

収束された水中衝撃波を利用した粉末衝撃固化装置の特性*

(第2報, 磁性粉末の状態式と衝撃圧縮過程の数値解析)

伊東 繁^{*1}, 久保田 士郎^{*2}, 藤田 昌大^{*1}
黒山 豊^{*3}, 伊藤 憲治^{*3}

Characteristics of Shock Compaction Assembly Using Converged Underwater Shock Waves (2nd Report, Equation of State of Magnet Powder and Numerical Calculation of Shock Compaction Process)

Shigeru ITOH, Shiro KUBOTA, Masahiro FUJITA,
Yutaka KUROYAMA and Kenji ITOH

Fundamental properties of a shock compaction technique of applying converged underwater shock waves have been investigated for rare earth magnet powders. The rare earth magnet made from Fe-Nd-B powder is being developed to have a high magnet performance. Usually this powder is consolidated using static high pressure and bond materials. It is very difficult to obtain over 80% magnet purity and, thus, it is difficult to achieve maximum performance. To solve this problem, shock compaction techniques involving use of explosives were tested and the results are presented here. The equation of state (EOS) of Fe-Nd-B powders is first verified by a quasi-static experiment. The applicability of the EOS is confirmed by a new shock loading test which is proposed in this paper. Both numerical simulation and experiments on the consolidation of the magnet powders are carried out. A fine-bonded bulk with of over 96% is obtained.

Key Words: Rare Earth Magnet Powder, Numerical Analysis, Underwater Shock Wave, Shock Consolidation, Detonation, Equation of State

1. はじめに

近年希土類金属を応用した各種の機能性材料が開発されてきている。特に磁石材料の分野では、Nd (Neodymium)や Sm (Samarium)の応用開発が著しい⁽¹⁾⁽²⁾。現在、Nd 磁性粉末材料の成形には磁性粉末材料に粘結剤を加えて静的圧力を加えて固化させる方法が一般的である。この場合、成形磁石に対する磁性材料の重量比率が80%程度⁽³⁾であり、希土類磁石のもつその性能が十分発揮されているとはいえない。そのため重量比率をあげ、磁石の性能を上昇させることが要求されている。粘結剤を使用しないか、あるいはそれに近い状態で磁性粉末の固化ができれば、高い磁気特性を有する永久磁石の製作が期待でき、モータ、発電機、音響機器等の高性能化につながる。

著者らは、希土類磁石のうち代表的な Fe-Nd-B 系

の粉末を第1報⁽⁴⁾で提案した衝撃固化装置を用いて、粘結剤を使用しないで直接衝撃固化を試みた。

第1報では爆薬の水中爆ごうによって生じた水中衝撃波を収束し高圧力を発生させ、それを利用した新しい粉末衝撃固化装置を提案した。爆薬の爆ごう過程、さらにそれが水中に入射した際に発生する水中衝撃波の伝ば・収束過程を数値解析と実験の両面から調べ、現象の把握とともに数値解析の妥当性を確認した。また、装置の粉末部を水で満たした場合について、数値解析を行い装置の最適形状を明らかにした。さらに TiAl 粉末の衝撃固化実験も合わせて行い良好な固化材が得られたことも報告した。

ところで粉末の衝撃圧縮過程を解明する場合、粉末の状態方程式を知ることは極めて重要である。特に数値解析により粉末の衝撃圧縮過程を解明する場合粉末の状態方程式は必要不可欠である。本報では、磁性粉末材料の状態方程式として Petrie-Page⁽⁵⁾によって提案された衝撃圧縮モデルを採用し、その衝撃圧縮モデルに必要なパラメータを静的圧縮試験により求めた。さらに光学的観測法を応用した新しい粉末の衝撃特性実験法を提案し、その実験結果より、今回求めたパラ

* 1995年11月18日 山口地方講演会で講演, 原稿受付 1996年3月18日.

^{*1} 正員, 熊本大学工学部 (☎ 862 熊本市黒髪 2-39-1).

^{*2} 正員, 熊本大学大学院.

^{*3} 日本油脂(株)愛知事業所 (☎ 521-25 愛知県知多郡武豊 1-2381).

