

(43) 国際公開日
2006 年 12 月 21 日 (21.12.2006)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2006/134980 A1

(51) 国際特許分類:

B22F 1/00 (2006.01) C22C 1/04 (2006.01)
B21C 23/01 (2006.01) C22C 23/02 (2006.01)
B22F 3/20 (2006.01) C22F 1/06 (2006.01)
B22F 9/04 (2006.01)

滋賀県湖南市石部緑台二丁目 1 番 1 号 Shiga (JP).
株式会社栗本鐵工所 (KURIMOTO, LTD.) [JP/JP]; 〒
5508580 大阪府大阪市西区北堀江 1 丁目 1 2 番 1 9 号
Osaka (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2006/311952

(71) 出願人 および

(22) 国際出願日: 2006 年 6 月 14 日 (14.06.2006)

(72) 発明者: 近藤 勝義 (KONDOH, Katsuyoshi) [JP/JP]; 〒
5620043 大阪府箕面市桜井 2-9-6-5 1 2 Osaka
(JP).

(25) 国際出願の言語: 日本語

(72) 発明者; および

(26) 国際公開の言語: 日本語

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 後藤 充啓 (GOTO,

(30) 優先権データ:

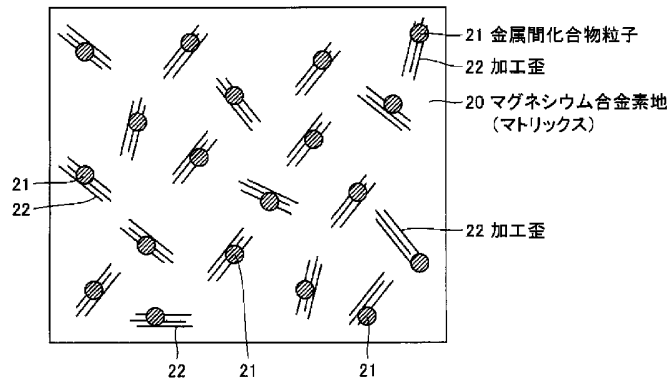
特願2005-176410 2005 年 6 月 16 日 (16.06.2005) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社
ゴーシュ (GOHSYU CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5203189Mitsuhiro) [JP/JP]; 〒5203189 滋賀県湖南市石部緑台
二丁目 1 番 1 号 株式会社ゴーシュ内 Shiga (JP). 福
井 秀明 (FUKUI, Hideaki) [JP/JP]; 〒5508580 大阪府大
阪市西区北堀江 1 丁目 1 2 番 1 9 号 株式会社栗本鐵
工所内 Osaka (JP). 金子 貴太郎 (KANEKO, Kantaro)

[続葉有]

(54) Title: RAW MAGNESIUM-ALLOY POWDER MATERIAL, MAGNESIUM ALLOY WITH HIGH PROOF STRESS,
PROCESS FOR PRODUCING RAW MAGNESIUM-ALLOY POWDER MATERIAL, AND PROCESS FOR PRODUCING
MAGNESIUM ALLOY WITH HIGH PROOF STRESS

(54) 発明の名称: マグネシウム合金粉体原料、高耐力マグネシウム合金、マグネシウム合金粉体原料の製造方法お
よび高耐力マグネシウム合金の製造方法



20 MAGNESIUM ALLOY BASE (MATRIX)
21 INTERMETALLIC COMPOUND PARTICLE
22 WORK STRAIN

(57) Abstract: A raw magnesium-alloy powder material obtained by subjecting a starting-material powder having a relatively large crystal grain diameter to a plastic working in which the powder is passed through a pair of rolls to cause it to undergo compressive deformation or shear deformation and thereby make the crystal grain diameter relatively small. The starting-material powder is a magnesium alloy powder in which a fine intermetallic compound (21) has been precipitated/dispersed in a base (20) by a heat treatment. In the magnesium alloy powder which has undergone the plastic working, there are work strains (22) around the intermetallic compound (21) precipitated. The magnesium alloy powder which has undergone the plastic working has a maximum size of 10 mm or smaller and a minimum size of 0.1 mm or larger, and the magnesium particles constituting the base (20) have a maximum crystal grain diameter of 20 μm or smaller.

(57) 要約: Mg 合金粉体原料は、相対的に大きな結晶粒径を持つ出発原料粉末に対して、1 対のロール間に通して圧縮変形またはせん断変形させる塑性加工を施して相対的に小さな結晶粒径としたものである。出発原料粉末は、熱処理によって微細な金属間化合物 21 を素地 22 中に析出・分散させている Mg 合金粉末である。塑性加工後の Mg 合金粉

[続葉有]



WO 2006/134980 A1



[JP/JP]; 〒5508580 大阪府大阪市西区北堀江 1 丁目 1 2 番 1 9 号 株式会社栗本鐵工所内 Osaka (JP). 塩崎修司 (SHIOZAKI, Shuji) [JP/JP]; 〒5508580 大阪府大阪市西区北堀江 1 丁目 1 2 番 1 9 号 株式会社栗本鐵工所内 Osaka (JP). 板倉 克仁 (ITAKURA, Katsuhito) [JP/JP]; 〒5508580 大阪府大阪市西区北堀江 1 丁目 1 2 番 1 9 号 株式会社栗本鐵工所内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 伊藤 英彦, 外 (ITO, Hidehiko et al.); 〒5420082 大阪府大阪市中央区島之内 1 丁目 2 1 番 1 9 号 協和島之内ビル アイミー国際特許事務所 Osaka (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN,

MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

体中には、析出した金属間化合物 21 の周辺に加工歪 22 が存在している。塑性加工後の Mg 合金粉体の最大サイズが 10 mm 以下、最小サイズが 0.1 mm 以上であり、素地 20 を構成する Mg 粒子の最大結晶粒径が 20 μm 以下である。

明 細 書

マグネシウム合金粉体原料、高耐力マグネシウム合金、マグネシウム合金粉体原料の製造方法および高耐力マグネシウム合金の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、マグネシウム合金粉体原料およびこの粉体原料を用いて製造したマグネシウム合金並びにそれらの製造方法に関し、特に高い耐力と伸びを両立させるマグネシウム合金およびその製造方法に関するものである。

背景技術

[0002] 工業用金属材料の中で最も軽量であるマグネシウム(以下、Mgとする)合金は、その軽量化効果を活用してスポーツ用品、家電製品、航空・宇宙関連機器、その他の機械部品などに広く利用されている。一方、自動車部品などの高い信頼性が求められる製品・部材にMg合金を適用するには、更なる強度増加が必要である。特に部品設計上、重要な耐力の向上が強く求められており、同時に高い伸び(靱性)を実現させる必要がある。言い換えると、高い耐力と高い伸びとを実現することにより、現状の軽量素材であるアルミニウム合金との代替が可能となる。

[0003] Mg合金の強度向上において、結晶粒の微細化や微細な金属間化合物の分散強化が有効であることは既に知られている。特に、Mg合金粉体を出発原料とし、それを圧粉・固化する製造方法は、溶解・鋳造法に比べて微細な組織を形成することが可能であり、高強度化においてはより有効な製造プロセスといえることができる。

[0004] 例えば、急冷凝固プロセスを利用した高強度Mg合金の製造方法が提案されているが、この方法は、以下の理由により、実用的なものではない。

[0005] (A) 高い強度は得られるが、伸びが数%程度と低い。

[0006] (B) 出発原料粉体の粒径が数十～百ミクロン程度と小さいために、取り扱い過程での安全性の問題や、低歩留まりの問題があり、さらに高価な元素を添加することでコストアップを誘発するといった経済性の問題などがある。

[0007] 一方、Mg合金素材を切削加工した際に排出される切削粉体を出発原料とし、これを圧粉・固化してMg合金を製造する方法が種々、検討・提案されている。例えば、

特開平2-182806号公報には、Mg合金切削粉体をホットプレスによって固化した後に押出加工する方法が記載され、特開平5-320715号公報には、Mg合金切削粉体を成形・押出加工する方法が記載されている。

[0008] また、特開平5-306404号公報に記載の「マグネシウム合金製部材の製造方法」においては、T6熱処理(溶体化熱処理+時効熱処理)されたアルミニウム含有Mg合金粉体を圧粉成形した後に、押出加工する方法が提案されている。ここに開示された製法においては、適切量のアルミニウム(Al)を含むMg合金切削粉体を固化する際に、T6熱処理と押出加工の双方の効果を引き出すことで機械的特性に優れたMg合金製部材を創製することを特徴としている。T6熱処理の効果は、押出成形されたMg合金の素地中に微細な金属間化合物 $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ を均一に分散することであり、押出加工の効果は、押出されたMg合金の素地を構成する結晶粒を微細化することである。その結果、例えば、ASTM規格で記載されている、Al:7.8~9.2重量%、マンガン(Mn):0.12~0.35重量%、亜鉛(Zn):0.2~0.8重量%、Mg:残部、といった組成を有するAZ80マグネシウム合金をT6熱処理した後に作製した切削粉体を用いて、成形・押出加工を施して得られたMg合金は、常温での引張強さは382MPa、伸びは27%であり、他方、T6熱処理を施さない場合には引張強さは330MPa、伸びは15%と報告されており、引張強さの向上効果が見られる。

[0009] しかしながら、特開平5-306404号公報に記載のMg合金製部材の製造方法において、押出材の耐力は、T6熱処理を行った場合には196MPaであり、T6熱処理を施さなかった場合には200MPaであることが報告されており、引張耐力の向上効果は認められない。この原因は、次のように考えられる。従来の溶解・鋳造法によって作製したMg合金の結晶粒(50~700 μm)と比較すれば、押出加工を施すことで再結晶が生じて結晶粒は微細化するが、その大きさはこれまでに開示されているデータなどを考慮すると、10~20 μm 程度である。引張耐力を向上させるには、結晶粒をさらに微細化する必要がある。これまでの開示データに基づく、例えば、1~5 μm あるいはそれ以下にまで微細化することが耐力向上に有効である。このような微細な結晶粒径を有するMg合金は、T6熱処理した切削粉体を圧粉・押出加工する製造方法だけでは到底、実現できない。

- [0010] またT6熱処理によって素地中に析出・分散した金属間化合物 $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ を押出加工によって、さらに微細化する方法が提案されているが、押出加工による塑性変形によって微細化できるレベルにも限界があり、耐力を向上させるには、金属間化合物の更なる微細化と複数の金属間化合物の微細・均一分散が必要である。

