

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 9 月 24 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360055

研究課題名(和文) 大面積パルス電子ビーム照射による硬質焼結金型材の高効率表面処理法の開発

研究課題名(英文) High Efficient Surface Finishing of Sintered Hard Materials for Metal Mold by Large-area Electron Beam Irradiation

研究代表者

岡田 晃 (Okada, Akira)

岡山大学・自然科学研究科・教授

研究者番号：60263612

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,600,000円

研究成果の概要(和文)：大面積パルス電子ビーム照射によって超合金やセラミックス製高性能硬質金型の高効率表面仕上げ法を確立するため、電子ビーム照射条件による表面平滑化特性の解明、仕上げ面の表面性状の解析、ならびに表面改質効果を検討した。その結果、数分の処理で表面粗さを表面粗さ $1\mu\text{mRz}$ 程度まで低減できることや母材と組織の異なる薄い再凝固層が形成され、撥水性や成形樹脂との離型性を向上できることが明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：In order to develop a high efficient surface finishing method of metal mold made of sintered hard materials including cemented carbide and ceramics by large-area electron beam (EB) irradiation, the effects of EB irradiating conditions on the surface smoothing characteristics, the surface structure, and the surface modification effects were discussed. Experimental and analytical results show that the metal mold surface can be finished to about 1 micron Rz in surface roughness in a few minutes by the large-area EB irradiation. Also, water repellency and releasability molded resin can be improved, since extremely thin resolidified layer with different micro structure from the matrix is formed on the large-area EB irradiated surface.

研究分野：工学

キーワード：電子ビーム 表面仕上げ 硬質金型 表面改質 離型性

1. 研究開始当初の背景

光学部品や電子部品の金型材として高い耐摩耗性を有する超合金やセラミックス等の硬質焼結材料の利用が拡大している

大量生産を可能とするこれらの金型の製作において、最終的な表面磨き作業は手作業によって行われる。しかし、熟練者の技能に頼るところが多く、またかなりの長時間を要することから、その高能率が従来からの課題となっている。

我々は大面積電子ビーム照射による新たな鉄鋼系金型材表面の仕上げ法を提案し、研究を行ってきた。そして、鉄鋼系金型材の表面を極短時間に平滑に仕上げる新たな手磨きレス仕上げプロセスが実現できることを明らかにし、実用化されている。

2. 研究の目的

本研究では、鉄鋼系金型材やチタン合金の高能率平滑化が可能な大面積短パルス電子ビーム照射法を用い、超合金やセラミックスに対する高能率表面平滑化の可能性、電子ビーム照射条件が表面平滑化特性に及ぼす影響、ならびに金型に必要なとされる表面特性を評価し、表面改質効果についても検討を行う。そして、高性能な焼結硬質金型材の新しい高能率表面仕上げ法を確立することを目的とする。

3. 研究の方法

実験は図1に示す大面積電子ビーム照射装置を用いて行った。従来のビームを細く絞って高いエネルギー密度を得る方式とは異なり、パルス状に短時間で電子を放出する方式によりビームを絞ることなく均一な高いエネルギー密度を得ることができる。このため直径60mmの電子ビーム照射により材料表面を均一に加熱することができる。主な電子ビーム照射条件を表1に示す。

本研究では以下の項目について順次検討を行った。

- (1) 大面積電子ビーム照射による超合金の表面平滑化特性について電子ビームのエネルギー密度、および照射回数等の影響を検討する。
- (2) 大面積電子ビーム照射による表面の材料組織変化について断面のTEM観察やEDX分析を用いて調査する。
- (3) WC粒径やバインダー成分比の異なる超合金や、アルミナ、ジルコニア等のセラミックス材料の表面平滑化特性の違いを調査し、材料構造の違いによる平滑化特性や照射面組織の違いを解明する。
- (4) 金型寿命に影響する表面特性である、耐摩耗性、撥水性、離型性、耐食性を評価する。

