

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 6 日現在

機関番号：13102

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2011 年～2012 年

課題番号：23760691

研究課題名（和文） コリレイティブマイクロスコープ解析に基づく汎用マグネシウム合金押出材の高速化

研究課題名（英文） High speed extrusion of Mg alloys based on correlative microscopy

研究代表者

本間 智之 (HOMMA TOMOYUKI)

長岡技術科学大学・工学部・准教授

研究者番号：50452082

研究成果の概要（和文）：高速押出しが可能な Mg 合金の開発を目的に、汎用元素を組み合わせた Mg-4Al-3Ca-0.3Mn および Mg-6.4Zn-0.2Ca-0.2Mn (mass%) 合金を選択し、押出し加工後の第 2 相粒子と機械的性質の関係をコリレイティブマイクロスコープを用いて解析した。また、合金組成を希薄化した Mg-0.27Al-0.13Ca-0.21Mn 合金 (mol%) を開発し、40mm/min の高速押出しに成功した。

研究成果の概要（英文）：In order to develop high speed extrudable Mg alloys, Mg-4Al-3Ca-0.3Mn and Mg-6.4Zn-0.2Ca-0.2Mn (mass%) alloys have been chosen by addition of ubiquitous elements. After the extrusion, relationship between particles and the mechanical properties was analyzed by correlative microscopy. Using a dilute Mg-0.27Al-0.13Ca-0.21Mn (mol%) alloy, a high speed extrusion of 40 mm/min has been accomplished.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料加工・処理

キーワード：塑性加工

1. 研究開始当初の背景

塑性加工の一種である押出し加工は、窓枠や輸送機器、パソコンの筐体等に用いられ、主としてアルミニウム合金（以下 Al 合金）などの高比強度合金がこの方法で加工されている。輸送機器の中でも新幹線構体は、この押出し技術が利用されており、中程度の強度を有する 6N01 合金を、押出し加工により中空部分を有する断面形状（ダブルスキン構体）に押し出すことで、高強度化と軽量化を同時に達成し（図 1）、しかも量産化が可能な高速での押出し加工が可能である。

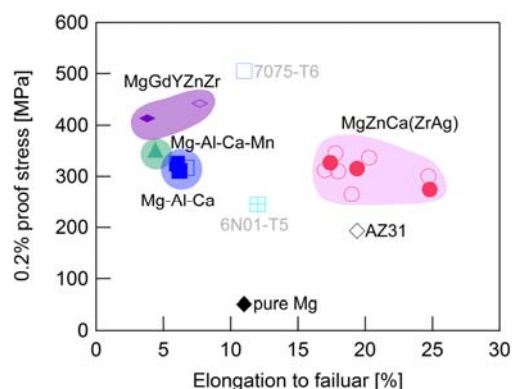


図 1 開発合金の 0.2% 耐力と伸びの関係。7075 合金は超々ジュラルミン。

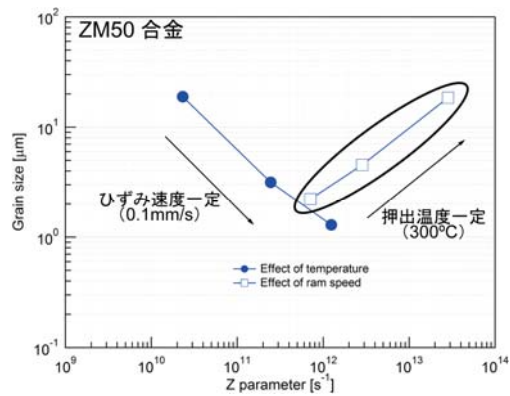


図2 Mg合金押し材のZパラメータと結晶粒径の関係。

一方、マグネシウム合金（以下、Mg合金）は、実用金属中最軽量であることから、近年、その研究開発が精力的に行われている。これまでの研究から、Mg合金の押し材は、低速で押し加工を行うことで、高強度が得られることが分かっているが（図1）、高速で押し加工をすると、加工中に割れが発生し、押しができないことが問題となっている。図2はMg-5Zn-0.3Mn（mass%）合金押し材を用いて、得られた結晶粒径とZパラメータの関係を示したグラフである。Zパラメータは $Z = \dot{\epsilon}(Q/RT)$ で与えられる。ここで $\dot{\epsilon}$ はひずみ速度、Qは活性化エネルギー、Rは気体定数、Tは絶対温度である。我々は、図2に示すようにひずみ速度一定（270°C）で押し加工すると結晶粒が微細化し、典型的な粒径とZパラメータの関係を示すが、押し温度一定でひずみ速度を増加させると結晶粒径が粗大化するという異常現象を確認している。押しで高強度化するには、結晶粒径を小さく維持する必要があり、低速で押しすると結晶粒の粒界部分にナノスケールの微細析出物が偏析することで、結晶粒の成長を抑制し、結果的に結晶粒径が微細化することを明らかにしている。

