

鑄造技術と粉末冶金技術の融合による新材料開発

— 金属間化合物を活用した高機能硬質材料 —

小林 慶三*、尾崎 公洋、松本 章宏、中山 博行

セラミックス粒子を金属で結合した硬質材料は、わが国の高度加工技術を支える金型や工具の材料として利用されている。しかし、硬質材料は資源的に少ないレアメタルを大量に含むため、新しい材料開発が求められていた。そこで、Fe-Al金属間化合物を結合相とした硬質材料を開発した。この硬質材料は鑄造と粉末冶金の技術を組み合わせたプロセスで合成することにより高硬度で高強度とすることができた。本稿では開発した材料を工業的に利用するための第2種基礎研究への取り組み、さらに異なる専門分野の研究者の融合による効率的な研究開発の方法論について紹介する。

キーワード: 超硬合金、FeAl、メカニカルアロイング、パルス通電焼結、金型、切削工具

New material development by the integration of cast technology and powder metallurgy technology

– A high-performance hard material which used intermetallic compound for binder phase –

Keizo Kobayashi*, Kimihiro Ozaki, Akihiro Matsumoto and Hiroyuki Nakayama

Hard materials made of ceramics combined with metals are used for dies and cutting tools that support high precision processing technology in Japan. Hard materials, however, need a large amount of rare metals that are scarce as resources as component and hence developing new materials with less dependence on rare metals has been expected. We developed a new hard material with Fe-Al intermetallic compound as a binder. This material was synthesized by a process combining casting and powder metallurgy and exhibited high hardness and high strength simultaneously. This paper introduces an approach to “Type2 Basic Research” in order to apply the developed material to industrial use, and a method of efficient research and development through the collaboration of researchers of different specialized fields.

Keywords: Cemented carbide, FeAl, mechanical alloying, pulsed current sintering, die, cutting tool

1 研究の背景

金型や工具として広く用いられている超硬合金は、硬質な炭化タンゲステンにコバルトで焼き固めた高強度で硬質な複合材料であり、我が国の自動車や情報家電等の先進産業を下支えする高精度加工技術には不可欠な材料となっている。超硬合金の歴史は古く、我が国の超硬工具出荷額は2007年度に3500億円を超える規模(超硬工具協会統計)にまで成長しているが、一方では全世界的な工業化の進展により、タンゲステンもコバルトも将来にわたる安定供給に不安がでてきている。特にコバルトは古くから価格変動の激しいレアメタルであり、環境的な側面からも新しい金属結合相の開発が望まれていた。そこで、高強度で高硬度を有する硬質な無機材料と金属からなる新しい複合材料の開発を目指して、産総研での材料開発がスタートした。

複合材料を構成する金属として、資源的に豊富で価格

が安定している鉄を使いたいという市場ニーズが潜在的にあった。しかし、鉄は炭化物(炭化タンゲステン等)と反応しやすい上、錆びるという実用上の大きな問題を有していた。そのため、これまで鉄を結合相とした超硬合金はほとんど実用化にいたっていない。

一方、超硬合金の新たな用途として、加工分野における高温下での使用が求められている。これは、例えば切削工具においては高速切削、無潤滑切削につながるものであり、金型では高温あるいは中温での成形加工を実現する技術となる。これらの技術は、成形時のエネルギー消費量を低減することにつながり、低CO₂社会の実現に向けた新しい技術となりうるものである。そのためには、超硬合金の結合相に耐熱性を付与することが不可欠である。

本稿では、産総研で見出した鉄アルミニウム金属間化合物を結合相とする新しい超硬合金^[1]を単なる機械的特性

産業技術総合研究所 サステナブルマテリアル研究部門 〒463-8560 名古屋市守山区下志段味穴が洞 2266-98
Materials Research Institute for Sustainable Development, AIST 2266-98 Anagahora, Shimo-Shidami, Moriyama-ku, Nagoya 463-8560, Japan * E-mail: kobayashi-keizo@aist.go.jp

Original manuscript received July 30, 2010, Revisions received August 25, 2010, Accepted August 30, 2010

の評価にとどまらず、工業的な利用に必要な特性評価や周辺技術の適用性にまで広げて、異なる専門を有する多くの研究者による継続的なグループ研究によって開発してきた経緯について報告する。

2 研究の目的と目標

硬質な複合材料の耐熱性を、鉄を用いた金属材料によって改善するためには、1990年から経済産業省のプロジェクトとして大学、民間企業、国立研究所によって総合的に取り組まれてきた金属間化合物の利用が有効だと考えられる。金属間化合物は異なる金属元素で構成される規則相であり、セラミックスと金属の中間的な特性を有する材料として知られている。なかでもアルミニウムを含む“アルミナイド”と呼ばれる金属間化合物は強度の逆温度依存性を示すものがあり、中・高温域で利用できる金属材料として期待されている。産総研ではこれまでに民間企業との連携のもと、鑄造技術によるアルミナイド金属間化合物の合成技術について研究を行ってきており、チタンアルミナイド (TiAl や Ti_3Al 等) や鉄アルミナイド (FeAl や Fe_3Al 等) 等の金属間化合物の合成を行ってきた。アルミナイド金属間化合物は、比重差や融点差の大きな元素で構成されているため、通常の溶解方法や鑄造技術では偏析が大きく、新たに電磁浮揚溶解-鑄造というプロセス技術を開発した。しかし、溶解した金属を鑄造しただけでは、鉄アルミナイド金属間化合物の組織が粗大となり、十分な強度を付与することができなかった。また同じ頃、産総研ではマグネシウム合金の組織を微細化して成形する鑄造技術として、半溶解成形技術の開発に取り組んでいた。マグネシウム合金を半分溶けた状態で加圧成形することによって、チキソトロピー性を発現させたニアネット成形と組織微細化による高強度化を同時に実現するものである。さらに、アルミナイド金属間化合物の合成方法として粉末冶金技術にも着目し、メカニカルアロイング法を用いた微細組織のアルミナイド金属間化合物の合成技術^{[2][4]}についても検討していた。

