

令和 3 年 10 月 18 日現在

機関番号：84431

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K18225

研究課題名(和文)異種金属摩擦攪拌接合における中間相の瞬間的異常成長挙動の解明とその制御技術の確立

研究課題名(英文) Investigation of rapid abnormal growth mechanism of intermetallic compound during dissimilar friction stir welding and establishment of its control method

研究代表者

田中 努 (Tanaka, Tsutomu)

地方独立行政法人大阪産業技術研究所・和泉センター・主任研究員

研究者番号：90416248

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：鉄鋼とアルミニウムの摩擦攪拌接合時に形成する金属間化合物の形成挙動を明らかにし、金属間化合物形成の抑制方法を検討した。接合中における温度測定およびシミュレーション解析により接合中の温度分布を従来よりも正確に把握できた。また、接合界面の断面観察により、ツール加圧による鉄鋼の塑性変形が金属間化合物の成長に強く影響することがわかった。ワークへの加圧を回避する形状を有するツールを用いることで、鉄鋼の塑性変形量の低減および接合温度の低下が達成され、金属間化合物形成が抑制されることがわかった。強く影響することがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

車や飛行機、電車、ロボットなど動きを伴う製品の「軽量化」は、省エネ化、さらにはCO2排出量も削減することから、現代において特に高い社会ニーズとなっている。強度が求められるところには鉄鋼を、強度が求められないところには軽量材料を適用する適材適所化(マルチマテリアル化)は、製品を大きく軽量化できる技術である。本研究では、マルチマテリアル化において課題となっていた特性を異にする材料同士をつなげる技術をより高度化することに成功しており、社会のカーボンニュートラル推進に大きく貢献できる成果となっている。

研究成果の概要(英文)：Formation process of intermetallic compound in dissimilar friction stir welding (FSW) of aluminum between steel, and control method of its growth were investigated. More accurate temperature distribution during FSW was obtained by numerical simulation analysis and three types of welding temperature measurements. Through the cross-section observation of welds, it was indicated that the formation of intermetallic compound was strongly influenced by plastic deformation of steel caused by large down pressure of welding tool. It was found that new welding tool with a shape avoiding the large down pressure to the steel was beneficial to retarding the intermetallic compound growth due to decreases in the degree of plastic deformation of the steel and the welding temperature.

研究分野：溶接・接合

キーワード：摩擦攪拌接合 異種金属接合 鉄鋼 アルミニウム 金属間化合物 接合温度

1. 研究開始当初の背景

輸送機器分野における車両の軽量化は、環境問題対策や省エネルギー化を達成するための最重要技術の一つとなっている。その中で期待される技術が、従来の鉄鋼を主体とした構造に軽量材料を組み込む、いわゆるマルチマテリアル構造である。鉄鋼とアルミニウムの異種金属接合材は、実用性に富むマルチマテリアル構造体であるが、一般的な溶融溶接では、接合時に形成する脆弱な金属間化合物 (Intermetallic Compound: IMC) が接合材の機械的性質を劣化させるため、IMC の抑制が重要課題となっている。近年、接合温度が低い摩擦攪拌接合 (Friction Stir Welding: FSW) 技術を用いることにより IMC の形成が抑制され、接合界面で破断しない健全な異種金属接合材を作製できることが報告された。しかしながら、接合温度の低い FSW でも、接合条件によっては厚さ数 μm 以上の IMC の形成が起こり、さらに FSW 中の IMC 形成速度はその他の接合方法による速度よりも早く、むしろ IMC が形成しやすいという報告もある。このように、FSW 中の IMC 形成プロセスについてはいまだ不明な点も多く、異種金属 FSW 材に高い信頼性を付与するための学術的見解が求められている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、信頼性の高い IMC フリーの異種金属 FSW 材についての作製技術を確立することである。

