

摩擦攪拌中のツール摩耗を利用した鋼表面への局所的合金化手法の開発

大阪大学 接合科学研究所 助教 山本 啓

1. 緒言

金属材料を接合する手法のひとつとして、摩擦攪拌接合(Friction stir welding: FSW)¹⁾が注目されている。FSWは、高速回転させたツールと呼ばれる棒状工具を表面に押し付けることで生じる摩擦熱と塑性変形を利用した固相接合法である。その接合部は、動的再結晶によって超微細粒組織となるため、場合によっては母材よりも高い強度を示す。またその特徴を生かし、表面改質のために応用した摩擦攪拌プロセス(Friction stir processing: FSP)²⁾は、所望の局所領域に対して組織の微細化・均質化が可能な他に類のない技術として知られている。

軟質なアルミニウム合金の施工から始まった FSW/FSP は、ツールに超硬合金や各種セラミックスなどの高温特性に優れた材料を採用することによって、現在では鉄鋼材料のような高強度金属にまで適用範囲を拡大している^{2,6)}。しかしながら、鉄鋼材料の FSW/FSP において、ツールの摩耗は依然として不可避な問題であり、良好な加工品質を維持するうえで大きな障害となっている。一方、本研究にて着目するのは、このときに鋼中に分散されるツール構成元素の存在である。多くの研究者が“摩耗しないツール”の開発に注力するばかりで、摩耗したツール材と鋼材との間で生じる組織変化に着目した研究は国内外ともにほとんどない。その数少ない研究事例⁷⁾では、FSW 中に PCBN 製ツールから供給された B が、ステンレス鋼基地との反応によって Cr ホウ化物の形成に寄与し、耐食性の低下を生じ得るというネガティブな結果を報告している。しかしながら、著しい塑性変形と元素添加が同時に起こる本現象は、局所領域へのメカニカルアロイングとして捉えることができ、ツール材と鋼材の組合せによっては、材料特性改善のためのポジティブな結果へと転換できる可能性を秘めている。本研究では、種々の鋼材における FSP 中の鋼表層へのツール構成元素供給機構及びそれら元素が組織形成に及ぼす影響を解明し、鋼表面の高強度化・高機能化に資する新しい局所的元素添加・合金化手法を確立することを目的とした。

2. 実験方法

供試材には、寸法 $150 \times 50 \times 4 \text{ mm}^3$ の低炭素鋼板 SM490A、フェライト系ステンレス鋼板 SUS430、オーステナイト系ステンレス鋼板 SUS304 の 3 鋼種を使用した。各鋼板の化学組成を表 1 に示す。

表 1 供試材 3 鋼種の化学組成

Steel type	C	Si	Mn	P	S	Cr	Ni	Fe
SM490A	0.17	0.44	1.43	0.012	0.002	-	-	Bal.
SUS430	0.04	0.24	0.5	0.026	0.005	16.18	0.18	Bal.
SUS304	0.03	0.59	0.93	0.034	0.002	18.1	8.05	Bal.

各鋼板表面に対し、ツール回転速度 900 rpm, 移動速度 100 mm/min, 挿入深さ 0.8 mm, 後退側傾斜角 3 deg. で FSP を施工した。ツールは WC-Ni 系超硬合金製で、先端は直径 15 mm のフラット型を採用した。

FSP 中に作用した荷重を、母材を固定している裏当て板中央部の下側に設置した圧電式荷重センサー(Kistler 9347C)を用いて測定した。ツール走行距離 300-400, 400-500, 500-600 mm の 3 区間において、鋼板の長手方向(ツール移動方向), 短手方向, 板幅方向(ツール挿入方向)の 3 方向の荷重を全施工時間に渡り記録した。

FSP 中のツールと鋼の界面での反応を凍結するため、ストップアクション法^{8,9)}による試料作製を実施した。その概要の模式図を図 1 に示す。水槽底部に固定した鋼板上で FSP を行い、走行距離 50 mm に到達した時点でツールの回転と走行を急停止させ、それと同時に水槽内に水を注ぎ込むことでツールと鋼板を接触させたまま急冷した。

