

超塑性変形に付随した集合組織制御による 高信頼性マグネシウム合金の開発

地方独立行政法人大阪市立工業研究所

研究員 渡辺博行

(平成 19 年度奨励研究助成 AF-2007039)

キーワード：超塑性，マグネシウム，集合組織

1. 研究の目的と背景

超軽量構造用部材として期待されるマグネシウム合金を塑性変形により形状付与する場合、最密六方格子構造を有することに起因して高温で成形せざるを得ない。ところで超塑性変形下では低い変形応力で大きな均一伸びが得られることから、種々の合金に対して製品の成形への適用が検討されており、マグネシウム合金では工業的に利用可能な超塑性材料の開発が進んでいる。マグネシウムの場合、塑性加工方法のバリエーションに乏しいことから、超塑性を成形に利用するメリットは他の合金と比較して大きい。調査研究によると、マグネシウム超塑性成形材は、家電・IT 関連製品などにおいてボス・リブなどを有する複雑形状の軽量部材や一体化することで優位になる部位等への適用が期待されている¹⁾。

一般に引張応力成分を有する高温変形においては材料内に空洞が生成・成長するが、これが原因で変形後の延性低下が危惧され、特に超塑性変形の場合に顕著である。従来の研究では空洞成長を抑制することで延性低下の度合いを低減させることが検討されてきた。ところで、著者らは一般的には空洞成長に起因して減少すると認識されている超塑性変形後の室温引張破断伸びが、マグネシウム合金ではむしろ増加する場合があることを指摘している²⁾。このことは、空洞の生成・成長による延性低下を補償する組織変化も超塑性変形中に起こっていることを示唆する。超塑性変形は粒界すべりが主変形機構であるため、超塑性合金の製造時に発達する集合組織が、超塑性変形中に弱まりランダム化する傾向が知られている。マグネシウム合金では、臨界分解せん断応力の非常に小さい底面すべりが起こりにくい集合組織が超塑性合金の製造時に発達するが、超塑性変形中に集合組織がランダム化すれば底面すべりが起こりやすい組織に変化する。底面すべりが起こりやすい組織では室温延性の向上が期待できることが明らかになっている³⁾ため、すべり系の限られるマグネシウム合金では超塑性変形に付随した集合組織のランダム化が室温延性向上を引き出す役割を担えとえられる。この集合組織変化を最大限に有効利用すれば、超塑性変形の後でも高い信頼性(延性)を有する(超塑性変形前よりむしろ超塑性変形後の方が大きな室温延性を示すような)マグネシウム部材を製造できる可能性がある。これは適切な超塑性変

形条件や初期組織の下でのみ達成できると推測される。

図 1 にマグネシウム合金における超塑性変形前後での室温伸びの変化を示す^{4,5,6)}。超塑性変形にともなって延性が低下する場合と向上する場合があるが、特に興味深い点は圧延板材の方が押し丸棒より延性が向上する傾向が顕著なことである。マグネシウム合金の場合、押し丸棒、圧延板材/押し板材いずれも結晶の底面が加工方向に平行に配向する底面集合組織を形成するが、より詳しく表現すると押し丸棒では底面が半径方向に対し垂直に同心円状に配向するように、一方、圧延板材/押し板材では底面が板厚方向に対し垂直に配向するような集合組織が形成される。そして、このような初期集合組織の違いが超塑性変形にともなう集合組織のランダム化の程度ひいては超塑性変形後の延性に影響する可能性がある。しかしこの観点からの研究は世界的にも行われていない。

本研究ではマグネシウム合金展伸板材について、超塑性変形条件および超塑性変形前の集合組織などの因子が超塑性変形後の室温における機械的性質および集合組織変化に及ぼす影響を調査した。

