

# 室温プレス成形を可能とするマグネシウム合金 圧延板材の微細組織制御

長岡技術科学大学 産学融合トップランナー養成センター  
産学融合特任講師 中田 大貴  
(2019年度 奨励研究助成 (若手研究者枠) AF-2019037-C2)

キーワード: マグネシウム合金, 圧延材, 張出し成形性

## 1. 研究の目的と背景

マグネシウムは、構造用金属の中で最も密度が小さいため、輸送機器の軽量化を実現する次世代のキーマテリアルとして注目されている。マグネシウムの主たる用途は、アルミニウム合金への添加であるものの、自動車小型鋳造部品としてのマグネシウム合金採用実績も、確実に増えつつある<sup>1)</sup>。また、ボルシェのルーフにマグネシウム合金圧延材が使用されたこともある<sup>2)</sup>。ただし、大衆車のパネル材やフレームにマグネシウム合金が利用されたことは無く、2050年のカーボンニュートラルを実現するためには、積極的に軽量のマグネシウム合金を採用し、自動車の軽量化や低燃費化を達成する必要があると考えられる。

大衆車向けにマグネシウム合金圧延材が利用されない理由の一つは、室温プレス成形性の欠如である。現在、マグネシウム合金の室温プレス成形性の評価手法として最もよく使用されているのは、エリクセン試験である<sup>3)</sup>。代表的な展伸用マグネシウム合金の Mg-3Al-1Zn(mass%, AZ31)合金の場合、圧延材のエリクセン値は3~4mmであり、軽量の自動車パネル部材として採用実績のある5000系および6000系アルミニウム合金の1/2~1/3にも満たない<sup>3)</sup>。このようなマグネシウム合金の低い室温プレス成形性は、自動車パネル製造時のコストアップにつながることから、マグネシウム合金の実用化の妨げとなっている。

この課題解決を目指して、プロセス最適化や新しい合金開発が進められている。例えば、Huangらは、AZ31合金を固相点直下まで加熱し、圧延加工を行うことで、底面集合組織(マグネシウムの(0001)極が板面法線方向(Normal direction, ND)に配向)が弱化し、8.6mmという高いエリクセン値が得られることを報告した<sup>4)</sup>。また、カルシウムと亜鉛の同時添加が集合組織制御に有効であることも提案されている<sup>5)</sup>。特に、近年開発された Mg-Al-Ca-Mn-Zn合金は、8mm以上の良好なエリクセン値を示しながら、強度特性にも優れることが明らかとされており、圧延方向の0.2%耐力は200MPaを超える<sup>6, 7)</sup>。一方で、集合組織制御には高温での再加熱が必要なことや、板幅方向の降伏応力が低いことも報告されている<sup>6, 8)</sup>。安価なパネル材としてマグネシウム合金の利用を考えた場合には、製造コストの低減を目的として、低温の圧延加工および圧延加工中の再加熱を必要としないプロセスが必要と考えられ、

また、強度異方性の低減も解決すべき課題となっている。

私たちの研究グループでは、上記の課題を解決できる材料として、Mg-Al-Mn合金を提案した<sup>9)</sup>。本合金は、220°Cの比較的低い温度かつ再加熱なしの圧延加工でも、底面集合組織の形成が抑制される。また、(0001)面の特定方向への顕著な傾斜もなく、強度異方性は小さい。そこで、本研究では、最近私たちの研究グループが見出した Mg-Al-Mn合金のさらなる高成形性を目的として、初期組織および圧延加工後の熱処理条件を変化させた圧延材を作製し、特性に及ぼす組織因子の影響を調べた。

## 2. 実験方法

連続鋳造法(Direct-chill casting, DC)および双ロール鋳造法(Twin-roll casting, TRC)を用いて、Mg-Al-Mn合金を作製した。表1に化学組成を示す<sup>10)</sup>。

