射出成形用 AZ91D 粒子に関する研究 (第1報, 圧密後のかさ密度に与える粒子寸法の影響)

小武内 清貴^{*1}, 福田 忠生^{*1}, 尾崎 公一^{*1}

Study on AZ91D chip for injection molding (1st Report, Effect of dimension on bulk density after consolidation)

Kiyotaka OBUNAI^{*1}, Tadao FUKUTA^{*1} and Koichi OZAKI^{*1}

^{*1} Department of Systems Engineering, Okayama Prefectural University
111 Kuboki, Soja-shi, Okayama 719-1197, Japan

Received 8 May 2015

Abstract

The purpose of this study is to propose an effective model to estimate the filling fraction of compacts made from magnesium alloy particles, considering the effects of particle size, temperature and pressure. In order to investigate the influence of the particle size, six kinds of particles were prepared in which the cross sectional area was different. The test particles made from AZ91D were poured into a compression vessel and then a given pressure was applied to the piston of vessel for six hours under constant temperature condition. During the testing, the displacement of piston was measured to evaluate the change of bulk density of compacts, and then the filling fraction was simply calculated by the ratio of bulk density of compacts and density of AZ91D. Test results showed that the filling fraction of the largest particles was lower than that of other particles in the temperature region between 523 K and 623 K. The densification rates of compacts were increased with increase of applied pressure and temperature elevation. The experimental equation of densification rates of compacts was determined to discuss the effects of cross sectional area on densification rate. Determination results showed that the transition point to the steady creep was increased with increase of cross sectional area of particles.

Key words : Bulk density, Filling fraction, Densification rate, Magnesium alloy, Thixomolding

1. 緒 言

マグネシウム合金(以下, Mg 合金と略)は, 軽量かつリサイクル性が高く, 省エネルギーや環境負荷低減の観点から近年注目されている素材である. Mg 合金は塑性加工性に乏しいため, 主に鑄造法で成形されるが, ダイカスト法では防燃ガスとして使用される SF₆ (京都議定書対象物質) の温暖化係数が高いことが問題となっている. 一方, 射出成形法(チクソモールディング法)は粒子状固体原料を成形機内で溶融し, 金型内に射出後, 成形品として取り出す手法である. 溶湯が大気に触れないことから防燃ガスが不要なことや, 成形品の機械的性質がダイカスト法に比べて優れるなどの利点がある(福田他, 2010). しかし, 射出成形機内部における Mg 合金粒子群の輸送・融解現象は高温高压のため実測が困難なことから定量的に解明されておらず, 数値解析による予測技術の構築が望まれている. 筆者らはこれまでに Mg 合金射出成形機内部の Mg 合金粒子群の輸送・溶解現象の数値シミュレーションを行い(尾崎他, 2007), その中で Mg 合金粒子群の見掛け物性値の定量的評価が重要であるとの知見を得た. 粒子群の見掛け物性値は, 粒子の物性値と粒子間に存在する流体の物性値, そして粒子の質量分率から推算で

きる(日本物性学会, 2008)が, 射出成形機内の Mg 合金粒子群は加熱・圧縮により質量分率が変化することが問題となる。これらに関しては, 粉末成形法に関する HIP(Hot Isostatic Pressing) 法(藤川, 真鍋, 2003) など粉末成形法の分野で検討されており, 例えば圧力と厚密体の相対密度との関係については Shapiro らの式(Belousov and Fedin, 1978) が知られており, Helle ら(Helle, et al. 1985) は圧力-温度-時間を考慮した圧密化速度式を提案している。しかし, これらの研究は, 粒子寸法が小さく, またその形状も球状のものを対象としており, 加熱圧縮時間も長い。そのため, 粉末成形法に比べて粒子寸法が大きく時間スケールも短い Mg 合金射出成形では, 従来の結果を適用できないものと予想される。

そのため, チクソモールドイング射出成形機内の Mg 合金粒子の現象を解明するためには, 粒子充填層の見掛け物性値を測定する必要がある。筆者らは過去に 2 種類の Mg 合金を用いて粒子圧密体を作製し, そのかさ密度に与える温度, 見掛け圧力の影響について調査を行い, 実験整理式にまとめた(尾崎他, 2006)が, 粒子寸法の影響については未だ明らかとなっていない。本報では, チクソモールドイング法で実際に使用されている Mg 合金粒子と, 実際に使用されているものと異なる形状の Mg 合金粒子を用いた加熱・圧縮実験によって, Mg 合金粒子圧密体を作製し, Mg 合金粒子圧密体のかさ密度の測定を行った。そして, かさ密度に与える Mg 合金粒子の形状および温度, 時間の影響についてそれぞれの粒子を比較し, 検討を行った。これらを踏まえ, Mg 合金粒子圧密体のかさ密度予測式を提案する。

