



Ni箔をインサート材としたWC-Co系超硬合金と鉄鋼の拡散接合

メタデータ	言語: jpn 出版者: 室蘭工業大学 公開日: 2014-03-04 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 桃野, 正, 出川, 恒之, 片山, 博, 柴田, 功, 湊, 嘉洋, 金山, 達也, 山口, 和浩, 酒井, 昌宏, 牧野, 功, 鴨田, 秀一, 宮腰, 康樹 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10258/787

Ni 箔をインサート材とした WC - Co 系超硬合金と鉄鋼の拡散接合

桃野 正・出川恒之・片山 博・柴田 功・湊嘉 洋・金山達也・
山口和浩・酒井昌宏・牧野 功・鴨田秀一・宮腰康樹

Diffusion Bonding of WC - Co Hard Metal to Steel Using Nickel Foil as an Insert-metal

Tadashi MOMONO, Nobuyuki DEGAWA^{*1}, Hiroshi G. KATAYAMA,
Isao SHIBATA^{*2}, Yoshihiro MINATO^{*2}, Tatsuya KANAYAMA^{*2},
Kazuhiro YAMAGUCHI^{*2}, Masahiro SAKAI^{*3}, Isao MAKINO^{*3},
Syuichi KAMOTA^{*3}, and Yasuki MIYAKOSHI^{*3}

Abstract

Diffusion bonding of WC - 10% Co hard metal to mild steel (S 20 C) was carried out by holding at 1000 ~ 1075°C for 30 min under the applied pressure of 0.5 ~ 1.5 kgf / mm² in vacuum using Ni foil (10 ~ 500 μm in thickness) as an insert-metal. The tensile strength of joints increased through a maximum at 100 μm thickness of Ni foil. Beyond 100 μm however, the strength of the joint was almost independent of the thickness of Ni foil. The improvement of the bonding strength was interpreted by the decrease of the thermal stresses which is due to the difference in the coefficients of thermal expansion of the hard metal and the steel during the cooling of the joints. Thermal stresses have been estimated by the theory of thermal elastic analysis based on the finite element method.

1. 緒 言

超硬合金 (Hartmetalle, hard metals, cemented carbides) とは、周期律表第 IV a, V a, VI a 族に属する 9 種類の金属 (Ti, Zr, V, Ta, W etc) の炭化物を対象とし、これらの炭化物粉末を Fe, Co, Ni などの金属をマトリックスとして焼結した合金を総称していることから、超硬合金には多くの種類がある。いずれの合金も低温硬さはもちろん、高温硬さにも優れ、高強度で諸物性値が安定していることを特徴としている。このような多種類の超硬合金の中で、WC - Co 系超硬合金は硬度、抗折力、圧縮強度、破壊靱性、耐酸化性、耐食性に優れ、熱膨張率が小さいなどの特性を有し、主に切削工具として用いられている。

^{*1} 大学院工学研究科博士前期課程 (材料物性工学専攻)

^{*2} 北海道住電精密(株)

^{*3} 北海道立工業試験場

一方、このような超硬合金と工具鋼との接合には、従来種々のろう材が用いられてきたが、液相を利用した接合であることから脆性破壊しやすく、その改善が試みられてきた。

本研究では、熱膨張差の大きい異種材料間の拡散接合に関する基本的知見を得るために、WC-Co 系超硬合金と鉄鋼材料を固相拡散接合し、最適接合条件を見出すことを主な目的とした。この場合、超硬合金と鉄鋼の両母材を接合後の、冷却時における熱膨張差に起因する残留応力の防止、および炭素の拡散によって生じる脆弱な金属間化合物（7 相： $\text{Co}_3\text{W}_3\text{C}$ ）の形成を防止¹⁾するため、インサート材として純 Ni 箔を用いた。

ところで、本系のように両母材の熱膨張係数の差異が大きな場合、熱応力の発生は避けることができない。このような熱応力の軽減法として、須賀²⁾ は1) 温度差の低減、2) 熱膨張係数のマッチング、3) 低弾性材料の介在、4) 熱応力制御の4項目を挙げている。本研究はこれら2)～4)の項目に該当するインサート材として Ni 箔を選び、箔厚さと熱応力緩和との関連を、有限要素法 (FEM) によってシミュレーションした。

2. 実験方法

接合に供した超硬合金の化学組成と機械的性質を表1に示す。同母材は10.7%Coを含むものであり、北海道住電精密(株)より提供を受けた。また純鉄と S20C 鋼の化学組成を表2に示す。

表1 WC-Co 超硬合金の機械的性質

	Co量 (wt%)	抗折力 (kgf/mm^2)	WC粒径 (μm)	比重	硬 度	
					(H_{HA})	(H_V)
WC-Co 合金	10.7	300	<7	14.5	87.0	1140

表2 鉄鋼の化学組成

	C	Si	Mn	P	S
純鉄	0.012	0.007	0.229	0.012	0.009
S20C	0.203	0.202	0.330	0.010	0.016

(wt%)

純鉄は溶接用芯材であり、S20C 鋼は市販の機械構造用鋼を用いた。

超硬合金の形状は $\phi 11.2 \times 9.3$ mm、鉄鋼の形状は $\phi 14 \times 20$ mm であり、インサート材として用いた Ni 箔の厚さは10, 30, 100, 200, 500 μm の5種類である。

組織観察用試料の作成には、超硬合金／Ni 箔／鉄鋼の順に3層に積層し、接合強さの評価用試料の作成には鉄鋼／Ni 箔／超硬合金／Ni

箔／鉄鋼の順に積層し、超硬合金を中心に5層とした。各母材の仕上げ手順は図1に示すとおり

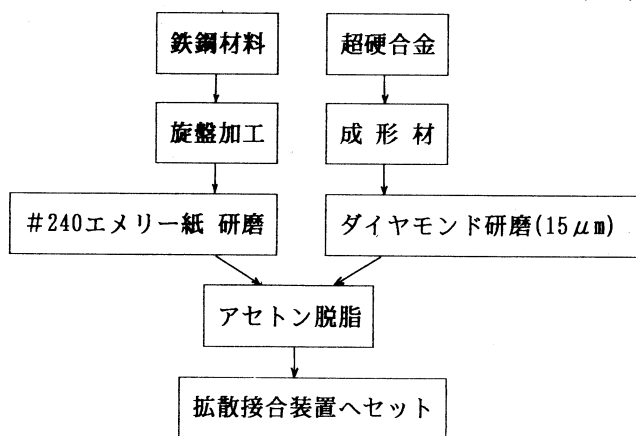


図1 拡散接合手順

であり、鉄鋼は#240エメリー紙研磨、超硬合金は粒径 $15\text{ }\mu\text{m}$ のダイヤモンド研磨とした。なお Ni 箔は受理材のままとし、アセトン脱脂処理した。

