

機関番号：84415

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2008～2010

課題番号：20760502

研究課題名（和文）微細ナノ粒子および粒界性格分布に注目した摩擦攪拌接合材の異常粒成長抑制機構の解明

研究課題名（英文）Analysis of effects of fine nanoparticles and grain boundary character distribution on abnormal grain growth in friction stir welded material

研究代表者

平田 智文（HIRATA TOMOTAKE）

大阪府立産業技術総合研究所・機械金属部・主任研究員

研究者番号：20359433

研究成果の概要（和文）：摩擦攪拌接合材では、接合後の熱処理時に、接合部組織が異常粒成長を起こすことがある。そこで本研究では、異常粒成長を抑制することを目的に、粒成長に及ぼす接合部の組織的特徴の影響を調査した。微細ナノ粒子の添加が粒成長の抑制に効果的であるとともに、接合条件最適化による粒界性格分布の制御により、粒成長を抑制できると考えられる。さらに、合金元素や不純物量を制御することにより、結晶粒径を制御できることもわかった。本研究成果は、摩擦攪拌接合材の信頼性向上に、十分に寄与できると考えられる。

研究成果の概要（英文）：In the friction stir welded (FSW) material, the abnormal grain growth (AGG) often occurs in the microstructure of the weld zone during the post-FSW heat treatment. In this study, the influence of microstructural features on GG was investigated to prevent the AGG. The addition of fine nanoparticles was effective for preventing the AGG. And also it was considered to prevent GG by controlling the grain boundary character distribution by the optimization of welding condition. In addition, it was confirmed that the grain size can be controlled by adjusting the alloying element and the purity level. It is concluded that these results are very important to improve a reliability of FSWed material.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	2,700,000	810,000	3,510,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・材料加工・処理

キーワード：結晶・組織制御、粒界性格分布、摩擦攪拌接合、結晶粒径

1. 研究開始当初の背景

摩擦攪拌接合（以下FSWと略す）は、次世代の高品位接合技術として大変注目されている技術である。FSW材は、動的再結晶によって接合部組織が母材よりも微細粒組織になり、さらに接合条件を最適化することによ

り、継手材の室温での機械的特性は、母材のそれとほぼ同等となる。しかしながら、接合材を高温に保持すると、数ミクロンの接合部結晶粒がミリオーダーに異常粒成長を起こすことがあり、実用的な観点から解決すべき課題となっていた。

2. 研究の目的

結晶粒の粗大化は、構造体として致命的な力学特性劣化を引き起こす危険性をはらんでいる。したがって、継手材の信頼性向上のためには、異常粒成長を抑制することが非常に重要であり、仮に異常粒成長が起こらない条件であるとしても、接合部の結晶粒組織がより微細であることが力学特性には望ましい。そこで本研究では、接合部の結晶粒に影響を及ぼすと考えられる種々の因子に注目して、それらの影響を系統的に調査することで、FSW 材における接合部組織の異常粒成長抑制方法を提言することを目指した。さらにこれに加えて、接合部組織をより微細化させるための材料設計の指針構築を目的として研究を行い、FSW の社会的信頼性向上・工業的用途拡大を目指した。

3. 研究の方法

本研究では、結晶粒の形成・成長に影響を及ぼす可能性が示唆される以下4つの項目について調査した。

- (1) FSW 接合部への微細ナノ粒子分散
- (2) FSW 接合部の粒界性格分布の最適化
- (3) 接合材の不純物量の制御
- (4) 接合材の合金元素の制御

以上の学術的に認知された因子に着目した検討方法を採用し、本研究目的の達成を目指した。

4. 研究成果

(1) 異常粒成長抑制に及ぼす微細ナノ粒子分散の影響

一般的に、異常粒成長が起こるか否かは、第2相粒子の大きさ・分散状態と母材の結晶粒径の関係が影響することが知られており、無次元パラメータ Ψ で整理される。

$$\Psi = 3FvR/d \cdots (1)$$

ここで、 R は結晶粒径、 d は粒子直径、 Fv は粒子体積分率である。 Ψ が $0.25 \sim 1$ では異常粒成長が支配的になる可能性があるが、 1 以上ではもはや起こらない。

ところで、アルミニウム合金中に微細な第2相粒子を分散させる方法として、 Zr を添加することがよく知られている。 Zr を添加することにより、数十ナノメートルの微細粒子を分散させることができる。したがって、本研究では、 $Al-Mg$ 合金への Zr 添加により微細ナノ粒子の影響を調査することとした。

