論文

中空球焼結体の構造異方性と強度の評価

—— 金属中空球加圧焼結の構成式 第3報 ——

品川 一成* 中澤 祐一** 吉村 英徳*

三原 豊* 鮎川 佳弘*** 村上 勝彦****

Estimation of Structural Anisotropy and Strength of Sintered Hollow Sphere Body

—— A Constitutive Equation for Pressure Sintering of Metallic Hollow Spheres III ——

Kazunari SHINAGAWA*, Yuichi NAKAZAWA**, Hidenori YOSHIMURA*,

Yutaka MIHARA*, Yoshihiro SUKEGAWA *** and Katsuhiko MURAKAMI ****

(Received on January 21, 2008)

The evolution of structural anisotropy in metallic hollow sphere (MHS) compacts during uniaxial compression in elevated temperatures is examined by experimentation as well as numerical simulation, in which an anisotropic continuum model for the compaction of powder packing is applied. The contacts between MHSs are enlarged with the reduction in the height of the compacts during firing, although the contact areas in the lateral direction are smaller than those in the vertical direction. The calculated results are in good agreement with the experimental data. A quasi-static compression test at room temperature for the sintered bodies is also conducted to reveal the correlation of their strength with the reduction in height during firing. It is shown that the bodies whose height is reduced over a certain value during firing have sufficient strength regardless of sintering temperature and time. Optimum sintering conditions to obtain firm MHS bodies can be estimated by the present method of simulation.

Key words: powder forming, hot pressing, solid-phase joining, new material, basic theory, constitutive equation, numerical analysis.

1. 緒言

近年、軽量化材料が着目されており、その1つである金属中空球(MHS: Metallic Hollow Spheres)は均質なセル構造体が得られると期待されている。MHS同士を結合するには、容器に充填後、加圧しながら焼結させる方法がある。しかし、複雑な形状を作製する場合は、健全なセル構造体が得られる焼成条件(温度・時間・加圧力)を適切に与えることが重要になると考えられる。すなわち、セル構造を損なうことなくあらゆる方向に確実な結合を得るための条件を見出

す必要があり、これにはMHSの高温変形挙動の予測が有効であると考えられる。

既報^{1),2)}ではMHS成形体の焼成過程をシミュレートする手法の確立を目的に、中空構造を持つ粒子の構成式を作成した。本構成式を用いたシミュレーションではMHS同士の接触面の拡大も計算可能である。ただし、接触面積の方向による差異は生じないと仮定していた。実際には単軸加圧による変形が進行すると面積増加は方向により異なってくると考えられるが、この影響は未検討である。特に焼結体の強度を考えると、単軸加圧に対し、水平方向の接触面の拡大がどの程度であるかが重要な因子となると考えられる。本報ではこのような構造異方性の発達を考慮した加圧焼結のシミュレーション手法を提案すると共に、実験との比較によりその妥当性を確認する。

一方、焼成時の拡散接合が確実であるとするれば、MHS同士の接触面の拡大と焼結体強度とは強い相関があると考えられる。そうであれば、十分な強度を得るための焼成条件を判断するのに、接触面拡大を計算可能な本手法が有益であると言える。従って本報では、加圧による接触面拡大と焼結体強度との関連性を調査し、その対応を確認することで本手法の有用性も検証する。

*香川大学工学部 〒761-0396 高松市林町 2217-20

Faculty of Engineering, Kagawa University

2217-20 Hayashi-cho, Takamatsu-shi 761-0396, Japan.

** 同上, ibid. (graduate student)

現在: 中央発條(株) 〒470-0225 愛知県西加茂郡三好町大字福田字宮下 43-1

Current address: Chuo Spring Co., Ltd., 43-1 Miyashita, Aza, Fukuda, Oaza,

Miyoshi-cho, Nishikamo-gun, Aichi-ken 470-0225, Japan.

*** (財)日本自動車研究所 〒305-0822 つくば市荻間 2530

Japan Automobile Research Institute

2530 Karima, Tsukuba-shi 305-0822, Japan.

**** 日本鋼管テクノサービス(株), NK Techno Service Co., Ltd.

現在: 産機電業(株) 〒236-0004 横浜市区金沢区福浦 1-4-9

Current address: Sanki Dengyo Co., Ltd., 1-4-9 Fukuura, Kanazawa-ku,

Yokohama-shi 236-0004, Japan.

