圧延と高温焼なましの組合せによる AZ31 マグネシウム合金板の冷間成形性向上のための集合組織ランダム化*

高津 正秀**・喜井 健二***・長田 祐希****
西尾 弘之****・東 健司**・井上 博史**

Journal of Japan Institute of Light Metals, Vol. 60, No. 5 (2010), pp. 237-243

Texture randomization of AZ31 magnesium alloy sheet for improvement of cold formability by combination of rolling and high temperature annealing*

Masahide KOHZU**, Kenji KII***, Yuki NAGATA****
Hiroyuki NISHIO****, Kenji HIGASHI** and Hirofumi INOUE**

To improve the cold formability of AZ31 magnesium alloy sheets, we investigate texture control by rolling and annealing. The texture ideal for forming close to random orientation was obtained by annealing at 773 K before and after isothermal rolling at 298–573 K. For the randomizing process, such a high temperature in pre-annealing was essential, whereas a slightly lower temperature was acceptable for final annealing, assuming a sufficiently long annealing time. The randomized sheet could be obtained in a wide range of rolling temperatures and reductions. It could also be produced easily with a standard mill without roll heating. The microstructure of the randomized sheet consisted of relatively homogeneous grains 25–30 μm large on average. In a 90 degree V-bending test, a well randomized sheet could be bent without cracking with a minimum bending radius per thickness $R/t=1.4$, which was about half of that in commercial AZ31D-O sheets, in spite of manganese content of over 0.6%.

(Received February 9, 2010 Accepted February 22, 2010)

Keywords: AZ31 magnesium alloy, texture randomization, isothermal rolling, high-temperature annealing, cold formability

1. 緒 言

比強度の大きいマグネシウム合金はすでに携帯電子機器用構造材料として広く使われており、近年、CO₂削減のため輸送機器、特に自動車部品への積極的な応用が注目されている¹⁾。その圧延板からのプレス成形は、生産性と靱性向上のため早い段階から期待されていたにもかかわらず、外板のような部材でさえ大半がダイカストやチクソモールディングで生産されているのが現状である。マグネシウムのプレス成形品がマグネシウム鋳物やアルミニウムのプレス成形品に取って代わるには、より低い温度、できれば室温でもある程度の成形ができることが不可欠と言われている。

冷間成形性はとりわけ集合組織に依存する^{2)~4)}。圧延板では、通常{0001}面が圧延面に平行に配向した底面集合組織が形成され、それが成形性を著しく害する。そこで、底面を傾けるための付加的なせん断ひずみを導入する集合組織制御圧延が試みられているが、冷間成形性の顕著な向上には至っていない^{5)~7)}。

筆者らは、ダブルピーク集合組織の市販 AZ31 圧延板が、冷間とまではいかないものの優れた低温成形性を有することを報告している^{2),3)}。しかしながら、それは一部の狭幅コイル材に限定される。そこで、圧延を模擬した恒温偏心ロール引抜きにより、圧延変形中の集合組織の発達過程を系統的に調査した^{8),9)}。その結果、ダブルピーク集合組織は、温度 423~523 K、圧下率 22% 以上で得られることがわかった。また、冷間成形に関しては、773 K の高温で焼なました AZ31 板の深絞りで 1.75 の絞り比を得たとの報告がある^{10)~12)}。

本研究では、恒温圧延と高温焼なましの組合せによる AZ31D マグネシウム合金板の冷間成形性向上のための集合組織制御を、各工程におけるマイクロ組織変化とともに検討する。加えて、冷間成形性を V 曲げ試験により評価する。本研究は、焼なましプレス成形のために不可欠であり、最終集合組織が塑性プロセスだけでは決まらないという考えに基づいている。

