論 文

CIP 充填体のコンピュータ・シミュレーション

浜田 美明^{*†}・石崎 幸三・ホセ ブリセニョ^{**}

(長岡技術科学大学機械系材料設計大講座, 940-21 長岡市上富岡町 1603-1)
^{*}長岡技術科学大学大学院, 940-21 長岡市上富岡町 1603-1
^{**}(株)リクルート

Computer Simulation of CIP Densified Bodies

Yoshiaki HAMADA^{*†}, Kozo ISHIZAKI and José BRICEÑO^{**}

(Department of Materials Science and Engineering, School of Mechanical Engineering,
 Nagaoka University of Technology, Kamitomioka-cho, Nagaoka-shi 940-21
^{*} Graduate Student, Nagaoka University of Technology, Kamitomioka-cho, Nagaoka-shi 940-21
^{**} Recruit Co., Ltd.)

A computer simulation of a Cold Isostatic Press (CIP) densified bodies was carried out to estimate the initial relative density and the coordination number which are important factors to elaborate HIP maps. First, the mean coordination number and the packing fraction of CIPped bodies were calculated.

Secondly, these values were compared to those of other simulations for unidirectional packing model. Two assumptions were used to simulate CIPped bodies. They were (a) all particles were rigid spheres of the same size, and (b) they were moved initially toward the center to contact three other particles.

The results were as follows :

(1) *The relative density and the mean coordination number of simulated CIPped bodies are 0.56 and 6.5, respectively.*

The coordination number is higher than the value obtained for an unidirectional packing model.

(2) *The present model gives a reasonable relative density and coordination number for a CIPped body.*

(3) *The relative density and the mean coordination number of simulated CIPped bodies give good agreement with the initial state used in the HIP maps.*

[Received January 30, 1989 ; Accepted January 25, 1990]

Key-words : CIP, HIP map, Relative density, Coordination number, Computer simulation, Particle packing

1. 緒 言

粉体を充填して求められる相対密度と配位数の関係については、種々の知見がある。例えば Scott らは、鋼球を円筒容器に詰め込んで充填体を作製し、得られた相対密度、配位数について評価している^{1)~3)}。またコンピュータの発達に伴い、コンピュータ・シミュレーションによる相対密度、配位数の評価についても報告されている^{4), 5)}。

充填した粉体を焼結させる方法として Hot Isostatic Press (HIP) 焼結があるが、HIP 焼結は異方性のない均質材料を得る有力な手段として多方面で利用されている。HIP 焼結過程の理論的考察としては HIP マップがあり、固相焼結の理論的考察としては Ashby らの HIP マップ^{6), 7)}、液相焼結の理論的考察としては田中、石崎の HIP マップがある⁸⁾。Ashby らは焼結初期において

の相対密度、配位数を Scott のモデル実験値を参考に、粒子はちょうど密無秩序充填状態に詰め込まれているという仮定¹⁾のもとに設定し、解析している^{6), 7)}。

HIP 焼結の初期過程では、粉体には等方圧がかかっており、粉体は等方的に充填されるものと考えられる。しかし、これまで得られた相対密度と配位数の関係は、そのほとんどが一軸方向に充填する重力充填体を作製して評価している。また Scott のモデル実験値^{1), 2)}も一軸方向に鋼球を充填して求められており、基本的には一軸充填と考えられ、成形体の相対密度が HIP マップの結果に非常に敏感であるにもかかわらず、HIP 焼結の初期充填として十分理解された数値を使っていない。そこで本研究では、HIP 焼結と同じ等方充填機構を持つ Cold Isostatic Press (CIP) 成形について着目し、単一球を等方的に充填して等方圧充填体を作製し、得られた結果を一軸(重力)充填体と比較した。また HIP 焼結の初期充填として充填体内部での相対密度と配位数について評価し、HIP マップの初期条件値への応用を考

