



ミニ特集・5

低環境負荷社会へのプロセス革新

微細組織インプロセス制御によるマグネシウム合金の高速柔軟成形

High-Strain Rate Flexible Forming of Magnesium Alloy Using In Situ Process Control of Grain Refinement

千野靖正

Yasumasa Chino

馬渕 守

Mamoru Mabuchi

独立行政法人 産業技術総合研究所
基礎素材研究部門 研究員

同上 グループリーダー

1 はじめに

マグネシウムは、実用構造金属材料中最も低密度（ $= 1.74 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ ）であり、樹脂系材料を代替する金属として注目されている。マグネシウムが次世代軽量材料として注目される理由としては、比強度、比剛性特性に優れること、金属材料特有の優れたリサイクル性を有すること、資源も豊富に存在すること等が挙げられる¹⁾。

自動車産業を中心とする輸送業界では、来るべき低環境負荷循環型社会に備えて抜本的なCO₂排出量抑制技術の開発が急務となっている。そこでは、燃料電池自動車・電気自動車等の新駆動系の開発、摩擦損失の向上を目指した単体効率向上技術、車体軽量化を中心とした走行抵抗の低減を目指した技術等が開発されつつある²⁾。マグネシウム合金の自動車部材への適用は、強度・剛性を保ちつつ大幅な軽量化を達成する可能性を有していることから、燃費向上技術の有効な一手段として捉えられつつあり、近年、ステアリングホイール、シリンダーヘッドカバー、オイルパン等が実用化され始めている。また、マグネシウム合金が有する高比強度、高比剛性を利用して、トランスミッションケース等のパワープラント骨格部品を製造するための研究開発も盛んに行われている²⁾。

マグネシウム合金を自動車部材に利用した際の環境負荷削減効果について見積もった結果を図1に示す。図1は車両重量を1トンと仮定し、鉄鋼製部材の一部をマグネシウム合金化することによる二酸化炭素排出量の削減効果を定量化したものである。本見積りでは、材料製造過程（原料を精錬して合金を作成する過程）で排出される二酸化炭素量と、自動車が10万km走行する際に排出される二酸化炭素量を考慮した。鉄鋼材料をマグネシウム合金に置換する際の条件としては、鉄鋼材料を利用した際の強度とマグネシウム合金を利用した際の強度が同等になることとした。また、鉄鋼材料のリサイクル率は90%、マグネシウム合金のリサイクル率は

50%と一定とした。本見積りに用いた数値を表1に示す。図1によると、製造過程における排出二酸化炭素量のみを考慮した場合、マグネシウム合金の製造エネルギーは鉄鋼材料の約4倍であり、マグネシウムに置換すればするほど現状より二酸化炭素排出量は多くなってしまふ。一方、走行過程における二酸化炭素排出量は、マグネシウム合金を搭載すればするほど効果的に抑制され、トータルでは二酸化炭素排出量は軽減される。本見積りでは、マグネシウム合金の強度を250MPa、リサイクル率を50%と仮定しているが、マグネシウム合金のリサイクル率の向上、特性向上（高強度化）により一層の環境負荷削減効果を生み出すことが予測できよう。

現在、マグネシウム合金製部材の生産量は増加の一途をたどっているが、そのほとんどは鋳造法により作成されている^{3,4)}。しかし、現状の生産法に問題がない訳ではない。例えば、鋳造欠陥を修正するための複雑な後処理が必要であること、歩留りが低いこと、地球温暖化物質である六フッ化硫黄を使用している等の問題をかかえている。また特性面にお

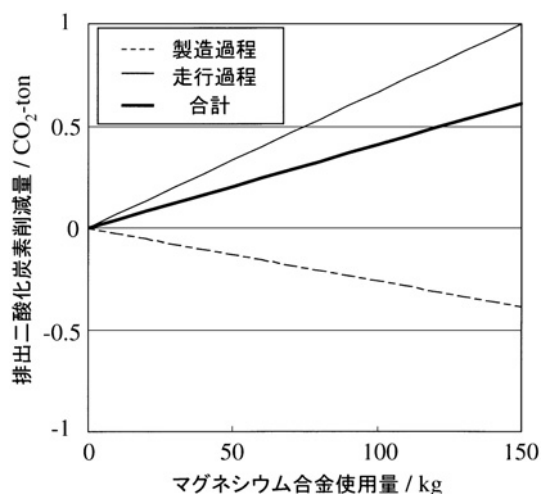


図1 製造過程・走行過程における自動車部材のマグネシウム化による排出二酸化炭素削減量

表1 マグネシウム化の環境負荷削減特性 (図1) を見積る際に用いた数値

	強度 MPa	比重 -	比強度 MPa	バージン材精製 時の排出量 CO ₂ -ton/metal-ton	再生時の 排出量 CO ₂ -ton/metal-ton
鉄鋼材料	800	7.9	101	1.77	0.72
マグネシウム合金	250	1.8	139	7.17	0.24