* 本論文は Materials Transactions, Vol.51, No.4 (2010), 749-755 に掲載したものである。

** 大阪府立大学大学院工学研究科マテリアル工学分野 (〒 599-8531 大阪府堺市中区学園町 1-1)。Department of Materials Science, Graduate School of Engineering, Osaka Prefecture University (1-1 Gakuen-cho, Naka-ku, Sakai-shi, Osaka 599-8531)。

*** SRI スポーツ株式会社 (神戸市)。SRI Sports Limited (Kobe-shi, Hyogo)。

**** 大阪府立大学大学院工学研究科大学院生 (堺市)。Graduate Student, Graduate School of Engineering, Osaka Prefecture University (Sakai-shi, Osaka)。

2. 実験方法

2.1 実験装置

Fig. 1 は偏心ロール引抜き^{8),9)} (以下, 恒温圧延と呼ぶ) の原理を示す。この方法では, 圧下率が連続的に変化し, さらに, ロールを試料とともに炉内で均一加熱できる。

試料としては, 厚さ 1.6mm の市販 AZ31D-O 圧延板を圧延方向に沿って 200mm×40mm の矩形に切出したものを用いた。**Table 1** はその化学組成を示す。試験片は, **Table 2** に示すような条件で, 前焼なまし, 恒温圧延, 最終焼なましの順に処理された。焼なましの間, 試験片は酸化防止のためアルミニウムホイルでくるんだ。773K 以上の焼なましは, 発火の危険性と形状保持の難しさから試みなかった。恒温圧延は, 偏心ロール引抜き装置を用いて $100\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ で行った。加えて, ロール加熱のない通常の圧延機でも, 試料を 523, 573, 623 および 673K に予加熱して同一速度で圧延を行った。ミクロ組織と圧延面の {0001} 極点図は各処理段階で調べた。集合組織は, 銅 X 線管球 (40kV, 100mA) を用いた Schulz の反射法で測定した。規格化した走査傾斜角の範囲は, 圧延面の法線周りに 0~75° で, その回折強度はマグネシウム粉末を 1 として規格化した。ミクロ組織観察の試料はバフ研磨後酢酸ピクリルで腐食し, 平均結晶粒径は切断法により求めた。圧延後の試料は, 主として, テーパー状試験片の 4, 11, 22, 32% の各圧下率に対応する位置から採取した。実験方法や手順の詳細は前報^{8),9)} に準じる。

Fig. 1 The scheme of eccentric-rolls drawing.

Table 1 The chemical composition of the specimen

(mass%)							
Al	Zn	Mn	Si	Cu	Fe	Ni	Mg
3.5	0.9	0.64	0.01	0.01	0.001	0.002	Bal.

Table 3 The tip-radii of punches and their ratios to sheet thickness, t/R , in V-bending ($t=0.9\text{mm}$)

R/mm	1.0	1.3	1.5	1.7	2.0
t/R	1.1	1.4	1.7	1.9	2.2
R/mm	2.4	3.0	3.8	4.8	
t/R	2.7	3.3	4.2	5.3	

90° 冷間 V 曲げの試験片は, 集合組織測定後のサンプルから採取し, 切削と研磨によって長さ 20mm (圧延方向), 幅 12mm, 厚さ 0.9mm に仕上げた。**Table 3** に示すような種々の先端半径のパンチを用意し, **Fig. 2** に示すような厳格な基準で曲げ限界 R/t を評価した。曲げ試験は $0.17\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ で行い, 荷重が定常曲げ荷重の約 5 倍になったところで終了した。

3. 実験結果および考察

3.1 集合組織ランダム化現象の発見

AZ31 における「集合組織ランダム化」の現象は, 473K で恒温圧延の前後に 773K, 1h の焼なましという条件で最初に発見された。後に, 後焼なましは 20min で充分, あるいは

Table 2 The positive combinations of conditions in the texture controlling process