最後に、上記の検討項目を体系的に検討し、高性能な焼結硬質金型材の新しい高能率表面仕上げ法の確立のための指針を得る。

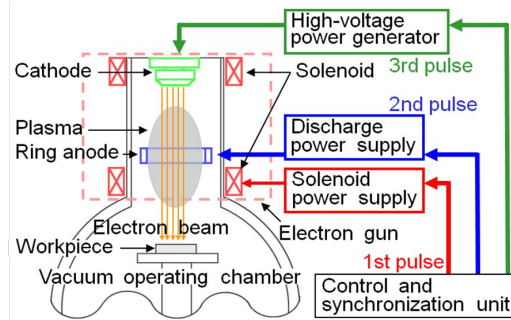


図1 大面積電子ビーム照射装置

表1 大面積電子ビーム照射条件

Acceleration voltage	$V$	keV	30
Pulse duration	$Dp$	$\mu s$	2
Pulse frequency	$Fp$	Hz	0.2
Energy density	$Ed$	J/cm <sup>2</sup>	2-15
Number of pulses	$N$	shot	5-30

4. 研究成果

(1) 平滑化特性

大面積電子ビーム照射による超合金の表面平滑化の基礎データを構築するために、まず通常のコバルトバインダ微粒超合金を用い大面積電子ビームのエネルギー密度、および照射回数の条件を変化させた場合の超合金表面を光学顕微鏡、レーザー顕微鏡等によって観察するとともに、表面粗さの変化について検討を行った。ここでは試料として粗粒超合金を用いた。大面積電子ビーム照射前の加工面は表面粗さ 2.5 ~ 3.0 $\mu mRz$  の研削加工面である。

図2は電子ビームのエネルギー密度および照射回数の異なる条件で電子ビーム照射を行った表面のSEM観察像、および粗さ曲線である。照射前には研削による研削筋が明確に確認できるが、最適な照射回数およびエネルギー密度の条件下では、それらがほぼ消失し表面が滑らかになっていくことが確認できる。粗さ曲線を比較しても細かい凹凸が減少し滑らかになっていることが分かる。大面積電子ビーム照射によって最表面が溶融再凝固して表面の平滑化がなされたといえる。ただし、エネルギー密度および照射回数の大きい場合は表面の凹凸はかえって大きくなる。これは過度の表面溶融によるものといえる。また、エネルギー密度の大きい条件では、照射面にマイクロクラックの発生が確認された。エネルギーの大きい条件では過度の表面溶融によって再凝固時の体積収縮の程度が大きいためと考えられる。したがって、健全な表面を得るにはエネルギー密度の小さい、照射回数の小さい条件が適するといえる。

図3に示す表面粗さの変化を見ると照射回数5から10回程度で粗さが最小となることが分かる。すなわち、1分程度の処理時間で表面粗さを 1.5 $\mu mRz$  程度にできる。

さらに、表面光沢度変化について検討した。図4は大面積電子ビーム照射条件による表面光沢度 (JISZ8741) の違いを示す。電子ビーム照射回数の増加とともに、またビームのエネルギー密度が大きいほど照射面の光沢度が増加することが分かる。細かい凹凸が減少することとよく対応した表面光沢度の変化となっている。

