

サーメットおよび超硬合金の繰返し熱衝撃実験*

石原外美*¹, 五嶋孝仁*¹, 宮尾嘉寿*¹

Cyclic Thermal Shock Tests of Cermets and Cemented Carbides

Sotomi ISHIHARA, Takahito GOSHIMA and Kazuyu MIYAO

Cyclic thermal shock tests were performed on cermets and cemented carbides by heating specimens in a furnace and plunging them into a water bath. The results thus obtained are summarized as follows: (1) The bending strength for the specimens of the cemented carbides subjected to the single thermal shock was larger than those of cermets, while in the cyclic thermal shock tests, the reverse tendency was observed especially in the tests performed at a low temperature difference. (2) In the cyclic thermal shock tests of the cemented carbides, many small cracks were initiated more easily than in cermets at the interface between WC and Co. A remarkable decrease of the bending strength of the cemented carbides subjected to the cyclic thermal shock may be caused by the large cracks formed by the coalescences among these numerous small cracks.

Key Words: Sintered Materials, Material Testing, Thermal Shock, Hardness, Cermets, Cemented Carbides Bending Strength, Microcrack, Fracture Toughness

1. 緒 言

切削加工等では、高速度切削や激しい断続切削時に生じる熱衝撃により、工具に熱クラックの発生することが知られている。耐熱衝撃性に優れた工具を開発するには、このような工具材の熱衝撃挙動を明らかにする研究が必要と考えられる。前報⁽¹⁾ではサーメットおよび超硬合金の単一熱衝撃挙動の調査を行い、抗折力、硬度、破壊靱性値等の熱衝撃による変化挙動に両材の差異が認められることを報告した。これは超硬合金においては、微視組織的要因に基づいてサーメットに比較して熱衝撃による微視き裂が発生しやすいことによるものであることを指摘した。

本研究では、前報⁽¹⁾に引き続いて2種類の代表的な硬脆材料、超硬合金、サーメットを用いて、平滑材の繰返し熱衝撃実験を行い、単一熱衝撃挙動との差異並びにサーメットと超硬合金の繰返し熱衝撃抵抗の差異について種々検討した結果について報告する。

2. 試験片および実験方法

2.1 試験片 本実験に用いた試験片素材は

TiCN系サーメットおよびWC-Co系超硬合金である。サーメットの化学成分はTiCN:50, TaC:10, WC:15, Ni:8, Co:8, Mo:9(重量%)であり、超硬合金のそれは、WC:72, TiC:8, TaC:8, NbC:2, Co:10(重量%)である。試験片は以上のように混合した粉粒体を加圧成形、脱脂予備焼結、成形加工、本焼結を経て幅8mm、高さ4mm、長さ25mmの矩形の試験片形状に仕上げた。焼結後の機械的諸性質を表1に示す。

2.2 実験方法 試験片の加熱、冷却は所定の温度まで炉中加熱し、その温度で30分の保持後すばやく293Kの水中に投入、5分間冷却することにより行った。試験片の上下は図1に示すように、タイマで制御した小形モータを正転、逆転させることにより行った。熱衝撃により付与した温度差として、炉の温度と

表1 供試材の機械的性質

	Young's modulus GPa	Poisson's modulus
Cermets	428.26	0.233
Cemented carbides	527.24	0.222

* 原稿受付 平成3年4月10日。

*¹ 正員, 富山大学工学部 (〒930 富山市五福 3190)。

水の温度の差 ΔT_w と炉の温度と水の沸点との差 ΔT_{100} を求めた。

所定の熱衝撃を与えた試験片について抗折試験を行い、熱衝撃履歴後の残存強度と温度差との関係を調査した。抗折試験は、スパン 20 mm, クロスヘッドスピード 0.01 mm/min で行い、得られた破断荷重 P を用いて次式より抗折力を算出した。

$$\sigma_b = 3Pl / (2bh^2) \dots\dots\dots (1)$$

ここに b は試験片の幅, h は厚さ, l はスパン距離である。

熱衝撃前後の試験片の硬さは、マイクロビッカース硬度計を用いて、負荷荷重 49 N, 負荷時間 40 秒で、約 10 回の測定を行った。また、破壊靱性値の測定はビッカースインデンテーション法により測定した。計算式は三好らの提案する式⁽⁹⁾を用いた。その他、実験方法の詳細は前報⁽¹⁾に記したので省略する。

