

氏 名	河 村 能 人		
授 与 学 位	博 士 (工 学)		
学位授与年月日	平成 5 年 3 月 25 日		
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 1 項		
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 材料物性学専攻		
学 位 論 文 題 目	Al 基非晶質合金粉末の固化成形とその 成形体の性質		
指 導 教 官	東北大学教授 増本 健		
論 文 審 査 委 員	東北大学教授 増本 健	東北大学教授 渡辺 龍三	
	東北大学教授 井上 明久		

論 文 内 容 要 旨

本論文は、Al 基非晶質合金粉末の固化成形とその成形体の性質に関して研究を行った成果をまとめたものであり、全編 7 章よりなる。

第 1 章 序 論

輸送機関などの省エネルギー化・効率化のために、より軽くて強い材料、すなわちより比強度の高い材料の開発が強く望まれている。軽量高強度材料の開発は、1911年にジュラルミンが開発されて以来、比重が2.7と軽量であるAlを主成分とする合金を中心にして活発に行われて来た。そして、1988年には1000MPaという、超ジュラルミンの2倍以上の強度を有するAl基非晶質合金が見出され、軽量高強度材料として注目されている。しかしながら、この合金は他の非晶質合金と同様に粉末、薄帯の形状でしか作製できないことから、その実用化には粉末の固化成形によるバルク化が不可欠である。Al基非晶質合金粉末の固化成形によって高強度の成形体を作製するためには、粉末の作製から固化成形に至るプロセスの設計が重要であるとともに、作製条件が成形体の固化成形度や組織に及ぼす影響を明らかにする必要がある。さらに、非晶質合金を結晶化させて微細組織にした場合にも、従来の急凝固粉末のP/M材を上回る高強度が得られる可能性が極めて大きいので、非晶質合金粉末の固化成形は、非晶質相を保持した成形体（非晶質成形体）だけではなく、非晶質相を微細結晶化させた成形体（微細結晶成形体）についても研究する必要がある。

そこで、本研究では上記の観点に基づいて、非晶質合金粉末の固化成形システムの開発を試みる

とともに、実用的な押し成形法による Al 基非晶質合金粉末の固化成形を非晶質成形体の作製と微細結晶成形体の作製の両方から試みることによって、軽量高強度の Al 合金バルク材を作製することを目的としている。

第 2 章 実験方法

本章では、本研究に用いた試料および実験方法について述べた。

第 3 章 非晶質合金粉末の固化成形用クローズドシステムの開発

本章では、非晶質合金粉末の押し成形によって高強度の成形体を作製するために、粉末の作製からその固化成形に至る一連のシステムの開発を試みた。

その結果、高圧ガスアトマイズ法による非晶質合金粉末の作製から押し成形法による固化成形までの全行程を、粉末を一度も大気に曝すことなく酸素と水分が 1 ppm 以下のクリーンな雰囲気下で、しかも活性な Al や Mg 合金でも安全に実施できる非晶質合金粉末の固化成形用クローズドシステムを開発することができた。また、本システムでは、メカニカルアロイング法や薄帯の粉碎により作製した非晶質合金粉末を大気に曝すことなく固化成形することも可能である。

このような一貫したクローズドシステムが開発された例はなく、この技術は極めて有用である。

第 4 章 非晶質成形体の作製とその性質

本章では、従来困難であると考えられていた実用的な押し成形法により非晶質相を保持した高強度 Al 基非晶質成形体を作製することを目的として、ガラス遷移を示すとともに溶質元素量が少ない $Al_{85}Ni_{10}Mm_5$ (Mn : Mischmetal) 非晶質合金について、押し出し条件が成形体の固化成形度と組織に及ぼす影響を明らかにするとともに、非晶質成形体が得られる押し出し条件の調査を行った。また、一度大気に触れた粉末を用いる通常のプロセスによって非晶質成形体を作製し、その機械的性質を調査した。

