

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 26 日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420060

研究課題名(和文) 金属箔圧接とレーザー照射によるマグネシウム合金の機能性皮膜形成とその特性評価

研究課題名(英文) Functional film and characteristic evaluation of magnesium alloy by metal foil lining and laser irradiation

研究代表者

原田 泰典 (Harada, Yasunori)

兵庫県立大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30218656

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：マグネシウム合金の表面特性を改善するため、ショットライニングと熱処理を組み合わせた複合処理によるマグネシウム合金へのFe-Al系金属間化合物皮膜形成を行った。ショットピーニングは鑄鋼製鋼球を用い、遠心式機械を用いて行った。接合用ホイルは純鉄粉を含む純アルミ箔であり、試験片は市販のマグネシウム合金である。箔接合した試験片は大気中においてレーザーで加熱を行った。鉄粉と純アルミ箔は多くの鋼球の衝突によって良好な接合が可能であった。機能性皮膜であるFe-Al系金属間化合物はレーザー処理によって形成することが可能であった。本手法は、マグネシウム合金への機能性皮膜形成に対して使用できることを確認した。

研究成果の概要(英文)：In the present study, to improve the surface characteristics of magnesium alloy, the formation of an Fe-Al intermetallic compound film on magnesium alloy by compound treatment combining shot lining method and heat treatment was mainly investigated. Shot peening was performed with a centrifugal-type machine using cast steel ball. The lined sheet is aluminum foil with pure iron powders, and the workpiece was the commercial magnesium alloys. The lined workpieces are heat treated by laser in air. The iron powders and pure aluminium foils were successfully bonded to the surface of the magnesium alloy workpieces by the hit of many shots. The Fe-Al intermetallic compound that is a functional film can be formed by the laser heating treatment. It was confirmed that the present method could be used for the formation of functional films on the magnesium alloy.

研究分野：金属加工学

キーワード：表面処理 接合 耐食性 耐摩耗性 マグネシウム合金 ショットピーニング

1. 研究開始当初の背景

マグネシウム合金は、省エネルギーの観点から自動車や航空機などの輸送機器や各種産業機器の軽量化のために軽量構造用材料として利用範囲が広がっている。例えば、岡本らは Mg-2Zn-10Y-5Gd-0.5Zr 合金のエンジン部品への適用を検証するため、強度評価を行っている①。また、高齢化社会を考慮した福祉用補助機器にも急速に適用範囲が広がっている。例えば、金子らは結晶粒微細化と集合組織制御による高強度・高靱性マグネシウム合金を用いて、片側支柱付長下肢装具を開発している②。このように、マグネシウム合金の需要は高く、新素材の開発が盛んに行われているのが現状である。しかしながら、鉄鋼材料と比べると、耐摩耗性や耐食性が著しく低いことが実用化の上で問題となる場合がある。そのため、表面処理技術による表面特性の向上が行われている。例えば、三浦らはマグネシウム合金の耐孔食性向上のために水熱処理による表面処理皮膜の形成に及ぼす前処理の影響について報告している③。現在、マグネシウム合金の表面処理はクロム酸塩を用いた陽極酸化処理や化成処理が主流であり、めっきや溶射などの異種金属材料による皮膜処理は合金との接合性が低いことから難しいとされているのが現状である。

