

令和元年6月7日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06763

研究課題名(和文) 結合相制御による高温高強度TiCN系サーメットの創製と摩擦攪拌接合ツールへの応用

研究課題名(英文) High strength TiCN cermets prepared by binder phase control at high temperature and its application as Friction stir welding tool

研究代表者

細川 裕之 (Hosokawa, Hiroyuki)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・研究チーム長

研究者番号：80357946

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：強度、耐高温酸化性に優れるTiCN-金属間化合物サーメットの創製に成功した。開発した材料を摩擦攪拌接合ツールとし鉄鋼材料の摩擦攪拌接合を実施した結果、代表的な工具材料であるWC-Coよりも形状変化がないことが確認された。以上のことから、開発したTiCN-金属間化合物サーメットは、鉄鋼系材料の摩擦攪拌接合用ツール材として有望であることがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

鉄鋼材料の摩擦攪拌接合において、従来ツールは熱亀裂、塑性変形、欠損、摩耗、高温酸化などの損傷が生じやすい。その結果、ツール寿命が短くなりコスト高になることから、鉄鋼材料への摩擦攪拌接合技術の実用化への障壁となっている。本材料開発は、ツールの長寿命によるコスト低減を実現できる可能性を示唆している。また、従来材より高速接合可能な中高炭素鋼用摩擦攪拌ツール材料の開発であることは、接合時間の短縮・コスト低減となり、競争力の向上に役立つ重大な意義がある。

研究成果の概要(英文)：The TiCN-intermetallic compound cermets with high strength and high oxidation resistance at high temperature were developed successfully. The friction stir welding to steel materials was carried out using the developed materials as a friction stir welding tool. It was confirmed that these materials were less change in tool shapes compared to the WC-Co tool. This result shows that the developed TiCN-intermetallic compound cermet is promising as a tool material for friction stir welding of steel materials.

研究分野：塑性加工、粉末冶金

キーワード：摩擦攪拌接合 ツール材料 硬質材料 サーメット 強度 酸化 摩耗

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

鉄鋼材料の摩擦攪拌接合はアルミニウム合金のそれと比較して 2 倍以上の高温高負荷であり、熱亀裂、塑性変形、欠損、摩耗、高温酸化などの損傷がツールに発生する。その結果、ツール寿命が短くなりコスト高になることから、鉄鋼材料への摩擦攪拌接合技術の実用化への障壁となっている。申請者は低炭素鋼への摩擦攪拌において Ti(C,N)系サーメットツールは超合金ツールよりも耐久性に優れ、高速接合が可能である知見を得たが、一方で高強度な中・高炭素鋼では、接合後にツールの塑性変形が確認された。

2. 研究の目的

Ti(C,N)系サーメットの高温強度の向上により、高速接合が可能で、かつ長寿命な中高炭素鋼用摩擦攪拌ツール材料を創製することを目的とする。

3. 研究の方法

強度の温度逆依存性(高温で強度が上昇する現象)を有する金属間化合物を結合相にすることで高温強度を向上させる。また、開発した材料をツールとし、鉄鋼材料への摩擦攪拌接合を実施し、ツールの損傷状況を把握する。

4. 研究成果

(1)Ni₃Al 結合相サーメット

まず、プロセス中の結合相組成変動による金属間化合物生成の阻害されることを懸念して、硬質材料の結合相の TEM 観察を行った。図 1 に明視野像、および結合相の電子線回折図形を示す。結合相の電子線回折に規則格子反射が認められ、結合相は Ni₃Al 構造を有することがわかった。

