

# 恒温圧延により微細化されたMg-Al合金, AZ91D板材の高温変形挙動

鳥阪 泰憲\*・筆谷 秀一\*<sup>2</sup>・広橋 光治\*<sup>2</sup>

Hot Deformation Behavior in Mg-Al Alloy, AZ91D Grain Refined by Isothermal-rolling

Yasunori TORISAKA, Shuichi FUDETANI and Mitsuharu HIROHASHI

**Synopsis :** The isothermal-rolling mill has been developed for non-working materials, for example, like Mg-Al alloy. The recrystallization behavior of Mg-Al alloy, AZ91D has been investigated. The starting and finishing temperatures of recrystallization are 523K and 648K, respectively. AZ91D sheets tempered to fine grain size by recrystallization have been prepared and tensed at high temperatures. Both the total elongation and strain-rate sensitivity  $m$  have been obtained and discussed. The values of total elongation have exceeded over 100% at testing temperature over 623K with strain-rate below  $1.0 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$  and 170% of maximum total elongation has been obtained. The  $m$  values have indicated over 0.5 in range of  $1.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  to  $2.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  except testing temperature of 573K. The activation energy required for high temperature deformation has been calculated to be about  $124 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ , which is almost same of the activation energy for self-diffusion coefficient in Mg. Therefore, the deformation of AZ91D has been accommodated by volume diffusion.

**Key words :** magnesium alloys; AZ91D; isothermal rolling; high temperature deformation; activation energy; volume diffusion; grain boundary diffusion.

## 1. 緒言

軽量・難加工材の代表である Mg 合金の最大の欠点は何といっても脆いことである。研究開発に当たっては、この脆さの改善にすべての焦点が絞られているといっても過言ではない。これまで上記の改善策として、種々の合金元素の添加が行われ、その成果が数多く報告されてきた<sup>1-4)</sup>。しかし、最近では Mg 合金に限らず、新素材そのものの機械的特性の向上を組織制御の改善から目指そうという動きがある。組織制御として普通よく用いられる方法が再結晶法による結晶粒の微細化である。

再結晶法では、再結晶温度以下で大きな加工を与えることが大前提となる。しかし、六方晶を有する Mg 合金ではこの加工がほとんど不可能である。

現在、大きなせん断力を与えることが可能な押し出し法、ECAE (Equal Channel Angular Extrusion) による AZ91D の超塑性化<sup>5)</sup> が注目されている。しかし、この方法では、あくまで押し出しであるため、薄い板材などを得ることは困難である。

そこで本研究では上記板材加工を可能とする恒温圧延機を試作することにした。その後、この試作機を Mg 合金、AZ91D に適用してその再結晶挙動を調べ、更に再結晶されたこれらの AZ91D を再結晶温度以下の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、超塑性材料としての可否を検討した。

## 2. 恒温圧延機の試作

Fig. 1 に示すように、上下それぞれのロール内に各 4 本の絶縁材でシースされた加熱ヒータを組み込んだ。電気の供給は、ローラー端でのスリップ・リングを用いることにより可能とした。ロールは JIS SKD61 製で、JIS HS75 の熱処理が施されている。また、加熱ヒータは直径 16 mm で、1 本あたりの最大電気容量は 1.25 kW であった。

熱によるジャーナル部の焼付きおよびハウジングの精度の狂いを保護するため、上下ロール両端のチョック部は水

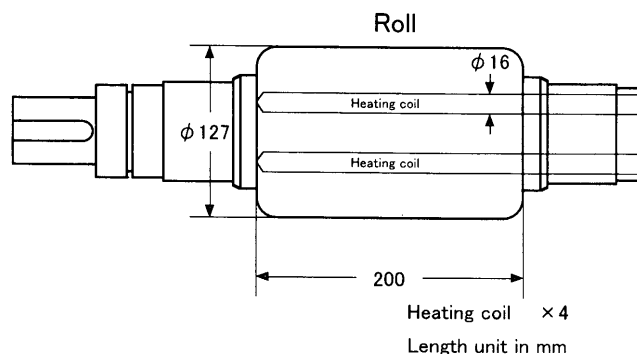


Fig. 1. Roll for isothermal rolling.

平成 15 年 3 月 26 日受付 平成 15 年 7 月 14 日受理 (Received on Mar. 26, 2003; Accepted on July 14, 2003)

\* 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 School of Science and Technology, Chiba University)

Table 1. Specifications of isothermal rolling.