申請者は、これまでに機械部品で利用されている炭素鋼の耐摩耗性や耐食性などの表面特性を向上させるため、ショットピーニングを利用して炭素鋼表面に所定厚さの純アルミニウム箔を接合させた後、熱処理によって鉄とアルミニウムの合金である鉄-アルミニウム系金属間化合物の皮膜を形成することに成功しており、皮膜形成に及ぼす接合条件や加熱条件を明らかにしている④。鉄とアルミニウムから構成される金属間化合物は、高硬度や高耐食性の特性をもっていることが知られており、近年、延性を発現する新たな特性も見いだされ、低コストでリサイクル性に富んだ金属間化合物として注目されている材料である。さらに、申請者の研究グループでは、製品である部材全体を加熱しないことや必要な領域のみの部分加工を行うことを考慮して、純アルミニウム箔を接合した炭素鋼表面にレーザー照射を行い、炭素鋼表面近傍のみの熱処理による皮膜形成も試みており、これまでに金属間化合物の形成を確認している。具体的には、レーザーによる照射による表面のみの熱処理によって、接合したアルミニウム膜中に金属間化合物が形成されていることを走査型電子顕微鏡によって観察している。ショットピーニングによる強加工によって大きいひずみが蓄積しているので、レーザーによる加熱によって合金化が促進されやすいこともわかっている。

申請者がこれまでに得ている結果に基づき、同様の手法によってアルミニウム合金やマグネシウム合金のような軽量材料表面に

においても鉄-アルミニウム系金属間化合物の形成が可能であると考えた。つまり、合金表面に鉄系材料の箔あるいは粉末を載せた状態でショットピーニングの強加工によって接合を行った後、レーザー照射による加熱を行えば、鉄-アルミニウム系金属間化合物の皮膜の形成が可能であると考えた。そこで、研究室レベルの基礎的な結果であるが、ショットピーニングによってアルミニウム合金やマグネシウム合金表面への純鉄の箔や粉末を接合させることに成功している⑤。とくに耐食性の低いマグネシウム合金の場合、本手法によって機能性皮膜形成の可能性は高いと考えている。しかしながら、合金表面に接合させる純鉄と純アルミニウムの割合やレーザーの照射条件となる加熱条件については不明である。

2. 研究の目的

マグネシウム合金の耐食性や耐摩耗性を向上させるため、ショットピーニングを利用した異種金属箔の接合とその後のレーザー照射によって機能性皮膜を形成し、その皮膜特性の評価を行うことをおもな目的とする。申請者は、これまでにショットピーニングによってマグネシウム合金表面に対して、従来法では皮膜が困難とされる鉄やチタンなどの異種金属材料を被覆することに成功している。本研究では、ショットピーニングによりマグネシウム合金表面に純鉄粉末含有のアルミニウム箔を接合した後、レーザー照射による熱処理を行う。おもに次のことについて明らかにすることを目的とする。

- (1) 皮膜形成に及ぼす加熱条件の影響について明らかにする。
- (2) 形成する皮膜の諸特性について明らかにする。

3. 研究の方法

ショットピーニングによるマグネシウム合金への純鉄粉末含有の純アルミニウム箔の接合を行った後、レーザー照射による加熱を行い、おもに Fe-Al 系金属間化合物の皮膜形成に及ぼす加工条件を明らかにする計画である。具体的には、皮膜形成に及ぼす種々の因子、例えば接合する金属材料の割合やレーザー照射条件などについて調べる。本申請で取り扱うマグネシウム合金は構造用材料として一般的に使用されている AZ 系合金とし、接合する異種金属材料は純鉄粉末を含有するアルミニウム箔とし、Fe-Al 系金属間化合物の皮膜形成を試みる。その際、純鉄粉末の添加量を変化させた場合やレーザー照射の出力条件を変化させた場合、皮膜の形成に及ぼす影響について調べるとともに、皮膜の耐摩耗性や耐食性などの特性について評価を併せて行う。

