

準安定粉末素材のシース封入高速圧延法による固化プロセスの開発

大阪大学 工学部 材料物性工学科

講師 左海哲夫

(平成3年度研究開発助成 AF-91007)

1. 研究の背景

近年、いわゆるメカニカルアロイング法により、非晶質、強制固溶体など非平衡相で、準安定状態にある材料が粉末で比較的容易に供給されるようになった。これらの材料を実用化しようとする、粉末のままでは用途は限られることは明らかであり、粉末を固化成形しバルク材とする必要が生じてくる。一般に粉末を完全に固化成形するためには、高温で長時間の加工を行うことが望ましいが、準安定素材では粉末本来の性質を保つためには高温長時間加工は不相当である^[1-2]。本研究では、これらの相反する要求を満たすため、少量の準安定状態にある粉末をシース封入し、高速で圧延することにより板状に成形するプロセスを開発することを目的とする。シース圧延による粉末の固化には、粉末の粒度、形状、表面状態、シース内雰囲気、シース材と粉末との強度比等の種々の因子が影響すると考えられるが、それらについては明らかではない。また、シース封入圧延により固化が達成される条件も明らかではない。そこで本研究では、まず入手容易な純金属の粉末を用いて高速圧延実験を行い、金属粉末を固化させるための条件を求める。この結果を基に、非晶質材、強制固溶体等の非平衡材料の粉末のシース封入高速圧延実験を行い、材料の物性を変化させないで、すなわち材料が平衡状態に到達しないうちに圧延固化を終了させる条件を求める。得られた板材については、固化条件とバルク材の性質との対応を明らかにし、最適な固化成形プロセスを開発するために基礎的知見を得たい。

2. 研究方法

まず、被覆圧延の基本的特性を把握するため粉末として鉄、銅を用い、これをそれぞれステンレス、銅のパイプに封入して高速圧延実験を行った。圧延後の試料の固化状態は、密度と破断面の走査電子顕微鏡観察により評価した。影響因子としては、圧延温度、圧下率をとりあげた。その後、これらの結果を参考にして、非平衡材料を非平衡状態のまま固化成形することを試みた。非平衡材として、強制固溶体となるFe-30at%Cuを選んだ。この粉末をシース封入し、急速加熱、高速圧延、急冷を行い、固化成形のための条件を明らかにすることとした。

3. 研究成果

3.1 水アトマイズ鉄粉の加熱シース圧延による固化

3.1.1 実験方法

水アトマイズ鉄粉を、内径8mm外径10mmのSUS304パイプに充填し、厚さ4.5mmの板状に冷間で予備成形した後熱延急冷を行い、圧延後の組織と破断面を観察した。使用した圧延機は、ロール径530mmの2段高速圧延機である。圧延速度は10m/s、圧延温度は573~1173K、圧下率30~50%とし、圧延直後50ms以内に水スプレーで急冷した。加熱には、塩浴炉を用い2分間で所定の温度に昇温させた。

3.1.2 実験結果

幅広がり率に及ぼす圧延温度と圧下率の影響をFig. 1に示す。いずれの圧延温度でも圧下率の増加とともに幅広がり率は増加し、その値は通常の板圧延に較べてかなり大きい。また、573K~773Kでの幅広がり率が873K~1173Kでのそれより大きい。それぞれの温度範囲では圧延温度が高いほど幅広がりは大きい。これは、低温域と高温域で用いた溶融塩の種類が異なることにより、圧延時に試料表面に残存している塩の潤滑作用の差が現れたものである。

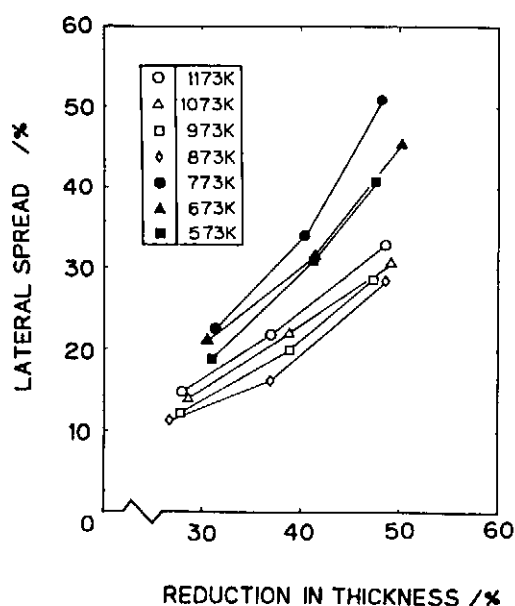


Fig. 1 Effects of rolling condition on lateral spread.