Maximum load	196MN
Maximum temperature on roll surface	673K
Width of uniform temperature on roll surface	100mm
Keeping temperature of roll chocks and stand	303K

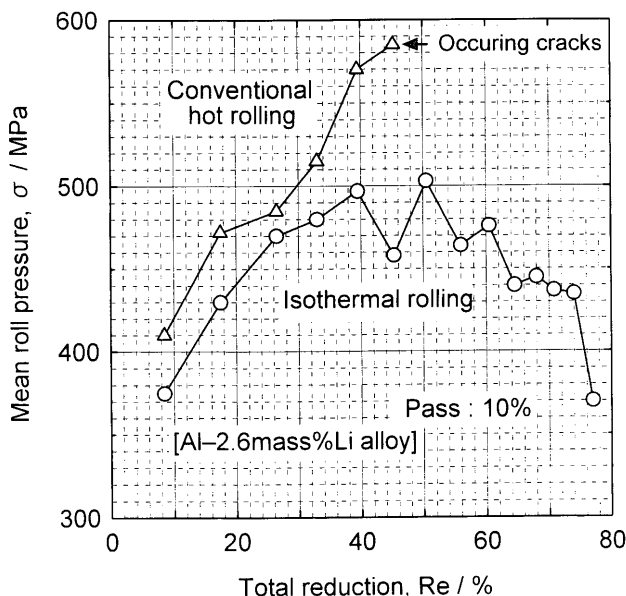


Fig. 2. Changes of mean roll pressure<sup>6)</sup>.

Table 2. 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

冷方式とした。Table 1 は、試作した恒温圧延機の性能をまとめたものである。

軽量難加工材として知られる Al-2.6%Li (mass%) 合金を、本圧延機を用いた恒温圧延および通常の熱間圧延に適用した結果を Fig. 2<sup>6)</sup> に示す。なお、初期板厚は 10mm である。

通常の熱間圧延では圧下率が 45% でクラックが生じるのに対し、恒温圧延では 80% 付近でも健全材が得られている。

### 3. 実験試料および実験方法

本実験に供した試料は Mg-Al 系鑄造合金、AZ91D で、その化学組成を Table 2 に示す。この試料から、厚さ 10mm、幅 15mm、長さ 70mm 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、圧延に供した。

圧延には先の試作した恒温圧延機を用い、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

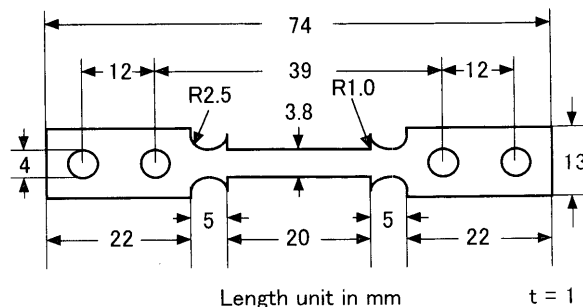


Fig. 3. A size of specimen for tensile tests.

気炉中にて 573K で 300s 保持後、1パスあたり 0.5 mm の圧下量で圧延し、最終厚さを 1mm (圧下率 90%) とした。その後、後述する再結晶挙動から 648K×1h の焼なましを施し高温引張試験に供した。

硬さ測定には、エメリー紙およびバフで研磨した後、マイクロピカース硬さ計 (荷重 1.96N, 荷重保持時間 10s) を用いて 5 個の測定値の平均を取り、硬さとした。

組織観察には、30% CH<sub>3</sub>COOH (酢酸) 水溶液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。なお、昇温速度は 20K/min であった。引張試験片は、再結晶された 90% 圧延材から Fig. 3 に示す形状に切り出し、引張試験に供した。

## 4. 実験結果および考察

### 4.1 再結晶挙動

90% 圧延材を 498K から 698K までの各温度で、1h 焼なました試料について硬さ測定した結果を Fig. 4 に示す。図中の□印は圧延前の鑄造材の硬さである。図から、523K 付近で焼なまし温度の上昇とともに、硬さは著しく減少しており、648K で軟化は終了している。

Fig. 5 は Fig. 4 における再結晶終了温度、648K における組織を示したものである。なお Fig. 6 に圧延前における鑄造材の組織を示す。図中には灰色で示される析出物が数多くみられる。この析出物は、非常に硬くて脆い  $\gamma$  相 (Al<sub>12</sub>Mg<sub>17</sub>) と呼ばれる金属化合物である。

