

報告番号	甲 第 14051 号
------	-------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 超硬合金 (WC-Co) のレーザ積層造形に関する研究
(Study on laser-powder-bed-fusion for cemented carbide material)

氏 名 伊部 博之

論 文 内 容 の 要 旨

本研究では、「超硬合金」と呼称されるタングステンカーバイド (WC) からなる硬質材料とコバルト (Co) からなる金属バインダーマトリックスの複合材料である WC-Co を用いたレーザ積層造形技術に関する取り組みを実施した。本研究にて取り組んだ超硬合金のレーザ粉末床溶融結合法 (LPBF 法) による積層造形に関しては様々な課題があるが、特に、従来の粉末冶金法では見られない特徴的な微視組織を有することである。従来の超硬合金と比較して、LPBF 法で作製した超硬合金の積層造形体は、多くの気孔とクラックが確認され、粗大化した WC 粒子を含む不均質な微視組織となっている。よって、硬度等の機械的特性は従来法と比べて著しく劣ることから工業的な適用はされていない。適用に向けては、従来法とは根本的に異なる積層造形体の特徴とその形成過程を理解することが重要であり、LPBF 法に最適な超硬合金粉末の粒度分布や化学組成の検討および、レーザ積層造形のプロセス制御が課題となる。本研究の目標と定めている深絞りプレス金型への適用には、低欠陥で均質な微細構造を実現し、十分な機械的特性を有する超硬合金の積層造形体を実現する必要がある。従来の研究例からは、積層造形体内部に顕著な亀裂や不均質な微視組織、脆性相が存在することと、その対応策については多数報告されているが、レーザ照射時のメルトプール形成過程やメカニズムの解明は進んでおらず、未だ現行材と同等の機械的特性は達成されていない。超硬積層造形体の産業適用に向けては、特異的な微視組織の形成過程を明らかにし、材料科学や熱力学の観点から積層造形体に存在する欠陥や脆性相を低減することで微視組織の均質化が必要であることを述べた。本論文では、粉末材料の組成、および熱処理条件や LPBF 法のプロセスパラメータの好適な条件を示すだけでなく、機械

的特性をさらに向上するための指針を提案した。

本論文は全7章で構成され、それぞれの章の概要を以下に示す。

第1章では、超硬合金の特性と用途、レーザ積層造形の現状と課題について概説し、超硬合金のレーザ積層造形に関する課題について述べた。超硬合金の微視組織は WC 粒子サイズや粒度分布、形状に影響を受け、焼結工程に大きく影響を受けることが知られており、従来の粉末冶金法では、焼結工程にて必要な特性を発現する微細構造と結晶相を制御している。超硬合金の微視組織構造の特徴と特性は、WC と Co の体積分率、Co 層間の平均自由行程距離、WC の平均粒径を介して理解することができる。これらによって、機械的特性が大きく特性が変化するため、粉末冶金法における超硬合金の研究結果を参考にした。金型の製造における積層造形に関しては、既に産業適用が進んでおり、この分野での可能性と技術開発による発展促進は、本研究を実施するにあたり大きな動機となっている。現在はレーザ積層造形による金型作製が主流となっているが、材料はマルエージング鋼などの LPBF 法に適した材料に焦点が当てられているのが現状である。一方で、LPBF 法にて作製された超硬合金は気孔やクラックの欠陥を多く有しており、不均質な微視組織であるため、従来法の機械的特性を実現できていないため 実用的な工業化は至っていない。そこで超硬合金の LPBF 法による積層造形は低欠陥でありかつ均質な微視組織を両立する必要があることを述べ、目的を超硬合金のレーザ積層造形における金型適用が適う技術の確立とした。

第2章では、WC-25mass%Co 粉末を用いたレーザ照射条件と造形性、及び相対密度の関係を調査し、積層造形体の断面組織観察と化学組成および結晶構造の関係性を明らかにした。レーザ照射条件と造形物の相対密度はレーザ体積エネルギー密度 (VED) との関係性が強く、65~200 J/mm³ の範囲で良好な造形性を示す結果を得た。超硬合金の積層造形体には W₂C, W₃Co₃C の脆性相と気孔が多く含まれる領域 (WC 分解領域) と、WC 粒子と Co 相を主とする領域 (WC-Co 領域) が確認された。積層造形体の微視組織について C-Co-W 系計算状態図によって結晶学的に検討した結果、WC 分解領域はレーザが粉末に照射される局所領域の WC が熱分解されることで形成される。レーザが直接照射される WC 分解領域からの熱移動によって、粉末の Co が熔融することで焼結が進むことで WC-Co 領域が形成されることが明らかとなった。

第3章では、LPBF 法で作製した WC-25mass%Co 積層造形体の均質な WC-Co 二相組織を得るため、熱処理に着目し、熱処理温度と保持時間による積層造形体の微視組織および結晶相の変化がもたらす機械的特性への影響を調査した。As-built で確認される WC 分解領域は、950℃から結晶相の変化が始まり、1100℃で微細な WC 粒子と Co 相となった。1320℃の共晶温度以上にてクラックや気孔が減少し、1380℃の 4h 以上の保持で、クラックや気孔がほとんど消失することで緻密でかつ均質な積層造形体を得ることができた。しか

