特集記事 ● 5 構造用金属材料の新たな挑戦 ヘテロ構造制御に基づく新指導原理構築

摩擦攪拌現象を用いたインプロセス組織制御 によるマクロヘテロ構造体化技術

Macro-heterogeneous Structure Manufacturing Technology Using In-process Microstructure Control by Friction Stir Processing

> 藤井英俊 Hidetoshi Fujii

大阪大学 接合科学研究所 教授

し はじめに

摩擦攪拌接合 (FSW) は、¢15mm程度の円柱状の工具を 高速で回転させ、素材へ押し当てることにより、摩擦熱を発 生させ、これを利用して接合する新規接合法である。この際、 材料が溶融せず、固相状態で接合が行われるとともに、回転 する工具によって素材に対して強ひずみ加工が加えられるこ とから、従来法と比較して継手の特性が大幅に向上すると言 われている¹⁾。そのため、本手法は単に接合技術に留まらず、 素材の表面改質 (FSP) などにも適用されるようになってき ている。

JSTの産学共創基盤基礎研究プロジェクト「革新的構造用 金属材料創製を目指したヘテロ構造制御に基づく指導原理の 構築」おいて、著者らの研究グループでは、本稿のタイトル となっている「摩擦攪拌現象を用いたインプロセス組織制御 によるマクロヘテロ構造体化技術の構築」に取り組んでいる。

上述の摩擦攪拌現象を最大限に利用して、接合中の高度な 組織制御を行い、これまで機械的特性の低下が常識となって いる接合プロセスにおいて、接合部の機械的特性を母材より 向上させる技術を確立することを目的としている。この手法 により、プロセスを施した構造体の一部が、他の部分より機 械的特性に優れるという、いわゆる「マクロヘテロ構造体」 を創造することが可能となる。また、本手法は接合界面に限 定されるものではなく、特性を向上させたい構造体の一部で あれば、どこでも良く、任意の場所でプロセスを施せるのが 特長である。

この時、「温度」、「組成」、「加工」のそれぞれをプロセス中 に、任意に制御可能なマクロヘテロ構造体化技術を構築す る。「温度」に関しては、Fig.1に示すように、制御圧延等でも 行われている「 γ 単相領域」、「 $\alpha + \gamma 2$ 相域」での加工に加 え、従来技術では困難であった、「 $\alpha + Fe_3C_2$ 相域」での加工 組織制御を行い、従来にない接合法を開発するとともに、このプロセスの間に生じる組織形成過程の解明を行ってきた。

「組成」に関しては、摩擦攪拌プロセス中に粒子等の添加 によって、局所的に組成を変化させながら、加工組織制御を 行う技術を確立する。「加工」に関しては、従来法より大きな 加工、歪み速度を導入ことが可能な摩擦攪拌プロセスを用い て、優れた機械的特性を有する、マクロヘテロ構造物を作製 することとなっている。

本論文では、これらの中で特に「組成」について焦点を 当てて議論を行う。Fig.2に示すように、接合部に発生した ギャップに被接合材と同種あるいは異種の粉末を充填するこ



Fig.1 Fe-C phase diagram and welding conditions

とで材料の不足を補いながらFSWを行う方法を「摩擦攪拌 粉末プロセス」(Friction stir powder processing:以下FSPP と記す)と名付けている。FSPPにおける粉末は溶融溶接の フィラーと同じ位置づけであり、フィラーとして粉末を選 定することで、曲線形状や複雑形状のギャップにも対応可 能となる。一方、ギャップに被接合材と異種の粉末を充填し FSPPを施す場合には、プロセス中に合金化が可能なことか ら、粉末と板材を組み合わせた新しい改質法として捉えるこ とができる。

2 実験方法

供試材は¹300mm×^w70mm×^t5mmのサイズの工業用純ア ルミニウム板材A1050-H24を、粉末には純Al粉末(純度> 99.5%;平均粒径141 μ m)、純Cu粉末(純度>99.85%;平均 粒径32 μ m)、純Fe粉末(純度>95%;平均粒径33 μ m)を用 いた。純Al粉末は、板材のギャップによる欠陥を抑制するた めに、純Cu粉末、純Fe粉末はA1050-H24と練合させ合金化 を行うために用いた。

