

ISSN 0039-4963

SKEGA2 54(1) 1-343 (2013)

VOL.54
2013

SUMITOMO LIGHT METAL
TECHNICAL REPORTS

住友輕金屬技報



住友軽金属技報

第54巻 第1号 平成25年

目次

巻頭言

「住友軽金属技報」最終号の刊行に際して……………山内重徳 1

ご挨拶

特集記事にあたってのご挨拶……………渋谷和久 2

論文

P773	Al-4.5mass%Cu 合金の固液共存域での応力-ひずみ線図……………	坂口信人 常川雅 渡辺良 功夫	3
P774	Effect of Texture on 0°/180° Earing in Deep Drawing of Aluminum Alloy Sheets……………	Hiroki Tanaka Shingo Ikawa	9
P775	Al-Zn-Mg-Cu系合金押出材の集合組織と強度に及ぼす断面形状の影響……………	新里喜文 箕田英 吉雄	16
P776	Al-Mg-Si 系合金の腐食に及ぼす塩化物水溶液中のカチオン種の影響……………	藤村涼子 小内山 内田秀 弘俊	22
P777	空調熱交換器の着除霜性に及ぼすアルミニウムフィン材表面処理の影響……………	水田貴彦 磯村紀 寿	30
P778	Self-reacting tool を用いた摩擦攪拌接合の制御方法の検討……………	田中直 熊谷正 樹	37
P779	銅合金の押し出し加工におけるピレット表層流れの FEM 解析……………	柴田聡 高橋昌 也	42
P780	スマートシートとスマートコアパネルの曲げ剛性……………	高橋昌也 松田公 橋本一 真	47
P781	循環給湯用銅管に発生する潰食とその対策……………	河野浩三 鈴木三 忍	51
P782	銅管の走間偏肉測定方法および装置の開発……………	武藤伸之 中村俊 幸	57

解説（組織制御特集）

P783	アルミニウム合金の組織制御（総論）- 結晶粒と析出の制御 -……………	吉田英雄	62
P784	アルミニウム合金の連続鋳造における鋳造組織制御……………	常川雅功	106
P785	アルミニウム合金の熱間圧延における組織制御……………	岡村義英 浅野峰 生	122
P786	押出材の組織制御……………	箕田正雄 吉田英 雄	133
P787	急冷凝固アルミニウム粉末冶金合金の組織制御……………	大久保喜正	143

P788	熱処理型合金の析出制御	八吉	太田	秀英	周雄	152
P789	自動車板材料の成形性向上のための組織制御	浅吉	野田	峰英	生雄	166
P790	飲料缶用アルミニウム材料の組織制御	横岡	井田	峰	洋光	185
P791	アルミニウム箔およびPS版用アルミニウム板材の組織制御	本居	徹也			196
P792	工業用純アルミニウムとAl-Fe系合金の組織制御	田中	宏樹			210
P793	自動車熱交換器用材料の組織制御	田伊小	中藤山	宏泰高	和永弘	223
P794	接合における組織制御	熊谷	正樹			235
P795	アルミニウム工業におけるシミュレーション技術の最近の進展	岩村	信吾			243

解 説 (ESD と 零 戦)

P796	これからの航空機産業とアルミニウム	吉田	英雄			250
P797	超々ジュラルミンと零戦 -超々ジュラルミン開発物語- (その2)	吉田	英雄			264

技 術 資 料

R582	アルミニウム飲料缶の軽量化動向	横岡	井田	峰	洋光	327
R583	航空機用 2013 合金引抜き管の特性	佐野	秀男			336

公 表 資 料

論文・講演・資料						342
----------------	--	--	--	--	--	-----

SUMITOMO LIGHT METAL TECHNICAL REPORTS

Vol. 54 No. 1, 2013

CONTENTS

Foreword

On the Last Publishing of "SUMITOMO LIGHT METAL TECHNICAL REPORTS"	Shigenori Yamauchi	1
---	--------------------	---

Preface

For the Special Features of Microstructural Control	Kazuhiisa Shibue	2
---	------------------	---

Technical Paper

P773	Stress-strain Curves of Al-4.5mass%Cu Alloy in Semi-solid State	Nobuhito Sakaguchi Masanori Tsunekawa Yoshio Watanabe	3
P774	Effect of Texture on 0°/180° Earing in Deep Drawing of Aluminum Alloy Sheets	Hiroki Tanaka Shingo Ikawa	9
P775	Effect of Cross Section Shape on Texture and Strength of Extruded Al-Zn-Mg-Cu Alloys	Yoshifumi Shinzato Tadashi Minoda Hideo Yoshida	16
P776	Influence of the Cation Species on the Corrosion of Al-Mg-Si Alloy in Cl ⁻ Containing Solution	Ryoko Fujimura Takahiro Koyama Hidetoshi Uchida	22
P777	Influence of the Fin Stocks Surface Treatment on Frost and Defrost Characteristics of the Heat Exchangers for the Room Air-conditioners	Yoshihiko Mizuta Norihisa Isomura	30
P778	Examination of Optimum Control Method of FSW by Using Self-Reacting Tool.	Sunao Tanaka Masaki Kumagai	37
P779	FEM Analysis of Billet Surface Flow on Extrusion of Copper Alloy	Satoshi Shibata Masaya Takahashi	42
P780	Bending Stiffness of the SMART SHEET and the SMART CORE Panel	Masaya Takahashi Koichi Matsuda Kazuma Hashimoto	47
P781	Erosion Corrosion and its Prevention of Copper Tube in Hot-Water Circulating System	Kozo Kawano Shinobu Suzuki	51
P782	Online Measurement Method and Equipment for Wall Thickness Deviation of Copper Tubes	Nobuyuki Mutoh Toshiyuki Nakamura	57

Explanation (Microstructural Control)

P783	Microstructural Control in Aluminum Alloys —Control of Grains and Precipitation—	Hideo Yoshida	62
P784	Microstructural Control in Cast Structures on Continuous Casting for Wrought Aluminum Alloys	Masanori Tsunekawa	106
P785	Microstructural Control in Hot Rolling of Aluminum Alloys	Yoshihide Okamura Mineo Asano	122
P786	Microstructural Control in Extrusion	Tadashi Minoda Hideo Yoshida	133

P787	Microstructural Control in Rapid Solidification and Powder Metallurgy Alloys	Yoshimasa Ohkubo	143
P788	Precipitation Control in Heat-treatable Aluminum Alloys	Hideonori Hatta Hideo Yoshida	152
P789	Microstructural Control to Improve the Formability of Automotive Sheet Stock	Mineo Asano Hideo Yoshida	166
P790	Microstructural Control in Aluminum Alloys for Beverage Can Stocks	Hiroshi Yokoi Minemitsu Okada	185
P791	Microstructural Control in Aluminum Foil and the Aluminum for the PS Plate	Tetsuya Motoi	196
P792	Microstructural Control in Commercially Pure Aluminum and Al-Fe Alloys	Hiroki Tanaka	210
P793	Microstructural Control in Heat Exchanger Materials	Hirokazu TANAKA Yasunaga ITOH Takahiro KOYAMA	223
P794	Microstructural Control in Joining	Masaki Kumagai	235
P795	Recent Advance of Integrated Computational Material Engineering in Aluminum Industry	Shingo Iwamura	243

Explanation (ESD and Zero Fighter)

P796	Future of the Japanese Aircraft Industries and Aluminum	Hideo Yoshida	250
P797	Extra Super Duralumin and Zero Fighter –History of Extra Super Duralumin– Part 2	Hideo Yoshida	264

Technical Review

R582	Light-weighting Trend of Aluminum Beverage Cans	Hiroshi Yokoi Minemitsu Okada	327
R583	Properties of 2013 Alloy Drawn Tube for Aerospace Application	Hideo Sano	336

Distributed Data

	Published Papers and Presentations		342
--	--	--	-----

「住友軽金属技報」最終号の刊行に際して

山内重徳



本年10月の経営統合を控えて、「住友軽金属技報」が最終号となりました。この機会に、研究開発や技報への思いと統合新会社UACJの研究開発についての思いを綴ってみたいと思います。

本紙の巻頭言を書くのは、平成23年の50周年記念号以来です。その時は、企業における研究開発の役割と技報の役割について書きました。まず、企業における研究開発の役割については、製品や生産技術の開発による経済的貢献、製品の使用方法や加工方法の提示による需要の拡大などを挙げ、また基礎的な研究についても直接・間接の貢献を指摘しました。技報の役割については、研究内容のレベルアップ、お客様の信頼度向上、人材育成などを挙げました。これらの貢献があるから、当社においては、経済環境が変化しても約200人規模の研究開発部門を抱え続け、そして技報の発行を継続してきたと述べました。

上記の役割は現在も通用し、また経営統合後もそのまま通用する事だと思うので、繰り返しになりますが、改めて記述しました。

さて、当社はこの10月1日に古河スカイと経営統合し、株式会社UACJになります。当然、両社の研究開発部門も統合されるでしょう。両社の研究内容、開発内容の詳細はまだ比較できていませんが、両方の強みを活かし、融合すれば、間違いなく強力な研究開発部門ができるでしょう。まさに、量的にも質的にも「1+1⇒3」にして多くの成果を出し、新会社グループの経営に貢献してくれることを大いに期待しています。

アルミ材料の研究開発について世界に目を向けてみましょう。情報収集に制約や限界はありますが、日本のアルミ圧延品の製品開発や生産技術開発は、総合的に見て諸外国に引けを取らないと筆者は見ています。不遜になるのは避けるべきですが、また個々のテーマについて言えば優もあれば劣もあるでしょうが、一貫してかなりの規模の陣容を抱え、研究開発を継続し、それなりの成果を出してきたアルミ圧延の会社は世界にもそんなに多くないと思います。統合によって会社の規模は世界に伍するレベルになります。研究開発も、質的にも量的にも世界に伍する、いや世界をリードするものになって欲しいと思います。研究開発部門の人達には、この事を理解した上で、研究開発の方向を的確に定め、スピード感や効率を意識しながら、ますますの成果を出して欲しいと思います。

筆者の立場上、今回の内容も社内向けになってしまいました。最後になりましたが、これまで「住友軽金属技報」を読んでいただいた社外の方々にお礼を申し上げるとともに、新会社UACJグループのパフォーマンス、UACJ研究開発部門のパフォーマンスに期待していただき、叱咤激励していただきたいとお願い申し上げます。

特集記事にあたってのご挨拶

住友軽金属技報の最終号の発刊にあたり、アルミ合金の研究開発のDNAと次世代に向けたアルミ合金開発の一助とするため、「超々デュラルミンと零戦」と「組織制御」とを特集しました。前者は研究開発センター顧問吉田英雄博士による超々デュラルミンに関する開発の歴史を膨大な資料を精査し、当社のアルミ事業の変遷とともにまとめられています。そこでは、住友の材料開発の伝統の一端をみていただけたと思います。

また、後者では、「組織制御」を通して、研究開発の現況をまとめるとともに、素材メーカーとして、材料開発のありたい姿を皆様に伝えたいと思います。当社では、お客様のご要望を製品仕様として定量化するとともに、その仕様をミニマムなコストでご提供すべく、最適な生産工程を設計してきております。成分を決め、圧延や熱処理などを試行錯誤的に繰り返せば、仕様を満たす製品を生み出すことができますが、これには膨大なコストと時間を費やさねばなりません。そこで、組織と材料の特性との関係、組織と製造条件の関係を解明し、ノウハウとして蓄積するとともに、お客様の要求に最適な生産工程の設計に活用してしております。しかしながら、経験による最適設計の面も否めなく科学的な材料設計への途上であると言わざるを得ません。

一方、近年の解析装置や解析技術の発展とともに計算科学のめざましい発展により、生産プロセスの数値解析、計算機シミュレーションを利用した材料組織の予測技術の研究が一層活発になってきており、アルミ合金への適用が期待されます。しかし、すべての工程における組織を予測する“完全な材質予測”は非常に高いハードルで、はるかな天空にも達しているかもしれませんが、その高いハードルへの挑戦では、道すがら多くのものを得ることができると確信しております。それは、鋳造・圧延・熱処理など多工程における、例えば、凝固組織の予測など部分的な予測かもしれませんが、この予測でも生産プロセスへの貢献は大きなものとなります。また、材質予測の達成には、多くの方々の力が必要となります。一層の高度な組織解析技術、プロセスの計測・制御技術やその数値解析、材料組織の予測などなど、天空のゴールを目指して一步一步踏み出していき、おおいなるチャレンジですが、皆様方と進んでみたく、そのスタートラインとして、当社における組織制御の現状をまとめました。本報をご高覧いただくとともに、「完全な材質予測」に向かい共に歩んでいただければ幸いです。

当社では、10月に古河スカイとの統合を控えており、統合後は両社の技術融合を図り、両社の伝統的な技術開発のDNAを継承するとともに一層進化させ、世界をリードするアルミ技術・製品をお客様にご提供することにより社会に貢献し続けるため、全社を挙げて邁進いたします。住友軽金属技報は本号で廃刊といたしますが、長い間、ご愛顧いただきまことにありがとうございました。統合新会社株式会社UACJにおきまして新たな一歩を踏み出し、皆様に最新の情報をご提供させていただくことをお約束したいと思います。

Al-4.5mass%Cu 合金の固液共存域での応力-ひずみ線図*

坂口 信人** 常川 雅功***
渡辺 良夫***

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 3-8

Stress-strain Curves of Al-4.5mass%Cu Alloy
in Semi-solid State

Nobuhito Sakaguchi, Masanori Tsunekawa and Yoshio Watanabe

The information about the mechanical properties, such as the elastic modulus, needs to be calculated for the hot tearing by CAE. The stress-strain curves in semi-solid state of an Al-4.5mass%Cu alloy, whose deformation behaviors had been classified into six stages in a previous study, were investigated in this study. The shapes of the stress-strain curves in the semi-solid state changed with the temperature the same as the deformation behaviors. The elastic modulus calculated from the stress-strain curves was lower than that calculated by general commercial software. This difference in the elastic modulus was about three to five digit in Pa. This difference would be caused by the melting of the grain boundary and the disappearance of the connection between the solid phases using the general commercial software. The elastic modulus obtained by the stress-strain curve should be more appropriate for calculation of the hot tearing by CAE than that calculated by the commercial software.

1. 緒 言

アルミニウム合金の半連続鋳造 (DC 鋳造) やダイカストなどの鋳造工程では、凝固中の鋳塊に割れが発生することがある。この割れは「凝固割れ」と呼ばれ、1950年代から多くの研究者によってその発生メカニズムが調査されている。それらの成果は渡部らによってレビューされ、過去の研究結果からその発生メカニズムを「固液共存状態で残留液相によるヒーリングが不可能な状態のときに凝固収縮により発生した引張応力あるいはひずみはそのときの固液共存状態の強度あるいは破断ひずみを越えたときに発生する」とまとめている^{1,2)}。近年では、凝固割れの予測手法に関する研究が多く成されている。例えば、森下らは、3000系および5000系アルミニウム合金において合金成分から凝固割れ感受性を簡易に予測する手法を報告している³⁾。また、座間らはCAE (Computer Aided Engineering) を用いて凝固割れの予測を行う際に必要な固液共存域の応力-ひずみ線図お

よび破断ひずみを Al-Mg 系合金の半溶融引張試験にて取得している⁴⁾。著者らも、純アルミニウムおよび Al-4.5mass%Cu 合金 (以下、mass% は % と略記する) の固液共存域の機械的性質および変形挙動を調査し、それらが温度により大きく変化することを明らかにしている⁵⁻⁸⁾。特に、Al-4.5%Cu 合金では、固液共存域の高温側にて、液相によるき裂の回復 (ヒーリング) が確認され、見掛け上、液相が変形に寄与することを明らかにしている^{5,6)}。DC 鋳造では鋳型内に溶湯が常に補給されるため、ヒーリングが生じる温度範囲ではき裂が発生しても液相により回復し、凝固割れは生じないと考えられた。このように、凝固割れを正しく予測するためには、凝固割れ感受性や応力-ひずみ線図に加え、各温度での変形挙動、特に液相の挙動を考慮する必要がある。

本研究では、既報^{5,6)}にて変形挙動を調査した Al-4.5%Cu 合金について、固液共存域での引張試験時に得られるデータからの応力-ひずみ線図を作成し、分類した各変形挙動における応力-ひずみ線図の形態を調査した。

* 軽金属に主要部を投稿中

** 研究開発センター 第一部, 博士 (工学)

*** 研究開発センター 第一部

2. 実験方法

2.1 供試材

Table 1 に示す成分の溶湯から DC 铸造により直径 330mm, 長さ 700mm の円柱状鋳塊を作製した。その円柱状鋳塊の鋳肌近傍および中心を除いた定常部から 90mm×35mm×300mm の角材を切出し, 幅 3 mm, 厚さ 4 mm, 長さ 10mm の平行部を有する引張試験片に加工した。Fig. 1 に引張試験片に加工した鋳塊のマイクロ組織を示す。マイクロ組織はデンドライト形態を示し, 結晶粒界およびデンドライトアーム間に灰色の晶出物が観察された。また, このマイクロ組織のデンドライト二次アーム間隔は 34.8 μ m, 平均結晶粒径は 153 μ m であった^{5, 6)}。

Fig. 1 (a) で観察された晶出物を同定するために, 引張試験片を採取した部位の近傍から 15mm×15mm×3 mm の平板試料を切出し, X 線回折を行った。管球には Cu-K α を用いた。Fig. 2 に X 線回折結果を示す。 α -Al および Al₂Cu の回折ピークが確認されたことから, Fig. 1 (a) にて観察された灰色の晶出物は Al₂Cu であった。

引張試験片の固相線温度を調査するため, 引張試験片

Table 1 Chemical composition of specimen. (mass%)

Cu	Fe	Si	Ti	Mg	Al
4.4	0.05	0.03	0.02	0.01	Bal.

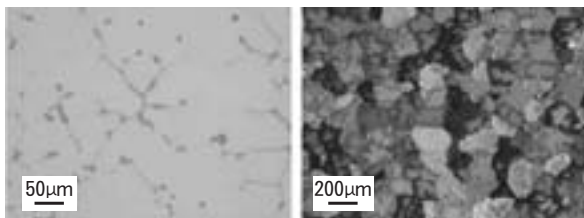


Fig. 1 Microstructure of Al-4.5%Cu alloy ingot.

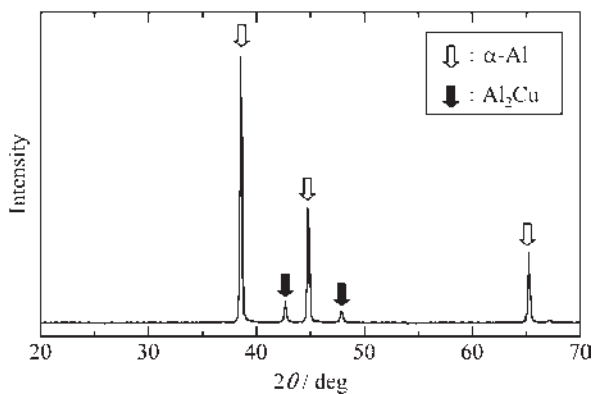


Fig. 2 X-ray diffraction profile of Al-4.5%Cu alloy ingot.

を採取した部位の近傍から直径 3 mm, 長さ 0.5mm の円盤試料を作製し, 示差熱分析を行った結果, 固相線温度は 549 $^{\circ}$ C であった^{5, 6)}。なお, 示差熱分析は, Ar ガス雰囲気中, 昇温速度 0.33 $^{\circ}$ C/s の条件で行った。

2.2 引張試験

Fig. 3 に本研究にて使用した引張試験機の概略図を示す。引張試験片は Ar ガスで置換されたチャンバー内の治具上に設置し, 赤外線ランプにより加熱した。この加熱方法では引張試験片と同時に治具も加熱されるため, 治具からの抜熱が無く, 治具と引張試験片の界面での凝固を解消することができる。試験温度へ加熱している途中もしくは試験温度での保持中に引張試験片は熱膨張するため, 引張試験を開始する直前まで引張試験片を治具に固定しない方法を採用することで, 引張試験片に圧縮応力が付与されない様にした。Fig. 4 に示す条件で引張試験片を加熱後, クロスヘッド速度 0.05mm/s で引張試験を行った。荷重は引張試験機のロードセルで検出した。また, 引張試験片平行部にあらかじめ罫書いた評点の間隔を引張試験前後で比較し, その差異で伸びを評価した。さらに, チャンバー上部のガラス窓から引張試験中の引張試験片の変形挙動をその場観察した。本試験方法の温度精度や伸び評価方法の詳細は, 既報^{5, 6)}を参照されたい。

なお, 本研究では, Fig. 4 に示す加熱条件での保持温度 (533 $^{\circ}$ C) より低温の固相域 (500 $^{\circ}$ C) についても引張試験を行った。500 $^{\circ}$ C での引張試験は, 引張試験片を室

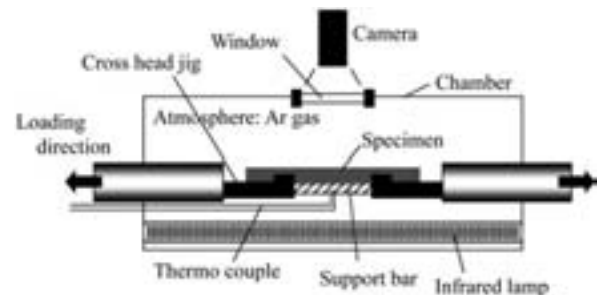


Fig. 3 Schematic diagram of tensile test machine.

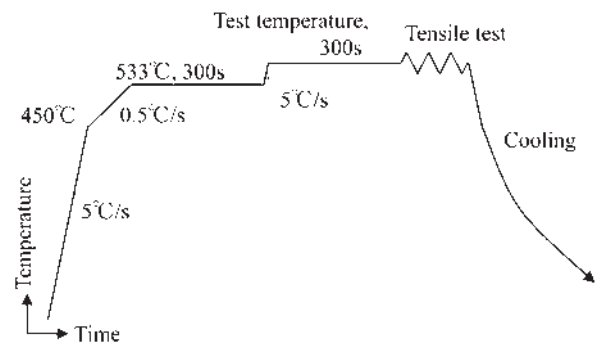


Fig. 4 Schematic diagram of heating condition before tensile test.

温から 450℃ までは 5℃/s、450℃ から 500℃ までは 0.5℃/s でそれぞれ加熱した後、500℃ にて 600s 保持した後にいった。

固液共存域での引張試験方法は、昇温過程にて行う半溶融引張試験法と凝固過程にて行う半凝固引張試験法の 2 種類に分類される。半溶融試験法では、試験温度までの加熱時および試験時に、マイクロ偏析の均質化およびメルトバック（一度溶解した粒界の偏析部が、均質化に伴い再凝固する現象）が生じる。本研究の引張試験は半溶融引張試験法に分類されるため、得られる機械的性質および変形挙動が実際の casting 時の凝固過程で得られるものとは異なる可能性がある。本研究における引張試験時のマイクロ偏析の均質化状況は、既報^{5,6)}を参照されたい。

2.3 応力-ひずみ線図作成方法

本研究で用いている引張試験機では、引張試験片にかかる荷重とクロスヘッドの移動量を得ることができる。応力は荷重を引張試験前に計測した引張試験片の断面積で除して算出した。クロスヘッドの移動量は引張試験片の評点間のみでなく治具との接触部などを含む引張試験片全体の変形量である。上述のように、本研究では引張試験片平行部にあらかじめ罫書いた評点の間隔を引張試験前後で比較することで伸び（破断ひずみ）を評価した。この試験片から測定された破断ひずみを真値とし、引張試験片平行部の変形量がクロスヘッドの移動量と比例関係にあると仮定して、(1) 式を用いてひずみを計算した。

$$\varepsilon = \frac{D - D_0}{D_B - D_0} \times \varepsilon_B \quad (1)$$

(1) 式にて、 ε はひずみ、 ε_B は引張試験片から実測した破断ひずみ、 D は引張試験中のクロスヘッドの位置、 D_0 は引張試験開始時のクロスヘッドの位置、 D_B は引張試験終了時（試験片破断時）のクロスヘッドの位置である。これらの応力およびひずみを用いて応力-ひずみ線図を作成した。

2.4 弾性率測定方法

一般に、応力-ひずみ線図から算出される弾性率は多くの誤差を含むため、他の手法（例えば、共振法など）と比較して信頼性が低い。しかし、固液共存域の弾性率を共振法で求めることは困難であり、その他の手法も確立されていない。そのため、本研究は、固液共存域の弾性率測定方法として、応力-ひずみ線図から弾性率を算出する方法を選択した。

Fig. 5 に本研究における弾性域と弾性率の定義を示す。本研究の引張試験では上述のように、クロスヘッド移動開始時に引張試験片は治具と接触していない。そのため、荷重が検出され始めた時点では、治具と引張試験片の間で荷重が正しく伝達されず、検出される値に機械的な遊びを含む期間が存在する。そのため、引張試験開始直後（ひずみが 0.01 以下の範囲）の傾きが小さい領域を弾性域から除外し、ひずみに対して応力が直線的に増加する

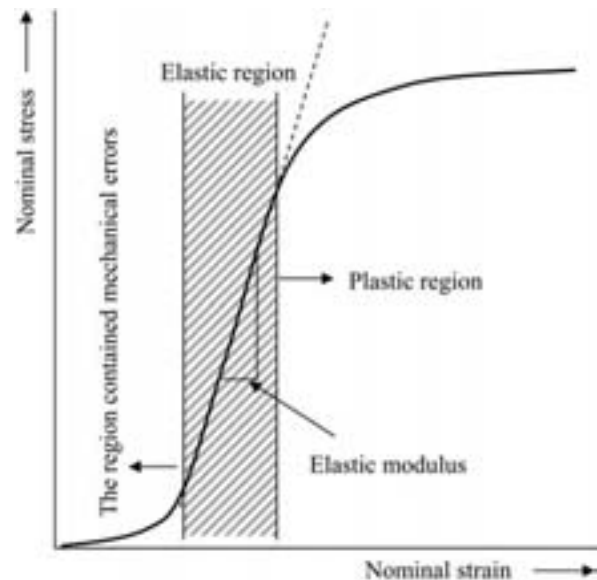


Fig. 5 Schematic diagram on the definition of elastic region and elastic modulus at stress-strain curve in this study.

領域を弾性域とし、その傾きを弾性率とした。

なお、一般に、応力-ひずみ線図から弾性率を算出する場合には、弾性域とした領域において、ひずみが可逆的に戻ることを検証する必要がある。しかし、本研究で行った引張試験は固液共存域を含むため、その検証は行わなかった。

3. 試験結果および考察

3.1 機械的性質および変形挙動

Fig. 6 に引張試験によって得られた Al-4.5%Cu 合金の引張性質および変形・破断挙動の変化を示す。Fig. 6 には示差熱分析により測定した固相線温度も併記する。著者らは、アルミニウム合金の固液共存域の変形挙動について、引張性質、引張試験のその場観察結果および破面形態から、大きな延性を示す領域、液相による脆化領域、ヒーリングが確認される領域、スラリーの領域の 4 つに分類されることを報告している^{7,8)}。Al-4.5%Cu 合金では、更に詳細な分類をしており、Table 2 に示す 6 つの領域に分類されることを報告している^{5,6)}。これらの分類の詳細については既報^{5,6)}を参照されたい。

3.2 応力-ひずみ線図

Fig. 7 に各試験温度での応力-ひずみ線図を示す。500℃（固相線以下の領域 I）および 555℃（固相線以上の領域 I）では、ひずみの増加に伴って、応力が直線的に増加し、最大応力を示した後、緩やかに減少する形態を示した。500℃ および 555℃ では、引張試験片が非常に大きな伸び（100% 以上）を示し、試験機のチャンパー内で破断させることができなかったため、破断までの応力-ひずみ線図を作成できなかった。Fig. 8 に

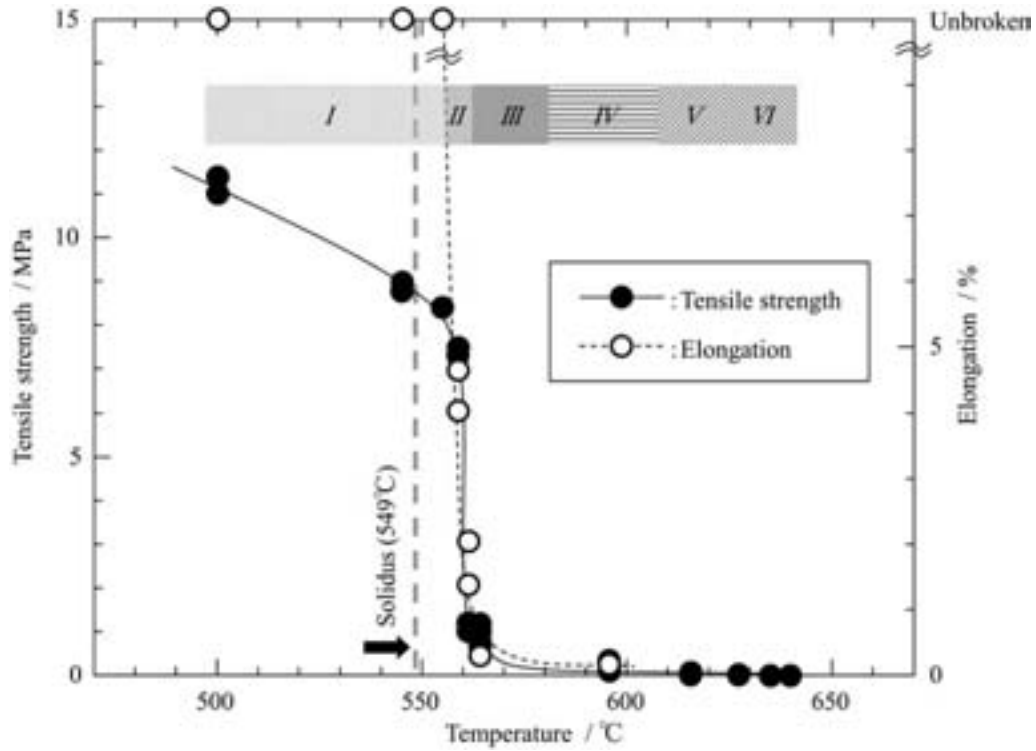


Fig. 6 Change in tensile properties and deformation behaviors of Al-4.5%Cu alloy.

Table 2 Classifications of deformation mechanism in semi solid state of Al-4.5%Cu alloy⁵⁾.

Low Temperature ↑↓ High Temperature	Stage I	Very large uniform deformation is occurs.
	Stage II	The strength of grain boundary decreases, and the ductility decreases remarkably. The ductile fracture in grain boundary occurs.
	Stage III	The strength decreases remarkably due to melting a part of grain boundary. Spikes which are unmelting part of grain boundary are observed on fracture surface.
	Stage IV	The strength and ductility decrease due to melting almost all grain boundary.
	Stage V	The healing, liquid flow into clacks or fracture surface, is observed. The migration of solid involving liquid flow is also occurred.
	Stage VI	The healing occurs.

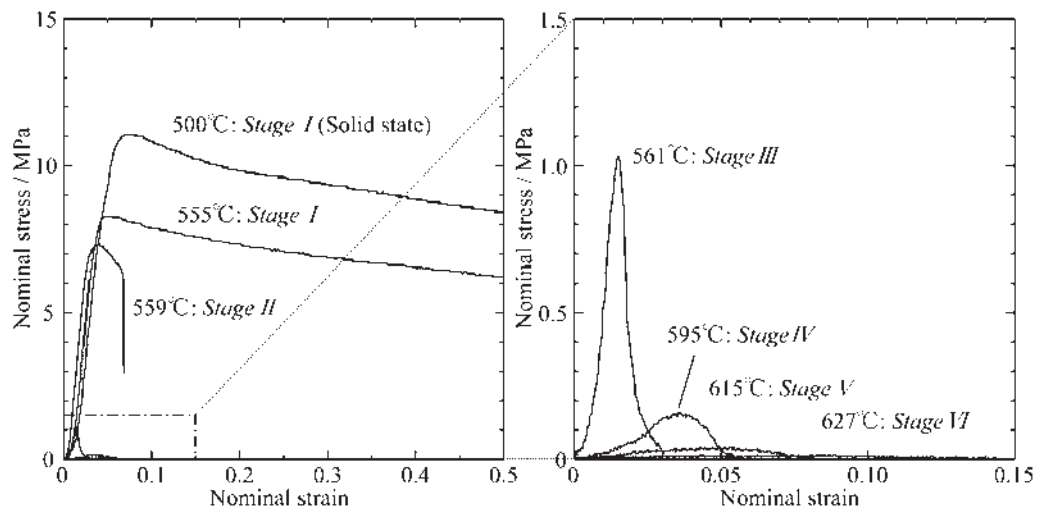


Fig. 7 Stress-strain curves of Al-4.5%Cu alloy at each temperature.

500°C での引張試験前および終了時の引張試験片平行部の外観を示す。引張試験片全体が大きな断面減少を伴って均一変形している様子が観察された。このことから、500°C の応力-ひずみ線図において、応力が最大値を示した後の緩やかな低下は、試験片の断面積の減少が原因と考えられた。

559°C (領域 II) での応力-ひずみ線図は、500°C と同様に、ひずみの増加に伴って、応力が直線的に増加して最大値を示すものの、その後、僅かなひずみで破断する形態を示した。Fig. 9 に 559°C での引張試験後の破面^{5,6)}を示す。破面にしわやポイドなどの延性破壊の痕跡が確認された。そのため、領域 II では、晶出物 (Al₂Cu) が存在する粒界が局部的に溶解し、その強度が結晶粒内 (α -Al) と比べて低下することで、小さいひずみで破断したと考えられた。

561°C (領域 III) の応力-ひずみ線図では、ひずみの増加に伴って応力が直線的に増加し、最大応力を示した後、急激に減少し、僅かなひずみで破断する形態を示した。559°C では破断に伴い急激に応力が消失したが、561°C では破断時に緩やかに応力が減少した。Fig. 10 に 561°C での引張試験後の破面^{5,6)}を示す。破面には、粒界未溶解部の変形により形成されたと考えられる突起が観察される。そのため、引張試験片に変位を与えると、粒界未溶解部に応力が作用し、そこが僅かに塑性変形すると考えられた。この局所的な変形に起因して、破断時に応力が緩やかに低下したと考えられた。

595°C (領域 IV), 615°C (領域 V) および 635°C (領域 VI) の応力-ひずみ線図では、試験温度の上昇に伴って応力-ひずみ線図の初期の傾きが小さくなり、破断ひずみが大きくなる傾向が確認された。著者らは既報にて、領域 IV では粒界が完全に液膜で覆われ、領域 V および領域 VI ではヒーリングが生じることを報告している^{5,6)}。そのため、これらの領域では変形に液相が関

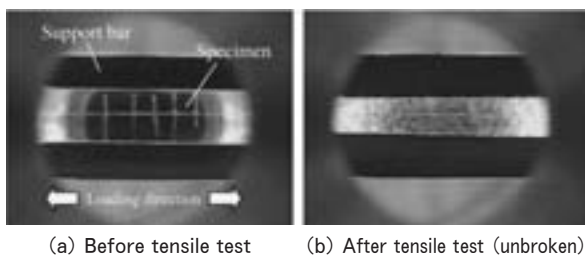


Fig. 8 Appearance of the parallel part of the specimen by tensile test at 500°C.

与する。通常、固相の弾性変形が表現される応力-ひずみ線図の初期の傾きも、これらの領域では液相の流体摩擦が応力として表現されているものと推察された。

3.3 弾性率

Table 3 に応力-ひずみ線図から算出した各温度での弾性率を示す。Table 3 には熱力学計算ソフトウェア (JMatPro V6.2, Sente Software 製) で計算した弾性率も併記する。応力-ひずみ線図から算出した弾性率は、熱力学計算ソフトウェアで計算した値と比較して3桁から5桁ほど低く、非常に大きな差異があることがわかった。Fig. 11 に熱力学計算ソフトウェアにて計算した Al-4.5%Cu 合金における構成相と弾性率の温度変化を示す。熱力学計算ソフトウェアによる弾性率は晶出物 (Al₂Cu) の消滅に伴って急激に低下し、その後、 α -Al の減少に伴って緩やかに低下する。また、弾性率は完全

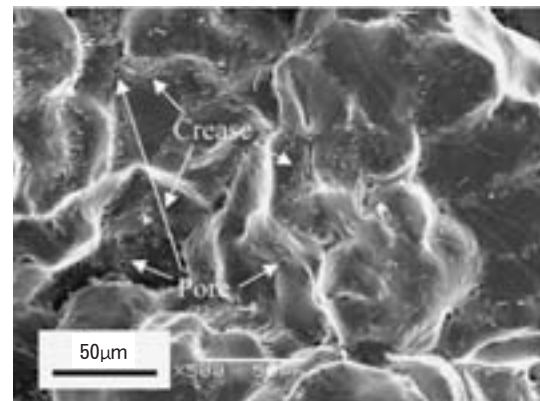


Fig. 9 SEM image of fracture surface after tensile test at 559°C.

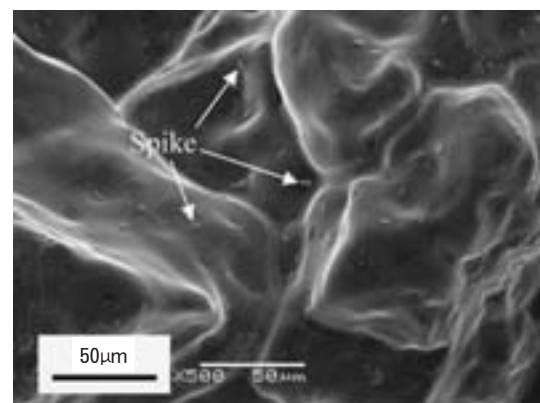


Fig. 10 SEM image of fracture surface after tensile test at 561°C.

Table 3 Elastic modulus of Al-4.5%Cu alloys in semi-solid state.

Temperature (°C)	545	555	559	561	564	595
Elastic modulus						
Calculated by stress-strain curve (MPa)	338	302	322	143	98	8
Calculated by JMatPro V6.2 (MPa)	43000	31000	30000	30000	29000	21000

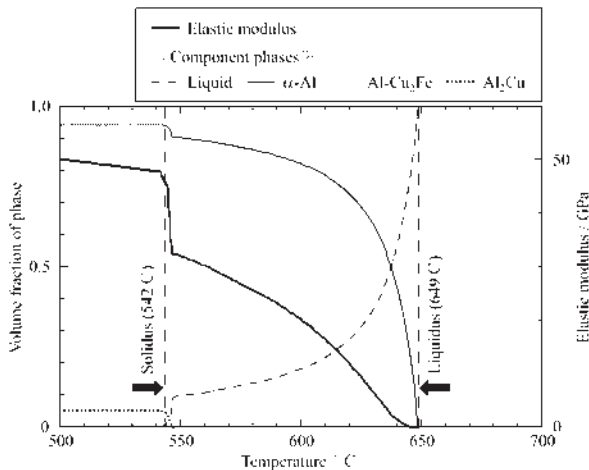


Fig. 11 Change in component phases and elastic modulus in Al-4.5%Cu alloys calculated by JMatPro V6.2.

に α -Al が消滅する液相線まで計算されている。しかし、実際の固液共存域高温側の引張試験では、固相が液膜に覆われて固相同士の結合が消滅しているため、変位を与えても応力はほとんど確認されず、固液共存域低温側と同等の弾性率は得られない。このような固相の形態変化および液相の存在に伴う固相間の結合の消滅を考慮に入れていないため、熱力学計算ソフトウェアの弾性率は、応力-ひずみ線図から算出した弾性率と比較して、大きな差異があると考えられた。そのため、CAEによる凝固割れ予測等の高精度な計算では、応力-ひずみ線図から算出した弾性率を使用することが望ましいと考えられた。

4. 結 言

Al-4.5%Cu 合金の固液共存域での応力-ひずみ線図を調査し、以下の結果を得た。

- (1) Al-4.5%Cu 合金の固液共存域での応力-ひずみ線図の形態は一様ではなく、変形挙動と同じく、試験温度により大きく変化した。
- (2) 固相域高温側から固液共存域の最も低温側の領域（領域 I）の応力-ひずみ線図は、ひずみの増加に

伴って、応力が直線的に増加して最大値を示した後、緩やかに減少する形態を示した。

- (3) 領域 I と比較して延性が大きく低下する領域（領域 II および領域 III）の応力-ひずみ線図は、ひずみの増加に伴って、応力が直線的に増加し、最大応力を示した後、急激に減少し、僅かなひずみで破断する形態を示した。
- (4) 粒界が液膜で覆われる領域（領域 IV、領域 V および領域 VI）の応力-ひずみ線図は、試験温度の上昇に伴って、応力-ひずみ線図の初期の傾きが小さくなり、破断ひずみが大きくなる傾向が確認された。また、これらの固液共存域高温側では、液相が変形に関与するため、応力-ひずみ線図の初期の傾きは液相の流体摩擦が応力として現れたものであると推察された。
- (5) 応力-ひずみ線図から算出した弾性率は、市販の熱力学計算ソフトウェア（JMatPro V6.2, Sente Software 製）で計算したものと比較して 3 桁から 5 桁低く、非常に大きな差異があった。固相の形態変化および液相の発生に伴う固相間の結合の消滅を熱力学計算ソフトウェアでは考慮に入れていないため、大きな差異が生じたと考えられた。そのため、CAEによる凝固割れ予測等の高精度な計算では、応力-ひずみ線図から算出した弾性率を使用することが望ましいと考えられた。

参 考 文 献

- 1) 渡部智也, 木村亮介, 中澤 嵩, 千葉浩行, 田中宗平, 植木 徹, 鳥山隆成, 吉田 誠: 軽金属, **58** (2008), 395.
- 2) 渡部智也, 木村亮介, 中澤 嵩, 千葉浩行, 田中宗平, 植木 徹, 鳥山隆成, 吉田 誠: 軽金属, **58** (2008), 464.
- 3) 森下 誠, 阿部光宏, 徳田健二, 吉田 誠: 軽金属, **59** (2009), 417.
- 4) 座間淳志, 利光万弘, 渡部智也, 千葉浩行, 鳥山隆成, 吉田 誠: 軽金属, **61** (2011), 446.
- 5) 坂口信人, 常川雅功, 渡辺良夫: 軽金属, **61** (2011), 66.
- 6) 坂口信人, 常川雅功, 渡辺良夫: 本誌, **52** (2011), 1.
- 7) N. Sakaguchi: *Light Metals 2012*, ed. C. E. Suarez, TMS (The Minerals, Metals & Materials Society), (2012), 1127.
- 8) N. Sakaguchi: 本誌, **53** (2012), 27.

Effect of Texture on $0^\circ/180^\circ$ Earing in Deep Drawing of Aluminum Alloy Sheets*

Hiroki Tanaka** and Shingo Ikawa***

It is known in aluminum alloy sheets that two ears on a cup formed by deep drawing in 0° and 180° to the rolling direction may grow by cold rolling. In previous reports, Goss and RD rotated cube textures were determined as the cause of the $0^\circ/180^\circ$ earing. However the growth process of the $0^\circ/180^\circ$ earing is not clear. In the present study, a texture analysis has been carried out of the cold rolling process using AA6016 aluminum alloy sheets that have a strong cube texture through the thickness and weak Goss texture at the center layer. An RD rotated cube texture is formed at the surface layer by cold rolling whereas the cube texture at the center layer rapidly decreased. It is indicated that the RD rotated cube texture at the surface layer and persisting Goss texture at the center layer caused the high $0^\circ/180^\circ$ earing. These texture factors are discussed based on a crystal plasticity finite element analysis. The calculated earing profiles derived by the finite element analysis show almost the same patterns as the experimental earing profiles.

1. Introduction

Earing is defined as the height difference between hills and valleys on the cup rim after deep drawing of a circular disk. The earing profile of a deep drawn cup is fundamentally due to material anisotropy, although tooling conditions such as lubrication, blank holder pressure and asymmetric tooling conditions can influence the earing profile.¹⁾ It is known that there are some relationships between material anisotropy and textures, and some reports have shown the relationships between earing profiles and textures. The cube $\{100\} \langle 001 \rangle$ texture causes four ears on a cap in 0° and 90° to the rolling direction whereas the rolling textures of Brass $\{110\} \langle 112 \rangle$, S $\{123\} \langle 634 \rangle$ and Cu $\{112\} \langle 111 \rangle$ generate 45° ears.^{2,3)} Six-fold earing symmetry at $0-180^\circ$ angles and 45° angles to the rolling direction is sometimes observed in can body stock products by use of 3000 series aluminum alloy sheets.^{1,4)} It is generally believed that the $0^\circ/$

180° earing is caused by Goss $\{110\} \langle 001 \rangle$ texture.^{1,2,5)} It has been also reported that a high density of $\{hk0\} \langle 001 \rangle$ textures obtained during cold rolling causes the $0^\circ/180^\circ$ earing.^{4,6~8)} Engler et al. considered based on the polycrystal-plasticity earing model that the α -fiber between Goss and Brass cause the six-fold earing symmetry at $0-180^\circ$ angles and 45° angles to the rolling direction.⁹⁾

Earing profiles mentioned above depend on total textures through the thickness of a sample. We usually discuss sample properties based on textures obtained by X-ray diffraction measurement. But this method does not show textures through the whole thickness of a sample. In the previous reports, the relationships between the sequence of texture changes during cold rolling and the formation of the $0^\circ/180^\circ$ earing are not clear.

An AA6016 aluminum alloy sheet having a strong cube texture through the thickness and Goss texture at the center area was used in the present study. Relationships between the changes in textures during cold-rolling and formation of the $0^\circ/180^\circ$ earing are discussed comparing with the results obtained through a finite element analysis.

* The main part of this paper was presented at Materials Transactions, **53** (2012), 1852-1857.

** No.1 Department, Research & Development Center. Dr of Eng.

*** Sheet & Plate Technology Department, Nagoya Works. Dr of Eng.

2. Experimental Procedures

The compositions of the AA6016 alloy sheets used in this study are listed in **Table 1**. Samples with 1 mm thick were prepared through our commercial process that consists of a standard semi-continuous direct chill casting, homogenization, hot rolling, cold rolling and rapid heat treatment for T4 temper. **Fig. 1** shows microstructures at the surface and center layers of the 1 mm thick samples after T4 temper. Uniform recrystallized structures with average grain size of $36\mu\text{m}$ diameter are formed through the thickness. The 1 mm thick samples were rolled at ambient temperature to 0.4mm thickness (60% reduction) and 0.2mm thickness (80% reduction). In order to prevent fracture at deep drawn forming, these sheets were heated at 180°C for 24 hours. **Table 2** shows the forming conditions for deep drawing tests. Due to specifications of the

used drawing facilities, blank sizes are different between 1 mm thick samples and under 0.4mm thick samples. This difference is not severe matter for comparison of earing profiles. The samples for measuring textures were also heated at 180°C for 24 hours. X-ray diffraction method was used to describe incomplete pole figures, and orientation distribution functions (ODF) were calculated from three incomplete pole figures of $\{111\}$, $\{110\}$ and $\{100\}$ by the harmonic method.¹⁰⁾ The ODFs were displayed using Bunge's system.¹⁰⁾ The textures of the 1 mm thick sample in T4 temper are shown in **Fig. 2**. The strong peak due to the cube texture appeared through the thickness. At the center layer, peaks due to Goss texture superimposed onto the cube texture.

3. Results

3.1 Changes in earing profile

Fig. 3 illustrates the changes in the earing profiles with increasing reduction rates in the cold rolling. The radial scale indicates the percentage of increment or decrement from an aver-

Table 1 Chemical composition of the material (mass%).

Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Al
1.0	0.15	0.01	0.07	0.40	Bal.

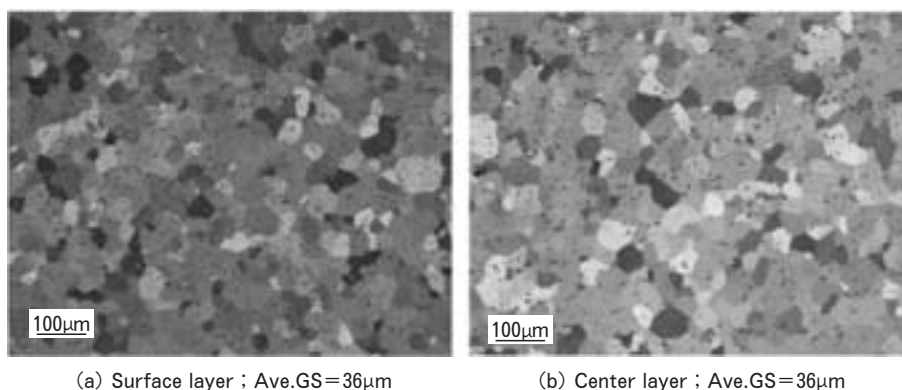


Fig. 1 Microstructures of AA6016 aluminum alloy sheets in T4 temper.
Ave.GS : average grain size.

Table 2 Forming conditions of deep drawing.

Blank	Thickness : 1.0mm Diameter : 64mm	Thickness : 0.4mm Diameter : 55mm	Thickness : 0.2mm Diameter : 55mm
Punch	Diameter : 33.0mm Radius : 4.0mm		
Die	Diameter : 35.6mm Radius : 5.0mm	Diameter : 34.0mm Radius : 2.5mm	Diameter : 33.5mm Radius : 1.5mm
Blank holder force	1.2kN/cm ²		
Punch speed	7.0mm/s		

aged wall height. In the initial material, peaks occur at the 0° and 90° angles to the rolling direction (Fig. 3 (a)). Precisely, the peak height of $0^\circ/180^\circ$ earing is 9.4% whereas that of $90^\circ/270^\circ$ earing is 8.2%. With increasing the cold rolling reduction, the peak height of $0^\circ/180^\circ$ earing becomes obvious. Generally, 45° ears are formed at the cup end when cold rolled sheets of aluminum are used for deep drawing. But, in the 80% reduction sheet, 45° ears do not appear (Fig. 3 (c)).

3.2 ODF analysis

The textures in the surface and center layers of the present sheet rolled to 80% reduction are shown in Fig. 4. In the surface layer, the cube texture with pronounced scatter about rotation around RD axis and weak rolling textures appears. In the center layer, the cube texture becomes weak even though the α -fiber between Goss and Brass are clearly formed. The α -fiber is not clear in the surface layer. The S and Cu components in the center layer are rather strong comparing with those in the surface layer. Al-

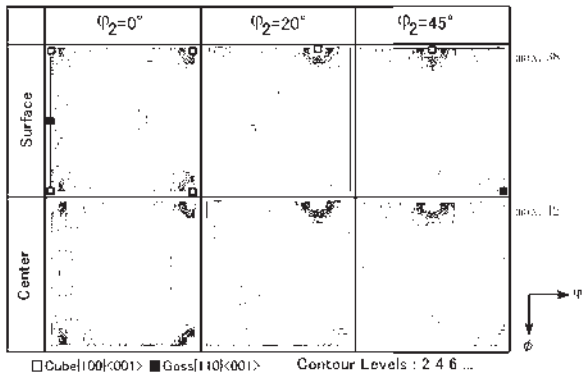


Fig. 2 Texture of AA 6016 aluminum alloy sheets in T4 temper.

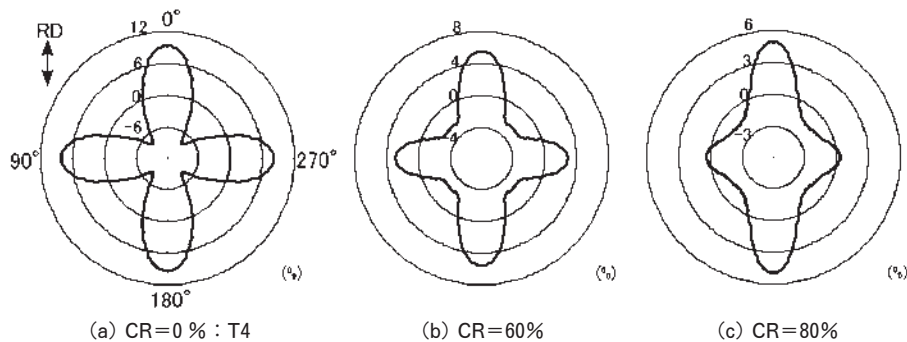


Fig. 3 Earing profiles at the top edge of drawn cup walls. The radial scale indicates the percentage of the height from zero level set in the cup wall. CR : cold rolling reduction.

though the texture components due to cold rolling appear in the specimen cold-rolled at 80%, orientation densities for them were not so high as to form four 45° ears as shown in Fig. 3 (c). Fig. 5 shows the change in textures at $\varphi_2 = 0^\circ$ section with increasing rolling reduction. In the surface layer, the rotated cube texture around RD, that is, $\{hk0\} \langle 001 \rangle$ texture is formed due to cold rolling. Orientation density for Goss texture does not increase with rolling reduction. In the center layer, the orientation density of the cube texture rapidly decreases with reduction rate. While, the α -fiber is formed with increasing reduction rate. The orientation density of Goss texture does not change during cold rolling up to 80% reduction in the center layer. Fig. 6 indicates the changes in orientation density at $\varphi_1 = 0^\circ$ and $\varphi_2 = 0^\circ$ sections, between cube and Goss textures, with increase in rolling reduction. In the surface layer, the orientation density of the cube texture decreases with increase in reduction rate, while those of the $\{hk0\} \langle 001 \rangle$ textures, $\phi = 15 \sim 30^\circ$, increases. In the center layer, the orientation density of the cube texture rapidly decreases by a factor of seven in comparison with that in the specimen after 60% reduction in thickness. The orientation density of Goss texture in the center layer maintains after cold rolling.

The above mentioned results shows the followings : In the initial material, T4 tempered sheet, the peak heights of $0^\circ/180^\circ$ earing are slightly higher than those of $90^\circ/270^\circ$ earing. The $0^\circ/180^\circ$ earing, two-fold earing symmetry became clear with reduction rate. The change in earing profiles depend on the changes in textures with

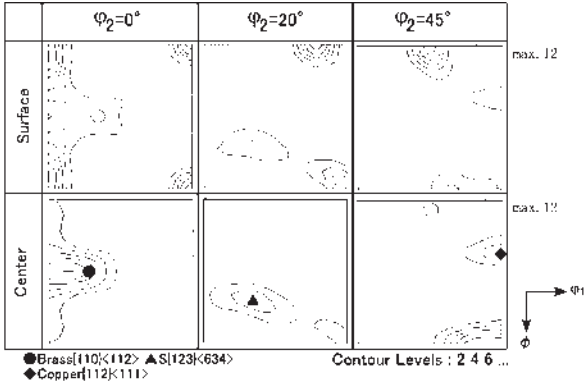


Fig. 4 Texture of AA6016 aluminum alloy sheets rolled to 80% reduction.

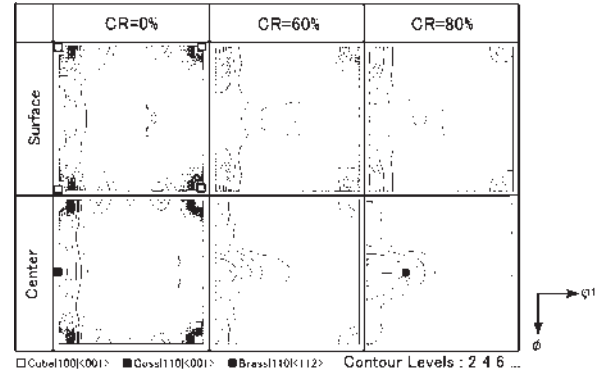


Fig. 5 The change of textures at $\varphi_2 = 0^\circ$ section during cold rolling. CR : cold rolling reduction.