表1 Mg-Al-Mn合金の化学組成[mass%]<sup>10)</sup>

鋳造方法	Al	Mn
Direct-chill casting (DC)	3.0	0.35
Twin-roll casting (TRC)	2.9	0.20

DC材およびTRC材ともに、板厚4mm、板幅130mm、長さ100mmとなるように切断した後、415°C-2h+500°C-2hの均質化処理を施し、圧延加工に供した。圧延加工時のロール温度、ロール周速および圧下率は、それぞれ180°C、5m/minおよび20%/passとし、再加熱をせずに連続で材料をロール間に通し、計6回の圧延加工により板厚1mmの圧延材を得た。その後、170°C、200°Cおよび220°Cにて1h~512hの等温焼なましを行い、硬さの変化が飽和する時間を焼なまし時間として選定した。硬さ試験は、マイクロビッカース硬さ試験機(Mitutoyo, HM-221)を用いて、負荷時間15sおよび圧子押込み荷重0.5kgfの条件で行った。

焼なまし材の室温成形性を評価するために、Sheet Metal Testing Machine(ERICHSEN Model01)を用いて、エリクセン試験を実施した。試験片は60×60mm<sup>2</sup>に切断し、パンチ直径、パンチ速度およびしわ抑え力は、それぞれ、20mm、~6m/minおよび10kNとした。また、板材とパンチ間の摩擦を低減するために、厚さ0.05mmのテフロンシートを挿入した。引張試験には、標点間距離が20mm、板幅が4mmで、引張方向が圧延方向(Rolling direction, RD)

および板幅方向 (Transverse direction, TD) となるように試験片を採取し, 万能試験機 (島津製作所, AG-50kNI) を用いて, 初期ひずみ速度  $10^{-3}/s$  の条件で引張特性を評価した。

焼なまし後の微細組織や集合組織は, 走査電子顕微鏡 (日本電子, JSM-IT500 InTouchScope) および電界放出形走査電子顕微鏡 (日本電子, JSM-7000F) に備え付けた電子線後方散乱回折 (Electron backscattered diffraction, EBSD) 装置により評価した。組織観察用試料は, SiC 研磨紙, アルミナ懸濁液およびコロイダル懸濁液を用いた機械研磨により作製した。組織観察は, 圧延材の RD-ND 面で行い, EBSD データ解析時には Orientation Imaging Microscopy (OIM) ソフトウェアを用いて, RD-TD 面からの解析結果が表示されるようにデータ処理を行った。

### 3. 実験結果および考察

図 1 に, 等温焼なまし時の硬さ変化を示す。焼なまし時間が増加するにつれて, 硬さは低下する。焼なまし温度が  $170^{\circ}\text{C}$  の場合, 初期の硬さ変化は緩やかであるが, 焼なまし温度が  $200^{\circ}\text{C}$  以上になると, 初期から顕著な軟化を示す。この結果から, 表 2 に示す温度と時間を焼なまし条件として選定した。なお, 硬さ変化が飽和した後は, 出発原料や焼なまし温度に関係なく, 硬さは  $52\sim 58\text{HV}$  程度であった。

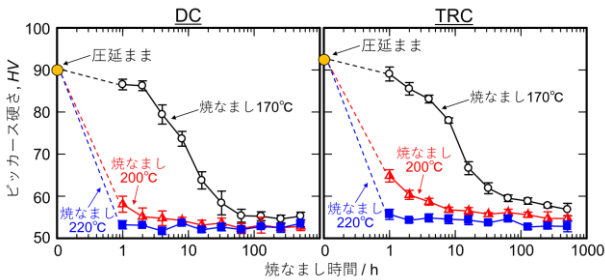


図 1 等温焼なましに伴う圧延材の硬さ変化

表 2 圧延材の焼なまし条件

温度 [ $^{\circ}\text{C}$ ]	時間 [h]
170	64
200	8
220	1

図 2 に, 焼なまし材の引張応力-ひずみ曲線を示す。また, 表 3 に, 焼なまし材の引張強さ (Ultimate tensile strength, U. T. S.), 0.2%耐力 (Proof stress, P. S.), 破断伸び (Elongation to failure, El.) およびエリクセン値 (Index Erichsen value, I. E.) をまとめて示す。U. T. S. は, 出発原料や焼なまし条件が変化しても, 大きく変化しなかった。P. S. に及ぼす出発原料の影響も小さかった。RD の P. S. は, 低温での焼なましにより改善するものの, TD の P. S. に及ぼす焼なまし条件の影響は認められず, 高温

