

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 24 日現在

機関番号：12301

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560892

研究課題名(和文) タンデム双ロール法による革新的軽量クラッド材料の開発

研究課題名(英文) Developing innovative lightweight materials using tandem twin roll-casting process

研究代表者

渡利 久規 (WATARI, HISAKI)

群馬大学・理工学研究院・教授

研究者番号：90210971

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円、(間接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：横型タンデム双ロールキャスターを使用して革新的軽量クラッド材料を開発した。開発したクラッド材料は二層クラッド材Al/Mg合金、および、Al/Mg/Al合金クラッド材料である。コア材として用いたMg合金はAlの濃度を9%～12%まで高めた高強度Mg合金であり、Al含有量12%を有するAZ121材では、引張強度420MPa、0.2%耐力が380MPaであることが示された。界面の分析の結果、接合界面には15μmの金属間化合物の混合層の析出がある。この領域には硬度の高いAl<sub>3</sub>Mg<sub>2</sub>およびMg<sub>17</sub>Al<sub>12</sub>の析出があるものの、90°曲げ試験の結果、界面では剥離することなく接合していることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：It has been found that developing innovative lightweight materials using a tandem twin roll-caster was possible. A two layered material, Al/Mg alloys as well as a three layered material, Al/Mg/Al alloys were fabricated in the present study. A high tensile Mg alloy which contains relatively high aluminum content (weight ratio of Aluminum was 9 to 12 percent) was used as a core material of the clad. It has already been shown that AZ121 which contains 12 percents aluminum has a tensile stress of the 420MPa, and a 0.2 percent proof stress of 380MPa. As a result of analysis of the clad interface, there is a mixed layer composed of intermetallic compounds of 15micron meters in the interface. Also, intermetallic compounds Al<sub>3</sub>Mg<sub>2</sub> as well as Mg<sub>17</sub>Al<sub>12</sub> were detected by EDS analysis. A 90 degrees bending test was performed to examine the connection of the different materials. It has been clarified that the interface could be successfully clad, due to a result of 90 degrees bending test.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：金属生産工学

キーワード：マグネシウム合金 ロールキャストイング 半溶融・半凝固 塑性加工 軽量材料

### 1. 研究開始当初の背景

マグネシウム合金 (Mg 合金) は軽量な材料であるが冷間での塑性加工性が劣るため、実用化されている製品のほとんどはダイカスト製品である。しかしながら、軽量で高強度な部品を製造するためには、Mg 合金の軽量性を生かした新しい使用法を検討する必要がある。

また、マグネシウム合金の強度という観点からすると、市販の Mg 合金は強度的に問題があり、強度を改善するためにはレアアース等を添加して素材の強度を改善する研究が多いが、この方法は現実的にはコストや製造できる製品の大きさに制限がある。

報告者等は、これまでに双ロール法を使用した急冷凝固法によって Al (アルミニウム) の含有量を 9% 以上に増加させても金属間化合物は粒界に析出せず、均等を組織内に分散することを確認している。この研究結果をふまえて、Al の含有量を 12% 程度まで増加させ、最終的には高強度の AZ121 合金に耐食性の良いアルミニウムを被覆した Al 合金/Mg 合金/Al 合金のクラッド材を双ロール法で製造することを試みた。

このような革新的な軽量材料を用いて塑性加工による量産化を図ることは、革新的軽量材料の実用化の道を拓くことになり、Mg 合金の実用化において重要な意味を有する。Mg 合金の国内外の研究例としては、冷間成形の劣る Mg 合金に Li (リチウム) 等の高価な添加元素を加えることで、結晶構造を変化させ成形性を向上させたり、Mg-Zn-Y 合金の長周期積層構造 (LPSO 構造) の強化メカニズムを利用した革新的な高強度化によって、引張強さ 500MPa 以上を実現している研究例、等がある。しかしながら、これらの研究例は実用化という観点からは、製造コストや実際の部品の大きさが可能な素材の製造の問題があり、今後の実用化への具体的な対策や実製品の応用開発が期待されているところである。

そこで、報告者等はこれまで得られた高濃度 Al 含有 Mg 合金の高強度性および低コスト性をベースとして、高強度 Mg 合金に耐食性の良いアルミニウムを被覆した Al 合金/Mg 合金/Al 合金のクラッド材を経済的に製造し、自動車等の輸送機器にも応用できれば、革新的な軽量な材料の創製によって、環境にやさしいものづくり社会の形成にも貢献できると考え、本研究を着想するに至った。