Ψ が 1 以上の試料を作成するために、 Zr 添加量の検討を行った。図1に Zr を添加していない 5083 アルミニウム合金の FSW 後の接合部マイクロ組織を示す。接合部組織は、大

部分が大角粒界からなる微細粒組織が形成されていることがわかり、結晶粒径は約 $7 \sim 8 \mu m$ であった。この値をもとに、式 (1) を利用して Fv を算出すると 10^{-3} 程度であり、わずかの粒子が存在していれば異常粒成長が起こらないことになる。そこで、5083 の組成に近い $Al-4.4Mg$ 合金に $0.12\%Zr$ を添加し、ナノオーダーの微細粒子を分散させた材料を準備した。

比較のために、 Zr を添加していない $Al-Mg$ 合金である 5083 合金も準備し、それらの材料に同条件にて FSW を施し、接合後に $500^\circ C$ で 30 分間保持し、保持後の接合部断面組織を観察した。図2にそれぞれの断面マクロ組織を示す。両材料ともに接合部の組織は母材に比べ粗大化しているが、 Zr を添加した材料の方が著しく微細であることが確認できた。すなわち、FSW 材の異常粒成長は、微細ナノ粒子に注目した従来の粒成長抑制方法で、十分に抑制できる可能性が示された。しかしながら、母材と比較すると粒成長が促進していることもわかり、この他の要因が影響していることも示唆された。

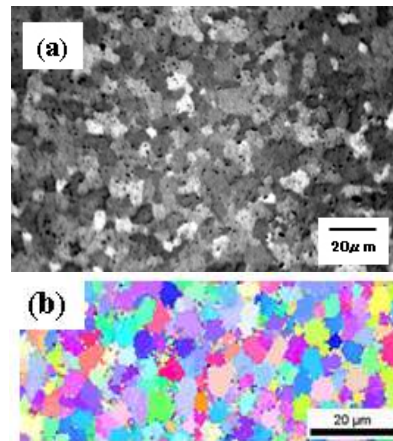


図1 5083 合金の接合部断面マイクロ組織，(a) 光学顕微鏡写真 (b) 方位マップ図。

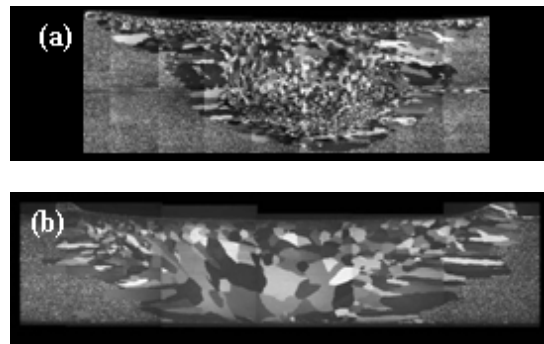


図2 高温保持後の接合部断面組織，(a) $Al-Mg-Zr$ 合金 (b) $Al-Mg$ 合金。

(2) 異常粒成長抑制に及ぼす粒界性格分布の影響

金属材料中に形成される集合組織は、材料の加工・熱履歴によって大きく異なることが知られている。そこで本研究では、同じ材料に異なる接合条件でFSWを実施し、集合組織の異なる試料の作製を試みた。そして、それらの材料を種々の温度まで昇温・保持し、高温域での組織安定性を調査し、粒界性格分布の影響を検討した。

図3に種々の接合条件で接合した試料の500°Cで30分保持後の断面マクロ組織を示す。接合条件により異常粒成長挙動が異なることがわかる。特に、接合部下部の違いが顕著に現れ、一つの要因として粒界性格分布が影響していることが示唆される。

ツール回転数やツール移動速度（接合速度）の影響の他に、接合時のツール前進角の影響も調査した。図4に同ツール回転数・同接合速度における種々の前進角で接合した試料の接合部断面マクロ組織を示す。前進角の違いにより、マクロ組織の形態が異なることがわかった。マクロ組織形態の違いは、この他の接合条件においても同様に現れた。そこで、800rpm、200mm/minでの接合材を選択し、前進角の異なる試料を500°Cで30分間保持し、高温保持後の断面マクロ組織の変化を調査した。図5に各前進角での接合材の断面マクロ組織を示す。前進角の違いにより異常粒成長挙動が異なり、前進角も強く影響を及ぼすことがわかった。