実験に用いた拡散接合装置の概略図を図2に示す。各母材を前述のように積層し端面を突合わせてセットした。接合雰囲気は 10^{-4} Torr 台の真空とし、試料への加圧は油圧ポンプにより行ない、圧力 (P_B) は小型ロードセルにより検出した。試料の加熱には赤外線反射炉を用い、所定の温度 (T_B) に到達後の経過時間を接合時間 (t_B) とした。この場合の温度—圧力—時間の関係を図3に示す。なお温度制御には CA 熱電対を接合界面鉄鋼側にスポット溶接し、サイリスターにより制御するとともに温度記録した。

接合強さは、接合界面に対し直角方向に引張試験を行なって求めた。用いた試験片の形状を図4(a), (b)に示す。(a)は平行部を $7\phi \times 20\text{ mm}$ とした場合であり、接合後超硬合金と鉄鋼の表層を研削した。(b)は接合後試験片を超硬合金母材の外形に合わせて研削し、両端をM10細目ネジ加工した。引張試験はインストロン型試験機を用い、クロスヘッド速度 1.0 mm/min にて室温で試験した。

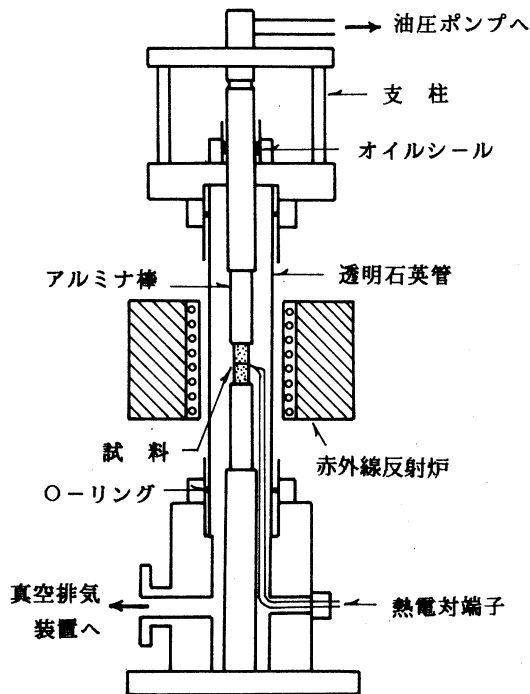


図2 拡散接合装置概略図

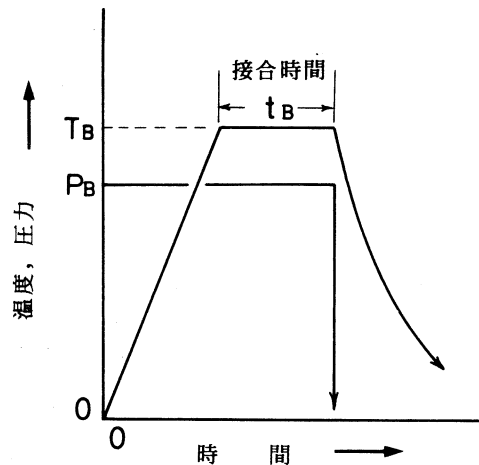


図3 接合温度、接合圧力および接合時間の関係

接合界面に形成される反応層を同定するためのX線解析は、上記の引張試験後の破面からの回折線について行なった。用いた特性X線はCu-K α 線である。

なお有限要素法による熱応力分布解析は、市販のFEM解析プログラム(マイコンショップ北九州製:有限要素法マスター)を用い、NEC製PC-9800シリーズパーソナルコンピュータにて行なった。

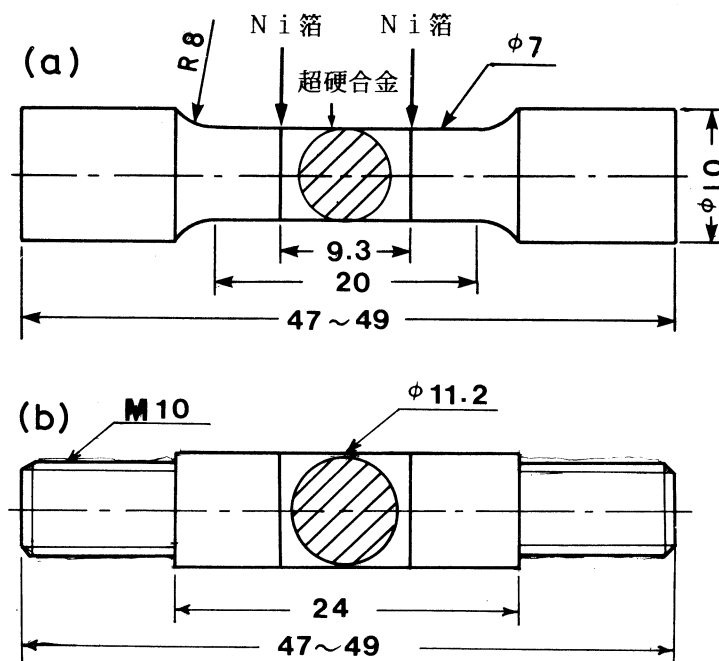


図4 引張試験片の形状

3. 実験結果と考察

3.1 接合界面組織

超硬合金と純鉄とを $T_B = 1075^\circ\text{C}$, $P_B = 1.5 \text{ kgf/mm}^2$, $t_B = 30 \text{ min}$ の接合条件で、インサート材を用いずに直接接合した結果、接合材を室温まで放冷する間に、接合界面で破断あるいは超硬合金内部にクラックの発生が認められた。このような破断はセラミックス・金属接合体においてしばしば観察され、熱膨張係数の差異に起因するものと考えられる。よって以後の接合実験には必ずインサート材として Ni 箔を用いた。