Fig. 2は、板幅方向中央部でのシース部と粉末部の圧下率の関係である。ほとんどの圧延条件で粉末部の方がシース部より大きく圧下されており、粉末部が効率よく変形していることがわかる。これは、シースの方が粉末に比べて変形抵抗が高いためと思われる。

アルキメデス法により測定した板幅方向中央部1/3粉末部の熱延前後の相対密度をFig. 3に示す。ステンレス鋼パイプに充填後の相対密度は66%であったが、冷間予備成形で98%まで上昇した。熱延後はわずかに増加しいずれの熱延条件でも約99%となった。Fig. 4は、573K、および973K圧延材の板幅方向のマイクロビッカース硬度分布を示す。いずれの場合でも板幅方向端部で急激に硬度が減少している。これは、円形断面のものを板状に成形しているため、端部の実質的な変形量が小さく粉末の圧密が十分に

行われなかったことが原因であると考えられる。573Kでは圧下率の上昇とともに加工硬化により硬度は増加しているが、973K圧延材では硬度は圧下率に依存しない。これは回復の進行によるものであると考えられる。この、板幅方向中心部の硬度に及ぼす圧延温度、圧下率の影響をFig. 5に示す。773K以下では加工硬化により圧下率とともに硬度は増加するが、873K以上では、回復、再結晶により軟化が生じており、硬度がほとんど圧下率に依存しない。なお、組織の観察結果から、773K、50%~973Kでは回復、1073K以上では再結晶が生じていることが確認された。

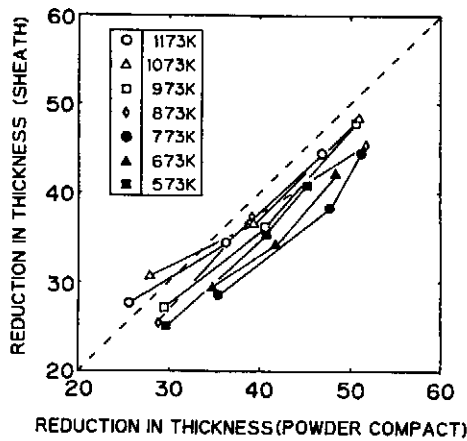


Fig. 2 Relation between reduction in thickness of the powder core and that of the sheath.

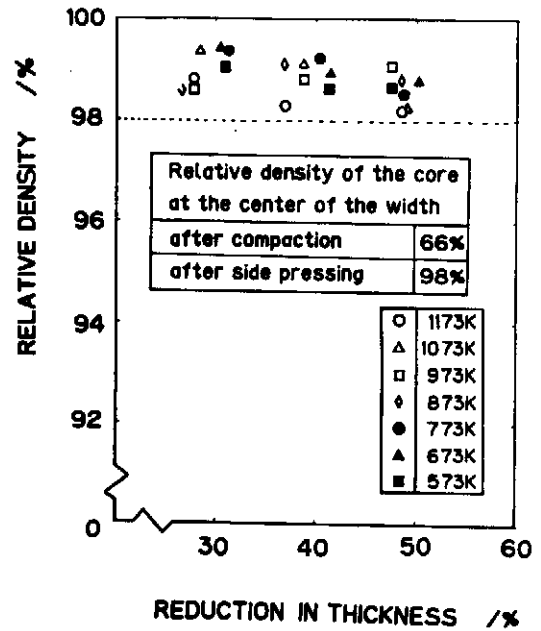


Fig. 3 Change in relative density of the powder compact with rolling condition.

