研 究

湿式造粒処理を施したアルミニウム合金粉末の圧密化挙動解析

近藤 勝義^{☆1}, 武田 義信^{☆1}, 渡辺 龍三^{☆2}, 橋本 等^{☆3}

^{☆1}住友電気工業(株), 〒 664-0016 伊丹市昆陽北 1-1-1. ^{☆2}東北大学大学院工学研究科材料加工プロセス学科, 〒 980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉. ^{☆3}東北工業技術研究所, 〒 983-8551 仙台市宮城野区若竹 4-2-1.

Analysis of Compaction Behavior of Wet Granulated Aluminum Alloy Powder

Katsuyoshi Kondoh^{☆1}, Yoshinobu Takeda^{☆1}, Ryuzo Watanabe^{☆2} and Hitoshi Hashimoto^{☆3}

^{☆1}Sumitomo Electric Industries Ltd., 1-1-1 Koya-kita, Itami 664-0016. ^{☆2}Dept. Materials Processing, Graduate School of Eng., Tohoku University, Aoba-ku, Sendai 980-8579. ^{☆3}Tohoku National Industrial Research Institute, Materials Engineering Division, Materials System Section, 4-2-1, Wakatake, Miyagino-ku, Sendai 983-8551.

Received December 14, 1998

SYNOPSIS

Compaction behaviors of wet granulated aluminum powder were examined by uni-axial die compaction and effects of rearrangement and plastic deformation on them were analyzed by using Cooper-Eaton equation. Based on calculation results and structure/morphology of granulated powder, new compaction model for granulated powder, which consists of three compaction mechanisms; macro-rearrangement, micro-rearrangement and plastic deformation, and modified equation were proposed in this study. It indicated that a macro-rearrangement was a dominant factor on compaction behavior of granulated powder and the modified equation was adaptive enough to analyze compaction behavior.

KEY WORDS

PVA binder, Granulated powder, Flow ability, Apparent density, Compaction behavior, Cooper-Eaton equation, Macro-rearrangement, Micro-rearrangement, Plastic deformation

1 緒 言

微細な急冷凝固組織を有する焼結アルミニウム合金は溶製合金に比べて優れた機械的特性および耐摩耗性を発現することから小型軽量化が望まれる自動車用部品への実用化が検討されている¹⁾。また焼結材の部品化に際して、粉末成形体における密度分布の均一化は機械的特性の向上のみならず焼結体の高寸法精度化の観点からも重要な課題である。一方、アルミニウム合金粉末は鉄系粉末に比べて低比重・微細粒径・異形状などの理由によって難流動性・難充填性を示すため、高寸法精度の成形体を得ることが困難である。これに対して、著者らは前報²⁾でPVAバインダーを用いた湿式造粒法によりアルミニウム合金粉末の流動性を改善することで成形体の寸法ばらつきを低減できることを明らかにした。しかしながら、このような造粒粉末を用いた成形体における密度分布の均一化においては、造粒粉末の圧縮機構を正確に把握し、圧縮特性を制御する因子を明らかにする必要がある。これまでに橋本・渡辺ら³⁾は鉄系粉末の圧密化挙動を明らかにするため、粉末の圧縮成形過程が粒子の再配列・塑性変形・破砕など幾つかのプロセスから成り、それぞれの確率過程論に基づいて指

数関数として定式化されたとしたCooper-Eaton⁴⁾の圧縮式を用いて解析を行なっている。

そこで本報では、湿式造粒アルミニウム合金粉末の圧密化挙動を解析することを目的に、その粉体特性に基づいて造粒粉末の圧密化モデルとCooper-Eaton圧縮式を基調とした修正式を提案し、これを用いて造粒粉末の圧密化機構に及ぼす粉体特性の影響について検討した。

2 実験方法

2.1 造粒アルミニウム合金粉末の特性

ここでは、前報と同様に転動式造粒装置により平均粒子径47 μ mのアルミニウム合金粉末(公称組成; Al-12Si-2Ni-1Mg/mass%)をPVA(Polyvinyl Alcohol)水溶液を用いて湿式造粒処理したものを試料粉末とした。Table 1に造粒工程で用いたPVAバインダーの濃度および原料粉末1kgに対する添加質量および造粒粉末中のPVA質量分率を示す。またTable 2に各粉末の粉体特性を示す。

2.2 粉末の圧縮成形方法

圧粉成形過程における粉末の圧密化挙動の圧力依存性を評

Table 1 Conditions of PVA binder used in wet granulation.

