

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 4 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656443

研究課題名(和文) 固相流動現象の可視化技術を活用した構造物の選択的部分強化改質技術の開発

研究課題名(英文) Development of partial modification technology of structures based on visualization of the solid phase flow phenomenon

研究代表者

藤井 英俊 (Fujii, Hidetoshi)

大阪大学・接合科学研究所・教授

研究者番号：00247230

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：母材上に異なる種類の粉末を塗布した後、高速回転する円柱状の工具を押し当てながら移動させることで摩擦熱を発生させ、「摩擦一分散 拡散一変態」や「攪拌一分散一拡散一固溶一析出」等の複雑な固相反応を1プロセス中で行い、その部位の特性を大幅に向上させる手法を確立した。本手法により例えば、成形性の良い素材で大型構造物を製作した後、必要に応じて任意の場所を高強度化し、構造物全体の機械的特性を維持する斬新なプロセスを構築することが可能となった。

「攪拌一分散」に関しては、2つのX線源を用いた世界で初めてとなる三次元固相流動可視化システムを構築し、Al合金および鉄鋼材料に対して、試料内の流動を直接観察した。

研究成果の概要(英文)：A new technology in which the characteristics of a part of a structure are significantly improved by one process, has been developed. In this method, the properties are improved at any place for any materials in a very short period. After manufacturing a large-sized structure using a material with a sufficient formability, arbitrary places can be strengthened with this technique to maintain the mechanical properties of the whole structure.

For "stirring-dispersion", the three-dimensional solid phase flow visualization system has been developed using two X radiation sources in order to directly observe the flow in aluminum and ferrous alloys. Thereby, the defect formation mechanism was clarified and the process was optimized.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・材料加工

キーワード：摩擦攪拌接合 三次元可視化 部分改質 析出強化 変態 X線

1. 研究開始当初の背景

摩擦攪拌接合 (FSW) は、回転ツールと呼ばれる 15 程度の円柱状の工具を、1000rpm 程度の高速で回転させながら被接合材に押し当てることにより摩擦熱を発生させ、その熱を利用して接合する方法である。

この手法は、固相状態で接合を行うプロセスであり、回転ツールによる強ひずみ加工と、摩擦熱に伴う昇温による動的再結晶の発現により、極めて微細な結晶粒が得られ、接合部の機械的特性が向上するという特徴がある。このため、開発されてまもなく Al 合金の接合に対して幅広い産業分野で用いられるようになった。(摩擦攪拌接合-FSW のすべて(2006)産報出版 p13)

しかしながら、現状では摩擦攪拌接合の適用範囲は Al 合金に限られており、鉄鋼材料などの高融点材料に関しては、現在でも大阪大学接合科学研究所など世界中で限られた研究機関で成功しているのみである。(H.Fujii et al, Mater. Sci. Eng. A, 429 (2006) 50-57) これに対し本研究代表者らは、2600 を超す融点を有するモリブデンの摩擦攪拌接合技術を確立するなどの成果をおさめている (H.Fujii, et al, Scripta Mater., 64 (2011) 657-660.)

2. 研究の目的

構造物の任意の一部を材料を選ばずにかつ短時間で高強度化できる新規改質技術を確立する。母材上へ異なる種類の粉末を塗布した後、高速回転する円柱状の工具を押し当てながら移動させることで摩擦熱を発生させ、「攪拌-分散-拡散-変態」あるいは「攪拌-分散-拡散-固溶-析出」等の複雑な固相反応を 1 プロセス中で行い、その部位の特性を大幅に向上させる。これにより例えば成形性の良い素材で大型構造部を製作した後、必要に応じて任意の場所を高強度化し、構造物全体の機械的特性を維持する手法を可能とする。

特に「攪拌-分散」に関しては、2 つの X 線源を用いた 3 次元固相流動可視化システムを構築し、試料内の流動を直接観察することでプロセスの最適化を図る。

3. 研究の方法

本研究では、これまでの発想を大きく転換・発展させ、本来、接合に用いられる摩擦攪拌プロセスを素材あるいは構造物の部分改質の目的で用いた。すなわち、本プロセスが固相プロセスであり、回転ツールによる攪拌効果および昇温効果があることに着目した。

具体的には、図 1 に示すように、改質すべき構造物上へ、それとは異なる材質の粉末を塗布した後、前述の円柱状の工具を押し当てながら移動させ、昇温することで、その部位

