

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

富山大学工学部 機械知能システム工学科

教授 松木賢司

(平成8年度研究開発助成 AF-96022)

キーワード：合金粉末、固化成形、超塑性

1. 研究の目的と背景

アルミニウム合金の粉末冶金プロセス開発においては、これまで熱間押出しを用いた固化成形法が多用されている^{(1) - (3)}。室温から約573K付近までの材料強度の改善を目指した開発では、急凝固で得られた粉末の微細組織の成長防止のため、出来るだけ低温で押出す事が望ましい。また、アルミニウム粉末表面の酸化被膜を分断し固化成形を促進するには押出し比を大きくとる必要がある^{(1) - (3)}。しかし、押出し温度を低くすると、押出圧力の増大や押出し表面欠陥の発生等の問題を生じる。

一方、最近、溶解鑄造材 (IM材) に対する拘束強せん断加工法として、ECAP法 (Equal Channel Angular Press法)^{(4) - (6)} が注目されている。本研究ではこのECAP法を、粉末の固化成形とマイクロ組織均一微細化に適用の可能性を検討した。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、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加できるので、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^{(1) (7) (8)} を分断し、均一微細なマイクロ組織が得られ、固硬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、固硬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^{(9) (10)}、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), (11)}、ECAP固化成形の可能性、機械的性質と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法の原理と固硬化方法

図1に本実験で用いたECAP法の原理図を示す。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⁽⁶⁾。本実験では1つの交差角 (Single Angle ECAP) と2つの交差角 (Double Angle ECAP) を有する分割型ダイスを用いた実験を行った。Double Angle ECAPは、①1st Angleで固化成形し、2nd Angleでせん断ひずみを付加することにより確実に固化成形する。②1st Angle通過時のせん断変形に対し、2nd

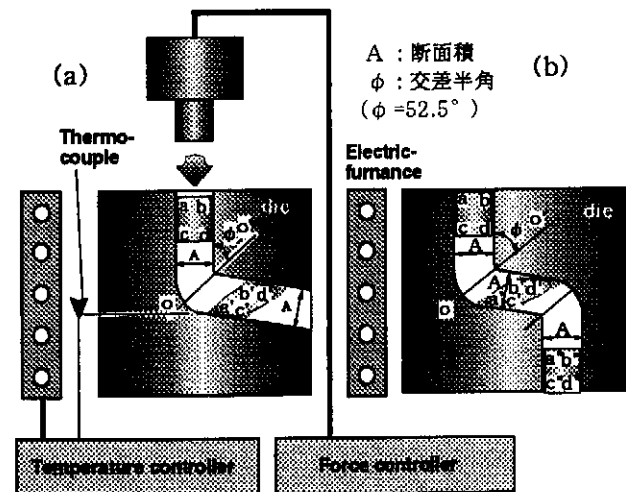


図1 本実験で用いたECAP用ダイの模式図

(a) Single Angle ECAP and (b) Double Angle ECAP.

Angleでは逆方向のせん断変形になるため試験片形状が復元し歩留が良い、等の特徴を持つ。交差半角 ϕ は、いずれも 52.5° 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⁽⁶⁾。

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

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

TRは0.01以下

2.2 粉末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と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20×長さ70mmのCIP体(Cold Isostatic Press : CIP)から直径18×長さ35mmの粉末試験片を切り出して用いた。その際、後述するような、肉厚1mmの2024Al合金のカップに入れてECAPを付加した。各試験片に523K(2024)又は573K(3F0N, 3F5N)でECAPをN=1-3回繰り返し固化成形した後、密度測定、ピッカース硬さ(HV)測定、TEMによるマイ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。

2.3 固化材の高温圧縮試験

本実験では、 $\phi=52.5^\circ$ のダイを用いて得た固化成形材から8×8×10mmの立方体を切り出し、予加工(573K, $\dot{\epsilon}=10^{-3}s^{-1}$, $\epsilon=30\%$)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 固化成形後の形状と密度

図2(a)-(d)に、Single及びDouble ECAPダイスを用い、3F5N CIP試験片に、573KでN=1回ECAPを付加後の試験片形状を示す(図.2(c)及び(d))。その際、CIP材(図2(b))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CIP試験片をECAプレスした。その結果、図2(c)及び(d)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°、N=3のSingle及びDouble ECAプレスした、3F5N CIP試験片の液中秤量法による密度を押し出し材と比較して示す。

