

# 双晶変形抑制による室温加工を指向した高強度マグネシウム合金板材の創製

千葉大学 機械工学科

准教授 糸井 貴臣

(平成 20 年度一般研究開発助成 AF-2008012)

キーワード：マグネシウム合金、室温加工、キンク変形、高強度

## 1. はじめに

マグネシウム（以下、Mg）は比重 1.74 とアルミニウムの約 2/3、鉄の約 1/4 で、実用金属材料中で最も小さく、比強度、比剛性、振動吸収性、放熱性、寸法安定性、などに優れるという利点があり、輸送機器、携帯用機器を始め、様々な工学的応用が期待されている。しかしながら Mg は六方晶構造を有し、その結晶学的制約から室温でのすべり系は主に底面のみであり、室温での加工性に劣るため、室温での圧延により板材を作製することは困難である。また、結晶粒を数  $\mu\text{m}$  程度にまで微細化すると、加工性と強度を両立させる事が可能であるが、結晶粒が微細化した Mg 合金板材の降伏強度は高いもので、室温にて 300MPa 程度であり、強度は超々ジュラルミンに及ばない。そこで本研究では、Mg とは原子積層構造が異なる長周期型 Mg 合金を用い<sup>1)</sup>、双晶変形を抑制し、キンク変形を活用することで高強度を有する Mg 合金板材を室温での圧延加工で作製する事を目的とする。結晶粒の微細化による加工性向上ではなく、異なるメカニズムにより、板材の低温での加工と高強度化を同時に達成することを目標とした。

## 2. 実験方法

電気炉にて鉄るつぼを用い、炭酸ガス雰囲気下にて  $\text{Mg}_{94}\text{Ni}_2\text{Y}_4$  および  $\text{Mg}_{85}\text{Ni}_6\text{Y}_9$  (at.%) の試料を作製した。20×30×75mm<sup>3</sup> の鋳鉄製鋳型に溶湯を鋳込んで試料を作製し、この試料から 3×20×30mm<sup>3</sup> の板材を切り出して圧延用の試料とした。圧延速度 2.7m/min で圧下率 3% 以下の圧延を繰り返し、最終圧下率 50% までの圧延を行った。組織観察は、走査型電子顕微鏡(SEM)、透過型電子顕微鏡(TEM)およびX線回折測定(XRD)を用いて行った。硬さはピッカース硬さ試験(荷重 4.9N)にて評価した。

## 3. 実験結果および考察

図 1 に(a)  $\text{Mg}_{94}\text{Ni}_2\text{Y}_4$  鋳造合金と(b)  $\text{Mg}_{85}\text{Ni}_6\text{Y}_9$  鋳造合金の反射電子像(BEI)を示す。図 1(a)からは灰色のコントラストで示される長周期相と黒色のコントラストで示される Mg 相が観察される。図 1(a)からは、小さいもので 10  $\mu\text{m}$  程度の Mg 相と、長さ 30~100  $\mu\text{m}$  程度のデンドライト状の Mg 相が観察され、これらの Mg 相を取り囲むようにして長周期相が存在している。長周期相と Mg 相の面積率はおよそ 1:1 である。一方、図 1(b)の  $\text{Mg}_{85}\text{Ni}_6\text{Y}_9$  鋳造合金では、長さ 30~150  $\mu\text{m}$ 、幅 5~30  $\mu\text{m}$  の長周期相が観察される。わずかに Mg 相が観察されるが、その多くは長周期相であり、ほぼ单相状態といえる。

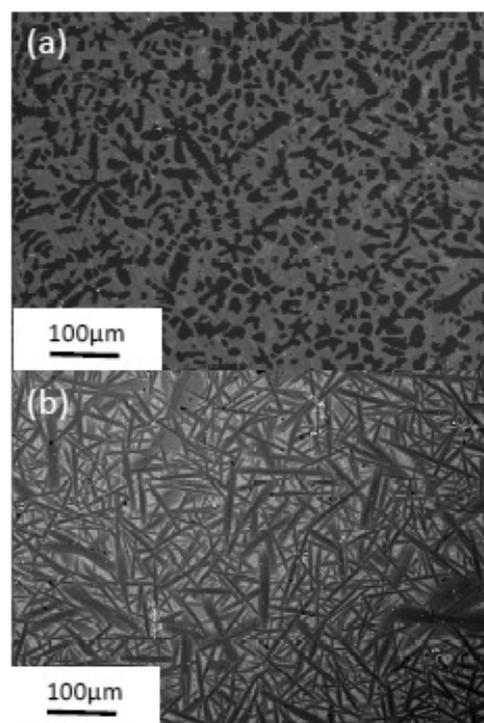


図 1 (a)  $\text{Mg}_{94}\text{Ni}_2\text{Y}_4$  鋳造合金と(b)  $\text{Mg}_{85}\text{Ni}_6\text{Y}_9$  鋳造合金の反射電子像