### 2. 研究の目的

本研究では、耐食性の良いアルミニウムを被覆した Al 合金/Mg 合金クラッド材および、Al 合金/Mg 合金/Al 合金のクラッド材をタンデム双ロールキャストを用いて製造する試みを行った<sup>1)</sup>。Mg 合金/Al 合金を接合させると脆い性質の金属間化合物 ( $Mg_{17}Al_{12}$  等) が析出し、金属間化合物層厚さが  $10\mu m$  を超えると引張強度などに影響を与えると報告されている。

本研究では、これらを回避する目的のためにタンデムに 3 段の上下ロールを配置した双ロールキャストを用いて Al/Mg/Al クラッド材の製造を行い、製造したクラッド材の接合部に存在する混合層厚さの調査、金属間化合物の同定等を行なったので報告する。

### 3. 研究の方法

本実験で使用した横型タンデム双ロールキャストの概略図と 3 層クラッド材の製造プロセスを図 1 に示す。クラッド材のコア材となる母材には、マグネシウム合金 AZ91D を使用し、表材には、アルミニウム合金 A1050 を使用した。実験条件を Table1 に示す。材料の物性値を Table2 に示す。

一段目と二段目の双ロールは純銅製である。ロールの寸法はそれぞれ直径 300mm、幅は 150mm である。1 段目、2 段目の溶湯プールは、ノズルとサイドダムによって形成させた。ノズルとサイドダムには、厚さ 1.8mm の断熱材を貼り付け、断熱材に BN スプレーを塗布し、溶湯との濡れ性を低くした。ノズルは、回転支持によりロールの振動に追従可能とした。離型剤は使用しておらず、空気雰囲気中で铸造を行なった。二段目の溶湯プールは、一段目で铸造された母材には接触しない様にし、2 次冷却距離を設け、接合時の温度を低下させる工夫をした。これは、母材である Mg 合金が Al 合金の熱により融解しないようにするためである。また、二段目の Al 表材が通過するノズルの先端荷重は、凝固層が二段目ロールを通過するように適切な大きさの荷重を負荷した。三段目のロールは鋼製ロールであり、主たる役割は二段目ロールで接合された界面を圧下することである。

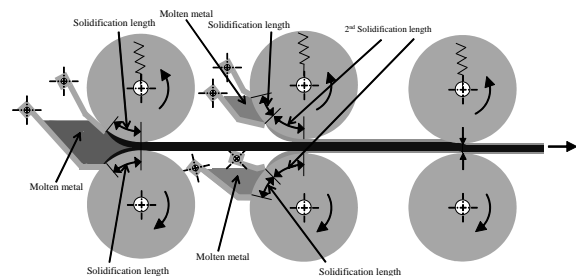


図 1 タンデム双ロールキャスト概略図

得られたクラッド材料は光学顕微鏡によって組織の観察を行った。また、クラッド材の界面では、EPMA による分析および、EBSD 解を行い、接合部に存在する混合層の金属間化合物を同定した。また、タンデム双ロールキャストによって得られた Al/Mg/Al 合金クラッド材の 90° 曲げ試験を行い、接合部の強度評価を行っている。

さらに三層クラッド材の熱間圧延を行い、熱間圧延 (400°C) 後の、クラッド比が圧延後にどのように変化するか確認している。

表 1 実験条件

Roll stand	1st	2nd	3rd
Material	AZ 91D	A 1050	
Roll velocity [m/s]	0.27	0.27	0.27
Solidification length [mm]	50	50	-
Pouring temperature [°C]	610	750	-
Initial roll gap [mm]	3	5	3, free

4. 研究成果

得られた三層クラッド材の内部組織を図2に示す。図2は、板厚方向の内部組織であり、この結果からクラッド比は、1:3.3:0.64であった。図2のより接合部は混合層が明確に確認できる。Al/Mg層の混合層厚さは約10μm程度、Mg/Al層の混合層厚さは同じく約10μm程度となった。この混合層厚さの計測結果から金属間化合物の分布している厚さは、引張強度などには影響を及ぼさないと推測できる。また、接合部付近のMg部は中心に向かう柱状晶とであり、Mg中心部では粒状晶となっていた。平均粒径は上ロール側と下ロール側が75μm前後であり、中央部分は約40μmであった。