2. 実験装置及び方法

2.1 供試 Mg 合金粒子

供試材として, Mg 合金粒子 AZ91D ((株)日本製鋼所 製)を用いた。表 1 に粒子寸法の数量 100 についての平均値 X_m, Y_m, Z_m (長いものより順に X, Y, Z と定義)と標準偏差 $\sigma_X, \sigma_Y, \sigma_Z$, 質量と密度より求めた粒子 1 個当たりの平均体積 V_m を示す。さらに, 粒子を平均体積 V_m と粒子長 X_m を有する直方体と仮定し求めた断面積 S_m と実際の粒子形状も示す。なお, 粒子 C は実際に射出成形機で使われている粒子である。粒子 A ~ E に関しては, 断面積の影響を検討するため, X_m をほぼ等しくし, S_m を変化させている。粒子 C を基準とすると, 粒子 A, B, D, E の S_m はそれぞれ粒子 C の 0.4, 0.7, 1.5, 1.8 倍となっている。また, 粒子 F に関しては, X_m が粒子 C の 1.2 倍, S_m が粒子 C の 4.9 倍となっている。写真から分かるように粒子はいずれも概ね直方体である。

2.2 マグネシウム合金粒子充填層の作製法

前述の粒子を図 1 に示す SUS310 製円筒型圧縮容器に約 32 g 充填した。粒子を充填した容器を加熱炉を装備した引張試験機に圧縮治具と共に装着し, 治具温度が所定の温度(423 ~ 723 K)に達し, 安定するまで加熱した後, 所定の荷重(5 ~ 20 kN, 見掛け圧力 $P = 2.5 \sim 10$ MPa)で 6 h 圧縮した。加熱・圧縮により粒子同士が凝着し, 圧密体(以下, 試料と呼ぶ)となる。容器から取り出した試料の直径 d と厚さ h 及び質量 m を測定し, これらの計測値が

Table 1 Dimensions of test Mg alloy particles.

Particle	A	B	C	D	E	F
X_m [mm]	4.25	4.28	4.27	4.39	4.42	5.19
Y_m [mm]	1.07	1.40	1.62	2.08	2.34	3.10
Z_m [mm]	0.50	0.69	0.77	1.08	1.19	2.12
σ_X [mm]	0.09	0.13	0.09	0.15	0.17	0.66
σ_Y [mm]	0.12	0.21	0.26	0.16	0.23	0.39
σ_Z [mm]	0.09	0.18	0.30	0.16	0.24	0.38
V_m [mm ³]	1.57	2.43	3.54	5.35	6.28	17.4
S_m [mm ²]	0.37	0.57	0.83	1.22	1.42	3.35
Shape

Fig. 1 Detail of compression test vessel.

ら得たかさ密度 ρ_a と Mg 合金の密度 ρ_s から充填率 ρ_a/ρ_s を算出した．充填率の値は，空隙に存在する空気の質量を無視し，次式により求めた．

$$\rho_a/\rho_s = \frac{4m}{\rho_s \pi d^2 h} \tag{1}$$

また，試験中の密度変化については，容器内径 D と経時的に測定した試験機ストローク δ ，試料質量 m から概算した．

2.3 圧密体内での粒子接触割合の測定方法

加熱圧縮実験によって得られた圧密体断面画像から画像内での全粒子周長に占める粒子同士の接触部の長さの割合（以下，接触割合と略す）を算出した．各試料を放射状に4分割し，その1断面のデジタル画像より Mg 合金部分を白色，空隙部を黒色とする二値化画像を得た．次に，接触部を断面画像より判別し，二値化後の画像に追記した．最後に自作の画像処理コードにて，粒子輪郭を判別し，全粒子周長 ΣL_p と粒子同士の接触部の長さ ΣL_c を計測し，接触割合を算出した．なお，事前調査より，複数断面で計測した接触部の長さとの間に，大きな差が生じないことを確認している．