図2に長周期相から得られた(a)電子線回折(ED)パターンと(b)高分解能像を示す。EDパターンからはダイレクトスポットと(0002)が矢印で示すように10等分されており、また(0002)が(11-20)と垂直な関係を持つことから10H型の長周期相であることが分かる。また、(b)の高分解能観察結果より、その原子の積層がABABACBCBCAであり、c軸方向に2.6 nmの周期をもつ長周期構造であり、Mg-Zn-Y合金に生成する10H型の長周期相と同じであることが分かった<sup>2)</sup>。また、18R型の長周期相も観察されたが、その多くは10H型の長周期相であった。

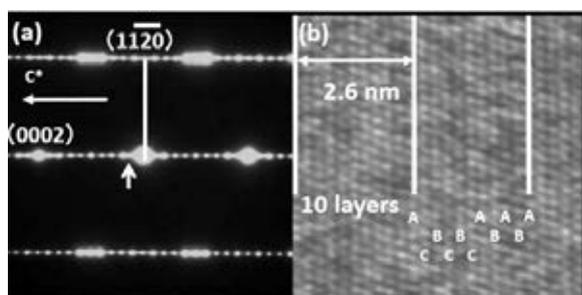


図2 Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 鋳造合金に生成する長周期相の (a)電子線回折パターンと(b)高分解能像

図3に純Mg、Mg<sub>94</sub>Ni<sub>2</sub>Y<sub>4</sub>鋳造合金とMg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub>鋳造合金について、30%圧延後の外観写真を示す。外観写真からわかるように、純Mgでは、耳割れが多く発生し、試料中心部まで到達している割れが多く観察される。しかし、Mg<sub>94</sub>Ni<sub>2</sub>Y<sub>4</sub>鋳造合金とMg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub>鋳造合金では、わずかに耳割れは観察されるが、その量は比較的少なく、純Mgと比較して同加工度であるにも関わらず、良好な加工性を示し、試料表面の荒れも少ない。加工後の硬さ値は純Mgで42HV0.5、Mg<sub>94</sub>Ni<sub>2</sub>Y<sub>4</sub>圧延板で105HV0.5、Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub>圧延板で118HV0.5でありいずれも加工硬化していた。図4に(a)Mg<sub>94</sub>Ni<sub>2</sub>Y<sub>4</sub>および(b)Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub>鋳造合金について30%圧延を行った試料の断面についてSEM観察を行った結果を示す。SEM像からは、加工後において試料内部に大きなクラック等は確認されないが、白線で囲ったように長周期相の変形後にはこのような折れ曲がりを生じた組織が頻繁に観察される。これはMgの変形組織によく観察される双晶変形ではなく、キंक変形である。長周期相は673KまではMgと同様に底面すべりしか生じないと報告されており、比較的高い温度域まで底面すべりに加えてこのようなキंक変形が生じる<sup>3)</sup>。

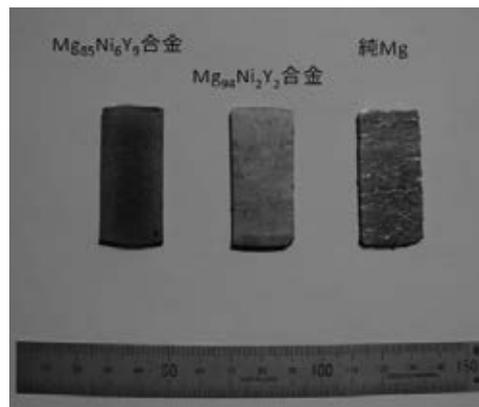


図3 純Mg、Mg<sub>94</sub>Ni<sub>2</sub>Y<sub>4</sub>合金とMg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub>合金圧延材(30%)の外観写真