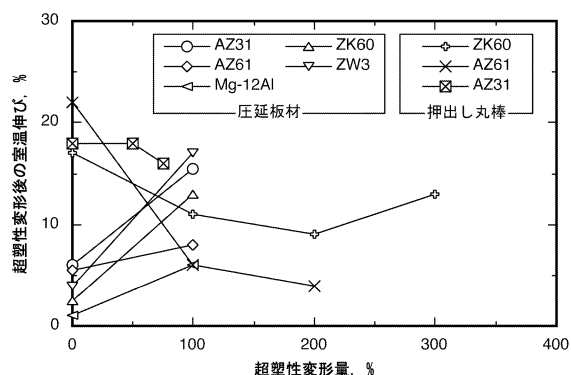


図 1 超塑性変形にともなう室温破断伸びの変化

2. 実験方法

本研究では、押し出しによって結晶粒を微細化することができ、かつ高温で超塑性が発現することがすでに分かっている^{7,8)}Mg-9mass%Al-1mass%Zn (AZ91) 合金を用いた。入手した AZ91 合金鑄造材に対して溶体化処理を行った。その

後、溶体化処理材を丸棒形状および板形状に押し出し加工した。押し出し板材を 548 K において 30 分間焼鈍した後の electron backscattering diffraction (EBSD) により観察したマイクロ組織を図 2 に示す。この焼鈍条件は、後出の高温引張試験の際の昇温条件と同じである。押し出し板材の結晶粒は等軸であり、結晶粒径は約 $5.5 \mu\text{m}$ であった。結晶粒界に解析されていない黒い領域が多く見られるが、光学顕微鏡組織観察の結果、これらは球状析出物に相当することが分かった。

得られた丸棒、および板に関して $548 \text{ K}/1 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ で引張試験をした時の真応力-真ひずみ曲線を図 3 に示す。いずれの材料においても大きな破断伸びが得られており、板材で 330%、丸棒で 870% であった。また、真ひずみ 0.1 での変形応力は両材料とも 10 MPa 以下であり非常に低い値を示した。なお、板材において応力が高くなっているのは、丸棒と比較して結晶粒径が粗大なためである。

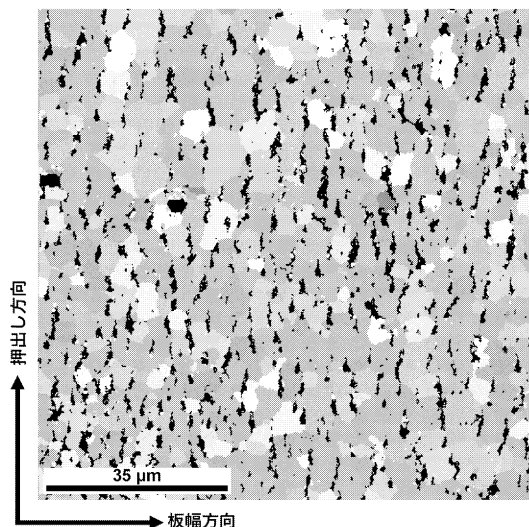


図 2 AZ91 合金押し出し板材マイクロ組織 (548 K/30 分焼鈍後)

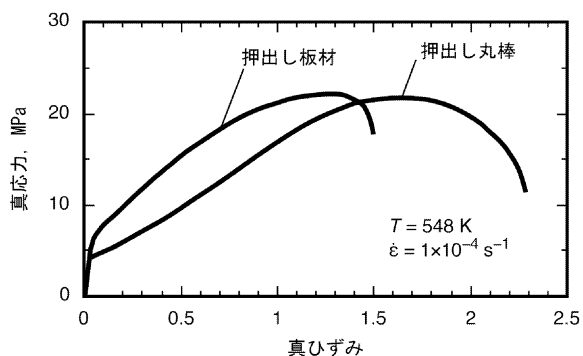


図 3 AZ91 合金押し出し材の $548\text{K}/1 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ における真応力-真ひずみ曲線

押し出し丸棒と押し出し板材の高温引張試験の結果について、剛性率で補正した流動応力 (σ/G) および破断伸びのひずみ速度依存性をそれぞれ図 4 (a) および (b) に示す。流動応力は真ひずみ 0.1 における真応力と定義した。また剛性率は、AZ91 合金で測定された動的かつ非緩和の値を記述する $G [\text{GPa}] = 18.46 - 0.0082T [\text{K}]^9$ により算出した。いずれの材料でもひずみ速度感受性指数 m 値は最大で約 0.5 であり、かつ最大の破断伸びも 300% 以上であることから判断して、超塑性が発現しているといえる。同じ変形条件では、丸棒と比較して板材は高い流動応力を示し、かつ破断伸びは小さかった。これは前述のとおり板材の結晶粒が丸棒よりも粗大であることに起因する。

