鋼粉の粒度偏析の観察ならびに均質化の試み

An Observation of the Size-Segregation of Steel Powders and a Clue for Homogenizing Them

竹 内 久 祐*

Hisasuke Takeuchi

1. 緒 言

近年、熔融金属を噴霧して粉末を量産する技術が普及し、これが焼結機械部品の増産と呼応して国内外の粉末冶金の発展に貢献してきた。この噴霧作業に用いられる流体がガスの場合にとくに粒子が球形に近くなるため、粒径範囲が広い原料粉（たとえば50~250 μ m）を使用する場合には、粗粒と細粒とが分離する傾向がいちじるしい。この現象は回転容器を用いるブレンディング操作の過程でたえず進行するので、永久に均質混合物が得られないばかりか、調合粉の移しかえや運搬の間に、粒度的な偏りを一層助長させる。

粒度偏析の傾向は、水流で噴霧された粉末（不規則形状粒子）においても観察され、粒度による表面酸化膜の色調差があれば容易にむらが認められる。

いずれの種類にせよ、噴霧粉を利用する焼結材料の品質管理上無視できない現象であって、これまでの還元粉や粉碎粉にはなかった問題を提起している。さらに、一成分粉末に第二元素の粉末を添加したとき、その粒度差・形状差から生じる偏析も当然考えられる。

球状粒子の混合における分離現象についてはすでに、無機物質あるいは殻類を対象にした研究^{1)~7)}があるが、焼結用球状粉（造粒粉を含めて）については、加熱時の拡散均質化が期待されるためか、混合から最終特性へつながる変動の因果関係を追究する研究はほとんど見受けられない。おそらく、企業内の品質管理資料となるに留まり、普遍化されないのが普通であろう。本稿も局限的な内容であるが、混合状態の観察を行ない、改善策への手がかりを得たので報告する。

2. 混合粉の調製方法

2.1 偏析の実例と供試粉末

最初に素ぼくな疑問が一つある。いま、噴霧法で製粉

された1ロットの粉末が最初の容器に貯えられたとき、それは“一様な”粒度分布をもつ粉体と考えてよいであろうか。もし、たい積した粉末が斜面を形成した結果あるいは再移動した結果、すでに粒度偏析が生じているとすれば、以後の処理が難題となるばかりか、たい積物の粒度測定や偏析程度を表現する手段に苦しむ。また分級によって1バッチ全量を粒度別に分け、重量比率を知り、なんらかの根拠で粒度分布をきめたとしよう。すると、その調合にあたり、いかに均質化するかが問題となるのである。

合流——分割のくりかえしにより均質化が進むような粉体ならば、市販の混合機により処理できるが、逆に分離傾向のある粉末は混合途中でサンプリングしても、目的の分布に近づいているのか否かの判断さえしがたいのである。実例を示そう。

著者が今回用いたガス噴霧鋼粉は、50 kg 単位の製粉後の分級の結果、Table 1 の粒度別粉末より成ることが分かった。この混ざりものの一部を採り、平行ガラス板で作った扁平な容器に流しこんだ後、手で容器を支えながら左右に徐々に回転を与え、移動した粉末をガラス越しに撮影した。すると、Fig. 1 の状態（スケッチ）および Fig. 2（部分写真）のようになった。

また、Fig. 3 は、水噴霧粉末を1さじずつガラス板の間隙へ流しこみ、さじを用いた回数と同じ数の縞模様が生じた例である。かように、ガス、水の噴霧媒体

Table 1 供試球状鋼粉の粒度分布

Fraction (mesh)	Weight percent
+20	2.0
20 / 28	10.9
28 / 35	13.8
35 / 60	34.9
60 / 100	23.2
100 / 200	9.7
200 / 325	3.6
-325	1.8

昭和52年2月3日受理

* 日立金属（株）磁性材料研究所（〒360 熊谷市三ヶ尻5200）

TEL 0485-32-2211

Fig. 1 ガラス容器を左右に傾けた結果生じた粒度の偏り

Fig. 2 ガラス容器を左右に傾けた結果生じた粒度の偏り (その一部を拡大したもの)

Fig. 3 水噴霧鋼粉の流動後の偏析例

によらず偏析が起ることが分る。

さらに、実用的な粉末容器に入れた流動後の粉体内の偏析状態を調べた結果を模式的に示しておく、Fig. 4 のようである。すなわち、落下粉が円錐形にたい積したとき、微粉は中心軸に近いほど多く、粗粉は斜面の外周に集まることはよく知られた¹⁾とおりである。また、縞状に粗粒層が形成されるのは粉の流れの断続と関係があ