発明の開示

- [0011] 本発明の目的は、高い耐力と伸びとを両立させるマグネシウム合金およびその製造方法を提供することである。
- [0012] 本発明の他の目的は、上記のマグネシウム合金を製造するのに使用されるマグネシウム合金粉体原料およびその製造方法を提供することである。
- [0013] この発明に従ったマグネシウム合金粉体原料は、相対的に大きな結晶粒径を持つ出発原料粉末に対して、1対のロール間に通して圧縮変形またはせん断変形させる塑性加工を施して相対的に小さな結晶粒径としたものであり、以下のことを特徴としている。すなわち、出発原料粉末は、熱処理によって微細な金属間化合物を素地中に析出・分散させているマグネシウム合金粉末である。塑性加工後のマグネシウム合金粉体中には、析出した金属間化合物の周辺に加工歪が存在している。塑性加工後のマグネシウム合金粉体の最大サイズが10mm以下、最小サイズが0.1mm以上である。塑性加工後のマグネシウム合金粉体の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が20 μm 以下である。
- [0014] 好ましくは、金属間化合物は、 $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ 、 Al_2Ca 、 Mg_2Si 、 MgZn_2 、 Al_3Re (Re: 希土類元素)、 $\text{Al}_{11}\text{Re}_3$ および Al_6Mn からなる群から選ばれた少なくとも一つの化合物である。また、好ましくは、金属間化合物の最大粒子径が5 μm 以下であり、より好ましくは2 μm 以下である。
- [0015] 好ましくは、マグネシウム合金粉体の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が10 μm 以下である。
- [0016] この発明に従った高耐力マグネシウム合金は、上記の特徴を有するマグネシウム合金粉体原料を圧粉成形した後に押出加工して得られたものであって、以下のことを特徴としている。すなわち、合金の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が10 μm 以下であり、常温での引張耐力が250MPa以上である。

- [0017] 好ましくは、マグネシウム合金の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が $5\mu\text{m}$ 以下であり、常温での引張耐力が350MPa以上である。
- [0018] 好ましくは、マグネシウム合金の素地中に、 $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ 、 Al_2Ca 、 Mg_2Si 、 MgZn_2 、 Al_3Re (Re: 希土類元素)、 $\text{Al}_{11}\text{Re}_3$ および Al_6Mn からなる群から選ばれた少なくとも一つの金属間化合物が析出・分散している。
- [0019] 好ましくは、マグネシウム合金は、ストロンチウム (Sr)、ジルコニウム (Zr)、スカンジウム (Sc) およびチタン (Ti) からなる群から選ばれた活性金属元素を、重量基準で0.5%以上4%以下含有している。
- [0020] この発明に従ったマグネシウム合金粉体原料の製造方法は、出発原料粉末に対して塑性加工を施すことによって、該出発原料粉末の素地を構成するマグネシウム粒子の結晶粒径を微細化する方法であり、以下の特徴を備える。すなわち、出発原料粉末として、熱処理によって微細な金属間化合物を素地中に析出・分散させているマグネシウム合金粉末を準備する。塑性加工は、出発原料粉末を1対のロール間に通して圧縮変形またはせん断変形させて金属間化合物の周辺に加工歪を付与する塑性加工である。塑性加工を、粉体の最大サイズが10mm以下で最小サイズが0.1mm以上、かつ粉体の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が $20\mu\text{m}$ 以下になるまで繰り返して行なう。
- [0021] 一つの実施形態では、出発原料粉末としてのマグネシウム合金粉末を準備する工程は、鑄造法によってマグネシウム合金インゴットを作製することと、マグネシウム合金インゴットを溶体化処理し、続いて時効熱処理を行なってインゴットの素地中に微細な金属間化合物を析出・分散させることと、インゴットから機械加工によってマグネシウム合金粉体を取り出すこととを含む。好ましくは、上記の塑性加工を行なう際に、投入する出発原料粉末の温度、およびこの出発原料粉末が接触するロールの表面温度を時効熱処理の温度以下にする。
- [0022] この発明に従った高耐力マグネシウム合金の製造方法は、上記の特徴を有するマグネシウム合金粉体原料を金型に充填した状態で加圧して圧粉成形体を得る工程と、マグネシウム合金圧粉成形体を 150°C 以上 450°C 以下の温度で加熱する工程と、加熱の終了後、直ちにマグネシウム合金圧粉成形体を押出加工してマグネシウム合

金を製造する工程とを備える。

- [0023] 好ましくは、マグネシウム合金の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が $10\mu\text{m}$ 以下であり、常温での引張耐力が250MPa以上である。また、より好ましくは、マグネシウム合金圧粉成形体の加熱を 200°C 以上 350°C 以下の温度で行なう。

図面の簡単な説明

- [0024] [図1]ローラーコンパクタ装置を示す図解図である。
- [図2]金属間化合物の周辺に加工歪が存在している状態を示す図解図である。
- [図3]AZ91Dインゴットの組織写真であり、(a)は鋳造後の組織写真、(b)は溶体化熱処理後の組織写真、(c)はT6熱処理(溶体化+時効熱処理)後の組織写真を示している。
- [図4]T6熱処理後の組織を拡大した組織写真である。
- [図5]ロールによる塑性加工を施したAZ91D粉体の組織写真であり、(a)はT6処理を施したものの組織、(b)は溶体化処理を施したものの組織を示している。
- [図6]粉体の微小硬さ(マイクロビッカース硬度)の試験結果を示す図である。
- [図7]押出素材についての光学顕微鏡による組織写真であり、(a)はT6熱処理AZ91D粉体を用いた場合の組織写真、(b)は溶体化処理AZ91D粉体を用いた場合の組織写真を示している。
- [図8]ロールによる塑性加工を3, 10, 20, 30回施した粉体を押出固化して得られたMg合金の押出方向の組織写真である。
- [図9]マグネシウムの底面の配向性を評価した結果の極点図である。

発明を実施するための最良の形態

- [0025] 以下に、本発明の実施形態および作用効果を説明する。
- [0026] 本発明は、上述した従来の問題点を解決するために行われたものであり、熱処理によって微細な金属間化合物が素地中に析出・分散したマグネシウム合金粉体を出発原料粉末とし、これを1対のロール間に通して圧縮変形および／またはせん断変形させる塑性加工を施して微細な組織を有する粗大なMg合金粉体を作製し、これを圧粉・押出加工することで250～350MPaを超える高い引張耐力を有するMg合金とその製造方法を提供しようとするものである。

[0027] (1) 出発原料粉体とその製造方法

Mgを主成分とし、この他にAl, Mn, Zn, Re(希土類元素), Ca, Siなど、金属間化合物を形成する元素と、ストロンチウム(Sr)、ジルコニウム(Zr)、スカンジウム(Sc)およびチタン(Ti)からなる群から選ばれた活性金属元素を添加したMg合金インゴットを鑄造法によって作製する。このMg合金インゴットに公知のT6熱処理(溶体化熱処理+時効熱処理)を施すことにより、素地中に、各添加元素によって生成する微細な金属間化合物を析出・分散させる。析出・分散する金属間化合物は、例えば、 $Mg_{17}Al_{12}$ 、 Al_2Ca 、 Mg_2Si 、 $MgZn_2$ 、 Al_3Re (Re: 希土類元素)、 $Al_{11}Re_3$ 、 Al_6Mn などである。これらの金属間化合物は、押出加工後のMg合金の素地においても均一に分散するので耐力の向上にも寄与する。また、ストロンチウム(Sr)、ジルコニウム(Zr)、スカンジウム(Sc)、チタン(Ti)などの活性金属元素を重量基準で0.5%以上4%以下含有することによってさらに強度を増加できる。

[0028] 熱処理条件は、添加する元素の種類およびその添加量によって異なるため、組織観察や硬さ測定(時効硬化曲線)などによって適切な条件を設定する必要がある。次に、Mg合金インゴットからフライスなどの機械・切削加工によって、0.1~10mm程度の大きさの粉体を採取し、これを本発明の出発原料粉体とする。なお、粉体の粒径が0.1mmを下回ると発火し易くなるため、安全性の観点から0.1mm以上、より好ましくは0.5mm以上とした切削粉体を用いる。

[0029] (2) マグネシウム合金粉体原料とその製造方法

上記のT6熱処理を施したMg合金粉体を出発原料粉末とし、これを図1に示すローラーコンパクタ装置に投入する。

[0030] 図1に示すローラーコンパクタ装置は、ケース11と、このケース11内に配置された多段式ロール回転体12と、破碎装置13と、粉末温度・供給量制御システム14と、受台15とを備える。多段式ロール回転体12は、出発原料粉末に対して塑性加工を施す塑性加工部を構成するものであり、圧延加工を施す3組のロール対12a, 12b, 12cを有する。出発原料粉末は、対となったロール間を通過する際に、圧縮変形および／またはせん断変形する。

[0031] 出発原料粉末は、粉末温度・供給量制御システム14で所定の温度および所定の

量に調整されてケース11内に投入される。ここで、所定の温度は、後述する時効熱処理の温度以下である。ケース11の内部は、粉末表面の酸化防止の観点から、不活性ガス雰囲気、非酸化性ガス雰囲気、または真空雰囲気に保たれる。また、多段式ロール回転体12の表面温度およびケース11内の雰囲気温度は、後述する時効熱処理の温度以下である。

[0032] ロール対12cから送り出された粉体は、引き続いて破碎装置13によって破碎されて顆粒状粉体となる。この顆粒状粉体を再度粉末温度・供給量制御システム14に戻して、多段式ロール回転体12による塑性加工を繰り返してもよい。加工後の顆粒状粉体は、受台15に收容される。

[0033] 粉体を1対のロール間に通して圧縮変形および／またはせん断変形させる塑性加工を施すことにより、以下の組織制御を行なう。

[0034] (a) 図2に示すように、マグネシウム合金粉体20の素地中に析出・分散した金属間化合物粒子21の周辺に、より多くの加工歪22を付与する。この加工歪22は、塑性加工によって金属間化合物粒子21の周辺に導入・蓄積された双晶や転位などであり、透過電子顕微鏡(TEM)で観察すると筋状に見える。

[0035] (b) 塑性加工後の粉体の最大サイズが10mm以下、粉体の最小サイズが0.1mm以上となるようにする。

[0036] (c) 出発原料粉末のマグネシウムの結晶粒径に対して、相対的により小さいものとする。

[0037] (d) 粉体の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径を20 μ m以下とする。

[0038] なお、必要に応じて、ロールによる塑性加工を施したMg合金粉体原料を破碎・粉砕・整粒処理を行った後に、再度、同様の条件下でロールによる塑性加工を繰り返す行うことで、上記の本発明が規定する微細組織を有するMg合金粉体原料を創製する。

[0039] 先ず、(a)に関しては、ロール間に粉体を通すことで塑性加工を行なうと、粉末全体に加工歪が付与されるが、素地中に金属間化合物粒子が析出・分散するので、素地に比べて金属間化合物粒子の周辺に、より多くの加工歪が付与される。従って、この