IMC の形成を抑制するためには、FSW 中に IMC がどこでどのような状態の時にどれくらい形成するのか、すなわち IMC の形成メカニズムを明らかにすることが必要不可欠となる。IMC の形成メカニズムを考察するうえで、最も重要となるパラメータは接合温度である。本研究では、より正確な接合温度を実測するために FSW 中の温度測定方法を検討するとともに、有限要素法解析により FSW プロセスを模擬することで、IMC が形成される際の温度分布を明らかにする。さらに、接合界面の断面組織観察を行い、接合過程におけるどの場所でどの程度 IMC が形成されるのかを調査し、FSW 中の IMC 形成メカニズムを解明する。以上の研究結果を基に、より高品質な異種金属 FSW 材を作製する技術を考察・確立することを目指す。

3. 研究の方法

(1) 供試材

板厚 3mm の軟鋼板 (SS400) と純アルミニウム (A1050) を用いて接合を行った。

(2) 接合方法

図 1 に FSW の模式図を示す。FSW は、先端にプローブと呼ばれる突起を有する工具を高速で回転させながら材料に挿入し、工具の回転による摩擦熱と材料の塑性流動を利用した接合技術で、接合温度は溶融溶接よりも

はるかに低く、かつ加熱時間も短いことが特徴である。アルミニウム同士のような同種材を FSW する場合、FSW ツールのプローブ中心は接合線直上に配置される。一方、本研究のように鉄鋼とアルミニウムの異種金属 FSW の場合には、プローブが鋼板にわずかだけ接触する (接合界面とツールプローブ外周部までの距離をオフセットと呼ぶ) ようにツールを配置して接合する。また、図 1 に示すように、ツールを接合方向の後方側にやや傾けた状態 (前進角と呼ぶ) で接合を行うことが一般的である。FSW で制御できるパラメータは、ツール回転数、接合速度、オフセット量、前進角、押込み量、加圧力である。本研究では、ツール回転数 1800 rpm、接合速度を 100mm/min、前進角を 3 度および加圧力を 3tonf (設定値) で一定とし、その他のパラメータを変化させることで接合温度を変化させ、IMC 形成メカニズム調査用試料を作製した。接合ツールのショルダ径は 12mm で、プローブは長さ 2.9mm の M4 左ねじで、材質は SKD61 である。なお、オフセットはツールプローブ部が鉄鋼ワークの側面に接触する座標を基準として設定し、押込み量についてもツールショルダ部が鉄鋼ワークに接触した座標を基準として設定した。

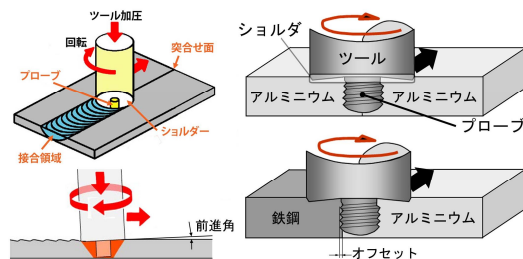


図 1 摩擦攪拌接合模式図

(3) 接合中の温度測定方法

FSW 中の主要な発熱は、ツールと鉄鋼ワークの接触によって起こると考えられる。図 1 に示すように、オフセットによりツールプローブは鉄鋼ワークを削る。また、前進角によりツールの接合方向に対して後方側のショルダ部は鉄鋼ワークを圧縮する。この 2 箇所を発熱部と考え、これらの温度をより正確に測定するために図 2 に示す 3 つの方法で温度測定を行った。ツールプローブ部の温度は、ツール内部に直径 0.8mm の穴を開け、直径 0.5mm の K 型熱電対先端をツールプローブ表面まで突出させて固定することによって測定した。熱電対の熱起電力の出力は、米国 MegaStir 社製の非接触遠隔測定システム (FSW-2000 Series telemetry system) を用い、Keyence 社製温度レコーダ (型番: NR-1000) を用いて収集した。ツールショルダ部の温度は、ツール後方から LUMASENSE TECHNOLOGIES 社製の二色放射温度計 (型番: IGAR12-LO, 測定温度領域: 300~1000) を用いて、ツールショルダ部とワーク接触部

