

称号及び氏名	博士（工学） 平井 勤二
学位授与の日付	平成 25 年 3 月 31 日
論 文 名	「耐熱性 Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系合金の組織制御と 実用化プロセス最適化に関する基礎研究」
論文審査委員	主査 東 健司
	副査 沼倉 宏
	副査 中平 敦
	副査 瀧川 順庸

## 論文要旨

現在、省エネルギー、装置の運動性向上のために、部材の軽量化が要請されている。マグネシウムは、軽量化材料として広く利用されているアルミニウムの比重の 2/3 で、実用金属の中で最も軽量な材料であり、その比強度、比剛性がアルミニウムよりも高く、リサイクルに要する熱エネルギーが小さいといった優れた特性を有している。軽量化効果の大きいマグネシウム合金の素形材の適用をさらに拡大するためには、アルミニウム押出材に匹敵する特性が必要とされている。特に、マグネシウム合金押出材を想定した場合、良好な室温および高温での機械的性質が必要とされているが、現在一般的なユビキタス元素を用いた合金組成からなるマグネシウム合金押出材は開発されていない。

本研究では、耐熱性を向上させるため、主要な添加元素として、積層欠陥エネルギーを低下させる効果の大きな Al に注目した。また、先行特許情報を整理することで、合金組成の特許戦略を設定し、開発する鍛造用押出材の合金組成として、Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系を選択した。また、温間あるいは熱間加工後の結晶粒径の変化に及ぼす加工因子（加工する速度と温度）の影響を Zener-Hollomon パラメータ（以下 Z 値）で整理する手法が確立されているので、この手法を適用することで、鍛造加工条件の最適化を行った。さらに、鍛造加工シミュレーションを活用して、理論的に最適化した鍛造加工条件を検証するとともに、実際に実用鍛造部品を製作することで、最終的に、開発した鍛造用マグネ

シウム押出材と最適鍛造加工条件の実用性を実証した。

本論文は5章で構成されており、各章の概要は以下の通りである。

第1章では、マグネシウム合金の特性とその特性を支配する組織学および力学的因子を総括した。さらに、第一原理計算と高温変形構成式を活用して、耐熱性マグネシウム合金を開発するための組成設計と素形材作製工程での組織制御に関する過去の研究成果を整理し、それらの課題について検討した。さらに、動的再結晶に関する知見とその鍛造加工への適用可能性について議論し、本研究の目的を明らかにした。

第2章では、耐熱性 Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系合金の室温での機械的性質に及ぼす合金組成とマイクロ組織の影響を体系的に解析した。まず、一般的なダイカスト材である AZ91 合金を基本組成とし、これに Ca、Sr を単独および複合添加した合金の結晶粒径を調査した。その結果、添加による微細化効果が、Ca 単独添加においては 1 mass% で飽和し、また Sr との複合添加においては、Ca 添加量が 1 mass% 以上の場合では、Sr が 0.5 mass% の添加量で飽和することを明らかにした。この知見を基に、Ca と Sr を種々添加した 5 種類の合金（以下；AZ91-CaSr 合金）について、簡便なダイカスト法により板材を鋳造し、室温での機械的性質およびマイクロ組織に及ぼすこれら添加元素の影響を調査した。その結果、従来の耐熱性マグネシウム合金においては、耐熱性に有効な元素添加により、室温での機械的性質の顕著な低下が見られたが、AZ91-CaSr 系合金では耐力の低下が比較的小さく、この合金組成の優位性が認められた。また、この合金の耐力低下の原因をホール・ペッチの関係を基に解析した結果、その主因が、添加元素 Ca、Sr と主要構成元素 Al との金属系化合物形成による Al 固容量の低下に起因した固溶強化の低下であることを明らかにした。それ故、さらなる強度向上には、Al 固容量の増加が必須であることを指摘した。

第3章では、室温と高温での機械的性質の調和した耐熱性マグネシウム合金の組成決定および耐熱性向上のオリジンについて、材料組織学的見地からの理論的解析を実施した。第2章で用いた5種類の耐熱性 AZ91-CaSr 系合金のダイカスト材の高温での機械的性質を調査した結果、これらの合金が優れた耐熱性を有することを明らかにした。また、高温長時間の熱処理後の組織観察より、耐熱性向上の主因は、低融点化合物  $Mg_{17}Al_{12}$  が減少する反面、高融点化合物  $Al_2Ca$ 、 $Al_4Sr$  が粒界あるいは最終凝固部近傍で共存して形成されること、およびそれらの熱的安定性であることを明らかにした。また、積層欠陥エネルギーの寄与を考慮した高温変形構成式を用いてデータ解析した結果、その変形機構が上昇運動支配型クリープであること、また室温および高温での機械的性質が共に優れ、調和した最適な合金組成が、AZ91-1.0 mass% Ca-0.5 mass% Sr であることなどを明らかにした。さらに、ダイカスト材に特徴的な金属系化合物の存在に起因した耐熱性向上

