

冷間多軸鍛造マグネシウム合金の 組織と特性

三浦博己¹⁾ 小林正和²⁾

1. 緒言

近年、金属・合金の結晶粒超微細化による材質・特性改善に関する研究が注目されている。これは元素添加による固溶強化や析出強化に頼らずに高強度化を図ることを主たる狙いとし、したがって高いバランスで強度と加工性を両立できる可能性を有す。また添加元素を多用しないため、リサイクル性にも優れる。例えばアルミニウム合金では高強度化しつつ延性低下を防ぐことができ、また銅合金においては添加元素の低減は導電率低下を避けることができるため、特に魅力的な手法と期待されている。最近の研究によれば、機械的性質の他、水素貯蔵性、耐食性等、種々の特性改善が見込めることが報告され始めている⁽¹⁾。

結晶粒の超微細化法としては、巨大ひずみ加工 (Severe Plastic Deformation/SPD)法が特に注目を集め、多くの巨大ひずみ加工法が考案されるとともに、数多くの研究がなされている。その中でも、繰り返し重ね接合圧延 (Accumulative Roll-Bonding/ARB)法⁽²⁾、高圧ねじり加工 (High Pressure Torsion/HPT)法⁽³⁾⁽⁴⁾、側方押し出し (Equal Channel Angular Pressing/ECAP)法⁽⁵⁾、多軸鍛造 (Multi-Directional Forging/MDF)法⁽⁶⁾⁽⁷⁾等が、一般的である。これら巨大ひずみ加工法は“形状不変”下での加工を前提としている。

MDF法のプロセス概略図を図1に示す。MDF法は、矩形試験片に所定の加工ひずみを付与し、パス毎に90度ずつ試料を回転させる方法である⁽⁶⁾⁽⁷⁾。MDFは汎用試験機を用いて容易に行うことが可能で、また任意の中断ひずみでの組織観察ができるため、微細粒の発達過程の基礎研究にも適する。動的再結晶を利用した高温MDFおよび降温MDFや、加工組織導入を主目的とした冷間MDF等、適用する素

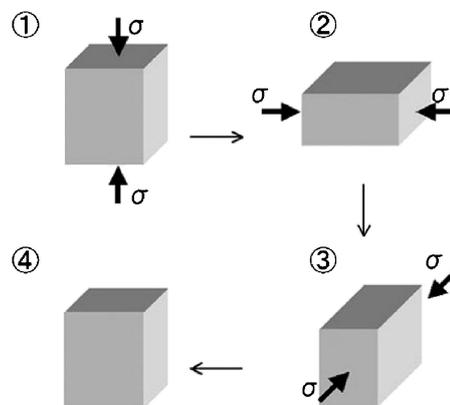


図1 MDF法の概略図。

材毎にプロセスも自由に変化させることができ、したがって難加工性材料にも適用が可能である。

これら種々のSPD法を用いて、実際に平均粒径200 nm前後の超微細粒組織が得られ、優れた特性が明らかにされている⁽¹⁾⁻⁽⁸⁾。

2. MDF法によるMg合金の結晶粒超微細化

(1) 降温多軸鍛造によるMg合金の超微細粒化と高強度化

Mg合金は軽量構造材料として期待されているものの、難加工性材料の一つであり、その加工性の向上と高強度化が望まれていた。Mgの機械的性質は特に結晶粒径に大きく依存することが知られており、結晶粒微細化により室温強度の上昇とともに延性も改善される⁽⁶⁾。MDFによる結晶粒微細化では、基本的に化学組成や集合組織を変える必要が無く、したがって強度増加に伴う延性や靱性の低下は小さい。Miura

* 豊橋技術科学大学機械工学系；1)教授，2)准教授(〒441-8580 豊橋市天伯町雲雀ヶ丘1-1)
Microstructure and Properties of Room-temperature MDFed Mg Alloys; Hiromi Miura and Masakazu Kobayashi (Department of Mechanical Engineering, Toyohashi University of Technology, Toyohashi)
Keywords: Mg alloy, MDF, twin, ultrafine grain, severe plastic deformation, texture, strength
2014年10月23日受理 [doi:10.2320/materia.54.105]

et al. は、動的再結晶を利用した降温 MDF 法により、AZ61Mg 合金の結晶粒超微細化を試み、強度・延性が大きく改善されることを報告した⁽⁶⁾。本稿では、より高い強度が期待できる AZ80Mg 合金(以下 AZ80Mg)を MDF 加工した結果を紹介する。