近傍を測定した。

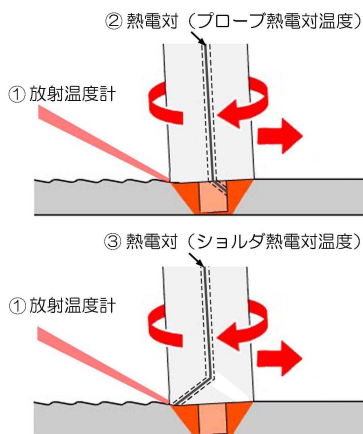


図 2 温度測定方法模式図

(4) 有限要素法解析による温度予測

有限要素法解析は、Simufact.forming 14.0.1.を用いて行った。解析モデルを図 3 に示す。ワークの鋼板モデルは、解析ソフトデータベース内の S15C を用いた。また、ワークは弾塑性体で厚さ 3mm、幅 20mm および長さ 30mm の直方体とし、メッシュは 6 面体で 8000 個とした。ツールとワークの摩擦係数は、クーロン摩擦係数 $\mu=0.27$ として解析を行った。このソフトによる有限要素法解析では、メッシュ間を自由に分離・結合できないため、接合ツール通過後の空間にメッシュを埋めることは不可能である。そこで接合中に塑性流動するアルミニウムは熱伝達率の高い流体と仮定し、アルミニウム自体の発熱は考慮せずアルミニウムは放熱のみに寄与するという設定で解析を行った。

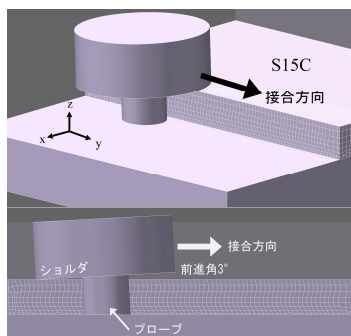


図 3 FSW の有限要素法解析モデル

(5) 接合材の断面組織観察による IMC 形成量評価

断面観察位置の模式図を図 4 に示す。図 4 中の のように、接合方向に対して垂直な断面による組織観察を行うとともに、同図 に示す接合終了付近の断面観察の実施により、IMC がどの場所でのどの程度形成しているのかを調査した。

4. 研究成果

(1) 接合中の温度解析結果

図 5 に、有限要素法解析による温度予測結果を示す。図 5(a)は鉄鋼ワーク側面からの視

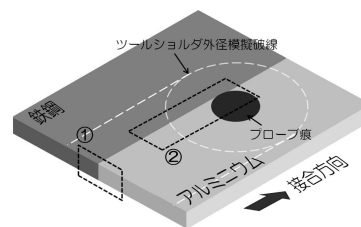


図 4 接合材の断面観察位置模式図

点の温度分布図であり、図 5(b)はツールショルダ外周部最下点を水平に切断した水平断面における温度分布図である。図より、ツールショルダ外周部は放熱によりツールプローブ部やツールショルダ直下よりも温度が低いことがわかる。また、ツールプローブ部とツールショルダ直下では、ショルダ部直下の接触部の温度がプローブ部温度よりも高くなっていることが認められた。これは、ショルダ部のほうがワークを塑性変形させる領域が多いためと予測される。これらの解析結果は、実測した温度測定結果の傾向と一致しており、IMC 形成メカニズムを解明するための有限要素解析方法の構築に成功した。

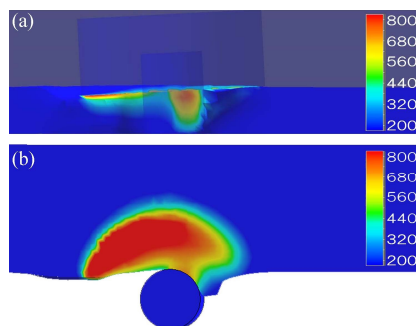


図 5 有限要素法解析による温度予測結果

(2) 接合材の断面組織観察結果

図 6 に、接合した試料の代表的な接合部断面の SEM 写真を示す。図より、接合界面の上部に SS400 が A1050 側に突き出した領域が認められる。この突き出し領域は、ツールのショルダ外周部がワークに強く接触することにより、SS400 が塑性変形したために形成されたと考えられる。そこで、IMC の形成挙動に及ぼす塑性変形の影響も調査するために、図に示すように接合上面から約 0.1 mm の深さまで研磨し、その研磨面における図 4 の領域を SEM 観察した。オフセット 0.2 mm、押込み量 0.4 mm で接合した試料の接合部マクロ組織を図 7 に示す。図より、プローブ痕中心より接合方向に対して後方側に約 2 mm 離れた位置から接合界面の位置が A1050 側に移動していることがわかる。これは、図 6 に示した SS400 の A1050 側への突き出し部に相当すると考えられる。そこで、接合界面が移動する前の領域 (P_s) と移動後の領域 (S_s) の接合界面組織を観察した結果を図 8 に示す。領域 P_s では $0.5 \mu\text{m}$ 以下の薄い IMC しか観察されないのに対し、領域 S_s では IMC 厚さが約 $1.5 \mu\text{m}$ まで増加していることがわかる。接