効果を検討した結果、粒界あるいは最終凝固部近傍の金属系化合物による粒界被覆率を考慮することにより、新規な経験的構成式を提案した。さらに、この構成式を規格化することで、粒界被覆率の有効性を確認するとともに、ダイカスト材の耐熱性向上の重要因子が、固溶に起因した積層欠陥エネルギーの低下と、粒界あるいは最終凝固部近傍での粒界被覆率の増大であることを示した。最終的には、ダイカスト法で作製された耐熱性 AZ91-CaSr 系合金の組成設計指針を明らかにした。

第 4 章では、AZ91-CaSr 系合金のダイカスト材で得られた組成設計指針を、押出法を想定して、室温と高温で優れた機械的性質を有する素形材用の Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系合金の組成設計に展開した。まず、AZ91-1.0 mass% Ca-0.5 mass% Sr の最適合金組成を用いた押出材は、汎用的な押出比 (Z 値) ではダイカスト材と同等な室温での機械的性質を示し、大きな押出比 (Z 値) では非常に優れた機械的性質を示した。また、組織学的検討から、押出材の室温での強化機構は、主に結晶粒微細化と固溶による強化であることを明らかにした。他方、耐熱性向上に関する当初からの課題として、ダイカスト材の耐熱性向上因子のひとつであった粒界あるいは最終凝固部近傍での粒界被覆率の増大が、押出法ではその有効形態の破壊により消失してしまうので、その耐熱性向上への寄与はほとんど期待できないことがあった。

粒界被覆率による耐熱性向上への寄与の消滅を補償する押出工程後の熱処理および押出材の耐熱性向上に寄与する組織学的要因を検討するため、Al の最大固溶 (8.3 mass% Al) に起因した積層欠陥エネルギーの低下を最大に保ち、かつ Ca、Sr 系の金属系化合物形成に消費される Al 量をバランスさせることを原則として、12 合金組成の押出材を作製した。まず、押出材を用いて熱処理条件を種々検討した結果、粒界に金属系化合物が配列する耐熱性向上に効果的な最適熱処理条件は、673 K、48 時間であった。さらに、押出材の耐熱性向上に寄与する組織学的要因の中で可能性のある因子として、粒界に存在する金属系化合物間の平均距離  $\lambda$  としきい応力  $\sigma_0$  を想定し、これらの因子を高温変形構成式に導入して解析した結果、新規素形材用の耐熱性 Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系合金の高温変形機構に及ぼす組織学的因子の影響を、理論的に解析することができた。すなわち、押出材における耐熱性向上の要因は、粒界に存在する金属系化合物の増加に伴う  $\lambda$  値の顕著な減少と  $\sigma_0$  の増大であることを明らかにした。以上の結果より、素形材用の耐熱性マグネシウム合金の設計と押出工程での組織制御に関する基本指針を明らかにした。

第 5 章では、新規素形材用の耐熱性 Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系合金を用いた自動車用シートベルト実用部品の鍛造加工を目指した際に想定される材料組織学的課題を検討した。そのために、Al を 3 mass% から 6 mass% 添加した AZ 系ダイカスト材をモデル材料として、鍛造加工による動的再結晶の発現条件に関する基礎的な調査を行った結果、下記の結論

を得た。すなわち、Takara らにより提案されている臨界初期結晶粒径（微細化あるいは粗大化する境界の初期結晶粒径）と Z 値の関係式、および Watanabe らにより提案されている鍛造後の動的再結晶粒径と初期結晶粒径の比率と Z 値の関係式などの有効性が確認できた。