(a) 降温 MDF 材の微視組織と機械的性質の変化

初期粒径 $19\ \mu\text{m}$ 、 $15.0 \times 22.2 \times 33.3\ \text{mm}^3$ (軸比 1.00 : 1.49 : 2.22) の矩形形状 AZ80Mg 試料に、初期ひずみ速度 $3.0 \times 10^{-3}\ \text{s}^{-1}$ で降温 MDF を施した。鍛造パス間ひずみを $\Delta\epsilon = 0.8$ とし、温度 623 K ~ 393 K まで鍛造パス毎に逐次降温しながら降温 MDF を行った。粗大粒組織からなる AZ80Mg を 1 パス目から低い温度で鍛造を行うと、試料が破壊してしまう。そのため、各パス毎の鍛造温度は、降温 MDF 中の各鍛造パスで組織が動的再結晶により最も均一・微細になる温度として、あらかじめ調査して決定された⁽⁶⁾⁽⁸⁾。すなわち、各 MDF 温度での鍛造中に動的再結晶による結晶粒組織の微細化が起こり、その結果徐々に鍛造温度を下げることを可能とし⁽⁶⁾⁽⁸⁾、最終的に 393 K でパス間ひずみ 0.8 での鍛造加工が可能となった。累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon = 4.8$, 7.2 まで行って得られた降温 MDF 材の透過型電子顕微鏡 (TEM) 写真を図 2 に示す。累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon = 4.8$, 7.2 で、それぞれ平均結晶粒径 $0.30\ \mu\text{m}$ と $0.26\ \mu\text{m}$ が達成された。MDF 温度の低下とともに転位密度が増加し、またわずかだが析出物も増える傾向が見て取れる。

図 3 に MDF 温度と平均結晶粒径の関係をまとめた結果を示す。MDF 温度の低下とともに平均粒径も小さくなり、最終的に $D = 0.26\ \mu\text{m}$ が得られた。降温 MDF 温度低下に伴い、動的析出や回復の遅れが発生する(図 2)。そのため、鍛造温度低下は結晶粒微細化の他に、析出強化と加工硬化が MDF 材の室温の強度をさらに上昇させる効果をもたらす。実際、累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon = 7.2$ での硬さ (Hv) は約 1.1 GPa と極めて高くなった。しかし、図 3 はより高累積ひずみまで MDF を施しても、さらなる結晶粒径の低下には限界があることも示唆する。実際には、さらなる低温側での MDF は割れの発生により困難であった。

AZ80Mg の降温 MDF 材の室温での引張試験結果を図 4 に示した。初期材 ($\Sigma\Delta\epsilon = 0$ /熱間押出材) の降伏強度は約 200

MPa 程度で塑性伸びが 18% 程度と大きい。降温 MDF の累積ひずみ増加とともに降伏強度、最大引張強度ともに徐々に増加し、累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon = 4.8$ 以上でそれぞれ 420 MPa と 500 MPa が達成された。ただし塑性伸びは約 5% まで低下