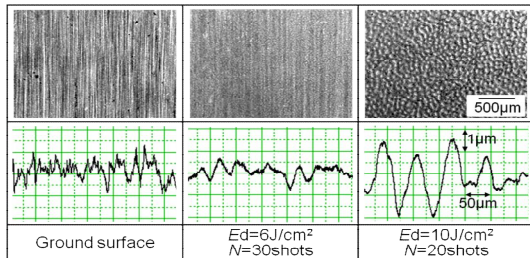


図2 大面積電子ビーム照射面のSEM像および断面曲線装置

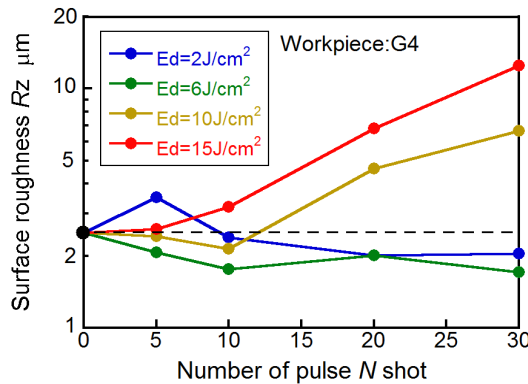


図3 超硬合金の照射面粗さの変化

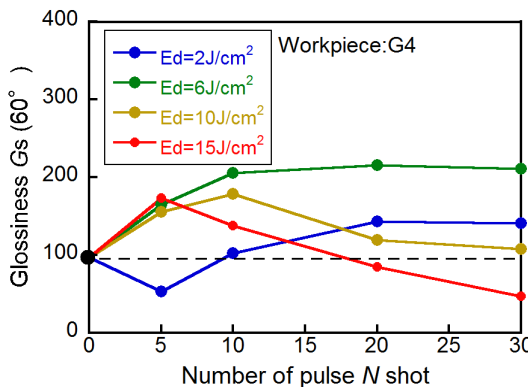


図4 超硬合金の照射面光沢度の変化

## (2) 組織変化

大面積電子ビーム照射面の表面組織を検討するため、TEM 観察を行った。図5に断面観察像と任意の箇所における EDX スペクトルを示す。TEM 像の上部に移る白い薄い層はTEM 観察サンプル作成のための FIB 加工において表面エッジを保護するために CVD に

より蒸着したカーボン層であり、その直下が電子ビーム照射面となっている。図より、母材部分では大きな炭化タングステン粒が明確に観察できるのに対して、表面近傍の再凝固層領域ではそのような様子は観察できず、細かい粒が分布している。その層の厚さは約1.0µm であることも分かる。再凝固層厚さはエネルギー密度の大きい条件で大きくなる傾向があることを確認している。図中に示す EDX スペクトルから母材の炭化タングステン粒部分と比較すると再凝固層部分ではバインダのコバルトが多く検出されることがわかる。再凝固層内の異なる箇所においてもそのスペクトル形状はほぼ同様であった。したがって、大面積電子ビームによって表面には薄い再凝固層が形成され、その層内では、炭化タングステン粒が微細化するとともにバインダのコバルト成分がある程度均一に分布する組織となっていることが明らかとなった。

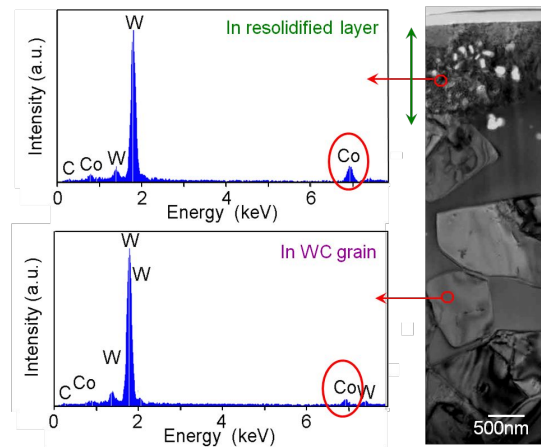


図5 超硬合金の照射面断面のTEM像およびEDXスペクトル

大面積電子ビーム照射時の試料表面の温度分布状態を把握するため、熱伝導モデルを構築した。図6に熱伝導解析モデルを示す。モデルは工作物をチャックで固定した状態の1断面であり、左右対称性を考慮した2分の1の2次元モデルとなっている。工作物上面とチャック上面に電子ビームのエネルギー密度に相当する熱流速を与えている。また電子のエネルギーは金属表面のみで全て吸収されるわけではなく、ある程度の深さまで貫入するため、照射条件や工作物種から電子ビーム貫入深さを求め、その深さまで均一に熱流速を与えることでそれを再現している。またモデル内は炭化タングステンとコバルトバインダ構造を図に示すように再現し、それぞれの熱物性値を与えている。

