

氏名	秀嶋保利
授与した学位	博士
専攻分野の名称	工学
学位授与番号	博甲第161号
学位授与の日付	令和6年3月22日
学位論文の題目	射出成形法によるマグネシウム基複合材料の創製
学位審査委員会	主査 尾崎 公一 副査 末岡 浩治 副査 福田 忠生

学位論文内容の要旨

本論文は、チクソモールディング射出成形法によるマグネシウム基複合材料の創製について述べた。マグネシウム合金は、実用金属の中で最小の密度と良好な比強度および比剛性を有し、さらに、リサイクル性の高さ、資源の豊富さから構造材としての重要性を年々増している。マグネシウム合金を構造部材に適用するためには、強度や剛性といった材料特性についてさらなる向上が求められる。そこで、マグネシウム合金に第二相粒子を分散させるマグネシウム基複合材料について着目した。複合材料の製造方法は種々提案されているが、本研究では次に示す新しい方法を考案した。まず、射出成形法の原料であるマグネシウム合金チップに、バインダーを用いることにより高濃度の強化材粒子を修飾(付着)させ、高濃度強化材粒子修飾マグネシウム合金チップを準備する。この修飾マグネシウム合金チップを原料として、射出成形を実施する。射出成形品は、マグネシウム合金マトリックス中に強化材粒子が分散したマグネシウム基複合材料となる。この新しい方法の最大のメリットは、原料のみに工夫を加えており、チクソモールディング射出成形機や金型は従来のものがそのまま使用でき、コストミニマムでマグネシウム基複合材料が製造できる点にある。また、複合化できる強化材は数マイクロメートル程度の粒子に近い形状であることが必須であるが、広範囲の強化材に適用できる汎用性を有している。この新しい方法を研究し、得られたマグネシウム基複合材料の特性を調査分析し、そのメカニズムを解明した。

第1章では、持続可能な社会の実現に向けて、マグネシウム合金の重要性について述べた。マグネシウムについて、主として精錬方法、鋳造方法を説明した。次に、鉄鋼材料やアルミニウム合金からのマグネシウム合金への材料置換における課題を示し、本研究の方向性を提示した。その後、マグネシウム基複合材料に関する従来研究の事例と課題について整理し、本研究の目的である射出成形法によるマグネシウム基複合材料の創製について、修飾マグネシウム合金チップを用いた新しい方法を提案した。

第2章では、高濃度のカーボン添加を行うため、バインダーを用いてグラファイト粉

末を付着させたグラファイト粉末修飾マグネシウム合金チップを原料として射出成形を行い、グラファイト粒子分散マグネシウム基複合材料の作製を試みた。得られた射出成形品において、針状のグラファイト粒子が分散していることを確認した。グラファイト粒子とマトリックスとの界面に顕著な空隙は観察されず、界面の一部には MgO の微細結晶が層状に存在していた。射出成形品の 0.2%耐力および引張強さは、グラファイト添加量 0.5mass%において最大値を示し、それ以上の添加は耐力および引張強度を低下させた。ヤング率はグラファイト添加量の増加に伴い単調に低下する傾向を示し、複合則の直列モデルとほぼ一致した。6.9mass%グラファイト添加成形品は、AZ91D マグネシウム合金成形品と比較し、熱伝導率は増加し、線熱膨張係数は低下した。いずれも、複合則が成り立つ範囲内であった。また、振動減衰性に大幅な向上を確認した。熔融マグネシウムとグラファイトは非常にぬれにくく複合化が困難な組み合わせであるにもかかわらず、グラファイト粒子分散マグネシウム基複合材料が製造できることを示した。新しい方法は、非常に簡易的な方法で複合化を達成でき、工業的にも実現可能性が高い。また、マグネシウム合金チップに修飾する強化材粒子は任意の物質が適用可能であり、汎用的なマグネシウム基複合材料の製造方法を確立できたことを示した。

第3章では、高剛性な第二相粒子を分散させるため、マグネシウム合金チップにシリコン粉末を修飾し、シリコン粉末修飾マグネシウム合金チップを原料に射出成形を行った。シリコン粉末が成形機シリンダ内でマグネシウム溶湯と *in situ* 反応を生じることで、 Mg_2Si 粒子が分散したマグネシウム基複合材料が得られた。 Mg_2Si 粒子とマトリックスの界面に空隙は確認されなかった。成形品のビッカース硬さは、シリコン添加量が増加するにつれて増加した。ヤング率はシリコン添加量の増加に伴い、概ね複合則に従って増加した。20mass%Si 添加成形品のヤング率は 73GPa であり、アルミニウム合金のヤング率に相当するヤング率がマグネシウム合金で得られることを示した。

