) 式から溶湯供給管による干渉面積の突き出し長に対する勾配は (2-8) 式で表される。

$$S_0 = \pi (d_n/2) \cdot \{ (d_n/2) / \sin(\alpha/2) \} \\ = \pi (d_n/2)^2 / \sin(\alpha/2) \quad (2-6)$$

$$\Delta S = d_n \cdot \Delta Z \quad (2-7)$$

$$(\Delta S/S_0) / \Delta Z = 2 \cdot \sin(\alpha/2) / (\pi \cdot d_n) \quad (2-8)$$

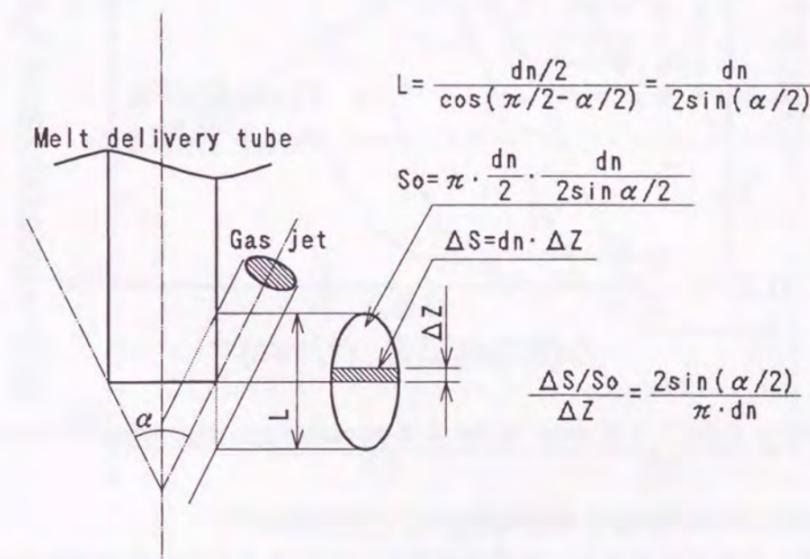


Fig.2-11 Geometrical illustration of the melt delivery tube and gas jets.

溶湯供給管を回避するように噴射ガスが流れて加速されると仮定すれば、上記の干渉面積の増加に応じて噴射ガスの流速が増加し、溶湯供給管出口の圧力が低下することとなる。(2-8) 式によれば干渉面積割合の溶湯供給管突き出し長に対する勾配 $(\Delta S/S_0) / \Delta Z$ は噴射孔径と噴射角度によって決定される。ここでは噴射孔径 d_n は同一にして噴射角度を変えてアトマイズノズルの溶湯供給管出口に生成する負圧の特性を検討した。

Fig.2-12 に溶湯供給管の突き出し長に対する干渉面積割合の変化率 $(\Delta S/S_0) / \Delta Z$ と溶湯供給管出口圧力の溶湯供給管突き出し長に対する変化率 (圧力勾配) $\Delta P_m / \Delta Z$ との

関係を示す。この結果から噴射圧力が 3.0MPa の場合、 $\Delta P_m / \Delta Z$ は $(\Delta S/S_0) / \Delta Z$ のほぼ 2 乗に比例して変化しており、ガス流速が $(\Delta S/S_0)$ に比例して増加すると仮定すれば圧力が流速の平方に比例して変化するベルヌイの定理に従う現象と見なすことができる。また、噴射圧力が 1.1MPa の場合の測定結果はバラツキが多いものの、おおむね前記と同様に $\Delta P_m / \Delta Z$ が $(\Delta S/S_0) / \Delta Z$ の 2 乗に比例すると見なせる。これらのことから溶湯供給管出口には、溶湯供給管の影響が無い場合にガスジェットが合流・衝突することによって正圧域が生成するが、溶湯供給管の突き出しに伴ってガス流れの加速による圧力低下の効果によって負圧域が形成されると考えられる。

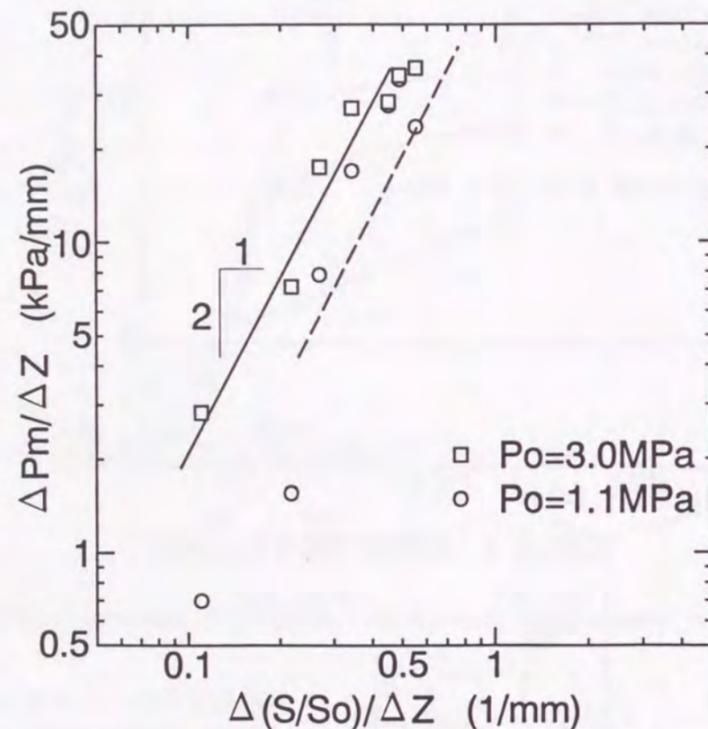


Fig.2-12 $\Delta(S/S_0) / \Delta Z$ versus $\Delta P_m / \Delta Z$ for various apex angle atomization nozzle.

(2) 溶湯供給管出口の圧力に関する影響因子

前項(1)に記した検討結果から、溶湯供給管出口での負圧生成は溶湯供給管端部の局所的なガス流れで決まると考えられる。アトマイズノズルの設計において溶湯供給管の外径ならびに溶湯供給管とアトマイズノズル間の間隙の有無は重要な要素であるため、これらの因子を変化させた実験によって圧力勾配の変化を検討した。

(2-1) 溶湯供給管外径の影響

溶湯供給管出口圧力の変化挙動が溶湯供給管の外径によって受ける影響について検討した。外径の異なる圧力測定プローブ I を微動装置に固定して P_m と L_m との関係性を求めた結果を Fig.2-13 に示す。プローブ外径が大きいほど、突き出し長が小さい段階で負圧が生成するが、プローブ突き出し長に対する圧力の変化すなわち圧力勾配 $\Delta P_m / \Delta Z$ はプローブ

外径によらずほぼ一定であることが分かった。これにより、溶湯供給管出口に負圧が生成することは、プローブの突き出しによる溶湯供給管近傍の局所的なガス流れの変化を反映する現象と考えられる。

(2-2) アトマイズノズルと溶湯供給管の間隙部の気密化の影響

前述の溶湯供給管出口圧力の変化挙動に関して、アトマイズノズルと溶湯供給管の間隙部を気密化することの影響を明らかにするため、圧力測定プローブ I にシール材を介して密着させた円板状治具をアトマイズノズルに気密に取り付け、ガス流通の無い状態において P_m と L_m との関係性を求めた結果も Fig.2-13 に示す。圧力勾配 $\Delta P_m / \Delta Z$ は、アトマイズノズルと溶湯供給管との間隙が気密状態でも開放状態でもほぼ同様の値を示している。なお密閉状態において同じ L_m においても P_m が負側へシフトするのは、溶湯供給管とアトマイズノズルとの環状間隙部が開放状態に比べてより負圧になるためと考えられる。

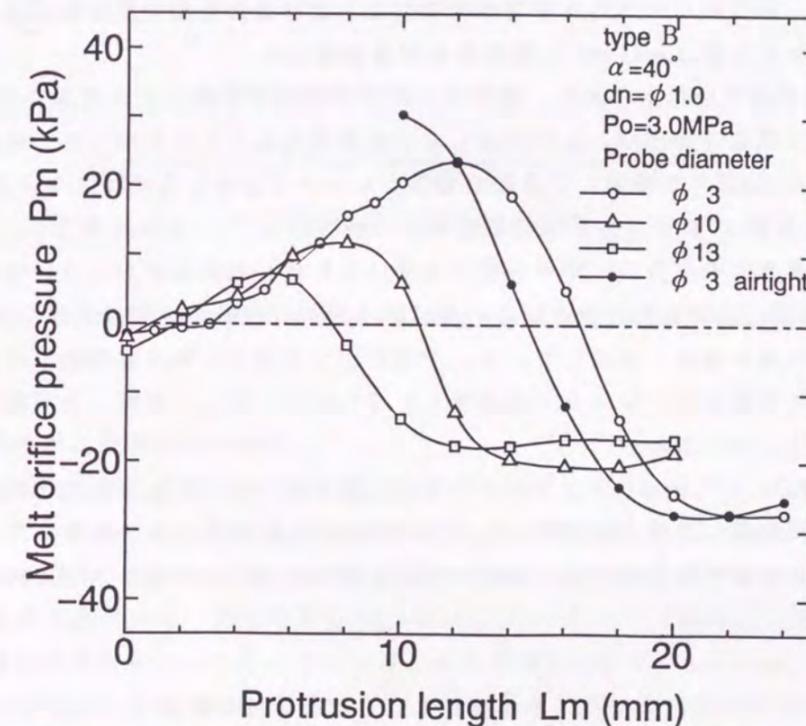


Fig.2-13 Effect of pressure probe diameter and clearance between melt delivery tube and atomizing nozzle on $\Delta P_m / \Delta Z$.

(airtight: the clearance is hermetically sealed)

圧力勾配 $\Delta P_m / \Delta Z$ が両者でほぼ同じであることから溶湯供給管出口近傍のガス流れは密閉状態と開放状態とで変化が無く、溶湯供給管の突き出しに伴って溶湯供給管の出口近傍で負圧域を生成する挙動は主として溶湯供給管端部のガス流れのみによって決定されていることが分かる。

これらの実験結果から、溶湯供給管出口の圧力変化挙動は溶湯供給管端部での局所的なガス流れのみに関係することが分かり、前項 2.4.3(1)に記したモデル解析結果と合致する。

2.5 アトマイズノズルの噴射ガス流速分布の特性

コンファインド型アトマイズノズルの諸元と生成するガス流れの流速との関係について実験的に検討した。

2.5.1 B型（標準型）アトマイズノズルにおけるガス流速分布の特性

(1) ノズル中心ガス流速の垂直方向変化

2.3.3項に述べたとおり、溶湯流の噴霧は幾何焦点近傍で起こることが観察された。そこでアトマイズノズル下方の垂直方向におけるガス流速の変化を明らかにしてアトマイズノズルから噴射されるガスジェットの水平面内の代表的流速分布を測定すべき垂直方向の位置を検討した。

溶湯アトマイズに標準的に使用されるアトマイズノズルとして、Table2-1の①-2に諸元を示すアトマイズノズルを選び、圧力1.1MPaのArガスを噴射し、アトマイズノズルの中心軸上を垂直方向にピトー管プローブを動かして、垂直方向の位置と流速との関係を求めた。このとき、あらかじめ求めた溶湯供給管位置と出口圧力との測定結果に従って、 P_m が約-10kPaとなる位置($L_m=15\text{mm}$)に溶湯供給管を固定した。

Fig.2-14に測定結果を示すとおり、幾何焦点の近傍で上下方向にガス流速の変化が少なく、ガス流速が垂直方向にほとんど減衰しない領域のあることが判明した。超音波アトマイズノズルからHeガスを噴射して多数のガスジェットが合流した流れについて流速測定したJ.Liuらの実験においても同様の結果が得られている⁵⁹⁾。また児島ら¹³⁾による2個の不足膨張噴流の干渉流れに関する研究結果によれば、衝突角度が小さい場合(45°)、

合成された噴流には時間的変動の少ない噴流境界層が比較的下流側まで強く形成され振動や拡散の挙動は単一噴流と類似していることが分かっており、本研究で用いたアトマイズノズルのように多数のガスジェットが合流した流れにおいても、類似した挙動を示す噴流が生成していると考えられる。

以上のことから、アトマイズノズルから噴出した多数のガスジェットは合流して幾何焦点の多少上流で到達した最大値を保って下方へ流れることが分かったため、アトマイズ粉末の粒度に強く影響すると考えられるガス流速分布は幾何焦点を通る水平面内での測定値を代表値とした。

(2) ガス流速の水平方向分布に与える溶湯供給管突き出し長の影響

供試アトマイズノズルは溶湯供給管の突き出し長によって溶湯供給管出口の圧力が変化する。適正な負圧値となるように突き出し長を調整して溶湯アトマイズに供する。このとき溶湯供給管の突き出し長によって幾何焦点周りのガス流速分布が変化する挙動を把握することは微粉末の生成に適したアトマイズノズルの設計に必要であり、ガス流れを明らかにするための基礎的知見としても重要である。

Table2-1の①-2、①-3、①-4、①-5、③に諸元を示すアトマイズノズルから、圧力1.1MPaのArガスを噴射し、アトマイズノズルの幾何焦点を通る水平直線上をピトー管プローブを動かして、幾何焦点周りの流速分布を求めた。このとき、 P_m が溶湯の吹き上げを発生させない限界の値である約-3kPaを示す溶湯供給管の突き出し長の場合、ならびに P_m が L_m に対してほぼ飽和する突き出し長の場合の両者について測定した。

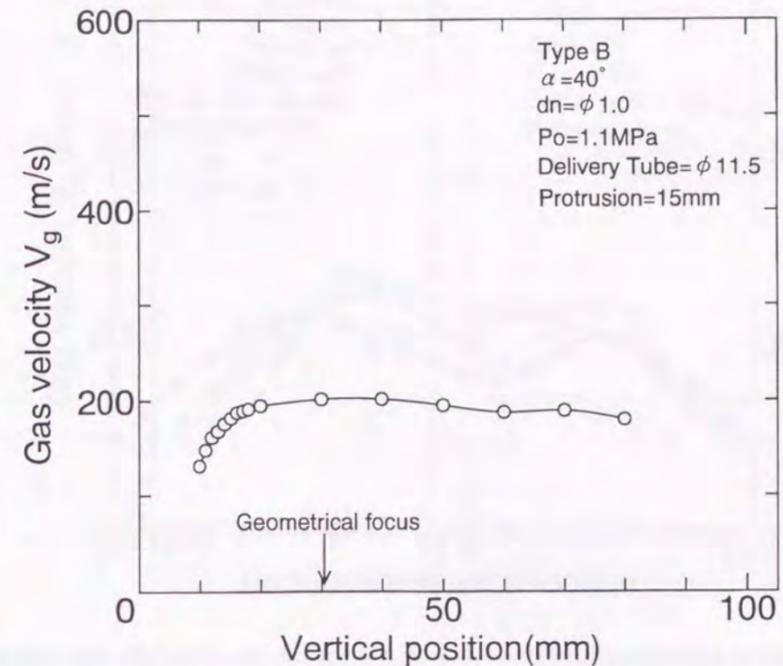


Fig.2-14 Gas velocity distribution as measured along vertical center line of the atomization nozzle (typeB $\alpha = 40^\circ$).

(2-1) 噴射角度が比較的小さい場合

まず、噴射角度が比較的小さい $\alpha = 40^\circ$ のアトマイズノズルを用いて、1.1MPaでArガスを噴射し、 $L_m=11\text{mm}$ (このとき $P_m=-3\text{kPa}$)の場合、ならびに P_m が L_m に対してほぼ飽和する $L_m=15\text{mm}$ の場合(このとき $P_m=-10\text{kPa}$)について幾何焦点を通る水平な直線上の各点におけるガス流速を測定した。測定結果をFig.2-15-(1)に示すとおり、幾何焦点周りのガス流速分布は溶湯供給管の突き出し長によってほとんど影響を受けず、 $L_m=11\text{mm}$ と $L_m=15\text{mm}$ の両方でガス流速はほぼ同じ値を示した。

同様の結果が、Fig.2-15-(2),(3)に示すとおり噴射角度 α が 30° 、 50° のアトマイズノズルについても得られた。

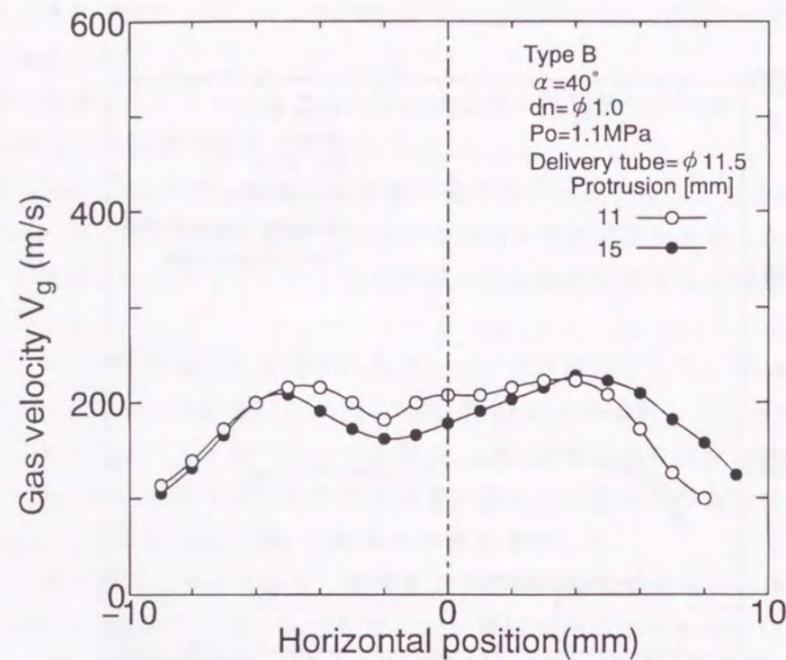


Fig.2-15-(1) Gas velocity distribution as measured along a horizontal line through the geometrical focus (typeB $\alpha=40^\circ$).

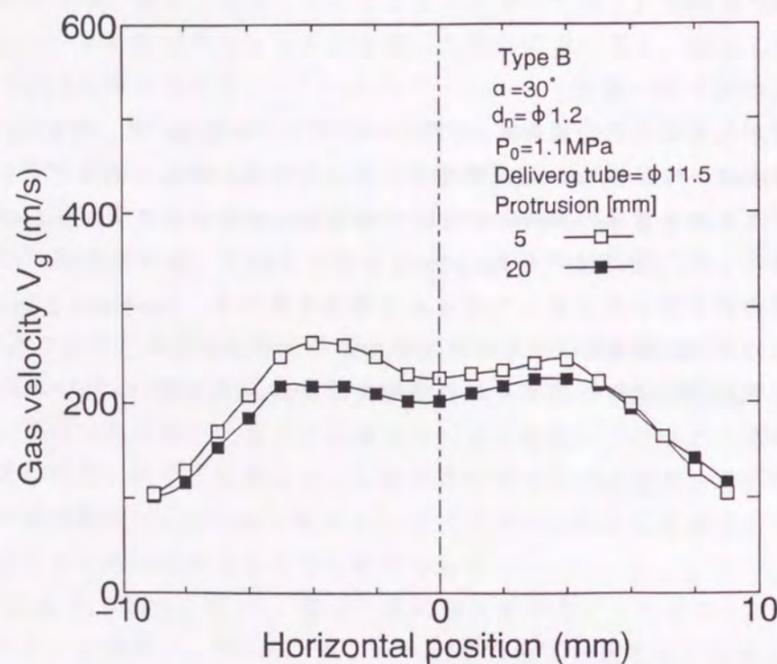


Fig.2-15-(2) Gas velocity distribution as measured along a horizontal line through the geometrical focus (typeB $\alpha=30^\circ$).

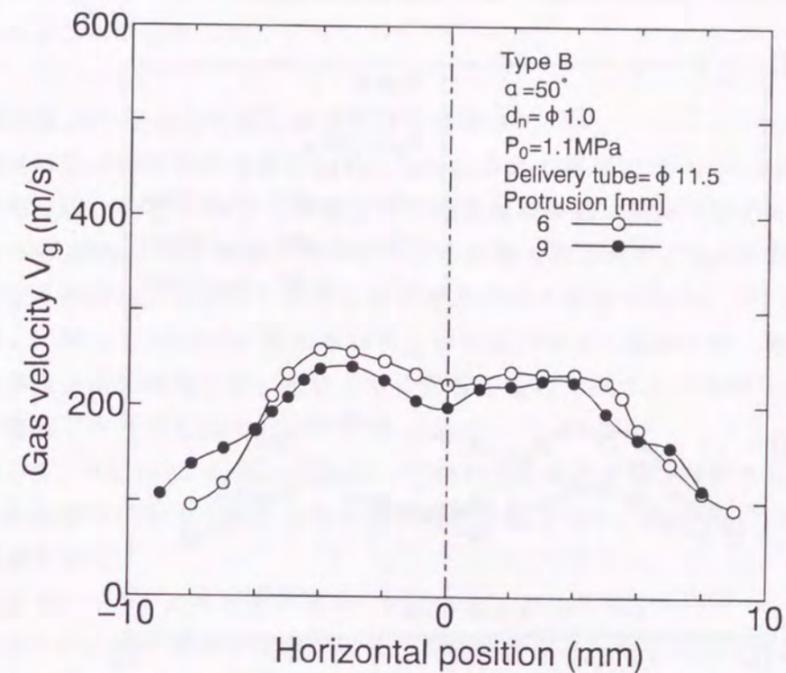


Fig.2-15-(3) Gas velocity distribution as measured along a horizontal line through the geometrical focus (typeB $\alpha=50^\circ$).

(2-2) 噴射角度が比較的大きい場合

噴射角度を増すほど、噴射孔から幾何焦点までの距離が減るためガスジェットの流れ減衰が少なく、より高流速のガス流れを溶湯に衝突させ微粉末を生成できる可能性がある。

噴射角度が比較的大きい $\alpha=65^\circ$ のアトマイズノズルを用いて、1.1MPaでArガスを噴射し、溶湯供給管出口で十分大きな負圧を生じる $L_m=10\text{mm}$ (このとき $P_m=-13\text{kPa}$) の場合について、幾何焦点を通る水平な直線上の各点におけるガス流速を測定した。Fig.2-16に示す通り幾何焦点周りのガス流速は、前記した噴射角度が比較的小さい場合に比べて、とくに中央部で著しく低流速となり双峰状となった。

同様に噴射角度 $\alpha=90^\circ$ のアトマイズノズルについても、溶湯供給管出口で十分大きな負圧を生じる $L_m=7\text{mm}$ (このとき $P_m=-15\text{kPa}$) の場合について、幾何焦点周りのガス流速を測定したところ、前記の $\alpha=65^\circ$ の場合と同様に著しく低流速となることが分かった。そこで L_m の影響を調べるため、 $\alpha=65^\circ$ のアトマイズノズルについて L_m を減じ溶湯供給管のガス流れへの干渉が少なくなる $L_m=6\text{mm}$ の場合 (このとき $P_m=-0.5\text{kPa}$) について幾何焦点周りのガス流速を測定した結果を Fig.2-17 に示す。 L_m を減じると高流速化するとともに流速分布は単峰状に近くなり、中心軸での流速は $\alpha=50^\circ$ の場合よりも大きくなった。さらに $\alpha=90^\circ$ の場合も L_m を減じると噴射ガスは $\alpha=65^\circ$ の場合と同様に高流速化した。このことから、噴射角度が高い場合にも噴射されたガスジェットは幾何焦点近傍で合流して垂直方向に高流速を有するガス流れを生成するが、噴射角度が低い場合に比べて溶湯供給管の影響を強く受け溶湯供給管の突き出し長が増すと急速に減速することが分かった。

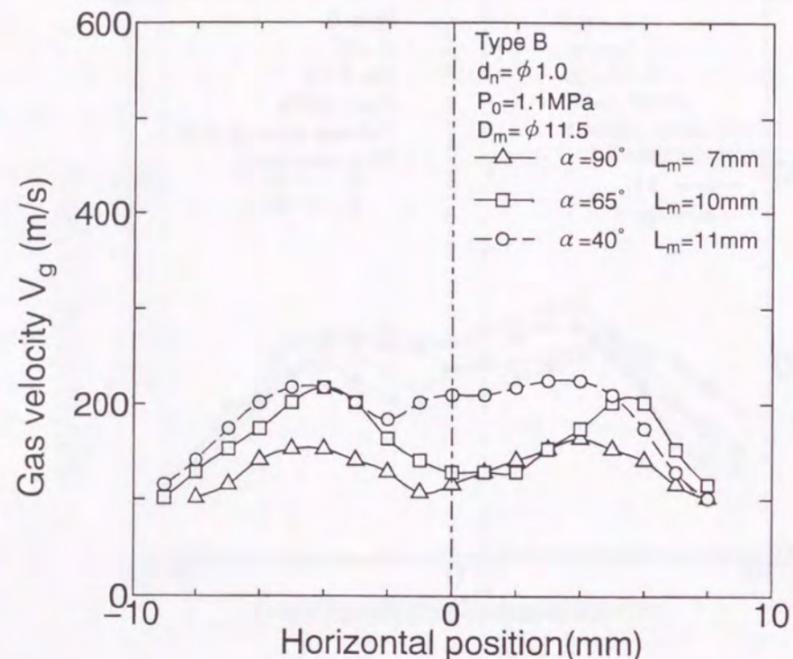


Fig.2-16 Comparison of gas velocity distribution along a horizontal line with different apex angle values.

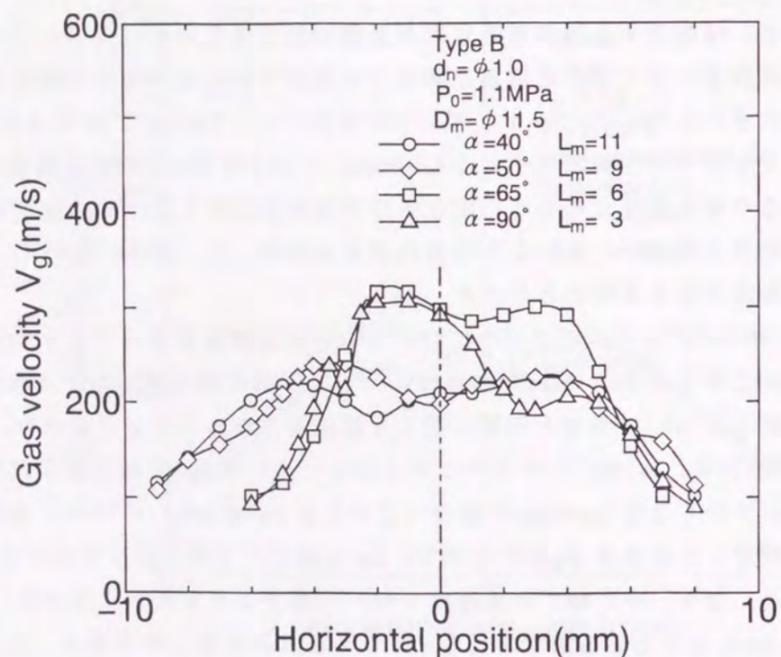


Fig.2-17 Comparison of gas velocity distribution along a horizontal line with different apex angle values in case of retracted melt delivery tube position.

これらのことから、検討した形式のアトマイズノズルにおいて、溶湯供給管出口圧力が十分な負圧を示し、かつ幾何焦点周りに高流速のガス流れを生成する噴射角度の上限は $\alpha \approx 50^\circ$ であることが分かった。

(2-3) 溶湯供給管出口圧力の勾配と流速減衰との関係

噴射角度が溶湯供給管の出口近傍のガス流れに与える影響について、Fig.2-18 に示すように、圧力勾配 ($\Delta P_m/\Delta Z$) の変化挙動とガス流速減衰挙動に関連が認められる。ここで V_{g1} は P_m が約 -3kPa となる位置に溶湯供給管を配置した場合の、 V_{g2} は L_m に対する P_m の変化が少なく十分な負圧を示す場合の幾何焦点のガス流速である。

噴射角度 α に対して ($\Delta P_m/\Delta Z$) が飽和する傾向を示す α の範囲では、幾何焦点周りのガス流速は溶湯供給管の突き出し長に大きく影響を受け、吹き上げを発生させない条件下では高流速の噴射ガスは得られない。

これに対して、($\Delta P_m/\Delta Z$) が α に比例して増加する範囲では、幾何焦点周りのガス流速は、溶湯供給管の突き出し長によらずほぼ同様な値を示し、結果として $\alpha=50^\circ$ の場合に最も高流速を得た。

噴射角 α が $50^\circ \sim 65^\circ$ より大きい場合、Fig.2-5 (b), (c) に示すシュリーレン写真では明確に写っていないが、ガス流線が溶湯供給管の端部近傍で滑らかに曲がらず、2.4.2 項に記載したとおり噴射ガス流の一部が溶湯供給管に沿って吹き上げる。これが上記の高噴射角度域におけるガス流速減衰の一因と考えられ、端部が直角な溶湯供給管を用いる場合、噴射角度の上限は約 50° と考えられる。

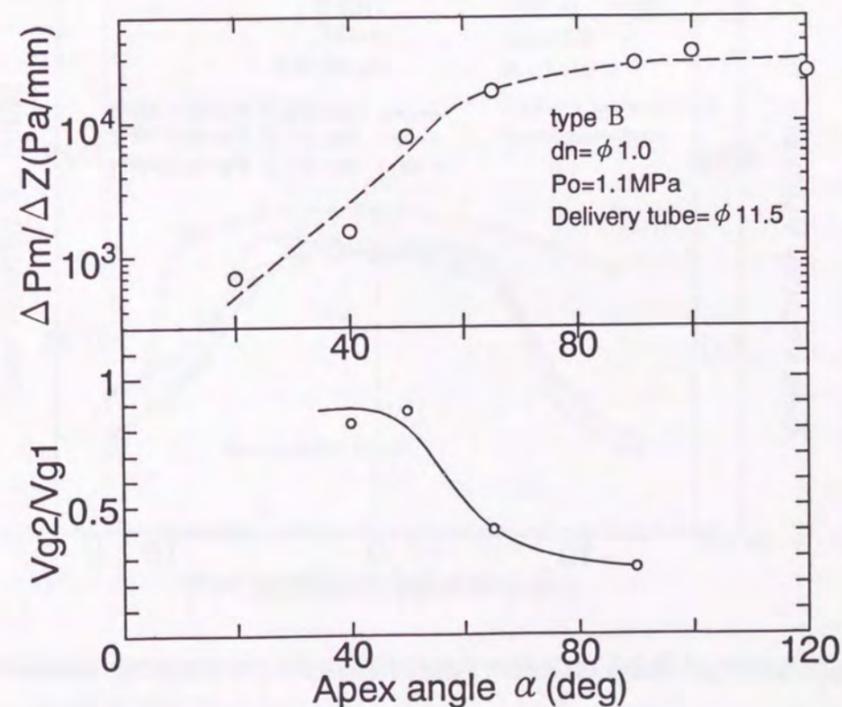


Fig.2-18 Experimental relation between $\Delta P_m/\Delta Z$, V_{g1}/V_{g2} and apex angle.