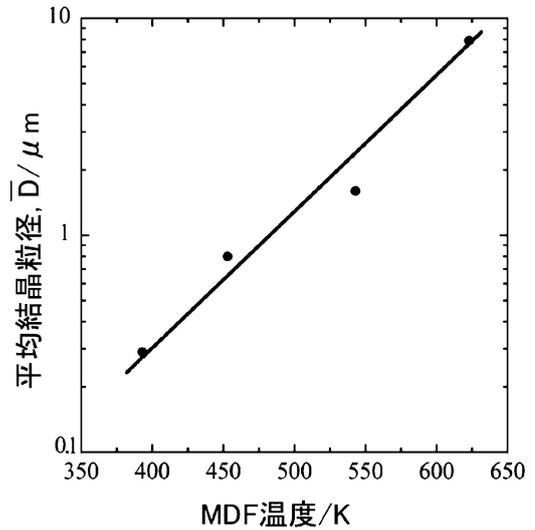


図 3 AZ80Mg の MDF 温度と結晶粒径の関係。

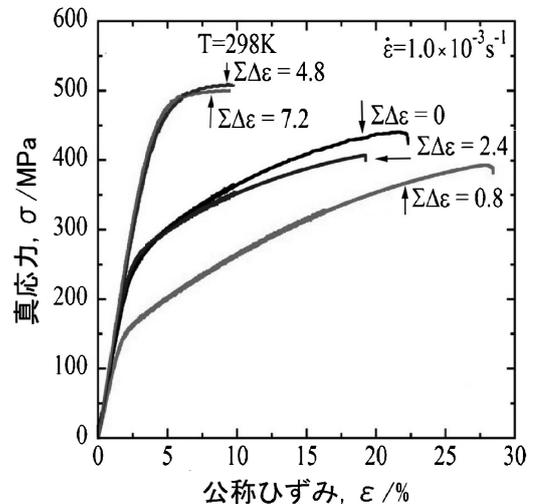


図 4 AZ80Mg の降温 MDF 材の引張試験結果。

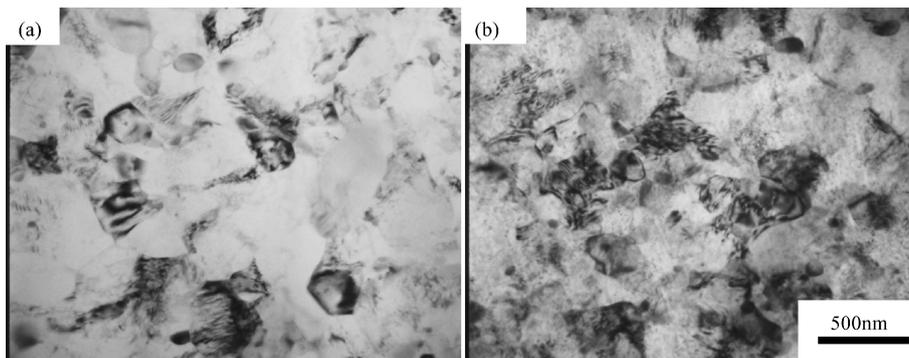


図 2 AZ80Mg の降温 MDF 材の TEM 写真例 : (a) $\Sigma\Delta\epsilon = 4.8$, (b) $\Sigma\Delta\epsilon = 7.2$.

した。降温 MDF 中、低累積ひずみ域では強度が一旦低下するが、これは熱間押出材中の集合組織の破壊による結果である。この結果は、Mg の強化には集合組織形成が極めて有効であることを示しており、興味深い。相当ひずみで4.8以上の巨大ひずみ加工を受けた AZ80Mg が5%もの塑性伸びを有するのは、主として集合組織の破壊による結晶粒方位のランダム化と室温粒界すべりの結果と推察される。

一般的に Mg 合金は回復と軟化が起りやすく、393 K でもその影響は避けられない。そのため、これらが最終的な硬さや引張強度の低下をもたらす、超微細粒材であるにもかかわらず、降伏強度が420 MPa 程度にとどまったと考えられる。

(b) AZ80Mg の降温 MDF のまとめ

(1) AZ80Mg 合金に動的再結晶を利用した降温 MDF を適用し、初期粒径 19 μm から累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon=7.2$ で平均結晶粒径 0.26 μm を達成した。その時の Vickers 硬さは約 1.1 GPa で、最大引張強度は 500 MPa であった。

(2) 結晶粒超微細化により塑性加工性が大幅に改善され、温間域 393 K でパス間ひずみ0.8の鍛造が可能となった。

(2) 冷間 MDF と AZ80Mg への適用

上述の通り、降温 MDF は熱間・温間鍛造中に起こる回復による軟化が避けられず、最大引張強度は 500 MPa 以上が達成されるものの、降伏強度は 400 MPa 前後とやや低くなる弱点があった。実際、降温 MDF 材の10%程度の冷間圧延により、引張強度は 50 MPa~100 MPa 上昇した⁽⁶⁾。この回復軟化の問題点を克服するために考案されたのが冷間 MDF である。Mg 合金は、冷間塑性加工性が極めて低い。しかし冷間 MDF では、小さなパス間ひずみの採用により、室温で累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon=2.0$ 以上の大ひずみ加工を可能とした⁽⁷⁾⁽⁹⁾。