の焼なましにより, P. S. の異方性は増大した。El. および I. E. は, 出発原料と焼なまし条件により大きく変化し, TRC は延性および成形性の改善に有効であることがわかった。高温の焼なましにより I. E. は向上し, TRC と  $220^{\circ}\text{C}$  の焼なましにより,  $9.4\text{ mm}$  の大きなエリクセン値が得られた。一方で, El. は, 高温の焼なましにより低下した。

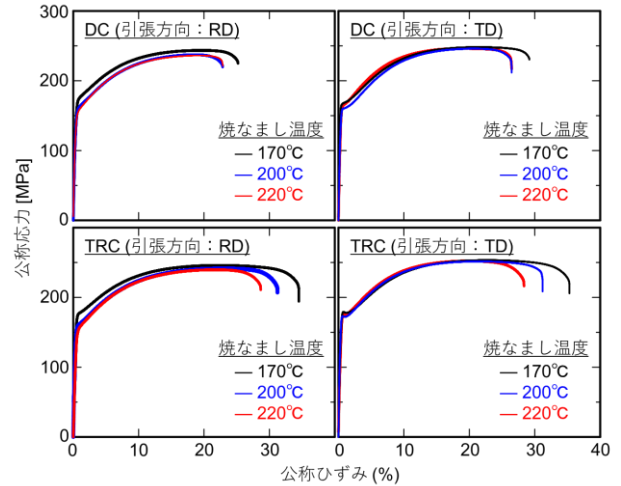


図 2 焼なまし材の引張応力-ひずみ曲線 (文献 10) のデータを一部引用)

表 3 焼なまし材の引張強さ (U. T. S.), 0.2%耐力 (P. S.), 破断伸び (El.) およびエリクセン値 (I. E.) のまとめ (文献 10) のデータを一部引用)

铸造方法	焼なまし温度	引張方向	U. T. S. [MPa]	P. S. [MPa]	El. (%)	I. E. [mm]
DC	$170^{\circ}\text{C}$	RD	244	167	23.9	7.9
		TD	249	163	30.0	
	$200^{\circ}\text{C}$	RD	241	153	22.3	8.2
		TD	245	155	25.8	
TRC	$170^{\circ}\text{C}$	RD	237	148	23.7	8.6
		TD	246	162	26.5	
	$200^{\circ}\text{C}$	RD	245	170	33.1	8.3
		TD	253	176	35.5	
$220^{\circ}\text{C}$	RD	241	155	31.1	8.7	
	TD	251	171	30.6		
$220^{\circ}\text{C}$	RD	239	149	28.0	9.4	
	TD	250	173	27.8		

図 3 に, 焼なまし材の反射電子像を示す。DC で作製した材料中には, 焼なまし温度に関係なく, 黄矢印にて示すように, ミクロンサイズの第二相粒子が存在する。これらの粒子は,  $\text{AlMn}_5$  相と考えられる<sup>11)</sup>。また, 低温の焼なまし後には, 赤矢印にて示すようなサブミクロンサイズの球状第二相粒子も存在するが,  $200^{\circ}\text{C}$  以上の焼なまし後では, そのような微細粒子はほとんど認められない。これらの微細粒子は  $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$  相と考えられ, 焼なまし温度が

200°C以上になると、マグネシウム母相に固溶すると考えられる。TRCで作製した場合、ミクロンサイズの $Al_{18}Mn_5$ 相の形成は認められないが、サブミクロンサイズの球状第二相粒子の量は増加する。170°Cの焼なまし後には、微細粒子の量が最も多く、200°C以上の焼なましにより、微細粒子の量は低減する。TRCでは冷却速度が大きく、晶出化合物は微細化することが予想され、また、170°Cの焼なまし後には、 $Mg_{17}Al_{12}$ 相が析出する。すなわち、TRC および焼なまし温度 170°Cにて作製した材料中には、 $Mg_{17}Al_{12}$ 相と $Al_{18}Mn_5$ 相が混在すると考えられ、焼なまし温度が200°C以上の場合には、 $Mg_{17}Al_{12}$ 相は固溶し、微細粒子の量も低減したと考えられる。