まず、FSW装置にSKD61の材質のバックプレートを置き、 その上に試料を取り付け、突き合わせ部に1~3mmのプレー トを挟んだ状態で固定した。次に前進方向と逆側に3°傾け たねじ切りツール (プローブ径6mm、ショルダ径15mm、プ ローブ長4.5mm)を回転させながら突き合わせ部に挿入し、 ツールのショルダ部が被接合材上部に接触し試料を攪拌して いる様子を確認した後、一定速度で移動させた。また、ツー ルの狙い位置は左右対称となり、プローブの中心と被接合材 の中心線を合わせるように設定した。

FSPPを行う際、接合時にツールの回転によってギャップ に充填した粉末が飛散することが懸念される。そこで、まず、 プローブ長さ0mmに設定し、パスを通しフタをした。その 後、1パス目としてプローブを有するツールを用いて接合を 行った。さらに、必要に応じて2パス目の効果の検討した。工 業用純アルミニウムであるA1050-H24の接合適正条件範囲 は広範囲に及ぶため、接合条件の選定はFujiiら²⁾によって報 告されている最適条件を基に検討した。

断面マクロ観察のために、接合方向(WD)に垂直な断面 を、エメリー紙No.80からNo.1500を用いて湿式研磨を施し、 1µmのダイヤモンドパウダーで鏡面になるまでバフ研磨を 行った。その後、ケラー液を用いてマクロ組織が明瞭になる まで常温でエッチングを施した。マクロ観察は接写タイプの 光学カメラを用い、ミクロ観察はSEM(Hitachi, SU-70)を用 いて行った。

EBSD (Electron Backscatter Diffraction) 用の試料に対し ては、WD面をエメリー紙No.80からNo.1500を用いて湿式 研磨を施し、1 μ mのダイヤモンドパウダーで鏡面になるま でバフ研磨を行った。その後、HNO₃+CH₃OH (体積比3: 7) 溶液を用いて電圧15V、液温-25℃、時間10s ~ 30sで 電解研磨を行った。アセトン中で10分間超音波洗浄を行い 脱脂した後、TSL社製のソフトOIM (Orientation Imaging Microscopy)を用いて解析した。尚、CI値0.1以下の点は除 外した。

必要に応じて、TEMを用いて微細組織の観察を行った。 同様に攪拌部の中心のWD面を、エメリー紙No.200から No.1500を用いて 50μ m以下の厚さまで乾式研磨を施した。 その後、HNO₃+CH₃OH(体積比3:7)溶液を用いて電圧 15V、液体温度-25℃の条件でStruers社製Tenupol-5による ツインジェット電解研磨により薄膜を作製した。TEM観察 は日立H-800を用い、加速電圧200kVで行った。

母材および攪拌部中央におけるビッカース硬さ試験を行った。微小部硬さ試験機(AkashiHM-124)を用いて、押し込み 圧力245.2mN、保持時間15sの測定条件を設定し、WD面の 中央部においてTD方向に左右25点ずつ、0.5mm間隔で試験 を行った。



Fig.2 Schematic illustration of friction stir powder processing (FSPP)

・3 AI粉末の添加による ギャップ裕度の拡大

FSWは固相接合法であるため、従来の溶融溶接と比較し て数多くの利点を持っている反面、ギャップの許容範囲が狭 く、接合部の目違い、ギャップの制御が必要であるといった 課題を抱えている。例えば、鉄道車両の分野においては、接 合長が最大で25mに及ぶことから、押し出し形材の精度向 上、開先加工、レーザセンサによる開先の倣い制御、高精度 治具など、長尺接合における欠陥防止技術が開発されてき た¹⁾。その一方で、ギャップが接合継手特性に与える影響に ついての報告は少なく、ギャップ幅と接合性との関連も未だ 不明な点が多い。

そこで本研究では、まず、工業用純アルミニウムA1050-H24 においてギャップ幅が接合継手に与える影響を調査した。 ギャップ幅を1, 2, 3mmに設定しFSWを行った。接合界面に 発生するギャップを模擬するために1, 2, 3mmのプレートを 被接合材の両端に挟むことでギャップを発生させた。