Fig. 4 噴霧粉末の落下流動後のたい積状況 (断面模式図)

ることが分かった。

2.2 予備混合の手段

分離現象を究明するためには、まずほぼ均質な混合物を得ておかねばならない。それには、落下後の流動が斜面で起こらぬように粉体の合流と分割を反覆すればよい理屈であるが、手作業で水平移動をさせるような手段は能率的でない。この点で Static Mixer⁹⁾(商品名)のような、回転容器によらない混合器具が好都合である。この器具は、円筒空間の中に曲面をもつエレメントを多数直列に接続したものであり、乾燥粉末を通過させる場合は筒内に充満した粉粒が重力で下降する間に分割合流がくりかえされ、均質化が進行するのである。ただし、軸方向に粉末を混合させる作用が乏しいため、供給される粉末の先頭と後尾の間に濃度変動があれば解消しないのが欠点である。

こうなると、均質化の手段は堂々めぐりに陥るのであるが、著者の実験では、試料を手作業でマクロ的に均質化し、Static Mixer を通した上で、目視で一様と判定した後偏析過程を観察するほかなかった。

3. 粒度偏析の機構

3.1 落下流動

粒度偏析の機構については三輪の考察⁹⁾が首肯されるが、本稿では前記の鋼粉についての観察記録を残したい前章でも触れたが、Fig. 5 のような平行ガラス板で作った扁平矩形容器(一例をあげれば、幅10mm、高さ140mm、長さ330mm)の中へ、漏斗を経てほぼ均質な鋼粉を流しこむ。すると Fig. 4 に示したような粗粒の偏在が顕著に生ずるが、この流動の過程をみると、

- (1) 斜面の長さ方向にみられる分離すなわち、粒径で異なる安息角または粒子運動量に支配される現象
- (2) 斜面と直角の方向に起こる分離、すなわち、粒径差のため運動中に微粒がより粗な粒の間をすり

Fig. 5 偏析観察用ガラス容器

ぬけて下降する現象

の組合せが観測される。いずれの場合も、粒子間の摩擦が比較的小さくて流動性が良すぎることが現象の根底をなすと思われた。(2)の場合には、斜面を流れた粉体層の最表面を粗粒が占めた状態で停止している。そして、あらたな粉流を冠るときは既存の粒子の凹凸の間に微細粒ほど捉えられやすい。粉末を休みなく落下させて斜面が静止しないようにすることは、この矩形容器内では可能であるが、実際の円錐形のたい積物では全斜面中の一部分で扇形に流動が進み、したがって縦断面をとれば停止部分に対応する縞が存在するのである。

さらに矩形容器を用い、平行ガラス板の間にある粉末を一方方向にのみ流動させ、容器を数回回転させてみると非常に長い斜面をつかったのと同様に、粗粒の密集部が一層強調され、Fig. 1 に似た三角地帯が何個か形成される。本実験における鋼粉、安息角は $23^{\circ} \sim 27^{\circ}$ であるが、粒度によって異なり、粗粒ほど小さいので粗粒が斜面を遠方へころがることが分かる。

3.2 振動にともなう分離現象

流動というより振動の結果としてしばしば経験され、パーコレーションと呼ばれる現象がある。この細粒のすりぬけ現象も本容器を用いて観察される。前述のガラス容器に蓋をして水平にねかし、手でゆすねばたちまち細粒が片側（下面）に移動する。このことは定性的にはすぐ了解されるが、振動の諸元、粉体の高さなどの関係は佐納⁶⁾らの論文にくわしい。

4. 均質化の一方法

4.1 磁性粉末の流動性におよぼす磁場の影響

現在、噴霧法の対象はおもに鉄鋼粉であり、これは強

Fig. 6 磁化コイルを有する流動計

磁性でもある。そこで、最終用途特性とは無関係な磁性を偏析防止に役立たせるべく、磁化と流動性との関係を調べることにした。磁場によって鋼粉の粒子間に吸引・凝集が起これると予想したからである。

