

急凝固アルミニウム合金粉末のECAP固化成形プロセスの開発

松木賢司*

1. 緒言

ECAP (Equal Channel Angular Pressing) 法⁽¹⁾⁻⁽⁴⁾は、各種溶解鑄造 (IM: Ingot Metallurgy) 合金ピレットに、比較的低温でせん断変形を繰り返して付与できる新しい加工法として最近注目されている⁽¹⁾⁻⁽⁴⁾。

本研究ではこの ECAP 法を急凝固アルミニウム合金粉末^{(5)、(6)}の固化成形に適用することを目的として検討を行った。急凝固粉末の固化成形に ECAP 法を適用することの理由は、

① ECAP 法では、図 1 に模式的に示すダイスを用い、同一断面形状のまま試験片にせん断ひずみを繰り返し付与できるので、一般の熱間押出しによる固化成形より、低温、低荷重で強せん断ひずみを蓄積した固化成形の可能性がある。

② そのため、アルミニウム粉末表面の酸化被膜が分断され固化成形が促進される。

③ また、粉末の凝固セル壁や共晶等での不均一な化合物組織⁽⁷⁾⁽⁸⁾を分断し、均一微細なマイクロ組織が得られ、固化材の高強度化が図れる。

④ さらに、マトリックスに微細結晶粒組織を形成できれば、固化材の高速超塑性を利用した鍛造加工の可能性が考えられる、等の優れた特徴が考えられたためである。

本実験においては、これまでに、熱間押出し材に関し種々の特性を検討した、2024Al-Fe-Ni 系合金粉末を対象として^{(7)・(8)} ECAP による低温固化成形の可能性、室温と高温機械的性質ならびにマイクロ組織変化に及ぼす、ECAP ダイス構造、ECA プレス時の繰り返し数 N 、や回転角 R 等の影響についての検討を行った。

2. 実験方法

2.1 ECAP 法の原理と固化方法

図 1 に本実験で用いた ECAP 法の原理図を

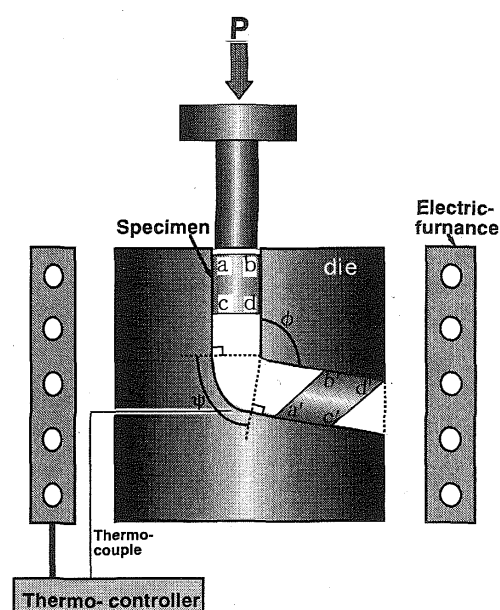


図 1 本実験で用いた ECAP 固化装置の模式図

示す。ECAP 法で用いるダイスは、同一断面積を持つ 2 つの管が交叉角度 ϕ で交わる交叉部を有する。交叉角 ϕ は 105° 、また ψ は 75° である。いま N を ECA プレスの繰り返し数とすると、試験片の受ける真の塑性ひずみ ϵ は次式で与えられる⁽⁴⁾。

$$\epsilon = (N/\sqrt{3}) [2 \cot(\phi/2 + \psi/2) + \psi \operatorname{cosec}(\phi/2 + \psi/2)] \quad (1)$$

本実験で用いたダイスでは $\epsilon = 0.76N$ である。

2.2 試験片の作成と固化成形

本実験では 2024Al、およびそれに 3mass%Fe、あるいは 3mass%Fe-5mass%Ni 添加した合金 (それぞれ 2024, 3F0N, 3F5N と呼称する) の空気アトマイズ粉末を用いた。各合金粉末の化学組成を表 1 に示す。これら粉末の直径 20mm × 長さ 70mm の CIP 体 (Cold Isostatic Press: CIP) から直径 18 × 長さ 35mm の試験片を切り出して用いた。その際、後述する理由で、肉

