銅粉の圧縮と応力緩和*

森 本 吉 春** 林 卓 夫**

Compression and Stress Relaxation of Copper Powders

by

Yoshiharu MORIMOTO and Takuo HAYASHI

(Faculty of Engineering Science, Osaka University, Toyonaka)

Experiments and theoretical analyses have been carried out on constitutive equations of copper powders. The results obtained are as follows.

(1) The stress-density relation of electrolytic copper powders is sensitive even to low strain rates of about 10^{-2} ~ 10^{-5} /sec in compression at room temperature. The higher the strain rate is, the larger the stress at the same density is.

Moreover, stress relaxation phenomena are affected by the history of loading processes. The compacted powders compressed by rather high strain rates show a larger stress relaxation. The compacted powders of lower density show larger stress relaxation.

(2) When the strain rate is changed in the compression process, the stress-density relation changes rapidly to the new one which coincides with the stress-density relation obtained by the constant strain rate test corresponding to the new strain rate.

(3) The above character of powders can be expressed by the three element elastic visco-plastic model, and the behaviour of powders of various loading history can be calculated by this model. The calculation agrees qualitatively with experiments.

(Received Oct. 4, 1978)

キー・ワード：粉体，圧縮，応力緩和，ひずみ速度，弾粘塑性

1 緒 言

粉体成形中の応力解析を理論的に行うには，当然ながら粉体の構成式を知る必要がある．構成式として粉体圧縮中の応力とひずみ（あるいは密度）の関係を求めた研究は数多くある．一例として，密閉容器内一軸圧縮に関しては川北¹⁾や，三軸圧縮に関しては鳥²⁾らの研究がある．しかし粉体圧縮中のひずみ速度の影響を考慮した研究は少く，高分子材料³⁾や薬品^{4,5)}についての研究がある程度で，金属粉についての報告はほとんどない．高分子材料などは材料そのものがひずみ速度の影響を大きく受けるが，金属固体においてはひずみ速度が 10^{-2} /sec程度までのいわゆる準静的な速度範囲では応力-ひずみ関係の変化が認められない．金属粉体においても静的と動的とでは応力-ひずみ（密度）関係は異なることが予想される．そこで本研究で，密閉容器内一軸圧縮における静的な応力-密度関係を調べたところ，金属粉体においては，常温において，ひずみ速度

が 10^{-2} /sec程度までのいわゆる準静的な速度範囲でも応力-密度関係がひずみ速度により異なることがわかった．また負荷後変位を一定にして応力緩和を調べたところ負荷時のひずみ速度により大きな変化が現れた．さらに本研究では，これらのひずみ速度による影響が出てくるメカニズムを考えた．また，この粉体の性質を三要素弾粘塑性モデルを用いて表してみた．

2 実験方法

圧縮はいわゆる密閉容器内一軸圧縮であり，銅粉を容器に入れ，圧縮装置の変位速度を一定にして行い，荷重と変位の関係を求め，所定の設定荷重に達したら装置のスイッチを切り，一定変位下での応力緩和を測定した．さらに応力緩和実験後に緩和後の応力以下で負荷と除荷を行い，このときの荷重-変位曲線より容器内での弾性係数を求めた．これらの経過をFig. 1に示す．

用いた圧縮容器は内径 18 mm，外径 36 mm の円筒金型で材質は SKD 11 である．金型壁面にはステアリン酸亜鉛 60 g を四塩化炭素 1 000 ml に溶かしたも

* 原稿受理 昭和53年10月4日

** 正 会 員 大阪大学基礎工学部 豊中市待兼山町

Fig. 1. Stress-time diagram in experiments.

