

令和 4 年 6 月 26 日現在

機関番号：50102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05086

研究課題名(和文)トレーサー粒子の追跡による超硬合金の熱間加工挙動の実験的解明

研究課題名(英文) Experimental Investigation of Hot Working Behavior of Cemented Carbide by Tracer Particle Tracking

研究代表者

高澤 幸治 (TAKAZAWA, Kohji)

苫小牧工業高等専門学校・創造工学科・准教授

研究者番号：20331952

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：黒鉛製の型を介した通電加熱および加圧によって超硬合金を熱間加工する際の変形挙動を、トレーサー粒子の分布から推測した。被加工材において、黒鉛型に接している領域は変形拘束を受け、内部は主として圧縮応力場となり、自由表面に向かって塑性流動が生じる。自由表面近傍は主として引張応力場となり、場合によっては空隙が形成される。また、これらの変形量は、トレーサー粒子を含む領域の形状変化から算出が可能であることが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超硬合金は硬さと靱性を高度に両立した材料として産業に必要不可欠である。しかし、その原材料のタングステンおよびコバルトは希少元素であり、供給には地政学的なリスクも大きい。本研究の成果は、単純形状の超硬合金素材に除去加工を用いずに形状を付与する技術の基礎となるものであり、加工屑になる希少資源の量を減らすことができる。また、既存の加工方法よりも消費電力を低減できる可能性もあり、省資源省エネルギーに寄与するものとなる。

研究成果の概要(英文)：Deformation behavior during hot working of cemented carbide by electric heating and pressure through a graphite die was estimated from the distribution of tracer particles. In the work piece, the area in contact with the graphite die is subject to deformation constraint, and the inside mainly becomes a compressive stress field, and plastic flow occurs toward the free surface. The area near the free surface is mainly a tensile stress field, and in some cases, voids are formed. It is suggested that the amount of these deformations can be calculated from the shape change of the region containing tracer particles.

研究分野：機械材料学

キーワード：超硬合金 熱間加工 塑性加工

### 1. 研究開始当初の背景

超硬合金(WC-Co系合金)は、硬さと靱性を高度に両立した材料として、工具や金型分野を中心に必要不可欠なものとなっている。しかし、その原材料は希少元素であるため、材料価格は年々上昇を続けており、その供給には常に地政学的なリスクを内包している。それゆえ、代替材料の研究開発が行われているが、長年の実績がある超硬合金への需要は依然として高いままである。そこで、次善の策となるのが、粉末冶金の特徴であるニアネットシェイプ製造による材料歩留まりの向上である。しかしながら、製品形状が複雑・極端な場合は、圧粉や焼結時の条件を均一にすることが困難である。そのため、そのような形状の超硬合金部材の製造においては、単純形状な焼結体からの放電加工や研削などの除去加工によっているのが現状である。そこで本研究代表者は、超硬合金の熱間加工を提案している。これは、素形材として完成している単純形状の超硬合金に、黒鉛ダイ・パンチを介した通電加熱・加圧を行い、形状を付与するものである。従来工程にさらに熱間加工が加わるものの、品質管理や流通において有利な単純形状な素形材から加工することで、需要に応じて随時、複雑形状部材を生産することが可能となるため、少量製品においても材料の品質が安定する、という利点がある。しかし、超硬合金の熱間加工については、研究例が見当たらず、現在、本研究代表者がその可能性を見出しているに過ぎない。ただし、加工条件によっては、試料内の特定の領域に微細な亀裂が生じることもあるため、加工過程における巨視的な塑性流動や微視的な変形量の大きさを明らかにする必要があった。

### 2. 研究の目的

本研究は、超硬合金素形材の熱間加工技術の実現に向けて、超硬合金の塑性変形挙動を実験的に明らかにすることを目的とした。

### 3. 研究の方法

(1) 主な手法として、単純形状の超硬合金素材に図1(c)のような単純一軸加圧を施した場合に、超硬合金素形材の、どの部分が、どの程度変形するのか、ということトレーサー粒子の分布から実験的に推測することを想定した。