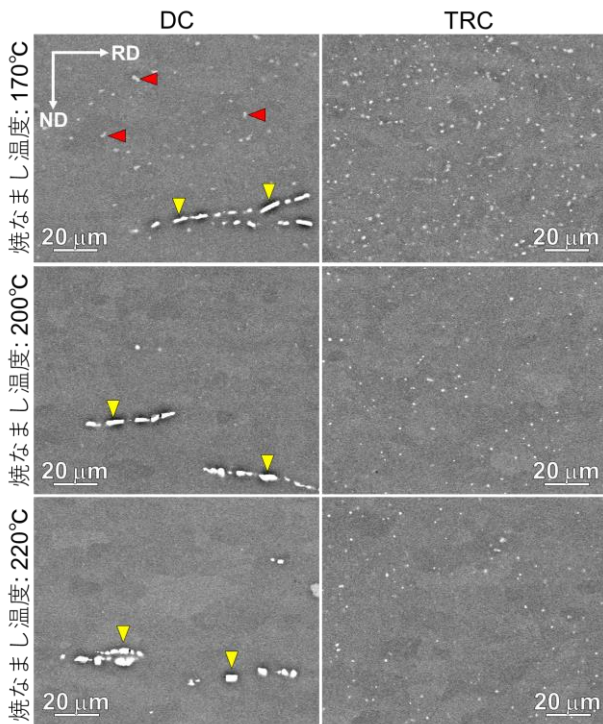


図3 焼なまし材の反射電子像

図4および図5に、焼なまし材の逆極点図マップと(0001)極点図を示す。また、表4に、引張方向がRDおよびTDの場合の底面すべりのシュミット因子(Schmid factor, S.F. (RD)および S.F. (TD))と、それらの比(S.F. (TD)/ S.F. (RD))をまとめて示す。TRCは結晶粒径の微細化に有効であり、焼なまし後の平均結晶粒径は、焼なまし温度に関わらず、7μm程度であった。DCを出発原料した場合、粗大な結晶粒が残留し、平均結晶粒径は10μm程度であった。全ての材料中にて、(0001)面がRDおよび

TDに傾斜した弱い底面配向が得られた。特に、(0001)面のTDへの傾斜は、焼なまし温度が低い場合に顕著であり、引張方向がTDの場合のシュミット因子は、高温の焼なましにより低下した。一方で、焼なまし温度が変化しても、引張方向がRDの場合のシュミット因子に差異は認められなかった。このため、シュミット因子の異方性は、高温の焼なましによって増大し、表3に示したようなP.S.の異方性の原因になったと考えられる。