メータを用いた磁性粉末の衝撃圧縮モデルが粉末の衝撃圧縮時の数値解析に極めて有効であることを確認する。その衝撃圧縮モデルを用いて、爆薬の爆ごうから粉末の衝撃圧縮過程まで一貫して数値解析し、衝撃固化装置の特性を明らかにする。

2. 衝撃固化実験

磁性粉末の衝撃固化実験装置を図1に示す。同装置は爆薬部、水で満たされた圧力媒体部および粉末充てん部からなる。爆薬には第1報と同じ高性能爆薬SEP [成分；ペンスリット65%、パラフィン35%；充てん密度1310 kg/m³、旭化成工業(株)製の可塑性爆薬]を用いた。磁性粉末としてはGeneral Motors Co., Ltd製のFe₁₄Nd₂B(MQP-A粉末)を用いた。同装置では爆薬が電気雷管を用いて起爆されると、爆ごう波が爆薬中を伝ばし水中に入射する。水中に入射すると水中衝撃波が直ちに発生し、それが粉末容器部へと伝ばするにつれて圧力媒体部の壁と干渉し、収束される。この収束された水中衝撃波が粉末充てん部に入射し粉末の衝撃固化を行う。同衝撃固化装置を用いて得られた磁性材料のバルク材の顕微鏡写真を図2に示す。図2中黒い部分にクラックも見られるが磁性粉末がよく緻密化されている様子がわかる。

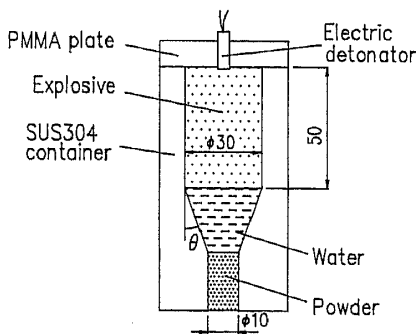


Fig. 1 Assembly for shock compaction of magnet powder

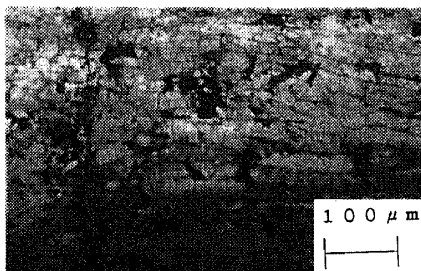


Fig. 2 An optical micrograph of compacted Fe₁₄Nd₂B powder (initial density is 3 600 kg/m³)

3. 磁性粉末の状態方程式

粉末の衝撃圧縮過程を理論的に解析しようとした場合、粉末の状態方程式が必要である。従来より多くの研究者たちにより粉末の状態方程式の表現が提案されてきた。例えば、Meyers⁽⁶⁾は、固体の状態方程式としてMie-Grüneisen状態方程式に粉末の気孔率 $a = \rho_s/\rho$ を導入したP-aモデル⁽⁷⁾を採用して解析を行った。ここで ρ は粉末がある状態(圧力等)にさらされたときの密度、 ρ_s は同じ状態での固体の密度である。Petrie-Pageは川北⁽⁸⁾のColdモデルを改良し、従来のモデルよりも広い圧力領域で有効な衝撃圧縮モデルを提案した⁽⁹⁾。以下にColdモデルならびに本研究で粉末の状態方程式として採用したPetrie-Pageの衝撃圧縮モデルの概要を示す。川北は各種の粉末に対して静的圧縮実験を行い荷重が静的である場合、粉末の圧縮率Cと圧力P_c⁽⁵⁾(熱エネルギーの影響を無視した圧力 [Cold pressure])の間には次の関係があるとした。

$$\frac{P_c}{C} = \frac{1}{(1-a)b} + \frac{1}{1-a} P_c \dots\dots\dots(1)$$

ここで、a, bは定数で実験的に求まる。v₀₀の初期の比体積とすると圧縮率Cは、

$$C = \frac{v_{00} - v}{v_{00}} = 1 - \frac{\rho_{00}}{\rho} \dots\dots\dots(2)$$