写真1に、厚さ $10 \mu\text{m}$ Ni 箔インサート材を用いて純鉄と超硬合金とを拡散接合した場合の、接合界面近傍の光学顕微鏡組織写真を示す。接合条件は $T_B = 1000^\circ\text{C}$, $P_B = 0.5 \text{ kgf/mm}^2$, $t_B = 30 \text{ min}$ である。(a)は接合のままであり、(b)は 1000°C , 50 hr 後熱処理した結果である。写真より明らかなように、純鉄/Ni 箔界面には化合物層の形成は認められず、相互拡散の結果、時間の増大とともに界面の凹凸が顕著となっている。一方、Ni 箔/超硬合金界面は極めて微小な凹凸が認められ、接合性は決して悪くないことを示唆している。

同様に写真2は、厚さ $30 \mu\text{m}$ の Ni 箔をインサート材として、純鉄と超硬合金とを拡散接合した場合の、接合界面近傍の光学顕微鏡組織写真を示す。接合条件は $T_B = 1000^\circ\text{C}$, $P_B = 0.5 \text{ kgf}$

$/\text{mm}^2$, $t_B = 30 \text{ min}$ である。(a)は接合のままであり、(b)は 1000°C , 50 hr 後熱処理した結果である。写真1に比べて Ni 箔/超硬合金界面に未接合部と思われる黒色部が観察される。このような未接合部の消滅には接合温度の上昇, および接合圧力の増大が効果的と考えられ, 以後の接合条件を $T_B = 1075^\circ\text{C}$, $P_B = 1.5 \text{ kgf}/\text{mm}^2$, $t_B = 30 \text{ min}$ とした。

写真3は厚さ $500 \mu\text{m}$ の Ni 箔をインサート材として, 純鉄と超硬合金とを拡散接合した場合の, 接合界面近傍の光学顕微鏡組織写真を示す。接合条件は $T_B = 1075^\circ\text{C}$, $P_B = 1.5 \text{ kgf}/\text{mm}^2$, $t_B = 30 \text{ min}$ である。純鉄/Ni 箔, および Ni 箔/超硬合金界面には特有の化合物層の形成は認められず, 接合性が極めて良好であることを示している。

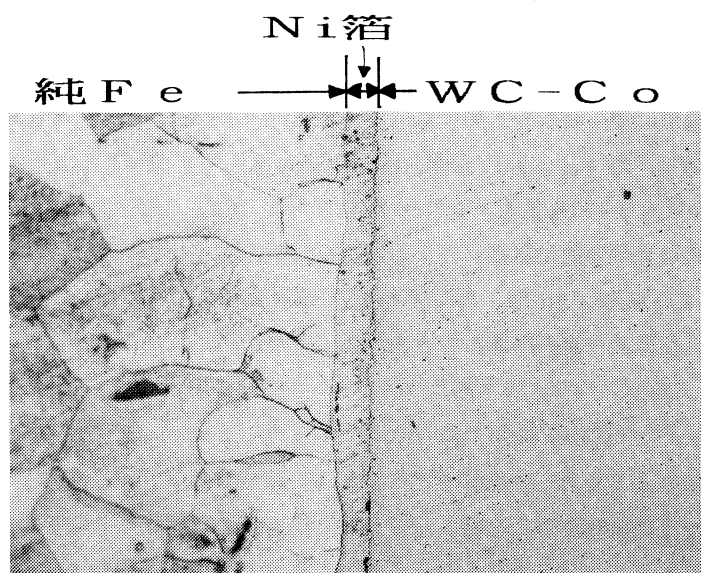
3.2 接合強さ

3.1の結果に基づき, 接合条件を $T_B = 1075^\circ\text{C}$, $P_B = 1.5 \text{ kgf}/\text{mm}^2$, $t_B = 30 \text{ min}$ で一定として接合し, その接合強度を調べた結果を図5に示す。横軸はインサート材として用いた Ni 箔厚さであり, 図中△印は試験片形状を図4(b)のように仕上げて試験した結果である。また○印は図4(a)のように平行部を切削加工して試験した結果である。いずれの曲線も Ni 箔の厚さにともない急激に接合強さが上昇し, ある Ni 箔厚さ以上ではほぼ一定となる傾向が認められる。またこの曲線の勾配は, 総じて接合強さの大きい方が急であり, インサート材厚さ依存性が大である。このような傾向は, セラミックス・金属接合体において認められ³⁾, 接合面での結合が強固になり, 金属母材が高強度になればなる程一層顕著となる。

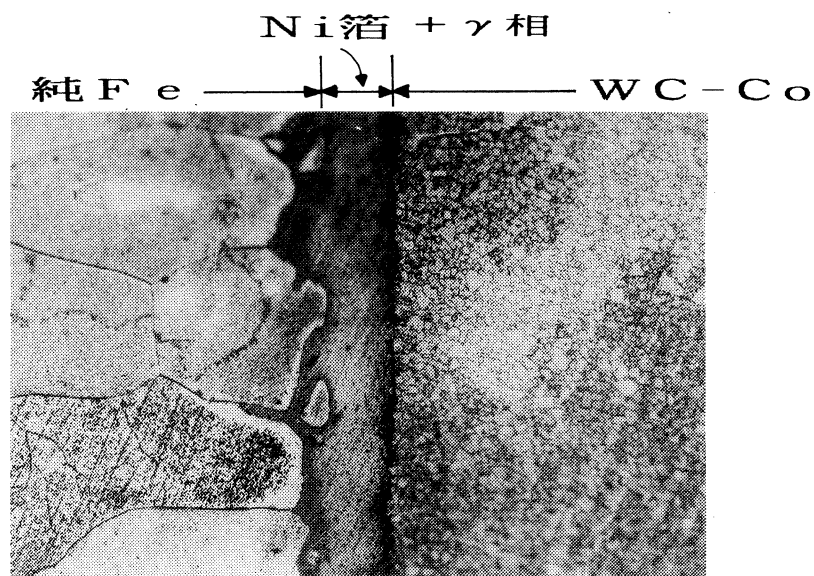
なお, 接合体の表面を切削しない場合, 一般的に接合強さが低い理由として, 超硬合金/Ni 箔接合端における未接合部の残留と, それにともなう切欠き効果が挙げられる。すなわち超硬合金と Ni 箔, あるいは超硬合金と鉄鋼との端面は, マクロ的に合わすことができて, 必ず微小なずれが生じ, 切欠部として作用するものと推察される。これに対して平行部を研削した場合は, 後述のように, 表面近傍に残留した熱応力が切削除去され, 真の接合強さが測定されたものと考えられる。