塑性加工を繰り返すことで、さらに多くの加工歪が金属間化合物粒子の周辺に蓄積する。本願の発明者らは、加工歪が多くなると、後工程である押出加工時に生じる動的再結晶の核生成サイトが多く生成され、従来のMg合金の製造方法では実現し得なかった、より微細な結晶粒を形成できることを見出した。

[0040] この新たな知見に関して、特開平5-306404号公報においても類似の記述がされている。つまり、T6処理を施したAl含有Mg合金部材から切削加工により採取したMg合金粉体を、ホットプレスで圧粉成形した後、その成形体を押出加工することでMg合金製部材を作製する方法を提案している。しかしながら、ここで開示されている製造方法では、T6処理した切削Mg合金粉体に対して、本発明が提案しているような強塑性加工を強制的に付与しておらず、その結果、上述したような動的再結晶の核生成サイトを形成することがなく、微細な結晶粒は得られない。そして、例えば、T6熱処理を施したAZ80合金切削粉体を用いた場合におけるMg合金の引張耐力は、約200MPa程度と低い値を示している。また前述の通り、T6熱処理を施さないAZ80粉体を用いた場合の押出材の引張耐力も200MPaとなり、T6熱処理時と大差がないことから、本発明の特徴である、析出・分散粒子周辺に優先的に加工歪を蓄積させて、そこを動的再結晶の核生成サイトとする製造方法とは根本的に異なるものである。

[0041] また本発明では、粉体に対して1対のロールによる塑性加工を繰り返して行なうことにより、ランダム(無秩序)な方向に加工歪が付与される。その結果、押出加工後のMg合金において結晶配向も無秩序となって伸びが向上する。つまり、通常押出材では、Mgのすべり面である(0001)底面が押出方向に沿って配列することで伸びが低下するが、本発明の1対のロールによる塑性加工を施したMg合金粉体を押出加工した場合には、(0001)底面の他に、(10-10)柱面や(10-11)錐面といった非底面も押出方向にそって配列する。その結果、高い耐力に加えて高い伸びも有するMg合金を創製することができる。

[0042] 逆に、T6熱処理を施さないMg合金粉末に対して、ローラーコンパクタ装置により同様の塑性加工を施した場合、マグネシウム結晶粒の微細化は確認されるものの、T6熱処理を施した場合のような微細結晶は得られなかった。従って、本発明で用いる

1対のロールを用いた塑性加工による結晶粒の微細化をより効果的に行なうためには、Mg合金粉体原料の素地中に金属間化合物粒子を析出・分散させておく必要がある。

[0043] また金属間化合物粒子の大きさは、粒子周辺に蓄積する加工歪量と強い相関がある。金属間化合物の粒子径が小さいほど、より多くの加工歪を蓄積することでき、その結果、高い耐力を有するMg合金が得られる。具体的には、原料粉末の素地に析出・分散する金属間化合物の最大粒子径を $5\mu\text{m}$ 以下とすることで、250MPaを超えるような高い耐力を有するMg合金を得ることができる。なお、金属間化合物の最大粒子径を $2\mu\text{m}$ 以下とすると、さらに多くの加工歪を少ない塑性加工で蓄積することができる。その結果、高い耐力が得られるとともに、1対のロールでの塑性加工回数をより少なくした条件で微細な結晶粒と高い耐力を有するMg合金を製造することができるといった経済性の効果も得られる。

[0044] 従って、T6熱処理による微細な金属間化合物粒子を事前に素地中に析出・分散させたMg合金粉体を、1対のロールに通して塑性加工するといった製造方法が、本発明における微細な結晶粒を有する高耐力と高靱性を両立するMg合金を実現するための特徴である。

[0045] 次に、(b)に関して、1対のロールによる塑性加工後のMg合金粉体の最大サイズを10mm以下、また粉体の最小サイズを0.1mm以上とする。粉体の最大サイズが10mmを超えると、次工程である粉体の圧粉成形の際に粉末同士の結合性が低下したり、金型内に投入する際に金型のコーナー部へ充填されないために成形後の圧粉体の端部に欠損が生じるといった問題が生じる。一方、Mg合金粉体の最小サイズが0.1mmを下回ると、発火し易くなるために取り扱い上での安全性の問題が生じる。

[0046] (c)および(d)に関して、1対のロールによる塑性加工を施すことにより、出発原料粉末のマグネシウムの結晶粒径に対して、相対的により小さい結晶粒を有するMg合金粉体を作製する。具体的には、1対のロールによる塑性加工後のMg合金粉体において、素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径を $20\mu\text{m}$ 以下とする。このようなMg合金粉末を圧粉成形・押出加工することで250MPaを超える耐力を有するMg合金が得られる。逆に、ロールによる塑性加工後の粉体のマグネシウム粒子の

結晶粒径が $20\ \mu\text{m}$ を超える場合には、そのようなMg合金粉体を用いて作製したMg合金では250MPaを超える高い耐力を得ることは困難である。なお、Mg合金において、さらに高い耐力、例えば350MPaを超えるような特性を得るには、1対のロールによる塑性加工後のMg合金粉体の素地結晶粒径を $10\ \mu\text{m}$ 以下とする必要がある。

[0047] ロールによる塑性加工において、投入する出発原料粉末の温度、ならびに粉体が接触するロールの表面温度を後工程での時効熱処理温度以下とする必要がある。時効熱処理温度よりも高い温度で塑性加工を行なうと、過時効現象によって金属間化合物粒子の周辺に蓄積される加工歪量が減少し、押出加工時の動的再結晶が効果的に進行せず、その結果、微細な結晶粒を有する高耐力Mg合金を得ることが困難となる。

[0048] (3) マグネシウム合金とその製造方法

上述したロールによる塑性加工を施したマグネシウム合金粉体原料に対して、圧粉成形および温間押出加工することで、以下の特性を有する高耐力Mg合金が得られる。

[0049] (a) 得られたMg合金の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が $10\ \mu\text{m}$ 以下である。

[0050] (b) その合金の常温における引張耐力が250MPa以上である。

[0051] 本願の発明者らは、特に、Mg合金粉体の素地のマグネシウム粒子の結晶粒径を $10\ \mu\text{m}$ 以下であるような原料を用いた場合には、押出加工後のMg合金の素地を構成する最大結晶粒径が $5\ \mu\text{m}$ 以下であり、その合金の常温における引張耐力が350MPa以上となることを見出した。またT6処理を施した投入原料の素地中に分散する、 $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ 、 Al_2Ca 、 Mg_2Si 、 MgZn_2 、 Al_3Re (Re: 希土類元素)、 $\text{Al}_{11}\text{Re}_3$ 、 Al_6Mn などの金属間化合物によっても、押出加工後のMg合金の耐力は向上する。

[0052] 上述したロールによる塑性加工を施したマグネシウム合金粉体原料を、金型に充填した状態で加圧して圧粉成形体を作製する。その成形体を 150°C 以上 450°C 以下の温度範囲で加熱した後、直ちに押出加工によって緻密固化してマグネシウム合金素材を製造する。加熱温度が 150°C 未満では、動的再結晶が進行しないために微細なマグネシウム結晶粒が得られない。他方、加熱温度が 450°C を越えると微細な

再結晶組織が成長・粗大化するといった問題が生じる。なお、押出加工時の加工発熱量の影響を考慮すると、成形体温度は200℃以上350℃以下とすることが好ましい。なお緻密化の観点から押出比は10以上、より好ましくは30以上とする。

実施例 1

- [0053] 鑄造法により作製したAZ91Dインゴット(組成—Al:9.1, Zn:0.85, Mn:0.23重量%, Mg:残部)を溶体化熱処理(413℃×16時間の加熱保持後に空冷)した後、続いて時効熱処理(251℃×4時間の加熱保持後に窒素ガス雰囲気の内炉内で冷却)を施した。このインゴットから粉砕加工により粉体を作製した(T6熱処理AZ91D粉体)。
- [0054] 一方、比較として、鑄造したインゴットを溶体化熱処理のみを施した状態で、同一条件下で粉砕加工により粉体を作製した(溶体化処理AZ91D粉体)。いずれの粉体も粒径は0.5～4mmの範囲であった。
- [0055] それぞれのAZ91D粉体を出発原料とし、ローラーコンパクタ装置による塑性加工を施した。ここで、ロール直径は100mm、ロールの周速度は100mm/秒、ロール間のクリアランスは0.1mm、ロールの表面温度および原料粉体温度はいずれも常温とした。ロールによる塑性加工を施した板状の連結した粉体を、カッターミル装置によって長さ1～5mm程度に粉砕することで所定のマグネシウム合金粉体(1パス品)を作製した。この処理を繰り返すことにより結晶粒の微細化を行なった。ここでは、20回および40回繰り返した場合の粉体をそれぞれN=20、40とし、ロールによる塑性加工を施さない場合をN=0とする。
- [0056] 図3はAZ91Dインゴットの組織写真であり、(a)は鑄造後の組織写真、(b)は溶体化処理後の組織写真、(c)はT6熱処理(溶体化+時効熱処理)後の組織写真を示している。図3の組織写真から明らかなように、溶体化処理により、鑄造後に析出している粗大な $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ 化合物はマグネシウム素地中に固溶し、さらにこれを時効熱処理することで、微細な金属間化合物が素地中に均一に分散していることが認められる。
- [0057] 図3(c)のT6熱処理後のAZ91Dの組織を拡大した組織写真を図4に示す。500～800ナノメートル(nm)の微細な粒状化合物が均一に分散しており、T6熱処理を

施すことで、出発原料において本発明が目的とする所定の組織構造が形成されている。

[0058] 図5に、ロールによる塑性加工を施したAZ91D粉体の組織写真を示す。(a)は本発明によるT6処理後の組織を示し、(b)は比較例の溶体化処理のみの場合の組織を示している。T6処理を施したAZ91D粉体を用いた場合、ロールによる塑性加工を20回および40回行なうことで、マグネシウム素地は均質な組織を示しており、結晶粒径が2～5ミクロン程度にまで微細化していることが認められる。他方、(b)の溶体化処理を施したAZ91D粉体を用いた場合、40回の塑性加工を行っても素地は不均質な混合組織(写真では白色と黒色の領域が入り混じった状態)を呈しており、マグネシウム素地は20ミクロンを超える粗大な結晶粒から構成されている。

[0059] 図6に各粉体の微小硬さ(マイクロビッカース硬度)試験結果を示す。いずれの出発原料粉体においても、ロールによる塑性加工回数の増加と共に硬さは増加しているが、T6熱処理を施したAZ91D粉体の硬さがより高い値を示している。また両者の硬さの差は、加工回数の増加にしたがって増大している。つまり、T6熱処理を施したAZ91D粉体の方が、ロールを用いた塑性加工による加工ひずみが、より効果的に素地中に蓄積していることが認められる。

