

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：13904

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24360303

研究課題名(和文)世界最高強度610MPaマグネシウム合金の強化機構解明とさらなる機械的性質の改善

研究課題名(英文) Investigation of strengthening mechanisms and improvement of mechanical properties of the world strengths 610 MPa Mg alloy

研究代表者

三浦 博己 (Miura, Hiromi)

豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30219589

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)：冷間MDFにより生じる微細粒組織の生成過程、強化メカニズムを明らかにした。そして、加工性に優れた超高強度Mg合金を得るための加工プロセスを確立した。これより、強度と加工性に優れた世界最高強度の650MPaを達成した。大型バルク材にこのプロセスを適用した場合の引張強度は約500MPaであり、これは大型バルク材中の組織不均一性と欠陥の存在確率の増加によると結論された。

また冷間MDF材と降温MDF材の組織と機械的特性の比較を行った結果、引張強度は冷間MDF材の方が高く、延性は降温MDF材の方が大きく、異なる機械的特性を有した。

研究成果の概要(英文)：Mechanisms of ultrafine grain evolution and strengthening of Mg alloys processed by room-temperature multi-directional forging (MDFing) were revealed. Thermo-mechanical processes to obtain ultra-high strength Mg alloys with good formability were established. Actually, the world highest strength of 650 MPa UTS without spoiling ductility was achieved. Even while the same process was applied to a large bulky Mg alloy, the tensile strength was saturated around 500 MPa. The relatively lower strength in the large samples was assumed due to inhomogeneous microstructure and larger amount of distribution of defects.

When compared the strength of Mg alloys fabricated by room-temperature MDFing and MDFing at elevated temperatures, they showed different mechanical properties, e.g., the former exhibit higher strength but the latter larger ductility.

研究分野：材料科学

キーワード：マグネシウム合金 高強度 組織制 非希土類元素 多軸鍛造

1. 研究開始当初の背景

マグネシウム(以下 Mg)合金は実用金属材料中、最も高い比強度を有するため、輸送機器等の軽量化と省エネルギー材料として注目されている。しかし、加工性が低いためその製造は主として鑄造法で行われており、その結果のコスト上昇と強度低下(150MPa程度)が構造部材への適用に対する大きな障害となっていた。

Mg合金の高強度化の手法として、希土類元素を添加し、長周期構造によって引張強度を最大500MPa程度まで高める研究も行われている。これは熊大合金として知られ、次世代軽量構造部材の候補として大きな期待を受けている。しかし、希土類元素が高価なことや、加工性が著しく低い等の問題がある。さらには、希土類元素の90%以上が中国で産出される戦略物質であり、代替材料の出現が期待されていた。

Mg合金の機械的性質は特に結晶粒径に大きく依存することが知られており、結晶粒微細化により室温強度の上昇と共に延性も改善される。結晶粒微細化では、基本的に化学組成や集合組織を変える必要が無く、したがって強度増加に伴う延性や靱性の低下は小さい。Miura et al.は、動的再結晶を利用した降温MDF法により、AZ61Mg合金の結晶粒超微細化を試み、強度・延性が大きく改善されることを報告した¹⁾。さらにそのMDFプロセスの改善により室温でのMDFが可能となり、引張強度500MPa以上が達成された²⁾。プロジェクト開始直前のベストデータとして、既に引張強度610MPaを達成している(未発表)。

2. 研究の目的

新技術「冷間多軸鍛造」(room-temperature Multi-Directional forging/MDF)法を用いて、希土類を必要としない超高強度Mg合金を開発する。そのために、既に開発に成功している冷間MDFプロセスを種々のMg合金に適用し、610MPaを大きく凌ぐ強度を達成する。その高強度マグネシウム合金MDF材の、詳細な諸特性の調査を行い、強化メカニズムを解明する。そして高強度Mg合金鍛造材創製のための「設計指針」を得る。

3. 研究の方法

(1) 市販Mg合金の冷間MDFにより、610MPaを超える強度を達成する。

強度は高いが加工性が低いとして敬遠されているAZ61Mg、AZ80Mg、AZ91Mg合金に冷間MDF法を適用し、さらなる高強度化を図る。種々のMDFの鍛造パス間ひずみ $\Delta\varepsilon$ を試し、最も適切なパス間ひずみを調査する。

