

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 16 日現在

機関番号：12501

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560843

研究課題名(和文) キンク変形を巧みに活用した冷間圧延型長周期Mg合金板の作製とその機械的特性

研究課題名(英文) Fabrication of cold rolled type long period stacking ordered Mg alloy plate by cleverly use of kink deformation and its mechanical property

研究代表者

糸井 貴臣 (Itoi, Takaomi)

千葉大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：50333670

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：長周期型Mg合金において室温圧延後にキンク変形が観察された。長周期型Mg合金では、このキンク変形に起因して同加工度の純Mgと比較して底面配向しにくく、室温での圧延加工性に優れることがわかった。圧延後に形成したキンク帯についてIGMA分析を行った結果、キンク帯は 0-110 / 1-100 テイラー軸回転型キンク帯と 1-210 テイラー軸回転型キンク帯に分類され、主に底面 a ずべりによって導入されると考えられる。室温圧延後(50%)に803Kで7.2ksの熱処理を施すことで再結晶化した長周期型Mg合金板は、結晶粒微細化により鑄造時よりも高い硬さ値の114HV0.5を示した。

研究成果の概要(英文)：Deformation kink was observed in the LPSO type Mg alloy after room temperature rolling. Due to formation of the deformation kink, the Maximum peak intensity of basal plane texture in the LPSO phase tended to decrease compared with pure Mg of the same rolling reduction. Therefore, rollability of the LPSO type Mg alloy was better than the pure Mg at room temperature. Intragranular misorientation axis (IGMA) analysis suggested that Taylor axis can classify kink bands. After room temperature rolling, we found two types Taylor axis of 0-110 / 1-100 and 1-210. Therefore, it is considered that these kink bands are introduced by basal a slip. The LPSO type Mg rolled sheet with 50% reduction was recrystallized by annealing at 803K for 7.2ks. Due to grain refinement of the LPSO phase by recrystallization, Vickers Hardness of the LPSO type Mg rolled annealed sheet showed higher hardness compared with that of the LPSO type Mg cast alloy.

研究分野：材料工学

キーワード：マグネシウム合金 長周期相 冷間圧延 キンク変形 EBSD

1. 研究開始当初の背景

マグネシウムは比重1.74とアルミニウムの約2/3、鉄の約1/4で、実用金属材料中で最も小さく、比強度、比剛性、振動吸収性、放熱性、寸法安定性、電磁遮断性に優れるという利点を持つ。しかし、マグネシウムは六方晶構造であり、冷間変形域では塑性変形を担う結晶のすべり変形が底面すべりに限られるため延性に乏しく難加工材の範疇に入る。従って、マグネシウム合金は鋳造材や展伸材などの成形品として航空機、自動車、携帯電子機器等のハウジングなどに構造材として用いられてきたが、例えば薄肉形状の部品であっても、ダイカストや射出成形法が主流で、展伸材の活用はこれらと比較すると極めて少なく、展伸材が利用される場合でも、押出し材が多く、圧延材の利用は少ない。鉄鋼やアルミニウム合金においても板材の多くは必要不可欠な素形材として圧延加工で製造されるが、マグネシウム合金は冷間加工が出来ない為に、厳しい温度管理の元に、熱間圧延と予熱を繰り返して作製される。従って、マグネシウム合金の冷間加工性の向上は重要な課題となる。

2. 研究の目的

Mg-RE(RE=希土類元素)にTM(TM=遷移金属元素)を添加することで、長周期相が生成することが知られている。この長周期相は高強度であることが知られており、これまでにMg-Zn-Y合金やMg-TM-Y合金において押出し材や圧延材において耐力が400MPa以上の高強度なマグネシウム合金が作製されている。一方、長周期相はc/a比が高いことから、その変形の特徴として双晶変形ではなくキンク変形を生じることが知られている。本研究ではこのキンク変形を利用して①室温での圧延特性を調べる事、②これまで十分に明らかとされていない室温でのキンク変形のメカニズムを調べる事、③冷間圧延型長周期Mg合金板を作製しその機械的特性を調べる事を目的とした。