- (1) 試験材料について、母材となる基材はマグネシウム合金の中で構造用材料として広く使用されている市販の AZ 系合金の AZ31 丸

棒を用いる。また、最近、新素材として注目されている次世代耐熱マグネシウム合金 AZX611 も用いる。基材となる試験片は合金丸棒から、直径 50mm で高さ 10mm の円板状に切り出して準備する。接合面の状態を一定にするため、エメリー研磨紙 #120 による乾式研磨を行い、アセトンによる脱脂を行う。接合材である金属箔は純アルミニウムで、箔に含有させる金属粉末は純鉄である。純鉄粉末は純度 99.8% で粒径数十ミクロンである。金属箔数枚に所定量の金属粉末をサンドイッチした状態でプレス加工を行い、接合用金属箔を作製する。この方法で作製した予備試験として、マグネシウム合金 AZ31 に対して純クロム粉末を含有した純アルミニウム箔を接合した。その結果、合金に接合したアルミニウム箔やクロム粉末において、空隙や割れなどの発生は見られず、接合性は良好であることを確認した。なお、純鉄粉末の量を増加させると、金属箔と純鉄粉末との接合において接合性が低くなることが考えられる。その場合は接合性向上のために純鉄粉末とともに純アルミニウム粉末を添加させること、また純鉄粉末層を多層化したりすることによって接合性の向上を行う。

(2) 金属箔や金属粉末の接合方法として、マグネシウム合金表面に金属箔を接合するため、ショットピーニングによる加工を行う。円板状マグネシウム合金試験片表面に純鉄粉末含有のアルミニウム箔を載せた状態で、ショットピーニングを行う。接合させる金属箔の厚みは 50~100 ミクロンとし、また金属箔含有の金属粉末量は合金化を考慮して変化させる。ショットピーニング装置は機械式を用い、投射材は平均直径 1.0mm の鋼球製を用いる。これまでに予備的に行った接合試験において得られた接合条件を参考にして行う。具体的には、投射条件として投射速度 60m/s、投射量 10kgf/min である。また、金属粉末の接合を容易にするため、試験片自体の低温加熱を行う。具体的には、保持温度は 300°C である。

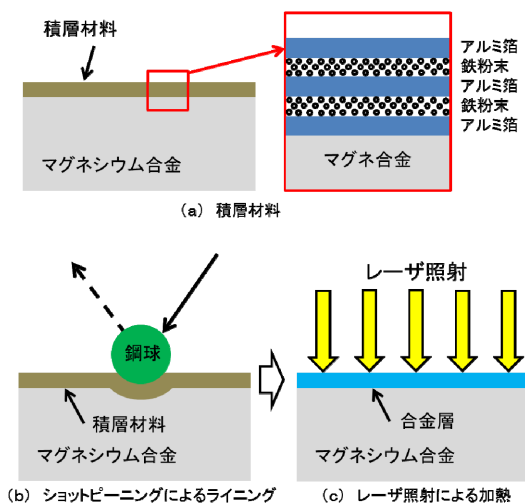


図1 レーザ照射による積層材の合金化

(3) レーザ照射による加熱方法について、純鉄粉末の含有したアルミニウム箔が接合した合金試験片表面に対して、炭酸ガスレーザーによる照射を行う。照射装置は3軸直交型の発振励起方式で、二酸化炭素ガスを用いる。ビームモードはシングルとし、ビーム外径は 18mm を基準とする。加熱のための照射は、おもにビームの出力と送り速度を変化させて照射を行う。材料表面におけるレーザービームの移動速度は約 5mm/s である。合金化の状態について、簡易的な硬さ試験と組織観察を行いながら調べるが、合金化が十分でないと判断された場合はその他の照射条件も変化させる。図1に、レーザー照射による積層材の合金化の方法を示す。

(4) 硬さ試験と組織観察について、レーザー照射の加熱によって形成した皮膜の硬さを調べるため、マイクロビッカース硬さ試験による測定を行う。測定は、最表面と表面から内部方向の分布について行う。具体的には、最表面の測定は表面を僅かに研磨して平滑面が露出した領域に対して、また材料内部の測定は表面近傍の断面について、それぞれ測定を行う。測定箇所 5 点以上として平均値で評価を行う。一方、組織観察を行うため、最表面および材料内部方向の皮膜断面に対して、光学顕微鏡と走査型電子顕微鏡による観察を行う。