(2) 冷間MDF中に起こる組織変化と高強度化のメカニズムを調査する。

冷間MDF過程での組織変化を、TEM、EBSDを用い、詳細に調査する。同時に、機

械的性質の調査も行い、組織と強度との関係を明らかにする。

(3) 鍛造パス間ひずみ $\Delta\varepsilon$ の調整により、集合組織形成を抑制し、また時効・回復処理により、強度低下なしに10%以上の延性を目指す。

(4) 降温MDF材も作製し、冷間MDF材の組織・機械的特性を比較し、冷間MDF材の優れた特性と強化機構を調査・検討する。

4. 研究成果

以下では、比較を容易にするため、降温MDFの結果を先に、冷間MDFの結果を後に示す。

(1) 降温多軸鍛造によるAZ80Mg合金の超微細粒化と高強度化

降温MDF材の微視組織と機械的性質の変化

Fig. 1にパス間ひずみ $\Delta\varepsilon = 0.8$ 、温度を623K~393Kまで鍛造毎に逐次降温しながら降温MDFを累積ひずみ $\Sigma\Delta\varepsilon = 4.8$ 、7.2まで行って得られた降温MDF材のTEM写真を示す。初期粒径18.9 μm から累積ひずみ $\Sigma\Delta\varepsilon = 4.8$ 、7.2でそれぞれ平均結晶粒径は0.3 μm と0.26 μm が得られた。

Fig. 2にMDF温度と平均結晶粒径の関係をまとめた結果を示す。MDF温度が低下するにつれ、平均粒径も小さくなり、最終的に鍛造温度393Kで0.26 μm に達した。ただし、こ

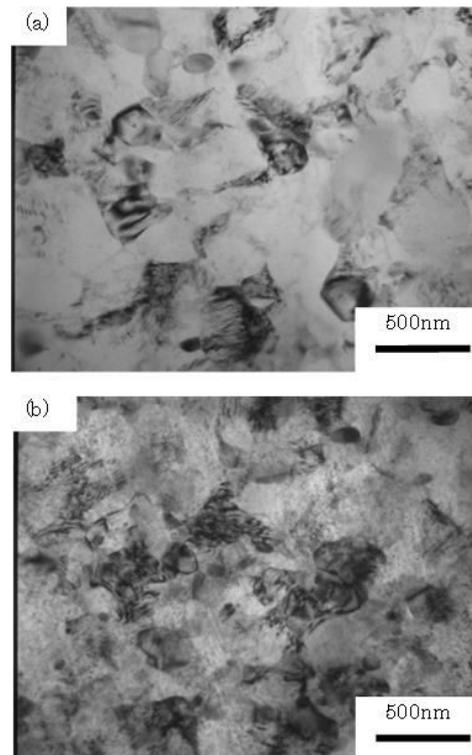


Fig. 1 AZ80Mgの降温MDF材のTEM写真: (a) $\Sigma\Delta\varepsilon = 4.8$, (b) $\Sigma\Delta\varepsilon = 7.2$.

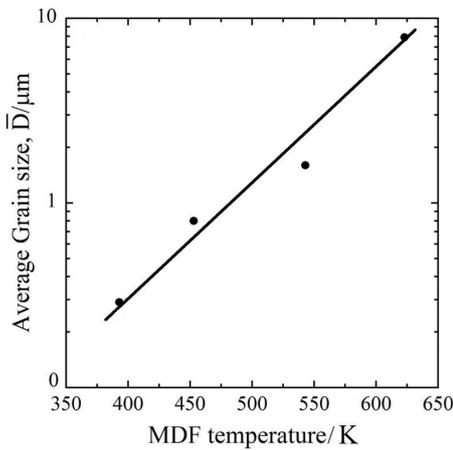


Fig. 2 AZ80Mg の MDF 温度と結晶粒径の関係。

ここでは初めから 393K で鍛造を行うと試料が破壊してしまう事に注意しなくてはならない。すなわち、各 MDF 温度での鍛造中に動的再結晶による結晶粒微細化が起こり、その結果徐々に鍛造温度を下げることを可能とし、最終的に 393K でひずみ 0.8 の加工が可能となった。この降温 MDF 温度の低下に伴い、動的析出や回復の遅れが発生する。そのため、結晶粒微細化の他に、析出強化と加工硬化が MDF 材の室温の強度をさらに上昇させる効果をもたらす。実際、累積ひずみ $\Sigma\Delta\varepsilon = 7.2$ での硬さ (Hv) は約 1.1GPa と極めて高くなった。

