

令和元年5月31日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04525

研究課題名（和文）双晶形成に基づく集合組織変化を活用した易成形性マグネシウム合金の創出

研究課題名（英文）Development of magnesium alloys with high formability by using texture control based on twin generation

研究代表者

千野 靖正（Chino, Yasumasa）

国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・研究グループ付

研究者番号：50357498

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：マグネシウム合金中の変形双晶の生成を制御し、マグネシウム合金板材の室温成形性を改善する手法を検討した。そこでは、圧延中に多くの微細双晶が生成するMg-Ca系合金を対象として、効果的に双晶を導入することができる「曲げ引張り加工」を利用することにより、集合組織形成を制御し、優れた室温成形性を付与することを目指した。その結果、曲げ引張り加工法により集合組織の制御が可能であり、それに連動して室温成形性が改善することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

マグネシウム合金の有する強み（軽量性）を活かした輸送機器用構造部材を実用化するためには、大型・高寸法精度部材の大量生産が必要不可欠となる。そのためには、室温成形性の向上は必須かつ最適な手段である。本研究では、マグネシウム合金の双晶形成を制御し、それに基づいた材料設計により室温成形性を飛躍的に改善することを目的としている。本技術が実現すれば、マグネシウムが元来有する強みと相まって、社会的に高い波及効果を期待することができる。

研究成果の概要（英文）：Method for improving room temperature formability of magnesium alloy sheets by controlling generation of deformation-twin were examined. It is known that a large amount of twins were generated in Mg-Ca alloys during rolling, and “bending and tension deformation” is known to be an effective process for introduction of twin generation in Mg alloys. Thus, in this study, effects of bending and tension deformation on the texture formation and room temperature formability of Mg-Ca alloys were investigated. As a result, it was revealed that the texture of Mg-Ca alloys can be controlled by the bending and tension deformation, and its room temperature formability was improved by the texture control.

研究分野：材料工学・金属学

キーワード：マグネシウム合金 集合組織 組織 成形性 双晶

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

マグネシウム合金は軽量・高比強度・易リサイクル金属素材として国内外で注目を集めている。長周期積層構造の導入による超高強度化[1]や表面処理による耐食性向上[2]など素材特性も充実し、電化製品筐体など一部実用化されているが、冷間(室温)成形性に乏しいことが大型部材化・量産化を阻んでいる。低成形性の原因としてマグネシウム合金の多くが室温でのすべり系の少ない六方最密充てん(hcp)構造を有すること、また圧延中に形成される強い底面集合組織が塑性異方性を助長していることが指摘されている。前者はリチウム添加により体心立方構造(bcc)を有する第2相を利用する研究が盛んに行われている[3]。後者に関しては、集合組織制御による塑性異方性改善の研究が隆盛であり、我々もこの観点での研究を実施している[4-8]。

このような状況の下、我々は0.1 mass%程度の特定元素の微量添加によりマグネシウム合金板材(代表組成:Mg-1.5mass%Zn-0.1mass%Ca)の室温成形性が飛躍的に向上することを実証した[6-8]。開発した板材は、市販のマグネシウム合金板材よりも著しく弱い強度の底面集合組織を有し、優れた室温成形性(室温エリクセン値8.2、限界深絞り比1.8)を示す。一方、市販アルミニウム合金の限界深絞り比は2.0以上であり、マグネシウム合金板材のさらなる室温成形性の改善が求められている。

2. 研究の目的

近年、我々はMg-Ca系合金圧延材の微細組織を調査した結果、圧延中に形成される双晶界面を基点としてナノオーダーの再結晶粒が生成することを発見し、微細な再結晶粒の生成が底面集合組織のランダム化に寄与することを明らかにした[9]。これらの知見に基づき「圧延中に生成する変形双晶の種類を把握し、積極的に双晶を導入することができれば、マグネシウム合金板材の室温成形性をさらに飛躍的に改善できる」、という着想を得た。