Sample No.	Concentration of PVA binder (%)	Amount of PVA binder (mass%)	PVA mass fraction (mass%)
1	2.0	7.5	0.15
2	2.0	10.0	0.20
3	2.0	15.0	0.30
4	3.0	7.5	0.225
5	3.0	10.0	0.30
6	3.0	15.0	0.45
7	4.0	7.5	0.30
8	4.0	10.0	0.40
9	4.0	15.0	0.60

Table 2 Characteristic of granulated aluminum alloy powder.

Sample No.	Average particle (μm)	Apparent density (Mg/m^3)
1	74.8	0.772
2	85.8	0.694
3	94.1	0.615
4	76.5	0.751
5	90.4	0.701
6	99.0	0.624
7	77.7	0.823
8	92.4	0.798
9	102.1	0.738

価すべく、本実験では25ton万能式圧縮試験機にセットした成形用金型(内径; $\phi 11.3\text{mm}$, 型材質; 超硬)内に試料粉末2gを充填して圧粉成形を行なった。但し、ステアリン酸亜鉛を溶解したアセトン溶液を潤滑剤として金型の内壁および上下パンチに塗布し、乾燥後に粉末を充填した。圧縮時の加圧速度を0.5mm/s一定とし、圧縮過程において粉末に作用する荷重および上パンチの変位量の関係を測定してその圧縮変位量から成形体体積の減少量を算出した。そして拔出し後の成形体の全長および直径から成形体の体積を求め、この値が金型内での最大加圧下での粉末体積と同一であると仮定して、先に測定した成形体体積の減少量を加算することで各成形圧力と成形体体積との相関(圧力P-容積V曲線)を求めた。粒子再配列機構の影響を厳密に評価するためには、可能な限り低圧力条件での圧縮変位量を測定することが有効であることから本実験では最小荷重を98Nとし、最大荷重78kNに設定した。なお、比較として造粒処理を施さない1次粒子原料粉末につ

いても同様の方法で圧縮特性を評価した。

2.3 Cooper-Eaton 式による粉末の圧密化挙動解析方法

ここでは、(1)式に示すように粉末を金型内で圧縮成形する際の圧密化機構を粒子の再配列による体積減少と粒子の塑性変形および破碎による体積減少から成ると仮定し、確率過程論に基づいて2項の指数関数の線形式として表現したCooper-Eaton 式を用いた。

$$V^* = \frac{V(0) - V(p)}{V(0) - V(\infty)} = a_1 \exp(-k_1/P) + a_2 \exp(-k_2/P) \quad (1)$$

a_1, k_1 ; Coefficient of rearrangement
 a_2, k_2 ; Coefficient of plastic deformation
 $(a_1 + a_2 = 1)$

ここで、 $V(0)$ は無加圧状態での粉末の充填容積であり本実験では各粉末の見掛け密度(AD値)を用いて求めた。 $V(\infty)$ は空隙が存在しない状態での粉末容積であり、秤量した試料粉末の質量と真密度から算出した。右辺第1項は粒子再配列による体積圧縮率、第2項は粒子の塑性変形と破碎現象による体積圧縮率に相当する。 a_1 および a_2 はそれぞれ極限圧力付加状態($P \rightarrow \infty$)における各圧密化機構による体積圧縮率を意味しており、例えば、 a_1 が a_2 よりも大きい場合は粉末の全体積圧縮量に占める粒子再配列の寄与度が大きいことを示唆している。また k_1, k_2 は各圧密化機構の開始相当圧力を表しており、その値が大きいほど高い圧力条件下でその圧密過程が生じることを表わしており、 k_1 が大きくなるにつれて粒子再配列による圧密化機構が起こり難くなることを意味する。そして本実験では、圧縮試験により得られた圧力P-容積Vの相関データから非線形最小2乗法によって式中の各定数(a_1, k_1, a_2, k_2)を算出し、これらを用いてそれぞれの圧密化機構による体積圧縮率の総和 $V^*(0 \leq V^* \leq 1)$ を算出する。その結果、粉末の圧縮特性の成形圧力依存性および緻密化過程での到達圧密率を定量的に把握できる。