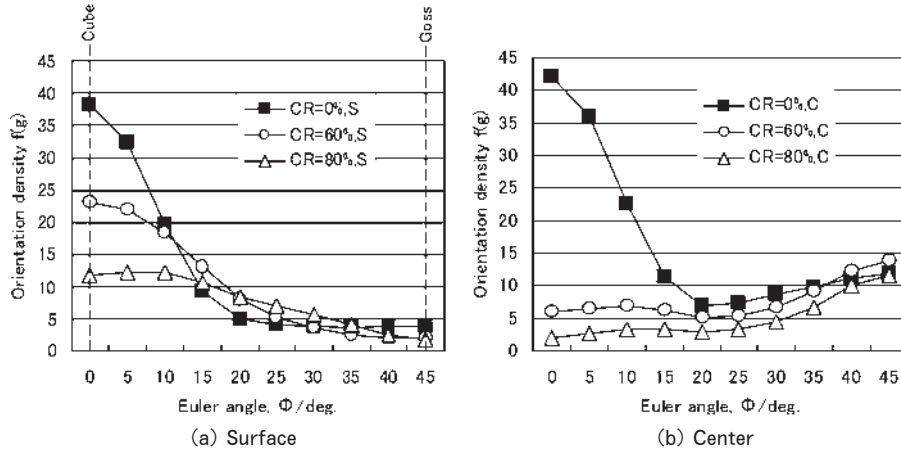


Fig. 6 Orientation density at $\varphi_1 = 0^\circ$ and $\varphi_2 = 0^\circ$. CR : cold rolling reduction.

increase in reduction. The cube texture rapidly decreased in the center layer, while $\{hk0\} \langle 001 \rangle$ textures were formed in the surface layer. The α -fiber, from Goss to Brass orientation, was in the center layer, although the changes in orientation density with increasing reduction rate were small. In the next section, the relationships between earing profiles and textures are discussed with referring to the results obtained through a finite element analysis using a crystal plasticity constitutive model.

4. Discussions

In order to perform a finite element analysis, we referred the method introduced by Kuroda.^{11,12)} In the present numerical investigation, finite element analyses based on the crystal plasticity constitutive model presented by Asaro¹³⁾ and Peirce¹⁴⁾ were carried out referring to the method reported by Kuroda.^{11,12)} In the

crystal plasticity model, the slip rate on the α th slip system is assumed to be given by the following power law relation;

$$\dot{\gamma}^{(\alpha)} = \dot{\gamma}_0 \text{sgn}(\tau^{(\alpha)}) \left| \frac{\tau^{(\alpha)}}{g^{(\alpha)}} \right|^{l/m} \quad (1)$$

where $\dot{\gamma}_0$ is the reference slip rate, $\tau^{(\alpha)}$ is the resolved shear stress, m is the rate sensitivity exponent and $g^{(\alpha)}$ is the hardness of the slip system. The values of 0.02×10^{-6} /s, 0.02 and 100 MPa are used for $\dot{\gamma}_0$, m and $g^{(\alpha)}$, respectively, in the present study.

The evolution law for $g^{(\alpha)}$ is given by

$$\dot{g}^{(\alpha)} = h \sum_{\beta} |\dot{\gamma}^{(\beta)}|, \quad h = h_0 \left(1 + \frac{h_0 \dot{\gamma}_\alpha}{\tau_0 n} \right)^{n-1}$$

$$\nu_\alpha = \int_0^t \sum_{\alpha} |\dot{\gamma}^{(\alpha)}| dt \quad (2)$$

where τ_0 is the initial value of $g^{(\alpha)}$, h_0 is the

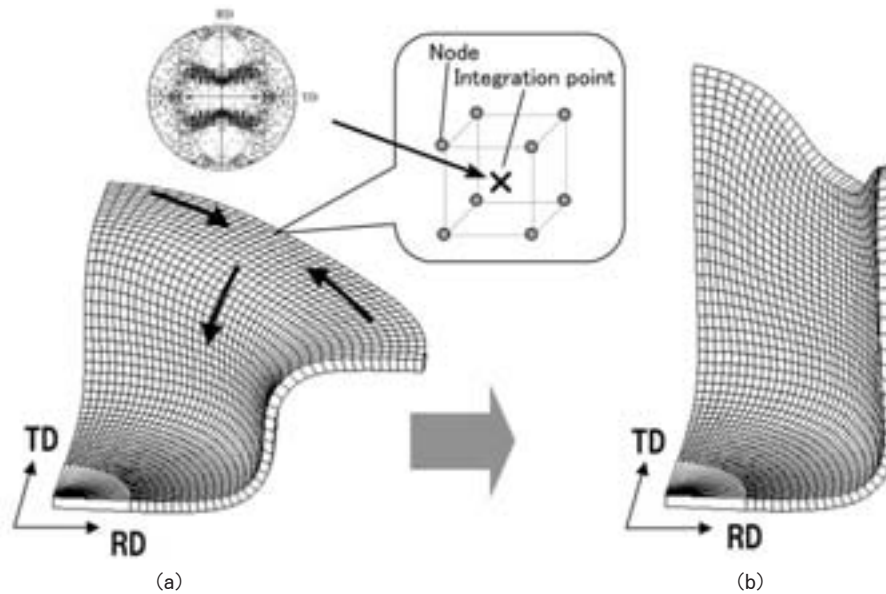


Fig. 7 Scheme illustrating the geometry of deep drawn cup used for the finite element analysis in this study. (a) illustrating in process of deep drawing, (b) calculated earring profile.

initial slip hardening modulus, n is a power law hardening exponent, and t is the time.¹⁵⁾ For the values of h_0 and n , 3000MPa and 0.15 were used, respectively. The extended Taylor model was used for analysis of polycrystalline deformation.¹⁶⁾ In the present numerical investigation, a pole figure model was created by 1,000 orientations arranged with WIMV method.¹⁷⁾ The above mentioned methods are the same as those used by one of the authors.¹⁸⁾ Fig. 7 shows schematic illustrations for the finite element analysis in this study. Firstly, a quarter circle of ϕ 64mm plate discretized by 1620 cubics is set. Each cubic is an 8-node isoparametric plane strain element with one Gaussian integration point. Ten crystal orientations were randomly selected from the pole figure model and applied to the elements. The earring profile is described as accumulated deformation of all the cubics. In the present numerical investigation, the punch and die were assumed to be rigid bodies with diameters of 33mm and 35.6mm, respectively. Punching rate of 10m/s was used in order to save calculation time, and coefficients of dynamic and static friction were set as 0.001.

Fig. 8 indicates calculated earring profiles based on experimental ODF data shown in Fig. 5. In the sheet without cold rolling (CR=0%), the peak heights of $0^\circ/180^\circ$ earring are slightly higher than those for $90^\circ/270^\circ$ earring,

which shows good agreement with the experimental data shown in Fig. 3 (a). Two-fold earring symmetry appears with increasing rolling reduction, which is also similar to the change in earring profiles shown in Fig. 3. The calculated earring profiles and the experimental ones are similar one another, although many parameters were used for calculation. It can be discussed, therefore, which texture attributes to the $0^\circ/180^\circ$ earring with using the present calculation method. Two types of textures are formed by cold rolling, that is, $\{hk0\} \langle 001 \rangle$ and Goss in the surface and center layers, respectively, as shown in Fig. 5 and 6. Then, the current finite element analysis calculates earring profiles by use of $\{hk0\} \langle 001 \rangle$ orientations including just cube and Goss texture. Fig. 9 indicates the calculated earring profiles on RD rotation of the cube texture. In this calculation, scatter orientations within 15° from the object textures were used, and 5 crystal orientations selected randomly from pole figure models were allocated for each integration point. It is clear that $\{hk0\} \langle 001 \rangle$ orientations including Goss texture cause the two-fold earring symmetry, $0^\circ/180^\circ$ earring. In the initial material in T4 temper, Goss texture in the center layer may cause some amount of $0^\circ/180^\circ$ earring. Fig. 10 indicates the effect of the α -fiber to earring profile. The orientations between Goss and ND rotation of 15° cause the

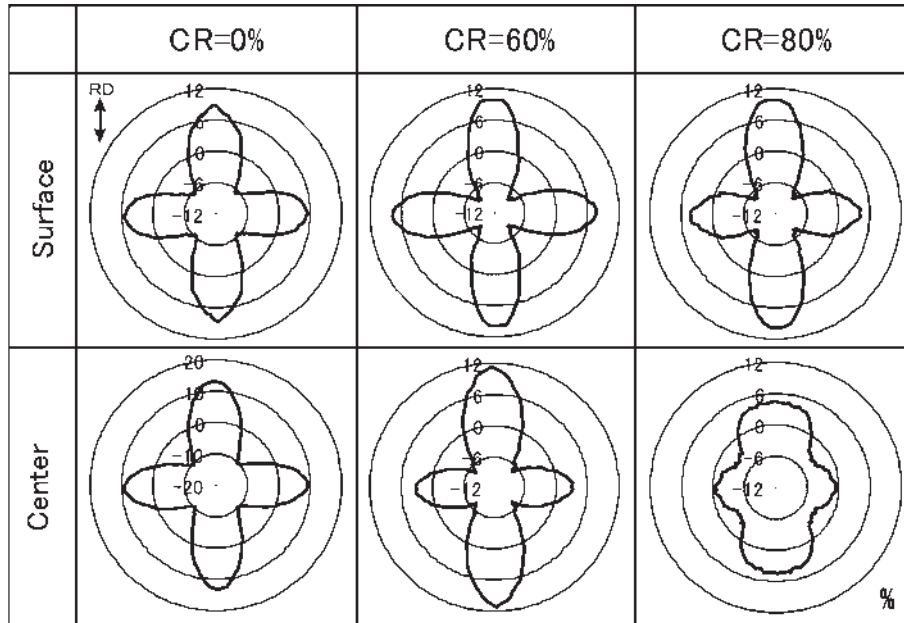


Fig. 8 Calculated earing profiles by making use of the textures shown in Fig. 5.
CR : cold rolling reduction.

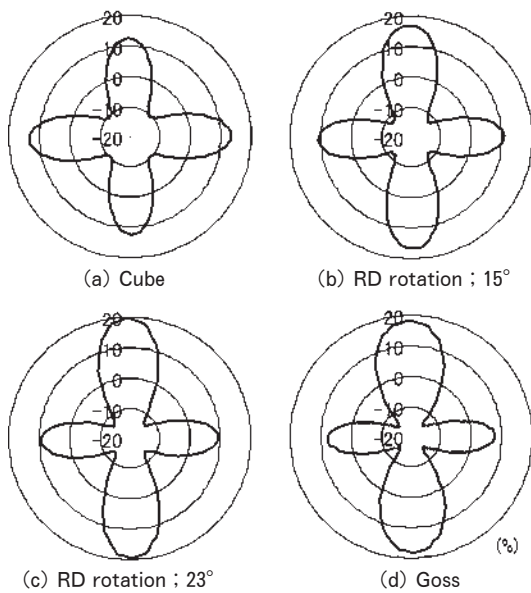


Fig. 9 Calculated earing profiles on RD rotated cube texture.

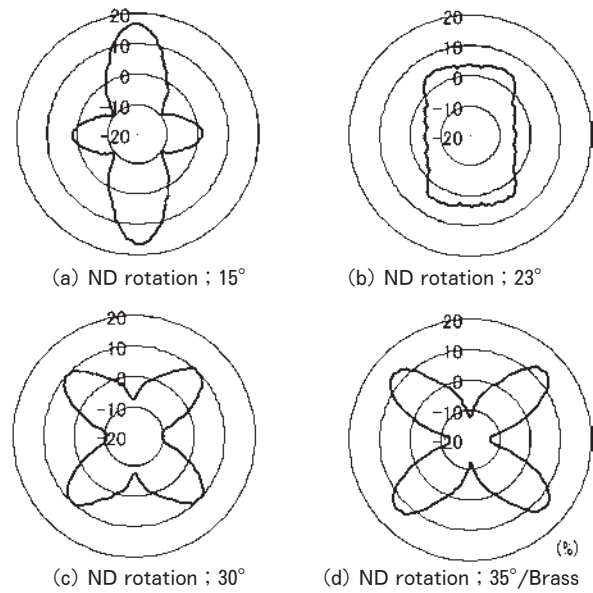


Fig. 10 Calculated earing profiles on the α -fiber ($\langle 110 \rangle // ND$).

$0^\circ/180^\circ$ earing clearly. But, at ND rotation of 23° , some amount of four 45° ears are confirmed. Over ND rotation of 30° , four 45° ears are formed clearly. Fig. 11 shows textures causing $0^\circ/180^\circ$ earing derived by the finite element analysis. In this study, it is found that a part of the α -fiber, between Goss and ND rotation of 15° , clearly causes the $0^\circ/180^\circ$ earing.

Ren⁸⁾ studied the mechanism of the formation of $\{hk0\} \langle 001 \rangle$ orientations. He indicated the

grain of cube texture rotates towards the $\{hk0\} \langle 001 \rangle$ orientations if there is a shear strain during cold rolling from the normal direction (ND) to the transverse direction (TD). He also showed the angle ϕ increases from zero to about 18.6° at a strain of 89.5% reduction in thickness, which rotates a grain from the cube $\{100\} \langle 001 \rangle$ orientation to the $\{130\} \langle 001 \rangle$ orientation. It is seen the cube orientation can be a source for the formation of the

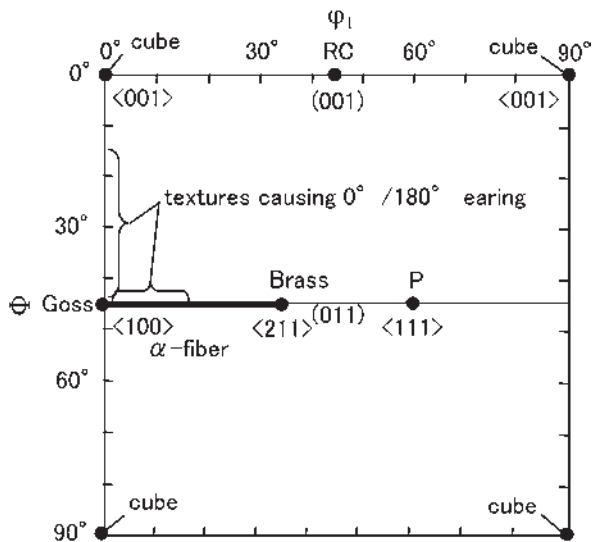


Fig. 11 Textures causing 0°/180° earing derived by the finite element analysis at $\varphi_2 = 0^\circ$ section.

{130} <001> orientation. This prospect can explain well to the phenomenon occurred at the surface layer in this study. But we need another mechanism to explain the phenomenon occurred in the center layer.

In order to reduce the 0°/180° earing, it might be good method to prevent the formation of Goss texture. So far, a mechanism of the formation of Goss texture has not been clear. We should examine carefully it through process from casting to hot rolling.

5. Conclusions

The relationships between the change of texture and the formation of the 0°/180° earing in an AA6016 aluminum alloy sheet with a strong cube texture through the thickness and weak Goss texture at the center layer was investigated with increasing the cold rolling reduction. The conclusions obtained are as follows.

(1) The change of orientation density on the cube texture is different between the surface and center layers. In the surface layer, the grain of the cube texture rotates towards the {hk0} <001> orientations. In the center layer, the orientation density of the cube texture rapidly decreases going into seventh part after 60% reduction in thickness, while the orientation density of Goss texture in the center layer maintains after 80% reduction in thickness.

(2) In the initial material, the peak height of 0°/180° earing is higher slightly than that of 90°/270° earing after deep drawn forming. Even after 80% reduction in thickness, four 45° ears are not formed in the present material because a strong cube texture. With increasing the cold rolling reduction, {hk0} <001> orientations are formed in the surface layer, and Goss texture remains in the center layer.

(3) Calculated earing profiles derived by the finite element analysis using the crystal plasticity constitutive model in this study have good relationships with actual earing profiles. This finite element analysis shows {hk0} <001> orientations and Goss texture cause 0°/180° earing.

References

- 1) A. S. Malin and B. K. Chen : *Aluminum Alloys for Packaging*, TMS, (1993), 251-260.
- 2) F. J. Humphreys and M. Hatherly : *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, Pergamon, (1995), 397-398.
- 3) S. Y. Li, X. M. Zhang, H. Z. Zhou and G. Gottstein : *Metall., Mater., Trans.*, **28A** (1997), 785-793.
- 4) J. Hirsch, P. Wagner and H. Schmiedel : *Materials Science Forum* Vol.217-222, (1996), 641-646.
- 5) A. Oscarsson and H. E. Ekström : *Aluminum Alloys for Packaging II*, TMS, (1996), 63-71.
- 6) S. E. Naess : *Z. Metallkde.*, **82** (1991), 259-264.
- 7) J. Hirsch and J. Hasenclever : *Proceedings of the 3rd International Conference on Aluminum Alloys (ICAA3)*, Trondheim, Norway, (1992), 305-310.
- 8) B. Ren : *Aluminum Alloys for Packaging III*, TMS, (1998), 49-58.
- 9) O. Engler and J. Hirsch : *Mater. Sci. Eng.*, A452-453 (2007), 640-651.
- 10) H. J. Bunge : *Texture analysis in materials science*, Butterworths, (1982).
- 11) M. Kuroda and V. Tvergaard : *Int. J. Plast.*, **23** (2007), 244-272.
- 12) M. Kuroda and K. Shizawa : *Journal of the JSTP*, **43** (2002), 299-309.
- 13) R. J. Asaro : *Acta Metall.*, **27** (1979), 445-453.
- 14) D. Peirce, R. J. Asaro and A. Needleman : *Acta Metall.*, **31** (1983), 1951-1976.
- 15) S. Ikawa, M. Asano, M. Kuroda and K. Yoshida : *Materials Science and Engineering A*, **528** (2011), 4050-4054.
- 16) R. J. Asaro and A. Needleman : *Acta Metall.*, **33** (1985), 923-953.
- 17) S. Matthies and G. W. Vinel : *Phys. Status Solidi*, (b) **112** (1982), K111-K115.
- 18) S. Ikawa, M. Asano, M. Kuroda and K. Yoshida : *Journal of Japan Institute of Light Metals*, **61** (2011), 53-59.

Al-Zn-Mg-Cu系合金押出材の集合組織と強度に及ぼす断面形状の影響*

新 里 喜 文** 箕 田 正***
吉 田 英 雄****

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 16-21

Effect of Cross Section Shape on Texture and Strength of Extruded Al-Zn-Mg-Cu Alloys

Yoshifumi Shinzato, Tadashi Minoda and Hideo Yoshida

The effect of the cross-section shape on the strength of the extruded Al-Zn-Mg-Cu alloys was investigated by measurement of the orientation distribution function (ODF) and the mechanical properties. For an extruded bar with the aspect ratio from 1 to 5, the strength in the longitudinal direction decreased with the increasing aspect ratio. For an extruded bar with the aspect ratio from 5 to 20, the strength in the longitudinal direction was nearly constant. There were no significant differences in the dispersion of the fine precipitates and the electrical conductivity between the cross-section shapes. However, the cross-section shapes influenced the crystallographic texture. For the cross-section shapes with the aspect ratio of 1, the major orientation in the longitudinal direction was $\langle 111 \rangle$, for the cross-section shapes with the aspect ratio from 1 to 3, the major orientation changed from $\langle 111 \rangle$ to $\langle 211 \rangle$, and for the cross-section shapes with the aspect ratio of 5 and more, the major orientation was $\langle 211 \rangle$. Therefore, the strength depended on Taylor's factor, or the difficulty of slip toward the stress axis.

1. 緒 言

Al-Zn-Mg-Cu 系合金はアルミニウム合金の中で最高強度を有することから、航空機、二輪といった輸送用材料として用いられている。近年、より一層の燃費向上が求められ、軽量化を図るために更なる高強度化が求められている。一方、本系合金は、時効処理により微細に析出させることで、高い引張強度が得られる。そのため、強度に及ぼす化学成分や熱処理の影響について研究されてきた¹⁾。

ところで、押出材の集合組織に関する研究として、丸棒押出材では $\langle 111 \rangle + \langle 100 \rangle$ の二重繊維組織が発達し、 $\langle 111 \rangle$ 成分は加工集合組織、 $\langle 100 \rangle$ 成分は製造中に生じる再結晶によるものと言われている^{2,3)}。また、稲数

らは6061合金の角型⁴⁾、T型、L型などの断面を持つ押出材⁵⁾について、断面形状と集合組織の関係や強度に及ぼす集合組織の影響を明らかにしている。しかし、アルミニウム合金の中で最高強度を有するAl-Zn-Mg-Cu系合金において、強度に及ぼす押出形状の影響に関する報告例は見当たらない。そこで本研究では、主要添加元素（亜鉛、マグネシウム、銅）を変量したAl-Zn-Mg-Cu系合金の強度に及ぼす押出形状の影響を調査し、強度の違いが生じるメカニズムの検討を行った。

2. 実験方法

製造した合金の化学成分をTable 1に示す。航空機用材料で実用化されているAl-Zn-Mg-Cu系合金に関し、形状と強度の関係について調査するため、亜鉛を6.0または9.0mass%（以後%と略す。）狙いとし、マグネシウムを1.5または2.5%狙いとし、銅を1.5または2.5%狙いとし、合金9ではそれぞれの中央値狙いとした。ま

* 軽金属, 63 (2013)に掲載

** 研究開発センター 第二部, 工学博士

*** 住軽テクノ名古屋, 工学博士

**** 研究開発センター, 工学博士

Table 1 Chemical composition of the alloys (mass%)

Alloy	Zn	Mg	Cu	Zr
1	6.0	1.5	1.4	0.16
2	8.7	1.5	1.4	0.17
3	6.2	2.4	1.4	0.15
4	9.0	2.4	1.4	0.16
5	5.9	1.4	2.3	0.16
6	9.2	1.5	2.6	0.13
7	6.5	2.5	2.6	0.14
8	9.4	2.5	2.6	0.15
9	7.8	2.0	2.0	0.14

Si : 0.03~0.04, Fe : 0.08~0.11, Mn < 0.01, Cr < 0.01,
Ti : 0.01~0.02

た、再結晶抑制のため、ジルコニウムは0.15%添加した。供試材はDC castingで $\phi 90$ mmのインゴットを作製し、均質化処理を施した後、673Kで直接押出により製造した。断面形状は押出比を39に固定し、アスペクト比(幅/厚さ)を1~20に変化させた4形状(厚さ13.4mm \times 幅13.4mm, 厚さ6mm \times 幅30mm, 厚さ4mm \times 幅44mm, 厚さ3mm \times 幅60mm)とした。以後断面形状の異なるサンプルを表現する際、断面形状のアスペクト比(AR)で表現することとする(すなわち、厚さ13.4mm \times 幅13.4mmの形状はAR1, 厚さ6mm \times 幅30mmはAR5と表記する)。押出後のサンプルは大気炉にて733Kの温度で7200s保持の溶体化処理を行い、水焼入れした。さらに室温にて4日以上保持した後に人工時効処理を行い、T6材を作製した。人工時効条件は393Kの温度で86400s保持とした。T6材について、シグマテストを用いた渦電流法による導電率測定、幅中央部のL-ST断面(法線方向が押出材の幅方向に一致する面)の光学顕微鏡による組織観察、幅及び厚さ中央部のL-LT断面(法線方向が厚さ方向に一致する面)の透過電子顕微鏡(TEM)観察及び結晶方位分布関数(ODF: Orientation Distribution Function)の測定を行った。ODFはX線反射法により(002), (022), (111)不完全極点図を測定し、展開次数22次にて級数展開により求め、公開配布されている解析ソフト「Standard ODF」⁶⁾を利用して解析した。押出長手方向及び直角方向の強度との相関を調べるため、測定部はL-LT面では厚さ中央部、L-ST面では幅中央部とした。試験片サイズは13mm角とし、13mm角のサンプルが採取できない形状に関しては幅中央部から採取したサンプルを重ねて13mm角とした。引張試験片は、AR1では平行部 $\phi 5$ mm, 標点距離15mmの丸棒試験片, AR5, AR11, AR20では板幅中央部より厚みを押出材のままとして、標点距離50mm, 平行部幅12.5mmのJIS13B号試験片

を採取した。引張方向は押出方向とし、インストロン型引張試験機を用いて引張性質を評価した。さらに、押出材の断面形状のアスペクト比が強度に及ぼす影響をより明確化するため、合金1において、前述した4形状に加え、断面形状のアスペクト比(幅/厚さ)を1~3とした4形状(厚さ12mm \times 幅15mm, 厚さ10.9mm \times 幅16.4mm, 厚さ9.5mm \times 幅19mm, 厚さ7.7mm \times 幅23.2mm)のT6材及び軟化材を作製した。軟化処理は683Kおよび523Kの2段で行った。ここでは機械的性質として、インストロン型引張試験機を用いて引張試験と圧縮試験を実施した。引張試験では、表層の再結晶層の影響をなくすため、板厚を両面1mmずつ除去し、平行部の長さ30mm, 平行部幅6mm, 標点距離25mmの試験片で引張方向を押し出し方向とした。圧縮試験では、板厚を両面1mmずつ除去し、試験片高さを8mmとした。圧縮方向は押し出し方向と直角方向とし、標点距離2mmのひずみゲージを試験片に取り付け、変位量を計測し、0.2%圧縮耐力を測定した。

3. 結果および考察

3.1 化学成分および断面形状の影響

T6材のマイクロ組織の一例をFig. 1に示す。押し出し方向に伸長した繊維状組織を有していたが、表層部では400~600 μ mの厚さの再結晶組織が認められた。各合金成分において、表層の再結晶組織の厚さに有意差は認められなかった。

断面形状のアスペクト比と引張強さの関係をFig. 2に示す。合金1~9のいずれにおいてもAR1は他の形状よりも引張強さが6~11%高かったが、亜鉛、マグネシウム、銅の量と断面形状のアスペクト比による強度変化の度合いの間に相関は認められなかった。このように、実用合金範囲にて、AR1はAR5, AR11, AR20よりも高い強度を有し、AR5, AR11, AR20の強度の低下は小さかった。

3.2 低アスペクト比での強度変化

AR1で強度が最も高いことを確認したが、AR1とAR5との間で強度差が大きく、低アスペクト比での強度変化を調査する必要がある。そこで、合金1(Al-6.0%Zn-1.5%Mg-1.5%Cu-0.15%Zr)について押し出し材の断面形状のアスペクト比1~3での引張強さをFig. 3に示す。アスペクト比が1から2の間で引張強さが徐々に低下した。

近年開発された7150-T77511材や7055-T77511材では押し出し方向だけでなく押し出し直角方向にも規格値が存在するため、押し出し直角方向の強度も重要である。そこで強度の異方性を調査するため、押し出し長手方向及び直角方向の圧縮試験を実施した。その結果をFig. 4に示す。押し出し長手方向では断面形状のアスペクト比が大きいほど圧縮耐力が低下したが、直角方向ではばらつきがみられ

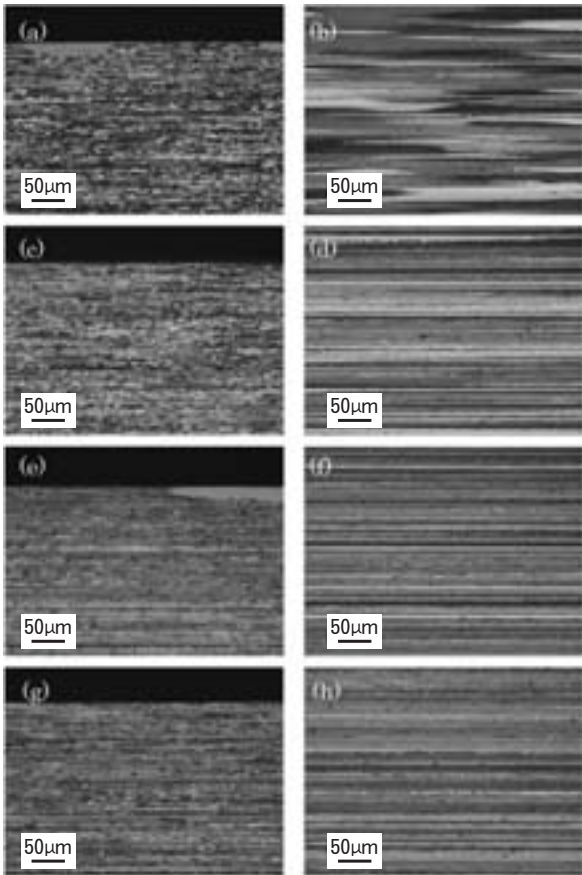


Fig. 1 Polarized optical microstructure of alloy 1. (a) (b) AR1, (c) (d) AR5, (e) (f) AR11 and (g) (h) AR20. The left figures are surface layer and the right figures are center thickness.

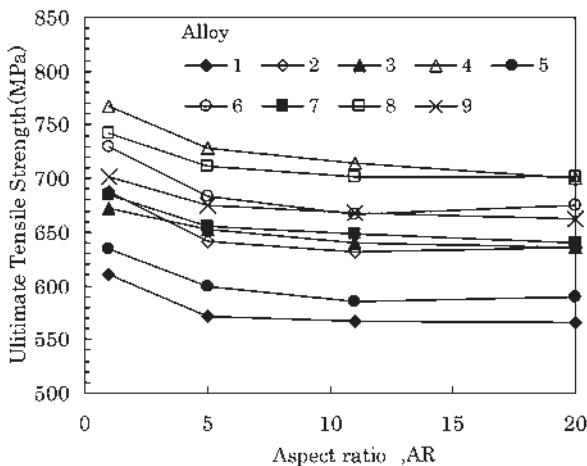


Fig. 2 Relationship between aspect ratio and ultimate tensile strength.

たものの、アスペクト比の影響はみられず、押出長手方向と直角方向で挙動は異なった。

3.3 ミクロ組織因子

断面形状のアスペクト比により押出長手方向の強度が

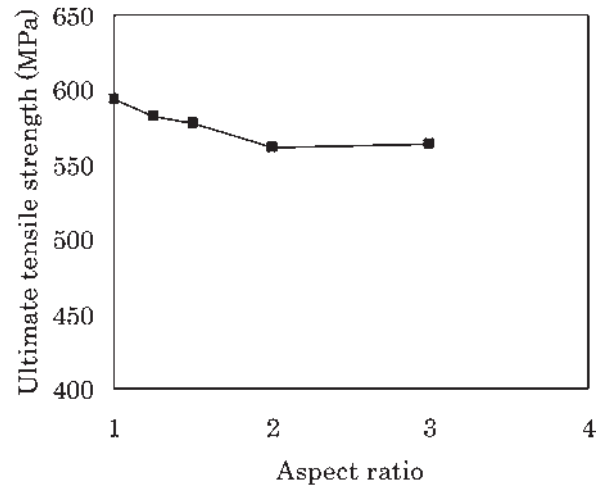


Fig. 3 Relationship between aspect ratio and ultimate tensile strength in the lower aspect ratio of alloy 1.

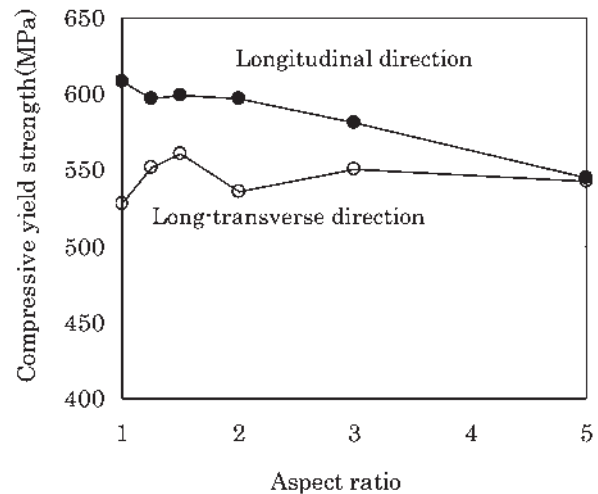


Fig. 4 Relationship between aspect ratio and compressive yield strength of alloy 1 (a) longitudinal and (b) long-transverse direction.

変化する要因として、サブグレインサイズ、粒内微細析出物、母相中の合金元素の固溶度、集合組織が挙げられる。そこで、合金1にて最も高い強度を示したAR1と最も低い強度を示したAR20を用い、それぞれの項目を調査した。Fig. 5にTEMにより観察したサブグレインを示す。AR1、AR20ともに約 $3\mu\text{m}$ のサブグレインが多くを占め、アスペクト比によるサブグレインのサイズに明らかな有意差は認められなかった。

Fig. 6にTEMにより観察した粒内の微細析出物を示す。どちらとも η' 相とみられる微細析出物⁷⁾が認められ、その分散状態に有意差は認められなかった。また、T6材の導電率はAR1で35.0%IACS、AR20で35.3%IACSとなり、有意差は認められなかった。このように、断面形状による固溶析出状態の差は認められなかった。

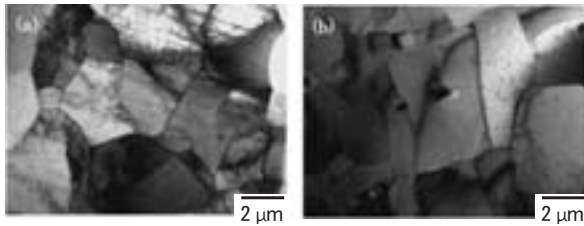


Fig. 5 TEM images showing subgrains of (a) AR1 and (b) AR20 of alloy 1.

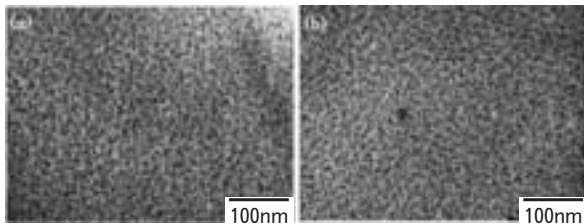


Fig. 6 TEM images showing precipitates within grain of (a) AR1 and (b) AR20 of alloy 1.

合金1における厚さ中央部のL-LT面のODF測定結果をFig. 7に示す。AR1はBrass方位($\{011\} \langle 211 \rangle$)やCu方位($\{112\} \langle 111 \rangle$)の集積が認められたが、主方位はP方位($\{011\} \langle 111 \rangle$)であった。AR20はBrass方位($\{011\} \langle 211 \rangle$)が主方位であり、 β 繊維集合組織の中でBrass方位の集積度が最も大きかった。AR5, AR11においてもBrass方位の集積が大きかった。このように、断面形状によって主方位が異なり、押出方向に集積する方位が強度に影響を及ぼしていることが示唆された。そこで、P方位とBrass方位の集積の違いをより詳細に調査するため、大きな差異が見られた $\phi = 45^\circ$, $\varphi_2 = 0^\circ$ における集合組織の分散状態をFig. 8に示す。AR1ではP方位($\{011\} \langle 111 \rangle$)が主方位であったが、AR5, 11, 20ではBrass方位($\{011\} \langle 211 \rangle$)が主方位であった。この傾向は繊維状組織を有した6061合金角型押出材⁴⁾の傾向と一致する。また、AR5, 11, 20で認められたBrass方位は、繊維状組織を有する7475アルミニウム合金の温間圧延板材で優先成長することが示されて、回復組織との関係が示唆されている⁸⁾。2024平板押出材においても、均質化処理と押出温度の最適化により、繊維状組織を安定化した場合、Brass方位成分が他の成分よりも強くなることが示された⁹⁾。6061アルミニウム合金押出材において、クロム無添加の押出ままで再結晶組織を有する場合、主方位がCube($\{100\} \langle 001 \rangle$)方位でありBrass方位への集積は認められないが、クロムの微量添加で繊維状組織が発達する場合は、Cube方位への集積が低下しBrass方位への集積が大きくなる¹⁰⁾。このように、繊維状組織(回復組織)ではBrass方位が発達しやすいようである。AR1の押出方向の引張強さがAR5~20よりも高

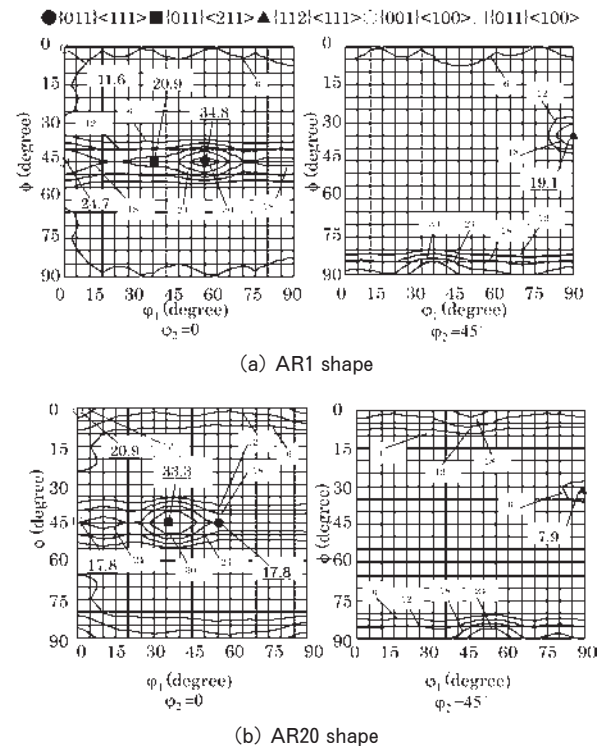


Fig. 7 ODFs measured at the L-LT plane (1/2t) of alloy 1 in T6 condition of alloy 1.

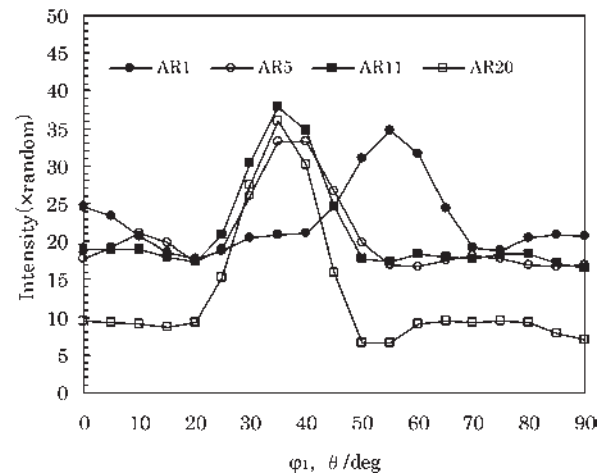


Fig. 8 Influence of the aspect ratio on crystallographic orientation densities of alloy 1 ($\phi = 45^\circ$, $\varphi_2 = 0^\circ$).

かったのは、引張応力に対してすべり変形が生じにくい $\langle 111 \rangle$ 方位の集積によるものと考えられる。

アスペクト比が大きくなるにつれ強度が低下したAR1~3にて $\phi = 45^\circ$, $\varphi_2 = 0^\circ$ の集合組織の分散状態をFig. 9に示す。AR1.25では押出方向の主方位は $\langle 111 \rangle$ 方位であるが、AR1.5では $\langle 111 \rangle$ 方位から 5° 傾いた方位の集積度が大きくなり、AR2では $\langle 111 \rangle$ 方位から 10° 傾いた方位が主方位で、AR3では $\langle 111 \rangle$ 方位から 15° 傾いた方位が主方位となり、アスペクト比が大きくなるにつれ主方位が徐々に $\langle 111 \rangle$ 方

位から<211>方位へ変化していることが分かる。AR1では押出時の上下左右方向からのメタルフローが均一で丸棒押出材で認められる<111>+<100>二重繊維組織²⁾に近い集合組織が得られたと考えられる。それに対して、AR5~20では加工組織が平面ひずみ状態に近く、温間圧延板材の集合組織に認められるBrass方位が主方位と考えられる。軟化材におけるアスペクト比と引張強さの関係をFig. 10に示し、Standard ODFから得られた集合組織全体を考慮したテイラー因子と引張強さの関係をFig. 11に示す。析出強化の影響を弱めた軟化材においても、高いテイラー因子を有する形状ほど高強度になっており、集合組織が強度に影響を及ぼすことが明らかである。

AR1とAR20のL-ST面のODF解析結果をFig. 12に示す。AR1ではP方位({011}<111>), {112}<111>方位, Cube方位({001}<100>)が集積し、AR20では{111}<112>方位, Cube方位({001}<100>),

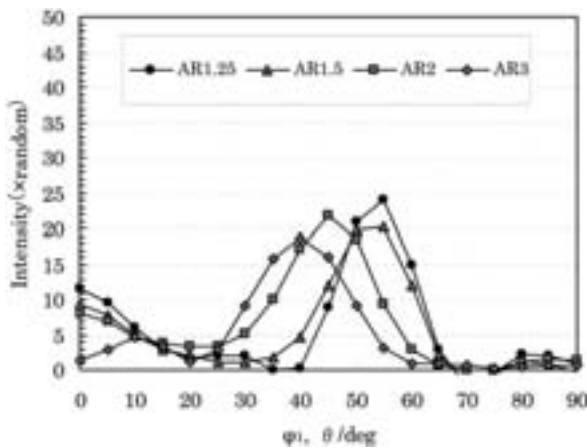


Fig. 9 Influence of the aspect ratio on crystallographic orientation of alloy 1 in the lower aspect ratio ($\phi = 45^\circ, \phi_2 = 0^\circ$).

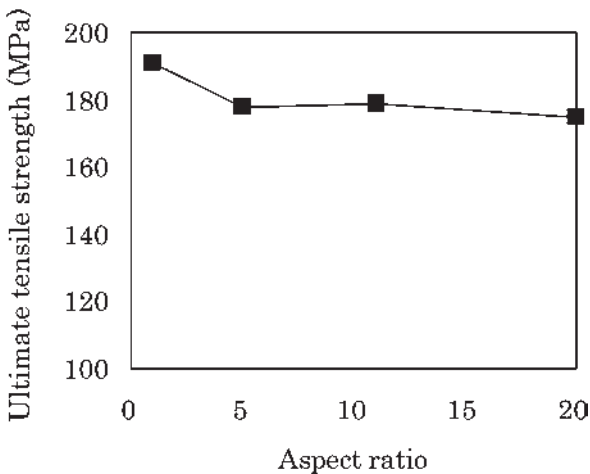


Fig. 10 Relationship between aspect ratio and ultimate tensile strength after annealing of alloy 1.

Brass方位({011}<211>)が集積し、幅中央部の押出直角方向に対して、断面形状によって集積した集合組織が異なった。AR1~3ではAR1と同様の傾向が認められ、AR5~20ではAR20と同様の傾向が認められた。Standard ODFから得られた集合組織全体を考慮したテイラー因子は断面形状が変わっても3.1から3.2となり、テイラー因子と断面形状のアスペクト比の間に相関は認められなかった。そのため、押出直角方向の圧縮耐力が断面形状に依存しなかったと考えられる。

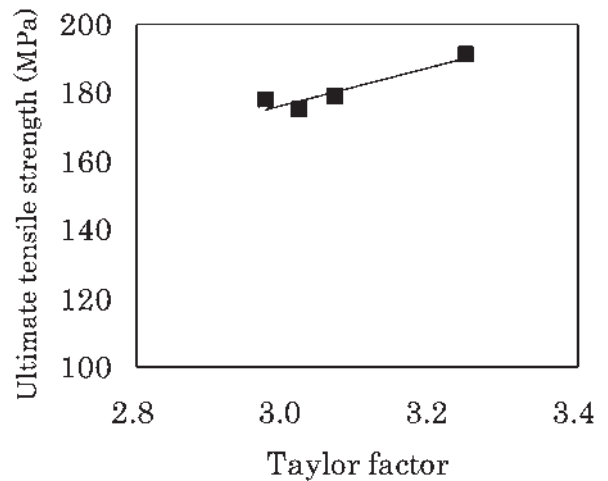


Fig. 11 Relationship between Taylor factor and ultimate tensile strength after annealing of alloy 1.

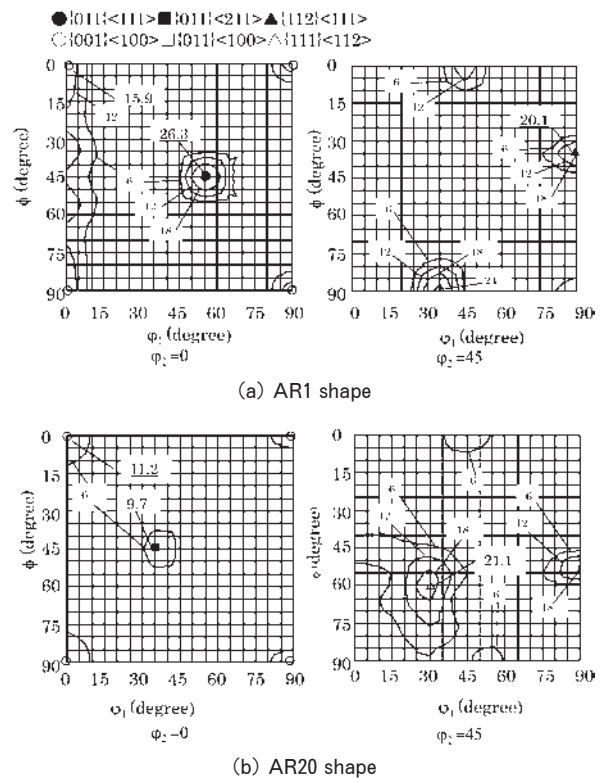


Fig. 12 ODFs measured at L-ST plane (1/2t) in T6 condition of alloy 1.

4. ま と め

Al-Zn-Mg-Cu系合金押出材の断面形状のアスペクト比を変化させ、機械的性質に及ぼす影響を調査した結果、以下の知見を得た。

(1) 実用化されている組成範囲の Al-Zn-Mg-Cu系合金において、断面形状のアスペクト比が1の形状が最も高い強度を有し、アスペクト比5~20の範囲では強度が低い。前者は後者に比べ、引張強さが6~11%高かった。本傾向に対し、亜鉛、マグネシウム、銅量の影響は認められない。

(2) Al-6%Zn-1.5%Mg-1.5%Cu-0.15%Zrにて、アスペクト比が1から3の間ではアスペクト比が大きくなるにつれ、押出長手方向の引張強度、圧縮耐力が徐々に低下した。一方、押出直角方向の圧縮耐力は断面形状に依存しない。

(3) 断面形状によるサブグレインサイズ、 η' 相の析出状態、マトリックス中の固溶度に明らかな有意差は認められない。

(4) 押出長手方向の主方位はアスペクト比が1の形状では $\langle 111 \rangle$ であり、アスペクト比1~5の間では $\langle 111 \rangle$ から $\langle 211 \rangle$ へ徐々に変化し、アスペクト比が5~20の形

状では $\langle 211 \rangle$ であった。押出直角方向の主方位は断面形状により異なったが、テイラー因子とアスペクト比の間に相関は認められない。

(5) 以上の結果より、押出長手方向の強度が断面形状により変化するのは、押出時のメタルフローにより形成される集合組織によるものと考えられる。

参 考 文 献

- 1) 吉田英雄, 内田秀俊: 住友軽金属技報, **34** (1993), 29-40.
- 2) C. J. McHargue, L. K. Jetter and J. C. Ogle: Trans. Met. Soc. AIME, **215** (1959), 831-837.
- 3) G. Wasserman: 軽金属, **17** (1967), 3-11.
- 4) 稲数直次, 北村昌彦, 松本英幹: 日本金属学会誌, **11** (1986), 1016-1022.
- 5) 稲数直次, 井上博史, 金野泰幸: 軽金属, **38** (1988), 102-106.
- 6) 井上博史: まてりあ, **40** (2001), 589-591.
- 7) 岩村信吾, 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属, **60** (2010), 75-78.
- 8) 田中宏樹, 江崎宏樹, 箕田 正, 渋江和久, 吉田英雄: 軽金属, **52** (2002), 231-235.
- 9) 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属, **60** (2010), 451-457.
- 10) 加藤勝也, 箕田正, 吉田英雄: 軽金属学会第114回春期大会講演概要, (2008), 119-120.

Al-Mg-Si 系合金の腐食に及ぼす塩化物水溶液中の カチオン種の影響*

藤村 涼子** 小山 高弘**
内田 秀俊***

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 22-30

Influence of the Cation Species on the Corrosion of Al-Mg-Si Alloy in Cl⁻ Containing Solution

Ryoko Fujimura, Takahiro Koyama and Hidetoshi Uchida

The influence of cation species on the corrosion behavior of an Al-Mg-Si alloy in a Cl⁻ containing solution was studied by an immersion test and electrochemical measurements. The results of the immersion test showed that pitting corrosion severely occurred at the Al-masking boundary of the sample in a MgCl₂ solution and the weight loss by the samples after the immersion test in a MgCl₂ solution was greater than those in CaCl₂ and NaCl solutions. The cathodic polarization curves showed that the occurrence of the remarkable corrosion in the MgCl₂ solution was caused by the increasing of cathodic current densities. The reason why the cathodic reaction increased was considered that the rise in the pH at the cathode surface in the MgCl₂ solution was suppressed by the buffering action of Mg²⁺ due to the low solubility of Mg(OH)₂.

1. 緒 言

降雪地域では、路上の雪による交通障害回避のために融雪剤が散布される。融雪剤には NaCl, MgCl₂, CaCl₂ などの異なるカチオン種の Cl⁻ が含まれる。近年自動車用等の材料にはアルミニウム合金が使用されるようになり、特に強度、耐食性ともに優れる Al-Mg-Si 系合金は各種構造材として適用されており、これらのアルミニウム合金の腐食に対する融雪剤の影響を明らかにすることが望まれている。

一般的にアルミニウム合金の腐食は、Cl⁻ の影響が大きいと考えられており、いくつかのカチオン種の異なる Cl⁻ について、アルミニウム合金の腐食に及ぼす影響を比較調査した報告もみられ^{1~4)}、また、アルミニウム合金以外の金属、特に鉄鋼材料に関してカチオン種の影響を報告した例はある^{5~8)} が、アルミニウム合金についてカチオン種の影響およびその腐食メカニズムを系統的に精査した報告は少ない。

本研究においては、温度と濃度の異なる NaCl, MgCl₂, CaCl₂ 溶液中に、Al-Mg-Si 系合金を浸漬し、その腐食挙動を調査した。また、電気化学的測定等の検証実験をあわせて実施し、カチオン種が Al-Mg-Si 系合金の腐食に及ぼす影響について考察した。

2. 実験方法

2.1 供試材

供試材には、Al-Mg-Si 系のアルミニウム合金圧延板（主成分 Al-1.0%Si-0.5%Mg, 板厚 0.9mm, 調質 T4）を用いた。

2.2 浸漬腐食試験

試験液は、NaCl, MgCl₂ · 2H₂O, CaCl₂（関東化学（株）、純度 99.5%）の 3 種の塩および脱イオン水を用い、それぞれ Cl⁻ 濃度が 100, 1000, 10000ppm となるよう計 9 種の試験液を調製した。全ての試験液にはカソード反応を増す腐食促進剤として、CuCl₂ · 2H₂O を用い、Cu²⁺ を 10ppm となるよう添加した。

供試材は 50×80mm に切断した後、前処理として 60℃ の 5 mass% NaOH 水溶液に 30 秒浸漬し、純水洗浄

* 軽金属, Vol.63 No. 5 (2013), 1 に主要部を掲載

** 研究開発センター 第四部

*** 名古屋製造所 品質保証部

した後、室温の 30mass% HNO_3 水溶液に 60 秒浸漬し、純水洗浄後乾燥した。前処理後、評価面の端部 5 mm および裏側をシリコンシーラント（信越化学工業㈱，シーラント 45）でマスキングしたものを腐食試験片とした。

ガラスビーカー中にとった試験液 200mL 中に、試験片各 1 枚を浸漬し（比液量：7.1mL/cm²），食品ラップフィルムで容器上部を覆って 313K および 353K の温度で 672 時間保持した。試験片はビーカー内に立てかけ、試験液は無攪拌とした。試験途中で蒸発により液量が減少した場合には、脱イオン水を補充した。

規定時間保持後の腐食状況の評価項目として、供試材の腐食生成物およびシリコンシーラントによるマスキングを、それぞれ $\text{H}_3\text{PO}_4 \cdot \text{CrO}_3$ 混合液および有機溶剤系のマスキング剥離剤で除去した後、外観観察（写真撮影）、腐食重量減少量測定（腐食試験前後の重量変化）および腐食深さ測定を実施した。腐食深さ測定は、光学顕微鏡を用いた焦点深度法により、アルミニウム/マスキング界面と一般部とに分けて実施した（Fig. 1）。

2.3 分極測定

市販のポテンショスタットを用い、3 電極法でアノード分極およびカソード分極測定を実施した。アノード分極測定では、測定液として、浸漬腐食試験液と同濃度の各カチオン種塩化物の水溶液を用いた。ただし、カソード反応を抑え孔食電位がより明確に測定できるように測定液の Cu^{2+} は無添加とし、溶存酸素を除去するため Ar ガスを吹込みながら測定を行った。測定温度は 313K および 353K とした。

カソード分極測定では、浸漬試験同様に Cu^{2+} を添加し、空気を吹き込みながら行った。測定温度は 313K および 353K で行った。

試験片は、100mm²の測定面を残して供試材をマスキングし作製した。マスキング後の試験片は、浸漬試験と同様 NaOH 水溶液および HNO_3 水溶液による前処理をした後、乾燥はせずに測定液に浸漬し分極測定を実施した⁹⁾。アノード分極では試験片を試験液に 600s、カソード分極では 1800s 浸漬後、自然電位から 20mV/min の速度で電位掃引して測定した。

3. 結 果

3.1 浸漬腐食試験結果

浸漬腐食試験後の一般部における最大腐食深さを Fig. 2 に示す。一般部の腐食に関して、313K の場合、いずれの Cl^- 濃度においても CaCl_2 より NaCl および MgCl_2 の方が最大腐食深さは深くなり、特に Cl^- 濃度が 1000ppm の場合には MgCl_2 の最大腐食深さが最も深くなった。また、NaCl および CaCl_2 について Cl^- 濃度が高いほど最大腐食深さは浅くなる傾向が見られた。353K の場合では、いずれの Cl^- 濃度においてもカチオ

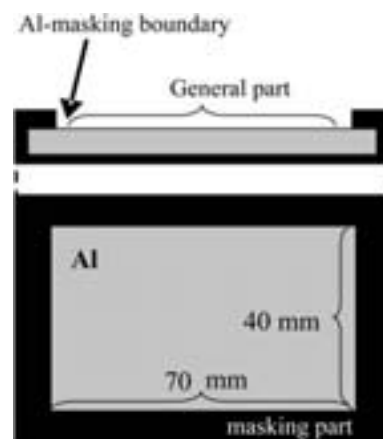


Fig. 1 Evaluation parts of corrosion depth.

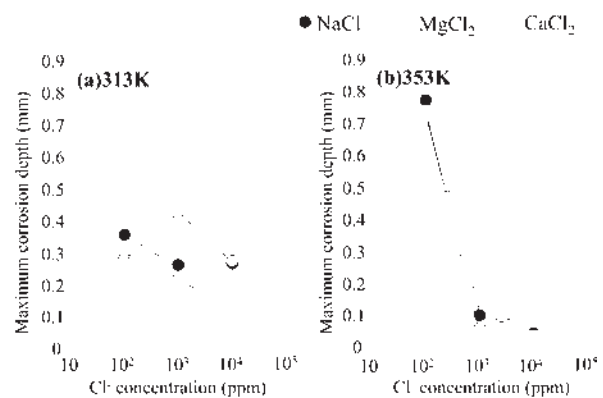


Fig. 2 Relationship between maximum corrosion depth of general parts and Cl^- concentration containing each cation.