3. 実験結果

3-1 繰返し熱衝撃履歴材の三点曲げ試験結果

サーメットおよび超硬合金の繰返し熱衝撃履歴材の三点曲げ試験を行い、残存抗折力 σ_b と ΔT_w の関係を調べた結果を図 2 および図 3 に示す。熱衝撃繰返し数は $N=1, 10, 100$ である。一部の試験片については、 $N=390$ および 430 までの繰返し熱衝撃を与えた。なお、図の横軸には ΔT_{100} の値も示してある。

図 2 よりわかるように、サーメットでは、 $N=1$ で

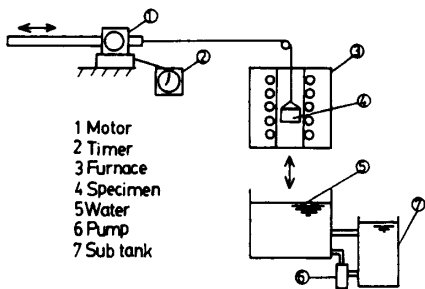


図 1 熱衝撃実験装置の模式図

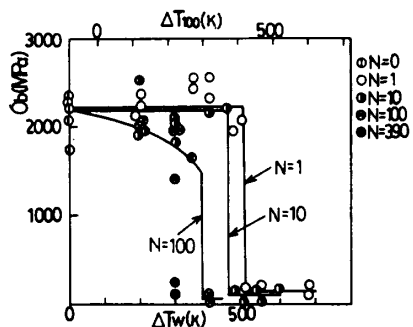


図 2 熱衝撃履歴材の σ_b - ΔT_w 線図 (サーメット)

は多少のばらつきはあるものの $\Delta T_w=495$ K まで抗折力はほぼ一定で、それ以上の温度差で抗折力は急減し最初の値の 10% 程度になる。したがって、熱衝撃抵抗の尺度として用いられている抗折力の急減する臨界温度差 ΔT_{wc} は 495 K になることがわかる。また、 $N=10$ の場合、多少の強度低下が認められ、 ΔT_{wc} は 450 K となっている。 $N=100$ では、 ΔT_{wc} は 375 K と減少し、また ΔT_{wc} 以下の低温度域においても抗折力は徐々に低下していることがわかる。

一方、図 3 の超硬合金では、 $N=1$ の実験では、 ΔT_{wc} 以下の低い温度域においても抗折力は徐々に低下しサーメットとは異なる特性を示すが、 ΔT_{wc} は 613 K とサーメットのそれよりも 24% ほど大きい。 $N=10$ の場合、 ΔT_{wc} は 460 K となり、 $N=1$ の場合に比べて、顕著な ΔT_{wc} の低下が認められる。 $N=100$ では、 ΔT_{wc} は 375 K と、 $N=1, N=10$ の場合に比較して大きく低下し、繰返し熱衝撃の影響の大きいことを

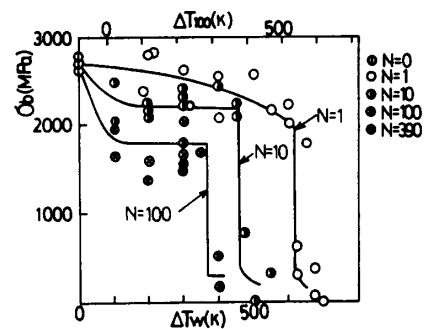


図 3 熱衝撃履歴材の σ_b - ΔT_w 線図 (超硬合金)

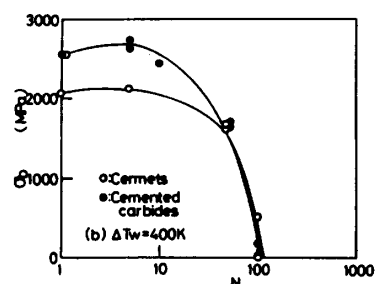
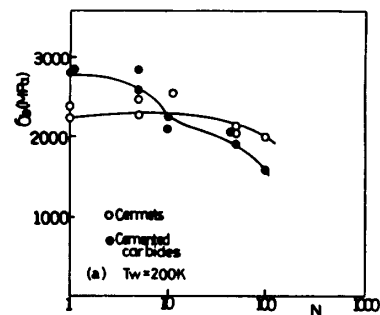