3 実験結果および考察

3.1 造粒粉末の圧密化学動解析結果

先ず, 粒子再配列機構の寄与度パラメータ a_1 と造粒粉末の AD 値の関係を Fig.1 に示す. 造粒粉末を用いた場合の a_1 値は原料粉末に比べて増加しており, その値は AD 値の増加に対してほぼ直線的に減少している. これは AD 値の小さい粉末を金型内に充填すると粉末間の空隙量が増加するため, 圧密化過程において粉末が移動し易くなり粒子再配列機構の寄与率が大きくなったものと考えられる. また Fig.2 に示すように原料粉末および AD 値の異なる造粒粉末における圧縮試験時の圧力-圧縮変位量の関係において, 成形圧力が 100MPa 程度迄の比較的低い加圧領域での圧縮変位量は原料粉末に比べて造粒粉末が大きく, 造粒粉末の AD 値が小さくなるに連れてその値は増加している. これらの結果から圧密過程の比較

的初期段階においては, 充填時に生じた粉末間の空隙と前報で示したような造粒粉末内部に存在する空隙を埋めるように造粒粉末自身およびそれを構成する 1 次粒子粉末が移動・再配列することで圧密化現象が進行すると考えられる.

以上の結果に基づき, 圧縮過程における造粒粉末の圧縮挙動は Fig.3 に示すような圧密化モデルにより進行すると考えられる. なお, (a) は従来から提案されている金属粉末の圧密化過程を表現した模式図であり, (b) が今回提案した圧密化モデルである. 単一金属粉末においては (a) に示すように, 低圧力域では粒子の移動・再配列によって粒子間の空隙が埋められる現象が主として生じ, 高圧力域では粒子の塑性変形や破砕によって粒子同士の接触点付近の比較的小さい空隙が埋められる現象が支配的となる. これに対して造粒粉末の圧密化挙動は (b) に示すような機構によるものと推察される. 粒子の塑性

Fig.1 Dependence of coefficient of rearrangement calculated by conventional Cooper-Eaton equation on apparent density of powder.

Fig.2 Change in compaction displacement in compacting raw powder and various granulated ones.

(a)

(b)

Fig.3 Schematic of compaction model in consolidating powders. (a) Conventional model (b) Proposed model in this work.

変形が生じるまでの低圧力域では(a)と同様に主に粒子再配列機構が生じるが、これは①金型内に造粒粉末を充填した際に造粒粉末間に生じる空隙(Inter-pore)を埋めるように造粒粉末自身が移動する「マクロな粒子再配列」と、②造粒粉末内部に存在する空隙(Intra-pore)を閉鎖するように造粒粉末を構成する1次粒子粉末の移動・再配列による「ミクロな粒子再配列」に分類できる。そして両機構が進行して粒子間の空隙が埋められると、圧縮成形圧力が造粒粉末を構成する1次粒子粉末に付加されて粒子の塑性変形あるいは破碎現象が生じる。但し、Fig.2に示した圧縮変位量と粉末のAD値の関係からマクロな粒子再配列機構がより低い圧力域で進行すると考えられる。

