

機関番号：84421

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2008～2010

課題番号：20760503

研究課題名（和文） 摩擦攪拌プロセスによるバイモーダルナノ組織の制御

研究課題名（英文） Control of bi-modal nanostructure by friction stir processing

研究代表者

森貞 好昭 (MORISADA YOSHIAKI)

地方独立行政法人大阪市立工業研究所・研究員

研究者番号：00416356

研究成果の概要(和文):金属マトリックスに微細硬質粒子が大量に分散している材料(例えば、溶射超合金皮膜)に対して摩擦攪拌プロセスを施すことでバイモーダルナノ組織が得られることが明らかとなった。また、クロム炭化物粒子及びバナジウム炭化物粒子を大量に含有する工具鋼皮膜に対する摩擦攪拌プロセスによって、理想的なナノ組織が形成された。当該工具鋼皮膜は同軸クラッディングトーチ及び半導体レーザを用いたレーザクラッディングによって SKD61 板材表面に形成され、炭化物は母材結晶粒界に偏析する急冷凝固組織となる。一般的に、このような急冷凝固組織は材料を脆化させるために好ましくない。これに対し、摩擦攪拌プロセスを施すことでクロム炭化物及びバナジウム炭化物は粉碎され、強力な攪拌効果によって母材に均一分散した。同種の焼結体が示す最高のビッカース硬度が約 750HV であるのに対し、摩擦攪拌を施した皮膜のビッカース硬度は 900HV 前後の極めて高い値を示した。

研究成果の概要(英文): The bi-modal nanostructure was formed by the friction stir processing (FSP) on the composites consist of a metal matrix and many fine hard particles. Additionally, the ideal nanostructure could be obtained by the FSP on the tool steel layer with many chromium carbide carbides and vanadium carbide particles. The carbide particles were segregated on the grain boundary of the matrix for the laser clad layer. Generally, it leads to brittle properties of the materials. On the other hand, the segregated carbide particles were crushed and dispersed in the matrix. The FSPed tool steel layer showed high hardness of 900HV which was much higher than that of the sintered tool steel.

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	1,000,000	300,000	1,300,000
2010年度	1,100,000	330,000	1,430,000
年度			
年度			
総計	3,200,000	1,260,000	4,160,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学

キーワード：結晶・組織制御

## 1. 研究開始当初の背景

近年、ナノサイズ化された結晶粒に数 $\mu\text{m}$ の結晶粒が混入した組織（バイモーダル組織）を有する銅が高強度と高延性を示すことが報告された<sup>1)</sup>。これは金属構造材の研究に新たな方向性を与える結果であるが、ナノメートルオーダーとマイクロメートルオーダーの結晶粒から成るバイモーダル組織を実際に作製するのは極めて困難である。現状、バイモーダル組織を意図的に制御し得る簡便な手法は存在せず、機械的特性に対するバイモーダル組織の最適化を行うことができない。異なる粒径を有する結晶粒の分散状況やその粒径等を制御できれば、機械的特性の更なる向上が期待できる。また、容易にバイモーダル組織を作製する手法を確立すれば、金属構造材の利用分野を大幅に拡大することができる。

申請者はこれまで FSP を用い、金属材料の結晶粒微細化及び金属材料と種々の強化材との複合化に関する研究を行ってきた。FSP は高速回転するツールで金属材料を摩擦攪拌するプロセスであり、強ひずみプロセスの一つである。申請者は FSP を利用した SiC 等の強化粒子の金属材料中への分散が可能であることを示し、強化粒子の分散が母材結晶粒の微細化を促進することを明らかにした<sup>2)</sup>。特に、直径約 1 nm の C60 分子を分散させることで、母材の結晶粒径を $\sim 100\text{nm}$ にまで超微細化することに成功している（図 1 参照）<sup>3)</sup>。結晶粒径は強化粒子の形状、サイズ及びその分散濃度等に対応することが明らかとなっており、バイモーダル組織の制御技術として FSP を用いる為の基礎的な知見は既に得られている<sup>4)</sup>。