平均粒径約 20 μm の AZ80Mg 合金熱間押出材をスタート材とし、 $22.2 \times 21.2 \times 20.0 \text{ mm}^3$ の矩形試験片を切り出し、これに初期ひずみ速度 $\dot{\epsilon}=3.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 、パス間ひずみ $\Delta\epsilon=0.1$ の条件で、最大累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon=2.0$ (20パス)まで室温で MDF を行った。

(a) 真応力-累積ひずみ曲線と硬さ変化

MDF を行った際の、真応力-累積ひずみ曲線を図5に示した。クラック等が発生することなく、累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon=2.0$ までの大ひずみ加工ができた。累積ひずみの増加に伴い、加工硬化と結晶粒超微細化によって、低累積ひずみ域では急激に、中・高累積ひずみ域では徐々に変形抵抗が増大し、最終的には 450 MPa 前後に達した。この値は、非底面すべりや圧縮双晶の活動のための臨界応力、それぞれ数十 MPa、114 MPa よりはるかに高い⁽⁷⁾⁽⁹⁾。3パス周期の鍛造応力の振動が現れるが、これは初期集合組織の影響である。MDF 中の高い負荷応力は、活発な室温での多重すべりの発生と高密度な圧縮・引張変形双晶の発達を促進し(後述図7)、その結果、Mg 合金の塑性変形を容易にするだけでなく、同時に大きな加工硬化をもたらした。さらに、多重双晶発生によ

る組織分割と結晶粒超微細化が起り、これも強度上昇に寄与した。図5で高累積ひずみ域での変形抵抗増加が緩やかとなったのは、これら因子がほぼ飽和状態に達したためと考えられる。室温硬さもほぼ同様の増加傾向を示し、低累積ひずみ域では急激に、中・高累積ひずみ域では徐々に上昇した(図6)。そして、超々ジュラルミンの硬さに匹敵する 1.26 GPa が達成された。

(b) 冷間 MDF 材の組織変化

AZ80Mg 冷間 MDF 材の微視組織の一例として、累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon=0.2, 2.0$ の TEM 写真を図7に示す。鍛造2パス目で幅 1 μm 以下の細長い変形双晶が高密度に、しかも複雑に交差して発達していることが分かる(図7(a))。累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon=2.0$ では、さらに細い数百 nm 以下の変形双晶が互いに切断し合い、最終的に平均粒径約 0.3 μm が達成された。図7(a)では主として $\{10\bar{1}2\}\{10\bar{1}2\}$ 双晶、 $\{10\bar{1}1\}\{10\bar{1}1\}$ 双晶の様々なバリエーションの組み合わせの多重双晶が確認され

