回転液中紡糸法における Sn-37 mass%Pb 合金細線の断面形状変化

島岡 三義* 大中 逸雄**

*奈良工業高等専門学校電子制御工学科

**大阪大学工学部材料開発工学科

J. Japan Inst. Metals, Vol. 60, No. 4 (1996), pp. 420-426

Change of Cross-Sectional Shape of Sn-37 mass%Pb Alloy Fiber in the In-Rotating-Liquid-Spinning Process

Mitsuyoshi Shimaoka* and Itsuo Ohnaka**

*Department of Control Engineering, Nara National College of Technology, Yamatokoriyama

**Department of Materials Science and Processing, Faculty of Engineering, Osaka University, Suita

It is difficult to produce the continuous fiber of a low surface tension alloy with a round cross-section by using the In-Rotating-Liquid-Spinning process. The relation between the cross-sectional shape of the fiber and the spinning conditions has been examined by using a Sn-37 mass%Pb alloy. The mean mass flow rate of molten metal jet was almost independent of the superheat of the melt. However, the direction of the jet stream became unstable with increasing superheat of the melt and the fluctuation of the jet diameter at the outlet of the nozzle also increased. The roundness of the cross-section of the obtained fiber increased with decreasing ejection pressure, circumferential velocity of rotating liquid layer, nozzle diameter, jet incidence angle and density of coolant and with increasing superheat of the melt. The fiber with high roundness could be produced, when the inner pressure of jet was higher than the dynamic pressure of coolant acting on the jet at the incidence point of jet into the liquid layer. The computer simulation of the cooling process of jet has been performed in the temperature range from the ejection to the liquidus temperature of the alloy. The average cooling rates were evaluated to be $0.5 \sim 2.4 \times 10^5 \text{ Ks}^{-1}$ in the water layer, $1.4 \sim 3.0 \times 10^4 \text{ Ks}^{-1}$ in the methanol layer and $4.7 \sim 6.5 \times 10^3 \text{ Ks}^{-1}$ in the salad oil layer, respectively. By using methanol and salad oil as a coolant, a more round fiber could be produced, even if the superheat of the melt was low. The double layers, such as the methanol-water layer and the salad oil-water layer, and the triple layer such as salad oil-methanol-water layers were also effective in producing the fiber with round cross-section.

(Received October 23, 1995)

Keywords: solidification, In-Rotating-Liquid-Spinning process, tin-lead alloy, cross-sectional shape, water, methanol, salad oil, multiple cooling layer, cooling rate, surface tension, dynamic pressure

I. 緒 言

回転液中紡糸法は溶融合金ジェットを回転液層中に噴射・急冷し、液相から直接連続合金細線を得る方法である⁽¹⁾⁽²⁾。急冷凝固プロセスを利用して、アモルファス細線の製造に活用化されている⁽²⁾⁻⁽⁵⁾。他、ダイスによる線引きの必要がなく、難加工性材料の線材化が容易であることから、Fe-Si 系合金細線⁽⁶⁾、Cu-Mn-Al 系合金細線⁽⁷⁾なども製造可能である。一方、ダイスのように形状を拘束するものがないために、ジェット速度、ジェット入射角、回転液層周速度などの紡糸条件によって、得られる細線の断面形状は種々変化する⁽¹⁾⁻⁽³⁾⁽⁸⁾。このため、紡糸後の線引きにより形状を整えることがあるが、製造コストは上昇するし、線引きにより表面性状が悪化する可能性もある⁽⁹⁾。また、室温での強度が低い材料では、