一方、WC-Co系超硬合金は材料および製造プロセスに関する技術がほぼ完成されており、硬質粒子をさらに微細化した材料開発を中心に研究が行われていた。超硬合金は加工技術の高速化・高精度化とともにその需要が増加し、一層の低コスト化が求められていた。特に、価格変動の大きいコバルトや資源偏在性の高いタングステンについては、代替あるいは省使用化技術が必要とされていた。

そこで、私達は金属間化合物のさまざまな合成技術と超硬合金に関する基礎知識をベースとして、アルミナイド金属間化合物を結合相とした新たな硬質材料を開発するため、これらの技術を融合した新しいプロセス技術の開発に着

手した。すなわち、超硬合金の結合相としてCoの代わりにFeとAlを用い、焼結過程でAlのみ液化させ、その後FeAl金属間化合物相を合成するプロセスを開発した。この技術を用いることで、鉄アルミナイド金属間化合物を結合相として炭化タングステンや炭化チタン、硼化チタン等の硬質粒子と複合化した耐熱性を有する新しい硬質材料を提供できるものと考えた。また、開発する複合材料は超硬合金の用途の一部を代替できるように、硬度900 Hv以上、3点曲げ強度で2 GPaを超えることを目標とした。

3 目標の実現に向けた研究のシナリオ

この技術開発では、複合材料を構成する硬質粒子の間隙をどのような方法で鉄アルミナイド金属間化合物で充填して硬質粒子と金属間化合物の密着性をいかに高めるかが複合材料の機械的強度を左右することになる。これまでに、硬質粒子の多孔質成形体（プリフォーム）を作製して、溶解した鉄アルミナイド金属間化合物を加圧注入する方法や、溶解した鉄アルミナイド金属間化合物の中に硬質粒子の粉末を混合して攪拌する方法等が検討されているが、硬質粒子との密着性が低いために高い強度は得られていない。そこで、産総研では高融点である硬質粒子と、金属間化合物を構成する鉄粉末およびアルミニウム粉末を機械的な攪拌力によって強制的に混合するプロセス^[4]を考えた。金属粉末は高い展延性を有していることから、硬質粒子を被覆しながら混合できるものと期待した。

そこで、これまでの超硬合金の製造プロセスに近い方法を用いてWC-FeAl合金(WC-8.6mass%Fe-1.4mass%Al)を作製した。WC粉末、Fe粉末、Al粉末を目的の組成になるように配合してアトライタによる湿式混合を行い、1440℃で真空焼結を行った。これまでの超硬合金は結合相を溶解させながら焼結を行う液相焼結法であり、WC-FeAlの場合にも結合相と硬質粒子の密着性を改善するには高温での焼結が必要であった。得られた焼結体は大気中で800℃に加熱しても優れた耐酸化性を示し、焼結体を熱間等方加圧(HIP)処理すると抗折強度は最大で1.8 GPaを示した。ただ、得られた焼結体の強度には大きなばらつきがあり、安定した焼結体を作製し難いことがわかった。これは、融点の低いAlが真空焼結中に蒸発するため、結合相の組成や量が一定にならないことに起因している。また、蒸発したAlは真空焼結炉の黒鉛電極等へ付着することが懸念され、従来プロセスによるWC-FeAl超硬合金の作製は困難であろうと考えられた。

焼結時のAlの蒸発は、湿式での混合によりFeとAlが十分反応しなかったことが原因と考えられ、大きな混合力で合金を作製できる乾式混合方法であるメカニカルアロイ

ング（以下、MA と記す）を WC-FeAl に適用してみた。これまでに MA によるアルミナイド金属間化合物の合成では、アモルファス状の合金粉末が合成されることが知られており、Fe と Al の合金化が進行するまで長時間の処理を行った。大きなエネルギーで長時間の MA 処理を行うと、硬質粒子と結合相との密着性が強くなり、低温での焼結が期待される。実際に遊星型ボールミルを用いて長時間の MA を行い、焼結してみると 1200 °C でも緻密な焼結体^[5]を作製することができた。しかし、得られた焼結体の抗折強度は 0.8 GPa しかなく、強度の向上を狙って結合相量を増加させても金属相の扁平化が進行^[6]し、焼結体の強度改善にはつながらなかった。すなわち、これまでの超硬合金製造プロセスを発展させた研究開発では WC-FeAl 超硬合金を目的の特性まで高めることはできなかった。その結果、いわゆる“死の谷”に陥り、企業との共同研究も継続できず、実用化への道は閉ざされたかのように思われた。