AZ80Mg の降温 MDF 材の引張試験結果を Fig. 3 に示した。初期材(熱間押出材)の降伏強度は約 200MPa 程度で塑性伸びが 25%程度と大きい。しかし、累積ひずみの増加と共に降伏強度、最大引張強度ともに徐々に増加し、累積ひずみ $\Sigma\Delta\varepsilon = 4.8$ 以上でそれぞれ 420MPa と 500MPa を得た。ただし塑性伸びは約 5%まで低下した。途中、低累積ひずみ域で強度が一旦低下するが、これは熱間押出材の集合組織の破壊による結果である。この結果は、Mg の高強度化には集合組織強化が極めて有効であることを示しており、興味深い。相当

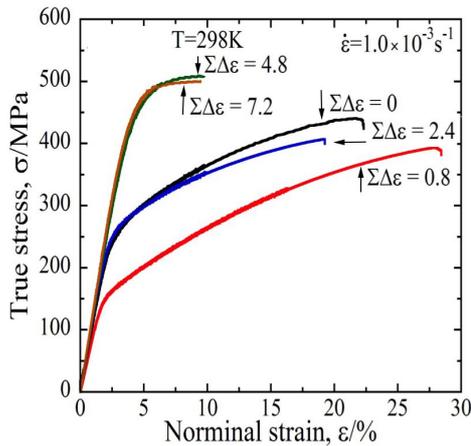


Fig. 3 AZ80Mg の降温 MDF 材の引張試験結果。

ひずみ 4.8 以上の巨大ひずみ加工を受けた AZ80Mg が、5%もの塑性伸びを有するのは、主として集合組織の破壊による結晶粒方位のランダム化と室温粒界すべりの結果と考えられる。

ただし、Mg 合金は回復と軟化が起こりやすく、393K でもその影響は避けられない。そのため、これらが最終的な硬さや引張強度の低下をもたらす、降伏強度が 420MPa 程度にとどまったと考えられる。

AZ80Mg の降温 MDF のまとめ

AZ80Mg 合金に動的再結晶を利用した降温 MDF を適用し、初期粒径 $19\mu\text{m}$ から $\Sigma\Delta\varepsilon = 7.2$ で $0.26\mu\text{m}$ まで平均結晶粒径を小さくできた。組織は等軸超微細粒であった。その時の硬さは約 1.1GPa で、最大引張強度は 500MPa であった。

また、結晶粒微細化により、降温 MDF 中に 393K の温間域でパス間ひずみ $\Delta\varepsilon = 0.8$ の鍛造が可能となった。

(2) 冷間 MDF と AZ80Mg への適用

上述の通り降温 MDF は、熱間・温間鍛造中に起こる回復による軟化が避けられず、最大引張強度は 500MPa が達成されたものの、降伏強度は 400MPa 前後とやや低くなる問題点があった。その欠点を克服するために提案されたのが冷間 MDF であり、低パス間ひずみの採用により室温で累積ひずみ $\Sigma\Delta\varepsilon = 2.0$ 以上の強加工を可能とした²⁾。低パス間ひずみは、Mg 合金の難加工性の一因である集合組織の発達を抑制し、室温での MDF を可能とする。

真応力-累積ひずみ曲線と硬さ変化

平均粒径約 $20\mu\text{m}$ の AZ80Mg 合金熱間押出材をスタート材とし、 $22.2 \times 21.2 \times 20\text{mm}^3$ の矩形試験片を切り出し、これに初期ひずみ速度 $3.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 、パス間ひずみ $\Delta\varepsilon = 0.1$ の条件で、最大累積ひずみ $\Sigma\Delta\varepsilon = 2.0$ (20 パス) まで室温で MDF を行った。MDF を行ったときの、