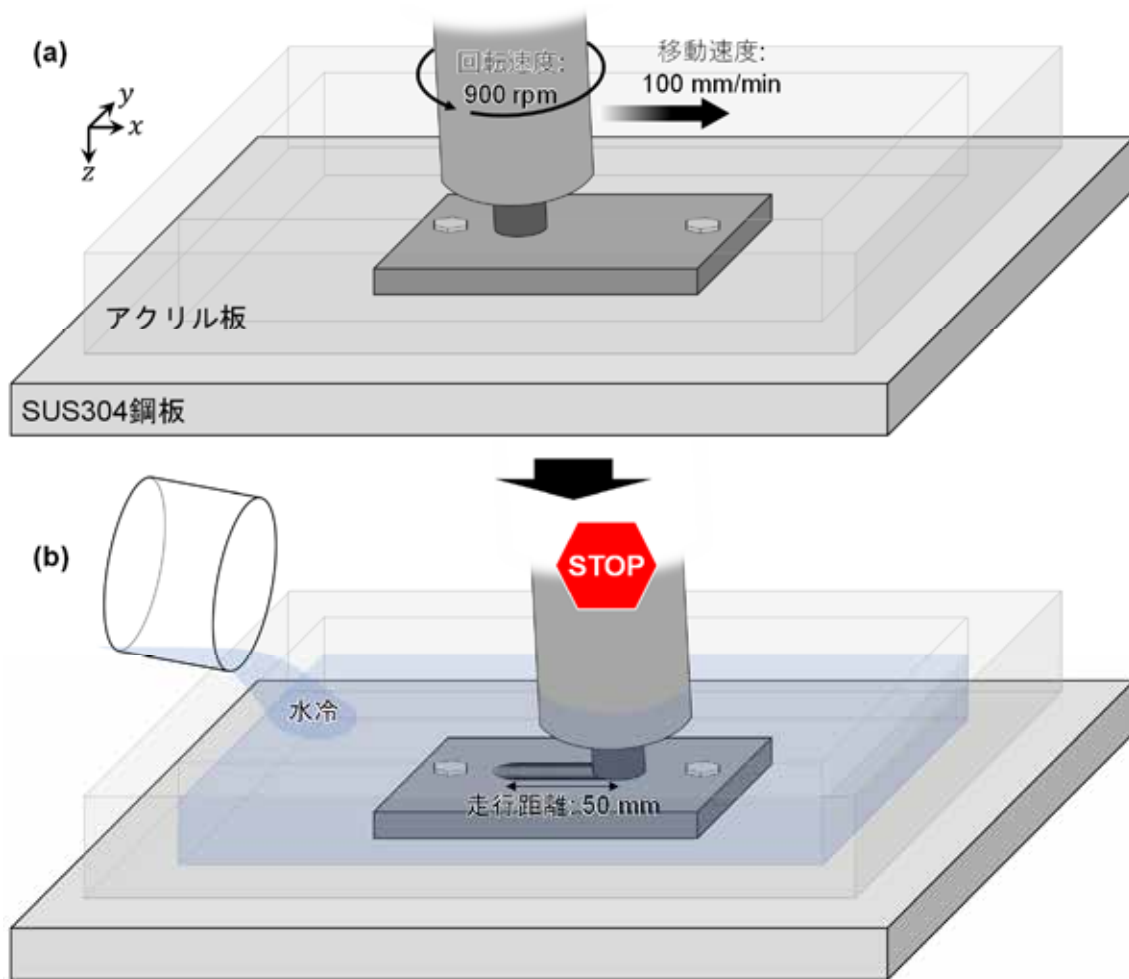


図1 ストップアクション法の模式図

(a)水槽底部に固定した鋼板上で FSP 開始

(b)走行距離 50 mm 地点でツールの回転と走行を急停止+水急冷

各試料断面の組織観察には、光学顕微鏡(Optical microscopy: OM)、走査型顕微鏡(Scanning electron microscopy: SEM)、及び透過型顕微鏡(Transmission electron microscopy: TEM)を用いた。また、それらの付属機器を用いたエネルギー分散型 X 線分析(EDS: Energy dispersive X-ray spectroscopy)及び電子線マイクロアナライザ(EPMA: Electron probe microanalyzer)による元素分析を行った。FSP 施工面と FSP 後のツール表面に対し、X 線回折(XRD: X-ray diffraction)パターンを取得して相同定を行った。測定には Cu 管球を用い、出力は 40 kV 及び 40 mA、スキャンスピードは 1 deg./min、ステップ幅は 0.02 deg.とした。