実施例 2

[0060] 実施例1で作製した各AZ91D粉体を、油圧プレス機を用いて常温で金型成形して円柱状の押出用ビレットを作製した。このビレットを窒素ガス雰囲気中で400℃×5分間の加熱を行った後、直ちに温間押出加工(押出比 $r=37$)を施すことで緻密な棒材を作製した。各マグネシウム合金押出素材より引張試験片(平行部20mm)を採取し、常温にてひずみ速度毎秒 10^{-4} で引張試験を行った。その際の引張耐力(0.2%歪)、引張強さ、破断伸びの測定結果を表1に示す。

[0061] [表1]

引張耐力 (MPa)	パス回数N	0	20	40
	T6熱処理	210	264	322
	溶体化処理	203	229	246
引張強さ (MPa)	パス回数N	0	20	40
	T6熱処理	332	369	385
	溶体化処理	327	341	354
破断伸び (%)	パス回数N	0	20	40
	T6熱処理	21.2	18.4	18.7
	溶体化処理	18.5	14.1	13.2

- [0062] 本発明例であるT6処理を施したAZ91D粉末を用いることにより、ロールによる塑性加工を経由した押出素材の引張強さおよび0.2%耐力は、いずれも著しく増大しており、特に、引張耐力は250～300MPaを超える高い値を示した。また破断伸びに関しても、18%程度と高い値を維持している。このように本発明による製造方法を用いることで、高い引張耐力と高い靱性を有するマグネシウム合金を作製することが可能である。
- [0063] 一方、比較例である、溶体化熱処理のみを施したAZ91D粉体を用いた場合、ロールによる塑性加工回数が増加するに連れて引張耐力・引張強さは増大するものの、本発明例のT6熱処理粉体の結果と比較すると、それらの値は低く、特に引張耐力は250MPaに到達していないことがわかる。
- [0064] ロールによる塑性加工を40回行った場合の押出素材について、光学顕微鏡による組織観察結果を図7に示す。(a)に示すように、本発明例のT6熱処理AZ91D粉体を用いた場合、画像解析によりマグネシウム素地の結晶粒径分布を測定した結果、最大結晶粒径は $4.2\mu\text{m}$ 、平均結晶粒径は $1.5\mu\text{m}$ であり、押出加工過程で動的再結晶による微細組織が形成された。一方、(b)の比較例である溶体化処理AZ91D粉体を用いた場合、押出素材の最大結晶粒径は $21\mu\text{m}$ 、平均結晶粒径は $9.6\mu\text{m}$ であり、(a)に示したT6熱処理AZ91D粉体の場合に比べて著しく粗大な組織である。つまり、本発明例のT6熱処理Mg合金粉体に対して、ロールによる塑性加工を施すことで、素地に析出・分散した微細な金属間化合物析出物の周辺に、より多くの加工ひずみが蓄積され、その結果、動的再結晶がより効果的に促進して微細な結晶粒を形成した。

実施例 3

[0065] 鑄造法により作製したZAXE1713インゴット(組成—Al:7.1, Zn:0.95, Ca:0.93, La:2.87重量%, Mg:残部)を溶体化熱処理(420℃×16時間の加熱保持後に空冷)した後、続いて時効熱処理(180℃×36時間の加熱保持後に窒素ガス雰囲気中の炉内で冷却)を施した。このインゴットから粉碎加工により粉体を作製した(T6熱処理ZAXE1713粉体)。一方、比較として、鑄造したインゴットを熱処理せずに、同一条件下で粉碎加工により粉体を作製した(熱処理なしZAXE1713粉体)。いずれの粉体も粒径は0.6～4mmの範囲であった。それぞれのZAXE1713粉体を出発原料とし、ローラーコンパクタ装置による塑性加工を施した。

[0066] ここで、実施例1と同様、ロール直径は100mm、ロールの周速度は100mm/秒、ロール間のクリアランスは0.1mm、ロールの表面温度および原料粉体温度はいずれも常温とした。ロールによる塑性加工を施した板状の連結した粉体を、カッターミル装置によって長さ1～5mm程度に粉碎することで所定のマグネシウム合金粉体(1パス品)を作製した。これを繰り返し行うことで結晶粒の微細化を行なった。ここでは、ロールによる塑性加工の繰り返し回数を最大30回とし、ロールによる塑性加工を施さない場合をN=0とする。

[0067] 各ZAXE1713粉体を、油圧プレス機を用いて常温で金型成形して円柱状の押出用ビレットを作製した。このビレットを窒素ガス雰囲気中で400℃×5分間の加熱を行った後、直ちに温間押出加工(押出比 $r=37$)を施すことで緻密な棒材を作製した。各マグネシウム合金押出素材より引張試験片(平行部20mm)を採取し、常温にてひずみ速度毎秒 5×10^{-4} で引張試験を行なった。その際の引張耐力(0.2%歪)、引張強さ、破断伸びの測定結果を表2に示す。

[0068] [表2]

引張耐力 (MPa)	加工回数	0	3	5	10	15	20	30
	T6熱処理	201	213	229	249	265	289	318
	熱処理無し	169	173	181	194	203	212	234
引張強さ (MPa)	加工回数	0	3	5	10	15	20	30
	T6熱処理	251	309	321	335	343	371	397
	熱処理無し	211	234	251	270	282	299	318
破断伸び (%)	加工回数	0	3	5	10	15	20	30
	T6熱処理	20.8	21.6	16.3	18.9	16.9	17.8	18.8
	熱処理無し	22.3	24.3	21.2	19.7	18.7	19.5	18.9

[0069] 本発明例であるT6処理を施したZAXE1713粉末を用いることで、ロールによる塑

性加工を経由した押出素材の引張強さおよび0.2%耐力は、いずれも著しく増大しており、特に、引張耐力は250～300MPaを超える高い値を示した。また破断伸びに関しても、16%以上と高い値を維持している。このように本発明による製造方法を用いることで、高い引張耐力と高い靱性を有するマグネシウム合金を作製することが可能である。

[0070] 一方、比較例である、熱処理を施さないZAXE1713粉体を用いた場合、ロールによる塑性加工回数が増加するに連れて引張耐力・引張強さは増大するものの、本発明のT6熱処理粉体の結果と比較すると、それらの値は低く、特に引張耐力は250MPaに到達していないことがわかる。

[0071] T6熱処理を施したZAXE1713粉体について、ロールによる塑性加工を3, 10, 20, 30回施した粉体を押出固化して得られたMg合金の押出方向の組織観察結果を図8に示す。加工回数の増加と共に、素地を構成するマグネシウムの結晶粒径は小さくなっており、特に、20回では最大結晶粒径は $9.2\mu\text{m}$ 、平均結晶粒径は $4.8\mu\text{m}$ となり、30回では最大結晶粒径は $4.4\mu\text{m}$ 、平均結晶粒径は $1.2\mu\text{m}$ であった。

実施例 4

[0072] 鋳造法により作製したAZ80Aインゴット(組成—Al:8.2, Zn:0.51, Mn:0.18重量%, Mg:残部)を溶体化熱処理($410^{\circ}\text{C} \times 6$ 時間の加熱保持後に空冷)した後、続いて時効熱処理($175^{\circ}\text{C} \times 26$ 時間の加熱保持後に窒素ガス雰囲気の中で冷却)を施した。このインゴットから粉砕加工により粉体を作製した(T6熱処理AZ80A粉体)。一方、比較として、鋳造したインゴットを熱処理せずに、同一条件下で粉砕加工により粉体を作製した(熱処理なしAZ80A粉体)。いずれの粉体も粒径は0.6～4mmの範囲であった。

[0073] それぞれのAZ80A粉体を出発原料とし、ローラーコンパクタ装置による塑性加工を施した。ここで、実施例1と同様、ロール直径は100mm、ロールの周速度は100mm/秒、ロール間のクリアランスは0.1mm、ロールの表面温度および原料粉体温度はいずれも常温とした。ロールによる塑性加工を施した板状の連結した粉体を、カッターミル装置によって長さ1～5mm程度に粉砕することで所定のマグネシウム合金粉体(1パス品)を作製した。これを繰り返し行うことで結晶粒の微細化を行なった。こ

こでは、ロールによる塑性加工の繰り返し回数を最大50回とし、ロールによる塑性加工を施さない場合をN=0とする。

- [0074] 各AZ80A粉体を、油圧プレス機を用いて常温で金型成形して円柱状の押出用ビレットを作製した。このビレットを窒素ガス雰囲気中で400℃×5分間の加熱を行った後、直ちに温間押出加工(押出比 $r=37$)を施すことで緻密な棒材を作製した。各マグネシウム合金押出素材より引張試験片(平行部20mm)を採取し、常温にてひずみ速度毎秒 5×10^{-4} で引張試験を行なった。その際の引張耐力(0.2%歪)、引張強さ、破断伸びの測定結果を表3に示す。

- [0075] [表3]

原料粉体の熱処理	ロールによる塑性加工回数	押出素材の機械的特性			備考
		引張強さ(MPa)	引張耐力(MPa)	破断伸び(%)	
T6	20	387	262	18.9	本発明例
T6	30	393	285	18.6	本発明例
T6	50	409	317	17.9	本発明例
T6	なし	365	208	16.8	比較例
なし	20	336	218	17.2	比較例
なし	なし	318	189	22.4	比較例

- [0076] 本発明例であるT6処理を施したAZ80A粉末に対して、ロールによる塑性加工を施した場合、引張耐力は262～317MPaと高く、併せて17.9～18.9%の高い破断伸びを有する。

- [0077] 一方、比較例においては、T6熱処理AZ80A粉体を用いた場合であっても、ロールによる塑性加工を施さなければ、引張耐力は208MPaと低い値を示した。熱処理を施さないAZ80A粉体において、ロールによる塑性加工を20回行なった場合でも、引張耐力は218MPaとなり、本発明例に比べて著しく低いことがわかる。

実施例 5

- [0078] 実施例3で作製したT6熱処理ZAXE1713粉体(ロールによる塑性加工回数;30回)を用いて、金型成形により押出用ビレットを作製した。これを温間押出(押出比 $r=37$)により緻密固化する際の、ビレット加熱温度を表4に記載の条件としてマグネシウム合金押出素材を作製した。各マグネシウム合金押出素材より引張試験片(平行部20mm)を採取し、常温にてひずみ速度毎秒 5×10^{-4} で引張試験を行なった。そ

の際の引張耐力(0.2%歪)、引張強さ、破断伸びの測定結果を表4に示す。

[0079] [表4]

ビレット温度(°C)	130	210	300	350	390	440	480
引張耐力(MPa)	242	327	331	324	318	302	229
引張強さ(MPa)	347	409	418	412	397	383	342
破断伸び(%)	16.8	15.7	15.4	16.7	18.8	19.3	17.5
備考	比較例	本発明例	本発明例	本発明例	本発明例	本発明例	比較例