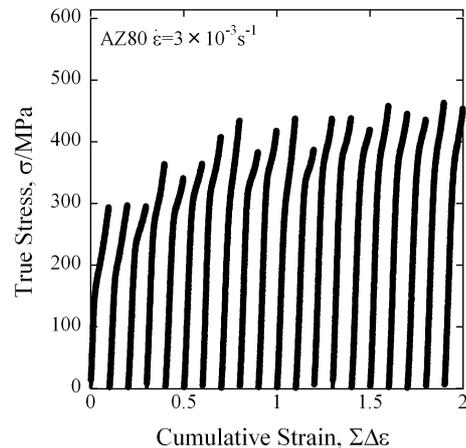


Fig. 4 MDF 中の真応力 - 累積ひずみ曲線

真応力 - 累積ひずみ曲線を Fig. 4 に示す。割れが発生することなく、累積ひずみ $\Sigma\Delta\varepsilon = 2.0$ までの強ひずみ加工ができた。パス間ひずみが小さい場合は、変形抵抗の上昇が遅く、高強度化は困難であった。また、パス間ひずみが $\Delta\varepsilon = 0.1$ より大きいと、直ぐに割れが発生し、冷間 MDF が出来なかった。Fig. 4 で、累積ひずみの増加に伴い、加工硬化と結晶粒微細化によって、低累積ひずみ域では急激に、中・高累積ひずみ域では徐々に変形抵抗が増大し、やがて飽和値 450MPa に達した。3 パス毎に鍛造応力の振動が現れたが、これは初期集合組織の影響であると判断された。MDF 中の高い変形抵抗は、非底面すべりの室温での活発な活動と圧縮・引張変形双晶の高密度の発達を促進し、その結果、大きな加工硬化をもたらした。すなわち、双晶生成の組織分割による結晶粒微細化と多重すべりの発現によって、大きな変形抵抗が得られた。高累積ひずみ域で変形抵抗の増加が緩やかとなったのは、これらの因子がほぼ飽和状態に達したためと推察される。

室温硬さもほぼ同様の増加傾向を示し、低累積ひずみ域では急激に、中・高累積ひずみ域では徐々に上昇した(Fig. 5)。そして、超々ジュラルミンの硬さに匹敵する 1.26GPa が達成された。

冷間 MDF 材の TEM 観察例

AZ80Mg 冷間 MDF 材の微視組織の一例として、累積ひずみ $\Sigma\Delta\varepsilon = 0.2, 2.0$ の TEM 写真を Fig. 6 に示す。鍛造 2 パス目で幅 $1\mu\text{m}$ 以下の細長い変形双晶が高密度に、しかも複雑に発達していることが分かる(Fig. 6(a))。累積ひずみ $\Sigma\Delta\varepsilon = 0.2$ ではさらに細い数百 nm 以下の変形双晶がお互いに切断し合うように高密度に発達し、最終的に平均粒径は約 $0.5\mu\text{m}$ であった。また $\{101-2\}\{101-2\}$ 、 $\{101-1\}\{101-1\}$ の他 $\{101-2\}\{101-1\}$ 等の様々な種類のパリアントの双晶の組み合わせの多重双晶が確認された。Mg 合金中での多重双晶の発生が破壊をもたらす、という説が発表されている。しかし、Figs. 4、5、6 の結果はこれを強く否