両図を比較すると分かるように、圧延前の結晶粒の大きさが 150  $\mu\text{m}$  をはるかに超えていたのに比し、再結晶終了後は、約 20  $\mu\text{m}$  と著しく微細となっている。次に述べる高温引張試験の結果は、この組織を引張ったものである。

### 4.2 高温引張挙動

高温引張試験の結果、ひずみ速度を x 軸に、y 軸に全伸びをとってプロットしたのが Fig. 7 である。各試験温度と

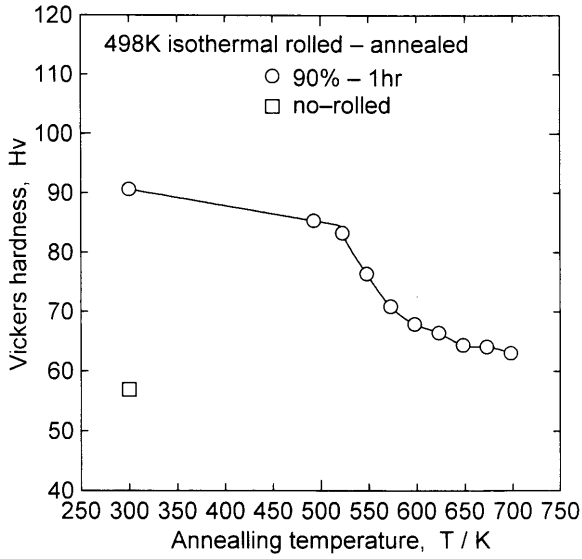


Fig. 4. Effect of annealing temperature on hardness for 498K isothermal rolled AZ91D.

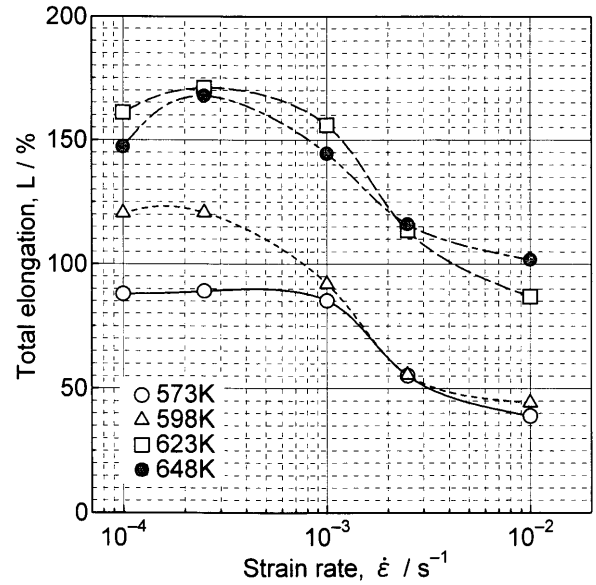


Fig. 7. Relation between strain rate and total elongation.

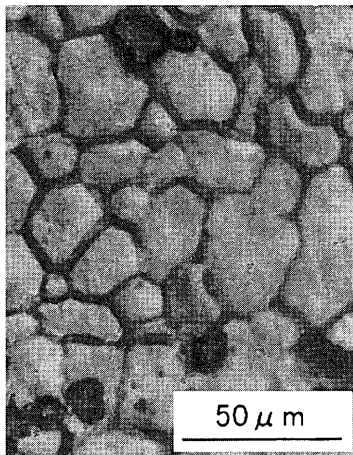


Fig. 5. Optical microstructure of AZ91D 90% rolled and recrystallized.

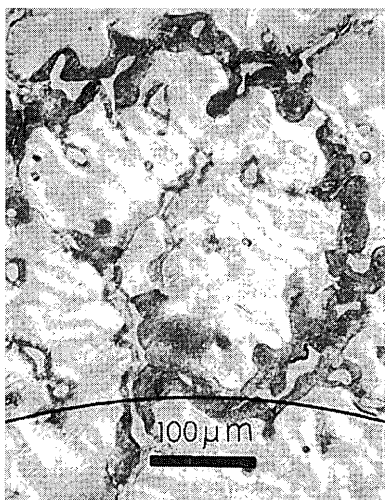


Fig. 6. Optical microstructure of AZ91D as cast.

