粉体におよぼす爆轟衝撃波の効果

鈴木弘茂*・吉田 浩*・木村康之**

(* 東京工業大学原子炉工学研究所・** 防衛大学校機械工学教室)

Effects of Detonation Shock Wave on Powder Materials

By

Hiroshige SUZUKI*, Hiroshi YOSHIDA* and Yasuyuki KIMURA**

(* Research Laboratory of Nuclear Reactor Tokyo Institute of Technology, Tokyo)
(** The Defence Academy : Yokosuka-shi, Japan)

Preliminary studies were made on the effects of high explosive (tetryl) detonation shock wave on powder materials. By the explosive compaction of mixed powder of metals (Ti, Zr, and Si powders) and colloidal graphite, metal carbides were produced. But under the same condition ZrO_2 powder did not react with the colloidal graphite.

Strong sintered body (>90% T.D.) was produced from each powder by the treatment. In case of ZrO_2 powder compaction, crushing of grains were observed, and the grain crystals were colored according to the magnitude of the detonation energy.

Measurements of the variation of micro Vickers hardness proved to be just like the case of work hardening.

In such a study, the most important technical problem is how to converge the shock wave most effectively on the specimen, so we tried to estimate the distribution of pressure and temperature in the sample holder, as accurate as possible. [Received Feb. 12, 1969]

1. 緒 言

金属加工法として放電加工，電磁加工，爆発加工，超音波加工など各種の高エネルギー速度加工法の研究開発が進められておりいろいろな目的に応用されつつある。

従来爆発加工法は金属の絞り加工，圧着，切断，穿孔などに用いられていたが，最近では耐熱材料や超硬材料の新しい合成あるいは製造方法としても非常に注目されるに至っている。すなわち従来の方法では非常に高温焼成を必要とする BeO ， MgO ， Al_2O_3 ， UO_2 などの高融点酸化物粉末やタングステン，タンタル，モリブデンなどの耐熱金属あるいはステンレス鋼，ジルカロイなどの合金粉末，さらには，サーメットなどの焼結をこの方法で，特別な加熱操作なしにしかも瞬間的にほとんど理論密度近くまで進行させることができると報告され，工業的にも有望視されている^{1)~5)}。また，同様な方法による金属炭化物の合成も報じられている⁶⁾。しかし瞬間的な高圧下におけるこのような過程の機構はまだ十分な説明が成されておらず，実験の難しさとともに多くの問題を残している。

著者らは，まず高エネルギーの衝撃波がこうした粉末の高密度化や化学反応に大きな効果をもたらすことを確かめながら，各種の要因の相互関係を明らかにするために，予備的に高爆薬の爆発による粉体の圧搾緻密化と炭化反応とを研究した。爆薬の爆発の際に生ずる衝撃波の

作用機構について二，三の知見を得るとともに，従来必ずしもよくわかっていなかった爆轟装置内の圧力や温度の分布を観察し，この種の方法による高融点物質粉末の緻密化に対するそれらの影響を論じた。

2. 実 験

2.1 実験装置と粉末原料

著者らの用いた装置は，図-1 に示すように軟鋼製試料円筒と爆薬を支持する塩化ビニル管，木製のキャップおよび栓，六号電気雷管などから構成されており，上端から下方へ爆轟波が伝播する。

この装置は著者の一人，木村が作製したものの一つで

Fig. 1. Assembly with explosive charge and cap in place.

あり、実験目的に応じていろいろな改良も行なっている。

試料粉末は図のように円筒内に詰められるが、その際、試料の上下部に脱脂綿を詰めて圧搾時に系内のガスを試料外に逃がすようにしておく。爆轟の際に試料円筒の破壊を避けるために円筒の周囲に充填する爆薬は、円筒の強度に対する適当な量を選ぶとともに十分に均一にする必要がある。

装置の構造上、下端部分は反射衝撃波などの作用により破壊され易いが、それだけ他の部分より高い圧力を受けると考えられる。使用した爆薬は、純粋な微粉状テトリルで、爆轟圧力の調節はテトリルの充填量すなわち充填密度を変えることで可能である⁷⁾。しかし著者らの用いた装置では、爆轟波の圧力と試料中に生ずる実際の圧力を知ることは容易でない。今回の実験ではテトリルの充填密度は $0.71 \sim 1.10 \text{ g/cm}^3$ 、計算される爆轟波圧力は大体 $20 \sim 120 \text{ kb}$ である^{8),9)}。