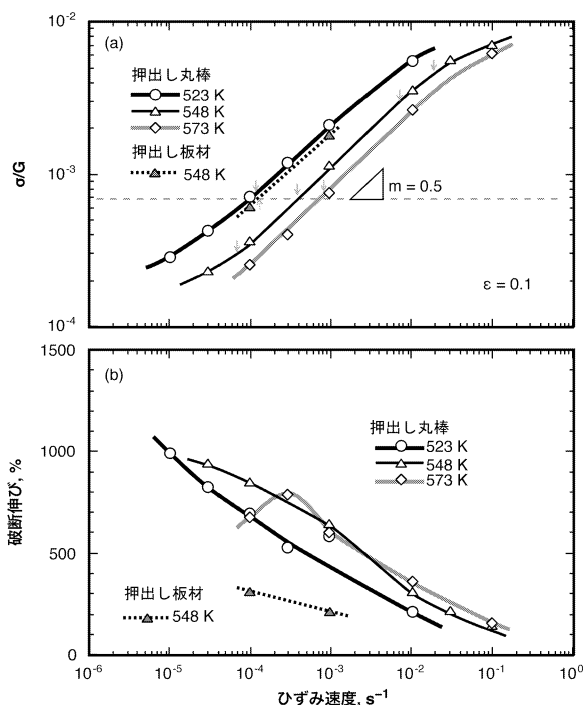


図 4 AZ91 押し出し材の高温変形特性 (a) 流動応力のひずみ速度依存性 (b) 破断伸びのひずみ速度依存性

図 3, 4 のような高温変形特性を示す材料を用いて、高温変形が、その後の室温引張特性に及ぼす影響を調査した。図 4 中の矢印で示した高温変形条件で、試験片に 50% あるいは 75% までの引張り伸びを付与した。超塑性変形前後の室温引張試験は、初期ひずみ速度を $5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ とした。また、9% までのひずみは伸び計で測定した。

以下の 3 つの観点で評価を行った。ひとつめは、丸棒に関して 548 K において 4 種類のひずみ速度 ($7 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$, $4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, $7 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ および $2 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$) で高温変形を付与して、高温変形時のひずみ速度がその後の室温引張特性に及ぼす影響を調査した。図 4 の m 値から判断して、低ひずみ速度側の 3 条件は超塑性発現機構である粒界す

べりが、高ひずみ速度では転位クリープがそれぞれ支配的な変形機構と考えられる領域に属する。ふたつ目の観点として、丸棒について、温度 523 K, 548 K, 573 K において応力レベル σ/G が約 7×10^{-4} となるひずみ速度（図 4 中の破線で、粒界すべりが支配的な変形機構と考えられる領域）で高温変形を付与して、高温変形時の温度がその後の室温引張特性に及ぼす影響を調査した。具体的には、523 K/ $1.1 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, 548 K/ $4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ および 573 K/ $8 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ の 3 条件で高温変形を付与した。最後に、丸棒および板材に関して、温度 548 K において応力レベル σ/G が約 7×10^{-4} となるひずみ速度で高温変形を付与して、丸棒と板材それぞれの形状に由来する集合組織がその後の室温引張特性に及ぼす影響を調査した。このひずみ速度は、丸棒では $4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 、板材では $1.4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ である。

3. 結果および考察

3.1 高温変形時のひずみ速度がその後の室温引張特性に及ぼす影響

押出し丸棒について、548 K での変形時のひずみ速度の違いがその後の室温引張特性に及ぼす影響を調べるために、4つの異なるひずみ速度で高温変形を付与した後、室温引張試験を行った。図 5 に加工履歴にともなう 0.2% 耐力と破断伸びの変化を示す。粒界すべりが支配的な変形機構と考えられるひずみ速度（低ひずみ速度側の 3 条件）で高温変形を付与した場合、変形量の増加にともなって耐力が低下した。また、ひずみ速度が遅いほど低下の程度が大きかった。一方、転位クリープが支配的な変形機構であると考えられる最も速いひずみ速度で高温変形を付与した場合、低ひずみ速度域での傾向とは対照的に、変形量の増加とともに耐力は増加した。