3. 研究の方法

電気炉を用いて鉄製のつばに炭酸ガスを流入させながら $Mg_{100-x-y}Ni_xY_y$ (at%), ($x=1\sim6$, $y=1\sim9$)の組成を有する試料を作製した。炉内の温度を1093Kに保ち、より比重の大きい元

素の偏析を避けるために純鉄の棒で十分に攪拌した後に、鋳鉄製の鋳型(12×20×85mm)に注湯して鋳造材を作製した。作製した鋳造材について室温で双ロール圧延機にて圧延速度2.7m/min、1パスの圧下率3%以下、初期厚さ2mmの条件で最終圧下率が50%になるまで圧延を施した。また、再結晶化を目的として、作製した圧延板に803Kで熱処理を行った。試料の硬さはビッカース硬さ試験(荷重4.9N)により評価した。圧縮試験($\phi 2.75\times 4$ mm)は島津オートグラフ(島津製作所製AG-5000ES)を用い、 $2.1\times 10^{-3}s^{-1}$ のひずみ速度にて室温～573Kの温度域にて行った。作製した試料について、走査型電子顕微鏡(SEM:JSM5300LV)および透過型電子顕微鏡(TEM:JEM2100F)、X線回折測定(XRD:JDX3530)を用いて組織観察を行った。また、キンク変形のメカニズムを明らかにするために、電子線後方回折(EBSD)により結晶方位の分析を行った。

4. 研究成果

図1(a)に $Mg_{85}Ni_6Y_9$ 合金鋳造材のSEM(BEI)像を示す。図からは幅～200 μm 、高さ～30 μm 程度の板状組織が観察された。TEM観察の結果、より明るいコントラストを示す相が10H型、また暗いコントラストを示す相が18R型の長周期相であることがわかった。長周期相の構造多形はその積層周期のみならず溶質原子濃度にも依存することから、BEI像からも2種類の長周期相が生成することが確認できる。他の化合物相は形成されていないものの本鋳造合金は2種類の長周期相から構成されていることがわかった。長周期相には12R、10H、18R、14H、および24R型の構造多形が組成に依存して形成されることがわかっている。本研究では、冷間圧延特性とキンク変形のメカニズムを調べる事を目的としている事から、単一の構造多形を有する単相合金による実験が必要であったため、上記の組成の合金からNiとY量を調整する事により、18R型の長周期相単相合金作製を試みた。組成は $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ (at.%)であり、鋳造後に793Kで24hの熱処理を行った合金のSEM(BEI)像を図1(b)に示す。図中にはTEMにより調べた電子線回折(ED)パターンをあわせて示す。図からは(a)と比較してコントラスト差がほとんど観察されず、EDパターンからは18R型の長周期構造を有している事がわかる。以上の結果から、 $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$

合金において熱処理後に 18R 型長周期単相合金が作製できたと考えられる。

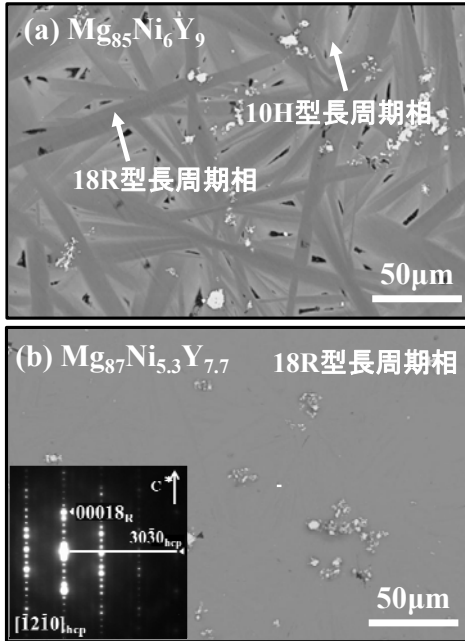


図 1(a) $Mg_{85}Ni_6Y_9$ 合金 鋳造材と (b) $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材の SEM(BEI)像。

次に作製した $Mg_{85}Ni_6Y_9$ 合金 鋳造材と $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材について、室温にて圧延を行った。図 2 に 30% 圧延を行った後の試料について外観写真を示す。比較として純 Mg についても同様に圧延を行った。純 Mg では圧下率数%程度から耳割れを生じ、その後耳割れが中心部まで到達し、圧下率 30%では、矢印で示すように試料中心部にまでいたる割れが観察されたが、 $Mg_{85}Ni_6Y_9$ 合金 鋳造材と $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材については耳割れが観察されるもの大きな割れは外観からは観察されなかった。