(5) 組織同定について、熱処理によって形成した金属間化合物の同定を行う。おもに、X線回折によって同定を行う。具体的には、最表面と深さ方向への回折を行う。深さ方向における同定では、表面に平行に逐次研削加工によって除去した表面の回折を行う。

4. 研究成果

(1) 積層材料のライニング

マグネシウム合金への接合積層材料である純アルミニウム箔と純鉄粉末の接合性を調べるため、純鉄粉末 1 層および 2 層を含む積層材料のライニングを行った。図2に、マグネシウム合金 AZ31 へ純鉄粉末 2 層を含む積層材料をライニングした試験片外観を示す。ショットピーニングによって接合表面は凹凸状態となっているが、均一な表面を呈している。また、積層材料のき裂やはく離は見られず、良好な接合が得られていることがわかる。しかしながら、基材であるマグネシウム合金との接合状態はわからない。そのため、積層材料の接合した表面近傍における断面の組織観察を行った。

図3に、マグネシウム合金 AZ31 へ積層材料をライニング加工した表面近傍の断面を示す。純鉄粉末は 1 層である。純アルミ箔の破断は生じていない。また、接合界面における空隙も見られない。良好な接合性が得られていることがわかる。以上のことから、マグネシウム合金への異種材料の接合は困難とされているが、本手法によって接合が可能であることがわかる。

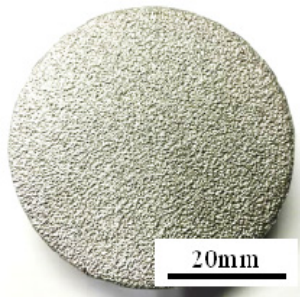


図2 積層材料のライニング後の外観

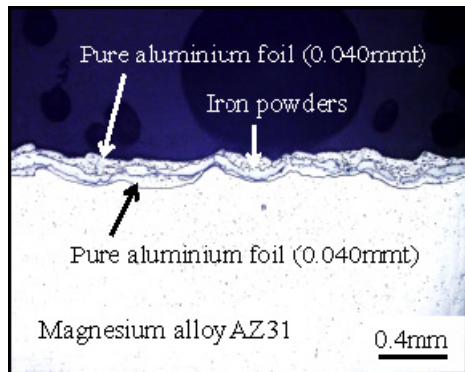


図3 積層材料の表面近傍断面

図3に、マグネシウム合金 AZ31 へ積層材料をライニング加工した表面近傍の断面を示す。純鉄粉末は1層である。純アルミ箔の破断は生じていない。また、接合界面における空隙も見られない。良好な接合性が得られていることがわかる。同様に、純鉄粉末2層の場合も良好な接合性が見られた。以上のことから、マグネシウム合金への異種材料の接合は困難とされているが、本手法によって接合が可能であることがわかる。

(2) レーザ照射による合金化

マグネシウム合金表面の特性を高めるため、積層材料への加熱によって合金化を試みた。表面近傍への加熱として、炭酸ガスレーザーによるレーザー照射を行った。ここで、積層材料はショットピーニングの鋼球による繰り返し衝突によって塑性変形が進み、加工硬化している。そのため、ひずみ蓄積状態の積層材料への加熱は合金化が進みやすい。積層材料における純鉄粉末と純アルミ箔の積層数に対応して、レーザー照射条件を変化させて加熱を行った。

図4に、純鉄粉末2層を含む積層材料をライニング加工したマグネシウム合金 AZ31(a) および AZX611(b) に対してレーザー照射を施した試験片表面の外観を示す。照射した表面は窪んでいるのがわかる。

図5に、純鉄粉末2層の積層材料をライニング加工したマグネシウム合金 AZ31 において、レーザー照射後のくぼみを生じた表面の拡大を示す。くぼみにおいて、熔融した跡が見られることから、表面層は合金化が進んだものと考えられる。合金化の状態を調べるため、表面近傍断面の組織観察を行った。