ダイスによる線引きが困難であることが予想される。したがって、回転液中紡糸法のみによって、如何にして円形断面を有する均一な連続細線を得るかは重要な課題である。

Liu ら⁽¹⁰⁾は $\text{Fe}_{68}\text{Ni}_{20}\text{Si}_{10}\text{C}_2$ 合金を用いて、また、Heyder と Frommeyer⁽¹¹⁾は Sn, Al, $\text{Al}_{88}\text{Si}_{12}$, $\text{Fe}_{75}\text{Si}_{10}\text{B}_{15}$, $\text{Fe}_{40}\text{Ni}_{40}\text{B}_{20}$ および Ni_3Al 合金を用いて、円形断面を有する連続細線を得るための最適紡糸条件を検討しているが、著者らの経験では Pb-Sn 合金のように低融点で、表面張力の小さな合金系では、彼らが提唱している最適紡糸条件下では円形断面を有する細線を得ることができない。また、回転液中紡糸法による極細線はんだの製作に関する報告⁽⁹⁾⁽¹²⁾もあるが、最適紡糸条件については具体的に提示されていない。細線の断面形状変化に与える要因として、ノズルから噴射された円柱状ジェットの表面張力による内圧と、ジェットに作用する回転液層の動圧が指摘されている⁽¹⁾⁽³⁾⁽⁸⁾。液層中におけるジェットの

Fig. 1 Change in the cross-sectional shape of jet.

断面形状の変化を Fig. 1 に模式的に示す。溶融合金はノズル形状(円形)と自身の表面張力によって円柱状のジェットとなってノズルから噴射されると考えられる (Fig. 1, A)。液層の動圧 ($\rho_w C_D (V_w \sin \varphi)^2 / 2$; ρ_w は冷却液体密度, C_D は流体抗力係数, V_w は液層周速度, φ はジェット進行方向と回転液層の流れ方向とのなす角度) がジェットの内圧 ($2\sigma_j / d_j$; σ_j はジェットの表面張力, d_j はジェット径) より大きければ, 熔融状態のジェットの断面は扁平化されと考えられる (Fig. 1, B)。一方, ジェット軌跡は下流側ほど液層の流れ方向に沿うようになり, 液層の動圧がジェット入射時に比べ相対的に小さくなるため, ジェットの温度が液相線以下に低下していなければ, ジェットの断面形状は, 自身の表面張力によって円形に回復していくと考えられる (Fig. 1, B→C→D→E)。したがって, 円形断面を有する細線を得るには, 液層入射時にジェットが扁平化しない条件で紡糸するか, ジェットが扁平化しても, ジェットの固化をより下流側で生じさせ, 凝固直前における動圧を小さくし, 表面張力による形状回復を待つことが考えられる。

そこで, 低融点で表面張力が小さな合金系で, 噴射圧力, 回転液層周速度, ノズル径, 噴射温度, 冷却液体および種々の液体を積層させた多重液層等に注目して実験を行い, 冷却過程と断面形状形成過程を明らかにすることを試みた。なお, 種々の紡糸条件で実験を行うにあたり, 溶融合金ジェットの噴射特性に影響を及ぼす噴射ノズル形状は同一であることが望ましく, そのためにはノズルとの反応がなくて同じノズルが再利用できること, 熔融状態における物性値, 特に表面張力とその温度依存性も含めて明らかなることを考慮して, Sn-37 mass%Pb 合金を試料合金に選定した。

II. 実験装置および実験方法

Fig. 2 に実験装置の概略を, また, Table 1 に実験条件を示す。石英ガラス管(外径 11 mm, 内径 9 mm)を加熱成形してノズル部(円すい状絞り部長さ約 10 mm)を形成させた, 噴射ノズル一体型溶解するつばに試料合金を入れ, 酸化防止のためノズル内の空気をアルゴンガスで十分置換したのち, 高周波誘導加熱装置によって溶解し, 回転ドラム(内径 500

Fig. 2 Schematic diagram of the in-rotating-liquid-spinning apparatus.

Table 1 Experimental conditions for spinning of Sn-37 mass%Pb (liquidus temperature $T_m = 459$ K) alloy.

Nozzle diameter, d_n	140-300 μm
Ejection pressure, P_n	0.1-0.4 MPa
Superheat of the melt, ΔT_i	64-564 K
Jet incidence angle, φ_0	0.26-1.31 rad
Drum rotational speed, N_D	1.67-3.50 s^{-1}
Velocity of liquid surface, V_{wi}	2.30-5.06 m s^{-1}
Distance between nozzle tip and liquid surface, l	5-30 mm
Temperature of coolant, T_f	282-315 K

mm)内に遠心力で形成させた液層(厚さ約 20 mm)中にアルゴンガスで加圧, 噴射した。噴射圧力はブルドン管式圧力計で, ドラム回転数は非接触式デジタル回転計でそれぞれ測定した。ノズル径 d_n は光学顕微鏡(読取り精度 10 μm)で測定し, ノズルの繰り返し使用に際し, ノズル径, ノズル形状および同一噴射圧力での噴出質量流量に顕著な変化がないことを確認した。

