ステンレス鋼粉の擬 HIP 成形における緻密化と組織形成

宮島 雅史^{☆1}, 川崎 亮^{☆2}渡辺 龍三^{☆2}, 李 敬鋒^{☆2}^{☆1} 東北大学大学院, [(現) ダイキン工業(株) MEC 研究所, 〒305 つくば市御幸が丘3].^{☆2} 東北大学工学部, 〒980 仙台市青葉区荒巻字青葉.

Densification and Microstructural Development of Stainless Steel Powder Compacts during Pseudo-HIP Process

Masafumi Miyajima^{☆1}, Akira Kawasaki^{☆2}Ryuzo Watanabe^{☆2} and Jing-Feng Li^{☆2}^{☆1} Graduate School, Tohoku University [Present Address: Daikin Industries, Ltd., MEC Laboratory Miyukigaoka, Tsukuba 305].^{☆2} Faculty of Engineering, Tohoku University, Aramaki-Aza-Aoba, Sendai 980.

Received January 25, 1993

The pseudo-HIP method was applied to the hot compaction of two kinds of stainless steel powders with average particle sizes of 53 and 0.06 microns, respectively. The preheated powder preform, encapsulated in a glass tube, was compacted in a steel die using preheated alumina granules as a pressure-transmitting medium. The densification behavior and microstructural development were investigated by varying compacting pressure and temperature. It has been found that full dense compacts with fine-grained microstructure can be obtained at temperature 300-400K lower than with normal sintering.

1 緒 言

擬似等方圧成形法 (以下, 擬HIP成形法と略す) は近年開発された金属粉体の高温圧縮成形法であり, 高性能粉末冶金部材の新しい製造法として注目されている⁽¹⁻⁸⁾. 従来, 難焼結性の金属粉とセラミックス粉または両者の混合体を緻密に固化するには, ホットプレス法やHIP法が使われている. ホットプレス法は高温で行なえる単軸成形法に過ぎないため, 製造部品の形状に対する制限がある. 一方, ガスを圧力伝達媒体とするHIP法は複雑な形状を持つ部品のニアネットシェイプ成形に適しているが, 設備が高価でしかも工程時間が長いなどの欠点がある. これらに対して, 擬HIP法はセラミック粒を圧力媒体として用いる点に特長があり, 短時間かつニアネットシェイプ成形可

能な方法である.

近年, 擬HIP成形法のプロセス開発と利用技術についての研究がなされているが, 組織形成過程および緻密化機構に対する理解はまだ不十分であると思われる. そこで, 本研究では本成形プロセスの緻密化挙動, 微細粒組織の形成条件を調べることを目的として, ステンレス鋼粉を試料粉末とする擬HIP成形の結果を報告する.

2 試料および実験方法

2-1. 原料粉末

本研究では, 主として平均粒径53 μ mのアトマイズステンレス鋼粉を供試粉として実験を行った. 粒度分布をTable 1に示す. Fig. 1(A)の断面組織写真に示す

Fig.1 (A) Optical micrograph of the cross-section of the atomized stainless steel powders, (B) TEM micrograph of ultra-fine stainless steel powders.

Table 1 Particle size distribution for atomized stainless steel powder.

particle diameter (μm)	<44	44-63	63-74	74-105	105-149	>149
Mass percent (%)	44.6	19.9	8.9	17.7	8.7	0.2

Table 2 Chemical compositions of starting powders

Powder	Element (wt%)										
	C	O	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Co	Fe
A	0.015	—	0.82	0.16	0.02	0.005	12.96	16.85	2.04	—	bal.
U	0.054	2.10	0.01	1.96	—	0.005	7.73	19.17	—	0.25	bal.

(A: Atomized powder, U: ultrafine powder)

ように、粉末にアトマイズ法に特徴的なデンドライト組織が見られる。さらにステンレス超微粉も用いて超微細粒焼結体の作製を試みた。超微粉は活性水素溶融金属反応法により作製されたものであり、約 0.06 μm の平均粒径を有する。Fig.1(B)にその透過型電子顕微鏡写真を示す。Table2に両粉末の化学成分を示す。

2-2. 成形装置および成形工程

Fig. 2に本研究で使用した成形装置の模式図を示す。

Fig.2 Schematic drawing of the pseudo-HIP setup. An encapsulated powder compact is embedded in alumina granules in a steel die.