図7に熱伝導解析によって求めた大面積電子ビーム照射における工作物表面の最高温度分布を示す。縦軸に照射による各深さでの最高到達温度、横軸に表面からの深さをとっている。図より明らかのように、本電子ビーム

条件では照射面の表面温度は2500K以上となることが分かる。そして表面からの距離が大きくなるに連れて最高到達温度は減少し、表面から5 $\mu\text{m}$ の点では1000K程度になることも分かる。

ここで図8にWC-Coの状態図を示す。ここで用いた超硬合金は、コバルトバインダを10%含んでいるため、モル濃度で表すとWCの割合は78mol%程度である。状態図から判断するとWCの分解温度は2300K程度、またCoの融点は1750K程度であるため、これらを先ほどの最高到達温度分布に記入し、WCが分解する領域、およびCoバインダの溶融厚さを記入してみる。同時に前述のTEM観察結果を表示してみると、TEM観察で見られた微粒の炭化タングステン粒の組織の再凝固層厚さと解析結果で求められたWCの分解層厚さはよく一致していることが分かる。またコバルトの溶融再凝固深さもほぼ一致しており、最表面の微粒の炭化タングステン粒の組織層においてコバルトが均一に分布していることもよく一致している。したがって、超硬合金表面での電子の貫入現象や超硬合金の材料構造を再現した大面積電子ビーム照射の非定常熱伝導解析によって得られた温度分布は高い精度を有し、表面から数 $\mu\text{m}$ の深さで炭化タングステンの分解およびコバルトバインダの溶融が生じる温度分布となることが示された。

### (3) 平滑化特性の違い

WC粒径やバインダ成分比の異なる超硬合金、アルミナ、ジルコニア等のセラミックス材料の表面平滑化特性の違いを調査した。

まず、WC粒径の小さい超微粒超硬合金の平滑化特性を検討したところ、表面粗さの変化の傾向は前述の粗粒超硬合金の場合とほぼ同様であり、得られる表面粗さは若干超微粒超硬合金の方が小さいことが分かった。したがって、炭化タングステン粒子の小さい超硬合金ほど大面積パルス電子ビーム照射によって平滑化がやや容易になるといえる。また、コバルト成分の多いほうが、表面粗さが若干小さく、表面光沢度も高くなる。さらにニッケルバインダ超硬合金に対しても検討を行い、ほぼ同様の平滑化特性を示すことも確認している。

図9は、アルミナのショットブラスト面に対して大面積電子ビーム照射を行った場合の照射面のSEM観察結果である。図より明らかなように、アルミナにおいても大面積電子ビーム照射により表面は溶融し、表面の平滑化がなされている様子が伺える。ジルコニアについても同じ傾向の結果が得られた。すなわち、絶縁物であるセラミックスに対しても表面の溶融と平滑化が可能であることが分かった。そして熱拡散のしにくさから少数回の照射であっても平滑化しやすい結果が得られ、熱伝導解析による表面温度分布状態の解析とよく一致していた。また、大きいエネルギー密度の電子ビーム照射条件では超硬合金の場合と同様に、照射表面でマイクロクラックが発生しやすいことが

