

令和 3 年 6 月 14 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04787

研究課題名（和文）時効析出を活用したマグネシウム合金板材の深絞り成形性向上

研究課題名（英文）Improvement of deep drawing formability of magnesium alloy sheets utilizing aging precipitation

研究代表者

黄 新ショウ（HUANG, Xinsheng）

国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・主任研究員

研究者番号：80415679

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、弱い集合組織と優れた成形性を持つAZ61マグネシウム合金高温圧延材に対し、時効処理が圧延材の組織、室温～225℃の深絞り成形性と引張特性などを与える影響を調査した。その結果、時効材は時効条件や成形温度によるが、未時効材よりも高い深絞り成形性を得ることが可能であると確認した。特に、 β 相（Mg₁₇Al₁₂）析出粒子を多く含む175℃96時間の時効材は100℃の比較的に低い成形温度でも、深絞り成形性が著しく向上し、高強度を持ちながら、未時効材よりも優れた深絞り成形性が得られ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成形性向上は実用化に向けて非常に重要な課題である。析出強化型合金は時効により、強度が向上する利点はあるが、一般的に、延性低下が伴うため、成形性の面において、第二相粒子の析出を避けるべきと考えられてきた。本研究では、集合組織を制御したAZ61合金圧延材に対し、時効処理が室温～225℃の深絞り成形性を与える影響を初めて調査した。その結果、時効条件や成形温度によるが、 β 相（Mg₁₇Al₁₂）析出粒子を多く含む時効材は、未時効材に比べ、強度と深絞り成形性の同時向上が可能であることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：In this study, for high-temperature rolled AZ61 magnesium alloy sheets with a well-weakened texture and thus excellent press formability, the influences of aging precipitation on microstructure, deep drawing formability and tensile properties at RT-225℃, were investigated. As a result, it is possible to achieve better deep drawing formability compared with the un-aging-treated sheet, depending on aging treatment conditions and deformation temperature. It is worth noting that the sheet aged at 175℃ for 96 h exhibits a significant improvement in deep drawing formability, when slightly increases deformation temperature from RT to 100℃. This results in the achievement of both higher mechanical strength and better deep drawing formability compared with the un-aging-treated sheet.

研究分野：金属材料工学

キーワード：マグネシウム合金 圧延 時効 成形性

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

Mg は比重 1.74g/cm^3 で、鉄 (Fe) の $1/4$ 、アルミニウム (Al) の $2/3$ であり、実用金属材料の中で最も低密度である。高い比強度と曲げ剛性を持つため、輸送機器の軽量化による省エネルギーの観点から注目されている。また、易リサイクル性、豊富な資源、優れた振動減衰能と耐くばみ性などの利点を有するため、輸送機器への適用において多くのメリットがある。

一方、室温近傍で非底面すべりが殆ど活動しないことや、圧延と同時に強い底面集合組織が形成されることに起因して、室温近傍におけるプレス成形性が非常に低いことが、Mg 合金板材の実用化に際しての問題となっている。

近年、申請者らは、固相線直下の温度で圧延する (高温圧延法) と、底面集合組織の形成が著しく抑制されることを発見し、汎用 Mg 合金である AZ31 (Mg-3%Al-1%亜鉛 (Zn), mass%) 合金の室温張出し成形性 (エリクセン値: $3\sim 5$) を Al 合金並み (エリクセン値: 9 程度) まで飛躍的に向上させることに成功している¹⁾。また、深絞り成形性も限界絞り比が通常の $1.2\sim 1.4$ から 1.8 程度まで大幅に上昇することを明らかにしている^{2,3)}。この高温圧延法は時効析出可能な Mg 合金 (例えば 6%以上の Al を含有した合金) にも有効である⁴⁾。

張出し成形の等二軸応力状態と異なり、深絞り成形は、成形カップの肩部では曲げ引張応力を、エッジ部では円周方向の圧縮応力を受ける。これまでの研究結果により、深絞り成形の破断箇所に関しては、Al 合金や鉄鋼材料は成形カップの肩部に割れるのに対し、Mg 合金はエッジ部で割れる傾向が強いことが分かっている。これは深絞り変形中にエッジ部の集合組織が大きく変化し、悪化するためである^{2,3)}。具体的には、底面集合組織の極がカップ円周方向に約 90° 回転し、結晶配向が強くなるためである。エッジ部では、底面配向した結晶の c 軸がカップ円周方向の圧縮応力を受けるため、引張双晶は非常に発生しやすい。

