

令和 5 年 6 月 12 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05168

研究課題名（和文）摩擦攪拌接合中の再結晶制御による微細組織形成手法の確立

研究課題名（英文）Development of grain refinement method using recrystallization control during FSW

研究代表者

柳楽 知也（NAGIRA, Tomoya）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・構造材料研究拠点・主幹研究員

研究者番号：00379124

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、面心立方格子(FCC)型であり、積層欠陥エネルギーの異なる金属材料（Al、Ag、Cu、Cu-30Zn）を対象に高温での強加工プロセスの一種である摩擦攪拌接合の微細化機構を動的再結晶および焼鈍双晶の観点から調査し、組織制御手法の確立を目指した。再結晶温度に対する接合温度の比によって、微細化機構や結晶粒子径を制御できることが分かり、組織形成を統一的に整理できることが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

一般に構造物全体の特性は、主に最弱部である溶接部によって決まるため、本研究で対象とする摩擦攪拌接合は、溶接部の結晶粒微細化によって機械的特性の向上が期待できる有効な接合法である。得られた成果は、積層欠陥エネルギーが小から中程度の面心立方型の金属全般の組織制御指針の提案に繋がるため、広範な応用が期待できる。摩擦攪拌接合を利用した長寿命な構造体を作製するための接合技術の確立として大きな意義がある。

研究成果の概要（英文）：In this study, grain refinement mechanisms during friction stir welding (FSW) for the FCC metals (Ag, Cu, and Cu-30Zn) with low-to-medium stacking fault energies were examined to develop the technique for the microstructural control from the aspect of discontinuous dynamic recrystallization and annealing twinning. It was found that the mechanism for grain structure development and grain size were determined by the ratio of peak temperature during FSW to the recrystallization temperature.

研究分野：溶接・接合

キーワード：摩擦攪拌接合 動的再結晶 積層欠陥エネルギー 微細化機構

1. 研究開始当初の背景

物と物を繋げる溶接・接合は、自動車、造船などの輸送機器や橋梁やビルなどの構造物の製作や補修を行う不可欠な技術として広く利用されており、我々の安心・安全な社会生活を支えている。また、近年のエネルギー、環境問題の高まりにより、構造物の軽量化を目指したマルチマテリアル化が進行しつつあり、従来の鉄鋼材料以外の様々な非鉄材料における接合技術の確立が望まれている。

近年目覚ましい発展を遂げている接合技術として、摩擦攪拌接合(Friction Stir Welding: FSW)が挙げられる。この方法は、ツールと呼ばれる棒状の工具を接合部に挿入し、ツールを高速で回転させながら押し付けて、材料との摩擦熱と加工による発熱を利用して、材料を液相状態へと溶融させることなく、固相状態のまま材料を流動させて接合させる。溶融溶接法において深刻な問題となる凝固割れの発生や溶接変形を防止することができるため、様々な材料の適用が期待されている。ただし、高温での強加工プロセスであるため、転位の蓄積、転位の回復(転位の再配列)、再結晶、粒成長など様々な物理現象を経て最終的な組織が形成される。これまでに多くの研究者によって、結晶構造が FCC (面心立方) 型の Al、Cu や hcp(六方晶最密)型の Mg などの金属材料を対象に微細組織の調査が行われてきた。ただし、FSW 中の材料の流動経路が特定できないこと、組織変化を正確にとらえることができないなど、観察手法が十分に確立されておらず、組織形成機構については十分には明らかになっていない。