(3) 噴射圧力の効果

児島ら⁵⁾は直円管から噴出する高速気流について出口近傍の噴流挙動の研究から、ガス流れは急膨張のため出口直前から加速しマッハ1~2の超音速噴流が生成すること、その流れは一種の不足膨張噴流であり擬似衝撃波が発生することを明らかにしている。本研究で用いた直管の噴射孔を具備した供試ノズルから噴出するガス噴流についても擬似衝撃波が観察されており超音速噴流が生成しているため、高圧噴射による流速の増減を調べた。

噴射角度 α は 20° とし、ガス噴射流量が同一となるように噴射孔径の異なるアトマイズノズルを用いて噴射圧力と幾何焦点周りの流速分布との関係を求めた結果を Fig.2-19 に示す。ガス流量がほぼ同一の場合に噴射圧力を増大させても幾何焦点周りの流速値ならびに流速分布にほとんど変化は認められなかった。

児島ら^{5), 6)}が直円管からの不足膨張噴流について得ている、擬似衝撃波の長さ X_L を噴射孔径 d で除した値(X_L/d)は出口の平均マッハ数 \overline{Ma} の増大に伴ってわずかに増すこと、擬似衝撃波の終了点でのマッハ数は約1.1であることを本実験結果について適用できるとすれば、小径噴射孔からの高圧噴射と大径噴射孔からの低圧噴射の両方で擬似衝撃波が発生しているコア部の長さがほぼ同じになることにより、Fig.2-19の実験条件では合流した噴流の流速がほぼ同じになったと考えられる。

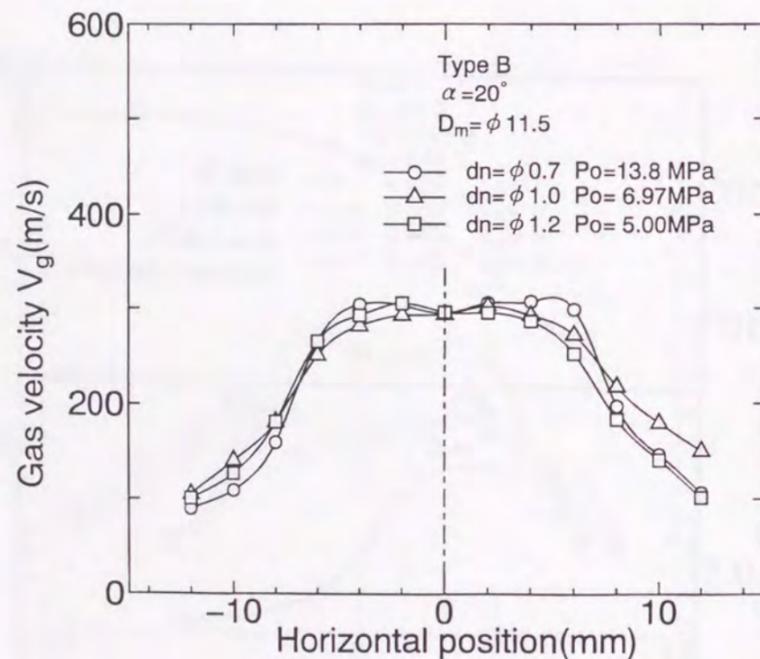


Fig.2-19 Comparison of gas velocity distribution along a horizontal line in case of high pressure atomization.

2.5.2 C型(近接型)アトマイズノズルにおけるガス流速分布の特性

粉末製造コスト低減の観点から、より少量のガスで微粉末を生成することが求められる。本研究で用いた形式のアトマイズノズルで噴射ガスを高圧化するだけでは高流速ガス流れが生成しないことは2.5.1(3)項に述べたとおりである。ガスジェットの流速は噴射孔からの距離に従って減衰することは避けられないため、高流速のガスジェットを溶湯流に衝突させる手段として近接噴射すなわち噴射孔を溶湯供給管に近接させて配置したアトマイズノズルにより幾何焦点周りのガス流れを高速化することについて検討した。

アトマイズノズルから噴射されるガスの流動特性を検討するため、溶湯供給管の外径ならびに噴射角度が同一で、ガス噴射孔を配置した円の径 D_n を減少させた typeC のアトマイズノズル (Table2-1 の④-1) を用いてガス流速を測定した。

(1) ノズル中心ガス流速の垂直方向変化

上記の供試アトマイズノズルに 1.1MPa の Ar ガスを供給して噴射し、2.5.1(1)項と同様にして垂直方向の位置と流速との関係を求めた結果を Fig.2-20 に示す。このときあらかじめ測定した実験結果を用いて、大気圧に対する溶湯供給管出口圧力が約 -20kPa となる位置に溶湯供給管を固定した。測定結果から、幾何焦点の近傍において上下方向でガス流速の変化は比較的小さく、2.5.1項に記したB型アトマイズノズルと同様に垂直下向きガス流速の水平方向分布は幾何焦点を通る水平面内で測定することで代表性があると見なした。

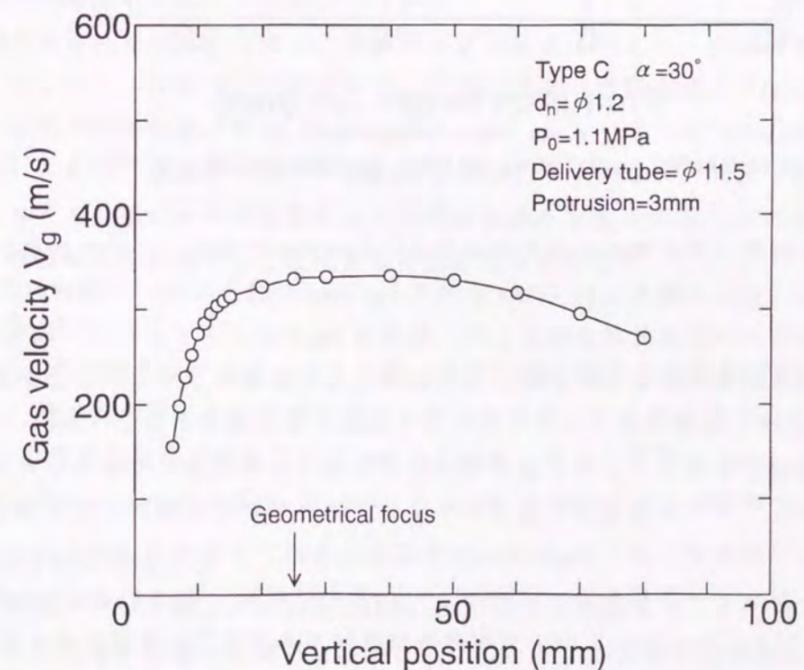


Fig.2-20 Gas velocity distribution as measured along vertical center line of the atomization nozzle (typeC $\alpha = 30^\circ$).

(2) ガス流速の水平方向分布に与える溶湯供給管突き出し長の影響

上記(1)と同一条件でガス噴射し、溶湯供給管と同一寸法の圧力プローブを微動装置に設置して、 L_m を変化させて P_m を測定した。Fig.2-21に測定結果を示すとおり噴射孔の溶湯供給管への近接により圧力勾配 $\Delta P_m / \Delta Z$ が著しく増大するため、溶湯のアトマイズにおいては溶湯供給管を所定の位置に厳密に設定することが求められる。

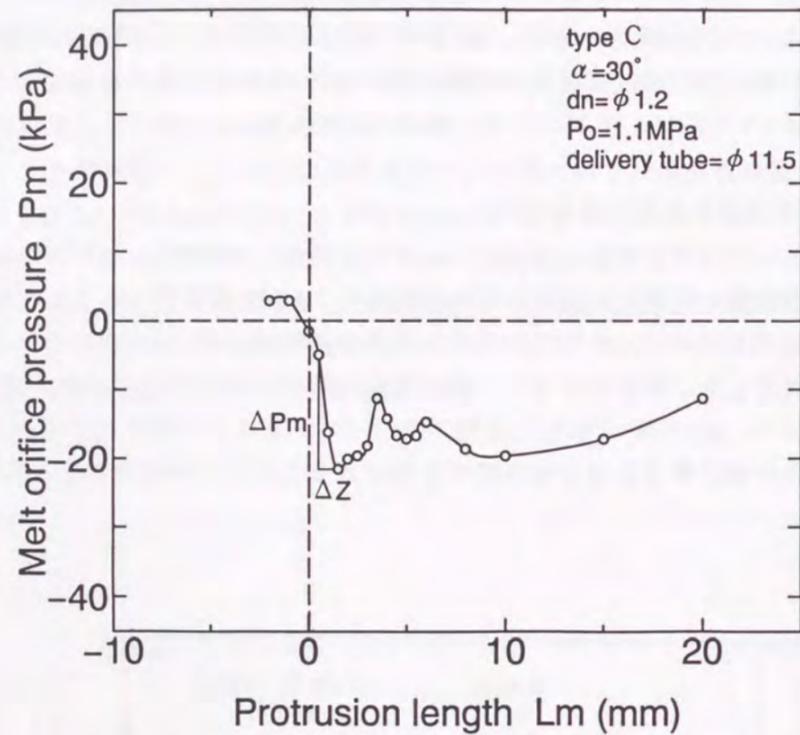


Fig.2-21 Melt orifice pressure results for typeC atomization nozzle ($\alpha = 30^\circ$).

つぎに、溶湯供給管のガス流れへの干渉が少ない $L_m=0\text{mm}$ の場合(このとき $P_m=-5\text{kPa}$)、ならびに P_m が L_m に対して飽和し約 -20kPa を示す $L_m=3\text{mm}$ の場合について幾何焦点を通る水平な直線に沿ってガス流速分布を測定した。結果をFig.2-22に示すとおり、幾何焦点周りのガス流速分布は溶湯供給管の突き出し長にはほとんど影響を受けないことが分かった。

また、Fig.2-15に示した標準型アトマイズノズルにおける流速分布と比べれば、噴射孔を溶湯供給管に近接させることにより幾何焦点周りのガスを高流速化できることが明らかである。これは単孔ノズルから噴出するガスジェットの流動特性を検討した児島らの研究結果^{6, 8)}に照らして考察すれば、Fig.2-22に示す流速分布はアトマイズノズルから噴射されるガスジェットがコア状態を保って合流しているのに対し、Fig.2-15(2)にtypeB ($\alpha = 30^\circ$)のアトマイズノズルについて示す流速分布は噴射ガスがすでに周囲気体を取り込んで低流速化したものが合流した結果と見なすことができる。本実験に用いたtypeC ($\alpha = 30^\circ$)のアトマイズノズルでは噴射孔と幾何焦点間の距離 L_g が 25.1mm であるのに対して、typeB ($\alpha = 30^\circ$)では $L_g=42.5\text{mm}$ である。高流速ガス流れを生成するには噴射孔と溶湯供給管の近接化が必要である。

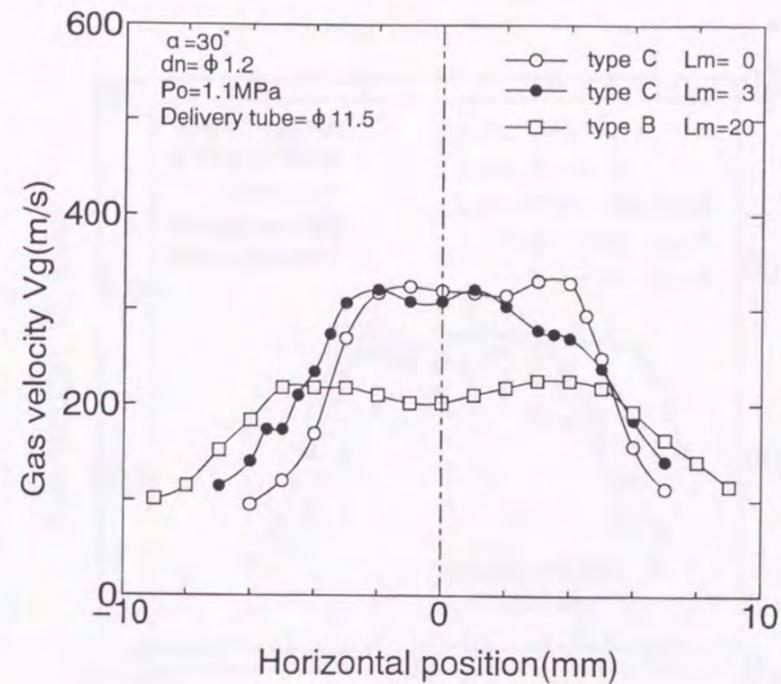


Fig.2-22 Comparison of gas velocity distribution along a horizontal line with different nozzle configuration.

(3) テーパー型噴射孔による高流速化の検討

高流速ガス流れを生成するため、噴射孔の近接配置に加えて、末広りの噴射孔を具備したアトマイズノズルについて検討した。圧縮性流体の超音速流れ生成には、流路途中にスロートを持つ先細末広ノズル (convergent-divergent nozzle あるいは Laval nozzle と呼ばれる) が用いられる。本研究で用いた Fig.2-1 に示したアトマイズノズルでは直円管からガスを噴出させると出口の絞り効果によって超音速流れが生成することが分かっているが、末広りの噴射孔を具備することによる高流速化を検討した。

(3-1) 供試アトマイズノズル

2.2.1 項 に述べたアトマイズノズルと同一の寸法で、噴射孔が断面積変化の無い直円管に替わり、断面は円形でその面積が出口に向かってテーパー状に増加する末広りの流路(上流側、下流側の直径がそれぞれ 1.2mm と 1.6mm でテーパー区間が 3mm)としたガス噴射孔を具備したアトマイズノズル (Table2-1 の④-2) を用いてガス流動特性を検討した。

(3-2) 垂直方向の流速分布

上記の供試アトマイズノズルから 1.1MPa のArガスを噴射して、2.5.1(1)項と同様にして垂直方向の位置と流速との関係を求めた。このとき、あらかじめ測定した溶湯供給管出口圧力が大気圧に対して -22kPa となる位置に溶湯供給管を固定した。Fig.2-23に測定結果を示すとおり、幾何焦点の近傍で上下方向ではガス流速の変化が少なく、2.5.2(1)項に記したアトマイズノズルの場合と同様に、垂直下向きガス流速の水平方向分布は幾何焦点を通る水平面内で測定することで代表性があるとした。

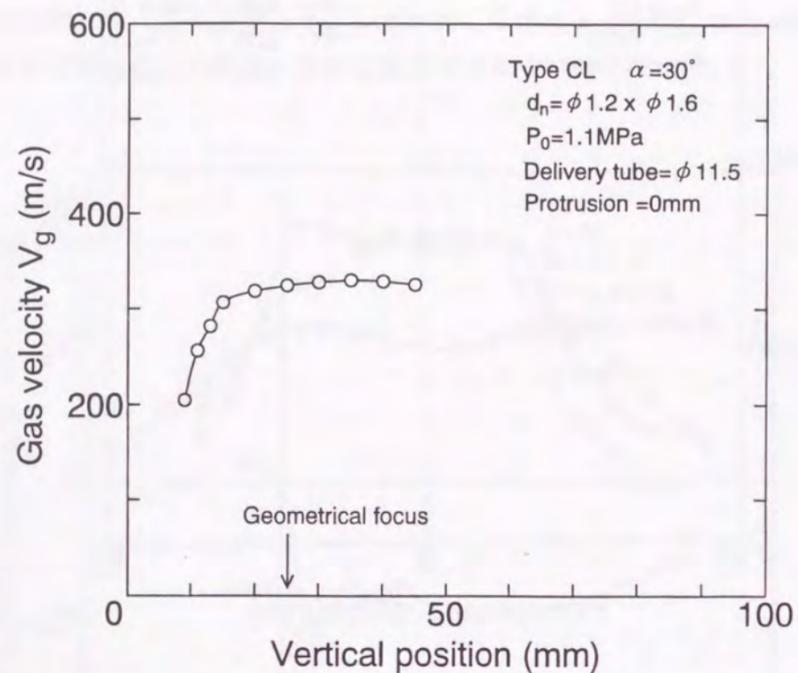


Fig.2-23 Gas velocity distribution as measured along vertical center line of the atomization nozzle (typeCL $\alpha = 30^\circ$ tapered gas nozzle).

(3-3) ガス流速の水平方向分布に与える溶湯供給管突き出し長の影響

供試アトマイズノズルに圧力 1.1MPa の Ar ガスを供給して噴射し、 P_m が溶湯吹き上げの限界の負圧値に近い約 -4kPa を示す $L_m=0\text{mm}$ の場合、ならびに負圧が十分に大きな値 ($P_m=-22\text{kPa}$) を示す $L_m=3\text{mm}$ の場合について幾何焦点を中心とする水平面内の任意の直線上の各点におけるガス流速を測定した。

Fig.2-24 に示すとおり幾何焦点周りのガス流速分布は、溶湯供給管の突き出し長を増すことによって、流速が減少するとともに、軸対称な双峰状から凸形あるいは片方に偏った分布となった。すなわち前項 2.5.2(2) に記した直円筒状の噴射孔の場合に比べて、溶湯供給管突き出しの影響を受けやすく、溶湯供給管の突き出し長が少ない場合にガス流速の値は辺縁部でわずかに増加するにすぎない。このようにアトマイズノズルの噴射孔を末広がり形状に形成することにより幾何焦点周りのガス流速分布は双峰状となって辺縁部で流速値は多少増加するが、ガス流れは溶湯供給管の影響を受けやすく流速分布の偏りや流速低下が認められた。したがって本アトマイズノズルの実用化にはさらに改良が必要であることが分かった。

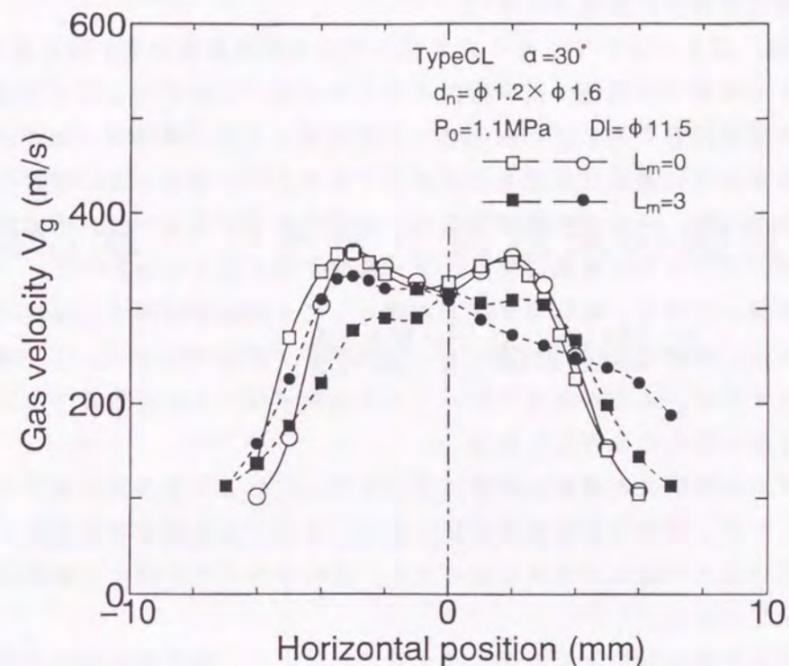


Fig.2-24 Gas velocity distribution as measured along a horizontal line through the geometrical focus (typeCL $\alpha = 30^\circ$ tapered gas nozzle).

2.6 結 言

ガスアトマイズ法による微粉生成の効率化を目指して、溶湯の吹き上げ現象の定量的把握ならびに高流速のガスジェットが合流したガス流れの特性の検討を行い、ノズル設計に必要な基本的なガス流れの挙動を調べた。得られた主な結果は次のとおりである。

1. 独立した円孔から噴射したガスジェットを逆円錐状に形成し溶湯供給管をガス流れに突き出した供試アトマイズノズルでは、噴射ガスジェットは幾何焦点近傍で合流して垂直下向きに流れ、溶湯供給管の出口近傍に負圧域を生成する。合流した噴射ガスジェットは幾何焦点から下方約 50mm 以上の区間で著しい流速減衰は認められなかった。また、噴射ガスの一部は幾何焦点近傍から逆流したのちガスジェットに巻き込まれる渦流れを形成すると推定できる。溶湯供給管の突き出し長を減じると渦流れが大きくなり、逆流ガス流れが強くなるため管端の圧力が高くなると考えられる。
2. 溶湯供給管から流出した溶湯は、溶湯供給管の下方に形成されたガス渦流れの影響を受けて、溶湯供給管の端面上を水平方向に移動して逆円錐状領域に広がったのち、幾何焦点近傍で粉化されることが分かった。このとき溶湯供給管の突き出し長が少なく逆流ガス流れが強いと、溶湯流から分裂した溶湯滴が溶湯供給管の外周部に付着して成長し、ノズル閉塞を発生させた。

3. 溶湯供給管出口での負圧生成は溶湯供給管を回避するガス流れの加速で説明され、ガス噴射条件ならびにガス噴射孔と溶湯供給管の位置関係等で決定される溶湯供給管の端部近傍の局所的なガス流れの条件で規定され、溶湯供給管の径あるいはアトマイズノズル上部の気密／開放状態には影響されない。
4. 噴射角度 α が 50° より小さいアトマイズノズルでは溶湯供給管の突き出し長を増しても幾何焦点周りの噴射ガス流速の減少は大きくなかった。これに対して α が 65° より大きい場合は溶湯供給管の突き出し長を増すと幾何焦点周りの噴射ガス流速は著しく減少し、溶湯供給管出口に適正な負圧を生成させて吹き上げを発生しない突き出し長においては低流速となった。このとき溶湯供給管外周を吹き上がるガス流れも観察され、噴射ガスの一部はアトマイズに有効に使われない傾向を示すことが分かった。
5. 噴射ガス流量が同一の場合、噴射ガス圧力を高くしても幾何焦点周りの流速はほぼ同じであった。これは、超音速を保つガスジェットのコア部長さはガスノズル径と噴射圧力によって変化するが、本実験条件においてガス流量が同一となる条件ではコア部長さがほぼ同一になったためと考えられる。
6. アトマイズノズルの噴射孔を溶湯供給管に近づけることにより幾何焦点周りのガス流速は大きく増加したが、噴射孔を溶湯供給管に近づけるほど溶湯供給管突き出し長に対する溶湯供給管出口圧力の変化が大きくなるため、適切な負圧を生成する溶湯供給管位置の許容範囲は限定される。
7. アトマイズノズルの噴射孔を末広がり状にすることにより、幾何焦点周りの流速は双峰状となって辺縁部で多少増加したが、ガス流れは溶湯供給管の影響を受けやすく、流速分布の偏りと流速低下を生じた。

第3章 アトマイズ粉末の粒度に 影響する諸因子

3.1 緒言

粉末冶金法に用いる原料粉末には、焼結性およびカプセル内充填密度を向上させることによる成形性の向上ならびに急凝固による偏析軽減などの観点から微細であることが求められる。さらに第4章に述べるとおり溶湯を急冷して表面汚染の少ない粉末を生成するために、また通常の高さの工場建屋に設置できるアトマイズタンク内で溶湯粒子の冷却・凝固を完了させるためにも粒子径が微細であることが求められる。また、噴霧媒のコスト低減のためには溶湯をアトマイズするガスの圧力、流量の抑制も必要である。

1.2.3 項に述べたようにガスジェットを吹き付けることによって流体を微粒化する方法については工業炉やエンジンなどでの燃料噴霧装置あるいは農薬散布用のノズルに関して多数の研究が行われ、生成液滴粒度と噴霧条件との関係^{5,9)}ならびに液滴径、粒子速度の空間分布^{3,10)}あるいは噴射気流の乱れの影響^{10, 11)}について研究されているが、生成する液滴径はアトマイズノズルの形式によって異なることが指摘されており、また液滴の急冷とともに物性値が急激に変化する熔融金属の噴霧とは分裂形態が異なることも考えられるため、求められた結果をそのまま用いることはできない。例えば内部混合形の噴射弁に関する披山ら^{2,9)}あるいはフラッシュ形噴射弁に関する Kim ら^{5,9)}の実験式を用いて金属のアトマイズ粉末の粒度を算出すると、いずれも実験値の数分の一程度になり差異が大きい。

また、金属のアトマイズ粉末粒度に関する実験式あるいはモデル計算式がいくつか提案されており、金属粉末の粒度については物性値が異なる多種類の金属・合金を統一的に扱える Lubanska の式^{3,8)}に言及する例が多いが、ガス流量が大きいと粒度に対するガス/溶湯比の影響を適切に表さないといわれている^{3,8)}。また、溶湯流が噴射ガスの衝突によって変形・分裂し生成粉末の粒度が決定されることから、ガス流速が粒度に与える影響の正確な把握が求められるが、Lubanska^{3,8)}は噴霧ガスの流速について、音速で放出されるガスジェットの流速減衰データを用いて、供試アトマイズノズルの幾何焦点における流速を算出しており、個々のアトマイズノズルが生成するガス流れ場の特性を反映できていない。

このようにガスアトマイズ粉末の粒度に与えるガス噴流の流速分布の影響について、従来の研究では十分明らかにはされていない。このため、著者は第2章においてアトマイズノズルが生成するガス流れの特性を検討し、ガスのみを噴射した条件において幾何焦点周りのガス流速分布に及ぼすアトマイズノズルの諸元すなわち噴射孔と溶湯供給管との距離、噴射角度などの影響を明らかにした。本章では、溶湯流に噴射するガスの平均流速と平均粒度、流速分布と粒度分布の関係を中心に、アトマイズ条件と粉末粒度との関係について検討する。

3.2 実験装置および実験方法

3.2.1 アトマイズ粉末の試作装置

アトマイズ粉末の試作装置の概略を Fig.3-1 に示す。溶湯の調製は溶湯供給管とストッ

パを備えたるつぼ内の原料合金をタンマン炉で加熱・溶解する方式、あるいは原料合金を誘導溶解して溶湯供給管とストッパーを備えたタンディッシュに傾転注湯する方式の両装置を用い、試料合金の溶解量に応じて使い分けた。アトマイズに用いる高圧ガスは Ar ガス集合容器から減圧弁を介して一定圧力のガスをアトマイズノズルに供給した。溶湯のアトマイズに使用したガスはサイクロンで微粉末を分離して大気放出した。溶湯は Table3-1 に主要成分を示す合金塊を Ar 雰囲気下で再溶解して調製し、約 1300 °C に保たれていることを確認してからストッパを抜いて溶湯供給管から流出させ、アトマイズ実験を行った。なお、本合金は急凝固による微細結晶の生成によって高磁束密度を得ようとするものであり、液相線温度は約 1250 °C であり高 Ni 合金に比べて約 100 °C 低い。溶湯流量は溶湯供給管の内径と溶湯供給管出口の負圧の組み合わせで調節し、流出した溶湯量をアトマイズ時間で除して溶湯の平均流量とした。

生成した粉末はサイクロンならびにアトマイズタンク底部から回収し、粒度測定に供した。また、アトマイズノズルを水平方向から観察する位置に観察窓を設けて、溶湯の噴霧状態をビデオカメラにて撮影・観察した。

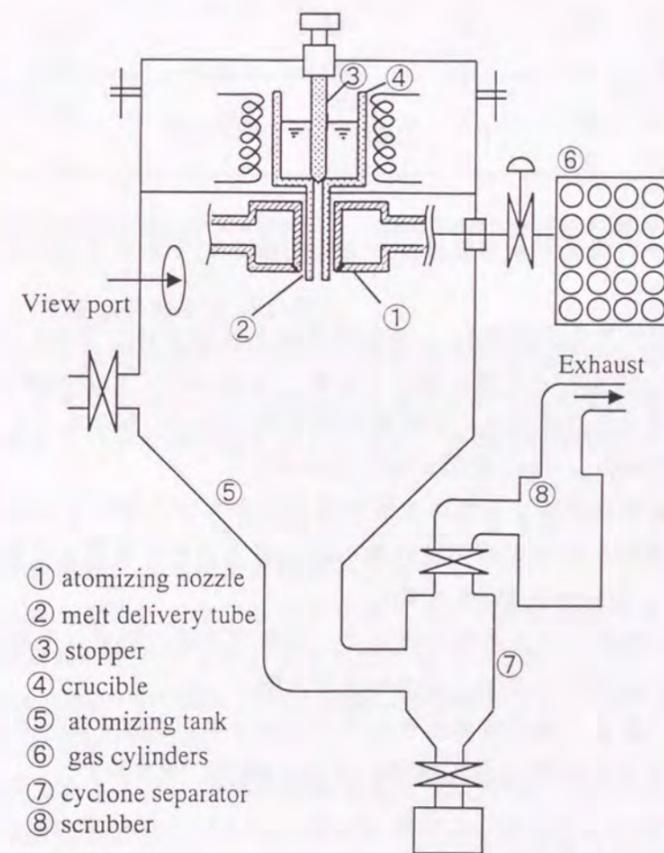


Fig.3-1 Experimental apparatus for gas atomization.