破断伸びは、高温変形を与えた後ではどの高温変形時のひずみ速度でも低下した。ただし、高温変形の際のひずみ速度が遅いほど、破断伸びは低下する傾向であった。

3.2 高温変形時の変形温度がその後の室温引張特性に及ぼす影響

押出し丸棒について変形温度の違いがその後の室温引張特性に及ぼす影響を調べるために、異なる変形温度ながら応力レベルが同程度 ($\sigma/G \approx 7 \times 10^{-4}$) になるひずみ速度を選択して高温変形を付与した。この後、室温引張試験を行った。図 6 に加工履歴にともなう 0.2% 耐力と破断伸びの変化を示す。いずれの変形温度であっても、耐力は超塑性変形量とともに単調に減少した。破断伸びは、高温変形の際の温度が最も低い 523 K では 50% 変形の後で顕著に減少するものの、より高い温度 (548, および 573 K) では 50% 変形までは比較的高い室温伸びを維持した。しかしながら 75% 変形の後では、室温伸びは顕著に減少した。押出し丸棒に関して、超塑性変形の後で顕著に室温伸びを向上できる超塑性変形条件を今回調査した範囲では見出すこ

とができなかった。しかしながら、図 1 で示したとおり、丸棒では超塑性変形後に室温伸びが大きく向上する結果は文献中でも見出されていない。

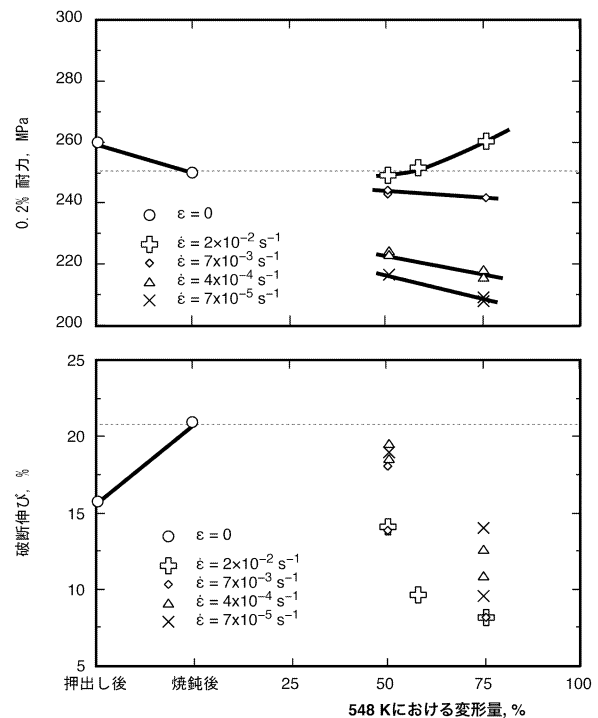


図 5 AZ91 合金押出し丸棒を 548 K において種々のひずみ速度で変形する前後の室温引張特性

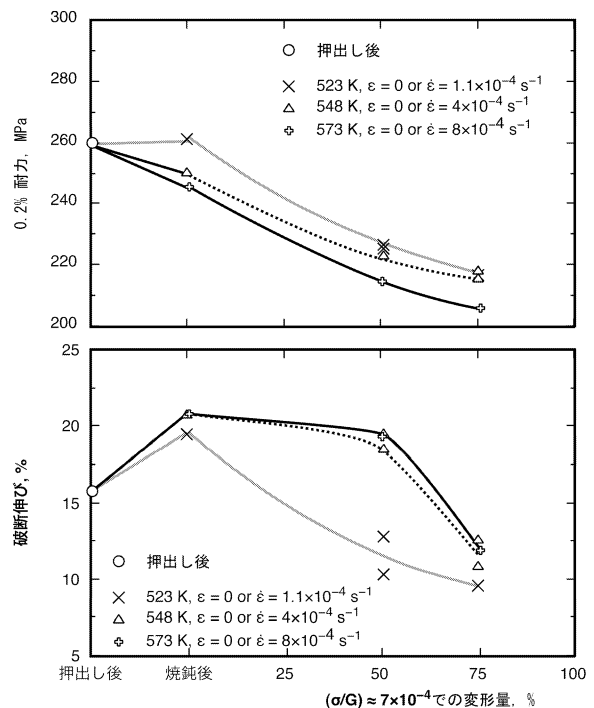


図 6 AZ91 合金押出し丸棒を種々の温度において $\sigma/G \approx 7 \times 10^{-4}$ となるひずみ速度で変形する前後の室温引張特性