3. 結果・考察

3.1. FSP 後の鋼とツール

FSP による鋼表層へのツール構成元素添加量を調査するため、施工部断面に対して EPMA を行った。代表として、各鋼種におけるツール走行距離約 450 mm 地点での断面 OM 像と EPMA-W マップならびに表層部におけるツール構成元素添加量の分布を図 2 に示す。OM 像上の組織形態に起因するコントラストから見積もられる攪拌部の範囲を白い点線で示しているが、その大きさは同じ FSP 条件にもかかわらず、鋼種による違いがみられた(図 2(a)-(c))。フェライトを基地組織とする SM490A と SUS430 は同程度に大きい一方、オーステナイトを基地組織とする SUS304 はそれらよりも小さかった。これは、オーステナイトがフェライトよりも高温で高い変形抵抗を有することに起因していると考えられる。また、いずれの攪拌部表層においてもツール構成元素が添加されたことが EPMA により確認され、その深さ範囲は SM490A が最も大きかった(図 2(d)-(f))。攪拌部表面から 20 μm の深さの位置に対し、直径 10 μm のスポット径で各元素の濃度増加量を見積もった結果、図 2(g)-(i)の分布(攪拌部中央からの距離は前進側(AS)の方向をマイナス、後退側(RS)の方向をプラスで表記)に示すように、全体的な濃度増加量は SM490A, SUS304, SUS430 の順に高かった。また、すべての鋼種において、W と C の濃度増加量は Ni と Cr のそれよりも大きかった。この比率はツールの持つ化学組成に近い値であり、ツールから鋼側への元素供給が外部へ損失することなく生じたことを示唆している。

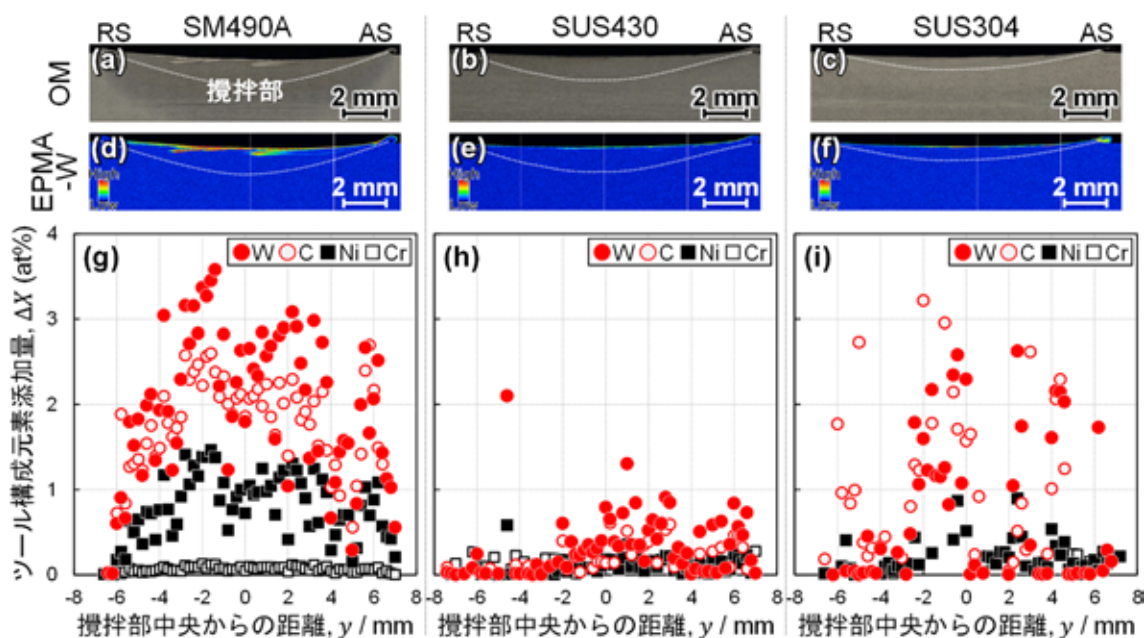


図 2 ツール走行距離 450 mm 地点での断面(a)-(c)OM 像と(d)-(f)EPMA-W マップ
ならびに(g)-(i)表層部におけるツール構成元素添加量の分布