これまでに我々のグループでは、FSW 中の材料の流動経路を正確に特定し、組織形成が変化する過程を観察可能な実験手法を独自に開発した。この方法を利用して FCC(面心立方)構造の金属における FSW 中の微細組織形成は、塑性変形中の転位運動に影響を及ぼす積層欠陥エネルギーに依存することが分かった。高い積層欠陥エネルギー (166 mJm^{-2}) を有するアルミニウム(Al)の場合、塑性変形段階では、転位の蓄積と再配列による連続動的再結晶が支配的に起こり、典型的な等軸状の微細な組織が形成された。一方、低い積層欠陥エネルギー(20 mJm^{-2}) を有する黄銅(Cu-30Zn)の場合、塑性変形段階では、不連続動的再結晶によって、典型的なネックレス状の組織を経て微細な組織が形成された。また、積層欠陥エネルギーが低いと、粒成長過程で積層欠陥が起こりやすいため、焼鈍双晶も観察された。つまり、積層欠陥エネルギーが低下するにつれて転位の交差すべりや上昇運動が抑制されるため、微細組織の形成機構は、連続動的再結晶から不連続動的再結晶へと変化し、焼鈍双晶の発生が顕在化することが明らかとなった。さらに、黄銅と同じ積層欠陥エネルギー(22 mJm^{-2}) を有する Ag の場合、再結晶が全く起こらず、焼鈍双晶の形成のみによって微細組織が形成される現象を見出した。再結晶温度よりも高温での強加工プロセスであり、同じ積層欠陥エネルギーを有する黄銅と同じ接合条件にもかかわらず、転位が蓄積されず、再結晶が起こらない機構については全く不明である。

2. 研究の目的

従来、FSW 中の組織形成は、積層欠陥エネルギーの大きさによって議論されてきたが、Ag のように動的再結晶が全く起こらない現象を説明することは困難である。そこで本研究では、積層欠陥エネルギーが比較的低い FCC 構造の Cu、Cu-30Zn、Ag、Ag-Sn を対象に動的再結晶挙動と焼鈍双晶の形成の観点から FSW 中の組織形成について調査を行った。また、各材料の再結晶温度に基づいて、接合温度と微細組織形成および結晶粒径との関係について統一的な理解を試みた¹⁻⁴。

3. 研究の方法

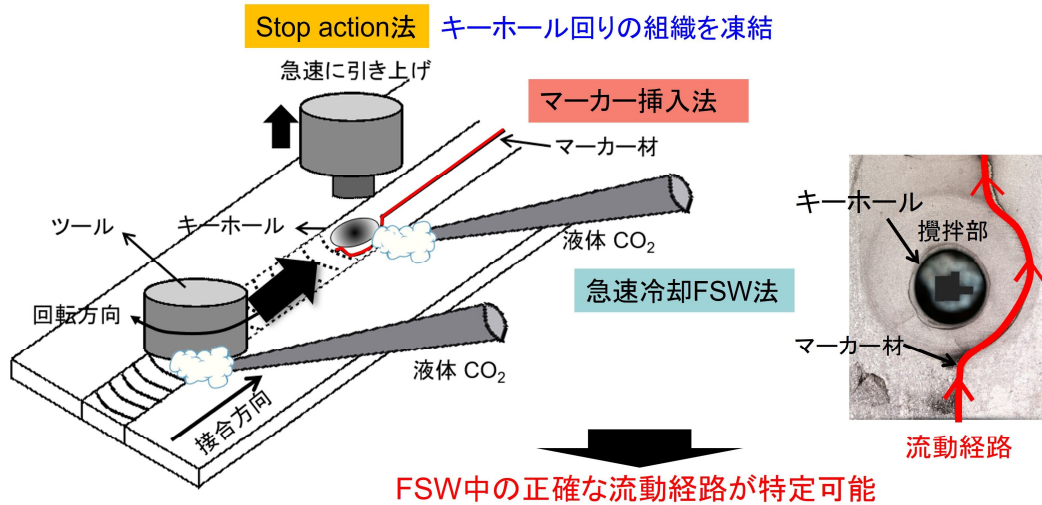


図1 FSW中の組織形成の観察手法

図1にFSW中の組織形成を観察するための実験手法を示す。FSW中に液体CO₂を噴射してキーホール回りの組織を凍結させる急速冷却FSW法、回転しているツールを瞬間的に引き抜くstop action法、試験片の突き合わせ面にマーカ材を挿入して材料流動の経路を調べるマーカ材挿入法を組み合わせる実験を行った。この手法により、材料流動経路に沿って組織形成の発達過程を調査することが可能である。供試材は、Cu、Cu-30wt%Zn、Ag、Ag-0.75wt%Snであり、それらの大きさは全て100mm×100mm×3mmである。マーカ材は、Cu、Cu-30Zn、Ag板に対して厚さ0.3mmのCu-30Zn、Cu、Auシートをそれぞれ用いた。接合温度は、Cuでは、0.56T_m(=融点)、0.47T_m、Cu-30Znでは、0.78T_m、0.73T_m、0.61T_m、Agでは、0.59T_m、0.46T_m、Ag-Snでは、0.59T_m、0.47T_mとなるように接合条件を制御した。組織の観察位置は、試料の上表面から0.5mmの位置のキーホール水平面(ショルダー影響部)とした。マーカ材の分布に沿って、FE-SEM/EBSDによる組織、結晶方位分布などの評価を行った。