Table3-1 Chemical composition of the melting stock.

Nd	B	Co	Al	Fe	(mass %)
13.0	3.8	3.4	0.8	bal.	

3.2.2 供試アトマイズノズル

供試アトマイズノズルの断面形状は Fig.2-1 に示したとおりであり、諸元を Table3-2 に示す。本ノズルを用いたアトマイズでは 2.3.3 項 に記したとおり、溶湯がほとんど自由流下しないためコンファインド型に類別される。また溶湯供給管の位置を調節することで、出口部に生成する負圧を変化させて溶湯流量を変化させることができる。負圧値はアトマイズノズルの諸元、溶湯供給管の突き出し長、噴射ガス圧力によって変化するため、装置の各部品を組立後に実験予定の圧力でガス噴射し所定の値であることを確認した。

Table3-2 Dimensions of atomizing nozzles used in this study.

No.	type	α	Dn(mm)	Dc(mm)	dn(mm)	N
①	C	30°	13	12	1.2	20
②	B	30°	22	16	1.2	20
③	C	40°	13	12	1.2	20
④	C	45°	13	12	1.2	20
⑤	CL	30°	13	12	1.2*1.6	20
⑥	C	30°	13	12	1.0	20
⑦	C	30°	13	12	1.5	18

アトマイズノズルの諸元が粉末粒度に与える影響を明らかにするため、次の諸点について実験的に検討した。

- (1) ガス噴射孔と幾何焦点の距離 L_g : 噴射角度 α と孔径が同一であり、噴射孔の配置円径が異なるアトマイズノズルを用いて実験 (② typeB-30° と ① typeC-30° を比較)。
- (2) 噴射角度 α : 噴射孔の孔径および配置円径は同一で α が異なるアトマイズノズルを用いて実験 (① typeC- $\alpha=30^\circ$ と ③ $\alpha=40^\circ$ を比較)。
- (3) ガス噴射孔の縦断面形状 : 通例の直管状噴射孔からガス噴射する場合と縦断面がテーパ形状のガス噴射孔から出口マッハ数の高いガス流れを噴射する場合について実験 (① typeC-30° と ⑤ typeCL-30° を比較)。
- (4) ガス噴射圧力の影響 : ガス流量が同じで、噴射ガス圧力が異なる場合について実験 (typeC-30° ⑥ ; $d_n=1.0$, ① $d_n=1.2$, ⑦ $d_n=1.5$ を比較)。
- (5) ガス流速分布の影響 : 幾何焦点周りのガス流速分布が凸形と凹形の場合について実験ならびに粒度分布を計算 (① typeC-30° と ④ typeC-45° を比較)。

3.2.3 粒度分布測定装置と測定方法

回収粉末の粒度分布は JIS Z 8801 に規定されたふるいを用いて測定するとともに、微量の界面活性剤を含む純水中に懸濁させた試料粉末についてレーザ回折/散乱法 (マイクロ

トラック F R A 型) によってメジアン径および粒度分布を測定した。両方法のメジアン径測定結果は Fig.3-2 に示すように比較的よく一致したので、以下の検討にはレーザ回折/散乱法によって測定した値を用いた。

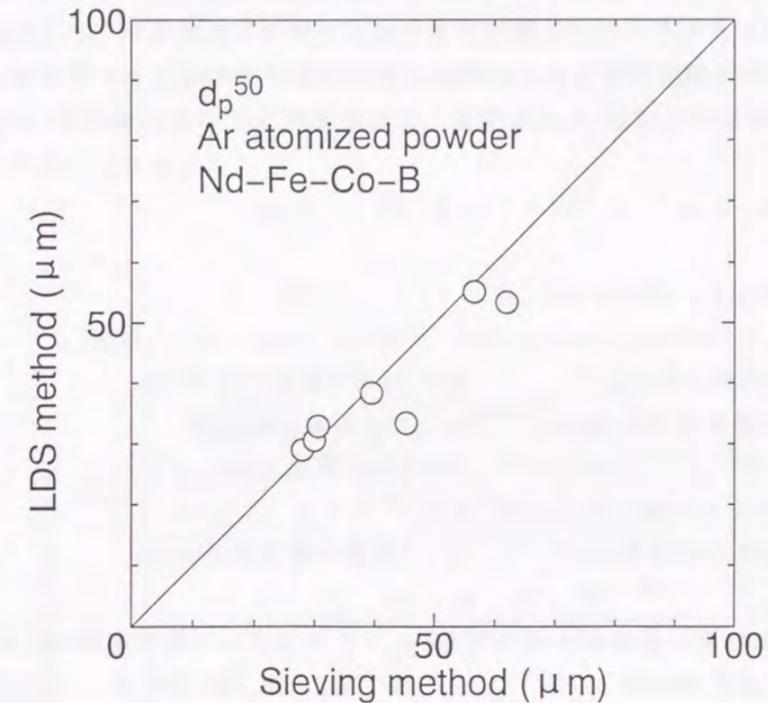


Fig.3-2 Correlation between sieving method and LDS method for median diameter of atomized powder.

3.3 アトマイズ粉末の粒度に影響を及ぼす因子

ガスアトマイズ法による粉末生成について、噴射ガスの運動エネルギーの一部が生成粒子の表面エネルギーに変換されるとして関係式を導き、粒度に影響するガスの噴射条件ならびに溶湯の物性値などの因子を抽出するとともに、各因子の影響度を実験によって求めた。

3.3.1 溶湯流の粉化状態観察による粒度影響因子の推定

供試アトマイズノズルを用いて生成したガスアトマイズ粉末は球形であり、また高 Ni 合金粉末断面の凝固組織の解析から冷却速度は粒子径の -1.5 乗に比例することが判明している²⁾。これは溶湯流がガス噴流の作用で分裂して粒度が決定されたのちに、熔融状態で球形化し凝固することを示している。

また、2.3.3 項に記したとおり、溶湯は溶湯供給管出口近傍で溶湯供給管外縁と幾何焦点付近を含む逆円錐領域に広がったのち、幾何焦点付近で粉化され、赤熱状態の粉末群は幾何焦点付近から下方に少なくとも約 100mm の区間では直径が 20 ~ 30mm 程度の限定された領域を流下することが観察された。

このとき、供試アトマイズノズルの幾何焦点から下方に約 50mm 以上の区間でガス流速

の減衰が少ないことを確かめているので、幾何焦点の流速を有するガス流れの作用によって粉末粒度が決定されると考えられる。すなわち、溶湯の粉化には幾何焦点周りのガス流速が強く関連していると推定できる。

3.3.2 アトマイズ粉末粒度に関するモデル式

噴射ガスの運動エネルギーは、溶融粉末粒子の表面積の拡大およびアトマイズで生成した粒子と周囲ガスの加速に費やされる。噴射ガスの運動エネルギーの一部が粒子の表面エネルギーに変換されるとして(3-1)式を導き、これを整理して(3-2)式を得る。

$$(1/2) \cdot M_g \cdot V_g^2 = k_1 \cdot \pi \cdot d_p^2 \cdot \sigma_1 \cdot M_l / (\pi \cdot \rho_1 \cdot r \cdot d_p^3 / 6) \quad (3-1)$$

$$d_p/D_l = 12/k_1 \cdot (M_l/M_g) \cdot \{ \sigma_1 / (D_l \cdot \rho_1 \cdot V_g^2) \} \quad (3-2)$$

ここで d_p : 平均粒子径 (m) D_l : 溶湯供給管の外径 (m)
 M_l : 溶湯質量流量 (kg/s) M_g : ガス質量流量 (kg/s)
 k_1 : 定数 V_g : ガス流速 (m/s)
 We : ウェーバ数 $(D_l \cdot \rho_1 \cdot V_g^2) / \sigma_1$
 ρ_1 : 溶湯の密度 (kg/m³) σ_1 : 溶湯の表面張力 (N/m)

(3-2)式から、粉末粒度に影響を及ぼす因子として溶湯とガスの流量比 M_l/M_g およびガス運動量と表面張力の比 $We (= D_l \cdot \rho_1 \cdot V_g^2 / \sigma_1)$ が挙げられることが分かる。これに従来のアトマイズ粉末の粒度に関する実験式に含まれる動粘度比 ν_l / ν_g (ν_l, ν_g はそれぞれ溶湯およびガスの動粘度 (m²/s)) を加えて、アトマイズ粉末の粒度には次の諸量に関連していると見なした。

$$d_p/D_l = f_n [(M_l/M_g), ((D_l \cdot \rho_1 \cdot V_g^2) / \sigma_1), (\nu_l / \nu_g)] \quad (3-3)$$

3.4 粉末粒度と溶湯アトマイズ条件の関係

3.3.2項で得たアトマイズ粉末の粒度モデル式および従来知見をもとにして、アトマイズ粉末の粒度に影響すると考えられるアトマイズ条件について実験的に検討した。

3.4.1 幾何焦点におけるガス流速

3.3.1項に述べたとおり、アトマイズ粉末の粒度には幾何焦点のガス流速が強く関連していると推定できる。溶湯の噴霧にはアトマイズノズルから3~4MPaのガスを噴射したが、プローブ強度の制約からガス流速分布は1.1MPaでガス噴射して測定した。なおガス流速の測定方法は2.2.3項に記したとおりである。噴射圧力が流速に及ぼす影響を調べるため、アトマイズノズルに設けた噴射孔と同一寸法の単孔ノズルからガス噴射した場合の流速を測定した結果をFig.3-3に示す。噴射孔が直管の場合、噴射圧力 P_g が約1MPaより大きいと噴射圧力の増大に対するガス流速 V_g の増加は比較的小さい。いっぽう噴射孔が

Table3-2-⑤に示す上流側内径1.2mm、下流側内径1.6mm、末広がり部の長さ3.0mmのテーパ管の場合、 P_g の増大とともに V_g は上昇して約2MPaより高圧の場合、 $L_g=15mm$ では直管噴射孔より高流速に達した。また $L_g=25mm$ でも P_g の増大とともに V_g は増大したが $P_g > 2MPa$ では直管噴射孔とほぼ同じ流速を示した。このように噴射孔がテーパ管の場合、噴射圧力の増大に伴って流速も増大する挙動を示すが、3.4.3(3)項に後述するとおり $P_g=1.1MPa$ においてtypeCL-30°のアトマイズノズルが生成する噴流の幾何焦点周りの平均流速(V_m)は噴射孔が直管の場合(typeC-30°)とほぼ同じ値であったため、溶湯のアトマイズにおける噴射圧 $P_g=3\sim 4MPa$ の場合も、アトマイズノズルの V_m は噴射孔が直管とテーパ管の両方で差異は小さいと推定した。

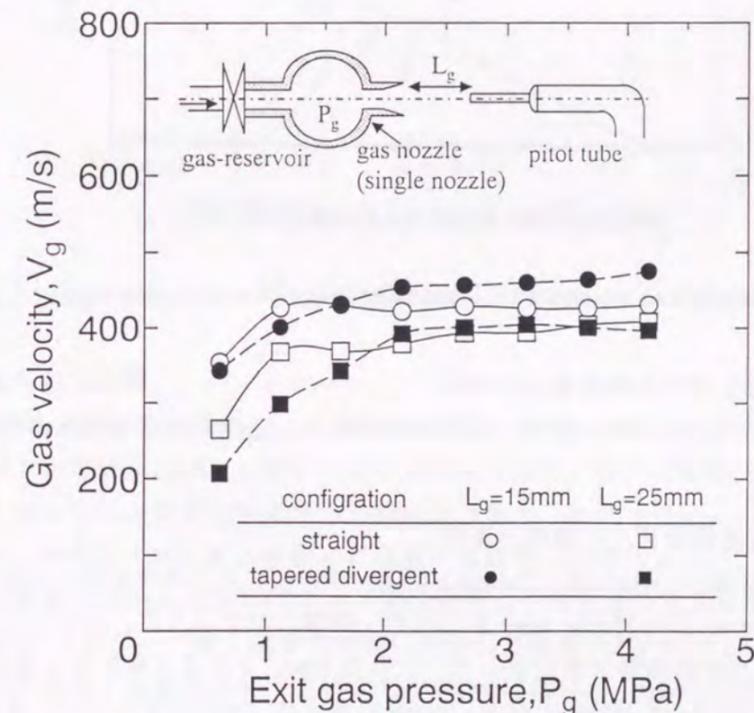


Fig.3-3 Effect of exit gas pressure on gas jet velocity.

3.4.2 メジアン径と溶湯/ガス流量比との関係

Table3-2-①に諸元を示すアトマイズノズルを用い、ガス噴射条件が一定のもとで、溶湯供給管の突き出し長を調節して溶湯供給管出口の負圧値を変えることにより、溶湯流量(M_l)を変えて生成したアトマイズ粉末のメジアン径(d_p^{50})、ならびに M_l がほぼ同じ値のまま噴射圧力を変えることによってガス流量(M_g)を変化させて生成したアトマイズ粉末のメジアン径をそれぞれの M_l/M_g 値に対してプロットした結果をFig.3-4に示す。これらの実験値は同一の直線で相関されることから、溶湯流量およびガス流量がメジアン径に与える影響は流量比 M_l/M_g で表すことができる。なお各実験条件における幾何焦点周りの平均ガス流速(V_m)はほぼ同じ値(255m/s)であった。

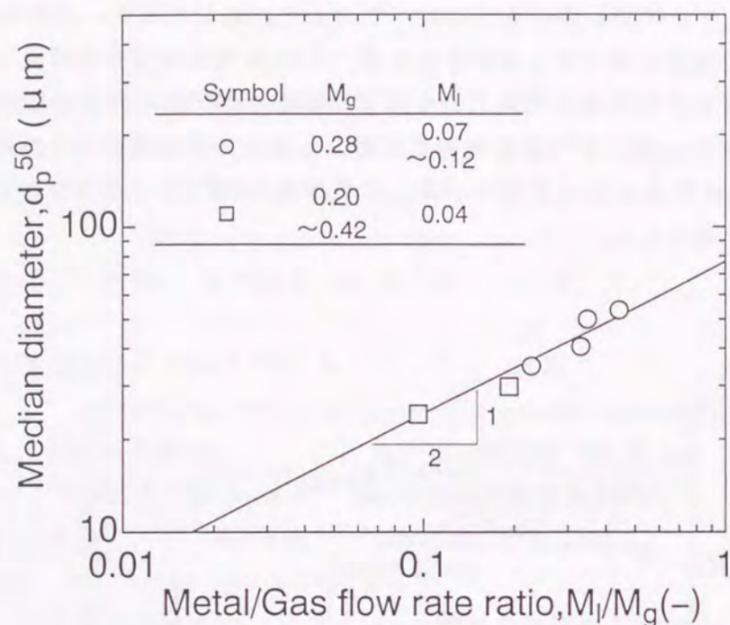


Fig.3-4 Correlation between d_p^{50} and M_l/M_g (typeC $\alpha=30^\circ$ atomizer).

3.4.3 粉末の平均粒度とガス平均流速との関係

諸元の異なるアトマイズノズルを用いて粉末を生成し、生成粉末の粒度と平均流速 V_m との関係を検討した。

(1) ガス噴射孔と溶湯供給管との距離の影響

typeB-30° (Table3-2-②) と typeC-30° (Table3-2-①) のアトマイズノズルを用いて生成した粉末のメジアン径と M_l/M_g との関係を Fig.3-5 に示す。同図に示すように、同じ M_l/M_g において typeC を用いるほうが微細粉末が生成した。これは typeC ではガス噴射孔と幾何焦点を近接して配置したため $V_m = 255\text{m/s}$ となり、typeB の場合の $V_m=223\text{m/s}$ に比べて高流速であることが要因と考えられる。

(2) 噴射角度の影響

typeC-40° (Table3-2-③) のアトマイズノズルを用いて生成した粉末の粒度も Fig.3-5 に示す。同じ M_l/M_g に対して、 $\alpha=30^\circ$ の場合に比べて $\alpha=40^\circ$ のアトマイズノズルを用いて生成した粉末のほうが微細である。 $\alpha=40^\circ$ のアトマイズノズルではガス噴射孔と幾何焦点がより近接しているため $V_m=278\text{m/s}$ となり、typeC-30° の $V_m=255\text{m/s}$ に比べて高流速であることがこの要因と考えられる。後述するように、両者のメジアン径の差異は幾何焦点の垂直下向きガス流速の差異に対応する結果を得ており、これは噴射角度を大きくした場合、2.3.1 項に示したように噴射ガスの流線が幾何焦点より上流において溶湯供給管端部を回避するようほぼ垂直下向きに方向を変えるため、垂直方向のガス流速増大の効果は現れるが、噴射孔出口近傍で有する水平方向分速度の影響は認められなかったものと考えられる。

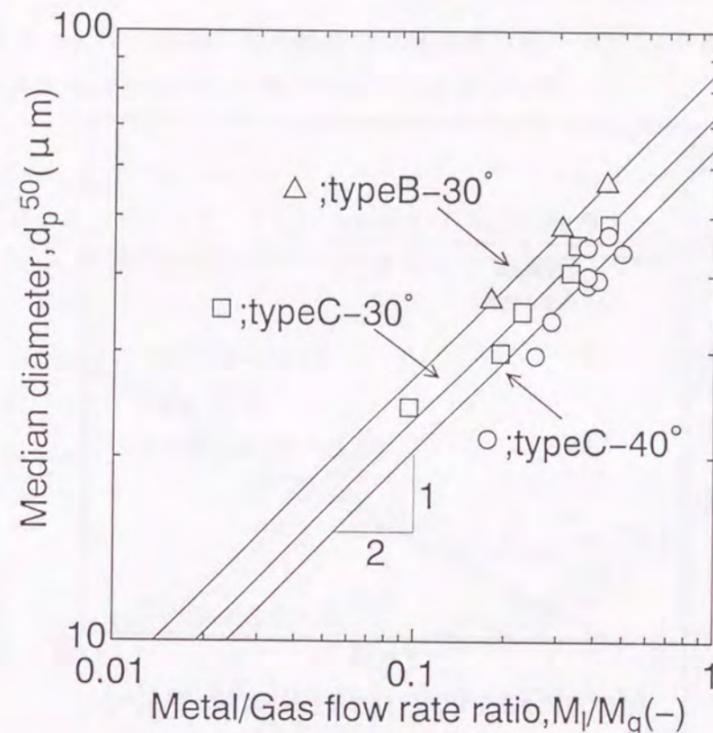


Fig.3-5 Effect of nozzle configuration and apex angle of atomizers on atomized powder size.

(3) 噴射孔形状の影響

typeC-30° (Table3-2-①) と typeCL-30° (Table3-2-⑤) のアトマイズノズルを用いて生成した粉末のメジアン径は、Fig.3-6 に示すとおり M_l/M_g に対して同一の直線で相関され、テーパ管噴射孔を用いることによる生成粉末の微粒化は認められなかった。この理由としては、Fig.3-3 に示した単孔ノズルから噴射した噴流の流速測定結果によると、噴射圧力 (P_g) が 1MPa、測定距離 $L_g=25\text{mm}$ においてテーパ管は直管より低流速の噴流を生成するが、 $P_g=2 \sim 4\text{MPa}$ においてはテーパ管と直管で流速にほとんど差異が無いこと、ならびに両アトマイズノズルが生成する噴流の平均流速は $P_g=1.1\text{MPa}$ において、typeC では $V_m=255\text{m/s}$ であり、typeCL の $V_m=253\text{m/s}$ とほとんど同じ値であることから、溶湯をアトマイズした $P_g=3 \sim 4\text{MPa}$ の条件において両アトマイズノズルから噴射されたガスの平均流速はほぼ同じであったためと推定される。

(4) 噴射ガス圧力の影響

Table3-2 の⑥、①、⑦に示した噴射孔径が異なる typeC-30° のアトマイズノズルについてガス流量が同一となるよう、それぞれ 6.10MPa、4.27MPa、2.70MPa でガス噴射してアトマイズ粉末を試作した結果を Table3-3 に示す。ガス噴射圧力によらず生成粉末のメジアン径はほぼ同じであった。

幾何焦点周りのガス流速はプローブ強度の制約から測定していないが、2.5.1(3)項に述べた検討結果から、ガス流速が粉末試作の各々の場合で同様であったため、ほぼ同じメジアン径を有する粉末が生成したと推定される。

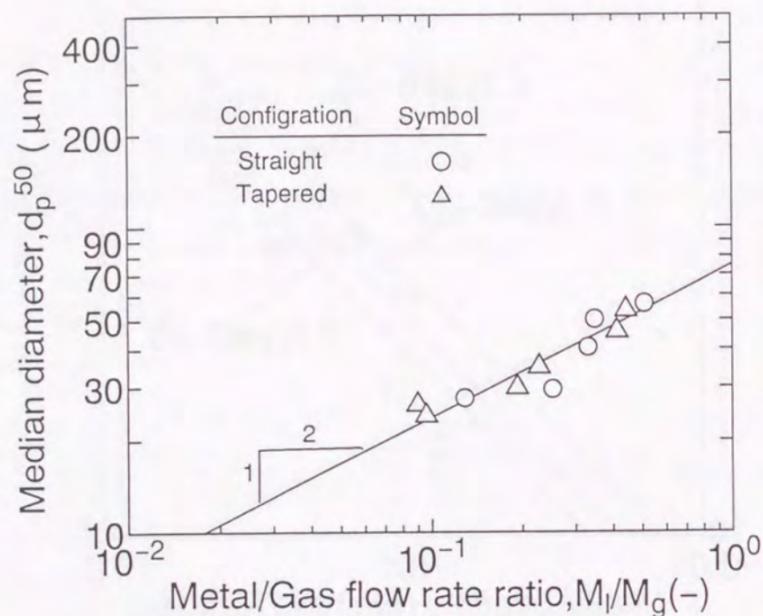


Fig.3-6 Effect of gas-nozzle geometry on atomized particle size.

Table3-3 Median particle size by using various atomizing pressure.

Nozzle	dn	Pg	dp
⑦	1.5 mm	2.70 MPa	56.4 μm
①	1.2	4.27	60.1
⑥	1.0	6.10	53.7
NdFeCoB	Ml=0.12 ~ 0.14 kg/s	Mg=0.27 kg/s	

上記(1),(2),(4)に示した実験結果について、各アトマイズノズルが生成するガス噴流の平均流速 V_m の影響を考慮するため、(3-3)式に従って縦軸に d_p^{50}/D_l を、横軸に $(M_l/M_g) \cdot (\sigma_l / (D_l \cdot \rho_l \cdot V_m^2)) \cdot (\nu_l / \nu_g)$ をとることにより、ガス流速の影響を取り込んでメジアン径とアトマイズ条件をプロットした結果を Fig.3-7 に示す。ここで溶湯の物性値には普通鉄の値⁶³⁾を与えた。Fig.3-7によれば上記(1),(2),(4)に示した実験値は(3-4)式によってよく相関することができる。すなわち、Fig.3-5に示す全実験値を d_p^{50} と (M_l/M_g) について最小二乗法で整理すると標準偏差 $\sigma = 4.8 \mu m$ 、相関係数 $r = 0.79$ であるのに対して、(3-4)式で示すようにガス流速の効果を相関式に取り入れ、 d_p^{50}/D_l と Φ については $\sigma = 3.0 \mu m$ 、 $r = 0.94$ となり、実験式の精度が向上していることが分かった。

$$d_p^{50}/D_l = 63.6 \sqrt{\Phi} \quad (3-4)$$

ここで $\Phi = (M_l/M_g) \cdot (\sigma_l / (D_l \cdot \rho_l \cdot V_m^2)) \cdot (\nu_l / \nu_g)$

(3-4)式に示すようにガス噴射孔の近接および高角度噴射に伴う V_m の増大に対しては、生成粉末のメジアン径は反比例して減少することが分かった。

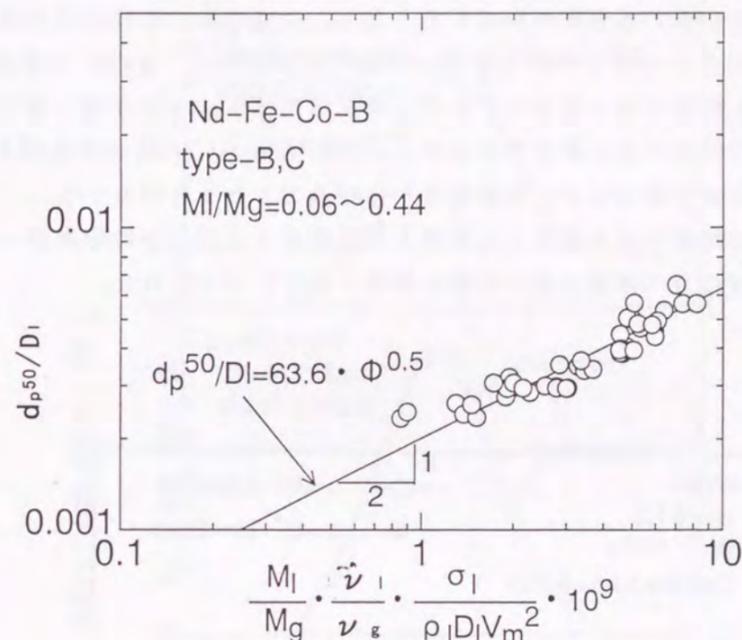


Fig.3-7 Correlation between d_p^{50}/D_l and $(M_l/M_g) \cdot (\sigma_l / (D_l \cdot \rho_l \cdot V_m^2)) \cdot (\nu_l / \nu_g)$ (typeB and typeC atomizers).

3.4.4 粒度分布とガス流速分布の関係

前項 3.4.3 では、アトマイズ粉末のメジアン径がアトマイズノズルの諸元、アトマイズ条件にかかわらず、幾何焦点周りの平均流速と相関関係にあることを示した。そこでガス流速分布の影響を検討するため、流速分布が凸形となる $\alpha = 30^\circ$ のアトマイズノズルならびに凹形となる $\alpha = 45^\circ$ のアトマイズノズルを用いて生成した粉末の粒度分布とガス流速分布との関係を調べた。

Table3-2の①、④に示すアトマイズノズルから噴射されるガス噴流の幾何焦点周りの流速分布を Fig.3-8 に示す。なお Fig.3-8 では複数の測定結果を平均化して表示している。最大流速は両者でほぼ同じであるが、 $\alpha = 45^\circ$ の場合には中央部に低流速域が生成した。

両アトマイズノズルを用いて生成した粉末の粒度分布を Fig.3-9 の階段状線図にて示す。また同図中の実線は、Fig.3-8 に示すガス流速分布を用いてアトマイズ粉末の粒度分布を計算した結果を示す。粒度分布の計算にあたり、アトマイズは幾何焦点を通り溶湯供給管の外径と同じ寸法の水平な円形断面内で行われるものとした。この円形断面を 19 個の環状区域と中心円の 20 の区域に細分化し、(3-4)式を用いて各区域で生成する粉末のメジアン径を、幾何標準偏差 $\sigma_g = 1.27$ とした対数正規分布によって粒度分布を計算し、各区域につ

いて求めた粒度分布を積算して全体の粒度分布を算出した。ここで溶湯流量は Liu らの実験結果⁵⁾を参照して当該断面内で均一と仮定した。なお試作したアトマイズ粉末の粒度分布測定結果から $\sigma_g=1.27$ とした。

Fig.3-9 に示すとおり、粒度分布の計算値はおおむね実測値と一致している。アトマイズ操作によって生成した粉末全体の粒度分布が、アトマイズが行われる各部分についても適用できると仮定して、流速分布を有するガス噴流の各部分で(3-4)式に従うメジアン径を有し対数正規分布した粉末の集合体が生ずるとして、生成粉末の粒度分布が推定できることになる。 $\alpha=45^\circ$ のアトマイズノズルを用いて生成した粉末は、 $\alpha=30^\circ$ の場合に比べて粗粉末の分率が増し粒度分布が広がっている。計算結果は Fig.3-9 に示すとおり実測結果に比べて粗粉末側で分率が低く算定されるが、 $\alpha=30^\circ$ と $\alpha=45^\circ$ の両者を比較すれば実測値に対応した粒度分布の傾向はガス流速分布から推算できることが分かる。このようにガス流速分布を用いて粒度分布を推算した結果と実験結果とはおおむね傾向が一致していることから、粒度分布はガス流速分布と密接に関連することが示された。

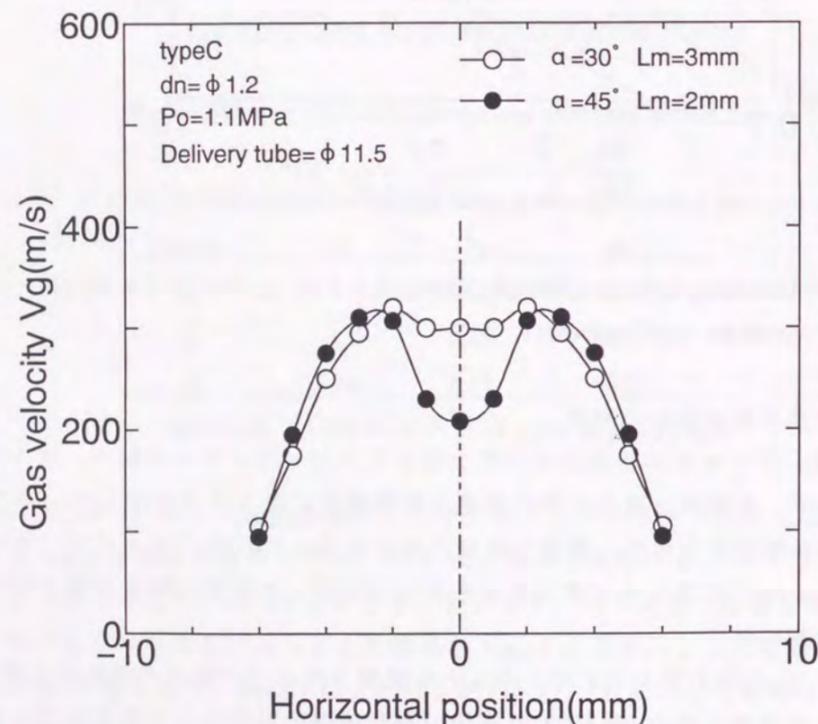


Fig.3-8 Gas velocity distribution for typeC $\alpha=30^\circ$ and $\alpha=45^\circ$ atomizers.