Load time [min]	A particles	C particles	F particles
0	$\rho_a/\rho_s = 0.49$	$\rho_a/\rho_s = 0.45$	$\rho_a/\rho_s = 0.46$
360	$\rho_a/\rho_s = 0.86$	$\rho_a/\rho_s = 0.85$	$\rho_a/\rho_s = 0.73$

Fig. 2 Cut-view of packed bed of Mg alloy particles ($T_m \simeq 573$ K, $P_a = 5.0$ MPa). The longest side (X_m) of each particle is perpendicular to the loading direction

Fig. 3 Variation of $\Sigma L_c/\Sigma L_p$ of with ρ_a/ρ_s . $\Sigma L_c/\Sigma L_p$ was increased with increase of ρ_a/ρ_s .

3. 実験結果及び考察

3.1 かさ密度の時間依存性

図2に実験前の充填状態ならびに $P_a = 5.0$ MPa, $T_m = 573$ K における実験後の充填状態をそれぞれ示す．空隙部の面積は，粒子の断面積 S_m が大きくなるにつれて大きくなっている．また，圧縮された圧密体内では粒子が安定な状態で詰まっているので，多くの粒子は長辺 X_m および Y_m が荷重方向に直交するように並んでいる．これは，圧縮初期の低充填率状態において，粒子が剛体回転し，長辺 X_m および Y_m が荷重方向に直交するように配向したためだと考えられる．よって，断面 S_m の寸法が充填率に及ぼす影響が大きく，長辺 X_m および Y_m が充填率に及ぼす影響は小さいと考えられる．

続いて，図3に充填率 ρ_a/ρ_s と接触割合 $\Sigma L_c/\Sigma L_p$ の関係を示す．いずれの試料においても， $\rho_a/\rho_s < 0.7$ では接触割合 $\Sigma L_c/\Sigma L_p$ の変化は小さく， $\rho_a/\rho_s > 0.7$ で充填率 ρ_a/ρ_s と共に直線的に増大していることがわかる．

図4に，各試料について見掛け圧力 $P_a = 5.0$ MPa で圧縮した際の見掛け密度 ρ_a の経時変化をそれぞれ示す．図(a)より試料Aでは，かさ密度 ρ_a の増加割合は温度 T_m に依らず圧縮開始直後に急増し，その後は減少する．これは，図3で示したように， ρ_a の増加に伴う粒子間の接触割合の増大によって，接触部における応力が低下するため，塑性変形が生じにくくなるためと考えられる．また， ρ_a の経時変化を温度域毎に見ると， $T_m \leq 478$ K と比べ， $T_m \geq 526$ K では $t > 140$ min における ρ_a の増加が顕著となっている．これは， $T_m \leq 473$ K の温度域で非底面すべりがより活発になり，変形抵抗が急激に減少するためと考えられる．

続いて，試料A，試料Bおよび試料Cを比較すると，同様な ρ_a の増加傾向を示すが， $t \geq 120$ min の領域において，試料A, Bの ρ_a が試料Cに比べて低くなっている．一例を示すと， $T_m \simeq 720$ K の温度条件において， $t \leq 120$ min での ρ_a は，試料A ($\rho_a = 1654$ kg/m³)，試料B ($\rho_a = 1683$ kg/m³)，試料C ($\rho_a = 1685$ kg/m³) であった．これは，加圧開始前の ρ_a の平均値が，試料A ($\rho_a = 619$ kg/m³)，試料B ($\rho_a = 717$ kg/m³)，試料C ($\rho_a = 780$ kg/m³) となっており，試料A, Bが試料Cに比べて低いために生じたと考えられる．次に，試料C，試料Dおよび試料Eを比較すると，いずれの温度域においても各試料間の差は小さく，ほぼ同様な傾向を示している．また，試料Fは試料A～試料Eに比べ圧縮開始直後の急激な増加量が少なく，その後の増加量もほぼ変化がない様に見て取れ

Fig. 4 Variations of ρ_a with time. ρ_a was increased with increase of time and temperature elavation.

Fig. 5 Variations of ρ_a with time for A particle. ρ_a was increased with increase of applied pressure. Fig. 6 Variations of ρ_a with time for C particle. ρ_a was increased with increase of applied pressure. Fig. 7 Variations of ρ_a with time for F particle. ρ_a was increased with increase of applied pressure.

