大ひずみ加工 AZ31 マグネシウム合金の超塑性変形

邢 劼*・楊 統躍**・三浦 博己**・酒井 拓**

Journal of Japan Institute of Light Metals, Vol. 56, No. 12 (2006), pp. 716-720

Superplasticity of AZ31 magnesium alloy processed by severe plastic deformation

Jie XING*, Xuyue YANG**, Hiromi MIURA** and Taku SAKAI**

Low temperature superplasticity was studied in a fine-grained magnesium alloy AZ31 which was processed by multi-directional forging (MDF) under decreasing temperature conditions. Tensile specimens were machined from MDFed Mg alloy parallel to the final compression axis. Tensile tests were carried out at temperatures from 393 K to 473 K and at various strain rates. Superplasticity appears even at 393 K with a stress exponent of around 5.6 and a total elongation of 370%. The relative large stress exponent can be connected with grain coarsening or refinement taking place during deformation. The initial texture introduced by MDF hardly changes during deformation. These suggest that grain boundary sliding can take place during superplasticity, while grain rotation hardly occurs.

(Received May 18, 2006 Accepted August 10, 2006)

Keywords: magnesium alloy, severe plastic deformation, grain refinement, superplasticity

1. 緒 言

マグネシウム (Mg) 合金は様々な優れた機械的性質を有することから次世代の軽量構造材料として関心が高まっている¹⁾。Mg 合金製品の大部分はこれまでダイカスト鋳造法やチクソモールド法で製造されているが、2次成形加工技術の向上とともに展伸材の需要が近年急速に拡大している。六方晶 (HCP) 格子に起因して Mg 合金は常温付近では低延性であり、塑性加工性の悪い難加工性材料に一般には分類される²⁾。この問題を解決するには、結晶粒微細化による機械的特性の改善と同時に超塑性による加工性の向上が有効であると考えられる³⁾。大型 Mg 合金素材の結晶粒微細化には、これまで側方押出加工 (Equal Channel Angular Extrusion (ECAE))^{4),5)} や多軸鍛造 (Multi-Directional Forging (MDF))⁶⁾ 等の大ひずみ加工法が利用されている。著者らは、Mg 合金 AZ31 に降温中 MDF 加工を施すことにより平均結晶粒径約 $0.36\mu\text{m}$ の微細粒組織の創製に成功し、結晶粒微細化による室温強度の改善効果を検討している⁶⁾。

本研究では、Mg 合金の強度と塑性加工性の改善を目的として、熱間から温間まで加工温度を連続的に降下させながら、加工ごとに材料を 90° ずつ回転させて圧縮加工を施して、超微細粒組織を導入した Mg 合金 AZ31 を作製した。それから切出した試験片を用いて比較的低温度域の引張変形特性を系統的に調査した。超塑性変形の発現特性と変形中の組織変化に特に注目して調査し、それらの機構を検討した。

2. 実験方法

試供材は直径 26 mm の市販 Mg 合金 AZ31 の押出丸棒材であり、その化学組成は質量 % で、Al: 2.68, Zn: 0.75, Mn: 0.68, Cu: 0.001, Si: 0.003, Fe: 0.003, 残りは Mg である。これより $31\text{ mm} \times 21\text{ mm} \times 14\text{ mm}$ (軸比 2.22:1.49:1) の直方体状の試験片を押出方向に平行に切出した (Fig. 1 参照)。その後 773 K で 7.2 ks 焼なまし処理後炉冷して、平均粒径約 $22.3\mu\text{m}$ の等軸状結晶粒組織に調整した。

真ひずみ速度を一定に制御できる高温圧縮試験機内には、試験片を変形後 1.5 s 以内に摘出水冷できる工具が備えられている⁶⁾。約 10^{-1} Pa の真空中で変形温度を 623 K から逐次降温させながら試験片を 90° 回転させてひずみ $\Delta\epsilon=0.8$ の圧縮加

Fig. 1 Tensile specimens machined parallel to L-ST plane of MDFed Mg alloy. The tensile axis (TA) was perpendicular to the final compression axis (CA).