以上の観点から図5を考察すると, Ni 箔厚さ $100 \mu\text{m}$ 以上では $40\sim 42 \text{ kgf}/\text{mm}^2$ の接合強さが得られ, Ni 母材とほぼ同程度の強さである。このような不均質材の強度特性に関して, 豊田⁴⁾が指摘しているように, 一定の箔厚さ以上で強度がほぼ一定となるのは, 界面接合強度支配型から塑性拘束効果支配型へと遷移するためと考えられる。すなわち塑性拘束効果支配型に遷移するまでの小さな箔厚さでは, 熱応力の緩和が不十分であり, 一定厚さ以上では Ni 箔の強度が支配的となったものと考えられる。

なお図5中に示したように, 超硬合金と Ni 丸棒とを直接接合した結果, その接合強さはいずれも超硬合金/Ni 箔/S20C 接合体よりも低い値となった。この原因は未だ判明しないが, 破断が超硬合金/Ni 界面であったことから, より多くの追試験を行ない, 表面清浄度等の影響を検討する予定である。



(a) 接合のまま



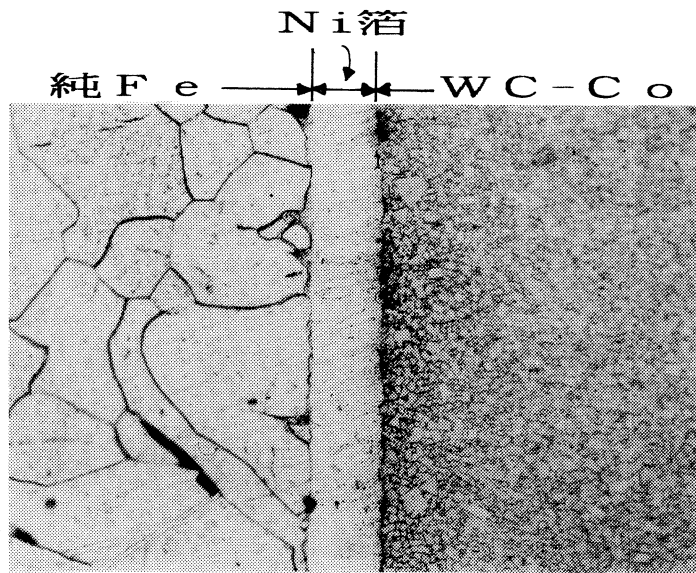
(b) 1000°C, 50hr 後熱処理

100 μm

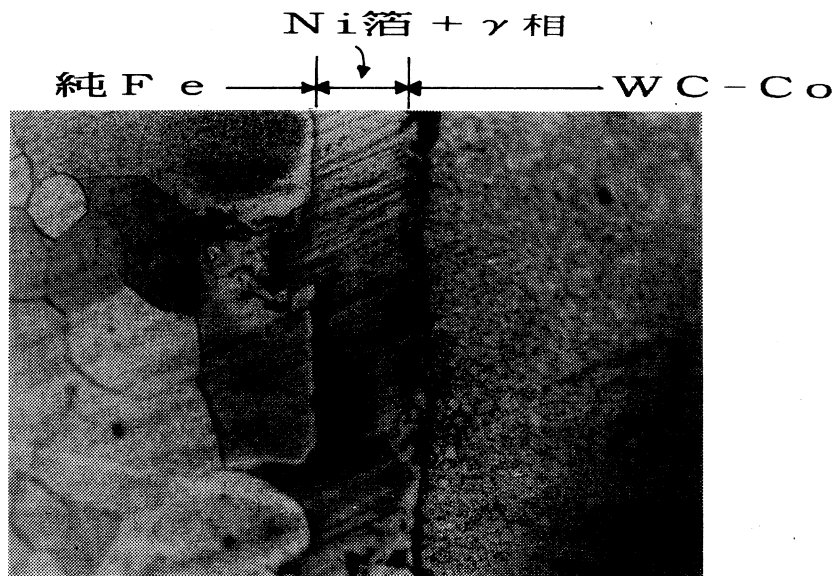
写真1 純鉄／超硬合金接合界面の顕微鏡組織。

接合条件： $T_B = 1000^\circ\text{C}$, $P_B = 0.5 \text{ kgf/mm}^2$,
 $t_B = 30 \text{ min}$, Ni 箔厚さ = 10 μm .

Ni 箔をインサート材とした WC-Co 系超硬合金と鉄鋼の拡散接合



(a) 接合のまま



(b) 1000°C, 50hr 後熱処理

100 μm

写真 2 純鉄／超硬合金接合界面の顕微鏡組織。

接合条件： $T_B = 1000^\circ\text{C}$, $P_B = 0.5 \text{ kgf/mm}^2$,
 $t_B = 30 \text{ min}$, Ni 箔厚さ = 30 μm .