これまでに、申請者らは、引張双晶の発生は母相方位に対して 86° の格子回転を伴うことから、引張双晶の生成頻度を低めることにより、深絞り成形中の集合組織の発達を抑制することができることを明らかにしている^{2,3)}。なお、双晶の形成は集合組織、結晶粒径、変形温度と析出物に強く影響される。時効析出型合金は、過飽和固溶した溶質元素が熱処理 (時効処理) 中に微細に析出するため、時効処理で生成する微細析出物のブロック効果により、双晶の生成を強く抑制できることが知られている⁵⁾。そのゆえに、時効処理を有効活用すると、成形中の底面集合組織の発達を抑制することができ、深絞り成形性をさらに向上させることが期待できる。しかし、Mg 合金の深絞り成形性に及ぼす時効処理の影響を調査した研究は、世界中においてもまだ報告されていない。また、特定結晶面に析出する傾向がある微細析出物が、変形中の活動すべり系や集合組織変化にどのように影響を及ぼすかも不明である。

なお、Mg の変形メカニズムは強い温度依存性を有しており、変形温度の上昇に伴い非底面すべりの活動度が増え、双晶生成は減少する傾向がある。従って、変形集合組織の形成メカニズムに及ぼす時効処理の影響を理解するために、微細析出物を含む Mg 合金の温間域における組織変化と変形挙動を明らかにすることも重要である。

2. 研究の目的

本研究では、Mg 合金板材の深絞り成形性向上を目指して、集合組織制御した Mg 合金圧延板材を対象として、室温～温間域において深絞り成形性に及ぼす時効処理の影響を明らかにし、微細析出物が双晶生成への影響および変形集合組織の形成メカニズムを究明することを目的としている。

3. 研究の方法

はじめに、汎用 AZ31 合金に比べて高強度かつ時効強化可能な AZ61 (Mg-6%Al-1%Zn, mass%) 合金を対象として、高温圧延を行い、集合組織をランダム化した圧延材を作製した。350 1 時間で焼鈍処理した圧延材 (未時効材) に対し、異なる条件で時効処理を行い、時効処理条件が圧延材の組織と硬さなどに与える影響を調査した。

次に、異なる時効処理条件で異なる析出形態を生成し、時効処理が室温～温間の引張特性と深絞り成形性に与える影響を調査した。

さらに、未時効材と時効材を対象として、深絞り成形カップの組織観察を行った。機械的特性と深絞り成形中の組織変化が深絞り成形性との関係を調査した。

微細析出物の観察は、走査型電子顕微鏡 (SEM) や透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて行った。深絞り成形カップに対して、電子後方散乱回折 (EBSD) を用いて集合組織と変形双晶などの解析を行った。深絞り試験はエリクセン社薄板成形試験機を用いた。引張試験は島津万能試験機 (恒温槽付き) を利用して行った。

4. 研究成果

4 - 1. 時効処理が析出形態と硬さに与える影響

はじめに、AZ61 合金に対して高温圧延を行い、集合組織をランダム化した圧延材を作製した。

350 1 時間焼鈍後の板材は底面集合組織の最大強度が 4.3 で、弱い集合組織を示した。また、この板材は室温エリクセン値が 8.0 であり、優れた室温張出し成形性を示した。

