

恒温圧延により微細化されたAZ91Dマグネシウム合金板材の超塑性挙動における異方性

鳥阪 泰憲*・筆谷 秀一*²・堀端 真彦*³・広橋 光治*⁴

Superplastic Anisotropic Behavior in Magnesium Alloy of AZ91D Grain Refined by Isothermal-rolling

Yasunori TORISAKA, Shuichi FUDETANI, Masahiko HORIHATA and Mitsuji HIROHASHI

Synopsis : Thin magnesium alloy of AZ91D sheets worked by isothermal-rolling and then annealed around the temperature between 0% and 100% recrystallization have been prepared, and tensed at right angles to rolling direction at elevated temperatures and at several strain-rates. Both the total elongation and strain-rate sensitivity m have been obtained and discussed.

The m values was found to be 0.5 in range of $1.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ to $1.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. The activation energy required for superplastic deformation was calculated to be about $87 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$, which was almost same of the activation energy for self-diffusional grain boundary coefficient in Mg.

Although the high strain-rate sensitivity and the activation energy corresponding to self-diffusional grain boundary were obtained, contrary to expectations, the values of total elongation didn't exceed over 100% at all testing temperatures and at all strain-rates.

Tensed at right angles to rolling direction, gap and offset presupposed during tensile testing were not accommodated by recrystallized anisotropic fine particles. Therefore, a large number of cavities caused, and consequently the total elongations decreased.

Key words: magnesium alloys; AZ91D; isothermal-rolling; superplastic deformation; anisotropic; activation energy; grain boundary diffusion; gap; offset.

1. 緒言

Mg合金、とりわけAlを9%含むAZ91Dの脆さの改善策として、現在大きなせん断力を与えることが可能な押出し法、ECAE (Equal Channel Angular Extrusion) 法¹⁾が注目される一方、通電加熱方式による恒温圧延法²⁾が報告されている。すなわち、Fig. 1³⁾に示すように、試験温度573Kの高ひずみ速度域を除き、実験の範囲内のあらゆる試験温度およびひずみ速度領域で、約110%以上の全伸びが得られ、最大伸びは約270%に達している。

このAZ91Dは再結晶が途中で中断されたもので（以下、RM0材）、完全に再結晶されたAZ91Dに比し²⁾、全伸び、 m 値ともに大きく向上している。

一般に超塑性試験では、押出し材、圧延材にかかわらず、加工方向に引張るのが通例である。例えば、Fig. 1の場合、圧延方向と引張り方向の関係を図示すれば、Fig. 2のようになる。図中の光顕組織はRM0材における引張り開始直前の圧延面での組織を示したものである²⁾。

ここで大きな問題が生じる。すなわち、AZ91Dを圧延方向と同方向ではなく、Fig. 3に示すように直角方向に引

張る（以下、RM90材）と、Fig. 1で示したRM0材と同様の結果が得られるか、という疑問である。

そこで本研究では、AZ91Dの圧延に恒温圧延機を用い、その後の再結晶を途中で中断させ、Fig. 2と同じ組織に調

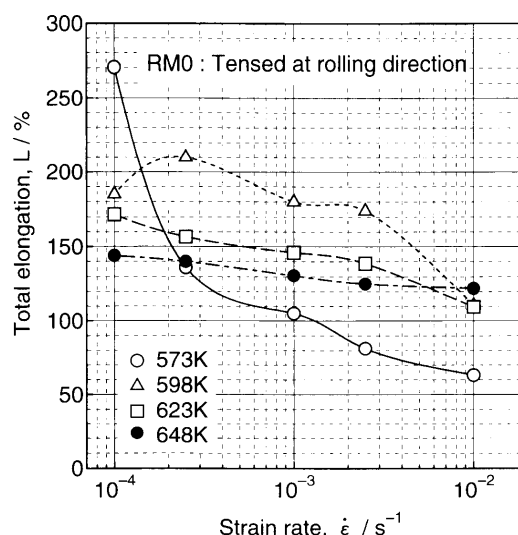


Fig. 1. Relation between strain-rate and total elongation RM0 material tensed at rolling direction.³⁾

平成17年3月16日受付 平成17年5月16日受理 (Received on Mar. 16, 2005; Accepted on May 16, 2005)

* 産業技術総合研究所 (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 1-2-1 Namiki Tsukuba 305-8564)

*² 千葉大学大学院自然科学研究科 (Graduate Student, Chiba University)

*³ 奈良教育大学 (Nara University of Education)

*⁴ 千葉大学大学院自然科学研究科 (Graduate School of Science and Technology, Chiba University)

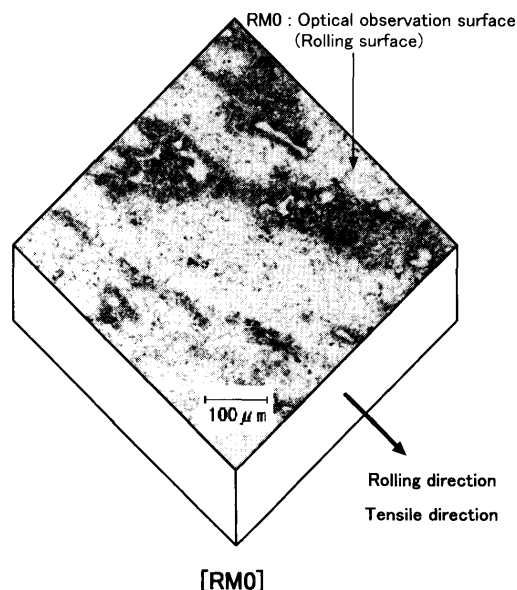


Fig. 2. Rolling and tensile directions before tensile test of RM0 materials.