で表せる。ここで ρ_{00} は粉末の初期充てん密度である。この式を式(1)に代入すると、

$$\frac{\rho}{\rho_{00}} = \frac{1 + bP_c}{1 + abP_c} \dots\dots\dots(3)$$

が得られる。川北モデルでは

$$(1-a) = C_\infty = \frac{v_{00} - v_\infty}{v_{00}} = 1 - \frac{\rho_{00}}{\rho_{s0}} \dots\dots\dots(4)$$

である。ここで、下添字 ∞ は極限圧縮状態⁽⁸⁾を示す。Petrie-Pageのモデルでは、川北モデルのaを次のように改良した。

$$\tilde{a} = \frac{\rho_{00}}{\rho_s} = \frac{\rho_{00}}{\rho_{s0}} \frac{\rho_{s0}}{\rho_s} = a \frac{\rho_{s0}}{\rho_s} \dots\dots\dots(5)$$

すなわちPetrie-PageのColdモデルは次式となる。

$$\frac{\rho}{\rho_{00}} = \frac{1 + bP_c}{1 + \tilde{a} \frac{\rho_{s0}}{\rho_s} bP_c} \dots\dots\dots(6)$$

ここで ρ_{s0} は粉末の組成から決まる密度である。 ρ_s は次式で表される。

$$\rho_s = \frac{\rho_{s0}K}{K - P_c} \dots\dots\dots(7)$$

このように ρ_{s0}/ρ_s を採用することによって、Petrie-PageのColdモデルでは高压側で固体の状態方程式に漸近するようになる。式(6)は体積弾性率Kを用

いれば,

$$\frac{\rho}{\rho_{00}} = \frac{1 + bP_c}{1 + ab[(K - P_c)/K]P_c} \dots\dots\dots (8)$$

となる。この P_c と熱エネルギーの影響を無視した内部エネルギー (Cold internal energy) $\epsilon_c^{(5)}$ を用いて Petrie-Page の粉末の衝撃圧縮モデルは次式で与えられる。

$$P = \frac{2 \frac{\alpha}{\Gamma} P_c - 2\rho\epsilon_c}{2 \frac{\alpha}{\Gamma} + 1 - \frac{\rho}{\rho_i}} \dots\dots\dots (9)$$

ここで、 ρ_i は粉末の充てん密度、 Γ は Grüneisen 係数⁽¹⁰⁾を表す。ただし ϵ_c は

$$\epsilon_c = \frac{(\rho_s - \rho_{s0})^2 K}{2\rho_{s0}\rho_s^2} \dots\dots\dots (10)$$

である。Petrie-Page のモデルでは静的圧縮実験で得られるパラメータと Grüneisen 係数のみを用いて衝撃圧縮時の圧力と密度の関係を知ることができる。

Petrie-Page は $Fe_{13}Nd_4B$ 磁性粉末について到達圧力 830 MPa までの静的圧縮試験を行いパラメータ a , b を実験的に得た。またこの結果と同磁性材料の衝撃圧縮実験結果を比較検討し 2 GPa 程度まで衝撃圧縮モデルの有効性を示している。なおモデルのパラメー

タ a , b は粉末の粒度分布、形状等に大きく影響を受けることも報告されている⁽¹¹⁾。そこで本報でも実験に採用した $Fe_{14}Nd_2B$ の川北定数 a , b を通常の静的圧縮試験によって実験的に求めた。シリンダおよびピストンの材料は超硬材料 [富士ダイス (株) 製 F-20] を用いて製作した。ピストンの直径は 10 mm である。シリンダに粉末を充てんしピストンに荷重をかけて、圧力と変位との関係を得た。実験は日本油脂 (株) 愛知事業所武豊工場で行い、最大 10 t まで荷重可能な手動プレス機 (形式 AE-25647) を用いた。

静的圧縮試験によって得られた圧縮率と圧力の関係を図 3 に示す。図 3 中には試験装置の概要を合せて示す。図 4 は荷重/圧縮率と圧力の関係を示す。圧力が高いところでは両者の関係はほぼ直線的であることが図 4 からわかる。図 4 中の直線は最小二乗近似により

Table 1 Parameters of magnet powder

$\rho_{00}(kg/m^3)$	a	$b(Pa^{-1})$
3015	0.41	1.11×10^{-8}
$\rho_{s0}(kg/m^3)$	$K(Pa)$	Γ
7500	1.67×10^{11}	1.69