金属粉末の試験に常用される粉末流量計は、JIS Z 2502 に示してあるが、そのオリフィス（径2.6mm）のままでは磁化した粉末で閉塞が起こりやすい。著者はFig. 6 のような、口径 5.2 mm のガラス製流動計を作り、オリフィスを囲んで磁化コイルを取りつけた。コイル電流（DC 約 2A まで）を加減し、0.1Aにつき8 G の磁場を下降中の粉末に印加するようにした。

次に Table 2 に示す代表的な磁性合金粉を選び、それぞれの流動度（sec/500 g）を測定した。無磁化状態から磁化により粉体の通過が不能となるまでコイル電流：流動度の関係を求めた。高透磁率材料ほど流動度は磁場に影響され、また残留磁気の大い鋼粉ほど、磁界を去っても吸引力が保持されることが分かった。

Fig. 7~10 はそれらの変化の様子を示したものである。無磁化の場合の流動度（秒数）を 1.0 とすると、これに対する相対流動度 f は漸増し 1.05~1.25 の間から急に ∞ （すなわち閉塞状態）に変わる場合が多かった。

Table 2 強磁性成分を有する供試粉末

No.	Kind of powder	Particle-size (mesh)
1	Pure iron (Electrolytic, crushed)	100
2	〃 〃 (Gas-atomized)	20
3	Fe-46%Co alloy (〃)	14
4	Reduced iron, 3% Cu, 2% C (Mixing of elements)	100
5	High carbon alloy steel (Gas-atomized)	20

Fig. 7 Fe 粉および Fe-Co 合金粉の磁場中における流動度

Fig. 8 Fe-Cu-C 混合粉の磁場中における流動度

f が 2 ないし 3 まで増加しながらなお流動が続く粉末もあり (Fig. 8), それは流動性のよい細粉にみられた。また、微粉を造粒したものや、非磁性物質を添加した粉末は流動度の変化が小さい。

鉄粉のような軟磁性材料粉末は、磁化電流を減少させたとき、可逆的に流動度が元へ戻る (Fig. 7)。というこ

Fig. 9 硬質磁性合金粉の磁場中における流動度の一例

Fig. 10 流動度測定回数による相対流動度の変化

Fig. 11 磁化処理を経た鋼粉の流動後の外観 (Fig. 3 と同一粉末)

とは、オリフィスを通してたい積したとき斜面形成のため偏析が生ずることである。一方、高炭素鋼粉では製粉時の条件により硬質となり、磁化後は不可逆的に流動度が初期値に近づく。別に 1000 G 程度の磁場に一度入れた粉は高い、残留磁気をもっており落下後も粘着し、簡

単には偏析しなくなる。それでも、高炭素鋼粉の落下中に減磁作用が働き、流動度測定自体が落下運動であるから f の低下をもたらす。Fig. 10はその過程を示したもので、 f 1.20 から始まって15回測定後に f は 1.05となり、それ以後たい積粉に粒度偏析が現われていた。再度磁化すれば f はまた高い値に移る。

次に、実際作業において、適度に帯磁させた粉末をかくはんすることにより均質化が可能になった。たとえば円筒形回転容器を非磁性材料で作し、粉末ごと磁界において混合する方法、あるいはその容器外側に永久磁石を貼着け不均一な磁界とはなるがその中でかくはんする方法である。もちろん、磁場の強さは対象粉末に応じて選ぶ必要がある。混合後の状態の一例を Fig.11 に示す。Fig. 3 に比べ明らかに改善されている。（ガラス容器は弱磁界内。Fig. 9 の結果を利用。）ガスアトマイズ粉でも粒度分布は一樣で、安息角は約 1° 増加していた。

なお、実際にプレス成形に移すまでに粒子の再分離が起こらないよう、磁界内での移送、型への給粉など補助的な操作が必要となるが、本稿では説明を省く。

4.2 最密充てんへの応用

球状粒の分離を防ぎつつブレンディングを完了させることができれば、こんどは、所定の粒径比の粗粉と細粉とを完全混合させることも可能になる。したがって、最密充てんを実現することもできる。著者は Furnas の理論¹⁰⁾に準じ、大中小の球形鋼粉 (420~590 μm , 74~104 μm および <44 μm) をフルイで得ておき、これらを 68 : 26 : 6 の比に混合し、前記帯磁混合法により均質化することができた。Fig. 12 はガラス壁内側におけるその分布の様子を示す。

この混合粉をカプセルに充てんし、次に熱間静水圧焼結法にて、高圧アルゴン中1100℃加熱して圧密化した。この密度 99.9% 以上の緻密焼結体となった試料を切断、研磨して調べた結果、Fig. 13 に示すように所期のとおりの均質混合組織が得られ、原粒子の分布をその