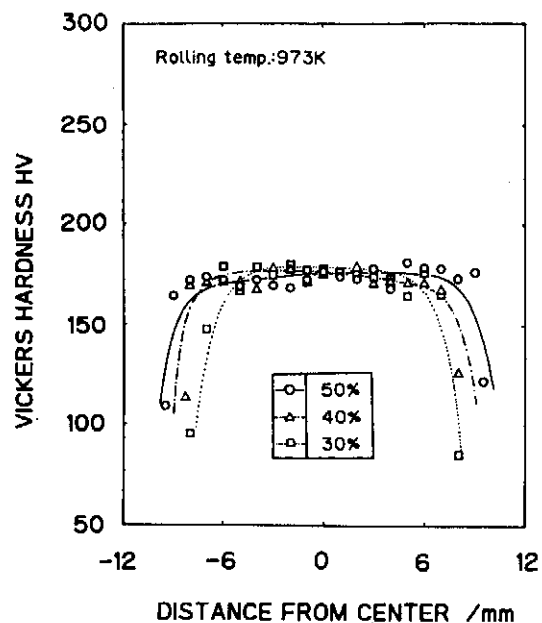
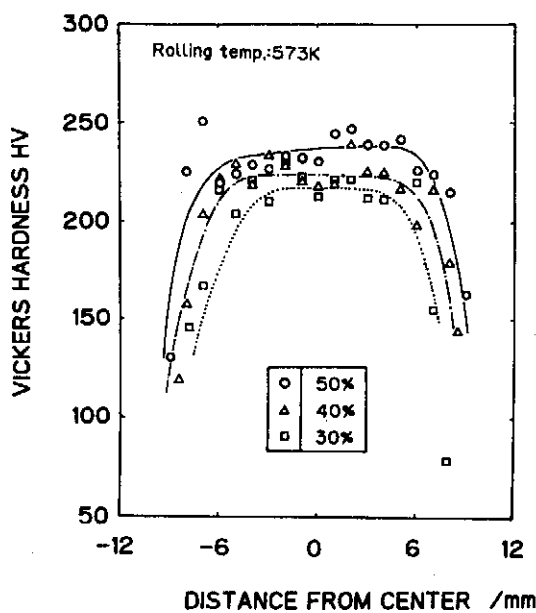


Fig. 4 Variation of micro Vickers hardness in the width direction of the powder compact.

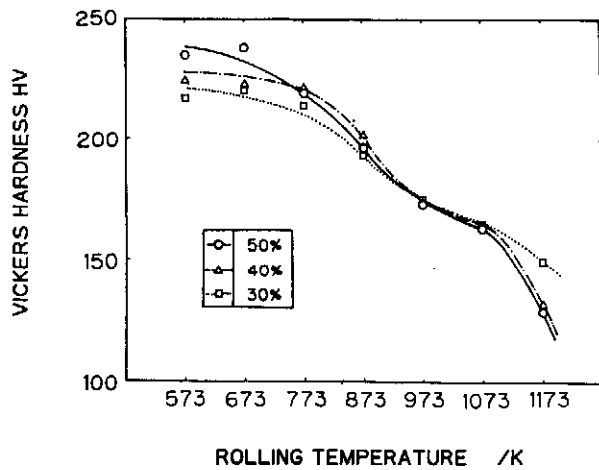


Fig. 5 Effects of rolling temperature and reduction on micro Vickers hardness of the central part of the width of powder compact.

粉末の固化が圧延により十分達成されているかどうかを判断するため、圧延後の試料を引張破断させ破面をSEMで観察した。その結果、圧延温度873Kではいずれの圧下率でも粉末の表面で破断しており、延性破面はほとんど見られなかった。973Kでは圧下率40%までは粉末表面で破断していたが、50%になると延性破面が現れたことから、この条件で粉末同士が完全に接合することがわかった。1073Kでは30%で粉末の表面で破断し、40%以上ではほぼ完全な延性破面となった。1173Kではいずれの圧下率でも完全な延性破面であった。このように、高温、高圧下率ほど固化が進むのは、圧下率が高いほど粉末表面の酸化膜の破断により金属接触を起こしやすく、また温度が高いほど原子の拡散が速いためであると思われる。Fig. 6は、光学顕微鏡による組織の観察結果と、SEM観察により判定した粉末の固化状態を合わせて示したものである。粉末の組織と固化状態は良く対応しており、加工組織の時は全く接合が見られず、回復組織では粉末境界部での延性破面が見られるようになり、再結晶が生じるとほぼ完全な延性破面となって、完全な一体化が達成される。すなわち、固化のためには回復が生じる条件で、完全に一体化するためには再結晶発生条件で圧延を行う必要があることがわかった。

