研究論文

半熔融攪拌した AZ91D マグネシウム合金チップ材
の流動性および加圧成形後の機械的性質関原 一敏*・大西 智*
鎌土 重晴**・小島 陽**Fluidity of AZ91D magnesium alloy chips stirred at semi-solid
state and mechanical properties after press-formingKazutoshi SEKIHARA *, Satoshi OHNISHI*
Shigeharu KAMADO** and Yo KOJIMA**

Stir-cast AZ91D magnesium alloy chips were reheated at semi-solid state and press-formed by employing a squeeze-casting machine at semi-solid temperature. The structures and tensile properties of the formed specimen were investigated. Stir-cast chips show good fluidity and have little defects because of fine and spherical magnesium solid solution with a large amount of liquid phase. Tensile properties of the semi-solid press-formed specimen are, therefore, improved by the T6 heat treatment. The eutectic microstructure becomes finely by the rapid cooling, resulting in the increased 0.2% proof strength which exceeds the JIS-specified value. But tensile strength and elongation are less than the JIS-specified values. This is caused by oxide layer formed on the slurry surface during stirring.

Keywords: AZ91D magnesium alloy, stir-casting, semi-solid press-forming, structure, tensile property

(Received April 6, 1995)

1. 緒 言

従来、マグネシウム合金製品のほとんどはダイカスト法で製造されてきたが、近年、固液共存領域でのチキソトロピー性を利用し、射出成形法を応用した新しい成形法¹⁾が注目されている。得られる製品は均一微細な組織を有し、優れた機械的性質を持つことが報告されている^{2),3)}。しかし、マグネシウム合金の半熔融状態での性状および成形方法に関する報告例は少なく、まだ不明な点が多い。

著者らはこれまでマグネシウム合金の半熔融攪拌凝固法の製造過程における基礎的要因の解明を目的とし、一連の研究を進めてきた。その結果、攪拌は固相粒子の球状化をもたらすものの、微細化効果は少なく逆に粗大化を引起し、機械的性質および流動性の低下が認められた^{4)~6)}。そこで、松井ら⁷⁾は、ひずみにより生じる加熱時の微細な再結晶粒に注目し、ひずみを導入した各種マグネシウム合金の半熔融状態における組織変化を調査した。その結果、ひずみを導入した試料は、加熱中に再結晶が生じ、再結晶粒が分離、球状化して半熔融温度では微細かつ球状のマグネシウム固溶体を有する組織が得ら

れた。また、チップ材は、半熔融温度まで加熱後にチップ同士を結合させる目的で等温攪拌を施すと、液相量が多く、かつマグネシウム固溶体の粗大化も少ない組織が得られた。

そこで本研究では、一般鋳造材とは異なり、球状のマグネシウム固溶体と微細な共晶相から成る組織および優れた機械的性質を得ることを目的として、チップ材を攪拌凝固させた試料を用いて半熔融成形加工を行った。従来、由浅ら⁸⁾が行ったバルク攪拌凝固材の加圧成形実験では、成形時の流動性の低下が大きな問題となった。そこで、はじめに等温攪拌中の流動性を調査し、攪拌中の流動性の変化ならびに流動性に影響する因子を調査した。その結果より流動性、組織から最も良好と考えられる条件で攪拌凝固させた試料を再加熱して半熔融温度で加圧成形し、成形後のマクロ、ミクロ組織および引張特性を調査した。また、成形時の金型温度がそれらに及ぼす影響についても検討した。

2. 実験方法

供試材として、AZ91D マグネシウム合金のチップ材 (Dow Chemical 社 製 ; AZ91D THIXOMAG™) を用

* 長岡技術科学大学大学院 (長岡市)。Graduate School, Nagaoka University of Technology (Nagaoka-shi, Niigata).