ン種の最大腐食深さへの影響は認められなかったが、 Cl^- 濃度が最も低い場合（100ppm）に著しく深くなった。

浸漬腐食試験後のアルミニウム/マスキング界面における最大腐食深さを Fig. 3 に示す。アルミニウム/マスキング界面における最大腐食深さは、313K の場合、 Cl^- 濃度が 100ppm では、カチオン種により変化しなかった。 Cl^- 濃度が 1000ppm では、 MgCl_2 溶液中において最大腐食深さが最も深くなり、次いで CaCl_2 溶液中で深くなり、NaCl 溶液中で最も浅くなる傾向が見られた。 Cl^- 濃度が 10000ppm では、NaCl および MgCl_2 溶液中の最大腐食深さが同等であり、これらより CaCl_2 溶液中で腐食深さが浅くなる傾向が見られた。353K の場合、カチオン種および Cl^- 濃度によらずに腐食深さに大差はなかったが、313K と比較していずれの条件も最大腐食深さは深くなっていった。アルミニウム/マスキング界面では隙間に発生した孔食が、温度に依存して速く成長すると考えられる。

腐食深さに関して結果をまとめると、313K の場合、 Cl^- 濃度が異なるとカチオン種の効果もそれぞれ異なり、一貫した Cl^- 濃度およびカチオン種の影響を確認するこ

とができなかった。

353K の場合では、いずれの Cl⁻濃度においてもカチオン種による差は確認されなかったが、Cl⁻濃度が最も低い場合 (100ppm) に Cl⁻濃度が高いときと比較して一般部の腐食深さが増大した。

浸漬腐食試験後の重量減少量を Fig. 4 に、腐食形態の観察結果を Fig. 5 に示す。313K の場合、いずれの条件においても重量減少量に大差は見られなかった。353K の場合、MgCl₂を用いた場合にすべての Cl⁻濃度について重量減少量は著しく増加した。MgCl₂に次いで CaCl₂での重量減少量が増加し、NaCl の場合が最も

小さかった。

腐食形態観察によれば、いずれのカチオン種においても 353K、Cl⁻濃度が 1000 および 10000ppm において、一般部における孔食の起点が減少し、アルミニウム/マスキング界面の隙間に発生した孔食数が増大した。また、353K の場合の MgCl₂水溶液において、アルミニウム/マスキング界面の隙間に発生した起点数が増大しており、MgCl₂水溶液の重量減少量が増加した原因は他のカチオン種より孔食の起点が増加したためと考えられる。

3.2 分極測定結果

各試験液および各温度で測定したアノード分極曲線を

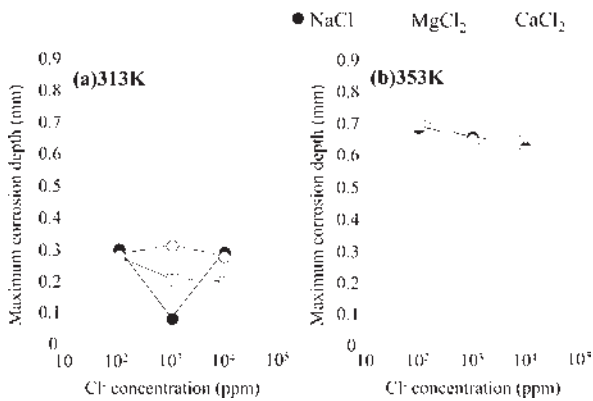


Fig. 3 Relationship between maximum corrosion depth of Al-masking boundary and Cl⁻ concentration containing each cation.

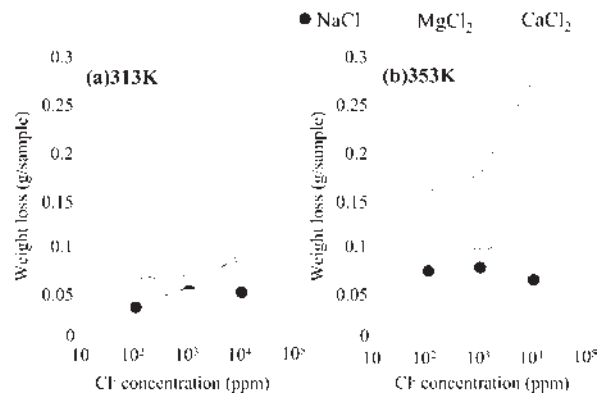
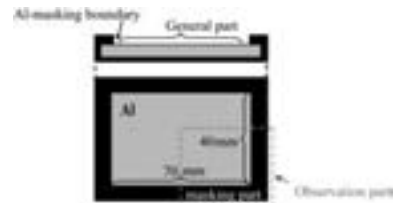


Fig. 4 Relationship between weight loss and Cl⁻ concentration containing each cation.



(a) 313K				(b) 353K			
	Cl ⁻ concentration : 100ppm	Cl ⁻ concentration : 1000ppm	Cl ⁻ concentration : 10000ppm		Cl ⁻ concentration : 100ppm	Cl ⁻ concentration : 1000ppm	Cl ⁻ concentration : 10000ppm
Solution : NaCl				Solution : NaCl			
Solution : NaCl ₂				Solution : NaCl ₂			
Solution : CaCl ₂				Solution : CaCl ₂			

Fig. 5 Appearances of specimen after the immersion test at (a) 313K and (b) 353K.

Fig. 6 に示す。また、Fig. 6 のアノード分極曲線から読み取った孔食電位のまとめを Fig. 7、不動態保持電流密度を Fig. 8 に示す。なお、孔食電位はアノード分極曲線において急激に電流が増加する屈曲点（厳密には屈曲部前後の接線の交点）における電位とする。また、不動態保持電流密度は屈曲点における電流密度とする。

孔食電位は、カチオン種によらず Cl^- 濃度の増加に従ってほぼ同様に卑化した。また、いずれのカチオン種も Cl^- 濃度が高い場合（1000, 10000ppm）には 353K の方が 313K の場合より僅かに卑化した。

カチオン種による差異に関して、313K において NaCl 水溶液中における孔食電位が他より僅かに貴化した。しかし、353K の場合においてカチオン種による違いは認められなかった。

不動態保持電流密度は、温度が 313K の場合、 Cl^- 濃度によらずほぼ一定であった。一方、353K では 313K の場合より不動態保持電流密度は増加し、 Cl^- 濃度が高いほど増加する傾向がみられた。

カチオン種による差異に関しては、 Cl^- 濃度が 1000, 10000ppm の場合には、313K, 353K ともに、 MgCl_2 おける不動態保持電流の値が他のカチオン種より増加した。

カソード分極測定結果を Fig. 9 に示す。313K の場合、分極開始電位から -1400mVvsSCE において溶存酸素の拡散律速が認められるが、いずれの濃度においてもカチ

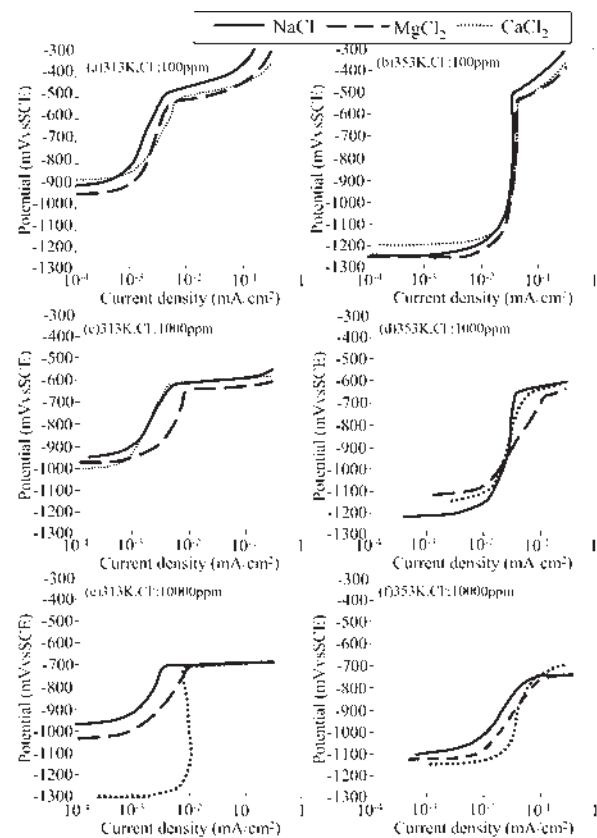


Fig. 6 Anodic polarization curves for Al-Mg-Si alloy in Cl^- solution containing each cation.

オン種による電流密度の大きさに大差は認められず、腐食試験結果 (Fig. 2 ~ 4) との相関は認められなかった。353K の場合、 Cl^- が 100ppm と低濃度では、酸素拡散限界電流密度が 0.1mA/cm^2 程度であるが濃度が高くなるにつれ、その電流密度が 0.1mA/cm^2 以上に増大し、さらにカチオン種では MgCl_2 水溶液中の電流密度が最も大きくなり、腐食重量減少量の結果 (Fig. 4) と関係すると考えられた。

4. 考 察

4.1 カチオン種の違いと腐食試験結果の関係

353K の腐食試験において、同一 Cl^- 濃度でありながら、 MgCl_2 水溶液の場合、NaCl や CaCl_2 水溶液より腐食量が増加する傾向にあった。一方、分極測定では MgCl_2 水溶液において、溶存酸素還元律速と見られるカソード電流密度が増加し、またアノード分極において、僅かであるが不動態保持電流密度が増加し、これらは腐食試験における傾向と合致した。

一方、腐食試験における腐食形態から判断すると、353K における重量減少量の主要因であるアルミニウム

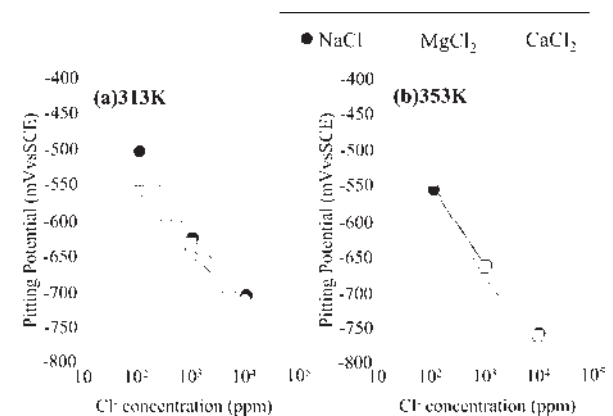


Fig. 7 Relationship between pitting potential and Cl^- concentration containing each cation.

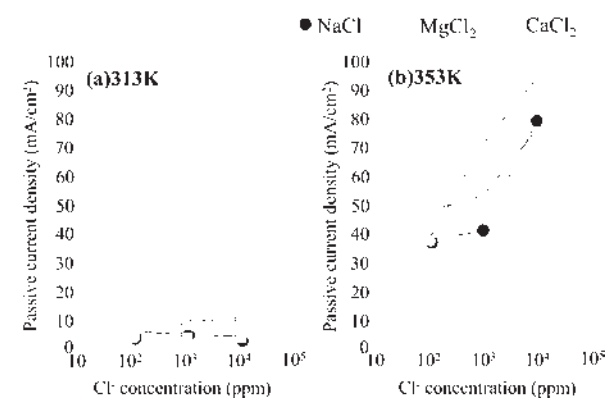


Fig. 8 Relationship between passive current density and Cl^- concentration containing each cation.

/マスキング界面の腐食形態は明確な孔食形態を呈しており、分極曲線の形状から腐食速度はカソード反応律速と考えられ、アノード分極曲線の僅かな差が影響している可能性は低い。従って、腐食試験における差の主要因は、カソード電流密度および温度の差と対応すると推定し、以下の考察を進める。

4.2 カチオン種の違いがカソード分極に及ぼす影響

4.2.1 カソード界面の pH 変化に及ぼすカチオン種の影響

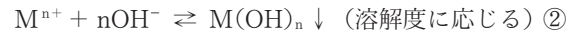
腐食電位付近では以下のカソード反応が進行していると考えられる。



①の反応により、孔食周囲のカソード電流密度の高い部位（以下では局部カソードと呼ぶ）では OH^- 濃度が増加する。このとき、 OH^- の拡散が不十分であれば、界面のアルカリ化が起こるが、電気的中性を保つためカチオン種が泳動して濃化し、 $\text{M}(\text{OH})_n$ の溶液が生成し、ここで金属水酸化物の溶解度が大きい場合は、より安定したアルカリ環境が保持されると考えられる。なお、アルミニウム合金の孔食部の周囲にアルカリ化により黒変が発生する事例や¹⁰⁾、弱アルカリ水溶液中においてカソード電流の集中によるアルカリ溶解で発生するディンプル状の窪み形態を呈する事例が知られており¹¹⁾、局

部カソード部におけるアルカリ形成とそれによる溶解は起こり得る現象と考える。

ここで、水酸化物の溶解度により局部カソード部での pH 変動に違いが生じる。



局部カソード部/溶液界面における pH 変化の様子を Fig. 10 に示す。水酸化物の溶解度が大きい場合、 M^{n+} および OH^- が解離した状態で溶液中に存在するため pH が上昇する。一方、溶解度が小さい場合、カソード反応で発生した OH^- はただちに水酸化物の沈殿を生成し pH は上昇しにくいと考えられる。各カチオン種の水酸化物の水に対する溶解度を Table 1¹²⁾ に示す。各カチオン種の水酸化物の溶解度の大きさは $\text{NaOH} > \text{Ca}(\text{OH})_2 > \text{Mg}(\text{OH})_2$ であり、特に $\text{Mg}(\text{OH})_2$ の溶解度は著しく小さい。従って、 MgCl_2 水溶液では NaCl や CaCl_2 と比較して、局部カソード界面付近の pH の上昇が抑制されると考えられる。

4.2.2 カソード界面の pH 変化とカソード分極の関係

カソード反応の大きさは①の反応式で表される溶存酸素拡散律速であり、本来 pH に依存しない。しかし、アルミニウム合金のカソード分極曲線は pH により形状が大きく変化する。pH を変動した NaCl 水溶液中のアルミニウム合金板 (A3003) および Cu 板 (無酸素銅) におけるカソード分極測定結果を Fig. 11 に示す (Cl^- 濃度 10000ppm, pH 調整は NaOH 添加にて実施, 温度 313K, その他の条件は 2.3 分極測定に記したカソード

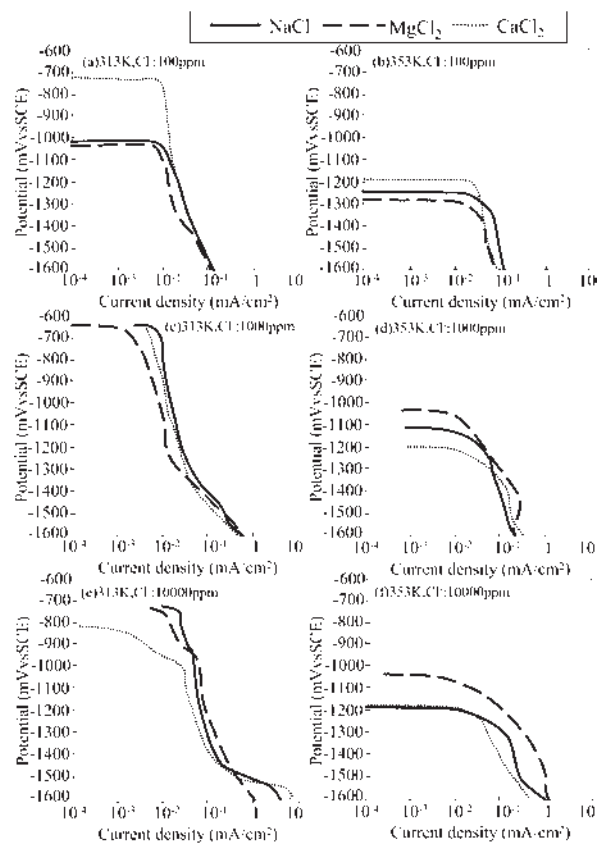


Fig. 9 Cathodic polarization curves for Al-Mg-Si alloy in Cl^- solution containing each cation.

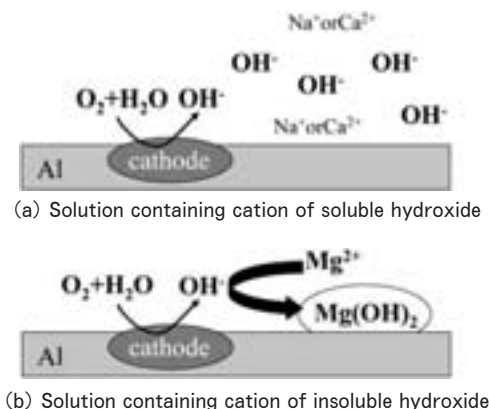


Fig. 10 Schematic diagram of pH behavior at cathode surface.

Table 1 Solubility of hydroxides in water.

Hydroxide	NaOH	$\text{Mg}(\text{OH})_2$	$\text{Ca}(\text{OH})_2$
Solubility	55% (20°C)	9 ppm (18°C)	1.7% (20°C)

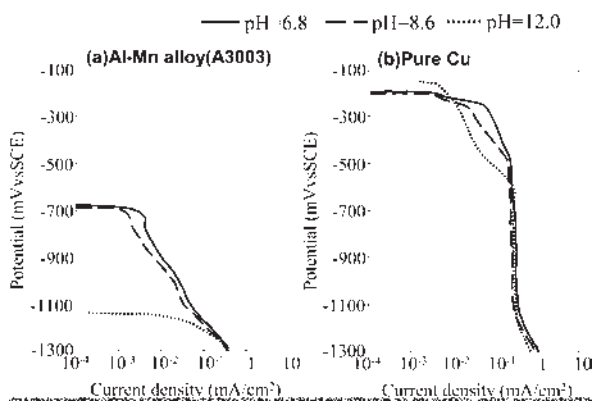


Fig. 11 Cathodic polarization curves under the influence of pH.

分極測定と同様)。銅板の場合は pH によらず $-700 \sim -1000 \text{ mV vs SCE}$ 付近のカソード電流値は一定であった。それに対して、アルミニウム合金板の場合、中性付近から pH の増加に従い電流値が減少し、さらに pH が増加すると腐食電位が著しく卑化した。この結果は、アルミニウム合金板では、カソード素反応としては銅板の場合と同様に①の酸素還元反応（溶存酸素拡散律速）は pH により変化しないと考えられるが、pH 上昇により同時にアノード反応として発生しているアルカリ溶解が増加し、見かけ上外部に取り出されるカソード電流が減少し、カソード分極が増大したように見えるものと考えられる。

カチオン種の違いによるカソード分極の差については、上述のように MgCl_2 水溶液の場合にカソード界面のアルカリ化が他のカチオン種より起こりづらく、カソード分極時のカソード界面の pH 変化の挙動に差が生じるため、特に電流値が大きい 353K の場合には、pH の変動幅も大きくなり、カチオン種の違いがカソード電流密度に影響を及ぼすと考えられる。

4.2.3 温度の効果

分極曲線からも明らかのように、353K では 313K と比較してアノード・カソードともに反応速度は増大し、腐食速度は増大した。カソード反応が増大すると、カソード界面の OH^- 濃度も進行しやすくなることから、353K ではカソード界面のアルカリ化が 313K より顕著になると考えられる。また、腐食形態 (Fig. 5) から、353K では 313K と比較して腐食発生数が減少しており、353K では、アルミニウム表面の水和酸化皮膜の成長により皮膜が厚くなることから、アノード・カソードの分離が進み、この現象もアルカリ化を促進している一因と考えられる。以上の 2 点から、353K の場合ではカソード部のアルカリ化が進行しやすく、その結果としてカチオン種の影響がより明確化すると考えられる。

4.2.4 水酸化物皮膜の影響

上記考察では、水酸化物の溶解度に応じてカソード界面の pH に違いが生じ、カソード反応速度へ影響を及ぼ

すことを挙げたが、形成される $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 沈殿物が皮膜となり腐食状況へ影響を及ぼす可能性も挙げられる。

353K におけるカソード分極曲線 (Fig. 9) では、 $-1400 \sim -1600 \text{ mV vs SCE}$ にかけて、 NaCl および CaCl_2 水溶液中では電流密度の増加が見られるが、 MgCl_2 水溶液中では -1600 mV vs SCE 付近において電流密度の僅かな減少が認められた。この電位領域では、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 沈殿物の皮膜が増加しカソード反応に対して障害層として影響していると推定される。したがって、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ 皮膜が更に厚く生成するような腐食環境では MgCl_2 溶液での腐食が抑制される可能性がある。ただし今回の浸漬試験ではそのような結果になっておらず、沈殿物の影響は不明である。

4.3 カソード分極挙動と腐食挙動の関係

今回の腐食試験で最も顕著な腐食はアルミニウム/マスキング界面のすき間に生じた孔食であるが、このような局部腐食では比較的明確なアノード/カソードの分離と固定化が進む。アルミニウム合金の局部腐食に関して、特に腐食速度が大きい場合、カソード界面のアルカリ化によりアルミニウムがアルカリ溶解腐食する現象はしばしば経験されている。このような腐食の場合、マクロ的には局部腐食内部の局部アノードと外部のカソードのカップリングによる腐食現象と見なすことができ、局部アノードの腐食速度は局部カソード（本研究では析出 Cu や未腐食部位など）から流れる外部カソード電流に比例する。すなわち、局部腐食の成長速度は、真のカソード反応量ではなく、カソード分極測定における見かけ上測定される外部カソード電流値に相当する速度で進むと考えられる。したがって、局部カソード界面のアルカリ化が進行した場合、局部腐食の成長速度は低下すると考えられる。なお、この場合、真のカソード反応量は減少していないので、この段階で全体の腐食速度は変化しない（アノードがカソード周囲のアルカリ溶解腐食とすき間の孔食に分散されている）と考えられるが、局部アノードである孔食内部では腐食の進行に伴って Cl^- が濃縮する。 Cl^- の濃縮が進むと孔食内部は酸性化し、酸による水素還元によるカソード反応が加算され腐食量が增大すると考えられる¹³⁾。また、 Cl^- の濃縮が進むと、孔食電位が卑化することから、孔食内部/外部カソード部の電位差の増大により、より遠方までカソードとして作用し、カソード面積が増大すると考えられる。以上から、局部腐食の形成が腐食速度を加速的に増加させると推察され、孔食を形成しやすい MgCl_2 水溶液中の腐食減量は増大すると考えられる。

このように推定される腐食挙動において、先述のカチオン種の違いが実際の局部腐食に及ぼす影響は、分極測定での電流値の差以上に大きくなる可能性がある。すなわち、実際のアルミニウム合金の局部腐食においては、腐食生成物が堆積していることから生成した OH^- が流出し難く、局部カソード付近でのアルカリ腐食もしばし

ば見られる現象であり、単板でのカソード分極測定時より発生した OH^- が著しく拡散し難い状況である可能性が高い。このような実際の腐食状況においてカチオン種の違いは分極測定の結果以上に大きな影響を及ぼす可能性がある。

4.4 カソード部の pH 変動に関する検証

4.1 の考察におけるカソード部の pH 挙動について、実験により検証した。方法を Fig. 12 に示す。浸漬腐食試験および電気化学評価に用いた材料と同様の試験片 (Al-Mg-Si 系合金) を電極として、 Cl^- 濃度を 10000ppm に調製した各カチオン種を含む Cl^- 水溶液中で定電流電解試験を行った。アノード部とカソード部の溶液成分の拡散混合を抑制するため電解液のビーカー (各 200mL) を分け、塩橋で接続した。両電極の露出面積を 1 cm^2 とし、電流密度 $100\mu\text{A}/\text{cm}^2$ のもと、 25°C で 3 日間電解した。

試験後のアルミニウム電極表面および電解液の pH を Fig. 13 に示す。アノード部に関して、カチオン種の違いによるアルミニウム試料表面および電解液の pH に差は見られなかった。

カソード部においてはカチオン種の違いが明確に現れた。NaCl 水溶液中で電解した場合には、アルミニウム電極表面が黒変しており、電解後の pH が 9.1 となりアルカリ腐食が発生していた¹³⁾。MgCl₂ および CaCl₂ 水溶液中では、アルミニウム電極表面に皮膜が形成していた。pH については MgCl₂ が 7.4、CaCl₂ が 8.4 となった。

MgCl₂ および CaCl₂ 水溶液中で電解した際のカソード電極表面に形成した皮膜について、X 線回折により皮膜を分析した。X 線回折による皮膜分析結果を Fig. 14 に示す。MgCl₂ 水溶液中で形成した皮膜では Mg(OH)₂ のピークが見られ、カソードで発生した OH^- が Mg^{2+} と反応し沈殿生成することが確認された。一方、CaCl₂ 水溶液中で形成された皮膜に関しては、明確な結

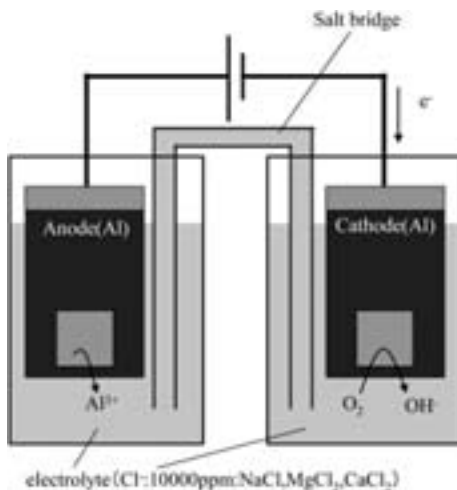


Fig. 12 Schematic diagram of experimental method for galvanostatic electrolysis test.

晶構造のピークは確認されず、無定形構造であるが、MgCl₂ 水溶液と同様の現象が起きているものと考えられる。

4.5 腐食進行メカニズムのまとめ

以上の考察から各カチオン種を含む Cl^- 溶液中の腐食進行メカニズムをまとめ、Fig. 15 に示す。

温度に関して、313K と比較して 353K では一般部に厚い水和酸化皮膜が形成するため、アノード・カソードの分離が明確化し、一般部が防食され、アルミニウム/マスキング界面の隙間部の局部腐食がより進行しやすくなると考えられる。

また、353K においてカチオン種による差が現れた原因は、カソード界面の pH 変化による影響と考えられる。局部腐食の進行により、カソード部界面の pH は上昇するが、水和酸化物の溶解度の違いにより MgCl₂ 水溶液より NaCl 水溶液中の方が pH が高くなるため、カソード部周囲でアルカリ溶解が発生しやすく、アノード電流が局部アノードとアルカリ腐食に分散され、局部アノ-

		NaCl	MgCl ₂	CaCl ₂
Before electroyzing	pH	5.51	5.48	8.91
Anode	Appearance			
	pH	4.5	4.5	4.6
Cathode	Appearance			
	pH	9.1	7.4	8.4

Fig. 13 Surface appearances of Al electrode and pH of electrolyte after galvanostatic electrolysis for 3 days.

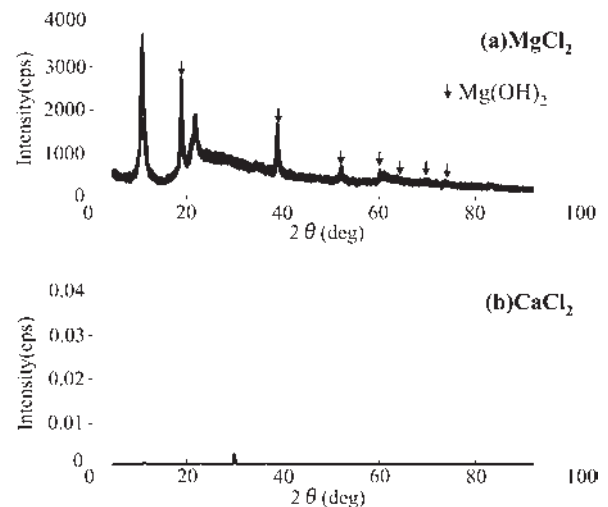


Fig. 14 X-ray diffractions of films formed on cathode surface after galvanostatic electrolysis.

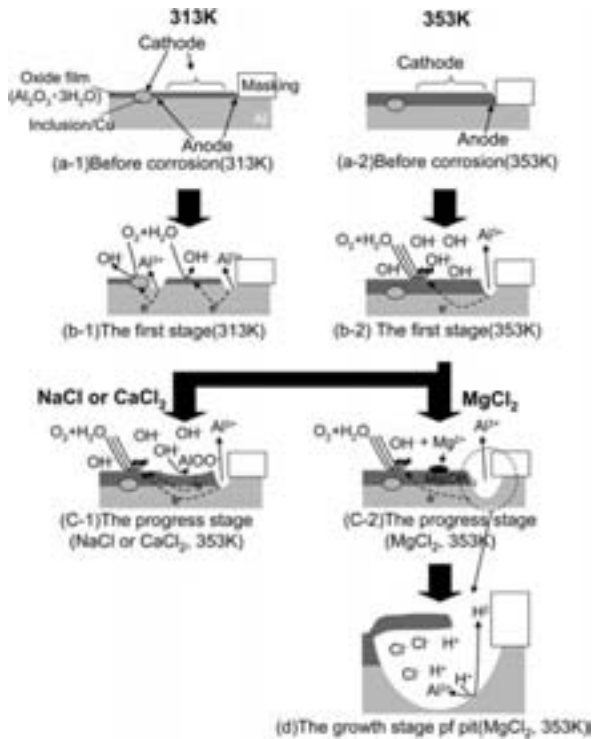


Fig. 15 Influences of temperature and cations of Al-Mg-Si alloys in solution including Cl^-

ド内の Cl^- 濃縮も緩和され結果として腐食速度が低下すると考えられる。なお、353K においてのみカチオン種の差が明確に現れた理由は、313K では腐食速度が遅くカソード部の pH の変化量が小さいためと考えられる。

5. 結 言

融雪剤の成分である NaCl , MgCl_2 , CaCl_2 を用い、Al-Mg-Si 合金の塩化物水溶液中の腐食に及ぼすカチオン種の影響を調査した。腐食深さおよび孔食電位につい

て、カチオン種の違いによる影響はほとんど見られなかった。腐食量については、 MgCl_2 水溶液中で高温の場合に増加する傾向が見られ、その際、分極測定におけるカソード電流密度が増加していた。これは $\text{Mg}(\text{OH})_2$ の溶解度が著しく小さいことから、カソード界面で発生した OH^- が水溶液中の Mg^{2+} と反応し不溶性の塩を形成し、pH 上昇が抑制されたことで、カソード電流密度が増加し、孔食成長を促進していたと考えられる。

以上から、 MgCl_2 が存在すると、他の塩化物環境下と比較して Al-Mg-Si 合金は腐食しやすいことが示唆された。

参 考 文 献

- 1) 自動車のアルミ化研究委員会：自動車用アルミニウム合金の耐食性調査結果，社団法人軽金属協会，(1981)。
- 2) 玉川勝美，三島靖子，関敏彦：仙台市衛生試験所報，15 (1985)，293。
- 3) R. Harlfinger, E. Rogler and E. Voelkel : Metalloberflaeche, 35 (1981), 47.
- 4) 内山利光，長谷川実，松本裕志：金属表面技術，37 (1996)，178。
- 5) M. F. Lopez and M. Lescudero : Electrochimica Acta, 43 (1998)，671。
- 6) 相良雅之，東茂樹：材料と環境講演集，(1999)，91。
- 7) W. Beom, K. Yun, C. Park, H. Ryu and Y. Kim : Corrosion Science, 52 (2010)，734。
- 8) A. Poursaee, A. Laurent and C. M. Hansson : Cement and Concrete Research, 40 (2010)，426。
- 9) 軽金属学会研究委員会 表面処理部会腐食防食分科会：研究部会報告書 No.15，軽金属学会，15 (1985)，3。
- 10) 重永光治，田部善一：住友軽金属技報，17 (1976)，109。
- 11) 田中宏和，正路美房：軽金属学会第 105 回秋季大会講演概要，(2003)，71。
- 12) 日本化学会編：改訂 4 版化学便覧基礎編 II，丸善，(1993)，161。
- 13) 社団法人軽金属協会：アルミニウム材料の基礎と工業技術，(1998)，188。

空調熱交換器の着除霜性に及ぼすアルミニウムフィン材 表面処理の影響*

水田 貴彦** 磯村 紀寿**

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 30-36

Influence of the Fin Stocks Surface Treatment on Frost and Defrost Characteristics of the Heat Exchangers for the Room Air-conditioners

Yoshihiko Mizuta and Norihisa Isomura

The frost formation is a very common phenomenon in heat exchangers that occurs when moist air near cold surfaces has been cooled below the freezing temperature of water. The frost layer formation on the fins and tubes results in a higher pressure drop causing a reduction in air flow and a decrease in heat exchanger efficiency.

In this study, the frost and defrost characteristics were experimentally evaluated using four different kinds of surface-treated fins, which aren't treated, hydrophilic, hydrophobic and super hydrophobic. During the frost process, the hydrophobic surface showed about a two-times longer time to frost accumulation than the other ones. On the other hand, the defrost times of the four different surfaces were only slightly different. A hydrophobic surface is supposed to be most effective in reducing the frost problem of air-conditioners. However at present, the hydrophobic surface does not have a sufficient durability and must be improved in the near future.

1. はじめに

ルームエアコンやパッケージエアコンなどの空調機器、冷蔵庫やショーケースなどの冷凍機器は、地球温暖化などの環境問題を背景として、絶えず省エネが求められている。これら機器の主要構成部材の一つとして熱交換器が挙げられるが、この熱交換器に対しても高性能化およびコンパクト化の要求が絶えず求められており、その手法として、冷媒側は伝熱管である内面らせん溝付管の内面溝形状最適化による伝熱性能の向上が、空気側はフィン形状の最適化、フィンピッチの狭小化等による空気側熱伝達率の向上が図られている。^{1~2)}

ここで空気側の大きな問題の一つとして、エアコンの室外機および冷蔵庫やショーケースの蒸発器には着霜による運転効率の悪化が挙げられる。これは、外気温度が低い場合および冷媒がマイナス温度で運転される場合に発生する現象であり、熱交換器のアルミニウムフィンに

結露した水が凍って、そこから霜が発生し、アルミニウムフィン間を塞いでしまい、熱交換を妨げるものである。本稿では、アルミニウムフィン材の表面処理による着霜問題を解決することを目的として、各種表面処理が着霜および除霜性に及ぼす影響を実験的に評価した結果について述べる。

2. 着霜・除霜試験

2.1 供試アルミニウムフィン材

各供試材の特性を Table 1 に、供試材の水滴付着模式図を Fig. 1 に示す。供試したアルミニウムフィン材は、無塗装のベアフィンを含む4種類である。塗装フィンについては、ベアフィンを脱脂、クロメート処理した上に、厚さ1 μ mの親水皮膜、撥水皮膜および超撥水皮膜を塗装した。各供試材における水との接触角は、Fig. 1 に示すとおりである。この濡れ性の違いによる着霜および除霜性について評価した。

* 冷凍, 88-1023 (2013. 1), 49-54に掲載

** 研究開発センター 加工品開発部

Table 1 Characteristics of test fins.

	Thickness (μm)	Contact angle (°)
Bare	100	50~60
Hydrophilic	100	< 30
Hydrophobic	100	120~130
Super hydrophobic	100	160<

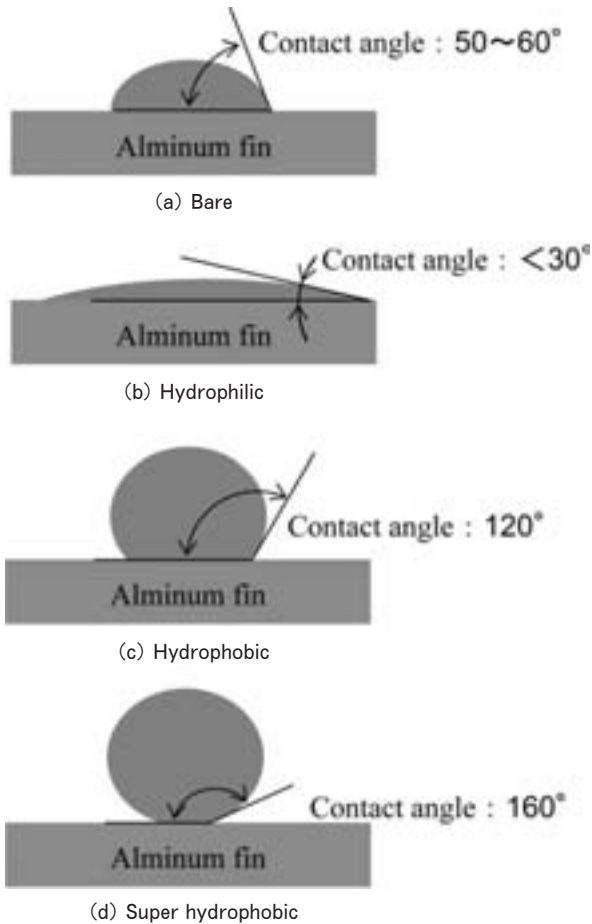


Fig. 1 Schematic diagram of water droplet on four different kinds of surface fins.

2.2 熱交換器の作製

各供試フィン材をプレス成形によりフィンに加工した。成形したフィンをスタックし、そこに外径7mmの銅管を挿入後、拡管することにより、クロスフィンチューブ熱交換器を作製した。熱交換器の仕様をTable 2に示す。この熱交換器を用いて、実際に使用される環境を模擬した条件下で着霜および除霜性を評価した。

2.3 試験条件および試験方法

試験条件をTable 3に、試験装置概略をFig. 2に、試験時の通風抵抗の変化例をFig. 3に、試験状況をFig. 4に示す。試験は冷却試験であり、所定の条件に制御された空気および冷媒を熱交換器に供給して熱交換させた。冷媒にはCO₂を用いた。

Table 2 Specification of Heat exchangers.

Hight (mm)	Width (mm)	Thickness (mm)	Column	Row	Fin pitch (mm)
294	300	25.4	14	2	1.5

Table 3 Test condition.

Frost	Air side	Dry-bulb temperature (°)	2.0
		Wet-bulb temperature (°)	1.0
		Frontal velocity (m/s)	1.5
		Threshold of pressure drop (Pa)	500
Refrigerant side		Refrigerant temperature (°)	-5.0
		Super heat (K)	2.0
		Refrigerant	CO ₂
Defrost	Air side	Dry-bulb temperature (°)	2.0
		Wet-bulb temperature (°)	1.0
		Frontal velocity (m/s)	0
Refrigerant side		Refrigerant temperature (°)	< 20
		Time (min)	5.0

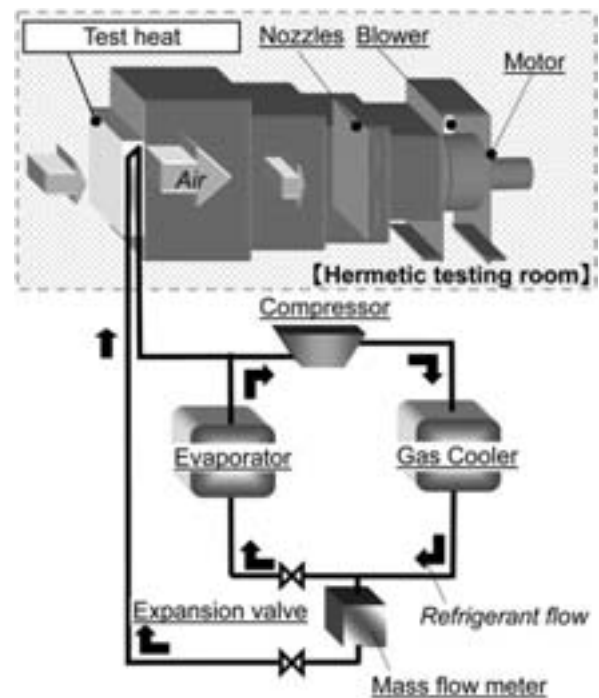


Fig. 2 Schematic diagram of experimental apparatus.

着霜時は、マイナス温度の冷媒と空気を熱交換させることにより、フィン表面の結露水が凍結する。その凍結した部分から霜が発生する。この状態を継続することにより、フィン間を塞ぐまで霜が成長するため、通風抵抗が徐々に増大していく。通風抵抗がある値に達した時点

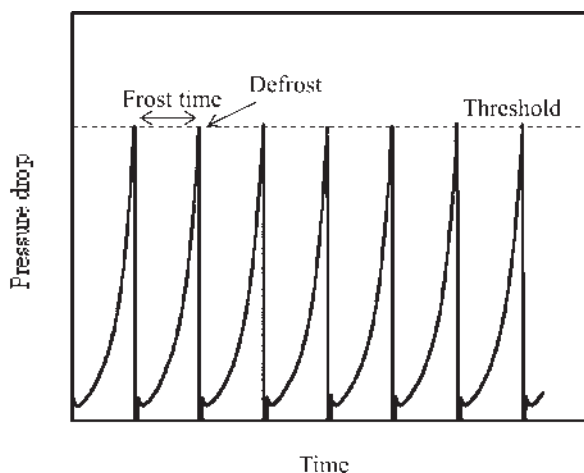


Fig. 3 A change of air side pressure drop in a frost and defrost process.

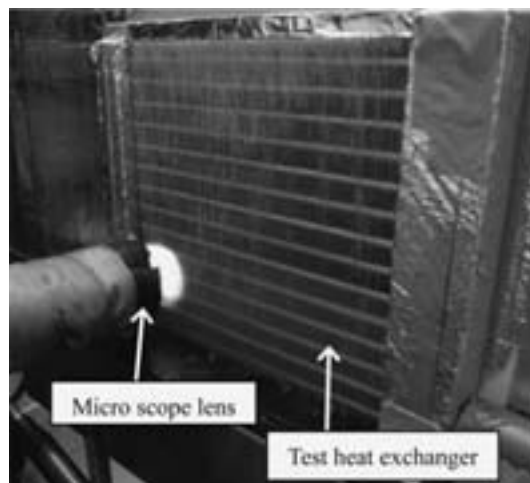


Fig. 5 Overview of the observation method.

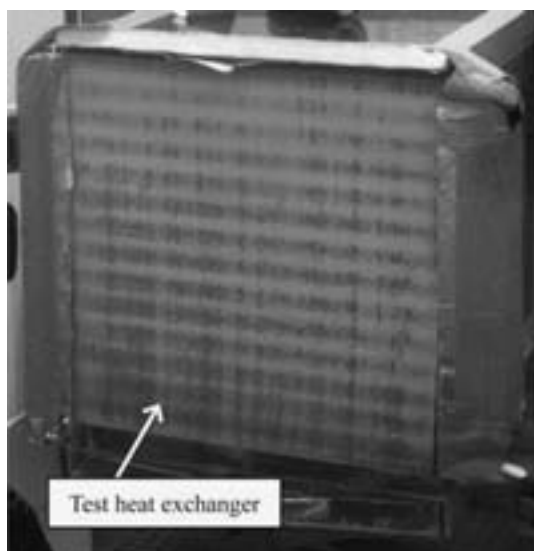


Fig. 4 Test status.

で除霜運転に切り替わる。この運転開始から除霜運転に入るまでの時間を着霜時間と定義し、着霜時間が長ければ難着霜性に優れていると判断した。

除霜時は、空気供給ファンの運転を止めて、ホットガスを銅管内に流すことで霜を融かすようにした。除霜時間は5分間一定とし、画像により除霜時間および除霜の様子を観察することで除霜性を評価した。

2.4 着霜・除霜の観察方法

各供試熱交換器の着霜および除霜状況観察方法を Fig. 5 に示す。熱交換器の前面側にマイクロスコブのレンズを設置し、フィン間を拡大して観察した。観察画像を動画で PC に取り込んだ。

3. 試験結果

3.1 着霜時間の比較

各供試材における着霜時間を比較した結果を Fig. 6 に示す。運転開始から除霜に入るまでの着霜時間を1サイクルとして、各サイクルにおける着霜時間を比較した。今回供試した塗膜で最も着霜時間が長かったのは撥水処理であり、ベアに対して3倍程度の着霜時間を示した。ベアの場合、着霜開始から除霜までの時間は33分程度であった。それに対して、最も水を排水しやすいであろうと考えていた超撥水塗膜は最も除霜までの時間が短く、30分弱であった。一般的に使われている親水塗膜は45分程度であった。撥水処理の4、5サイクル目の着霜時間が初期に比べて20分程度短くなったのは、除霜後に結露水がフィン上に残ったことによるものと考えられる。

各サイクルにおける通風抵抗値の変化を Fig. 7 に示す。ベア、撥水処理および超撥水処理の通風抵抗値が冷却開始とともに一旦低下するのは、冷却開始と同時に空気供給ファンを運転するため、除霜後に残った結露水が風により除去されるためである。

ベア、親水処理および超撥水処理は、通風抵抗値40~50Paから急激に上昇するのに対して、撥水処理は、通風抵抗値が100Paを超えた辺りから急激に上昇していた。

この通風抵抗値の変化の違いつまり着霜性の違いは、着霜中の結露水の挙動が影響していると考えられたため、詳細観察を試みた。

3.2 着霜および除霜時の詳細観察

各供試材の詳細観察結果を Fig. 8, Fig. 9, Fig. 10 および Fig. 11 に示す。

ベアは、まずフィンの端面に、直径0.1mm程度の結露水が付着し、隣り合う結露水と結合して約3倍まで成長した。次にフィン面に直径0.3mm程度の結露水が付着して、球状のまま直径0.5mm程度まで成長した。結

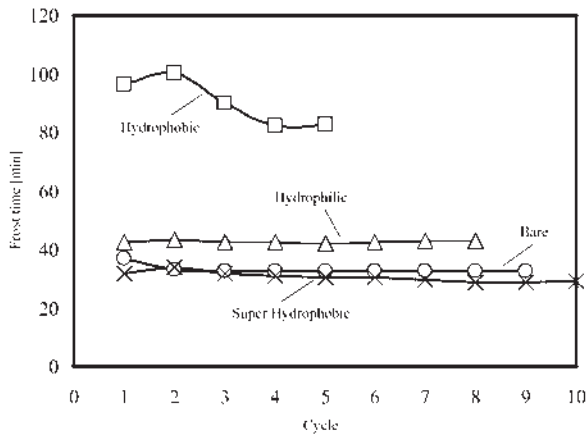


Fig. 6 Comparison of frost time.

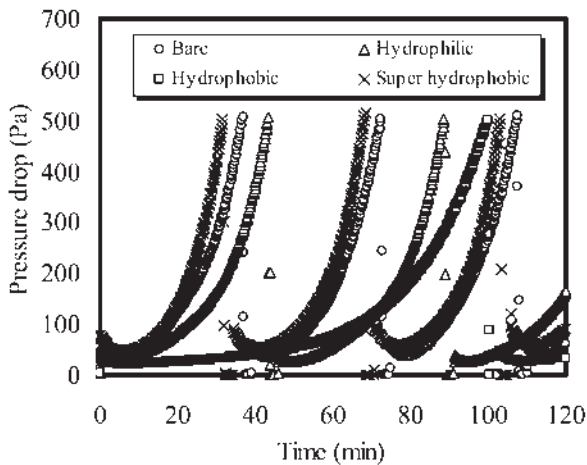


Fig. 7 Change of air side pressure drop in a frost and defrost process.

露水は流れ落ちることなく、結露した状態のまま凍った。その後、凍った面からフィン間を閉塞するまで霜が成長した。除霜の際は、フィンに接する霜から融けだし、次第に霜の表面まで融け、水と氷が共に流れ落ちた。

親水処理は、運転開始直後、フィン表面に薄い結露水の膜ができ、4分程度で、薄い霜の膜が生成された。その後、フィン間を塞ぐ程度まで霜が成長した。除霜の際は、フィンと接する霜から融けだし、次第に霜の表面まで融け、水として流れ落ちた。ベアと異なる点は、氷が膜状で形成されること、および除霜時は水となって流れることであった。

撥水処理は、フィンの端面およびフィン上に0.1mm程度の結露水が付着し、それが0.3~0.5mmまで成長すると転落する。この結露水の生成、成長、転落のサイクルを数回繰り返し、52分程度経過したところで凍り始めた。その後はフィン間を塞ぐまで霜が成長した。除霜の際は、フィンと接する霜から融けだし、次第に霜の表面が融け出すと同時に、氷がフィン上を滑り落ちた。ベアとの違いは、結露水が生成、成長、転落を繰り返すこ

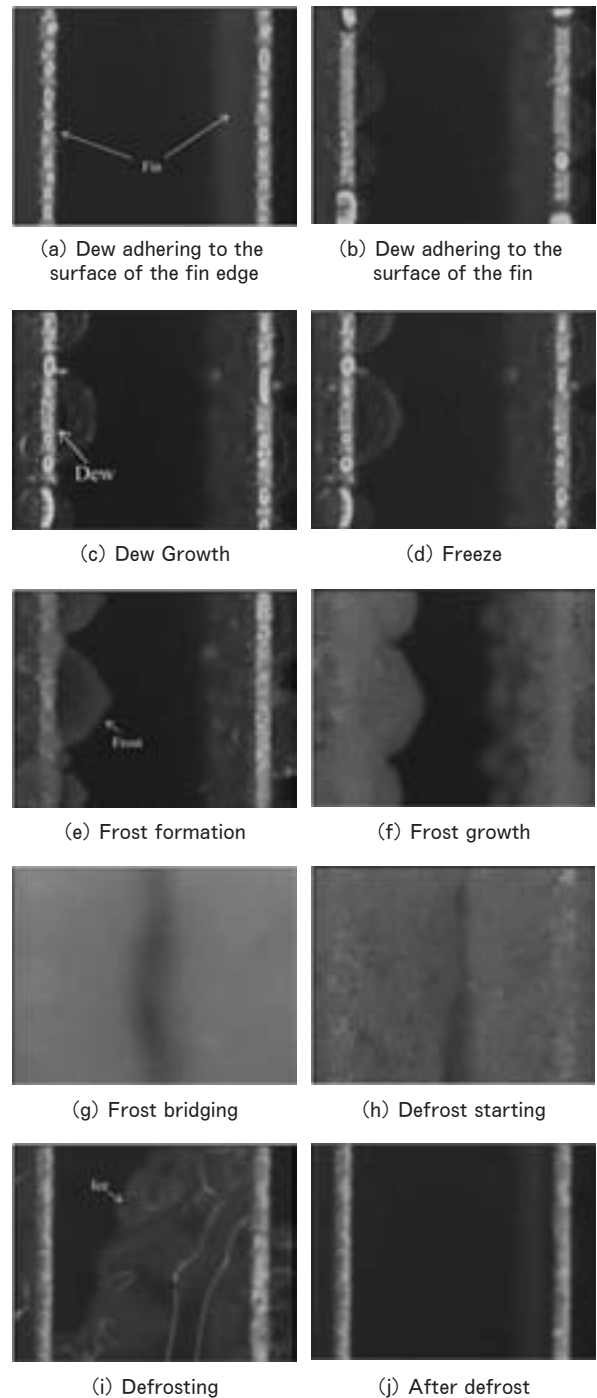


Fig. 8 Observation results of bare fin.

と、および除霜時に氷がフィン上を滑り落ちることである。

超撥水処理は、フィン端面に0.1mm以下の非常に細かい結露水が付着し、それが徐々に成長し、0.3~0.5mm程度まで成長した。結露水は、一度流れ落ち、その後0.1mm程度の細かい結露水が新たに生成されて凍った。その後はフィン間を塞ぐまで霜が成長した。除霜の際は、フィンと接する霜から融けだし、次第に霜の表面が融け出すと同時に、氷がフィン上から滑り落ち

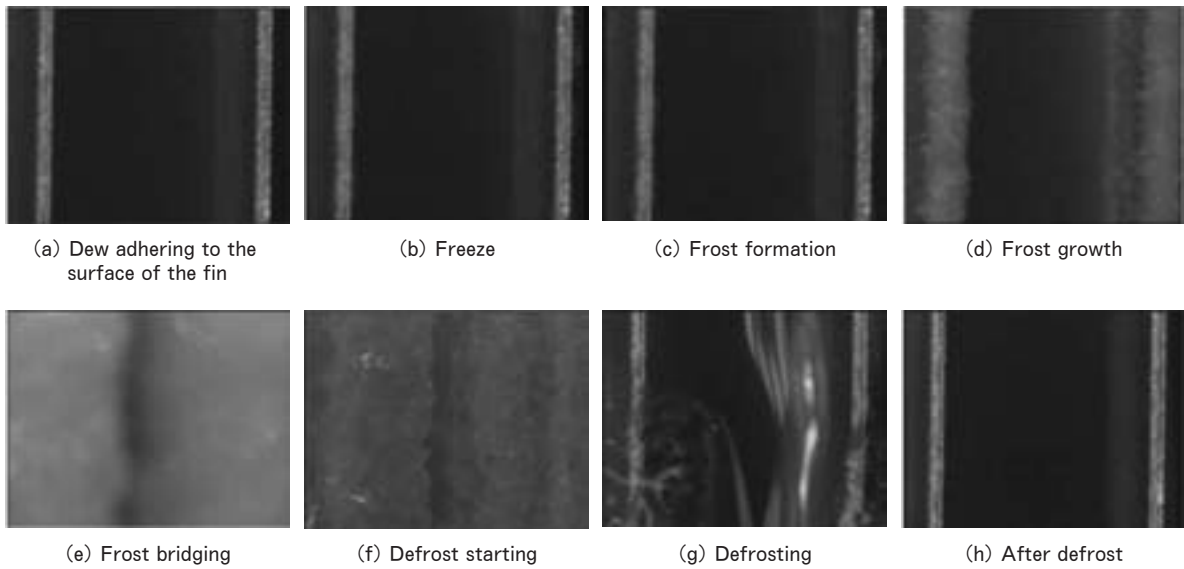


Fig. 9 Observation results of hydrophilic fin.

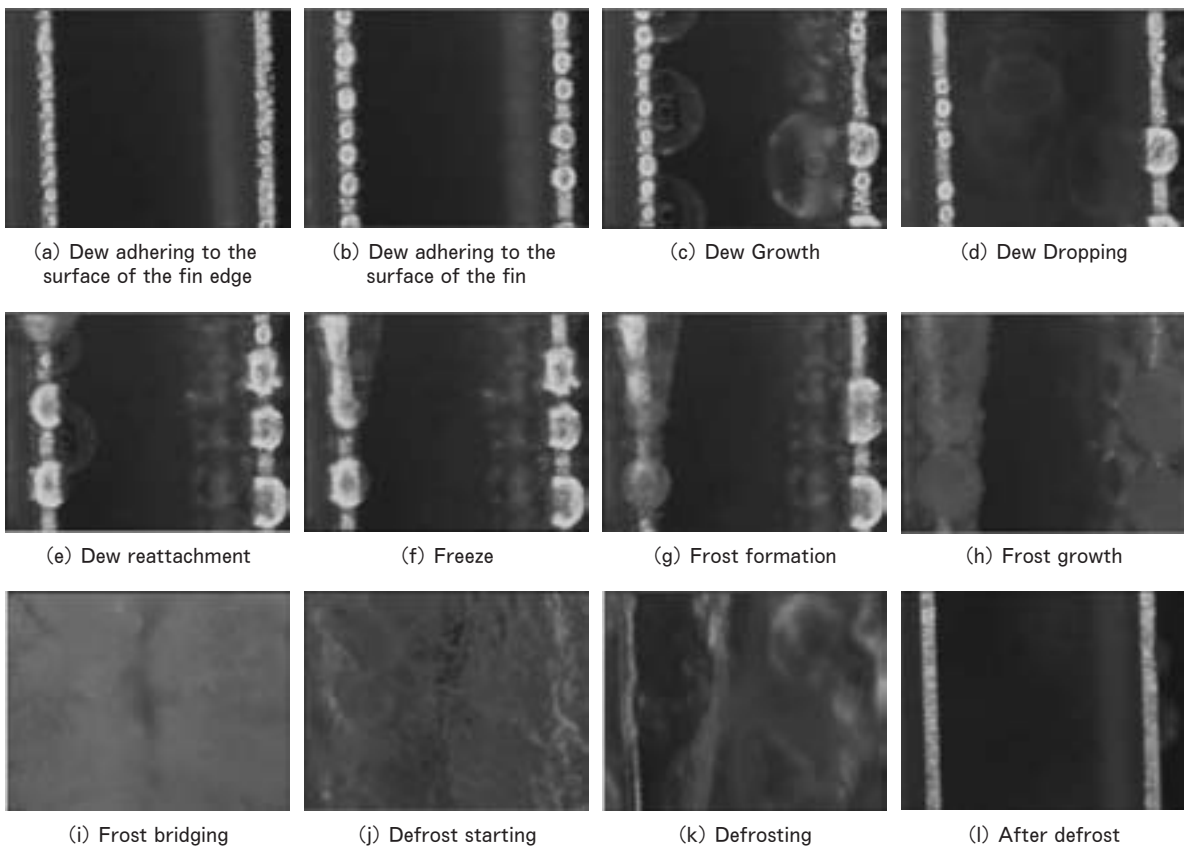


Fig. 10 Observation results of hydrophobic fin.