ともに純度 99.9% の Pb および Sn を所定の質量比になるように秤量し, 約 900 K の電気炉中で黒鉛のつばを用いて溶解し, 金型に流し込み直径約 8 mm, 長さ約 200 mm の円柱状試料合金を作成した。1 回の噴射質量 m_n は 6~7 g とした。本合金組成の熱分析の結果, 液相線温度は約 459 K, 固相線温度は約 454 K であった。肉厚 0.4 mm の石英ガラス管を介して R または K 型熱電対で溶湯温度 T_i を測定した。噴射中溶湯はアルゴンガスによって冷却されるが(全実験を通して, 温度降下は最大で約 40 K であった。), 以下の考察では, 噴射開始時の温度で溶湯過熱度を評価している。

ジェット噴射状況, 回転液層中でのジェット軌跡や剝離膜の形成状況等を CCD カメラ(シャッター開放時間 10^{-4} s)で観察し, ビデオテープに録画(30 コマ/s)した。ビデオプリンタによる出力画像図から, ジェット入射角 φ_0 , ノズル先端からジェット入射点までの距離(噴射距離) l および回転液

Fig. 3 Definition of roundness of cross-section of the obtained fiber.

層厚さを求め、液層がドラムと同期して回転するとして液層表面の周速度 V_{wi} を求めた。

噴射開始から終了までの噴射時間 T_e をビデオデッキ内蔵の時計で測定し、 m_n と T_e からジェット平均質量流量 q_j を求めた(ストップウォッチとの時計差は 10 min 間で約 1 s であったが、 T_e の最長が約 24 s で、 q_j に与える影響は小さいと判断した.)。

冷却液体には水の外、低密度液体としてメタノールと市販のサラダ油(菜種油、大豆油を主成分とする混合油)を用いた。水層表面に約 3 mm のメタノール層やサラダ油層を形成させた 2 重液層と、水層表面にメタノール層(約 2.5 mm)を形成し、さらにその表面にサラダ油層(約 2.5 mm)を形成させた 3 重液層でも紡糸した。紡糸直後に棒状水銀温度計で冷却液体の温度 T_f を測定した。

溶融合金の噴射特性(特に溶湯過熱度依存性)を、静止水中(ノズル先端と水面との距離約 80 mm、水深約 120 mm)および大気中に鉛直噴射して調べた。CCD カメラ(一部 200 倍の実体顕微鏡を併用)による観察の他、レーザマイクロメータによりノズル出口直下のジェットの幅 d_{j1} を測定した。ペンレコーダに記録されたチャート図から、 d_{j1} を 400 点以上タブレットで読みとり、算術平均した値 d_{jm} に対する誤差百分率と、時間 t を T_e で除した無次元時間に整理した。

細線の断面形状の特徴的な形状、短辺 T および長辺 W の測定部位を Fig. 3 に示すが、 T および W は光学顕微鏡で測定した。図に示した定義⁽³⁾による円形度 ε を用いて形状の評価を行い、得られた細線の数カ所で円形度を測定し、ばらつきの程度も調べた。

III. 実験結果と考察

1. 細線断面形状に及ぼす噴射圧力、回転液層表面周速度およびノズル径の影響

細線断面の円形度に及ぼす噴射圧力、液層表面周速度およびノズル径の影響を調べた結果を Fig. 4 (図中の○◇▽●は数カ所測定したものの平均値)に示す。水温は 286~294 K である。

噴射圧力を高くすると円形度が低下する傾向にあった。ジェット入射初期は強制対流膜沸騰熱伝達が支配的と考えてジ

Fig. 4 Effect of ejection pressure on the roundness of the obtained fiber.

