

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 4 月 22 日現在

機関番号：14401

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23575

研究課題名(和文) 摩擦攪拌現象中のツール摩耗を利用した局所的元素添加手法の確立

研究課題名(英文) Development of local surface alloying method using tool wear during friction stir processing

研究代表者

山本 啓 (Yamamoto, Hajime)

大阪大学・接合科学研究所・助教

研究者番号：00842577

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：摩擦攪拌プロセス(FSP)は、回転ツールを利用した金属材料の表面改質手法である。鉄鋼材料に代表される高強度金属のFSPにおいて、ツールの摩耗は不可避な問題であり、実用化するうえでの大きな障害となっている。本研究では、FSP中のWCツールの摩耗によって種々の鉄鋼材料へ供給されたツール構成元素が、その後の組織形成に及ぼす影響を解明し、当該現象の逆活用による新規固相合金化プロセスとしての基礎を確立した。また、ツール構成元素の合金化機構を明らかにするために、FSP中のツール/鋼界面の凍結を試み、WC粒子と鋼側のFeの反応により生じた化合物層の破碎・分解を経て、WとCが鋼中固溶されることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

多くの研究者が“摩耗しないツール”の開発に注力するばかりで、摩耗したツール材と鉄鋼材料との間で生じる組織変化に着目した研究自体がほとんどなく、本研究はFSP中に生じるツール側の組織変化から鋼側への元素移動までを材料科学的に詳細に捉えた最初の研究となった。また、本現象を逆活用することにより、鋼構造物中の所望の領域に対してのみ、高疲労強度や高耐摩耗性を付与することが期待でき、ひいては製品設計上の材料選択における自由度の大幅な拡大が実現可能であると考えられる。

研究成果の概要(英文)：Friction stir processing (FSP) is an effective surface modification technique to refine and homogenize microstructures in a solid state for various metallic materials. However, the tool wear has been considered as the unavoidable issue in FSP of high strength materials. In this study, the effects of tool constituent elements added to several steels due to WC tool wear during FSP on the microstructural evolution were investigated, and a new alloying process was developed based on the phenomenon. In addition, in order to clarify the alloying mechanism, a tool/steel interface frozen during FSP was observed. It was found that the compound layer was generated by the reaction of WC particles and Fe atoms on the steel side and decomposed under high temperature and high pressure, followed by the W and C dissolution into the steel matrix.

研究分野：溶接・接合工学

キーワード：摩擦攪拌プロセス ツール摩耗 表面合金化 炭化タングステン 鉄鋼材料 固溶 界面反応 メカニカルアロイング

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

金属材料を接合する手法のひとつとして、摩擦攪拌接合(Friction stir welding: FSW)が注目されている[1]。FSWは、高速回転させたツールと呼ばれる棒状工具を表面に押し付けることで生じる摩擦熱と塑性変形を利用した固相接合法である。その接合部は、動的再結晶によって超微細粒組織となるため、場合によっては母材よりも高い強度を示す。またその特徴を生かし、表面改質のために応用した摩擦攪拌プロセス(Friction stir processing: FSP)[1]は、所望の局所領域に対して組織の微細化・均質化が可能な他に類のない技術として知られている。

軟質なアルミニウム合金の施工から始まった FSW/FSP は、ツールの材料特性や形状の改良によって、現在では鉄鋼材料のような高強度金属にまで適用範囲を拡大している。しかしながら、鉄鋼材料の FSW/FSP においてツールの摩耗は依然として不可避な問題であり、良好な加工品質を維持するうえで大きな障害となっている。一方、本研究にて着目するのは、このときに鉄鋼材料中に分散されるツール構成元素の存在である。多くの研究者が“摩耗しないツール”の開発に注力するばかりで、摩耗したツール材と鉄鋼材料との間で生じる組織変化に着目した研究は国内外ともにほとんどない。その数少ない研究事例[2]では、FSW 中に BN 製ツールから供給された B が、ステンレス鋼マトリックスとの反応によって Cr ホウ化物の形成に寄与し、耐食性の低下を生じ得るというネガティブな結果を報告している。しかしながら、著しい塑性変形と元素の移動が同時に起こる本現象は、局所領域へのメカニカルアロイングとして捉えることができ、ツール材と鋼材の組合せによっては、材料特性改善のためのポジティブな結果へと転換できる可能性を秘めている。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、FSP 中のツール摩耗によって種々の鉄鋼材料へ供給された元素がその後の攪拌部における組織形成と材料特性に与える影響を解明し、鉄鋼材料の高強度化・高機能化を達成するための新しい元素添加手法を確立することである。