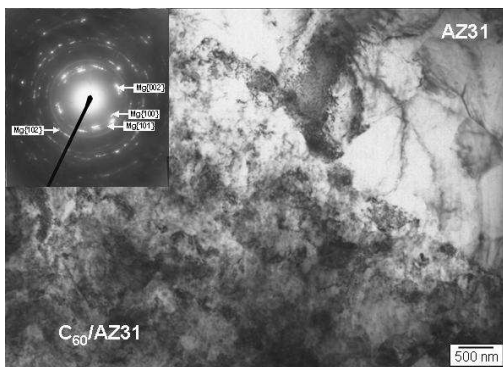


図 1 C<sub>60</sub> 分散によるマグネシウム合金 (AZ31) の結晶粒微細化 (SAD パターンは C<sub>60</sub> 分散領域に対応)

従来の方では金属材料中における微細粒子の分散状況を制御すること自体が困難である為、微細粒子の有無による再結晶挙動の差異に着目したバイモーダル組織の制御はこれまで全く検討されていない。

- 1) Y. Wang, M. Chen, F. Zhou, and E.

Ma, High Tensile Ductility in a Nanostructured Metal, Nature, 419 912-915 (2002).

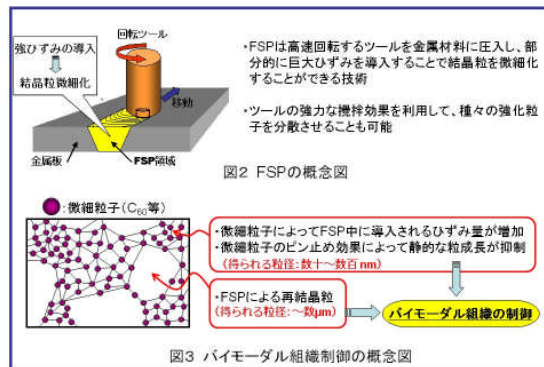
2) Y. Morisada, H. Fujii, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Effect of Friction Stir Processing with SiC Particle on Microstructure and Hardness of AZ31, Mater. Sci. Eng. A, 433 50-54 (2006).

3) Y. Morisada, H. Fujii, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Nanocrystallized Magnesium Alloy - Uniform Dispersion of C60 Molecules-, Scripta Mater., 55 1067-1070 (2006).

4) Y. Morisada, H. Fujii, T. Nagaoka, K. Nogi, and M. Fukusumi, Fullerene/A5083 Composites Fabricated by Material Flow during Friction Stir Processing, Composites A, 38 2097-2101 (2007).

## 2. 研究の目的

C<sub>60</sub> に代表されるナノサイズの微細粒子を強ひずみプロセスの一つである摩擦攪拌プロセス (FSP: Friction Stir Processing) を用いて金属材料中に分散させ、バイモーダル組織の制御を試みる (図 2, 3 参照)。本研究は金属構造材の機械的特性を最大限に引き出す手法を提案するものであり、再結晶による金属組織制御手法の探求という面でも意義深いものである。



## 3. 研究の方法

FSP を用いてバイモーダル組織を制御する為には、微細粒子を金属材料中に自在に分散させる技術の確立が重要である。申請者は FSP を用いた金属材料と微細粒子の複合化に関するメカニズムを検討し、FSP 条件（金属材料に圧入する円柱状ツールの回転速度及び移動速度等）が微細粒子の分散状況と密接に関係していることを明らかにしている<sup>1)</sup>。具体的には、微細粒子はツールの回転ピッチ（移動速度/回転速度）に対応し、金属材料中に縞状に分散する。つまり、回転ピッチを小さくすれば微細粒子は密に分散し、回転ピッチを大きくすれば粗に分散することにな