(2) 第一段階として、図1(a)および(b)に示すように、トレーサー粒子を含む層を所定の領域に配置した円柱状および角柱状の超硬合金を作成した。超硬合金粉末は、平均粒径 $6\mu\text{m}$ の炭化タングステン粉末、平均粒径 $5\mu\text{m}$ のコバルト粉末、平均粒径 $1\mu\text{m}$ の酸化アルミニウム粉末を所定量秤量して、直径 $10\text{mm}$ の超硬合金製ボールおよび適量のエチルアルコールとともに超硬合金製ポットに封入し、遊星ボールミルで湿式混合を行い、得た。混合条件は、種々試した結果、公転回転数 $100\text{rpm}$ 、 $60\text{min}$ で十分な分散が得られた。代表的な組成として、超硬合金粉末は WC-16.3vol%Co (WC-10mass%Co)、トレーサー粒子粉末を含む超硬合金粉末は WC-16.3vol%Co-16.3vol% $\text{Al}_2\text{O}_3$ を主に用いた。これらの粉末を、円柱状(内径 $10\text{mm}$ )および角柱状( $10\times 10\text{mm}$ )焼結体作製のための黒鉛型(ダイ・パンチ式)に封入し、放電プラズマ焼結機を用いてこれに直流パルス電流を通電しながらプレス荷重を付加して焼結した。なお、超硬合金粉末およびトレーサー粒子粉末を含む超硬合金粉末は、型内の高さ方向に積層することしかできない。円柱状の場合、図1(a)に示すように、焼結後の寸法が直径 $10\text{mm}$ 、高さ $10\text{mm}$ で、円柱の上端、中央、下端に厚さ $1\text{mm}$ のトレーサー粒子を含む層が形成されるよう、粉末を型内に装填した。角柱状の場合も、まずは、焼結後の寸法が幅・奥行 $10\text{mm}$ 、高さ $10\text{mm}$ で、角柱の高さ方向の $1/3$ および $2/3$ の位置に厚さ $1\text{mm}$ のトレーサー粒子を含む層が形成されるよう、粉末を型内に装填した。これらの焼結条件は、種々試した結果、黒鉛パンチ加圧 $30\text{MPa}$ 、到達温度 $1150$  (直流パルス電流 $500\sim 550\text{A}$ )の条件で焼結することで、ほぼ設計値に近い形状の超硬合金素材を得るに至った。

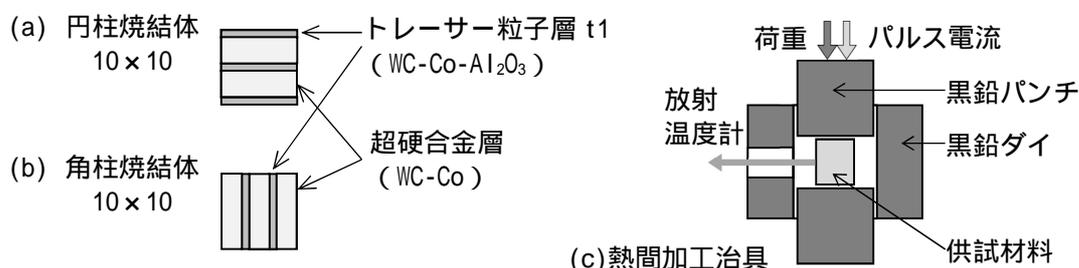


図1 トレーサー粒子層が配置された超硬合金素材および熱間圧縮加工方法の概要

(3) 第二段階として、第一段階で作製した超硬合金素材を図1の(a)および(b)の縦方向に一軸荷重が付加されるよう放電プラズマ焼結機に設置し、上下の黒鉛パンチを介して直流パルス通

電と加圧を行った。その概要を図 1(c)に示す。これにより超硬合金素材の温度が一定程度に達すると、軟化した素材が加圧に耐えられなくなり、圧縮加工が行われた。加工条件は、種々試した結果、黒鉛パンチ加圧が 10 試料で 3.9kN、10 試料で 5.0kN（変形前で何れも 50MPa）、到達温度約 1150（直流パルス電流 850A）において、3~5 μm/s 程度の安定した圧下速度が得られた。圧下率としては当初 50%を目指したが、主に採用したのは 40%（高さが 10mm から 6mm へ変形）とした。これは、圧下率の増加とともに断面積も増加し、加工応力が減少して圧下速度が減少する、また、電流密度も減少して温度も徐々に低下する、といった現象が認められ、そのような影響を可能な限り抑制するための判断である。