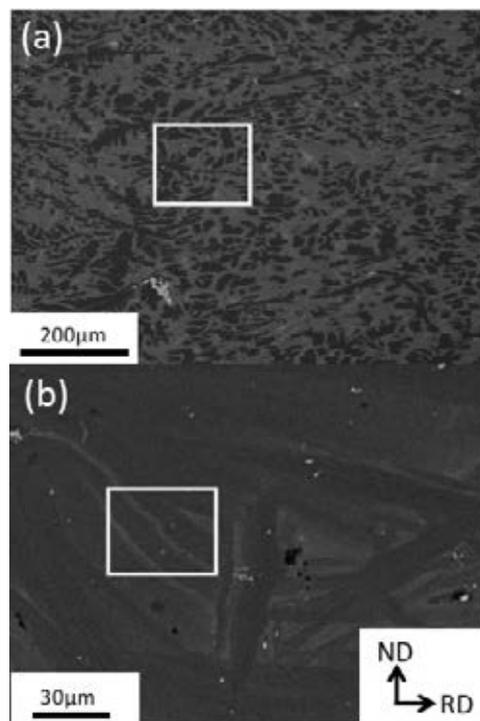


図4 (a)Mg<sub>94</sub>Ni<sub>2</sub>Y<sub>4</sub>および(b)Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub>合金圧延板(30%圧延)の断面SEM像

Mgはc軸に垂直な圧縮力が加わると、{10-12}を軸として結晶の上半分が回転する双晶変形により底面は約86度回転するため、圧延により加工度(圧延率)が増加すると、圧延板面に底面が強く配向する。底面配向度が高くなると、板圧方向には室温での主たる変形機構であるa転位によるすべり変形が(底面または柱面)板圧方向に作用しなくなり、板圧の減少が困難となるために室温での圧延性が乏しい。そこで、Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub>鋳造合金が純Mgと比較して圧延性に優れる理由を調べる為に、作製した圧延板の底面集合組織をXRDにより調べた。図5に(a)純Mgと(b)Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub>鋳造

合金について 30% 圧延を行った試料の板面について、底面の集合組織を XRD により調べた結果を示す。(00010)<sub>LPO</sub> 極点図から、圧延方向に対して 15 度程度傾斜したところにピークが存在し、圧延により長周期相の底面が圧延面に配向している様子が観察された。I<sub>max</sub> 値は 2.1 であったが同加工度の純 Mg の 4.0 よりも低く、純 Mg と比較して底面配向の程度が小さいことがわかった。それぞれの試料について、50% までの圧延を行ったところ、いずれの試料も耳割れや試料中心部にクラックが観察された。圧延後の Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 鋳造合金について TEM にて組織観察を行った結果、双晶変形は確認されず、頻繁にキンク変形帯が観察された。長周期相は室温では底面すべりとキンク変形を生じ、このキンク変形は圧延による底面配向を抑制する。また、長周期相は、その原子の積層に周期的に C 層（積層欠陥）が導入した構造であるため、純 Mg の変形組織に頻繁に生じる双晶変形を生じないことも知られている。室温圧延において長周期相が純 Mg と比較して良い加工性を示す理由は、長周期相はその構造に起因して、キンク変形が底面配向を抑制する事、および双晶変形を抑制する事に起因していると考えられる。

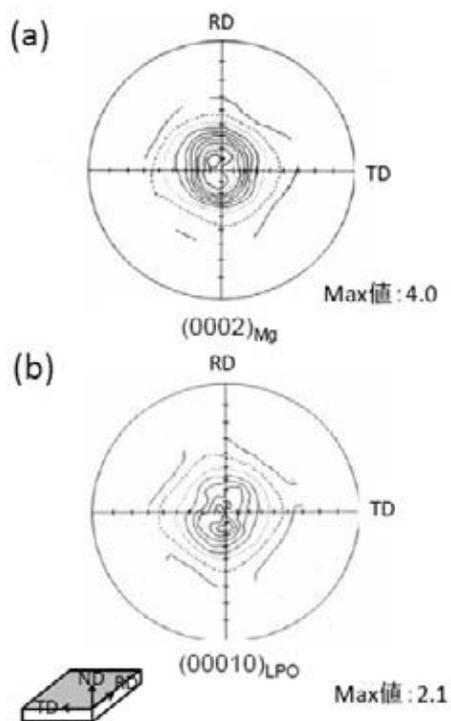


図 5 (a) 純 Mg および (b) Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 合金圧延板 (30% 圧延) の底面極点図