*電気通信大学知能機械工学専攻, 大学院生 (〒182-8585 東京都調布市調布ヶ丘 1-5-1)。Graduate Student, Department of Mechanical Engineering and Intelligent System, The University of Electro-Communications (1-5-1 Chofugaoka, Chofu-shi, Tokyo 182-8585).

**電気通信大学知能機械工学専攻 (東京都)。Department of Mechanical Engineering and Intelligent System, The University of Electro-Communications (Chofu-shi, Tokyo).

工を真ひずみ速度 $\dot{\epsilon}=3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で施した。最終加工温度 423K において総加工ひずみ ($\Sigma \Delta \epsilon$) は 4.8 となり、その結果平均結晶粒径約 $0.36 \mu\text{m}$ の超微細粒組織が生じた⁶⁾。平行部寸法幅 3mm, 長さ 6mm, 厚さ 0.7mm, R 部 1mm を有する引張試験片を MDF 加工材の L-ST 面に平行に放電加工機を用いて切出したので、その引張軸 (TA) が最終圧縮軸 (CA) と直交する (Fig. 1)。

高温引張試験には、約 10^{-3} Pa の真空中で、変形後瞬間的に水素ガスを噴射させ冷却できる自家製のインストロン型試験機を用いて⁷⁾、温度 373 K~473 K, 初期ひずみ速度 $8.3 \times 10^{-6} \sim 8.3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ の範囲で系統的に引張試験を行った。真空ベッセル内の電気炉で各試験温度まで加熱後 0.6ks 保持してから引張試験を行った。試験終了直後に電気炉を落下さ

Fig. 2 Strain rate dependence of true stress-nominal strain (σ - ϵ) curves. (a) 393K, (b) 423K and (c) 473K.

せて強制冷却を行うことにより、変形による以外の組織変化を小さくした。光学顕微鏡 (OM) と結晶方位解析 (OIM) 装置を備えた走査型電子顕微鏡 (SEM/EBSD) によって変形に伴う組織変化を観察した。

3. 実験結果

3.1 引張変形特性

MDF 法で作製した超微細粒 Mg 合金の真応力-公称ひずみ (σ - ϵ) 曲線のひずみ速度依存性を、373 K, 423 K および 473 K で調査した結果をまとめて Fig. 2 に示す。 σ - ϵ 曲線における最大変形応力 (ピーク応力 σ_p) と全伸び (ϵ_T) のひずみ速度依存性を Fig. 3 に示す。高ひずみ速度 ($8.3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$) の σ - ϵ 曲線は、いずれも比較的低ひずみ域で鋭いピーク応力を示し、その後加工軟化を生じながら 100% 前後の全伸びで破断に至っている。ひずみ速度の低下に伴いピーク応力は大きく減少するのに対し、全伸びは逆に 100% 前後から 300% 以上へと急増している。393 K, $8.3 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ の引張変形において、今回の最大全伸びである 370% が得られている。

超塑性変形が発現する場合、変形応力のひずみ速度依存性から求まる応力指数 ($n = \partial \ln \dot{\epsilon} / \partial \ln \sigma$) は一般的には $n \leq 3$ であり、その際に 200% 以上の全伸びが生じると考えられる^{8)~10)}。しかし、Fig. 3(a) が示すように、今回の実験範囲内では常に $n > 5$ である。一方、全伸びが 200% を超える 10^{-3} s^{-1} 以下のひずみ速度領域においては $n = 5.0 \sim 6.3$ であり、これらは通常の超塑性発現の n より明らかに大きい。このことは後で詳しく検討することにする。

3.2 引張変形に伴う微視組織の変化

3.2.1 変形に伴う光学顕微鏡組織の変化

473 K, $8.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ の引張変形に伴う L-ST 面の結晶粒組織の変化を Fig. 4 に示す。これらは、(a) 変形直前の組織と引張ひずみが (b) 40%, (c) 100%, (d) 約 350% における代表的組織である。MDF 加工で導入した平均結晶粒径 $0.36 \mu\text{m}$

Fig. 3 Strain rate dependence of (a) peak flow stress σ_p and (b) total elongation to fracture ϵ_T of MDFed Mg alloy tested at 393 K, 423 K and 473 K.

