摩擦攪拌プロセスによる組織微細化とその応用

Microstructural Refinement by Friction Stir Processing and Its Application

森 貞 好 昭*・藤 井 英 俊*
Yoshiaki MORISADA and Hidetoshi FUJII

Key Words: Friction Stir Processing, Microstructural Refinement, Tool Steel, Hardness, Cutting Tool

1. はじめに

摩擦攪拌プロセス (FSP: Friction Stir Processing) は、固相接合法である摩擦攪拌接合 (FSW: Friction Stir Welding) の技術を金属材の表面改質に応用したものであり、欠陥の除去や組織微細化を目的として、近年盛んに研究が進められている。FSW では、高速で回転する円筒状のツールを被接合材に圧入し、材料との摩擦熱を利用して接合が達成される¹⁾⁴⁾。接合中の最高到達温度が被接合材の融点に達せず、接合部における強度低下が従来の溶融溶接と比較して小さいのが特徴で、場合によっては接合部の方が母材よりも高強度化される。

このため、FSW は開発されてから約 20 年の間に、Al 合金では既に定着した技術となっており⁴⁾¹³⁾、特に鉄道車両においては急ピッチで実用化が進んでいる。6N01 アルミニウム合金を車体の長さに中空押し出した部材を FSW し、車体の床、側面、及び天井を作製した鉄道車両は 3000 両を超えるとされ、700 系のぞみやつくばエクスプレスなどとして使用されている。鉄道車両と比較すると量は少ないが、自動車においても各社が Al 製のフードを FSW で製造している。

Al 合金以外にも、Mg 合金及び Cu 合金等は既に実用化されており、最近では、銅や Ti、更には融点が 2620 ℃のモリブデン¹⁴⁾等の FSW や FSP も可能となっており、種々の産業分野から注目を浴びている。

本稿では、FSW を基にした FSP の原理と特徴、微細組織について基礎的な見地から概説した後、工具鋼の組織微細化及び当該技術の応用例について、著者の研究結果を中心に紹介する。

2. FSP の原理

FSP の原理を Fig. 1 に示す。先端部にプローブと呼ばれる小突起を有する円柱状の工具 (ツール) を高速回転させながら被改質材に押し付け、プローブ部を材料中に圧入す

Fig. 1 Schematic drawing of FSP.

る。被改質材はプローブ側面およびツール肩部下面との摩擦熱により加熱されて塑性変形抵抗を失い、ツールの回転に引きずられる形で材料流動を起こす。この状態を保ちながらツールを移動させると、被改質材の表面は材料流動によって攪拌されて改質が達成される。ここで、表面改質に溶融プロセスを用いる場合は改質領域が凝固組織となり結晶粒の粗大化が起こるのに対し、FSP では再結晶組織となり結晶粒が母材より微細化し、機械的特性の優れた改質部が得られる¹⁰⁾¹²⁾。なお、ツール底面のプローブ長によって改質領域の深さを調節することができ、表面近傍のみの改質を目的とする場合は、プローブを有さないフラットツールを用いることもできる。

3. FSP による欠陥の除去

金属材料の casting 品には、鑄造組織の粗大化、偏析、気孔などの欠陥が存在することにより応用を制限される場合がある。例えば、エンジンブロックの上部表面に欠陥が存在すると、シリンダヘッドとの間からシリンダ内の圧力がもれることで燃費の低下へとつながる。現在はレーザ、プラズマ、ろう付けなどによる局所的な補修溶接が行われている

* 大阪大学接合科学研究所 (〒 567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘 11-1)
Joining and Welding Research Institute, Osaka University (11-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka, 567-0047 Japan)

るが、高コストであることや材料の再溶融に伴う気孔の発生、凝固割れ、結晶粒の粗大化等が問題となる¹⁵⁾。

これに対し、改質が必要な領域に FSP を施すことで材料を均質化し、欠陥を除去することが可能であり、既存のプロセスが有する上述の問題点を一気に解決してくれる。なお、広範囲の処理が必要な場合には、プローブがツールの中心からオフセットされているもの (Com-stirTM) や回転軸を傾斜させ、プローブ先端が遊星運動するようにしたもの (Skew-stirTM) が提案されており^{16),17)}、銅等への適用は困難であるが、塑性変形抵抗が小さな軽金属に対しては効果的である。