図 4 熱衝撃材の強度に及ぼす熱衝撃繰返し数の影響

表している。また、全般に、超硬合金では、サーメットに比較して ΔT_{wc} 以下の低温度域での抗折力の低下が大きいことがわかる。

次に ΔT_w = 一定として、熱衝撃履歴材の抗折力 σ_b が熱衝撃繰返し数によってどのように変化するかを調査した。図4は、 $\Delta T_w = 200$ K および 400 K 一定条件における、熱衝撃繰返し数に伴う σ_b の変化を示したものである。

図4(a)の $\Delta T_w = 200$ K において、 $N=1$ の単一熱衝撃実験では、超硬合金の σ_b はサーメットのそれに比較して21%程度大きいけれども、 $N=10$ および $N=100$ の繰返し熱衝撃実験では、逆にサーメットの σ_b が超硬合金のそれよりも大きく、単一の熱衝撃実験とは逆の特性を示すことがわかる。一方、図4(b)の $\Delta T_w = 400$ K では、熱衝撃繰返し数の増加に伴ってサーメットと超硬合金の強度の逆転は認められないものの、ほぼ両材の抗折力は等しくなる傾向が認められる。以上より、単一の熱衝撃で得られた傾向が繰返し熱衝撃実験の傾向と必ずしも一致しないことがわかる。

3.2 臨界温度差 ΔT_{wc} の熱衝撃繰返し数に伴う変化 図5は図2および図3の $\sigma_b - \Delta T_w$ 線図を用いて臨界温度差 ΔT_{wc} の熱衝撃繰返し数に伴う変化を調

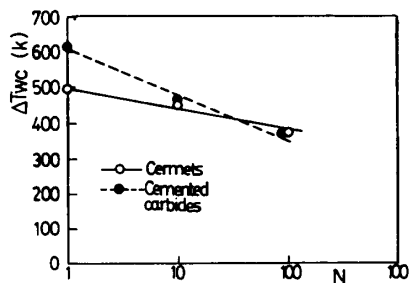


図5 ΔT_{wc} の熱衝撃繰返しに伴う変化

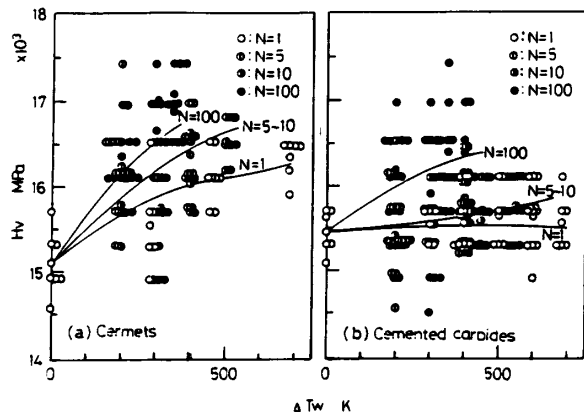


図6 繰返し熱衝撃実験における硬度の変化

査した結果である。図より単一の熱衝撃実験では、超硬合金の ΔT_{wc} はサーメットのそれよりも大きいけれども、熱衝撃繰返し数の増加に伴い、両者の ΔT_{wc} はほぼ一致、むしろ逆転する傾向が認められる。

3.3 繰返し熱衝撃実験における試験片硬度および破壊靱性値の変化 図6は熱衝撃繰返し数をパラメータにとり、硬度の熱衝撃温度 ΔT_w の増加に伴う変化を示したものである。図6(a)のサーメットでは、 ΔT_w の増加に伴い硬度の増加が顕著に生じ、また $N=1$ から $N=5 \sim 10$ までの少数の熱衝撃繰返し実験においては、繰返し数の増加に伴って硬度はますます増える傾向にあることがわかる。しかし、 $N=5 \sim 10$ から 100 までの多数の熱衝撃繰返しでは硬度値の増加は顕著に認められない。一方、図6(b)の超硬合金では、 $N=1$ から $N=5 \sim 10$ までの少数の熱衝撃繰返し実験においては硬度の増加は顕著に認められないものの、 $N=5 \sim 10$ から 100 までの多数の熱衝撃繰返しでは硬度の増加が認められる。