## 3. 研究の方法

供試材料には、低炭素鋼板 SM490A、フェライト系ステンレス鋼板 SUS430、オーステナイト系ステンレス鋼板 SUS304 を使用した。各鋼板表面に対し、ツール移動速度 100 mm/min 一定で、種々の回転速度に変化させた FSP を施工した。FSP ツールは WC 系超硬合金製で、先端はフラット型を採用した。

SM490A においては、FSP 中のツールと鋼の界面での反応を凍結するため、ストップアクション法と水急冷を同時に適応した。水槽に固定した鋼板上でツールが走行距離 50 mm 地点に到達した際に回転と走行を急停止させ、同時に水槽に水を注ぎ込むことでツールと鋼板を接触させたまま急冷した。

各試料の観察には、光学顕微鏡(Optical microscopy: OM)、走査型顕微鏡(Scanning electron microscopy: SEM)、及び透過型顕微鏡(Transmission electron microscopy: TEM)を用いた。加えて、それらの付属機器を用いたエネルギー分散型 X 線分析(EDS: Energy dispersive X-ray spectroscopy)及び電子線マイクロアナライザ(EPMA: Electron probe microanalyzer)による元素分析を行った。また、組織形態及び元素分布が強度特性に及ぼす影響について評価するため、ビッカース硬度試験を荷重 49 mN、保持時間 15 s で行った。

## 4. 研究成果

### 4. 1 低炭素鋼板 SM490A におけるツールの摩耗と元素供給機構の解明

低炭素鋼板 SM490A に対するツール構成元素の供給量を明らかにするために、FSP 施工後の鋼断面表層に対して EPMA による元素分析を行った。回転速度 600~1000 rpm における母材の平均化学組成と比較した W, C, Ni, Cr 濃度の増加量分布を図 1 に示す。ツール回転速度(摩耗量)の増加に伴って、鋼表層に供給されるすべてのツール構成元素量が増加した。特に W と C の増加量は、Ni と Cr の増加量よりもはるかに大きかった。これらの比率はツールを構成している WC 粒子とバインダーの割合に近く、摩耗したツールの元素が損失することなく、そのほぼ全量が鋼側に移動したことを意味している。

代表として、回転速度 900 rpm において得られた FSP 施工部表層について、ツール構成元素の供給による組織形成への影響について詳細な観察を行った。その SEM 反射電子(Backscattered electron: BSE)像、EPMA-W マッピング像、ならびに TEM による明視野(Bright-field: BF)像と EDS-W マッピング像を合わせて図 2 に示す。BSE 像上で明るいコントラストを呈している表層では、EPMA-W マッピング像のように W をはじめとするツール構成元素が供給された領域である。またその濃度は、表面に近づくにつれて高濃度となっていることがわかった。濃度の異なる各深さ領域における TEM 観察を試みたところ、最高濃度を示す極最表面の BF 像上において、微細なマルテンサイトマトリックス内に暗いコントラストの球状粒子が観察された。これらの球状粒子に対して EDS による定量分析を行ったところ、Fe に対して W が 10

～30 at.%含有していた。一方で、極最表面より下側の領域では、それら球状粒子や析出物も観察されず、FSP 中に供給されたツール構成元素が全量マルテンサイト中に固溶していることが明らかとなった。