図 6 に (a) Mg<sub>94</sub>Ni<sub>2</sub>Y<sub>4</sub> および (b) Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 鋳造合金について 40% および 50% 圧延を行った試料の断面について SEM 観察を行った結果を示す。Mg<sub>94</sub>Ni<sub>2</sub>Y<sub>4</sub> 板においては圧延面から試料中心部にかけてせん断亀裂が観察され、試料が破壊されている様子が伺える。純 Mg も同様のせん断亀裂が確認された。一方、Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 鋳板材においては、加工後において試料中心部で長周期相の粒界での破壊は観察されるものの、Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 鋳板材においては、図 6(a) に観察される様な試料全域にわたるせん断亀裂は確認されない。

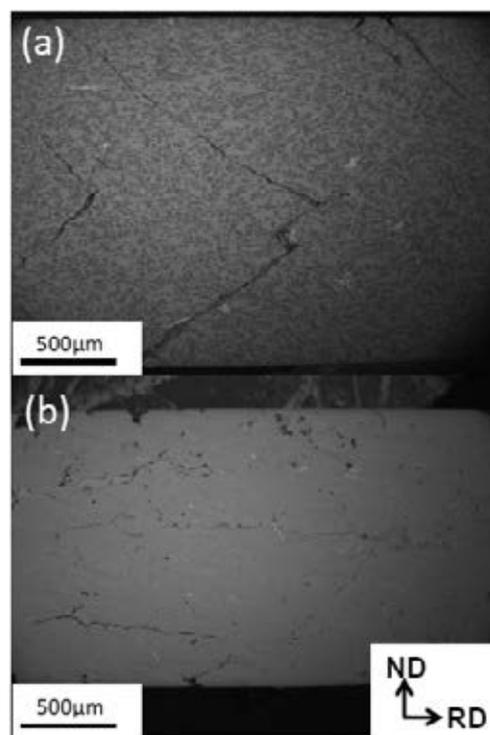


図 6 (a) Mg<sub>94</sub>Ni<sub>2</sub>Y<sub>4</sub> 合金圧延板 (40% 圧延) および (b) Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 合金圧延板 (50% 圧延) の断面 SEM 像

図 7 に純 Mg と Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 鋳造合金について 50% 圧延を行った試料の板面について、底面の集合組織を XRD により調べた結果を示す。(00010)<sub>LPO</sub> 極点図から、圧延方向に対して TD に 8 度程度傾斜したところにピークが存在している事が分かる。一方、(0002)<sub>Mg</sub> 極点図からは圧延率の増加により、圧延により長周期相の底面が圧延面に配向している様子が観察された。I<sub>max</sub> 値は 2.4 であったが同加工度の純 Mg の 6.0 よりも低く、純 Mg と比較して底面配向の程度が小さいことがわかった。

長周期相は図 2 に示すように通常の Mg 積層構造に周期的にその原子配列の周期 ABAB... に周期的に C 積層が存在する。これは、局部的に ABC 積層、つまり面心

構造が存在しているとも考えられ、そのため、通常の Mg と比較して対称性が異なる。これまでの研究においては、室温における長周期相のすべり系は底面のみであり、室温において Mg と同様に a+c 成分への変形は生じない。しかしながら、上記の組織観察の結果からわかる様に、その結晶構造において a 軸と c 軸の比が大きいため、変形において頻繁にキンク変形を生じる。

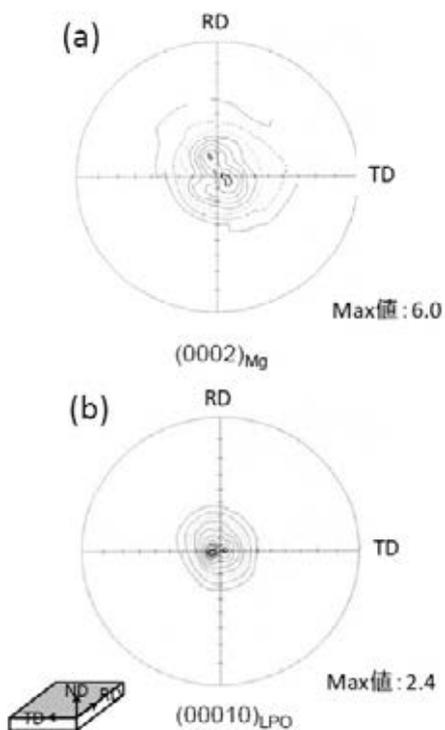


図 7 (a) 純 Mg および(b) Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 合金圧延板 (50%圧延) の底面極点図