仮定 1) 鉄鋼材料のリサイクル率90%、マグネシウム合金のリサイクル率50%
2) 自動車1万km走行によって排出されるCO₂量→1.8 CO₂-ton
3) 重量が10%低減すれば、CO₂排出量も10%減

いても、他の材料 (アルミニウム合金等) より格段に優れた高比強度、高比剛性の要求等があるが、現状ではこれら要件を十分に満たしているとは言えない。塑性加工プロセス⁵⁾は成形と同時に高強度・高韌性化を図ることができることから、上記問題を解決するためのキーテクノロジーになりうると言える。しかしながら、六方最密構造を有するマグネシウム合金は、底面すべりの臨界分解剪断応力と非底面すべりのそれとの間に大きな差が存在し、Mg-Li 合金⁶⁾のような特殊合金を除き加工が困難である。

これらの諸問題を解決する手法、すなわちマグネシウム合金の加工性を抜本的に改善する手法の一つとして結晶粒微細化による超塑性が挙げられる。また、マグネシウム合金は結晶粒を微細化することにより室温強度⁷⁻¹¹⁾、延性¹⁰⁻¹²⁾が著しく向上することが報告されており、超塑性の利用により成形性の抜本的改善と機械的特性の向上を同時に達成することが可能である。しかし、マグネシウム合金の超塑性技術¹³⁾には、超塑性速度が一般的な加工速度 (歪み速度 10^{-2}s^{-1} 以上) に比べ100倍以上遅いこと (速度バリア)、超塑性を発現させるためには希土類金属等の特殊成分が必要でありリサイクル性に難点があること (成分バリア) 等の技術障壁 (バリア) が存在し、超塑性プロセスの実用化の大きな障壁となっている。

上記のマグネシウム合金の例に見られるように、エコマテリアル化実現には様々なプロセスバリアが存在する。このようなバリアを打破するプロセスの開発を目的に、“材料の低環境負荷ライフサイクルデザイン実現のためのバリアフリープロセッシング技術に関する研究” プロジェクトが進行中である。このプロジェクトの中で、著者らはマグネシウム合金の加工バリアを払拭する技術として、簡便な加工熱処理 (圧延等) プロセスのみにより、加工中に動的に結晶粒微細化を達成する微細組織インプロセス制御技術に関する研究を行った。これは、加工と同時に結晶粒微細化を達成し、超塑性現象を利用して複雑構造部材の成形を図るものである。具体的な目標としては、超塑性だけではなく室温特性も考慮し、

(1) 希土類金属等特殊な成分を含まない実用合金を対象とし、
(2) ひずみ速度 10^{-2}s^{-1} で200%の伸び (高速超塑性) を達成するとともに、(3) 室温強度300MPa以上の高強度化を実現することを掲げた。

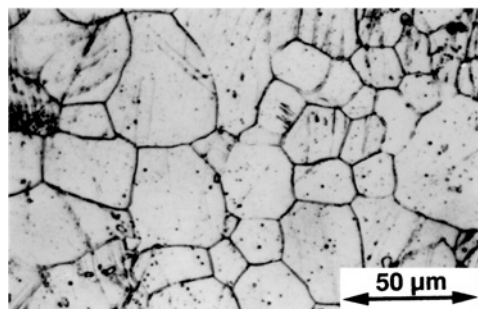
本稿ではマグネシウム合金のバリアフリー高速柔軟成形加工技術の一例として、代表的なMg-Al-Zn系市販合金であるAZ91 (Mg-9mass % Al-0.8mass % Zn-0.3mass % Mn) 合金の高速超塑性について紹介する¹⁴⁾。