以上のように、接合条件の違いによって異常粒成長挙動は大きく異なることがわかり、粒界性格分布も強く影響していることが示唆される。すなわち、接合条件を最適化することにより、異常粒成長を抑制できる可能性が示された。

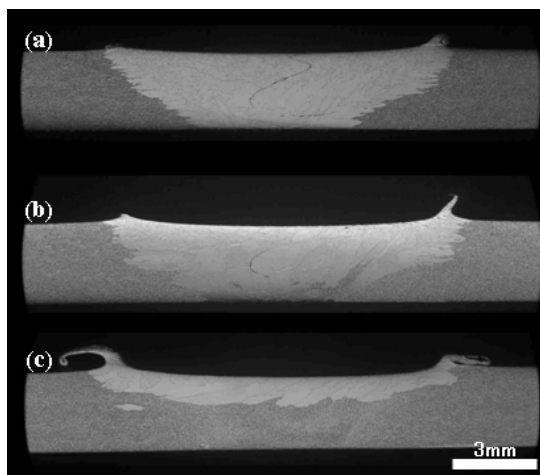


図3 種々の接合条件で接合した材料の高温保持後の断面マクロ組織, (a) 800rpm, 200mm/min, (b) 800rpm, 100mm/min, (c) 1200rpm, 100mm/min.

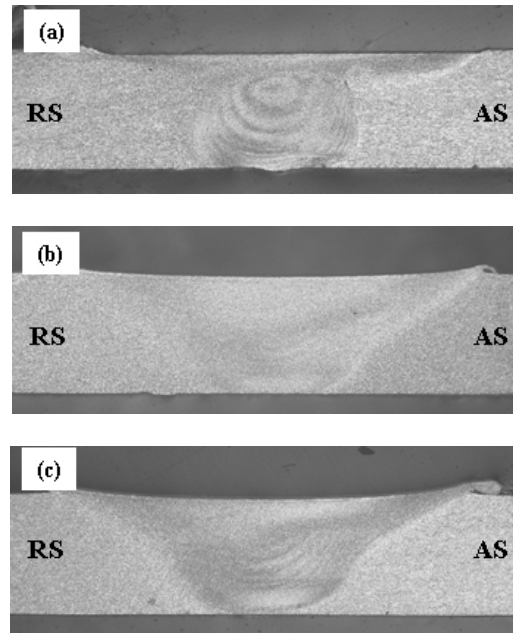


図4 種々の前進角で接合した材料の接合部断面マクロ組織, (a) 0度, (b) 3度, (c) 5度. 接合条件は800rpm, 100mm/min.

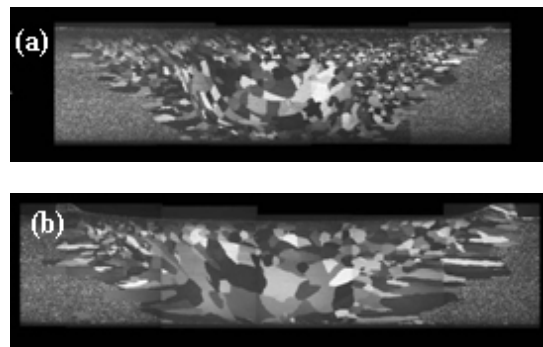


図5 種々の前進角で接合した材料の500°C30分保持後の断面マクロ組織, (a) 0度, (b) 3度. 接合条件は800rpm, 200mm/min.

(3) 不純物量制御による材料設計

金属材料において結晶粒径の制御は、材料設計における最も重要な因子の一つである。したがって、異常粒成長の有無に関わらず、FSW材の接合部が、より微細な結晶粒組織により構成されることが望ましく、それがFSW材の社会的信頼性の向上へとつながる。そこで、FSW前の材料設計により、FSW後の結晶粒組織の制御を目指し、ここでは不純物元素に着目し、その影響を調査することとした。

不純物量の影響を調査するために、純度の異なる3種類の純アルミニウムを用意し、それらの材料に摩擦攪拌プロセス(FSP)を施して、組織的特徴を調査した。図6に同プロセス条件での各純アルミニウムの接合部ミ