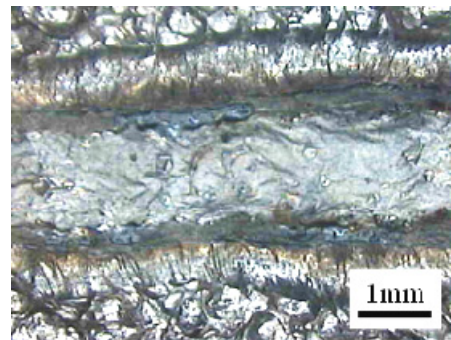


(a) 合金 AZ31 (φ 50mm)

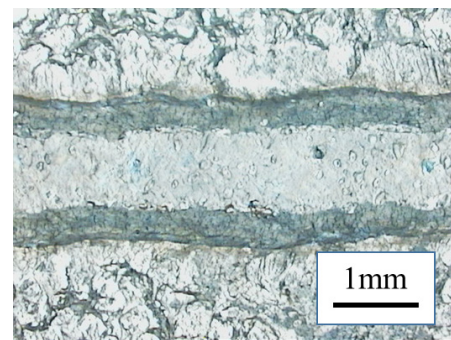


(b) 合金 AZX611 (φ 50mm)

図4 レーザ照射後の試験片外観



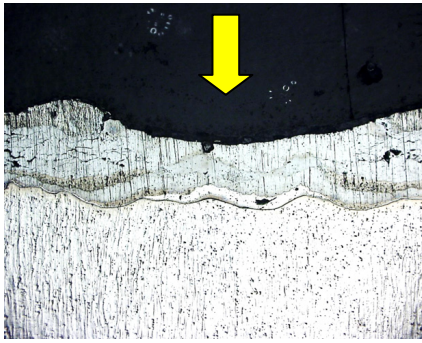
(a) 合金 AZ31



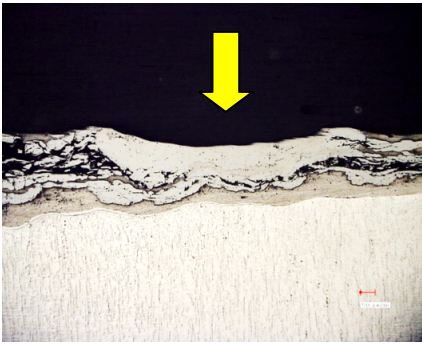
(b) 合金 AZX611

図5 レーザ照射したくぼみ領域

図6に、純鉄粉末2層の積層材料をライニング加工したマグネシウム合金 AZ31 において、レーザー照射した表面近傍断面の組織を示す。レーザー照射によって、合金化が進んでいるのがわかる。



(a) 合金 AZ31



(b) 合金 AZX611

図6 レーザ照射した表面近傍の断面組織 (純鉄粉末2層)

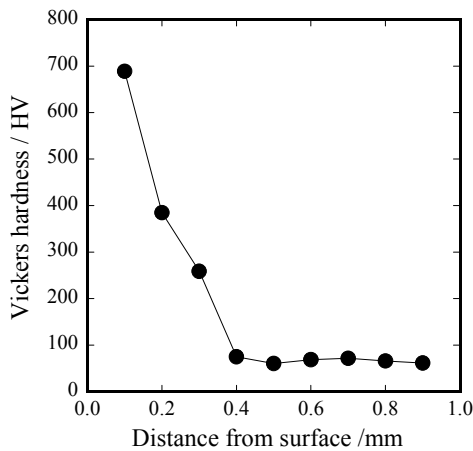


図7 合金 AZ31 におけるレーザ照射した表面層の硬さ分布 (純鉄粉末2層)

(3) 合金化した積層材料の表面特性

積層材料へのレーザ照射によって、積層材料の溶融が見られたため(図6参照)、その領域の表面特性を調べた。まず、ビッカース硬さ試験による表面から材料内部への硬さ測定を行った。図7に、マグネシウム合金AZ31におけるレーザ照射した表面近傍の硬さ分布を示す。表面に近い領域において、高い硬さを示すことがわかる。深さ0.1mmでは約HV700を示す。この値は基材である合金AZ31や積層材料である純鉄粉末と純アルミ箔のいずれの硬さ値と比べてかなり高い。このことから、合金が形成されたと考えられる。