4. 研究成果

Cu-30Zn、Cu、Ag、Ag-0.75Snにおける液体CO₂により凍結させた後の水平面の写真を図2(a)、

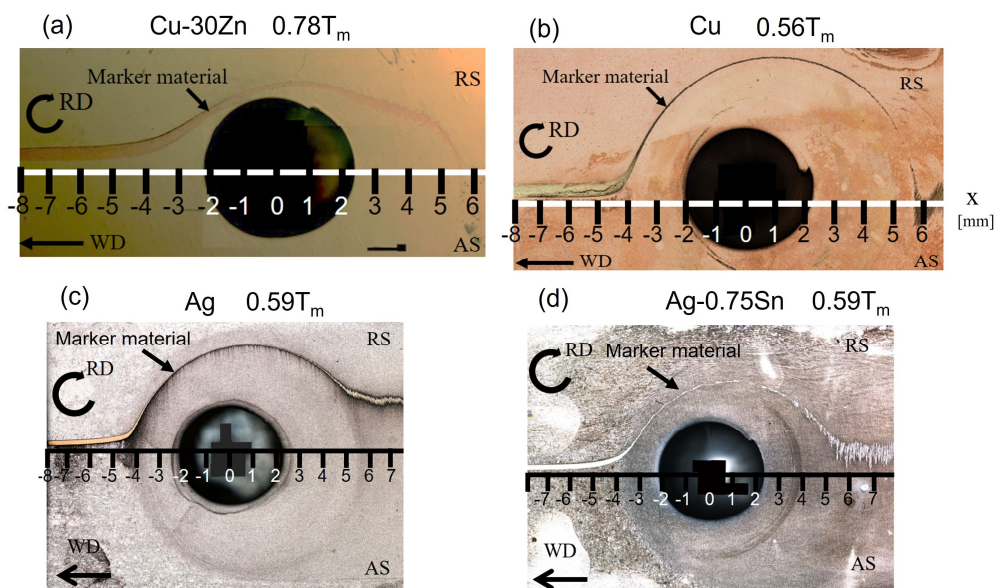


図2 攪拌部におけるマーカ材の分布 (a) Cu-30Zn、(b)Cu、(c)Ag、(d)Ag-0.75Sn

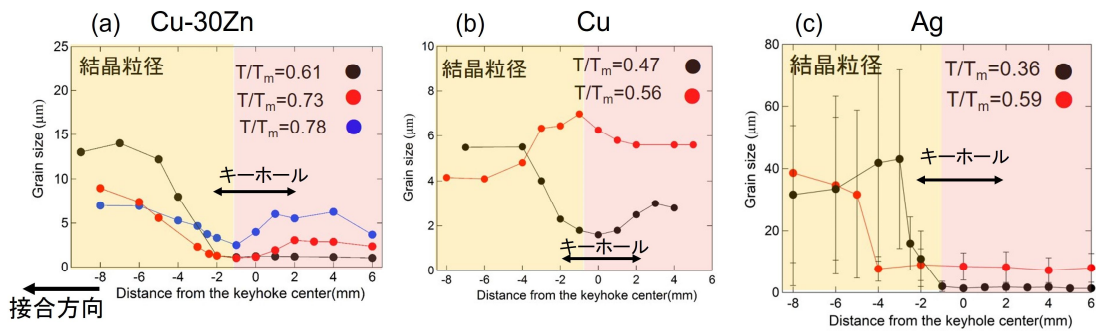


図3 キーホール中心からの結晶粒サイズの変化 (a) Cu-30Zn、(b)Cu、(c)Ag

(b)、(c)、(d)にそれぞれ示す。マーカ材は連続的に変形し、キーホール前方から後退側を通過して、キーホールの後側に堆積していた。すなわち、FSW ツールは回転しているが、材料流動の経路は、途切れることなく連続的に繋がっていることが分かった。また、マーカ材の厚さは、攪拌部に入る近傍の $x=-4$ 付近で急激に減少し、その後 $x=+4$ 付近までほぼ一定であった。この流動パターンは、試料によらず同様であった。