Fig. 4 Optical microstructures developed in MDFed Mg alloy during tensile deformation at 473K and at $8.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$. (a) $\varepsilon=0\%$, (b) $\varepsilon=40\%$, (c) $\varepsilon=100\%$ and (d) $\varepsilon \approx 350\%$.

の初期組織は、引張変形前の加熱保持中に $2.2 \mu\text{m}$ まで粒成長している (Fig. 4(a))。引張変形の開始とともに粒成長が起り、ひずみ 40% で $3.6 \mu\text{m}$, 100% では $4.6 \mu\text{m}$ まで増加する。しかし、さらに約 350% まで変形すると、結晶粒径は逆転して $4.1 \mu\text{m}$ まで減少することがわかる。結局、引張変形中に結晶粒径は低ひずみ域でいったん顕著な増加を示した後、ピーク応力出現以後の高ひずみ域では逆にわずかながら減少に転じていることがわかる。

平均結晶粒径の引張変形に伴う変化とそれに及ぼすひずみ速度の影響をまとめて Fig. 5 に示す。 $8.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ の結果は Fig. 4 から求めたものである。ひずみ速度が 1 桁大きい $8.3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ での結晶粒径の変化は小さく、約 150% ひずみで $2.5 \mu\text{m}$ である。ひずみ速度がさらに 1 桁大きい $8.3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ の引張変形では、変形開始とともに初期結晶粒径の $2.2 \mu\text{m}$ から減少しており、約 100% ひずみでは $1.9 \mu\text{m}$ になっている。以上をまとめると、(1) 本 Mg 合金の引張変形に伴う結晶粒径の変化は顕著なひずみ速度依存性を示すこと、(2) 結晶粒径はひずみ速度またひずみ領域によっても増減するという複雑な挙動を示すことがわかった。

3.2.2 SEM/EBSD 組織観察

473K, $8.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ の引張変形で生じるひずみ約 350% の結晶方位像 (OIM) と逆極点図を変形直前のものと合せて Fig. 6 に示す。これらは引張試験片の縦断面 (Fig. 1 に示す ST 方向) から観察した結果である。図中の白線は方位差 $\theta=2\sim 4^\circ$, 黒細線は $\theta=4\sim 15^\circ$, 黒太線は $\theta>15^\circ$ の転位境界または (副) 結晶粒界を示す。これより、MDF 加工 Mg 合金は顕著な集合組織を有しており、引張試験片表面にはほぼ垂直に $\{0001\}$ 底面が集積していることがわかる。すなわち、 $\{0001\}$ 底面が引張軸 (TA) 方向に大体平行に集積している (Fig. 1)。この $\{0001\}$ //TA を主成分とする変形集合組織 (Fig. 6(a)) は 350% までの引張変形後でもほとんど変化せず、安定に存在することがわかる (Fig. 6(b))。結局、Fig. 6 より高温変形によって結晶粒組織は粗粒化するが、集合組織は変形中ほとんど変化しないと結論できる。

Fig. 5 Effect of strain rate on changes in average grain size with tensile deformation at 473K.

Fig. 6 OIM micrograph in gray tones and inverse pole figure developed in L-LT plane of MDFed Mg alloy deformed in tension at 473K and at $8.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$. (a) $\varepsilon=0\%$ and (b) $\varepsilon \approx 350\%$.

4. 考 察

4.1 超塑性変形特性

$10 \mu\text{m}$ 以下の微細粒材料における典型的超塑性変形下では、粒界すべりにより変形が主に支配され、この場合の変形方程式は一般に次式で表される^{11)~13)}。

$$\dot{\varepsilon} = k \cdot d^{-p} \cdot \sigma^n \cdot \exp(-Q/RT) \quad (1)$$