2 インプロセス高速超塑性^{14, 15)}

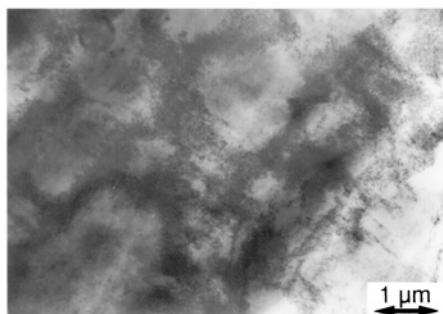
インプロセス高速超塑性のための加工熱処理の概略は以下の通りである。まず、圧延の前処理として、688K、 $72\times 10^3\text{s}$ で溶体化処理を行った。溶体化処理後の供試材を673Kに加熱し、1パスの圧下率を10%から20%とし、最終的に圧下率73%まで圧延を行った。圧延材組織の光学顕微鏡観察結果 (a) およびTEM観察結果 (b) を図2に示す。(a) に示すように、圧延材組織が約 $39.5\mu\text{m}$ の比較的大きな結晶粒により構成されることが確認された。また、(b) に示す結果からは結晶粒内に微細転位セル組織が観察された。なお、転位セル内には転位をピンニングするための微細析出物は特に見られなかった。一般に、超塑性現象を金属材料に発現させるためには $10\mu\text{m}$ 以下の微細結晶粒を有する必要がある¹⁶⁾、(a) に示される組織からは圧延のみでマグネシウム合金に超塑性現象を発現させることは困難であることが予見される。

作製した圧延材試験片に、温度573K、初期歪み速度 $1\times 10^{-3}\text{s}^{-1}$ にて引張り変形を加えた際の試験片形状を図3に示す。圧延材の結晶粒は粗大であるにもかかわらず、試験片は超塑性現象を呈し、604%もの大きな伸びを示した。以上のことから、変形中の結晶粒微細化すなわち微細インプロセス制御が示唆される。

試験片を真歪み0.6まで引張り変形させた際の組織写真を図4に示す。予想どおり圧延材の結晶粒は等軸かつ微細な組織に変化しており、超塑性現象が発現するのに必要とされる



(a)



(b)

図2 AZ91 マグネシウム合金圧延材の光学顕微鏡観察結果 (a) およびTEM観察結果 (b)

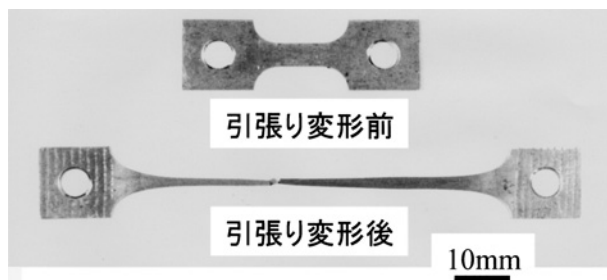


図3 引張り変形前後のAZ91 マグネシウム合金圧延材試験片の形状 (試験片温度573K、歪み速度 $1.51 \times 10^{-3} \text{s}^{-1}$ 、伸び604%)

10 μm 以下 (平均結晶粒径9.1 μm) の結晶粒径が確認された。

真歪み0.1まで引張り変形させた際の試験片組織のTEM写真を図5に示す。図5からは、変形初期の圧延材組織中に微細なサブグレイン組織の形成が確認された。このような微細亜粒界が変形とともに動的に高傾角化していき (連続再結晶)、最終的に微細結晶粒組織が得られたと考えられる。以上の結果を総合すると、図4に見られる微細結晶粒組織は、圧延処理により結晶粒内に形成された高密度転位セル組織が高温変形初期 (あるいは昇温中) に回復過程を経てサブグレイン構造に変化し、さらに変形とともに動的に連続再結晶が起こることにより達成されたと考えられる。

マグネシウムは積層欠陥エネルギーが高く動的再結晶が生じにくいと考えられてきた。しかし、上記に示したように適切な条件を負荷させることにより、動的再結晶により微細結晶粒が得られることが実証された。過去の研究においても、