図3(a)、(b)、(c)に Cu-30Zn、Cu、Ag におけるキーホール中心からの結晶粒径の変化をそれぞれ示す。FSW 中の組織形成は、二つのステージから成ることが分かった。最初のステージは、マーカ材が大きく変形するまでの領域($x < -2$)で起こる組織形成である。ここでは、不連続動的再結晶および(もしくは)焼鈍双晶によって、微細組織が形成され、接合温度によって不連続動的再結晶や焼鈍双晶の発生頻度が変化し、結晶粒径が変化する。後半のステージは、マーカ材が大きく変化しない領域($x > -2$)で起こる組織形成である。粒界移動による粒成長(粗大化)と焼鈍双晶の形成による微細化が動的にバランスし、結晶粒径はほとんど変化しない。ただし、動的にバランスする結晶粒径は、接合温度に依存し、高温ほど結晶粒径は大きくなった。

ここで、前半のステージにおける高温条件と低温条件における組織形成の違いを図4に示す。高温条件では、図4(a)に示すように動的再結晶はほとんど観察されず、粒成長および焼鈍双晶(TB)の形成が支配的に起きていた。焼鈍双晶は、粒成長の過程で発生し、結晶粒の微細化をもたらすが、焼鈍双晶の頻度によって結晶粒径の大きさは変化する。Cu($T/T_m=0.56$, T_m : 融点)の場合、焼鈍双晶の形成の寄与より粒成長の寄与が大きいため、粗大化が起こった。一方、Cu-30Zn($T/T_m=0.78$)、Ag($T/T_m=0.59$)の場合、粒成長の寄与より、焼鈍双晶の形成の寄与が大きいため、微細化が起こった。次に低温条件では、図4(b)に示すように、すべての試料において転位密度差を駆動力とする高角粒界バルジングによる不連続動的再結晶が頻りに観察された。その結果、元の粒界に沿って、再結晶粒が形成するため、ネックレス状の組織を経て微細化された(図