そこで本研究では、Mg-Ca系合金を対象として、マグネシウム合金中の変形双晶の生成を制御し、マグネシウム合金板材の室温成形性を飛躍的に改善することを目指す。

なお、これまでの研究により、曲げ加工を行ったマグネシウム合金内部には多数の双晶が生成することが知られており[10]、それに起因して特異な集合組織が形成されることが知られている。一方、曲げ加工を行った時に生成する双晶を利用して、マグネシウム合金の集合組織を制御した事例は少ない。そこで本研究では、試料全面に曲げ変形を付与することができる「曲げ引張り加工」に注目し[11]、Mg-Ca系合金の底面集合組織を曲げ引張り加工法により制御し、室温成形性を改善するための手法を開発することを目指す。

3. 研究の方法

平成28年度は、Mg-Ca系合金の集合組織形成と室温成形性の関係を明確化することを目的として、曲げ引張り加工を行わないMg-Ca系合金を対象として、マグネシウム合金へのカルシウムの添加が圧延材の組織や室温成形性に及ぼす影響について系統的に調査した。そこでは、Mg-Xmass%Ca合金(X=0.01~0.3)および純マグネシウムインゴットを高周波炉により溶製し、押出加工の後に、均質化処理した試料を出発材とした。厚み5mmから1mmまで高温(500)での焼鈍と温間(200)での圧延を繰り返し行い、圧延後に焼鈍(350, 90min)を行った。圧延材の組織・集合組織をSEM-EBSDおよびXRDで評価するとともに、圧延材より円形状のブランクを切り出し、エリクセン試験により室温張出し成形性を評価した。

平成29年度は、曲げ引張り加工がマグネシウム合金板材の集合組織形成に及ぼす影響を明確化することを目的として、汎用マグネシウム合金(AZ31B:Mg-3mass%Al-1mass%Zn-0.5mass%Mn)板材を対象として、曲げ引張り加工が集合組織形成および室温成形性に及ぼす影響を調査した。供試材としては厚み1mmの完全焼き鈍し材を利用した。曲げ引張り加工に利用した金型の曲げ角度は45度、パンチの曲率半径は5mmとした。上記の金型に供試材をセットした後に速度100mm/minで曲げ引張り加工を行った。潤滑は機械油を利用した。加工後の試料に焼鈍(350, 15min)を実施した後に同様の加工を行い、加工回数が集合組織形成に及ぼす影響を調査した。曲げ引張り加工後の板材の組織・集合組織をSEM-EBSDおよびXRDで評価するとともに、板材より円形状のブランクを切り出し、エリクセン試験により室温張出し成形性を評価した。

平成30年度は、H28~29年度に得られた知見を活用し、Mg-Ca系合金(Mg-0.5mass%Ca合金)を対象として、曲げ引張り加工法が集合組織形成および室温成形性に及ぼす影響を調査した。そこでは、厚み1mmのMg-0.5mass%Ca合金焼鈍材を供試材として利用した。曲げ引張り加工に利用した金型の曲げ角度は45度、パンチの曲率半径は5mmとした。上記の金型に供試材をセットした後に速度100mm/minで曲げ引張り加工を行った。潤滑は機械油を利用した。加工後の試料に焼鈍(350, 15min)を実施した後、パス回数毎に板材を表裏反転させる加工を6回行った。比較材として、曲げ引張り加工を行わないMg-0.5mass%Ca合金の特性の評価を行った。曲げ引張り加工後の板材の組織・集合組織をSEM-EBSDおよびXRDで評価するとともに、板材より円形状のブランクを切り出し、エリクセン試験により室温張出し成形性を評価した。