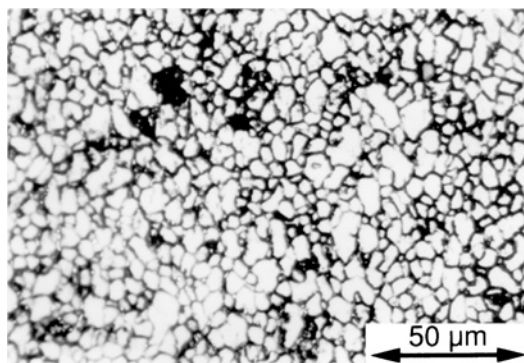


図4 引張り変形中のAZ91 マグネシウム合金圧延材組織 (真歪み0.6、試験片温度573K、歪み速度 $1.5 \times 10^{-3} \text{s}^{-1}$)

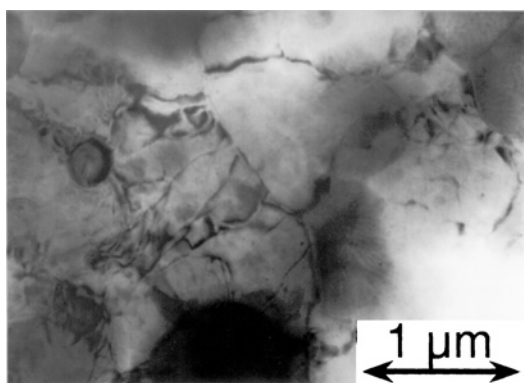


図5 引張り変形中のAZ91 マグネシウム合金圧延材組織 (真歪み0.1、試験片温度573K、歪み速度 $1.5 \times 10^{-3} \text{s}^{-1}$)

Mwembelaら¹⁷⁾はMnを少量添加したAZ31 (Mg-3mass% Al-1mass% Zn) 系マグネシウム合金において、Kaibyshevら¹⁸⁾は純マグネシウムにおいて強加工を加えることにより動的再結晶が起こり得ることを報告している。従来、アルミニウム合金において動的再結晶を発現させるためには、材料内部に数十ナノオーダーの微細析出物を均一分散させる等の複雑な処理を実施する必要があるとされてきた^{19,20)}。一方マグネシウム合金における一連の実験結果は、圧延等の簡便な加工熱処理で試料内部に転位を導入することにより、動的な連続再結晶を発現させ結晶粒を微細化させることを示している。インプロセス制御は、マグネシウム合金の組織制御法としてきわめて有効な手法であると考えらるべきであろう。

573Kでの引張り変形時の歪み速度と伸びの関係を図6に示す。10⁻²s⁻¹の高ひずみ速度においても、伸び200%の超塑性が発現することがわかる。図6において最も注目されるべき事項は、10⁻⁴s⁻¹から10⁻²s⁻¹の広範なひずみ速度領域で200%以上の伸びが得られていることである。複雑形状成形を一工程で行う場合、各場所の変形速度 (歪み速度) は大きく異なる。したがって、広範なひずみ速度領域で超塑性を示すことは実用上きわめて重要である。

紙面の関係上、室温特性に関する詳細は割愛するが、本合金は室温で約380MPaの高強度を示した (比強度=211MPa)。したがって、本インプロセス制御法はマグネシ

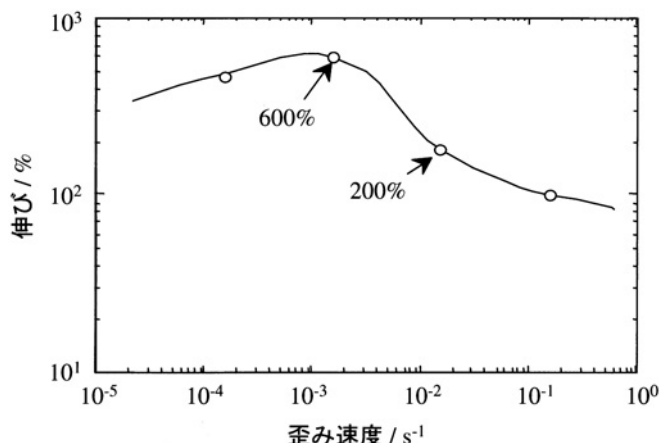


図6 AZ91マグネシウム合金圧延材の
超塑性特性 (試験片温度573K)