Fig. 12 最密充てん配合による球状粒の混合状況

Fig. 13 3成分混合による最密充てん粉末の熱間静水圧焼結体の断面組織

まま受継いだものであった。

なお、この実験に用いた原料粒子の充てん率は、粗粉細粉とも単独で 61.7~62.5%であり、配合後は Furnas の理論値に近く75%に達しており密充てんの実現が証明された。もし、このような粉粒を単純にかくはんしたのでは、粗細粒の分離が生じ、密充てんの部分はごく少なくなってしまうであろう。

5. 考 察

混合過程をモデルにより推論する立場と異なり、現実の生産工程の中で粒度偏析が起こっている状態を数値で表現するとすれば、「粒度分布の分布」を粉体の多数個所について求めることになる。これが実行困難であることはいうまでもなく、著者も前掲写真のような視覚判定によるほかはなかった。写真を利用して自動粒度測定を行ない分布を求めることは可能ではあるが、工業上の意義から考えると、粒度むらが最終製品の特性変動まで尾をひいてゆく因果関係を追究した上でないと、許容範囲もきめられず、また、むらの解消への目標も立てかねる。

古くからある粉体では、現場実験により特性上必要かつ十分な混合時間を一度きめてしまえばそれ以上の器具条件変更はあまり行なわれなかった。しかし、噴霧粉ではそうはいかないようである。分離性の粉末については、目視ながら均質化可能の方案を使い、限度見本的な考え方をを用いて前進していくほかはない。

粒度偏析に関連のふかい現象として成分偏析の問題がある。とくに、鉄粉に炭素粉を加えるとき、これらが粗粒と細粒の關係に相当し、分離を起こしやすい。この場合も、混合時間の経過とともに濃度値の分散が小さくなるような方法さえ見いだされれば混合技術は大きく進歩すると思われる。

ここで、二成分の分離する傾向は、化学分析や放射化分析（トレーサ法）で証明できるが、ミクロ的な意味での均質度は確認し難い。著者は Fe, C などの混合粉の圧粉体を X 線マイクロアナリシスで偏在を追求したことがあったが、電子ビームがミクロ的すぎる濃度変化を表すため実用的ではなかった。すなわち、計測技術上、化学分析との間にギャップがあるのである。

ともあれ、濃度値の収れんが進む混合技術が樹立されれば、品質安定化への足がかりとなるはずで、本研究の方法は非磁性物質を含む磁性粉体の完全混合にも十分効果があつた。

さて、分離状態を解析した結果、偏析を防止するには摩擦力に關係の深い性質（流動度、安息角など）に注目し、流動性を殺すのが有効な手段と考えた。この流動度とは、運動する粒子間の摩擦力の大小が別の計測量で表われたものと考えることができる。

流動度の磁場による変化が報告された文献は見当たらない。通常、細孔の通過時間／重量の値で流動性の良否が表わされるが、鉄鋼粉の場合粒形状によって大きく変わるものなので、粉量や口径を変えたとき、通過秒数の絶対値にあまり意味はない。そこで流動度の変化率を求めると、鉄鋼の 100~1000 μ の粗粒に関しては 30~80 Gauss 程度の直流磁場で 1 から 1.05 倍程度に増加するが、この間に粒子の吸引や粘着が目視で認められるようになる。さらに磁化が進めば、流動度が ∞ すなわちオリフィス内に閉塞してしまうが、この状態でもかくはんは可能である。流動性を失った粉末でもミルかくはんが容易に

行なえることは、セラミック粉をはじめとし日常よく経験するところである。したがって流動度 ∞ の状態（例 100 G）でかくはんは可能であり、さらに 400~700 Gauss 程度の磁界をボールミルの容器内に生じさせたとき、一般に鋼粉は磁化され固結するが、球状の粗粒はそれでも半融の氷粒のような感触でかきまぜることができる。

6. 結 論

おもに鉄鋼の噴霧粉について、流動のさい生じやすい粒度偏析に注目し、その生成過程を観察した。つぎに、コイル付流動計を作り、粉体の流動性低下の傾向を磁化電流に対して求め、流動時間／重量の値を基本尺度とした。結果を略記すると以下のようである。