図7は破壊靱性値 K_{Ic} の繰返し熱衝撃実験における変化挙動を示したものである。図7(a)のサーメットでは、 $N=1$ から $N=10$ の少数の繰返しの場合、 ΔT_w の増加に伴い K_{Ic} は低下し、熱衝撃繰返し数の増加に伴い低下量は大きくなる傾向が認められる。しかし、 $N=100$ の多数の熱衝撃繰返しを行った後の K_{Ic} は、 $N=10$ におけるそれとほぼ同様の値をとっており、熱衝撃繰返し数の影響が明確に認められない。一方、図7(b)の超硬合金では、サーメットとは逆に $N=1 \sim 10$ までの少数の熱衝撃繰返しでは、顕著な K_{Ic} の低下は認められないが、多数の熱衝撃繰返しを行った $N=$

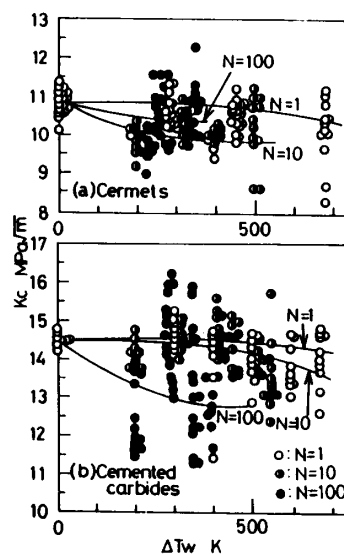


図7 繰返し熱衝撃実験における K_{Ic} の変化

100 では顕著な K_{Ic} の低下が認められる。

4. 考 察

既報⁽¹⁾の単一熱衝撃実験においては、超硬合金では ΔT_{wc} 以下の低温度域において、曲げ強度の低下がサーメットに比較して顕著に認められた。本繰返し熱衝撃実験においても、図4および図5に示すように熱衝撃繰返し数の増加に伴う超硬合金の強度低下はサーメットのそれよりも大きいことが明らかとなった。以上の結果から、超硬合金ではサーメットに比較して熱衝撃下の微視的き裂の発生、進展が顕著に生じることが予想された。そこで、以下では繰返し熱衝撃下のき裂の進展挙動について調査した。

4.1 サーメットおよび超硬合金の繰返し熱衝撃下のき裂進展挙動 ピッカース圧痕により導入した予き裂入り試験片の熱衝撃実験を行い、繰返し熱衝撃下のき裂進展挙動を調査した。図8はサーメットの $\Delta T_w = 200$ K および 250 K におけるき裂進展曲線を片対数グラフ上に示したものである。図中 L 方向とは試験片長手方向へのき裂進展を、T 方向とは長手方向と直角の方向へのき裂進展挙動を示している。図よりわかるように、き裂進展曲線は片対数グラフ上でほぼ直線となり、次式の関係が存在する。ここに $2c$ は試験片表面でのき裂長さ、 a および b は定数である。

$$\log(2c) = aN + b$$

また、L 方向と T 方向のき裂進展挙動には有意な差異は認められない。

図中のヒゲを付したプロット点は、図2の繰返し熱衝撃下の $\sigma_c - \Delta T_w$ 線図と既報⁽¹⁾の抗折力と予き裂長さの関係を用いて、10 μm から 20 μm 程度の小さなき裂寸法領域の繰返し熱衝撃下のき裂進展曲線を推定した結果である。このようにして推定した微小き裂の進