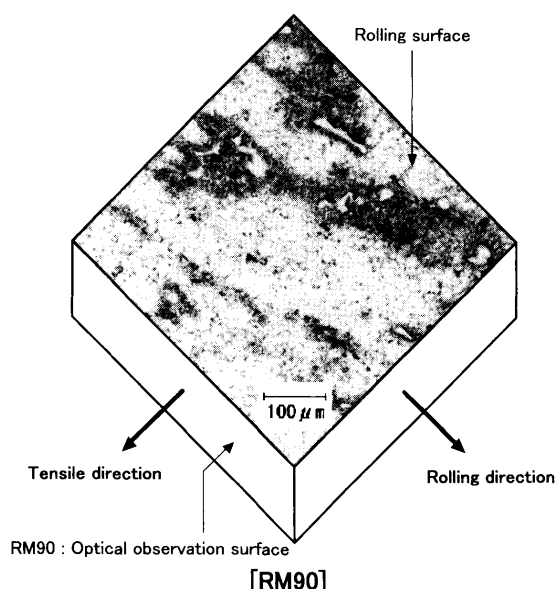


Fig. 3. Rolling and tensile directions before tensile test of RM90 materials.

整された試験片を、Fig. 3で示したように圧延方向と直角方向に、種々の温度およびひずみ速度で引張ることとした。そして、そのときの全伸びおよびひずみ速度感受性指数 m 値を求め、圧延方向と同方向の引張試験で得られたこれらの値と比較検討した。

2. 実験試料および実験方法

本実験に供した試料はMg-Al系鋳造合金、AZ91Dでその化学組成をTable 1に示す。この試料から、厚さ10mm、幅40mm、長さ80mmの圧延ビレットを切り出した。更に、圧延のための先付けを行い、幅方向での圧延に供した。

Table 1. Chemical composition of AZ91D (mass%).

Mg	Al	Zn	Mn	Si	Cu	Fe
Bal.	9.0	0.8	0.1	0.1	0.05	0.05

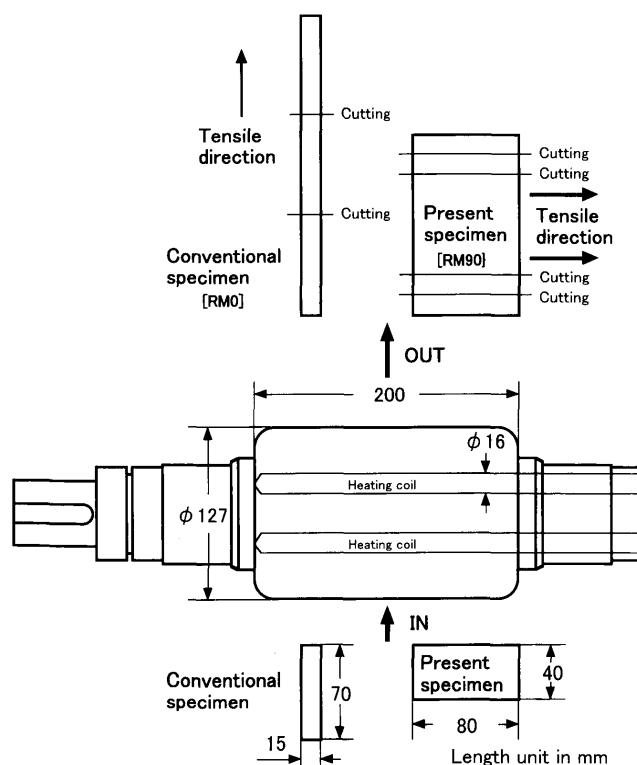


Fig. 4. Roll for isothermal rolling and relation between rolling and tensile direction.

Table 2. Specifications of isothermal rolling.

