

等速・異周速複合圧延による 高強度・高成形性マグネシウム合金板の開発

大阪府立大学 大学院工学研究科 物質・化学系専攻 マテリアル工学分野
准教授 井上博史

(平成 22 年度一般研究開発助成 AF-2010029)

キーワード：組織制御，降伏強度，絞り加工性

1. 研究の目的と背景

低密度・高比強度のマグネシウム合金は制振性，切削性，電磁遮蔽性，耐くぼみ性，リサイクル性等の多くの利点を有するため，様々な産業への応用が期待されているが，常温での成形加工は一般に困難である。これは，マグネシウム合金の結晶構造が最密六方晶であること，さらに板材の場合に底面(0001)が板面に平行な底面集合組織が発達しやすいことから，150℃以下の低温で支配的な変形様式である底面すべり(0001) $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ だけでは塑性変形，特に板厚方向の変形が困難であることに起因する。それゆえ，底面集合組織を有するマグネシウム合金板では絞り成形や曲げ成形のようなプレス成形性は非常に悪くなる。その反面，底面すべりが起こりにくいため，降伏強度はかなり高い値を示す。常温付近での成形性を改善するには，圧延や押出により発達しやすい底面集合組織を弱めることや結晶方位をランダム化させることが有効である。しかしながら，それと同時に降伏強度が大きく低下するため，所定の強度が必要な部材への適用が難しくなる。このように，降伏強度と成形性の間には一般にトレードオフの関係が存在するため，降伏強度をある程度確保しつつ成形性を改善し，強度・成形性バランスがとれたマグネシウム合金板を開発することが，用途の拡大に必要不可欠である。

著者らは最近，冷間等速圧延と温間異周速圧延の複合圧延により，アルミニウム合金板の深絞り性に好都合な $\langle 111 \rangle$ /ND (ND：板面法線方向)の $\{111\}$ 集合組織を再結晶焼鈍後に発達させることに成功し^{1)・4)}，AZ31 マグネシウム合金にこれと類似の「熱間等速圧延+熱間異周速圧延」の複合圧延を行った結果，強度に寄与する底面集合組織と，成形性に寄与する底面が板面から約40°傾いた集合組織を併せ持つ圧延板の作製に成功した^{3)・5)・6)}。この特異な集合組織を有するAZ31 マグネシウム合金板は120MPa以上の降伏強度を維持したまま，絞り比1.67，ポンチ速度10mm/minの条件下で成形可能温度が従来の175℃から75℃まで低下した。

自動車ボディパネル等の構造用部材にこのAZ31 マグネシウム合金板を適用する場合，降伏強度が不足する。本研究開発では，より高強度のマグネシウム合金にこの複合圧延プロセスを用いることにより集合組織を制御し，強度・

成形性バランスの優れた板材の創製を目指すことを第一の目的とした。Mg-Al 二元系状態図⁷⁾からAlを含有するAZ系マグネシウム合金では，Al量が6mass%以下の組成において300℃以上の温度から比較的速い速度で冷却すると，基本的にMg固溶体单相組織が得られることが推察される。そのため，AZ31よりもAl量の多いAZ61 マグネシウム合金を使用し，固溶強化による高強度化を図った⁸⁾。

強度・成形性バランスの優れた固溶強化型マグネシウム合金板の開発以外に，プレス加工時に優れた成形性を有し，その後の熱処理により最終製品の降伏強度を高めた析出強化型マグネシウム合金板を創製することを第二の目的とした。具体的には，高強度が期待される析出強化型実用合金としてZK60 マグネシウム合金を使用し，熱間異周速圧延による集合組織制御とその後の時効処理による高強度化を目指した^{9)・10)}。