た。ベアと異なる点は、着霜運転中に結露水が流れ落ちること、小さい球状の水がフィン上にできること、および除霜時に氷がフィン上を滑り落ちることである。超撥水処理が最も着霜時間が短かった要因としては、細かい球状の結露水をフィン上に保持するため、氷の核を作りやすいものと考えられる。

撥水処理と超撥水処理との違いは、撥水処理の結露水

は結合しやすく転落しやすいことである。よって、撥水処理の着霜時間が長い要因として、結露水の生成、成長、転落を繰り返すことにより、フィン上に氷の核を作り難くするためと考えられた。

3.3 除霜時間の比較

各供試材における観察画像から、除霜時間を計測した結果を Table 4 に示す。親水処理の除霜時間が最も短く、

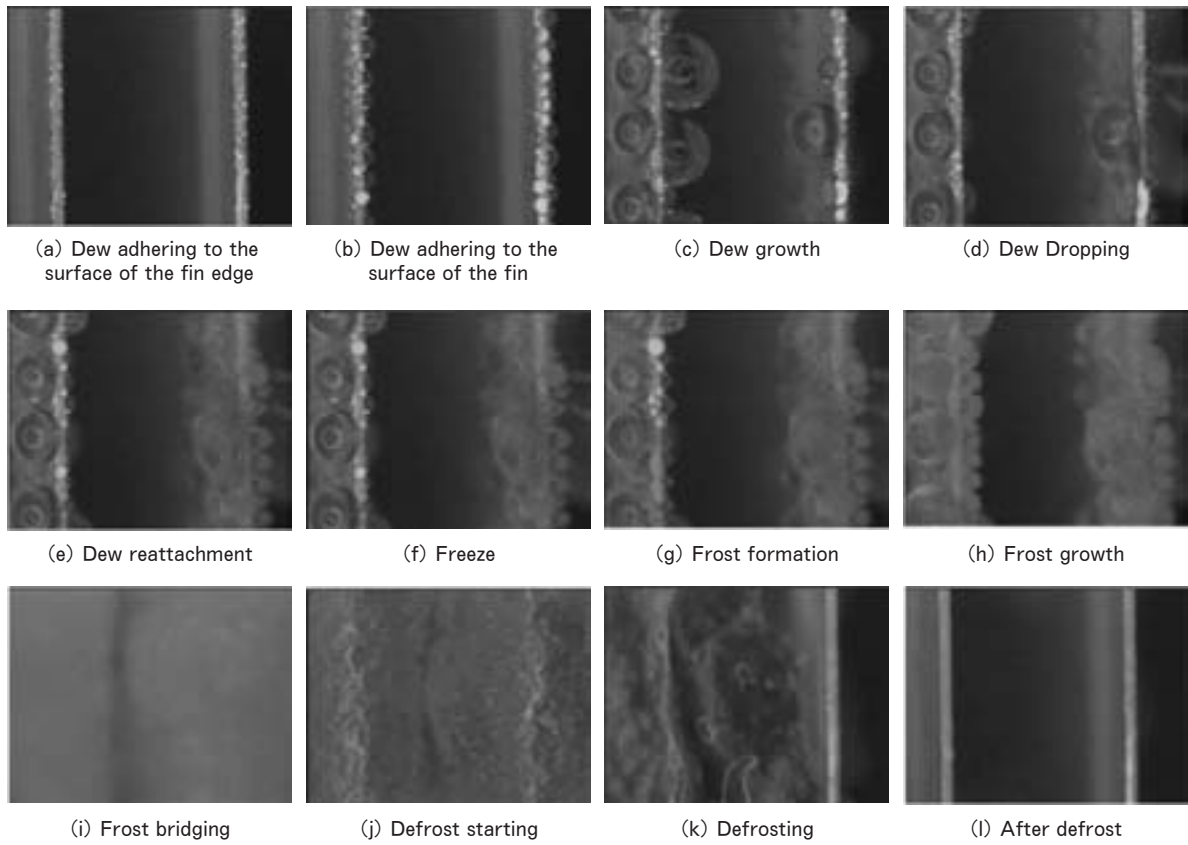


Fig. 11 Observation results of super hydrophobic fin.

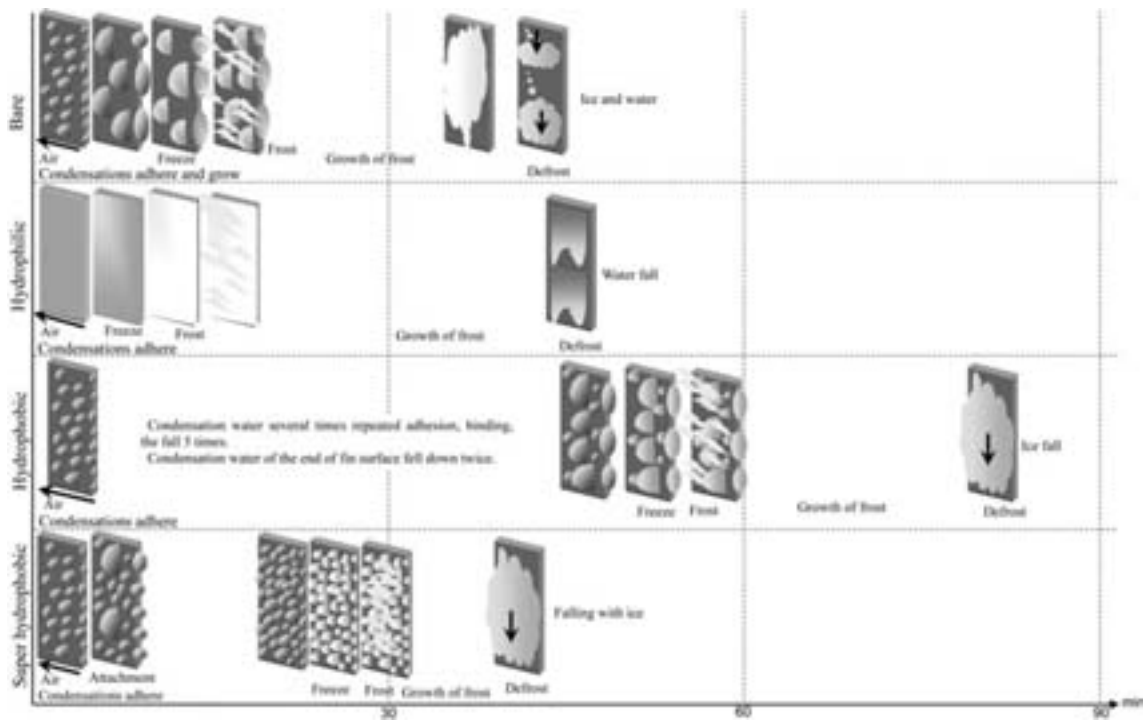


Fig. 12 Schematic diagram of frost and defrost process on four different kinds of surface treated fins.

超撥水処理の除霜時間が最も長かった。親水処理は霜の密度が高いことから³⁾、熱が伝わり易くなり、霜および

氷が融け易くなり除霜時間が短くなったものとする。一方、超撥水処理は、霜密度が低いために、熱を伝え難

Table 4 Comparison of defrost time.

Surface treatment	Defrost time (s)
Bare	70
Hydrophilic	67
Hydrophobic	80
Super hydrophobic	93

く溶け難いものとする。更に、霜密度が低いと考えられることから、霜とフィンとの結合力も小さいと考えられ、氷のまま除霜転落するものとする。

各塗膜における除霜までの結露水の変化を Fig. 12 にまとめた。

4. ま と め

濡れ性の異なるアルミニウムフィンを用いた熱交換器の着霜および除霜性について実験的に評価した結果、難着霜性については、接触角が $120\sim 130^\circ$ の撥水処理が最も良いと考えられた。結露水の生成、成長、転落を繰返し、着霜時間を長くすることがポイントであった。撥水処理は、除霜時間が若干長くなるが、空調機器や冷熱機器の着霜問題を低減させるには有効な塗膜であると考えられる。しかし撥水処理は、その効果の持続性が不十分であることから、その改良が今後の課題である。

参 考 文 献

- 1) 清谷明弘：住友軽金属技報，**49**，158 (2008)．
- 2) 磯村紀寿：冷凍，**85**，(994)，666 (2010)．
- 3) Kristian Lenic, Anica Trp, Bernard Frankovic：International Journal of Heat and Mass Transfer，**52**，22-32 (2009)．

Self-reacting tool を用いた摩擦攪拌接合の 制御方法の検討*

田 中 直** 熊 谷 正 樹***

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 37-41

Examination of Optimum Control Method of FSW by Using Self-Reacting Tool.

Sunao Tanaka and Masaki Kumagai

Friction stir welding (FSW) by using the self-reacting tool can solve the conventional FSW problem by using the fixed tool. Self-reacting tool consists of upper and lower shoulder. To weld distorted material without tunnel pore, pinch force between upper and lower shoulder has been controlled in self-reacting FSW. The optimum welding condition of self-reacting tool was not wider than that of fixed-tool. Mechanical properties of welded part by using the self-reacting tool was little better than that by fixed tool.

1. 緒 言

FSW (Friction Stir Welding の略, 以下 FSW と言う) は 1991 年に The Welding Institute が開発¹⁾して以来, 固相接合であるため従来の溶融溶接に比べて入熱が低く, 接合部の欠陥が少ないことから, 画期的な接合方法として注目を浴び, 研究が盛んに行われた²⁾。それらの成果により, FSW が鉄道車両^{3,4,5)}, 船舶, 航空機⁶⁾等の多くの輸送機材に適用されてきた。しかし, 従来の溶融溶接から FSW に置換する場合, FSW 装置および施工治具の導入のため高い初期投資が必要なこと, FSW 施工の課題, 継手性質のデータが不足していること, 規格への登録が必要であることの課題が見えてきた。施工の課題を Fig. 1 に示すが, 従来の固定ピンでの接合の場合, 突合せ面の底部に攪拌不十分により欠陥が発生する場合がある。また, パイプを製作する際, 丸めた板を固定ピンの FSW により接合する場合, 裏当て治具の装入および取出に時間を要するため, 溶融溶接と比べて, FSW のメリットが出しにくい。そこで, 本研究では底部の欠陥を抑制するためおよび裏当て治具の装入取出での時間短縮のため, 裏当て治具を備えた Self-reacting tool の適用を検討した⁷⁾。特に, Self-reacting tool に

よる接合制御方法を検討し, 供試材を挟み込むピンチ荷重が継手に及ぼす影響を調査した。

2. 実験方法

母材の材質は鉄道車両で汎用的に使用される 6N01-T5 材とし, 板厚は 8 mm, 長さは 400mm とした。FSW に用いる回転工具は, 上下を挟み込む Self-reacting tool と従来法の Fixed tool を使用した。Fixed tool は, 高い生産性を示すため鉄道車両, 橋梁で一般的に用いられることから, Self-reacting tool と比較した。

Self-reacting tool の最適制御方法を調査するため, 位置固定制御および荷重固定制御で接合した。制御する荷重は, 主軸荷重⁸⁾とした。制御には他に主軸トルク制御があるが, ここでは主軸方向の影響を調査するため,

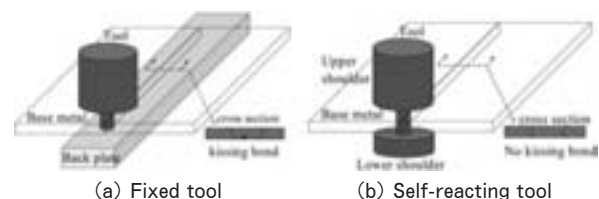


Fig. 1 Schematic view of FSW by (a) Fixed tool and (b) self-reacting tool.

* 溶接学会論文集 29, 4 (2011), 353-357 にて一部発表。

** 研究開発センター 第二部

*** 研究開発センター 工学博士

位置固定制御および荷重固定制御を比較することとした⁹⁾。ピンチ荷重は、下側ショルダの荷重から上側ショルダの荷重を減算した値とした。上側ショルダの荷重は、ショルダが落ちない程度の小さな荷重（1 kN 以内）と設定した。接合開始は、上側と下側のショルダの位置を板厚表面に接触するようにした。Self-reacting tool 及び Fixed tool ともショルダ径 23mm、プローブ径 10mm、プローブ円周部 M10 の溝加工を施した形状とした。Fixed tool のプローブ高さは、7.8mm とした。拘束方法は、母材の幅端部を 4 箇所汎用クランプで押さえこんだ。Fixed tool での接合は、前進角 1 度とした。

接合可能範囲を調査するため、接合速度は 250~1000 mm/分、回転速度は 500rpm、750rpm、1000rpm とした。継手の特性を比較するため、引張試験を実施した。引張試験片は、接合方向に対して直角方向に、接合部を中央に切り出して、切削加工した JIS 5 号片とした。

3. 実験結果

3.1 制御方法の検討

回転工具の最適制御方法を調査するため、JISH4100 に規定される型材の曲がりをも想定した接合を実施した。Fig. 2 に示すように供試材の尾部に板厚 1 mm の板を挟み込むことで底上げして、供試材に傾斜を付けた状態で Self-reacting tool を用いて接合した。回転工具の制御は位置固定および荷重固定の 2 通りで実施した。接合条件は、安定する条件の接合速度 250mm/分、回転数 500rpm と固定した。各制御方法で接合した結果を Fig. 3 に示す。位置制御の場合、上側及び下側ショルダの位置は一定であり、接合尾部でバリが発生した。接合部の断面組織においても攪拌部と母材との接合部表面の境界に 1 mm 程度の段差が発生しており、疲労強度の低下が懸念される。一方、荷重制御による接合の場合、バリはほとんど発生せず、上側及び下側ショルダの位置が約 1 mm 上昇したことから両ショルダは供試材表面に追従していると推定される。接合部の断面の組織においても攪拌部と母材との境界に段差はほとんどなかった。これらの結果から、傾斜した材料を接合する場合、Self-reacting tool による FSW 接合の制御として、荷重制御が位置制御より好ましい。

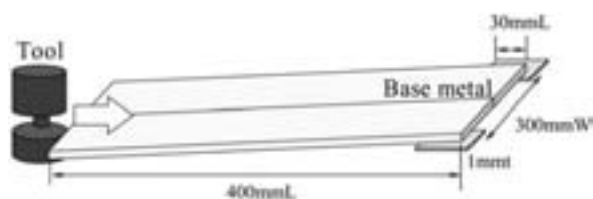


Fig. 2 Schematic view of FSW experiment.

3.2 Self-reacting tool におけるピンチ荷重の影響

Self-reacting tool を用いて接合する場合、接合パラメータとして従来の回転速度および接合速度以外に供試材を挟み込むピンチ荷重が重要であり、荷重固定制御でピンチ荷重が接合部継手に及ぼす影響を調査した。供試材は、傾斜させず、平らな状態で接合した。ピンチ荷重を 5 kN とした場合、ビード表面にき裂が認められた。ピンチ荷重を 9 kN とした場合、バリが多発した。そこで、ピンチ荷重が 6~8 kN の範囲で、内部欠陥の有無を調査し、その結果を Fig. 4 および Fig. 5 に示す。ピンチ荷重 6 kN および 7 kN では接合部に内部欠陥が発生した。一方、8 kN では接合部は健全であった。よってピンチ荷重を 8 kN に設定すると内部欠陥を抑制できることが分かった。これらの結果から、板厚 8 mm における Self-reacting tool による接合は可能であると判断した。

3.3 接合可能範囲

Self-reacting tool は、上下のショルダが材料に接触することから、従来の Fixed tool よりも摩擦熱が多く発生し、接合の向上が期待できる。接合可能範囲を Self-reacting tool と Fixed tool において比較した結果を Fig. 6 に示す。接合可能な最高速度は Self-reacting tool が 400mm/min で Fixed tool が 1000mm/min であり、接合可能範囲は Self-reacting tool が Fixed tool より狭かった。なお、Fixed tool による接合は、ショルダの接触を安定させるため、位置固定制御とした。Self-reacting tool で接合速度を向上させるために、荷重を 10kN に上げた結果、500mm/min で内部欠陥が発生し、接合速度は向上しなかった。

3.4 継手の特性

Fig. 7 に Self-reacting tool を用いた接合部断面のマクロ組織を示す。攪拌部は、微細な再結晶組織である¹⁰⁾。Fig. 8 に接合速度 250mm/min と 400mm/min、回転数 750rpm で接合した継手の引張試験の破断位置とそのマクロ組織を示す。破断位置は、Self-reacting tool と Fixed tool とも攪拌部ではなく、接合中央部から 10mm 離れた熱影響部であった。破断は、Self-reacting tool では表面に対して直角であり、Fixed tool は攪拌部に沿って傾斜した形状であった。Fig. 9 にこれらの継手の断面の硬さ分布を示す。破断位置は、いずれも最軟化部であった。また、熱影響部の範囲は、Self-reacting tool と Fixed tool とも、接合中央部から 20mm であり、同等であった。Table 1 に継手の機械的性質を示す。Self-reacting tool では、Fixed tool より耐力、引張強さが最大 12MPa 高く、伸びも最大 2% 高かった。

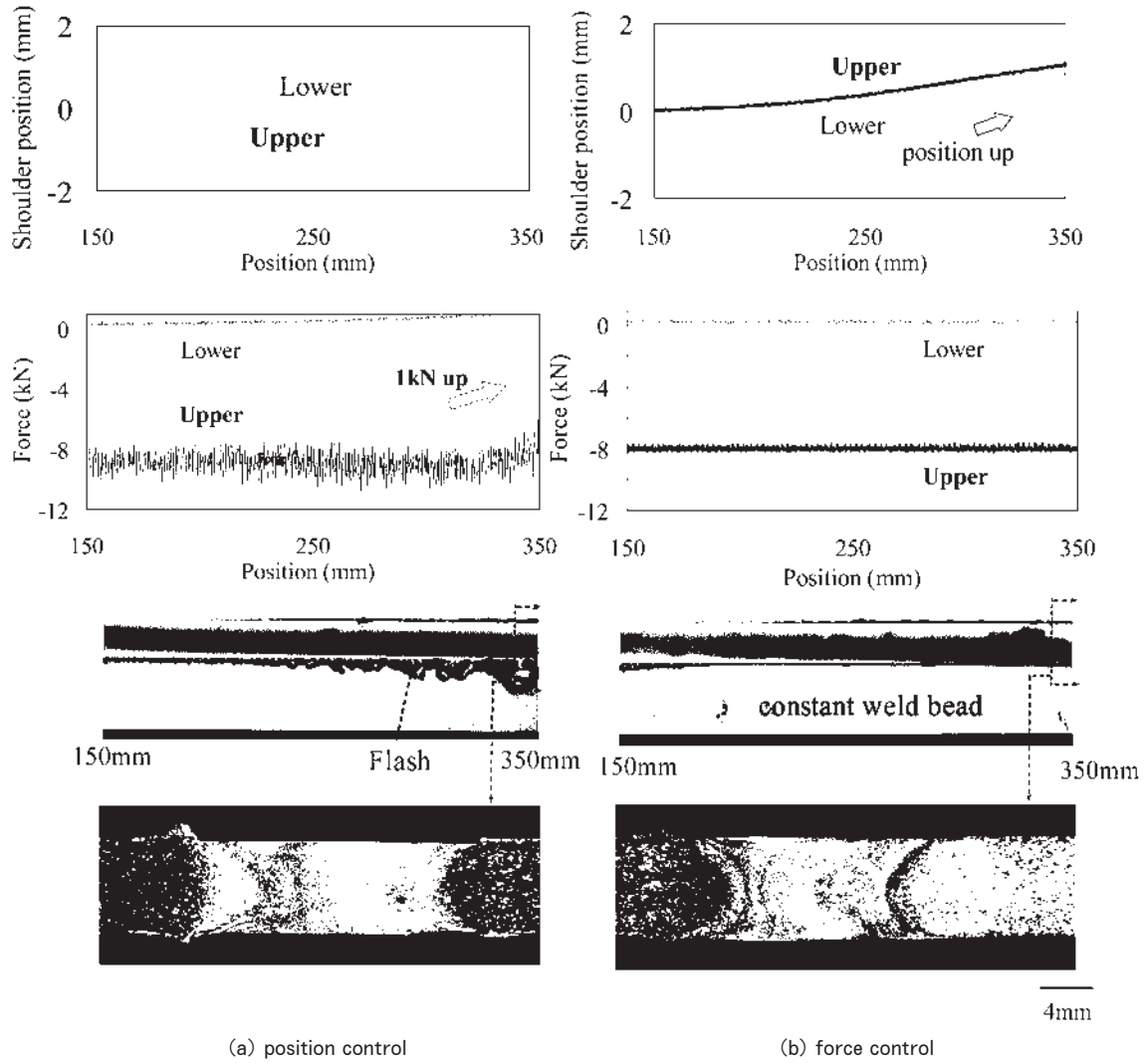


Fig. 3 Effect of control method on weld bead and macrostructure.

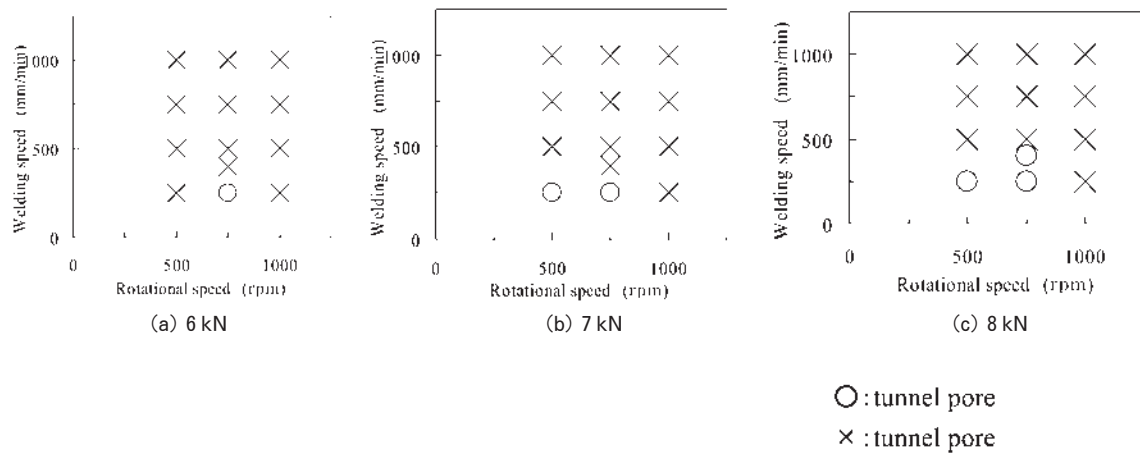


Fig. 4 Effect of pinch force on weld quality.

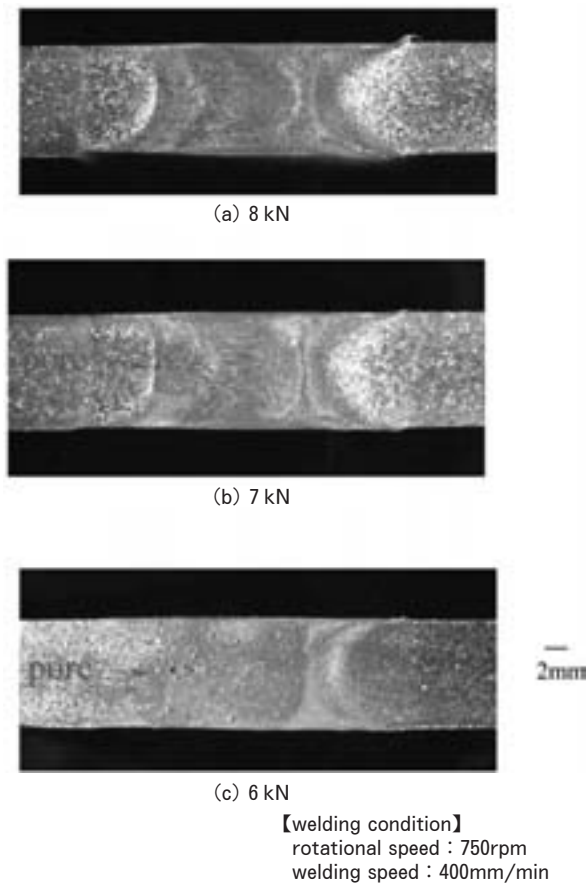


Fig. 5 Macrostructure of welds on each pinch force.

4. 考 察

接合可能な最高速度は、Self-reacting tool では400mm/minであり、Fixed toolでの1000mm/minより遅かった。Self-reacting toolでは材料の上面および下面から均等に攪拌され発熱するため、Fixed toolより接合速度が速くなると推測したが、逆の遅い結果であった。この原因として、Self-reacting toolによる高速度接合での欠陥が内部の板厚中央に認められたことから、材料の上面側の攪拌および下面側の攪拌との交点で攪拌が不十分であったことと推測する。

本実験では位置制御は固定としたが、最適な位置制御方法は、材料表面の高さを読み取った後、材料に追従させる方法であり、ひずんだ材料にも対応できると推定する。荷重制御にすれば、表面の高さを読み取る必要がないため、生産性および設備面から荷重制御が優位である。

引張試験にてSelf-reacting toolおよびFixed toolとも熱影響部で破断したが、引張強さおよび伸びはSelf-reacting toolの方が高かった。引張強さ及び伸びの差異は、破断形態の差と推測する。Fixed toolでの破断は、攪拌形態が材料表面に対して斜角であり、せん断破断が支配的であり、Fixed toolの引張強さが低かったと推測する。Self-reacting toolでの破断は、くびれを伴う延性破断であり、伸びが高かったと推測する。

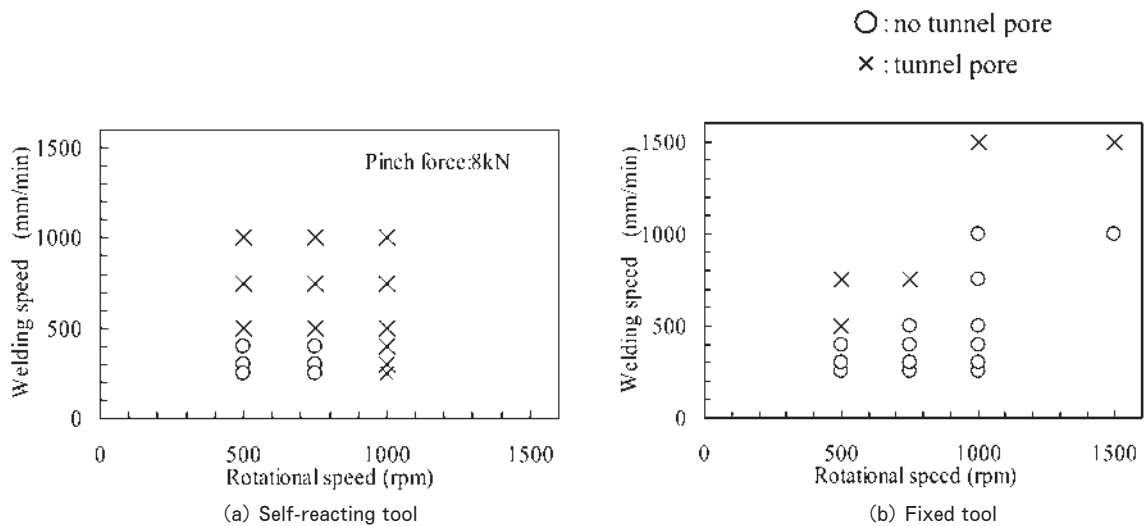


Fig. 6 Effect of self-reacting and fixed tools on weld quality.

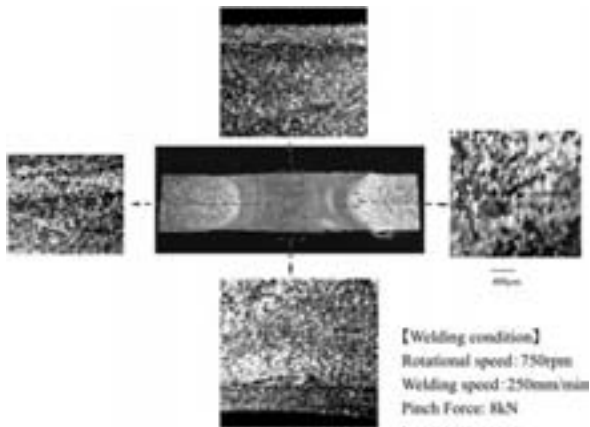


Fig. 7 Macrostructure of welds by the self-reacting tool.

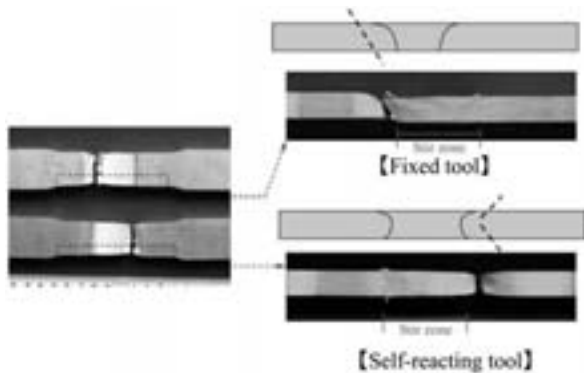


Fig. 8 Fractured area on fixed tool and self-reacting tool.

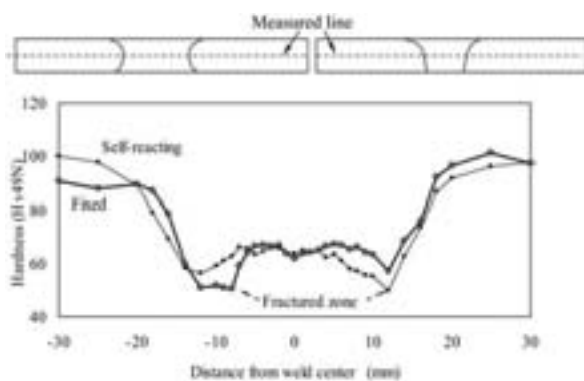


Fig. 9 Hardness profiles of welds by self-reacting tool and fixed tool.

Table 1 Mechanical property on welding condition.

welding speed (mm/min)	tool type	UTS (MPa)	YS (MPa)	EL (%)	fractured zone
250	Self-reacting	214	124	15	HAZ
	Fixed	202	124	13	HAZ
400	Self-reacting	200	124	14	HAZ
	Fixed	192	116	13	HAZ
Base metal		289	269	10	—

5. 結 論

(1) 板厚 8 mm, 6N01-T5 材において, Self-reacting tool での最適制御方法を検討した結果, ひずんだ材料に対して材料の追従性を考慮すると位置固定制御より荷重固定制御が良好であった。

(2) Self-reacting tool でのピンチ荷重が板厚 8 mm, 6N01-T5 材の接合部に及ぼす影響を調査し, 接合速度 400mm/min, ピンチ荷重 8 kN で欠陥がなく, 健全な接合部を得られた。

(3) Self-reacting tool の継手を引張試験した結果, 破断位置は, 接合中央部から 10mm 離れた熱影響部であり, 攪拌部は破断せず健全であった。

参 考 文 献

- 1) Thomas W M, Nicholas E D, Needham J C, Murch M G, Temple-Smith P and Dawes C J : European Patent Specification 0615480B1.
- 2) K. Colligan : Welding Research, **78-7** (1999), 229-237.
- 3) H. Hori, S. Makita, and H. Hino : Proceedings of 1st International Symposium on Friction Stir Welding, Rockwell Science Center, June (1999).
- 4) T. Kawasaki and T. Makino : Proceedings of 2nd International Symposium on Friction Stir Welding, Gothenburg, June (2000).
- 5) D. Otsuka and Y. Sakai : Proceedings of 7th International Symposium on Friction Stir Welding, Awaji island, (2008).
- 6) 後藤智彦, 坂口秀明, 佐藤広明ら : 三菱重工技報 **42** (2005), 234-237.
- 7) M. Skinner, R. L. Edwards : Proceedings of 4th International Symposium on Friction Stir Welding, Utah, May (2003).
- 8) S. Hirano and K. Okamoto : Proceedings of 3rd International Symposium on Friction Stir Welding, Kobe, (2001).
- 9) 社団法人溶接学会 産報出版(株) 摩擦攪拌接合, (2006) 36.
- 10) G. D. Sylva and C. A. Widener : Proceedings of 8th International Symposium on Friction Stir Welding, Timmendorfer Strand, May (2010).

銅合金の押し出し加工におけるビレット表層流れの FEM 解析*

柴 田 聡** 高 橋 昌 也***

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 42-46

FEM Analysis of Billet Surface Flow on Extrusion of Copper Alloy

Satoshi Shibata and Masaya Takahashi

The flow of a billet surface inserted into the profile during the extrusion of a Cu alloy has been investigated by the finite element method under several extrusion conditions. The billet surface material is inserted into the profile in two ways. We have defined the forward flow into the profile surface as Flow type 1, and the flow into the inner parts of the profile as Flow type 2. These lengths of insertion into the profile have been estimated. In the initial billet temperature range of 500-800°C, the higher the temperature, the greater is the insertion length of Flow type 1, and the shorter that of Flow type 2. The insertion length of Flow type 1 increases because the deformation resistance of the billet surface increases when the initial billet temperature is higher than the container temperature. For the extrusion ratios of 11-42, the higher the extrusion ratio, the greater is the insertion length of Flow type 1, and the shorter that of Flow type 2. The insertion length of Flow type 1 decreases because the length between the billet surface and the profile is large when the extrusion ratio is high.

1. 緒 言

銅合金やアルミニウム合金の押し出し加工において、ビレット表層部が押し出し材に流出することがある¹⁾。铸造後のビレットをそのまま押し出しする場合、ビレット表層部には割れやしわ、偏析層等が存在するため、空気や異物が入り込みやすい。押し出し材に抽伸加工を付与する際、そこに入り込んだ空気や異物が原因で割れが発生する。銅合金の押し出しでは、ビレットをコンテナに挿入する前にビレットの表層を削る工程が入ることもあるが、表層部を完全に除去できないこともある。

ビレット表層部の流出を抑制するには、そのメカニズムを明らかにする必要がある。これまでに押し出し実験による調査も行われているが^{2~5)}、実際の押し出し機において工具温度等の条件を整えて実験を行うのは困難であり、有限要素法 (FEM) を利用して表層流れの挙動を明ら

かにする試みを行った。

2. FEM 解析方法と条件設定

押し出し加工の FEM 解析には汎用ソフト DEFORM-2D を用いて行った。ビレット及び工具は実際の押し出し機において用いられる形状を模擬した。Fig. 1 に計算に用いた軸対称モデルを示す。FEM 解析条件は実機に近い条件を想定した (Table 1)。ビレット温度 500°C か

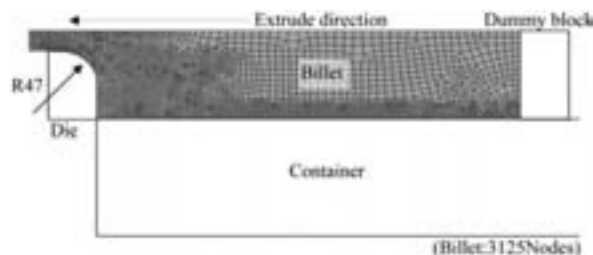


Fig. 1 Extrusion model used for FEM analysis.

* 塑性と加工, 54 (2013), 52 に掲載

** 研究開発センター 第二部

*** 研究開発センター 第三部, 博士 (工学)

ら 800°C の 4 条件, 押し出し比 11 から 42 までの 5 条件で計算を行った。ラム速度は 10mm/s, ビレット長さは 600mm でラムストロークを 500mm とした。押し出しは無潤滑押し出しを行うものとしてビレットと工具間の摩擦は完全固着状態とした。ビレットは銅合金 C2400 の剛塑性体, ダイスやコンテナ, 押盤は一般的な熱間工具鋼の剛体とした。FEM 解析はビレットと各工具間の熱の影響を考慮し, **Table 2** に示した熱伝導に関する物性値をそれぞれ設定した。

ビレットの変形抵抗は実験値を用いた。銅合金 C2400 ビレットから試験片を切り出し, ひずみ速度 0.1, 1, 10/s で圧縮試験を行い材料の変形抵抗を取得した。実験によって得られた銅合金 C2400 の変形抵抗を **Fig. 2** に示す。

ビレットの表層流れを評価するために DEFORM のフローネット機能を用いて表層の可視化を行った。巻き込みとして問題となるのはビレット表層部の約 2mm 未満であるが, 表層部 2mm の流れを再現するには, 要素数を非常に多くする必要があり, FEM 解析を行うのは容易ではない。そこで, **Fig. 3 (a)** のようにビレット表面から 10mm 部分をビレット表層部として, 押し出しの進行に伴うビレット表層流れを可視化した。ビレット表層を 10mm としている為, 本稿における巻き込み長さの絶対値は正確なものではないが, 10mm 部分が

ビレット直径に対して表層に比較的近い部分であり, 傾向に相違は無い。ビレット表層流れは **Fig. 3 (b)** に示

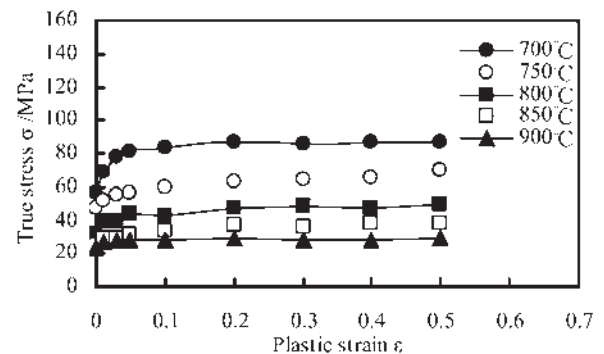
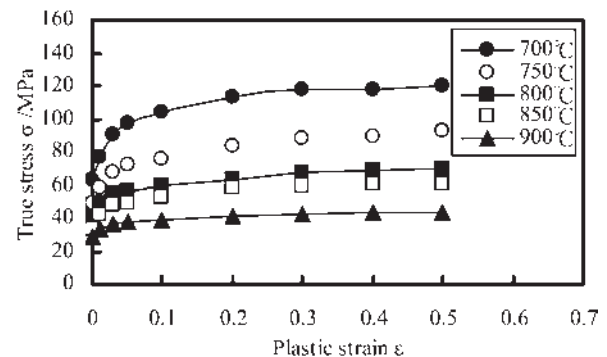
(a) Strain rate 0.1 s^{-1} (b) Strain rate 1 s^{-1}

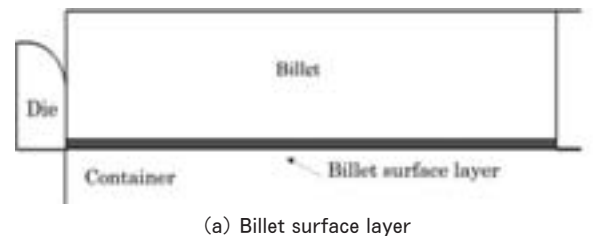
Fig. 2 Flow stress of C2400.

Table 1 Extrusion condition for FEM analysis.

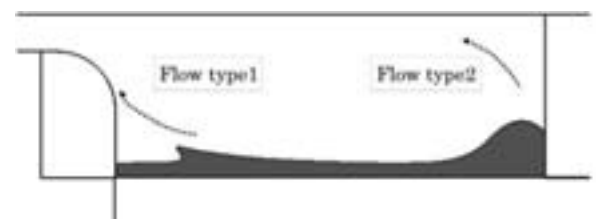
FEM solver	DEFORM- 2D
Number of nodes	3125
Number of elements	2986
Billet diameter, mm	260
Billet length, mm	600
Billet temperature, °C	500, 600, 700, 800
Extrusion ratio	11, 14, 19, 27, 42
Ram speed, mm/s	10
Dummy block temperature, °C	500
Container temperature, °C	500
Friction condition	Fully sticking
Number of steps	500
Step interval, mm	1

Table 2 Material properties for FEM analysis.

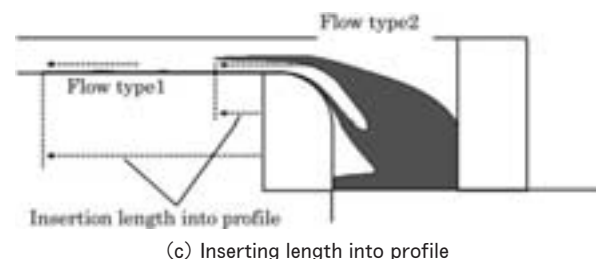
Materials	C2400	Steel
Heat capacity, J/(K · mm ³)	3.3	5.5
Thermal conductivity, W/(K · m)	138	33
Heat transfer coefficient, kW/(K · m ²)	100	



(a) Billet surface layer



(b) Flow type



(c) Inserting length into profile

Fig. 3 Flow of billet surface layer in extrusion.

すようにビレットの前方からダイス孔へ向かう流れとビレット後方から押盤に沿ってビレット内部に向かう流れに分かれる。この二種類の流れを前方巻き込み (Flow type 1) と後方巻き込み (Flow type 2) と定義し、押し出し条件ごとにそれぞれの巻き込み長さを測定した。巻き込み長さは Fig. 3 (c) に示すようにラムストローク 500mm まで押し出した時の押し出し材に流入したビレット表層の長手方向の長さとした。

3. FEM 解析結果および考察

3.1 ビレット表層流れに及ぼすビレット温度の影響

押し出し比が 19 の場合のビレット温度 500°C から 800°C における押し出し時の温度分布を Fig. 4 に示す。工具温度が 500°C であるため、ビレット温度 800°C ではビレット表層の温度が大きく低下し、ビレット温度 500°C の場合では表層の温度はほとんど変化していない。

次にひずみ速度分布を Fig. 5 に示す。比較のため、0.1/s 以上のひずみ速度を持つ領域をせん断変形領域と

する。Fig. 5 (a) に示すようにビレット温度 500°C の場合はせん断変形領域がビレット表面付近にあるが、Fig. 5 (d) に示すようにビレット温度 800°C の場合ではせん断領域がビレット内部に位置している。これはビレット温度とコンテナ温度の差が大きい場合、コンテナ壁面付近のビレット温度がコンテナへの抜熱により低下し、変形抵抗が増加することにより、コンテナ壁面付近の材料がビレット内部の材料よりも変形しにくくなるためである。

Fig. 6 にビレット温度 500°C から 800°C での前方と後方の巻き込み長さの関係を示す。前方巻き込みはビレット温度 500°C と 600°C で発生し、700°C と 800°C では発生しなかった。一方、後方巻き込みはビレット温度が高いほど巻き込み長さが大きいことがわかる。初期のビレット温度がコンテナ温度と同じ程度である場合、ビレット表層の温度が低下せず、せん断変形領域がビレット表層に位置することで前方巻き込みが発生しやすくなると考えられる。また、初期のビレット温度がコンテナ温度よ

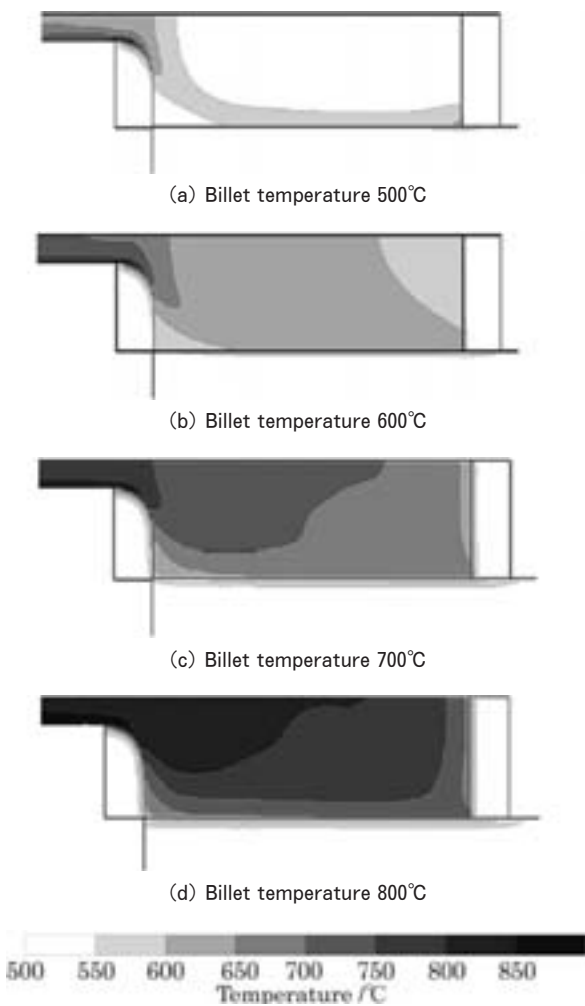


Fig. 4 Temperature distribution calculated by FEM in case of ram speed 10mm/s (Ram displacement 100mm).

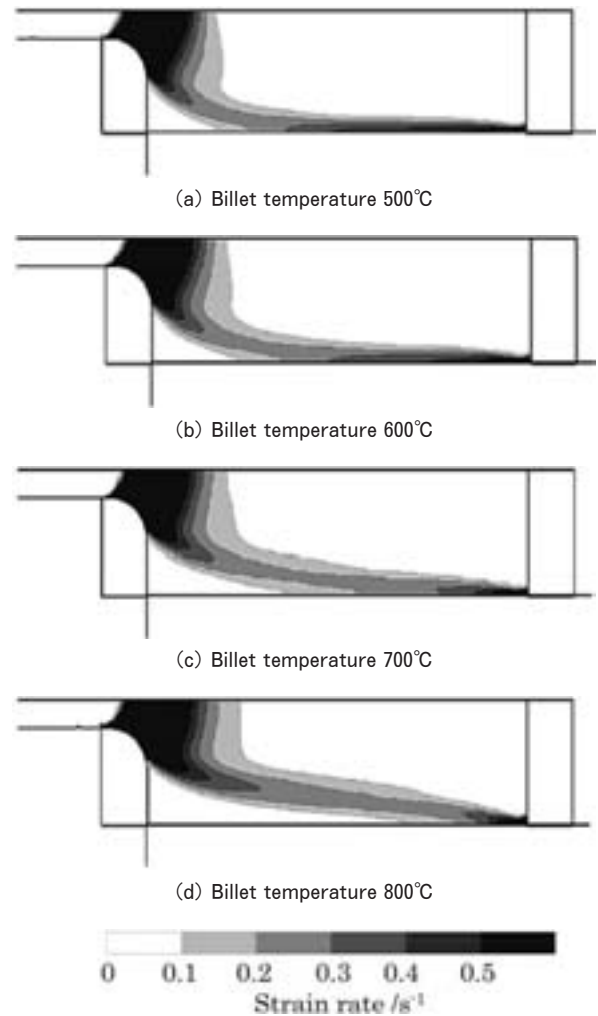


Fig. 5 Strain rate distribution calculated by FEM in case of ram speed 10mm/s (Ram displacement 100mm).

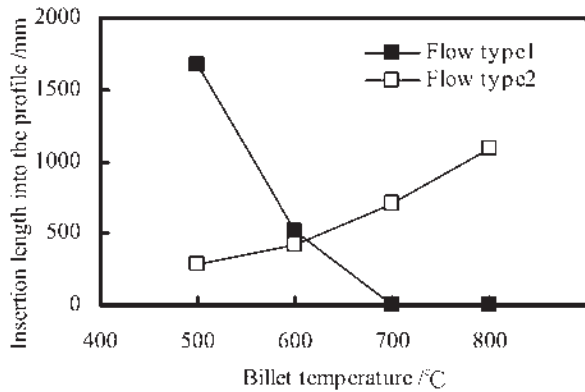


Fig. 6 Insertion length into the profile.

り高い場合、ビレット表層の温度が低下し、せん断変形領域がビレット内部に位置することで後方巻き込みが発生しやすくなると考えられる。

3.2 ビレット表層流れに及ぼす押し出し比の影響

各種の押し出し比において、ラムストローク 100mm における温度分布を Fig. 7 に示す。押し出し比の増加に伴いビレット内部の温度はやや減少しているが、これは押し出し比が高いほど、押し出し工具による抜熱のため温度低下したビレット表層部がビレット内部に巻き込むためである。また、押し出し比が高いほど、ダイス出側の押し出し材温度が上昇しているが、ビレット内部の温度分布に影響は見られない。押し出し材からビレット内部への熱の移動速度よりも材料の移動速度の方が速いためと思われる。したがって、押し出し比がビレットの温度分布に及ぼす影響は少ないと考えられる。

次に、各種の押し出し比において、ラムストローク 300mm におけるひずみ速度分布と、Fig. 3 で定義した表層 10mm 位置を合わせて示した図を Fig. 8 に示す。押し出し比が異なっても、ビレット内部のひずみ速度分布の形態は概ね同じであるが、押し出し比が小さい方がビレット内部せん断領域のひずみ速度の値が大きくなっている。押し出し比が小さいほどダイス孔とビレット表層部の距離が短くなるため、ビレット表層からの流れが強まり、前方巻き込みが増加する。また、ビレット表層部の体積は一定であり、前方巻き込みが増加すれば後方巻き込みは減少する。一方、押し出し比が高いほど、ダイス孔とビレット表層部の距離が長くなるため、ビレット表層からの流れが弱まり、前方巻き込みが減少、その体積に応じて後方巻き込みが増加している。

ビレット温度が 600°C の場合の押し出し比と前方・後方巻き込み長さとの対応を Fig. 9 に示す。前方巻き込みは押し出し比が増加するごとに減少している。一方、後方巻き込み長さは押し出し比が増加するごとに増加しており、前方巻き込みとは相反する傾向があった。

以上の結果より、押し出し条件が前方及び後方巻き込みに及ぼす影響が明らかになった。巻き込み長さの計算は

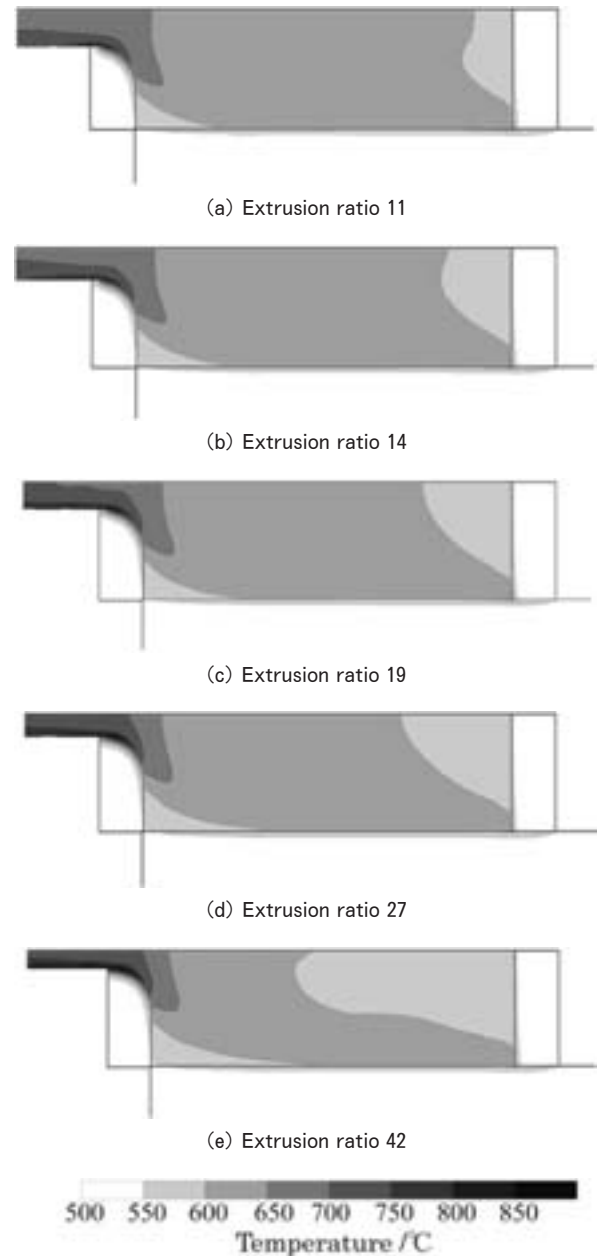


Fig. 7 Temperature distribution calculated by FEM in case of ram speed 10mm/s (Ram displacement 100mm).

ビレット表層 10mm の値であり、実際のビレット表層の厚さはさらに薄く、巻き込み長さは全体的に短くなると思われる。今回得られた結果より、実際の押し出しにおけるビレット表層の巻き込みは適切な押し出し条件を選ぶことによって抑制できると考えられる。

4. 結 言

(1) ビレットと工具の温度差が大きいほどビレット表層の温度が下がり、変形抵抗が増加する。その結果、せん断変形領域がビレット内部に位置し、後方巻き込みが発生しやすくなる。ビレットと工具の温度差が小さいと

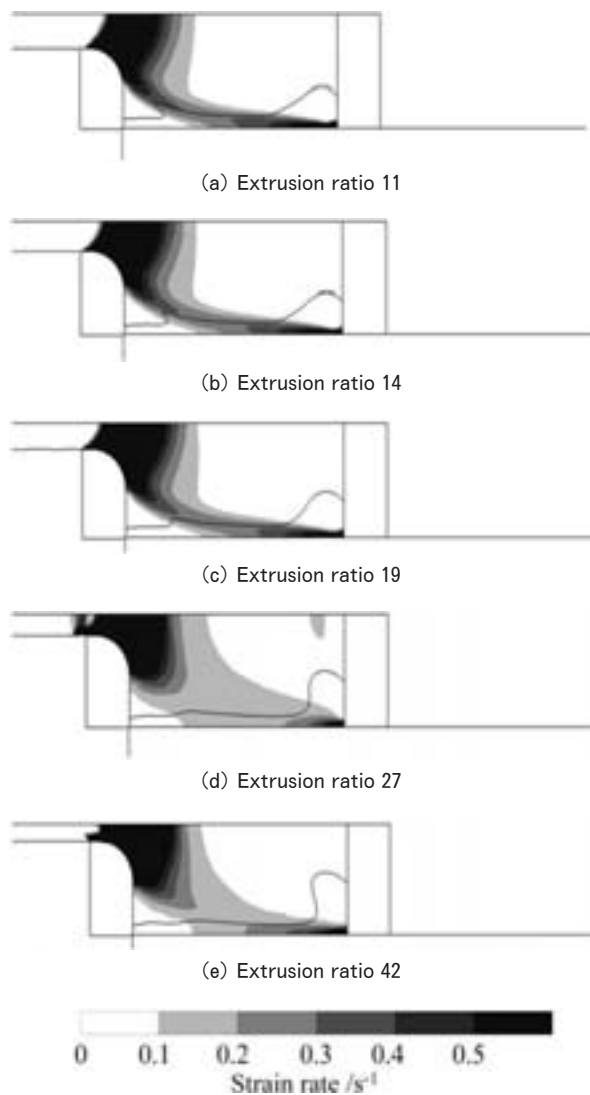


Fig. 8 Strain rate distribution calculated by FEM in case of ram speed 10mm/s (Ram displacement 300mm).