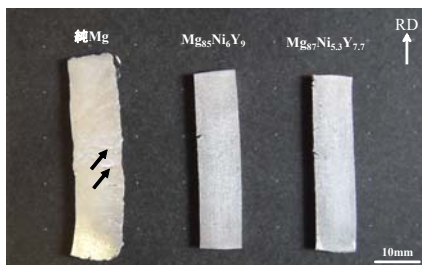


図 2 純 Mg、 $Mg_{85}Ni_6Y_9$ 合金 鋳造材および $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材の 30% 圧延後の外観写真。

作製した合金の圧延加工限界を調べるため、圧延材の断面 SEM 観察を行った。純 Mg では、圧下率 20%において板面から大きな割れが進行しており、30%では板内部での割れも観察された。一方、 $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材では、圧下率 30%まで圧延を施しても、割れは観察されなかった。 $Mg_{85}Ni_6Y_9$ 合金 鋳造材においても $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材と同様の結果が得られたことから、室温圧延の加工限界は、純 Mg では 10%程度であり、長周期型 Mg 合金では 30%程度であると考えられ、長周期型 Mg 合金が Mg と比較して室温での圧延特性に優れるといえる。

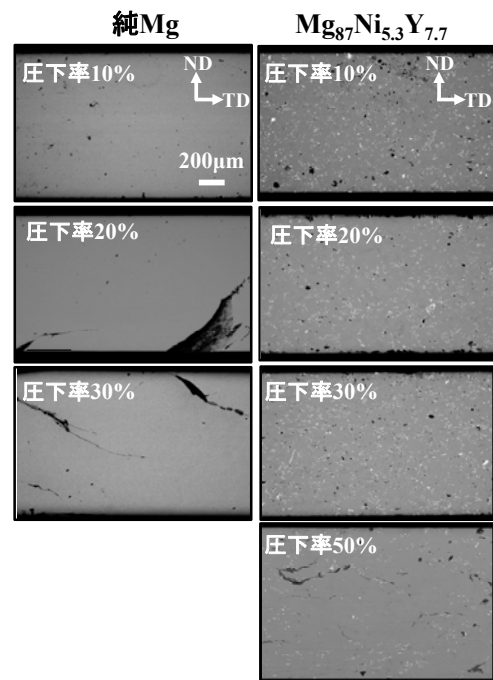


図 3 純 Mg および $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材の圧延後の各圧下率における断面 SEM 像。

図 4 に圧下率 50%における $Mg_{85}Ni_6Y_9$ 合金板の断面 SEM(BEI)像を示す。図中の白線は長周期相の底面を示しており、c 軸に対して任意の角度で折れ曲がるキック変形が頻繁に観察され、室温での圧延によりキック変形が導入された様子がわかる。純 Mg は圧延において、双晶変形を生じ、圧延面に底面が強く配向する事が知られており、冷間加工性に影響を与える。そこで、キック変形がどのように底面配向に影響を与えるかを調べるために、長周期型 Mg 合金について 50% 圧延後の板面について XRD により底面配向度を調べた。図 5 に純 Mg および $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材の圧下率 50%における底面での XRD

極点図の測定結果を示す。 $Mg_{85}Ni_6Y_9$ 合金鑄造材と $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材は、純 Mg と比べて TD 方向にスプリットする傾向があり、また Max 値はそれぞれ 2.0 と純 Mg の Max 値である 5.9 よりも低い値となったことから、長周期型 Mg 合金の方が純 Mg と比較して底面配向し難い事がわかった。このことから、いずれの長周期型 Mg 合金も室温圧延時に純 Mg において頻繁に生じる双晶変形ではなくキंक変形を生じることで底面配向を抑制し、図 4 に示すように c 成分の変形を担うことで純 Mg と比較すると室温での変形を許容すると考えられる。