3.2 修正 Cooper-Eaton 圧縮式による解析結果

次に、上記の造粒粉末の圧密機構を考慮した修正 Cooper-Eaton 圧縮式を提案し、これを用いて造粒粉末の圧密化挙動解析を行なった。具体的には、マクロ粒子再配列およびミクロ粒子再配列は従来の粒子再配列と同様の圧縮曲線で整理できると考え、(2)式に示すような3項の指数関数の線形和からなる修正式の適用を試みた。

$$V^* = \frac{V(0) - V(p)}{V(0) - V(\infty)} = a(r1) \exp(-k(r1)/P) + a(r2) \exp(-k(r2)/P) + a(p) \exp(-k(p)/P) \quad (2)$$

$a(r1), k(r1)$; Coefficient of macro-rearrangement
 $a(r2), k(r2)$; Coefficient of micro-rearrangement
 $a(p), k(p)$; Coefficient of plastic deformation
 $(a(r1) + a(r2) + a(p) = 1)$

計算方法は従来の2項からなる計算プログラムにおいてマクロ粒子再配列の項を追加し、粉末の圧縮データを用いて非線

形最小2乗法によって式中の各パラメータを算出した。なお、マクロ粒子再配列が最も低い加圧領域で生じると考え、右辺第1項をマクロ粒子再配列、第2項をミクロ粒子再配列、そして第3項を塑性変形・破碎現象によるものとした。

まず、造粒粉末の圧密化挙動に及ぼす粒子再配列と塑性変形の寄与度を評価すべく、(1)式および(2)式により算出したa値($a(r)$; 粒子再配列, $a(p)$; 塑性変形)と粉末のAD値との関係をFig.4に示す。(a)は今回提案した3項モデルに基づく修正式による計算結果であり、(b)は従来のCooper-Eaton式を用いた結果である。なお、両図は同じ圧縮データを用いて計算した結果である。これに見るように修正式によれば、マクロおよびミクロ粒子再配列と塑性変形のそれぞれによる粉末の圧密化挙動への寄与度を分離することができる。その結果、マクロ粒子再配列機構の寄与度を示す $a(r1)$ 値は2項モデルでの計算結果と同様に、造粒粉末のAD値が増加するに従ってほぼ直線的に減少する。一方、ミクロ粒子再配列の寄与度を示す $a(r2)$ 値に関しては、 $a(r1)$ 値の傾向とは逆にAD値の増加に伴ない増大している。この結果は造粒粉末のAD値と造粒粉末内のIntra-pore量に起因している。前述したようにミクロな粒子再配列とは原料粉末同士がPVAバインダーによって結合してできた造粒粉末内部のIntra-poreを閉鎖するように1次粒子粉末が移動・再配列する現象を意味している。ゆえに造粒粉末中のIntra-pore量が多いほど圧密化過程における $a(r2)$ 値は増加する。一方、前報で記載したように造粒過程におけるバインダーの結合が強固になると、造粒化が進行して内部のIntra-pore量が減少し、より緻密で粗大な球状の造粒粉末が得られる。その結果、造粒粉末のAD値が低下する。つまり、造粒化が進行すると造粒粉末のAD値は低下し、粉末内部のIntra-pore量も低減する。以上のことから造粒粉末のAD値が

Fig.4 Relationship between apparent density of powders and parameter a of rearrangement and plastic deformation calculated by modified Cooper-Eaton equation compared with conventional one. (a) Modified equation (b) Conventional equation.

減少すると、Inter-pore 量が増えるためにマクロ粒子再配列の寄与率は増加するが、逆に Intra-pore 量が減少するためにミクロ粒子再配列の寄与率が低下すると考えられる。また、いずれの造粒粉末においても $a(r2)$ 値に比べて $a(r1)$ 値が大きい。これは平均粒子径と AD 値から算出した粉末充填時の Inter-pore 量が約 30~40vol.% であるのに対して、造粒粉末の断面組織観察結果より求めた粉末内部の Intra-pore 量が約 8~15vol.% と小さいためにマクロ粒子再配列の寄与度を表す $a(r1)$ 値が大きくなったと考えられる。以上の結果より、造粒粉末を圧粉成形する際の粒子再配列による緻密化挙動では造粒粉末自身の移動によるマクロ粒子再配列機構が主な支配因子であるといえる。