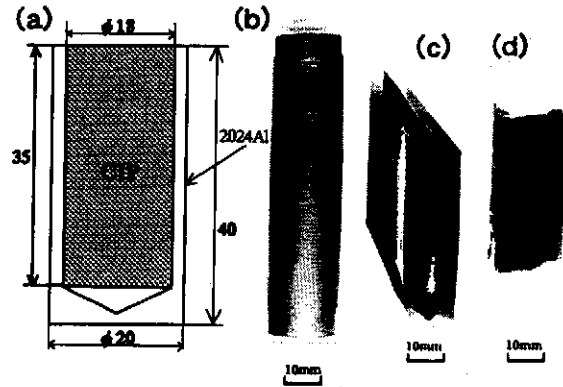


図2 (a) 2024Al缶に挿入した3F5N CIP試験片の模式図、(b) CIP試験片、ならびに(c) single angle及び(d) double angle ダイスを用いECAプレスした3F5N試験片形状。

これより、3回までのECAP固化材の密度は、いずれも押し出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。

表2 3F5N試験片の密度の比較

Process condition	ECAP at 573K ($\phi=52.5$)		Hot extrusion (R=10)		
	N=1	N=2	at 653 K	at 753K	
Density (g/cm ³)	Single	2.928	2.935	2.939	2.938
	Double	2.902	2.933		

図2に示した結果と表2から、Double ECAPのみならずSingle ECAPによっても粉末の固化成形が可能である事が分かった。両者を比較すると試験片の歩留りに関しては端部が平坦なDouble ECAPが有利である(図2(c)及び(d))。しかし、Double ECAPでは荷重が高くなり過ぎポンチを破損する事が合った。そこで、以下の実験では10~30T程度の低荷重で、またダイス製作も単純なSingle ECAPを用いて実験を進めた。

3.2 Single Angle ECAP 固化材の硬さ分布

(1) 繰り返し数の影響

合金粉末の硬さ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のが、ECAプレス後には比較的

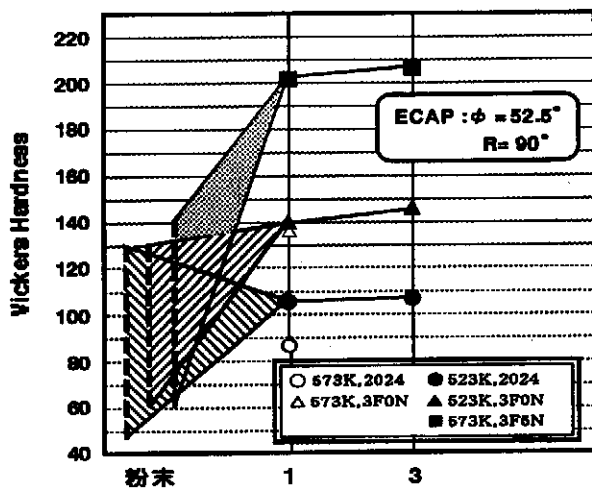


図3 各合金粉末のHV値に及ぼすECAプレス回数の影響

均一な硬さ分布が得られた。そこで、それらの結果から各試験片の平均値を求め、図3にまとめて示した。合金別では、2024ではNによってあまり硬化しないが、化合物粒子の体積率が多くなる⁽⁷⁾ 3F0Nから3F5Nの順にECAプレスによる硬化の度合いが増し、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。

(2) 回転角の影響

N=3回までのSingle ECAプレスが、3F5N試験片のプレス方向断面のピッカース硬さ分布に及ぼす回転角の影響を、図4に示す。、HV値はR=90°、0°、180°の順に大きくなる事が分かる。