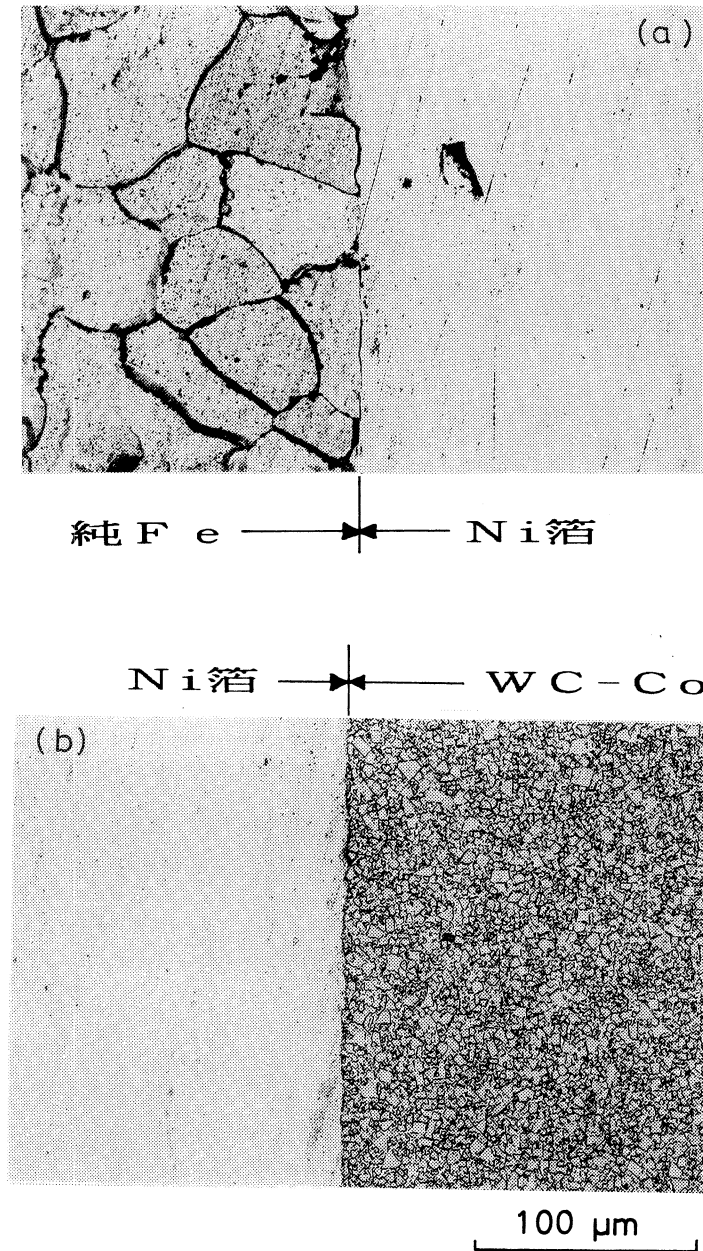


写真3 純鉄／超合金接合界面の顕微鏡組織（接合のまま）。
 接合条件： $T_B = 1075^\circ\text{C}$, $P_B = 1.5 \text{ kgf/mm}^2$,
 $t_B = 30 \text{ min}$, Ni 箔厚さ $= 500 \mu\text{m}$.

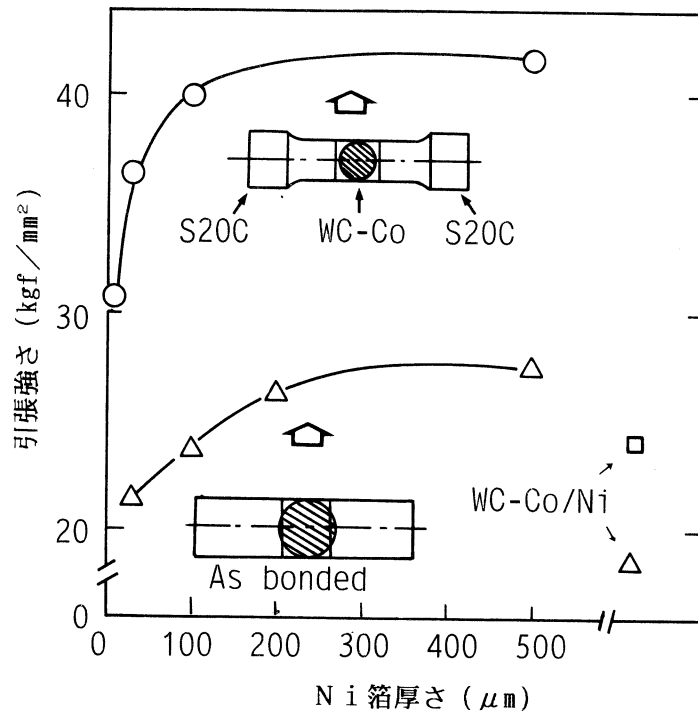


図5 S20C/超硬合金接合体の接合強さと Ni 箔厚さとの関係

3.3 破断面のX線解析

接合界面に形成される反応層を同定するために、引張試験後面母材の破断面をX線解析した。またこのような解析によって、破断位置の推察も可能となる。

図6；図7は超硬合金と純鉄とを $T_B = 1000^\circ\text{C}$ 、 $P_B = 0.5\text{kgf/mm}^2$ 、 $t_B = 30\text{min}$ の接合条件で、厚さ $30\mu\text{m}$ の Ni 箔インサート材を用いて接合した破断面のX線解析結果を示す。図6(a)および図7(a)は接合のままであり、図6(b)と図7(b)は 1000°C で 50 hr 後熱処理した結果である。両図を比較検討すると、接合のままで Ni による回折ピークが純鉄母材側に認められ、超硬合金側には認められない。このことから、本接合条件では破断は Ni 箔と超硬合金との間で生じたと推察される。

これに対して後熱処理した場合は、 η 相 ($\text{Co}_3\text{W}_3\text{C}$) が認められ、純鉄側に超硬合金の一部が同定された。すなわち η 相の形成によって超硬合金母材が脆化し、クラックが超硬母材の一部を伝播したと考えられる。

一方、超硬合金と純鉄とを $T_B = 1075^\circ\text{C}$ 、 $P_B = 1.5\text{kgf/mm}^2$ 、 $t_B = 30\text{min}$ の接合条件で、厚さ $500\mu\text{m}$ の Ni 箔インサート材を用いて接合した破断面のX線解析結果を図8に示す。図8(b)より、超硬合金側には WC 相と Co 以外の特有の相は同定されなかったが、図8(a)より明らかなように、純鉄側には Ni が同定され、破面観察結果と併せて考えると、この場合の破断は Ni 箔と超硬合金