そこで、これまでの超硬合金製造プロセスから離れ、当時研究グループでアモルファス粉末のバルク成形方法として開発してきたパルス通電焼結技術を WC-FeAl 超硬合金の焼結に応用することへ方向転換した。パルス通電焼結は通電で加熱を行いながら同時に加圧を行うことで短時間・低温で緻密な焼結体を作製する技術であり、固相焼結に適した焼結技術である。ただ、液相を伴う超硬合金の焼結では加圧により液相が分離するため、適さないプロセスと考えていた。しかし、MA において WC 粉末と Fe 粉末は十分に混合されているが、Al と Fe は反応していない状態で焼結を行うと、焼結過程で Fe が溶解する前に Fe と Al の反応で金属間化合物が生成することを見出した。この反応を利用すると、パルス通電焼結における低温（660 °C）で Al が溶解し、その後 FeAl 金属間化合物を合成しながら焼結が進行する。WC-FeAl 超硬合金中の Al 含有量は

わずかであるため、加圧を行っても生成した Al の液体は粉末の空隙部を浸潤する程度で分離する現象は認められなかった。また、パルス通電焼結を用いたことで粉末間のジュール加熱により焼結体の内部まで均等に加熱することができた。一般の粉末冶金プロセスの加圧成形時には有機系の潤滑剤が用いられるが、溶解した Al はこの潤滑剤の役割を果たすものと考えられる。Al が溶解した状態での加圧成形は、半溶融成形技術と全く同じメカニズムであり、Mg 合金の半溶融成形技術で得た知見を投入することで緻密な成形体を作製することに成功した。なお、Fe と Al の反応はわずかな発熱を伴う反応であり、金属間化合物の合成時には微量の体積変化が生じて気孔を生成するが、その後の加熱によって十分緻密化することができた。開発したプロセスは図 1 のように示される。このプロセスで得られた WC-FeAl 超硬合金焼結体は目標の抗折強度と硬度をほぼクリア^{[7][8]}し、ようやく新たな硬質材料としての目途を立てることができた。本合金の作製プロセスにおいては、乾式の新しい合金粉末合成プロセスとパルス通電焼結^{[9]-[11]}という新しい焼結技術を導入することで、実験室レベルではあるが、これまでの超硬合金の一部を置き換えることができる材料を試作できた。ただ、これまでの超硬合金においてご法度とされていた Al 添加はなかなか関連業界に受け入れられるものではなく、また特殊な焼結設備を必要とすることから、基盤技術の構築はできたものの実用化への研究展開に行き詰まりはじめていた。

基盤技術が開発できた経緯を分析してみると、超硬合金に関する基礎知識があったことは当然であるが、粉末冶金に関する知識、加圧焼結技術に関する知識、界面を制御するための微細領域を観察する技術等の知識を有する研究者が、産総研で組成特許を取得した材料に興味を持ち、それぞれのアプローチから材料特性を改善できたことが大きかったと思われる。その結果、これまでの超硬合金

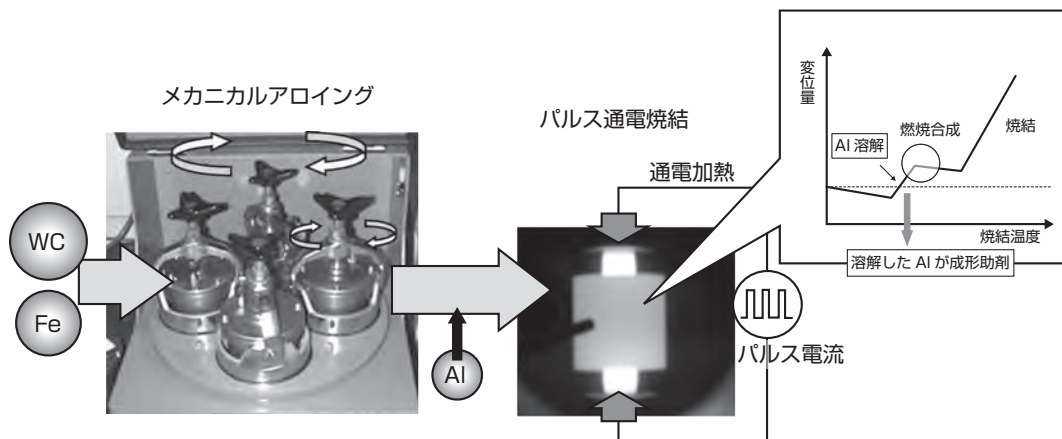


図 1 開発した WC-FeAl 超硬合金の作製プロセス

製造プロセスの呪縛から離れ、奇抜な発想に基づく新たなプロセス開発につながったものと考えられる。それぞれのアプローチで問題解決に取り組んだため、次に紹介する第2種基礎研究から実用化に向かうステージではそれぞれの研究者の個性が表れるユニークな技術に展開することができた。

4 第2種基礎研究から実用化研究へ

新しく開発した WC-FeAl 超硬合金を実用材料として普及するには、本材料を工業レベルで作製してもらえる企業を見つけることが重要である。ただ、新しい材料を新しいプロセスで作製して高い材料特性を示しても、なかなか本気で本材料に取り組んでももらえる企業は現れない。ただ、得られた情報については適宜関連する学会（粉体粉末冶金協会）等の場で報告してきたため、関連業界からは研究の初期段階から注目されていたようである。そこで、一気に本材料を実用化するため、本材料を実用化した際の製品イメージから企業が本当に必要とする実験データを収集することにした。私達はこれをまさしく第2種基礎研究と位置づけ、大学や企業ではリスクが高く実施しづらい内容と考え、実用化に向けたデータ収集を行った。そのために、産総研の“ハイテクものづくり”プロジェクトを活用し、WC-FeAl を金型として実用化するためのキーワードを精査した。すなわち、①実用的な大きさの金型を作製するための大型焼結体作製、② WC-FeAl 超硬合金の加工コストを判断するためにこれまでの加工技術による仕上げ加工、③高温での金型使用を想定した加熱-冷却による耐サーマルショック性、を実用化のための技術課題とした。なお、実験室の装置のみでは対応できない課題も含まれるため、大学や企業の協力を仰ぎながら研究を推進した。