ツールから鋼側への元素供給過程において、ツール/鋼界面でどのような反応が生じているかを調査するため、FSP後の攪拌部表面と摩耗したツール先端表面のXRD解析を行った。各鋼種におけるそれぞれのXRDパターンを図3に示す。母材はフェライト主体で構成されているSM490AとSUS430において、FSP後の攪拌部表面ではフェライトのピークのみならず、オーステナイトのピークも観察された。SM490Aは元素添加の有無に限らず、FSP中の温度上昇によってオーステナイトへと変態し、その後の冷却過程でマルテンサイト変態を生じるが、CやNiといったオーステナイト安定化元素が多量に固溶したことにより、元素添加がない場合よりも多くのオーステナイトが残留したと考えられる。一方、SUS430は温度によらずフェライト安定な化学組成を有するはずであるが、元素添加によりFSP中のオーステナイト変態が促進され、そのうちの大部分が最終的に室温まで残留したものと考えられる。また、母材がオーステナイト単相のSUS304は、FSP後もオーステナイト単相のままであった。したがって、ツール構成元素の添加により攪拌部表層のオーステナイト安定化が促進されるものの、いずれの鋼種においても鋼基地以外の相の存在は確認されず、添加元素が鋼中に全量固溶したことを示唆する結果となった。これに対し、ツール側の回折パターンでは、いずれの鋼種においてもWCとともに多数の M_6C のピークがみられた。ツール構成元素が鋼中に固溶するにあたり、その前駆体としてWCと鋼側元素の反応により M_6C がツール先端に生成するものと考えられる。

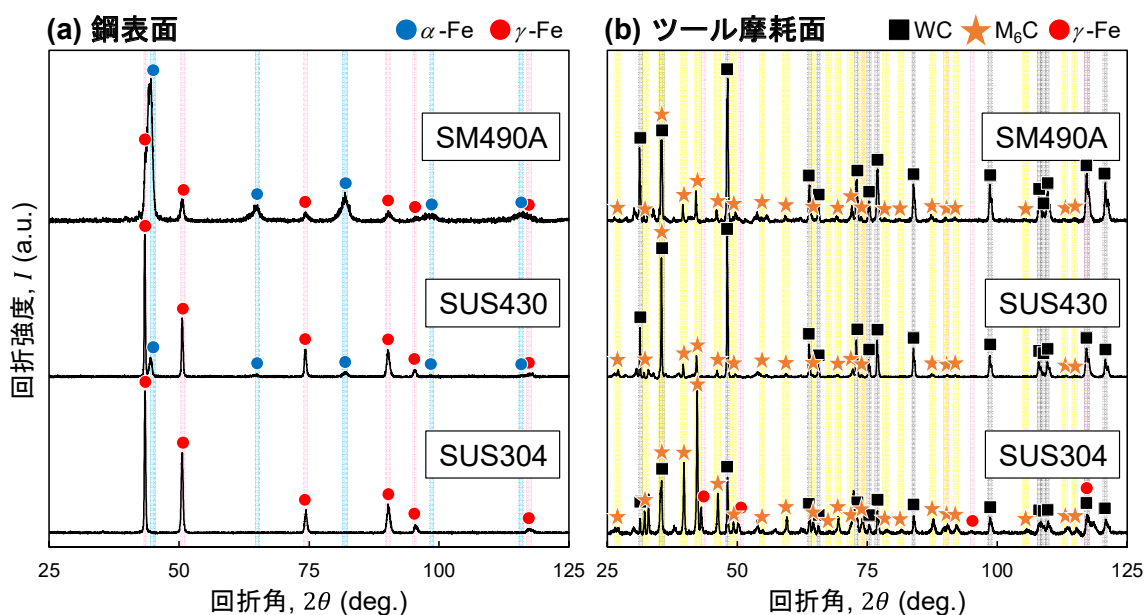


図3 FSP後の(a)鋼表面と(b)ツール摩耗面から取得したXRDパターン

3.2. ツール元素添加量の鋼種依存性

3 鋼種間での元素添加量の差には、ツール先端に形成された M_6C を主とする反応層の強度と、ツールの運動により反応層へ負荷される力の 2 つの因子が関係していると考えられる。そこで、FSP 中に作用した鋼板の長手方向(ツール移動方向)、短手方向、板幅方向(ツール挿入方向)の 3 つの荷重を圧電式荷重センサーにより測定した。ツール走行距離 300-400, 400-500, 500-600 mm の区間におけるそれらの平均値を図 4 に示す。