爆薬の有する全エネルギーは極めて大きく普通の化学反応熱の数倍以上に達するものもあり、テトリルもこのような類に属する高爆薬である。しかし本実験装置の場合は、爆薬の燃焼熱による効果はそれほど期待できず、極めて短時間に発生する強大な圧力に特徴づけられるようである。圧力は爆轟衝撃波によるものと燃焼ガスの急激な膨脹によるものとが考えられるが、今回の実験のように空气中でほとんど解放状態で爆轟させる場合には、前者による作用の方が大きいものと考えられる^{10)~16)}。本実験の題目もこのような観点に立って用いたものである。しかし装置の幾何学的形状と爆轟波の進行方向とを考えると、本実験では、爆轟波の圧力を十分に利用するに至っていないと考えられる。

一方、実験に供する原料粉末としてチタン、シリコン、ジルコニウムの金属粉末と、2種の純度のジルコニア粉末（それぞれ通常量のハフニアを含んで、99.5, 99.9%）と粒状の電融安定化ジルコニアおよびコロイド状黒鉛を使用した。ただし、チタン粉末は、粒子の表面が大気中で酸化されて活性を減じることができるだけ避けるために、実験の都度、スポンジ・チタンを水素化し微粉碎後、これを約 600°C で熱分解して調製したものである。

チタンと化学的性質の類似するジルコニウムの粉末は比較のため、上述のような意味での活性なものでなく、比較的古い、従って、粒子表面が酸化されているとみられるものを使用した。

各粉末の粒度を以下に示す。

チ タ ン： $< 10 \mu$

ジルコニア(99.5%)： $< \text{数百 } \mu$

シ リ コ ン： 400μ

ジルコニア(99.9%)： $< 10 \mu$

Table 1. Experimental condition, packing type and weight of Tetryl.

No.	Material	Mole ratio	Packing	Tetryl	
				weight (g)	density (g/cm ³)
1	Ti+C	1:1	Pellet	80(70)	0.86
2	Si+C	1:1	Powder	68(58)	0.77
3	Zr+C	1:1	Pellet	66(58)	0.71
4	Zr+C	1:1	Powder	69(63)	0.77
5	Zr+C	1:1	Powder	81(65)	0.80
6	ZrO ₂ +C	1:3	Powder	75(65)	0.80

Parentheses indicate Tetryl weights just around steel tubes

ジルコニウム： $< 10 \mu$

電融安定化ジルコニア：26#~60#

コロイド状黒鉛： $\sim 40 \text{ mm}\mu$

2.2 各種金属炭化物の合成実験

表-1に示すように、コロイド状黒鉛と各種金属粉末をそれぞれ配合し、瑪瑙乳鉢で十分に混合後、これを粉末のまま、あるいはペレット状にして試料円筒内に充填した。ペレットは、圧力 100 kg/cm^2 で予備成形後、ラバー・プレスで 3 t/cm^2 の圧力をかけて本成形したものである。次いで、この円筒と塩化ビニル管との間にテトリルをできるだけ均一に充填した。

2.3 各種金属およびジルコニア粉末の圧搾焼結実験

表-2に示すように、それぞれの粉末を円筒にタップ充填後、いろいろな爆薬量で爆轟圧搾（以後圧搾と略記する）した。

Table 2. Experimental condition, packing type and weight of Tetryl.

No.	Material	Packing	Tetryl	
			weight (g)	density (g/cm ³)
1	Zr	Powder	80(75)	0.92
2	Si	Powder	83(75)	5.92
3	Si	Powder	105(90)	1.10
4	ZrO ₂ *	Powder	72(60)	0.74
5	ZrO ₂ *	Powder	105(90)	1.10
6	ZrO ₂ *	Powder	83(69)	0.85
7	ZrO ₂ *	Powder	97(84)	1.05
8	ZrO ₂ **	Powder	99(80)	1.00
9	ZrO ₂ ***	Powder	97(80)	1.00

Parentheses indicate Tetryl weights just around steel tubes

* powder of Zirconia, purity : 99.9% (including HfO₂)

** fine powder of Zirconia, purity : 99.5% (including HfO₂)

*** (26#~60#) grains of fused and stabilized Zirconia

金属粉末は炭化物合成実験に供したものと同一原料である。ジルコニア粉末は前述の非安定化ジルコニアと電融安定化ジルコニアを用いた。

3. 実験結果と考察

3.1 炭化物の合成

圧搾後、試料を図-2のように(I)~(IV)に分けて取り出し、それぞれの中心部分の塊状になったものを粉末X線分析した。表-3にその結果を示すが、表中の空白部分は圧搾の際試料が飛散したためである。装置の下

Fig. 2. Sample holder of steel tube.