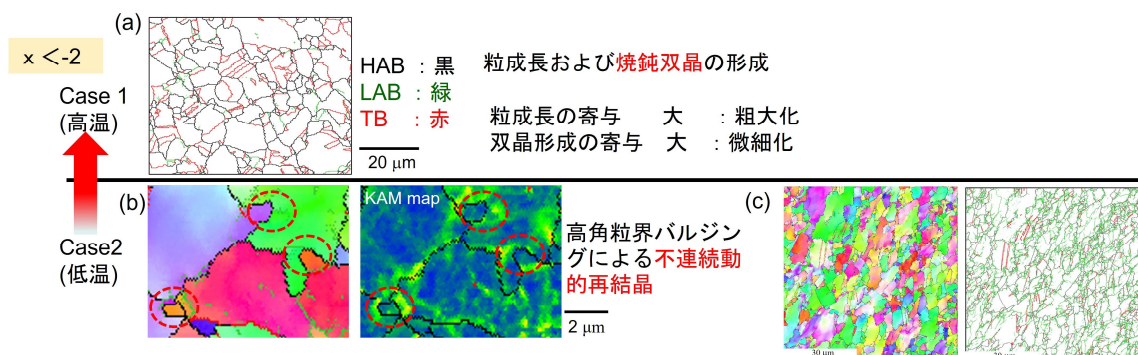


図4 $x < -2$ における高温条件と低温条件における組織形成の違い

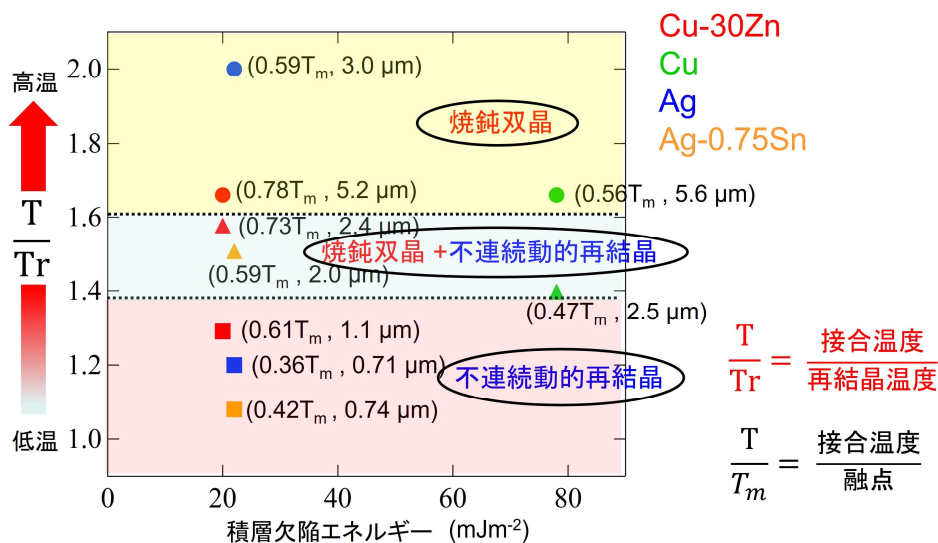


図5 静的再結晶温度に対する接合温度の比に対する結晶粒子径と組織形成機構

4(c))。

図5にCu、Cu-30Zn、Ag、Ag-0.75Snにおける静的再結晶温度に対する接合温度の比(T/T_r)に基づいたFSW中の組織形成機構を示す。金属元素によらず再結晶温度(T_r)に対する接合温度(T)の比(T/T_r)が約1.6以上の場合、焼鈍双晶支配の組織形成、 T/T_r が1.6から1.4の間では、焼鈍双晶と不連続動的再結晶の両方が起こる組織形成、 T/T_r が約1.4以下まで低下すると、不連続動的再結晶支配の組織形成となることが分かった。さらに、最終的な結晶粒径(図中の各プロットに表記)も T/T_r にほぼ依存していた。従来、FSWにおける組織形成は、融点に対する接合温度の比(T/T_m)によって議論されてきたが、再結晶温度に対する接合温度の比によって、統一的に組織形成が整理できることが初めて明らかとなった。