(4) 第三段階として、圧縮加工で変形した試料の断面組織観察を行い、トレーサー粒子を含む層の分布を調べた。個々のトレーサー粒子の認識には走査型電子顕微鏡が必要であるが、トレーサー粒子が分散している領域としての認識には、光学顕微鏡の方が簡便かつ迅速であった。

#### 4. 研究成果

(1) 図 2 に、図 1(a)および(b)のようなトレーサー粒子層を所定の領域に配置した超硬合金の代表的な焼結挙動を示す。放電プラズマ焼結は、供試粉末を封入した黒鉛型に直接通電することで、型および粉末が発熱する。図 2 の温度は、その黒鉛型表面の温度を放射温度計で測定したものであるが、測定範囲が約 570 以上のため、それ以下では 570 と測定されている。変位は、粉末や黒鉛型（上下パンチ）、スペーサ等、放電プラズマ焼結機の上下の電極兼加圧ラムで挟まれたものの総高さの変化を示している。この値は、荷重付加によって負側へ、熱膨張によって正側へ変化するが、最も影響が大きいのは、粉末の焼結の進行とともに粉末粒子間の空隙が減少することであり、負側へ大きく変化する。

電流値の増加とともに温度も増加し、電流値を保持すると温度も徐々に一定になる。なお、(a)の 10 試料は 1100s 頃から電流値を再び増加させたため温度もそれに応じて増加している。一方、(b)の 10 試料は電流値が一定であるにもかかわらず、1000s 以降に温度が増加している。これは、黒鉛ダイとパンチとのわずかな空隙から型内の粉末が漏れ出てきたことに起因して、黒鉛型全体の電気抵抗が増加したためと考えられる。図 2 では省略しているが、実際の測定データでは抵抗値が増加している。また、焼結終了後に試料を取り出すと、わずかではあるがバリが形成されていることも、この考えを支持するものである。

トレーサー粒子層となる WC-16.3vol%Co-16.3vol%Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 合金は、超硬合金としては一般に添加しない成分である Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を、結合相金属である Co と同体積率で含有しており、また、この層が全体積に占める割合が、10 試料で 30%、10 試料で 20%にも及び、そのため当初は、WC-Co 系合金との焼結条件の乖離が危惧されたが、結果としては、著しい欠陥の無い焼結体を作製することが可能であった。また、トレーサー粒子層を所定の領域に形成することは容易ではないものの、本研究のように 1mm 程度の厚さで水平に積層するだけであれば、一般的な粉末冶金の実験手技で対応可能であることがわかった。

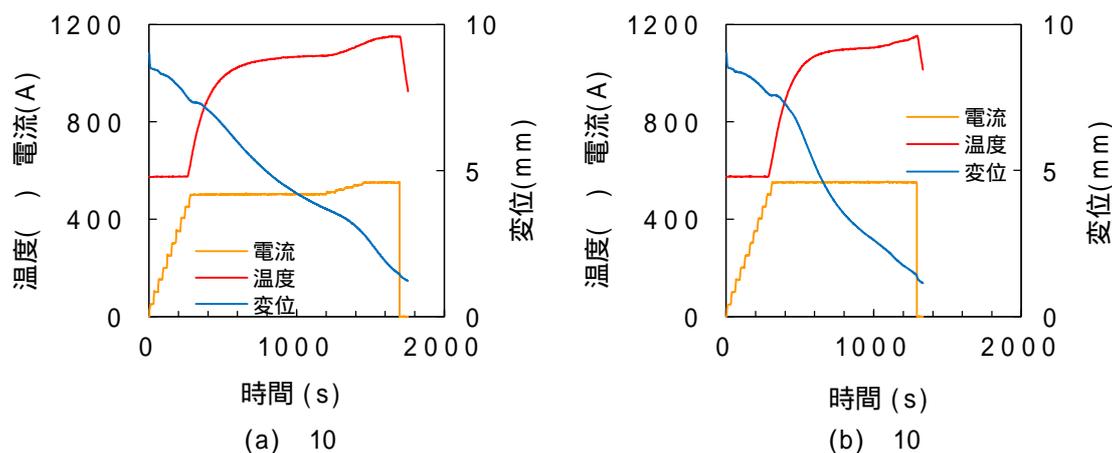


図 2 焼結過程における黒鉛型表面温度，変位の代表的な変化

(2) 図 3 に、図 1(a)(b)の縦方向に一軸荷重を付加して図 1(c)のような熱間圧縮加工を行ったときの、超硬合金素材の代表的な変形挙動を示す。加工には、焼結と同様に放電プラズマ焼結機を用いているが、黒鉛型が接しているのは円柱状あるいは角柱状の試料の上下端のみである。黒鉛パンチのガイドとして黒鉛ダイを用いているが、加工の全過程を通じて超硬合金素材がダイ内壁に接することは無い。なお、加工中の超硬合金素材の表面温度は、黒鉛ダイの壁面に開けた穴を通じて放射温度計で測定している。変位は、(1)節で述べたことと同様であるが、ここでは焼結の影響は無視できる一方、圧下の進行によって大きく負側へ変化する。