次に、WC 量を変化させた TiCN- xWC- 25(Ni,Fe)₃Al (x= 0, 30, 60: それぞれ 0WC, 30WC, 60WC と称す)を作製し、それらの特性評価と組織・組成分析を行い、WC 添加が及ぼす特性への影響を検討した。図 2 に TiCN- xWC- 25(Ni,Fe)₃Al の抗折力、硬度と焼結時間の関係を示す。WC 量の増加とともに機械的特性は増加にあるが、焼結時間が機械的特性に及ぼす影響に相違が認められた。0WC では焼結時間が長くなるほど機械的性質が低下した。30WC では焼結時間とともに機械的性質は向上した。60WC では焼結時間とともに機械的性質が若干低下した。0WC では、密度も焼結時間とともに減少した。一般的に密度は焼結時間の増加とともに増加する傾向にあるが、0WC は逆の傾向を示す。これは TiCN と(Ni,Fe)₃Al の濡れ性が悪いことから、焼結時間が長くなることで Ti(C,N)と(Ni,Fe)₃Al の分離が進み、より多くの欠陥が形成されて密度が低下し、結果として機械的性質が低下したと思われる。焼結性を改善する WC が添加された 30WC では焼結時間が長くなることで欠陥が少なくなり、相対密度、機械的性質ともに向上したと推察される。60WC では WC が主相となることから、組織形成過程が WC 中への Ti の固溶となることで WC 相と(Ni,Fe)₃Al の界面強度が低下し、機械的性質が悪化したと考えられる。

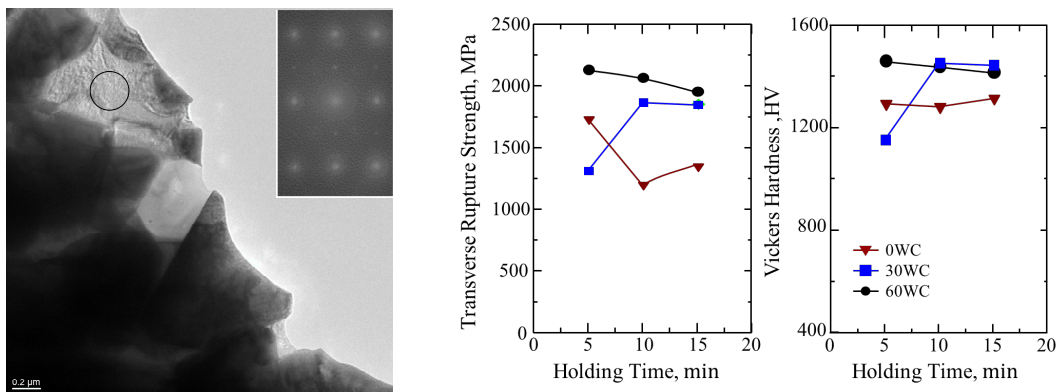


図 1 明視野像と電子回折図形 図 2 TiCN- xWC- 25(Ni,Fe)₃Al の抗折力、硬度と焼結時間

図 3 に 0WC ~ 60WC と超合金(WC-Co)の 800 °C での耐酸化試験における累計時間と単位面積当たりの質量増加率の関係と各サンプルの外観写真、および X 線回折図形を示す。WC 添加量が多いほど、単位面積当たりの質量増加率が増加し、超合金の単位面積当たりの質量増加率が最も高くなる。体積膨張が起きている材料ほど、質量増加が生じている。これは WC 添加量が多いほど、サンプル表面に脆い酸化層が形成され、体積膨張とともに表面から剥離し、むき出しになった新しい表面が再び脆い酸化膜を形成するからだと考えられる。X 線回折図形から 0WC では、TiO₂、Fe₂O₃、および Al₂NiO₄、30WC においては TiO₂ と NiWO₄、60WC では NiWO₄ と WO₂ が検出された。