る．そのため，時間を固定して比較すると，殆どの温度域でかさ密度 ρ_a が他の試料と比較して低い傾向を示している．次に，圧力による影響を観察するために，試料 A，C および F の見掛け圧力 $P_a = 2.5, 5.0$ および 10 MPa で圧縮した際の経時変化を図 5～7 に示す．各圧力を比較していくと， ρ_a はいずれの圧力においても圧縮開始直後に急激に増加し，その後，増加割合を減少させる傾向にあるが， ρ_a の増加量は見掛け圧力 P_a が高いほど大きいことがわかる．

3.2 充填率の温度及び圧力依存性

図 8 に，見掛け圧力 $P_a = 5.0$ MPa における各試料の試験終了時の充填率 ρ_a/ρ_s と温度 T_m の関係をそれぞれ示す．図より，離散的なプロットであるため，定性的な評価ではあるが，粒子 A では，見掛け圧力は P_a が一定の場合，充

Fig. 8 Variation of ρ_a/ρ_s with T_m . ρ_a/ρ_s was increased with increase of temperature elavation.

充填率 ρ_a/ρ_s は温度 T_m の上昇に伴い大きくなる傾向が見られた。また、 ρ_a/ρ_s の T_m への依存性は、 $T_m \leq 473$ K において小さく、 $473 \text{ K} \leq T_m \leq 573 \text{ K}$ で大きくなり、 $T_m \geq 573 \text{ K}$ で再び小さくなる傾向が見られた。このため、依存性の小さい温度域では ρ_a/ρ_s の増加量が少なく、大きい温度域では ρ_a/ρ_s の増加量が多くなる様に見て取れる。これは 473 K 以上の温度域では、それ以下の温度域に比べ非底面すべりがより活発になり、変形抵抗が急激に減少することと、473 K 以下および 573 K 以上の温度域では、変形抵抗の温度依存性が小さいことに起因すると考えられる(日本マグネシウム協会, 2000)。試料 B ~ 試料 E に関しても、試料 A と定性的に同様の傾向を示している。しかしながら、試料 F は、試料 A ~ E が 473 ~ 573 K の温度域で充填率 ρ_a/ρ_s の急激な増加を示しているのに対して、より高温である 623 ~ 673 K の温度域で急激な増加を示している様に見て取れる。このため、試料 F は 523 ~ 623 K の温度域で試料 A ~ E と比べ低い傾向がある様に見て取れる。これは、試料 A ~ E では、粒子同士の接触点近傍のみの変形で充填率 ρ_a/ρ_s が増加すると考えられるが、断面積 S_m が大きい粒子 F の場合には、粒子表面から離れた領域の変形も必要であり、その領域のクリープ変形に必要な活性化エネルギーが表面に比べて大きいためだと考えられる。これらについては、試料圧縮中の ρ_a/ρ_s の経時変化を基に、より詳細な検討を行う。

次に、試料 A, C および F の見掛け圧力 $P_a = 2.5, 5.0$ および 10 MPa における試料の充填率 ρ_a/ρ_s と温度 T_m の関係を図 9 に示す。 P_a の影響を観察すると、 T_m が一定の条件では、 ρ_a/ρ_s は P_a と共に増大することがわかる。また、 $P_a = 10 \text{ MPa}$ の条件では、 $T_m \geq 623 \text{ K}$ で ρ_a/ρ_s の温度依存性が小さくなるが、これは ρ_a/ρ_s が上限値である 1 に近いいためと考えられる。

次に、充填率の増加速度に及ぼす充填率 ρ_a/ρ_s の影響を観察するため、かさ密度 ρ_a の経時変化のデータを Z 対 ρ_a/ρ_s の座標にプロットしたものを図 10 および 11 に示す。ここに Z はかさ密度比の増加速度に温度補正因子を乗じたもので、次式により定義される。

$$Z = \frac{d(\rho_a/\rho_s)}{dt} \exp \frac{Q_C}{RT_k} \quad (2)$$

$d(\rho_a/\rho_s)/dt$ を求める際、試験機ストローク δ の測定値が微小な変動を伴っていたので、この影響を排除するため、 $t \leq 1 \text{ min}$ では 10 秒間隔、 $1 \text{ min} < t \leq 5 \text{ min}$ では、30 秒間隔、 $5 \text{ min} < t \leq 30 \text{ min}$ では、5 分間隔、これ以降は 30 分間隔の ρ_a の測定値を数値微分した。また、試料 A ~ E について、温度補正因子中の活性化エネルギーは、

Fig. 9 Variations of ρ_a with T_m and P_a . ρ_a was increased with increase of P_a and temperature elavation Fig. 10 Variation of densification rate with ρ_a/ρ_s . The densification behavior was classified into three types with respect to test temperature.