のを塗付し、壁面摩擦を小さくした。試料粉体としては、電解銅粉（福田金属箔粉工業（株）製 CE-6）を用い、充てんした量は6.84 gで、これは銅粉が完全に圧縮され、空孔がなくなったとき3 mmの厚さとなるようにした。

圧縮装置は島津製作所製オートグラフ IS-10T を用いた。この装置はクロスヘッドの変位速度を0.005から500 mm/minまで制御できるが、ロードセルやクロスヘッドなどのたわみのため試料におけるひずみ速度が遅くなり、誤差が大きくなるのでクロスヘッドの変位速度0.5から20 mm/minの場合はポンチの上下の圧盤間に差動トランスをつけ、この間の変位速度が一定となるようにした。

3 実験結果と考察

3・1 実験結果

負荷時の圧縮速度を変えた場合の応力-密度比関係を Fig. 2 に示す。ここで密度比とは粉体の密度と金属固体の密度の比である。密度比が0.281となるまでは応力0で密度が上昇し、その後上に凹な曲線となっている。なお、この密度比が0.281のときの粉体の長さ10.68 mmを初期長さとし、以下のひずみ計算は公称ひずみを用いた。したがって圧縮速度20, 5, 2, 0.5, 0.01 mm/min はひずみ速度に直すとそれぞれ 3.12×10^{-2} , 7.80×10^{-3} , 3.12×10^{-3} , 7.80×10^{-4} , 1.56×10^{-5} /sec となる。図を見ると圧縮速度が大きくなるにつれ、同じ密度になる応力が大きくなっているのがわかる。

Fig. 2. Stress-relative density relations of various compression speeds.

圧縮時の圧縮速度を種々変えた場合の応力緩和の一例として設定荷重が8 tと1 tの場合について緩和率の時間変化を Fig. 3 に示す。ここで緩和率とは、そのときの緩和応力量と応力緩和開始時の応力との比である。この図からわかるように、電解銅粉の応力緩和は非常に大きく、今回の実験時間内では緩和率は一定に増加し続けている。また最初の1 secで相当緩和している。

負荷を種々に変えた場合の緩和率の時間変化の一例として圧縮速度が0.5 mm/minの場合を Fig. 4 に示す。

Fig. 4. Stress relaxation curves of compacted powders compressed to the various loads with same strain rate.

Fig. 3. Stress relaxation curves of compacted powders compressed to the same load with various strain rates.

Fig. 5. Percentage of stress relaxation at 1000 sec.

荷重と圧縮速度を変えた場合の 1000 sec 後の応力緩和率を Fig.5 に示す。

これらの図からわかるように荷重が小さいほど緩和率が大きく荷重が大きくなれば（すなわち密度が大きくなり金属固体に近づく）緩和率は小さくなる。また、圧縮速度が大きいほど緩和率が大きい。

応力緩和終了後除荷し、再び 負荷 したときの応力-ひずみ曲線から求めた電解銅粉の容器内での弾性係数と密度比の関係を Fig.6 に示す。密度が大きくなり、金属固体に近づくほど弾性係数は大きくなっている。なお、この弾性係数においては、圧縮時の速度の違いによる差は認められなかった。

Fig. 6. Elastic modulus-relative density relation.

3・2 粉体の圧縮と応力緩和のメカニズム

粉体を圧縮する場合、次の順序により密度が上昇すると考えられる。

(1) ごくわずかの荷重で粒子の移動が可能ほどすきまが空いているためほとんど応力 0 で密度が上昇す

る。

(2) 粒子同志は互いに直接接触しており、荷重を加えることにより、粒子が互いに滑りながらすきまへ落込むように移動するため密度が増える。この場合は粒子表面に摩擦力が働いており、その分だけ密度を上げるのに大きな力が必要となる。この摩擦力は滑り速度すなわち圧縮速度が大きいほど大きく、粒子の単位重量当りの表面積（比表面積）が大きいほど大きい。

(3) 圧縮が進み、粒子間のすきまが小さくなったため粒子がすきまに落込めない場合は、粒子自身の塑性変形により粒子の一部がはみ出し、すきまを埋めていく。(2)の滑りよりも塑性変形を起す方がより大きな力を必要とするため、応力は大きくなる。

この(2)と(3)は明確な変態点があるわけではなく、実際は(2)と(3)が混ざりながら同時に進行していく。圧縮初期は(2)の影響が大きい、圧縮が進むにつれて(3)の影響が大きくなる。