2. 異方性構成式と焼成シミュレーション

2.1 構成式

前報²⁾では Jagota らにより提案された粉末成形の等方性モデル³⁾を利用したが、本報では異方性モデル⁴⁾を適用する。ただし、両者の基礎式は同一であり、前報で提案した中空構造の導入も全く同様に行うことができる。以下に基礎式をまとめる。

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl}(d_{kl} - \delta_{kl}\dot{\epsilon}) \quad (1)$$

ここで、 σ_{ij} は応力テンソル、 C_{ijkl} は粘性テンソル、 d_{kl} は変形速度テンソル、 δ_{kl} はクロネッカーのデルタである。 $\dot{\epsilon}$ は extrinsic ひずみ速度で、着目する2つの粒子に対し、それら以外の粒子の接触（多体接触）がもたらすひずみ速度である⁴⁾。粒子充填がランダムであるとき、接触の方向は均等であり、粘性テンソルは以下のように与えられる。

$$C_{ijkl} = \frac{\bar{N}}{4\pi} \int L[(\mu^n - \mu')\beta_i\beta_j\beta_k\beta_l + \mu'(\delta_{jk}\beta_i\beta_l + \delta_{jl}\beta_i\beta_k)]/2] d\beta \quad (2)$$

ここで、 $\bar{N}$ は単位体積当たりの平均接触数であり、 $\bar{N} = 3\delta N / 9\pi R_0^3$ で与えられる（ δ : 粒子の体積率、 N : 配位数、 R_0 : 粒子半径）。 μ^n と μ' はそれぞれ接触面に対して垂直、水平方向の力とひずみを関係づける粘性係数である（ $\mu' = \mu^n/3$ ）。また、Fig. 1に示すように、 L は中心間距離、 β は接触面に垂直な単位ベクトルである（中心を結ぶ方向と β の方向は一致）。 μ^n は接触面積 $a = \pi r^2$ と赤道面積 $\bar{a} = \pi R^{*2}$ との比 $\alpha = a/\bar{a}$ の関数として与えられる（ r : 接触面半径、

Fig. 1 Geometrical parameters for two spheres contacting in direction of β

(a) Line cut by cross section

(b) S-1, $\Delta H/H_0 = 5\%$

(c) S-1, $\Delta H/H_0 = 33\%$

(d) S-3, $\Delta H/H_0 = 15\%$

Fig. 2 Length D and angle θ' of line to cross contact area between MHSs (a); emerging on cross section of bodies sintered at 1473 K (b)~(d); S-1 and S-3 are MHSs with diameter of $2R_0 = 1.9$ mm and shell widths of $w = 16$ and 32 μm , respectively; $\Delta H/H_0$ is reduction in height of MHS compacts after firing

R^* : 赤道面半径)。 $\bar{a}$ および α の変化率も α の関数となる。中空構造の影響は、これらの関数に新たに MHS 単球の相対密度 $\rho = 1 - (1 - w/R_0)^3$ を導入することで考慮される（ w : MHS のシェル厚）。

$$\mu^n = 3\eta\bar{a}g_1(\alpha, \rho) \quad (3)$$

$$d\bar{a}/d\epsilon^n = \bar{a}g_2(\alpha, \rho) \quad (4)$$

$$d\alpha/d\epsilon^n = g_3(\alpha, \rho) \quad (5)$$

ここで、 η は粘性係数、 ϵ^n は接触面に対する垂直ひずみである。 $g_1 \sim g_3$ の各関数は前報²⁾にて解析より決定した。

2.2 異方性の考慮

本報では円筒容器内での MHS の単軸加圧焼結を対象とする。従って成形体は軸対称とし、水平方向と垂直軸方向との間の異方性を考える。まず、式(1)をマトリックスの形で次のように書き換える。

$$\{\sigma\} = [K]\{\dot{\epsilon}\} - \{\sigma^e\} \quad (6)$$

ここで、 $[K]$ は粘性マトリックス、 σ^e は extrinsic 応力であり、 $\dot{\epsilon}$ により生ずる応力である⁴⁾。密閉容器内での単軸圧縮で、軸方向の変形速度は条件 $d_{xx} = d_{yy} = 0$ より、

$$d_{zz} = (\sigma_{zz} + \sigma^e_{zz})/k_{zz} \quad (7)$$

となる。ここで、 k は $[K]$ の成分である。一方、軸対称であることから β はFig. 1に示すように次式で与える。

$$\beta = \cos\theta \sin\phi e_x + \cos\theta \cos\phi e_y + \sin\theta e_z \quad (8)$$