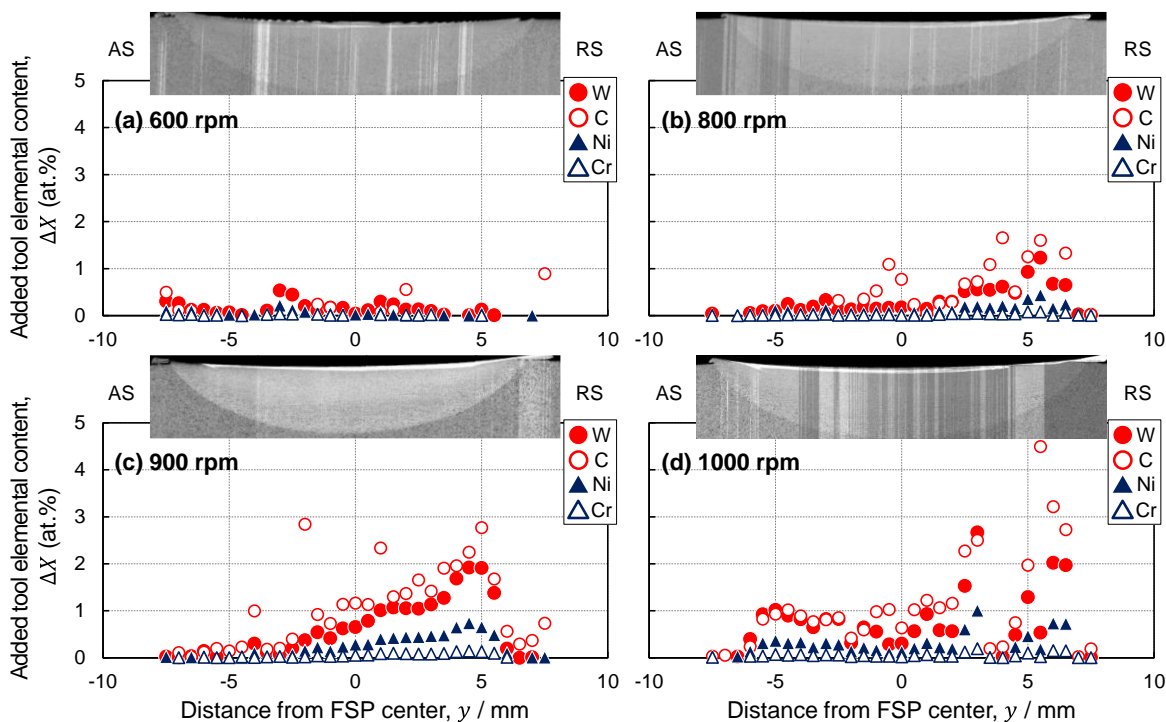


図1 ツール回転速度(a)600, (b)800, (c)900, (d)1000 rpmにおけるFSP施工部表層に供給されたツール構成元素の濃度分布。

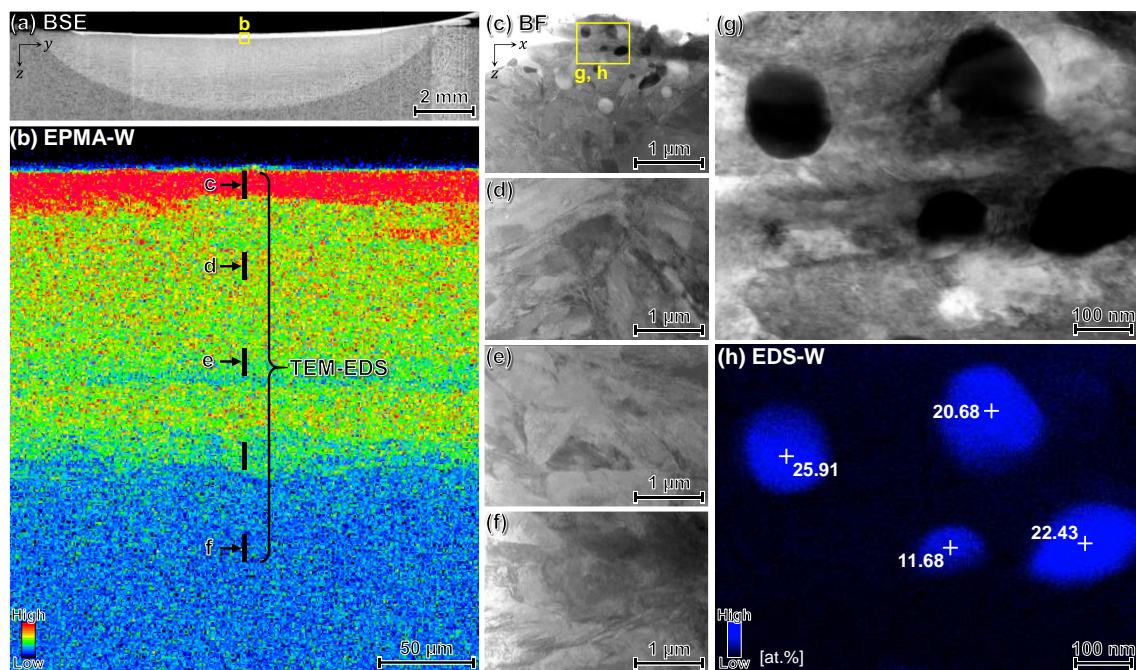


図2 ツール回転速度 900 rpm における FSP 施工部表層の(a)BSE 像, (b)EPMA-W マッピング像, (c-g)TEM-BF 像, (h)EDS-W マッピング像。

FSP 中に供給されたツール構成元素の濃度と硬度との関係を明らかにするため、図 2b の視野内において濃度の定量分析とピッカース硬度試験を行った。その結果を表面から深さ方向における分布として図 3 に示す。各元素濃度は表面に向かうにつれて増加しており、それに対応して硬度も焼入れした母材よりはるかに高い値となった。また、図 3a 内の赤丸マークは TEM-EDS によりマルテンサイトラス内で得られた W 濃度を示しており、W-rich な球状粒子を有する極最表面を除いて、EPMA により得られた結果と良い一致を示している。同様に、他の元素もまたマルテンサイトマトリックス中に完全に固溶していると思なすことができ、マルテンサ

イト粒径に大きな違いが見られなかったことから、本手法における主要な強化機構は固溶強化であることが示唆された。各元素の濃度増加量と硬度増加量との関係について、重回帰分析を行った結果、C濃度増加に係わる硬度上昇の寄与が最も大きかった。Cの侵入型固溶が鋼の硬度上昇に有効であるのは、一般的に知られている。一方で、WのそれはCの5分の1程度ではあるが、置換型固溶でありながら最大で130 HV以上の増加に寄与している点は注目し値する。