[†] 現住所：日清製粉(株)生産技術研究所粉体研究室, 354 埼玉県入間郡大井町鶴ヶ岡 5-3-1

Present Address : Nisshin Flour Milling Co., Ltd., 5-3-1, Tsurugaoka, Oi-machi, Iruma-gun, Saitama 354

えた。

2. 計算方法

等方加圧による密化は次のように考えた。粒子は変形不可能な剛体であり、CIP 圧力による粒子の変形はないものとする。等方加圧による粒子の配列変化をモンテ・カルロ法を用いて再現し、加圧による配列変化により密化が進行するものと仮定している。

充填体を構成する各粒子は、乱数を用いてランダムに空間に配置される。空間に配置された各粒子は粒子群の中央に位置する点を原点として、原点方向に1粒子ずつ移動する(図1(a))。移動した粒子Aは最初の粒子Bに接触し(図1(b))、その後接触粒子周りに任意の方向に転がり、2番目の粒子Cに接触するまで転がる(図1(c))。そしてこの二つの接触粒子B、Cとの接触状態を保ちながら、接触粒子B、Cの中心を結ぶ直線に垂直な面に沿って転がり、3番目の粒子Dに接触するまで転がってB、C、Dの各粒子と接触する(図1(d))。このようにすべての粒子を最初に他の三つの粒子と接触する位置に配置した。この過程を1粒子ずつ繰り返して行うことにより、多粒子のCIP 充填体をシミュレートしている。

シミュレートされた充填体の相対密度の計算は、充填体を形成する各粒子を充填体の中心から近い順に順番付けし、充填体の中心から充填体を構成する任意の粒子の中心までの距離を半径とする大きな球を仮定したときに、この球の体積とその内側に中心を持つすべての粒子

が占める体積の比で表されている。

なお、この計算はFortranを用い、東京大学大型計算機センター HITAC M-682 H を使用して行った。

3. 結果及び考察

3.1 実際の CIP 成形における相対密度

本研究では、粒子は剛体球を仮定しているので、シミュレートする粉体として、塑性変形の非常に少ない Si_3N_4 や SiC 等のセラミックスが考えられる。CIP 成形をHIPの前処理として考えた場合、いかにして均質な充填体を得るかが重要となる。その尺度として相対密度がある。著者らは構造用セラミックスである Si_3N_4 をCIP 成形し、実際に相対密度を測定した。印加圧力は2000, 4000, 6000 気圧に分けて求めた。その結果印加圧力が2000 気圧での相対密度は0.50, 6000 気圧では0.55であり、圧力による相対密度の変化はそれほど大きくないことが確認された。

3.2 等方圧充填体内部での相対密度と配位数の関係

粒子数2600個でシミュレートした場合の、充填体内部での相対密度と配位数の関係を図2に示す。横軸には充填体の中心から各粒子の中心までの距離が短いものから順に粒子に番号を付け、その個数を基準として取っている。縦軸にそれぞれ相対密度、平均配位数を取っている。

この図から次のことがわかった。相対密度は充填体の中心部近傍でちょう密無秩序充填状態(相対密度0.64)に近い値を示しており、相対密度は充填体の内側から外側に向かうにつれて、徐々に下がっていく。減少の傾きは徐々に小さくなっていき、充填体の中心からのある位置でほぼ一定の値を示すようになる。また平均配位数も充填体の内側から外側に向かうにつれて徐々に下がり、ある位置でほぼ一定の値を示す。

このように本モデルでは、充填体の内側では密で外側に向かうにつれて疎になる充填体を形成した。これは本

Fig. 1. Movement of a particle. (a) Transfer of a particle (Particle A) toward the center, (b) First contact with the particle B, (c) Second contact with both particles B and C, (d) Third contact with three particles B, C and D.

Fig. 2. Relationship between the relative density and the mean coordination no. in the simulated body. ○: Relative density, △: Mean coordination no.