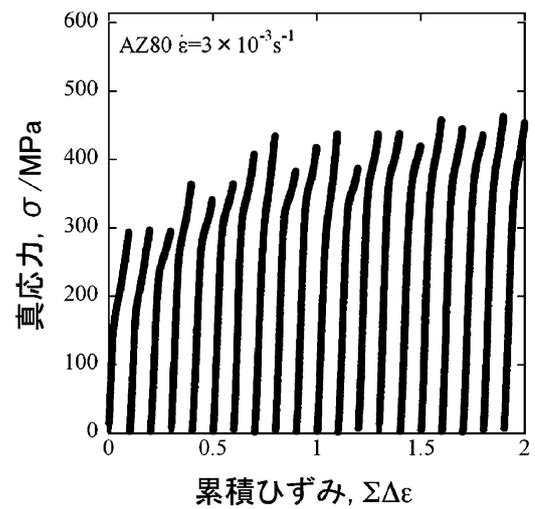


図5 MDF中の真応力-累積ひずみ曲線⁽⁷⁾。

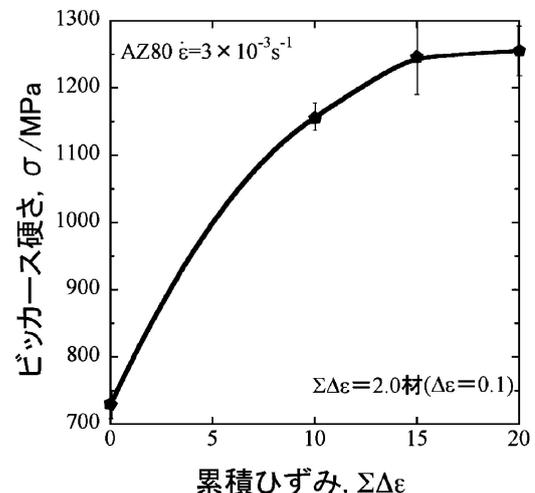


図6 累積ひずみと硬さの関係⁽⁷⁾。

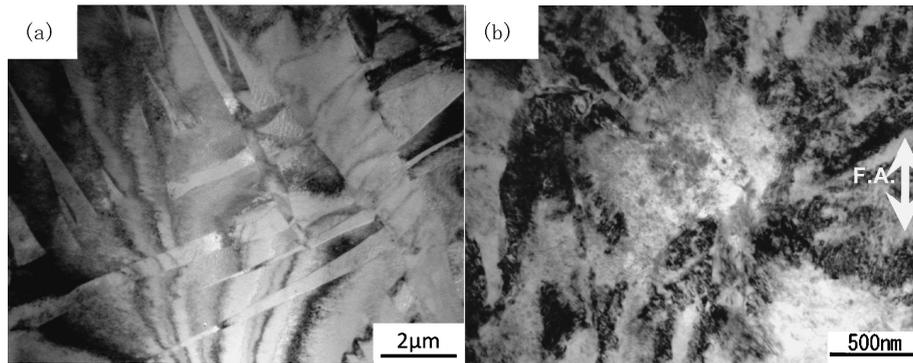


図7 AZ80Mg-MDF 材の TEM 写真: $\Sigma\Delta\varepsilon=0.2$, (b) $\Sigma\Delta\varepsilon=2.0$. F.A. は最終鍛造方向⁽⁷⁾.

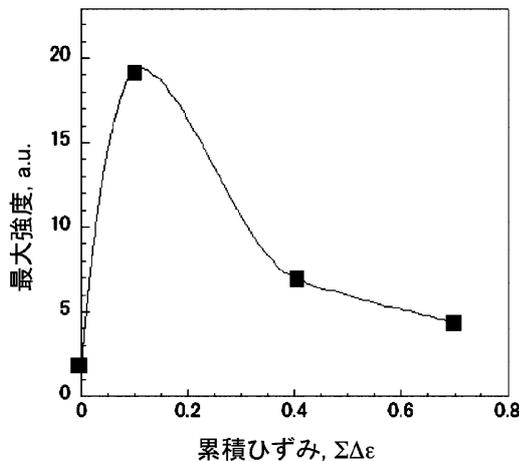


図8 MDF 中の累積ひずみ増加に伴う底面集合組織の強度変化. 全て同一面を分析.

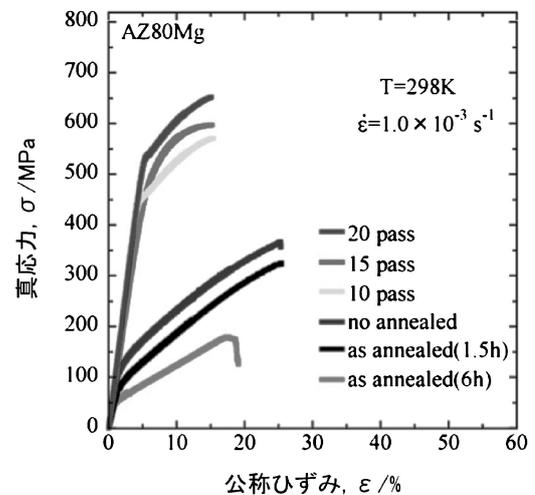


図9 MDF 材の引張試験によって得られた応力-ひずみ曲線.