4. 研究成果

平成 28 年度の研究成果に関しては、圧延材の底面集合組織を調査した結果、カルシウム濃度の増加に伴い集合組織強度は低下し、Mg-0.01mass%Ca 合金の集合組織強度は約 20 であるのに対し、Mg-0.1mass%Ca 合金の集合組織強度は約 4 まで低下することが確認された。また、上記合金のミクロ組織を観察した結果、カルシウムを 0.3mass%以上添加すると比較的微細な粒径(35 μ m)になるが、0.1mass%以下の添加では結晶粒径に大きな差が現れないことが分かった(粒径:約 50 μ m)。

上記合金の室温エリクセン試験を実施した結果、カルシウム濃度が 0.01~0.05mass%の範囲では Mg-Ca 系合金は純マグネシウムとほぼ同じエリクセン値を示した。一方、カルシウム濃度を 0.1mass%に設定すると、著しく高いエリクセン値(7.1)が得られた。この値は、市販の AZ31B 合金のエリクセン値(3~5)[12]と比較すると著しく高い値であり、室温成形性を高めるためのカルシウム濃度には最適値があることが分かった。また、底面集合組織強度の弱化と室温エリクセン値の増加は、定性的に連動した関係を示しており、Mg-0.1mass%Ca 合金が優れた室温成形性を示した主な原因が、底面集合組織強度の弱化や分布の変化に起因することが示唆された。

平成 29 年度の研究成果に関しては、始めに曲げ引張り加工前の AZ31B 合金の底面集合組織を測定した。その結果、試料には(0002)面が RD-TD 面に配向する集合組織が形成されていることが確認された。次に、曲げ引張り加工を行った AZ31B 合金の底面集合組織を測定した。その結果、複数回の曲げ引張り加工を行うと、c 軸が RD 方向に約 25~40 度傾く底面集合組織が形成されることが分かった。なお、7 回以上の加工を行うと、集合組織の大きな変化は確認されなくなった。7 回の曲げ引張り加工を行った試料のエリクセン値は 6.7 であり、曲げ引張り加工前の試料のエリクセン値(4.7)よりも優れた値を示した。

次に、曲げ引張り加工の加工方向が集合組織形成等に及ぼす影響を調査した。その結果、1 回目の曲げ引張り加工に供した後に、板材を表裏反転させて(前後反転させずに)金型に設置し、2 回目の加工に供する操作を 6 回繰り返す加工を採用すると、集合組織の形成に変化が現れることが分かった。具体的には、板材を表裏反転させない場合と同様に、c 軸が RD 方向に約 25~40 度傾く集合組織が形成されるが、(0002)面の集積が低下する傾向が確認された。上記の加工を行った試料のエリクセン値は 7.0 であり、底面集合組織の分布および強度を制御すると、室温成形性を効果的に改善することができることが明らかとなった。

平成 30 年度の研究成果に関しては、始めに Mg-0.5mass%Ca 合金板材の底面集合組織を XRD により評価した。その結果、(0002)面が RD-TD 面に配向する典型的な底面集合組織が確認された。次に、曲げ引張り加工を実施した Mg-0.5mass%Ca 合金の底面集合組織を評価した。その結果、c 軸が RD 方向に 30~50 度傾く集合組織が観察された。以上の結果から、Mg-Ca 系合金に関しても AZ31B 合金と同様に、曲げ引張り加工により底面集合組織の分布および強度を制御可能であることを確認した。

さらに、上記 Mg-0.5mass%Ca 合金の室温エリクセン試験を実施した結果、比較材の室温エリクセン値は 4.6 であり、曲げ引張り加工を行った Mg-0.5mass%Ca 合金の室温エリクセン値は 5.1 であった。このことから、Mg-Ca 系合金に関しても、曲げ引張り加工により集合組織を制御することにより、室温成形性を改善することが可能であることを明らかにした。