せん断変形領域はピレット表面付近に位置し、前方巻き込みが発生しやすくなる。

(2) 押し出し比が低いほど、ダイス孔とピレット表層部の距離が短くなり、デッドメタル付近のせん断領域とピレット表層部が交わる部分のひずみ速度が高くなり、前方巻き込みが増加、後方巻き込みは減少する。押し出し比が高いほど、ダイス孔とピレット表層部の距離が長くなり、デッドメタル付近のせん断領域とピレット表層部が交わる部分のひずみ速度が低くなり、前方巻き込みが減少し、後方巻き込みは増加する。

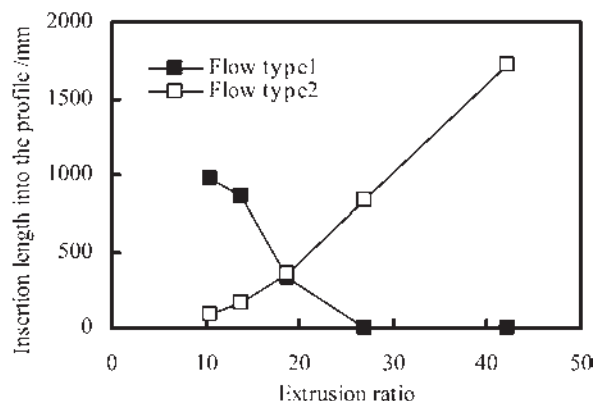


Fig. 9 Insertion length into the profile.

参考文献

- 1) P. Saha : *Aluminium Extrusion Technology*, ASM International, (2000), 195.
- 2) B. Dixon : *Aluminium International Today*, 16-2 (2004), 44.
- 3) 沖 善成, 吉田善博, 土合一夫, 山下友一 : *軽金属*, 40 (1990), 495.
- 4) 高辻則夫, 時澤 貢, 室谷和雄, 松木賢司, 村田伸一 : *塑性と加工*, 28 (1987), 818.
- 5) 鳥飼 岳, 高橋昌也 : 平成 19 年度塑性加工連合講演会講演論文集, (2007), 159.

スマートシートとスマートコアパネルの曲げ剛性*

高橋 昌也** 松田 公一**
橋本 一真***

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 47-50

Bending Stiffness of the SMART SHEET and the SMART CORE Panel

Masaya Takahashi, Koichi Matsuda and Kazuma Hashimoto

Honeycomb sandwich panels are used as lightweight panels when a high bending stiffness is required, such as in aircraft, train and architectural materials. Aluminum honeycomb cores have been used as the core materials of sandwich panels, however, there is a problem that the manufacturing cost of sandwich panels using aluminum honeycomb cores is very high. We have developed the SMART SHEET[®] which has a large second moment of area in arbitrary cross-sectional dimensions in order to increase the bending stiffness in all directions. The SMART CORE[®] panel, which uses the SMART SHEET as the core material instead of the honeycomb core, can be used as an alternative sandwich panel. In this study, the bending stiffness of the SMART SHEET, the SMART CORE panel and the honeycomb panel have been investigated using the three point bending test. The results showed that the bending stiffness of the SMART SHEET and the SMART CORE panel are higher than that of the honeycomb panel.

1. 緒 言

省資源、省エネルギーという観点から、軽量化を考慮して各種機器を設計する必要がある。また、自動車や鉄道、航空機等の輸送機器の場合、運動性能の向上という目的を達成する為にも軽量化が不可欠である。構造物の軽量化に寄与する高剛性パネルとしては、ハニカムパネルが数十年前から実用化されている。鉄道や航空機にはハニカムパネルが適用されているが、安価に大量生産される自動車に適用された事例は少ない。ハニカムコアの作製や、ハニカムコアと面板との接着といった製造工程を完全に自動化するには至っておらず、ハニカムパネルの製造コストが高いことが普及の妨げの一つの要因となっている。これまでにハニカムパネルの代替となるサンドイッチパネルの研究がなされており^{1,2)}、加工コストの低いプレス成形で板材に凹凸形状を付与したコア材が適用されている。筆者らも板材の面外曲げ剛性を面内等方的に高めるシェル構造の補剛模様を創成し^{3,4,5)}、その

凹凸形状を板材にプレス成形で付与した高剛性アルミニウム合金板スマートシート[®]を開発している。スマートシートは、単体での使用を想定して開発したが、スマートシートをサンドイッチパネルのコア材として適用すれば、面内等方的な面外曲げ剛性を有するサンドイッチパネルが作製できると予想される。本研究では、スマートシートをサンドイッチパネルのコア材として適用したスマートコア[®]パネルの曲げ特性について評価する。

2. スマートシート

スマートシートとは板材に特殊な凹凸形状を付与し、元の平板と比較して面外曲げ剛性を向上させたものである。スマートシートの形状は数十種類を開発しているが、本研究では開発した形状の中でも面外曲げ剛性が高いH形状³⁾を用いる (Fig. 1)。H形状の基本形状の凸部を黒、凹部を白として模式的に示したのが Fig. 2、立体図を示したのが Fig. 3 である。Fig. 2 に示すように、スマートシートのH形状はZ軸回りの任意断面が、高い断面二次モーメントとなる形状である。

* 日本機械学会論文集 A 編, 79-798 (2013), 209 に掲載

** 研究開発センター 第三部, 博士 (工学)

*** 研究開発センター 第三部

本研究では凹凸高さ $h = 3 \text{ mm}$ と 6 mm の二種類のスマートシートを用いるが、 $h = 3 \text{ mm}$ のスマートシートは Fig. 2 において $A = 4 \text{ mm}$ 、Fig. 3 において $L = 48 \text{ mm}$ であり、 $h = 6 \text{ mm}$ のスマートシートは Fig. 2 において $A = 8 \text{ mm}$ 、Fig. 3 において $L = 96 \text{ mm}$ である。側壁の斜度は共に $\theta = 30^\circ$ である。

3. 実験条件

スマートシートをサンドイッチパネルのコア材としたスマートコアパネルの曲げ剛性に加えて、ハニカムパネ



Fig. 1 The SMART SHEET (H-shape).

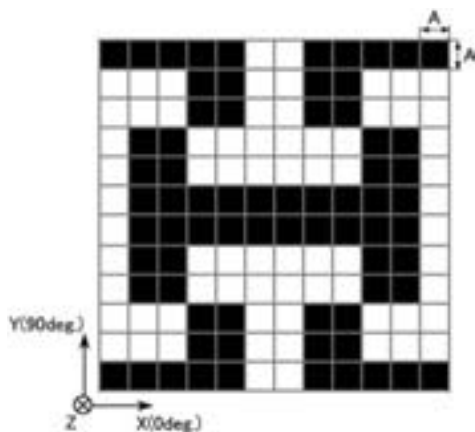


Fig. 2 Basic shape of the SMART SHEET.

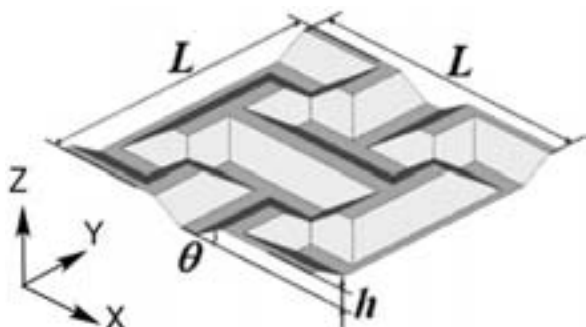


Fig. 3 3D diagram of the SMART SHEET.

ルとスマートシート単体の曲げ剛性も比較として評価する。スマートコアパネルとハニカムパネルの仕様を Table 1 に示す。厚さ 7.2 mm のスマートコアパネルは、A1050-Oの 0.3 mm 平板をプレス成形して 6 mm の凹凸高さのスマートシートを作製し、その上下面にシリコン系弾性接着剤を塗布し、A3004-H32の 0.6 mm 平板を面板として貼り付けた。

比較として作製した厚さ 7.2 mm のハニカムパネルは、面板はスマートコアパネルと同様に A3004-H32の 0.6 mm 平板とし、ハニカムコアのセルサイズは 12.7 mm であり、コア材は厚さ $76 \mu\text{m}$ の A3003-H19 アルミニウム箔を用いた。通常の製法に従って面板にシリコン系接着剤を塗布した。

縦横 100 mm 角のサンプルの質量は、スマートコアパネルが 43 g 、ハニカムパネルが 44 g であった。 1 m^2 あたりの質量に換算すると、それぞれ 4.3 kg 、 4.4 kg となる。ハニカムパネルでは接着剤を面板全面に塗布する必要があるが、スマートコアパネルでは、コア材の頂面だけに接着剤を塗布できるため、接着剤の使用量を減らすことが可能である。

スマートコアパネルは、 0.6 mm の面板 2 枚と 0.3 mm のコア材 1 枚からなり、合計の板厚は 1.5 mm となる。そこで Table 2 に示すように、厚さ 1.5 mm の A1050-O 平板を張出し成形して凹凸高さ 3 mm および 6 mm の

Table 1 Specification of the SMART CORE and honeycomb panel.

	SMART CORE	Honeycomb
Face sheet material	A3004-H32	A3004-H32
Face sheet thickness (mm)	0.6	0.6
Core material	A1050-O	A3003-H19
Core thickness (mm)	0.3	0.0076
Basic shape size of smart sheet L (mm)	48	—
Cell size of honeycomb core (mm)	—	12.7(1/2 inch)
Core height h (mm)	6.0	6.0
Panel height (mm)	7.2	7.2
Mass (kg/m^2)	4.3	4.4

Table 2 Specification of the SMART SHEET.

	SMART SHEET ($h = 3$)	SMART SHEET ($h = 6$)
Material	A1050-O	A1050-O
Thickness (mm)	1.5	1.5
Boss height h (mm)	3	6
Basic shape size L (mm)	48	96
Mass (kg/m^2)	4.1	4.1

スマートシートを作製し、スマートコアパネルとの曲げ剛性の差を比較することにした。厚さ 1.5mm の平板から作製したスマートシートの 1m^2 あたりの質量は 4.1kg である。接着剤を使用していないため、スマートコアパネルやハニカムパネルよりも軽くなっている。なお、三点曲げ試験により得られた荷重-変位線図において、立ち上がりの傾きを曲げ剛性と定義する。本稿では、荷重が 50N から 100N に増加した時の変位の増加量が d となる場合の曲げ剛性を $S=(100-50)/d$ とする。

ハニカムパネルのコア材は、厚さ $76\mu\text{m}$ の A3003-H19 アルミニウム箔の波板を Fig. 4 のように貼り合わせて作製する。貼り合わせ部分の厚みは 2 倍の $152\mu\text{m}$ となるため、ハニカムコアの曲げ剛性に異方性が生じる可能性がある。そこで、Fig. 5 に示すように、貼り合せ面と水平方向 (0° 方向) と直角方向 (90° 方向) の二方向の 3 点曲げ試験を行う。100mm 角の試験片を用いて支持スパン 90mm の 3 点曲げ試験を実施した。各支点の半径は 5mm、荷重点変位速度は $10\text{mm}/\text{min}$ である。

スマートシート、スマートコアパネルも同様の条件で 3 点曲げ試験を実施した。スマートシートは Fig. 2 に示すように H 形状のリブの方向を 0° 方向と定義する。ス

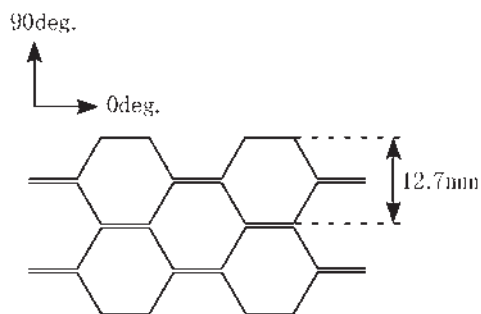


Fig. 4 Honeycomb core.

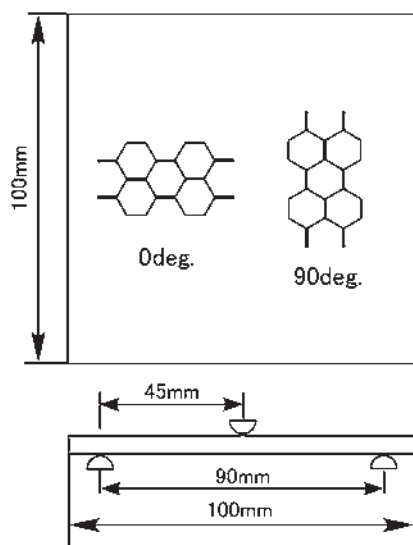


Fig. 5 Three point bending test of honeycomb panel.

スマートシートは、 0° 方向と 90° 方向が同一形状となるため、 0° 方向と 45° 方向の 2 種類で 3 点曲げ試験を実施した。Fig. 6 に深さ 3mm の H 形状スマートシートの 45° 方向の 3 点曲げ試験状況を示す。スマートコアパネルについても、コア材のスマートシートが 0° 方向と 45° 方向になるようにして 3 点曲げ試験を実施した。

4. 実験結果および考察

ハニカムパネル、スマートコアパネル、スマートシートの 3 点曲げ試験で得られた荷重-変位線図を Fig. 7 に示す。荷重が 50N から 100N に上昇する際の変位量から求めた各パネルの曲げ剛性の比較を Fig. 8 に示す。ハニカムパネルの曲げ剛性を基準とすると、スマートコアパネルの曲げ剛性は約 6.6 倍、凹凸高さ 3mm のスマートシートの曲げ剛性は約 1.8 倍、凹凸高さ 6mm のスマートシートの曲げ剛性は約 3 倍となる。

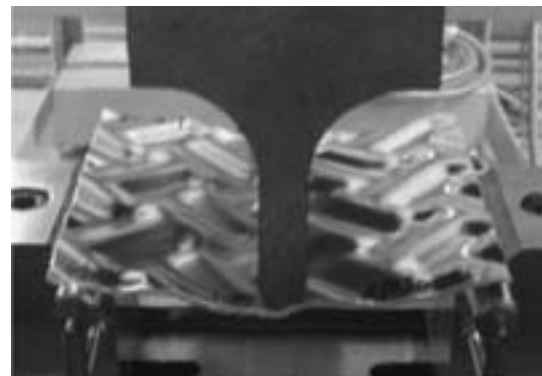


Fig. 6 Situation of three point bending test of the SMART SHEET (45°).

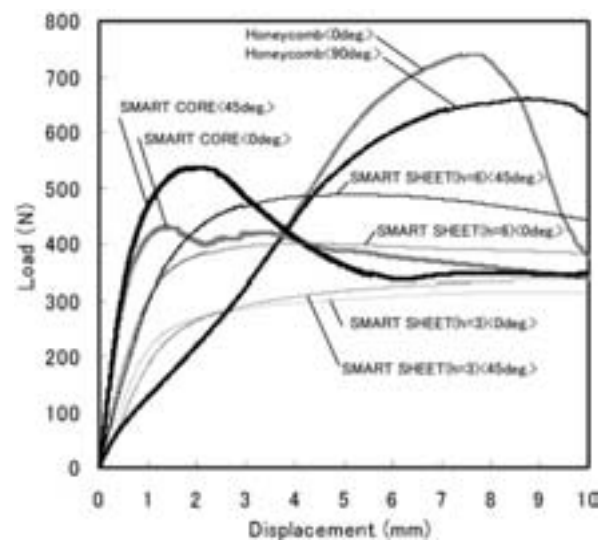


Fig. 7 Load-Displacement diagrams of three point bending tests (support span 90mm, specimen width 100mm)

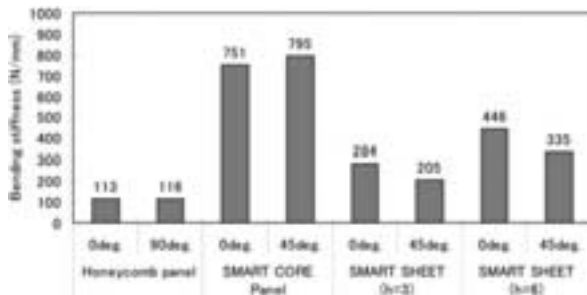


Fig. 8 Comparison of bending stiffness.

スマートコアパネルもハニカムパネルも面板は同じ板厚であり、断面二次モーメントには大差がないが、スマートコアパネルの場合、コア材であるスマートシートがハニカムコアよりも高い曲げ剛性を有していることに加え、スマートシートの方がハニカムコアよりも面板との接着面積が広い。その結果、スマートコアパネルの方がハニカムパネルよりもせん断剛性が高く、3点曲げ試験で得られた荷重-変位線図における弾性変形範囲内の立ち上がりの傾きに差が出たと考えられる。

3点曲げ試験の支持スパンを長くすれば、せん断剛性の影響が少なくなるため、スマートコアパネルとハニカムパネルの曲げ剛性の差は縮小すると考える。ハニカムコアのセルサイズを小さくすれば、ハニカムパネルの曲げ剛性をさらに高めることも可能である。

また、スマートシート単体の方が、ハニカムパネルよりも曲げ剛性が高いことから、パネルの厚みや支持スパンの条件によっては、製造コストの高いハニカムパネルを使わなくとも、厚肉のスマートシート単体で設計要件を満足できる可能性がある。

ハニカムコアは Fig. 4 に示すように異方性がある。Fig. 7 の3点曲げ試験の結果をみると、0°方向と90°方向で最大荷重には差があるが、曲げ剛性は同等であった。

また Fig. 8 において、凹凸高さ 6 mm のスマートシートは 0°方向の曲げ剛性が 45°方向の 1.33 倍であり、凹凸高さ 3 mm のスマートシートは 1.38 倍であった。この結果は、一般的な波板と比較すると等方的な面外曲げ剛性を有していると言える。つぎに、各パネルの最大荷重の比較を Fig. 9 に示す。スマートコアパネルもハニカムパネルも同じ板厚の面板を用いているが、最大荷重についてはスマートコアパネルよりもハニカムパネルの

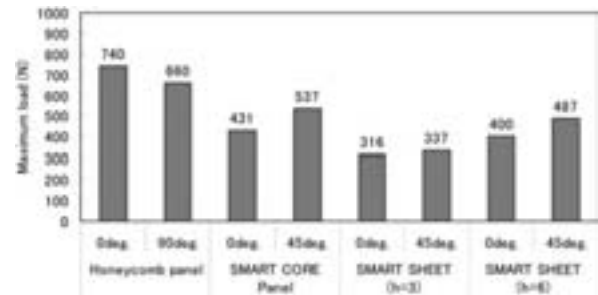


Fig. 9 Comparison of maximum load.

方が高い。ハニカムパネルの 90°方向の最大荷重を基準とすると、スマートコアパネルの最大荷重は約 0.7 倍、凹凸高さ 3 mm のスマートシートの最大荷重は約 0.6 倍、凹凸高さ 6 mm のスマートシートの最大荷重は約 0.5 倍となった。

5. 結 言

等価質量のスマートコアパネルとハニカムパネルとスマートシートの3点曲げ試験を実施したところ以下の結果を得た。

(1) ハニカムパネルの曲げ剛性を基準とすると、スマートコアパネルの曲げ剛性は約 6.6 倍、凹凸高さ 3 mm のスマートシートの曲げ剛性は約 1.8 倍、凹凸高さ 6 mm のスマートシートの曲げ剛性は約 3 倍となった。

(2) ハニカムパネルの最大荷重を基準とすると、スマートコアパネルの最大荷重は約 0.7 倍、凹凸高さ 3 mm のスマートシートの最大荷重は約 0.6 倍、凹凸高さ 6 mm のスマートシートの最大荷重は約 0.5 倍となった。

参 考 文 献

- 1) 酒巻正守, 三浦公亮, 小野緑: 東京大学宇宙航空研究所報告, 16-1 (1980), 639.
- 2) 齊藤一哉, 野島武敏, 森村浩明, 萩原一郎: 日本機械学会論文集 A 編, 75-750 (2009), 259.
- 3) 高橋昌也: 日本機械学会第 20 回設計工学・システム部門講演会講演論文集, 10-27 (2010), 102.
- 4) 高橋昌也: 日本機械学会論文集 A 編, 77-781 (2011), 1410.
- 5) 高橋昌也: 日本機械学会第 21 回設計工学・システム部門講演会講演論文集, 11-23 (2011), 55.

循環給湯用銅管に発生する潰食とその対策*

河野浩三** 鈴木 忍**

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 51-56

Erosion Corrosion and its Prevention of Copper Tube in Hot-Water Circulating System

Kozo Kawano and Shinobu Suzuki

The erosion corrosion of a copper tube in a hot-water circulation system was reproduced by a laboratory test under the condition in which the concentration of dissolved air in the hot water was higher than that in the supplied tap water. The maximum corrosion depth did not depend on the internal pressure in the pipe line in which the pressure was changed from a positive 0.3MPa to a negative -0.04MPa. Based on the observation of the flow pattern in the model plumbing system, no cavitations were seen downstream of the joint at which the erosion corrosion was often generated. When the concentration of dissolved air in the hot water was reduced by using an open-type air separator, the erosion corrosion was completely inhibited. It was therefore assumed that the erosion corrosion of the copper tube in the system was mainly caused by the high concentration of dissolved air. Based on these results, installation of an open-type air separator in the hot-water circulation system was found to effectively prevent the generation and propagation of the erosion corrosion of the copper tubes.

1. 緒 言

循環給湯用配管にはりん脱酸銅管 (JIS H3300 C1220, 以後、銅管と称する) が多く使用されているが、その発生が無視できない腐食現象として潰食が経験される。潰食に関しては古くより研究がなされ^{1~3)}、その多くが発生条件を流速と温度に求め、流速に関しては1.5m/sを臨界値として示す報告も見られる⁴⁾。しかしながら、潰食が発生した実環境においては、バルブの調整により流速を下げる運用が実施されてはいるものの、潰食の発生と進行が抑制できないことが多い。一方、著者らは、潰食による漏水事故は密閉型給湯システムの方が開放型給湯システムよりも圧倒的に多く発生し、前者においては、溶存空気の指標である溶存酸素濃度が、給湯水中の方が給水中より高くなることを明らかにした⁵⁾。このことから潰食は流速よりも給湯水中に溶解している溶存空気が影響していると考え、給湯水の使用により給湯配管内の圧力が変化し、溶存空気が気泡化して潰食を発生させる

ものと推定した⁵⁾。また、発生する気泡はミクロンサイズの微細な気泡であり、それらが水流の影響により、潰食発生箇所において乱れた流動状態を示すことで継続的に保護皮膜を破壊し、銅を浸食するとの検討結果も示した⁶⁾。しかしながら、潰食発生要因については、継手部における局部沸騰と発生した水蒸気による気泡の消滅 (キャビテーション現象) により進行するとの考えもあり⁷⁾、統一的な認識には至っていない。

そこで、実環境を模擬した通湯試験装置を用いて潰食を再現し、その後、潰食発生に対する溶存空気の影響を実験装置の配管内圧力を変化させて確認した。また、試験管の全てを透明化して管内の流動状態を確認することで、潰食発生条件におけるキャビテーション現象発生有無を調査した。あわせて、これらの検討結果から得られた対策技術についてフィールド試験により検証した。

2. 実験方法

2.1 通湯試験

Fig. 1 に通湯試験装置の系統図を示す。通湯試験装置は、0.4m³の受水槽、0.5m³の蒸気加熱式密閉型貯湯槽、

* 日本銅学会誌「銅と銅合金」第52巻 (2013, Vol.52) に主要部を投稿中。

** 研究開発センター 第四部

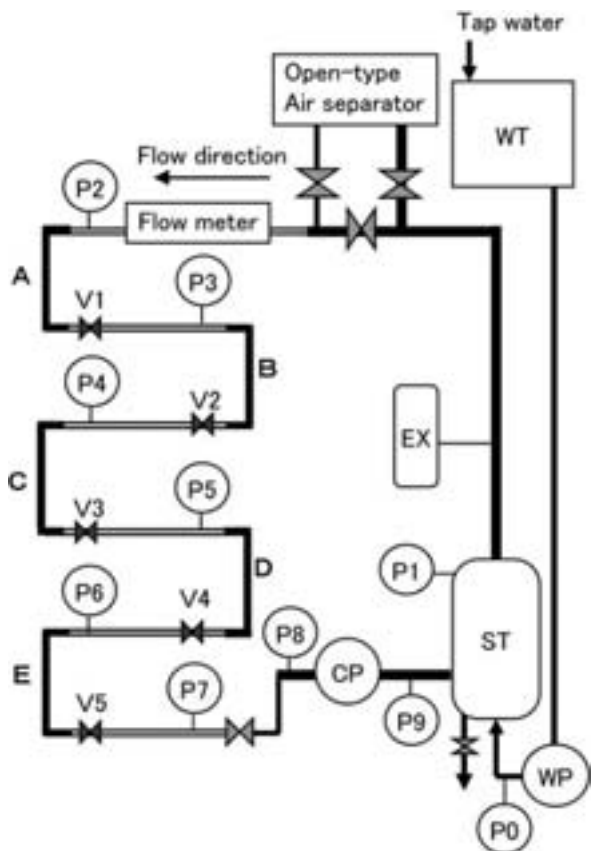


Fig. 1 Schematic diagram of model plumbing systems for hot water circulation.

P0~P9: pressure gauge, V1~5: valve, ST: storage tank, WT: water tank, EX: expansion tank, CP: circulation pump, WP: water pump, A~E: test tubes

膨張タンク、給水ポンプ、給水管、循環ポンプ（220V、容量 0.22m³/min、全揚程 43.5m）および試験管から構成されている。試験管は外径 22.22mm、肉厚 0.81mm の銅管（硬質材）であり、それをエルボ継手を用いてロウ付け接合し、Fig. 1 のように配管した。そして、各箇所に取り付けたバルブにより、配管内の圧力を正圧（0.3MPa）から負圧（-0.04MPa）に段階的に調整して通湯した。Fig. 2 に試験期間中の配管各箇所での圧力の一例を示すが、試験中にこの値が大きく変化することはない。Table 1 に試験水として使用した名古屋市水道水の水質分析結果の一例を示す。

試験は蒸気ヒーターで加温した試験水を循環ポンプによって循環通湯させ、管内流速は流量計直前のバルブの調節により 3 m/s とした。試験水の温度は蒸気ヒーターにて加熱された試験水の排水と、それと同時に給水ポンプより給水される補給水によって 333±3K にて制御した。そして、溶存空気の影響に関しては、溶存空気の低減に有効とされる開放式脱気装置（ナルミ技研製、DS-84L、以後、脱気装置と称する）を流量計直前にバイパス配管で接続して調査した。Fig. 3 に脱気装置の概略

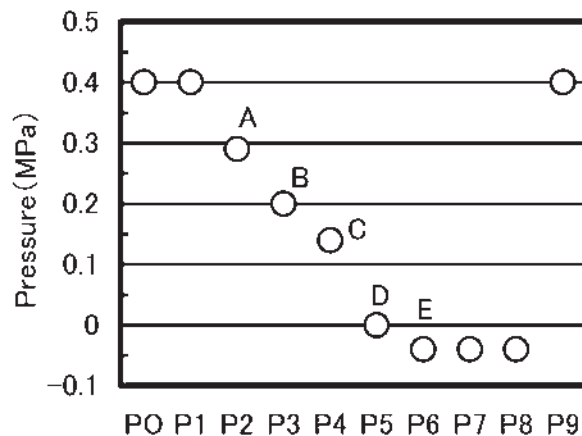


Fig. 2 Pressure at the individual points from P0 to P9.

Table 1 Typical analysis data of test water.

pH	6.8
Conductivity (mS/m)	8.1
Total hardness (mgCaCO ₃ /L)	20.0
Ca hardness (mgCaCO ₃ /L)	16.1
M alkalinity (mgCaCO ₃ /L)	17.3
SO ₄ ²⁻ (mg/L)	8.0
Cl ⁻ (mg/L)	7.0
SiO ₂ (mg/L)	9.8

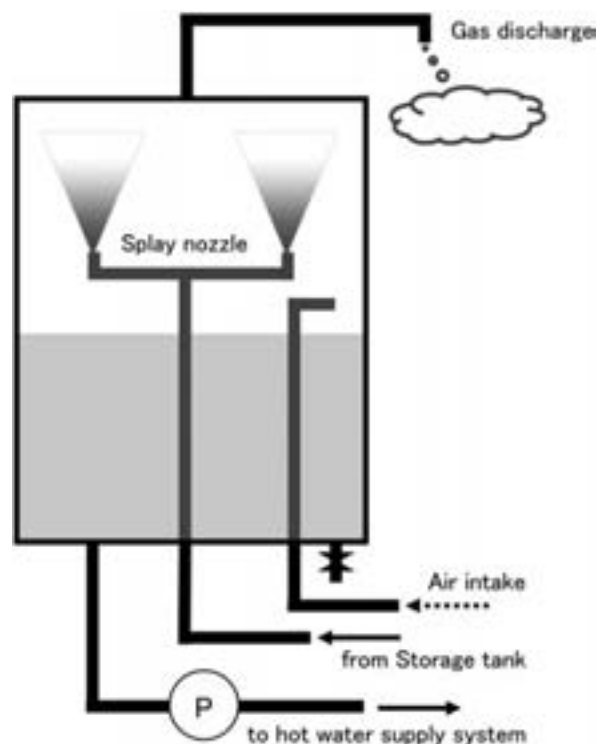


Fig. 3 Illustration of open-type air separator.

図を示す。同機は、貯湯槽からの給湯水をスプレーノズルより噴霧させた後、再び循環経路に戻らせる機構を有しており、スプレーノズルからの噴霧により分離した溶存空気を排気管から排出することで戻される給湯水中の溶存空気の低減が可能となる⁸⁾。

溶存空気の指標である溶存酸素濃度は、JIS K0101 24.2 に示されているウィングラーアジ化ナトリウム変法により測定し、試験期間を通して、補給水、脱気装置未使用時の給湯水、脱気装置使用時の給湯水ではそれぞれ、7.4~9.3ppm、8.4~9.4ppm、4.6~6.7ppmであった。したがって、溶存空気は、脱気装置未使用時には給湯水の方が補給水より若干高い傾向にあり、脱気装置使用時には反対に補給水の方が高くなった。

脱気装置未使用、使用のいずれにおいても試験期間は3, 7, 11 ヶ月間とし、試験終了後には各箇所より試験管を抜き取り、管内面の腐食状況を調査した。あわせて、試験管の全てを試験管とほぼ同一内径、形状としたポリカーボネート製の透明配管とし、管内の流動状態を観察した。

2.2 フィールド試験

潰食対策としての脱気装置の効果を、給湯銅管に潰食による漏水が発生した建築物実配管にて検証した。対象建築物では竣工後7年を経過して密閉式循環給湯銅管に潰食による漏水事故が発生し、その漏水事故件数は、竣工後11年間で12件に達していた。対象実配管に脱気装置を設置して3ヵ月経過後に装置設置前より継続使用し

ていた配管を一部抜管し、潰食の進行状況を調査した。

3. 結果および考察

3.1 潰食の再現と溶存空気の影響

脱気装置未使用、すなわち、給湯水の溶存酸素濃度が補給水のそれより高い傾向での通湯試験の場合、3ヵ月試験後には各試験管のエルボ継手およびその下流の60mm範囲内の配管において、微小ではあるが潰食特有の馬蹄形の腐食痕が生じていた。そして、試験開始から7ヵ月を経過すると、いずれの試験管にも明確に馬蹄形の潰食痕が観察され、その様相は実環境で経験される潰食と同様であった。Fig. 4 に通湯試験開始7ヵ月後の各試験管の内面（酸洗後）および断面状況を示す。試験開始11ヵ月後には各試験管における潰食は進行して全体的に腐食による凹凸は小さくなり、やや全面腐食の様相を呈するようになった。

通湯試験期間毎の各試験管の最大腐食深さを Fig. 5 に示すが、試験期間の経過とともに最大腐食深さは深くなる傾向となったが、各試験管、すなわち、管内の圧力を正圧(0.3MPa)から負圧(-0.04MPa)に変化させても同一試験期間であれば最大腐食深さには大きな差異がないことが明らかとなった。このように、潰食は正圧部でも負圧部と同等に発生、進行していることから、負圧部のみにその発生が予想されるキャビテーション現象による腐食の可能性は低いように推測された。

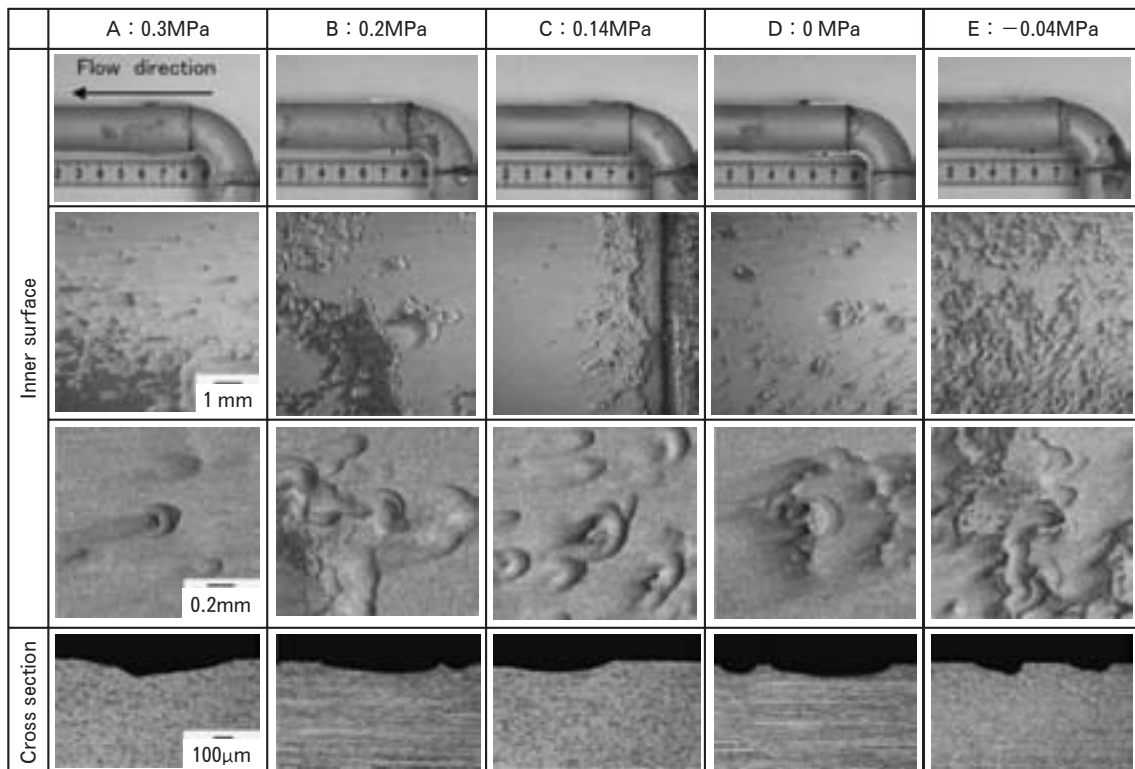


Fig. 4 Inner surface and cross section of the test specimen in the system without open-type air separator.

本実験で確認された潰食による腐食速度は0.14mm/yearとなり、過去に調査した実環境での0.16mm/year⁹⁾と概ね一致した。このことから、本実験条件は、潰食の再現に対して適正な条件であったものと考えられた。

Fig. 6に、脱気装置を使用し、溶存空気を低減させた給湯水にて通湯試験を実施した場合の各試験管の内面(酸洗後)および断面状況を示す。試験開始7ヵ月後の状況であるが、3, 11ヶ月経過後も同様の様相であった。前述の脱気装置未使用時の場合とは異なり、管内の圧力が異なるいずれの試験管においても、全く潰食は発生し

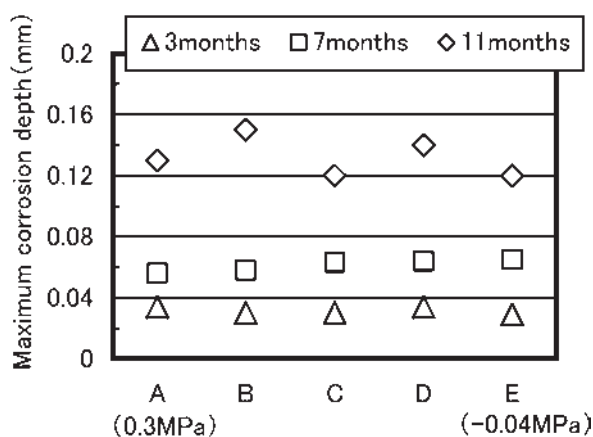


Fig. 5 Maximum corrosion depth of the test specimen in the system without open-type air separator.

ておらず、脱気装置にて溶存空気を低減すれば、潰食の発生を抑制可能なことが検証された。言い換えれば、潰食の主要因は溶存空気であることを裏付ける結果である。透明配管による管内流動状態の確認において、潰食を再現させた脱気装置未使用時では補給水の流入に従って微細な気泡が貯湯タンクより流動し、Fig. 7に示すように潰食が生じ易いエルボ継手下流側にて乱れて流れる様子が観察された。これはFig. 8⁶⁾に示すように、これまでの検討において得られた管内微細気泡の流動シミュレーション結果とほぼ同様であった⁶⁾。さらに、通水量を低下させて管内をより減圧しても微細気泡の発生量が増加するのみで、エルボ継手とその近傍において、局所的な気泡の発生・消滅といったキャビテーション現象は認められなかった。

そして、同条件下にて貯湯槽より採水すると、実環境にて潰食が発生する箇所と同様、微細気泡が多量に発生し、給湯水は白濁した¹⁰⁾。

一方、脱気装置を使用した場合には、補給水が流入しても微細気泡が流動する様相は全く観察されず、貯湯槽から採水した給湯水にも微細気泡は認められず、透明な状態であった。これらのことから、循環給湯銅管の潰食発生は溶存空気の気泡化が主要因であり、エルボ継手下流側でのキャビテーション現象に起因する可能性は低いこと、また、対策としては脱気装置の設置が有効であると考えられた。

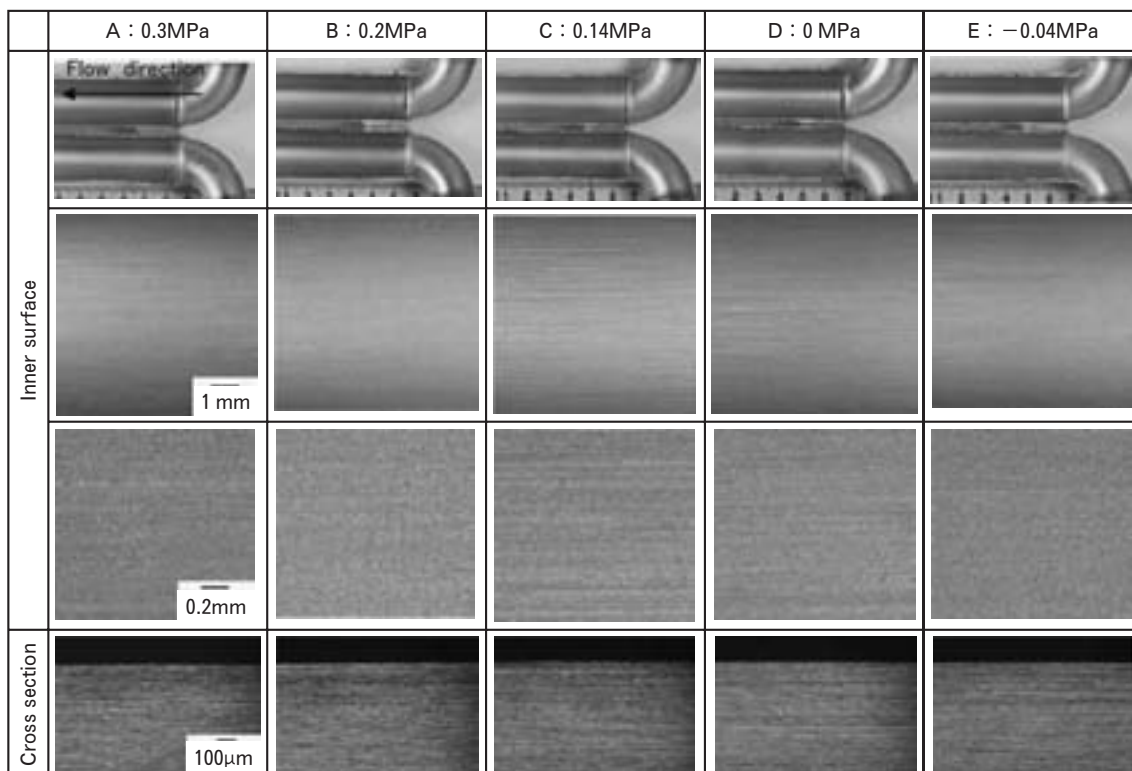


Fig. 6 Inner surface and cross section of the test specimen in the system with open-type air separator.

3.2 フィールド試験による脱気装置の効果検証

Fig. 9 に、脱気装置設置時、設置 2 ヶ月経過後および設置 12 ヶ月経過後の補給水、給湯水の溶存酸素濃度の変動を示す。脱気装置使用前の給湯水の溶存酸素濃度は 8 ppm 程度であったが、同装置の使用とともに低減し、一時的に 8 ppm を超える場合も見受けられたが、全体的には 6 ppm 前後で推移した。そして、脱気装置使用開始から 3 ヶ月経過後に同装置使用前から継続的に用いていた配管を一部抜管して内面状況を確認したところ、同装置使用前の様相とは異なり、潰食による浸食部に黒色の酸化皮膜の形成が観察され、潰食の進行が既に停止していることが確認された (Fig. 10)。これらのことから、脱気装置の設置により溶存空気量の低減がなされれば、潰食の発生を防止するのみでなく、進行中の潰食も停止可能なことが判明し、実環境においても脱気装置は潰食抑制に有効であることが検証された。なお、潰食発生に及ぼす給湯水中の溶存空気量 (溶存酸素濃度)

の閾値については、今回のフィールド試験やこれまでの経験から 8 ppm 程度であるとの知見も得ているが、今後の検証が必要である。

4. 結 言

実環境を模擬した通湯試験装置を用いて給湯銅管の潰食に及ぼす溶存空気の影響を調査し、潰食抑制に有効と判断された開放式脱気装置の実環境での検証試験を実施した結果、以下の結論を得た。

(1) 管内圧力を変えて通湯試験を行った結果、正圧部 (0.3MPa) から負圧部 (-0.04MPa) のいずれの試験管においてもエルボ継手とその下流箇所の実環境で経験されるような潰食が再現され、その浸食の程度は管内圧力には関係なく同等であった。

(2) 潰食を再現した試験条件にて、開放式脱気装置を使用して給湯水中の溶存空気を低減させ通湯試験したと

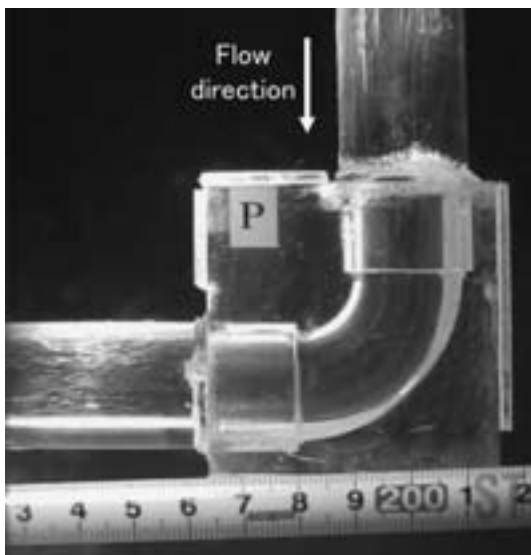


Fig. 7 Visualization of micro-bubbles flow at the elbow portion of test tube D using transparent pipe and elbow of ID22mm under the flow rate of 1.5m/s.

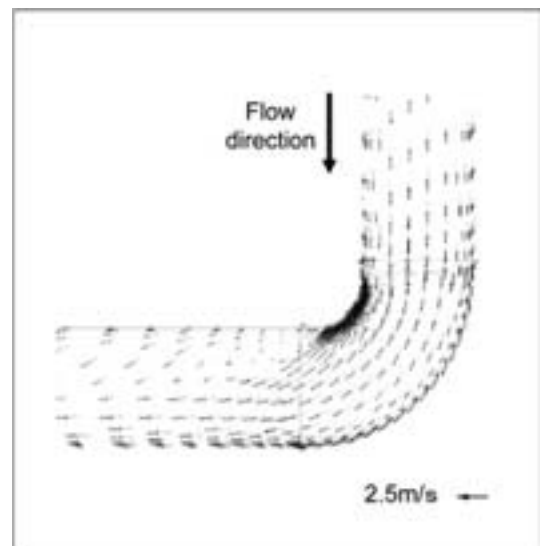


Fig. 8 Velocity vector of liquid for downward pipe of ID20.6mm using CFD analysis, Temp ; 333K, Flow rate ; 1.5m/s, pressure of outlet ; 0 Pa-gauge.

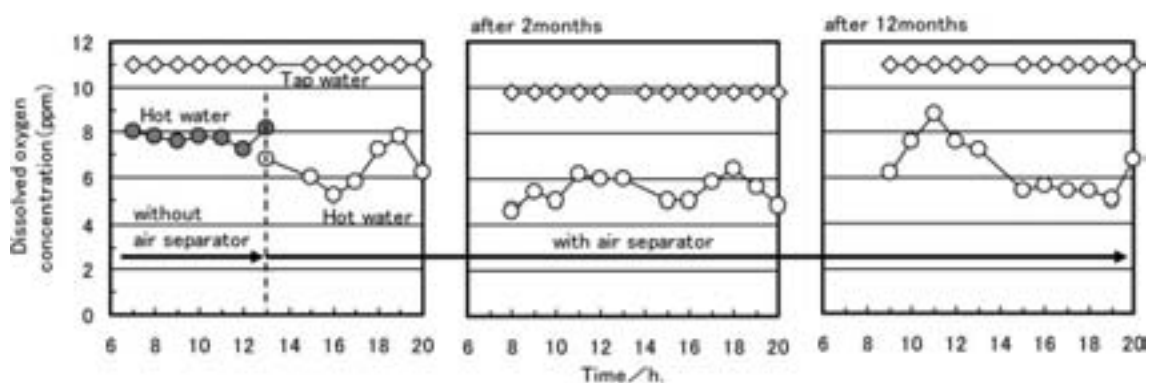


Fig. 9 Dissolved oxygen concentration in the system without and with open-type air separator.

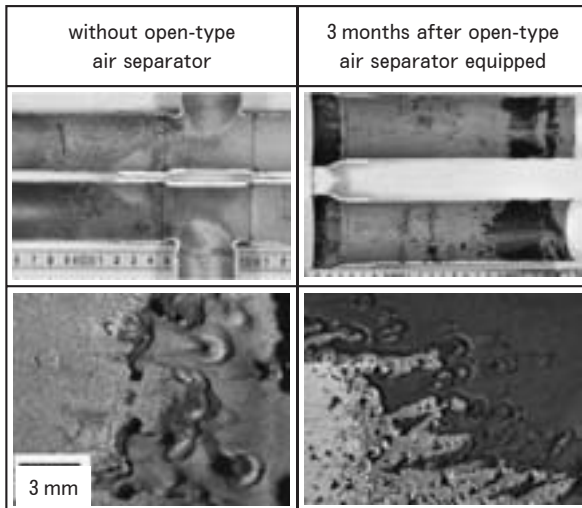


Fig. 10 Inner surface of copper tube in the system without and with open-type air separator.

ころ、試験管に潰食は全く発生しなかった。このことから、潰食は溶存空気が主要因と考えられ、継手部におけるキャビテーション現象に起因する可能性は低いものと推察された。

(3) 潰食により漏水事故を経験した実配管に開放式脱気装置を設置したところ、溶存酸素を低減させ、更に装

置設置3ヶ月経過後には、継続使用された銅配管に生じていた潰食部分に黒色の酸化皮膜が形成され、潰食の進行が停止していることが確認された。これらのことから、開放式脱気装置は潰食発生の防止に加え、潰食の進行抑制も停止可能なことが検証された。

参 考 文 献

- 1) Malvin F. Obrecht : Corrosion, 18 (1962), 189t.
- 2) H. Yamamoto, H. Kunieda : Proceedings of the International Symposium on Corrosion of Copper and Copper Alloys in the Buildings, Tokyo (1982), 146.
- 3) T. Kanbayashi and K. Minamoto : Proceedings of the International Symposium on Corrosion of Copper and Copper Alloys in the Buildings, Tokyo (1982), 163.
- 4) L. Knutsson, E. Mattsson and B-E. Ramberg : Br. Corros. J., 7 (1972), 208.
- 5) 河野浩三, 山田 豊, 中野 稔 : 銅と銅合金, 46 (2007), 212.
- 6) 鈴木 忍, 山田 豊, 河野浩三 : 銅と銅合金, 48 (2009), 165.
- 7) 佐藤史郎 : 銅と銅合金, 48 (2009).176.
- 8) 山田 豊, 河野浩三, 渥美哲郎 : 伸銅技術研究会誌, 36 (1997), 154.
- 9) 山田 豊, 河野浩三, 渥美哲郎 : 伸銅技術研究会誌, 36 (1997), 154.
- 10) 山手利博, 大久保泰和, 表 幸雄, 河野浩三, 山田 豊 : 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集 (2008), A-28.

銅管の走間偏肉測定方法および装置の開発*

武藤伸之** 中村俊幸***

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 57-61

Online Measurement Method and Equipment for Wall Thickness Deviation of Copper Tubes

Nobuyuki Mutoh and Toshiyuki Nakamura

Higher copper prices have recently led to thinner tube walls in copper tube productions. Therefore reducing wall thickness deviation of the tubes has become increasingly important. Consequently, non-destructive on-line wall thickness deviation monitoring and control are required for the total wall thickness assurance. However, there are no applicable methods and equipment to insure these requirements. Thus, an eddy current method for on-line wall thickness deviation monitoring with probe coils revolving around the tube was developed.

A temperature change around the coils causes an unbalance in the bridge circuit to detect the thickness difference in the tube walls facing each other, therefore the detection error of the wall thickness deviation will significantly increase.

However, it was found from an experiment that the amplitude of the wall thickness difference signal from the signal processing circuit including the bridge circuit is free from the temperature effect and is proportional to the maximum wall thickness difference i.e. the wall thickness deviation.

Additionally, the optimum conditions to detect the wall thickness deviation using this method are clarified by electro-magnetic field FEM simulations.

Actually, a prototype equipment for monitoring the wall thickness deviation was experimentally installed in a tube straightening and non-destructive inspecting line and then the online monitoring test was carried out at a 100 m/min line speed. Consequently, the entire wall thickness deviations of the tested tubes were able to be detected within a ± 0.016 mm accuracy of thickness difference accuracy, and the possibility of practical use has been shown based on these results.