(a) Rolling temperatures for focused pre-annealing conditions

Pre-annealing		573 K	773 K
Final-annealing		30 min	1 h
473 K	5 min	473 K	298, 393, 423, 473 K
573 K	30 min	298, 473 K	298, 473 K
693 K	24 h		473 K
723 K	30 min, 1 h		473 K
773 K	10 s, 20 s		473 K
	30 s, 1 min		298, 473 K
	2 min, 4 min		473 K
	20 min	298, 393, 473 K	298, 393, 423, 473 K
	1 h	473 K	473 K

(b) Rolling temperatures for other pre-annealing conditions

Pre-ann.		693 K	723 K		773 K
Final ann.		24 h	1 h	2 h	30 min
473 K	5 min		473 K	473 K	473 K
773 K	20 min	298, 393, 473 K	298, 393, 473 K	473 K	473 K

Standard rolling reductions for each rolling temperature:

298K-4, 7%; 393K-4, 11, 22%; >423K-4, 11, 22, 32%.

Especially, **298K**-4, 7, 9, 11%; **423K**-4, 7, 11, 16, 22, 27, 32%.

Fig. 2 An example of the success/failure criterion in V-bending (Δ : rough surface stopping short of cracking. In this case, the bending limit is evaluated as $R/t=4.2$).

むしろ好ましいことがわかった。そこで、集合組織ランダム化の要件はこの処理条件（以下、「標準ランダム化プロセス」と呼ぶ）の周辺で調べた。

入手材の集合組織を{0001}極点図として、そのRD断面図および光学顕微鏡組織とともに **Fig. 3** に示す。その極点図は、中心 (0°) に強く配向した同心円リングからなる典型的な底面集合組織であった。また、ミクロ組織は、平均粒径約 $12\mu\text{m}$ の等軸結晶粒組織であった。

3.2 集合組織ランダム化の条件

Fig. 4 は、前焼なまし、恒温圧延、後焼なましの各段階での{0001}極点図とそのRD断面における強度、およびミクロ組織を示す。その左右の列は、それぞれ前焼なましが573K、30minの場合と773K、1hの場合である。いずれの列においても圧延は473K、後焼なましは773K、20minで行った。右列は前述の標準ランダム化条件にて焼なましを行っている。**Fig. 4 (a)** の低温前焼なましでは集合組織、ミクロ組織ともほとんど変わらないが、**Fig. 4 (A)** の高温前焼なましでは異常成長粒を含む粗大粒となり、より強い底面集合組織となる。これを高圧下率で圧延すると、(d)~(e)の低温前焼なましで形成された集合組織に比べて、(D)~(E)の高温前焼なましで形成された集合組織の方がより明瞭なダブルピークになる。

低温前焼なまし材では、圧延の過程で、圧下率の低い段階に形成された変形双晶の部分から動的再結晶が進行し、高圧下率になると **Fig. 4 (b)~(e)** に示すように双晶は消滅する。これに対し、高温前焼なまし材では圧延中に動的再結晶は生じず、変形双晶は、**Fig. 4 (B)~(E)** に示すように圧下率の増加とともにむしろ増加する。これら圧延後の試料に対し高温焼なましを行うと、高温前焼なまし後に11~22%の中間圧下率で圧延した場合のみピーク強度が顕著に減少し、ランダム化する。いずれの前焼なまし条件でも、最終焼なまし（高温後焼なまし）後は **Fig. 4 (A)** のような異常成長粒の混入はなく、**Fig. 4 (f)~(i)** および **(F)~(I)** に示すように、25~30mmの均一な結晶粒組織となる。

Fig. 4 の右列に示した標準ランダム化プロセスをベースとして、前焼なまし、恒温圧延、後焼なましの各プロセスごとに条件を変化させた。その場合の後焼なまし後のランダム化の程度を、極点図ピーク強度として **Fig. 5** に示す。ここで、() 内の数値は、異常成長した結晶粒を除く前焼なまし後の平均粒径である。**Fig. 5 (a)** に示すように、723K以下の前焼なましは、長時間かけても最終的にランダム化に至らず、また773Kの前焼なましでも、30minでは、最終的なランダム化に不充分である。なお、693K-24hの焼なまし条件は、粒

Fig. 3 The {0001} pole figure, its RD-section and microstructure of the received AZ31D rolled sheet.