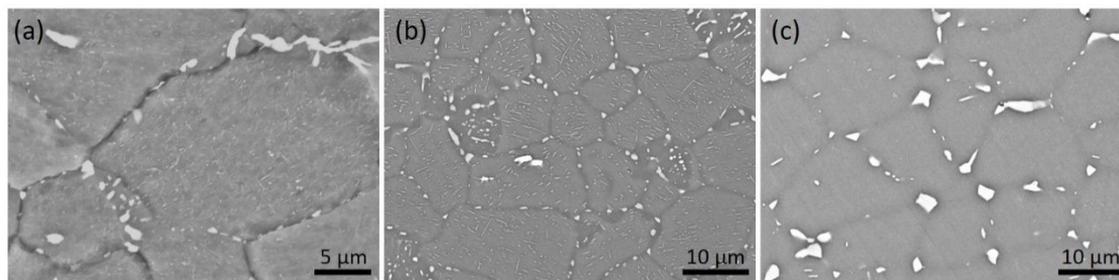


図1 (a)175、(b)200 と(c)250 において96時間で時効処理した試料のSEM写真

次に、350 1 時間焼鈍処理後の AZ61 合金高温圧延材（未時効材）に対して、異なる析出形態を得るために、各種条件で時効処理を行った。具体的には、175（48, 96 時間）、200（8, 24, 96 時間）と 250（8, 24, 96 時間）などの条件で時効処理を行った。X 線回折測定によると、析出相である β 相 ($Mg_{17}Al_{12}$ 相) のピークは時効処理に伴って出現し、ピークの高さは時効時間とともに増大した。例として、図 1 に 175、200 と 250 において 96 時間で時効処理した試料の SEM 写真を示す。175 時効材と 200 時効材の β 相は、結晶粒内と結晶粒界の両方にそれぞれ針状と粒状で析出するが、250 時効材の β 相は主に結晶粒界に粒状で析出することがわかった。また、時効温度の増加に伴って β 相析出粒子は粗大化し、175 時効材の β 相析出粒子は最も微細であった。TEM で観察した結果、175 時効材の結晶粒内に析出した β 相粒子のサイズは長さ数百 nm、幅数十 nm であることがわかった。

ビッカース微小硬度 (HV) を測定した結果、時効温度の低下と時効時間の増大に伴って、硬さは向上する傾向があった。中では、175 96 時間の時効材は HV が未時効材の 65.0 に比べ、最も高い 72.1 の値を示した。これは微細で高密度に分布する硬い β 相粒子の析出によるものである。

以上の結果より、時効条件を制御することにより、 β 相粒子の析出形態を制御することが可能であることを明らかにした。175 96 時間の時効材は微細で高密度な β 相粒子の析出により、最も高い硬さを示した。

4 - 2 . 時効処理が引張特性に与える影響

集合組織がランダム化された AZ61 合金高温圧延材を対象として、350 1 時間の焼鈍材（未時効材）および異なる β 相析出形態を示す 175 96 時間の時効材と 250 24 時間の時効材について、時効処理が室温～温間の引張特性と深絞り成形性に与える影響を重点的に調査した。

表 1 350 1 時間の焼鈍材と 175 96 時間の時効材の引張試験の結果 (UTS: 引張強度、YS : 耐力、FE : 破断伸び、PUE: 局部伸び)

引張 温度	350 1h				175 96h			
	UTS(MPa)	YS(MPa)	FE(%)	PUE(%)	UTS(MPa)	YS(MPa)	FE(%)	PUE(%)
室温	290	159	24.7	3.7	307	178	20.6	3.1
100	262	149	32.9	11.7	273	167	33.1	15.0
175	198	129	43.8	27.5	206	144	40.7	26.4
225	150	104	37.2	24.9	155	121	34.0	24.4

表 1 に室温～225 の温度領域において行った引張試験の結果を示す。室温引張試験結果では、未時効材に比べ、175 96 時間の時効材は結晶粒内に高密度に分布する β 相粒子の析出により、引張強度と耐力が両方とも 20MPa 近く上昇し、それぞれ 307MPa と 178MPa に達し、高強度を示した。また、100、175 と 225 の温間引張試験の結果では、温度上昇に伴って強度が低下したものの、175 96 時間の時効材は未時効材に比べ、20MPa 近くの高い耐力を維持した。 β 相粒子が主に結晶粒界に析出する 250 24 時間の時効材は強度上昇が確認されなかった。伸びに関しては、室温では、175 96 時間の時効材は破断伸びが 20.6% であり、未時効材の 24.7% の破断伸びに比べて低かった。一方、100 では、175 96 時間の時効材の破断伸びは大きく向上し、同じ変形温度の未時効材と同程度になった。これは局部伸びの向上によるものである。未時効材の局部伸びは約 8% が増えたのに対し、175 96 時間の時効材の局部伸びは約 12% が増えた。局部伸びの向上の原因としては、 β 相粒子の大量析出により、母相中の Al 濃度が低下し、動的回復が起こりやすくなったためと考えられる。

4 - 3 . 時効処理が深絞り成形性に与える影響

表 2 に 350 1 時間の焼鈍材 (未時効材)、175 96 時間と 250 24 時間の時効材に対して、室温 ~ 225 の温度領域において行った深絞り試験の結果を示す。室温では、未時効材は 1.7 の限界絞り比を示し、その値は通常な Mg 合金の 1.2 ~ 1.4 の限界絞り比より高かった。175 96 時間の時効材は限界絞り比が 1.5 で、深絞り成形性が大きく低下した。250 24 時間の時効材は未時効材よりも若干高い限界絞り比 (1.75) を示した。