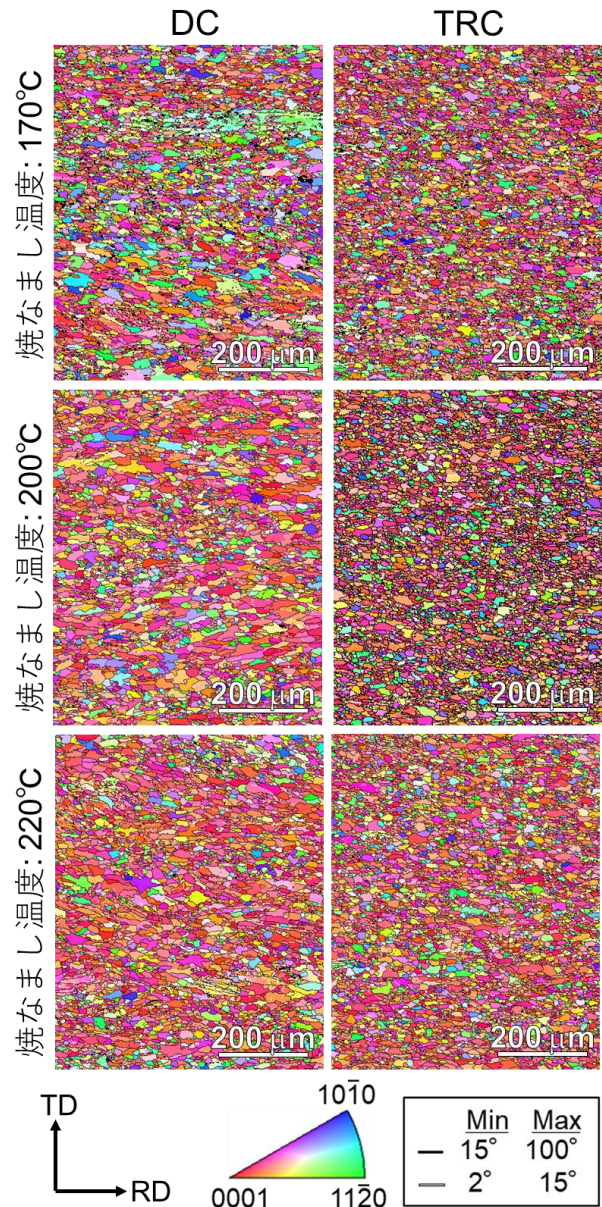


図4 焼なまし材の逆極点図マップ



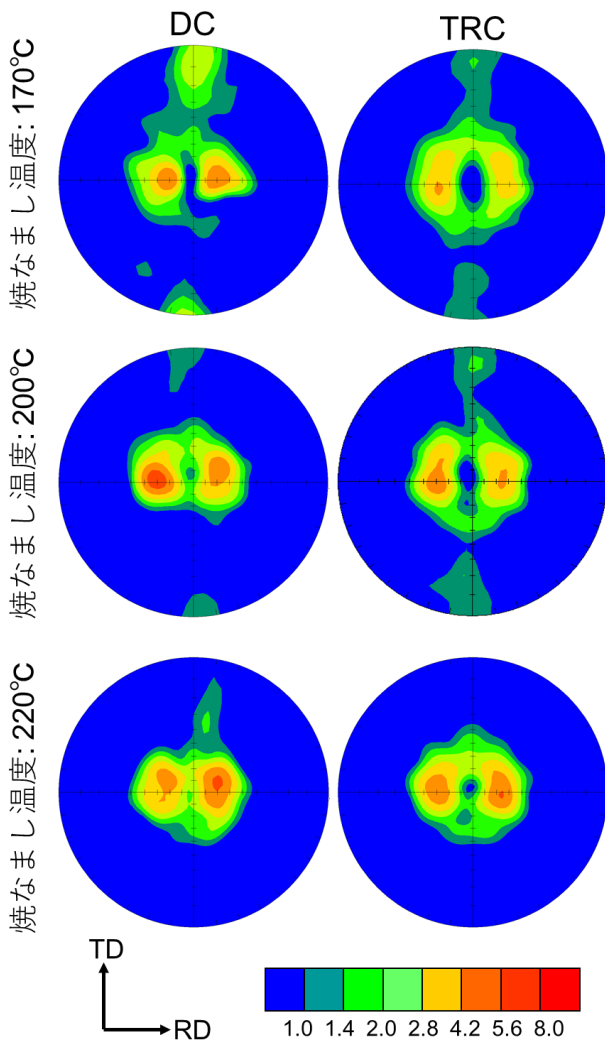


図5 焼なまし材の(0001)極点図

表5 焼なまし材のシュミット因子(S.F.(RD)およびS.F.(TD))と、それらの比(S.F.(TD)/S.F.(RD))をまとめ

铸造方法	焼なまし温度	S.F.(RD)	S.F.(TD)	S.F.(TD)/S.F.(RD)
DC	170°C	0.281	0.263	0.936
	200°C	0.294	0.249	0.846
	220°C	0.280	0.246	0.879
TRC	170°C	0.291	0.282	0.971
	200°C	0.293	0.269	0.918
	220°C	0.290	0.256	0.883

