高温材料の接合に向けた Ir 系摩擦攪拌接合ツールの開発*

宮澤 智明**, 岩本 祐一***, 丸子 智弘***, 藤井 英俊****

Development of Ir based tool for friction stir welding of high temperature materials*

by MIYAZAWA Tomoaki**, IWAMOTO Yuichi***, MARUKO Tomohiro*** and FUJII Hidetoshi****

A friction stir welding (FSW) tool with good properties at elevated temperature is needed to perform the friction stir welding of high temperature materials. One of the reasons for delaying the application of FSW to high temperature metals is the absence of such a tool. The purpose of this study was to develop a welding tool for the FSW of high temperature materials. As a result, it has been clarified that iridium (Ir) is almost unaffected by oxidation at elevated temperatures. The Ir alloy increases its recrystallization temperature, high-temperature strength and high-temperature hardness by the addition of rhenium (Re). Although SUS304 stainless steel was friction stir welded by an Ir-10at%Re welding tool, the tool was hardly deformed.

Key Words: Iridium, Rhenium, High temperature properties, Friction stir welding, Welding tool

1. 緒 言

摩擦攪拌接合 (Friction Stir Welding, FSW) とは、回転する接合ツールと被接合材との間で生じる摩擦熱を利用した固相における接合方法で、1991年に英国 TWI において開発された¹⁾。FSW は溶融溶接と異なり、接合部の温度が被接合材の融点にまで達しないため、接合部の強度低下が小さく、場合によっては母材よりも高強度になることもある優れた接合方法である。

しかし、現在までに実用化されている構造物は比較的融点の低い Al, Mg, Cu やそれぞれの合金であり²⁻⁴⁾、鉄鋼材料などの融点が高い材質においては、積極的に研究開発が進められているが、依然実用化にまでは至っていない。この原因の一つとして、高温材料を接合する場合に用いられる接合ツールが、高温における強度、硬度、靱性、耐摩耗性、非反応性といった性能を有してはならないことが挙げられる。これらを満たす材質として、現在までに W 合金, Mo 合金, 各種セラミックス材料, 超硬合金などが検討されており⁵⁻¹¹⁾、その中でも多結晶立方晶窒化ほう素 (PCBN) 等のセラミックス材料が主に使用され^{12, 13)}、研究されている。しかし、PCBN はダイヤモンドに次ぐ硬さを有している¹⁴⁾ため加工が難しいだけでなく、高温高压を必要とする製造工程のため¹⁵⁾大型のインゴットを作製することも難しく、実用化の観点からは問題がある。

そこで、本研究では高温において優れた性能を持つ合金により接合ツールを作製し、高温材料を接合するための接合ツールを提供することを目標とした。

2. 実 験 方 法

ツールの基材となりうる金属を選択するため、融点が 2000℃ 以上の各種金属について酸化の影響を調べた。ブルカー AXS 製示差熱天秤 TG-DTA2000SA を用いて、1200℃ まで 20℃/min で昇温し、1200℃ で 180 min 保持した。

添加元素の影響を見るために、様々な元素を 1at% 添加した Ir 合金の溶解インゴットをアーク溶解により作製し、熱間 (1400℃) において塑性加工を行った。塑性加工により加工硬化した金属材料は、高温に晒されることにより再結晶を起こし軟化することが知られている。FSW 中にツールが軟化し変形すると、継手の品質に大きな影響を与えることになるので、材料が軟化する温度を把握することは重要である。そこで、塑性加工後の Ir 合金を様々な温度で 1 時間熱処理し、室温においてビッカース硬さを測定することにより、ビッカース硬さの熱処理温度依存性を調査した。同様に、添加量を振った Ir 合金を作製し、ビッカース硬さの熱処理温度依存性を調査した。添加量が増えることにより塑性加工が困難となるため、これらの合金は 1650℃ において熱間加工を行った。ビッカース硬さの測定にはミットヨビッカース硬さ試験機 HV-112 を用い、荷重 24.5 N で行った。また、これらの合金を樹脂に埋込み、観察面を鏡面に仕上げた後電解腐食させ、光学顕微鏡によりミクロ組織を観察した。

ツール材質には高温における高強度・高硬度・高靱性といった性能が要求される。高温強度の評価として、高温圧

*受付日 平成22年1月13日 受理日 平成22年5月17日
**正 員 株式会社フルヤ金属 Member, Furuya Metal Co., Ltd.
*** 株式会社フルヤ金属 Furuya Metal Co., Ltd.
****正 員 大阪大学接合科学研究所 Member, Joining and Welding Research Institute Osaka University

Table 1 Typical properties of high-melting-point metals.