Table 3. The results of X-ray diffraction analyses of products shown in Table 1.

No.	Product	Position of sampling in steel tube (Fig. 3)			
		I	II	III	IV
1	TiC	+++++	+++++		
2	SiC	+++	—	—	+
3	ZrC	+	—		
4	ZrC	++	+	+	+
5	ZrC	+++	—	—	—
6	ZrC	—	—	—	—

++++: a lot of +++: medium ++: a little
 +: little —: not detected
 blank: lack of sample

端部 (I) における各種炭化物生成の例を 図-3 に示す。

No. 1 では (a) のように 未反応チタンが検出されないから、この部分では原料チタンはほとんどグラファイトと反応したことがわかる。

No. 2 では (I) と (IV) で β -SiC が生成しているが、(b) に示すように未反応シリコンも残存している。

No. 3, 4, 5 はそれぞれ、テトリル使用量が 66, 69, 81 g の場合であり、(I) の部分に限るならば爆薬量の多いほど、すなわち衝撃波圧力の高いほど炭化反応が起こり易いと言える。しかしながら最もテトリル量の多い No. 5 でも未反応ジルコニウム金属がかなり残っていることが (c) から認められる。

No. 6 では炭化物が全く認められないので、こ

の混合粉末では反応は起こり難いと言える。この例については、さらに後述する。

以上の結果から、混合試料は爆轟による衝撃波のため何らかの影響を受けて短時間に固相反応を起こすに至ることがわかった。また、原料の種類や性状による反応の難易の他に装置内の位置による影響も相当大きく、試料円筒内の半径方向への位置と共に円筒軸方向への位置によっても圧力や温度の受け方かなりの相違のあることが推察される。この点を詳しく調べることにより、粉末中を伝播する衝撃波の挙動をある程度明らかにし、今後の研究において考慮すべき問題点を浮彫りにできと思われる。本論文はこのような点に注目しつつ実験し、その結果について考察したものである。

ところで結晶子は衝撃波によって圧縮されて外見的な破碎と共に結晶中に種々の欠陥を生じ、その結果、粒子は極めて活性化された状態になると信ぜられる^{17)~20)}。

また、衝撃波の運動エネルギーの一部は熱エネルギーに変換し、試料の温度を上昇させる。しかし、圧力の持続時間は、マイクロ秒からたかだかミリ秒程度であろうから、その間に試料中に発生した熱がどのように伝播し、その到達する有効温度はどれくらいかということは極めて興味あるが、また難しい問題でもある。

反応が発熱反応である場合には、瞬間的な加熱によってもそれが引金となり、衝撃波によってあらかじめ活性状態にある系は反応を持続し得るということは考えられぬことではない。放射線損傷の回復においても類似のことがみられる^{17), 18)}。

なお、この種の方法では、原料粒子の表面の酸化皮膜は衝撃波によって瞬間的に粉砕されて金属表面が露出するから、酸化膜の存在は反応性にあまり影響を与えないと考えられている¹⁹⁾が、本実験結果はそのような従来の説と必ずしも一致しなかった。すなわち、テトリル量のあまり変わらない表-2 中の No. 1 (80 g) と No. 5 (81 g) におけるチタンとジルコニウムの反応性の差は、やはり原料粒子の性状、とくに粒子表面の酸化膜の存在に起因すると考えざるを得ない。すなわち、実験の都度調

Fig. 3. X-ray diffraction patterns of products.