ェットの冷却過程をシミュレート⁽¹³⁾した結果(ジェットの断面形状は円形と仮定し、ジェット軌跡の計算に際し、流体抗力係数はレイノルズ数依存性⁽¹⁴⁾を考慮した.)、Fig. 4 の紡糸条件では、噴射圧力の増大に伴うジェット凝固開始位置の下流側へのシフト量はごくわずかであった(1 mm 以内)。しかし、高噴射圧力下ではジェットが液層中深く侵入しているために、凝固直前におけるジェット進行方向と液層の流れ方向とのなす角度 ϕ が、低噴射圧力下に比べて大きい状況、すなわち、液層の動圧が大きい状況にあり、噴射圧力の増大とともに円形度が低下したものと考えられる。

同一噴射圧力においては、液層表面周速度 V_{wi} の増大に伴い円形度は低下した。 V_{wi} を増大させるとジェット速度と液層速度の相対速度が大きくなり、伝熱係数は増大する。一方、液層の動圧が増大し、ジェット軌跡は液層流れ方向に沿う(ϕ が小さくなる)ようになり、逆に伝熱係数は減少する⁽¹⁵⁾。計算上では、ジェットの冷却速度は増大する傾向にあり、凝固開始点はより上流側(相対的に ϕ の大きい位置)にシフトする。 V_{wi} の増大によってジェットの冷却が速まり、液層の動圧も増大して、円形度が低下したものと考えられる。

ノズル径の増大に伴いジェット径も大きくなり、表面張力によるジェットの内圧が低下するため、円形度は低下することが Fig. 4 から予想される。図には示していないが、実際、ノズル径が 300 μm の場合、0.15 MPa の低噴射圧力でも円形度が 0.2 以下で、リボン状(Fig. 3(a)のような断面形状)の凝固物となった。

円形度にばらつきが生じた原因としては、ノズルから噴射されたジェットが、表面張力により周期的な断面収縮・膨張を伴いながら進行していく⁽¹¹⁾⁽¹⁶⁾ことが考えられる。また、ジェット速度が液層周速度より大きい場合、ジェットは液層中で圧縮力を受け、ジェットの断面膨張によって圧縮力をす

べて吸収できない場合、ジェットは座屈、断面膨張を繰り返し、断面形状が細線長さ方向に不均一となったものと考えられる。

2. 細線断面形状に及ぼすジェット入射角の影響

ジェット入射角 ϕ_0 を小さくして噴射すれば、ジェットに作用する液層の動圧を容易に小さくできる。Fig. 5 に円形度に及ぼすジェット入射角 ϕ_0 の影響を示す。水温は 282~296 K である。 ϕ_0 の増大に伴い円形度は低下した。ノズル径を小さくし、ドラム回転数を一層小さくし (図中○印, 安定な回転液層を形成するためドラムを水平に回転した.), ϕ_0 を極端に小さくすると、円形度は向上したものの、加熱コイルの存在のため噴射距離が長くなり、液層下流域でジェットが揺らぎ、円形度のばらつきは必ずしも小さくならなかった。良好な断面形状を得るためのジェット入射角として、 $\phi_0 < 1 \text{ rad}$ が望ましく、これは従来からの指摘⁽¹⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾と同様である。

3. 細線断面形状に及ぼす溶湯過熱度の影響

ジェットを下流側で固化させる最も簡単な方法は、溶湯過熱度 ΔT_i を高くして噴射することであり、その際、ジェットの噴射特性が ΔT_i に依存しないことが望まれる。本合金の静止水中への鉛直噴射実験では、質量流量の ΔT_i の依存性は認められなかった。合金の密度、粘性係数および表面張力の温度依存性並びに石英ガラスの熱膨張に伴うジェットの質量流量の変化は、本合金の粘性係数の温度依存性が不明のため、Pb の物性値を用いてノズル内外でのエネルギーバランスから計算した結果、ノズル径 $d_n = 200 \mu\text{m}$ 、噴射圧力 $P_n = 0.1 \sim 0.4 \text{ MPa}$ 、 $\Delta T_i = 50 \sim 800 \text{ K}$ において $\pm 0.4\%$ 以下であった。また、Fig. 6 に示すように、ジェット軌跡は ΔT_i に依存しなかった。しかし、レーザマイクロメータによるジェット径の測定結果では、 ΔT_i の増大とともにジェット径の変動が著しくなる傾向を示した。また、 ΔT_i の増大とともに噴射方向が不規則に変化する傾向を示した。 ΔT_i が高い場

Fig. 5 Effect of jet incidence angle on the roundness of the obtained Sn-37 mass%Pb alloy fiber.