図 8(a) と (b) に Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 鋳造合金について 50% 圧延を行った試料について TEM 観察を行った結果を示す。両図共に長周期相の界面について観察を行った。図 8(a) では、長周期相の c 軸同士がおよそ 25 度の角度で界面を形成している事が分かる。図 8(b) も同様に変形により形成された界面を示す。白線は長周期相の (00010) 底面を示し、破線は界面を示す。この図より長周期相の c 軸同士は 4 度傾斜している事が分かる。つまり、キンク変形により生じた界面は低角から比較的高角度まで任意に形成されている事が分かる。また図 8(b) からは、キンク界面に黒いコントラストが観察され、転位が蓄積されているものと考えられる。図 9 にキンク変形による界面形成の模式図を示す<sup>4)</sup>。キンク変形は底面に垂直成分の力が働いた場合、底面すべりを生じ、その変形量が増加するに従い転位も増加し、その蓄積により界面を形成する。長周

期相も底面すべりのみで変形するため、このモデルと同様に、界面を形成したといえる。

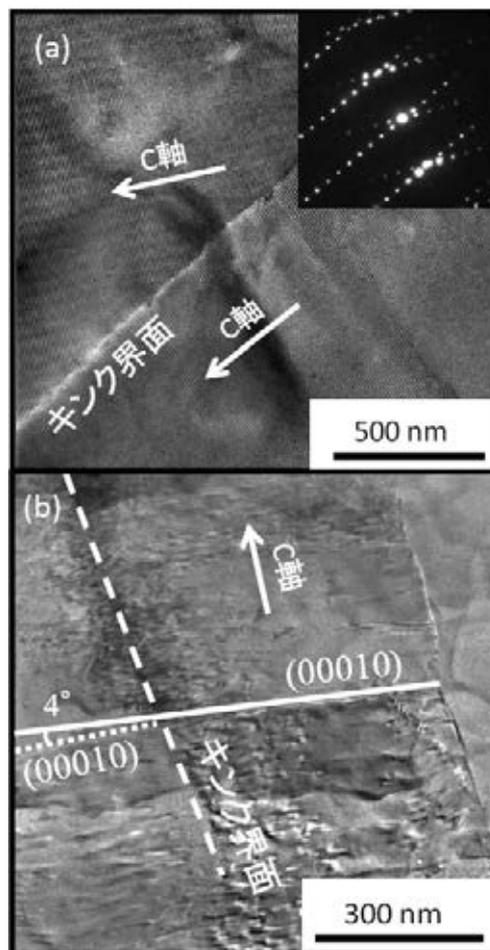


図 8 Mg<sub>85</sub>Ni<sub>6</sub>Y<sub>9</sub> 合金圧延板 (50%圧延) の TEM 観察結果

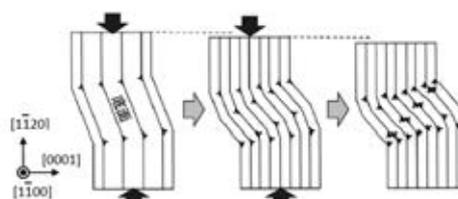


図 9 キンク変形による界面形成の模式図

また、長周期相は図 1 に示すように a 軸方向へ成長した板状の組織形態を有しており、幾何的にもこのような変形を生じやすく、微小な変異により界面が形成されるため、その界面同士の角度関係もまちまちであると考えられる。このようなキンク変形が頻繁に生じた場合、圧延による変形で長周期