製されたチタン粉末の方が、古いジルコニウム粉末よりも炭化反応に対して活性であったと考えられる。

このことから、この方法による固相反応でも原料は、フレッシュかつ微細であることが望ましいと言える。

衝撃波によって系が圧縮されてしまうこの方法では、生成ガスを伴う固相反応は当然進行し難く、今回の実験においても

のような反応は起こらなかった。

このほか、系内に含まれた空気が圧搾時の炭化反応にどのような影響を与えるか、および、あらかじめ粒子が緊密に詰められていると炭化物生成にどのような差異を生ずるかをしらべるため No. 1 と No. 3 で混合試料をペレットにして実験を行なったが、はっきりした差異を認めるに至らなかった。

単体の粉末の圧搾緻密化実験では系内の空気存在による差異はほとんど認められないと報告されている¹⁾。

3.2 高融点物質の圧搾による焼結と組織

表-2 について得られた試料から幾つか選び、嵩密度と気孔率を測定した(表-4)。

Table 4. Bulk densities and porosities of explosively compacted bodies.

Material	Grain size (μ)	Purity (%)	Weight of Tetryl (g)	Bulk density (%)	Apparent porosity (%)
Zr	<10	99.6	83(75)	91.6	5.3
Si	400 #	99.999	83(75)	79.8	15.7
Si	400 #	99.999	105(90)	90.8	7.5
ZrO ₂	500	99.5	105(90)	94.9	5.1*
ZrO ₂	<10	99.5	99(80)	98.6	1.4*
ZrO ₂	<10	99.9	68(53)	98.4	1.6*
ZrO ₂	26 #-60 #	Fused	70(57)	97.0	3.0*

* total porosity

Zr and ZrO₂ including Hf and HfO₂

シリコン粉末、ジルコニウム粉末、各種のジルコニア粉末のいずれも適当なテトリル量の使用によって理論密度に近く、気孔率も10%以下の緻密なものが得られた。

表から、シリコン粉末の場合、爆薬量の増加は密度の増加をもたらすこと、ジルコニア粉末の場合、原料粉の種類、粒度の違いにもかかわらず高密度を達成し得ることがわかる。また、微細なジルコニア粉末では、テトリル 68 g で密度は 98% T.D. 以上に達する。

粗い粒子から成る電融ジルコニアも比較的少ない爆薬量で理論密度近くまで緻密化した。

衝撃波の強さの違いによる圧搾状態の差異を調べるために、ジルコニアについては、種々の爆薬量で実験をおこなって、得られた圧搾体の組織を光学および電子顕微鏡、その他で観察した。

図-4 は、表-2 の No. 4 でテトリル 72 g を用いて得られたジルコニア圧搾体の中心軸に垂直な断面である。中心部には、ほぼ円形の大きな中心孔と、ほぼそれ

Fig. 4. Cross section of explosively compacted ZrO₂, using 72 g of Tetryl. ($\times 6$)

を囲む多数のクラックが認められるが、その他の部分ではかなりの緻密化が進んでいる。注意深く観察すると同心円状に区別し得る幾つかの層から成り立っている。中心孔付近では粒子が多数集まってできた二次粒子が粗に充填しているが、外縁部では二次粒子が針状あるいは錐状に発達し、しかもそれらが緻密に充填した組織を呈している。その幅は半径方向に約 1 mm に達する。

なお、本実験例では装置内の試料円筒部のテトリルは 60 g でその爆轟圧力は大体 20 kb と見積られる⁹⁾。

(A) : Outer part, (B) : Middle part, (C) : Central part

Fig. 5. Longitudinal cross section of explosively compacted ZrO₂, using 97 g of Tetryl. ($\times 8.4$)

図-5 は、No. 7 でテトリル 97 g (円筒部 84 g で圧力は約 100 kb) を用いて得られた圧搾体の中心軸に沿った断面で、中心孔はないが著しく異なった幾つかの領域から成っている。殊に、興味ある点は色相の変化で、約 1 mm の幅の外縁部は白色やや半透明であるのに中間部は灰黒色を呈し、中心部は再び白色に近くなっていることである。装置内の試料円筒部でのテトリルの充填量および充填密度の最大である No. 5 (90 g, 1.10 g/cm³) の場合でも組織と色相に同様の傾向が見られた。その各部分を顕微鏡観察した(図-6~9)。

図-6 は外縁部で、外見的にはそれほど破碎されていない、粒形のはっきりした白色粒子とほぼ同数の粒形の不明瞭な灰黒色に見える粒子から成り立っている。

図-7 は中間部で、粒子のあるものはかなり細かく破碎されているが、大多数はほぼ外縁部の粒子と同じくらいの大きさである。しかし白色の粒子は少なく、不明瞭な灰黒色に見える粒子が主体となっている。