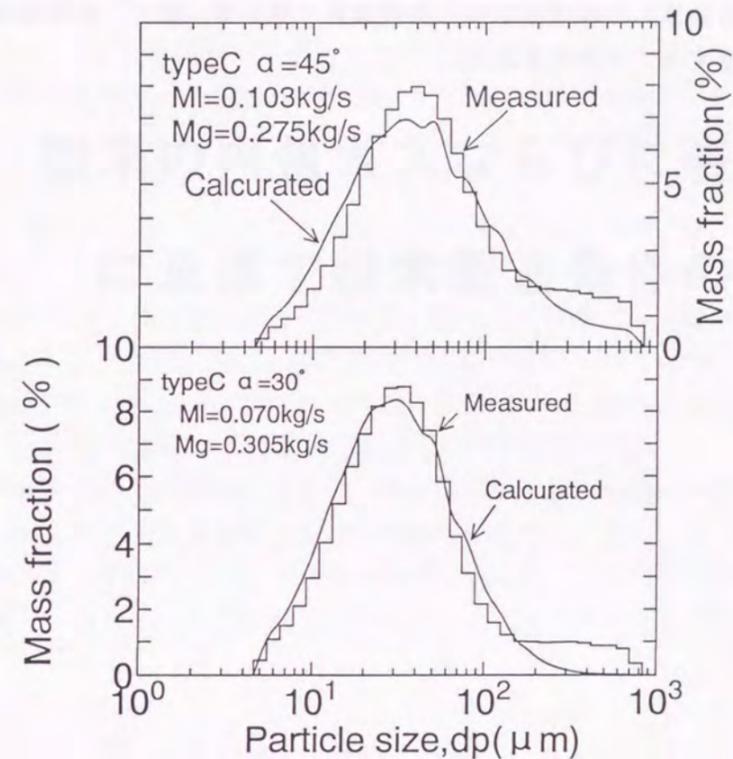


Fig.3-9 Particle size distribution in case of using typeC $\alpha=30^\circ$ atomizer (convex V_g distribution) and $\alpha=45^\circ$ atomizer (concave V_g distribution).

3.5 結 言

ガスアトマイズ法によって生成される合金粉末の粒度に関連する各因子の影響度を明らかにするため、アトマイズノズル諸元、溶湯流量、ガス流量、ガス圧力を変えて実験し、アトマイズノズルによって生成するガス流れの特性と生成粉末の粒度との関係を求めた。溶湯流に噴射するガスの平均流速と平均粒度、ガス流速分布と粒度分布の関係を検討して得られた主な結果は次のとおりである。

1. 噴射ガス流量ないしは溶湯流量の一方をほぼ同じ値のまま他方を変化させた場合、生成したアトマイズ粉末のメジアン径は MI/Mg 値に対して同一の直線で相関できた。
2. ガス噴射孔と幾何焦点の近接度、および噴射角度が異なるアトマイズノズルを用いた場合、生成したアトマイズ粉末のメジアン径は、各アトマイズノズルの幾何焦点周りの平均ガス流速に反比例して減少した。また噴射孔径を調整して異なる噴射圧力においても、流量が同じ条件下でアトマイズした場合には、ほぼ同じメジアン径の粉末が生成した。

3. メジアン径は $(Ml/Mg)^{0.5}$ ならびに V_m^{-1} に比例し、次の実験式を得た。

$$d_p^{5.0}/D_1 = 63.6 \{ (Ml/Mg) \cdot (\sigma l / (D_1 \cdot \rho \cdot V_m^2)) \cdot (v l / v_g) \}^{0.5}$$

4. アトマイズノズルが生成するガス流速分布が凹形の場合、凸形の流速分布の場合に比べて生成する粉末の粗粉末の分率が増大した。アトマイズ操作によって生成した粉末全体の粒度分布が、アトマイズが行われる各部分についても適用できると仮定して、ガス流速分布から計算した粒度分布は、実験結果と傾向が一致し、粒度分布はガス流速分布と強く関連することが示された。

第4章 粉末の内包ガスならびに表面状態 に及ぼす粉末製造条件の影響

4.1 緒言

粉末ならびに粉末成形材の特性には粉末表面の性状ならびに内部組織が強く関連するため、粉末表面の酸化物や水酸化物の性状と生成量ならびに内部に捕捉された不活性ガス量と粉末生成条件との関係、およびこれらが粉末成形材の特性に与える影響を明確にすることが求められる。

粉末内部に捕捉された不活性ガスは、気孔と認められる数 μm を越える比較的大きなものとマイクロポイドと呼ばれる数 nm 程度の比較的小さいものに区別することができるが、ここでは気孔について検討する。1.2.4項に述べたとおり粉末中の気孔についてはRabinら⁴⁹⁾および滝川ら⁵⁰⁾の検討結果があるが、いずれも粉末に含有される不活性ガスと粉末製造条件との関係あるいは成形材の特性との関係については不明な点が多い。したがって粉末中のガス含有量と粉末製造条件との関係および粉末中のガス成分が成形材に与える影響を明らかにして、粉末材料の特性向上に資することが必要である。

つぎに粉末表面に生成する酸化物層は粉末成形材において旧粉末粒界 (PPB: Prior Particle Boundary) を形成し、結晶粒成長を抑制して延性を低減させることが分かっている。また、酸化しやすい元素を含む組成の合金では、不活性雰囲気下において原料合金を溶解、アトマイズして粉末を生成して取り扱った場合においても、粉末表面には成形材の特性に影響を及ぼす酸化物等が生成する。したがって粉末表面に生成する酸化物および水酸化物の生成条件ならびに特性を検討したうえで、表面が十分に清浄な粉末を生成し、耐食性、機械的強度また溶接性を高めることが必要である。

粉末表面の生成物について Olefjord ら^{41, 42)}、Nyborg ら^{43, 44)}の研究によりステンレス鋼粉末などに生成する酸化物種ならびに厚み、粉末表面に占める比率などが明らかにされている。しかしいずれも粉末表面の生成物と粉末製造条件との関係あるいは成形材の特性との関係についてはほとんど言及されておらず、粉末成形材の特性を向上させるための粉末生成方法の改良指針は示されていない。したがって粉末表面において酸化物等が生成する条件ならびに粉末表面の生成物が粉末成形材に与える影響を明らかにすることが必要である。

以上のことから本章では高Ni合金の粉末成形材の特性に対する粉末性状の影響を明確にし、成形材特性の向上について検討する。まずArガスアトマイズ粉末が含有するAr成分を明らかにするため、粉末粒度ならびに粒子内気孔量と粉末Ar量との関係を調査するとともに、アトマイズ条件が粉末のAr含有量に及ぼす影響を検討し、溶湯/ガス比(質量流量比)との関係を調べる。

つぎに粉末中に気孔を生じない N_2 ガスアトマイズ粉末について、アトマイズ直後の生成粉末の冷却速度が粉末表面に生成する酸化物ならびに水酸化物等に与える影響、ならびに粉末成形材の機械的特性との関係について検討する。

4.2 実験装置および実験方法

Arガスあるいは N_2 ガスを噴霧媒とするアトマイズ法によって高Ni合金粉末を生成し、

そのガス成分を含む化学成分、水分、表面生成物を分析するとともに、同粉末をカプセル充填し、HIP(熱間静水圧成形)あるいは熱間押し法によって丸棒材を作製して機械的特性を調べるとともにビードオン溶接を施すことによって溶接特性を調べた。

4.2.1 アトマイズ粉末の生成装置と生成方法

Fig.4-1 に試料粉末の生成に用いたアトマイズ装置の概略構成を示す。真空脱気後に不活性ガスでパージすることにより、装置内の酸素濃度を $10\text{ppm}(0.001\text{vol}\%)$ 以下、露点を -65°C 以下にした。あらかじめ成分調整した合金塊をAr雰囲気中で高周波溶解炉を用いて再溶解し、所定の温度に調節ののち、傾転してタンディッシュへ注いだ。タンディッシュ内の溶湯が放冷によって所定の温度に達してから、ストッパーを上方へ移動してタンディッシュ底部の溶湯ノズル孔を通してアトマイズノズルに溶湯を供給し、この溶湯流の周囲からアトマイズノズルによって高圧の N_2 あるいはArガスを噴射して溶湯流を粉砕、冷却し粉末を生成した。生成粉末はタンクの底部に仕切り弁を介して取り付けられた粉末タンク内に堆積させるとともに微粉末はサイクロンで捕集して回収した。アトマイズに用いたガスはサイクロンに導いて微粉末を分離したのち、大気に放出した。また、アトマイズが終了してから直ちにサイクロン入口の弁を閉じ、アトマイズタンクを密閉状態に保ったまま、粉末回収タンクが常温まで冷却されたのち、タンク底部の仕切り弁を閉め、生成したアトマイズ粉末を密閉回収した。アトマイズノズルはFig.2-1に示すものを用いた。その特性は第2, 3章に述べたとおりである。

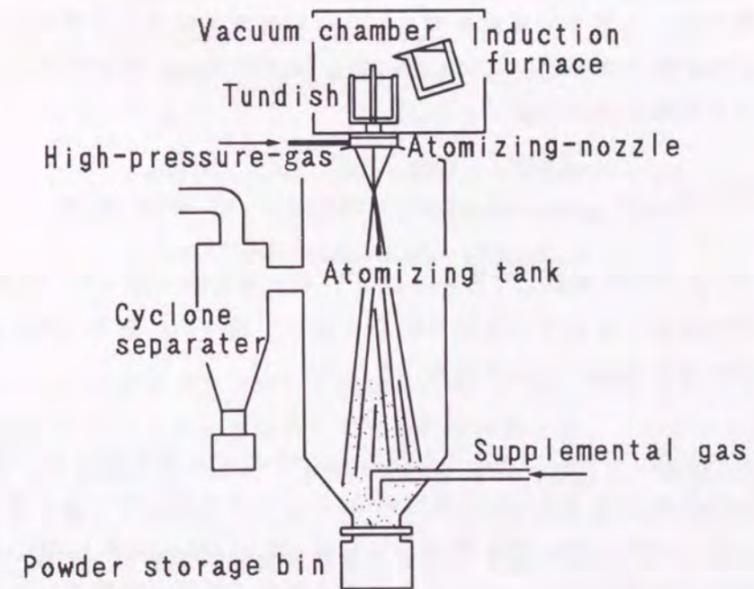


Fig.4-1 Schematic of gas atomization equipment.

表面性状の評価に用いた粉末はタンク底部の粉末タンクから回収したものをを用いた。溶湯のアトマイズによって生成した粉末が堆積する部位にアトマイズと同時にアトマイズに用いるのと同種のガスを噴射し、この補助噴射ガス流量を変えることによって粉末の流動状態を変化させて粉末温度を変化させた。すなわち補助噴射ガス流量を多くすれば、タンク内堆積粉末は常温近くまで冷却され、また復熱する現象も認められない。反対に補助噴射ガス流量が少量の場合はアトマイズ直後の粉末は高温であり、アトマイズタンク内のガスと長時間に渡って接触したまま常温まで徐冷される。なお、Arガスアトマイズについては多量の補助ガス噴射によって急冷された粉末を試料として用いた。

実験に用いた合金は Inconel625 相当成分の高 Ni 合金 (Alloy625 と呼称する) であり代表的な粉末の成分分析値を Table4-1 に示す。Ar ガスアトマイズ粉末では、後述のように粗粒子ほど Ar を多く含有する結果が得られた。N₂アトマイズ粉末の場合は約 400ppm の窒素を含有し粒度によらずほぼ同一の窒素量を示した。出湯温度は約 1500℃で各実験ごとに一定にし、またアトマイズ操作中におけるタンディッシュ内の溶湯温度の低下は約 25℃未満であった。粉末回収量を出湯時間で除して溶湯の平均流量と見なした値は 11～15kg/min、噴射ガスの圧力は約 4.5～5.0MPa、Ar ガス流量は約 12～43kg/min、N₂ガス流量は約 32～36kg/min であった。また生成粉末のメジアン径は 60～125 μm であった。

4.2.2 試料粉末の取扱い方法

タンク底部に連結された粉末タンク内の回収粉末は、仕切り弁を密閉したまま不活性ガスで置換したグローブボックス内に搬入して取り出し、分析用試料を分取した。試料粉末はアルミニウムをコーティングしたポリエステル製の袋に入れて熱線シールした。これをシリカゲル式のデシケータの中で保管することにより、粉末が大気に暴露されることを抑制した。

生成粉末は粒子径によらずほぼ球形であり、一般にサテライトと呼ばれる粒子表面に付着する微細粒子は少数であった。また、約 100 μm より大きい粒子の SEM 像には外表面にデンドライト状の凝固組織が認められた。

4.2.3 粉末特性の測定方法

(1) 水分分析

水分分析は JIS M 8211 に準拠してカールフィッシャー滴定法で行った。試料は前記のグローブボックス内で保管した粉末を大気中に取り出して速やかに測定に供した。本方法における水分分析の精度は 5×10^{-4} mass% であった。

(2) 表面分析

粉末の表面分析には VG ESCA3 MK II を使用し、Al の K α 線を用いた。表面汚れ、および表面カーボン汚れを除去する 0.5nm 程度の Ar スパッタを施してから X 線光電子分光法 (XPS 分析) にて分析した。粉末試料としては 150～250 μm ならびに 75～105 μm にふるい分けたものを対象にし、インジウム板に乗せて軽度の冷間プレスを施した。

Table 4-1(1) Chemical composition of

Ar-atomized powder. (mass%)						
	C	Si	Mn	P	S	Cr
Product	0.004	0.48	0.48	0.002	0.002	21.1
						20.0
Spec.※	<0.015	<0.5	<0.5	<0.015	<0.015	-23.0

Mo	Nb	Fe	Al	Ti	Ni	O	N
8.90	3.56	3.95	0.06	0.005	59.3	0.007	0.002
8.0	3.15						
	-10.0	-4.15	<5.0	<0.4	<0.4	>58.0	

※ UNS N06625

UNS; Unified Numbering System (ASTM)

N06625; a code name for Ni-Cr-Mo-Nb alloy

Table 4-1(2) Chemical composition of

N ₂ -atomized powder. (mass%)							
	C	Si	Mn	P	S	Cr	Mo
Product	0.004	0.45	0.47	0.002	0.002	21.1	8.84
						20.0	8.0
Spec.※	<0.015	<0.5	<0.5	<0.015	<0.015	-23.0	-10.0

Nb	Fe	Al	Ti	Ni	O	N
3.66	3.45	0.06	0.005	59.5	0.009	0.042
3.15						
	-4.15	<5.0	<0.4	<0.4	>58.0	

※ UNS N06625 UNS; ASTM Unified Numbering System

N06625; Ni-Cr-Mo-Nb alloy (Alloy625)

(3) TIG 試験

試料粉末をステンレス鋼製のカプセルに充填し、400℃-1h の脱気を施したのち封口して、1200℃-200MPa-1h のHIP 処理を施して成形材を作製した。このHIP 成形材に Fig. 4-2 に示すとおり TIG 法によってビードオン溶接を施し、溶融した部分の断面を顕微鏡観察して溶接金属中に発生した気孔 (ブローホール) の発生量、気孔径を測定した。ブローホールの発生量比率は、数視野の顕微鏡写真から溶接金属の断面に占めるブローホールの断面積を画像処理を援用して求めた。なお、実管は熱間押出法によって製造したが、溶接特性については HIP 材がより簡便に結果が求められ、押出材を用いた試験結果とよい相関があるため HIP 材を用いて試験した。

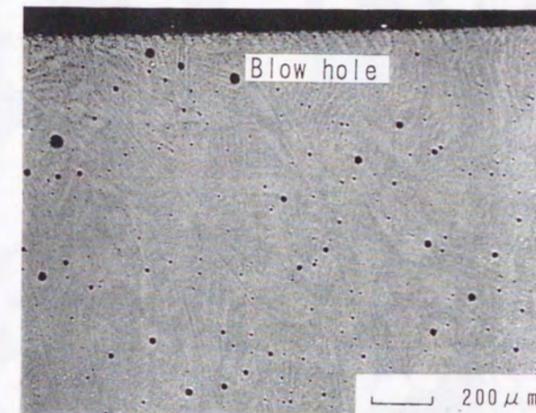
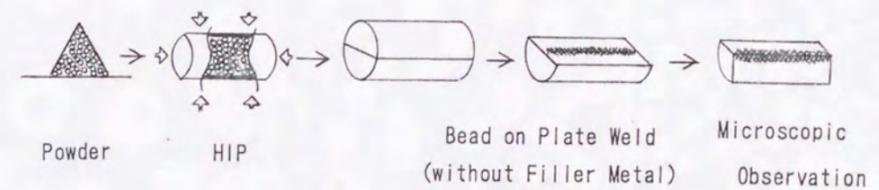


Fig.4-2 The TIG test procedure and an example of micro-structure of a cross section for the weld metal.

(4) 粉末の Ar 含有量および断面形態

生成した粉末をグローブボックスから取り出し、JIS Z 8801 に規定されたふるいを用いて、空調された室内で所定の粒度に分割し、再び不活性ガスでパージされたグローブボックス内に保管した。Ar の分析は不活性ガス融解法によって行った。

つぎに、ふるい分けた粉末を樹脂に埋め込み、粉末断面の径がふるいの目開きのほぼ平均値になるまで研磨した例を Fig.4-3 に示す。粒子断面の気孔面積が当該粒子の断面積に占める割合を各粒度区分ごとに、約 2000 個の粒子について画像処理を用いて計量し平均値を求めた。

4.2.4 粉末成形方法および機械的特性の評価方法

試料粉末をステンレス鋼製のカプセルに振動充填し 400 °C -1h の脱気を施したのち封口した粉末カプセルを 1150 °C に加熱し、押し出し比 12.2 の熱間押し出しを施して丸棒状の成形材を作製した。この成形材に UNS N06625 に “Solution annealed” と示されている 1200 °C -10min -WQ の熱処理を施したのち、押し出し方向と引張方向が一致するように JIS Z 2201 に従って 6mm 径の丸棒引張試験片を、押し出しと直角の方向が衝撃方向と一致するように JIS Z 2202 に従って 4 号試験片（ハーフサイズのシャルピー試験片）を採取した。なお組織観察は 1200 °C -200 MPa-1h の H I P 処理を施した成形材についても行った。

4.3 Ar アトマイズ粉末の性状

窒化物の生成がない Ar アトマイズ粉末の性状に関して検討した結果は次のとおりである。

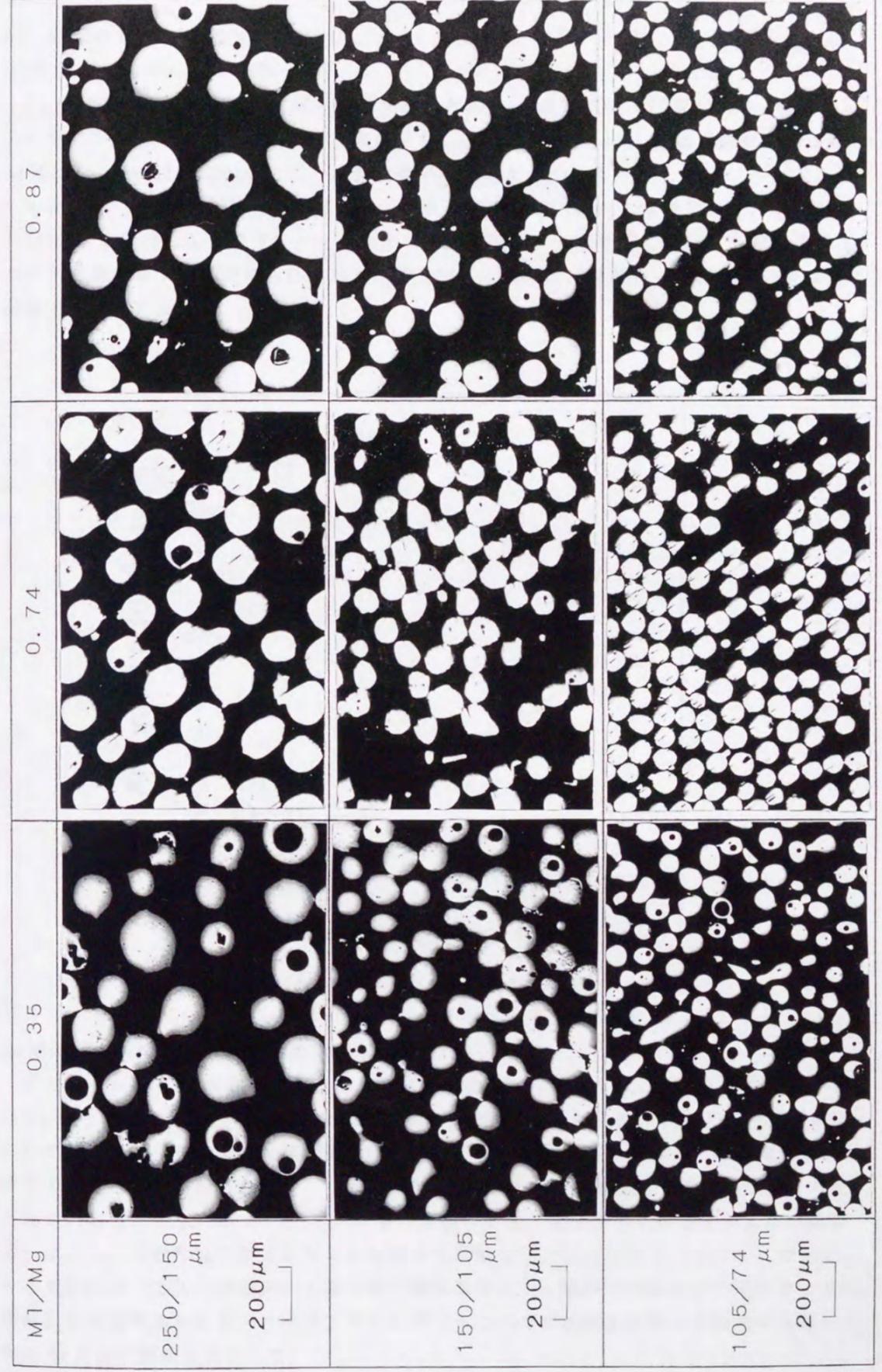


Fig.4-3 Polished cross-section of Ar-atomized A625 powder.

4.3.1 粉末のガス含有量

(1) 粒度とガス含有量の関係

Fig.4-4 に Ar 含有量と粉末粒度の関係を示すとおり Ar 量は粗粒ほど多く、同一粒度においても試作チャージによって異なる値を示すこと、また 30 ~ 40 μm より微粒側では粉末 Ar 量は約 0.5ppm(0.0005mass%) の一定値を有することが分かった。

Rabin ら⁴⁹⁾ が調べた He を冷却媒体とした遠心アトマイズ法によるステンレス鋼粉末ならびに Ar を媒体とした真空アトマイズ法によるステンレス鋼粉末についても粗粒子ほどガス含有量が増す結果が得られており、アトマイズ粉末では粗粒ほど不活性ガスを多量に捕捉する傾向がある。

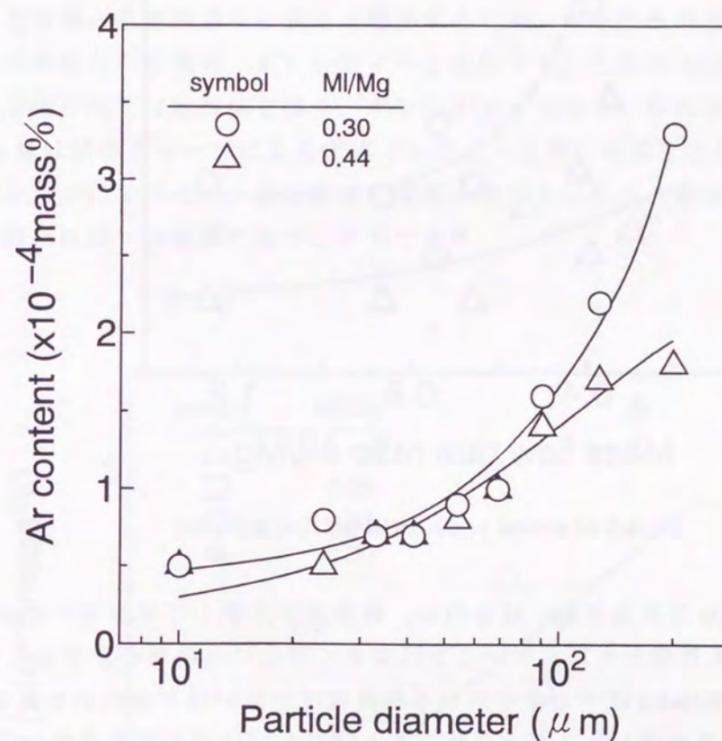


Fig.4-4 Ar content versus particle size.

(2) 溶湯/ガス比とガス含有量の関係

アトマイズ粉末の Ar 含有量と粒度との関係は粉末試作チャージによって異なっている (Fig.4-4)。そこで粉末 Ar 量と粉末生成条件との関係を検討した。ガスアトマイズ法においては溶湯流から粉末が生成する過程において噴射ガスの作用によって溶湯流が複雑に変形することが示されており⁷²⁾、溶湯滴が周囲の Ar ガスを捕捉して粉末になると考えられている⁴⁹⁾。したがって粉末の Ar 量は溶湯の粘度、表面張力に影響を与える出湯温度、ならびに分裂形態に影響を与える噴射ガス流量ならびに流速によって大きく変化すると考えられる。ここでは溶湯を出湯可能な最低温度とし、噴射ガス圧力は一定のままガス噴射孔の内径が異なるアトマイズノズルを用いることでガス流量を変えて粉末を作製して粉末 Ar 量との関係を検討した。

Fig.4-5 に粉末 Ar 量と溶湯/ガス比との関係を示す。この実験結果から噴射ガス流量が少ないほど同一粒子径での粉末 Ar 量は低減すること、溶湯とガスの質量流量比が約 0.8 より大きい場合には粉末 Ar 量の低減が飽和する傾向を示すことが分かった。

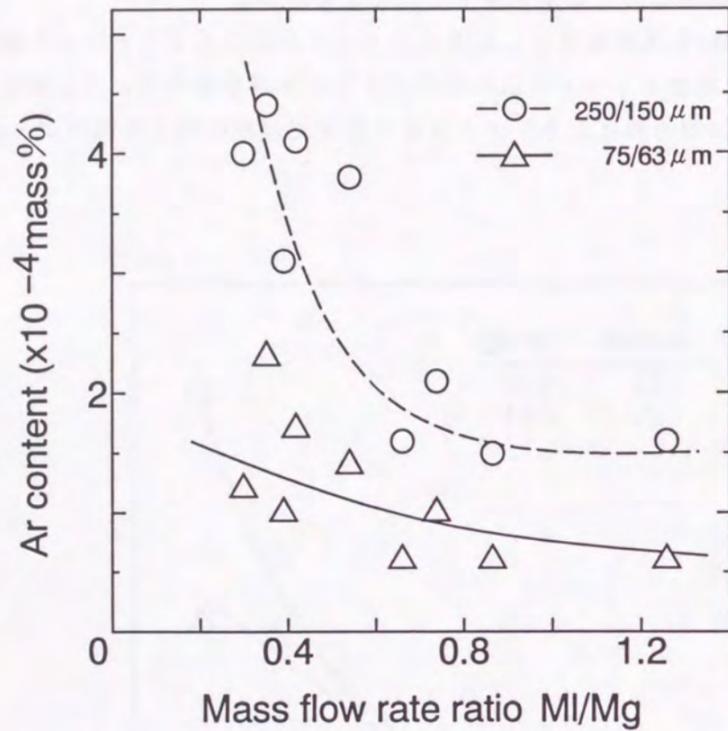


Fig.4-5 Ar content versus metal/gas flow rate ratio.