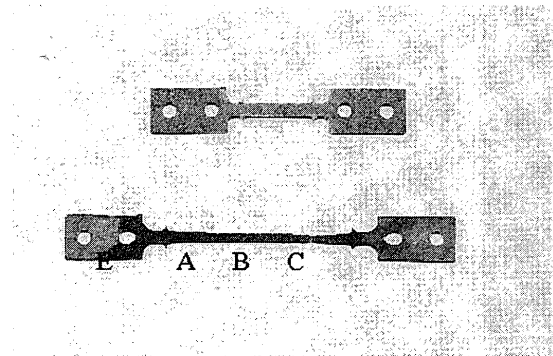


Fig. 8. Specimens before tensile test (top) and after failure (bottom).

も、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。また、試験温度 623K 以上、ひずみ速度  $1.0 \times 10^{-2} s^{-1}$  以下の領域で、全伸びは約 100% 以上を示し、最大伸びは Fig. 8 に示すように約 170% に達した。この最大伸びは、一般に超塑性の指標といわれている 300% をかなり下回っているが、六方晶を有する Mg-Al 系合金、とりわけ AZ91D では比較的大きな値ではないと思われる。

Fig. 9 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とってプロットしたものである。図より、最大のひずみ速度感受性指数  $m$  値は、Fig. 7 で示した最大伸びとよく対応しており、試験温度 573K を除いて、ひずみ速度  $1.0 \times 10^{-4} s^{-1}$  から  $2.5 \times 10^{-4} s^{-1}$  の間で約 0.5 を超えていることが分かる。

一般に  $m$  値は Bachofen のひずみ速度急変法で求められる。しかしこの方法ではひずみ速度を急変させた場合、① その前後における組織変化、② ひずみ速度を上げるのか、下げるのか、③ 何倍に急変させるのか、④ どのひずみ量で急変させるのか、などの問題が多い。したがって本研究で

は  $m$  値を求める場合、Fig. 9 で示したように種々のひずみ速度で同じ組織を有する種々の材料を引張り、得られたピーク流動応力の勾配を  $m$  値とした。

なお、AZ91D の常温における全伸びおよび引張強さは

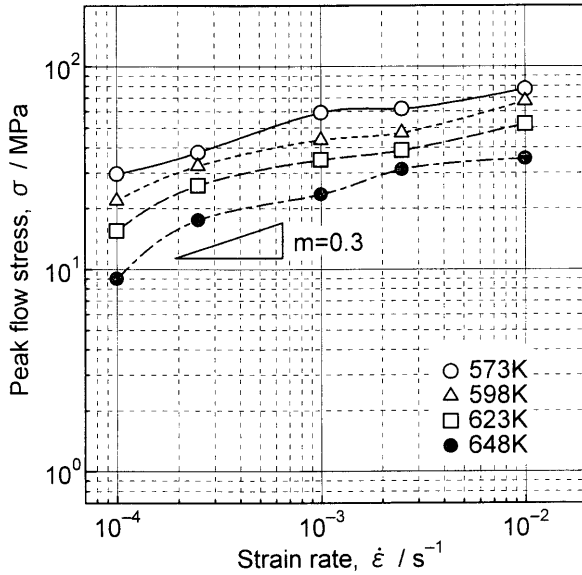


Fig. 9.  $\ln \sigma$  vs.  $\ln \dot{\epsilon}$  curves obtained by tensile testing performed at temperatures indicated.

ひずみ速度  $1.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$  付近において、それぞれ6%および255.8 MPaであった。

Fig.10 に、Fig. 8 で示した各場所における破断後の光顕組織を示す。图中、灰色部分は先に述べた  $\gamma$  相 ( $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ ) で、黒色部分はキャビティである。これより、破断部分に近くなるほど数多くのキャビティが生じることが分かる。また、結晶粒径も暫時大きくなり、破断部では  $30 \mu\text{m}$  となる。なお、Fig.10 のエッチング液には2%ナイトル ( $\text{HNO}_3 : 2 \text{ mL}, \text{C}_2\text{H}_5\text{OH} : 98 \text{ mL}$ ) を用いた。