ここで、 k は実験定数、 p は粒径指数、 n は応力指数、 Q は

引張変形に対する見かけの活性化エネルギー, R は気体定数である。ひずみ速度 $\dot{\epsilon}$ と実験温度 T が一定の場合, 式 (1) は次式で表せる。

$$\sigma = k_1 \cdot d^{p/n} \quad (2)$$

ここで k_1 は定数である。今回の実験では, 結晶粒径はひずみ速度とひずみ域によって変化するが, 高ひずみ領域に限定すると結晶粒径のひずみに伴う変化は無視できるほど小さい (Fig. 5)。そこで, ピーク応力 σ_p が現れるひずみ付近以後で生じる平均粒径 d と σ_p との関係を Fig. 7 に示す。これより, σ_p と d の関係はほぼ直線で近似されるので, 次のべき乗則が成立すると考える。

$$\sigma_p = k_2 \cdot d^{-N} \quad (3)$$

ここで, k_2 は定数, $N=0.9$ と実験的に求まる。超塑性変形中に式 (3) に従って d が変化する場合の応力指数を n' とすれば, Fig. 3 よりピーク変形応力とひずみ速度との間に次式が近似的に成立する。

$$\dot{\epsilon} = k_3 \cdot \sigma_p^{n'} \quad (4)$$

ここで, 式 (4) に基づく今回の実験定数 n' は Fig. 3(a) より $n'=5.0 \sim 6.3$ である。結晶粒径が変形中変化しない, またはその変化の影響を分離した場合の真の応力指数 n に対して, 変形中の結晶粒径変化が顕著に起こる場合のそれが n' であり, 今回の実験結果はこれにあてはまる。式 (2), (3), (4) より, 実験値 n' と n , p , N との間に次式が成立する。

$$n' = n + \frac{p}{N} \quad (5)$$

典型的な超塑性変形で報告されている粒径指数 p は 2~3 である^{11)~14)}。今回の実験から求まる $N=0.9$, $n'=5.0 \sim 6.3$ と $p=2 \sim 3$ を式 (5) に代入して結晶粒組織が変形によって変化しない場合の真の応力指数 n を求めると, $n=2.8 \sim 3.0$ となった。この値は粒界すべりにより支配される典型的な超塑性変形で報告されている $n \leq 3$ にほぼ一致する。

以上の σ_p - $\dot{\epsilon}$ 関係に関する考察と実験結果をまとめて Fig. 8 に図示的に示す。初期組織が変形中変化せず一定である場合の σ_p と $\dot{\epsilon}$ の関係の予測結果を Fig. 8 に破線で示す。引張変形中に結晶粒組織がひずみ速度によらず一定であれば, ピーク応力とひずみ速度の関係は応力指数 $n \approx 3$ を有する破線で示される。しかし, 結晶粒径がひずみ速度の減少とともに $d_1 > d_2 > d_3$ の順に変形中に増加すれば, ピーク応力とひずみ速度の関係は実線で示すように変化することになる。その結果, 応力依存指数は見かけ上増加し, 今回の結果である $n'=5.0 \sim 6.3$ になると考えられる。

4.2 変形機構

これまでの実験結果より, MDF 加工した Mg 合金の引張変形中に結晶粒組織の変化が起こるが, 集合組織の変化はほとんど起こらないことがわかった。Fig. 9 は 473K, $8.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ で引張変形前後の LT, ST, L 方向から観察した SEM/EBSD で得られる逆極点図を示す。これより, 引張変形前後の集合組織はほとんど変化せず, またその相対的集積強度も実験誤差範囲内でほとんど変わらないことがわかる。したがって, 今回の Mg 合金の超塑性変形中には粒界すべりに伴う結晶粒

Fig. 7 The relationship between peak flow stress σ_p and grain size d developed in high strain for MDFed Mg alloy tested at 473K.

Fig. 8 Schematic drawing of predicted strain rate dependence of peak flow stress (broke line) and the experimental data at 473K.

回転はほとんど起こらないことが示唆される。

473K, $8.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ の引張ひずみ 5% と 40% における試験片表面 (L-ST 面) の OIM 像を Fig. 10 に示す。これは同じ試験片の同じ場所を SEM/EBSD 観察したものである。また各結晶粒の方位は Fig. 10 中のカラーキーが示す各色に対応している。これより, 同じ場所に存在する結晶粒群 (Fig. 10 に示す結晶粒 a, b, c, d) の結晶粒方位は 5% から 40% の変形に伴ってほとんど変化していないと判断される。Fig. 10(a), (b) における結晶粒 a, b, c, d を含む多くの結晶粒方位の回転角を個々に実測した結果, その大部分は 5° 以下であったが, 中には 10° 前後の回転を起こした結晶粒も数個含まれていた。また, Fig. 10 の結晶粒 c と d に注目すると, これらの結晶粒の隣接領域には矢印で示す複数の新粒が現れていることがわかる。これは L-ST 面における上下の結晶粒が 5% から 40% の変形中に粒界すべりによって位置を交換して現れたことを示唆している。

以上より, 本微細粒 Mg 合金の超塑性変形は主に粒界すべりによって支配されるが, その際に結晶粒の成長または細粒化が生じるとともにそれらの粒回転をほとんど伴わないと結

Fig. 9 Inverse pole figure and maximum intensity of the texture in L-LT, L-ST and LT-ST plane for MDFed Mg alloy deformed in tension at 473 K and at $8.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$.

