

機関番号：84421

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20560688

研究課題名（和文） 結晶粒微細化によるマグネシウム合金の低温・高速超塑性

研究課題名（英文） Low-temperature superplasticity at high strain rates in ultra fine-grained magnesium alloys

研究代表者

福角 真男（FUKUSUMI MASAO）

地方独立行政法人大阪市立工業研究所・研究員

研究者番号：70416345

研究成果の概要（和文）：マグネシウム合金で著しい結晶粒微細化を図ることによって低温・高速超塑性を発現させることを目指した。このためには適切な合金成分を選択する必要があることが明らかになった。また、結晶粒微細化のために行う摩擦攪拌プロセスに相当する条件での塑性変形挙動を明らかにした。この結果を活用し、結晶粒微細化領域を均一かつ広い断面積を得る手法やプロセス条件を検討し、摩擦攪拌するツールの形状や摩擦攪拌領域を重複させて形成させる手法等を提案した。

研究成果の概要（英文）：The fine-grain processing of magnesium alloys was investigated for attaining low-temperature superplasticity at high strain rates. The alloys were produced by friction stir processing. Some alloying elements were suggested to be detrimental for grain boundary sliding to occur. In addition, we revealed the high temperature deformation behavior at high strain rates, which corresponds to the strain rates for friction stir processing. Based on these results, we proposed some techniques for friction stir processing, which will enable to increase the area with fine grains.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	600,000	180,000	780,000
2009年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2010年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学 ・ 材料加工・処理

キーワード：構造・機能材料、材料加工・処理、ナノ材料、超塑性、摩擦攪拌プロセス

1. 研究開始当初の背景

超塑性の発現する変形条件（温度とひずみ速度）は、素材の結晶粒径の影響を強く受ける。よって超塑性研究は結晶粒微細化技術の進展と同調して発展してきた。例えば高速超塑性はミクロンオーダー／サブミクロンオーダーの結晶粒を有する材料の作製技術の開発により見出された現象である。一方、超塑性構成方程式に従えば、超塑性発現温度も

結晶粒微細化とともに低減することが示唆され、実際 1990 年代後半以降、低温超塑性が相次いで報告された。

マグネシウム合金でも、ミクロンオーダー／サブミクロンオーダーの結晶粒を有する材料の作製技術が確立されつつあり、我々も工業的に有用な高速超塑性（例えば、Mater. Trans. 43 (2002) 78）や低温超塑性（例えば、Scripta Mater. 46 (2002) 851）の発現

を確認している。低温超塑性発現のためには結晶粒微細化が必要条件であるが、超塑性変形の主変形機構である粒界すべりが起こりえることがさらに要件として加わる。一般に、加工熱処理を利用した結晶粒微細化に際しては高合金化が有効な手段である。しかし、粒界近傍への溶質元素の偏析や第2相の分散は粒界すべりを抑制することが、研究分担者の一人によって指摘されていた (Scripta Mater. 51 (2004) 291)。よって、低温超塑性を発現させるためには、比較的低濃度の添加元素を含む合金系が有利になると推測された。以上の点から、低濃度合金で結晶粒微細化を押し進めていけば、低温・高速超塑性が発現すると期待できた。

低濃度の添加元素を含むマグネシウム合金でナノ結晶レベルまでの結晶粒微細化を達成するには、強ひずみ加工が最も有望であると考えられた。我々はこれまでにFSPを用いた結晶粒微細化に関する研究を遂行してきた。FSPは他の強ひずみ加工と比較して、ひずみ量やひずみ速度等のパラメータを容易に制御することができ、結晶粒微細化手法として大きな優位性を有している。研究分担者の一人が低濃度の添加元素を含むマグネシウム合金であるAZ31について、FSP中にフラレン分子を分散させることで結晶粒径を100 nm程度にまで超微細化できることを報告していた (Scripta Mater. 55 (2006) 50)。また、本研究の遂行に先立ちFSP条件を検討したところ、微小領域ではあるがフラレン分子の分散がなくてもAZ31をナノ結晶化することが明らかになりつつあった。