一般に高温クリープ変形の熱活性化過程におけるひずみ速度  $\dot{\epsilon}$  は、変形に要する活性化エネルギーを  $Q$  とすると、

$$\dot{\epsilon} = A \cdot f(\sigma) \cdot \exp(-Q/RT) \dots \dots \dots (1)$$

で与えられる。 $A$  は材料定数、 $R$  はガス定数、 $T$  は引張温度である。

ここで両辺の対数を取り、 $\sigma$  を一定とすれば、(1) 式は

$$\ln \dot{\epsilon} = \text{Const.} - Q/RT \dots \dots \dots (2)$$

となる。

いま、Fig. 9 から、 $\sigma$  を  $30 \text{ MPa}$  一定とし、(2) 式を使って  $\ln \dot{\epsilon} - 1/T$  なる関係を図示すれば、Fig.11 が得られ、その

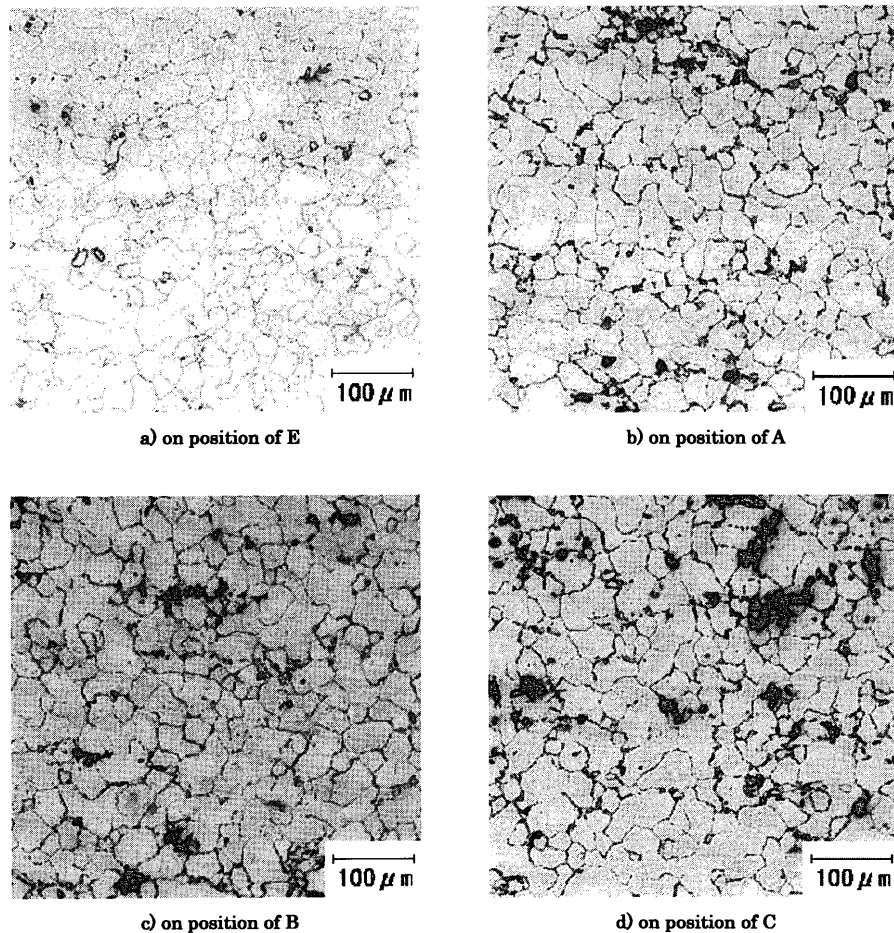


Fig. 10. Optical microstructures after failure on several positions in Fig. 8. a) On position of E, b) on position of A, c) on position of B, d) on position of C.

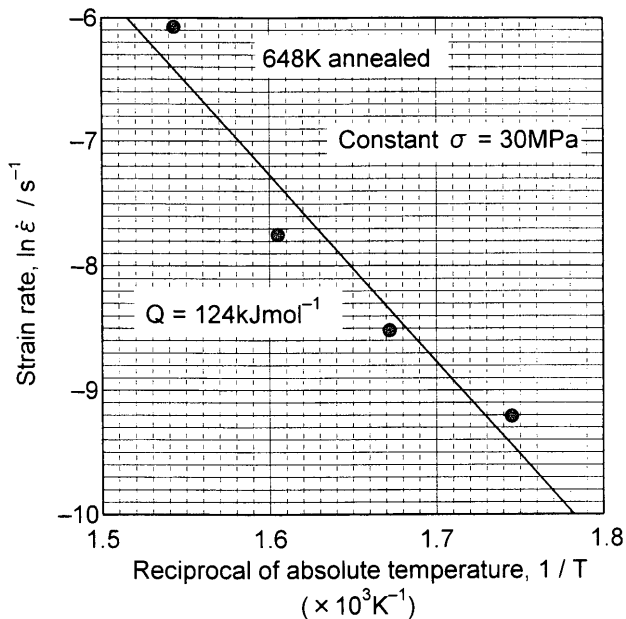


Fig. 11. Activation energy required for high temperature deformation.