[0080] 本発明が規定する適正なビレット温度を満足する場合、引張耐力は300MPaを超える高い値を示す。一方、比較例であるビレット温度が130°Cの場合には、押出加工過程での再結晶が十分に進行しないために高い引張耐力が得られない。また比較例であるビレット温度が480°Cの場合には、押出加工過程で微細な再結晶組織が成長・粗大化するために高い引張耐力が得られない。

実施例 6

[0081] 実施例3で作製したT6熱処理ZAXE1713粉体を用いて、実施例1と同様の条件でロールによる塑性加工を最大30回まで行い、粉体組織構造の微細化を行なった。その際、ロール表面と粉体の温度と共に、常温あるいは200°Cとした。得られたMg合金粉体を油圧プレス機により常温で金型成形して円柱状の押出用ビレットを作製した。このビレットを窒素ガス雰囲気中で400°C×5分間の加熱を行った後、直ちに温間押出加工(押出比 $r=37$)を施すことで緻密な棒材を作製した。各マグネシウム合金押出素材より引張試験片(平行部20mm)を採取し、常温にてひずみ速度毎秒 5×10^{-4} で引張試験を行なった。その際の引張耐力(0.2%歪)、引張強さ、破断伸びの測定結果を表5に示す。

[0082] [表5]

引張耐力(MPa)	加工回数	0	3	5	10	15	20	30
	常温	201	213	229	249	265	289	318
引張強さ(MPa)	加工回数	0	3	5	10	15	20	30
	常温	251	309	321	335	343	371	397
破断伸び(%)	加工回数	0	3	5	10	15	20	30
	常温	20.8	21.6	16.3	18.9	17.9	17.8	18.8
	200°C	20.8	22.1	20.4	18.4	18.9	18.3	17.2

[0083] 本発明例である、ロール表面および粉体の温度を常温とした場合、得られたMg合

金押出素材の引張耐力・引張強さ・破断伸びは、いずれも高い値を示した。

- [0084] これに対して、比較例である、ロール表面および粉体の温度を時効処理温度(175℃)よりも高い200℃とした場合、引張耐力・引張強さは共に、本発明例に比べて著しく低下した。特に、耐力に関しては、加工回数が増加するにも関わらず、ほぼ一定の値を示した。これは、Mg合金粉体を時効処理温度以上に加熱した状態でロールによる塑性加工を行う場合、過時効現象によって析出物の周辺に加工歪が十分に蓄積せず、その結果、押出加工過程における動的再結晶による微細組織が形成されにくくなり、耐力の低下が生じたからである。

実施例 7

- [0085] 実施例4で作製したAZ80A押出素材の押出方向の断面について、マグネシウムの底面(0001)の配向性を評価した結果を図9の極点図に示す。ここでは、ロールによる塑性加工回数を5, 10, 30, 50回とした。加工回数が10回までは、(0001)面が押出方向に沿った典型的な押出素材が示す集合組織を形成している。しかしながら、30回および50回においては、底面配向性が弱まっており、言い換えると、(0001)底面以外の(10-10)柱面や(10-11)錐面といった非底面も押出方向にそって配列している。
- [0086] 一方、熱処理を施さないMg合金粉体では、50回の塑性加工後においても、底面配向性の著しい低下は見られなかった。
- [0087] 以上の結果より、本発明が規定する、ロールを用いた塑性加工をT6熱処理Mg合金粉体に施した後、押出加工により得られたMg合金素材においては、動的再結晶による結晶粒の微細化による引張耐力の増加に加えて、集合組織の無秩序化による破断伸び(靱性)の向上が生じる。

実施例 8

- [0088] 表6に記載の組成を有する鋳造マグネシウムインゴットを溶体化熱処理(420℃×16時間の加熱保持後に空冷)した後、続いて時効熱処理(180℃×36時間の加熱保持後に窒素ガス雰囲気の中炉内で冷却)を施した。
- [0089] [表6]

試料No.	加工回数	合金組成(重量%)								
		Zn	Al	Ca	La	Zr	Sr	Sc	Ti	Mg
1	30	0.95	7.11	0.93	2.87	0	0	0	0	残部
2	30	1.06	6.94	0.98	3.04	0.85	0	0	0	残部
3	30	1.11	7.15	1.08	2.93	1.97	0	0	0	残部
4	30	0.99	6.98	1.11	2.89	0	1.93	0	0	残部
5	30	1.03	7.09	0.97	2.97	0	2.59	0	0	残部
6	30	0.99	6.84	0.95	3.06	0	0	0.89	0	残部
7	30	1.05	7.01	1.02	2.98	0	0	0	1.16	残部
8	30	1.06	7.07	0.98	2.95	0	0	0	2.07	残部
9	30	0.96	7.08	1.11	2.87	0	1.03	0	0.86	残部
10	0	0.95	7.11	0.93	2.87	0	0	0	0	残部
11	0	1.11	7.15	1.08	2.93	1.97	0	0	0	残部
12	0	1.03	7.09	0.97	2.97	0	2.59	0	0	残部

[0090] 各インゴットから粉碎加工によりマグネシウム合金粉体を作製した。いずれの粉体も粒径は0.6～4mmの範囲であった。各粉体を出発原料とし、ローラーコンパクタ装置による塑性加工を施した。ここで、実施例1と同様、ロール直径は100mm、ロールの周速度は100mm/秒、ロール間のクリアランスは0.1mm、ロールの表面温度および原料粉体温度はいずれも常温とした。

[0091] ロールによる塑性加工を施した板状の連結した粉体を、カッターミル装置によって長さ1～5mm程度に粉碎することで所定のマグネシウム合金粉体(1パス品)を作製した。これを繰り返し行うことで結晶粒の微細化を行なった。ここでは、ロールによる塑性加工の繰り返し回数を30回とした。なお、比較としてロールによる塑性加工を施さない場合をN=0とする。

[0092] 続いて、各処理粉体を油圧プレス機を用いて常温で金型成形して円柱状の押出用ビレットを作製した。このビレットを窒素ガス雰囲気中で400℃×5分間の加熱を行った後、直ちに温間押出加工(押出比 $r=37$)を施すことで緻密な棒材を作製した。各マグネシウム合金押出素材より引張試験片(平行部20mm)を採取し、常温にてひずみ速度毎秒 5×10^{-4} で引張試験を行なった。その際の引張耐力(0.2%歪)、引張強さ、破断伸びの測定結果を表7に示す。

[0093] [表7]

試料No.	加工回数	引張耐力 (MPa)	引張強さ (MPa)	破断伸び (%)	備考
1	30	318	397	18.8	本発明例
2	30	333	417	18.2	本発明例
3	30	346	428	17.9	本発明例
4	30	340	424	18	本発明例
5	30	352	442	17.4	本発明例
6	30	335	416	18.4	本発明例
7	30	336	419	18.1	本発明例
8	30	345	425	18	本発明例
9	30	357	449	17.2	本発明例
10	0	201	251	20.8	比較例
11	0	205	242	15.2	比較例
12	0	207	231	12.3	比較例

[0094] 試料No. 1～9は本発明例であり、試料No. 2～9は試料No. 1にZr, Sr, Sc, Tiなどの活性金属元素を適正範囲、添加した鑄造マグネシウム合金インゴットから採取した粉体を用いて得られた押出素材である。試料No. 1の特性と比較して、Zr, Sr, Sc, Tiなどの活性金属元素を添加することで、著しい伸び(靱性)の低下を伴うことなく、引張耐力および引張強さを向上させることができる。

[0095] 一方、比較例である試料No. 10～12において、ロールによる塑性加工を施さなければ、活性金属元素を添加した場合であっても引張耐力や引張強さの増加は認められず、かえって伸びの低下が生じた。

[0096] 以上、図面を参照してこの発明の実施形態を説明したが、この発明は、図示した実施形態のものに限定されない。図示した実施形態に対して、この発明と同一の範囲内において、あるいは均等の範囲内において、種々の修正や変形を加えることが可能である。

産業上の利用可能性

[0097] この発明は、高い耐力と伸びとを両立させるマグネシウム合金を得るのに有利に利用され得る。

請求の範囲

- [1] 相対的に大きな結晶粒径を持つ出発原料粉末に対して、1対のロール間に通して圧縮変形またはせん断変形させる塑性加工を施して相対的に小さな結晶粒径としたマグネシウム合金粉体原料において、
- 前記出発原料粉末は、熱処理によって微細な金属間化合物を素地中に析出・分散させているマグネシウム合金粉末であり、
- 前記塑性加工後のマグネシウム合金粉体中には、析出した前記金属間化合物の周辺に加工歪が存在しており、
- 前記塑性加工後のマグネシウム合金粉体の最大サイズが10mm以下、最小サイズが0.1mm以上であり、
- 前記塑性加工後のマグネシウム合金粉体の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が $20\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする、マグネシウム合金粉体原料。
- [2] 前記金属間化合物は、 $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ 、 Al_2Ca 、 Mg_2Si 、 MgZn_2 、 Al_3Re (Re: 希土類元素)、 $\text{Al}_{11}\text{Re}_3$ および Al_6Mn からなる群から選ばれた少なくとも一つの化合物である、請求項1に記載のマグネシウム合金粉体原料。
- [3] 前記金属間化合物の最大粒子径が $5\mu\text{m}$ 以下である、請求項1に記載のマグネシウム合金粉体原料。
- [4] 前記金属間化合物の最大粒子径が $2\mu\text{m}$ 以下である、請求項1に記載のマグネシウム合金粉体原料。
- [5] 前記マグネシウム合金粉体の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が $10\mu\text{m}$ 以下である、請求項1に記載のマグネシウム合金粉体原料。
- [6] ストロンチウム (Sr)、ジルコニウム (Zr)、スカンジウム (Sc) およびチタン (Ti) からなる群から選ばれた金属元素を重量基準で0.5%以上4%以下含有し、残部が実質的にマグネシウム (Mg) である、請求項1に記載のマグネシウム合金粉体原料の製造方法。
- [7] 請求項1に記載のマグネシウム合金粉体原料を圧粉成形した後に押出加工して得られたマグネシウム合金であって、
- 合金の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が $10\mu\text{m}$ 以下であり、

常温での引張耐力が250MPa以上であることを特徴とする、高耐力マグネシウム合金。

- [8] 前記マグネシウム合金の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が $5\mu\text{m}$ 以下であり、

常温での引張耐力が350MPa以上である、請求項7に記載の高耐力マグネシウム合金。

- [9] 前記マグネシウム合金の素地中に、 $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ 、 Al_2Ca 、 Mg_2Si 、 MgZn_2 、 Al_3Re (Re:希土類元素)、 $\text{Al}_{11}\text{Re}_3$ および Al_6Mn からなる群から選ばれた少なくとも一つの金属間化合物が析出・分散している、請求項7に記載の高耐力マグネシウム合金。