Fig. 6. Outer part of longitudinal cross section of explosively compacted ZrO_2 , using 105 g of Tetryl. ($\times 60$)

Fig. 7. Middle part of longitudinal cross section of explosively compacted ZrO_2 , using 105 g of Tetryl. ($\times 60$)

Fig. 8. Central part of longitudinal cross section of explosively compacted ZrO_2 , using 105 g of Tetryl. ($\times 60$)

図-8 は中心部で、もとの粒子はほとんど原外形を留めておらず、もとの粒界と関係のないクラックが中心軸に沿って存在する。この部分をさらに詳しく電子顕微鏡観察してみる(図-9)と粒子は 1μ 以下になっており、しかもかなり緻密になっているように見えるが、粒子のあるものはまわりの組織との間にすき間を生じ一部は剥落している。

図-10 は、外縁部の白色に見える粒子の近傍を約 350 倍に拡大したものである。白色粒子はその表層部が極めて微細化され、しかも全体的にはもとの粒形を留めている。

図-11 は、このような表層を有する白色粒子の周りの

Fig. 9. Electron microphotograph of explosively compacted ZrO_2 shown in Fig. 8. ($\times 12500$)

Fig. 10. Typical microstructure of explosively compacted ZrO_2 shown in Fig. 6. ($\times 350$)

Fig. 11. Typical microstructure of explosively compacted ZrO_2 shown in Fig. 6. ($\times 350$)

Fig. 12. A part of cross section of explosively compacted ZrO_2 shown in Fig. 6. Each diagonal of indentations is about 13.5μ ($V_{hn} \approx 1000 \text{ kg/mm}^2$). ($\times 350$)

いわゆる粒形不明瞭な灰黒色粒子を約 350 倍に拡大したものである。もとの粒界付近はややすき間が多くなって、いはほとんど粒界は消え、全体的に極めて微細化している。写真の上部の白色粒子の表層部よりやや粗いが互いに緊密に結合している。

図-12 は、白色粒子とその表層部およびその周囲の微小硬度の差を調べるためのピラミッド形ダイヤモンド圧子の圧痕を示すが、100 g の荷重では各部分はほとんど同じ硬さを示した。

図-13 は、No. 7 のテトリル 97 g を用いて得たジルコニア圧搾体の軸方向に直角に曲げ応力をかけた際、外縁部に生じた破断の様子を示すもので、破断線が粒界のみでなく粒内も通っていることから、もとの粒子は微細化された粒子をなかだちとして十分強固に結合されていることがわかる。

以上の観察結果から、個々の粒子には破砕の程度に差異があるが、粗い粒子からなるジルコニア粉末でも適当量のテトリルを用いれば十分緻密な焼結体となし得る可能性のあることがわかった。

本実験では、装置の幾何学的形状から衝撃波は取れんしつつ内部に伝播し圧力効果を高めるが、爆薬量が少なく試料中の衝撃波が伝播の過程で減衰してしまう場合には、圧搾体の中心部の粒子の結合は不十分なものとなる。表-2 の No. 4 がこれに相当する。逆に衝撃波が過大な時には、中心で衝突して膨脹波に転ずる^{2), 20), 21)}から、圧搾体には中心軸に沿ってクラックあるいは中心孔を生ずる。

また、衝撃波は試料中を伝播する過程でエネルギーの一部を試料および系内のガスの断熱圧縮熱、

Fig. 13. Fracture path in explosively compacted ZrO_2 , using 97 g of Tetryl. ($\times 60$)

粒子間の摩擦熱などに変換して試料を瞬間的に加熱する。このような加熱作用も当然中心部の方が大きいことは炭化反応実験からも裏付けられるが、その有効な到達温度はどれくらいか不明である。このような圧力と温度がジルコニアの変態にどのような影響を与えるのか圧搾体の組織にどのような変化を与えているかについては後刻報告したい。

ジルコニア圧搾体にみられた色相変化も、衝撃波による極めて瞬間的な高圧と加熱に直接起因するもので、使用する爆薬量の多いほど濃い黒色となる。これがどのような種類の色中心であるか、その生成機構と共に現在検討中であるが、このような衝撃波による着色効果を放射線照射実験で知られている着色効果と共に考えてみることは極めて興味あるところである。