表 2 350 1 時間の焼鈍材、175 96 時間と 250 24 時間の時効材の深絞り成形試験の結果

	350 1h		175 96h		250 24h	
成形温度	限界絞り比	割れ箇所	限界絞り比	割れ箇所	限界絞り比	割れ箇所
室温	1.7	エッジ割れ	1.5	肩割れ	1.75	エッジ割れ
100	1.75	エッジ割れ	1.9	肩割れ	1.9	エッジ割れ
175	2.3	肩割れ	2.3	肩割れ	2.3	肩割れ
225	2.7	肩割れ	2.7	肩割れ	2.8	肩割れ

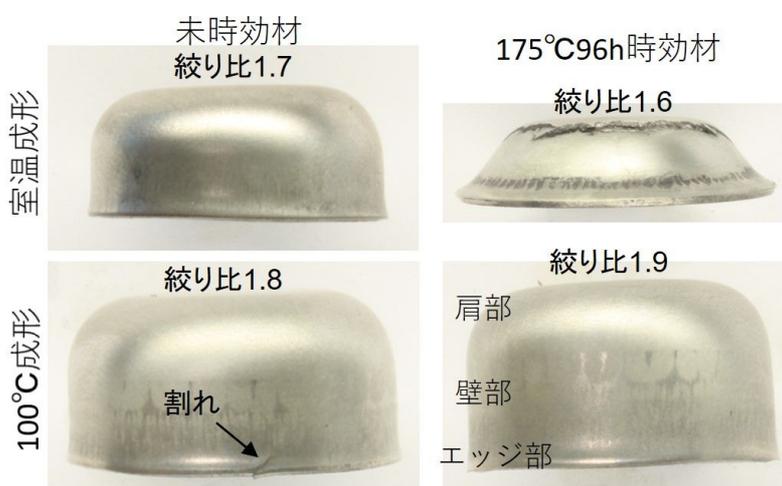


図 2 未時効材と 175 96 時間の時効材の室温と 100 で深絞り成形したカップの写真

成形温度の上昇に伴って深絞り成形性は向上した。100 の成形温度では、未時効材の限界絞り比は室温成形の 1.7 から 1.75 に僅かに向上した。一方、時効材は絞り比 1.9 の成形に成功し、未時効材に比べて優れた深絞り成形性を示した。特に、表 2 と図 2 に示すように、175 96 時間の時効材は成形温度を室温から 100 に上げるにより、限界絞り比が 1.5 から 1.9 に大きくなり、深絞り成形性の向上が一番顕著であった。175 の成形温度では、未時効材と時効材は同程度の 2.3 の限界絞り比を示した。この値は Al 合金と同等以上のものである。225 の成形温度では、未時効材の 2.7 の限界絞り比に対し、175 96 時間の時効材は同程度で、250 24 時間の時効材は絞り比 2.8 の成形にも成功した。

また、表 2 に示したように、限界絞り比を超えて成形する場合の割れ箇所に関しては、未時効材と 250 24 時間の時効材は室温と 100 の低い成形温度で成形カップのエッジ部に割れが発生するが、成形温度の上昇に伴って、割れ箇所はエッジ部から肩部に変化した。一方、175 96 時間の時効材はいずれの成形温度において、割れ箇所は成形カップの肩部であった。

以上の結果より、時効材は時効条件や成形温度によるが、未時効材よりも高い深絞り成形性を得ることが可能であると確認した。特に、相析出粒子を多く含む 175 96 時間の時効材は 100 の比較的低い成形温度でも、深絞り成形性が著しく向上し、高強度を持ちながら、未時効材よりも優れた深絞り成形性が得られることを明らかにした。

4 - 4 . 深絞り成形中の組織変化

時効材の深絞り成形性向上の原因を探るために、深絞り成形カップに対して EBSD 測定を行い、深絞り成形中の組織変化を調べた。100 で 1.8 の絞り比で深絞り成形した未時効材と 175 96 時間の時効材のカップの肩部に接する壁部とエッジ部 (未時効材の割れ箇所) に対して測定した結果を図 3 に示す。いずれの試料は底面集合組織が変形とともに増強し、変形量の大きいエッジ部では、底面集合組織が最も強かった。一方、エッジ部では、未時効材と 175 96 時間の時効材の底面集合組織の最大強度はそれぞれ 9.2 と 8.1 であり、175 96 時間の時効材は未時効材に比べ、集合組織の発達が遅れることがわかった。これは高密度に分布する 相析出粒子が集合組織