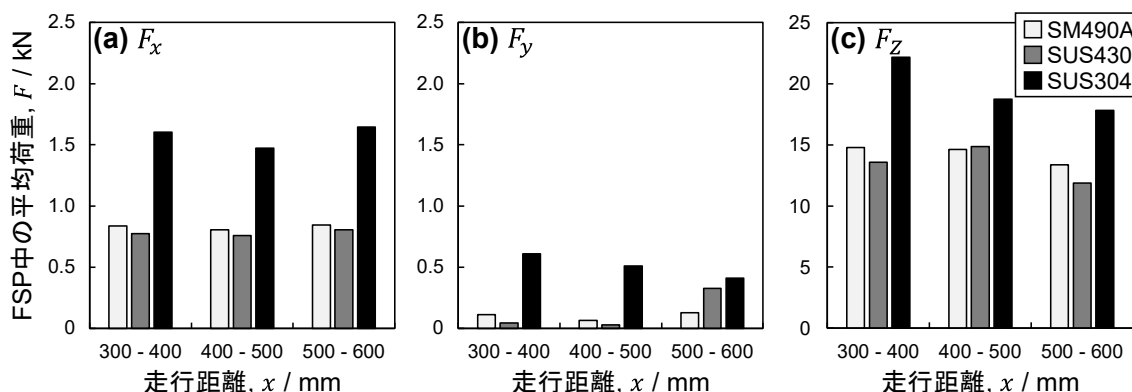


図 4 ツール走行距離 300-400, 400-500, 500-600 mm の区間において鋼板の(a)長手方向(ツール移動方向)、(b)短手方向、(c)板幅方向(ツール挿入方向)に生じた平均荷重

フェライトを基地組織とする SM490A と SUS430 において生じた荷重は、全方向及び全区間において同程度であったが、オーステナイトを基地組織とする SUS304 はそれらよりも著しく大きかった。これは、図 2 で示した攪拌部の大きさが異なる理由と同様に、オーステナイトがフェライトよりも高温で高い変形抵抗を有することに起因していると考えられる。しかしながら、SUS304 における元素添加量は SUS430 よりは大きいものの SM490A よりは低く、FSP 中のツールに生じる荷重の違いだけでその大小関係を完全に説明することはできない。

FSP 中の施工面表層へのツール構成元素の供給過程におけるツール/鋼界面の様子を観察するため、ストップアクション法により組織変化を凍結したキーホール試料を作製した。回転速度 900 rpm の FSP 中に鋼中に埋入していたツールは、その運動を急停止したことによる衝撃で破砕し、その破片が残存した状態となっていた。このキーホール試料のツール/鋼界面から集束イオンビーム加工により薄膜試料を採取し、TEM-EDS を実施した結果を図 5 に示す。各低倍率の明視野(Bright field: BF)像(図 5(a)-(c))のツール(上)側に黄色で示された領域は、EDS-Fe/W マップ(図 5(d)-(f))を基に識別した M_6C であり、その形態は鋼種により大きく異なっている。SM490A に施工したツール先端の反応層では、直径 3 μm 程度の粗大な M_6C 粒と、その間隙に旧バインダー領域と思われる鋼基地とほぼ同じ化学組成を有する金属相が観察された。Ni 基バインダーは FSP 中に鋼側から拡散した Fe を