** 長岡技術科学大学 (長岡市)。Nagaoka University of Technology (Nagaoka-shi, Niigata).

いた。Fig. 1 にその外観を示す。

Fig. 2 に実験プロセスを、Table 1 に各実験条件を示す。はじめに、半溶融攪拌凝固装置⁴⁾を用いて等温攪拌実験を行い、攪拌中の流動性を調査し、攪拌温度および攪拌時間とマイクロ組織ならびに流動性との関係を調査した。流動性の評価は、内径 8 mm のパイプを用いた真空流動性試験⁸⁾により行った。その結果より加圧成形に最適と思われる攪拌温度および攪拌時間を決定した。決定した条件を用いて等温攪拌を行い、スラリーを急冷して直径 28 mm、高さ約 250 mm の凝固試料を採取し、直径 27 mm、高さ 42 mm に機械加工して加圧成形実験の供試材とした。その供試材を半溶融温度まで再加熱後、直ちに高圧鋳造機により加圧成形し、成形試料の組織観察を行うとともに、引張特性を評価した。なお、成形には成形用の金型を高圧鋳造機の固定金型内に挿入して行った。Fig. 3 に成形用金型と引張試験片の寸法を示す。

3. 結果および考察

3.1 等温攪拌中の流動性

実験を行うにあたり、はじめに吸引試料の各部分のマイクロ組織を観察し、液相のみの優先的な吸引は見られず、問題なく流動性が評価できることを確認した。Fig. 4 に各攪拌温度における攪拌時間と流動長およびマイクロ組織との関係を示す。流動長は、いずれの攪拌温度でも攪拌時間の経過とともに長くなるが、攪拌温度が高いほど攪拌時間への依存性は小さくなる。マイクロ組織では、いずれの攪拌温度でも固相粒子は攪拌時間の経過とともに粗大化する。液相量は、攪拌時間が長くなるにつれて、580°Cでは大きく増加するが、590°Cでは、若干の増加がみられるだけとなる。また、同じ攪拌時間で比較した場合、攪拌温度が高いほど流動長は長くなる。このことは流動長に対応し、これより流動長は液相量に比

Fig. 1 Outer view of AZ91D THIXOMAG™.

Table 1 Experimental conditions

Heating rate	Ave. 8°C/min
Stirring temp.	580, 585 and 590°C
Stirring speed	3.33 s ⁻¹
Type of stirrer	Paddle
Reheating rate	Ave. 36°C/min
Reheating temp.	580°C
Forming pressure	49 MPa
Plunger speed	0.05 m/s
Die temp.	250, 300 and 350°C

例すると言える。

これらの結果より、流動性がよく、マグネシウム固溶体が微細かつ球状となる攪拌温度590°C、攪拌時間20 min を加圧成形実験用の供試材の攪拌条件とした。

3.2 再加熱時のマイクロ組織変化

Fig. 5 にチップ攪拌凝固材を半溶融温度まで再加熱したときのマイクロ組織変化を示す。室温での組織、つまり

Fig. 2 Experimental process of semi-solid press-forming using stir-cast chips.

Fig. 3 Dimensions of forming die and tensile test specimens (mm).

攪拌凝固時の組織は急冷された液相部分が多く、またマグネシウム固溶体は微細かつ球状である。攪拌時に形成されたマグネシウム固溶体は、435°C以上で合体により粗大化が進み、直径100~200 μm となる。急冷されていた液相部分は、470°Cで液相とマグネシウム固溶体に分離し始め、550°Cでは液相と新たに形成された微細で球状のマグネシウム固溶体となる。しかし、再加熱温度の上昇とともにこの微細なマグネシウム固溶体は溶解して消滅し、液相量が徐々に増加する。

そこで、液相量とマグネシウム固溶体の粒径が適度にバランスし、なおかつ、加圧成形時にある程度のせん断力が働くことにより、組織が微細化する可能性も考え、加圧成形時の再加熱温度を580°Cと決定した。

3.3 半溶融成形加工後のマクロおよびミクロ組織

Fig. 6 に金型温度350°Cで半溶融成形加工したチップ攪拌凝固材のマクロおよびミクロ組織を示す。成形後の組織は、完全に一様とはなっていない。全体としては、再加熱時の組織とよく対応し、攪拌時に形成されたマグ

Fig. 4 The relationship between fluidity and stirring time for AZ91D magnesium alloy chips.

ネシウム固溶体と再加熱時に晶出した微細かつ球状のマグネシウム固溶体および液相部分からなる組織となる。また、試料角部には流動性のよい液相のみの流入も観察される。また、Fig. 7 に比較のために市販のインゴット（以下インゴット材と表記する）を同じ条件で成形加工したときのマクロおよびミクロ組織を示す。チップ攪拌凝固材を用いた場合と同様に、成形後の組織は完全にはならず、試料下部および角部で多くの液相が観察される。しかし、チップ攪拌凝固材で見られた微細なマ

Fig. 5 Microstructural changes of stir-cast AZ91D magnesium alloy chips during reheating.