- [10] 出発原料粉末に対して塑性加工を施すことによって、該出発原料粉末の素地を構成するマグネシウム粒子の結晶粒径を微細化する方法であり、

前記出発原料粉末として、熱処理によって微細な金属間化合物を素地中に析出・分散させているマグネシウム合金粉末を準備し、

前記塑性加工は、出発原料粉末を1対のロール間に通して圧縮変形またはせん断変形させて前記金属間化合物の周辺に加工歪を付与する塑性加工であり、

前記塑性加工を、粉体の最大サイズが10mm以下で最小サイズが0.1mm以上、かつ粉体の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が $20\mu\text{m}$ 以下になるまで繰り返して行なうことを特徴とする、マグネシウム合金粉体原料の製造方法。

- [11] 前記出発原料粉末としてのマグネシウム合金粉末を準備する工程は、

鋳造法によってマグネシウム合金インゴットを作製することと、

前記マグネシウム合金インゴットを溶体化処理し、続いて時効熱処理を行なってインゴットの素地中に微細な金属間化合物を析出・分散させることと、

前記インゴットから機械加工によってマグネシウム合金粉体を取出すこととを含む、請求項10に記載のマグネシウム合金粉体原料の製造方法。

- [12] 前記塑性加工を行なう際に、投入する出発原料粉末の温度、およびこの出発原料粉末が接触する前記ロールの表面温度を前記時効熱処理の温度以下にする、請求項11に記載のマグネシウム合金粉体原料の製造方法。

- [13] 前記マグネシウム合金インゴットは、ストロンチウム(Sr)、ジルコニウム(Zr)、スカンジ

ウム(Sc)およびチタン(Ti)からなる群から選ばれた金属元素を重量基準で0.5%以上4%以下含有し、残部が実質的にマグネシウム(Mg)である、請求項11に記載のマグネシウム合金粉体原料の製造方法。

- [14] 請求項1に記載のマグネシウム合金粉体原料を金型に充填した状態で加圧して圧粉成形体を得る工程と、

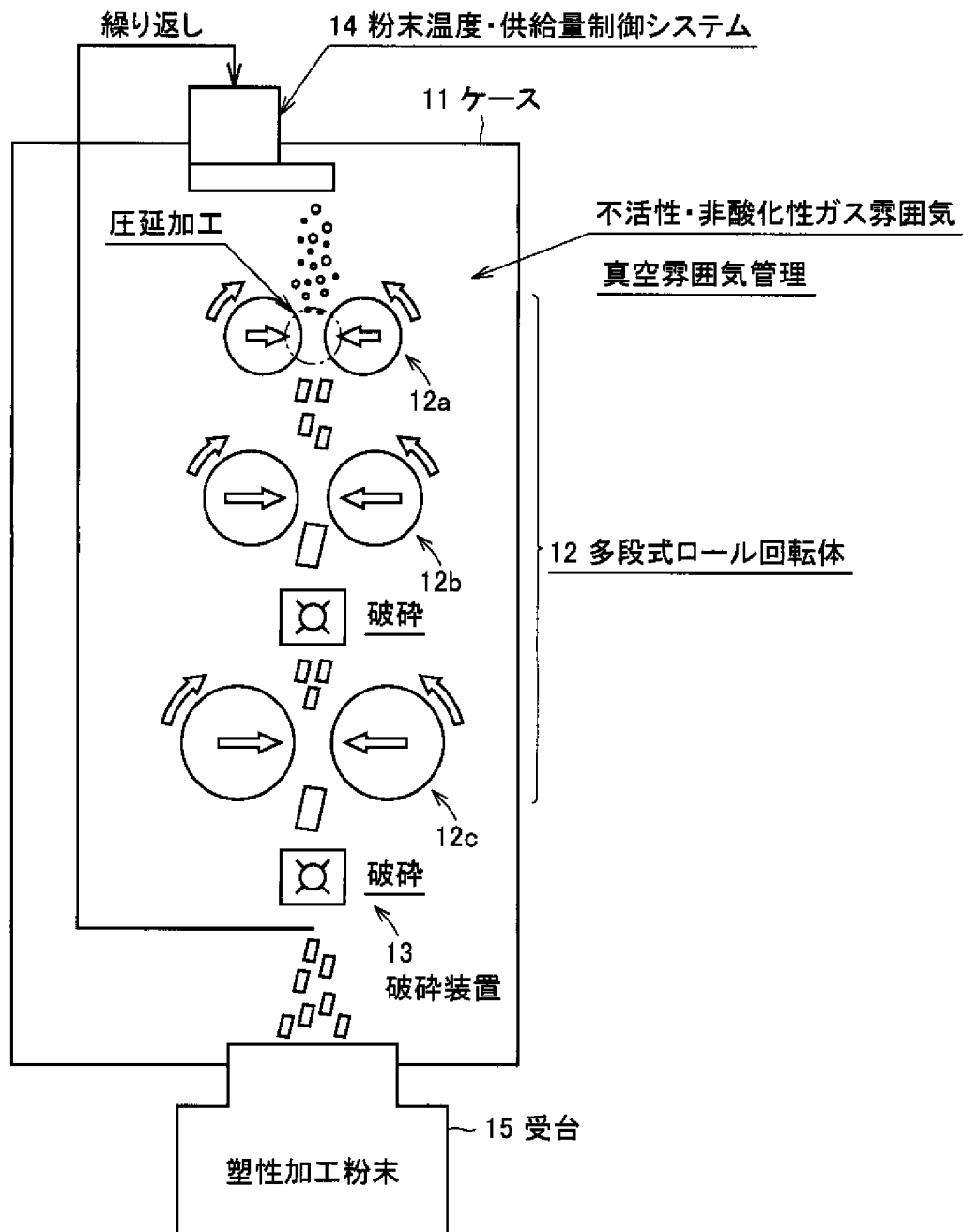
前記マグネシウム合金圧粉成形体を150℃以上450℃以下の温度で加熱する工程と、

前記加熱の終了後、直ちに前記マグネシウム合金圧粉成形体を押出加工してマグネシウム合金を製造する工程とを備える、高耐力マグネシウム合金の製造方法。

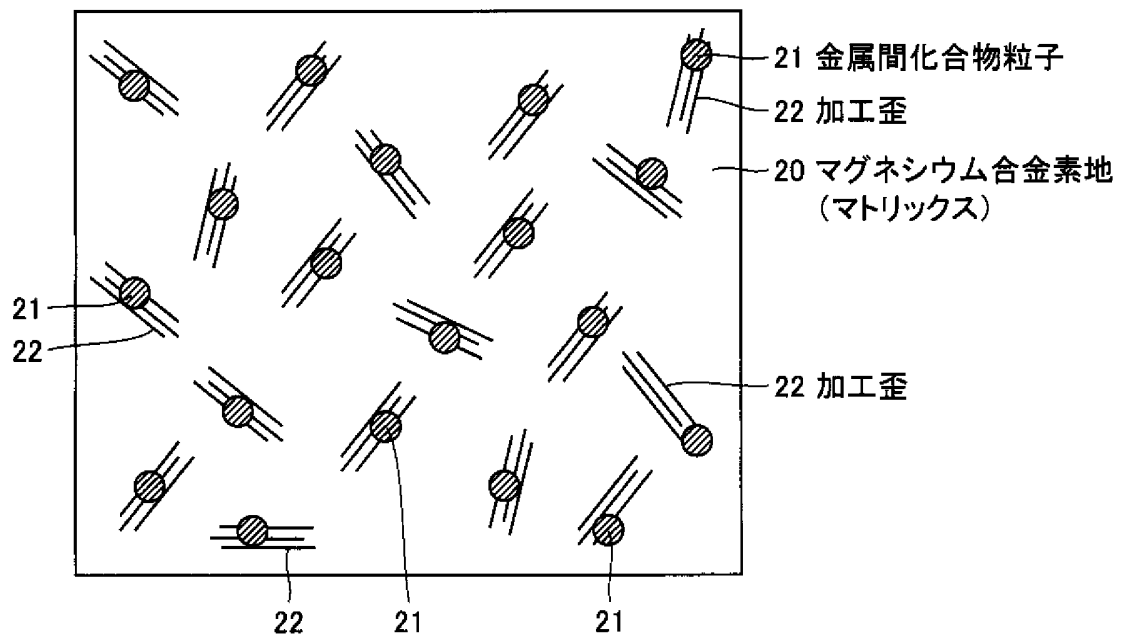
- [15] 前記マグネシウム合金の素地を構成するマグネシウム粒子の最大結晶粒径が10 μ m以下であり、常温での引張耐力が250MPa以上である、請求項14に記載の高耐力マグネシウム合金の製造方法。

- [16] 前記マグネシウム合金圧粉成形体の加熱を200℃以上350℃以下の温度で行なう、請求項14に記載の高耐力マグネシウム合金の製造方法。

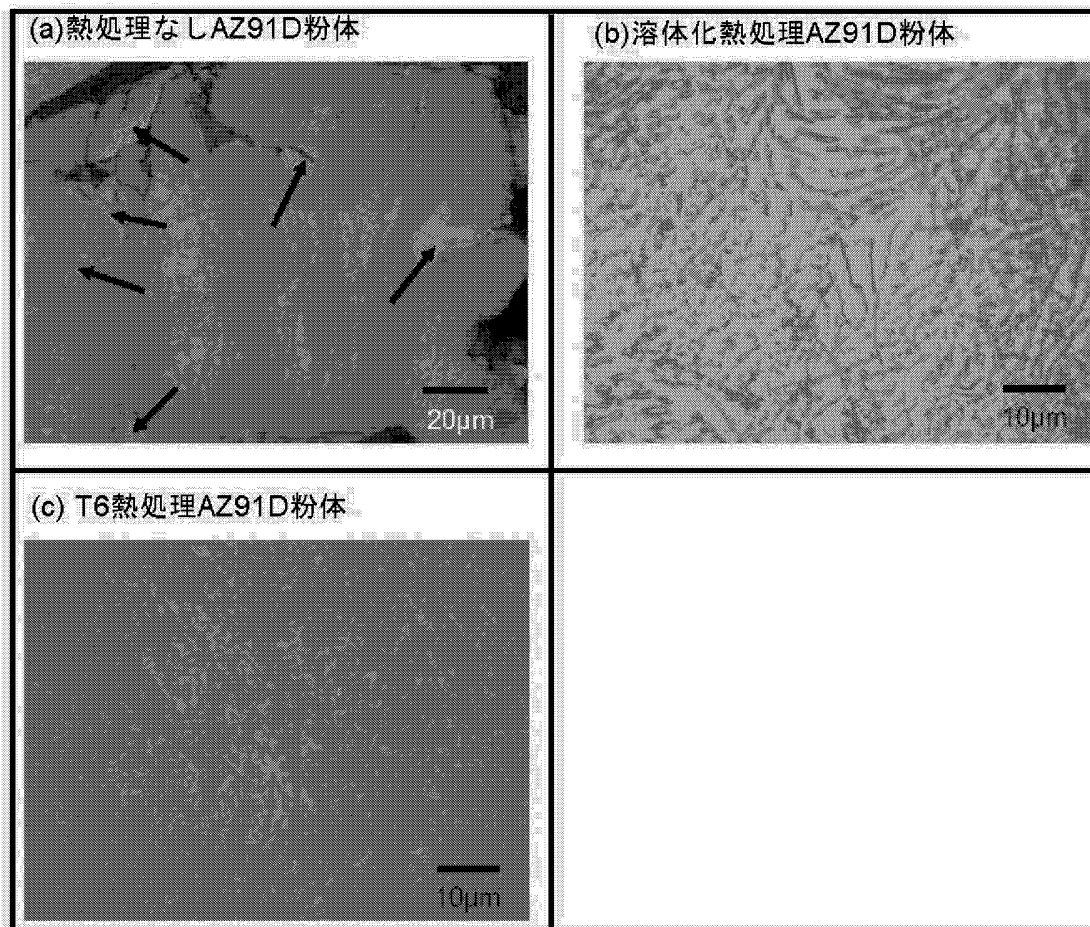
[図1]