1. 緒 言

銅管はルームエアコンなどの熱交換器や配管の材料として用いられている。これらは熱間押出後、圧延および引抜きにより所定寸法の管に加工される。ここ数年の銅地金価格高騰を背景に、さらなるコストダウンや品質高度化の要求にともなって、薄肉軽量化や管肉厚均一化が益々重要になっている。偏肉は熱間押出や圧延、引抜きで生じ、特に最終工程に近い引抜きでの偏肉低減制御お

よび偏肉全長測定保証が課題となる。しかし、その要素となる管肉厚分布を非破壊で測定する方法および装置は、超音波厚さ計や放射線を利用した方法¹⁾などが報告されているが、実際の製造で要求される、ライン速度が100m/min以上で、管肉厚が数mm~0.2mm程度の適用範囲で、比較的安価なものはない。実際には、偏肉は管端部の肉厚分布をマイクロメータにより測定する方法が適用されている。そこで、非破壊で偏肉、すなわち最大肉厚差を連続測定する、渦電流を利用した走間偏肉測定方法および装置を開発した。この試作装置を用いて実機ラインでの測定実験を行い、実用域の測定精度が得られた。

* 学術雑誌「非破壊検査」第62巻, 3号(2013), PP142-143に一部掲載

** 研究開発センター 加工品開発部

*** 住友軽金属 技術管理部

2. 銅管の偏肉測定原理

渦電流を利用した銅管の偏肉測定の原理は、Fig. 1に示すように銅管軸を対向する2つのプローブコイルを管外表面に近接させ、それらのインピーダンス差から銅管の肉厚差信号（電圧） ΔT を検出し、銅管を回転させる、またはコイル対を銅管軸まわりに回転させながら、1回転中の ΔT の最大値 ΔT_{max} を測定し、換算係数 C を乗じることによって、偏肉の指標である最大肉厚差 Δt_{max} を求める。渦電流を利用した偏肉測定法には、2組のコイル対を管軸中心に直交配置する、鈴木、柳井ら²⁾の方法が挙げられるが、 ΔT_{max} やその方向の測定精度が劣るため、本研究では、回転法について検討した。

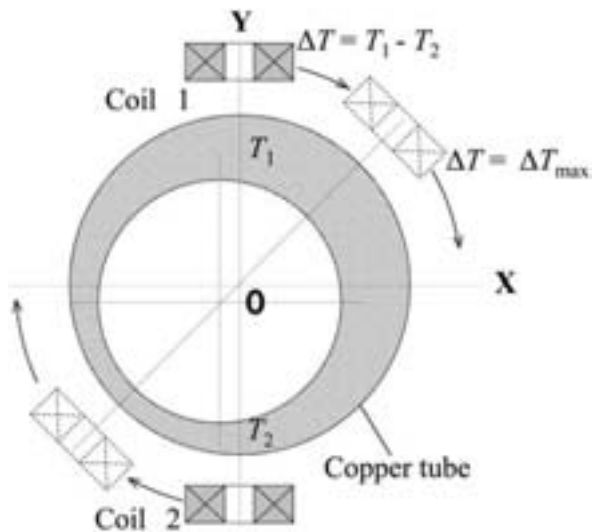


Fig. 1 Probe coil arrangement of the eddy current instrument for monitoring wall thickness deviation

具体的には、一対のコイルと抵抗からなるブリッジ回路を構成し、Fig. 2に示したように、渦電流探傷回路と同様な位相検波回路により、コイルのインピーダンス差出力 V_x 、 V_y を得る。それらには、肉厚差によるインピーダンス差とコイル対に対する銅管の位置変動（ガタ）によるインピーダンス差が重畳しているため、移相回路を用いて後者を分離除去し、肉厚差による $\Delta T(=V_y)$ のみを取り出す。この処理を位相弁別と称す。このようにして得られた ΔT において、回転の原点信号をもとに1回転ごとの ΔT の最大値を検出することで ΔT_{max} およびそのときの回転方向の位置から ΔT_{max} の方向を得る。

3. コイル周囲温度の影響

肉厚差信号は非常に微小で外乱、特にコイル近傍の温度変化の影響が大きいため、実験による調査を行った。コイル対を固定し、外径 ϕ 14.9mm、肉厚1.5mm、最大肉厚差0.10mmの銅管をその中心に位置させ、2.4rpmで回転させながら ΔT を観測すると、Fig. 3に示したように正弦波状の波形が得られ、その1回転あたりのピーク ΔT_{max} が最大肉厚差 Δt_{max} に比例する。条件は、コイルターン数80ターン、試験周波数4kHz、総合増幅度62dBおよびリフトオフ0.1mmとした。熱風をコイルにあててコイル近傍温度に変化を与えると、 ΔT_{max} は著しく変化し、最大肉厚差 Δt_{max} 換算値で $-0.054\text{mm}/^\circ\text{C}$ ($-27\%/^\circ\text{C}$)の誤差を生じた。これは、ブリッジ回路のコイル抵抗が変化し、ブリッジ回路平衡点がずれたことによる。従って、 ΔT_{max} から Δt_{max} を求める方法は、実製造プロセスのような厳しい環境下で適用することは難しい。一方、 ΔT の振幅 A は、Fig. 3に示したように、コイル近傍の温度変化に依らず一定の傾

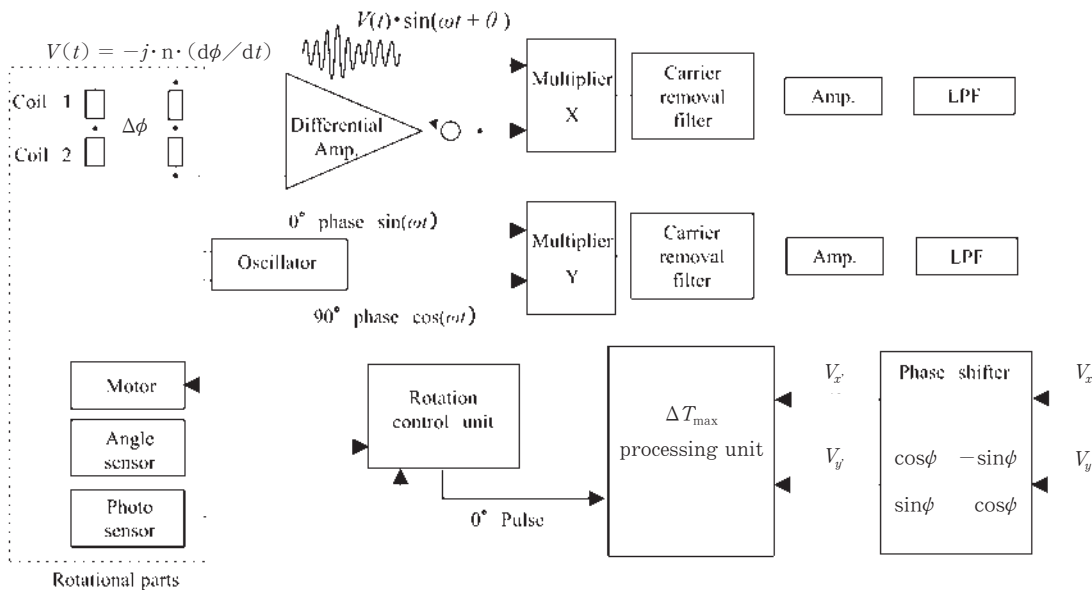


Fig. 2 Block diagram of signal processing

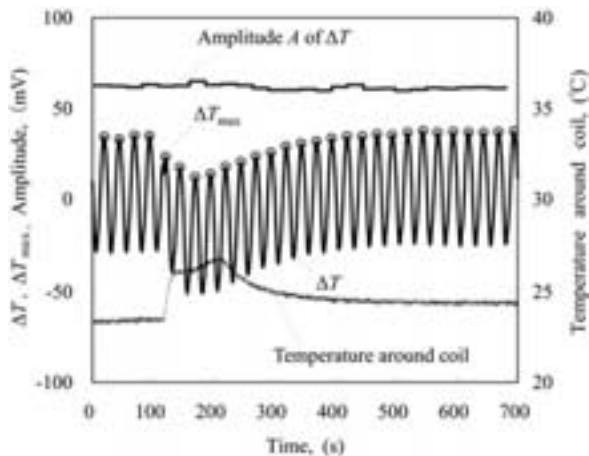


Fig. 3 Influence of temperature around the coil on ΔT and amplitude of ΔT

向がみられ、その変動は $\pm 3.3\%/^{\circ}\text{C}$ 以内であった。すなわち、 Δt_{\max} が A に比例することから、 A を測定することにより、最大肉厚差 Δt_{\max} を容易に求めることができる。そこで、一組のコイル対を管外周で周回させ、能動的に得られた ΔT の振幅から Δt_{\max} を演算出力する回転型偏肉測定装置を考案し、製作して実機ラインでの実験を行った。

4. FEM 解析による動作条件の最適化

4.1 渦電流 FEM 解析

肉厚差に対する感度やガタ（コイルに対する管の位置変動）信号との位相弁別性は、管の平均肉厚と試験周波数に依存する。そこで、渦電流 FEM 解析を用いて、その最適条件について検討し、実験によってそれを確認した。解析における基本の電磁場方程式は、磁気ベクトルポテンシャル M および磁束密度 B ($B = \text{rot}M$) を用いて式 (1) のように示される。ここで、 H は磁界、 J は電流密度、 D は電束密度、 μ は透磁率、 t は時間である。

$$\text{rot} \frac{1}{\mu} \cdot \text{rot}M = J + \frac{\partial D}{\partial t} \quad (1)$$

渦流応用計測では、一般的に数 KHz から 1 MHz の試験周波数を用いるため、このような低周波数領域では、

変位電流 $\frac{\partial D}{\partial t} = 0$ とおける。従って、このような系では、

式 (1) を変形して式 (2) の支配方程式で表すことができる。ここで、 σ は導電率である。

$$\sigma \cdot \left(\frac{\partial M}{\partial t} \right) + \text{rot} \frac{1}{\mu} \cdot \text{rot}M = J_0 \quad (2)$$

熱間押出では芯金とダイスの軸ずれが、抽伸ではプラグとダイスの軸ずれが偏肉の発生要因であり、通常、偏肉は 1 回転あたり 1 周期で現れる。従って、偏肉信号の周

波数帯域は、回転系の回転数に依存し、高々 100 Hz で、試験周波数に比較して十分に小さい。このような系では定常状態を解析する周波数応答解析が適用できるため、市販の渦電流解析ソフト「Eddy $j\omega$ 」の 3D モデルを解析に用いた。

式 (2) は、周波数が時間的変化せず一定で、 $M = M \cdot e^{j\omega t}$ とおけるため、支配方程式は式 (3) で表すことができる。ここで、 ω は角周波数である。

$$j\omega\sigma M + \text{rot} \frac{1}{\mu} \cdot \text{rot}M = J_0 \quad (3)$$

従って、解析は、この式 (3) を離散化して、モデルにそって計算される。要素は 8 節点、12 辺のアイソパラメトリック要素を用いた。計算で求められたベクトルポテンシャル M からモデル空間全体の磁束密度分布が得られ、コイルに沿った任意の閉ループを貫く磁束 ϕ を計算することができる。従って、コイルに誘導される電圧 V は、式 (4) によって示される。

$$V = -n \cdot \frac{d\phi}{dt} = -j \cdot 2\pi n f \phi \quad (4)$$

ここで、 n : コイルターン数、 f : 試験周波数、 j : 虚数である。

解析は外径 $\phi 14.9\text{mm}$ 、平均肉厚 1.5mm の銅管を対象とした。解析範囲は、コイル対がつくる電磁場の影響範囲を考慮して、銅管およびコイル対を含めて、管断面および管軸方向において管外径の 3 倍程度の大きさの空間とした。解析モデルは、コイル対を 2 等分し銅管の軸に垂直な面を対称とする、1/2 モデルとした。解析モデルにおいて、コイル対と銅管外径円の位置を固定し、内径円の中心をずらして 2 水準の偏肉を与え、さらに、銅管外径円中心に対して、コイル対の位置をコイル対軸の方向にずらして、3 水準のガタを与え、偏肉およびガタの変化によるコイル間のインピーダンス差を計算した。前掲の Fig. 1 において、コイル 1 は銅管の肉厚最大部に、コイル 2 は、最小部に面するようにコイルを配置し、コイルは対象管外径 D_1 に対して管軸方向の長さが $0.7 D_1$ 、幅が $0.2 D_1$ の矩形とし、厚みを $0.07 D_1$ とした。コイルと銅管との間隙 h は 0.6mm とした。コイル断面は正方形、コイル巻数は 180 ターンとし、試験周波数は 4 kHz とした。

4.2 解析結果および最適動作条件

FEM 解析により求めたコイル間のインピーダンス差を電圧に変換して得られた ΔT_{\max} を Fig. 4 に示した。偏肉信号のベクトルの方向は 174° 、ガタ信号のベクトルの方向は 56° である。次に、周波数を変えて各モデルを計算し、得られた周波数依存性を Fig. 5 に示した。図中の ΔT_{\max} vector magnitude は、Fig. 4 で示す偏肉信号のベクトルの大きさを表し、Phase difference は、その偏肉信号とガタ信号の位相差を示す。 ΔT_{\max} output

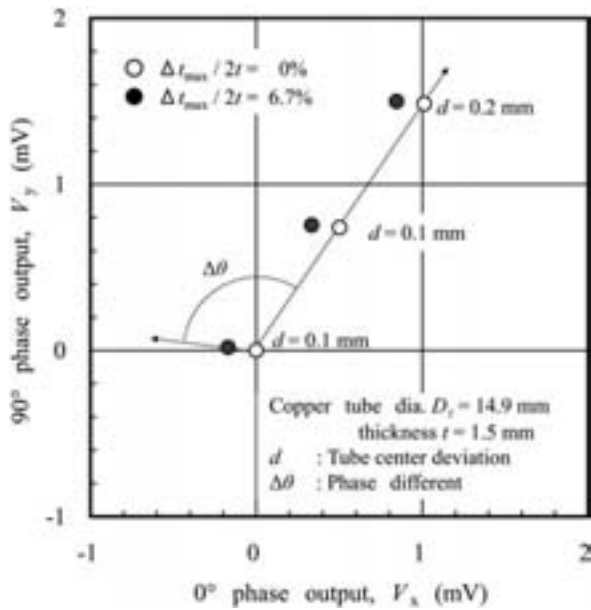
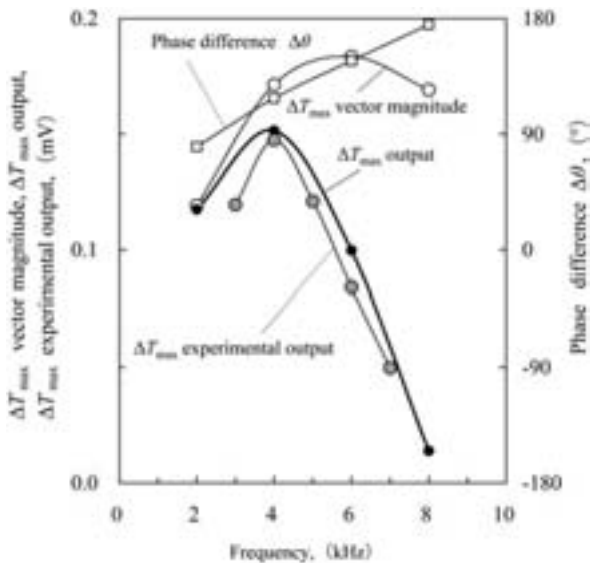
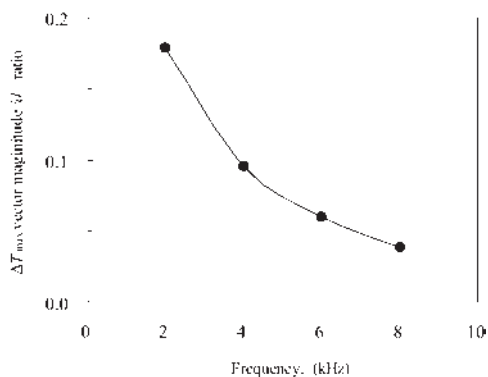


Fig. 4 Wall thickness deviation vector ΔT_{\max} and center deviation vector d on XY plane



(a) ΔT_{\max} and ΔT frequency characteristics



(b) ΔT_{\max} vector magnitude / d frequency characteristics

Fig. 5 Influence of frequency on signal amplitude and phase difference

は、ガタ信号が位相角 0° となるように移相したときの偏肉信号のベクトルの 90° 位相出力の大きさを表す。 $\Delta T_{\max}/d$ vector magnitude ratio は、ガタ信号ベクトル d の大きさと偏肉信号ベクトルの大きさの比を表す。この比は、10kHz 以上では、2 kHz の $1/10$ 以下になり、上述の位相弁別においても、実際のガタ信号の影響が無視できなくなる。これらは解析にもとづいて求めたもので、 ΔT_{\max} experimental output は、それを実験で確認したものである。 ΔT_{\max} output は実験値とよく一致し、4 kHz で最大感度を示した。この周波数は、ガタ信号との位相弁別性の影響で ΔT_{\max} vector magnitude が最大になる 6 kHz に一致しないことも分かった。以上のように、位相弁別性も考慮して予め最適な試験周波数を予測することができた。

5. 実機実験結果

試作した実験装置測定部の概略構造を Fig. 6 に示した。回転円筒部に 1 対の矩形プローブコイルを配置し、その回転中心軸に銅管を通過させる中空回転機構とした。コイルおよび信号処理回路間には中空型スリップリングを介して接続した。 ΔT の振幅 A を 1 回転周期ごとに演算し、次の周期まで出力をホールドする電子回路を製作して適用した。

本装置を定尺の直管矯正・検査ラインに設置し、実機実験を行った。対象材に外径 $\phi 14.9$ mm 肉厚 1.5 mm の銅管を用い、100 m/min で走行させ偏肉をオンラインで測定した。回転機構の回転数は 1500 rpm とした。走行測定実験を行った被測定管を全て採取し、0.5 m ごとに切断後、全ての管端において、マイクロメータを用いて、各々の最大肉厚差及びその方向をオフラインで測定した。

Fig. 7 に管長手方向の最大肉厚差 (Fig. 7 (a) 実線) および最大肉厚差の方向 (Fig. 7 (b) 実線) のオンライン

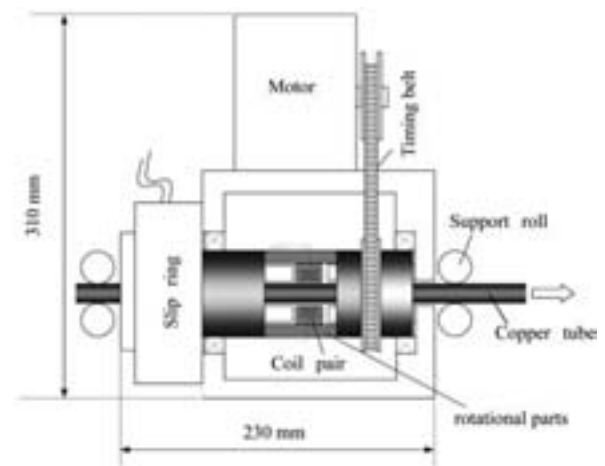


Fig. 6 The structure of the sensing unit of developed equipment

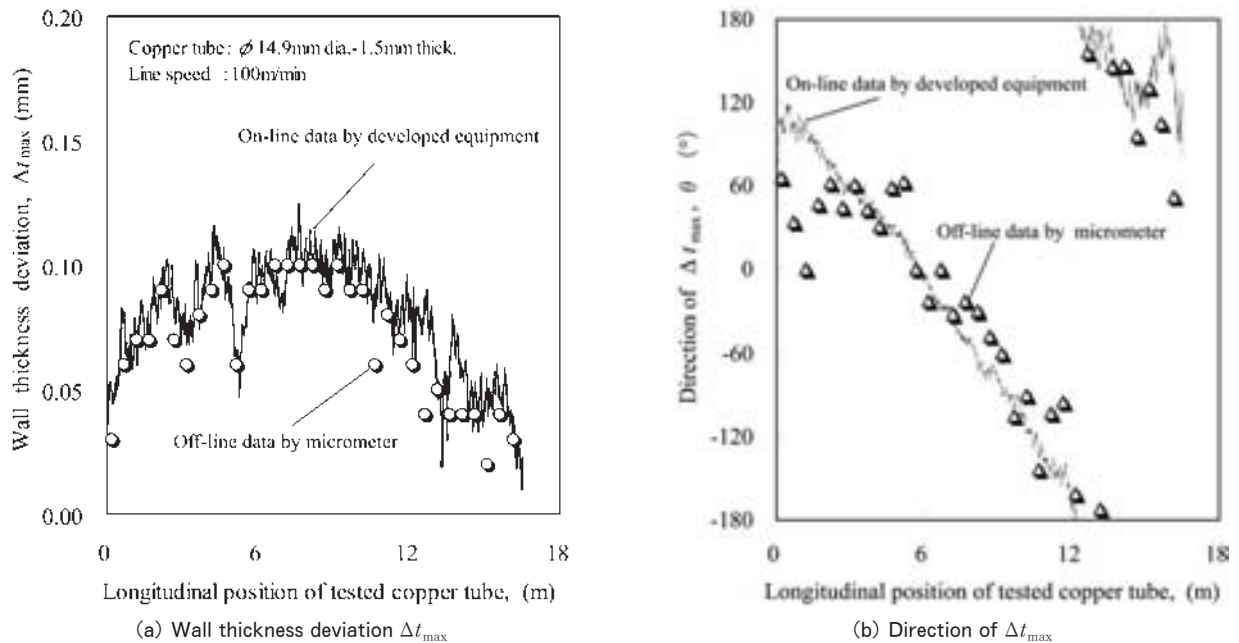


Fig. 7 Example of monitoring wall thickness deviation Δt_{\max} and direction of Δt_{\max} on actual production line

ンでの測定値を示した。また、併せて Fig. 7 にマイクロメータでの測定値（白抜印）を示した。オンラインでの測定値は、マイクロメータで測定したオフラインでの測定値とはほぼ一致した。Fig. 8 は、両者の Δt_{\max} の相関を示したもので、測定精度は最大肉厚差誤差で ± 0.016 mm 以下であった。

6. 結 言

走行する管の偏肉（最大肉厚差）を渦電流法により測定する方法において、最大肉厚差および偏肉方向の高い精度が得られる、1 対のコイルを周回させる方法を開発した。最大肉厚差の微小信号を検出するブリッジ回路において、コイル周囲の数°C の温度変化により大きく平衡点がずれ、偏肉の検出が困難であった。しかし、コイル周回にともなう肉厚差信号の振幅が最大肉厚差に比例し、その振幅から精度よく最大肉厚差を求められることを実験により確認した。

また、ガタ信号と分離して、最大肉厚差信号を効率よく取り出すための試験周波数や移相角の動作条件を FEM 解析で求め、それを実験で検証し、最適な動作条件の知見を得た。

この方法にもとづく装置を試作し、実機ラインにて、オンラインでの測定実験を行った結果、最大肉厚差誤差 ± 0.016 mm 以下の実用性のある精度で測定できることが分かった。

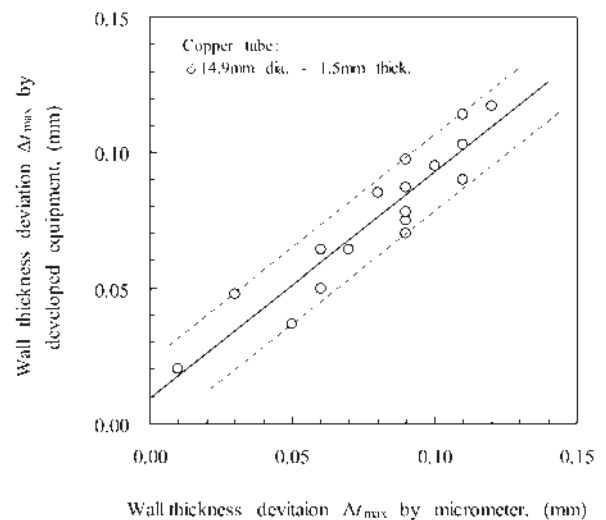


Fig. 8 Precision of experimental online equipment

参 考 文 献

- 1) 大嶽 篤ら：本誌，31-1 (1990) 46.
- 2) 鈴木紀生，柳井敏志，木島広行：日本国特許 開平 7-198306, (1995) .
- 3) 武藤伸之：日本国特許特開 2012-127888, (2012).

アルミニウム合金の組織制御 (総論)

— 結晶粒と析出の制御 —

吉 田 英 雄*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 62-105

Microstructural Control in Aluminum Alloys

— Control of Grains and Precipitation —

Hideo Yoshida

The microstructural controls used in the research and development at Sumitomo Light Metal were reviewed from the viewpoint of the control of grains and precipitation in aluminum and aluminum alloys. For the control of the grains, it is summarized that (1) the role of impurity elements, Fe and Si, and additional elements, Zr and Mn, on the formation of grains and subgrains, (2) thermomechanical treatment in the 7000 series alloy hot rolled plates, 7000 series alloy extrusions and high strength 6000 series alloys for forging stock, (3) grain refinement for superplasticity, thermomechanical treatment in 7475, 8090 and 2090 Al-Li alloys and Al-Mg alloys by static or dynamic recrystallization, (4) the development of 7075 alloy sheet by controlling the grain size and the precipitation, followed by taper rolling by Mitsubishi Heavy Industries for taper rolled stringer of the B767 airplanes, (5) subgrain structures stabilized by a controlled warm rolling process to obtain the high strength 7000 series alloy sheet, and (6) the surface appearance of the sheets, orange peel, looper marks, ridging marks, etc. For the control of precipitation, it is summarized that (1) the role of the precipitation of ring-like Si particles on the dislocation cell boundaries regarding the strength and elongation of pure aluminum, (2) heterogeneous and homogeneous deformations by partial annealing of pure aluminum, (3) work softening at the high reduction of cold rolling in Al-Fe alloys, (4) the comparison of the fracture toughness between Zr bearing 7000 series alloys and Cr bearing ones, (5) inhibition of pick-up formation by the small addition of Mn to 6000 alloys extrusions, (6) Comparison of quench sensitivity between Cr bearing 7000 series alloy and Zr bearing ones and its mechanism, (7) α transformation of AlFeMn compound to α -AlFeMnSi is important for galling in 3004 alloy, (8) the mechanism of two-step aging phenomenon on the strength in 6000 and 7000 series alloys, (9) the application of reversion phenomena to the bake hardenability for auto body panels and the increase in workability of 7000 series alloys, (10) artificial aging properties and stress corrosion cracking of Al-high Mg alloys, (11) high extrudability of portholes in our recently by developed alloy 2013 for airplanes, (12) the control of grain boundary precipitation and final thermomechanical treatment. Finally, it is concluded that the development of a theory for the recovery and recrystallization is required to analyze and simulate the process, especially in hot working.

1. はじめに

アルミニウム合金はその機械的性質を向上させ、安定

* 研究開発センター 顧問, 工学博士

化させるために、組織観察をもとに結晶粒や析出の均一化を図る。さらには特定の集合組織の形成も重要になる。材料研究者の基本は金属組織学であり、まず組織観察するところから始まる。観察できない部分は、電気伝導度

や熱分析その他の結果をもとにある程度推測して行う。最近では計算科学も発達してきて、原子の結合状態もわかるようになってきている。金属組織学とその背景にある金属材料学をもとにあるべき組織状態を予測し、必要とされる材料特性を得るための製造プロセスを考案する。必要とされる特性には、強度と成形性に関する強度、靱性、疲労強度、耐応力腐食割れ性、耐熱性、クリープ特性、成形性、あるいは製造にかかわる押出性、焼入れ感受性、圧延性、鍛造性、表面欠陥あるいは加工に関する問題としては溶接割れ性、表面処理性、発色性、光沢性など多くの特性がある。材料研究者はこれら複数の要求に応えるべくその材料成分とその製造方法を日夜研究しているともいえる。

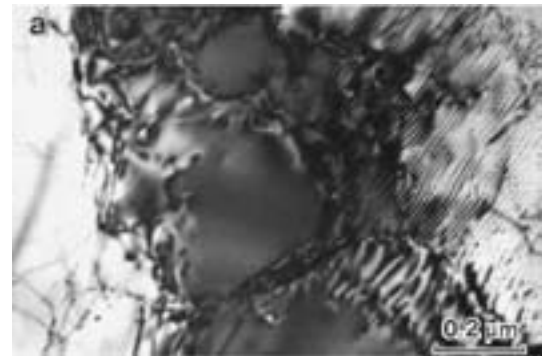
本稿では、その基本的な結晶粒と析出状態に関する組織制御について、住友軽金属で行われてきた組織制御に関する知見を整理し、今後の課題を明らかにする。なお、一部重複しているが、Al-Fe系合金に関しては田中宏樹博士、時効析出に関しては八太博士、押出材に関しては箕田博士、自動車ボディシートに関しては浅野氏の報告を参照していただきたい。

2. 結晶粒制御

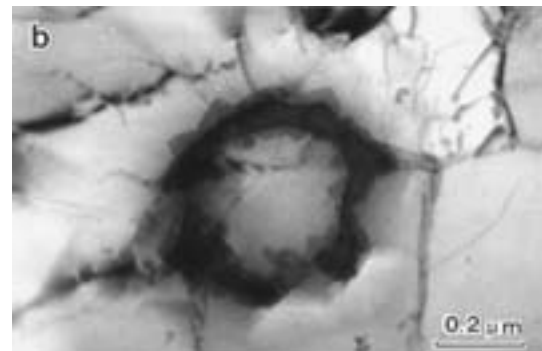
2.1 微量添加元素の影響

2.1.1 不純物元素

アルミニウム合金中には不純物元素としてSiやFeが含まれている。一般に、高純度になるほど結晶粒を微細にすることは難しい。たとえば99.999%の高純度地金による圧延材でも結晶粒150ミクロン程度に均一に微細化することは要求される。高純度のため微細化剤が添加されることはないで鋳塊の結晶組織の影響を受けやすい。不純物量が微量といえども熱間圧延前の均質化処理条件や圧延温度の影響も受ける。微量元素だけに材料中の分布を捕まえることは非常に難しいが、3N、4Nでの不純物元素の動きを観察していればたとえ観察できなくても十分理解できる。この微量元素の制御が材料開発の基本で、この固溶した微量元素こそがたとえ極微量であっても加工組織、回復・再結晶組織を制御していると考えられる。Fig. 1は1050合金中のSiの動きであるが、圧延中に転位に捕まったSiあるいは焼鈍中に転位セル上に捕まったSiは、セルを安定化させているが転位上を拡散して、Si単体として凝集化し始める。これらの単体Siがリング状に凝集化すると、セル境界はリング状Siから外れて移動しセルは成長し、亜結晶粒界となる¹⁾。同様に亜結晶粒界にもSiやFeが析出して安定化されるが、これも凝集化して α -AlFeSi粒子となることで粒界をはずれて再結晶粒形成となる。さらに再結晶粒界上にも不純物のSiやFeが析出して結晶粒成長を抑制しながら、凝集化により粒成長していくことが考えられる。これに関しては現在速度論的な観点から研究



(a) As Cold Rolled



(b) 150°C/1 h Annealed



(c) 200°C/1 h Annealed

Fig. 1 Ring-like aggregated Si crystals on the dislocation cell boundary and this Si-ring was left behind within subgrains at higher temperature¹⁾.

が進められている²⁾。

2.1.2 Zr 添加

Al-Zn-Mg合金では、焼入れ感受性の観点からZrが添加されるようになっている。戦後、世界の合金開発では超々ジュラルミンの影響を受けてMnに加えてCrを添加することが行われていたが、住友軽金属では、馬場がCr添加材は焼入れ感受性が非常に敏感で、これに代わってZrを添加すると焼入れ感受性が鈍感となり空冷でも焼きが入ることを発見し、さらに応力腐食割れや溶接割れに対しても有効であることを見出し、Zr添加Al-Zn-Mg系合金を世界に先駆けて特許化した^{3~6)}。この

焼入れ感受性の原因は、後述する(3.2.1参照)が均質化処理時に析出するCr系化合物は非整合な不溶性化合物で、Fig. 2に示すようにマトリックスとの界面で冷却中に溶質原子が析出しやすいことが焼入れ感受性を敏感にしていることを明らかにした^{7~10)}。

一方、Zr系化合物については、著者らがこの化合物が強度向上や耐応力腐食割れ性に効果的で、焼入れ感受性に鈍感である理由を金属組織形成の観点から検討した¹¹⁾。Fig. 3はAl-6%Zn-1.8%Mg-0.2%Zr合金鋳塊の均質化処理条件と溶体化処理後の圧延材のマイクロ組織

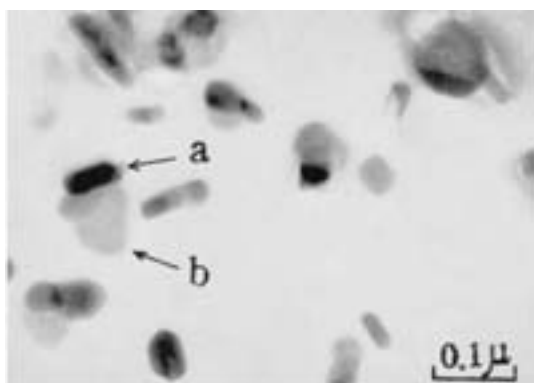


Fig. 2 Precipitation of η -phase (a) at the interface between E-phase containing Cr (b) and matrix⁸⁾.

である。400~450°Cの均質化処理条件で繊維状組織が形成されることがわかる。これはFig. 4に示すようにこの温度域でL1₂構造を有するマトリックスと整合な準安定相Al₃Zrが形成されることと関連している。この化合物はすぐには凝集化せず、亜結晶粒界を比較的高温まで安定化させる。この温度域より高温になるとDO₂₃構造を有し非整合で粗大な安定相Al₃Zr化合物を形成し、結晶粒は再結晶粒となる。繊維状組織では強度や耐応力腐食割れ性が向上する。また整合な準安定相Al₃Zr化合物では界面での析出が抑制されるため、冷却中に析出がしにくく焼入れ感受性が鈍感となる。

Fig. 5は、ZK60 (Al-6%Zn-0.75%Mg-0.18%Zr) 押出材の均質化条件と押出条件を変えて押出したときの材料組織である¹²⁾。均質化条件、押出条件が高温であると、押出後の結晶粒が粗大化しやすいことがわかる。こうした粗大化した組織では応力腐食割れ感受性も高まる。

2.1.3 Mn 添加

古くから微量のMnが含まれた2S (1100) やAl-Mn系の3S (3003)での結晶粒粗大化が問題とされた¹³⁾。最近では鋳塊予備加熱 (Pre-heating, ソーキングあるいは均質化処理ともいう) する機会が多いので問題とはなりにくいですが、特に圧延する前の鋳塊予備加熱がない場合や低温での予備加熱では生じやすい。Fig. 6は金型に

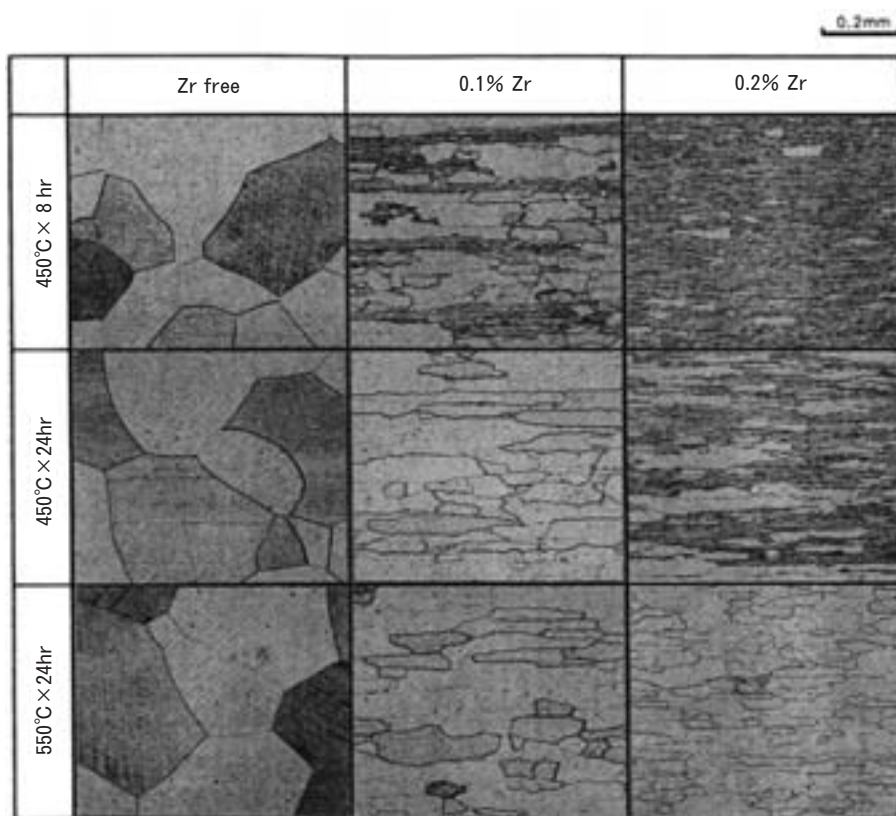


Fig. 3 Effect of Zr content and homogenizing conditions on the microstructures (cross-section) of Al-6%Zn-1.8%Mg alloy sheets¹¹⁾.

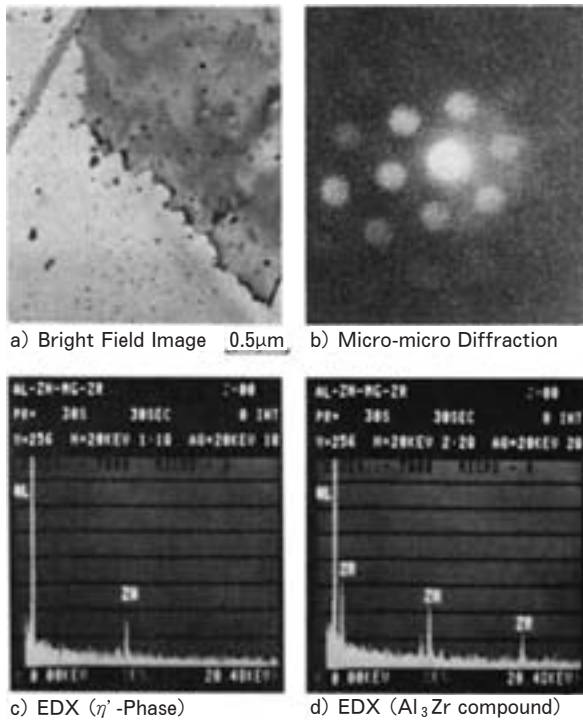


Fig. 4 Zr-bearing compounds dispersed in the subgrain and its boundary, a) bright field image, b) micro-micro diffraction of Zr-bearing compounds, c), d) analyses of compounds by EDX¹¹⁾.

鋳込んだ微量 Mn を含む純アルミニウム (Fe, Si それぞれ 0.2% 程度) を鋳塊予備加熱なしで 30mm から 4 mm 間で熱間圧延し, その後 0.6mm まで冷間圧延した材料を焼鈍したときの結晶粒径である。一般に徐熱焼鈍した場合に結晶粒径は大きくなる。Mn の増加とともに著しい粗粒化が生じる。3S の結晶粒径に及ぼす鋳塊予備加熱の有無, Fe 量の影響と焼鈍速度の影響を Fig. 7 に示す¹⁴⁾。ここでの予備加熱とは鋳塊を 580°C に 1.5 時間加熱後, 同温度で圧延を開始したものである。予備加熱無しとは 530°C に同時間加熱後圧延を行ったものである。最終焼鈍条件は 500°C 1 時間である。この図から, ①Fe の含有量の多いものは結晶粒が小さい。②Fe の含有量に拘らず, 予備加熱を行った方が結晶粒は小さい。③Fe 含有量の少ない 3S を予備加熱行わず製作し, これを徐熱軟化すると著しく結晶粒が粗大化することがわかる。Fe は Si 量にもよるが鋳造時や鋳塊予備加熱時に Mn と結びついて, $Al_6(MnFe)$ や $\alpha-Al(MnFe)Si$ 系化合物を生成することが知られている。Fig. 8 は Al-1%Mn-Fe 合金中の固溶体中の Mn 濃度変化に及ぼす Fe の影響を示す^{15,16)}。Fe が増加するにつれて Mn の固溶度が減少する。畑は熱延板を再加熱して 630°C 2 時間保持後水冷した材料では再結晶温度は上昇し結晶粒径も大きくなるのに対して, 630°C より徐冷した材料や焼入れ後 570°C で 2 時間再加熱した材料の再結晶温度は低下し結晶粒径も小さくなることから, 鋳塊予備加熱

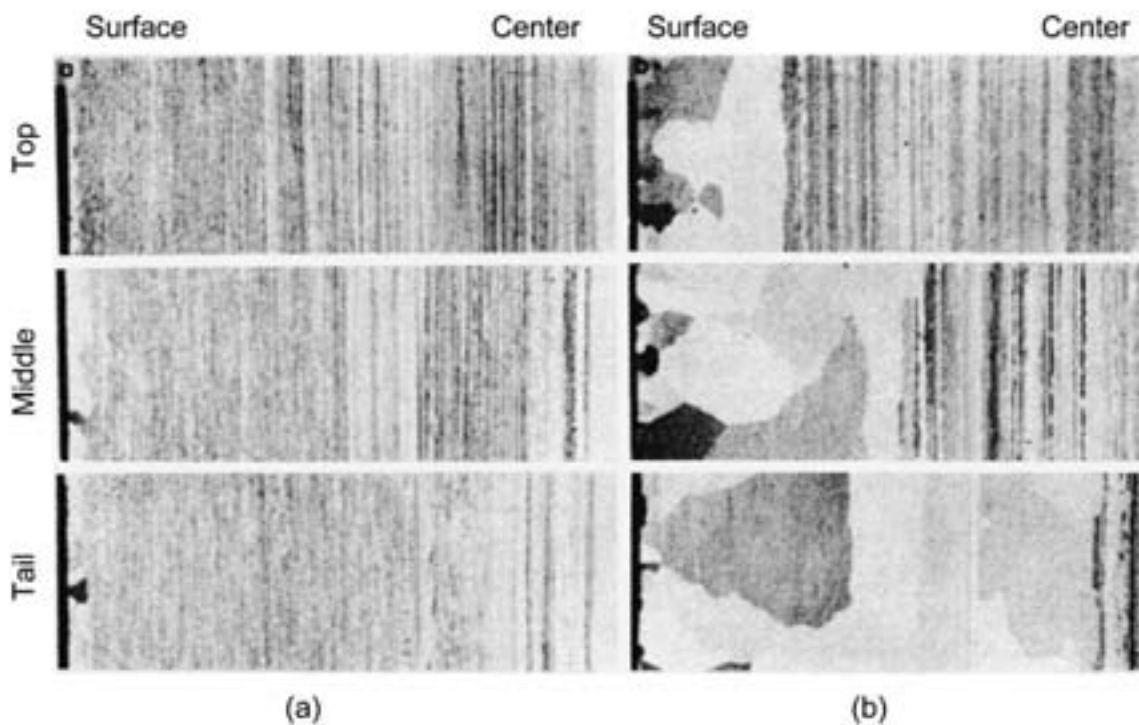


Fig. 5 Microstructures (cross-section) of 7003 alloy shapes extruded in the different conditions of (a), homogenization at 450°C, extrusion at 440°C and (b), homogenization at 560°C, extrusion at 520°C. The top, middle and tail of extrusion and each surface and center of cross-section were observed. In the condition of (b), grain growth occurred at the surface of extrusions¹²⁾.

は析出処理としての役割があると述べている。

2.2 熱間加工組織の制御

2.2.1 熱間圧延材の結晶粒微細化, 中間加工熱処理

1960年代の後半から1970年代にかけて、航空機の軽量化をはかり、かつ安全性を高めるために、航空機用高強度アルミニウム合金の強度、破壊靱性、疲労強度、耐応力腐食割れ性等を向上させる加工熱処理法が研究開発された¹⁷⁾。この加工熱処理法は鋳塊の熱処理をコントロールし熱間圧延での組織を改善するもので、圧延の途中で行われるので中間加工熱処理 (ITMT: Intermediate Thermomechanical Treatment) と呼ばれた。通常

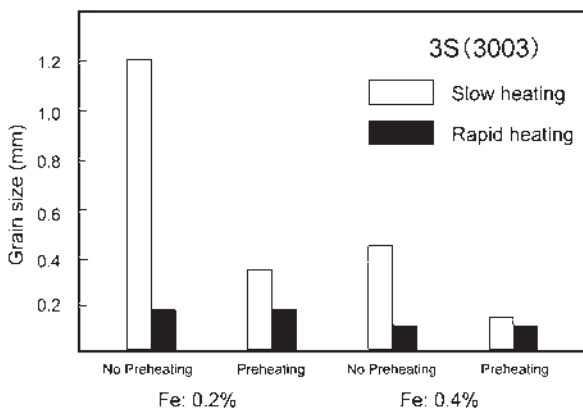


Fig. 6 Effect of preheating and Fe contents on the grain size of 3S (3003) alloy sheets¹³⁾

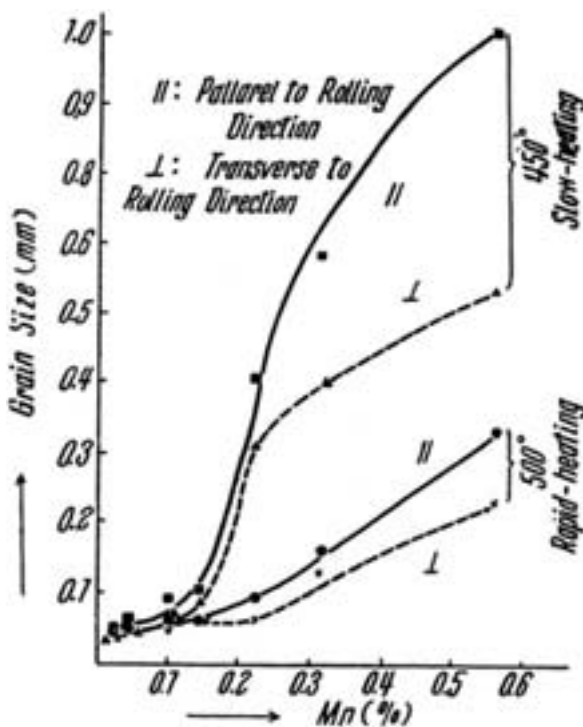


Fig. 7 Effect of Mn content on the grain size of commercially pure aluminum sheets¹⁴⁾.

の熱間圧延では、再結晶しにくく鋳造組織が板厚方向に潰された形状になり、その後の溶体化処理後でもその場再結晶 (連続再結晶) してパンケーキ状組織になり、晶出物や鋳造欠陥がそのまま結晶粒界に残存しやすく、特に板厚方向の靱性が低いことが問題とされた。これを解決するために二つの中間加工熱処理法、それぞれの研究機関の名前をつけて ISML-ITMT 法と FA-ITMT 法が開発された^{18,19)}。

ISML-ITMT は、イタリアの ISML (Istituto Sperimentale dei Metalli Leggeri) の Russo らが開発した方法²⁰⁾で、Fig. 9 (a) に示すように 400°C の低温均質化処理後、330°C で温間圧延を行い、その後急速加熱により再結晶と溶体化処理水冷を行った後に通常の

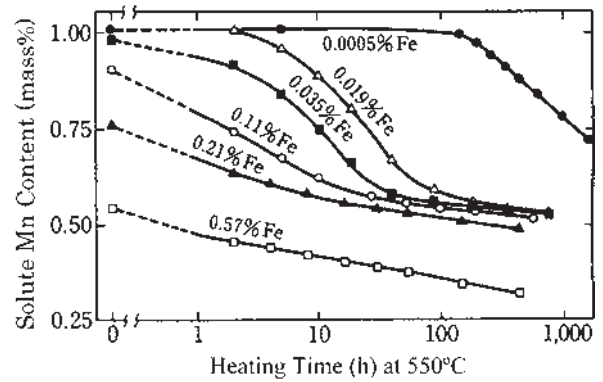
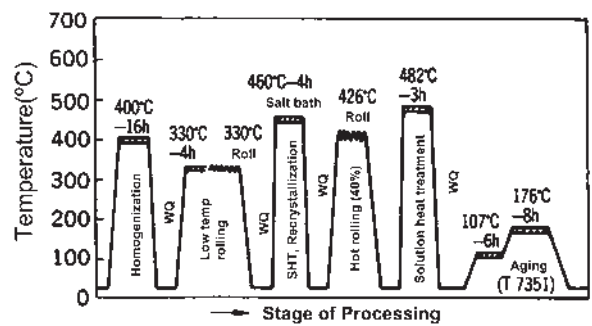
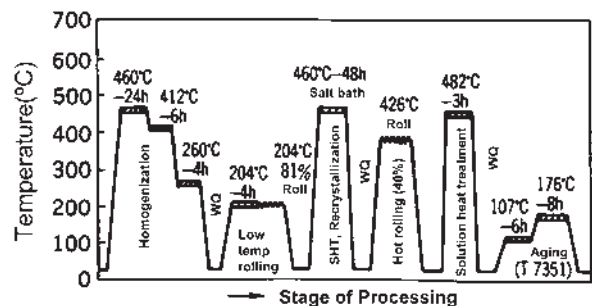


Fig. 8 Effect of Fe content on the solute Mn content in Al-1%Mn-Fe alloy during heating at 550°C^{15,16)}.



(a) ISML-ITMT



(b) FA-ITMT

Fig. 9 Two types of ITMT (Intermediate Thermomechanical Treatment)^{18,19)}.

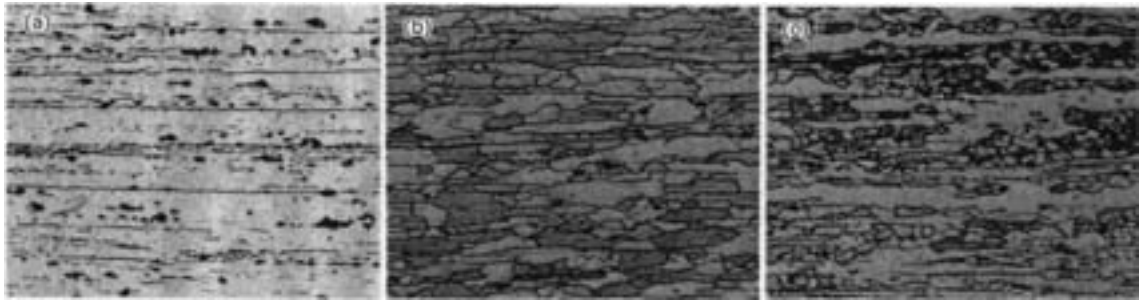


Fig. 10 Effect of thermomechanical treatment on microstructures in the cross section of thick plates, (a) conventional process, (b) FA-ITMT, (c) ISML-ITMT^{21,22}).

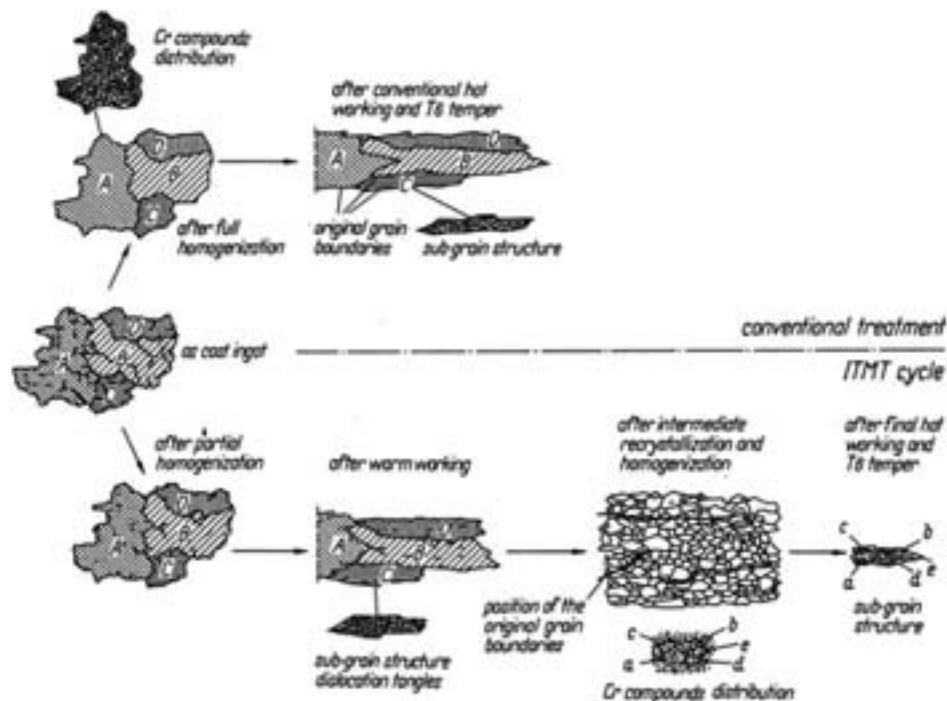
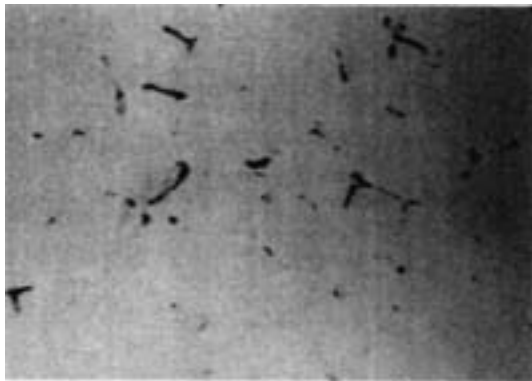


Fig. 11 Comparison of microstructural change (schematic diagram) between conventional and ITMT processes^{18,19}).

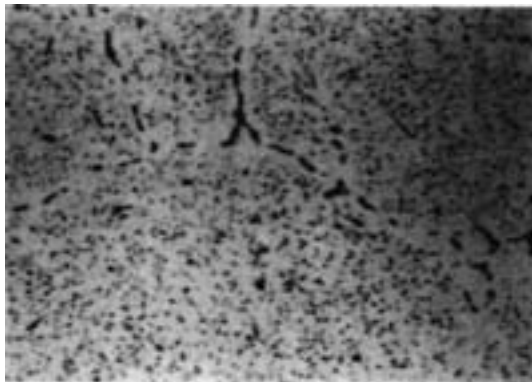
426°C で熱間圧延を行う方法である。一方、FA-ITMT は米国の FA (Frankford-Arsenal) の Waldman らが開発した方法²¹⁾で、Fig. 9 (b) に示すように、通常の均質化処理後段階的に冷却し、その後 204°C で 81% の加工度で温間圧延を行った後、急速加熱で再結晶と溶体化処理水冷を行って、通常の熱間圧延を行う方法である。熱間圧延後溶体化処理した組織を Fig. 10 に示す^{21,22)}が、従来法に比べて結晶粒は微細化されている。いずれの方法でも均質化処理で固溶原子を徹底的に析出させてから高加工度の温間圧延して、このことで次の急速加熱で微細に再結晶させやすくしていることである。この微細化が生じる模式図を Fig. 11 に示す²³⁾。住友軽金属では、戦前、超々ジュラルミンの熱間圧延を行う前に、「押し圧延」と称して、スラブを約 30% 熱間圧延した後に加熱して熱間圧延を行っていた²⁴⁾。これも現在から見れば加工熱処理法の一つと考えられ、時代の先端を行っていたとも言える。

2.2.2 押出材の加工熱処理

航空機用高力アルミニウム合金は高強度高靱性のため二輪車のフロントフォーク用合金としても用いられている。しかしながら押出速度が極めて低いために生産性が問題とされる。このため、この系合金の Zn, Mg, Cu 系化合物の析出ノーズが 350°C 付近にあり、Fig. 12 に示すように約 1 μm 程度の第二相粒子が最も多く均一に分散するので、均質化処理後この温度で固溶成分を徹底的に析出させる熱処理を行い、その析出物が再固溶しない温度で押出することで速度を向上させることができた^{19,25,26)}。これは数 μm 程度に析出させた化合物近傍で動的回復が生じやすくなり、このため変形抵抗が減少し変形能が向上したからである。鋳塊の析出処理の有無で引張試験を行った結果を Fig. 13 に示す。析出処理した材料の変形抵抗が小さく、変形能が向上していることがわかる。特に、この系の合金では表層近傍で結晶粒粗大化が生じやすいが、第二相粒子を分散させ押出中に再固



(a) Conventional process



(b) Improved process

Fig. 12 Microstructures in the ingots preheated by conventional process and improved precipitation-controlled one^{25, 26)}.

溶させなければ動的回復が生じて、剪断変形は抑制され結晶粒の粗大化は防止できる。

2.2.3 高強度鍛造品の加工熱処理

自動車の足回りのサスペンション部品では高強度高靱性、高疲労強度で耐食性が要求される。このため 6000 系合金の高強度化を図るために、Mg, Si, Cu などを多く添加するが、再結晶すると粒界析出を伴いやすく靱性が低下する。従来の鍛造棒から鍛造する場合は再結晶組織となるが、押出棒を用いると Mn, Cr, Zr の添加により繊維状組織とすることができる^{27, 28)}。この場合の

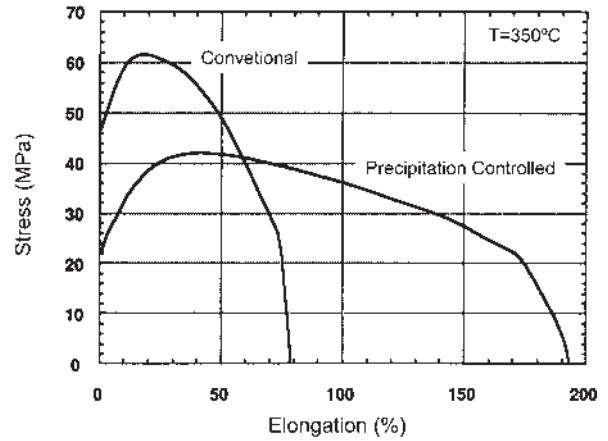


Fig. 13 Effect of pre-heating conditions on stress-strain curves at 350°C^{19, 25, 26)}

製造工程を Fig. 14 に示す²⁸⁾。押出で繊維状組織を形成させるには Mn, Cr, Zr の添加と適正な添加量と均質化処理が必要である。こうして押出で形成された繊維状組織を鍛造後も維持できるかどうか重要である。鍛造温度が低い場合にはその後の溶体化処理でグレイングロ

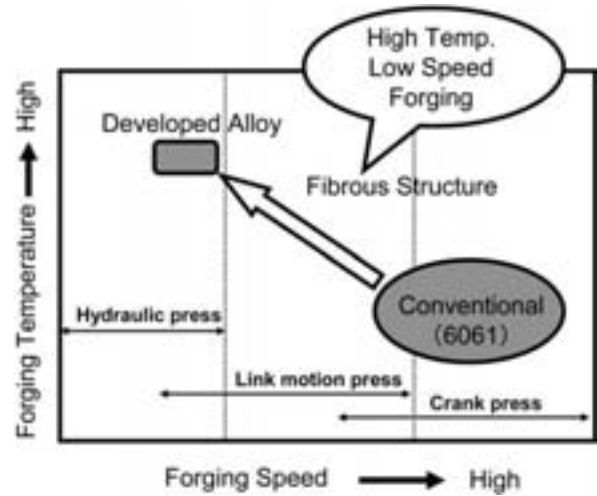


Fig. 15 Optimum forging conditions for high strength aluminum alloy with fine controlled microstructures²⁸⁾.

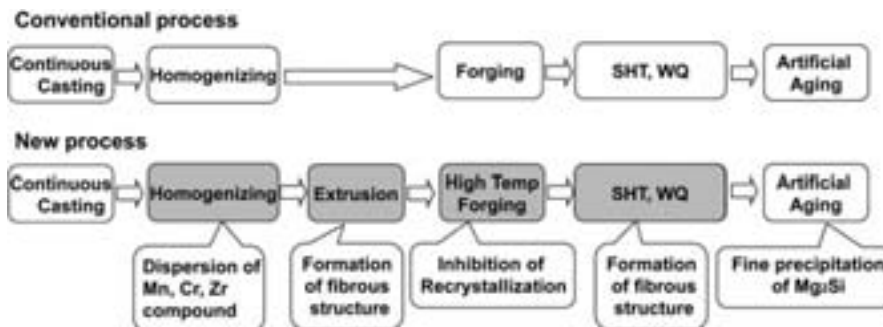


Fig. 14 Thermomechanical treatment for forged suspension arms with high strength 6000 alloys²⁸⁾.