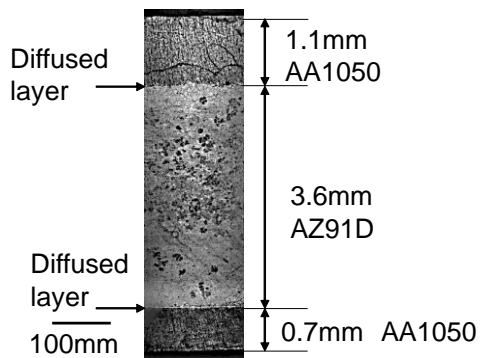


図2 得られたクラッド材（キャスト材）の金属組織（圧下なし）

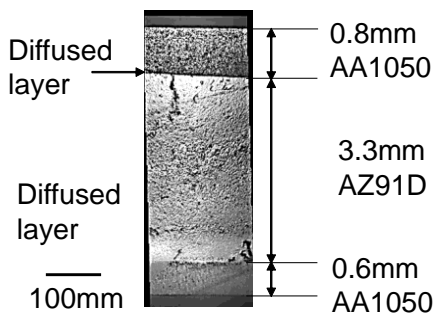


図3 得られたクラッド材（キャスト材）の金属組織（圧下率13%）

図3は三段ロールで13%（見かけの圧下率）の圧下をかけた場合の三層クラッド材料の金属組織を示している。

13%の総圧下率に対して、アルミニウム層が約25%~28%、の圧下になっているのに対して、マグネシウム合金層の圧下率は約8.0%であり、相対的にMg層の強度が高いために、表材であるA1層の圧下率が大きくなっている。総圧下率13%後の三層クラッド材料のクラッド比は、1:4.2:0.75であり、このクラッド比のコントロールは材料の強度と圧下率との比で決定できると考えている。

図4は接合界面の分析結果を示している。この結果より混合層（約10μm）では、Al<sub>3</sub>Mg<sub>2</sub>とMg<sub>17</sub>Al<sub>12</sub>二種類の金属間化合物を同定した。図4より混合層においては、二種類の金属間化合物中、マグネシウムの金属間化合物Mg<sub>17</sub>Al<sub>12</sub>よりもアルミニウムの金属間化合物Al<sub>3</sub>Mg<sub>2</sub>の方が多く存在していることが判明している。本メカニズムについては現在も研究を続けているが、接合時のAlの状態にわずかな液相が存在したため、このような結果になった可能性が高いと考えている。

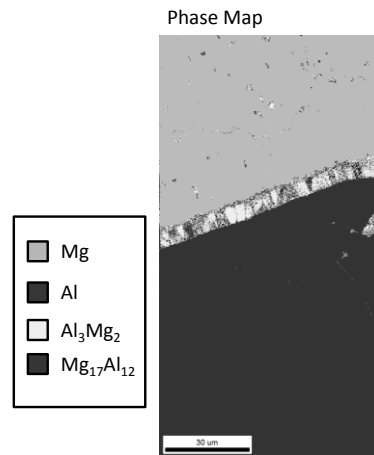


図4 得られたクラッド材の界面の分析

図5は得られた三層クラッド材（400℃熱間圧延材）の90度曲げ試験の結果である。本曲げ試験の試験温度は400℃であり、曲げ半径R=5.00mmである。（R/t=1.1）

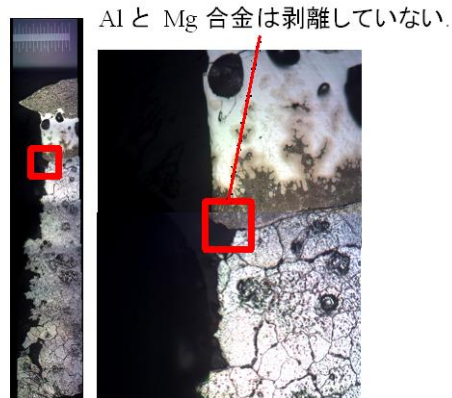


図5 クラッド材曲げ試験の結果

この結果から、得られたクラッド材の接合界面は、曲げ試験において剥離することがなく一定の接合強度を有していることが明らかになった。

以上、本研究で得られたことを要約すると以下ようになる。

(1) 横型タンデム双ロールキャスターを使用して、Al/Mg/Al 合金の三層クラッド材を製造することができ、クラッド材の製造条件を示した。

(2) 接合部の混合層の厚さは約  $10\mu\text{m}$  であり、この狭い領域には、アルミニウムの金属間化合物  $\text{Al}_3\text{Mg}_2$  とマグネシウム合金の金属間化合物が存在していることを確認した。混合層においては、マグネシウムの金属間化合物  $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$  よりもアルミニウムの金属間化合物  $\text{Al}_3\text{Mg}_2$  の方が多く存在していることが判明した。