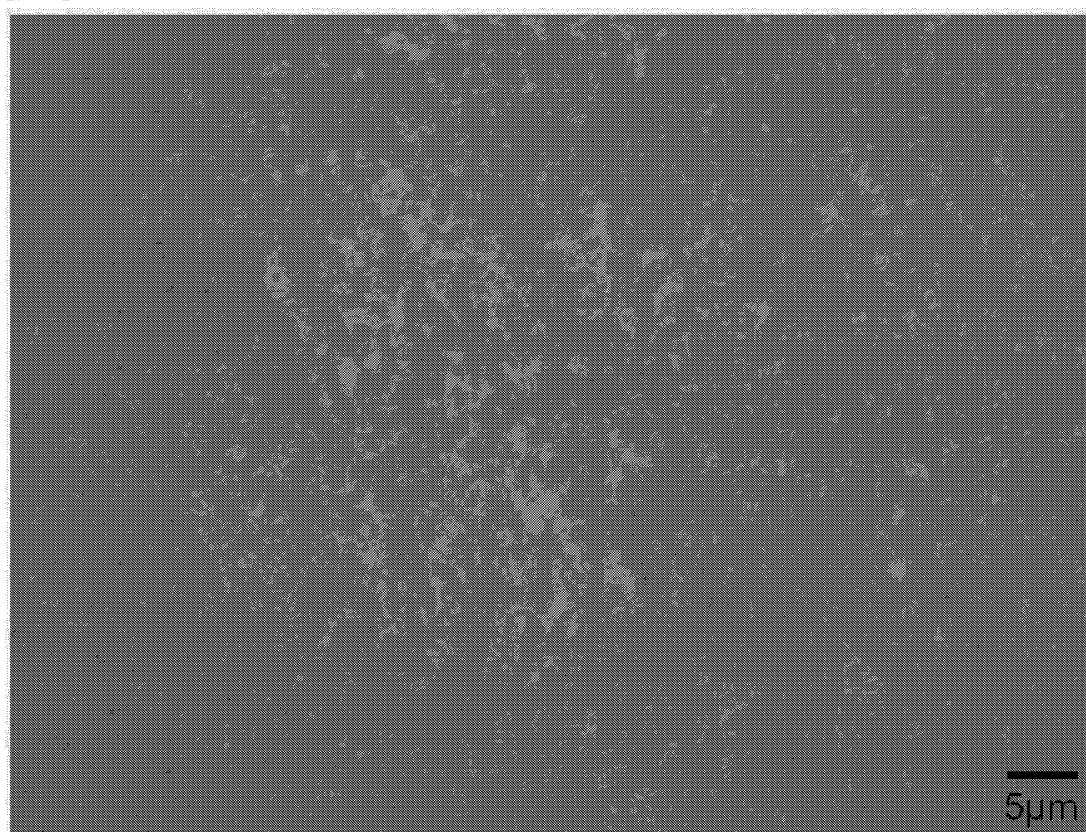
[図2]



[図3]

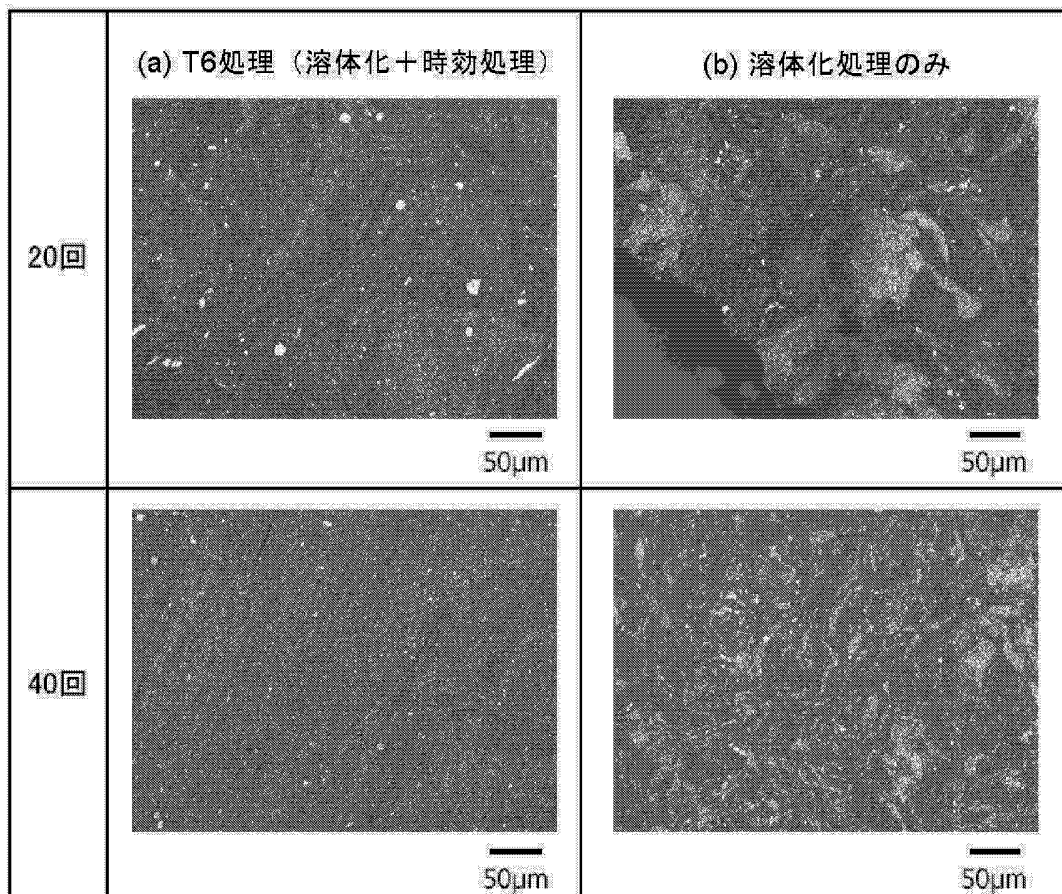


[図4]



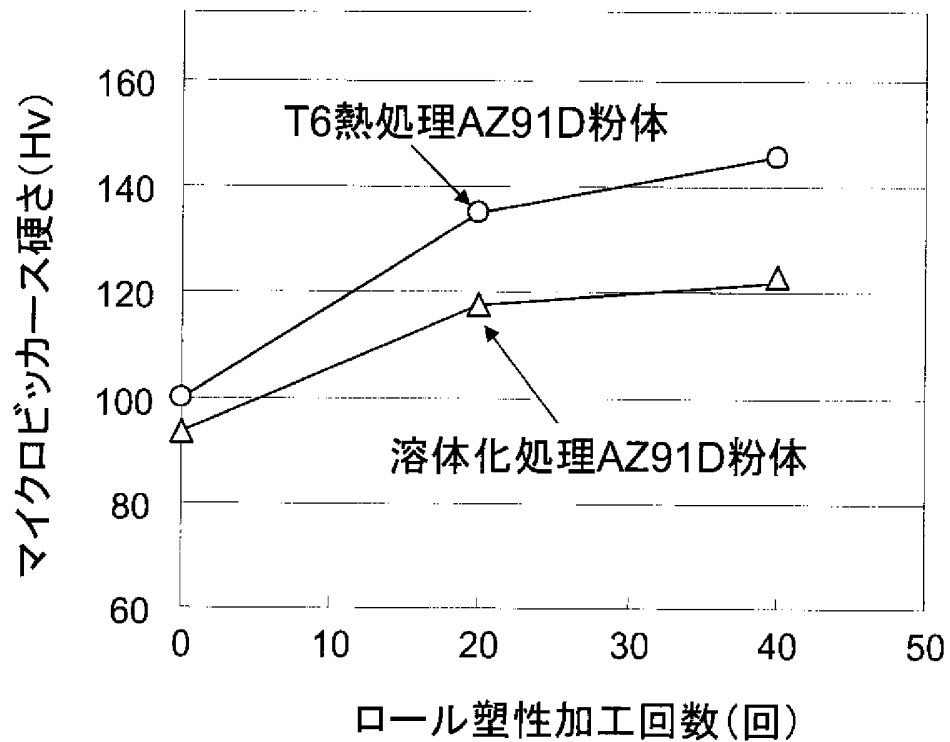
T6熱処理AZ91D粉体の拡大組織写真

[図5]