2. 実験方法

2・1 AZ61 マグネシウム合金

圧延条件を決定するために，市販のAZ61A マグネシウム合金温間圧延板を用いて，450℃で熱間圧延(HR)ならびにロール径比1.5の熱間異周速圧延(AHR)を行った。X線回折を用いてSchulzの反射法により板厚中心部の極点図を測定し，板面法線方向NDから圧延方向RDへの±75°範囲の(0001)極密度分布を調べた。その結果に基づいて等速・異周速複合圧延におけるHRとAHRの最適圧下率を決定した。温間圧延で板厚調節し焼鈍した試料を用いて，決定した圧下率でHRとAHRの複合圧延を実施し，得られた圧延板(板厚0.9mm)に300℃で30minの焼鈍を施した。圧延および焼鈍による組織変化を見るために，光学顕微鏡により縦断面の微細組織を観察した。

焼鈍材の強度と成形性を評価するために引張試験と絞り試験を実施した。RD，RDから45°，RDから90°の3方向の試験片を用いて引張試験を行い，強度と伸びの面内異方性を評価した。絞り比を1.67，ポンチ速度を10mm/minに固定し，潤滑剤に二硫化モリブデンを用いて種々の温度で絞り試験を行い，成形可能温度を評価した。絞り試験にはポンチ径15mm，ポンチ肩半径2.0mmのポンチとダイス内径17mm，ダイス肩半径4.0mmのダイスを使用した。

2・2 ZK60 マグネシウム合金

温間圧延により得られた市販の ZK60A マグネシウム合金圧延板を使用し、ロール径比 1.5 の 2 段圧延機を用いて、450°C と 500°C で熱間異周速圧延を行った。また、比較材として 300°C で通常の温間等速圧延を行った試料も作製した。異周速圧延を高温で行ったのは AZ 系と同様に集合組織を大きく変化させるためであるが、400°C の異周速圧延で割れが発生したため、AZ 系よりも圧延温度を高目に設定した。以下では 450°C での熱間異周速圧延を AHR、500°C での熱間異周速圧延を AHRH、300°C での温間等速圧延を WR と略記する。得られた圧延板（板厚 0.9mm）に対して 400°C-24h の溶体化処理を施した後、180°C-96h の時効処理を行った。

X 線回折を用いて Schulz の反射法により板厚中心部の極点図を測定し、ND から RD への ±75° 範囲の (0001) 極密度分布を調べた。また、光学顕微鏡と走査電子顕微鏡を用いて縦断面の微細組織を観察し、時効材について透過電子顕微鏡で析出物を観察した。

溶体化処理材に対して、絞り比を 1.67、ポンチ速度を 10mm/min に固定し、潤滑剤に二硫化モリブデンを用いて種々の温度で絞り試験を行い、成形可能温度を評価した。絞り試験に使用したポンチとダイスは上述の AZ61 合金の場合と同一である。一方、時効材に対して、RD、RD から 45°、RD から 90° の 3 方向の試験片を用いて引張試験を行い、強度と伸びの面内異方性を評価した。

3. 研究成果

3・1 AZ61 マグネシウム合金

図 1 に入手材および 30% 圧延後の熱間圧延材と熱間異周速圧延材の (0001) 極点図を示す。入手材は強い底面集合組織を示していたが、熱間等速圧延 (HR) によって極密度がかなり低下する。一方、熱間異周速圧延 (AHR) は極密度を低下させるとともに底面を RD と反対方向に傾かせる効果がある。圧下率の増加にともなう集合組織の変化を図 2 に示す。この図は ND から RD までの ±75° 範囲の (0001) 極密度分布を示しており、HR でも AHR でも圧下率 30% で最も極密度が低くなる。特に AHR30% で極密度分布が最も広く、底面が板面から RD と反対方向に大きく傾斜することがわかる。このことから、HR により底面集合組織の強度を低下させ、AHR により底面を大きく傾斜させるには、30%HR と 30%AHR を組み合わせて複合圧延することが最も効果的と考えられる。

HR30%+AHR30% の複合圧延材における集合組織変化を図 3 に示す。上述の結果と同様に、HR により底面集合組織が弱まり、その幅広い極密度分布が AHR により RD と反対方向に移動する。さらに、その後の焼鈍で極密度はより低下する。これに対応する微細組織の変化を図 4 に示す。HR により結晶粒径が多少大きくなるとともに双晶が