大型焼結体の作製では、開発プロセスにおいて Al 液相

を利用した加圧成形を行っているため、Al 液相が成形助剤として作用し、粉末の緻密化が比較的容易に行えることがわかった。産総研のパルス通電焼結装置より電源および加圧力の大きな焼結装置を利用することで基礎研究と同様の性能を有する大型焼結体が作製できた。試作した大型焼結体の外観を図2に示す。小型の金型として利用できる程度の大きさ（ ϕ 140 mm）を有している。また、硬質な超硬合金の仕上げ加工には放電加工やワイヤーカットが活用されている。これは、超硬合金が有する高い導電性を利用した加工技術である。開発した WC-FeAl 焼結体もこれまでの超硬合金と同様に高い導電性を有していることから、同じ加工条件にてワイヤーカットや放電加工を施すことができた。また、これまでの超硬合金のワイヤーカットでは加工面が少し反応して変色するが、WC-FeAl 超硬合金では FeAl の耐食性の良さを反映して反応が少ないことが確認された。実際に産総研にて焼結した WC-FeAl 超硬合金を加工メーカーに依頼して金型形状（歯車）へ加工したが、その外観は図3に示すように超硬合金製金型と同じ仕上げであった。加工に伴う作業時間もこれまでの超硬合金と同じ程度であることから、これまでの超硬合金と同程度のコストで本材料を加工できることが確認できた。このような金型を高温鍛造等で使用することができれば、被加工材を加熱して高温下にて小さな成形荷重で高速に加工することができ、加工に要するエネルギーの低減が期待できる。一般の高温鍛造等では、金型を水冷しながら使用することがあり、超硬合金を大気中で 900 °C に加熱した後、水中に急冷する実験を行ってみた。急冷した試料の外観を図4に示す。これまでの超硬合金では酸化の進行が大きく、大気中で加熱した試料の表面は酸化膜が生じて青く変色しており、急冷を行うと熱応力でクラックが発生した。一方、WC-FeAl 超硬合金は表面に薄い酸化膜が生じてやや赤褐色になるが、クラックは発生しなかった。このことから開発した WC-FeAl 超硬合金は大気中で加熱しても酸化しにくく、その後水冷してもクラックの発生が少ない材料で

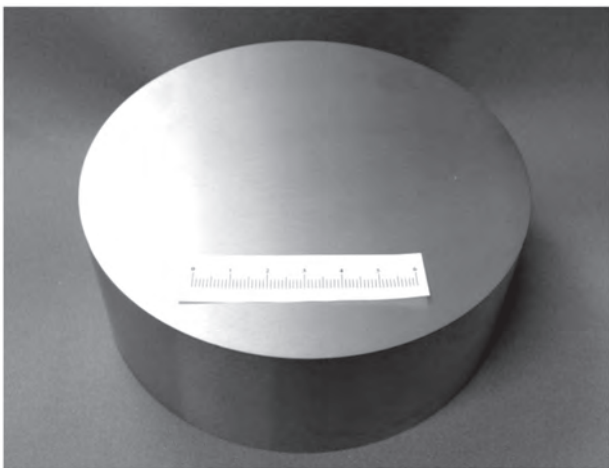


図2 WC-FeAl 超硬合金の大型焼結体の外観

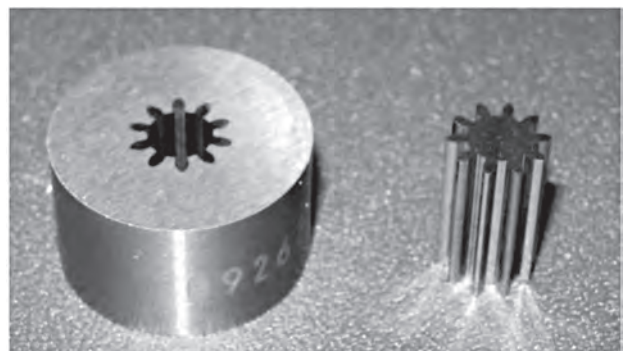


図3 WC-FeAl 超硬合金製金型の外観

あり、高温用の金型材料として期待される。

さらに、WC-FeAl 超硬合金は砥石を使った研削加工においてもこれまでの超硬合金並みの加工速度で同等の加工精度が得られ、複雑形状を有するボールエンドミルの刃先部分を試作加工できた。得られたボールエンドミルの先端部は図5のようにこれまでの材料と同等の加工が実現できている。ただ、本ボールエンドミルは先端部のみ開発材料を使用しており、軸部のハイス材料とろう付けによって接合している。これは、開発したプロセスでは長尺焼結体がまだ作製できないためであり、今後の課題である。

これらの第2種基礎研究の成果は実用化への距離を大きく短縮し、本材料を実際に使用してみたいという企業が複数できた。いずれの企業も自社での材料製造を検討されており、新しいプロセス技術を導入しながら自社の技術と融合させることにより用途および事業化を検討してみたいという希望であった。そこで、切削工具および金型を出口として、材料メーカーや加工メーカーを巻き込んだ研究体制で実用化検討を行っている。