3. 1. 3 まとめ

水アトマイズ鉄粉をSUS304パイプに封入し、急速加熱高速圧延実験を行い、温度、圧下率が粉末の組織と固化の程度に及ぼす影響を調べた。得られた主な結果は次の通りである。

- 1) 熱間圧延により十分な固化が達成できた。
- 2) 高温、高圧下率の圧延条件では粉末内部に回復及び再結晶が起こり、より完全な固化が可能となる。本研究の加

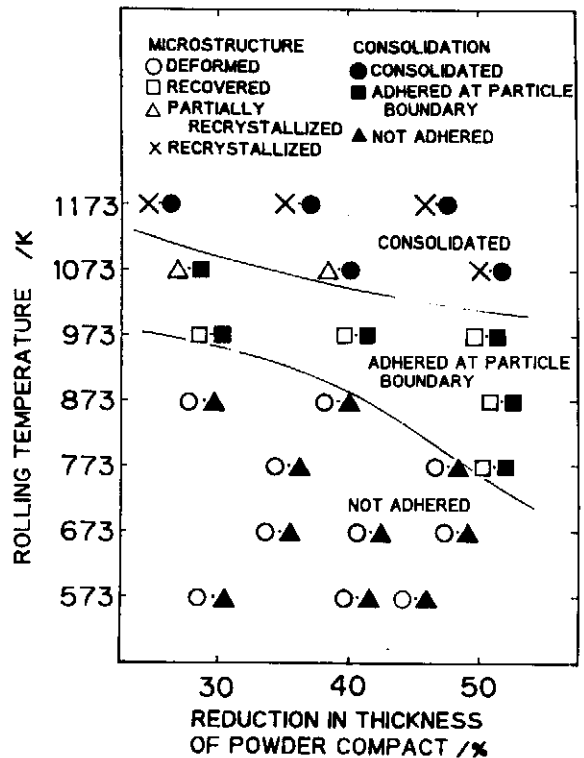


Fig. 6 Effects of rolling temperature and reduction in thickness on microstructure and degree of adhesion of iron particles.

熱条件、圧延速度では、973K、50%の圧延で粉末内部の組織の大幅な変化を起こさず回復のみで固化が達成できた。

3. 2 ガスアトマイズ銅粉のシース封入圧延による固化

3. 2. 1 実験方法

ガスアトマイズ銅粉を、銅管に封入して高速熱延を行った。圧延温度は573K~773K、圧下率は40%~60%とした。その他の条件は鉄粉の場合と同様である。

3. 2. 2 実験結果とまとめ

粉末部の組織は、圧延温度が比較的低いためいずれの場合も加工組織であったが、硬さ試験の結果から高温では回復が進行していることがわかった。引張破面は、高温高圧下率ほど延性破面の割合が増加しており773K、60%でほぼ完全な延性破面となった。このことから、銅粉のシース封入圧延では、回復領域で高圧下率圧延を行うと組織に大きな変化を与えずに固化させることが可能であることがわかった。

3. 3 Fe-30%Cuメカニカルアロイング粉末の

シース封入圧延による固化

金属粉末をシース封入後高速熱延を行うことで固化することがわかったので、次に非平衡材料としてFe-30at% Cuの強制固溶体を選び、固化することを試みた。

3. 3. 1 実験方法

水アトマイズ鉄粉とガスアトマイズ銅粉をモル比で7:3となるよう秤量し、混合粉末100gをアトラクタ型のボールミルに投入して、Ar雰囲気中でメカニカルアロイング(MA)を行った。ボールは直径3/16インチのSUS304製を2kg用い、ミリング助剤としてメタノールを用いた。回転数は400rpmミリング時間は24hとした。ミリング後の粉末はAr雰囲気中で回収し、真空デシケータ中に保存した。

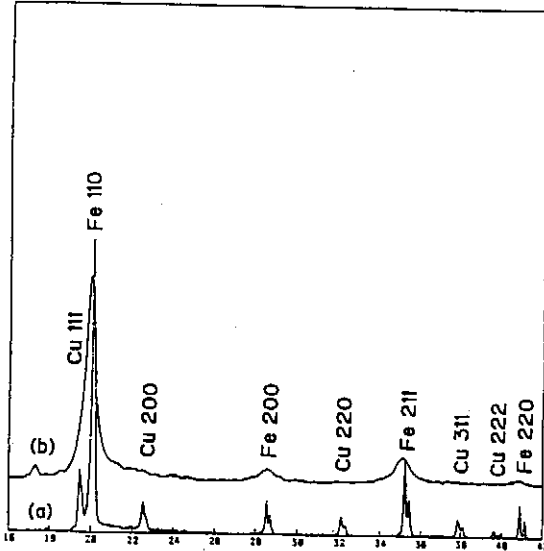


Fig. 7 X-ray diffraction pattern of (a) mixed powder and (b) mechanical-alloyed powder.