厚 1 mm の 2024Al 合金のカップに入れて ECAP を付加した。各試験片に 523K 又は 573K で ECAP を $N=1\sim 3$ 回繰り返し固化成形した後、密度測定、ビッカース硬さ (H_V) 測定、TEM によるミクロ組織観察を行った。

また、ECA プレスを繰り返す際、試験片をプレス軸の回りに 0° 、 90° と 180° 回転して投入する、回転角 R の影響についても検討した。ただし、 $R=90^\circ$ では同一方向に回転した。

表 1 合金粉末の化学組成 (mass%)

Alloys	Cu	Mg	Fe	Ni	Si	Mn	Zn	Cr	Ti
2024	4.28	1.54	0.10	TR	0.08	0.60	0.03	TR	TR
3F0N	4.22	1.43	2.90	TR	0.49	0.40	TR	TR	TR
3F5N	4.14	1.66	2.86	4.69	0.01	0.64	0.01	TR	TR

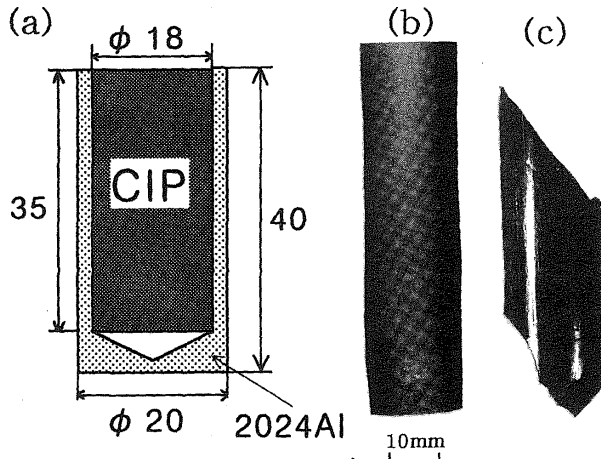


図 2(a)2024Al パイプと CIP 体の寸法、(b)固
化前の CIP 体、(c)ECAP 固化後の試験片形状

表 2 固化する前後の 3F5N 試験片の密度 (g/cm^3)

As CIP	ECA pressing at 573 K ($R=90^\circ$)		Conventional hot extrusion, (extension ratio = 10)	
	$N=1$	$N=3$	at 653 K	at 753 K
2.271	2.928	2.935	2.939	2.938

2.3 ECAP 固化材の高温圧縮試験

固化成形材から $8 \times 8 \times 10$ mm の立方体を切り出し、予加工 ($573K$, $\dot{\epsilon} = 10^{-3}s^{-1}$, $\epsilon_p = 30\%$) を加えた後、 $773K$ で $\epsilon = 70\%$ までの高温圧縮試験を行った。そして、真応力 (σ) - ひずみ (ϵ) 線図、真応力 - ひずみ速度 ($\dot{\epsilon}$) 線図、およびひずみ速度感受性指数 m 値を求め超塑性の観点で検討を加えた。

3. 実験結果と考察

3.1 固化成形体形状と密度

図 2 (a)-(c) に、3F5N CIP 試験片 (図 2 (b) に、 $573K$ で $N=1$ 回の ECAP を付加後の試験片形状 (図 2 (c)) を示す。その際、CIP 材をそのまま ECA プレスした場合、表面割れを発生したので、図 2(a) に示す形状の 2024Al パイプを被覆材として 3F5N CIP 試験片を ECA プレスした。その結果、図 2 (c) に示したように割れを発生しなかった。そこで、本実験ではこの被覆法を用いることにした。

表 2 に、回転角 $R=90^\circ$ 、 $N=3$ の ECA プレスした、3F5N CIP 試験片の液中秤量法による密度を熱間押し材と比較して示す。これより、3 回までの ECAP 固化材の密度は、押し材とほぼ同等の値となり、100% 密度に近い緻密化がほぼ達成されている事が分かる。