る。また、添加する微細粒子の量によって回転ピッチ間における微細粒子の広がりやを制御できる。

金属材料の再結晶粒径は FSP によって導入されるひずみ量、ひずみ速度、入熱量、再結晶後の静的な粒成長に対する障害（ピンニング粒子）の有無等によって制御できる。これらのパラメーターはツールの回転速度、移動速度、ツール形状、添加粒子のサイズ、添加粒子の形状、添加粒子の量等で調節できるものであり、全てが容易に制御し得るものである。平成 20 年度は代表的な軽量構造材であるマグネシウム材に対して実験を行い、バイモーダル組織の制御手法を検討する。

1) Y. Morisada, H. Fujii, T. Nagaoka, K. Nogi, and M. Fukusumi, Fullerene/A5083 Composites Fabricated by Material Flow during Friction Stir Processing, Composites A, 38 2097-2101 (2007).

#### 4. 研究成果

##### <工具鋼の組織制御>

摩擦攪拌プロセスを用いてバイモーダル組織を制御する為には、微細粒子を金属材料中に自在に分散させる技術の確立が重要である。代表的なマグネシウム合金である AZ31 の板材に加工した溝に微細粒子を充填し、当該領域に摩擦攪拌プロセスを施すことで組織の微細化が達成できることを確認した。また、外部から微細粒子を添加することなく、材料 (SKD11) 自身に含まれる粒子 (クロム炭化物) を摩擦攪拌プロセスによって破碎し、当該微細化された粒子を組織制御に利用する手法も検討した。摩擦攪拌プロセスの予備処理として、SKD11 板材表面にレーザー照射を施し、サブミクロンのクロム炭化物が母材結晶粒界に偏析する急凝固組織を形成させることで、SKD11 をナノ組織化 (母材結晶粒径: ~200 nm, クロム炭化物: ~100 nm) することに成功した。図 4 に処理を施した SKD11 の断面写真を示す。

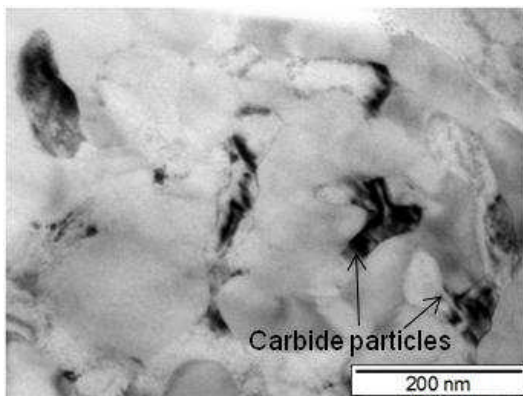


図 4 ナノ組織化した SKD11 の TEM 写真

また、ナノ組織化した SKD11 は、これまで

に報告されている SKD11 の硬度を大幅に上回るビッカース硬度 (900 HV 以上) を有していた。当該手法によれば、板材への溝の加工や粒子の充填等が不要であり、プロセスの自動化も容易である。粗粒を意図的に形成させてバイモーダル組織を実現するまでには至っていないが、硬質粒子を含有する金属材料の組織制御手法として、非常に効果的な手法であると思われる。

##### <超合金の組織制御>

数~数十  $\mu\text{m}$  の WC 粒子を Ni や Co で結合させた溶射超合金皮膜に対して摩擦攪拌プロセスを検討した結果、金属結合相が ~200nm のナノ組織になることが明らかとなった。図 5 に摩擦攪拌プロセス前後における超合金皮膜の組織写真を示す。