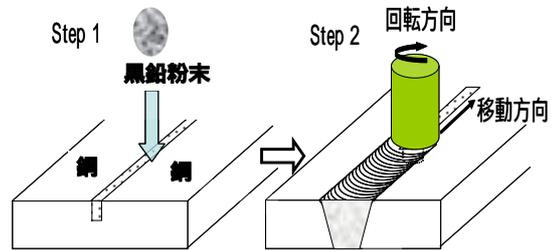


図 1 選択的部分強化改質技術の模式図

(FSPP: Friction Stir Powder Processing)

の機械的特性を大幅に向上させる。

例えば、鉄鋼材料に対しては炭素粉末、Al 合金に対しては Cu 粉末が例として挙げられる。これにより、1 プロセスの中で、「攪拌分散 拡散 変態」、あるいは「攪拌 分散 拡散 固溶 析出」等の複雑な固相反応をすべて行うという学術的にも斬新な方法で、上記の目的を達成する。

3. 研究成果

ギャップ幅 2mm に純 Cu 粉末を添加し、1500rpm-400mm/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。

その結果、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、純 Cu 粉末が分布している領域は、コントラストに違いがあり、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においては、白色のコントラストの Cu 粒子が、Al 基材中に凝集することなく分散した。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 : 32 μm) 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。

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において、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樣に分布し、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

を行ったところ、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、Al 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た。

FSPP を用いた合金化プロセスは「強化材そのものをマトリ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。

次に、Al に対して固溶度のほとんどない純 Fe 粉末をギャップ幅 2mm に添加し、FSPP を行った。接合方向に垂直な断面マクロ観察の結果、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った。1500rpm-100mm/min-2pass の条件下で得られた攪拌部では、比較的明るいコントラストを持つ Fe 粒子が観察され、Al 基材中に凝集することなく分散していた。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 : 33 μ 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。

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 $Al_{13}Fe_4$ 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した。FSPP 中には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。

このように、突き合わせ部に発生してしまうギャップに、粉末を添加して摩擦攪拌プロセスを行う摩擦攪拌粉末プロセス (FSPP) を用いて、界面に形成する欠陥を大幅に低減する手法を確立した。また、固溶度が非常に小

さい Fe 粉末を Al 中に添加しても、FSW 特有の現象が生じることで析出強化合金の作製が可能である。また、粉末を充填するだけという比較的簡単な方法で微細な金属間化合物を様に析出させ、攪拌部の強度を向上させることができる FPP は部分合金化プロセスとして有効であると言える。

本研究では、塑性流動の 3 次元可視化のために、高輝度 X 線透過システムを用いた新規システムも構築した。高輝度 X 線透過システムは、X 線発生装置と高速応答 X 線イメージインテンシファイア (以下、「X 線 I.I.」) から構成される結像系を 2 組有し、X 線発生装置及び X 線 I.I. は自在に位置を制御できる 4 台の多関節ロボットに担持されている。これにより、自由度の高い透視位置設定が可能となり、水平方向と垂直方向の斜め透視を行うことができる。フレーム同期した異なる 2 方向からの透視画像は高速度カメラに記録され、得られたステレオ画像をデータ処理することによって関心物体 (例えば、金属球及び球状ポロシティ等) の空間上の位置を三次元に把握し、当該位置を高速度の時間間隔で画像化することができる。

FSW 装置は高輝度 X 線透過システム用に設計されており、例えば、被接合材を固定するステージは X 線の透過を考慮して中空構造となっている。また、高輝度 X 線透過システムと共に X 線検査室内に設置する必要があるため、可能な限りコンパクトな設計とした。

図 2 に X 線透視画像を得るための装置配置図を示す。供試材には板厚 5 mm の A1050 アルミニウム板を用いた場合である。また、FSW 用の裏板には鋼板を用いるのが一般的であるが、本研究では X 線の透過性及び裏板としての剛性を考慮して、板厚 5 mm の A2024 アルミニウム合金板を用いた。更に、X 線はツールも透過する必要があるため、軽元素で構成される窒化珪素製のツールを使用した。ツール形状はシヨルダ径及びプローブ径をそれぞれ 15 mm 及び 6 mm とし、プローブ長は 2.9 mm とした。尚、プローブはネジのない円柱形状である。