ツール回転速度1500rpm、ツール移動速度400mm/minの 条件下で得られた継手の接合部断面マクロ観察結果をFig.3 (上部)に示す。ギャップ幅1mmにおいては、欠陥は形成 されていない。A1050-H24は塑性流動性が良好であるため、 ギャップ幅が1mmであれば、欠陥のない接合部が得られる ことが分かる。一方、ギャップ幅が2mmにおいては、表面に 欠陥は形成されなかったがトンネル状欠陥と呼ばれる内部欠 陥が形成された。さらに、ギャップ幅が3mmとなると、溝状 欠陥と呼ばれる表面から下部まで続く大規模欠陥が形成され た。これらの溝状欠陥は前進側で発生する傾向が見られた。

一方、ギャップに純Al粉末を添加してFSPPを行った場合 には、Fig.3 (下部)に示すように、ギャップ幅2mmにおいて トンネル状の欠陥が消失し、純Al粉末添加による効果が見ら れた。とりわけ、ギャップ幅が3mmと大きい場合には添加 の効果が顕著に現れており、純Al粉末がフィラーとしての役 割を果たし、材料不足による溝状欠陥を抑制していることが 分かる。

4 FSPPの部分合金化技術

3章では、FSPPを用いてギャップによる欠陥を抑止する ことに成功した。一方、添加する粉末によって接合部の特性 を制御することが可能であるため、FSPPは接合時における 欠陥防止技術として利用するだけでなく、目的や用途に応じ て金属粉末を選定し、添加することで表面改質技術や合金化 プロセスとしても応用可能であると考えられる。

本章においては、まず、純Cu粉末の添加を検討した。 Al-Cu系は代表的な析出強化合金であることから、FSPPにより純アルミニウムとCu粉末の合金化を行い、母材中に強化 材として析出物粒子を微細に分散させることで強度の向上を 図った。また、純Fe粉末の添加も検討した。Feは資源として も豊富であるが、Alに対する最大固溶度が小さく³、拡散係 数も小さいことから、Cu粉末を添加した場合と異なる現象 が期待される^{4,5)}。

4.1 Cu粉末添加によるAI基材の合金化

ギャップ幅2mmに純Cu粉末を添加し、1500rpm-400 mm/min、1500rpm-100mm/minの条件下でFSPPを施した。 また、純Cu粉末を広い範囲で分散させるために同一領域に2 パスFSPPを施した試料も作製した。得られた試料の接合方 向に垂直な断面のマクロ観察結果をFig.4に示す。

ギャップは消失し、欠陥のない良好な改質部が得られた。 また、コントラストに違いが見える部分は純Cu粉末が分布 している領域であり、1500rpm-400mm/minの条件下におい ては前進側 (Advancing side : AS) に粉末が凝集する傾向が 見られた。

1500rpm-100mm/min-2passの条件下で得られた攪拌部の (a) 後退側 (Retreating side: RS)、(b) 中央 (Center)、(c) 前



Fig.3 Cross section of A1050-H24 joints obtained without powder and with AI powder at 1500rpm and 400mm/min. (A: Advancing side, R: Retreating side) 進側 (Advancing side: AS) における SEM 像を Fig.5 に示す。

白色のコントラストがCu粒子であり、Al基材中に凝集す ることなく分散していることが分かる。さらに、分散した Cu粒子の粒子径に着目すると、添加前の純Cu粉末の粒子径 (Average grain size: 32µm)で残存しているものは少なく、 ほとんどの粒子が小さくなっていることが確認された。これ は、FSPP中の攪拌によりCu粉末が粉砕されたと考えられな くもないが、FSPP中にAl中にCuが固溶したため、Cu粒子が 小さくなったと考える方が自然である。特に、前進側 (AS) に おいてはこの傾向が顕著であり、前進側 (AS)の温度が高く なったためAl中へのCuの固溶が促進されたと推察される。

Fig.6に1500rpm-100mm/minの条件で得られた試料の接 合方向に垂直な断面の硬度分布を示す。横軸に攪拌部中心 からの距離、縦軸にビッカース硬度を示している。母材では 40Hv程度のビッカース硬度であるのに対し、攪拌部の高い



10mm

Fig.4 Cross section of the A1050-H24 joints obtained after the first and second passes at 400mm/min and 100mm/min after adding Cu powder