以上より、比較的低濃度の添加元素を含むマグネシウム合金でもFSPによりナノ結晶が得られる可能性が高く、かつこの材料は低温・高速超塑性が達成できると予測された。

2. 研究の目的

比較的低濃度の添加元素を含むマグネシウム合金について、摩擦攪拌プロセスによりナノ結晶を得て、低温・超高速超塑性を達成する。

3. 研究の方法

(1) 最適な添加元素の探索

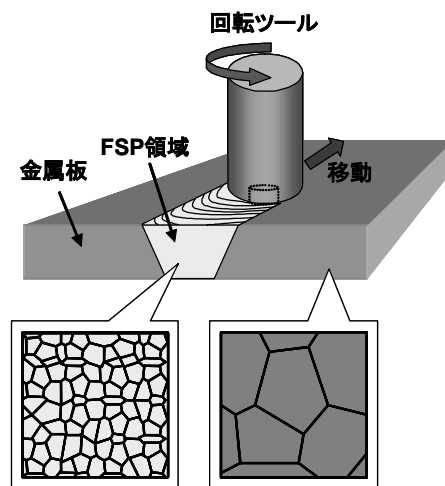
比較的低い温度でも粒界すべり(超塑性の主変形機構)が起こりやすい合金で結晶粒微細化を達成するためにまず適切な合金添加元素を検討する。このために、粒界すべりに起因する内部摩擦特性を評価した。評価にはマグネシウム合金の主要な添加元素であるアルミニウムが添加されたMg-Al二元系合金、および一般に耐クリープ特性が付与され逆に超塑性の発現を妨げると予想されるイットリウムが添加されたMg-Y二元系合金を用いる。

(2) 微細化プロセス条件における変形挙動の解明

摩擦攪拌プロセス(FSP)などの塑性加工プロセスを最適化するには、マイクロ組織や変形温度・変形速度などの変形条件が塑性変形挙動に及ぼす影響を把握しておく必要がある。しかし、マグネシウム合金において摩擦攪拌プロセスが行われるような1~1000/s付近の高ひずみ速度域における変形挙動はほとんど調べられていない。そこで、Mg-3Al-1Zn合金押出し材の高温かつ高ひずみ速度での圧縮特性を評価する。

(3) 摩擦攪拌プロセスによる結晶粒微細化

FSPツールの回転速度及び移動速度を変化させ、FSP領域に導入されるひずみ量、ひずみ速度及び入熱量を制御することで結晶粒径の微細化を目指す(図1)。FSPによる結晶粒微細化の研究はこれまでも盛んに行われており、より微細な結晶粒は①ツールの回転速度を低下させ、②ツールの移動速度を増加させることで得られるというのが通説となっている。FSP領域に導入される熱量を小さくし、粒成長を抑制することで微細な結晶粒を得ることができるが、これらの指針に基づいて得られる結晶粒径は1 μ m程度が限界である (Scripta Mater. 51 (2004) 509)。本研究の予備実験としてFSP条件を検討したところ、上記①に反してツールの回転速度を大幅に上昇させることで部分的に100nm程度の超微細粒を得ることに成功した(図2)。そこで回転速度2000~10000rpm(一般的な回転速度は500~1500rpm)におけるFSPが結晶粒微細化に及ぼす影響を詳細に検討する。



FSPは高速回転するツールを金属材料に圧入し、部分的に巨大ひずみを導入することで結晶粒を微細化することができる技術

図1 FSPによる結晶粒微細化の概念図

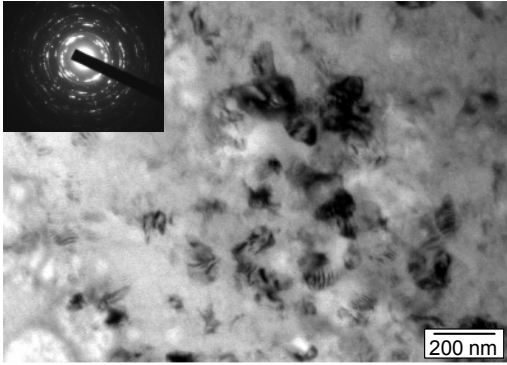


図2 FSPによって得られたナノ結晶を有するマグネシウム合金

(4) 結晶粒微細化領域の制御

超塑性挙動を評価するためには結晶粒微細化領域を均一に広い断面積で得る必要がある。これに対しては摩擦攪拌するツールの形状を検討し、より広域に結晶粒を微細化し得るツール形状を明らかにする。