モデルで採用した充填の方法が、等方圧の効果を出すために粒子を一点に対して集めたことによる。実際の等方充填の効果を出すためには、充填体表面に位置する粒子に作用する圧力についてシミュレートすべきであるが、本モデルでは計算機的能力上一点に対して粒子を移動させる手法を取った。実際の CIP 成形体においては、表面が密で内側が疎になる充填体を形成すると考えられ、内部で充填状態が一定ではなく、徐々に変化しているものと思われる。本結果ではシミュレートされた充填体の内側が CIP 成形体の表面部に対応し、表面部が CIP 成形体の中心付近に対応すると考えられる。しかし結果として得られる相対密度、平均配位数がほぼ一定になる部分を使うかぎり充填体内部での相対密度の分布の影響は避けられ、等方圧充填体としての取り扱いが可能と考えられる。

3.3 単一球の充填に関する他報告との比較

図 3 に単一球の充填に関する種々の報告について示している。図の▲と△は鋼球を円筒容器に充填して接触状態に配置した Scott のモデル実験値を示す。▲は円筒容器に鋼球を充填して得られた△の充填体に、更に円筒容器に振動を与えてもっと密な充填体を得たもので、そのときの相対密度は 0.64、配位数は 6.4 となっている。これが Close packing 状態であり、容器に振動を与えない疎な充填△が Loose packing 状態である。このときの相対密度は 0.60、配位数 5.5 となっている¹⁾。またコンピュータ・シミュレーションにより単一球を一軸方向に充填して求められた重力充填体の代表的な値は●であり、相対密度 0.58、配位数 6.0 が得られている^{4), 5)}。

これらの値と比較して本研究結果(□印)では、相対密度 0.56 のときに配位数 6.5 が得られた。つまり等方的に充填したモデルにおいては、重力(一軸)充填体に比べ、相対密度が低いわりに高い配位数が得られるとい

Fig. 3. Comparison of results on relative density and coordination no. in various packing methods of same sized spheres. □: Present work, ●: Computer model of a gravitational force,^{4), 5)} △: Scott (loose packing),²⁾ ▲: Scott (close packing),¹⁾ ○: Value of the HIP map used by Ashby et al.⁷⁾

うことがわかる。Ashby らの HIP マップにおいて初期の相対密度、配位数は Scott のモデル実験値¹⁾を基に相対密度 0.64、配位数 7.3 が仮定されている⁶⁾。これは○で示されている。この配位数 7.3 は Scott の累積半径分布関数²⁾を参考に、その後の Arzt の解析により設定されたものである⁹⁾。

3.4 累積半径分布関数

各粒子周りにおける他粒子の近接状態を見るのに、累積半径分布関数がある。これは図 4 に示すように単一球の半径を R としたときに、球の中心からの距離 r を徐々に増加させていき、その距離 r の内側に中心を持つ近接粒子の数 $G(r)$ を示している。Arzt は HIP マップの初期配位数を 7.3 と設定している⁹⁾が、これは次に示す累積半径分布関数(図 5(a))から、解析的に求められたものである。図 5(a) は Scott のモデル実験値の累積半径分布関数²⁾と本研究値について比較している。横軸に距離 r を球の直径 $2R$ を基準として取っており、縦軸に近接粒子の数 $G(r)$ を取っている。図 5(b) には $r=2R$ の近傍においての拡大図を示している。

最初に Scott の値について考察してみる。球の中心から十分遠い点での相対密度 D は近似的に、

$$D = G(r) / (4/3)\pi R^3 / (4/3)\pi r^3 \quad (1)$$

で求められるが、このとき相対密度 D がちょう密無秩序充填 ($D=0.64$) であると仮定すると、近接粒子の数は図 5(a) 中の式

$$G(r) = 0.64(r/R)^3 \quad (2)$$

式で表される。Arzt はここで Scott の値²⁾が横軸が 1 の近傍では (7) 式からずれていることに着目し、この付近では

$$G(r) = 7.3 + 15.5(r/2R - 1) \quad (3)$$

式で表した⁹⁾。これから $r=2R$ の点での接触粒子の数 7.3 が得られた。本研究では図 2 に示されるように、ちょう密無秩序充填状態より低い値を取っているの、Scott の値に比べて近接粒子の数も低い傾向を示している。しかしここで注目すべきは、図 5(b) に示されるように、等方圧充填体では $r=2R$ の点において Scott の

Fig. 4. The packing model of particles. R is the radius of a particle and r is the distance from the center.