(3) 得られた三層クラッド材料は熱間圧延が可能であった。また、圧延後のクラッド材料の  $90^\circ$  曲げ試験の結果、界面は剥離することなく母材側で破断していることを確認できた。

#### 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 5 件)

① Hideto Harada, Shin-ichi Nishida, Masaaki Endo, Hisaki Watari, Casting of high aluminum content Mg alloy strips by a horizontal twin roll caster, *Metallurgical and Materials Transaction B*, 査読有り, Vol. 9913, 2013, 1-11.

② 原田英人, 遠藤正樹, 中村慎, 西田進一, 渡利久規, 羽賀俊雄, 横型タンデム双ロールキャスターによる Al/Mg クラッド材料の製造, *日本機械学会論文集 (A特, M&P2012)*, 査読有り, 79-804, 2013, 1147-1151.

③ Hideto Harada, Takayuki Nagumo, Masaaki Endo, Hisaki Watari, Fabrication of high aluminum contents Mg alloys by twin roll casting process, *International Journal of Mechanical and Industrial Engineering*, 査読あり, Vol.6, 2012, 187-190.

④ Toshio Haga, Ryosuke Nakamura, Shinji Kumai, Hisaki Watari, Roll casting of clad strip, *Materials Science Forum*, 査読あり, Vols. 70-709, 2012, 1152-1157.

⑤ Hisaki Watari, Takayuki Nagumo, Mayumi Suzuki, Toshio Haga, Keith Davey and Nobuhiro Koga, Effects of aluminum contents on on plastic formability of wrought Mg alloysheet priduced by twin roll casting, *Materials Science Forum*, 査読あり Vols. 675-677, 2011,667-670.

[学会発表] (計 6 件)

① 赤池勇樹, 原田英人, 李華君, 西田進一, 渡利久規, 横型タンデム双ロールキャスターで製造した Al/Mg/Al クラッド材の接合界面と微細構造, 軽金属学会総会講演会, 2014年5月17日~5月18日, 日本 (広島大学)

② Hideto Harada, Takayuki Nagfumo, Shin-ichi Nishida, Masaaki Endo, Hisaki Watari, Toshio Haga, Solidification, heat transfer analysis of AZ91D cast strip by using twin roll caster, 8<sup>th</sup> Pacific Rim International congress on advanced materials and processing (PRICM-8), 2013年8月4日~8月9日, USA (Hawaii)

③ 原田英人, 遠藤正樹, 狩野達弘, 西田進一, 渡利久規, 横型双ロールキャスターによる Al/Mg クラッド材の製造, 19<sup>th</sup> Symposium on Microjoining and Assembly Technology in Electorronics, 2012年1月29日~1月30日, 日本 (パシフィコ横浜)

④ Hideto Harada, Shin-ichi Nishida, Keisuke Fujikura, Masaaki Endo, Yuta Yamamoto, Makoto Nakamura, Hisaki Watari, Casting of high aluminum content Mg alloys by a horizontal twin roll caster, 15<sup>th</sup> International conference on advances in materials & processing technology (AMPT2012), 2012年9月23日~9月26日, Australia(University of Wollomgong)

⑤ 原田英人, 遠藤正樹, 狩野達弘, 西田進一, 渡利久規, 横型双ロールキャスターによる Al/Mg クラッド材の製造, 日本機械学会機械材料展材料加工部門第 20 回機械材料・材料加工技術講演会 M&P2012, 2012年12月1日~12月02日, 日本 (大阪工大)

⑥ 原田英人, 南雲隆幸, 遠藤正樹, 西田進一, 渡利久規, 横型双ロールキャスターによる Al/Mg クラッド材の製造, 日本機械学会関東支部第18回総会講演会, 2012年3月10日, 日本 (日本大学生産工学部津田沼キャンパス)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：

種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

渡利 久規 (WATARI HISAKI)  
群馬大学 理工学研究院・教授  
研究者番号：90210971

### (2) 研究分担者

山崎 敬則 (YAMAZAKI TAKANORI)  
小山工業高等専門学校・機械工学科・助教  
研究者番号：80342476

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：