Table 2 Material data	
Atomic Volume [†] , (Busk,1950)(Busk,1952) Ω [m ³]	7.75×10^{-30}
Yield strength(AZ91D), σ_y [MPa]	160
Yield strength(AM50A), σ_y [MPa]	125
Shear modulus [†] , (Frost,etal.1982) G [GPa]	$16.6\{1 - 5.3 \times 10^{-4}(T_k - 300)\}$
Volume diffusion [†] , (HandbookofAdvancedMagnesiumTechnology,2000) D_v [m ² /s]	$D_{v0} \exp\{-Q_v/(RT_k)\}$
D_{v0} [m ² /s]	1.0×10^{-4}
Q_v [kJ/mol]	140
Grain boundary diffusion [†] , (Frost,etal.1982) δD_b [m ³ /s]	$\delta D_{b0} \exp\{-Q_b/(RT_k)\}$
δD_{b0} [m ³ /s]	5.0×10^{-12}
Q_b [kJ/mol]	92
Power-law creep [†] , (HandbookofAdvancedMagnesiumTechnology,2000), $\dot{\epsilon}$ [s ⁻¹]	$\alpha \exp\{-Q_v/(RT_k)\}(\sigma/G)^n$
α [s ⁻¹]	3.97×10^{24}
n [-]	6.24

[†] : Values for pure Mg[‡] : Determined with data of precipitation hardening Mg alloys.

粒界拡散の値に近い $Q_c = 80$ kJ/mol を用いてある。これは、上述した通り、殆どの粒子では、主に粒子配置の変化により充填率が増大するため、接触点である粒子表面の変形特性を反映するように配慮したものである。

まず、試料 A に関する見掛け圧力 $P_a = 5.0$ MPa における試料の充填率 ρ_a/ρ_s の変化を低温度域 ($T_m = 431, 478$ K)、中温度域 ($T_m = 526, 574$ K) および 高温度域 ($T_m = 626, 676, 719$ K) の 3 つの温度域に分けて図 10 に示す。まず、低温度域での実験値は、充填率 $\rho_a/\rho_s \leq 0.6$ の範囲において、急激に低下している。一方、中温度域での実験値は、初期には低温度域でのそれと同様に急激に低下するものの、 $\rho_a/\rho_s \simeq 0.56$ 付近から 0.8 の範囲において、な

だらかな低下傾向を示す．高温度域での実験値は，初期には中温度域と同様になだらかに低下するものの， $\rho_a/\rho_s \simeq 0.87$ で再び大きく低下している．このような変化については以下のような現象が生じていると考えられる．充填率が低い圧縮開始直後は，粒子の変形を殆ど伴うことなく粒子配置の変化により充填率が增大するため，充填率の増加速度が大きくなる．粒子密度の増加に伴い粒子同士の接触が強固なものとなり，充填率の増加には接触点近傍での粒子の変形が必要となるため，充填率の増加速度が急激に低下する．非底面すべりが不活発な低温度域での条件では，このまま実験終了へと至るが，非底面すべりがより活発な中・高温度域の条件では，接触部近傍のクリープ変形により充填率の増加を継続する．前述したとおり，充填率の増加に伴い粒子同士の接触面積は増加するため，充填率の増加速度は徐々に低下する．そして， $\rho_a/\rho_s \geq 0.87$ と充填率が高くなったときには，粒子間に形成される僅かな隙間を埋めるためには粒子の大きな変形を必要とするため，充填率の増加速度は大きく低下する．実際の成形機内部においては，Mg 合金粒子の温度は低温から高温まで連続的に変化し，充填率もそれに伴って変化する．よって，以降見掛け圧力を固定し，各温度条件での結果を連続的に示すことにより，温度変化に伴う各試料の充填率の変化を議論する．

図 11 中の一点鎖線と破線は，球状粒子の HIP に関する Helle らの文献 (Helle, et al. 1985) による予測値を示す．予測値を求める際には，直方体状粒子を体積が等しい球に置き換え，降伏，べき乗則クリープ，粒子境界間拡散（粒界拡散および体積拡散）を考慮し，表 2 に示す諸特性を用いた．本実験結果と予測値を比較すると，すべての試料に関して，充填率 ρ_a/ρ_s を固定した場合， Z の値は，実験値の方が数桁大きいことが分かる．これは，本実験では圧縮開始直後からの変形を対象にしているの，遷移クリープの影響を受けるが，計算値を求める際には定

Fig. 11 Variation of densification rate with ρ_a/ρ_s . The estimation of Helle et al showed poor agreement between experimental results.