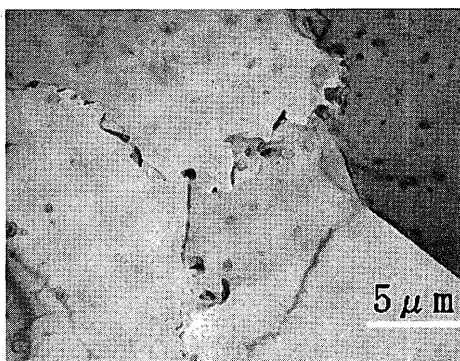


Fig. 12. Microstructure of AZ91D 90% rolled and recrystallized by transmission electron microscopy.

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、 $124 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$  が得られる。

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<sup>7)</sup>。本実験の高温引張試験で得られた活性化エネルギーの値、 $124 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$  は、Mg の自己粒内拡散の活性化エネルギーの値にほぼ等しい。したがって再結晶された AZ91D の高温変形挙動は、Mg の自己粒内拡散に律速されたものと考えられる。

Fig.12 は、Fig. 8 で示したつかみ部 (E) の透過型電子顕微

鏡 (Transmission Electron Microscopy) による組織を示したものである。結晶粒の界面は丸みを帯びているのではなく、ギザギザ状となっていることが分かる。

AZ91D の高温変形挙動が、Mg の (自己) 粒界拡散ではなく、Mg の (自己) 粒内拡散に律速されたということは、上記に述べた通りである。この原因が粒界形状の異常によるものか、あるいは再結晶終了後の結晶粒そのものが Fig. 5 で示した  $20 \mu\text{m}$  と大き過ぎたことによるものか、本実験の範囲内では明らかでない。ただ、組織に大きく起因することは確かである。今後組織を更に改良し、AZ91D の高温変形挙動が Mg の自己粒界拡散型になるようにすることが急務であると思われる。

### 5. 結言

恒温圧延機を用いて、Mg-Al 系合金、AZ91D の再結晶挙動を調べ、その後再結晶された AZ91D を種々の温度およびひずみ速度で引張試験を行った結果、以下の諸点を明らかにした。

- (1) AZ91D の再結晶開始温度および再結晶終了温度は、それぞれ  $523 \text{ K}$  および  $648 \text{ K}$  であった。
- (2) 全伸びは試験温度  $623 \text{ K}$  以上、ひずみ速度  $1.0 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$  以下の領域で、 $100\%$  以上を示し、最大伸びは約  $170\%$  に達した。
- (3)  $m$  値は試験温度  $573 \text{ K}$  を除いて、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  $0.5$  以上を示した。
- (4) AZ91D の高温変形に要する活性化エネルギーは  $124 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$  で、この値は Mg の自己粒内拡散に要する活性化エネルギーにほぼ等しい。
- (5) 再結晶された AZ91D の高温変形挙動は、Mg の自己粒内拡散に律速される。

### 文 献

- 1) M.Sahoo and J.T.Atkins: *J. Mater. Sci.*, **17** (1982), 3654.
- 2) P.Metenier, G.Gonzalez-Doncel, O.A.Ruano, J.Wolfenstine and O.D.Sherby: *Mater. Sci. Eng.*, **A125** (1990), 195.
- 3) W.Fujitani, N.Furushiro, S.Hori and K.Kumeyama: *J. Jpn. Inst. Light Met.*, **42** (1992), 125.
- 4) W.Fujitani, K.Higashi, N.Furushiro and Y.Umakoshi: *J. Jpn. Inst. Light Met.*, **45** (1995), 333.
- 5) M.Mabuchi, K.Ameyama, H.Iwasaki and K.Higashi: *Acta Metall. Mater.*, **47** (1999), 2047.
- 6) M.Horihata and Y.Torisaka: 6th Int. Conf. on Processing and Fabrication of Advanced Materials, Vol. 1, IOM Communications Ltd., London, (1997), 83.
- 7) P.G.Shewmon: *J. Met.*, **8** (1956), 918.