FSP 施工面表層における上記の W 及び C を主体とする固溶強化の発現に至るまでの元素供給機構について明らかにするために、FSP 中にストップアクション法と水急冷を同時に適用し、組織変化を凍結したキーホール試料におけるツール/鋼界面を調査した。ツール回転速度 900 rpm のキーホール試料の上面 OM 像、縦断面 BSE 像、EPMA-Fe, W, Ni マッピング像を図 4 に示す。図 4a 及び b 上の緑の破線で囲まれた部分は、FSP 中に鋼中に埋入していたツールがストップアクションによる衝撃で破砕し、そのまま残存したものである。そのツール/鋼界面における高倍率 EPMA 結果から、鋼側にはツール構成元素の移動がみられ、同時に鋼側の Fe はツールの Ni 基バインダー部分を介して内部へと拡散侵入(Layer 1)していた。また、界面近傍の幅数  $\mu\text{m}$  程度の領域では Fe と W を主に含む反応層(Layer 2)が観察され、 $\mu\text{-XRD}$  測定の結果から、Layer 2 の領域からは  $\text{Fe}_4\text{W}_2\text{C}$  のパターンが検出された。また、界面近傍ではツールから鋼側へ  $\text{Fe}_4\text{W}_2\text{C}$  粒子が離脱する様子が観察された。

900 rpm の条件におけるツール/鋼界面の TEM-EDS 結果を図 5 に示す。ツール原質部である WC 粒子と鋼との間には、 $\text{Fe}_4\text{W}_2\text{C}$  相と部分的に鋼と同様の化学組成を有する領域で構成された反応層が観察された。 $\text{Fe}_4\text{W}_2\text{C}$ /鋼間で摩擦が生じている界面を元素分析すると、両者の元素が約 100 nm 程度の幅で移動していることがわかった。したがって、鋼側の Fe と WC 粒子の反応によって生じた  $\text{Fe}_4\text{W}_2\text{C}$  粒子は、ツール直下でオーステナイトと機械的に混合されて W と C に分解し、ツール通過後に変態したマルテンサイト中に両元素が強制固溶されたと推察される。加えて、鋼側へ離脱したそれら  $\text{Fe}_4\text{W}_2\text{C}$  粒子は、FSP の攪拌効果によってさらに溶解が加速する可能性が示唆された。