5 考察

開発した WC-FeAl 超硬合金は結合相に FeAl 金属間化合物を採用した新しい複合材料であり、これまでの WC-Co 超硬合金の問題点を解消できる可能性がある。例えば、これまでの超硬合金の結合相である Co は硬度がビッカース硬度で 130 Hv であり、炭化タングステンよりかなり軟らかい材料である。そのため、表面を研磨した際には結合相と硬質粒子の間にでこぼこが生じる。一方、FeAl 金属間化合物はビッカース硬度が 320 Hv であり、硬度差に起因するでこぼこは減少するものと考えられる。そこで、結合相の体積割合をそろえた WC-FeAl 超硬合金およびこれまでの WC-Co 超硬合金をダイヤモンド砥粒で研削し、表面にダイヤモンドライクカーボン (DLC) をスパッタでコーティングした。それぞれの試料における研削面の面粗さは観察場所による差が多少あるものの、WC-FeAl では Ra=4.3 nm であり、WC-Co では Ra=5.3 nm となっていた。WC-FeAl は結合相が硬いため、研削面が滑らかになったものと考えられる。それぞれの超硬母材の上に形成した DLC 膜の密着性をスクラッチ試験により測定してみると、WC-FeAl の方が 25 % 程度剥離に必要な荷重が高くなった。DLC 膜と超硬合金母材との界面部分は図6のように、硬質粒子や結合相の上に均質な DLC 膜が密着していることが確認された。WC-FeAl と DLC 膜の界面を微視的に観察すると、界面部には薄い層が観察され、詳細に分析すると酸化アルミニウムの膜が形成されていた。WC-FeAl では表面に薄い

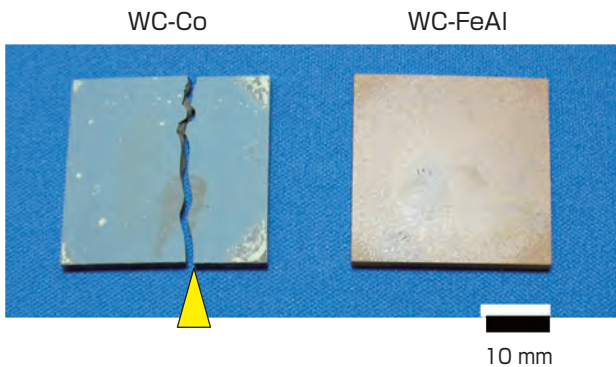


図4 大気中で 900 °C から水中へ冷却した超硬合金の外観
WC-Co (従来材) は割れているが、WC-FeAl は割れ無し。



図5 WC-FeAl で試作したボールエンドミルの外観

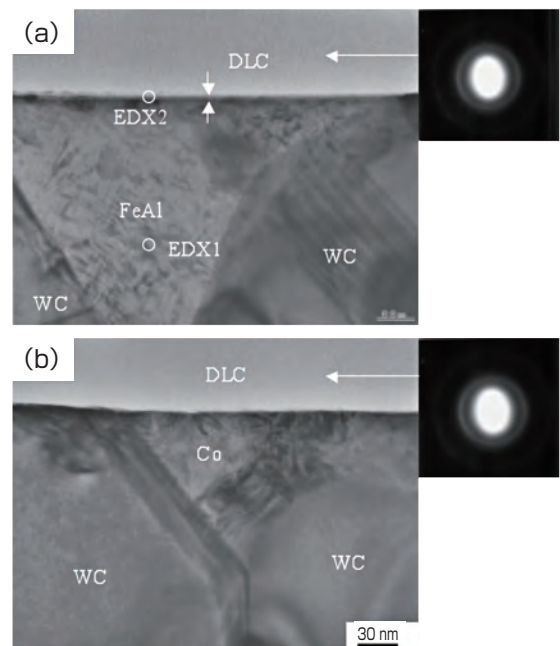


図6 DLC 膜と超硬合金の界面部の微細組織観察
(a) DLC/WC-FeAl 界面、(b) DLC/WC-Co 界面
(a) の EDX2 部分で酸化アルミが形成

酸化アルミニウムを含む層が形成され、高温での耐酸化性が改善されているものと考えられるが、室温付近で形成されたこの薄い層は DLC 膜との密着性を改善する効果のあることがわかった。超硬合金の表面に DLC 膜を形成すると、金型と成形材との離型性を改善することが期待される。実際に、マグネシウム薄膜や銅薄膜を DLC 膜をコーティングした WC-FeAl 超硬合金で打ち抜き加工してみると、加工時の成形荷重を低減できることが確認できた。

開発したプロセスで作製した WC-FeAl 超硬合金は、これまでの超硬合金で問題となってきた焼結時の WC 粒子の結晶成長がほとんど観察されない。また、脆化相として知られる W_3Fe_3C 等の複合炭化物相の形成も認められない。開発当初は低温焼結を実現したための結果と判断していたためあまり注目していなかったが、学術的な側面から Al の効果について検討する研究者もあらわれ、炭化物と Fe 系金属間化合物の相互作用についてさらに深い考察を行う必要がある。これまで実用化に注力してきたため、学術的考察が不足している側面もあり、大学との共同研究等を通してさらなる考察を行う予定である。

結合相を FeAl という硬質材料にすることで、同じ硬度を発現させる場合には炭化タングステン量を少なくすることができ、WC-FeAl 超硬合金の利用は省タングステン技術にもつながると考えられる。ただ、そのタングステン削減はわずかであり、さらにタングステン使用量を低減するためには、炭化タングステン以外の硬質材料との複合化を検討する必要がある。特に近年のタングステン価格の高騰を考えると、炭化タングステン以外の硬質材料との複合化について検討する必要がある。そこで、WC-FeAl の作製プロセスを活用して、チタン系の硬質粒子と FeAl の複合化を検討した。高い熱伝導性を有する硼化チタン粒子を Fe-Al 金属間化合物で結合した硬質材料の開発を試みた^{[12][13]}。