	Ir	Re	Mo	W	Nb	Ta	Hf
Melting point (°C)	2447	3186	2623	3422	2469	3020	2231
Tensile strength (MPa)	500	1131	481	588	275	206	444
0.2% proof stress (MPa)	90	317	441	539	206	177	230
Elongation (%)	6	24	50	0	30	40	23
Hardness (Hv)	200	280	160	360	80	70	160

Fig. 1 Change in weight of each element after oxidation test at 1200°C by TG-DTA

縮試験を行った。試験片の形状は直径 5 mm，高さ 5 mm とし，1200°C 大気中でクロスヘッド速度 0.1 mm/min で行った。また，高温における耐摩耗性の評価として高温硬さ試験を行った。高温硬さ試験はニコン製高温顕微硬度計 QM-2 を用い，1200°C アルゴン雰囲気中において，荷重 2.94 N において行った。

3. 結果と考察

3.1 ツール基材の検討

ツールの基材となりうる金属を選択するため，融点が 2000°C 以上の各種高融点金属について，機械的特性，耐酸化特性を調査した。Table 1 にいくつかの高融点金属の代表的な物性を示す¹⁶⁻¹⁸⁾。Table 1 より，いずれの金属も高い強度を有している。また，これらの金属は高温においても高強度を有することが一般的に知られている。Fig. 1 には TG-DTA 試験前後の重量変化を示した。1200°C で 180 min 保持した後は，Ir 以外の金属は酸化により大きく減耗するか，酸化物を生成し増量している。FSW 中のツールの酸化減耗や酸化物生成による増量は，FSW 中にツールの摩耗を促進する原因となりうる。以上の観点より，ツールの基材として Ir を選択した。

3.2 Ir への添加元素の影響

ツール基材としての Ir へ，種々の高融点金属 (Re, Mo, W, Nb, Ta) を 1at% 添加した合金について，ビッカース硬さの熱処理温度依存性を調査した。平衡状態図¹⁹⁾によると Ir への 1at% の添加は，いずれの元素も固溶範囲である。

Fig. 2 Annealing temperature dependence of Vickers hardness of Ir alloys containing one atomic percent of high-melting-point metal. **Fig. 3** Ir-Re binary alloy phase diagram²⁰⁾.

Fig. 2 に高融点金属を 1at% 添加した合金のビッカース硬さの熱処理温度依存性を示す。これによると，いずれの元素を添加しても硬さの上昇が見られる。特徴的なのは Ir-1at%Re の軟化開始温度（再結晶温度）が，他の合金系よりも高温側にあることである。平衡状態図 (Fig. 3)²⁰⁾を見ると，Re の添加でのみ Ir 合金の融点が上昇しており，これが再結晶温度を高温側へシフトさせる原因と考えられる。Ir-Re 系合金は固溶範囲が広い包晶反応系である。固溶範囲が広いことは，結晶構造が基材 (Ir の結晶構造は f.c.c) と大きく異ならないため，良好な塑性加工性が予想される。以上より，添加元素として Re を選択し，Ir-Re 系合金をツールとして作製した。

3.3 Ir-Re 系合金の高温における機械的特性

Ir-Re 系合金の物性を調査するため，Ir-1at%Re, Ir-3at%Re,

Ir-10at%Re について高温における機械的特性を調査した。

Fig. 4 に Ir-Re 系合金のビッカース硬さの熱処理温度依存性を示す。急激に硬度が低下する温度が再結晶温度と考えられるが、Re 濃度の増加に伴い、硬さ、再結晶温度の上昇が見られ、Re 添加による影響が確認された。ところで、鉄系の材料を FSW する場合の接合温度は 1200℃ 程度であると報告されている^{21, 22)}ため、高温における機械的特性、及び、微細組織の安定性に関する調査は 1200℃ において行った。Fig. 5 に熱間塑性加工の条件まま、及び、1200℃ において熱処理された Ir-Re 系合金のミクロ組織を示す (Fig. 4 の矢印の温度で熱処理)。Ir-Re 系合金の組織は、Re 濃度の増加に伴い結晶粒が微細になっている。また、1200℃ における熱処理後も大きな組織変化は見られなかった。これは Fig. 4 の曲線の結果と一致している。これらから、Ir-Re 系合金は高温まで再結晶を起こさず、1200℃ における熱処理でも塑性加工後と同等のミクロ組織を有していることが分かった。

高温における耐摩耗性の指標として、1200℃ における高

Fig. 4 Annealing temperature dependence of Vickers hardness of Ir-Re alloys.

Fig. 5 Microstructure of Ir-Re alloys; (a) Ir-1at%Re as-hot rolled, (a') Ir-1at%Re annealed at 1200℃, (b) Ir-3at%Re as-hot rolled, (b') Ir-3at%Re annealed at 1200℃, (c) Ir-10at%Re as-hot rolled, (c') Ir-10at%Re annealed at 1200℃.