3.3 初期集合組織がその後の室温引張特性に及ぼす影響

初期集合組織の異なる押し丸棒と押し板材に関して、同じ変形応力レベル ($\sigma/G \approx 7 \times 10^{-4}$) となるようにひずみ速度を選択して超塑性変形を付与した後の、室温における引張り特性を図7に示す。耐力は押し丸棒、板材いずれも変形とともに減少した。破断伸びは、押し丸棒では50%の超塑性変形を与えた場合は、超塑性変形前と比較してわずかな伸びの低下しか起こらないが、75%までの超塑性変形を与えた場合には顕著に減少した。押し板材では75%までの超塑性変形を与えた場合でも、超塑性変形前の伸びを維持していた。

3.4 超塑性変形にともなう集合組織の変化

超塑性変形の後でも室温延性が維持された押し板材に関して集合組織の変化を評価するめ、図2に示した観察面のEBSDによる逆極点図を作成した。図8に超塑性変形前(押し材の焼鈍後)および超塑性変形条件(548 K/1.4 $\times 10^{-4}$ s $^{-1}$)において75%の引張り伸びを付与した後の材料の逆極点図を示す。押し後ではマグネシウム合金で典型的に観察される強い底面集合組織が形成されていた。超塑性変形後も底面集合組織が形成されたままであり、新しい成分の発達も見られない。しかしながら、配向の程度に着目すると超塑性変形後ではmax値が元々の8.6から4.9にまで大きく低下しており、底面集合組織が弱化していることが明らかである。

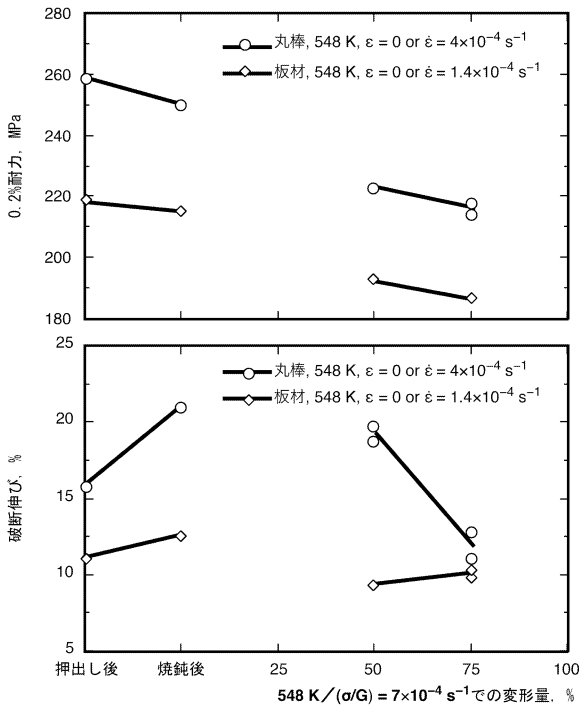


図7 AZ91合金押し丸棒および板材を温度548 K, $\sigma/G \approx 7 \times 10^{-4}$ となるひずみ速度で変形する前後の室温引張特性

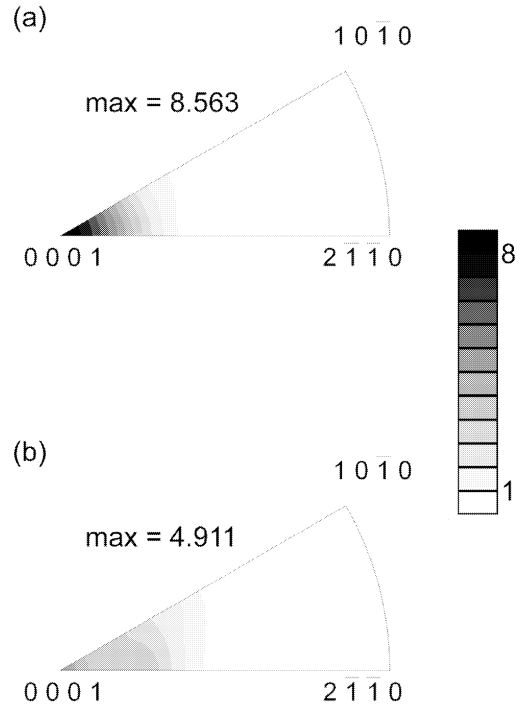


図8 AZ91合金押し板材の逆極点図
(a) 超塑性変形前, (b) 超塑性変形後

このような集合組織変化を考慮すると、超塑性変形後に見られた耐力の低下は、底面集合組織の弱化によって、臨界分解せん断応力が他のすべり系と比較して非常に小さい底面すべりが起こりやすくなったことが要因のひとつになっていると考えられる。