ここで粗粒子ほど Ar 含有量が多くなるのは、溶湯流が分裂して球形粒子となる過程において変形の箇所、変形量ともに大きいことに加えて固化に長時間を要するためと考えられる。この理由は、Table4-2 に示した結果から溶湯温度が高いほど固化するまでの時間が増して粉末の Ar 含有量が増したと考えられること、ならびにガス流量が増して MI/Mg の値が小さいほど粉末の Ar 含有量が増している (Fig.4-5) ことから、噴射ガスの作用による溶湯の変形箇所、変形量が増したためと考えられる。すなわち粗粒子では固化するまでの時間が長いことにより複雑に変形して周囲ガスを巻き込む箇所が増すこと、ならびに粒子を変形させようとするガスの動圧と球形化させようとする表面張力との比である (4-1) 式に示す We 数が粗粒子ほど大きいことから理解されるとおり、粗粒は変形しやすいために周囲ガスを巻き込むことが作用していると考えられる。

$$We = (\rho_g d_p V_g^2) / \sigma_l \quad (4-1)$$

- d_p : 粒子径 (m)
- V_g : 噴射ガスの流速 (m/s)
- ρ_g : 噴射ガスの密度 (kg/m^3)
- σ_l : 溶湯の表面張力 (N/m)

Table 4-2 Effect of molten metal temperature on Ar content of atomized powder.

Molten metal temp. ($^{\circ}\text{C}$)	Ar content of powder 150/250 μm (mass %)	MI/Mg
1420	1.8×10^{-4}	0.45
1510	3.1×10^{-4}	0.39
1660	4.1×10^{-4}	0.42

4.3.2 粉末ガス含有量と粒内ポロシティーの関係

粉末ガス含有量と直接関連する因子を把握するため、粒子内部の気孔との関係を検討した。粒子断面の気孔の面積率 (ポロシティーと呼称する) と粉末 Ar 量との関係を Fig.4-6 に示す。粒子内の気孔は粗粒ほど多く、ポロシティーの大きい粗粉末ほど多量の Ar が含有され、Ar 量は試作チャージによらずポロシティーと強い相関を示した。前出の Fig.4-5 では試作チャージによってガス量と粒度の関係に差があったが、粉末 Ar 量とポロシティーとの関係はほぼ単一の曲線で表すことができた。

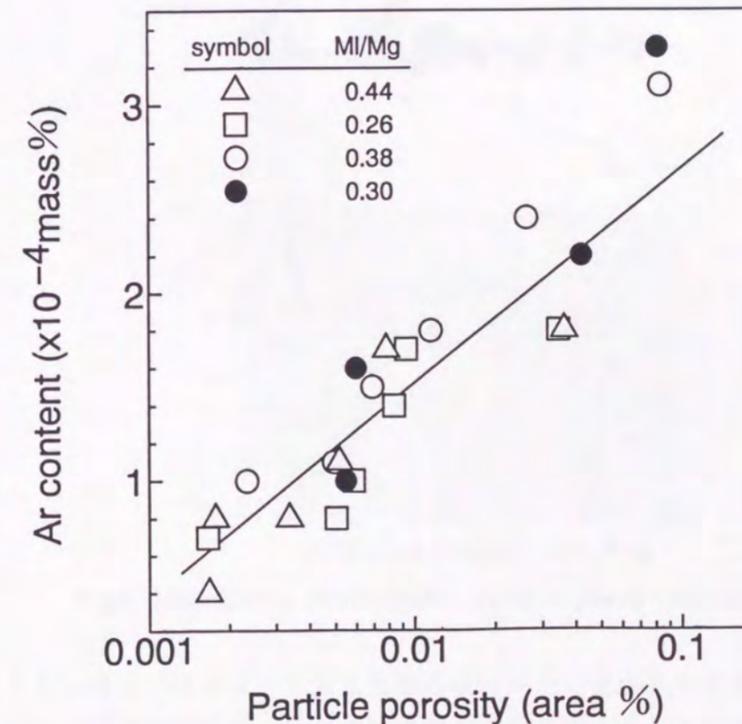


Fig.4-6 Ar content versus powder porosity measured in cross section.

また顕微鏡観察ではほとんど気孔が認められない微粒でも約 0.5ppm(0.0005mass%) の Ar を含有していた。これらの結果から粉末の Ar の大部分は粒子内部の気孔に、一部が微細なサイズのポイドとして組織中に捕捉されていると考えられる。さらに微粒ほど Ar 量は少ないことから考えて、粉末表面に吸着されている Ar は相対的に少ないと見なせる。

4.3.3 粉末成形材の性状

(I) ミクロ組織

粉末に含有される Ar が成形材特性に与える影響を検討するため、Ar ガスアトマイズ法によって作製した粉末を H I P 法ならびに粉末押し法によって固化成形しその断面組織を観察した。Fig.4-7 に示すように H I P 成形材には認められないが、押し材では長さ 100 μ m 程度の亀裂（気孔欠陥と呼称する）が認められた。また熱処理材では固化成形方法によらず 1200 $^{\circ}$ C 以上での熱処理材について気孔欠陥が認められた。

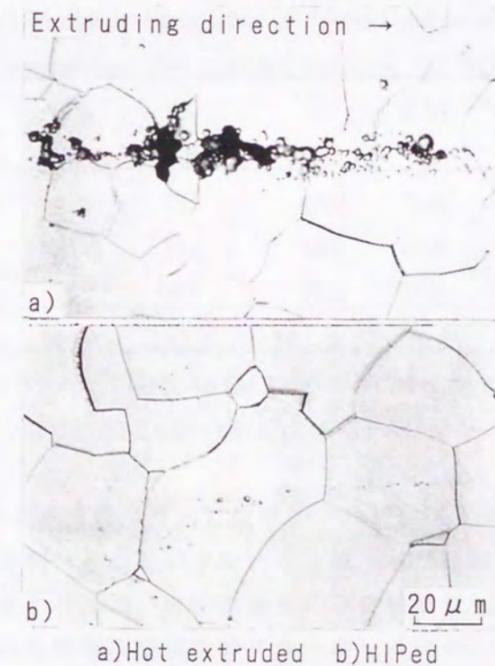


Fig.4-7 Microstructure of hot extruded and HIPed powder consolidated materials.

このように成形方法によって気孔欠陥の現れかたに差が生じる理由は次のように考えられる。押し材においては、粉末の充填層が押し機のコンテナ内で圧縮変形（据込み）されて粉末が相互に圧着したのち、ダイス部で縮径されて押し方向に Ar ガスの気孔が延ばされて材料内部に残留する。ダイスを通じた直後に高温で変形抵抗が低い状態のまま応力が解放されるため、押し材内部のガスが膨張して顕微鏡観察される寸法の気孔欠陥となる。いっぽう H I P では高温で長時間（約 1h）に渡る低歪み速度での変形により、ク

リープ現象や粒界拡散現象によって粉末内部の Ar ガスは分散して収縮した状態となり、高圧に保持されたまま冷却されるので Ar ガスは成形材内部に残留するものの膨張することなく微細に分散した状態であるため光学顕微鏡では観察できない。

また熱処理材では固化成形方法によらず気孔欠陥が認められるのは材料内部に残留した Ar ガスが高温下で変形抵抗が低減した材料内部で膨張するためである。これは粉末の固化成形材に対する TIP (Thermal Induced Porosity) 試験⁶⁴⁾において内部にガスが残留した材料では成形材密度が低下することと対応している。

なお粉末成形材において気孔欠陥が認められなくなるのは、粉末 Ar 量が約 1.0ppm (0.0001mass%) より少ない場合であり、Fig.4-4 に示す粉末の Ar 含有量と粒度との関係から分かるように、使用できる Ar ガスアトマイズ粉末は微粒に限定され、その歩留りは低い。

(2) 機械的特性

いっぽう機械的特性は Table4-3 に示すとおり溶製材とほぼ同等の値を示し、成形材に内包される気孔欠陥の影響は少ないことが分かった。なお結晶粒径も溶製材と粉末材で差はなく両者とも 20 ~ 30 μm であった。

Table 4-3 Mechanical properties of Ar-atomized powder consolidates (hot extruded and 1200 °C WQ).

Specimen	TS N/mm ²	YS N/mm ²	El %	RA %	vE ₀ J
Hot extruded	819	393	66.0	71.6	102
HIPped	798	383	58.0	69.0	82
Wrought	765	363	71.0	73.0	101
Spec.※	>690	>276	>30		

※ UNS N06625 UNS;ASTM Unified Numbering System
N06625;Ni-Cr-Mo-Nb alloy (Alloy625)

このように Ar ガスアトマイズ粉末の押し出し成形材の内部に気孔欠陥が認められるにもかかわらず、機械的特性に溶製材との差が少ないことは、延性破壊する場合には欠陥の存在は断面積の減少程度を考慮すればよいとする従来の研究結果⁶⁵⁾と同様の傾向を示しているためと考えられる。すなわち軟鋼溶接継手のブローホールについては欠陥率が 10% 以下では強度の低下がほとんどないことが示されており⁶⁵⁾、Fig.4-7 に示すように気孔欠陥は円孔の集合であり先端部は必ずしも鋭くないこと、また気孔欠陥の占める面積は少量であること、さらに試験片の破面観察から延性破壊と判断されることから Table4-3 に示す結果が得られたものと考えられる。

またHIP材の延性は押し出し材ならびに溶製材に比べて低く、粉末表面の酸化物等により粒子間の接合が不十分であるためと考えられる⁶⁶⁾。

4.4 粉末表面性状と粉末冷却速度との関係 (N₂アトマイズ粉末に関して)

一般に高耐食・高強度を要求される金属材料では組織に気孔欠陥を含むことは好ましくない。これまでの検討結果から粉末に内包される気孔には Ar ガスが含まれること、粉末中の Ar は成形材の気孔欠陥の原因となり、Ar を全く含まない粉末を Ar アトマイズ法で生成することは非常に困難であることが判明した。したがって噴霧媒を Ar から N₂ に替えた N₂ アトマイズ粉末を試作し、粉末の断面ならびに粉末成形材のマイクロ組織を Ar アトマイズ材と比較して特徴を明らかにすることとした。

4.4.1 N₂ アトマイズ粉末の断面形態

噴霧媒を Ar から N₂ に替えることにより、冷却速度が多少増し、粒度は多少減少する。試料作製に用いたアトマイズ装置では Ar 雰囲気気溶解するチャンバーとアトマイズタンクとはガス流通がない構造とした。試作粉末の Ar 含有量は検出限界以下であり、Fig.4-8 に示すとおり、粉末の断面に気孔は認められなかった。

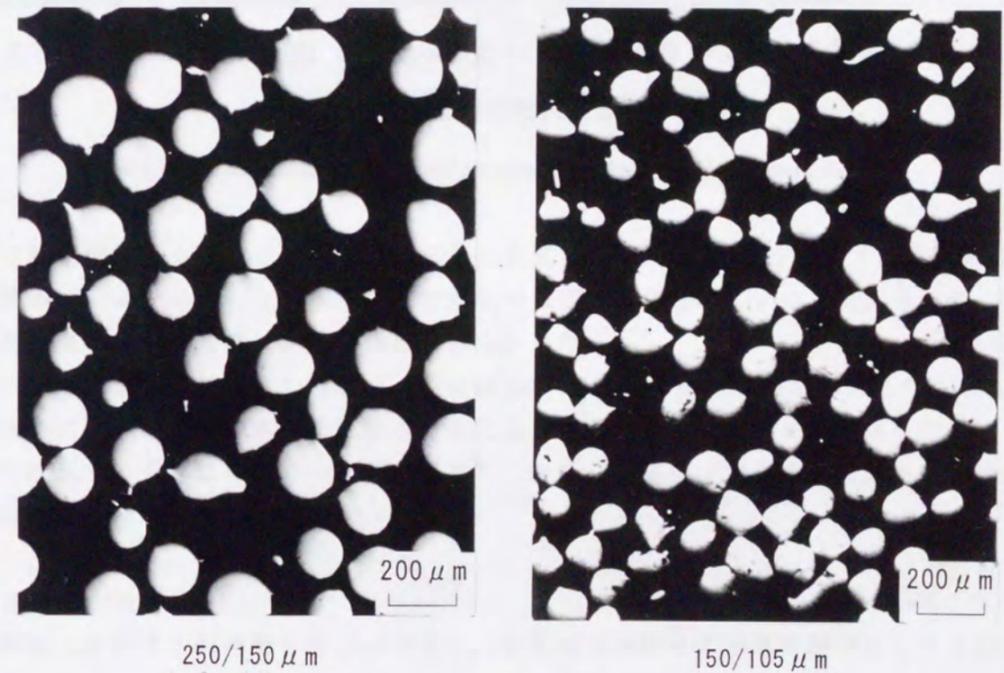


Fig.4-8 Polished cross-section of N₂ - atomized A625 powder.

4.4.2 粉末の含有水分

Fig.4-9 は試料粉末の加熱温度を 100 °C ずつ上昇させ、水分の検出が認められなくなるまで保持して各温度帯での粉末の水分量を測定した結果である。38/45 μm の比較的微粒子の場合、水分の分析値は 200 °C ~ 300 °C で最も大きい値を示し、500 °C ~ 600 °C 以上では検出限界以下となった。いっぽう 150/250 μm の比較的粗粒子の場合、加熱温度帯の違いによる水分の分析値に大きな差は認められず 500 °C 以上では検出限界以下となった。

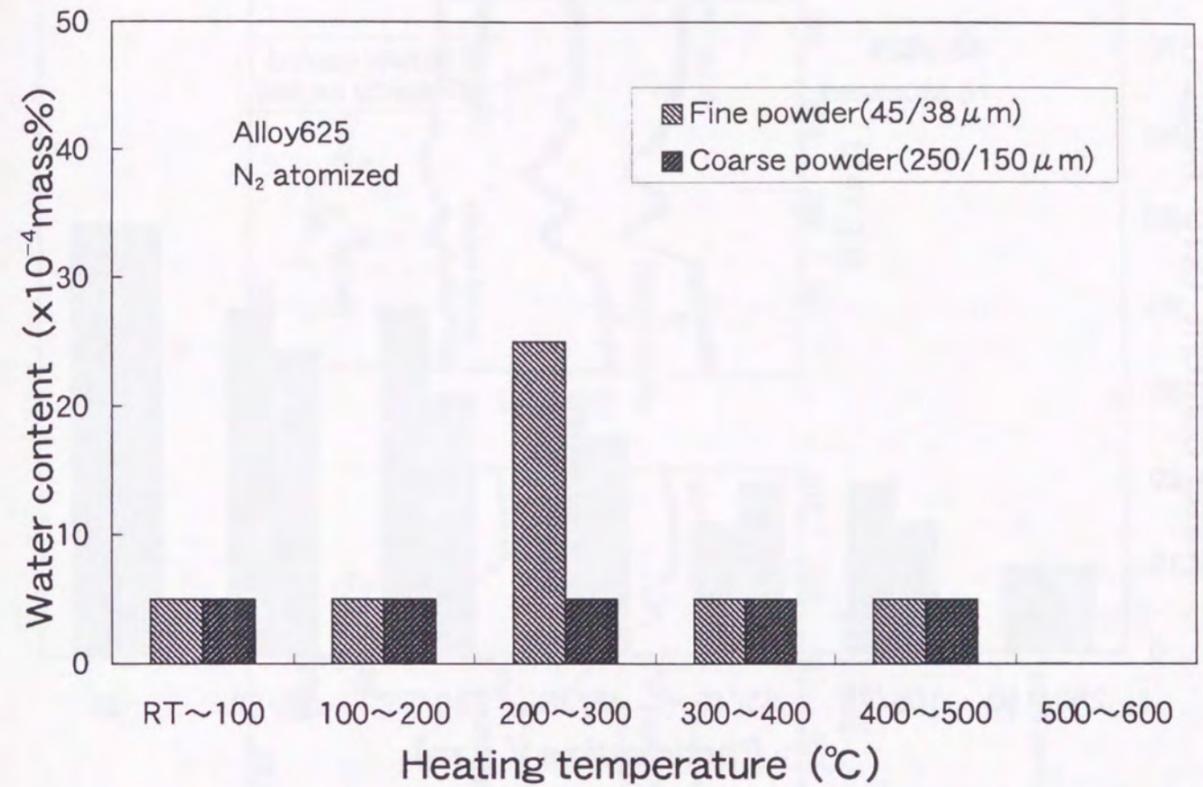


Fig.4-9 Water content of the atomized powder for various heating temperatures.

つぎに粒度別にふるい分けした粉末の水分を測定した結果を Fig.4-10 に示す。微粉末ほど水分値が高い値を示すことから水分は粉末粒子表面に吸着されていると考えられる。また徐冷粉と急冷粉で水分値に差異は認められなかった。

これらの結果から、粉末材の水分パーセントには 500 °C 程度までの加熱が必要と推定される。実用的には真空脱気で水分を脱離させることが一般的であり、粉末を充填したカプセルを真空脱気する条件についてのモデル計算⁶⁷⁾ あるいは真空下で粉末を流動させて吸着ガスを除去する装置の例⁶⁸⁾ が述べられている。

4.4.3 粉末表面の生成物

粉末表面に生成する析出物を表面分析して、粉末冷却条件との関係を調べるとともに、粉末表面に析出すると同定された酸化物、水酸化物の溶接特性への影響を調べた。

Fig.4-11 に XPS 分析で得られたスペクトル曲線を示す。この分析結果から判明した事項は次のとおりである。

(1) Ni の存在形態

粉末表面で Ni は主に Ni(OH)₂ の形態で存在し、徐冷粉末では急冷粉末に比べて金属 Ni のピークと比べて Ni(OH)₂ のピークが高いことから、Ni(OH)₂ が非常に多いことが分かった。なお、徐冷粉末では NiO も存在が認められた。また急冷粉末では 250/149 μm 粉末と 105/74 μm 粉末で粒度によるスペクトルの差はほとんど認められず、前記の 2 粒度の粉末に関する金属 Ni と Ni(OH)₂ の存在比はほぼ同一と見なすことができた。

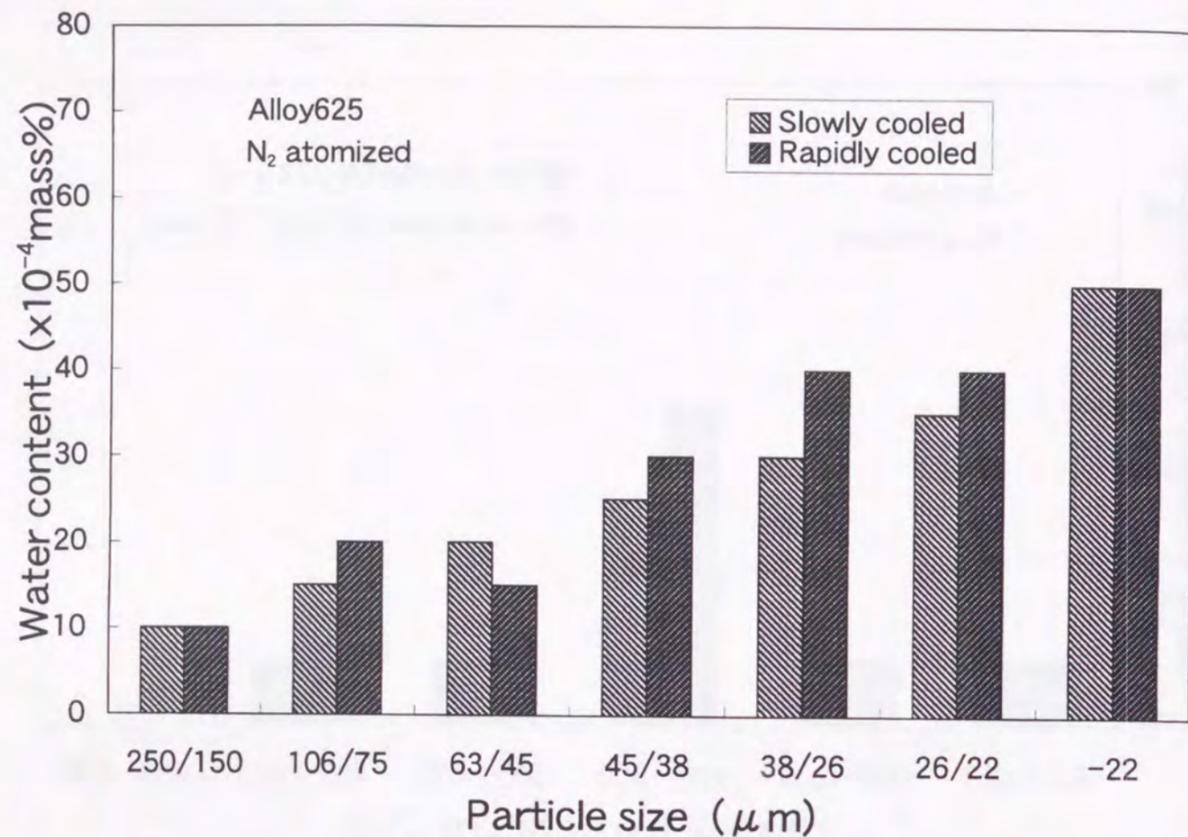


Fig.4-10 Water content versus powder particle size prepared at different cooling rates.

(2) Cr の存在形態

Cr は主に Cr₂O₃ で存在し、徐冷粉末では急冷粉末に比べて金属 Cr のピークと比べて Cr₂O₃ のピークが高いことから、Cr₂O₃ が非常に多いことが分かった。また急冷粉末では粒度によるスペクトルの差はほとんどないと判断され、250/149 μm 粉末と 105/74 μm 粉末では金属 Cr と Cr₂O₃ の存在比はほぼ同一と見なすことができた。

(3) Mo の存在形態

Mo は主に MoO₃、MoO₂ の形態で存在した。金属 Mo のピークと酸化物のピークとの相対的高さは急冷粉末と徐冷粉末とで相違が認められなかった。よって Mo 酸化物の状態は急冷と徐冷で差がないと考えられる。また粒度によるスペクトル差もほとんど認められなかった。

(4) Nb の存在形態

Nb は主に Nb₂O₅、NbO の形態で存在し徐冷粉末では急冷粉末に比べて金属 Nb のピークと比べて Nb₂O₅ のピークが高いことから、Nb₂O₅ が非常に多いことが分かった。また急冷粉末では粒度によるスペクトルの差はほとんど認められなかった。

なお、供試合金に含まれる易酸化性元素である Al、Si の酸化物ないしは水酸化物は検出されなかった。

以上の XPS 分析から、徐冷粉末では急冷粉末に比べて、Ni(OH)₂、Cr₂O₃、Nb₂O₅ が多いこと、金属のピークと酸化物のピークの両方が現れる急冷粉末の酸化物の厚さは約 2nm 以下と考えられることが分かった。

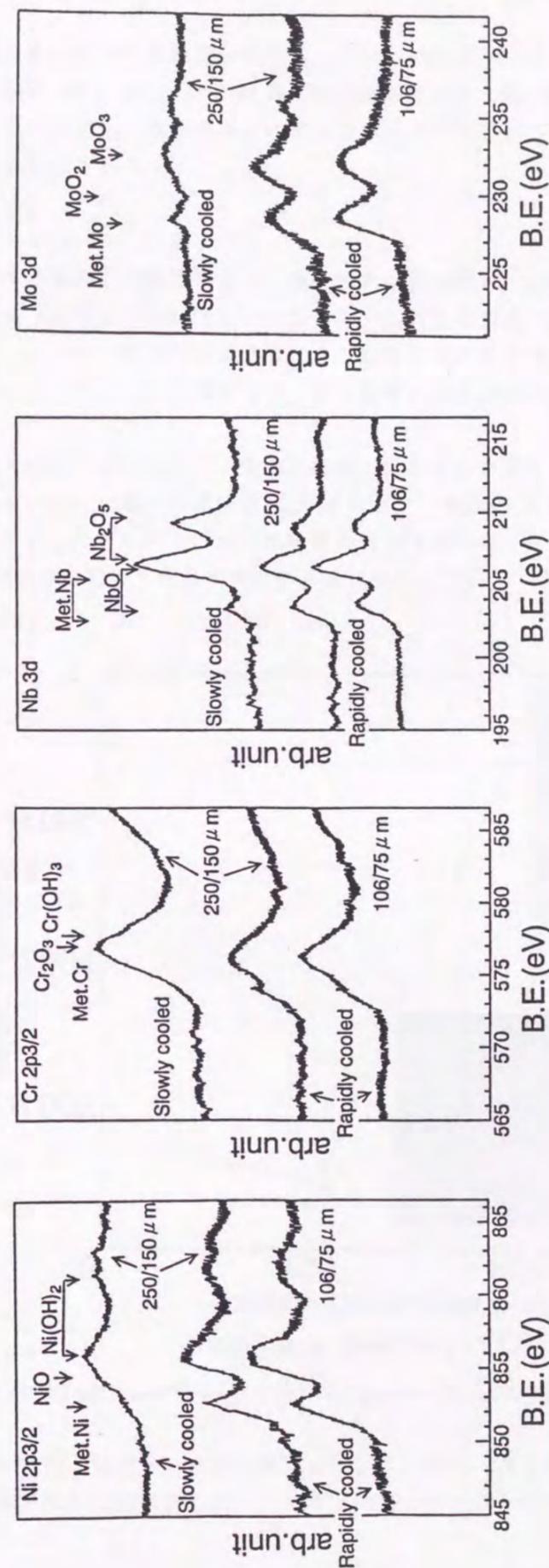


Fig.4-11 XPS spectra for the N₂-atomized powder.

また急冷粉末については粒度によるスペクトルの差がほとんど認められないこと、さらに篩分した粉末 (22 ~ 250 μm) の酸素量は粒度区分の中央値の逆数にほぼ比例する結果が得られていることから、粒子表面には粒子径によらずほぼ同じ厚みの酸化物、水酸化物層が存在すると推定される。

4.4.4 溶接ブローホール

前述の粉末表面分析の結果により、急冷粉末と徐冷粉末では表面の酸化物ならびに水酸化物の生成量が異なることが明らかとなった。これらの差異が粉末成形材の特性に与える影響を検討するため、粉末の表面汚染による影響を反映しやすい特性の一つとして溶接金属中のブローホールについて調査した。なお機械的特性の差異については 4.5.2 項に後述する。

アトマイズ直後におけるタンク底部に堆積した粉末の温度と 4.2.3 項に記した TIG 試験によるブローホール量との関係を Fig.4-12 に示す。Fig.4-12 に示すとおり TIG 溶接の溶接金属中に発生したブローホールは堆積部の粉末温度が高い徐冷粉末に多く、堆積部の粉末温度が 300 ~ 400 $^{\circ}\text{C}$ より高温の場合に多量に発生した。

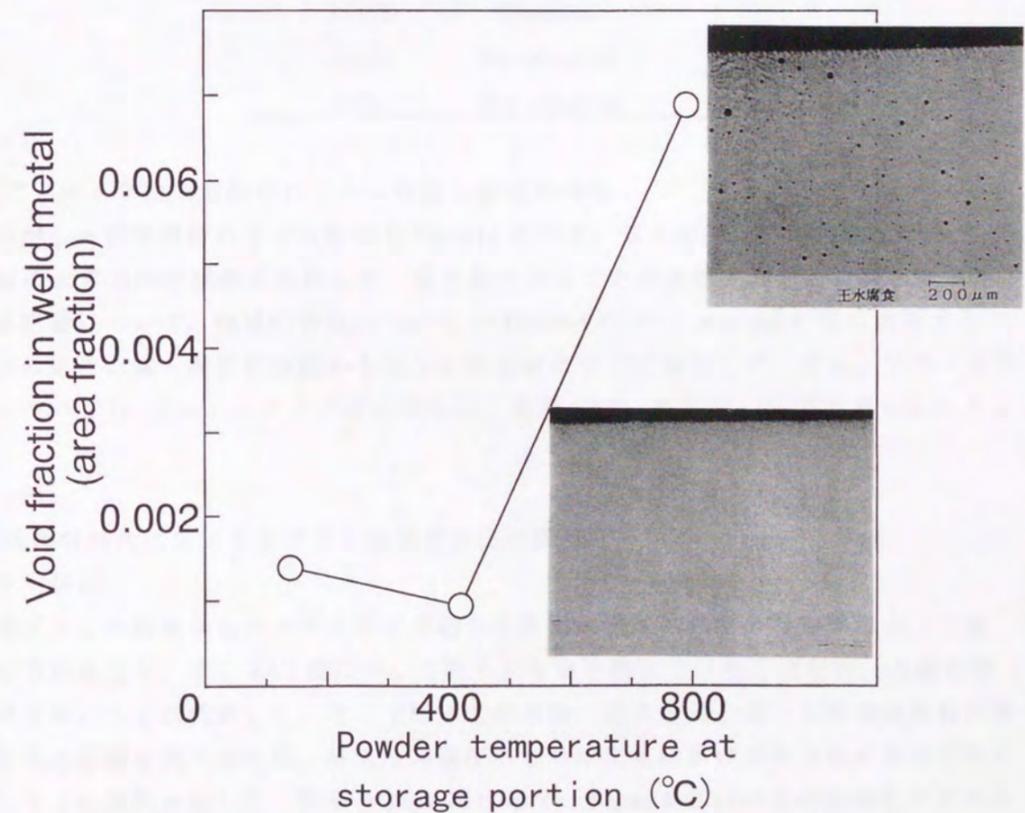


Fig.4-12 TIG test results for the N_2 -atomized powder with various storage bin temperatures.