- (1) 球状粒が主である噴霧粉が落下後形成する斜面において、粗粒ほど遠方へ進むための偏析と、斜面に直角に細粒が粗粒間をくぐる分離とが生じる。
- (2) 粉末の流動が断続すると、停止回数に応じて粗粒の層が残留する。
- (3) 以上の偏析状態と比較しつつ、粉末の流動度を変化させる処理を行ない、強磁性体粉末について均質混合を行なうことができた。
  - (a) 軟質の磁性材料粉について、磁化コイルの電流増加による粉末の流動度 (sec/kg) の増加を測定し、分離を阻止し混合させる条件を見いだした。
  - (b) Furnas の原理による最密充てんの配合に本手法を適用し、均質かつ高充てん率 (75%) の球粒鋼粉を得、焼結組織について均質性を確めた。

本研究に御教示御援助いただいた日立金属(株)磁性材料研究所宮崎健副所長、福井正彦研究員、佐藤隆善氏、大野須美江氏に深謝する。

引 用 文 献

- 1) 三輪茂雄：粉体工学研究会資料，No. 26, 1 (1960)
- 2) 川北公夫，津々見雄文，池田千尋：法政大学工学部研究集録，No. 6, 1 (1969)
- 3) Van Denburg, J.F. and W. C. Bauer : Chemical Engineering, Sept. 28, 135 (1964)
- 4) Williams, J. C. and M.I. Kahn : Chemical Engineer, 19 (Jan. 1973)
- 5) Lawrence, L.R. and J.K. Beddow : Powder Technology, 2, 253 (1968/69)
- 6) 佐納良樹，宮田清己，勝俣春美：材料，19, No.201, 80, 570 (1970)
- 7) 山口賢治：化学工学，33, 314 (1969)
- 8) 大島栄次，山見英雄（訳）：スタティック・ミキシング・ハンドブック（1973）原著：Chan, S. J., Devellian, R.C., et al. : Static Mixing Handbook (1973)
- 9) 三輪茂雄：粉粒体工学，225 (1972) 朝倉
- 10) Dalla Valle, J.M. : Micromeritics, 123 (1943)

Author's Abstract

An Observation of the Size-Segregation of Steel Powders and a Clue for Homogenizing Them

by

Hisasuke TAKEUCHI

(Magnetic & Electronic Materials Research Laboratory, Hitachi Metals, Ltd.)

Atomized steel powders, especially those with spherical particles, are liable to size-segregation on flowing. For this reason the separation phenomenon between coarse and fine particles was investigated.

In order to prevent the segregation, a study was made on the flow behaviour of several magnetized powders dropped through a solenoid coil, and the flow rate (in seconds per kilogram) was proved to be increased appreciably with the coil current applied. Several test powders having wide range particle-size could be blended uniformly by magnetization, without lumping up, to such a degree that their flow rates reached 1.05 times those not magnetized.

This new blending technique was applied to obtaining the perfect mixtures of industrial steel powders, enabling close packing. This was confirmed by the observation of the microstructures of the isostatically hot pressed specimens.

List of Figures and Tables

Fig. 1 Schematic representation of spherical steel particles poured into a flat glass vessel

Line (1) shows the slope position just after the powder has fallen; line (2) is that after rotating the vessel; line (3) shows the final surface after reversing

Fig. 2 Appearance of powder in the rectangle of Fig. 1

Fig. 3 An example of size-segregation appearing in a heap of water-atomized steel powder after flowing (The coarser particles are blacker)

Fig. 4 Schema of size-segregation found on an atomized powder heap

Fig. 5 Glass vessel for examining powder segregation

Fig. 6 A flowmeter assembled with a solenoid coil

Fig. 7 Powder flow rate in magnetic fields

(a) Iron powder

(b) Iron-cobalt alloy powder

Fig. 8 Flow rate of iron-copper-carbon mixture depending on magnetizing current

Fig. 9 An example of flow rate of hard magnetic steel powder varying with coil current

Fig. 10 Relative flow rate vs. number of measurements on a hard magnetic steel powder

Fig. 11 Appearance of the water-atomized steel powder as shown in Photo. 2, but prevented from segregation by the treatment described in 4.1.

Fig. 12 Appearance of a closely packed uniform mixture made from three components

Fig. 13 Microstructure of the isostatically-hot-pressed steel, made from a uniform mixture of spherical particles of three sizes

Table 1 Sieve analysis of steel powder used

Table 2 Tested powders