ウム合金における加工バリアを克服するとともに、高強度化も同時達成するプロセスといえる。

③ おわりに

マグネシウム合金は循環型超軽量材料としてその需要の拡大が急速に進んでいるものの、現在までの国内需要は2.1万トン程度(2000年、1月～8月実績)²¹⁾であり、アルミニウム合金(3,7百万トン〔1999年〕)²²⁾、ましてや粗鋼(107百万トン〔2000年〕)²³⁾と比較すると非常に少ない。これは、加工工程における技術障壁(加工バリア)のみに留まらず、表面処理技術^{24, 25)}、精錬技術、リサイクル技術^{26, 27)}等数多くのプロセスに技術的なバリアを抱えていることに起因する。一般的にマグネシウム合金の技術的蓄積は他の金属材料と比較して少ない。マグネシウム合金の実用化を促進するためには、加工技術だけでなく他の技術障壁を解決する各種基礎データを集積するための基礎的研究が必須である。特に、リサイクル萌芽期にある現段階でアップグレードリサイクル²⁶⁾のような新しいリサイクル技術の開発が緊急に望まれている。今後の研究に期待したい。

参考文献

- 1) 小島 陽：工業材料，47 (1999) 5，18.
- 2) 吹沢一徳，小池誠一，柴田一雄：まてりあ，39 (2000)，17.
- 3) 白井正勝：工業材料，46 (1998) 10，106.
- 4) 附田之欣，斎藤 研：軽金属，47 (1997)，298.
- 5) 千野靖正，馬淵 守：軽金属，51 (2001)，498.
- 6) 二宮隆二，三宅行一：軽金属，51 (2001)，509.
- 7) G. Nussbaum， P. Sainfor， G. Regazzoni and H. Gjestland：Scr. Metall.， 23 (1989)， 1079.
- 8) D. Lahaie， J. D. Embury， M. M. Chadwich and G. T.

Gray：Scr. Metall.， 27 (1992)， 139.

- 9) M. Mabuchi， Y. Chino， H. Iwasaki T. Aizawa and K. Higashi：Mater. Trans.， 42 (2001)， 1182.
- 10) Y. Chino， M. Mabuchi， K. Shimojima， Y. Yamada， C. E. Wen， K. Miwa， M. Nakamura， T. Asahina， K. Higashi and T. Aizawa：Mater. Trans.， 42 (2001)， 414.
- 11) 千野靖正，下島康嗣，山田康雄，文翠娥，馬淵 守：材料，50 (2001)，1228.
- 12) J. A. Chapman and D. V. Wilson：J. Inst. Met.， 91 (1962-63)， 39.
- 13) K. Kubota， M. Mabuchi and K. Higashi：J. Mater. Sci.， 34 (1999)， 2255.
- 14) T. Mohri， M. Mabuchi， M. Nakamura， T. Asahina， H. Iwasaki， T. Aizawa and K. Higashi：Mater. Sci. Eng. A290， (2000)， 139.
- 15) T. Mohri， T. Nishiwaki， T. Kinoshita， H. Iwasaki， M. Mabuchi， M. Nakamura， T. Asahina， T. Aizawa and K. Higashi：Mater. Trans.， JIM， 41 (2000)， 1154.
- 16) T. G. Langdon：Metall. Trans. A， 13A， (1982)， 689.
- 17) A. Mwembela， E. B. Konopleva and H. J. McQueen：Scr. Metall.， 37 (1997)， 1789.
- 18) R. Kaibyshev and O. Sitdikov：Z. Metallkd.， 85 (1994)， 738.
- 19) K. Higashi， M. Uno， S. Matsuda， T. Ito， S. Tanimura：Proc. Int. Conf. on Recrystallization in Metallic Materials， ed. by T. Chandra， TMS， Warrendale， Pennsylvania， (1990)， 711.
- 20) X. Yang， H. Miura and T. Sakai， Mater. Trans.， JIM， 37 (1996)， 1379.
- 21) マグネシウム，日本マグネシウム協会，30 (2001) 1， 15.
- 22) URL：http://www.aluminum.or.jp/al012.htm
- 23) URL：http://www.jisf.or.jp/00fy/seisan1.html
- 24) Y. Chino， Y. Mori， K. Ippongi and M. Mabuchi：Mater. Trans.， 43 (2002)， 340.
- 25) 千野靖正，森 美昭，一本木康二，馬淵 守：アルトピア，31 (2001) 12， 37.
- 26) M. Mabuchi， K. Kubota and K. Higashi：Mater. Trans.， JIM， 36 (1995)， 1249.
- 27) 千野靖正，岸原竜二，下島康嗣，山田康雄，文 翠娥，岩崎 源，馬淵 守：日本金属学会誌，65 (2001)， 621.

(2001年12月14日受付)