Fig.5 Cu particle distribution in the stir zone after the second pass at 100mm/min and 1500rpm with Cu powder addition. (a) Retreating side (b) Advancing side (c) Center

ところにおいては80Hv程度まで上昇した。とりわけ、2パス 行った試料に関しては、攪拌部の硬度上昇は攪拌部全体に一 様に観られ、母材の2倍程度の硬度をもつ攪拌部が得られた。

硬度が向上した1500rpm-100mm/min-2passの条件下で得 られた試料の攪拌部のTEM観察を行った。Fig.7に示すよう に、微細に分散している金属間化合物が観察され、極めて微 細であることから析出によって生じたものであると思われ る。また、硬度が向上した試料において、AI基材中に析出物 が微細に分散していることから、硬度向上の要因は析出強化 によるものであるといえる。この析出物の粒子径および形状 に着目すると、150nm程度の塊状のものと、数10nm程度の 板状のものが存在することが分かる。FSPPは動的再結晶と 析出の両方が起こるため、再結晶挙動が析出に影響を及ぼす ことが示唆される。Koster ら ^{6,7)} や長浜ら ^{8,9)} は析出物が再結 晶過程で析出した場合には丸みを帯びた塊状、再結晶が終了 した後に析出した場合には板状や針状といった方位性を持っ た析出物となると報告している。本手法でも同様な現象が起 こっているとすれば、粗大で塊状の析出物はFSPPの再結晶 中に析出したものであり、数10nmの板状のものは再結晶が 終了した後に析出したものであると考えられる。

FSPPを用いた合金化プロセスは「強化材そのものをマト



Fig.6 Hardness distribution on the cross section after the first and second pass at 100mm/min



Fig.7 Dispersion of precipitates in the stir zone after the second pass at 100mm/min

リックス内部で合成するプロセス」である。それゆえ、出発 原料同士の反応や原子拡散が重要である。今回用いたAlと Cuの場合、強化手法が析出強化のため、固溶体の作製が必要 不可欠であり、まず出発原料同士の拡散を促進させ、固溶体 を形成しなければならない。したがって、添加金属粉末を基 材へ十分に固溶(拡散)させるために、ある一定以上の入熱 量が必要となる。

このように、FSPPという1回のプロセスで「Cu粉末の分 散」→「CuのAl中への拡散(固溶体の形成)」→「Alマトリク ス中への析出」と3過程を実現できることは合金のその場形 成プロセスとして非常に興味深い結果である。

4.2 Fe粉末添加によるAI基材の合金化

ギャップ幅2mmに純Fe粉末を添加しFSPPを行った。接 合方向に垂直な断面マクロ観察の結果をFig.8に示す。純Fe 粉末を添加した場合も欠陥のない良好な改質部が得られる ことが分かる。1500rpm-100mm/min-2passの条件下で得ら れた攪拌部の(a)後退側(Retreating side:RS)、(b)中央 (Center)、(c)前進側(Advancing side:AS)におけるSEM 像をFig.9に示す。比較的明るいコントラストを持つ粒子が Fe粒子であり、Al基材中に凝集することなく分散している。 Fe粒子径に着目すると、RSにおいては添加したFe粉末と同 程度の粒子径 (Average grain size: 33μ m) で残存している ことが確認できた。一方、ASでは比較的粒子径は小さくなっ ており、ASの方が高温であることが示唆され、その影響で FeのAl中への固溶が促進されたと考えられる。

接合部断面の硬度試験結果をFig.10に示す。ツールの移動 速度をV、ツールの回転速度をNとすると接合中の入熱量は 以下のような関係¹⁾になる。

すなわち、入熱量Qはツールの回転速度Nに比例し、ツー ルの移動速度Vに反比例する。式(1)に示した関係を用 いて試料の入熱量が小さいほうから並べると、1500rpm-400mm/min、1500rpm-100mm/min、1500rpm-25mm/min となる。硬度分布を見ると入熱量に応じて硬度が高くなって いることが分かる。このことからAl-Fe系において接合時の



Fig.8 Cross section of the A1050-H24 joints obtained after the first and second passes at 100mm/min after adding Fe powder



Fig.9 Fe particle distribution in the stir zone after the second pass at 100mm/min and 1500rpm with Fe powder addition. (a) Retreating side (b) Advancing side (c) Center