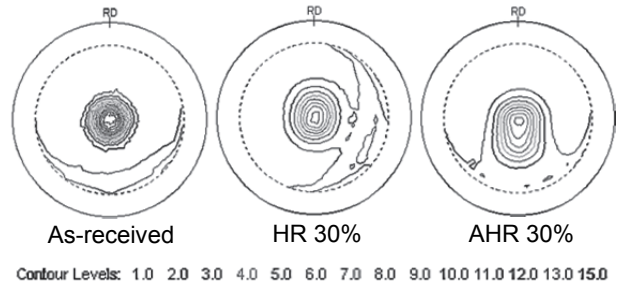


図 1 450°C で圧下率 30% まで熱間圧延 (HR) または熱間異周速圧延 (AHR) した AZ61 マグネシウム合金板の高周速ロール側から見た (0001) 極点図

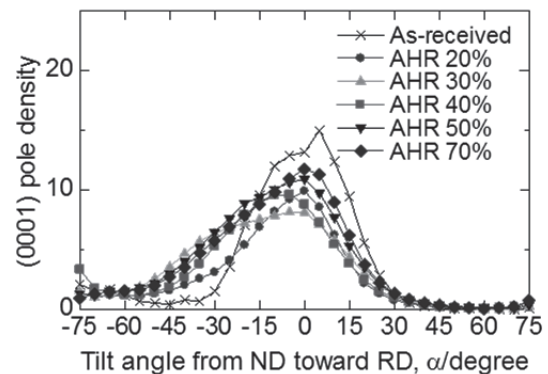
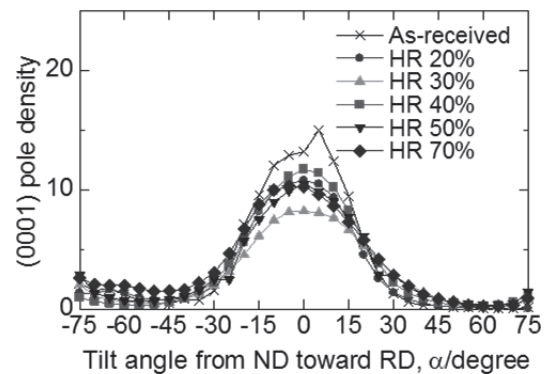