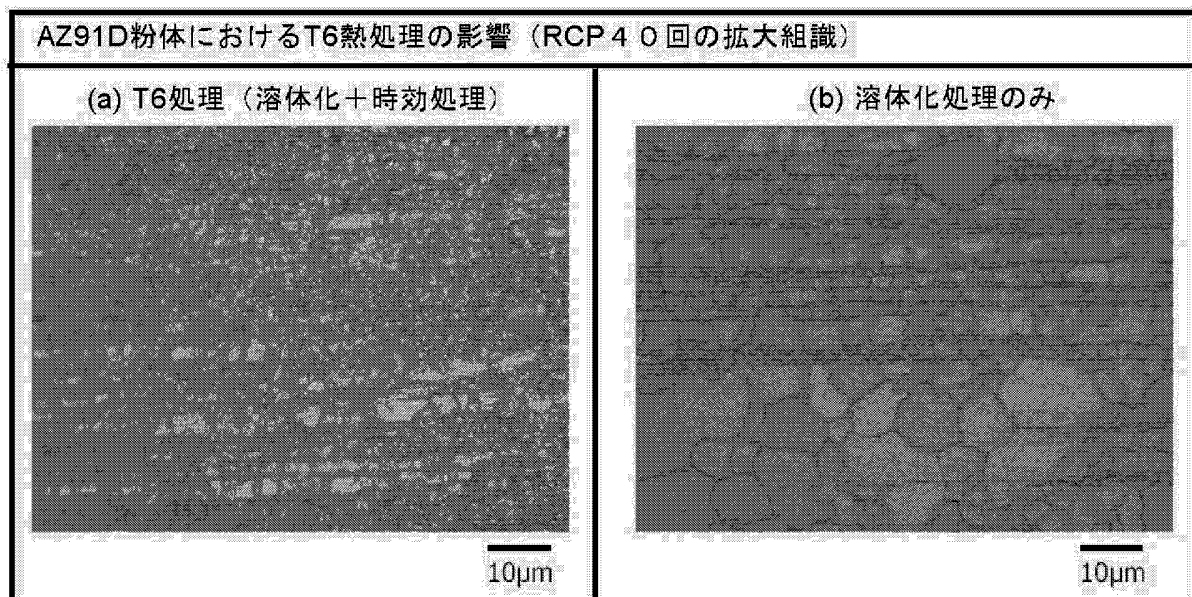
AZ91D粉体におけるT6熱処理の影響

[図6]

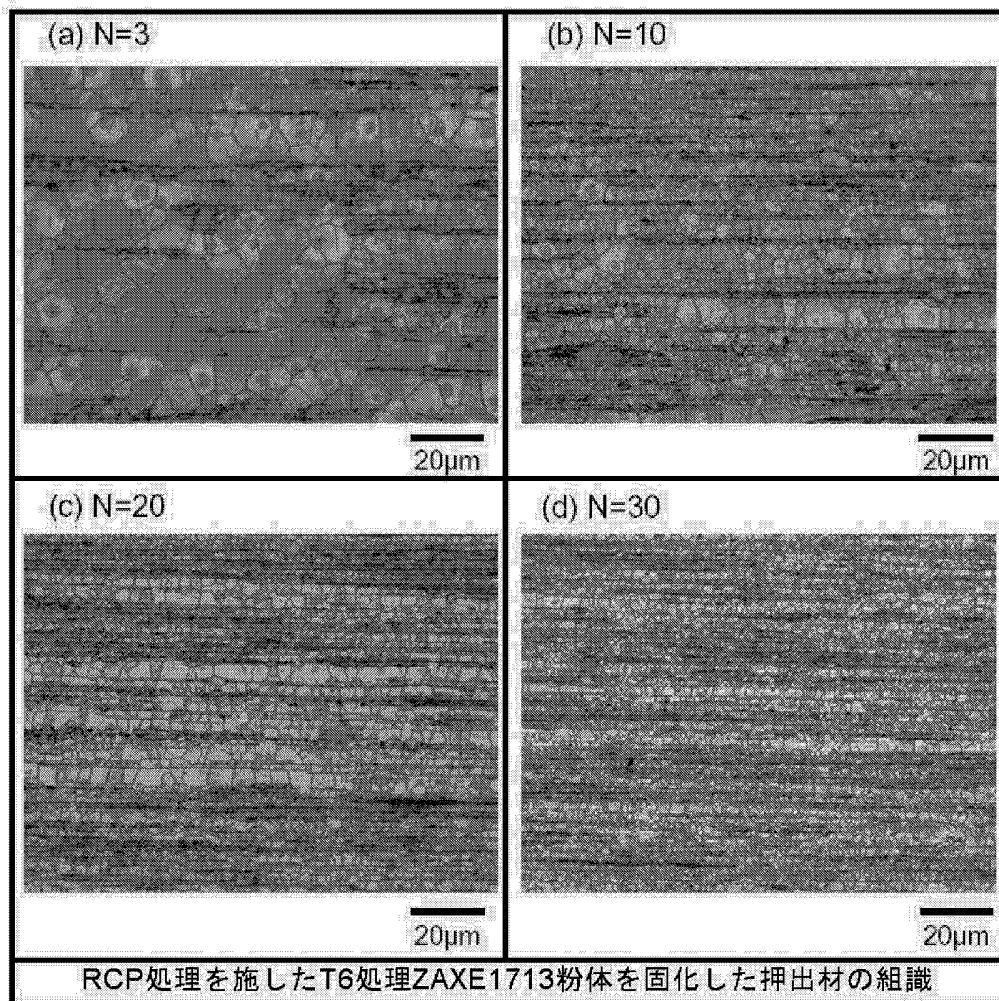


AZ91D粉体におけるT6熱処理の影響

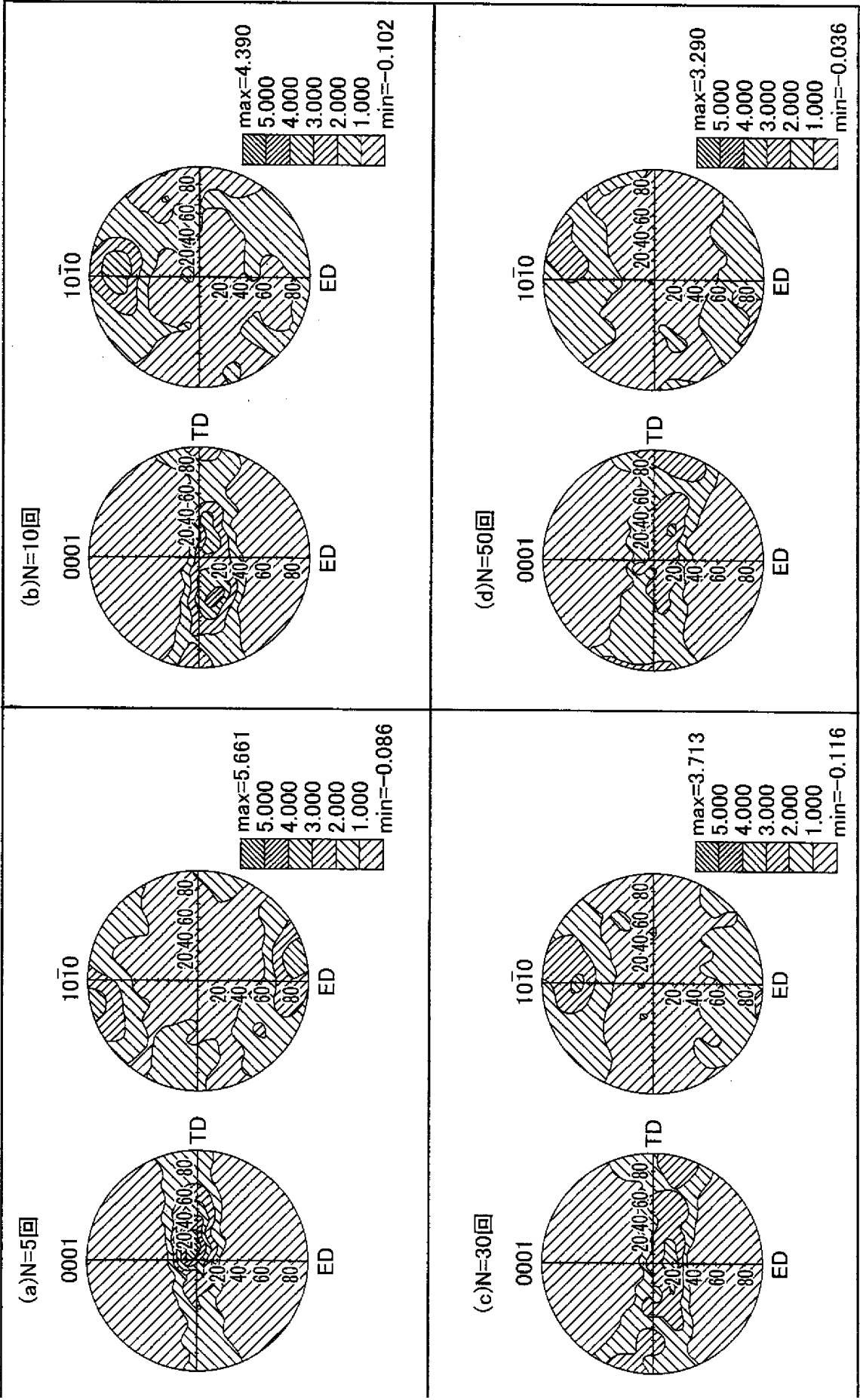
[図7]



[図8]



[図9]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/311952

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B22F1/00(2006.01)i, B21C23/01(2006.01)i, B22F3/20(2006.01)i, B22F9/04(2006.01)i, C22C1/04(2006.01)i, C22C23/02(2006.01)i, C22F1/06(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B22F1/00, B21C23/01, B22F3/20, B22F9/04, C22C1/04, C22C23/02, C22F1/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	JP 2006-63411 A (Kurimoto Ltd.), 09 March, 2006 (09.03.06), Claims; Par. Nos. [0030] to [0040], [0045] to [0047], [0059] to [0061]; example 1; table 3; Fig. 3 (Family: none)	1-10, 14-16
A	JP 5-306404 A (Mazda Motor Corp.), 19 November, 1993 (19.11.93), (Family: none)	1-16

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
16 August, 2006 (16.08.06)

Date of mailing of the international search report
29 August, 2006 (29.08.06)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. B22F1/00(2006.01)i, B21C23/01(2006.01)i, B22F3/20(2006.01)i, B22F9/04(2006.01)i, C22C1/04(2006.01)i, C22C23/02(2006.01)i, C22F1/06(2006.01)i											
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. B22F1/00, B21C23/01, B22F3/20, B22F9/04, C22C1/04, C22C23/02, C22F1/06											
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2006年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2006年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2006年</td> </tr> </table>				日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2006年	日本国実用新案登録公報	1996-2006年	日本国登録実用新案公報	1994-2006年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2006年										
日本国実用新案登録公報	1996-2006年										
日本国登録実用新案公報	1994-2006年										
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)											
C. 関連すると認められる文献											
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号									
P, X	J P 2 0 0 6 - 6 3 4 1 1 A (株式会社栗本鐵工所) 2 0 0 6 . 0 3 . 0 9 , 特許請求の範囲, 【0030】 - 【0040】, 【0045】 - 【0047】, 【0059】 - 【0061】, 実施例1, 表3, 図3 (ファミリーなし)	1-10, 14-16									
A	J P 5 - 3 0 6 4 0 4 A (マツダ株式会社) 1 9 9 3 . 1 1 . 1 9 (ファミリーなし)	1-16									
☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。											
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献											
国際調査を完了した日 1 6 . 0 8 . 2 0 0 6		国際調査報告の発送日 2 9 . 0 8 . 2 0 0 6									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 井上 猛 電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 3 5	4 K 9 2 6 9								