3.3 ジルコニア圧搾体および軟鋼栓の硬度分布

図-14 は、表-2 の No. 4 で得られたジルコニア圧搾体について半径方向に測定した微小硬度分布である。図-14 から予想されるように、外縁部の硬度は中心に向かって増加し 0.5 mm くらいで最大に達した後、ゆるやかに低下する。1.5 mm くらいから急激な低下を示し 1.7 mm 以上では測定できなくなり 1.9 mm 付近で中心孔に達する。衝撃波の減衰効果は 0.9 mm 付近から認められ、各測定位置での硬度のバラつきが著しい。この

Fig. 14. Micro Vickers hardness distribution of explosively compacted ZrO_2 , using 72 g of Tetryl. ($ZrO_2 + HfO_2 = 99.5\%$ in purity)

Fig. 15. Micro Vickers hardness distribution of explosively compacted ZrO_2 , using 83 g of Tetryl. ($ZrO_2 + HfO_2 = 99.5\%$ in purity)

Fig. 16. Micro Vickers hardness distribution of explosively compacted ZrO_2 , using 105 g of Tetryl. ($ZrO_2 + HfO_2 = 99.5\%$ in purity)

場合の中心孔の発生は主として爆轟圧力の不足に起因するものであると考えられる。

図-15 は、テトリル使用量 83 g (No. 6) の場合の圧搾体の半径硬度分布である。硬度は始めゆるやかに増加し、1.1 mm 付近で最大となり、次いで中心孔まで徐々に低下している。中心孔の半径は約 0.2 mm であり各測定位置における硬度のバラつきは小さい。最大値を示す位置はかなり内部に移りその幅も広い。

図-16 は、No. 5 の、試料円筒部のテトリル量の最も多い場合の圧搾体の半径方向の硬度分布である。硬度は始め高いが 0.6 mm ぐらいから低下し中心に達する。各測定位置におけるバラつきはかなり認められるが、全体的にはこれまでの試料の中で最も硬い。図-5 の組織と対応させると外縁部は約 1 mm まで、中間部は約 2.6 mm まで、中心部は 2.6 mm 以上に相当し、硬度分布もそれにつれて変化している。この図では最も硬い部分

は外縁部である。

これらの硬度分布は純度 99.5 % の粗い粉末ジルコニアを用いて得られた一連の圧搾体についての結果であるが、テトリル使用量の増加に応じて、最大硬度はそれぞれ 780, 900, 1070 kg/mm^2 であった。

ジルコニアの硬度に対する衝撃波の影響をはっきりさせるため No. 8 で用いた純度 99.9% ジルコニア粉末を原料とし、高周波炉で加熱して嵩密度 96.5% T.D., 気孔率 1.6% の緻密な非安定化ジルコニア焼結体を作製した。

図-17 A は 10^{-4} mmHg の真空中、2300°C で加熱して得られた黒色の非化学量論的ジルコニア焼結体、図-17 B はこれを空气中、1000°C で空気酸化して得られる白色で変態によるクラックのない焼結体である²²⁾。

この白色焼結体の微小硬度の平均値は 540 kg/mm^2 であった。この値との比較から、衝撃波による圧搾焼結体はかなりの加工硬化を受けていることが推測される。

また、たびたび述べたように衝撃波の収れん効果から中心部ほど加工硬化の程度が大きくなるべきであるが、中心部はクラックあるいは中心孔の発生のため硬度はむしろ低下する傾向が強い。

ところでこのような中心孔の発生する機構の十分な説明は成されておらず本研究の課題のひとつでもあるのだ

Fig. 17. Color change of pure sintered ZrO_2 before (A) and after (B) oxidation in air at 1000°C. ($\times 4.5$)
(A): Oxygen-deficient ZrO_2
(B): Stoichiometric ZrO_2

が、従来、主として伝播する衝撃波の中心部での膨脹波への変換と試料自体の弾性回復とに理由づけられている^{2), 22)}。爆薬量が多く衝撃波圧力が高すぎると圧搾体の中心に孔を生じ易いことが報告されているが、圧搾される粉末の種類、粒子の大きさなどによっては、必ずしも一義的ではない。テトリル量が少なすぎると衝撃波は伝播中に減衰して中心部では圧力不足となり粒子間に十分な結合をもたらずに至らず大きな中心孔を生ずる(図-4)。粗い粒子からなるジルコニア原料粉末の場合、すなわち No. 4~7 では爆薬量の多いほど、中心孔は小さくなって、その影響もまた小さくなる。