Maximum load	20tonf
Maximum temperature on roll surface	673K
Width of uniform temperature on roll surface	100mm
Keeping temperature of roll chocks and stand	303K

圧延には、恒温圧延機を用い、あらかじめロール温度を573Kまで加熱しておき、圧延ビレットを電気炉中にて573Kで300s保持後、1パス当たり0.5mmの圧下量で圧延し、最終厚さを1mm（圧下率90%）とした。このときの圧延方法をFig. 4の右側で、また用いた恒温圧延機の仕様をTable 2にそれぞれ示す。その後、再結晶の途中域である603K×1hの焼なましを施し（以下、RM材）、Fig. 5に示す形状に切り出した後、高温引張試験に供した。したがって、RM材をFig. 4の左側で示すように切り出したのがRM0材で、右側で示すように切り出したのがRM90材となる。

なお、Fig. 6は90%圧延材を498Kから698Kまでの各温度で、1h焼なましした試料について、硬さ測定した結果を示したものである。図中の■印は圧延前の鋳造材の硬さ

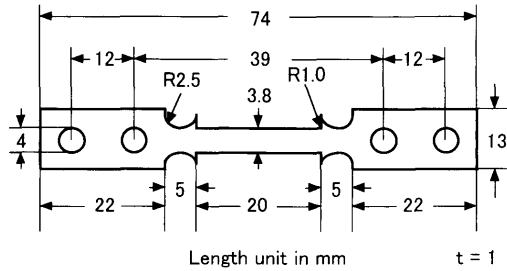


Fig. 5. Specimen dimensions for tensile tests.

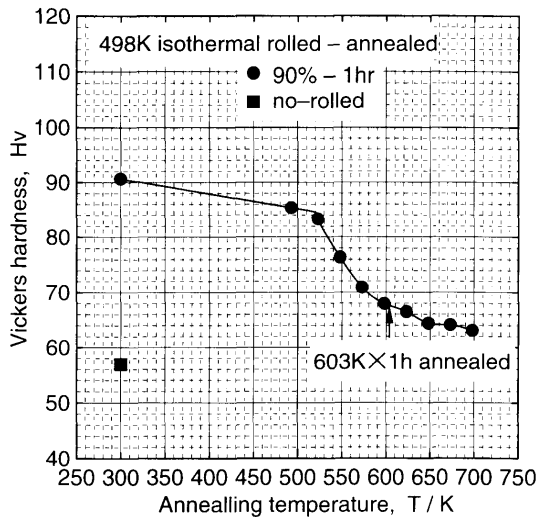


Fig. 6. Effect of annealing temperature on hardness for 498K isothermal rolled AZ91D.

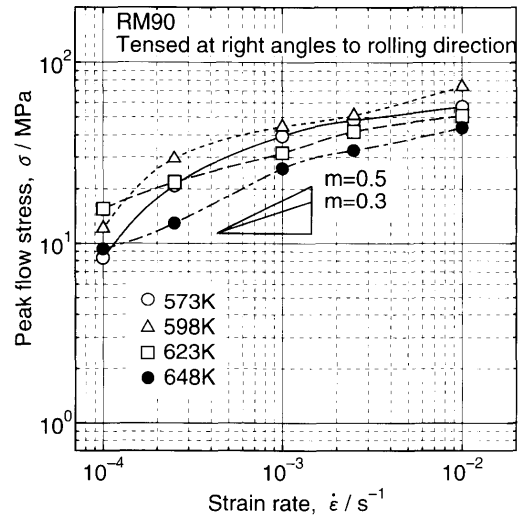
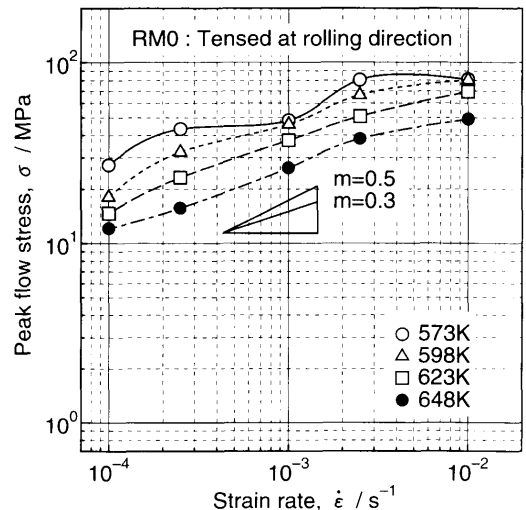
を示す。これより、本焼なまし材は再結晶途中域のものであることが分かる。

組織観察には、2%ナイトル (HNO_3 : 2 mL, $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$: 98 mL) によるエッチングの後、光学顕微鏡により観察し、線分法にて結晶粒の大きさを求めた。

高温引張試験は、島津製作所製引張試験機、SERVO PULSER EHF-EA5Tを用いて、 $1.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 、 $2.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ 、 $1.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 、 $2.5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ および $1.0 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ の初期ひずみ速度一定で行った。試験温度は573K、598K、623Kおよび648Kとし、真空中で試験を行った。ここで、昇温速度は20K/minであった。

3. 実験結果および考察

Fig. 7はx軸にひずみ速度を、y軸に応力-ひずみ曲線から得られたピーク流動応力をもってプロットしたもので、Fig. 8³⁾はRM0材の場合を示したものである。RM0材では最大のひずみ速度感受性指数 m 値は、ひずみ速度 $1.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ から $2.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ の間で、約0.5を示しているが、RM90材ではこの値が $1.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 付近まで続いている。したがって、このような m 値の傾向から推察すると、RM0材に比し、RM90材の方がより大きな全伸びを示すことが予想される。


 Fig. 7. $\ln \sigma$ vs. $\ln \dot{\epsilon}$ curves in RM90 material obtained by tensile testing performed at right angles to rolling direction at indicated temperatures.

