微細粒軽量金属の研究動向 —材料特性の視点から—

里 達 雄*

1. はじめに

近年、省資源・省エネルギーの観点から種々の分野で軽量・高性能材料へのニーズが高まっている。実用金属材料として軽金属の範疇に含まれるものにはアルミニウム(密度 2.7 g/cm^3)、マグネシウム(密度 1.7 g/cm^3)、チタン(密度 4.5 g/cm^3)がある。特にアルミニウムは加工性、铸造性、耐食性等に優れ、工業材料として広く使用されている。また、マグネシウムは実用金属としては最も軽量であることから、最近急速に使用量が増加している。チタンは軽量性の他に耐食性、耐熱性、高強度特性に優れ、各種構造材料として重宝されている。

軽量金属は、航空機、鉄道車両、自動車など移動するものの構造材料として適用すると、それぞれの持ち味が十分生かされることになる。材料の軽量化がいかに省エネルギー効果に寄与するのかが本ミニ特集で具体的に紹介されている。さらに種々の工夫により合金のさらなる高強度化が図られている。たとえば、結晶粒径の超微細化や析出強化制御などにより顕著な高強度化が可能である。これまでにスーパーメタルプロジェクト(1997年～2001年、5年間)が推進され、産官学の連携で精力的な研究活動が進められてきた。アルミニウムの場合、結晶粒径を超微細化することにより、どの程度の特性向上が図られるかが関心事のひとつになっている⁽¹⁾。

アルミニウム合金ではホール・ペッチ則の勾配(k_p 値)が鋼などに比べ小さいこと、また、アルミニウムは積層欠陥エネルギーが高いために動的回復がおこりやすく、ひずみの蓄積が困難なため、通常的手法では $10 \mu\text{m}$ 以下の微細粒を得ることは難しいことなどのため、微細粒強化はあまり検討されてこなかった。アルミニウム系スーパーメタルプロジェク

ト(スーパーアルミプロジェクト)では、「 $3 \mu\text{m}$ 以下の極微細結晶粒径を有する組織制御材料で工学的特性(強度、耐食性)が現在使用されている同種材料の1.5倍以上、かつ、板幅が 200 mm 以上のアルミニウム系大型素材の創製技術を確立する。」ことが目標として設定された⁽¹⁾。具体的には目標達成のために以下の手法が検討された。

- (1) 高ひずみ蓄積材の開発：加工時に大量のひずみを生成
 - ・基礎：ECAP(Equal-Channel Angular Pressing), ARB(Accumulative Roll-Bonding)
 - ・極低温圧延(低温度域でひずみを多量に蓄積)
 - ・異周速圧延(上下のロール速度差でせん断変形付与)
 - ・大圧下圧延(トータルのひずみ量を増大)
- (2) 化合物粒子の分散制御技術の開発：再結晶時の核生成サイトの増大
 - ・溶湯圧延：急冷凝固法の利用
- (3) サブグレイン制御加工プロセス技術の開発：動的回復、連続再結晶の利用
 - ・温間圧延
- (4) 高ひずみ保持昇温技術の開発：焼なまし温度への昇温中のひずみ焼失を抑制
 - ・急速加熱：電磁誘導加熱利用

本稿では、微細粒材の材料特性として、スーパーアルミプロジェクトの成果の一部を紹介し、さらに現在展開中のマグネシウム合金ならびにアルミニウム合金の研究について概説する。

2. アルミニウム合金の微細粒組織と材料特性

まず、実用アルミニウム材料の機械的特性を概観するため、図1に JIS 展伸用アルミニウム合金について0.2%耐力

* 東京工業大学教授；大学院理工学研究科材料工学専攻(〒152-8552 東京都目黒区大岡山2-12-1)
Research Trend on Ultrafine Grained Light Metals from a Viewpoint of Material Properties; Tatsuo Sato(Department of Metallurgy and Ceramics Science, Tokyo Institute of Technology, Tokyo)
Keywords: ultra fine grain, Hall-Petch relation, materials properties, aluminum, magnesium
2004年3月30日受理