界に析出するごく少量の β 相 ($\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$) の固溶化熱処理として充分である。この前焼なまし後の結晶粒径は773K・1hの場合の粒径に匹敵し、773K・30minの場合より大きい。しかし、最終ピーク強度は773Kでいずれの時間前焼なましする場合より高い。このことから、粗大粒組織の形成は、必ずしも最終的な集合組織ランダム化に結びつかないといえる。**Fig. 5 (b)** に示すように、圧延温度は最終ピーク強度にほとんど影響しない。このことは、圧延工程で厳格な温度制御を要しないことを示唆する。**Fig. 5 (c)** に示すように、後焼なまし温度は693Kあるいは723Kと低めでも773K、20minの場合とほとんど同レベルまでピーク強度を下げられるが、後焼なまし温度が低いと多大な時間が必要になる。後焼なまし温度773Kでは、20min以上焼なましても、より以上のランダム化は望めない。**Fig. 5 (a)** から **(c)** は、最終ピーク強度が11~22%の中間圧下率で低くなることを示している。圧延集合組織がダブルピークになるかどうかは、その境界が11%と22%の間にあることから、ランダム化とは無関係であるといえる。

上述のような最終的なランダム化のための広範な圧延条件は、このプロセスへの通常圧延の適用を示唆する。**Table 4** は、ロール非加熱の通常圧延における最終ピーク強度に及ぼす予加熱温度の影響を示す。圧延速度は、恒温圧延の場合と同じ $100\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ とした。この通常圧延では、予加熱温度523~573Kで恒温圧延での標準ランダム化プロセスに匹敵する低い最終ピーク強度が得られた。しかし、より高い予加熱温度673Kでは、圧延中に動的再結晶が生じないにもかかわらず、最終焼なまし後には強い底面集合組織となる。また、高温で焼なました板は、通常温度の焼なまし板より低温圧延性がよいといえる。

3.3 集合組織とミクロ組織の考察

Fig. 6 は標準ランダム化プロセスにおける前焼なましを693K、24hに置換えた場合の集合組織とミクロ組織の変化を示す。この前焼なまし条件は、上述の溶体化処理条件である。**Fig. 6 (a)** の前焼なまし段階の状態は、異常成長粒の存在およびそれを除く平均結晶粒径において、**Fig. 4 (A)** の773K、1h前焼なまし（標準ランダム化プロセス）の場合とほとんど変わらない。しかしながら**Fig. 6 (a)** では、**Fig. 6 (b)**、**(c)** に示すように、その後の圧延で動的再結晶が生じ、**Fig. 6 (d)**、**(e)** に示すように、最終的な集合組織が同心円状（底面集合組織）になる。この変化は、最終のピーク強度は低いが、**Fig. 4** 左列の573K、30minの前焼なましの場合に似ている。一般に、粗大粒のAZ31マグネシウム合金では、双晶が塑性変形に大きく寄与する。723K以下で前焼なました板の圧延では、変形双晶が微細な動的再結晶粒に置換わって消

Fig. 4 The {0001} pole figure, its RD-section and microstructure after pre-annealing, rolling and final annealing (effect of high-temperature annealing).

Fig. 5 The effect of experimental conditions in each procedure on the final peak intensity (based on pre-annealing at 773 K for 1 h, rolling at 473 K and final annealing at 773 K for 20 min).