た. Mg 合金中での多重双晶の発生は破壊をもたらす, という説が数多く発表されている⁽¹⁰⁾. しかし, 図5, 7の結果はこれを強く否定する. すなわち, 高密度の変形双晶の発達や多重双晶そのものがき裂発生や破壊をもたらすのではなく, き裂発生付近での局所的応力集中が高密度の変形双晶や多重双晶の発達をもたらしているのである.

冷間 MDF 中の底面集合組織の発達を結晶方位分散分析装置(OIM)により観察し, その最大強度の変化をまとめた結果を図8に示した. 全て同一鍛造面での測定結果である. 1パス目の鍛造により底面集合組織は急増するものの, その後, 鍛造パスの増加に伴い, 集合組織強度が徐々に低下していることがわかる. これは, 変形双晶の高密度発生によるものと考えられる(図7). すなわち, 母相と大きく方位の異なる変形双晶の高密度発達によって結晶方位のランダム化が起こり, さらに小さなパス間ひずみの採用と3軸方向からの鍛造により, 底面集合組織の再発達が抑制された⁽⁷⁾.

(c) 冷間 MDF 材の引張試験結果

AZ80Mg の MDF 材を引張試験し, その真応力-公称ひずみ曲線を図9に示す. 累積ひずみ増加に伴い降伏応力と最大引張応力は増大し, 20 pass ($\Sigma\Delta\varepsilon=2.0$) 材ではそれぞれ 530

MPa, 650 MPa が達成された. 注目すべきは, 室温での大ひずみ加工後にもかかわらず, 約10%の塑性伸びを達成している点である. これは, パス間ひずみを $\Delta\varepsilon=0.1$ としたことにより, 底面集合組織の発達の抑止と結晶粒の超微細化の効果である⁽⁷⁾⁽⁹⁾. すなわち, 高い引張応力と結晶方位のランダム化により, 多重すべりが容易に起こり, その結果として塑性伸びが大きくなったと考えられる.

図4のAZ80Mg 降温 MDF 材の結果と比較して, 降伏強度, 最大引張応力, 伸びの全てで冷間 MDF 材の方が高くなり, 機械的性質がさらに改善されたことがわかる.

(d) 冷間 MDF の大型材への適用

工業的実用化を考慮し, 大型材(150 × 150 × 150 mm³ 前後)に冷間 MDF を適用した(図10). しかし引張強度は 560 MPa 程度, 塑性伸び数%で, 小型試料に比べて機械的性質は大幅に低い結果となった(図11). これは大型熱間押出材に含まれる各種欠陥や組織不均一性に起因するものと判断された. 作製された大型 MDF 材は切削加工され, 各種機械のパーツとして利用され始めている.

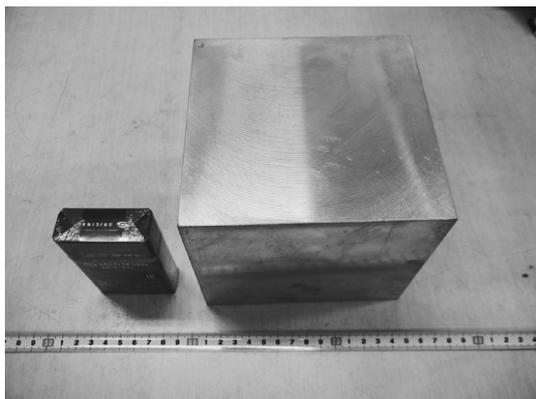


図10 冷間 MDF 材の大型試料。MDF は川本重工株式会社による。

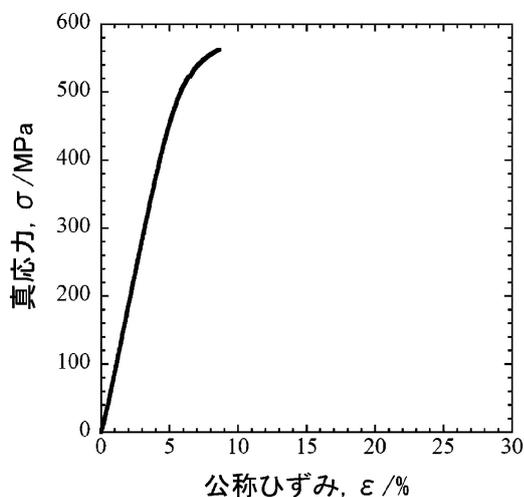


図11 大型 AZ80Mg-MDF 材の引張試験結果。初期ひずみ速度は $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 。