と伸びの関係を示す。純アルミニウムに比べ、合金化すると全体的に強度が増大する傾向が認められる。また、熱処理型合金は析出硬化を有効に活用できることから、非熱処理型合金よりも強度がかなり高い。非熱処理型合金の場合、固溶強化や加工強化により強度増大を図るが、強度増大の有効な手法として結晶粒微細化が挙げられる。

代表的な例としてスーパーアルミプロジェクトで研究された非熱処理型合金の5083アルミニウム合金について紹介する。5083合金(Al-4.5%Mg-0.5%Mn系合金, mass%)は実用合金として最もMg含有量が多く、また、Mnを含有するためAl-Mn系の析出物等によって結晶粒成長の抑制効果が期待できる。図2⁽²⁾に5083合金について通常の手法による材料と温間大圧下圧延による微細結晶粒材について耐力と伸びの関係を示す。微細結晶粒材は耐力および伸びの両方の特性が向上しており、スーパーアルミプロジェクトの目標特性(図中の実線)に到達している。これは後述のように結晶粒微細化の寄与が大きい。また、表1⁽²⁾に5083合金について、各種プロセスにより結晶粒を微細化するときのねらいや結晶粒径ならびに代表的特性を示す。結晶粒径として数 μm 程度、あるいは3 μm 以下の大きさの微細粒が得られている。これ

によって強度が増大するとともに、成形性が向上する。特に、微細結晶粒材ではラングフォード値(r 値)が最も大きくなり、45°方向では2.2ときわめて大きな値が得られている。 r 値に異方性はあるものの、きわめて高い値が得られていることはアルミニウム材料として興味深い成果である。

温間1パス大ひずみ圧延の場合、通常の冷間加工後の焼なましでは再結晶に先立つ静的回復が生じてひずみが失われるのに対し、温間圧延では動的回復で安定な転位下部組織が形成されるため、ひずみエネルギーを再結晶に有効活用できることから微細粒が得られると考えられる。5083合金を373~673 Kの温度において、1回の圧延で50~88%圧延する1パス大圧下圧延を行うと結晶粒は微細化する。通常の5083焼なまし材(粒径約20 μm)に比べ、微細結晶粒材は耐力が1.3~1.5倍高い。また、523 Kでの温間圧延材では伸びも向上し、さらに、 r 値も増大する。さらに、冷間異周速圧延と急速加熱焼なましを組み合わせると、平均粒径2.5 μm の微細粒組織を有する5083合金板が得られる。通常材に比べ耐力は1.3倍以上、伸びも同等レベル以上となり、また、耐食性も改善される。一方、温間異周速圧延を施すと結晶粒径は1.0~1.5 μm とさらに微細粒組織となり、通常材に比べ、耐力は2.5倍以上となる。

溶湯圧延機の急冷効果を利用して厚さ約7 mmの板材を作

図1 JIS規格展伸用アルミニウム合金の0.2%耐力と伸び(標準的性質)の関係。

図2 5083アルミニウム合金(Al-4.5%Mg-0.7%Mn)の通常材および温間大圧下圧延による微細粒材の耐力と伸びの関係。太線はスーパーアルミでの目標特性。

表1 5083アルミニウム合金の結晶粒微細化のプロセスと得られた結果。

	プロセス	ね ら い	結晶粒径	強 度	成形性	耐食性
1	室温大ひずみ圧延→急速焼鈍	導入ひずみ量を大きくし不連続再結晶	約3 μm	1.3~1.5倍	絞り性 約1.8倍	SCC 約3.6倍
	極低温圧延→急速焼鈍	導入ひずみ量を大きくし不連続再結晶	約7 μm	—	—	—
2	温間域での1パス大圧下圧延	一度に大きなひずみを付加し、自己焼鈍作用で再結晶	表層 3 μm 中央層 8 μm	約1.3倍	—	—
3	温間域多パス圧延→焼鈍	不連続再結晶をおこさずに導入された転位を回復	約1.5 μm (亜結晶粒)	同等 (伸び増加)	r 値2.2 (45°)	—