さらに中心孔の発生機構の解明を試みるために本実験では予備的に装置内にはめ込まれた軟鋼栓で中心孔の生じたものの微小硬度分布とその焼鈍挙動を調べ、あわせて非衝撃栓の硬度およびその焼鈍変化も測定した(図-18 (a), (b))。焼鈍条件は真空中(10^{-3} mmHg) 200°, 400°C で各 1 時間, 800°, 1000°C で各 30 分間加熱し、その都度硬度を測定した。これまでの測定と同様に明石製作所製微小硬度計を用い、荷重 100 g で行なった。

- as-shocked
- △— annealed at 200°C for 1 hour
- at 400°C for 1 hour
- at 800°C for 1/2 hour
- ×— at 1000°C for 1/2 hour

Fig. 18. Variation of micro Vickers hardness of steel plug during annealing. (a) explosively loaded specimen, (b) as-received specimen. Calculated detonation shock pressure is about 120 kbar.

(a) では、衝撃試料の硬度は表面から 1 mm のところまで僅かに増加しているが、1 mm から 2 mm にかけて急激に低下し、さらに 4 mm のところまでゆるやかに減少して中心孔に達する。200°C, 400°C で焼鈍後、表面から 2 mm まで極く僅かな硬度増加が認められるが、2.5 mm 以上では数パーセントの減少がみられる。この傾向は 400°C の焼鈍でも認められるが、一般的には、これらの温度ではほとんど焼鈍回復はない。800°C の焼鈍で急激な軟化を示し一様分布となって半径方向の著しい硬度の違いは消える。1000°C で硬度はさらに幾分かの低下を示した。

衝撃波を受けてない軟鋼栓の場合 (b), 200°, 400°C では全く硬度変化は認められず回復は起っていない。800°, 1000°C の焼鈍で (a) の硬度にほぼ等しい値となった。

(a), (b) の比較から軟鋼は衝撃波により冷間加工に相当する加工硬化を受けていることは明らかである。しかし粉体の圧搾の場合のような衝撃波の伝播中の減衰¹⁾は小さく、むしろ取れんによって中心部ほど硬くなるはずである。従って (a) のような硬度分布や中心孔の発生は、単に衝撃波の機械的作用のみを考慮しては説明し難い。

まず中心部は多量の加工を受けて^{23)~25)}劣化し、すでにジルコニア圧搾実験で確かめた膨脹波の作用が加わって孔を生ずることが考えられる。一方、炭化物合成実験で確認したように、衝撃波の瞬間的加熱による半径方向の温度分布のため軟鋼は圧縮を受けた後に、一部の欠陥を焼鈍回復する。(a) に示したような硬度分布は、このような劣化あるいは回復の結果生じたものと考えざるを得ない。

なお、中心孔の発生機構のひとつとして上述のような温度による熔融も考えられるが、鋼の大きな熱伝導性を考えると中心部の到達温度はそれほど高くはないであろう。(a) と (b) から、その到達有効温度は 1000°C には達していないと見られる。しかし、試料が熱伝導性の低い物質である場合、たとえば炭化物合成のための炭素と金属の混合粉末やジルコニア粉末では、その到達温度はかなり高く 1000°C あるいは 1300°C 以上に達している可能性もある。衝撃波圧力の増大は、これらの温度を

Fig. 19. High pressure and temperature region in steel tube (shaded).

もっと高めるであろう。このことは実験結果から推察される。

以上の各種の物質についての硬度分布、組織写真および炭化物生成状況などを総合すると、本実験で使用した装置内の圧力および温度分布は、大体図-19の影を施した部分になる。しかし、このような部分は、爆薬量と充填される試料の種類、性状、充填具合などによって、いくらか違ったものになるかもしれない。

4. 総 括

衝撃波による極めて短時間の炭化反応、粉体の焼結の現象を確認すると共に、これを発展させて装置の幾何学的形状、位置による衝撃波の粉体におよぼす影響の違いを、主としてX線分析、顕微鏡観察、微小硬度測定によって調べた。結果を総括すると