3.2 ECAP 固化材のビッカース硬さ

(1) 繰り返し数の影響

図 3 に、3F5N に $R=90^\circ$ で $N=1$ と 3 回の ECA プレス試験片のプレス方向に平行 (a) と直角断面 (b) のビッカース硬さ (H_V) 分布を示す。この結果から、 $N=1$ 回の固化試験片でも場所的なバラツキはそれ程見られない事が分かった。

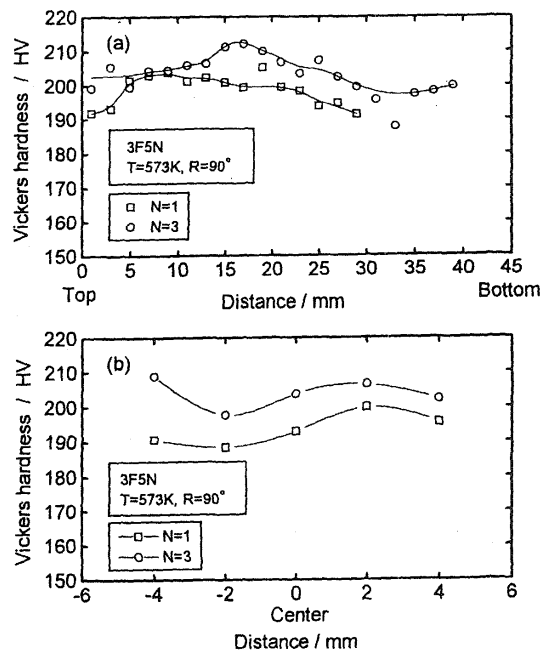


図 3 3F5N 合金 ECAP 固化材 ($R=90^\circ$, $N=1,3$) のビッカース硬さ分布
ECA プレス方向に (a) 平行、(b) 直角

合金粉末のビッカース硬さ (H_V) はマイクロ組織の不均一を反映してバラツキがの幅大きい、ECA プレス後には図 3 の様に比較的均一な硬さ分布が得られた。そこで、図 3 の様な結果から、各試験片の平均値を求め、図 4 にまとめて示した。合金別では、2024 では繰り返し数 N の増加によってあまり硬化しないが、後で示す化合物粒子の体積率が多くなる⁽⁷⁾、3F0N から 3F5N の順に ECA プレス回数による硬化の割合が増し、粉末に比べ顕著な強化が達成されている。しかし、繰り返し数 N の効果に関しては、特に $N=1$ 回の ECA プレスによる硬化が著しく、それ以降では飽和する傾向が有る。従って、繰り返し数は、粉末の固化も考慮し $N=3$ 回程度で十分と思われる。

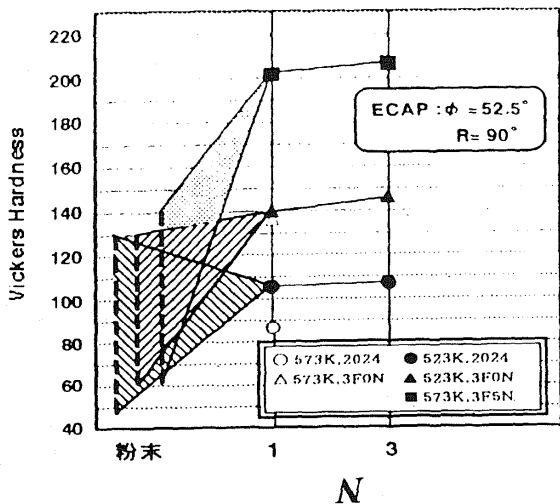


図 4 各合金粉末の ECAP 固化に伴う硬さ (H_V) 変化

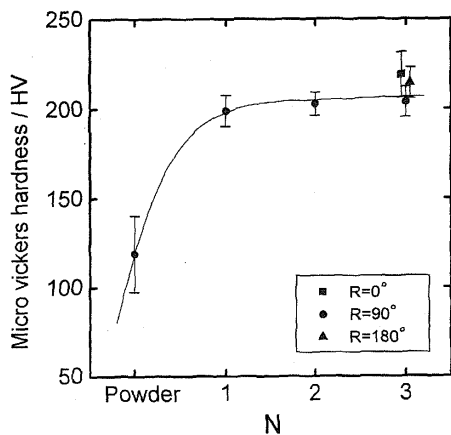


図 5 3F5N 粉末 ECAP 固化材の硬さ (H_V) に及ぼす N と R の影響

(2) 回転角の影響

$N=3$ 回までの ECA プレスが、3F5N 試験片のプレス方向断面のビッカース硬さに及ぼす影響、及び $N=3$ 回における回転角の影響を図 5 に示す。回転角の影響については、 $R=90^\circ$ の H_V 値が、 0° と 180° よりやや低い値を示した。