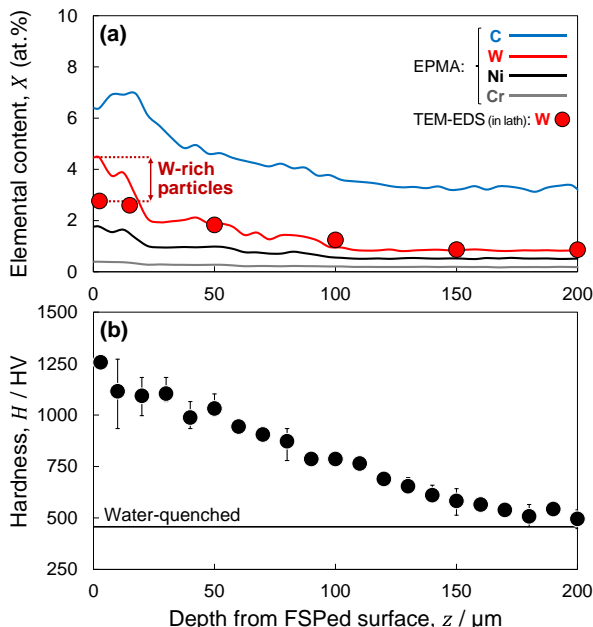


図 3 ツール回転速度 900 rpm の FSP 施工面表層における(a)元素濃度と(b)硬度分布。

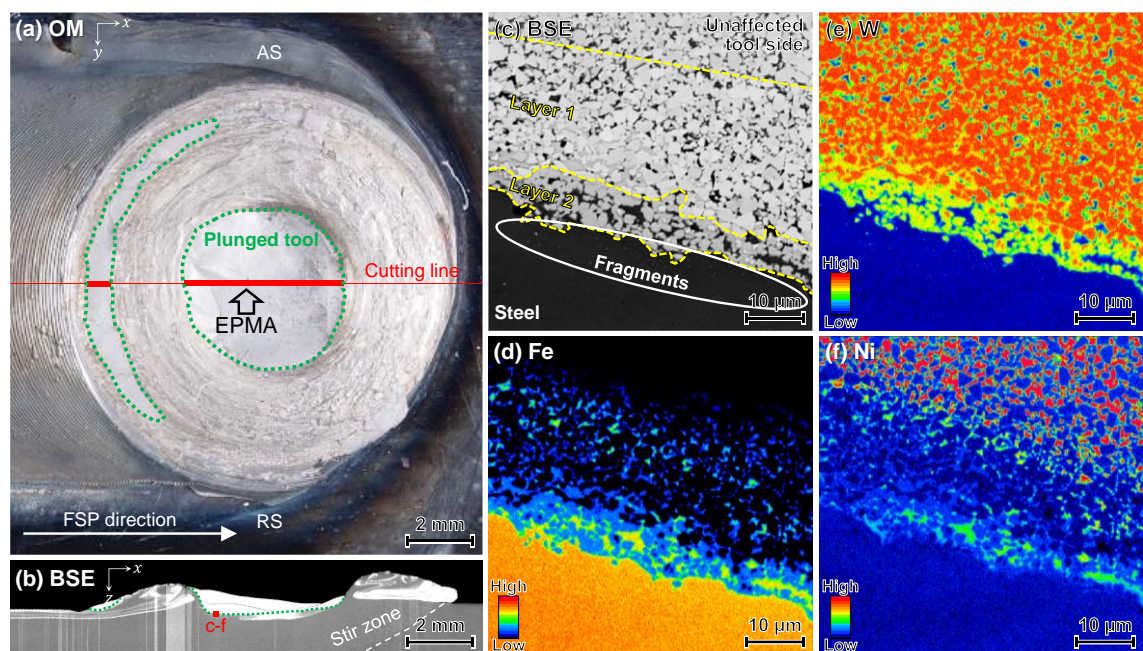


図 4 ストップアクション法+水急冷によって FSP 中の組織変化が凍結された回転速度 900 rpm におけるキーホール試料の(a)上面 OM 像、(b-c)縦断面 BSE 像、(d)EPMA-Fe、(e)W、(f)Ni マッピング像。