製し、耐力の結晶粒径依存性を調べると、図3⁽³⁾に示すように結晶粒微細化により耐力は増大し、強化されることが示される。Al-2.5%Mn-0~2.5%Mg合金溶湯圧延材において平均結晶粒径3 μm 以下で高角粒界の多い組織が得られている。また、Mg添加により固溶強化が加算されるため耐力が増大する。粗大粒材(17 μm)に比べ、1.8倍程度の強度が得られている。成形性については通常材と同等である。結晶粒微細化したAl-2.5%Mn-2.5%Mg合金板は耐力160~180MPaとなり、4.5%Mgを含む通常の5083合金より高い強度となっている。また、耐SCC性は4.5%Mgを含む通常の5083合金よりも良好であった。また、疲労限も高くなっている。成形性評価としてエリクセン試験およびTZP試験を行い、良好な結果を得ている。これらの溶湯圧延材では第2相粒子の均一分散を特徴としており、最適分散を図れば再結晶粒のさらなる微細化が可能である。

一方、強加工により微細結晶粒を得る手法としてECAP法やARB法(繰り返し重ね接合圧延)が注目され、研究されている。一例として、各種アルミニウム合金のECAP材を373~573Kで3.6ks熱処理して結晶粒を制御し、引張試験したときの0.2%耐力と結晶粒径との関係を図4⁽⁴⁾に示す。ホール・ペッチ則がおおむね成立し、いずれの材料でも微細粒となるほど耐力は増大する。また、Mg固溶量が多いほど

図3 溶湯圧延による結晶粒微細化 Al-Mn-Mg 合金の耐力と結晶粒径の関係。

図4 各種アルミニウム合金 ECAP 材の耐力と結晶粒径の関係。

高強度となり、微細粒とMgの固溶強化により高強度化が実現されている。図5⁽⁵⁾に1100アルミニウム(工業用純アルミニウム)のARB材について、0.2%耐力および全伸びと平均粒径の関係を示す。耐力についてホール・ペッチ則が成立し、粒径が0.3 μm 程度の超微細粒領域まで直線関係が成立している。また、伸びは微細粒になれば低下する傾向が認められ、特に1 μm 付近で急激に低下している。ARB法によりAl-Mg系、Al-Mg-Si系およびAl-Zn-Mg-Cu系合金で1 μm 以下の超微細粒組織が実現され、通常材の1.7倍以上の高強度が達成されている。

以上のように、工業用純アルミニウムや非熱処理型合金について結晶粒を微細化することは強度増大の点できわめて有効であることがわかる。また、微細粒化の過程で集合組織も変化し、成形性の向上も図られる。

熱処理型合金として中強度を有する6061アルミニウム合金(Al-Mg-Si合金)について温間異周速圧延を573Kにおいて加工度77~92%の条件で行った材料では約92%の加工度で均一な微細粒組織が形成され、平均結晶粒径として約1.0 μm が得られている⁽⁶⁾。6061合金では時効に先立ち溶体化処理を行うが、その際に粒成長がおこるため、粒成長を抑制するScやZrなどの微量添加が必要となる。このようにして得られた材料は通常圧延材に比べ、耐力はT4状態(焼入れ後自然時効)で1.5倍以上、T6状態(焼入れ後人工時効)で1.1倍程度に向上することが報告されている。熱処理型合金として高強度を有する7475合金(Al-Zn-Mg-Cu系合金)についても温間圧延により動的回復を制御してサブグレインの安定化を図り、微細粒組織が得られている。この微細粒は耐力割れ感受性が大きく改善されており⁽⁷⁾、注目される。

各種実用合金材ならびに最近開発された合金材料について、耐力と結晶粒径のホール・ペッチ則を図6⁽⁸⁾に示す。各合金でホール・ペッチ則が成り立ち、1 μm 以下の微細粒ではかなり耐力が増大することがわかる。これらの合金には急冷凝固材や粉末冶金法により作製された合金も含まれており、これらの合金材料ではきわめて高い強度が得られている。