徐冷粉末の表面で同定された酸化物によるブローホール発生を確認するため、4.4.2 項に示した表面分析にて粉末表面に存在すると同定された酸化物ならびに合金成分から推定

して生成する可能性のある酸化物を、溶製法で作製した Alloy625 の棒材の端面に溶射して付着させ、その端面と同一径を有する他の Alloy625 棒材の端面とをHIP接合した。この接合面と直角な断面上の接合部分にTIG試験を施してブローホールを観察した結果をTable4-4に示す。Table4-4に示すように、Cr, Nb, Mn, Feの酸化物では多数のブローホールの発生が認められた。

これはアークによって酸化物が分解して発生した酸素、CO、CO₂ガスがブローホールとして残留したものと思われる。4.4.3項に示した表面分析の結果と比べると、徐冷粉末の表面で検出されたCr₂O₃ならびにNb₂O₅は溶接金属中のブローホール発生と強い因果関係を有していると考えられる。

Table4-4 TIG test results for spray coated oxides onto Alloy625 bars.

Oxides	Blow-holes
Cr ₂ O ₃	Observed
MnO	Observed
Fe ₂ O ₃	Observed
Nb ₂ O ₅	Observed
Al ₂ O ₃	Not observed
SiO ₂	Not observed

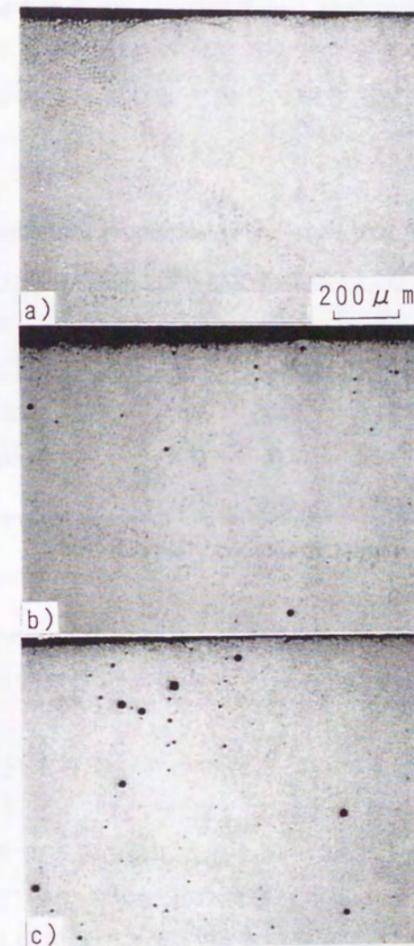
4.4.5 N₂アトマイズ粉末成形材のマイクロ組織と機械的特性

熱間押し-熱処理材のマイクロ組織をFig.4-13に示す。気孔欠陥は認められなかった。約1μmの大きさの析出物が認められ、窒化物であることが確認された。これら析出物の与える影響について、機械的特性についてはTable4-5の"N₂-atomized R"欄に表示しており多少の延性低減・硬質化が認められたが規格値は十分に満足した。なお、サワーガス耐食性についてN₂ガスアトマイズ材は溶製材と差異のないことを5.3.3項で明らかにする。

4.5 粉末成形材特性に及ぼすカプセル前処理方法の影響

4.5.1 ミクロ組織

4.4.1項に示した結果からガスアトマイズ粉末の表面に吸着した水分は加熱によって脱離が可能であること、また4.4.2項に示した結果から急冷粉末では表面酸化物、水酸化物の生成が少ないことが判明した。そこで粉末生成方法、脱気方法の違いが粉末成形材の清浄度に与える影響を調べるため、粉末冷却速度あるいは充填粉末の脱気方法が異なる試料を作製しTIG試験を施した。結果をFig.4-14に示す。Fig.4-14でa)は急冷粉末をカプセル充填し温間脱気した場合、b)は急冷粉末をカプセル充填し室温で脱気した場合、そしてc)は徐冷粉末をカプセル充填し温間脱気した場合である。急冷粉末を温間脱気した場合は、溶接金属にブローホールは認められなかったが、温間脱気を行わない急冷粉末および徐冷粉末の場合は脱気を施しても、約10~50μmのブローホールが認められた。b)の場合は



- a) rapidly cooled with 400°C evacuation
- b) slowly cooled with 400°C evacuation
- c) rapidly cooled without 400°C evacuation

Fig.4-14 TIG test results for powders with different processing.

粉末表面の水分が、c)の場合は粉末表面の酸化物、水酸化物がブローホール発生の原因と考えられる。

したがって、機械的特性の良好な粉末成形材の製造には生成粉末を急冷して酸化物の生成を抑制するとともに、吸着水分の温間脱気による脱着が必要であることが分かった。

4.5.2 機械的特性

急冷粉末と徐冷粉末をカプセル充填し、温間脱気を施して熱間押出材を作製して機械的特性を評価した結果を **Table4-5** に示す。この結果から徐冷粉末の成形材は急冷材に比較して、シャルピー衝撃エネルギーが多少低い引張強度、延性値はほぼ同一と見なすことができる。また急冷粉末の成形材は溶製材に比較してやや強度が高く、延性が低い規格値は十分に満たしている。

Table4-5 Mechanical properties of N₂ - atomized powder

		consolidates (hot extruded and 1200 ° C WQ).				
Specimen		TS	YS	EI	RA	vE _o
powder cooling		N/mm ²	N/mm ²	%	%	J
N ₂ -atomized	R	886	440	58.8	66.0	89
N ₂ -atomized	S	879	411	57.7	64.0	80
Wrought		765	363	71.0	73.0	101

R:rapidly cooled S:Slowly cooled

以上のことから、N₂アトマイズ法で生成した Alloy625 の急冷粉末を温間脱気して熱間押出成形した粉末材料は機械的特性、溶接特性とも十分に高いとともに、マイクロ組織も良好であることが確認できた。

いっぽう、Alloy625 粉末のHIP成形材の特性については Gilman⁵¹⁾ が引張特性、溶接性、耐食性の観点から Ar アトマイズ材で問題のないことを述べている。アトマイズガス種による成形材の特性は本章で明らかにしたとおり、Ar アトマイズ粉末では押出し材に気孔欠陥が生じること、N₂アトマイズ粉末の成形材は多少硬質であるとともに析出物が多少生成することがそれぞれ留意点である。粉末応用製品の必要仕様から適切なアトマイズガスを選択することが必要となる。

4.6 結 言

補助噴射ガスの吹き付けによってアトマイズ粉末を急冷する不活性ガスアトマイズ法によって Alloy625 粉末を生成し、特性を評価した。Ar アトマイズ粉末について粉末 Ar 量と粒度および粒子内部の気孔量との関係ならびに成形材の特性さらに粉末 Ar 量と粉末製造条件との関係を検討した。また N₂アトマイズ粉末について表面生成物ならびに成形材特性と粉末製造条件との関係を検討した。得られた主な結果は次のとおりである。

1. Ar ガスアトマイズ法で生成した粉末に含まれる Ar 量は微粒子ほど減少したが、22 μm 以下の微粉の場合も約 0.5mass-ppm (0.0005mass%) の Ar を含有した。
2. 粉末断面のポロシティと粉末 Ar 量には明確な相関が認められた。
3. 溶湯とガスの質量流量比 Ml/Mg が大きいほど粉末 Ar 量は減少するが、Ml/Mg>0.8 では Ar 量低減が飽和した。
4. Ar アトマイズ粉末の熱間押しによる成形材には気孔欠陥が認められたが、引張特性は溶製材とほぼ同等であった。
5. 粉末水分は加熱温度が約 500 °C まで脱着が認められ、急冷粉末と徐冷粉末とで差異は認められなかった。また水分分析値は粒度に反比例するため、水分は表面吸着していると思なせる。
6. 徐冷粉末の表面には急冷粉末に比較して多量の Ni(OH)₂、Cr₂O₃、Nb₂O₅ が認められ、アトマイズ粉末温度が 400 °C より高いと T I G 試験において溶接金属中に多量のブローホールが発生した。また急冷粉末については、これらの水酸化物、酸化物と各金属元素との比率に粒度による差異は認められなかった。溶製法で作製した Alloy625 中の Cr₂O₃、Nb₂O₅ 溶射層からはビードオン溶接によってブローホールが発生し、Alloy625 粉末表面のこれらの酸化物がブローホールの原因であることを示した。
7. N₂アトマイズ法で生成した急冷粉末をカプセル充填・温間脱気した H I P 成形材にはブローホールは認められなかったが、常温脱気を施した急冷粉末あるいは温間脱気を施しても徐冷粉末の成形材ではブローホールが発生した。また成形材に気孔欠陥は認められず、窒化物の析出による多少の延性低減・硬質化が認められた。

第 5 章 高合金粉末熱間押し成形材の 特性ならびにクラッド鋼管の作製

5.1 緒言

原油プラント用の管材料や排熱ボイラ用熱交管など高い耐食性、耐熱性を求められる素材には高合金が適用される例が多いが、一般に高合金は難加工材料であるため、工業製品としての供給に問題を抱えている。さらに、高価な高合金材料は必要部位に限定して用いようとする要望も強い。

このように高特性ながら加工性に劣る高合金を必要部位に配置した素材の提供方法として、ニアネットシェイプ加工が可能であることや偏析が少なく脆性相の析出を抑制できること等に注目して粉末冶金法の適用を試みた。粉末冶金法は鉄系の焼結機械部品の製造には広く適用されているが、高合金の耐食・耐熱材料については検討例が少ない。そこで著者は第2、3章に記した微粉末の製造技術についての研究ならびに第4章に記した清浄粉末の製造技術についての研究結果に基づいて生成した高品質の高合金粉末を用いて、耐食性に優れた成形材を生成する方法ならびに低合金鋼と密着複層化したクラッド材の製造技術に関する研究を行うこととした。

高合金の粉末成形材については1.2.5項に述べたとおり、宮坂ら⁵⁶⁾によりHIP+熱間押し法による高合金/低合金鋼クラッド油井管が試作され、サワーガス中で十分な耐食性を示すと報告されているものの、生産性や製造コストの点で課題が多い。またRizzoら⁵⁷⁾はHIP法により高合金ライナーを低合金鋼母材に密着させた油井用配管部品の製造を報告しているが、粉末に十分な塑性変形を加えなければ、粉末成形材の性能が劣るとする報告⁵⁸⁾もある。そこで著者はこれらの従来の製造法の欠点を改良し、粉末材の性能を十分に発現でき、かつ生産性の高い製法として、CIP処理を施して粉末充填層の密度を向上させた粉末ピレットを熱間押しする方法(CIP-押し法)によるクラッド材料の製造技術を研究した。

本章ではまず基礎的知見として、高合金粉末の押し成形材に関する耐食性と機械的特性について、粉末の特性ならびに固化成形方法との関連を検討する。つぎに高合金粉末と鋼材との接合界面の状態について検討するとともに、高合金と加工性が異なる低合金鋼との界面密着性に優れたクラッド材料を熱間押し法で製造するための基本技術を検討する。

これらの実験室規模の検討から得た基礎的知見を用いて実管サイズのクラッド管の試作に取り組み、ユジーン・セジュール方式の実管製造設備を用いて、粉末高合金内面クラッド鋼管の試作に成功した。本章ではその製造技術と試作管の特性評価結果についても述べる。

5.2 実験方法

5.2.1 供試粉末

供試粉末は、ASTM規格のUNS N06625に則って調製した溶製材を不活性雰囲気下で再溶解し、窒素ガスを噴霧媒としたアトマイズ法により製造したNi基合金粉末(Alloy625粉末と呼ぶ)であり、その化学成分をTable5-1に、同粉末のJISふるい分け法による粒度分布測定結果をFig.5-1に、外観をFig.5-2に示す。

Table 5-1 Chemical composition of the gas atomized A625 powder. (mass%)

	C	Si	Mn	P	S	Cr	Mo
Powder	0.004	0.45	0.47	0.002	0.002	21.1	8.84
Spec.						20.0	8.0
※	<0.015	<0.5	<0.5	<0.015	<0.015	-23.0	-10.0

Nb	Fe	Al	Ti	Ni	O	N	Ar
3.66	3.45	0.06	0.005	59.5	0.009	0.042	N.D.
3.15							
-4.15	<5.0	<0.4	<0.4	>58.0			

※ Spec.;UNS N06625 UNS;Unified Numbering System (ASTM)
N06625;a code name for Ni-Cr-Mo-Nb alloy

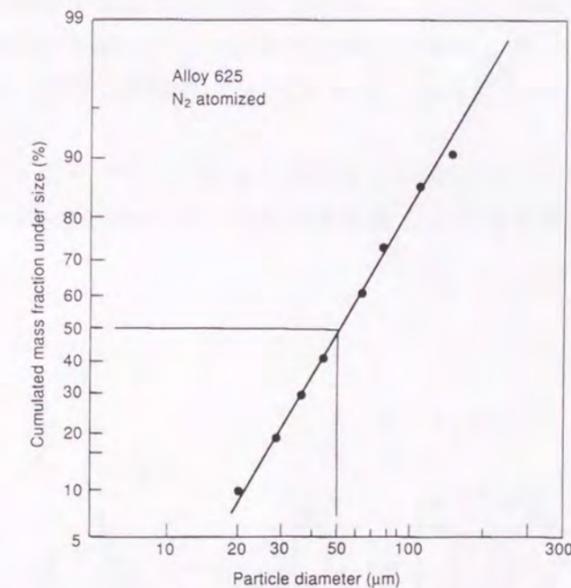


Fig.5-1 Particle size distribution for Alloy625 powder.

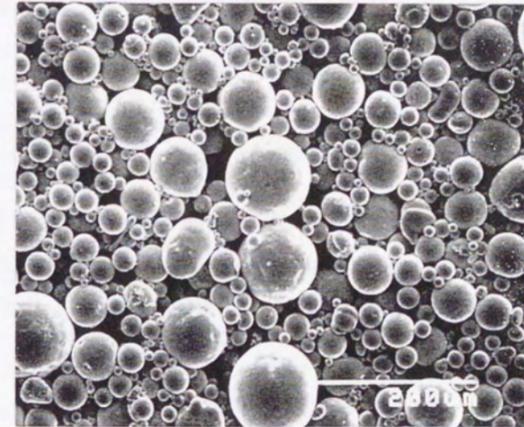


Fig.5-2 SEM for gas-atomized Alloy625 powder.

5.2.2 粉末成形材の特性評価方法

(1) 固化成形方法

熱間押し法による粉末の成形手順を管材料の場合について Fig.5-3 に示す。棒材も同様である。供試粉末を外径 67mm、肉厚 2mm、全長約 180mm の軟鋼製ないしはステンレス鋼製容器に充填し、真空脱気しつつ 400 °C に 3600s 保持したのち、封口した。これに種々の条件のもとで熱間押しを施して棒材を作製し、所定の熱処理を施して実験用試料を作製し、押し成形条件の違いによる粉末材の特性を検討した。ここで押し前の加熱は 1150 °C 付近で行い、押し比は約 3 ~ 12 とした。なお押し比は押し前後における素材の断面積比とした。

また、押しをせずカプセルに充填した粉末を圧縮成形した試料（押し比 1.0 と見なす）ならびに 1200 °C -200MPa-1h の H I P 処理を施した試料も作製した。

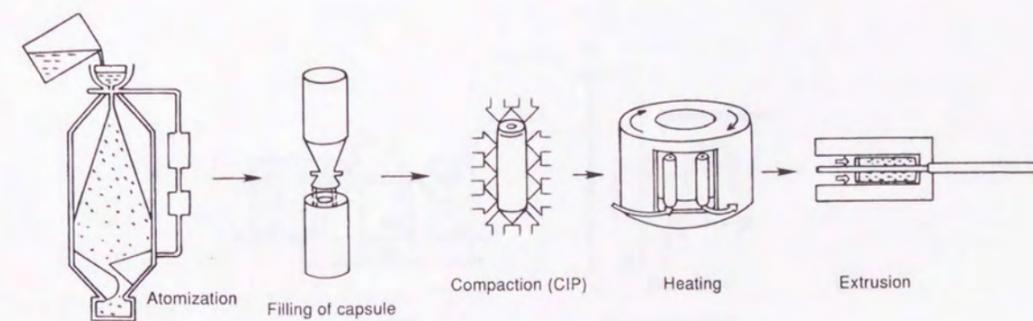


Fig.5-3 Flow diagram for the P/M tubular manufacturing process.

(2) 機械的特性の評価方法

熱間押し法によって作製した Alloy625 粉末材の機械的特性を評価する場合には、次に示す (A) 条件の熱処理を施し、耐食性を評価する場合ならびに 5.5 節に後述する試作管については (B) 条件の熱処理を施した。この (B) 条件は母材の低合金鋼の特性発現を考慮したものである。

(A) 1200 °C x 600s 水冷

(B) 980 °C x 1800s 水冷さらに 700 °C x 2400s 空冷

ここで、JIS Z 2201 に規定された外径 6mm の丸棒試験片を引張方向が押し出し方向と一致するように採取して引張試験に供するとともに、JIS Z 2202 に規定された 4 号試験片を衝撃方向が押し出し方向と直交するように採取して衝撃試験に供した。

(3) 耐食性の評価方法

粉末押し出し材の耐食性についてはさまざまな視点から評価する必要があると考えられるが、ここでは粒界腐食特性を JIS G 0573 のヒューイ試験で評価するとともに、模擬サワーガス環境下での SCC 発生を評価するため、Fig.5-4(1) に示す試験片を用いて、次の (C) に示す腐食環境の下で SSR(Slow Strain Rate) 試験を実施するとともに、5.5 節に後述する試作クラッド管の高合金部から Fig.5-4(2) に示す試験片を切り出して U ベンドに曲げ、次の (D) に示す腐食環境の下での SCC 発生有無を一ヶ月ごとに観察して評価した。

(C) 204 °C 0.81MPa H₂S, 25%NaCl+0.5%CH₃COOH

歪速度 $\dot{\epsilon}=4 \times 10^{-6}$ 1/s

(D) 177 °C および 232 °C

1.11MPa H₂S, 1.11MPa CO₂, 25%NaCl+0.5%CH₃COOH

ここで SSR 試験は不働体皮膜を機械的に破壊したのちの SCC 亀裂進展の有無を評価し、U ベンド試験は不働体皮膜の化学的破壊に対する抵抗性および SCC 亀裂発生を評価する。

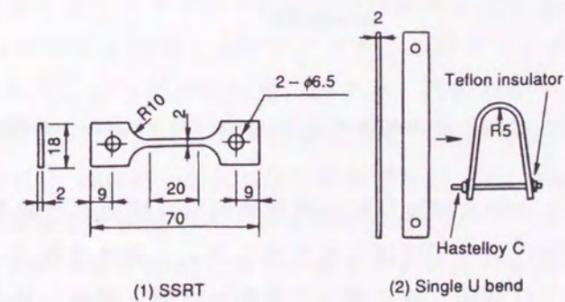


Fig.5-4 Specimens for the corrosion tests.

5.3 粉末押し成形材の特性

粉末押し法は他の粉末固形成形プロセスと異なって、不活性雰囲気下で粉末に大きな変形を与えながら緻密化をさせることが特徴である。このことから押し比が成形材の特性に与える影響を調査した。

5.3.1 密度および引張・衝撃特性

Table 5-2 に押し成形材の密度を水浸法によって測定した結果を示す。成形材の密度は押し比によらず溶製材での測定値とほぼ同一の値であった。さらにマイクロ組織観察においても空孔は認められないことから、CIP-押し法によって粉末層は完全に緻密化することが確認できた。

Table 5-2 Density of hot-extruded powder material.

Extrusion ratio	Density(kg/m ³)	Appendix
1	8430	
3.1	8420	
4.8	8440	
7.8	8430	
12.2	8450	
7.8	8420	Wrought material

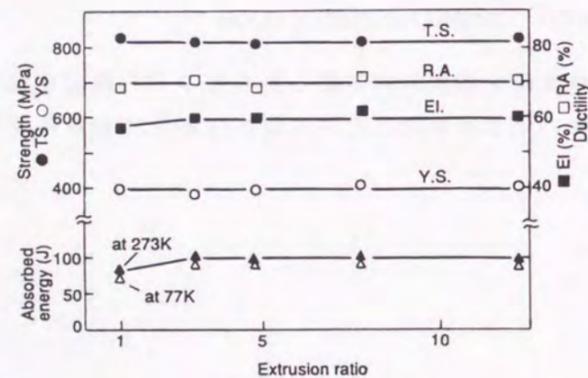


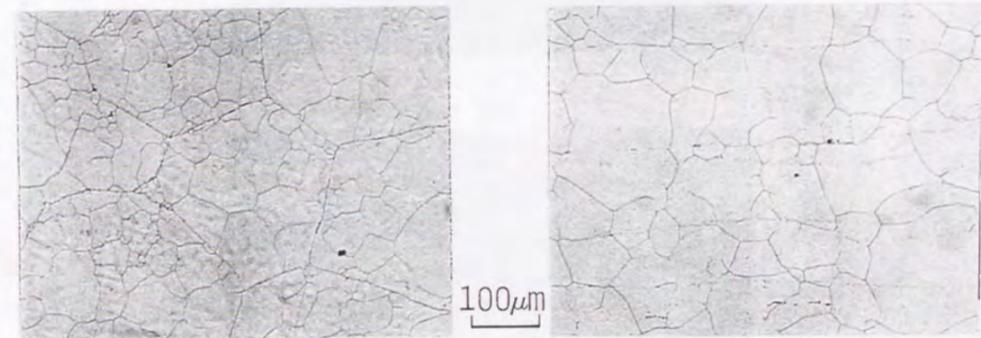
Fig.5-5 Effect of extrusion ratio on mechanical properties for powder consolidated Alloy625.

Fig.5-5 は押し比の異なる粉末押し材の機械的特性を評価した結果である。同図に示すとおり、強度は押し比によらずほぼ一定の値を示し、延性は押し比1に相当する粉末の等方的な圧縮成形材では押し比に比べて低かったが、押し比が3より大きいとほぼ同じ値を示した。衝撃吸収エネルギーについても延性と同様であるが、押し比に比べて圧縮成形材の特性値の劣化が大きかった。

5.3.2 押しに伴うPPBの変化挙動

Fig.5-6 にHIP成形材と押し成形材のマイクロ組織を示す。HIP成形材にはPPB（旧粉末粒界）の残存が明瞭に観察できる。これに対して押し材ではPPBを越えた粒成長が観察されるとともに結晶粒径がHIP成形材に比べて大きい。押し加工における据え込み状態の材料はHIP材の組織に近いと考えれば、PPBを形成する粉末表面の酸化などが押し加工の進行とともに分断されることにより、PPBを越えた粒成長を起こすと推定される。すなわち押し加工による粉末の大きな変形が粉末の接合に大きな役割を果たしており、Fig.5-5 に示した押し比の増加に伴う延性ならびに衝撃値の向上をもたらす要因と考えられる。

これに関して大橋ら⁶⁾は押し加工によって伸ばされるPPBの長さに対するPPBの分断によって新たに生成した新生界面の長さの比率(分断率)を調べ、押し比が1~約3までの間で押し比に対する分断率の増加が著しいことを述べている。



(a) HIPed material

(b) Extruded material

(Extrusion ratio=4)

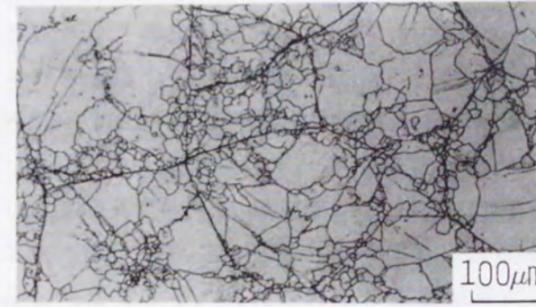
Fig.5-6 Influence of extrusion on microstructure for powder consolidates.

つぎに押し加工の進行に伴う粉末成形材の組織の変化をFig.5-7に示す。押し比が1.0ないしは1.3の成形材の組織において、PPBの近傍から微細な再結晶粒が生成していることが観察された。さらに押し比が増すと、旧粉末粒子の内部まで微細結晶粒が生成して、押し比6.7の場合は全断面で微細結晶粒が認められた。これに4.2.4項に記した"Solution anneal"とされる1200℃-10min-WQの熱処理を施すと、Fig.5-6(b)に示したようにPPBを越えて粒成長した組織を有する成形材を得た。

以上のことから、粉末材に押し加工を施すとPPBの分断が生じ、これによってPPBを越えた再結晶粒成長が進み、PPBがほぼ消滅するとともに延性の向上することが分かった。

Extrusion ratio

Upset zone



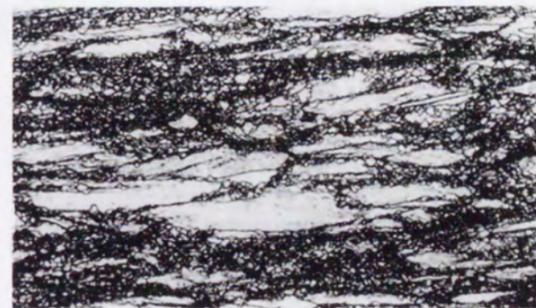
1.0

Deformation zone(1)



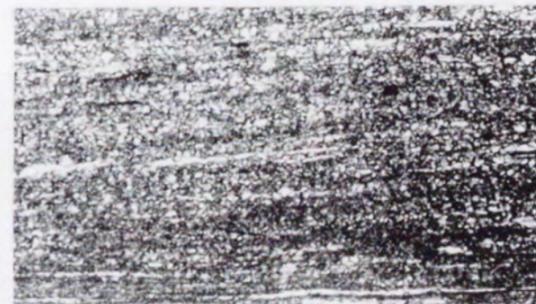
1.3

Deformation zone(2)



3.0

Extruded material



6.7

Fig.5-7 Typical microstructures for powder consolidates through hot extrusion process.

5.3.3 粒界腐食およびサワーガス中の SCC 挙動

Fig.5-8 に押し出し比の異なる粉末押し出し材の粒界腐食特性の評価結果を示す。腐食減量は押し出し比の増加に従って減少し、押し出し比が約 8 より大きいと一定値となる傾向を示した。また Fig.5-9 に模擬サワーガス環境での SSRT 結果を示すとおり、押し出し材については腐食環境中での破断に至る時間 (TTF 値) と不活性雰囲気中での破断時間との比 (TTF 比) はほぼ 1.0 であり、応力腐食割れが認められず、かつ伸びの値も十分に高いのに対して、押し出しをせず圧縮成形した試験片については TTF 比ならびに TTF 値ともに多少小さかった。これらの評価結果より、試作した Alloy625 粉末の押し出し材は本サワーガス腐食環境中で十分な耐食性を有すると判定できる。またこれらの実験結果は、5.3.2 項に述べた押し出しによる PPB の分断と PPB を越えた結晶粒成長によって粉末相互の接合がより強固になる粉末成形材の挙動と一致する。

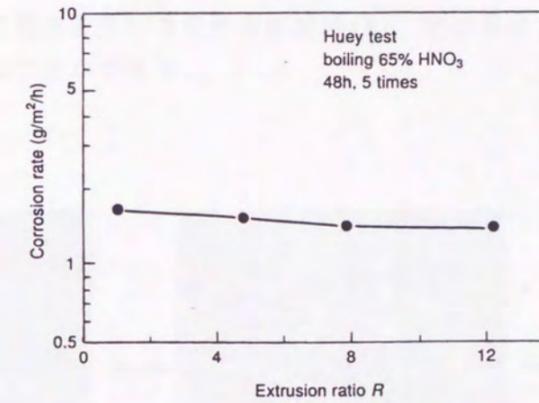


Fig.5-8 Effect of extrusion ratio on IGC property.