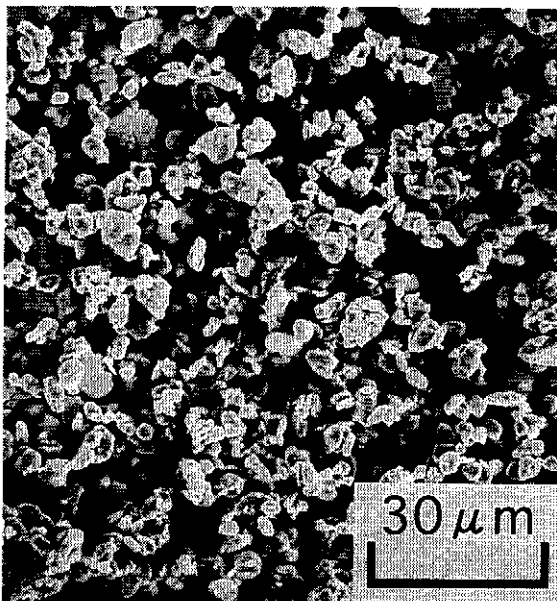


Fig. 8 SEM photograph of mechanical-alloyed powder.

粉末を、内径8mmのステンレスパイプに充填した。この時、1000kgf (195Mpa) で圧粉したものと、手で軽くつき固めたものと2種の圧粉条件を採用した。これを前項、前前項と同様の方法で高速熱間圧延した。圧延温度は473、573、673Kとし、シリコンオイルバスまたはソルトバスで120s加熱した。

3. 3. 2 実験結果

混合粉末及び24hMA後の粉末のX線回折図形をFig. 7に示す。MAにより銅の回折ピークが消え、鉄の回折ピークのみが残っており、鉄中に銅が固溶した強制固溶体ができたとわかる。また、鉄の回折ピークがブロードになっており、その回折角がやや低角度側にシフトしている。このことから、鉄中に大量の格子欠陥が導入されていること、また銅が鉄中に強制的に固溶したため格子定数が大きくなっていることがわかる。Fig. 8は、MA粉のSEM写真である。フレーク状の微細な大きさのそろった粒子が得られている。

圧延後の試料のX線回折図形の圧延温度による変化をFig. 9に示す。圧延温度が高くなるにともないピークの幅が狭くなっている。またいずれの圧延温度でもFeの110ピークとCuの111ピークの分離が見られ、その程度は温度が高くなるほど顕著になる。このことから、本実験の範囲では、圧延後も完全な非平衡状態を保つことができなかったことがわかる。ただし、X線回折ピークがブロードであることから、粉末内部には大量の格子欠陥が存在しているものと思われる。

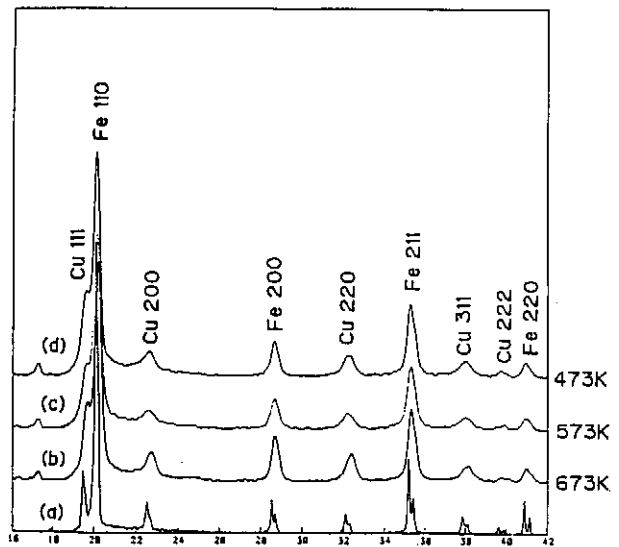


Fig. 9 Effect of rolling temperature on the X-ray diffraction pattern. (a) mixed powder, (b) 673K, (c) 573K, (d) 473K.