ここで、 e_x, e_y, e_z は正規直交基底ベクトル、 θ および ϕ は β と x - y 平面および y - z 平面とのなす角である。これを用い、式(2)において ϕ に関する積分のみ実行し、次式を得る。

$$k_{zz} = \int_{-\pi/2}^{\pi/2} \left[\int_0^{2\pi} C_{zz} d\phi \right] \cos\theta d\theta = \frac{\bar{N}}{2} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} L[(\mu^n - \mu') \sin^4\theta + \mu' \sin^2\theta] \cos\theta d\theta \quad (9)$$

同様に extrinsic 応力は

$$\sigma^e_{zz} = \frac{\bar{N}}{2} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} \dot{\epsilon} \mu^n L \left[\frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \beta_z \beta_z d\phi \right] \cos\theta d\theta = \frac{\bar{N}}{2} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} \dot{\epsilon} \mu^n L \sin^2\theta \cos\theta d\theta \quad (10)$$

$$\dot{\epsilon} = (N-2) \int_{\pi/3}^{2\pi/3} \{(1-q)g_2 + qg_2 \sin \phi\} \dot{\epsilon}^n \sin \phi \, d\phi \quad (11)$$

となる. ここで, ϕ は着目する 2 つの粒子に対し第 3 の粒子が接触する角度, q は定数である. 粒子の形状変化に関しても ϕ についてのみ平均をとり, θ の関数とする.

$$\dot{\epsilon}^n = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{\dot{L}}{L} d\phi = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \beta_k \beta_l d_{kl} d\phi = d_{zz} \sin^2 \theta \quad (12)$$

$$\dot{a}/\bar{a} = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} (d_{kk} - \beta_k \beta_l d_{kl}) d\phi = d_{zz} \cos^2 \theta \quad (13)$$

$$\dot{a}/\bar{a} = -(\alpha g_2 + g_3)(\beta_k \beta_l d_{kl} - \dot{\epsilon}) = -(\alpha g_2 + g_3)(\dot{\epsilon}^n - \dot{\epsilon}) \quad (14)$$

2.3 シミュレーション方法

式(3)~(5)および式(9)~(14)を用いて円筒容器内の加圧焼結の計算を行うが, 式(9)~(11)の積分は変形ステップごとに数値的に行う. また, 式(11)と式(12)が同時に満足するような $\dot{\epsilon}$ と $\dot{\epsilon}^n$ は, 繰り返し収束計算を行うことで決定する. 式(3)における粘性係数 η の温度依存性は前報²⁾と同一の式を用い, 加熱, 冷却過程を考慮する. 各定数も前報と同様の値を採用する ($\delta = 0.52$, $N = 7.3$, $q = 1.629$).

セル構造の異方性について後述するように検証実験を行う際, 接触面 a と角度 θ との関係を計測することは困難である. 一方, Fig. 2 は実験で得られる MHS 焼結体を切断した例であり, (a)に示すような切断面における見かけの接触長さ D と角度 θ' を計測することは可能である. 従って比較のためにはシミュレーションにおいて切断面に現れる D の期待値と θ' の関係をさらに計算することとする. ある見かけ角度 θ' に現れる接触面の真の角度 θ は Fig. 3 に示す ϕ' の関数として次式より算出できる.

$$\theta = \tan^{-1}(\cos \phi \tan \theta'), \quad \phi = \tan^{-1}(\tan \phi' \sec \theta') \quad (15)$$

これよりシミュレーションによって得られる r と θ の関係を r と θ' , ϕ' との関係に置き換え,

$$D_{\text{ave}} = \frac{1}{2} \int_{-\pi/2}^{\pi/2} 2\bar{r}P(\phi') d\phi' \quad (16)$$

に代入し, 期待される平均値 D_{ave} と θ' の関係を得る. ここで, $2\bar{r}$ は接触面を円形としたときの平均切断長さで $\bar{r} = \pi r/4$, $P(\phi')$ は確率密度関数で $P(\phi') = \cos \phi'$ である.

3. 焼成実験とシミュレーションとの比較

3.1 実験方法

焼結体試料と高さ減少率 $\Delta H/H_0$ のデータは前報²⁾で得たものを用いる. 使用した MHS (フラウンホーファー製) は直径 $2R_0 = 1.9 \text{ mm}$ で, シェル厚 w が 16, 24, 32 μm の鉄中空球 3 種類であり, それぞれ S-1, S-2, S-3 と表記する. MHS は円筒容器内で(成形体の初期高さ $H_0 = 55 \text{ mm}$, 直径 30 mm), $\sigma_{zz} = 3.8 \times 10^{-4}$, 1.9×10^{-3} , $3.9 \times 10^{-3} \text{ MPa}$ の各圧力の下, 所定温度で 10 分間焼成された. 加熱, 冷却速度は 100 K/h である.

