

# 降温中多軸鍛造による超微細粒マグネシウム合金の創製

電気通信大学知能機械工学科

助教 楊 統躍

院生 邢 劼 教授 酒井 拓

(平成17年度研究開発助成 AF-2005006)

キーワード：多軸鍛造、結晶粒微細化、大ひずみ加工

## 1. 研究の目的と背景

マグネシウム(Mg)合金は実用金属中密度が最も小さく、比強度、電磁遮蔽能、切削性、リサイクル性などに優れた利点を有する<sup>1)</sup>。Mg製品の大部分はこれまでダイカスト鑄造法やチクソモールド法で製造されているが、2次成形加工技術の向上と共に展伸材の需要が近年急速に拡大している。Mg合金は六方晶(hcp)格子に起因して常温付近では低延性であり、一般には塑性加工性の悪い難加工性材料に分類される<sup>2)</sup>。難加工性の問題を解決するには、結晶粒微細化による機械的特性の改善と同時に超塑性による加工性の向上が有効であると考えられる<sup>3)</sup>。

本研究は、Mg合金の塑性加工性改善を目的として、微細粒組織の生成とそのための最適加工熱処理プロセスを検討することを目的として行った。そのために、加工毎に温度を熱間から温間まで順次減少させて圧縮する降温中多軸鍛造をMg合金AZ31に施した。その際の変形に伴う微細粒組織の生成過程を明らかにすること、並びに結晶粒微細化による機械的性質の改善効果を調査した。

## 2. 実験方法

試供材は市販Mg合金AZ31の押し出し丸棒材であり、その化学組成は質量%で、Al: 2.68, Zn: 0.75, Mn: 0.68, Cu: 0.001, Si: 0.003, Fe: 0.003で残りはMgである。これより高さ31mm、縦21mm、横14mm(軸比2.22:1.49:1)の直方体状の試験片を、その長手方向が押し出し方向に平行するように切出した。その後773Kで7.2ks焼なまし処理後炉冷して、平均粒径約22.3 $\mu\text{m}$ の等軸状結晶粒組織に調整した。多軸鍛造(Multidirectional Forging, MDF)とは、加工毎に荷重付加方向を90°変えながら加工ひずみ $\Delta\epsilon=0.8$ を繰返し加えるものである(Fig.1(a))。最大軸比方向に $\Delta\epsilon$ 一定の圧縮を施せば、試験片寸法比は常に保たれ、繰返し圧縮が無制限可能になる<sup>4)</sup>。

真ひずみ速度を一定に制御できる高温圧縮試験機には、変形後1.5s以内に試験片を摘出水冷できる工具と約 $10^{-1}\text{Pa}$ の真空度を保つ管状ベッセル内が装備された<sup>5)</sup>。変形温度を623Kから逐次降温させて10分間保持後、真ひずみ速度 $3\times 10^{-3}\text{s}^{-1}$ にて $\Delta\epsilon=0.8$ の圧縮を施し、変形後水冷した(Fig.1)。加工後の試験片に現れた若干のゆがみは、エメリー紙で研磨除去し、直方体状を常に保つようにした。試験片の最終

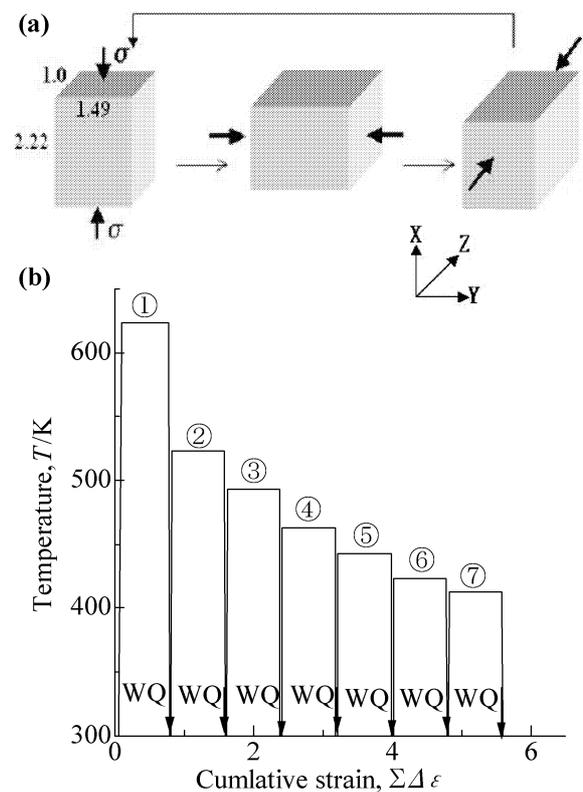


Fig.1 Schematic illustration of thermo-mechanical processing by using (a) multi-directional forging (MDF) under (b) decreasing temperature conditions. WQ indicates water quenching.