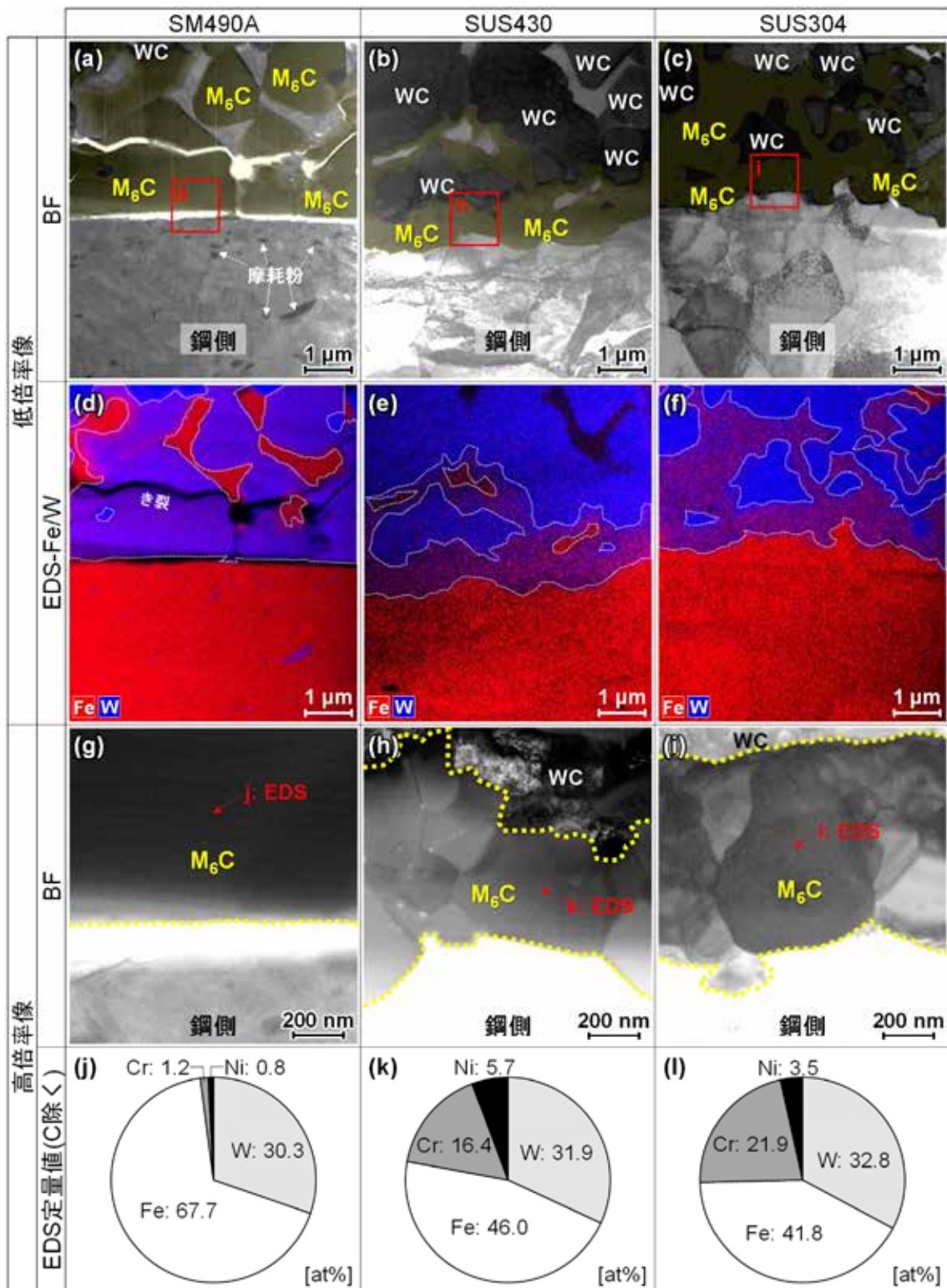


図5 ストップアクション法により組織変化を凍結したキーホール試料におけるツール/鋼界面の TEM-EDS 結果 (低倍率の(a)-(c)BF 像と(d)-(f)EDS-Fe/W マップ、高倍率の(g)-(i)BF 像と(j)-(l)その M_6C 粒内における EDS 定量分析結果(C を除く))

主とする原子によって置換され、同時に WC 粒子は Fe との反応によって M_6C を形成したと考えられる。その M_6C 粒内を EDS により定量分析した結果(図 5(g), (j)), Fe 濃度が W 濃度の約 2 倍であったことから、 Fe_4W_2C である可能性が示唆された。これに対し、SUS430 と SUS304 に施工したツール先端の反応層には金属相の領域が存在せず、WC 粒子を取り囲むように網目状に M_6C が形成されていた(図 5(b), (c))。加えて、図 5(h), (i)の拡大 BF 像に示すように、 M_6C 粒はいずれも直径 200~400 nm と極めて微細であることがわかった。両鋼種における M_6C 粒内の化学組成(図 5(k), (l))は類似しており、SM490A のそれ(図 5(j))と比較して Fe が約 20 at%少なく、Cr が約 20 at%多い傾向にあった。Cr は C との親和性が高く、炭化物を容易に形成する元素であるため、Cr を含む鋼側の元素がバインダー領域へと拡散するとともに、WC 粒子の間隙で早期に微細な M_6C 粒を形成したものと考えられる。この SUS430 と SUS304 における超微細 M_6C 粒と WC 粒子で構成された緻密な反応層は、SM490A における粗大 M_6C 粒と金属相を含むそれよりも FSP 中に離脱しにくいと思われる。したがって、SM490A において元素添加量が最大となった要因は、この FSP 中のツール先端において脆弱で離脱が容易な反応層が形成されるためと考えられる。一方で、ともに強固な反応層を形成する SUS430 と SUS304 においても、元素添加量に差異が生じた要因は、図 4 で示した FSP 中にツールに生じる荷重の違いにあると考えられ、負荷される荷重が小さい SUS430 の場合には、ツール先端での離脱がより少なくなる可能性が示唆された。