そこで、本研究では図2の楕円内に示す領域に着目し、押し後、母相の溶質原子の固溶状態を高く維持し、その後の析出処理で高強度化を目指す。

2. 研究の目的

押し加工の高速度化を目的に、微細析出物が粒界を覆うことが可能な合金系を抽出し、合金組成を考慮に入れることで、押し加工の高速度化を目指す。また、コリレイティブマイクロスコープに基づく微細組織観察を行うことで、微細析出物の組成や構造を同定し、時効処理に伴う、析出物の分散状態をナノ・原子レベル解析で明らかにする。

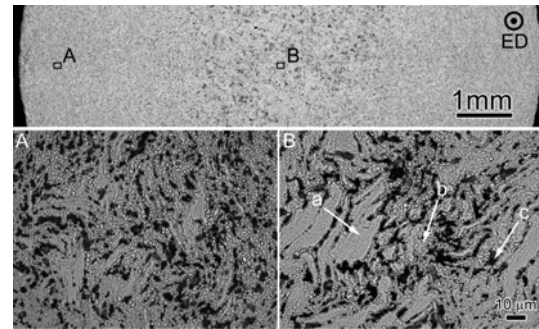


図3 押し材の押し方向に垂直な断面のOM像。断面の中心部と端部で粒径を比較。

3. 研究の方法

合金はSF₆およびCO₂ガス雰囲気中で電気炉を用いて鋳込み、直径50mm、長さ250mmのピレットを得た。押し用のピレットは直径43mm、高さ37mmを用い、金型温度を250~500°Cに調整して押し加工を行った。押し速度は0.1~40mm/sで行い、間接押し法を用いて押し比は20に固定した。引張試験は標点間距離22mm、直径4mm、JIS14号A比例試験片を用い、初期ひずみ速度 $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で引張試験を行った。

コリレイティブマイクロスコープには、光学顕微鏡（OM）、電界放射形走査型電子顕微鏡、後方散乱電子回折（EBSD）法、透過型電子顕微鏡（TEM）、電界放射形透過型電子顕微鏡（FETEM）、高角度散乱暗視野走査透過電子顕微鏡（HAADF-STEM）法、収束電子顕微鏡（CBED）法、エネルギー分散型X線分光（EDX）法を用いて解析を行った。

4. 研究成果

図3に0.1mm/sで押し加工したMg-4Al-3Ca-0.4Mn（AX43）合金のOMによる組織観察結果を示す。押し直後の組織の特徴として、押しの中心部に比べ、金型に直接接触する外周部（端部）の組織が微細化する傾向が見られる。特に、結晶粒径が端部で微細化することが明らかとなった。引張試験片は、外周部を旋削し、直径4mmまで削るため、引張特性に及ぼす結晶粒径の不均一性は除外されると考えられる。

EBSDを用いることにより、押し材の集合組織は、Mgの最密六方構造のc軸が押し方向に垂直になる典型的な底面集合組織を形成することがわかった。このような傾向は、Mg-6.4Zn-0.2Ca-0.2Mn（ZX60: mass%）およびMg-0.27Al-0.13Ca-0.21Mn（AX0302: mol%）合金でも同様な傾向を示した。Mg合金の押し材の集合組織の形成メカニズムについては文献[本間智之、鎌土重晴: 塑性と加工 54 (2013) 127.]にまとめたのでここでは割愛する。押し材で得られる特徴的な組織は

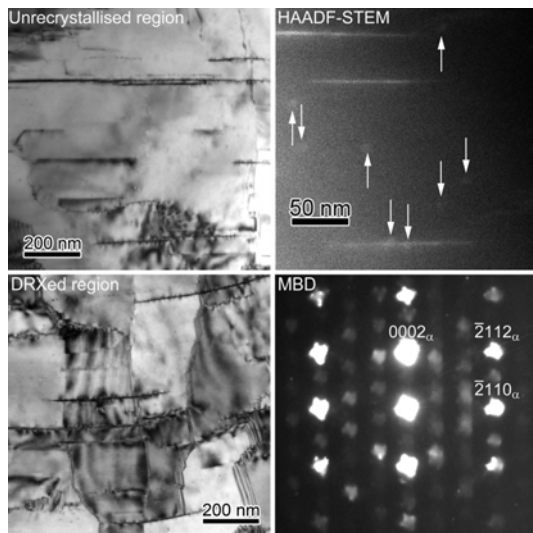


図4 TEMおよびFETEMによる再結晶領域と未再結晶領域の明視野像、未再結晶領域内のHAADF-STEM像および板状析出物からのマイクロビーム電子回折図形。

結晶粒径の二峰性分布（バイモーダル）であり、 $1\mu\text{m}$ 程度の微細粒（再結晶領域）と c 軸に平行に伸長した比較的大きな結晶粒（未再結晶領域）の2種類が現れる。特に後者は強い底面集合組織を有するがわかり、この領域でシュミット因子が低下することで集合組織強化に寄与することがわかった。