4. 研究成果

(1) 超塑性発現に適した合金組成

微細な結晶粒を有する Mg-Al 合金、Mg-Y 合金、および粗大な結晶粒を有する Mg-Al 合金を押し出しにより作製した。高温における内部摩擦を評価した結果、粗大な結晶粒を有する合金では粒界すべりに起因する内部摩擦の変化は観察されず、一方、微細な結晶粒を有する合金では、粒界すべりに起因する内部摩擦の増加が観察された。添加元素の種類の影響を評価したところ、数%のアルミニウム添加は粒界すべりを妨げ、イットリウム添加はさらに微量でも粒界すべりの発現を著しく妨げることが明らかになった。よって、アルミニウムを添加したマグネシウム合金が対象材として適していると判断した。本検討は、マグネシウム合金の低温超塑性特性極大化を指向する世界初の試みとなった。

(2) 高温・高速におけるマグネシウム合金の変形挙動

Mg-3%Al-1%Zn 合金押し出し材の高温かつ高ひずみ速度での圧縮特性を評価した。流動応力のひずみ速度依存性を図3に示す。低ひずみ速度域では、温度の上昇により流動応力は減少した。高ひずみ速度では流動応力の温度依存性は小さかった。ひずみ速度 2000/s における流動応力の温度依存性を図4に示す。顕著な温度依存性は観察されず 623Kまでは流動応力の低下はほとんど見られなかった。

マイクロ組織なども含めた解析の結果、高温・高速 (約 1000/s) での変形においては

拡散がもはや律速過程にはならず、室温と同様に転位のすべり運動や双晶変形が主たる変形機構であると結論づけられた。この結果は、FSP のみならず、これ以外のさまざまな塑性加工の最適化に必要とされる貴重なデータとなった。

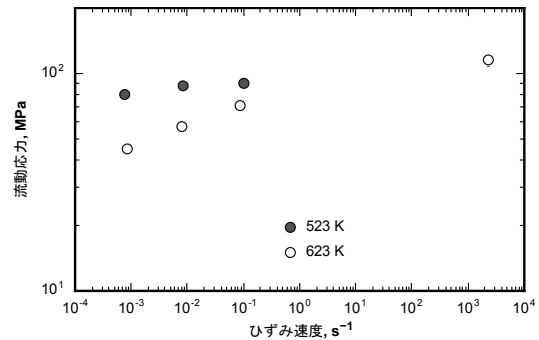


図3 Mg-3%Al-1%Zn 合金押し出し材における温度 523K および 623K での流動応力のひずみ速度依存性

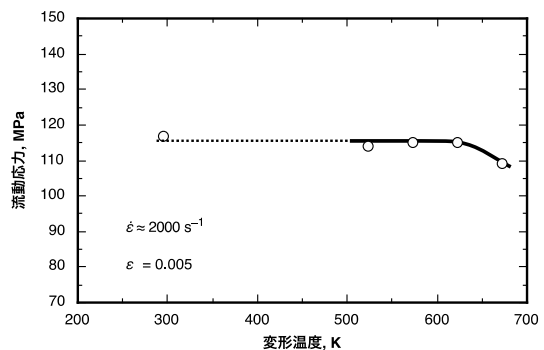


図4 Mg-3%Al-1%Zn 合金押し出し材における高ひずみ速度での流動応力の温度依存性

(3) 摩擦攪拌プロセス条件の最適化による結晶粒微細化

100nm の結晶粒を広域に形成させるまでには至っていないが、高回転速度 (3000rpm 以上) の摩擦攪拌プロセスで 100nm~数十 μm の結晶粒が混在したバイモーダルナノ組織が得られるという新規な知見を得ることができた。一般的に摩擦攪拌接合は 2000rpm 以下の回転速度で行われるため、それ以上の回転速度領域で処理した場合の組織変化はほとんど研究されていなかった。バイモーダルナノ組織は高強度と延性を両立することができる組織として注目されており、今回得られた結果は金属材料に関する組織制御の観点からも意義深い。