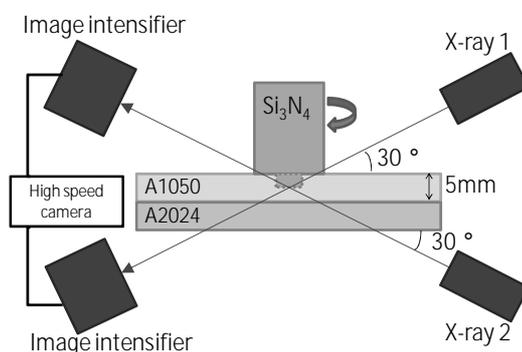


図 2 3 次元可視化システムの構成

X線発生装置とX線I.I.から構成される2組の結像系は、透視点が攪拌部の中心となるように、それぞれ供試材の上下30°の位置に固定し、FSW中のWトレーサー(直径300 μm)の動きを観察した。なお、Wトレーサーは供試材の表面から深さ2 mmの位置に埋設し、当該Wトレーサーがプローブの中央に位置するようにツールの位置を設定した。FSW条件はツールの移動速度を1000 mm/minで固定し、回転速度を200~1000 rpmの範囲で変化させた。なお、摩擦攪拌接合は位置制御方式で行った。

マイクロフォーカスX線発生装置は管電圧180 kV及び管電流1 mA、ミニフォーカスX線発生装置は管電圧100 kV及び管電流8 mAの条件でX線を発生させ、得られたX線透視画像はフレームレート500 fpsで高速度カメラに記録した。

ツール回転速度を200~1000 rpmと変化させて、塑性流動挙動を調査した。600~1000 rpmの場合はほぼ同様の塑性流動挙動を示しており、Wトレーサーの軌跡はプローブの周囲に同心円を描いている。これに対し、400 rpmの場合はプローブ周囲の軌跡が歪んでおり、プロット間隔もツールに対する方位によって粗密が存在する。また、300 rpmの場合はWトレーサーがプローブの周囲を回転することなく、プローブの後方に排出され、200rpmの場合には、ツールが破損した。

塑性流動挙動をより詳細に検討するために、Wトレーサーの軌跡の2次元グラフを作成した。TD-WD面(試料上方)から観察すると、塑性流動領域の形状はほぼ同一であるが、ツールの回転速度が増加するほど、また、プローブからの距離が大きくなるほど、プロット間隔が大きくなることがわかった。また、塑性流動領域がプローブの周囲に水平に形成されるのではなく、プローブの前後左右方向に対して傾斜している。前後方向の傾きはツールの前進角から予想される傾きとは逆であり、ツールの前進角が原因であるとは考え難い。これに対し、ショルダの影響によってプローブ後方で生じる上下方向の流れが塑性流動の傾きに影響している可能性があると言える。回転するツールが被接合材中に圧入されて移動する場合、プローブの通過によって形成されるプローブ後方の低圧領域に攪拌された材料が流入することになる。この場合、ショルダ直下の材料はショルダの回転方向(RSからAS)に沿って移動し、その一部分はASの壁(低温領域)の影響で下側の流れとなる。その後、当該流れはRSの壁(低温領域)に沿って上方に押し出されることになり、これによって連続した上下の塑性流動が形成されるものと思われる。当該塑性流動とプローブ周囲に形成される水平方向の塑性流動の合成により、プローブの前後左右に少し傾斜した塑性流動が形成される。つまり、プローブ周囲の塑性流動の傾きは、ショルダの影響が塑性流動に現れる程に攪拌

部への入熱が十分であり、円滑な塑性流動が実現していることを示唆する現象であると言える。

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 5件)

森貞好昭、今泉卓也、藤井英俊、高輝度X線透過システムを用いた摩擦攪拌接合における欠陥形成機構の解明、溶接学会論文集、査読有、Vol.32、2014、pp.31-37.
<http://jweld.jp/quarterly/new-quarterly.html>

K.Imagawa, H.Fujii, Y.Morisada, T. Hashimoto, Y.Yamaguchi and S.Kiguchi, Surface Hardening of Ferritic Graphite Cast Iron by Friction Stir Processing, Materials Transactions, Vol.54, 2013, pp.1938-1943.
10.23.20/matertrans.F-M2013818

田島敏宣、半谷禎彦、齋藤雅樹、小山真司、藤井英俊、孫玉峰、森貞好昭、桑水流理、吉川暢宏その場生成した、CuAl₂を分散させたポラスAlコア充填パイプ複合部材の創製、日本機械学会論文集A編、Vol.79、2013、pp.1071-1075.

藤井英俊、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、ふえらむ(日本鉄鋼協会誌)、Vol.17、2013、pp.763-768

https://www.isij.or.jp/journal/ferrum/?action=common_download_main&upload_id=502
H.Fujii, Y.Morisada, T.Imaizumi, Three-Dimensional Visualization of Metallic Flow and Control of FSW Joint Properties Using New FSP Technique, Vol.7, 2013, pp.279-288.