(○) $d_n = 140 \mu\text{m}$, $P_n = 0.15 \text{ MPa}$, $V_{wi} = 2.81 \text{ m s}^{-1}$,
 (□) $d_n = 180 \mu\text{m}$, $P_n = 0.25 \text{ MPa}$, $V_{wi} = 4.58 \text{ m s}^{-1}$,
 (◇) $d_n = 220 \mu\text{m}$, $P_n = 0.20 \text{ MPa}$, $V_{wi} = 4.34 \text{ m s}^{-1}$,
 (△) $d_n = 300 \mu\text{m}$, $P_n = 0.10 \text{ MPa}$, $V_{wi} = 2.35 \text{ m s}^{-1}$.

Fig. 6 Effect of ejection temperature on the jet orbits.

Fig. 7 Sn-37 mass%Pb alloy jet behavior near the nozzle ejected vertically (video images with CCD camera). $d_n = 190 \mu\text{m}$, $P_n = 0.15 \text{ MPa}$, $\Delta T_i = 264 \text{ K}$.

合のジェットの噴射状況の一例を Fig. 7 に示すが、噴射の前半(a)では、 x_1 と x_2 でのジェット径の相違は明白で、噴射の後半(b)や終了直前(c)では周期的な断面収縮・膨張の振幅が小さくなっており、噴出状況が一定でないことがわかった。これは、 ΔT_i の増大とともに、るつぼ内での酸化物等の生成量が増大し、ノズルへの付着と離脱を繰り返した結果と考えられる他、合金の粘性係数と表面張力が低下し、ジェットの周期的な断面収縮・膨張が顕著になること、さらに、ジェット表面の酸化皮膜層がより厚くなることなども原因していると考えられる。

ΔT_i と円形度 ε の関係を断面形状のスケッチも含めて Fig. 8 に示す。水温は 284~293 K である。全般的に ΔT_i の増大とともに円形度が大きくなる傾向を示し、 $d_n = 300 \mu\text{m}$ (図中△▽印) の場合にはその傾向が著しかった。Fig. 9 はジェットの冷却過程をシミュレート⁽¹³⁾したもので(横軸 L_j はジェット入射点からジェットに沿った長さ)、Fig. 6 のようにほぼ同一の軌跡を描く場合、 ΔT_i の差が 100 K のときに凝固開始点は大幅に下流側にシフトすることがわかる。 $d_n \leq 200 \mu\text{m}$ の合金液層温度直上までの平均冷却速度が $1.0 \sim 2.4 \times 10^5 \text{ K s}^{-1}$ であったのに対し、 $d_n = 300 \mu\text{m}$ では $0.4 \sim 1.0 \times 10^5 \text{ K s}^{-1}$ 程度であり、冷却速度の低下と ΔT_i の増大により、未凝固区間が増大し(ΔT_i が 64 K で未凝固区間は 6.4 mm であるが、564 K では 142 mm)、液層入射時にリボン状に扁平化したものが、円形に回復したと考えることができる。

Fig. 8 Effect of superheat of the melt on the roundness of the obtained fiber.

Fig. 10 Effect of density of liquid coolant on the roundness of the obtained fiber.

Fig. 9 Calculated cooling curves of Sn-37 mass%Pb alloy jet in rotating liquid layers.

なお、低噴射圧力下では、 ΔT_i の増大に伴い円形度のばらつきが大きくなる傾向にあり、 ΔT_i の増大とともにジェット径の変動が著しくなることによるものと考えられる。

4. 細線断面形状に及ぼす冷却液体の影響

Fig. 10に円形度と冷却液体密度の関係を示す。メタノールやサラダ油の低密度液体の場合にはきわめて良好な断面形状を有する細線が得られた。

メタノールの沸点は水より低く、蒸発潜熱も小さいため蒸気発生が活発となり、ジェット周りには急冷を阻害する蒸気膜がより厚く形成されると考えられる。膜沸騰熱伝達係数は冷却液体サブクール度にほぼ比例して増大するため⁽¹³⁾⁽¹⁷⁾、液温が同じであれば、メタノールの冷却能力は水より低くな

Fig. 11 Effect of liquid coolant on the jet orbits.