図 2 AZ61 マグネシウム合金の熱間圧延板 (HR) と熱間異周速圧延板 (AHR) の (0001) 極密度分布

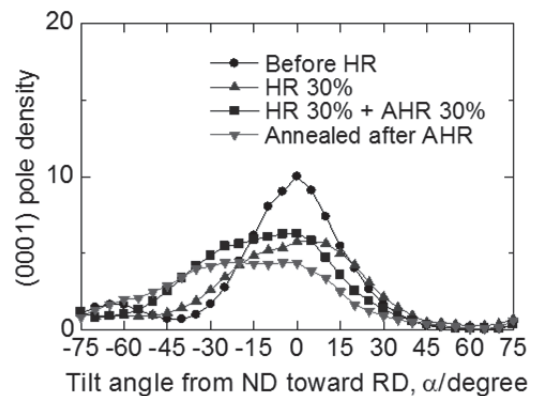


図 3 30% 熱間圧延 (HR) → 30% 熱間異周速圧延 (AHR) → 焼鈍による AZ61 マグネシウム合金の集合組織変化

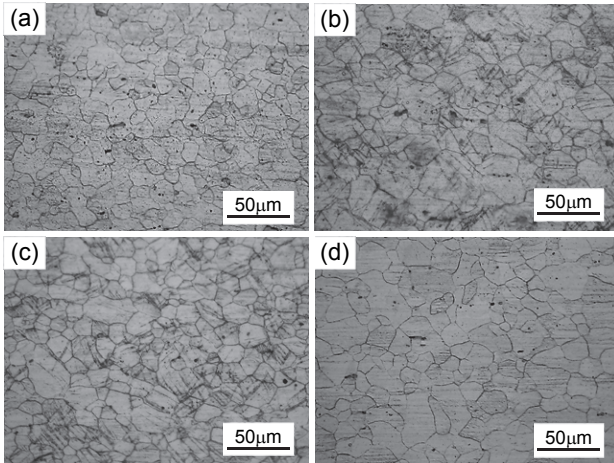


図4 熱間圧延前(a), 30%熱間圧延後(b), 30%熱間異周速圧延後(c), および焼鈍後(d)のAZ61マグネシウム合金板の縦断面における光学顕微鏡写真

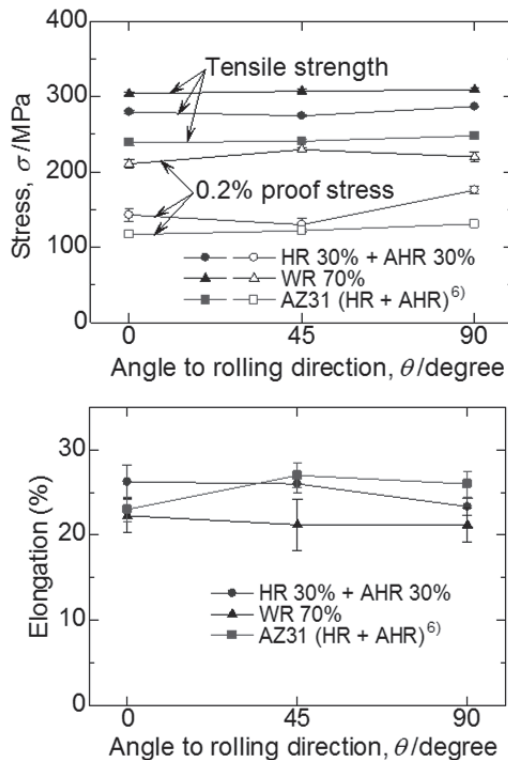


図5 熱間圧延+熱間異周速圧延の複合圧延後に焼鈍したAZ61マグネシウム合金板の強度と延性

形成されるが、AHRにより一方向の双晶面を有する双晶の形成が増加するとともに結晶粒径が細くなる。圧延による結晶粒の伸長はさほど見られず、等軸粒組織であることから、圧延プロセス中に動的再結晶や静的再結晶が生じていることが示唆される。複合圧延後の焼鈍によって圧延中に形成された双晶は消失する。

図5に焼鈍材の0.2%耐力と引張強さ、伸びを示す。HR+AHRの複合圧延を行った試料では300°Cで70%温間圧延した試料(WR)と比べて0.2%耐力と引張強さは低下

表1 AZ61マグネシウム合金焼鈍材の絞り成形性(絞り比1.67, ポンチ速度10mm/min)

Sample	200°C	175°C	150°C	125°C	100°C
HR+AHR	—	—	○	○○×	×××
AHR+HR	○○	○○△	△×	—	—
WR 70%	○	○○×	××	—	—

○:Good △:Crack ×:Failure

するが、伸びは向上する。これは複合圧延材における底面が傾斜した集合組織の影響であり、底面集合組織を有する温間圧延材よりも底面すべりが容易に起こることを示唆する。AZ31合金の複合圧延材^{5),6)}と比べると、伸びは同程度のまま0.2%耐力と引張強さは向上する。このように、AZ61合金による高強度化は達成されており、0.2%耐力は45°方向を除けば140MPaを超える値となっている。0°, 45°, 90°方向の平均値をとると、0.2%耐力は150MPaとなり、AZ31合金の123MPa⁶⁾よりも20MPa以上高い。