(e) AZ80Mg 合金の冷間 MDF のまとめ

(1) パス間ひずみ $\Delta\epsilon = 0.1$ は集合組織の発達を抑制し、その結果、累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon = 2.0$ までの室温大ひずみ加工が可能となった。

(2) 累積ひずみの増加とともに、降伏強度と最大引張強度は増大し、累積ひずみ $\Sigma\Delta\epsilon = 2.0$ で降伏強度 530 MPa, 最大引張強度 650 MPa が達成された。また、その場合でも約 10% の塑性伸びが確保された。

(3) 冷間 MDF 材の優れた機械的性質は、室温多重すべりによる大きな加工硬化、多重双晶の高密度発達による結晶粒の超微細化、集合組織の破壊による結晶方位のランダム化、によってもたらされた。

3. ま と め

降温多軸鍛造 (降温 MDF) と冷間 MDF による Mg 合金の結晶粒微細化機構は異なる。前者は動的再結晶を、後者は変形双晶による結晶粒微細化機構を主とする。得られる組織と

特性も同様に大きく異なる。加工硬化も効果的に取り入れることが可能な冷間 MDF でより高い強度が得られるが、延性は降温 MDF とほぼ同等と見なされた。この機械的性質の差異は、室温での変形機構が異なることが影響していると考えられる。すなわち、降温 MDF 材では室温粒界すべりの寄与が大きく、一方、冷間 MDF 材では、ランダムな結晶方位と高い変形抵抗が、多重すべりと結晶粒の塑性変形をもたらした、と推察された。冷間 MDF 材の大型化は可能であるが、サイズ効果等により強度が低くなる傾向がある。

本研究は、軽金属奨学会および文部科学省科学研究費新学術領域研究「バルクナノマテリアル」課題番号22102004の研究費支援によって行われました。ここに記し感謝申し上げます。

文 献

- (1) Z. Horita (ed.): *Nanomaterials by severe plastic deformation*, Mater. Sci. Forum, **503–504** (2006), Trans Tech Publications.
- (2) N. Tsuji, Y. Ito and Y. Saito, Y. Minamino: *Scripta Mater.*, **47** (2002), 893–899.
- (3) R. Z. Valiev, M. Yu. M. Elena, V. Bobruk and G. I. Raab: *Mater. Trans.*, **50** (2009), 87–91.
- (4) 赤間大地, 李 昇原, 堀田善治, 松田健二, 廣澤渉一: *軽金属*, **62** (2012), 448–453.
- (5) M. Kai, Z. Horita and T. G. Langdon: *Mater. Sci. Eng. A*, **488** (2008), 117–124.
- (6) H. Miura, G. Yu and X. Yang: *Mater. Sci. Eng. A*, **528** (2011), 6981–6992.
- (7) H. Miura and W. Nakamura: *Philos. Mag. Lett.*, **93** (2013), 601–607.
- (8) J. Xing, H. Soda, X. Yang, H. Miura and T. Sakai: *Mater. Trans.*, **46** (2005), 1646–1650.
- (9) H. Miura, T. Maruoka, X. Yang and J. J. Jonas: *Scripta Mater.*, **66** (2012), 49–51.
- (10) I. J. Beyerlein, J. Wang, M. R. Barnett and C. N. Tomé: *Proc. R. Soc. A*, February (2012), 1–21.

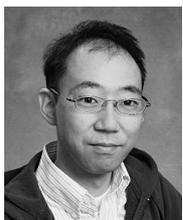
★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★

三浦博己
 1989年3月 東京工業大学大学院総理工博士課程中退
 同年4月 電気通信大学電気通信学部機械工学科助手
 1997年4月 同 助教授
 2014年2月 豊橋技術科学大学教授 (現職)
 専門分野: 材料工学
 ©金属材料の加工熱処理による組織と特性制御に関する研究を中心に活動。
 特に近年は超微細粒材料の実用化に重点を置く。

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★



三浦博己



小林正和