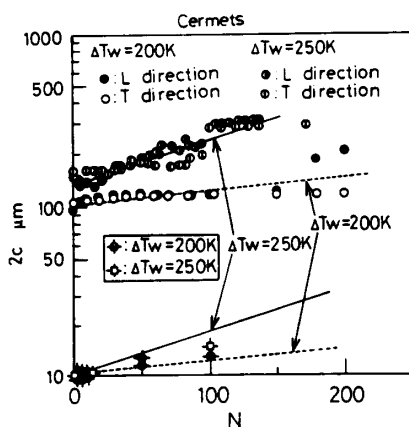


図8 サーメットの繰返し熱衝撃下のき裂進展挙動

展挙動とピッカース圧痕により導入した予き裂入り試験片を用いて得た結果とを比較すると、両方法の直線の傾きがほぼ等しいことから両者はほぼ対応することがわかる。

図9は超硬合金の $\Delta T_w = 200$ K および 300 K の繰返し熱衝撃下のき裂進展挙動を片対数グラフ上に示したものである。図よりピッカース圧痕により導入した予き裂入り試験片の繰返し熱衝撃下のき裂進展挙動は、サーメットと同様に片対数グラフ上でほぼ直線となる。予き裂入り試験片の $\Delta T_w = 300$ K の結果は、サーメットの場合と同様に、前述の方法で推定した図中の微小き裂領域のき裂進展挙動（ヒゲを付したプロット点）とは対応するが、 $\Delta T_w = 200$ K の予き裂入り試験片の結果は、図中の微小き裂領域のき裂進展挙動の推定結果（ヒゲを付したプロット点）とは対応せず、後者は前者に比較してき裂進展速度が速くなる傾向を示す。熱衝撃による抗折力の低下が微視的き裂の進展に基づくものと仮定すると、以上の結果は、 $\Delta T_w = 200$ K における熱衝撃後の抗折力の低下が単一の微視的き裂の進展挙動では説明できないことを示唆している。この点に関しては、次節でさらに検討する。

4.2 熱衝撃繰返しに伴う試験片表面組織の連続観察 超硬合金では、低 ΔT_w 領域において、熱衝撃繰返しに伴う抗折力の低下が、サーメットよりも大きく、また、この低 ΔT_w 領域における抗折力の低下は予き裂入り試験片のき裂進展挙動とは必ずしも対応しないことが明らかとなった。そこで、本節では、超硬合金の低 ΔT_w 領域における抗折力の顕著な低下をもたらす原因を明確にすることを目的として、以下の実験を行った。

まず、試験片をダイヤモンドペーストにより鏡面に研磨し、目印としてピッカース圧痕を導入後、繰返し熱衝撃に伴う試験片表面組織の変化を連続観察した。一例として超硬合金の結果を図10に示す。図10(b)

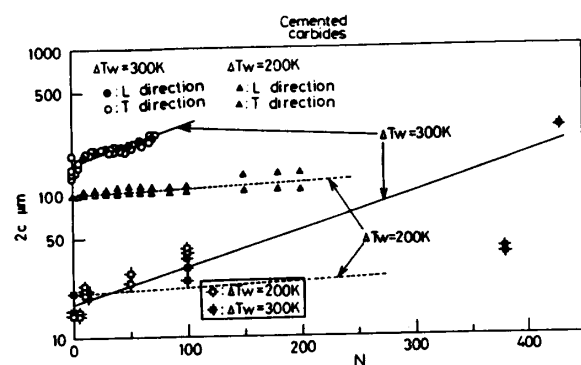


図9 超硬合金の繰返し熱衝撃下のき裂進展挙動

の熱衝撃を10回受けた後の試験片表面と図10(a)の熱衝撃前の試験片表面とを比較すると、熱衝撃によって試験片表面には黒点が現れることがわかる。

図11は別の試験片を用いて熱衝撃を8回繰返した後の微視組織を超硬合金について示したものである。図中認められる黒点は熱衝撃前には存在しなかったものであり、また、表面をダイヤモンドペーストにより研磨しても消失しないことを確認しているから、表面に付着している酸化物等ではないと思われる。そこで、図11のA部をSEMにより観察した結果を図12に示す。図よりA部の拡大箇所には多数の微視割れが発生していることがわかる。したがって図10(b)および図11の熱衝撃によって発生してくる黒点は微視割れ

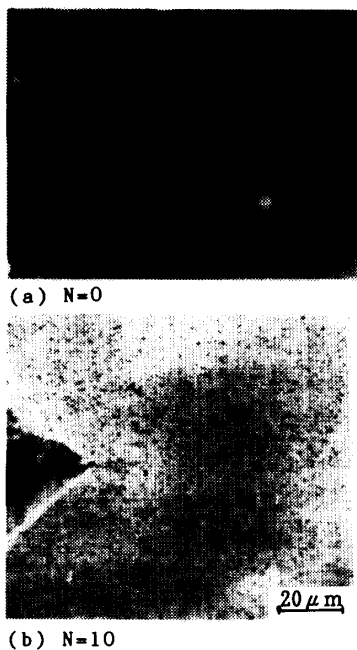


図10 繰返し熱衝撃下の試験片微視組織の変化 (超硬合金)