4. 結言

本研究では、SM490A, SUS430, SUS304 の 3 鋼種について、WC-Ni 系超硬合金ツールの摩耗を伴った FSP における鋼表層へのツール構成元素供給機構及びそれら元素が組織形成に及ぼす影響を調査した。

ツール構成元素は FSP 中に外部への損失なく攪拌部表層へ添加・固溶され、その量は SM490A, SUS304, SUS430 の順に高かった。母材に Cr をほぼ含有しない SM490A への施工では、ツール先端の反応層において粗大な M_6C 粒が金属相に囲まれて存在しているため、鋼側へ離脱しやすく、ツールに生じる荷重が小さいにもかかわらず、最も多いツール構成元素が供給されると考えられた。一方、Cr を含有する SUS430 と SUS304 では、超微細 M_6C 粒と WC 粒で構成された緻密な反応層となり、添加量は SM490A と比較して小さくなった。ただし、両ステンレス鋼において、ツールに生じる荷重が大きなオーステナイト主体の SUS304 の方がフェライト主体の SUS430 よりも大きな添加量になったと結論付けられた。

以上のように、本プロセスにおけるツール構成元素添加量は、鋼側の化学組成と構成相に依存するものの、従来では実現し得なかった局所領域の固相合金化プロセスとしての基礎を確立することができた。本研究にて得た知見を活かし、鋼種とその用途に応じたツール材や FSP 条件を最適化することで、鉄鋼材料表面の高機能化・高強度化に資する技術へ

と発展できるものと考えている。

謝辞

本研究は、公益社団法人 JFE21 世紀財団 2020 年度技術研究助成の支援を受けて遂行した。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- 1) R.S. Mishra, Z.Y. Ma: Friction stir welding and processing, *Materials Science and Engineering R*, 50 (2005) pp. 1-78.
- 2) W.M. Thomas, P.L. Threadgill, E.D. Nicholas: Feasibility of friction stir welding steel, *Science and Technology of Welding and Joining*, 4 (1999) pp. 365-372.
- 3) A.P. Reynolds, W. Tang, T. Gnaupel-Herold, H. Prask: Structure, properties, and residual stress of 304L stainless steel friction stir welds, *Scripta Materialia*, 48 (2003) pp. 1289-1294.
- 4) Y.S. Sato, T.W. Nelson, C.J. Sterling, R.J. Steel, C.-O. Pettersson: Microstructure and mechanical properties of friction stir welded SAF 2507 super duplex stainless steel, *Materials Science and Engineering A*, 397 (2005) pp. 376-384.
- 5) H. Fujii, L. Cui, N. Tsuji, M. Maeda, K. Nakata, K. Nogi: Friction stir welding of carbon steels, *Materials Science and Engineering A*, 429 (2006) pp. 50-57.
- 6) L. Cui, H. Fujii, N. Tsuji, K. Nogi: Friction stir welding of a high carbon steel, *Scripta Materialia*, 56 (2007) pp. 637-640.
- 7) S.H.C. Park, Y.S. Sato, H. Kokawa, K. Okamoto, S. Hirano, M. Inagaki: Boride formation induced by pcBN tool wear in friction-stir-welded stainless steels, *Metallurgical and Materials Transactions A*, 40 (2009) pp. 625-636.
- 8) R.W. Fonda, J.F. Bingert, K.J. Colligan: Development of grain structure during friction stir welding, *Scripta Materialia*, 51 (2004) pp. 243-248.
- 9) P.B. Prangnell, C.P. Heason: Grain structure formation during friction stir welding observed by the 'stop action technique', *Acta Materialia*, 53 (2005) pp. 3179-3192.