る。メタノール中のジェット軌跡は(計算値はAbeら⁽⁸⁾の方法で求め、質量流量と噴射時間から求めたジェット速度を用いた。)、**Fig. 11**に示すように、水中に比べ、より深く液層中を進行しているが、計算⁽¹³⁾によるジェットの平均冷却速度は、水の $1.2 \times 10^5 \text{ K s}^{-1}$ 程度に対し、メタノールでは $0.25 \times 10^5 \text{ K s}^{-1}$ 程度と著しく低くなり、凝固開始位置が下流側にシフトすることがわかる(**Fig. 9**)。水より密度が小さいため液層の動圧も低下し、ジェットの表面張力による形状の回復が達成されたものと考えられる。

サラダ油の場合では、サラダ油の沸点(測定の結果673 K以上であることを確認しているが、正確な値は不明である。)以下の温度で噴射したにもかかわらず、水やメタノールの場合と同様にジェット周りに剝離膜が形成された。これは液層速度が大きいことに起因するもので、この剝離現象は流体力学的に阻止不可能である⁽¹³⁾。この場合、剝離膜が形成されてはいるが、ジェットは単なる強制対流下で冷却されることになる。強制対流熱伝達係数はレイノルズ数($V_n d_j / \nu_w$; V_n はジェット速度と液層速度の相対速度のジェットの直交する速度成分、 ν_w は冷却液体の動粘度である。)、冷却液体のプラントル数および熱伝導率に依存する⁽¹⁸⁾。**Fig. 12**の計算

Fig. 12 Effect of liquid coolant and spinning process parameters on the jet orbits.

値は観察値に近くなるようにサラダ油の動粘度を仮定して求めたものであるが、動粘度は水より1オーダー大きい値となり、サラダ油中ではレイノルズ数が1000以下の値になる(レイノルズ数が1000以下になると、流体抗力係数は急激に増大する⁽¹⁴⁾)。このため、ジェットが急激に曲げられているものと考えられる。また、サラダ油の熱伝導率が不明のため、大豆油の値⁽¹⁹⁾を代用して冷却過程をシミュレート⁽¹³⁾した結果をFig. 9に示すが、熱伝導率とレイノルズ数が小さいことが主因で、ジェットの平均冷却速度は $6.5 \times 10^3 \text{ Ks}^{-1}$ となり、同一紡糸条件の水(Fig. 6)の $1.4 \times 10^5 \text{ Ks}^{-1}$ に比べ非常に低くなっている。未凝固区間が長くなって(計算では約140 mm程度)、形状の回復が達成できたものと考えられるが、液層中で破断して20 mm程度以下の線材しか得られなかった。これは強度の低い未凝固区間が長くなり過ぎたためと考えられる。

なお、サラダ油ではジェットが液層に進入できるように、粘性係数を下げるため、メタノールや水の場合より油温を高くして315 Kとした。比較のため、水温318 Kで紡糸してみたが、低水温時に比べ円形度は向上したものの、メタノールやサラダ油の場合には及ばなかった。

5. 多重液層中での紡糸

Fig. 13に2重液層(メタノール・水およびサラダ油・水)中および3重液層(サラダ油・メタノール・水)中で紡糸した場合の細線の円形度を示す。2重液層では水単独層よりは細線の円形度は向上した。これは、Fig. 9に示すように(メタノール・水の2重液層の冷却曲線はFig. 11と同条件で紡糸した場合である)、メタノール層、サラダ油層での冷却速度が低いために、水単独層より凝固開始点が下流側にシフトし、表面層がメタノールの場合、液層入射時の初期扁平化も抑制されたためと考えられる。

なお、サラダ油・水の2重液層では、サラダ油単独層に比べて細線の連続性が向上したが、長さは200 mm程度であった。Fig. 9に示すように、サラダ油層から水層に進入後のジェットの冷却が速められ、未凝固区間は減少しているものと推定されるが、Fig. 12に示すように、ジェットは波状的に液層中を進行しており、サラダ油層と水層の境界での流

Fig. 13 Comparison of roundness of the obtained fibers spun in the water layer and in the double or triple layer.