10 試料の断面積は 10 試料のそれの約 80%であるので、同じ 850A の通電加熱であれば 10

試料の方が電流密度が高く、温度上昇が速いと考えることもできる。しかし、実際には、黒鉛パンチから黒鉛ダイをバイパスしている電流もあるため、両者とも同程度の速度で 1150 ~ 1180 程度に到達し安定している。

加圧は、両者とも変形前の断面積をもとに 50MPa となるように設定しているが、10 試料の方が圧下速度が明らかに遅い。この要因として、第一に、10 試料よりも保持温度が 30 程度低いことが挙げられる。第二に、10 試料では、円柱の高さ方向の中央部分に厚さ 1mm のトレーサー粒子層が存在しており、そこに分散している  $\%Al_2O_3$  粒子が変形を抑制している可能性が挙げられる。図 3 について後述するように、10 試料では、この部分において半径方向（水平方向）の変形量が最も大きくなるため、その影響は小さくないと考えられる。一方、10 試料にも厚さ 1mm のトレーサー粒子層が二層配置されているが、これらは水平方向の変形に対して層の厚さに相当する寄与に留まるため、その影響が顕在化しなかったといえる。

熱間圧縮加工の温度条件としては、素材作成時の焼結温度近傍において緩慢で安定した変形速度と欠陥の少ない加工組織が得られるが、それよりも低いと変形が著しく遅く、高いと変形が速くなり制御が難しくなるとともに、Co を主とする結合相成分の偏析が生じる。

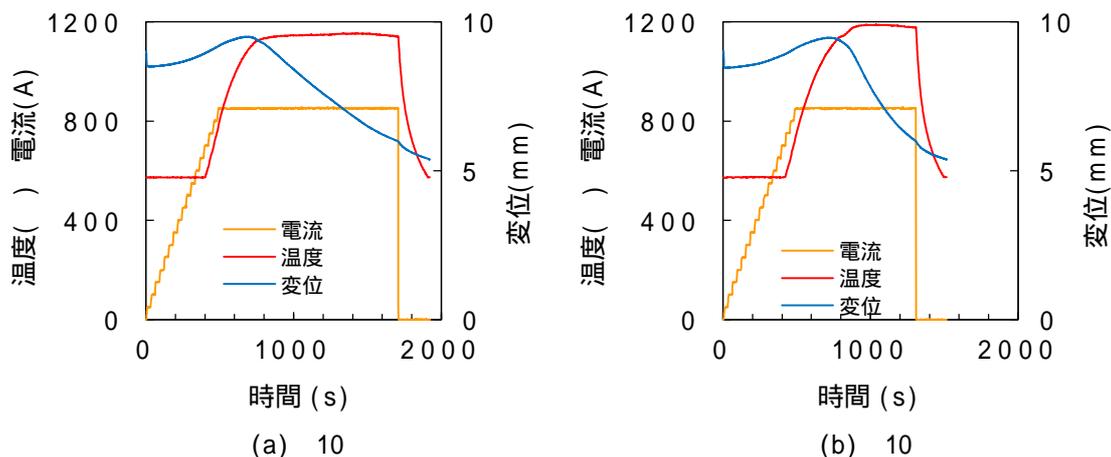


図 3 熱間圧縮過程における超合金表面温度，変位の代表的な変化

(3) 図 4 に、熱間圧縮加工による超合金素材の変形の様子を示す。10 試料は焼結ままの状態加工に供したため、(a)および(b)に示すとおり、表面に光沢は無い。試料側面の縞模様は、トレーサー粒子層ではなく焼結時の黒鉛型から転写されたものである。10 試料は焼結後、(c)に示すように、ダイヤモンドバフ研磨で表面を鏡面に仕上げた。肉眼でも認識できる縞模様はトレーサー粒子層である。研磨による除去量を最小限としたため、層の境界は曖昧であるが、設計通り積層されていることがわかる。この(c)の上面を黒鉛パンチで加圧して圧縮加工したものが(d)である。なお、加工後の試料の上面には黒鉛粉末等が付着しているため、組織を認識しやすいように、最小限のダイヤモンドバフ研磨を施してある。10 試料および 10 試料はともに圧下率 40%程度の高さとなっており、試料の高さ方向の中央部分が膨張している様子が認められる。このことは、(c)および(d)の手前側面に現出しているトレーサー粒子層の変形にも表れている。