Fig. 12 Variation of densification rate with ρ_a/ρ_s for A particle.

Fig. 13 Variation of densification rate with ρ_a/ρ_s for C particle.

Fig. 14 Variation of densification rate with ρ_a/ρ_s for F particle. According to Fig. 12~14, the gradient of densification rate at $0.65 \sim 0.85$ were independent of change of P_a .

Fig. 15 Variations of densification rate with P_a . The gradient of densification rate was coincident with the stress exponent of the power-law creep of AZ91D.

常クリープの値を用いたことや、上述したように、本実験結果は主として粒子配置の変化により充填率が増加するため、粒子の変形は接触点近傍にのみ限定され、球状粒子ほどの大きな変形を必要としないことなどが考えられる。また、図 11 (c) には筆者らが前報 (尾崎他, 2006) にて提案した実験式を併記している。この実験式の立式に用いた粒子寸法は $X_m = 2.5 \text{ mm}$, $Y_m = 1.6 \text{ mm}$, $Z_m = 1.0 \text{ mm}$ であり、試料 C のそれと比較して、 X_m の寸法に差が見られるものの、 Y_m および Z_m についてはほぼ同程度の寸法である。次に、各試料を比較していく。

図 11 (a) の試料 A ～ 図 11 (e) の試料 E を比較すると、いずれの試料も定性的には同様な傾向を示すが、低充填率域において、充填率 ρ_a/ρ_s を固定した場合、試料 A, B の Z は試料 C ～ E のそれに比べて低くなっている。これは、前節で述べた通り、初期充填率の影響を受けたものと考えられる。低充填域以降において粒子長の影響を観察すると、概ね同様の傾向を示しており、充填率の増加速度に及ぼす粒子長の影響は小さいと考えられる。なお、図 11 (f) の粒子 F については、データのまとまりが良くなるよう活性化エネルギーを試行錯誤的に決定し、 $Q_c = 110 \text{ kJ/mol}$ とした。これは、前述した通り、断面積が大きい場合、接触点近傍のみならず粒子内部の変形も必要となり、試料 A ～ E に比べ活性化エネルギーが高くなったためと考えられる。

次に、試料 A, C および F の見掛け圧力 $P_a = 2.5, 5.0$ および 10 MPa における Z と T_m の関係を図 12 ～ 14 に示す。図より、 P_a の影響を観察すると、いずれの P_a に関しても、充填率 $\rho_a/\rho_s = 0.65 \sim 0.85$ の範囲における、充填率の増加速度の低下の傾きが等しくなっている。そこで、充填率の増加速度に及ぼす見掛け圧力 P_a の影響を観察するために、図 12 ～ 14 のデータを Z 対 P_a の座標にプロットしたものを図 15 に示す。なお、図中には、 $\rho_a/\rho_s = 0.645 \sim 0.655, 0.745 \sim 0.755$ および $0.845 \sim 0.855$ 範囲内のデータを抽出している。いずれの粒子も、応力指数 $n \simeq 3.1$ となり、この値は、Mg-Al 合金のべき乗則クリープに近い値である。

3.3 充填率の増加速度の予測式構築

本実験結果を数値計算に利用するには、実験整理式にまとめる必要がある。粒子同士の接触点近傍のひずみ速度は $\{d(\rho_a/\rho_s)/dt\}$ と ρ_a/ρ_s の関数、応力は P_a と ρ_a/ρ_s の関数になると考えられるので、クリープ変形のデータ整理法を参考にすれば、 $\{d(\rho_a/\rho_s)/dt\}$ は ρ_a/ρ_s , P_a , 粒子断面積 S_m , 温度補正因子の関数になると考えられる。また、充填率に伴うかさ密度の増加速度の低下割合は、低充填率域と高充填率域では急激に、中間領域ではなだらかに変化することから、各充填率域において滑らかに接続するものとして、次式の関数形により結果の整理を試みた。

$$\frac{d\rho_a}{dt} = (1 + f_1)(f_2^{-1} + f_3^{-1})^{-1} \rho_s \left(\frac{P_a}{G} \right)^n \times \exp \left(-\frac{Q_c}{RT_k} \right) \quad (3)$$