し、1100°C以降は熱処理温度の上昇に伴って WC 粒子の成長が確認された。機械的特性については、950~1100°Cの範囲において、WC 分解領域のビッカース硬度は、WC 分解領域の減少と共に減少し、ヤング率は向上した。1320°Cの共晶温度以上においては、気孔率の減少と共に硬度とヤング率は上昇することが明らかとなった。1380°Cの4h以上の保持で、積層造形体の硬度のバラツキは最小なり、従来の粉末冶金法で製造される VC-50 超硬合金と同等の機械的特性を示す結果を得ることができた。

第4章では、硬度などの機械的特性を向上させるため、Co含有量を17mass%に下げた超硬粉末を作製し、粉末の炭素量が積層造形体の組織構造、結晶構造、機械的特性に与える影響について調査を行った。炭素添加量が異なる WC-17mass%Co 粉末を用いて作製した積層造形体の微視組織は、粉末の炭素量が大きく影響を与えることが明らかとなった。WC-17mass%Co にグラファイトを0.28%以上添加した粉末で作製された積層造形体は、1380°Cで液相+WCの領域に位置し、熱処理後に WC-Co 二相の微細構造が得られた。ビッカース硬度は熱処理によって向上するが、炭素量の増加に伴い硬度は低下した。これは軟質な Co、硬質な WC と W_3Co_3C の割合に関係した結果と考えられた。

第5章では、超硬合金の積層造形体の機械的強度を向上させるため、WCの粗大化を防ぐことが可能なレーザー照射条件を検討した。特に、出発原料と同等の WC 粒子径で造形可能なレーザー照射条件を探索することに重点を置き、LPBF法におけるレーザー照射条件（レーザー出力と走査速度）と造形性（造形可否）及び気孔率、WC分解領域面積率の関係について調査した。LPBF法におけるレーザー照射条件と造形性、気孔率、WC分解領域面積率に及ぼすレーザー照射条件の影響について、気孔率はレーザー体積エネルギー密度(VED)の増加に伴って減少する傾向が見られた。一方で、WC分解領域はレーザー出力が36Wの時のみに走査速度に関係なく出現しないという結果が得られ、レーザー出力依存が強いことを示した。レーザー出力が高くなると、WC分解領域は出現し、顕著な WC 粒子径の粗大化と W_3Co_3C の形成が確認された。レーザー出力36W、走査速度100mm/s以下の条件下においてのみ、As-built やHIP後の顕著な WC 粒成長も見られず、硬度(HRA)と抗折力は従来の粉末冶金法で作製された超硬合金と同等の機械的特性を示す結果となった。

第6章では、産業界で活用できる金型ほか高機能部材の造形技術の構築を目指し、LPBF法によって作製した WC-17mass%Co の超硬深絞りプレス金型の機械的強度測定と、トランスファープレス機を用いた社会実装試験を実施した。実機試験において、金型が破損や異常以上摩耗することなく成型加工を実施できた。加工された製品の品質も従来の超硬金型と同等であった。機械的強度は従来法で作製した VM-30 には及ばない結果となったため、今後は超硬積層造形体のさらなる気孔率の低減と WC 粒子成長の抑制が必要となる。WC 粒子成長はレーザー出力を下げることによって抑制されるが、As-built の気孔率が高いため、熱

処理時の収縮率が高いことが課題であることが明確化された。これまで超硬合金の LPBF 法による積層造形は、造形性や積層造形体の欠陥等によって実用化は困難な技術であった。しかし、レーザ積層造形向けの超硬合金粉末として最適な組成、粉末特性に調整をし、造形条件や造形後の熱処理方法を見出すことで、実用可能な積層造形による超硬金型を作製することができたことは、世界でも報告例が非常に少ない画期的な成果であると考えている。これにより、超硬合金の金型内部に機能的な空間を構築することが可能となるため、内部冷却管の設置による金型の効率的冷却や、インラインでの金型の圧力・温度計測による生産効率や製品精度の向上が期待できる。また、超硬合金が多く適用されているドリルやエンドミルなどの工具や耐摩耗性が求められる治具においても、この技術の展開が期待される。

第7章では、本研究を総括した上で、超硬合金粉末を用いたレーザ積層造形に関する研究成果をまとめ、今後の展開を述べた。超硬合金の **Additive Manufacturing** に関する研究報告は年々増加している。しかし、難加工材である超硬合金への適用が期待されている一方で、実用化に向けた検討課題は多いことも示した。従来の金属材料に比べて研究期間が短いこともあり、今後コスト低減や大型化に向けた課題解決が必要である。また、超硬合金の積層造形体の機械的特性に強く影響する WC 粒子径制御についても、研究の余地が残っており、用途に応じた組成設計をすることや、望ましい機械的特性を実現する製造技術の双方が必要であることを示唆した。本研究で取り扱った超硬合金のレーザ積層造形の成果を活用することで、従来製法と同等の機械的特性の実現と積層造形のメリットである複雑形状の作製の両立ができる可能性があることを提案した。