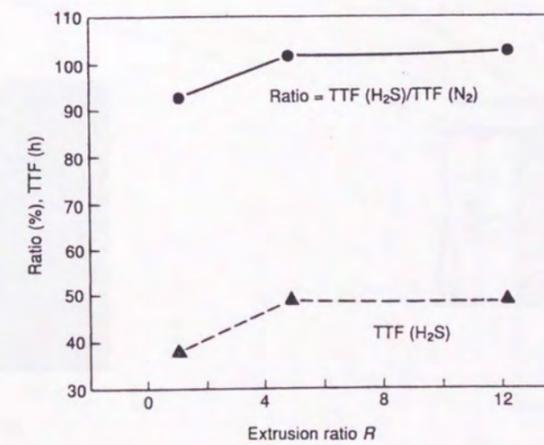


Fig.5-9 Effect of extrusion ratio on SCC behavior measured by SSRT. (TTF; Time to failure)

5.4 高合金粉末/低合金鋼界面の接合ならびに複層材料の同時押し出し

工業製品として高合金/低合金鋼クラッド管には、溶接性ならびに強度、延性、疲労強度等の機械的特性などの観点から、良好な界面密着性が求められる。押し出し成形における界面形成の過程ならびに成形挙動を把握するとともに、複層材料の成形現象に与える押し出し条件の影響について検討した。

5.4.1 界面における成形挙動

実大のクラッド管における界面接合挙動の観察に替えて、高合金粉末充填層と炭素鋼との接合挙動を詳しく観察することとし、外径 ϕ 50mmのS45C丸棒(C=0.44, Si=0.22, Mn=0.77, P=0.028, S=0.021 mass%)と外径 ϕ 67mm, 肉厚 1.2mmの軟鋼製円筒との環状空隙に高合金粉末充填層を配した全長約 100mmのピレットを 1150℃に加熱して、熱間押し出しあるいは押し出し途中においてピレットの加工操作を停止して回収した試験片(途中止め試験片)の断面を観察した。途中止め試験片はその成形過程に応じて Fig.5-10 に示すように粉末の表面近傍が局部的に変形して粉末層が緻密化する部分変形領域(A), 粉末層および母材炭素鋼がダイス内において変形を受ける塑性変形領域(B), 成形が終了したクラッド成形材(C)の3領域に大別することができる。

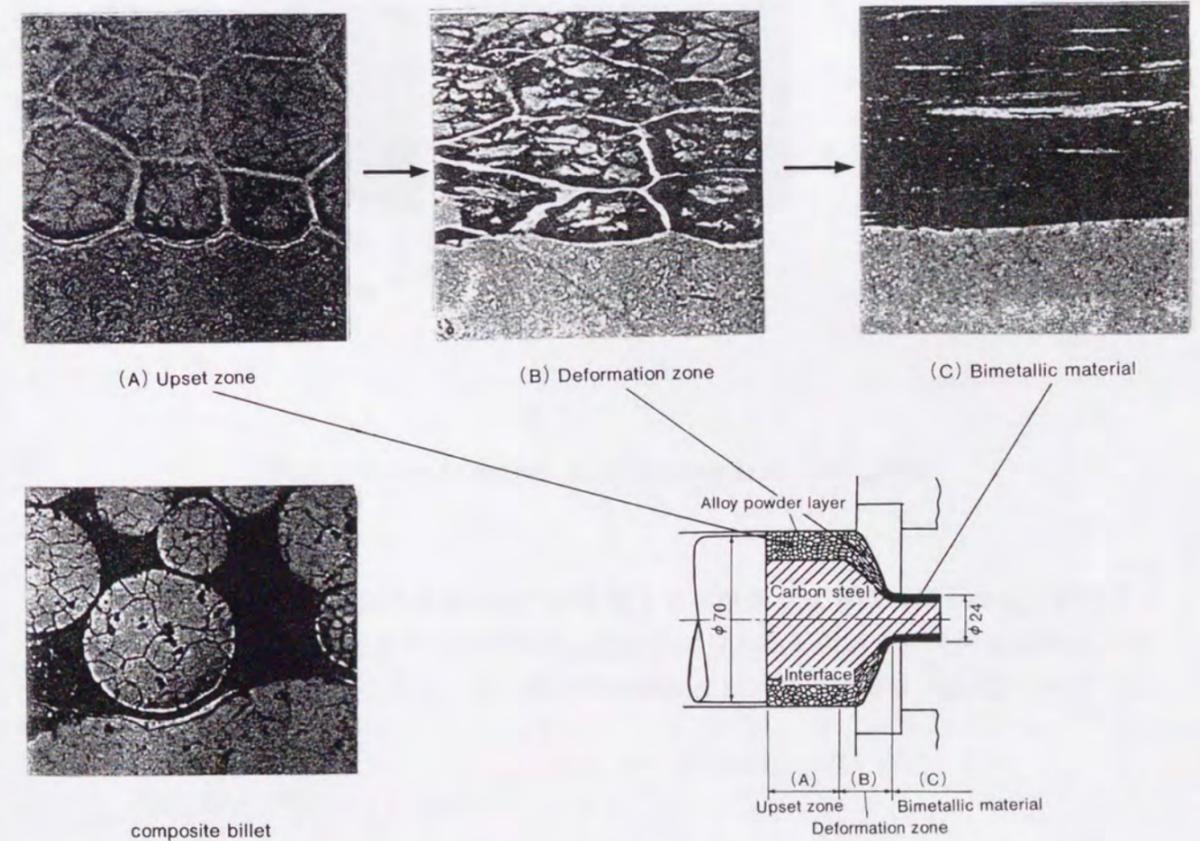


Fig.5-10 Interface bonding behavior in the coextrusion process.

押し出し過程に沿った界面部のマイクロ組織観察により、部分変形領域 (A) では高合金粉末が低合金鋼ビレット表面に食い込んで界面の接合性を向上させるとともに、低合金鋼表面の酸化物を主とする膜を分断して界面の冶金的な結合を助け、良好な界面接合が得られること、塑性変形領域 (B) では界面が押し出し成形によって伸ばされることにより界面の凹凸が減少すること、クラッド成形材 (C) では平滑な界面が得られることが明らかとなった。実管サイズのクラッド管においても同様の結果を確かめた。

つぎに上記の基礎試験で得られた試験片を弗硝酸に浸漬して炭素鋼部分を溶解除去して界面に相当する高合金粉末成形層の表面形状を表面粗さ計を用いて計測した。得られた表面プロフィールを Fig.5-11 に、10 点平均粗さと押し出し比との関係を Fig.5-12 に示す。界面のマイクロ観察で得られた、部分変形領域 (A) における炭素鋼への高合金粉末層の食い込み現象が表面プロフィールからも確認された。さらに塑性変形領域 (B) からクラッド成形材 (C) へと成形が進行するにしたがって、界面が伸展して凹凸が減少し、最終的にはほぼ平滑な界面が得られる挙動が確認できた。

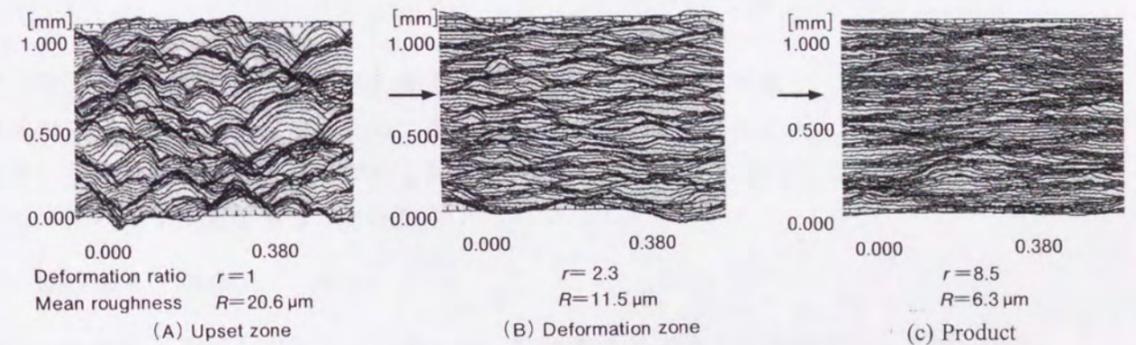


Fig.5-11 Change of interface profile according to extrusion process.

また粉末の食い込みを表す高合金層の表面粗さ R は押し出し成形の初期すなわち据え込み状態では $R \approx 21 \mu\text{m}$ であったものが押し出し成形の進行とともに減少し、例えば押し出し比 8.5 の場合は $R \approx 6.3 \mu\text{m}$ となる。表面粗さ R と押し出し比 r との関係は Fig.5-12 に示すとおり次式 (5-1) で表される。

$$\ln R = 3.0 - 0.48 \ln r \quad (5-1)$$

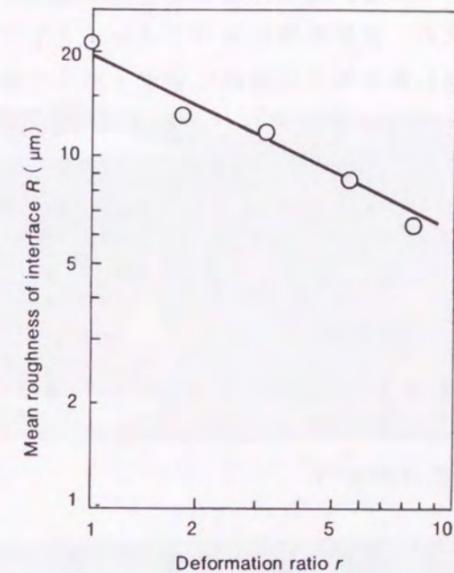


Fig.5-12 Change of mean roughness of interface according to extrusion process.

ここで、複層材料の押し出し成形の途中において両材料に滑りが無く、その結果として断面形状の変化が相似である場合には、押し出し比 r は素材の断面積比であり、素材断面の代表寸法の平方に比例するから、押し出し前に d_1 の大きさの凹凸は押し出し比 r の押し出し操作によって次のように変化することとなる。

$$\ln R = \ln d_1 - 0.5 \ln r \quad (5-2)$$

押し出し比に対する界面の凹凸変化の係数は、式 (5-1) に示すように実験によって得られた値が 0.48 であり、滑りが無いとして求めた値 0.50 に近いことから、高合金粉末/炭素鋼の複層材料の押し出し加工において両材料間に滑りはほとんど無く、界面せん断係数は相当に大きな値であると推定される。

5.4.2 複層管の限界押し出し比に及ぼす各因子の影響

一般に変形抵抗の異なる材料を複層して同時に押し出す場合には、成形条件が適切でないと高合金のクラッド層の肉厚が変動あるいは甚だしくは破断する等の欠陥が発生することが知られており⁷⁰⁾、内側に高合金層を配したクラッド鋼管における欠陥の例を Fig.5-13 に示す。変形抵抗が異なる材料を複層したクラッド材の成形性について、山口ら⁷⁰⁾ は欠陥の発生は変形領域における内外層界面の滑りに起因すると考え、エネルギー法によって求めた複層材として健全に押し出される圧力 P_c が、界面滑りを伴うどちらかの層のみの押し出し圧力 P_t より小さい場合に健全な押し出し材を得るとする解析（エネルギー解析と呼ぶ）

ぶ)を行っているほか、西口ら⁷¹⁾が高合金粉末/炭素鋼の複層管についてエネルギー解析を適用した検討を行っている。Fig.5-14は前記のエネルギー解析を用いて、内面に高合金材料を密着複層した管材について、同時押し出しが可能な最大押し出し比と界面のせん断係数との関係を計算によって求め、変形抵抗比をパラメータとして示したものである。計算に用いたビレット諸元、押し出し条件等は同図内に示すとおりである。ここで用いた変形抵抗比 k 、界面せん断係数 m_i の定義をそれぞれ(5-3)、(5-4)式に示す。

$$k = \sigma_{inner} / \sigma_{outer} \quad (5-3)$$

ここで σ_{inner} :内層材の降伏応力(N/m²) σ_{outer} :外層材の降伏応力(N/m²)

$$m_i = \tau_i / (\sigma_{outer} / \sqrt{3}) \quad (5-4)$$

ここで τ_i :界面の摩擦応力(N/m²)

ここで、5.3節に記したように高い特性を有する粉末成形材を得るには押し出し比>8が必要であるとの検討結果に鑑み、Alloy625などの高合金材料と炭素鋼ないしは低合金鋼との複層管についてFig.5-14中に記したビレット条件のもとで押し出し比を約11として熱間押し出しを行った場合の高合金クラッド層の欠陥有無をFig.5-15に示す。押し出し温度が1150℃より低く変形抵抗比が約2.8より大きい場合には必ず欠陥が発生したが、押し出し温度が1200℃で変形抵抗比が約2.4の場合には欠陥が認められないかあるいはきわめて軽微となった。この実験結果から変形抵抗比2.4における同時押し出し可能な最大押し出し比を約11と見なすとFig.5-14から本条件の界面せん断係数は約0.3と読みとれる。

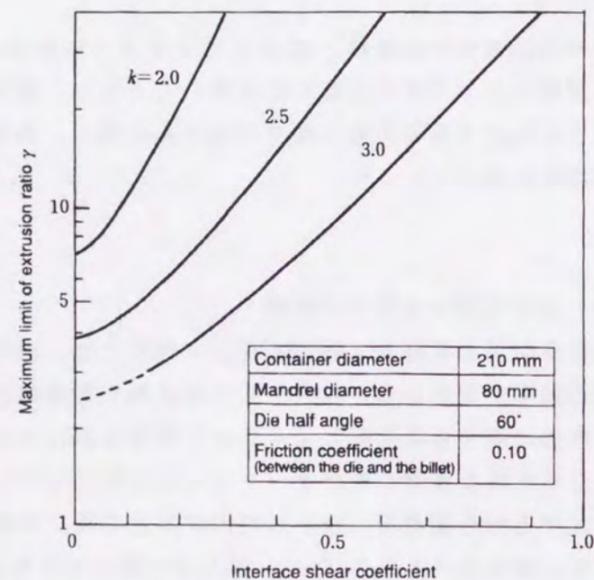
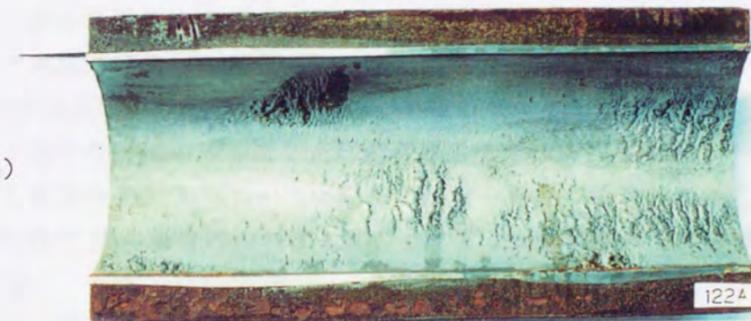


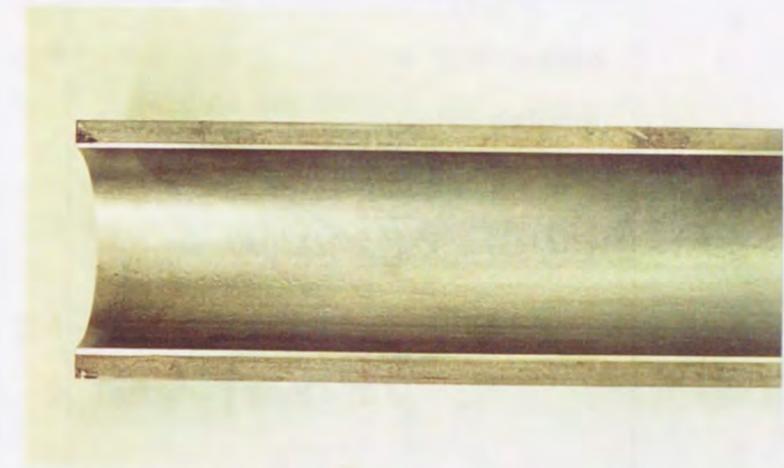
Fig.5-14 Effect of the interface shear coefficient on the coextrusion of clad materials.



(a)



(b)



(c)

(a):Cracks in an inner layer which appear periodically in a longitudinal direction.

(b):Surface defects caused by incomplete consolidation of powder particles.

(c):Sound product (without defects)

Fig.5-13 Typical defects occurred in clad-tubing.

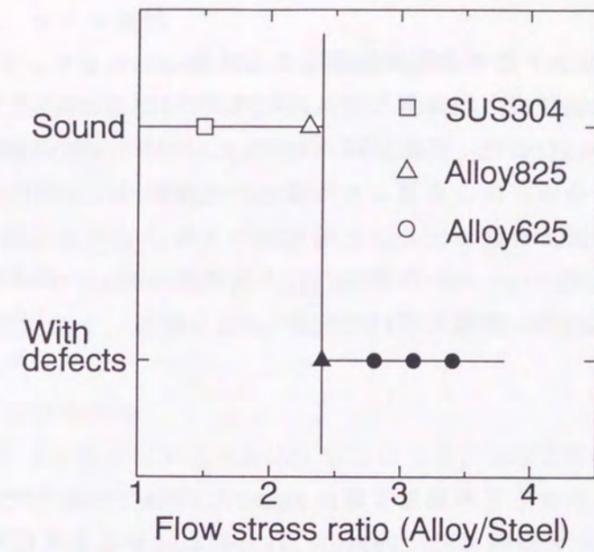


Fig.5-15 The occurrence of defects vs flow stress ratio for bimetallic material in coextrusion.

さてビレットの加熱温度の誤差を考慮すれば 1200 °C では Alloy625 に液相発生の危険性があることから工業的には加熱温度の上限を越えている。そこで本例の粉末複合ビレットでは Fig.5-16 に示すように、外面の低合金鋼側が内面の Alloy625 層よりも 75 °C 低温になるような加熱操作を施すことによって低合金鋼の変形抵抗を相対的に大きくすることにより、高合金層の中心温度が 1150 °C においても変形抵抗比を等温の場合の約 2.8 から約 2.2 に低減して、押し出し比が 11 の場合についても高合金クラッド層に割れや肉厚変動の無い健全な複層管を得た。

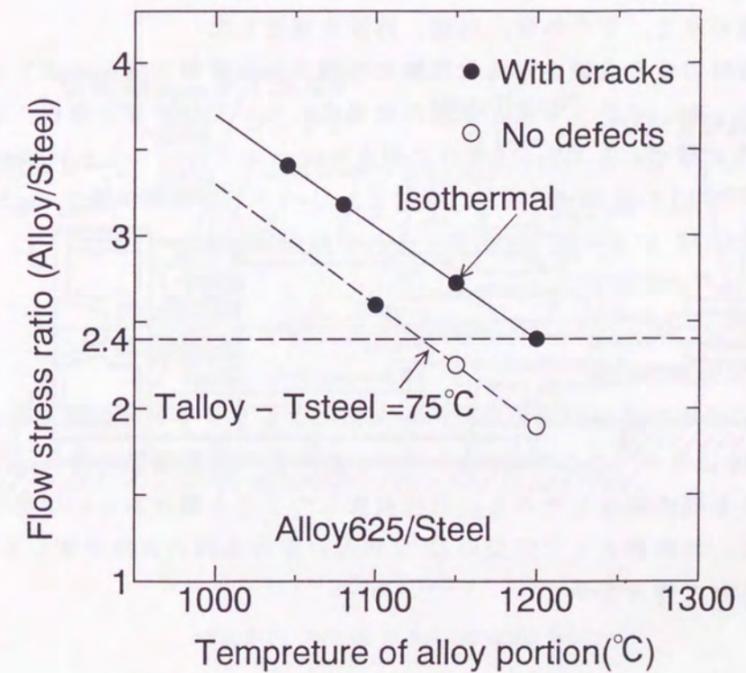


Fig.5-16 Reduction in flow stress ratio by decreasing the alloy temperature for bimetallic material.

5.5 高合金粉末/低合金鋼クラッド管の実製造装置による試作

前節に述べたとおり、高合金粉末/炭素鋼複層材料の熱間押し出しにおける接合界面の挙動として粉末が炭素鋼に食い込むこと、界面に滑りが無いことが明らかになるとともに、変形抵抗比を減少すべく低合金鋼が高合金層より低温となる加熱操作を施すことによりクラッド部に欠陥が無く同時押し出しが可能なことを明らかにした。

実管の作製については、粉末ピレットを作製してCIP処理を施し、気密検査したのち、ユージーン・セジュールネ式熱間押し出し設備を用いて実施した。

5.5.1 試作方法ならびに特性評価方法

実生産設備を用いた粉末クラッド管の製造工程は Fig.5-3 に示したとおりである。まず外径 208mm、内径 150mm の低合金鋼母材の内側にこれと同心となるように内径 85mm の軟鋼製の薄肉円筒を配し、底部を炭素鋼製円板で密閉して中空ピレット構造に組み立てた。他方の端部から低合金鋼母材とカプセルとの間の環状間隙に供試 Alloy625 粉末を充填したのち、底部と同様の円板を取り付けて気密構造に組み立てた。この複合ピレットに、CIP装置にて約 430MPa の等方静水圧を加えて粉末層を圧縮成形し、高密度化した。前記の円板の一部を開口して、粉末充填層を真空脱気したのち、再び封口して 1150℃ に加熱して、押し出し比 10.7 で熱間押し出しを施して外径 98mm、内径 81mm、クラッド厚さ 3.5mm のクラッド管を試作した。押し出し素管の内面に密着している軟鋼製のカプセルは酸洗によって除去した。これを低合金鋼の特性を発揮するよう 5.2.2 項 に述べた (B) の熱処理を施したのち、試験材を採取した。

押し出し管の寸法精度については定常部から試験材を切り出し、その横断面および縦断面についてクラッド層の厚さ、管の外径、内径、肉厚を測定した。

機械的特性は、母材の低合金鋼から弧状試験片の軸方向が管軸方向と一致するように採取して評価試験を行った。クラッド部と母材の密着性については、界面強度、偏平試験などを行った。クラッド層である Alloy625 部分の耐食性については、SSR試験を Fig.5-4(1) に示す試験片を用いて 5.2.2 項 に述べた (C) 条件で、Uベンドの浸漬試験を Fig.5-4(2) に示す試験片を用いて 5.2.2 項 に述べた (D) 条件でそれぞれ実施した。

5.5.2 試作管の特性評価

(1) 熱間押し出し後の試作管の外観

Fig.5-17 の概略図に示す実生産設備を用い、粉末法によるクラッド管の熱間押し出しを実施した状況を Fig.5-18 に示す。ここで (1) はクラッド部の健全な複層管が得られた場合を示しており、カプセルを酸洗除去したのち、目視観察したところ割れあるいは傷などの欠陥は認められなかった。比較例として同図の (2) に内層の高合金部の肉厚が著しく変動し一部破断した管が得られた場合を示す。

(2) 寸法、形状、マクロ組織

試作したクラッド管の Alloy625 層から試験片を採取し、水浸法で測定した密度は 8430 kg/m³ であり、前記の溶製材の値ならびにラボ押し出し材の値にほぼ等しい。さらに試作管の粉末成形高合金部をマイクロ組織観察した結果、空孔は認められなかったため粉末層は完全に緻密化されることが確認できた。

Fig.5-19 は試作管横断面のマクロ組織を、Fig.5-20 は縦断面に沿った界面のマイクロ組織を示す。試作管のクラッド部分は均一な肉厚でありかつ真円度もとくに問題は無い。また、界面はほぼ平坦であり、近傍にはとくに問題となる異常層は認められなかった。

(3) 界面および母材の特性

試作管のクラッド部すなわち Alloy625 部分ならびに母管部すなわち 2 1/4 Cr - 1 Mo 低合金鋼部分の化学分析結果を Table5-3 に示す。クラッド層は UNS N06625 の成分範囲にあり、母層は API6A の Low Alloy Steel の成分範囲にあり、ともに規格値を満足している。母管部の引張試験結果ならびに衝撃試験結果を Table5-4 に示す。強度、延性とも十分な特性値を示しており、API GradeX-75 の基準値を満足している。また衝撃特性値も良好である。

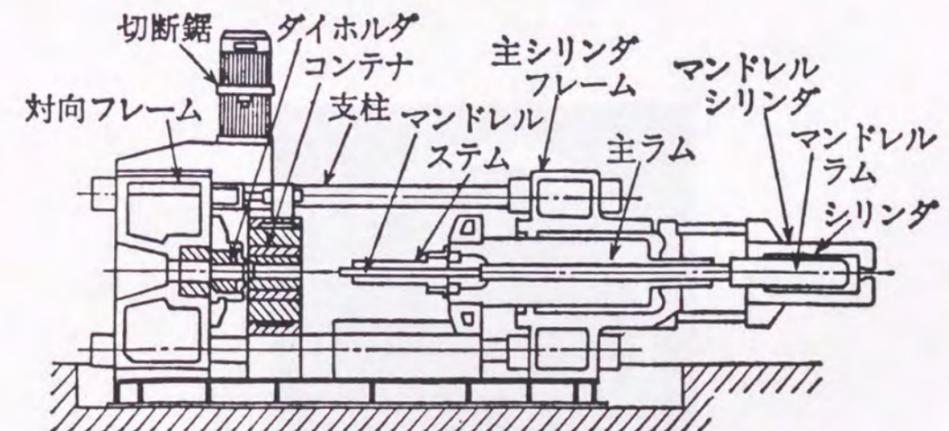


Fig.5-17 Outlook of hot extruding facility.



(a)no obvious defects (b)cracks in longitudinal direction

Fig.5-18 Outlook of hot extruded P/M clad pipe.



Fig.5-19 Macro structure of the trially produced P/M clad pipe.

Alloy625 → ← Low alloy steel



Fig.5-20 Interface microstructure of the trially produced P/M clad pipe.

Table 5-3 Chemical composition of the clad pipe. (mass%)

	C	Si	Mn	Ni	Cr	Mo	Nb	Fe	O	N
Liner A625	0.005	0.45	0.47	59.7	21.0	8.88	3.63	3.46	.01	.045
UNS N06625	<0.1	<0.5	<0.5	>58	20-23	8-10	3.15-4.15	<5		
Substrate 2 1/4Cr-1Mo	0.079	0.25	0.4	0.03	2.1	0.89		bal.		
UNS K21590	<0.15	<0.5	0.3-0.6		1.9-2.6	0.87-1.13		bal.		

Table 5-4 Results of the tensile tests and impact tests for the pipe.

	(1) Tensile test				
	0.2% Offset proof stress		Tensile strength		Elongation (%)
	(MPa)	(ksi)	(MPa)	(ksi)	
Grade X-75	624	90.7	719	104	23
		>75		>100	>17

Table 5-4 (continued) (2) Impact properties (5mm x 10mm x 2mmV)

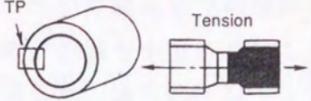
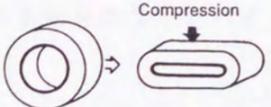
	0 °C	-30 °C
	114 J	105 J

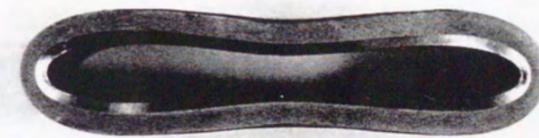
Quenching: 980 °C for 300 s followed by water quenching

Tempering: 700 °C for 1800 s followed by air cooling

つぎに、界面の特性を調査するため種々の特性評価を実施した結果を Table5-5 にまとめて示す。界面引張強度、界面せん断強度とも十分に高い値を示している。Fig.5-21 に示す偏平試験ならびに Fig.5-22 に示す側曲げ試験においても界面の剥離は全く認められなかった。

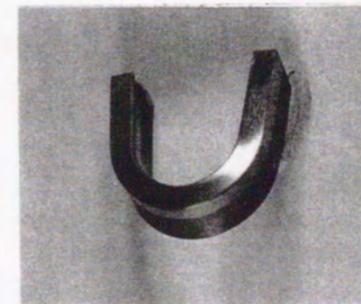
Table 5-5 Results of the interface bond evaluation.

Item	Test pieces	Results
Interfacial tensile test		Tensile strength 725 MPa
Shear test		Shear strength 425 MPa
Flattening test		No interface debond No cracks
Bending test		No interface debond No cracks



Liner : No crack
Substrate : No crack
Interface : No debond

Fig.5-21 Outlook of flattening test results.



Liner : No crack
Substrate : No crack
Interface : No debond

Fig.5-22 Outlook of bending test results.

(4) 高合金ライナー部 (Alloy625 クラッド部) の耐食性

Table5-6 は模擬サワーガス環境で、クラッド層部のSSR試験を実施した結果を示す。腐食環境中での破断に至る時間は不活性雰囲気中での破断時間とほぼ同一であり、応力腐食割れが認められないこと、かつ伸びの値も十分に高いことから、試作管の本腐食環境中での耐食性は十分に高いことが判明した。さらに、Uベンドの6ヶ月間の浸漬試験においても、Table5-7に示すように応力腐食割れならびに孔食とも発生していないことから、試作管はサワーガス環境で十分な耐食性を有することが確認できた。

以上の結果から粉末押出し製管法による Alloy625 を 2 1/4 Cr - 1 Mo 低合金鋼管の内側に複層化したクラッド管は低合金鋼本来の高強度と Alloy625 の高い耐食性を兼ね備えた新素材であり、過酷な腐食環境にある油井のラインパイプあるいは化学工業用配管等に適用できるものと期待される。

Table 5-6 SSR test results at 204 °C.

Inert		Hostile *)		Ratio (Hostile/Inert)	
TTF (h)**	RA (%)	TTF (h)	RA (%)	SCC	TTF (-) RA (-)
35.1	52.0	35.6	53.7	No	1.01 1.03

*) 204 °C 0.81MPa H₂S 25%NaCl+0.5%CH₃COOH e=4 x 10⁻⁶

**) TTF: Time to failure

Table 5-7 Result of single U-bend SCC test.