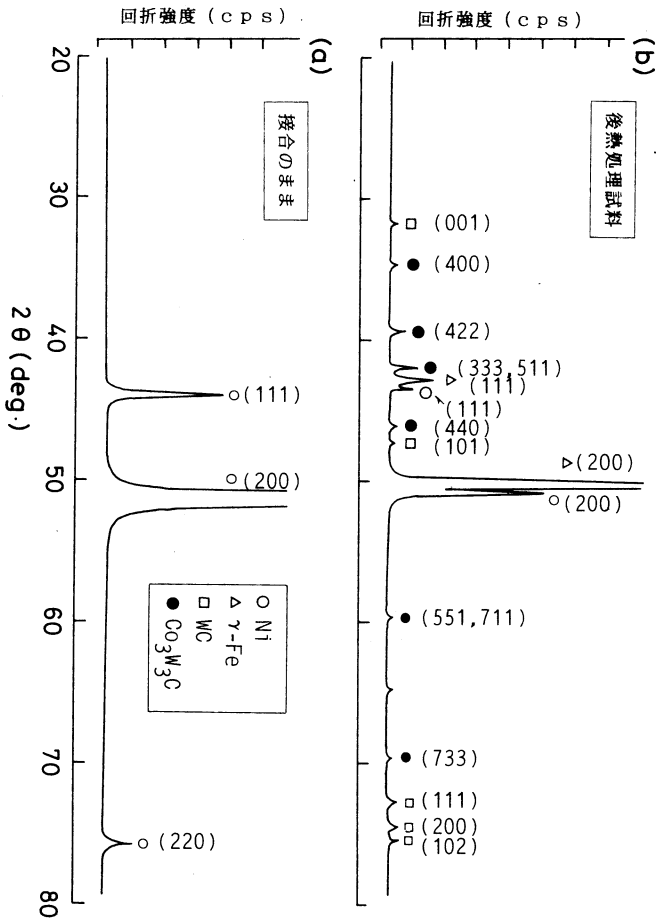


図6 純鉄／超硬合金拡散接合界面のX線解析 (Ni 箔30 μm , 純鉄側)

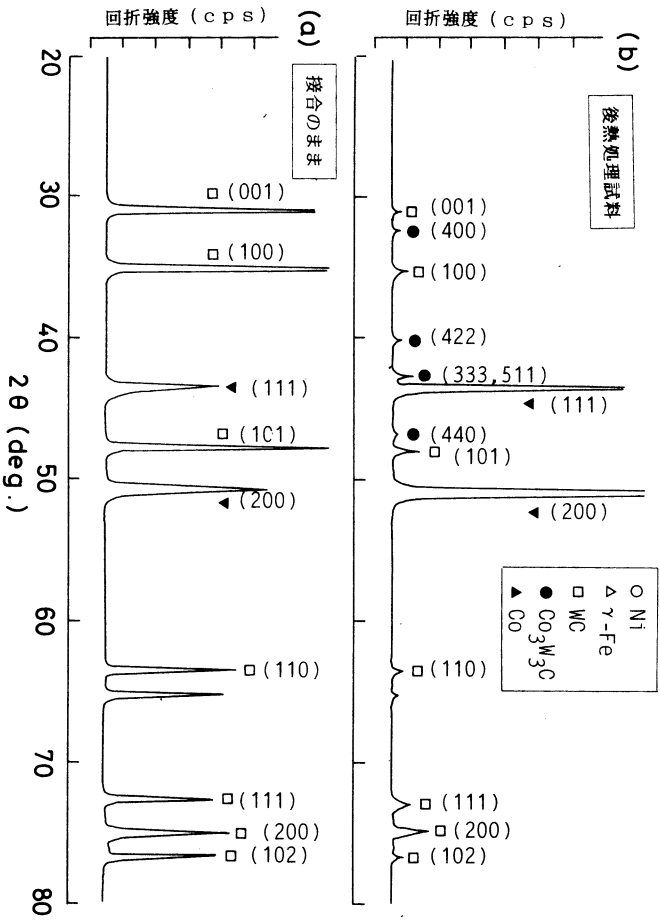


図7 純鉄／超硬合金拡散接合界面のX線解析 (Ni 箔30 μm , 超硬合金側)

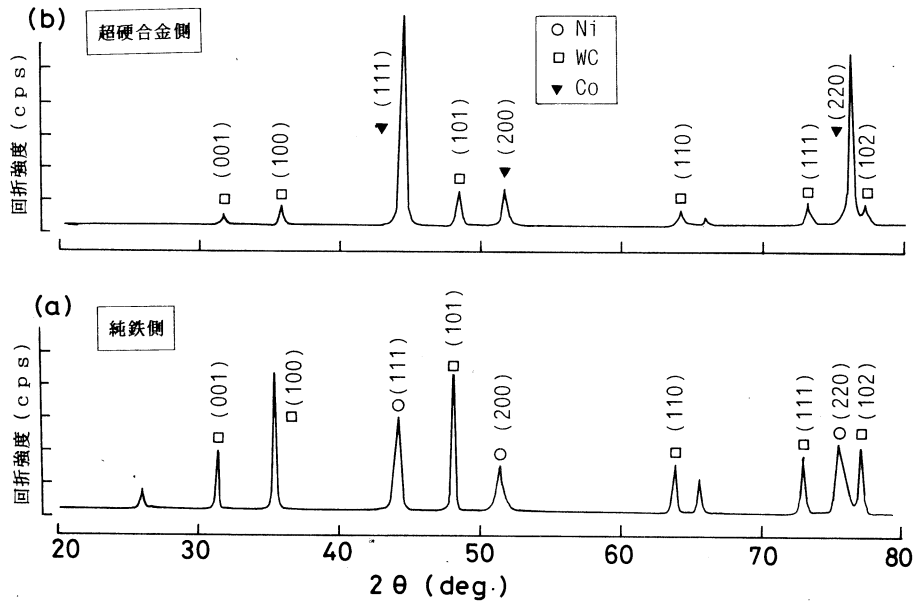


図8 純鉄／超硬合金拡散接合界面のX線解析 (Ni 箔500 μ m, 接合のまま)

との間で生じたものと考えられる。また純鉄側に WC 相が観察されることから、超硬合金母材の一部が純鉄側に接合していると推察される。すなわち超硬合金の一部をクラックが伝播したことを示唆している。

なおこの場合 Ni, Co, γ -Fe による回折角は極めて接近していることから、相互の分離および判定は困難であった。

3.4 有限要素法 (FEM) による熱応力のシミュレーション

超硬合金と鉄鋼の熱膨張の差異に起因して、接合後の冷却過程で発生する熱応力は、有限要素法を用いた弾性計算により解析した。解析に用いた超硬合金、鉄鋼の諸物性値を表3に示す。

解析モデルは超硬合金、鉄鋼の双方ともに直径11.2mm、長さは超硬合金が9.3mm、鉄鋼が10.0mmの丸棒を突き合わせた接合体とし、与える温度差は接合温度 ($T_B = 1075^\circ\text{C}$) から室温 (20°C) とした。また軸対称応力場において、要素は三節点三角形要素を用い、節点総数、要素総数、拘束条件等を付与して解析した。なおインサート Ni 箔の効果を検討するために、厚さ10 μ mと500 μ mの場合についてシミュレートした。