クロ組織を示す。2N と 4N の純アルミニウムは、結晶粒径に顕著な差は認められないが、5N の試料だけ著しく結晶粒が粗大であることがわかる。

この結果が FSP 特有の結果であるのかを検討するために、FSP 以外の強ひずみ加工プロセスを経た純アルミニウムと比較した。プロセスパラメータを一義的に表すために、ここでは Z パラメータを採用した。Z パラメータは次式で表される。

$$Z = \dot{\epsilon} \exp(Q/RT) \dots (2)$$

ここで、 $\dot{\epsilon}$ はひずみ速度、Q は活性化エネルギー、R はガス定数、T は絶対温度である。式 (2) を利用して、FSP を含む種々の強ひずみ加工材の Z パラメータを算出し、Z 値と結晶粒径の関係を整理した。その結果を図 7 に示す。FSP とそれ以外の材料はよい一致を示し、Z パラメータにより整理すれば、同様の傾向が得られることがわかった。すなわち、純度の違いによって二つの曲線で表されることがわかり、4N 以下の純度では不純物の影響が小さくなるが、5N になるとその影響が非常に大きく現れることがわかった。また、ある Z パラメータを境に、それ以上加工を施しても、結晶粒径にほとんど影響がない臨界値が存在することもわかった。

以上のように、本研究成果により、不純物量の制御によって、FSW 材の結晶粒を制御できる可能性を示すことができた。また、FSP

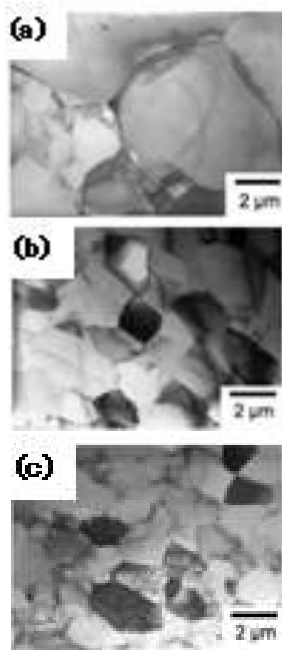


図 6 各種純アルミニウムの FSP 部断面マイクロ組織、(a) 5N, (b) 4N, (c) 2N. プロセス条件は 500rpm, 200mm/min.

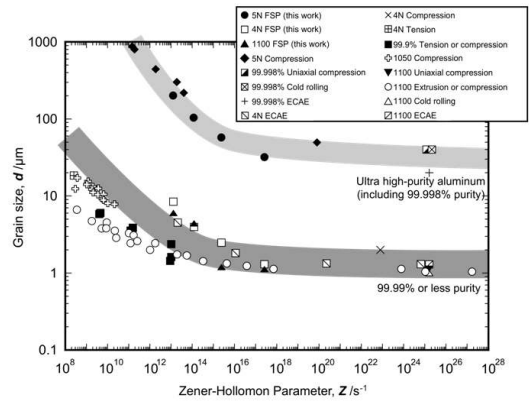


図 7 各種純アルミニウムにおける Z パラメータと結晶粒径の関係。

により、その材料の最小に近い結晶粒径が得られることもわかり、FSP が非常に魅力的な加工プロセスであることもわかった。

(4) 合金元素制御による材料設計

前項の研究成果により、ある Z パラメータを境に、Z パラメータがそれより増加しても結晶粒径がほとんど微細化しないことがわかった。そこで本項では、結晶粒径がほとんど変化しない領域の Z 値に応じた FSP をアルミニウム合金に施し、結晶粒径に及ぼす合金元素量の影響を調査した。

材料は 5052 (Al-2.5Mg) 合金と 5083 (Al-4.6Mg) 合金である。図 8 に、Z 値が十分に大きい FSP を施した両合金の断面マイクロ組織を示す。プロセス条件は同じであるにもかかわらず、マグネシウム添加量が多い 5083 合金の方がやや結晶粒が微細であった。

結晶粒径の違いの要因を検討するために、合金中にマグネシウムを添加することによる積層欠陥エネルギーの変化に注目した。積層欠陥エネルギーは、転位の上昇運動に影響を及ぼすため、結晶粒の形成に大きく影響を及ぼす。そこで、過去に報告されているデータを調査し、本研究の FSP の結果をふまえて、マグネシウム添加量と積層欠陥エネルギー、ならびに材料の結晶粒径との関係を整理した。その結果を図 9 に示す。マグネシウム量の増加にともない積層欠陥エネルギーが減少していることがわかり、その傾向は結晶粒径においても同様で、マグネシウム量の増加にともない結晶粒径が減少していることがわかった。すなわち、マグネシウム添加による積層欠陥エネルギーの減少が、結晶粒径の減少に影響していることが示唆された。

