

ADVANCED PREPARATION OF HARD COMPOSITE MATERIALS WITH MECHANICALLY COATED PARTICLES

(機械的被覆粒子による硬質複合材料の高度調製)

学位論文内容の要旨

WC-Co cemented carbides are currently utilized as the most important hard materials in various applications, for example, metal and stone cutting, rock drilling, and wear tools. However, the mechanical properties of cemented carbides, particularly the hardness at high temperature, need to be improved for modern high performance applications such as the high-speed cutting tools. The properties are considered to be governed not only by the addition of ceramic dispersing phases but also by microstructural morphology of sintered materials which largely depends on uniformity of additive dispersion in the particle mixture.

In the present work, to enhance the mechanical properties of cemented carbides, the addition of Al_2O_3 and TiC by mechanical coating was exploited by preparing the surface composite particles for the design of the hard materials with novel microstructure. The effects of the powder preparation methods, composition of dispersing phases, sintering methods and sintering conditions were quantitatively examined on the microstructure and they were correlated with mechanical properties of the sintered materials obtained. The optimal conditions were investigated to obtain the material of high hardness both at the low and elevated temperatures.

The industrial needs for hard materials were discussed and the corresponding key material properties were identified in Introduction of this thesis. The examination of the properties of Al_2O_3 and TiC ceramics demonstrated the potentiality to be expected from their addition into the cemented carbide compositions. Then, the advantage of the composite tools were emphasized in comparison with the coated one. The need of uniform distribution of active phases in the particle mixture was considered to obtain the composite material of improved mechanical properties, and the great prospective of surface coated particles was

highlighted to achieve the uniform dispersion of each component in the mixture at the microscopic scale. Next, the possible advantage of the dry-based high-speed rotational blending were summarized for the coating of hard materials. Then, the main objectives were formulated for the present study and the outline of the research was demonstrated.

As a first step of the present research, the experimental investigation was carried out to prepare WC particles coated with Co, Al_2O_3 , and TiC by high-speed rotational impact blending. The uniformity of each component was investigated both in the mixture of coated particles and in the sintered composite material. It was correlated with mechanical properties such as the Vickers hardness (HV) and the transverse rupture strength (TRS). As compared with an ordinary ball mill, the high-speed rotational impact blending achieved the higher degree of mixing of particle mixture more easily. Thus, the higher mechanical properties were obtained due to higher uniformity of each component in the microscopic scale of the sintered sample.

Then, a proper composition for a uniform microstructure to yield superior hardness was investigated for various proportions of TiC and Al_2O_3 additives. The hardness was increased with higher amount of TiC from 5 up to 30 by weight percentage due to the formation of hard TiC-WC matrix (β) phase. The small amount of Al_2O_3 addition was quite effective for the hot hardness because of the higher chemical stability than TiC at elevated temperature. As a result, a proper composition, which generates the uniform microstructure of the sintered composite corresponding to the coated particle model, was obtained as 55% of WC, 10% of Co, 30% of TiC and 5% of Al_2O_3 to yield the highest value of Vickers hardness both at low and elevated temperatures.

Finally, the sintering behavior of composites was quantitatively characterized by means of the image analysis from the view point of the microstructure evolution. The areal fraction, the grain size distribution and the uniformity of spatial distribution expressed by the void size distribution of each component were correlated with the mechanical properties of samples. As a result, the void size distributions among total components were found to be relatively uniform due to higher degree of mixing of the particle mixture achieved by high-speed rotational impact blending in contrast with an ordinary ball mill. Further, the sintered composites with excellent properties were obtained by using spark plasma sintering (SPS) for shorter sintering time, as compared with hot-pressing. The formation of gaseous product by reaction between Al_2O_3 and TiC as well as the grain growth was expected to be suppressed due to the high heating rate of SPS and to result in the dense materials with less pores and

with small grains. Moreover, the higher HV and lower TRS were yielded at higher sintering temperature with shorter sintering time, due to the smaller WC and Al_2O_3 grains, higher areal fraction and more uniform distribution of β -phase.