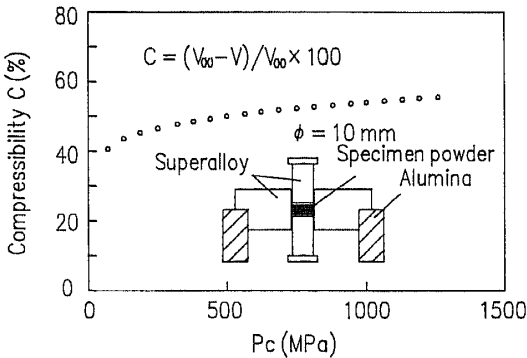


Fig. 3 A relation between compressibility C and apparent pressure P_c

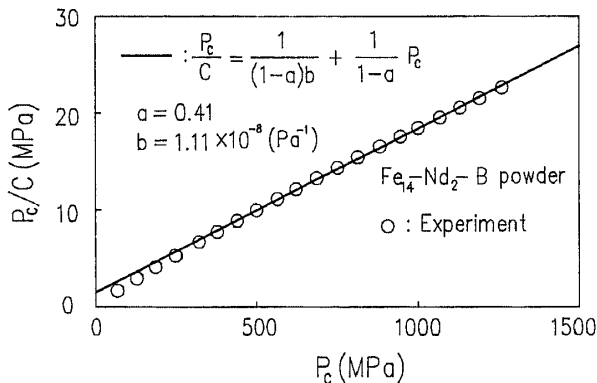


Fig. 4 A compressibility of the magnet powder

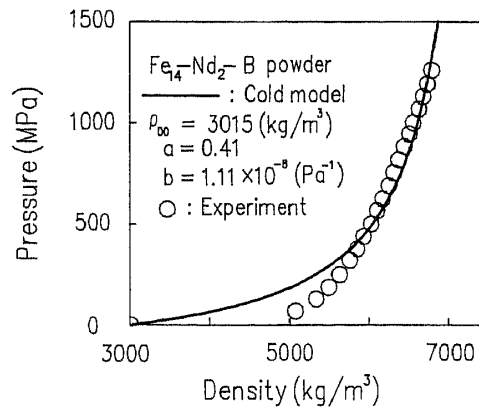


Fig. 5 The relation between P_c and density at lower pressure

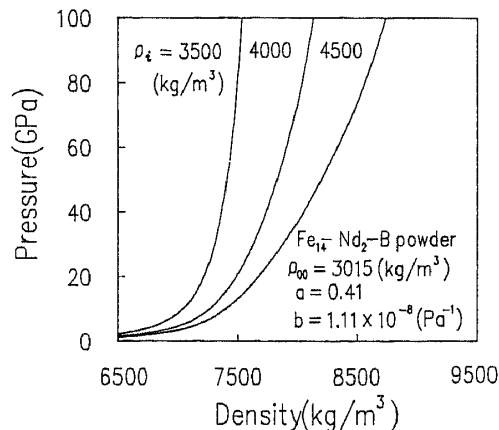


Fig. 6 Hugoniot for different initial porosities

求めた直線で、式(1)より傾きは $1/(1-a)$ に対応している。切片は $1/(1-a)/b$ を示し、それから a, b の値が求められる。Fe₁₄Nd₂Bの各定数を表1に示す。

式(8)から得られた P_c と密度との関係を図5に示す。図5中の○印は実験結果を示し、実線は式(8)の結果を示す。両者は高圧側でよく一致することがわかる。500 MPa程度以下の低い圧力領域でColdモデルと実験値に違いが見られる。これは次のことに原因する。粉末部に大きな空げきがある場合、低い圧力領域で粉末は自由に動き再配列が生ずる。このような場合、式(1)と実験データは低い圧力領域で一致しない。そこで、200 MPa以下の低い圧力領域を無視して全体的によく実験データと一致するように最小二乗近似を行った。以上のことより静的な圧力-密度の関係は本研究で求めたパラメータを用いて有効に表現されることがわかった。図6は衝撃圧時の圧力-密度の関係を示す。