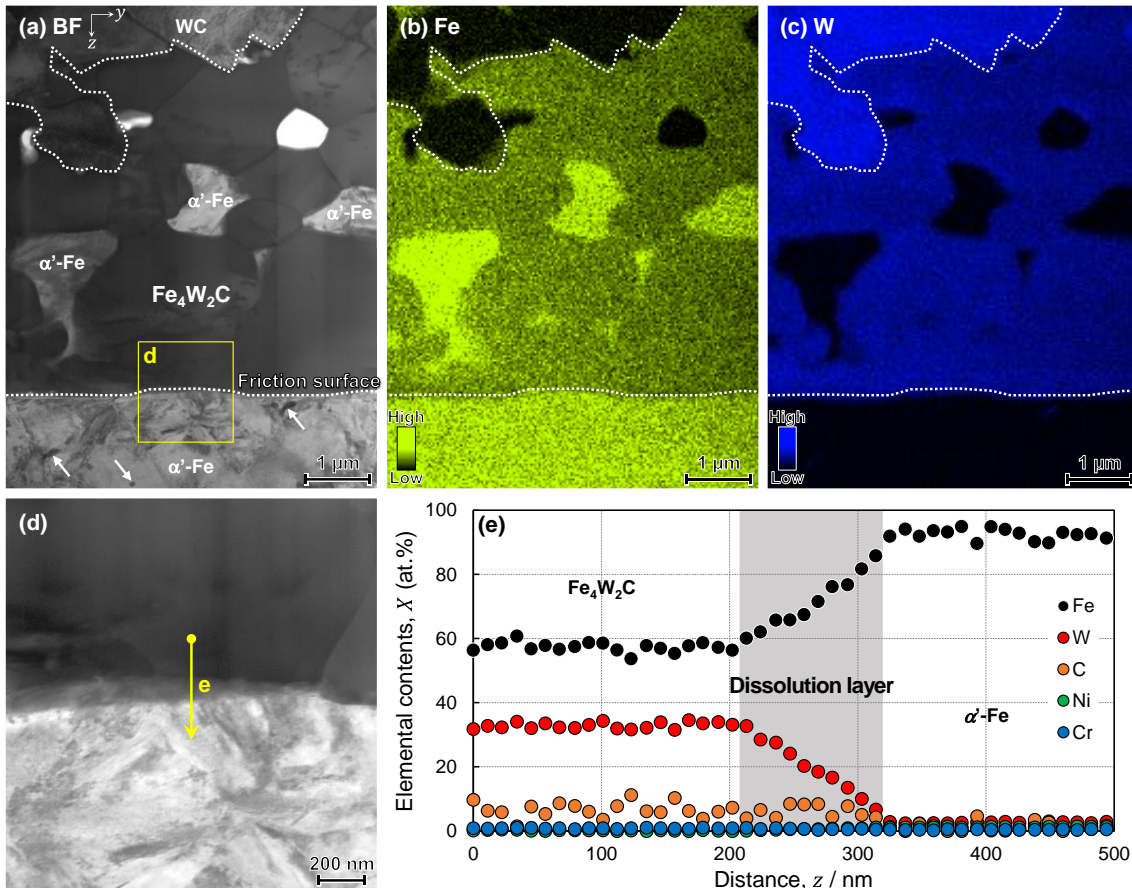


図 5 回転速度 900 rpm におけるキーホール試料のツール/鋼界面における(a)TEM-BF 像, (b)EDS-Fe, (c)W マッピング像, (d)高倍率 BF 像, (e)d 中で得られた EDS 定量線分析結果.

#### 4. 2 ツール元素供給量に及ぼす鋼種の影響

4. 1 において示した低炭素鋼板 SM490A の場合には, FSP 中にフェライト相からオーステナイト相への変態が生じていたが, 市販の鋼種の間には, Cr 及び Ni 当量を変化させることによりフェライトあるいはオーステナイト単相のまま室温から融点まで安定なステンレス鋼も存在する. そこで, 本手法による元素供給量に及ぼす鋼種の影響についても調査した.