4. FSP による結晶粒微細化

金属材料においては降伏強さと結晶粒径が密接に関連しており、一般的に下記の Hall-Petch の関係が成立する。

$$\sigma = \sigma_0 + kd^{-1/2}$$

ここで、 σ_0 と k は定数、 d は結晶粒径である。つまり、結晶粒を微細化してやることで金属材料を高強度化することができる。

プローブによって攪拌された領域は一般に“攪拌部”と呼ばれ、転位密度の低い微細な等軸粒を有する。その粒径は材料、プロセス条件によって異なるが、おおよそ数 μm ～ 20 μm 程度である。この微細な結晶粒は、プロセス時の摩擦熱と塑性流動に伴う再結晶によって生成すると言われている¹⁸⁾⁻²¹⁾。ここで、プロセス条件が変化すると、攪拌部の変形速度および最高加熱温度が変化し、再結晶後の粒径が変化する²²⁾。さらに、最高加熱温度の変化により、冷却加熱の熱影響による静的な粒成長挙動にも違いが生じ、最終的な結晶粒径が変化する。Frigaard によると、ツールを移動させない場合、FSW 中に材料に投入される熱量 Q は、

$$Q = 4/3 \cdot \pi^2 \mu PNR^3$$

と表すことができる²³⁾。ここで、 μ ：摩擦係数、 P ：攪拌部の圧力、 N ：ツール回転速度、 R ：シヨルダ径である。すなわち、ツールの回転速度を遅く、ツールの移動速度を速くしてやることで入熱量を低減でき、より微細な結晶粒を得ることができる。

Fig. 2 に FSP によって代表的なマグネシウム合金である AZ31 を表面改質した例を示す²⁴⁾。表面から約 2 mm 程度の深さ（圧入したプローブの長さとはほぼ同じ深さ）まで、硬度が著しく上昇しているのが確認できる。これは上述の結晶粒微細化の効果であり、実際に FSP を施した領域の結晶粒径は 6 μm と、未処理の結晶粒径 (80 μm) の約 1/13 になっている。単純に考えると結晶粒径をより細かくしてやることで更なる高強度化（高硬度化）を図ることが可能であるが、ツールの回転速度や移動速度をパラメーターとして入熱量を低減し、結晶粒を微細化するには限界がある。

Fig. 2 Microhardness depth profiles of the cross-section.

Fig. 3 TEM images of the C₆₀ dispersed stir zones.

これに対し、Hofmann らは、水中で摩擦攪拌を行うことでサブミクロンの結晶粒が得られると報告している²⁵⁾。更に、微細粒子の分散を伴った FSP により、得られる結晶粒径が劇的に小さくなることが明らかになっている^{26),27)}。Fig. 3 に FSP によってフラーレン分子を分散させた攪拌部の TEM 写真を示す。マグネシウム合金 (AZ31) の結晶粒は～100 nm、純銅 (C1020) の結晶粒は～200 nm 程度にまで微細化されている。FSP によって金属材料の結晶粒が微細化されることは広く知られているが、通常の FSP ではツールの移動速度及び回転速度を調節することで金属材料に導入される歪量の増大及び入熱量の低減を図っても、得られる結晶粒径は数 μm 程度である。これに対し、フラーレンの分散を伴った場合には FSP による結晶粒微細化効果が明らかに大きい。FSP によって微細化された結晶粒は、当該プロセスの入熱によって粒成長するが、フラーレンの分散に伴う歪量の増加とフラーレンのピン止め効果によって、当該微細化効果が促進されたものと思われる。

Fig. 3 に示す攪拌部の形成に用いた FSP 条件 (1500 rpm, 50 mm/min) は比較的に入熱量が大きい条件であるため、フラーレンの分散を伴わない場合は 10 HV 程度しか硬度は上昇しない。また、良好な塑性流動が生じる範囲で FSP 条件

を最適化しても、硬度上昇は母材の数割程度が限界である。これに対し、AZ31にフラーレンを分散した場合は未処理の場合と比較して約3倍、C1020の場合は約2倍の顕著な硬度上昇が確認された。

5. 工具鋼の組織微細化

刃物用の材料として使用されている工具鋼は、高硬度、高強度、耐摩耗性等を向上させるために高硬度の炭化物が大量に分散した組織を有している。十分な量の炭化物を生成させる為には炭素及び合金成分である希少元素（Cr、Mo、W、V等）を大量に添加する必要があるが、結果として炭化物が粗大化（粒径：5～20 μm）してしまう。工具鋼の組織微細化は機械的特性の向上に直結することから、当該手法を確立することができれば、高価かつ希少な合金元素の大量使用に依存しない高強度化手法となり得る。工具鋼の組織微細化に関しては、母材結晶粒の微細化及び炭化物の微細化を共に達成する必要があるが、工具鋼中の炭化物は高硬度であり、FSPの強力な攪拌効果によっても十分な微細化は達成されない。

これに対し、レーザ照射による局所溶融・急凝固とFSPによる局所的な加熱・強ひずみの導入を複合した処理により、工具鋼の組織を極めて効果的に微細化することができる²⁸⁾。Fig. 4に複合プロセスの概念図を示す。FSPの予備処理として、工具鋼板材表面にレーザをフォーカスしてスキャンすることで、部分的に工具鋼を急速溶融・急令凝固させる。析出する炭化物が粗大化する時間を与えな

Fig. 4 Schematic drawing of the process for microstructural refinement of tool steel.