しかし希釈合金の場合、押出しの高速化に伴いバイモーダルな組織から等軸粒へと組織が変わり、均一な組織となることも明らかにしている。

AX43合金の引張試験の結果、0.2%耐力が331MPaに達し、破断伸びも8.2%と高強度押出し材の創製に成功している。一方、ZX60合金においては、 300°C の押出しまま材で0.2%耐力が202MPa、破断伸びが24%となり良好な延性を示すことが明らかとなった。押出し温度を 30°C 低下させた 270°C における押出しまま材では、耐力が253MPaまで増加する。この押出材に対して更に 150°C で時効処理を256h施すと290MPaまで耐力が向上することから、時効により高強度化することも明らかにしている。

図4にTEMおよびFETEMにより観察したAX43合金押出し材の明視野像を示す。未再結晶領域、再結晶領域ともに微細な板状の析出物が押出し直後に析出することがわかった。板状の析出物を直接狙ってマイクロビーム電子回折図形を母相の $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ に平行にビームを入射して得ると、母相からの回折に加え、 Al_2Ca に相当する回折図形が得られた。未再結晶領域から得られた。HAADF-STEM像からもAlやCaなど、Mgよりも原子番号の大きな元素が板状析出物に濃化していることを明らかにしている。HAADF-STEM像を更に詳しく分析すると、母相に球状の微細

析出物も析出することが明らかになった。EDXによる点分析の結果、この析出物にはAlとMnが含まれることを明らかにし、AlMn系の析出物が析出していることを明らかにした。

これらの微細な析出物は押し直後に動的再結晶を起こした粒界にも偏析していることを確認しており、析出物による結晶粒微細化が引張特性の向上にも寄与することが予想される。

高速押しでは、押し中に融点の低い化合物が加工発熱により融解し、そのため押し棒が分裂し、押し加工ができないことがわかっている。そこで押出しの高速化を目的に、化合物量を減少させるため、合金組成の希釈化を図ったAX0302合金を開発し、連続鋳造技術も取り入れることでビレットの初期結晶粒径を低減することで押出しの高速化と高強度化を同時に狙った。この合金の押し速度は40mm/sまで向上することに成功しており、高強度化する0.1mm/sの低速押しに比べ400倍もの高速化に成功した。高速押し後の引張強さは225MPaにも達し、合金組成を希釈化することで押出しの高速化と高強度化を同時に満足していることを確認している。

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4件）

- (1) 本間智之、鎌土重晴、集合組織制御による高強度材料の創製-Mg-Al-Ca-Mn合金、塑性と加工、査読有、54巻、2013、127-131
- (2) T. Homma、S. Hirawatari、H. Sunohara、S. Kamado、Room and elevated temperature mechanical properties in the as-extruded Mg-Al-Ca-Mn alloys、Materials Science and Engineering A、査読有、539巻、2012、163-169
- (3) S.W. Xu、K. Oh-ishi、S. Kamado、T. Takahashi、T. Homma、Effects of different cooling rates during two casting processes on the microstructures and mechanical properties of extruded Mg-Al-Ca-Mn alloy、Materials Science and Engineering A、査読有、542巻、2012、71-78
- (4) T. Homma、J. Hinata、S. Kamado、Development of extruded Mg-zn-Ca based alloy: A new insight on the role of Mn addition in precipitation、Philosophical Magazine、査読有、92巻、2012、1569-1582

〔プロシーディングス〕（計3件）

- (1) K. Oh-ishi, S.W. Xu, T. Homma, S. Kamado, Microstructure evolution of as-cast Mg-Al-Ca-Mn alloy by hot extrusion, Proc. 9th International Conference on Magnesium Alloys and their Applications, 査読有、2012、719-723
- (2) S.W. Xu, K. Oh-ishi, H. Takahashi, T. Homma, S. Kamado, Effect of deformation temperature on the microstructures and mechanical properties of high-strength extruded Mg-Al-Ca-Mn alloy, Proc. 9th International Conference on Magnesium Alloys and their Applications, 査読有、2012、599-604
- (3) K. Oh-ishi, S.W. Xu, T. Homma, S. Kamado, Microstructural variations of as-cast Mg-Al-Ca-Mn alloy by hot extrusion, The 1st GIGAKU conference in Nagaoka, 査読無

[学会発表 国際会議] (計 5 件)