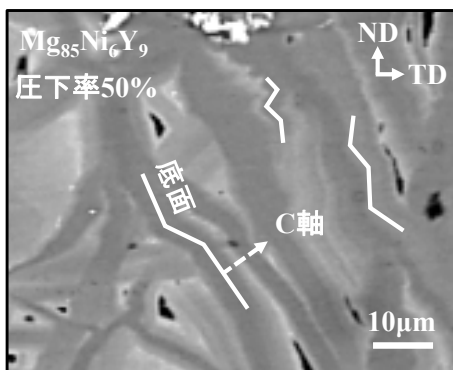


図 4 圧下率 50%における $Mg_{85}Ni_6Y_9$ 合金板の断面 SEM(BEI)像。

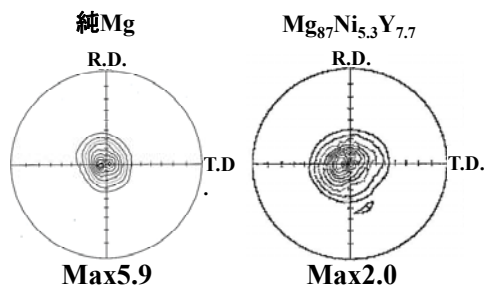


図 5 純 Mg および $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材の圧下率 50%での板面で測定した XRD 極点図。

上記のように、長周期型 Mg 合金が室温での圧延によりキंक変形を生じ、その加工性に影響を及ぼしている事から、そのメカニズムを調べる必要がある。キंक変形のメカニズムを明らかにするために、本研究では EBSD 解析を行った。図 6 に $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材の IPF(Inverse pole figure) マップと misorientation angle のヒストグラムを示す。IPF マップより、 $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材は、

ほぼ 18R 型長周期相の単相であり、その板状組織が比較的ランダムな配向で生成している事がわかる。また、ほとんどの結晶粒には約 60° の misorientation angle をなす境界が形成されており、misorientation angle のヒストグラムからは、その頻度が突出して高いことがわかる。IPF マップの拡大図からは粒内をつきつて底面に沿って境界が存在しており、模式図で示すように、結晶格子が $\langle 00018 \rangle$ 軸まわりに回転していることから Rhombohedral (ロンボヘドラル) 双晶であると考えられる。このロンボヘドラル双晶は鑄造後、および熱処理後いずれにおいても頻繁に観察された。

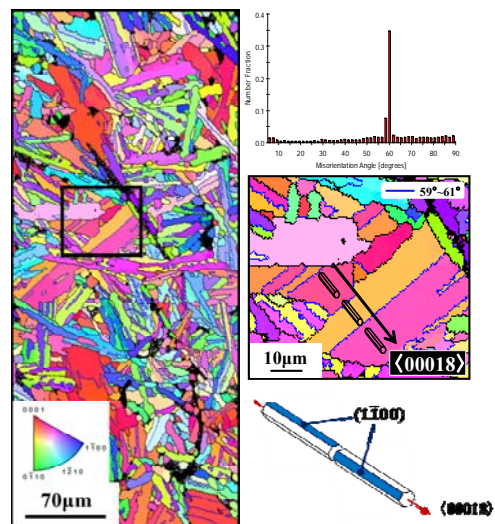


図 6 $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材の IPF マップと misorientation angle のヒストグラム。IPF マップの拡大図とロンボヘドラル双晶の模式図をあわせて示す。

近年、山崎らは Intragranular misorientation axis (IGMA)分析により、長周期相内に形成したキंक帯について、すべりにより誘発された格子の回転とその回転軸(テイラー軸)を決定し、実験的に得られるIGMA分布より、ある特定のすべり系のテイラー軸に沿う変形を生じるような支配的なすべり系を決定している。本研究においても室温で形成されたキंक帯について同様にIGMA分析を行った。図7に圧下率20%の $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材の圧延後のIPFマップと図中のキंक帯の拡大図およびそのIGMA分布を示す。IPFマップより、 $4\sim 20^\circ$ の角度差をもつ多数のキंक帯が観察された。キंक帯のIGMA分析の結果、 $\langle 0-110 \rangle / \langle 1-100 \rangle$ 軸をテイラー軸とするキंक帯と $\langle 1-210 \rangle$ 軸をテイラー軸とするキंक帯に分類された。いずれのキंक帯も