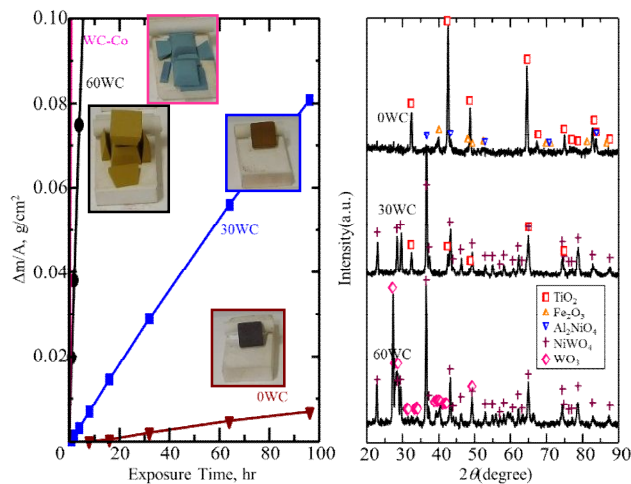


図3 0WC～60WCと超合金(WC-Co)の800℃での耐酸化試験における累計時間と単位面積当たりの質量増加率の関係と各サンプルの外観写真、およびX線開設図形

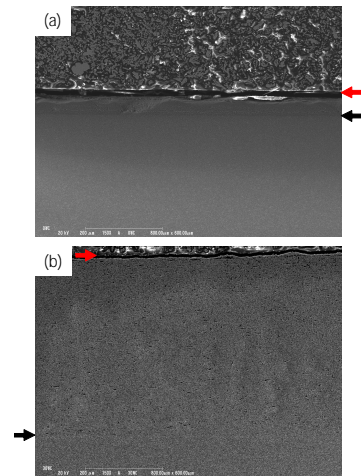


図4 (a)0WCと(b)30WCの800℃での耐酸化試験後のサンプル断面SEM像。赤矢印は樹脂と表面の界面、黒矢印は酸化層と母相の界面である。

図4に0WCと30WCの800℃耐酸化試験後のサンプル断面SEM像を示す。酸化層は明らかに、30WCの方が厚いことがわかり、単位面積当たりの質量増加率の関係と傾向は一致する。

(2) FeAl 結合相サーメット

原料粉末には、硬質相として平均粒径 1.4 μm の TiC_{0.7}N_{0.3} 粉末と、結合相として粒径 300 μm 以下のフェロアルミニウム粉末を用い、TiC_{0.7}N_{0.3}-25vol.%FeAl₂ となるように秤量したのち、湿式混合を行った。湿式混合は、内容積 490ml のステンレス製ポットに、混合原料粉末 60g、超合金製ボール 1kg、有機溶媒としてアセトン 100 cc を投入し、転動型ボールミルにて混合粉碎を行った。混合時間を変えることで、様々な酸素含有量を持つ混合粉末を準備した。湿式混合後、取り出したスラリーをエバポレータにより乾燥させた後、グラファイト型に充填して、パルス通電焼結装置により焼結を行った。焼結条件は、真空雰囲気、加圧力 40MPa、20K/min にて昇温し、焼結温度にて 10 分間保持した。得られた焼結体について、酸素・窒素分析、密度測定、機械的特性評価(ピッカー硬度試験、抗折試験)を行った。また FE-SEM ならびに EDX による組織観察、XRD による同定も合わせて行った。

図5に、TiC_{0.7}N_{0.3}-25vol.%FeAl₂ 焼結体の酸素含有量と抗折力ならびに硬度の関係を示す。図中の破線は、結合相組成が Fe-40at.%Al となる、酸素含有量を示している。図より、抗折力に関しては、Fe-40at.%Al となる酸素含有量近辺で高い抗折力を示した。一方、硬度に関しては、酸素含有量が 5.9wt.% 前後にて、高い値を示した。

次に、パルス通電焼結装置により焼結を行った材料を摩擦攪拌接合用ツールとして採用した。ツールは形彫り型放電加工機にて直径 6mm、長さ 15mm、プローブ径 1mm、プローブ高さ 0.8mm の形状に加工し、摩擦攪拌接合実験を行った。ワークには S45C を使用した。摩擦攪拌接合後ツールの形状測定・観察、ならびにワークの継手強度評価を行い、適用の可能性を検討した。TiCN-FeAl ツールに供した焼結体の硬度、抗折力はそれぞれ 1180Hv、1900MPa であり、比較ツールは、硬度 1700HV、抗折力 2450MPa 以上の超合金を同じ形状に成形加工したものを用いた。