 Fig. 8. $\ln \sigma$ vs. $\ln \dot{\epsilon}$ curves in RM0 material obtained by tensile testing performed at rolling direction at indicated temperatures.³⁾

ここで、RM90材の高温引張試験の結果を、ひずみ速度をx軸に、全伸びをy軸にとってFig. 9にプロットする。Fig. 1³⁾で示したRM0材同様、RM90材も各試験温度ともにひずみ速度の増加に伴って、全伸びは小さくなる傾向がみられる。しかし、RM0材に比べ、その値は上記予想に反し、著しく小さく、最大でもFig.10 (図中の最小スケールは10 mm) に示すように約100%である。この傾向を分かり易くするために、試験温度をx軸に、全伸びをy軸にとってプロットし直すと、RM90材ではFig.11が、RM0材ではFig.12が得られる。RM0材に比し、RM90材の全伸びの減少は全ての温度領域で顕著に現れていることが分かる。ここで、図中RSは再結晶開始温度を、RFは再結晶終了温度を、またRMは圧延後の熱処理温度をそれぞれ示す。

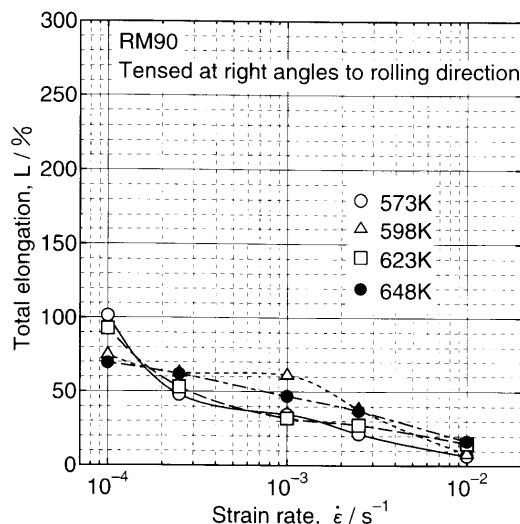


Fig. 9. Relation between strain-rate and total elongation in RM90 material tensed at right angles to rolling direction.

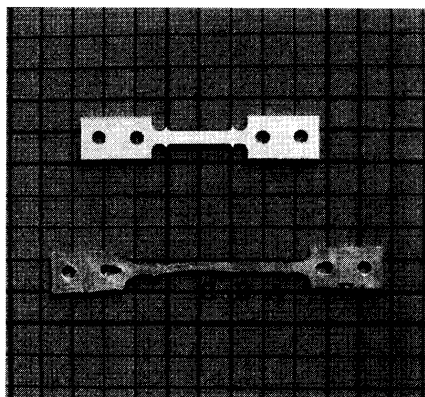


Fig. 10. Specimens (RM90) before tensile test (top) and after failure (bottom) at temperature of 573K and with strain-rate of $1.0 \times 10^{-4} s^{-1}$.

ところで、RM0材およびRM90材ともに最大伸びの得られる最適試験温度は、ひずみ速度 $1.0 \times 10^{-4} s^{-1}$ の場合を除いて、全て598K一定で、この温度の両側の領域では全伸びは低下している。一般に、超塑性ではクリープとは異なり、試験温度が低過ぎても、また高過ぎても伸びるというものではなく、最大伸びの得られる最適試験温度が存在する。すなわち、全伸びの大小を別にとすると、RM90材もRM0材同様に超塑性的な挙動を示しているといえる。

Fig.13に、Fig.10で示した各場所における破断後の光顕組織を示す。観察位置はFig.3で示したように圧延面とは直交している。したがって、Fig.13における引張方向は紙面に垂直方向となる。図中、灰色部分の線状の集合体は未再結晶組織内に生じた再結晶微粒子を、所々の灰色部分は γ 相 ($Al_{12}Mg_{17}$) を、また黒色部分は変形中に生じたキャビティをそれぞれ示している。

Fig.3で示した圧延表面におけるある形状を有する再結晶微粒子の集合体とFig.13(a)で示した線状の再結晶微粒子

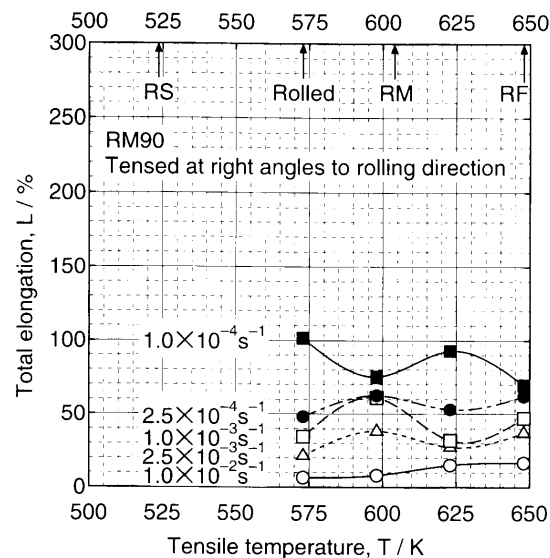


Fig. 11. Relation between tensile temperature and total elongation in RM90 material.