(1) 衝撃波によって結晶粒子は巨視的にも微視的にも破壊を受けていわゆる活性状態になり、炭化反応や焼結が極めて進行し易くなる。

(2) 圧搾焼結体はかなり加工硬化を受けており、結晶中に相当の残留歪のあることが推察される。

(3) 衝撃波の圧力、温度の効果は装置内の位置によってかなり差異があり、一般的には、試料円筒の中心部分でそれが著しくなる。

(4) ジルコニア粉末の圧搾ではテトリル使用量の少ないほど大きな中心孔を生じたが、このような圧搾体中心の孔やクラックの発生原因は、従来説明されている膨脹波への変換、試料自体のスプリング・バックのほか、試料の脆化や劣化、衝撃波の減衰効果が考えられる。

(5) ジルコニアは、かなり粗い粉末でも緻密堅固な焼結体となる。その組織中の粒子は、いずれも表層部あるいは中心部まで、極めて微細化されており、これが焼結の進行に大いに寄与していると考えられる。

以上から、衝撃波の有するエネルギーは金属炭化物の合成法および高融点物質の焼結法として十分有効なものであることがわかった。しかしながら、衝撃波の伝播の様子と圧力や温度に関するより詳しい知識、目的に応じた爆薬の種類、量、装置の形状の選択など多くの検討す

べき問題も残っており、今後の研究に待つところがなお大きいと言わざるを得ない。

文 献

- 1) S.W. Porembka and C.C. Simons, *ASTME paper* SP 60-102 October, 1960.
- 2) S.J. Paprocki, C.C. Simons and R.J. Carlson, *ASTME paper* SP 69-29 October, 1962.
- 3) S.W. Porembka *Cerm. Age* 79 [12] 69 (1963).
- 4) 木村康之, 山本富才, *精密機械* 3 [7] 617 (1965).
- 5) Japanese Patent, No. 1952, Patented Mar. 23 (1966).
- 6) Y. Horiguchi and Y. Nomura, *J. Less-Common Metals* 11, 378 (1966), (short communications).
- 7) Melvin A. Cook, *The Science of High Explosives*, Reinhold Publishing Corp., New York (1961).
- 8) R. Caldirola, *J. Chem. Phys.* 14 [12] (1946).
- 9) R.L. Scorah, *J. Chem. Phys.* 3, July (1935).
- 10) 疋田 強, *科学* 33 [12] 575 (1963).
- 11) H.T. Hall, F.P. Bundy and W.R. Hibbard, Jr. H.M. Strong Edit, *Progress in Very High Research*, John Wiley & Sons, Inc., (1961).
- 12) R.S. Bradley, *High Pressure Physics and Chemistry*, Vol. 2 Academic Press, London and New York (1963).
- 13) 西山卯二郎, 井上 卓, *塑性と加工* 8 [72] 10 (1967).
- 14) 西山卯二郎, 井上 卓, *日本機械学会論文集* 29 [208] 1889 (1963).
- 15) 西山卯二郎, 井上 卓, 奥野正雄, *日本機械学会論文集* 30 [217] 1040 (1964).
- 16) 西山卯二郎, 井上 卓, 奥野正雄, *日本機械学会論文集* 33 [250] 990 (1967).
- 17) 橋口隆吉, 照射損傷, 界面現象, 格子欠陥 259-338, 共立 (1958).
- 18) L.T. Chadderton, *Radiation Damage in Crystals*, Methuen & Co., Ltd. (1965).
- 19) Japanese Patent, No. 24961, Patented Nov. 1, 1965.
- 20) 河嶋千尋, 超高圧・超高温の物性と応用, 金原 (1968).
- 21) 倉谷健治, 土屋莊次, 衝撃波の化学物理, 裳華房 (1968).
- 22) H.J. Garrett and R. Robert, *Am. Ceram. Soc. Bull.* 47 [6] 578 (1968).
- 23) W.C. Leslie, E. Hornborgen and G.E. Dieter, *J. Iron. Steel Inst.* 200, 622 (1962).
- 24) B.A. Stein and C. Johnson, *Trans. Met. Soc. AIME*, 227, 1188 (1963).
- 25) R.O. Scattergood, P. Beardmore and M.B. Bever, *Trans. Met. Soc. AIME*, 227, 1486 (1963).
- 26) J.F. Kircher and R.E. Bowman, *Effects of Radiation on Materials and Components*, Reinhold Publishing Corp. (1964).

(2/12/1969 受付)