合ツールの通過過程における IMC の形成挙動を議論するために、プローブ痕中心からの距離 (d) と IMC 厚さ (w) との関係を調査した結果を図 7(b)に示す。図より、プローブ痕中心から 2 mm を超えたあたりにかけて IMC 厚さは放物線状に増加し、そこからさらに 4 mm を超えたあたりにかけても同様の傾向で増加した後、一定の値となる。つまり、接合中の IMC の形成は、初期のプローブ部近傍と後期のショルダ部近傍の二段階に分けられる。さらに、二段階目の IMC 厚さ増加領域は、接合界面が移動し始める領域、すなわち SS400 がショルダに押込まれて塑性変形し始める領域とおおむね一致しており、IMC 形成挙動が塑性変形に影響されていることが示唆された。

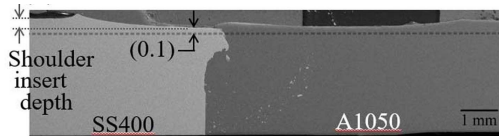


図 6 接合材の代表的な断面写真

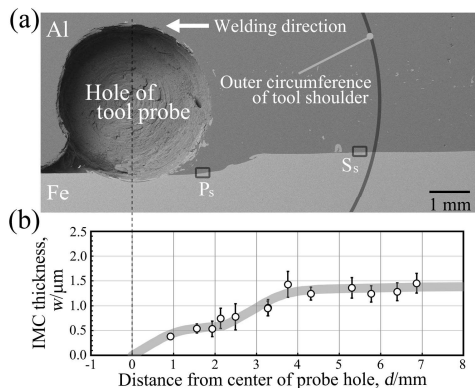


図 7 オフセット 0.2mm、押込み量 0.4mm で接合した試料の(a)断面 SEM 写真と(b)IMC 形成挙動

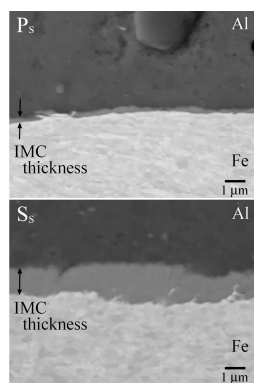


図 8 P_sおよび S_sにおける SEM 写真

(3) 鉄鋼とアルミニウムの FSW における IMC 形成の抑制技術の検討

前節より、鉄鋼の塑性変形が IMC 形成に寄与していることが示唆されたため、接合中に鉄鋼ワークを圧下させない形状のツールで接合を行い、IMC 形成挙動を比較した。図 9 に前節で使用したツール(標準ツール)と比較ツールの形状を示す。比較ツールのプロ

ーブ部の形状やショルダ径は標準ツールと同じであるが、ショルダ部は FSW 時、前進角 (3°) だけ傾けられた時に進行方向後方でワーク面と平行になるため、SS400 側に押込まない。

比較ツールを用いて、オフセット 0.2 mm、押込み量 0.4 mm で接合した試料の接合部マクロ組織と、その箇所でのプローブ痕中心からの距離 (d) と IMC 厚さ (w) との関係を図 10 に示す。比較ツールでは、標準ツールで観察されたような塑性変形による接合界面の A1050 側への移動現象は観察されなかった。図 11 には、図 10(a)の領域 P_c および S_c における接合界面組織を示す。標準ツールを使用した場合、P_s から S_s にかけて IMC 厚さが 1 μm 以上増加していたが、比較ツールでは、P_c から S_c にかけての IMC 厚さの増加は認められなかった。そこで、比較ツールにおいてもプローブ痕中心からの距離と IMC 厚さとの関係を調査した。その結果を図 10(b)に示す。標準ツールと同様に、比較ツールもプロ