体抗力の急変(計算ではジェットの進行方向が大きく変化している)による衝撃により、連続性が持続できなかったものと考えられる。

また、サラダ油(表面層)、メタノール(中間層)、水(最下層)の3重液層では、円形度は2重液層よりも良好であった。しかし、各層の密度が異なることから、Fig. 12に示すように、液層の動圧変動を2段階に受け、細線の連続性は2重液層よりも悪かった。

6. ジェット内圧と液層動圧との比と円形度

ジェットの内圧 P_j は、紡糸中のジェット径 d_j の測定が困難なため、レーザマイクロメータによるジェット径の測定結果から、ノズル径 d_n より約10%小さくするとして、

$$P_j = \frac{2\sigma_j}{0.9d_n} \quad (1)$$

で計算した。ジェットの表面張力 σ_j はSn-Pb合金の組成と温度に依存し、Schwanekeら⁽²⁰⁾の結果を計算に用いた。ジェットに作用する液層の動圧 P_f は、液層入射点において最大になると考えられ(液層の動圧 $\{\rho_w C_D (V_w \sin \phi)^2 / 2\}$ の中で、ジェットが下流に行くにしたがって液層周速度 V_w は増大するものの、ジェット進行方向と液層流れ方向とのなす角 ϕ と流体抗力係数 C_D は小さくなる)、次式によって計算した。

$$P_f = C_D \frac{\rho_w (V_{wi} \sin \phi_0)^2}{2} \quad (2)$$

Fig. 14にジェット内圧と液層の動圧との比 P_j/P_f と得られた細線の断面の円形度 ε の関係を示す。 P_j/P_f は多少のばらつきがあるものの、 $P_j/P_f < 1$ では P_j/P_f の増大とともに円形度は増大し、内圧と動圧がバランスする $P_j/P_f = 1$ 付近で最大の円形度を示している。しかし、水中紡糸では、 $P_j/P_f > 1$ では静力学的に円形を保ち得るはずであるが、 P_j/P_f

Fig. 14 Relation between the ratio of inner pressure of jet and dynamic pressure of liquid coolant acting on the jet at the rotating liquid surface and the roundness of the obtained fiber.

に関係なく、平均的な円形度は0.8~0.9で頭打ちの状態であった。特に、 $P_j/P_f > 3$ はドラムを水平に回転し、ジェット入射角を小さくした場合であるが、噴射距離が30 mmにもなり、ジェット径やジェット噴射方向の変動などにもより、ジェットが液層内下流域で揺らぎ、これが上流側に伝播し、凝固開始直前の断面が円形になっていない状態で固化してしまったためと考えられる。

メタノール、サラダ油の場合では、 $P_j/P_f < 1$ であっても水の場合より円形度は大きくなっている。これは、冷却速度が遅いため円形に回復するための時間的余裕があったためといえる。

IV. 結 言

表面張力の小さいSn-37 mass%Pb合金について、円形断面を有する細線を得る目的で、回転液中紡糸法のプロセスパラメータである噴射圧力、回転液層周速度、ジェット入射角、溶湯過熱度が細線の軸断面形状に及ぼす影響や、冷却液体の種類および異種液体を2重あるいは3重に積層させた液層中での紡糸による断面形状の向上の効果を、ジェットの冷却過程とともに調べ、以下の結果を得た。

(1) 円形度の高い細線を得るためには、噴射圧力、回転液層表面周速度およびジェット入射角はいずれも小さい方が望ましい。また、溶湯過熱度を高くすれば円形度は向上する。300 K以上の高い過熱度で噴射すれば、300 μm程度の太い線材でも円形度の高い断面形状を得ることが可能である。ただし、噴射方向やジェット径の変動が過熱度の増大とともに顕著になり、細線長さ方向の均一性が悪化する恐れがあるので、過熱度を極端に高くしないことが望ましい。