温硬さを Fig. 6 に示した。Re 濃度の増加に伴い、高温硬さは増加した。例えば、SUS304 ステンレス鋼の 800℃ におけるビッカース硬さは 100 Hv 程度²³⁾であり、1200℃ では更に軟化することから、Fe 系材料の FSW を行う場合には、Ir-10at%Re ツールは摩耗し難いと考えられる。

FSW では、キッシングボンドと呼ばれる欠陥が接合裏面に発生することがある。これはプローブ長さの不適合の他に、入熱不足などにより発生するが²⁴⁾、これを抑制するためには、ツールには 10 kN を超える大きな荷重と 1000℃ を越す温度が終始負荷されるため、高温における圧縮強度が必要となる。Fig. 7 は Ir-Re 系合金の 1200℃ における高温圧縮試験結果である。Re 濃度の増加に伴い、0.2% 耐力は増加しており、Ir-10at%Re は 250 MPa を示した。一般的なステンレス鋼の室温引張試験における 0.2% 耐力は 250 MPa 程度、800℃ における 0.2% 耐力は 100 MPa 程度²⁵⁾であることから、Ir-10at%Re は FSW のツール挿入時から問題のないツールとして使用可能な機械的特性を有していると考えられ

Fig. 6 Rhenium concentration dependence of Vickers hardness of Ir-Re alloy at 1200℃.

Fig. 7 Rhenium concentration dependence of compressive 0.2% proof stress of Ir-Re alloy at 1200℃.

Fig. 8 FSWed SUS304 stainless steel using Ir-10at%Re tool.

Fig. 9 Change in probe length of Ir-Re alloy tools after FSW.

る。

3.4 Ir-Re 系合金ツールによる FSW

Ir-3at%Re, Ir-10at%Re によりツールを作製し, SUS304 ステンレス鋼の接合を試みた。接合は回転速度 1080 rpm, 接合速度 320 mm/min で, 汎用フライス盤を使用した。1 回の接合長さを 120 mm として数回の FSW を行った。Fig. 8 に Ir-10at%Re ツールで突き合わせ接合した後の SUS304 ステンレス鋼の外観を示す。Ir-3at%Re ツールでも同様に接合が可能であった。Fig. 9 に FSW 後のプローブ長さの変化を示す。Ir-3at%Re ツールで 7 回 (接合距離 840 mm), Ir-10at%Re ツールで 10 回 (接合距離 1200 mm) の FSW を行ったが, Ir-10at%Re ツールのほうがプローブ長さの変化は大幅に小さかった。

4. 結 言

高い融点を持つ金属を摩擦攪拌接合するためのツールを検討した結果, 以下の結果を得た。

- (1) 様々な高融点金属の, 高温における酸化特性から, Ir は重量の増減がほとんどなく, 高温で使用する工具として適している。
- (2) 様々な高融点金属を 1at% 添加した Ir 合金の硬さの熱

処理温度依存性から, Re を添加した場合のみ再結晶温度が上昇した。

- (3) Ir-Re 系合金は 1200℃ における熱処理後でも, 塑性加工後と同等の組織を保つ。また, Re 濃度の増加に伴い硬さは上昇し, 結晶粒は微細化される。
- (4) Ir-Re 系合金の 1200℃ における硬さは Re 濃度の上昇に伴い増加し, Ir-10at%Re においては, 800℃ における SUS304 ステンレス鋼の硬さよりも高い値を示した。
- (5) Ir-Re 系合金の 1200℃ における圧縮強度は Re 濃度の上昇に伴い増加した。Ir-10at%Re の 1200℃ における高温圧縮強度は, SUS304 ステンレス鋼の室温における引張強度と同程度であり, FSW のツール挿入時から問題のないツールを作製することが可能である。
- (6) Ir-Re 系合金により摩擦攪拌接合用ツールを作製し, SUS304 ステンレス鋼の接合に成功した。この時使用した Ir-10at%Re ツールには, 顕著な形状変化はみられなかった。