圧縮軸に平行な縦断面に対して、室温でビッカース硬さの測定並びに光学顕微鏡と透過型電子顕微鏡(TEM)による微視組織観察を行った。加速電圧は200kVであった。

高ひずみのMDF加工材の均一変形部分から平行部寸法幅3mm、長さ6mm、厚さ0.7mmを有する引張試験片を放電ワイヤカットを用いて切出した。試験片の表面はMDF材の最終圧縮軸(CA)と平行し、したがって引張軸(TA)はCAと直交した。高温引張試験には、約 $10^{-3}\text{Pa}$ の真空中で変形後瞬間的に水素ガスを噴射させ冷却できる自家製のインストロン型試験機を用いた<sup>6)</sup>。試験温度は室温並びに

373K~473K, 初期ひずみ速度  $8.3 \times 10^{-6} \sim 8.3 \times 10^{-3} s^{-1}$  の範囲で系統的に引張試験を行った。

### 3. 実験結果及び考察

#### 3.1 応力—ひずみ曲線

##### (1) 単軸圧縮中の応力—ひずみ曲線

真ひずみ速度  $3 \times 10^{-3} s^{-1}$  におけるの単軸圧縮変形で得られる真応力—真ひずみ ( $\sigma$ - $\epsilon$ ) 曲線に及ぼす試験温度の影響を Fig.2 に示す。573K 以上の高温域の  $\sigma$ - $\epsilon$  曲線は比較的lowひずみ域で滑らかなピークを示し、その後加工軟化しながら高ひずみ域で変形応力がほぼ一定となる定常状態変形を示す。この変形挙動は、動的再結晶を起こす立方晶金属で現れる典型的挙動と類似する<sup>7)</sup>。これに対して、523K 以下の低温域では降伏直後に 2 段階の加工硬化を経て鋭い応力ピークに達し、その後大きく加工軟化しながら高ひずみ域では同じく定常状態変形が現れている。473K の  $\sigma$ - $\epsilon$  曲線では、急激な加工硬化後、ひずみ約 0.2 で鋭い応力ピークの直後に脆性的破壊を起こしている。

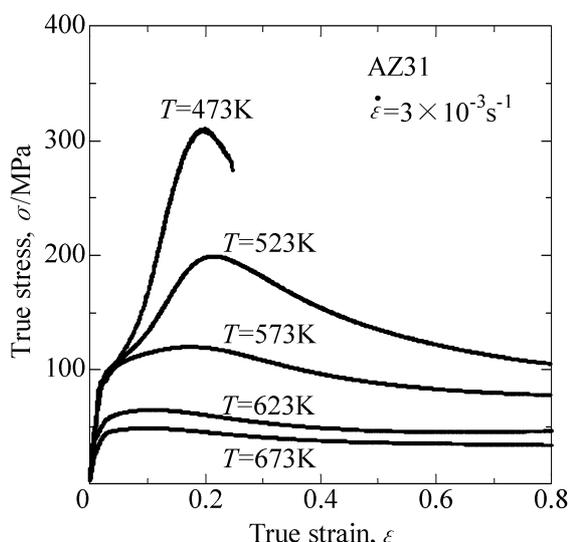


Fig.2 True stress-true strain curves of AZ31 alloy during single pass compression at a strain rate of  $3 \times 10^{-3} s^{-1}$  and at various temperatures.