Temp (°C)	SCC
177	No
232	No

*) Atmosphere: 1.11MPa H₂S, 1.11MPa CO₂ 25%NaCl+0.5%CH₃COOH

**) Immersion time: 4320 (h)

5.6 結 言

本章では、粉末押出し材料の基本的な特性を把握するため、押出し比を種々変更して Alloy625 粉末の押出し棒材を作製し、その機械的特性および耐食性を調査するとともに粉末界面での固化成形挙動を検討した。また Alloy625 粉末と低合金鋼との接合界面の状態を検討し、高合金粉末と低合金鋼との界面密着性に優れたクラッド材料を熱間押出し法で製造する基本製造技術を検討した。得られた主な結果は次のとおりである。

1. CIP-押出し法によって粉末層は完全に緻密化し、成形材の密度は溶製材と同一であり、組織に空孔は認められなかった。
2. 粉末成形材の強度は押出し比によらずほぼ一定の値を示し、延性および衝撃吸収エネルギーは押出し比が約3より小さいと減少した。熱間押出しによる延性向上は、粉末表面を覆っている酸化物等が押出しの進行に従って分断されることにより PPB を越えて結晶粒の成長が促進されることが要因と考えられる。
3. 腐食減量は押出し比の増加に従って減少し、押出比が約8より大きい場合に一定値となった。また模擬サワーガス環境で TTF 比はほぼ 1.0 であり、応力腐食割れも認められず、伸びも十分に高い値を示した。
4. 高合金クラッド部と母材炭素鋼との接合について、高合金粉末が炭素鋼ピレット表面に食い込んで界面の接合性を向上させるとともに、炭素鋼表面の析出物を分断して界面の冶金的な結合を助けるため、良好な接合界面が得られることを明らかにした。
またエネルギー解析を用いて、内面に高合金材料を密着複層した管材について、界面せん断係数および変形抵抗比の値から、同時押出しが可能な最大押出し比を求めるチャートを作成した。
5. CIP-押出し法による高合金クラッド鋼管の製造方法を検討し、Alloy625 を内面に密着・複層化した 2 1/4Cr-1Mo 低合金鋼管を実生産設備を使って試作した。このとき内面に高合金層を有する複合ピレットでは、外面の低合金鋼が内面の Alloy625 層よりも低温になる加熱操作を施すことより変形抵抗比を低減する改善を加えた。
試作管の界面は冶金的に結合しており、十分な密着性を有していることを明らかにした。試作クラッド管は API GradeX75 に規定する強度を満足するとともに、高温の模擬サワーガス環境においても十分な耐食性を有することを明らかにした。

第6章 結 論

金属材料に要求される性能はますます高度になってきており、成分ならびに加工法の改良とともに、必要性能を満足する材料の複合化がさかんに行われている。そのなかで、優れた耐食性とともな十分な強度を有する管材料が高温で腐食性が高い環境の油井プラント用あるいは化学工業用の配管、またエネルギープラントの熱交管などの用途向けに求められている。このような素材の需要に対して、高強度低合金鋼に耐食性の優れた高合金を密着・複合化したクラッド材料が有望であるが、一般に高合金は難加工材料であり、変形能が劣るうえに変形抵抗が高いことから製造が困難であるうえに、その加工性が低合金鋼とは大きく隔たっていることから、高合金管・棒の製造に用いられる熱間押し法によるクラッド製品の製造は実質的に不可能であった。

そこでニアネットシェイブ成形と成分偏析抑制という粉末冶金法の利点に着目して、高合金粉末/低合金鋼の複層ピレットに熱間押しを施してクラッド管を製造することを試みた。ここで用いられる高合金粉末には、予熱工程で焼結が十分に進行するよう微粒であること、ならびに表面が清浄で内部にガスを含めないことが求められるとともに、成形加工法には、高合金粉末と低合金鋼で構成されるクラッド材料を押し出し成形できるとともに、粉末成形層が所定の特性を示すような加工条件を明らかにすることが求められる。

上述の要請に応えるため、粉末製造については微粉末を高効率で生成するのに適したアトマイズノズルの諸元ならびに運転条件を検討するとともに、粉末表面の汚染および内包されるガス成分を抑制できる粉末製造条件について検討を加えた。また複層ピレットの成形加工については、高合金/低合金鋼の密着二重管を同時押し出しできる成形加工方法ならびに粉末の固化成形層が所定の特性を発現する成形加工条件を検討した。

以下、得られた結論を示すと次のとおりである。

第1章は緒論であり、本研究の意義と目的および本研究に関連する既往の研究ならびに本研究の概要を述べている。

第2章はガスアトマイズ操作の噴霧安定性ならびにガスアトマイズノズルが生成するガス噴流に関する研究結果について述べている。すなわち、供試アトマイズノズルが生成するガス流れ場をシュリーレン法によって可視化するとともに、溶湯の噴霧状況の観察から、吹き上げ現象の検討に必要なガス流動特性を検討した。その検討結果を用いて、溶湯供給管の出口と下方域における圧力変化挙動あるいは溶湯供給管とガス噴射器との環状間隙部のガス流れ特性に与えるアトマイズノズル諸元の影響を検討し、吹き上げの要因を検討した。また、溶湯供給管の出口近傍に負圧域が生成する機構についても検討した。つぎに、幾何焦点周りのガス流速分布とアトマイズノズルの諸元ならびにガス噴射条件との関係を検討し、とくに吹き上げを発生しない安定した噴霧と高流速ガス流れを両立する条件を検討した。

はじめに、独立した円孔から噴射したガスジェットを逆円錐状に形成し溶湯供給管をガス流れに突き出した供試アトマイズノズルでは、噴射ガスジェットは幾何焦点近傍で合流して垂直下向きに流れ、一部は幾何焦点近傍から逆流したのちガスジェットに巻き込まれる渦流れを形成すること、この渦流れは溶湯供給管の突き出し長を減じると大きくなって、

逆流ガス流れが強くなり管端の圧力が高くなることを示した。

溶湯供給管から流出した溶湯は、溶湯供給管の下方に形成されたガス渦流れの影響を受けて、溶湯供給管の端面上を水平方向に移動するとともに逆円錐状領域に広がったのち、幾何焦点近傍で粉化されること、このとき溶湯供給管の突き出し長が少なく逆流ガス流れが強いと溶湯流から分裂した溶滴が溶湯供給管の外周部に付着して成長しノズル閉塞を発生させることを明らかにした。また、噴射角度が 50° より大きい場合、溶湯供給管の出口近傍に負圧域が生成されるとともに、溶湯供給管の外周を吹き上がるガス流れも発生し、噴射ガスの一部はアトマイズに有効に使われない傾向があることを示した。

いっぽう溶湯供給管出口での負圧生成は溶湯供給管を回避するガス流れの加速で説明され、ガス噴射条件ならびにガス噴射孔と溶湯供給管の位置関係等で決定される溶湯供給管の端部近傍の局所的なガス流れの状態規定され、溶湯供給管の径あるいはアトマイズノズル上部の流通状態には影響されないことを見いだした。

また供試アトマイズノズルでは、噴射ガスジェットは幾何焦点近傍で合流して垂直下向きに流れ、幾何焦点から下方約50mm以上の区間で著しい流速減衰は認められないこと、噴射角度 α が 50° より小さいアトマイズノズルでは溶湯供給管の突き出し長を増しても、幾何焦点周りの噴射ガス流速の減少は大きくないが、 α が 65° より大きい場合は溶湯供給管の突き出し長を増すと幾何焦点周りの噴射ガス流速は著しく減少し、溶湯供給管出口に適正な負圧を生成し、かつ吹き上げを発生しない突き出し長においては低流速となることが分かった。

さらに、噴射ガス流量が同一の場合、噴射ガス圧力を高くしても幾何焦点周りの流速は増加しないこと、アトマイズノズルの噴射孔を溶湯供給管に近づけることにより幾何焦点周りのガス流速は大きく増加するが、溶湯供給管の突き出し長に対する溶湯供給管出口圧力の変化が大きくなるため、適切な負圧を生成する溶湯供給管位置の許容範囲は限定されること、アトマイズノズルの噴射孔をテーパ形状にすることにより、幾何焦点周りの流速はやや双峰状となって辺縁部で多少増加するが、ガス流れは溶湯供給管の影響を受けやすく、流速分布の偏りと流速低下が生じることを示した。

第3章においてはガスアトマイズにより生成する金属粉末の粒度特性に関する研究結果について述べている。すなわち、ガスの運動エネルギーが粉末表面エネルギーに部分的に変換されるとして導いたモデル式から、アトマイズ粉末の平均径に対して噴射ガスの平均流速、溶湯/ガス流量比、ウェーバー数が影響を与えると分析し、実験によってそれらの影響を検討した。また、高角度でガス噴射した場合に得られる凹形ガス流速分布の場合を例としてガス流速分布が粒度分布に与える影響を検討した。

はじめに、噴射ガス流量ないしは溶湯流量の一方をほぼ同じ値のまま他方を変化させて生成したアトマイズ粉末のメジアン径は、溶湯とガスの質量流量比 Ml/Mg に対して同一の直線で相関できることを示した。

つぎに、ガス噴射孔と溶湯供給管との距離が異なるアトマイズノズル、噴射角度が高いアトマイズノズル、噴射孔がテーパ形状のアトマイズノズルを用いて生成したアトマイズ粉末のメジアン径は、各アトマイズノズルの幾何焦点における平均ガス流速に反比例して減少すること、噴射孔径を調整して異なる噴射圧力でも流量が同じとなるようにガス噴射

した場合には、ほぼ同じ平均粒度の粉末が生成されることを示した。

また、アトマイズノズルにより生じるガス流れの流速分布が凹形の場合は、通例の凸形流速分布の場合に比べて生成する粉末の粗粒分率が高いこと、アトマイズ操作によって生成した粉末全体の粒度分布が、アトマイズが行われる各部分についても適用できると仮定すればガス流速分布から計算した粒度分布は実験結果と定性的に一致し、粒度分布はガス流速分布と強く関連することを示した。

第4章においては粉末表面の性状および粉末に含有される噴霧媒体ガスに及ぼすアトマイズ粉末の生成条件の影響ならびに両者の成形材特性への影響に関する研究結果について述べている。すなわち、Arガスアトマイズ粉末のAr量と粒内ポロシティーとの関係ならびにAr量とアトマイズ条件との関係を検討するとともに、噴霧媒体ガスが粉末成形材のマイクロ組織に与える影響を検討した。また、粉末冷却速度を変化させてN₂アトマイズ法にて高Ni合金粉末を生成し、粉末表面の酸化物・水酸化物ならびに水分との関連を検討した。またアトマイズ粉末表面の酸化物・水酸化物が成形材の特性に及ぼす影響ならびにTIG試験を用いた定量的評価方法を検討した。

はじめに、Arガスアトマイズ法で生成した粉末に含まれるAr量は微粒子の場合ほど減少するが、22 μm以下の微粉末の場合も約0.5mass-ppm (0.0005mass%)のArを含有すること、粉末断面のポロシティーと粉末Ar量には明確な相関が認められること、溶湯とガスの質量流量比M_i/M_gが大きいほど粉末Ar量は減少するが、M_i/M_g>0.8ではAr量低減が飽和することを見いだした。

また、Arアトマイズ粉末の熱間押しによる成形材には気孔欠陥が認められたが、引張特性は溶製材とほぼ同等であることを示した。

つぎに、粉末水分は加熱温度が約500℃まで脱離が認められ、急冷粉末と徐冷粉末とで差異は認められないこと、水分分析値は粒度に反比例するため、水分は表面吸着していると見なせることを示した。

徐冷Alloy625粉末の表面には急冷粉末に比較して多量のNi(OH)₂、Cr₂O₃、Nb₂O₅が認められ、アトマイズ粉末温度が400℃より高いとTIG試験において溶接金属中に多量のブローホールが発生すること、急冷粉末については、これらの水酸化物、酸化物と各金属元素の比率に粒度による差異は認められないことを示した。また、溶製法で作製したAlloy625中のCr₂O₃、Nb₂O₅溶射層からはビードオン溶接によってブローホールが発生し、Alloy625粉末の表面に存在するこれらの酸化物がブローホールの原因であることを確かめた。

さらに、N₂アトマイズ法で生成した急冷粉末をカプセル充填・温間脱気したHIP成形材には溶接金属中にブローホールは認められなかったが、常温脱気を施した急冷粉末あるいは温間脱気を施しても徐冷粉末の成形材ではブローホールが発生すること、また成形材に気孔欠陥は認められず、窒化物の析出によって多少の延性低減・硬質化が起こることを示した。

第5章においては粉末成形材の組織と粉末性状、成形条件との関係ならびに粉末押し法による高合金クラッド材料の加工に関する研究結果について述べている。すなわち、粉

末成形材のマクロ組織、ミクロ組織に及ぼす成形条件ならびに粉末性状の影響を検討するとともに、機械的特性・耐食性・熱間加工性など粉末成形材の特性評価結果を述べた。

はじめに、CIP-押し法によって粉末層は完全に緻密化し、成形材の密度は溶製材と同一であり、組織に空孔は認められないこと、粉末成形材の強度は押し比によらずほぼ一定の値を示し、延性および衝撃吸収エネルギーは押し比の低減に伴ってわずかに減少することを示し、熱間押しによる延性向上は、粉末表面を覆っている酸化物等が押し比の進行に従って分断されることによりPPBを越えて結晶粒の成長が促進されることが要因であると考察した。

また、腐食減量は押し比の増加に従って減少し、押し比が約8より大きい場合に一定値となること、模擬サワーガス環境でTTF比はほぼ1.0であり、応力腐食割れも認められず、伸びも十分に高い値を示すことを明らかにした。

つぎに、高合金クラッド部と母材低合金鋼との接合については、高合金粉末が低合金鋼ピレット表面に食い込んで界面の接合性を向上させるとともに、低合金鋼表面の析出物を分断して界面の冶金的な結合を助け、良好な界面接合が得られることを明らかにした。またエネルギー解析を用いて、内面に高合金材料を密着複層した管材につき、界面せん断係数および変形抵抗比の値を与えて、同時押しが可能な最大押し比を求めるチャートを作成した。

これらの結果を使って、CIP-押し法により、Alloy625を内面に密着・複層化した2 1/4Cr-1Mo低合金鋼管を実生産設備を使って試作した。このとき内面に高合金層を有する複合ピレットでは、外面の低合金鋼側が内面のAlloy625層よりも低温になる加熱を行うことにより変形抵抗比を低減するための改善を加えた。試作クラッド管の界面は冶金的に接合しており、十分な強度と密着性を有していること、また試作管はAPI Grade-X75に規定されている強度を満足するとともに、高温の模擬サワーガス環境においても十分な耐食性を有することを確認した。

以上のように、本研究はガスアトマイズ法による粉末製造において発生する溶湯吹き上げ現象を解明して安定噴霧条件を求め、アトマイズノズルの諸元およびガス噴射条件と生成粉末粒度との関係を求めるとともに、高Ni合金粉末の表面および内部のコンタミネーションと粉末製造条件との関係ならびに高合金粉末および低合金鋼との界面における成形現象を解析して粉末/溶製材クラッド材料を作製する適正条件を求めることにより、高合金クラッド鋼管の製造に大きく貢献する知見を得ることができた。

すなわち、著者の研究成果を用いたCIP-押し法により、高Ni合金粉末を低合金鋼管にクラッドした複層鋼管が熱間押しの実製造設備を用いて作製され、十分な強度・耐食性を示すことが確認されたことから、高合金クラッド鋼管の製造にCIP-押し法が有用であることが実証されるとともに、ガスアトマイズ法の噴霧安定性ならびに微粉末の収率向上も達成された。これらの点において、著者の研究は工業上の寄与を十分に果たすものと考えられる。

参 照 文 献

- 1) 日本粉末冶金工業会年報 (H7年度)
- 2) J. M. Capus: Metal Powders~A global survey of production, application and markets(1993), p. 113 [Elsevier Advanced Technology].
- 3) C. Turnberg: TUBE INTERNATIONAL (March-1987), pp. 41-43. および A. Muggeo, G. Pitois and D. Vuillaume: Proc. 1986 International Powder Metallurgy Conference and Exhibition, pp. 339-342.
- 4) 生井武文, 松尾一泰: 圧縮性流体の力学(1977), pp. 41-98 [理工学社].
- 5) 児島忠倫, 松岡祥浩: 日本機械学会論文集(B編) Vol. 52, No. 477(1986), pp. 2021-2027.
- 6) 児島忠倫, 松岡祥浩: 日本機械学会論文集(B編) Vol. 53, No. 495(1987), pp. 3146-3151.
- 7) 児島忠倫, 松岡祥浩: 日本機械学会論文集(B編) Vol. 54, No. 502(1988), pp. 1286-1291.
- 8) 永井實: 日本機械学会論文集(B編) Vol. 48, No. 430(1982), pp. 998-1007.
- 9) 望月博昭, 宮里義昭, 佐藤義智, 山口裕史, 松尾一泰: 可視化情報, Vol. 11, No. 2 (1991), pp. 35-38.
- 10) A. Unal: Physical Chemistry of Powder Metals Production and Processing ed. by W. M. Small (1989), pp. 201-228 [TMS].
- 11) 児島忠倫, 松岡祥浩: 日本機械学会論文集(B編) Vol. 54, No. 503(1988), pp. 1560-1566.
- 12) 児島忠倫, 松岡祥浩: 日本機械学会論文集(B編) Vol. 54, No. 506(1988), pp. 2738-2743.
- 13) 児島忠倫, 松岡祥浩: 日本機械学会論文集(B編) Vol. 55, No. 509(1989), pp. 188-193.
- 14) 望月博昭ほか: 九州大学大学院総合理工学研究科報告, Vol. 14, No. 1(1992), pp. 41-47.
- 15) R. S. Figliola, I. E. Anderson, D. Molnar and H. Morton: American Society of Mechanical Engineering Heat Transfer Division, Vol. 116(1989), pp. 7-11.
- 16) M. K. Veistinen, E. J. Lavernia, M. Abinante and N. J. Grant: Materials Letters, Vol. 5, No. 10(1987), pp. 373-379.
- 17) J. C. Baram, M. K. Veistinen, E. J. Lavernia, M. Abinante and N. J. Grant: J. of Materials Science, Vol. 23(1988), pp. 2457-2463.
- 18) 関野昌蔵, 山宮昌夫, 西田卓彦: 鉄と鋼, Vol. 67, No. 3(1981), pp. 541-546.
- 19) S. D. Ridder, P. I. Espina and F. S. Biancaniello: Physical Chemistry of Powder Metals Production and Processing ed. by W. M. Small TMS (1989), pp. 163-173 [TMS].
- 20) I. E. Anderson, H. Morton and R. S. Figliola: Physical Chemistry of Powder Metals Production and Processing ed. by W. M. Small (1989), pp. 229-249 [TMS].
- 21) 皆川和己, 千葉健一, 原田幸明: 粉体および粉末冶金, Vol. 40, No. 12(1993), pp. 1166-1169.
- 22) 武田徹, 皆川和己: 粉体および粉末冶金, Vol. 38(1991), pp. 796-799.
- 23) 皆川和己, 千葉健一, 原田幸明: 粉体および粉末冶金, Vol. 40, No. 12(1993), pp. 1231-1237.
- 24) Y. Seki, S. Okamoto, H. Takigawa and N. Kawai: Physical Chemistry of Powder Metals Production and Processing ed. by W. M. Small (1989), pp. 251-258 [TMS].
- 25) 新田稔, 小倉邦明, 斉藤滋之, 杉原裕: 川崎製鉄技報, Vol. 24, No. 4(1992), pp. 290-295.
- 26) 永井伸樹: 燃料協会誌, Vol. 70, No. 4(1991), pp. 288-292.
- 27) 永井伸樹: 第20回液体の微粒化に関する講演会講演論文集(1993), pp. 19-28.
- 28) 倉林俊雄: 機械学会誌, Vol. 89, No. 811(1986), pp. 603-609.
- 29) 抜山四郎, 棚澤泰: 日本機械学会論文集, Vol. 5, No. 18(1939), pp. 136-143.
- 30) 稲村隆夫, 永井伸樹, 平井哲郎: 日本機械学会論文集(B編), Vol. 57, No. 541(1991), pp. 3248-3254.
- 31) 稲村隆夫, 永井伸樹, 金永洙, 奥山将: 日本機械学会論文集(B編), Vol. 57, No. 544(1991), pp. 4319-4325.
- 32) K. D. Kihm and N. Chigier: Atomization and Sprays, Vol. 1(1991), pp. 113-136.
- 33) 岸高寿: 焼結金属に関する学術講演会概要集(粉体粉末冶金協会1982. 2. 23-24), アトマイズ鉄粉の製造とその理論, (1972), pp. 19-24.
- 34) S. Small and T. J. Bruce, Int. J. Powder Metallurgy, Vol. 4, (1968), p. 7.
- 35) R. J. Grandzol and J. A. Tallmadge: Int. J. Powder Metallurgy and Powder Technology, Vol. 11 (1975), p. 103.
- 36) H. Lubanska: Journal of Metals, February, 1970, pp. 45-49.
- 37) 中村泰, 西田卓彦, 溝口庄三, 山宮昌夫: 粉体粉末冶金協会講演概要集(1974-春季), pp. 10-11.
- 38) 福田匡, 池田浩之: CAMP-ISIJ, Vol. 3, (1990), S294.
- 39) E. Klar and J. W. Fesko: Metals Handbook 9th ed., Vol. 7, ed. by E. Klar et al. (1984), p. 32. [ASM, Ohio]
- 40) 奥野攻: 医用器材研究所報告, No. 14(1980), pp. 1-10.
- 41) I. Olefjord and L. Nyborg: Modern Development in Powder Metallurgy, Vols. 18-21 (1989), pp. 93-107.
- 42) I. Olefjord and L. Nyborg: Powder Metallurgy, Vol. 28(1985), pp. 237-243.
- 43) L. Nyborg and I. Olefjord: Key Engineering Materials, Vol. 29-31(1989), pp. 9-19.
- 44) L. Nyborg: Metal Powder Report, January(1989), pp. 32-34.
- 45) L. Nyborg, T. Tunberg, P. X. Wang and I. Olefjord: Proc. International Conference on Powder Metallurgy, Vol. 3(1990), pp. 199-203.
- 46) J. E. Flinn, G. E. Korth and R. N. Wright: Proc. of the 2nd International Conference on Rapidly Solidified Materials(1988), pp. 153-162 [ASM].
- 47) J. E. Flinn, T. F. Kelly and W. G. Wolfer: Advances in Powder Metallurgy, Vol. 1(1990), pp. 65-79.
- 48) J. E. Flinn and G. R. Smolik: Materials Science and Engineering, A124(1990), pp. 39-48.
- 49) B. H. Rabin, G. R. Smolik and G. E. Korth: Materials Science and Engineering, A124 (1990), pp. 1-7.
- 50) 滝川博, 古田誠矢, 大江清美, 河合伸泰, 緒方和郎: 粉体および粉末冶金, Vol. 33, No. 5(1986), pp. 246-250.
- 51) P. S. Gilman: Modern Development Powder Metallurgy, Vol. 16(Proc. 7th International Powder Metallurgy Conference in Toronto), (1985), pp. 615-634.

- 52) F. J. Rizzo and J. Radavich: Super alloys 718, 625 and Various Derivatives ed. by E. A. Loria (1991), pp. 297-308 [TMS].
- 53) J. E. Flinn, K. Shin and T. F. Kelly: Super alloys 718, 625 and Various Derivatives ed. by E. A. Loria (1991), pp. 251-260 [TMS].
- 54) E. A. Loria: Super alloys 718, 625 and Various Derivatives ed. by E. A. Loria (1991), pp. 837-842 [TMS].
- 55) E. A. Loria: Super alloys 718, 625 and Various Derivatives ed. by E. A. Loria (1991), pp. 905-912 [TMS].
- 56) 宮坂明博, 北口三郎, 荒木敏, 野口岳雄: 製鉄研究, No. 339 (1991), pp. 35-41.
- 57) F. J. Rizzo: Offshore Technology Conference (May-1989), pp. 281-287.
- 58) J. Liu, L. Arnberg, N. Backstrom, H. Klang and S. Savage: Materials Science and Engineering, Vol. 98 (1988), pp. 43-46.
- 59) K. Y. Kim and W. R. Marshall, Jr.: AIChE Journal, Vol. 17, No. 3 (1971), pp. 575-584.
- 60) 金永洙, 稲村隆夫, 永井伸樹: 第20回液体の微粒化に関する講演会講演論文集 (1993), 日本エネルギー学会 (東京), pp. 7-12.
- 61) 金永洙, 稲村隆夫, 永井伸樹: 第2回微粒化シンポジウム講演論文集 (1993), 日本液体微粒化学会 (東京), pp. 9-14.
- 62) 福田匡, 中西睦夫, 池田浩之: 材料とプロセス, Vol. 2 (1989) p. 378.
- 63) 大中逸雄編: 伝熱・凝固解析入門 (1985), p. 326 [丸善].
- 64) L. J. Barnard: Metals Handbook 9th ed., Vol. 7, ed. by E. Klar et al. (1984), p. 181 [ASM, Ohio].
- 65) 太田省三郎, 妹島五彦: 現代溶接技術大系 (第4巻), (1980) p. 140 [産報出版, 東京].
- 66) 大橋善久, 中西睦夫: 住友金属, Vol. 41, No. 4 (1989), pp. 503-510.
- 67) P. Flecher and R. Ruthhardt: Int. J. Powder Metallurgy and Powder Technology, Vol. 19, No. 4 (1983), pp. 259-267.
- 68) S. Jonsson: Powder Metallurgy International, Vol. 18, No. 3 (1986), p. 190.
- 69) Y. Ohashi et al.: Advanced Technology of Plasticity 1990, Vol. 2, pp. 951-956.
- 70) 山口喜弘, 野口昌孝, 松下富春, 西原正夫: 塑性と加工, Vol. 15, No. 164 (1974), pp. 723-729.
- 71) 西口勝, 平石信茂: 塑性加工学会 圧延理論部会資料 86 圧理-16.
- 72) E. Klar and J. W. Fesko: Metals Handbook 9th ed., Vol. 7, ed. by E. Klar et al. (1984), p. 28 [ASM, Ohio].
- 73) 生井武文, 松尾一泰: 圧縮性流体の力学 (1977), p. 43 [理工学社].
- 74) 生井武文, 松尾一泰: 圧縮性流体の力学 (1977), pp. 165-167 [理工学社].

引用論文リスト

No	書誌事項	関連
1	福田匡, 中西睦夫, 久保敏彦: "コンファインド型ガスアトマイズノズルにおける溶湯管周辺の圧力分布", 鉄と鋼, Vol. 82 (1996), No. 8, pp. 665-670.	第2章
2	福田匡: "コンファインド型ガスアトマイズノズルにおけるガス流速分布の特性", 鉄と鋼, Vol. 82 (1996), No. 8, pp. 635-640.	第2章
3	福田匡, 阿佐部和孝: "コンファインド型アトマイズノズルを用いて生成した合金粉末の粒度", 鉄と鋼, Vol. 85 (1999), No. 9, pp. 703-709.	第3章
4	福田匡, 大橋善久, 神代光一: "高Ni合金粉末・粉末成形体における不活性ガス成分の挙動", 鉄と鋼, Vol. 82 (1996), No. 7, pp. 623-627.	第4章
5	福田匡, 大橋善久, 薄木智亮, 小川和博, 神代光一: "高Ni合金アトマイズ粉末の表面性状と成形体の特性", 鉄と鋼, Vol. 82 (1996), No. 7, pp. 605-610.	第4章
6	平石信茂, 福田匡, 大橋善久, 菊地諄一: "Alloy 625 粉末クラッド鋼管の特性評価", 粉体および粉末冶金, Vol. 39 (1992), No. 8, pp. 701-704.	第5章
7	T. Fukuda, Y. Ohashi, M. Nakanishi, M. Nishiguchi, M. Ueda, S. Azuma and J. Kikuchi: "Development of a production technique for P/M Alloy 625 clad low alloy steel pipes", Super alloys 718, 625 and Various Derivatives ed. by E. A. Loria (1991), pp. 793-802 [The Minerals, Metals and Materials Society].	第5章
8	Y. Ohashi, T. Fukuda and M. Nakanishi: "Powder Deformation Analysis during P/M Clad Pipe Manufacturing Process", Advanced Technology of Plasticity (1990), Vol. 2, pp. 951-956 [The Japan society for Technology of Plasticity].	第5章

謝 辞

本研究を遂行するにあたり、終始懇切なご指導とご鞭撻を賜った大阪大学大学院工学研究科大中逸雄教授に深甚な謝意を表します。

さらに、本論文を作成するにあたり、数々の有益なご教示を賜った大阪大学大学院工学研究科齋藤好弘教授ならびに永井宏教授に深く感謝いたします。

また、本研究を進めるにあたって、種々のご指導をいただいた住友金属工業株式会社 廣島龍夫氏、中西睦夫氏、西口勝氏、志田善明氏、久保敏彦氏、高井重治氏に厚くお礼申し上げます。

さらに、本研究に関する実験に際し、ご協力と有益な議論を下された大橋善久氏、平石信茂氏、阿佐部和孝氏、神代光一氏、植田昌克氏、東茂樹氏、薄木智亮氏、小川和博氏、菊池諄一氏、松田信幸氏、松本一夫氏、森本福男氏、林昭一氏に心から感謝致します。

平成12年1月18日