図9は解析の結果得られた応力変形図である。軸対称であることから、中心軸より右半分について表示した。矢印は接合界面であり上側が超硬合金、下側が純鉄を示す。超硬合金の変形に比べて、純鉄の変形が大であることが明らかである。また、Ni 箔厚さ10 μ mに比べて500 μ mの変

桃野 正・出川恒之・片山 博・柴田 功・湊嘉 洋・金山達也・山口和浩・酒井昌宏・牧野 功・鴨田秀一・宮腰康樹

形最大値が大きいのは、Ni 箔の熱膨張係数が大きいため、厚さが増大するにしたがってそれだけが重畳されたためと推察される。

表3 供試材の物性値

材 料	ヤ ン グ 率 (kgf/mm^2)	ポアソン比	熱膨張係数 ($\times 10^{-6}/^\circ\text{C}$)
WC-Co合金	5.2×10^4	0.23	5.1
純 鉄	2.1×10^4	0.30	11.7
純 Ni	2.1×10^4	0.34	12.6

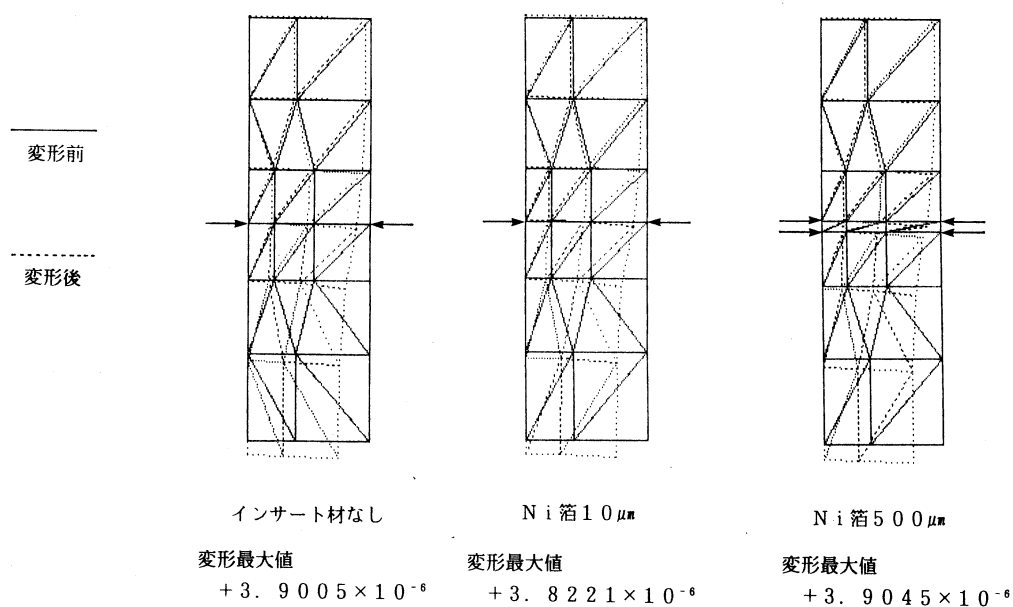
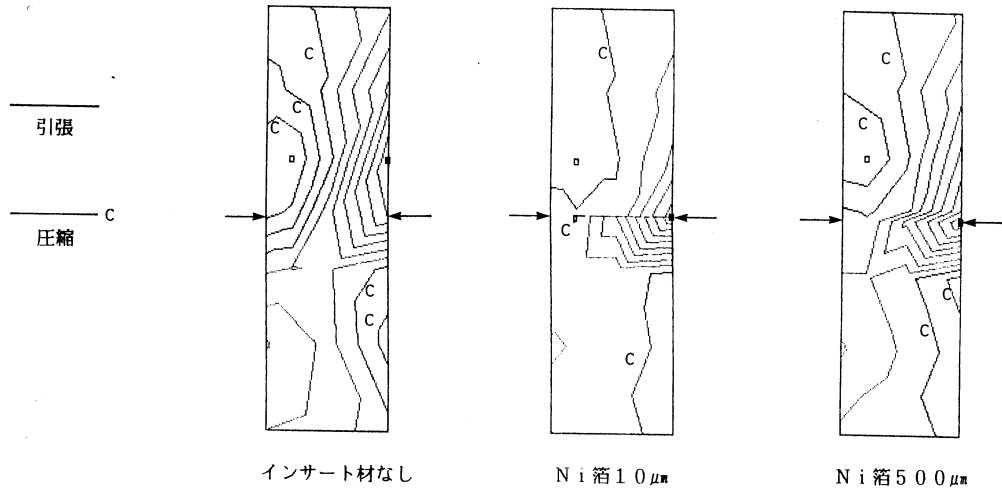


図9 応力変形図

図10は解析の結果得られた最大主応力等高線図である。インサート材を用いない場合は、最大主応力の上端値は接合界面の超硬合金側に引張応力として表わされ、下端値は超硬合金中央付近に圧縮応力として表わされている。すなわち超硬合金内に高い応力場が生じている。これに対して Ni 箔厚さ $10\mu\text{m}$ では上端値は Ni 箔境界上にシフトし、圧縮応力が超硬合金内と Ni 箔上に停留していることが分かる。すなわち、この厚さでは箔内に不均一な主応力が作用することが明