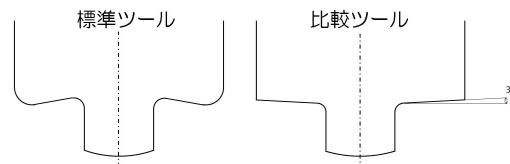


図 9 標準ツールと比較ツールの形状図

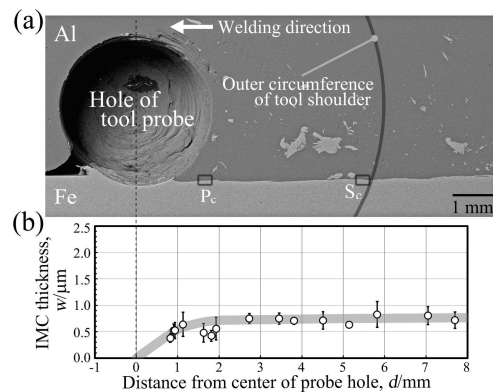


図 10 比較ツールを用いてオフセット 0.2 mm、押込み量 0.4 mm で接合した試料の(a)断面 SEM 写真と(b)IMC 形成挙動

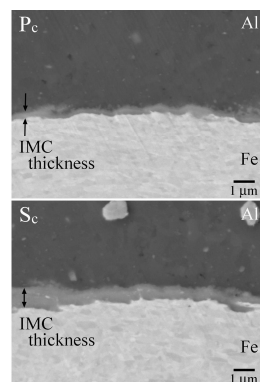


図 11 P_cおよび S_cにおける SEM 写真

ーブ痕中心から 2 mm を超えたあたりにかけて IMC 厚さは放物線状に増加しているが、それ以降の IMC 厚さの増加は認められなかった。以上のように、標準ツールでは SS400 の塑性変形に伴い二段階目の IMC 厚さの増加が観察される一方、比較ツールでは SS400 の塑性変形も IMC 厚さの増加も認められず、組成変形が IMC の形成挙動に強く影響することを示唆する結果となった。

(4) 鉄鋼とアルミニウムの FSW における IMC 形成機構の考察

異種金属の接合界面における拡散現象は、反応拡散と呼ばれており、反応相の厚さ $w(m)$ と加熱時間 $t(sec)$ との間には、式(1)のような放物線則が成り立つ。

$$w^2 = K \cdot t \quad (1)$$

ここで K はある温度における反応の速度定数 (m^2/s) であり、式(2) (Arrhenius の式) のような温度依存性を有する。

$$K = K_0 \cdot \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (2)$$

ここで、 K_0 は比例定数 (m^2/s)、 Q は活性化エネルギー (J/mol)、 R はガス定数 ($J/mol \cdot K^{-1}$)、 T は絶対温度 (K) である。そこで FSW 中に形成する IMC も、式(1)および(2)で表される反応拡散理論によって整理できるかを検討した。図 7(b) および図 10(b) の結果を基に、標準ツールと比較ツールの w の平方を時間的変化で整理した結果を図 12(a) および(b) に示す。標準ツールおよび比較ツールのいずれにおいても、接合開始から 1.5 秒後までは IMC 厚さが直線的に増加することがわかる。さらにその後も、ツール間で傾きは異なるものの、ともに直線的に増加することがわかる。これらは、FSW における IMC 形成過程も反応拡散理論に支配されることを意味する。そこで、式(2)に従い、各接合条件で解析された速度定数を温度の逆数で整理 (Arrhenius プロット) した。その結果を図 13 に示す。標準ツールのプローブ部およびショルダ部、さらには比較ツールのプローブ部は、比較的速度定数が高く一直線上に位置していることから、IMC 形成過程は同一機構であると考えられる。一方、比較ツールのショルダ部では、同じ温度のプローブ部に比べて速度定数が 1 桁から 2 桁小さく、直線の傾きも小さい。つまり、比較ツールのショルダ部の IMC 形成機構は標準ツールおよび比較ツールのプローブ部とは異なることがわかった。これまでの組織観察結果から、IMC 形成機構が異なるこの 2 つの領域の違いは、鉄鋼の塑性変形が伴う領域か否かである。つまり、鉄鋼の塑性変形によって IMC 形成速度が変化することを示唆している。そこで、過去に報告された種々の接合プロセスにおける IMC 形成機構を解析することで、鉄鋼の塑性変形の影響について検証する。図 13 には、本研究結果と合わせて、これまでに報告されているロール圧延後の熱処