表1に焼鈍材の絞り成形試験結果を示す。AZ61合金の成形可能温度は温間圧延材の175°Cに対してHR+AHRの複合圧延材では125°Cまで低下する。一方、HRとAHRの順番を逆にしたAHR+HRの複合圧延材の成形可能温度が温間圧延材からあまり改善されなかったことから、AHR+HRの複合圧延で形成される比較的弱い底面集合組織ではそれほど絞り成形性が向上しないことを意味する。したがって、HR+AHRの複合圧延による絞り成形性の向上は、底面が傾斜した集合組織の影響によるものであると言える。しかし、HR+AHRの複合圧延をしたAZ61合金の成形可能温度(125°C)がAZ31合金の場合(75°C)^{5),6)}よりも高く、降伏強度を上げれば成形性が下がるといった関係、いわゆるトレードオフの関係がこれらの合金間で認められる。それゆえ、用途に応じた合金の選択が必要である。

3・2 ZK60マグネシウム合金

温間圧延により得られた入手材の微細組織と集合組織を図6に示す。ZnとZrを含有するZK60合金の温間圧延板はAZ系合金と同様に強い底面集合組織をもつが、微細組織はAZ系合金とは異なり、再結晶粒を含む伸長粒組織を示す。反射電子像とEPMAによる組成分析結果から、ZnとZrの含有量が少ない領域(図6(b)の黒い領域)と多い領域(白い領域)が存在することがわかった。また、主として粒界に微細な析出物 Zn_2Zr が存在していた。

図7に70%熱間異周速圧延後の微細組織を示す。450°Cおよび500°Cのいずれの圧延温度でも、圧延面に対して30°以下の傾きを有する主として一方向の巨視的なせん断帯が出現するとともに、双晶や再結晶粒の少ない変形組織が観察される。熱間異周速圧延の圧下率の増加にともなう集合組織の変化を図8に示す。AZ31やAZ61のようなAZ系合金における低下率での急激な集合組織変化とは異

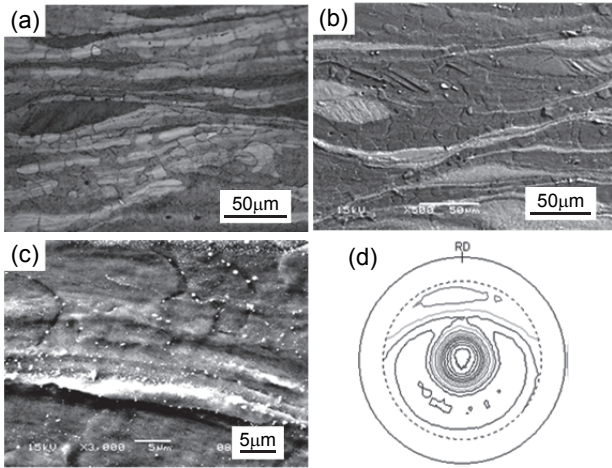


図 6 ZK60 マグネシウム合金温間圧延板(入手材)における縦断面の光学顕微鏡写真(a)と走査電子顕微鏡写真(b, c), および(0001)極点図(d) (等高線レベル: 0.5, 1, 1.5, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 10, 12, 15, 18)