さて圧縮中に変位を一定にした場合、粒子はまだ安定な位置になく、荷重も加わっているため(2)の滑りは進行するが、変位一定のため密度は上昇せず、代りに応力が減少し、応力緩和が起る。応力が下がるため(3)の現象は進行しない。したがって変位を一定にすると、密度が大きいほど(2)の現象の占める割合が少いので応力緩和率は小さい。また、変位を一定にする設定荷重が同じでも、圧縮時の速度が小さいほど密度が大きいので、変位一定の間でも(2)の現象の進み方が小さく応力緩和率は小さい。

3・3 追加実験

さて、この(2)に影響を及ぼす滑り摩擦を減らすため電解銅粉に潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を添加して圧縮し、応力緩和を調べた。

Fig. 7. Stress-relative density relations of electrolytic copper powders mixed with zinc stearate and atomized copper powders.

圧縮時の応力-密度比曲線を Fig. 7 に示す。圧縮時の速度 5 mm/min でステアリン酸亜鉛 1% 添加の曲線は Fig. 2 の添加しない曲線より下になっており潤滑剤添加の効果が現れている。圧縮速度 0.5 mm/min のものやステアリン酸亜鉛 0.2% 添加の曲線は添加しない曲線との差はあまり認められない。

応力緩和曲線を Fig. 8 に示す。Fig. 3 の曲線と比べていずれも潤滑剤添加により緩和量が減少しておりステアリン酸亜鉛 0.2% 添加よりも 1% 添加の方が効果大きい。

Fig. 8. Stress relaxation curves of electrolytic copper powders mixed with zinc stearate and atomized copper powders.

また電解銅粉と粒子形状の異なる噴霧銅粉（福田金属箔粉工業（株）製 Cu-At-100）を使って圧縮し応力緩和を調べた。電解銅粉と噴霧銅粉の走査型電子顕微鏡写真を Fig. 9 に示す。これを見ると電解銅粉は樹枝状であり、噴霧銅粉は球状であり、比表面積は噴霧銅粉の方がはるかに小さく、したがって滑り摩擦力も小さいと考えられる。

噴霧銅粉の応力密度比曲線を Fig. 7 に、応力緩和曲線を Fig. 8 に示す。電解銅粉に比べ噴霧銅粉の応力-密度比曲線は下にあり、応力緩和も小さいことがわかる。

粉体の圧縮中に圧縮速度を変えると、応力-密度比曲線はそれぞれの圧縮速度の応力-密度比曲線と異なる

(a) Electrolytic copper powders. (b) Atomized copper powders.

Fig. 9. Scanning electron micrographs.

Fig. 10. Stress-relative density relations when compression speeds change at about 2t.

と予想される。Fig. 10 は圧縮中 2t (7.86 kg/mm²) 付近で圧縮速度を 20 から 0.01 mm/min へ、および 0.01 から 20 mm/min へ変えた場合の応力-密度比曲線である。この実験の場合、圧盤間の圧縮速度を制御できないので、クロスヘッドの速度を制御した。Fig. 10 の拡大図にはクロスヘッドの圧縮速度が 20 mm/min と 0.01 mm/min の場合の応力-密度比曲線も示してある。これを見ると圧縮速度変更後、短時間でそれぞれの速度に応じた応力-密度比曲線と一致している。したがって圧縮速度が変わる場合でも、応力-密度比曲線はそれぞれの速度に応じた圧縮速度一定の応力-密度比曲線を使っても大きな誤差はないと思われる。なお、応力緩和量は圧縮速度変更後の速度に応じた応力緩和量とほぼ一致した。

4 モデルによる計算

粉体を任意の速度で圧縮した場合の応力-密度比関係や応力緩和量を理論計算で求めるには粉体の性質を式的形（構成式）で表しておく必要がある。そこで構成式を求めるため粉体のモデル化を考える。今までの結果より粉体のモデルとしては少なくとも次の性質を満足せねばならない。

- (1) 加工硬化特性を示す。
- (2) 弾性成分をもつ。
- (3) 負荷過程ではひずみ速度が大きいほど同じ密度にする応力が大である。
- (4) 応力緩和現象を示し、その現象は負荷過程のひずみ速度により影響される。
- (5) 非線形性が大きい。