3-3 ECAP 固化材の高温圧縮変形特性

$N=3$ 回の ECA プレスを加えた 3F5N 試験片の高温圧縮変形特性に及ぼす回転角 R の影響を超塑性の観点で $T_c=773K$ で調べた。先ず図 6 に、 $\dot{\epsilon}=1s^{-1}$ における真応力-公称ひずみ線図を比較した。この結果から、 $R=180^\circ$ の応力が 0° 、 90° よりかなり高い値を示す事が分かった。

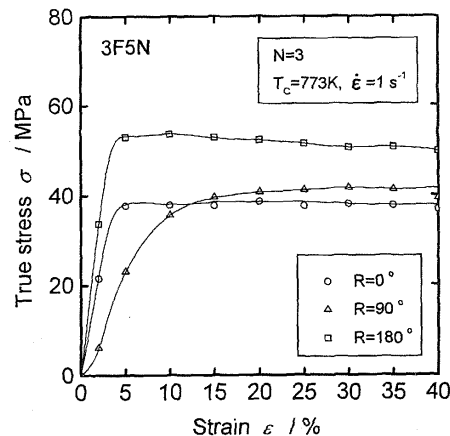


図 6 3F5N 粉末 ECAP 固化材 ($N=3$) の真応力-公称ひずみ線図に及ぼす回転角 R の影響 ($T_c=773K$, $\dot{\epsilon}=1s^{-1}$)

次に、真応力-公称ひずみ線図における、ひずみ 10%、20% と 40% での $R=0^\circ$ 、 90° 及び 180° の $\log \sigma - \log \epsilon$ 線図をそれぞれ図 7 (a)-(c) に示した。これらの結果から、 $R=90^\circ$ ですべてのひずみで $m=0.3$ を示し、超塑性的傾向が見られるが、 $R=180^\circ$ では m 値は低く超塑性を示さなかった。一方、 $R=0^\circ$ ではひずみが増すと m 値が低くなる傾向があった。超塑性の観点では、 $R=90^\circ$ での ECAP 付加が適切である。

同様の検討を 2024 と 3F0N でも行った。その結果、2024 は m 値は 0.08 と低かった

が 3F0N の $R=90^\circ$ で、 $m=0.25$ とやや高い値を示した。これらの 2 種類の合金での超塑性発現のためには、さらに固化条件を検討する必要が有る。

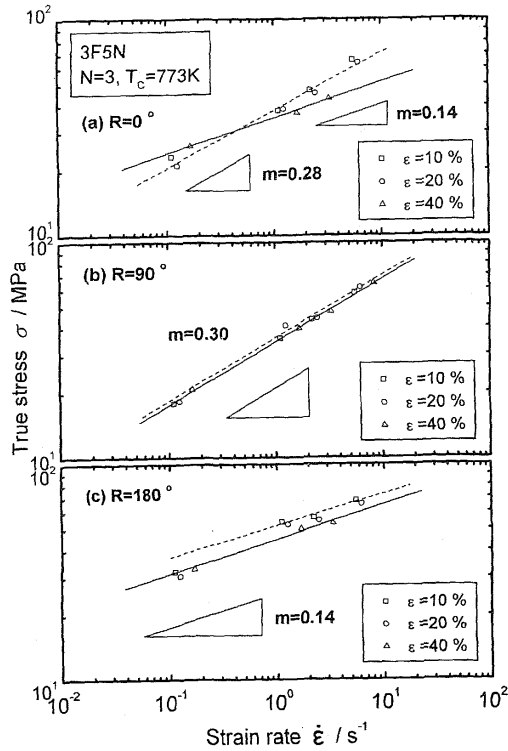


図 7 3F5N 粉末 ECAP 固化材 ($N=3$) の $\log\sigma$ - $\log\dot{\epsilon}$ 線図 ($T_c=773K$) に及ぼす回転角 R の影響 (a) $R=0^\circ$, (b) $R=90^\circ$, (c) $R=180^\circ$