FSW ツールでは、ショルダー部付近において、最も高

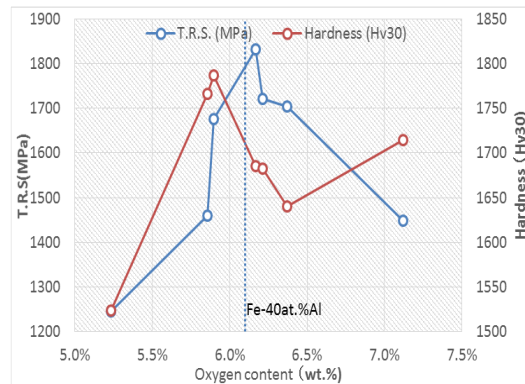


図5 酸素含有量と抗折力・硬度

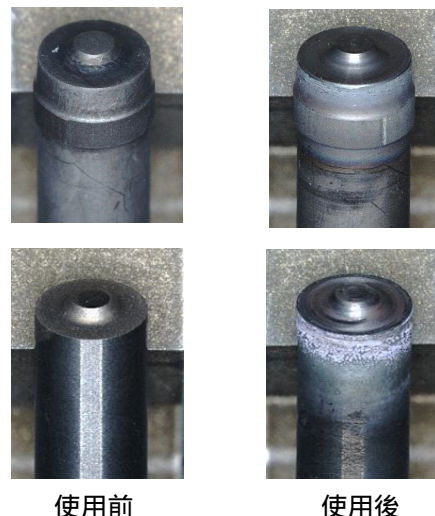


図6 ツール概観

(上段 TiCN-FeAl 下段 WC-Co)

温となるため、比較ツールではショルダー部直下の大気に暴露されている部分において酸化が発生した。また、3次元プロフィールを計測したところ、直径が 160 ミクロン増大しており、ショルダー部において若干変形したことがわかった。他方、TiCN-FeAl ツールでは加工後も目立った変化は無く、また付着等もほとんど確認されなかった。3次元プロファイル測定においても、使用前後において、有意な差は無く、ツールに損傷が無いことが確認された。以上の結果から TiCN-FeAl ツールは、鉄鋼系材料の摩擦攪拌接合用ツール材として有望であることがわかった。

s5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計2件)

K. Katou, K. Shimojima, H. Hosokawa, MATERIALS TRANSACTIONS, vol.60, 2019, 471-475.

DOI:10.2497/jjspm.64.615

加藤清隆、下島康嗣、細川裕之、真空焼結による WC-Ni₃Al 超硬合金の作製、粉体及び粉末冶金、査読有、64 巻、2017、615-620

DOI: 10.2497/jjspm.64.615

[学会発表] (計5件)

下島 康嗣、加藤 清隆、細川 裕之、TiCN-FeAl₂ の機械的特性と酸素含有量の関係、粉体粉末冶金協会平成 28 年度秋季大会

細川 裕之、下島 康嗣、加藤 清隆、WC-25(Ni,Fe)₃AlB の組織評価、粉体粉末冶金協会平成 28 年度秋季大会

加藤 清隆、下島 康嗣、細川 裕之、真空焼結による WC-Ni₃Al 超硬合金の作製、粉体粉末冶金協会平成 28 年度秋季大会

H. HOSOKAWA, K. KATOU, K. SHIMOJIMA, Microstructures and Mechanical Properties of TiCN-xWC-(Ni,Fe)₃Al cermets, JSPM International Conference on Powder and Powder Metallurgy (JSPMIC2017)

下島 康嗣、古嶋 亮一、加藤 清隆、細川 裕之、TiCN-FeAl ツールを用いた鉄系材料の摩擦攪拌接合とその適用性の評価、粉体粉末冶金協会平成 30 年度秋季大会

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名: 下島康嗣

ローマ字氏名: Koji Shimojima

所属研究機関名: 国立研究開発法人産業技術総合研究所

部局名: 磁性粉末冶金研究センター

職名: 主任研究員

研究者番号 (8 桁): 50262887

(2)研究協力者

研究協力者氏名: 加藤清隆

ローマ字氏名: Kiyotaka Katou