##### (2) 降温多軸鍛造中の応力—ひずみ曲線

623K から逐次降温させながら  $3 \times 10^{-3} s^{-1}$  で多軸鍛造を行った際の真応力—累積ひずみ ( $\sigma$ - $\Sigma \Delta \epsilon$ ) 曲線を Fig.3 に示す。降温多軸鍛造中の  $\sigma$ - $\Sigma \Delta \epsilon$  曲線では、変形初期に現れる応力ピーク後の加工軟化量が温度の低下に伴い次第に減少し、493K 以下では無視できる程小となり、変形初期から応力がほぼ一定の定常状態変形が現われる。定常状態変形は変形中に起こる加工硬化を相殺するように動的回復が頻繁に働く結果現れると一般に考えられている<sup>8)</sup>。

一方、焼きなまし材の 473K における単軸加工では、低ひずみで急激な加工硬化後  $\epsilon \approx 0.2$  で 300MPa を超える応力ピークを生じた直後に脆性破壊を起こしている (Fig.2)。これに対し、多軸鍛造下の 473K における変形曲線では累積ひずみ 3.2 の強ひずみ加工でも

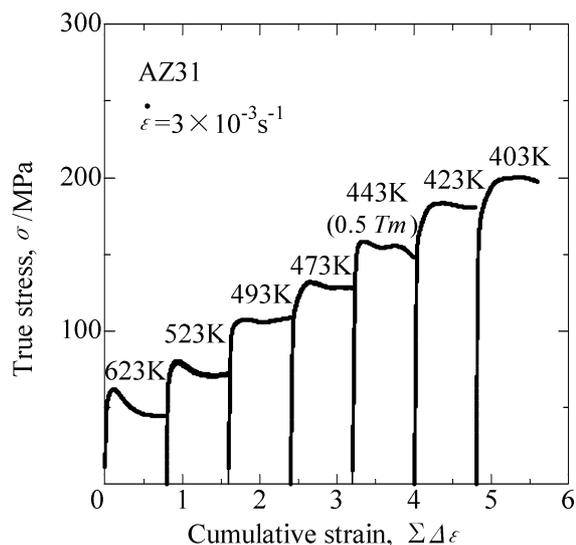


Fig.3 Typical true stress-true strain curves of Mg alloy AZ31 during MDF at a strain rate of  $3 \times 10^{-3} s^{-1}$  under decreasing temperature conditions from 623K to 403K.

破壊せず、またその変形応力約 128MPa は単軸圧縮の値の約 1/3 に減少している。これは極めて興味深く重要な結果と考えられる。さらに温度を下げて行くと、 $0.5T_m (\approx 443K, T_m$  は融点) 以下である 403K でも累積ひずみ 5.6 までの圧縮加工が可能であることが分かる。

#### 3.2 多軸鍛造に伴う微視的組織変化

##### (1) 光学顕微鏡組織

623K から温度を連続的に低下させながら多軸鍛造した材料中に生じる代表的微視的組織を Fig.4 に示す。滑らかな境界からなるほぼ等軸状の初期粒組織は、温度の低下並びに累積ひずみの増加に伴い顕著に微細粒化している。加工前の平均結晶粒径  $22.3 \mu m$  は MDF と共に約  $6.7 \mu m$  (Fig.4(a)), 約  $3.8 \mu m$  (Fig.4(b)), 約  $1.3 \mu m$  (Fig.4(c))まで細粒化された。第 5 段階圧縮変形後の結晶粒径は微細粒化過ぎて光学顕微鏡では測定不可能であった (Fig.4(d))。

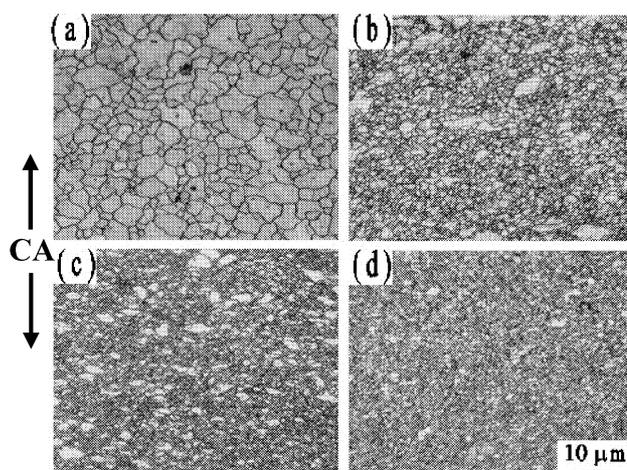


Fig.4 Optical microstructures evolved during MDF under decreasing temperature condition in Mg alloy AZ31. (a)  $T=623K, \Sigma \Delta \epsilon=0.8$ , (b)  $T=523K, \Sigma \Delta \epsilon=1.6$ , (c)  $T=493K, \Sigma \Delta \epsilon=2.4$ , and (d)  $T=443K, \Sigma \Delta \epsilon=4.0$ .