Fig. 5. (a) Radial distribution function $G(r)$ as a function of $r/2R$. $\circ$: Calculated value by the present work, $\square$: Experimental value by Scott.¹⁾ The dashed and dotted line indicates Eq. (2) and the dashed line indicates Eq. (3). The region of small $r (< 3R)$ is shown in (b).

値²⁾より接触粒子の数が多く (配位数が高い), HIP ち密化過程を理論的に解析するために用いられた Arzt の値 7.3⁹⁾に近いという点である。Arzt は $Z=7.3$ を仮定し, 焼結途中における密度の解析的な算出を試みている⁹⁾が, 実際に CIP 成形体では, 圧力を加えて粒子を固めるため粒子の移動が起こり, 重力充填体よりも配位数は上がるはずである。すなわち充填体を形成する各粒子に近接 (接触) する粒子の数は増す。このことから $r=2R$ の点における接触粒子の数は Scott の値よりも高いことが考えられ, 等方圧充填体の配位数は高くなる。

3.5 固相焼結 HIP モデルのなかでの相対密度と配位数の関係

Helle は, 相対密度 D と配位数 Z の関係を以下の簡単な式で近似した⁷⁾。

$$Z=12D \quad (4)$$

この式は 3 次元で単一球が最ちょう密状態になったと

Fig. 6. Relationship between the coordination no. and the relative density. The line represents $Z=12D$. The open circle corresponds to the values of the present work. Experimental data by Scott et al. and the value used in the HIP map by Ashby et al. ($D_0=0.64$) are also indicated. The dashed line indicates the value used in the HIP map by Itakura et al. ($D_0=0.56$).

き, 配位数は 12 となるが, この最ちょう密状態において, 相対密度 D が 1 になることを表している。本モデルの仮定に従うと, 最密充填の時の相対密度は $D=0.74$ となるべきであるが, Helle は $D=1$ のときに $Z=12$ となると仮定した。

図 6 に本研究により得られた充填体の相対密度, 平均配位数と, Helle の近似式⁷⁾との関係について示す。横軸に相対密度, 縦軸に平均配位数をそれぞれ取っている。

この図から本研究により得られた充填体内部での相対密度と配位数の関係は, Helle の近似式⁷⁾にはほぼ一致していることがわかる。この近似式において, ちょう密無秩序充填状態 $D=0.64$ では $Z=7.7$ であり, 固相焼結の HIP マップにおける Arzt の仮定 $Z=7.3$ ⁹⁾に近い値を示す。また $D=0.56$ のときに $Z=6.7$ であり, 本研究値 $D=0.56$ で $Z=6.5$ に近い値を示している。同様に Scott のモデル実験値¹⁾と等方的に充填した本研究値との比較によると, 同じ相対密度でも Scott の値は平均配位数が低くなり³⁾, Helle の近似式⁷⁾から大きくずれることがわかる。

Ashby 理論におけるち密化速度式は, 相対密度 D が $D < 0.9$ の場合には以下の式で表される⁶⁾。

初期段階 ($D < 0.9$)

$$\dot{D} = \frac{43(1-D_0)^2(\delta D_b + \rho D_v)}{(D-D_0)^2(kTR^3)} \Omega P \quad (5)$$

$\dot{D}$ はち密化速度 (s^{-1}), D_0 は成形体の相対密度, δ は粒界の幅 (m), D_b は粒界拡散係数 (m^2s^{-1}), ρ はネックの曲率半径 (m), D_v は体積拡散係数 (m^2s^{-1}), k はボルツマン定数, T は絶対温度 (K), R は粒子の半径

(m), Ω は原子の体積 (m^3), P は印加圧力 (MPa) について示している. この式から D_0 の値が圧密加速度へ及ぼす影響が推察される.