3-4 TEM 組織観察

ECA プレスに伴うマイクロ組織の変化を TEM 観察によって調べた。

先ず図 8 に、3F5N アトマイズ粉末の典型的な SEM(a)と TEM(b) 組織を示す。この合金系では、主として Al_9Co_2 と同形のモノクリニック構造を有する Al_9FeNi 化合物相が、図 8 の様にセル壁や共晶化合物として晶出する。一方図 9 に、 $N=1$ 回の ECA プレスを加えた 3F5N 試験片の TEM 組織を示す。 $N=1$ 回では、所々に共晶組織やセル組織が残っているが、全体的に化合物粒子は分断、球状化し、その粒子にピン留めされた多数の転位が観察された。このような組織変化が H_V の増大の原因と考えられる。

次に、 $T=573K$ で、それぞれ $R=0^\circ$ 、 90° および 180° の ECA プレスを $N=3$ 回加えた

3F5N 試験片の TEM 組織を図 10(a)-(c)に示す。 $R=0^\circ$ では、ECA プレスの繰り返しによるせん断ひずみが同一方向に累積されるため、粉末の不均一な化合物組織が分断され、せん断方向に層状に配列した化合物粒子、およびそれらの化合物の配列に沿って伸びた亜結晶粒組織が観察される (図10(a))。しかし