得られた TiB_2 -20mass% (Fe-Al) 焼結体は理論密度の 95% 以上となり、その硬度は Fe:Al の比率によって変化するが、1500 Hv 以上を示した。なお、 TiB_2 粒子は結合相に Fe 含有量が多いと焼結性が良好であるため、より Fe 含有量の多い (Fe-Al) 金属間化合物を用いた。また、硬質粒子に炭化チタン粒子と硼化チタン粒子、結合相に Fe-Al 金属間化合物を用いた TiC -30mass% TiB_2 -30mass% (Fe-Al) 硬質材料は、30 W/mK の熱伝導率を示し、これまでの超硬合金とサーメット (TiC-Ni 系合金) の間の値を示した。WC を FeAl 金属間化合物で結合した超硬合金でさまざまな付加機能が発現したように、 TiB_2 - (Fe-Al) あるいは TiC - TiB_2 - (Fe-Al) 硬質材料にも新たな用途がでてくるのではないかと期待している。実際、 TiB_2 - (Fe-Al) 硬質材料は超硬合金より軽量であり、耐摩耗性等をさらに評価することで新しい耐摩耗部材への応用が考えられ、今後の展開が楽しみである。

6 まとめ

産総研で材料自体を開発した耐酸化性に優れる硬質材料である WC-FeAl 超硬合金について、その開発経緯を詳細に紹介し、研究グループとして取り組んできた基礎研究から第 2 種基礎研究、応用研究へ向けた研究開発を紹介させていただいた。開発の経緯を模式的に示すと図 7 のようになり、長年にわたってさまざまな要素技術が融合された結果、現在の WC-FeAl が形成されたことがわかる。硬質材料の開発を開始した頃から超硬合金の一部を代替することを目指していたため、出口としては金型や工具になることは自明であった。さいわい本材料を発見した研究者が企業で超硬合金の開発に従事した経験を持つことから、実用化につながる目標設定を比較的容易に行うことができた。産総研が開発した独自の硬質材料をこれまでの超硬

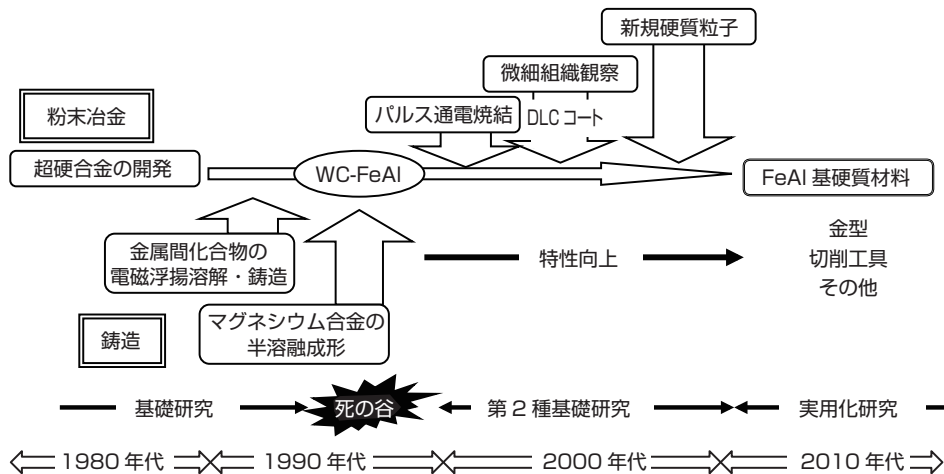


図 7 WC-FeAl 超硬合金の開発

合金製造プロセスを使って目標値を達成することは困難であったが、超硬合金とは直接関係のない研究者の新しいものの見方により、課題を着実に解決することができた。ただ、目標値の達成が即実用化につながるものではなく、長期にわたって継続的に硬質材料に関する学会にて情報を発信し続けることで、企業からのアドバイスをいただきながら実用化に近づく課題をさらに見出すことができた。これまでに本開発材料の実用化を目指したプロジェクトとして、経済産業省の地域コンソーシアムや戦略的基盤技術高度化支援事業（サポイン）のご支援をいただき、産学官の連携体制にて実用化、その先の事業化へ向けて研究開発を推進しているところである。今後も超硬合金においてはCoの価格高騰や人体への影響等が懸念されており、本開発材料の高度化により一層の利用分野拡大が期待される。ようやく大型部材や複雑形状の部材を供給できる体制が組みあがり、本材料にご興味をいただいた方々にサンプルを提供できるようになってきた。WC-FeAlを中心に新しい硬質材料が工業材料としてお役にたてるよう、継続して研究室一丸となった体制で邁進する予定である。