その結果、非晶質成形体が得られる押し出し条件を求めるとともに、従来管状でしか得られなかった非晶質成形体が円柱状でも作製できることを実証し、非晶質成形体の実用化の道を拓くことができた。また、断面減少率 (RA)、押し出し温度 (T_e)、押し出し速度 (V_e)、ダイス半角 (α)、ピレット構造などの押し出し条件が成形体の固化成形度とその組織に及ぼす影響を明らかにした。さらに、それを圧力 (P_e)、剪断、加工発熱による温度上昇 (ΔT_e)、 P_e/Y (Y : 合金の変形抵抗) などによって体系化し、非晶質合金粉末を固化成形する上での指針を得た。作製した非晶質成形体の圧縮強さは室温で 900 MPa であり、非晶質合金薄帯の強さに近い高強度が得られた。

ここで得られた知見は、非晶質合金に限らず他の準安定・非平衡材料の粉末の固化成形にも適用され、新素材の開発に役立つものと思われる。

第 5 章 微細結晶成形体の作製とその性質

本章では、非晶質相の微細組織への結晶化を利用して高強度の Al 合金バルク材を作製すること

を目的として、Al-Ni-RE-TM (RE: 希土類金属, TM: 遷移金属) 系の4元合金のうち、 $Al_{1.00-x}(Ni_5Y_3Co_2)_x$ 合金と Al-Ni-Ce-TM (TM: Ti, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zr) 系合金について、組成探査を中心に、一度大気に触れた粉末を用いる通常のプロセスによって高強度微細結晶成形体の作製を試みた。

熱処理した急冷薄帯の硬さと曲げ最大破断歪を測定する方法を用いて組成探査した結果、従来の高強度 Al 合金バルク材を上回る高強度・高延性な微細結晶成形体を作製することができた。これによって、この方法が簡便で効率的な組成探査法であることを明らかにした。

$Al_{1.00-x}(Ni_5Y_3Co_2)_x$ 合金では、非晶質合金粉末を固化成形時に微細結晶化させることによって、 $(\sigma_B(\text{MPa}), \varepsilon_P(\%)) = (910, 0.13), (855, 0.70), (815, 1.6), (797, 3.2)$ という従来の高強度 Al 合金バルク材を上回る強度を有する微細結晶成形体を得られた。また、その成形体は、耐熱性、耐摩耗性、低熱膨脹の点でも従来材を上回る優れた特性を有していた。一方、Al-Ni-Ce-TM (TM: Ti, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zr) 系合金では、TM としては Ti と Zr が高強度・高延性化に効果的であることを急冷薄帯を用いた組成探査により明らかにした。そして、Al-Ni-Ce-(Ti, Zr) 系の非晶質形成組成の合金では、粉末の作製時に微細結晶化した粉末を固化成形することによって、 $(\sigma_B(\text{MPa}), \varepsilon_P(\%)) = (940, 1.0), (925, 1.0), (876, 1.7), (868, 2.7), (858, 3.4)$ という高強度・高延性な微細結晶成形体を得られた。

このように、今まで脆化という問題のために高強度化の方法としてあまり着目されなかった非晶質合金を微細結晶化させる組織制御法によって、超ジュラルミンの2倍近い強さを有する成形体を作製できることを明らかにした。今後、この非晶質相の微細結晶化を利用した固化成形の研究が、合金組成探査と固化成形プロセスの研究の両方で進展し、従来の方法では得られない高強度バルク材が開発されていくものと考えられる。特に、合金組成は、本章で提案した急冷薄帯を用いた組成探査法によって効率よく開発されていくものと思われる。

第6章 クローズドプロセスによる非晶質および微細結晶成形体の作製とそれらの性質

本章では、成形体の固化成形度の向上の観点から、高純度粉末の使用によって高強度化を図ることを目的として、第3章で開発したクローズドシステムを用いて非晶質および微細結晶成形体の作製を試み、その性質を、第4章と第5章で述べた通常プロセスにより作製したものと比較した。

クローズドプロセスにより作製した $Al_{85}Ni_{10}Mm_5$ 非晶質成形体の圧縮強さは1060MPaであり、通常プロセスにより作製した成形体(900MPa)に比べて約20%向上した。また、クローズドプロセスにより作製した $Al_{85}Ni_5Y_3Co_2$ 微細結晶成形体において、 $RA=60\%$ という低い加工率でも780MPa という従来の高強度 Al 合金 P/M 材を上回る引張強さが得られた。これらにより、クローズドプロセスでは成形体の高強度化や大形状化に極めて有効であることを明らかにした。さらに、 $Al_{85}Ni_5Y_3Co_2$ 微細結晶成形体の高温強度は、試験温度の上昇に伴ってプロセスによる差が大きくなり、573K では、クローズドプロセスにより作製した成形体は540MPa という、通常プロセスの成形体(480MPa)に比べても約13%も高い強さを有していた。これは従来の耐熱 Al 合金 P/M