次に、合金化した積層材料に対して、X線回折による組織同定を行った。その結果、鉄-アルミ系金属間化合物であるFeAlの形成が合金化した領域で確認できた。このFeAlは硬質であり、また耐食性のある金属間化合物である。このことから、レーザ照射によって加熱された領域において、機能性皮膜の形成が可能であることが明らかとなった。さらに、この形成した皮膜における耐食性について調べるため、塩水のような腐食環境下での評価を検討中である。

<引用文献>

- ① 岡本 和孝、高橋 智一、佐々木 正登、日本金属学会誌、76巻4号、2012、234-239
- ② 金子 貴太郎、閻師 昭彦、松田 靖史、近藤 勝義、軽金属、58巻11号、2008、617-621
- ③ 三浦 一真、小林 泰則、内藤 隆之、山田 昭博、五十嵐 晃、林 成実、磯部 錦平、日本金属学会誌、74巻12号、2010、771-778
- ④ 原田 泰典、下入佐 真也、日本塑性加工学会誌、塑性と加工、51巻589号、2010、131-135
- ⑤ 原田 泰典、森 謙一郎、原 政明、牧清二郎、日本塑性加工学会誌、塑性と加工、42巻480号、2001、48-52

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10件)

- ① Y. Harada, M. Matsumoto, K. Takahashi, Surface modification of magnesium alloy by shot lining and heat treatment PRICM9_AS-46、(2016)、査読有
<http://web.apollon.nta.co.jp/PRICM9/>
- ② Y. Harada, M. Matsumoto, A. Nagao, K. Takahashi Surface modification of aluminium alloy by shot lining and laser PRICM9_AS-46、(2016)、査読有
<http://web.apollon.nta.co.jp/PRICM9/>
- ③ Y. Harada, M. Matsumoto, M. Nunobiki, K. Takahashi, Surface modification of magnesium alloy by shot lining and laser heating, Proc. of Int. Conf. on Processing and Manufacturing of Advanced Materials、(2016)、査読有
<http://www.tugraz.at/events/thermec-2016/home/>
- ④ 原田泰典、ショットピーニング、表面技術、第67巻第1号、2-7、(2016)、査読有
<http://dx.doi.org/10.4139/>
- ⑤ Y. Harada, M. Matsumoto, M. Nunobiki, K. Takahashi, Surface modification of magnesium alloy by shot lining and heat

- treatment, Proc. of The Twenty-Fourth International Symposium on Processing and Fabrication of Advanced Materials, (2015), pp. 352-357、査読有
- ⑥ 原田泰典、叩いて鍛える、ショットピーニング技術の可能性、機械技術、日刊工業新聞社、第63巻11号、56-60、(2015)、査読有
http://pub.nikkan.co.jp/magazine_series/detail/0009
- ⑦ 原田泰典、「固相接合」ショットピーニングによる異材接合、溶接学会誌、83巻3号、2014、pp. 189-194。査読有
<http://doi.org/10.2207/jjws.83.189>
- ⑧ Y. Harada, K. Takahashi and Y. Sakamoto, Formation of Fe-Al intermetallic compound film on hot work tool steel by shot lining and heat treatment, Proc. of the 12th International conference on Shot Peening, (2014), pp. 456-462。査読有
<http://www.shotpeening.org/ICSP-12/>
- ⑨ M. Nunobiki, Y. Harada, K. Okuda, Production of Fe-Al Alloy Coat on Steel Block by Scanning Laser Beam, Advanced Materials Research, Vol.1017 (2014), pp. 794-799、査読有
doi:10.4028/www.scientific.net/AMR.891-892
- ⑩ Y. Harada, M. Ishida, K. Takahashi, Formation of Fe-Al Intermetallic Compound Film on High-Speed Tool Steel by Shot Lining and Heat Treatment, Materials Science Forum Vols. 783-786 (2014) pp 1414-1419。査読有
<http://www.scientific.net/MSF>