ところで、Mg 合金 AZ31 の高温圧縮変形に伴う微細粒組織の形成過程は、楊ら<sup>9,10)</sup>によってほぼ調査解明されている。それを要約すると、変形と共に初期結晶粒が頻繁に生じるキンク帯によって分割され、高ひずみ域でその分割領域がその場で新粒組織に変化するといいうゆる連続的動的再結晶が Mg 合金では起こり、新粒の核生成と成長からなる通常の不連続的動的再結晶とは異なることを報告している。また、Mg 合金の hcp 構造の底面と圧縮軸がほぼ平行関係にある際に、キンク帯はその垂直方向に頻繁に発生する<sup>10)</sup>。一方、今回と同じく加工方向にはほぼ平行する初期の hcp 底面は圧縮変形に伴い圧縮軸方向と直交するまで回転する。その結果、キンク帯の生成頻度は変形と共に減少するため、変形誘起による新粒組織の完全な生成は高ひずみ域では困難になると考えられる(Fig.4(b),(c)参照)。

これに対して降温中多軸鍛造では、多軸加工に伴って微細粒化の進展と共に hcp 底面が絶えず変化する結果、キンク帯は種々の方向に互いに交差するように生成し、元の結晶粒がそれによって微細かつ均一に分割されることになる。その結果、低温度かつ大ひずみ域まで多軸多段階圧縮を繰返すことによって、より微細粒からなる等軸状結晶粒組織がほぼ均一に生じると考えられる(Fig.4(d))。降温中多軸鍛造後の 473K の変形応力が焼なまし材の値の約 1/3 まで減少するのは、集合組織の変化<sup>10)</sup>に加えて結晶粒径の減少に伴い塑性変形に及ぼす粒界すべりの寄与が増大することが考えられる<sup>11)</sup>。

## (2) 電子顕微鏡組織

403K で  $\Sigma\epsilon=5.4$  の第 7 段階加工後に生じる TEM 組織とそれに対する制限視野電子回折パターンを Fig.5 に示す。制限視野回折像におけるストリーク状の回折斑点から低温度大ひずみ加工によって生じた組織には大きな内部応力が残っていることが示唆される<sup>12)</sup>。回折パターンはほぼ均一な連続したリング状を示しており、これらの変形組織の大部分は大角度粒界を有する微細粒から構成されていることが分かる。この第 7 段階まで MDF 加工した後の平均粒径は約 0.23 $\mu\text{m}$  であった。

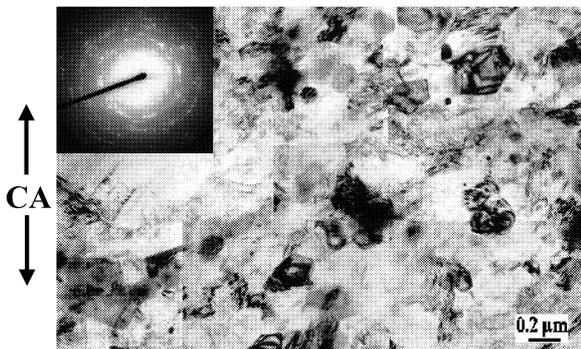


Fig.5 Typical TEM microstructure and the diffraction pattern of Mg alloy AZ31 developed during MDF at  $T=403\text{K}$  and  $\Sigma\Delta\epsilon=5.6$ .

降温中 MDF 加工で生じる結晶粒径と加工温度との関係を実線で、また累積ひずみと温度との関係を破線で Fig.6 に示す。加工温度の低下に伴って加工誘起の平均結晶粒径は顕著な減少を示す。Fig.6 より、任意の結晶粒径を有する