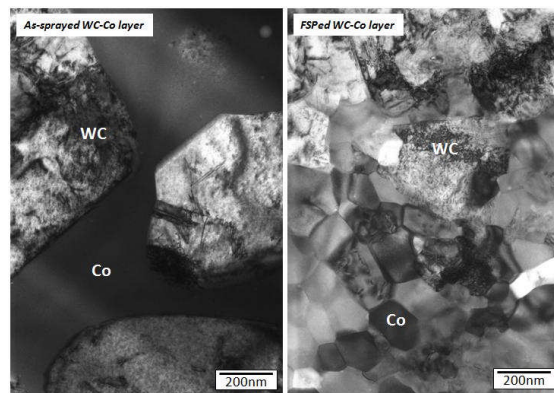


図 5 摩擦攪拌プロセス前後における超合金皮膜の TEM 写真

これは、これまで検討してきた Al や Mg に対する結果 (摩擦攪拌プロセス中に硬質粒子が存在する場合、母材の結晶粒がより微細化される) と一致している。特殊なバイモーダル組織 (WC 粒子+ナノ金属結合相) を有する溶射超合金皮膜は優れた機械的特性を示し、超合金焼結体と同等以上の極めて高い硬度 (~2000 HV) を示した。摩擦攪拌プロセス前の溶射超合金被膜には欠陥が散見されたのに対し、摩擦攪拌プロセス後の溶射超合金被膜にはほとんど欠陥が観察されなかった。摩擦攪拌プロセス中の塑性流動により、欠陥が消失したものと考えられる。また、SEM-EDX マッピングにより溶射超合金被膜/SKD11 の界面近傍における元素分布を観察したところ、摩擦攪拌プロセス後のサンプルでは、SKD11 基材に含まれる Fe の溶射超合金被膜への拡散が確認された。当該結果は、摩擦攪拌プロセスが基材と溶射超合金被膜との密着性向上に資することを示唆している。

#### 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3件)

- ① Y. Morisada, H. Fujii, T. Mizuno, G. Abe, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Nanostructured Tool Steel Fabricated by Combination of Laser Melting and Friction Stir Processing, Mater. Sci. Eng. A, 査読有, 505 (2009) 157-162.
- ② Y. Morisada, H. Fujii, T. Mizuno, G. Abe, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Modification of Thermally Sprayed Cemented Carbide Layer by Friction Stir Processing, Surface and Coatings Technology, 査読有, 204 (2010) 2459-2464.
- ③ Y. Morisada, H. Fujii, T. Mizuno, G. Abe, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Fabrication of nanostructured tool steel layer by combination of laser cladding and friction stir processing, Surface and Coatings Technology, 査読有, 205 (2011) 3397-3403.

〔学会発表〕(計5件)

- ① 森貞好昭, 藤井英俊, 水野雅, 阿部源隆, 長岡亨, 福角真男, 摩擦攪拌プロセスによる工具鋼の組織微細化, 溶接学会春季全国大会, 2008年4月9日, ハイアット・リージェンシー・オーサカ
- ② 森貞好昭, 藤井英俊, 水野雅, 阿部源隆, 長岡亨, 福角真男, 摩擦攪拌プロセスを用いた超硬合金層の改質, 溶接学会秋季全国大会, 2009年9月10日, 徳島大学
- ③ Y. Morisada, H. Fujii, T. Mizuno, G. Abe, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Modification of Thermally Sprayed Cemented Carbide Layer by Friction Stir Processing, Eighth International Symposium Friction Stir Welding, 2010年5月18日, MARITIM Seehotel Timmendorfer Strand, Germany
- ④ 森貞好昭, 藤井英俊, 水野雅, 阿部源隆, 長岡亨, 福角真男, レーザクラッディング層への摩擦攪拌プロセスによるナノ工具鋼被膜の創製, 溶接学会秋季全国大会, 2010年9月7日, 日本大学
- ⑤ Y. Morisada, H. Fujii, T. Mizuno, G. Abe, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Fabrication of nanostructured tool steel layer by combination of laser cladding and friction stir processing, 2011 TMS Annual Meeting & Exhibition, 2011年2月28日, San Diego convention center, USA

6. 研究組織

(1) 研究代表者

森貞 好昭 (MORISADA YOSHIAKI)

地方独立行政法人大阪市立工業研究所・研究員

研究者番号: 00416356