同一条件(回転速度 900 rpm, 移動速度 100 mm/min)で FSP を施工した各鋼種に対するツール構成元素の供給範囲および供給量を明らかにするために, FSP 施工後の鋼板断面に対して EPMA による元素分析を行った. 母材の平均化学組成と比較した W, C, Ni, Cr 濃度の平均増加量を図 6 に示す. 全元素の増加量は, SM490A が 1.91 at.%, SUS304 が 1.09 at.%であったのに対して, SUS430 が 0.25 at.%と極端に少なかった. また, W と C の増加量は, それぞれ SM490A が 0.79 at.%と 0.86 at.%, SUS430 が 0.12 at.%と 0.09 at.%, SUS304 が 0.51 at.%と 0.47 at.%であり, 増加量に大きな違いがみられるが, いずれの鋼種においても両元素は同程度の比率で供給されていた. 本研究期間において, これら鋼種間におけるツール構成元素供給量に差異が生じた要因を明確化するまでは至らなかったが, ツール/鋼間で生成される反応層の形態や量, あるいは FSP 中の温度履歴や鋼の変形抵抗等の違いが関係したと推察している.

以上のように, FSP 中の WC ツールの摩耗により, 鋼種に応じた元素供給量の違いはあるものの, 従来では実現し得なかった固相合金化プロセスへの展開が開かれた. 本研究にて得た知見を活かし, 鋼種とその用途に応じたツール材や施工条件の最適化により, 鉄鋼材料表面の更なる高機能化・高強度化に資する技術へと発展できるものと考えている.

<引用文献>

- [1] R.S. Mishra *et al.*: Mater. Sci. Eng. R, Vol. 50 (2005) pp. 1-78.
- [2] S.H.C. Park *et al.*: Metall. Mater. Trans. A, Vol. 40 (2009) pp. 625-636.

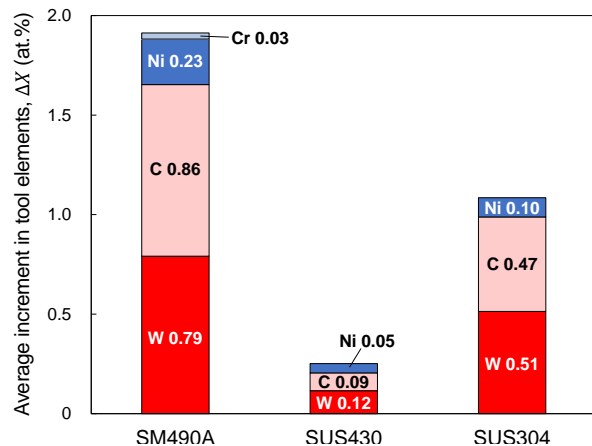


図 6 SM490A, SUS430, SUS304 の FSP 施工 面表層におけるツール構成元素の平均増加量.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 山本 啓, 今川雄大, 伊藤和博
2. 発表標題 摩擦攪拌プロセスによるWCツール構成元素の鋼中固溶機構
3. 学会等名 一般社団法人 溶接学会 2021年度春季全国大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本 啓, 今川雄大, 伊藤和博
2. 発表標題 摩擦攪拌プロセスによるWCツール構成元素の鋼中固溶機構
3. 学会等名 公益社団法人 日本金属学会 2021年春期(第168回)講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hajime Yamamoto, Yudai Imagawa, Kazuhiro Ito
2. 発表標題 Investigation of WC-tool-component solution mechanism arose in a steel surface layer during friction stir processing
3. 学会等名 IIW 2021 Intermediate Meeting of Commission IX (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yudai Imagawa, Hajime Yamamoto, Kazuhiro Ito
2. 発表標題 Travel distance of stable WC-tool-wear related W alloying varying with friction stir processing parameters on low-carbon steel plates
3. 学会等名 The 5th International Symposium on Visualization in Joining & Welding Science through Advanced Measurements and Simulation (Visual-JW 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今川雄大, 山本 啓, 伊藤和博, 三上欣希, 藤井英俊
2. 発表標題 摩擦攪拌プロセスによるWCツール構成元素の低炭素鋼表面への供給とその組織形成に及ぼすツール摩耗挙動の影響
3. 学会等名 一般社団法人 溶接学会 2019年度秋季全国大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 今川雄大, 山本 啓, 伊藤和博, 三上欣希, 藤井英俊
2. 発表標題 摩擦攪拌プロセスによるWCツール構成元素の低炭素鋼表面への供給とその組織形成に及ぼすツール摩耗挙動の影響
3. 学会等名 公益社団法人 日本金属学会 2019年秋期(第165回)講演大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関