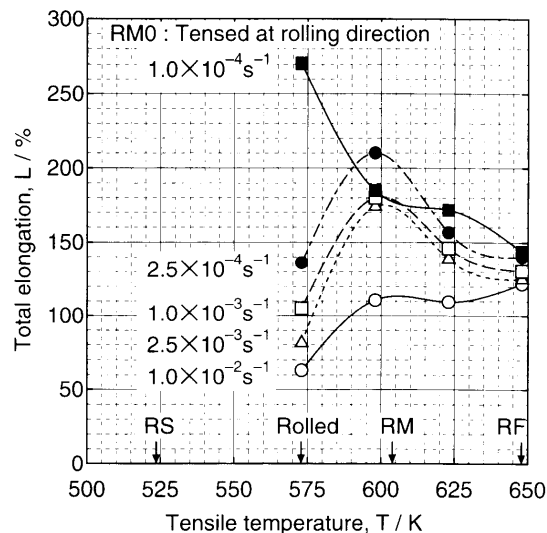


Fig. 12. Relation between tensile temperature and total elongation in RM0 material.

の集合体を比較すると、この集合体はある形状を有するプレート状であることが分かる。そして、プレートとプレートの間では再結晶微粒子が互いに食い合い、十数 μm 程度の再結晶粒になっている。また、キャビティは再結晶粒内ではなく、このプレート内で生じている。Fig.10で示した変形途中のB点における組織写真をモノクロ2階調表示し、キャビティの面積率を求めると、RM0材では7.1%であった³⁾のに対し、RM90材では35.4%とその数は非常に多い。また、線分法による破断後の結晶粒径もRM0材では変形量に対し、全く粗大化することなく、つかみ部の粒径とほとんど同じで、15 μm を保ったままであった³⁾のに対し、RM90材では約25 μm と粗大化している。

RM90材とRM0材におけるこのような全伸びの大きな差は、一般にはMg合金の最密六方格子ゆえに生じる集合組織の異方性が全伸びに大きく影響を及ぼしたことによ

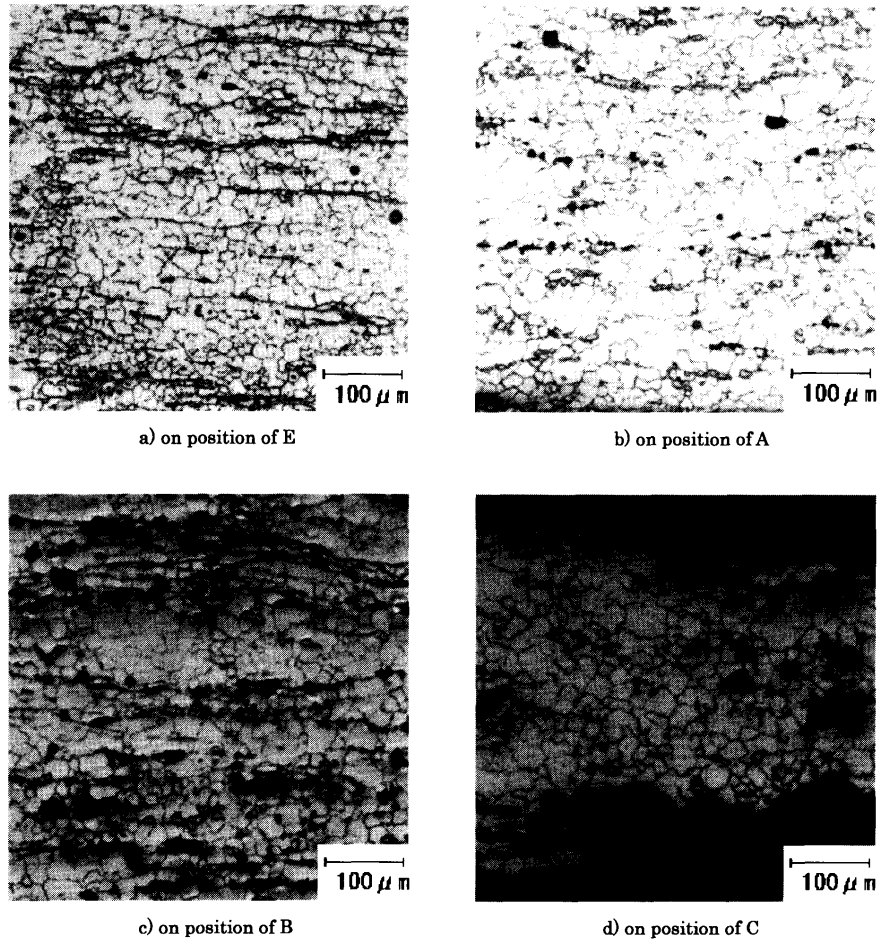


Fig. 13. Optical microstructures in RM90 material after failure on several positions in Fig. 10. (a) On position of E, (b) on position of A, (c) on position of B, (d) on position of C.