(4) 結晶粒微細化領域の拡張

超塑性挙動を評価するために必要な結晶粒微細化領域を均一かつ広い断面積を得る手法やプロセス条件を検討し、摩擦攪拌するツールの形状や摩擦攪拌領域を重複させて形成させる手法等を実施した結果、シオルダ径の1/3以内におけるプローブ径の増大、及びプローブ径の1/4程度を重複させた複数回のプロセスが広範囲の処理に効果的であることが確認された。加えて、微細な硬質粒子が存在する場合に結晶粒微細化効果が顕著かつ均一になることが明らかとなった。図5に微細なクロム炭化物及びバナジウム炭化物の存在下で摩擦攪拌プロセスを施した鉄の透過電子顕微鏡写真を示す。広範囲において微細なナノ組織を形成させることに成功した。

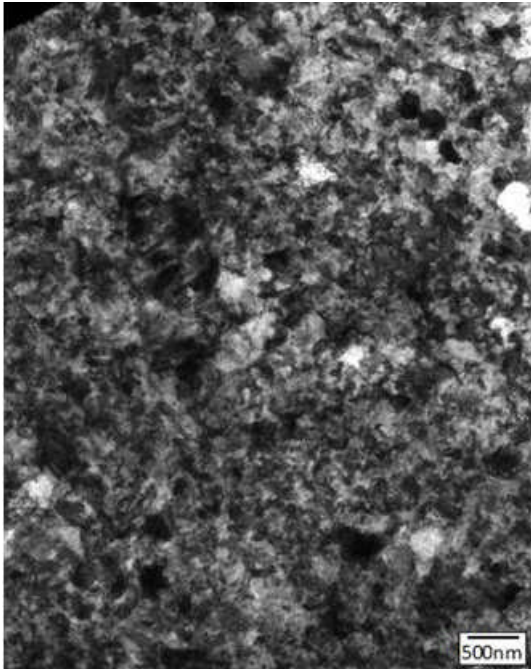


図5 適切にFSP処理した金属のナノ組織

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

- ① H. Watanabe, and K. Ishikawa, Effect of texture on high temperature deformation behavior at high strain rates in a Mg-3Al-1Zn alloy, Mater. Sci. Eng. A, 査読有, 523 (2009) 304-311.
- ② Y. Morisada, H. Fujii, T. Mizuno, G. Abe, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Fabrication of nanostructured tool steel layer by combination of laser

cladding and friction stir processing, Surface and Coatings Technology, 査読有, 205 (2011) 3397-3403.

[学会発表] (計4件)

- ① 渡辺博行, 石川皓一, AZ31 マグネシウム合金押し出し材の高温・高速圧縮特性, 軽金属学会第117回秋期大会, 2009年11月15日, 電気通信大学(東京都)
- ② Y. Morisada, H. Fujii, T. Mizuno, G. Abe, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Modification of thermal sprayed cemented carbide layer by friction stir processing, Eighth International Symposium Friction Stir Welding, 2010年5月18日, MARITIM Seehotel Timmendorfer Strand, Germany
- ③ 森貞好昭, 藤井英俊, 水野雅, 阿部源隆, 長岡亨, 福角真男, レーザクラッディング層への摩擦攪拌プロセスによるナノ工具鋼被膜の創製, 溶接学会平成22年度秋季全国大会, 2010年9月7日, 日本大学(福島県)
- ④ Y. Morisada, H. Fujii, T. Mizuno, G. Abe, T. Nagaoka, and M. Fukusumi, Fabrication of nanostructured tool steel layer by combination of laser cladding and friction stir processing, 2011 TMS Annual Meeting & Exhibition, 2011年2月28日, San Diego convention center, USA

6. 研究組織

(1) 研究代表者

福角 真男 (FUKUSUMI MASAO)

地方独立行政法人大阪市立工業研究所・研究員

研究者番号: 70416345

(2) 研究分担者

森貞 好昭 (MORISADA YOSHIKI)

地方独立行政法人大阪市立工業研究所・研究員

研究者番号: 00416356

(3) 研究分担者

渡辺 博行 (WATANABE HIROYUKI)

地方独立行政法人大阪市立工業研究所・研究員

研究者番号: 90416339