<引用文献>

- [1] E. Abe, Y. Kawamura, K. Hayashi, A. Inoue, *Acta Mater.* Vol. 50 (2002) 3845-3857.
- [2] J.E. Gray, B. Luan, *J. Alloy. Compd.* Vol. 336 (2002) 88-113.
- [3] T. Al-Samman, *Acta Mater.* Vol. 57 (2009) 2229-2242.
- [4] Y. Chino, K. Sassa, M. Mabuchi, *Mater. Trans.* Vol. 49 (2008) 2916-2918.
- [5] Y. Chino, K. Sassa, M. Mabuchi, *Mater. Sci. Eng. A* Vol. 513-514 (2009) 394-400.
- [6] Y. Chino, X. Huang, K. Suzuki, M. Mabuchi, *Mater. Trans.* Vol.51 (2010) 818-821.
- [7] 千野靖正, 佐々健介, 黄新ショウ, 鈴木一孝, 馬淵守, *日本金属学会誌* Vol. 75 (2011) 35-41.
- [8] Y. Chino, T. Ueda, Y. Otomatsu, K. Sassa, X. Huang, K. Suzuki, M. Mabuchi, *Mater. Trans.* Vol. 52 (2011) 1477-1482.
- [9] H. Nakano, M. Yuasa, Y. Chino, M. Mabuchi, *J. Mater. Res.* Vol. 29 (2014) 3024-3031.
- [10] 田中良典, 浅川基男, 加藤正仁, 小林勝, *軽金属*, Vol. 58 (2008) 522-523.
- [11] 加藤正仁ら, H21 塑性加工春季講演会論文集 (2009) 269-270.
- [12] Y. Chino, H. Iwasaki, M. Mabuchi, *Mater. Sci. Eng. A* Vol. 466 (2007) 90-95.

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 3 件)

千野靖正, 黄新ショウ, 鈴木一孝, 集合組織制御による優れた室温成形性を示すマグネシウム合金圧延材の開発, *日本金属学会誌*, 査読有, 81 巻, 2017, 49-54
<https://doi.org/10.2320/jinstmet.J2016059>

野口智之, 鈴木一孝, 黄新ショウ, 斎藤尚文, 塚田祐貴, 小山敏幸, 千野靖正, Mg-Ca 合金圧延材の室温成形性および制振性に及ぼすカルシウム濃度の影響, *日本金属学会誌*, 査読有, 82 巻, 2018, 249-255

<https://doi.org/10.2320/jinstmet.J2018007>

野口智之、鈴木一孝、黄新ショウ、斎藤尚文、塚田祐貴、小山敏幸、千野靖正、AZ31B マグネシウム合金圧延材の集合組織形成及び室温成形性に及ぼす曲げ引張り加工の影響、日本金属学会誌、査読有、83 巻、2019、212-220

<https://doi.org/10.2320/jinstmet.J2019002>

〔学会発表〕(計 3 件)

野口智之、Mg-Ca 合金圧延材の室温成形性に及ぼす Ca 添加の影響、日本金属学会 2017 年度春期大会、2017/03/16、首都大学東京(東京)

野口智之、AZ31B 合金板材の集合組織形成及び成形性に及ぼす曲げ引張り加工の効果、日本金属学会 2017 年度秋期大会、2017/09/07、北海道大学(札幌)

千野靖正、Mg-Ca 合金板材の室温成形性及び制振性に及ぼすカルシウム濃度の影響、軽金属学会第 134 回春期大会、2018/05/27、熊本大学(熊本)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

○取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等(計 0 件)

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：中野 裕美

ローマ字氏名：Hiromi Nakano

所属研究機関名：豊橋技術科学大学

部局名：研究基盤センター

職名：教授

研究者番号(8桁)：00319500

研究分担者氏名：馬淵 守

ローマ字氏名：Mamoru Mabuchi

所属研究機関名：京都大学

部局名：エネルギー科学研究科

職名：教授

研究者番号(8桁)：00358061

研究分担者氏名：鈴木 一孝

ローマ字氏名：Kazutaka Suzuki

所属研究機関名：国立研究開発法人産業技術総合研究所

部局名：材料・化学領域

職名：主任研究員

研究者番号(8桁)：60357275

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。