と考えられる。ここで、573K、90%圧延材と603K×1h焼なまし材（RM材）のX線極点図解析（XPFA）をSchulzの反射法を用いて行うことにした。

回折角 2θ を(0002)のそれに合わせ固定した後、この状態で圧延された直後のAZ91Dを、圧延面（圧延方向がRD）の幅方向（TD）であるA軸および圧延面の法線方向（ND）であるB軸の周りにそれぞれ回転させながらND面における(0002)面からの回折X線強度を計測した。

なお、(0001)面でなかったのは、測定の際のX線反射角度が(0002)でしか取れなかったためである。また、RD面およびTD面での測定は試験片の厚みがあまりにも小さかったため、不可能であった。

Fig.14に、圧延された直後におけるAZ91DのND面におけるポーラーネットと呼ばれる極点図を示す。図はA軸の回転角 α を $\alpha=0\sim90^\circ$ 、またB軸の回転角 β を $\beta=0\sim360^\circ$ とし、前者を半径方向、後者を円周方向の座標として、得られた回折強度をプロットしたものである。この結果、(0002)面からの回折強度の等高線図が得られる。ここで、図中心における $\alpha=90^\circ$ は入・反射X線を含む面と試料面が垂直な状態で、通常の回折と同じである。

図より、等高線はほぼ同心円上に単調に盛り上がった山

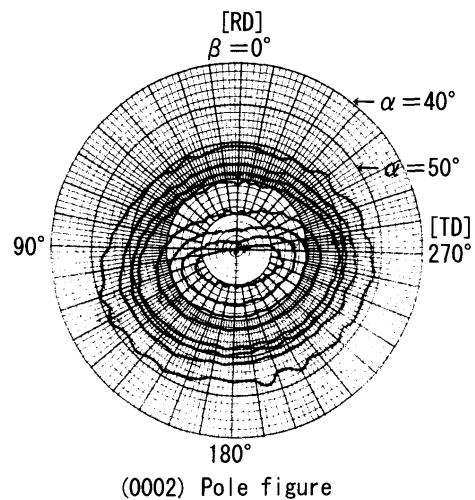


Fig. 14. (0002) pole figure as rolled at 573K with 90%.

形になっており、その頂点は図中心（ND方向）から圧延方向（RD方向）におよそ 5° 程度ずれていることが分かる。

これに対し、RM材をFig.14と全く同じ条件で回折強度を測定すると、Fig.15が得られた。等高線は同心円上からは少し外れているが、Fig.14に比し山形が鋭く、極の分布

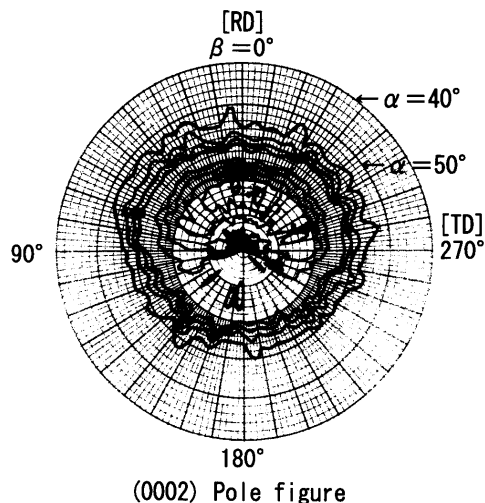


Fig. 15. (0002) pole figure of RM material.

の頂点は丁度図中心にあることが分かる。これはRM材の再結晶後の六方晶底面が圧延面に対し、多少の分布を持ちながらもほぼ平行に配向している傾向が強いことを示している。また、RD方向とTD方向での極の分布状態には、そんなに差異はみられない。

なお、Fig.14およびFig.15において、 $\alpha=40\sim90^\circ$ のみが示されているのは、 $\alpha=0\sim40^\circ$ において回折X線が全く認められなかったためである。

ところで、Fig.15では $\alpha=70\sim90^\circ$ および $\beta=120\sim240^\circ$ の間で、等高線の山が削り取られたような状態がみられる。すなわち、この部分では、(0002)面からの回折X線は皆無であり、六方晶底面の圧延面に対する平行な配向は全く無かったことを示している。先に述べたように、顕微鏡観察の結果、引張り前のRM材では、再結晶組織、未再結晶組織およびわずかの γ 相しか存在しなかったことから、この部分は未再結晶組織内に生じた再結晶微粒子の集合体であると思われる。

次に、RM0材³⁾同様にRM90材の高温変形に要する活性化エネルギー Q を、ピーク流動応力 σ を一定としたときに成立する次式^{2),3)}を用いて求めることにする。

$$\ln \dot{\epsilon} = \text{Const.} - Q/RT$$

ここで、 $\dot{\epsilon}$ はひずみ速度、 R はガス定数、 T は引張温度である。

いま、Fig. 7から σ を20 MPa一定とし、それぞれの温度においてその応力に対するひずみ速度を求め、上式を使って $\ln \dot{\epsilon}-1/T$ なる関係を再プロットすればFig.16が得られ、その直線の勾配から Q の値が求められる。そして、その値を求めるとRM90材では $87 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ が得られる。なお、RM0材では $70 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ であった³⁾。ここで、 σ を20 MPa一定としたのは、Fig. 7で示したそれぞれの温度におけるピーク流動応力-ひずみ速度曲線において、最大 m 値が得られるピーク流動応力を上記 σ に用いたためである。