底面集合組織の弱化は、室温での破断伸びに対しては望ましい変化となる。例えば、ECAE加工を施すことによって底面すべりが起こりやすいように集合組織の制御を行ったマグネシウム合金AZ31においては、室温で45%もの引張伸びを示すことが分かっている³⁾。今回評価したAZ91合金では超塑性変形にともなう底面集合組織の弱化のために、多くの結晶粒において底面すべりが起こりやすくなっている。よって、押し板材で観察された超塑性変形後であっても室温伸びが維持されるという結果は、集合組織の弱化と関連していると考えられる。

4. 結言

マグネシウム合金において超塑性変形中の集合組織変化を制御することによって、超塑性変形の後でも高い信頼性(延性)を有する部材を開発するための基礎的な知見を得ることを目的とし、マグネシウム合金展伸板材について、超塑性変形条件および超塑性変形前の集合組織などの因子が超塑性変形後の室温における機械的性質および集合組織変化に及ぼす影響を調査した。結果は以下のとおりである。

1) 微細な結晶粒を有する AZ91 マグネシウム合金の丸棒と板材を押し出し加工によって作製した。高温引張試験により、丸棒、板材ともに 548 K 付近の温度で超塑性が発現することを確認した。

2) 押し出し丸棒に関して、高温変形時のひずみ速度がその後の室温引張特性に及ぼす影響を調査した。室温伸びは、超塑性領域で 75%までの引張り伸びを与えた後において、超塑性変形前と比較して約半分まで低下することが分かった。

3) 押し出し丸棒に関して、高温変形の際の温度がその後の室温引張特性に及ぼす影響を調査した。室温伸びは、超塑性変形を与える変形温度が高く、かつ 50%までの引張り伸びを与えた後までは、超塑性変形前の伸びを維持することが分かった。

4) 押し出し板材では、75%までの超塑性変形を与えた場合でも超塑性変形前の伸びを維持していた。EBSD を用いて集合組織の変化を調べた結果、底面集御組織が超塑性変形によって弱化していることが明らかになった。この集合組織変化が超塑性変形後の室温伸びの維持に効果的に働いたと考えられる。文献においても板材の超塑性変形後の室温伸びが向上する傾向があることから、板材で発達する集合組織が、より有効に集合組織の弱化に寄与する可能性が指摘される。

謝 辞

本研究は財団法人天田金属加工機械技術振興財団による助成により行われた。

参考文献

- 1) 平成 13 年度 革新的素形材加工技術調査 超塑性技術利用可能性調査報告書, 素形材センター 調査研究報告, No. 570, (2002 年 3 月) .
- 2) 渡辺博行・向井敏司・東 健司, 塑性と加工, 44 (2003), 10.
- 3) T. Mukai・M. Yamanoi・H. Watanabe・K. Higashi, Scripta Mater., 45 (2001), 89.
- 4) M.M. Tilman・R.L. Crosby・L.A. Neumeier, RI8382, Bureau of Mines Report of Investigation, U.S. Department of the interior (1979).
- 5) M.M. Tilman・L.A. Neumeier, RI8662, Bureau of Mines Report of Investigation, U.S. Department of the interior (1982).
- 6) H. Watanabe・M. Fukusumi, Mater. Sci. Eng., A477 (2008), 153.
- 7) 岩崎源・柳瀬希昭・森隆資・馬淵守・東健司, 粉体および粉末冶金, 43 (1996), 1350.
- 8) H. Watanabe・T. Mukai・K. Ishikawa・K. Higashi, Mater. Trans., 43 (2002), 78.
- 9) K. Ishikawa・H. Watanabe・T. Mukai, Mater. Lett., 59 (2005), 1511.