Fig. 6 Macro- and microstructures of AZ91D magnesium alloy fabricated by semi-solid press-forming at 580°C. Raw material; Stir-cast chips, Die temp.; 350°C

Fig. 7 Macro- and microstructures of AZ91D magnesium alloy fabricated by semi-solid press-forming at 580°C. Raw material; As-received ingot, Die temp.; 350°C

マグネシウム固溶体の晶出は認められない。

Fig. 8 に as-cast 材, 半溶融成形加工したチップ攪拌凝固材およびインゴット材の試料中央部のミクロ組織の比較を示す。また, 併せてそれぞれの T6 処理後の組織も示す。as-cast 材ではマグネシウム固溶体の粒界および粒内に一部塊状の共晶化合物 $Mg_{17}Al_{12}$ が観察される。しかし, 半溶融成形加工した試料は半溶融温度からの加

圧急冷により共晶部分は非常に微細である。

半溶融成形加工したチップ攪拌凝固材は, 半溶融攪拌時に形成された直径100~200 μm のマグネシウム固溶体と, 再加熱時に急冷された液相部分より晶出したと思われる直径50~80 μm の微細なマグネシウム固溶体の混合組織となる。また, 前述のように液相はマクロ組織では試料角部への偏りが見られたが, ミクロ的にはよく分散

Fig. 8 Microstructures of AZ91D magnesium alloy.
a) as-cast, b) semi-solid press-formed at 580°C using stir-cast chips, c) semi-solid press-formed at 580°C using as-received ingot, die temp.; 350°C

している。成形加工後の液相量はチップ撹拌凝固材、インゴット材ともに同程度であるが、インゴット材では粗大なマグネシウム固溶体が液相部分を内部に取り込んでいる。そのため、成形時に液相が固相粒子間で潤滑剤のように働くことは不可能と考えられる。

T6 処理後では、いずれの試料でも粒界反応型析出によるノジュールが観察される。半溶融成形加工したチップ撹拌凝固材は、急冷された液相部分では粒界反応型析出および粒内析出が生じる。しかし、as-cast 材および半溶融成形加工したインゴット材に比べ、マグネシウム固溶体内部があまり腐食されないことから、この領域で

の析出量が少ないものと推測される。チップ撹拌凝固材では、半溶融温度で等温撹拌を施すことにより、マグネシウム固溶体内の溶質元素の濃度が通常よりも低くなる⁹⁾と推察される。よって、通常の溶体化処理時間では粒界から粒内へのこれらの溶質元素の拡散が充分進まないため、この領域での析出量が少なくなるものと思われる。

Fig. 9 に半溶融成形加工後の試料中に観察される欠陥を示す。チップ撹拌凝固材では矢印で示すように急冷された液相部分にフィルム状および帯状の黒色の介在物が観察される。これは、撹拌中に巻込まれたスラリー表面の酸化物であると推察される。また、インゴット材では亀裂らしきものが多数観察される。インゴット材では、マグネシウム固溶体が粗大なデンドライト状であるために流動性が悪く、成形時にスラリー間のせん断変形が生じ、その界面がよく結合しなかったものと考えられる。一方、チップ撹拌凝固材ではこのような成形欠陥はみられなかった。これは、チップ撹拌凝固材では液相量が多く、微細かつ球状なマグネシウム固溶体となるため、流動性に優れ、良好に成形できたものと思われる。また、成形加工時の金型温度を変化させて実験を行ったが、チップ撹拌凝固材、インゴット材いずれも本実験条件の範囲内ではミクロ、マクロ組織に大差は認められなかった。

3.4 半溶融成形加工後の引張特性

Fig. 10 に半溶融成形加工したチップ撹拌凝固材およびインゴット材の引張特性を示す。チップ撹拌凝固材は金型温度 350°C で成形加工した場合、成形したままの試料 (F 材) で約 150 MPa、T6 材で約 210 MPa の引張強さを示す。

半溶融成形加工したチップ撹拌凝固材の引張強さおよび耐力は、金型温度が高いほど高くなる。これは、金型温度が高いほど成形時にスラリーの凝固が進行せず、良

Raw material ; Stir-cast chips

As-received ingot

Fig. 9 Defects in AZ91D magnesium alloy fabricated by semi-solid press-forming at 580°C. Die temp.; 350°C

Fig. 10 The relationships between die temperature and tensile properties of AZ91D magnesium alloy fabricated by semi-solid press-forming.