Fig. 10は、圧延後の試料の硬さと圧延温度の関係を示したものである。圧延温度とともに硬さが上昇する傾向が見られる。いずれもビッカース硬さで700程度と非常に硬くなっている。この原因は明らかではないが、MAにより大量の格子欠陥が導入されて激しく加工硬化していること、およびCuが微細に析出していることによる析出硬化が考えられる。Fig. 11は、673K圧延後の試料を2分間焼鈍した後の硬さであるが、焼鈍により硬さが上昇していることがわかる。Fig. 10に示したように圧延温度とともに硬さが上昇することを考え合わせると、析出硬化である可能性が高い。

次に、圧延後の粉末部分の破面のSEM写真をFig. 12に示す。圧延温度が573Kでは、粉末粒子の形状が明瞭に見えるのに対し、673Kでは一体化が進んでいる。Fig. 13に、粉

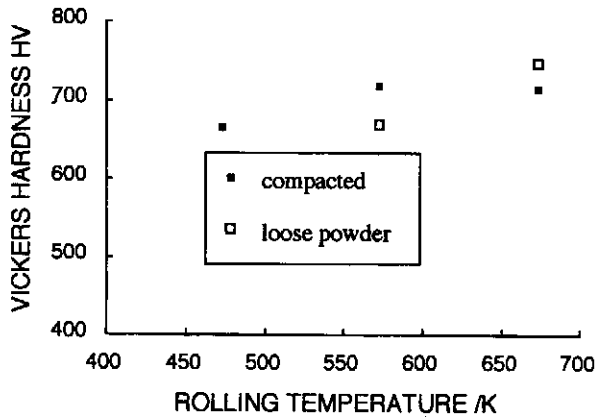


Fig. 10 Effect of rolling temperature on micro Vickers hardness of the powder core.

末をパイプに充填する際に手で押し固めただけの場合の圧延後の破面のSEM写真を示す。195MPaで圧粉したものに較べて空隙が多いが、粉末相互の接着状態には大差がないようである。したがって、健全な固化材を得るためには、195MPa以上で圧粉した後673K以上で圧延すればよい。ただし本実験で採用したソルトバスによる加熱では、Fe-Cu系強制固溶体を非平衡状態のまま圧延することはできない。

3. 3. 3 まとめ

Fe - 30at % Cuの強制固溶体の粉末をシースに封入し、ソルトバスで加熱して高速圧延実験を行った結果次の結果が得られた。

- 1) 圧延温度473~673Kでは、一部にCuの分離が見られた。
- 2) 673Kで圧延した場合は粉末粒子同士の接合が生じた

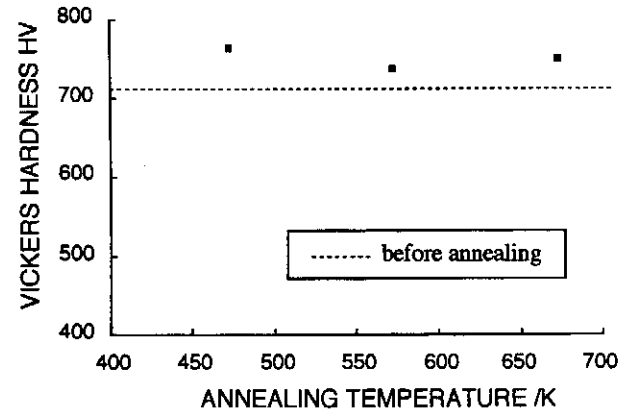


Fig. 11 Effect of annealing temperature on micro Vickers hardness of the powder core.