発達を助長する引張双晶の形成を抑制したためと考えられる。これにより、エッジ部では、175 96 時間の時効材は比較的に高い変形能力を維持し、エッジ部の割れを抑制することができた。また、100 における引張変形時の大幅な局部伸びの向上（表 1）により、175 96 時間の時効材は深絞り成形時の割れ箇所としての肩部の曲げ変形能が顕著に改善し、深絞り成形性の格段な向上に繋がった。

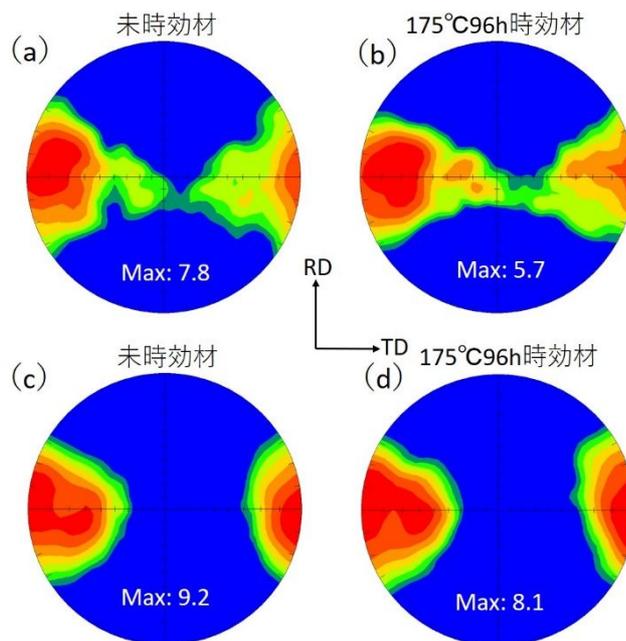


図3 100 で1.8の絞り比で深絞り成形した(a, c)未時効材と(b, d)175 96時間の時効材のカップの(a, b)肩部に接する壁部と(c, d)エッジ部の(0001)集合組織

以上のように、175 96 時間の時効材は引張双晶形成の抑制と局部伸びの向上により、100 への僅かな温度上昇で格段な深絞り成形性向上が得られた。

<引用文献>

- 1) X.S. Huang, K. Suzuki, Y. Chino, M. Mabuchi, J. Alloy Compd., 509 (2011) 7579-7584.
- 2) X.S. Huang, K. Suzuki, Y. Chino, M. Mabuchi, Mater. Sci. Eng. A, 565 (2013) 359-372.
- 3) X.S. Huang, Y. Chino, M. Mabuchi, M. Matsuda, Mater. Sci. Eng. A, 611 (2014) 152-161.
- 4) X.S. Huang, K. Suzuki, Y. Chino, M. Mabuchi, J. Alloy Compd., 632 (2015) 94-102.
- 5) J. Jain, W.J. Poole, C.W. Sinclair, M.A. Gharghour, Scripta Mater. 62 (2010) 301-304.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Bian Mingzhe, Huang Xinsheng, Chino Yasumasa	4. 巻 834
2. 論文標題 A combined experimental and numerical study on room temperature formable magnesium-silver-calcium alloys	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 155017(1-11)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2020.155017	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Bian Mingzhe, Huang Xinsheng, Chino Yasumasa	4. 巻 837
2. 論文標題 Improving flame resistance and mechanical properties of magnesium-silver-calcium sheet alloys by optimization of calcium content	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 155551(1-10)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2020.155551	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Bian Mingzhe, Huang Xinsheng, Chino Yasumasa	4. 巻 10
2. 論文標題 Microstructures and Mechanical Properties of Precipitation-Hardenable Magnesium-Silver-Calcium Alloy Sheets	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Metals	6. 最初と最後の頁 1632(1-13)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/met10121632	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Bian Mingzhe, Huang Xinsheng, Chino Yasumasa	4. 巻 819
2. 論文標題 Solute segregation assisted grain boundary precipitation and its impact to ductility of a precipitation-hardenable magnesium alloy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials Science and Engineering: A	6. 最初と最後の頁 141481(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.msea.2021.141481	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------