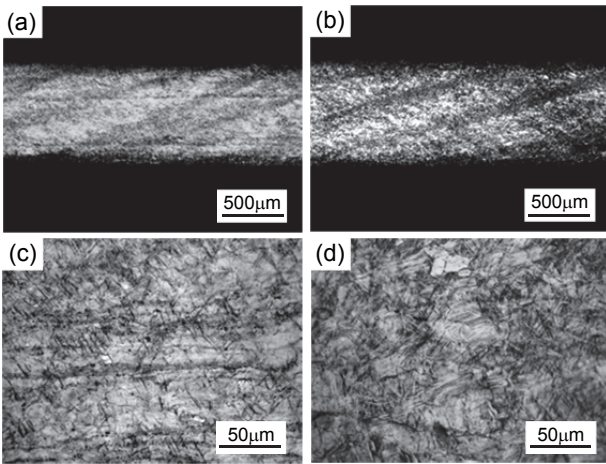


図 7 450°C(a, c)および500°C(b, d)で70%熱間異周速圧延した ZK60 マグネシウム合金板の縦断面における光学顕微鏡写真

なり, ZK60 合金では圧下率の増加に伴って RD と反対方向への底面の傾きが徐々に大きくなっていく. AZ 系合金では双晶形成や動的および静的再結晶が圧延プロセス中に起こりやすいのに対して, ZK60 合金では双晶や再結晶粒が少なく, 非底面すべり, 特に<c+a>面すべりが活動することによって底面集合組織から結晶回転が起こり, 圧下率の増加とともに底面が徐々に傾いていくと考えられる. そのため, 熱間異周速圧延によって底面を板面から大きく傾けるには, AZ 系合金の圧下率 (30%) よりもかなり高い圧下率 (70%) が必要である. 圧延温度による集合組織の違いを見ると, より高温の 500°C 圧延では極密度がかなり低いことがわかる. AZ31 合金の熱間圧延材が温間圧延材よりも極端に低い極密度を示すこと⁶⁾から類推すると, ZK60 合金でも圧延パス間の 500°C 加熱中に再結晶

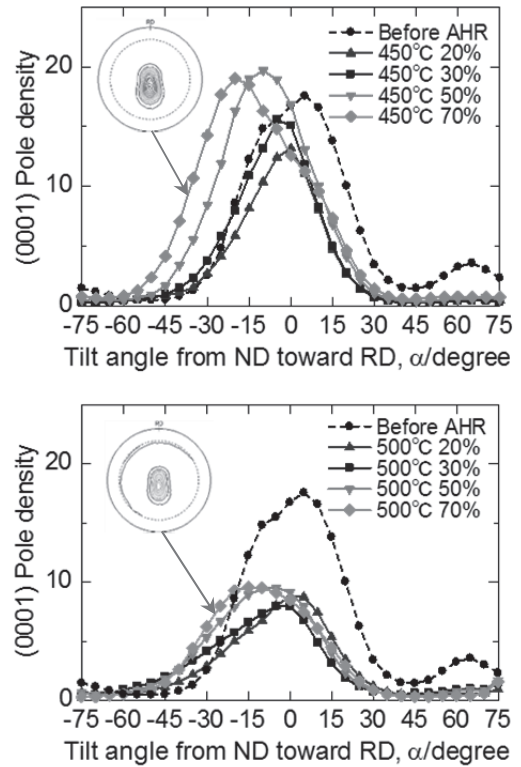


図 8 450°C および 500°C で熱間異周速圧延 (AHR) した ZK60 マグネシウム合金板の(0001)極密度分布

表 2 ZK60 マグネシウム合金溶体化処理材の絞り成形性 (絞り比 1.67, ポンチ速度 10mm/min)

Sample	200°C	175°C	150°C	125°C	100°C
AHRH 70%	—	○	○	○△	××
WR 70%	○	○○	×△	—	—

○:Good △:Crack ×:Failure

が起こることが示唆される. 板面からの底面の傾斜だけでなく, 集合組織の強度の低下も成形性の向上に非常に有効であるため, 温間圧延材に 500°C で熱間異周速圧延を行った試料について成形性を調査した.

500°C で 70% 熱間異周速圧延 (AHRH) した後に溶体化処理を施した試料の絞り試験結果を 70% 温間圧延 (WR) した比較材の結果とともに表 2 に示す. 成形可能温度は WR 材が 175°C であるのに対して, AHRH 材は 150°C 以下であり, 125°C でもカップ肩部にクラックが発生せずに絞り成形できる場合がある. このように, 熱間異周速圧延した試料は通常の温間圧延した試料よりも溶体化処理材において絞り成形性が良好である. 比較のために, AZ31 合金を 450°C で 30% 熱間異周速圧延し焼鈍した試料の成形可能温度を調べた結果, 100°C で問題なく絞り成形できた. AZ31 合金^{5,6)} や上述の AZ61 合金の複合圧延材の結果も考慮すると, 溶体化状態の ZK60 合金が Mg 固溶体単相からなる AZ 系合金と比較して熱間異周速圧延により絞り成形性が