Fig. 16 Variation of C_1 , C_2 and C_3 with S_m . The C_1 , C_2 and C_3 was increased with increase of S_m . Fig. 17 Variation of densification rate with ρ_a/ρ_s . The estimation of proposed model showed good agreement between experimental results.

f_1 , f_2 および f_3 は以下の関数形を用いた.

$$\begin{aligned} f_1 &= C_1(\rho_a/\rho_s)^{n_1} \\ f_2 &= C_2(\rho_a/\rho_s)^{n_2} \\ f_3 &= C_3(\rho_a/\rho_s)^{n_3} \end{aligned} \quad (4)$$

ここで, C_1 , C_2 および C_3 はそれぞれ低充填域, 中充填域及び高充填域の接続位置の粒子断面積 S_m への依存性を表す関数であり, n_1 , n_2 および n_3 はそれぞれ低充填域, 中充填域及び高充填域における $\{d(\rho_a/\rho_s)/dt\}$ の ρ_a/ρ_s

への依存性を表す関数である。

試料 A ～ 試料 F のそれぞれの実験結果に対して最小二乗法を適用し、近似式を得た。さらに、試料 B, D, E に関しては見掛け圧力 $P_m = 5.0$ MPa についてのみ実験を行っているが、かさ密度の増加速度は概ね同様な傾向を示しており、応力指数 $n \simeq 3.1$ と仮定し、 n_1, n_2 および n_3 については試行錯誤的に決定し、 $n_1 = -95, n_2 = -16, n_3 = -146$ とし、近似式を求めた。

図 16 に、 C_1, C_2 および C_3 の算出結果と粒子断面積 S_m との関係を示す。この結果に最小二乗法を適用し、以下の近似式を得た。

$$\begin{aligned} C_1 &= 1.9 \times 10^{-30} \exp(3.8 \times S_m) \\ C_2 &= 1.1 \times 10^{10} \exp(1.9 \times S_m) \\ C_3 &= 1.4 \times 10^7 \exp(1.8 \times S_m) \end{aligned} \quad (5)$$

図 16 において、 C_1 の変動が大きく、近似線との一致度が低くなった。これは低充填域のかさ密度の増加速度は圧縮容器内の初期粒子配置による影響が大きいと考えられるためである。一方、 C_2 および C_3 は粒子同士の接触割合が高く、初期粒子配置によるかさ密度増加速度への影響が少なくなり、その結果近似線との一致度も高くなったと考えられる。

また、試料 A ～ F の実験結果と、式 (3) ～ (5) で得られた実験整理式との関係を図 17 に示す。図中縦軸は充填率の増加速度に無次元応力 G/P_a で補正を行った結果を示す。この図から、予測値と本実験結果が比較的一致しており、本研究で提案する実験整理式を用いて、粒子断面積 S_m の違いによる充填率の増加様相を概ね予測可能であることが分かった。

また、式 (5) と図 16, 17 より、充填率の増加速度の低充填域、中充填域及び高充填域への接続位置は粒子断面積 S_m の増加に伴って図 17 中右側に移動し、特に低充填域から中充填域への移行に粒子断面積 S_m の影響が大きくなることがわかった。

4. 結 言

本研究では、形状寸法の異なる射出成形用 AZ91D 粒子を使用し、種々の温度、圧力条件で加熱圧縮を行い、圧密体を作製し、そのかさ密度に与える粒子寸法の影響を調査し、以下の結言を得た。

1. 圧密体の充填率が顕著に増加する温度域が存在し、粒子断面積が比較的大きい試料ではより高温域に遷移する。
2. 圧密体の充填率の増加速度は温度および見掛け圧力の上昇に伴い大きくなる。
3. 圧密体の充填率の増加速度は、粒子の断面積、温度、見掛け圧力の関数として表現でき、かさ密度の増加速度に関する予測式を得た。