相の底面が板面に配する際に、その底面配向を抑制する働きを担うと考えられる。これは図5および図7に示す底面極点図からもそのMAX値が低い事から明らかであるといえる。従って、長周期相の変形では、その結晶構造の特徴として双晶変形を抑制し、底面すべりに起因するキンク変形を生じやすく、またそのキンク変形はc軸成分の変形を担い、かつ圧延による集合組織化を抑制すると考えられる。従って、純MgおよびMgと長周期相との2相合金と比較して、圧延による成型限界が高いと考えられる。しかしながら、キンク変形はすべり変形による生じる為、その界面には転位が蓄積するため、加工度が上昇するとそこを起点として割れが発生する。図6(b)で50%の圧延で力学的なせん断方向への亀裂ではなく、板の内部で局所的に亀裂を生じているのはそのためだと考えられる。キンク変形は通常のMgにおいても観察されるが、一般的にCRSS（臨界分解せん断応力）からわかるように、双晶変形を生じやすいため、いかにこれを抑制するかが重要であり、結晶粒の微細化などが効果的である事が知られている。しかし長周期相の場合、結晶粒を微細化することなしに上記のように圧延限界を向上させる事ができる。

そこで、 $Mg_{85}Ni_6Y_9$  鋳造合金について室温で15%圧延し、その後803Kで0.6ksの熱処理を繰り返し、最終板圧62%までの圧延を行い板を作製した。図10(a)に作製した板の断面SEM像を、また(b)にその板の外観写真を示す。

図10(a)からは、板面の表層部、および中心部にも割れが観察された。しかし、図10(b)の外観図からは耳割れは生じているが、中心部に至るまでの割れは観察されない。硬さ値は140HV0.5を示し、Mg合金板として高い硬さ値を有しており、高強度が期待される。現段階ではこの条件でのみ板の作製を行っておらず、より実験条件を絞り込む事で、より良質の板が作積できると考えられ、室温での圧延と焼なましのみで、高強度板の作製が期待される。

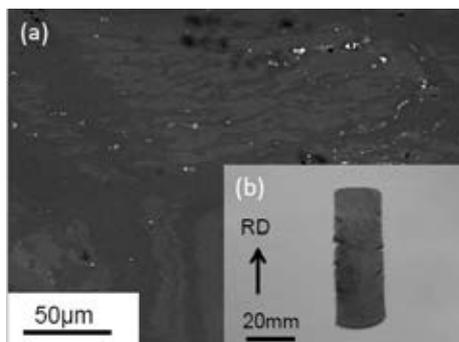


図10 (a) 作製した板の断面SEM像、および  
(b)板の外観写真

#### 4. まとめ

純Mg、長周期相とMg相の2相合金および長周期相単相合金について、室温で圧延を行い加工性を調べた結果、 $Mg_{85}Ni_6Y_9$  鋳造合金（長周期相単相）は30%まで圧延が可能であった。圧延後の硬さ値は、118HV0.5と高い値を示した。SEM、XRDおよびTEMを用いて組織観察を行った結果、 $Mg_{85}Ni_6Y_9$  鋳造合金では室温での圧延により、長周期相が頻繁にキンク変形を起こすため、同加工度の純Mgと比較して底面配向度が弱い事が明らかとなった。さらに、これに加え、長周期相は双晶変形を生じないため、純Mgより室温での圧延加工性が良いと考えられる。

#### 5. 参考文献

- 1) Y. Kawamura, K. Hayashi, A. Inoue, T. Masumoto, *Material Trans.*, 42 (2001) 1172.
- 2) T. Itoi, K. Takahashi, H. Moriyama and M. Hirohashi, *Scripta Mater.*, 59 (2008) 1158.
- 3) J.B. Hess, C.S. Barrett : *Trans. AM. Inst. Min. Met. Eng.*, 185 (1949) 599.
- 4) K. Hagihara, N. Yokotani, Y. Umakoshi: *Intermetallics* 18(2009), 267.

#### 謝辞

本研究は(財)天田金属加工機械技術振興財団一般研究開発助成 (AF-2008012) の支援のもと行われたものである。付記して感謝申し上げる。

#### 発表論文

- 1) 糸井貴臣、市川龍、稲沢利春、広橋光治、長周期型マグネシウム合金圧延板の作製とその組織観察、平成22年度塑性加工春期講演会概要 P63-64.
- 2) T. Itoi, R. Ichikawa and M. Hirohashi, Deformation behavior of Mg-Ni-Y alloy with long period stacking ordered phase. THERMEC 2011 発表予定