安茂⁵⁾は医薬品などの粉体に粘弾性標準線形モデルを適用して応力緩和を説明している。しかしこのモデルでは(4)に述べた過去の履歴の影響を説明することができない。

そこで、ここでは上記(1)～(5)の特性を表す以下のようなモデルを考えた。

いま、粉体を静的に圧縮し、除荷した場合の理想的応力-ひずみ曲線の概略図を Fig. 11 に示す。応力およびひずみは圧縮を正とする。OA は負荷、AB は除荷であり、さらに負荷を加えると BA をもどり、A 点で降伏し、AC と進む。加工硬化をもついわゆる弾塑性体である。これだけでは上記(1)、(2)の性質を表しているだけである。さらに(3)、(4)、(5)の性質を示すような最も簡単なモデルとして Fig. 12 のような三要素弾粘塑性モデルを考えた。

Fig. 11. Idealized stress-strain diagram of powders

Fig. 12. Three elements elastic visco-plastic model.

XY 間は弾性部分を表し、Fig. 11 の AB に相当する。AB の傾きが弾性係数となる。YZ 間は粘塑性部分を表す。Y₁Z₁ は塑性項を表し、 f は降伏応力で $\sigma > f$ ならば $\sigma_p = f$ となり、 $\sigma < f$ ならば剛体として働く。Y₂Z₂ は粘性項を表す。前述 3・2 節(2)の現象を示すのがこの項である。

このモデルでは次の関係が成立する。

$$\left. \begin{aligned} \sigma &= \sigma_p + \sigma_v \\ \sigma &= E\epsilon_e, \quad \sigma_p = f \\ \sigma_v &= \eta \epsilon_p^k, \quad \epsilon = \epsilon_e + \epsilon_p \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

また、密度比 ρ とひずみ ϵ の間には初期密度比を ρ_0 とすると次の関係がある。

$$\rho = \rho_0 / (1 - \epsilon) \quad (2)$$

ここで E , f , η , k は粉体の性質を表す材料定数である。この材料定数は粉体の密度により異なると考えられ、密度比 ρ の関数とすると $E(\rho)$, $f(\rho)$, $\eta(\rho)$, $k(\rho)$ となる。これらの材料定数は以下に述べるようにして

実験結果から決定する。

$E(\rho)$ はすでに Fig. 6 で求めた。 $f(\rho)$ は変位速度 0 の場合の応力-密度比関係であり、変位速度を種々変えたものから外挿法により求める。実際には変位速度 0 のものの外挿が困難だったので変位速度 0.001 mm/min のものを外挿して求め、それを $f(\rho)$ に代用した。その結果を Fig. 2 に一点鎖線で示す。

$\eta(\rho)$, $k(\rho)$ は $E(\rho)$, $f(\rho)$ が決まれば、次のようにして応力緩和曲線より求まる。すなわち

$$\sigma_v = \eta \dot{\epsilon}_p^k = \eta (-\dot{\sigma}/E)^k \quad (3)$$

$$\therefore \dot{\epsilon}_p = \frac{d\epsilon_p}{dt} = \frac{d}{dt}(\epsilon - \epsilon_e) = \frac{d}{dt}\left(\epsilon - \frac{\sigma}{E}\right) = -\frac{\dot{\sigma}}{E} \quad (4)$$

(ϵ , E は応力緩和中に一定)

$$\text{ここで} \quad \sigma_v = \sigma - \sigma_s = \sigma - f \quad (5)$$

であるから両辺の対数をとると

$$\log \sigma_v = \log \eta + k \log (-\dot{\sigma}/E) \quad (6)$$

となり、縦軸に $\log \sigma_v$ 、横軸に $\log (-\dot{\sigma}/E)$ をとって応力緩和中のグラフを書くと直線となる。この一例を Fig. 13 に示す。この傾きが k で切片が $\log \eta$ を表す。それらの結果を密度比の関数として表したのが Fig. 14 である。このようにして実験から E , f , η , k が ρ の関数として求まった。

Fig. 13. Relations of $\log \sigma_v - \log (-\dot{\sigma}/E)$ in stress relaxation curves

これらの材料定数が求まれば、途中で圧縮速度を変えても応力-密度比曲線や応力緩和を計算することができる。すなわち、圧縮中は(1)式を差分式に直して数値計算をすることができる。また応力緩和中の解析については、(1)式より

$$E(\epsilon - \epsilon_p) - f = \eta \dot{\epsilon}_p^k \quad (7)$$

が成立し、応力緩和中は ϵ , E , f , η , k が一定で

Fig. 14. Relations of k and η -relative density.