Fig. 10 OIM micrograph in L-LT surface at a same place during tensile deformation at 473 K and at $8.3 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$. (a) $\epsilon=5\%$ and (b) $\epsilon=40\%$.

論できる。本 Mg 合金の超塑性変形中に粒界すべりに伴う結晶粒回転がほとんど起こらないこと、また高ひずみ速度変形または高ひずみまでの変形中に結晶粒組織がわずかながら細粒化する、などの実験事実は興味深い。これらに関しては、さらに系統的实验調査が必要である。

5. 結 言

大ひずみ加工により作製した微細粒 Mg 合金の超塑性特性を引張試験と結晶粒組織観察によって調査した結果は、以下に示す主な結論にまとめられる。

(1) 変形応力のひずみ速度依存性から求まる応力指数 n は

常に 5 以上であるが、 10^{-3} s^{-1} 以下のひずみ速度領域での全伸びは 200% を超え、最大伸びは 370% に達する。

(2) 結晶粒径の変形に伴う変化は顕著なひずみ速度依存性ととともにひずみ領域によって増減する。

(3) 高ひずみ域の結晶粒径と変形応力の間に、 $\sigma \propto d^{-0.9}$ の関係が成立する。これを反映して結晶粒組織が変形によって変化しない場合の真の応力指数 ($n \approx 3$) は見かけ上 $n > 5$ へ変化する。

(4) {0001} 底面が引張軸方向にはほぼ平行する初期集合組織は、350% を超える超塑性変形後でもほとんど変化せず、安定に存在する。

(5) 本 Mg 合金の超塑性変形は主に粒界すべりによって支配される。その際に結晶粒の成長または細粒化を起こし、またそれらの粒回転をほとんど起こさないと結論される。

本研究の一部は文部科学省科学研究費補助金（基盤研究 (c) (2) 課題番号 1656027）、および財団法人軽金属奨学会の研究補助金によって行われたものであり、ここに感謝致します。

参 考 文 献

- 1) B. L. Mordike and T. Ebert: Mater. Sci. Eng., A302 (2001), 37.
- 2) 千野靖正, 馬淵 守: 軽金属, **51** (2001), 498-502.
- 3) 渡辺博行, 向井敏司, 東 健司: 軽金属, **51** (2001), 503-508.
- 4) Yamashita, Z. Horita and T. G. Langdon: Mater. Sci. Eng., A300 (2001), 142.
- 5) 吉田 雄, Lawrence CISAR, 鎌土重晴, 小島 陽: 軽金属, **52** (2002), 559-565.
- 6) J. Xing, H. Soda, X. Yang, H. Miura and T. Sakai: Mater. Trans., **46** (2005), 1646-1650.
- 7) X. Yang H. Miura and T. Sakai: Mater. Trans., **43** (2002), 2400-2407.
- 8) R. H. Bricknell and J. W. Edington: Mater. Trans., **7A** (1976), 153.
- 9) K. Higashi, M. Mabuchi and T. G. Langdon: ISIJ Intl., **36** (1996), 1423.
- 10) T. G. Langdon: Mater. Sci. Eng., A174 (1994), 225.
- 11) T. G. Nieh, J. Wadsworth and O. D. Sherby: Superplasticity in metals and ceramics, (Cambridge University Press, 1997), 1-90.
- 12) 東 健司: 日本金属学会会報, **29** (1990), 22.
- 13) N. Ridley: Mater. Sci. Tech., **6** (1990), 1145.
- 14) J. W. Edington, K. N. Melton and C. P. Cutler: Prog. Mater. Sci., **21** (1976), 61.