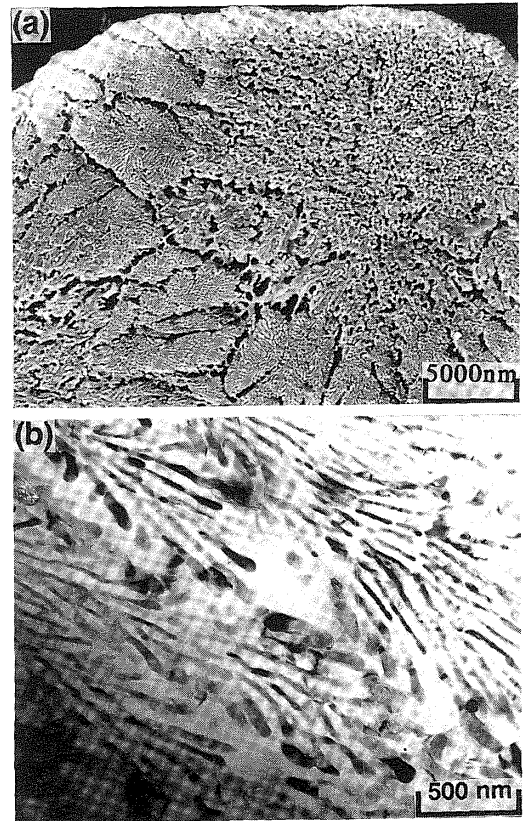


図 8 3F5N 粉末の(a)SEM 組織, (b)TEM 組織

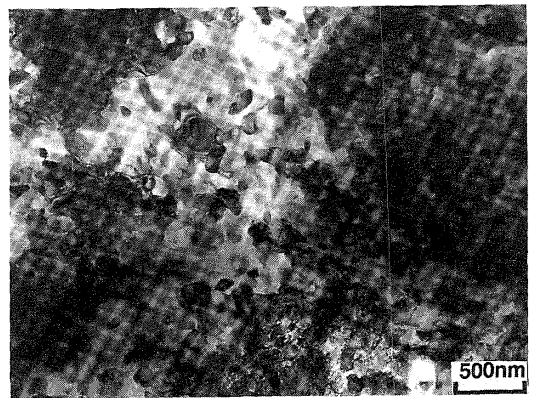


図 9 3F5N 粉末 ECAP 固化材 ($N=1$) の TEM 組織

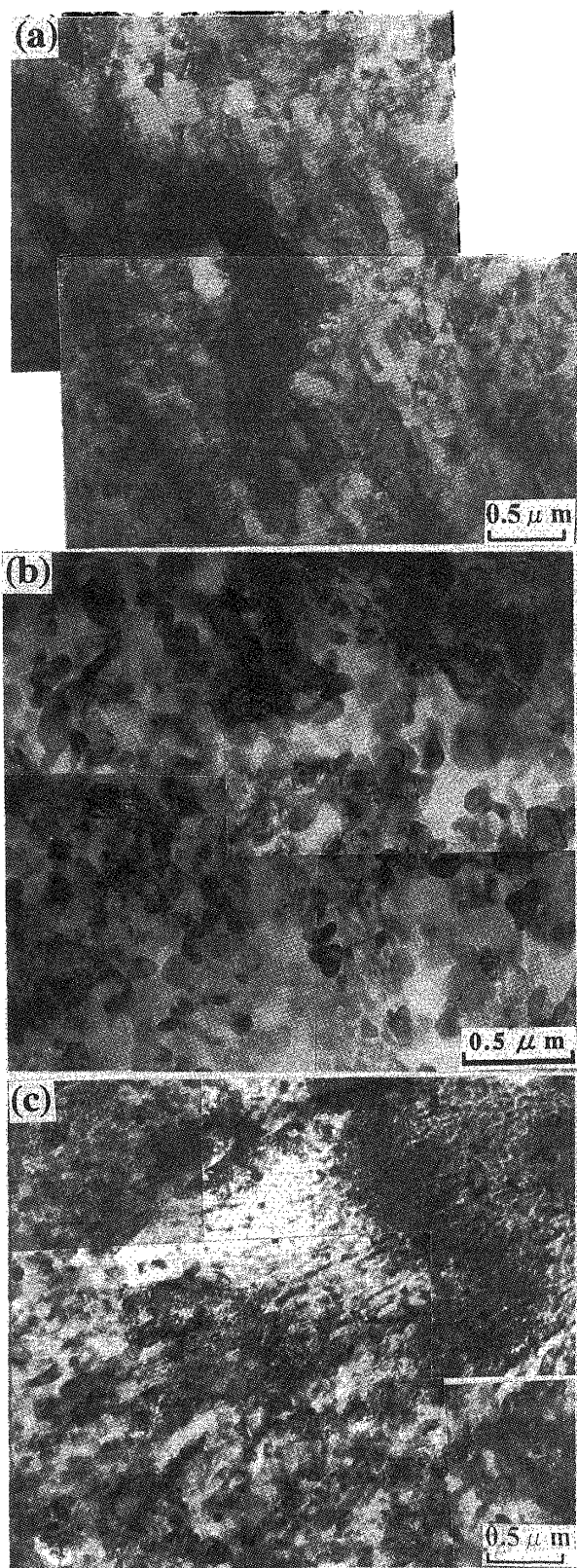


図 10 3F5N 合金粉末 ECAP 固化材 ($N=3$) の TEM 組織 (a) $R=0^\circ$, (b) $R=90^\circ$, (c) $R=180^\circ$

$R=90^\circ$ では、せん断面が交叉する事によって、分断された化合物がほぼ等方的に微細分散しており、化合物粒子間のマトリックスの所々に極めて微細な亜結晶粒が観察された (図 10(b))。一方、 $R=180^\circ$ では、ECA プレスの繰り返しによるせん断ひずみ方向が往復するため、粉末凝固組織の分断が $R=0^\circ$ より不十分で、微細セル組織や共晶組織の痕跡が残っていた。また、微細セル組織の内部や共晶組織の周囲等に極めて高密度な転位組織が観察された。

以上の結果より、 $R=180^\circ$ では加工硬化状態にあるため H_v 値が最も大きく、また、 $R=90^\circ$ では回復が進んだ状態に有るため比較的低い H_v 値を示したと考えられる。