(2) 合金液相線温度直上におけるジェットの平均冷却速度は、水中、メタノール中およびサラダ油中についてそれぞ

れ、 $0.5 \sim 2.4 \times 10^5 \text{ Ks}^{-1}$, $1.4 \sim 3.0 \times 10^4 \text{ Ks}^{-1}$, $4.7 \sim 6.5 \times 10^3 \text{ Ks}^{-1}$ であり、円形断面を有する細線を得るには、メタノールおよびサラダ油など、水より密度が小さく、冷却能力が劣る液体を使用することがきわめて効果的である。また、全液層厚さ20 mmに対して、メタノールやサラダ油などの低密度、低冷却能力液体層を液層表面に3 mm程度形成させた、2重液層中での紡糸によっても、断面形状を向上させることができる。サラダ油-メタノール-水の3重液層では、2重液層よりも断面形状を向上させることはできるが、各層の境界での動圧変動により、細線の連続性は2重液層よりもむしろ悪化する。

(3) ジェットの内圧 P_j (式(1))とジェットにかかる液層の動圧 P_f (式(2))が、 $P_j/P_f \geq 1$ の関係にあるとき円形に近い断面が得られる。しかし、水中紡糸では、 $P_j/P_f \gg 1$ であっても円形度はほとんど向上せず、円形断面を有する細線を得ることは困難である。

最後に本研究を進めるにあたり、大阪大学工学部材料開発工学科 山内 勇助教授、安田秀幸助手ならびに朱 金東助手の各氏より有益なご助言をいただいた。また、同学科 大道徹太郎技官には実験に際しご協力いただいた。記して謝意を表します。

文 献

- (1) 大中逸雄, 福迫達一, 大道徹太郎: 日本金属学会誌, **45**(1981), 751.
- (2) I. Ohnaka: *Encyclopedia of Mater. Sci. Engng.*, Sup. Vol. 1, Ed. by R. W. Chan and M. B. Bever, Pergamon Press, (1988), 584.
- (3) I. Ohnaka: *Int. J. Rapid Solidification*, **1**(1984-85), 219.
- (4) 十代田哲夫, 岡本昭二: 日本金属学会会報, **29**(1990), 370.
- (5) 萩原道明, 平見松夫, 井上明久, 増本 健: 日本金属学会会報, **31**(1992), 464.
- (6) 一柳隆治, 大中逸雄, 立岡秀久, 山内 勇: 日本金属学会誌, **50**(1986), 927.
- (7) 小野芳樹, 大中逸雄, 山内 勇: 日本金属学会誌, **51**(1987), 755.
- (8) Y. Abe, K. Miyazawa, M. Nakamura and T. Ohashi: *Trans. ISIJ*, **27**(1987), 929.
- (9) 三井朋晋: 日本金属学会会報, **26**(1987), 314.
- (10) J. Liu, L. Arnberg, N. Bäckström and S. Savage: *Mater. Sci. & Engng.*, **98**(1988), 21.
- (11) B. Heyder and G. Frommeyer: *Mater. Sci. Engng.*, **A133**(1991), 667.
- (12) 三井朋晋: 溶接技術, **39**巻, 4号, (1991), 85.
- (13) I. Ohnaka and M. Shimaoka: *Heat and Mass Transfer in Materials Processing*, Ed. by I. Tanasawa and N. Lior, Hemisphere Pub., New York, (1992), 315.
- (14) 日本機械学会: 機械工学便覧, **A5** 流体工学, 日本機械学会, (1986), 99.
- (15) 日本機械学会: 伝熱工学資料(改訂4版), 丸善, (1986), 64.
- (16) C. Weber: *Z. angew. Math. Mech.*, **11**(1931), 136.
- (17) M. Epstein and G. M. Hauser: *Int. J. Heat & Mass Transfer*, **23**(1980), 179.
- (18) R. M. Fand: *Int. J. Heat & Mass Transfer*, **8**(1965), 995.
- (19) 日本熱物性学会: 熱物性ハンドブック, 養賢堂, (1990), 448.
- (20) A. E. Schwaneke, W. L. Falke and V. R. Miller: *J. Chem. Engng. Data*, **23**(1978), 298.