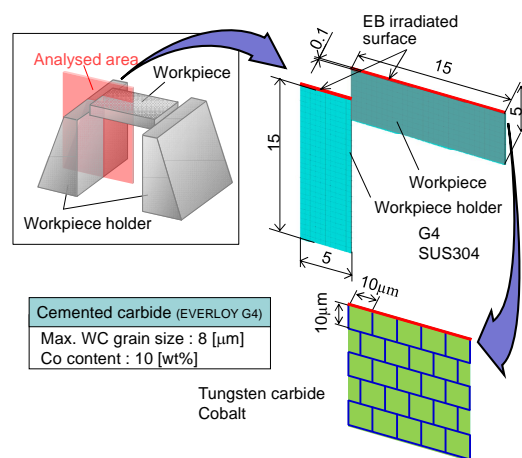


図6 超硬合金の大面積電子ビーム照射の非定常熱伝導解析モデル

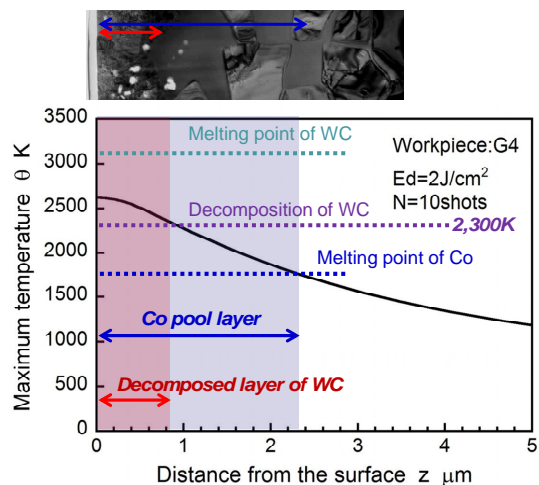


図7 超硬合金の大面積電子ビーム照射面近傍の最高到達温度分布

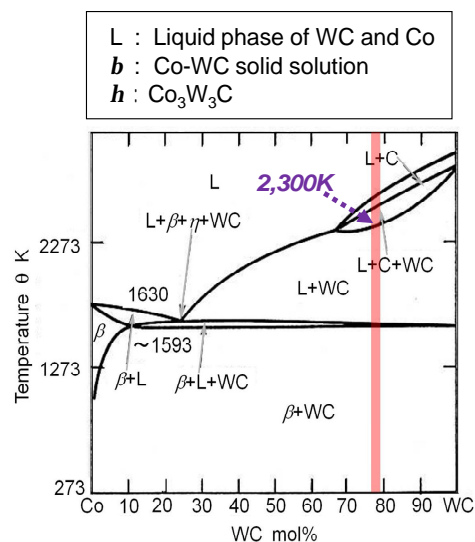


図8 超硬合金の状態図

明らかとなった。

### (4) 表面特性評価

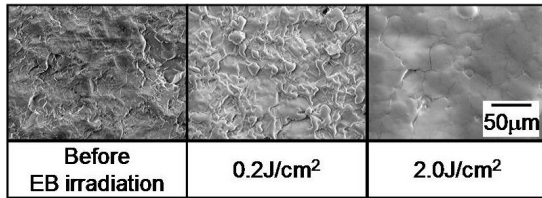


図9 アルミナの大面积電子ビーム照射面 SEM 観察結果

WC 粒径およびコバルトバインダの異なる各種超硬合金に対して大面积電子ビーム照射を行い、実用的に金型寿命に影響する表面特性である、表面硬度、撥水性、離型性を評価した。

図10は大面积電子ビーム照射面の硬度分布を示す。図より明らかなように、大面积電子ビーム照射面では若干の硬度変化が生じていることが分かる。また硬度低下の深さは電子ビームの照射回数条件によって異なり、照射回数の増加に伴って硬度低下層深さは大きくなる。

次に、水滴の接触角を測定し、大面积電子ビーム照射面の撥水性について検討を行った。撥水性は、表面自由エネルギーと相関があり、接触角が大きいくほど表面自由エネルギーが小さい。そして表面自由エネルギーが小さいほど離型性が良いといわれている。図11にその結果を示す。図より明らかなように大面积電子ビーム照射前の研削面においては接触角は約70°である。これに対し、大面积照射後の表面はいずれの条件においても接触角は増加し、最適な条件下では、90°を超える撥水面に変化することが分かる。大面积電子ビーム照射による表面凹凸形状の変化と表面での組織変化が表面自由エネルギーの変化をもたらしたといえる。