- ① K. Oh-ishi, S.W. Xu, T. Homma, S. Kamado, Microstructural variations of as-cast Mg-Al-Ca-Mn alloy by hot extrusion, The 1st GIGAKU Conference in Nagaoka, 2012 年 2 月 5 日、長岡、日本
- ② S. Kamado, S.W. Xu, K. Oh-ishi, T. Homma, K. Hono, Strengthening of Mg-Al-Ca-Mn alloy by hot extrusion, The 1st GIGAKU Conference in Nagaoka, 2012 年 2 月 5 日、長岡、日本
- ③ S. Kamado, S.W. Xu, K. Oh-ishi, T. Homma, K. Hono, Strengthening of rare earth metal free Mg-Al-Ca-Mn alloy by utilization of dynamic structural changes during hot extrusion, International Symposium on Materials and Innovation for Sustainable Society-Eco-Materials and Eco-Innovation for Glocal Sustainability-, 2011 年 11 月 30 日、大阪、日本
- ④ S. Kamado, S.W. Xu, K. Oh-ishi, T. Homma, K. Hono, Strengthening of Mg-Al-Ca-Mn alloy containing common metals by utilization of dynamic structural changes during hot extrusion, The 4th Asian Symposium on Magnesium Alloys, 2011 年 10 月 3 日、Busan, Korea
- ⑤ S. Kamado, T. Homma, S.W. Xu, K. Oh-ishi, Development of high strength Mg-Al-Ca-Mn alloy by extrusion, KIM-JIM Symposium on 2010 Fall Conference of the Korean Institute of Metals and Materials, 2010 年 11 月 4 日、Changwon, Korea

[学会発表 国内会議] (計 10 件)

- ① 本間智之、片岡翔平、五十嵐諒、鎌土重晴、

- Mn または Zr を添加した Mg-Gd-Y-Zn 合金押出し材のクリープ特性と微細組織、日本金属学会 春期大会、2013 年 3 月 27 日 (水) ~ 3 月 29 日 (金)、愛媛大学
- ② 本間智之、微細析出物を利用した高機能マグネシウム合金の設計指針、日本金属学会・日本鉄鋼協会東海支部若手材料研究会、2012 年 12 月 6 日 (木)、名古屋会議室、**依頼講演**
 - ③ 徐世偉、上野顕路、大石敬一郎、鎌土重晴、本間智之、Mg-Al-Ca-Mn 希薄合金に及ぼす圧延温度の影響、軽金属学会 春期大会、2012 年 5 月 19 日 (土)、九州大学
 - ④ 岡村一伯、本間智之、鎌土重晴、Mg-Al-Ca-Mn 希薄合金押出し材のミクロ組織と機械的性質に及ぼす Al 添加量の影響、軽金属学会 春期大会、2012 年 5 月 19 日 (土)、九州大学
 - ⑤ 高橋広樹、徐世偉、大石敬一郎、本間智之、鎌土重晴、清水和紀、高橋泰、花木悟、Mg-Al-Ca-Mn 合金押出し材の組織および機械的性質に及ぼす押出温度の影響、軽金属学会 春期大会、2012 年 5 月 19 日 (土)、九州大学
 - ⑥ 目崎達也、徐世偉、大石敬一郎、本間智之、鎌土重晴、高橋泰、花木悟、Mg-Al-Ca-Mn 希薄合金のミクロ組織および機械的性質に及ぼす押出し速度の影響、軽金属学会 春期大会、2012 年 5 月 19 日 (土)、九州大学
 - ⑦ 高橋広樹、徐世偉、大石敬一郎、本間智之、鎌土重晴、平渡末二、花木悟、清水和紀、高橋泰、Mg-Al-Ca-Mn 系合金押出し材の組織および機械的性質に及ぼす押出温度の影響、平成 23 年度日本金属学会・日本鉄鋼協会北陸信越支部連合講演会、2011 年 12 月 3 日 (土)、金沢工業大学
 - ⑧ 目崎達也、徐世偉、本間智之、鎌土重晴、高橋泰、花木悟、Mg-Al-Ca-Mn 系希薄合金押出し材のミクロ組織と機械的性質、平成 23 年度日本金属学会・日本鉄鋼協会北陸信越支部連合講演会、2011 年 12 月 3 日 (土)、金沢工業大学
 - ⑨ 大石敬一郎、徐世偉、本間智之、鎌土重晴、高強度 Mg-3.6Al-3.3Ca-0.4Mn 合金押出し材の微細組織、軽金属学会 秋期大会、2011 年 11 月 12 日 (土) ~ 11 月 13 日 (日)、早稲田大学
 - ⑩ 村山義幸、宮下幸雄、鎌土重晴、本間智之、徐世偉、大石敬一郎、Mg-Al-Ca-Mn 系合金押出し材の疲労特性、軽金属学会 秋期大会、2011 年 11 月 12 日 (土) ~ 11 月 13 日 (日)、早稲田大学

6. 研究組織

- (1) 研究代表者

本間 智之 (HOMMA TOMOYUKI)
長岡技術科学大学・工学部・准教授
研究者番号：50452082