内径60mmのスプリング式の金型ダイスと300トン油圧プレス機の組合わせである。圧力媒体として平均粒径約0.5mmの α - Al_2O_3 粉を使用した。

以下、本成形工程について詳細に説明する。

(1) 金型成形により供試粉を直径10mm×高さ約8mmの円柱体に予備成形した後、硼珪酸ガラス（パイレックスガラス）管に約1030Kで真空封入した。

(2) ガラスカプセル化した試料と圧力伝達媒体用のアルミナ粉を1073~1373Kで約60s予熱した。

(3) 試料の底面が水平になるように、速やかに予熱された試料とアルミナ粉を金型ダイスに装入した。この際に、試料をアルミナ粉の中心部に置いた。

(4) 170~870MPaの範囲で60s加圧を行った後、試料を取り出した。

なお、(2)~(4)過程の温度変化を実測して予熱温度と加圧温度の関係式^(6,7)を導き、予熱温度から加圧温度を求めた。

2-3. 評価

各条件で得られた試料について、マイクロメータで擬HIP成形前後の寸法変化を、またアルキメデス法で成形密度を測定した。さらに、光学顕微鏡と透過型電子顕微鏡によりミクロ組織を観察した。

3 実験結果および考察

3-1. アトマイズ鋼粉について

Fig. 3に各圧力で得られたアトマイズ粉成形体の相対密度と成形温度との関係を示す。実験範囲において

520MPa以下の圧力では、成形温度と共に相対密度がほぼ直線的に増加する。成形圧力が約700MPa以上では、約1000Kと低い温度でも緻密な試料が得られる。これは成形圧力を高めるかわりに、加工温度を低く押えられる擬H I P成形法の特徴の一つを表わした結果である。

しかし、本実験装置においては、Table3に示すように試料の寸法変化に方向性が見られた。すなわち、全体的に見れば、プレス機の加圧方向に平行する試料の長さ方向において、その垂直な径方向に比べて試料の変形量が大きくなった。このような傾向はおそらく用いた圧力伝達媒体アルミナ粉の圧密挙動を反映してい

るものと考えられる。事実、圧力伝達媒体アルミナ粉は400MPaの圧力下では約75%に圧密され、そのため、試料の等方的な収縮に必要とされる流動性が欠けていると考えられる。

Fig. 4にFig. 3の結果から求めた成形体の気孔率と成形圧力との関係を示す。各成形温度では、気孔率の対数と成形圧力との間に直線関係が認められた。一方、Helleらの研究⁽⁹⁾によると、粉末成形時に塑性流動により達成される限界相対密度(ρ_{lim})、あるいは限界気孔率(f_{lim})と付加圧力(P)との間に、下記の関係式が成り立つことが明らかにされている。

$$\rho_{lim} = 1 - [\exp(-3P/2\sigma_y)] \quad (1)$$

あるいは、

$$f_{lim} = \exp(-3P/2\sigma_y) \quad (2)$$

ここで、式中の σ_y は降伏応力を表わす。

Table 3 The ratio α of shrinkage at height direction to that at diameter direction.

α / T/K P/MPa	1040	1130	1220	1310
174	4.8	3.9	2.4	---
347	4.5	2.9	2.7	---
521	4.0	3.5	2.8	---
694	4.9	---	6.0	7.2
868	4.1	4.7	---	---

$$\alpha = \frac{\Delta h}{h} : \frac{\Delta d}{d}, \quad h\text{-height; } d\text{-diameter}$$

T-compacting temperature, P-compacting pressure

Fig. 3 Relation between the relative density of the atomized powder compact and the compacting temperature for the different pressure.

Fig. 4 Semi-log plot of the relation between porosity and compacting pressure for the atomized powder compact.

実際に一定の成形温度では降伏応力が定数であるので、Fig. 4の結果は(2)式と一致していることから、本成形法における緻密化は主に塑性流動によって起るものと考えられる。

Fig. 5に擬H I P成形体の代表的なミクロ組織を示す。写真(A)に示すように、低い成形温度では、粒内の凝固に特徴的なデンドライト組織が保持されたまま圧密された組織が得られた。成形温度の上昇につれて、凝固組織の消失と共に再結晶および粒成長が起ったことがよく分る。したがって、アトマイズステンレス鋼粉の擬H I P成形体の組織形成がデンドライト組織の溶体化、再結晶と結晶粒成長のような3段階に分れて進行すると考えられる。興味深いのは、写真(B)に示すように、極めて微細な組織によって粗大粒が取り囲まれた複合組織が得られた。このような組織はH I P

Fig.5 Microstructures of the pseudo-HIPed samples of the atomized powder compacted at

- (A) 1093K and 868MPa;
- (B) 1133K and 694MPa;
- (C) 1173K and 868MPa;
- (D) 1283K and 868MPa.