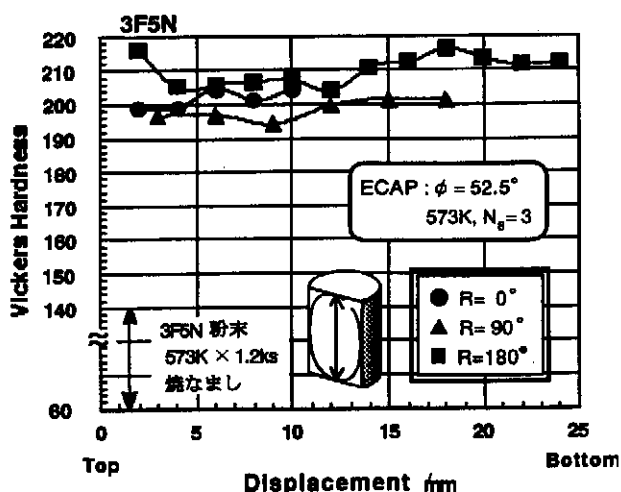


図4 N=3回ECAプレス後の3F5N試験片のHV値の分布に及ぼす回転角Rの影響

3-3 TEM組織観察

Single 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。

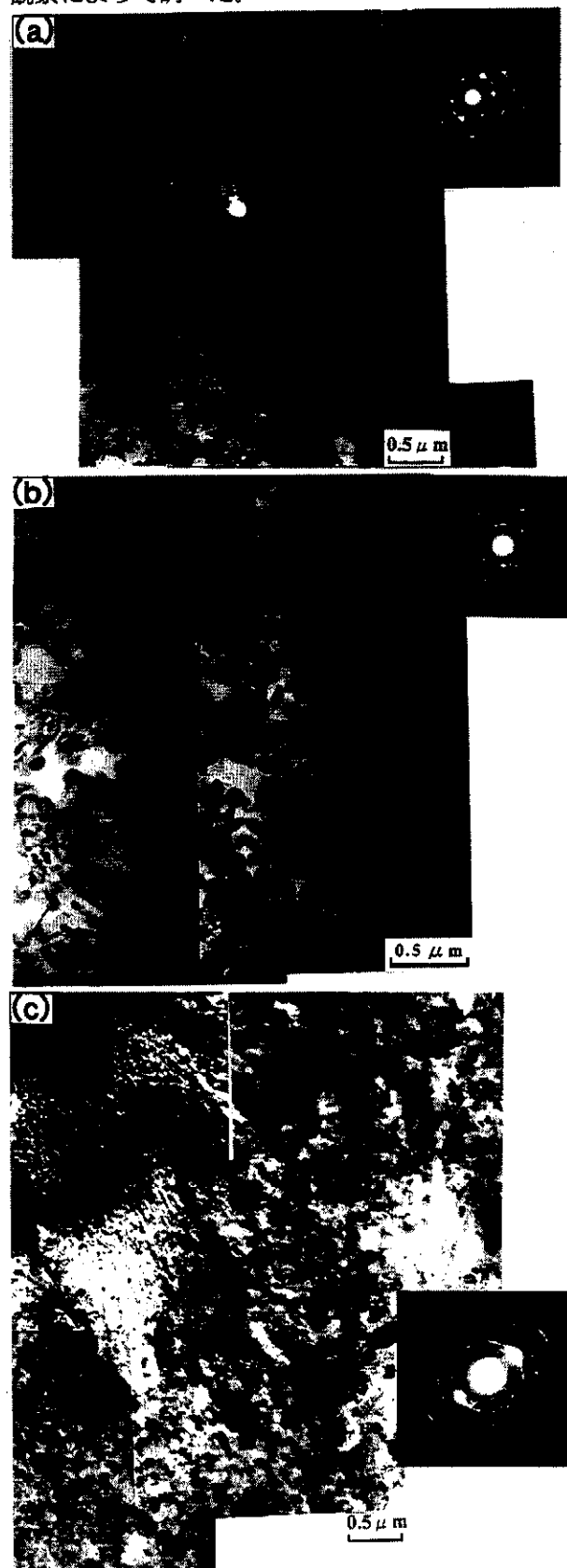


図5 T=573KでN=3回のECAプレスした3F5N試験片のTEM組織
(a) R=0° , (b) R=90° , and R=180°

$T=523\text{K}$, $R=90^\circ$ の条件で、 $N=1$ と 3 回 Single 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、マイクロ組織の方向性が減少する傾向があった。ただ、ほぼ単相組織の IM 材で報告されているような⁽¹²⁾⁻⁽¹⁴⁾、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、粉末の固化为目的として $T=523\text{K}$ 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。

一方、 $T=573\text{K}$ で、それぞれ $R=0^\circ$ 、 90° および 180° の Single ECA プレスを $N=3$ 回加えた 3F5N 試験片の TEM 組織を図 5 (a) - (c) に示す。この合金系では主として Al_3Co_2 と同形のモノクリニック構造を有する Al_3FeNi 化合物相が晶出する。 $R=0^\circ$ 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 5 (a))。

しかし $R=90^\circ$ では、2024 に関して述べた効果で、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 5 (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⁽¹⁵⁾。

以上の結果より、 $R=180^\circ$ では加工硬化状態にあるため HV 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 HV 値を示したと考えられる。

4.4 固化材の高温圧縮変形特性

3F5N の $R=90^\circ$ の ECA プレスで形成された亜結晶粒は 2024 や 3F0N 試験片より微細であった。そこで、3F5N の $N=3$ 回の ECA プレスを加えた試験片の高温圧縮特性を $T=773\text{K}$ で調べた。