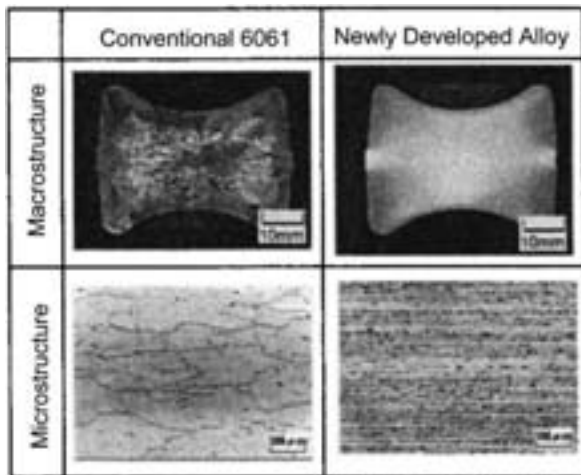


Fig. 16 Macro and micro structures in forged stocks using conventional 6061 alloy and newly developed one²⁸⁾.

スが生じて強度や疲労強度が低下する。また鍛造の加工速度も重要で、歪み速度の遅い油圧プレスが最適である。これを Fig. 15 に示す。最適な鍛造温度と加工速度を選択することで Fig. 16 に示すような鍛造組織を得ることが出来る。Fig. 17 はこうして開発された開発材の強度と靱性を従来工程の 6061 材と比較して示す。

2.3 結晶粒微細化と超塑性特性

2.3.1 7475 合金超塑性材, 静的再結晶と超塑性

前述の中間加工熱処理を 7075 合金に応用して結晶粒径 10 μm 程度の微細粒を有する超塑性材の開発に成功したのが, Rockwell International の Wert らである。彼らの結晶粒微細化プロセスを Fig. 18 に示す^{29,30)}。厚板を溶体化処理後水冷した後, 400 $^{\circ}\text{C}$ で 8 時間の過時効処理を行い, 0.75~1 μm の第二相粒子を析出させて水冷する。その後 220 $^{\circ}\text{C}$ の温間圧延で 90% の強加工を与え, これを急速加熱して再結晶させる工程である。本プロセスで結晶粒が微細化するメカニズムを検討するために, 7075 合金の不純物量を減らした 7475 合金の析出条件を変えて, 90% の冷間圧延を行った。この加工熱処理による結晶粒径の結果を Table 1 に示す³¹⁾。結晶粒が最も微細化するのはい Wert らと同様に, 400 $^{\circ}\text{C}$ で 8~16 時間あるいは 420 $^{\circ}\text{C}$ で 16 時間水冷で, 6.5 μm の結晶粒が形成される。炉冷材では 400 $^{\circ}\text{C}$ で 4 時間以上か 420 $^{\circ}\text{C}$ から炉冷でほぼ 11 μm の結晶粒が形成される。400 $^{\circ}\text{C}$ 8 時間の水冷材と炉冷材と 480 $^{\circ}\text{C}$ 2 時間の水冷材に関して冷間圧延後の電子顕微鏡観察を行った結果を Fig. 19 に示す^{19,31,32)}。水冷材の光学顕微鏡組織には剪断帯が数多く観察されるが, 電子顕微鏡ではマイクロバンドが観察される。第二相粒子のない 480 $^{\circ}\text{C}$ からの水冷材には圧延方向と直角な方向にマイクロバンドが発達しているのが観察されるが, 1 μm 程度の第二相粒子が存

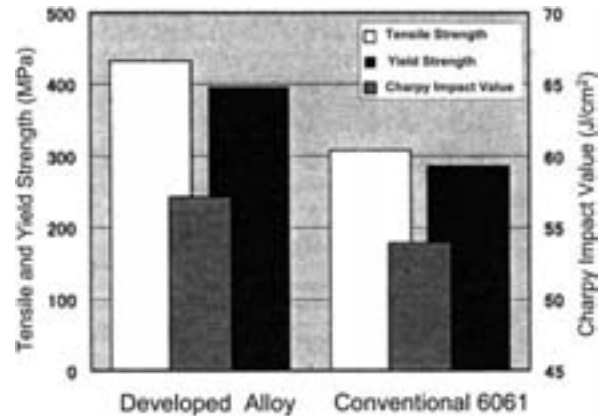


Fig. 17 Comparison of the mechanical properties between 6061 and developed alloys²⁸⁾.

在するとそのマイクロバンドの方向が第二相粒子の周りで複雑に変化していることがわかる。一方, 炉冷材ではマイクロバンドは観察されず, 動的回復が進行し転位セルや亜結晶粒が形成されている。圧延前後の電気伝導度を計ると, 炉冷材では導電率が減少していたが, 水冷材では導電率が増加していたので固溶した溶質原子が転位上に析出して転位組織を安定化していたものと考えられる。400 $^{\circ}\text{C}$ 8 時間水冷材が最も結晶粒が微細化したのは, 第二相粒子近傍で多重迂回により生じた微細なバンドで形成された転位組織上に, 冷間加工中に Zn, Mg, Cu の溶質原子が析出し, さらに焼鈍中にこれらの原子の粒界析出が促進されセル組織や亜結晶粒の成長が抑制される。さらに溶体化温度まで高温になると, 粒界析出した第二相粒子は再固溶するが, この温度では Cr が析出してきて再結晶粒の成長を抑制するために結晶粒は微細化されたものと考えられる。第二相粒子がない 480 $^{\circ}\text{C}$ 水冷材ではマイクロバンドが比較的粗大な間隔で成長し, そのバンドの間隔で結晶粒径が決まってくる。一方, 炉冷材は圧延中に既に転位セルが形成され, 焼鈍

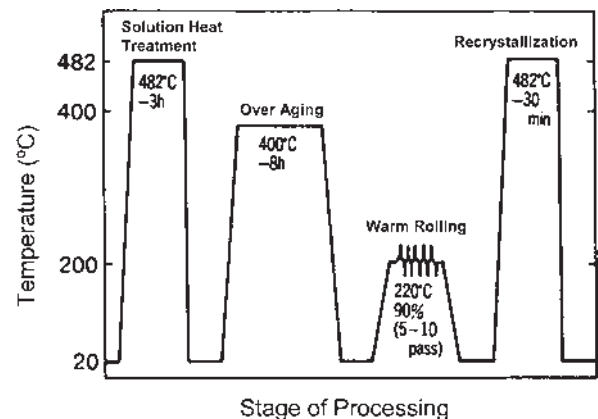
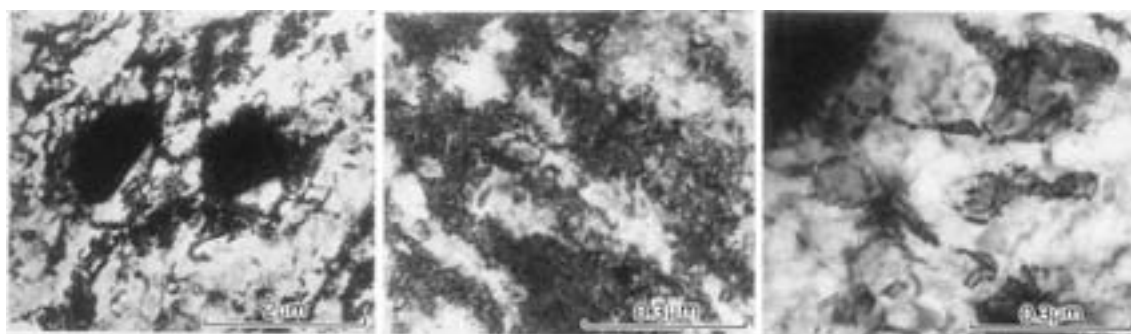


Fig. 18 Grain refinement process developed by Rockwell International for superplastic 7075 alloy sheets^{29,30)}.

Table 1 Effect of intermediate heat treatment on the grain size in L-LT plane of recrystallized sheets³¹⁾.

		Grain size (μm) in L-LT plane after recrystallization											
Solution treatment	Precipitation treatment												
	Temperature	Cooling rate	Holding time					Cooling rate	Holding time				
			1 h	2 h	4 h	8 h	16h		1 h	2 h	4 h	8 h	16h
753K – 1.5ks WQ	633K	WQ	—	—	11	9.5	9.5	FC	—	—	19	19	16
	653K	WQ	—	—	8	8	8	FC	—	—	16	16	13
	673K	WQ	—	8	8	6.5	6.5	FC	—	13	11	11	11
	693K	WQ	—	9.5	9.5	8	6.5	FC	—	11	11	11	11
	713K	WQ	—	9.5	9.5	9.5	11	FC	—	11	11	11	11
	733K	WQ	—	11	11	—	—	FC	—	11	11	—	—
	753K	WQ	15	15	—	—	—	FC	11	11	—	—	—
Without treatment	673K	WQ	—	—	—	8	—	FC	—	—	—	11	—
	753K	WQ	—	15	—	—	—	FC	—	11	—	—	—

Grain refinement process adopted in this investigation : Hot rolled plate \rightarrow Intermediate heat treatment (Solution heat treatment \rightarrow Precipitation treatment) \rightarrow Cold rolling (reduction : 90%) \rightarrow Recrystallization (753K/0.3ks Water quenching)



(a) 400°C/8 h WQ

(b) 400°C/8 h WQ

(c) 400°C/8 h FC

Fig. 19 Effect of intermediate heat treatment on the TEM structures in the cold rolled sheets (90% reduction), (a)(b) : 400°C/8 hWQ, (c) : 400°C/8 h FC^{19, 31, 32)}.

中に亜結晶粒が形成されるが、固溶原子が少ないために、400°C 8時間水冷材よりは結晶粒径が大きくなる。これを図式化したのが **Fig. 20** である^{31, 32)}。工業的にはコイル化した厚板の水冷や温間圧延が困難なため、水冷材より結晶粒径は大きくなるが、**Fig. 21** のような加工プロセスで超塑性材を製造して三菱重工に供試した^{33, 34)}。この方法で製造した高温伸びを **Fig. 22** に示す³³⁾。13 μm の結晶粒を有する材料は 10^{-4}s^{-1} オーダーの歪み速度で超塑性変形を示す。このような方法で製造した超塑性材も、高温予備加熱処理すなわち超塑性変形前に長時間保持することで高温伸びが大きく変化することが明らかとなった。これは変形中のキャビティの発生と関連している。伸びの低い材料ほど、変形の初期からキャビティが発生し、これが変形中に連結して伸びを低下させる。**Fig. 23** は高温保持温度（保持時間はいずれもソルトバス中で 32 時間）とキャビティの発生量の関係を示す³⁵⁾。

これは結晶粒微細化のために粗大な第二相粒子を析出させたが、これが溶体化処理でも結晶粒界に残存し容易に再固溶しないことを意味する。キャビティは 500°C 以上に保持するとまた増加し始めるが、これは結晶粒径の増大と関連しているものと考えられる。また高温予備加熱した材料は 10^{-3}s^{-1} オーダーでも優れた伸びを示す。これは結晶粒界に析出相や不純物が少ないためと考えられる。

2.3.2 7475 合金の動的再結晶と超塑性

静的再結晶させた 7475 合金は通常に製造した超塑性材は 10^{-4}s^{-1} オーダーで優れた成形性を示すため、成形時間が 1 時予びずみ間程度要する。このため成形速度を上げることが要求される。このため昇温成形法や二段成形法が開発された。前者は温間加工温度から超塑性変形温度まで温度を上げながら連続的に変形する方法で、後

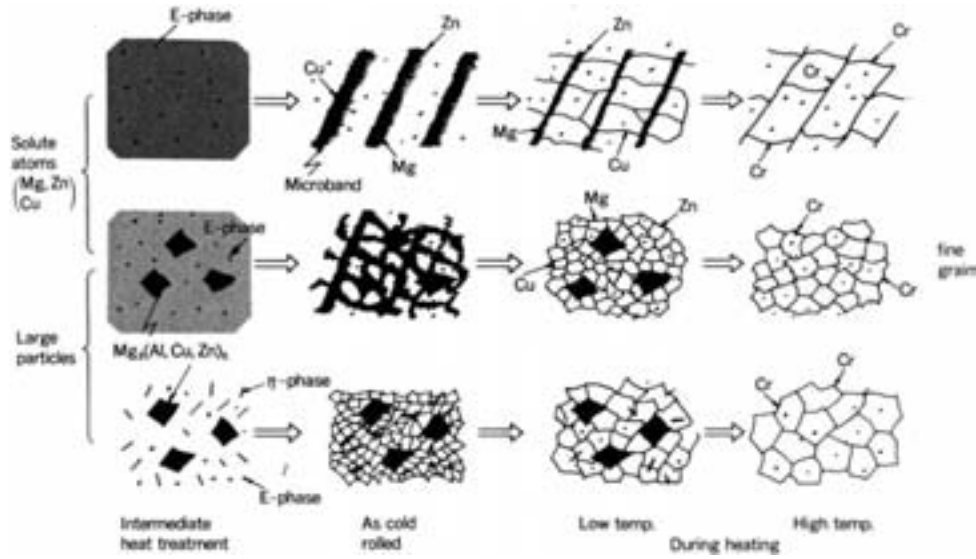


Fig. 20 Schematic model of grain refinement in 7075 alloy sheet^{31, 32)}.

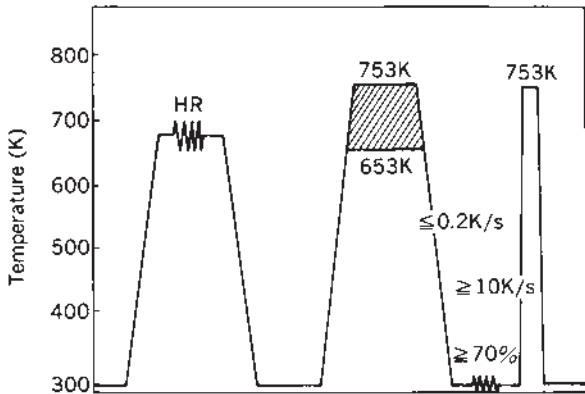


Fig. 21 Grain refinement process developed at Sumitomo Light Metal for superplastic 7075 alloy sheet^{33, 34)}.

者は温間加工で予ひずみを与えた後、超塑性温度で変形する方法である。これらの方法により、 10^{-3}s^{-1} オーダーで成形が可能になる。二段成形法のメカニズムを調べるために、結晶粒径を超塑性材の製造プロセスを用いてある程度小さくした材料を用いて、固溶量と第二相粒子の分布を変えて20~80%の加工度で冷間圧延した。この材料の製造プロセスをFig. 24に示す³⁶⁾。この冷間圧延材を一段目の予ひずみ(付加したひずみ量は65%)の成形温度を変え、二段目は500℃でひずみ速度 $2.7 \times 10^{-3}\text{s}^{-1}$ にて成形する二段成形を行った。50%冷間圧延材の二段目での引張り伸びと冷間圧延前の固溶量、第二相粒子を変えた熱処理条件との関係をFig. 25に示す³⁶⁾。いずれも水冷材が大幅な伸びを示すことがわかる。予ひずみ付加の有無と高温で成形後のマイクロ組織をFig. 26に示す³⁶⁾。予ひずみの付加がないと100 μm 程度の結晶粒径となるが、予ひずみ付加した材料は10 μm 以下の結晶粒径となった。この結果は冷間圧延の加工度によらず歪み付加により $2.7 \times 10^{-3}\text{s}^{-1}$ の歪み速度で900%の

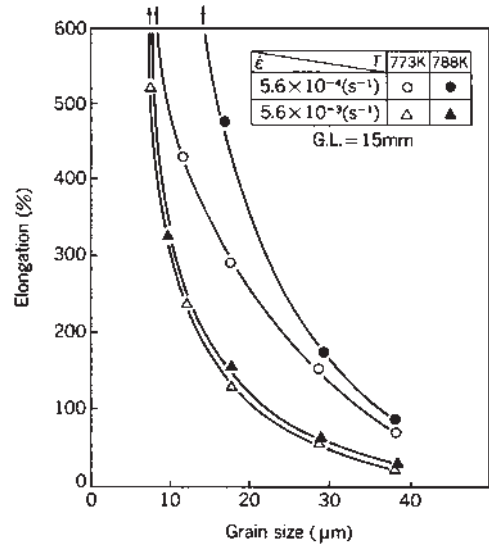


Fig. 22 Effect of grain size and tensile test conditions on the elongation to failure at high temperature³³⁾.

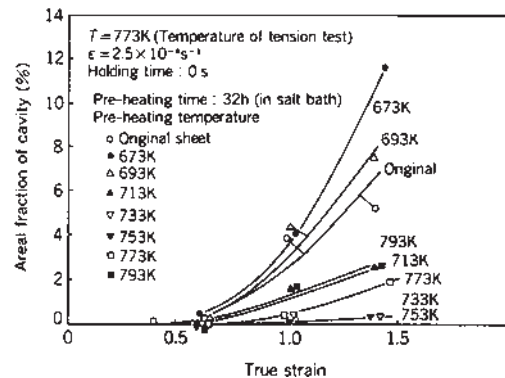


Fig. 23 Effect of preheating temperatures in a salt bath on cavitation during superplastic deformation at 773K and $2.5 \times 10^{-4}\text{s}^{-1}$ without holding at 773K before tensile test³⁵⁾.

伸びを示す。ただし予歪み付加の温度は変わり、熱分析の結果から再結晶温度以下で付加することが必要であることがわかった。これは Fig. 27 に示すように予歪みで安定な亜結晶粒を生成させることが必要のためである。この安定な亜結晶粒生成のために固溶原子が必要である。

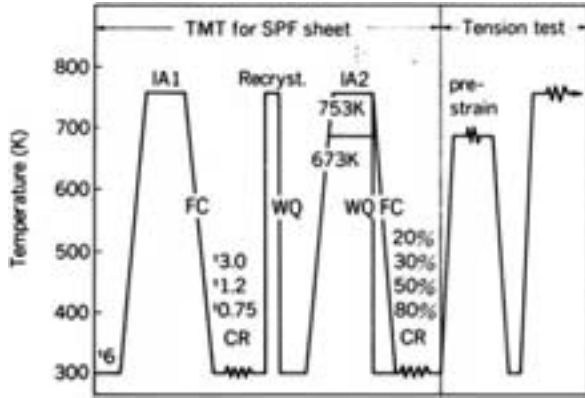


Fig. 24 Process and its conditions of thermomechanical treatment for superplastic forming and tensile test for two-step deformation (FC : furnace cooling, WQ : water quenching, CR : cold rolling, IA : intermediate annealing)³⁶⁾.

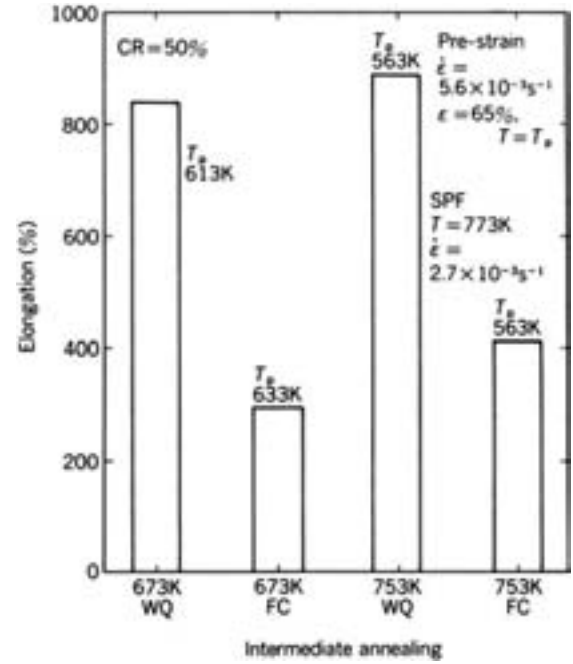


Fig. 25 Effect of excess solute atoms before cold rolling in thermomechanical treatment on total elongation in superplastic tensile test (T_p : temperature of pre-straining)³⁶⁾.

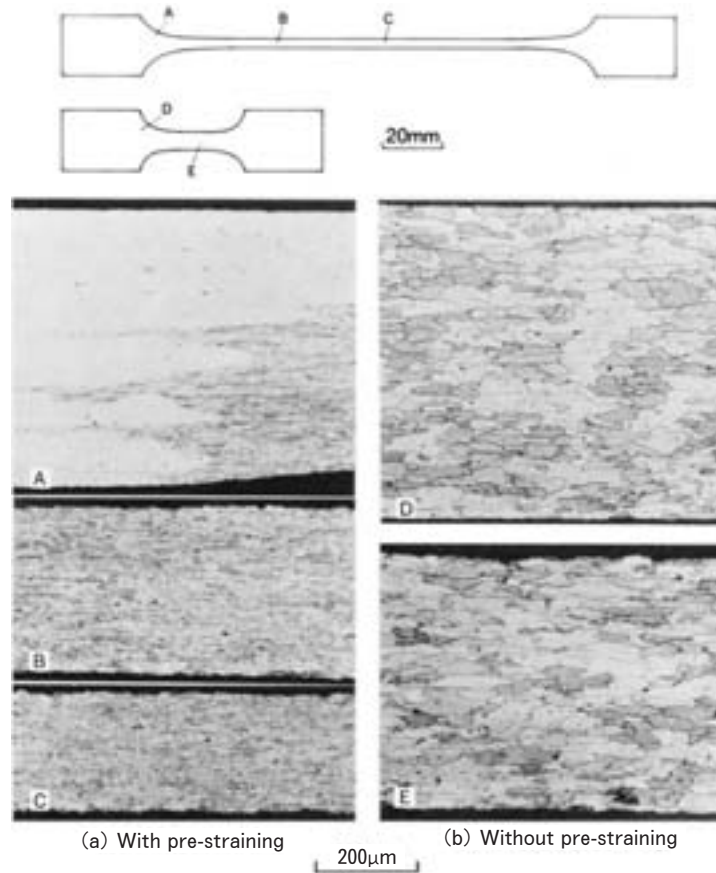


Fig. 26 Microstructures in the cross section parallel to tensile direction (corresponding to L-LT plane in the sheet) after superplastic forming with or without pre-straining³⁶⁾.

この安定な亜結晶粒はさらに高温の引張試験中に動的再結晶で微細粒が形成され、この微細粒のため 10^{-3}s^{-1} オーダーで成形できるものと考えられる。これはまた高温で

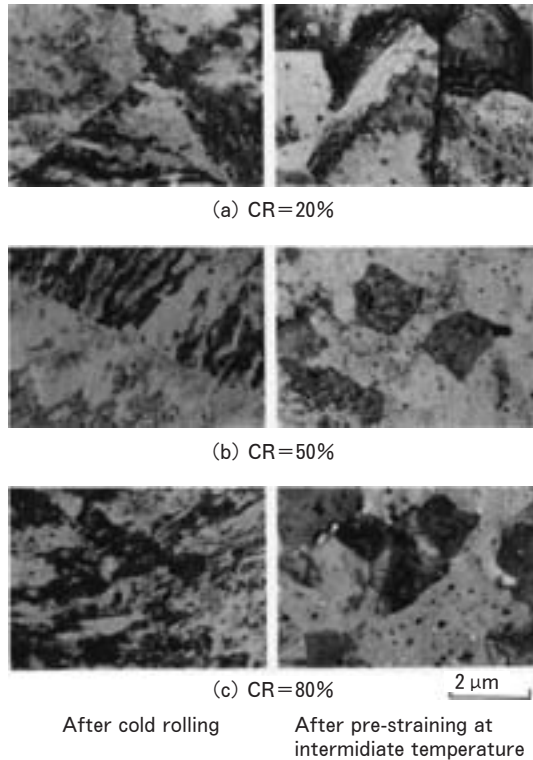


Fig. 27 TEM structures of cold rolled sheets and their pre-strained specimens. The formation of subgrains is observed after pre-straining at intermediate temperatures³⁶⁾.

動的に再結晶させたため、静的再結晶に比べて粒界析出物や不純物が少ないことも関係しているであろう。

2.3.3 Al-Li 合金

Al-Li 合金も高温で超塑性を示すことはよく知られている。このため 7475 合金で開発した加工プロセス (Fig. 21) を Al-Li-Cu-Mg-Zr 系 8090 合金に適用したところ、圧延方向では 10^{-3}s^{-1} オーダーで 700% 程度の伸びを示すが、圧延直角方向では 300% 程度と異方性を示すことが明らかとなった。この圧延材の超塑性変形中のマイクロ組織と集合組織の変化を Fig. 28 に示す^{32,37)}。この組織変化から 8090 合金は動的再結晶により結晶粒は微細化し高い伸びを示すことがわかった。また最も高い伸びが得られる温度とひずみ速度は 500°C 、 10^{-3}s^{-1} であったが、この条件は Fig. 29 からわかるように結晶粒径が微細で粒界析出の少ない条件である³²⁾。なお、結晶粒径は粒界析出と関連していて、粒界析出によって結晶粒成長が抑制され微細になるが、粒界析出が多すぎても伸びを低下させる。異方性に関しては圧延方向に沿って元の結晶粒界近傍で静的再結晶した粗大な結晶粒が変形前から存在するため圧延直角方向の伸びは低くなったと考えられる。この異方性をなくするために新たに加工熱処理法を検討した。最適な熱間圧延条件を探るために、それぞれの合金の析出挙動を調査した。8090 と 2090 合金鑄塊の $300\sim 450^\circ\text{C}$ での導電率と硬度を測定した。Fig. 30 に示すように 2090 合金は 400°C 以上の高温長時間ほど析出量が増加し硬度は低下する。一方、8090 合金は 300°C の低温ほど析出量が増加し硬度も高いが、この温度で硬度が減少するのは 31 時間以上の長時間であ

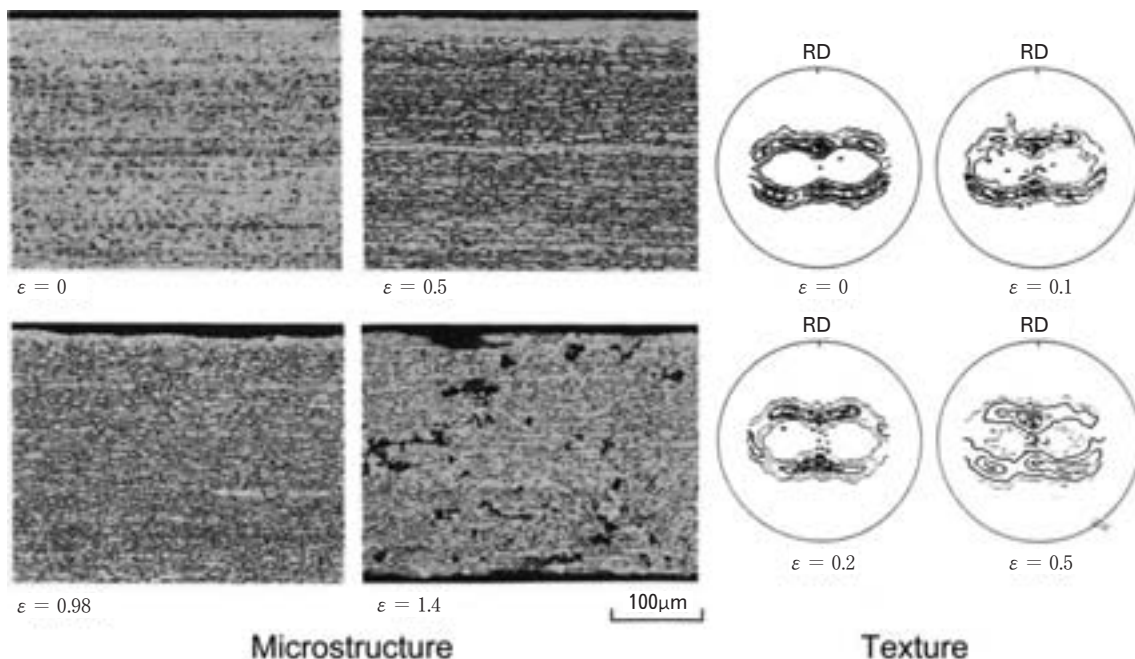


Fig. 28 Changes of microstructures and (111) pole figure of 8090 alloy sheet during superplastic deformation at 773K and $4.2 \times 10^{-3}\text{s}^{-1}$ ^{32,37)}.

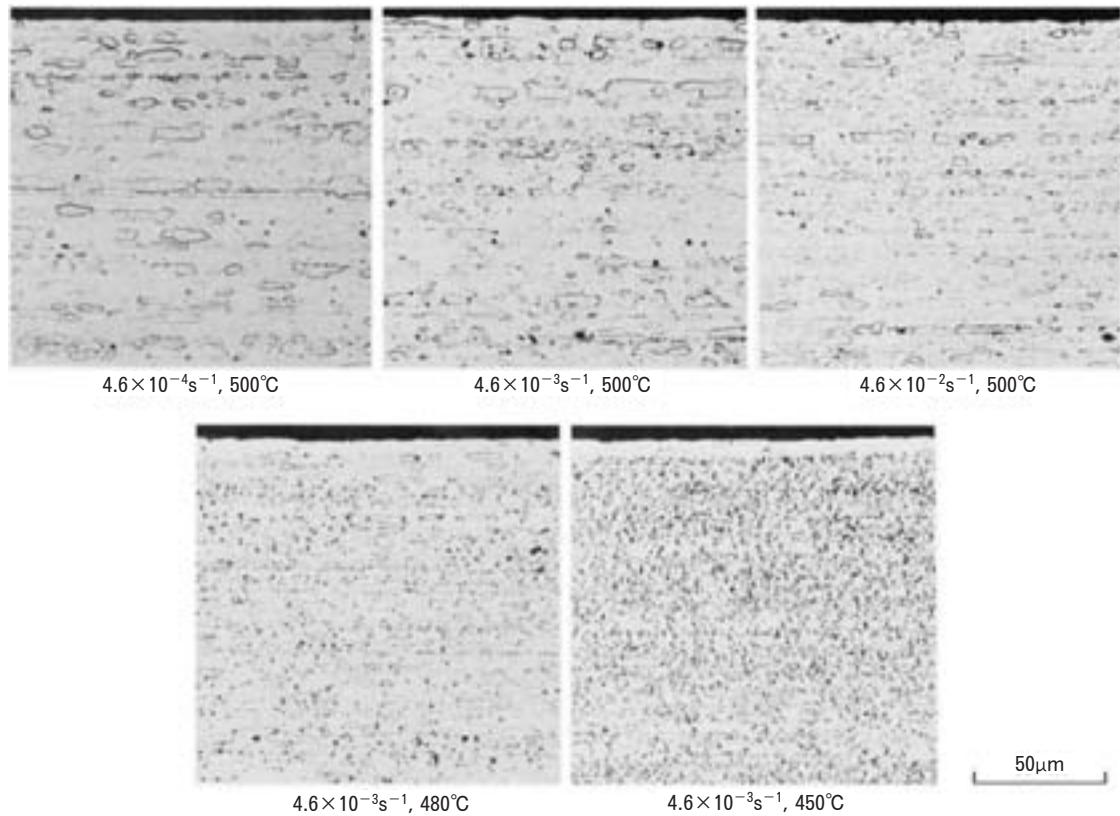


Fig. 29 Effect of temperature and strain rate in tensile test on the grain size and grain boundary precipitation at the deformation of strain 0.3. Optimum condition to obtain maximum elongation is $4.6 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, 500°C because both small grain size and few grain boundary precipitation are fulfilled in its condition³²⁾.

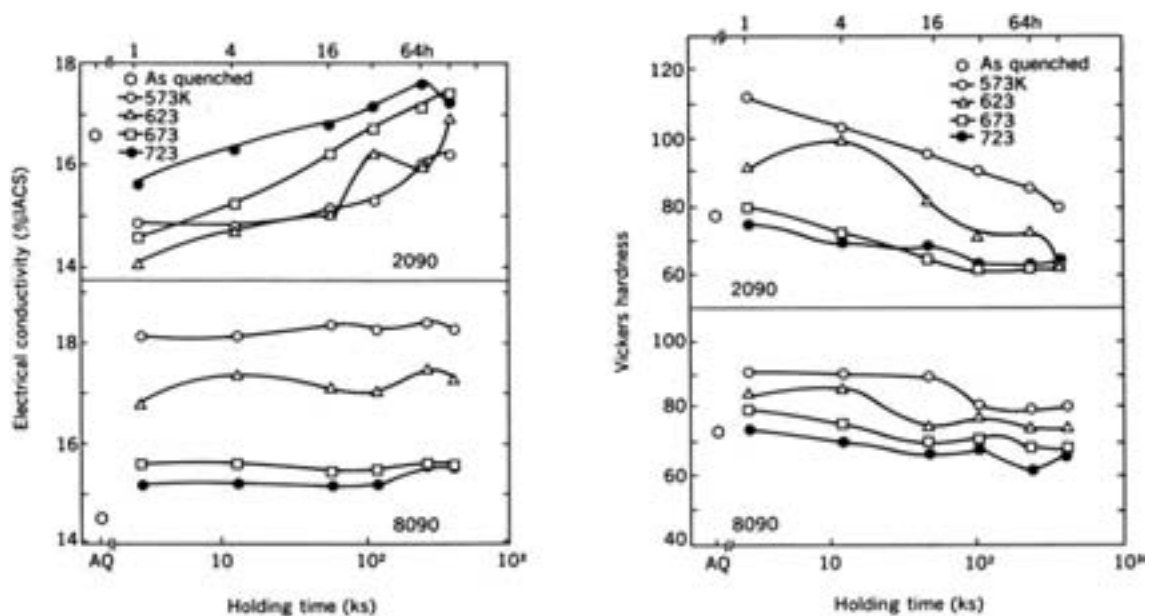


Fig. 30 Isothermal changes of electrical conductivity and Vickers hardness in 8090 and 2090 alloy ingots heated at 573~723K³⁸⁾.

る。電子顕微鏡観察から 2090 合金では主要には板状析出物の T_1 相で、8090 合金では塊状(棒状)析出物の T_2 相であった。8090 合金の DSC 熱分析から T_2 相の析出のピークが 320°C であることがわかった。最適な熱間加

工条件を探るために押出材で押出温度を変えてその超塑性特性を調査した。その結果を Fig. 31 に示す³⁸⁾。8090 合金は 320°C で Al-Cu-Li-Zr 系 2090 合金は 400°C の押出で最も高い伸びを示し、同じ Al-Li 合金でも最適温度

が異なることがわかった。超塑性挙動はこれらの析出が変形中の亜結晶粒生成に影響を及ぼしていることが明らかとなった。Fig. 31 に示したように 2090 合金は 450°C では超塑性挙動を示さなかったが、これは押出での加工熱で温度上昇を伴い、 T_1 相が析出しにくく安定な亜結晶が形成されなくなったものと考えられる。この析出挙動を前提に圧延の加工熱処理条件を検討した。2090 合金では 400°C 12 時間の予備加熱後 350°C で温間圧延を行うと異方性も少なく 500°C、 $5.6 \times 10^{-3} \text{s}^{-1}$ で 1000% の伸びが得られた。8090 合金では、温間圧延前の保持時間の影響を受け、320°C で 86 時間以上の保持後 320°C で温間圧延した材料が最も異方性が少なく、500°C 到達後 10 分保持後、 $5.6 \times 10^{-3} \text{s}^{-1}$ で引張試験すると 1100% の伸びが得られた。8090 合金について、7475 合金で用いたプロセス (従来プロセス) と温間圧延によるプロセス (新プロセス) による伸びの比較を Fig. 32 に、500°C

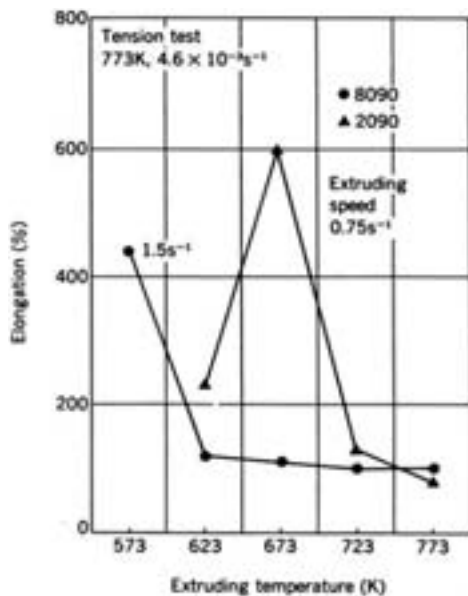


Fig. 31 Effect of extruding temperature on superplastic elongation in 8090 and 2090 alloy extruded bars³⁸⁾.

で 5 分間ソルトバスにて加熱後の組織を Fig. 33 に示す。温間圧延プロセスでは元の結晶粒界が消失し、均一微細な組織の得られることがわかる。さらに温間圧延前に熱間鍛造プロセスを加えた材料はさらに高温伸びが増加し、Fig. 34 に示すように室温強度の異方性もなく、室温での伸びも高いことがわかった^{19,34)}。

2.3.4 Al-Mg 合金

田中らは Al-5.5%Mg 合金 (C-0) と Al-5.5%Mg-0.3%Cu 合金 (C-3) を押出、抽伸加工、熱処理で結晶粒径 350 μm と 100 μm の丸棒を製作し、300~480°C で 10^{-2}s^{-1} の引張速度で試験した。このときの伸びを Fig. 35 に示す^{39,40)}。結晶粒径 100 μm を有する Al-5.5%Mg-0.3%Cu 合金の試料は 400°C 以上で超塑性伸びの指標である 300% 以上の伸びを示した。Cu 添加で伸びの向上は顕著である。変形途中の SEM によるチャンネルングコントラストを Fig. 36 に示す^{39,40)}。元の結晶粒界でキャ

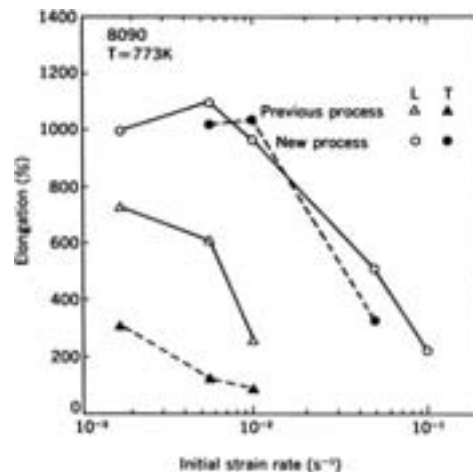


Fig. 32 Superplasticity of an 8090 sheet produced by a new process (controlled warm rolling at 573K) compared with one by a previous process (hot rolling, annealing followed by furnace cooling, cold rolling with high reduction and finally rapid heating at 773K)^{32,38)}.

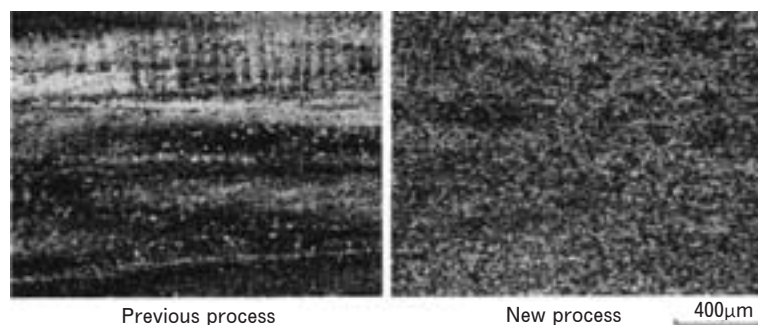


Fig. 33 Microstructures of 8090 sheets rapid heated at 773K for 0.3ks, produced by two kind of process, previous process (hot rolling, annealing followed by furnace cooling, cold rolling with high reduction) and new one (controlled warm rolling at 573K). In a previous one, original grain and their grain boundaries remain³⁸⁾.

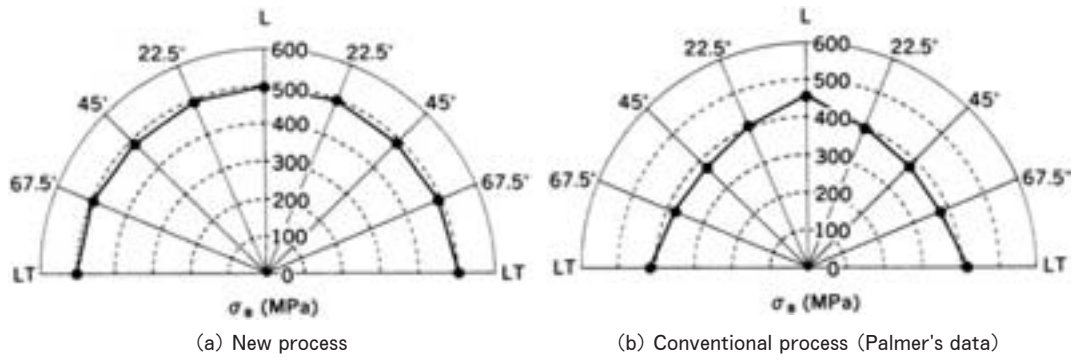


Fig. 34 Comparison of anisotropy in tensile strength at room temperature between new (controlled warm rolling at 573K) and conventional processes³⁴⁾.

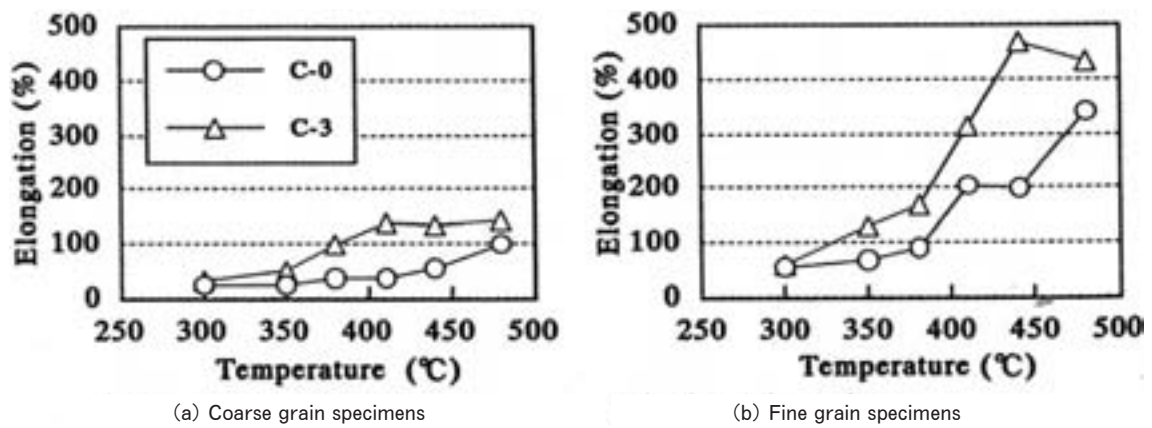


Fig. 35 Changes of elongation at elevated temperature and a strain of 10^{-2}s^{-1} in Al-5.5%Mg (C-0) and Al-5.5%Mg-0.3%Cu (C-3) alloy extruded rod with coarse grains (grain size: $\sim 350\mu\text{m}$) and fine ones ($\sim 100\mu\text{m}$)³⁹⁾.

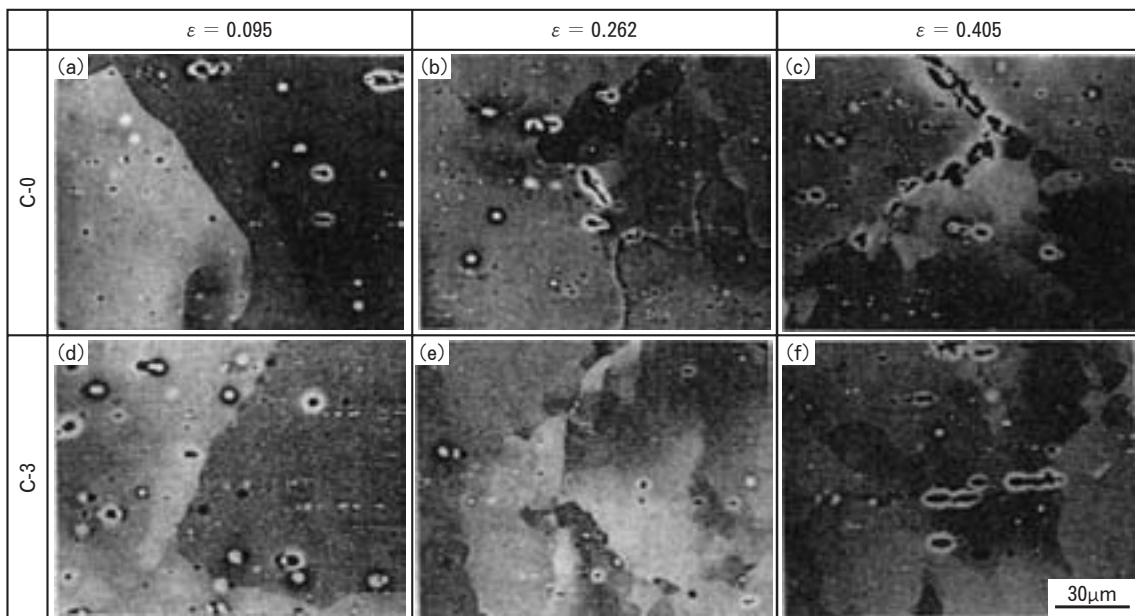


Fig. 36 SEM-ECC (electron channeling contrast) images of Al-5.5%Mg (C-0) and Al-5.5%Mg-0.3%Cu (C-3) alloy extruded rod with grain size of $\sim 100\mu\text{m}$ deformed at 440°C and the true strain of 0.095, 0.262 and 0.40539)⁴⁰⁾.

ビティが生成し、歪み量が増すにつれて連結していく様子がわかる。また元の結晶粒界は波打ち、粒内に亜結晶粒が観察され、本実験範囲内では動的再結晶は観察されなかった。なお、Fig. 37 に示すように 380°C で引張試験した材料の結晶粒界には試験前には存在しなかった T 相 ($\text{Al}_6\text{Mg}_4\text{Cu}$) が観察された^{39,41)}。滝口らは Mg 量を 3~8% と変えて同様な試験を行い、電顕観察から Al-8%Mg 合金で粒界に Mg が偏析し β 相を形成していることを明らかにした⁴²⁾。Cu 添加で伸びが向上した理由は、Fig. 38 に模式的に示すように変形中に β 相は粒界に連続的に析出してボイドを形成し、粒界破壊しやすくするのに対し、Cu が添加されると Mg は Cu と結合して T 相 ($\text{Al}_6\text{Mg}_4\text{Cu}$) を形成し、 β 相の連続析出を抑制し、伸びを向上させていると考えられる^{39~42)}。内田らは Al-5.5%Mg-0.3%Cu 合金の結晶粒径約 50 μm を有する板材を作製し、ひずみ速度を変えて高温引張試験を行ったところ、通常の超塑性 5083 合金に比べ、比較的低温でかつ $10^{-2}\sim 10^{-1}\text{s}^{-1}$ の高ひずみ速度で高伸びが得られた⁴³⁾。この Al-5.5%Mg-0.3%Cu 合金は 5083 合金に比べてキャビティの発生が極端に少ないことが特徴である。

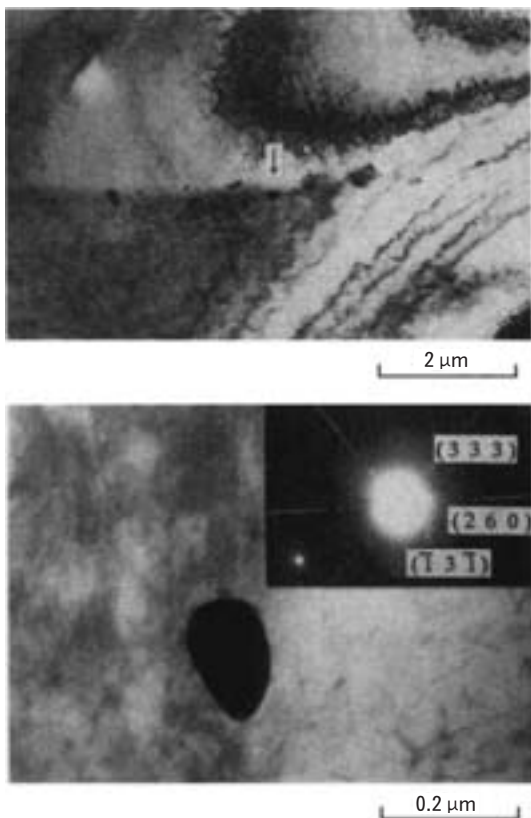


Fig. 37 TEM images and diffraction pattern of T-phase in Al-5.5Mg-Cu alloy deformed at 380°C and a strain of 0.05^{39,41)}.

2.4 7075 合金の結晶粒粗大化抑制、ストリンガー材
ボーイングの B767 機体の製造では、従来、7075 押出型材を用いたストリンガー（縦通し材）の重量を軽減するため、Fig. 39 に示すように、板材を圧延により長手方向で肉厚を変動させ、継手部分のみを厚くしたテーパーストリンガーを全面的に用いようとした。しかしながら、従来の海外製 7075 板材では、テーパ圧延で弱加工された部分は溶体化処理で結晶粒粗大化が生じて、その後のハット型加工で割れが発生し、疲労強度の低下する問題が発生した。このため弱加工でも結晶粒粗大化しない材料の開発が求められた。住友の馬場、宇野らは連続焼鈍炉を用い急速加熱、急速冷却処理で結晶粒を 50 μm 以下に微細化し、その後適正な析出処理により軟化させることで、テーパ圧延の弱加工・溶体化処理で結晶粒粗大化が生じない加工熱処理法を開発し国産化した^{5,44)}。Fig. 40 にその開発プロセスを従来プロセスと比較して示す⁴⁵⁾。開発プロセスの製造条件を Table 2 に示す。従来プロセスと開発プロセスによる冷間加工度と結晶粒径の関係を図 41 に示す。開発プロセスで結晶粒粗大化が生じなかった理由は、O 材のための再加熱条件が大きく異なることである。海外材は O 材処理を通常の 400°C で行っているが、住友は CAL を用いて一旦溶体化処理して結晶粒径を 40 μm と小さくし、溶質原子を再固溶させ、その後 300°C の低温で焼鈍している。このことで Fig. 42 に示すように、第二相粒子の析出状態が異なる。従来プロセスの O 材 (400°C 炉冷) を加工すると粗大な第二相粒子の近傍で固溶度が少ないために O 材処理後の加工で動的回復が進行しやすく、弱加工では溶質原子の析出も少ないために結晶粒成長を抑制できず粗大な再結晶粒となる。一方、開発プロセスでは、

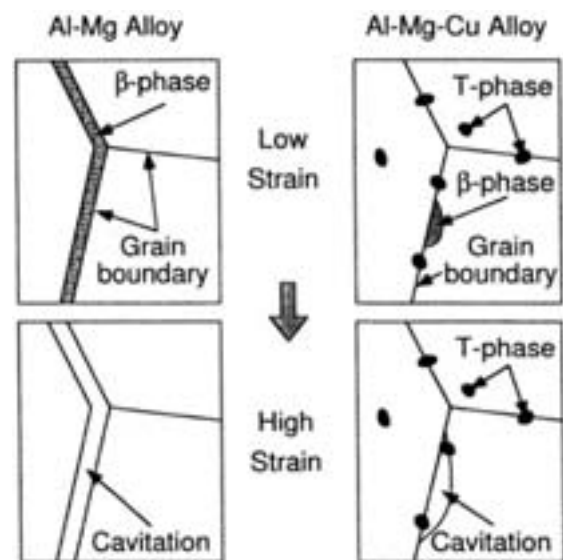


Fig. 38 Schematic model of cavitation in Al-Mg and Al-Mg-Cu alloys deformed at high temperature^{39~42)}.

低温焼鈍（300℃ 炉冷）で析出相が微細で動的回復の進行が遅く、焼入れ工程で再固溶した溶質原子は低温焼鈍のため残存し、加工中あるいは加工後の溶体化処理時にセル組織や亜結晶粒界等に析出して再結晶粒の成長を抑制し、20%の弱加工では Fig. 43 に示すように元の結晶粒界を残して亜結晶粒を含む結晶粒（その場再結晶）となったと考えられる。三菱重工はこの加工熱処理を施した板材をハット型に成形し、ボーイング B767, B777 のストリンガーに用いることができた。Fig. 44 は B767 機の胴体部で、ハット型に成形されたテーパーストリンガーと湾曲したフレームと外板がリベットで組み合わされている様子がわかる。

2.5 温間圧延材の組織，スーパーメタル研究

「3 μm 程度以下の極微細結晶粒を有する組織制御材料で、工業的特性（強度，耐食性）が現在使用されている

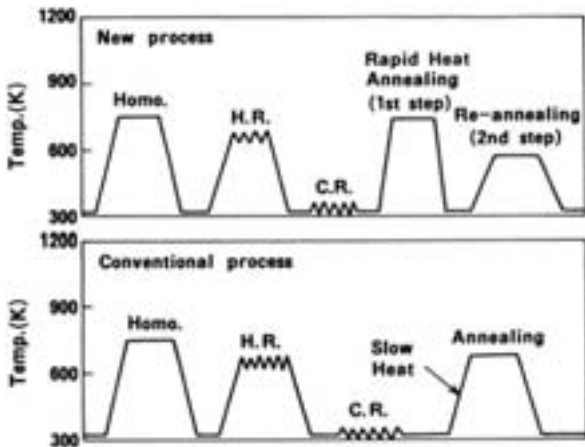


Fig. 40 Schematic diagram of the production of 7075 alloy sheet coil for taper-rolled stringer⁴⁵⁾.

Table 2 Manufacturing conditions for taper-rolled stringer⁴⁵⁾.

(1) Material	: 7075-O Sheet (3 ~ 4 ^t mm × 150 ^w mm × 10 ^l m)
(2) Taper Rolling	: Cold Rolling by 0 ~ 80%
(3) Solution Treatment	: 733 ~ 772K × 2.4Ks → W.Q.
(4) Roll Forming	
(5) Jogging	
(6) Aging	: 393K × 86.4Ks

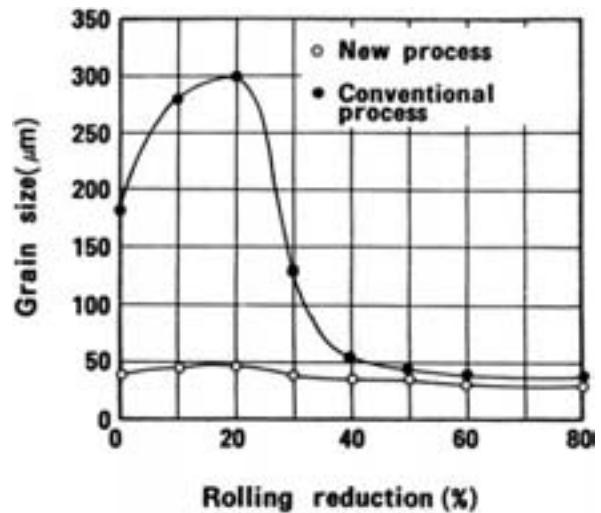


Fig. 41 Effect of taper rolling reduction on grain size of 7075 alloy sheet taper-rolled by 0 ~ 80% and solutionized at 750K for 2ks. (process, referred to Fig. 41)⁴⁵⁾

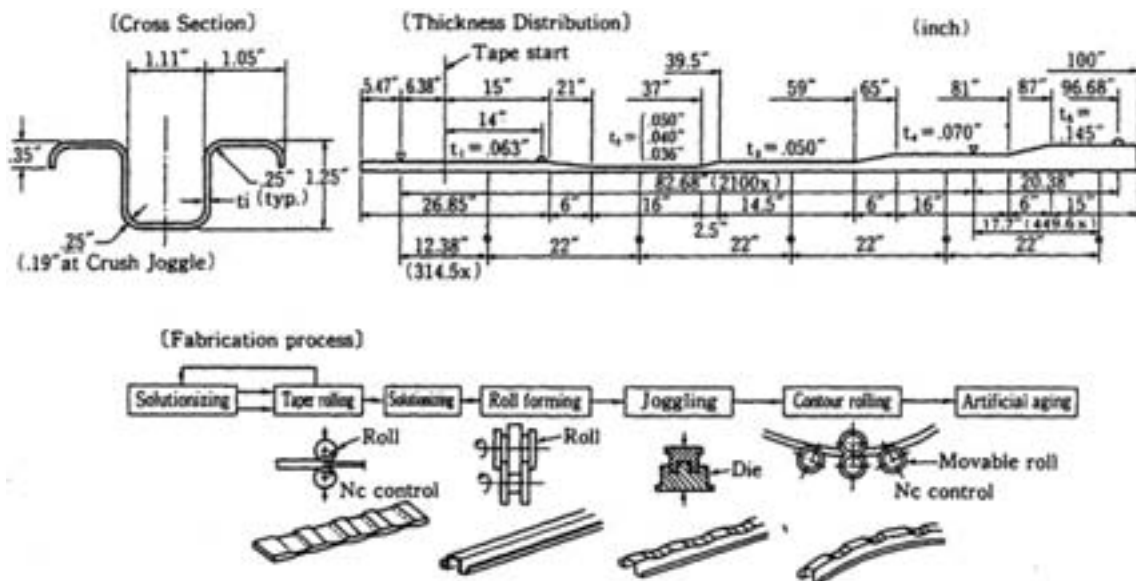


Fig. 39 Shape and dimension of taper-rolled stringer and its manufacturing process⁴⁴⁾.