4. 実験方法および数値計算法

4.1 粉末の衝撃特性実験 粉末材料の衝撃特性を得るために新たに実験装置を提案した。この装置の概要を図7に示す。装置は水で満たされたPMMA製の水槽の中に配置されており、二つのPMMA製のパイプと支持用角柱棒からなる。図7下部に配置されているのが爆薬(SEP)を装薬するパイプで、内径18 mm、外径21 mmで、高さ30 mmであり、上部に配置されるのが粉末容器で内径40 mm、外径50 mm、高さ5 mmの円筒容器である。粉末の初期充てん密度は 3400 kg/m^3 であった。この装置は爆薬の爆ごうによって発生した水中衝撃波が粉末部に到達しそれを通過して発生する水中衝撃波の伝ば過程を観察するためのものである。観察はイメージコンバータカメラ(最高20000000コマ/s、流し速度、最高1 ns/mm)を用いたストリーク写真、ならびにこま撮り写真で行われた。なお光源にはせん光時間が $50 \mu\text{s}$ のキセノンフ

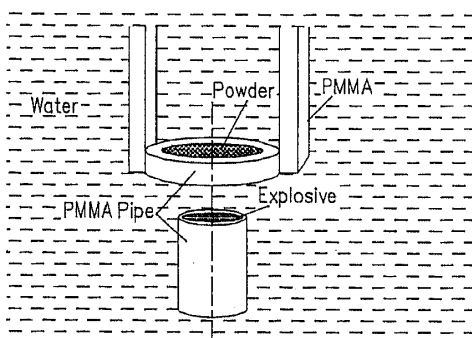


Fig. 7 A schematic illustration of an optical measurement set up

ラシュライトを採用した。また光学系は通常のシャドウグラフ法による。本装置は衝撃圧縮モデルを用いた数値計算結果と比較することによってこのモデルの妥当性を検討するためのものである。

4.2 数値解析方法 数値計算はLagrangeの方法とEulerの方法を組合せたArbitrary Lagrangian Eulerian Method (ALE法⁽¹²⁾)を用いて行った。計算は質量、運動量、エネルギーの保存則に状態方程式を組合せて行った。水およびSUS 304についてはMie-Grüneisenの状態方程式⁽¹⁰⁾を用いた。また爆ごう生成ガスの状態方程式は実験的に求められたJWL状態方程式を用いた⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾。数値解析方法の詳細は第1報を参照されたい。計算はGATEWAY 2000(P5-120)で行った。代表的な計算では1回あたりの計算時間は、およそ8 hであった。

5. 結果および考察

5.1 粉末の衝撃圧縮特性 図8は粉末の衝撃特性実験によって得られたストリーク写真である。縦軸は距離、横軸は時間を示す。写真中の細い平行な黒線(図8中記号Aで示す)が粉末容器である。また白線の(DW)は爆薬中を伝ばする爆ごう波を示す。爆ごう波が水中に入射すると水中衝撃波(SW1)がただちに発生しそれが粉末部に入射する。入射した水中衝撃波が粉末部に衝撃波を発生させ粉末部を伝ばし、その後再び水中に衝撃波を発生させ伝ばしてゆく過程が図8から理解できる。なおストリーク撮影の場合粉末容器