3.3 修正 Cooper-Eaton 圧縮式の適合性の検証

造粒粉末の圧密化過程における粒子再配列と塑性変形の開始領域について修正式と従来式を用いて評価した。Fig.5 に AD 値に対する各圧密化機構の開始相当圧力パラメータ k 値の変化を示す。(a), (b) は粒子再配列および塑性変形の各機構の開始相当圧力である。AD 値の違いによって多少の差はあるものの、修正式によれば $k(r1)$; 5.9~7.8MPa, $k(r2)$; 22.5~31.4MPa, $k(p)$; 323.4~362.6MPa となり、マクロ粒子再配列は極低圧力域で生じ、続くミクロ粒子再配列機構も 30MPa 程度で完了する。 $k(p)$ 値からは 1 次粒子粉末の塑性変形がいずれも 350MPa 付近で開始していることを意味しているが、この値は本試料粉末を固化した合金の圧縮耐力 ($\sigma_c=344$ MPa) とほぼ一致しており、実際に粉末を圧縮した際の塑性変形能を精度よく推定している。一方、従来式によれば $k(r)$ 値; 6.9~11.8MPa となり、修正式での結果と同等であるが、 $k(p)$ 値は 117.6~147MPa と修正式による値に比べて 200MPa 程度小さい。これは従来式ではミクロ粒子再配列と塑性変形との寄与率の分離が困難

であるために両者が重複して計算され、その結果、 $k(p)$ 値は修正式によって算出した値に比べて小さくなったと考えられる。以上の結果より今回提案した修正式によれば、マクロ・ミクロ粒子再配列機構の開始度合いのみならず、算出した各圧密機構の開始圧力も高い精度で推定できることから本修正式の妥当性が検証された。

さらに、実際に圧縮成形した試料の体積圧縮率の測定値 (V'_m) と各圧縮式により算出した体積圧縮率 (V'_c) との差の自乗 (残差平方和) を R とし、この R 値を比較することで圧縮式の適合性を検証した。その結果を Fig.6 に示す。ここでは、Fig.2 に示した 3 種類の造粒粉末についてそれぞれ 5 回の圧縮試験を行ない、従来式と修正式によって R 値を算出してそれぞれの平均値を求めた。いずれの造粒粉末においても残差平方和

Fig.6 Comparison of conformity of each compaction equation.

Fig.5 Relationship between apparent density of powders and parameter k of rearrangement and plastic deformation calculated by modified Cooper-Eaton equation compared with conventional one. (a) Rearrangement (b) Plastic deformation.

の値は修正式を用いた場合が小さいことから修正式がより高い適合性を有している。つまり、上述した3つの機構から成る造粒粉末の圧密化挙動モデルが妥当であるといえる。

3.4 体積圧縮率に及ぼす各圧密化機構の影響

修正式により算出した各パラメータを用いて、圧縮圧力784MPaを負荷した際の造粒粉末の全体積圧縮率におけるマクロおよびミクロ粒子再配列の比率を整理した結果をFig.7に示す。Fig.4(a)に記載の通りAD値が減少すると造粒粉末間のInter-pore量が増加するために造粒粉末の移動・再配列現象が進行し易くなり $a(r1)$ 値が増大する。その結果、マクロ粒子再配列による体積圧縮率 $V(r1)$ の比率が増加する。逆にAD値が減少すると造粒粉末が緻密化するために粉末内部での1次粒子粉末の移動・再配列が進行し難くなり、ミクロ粒子再配列による体積圧縮率 $V(r2)$ の寄与度は低下する。また、 $V(r1)$ 値は $V(r2)$ 値の2~3倍と大きく、この結果も3.2項で記載したように造粒粉末内のIntra-pore量(約8~15vol.%)に対して、充填時の造粒粉末間のInter-pore量(約30~40vol.%)が2~3倍程度大きいことに起因すると考えられる。