Table 4 The effect of pre-heating temperature and rolling reduction on final peak intensity in standard rolling without roll heating (pre-annealing at 773 K for 1 h and final annealing at 773 K for 20 min)

Temperature (K) \ Reduction (%)	523	573	623	673
17.5	3.5	3.8	4.4	—
20.0	2.9	3.4	4.0	11.9

減する。

一般に、温度が低いほど動的再結晶には大きなひずみが必要となるので¹³⁾、再結晶が生じないように Fig. 6 に示したプロセス中の圧延温度だけを 393 K に下げた。その結果を Fig. 7 に示す。22% 圧延後のマイクロ組織には、Fig. 7 (a) に示すように、動的再結晶を生じることなく多くの変形双晶が発生していた。このマイクロ組織は標準ランダム化プロセス (Fig. 4 右列) のものと類似していたにもかかわらず、Fig. 7 (b) に示すように、最終の集合組織は Fig. 6 (d), (e) と同様な同心円状となった。Fig. 8 に、多くの変形双晶を含んだ圧延後のマイクロ組織 Fig. 4 (D) と Fig. 7 (a) の拡大写真を示す。いずれの組織にも薄い部分的に交差した双晶が多く見られる。その双晶のタイプはまだ特定できていないが、主として限られたすべり系の下で塑性変形に寄与するとされている $\{10\bar{1}2\}$ $\{10\bar{1}1\}$ 双晶と推察される^{14),15)}。

Fig. 6 The $\{0001\}$ pole figure, its RD-section and microstructure after pre-annealing at 693 K for 24 h, rolling at 473 K and final annealing at 773 K for 20 min.

Fig. 7 The $\{0001\}$ pole figure, its RD-section and microstructure after pre-annealing at 693 K for 24 h, rolling at 398 K and final annealing at 773 K for 20 min.

Fig. 9 に種々の後焼なまし条件での $\{0001\}$ 極点図の RD 断面を示す。前焼なましと圧延の条件は標準ランダム化プロセスに準じている。723 K あるいは 693 K の後焼なましでも集合

組織はランダム化するが、773Kでは、723Kまでの後焼なましに比べてランダム化の進行がかなり早く、非常に効率的である。773Kの後焼なましでは、標準ランダム化プロセス条件で20min以上焼なましを行っても効果がないといえる。

上述の最終的な集合組織ランダム化の要件を整理すると以下のようになる。(1) 773K, 1hの高温前焼なましは不可欠である。(2) 高温前焼なましは結晶粒を粗大化させ、その後の圧延で動的再結晶を生じることなく、多くの変形双晶を含んだマイクロ組織となる。(3) 粗大粒組織と動的再結晶に発展しない双晶は必要条件ではない。(4) ランダム化できる圧延条件(温度, 圧下率)の範囲は広いので、ロール非加熱の通常の圧延機で充分本プロセスを実行できる。(5) 後焼なましは必ずしも773Kの高温でなくてもよいが、723Kまでに比べるとはるかに速くランダム化する。

3.4 極点図ピーク強度と曲げ性の関係

集合組織ランダム化材の卓越した成形性は90°V曲げ試験で示されるが、このようなAZ31圧延板は存在しなかったので、V曲げ限界と極点図ピーク強度の統計的な関係は、このような低い強度レベルまでは確認されていなかった。Fig. 10は、適正ランダム化条件の探索で得られた多くのデータを基にプロットしたその相関図である。試験片は厚さ0.9mmまで研磨した。V曲げ限界 R/t は、ピーク強度 I と全体的によい

相関を示す。 $R/t < 2.0$ の優れた曲げ性を示すのは、 $I < 4.5$ のランダム化した試料に限られる。しかし、それより高いピーク強度の試料で R/t の分布幅が広いのは、 R/t がピーク強度だけでなく極点図のパターンにも依存するからである。

Fig. 9 The variation in the RD-section of {0001} pole figure due to the final annealing (rolling at 473K after pre-annealing at 773K for 1 h).

(a) Magnified microstructure of Fig.4 (D)

(b) Magnified microstructure of Fig.7 (a)

Fig. 8 The comparison between magnified microstructures of Fig. 4 (D) and Fig. 7 (a).