以上のように、合金元素添加により、結晶粒径の制御が可能であることが示唆され、本研究成果は、FSW 材の力学特性の向上はもとより、アルミニウム合金の合金設計にも十分に寄与すると考えられる。

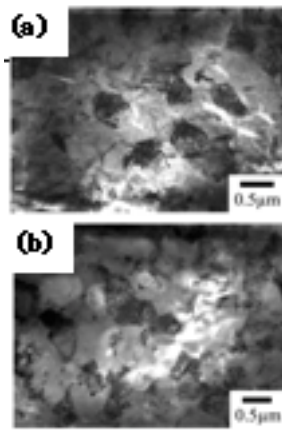


図 8 各種アルミニウム合金の FSP 部断面マイクロ組織, (a) 5052 合金 (b) 5083 合金. プロセス条件は 300rpm, 200mm/min.

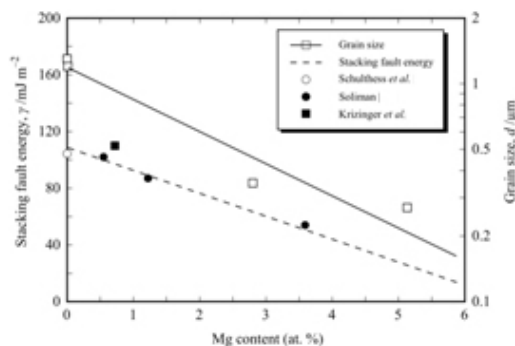


図 9 マグネシウム添加量と積層欠陥エネルギー、ならびに材料の結晶粒径との関係.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① 平田智丈、森重大樹、辻川正人、東健司、Influences of alloying elements on grain sizes in friction stir processed aluminum and aluminum alloys、Proceedings of TMS 2011 annual meeting、査読有、2011 CD-ROM
- ② 森重大樹、平田智丈、上杉徳照、瀧川順庸、辻川正人、東健司、Effect of Mg content on the minimum grain size of Al-Mg alloys obtained by friction stir processing、Scripta Materialia、査読有、64、2011、355-358
- ③ 森重大樹、平田智丈、辻川正人、東健司、Comprehensive analysis of minimum grain size in pure aluminum using friction stir processing、Materials. Letters、査読有、64、2010、1905-1908

[学会発表] (計 6 件)

- ① 平田智丈、森重大樹、上杉徳照、瀧川順庸、辻川正人、東健司、強ひずみ加工を施した純アルミニウムの結晶粒径に及ぼす純度の影響、軽金属学会春期大会、平成 23 年 5 月 22 日、名古屋大学
- ② 平田智丈、森重大樹、辻川正人、東健司、Influences of alloying elements on grain sizes in friction stir processed pure aluminum and aluminum alloys、TMS 2011 140th annual meeting、平成 23 年 3 月 1 日、サンディエゴ コンベンション センター (アメリカ)
- ③ 平田智丈、森重大樹、田中努、超高純度アルミニウムの摩擦攪拌接合部における組織的特徴、溶接学会秋季大会、平成 21 年 9 月 11 日、徳島大学工学部

6. 研究組織

(1) 研究代表者

平田 智丈 (HIRATA TOMOTAKE)
大阪府立産業技術総合研究所・
機械金属部・主任研究員
研究者番号：20359433

(2) 連携研究者

田中 努 (TANAKA TSUTOMU)
大阪府立産業技術総合研究所・
機械金属部・研究員
研究者番号：90416248

森重 大樹 (MORISHIGE TAIKI)
大阪府立産業技術総合研究所・
機械金属部・客員研究員
研究者番号：30530076

(3) 研究協力者

東 健司 (HIGASHI KENJI)
大阪府立大学
工学研究科・教授
研究者番号：50173133

辻川 正人 (TSUJIKAWA MASATO)
大阪府立大学
工学研究科・准教授
研究者番号：90172006

瀧川 順庸 (TAKIGAWA YORINOBU)
大阪府立大学
工学研究科・准教授
研究者番号：70382231

上杉 徳照 (UESUGI TOKUTERU)
大阪府立大学
工学研究科・助教
研究者番号：10405342