張出し成形性に及ぼす組織因子の影響を考察するために、底面すべりのシュミット因子とエリクセン値の関係を調べた。これは、板材の張出し成形時には板厚減少が必須で、マグネシウム圧延材の板厚減少には、底面すべりの活動が欠かせないためである。図6に、引張方向がRDおよびTDの底面すべりのシュミット因子の平均値とエリクセン値の関係を示す。図中の青色で記載した数字は、表5

に示したシュミット因子の比を表す。シュミット因子が大きいと、底面すべりが活発になり、エリクセン値も改善することが予想されるが、シュミット因子が増加するにつれて、エリクセン値は低下する傾向が認められた。また、RDとTDの変形能の差異が改善することで、張出し成形性が向上することも提案されており<sup>12)</sup>、シュミット因子の比が1に近いほど、エリクセン値は改善すると予想されるが、本研究からは、そのような傾向は確認できなかった。化合物量の低減・微細化や結晶粒径の微細化も、張出し成形性改善に有効となることは報告されており<sup>7, 10)</sup>、TRCを出発原料とした場合のエリクセン値の向上理由と考えられる。また、本研究で検討した材料では、170°Cの焼なまし後に、Mg<sub>17</sub>Al<sub>12</sub>相と考えられる微細粒子が分散していたことから、200°Cの焼なましによりエリクセン値が改善したのは、微細粒子が固溶したためと考えられる。一方、200°Cと220°Cの焼なまし後では、化合物の分散状況に差異は認められず、平均結晶粒径も大きく変化しなかった。前述の通り、220°Cの焼なまし後にはシュミット因子は小さくなり、異方性も大きくなったことから、高温の焼なましによってエリクセン値が改善した理由は、これまでの研究開発知見からは説明できず、さらなる特性改善メカニズム解明が必要になると考えられる。

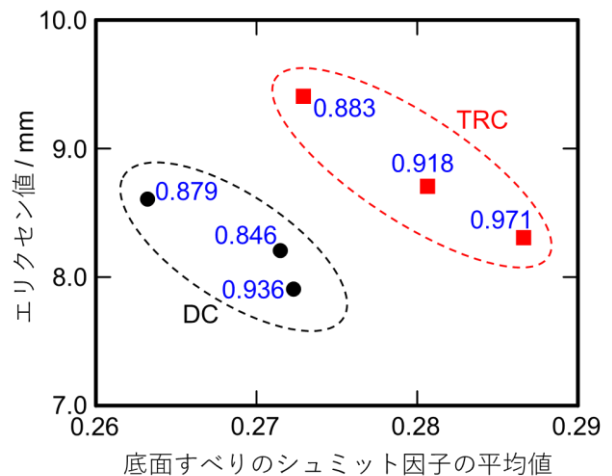


図6 表5に示した底面すべりのシュミット因子の平均値とエリクセン値の関係

張出し成形性とは異なり、破断伸びは、低温の焼なましにより大きく改善した。特に、TRCを出発原料として、170°Cの焼なましを行うことで、33%を超える破断伸びを発現した。この高延性は、TRCにより実現した第二相粒子の微細分散や結晶粒径の微細化が理由と考えられる。一方で、エリクセン値とは異なり、焼なまし温度が高くなるにつれて破断伸びは低下する傾向があった。一部の研究開発では、マグネシウム合金圧延材の高成形性化を目指して、優れた破断伸びを有する材料開発が進められているが<sup>13,14)</sup>、本研究成果は、破断伸びの評価だけでは、室温プレス成形性向上を目指した指針を構築することは困難

となることを示唆している。これは、材料の巨視的な変形に起因すると考えられる。マグネシウム板材の単純な一軸引張試験時には、非底面すべり(柱面すべり)も容易に活動し、幅方向の変形も容易であるため、高延性化は達成しやすい。張出し成形時には、材料が変形するためには板厚減少が必須となるものの、底面集合組織を有する材料中では、柱面すべりの活動によっては板厚方向に変形できないため、その活動も困難と予想される。また、数値計算によっても、柱面すべりが活動しにくいことは提案されている<sup>15, 16)</sup>。一方で、柱面すべりの活動が張出し成形性改善に有効という研究例もあることから<sup>6, 17)</sup>、マグネシウム合金の高成形性化に関して、十分な結論は出ていないと言える。今後、詳細な変形挙動解明を行い、組織と特性の関係を構築する必要があると考えられる。