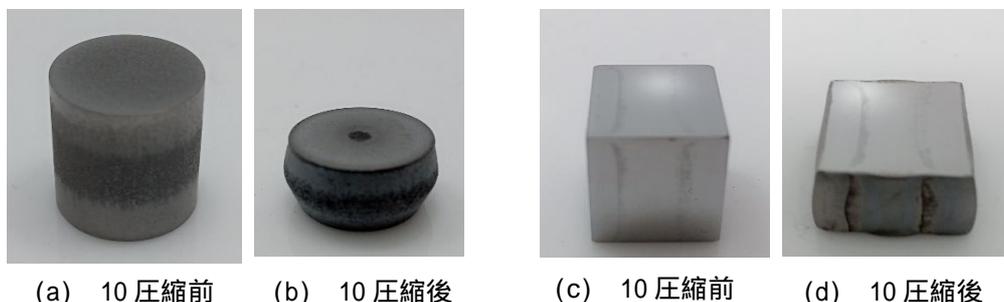


図 4 熱間圧縮加工による代表的な試料外観の変化

(4) 図 5 に、圧縮加工された 10 試料の垂直断面（圧縮方向に平行な断面）におけるトレーサー粒子の分布の例を示す。(a)は円柱の中心を含む断面のマクロ写真であり、上端，中央部，下端の幅は図 4(b)におけるそれぞれの場所の直径にほぼ等しい。また、それらの場所に認められる、厚さ 1mm 未満の周囲よりも僅かに暗く見える層がトレーサー粒子層である。(b) ~ (e)は、(a)中に示された各箇所における光学顕微鏡写真である。周囲よりも暗く、分散した組織は主としてトレーサー粒子の  $Al_2O_3$  から成る。(e)に見られる黒く散在した箇所は空隙を含んでいる。

(a)の中央部の幅(直径)は圧縮加工前と比較して大きく増加している。しかし、そのトレーサー粒子層の厚さは、試料表層近傍を除いて圧縮加工前の約1mmから大きく減少している。これらのことから、圧縮加工過程において、この領域から試料外周部への塑性流動が著しいことがわかる。ただし、(d)においてはトレーサー粒子間隔や空隙の明らかな増加は認められないことから、試料の中央部近傍は高さ方向に圧縮応力が作用する一方、(e)においては塑性流動を受け外側へ膨張することから、試料最表面は引張応力が作用し、場合によっては空隙が形成されるものと考えられる。

上端および下端は中央部と比較して変形量が小さい。(b)および(c)においてもトレーサー粒子間隔や空隙の明らかな増加は認められない。これらの領域は、黒鉛パンチとの摩擦が大きいため、塑性流動が抑制されていると考えられる。

(5) 図6に、圧縮加工された10試料の水平断面(圧縮方向に垂直な断面)におけるトレーサー粒子の分布の例を示す。(a)は角柱の中心を含む断面のマクロ写真であり、厚さ1mm強の暗く見える層がトレーサー粒子層である。(b)~(e)は、(a)中に示された各箇所における光学顕微鏡写真であり、周囲よりも暗く、分散した組織は主としてトレーサー粒子の $Al_2O_3$ から成る。(b)および(d)に見られる黒く散在した箇所は空隙を含んでいる。

(a)は、角柱の水平方向の変形を最も顕著に表している。トレーサー粒子層の厚さは全体的に変形前の1mmよりも増加している。また、角柱の外周部においては、各辺が外側に凸上に膨張していることがトレーサー粒子層の湾曲の様子から容易に推測できる。試料中央部の(c)および(e)においてはトレーサー粒子間隔や空隙の明らかな増加は認められないが、試料最表面の(b)および(d)においては塑性流動を受け外側へ膨張することから、試料最表面は引張応力が作用し、空隙が形成されると考えられる。以上のことは、図5で示した仕組みと矛盾しない。