図12は異なる超硬合金種における大面积電子ビーム照射前後の接触角変化である。横軸にはCo含有量を示している。純Coの接触角は90°以上で最も大きい。また、超硬合金のコバルトバインダ量が大きいほど接触角は大きく、Cassie-Baxterの定理によく対応している。そしていずれの超硬合金種においても大面积電子ビーム照射によって接触角は増大し、表面自由エネルギーを減少させることができることが明らかである。

最後に、金型表面仕上げ加工を想定して、成形樹脂との離型性を評価した。試料の大面积電子ビーム照射面と成形樹脂との接着界面に垂直方向の引張り荷重を加え、それらが剥離するときの最大荷重を離型力として測定した。図13に離型性試験機の模式図を示す。ヒータ上に大面积電子ビーム照射面を上向きにして試料を固定し、その試料上に治具金型をセットする。一定温度に加熱された治具金型内に熱硬化性エポキシ樹脂を充填して樹脂を溶融し、圧縮荷重を負荷した状態で一定時

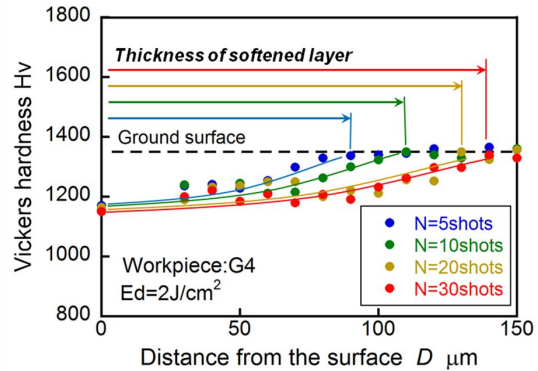


図10 大面积電子ビーム照射面硬度分布

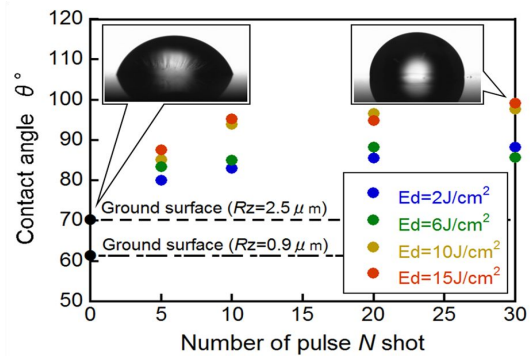


図11 大面积電子ビーム照射面の接触角

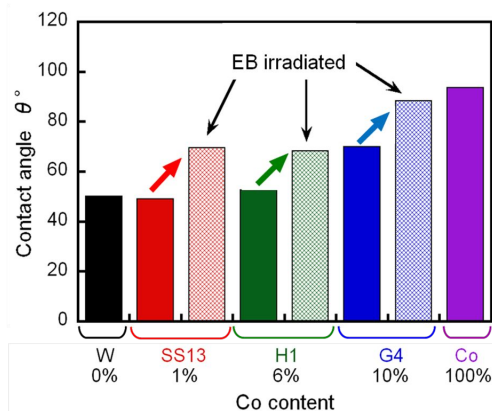


図12 異なる超硬合金種における大面积電子ビーム照射前後の接触角変化

間保持して樹脂を硬化成形する。その後、治具金型ごと成形樹脂を引張り、樹脂と放電加工面との最大剥離荷重を離型力として測定する。本離型性試験において、試料と樹脂の接着面は14mmの円形、圧縮加重は1.13N、引張り速度は10mm/分、硬化時間は10分間、成形温度は448K(175℃)とした。