〔学会発表〕(計10件)

- ① 松本実、原田泰典、布引雅之、ショットライニング加工熱処理によるマグネシウム合金AZ31への皮膜形成、日本機械学会2016年度年次大会、U00454、(2016)開催日:2016年9月11日(日)~14日(水)会場:九州大学伊都キャンパス(福岡市西区) <http://www.scientific.net/MSF>
- ② 松本実、原田泰典、布引雅之、ショットライニング加工熱処理によるマグネシウム合金への硬質皮膜形成、軽金属学会、第130回春期大会、(2016)、開催日:2016年5月26日(土)~29日(日)会場:九州大学伊都キャンパス(大阪府吹田市山田丘)
- ③ 松本実、原田泰典、布引雅之、ショットライニング加工熱処理によるMg合金への異種材皮膜形成、日本塑性加工学会春季講演会、(2016)、開催日:2016年5月20日(金)~22日(日)会場:京都工芸繊維大学松ヶ崎キャンパス(京都市左京区松ヶ崎橋上町)
- ④ 松本実、原田泰典、布引雅之、高橋勝彦、

ショットライニング加工熱処理によるマグネシウム合金への機能性皮膜形成、日本機械学会 関西支部第91期定時総会講演会、(2016)開催日:2016年3月11日(金)~12日(土)、会場:大阪電気通信大学寝屋川キャンパス(大阪府寝屋川市)

- ⑤ 松本実、原田泰典、表面強加工による軽金属表面厚膜硬化技術の開発、平成27年度地域連携卒業研究および地域連携大学院特別研究成果発表会、(2016)、開催日2016年3月7日(月)13:00-16:10、場所:姫路商工会議所(兵庫県姫路市)
- ⑥ 松本実、原田泰典、布引雅之、ショットライニング加工熱処理によるマグネシウム合金の機能性皮膜形成、日本鉄鋼協会・日本金属学会関西支部「材料開発研究会」、(2015)、2015年12月24日(木)、場所:兵庫県立大学姫路書写キャンパス、書写記念会館(兵庫県姫路市書写)
- ⑦ 松本実、原田泰典、布引雅之、高橋勝彦、ショットライニング加工熱処理によるマグネシウム合金の表面改質、日本機械学会機械材料・材料加工部門、第23回機械材料・材料加工技術講演会、(2015)、2015年11月13日(金)~15日(日)、会場:広島大学東広島キャンパス(広島県東広島市鏡山)
- ⑧ 原田泰典、松本実、布引雅之、高橋勝彦、ショットライニング熱処理法によるAZ31へのFe-Al系合金皮膜形成、日本金属学会2015年秋期講演大会、(2015)、2015年9月16日(水)~9月18日(金)、九州大学伊都キャンパス(福岡市西区元岡)
- ⑨ 松本実、原田泰典、ショットピーニング熱処理による新しい表面改質、日本機械学会 関西学生会平成26年度学生員卒業研究発表講演会、(2015)、2015年3月16日(月)~17日(火)、京都大学桂キャンパス(京都府京都市)
- ⑩ 松本実、長尾篤、原田泰典、ショットライニング加工熱処理による軽金属への鉄系合金皮膜形成とその特性、日本ばね学会、秋季ばね及び復元力応用講演会、(2014)、2014年11月7日(金)、京都タワーホテル(京都府京都市下京区烏丸通七条下ル東塩小路町)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

原田 泰典 (HARADA Yasunori)
 兵庫県立大学・大学院工学研究科・教授
 研究者番号: 30218656

(2) 研究協力者

松本 実 (MATSUMOTO Minoru)
 兵庫県立大学・大学院工学研究科・大学院生