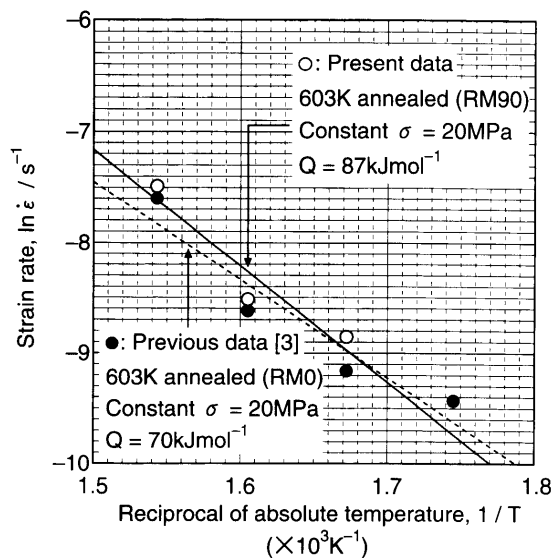


Fig. 16. Activation energy required for high temperature deformation in RM0 and RM90 materials.

Table 3. Self diffusion energies of Mg for both volume diffusion and grain boundary diffusion.

Material	Activation energy ($\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$)	
	Volume diffusion	Grain boundary diffusion
Mg in Mg	135	67

Table 3に示すように、Mgの自己粒内拡散に要する活性化エネルギーの値は $135 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ 、自己粒界拡散に要する活性化エネルギーの値は $67 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ であることが知られている⁴⁾。RM0材で得られた活性化エネルギーの値、 $70 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ およびこれよりは若干その値が大きいが、本実験の高温引張試験で得られたRM90材の活性化エネルギーの値、 $87 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ はMgの自己粒界拡散の活性化エネルギーの値にほぼ近い。したがって、再結晶を中断されたRM0材およびRM90材の高温変形挙動は、Mgの自己粒内拡散に起因するのではなく、Mgの自己粒界拡散に律速されたものと考えられる。このことから、RM材の高温での変形機構として、粒界拡散による粒界すべりなどが考えられる。

すなわち、RM材の変形は結晶粒内の問題に起因したのではなく、拡散を伴った形状不変のままの結晶粒の著しい粒界すべりや粒界移動によって大きく左右された。問題はそのとき結晶粒の粒界3重点で必然的に生ずることが予想されるgapおよびoffsetがどのような調和機構によってキャンセルされたかである。

有力なアコモデーション・モデルとして、M. F. AshbyとR. A. Verrall⁵⁾およびJ. R. SpingarnとW. D. Nix⁶⁾によるgrain switchingモデルおよびR. C. GifkinsによるCore-Mantleモデル⁷⁾などが考えられる。RM90材の高温変形がRM0材と同様、このようなモデルが大きく関与したことは事実であろう。しかし、RM材のこれらの伸びは、先に述べたよう

に再結晶微粒子が互いに食い合い一つの再結晶粒を形成しようとする過渡期に荷重を加えるという組織変化を伴った変形であったという点から、再結晶微粒子の挙動も考慮しなければならない。

すなわち、RM0材ではRD方向に引張りが始まると、未再結晶の再結晶微粒子が互いに食い合い成長する過程において、これらがその六方晶底面を引張方向すなわち圧延方向に平行となるよう、 α の最大方向に0~20°回転することによって、変形中に生じることが予想される gap および offset を調和していったものと思われる。

しかし、RM90材ではRDで示される圧延方向に直交するTD方向に引張るため、再結晶微粒子は α 方向のみならず、更に β 方向に最大で90°回転する必要がある。したがって、RM90材ではこの90°回転が困難となって上記調和機構が作用しなくなり、そのため先に述べた通り、キャビティがRM0材より非常に多く生じることになり、結果として伸びの減少につながったのであろう。

以上から、未再結晶組織を有する超塑性変形では、たとえ変形初期の m 値が大きくても、再結晶微粒子の持つ集合組織の異方性がその後の全伸びに大きく影響を及ぼすといえる。

Fig. 7およびFig. 8を比較すると、試験温度573Kおよび598Kにおけるピーク流動応力がRM90材とRM0材とでは全く逆転している。これを明確にするために、試験温度を x 軸に、ピーク流動応力を y 軸にとってプロットし直すと、RM90材ではFig.17が、RM0材ではFig.18が得られる。RM0材では試験温度が高くなるほどピーク流動応力が減少するのに対し、RM90材ではひずみ速度 $1.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ を除くその他の全てのひずみ速度において、試験温度598K付近でピーク流動応力が最大値を有する。Fig.11およびFig.12で述べたように、この温度は最大伸びの得られる最適試験温度に丁度一致する。