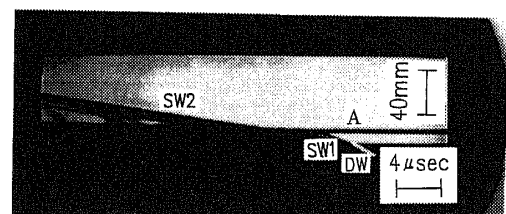


Fig. 8 A streak photograph of the shock wave

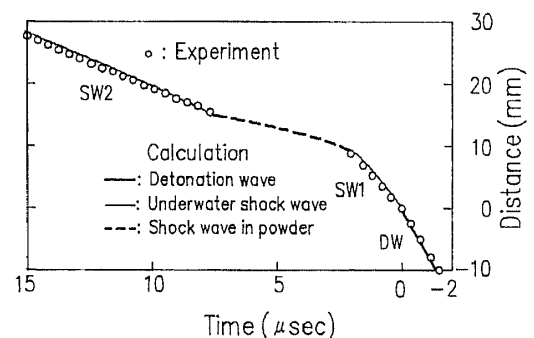


Fig. 9 An $x-t$ wave diagram of the underwater shock wave

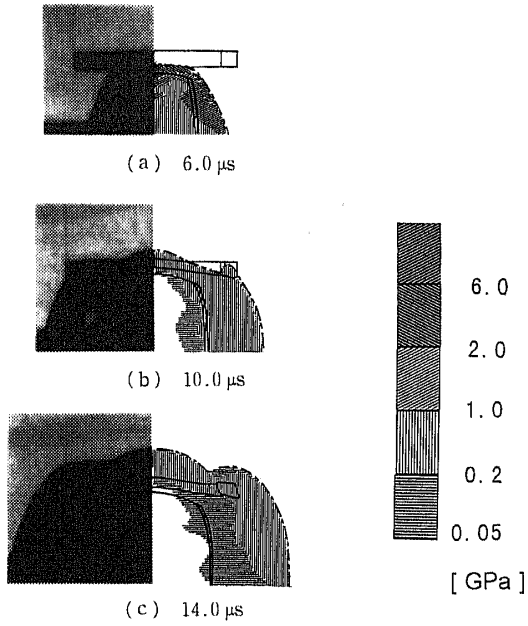


Fig. 10 Framing photographs and pressure contour maps obtained by numerical calculation

部に入射する水中衝撃波の挙動を明確にするために、爆薬部と粉末容器部の距離は10 mmとした。図8より得られた波動線図と、それに対応する数値解析結果を図9に示す。図9中○印が実験結果を示し太い実線が爆ごう波、細線が水中衝撃波の伝ば過程を示す。さらに破線が粉末部内を伝ばする衝撃波の数値計算結果を表す。爆薬中を伝ばする爆ごう波、および水中衝撃波のいずれの場合においても計算結果と実験結果に極めてよい一致が得られたことが図9からわかる。

粉末の衝撃特性実験で得られたこま撮り写真を図10に示す。伝ばする水中衝撃波、あるいは粉末部後方に再び現れる水中衝撃波を有効にとらえるために爆薬部と粉末容器部の距離は5 mmとし写真の視野を広げた。図10は水中衝撃波が粉末に入射する瞬間から4 μ sおきにとられた。図10の右側は数値計算によって得られた圧力分布を示す。粉末部で最高圧力8.8 GPaの結果が得られた。また計算結果は横断面における圧力分布であり、写真はシャドウであるので水中衝撃波の外周である。図10中一点鎖線は密度の2階微分から求めた衝撃波の先頭形状を示す。また実線は爆薬容器と粉末容器の断面形状ならびに爆ごうガスと水との界面を示す。図10からいずれの時間においても数値計算で得られた衝撃波の形状は実験結果と極めてよく一致することがわかる。以上のことより本報告で求めた磁性粉末の圧力-密度の関係は極めて有効に粉末の衝撃特性を示すことがわかる。

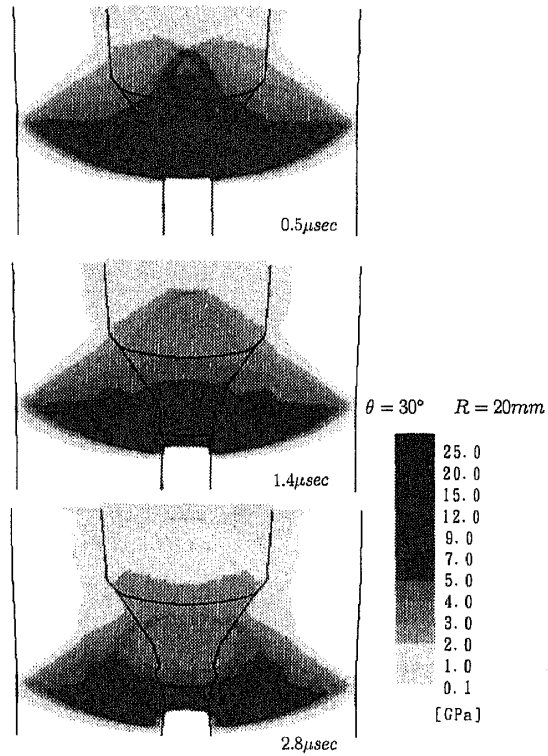


Fig. 11 Pressure contour maps obtained in the case of the wall angle $\theta = 30^\circ$