好に成形できるためと思われる。しかし、インゴット材では引張特性への金型温度の影響は見られない。また、チップ攪拌凝固材は、成形加工後の T6 処理で強度の向上が見られるのに対し、インゴット材では、熱処理の効果は見られない。これらは、インゴット材では流動性が極めて悪いため、成形欠陥が数多く発生することによると推察される。

チップ攪拌凝固材は、インゴット材よりもはるかに微細なマイクロ組織を有しているにも関わらず、F 材ではインゴット材と同程度の引張強さを示す。その理由としては、機械加工により、急冷され、微細化されている試料表面が削除されたこと、および前述した介在物の存在が考えられる。また、0.2%耐力はチップ攪拌凝固材、インゴット材どちらの場合にも通常の鋳物（JIS 規格値；F 材 70 MPa, T6 材 110 MPa）と比較して高い値を示す。これは、急冷により微細化された共晶部分の寄与によるものと考えられる。また、伸びはいずれの供試材でも著しく低いが、これは介在物、欠陥の存在および連続した脆い共晶部分が亀裂の発生起点となり、伝播を容易にするためと考えられる。

4. 結 言

本研究では半熔融成形加工により一般鋳造材よりも微

細な組織、優れた機械的性質を得ることを目的として、AZ91D マグネシウム合金チップ材を半熔融攪拌凝固後、再加熱して半熔融成形加工を行い、組織および引張特性を調査した。その結果、以下のことが明らかとなった。

(1) チップ材の半熔融攪拌中の流動性は液相量に比例する。

(2) チップ攪拌凝固材は微細かつ球状のマグネシウム固溶体を有し、液相量が多いため流動性に優れ、成形欠陥の発生が少ない。

(3) 半熔融成形加工時の金型温度が高いほど、引張強さは向上する。

(4) 半熔融成形加工後のチップ攪拌凝固材とインゴット材の強度差は成形したままの試料ではほとんど見られない。しかし、チップ攪拌凝固材は成形欠陥が少ないため、熱処理により強度を向上することが可能である。

(5) チップ攪拌凝固材の半熔融成形加工後の引張特性は、攪拌中に巻込まれたスラリー表面の酸化物の存在により、満足な値を示さない。しかし、半熔融温度からの加圧急冷による微細な共晶部の寄与により、0.2%耐力は JIS 規格値を大きく上回る。

参 考 文 献

- 1) S. C. Erickson: Proc. of 44th Annual World Magnesium Conf., Tokyo, International Magnesium Association, (1987), 39.
- 2) R. Carnahan, R. M. Hathaway, R. Kilbert, L. Pasternak and P. Rohatgi: Proc. of the International Symposium on Light Metals Processing and Applications, The Metall. Soc of CIM, (1993), 325.
- 3) R. D. Carnahan, R. F. Decker, D. Ghosh, C. VanSchildt, P. S. Frederick and N. Bradley: Magnesium alloys and Their Applications, DGM Informationsgesellschaft, (1992), 69.
- 4) 人見高久, 由浅 明, 鎌土重晴, 小島 陽: 軽金属, **42** (1992), 504.
- 5) 鎌土重晴, 由浅 明, 人見高久, 小島 陽: 軽金属, **42** (1992), 734.
- 6) 由浅 明, 松井伸司, 鎌土重晴, 小島 陽: 軽金属, **44** (1994), 9.
- 7) 松井伸司, 関原一敏, 鎌土重晴, 小島 陽: 軽金属, **45** (1995), 15.
- 8) 関原一敏, 松井伸司, 鎌土重晴, 小島 陽: 軽金属学会第86回春期大会講演概要, (1994), 70.
- 9) A. Tissier, D. Apelian and G. Regazzoni: J. Mat. Sci., **25** (1990), 1148.