構造異方性としては 2 粒子の接近と接触面の拡大について方向による差異を調査する. 焼結体を樹脂で固め切断し, まず, 直交する x - z , y - z の 2 平面の断面写真から同一の粒子ペアについて, 中心間距離 L の投影長さ Δx , Δy , Δz を測定し, $L = \sqrt{\Delta x^2 + \Delta y^2 + \Delta z^2}$ および $\theta = \sin^{-1}(\Delta z/L)$ を算出した. また, 接触面の拡大については前述したように接触面積に

Fig. 3 Relationship between (θ, ϕ) and (θ', ϕ') , two pairs of angles representing contact point

Fig. 4 $\Delta H/H_0$ calculated by anisotropic and isotropic models, compared with experimental data, where S-2 is MHSs with $2R_0 = 1.9 \text{ mm}$ and $w = 24 \mu\text{m}$

代わり, x - z または y - z の断面写真から見かけの接触長さ D の角度 θ' に対する分布を測定した.

3.2 実験と計算との比較

$\Delta H/H_0$ に関する実験と計算の比較を Fig. 4 に示す. 図には前報²⁾における等方性モデルによる計算結果も示してある. 異方性モデルによる計算値の方が実験値との一致が良くなったと考えられる. これらの焼結体試料の中から $\Delta H/H_0$ が 5 % と 33 % となった S-1 に関して構造異方性を調べた. Fig. 2(b), (c)に断面写真を示す. Fig. 5 は 20~30 個の接触している粒子ペアについて L を計測した結果と, これに対応する計算結果である. 計算では $\Delta H/H_0$ が増加しても容器の拘束により, 水平方向 ($\theta = 0^\circ$) の L は変化しない. また, 軸方向 ($\theta = 90^\circ$) の L の減少率は $\Delta H/H_0$ と一致する. 実験では MHS の寸法のばらつきの影響があるが, 計算と同様の傾向が見られた. Fig. 6 に同試料の見かけの角度 θ' と接触長さ D の関係を示す. 太線が計算による期待値 D_{ave} であるが, 参考のために D の最大値となる接触面直径 $2r$ も細線で示してある. 単軸加圧であるため θ' が小さくなるにつれ D は減少するが, $\theta' = 0^\circ$ においても $D = 0$ とならないのは, 計算においては MHS 同士の干渉の結果である $\dot{\epsilon}$ を考慮しているからである. 実験も同様の傾向が得られた.

3.3 誤差の検討と考察

Fig. 6 に示した D の計測値は平均すると計算値よりも大

Fig. 5 Relationship between L and θ for S-1 sintered at 1473 K, where L is normalized by initial value $L_0 = 2R_0$

Fig. 7 Relationship between L/L_0 and θ for S-3 sintered at 1473 K

Fig. 6 Relationship between D and θ' for S-1 sintered at 1473 K, where D is normalized by $D_0 = 2R_0$, and Max. D equals $2r$ in calculation

Fig. 8 Relationship between D/D_0 and θ' for S-3 sintered at 1473 K, where experimental values of D are averaged by 5° with and without correction

きめになっている。接触の程度が大きければ、そのばらつきは正／負に振れるが、 $\Delta H/H_0 = 5\%$ では全体に接触の程度が小さく、負側は“接触なし”となって計測されず、正側にばらつきが偏ったと考えられる。一方、 $\Delta H/H_0 = 33\%$ については中空球の変形が大きすぎ、円形接触面を仮定したシミュレーションの適用範囲を越えたためと考えられる。これらのことより、中程度の $\Delta H/H_0 = 15\%$ となったS-3の焼結体について、同様の計測を行った。断面写真はFig. 2(d)に示してある。 L についてはFig. 7に示すように、Fig. 5と同様、計算との一致が確認された。Fig. 8の白丸は D について4断面、合計約1600個のペアを調査し、 θ' の 5° ごとに平均をとった結果である。 $\theta' = 85 \sim 90^\circ$ では計算との良い一致が得られたが、低角になるに従い、本試料でも不一致が現れた。そこで、ばらつきがなければ本来接触しうる潜在的ペアが低角側に多くあると考え、これを考慮することで平均値の補正を行うことにする。ただし、負の D を評価することは困難であるため、 $D = 0$ で近似する。また、断面写真よりこれらのペアを同定することは困難であるため、その数はFig. 9に示す接触数分布から推定する。単軸