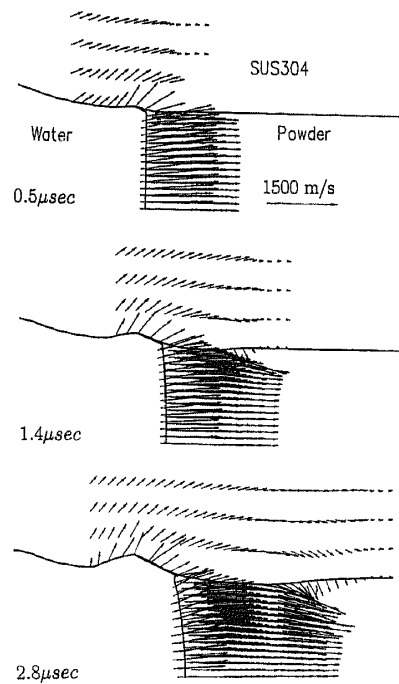


Fig. 12 Distributions of particle velocity at the near of the powder chamber

5・2 磁性粉末の衝撃圧縮過程 水中衝撃波の収束を利用した衝撃固化装置に $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$ 粉末を初期密度 4500 kg/m^3 で充てんした場合の衝撃圧縮過程について数値解析を行った。装置の材質は SUS 304 を用いた。容器収束部形状は収束角が $\theta = 30^\circ$ 、粉末部入

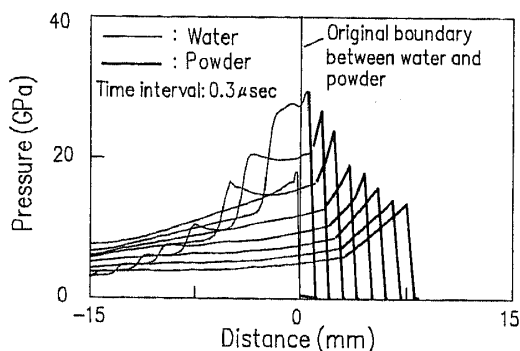


Fig. 13 Histories of pressure distribution on the axis of assembly for shock compaction

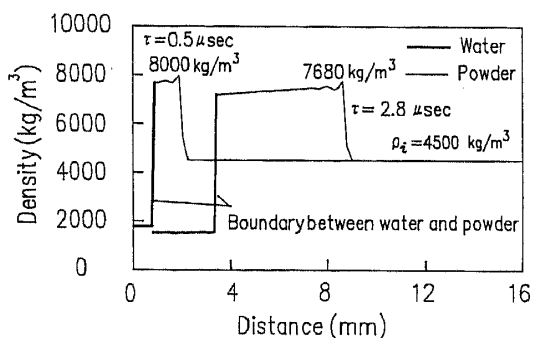


Fig. 14 Density distributions obtained by numerical calculation

口の角に $R=20$ mm の丸みを付けた場合である⁽⁴⁾。図 11 に水中衝撃波が粉末部入口に到達した後の圧力分布を示す。圧力分布はそれぞれ、衝撃波が到達して、約 0.5, 1.4, 2.8 μ s 経過後に得られたものである。衝撃波が下流に伝ばするにしたがい、容器中の衝撃波が粉末中の衝撃波より先行して伝ばする様子がわかる。これは、粉末は空げきを含んでおりその空げきの部分で衝撃インピーダンスは極端に低く、衝撃波の速度が大きく減速するために起こる現象である。また時間の経過とともに粉末部入口部は大きく広がっている。この大きな変形は粉末部からの衝撃波の反射により高圧状態が持続したことに起因する。

粉末部とその近傍での粒子速度の分布を図 12 に示す。時間の対応は上述した圧力分布と同様である。実太線が容器の壁および、粉末部と水との境界を示している。容器中の粒子速度は粉末部に水中衝撃波が入射した直後では粉末部から遠ざかる方向を向いている。しかし、衝撃波が下流に伝ばするにしたがい、衝撃波先頭での粒子速度は容器上で完全に粉末部内部の方向となっており、粉末部内部の粒子の流れに影響を与えている。以上の結果より、粉末部を伝ばする衝撃波より速く、容器中から粉末内部に入射する衝撃波が存在し、内壁近傍で粉末中の粒子速度を変化させることが明らかになった。この結果は、粉末の衝撃固化の際、