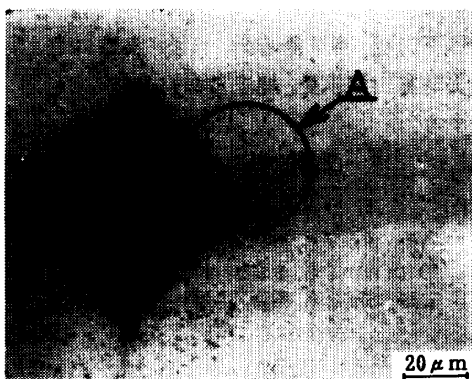
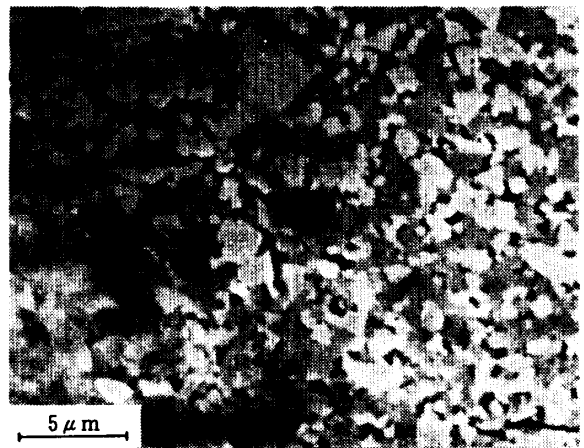


図11 熱衝撃を8回受けた試験片の表面微視組織 (超硬合金)

であり、また、その発生箇所はWCとCoの界面であることが判明した。

図13は、熱衝撃繰返しに伴って黒点密度の増加の様子をサーメットと超硬合金について示したものである。図よりわかるように、サーメットに比較して、超硬合金では熱衝撃繰返しに伴う黒点密度の増加は明らかに多く、熱衝撃によって生じる微視き裂数が多いことを示している。

したがって、繰返し熱衝撃下、とりわけ低 ΔT_w 域において、超硬合金の抗折力がサーメットに比較して顕著に低下し、さらに抗折力の低下から推定した微視き裂の進展挙動が予き裂入り試験片の進展挙動とは必ずしも対応しない一因として、このような多数の微視き裂の発生が考えられる。つまり多数の微視き裂の干渉・合体によって寸法の大きなき裂が発生するためと考えられる。高 ΔT_w 域よりも低 ΔT_w 域において、多数の微視き裂の発生が抗折力の低下の支配因子になる



A部詳細

図12 表面微視組織の電顕写真の一例

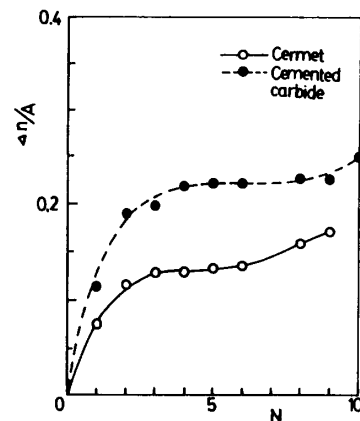


図13 熱衝撃繰返しに伴う黒点密度の変化 ($\Delta T_w=200$ K)

のは、低 ΔT_w 域では、発生熱応力が小さく微視割れ先端の応力拡大係数が破壊靱性値以下であるため、単独き裂の進展が困難であるため、破壊が複数個の微視き裂間の合体・相互作用に支配されやすくなるためと予想される。超硬合金では、破壊靱性値がサーメットに比較して大きく、かつその微視組織に起因して多数の微視割れが発生するので、非進展性の複数個の微視割れの発生が熱衝撃破壊に対する重要な因子になると考えられる。