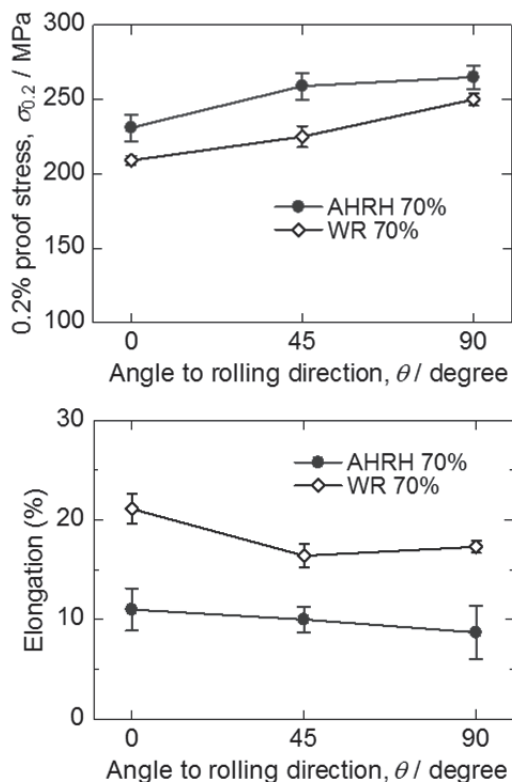


図9 ZK60 マグネシウム合金時効材の0.2%耐力と伸び

大幅に向上しないのは、板面に対する底面の傾斜角が小さい集合組織を有するためである。これは熱間異周速圧延中の変形様式の違いに起因すると考えられるので、今後、合金組成の検討が必要である。

図9に溶体化処理後に時効処理を施した試料の引張試験結果を示す。ZK60合金の0.2%耐力はWR材の233MPa(0°, 45°, 90°方向の平均値)に対してAHRH材は251MPaであり、高温で熱間異周速圧延した試料は通常の温間圧延した試料よりも時効材において強度が高くなる。この理由を考察するために時効材の透過電子顕微鏡観察を行った。図10に示すように、WRの場合には圧延温度が300°Cと低いために圧延中に析出物(Zn_2Zr)が多数析出するが、AHRHの場合には500°Cでの高温圧延のためにその析出量が少なく、溶体化処理後のマトリクス中のZn濃度が高くなり、その後の時効処理により微細な棒状析出物 β_1' 相(Mg_4Zn_7)¹¹⁾が容易に析出したために0.2%耐力が高くなったと考えられる。このようにZK60合金では析出物の種類と形態を変化させ、時効材の高強度化を達成することが可能である。しかしながら、時効材の伸びに関してはWR材の18.2%(3方向の平均値)に対してAHRH材では9.9%の低い値となる。