Fig.6 Relative density of the pseudo-HIPed compacts with ultrafine powders as a function of compacting temperature.

材にも見られると報告され⁽¹⁰⁾、粒度分布などの原料粉末の特徴に由来するものである。原料粉末の粒度分布および圧縮成形を制御すれば、サブミクロンサイズの結晶粒組織をもつ緻密な成形体を得られる。

3-2. 超微粉について

ステンレス超微粉は粒径が $0.06\mu\text{m}$ と非常に小さいため、良好な焼結性を示す。真空焼結では、上述のアトマイズ鋼粉の焼結開始温度が約1173Kであるのに対

して、超微粉のそれが約300K低く870Kとなっていることが確認された。その良好な焼結性を反映して、Fig. 6に示すように、本実験条件範囲において一つの条件を除いて、緻密な成形体を得られた。ここでは、HIP成形(1573K, 150MPa)で作製した完全緻密体の密度に比して、Fig. 6中の相対密度を求めた。HIP成形体の密度が 7.53g/cm^3 であり、同組成ステンレス鋼の値より小さいが、これは表面酸化物による影響であると考えられる。

Fig. 7に超微粉の擬HIP成形体のTEM写真を示す。いずれの試料においても気孔が見られず緻密な組織を得られた。成形温度と共に粒成長が起ったが、平均粒径は約 $0.2\sim 0.3\mu\text{m}$ と非常に小さい。

超微粉については、緻密化機構と粒成長を含む組織形成過程を明らかにするには、さらに成形温度と圧力を下げて実験を行なう必要がある。にもかかわらず、以上の結果からみれば、超微粉の擬HIP成形により、力学的特性の飛躍な向上が期待される $0.1\mu\text{m}$ 以下⁽¹¹⁾の結晶粒組織の素材を作製できる可能性が大きいことが分った。

4 ま と め

擬HIP法により、通常の常圧焼結プロセスより300~400K低い温度、短時間(60s)でステンレス鋼粉を緻密に圧縮成形することができた。

Fig. 7 TEM micrographs of the pseudo-HIPed samples with ultrafine powders compacted at 1040K and 868MPa (A); at 1220K and 868MPa (B); and at 1310K and 694MPa (C).

平均粒径 $53\mu\text{m}$ のアトマイズ鋼粉の擬HIP成形過程においては、塑性流動が緻密化の支配的な機構であると推測された。さらに、緻密化過程と共にデンドライト組織の溶体化、再結晶、そして結晶粒成長といっ

た3段階に分れて微細組織が形成されることが観察され、成形条件を制御すれば、原料粉末よりも細かいサブミクロンサイズの結晶粒組織が得られることも分った。

さらに、平均粒径 $0.06\mu\text{m}$ のステンレス超微粉を原料粉として、より低い温度で平均粒径が約 $0.2\mu\text{m}$ と超微細粒の成形体を得られることが分った。

文 献

- (1) P. Beiss: *met. Powder rep.*, 38(1983)185.
- (2) H. A. Kuhn, B. L. Ferguson and O. D. Smith: *Met. Powder Rep.*, 38(1983)321.
- (3) W. B. James: *Int. J. Powder Metall. Powder Tech.*, 21(1985)163.
- (4) B. L. Ferguson: *Int. J. Powder Metall. Powder Tech.*, 21(1985)201.
- (5) Y. R. Mahajan, D. Eyrone, C. A. Kelto and F. H. Froes: *Powder Metall. Int.*, 17(1985)75.
- (6) R. Watanabe, A. Kawasaki and M. Miyajima: *Trans. JIM*, 31(1990)152.
- (7) 宮島 雅史, 川崎 亮, 渡辺龍三: *日本金属学会誌*, 53(1989)799.
- (8) 新宮秀夫, 石原慶一: *粉体および粉末冶金*, 37(1990)670.
- (9) A. S. Helle, K. E. Easterling and M. F. Ashby: *Acta Metall.*, 33(1985)2163.
- (10) W. A. Kaysser, M. Aslan, E. Arzt, M. Mitkov, and G. Petzow: *Powder Metallurgy*, 31(1988)63.
- (11) H. Fujita and S. Miyazaki: *Acta Metall.*, 26(1978)1273.