- (a) Rolling at 473 K with 22% after pre-annealing at 773 K for 1 h.
(b) Rolling at 393 K with 22% after pre-annealing at 693 K for 24 h.

	Pre-annealing		Rolling	Final annealing	
	T_{PA} /K	t_{PA} /min	T_R /K	T_{FA} /K	t_{FA} /min
○	773	60	473	773	60, 20
△	773	60	423, 393	773	20
▽	773	60	298	773	20
□	773	60	473	723	60, 30
◇	773	60	473	573	30
×	773	60	298	573	30
+	723	120, 60	473	773	20
●	573	30	473	773	60, 20
▲	573	30	473	573	30

Fig. 10 The correlation between the V-bending limit, R/t , and peak intensity of the {0001} pole figure, I (R : tip radius, t : thickness of sheet).

4. 結 言

マグネシウム合金板の集合組織ランダム化が、一般的な市販展伸材 AZ31 において、特殊な装置や技法を用いることなく、通常の圧延プロセスの範囲内で達成できた。このプロセスでは、最終圧延パス前後の 773 K の高温焼なましで、圧延板の底面配向を大幅に弱め、それが冷間成形性を飛躍的に向上させる。圧延条件の許容範囲は広いので、需要さえあれば工業的量产も可能である。しかしながら、この集合組織変化の機構はまだほとんど解明されておらず、多くの疑問が残されている。今後、地道な機構究明とともに、最終的な実用化の視点から成形性の多角的な検証が必要である。

謝 辞

本研究に多大なご協力を賜った日本大学の勝田基嗣教授と三菱アルミニウム株式会社の関係各位に厚く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) M. Easton, A. Beer, M. Barnett, C. Davies, G. Dunlop, Y. Durandet, S. Blacket, T. Hilditch, P. Beggs: JOM, **60**-11 (2008), 57–62.
- 2) M. Kohzu, T. Hironaka, S. Nakatsuka, N. Saito, F. Yoshida, T. Naka, H. Okahara and K. Higashi: Mater. Trans., **48** (2007), 764–768.
- 3) 高津正秀, 廣中智也, 中塚章太, 斎藤尚文, 吉田総仁, 中 哲夫, 岡原治男, 東 健司: 塑性と加工, **49** (2008), 221–225.
- 4) T. Al-Samman, G. Gottstein: Mater. Sci. & Eng. (A), 488 (2008), 406–414.
- 5) Y. Chino, M. Mabuchi, R. Kishihara, H. Hosokawa, Y. Yamada, C. Wen, K. Shimojima, H. Iwasaki: Mater. Trans., **43** (2002), 2554–2560.
- 6) Y. Chino, H. Iwasaki, M. Mabuchi: Mater. Sci. & Eng. (A), 466 (2007), 90–95.
- 7) Y. Chino, K. Sassa, M. Mabuchi: J. Mater. Sci., **44** (2008), 1821–1827.
- 8) M. Kohzu, S. Nakatsuka and K. Higashi: Mater. Trans., **49** (2008), 2096–2099.
- 9) 高津正秀, 中塚章太, 東 健司: 軽金属, **59** (2009), 498–501.
- 10) K. Mori and H. Tsuji: CIRP Annals-manufacturing Technology, **56** (2007), 285–288.
- 11) 森謙一郎, 辻 浩和: 塑性と加工, **48** (2007), 41–45.
- 12) L. F. Yang, K. Mori and H. Tsuji: Trans. Nonferrous Metals Soc. China, **18** (2008), 86–91.
- 13) O. Sitdikov and R. Kaibyshev: Mater. Trans., **42** (2001), 1928–1937.
- 14) A. Jain and S.R. Agnew: Mater. Sci. & Eng. (A), 462 (2007), 29–36.
- 15) 小池淳一, 宮村剛夫: 軽金属, **54** (2004), 460–464.

1) M. Easton, A. Beer, M. Barnett, C. Davies, G. Dunlop, Y. Durandet, S.