第4章では、マグネシウム合金チップに SiO_2 粉末を修飾し、 SiO_2 粉末修飾マグネシウム合金チップを原料に射出成形を行った。成形機シリンダ内でマグネシウム溶湯と SiO_2 粉末が *in situ* 反応を生じることで、 Mg_2Si 粒子と MgO 粒子がマトリックス中に分散した $\text{Mg}_2\text{Si}+\text{MgO}$ 分散マグネシウム基複合材料が得られた。金属組織の形成過程として、成形機シリンダおよび金型内で SiO_2 粉末の酸素と溶湯のマグネシウムが *in situ* 反応し、粉末表面から内部に向かって MgO が生成すると同時に、 Si は溶湯中に溶解し Mg_2Si として再析出する反応が進行したと推定された。 SiO_2 添加に伴い、硬さ、ヤング率、耐力および引張強さは増加し、伸びは減少した。金属組織形成において、 Mg_2Si 粒子と MgO 粒子は、成形機シリンダ内および金型での反応過程で、それぞれ異なる経路により形成されていることが推定できた。

第4章において $\text{Mg}_2\text{Si}+\text{MgO}$ 分散マグネシウム基複合材料の金属組織形成過程について考察した結果、個々の塊としての MgO 粒子径は添加した SiO_2 粒子径に強く依存していると推察された。そこで第5章では、より微細なナノメートルオーダーのシリカ

粒子を添加した場合について検討した。シリカナノ粒子修飾マグネシウム合金チップを原料とした射出成形品は、マグネシウム合金マトリックス中に Mg_2Si 粒子および MgO ナノ粒子が分散していることを確認した。シリカナノ粒子添加成形品に分散している MgO ナノ粒子は凝集しやすく、凝集体の分布も疎となっており、 α - Mg 結晶粒径は SiO_2 粉末添加成形品と比較し大きかった。シリカナノ粒子添加成形品の機械的性質について、 SiO_2 粉末添加成形品と比較すると、引張強さは同等であるものの、耐力が低く、伸びは大きかった。硬さおよびヤング率については、添加量に伴い増加し、 SiO_2 粉末添加成形品と同じ傾向を示した。 SiO_2 添加による成形品の金属組織は、添加する SiO_2 粒子径によらず同様な過程で形成されることを示す一方、 SiO_2 粒子径によって細部に差異が生じ、機械的性質に影響を与えることを明らかにした。

第6章では、現在まで多くの研究がなされてきた SiC 分散マグネシウム基複合材料について、 SiC 粉末修飾マグネシウム合金チップを原料に射出成形を行い、 SiC 粒子分散マグネシウム基複合材料の作製を試みた。得られた射出成形品において、マグネシウム合金マトリックス中に SiC 粒子が比較的均一に分散していることを確認した。成形品のビッカース硬さ、0.2%耐力および引張強さは、 SiC 添加量の増加にともない増加する傾向を示した。一方、伸びは減少した。ヤング率は、 SiC 添加量の増加にともない増加する傾向を示した。15mass% SiC 添加成形品は、AZ91D マグネシウム合金成形品と比較し、熱伝導率は増加し、線熱膨張係数は低下した。比剛性の観点で、射出成形法による SiC 粒子分散マグネシウム基複合材料は、部材の軽量化に有効であることを示した。

第7章では、本研究の総括として、得られた結論を述べ、プロセス面の課題と材料面の課題について述べた。本研究では、修飾マグネシウム合金チップを原料に射出成形するマグネシウム基複合材料の製造方法を提案した。新しい方法は、非常に有望であり、将来の社会実装が期待される。

主業績

No.1	
論文題目	AZ91D 合金射出成形品の金属組織, 機械的性質および熱的性質に及ぼすグラファイト添加の影響
著者名	秀嶋保利, 前田郁也, 福田忠生, 尾崎公一
発表誌名	日本金属学会誌, Vol.86, No.12, pp.237-244, 2022-12.
No.2	
論文題目	AZ91D 合金射出成形品の金属組織, 硬さおよびヤング率に及ぼすシリコン添加の影響
著者名	秀嶋保利, 前田郁也, 福田忠生, 尾崎公一
発表誌名	日本金属学会誌, Vol.87, No.5, pp.186-191, 2023-5.
No.3	
論文題目	射出成形法による SiC 粒子分散 AZ91D マグネシウム合金基複合材料の作製と諸特性
著者名	秀嶋保利, 前田郁也, 福田忠生, 尾崎公一
発表誌名	軽金属, Vol.74, No.3, (掲載決定), 2024-3.