析出硬化型ZK60合金の時効材はMg固溶体単相のAZ系合金の焼鈍材よりも遥かに高い0.2%耐力を示す。この特性を活かすために、溶体化処理後の成形性が良好な状態

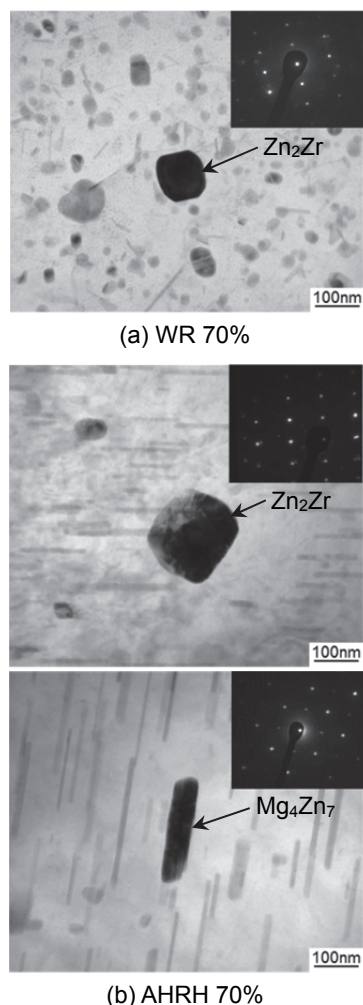


図10 ZK60 マグネシウム合金時効材における析出物の透過電子顕微鏡写真

でプレス成形を行い、その後に時効処理を施して強度を高めることが望まれる。温間圧延で発達した底面集合組織を熱間異周速圧延で底面がRDと反対方向に傾いた集合組織に変化させることによって、溶体化処理後に絞り成形性の良好なZK60合金板が作製できる。この状態でプレス成形を行った後に時効処理で高い強度を得ることが可能である。熱間での異周速圧延は底面傾斜による集合組織制御と微細析出物による組織制御を達成するための非常に有用なプロセスである。

4. 結言

4.1 AZ61 マグネシウム合金

- (1) 集合組織に及ぼす熱間等速圧延および熱間異周速圧延の影響は圧下率30%の時に最も顕著に現れ、それ以上の圧下率では、底面集合組織成分が強まる傾向がある。
- (2) 熱間での等速・異周速複合圧延によって底面集合組織と板面に対して底面がRDと反対方向に傾いた集合組織が同時に形成され、通常の温間圧延材と比べて強度

は劣るが成形性が改善された板材が得られる。

- (3) Mg 固溶体単相の AZ61 合金では 0.2%耐力は AZ31 合金よりも 20MPa 以上向上するが、絞り成形における成形可能温度は約 50°C 上昇する。

4・2 ZK60 マグネシウム合金

- (1) 温間圧延板に高温で異周速圧延を施すことで、板面に対して底面が RD と反対方向に傾いた集合組織が得られる。このような集合組織を有する圧延板は温間圧延板と比べて溶体化処理後に優れた絞り成形性を示す。
- (2) 析出強化型 ZK60 合金では従来の温間圧延材に熱間異周速圧延を行い、適切な熱処理を加えることにより、溶体化処理後に良好な絞り成形性を、その後の時効処理で高い強度を達成することが可能である。

謝 辞

本研究開発の一部は、公益財団法人天田財団の平成 22 年度一般研究開発助成により実施したものであり、ここに感謝の意を表します。また、本研究の遂行にあたって、実験を担当した大阪府立大学工学研究科大学院生の堀内惇平君と工学部学生の中堂庄太君に感謝いたします。

参考文献

- 1) Inoue, H., Hori, M., Komatsubara, T., Tanaka, H. & Takasugi, T.: Mater. Sci. Forum, **558-559** (2007), 207-212.
- 2) Inoue, H., Kobayashi, S., Hori, M., Komatsubara, T. & Takasugi, T.: Application of Texture Analysis, (2009), 445-452, John Wiley & Sons.
- 3) Inoue, H.: Mater. Sci. Forum, **702-703** (2012), 68-75.
- 4) 井上博史：塑性と加工, **54-625** (2013), 116-121.
- 5) 井上博史・堀内惇平・高杉隆幸：第 60 回塑性加工連合講演会講演論文集, (2009), 197-198.
- 6) Horiuchi, J., Inoue, H., & Takasugi, T.: Materials Science Forum, **654-656** (2010), 719-722.
- 7) 日本金属学会編：金属データブック, (1993), 474, 丸善.
- 8) 井上博史・中堂庄太：日本金属学会 2012 年春期 (第 150 回) 大会講演概要 (DVD-ROM), (2012), 419.
- 9) 井上博史・堀内惇平：第 63 回塑性加工連合講演会講演論文集, (2012), 467-468.
- 10) 井上博史・堀内惇平：軽金属学会第 124 回春期大会講演概要, (2013), 225-226.
- 11) Gao, X. & Nie, J. F.: Scripta Mater. **56** (2007), 645-648.