(6) 以上のことから次のことがいえる。すなわち、超硬合金の熱間塑性加工においては、黒鉛型に接している箇所は変形拘束を受け、被加工材の内部は主として圧縮応力場となり、自由表面に向かって塑性流動が生じる。自由表面近傍は主として引張応力場となり、場合によっては空隙が形成される。また、これらの変形量の推定は、トレーサー粒子を含む層の形状変化から算出することで十分可能であることが示唆された。

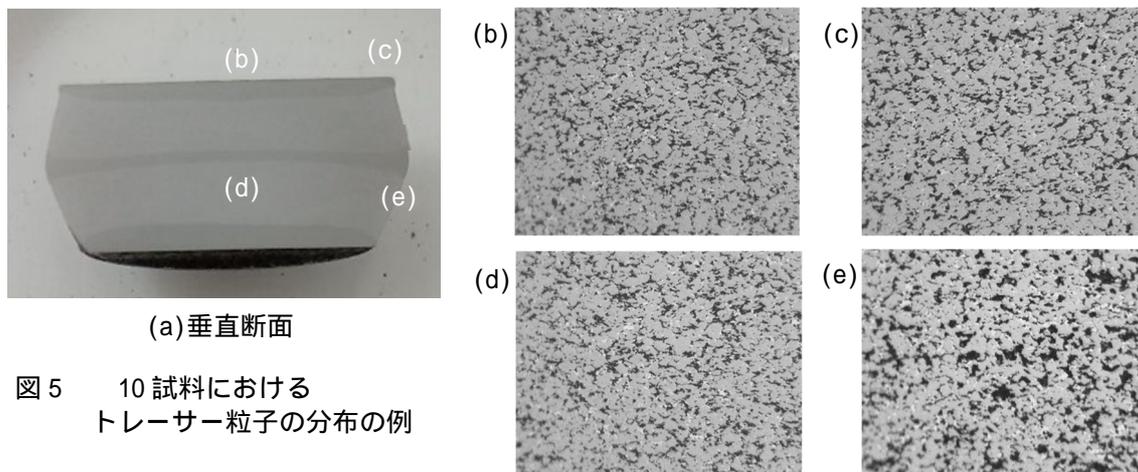


図5 10試料におけるトレーサー粒子の分布の例

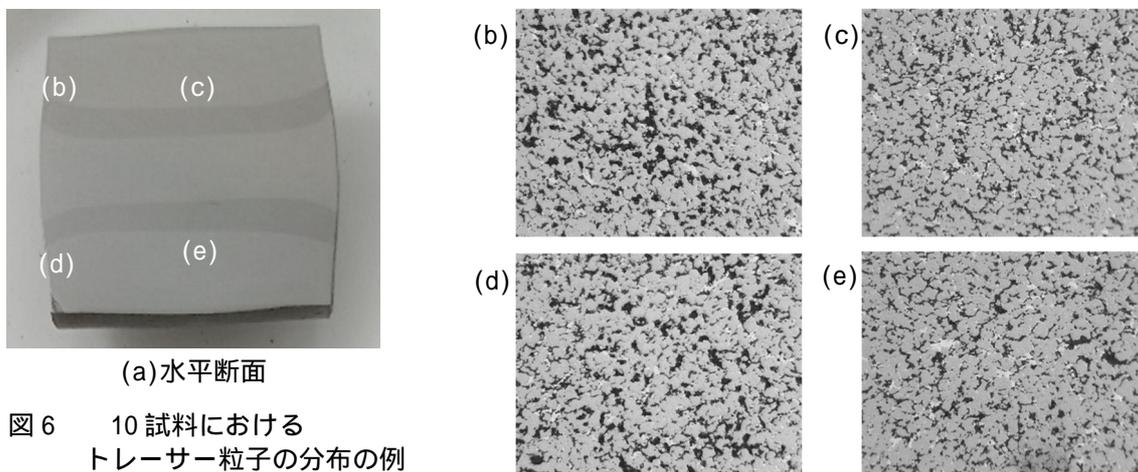


図6 10試料におけるトレーサー粒子の分布の例

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	浅見 廣樹  (ASAMI Hiroki)  (00547961)	苫小牧工業高等専門学校・創造工学科・准教授    (50102)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関