Fig.10 Hardness distribution on the cross section after the first and second pass at 400mm/min, 100mm/min and 25mm/min with Fe powder addition

入熱量は硬度増加に重要な条件であることが分かる。また、2 パス行うことで各々の硬度に変化が見られるが、低入熱条件 で2パス行うよりも、高入熱条件で1パス行う方が硬化して おり、入熱量が硬化に与える影響は非常に大きいことを示し ている。

1500rpm-400mm/min-2pass、1500rpm-25mm/min-2pass の条件下で得られた攪拌部のTEM観察結果をFig.11に示 す。微細析出物の量を比較すると高入熱である1500rpm-25mm/min-2pass条件の方が多く、硬度の向上はこれらの微 細析出物に起因していることが分かる。電子回折図形を解析 した結果、これらの析出物はAl₁₃Fe₄であることが分かった。 また、析出物の形状に着目すると、塊状の粗大な析出物と針 状の微細な析出物が存在することが分かる。FSPP中には動 的再結晶が生じていることから、Cu粉末を添加した場合と 同様に、再結晶過程で析出が生じている場合と、再結晶終了 後に析出が生じる場合を区別して考える必要がある。

5結言

接合部に発生したギャップに被接合材と同種あるいは 異種の粉末を充填することで材料の不足を補いながら FSWを行う「摩擦攪拌粉末プロセス」(Friction stir powder processing: FSPP)を開発した。FSPPを板材のギャップに





Fig.11 TEM bright field image in the stir zone after the second pass at 400mm/min and 25mm/min with Fe powder addition

よる欠陥を抑制する目的で純Al粉末を、合金化を行う目的で 純Cu粉末、純Fe粉末を用いた。得られた知見は以下の通り である。

- (1) A1050-H24を1500rpm-400mm/minの条件下で接合する際、ギャップ幅1mmにおいては欠陥のない十分な強度を持つ継手が作製される。しかしながら、ギャップ幅2mmでトンネル状欠陥、ギャップ幅3mmで溝状欠陥が発生し十分な強度を持つ継手は得られない。一方、突き合わせ部に発生したギャップに純AI粉末を添加することで欠陥抑制が可能であり、ギャップ幅3mmの存在下でも、2パス行うことで良好な継手を得ることができる。
- (2) A1050-H24に純Cu粉末を添加した後、1500rpm-100 mm/min-2passの条件下でFSPPを行うことで、Al₂Cu相の微細析出により80Hvの硬度をもつAl-Cu合金の作製 が可能である。
- (3) A1050-H24に純Fe粉末を添加した後、1500rpm-25 mm/ min-2passの条件下でFSPPを行うことで、析出物分散 による強化が可能であり、70Hvの硬度を持つAl-Fe合金 の作製が可能である。これは固溶度の小さい合金系でも FSPPを適用できることを示唆している。
- (4) このようにFSPPは、「粉末の分散」→「粉末成分のAI中への拡散(固溶体の形成)」→「AIマトリクス中への析出」という3つの過程を1つの手法の中で実現可能であり、マクローへテロ構造体を作製するうえで、極めて有用な手法であると言える。

参考文献

- 「摩擦攪拌接合-FSWのすべて-,(社)溶接学会編,産報 出版,(2006)
- 2) H.Fujii, L.Cui, M.Maeda and K.Nogi : Materials Science and Engineering, A 419 (2006) 25.
- 3) T.B.Massalski, H.Okamoto, P.R.Subramanian, L.Kacprzak: Binary alloy phase diagrams 2 ed. 1990, ASM Int., Materials Park.
- 4) 申熙澤, 菅又信, 金子純一: 軽金属, 42 (1992) 38.
- 5)藤井秀紀, 菅又信, 金子純一, 久保田正広: 軽金属, 52 (2002) 598.
- 6) U.Koster and E.Hornbogen : Z.Metallkde, 59 (1968) 792.
- 7) U.Koster and E.Hornbogen : 5 Internationale Leichtmetalltagung Leoben, (1968)
- 8) 長浜勝介, 高橋正弘, 三木功: 軽金属, 21 (1971) 444.
- 9) 長浜勝介, 三木功: 軽金属, 24 (1974) 77.

(2012年8月23日受付)

768