Fig. 9 Ratio of number of contacts in direction θ' to that in $\theta' = 85 \sim 90^\circ$ for S-3 sintered at 1473 K ($\Delta H/H_0 = 15\%$), which is used for correction in Fig. 8

Fig. 10 Appearance of sintered body of S-2, fired with $\sigma_{zz} = 1.9 \times 10^{-3}$, at $\Delta H_{\text{tot}}/H_0 = 27\%$ in compression test, where $\Delta H_{\text{tot}}/H_0$ is total reduction in height, including $\Delta H/H_0$

加圧による軸方向($\theta = 85 \sim 90^\circ$)の圧縮は確実に、本来接触すべきペアはすでに接触済みであると仮定し、この方向の数を基準接触数とする。Fig. 9の縦軸は各方向の接触数と基準接触数との比になっている。基準数に達していない分を潜在的ペアの数と見なし、平均をとる際の分母をこの比で除した補正値をFig. 8に◆印で示す。低角側の不一致は改善され、本モデルの妥当性は確認できたと考えられる。

4. 圧縮強度試験

4.1 試験方法

焼成時の成形体高さ減少率 $\Delta H/H_0$ はFig. 6, Fig. 8に示したようにMHS同士の接触面の拡大に対応している。ここでは焼成条件が異なる焼結体について圧縮試験を行い、 $\Delta H/H_0$ すなわち接触面拡大と焼結体強度との関連性を調べる。焼結体試料は前報²⁾で作製したものも含め、1273～1473 Kで10分～5時間焼成したものを用いた。圧縮試験は室温で準静的に行った。

4.2 試験結果

Fig. 10に圧縮中の焼結体の外観例を示す。 $\Delta H/H_0$ が小さい焼結体は(a)のように縦割れが生じ、特に小さいものは圧縮開始と同時に上部からの崩壊が始まった。縦割れが生じたのは前章で検討したように、MHS同士の水平方向の接触面積が小さいためと考えられる。Fig. 11に公称応力-圧縮率曲線の例を示す。横軸の総高さ減少率 $\Delta H_{\text{tot}}/H_0$ は、圧縮試験による圧縮率に $\Delta H/H_0$ を加算したものである。 $\Delta H/H_0$ が小さい焼結体は縦割れが生じた時点で応力が低下した。 $\Delta H/H_0$ が大きいものはセル構造特有の変形特性を示す健全な焼結体を得られている。

Fig. 12は $\Delta H/H_0$ および焼成条件と、破壊の有無との関係をまとめた図である。焼成条件にかかわらず、 $\Delta H/H_0 = 15\%$ 以上で健全な焼結体を作製できることが分かった(計算による $\Delta H/H_0 = 15\%$, $\theta = 90^\circ$ での接触は $r/R_0 = 38\%$)。これより接触面=接合面と見なせ、接触面積が焼結体強度を判断する指標になり得ると解釈できる。すなわち、寸法形状だけでなく、強度的にも健全な焼結体を得るための焼成条件最適化に、本手法が利用できることが確認された。

5. 結 言

構成式にセル構造の異方性の発達を考慮し、金属中空球の加圧焼結過程のシミュレーションを行った。実験により

Fig. 11 Compressive behavior of sintered body of S-2, where stress is plotted against total reduction in height

Fig. 12 Relationship between reduction in height during firing and strength of sintered bodies of S-2. Sintering time is 10min except three samples noted as 5, 30, 50 h

焼結体における中空球同士の接近、接触の異方性を調査し、計算結果と比較することで、本手法の妥当性を確認した。また、焼結体の圧縮試験により中空球同士の接触と焼結体強度との関連性を明らかにし、接触程度を評価可能な本手法の有効性を確かめることができた。

本研究の一部はNEDOプロジェクト「金属中空球成形体を用いた自動車軽量部品の開発」で実施した。一部は科研費(16560636)の助成を得た。記して謝意を表す。

参 考 文 献

- 品川一成・吉村英徳・三原豊・鮎川佳弘・村上勝彦：塑性と加工，**47**-543 (2006), 323-327.
- 品川一成・吉村英徳・三原豊・鮎川佳弘・村上勝彦：同上，**47**-543 (2006), 328-332.
- Jagota, A., Mikeska, K. R. & Bordia, R. K.: J. Am. Ceram. Soc., **73**-8 (1990), 2266-2273.
- Jagota, A., Dawson, P. R. & Jenkins, J. T.: Mechanics of Materials, **7** (1988), 255-269.