内壁近傍で固化が十分に行われない可能性があることを意味している。

図 13 は衝撃固化装置の中心軸上における圧力分布の履歴を示す。横軸の距離は衝撃波が到達する前の水と粉末の界面を原点 0 としている。太線が水中衝撃波、細線が粉末中の衝撃波であり、時間間隔は 0.3 μ s である。約 18 GPa の強さの水中衝撃波が粉末部に入射した後、粉末部との境界での圧力は急激に上昇し、0.3 μ s 後に約 30 GPa となる。粉末中では衝撃波が下流に伝ばするにしたがい急激に圧力を減衰させ、8 mm 下流に到達したときの先頭衝撃波の圧力は入射直後に発生した圧力は大きく減衰しおよそ 13.5 GPa であった。また水と隣接する粉末に作用する圧力(水と粉末との界面での圧力)が 10 GPa 以上である高圧力の持続時間は約 1.5 μ s あった。

装置の軸上で得られた衝撃固化過程における粉末の密度分布を図 14 に示す。水中衝撃波が粉末部に入射しておよそ 0.5 μ s 後で、粉末は、密度が 8000 kg/m^3 になるまで上昇している。さらに時間が経過して衝撃波が水と粉末との初期界面から約 8 mm 下流まで伝ばしたときの衝撃圧縮下での密度は約 7680 kg/m^3 でありこの密度は $\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$ の理論密度 7500 kg/m^3 より 102.4%緻密化された値であった。

6. ま と め

$\text{Fe}_{14}\text{Nd}_2\text{B}$ 粉末に対して、Petrie-Page の衝撃圧縮モデルを衝撃圧縮時の状態方程式として採用し、そのパラメータを静的圧縮実験結果により求めた。新たに本論文で提案した粉末の衝撃圧縮実験法ならびに数値解析により、この状態方程式の妥当性を確認した。さらに得られた衝撃圧縮曲線をもとに水中衝撃波の収束を利用した衝撃固化装置での衝撃固化過程を数値解析し、装置特性の評価を行った。その結果、水中衝撃波と粉末との干渉により、粉末部に発生した衝撃波よりも早く容器中に回り込んで粉末部に到達する衝撃波が存在することを確認した。また、粉末部に発生する衝撃波の圧力、衝撃圧縮下での密度の分布を求め、装置特性を明らかにした。

本研究は科学研究費補助金(国際学術研究)によった。なお実験は熊本大学工学部付置衝撃エネルギー実験所で行われた。実験に際し実験所の石谷氏に負うところが大きい。ここに謝意を表す。

文 献

- (1) 谷川茂穂・ほか 3 名, 日立金属技報, 10 (1994), 55-60.
- (2) Herbst, J. F. and Croat, J. J., *J. Mag. Mag. Mater.*, 100

- (1991), 57-78.
- (3) Yao, J. M., ほか2名, *J. Appl. Phys.*, **76**-10 (1984), 7071-7073.
- (4) 伊東繁・ほか5名, *機論*, **61**-588, B(1995), 2981-2986.
- (5) Petrie, M. W. and Page, N. W., *J. Appl. Phys.*, **69**-6 (1991), 3517-3524.
- (6) Meyers, M. A. and Wang, L., *Acta Metall.*, **36** (1988), 925-936.
- (7) Herrmann, W., *J. Appl. Phys.*, **40**-6 (1969), 2490-2499.
- (8) 川北公夫, *科学*, **26**-3 (1956), 149-150.
- (9) Petrie, M. W. and Page, N. W., *Acta Metall.*, **40**-11 (1992), 3195-3203.
- (10) 田中克己, *工業火薬協会誌*, **37**-5 (1976), 222-232.
- (11) Petrie, M. W. and Page, N. W., *Sock Waves*, **4** (1994), 73-80.
- (12) Amsden, A. A., ほか2名, LA-8095, UC-32 (1980).
- (13) Lee, E. L., ほか2名, UCRL-50422 (1968).
- (14) 伊東繁・ほか4名, *火薬学会誌*, **55**-5 (1994), 202-208.
-