#### 4. まとめ

本研究では、私たちの研究グループで提案したMg-Al-Mn合金圧延材の引張特性や室温張出し成形性に及ぼす出発原料および焼なまし条件の影響を調べた。その結果、双ロール鋳造法と低温の焼なましの組み合わせにより、異方性の小さい良好な強度特性と8mmを超えるエリクセン値を達成した。また、高温の焼なましにより、シュミット因子の異方性が大きくなるにもかかわらず、エリクセン値は向上するという特異な現象も見出した。今後、組織と特性の詳細な関係解明を行うことで、マグネシウム合金の実用化を促進する新規な学術知見の提案につながると考えられる。

#### 謝辞

本研究は、公益財団法人天田財団の研究助成を受けて実施することができました。ここに厚く御礼申し上げます。双ロール鋳造材は、住友電気工業株式会社 吉田雄様、吉田克仁様にご提供いただきました。また、実験は、長岡技術科学大学 海部圭吾君の協力により進めることができました。ご支援、ご協力いただきました皆様に心より御礼申し上げます。研究成果の一部は、Journal of Magnesium and Alloysにて発表しました。

#### 参考文献

- 1) J. P. Weiler: J. Magnes. Alloys., 7 (2019), 297.
- 2) L. C. Whitmore · J. Denk · G. A. Zickler · G. R. Bourret · O. Huber · H. Saage · N. Huesing · O. Diwald: J. Alloys Compd., 789 (2019), 1022.
- 3) A. A. Luo · R. Shi · J. Miao · T. Avey: JOM, 73 (2021), 1403.
- 4) X. Huang · K. Suzuki · Y. Chino · M. Mabuchi: J. Alloys Compd., 509-28 (2011), 7579.
- 5) Y. Chino · X. Huang · K. Suzuki · M. Mabuchi: Mater. Trans., 51 (2010), 818.
- 6) Z. H. Li · T. T. Sasaki · M. Z. Bian · T. Nakata · Y. Yoshida · N. Kawabe · S. Kamado · K. Hono: J. Alloys Compd., 847 (2020), 156347.
- 7) T. T. T. Trang · J. H. Zhang · J. H. Kim · A. Zargaran · J. H. Hwang · B. -C. Suh · N. J. Kim: Nat. Commun., 9 (2018), 2522.
- 8) M. Z. Bian · T. T. Sasaki · T. Nakata · S. Kamado · K. Hono: Mater. Sci. Eng. A, 730 (2018), 147.
- 9) T. Nakata · C. Xu · H. Ohashi · Y. Yoshida · K. Yoshida · S. Kamado: Scr. Mater., 180 (2020), 16.
- 10) T. Nakata · C. Xu · K. Kaibe · Y. Yoshida · K. Yoshida · S. Kamado: J. Magnes. Alloys, 10 (2022) 1066.
- 11) A. A. Luo · A. K. Sachdev: Metall. Mater. Trans. A, 38 (2007), 1184.
- 12) B. -C. Suh · M. -S. Shim · K. S. Shin · N. J. Kim: Scr. Mater., 84-85 (2014), 1.
- 13) R. Shi · J. Miao · A. A. Luo: Scr. Mater., 171 (2019), 92.
- 14) C. Wang · H. Ning · S. Liu · J. You · T. Wang · H. -J. Jia · M. Zha · H. -Y. Wang: Scr. Mater., 204 (2021), 114119.
- 15) T. Hama · H. Takuda: Comput. Mater. Sci., 51-1 (2012), 156.
- 16) D. Xia · X. Chen · G. Huang · B. Jiang · A. Tang · H. Yang · S. Gavras · Y. Huang · N. Hort · F. Pan: Scr. Mater., 171 (2019), 31.
- 17) B. -C. Suh · J. H. Kim · J. H. Bae · J. H. Hwang · M. -S. Shim · K. S. Shin · N. J. Kim: Acta Mater., 124 (2017), 268.