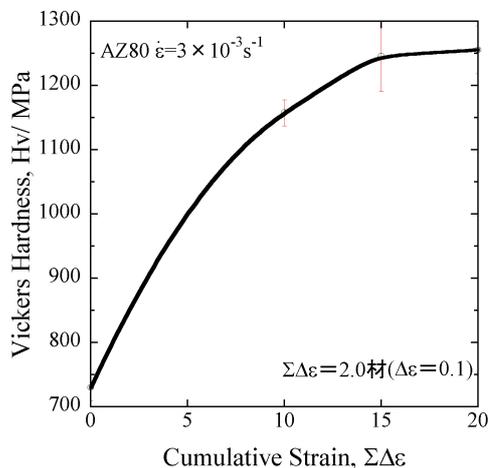


Fig. 5 累積ひずみと硬さの関係³⁾

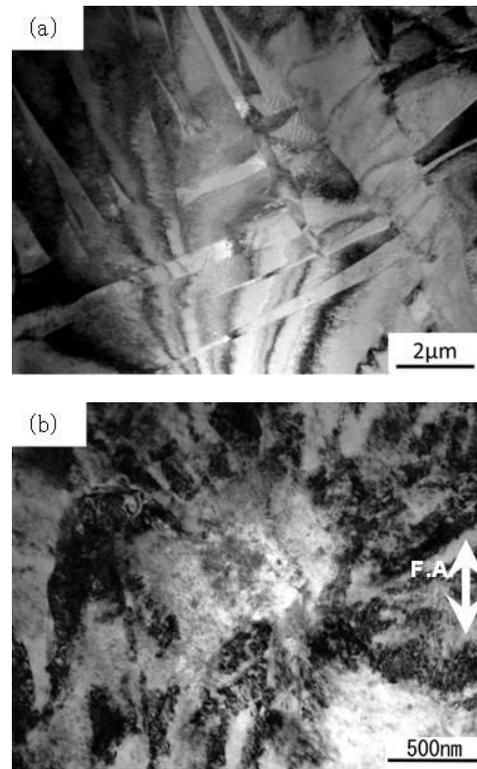


Fig. 6 AZ80Mg-MDF 材の TEM 写真: $\Sigma\Delta\varepsilon = 0.2$, (b) $\Sigma\Delta\varepsilon = 2.0$. F.A. は最終鍛造方向³⁾

定する。すなわち、高密度の変形双晶の発達や多重双晶そのものがき裂発生や破壊をもたらすのではなく、き裂発生付近での局所的応力集中が高密度の変形双晶の発達をもたらしている、ということである。冷間 MDF によって得られる微視組織は針状で、先に示した降温 MDF によって得られる等軸な超微細粒組織(Fig.1)とは全く異なる。

冷間 MDF 材の引張試験結果

AZ80Mg の MDF 材を引張試験し、その真応力 - 公称ひずみ曲線を Fig. 7 に示す。累積ひずみ増加に伴い降伏応力と最大引張応力は増大し、20Pass($\Sigma\Delta\varepsilon = 2.0$)材ではそれぞれ 530MPa、650MPa が達成された³⁾。驚くべきは、室温での巨大ひずみ加工後にもかかわらず、約 10%の塑性伸びを達成している点である。これは、パス間ひずみを $\Delta\varepsilon = 0.1$ としたことにより、底面集合組織の発達の抑止と結晶粒の超微細化の効果と考えられる³⁾。実際、鍛造パス毎に形成された底面集合組織の強度は低下し、 $\Sigma\Delta\varepsilon = 1.0$ では 3.0 と極めて低かった。これは、鍛造毎の鍛造方向の 90 度回転と変形双晶発達による母結晶の分断による^{2,3)}。

また、AZ61Mg 合金の冷間 MDF 材の 20Pass 材の機械的性質、降伏応力 480MPa、UTS 520MPa、塑性伸び 5%と比較すると²⁾、全てでその特性を大きく上回った。さらに Fig.3 の AZ80Mg 降温 MDF 材の結果と比較すると、降伏強度、最大引張応力、伸びの全てで冷間 MDF 材の方が高くなった。

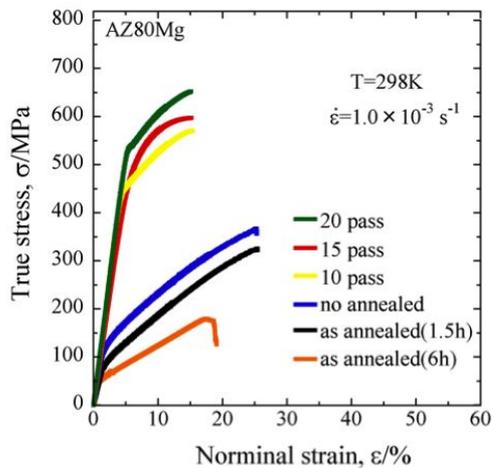


Fig. 7 MDF 材の引張試験によって得られた応力-ひずみ曲線。

AZ80Mg 合金の冷間 MDF のまとめ

- ・ パス間ひずみ $\Delta\varepsilon = 0.1$ の採用は、集合組織の発達を抑制する結果、累積ひずみ $\Sigma\Delta\varepsilon = 2.0$ までの鍛造が割れを起こすこと無く可能であった。
- ・ 累積ひずみの増加と共に、降伏強度と最大引張強度は増大し、累積ひずみ $\Sigma\Delta\varepsilon = 2.0$ で降伏強度 530MPa、最大引張強度 650MPa が達成された。また、その場合でも約 10% の塑性伸びが確保された。
- ・ 以上の優れた機械的性質は、高負荷鍛造と室温での多重すべりによる大きな加工硬化、結晶粒の超微細化、集合組織の破壊による結晶方位のランダム化、によってもたされたと判断された。