参考文献

- [1] 小林慶三, 三輪謙治, 阪口康司: 高硬度で耐酸化性に優れた超硬合金, 特許第2611177号
- [2] 小林慶三, 尾崎公洋: アルミナド金属間化合物の低温成形合成法, 特許第2818860号
- [3] K.Kobayashi and K.Ozaki: Synthesis of aluminide intermetallics in low temperature using mechanical alloying process, *Mater. Trans., JIM*, 37, 738-742 (1996).
- [4] 小林慶三, 坂崎一茂: Al液体を利用したFeAl金属間化合物の成形, *粉体および粉末冶金*, 42, 1247-1251 (1995).
- [5] 小林慶三, 三輪謙治, 福永稔, 町田正弘: Fe-Al合金を結合相にした超硬合金の作製, *粉体および粉末冶金*, 41, 14-17 (1994).
- [6] 福永稔, 町田正弘, 小林慶三, 尾崎公洋: FeAlを結合相とする超硬合金のパルス通電焼結による作製, *粉体および粉末冶金*, 47, 510-514 (2000).
- [7] 松本章宏, 小林慶三, 尾崎公洋, 西尾敏幸: メカニカルアロイングを利用したFeAl-WCの作製, *粉体および粉末冶金*, 48, 986-989 (2001).
- [8] A.Matsumoto, K.Kobayashi, T.Nishio, K.Ozaki and S.Tada: Fabrication of FeAl-WC by combustion synthesis and the mechanical properties., *Euro PM2004 Conference Proceedings*, 3, 641-645 (2004).
- [9] 小林慶三, 松本章宏, 尾崎公洋: 短時間メカニカルアロイングで合成したWC-20mass%Fe₃Al合金の機械的特性, *粉体および粉末冶金*, 49, 284-289 (2002).
- [10] 小林慶三, 松本章宏, 西尾敏幸, 安井幸栄: 素粉末をミリングした75vol%WC-FeAl混合粉末のパルス通電焼結における結合相の変化, *粉体および粉末冶金*, 54, 269-273 (2007).
- [11] 小林慶三, 尾崎公洋, 多田周二, 西尾敏幸, 安井幸栄: WC-FeAl超硬合金の機械的特性に及ぼすWC粒径, FeAl量の影響, *粉体および粉末冶金*, 55, 593-598 (2008).
- [12] 小林慶三, 松本章宏, 尾崎公洋, 西尾敏幸, 菊池光太郎: メカニカルアロイングによるTiB₂-20mass%Fe₃Alサーメットの合金の作製, *粉体および粉末冶金*, 53, 58-61 (2006).

- [13] 中山博行, 小林慶三, 尾崎公洋, 多田周二, 三上祐史: 通電焼結で作製したTiB₂添加TiC/Fe-Alサーメットの特性, *粉体および粉末冶金*, 56, 775-779 (2009).

執筆者略歴

小林 慶三（こばやし けいぞう）

1986年3月大阪大学大学院工学研究科冶金工学専攻前期課程修了、(株)神戸製鋼所勤務を経て1989年工業技術院名古屋工業技術試験所入所。チタン合金の磁気浮揚溶解技術、マグネシウム合金の半溶融成形技術、メカニカルアロイングによる非平衡粉末合成技術などの研究に従事。2001年4月産業技術総合研究所基礎素材研究部門相制御プロセス研究グループ長、2004年4月よりサステナブルマテリアル研究部門相制御材料研究グループ長。1997年7月大阪大学より博士(工学)授与。本研究開発では、超硬合金の経験を活かしてWC-FeAl超硬合金を見出し、特許を取得するとともに、全体計画の立案と研究管理・運営を行った。



尾崎 公洋（おざき きみひろ）

1994年3月大阪大学大学院工学研究科生産加工工学専攻博士課程修了、博士(工学)取得後、同年工業技術院名古屋工業技術研究所入所。メカニカルアロイングパルス通電焼結法によるマグネシウムアモルファス合金の開発、パルス通電焼結法の基礎現象解明などの研究に従事。本研究開発では、金型用途への研究展開を推進するとともに、通電焼結技術の開発に従事した。



松本 章宏（まつもと あきひろ）

1992年3月名古屋大学大学院工学研究科金属工学および鉄鋼工学専攻博士課程後期課程修了。博士(工学)。同年4月工業技術院名古屋工業技術試験所に入所。構造用高融点金属間化合物の開発、チタン系非晶質・準結晶合金の合成とエネルギー利用に関する研究、環境融合型超硬合金の開発に従事。2007年サステナブルマテリアル研究部門融合部材構造制御研究グループ長。本研究開発では、切削工具用途への研究展開を推進するとともに、微視的組織観察をもとにDLCコーティング技術を開発した。



中山 博行（なかやま ひろゆき）

2004年3月豊橋技術科学大学大学院工学研究科博士後期課程機能材料工学専攻修了。博士(工学)。ワシントン大学、名古屋工業大学でのポストドクターを経て、2008年4月産業技術総合研究所に入所。本研究開発では、省タングステン技術としての研究展開を推進するため、種々の硬質粒子とFe-Al金属間化合物との混合および複合化技術を開発した。



査読者との議論

議論1 超硬合金の市場規模とコバルトフリーの効果

コメント (村山 宣光: 産業技術総合研究所先進製造プロセス研究部門)

研究の背景で、分野の異なる読者に超硬合金の経済的意味とコバルトフリーにする効果をより具体的に理解していただくため、

超硬合金の市場規模、日本シェア、コバルトフリーの経済効果を数値で表現されたらどうでしょうか。

回答 (小林 慶三)

超硬合金の国内生産量は2007年度の超硬工具協会の統計によりますと、3500億円を超えるまでに成長しております。ただ、その後リーマンショック等で減少しておりますが、2000億円を超える市場を維持しており、その後また増加傾向に転じております。超硬合金の国際的なシェアでは、サンドビック、ケナメタル、イスカルに続いて、我が国の三菱マテリアル(株)や住友電気工業(株)等がありますが、日本のシェアについては正確な数値を出すことができませんでした。また、コバルトフリーの効果につきましては、原料コストの低減(原料価格ではコバルト粉末に対して鉄粉末・アルミ粉末は1/4以下: 試薬による比較)とともに、環境的側面(発がん性等)や新たな高温用途への対応等数値化しにくい部分が多々あります。ご指摘にしたがい、数値等を明瞭に記載できる部分につきましては加筆・修正しました。なお、第2種基礎研究から応用研究に向けて開発を進めている鍛造用金型は150億円((財)素形材センター資料)程度の市場があります。