Mg 合金の製造条件並びにその定量的制御が可能であることが分かる。

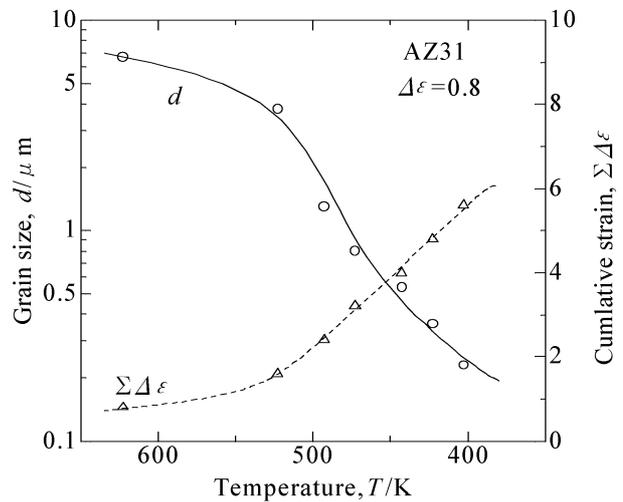


Fig.6 Changes in average grain size with deformation temperature during MDF of Mg alloy AZ31.  $\Sigma\Delta\epsilon$  indicates the accumulated strain applied.

## 3.3 多軸鍛造後の温間域引張変形挙動

焼なまし材( $d=22.3\mu\text{m}$ )と加工誘起超微細粒材( $d=0.36\mu\text{m}$ )を用いて、423K、 $8.3\times 10^{-3}\text{s}^{-1}\sim 8.3\times 10^{-6}\text{s}^{-1}$ のひずみ速度範囲で引張試験を行った。それらの $\sigma$ - $\epsilon$ 曲線を破線と実線で Fig.8 に示す。焼なまし材における変形応力のひずみ速度依存性は比較的大きいが、全伸びのそれはほとんど認められない。これに対して、超微細粒材料の $\sigma$ - $\epsilon$ 曲線(実線)は焼なまし材のそれに比べて低応力側で現われており、ひずみ速度の減少と共に変形応力が減少し、同時に破断までの全伸びが著しく増加している。 $8.3\times 10^{-5}\text{s}^{-1}$ で全伸びは 250%を超え、 $8.3\times 10^{-6}\text{s}^{-1}$ で 300%を超えている。降温中 MDF 加工による細粒化によって塑性加工性の顕著な改善効果が示された。さらに、この加工誘起超微細粒材は 423K で全伸びが 370%を超える超塑性変形挙動を示した<sup>13)</sup>。この超塑性変形特性については他で詳しく報告している<sup>13)</sup>。

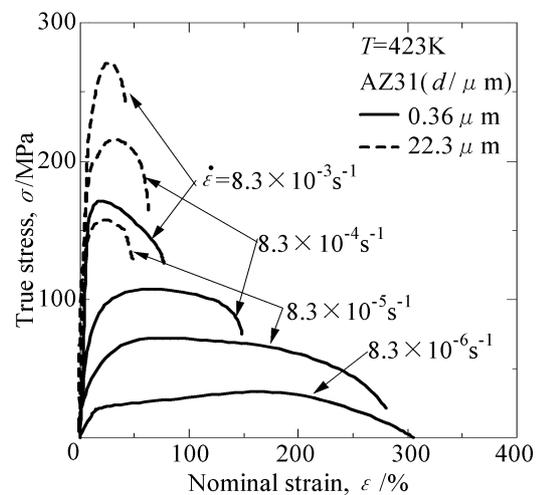


Fig.8 Strain rate dependence of true stress-nominal strain ( $\sigma$ - $\epsilon$ ) curves for Mg alloy AZ31 with the grain sizes of 0.36 $\mu\text{m}$  and 22.3 $\mu\text{m}$ .

### 3.4 室温の降伏強さと硬さの結晶粒径依存性

降温中 MDF 加工を施した微細粒 Mg 合金 AZ31 を用いて引張試験を 298K,  $8.3 \times 10^{-3} \text{s}^{-1}$  で行った. 降伏応力 ( $\sigma_y = \sigma_{0.002}$ ) と平均結晶粒径 ( $d$ ) との関係を室温硬さ (HV(0.3)) と  $d$  の関係と共に Fig.10 にまとめて示す. これより, 加工ひずみを含め初期焼なまし材に対するデータ ((○), (●)) を除けば,  $\sigma_y$  及び HV(0.3) と  $d^{-1/2}$  との間には, ほぼ同じ傾きの直線関係がそれぞれ成立すると見なせる. すなわち, 次式が近似的に成立する.