参 考 文 献

- 1) W. M. Thomas, E. D. Nicholas, J. C. Needham, M. G. Murch, P. Temple-Smith, and C. J. Dawes: International Patent Application PCT/GB/02203 and GB Patent Application No. 9125978.9, (1991).
- 2) I. Okura: Application of Aluminum Alloys to Bridges and Joining Technique, Journal of the Japan welding society, 72-1 (2003), 53-56. (in Japanese)
- 3) M. Aritoshi: Friction Stir Welding of Magnesium Alloy Sheets, Journal of the Japan welding society, 74-3 (2005), 152-157. (in Japanese)
- 4) T. Tonogi: Application of Friction Stir Welding to Copper Backing Plate, Journal of the Japan welding society, 72-6 (2003), 516-519. (in Japanese)
- 5) A. P. Reynolds, W. Tang, M. Posada and J. DeLoach: Friction stir welding of DH36 steel, Science and technology of welding and joining, 8-6 (2003), 455-460.
- 6) Y. S. Sato, H. Yamanoi, H. Kokawa and T. Furuhashi: Microstructural evolution of ultrahigh carbon steel during friction stir welding, Scripta Materialia, 57 (2007), 557-560.
- 7) Y. Zhang, Y. S. Sato, H. Kokawa, S. H. C. Park, S. Hirano: Microstructural characteristics and mechanical properties of Ti-6Al-4V friction stir welds, Materials Science and Engineering A, 485 (2008), 448-455.
- 8) R. Ueji, H. Fujii, L. Cui, A. Nishioka, K. Kunishige and K. Nogi:

- Friction stir welding of ultrafine grained plain low-carbon steel formed by the martensite process, *Materials Science and Engineering A*, 423 (2006), 324-330.
- 9) T. Ishikawa, H. Fujii, K. Genchi, S. Iwaki, S. Matsuoka and K. Nogi: High Speed-High Quality Friction Stir Welding of Austenitic Stainless Steel, *ISIJ International*, 49-6 (2009), 897-901.
- 10) H. Fujii, L. Cui, N. Tsuji, M. Maeda, K. Nakata and K. Nogi: Friction stir welding of carbon steels, *Materials Science and Engineering A*, 429 (2006), 50-57.
- 11) L. Cui, H. Fujii, N. Tsuji and K. Nogi: Friction stir welding of a high carbon steel, *Scripta Materialia*, 56 (2007), 637-640.
- 12) M. Collier, R. Steel, T. Nelson, C. Sorensen and S. Packer: Grade Development of Polycrystalline Cubic Boron Nitride for Friction Stir Processing of Ferrous Alloys, *Materials Science Forum*, 426-432 (2003), 3011-3016.
- 13) Y. S. Sato, T. W. Nelson, C. J. Sterling: Recrystallization in type 304L stainless steel during friction stirring, *Acta Materialia*, 53 (2005), 637-645.
- 14) S. Nagakura, Y. Iguchi, H. Ezawa, H. Iwamura, F. Sato, and R. Kubo: *Iwanami Dictionary for Physics and Chemistry*, The Fifth Edition. (1998), 842. (in Japanese)
- 15) Sumitomo Electric Industries, Ltd.: Sintered cubic boron nitride and method for manufacturing the same. JP4106590. 2008-6-25. (in Japanese)
- 16) The Japan Institute of Metal: *Metals Data Book* 4th ed., Maruzen, (2004), 175. (in Japanese)
- 17) Degussa: *Edelmetall taschenbuch*, Hüthig-Verlag Heidelberg, (1995), 213.
- 18) T. E. Tietz and J. W. Wilson: *Behavior and properties of refractory metals*, University of Tokyo Press, (1965), 208.
- 19) T.B.Massalski: *Binary Alloy Phase Diagram*, 2nd ed., ASM International, Materials Park, Ohio, (1990), 3542p.
- 20) T.B.Massalski: *Binary Alloy Phase Diagram*, 2nd ed., ASM International, Materials Park, Ohio, 2, (1990), 2346.
- 21) W. M. Thomas, P. L. Threadgill and E. D. Nicholas: Feasibility of friction stir welding steel, *Science and Technology of Welding and Joining*, 4-6 (1999), 365-372.
- 22) T. J. Lienert, W. L. Stellwag, Jr., B. B. Grimmer and R. W. Warke: Friction Stir Welding Studies on Mild Steel, *Welding Journal*, 82-1 (2003), 1-S-9-S.
- 23) Y. Takahashi, M. Masaki, T. Kiyotaka, M. Kitasaka, S. Katagishi and K. Shimizu: Manufacture and Several Characteristic Evaluations of Cast Iron Matrix Composite Materials by Cast-In Insertion Process. -Development of High-Temperature Wear Resistance Bent Pipe for Powder Transportation-, Oita Industrial Research Institute research report, (2002), http://www.oita-ri.go.jp/report/2002/2002_21.pdf
- 24) H. Okamura, K. Aota, H. Takai, M. Ezumi: Problems for Application and Situation of Development in Friction Stir Welding, *Journal of the Japan welding society*, 72-5 (2003), 436-444. (in Japanese)
- 25) NIRM Creep Data Sheet, No. 32A, NIMS, Tsukuba, (1995).
-