理材 および拡散接合材 のデータも示している。また、沓名ら と小椋らは、鉄鋼とアルミニウムの異材接合において、アルミニウム中への鉄原子の拡散が律速過程となり IMC を形成すると報告していることから、アルミニウム中の鉄原子の反応拡散における速度定数と温度の逆数の関係 も同図中に示す。図 13 より、IMC の形成機構が接合プロセスの違いによって 3 つに分類される。ロール圧延後の熱処理材は、最も低い速度定数および傾きを示しており、アルミニウム中の鉄原子の拡散を表した直線とよい一致を示す。一方、拡散接合材および本研究における比較ツールのショルダ部は、ロール圧延後の熱処理材よりも高い速度定数および傾きを示す。また、本研究における標準ツールおよび比較ツールのプローブ部は、さらに高い速度定数および傾きを示す。以上のように、一部の結果では IMC 形成機構の律速過程がアルミニウム中への鉄原子の拡散機構と一致するが、本研究結果を含む多くの結果では、これよりも高い速度定数を示す拡散機構となり、温度から予測される従来の拡散機構では整理することができない。すなわち、IMC の形成機構が温度以外の因子に律速されることを示唆している。Cohen らは、金属材料では塑性変形による転位密度の増加によって拡散現象が促進すること、さらにその促進の程度は必ず