Ashby 理論における成形体の相対密度は $D_0=0.64$ (ちょう密無秩序充填状態) が設定されている⁷⁾. しかしこれは対象とする成形体に関する理論的な根拠があるわけではなく, 充填に関してこれまで得られた一般的な知見から仮定されたものである.

実際に塑性変形の非常に少ない粉体を充填した場合, これよりも低い相対密度を示すことが考えられ, これは本研究においても Si_3N_4 の CIP 成形体の実測値から確認されている. このとき印加圧力を 6000 気圧程度まで上げて, 相対密度は 0.55 であった. 塑性変形の非常に少ない Al_2O_3 を HIP 焼結して求められた板倉らの HIP マップ¹⁰⁾では, 図 6 中の破線で示したように, $D_0=0.56$ を仮定している. この値は金型を用いて一軸方向に成形した試料を CIP 成形したものの実測値であり, 塑性変形の非常に少ない粉体を仮定した本モデルの相対密度 0.56 (図 2) と一致した.

これらのことから等方的に充填した CIP 充填体モデルでは, HIP 処理初期における等方加圧状態を模倣しており, 塑性変形のほとんどない粉体を対象とした場合の HIP マップの初期値として適当であると考えられる.

4. 結 言

モンテカルロ法を用いたコンピュータ・シミュレーションにより等方圧充填体を作製し, 充填体内部での相対密度と配位数について調べた. またその値を固相焼結の HIP マップへ応用することを考えた. その結果, 以

下の結論を得た.

(1) CIP 充填においては重力 (一軸) 充填体に対して, 同じ相対密度でも平均配位数が高くなる. 相対密度 0.56 のときに配位数 6.5 であった.

(2) 本研究で得られたシミュレーション・モデルは, 実際の CIP 成形体の相対密度, 配位数として適当である.

(3) 種々の HIP マップにおける初期条件との比較の結果, 本研究で得られた CIP 成形体の相対密度は, Al_2O_3 の HIP マップに用いられている CIP 成形体の相対密度 $D_0=0.56$ によく一致し, 塑性変形の非常に少ない粉体を仮定した場合の HIP マップの初期条件として与えられる相対密度, 配位数として適当であると考えられる.

文 献

- 1) G. D. Scott and D. M. Kilgour, *Br. J. Phys. D*, **6**, 863-66 (1969).
- 2) G. D. Scott, *Nature*, **194**, 956-57 (1962).
- 3) G. Mason, *Nature*, **217**, 733-35 (1968).
- 4) J. Rodriguez, C. H. Allibert and J. M. Chalx, *Powder Technol.*, **47**, 25-33 (1986).
- 5) M. J. Powell, *Powder Technol.*, **26**, 221-22 (1980).
- 6) E. Arzt, M. F. Ashby and K. E. Easterling, *Met. Trans.*, **14a**, 211-21 (1983).
- 7) A. S. Helle, K. E. Easterling and M. F. Ashby, *Acta Met.*, **33**, 2163-74 (1985).
- 8) 田中紘一, 石崎幸三, 「液相焼結における HIP 機構図——窒化ケイ素の焼結——」, 「新素材焼結——HIP 焼結の基礎と応用——」, 石崎幸三, 田中紘一編, 内田老鶴圃, (1987), pp. 7-38.
- 9) E. Arzt, *Acta Met.*, **30**, 1883-90 (1982).
- 10) 板倉一久, 内田 希, 植松敬三, 斉藤勝一, 宮本 明, 宮下恒雄, セラミックス論文誌, **96**, 574-78 (1988).