$\langle uvw \rangle$ の範囲(u, v, w は $u+v+w=0$ を満たす任意の実数)にプロットの集中が見られることから、主に底面 $\langle a \rangle$ すべりにより形成されたキンク帯であると考えられる。長周期型 Mg 合金は、およそ 673K までは底面すべりのみで変形する事が知られている。また、Zn 等のキンク変形については、Hess や Barrett が提案したモデルとも概ね矛盾しないと考えられる。また、本試料で観察されたキンク変形は、粒界から発生しているものが多く観察されたが、IPF マップからは粒内のロンボヘドラル双晶

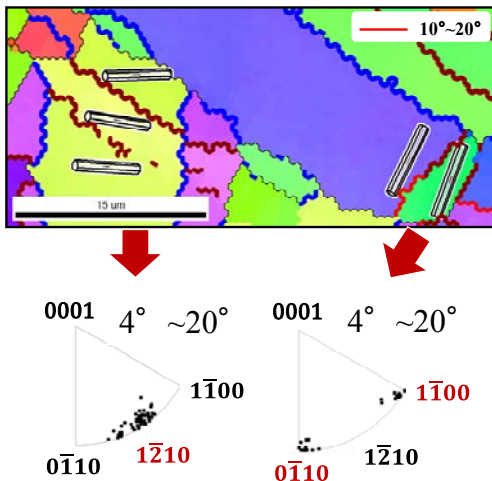
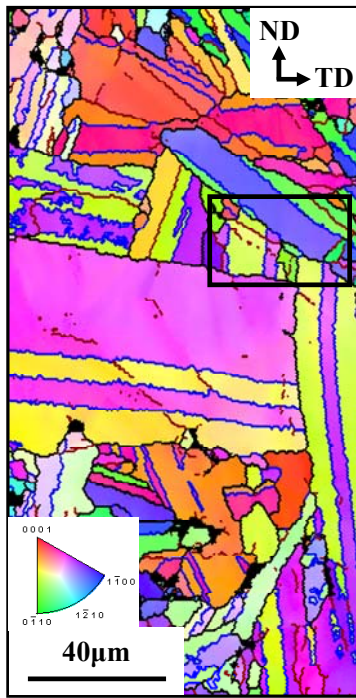


図 7 $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材の圧延後(20%)の IPF マップと図中のキンク帯の拡大図とその IGMA 分布。

から発生している様子も観察され、この界面がキンク変形の発生にも関係していると考えられる。

図 8 に作製した $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材について室温~573K までの温度範囲で圧縮試験を行い、0.2%耐力を AZ91D と比較した結果を示す。 $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材では室温で 262MPa、473K で 181MPa、573K で 107MPa を示し、いずれの温度域においても AZ91D と比較して高い値を示し、18R 型長周期 Mg 合金が室温から高温域まで高強度を有する事が明らかとなった。圧縮試験後の試料についてキンク帯の EBSD 分析を行った結果、複数のキンク帯が観察され、IGMA 分布より、どちらも $\langle uvw \rangle$ テイラー軸を有していることがわり、圧延と同様に底面すべりにより形成されたキンク帯であることがわかった。

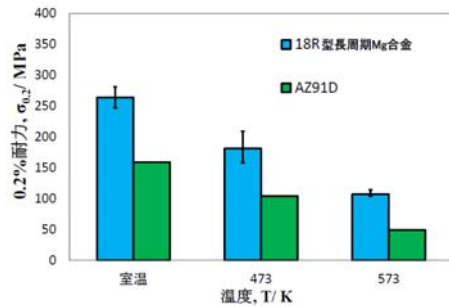


図 8 $Mg_{87}Ni_{5.3}Y_{7.7}$ 合金熱処理材の圧縮試験結果。0.2%耐力は同条件で調べた Z91D と比較している。

次に冷間圧延型長周期 Mg 合金板の作製において再結晶挙動を調べるため、 $Mg_{85}Ni_6Y_9$ 合金鋳造材に圧下率 50% の室温圧延を行った後、803K で 7.2ks の熱処理を施した結果、広範囲にわたってランダムな方位を向いた再結晶粒が観察され、結晶粒径は数 μm ~40 μm 程度であった。その硬さ値は 114HV0.5 と鋳造時の硬さ値 101HV0.5 と比較して高い値を有しており、高強度な板が作製できた。長周期型 Mg 合金に内部割れが生じない圧下率 30% 以下の室温圧延と焼きなましを繰り返すことで、さらに高強度板の作製が期待される。