$$\sigma_y = 80 + 0.21d^{-1/2} \quad (1)$$

$$\text{HV}(0.3) = 500 + 0.23d^{-1/2} \quad (2)$$

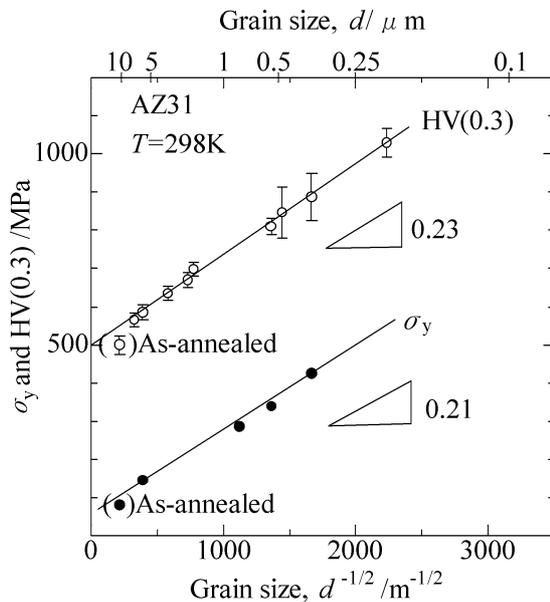


Fig.10 Relationships between yield stress or hardness at 298K and grain size developed during MDF of Mg alloy AZ31.

Fig.10 より, 降温中 MDF 加工で作製した微細粒 Mg 合金においても,  $\sigma_y$  または HV と  $d$  の間に Hall-Petch の関係が成立すると結論される. 今回作製した超微細粒材料で得られる最大の硬さと降伏応力は, 焼なまし材の値のそれぞれ約 2 倍と 4 倍以上に増加しており, 著しい機械的性質の改善効果が示された.

## 4. 結言

市販マグネシウム合金 AZ31 を熱間から温間まで温度を順次降下させながら多軸鍛造加工を施す際の微細粒組織の生成過程ならびに加工後の機械的性質の改善効果を調査した. 得られた主な結果は, 次のようにまとめられる.

- (1) 降温中 MDF 加工によって微細粒組織と集合組織の展開を制御することができた.  $0.5T_m$  以下の 403K で  $\Sigma\Delta\epsilon=5.6$  の大ひずみ加工によって  $0.23\mu\text{m}$  粒径の組織が作製された.
- (2) 降温中 MDF によって作製した超微細粒材は, 423K,

- (3)  $8.3 \times 10^{-6} \text{s}^{-1}$  の引張変形で 300% を超える全伸びを示した. 室温の硬さ及び降伏応力は結晶粒径の減少と共に増加し, その間に Hall-Petch の関係がほぼ成立した.

## 謝辞

本研究の実施にあたり, (財)天田金属加工機械技術振興財団より研究助成を頂きました. ここに感謝致します.

## 参考文献

- 1) B.L.Mordike and T.Ebert: Mater. Sci. Eng. Ser. A **302** (2001), 37-45.
- 2) 千野靖正・馬淵 守: 軽金属, **51** (2001), 498-502.
- 3) 渡辺博行・向井敏司・東 健司: 軽金属, **51** (2001), 503-508.
- 4) J.Xing, H.Soda, X.Yang, H.Miura and T.Sakai: Mater. Trans. JIM **46** (2005), 1646-1650.
- 5) 井上栄治・酒井 拓: 金属誌, **55** (1991), 286-293.
- 6) X.Yang H.Miura and T.Sakai: Mater. Trans. JIM **43** (2002), 2400-2407.
- 7) T.Sakai and J.J.Jonas: Acta Metall. **32** (1984), 189-209.
- 8) T.Sakai and J.J.Jonas: Encyclopedia of Materials: Science and Technology, eds. K.H.J.Buschow et al., Elsevier, Oxford, **7** (2001) 7079-7084.
- 9) 楊 統躍・三浦博己・酒井 拓: 軽金属, **52** (2002), 318-323.
- 10) X.Yang, H.Miura, T.Sakai: Mater. Sci. Forum. **426-432** (2003), 611-616.
- 11) J.Koike, R.Ohyama, T.Kobayashi, M.Suzuki and K.Maruyama: Mater. Trans. JIM **44** (2003), 445-451.
- 12) A.Belyakov, T.Sakai, H.Miura and R.Kaibyshev: Philozophical Magazine Letters, **80** (2000), 711-718.
- 13) 邢 劫・楊 統躍・三浦博己・酒井 拓: 軽金属, **56** (2006) 716-720.