図5 1100アルミニウムのARB材の耐力と結晶粒径の関係。

3. マグネシウム合金の微細粒組織と材料特性

マグネシウムの場合、ホール・ペッチ則の k_y 値がアルミニウムより大きく、結晶粒微細化による合金強化はきわめて有効である。図7⁽⁹⁾にAZ91マグネシウム合金(Mg-9%Al-1%Zn)と5083アルミニウム合金の耐力の結晶粒径依存性を示す。結晶粒が粗大な場合はマグネシウムの耐力はアルミニウムに比べて小さいのに対し、粒径が小さくなると逆にマグネシウムの方が高い耐力を示す。すなわち、マグネシウムは結晶粒径依存性がアルミニウムより大きく、結晶粒微細化は合金強化にきわめて有効であることがわかる。また、微細結晶粒のマグネシウム合金では超塑性変形が生じ、これにより良好な成形品が得られることも報告されている⁽¹⁰⁾。また、微細粒による延性の改善について、一例として、AZ31合金の伸びと平均結晶粒径の関係を図8に示す。試料はそれぞれ

図6 各種アルミニウム合金の耐力と結晶粒径の関係。

図7 AZ91マグネシウム合金と5083アルミニウム合金の耐力と結晶粒径の関係。AZ91マグネシウム合金の方が勾配が大きく、耐力の結晶粒依存性が高い。

圧延に対してRDおよびTDを区別して表示してある。結晶粒を超微細化すると図8に示すように、室温でも35%以上の伸びが得られる。さらに、マグネシウム合金では図9⁽¹¹⁾に示すように微細粒と同時に結晶方位を制御することにより、高強度と高延性を同時に実現できることが期待されている。

4. 逆ホール・ペッチの関係

これまで述べたように結晶粒が微細になるほど合金強度は増大するホール・ペッチ則が成立しているが、結晶粒をさらに微細にし、ナノスケールの大きさにするとホール・ペッチ則は成立しなくなり、むしろ微細粒ほど強度が低下する逆ホール・ペッチ則の関係になることが明らかにされてきた。下川ら⁽¹²⁾は分子動力学シミュレーションを行い、ナノ多結晶体の粒径と強度の関係を検討し、粒径が20~40 nm以下になると強度が減少することを示している。このような逆ホール・ペッチ則となる理由については種々考えられるが、微細粒になれば粒界領域が急激に増大し、また、粒界会合部の距離も短くなるため、粒界部の変形抵抗が小さくなるためと

図8 AZ31マグネシウム合金の伸びの結晶粒径依存性。

図9 AZ31マグネシウム合金の結晶粒微細化と結晶方位制御による高強度・高延性化の実現。

図10 アルミニウム合金展伸材の高強度・高性能化の展開。

考えられている⁽¹²⁾。従って、より微細粒となれば粒径のみでなく、結晶粒界面部の構造や強度に関する検討が必要となる。また、析出強化合金では粒界近傍に通常形成される無析出帯(PFZ)の材料特性への影響についても明らかにする必要がある。これらについては今後の課題として残されている。

5. 今後の展開

合金元素の添加による場合と異なり、結晶粒微細化のみにより材料を高強度・高性能化することができれば環境に配慮した材料開発につながる。アルミニウムでは、たとえば鉄やチタンと異なり、同素変態が存在しないことから、結晶粒微細化や合金強化法の自由度が限られてくる。1 μm以下の微細結晶粒実現のために、晶出物や析出物の核生成サイトとしての有効性を系統的に明らかにする必要がある。アルミニウム合金展伸材の高強度・高性能化に関わるスーパーアルミプロジェクトに続く研究の展開を図10に示す。スーパーアルミでは結晶粒の超微細化を目標に研究開発が行われ、続いて、ナノメタル(アルミ系)ではナノ析出組織制御による大きな析出強化と延性の実現を目標に研究開発が行われており、同時に、自動車用高成形性合金開発のための結晶方位・集合組織制御と高ランクフォード値の実現に向けた研究が進められている。スーパーアルミより派生した両プロジェクトの成果を融合し、特に自動車用ボディパネル材として高強度と高成形性を実現し、マルチパフォーマンスの材料として自動車軽量化に貢献すべく精力的な研究が展開されている。