参考文献

1. T. Nagira, X.C. Liu, K. Ushioda and H. Fujii, "Microstructural evolutions of 2N grade pure Al and 4N grade high-purity Al during friction stir welding", Materials 14 (2021)3606.
2. T. Nagira, X.C. Liu, K. Ushioda and H. Fujii, "Mechanism of grain structure development for pure Cu and Cu-30Zn with low stacking fault energy during FSW", Science and Technology of Welding and Joining 25(2020)669-678.
3. X. Liu, Y. Sun, T. Nagira, K. Ushioda and H. Fujii, "Effect of stacking fault energy on the grain structure evolution of FCC metals during friction stir welding", Acta Metallurgica Sinica (English Letters) 33(2020) 1001-1012.
4. T. Nagira, X.C. Liu, K. Ushioda and H. Fujii, "Influences of temperature and Sn-addition on microstructural evolution of Ag during FSW", Science and Technology of Welding and Joining 25 (2020)198-207.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 T. Nagira, X.C. Liu, K. Ushioda and H. Fujii	4. 巻 14
2. 論文標題 Microstructural evolutions of 2N grade pure Al and 4N grade high-purity Al during friction stir welding	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials	6. 最初と最後の頁 3606
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/ma14133606	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Zexi. Wu, Tomoya Nagira, Kohsaku. Ushioda, Hidetoshi Fuii, Goro. Miyamoto	4. 巻 799
2. 論文標題 Microstructure and mechanical properties of friction stir welded 0.2%C-Si-Mn steel	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials Science and Engineering: A	6. 最初と最後の頁 140068
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.msea.2020.140068	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nagira T., Liu X.C., Ushioda K., Fujii H.	4. 巻 25
2. 論文標題 Mechanism of grain structure development for pure Cu and Cu-30Zn with low stacking fault energy during FSW	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Science and Technology of Welding and Joining	6. 最初と最後の頁 669 ~ 678
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/13621718.2020.1818032	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Nagira T., Yamashita D., Kamai M., Liu H., Aoki Y., Fujii H., Uesugi K., Takeuchi A.	4. 巻 167
2. 論文標題 Time-resolved X-ray imaging of solidification cracking for Al-Cu alloy at the weld crater	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Materials Characterization	6. 最初と最後の頁 110469 ~ 110469
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.matchar.2020.110469	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kawakubo Takumi, Nagira Tomoya, Ushioda Kohsaku, Fujii Hidetoshi	4. 巻 106
2. 論文標題 Friction Stir Welding of High Phosphorus Weathering Steel - Weldabilities, Microstructural Evolution and Mechanical Properties	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Tetsu-to-Hagane	6. 最初と最後の頁 892 ~ 901
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2355/tetsutohagane.TETSU-2020-057	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Liu Xiaochao, Sun Yufeng, Nagira Tomoya, Ushioda Kohsaku, Fujii Hidetoshi	4. 巻 33
2. 論文標題 Effect of Stacking Fault Energy on the Grain Structure Evolution of FCC Metals During Friction Stir Welding	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Acta Metallurgica Sinica (English Letters)	6. 最初と最後の頁 1001 ~ 1012
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s40195-020-01064-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Wu Zexi, Nagira Tomoya, Ushioda Kohsaku, Miyamoto Goro, Fujii Hidetoshi	4. 巻 108
2. 論文標題 Microstructures and Tensile Properties of Friction Stir Welded 0.2%C-2%Si-Cr Steels	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Tetsu-to-Hagane	6. 最初と最後の頁 911 ~ 925
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2355/tetsutohagane.TETSU-2022-038	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 柳樂知也、中村照美、吉中奎貴、澤口孝宏、劉恢弘、青木祥宏、釜井正善、藤井英俊
2. 発表標題 高空間分解X線イメージングを利用したFe-Mn-Si系合金における溶接凝固現象のその場観察
3. 学会等名 溶接学会2021年度秋季全国大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 川久保拓海、潮田浩作、藤井英俊、柳樂知也、中村照美
2. 発表標題 耐候性厚鋼板の線形摩擦接合
3. 学会等名 溶接学会2021年度秋季全国大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柳樂知也、Nikulin Ilya、中村照美、澤口孝宏、森貞好昭、森正和、藤井英俊
2. 発表標題 制振ダンパー用Fe-Mn-Si系合金の摩擦攪拌接合
3. 学会等名 日本鉄鋼協会春季(第183回)講演大会シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 川久保拓海、柳樂知也、潮田浩作、藤井英俊
2. 発表標題 摩擦攪拌接合を前提として開発した高P添加の耐候性鋼の靱性評価
3. 学会等名 溶接学会2020年度春季全国大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 柳樂知也、劉小超、潮田浩作、藤井英俊
2. 発表標題 高純度Alの摩擦攪拌接合中における微細組織形成の解明
3. 学会等名 溶接学会2020年度春季全国大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 伍沢西、柳楽知也、潮田浩作、藤井英俊
2. 発表標題 摩擦攪拌接合したSi-Mn炭素鋼の組織と機械的性質に及ぼすMoおよびV添加の影響
3. 学会等名 溶接学会2020年度春季全国大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 柳楽知也、劉小超、潮田浩作、藤井英俊
2. 発表標題 低い積層欠陥エネルギーを有するfcc金属におけるFSW中の微細組織形成機構の解明
3. 学会等名 溶接学会2020年度秋季全国大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 T. Nagira, X.C. Liu, K. Ushioda, H. Fujii
2. 発表標題 Micro-texture evolution of Ag with low stacking fault energy during friction stir welding
3. 学会等名 The 19th International Conference on Texture of Materials (ITOCOM19) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 柳楽知也
2. 発表標題 金属合金の凝固・変形その場観察を利用した溶接・鋳造欠陥、組織形成機構の解明
3. 学会等名 日本金属学会2021年春季第168回講演大会(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 柳樂知也
2. 発表標題 制振ダンパー用鋼材の接合技術とその周辺技術
3. 学会等名 第16回鉄鋼材料と鋼構造に関するシンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2022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