[学会発表](計18件)

H.Fujii, Friction Stir Welding of Steel, Seminar at FEFU (招待講演), 2014.3.27-3.28, Vladivostok, Russia

H.Fujii, Analysis of Metallic Flow during Friction Stir Welding by Three-Dimensional Visualization Using Two Pairs of X-ray Transmission System, The 3rd International Conference on Scientific and Technical Advances on Friction Stir Welding & Processing (基調講演), 2014.1.30-1.31, Nantes, France

H.Fujii, Y.Moisada and T.Imaizumi, Three Dimensional Visualization of Metallic Flow to Understand Defect Formation Mechanism during Friction Stir Welding: Steel and Aluminum, Thermec'2013 (基調講演), 2013.12.2-12.6, Las Vegas, USA.

M.Ueda, M.Ikeda, Y.Morisada and H.Fujii, Local Alloying between Cu and Zn by Friction Stir Processing, Int. Joint Symp. on

Joining and Welding, 2013.11.6-11.8, Osaka, Japan

Y.Kimoto, T. Nagaoka, H.Watanabe, M.Fukusumi, Y.Morisada and H.Fujii, Ferrite Alloy-Based Surface Composites Produced by Friction Stir Processing, Materials Science & Technology 2013 Conf. & Exhibition, 2013.10.27-10.31, Canada.

木元慶久、長岡亨、渡邊博之、福角真男、森貞好昭、藤井英俊、反応性および非反応性粒子の添加を伴うステンレス鋼への摩擦攪拌プロセス、(一社)溶接学会平成25年度秋季全国大会、2013.9.2-9.4、岡山
森貞好昭、今川浩一、藤井英俊、鑄鉄の摩擦攪拌プロセス、(一社)溶接学会平成25年度秋季全国大会、2013.9.2-9.4、岡山
今泉拓也、森貞好昭、上路林太郎、藤井英俊、高輝度 X 線透過装置を用いた摩擦攪拌接合時の流動解析、(一社)溶接学会平成25年度秋季全国大会、2013.9.2-9.4、岡山

藤井英俊、摩擦攪拌粉末プロセス (FSPP) による継手の高機能化、軽金属学会第124回春季大会 (基調講演)、2013.5.18-5.19、富山

今泉拓也、森貞好昭、藤井英俊、池田倫正、松下宗生、高輝度 X 線透過装置による低炭素鋼塑性流動挙動の三次元可視化、(一社)溶接学会平成25年度春季全国大会、2013.4.17-4.19、東京

藤井英俊、摩擦攪拌接合中の塑性流動の可視化と摩擦攪拌粉末プロセス (FSPP) による継手の高機能化、大阪大学接合研東京セミナー、2012.12.5、東京

Y.Morisada, T.Imaizumi and H.Fujii, Understanding Defect Formation Mechanism during Friction Stir Welding by Three-dimensional Visualization of Material Flow, The Int. Symp. on Visualization in Joining & Welding Science through Adv. Measurements and Simulation, 2012.11.28-2012.11.30, Osaka

今泉拓也、森貞好昭、藤井英俊、摩擦攪拌接合部の塑性流動三次元可視化による欠陥形成メカニズムの解明、スマートプロセス学会秋季総合学術講演会、2012.11.14、大阪

H.Fujii, Friction Stir Welding of High Temperature Materials and Visualization of Flow, 2nd Int. Sym. Friction Stir Welding in China (基調講演), 2012.10.18-10.19, Beijing, China.

今泉拓也、森貞好昭、藤井英俊、高輝度塑性流動の三次元可視化による摩擦攪拌接合部欠陥形成メカニズムの解明、(一社)溶接学会平成24年度秋季全国大会、2012.9.26-9.28、奈良

K.Imagawa, Y.Morisada and H.Fujii, Partial Surface Hardening of Low Carbon Steel by Friction Stir Powder Processing, 9th Int.

Symp. FSW, 2012.5.15-5-17, Huntsville, USA.

Y.Morisada, H.Fujii, Y.Kawahito, K.Nakata and M.Tanaka, Three-dimensional Visualization of Material Flow in FSW by X-ray Radiography, 9th Int. Symp. FSW, 2012.5.15-5-17, Huntsville, USA.

今川浩一、藤井英俊、森貞好昭、表面硬化層の形成に及ぼす摩擦攪拌粉末プロセス (FSPP) 条件の影響、(一社)溶接学会平成24年度春季全国大会、2012.4.10-4.12、東京

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0件)

取得状況 (計 0件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.jwri.osaka-u.ac.jp/dpt9/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤井 英俊 (FUJII Hidetoshi)

大阪大学・接合科学研究所・教授

研究者番号： 00247230

(2) 研究分担者

森貞 好昭 (MORISADA Yoshiaki)

大阪大学・接合科学研究所・特任講師

研究者番号： 00416356