すなわち、RM0材ではFig.12で示したように、先に述べた調和機構の作用により外部荷重は緩和され、そのためピーク流動応力が少なくなって全伸びは大きく現れる。しかし、RM90材ではこの温度付近で調和機構が作用せず、外部荷重は緩和されることなく、キャビティの生成にエネルギーが費やされ、試験温度598K付近でピーク流動応力が最大に達したものと思われる。

4. 結言

再結晶を中断されたMg-Al系合金、AZ91Dの試験片を圧延方向と直角方向に、種々の温度およびひずみ速度で引張り、そのときの全伸びおよびひずみ速度感受性指数 m 値を求めた結果、以下の諸点を明らかにした。

(1) 最大のひずみ速度感受性指数 m 値は、ひずみ速度 $1.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ から $1.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ 付近の間で約0.5を示した。

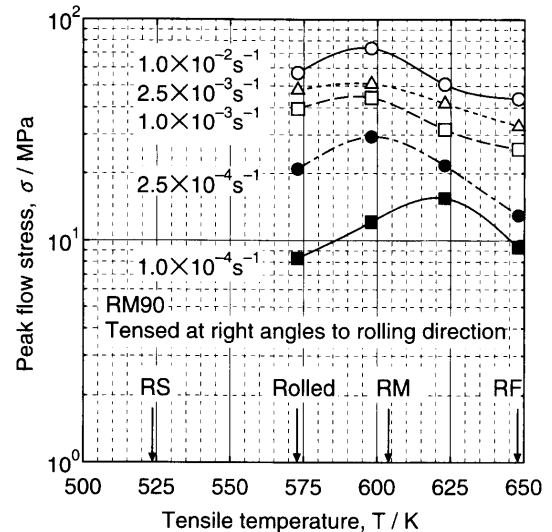


Fig. 17. Relation between tensile temperature and peak flow stress in RM90 material.

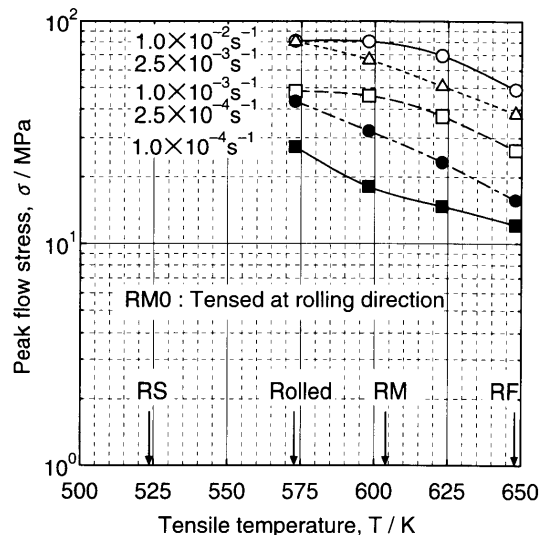


Fig. 18. Relation between tensile temperature and peak flow stress in RM0 material.

(2) 圧延方向と直角方向に引張ったときの超塑性変形に要する活性化エネルギーは $87 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ で、この値はMgの自己粒界拡散に要する活性化エネルギーにほぼ等しい。したがって、この場合の超塑性変形挙動はMgの自己粒界拡散に律速される。

(3) 全伸びは各試験温度ともにひずみ速度の増加に伴って小さくなる傾向がみられた。しかし、圧延方向と同方向に引張った場合に比べ、その値は著しく小さく、最大でも約100%であった。

(4) 最大伸びの得られる最適試験温度は、ひずみ速度 $1.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ の場合を除いて、全て598K一定で、この温度の両側の領域では全伸びは低下した。

(5) 圧延時の圧延方向に対し直交する方向で引張ると、変形中に生じることが予想される gap および offset に対する調和機構が作用しなくなり、そのためキャビティが

非常に多く生じ，結果として全伸びが減少した。

(6) ひずみ速度 $1.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ を除くその他の全てのひずみ速度において，試験温度 598K 付近でピーク流動応力が最大に達した。

(7) 未再結晶組織を有する超塑性変形では，たとえ変形初期の m 値が大きくても，再結晶微粒子のもつ集合組織の異方性がその後の全伸びに大きく影響を及ぼす。

文 献

- 1) M.Mabuchi, K.Ameyama, H.Iwasaki and K.Higashi: *Acta Metall. Mater.*, **47** (1999), 2047.
- 2) Y.Torisaka, S.Fudetani and M.Hirohashi: *CAMP-ISIJ*, **89** (2003), 1071.
- 3) Y.Torisaka, S.Fudetani and M.Hirohashi: *CAMP-ISIJ*, **90** (2004), 21.
- 4) P.G.Shewmon: *J. Met.*, **8** (1956), 918.
- 5) M.F.Ashby and R.A.Verrall: *Acta Metall. Mater.*, **21** (1973), 149.
- 6) J.R.Spingarn and W.D.Nix: *Acta Metall. Mater.*, **26** (1978), 1389.
- 7) R.C.Gifkins: *Metall. Trans.*, **7A** (1976), 1225.