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 篠 原 邦 夫
副 査 教 授 井 口 学
副 査 教 授 荒 井 正 彦
副 査 教 授 増 田 隆 夫

学 位 論 文 題 名

ADVANCED PREPARATION OF HARD COMPOSITE MATERIALS WITH MECHANICALLY COATED PARTICLES

(機械的被覆粒子による硬質複合材料の高度調製)

近年、先端技術の普及に伴い、硬質材料の需要が増してきている。中でも、タングステンカーバイド WC の複合材料が、生産性や耐久性の向上のため切削機械や耐磨耗性工具に広く使用されてきている。そのため、特に高温での硬度を高めるため、いろいろな成分調整が試みられている。

本論文では、WC・C o 複合材料の機械的特性を向上させるため、新たに Al_2O_3 と TiC を加え、各成分の均一な分散を促進するために機械的に WC 核粒子に添加成分小粒子の被覆を行った。その粒子混合物を異なる方法で焼結し、種々の機械的特性を測定した。核粒子のスケールで微視的にこれらの構造を解析し、被覆および焼結条件と材料特性を定量的に結びつけて新材料開発を行った研究は、これまでにない。

本論文は、全 5 章から成っており、各章の研究内容について以下のとおり工学的に評価した。

第一章の緒論では、硬質材料の位置付けとして、産業的重要性と工学的調製法および複合物成分についての現状が広範に系統的に整理されている。その結果、本研究の狙いが明確にされている。

第二章では、高速気流中衝撃法により、 TiC 、 Co 、 Al_2O_3 の 3 成分を順次 WC 核粒子に被覆することにより、混合物として粒子スケールでの均一性を高めるための操作条件が検討されている。その結果、被覆粒子および焼結体の均一性を各成分の変動係数による混合度としてサンプリングサイズに対して検討し、従来のボールミルによる混合操作に比較して明らかに均一性の高まっていることがわかり、焼結体の機械的特性に対応していることが立証されていることは、

工学的価値がある。

第三章では、TiC と Al_2O_3 の添加成分の割合について、種々の組合せで実験し、焼結体の硬度が、TiC-WC 相の生成を通して微細構造の均一性に大きく依存しており、また、 Al_2O_3 の微量添加が、とりわけ高温での化学安定性の効果に寄与していることを初めて見出している。その結果、被覆粒子に対応した焼結体の均一な微細構造を形成し、高硬度な材料を調製するためには、質量基準で WC55%、Co 10%、TiC 30%、 Al_2O_3 5% の混合割合が最適であることを提案できたのは、工学のみならず工業的にも十分価値がある。

第四章では、複合材料の焼結特性について、微細構造の画像解析により定量的に解析した。すなわち、各成分の面積割合、粒径径分布および空孔径分布による粒界間空間の均一性と機械的特性とが関連付けられている点は、極めて独創的アプローチと言える。その結果、高速気流中衝撃法により全成分の空孔径分布がボールミルより均一になり、ホットプレスよりスパークプラズマ焼結法での短時間焼結により粒界成長およびガス生成が抑制できる事がわかった。その結果、短時間高温焼結で、粒径径の減少と成分面積割合の増加およびベータ相の均一分布により、曲げ強度は低い、極めて高い硬度の得られることが、この新しいアプローチで説明できたことは十分に評価に値する。

第五章では、研究全体の結論として、混合度が一段と高い新規な微粒子被覆調製法を開発することによって、焼結体の新しい微細構造を定量的に設計することが出来、最適成分調整および焼結条件を選択することによって、各成分の空間分布を均一にし、相対密度を上げることができた。その結果、極めて高い高温硬度複合材料を乾式創製できる可能性を見出している。

これを要するに、著者は、高温高硬度複合材料の調製に関し、微粒子化学工学的アプローチから、実用化に迫る系統的新知見を得たものであり。化学工学および材料工学の新展開に対して貢献するところ大なるものがある。よって、著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。