一方、マグネシウム合金でも高度構成設計を推進する研究プロジェクトが展開しており、種々の成果が得られている。これらについては、たとえば小島ら⁽¹¹⁾の解説に詳しい。

6. おわりに

微細粒軽量金属の研究動向について、材料特性の視点から概説した。近年の材料の軽量高性能化に応えることが強く求

められる中、結晶粒を飛躍的に微細にする手法の構築、超微細粒材料の強度、延性、成形性、耐食性をはじめとする諸特性の評価・解析がスーパーメタルプロジェクトで開始され、さらに、結晶粒内ならびに粒界・粒界近傍のナノスケールの析出制御と特性向上を図るナノメタルプロジェクト、さらには飛躍的な高成形性を実現するための結晶粒と集合組織の制御を図る自動車軽量化プロジェクトが精力的に展開されている。これらのプロジェクトは実用材料の開発と新たな事業化という大きなテーマで進められている一方で、材料組織制御や材料特性に関するきわめて基礎的な興味深い知見を多く見出している。これらは今後の新たな材料開発において重要なものであり、このような成果も見逃すことはできない。

文 献

- (1) 長濱勝介：軽金属，51(2001)，62-69.
- (2) スーパーメタルの技術開発・海底石油生産支援システム研究開発・アルミニウム高耐食性微細構造制御金属材料技術開発成果報告書(平成13年度)，財金属系材料研究開発センター，(2001)，33-61.
- (3) スーパーメタルの技術開発・海底石油生産支援システム研究開発・アルミニウム高耐食性微細構造制御金属材料技術開発成果報告書(平成12年度)，財金属系材料研究開発センター，(2000)，25-40.
- (4) スーパーメタルの技術開発・海底石油生産支援システム研究開発・アルミニウム高耐食性微細構造制御金属材料技術開発成果報告書(平成10年度)，財金属系材料研究開発センター，(1998)，26-37.
- (5) 斎藤好弘：スーパーメタルの技術開発・海底石油生産支援システム研究開発・アルミニウム高耐食性微細構造制御金属材料技術開発成果報告書(平成11年度)，財金属系材料研究開発センター，(1999)，40-54.
- (6) スーパーメタルの技術開発・海底石油生産支援システム研究開発・アルミニウム高耐食性微細構造制御金属材料技術開発成果報告書(平成13年度)，財金属系材料研究開発センター，(2001)，137-142.
- (7) スーパーメタルの技術開発・海底石油生産支援システム研究開発・アルミニウム高耐食性微細構造制御金属材料技術開発成果報告書(平成13年度)，財金属系材料研究開発センター，(2001)，116-136.
- (8) 長村光造：第1回スーパーメタルシンポジウム講演集(東京)，(1998，11)，13-21.
- (9) 千野靖正，馬淵 守：軽金属，51(2001)，498-502.
- (10) 渡辺博行，向井敏司，東 健司：軽金属，51(2001)，503-508.
- (11) 小島 陽，鎌土重晴，東 健司，相澤龍彦：軽金属，51(2001)，575-585.
- (12) 下川智嗣，伊川俊輔，中谷彰宏，北川 浩，新宅救徳：日本機械学会講演論文集(材料力学部門講演会)，No. 03-11(2003)，483-484.

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★
里 達雄

1979年 東京工業大学大学院理工学研究科博士課程修了。

同年に東京工業大学工学部金属工学科助手となり，助教を経て，1999年より現職。

この間，1988年から89年にかけて英国マンチェスター大学客員研究員。

専門分野：金属組織学，材料機能設計学。

主として非鉄金属材料を対象に微視的組織制御ならびに材料特性について研究。鋳造凝固や加工，熱処理を含む広範な創製プロセスを精力的に研究し，特に最近では軽量で高強度・高延性材料開発のためのナノ組織制御法の確立を目指して研究を展開中。

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★