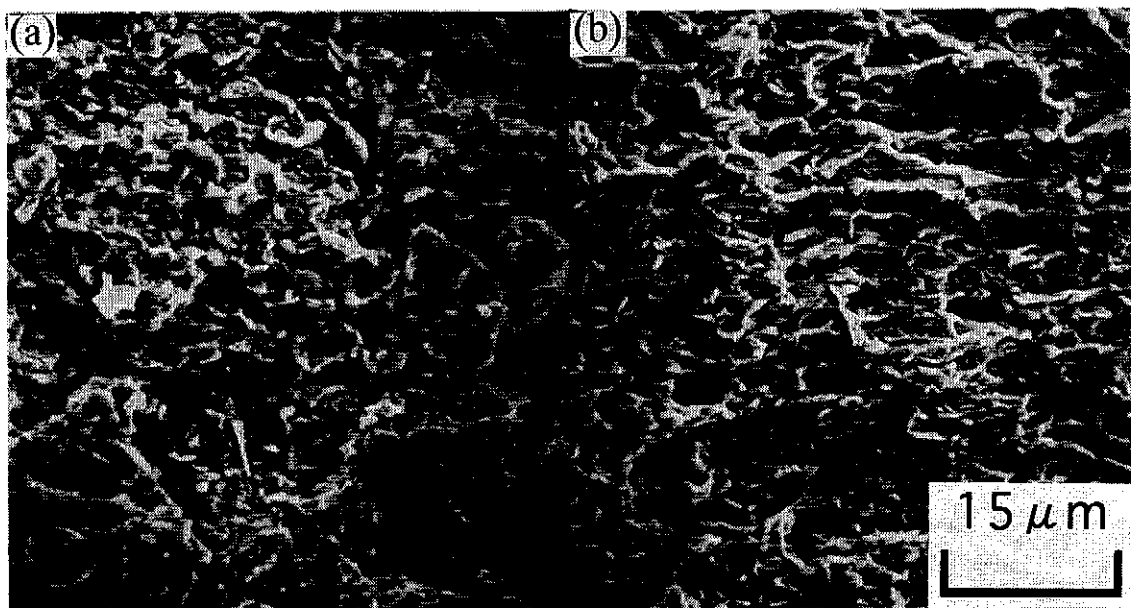


Fig. 12 Effect of rolling temperature on the fracture surface of powder core rolled at (a) 573K and (b) 673K.

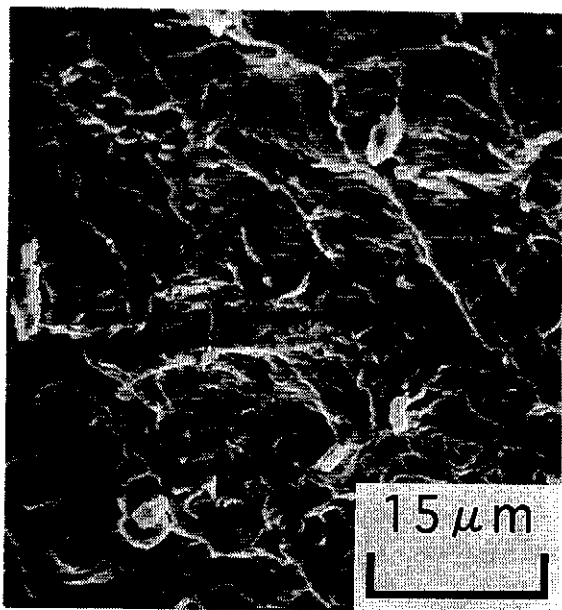


Fig. 13 Fracture surface of loosely compacted powder core rolled at 673K.

が、473、573Kでは機械的なかみ合わせで形状が保たれていた。

- 3) 673K圧延試料は、ビッカース硬度で700という高い値を示した。これを473~673Kで2分間焼鈍するとわずかに硬さが増加した。これは、微細な銅粒子の析出によるものと思われる。

4. 総括

本研究で、シース圧延の変形特性および鉄と銅における粉末組織と固化状態との関係が明らかになった。一方、本実験の組み合わせ、すなわちFe-Cu系強制固溶体とソルトバスでは残念ながら非平衡材を、完全に非平衡のまま固化させることはできなかった。しかし、シース封入高速熱延法でMAによる強加工を受けた微細な粉末を固化できることがわかったので、今後は、より高速の加熱方法、あるいはもう少し安定度の高い非平衡材を選ぶことで、非平衡材料をバルク状態で製造することが可能になると思われる。

なお、本研究の一部は中国で開催された、第4回塑性加工国際会議で発表した。

謝辞

本研究は、(財)天田金属加工機械技術振興財団による研究開発助成を受けて行われたものであることを記し、深く感謝いたします。

参考文献

- [1] 新宮秀夫：金属学会シンポジウムテキスト「超急冷粉とその固化技術」(1987) p. 1
- [2] 増本 健：同上 p. 33