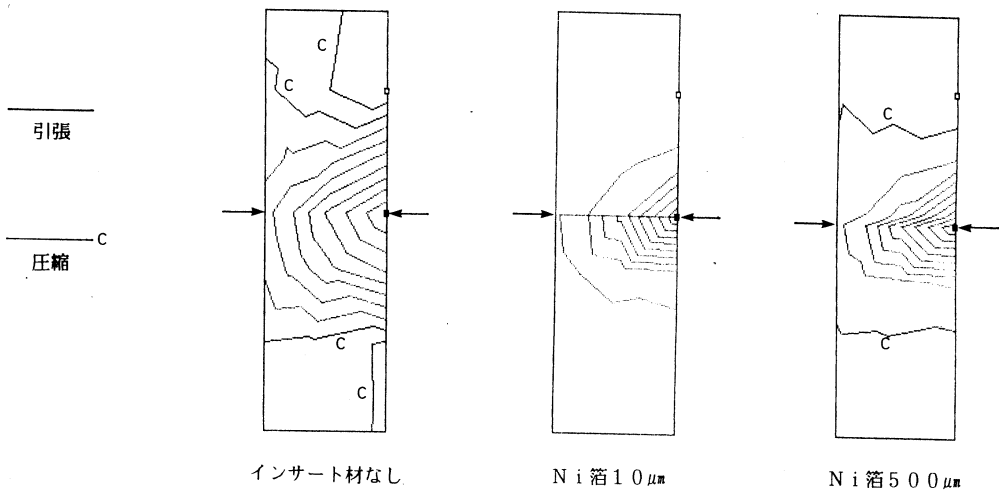
Ni 箔をインサート材とした WC-Co 系超硬合金と鉄鋼の拡散接合

らかである。さらに Ni 箔厚さを $500\mu\text{m}$ と増加させると、最大主応力の上端値は箔上にシフトす



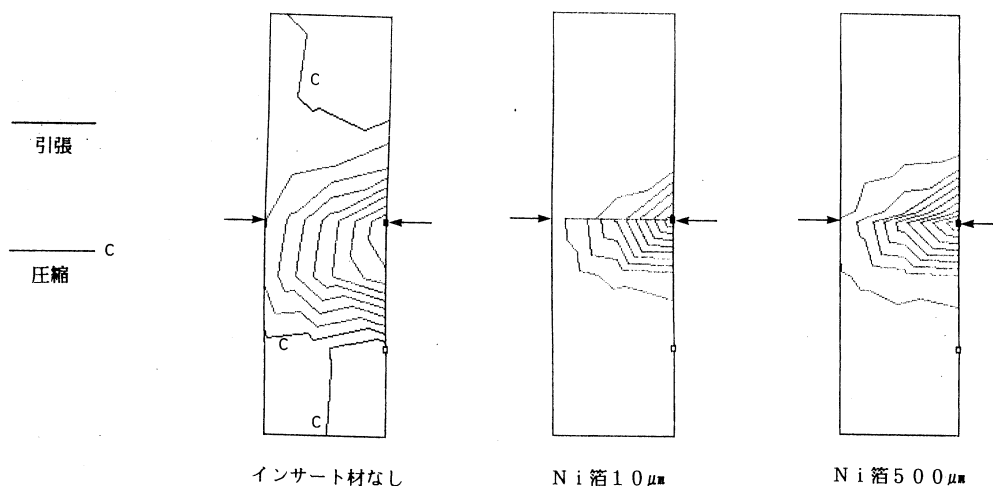
上端値 (■) kg/mm^2	$+1.6581 \times 10^{-3}$	$+7.3203 \times 10^{-3}$	$+3.3082 \times 10^{-3}$
下端値 (□) kg/mm^2	-1.0848×10^{-3}	-1.0773×10^{-3}	-1.1185×10^{-3}
増加分 kg/mm^2	$+2.7429 \times 10^{-4}$	$+8.3977 \times 10^{-4}$	$+4.4267 \times 10^{-4}$

図10 最大主応力等高線図



上端値 (■) kg/mm^2	$+1.7007 \times 10^{-3}$	$+9.1755 \times 10^{-3}$	$+5.1519 \times 10^{-3}$
下端値 (□) kg/mm^2	-6.1670×10^{-4}	-6.1787×10^{-4}	-6.6321×10^{-4}
増加分 kg/mm^2	$+2.3174 \times 10^{-4}$	$+9.7933 \times 10^{-4}$	$+5.8151 \times 10^{-4}$

図11 セン断応力等高線図



上端値 (■) kg/mm^2	$+1.5546 \times 10^{-7}$	$+1.1674 \times 10^{-6}$	$+6.5470 \times 10^{-7}$
下端値 (□) kg/mm^2	-5.2969×10^{-8}	-5.0864×10^{-8}	-4.8474×10^{-8}
増加分 kg/mm^2	$+2.0843 \times 10^{-8}$	$+1.2183 \times 10^{-7}$	$+7.0317 \times 10^{-8}$

図12 せん断歪等高線図

るが、10 μm に比べて緩衝効果が認められる。

同様にせん断応力等高線図を図11に示す。いずれの場合も、せん断応力の上端値は接合界面に位置し、この上端値より各等高線に垂線を描くと、超硬合金側にレンズ状に割れが入り剝離することが分かる。これに対して Ni 箔厚さ10 μm では、等高線の扱りは小さいものの、その間隔は小さく、勾配が急であることを示している。なお500 μm の場合には、見かけ上間隔は小さく、勾配が急であるが、本解析が弾性範囲内であるためと考えられる。なお図12に示すように、せん断歪等高線図においても、図11とほぼ同様のことが理解される。

4. 結 言

Ni 箔をインサート材として、WC-Co 系超硬合金と鉄鋼との拡散接合を試み、両者の熱膨張差に起因して発生する熱応力、接合強さに及ぼすインサート材厚さの影響について検討し、以下の結論を得た。

1. 接合強さはインサート材厚さの増加にともない向上するが、ある厚さ以上では一定となる。このことは、軟質なインサート材により超硬合金表面部に発生する熱応力を緩和するが、一定以上厚くなるとインサート材自体の強度が接合強さを支配するためと考えられる。

2. 接合界面に Ni 箔をインサート材として用いることで、接合強さを低下させる η 相 (Co_3W_3C 相) の生成を防止できる。しかし長時間高温に暴露されることによって、 η 相が析出し、接合体

の強度が劣化することが予測される。

3. Ni 箔厚さ $100\ \mu\text{m}$ 以上, $T_B = 1075^\circ\text{C}$, $P_B = 1.5\text{kgf/mm}^2$, $t_B = 30\text{min}$ の接合条件で, 40kgf/mm^2 以上の接合強さが得られることが判明した。これはインサート材 Ni 箔による超硬合金側の熱応力の緩和が, 接合強さの向上に極めて有効であることを示している。

4. 接合端面を切削除去することによって, 最大せん断応力や未接合に起因する切欠き効果が低減し, 真の接合強さに近い測定値が得られる。

5. 有限要素法を用いた弾性計算により, Ni 箔による熱応力緩和効果をシミュレートできた。

参考文献

- 1) 鈴木 寿: 超硬合金と焼結硬質材料—基礎と応用—, 丸善, (1986)
- 2) 須賀唯知: ファインセラミックス材料・部品の精密加工技術, リアライズ社, (1987)
- 3) 石田洋一: 日本金属学会会報, 29 (1990), 888
- 4) 豊田政男: 溶接学会誌, 59 (1990), 78