いことで、炭化物の微細化を図ることができる。レーザ処理によって微細化された炭化物は母材結晶粒界に偏析するが、FSPの強力な攪拌効果を用いて均一分散させることが可能である。

Fig. 5に工具鋼（冷間工具鋼：SKD11）の組織変化を示す。受け入れままの工具鋼には粗大な共晶炭化物が存在しているが、レーザ照射による急凝固でネットワーク状（デンドライト状）に変化している。当該組織にFSPを施すと、ネットワーク状の炭化物が分断及び分散され、極めて微細な炭化物が均一分散した組織が得られている。TEM観察の結果、炭化物及び母材結晶粒共にナノメートルオーダーの微細組織となっていた。これに対し、レーザ照射による予備処理なしでFSPを施した場合、数 μm の炭化物が残存していることが確認できる。

Fig. 6に工具鋼のビッカース硬度（表面から深さ方向へのプロファイル）を示す。未処理のSKD11の硬度は約250

Fig. 5 Microstructural change of SKD11.

Fig. 6 Microhardness depth profiles of the cross-section (SKD11).

HVであるが、レーザ照射によってマルテンサイトが形成し、硬度が 500 HV 前後に上昇する。更に、FSP を施すことで大幅に硬度上昇し、レーザ照射のみの場合の 2 倍の硬度 (900 HV) が得られている。焼入れ及び焼き戻し温度を最適化して得られる SKD11 の最高硬度が約 830 HV であることから、当該硬度上昇は組織微細化が原因であると思われる。なお、急冷凝固領域に FSP を施した後、サブゼロ処理を行うことで、SKD11 の硬度は 1000 HV にまで達する。

また、被処理材に対するレーザ照射をレーザクラディングに置き換えることで、従来は極めて微細化が困難であった炭化物を有する鋼についても、組織の微細化を図ることができる²⁹⁾。例えば、炭化バナジウム (VC) は SKD11 に多く含まれるクロム炭化物よりも優れた高温安定性を有しており、レーザ照射による短時間の処理では完全に溶解できない。また、溶融領域と未溶融領域界面近傍の VC が、対流によって溶融領域に巻き込まれてしまう。これは板材の表面を溶融させることに起因する現象であり、溶解し易いクロム炭化物の場合はそれ程問題とならないが、高温における安定性が高く、溶解し難い炭化物の場合に問題となる。しかしながら、一般的に高温安定性に優れた炭化物は高硬度であり、そのような炭化物を有する工具鋼は高い耐磨耗性を発揮する。

上記の問題を解決するために、粉末状の工具鋼をレーザで溶融させ、任意の基板上で急冷凝固させるレーザクラディングを用いることができる。粉末状の工具鋼に含まれる炭化物は工具鋼板材に含まれる炭化物よりも小さいことからレーザ照射による短時間の処理でも完全に溶解できることに加え、未溶解の炭化物を巻き込む恐れも無い。さらに、基板を安価な炭素鋼とすることで、部材のコストを低減することができる。Fig. 7 に VC 粒子を大量に含む工具鋼の組織変化を示す。レーザクラディング層にはデンドライト状の VC が形成され、当該領域に FSP を施すことで、サブミクロンの微細な球状 VC 粒子が分散した組織が得られている。TEM 観察においても、組織の構成単位は全て 500 nm 未満となっていることが分かる。VC 粒子の微細化は casting 分野でも盛んに研究されているが、Fig. 7 に示すようなナノメートルオーダーの微細組織は得られていない。

6. 組織微細化領域の応用例

FSP を用いて形成させた組織微細化領域の応用例として、各種刃物を挙げることができる。古来より日本刀は鍛造によって刃先の組織が微細化されてきたが、FSP を利用することにより、短時間でより微細な組織を有する刃物の大量生産が可能となる。Fig. 8 に鏡面研磨及びエッチング処理を施した SKD11 製木工用刃物（鉋）の刃先を示す。一方は一般的な SKD11 製のものであり、他方は同じ素材にレーザ照射及び FSP を施したものである。明るく見える領域が炭化物であるが、SKD11 製鉋では粗大な炭化物が大量に存在

Fig. 7 Microstructural change of the tool steel with VC particles.

Fig. 8 Microstructural change of the cutting edges.