あるため(7)式は解析的に解け、次式となる。

$$\varepsilon_p = -\frac{\eta}{E} \left\{ -\frac{E}{\eta} \frac{k-1}{k} (t-t_c) \right\}^{\frac{k}{k-1}} - \frac{f}{E} + \varepsilon \quad (8)$$

ここで

$$t_c = \left\{ \frac{E}{\eta} (\varepsilon - \varepsilon_{p0}) - \frac{f}{\eta} \right\}^{\frac{k-1}{k}} \frac{\eta}{E} \frac{k}{k-1} \quad (9)$$

$$0 < k < 1$$

ε_{p0} は応力緩和開始時 ($t=0$) の塑性ひずみ

これらの計算より求めた圧縮速度一定の場合の応力-密度比曲線の一例を Fig. 15 に示す。Fig. 2 の実験値より応力が少し大きくなっているが定性的な性質はよく表されている。

圧縮速度一定の場合の応力緩和曲線の一例を Fig. 16 に示す。実験では測定できなかった 1 sec 以内の非常に早い時期にかなりの応力緩和が起っていることがわかる。

圧縮速度を途中で変えた場合の応力-密度比曲線を Fig. 17 に示す。それぞれの圧縮速度に応じた応力-密度比曲線に短時間で移動しているのがわかる。

Fig. 15. Stress-relative density relations by calculations.

Fig. 16. Stress relaxation curves by calculations.

Fig. 17. Stress-relative density relations when compression speeds change at $2t$ by calculations.

このように三要素弾粘塑性モデルを用いて実験結果より材料定数を求めることができ、それを用いて圧縮速度を変えた場合の計算をすると、実験結果と定性的に一致した。このモデルを用いれば密閉容器内一軸圧縮における種々の履歴の応力-密度比状態を計算することができる。

5 結 言

以上の結果より次のことがいえる。

(1) 電解銅粉は常温で $10^{-2} \sim 10^{-5}/\text{sec}$ 程度のゆっくりしたひずみ速度による圧縮においても、応力-密度比関係は、圧縮時のひずみ速度により異なる。ひずみ速度が大きいほど同じ密度にする応力は大きくなる。

(2) 電解銅粉を圧縮成形して変位を一定に保っておくと応力緩和があり、圧縮時のひずみ速度が大きいほど、また低密度なものほど応力緩和率が大きい。

(3) これらの性質は粉体粒子同志のすべり摩擦により起ると考えられる。潤滑剤としてステアリン酸亜鉛を添加すると応力緩和は少くなる。また比表面積の小さい噴霧銅粉も応力緩和は少い。

(4) 圧縮途中でひずみ速度を変えると応力-密度比関係は急変し、すぐにそれぞれのひずみ速度に応じた応力-密度比曲線の上になる。したがって応力計算などをする場合、粉体の構成式としてそれぞれのひずみ速度に応じた応力-密度比曲線を使用しても大きな誤

差は生じない。

(5) 粉体の性質を三要素弾粘塑性モデルで表した。これにより過去の履歴を考慮して粉体の挙動を表すことができた。その結果は実験結果と定性的に一致した。

終りに、本研究に当り、実験の一部を担当された当時本学学生の牛谷恵史氏、谷川雅則氏、沼田浩氏に感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) 川北公夫, 材料, **13**, 421 (1964).
- 2) 島 進, 井上隆雄, 大矢根守哉, 沖本邦郎, 粉体および粉末冶金, **22**, 257 (1976).
- 3) 梅屋 薫, 原 隆一, 木村知弘, 材料, **25**, 632 (1976).
- 4) Shlanta, S., and G. Milosovich, J. Pharm. Sci., **53**, 562 (1964).
- 5) 安茂寿夫, 粉体および粉末冶金第6回粉体セミナー<専門講座>テキスト, p. 43 (1969).