材の2倍近い強さであり、クローズドプロセスを用いることにより成形体の耐熱性が著しく向上することを明らかにした。

成形体の酸素および水素分析の結果、クローズドプロセスでは、一般に行われている温度よりも約100K高い温度（773K）で脱ガスを行う場合を比較しても、粉末の酸化や成形体中への水素ガス放出物の残存を通常プロセスの1/5に抑制できることを明らかにした。このために成形体の性質が向上するものと推察した。

第7章 総 括

本章では、本研究で得られた成果を要約し、今後の展望を述べた。

以上のように、本研究では、独自の非晶質合金粉末の固化成形用クローズドシステムを開発し、Al基非晶質合金粉末を非晶質相を保持した状態で固化成形する技術を確立するとともに、非晶質相の微細結晶化により脆化を抑止した状態で高強度化できることを組成探査によって明らかにした。その結果、非晶質合金粉末の固化成形により、従来の高強度Al合金を上回る特性を有する非晶質および微細結晶成形体が得られることを明らかにした。また、クローズドプロセスにより成形体の性質が向上することを明らかにし、その有効性を実証した。本研究により得られた結果を基にさらに研究を発展させれば、より高強度のAl合金バルク材が開発できるものと考えられる。また、本研究で得られた知見は、非晶質合金を初めとする他の準安定・非平衡材料の粉末の固化成形にも適用されて、新素材の創製に貢献していくものと思われる。さらに、本研究で開発したようなクローズドシステムが実現した例はなく、非晶質合金の分野に限らず粉末冶金全般における研究の進展に役立つものと考えられる。

審 査 結 果 の 要 旨

非晶質合金はその特性を利用して多くの分野で実用化されているが、大きな欠点として大型材が得られないことである。本研究は現用ジュラルミンの約2倍の強さを有するAl基非晶質合金に着目して、その粉末の固化成形方法を開発すると共に、押出しによる固化成形条件の検討と成形体の機械的性質などの諸物性を研究したもので、全編7章よりなる。

第1章は序論であり、本研究の背景、目的および従来の研究との関連について述べている。

第2章では、本研究で用いた試料および実験方法について述べている。

第3章では、本研究で開発した高圧ガスアトマイズ法による粉末作製から押出し成形法による丸棒材作製までの全工程をクリーンな雰囲気下で安全かつ健全な成形体を得るシステムについて述べている。その結果、酸素と水分が1 ppm以下のクリーンな雰囲気をもつ製造方法を確立することができた。

第4章では、高強度Al基非晶質合金粉末を用いて、非晶質を保持したままで高密度な成形を行う押出し条件を求め、考察している。また、その成形体の圧縮試験を行い、900MPaの強さが得られたことを示している。

第5章では、非晶質の微細結晶化を利用して高強度Al基合金成形体を得る方法を試みた実験結果を述べている。合金組成の選択のために簡易な実験法を提案し、これにより数種のAl基合金(Al-Ni-Y-Co系、Al-Ni-Ce-Ti系など)を対象として粉末の押出し成形を行った。その結果、ジュラルミンの約2倍の強さを持つ固化成形体を得ている。この非晶質の結晶化を利用した結晶の微細化法は新しい試みであり、今後の興味ある組織制御法である。

第6章では、第3章で述べたクリーン雰囲気でのクローズドシステムを用いて作製した非晶質成形体と微細結晶成形体の機械的性質の結果を、通常のシステムで作製した同一合金成形体と対比させて述べている。クローズドシステムは固化成形体中の水素、酸素などの有害元素を大きく低下させ、高い伸びと強さをもつ良好なAl基合金成形体を得られることを示している。

第7章総括である。

以上要するに、本論文はAl基合金の粉末作製から押出し成形体作製までの全工程をクローズドシステム化する装置を開発し、従来困難とされていた非晶質合金粉末の固化成形を可能にし、また非晶質の結晶化による微細結晶成形体を得るなど新たな知見を得たもので、材料物性学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。