真応力-公称ひずみ線図における、ひずみ 30% での $R=0^\circ$ 、 90° 及び 180° の $\log \sigma - \log \dot{\epsilon}$ 線図を図 6 に示した。これらの結果から、方向性の少ない化合物粒子の分散と微細亜結晶粒が観察された $R=90^\circ$ では (図 5 (b))、各ひずみ対する $\log \sigma - \log \dot{\epsilon}$ 線図の、 $2 \times 10^{-3}\text{s}^{-1}$ 以上のひずみ速度範囲での直線の勾配から求めた m 値は、約 0.32 を示し高速超塑性的

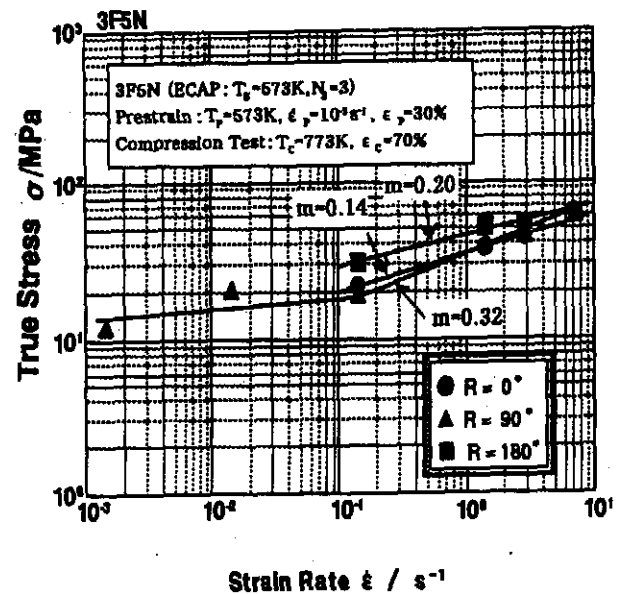


図 6 $N=3$ 回の ECAP を加えた 3F5N 試験片の $\log \sigma - \log \dot{\epsilon}$ 線図に及ぼす回転角 R の影響

特性を示す事が分かった。しかし、 $R=180^\circ$ では全体的に変形応力が大きく、 m 値は低い値となり、超塑性が得られなかった。

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ある。

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 付近の比較的低温度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 HV 値が高くなる傾向がある。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 $R=90^\circ$ 、 0° 、 180° の順に高い HV 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マイクロ組織は 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) その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) 井上明久、増本健：軽金属、40 (1990)、453.
- 2) 金子純一：“P/Mアルミニウム合金の最近の進歩”、軽金属学会、第40回シンポジウムテキスト (1992、4)、1.
- 3) 大家正二郎、宮木美光：“アルミニウム合金P/M材の組織と性質”、軽金属学会研究部会報告書 No.28 (1992、9)、1.
- 4) J.Wang, Z.Horita, M.Furukawa, M.Nemoto, N.K.Tseney, R.Z.Valiev, Y.Ma & T.G.Langdon : J.Mater. Res.,8 (1993) ,2810.
- 5) J.Wang, Y.Iwahashi; Z.Horita, M.Furukawa,M.Nemoto, R.Z.Valiev T.G.Langdon : Acta mater., 44 (1996) ,2973.
- 6) 堀田善治、古川稔、T.G.Langdon, 根本 実：まてりあ,37 (1998)、767.
- 7) 松木賢司、木本勉、向上、時澤貢、横手隆昌、楠井潤、藤井一男：軽金属、46 (1996) 189-194.
- 8) K.Matsuki, S.Xiang, T.Kimoto, M.Tokizawa, T.Yokote, J.Kusui & K.Fujii : Materials Sci. & Tech., 13 (1997) ,477.
- 9) 松木賢司：鉄と鋼, 75 (1989)、22.
- 10) J.Wadsworth, T.G.Nieh, & O.D.Sherby : Proc. Superplasticity in Advanced Materials, Ed.by S.Hori, M.Tokizane & N.Furushiro, (1991) , 13.
- 11) 松木賢司、北野亮一、時澤貢、會田哲夫、横手隆昌、楠井潤、横江一彦：塑性と加工, 39 (1998) ,47.
- 12) S.Ferrasse, V.M.Segal, K.T.Hartwig & R.E.Goforth : Metall. Mate. Trans.,28A (1997) ,1047.
- 13) Y.Iwahashi, Z.Horita, M.Nemoto & T.G.Langdon : Acta mater, 45 (1997) ,4733.
- 14) K.Nakashima, Z.Horita, M.Nemoto & T.G.Langdon : Acta mater, 46 (1998) ,1589.
- 15) S.Xiang, K.Matsuki, N.Takatsuji, M.Tokizawa, T.Yokote, J.Kusui & K.Yokoe : J.Materials Sci. Letters, 16 (1997) 1725.