4.3 繰返し熱衝撃下の硬度並びに破壊靱性値の変化 サーメットでは1回から10回程度の少数の熱衝撃繰返し実験では、硬度増加並びに破壊靱性値の低下が顕著に生じるのに対し、10回から100回程度の多数の熱衝撃繰返し実験では硬度および破壊靱性値の顕著な変化は認められなかった。これは少数の熱衝撃繰返し域では、微視的組織間の熱膨張係数の差異が小さく、熱衝撃によって微視き裂が発生しにくく、ひずみ硬化によって硬度増加並びに破壊靱性値が低下するためと考えられる。多数の熱衝撃繰返し域においては、ひずみ硬化が飽和するため硬度の増加並びに破壊靱性値の低下は顕著に認められなくなるものと考えられる。

一方、超硬合金では、少数の熱衝撃繰返しにおいて母相の WC と結合相である Co の熱膨張係数の差異が大きい⁽²⁾ ことに起因して微視き裂が発生しやすく、き裂発生箇所近傍のひずみ解放により、硬度の増加や破壊靱性値の低下は顕著に認められない。多数の熱衝撃繰返し域においては、繰返しの初期において微視き裂が発生し尽すため、以後のひずみ解放が進まず硬脆化するため、硬度が増加しかつ破壊靱性値の低下も大きくなるものと考えられる。

5. 結 言

サーメットおよび超硬合金の繰返し熱衝撃実験を行い以下の結論を得た。

(1) $\Delta T_w = 200$ K における単一熱衝撃実験では、超硬合金の抗折力 σ_b はサーメットのそれに比較して21%程度大きいけれども、繰返し熱衝撃実験では、逆にサーメットの σ_b が超硬合金のそれよりも大きく、単一の熱衝撃実験とは逆の特性を示すことがわかった。 $\Delta T_w = 400$ K では、熱衝撃繰返し数の増加に伴いサーメットと超硬合金の強度の逆転は認められないものの、ほぼ両材の抗折力は等しくなる傾向が認められ

た。したがって、単一の熱衝撃に対する破壊抵抗の順位は繰返し熱衝撃下のそれとは必ずしも一致しない。

(2) サーメットでは、少数の熱衝撃繰返しにおいて、硬度の増加と破壊靱性値の低下する傾向にあるが、多数の熱衝撃繰返しでは硬度値の増加並びに破壊靱性値の変化は顕著に認められなかった。一方、超硬合金では、少数の熱衝撃繰返しにおいて、硬度と破壊靱性値の変化は顕著に認められないが、多数の熱衝撃繰返しでは硬度増加および破壊靱性値の低下が認められた。

(3) サーメットでは微視的組織間の熱膨張係数の差異が小さいため、少数の熱衝撃繰返し域では微視き裂が発生しにくく、ひずみ硬化によって硬度増加並びに破壊靱性値が低下する。多数の熱衝撃繰返し域では、ひずみ硬化が飽和するため硬度増加並びに破壊靱性値の低下は顕著に認められなくなる。一方超硬合金では、少数の熱衝撃繰返しにおいて、母相の WC と結合相の Co の熱膨張係数の差異が大きいため、微視き裂が発生しやすく、き裂発生箇所のひずみ解放により硬度の増加や破壊靱性値の低下は顕著に認められない。多数の熱衝撃繰返し域においては、繰返し初期に熱衝撃によって微視き裂が発生し尽すため、以後のひずみ解放が進まず硬脆化する。

(4) 繰返し熱衝撃下の $\sigma_b - \Delta T_w$ 線図と $\sigma_b - 2a$ 関係を用いて、小さなき裂寸法領域における繰返し熱衝撃下のき裂進展速度を評価した結果は、超硬合金の低 ΔT_w 領域の実験結果を除いて、予き裂入り試験片を用いて得たき裂進展速度とほぼ対応する。

(5) (1)で述べた超硬合金の繰返し熱衝撃下、とりわけ低 ΔT_w 領域における抗折力の顕著な低下は、サーメットに比較して、超硬合金では発生した熱応力により硬質分散相と結合相の境界に、多数の微視割れが生じ、これらの微視割れの合体により大きな割れが生じるためである。

本研究の実施にあたって、実験材料を提供いただいた(株)不二越、吉本隆志氏、また、実験に協力いただいた当時富山大学生、能登宏和君、寺岡達利君に謝意を表す。

文 献

- (1) 石原・ほか4名, 機論, 57-536, A(1991), 824.
- (2) 鈴木・ほか2名, 金属誌, 40-3(1976), 211.
- (3) 三好・ほか2名, 機論, 51-471, A(1985), 2489.