謝 辞

本研究を実施するに際して、各種チップの提供を行っていただいた日本製鋼所に謝意を申し上げる。

文 献

- Belousov, V.A. and Fedin, V.P., Pressing of powder materials (review), Pharmaceutical Chemistry Journal, Vol.12, Issue 2 (1978), pp.263-272.
- Busk, R.S., Lattice parameters of magnesium alloys, Transactions of the Metallurgical Society of AIME, Vol.188 (1950), pp.1460-1464.
- Busk, R.S., Effect of temperature on the lattice parameters of magnesium alloys, Transactions of the Metallurgical Society of AIME, Vol.194 (1952), pp.207-209.
- Frost, H.J. and Ashby, M.F., Deformation-mechanism maps, Pergamon Press (1982), pp.32-33.
- 藤川隆男, 真鍋康夫, HIP/CIP 技術の歴史と展望, 粉体および粉末冶金, Vol.50, No.9 (2003), pp.689-698.
- 福田忠生, 尾崎公一, 真角祐樹, 半熔融成形法による比較的厚い AZ91D 合金製平板の相対密度と曲げ強度に及ぼす溶湯温度とゲート流速の影響, 日本機械学会論文集 A 編, Vol.76, No.761 (2010), pp.89-95.

- Helle,A.S., Easterling,K.E. and Ashby,M.F., Hot-isostatic pressing diagrams: New developments, *Acta Metallurgica*, Vol.33, No.12(1985), pp.2163-2174.
- 日本物性学会編, 熱物性ハンドブック (2008), p.190.
- 尾崎公一, 藤井俊樹, 福田忠生, 辻和也, 武谷健吾, 早川悌二, マグネシウム合金の射出成形技術に関する基礎研究: 第3報, マグネシウム合金粒子群の輸送・融解シミュレーション, *日本機械学会論文集 A 編*, Vol.73, No.727(2007), pp.360-367.
- 尾崎公一, 近藤秀樹, 辻和也, 武谷健吾, 早川悌二, マグネシウム合金の射出成形技術に関する基礎研究: マグネシウム合金粒子充填層のかさ密度に与える温度, 見掛け圧力および時間の影響, *日本機械学会論文集 A 編*, Vol.72, No.716(2006), pp.478-486.
- 日本マグネシウム協会編, マグネシウム技術便覧 (2000), p.126.

References

- Belousov,V.A. and Fedin,V.P., Pressing of powder materials(review), *Pharmaceutical Chemistry Journal*, Vol.12, Issue 2(1978), pp.263-272.
- Busk,R.S., Lattice parameters of magnesium alloys, *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, Vol.188(1950), pp.1460-1464.
- Busk,R.S., Effect of temperature on the lattice parameters of magnesium alloys, *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, Vol.194(1952), pp.207-209.
- Frost,H.J. and Ashby,M.F., *Deformation-mechanism maps*, Pergamon Press(1982), pp.32-33.
- Fujikawa,T. and Manabe,Y., History and future prospects of HIP/CIP technology, *Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy*, Vol.50, No.9(2003), pp.689-698 (in Japanese).
- Fukuta,T., Ozaki,K. and Masumi,Y., Influence of slurry temperature and gate velocity on relative density and bending strength of relatively thick AZ91D plate made by semi-solid molding, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A* Vol.76, No.761(2010), pp.89-95 (in Japanese).
- Helle,A.S., Easterling,K.E. and Ashby,M.F., Hot-isostatic pressing diagrams: New developments, *Acta Metallurgica*, Vol.33, No.12(1985), pp.2163-2174.
- Japan Society of Thermophysical Properties ed., *Thermophysical properties handbook* (2008), p.190 (in Japanese).
- Ozaki,K., Fujii,T., Fukuta,T., Tsuji,K., Takeya,K. and Hayakawa,T., Fundamental study on injection molding of magnesium alloy : 3rd Report, Numerical simulation on transport and melting phenomena of Mg alloy particles *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A* Vol.73, No.727(2007), pp.360-367 (in Japanese).
- Ozaki,K., Kondo,H., Tsuji,K., Takeya,K. and Hayakawa,T., Fundamental study on injection molding of magnesium alloy : Effects of temperature, pressure and time on bulk density of packed bed of magnesium alloy particles, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A* Vol.72, No.716(2006), pp.478-486 (in Japanese).
- The Japan Magnesium Association ed., *Handbook of advanced magnesium technology* (2000), p.126 (in Japanese).