次に、マクロおよびミクロ粒子再配列と塑性変形の全圧密過程に対する寄与率について、体積圧縮率 V の対数と圧粉圧力の逆数 $1/P$ の関係をFig.8に示す。(a)~(c)は順に、マクロ粒子再配列、ミクロ粒子再配列、塑性変形による体積圧縮率の対数と $1/P$ との関係であり、いずれも直線関係を有している。これは前記の(2)式から判るように、体積圧縮率 V の対数が右辺の各項に対して $1/P$ の関数となる結果、 $1/P$ との直線関係として表現できる。(a)のマクロ粒子再配列の寄与率に関してAD値が減少するにつれて体積圧縮率は全圧粉圧力域において増加しており、各直線の傾き、つまり $k(r1)$ 値はほぼ同じである。(b)のミクロ粒子再配列の寄与率について、低圧域では体積圧縮率の値に多少の差異はあるものの、高圧域では圧密化への寄与度に顕著な差は見られない。一方、(c)の塑性変形の寄与率に関して圧密化に有効な体積圧縮率0.01以上

Fig. 7 Relationship between apparent density and fractional volume compaction under consolidating pressure of 784MPa.

(a)

(b)

(c)

Fig. 8 Effects of each compaction factor on fractional volume compaction in modified equation. (a) Macro-rearrangement (b) Micro-rearrangement (c) Plastic deformation.

の範囲では、各造粒粉末の体積圧縮率が粉末のAD値に関係なくほぼ一つの直線として整理できる。本来、塑性変形は1次粒子粉末の降伏点や硬さ、剛性等に直接依存することから造粒粉末を構成する1次粒子粉末が同一である限り、たとえAD値が異なっても塑性変形による全圧密に対する寄与率は同等となる。そのため、(c)に示したように塑性変形による体積圧縮率のデータはAD値に依存することなく、全て一つの直線上に整理できると考えられる。

4 結 論

湿式造粒アルミニウム合金粉末の圧密化機構に及ぼす粉体特性の影響についてCooper-Eaton圧縮式を用いて検討すると共に、造粒粉末の圧密化挙動解析に適した修正式を提案し、この妥当性を検証した。本研究で得られた結果を以下に示す。

- (1) 造粒粉末の外観・断面組織観察およびCooper-Eaton圧縮式による圧密化挙動解析の結果、造粒粉末の圧密化挙動は次の3機構からなるモデルであることを提案した。
 - ① 充填時の造粒粉末間の空隙(Inter-pore)を埋めるように粉末が移動するマクロな粒子再配列
 - ② 造粒粉末内部に存在する空隙(Intra-pore)を閉鎖するように造粒粉末を構成する1次粒子粉末の移動によるミクロな粒子再配列
 - ③ 圧縮成形圧力による1次粒子粉末の塑性変形

- (2) 全体積圧縮率に対するマクロな粒子再配列機構の割合はミクロな粒子再配列機構による場合に比べて2~3倍と大きく、かつそれによる圧密化挙動は6~8MPa程度の極めて低い加圧領域において生じる。
- (3) 修正式による圧密化挙動解析の結果、いずれの造粒粉末の $k(p)$ 値も約350MPaとなり、試料粉末合金の圧縮耐力($\sigma_c=344\text{MPa}$)とほぼ一致しており、さらに従来式に比べて修正式を用いた場合の残差平方和が小さいことから今回提案した3項モデルに基づく修正式が妥当であるといえる。

文 献

- 1) K.Kondoh et al.: "Wear Property of Powder Forged Aluminum Alloy", Proceeding of 1993 Powder Metallurgy World Congress, Kyoto, Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, (1993)339-343.
- 2) 近藤ほか: "湿式造粒処理を施したアルミニウム合金粉末の粉体特性に及ぼすバインダー条件の影響", 粉体および粉末冶金, 46(1999).
- 3) 橋本ほか: "アトマイズ低合金鋼粉の圧縮成形式/鉄鋼の粉末冶金における新しい展開", 日本鉄鋼協会・粉粒体工学フォーラム, 東京, (1996)39-45.
- 4) A.R.Cooper and L.E.Eaton: "Compaction Behavior of Several Ceramics Powders", J. Amer. Ceram. Soc., 45(1962)97-101.