図14に離型力を測定した結果を示す。大面积電子ビーム照射により成形樹脂の離型力が低下することがわかる。表面の平滑化や撥水性の向上が影響していると考えられる。すなわち、大面积電子ビーム照射により、超硬合金表面の離型性を向上できることが明らかとなった。

以上の結果から、大面积電子ビーム照射に

よって硬質焼結金型材表面の高効率な表面仕上げとともに、撥水性や離型性を向上させることが明らかとなった。

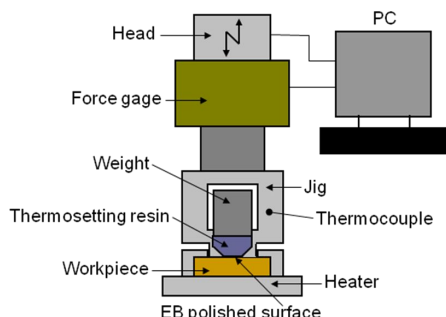


図 13 成形樹脂との離型力測定装置

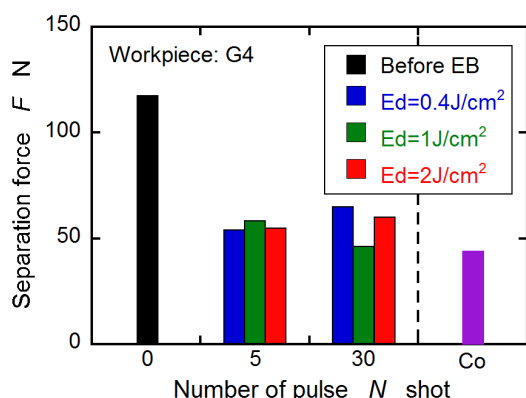


図 14 大面積電子ビーム照射面の成形樹脂との離型力変化

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 6 件)

- (1) Akira Okada, Yasuhiro Okamoto, Yoshiyuki Uno, and Kensuke Uemura, Improvement of Surface Characteristics for Long Life of Metal Molds by Large-area EB irradiation, Journal of Materials Processing Tech., Vol.213, 2014, pp. 1740-1748.
- (2) Shuhei Misumi, Akira Okada, Yasuhiro Okamoto, Motohiro Inoue, Fundamental Study on Sputter Deposition of Ceramic Film by Large-Area Electron Beam Irradiation, Procedia CIRP, 査読有, No. 6, 2013, pp. 486-491.
- (3) 萩原義人, 佐野正明, 岡田 晃, 電子ビーム照射した金型鋼の諸特性について, 電気加工学会誌, 査読有, Vol.47, 2013, pp.88-96.

〔学会発表〕(計 8 件)

- (1) 幸山功輝, 大面積パルス電子ビーム照射による凸部形状の変化, 2014 年度精密工学会春季大会学術講演会, 2014.3.18, 東京都文京区
- (2) 岡田 晃, 大面積電子ビーム照射法による新しい表面仕上げ技術, 2013年度精密工学会北陸信越支部特別講演会, 2013.12.16, 石川県金沢市
- (3) 三角周平, 大面積パルス電子ビームを用いた金属薄膜コーティングの可能性, 電気加工学会全国大会2013, 2013.12.5, 愛知県名古屋市
- (4) 藤田智弘, Al-Si合金の大面積電子ビーム照射におけるクレータ発生メカニズムの考察, 日本機械学会第9回生産加工・工作機械部門講演会, 2012.10.27, 秋田県由利本荘市
- (5) 佐野正明, 電子ビーム照射面に窒化処理を適用した金型鋼の熱疲労特性について, 電気加工学会第205回電気加工研究会, 2012.6.13, 東京都新宿区

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

岡田 晃 (OKADA AKIRA)

岡山大学・大学院自然科学研究科・教授

研究者番号: 60263612

(2)研究分担者

岡本 康寛 (OKAMOTO YASUHIRO)

岡山大学・大学院自然科学研究科・准教授

研究者番号: 40304331

(3)連携研究者

該当なし