AZ61, AZ91Mg 合金は、前者は加工硬化特性、後者は塑性加工性に問題があり、それら冷間 MDF 材は AZ80Mg 合金冷間 MDF 材の引張強度や延性を越えることが出来なかった。すなわち冷間 MDF と優れた機械的性質の獲得には、適切な材料選択が重要であることが示唆された。

<参考文献>

- 1) H. Miura, G. Yu, X. Yang: Mater. Sci. Eng. A, 528 (2011), 6981-6992.
- 2) H. Miura, T. Maruoka, X. Yang and J.J. Jonas: Scripta Mater., 66 (2012), 49-51.
- 3) H. Miura, W. Nakamura: Philo. Mag. Lett., 93 (2013), 601-607.

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 8 件)

三浦博己、松本光太、小林正和、金型を用いた降温多軸鍛造 AZ61Mg 合金の組織と機械的性質、日本金属学会誌、査読有、79

巻、2015、295 - 302、
<https://www.jim.or.jp/journal/j/pdf3/79/06/295.pdf>

H. Miura, W. Nakamura, M. Kobayashi, Room-temperature multi-directional forging of AZ80Mg alloy to induce ultrafine grained structure and specific mechanical properties, Procedia Engineering, 査読有, Vol.81, 2014, 534 – 539, doi:10.1016/j.proeng.2014.10.035

H. Miura, W. Nakamura, Microstructure and mechanical properties of Mg-8Al alloy fabricated by room-temperature multi-directional forging, Philosophical Magazine Letters, 査読有, Vol.93, No.10, 2013, 601 – 607, doi: 10.1080/09500839.2013.827800

H. Miura, T. Maruoka, J. J. Jonas, Effect of ageing on microstructure and mechanical properties of a multi-directionally forged Mg-6Al-1Zn alloy, Materials Science and Engineering A, 査読有, Vol. 563, 2013, 53 – 59, doi:10.1016/j.msea.2012.11.021

[学会発表](計 32 件)

H. Miura and M. Kobayashi : Microstructure and specific mechanical properties of room-temperature MDFed AZ80Mg alloy, The 6th Asian Symposium on Magnesium Alloys (ASMA6), 20-23 December 2014, Chengdu, China.

H. Miura, W. Nakamura : Multi-directional forging of AZ80Mg alloy at room-temperature and the specific mechanical properties, International Conference of Materials Science Engineering, MSE 2014: 23-25 September 2014, Darmstadt, Germany.

H. Miura, W. Nakamura: Superior mechanical properties of AZ80Mg alloy fabricated by room temperature multi-directional forging, THRMEC'2013, 2-6 December 2013, Las Vegas, USA.

H. Miura, T. Maruoka, J.J. Jonas, Microstructure and mechanical properties of AZ61Mg alloy multi-directionally forged at room temperature, MSE, 25-27 September 2012, Darmstadt, Germany.

H. Miura: Fabrication of ultrafine grained Mg alloys by multi-directional forging and the specific mechanical properties, IUMRS-ICA 2013, 16-20

December 2013, Bangalore, INDIA.

〔産業財産権〕

出願状況（計 1 件）

名称：拘束下高圧プレスによるマグネシウム
合金棒材・板材の強化法とプレス治具

発明者：三浦博己

権利者：同上

種類：特許

番号：PCT/JP2012/065666

出願年月日：2012/06/19

国内外の別：国際

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.str.me.tut.ac.jp/>

6．研究組織

(1)研究代表者

三浦 博己 (Miura, Hiromi)

豊橋技術科学大学・機械工学研究科・教授

研究者番号：30219589