議論2 本研究のオリジナリティ

コメント (村山 宣光)

本研究の第1のオリジナリティは、超硬合金の結合相として、CoのかわりにFeとAlを使い、焼結途中では、Alを液体状態で結合相として機能させ、その後FeAlを合成させ、Fe、Alの欠点を回避するというアイデアだと思います。この着眼点を2.あるいは3.に記載されることにより、論文がより充実すると思います。

第2のオリジナリティは、実験結果では、Fe、Alともに液体状態にしてしまうと、Alの蒸発が激しくて、うまくいかなかったが、Alだけを液体状態にすると、それが結合剤として機能し、かつ、FeAlへの合成も進むという現象の発見だと思います。これは、思考実験によるシナリオ設計どおりの結果は得られなかったが、粘り強い研究によって道が開けた事例です。

3.の目標の実現に向けた研究のシナリオを、例えば、思考実験によるシナリオ設計と実験によるシナリオ変更に大きく分けて記載されると、材料研究のダイナミズムが読者に伝わると思います。

回答 (小林 慶三)

ご理解いただけましたように、本研究ではCoのかわりにFeとAlを用い、焼結途中でAlを溶解し、その後の加熱で目的の金属間化合物を合成するところに最大の特徴があります。この着眼点につきましては、2.に追加しました。また、WC-FeAlという合金をどのような経路で作製するかが今回の研究では重要であったと思います。これまでの超硬合金の概念に縛られて材料開発を行っていた間は、素材の特性については明らかにできたものの、安定した材料を作製することができませんでした。その後、発想を転換してプロセスから見直すことでさまざまな副次的な効果が見出され、結果として研究を飛躍的に伸ばすことができました。ご指摘いただいた点を加味して、3.目標の実現に向けた研究のシナリオを加筆・修正しました。ただ、思考実験というものをご自分の範囲を示すべき概念なのかが明確にできませんでしたので、思考実験という言葉はあえて使用しませんでした。

議論3 材料開発に要する時間

コメント (村山 宣光)

材料開発には長い年月がかかります。これも、材料開発の特徴

です。図7のWC-FeAl超硬合金の開発に時間軸を加え、本文中にも、この点を記載されたいかがでしょうか。

回答 (小林 慶三)

ご指摘のとおり、時間軸の記載は本材料の進化過程をご理解いただくうえで、とても有効なものだと思います。ただ、実際には、同時並行的に技術開発が進行しておりますので、時間軸を記述するのは難しいように思います。かなり雑駁になってしまいますが、図7に10年単位での時間軸を記載し、長期間の歳月が材料開発には必要であることを強調しました。

議論4 実用化に向けた要素技術の選択

コメント (一條 久夫: (株)つくば研究支援センター)

研究開発の必要性、素材合成、特性評価、融合研究をととした新超硬合金開発への一連のプロセスは詳述されています。第2種基礎研究では要素技術の選択と統合の過程が重要ですが、選択についても記されると理解が深まるのではないのでしょうか。

回答 (小林 慶三)

ご指摘にしたがい、要素技術の選択についても簡単に記述しました。金型材料を出口と考えた場合の本材料およびプロセスの課題については、関連する学会等での民間企業からのご意見を拜聴して、選定しました。

また、ハイテクものづくりでは、出口イメージとして中・高温用金型に絞り込み、これまで基礎的な物性(機械的特性、耐酸性、摩耗試験等)の評価を行ってきたWC-FeAl超硬合金に対して、産業的に利用できる金型を供給するための大型素材の試作、加工コストを評価するために従来の超硬合金加工方法の適用性、加熱と冷却を繰り返すことによる割れや酸化の評価を目的とした実験を行いました。これは、関連する学会(粉体粉末冶金協会)にて本材料に興味を示された企業からのヒアリング等を通じて設定したものです。本文の記述内容を加筆・修正し、背景がわかるようにしました。

議論5 パルス通電焼結の効果

質問 (村山 宣光)

パルス通電焼結の効果を教えてください。加圧下で、660℃の低温域での成形、燃焼合成反応とそれに続く焼結ということであれば、通常の加圧焼結でも目的の超硬合金は作製できるのでしょうか。

回答 (小林 慶三)

本プロセスにおける考え方(アルミの溶解による成形と燃焼合成反応、焼結)を使いますと、小型の成形体においてはホットプレス等の加熱と加圧を同時に行える焼結プロセスでも実現できると思います。ただ、大型の成形体では、ホットプレスのようなヒーターを用いた外熱式の加熱では、ヒーター近傍と成形体の中心付近では温度差が生じ、液相の生成タイミングやその後の燃焼合成反応のタイミングにずれが起こり、均質な焼結体を作製することが難しくなります。これは、私達が半溶融成形の際に身につけた知見であり、パルス通電焼結では成形体内部にも電気が流れて、粉末間でのジュール加熱が行えることから外熱式の加熱方式に比べて温度差の発生を抑えることができます。この結果、大型のWC-FeAl焼結体の作製におきましてもAl液相が成形助剤として均等に作用し、割れない焼結体を作製できたものと考えております。