$T=523\text{K}$, $R=90^\circ$ の条件で、 $N=1$ と 3 回 ECA プレスした 2024 合金の TEM 組織において、 $N=1$ 回では ECA プレス方向に粉末の凝固セル組織がせん断方向に伸びた組織が観察されるが、 $N=3$ 回では、せん断面が交叉する事によって、ミクロ組織の方向性が減少する傾向が有った。ただ、ほぼ単相組織の IM 材で報告されているような⁽³⁾⁻⁽⁴⁾、微細かつ明瞭な粒界を持つ亜結晶粒または結晶粒組織は形成されていなかった。本実験では、粉末の固化を目的として $T=523\text{K}$ で ECA プレスしたため、転位相互の合体消滅が起こり易く、室温におけるよりは転位の蓄積が不十分であったと考えられる。

4. 結 言

2024Al-3Fe-Ni 系合金粉末の CIP 体の ECAP 固化と固化材の高速超塑性の可能性を検討した。得られた結果を要約して以下に示す。

(1) 2024Al パイプに挿入して繰り返し数 $N=3$ 回の ECA プレスする事により、573K 付近の比較的低温でも熱間押し出し材に近い密度の固化材が得られる。

(2) 固化材の硬さ分布は比較的均一で、 N の増大によって H_v 値が高くなる傾向が有る。その傾向は特に化合物粒子を多く含む 3F5N で顕著であった。また、一定合金組成では $R=90^\circ$ より、 0° と 180° がやや高い H_v 値を示した。

(3) 得られた ECAP 固化材の化合物粒子の

分布とマトリックスの亜結晶粒を含むミクロ組織は R の影響を強く受けた。 $R=0^\circ$ ではせん断方向に伸びた方向性を有し、一方、 $R=90^\circ$ では微細かつ等方的であった。しかし、 $R=180^\circ$ では粉末の微細化合物組織が未だ残っていた。マトリックスには極めて高密度の転位組織が導入されており、高い硬さが得られた。

(4) $R=90^\circ$ 固化材の高温圧縮試験の結果、 $10\text{ s}^{-1}\sim 10^{-2}\text{ s}^{-1}$ のひずみ速度範囲で超塑性の指標となる $m > 0.3$ が得られ、高速超塑性を利用した成形が可能である事を明らかにした。

5. 謝辞

本研究は財団法人天田金属加工機械技術振興財団の研究開発助成として採択され行われたもので、同財団からの研究助成に対し深く感謝の意を表します。

また、本研究にご協力を頂きました、東洋アルミニウム株式会社に厚く御礼申し上げます。

さらに、本研究の遂行に携わった、当時富山大学工学部大学院生であった向上君および竹内孝之君に心よりお礼申し上げます。

参考文献

- (1) V. M. Segal, V. I. Reznikov, A.E. Drobyshevskiy, and V. I. Kopylov: *Metally*, 1(1981), 115. English translation: *Russian Metallurgy*, 1(1981), 99.
- (2) J. Wang, Z. Horita, M. Furukawa, M. Nemoto, N. K. Tsenev, R. Z. Valiev, Y. Ma & T. G. Langdon: *J. Mater. Res.*, 8(1993), 2810.
- (3) J. Wang, Y. Iwahashi, Z. Horita, M. Furukawa, M. Nemoto, R. Z. Valiev, T. G. Langdon: *Acta mater.*, 44(1996), 2973.
- (4) 堀田善治, 古川稔, T. G. Langdon, 根本 実: *まてりあ*, 37 (1998), 767.
- (5) S. Xiang, K. Matsuki, N. Takatsuji, T. Yokote, J. Kusui & K. Yokoe: *J. Materials Sci Letters*, 16(1997), 1725.
- (6) K. Matsuki, T. Aida, T. Takeuchi, J. Kusui & K. Yokoe: *N. Takatsuji, Acta mater.*, 48(2000), 2625.
- (7) 松木賢司, 木本勉, 向上, 横手隆昌, 楠井潤, 藤井一男: *軽金属*, 46 (1996), 189.
- (8) K. Matsuki, S. Xiang, T. Kimoto, T. Yokote, J. Kusui & K. Fyji: *Materials Sci. & Tech.*, 13(1997), 477.