副業績

No.1	
論文題目	AZ91D 合金射出成形品の金属組織および機械的性質に及ぼす SiO ₂ 添加の影響
著者名	秀嶋保利, 前田郁也, 福田忠生, 尾崎公一
発表誌名	日本金属学会 2023 年春期(第 172 回)講演大会講演概要, p.160, 2023-3.
No.2	
論文題目	マイクロ/ナノ SiO ₂ を添加した AZ91D マグネシウム合金射出成形品の組織と機械的性質
著者名	秀嶋保利, 前田郁也, 福田忠生, 尾崎公一
発表誌名	第 15 回 軽金属学会中国四国支部講演大会講演概要, p.8, 2023-10.

論文審査結果の要旨

マグネシウム（以下Mgと略）合金は、実用金属の中で最小の密度と良好な比強度・比剛性を有し、さらに、高リサイクル性と資源の豊富さから構造用材料としての重要性を増している。しかし、Mg合金を構造部材に適用するためには、強度や剛性等の材料特性のさらなる向上が必要であり、そのためには複合材料化が有効な手段と考えられる。

本研究では、地球温暖化係数が大きい防燃ガスを用いないチクソモールディング射出成形法に着目し、原料となるMg合金（AZ91D合金）チップにバインダーを用いて強化材粒子を多量に修飾し、Mg合金マトリックス中に強化材粒子が高濃度に分散したMg基複合材料の作製法を提案している。そして、種々の強化材粒子を添加したMg基複合材料の特性を調査分析し、そのメカニズムの解明を目的としている。

グラファイト粉末を修飾した場合には、針状のグラファイト粒子が分散した組織を形成することや、グラファイト粒子とマトリックスとの界面に顕著な空隙は観察されず、界面の一部には MgO の微細結晶が層状に存在することを示した。成形品の0.2%耐力および引張強さは、グラファイト添加量 0.5 mass% において最大値を示すこと、およびグラファイト添加量の増加に伴いヤング率が低下することを示した。また、グラファイト無添加AZ91D Mg合金成形品と比較して、熱伝導率が増加、線熱膨張係数が低下、そして振動減衰特性が大幅に向上することを示した。

シリコン粉末を修飾した場合には、添加した Si 粉末が成形機内部で in situ 反応し、Mg₂Si粒子が分散したMg基複合材料が得られることを示すと共に、成形品断面のビッカース硬さやヤング率は、シリコン添加量の増加に伴い増大することを定量的に示した。

SiO₂粉末を修飾した場合には、成形機内部でin situ反応し、Mg₂Si+MgO粒子が分散したMg基複合材料が得られることを示すと共に、金属組織形成のメカニズムについて考察した。また、SiO₂添加量の増加に伴い、硬さ、ヤング率、耐力および引張強さは増加し、伸びが減少することを定量的に示した。

シリカナノ粒子を修飾した場合には、SiO₂粉末を修飾した場合と同様、Mg₂Si およびMgOが分散するが、Mgとの反応で生成するMgO粒子が微細なために凝集しやすく、見かけ上のMgO粒子が粗大化して分散密度も疎となるため、機械的特性はSiO₂粉末添加射出成形品に比べて劣ることを明らかとした。

SiC粉末を修飾した場合には、SiC粒子が比較的均一に分散したMg基複合材料が得られることを示した。ビッカース硬さ、0.2%耐力、引張強さおよびヤング率はSiC添加量の増加に従って増大するが、伸びは減少することを定量的に示した。また、15mass%SiC添加射出成形品とSiC無添加AZ91D Mg合金成形品とを比較し、SiC添加により熱伝導率は増加し、線熱膨張係数が低下することを示した。

以上の様に、本論文では比較的簡便な方法で種々のMg基複合材料を作製できることを示すと共に、その機械的特性について定量的に明らかにしている。従って、本論文の内容は、学術的、実用的価値が極めて高いものと判断される。

以上の結果より、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。