以上の結果から、

- (1) 長周期型 Mg 合金は冷間圧延においてキンク変形を生じるため、圧延において同加工度の純 Mg と比較して底面配向しにくく冷間での加工性に比較的優れること。

- (2) 室温圧延後におけるキンク帯のIGMA分析の結果、キンク帯は〈0-110〉/〈1-100〉テイラー軸回転型キンク帯と〈1-210〉テイラー軸回転型キンク帯に分類され、圧縮試験後においても同様の結果が得られたことから、18R型長周期Mg合金のキンク変形は圧縮力によって生じ、そのキンク帯は主に底面〈a〉すべりによって導入されると考えられること。
- (3) 長周期型Mg合金は、圧下率50%の室温圧延後に803Kで7.2ksの熱処理を施すことで再結晶化し、再結晶による結晶粒微細化によって鋳造時の硬さ値である101HV0.5と比べ、熱処理材の硬さ値は114HV0.5と高くなること。
が明らかとなった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計0)

〔学会発表〕(計19件)

- [1] 大角、増井、糸井、三浦
Mg-Ni-Y合金に生成するLPSO相の構造多形と組成の相関. 第156回日本金属学会
2015年3月18日、東京大学(東京都)
- [2] T. Itoi (Invite)
Effect of Kink Deformation on Room Temperature Rollability in the Mg alloy. The 6th Asian Symposium on Magnesium Alloys (ASMA6), (Chengdu, China)
(2014年12月9日)
- [3] 増井、荒川、糸井
Mg-Ni-Y合金に生成するLPSO相における構造多形の組成依存性.
軽金属学会第127回秋期講演大会
2014年11月16日、東京工業大学(東京都)
- [4] 松本、増井、飯島、糸井
長周期相を有するMg-TM-Y(TM=遷移金属)合金の室温圧延特性と変形組織.
軽金属学会第127回秋期講演大会
2014年11月16日、東京工業大学(東京都)
- [5] 増井、荒川、清水、糸井
Mg-Ni-Y合金に生成するLPSO相の組織観察
3. 第154回日本金属学会
2014年3月23日、東京工業大学(東京都)
- [6] 糸井、荒川、三浦
長時間熱処理を施したMg-Zn-Y合金の組織観察. 第154回日本金属学会
2014年3月23日、東京工業大学(東京都)

- [7] 荒川、増井、清水、糸井
Mg-Ni-Y系LPSO相の作製とその組織観察.
軽金属学会第125回秋期講演大会
2013年11月9日、横浜国立大学(横浜市)
- [8] T. Hosono, T. Katsumata, T. Itoi
Mechanical property of Mg-TM-Y(TM=Ni or Cu) Alloy Sheet with Long Period Ordered Phase Prepared by Hot-rolling. The 5th Asian Symposium on Magnesium Alloys (ASMA5),
2013年10月, (Ngaoka, Japan)
- [9] 荒川、清水、増井、糸井
Mg-Ni-Y合金に生成するLPSO相の組織観察.
第153回日本金属学会
2013年9月18日、金沢大学(金沢市)
- [10] T. Itoi, T. Matsumoto
Improvement of rolling property of magnesium alloy at room temperature.
Rolling 2013, 2013年6月, (Venice, Italy)
- [11] 増田、糸井
Mg-Cu-Y合金押し出し材の組織と機械的特性.
軽金属学会第123回秋期講演大会
2012年11月11日、千葉工業大学(習志野市)
- [12] 清水、荒川、糸井
Mg-Ni-Y合金に生成するLPSO相の組織観察.
第151回日本金属学会
2012年9月17日、愛媛大学(松本市)
- [13] 増田、糸井
Mg-Cu-Y合金押し出し材の作製とその機械的特性. 第151回日本金属学会
2012年9月17日、愛媛大学(松本市)

その他6件

〔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〕
なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

糸井 貴臣 (Itoi Takaomi)

千葉大学 大学院工学研究科 准教授

研究者番号: 50333670