していることが分かる。切削加工中に刃先から粗大な炭化物が脱離すると深刻な欠陥となり、当該現象が刃物寿命を決定してしまう。これに対し、レーザ照射及び FSP を施した領域には粗大な炭化物が全く存在しておらず、刃物寿命は炭化物の脱離によって律速されない。更に、当該領域は従来の刃先よりも大幅に高い硬度を有していることに加えて靱性も損なわれておらず、刃物としては極めて理想的な状態になっている。

7. おわりに

新規な金属材料の表面改質手法である FSP の基礎及び応用について紹介した。FSW (FSP) が開発されてから 20 年余

が経過し、対象材料はアルミニウム合金から鋼やチタン合金等の高融点金属にまで拡大している。解決すべき課題も残っているが、単純明快な原理に基づく技術であり、従来の手法には無い様々な利点を有していることから、今後も様々な分野での実用化が期待される。特に、簡便な組織微細化手法が存在しない工具鋼に関しては極めて効果的な技術であり、高硬度化を目的として大量添加されるレアメタルの削減が可能であることから、経済効果も大きい。

引用文献

- 1) W.M. Thomas, E.D. Nicholas, J.C. Needhan, M.G. Murch, P. Temple-Smith, C.J. Dawes: PCT/GB92/02203, December 6, 1991.
- 2) C.J. Dawes, Weld. Metal Fab., **63** (1995) 3pp.
- 3) C.J. Dawes, W.M. Thomas, Weld. J., **75** (1996) 41-45.
- 4) 摩擦攪拌接合 -FSW のすべて -, 溶接学会編、産報出版、(2006).
- 5) R. Nandan, T. DebRoy, H.K.D. Bhadeshia: Prog. Mater. Sci., **53** (2008) 980-1023.
- 6) R.S. Mishra, Z.Y. Ma, Mater. Sci. Eng. R, **50** (2005) 1-78.
- 7) Y.S. Sato, S.H.C. Park, H. Kokawa, Metall. Mater. Trans., **32A** (2001) 3023-3031.
- 8) H.J. Liu, H. Fujii, M. Maeda, K. Nogi, J. Mater. Proc. Tech., **142** (2003) 692-696.
- 9) H. Okamura, K. Aota, M. Ezumi, J. Jpn. Inst. Light Met., **50** (2000) 166-172.
- 10) G. Campbell, T. Stotler, Weld. J., **78** (1999) 45-47.
- 11) M.R. Johnson, Weld. J., **78** (1999) 35-39.
- 12) K.E. Knipstron, B. Pekkari, Weld. J., **76** (1997) 55-57.
- 13) C.J. Dawes, W.M. Thomas, Weld. J., **75** (1996) 41-45.
- 14) H. Fujii, Y.F. Sun, H. Kato, Scripta Mater, **64** (2011) 657-660.
- 15) T. Shinoda, M. Kawai, J. Jpn. Inst. Light Met., **53** (2003) 15-19.
- 16) W.M. Thomas, A.B.M. Braithwaite, R. John, Proc. 3rd Int. Symp. FSW, CD-ROM, (2001).
- 17) W.M. Thomas, D.G. Staines, I.M. Norris, R. Frias, Welding in the world, **47** (2003) 10-17.
- 18) G. Liu, L.E. Murr, C.S. Niou, J.C. McClure, F.R. Vega, Scripta Mater., **37** (1997) 355-361.
- 19) L.E. Murr, G. Liu, J.C. McClure, J. Mater. Sci. Lett., **16** (1997) 1801-1803.
- 20) L.E. Murr, G. Liu, J.C. McClure, J. Mater. Sci., **33** (1998) 1243-1251.
- 21) O.V. Flores, C. Kennedy, L.E. Murr, D. Brown, S. Pappu, B.M. Nowak, J.C. McClure, Scripta Mater., **38** (1998) 703-708.
- 22) C.I. Chang, C.J. Lee, and J.C. Huang: Scripta Mater., **51** (2004) 509-514.
- 23) O. Frigaard, Proc. 1st Int. Symp. FSW, CD-ROM, (1999).
- 24) Y. Morisada, H. Fujii, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Mater. Sci. Eng. A, **419** (2006) 344-348.
- 25) D.C. Hofmann, K.S. Vecchio, Mater. Sci. Eng. A, **402** (2005) 234-241.
- 26) Y. Morisada, H. Fujii, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Mater. Sci. Eng. A, **433** (2006) 50-54.
- 27) Y. Morisada, H. Fujii, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Scripta Mater., **55** (2006) 1067-1070.
- 28) Y. Morisada, H. Fujii, T. Mizuno, G. Abe, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Mater. Sci. Eng. A, **505** (2009) 157-162.
- 29) Y. Morisada, H. Fujii, T. Mizuno, G. Abe, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Surface and Coatings Technology, **205** (2011) 3397-3403.