上記の関係式との組み合わせにより、目標とする鍛造後の動的再結晶粒径が得られる新規素形材用の耐熱性 Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系合金の初期結晶粒径と鍛造加工条件の Z 値範囲を予測した。最終的な鍛造加工条件の Z 値は、各組成の合金の押出し後の結晶粒径、臨界初期結晶粒径および目標とする鍛造後の動的再結晶粒径などを考慮した結果、 $Z > 2 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$  であると決定した。また、前章にて作製した 12 合金組成の押出材から、最適な合金組成を Mg-10 mass% Al-1 mass% Zn-1 mass% Ca-1 mass% Sr と決定した。また、他の鍛造条件の環境因子である鍛造パンチ方式、鍛造用ワークの最適寸法などは、事前に鍛造シミュレーションにより決定した。最適組成の押出材を用いて鍛造加工したシートベルト実用部品の機械的性質は、当初目標としていたアルミニウム合金製ダイカスト部品の値を超え、新規合金素形材による実用部品の鍛造成形加工の可能性を実証した。

第 6 章では、本研究の成果をまとめた。

本研究は、簡便なダイカスト法で作製した材料の解析により、耐熱性 Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系合金における組成設計の指針を得て、これを素形材に展開し、新規な押出材の合金組成とマイクロ組織を最適化して、実用鍛造部品を製造できる鍛造プロセスを理論的に決定したものである。特に、本研究では、大学における研究シーズ（合金の組成設計指針と構成式による最適プロセス予測）を活用し、室温および高温での強化機構に及ぼす元素の影響を理論的に考察し、合金の組成設計と組織制御を最適化する作製プロセスを構築することで、室温における強度と伸びのトレードオフバランスを保持しながら、高温での機械的性質、特に耐熱性に優れた Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系合金を開発し、実用モデル部材の作製と鍛造による基盤製造技術の高度化を実証したものである。

## 審査結果の要旨

現在、省エネルギー、装置の運動性向上のために、部材の軽量化が要請されている。マグネシウムは、実用金属の中で最も軽量な材料であり、リサイクルに要する熱エネルギーが小さいといった優れた特性を有している。軽量化効果の大きいマグネシウム合金の素形材の適用をさらに拡大するためには、アルミニウム押出材に匹敵する特性が必要とされている。特に、マグネシウム合金押出材を想定した場合、良好な室温および高温

での機械的性質が必要とされているが、現在一般的なユビキタス元素を用いた合金組成からなるマグネシウム合金押出材は開発されていない。本研究では、耐熱性を向上させるための主要な添加元素として、Al に注目し、また、先行特許情報を整理することで、開発する鍛造用押出材の合金組成として、Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系を選択した。また、熱間加工後の結晶粒径の変化に及ぼす加工因子の影響を Zener-Hollomon パラメータ（以下 Z 値）を適用することで、その鍛造加工条件の最適化を行った。さらに、鍛造加工シミュレーションを活用して理論的に最適化した鍛造加工条件を検証するとともに、実際に実用鍛造部品を製作することで、以下に述べるような研究成果を得ている。

- ① 耐熱性 Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系合金の室温での機械的性質に及ぼす合金組成とマイクロ組織の影響を調査した結果、Ca、Sr の単独および複合添加が結晶粒微細化に有効であること、室温および高温での機械的性質が共に優れ、調和した最適な合金組成が AZ91-1.0 mass % Ca-0.5 mass % Sr であることなどを明らかにした。
- ② 耐熱性 Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系合金のダイカスト材の耐熱性向上因子が、固溶に起因した積層欠陥エネルギーの低下と、粒界あるいは最終凝固部近傍での粒界被覆率の増大であることを明らかにした。さらに、その押出材における耐熱性向上因子は、粒界に存在する金属系化合物の増加に伴うその平均距離  $\lambda$  値の顕著な減少としきい応力  $\sigma_0$  の増大であることを明らかにした。
- ③ 目標とする鍛造後の動的再結晶粒径が得られる新規素形材用の耐熱性 Mg-Al-Zn-Ca-Sr 系合金の初期結晶粒径と鍛造加工条件の Z 値範囲を予測した結果、最終的な鍛造加工条件の Z 値は、 $Z > 2 \times 10^{12} \text{ s}^{-1}$  であると決定した。最適組成の押出材を用いて鍛造加工したシートベルト実用部品の機械的性質は、当初目標としていたアルミニウム合金製部品での値を超え、新規合金素形材による実用部品の鍛造成形加工の可能性を実証した。

本研究成果は、学術的のみならず工業的にも大いに期待できる有益な知見を含んでおり、材料開発および製造技術の一層の高度化に貢献するところ大である。さらに、申請者が自立して研究を行うに十分な能力と学識を有することを証したものである。学位論文審査委員会は、本論文の審査ならびに最終試験の結果から、博士（工学）の学位を授与することを適当と認める。