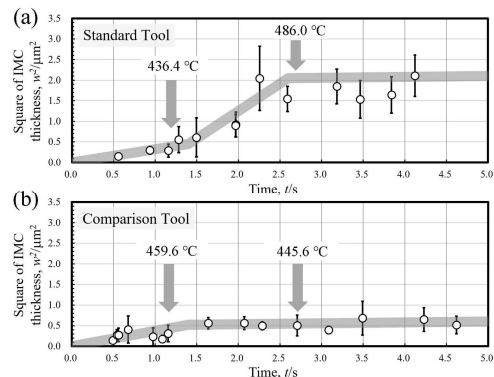


図 12 標準ツールと比較ツールで形成する IMC 厚さと時間との関係

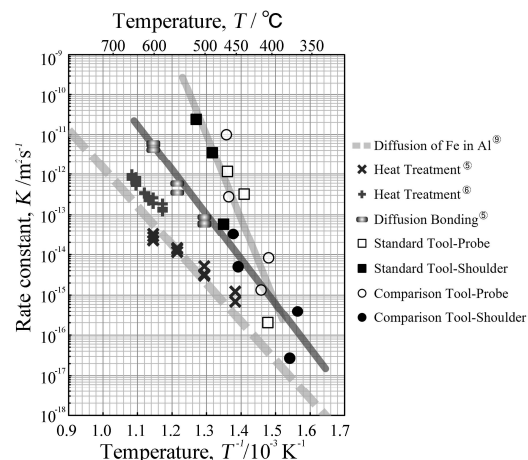


図 13 本研究における IMC 形成反応の速度定数と温度の関係

み速度に比例し，温度に反比例することを報告している．そこで，各接合プロセスにおける反応拡散中の塑性変形およびひずみ速度に着目して考察する．ロール圧延後の熱処理材では，塑性変形後に熱処理を行うことから，熱処理中に塑性変形は起こらず，圧延によって導入された格子欠陥や転位も逐次消失するため，拡散現象は促進されず，従来モデルの拡散機構に律速されると考えられる．及川らが行った冷延鋼板と A1050 の拡散接合では，接合中に塑性変形が進行する．そのときのひずみ速度を接合時間と変位量から計算すると，A1050 側で約 $2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ ，冷延鋼板側で約 $1 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ と推定される．したがって，拡散接合では，ロール圧接後の熱処理よりも高い速度定数を示すと考えられる．FSW 中のひずみ速度については，森貞ら が A1050 の塑性流動を高輝度 X 線透過装置によって解析しており，ひずみ速度は最大 14 s^{-1} になることを報告している．鉄鋼とアルミニウムの FSW における鉄鋼側のひずみ速度を解析した研究報告はないが，本研究では 1800 rpm のツール回転および 100 mm/min の接合速度により変形が進むことを考慮すれば，その時のひずみ速度は，拡散接合よりも著しく高いことが予想される．以上のように IMC の形成機構の差異は各接合プロセスのひずみ速度によって整理できる可能性がある．本研究で実施した FSW は，標準ツール，比較ツールともにツール回転数や接合速度は同じであるため，攪拌している A1050 のひずみ速度においては，ツール形状による差は大きくないにも関わらず，ツール間で IMC 形成機構が異なっていたことを考慮すると，アルミニウムよりも鉄鋼のひずみ速度のほうが，IMC 形成機構により支配的に影響していると考えられる．

以上のように，鉄鋼とアルミニウムの FSW 中に形成する IMC を抑制するためには，接合温度の制御に加えて接合時の材料のひずみ速度を抑制することが重要であることがわかった．

< 引用文献 >

- 福本ら：溶接学会論文集，**22** (2004)，309.
田中ら：溶接学会論文集，**29** (2011)，101.
大西ら：日本金属学会会報，**18** (1979)，174.
伊藤ら：日本機械学会論文集 A 編，**64** (1998)，494.
及川ら：鉄と鋼，**83** (1997)，641.
迎ら：溶接学会論文集，**12** (1994)，528.
杵名ら：溶接学会論文集，**21** (2003)，282.
小椋ら：溶接学会誌，**87** (2018)，16.
D.L. Beke. et al.: Philo. Mag. A, **55** (1987)，425.
M. Cohen ら：日本金属学会会報，**9** (1970)，271.
Y. Morisada. et al.: Scripta Mater., **106** (2015)，57-60.

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

田中努，内田壮平，平田智丈，走査電子顕微鏡による結晶方位解析を利用した極微小領域の結晶解析，大阪府立産業技術総合研究所報告，**30** (2016)，15-19.

T. Tanaka, M. Nezu, S. Uchida, T. Hirata, Mechanism of intermetallic compound formation during the dissimilar friction stir welding of aluminum and steel, J Mater. Sci., **55** (2020)，3064-3072.

田中努，根津将之，内田壮平，平田智丈：軽金属，**70** (2020)，503-509.

〔学会・セミナー・展示会発表〕(計 6 件)

田中努，根津将之，内田壮平，平田智丈，アルミニウムと鉄鋼の異材摩擦攪拌接合における金属間化合物形成過程，溶接学会平成 29 年度秋季全国大会，2017/9/11 ~ 2017/9/13，北九州

田中努，四宮徳章，白川信彦，根津将之，内田壮平，平田智丈，アルミニウムと鉄鋼の異材摩擦攪拌接合過程における温度解析，第 68 回塑性加工連合講演会，2017/11/10 ~ 2017/11/11，福井

田中努，根津将之，内田壮平，平田智丈，異種金属摩擦攪拌接合材における金属間化合物の抑制技術の開発，大阪産業技術研究所 ORIST 技術シーズ・成果発表会，2017/12/8，大阪

田中努，摩擦攪拌接合 (FSW)，大阪産業創造館【テクニカルセミナー】金属接合 DAY ものづくりを変える接合技術，2019/11/5，大阪

田中努，摩擦攪拌を利用した異材接合，高機能材料 week 2020，2020/10/7，大阪

田中努，根津将之，内田壮平，平田智丈，摩擦攪拌接合により異種金属接合を高度化，産業技術支援フェア in KANSAI 2020，2020/12/4，大阪

〔特許〕(計 1 件)

田中努，平田智丈，根津将之，内田壮平，摩擦攪拌接合ツール及び摩擦攪拌接合方法，特開 2021-62376

6 . 研究組織

(1)研究代表者

田中 努 (TANAKA TSUTOMU)
地方独立行政法人大阪産業技術研究所金属材料研究部・主任研究員
研究者番号：90416248