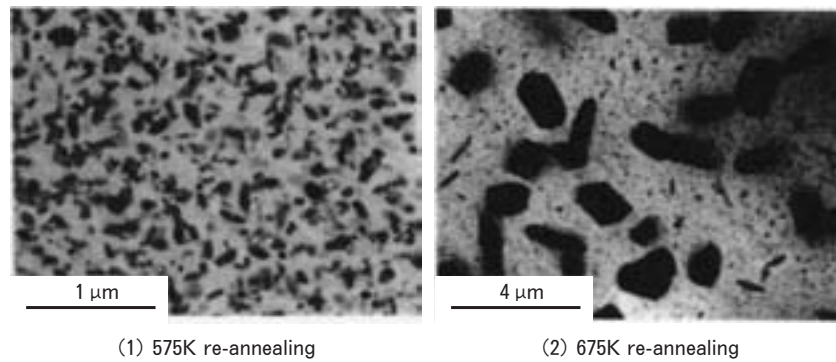


Fig. 42 TEM structures of 7075 alloy cold-rolled by 50%, then, rapid heated (3.3×10^3 K/ks) to 740K for 300s and rapid-cooled (6.6×10^3 K/ks) and finally re-annealed for 3.6ks⁴⁵⁾.

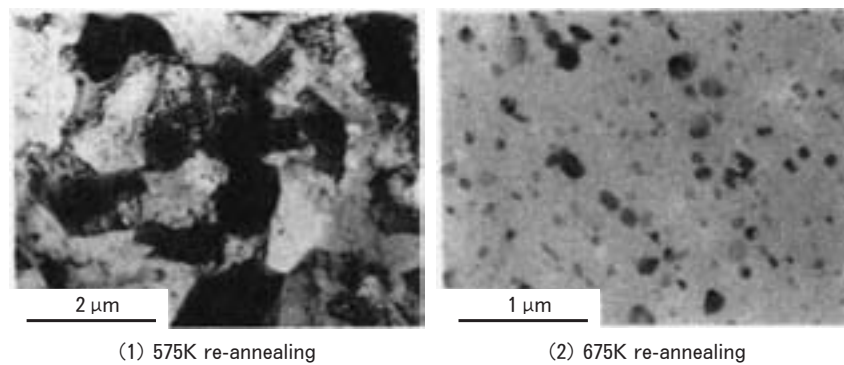


Fig. 43 TEM structures of 7075 alloy cold-rolled by 50%, rapid heated (3.3×10^3 K/ks) to 740K for 300s and rapid-cooled (6.6×10^3 K/ks), re-annealed for 3.6ks and finally cold rolled by 20%⁴⁵⁾.



Fig. 44 Fuselage of B767 made of taper-rolled stringer^{4,5,44)}.

る同種材料の1.5倍以上、かつ板幅が200mm以上のアルミニウム系大型素材の創製技術を確立する」ことを目標としたスーパーメタルの技術開発プロジェクトがNEDO（新エネルギー・産業技術総合開発機構）のもとで平成9年度から5ヵ年計画で行われた⁴⁷⁾。基礎研究として、各種の結晶粒微細化手法、すなわち低温圧延、

ECAP、ARB、異周速圧延、溶湯圧延、温間圧延が試みられた。この中の低温圧延では、Al-Mn系、Al-Mg系合金の -196°C での圧縮試験では常温での圧縮に比べて加工硬化を示すが、加工硬化の程度はAl-Mn系合金の方が大きいことがわかった⁴⁷⁾。その後加工温度 -100°C から室温まで上げていくと加工硬化量は減少し、Al-Mg系合金では極低温と室温圧延を組み合わせた圧延は、室温だけで加工したものよりも加工硬化量が減ることがわかった。これは室温での圧延ではMgが転位と固着しやすいが、低温では固着しにくいと考えられた。これらの低温加工の影響を圧延で確認するために、低温圧延装置を考案した⁴⁸⁾。これは、圧延装置本体のほかに、ロール表面に液体窒素を噴霧する冷却装置、圧延前後に取り付けたアンコイラー、コイラーおよびコイルを通板させながら連続して冷却するための液体窒素槽からなる。まずシート圧延で材料温度を確認したところ、 -170°C で開始したが、板厚が2mm以下になると材料温度が急激に上がることがわかった。これはロール温度が 4°C にしているため、ロールからの抜熱が大きいと考えられた。コイル圧延でも圧延速度が速いほうが抜熱の少ないことがわかったが、いずれにしてもロールによる抜熱は避けられず、冷温での蓄積された歪を室温まで維持することは困難であるとの結論になった。その後プロジェクトでは大型素材の実用化可能性の高い溶湯

圧延法と温間圧延法に絞られた。

双ロール式溶湯圧延法では 300°C/s 以上の冷却速度で圧延することができ、DC 法 (10°C/s) では巨大化合物を晶出するため健全な素材が得られない Al-2~3%Mn 系合金の板材の製造に成功した^{49,50)}。その結果、適切な熱処理と 90% の冷間圧延後、急速加熱することで 15° 以上の方位差をもつ、いわゆる大角粒界の比率が高い 3 μm 以下の微細再結晶粒組織が得られた。Al-2~3%Mn-2.5%Mg 合金は 5083 合金に匹敵する強度と 5083 合金よりも優れた耐応力腐食割れ性を有することも判明した。

温間圧延は押出材で得られるような溶体化処理後も安定な亜結晶粒を板材で形成させて、強度アップを図ろうとする目的で用いられた圧延方法である。通常安定な亜結晶粒を得るには Cr や Zr が添加される。箕田らは 7475 系合金をベースに Cr, Zr, Cr と Zr の複合添加した鑄塊を 470°C 10 時間の均質化処理後、350°C 10 時間の析出処理を行い、100mm から 40mm まで 350°C で温間鍛造後、350°C で温間恒温圧延した。その結果、Zr のみを 0.17% 添加した合金が溶体化処理後も安定な亜結晶粒を有した組織 (Fig. 45) となった⁵¹⁾。これは、均質化処理時や析出処理時に Cr が安定相で母相と非整合な E 相 (Al₁₈Mg₃Cr₂) を形成し回復・再結晶を促進しやすいのに対し、Zr は準安定相で母相と整合性を有する微細な Al₃Zr を形成しその凝集化速度は遅くかつ固溶度を有して再結晶を抑制するためと考えられた。470°C 100 時間の均質化処理を行うと結晶粒径約 2 μm

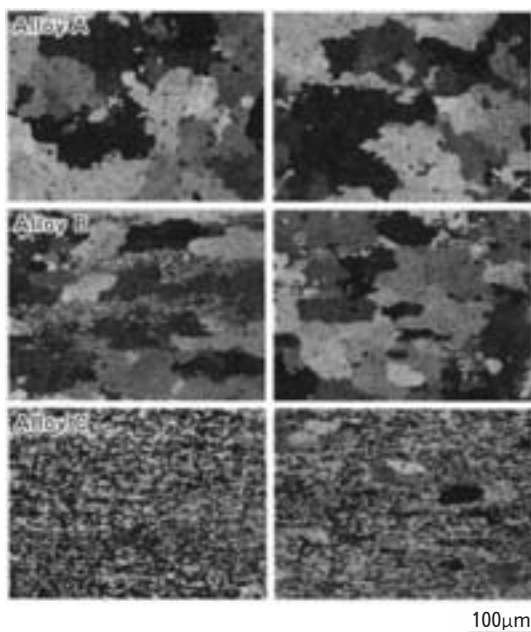


Fig. 45 Microstructures after solution heat treatment of warm rolled 7475 based sheet. Sample thickness of 1.2mm (left) and 0.8mm (right). Alloy A contains 0.21%Cr, alloy B, 0.21%Cr and 0.15%Zr, and alloy C, 0.17%Zr⁵¹⁾.

の全面再結晶組織となった。これは均質化処理時に Zr の固溶量が低下したため再結晶しやすくなったと考えられた。田中らは温間恒温圧延温度を 300, 350, 400°C と変えて圧延した結果、350°C が最も安定な亜結晶粒を形成することがわかった⁵²⁾。350°C 圧延材は集合組織からは β 方位群の集積が先鋭で、従来の再結晶組織に比べて T6 強度が 10% 向上した。また耐応力腐食割れ性も極めて良好な特性を示した。この温間恒温圧延では、溶体化処理時の表層での結晶粒粗大化が生じやすいことが問題であった。特に冬場に粗大化しやすいことが分かり、ロール温度の影響が考えられた。Fig. 46 はロール温度を変えて温間恒温圧延を行い、480°C 5 分間ソルトバスで熱処理し水冷した時の断面マイクロ組織である。低温ほど中心部まで結晶粒粗大化が生じることが明らかとなった⁵³⁾。これは Fig. 47 に示すようにロール温度が低温であればあるほど表層で剪断変形が生じ、加工硬化し再加熱時に表層だけが軟化して、中心付近は弱加工状態にな

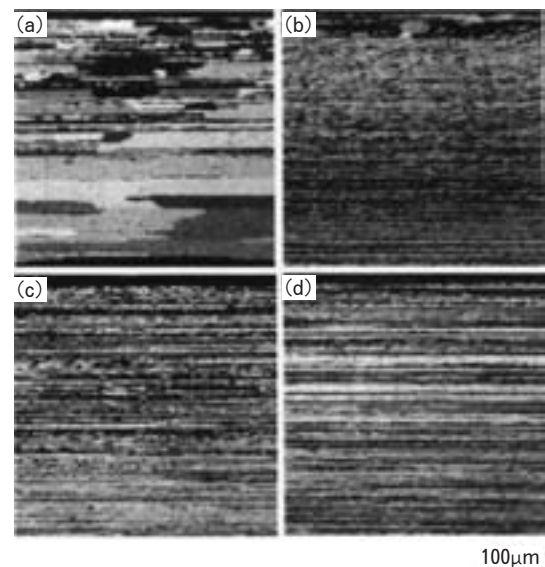


Fig. 46 Microstructures after solution heat treatment in the sheets rolled with the roll temperature at (a) 2-10°C, (b) 20-30°C, (c) 60-80°C and (d) 90-110°C⁵³⁾.

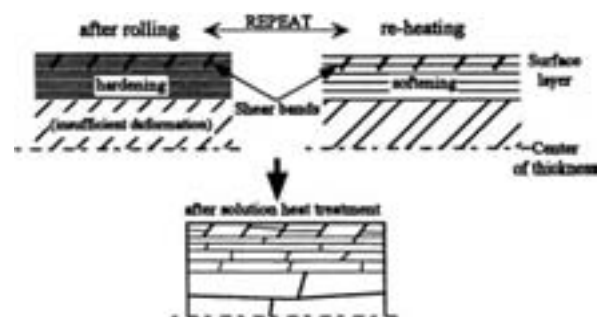


Fig. 47 Schematic diagram of the coarsening mechanism in rolling with roll temperature, 2-10°C⁵³⁾.

るためと考えられた⁵³⁾。このため、ロールにヒーターを埋め込んだ Fig. 48 に示すような温間圧延機を開発した⁵⁴⁾。この方法で製造された Zr を添加した 7475 系圧延板は Brass 方位 $\{011\} \langle 211 \rangle$ の方位密度が高く、 45° 方向の r 値が 3 を超える値を示した。本プロセスを Zr が添加された 5083 系合金に適用した結果、 400°C の恒温圧延が 350°C の最終焼鈍で最も安定な亜結晶粒組織が形成され、従来の 5083 合金の耐力に比べて約 40% 以上の高い H22 材相当の耐力が得られた。

2.6 成形時の肌荒れ

工業的の結晶粒径が問題となるのは、成形するとき成形された表面に肌荒れを生じる場合である。肌荒れにもいくつか種類があり、ルーパーマークと呼ばれる波状の模様が生じる場合、みかんの肌 (柚子肌) のようになるオレンジピールと呼ばれる模様が生じる場合や Al-Mg-Si 系の自動車ボディシートを成形するとき問題となるリジングマークあるいは Al-Mg 系合金を成形するとき生じるストレッチャーストレインマークなどがある。

Mn や Cr などの遷移元素を含む合金では、鑄塊予備加熱 (あるいはソーキング) がない場合や低温予備加熱の場合には、共晶系の Mn, Fe などが鑄塊で粒界偏析して残存したり、包晶系の Cr が粒内で固溶された状態であると、Fig. 49 に示すような深絞り成形時にルーパーライン (Looper Lines) あるいはローピング (Roping) とも呼ばれる筋状の表面欠陥が生じやすい^{55,56)}。これは鑄造組織が圧延で細長く伸びて繊維状組織となるが、粒界偏析や遷移元素の固溶のために、再結晶が生じにくい場合再結晶 (連続再結晶) のために鑄造組織が伸びたまま、あるいはその繊維状組織の内部で微細結晶粒が形成されてもほとんど同じ集合組織を有するため見かけ上一個の結晶粒として挙動するためにルーパーラインを形成する。高温での鑄塊予備加熱や熱延条件の適正化や中間焼鈍で再結晶させることでなくすることができる。

ルーパーラインとよく似たのが、Al-Mg-Si 系の自動車ボディシートの成形で問題とされるリジング (Ridging) あるいはリジングマークである。これもローピングとも呼ばれている。小関らは、6016 合金のリジングマークを集合組織の観点から調査して、Goss 方位に強

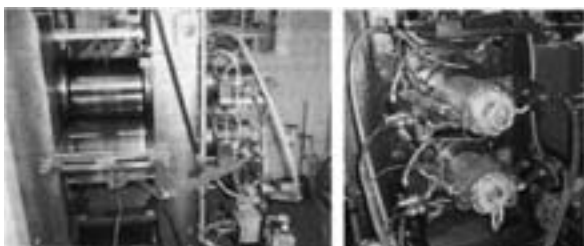


Fig. 48 New developed rolling machine with heating system^{48,54)}.

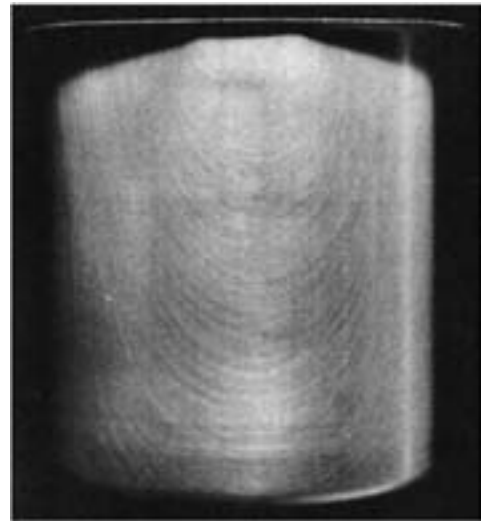


Fig. 49 Deep drawn aluminum sheet showing looper lines (roping)⁵⁵⁾.

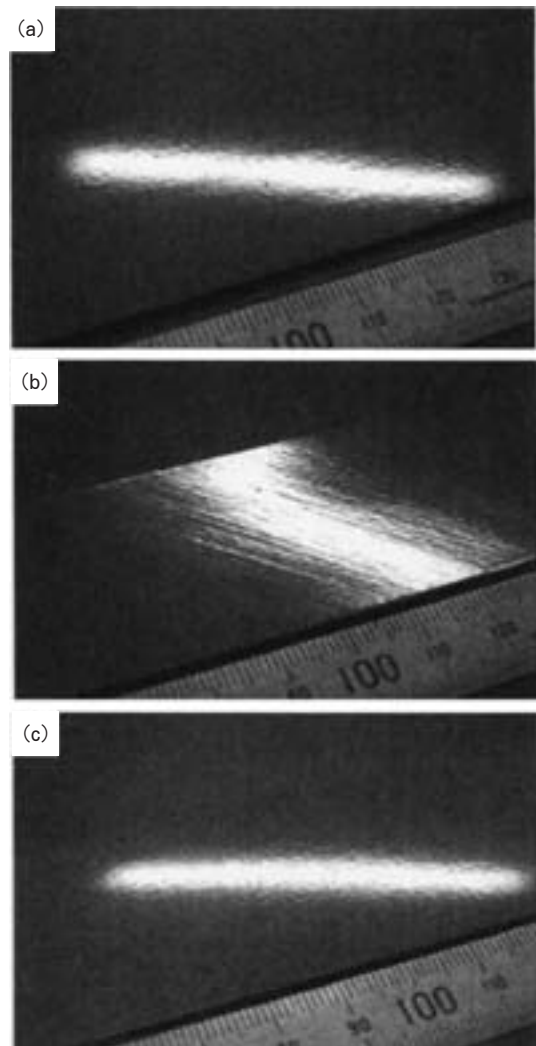


Fig. 50 Surface appearance of 6016 alloy sheet showing ridging mark (roping) after tensile test. The tensile direction is (a) 0° , (b) 45° and (c) 90° to the rolling one⁵⁷⁾.

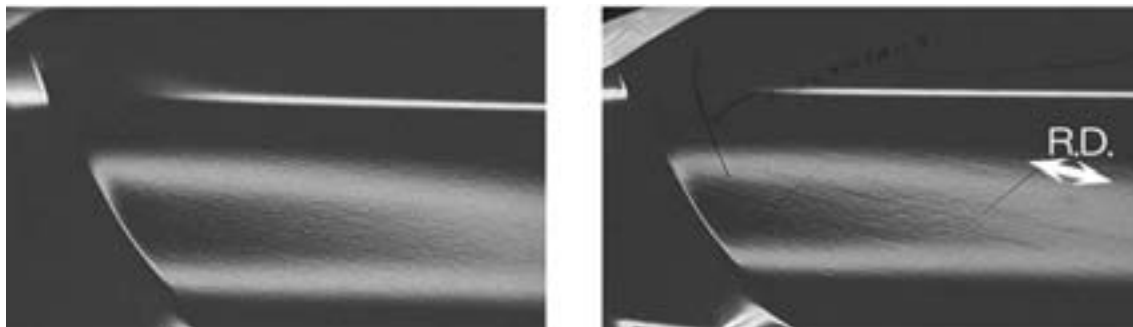


Fig. 51 Appearance of auto body panel after press forming. Ridging Mark occurred in the right. Left is normal.

い集積がある場合に顕著なリジングマークが発生し、Fig. 50 に示すように圧延方向と 45° 方向に引張変形を受けると特に顕著になることを明らかにした⁵⁷⁾。これは Cube 方位と Goss 方位が圧延方向に沿ってバンド状に存在し、Cube 方位の方位密度は特に 45° 方向に引張ると大きく低下することと関連していることが明らかとなった。リジングマーク防止には、熱間圧延条件や中間焼鈍による方位のランダム化が重要である。Fig. 51 は自動車ボディパネルに成形したときに生じた表面模様である。右はリジングマーク発生した成形品で、左はリジングマークのない成形品の例である。リジングやストレッチャーストレインマークについての詳細は本号の浅野の解説を参考にされたい。

3. 析出制御

3.1 不純物元素、Si、Fe の析出

3.1.1 純アルミニウムと不均一変形、延性

純アルミニウム 1050 合金 (0.29%Fe, 0.11%Si) 冷間圧延材を焼鈍すると、焼鈍温度と引張特性の関係は Fig. 52 のようになる場合がある¹⁾。引張強さや耐力は温度の上昇とともに低下していくが、伸びは 150°C 付近で一旦低下してから上昇し始め 275°C 付近でピークを迎え、その後低下して一定となる。 150°C 付近でほとんど伸びを示さない場合もある。伸びがピークを示すのは、Fig. 1 で説明したように転位セル上に偏析した Si が温度上昇とともに凝集化しリング状となり、粒界から外れて粒内に取り込まれた状態になったときである。 300°C 以上では凝集化した Si が再固溶し、Fe とともに再び再結晶粒界に偏析して粒成長を抑制する。偏析した Si や Fe が $\alpha\text{-AlFeSi}$ として凝集化が始まると再び結晶粒成長が始まると考えられる。Fig. 53 は 1050 合金の 200°C 焼鈍での荷重-伸び曲線と焼鈍時間の関係を示す⁵⁸⁾。圧延ままと 100 分までは加工硬化を示すが、1000 分では降伏点降下を示し 5000 分以上では荷重が一定となり伸びが増加して行く。この高伸びは Si が粒内に凝集化して析出し固溶度が減少するため、加工硬化しても動的回復が同時進行し、見かけ上加工硬化がほとんど見られず延

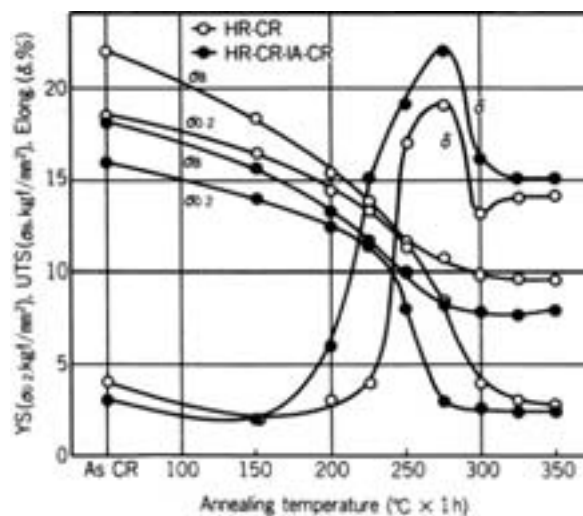


Fig. 52 Effect of final annealing temperature on the tensile properties of 1050 alloy sheet¹⁾.

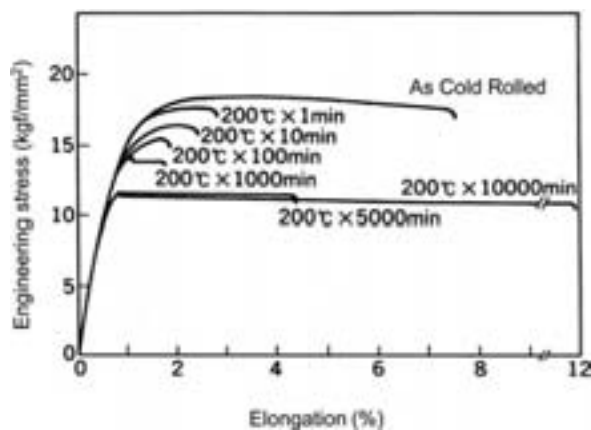


Fig. 53 Effect of annealing time on the engineering stress-strain curves of 1050 alloy sheet annealed at 200°C ⁵⁸⁾

性が向上する。Fig. 54 は 1200 合金 (0.8%Fe, 0.06%Si) の 250°C 焼鈍での応力-ひずみ曲線である⁵⁹⁾。 250°C で 20~150 分での降伏点降下は引張試験での局所くびれと関係していることが Fig. 55 からわかる。中村等は組織観察からこの局所的なくびれの発生は、全面が

亜結晶粒組織となりこの亜結晶粒界上に析出が生じて粒内の固溶度が減少するために、動的回復が生じやすくなって生じたと報告している。さらの長時間焼鈍では部分再結晶となり、その再結晶内部に新たに亜結晶粒が形成され加工硬化が進行するため延性が向上すると考えている。材料の延性は加工硬化と動的回復のバランスで決まってくる。変形の伝播の観点から加工硬化がわずかでも必要であるが、動的回復が局所的に急激に生じるとくびれが生じて破断に至る。

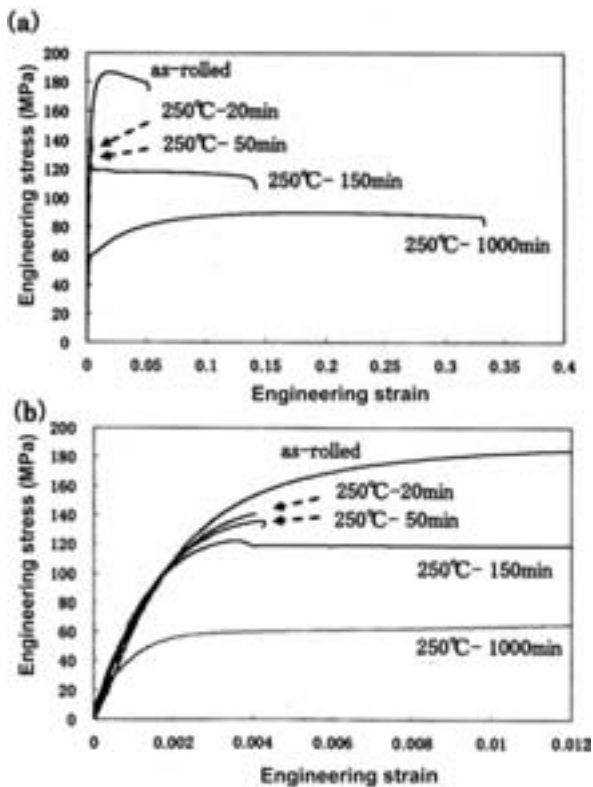


Fig. 54 Effect of annealing time on engineering stress-strain curve of 1200 alloy sheet annealed at 250°C⁵⁹⁾.

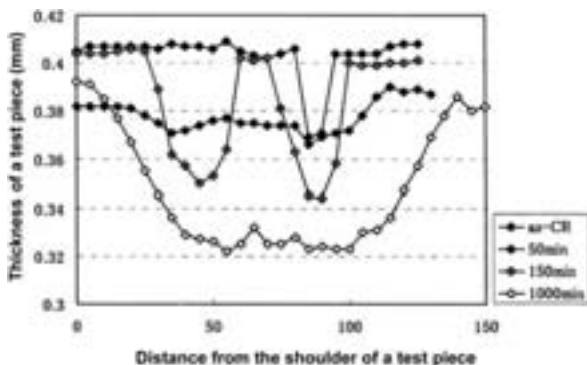


Fig. 55 Thickness distribution in tensile test pieces of 1200 alloy sheet annealed at 250°C⁵⁹⁾.

3.1.2 加工硬化と加工軟化

アルミニウム材料は通常加工硬化を示すが、ある加工条件下では加工硬化せずに軟化を示す。これを加工軟化と呼んでいる⁶⁰⁾。この現象は古くから知られており、この加工軟化現象はいくつかに分類される。第一に、変形温度を高くしたり、変形速度を遅くしたり、変形方法を変えたときに現れる。この場合は変形条件を変える前の変形量が大い時、すなわち十分加工硬化した状態で現れるのが特徴である。第二に加工材を低温で焼鈍した場合にその後に数%のスキャンパスを行うと、Fig. 56に示すように7%以下のスキャンパス材の強度は焼鈍材の強度より低下し伸びが増加することが生じる⁶¹⁾。これは普通純度のアルミニウムで鋳塊予備加熱処理をした材料に現れる。この加工軟化現象は、低温焼鈍材では降伏点降下現象が現れる場合があるが、降伏時に生じるひずみ程度の予ひずみを与えることで、応力-ひずみ曲線ではFig. 57のように降伏点降下現象がなくなり均一伸びが増加することが関連している⁶²⁾。第三に、冷間圧延の強加工域で加工とともに軟化する現象^{60, 63~66)}で、Fig. 58に示すようにAl-Fe, Al-Co, Al-Ni合金では約

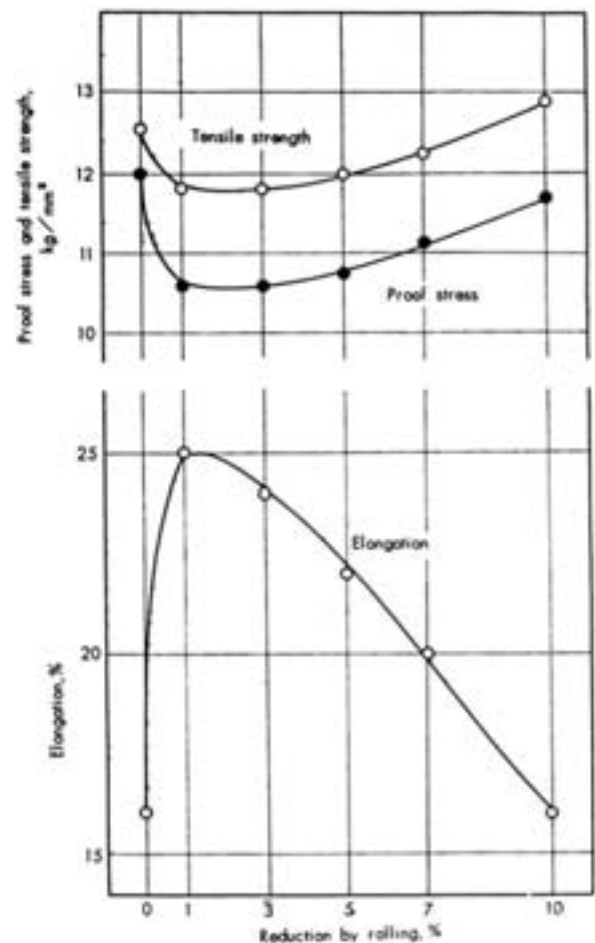


Fig. 56 Effect of rolling reduction on the tensile properties of 99.2% aluminum sheet annealed at 240°C for 30min⁶¹⁾.

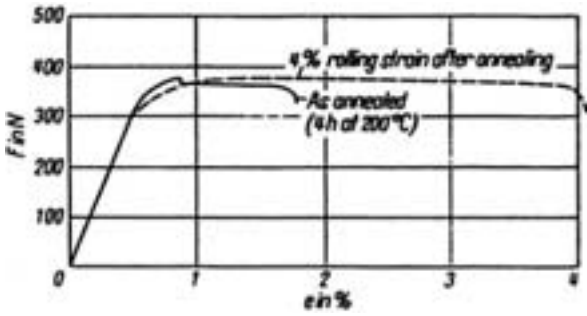


Fig. 57 Effect of a slight rolling deformation on the load-elongation curve of the partially annealed 1100 aluminum sheet ; solid line : as annealed (200°C/4 h), dashed line : rolling strain after annealing⁶²⁾.

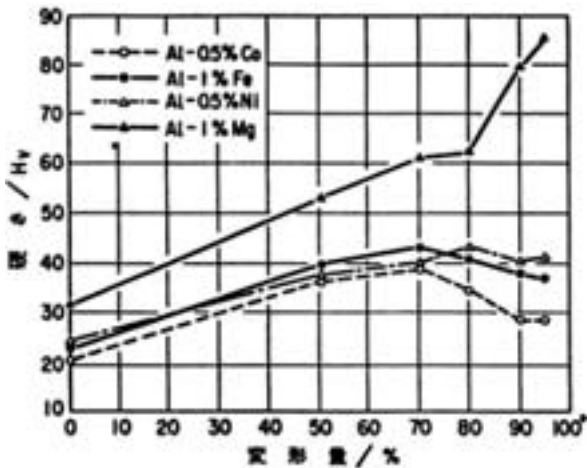


Fig. 58 Effect of cold rolling reduction on the Vickers hardness of several aluminum sheets⁶⁰⁾.

80% 程度以上の強加工した後で軟化が起きている^{60,67)}。Fe を 0.75% 以上に増やした合金で 75% 以上の高加工度域で加工硬化率が低下して十分な延性が得られる特許が 1966 年レイノルズから出願されている^{64,68)}。大野らは高純度 99.998% のアルミニウム地金と 99.9% の Fe を用い Al-0.5%Fe 合金を金型に鋳込んだ後、520°C で予備加熱後熱間圧延し、260°C で 16 時間の中間焼鈍を施して 50 と 85% の冷間圧延を行った。Fig. 59 は冷間圧延後室温に 72 時間まで放置した時の硬度変化である。50% 圧延材は軟化しなかったが、85% 圧延材はすぐに軟化を開始し 24 時間で完了した⁶⁹⁾。85% 圧延材はほぼ室温で再結晶する。この再結晶挙動は地金の純度が 99.995% と不純物量が微量増えると再結晶温度は 100°C になると大野らは述べている。Fig. 60 は微量の Si を Al-2.0% Fe に添加したときの硬度変化である⁶⁹⁾。Fe 量が増えると加工軟化する加工度が小さくなり、2.0%Fe では加工度 50% で加工軟化が始まる。Si 量が増えてくると加工軟化しにくくなる。Fig. 61 は 1.7%Fe 合金の中間焼鈍の影響である^{70,71)}。400°C 1 時間焼鈍材では

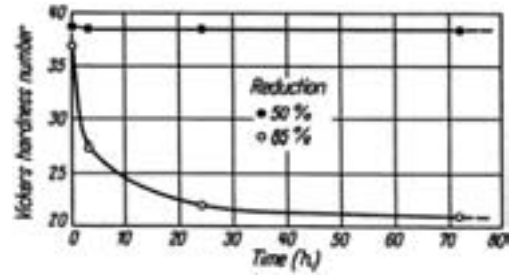


Fig. 59 Softening of Al-0.5%Fe sheets cold rolled and held at room temperature⁶⁹⁾.

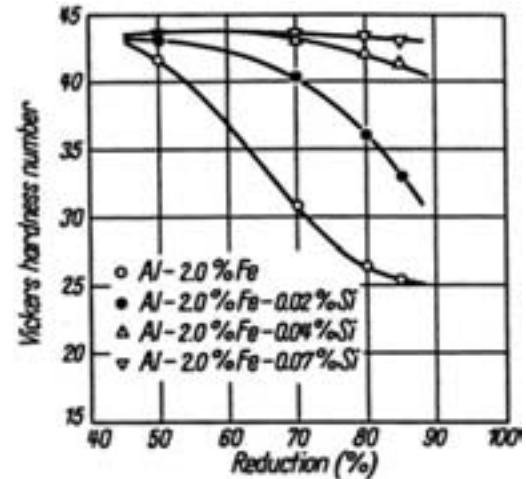


Fig. 60 Effect of cold rolling reduction on Vickers hardness of Al-2.0%Fe sheets containing different amount of Si⁶⁹⁾.

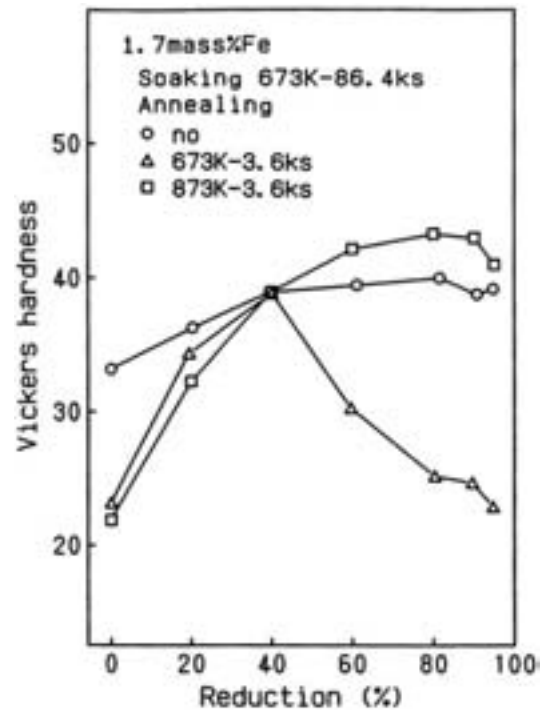


Fig. 61 Effect of annealing conditions on Vickers hardness of Al-1.7%Fe^{70,71)}.

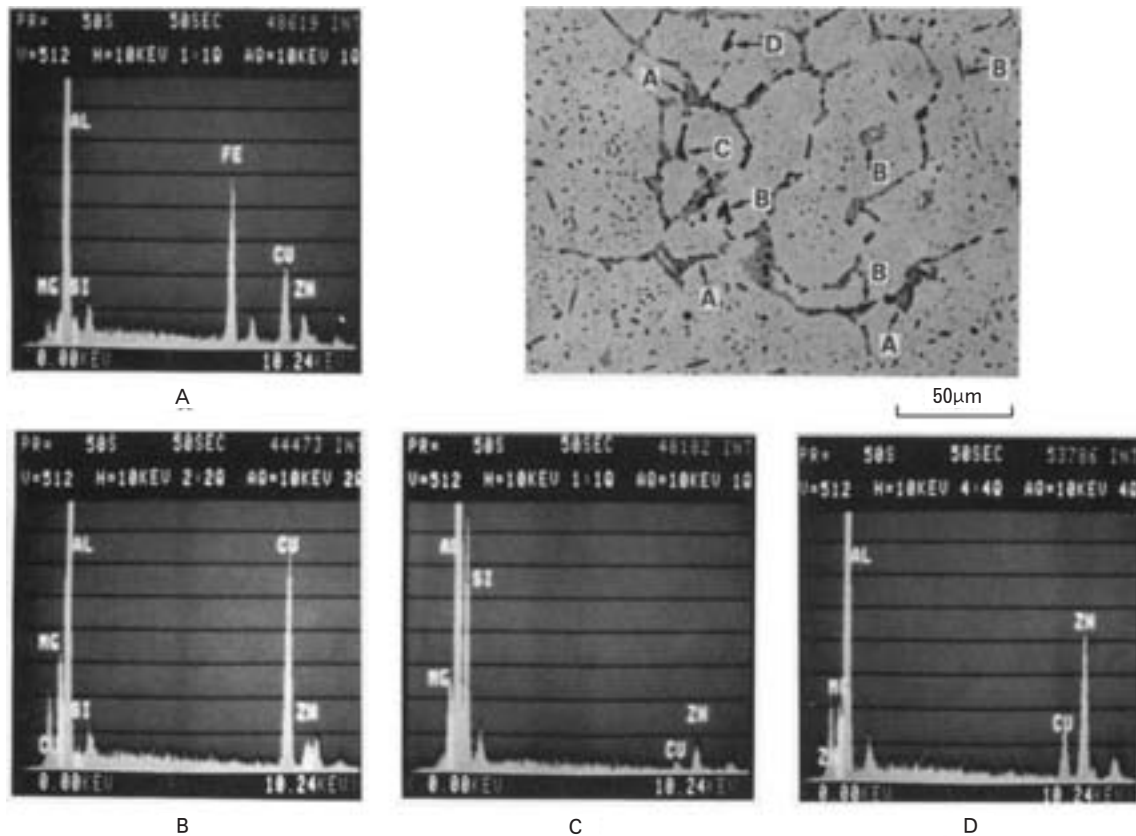


Fig. 62 EDX analyses of second-phase particles in a 7150 alloy ingot⁷⁴⁾.

40%加工度で加工軟化が始まるが600℃ 1時間では90%以上の加工度で軟化が始まる。これはマトリックス中のFeの固溶量と関係していてFeが Al_3Fe として十分析出することが加工軟化にとって必要なことがわかる。

3.1.3 2000, 7000系合金と靱性, 疲労亀裂進展速度

2000系合金と7000系合金の破壊靱性は地金の純度を上げれば破壊靱性値が向上する^{72,73)}。Fig. 62に示すように不純物元素や添加元素による $\text{Al}_7\text{Cu}_2\text{Fe}$, $\alpha(\text{AlFeSi})$, $(\text{Fe, Mn})\text{Al}_6$ など化合物が1~10 μm 程度の大きな晶出物となって铸造時に形成され, 母相中に第二相粒子となって分散する⁷⁴⁾。これらの第二相粒子は脆かったり, 母相との界面が剥離しやすいため低応力でポイドが発生し亀裂の伝播経路となるため破壊靱性が低下すると言われている。Fig. 63は7075合金T6材のST方向の破壊靱性に及ぼす第二相粒子の体積率の影響を示す⁷⁵⁾。これらの体積率が増えると破壊靱性値は低下している。Fig. 64は7475合金と7150合金の破壊靱性に及ぼす使用した地金純度の影響を示す⁷⁴⁾。7475合金はT651, T7351いずれの調質でも地金の純度が上がると破壊靱性は向上するが, 7150合金T651調質では必ずしも向上しなかった。これは第二相粒子以外にもFig. 65に示すような再結晶を制御するCrやZr系化合物も破壊靱性に

影響を及ぼすことがあることを意味する⁷⁴⁾。Fig. 66はこれらの合金の破壊靱性値測定後の破面観察結果である⁷⁴⁾。いずれの合金でも約5~10 μm の間隔で鋸刃状の起伏が観察されるが, 7075, 7475合金が7150合金に比べて破面に0.1~0.5 μm 間隔の微細なディンプルが観察される。これはCr系粒子(E相, $\text{Al}_{18}\text{Mg}_3\text{Cr}_2$)に対応するもので, このCr系粒子は母相と非整合で粒子近傍にPFZを形成しやすいことがディンプル形成に関係していると考えられる。一方Zr系粒子は整合粒子でPFZを形成しにくく, 破面もディンプルのない剪断破面となったものと考えられる。この影響は母相の強度が高いT651ほど大きい。岩村らは靱性に及ぼす主要元素のMgとCuの影響を調べ, 1at%添加当たりのシャルピー衝撃値の減少量はそれぞれ25J/cm²および23J/mm²であり, (Mg+Cu)が4.0mass%を超えると粗大なS相や η 相が溶体化処理後も残存し, これらを起点とした粒内での破断が主となって低い靱性を示すことを明らかにした⁷⁶⁾。

Table 3は, 2000系合金の第二相粒子量と破壊靱性, 耐力との関係である。2124合金は2024合金の高純度化を図った合金で, 2048合金はCuの添加量を減らすことで第二相粒子の量を少なくした合金である。Cuを減らすことで耐力はやや小さくなるが, いずれの方向の破壊靱性値も高くなることが分かる。Fig. 67に示すよう

に、疲労亀裂進展速度においても 2024 合金よりも不純物を減らして第二相分散粒子を少なくした Alcoa C188 (2524) 合金の疲労亀裂進展速度は 2024 合金の約 1/4 程度になることがわかる⁷⁷⁾。

3.1.4 6000 系合金中の Fe 量とピックアップ、曲げ特性

6000 系合金において Fe は主要添加元素の Si と結びついて casting 時に析出する。Fe 量が多いほど Si と結びついて、固溶した Si を減らすために強度が得られにくくなる。 casting 時に析出する化合物には、 FeAl_3 、 α - AlFeSi 、 β - AlFeSi 、 Mg_2Si 、 AlMgFeSi 、Si などがあり、冷却に従い、Fig. 68 のように析出して来る⁷⁸⁾。凝固速度が増してくると FeAl_3 や α - AlFeSi の析出は抑制

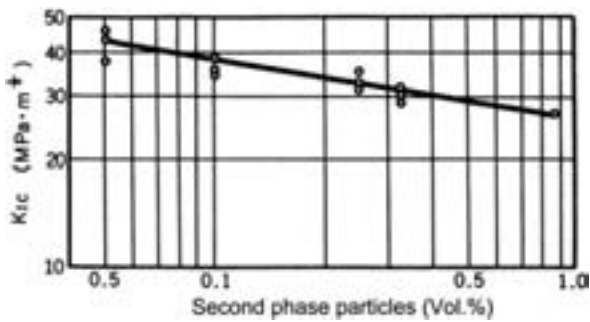


Fig. 63 Effect of the concentration of second phases particles in 7075-T6 aluminum alloy on the plane strain fracture toughness in the short transverse direction^{72, 73, 75)}.

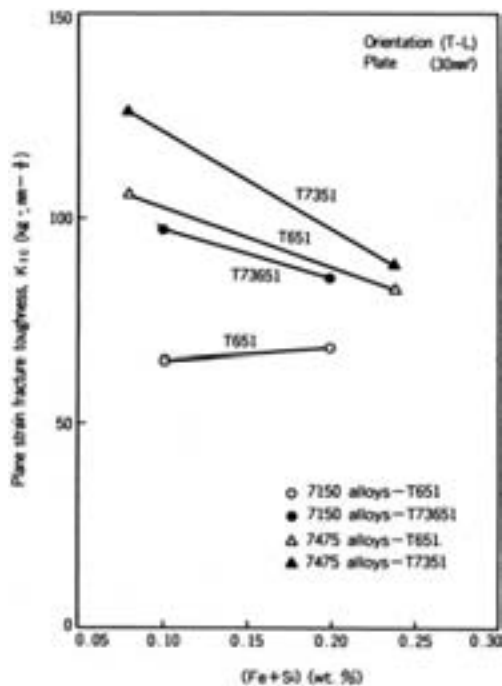


Fig. 64 Effect of impurity levels on the fracture toughness, K_{1C} ⁷⁴⁾.

され、 β - AlFeSi や Mg_2Si が主として析出する。均質化処理は強度だけでなく押出表面欠陥にも影響してくる。押出性に関しては casting 時に析出する β - AlFeSi が多くと押出表面にピックアップや筋欠陥が発生の原因になって押出速度が低下することが知られている⁷⁹⁾。ピックアップ発生には β - AlFeSi 晶出物が Mg_2Si 晶出物と共存している casting 表面が影響していて、これらの晶出物の共晶融解が原因で生じることを明らかにした。このため高温加熱で、 Mg_2Si 晶出物を消失させるか、 β から α - AlFeSi への相変態をはかることでこの共晶融解を抑制でき押出欠陥が少なくなる。また微量の Mn 添加が板状の β から塊状の α - AlFeSi への相変態を促進することが知られている。詳細は箕田らの解説を参照のこと。

鑄塊予備加熱処理 (preheating)、均質化処理 (Homogenization) は強度や押出性の向上の観点から数多くの研究がなされている^{80, 82~84)}。堀内らは、主として熱間ねじり試験より検討し、高温での加熱で casting 偏析の均質化と溶質原子の溶体化をはかり、ついでやや低温の析出温度によって溶質原子を Mg_2Si として析出させることで変形抵抗を減少させて熱間加工性が大きく改善されることを明らかにした^{85, 86)}。工業的には、均質化処理後の冷却速度の制御が重要で、冷却が遅すぎると粗大に析出し、押出速度は増すが押出中に再固溶できなくなり強度低下をもたらす。Gruhl らは冷却速度として 200~500°C/h が適当であると述べている^{82, 84, 87)}。

板材ではボディシートの成形性と Fe 量の関係が問題となる。Fe 量が増加すると 6016 系合金 T4 の曲げ性は低下するが、0.5% 以上になると剪断帯が形成されにくくなり、曲げ性が低下しなくなったことが報告されている⁸⁸⁾。

3.2 Cr, Zr, Mn 系化合物の析出

3.2.1 焼入れ感受性、耐力力腐食割れ性に及ぼす Cr, Zr 添加の影響

Fig. 69 は Al-6%Zn-1.8%Mg (Al-2.5at%Zn-2at%Mg) 合金の焼入れ感受性に及ぼす添加元素とその添加量の影響を示す^{81, 89)}。応力腐食割れ防止のために Cr 添加が一般的になっていたが、焼入れ感受性の観点

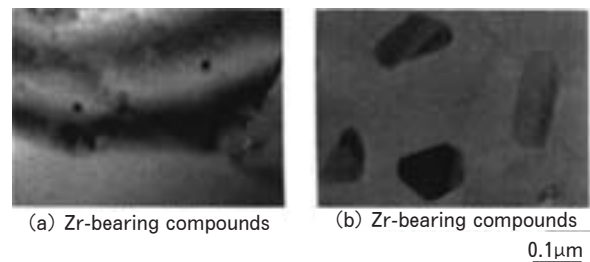


Fig. 65 Precipitation of Zr bearing compounds in 7150 alloy and Cr bearing ones in 7475 alloy (as water quenched)⁷⁴⁾.

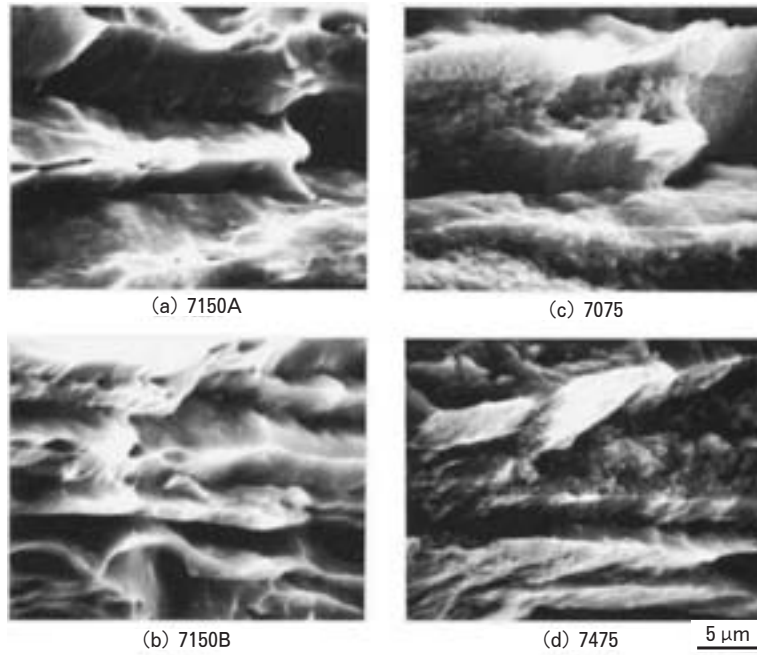


Fig. 66 Fractographs of fracture toughness specimens (T651 plates, T-L direction). Characteristic dimple are shown in 7475 alloy, however, few dimples and smooth surfaces are shown in 7150 one independent of purity levels⁷⁴⁾.

Table 3 Relationship between fracture toughness, yield strength and the amount of second phase particles in 2024, 2124 and 2048 alloys^{72, 73)}.

Alloy		2024	2124	2048
Amount of second phase particles (Vol.%)	direction	2.5	1	>0.5
	L-T	24	31	38
Fracture toughness K_{IC} (MPa · m ^{1/2})	T-L	22	26	33
	S-L	19	25	27
	LT	395	395	385

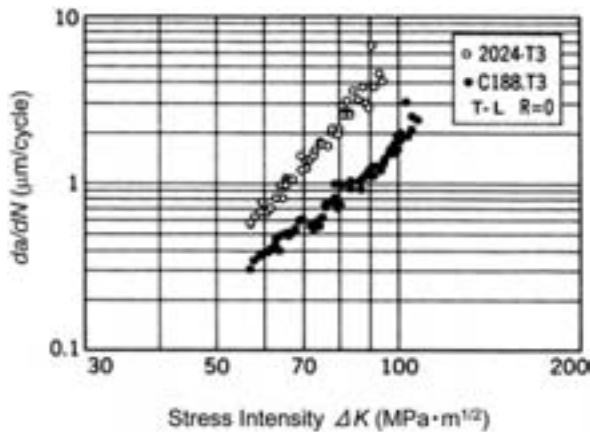


Fig. 67 Comparison of fatigue crack propagation rate between 2024 and C188 (2524) T 3 alloy for fuselage⁷⁷⁾.

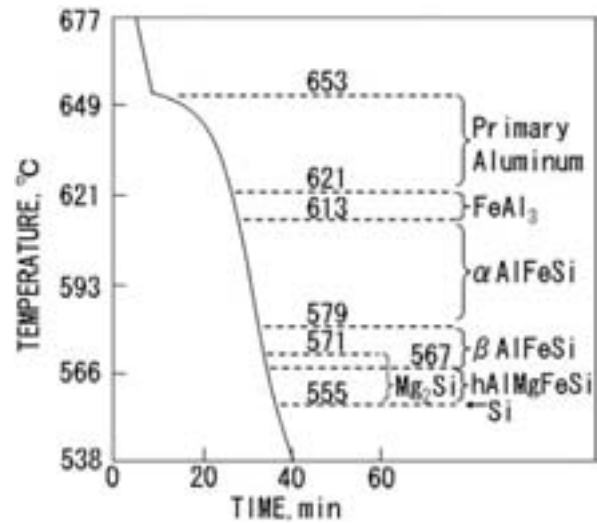


Fig. 68 Phases in 6063 alloy (Al-0.67%Mg-0.38%Si-0.20%Fe alloy) as related to the cooling curve, cooled at an average rate of 4 K/min⁷⁸⁾.

からみると Cr は Zr に比べて非常に感受性が高いことがわかる。これは押出後のダイクエンチでは空冷ではなく水冷が必要になることを意味する。Fig. 70 はフィッシュボーン試験による Al-5%Zn-2%Mg 系合金の溶接割れに及ぼす添加元素の影響を示す^{81, 90)}。Zr0.2% 添加が割れ防止には最も効果的であることが分かる。馬場らは Al-Zn-Mg 系合金において Zr 添加は溶接割れが防止でき空冷でも焼きが入るために Cr 添加よりも効果的であること明らかにし、住友軽金属の Al-Zn-Mg 系合

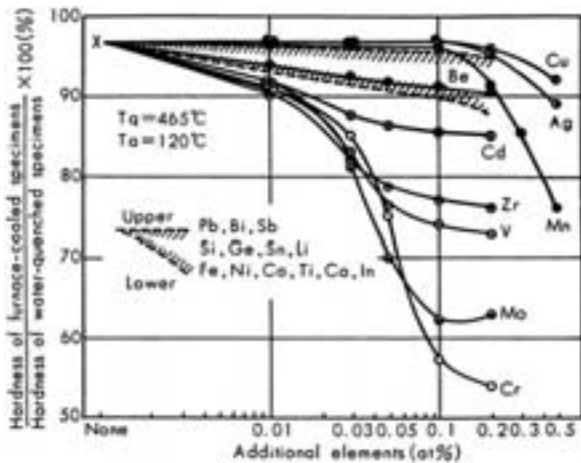


Fig. 69 Effect of additional elements on the quench sensitivity of Al-6%Zn-1.8%Mg (Al-2.5at%Zn-2at%Mg) alloys sheets aged at 120°C to maximum hardness after water quenching or furnace cooling (15°C/min)^{8), 80), 81)}.

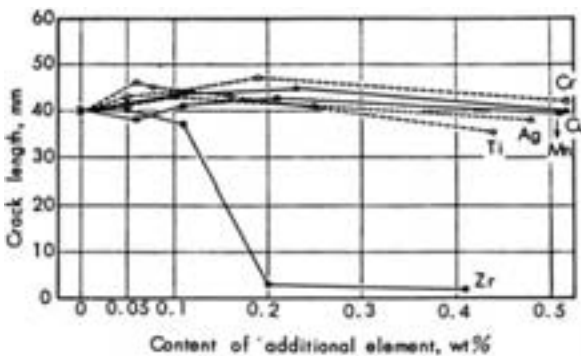


Fig. 70 Effect of additional elements on the weld cracking of Al-5%Zn-2%Mg alloys (fish bone crack test with parent metal filler)^{81), 90)}.

金には世界に先駆けて Zr を添加した合金を開発した^{91), 92)}。

しかしながら、Cr の役割については不明なことも多く、馬場等は Al-6%Zn-1.8%Mg 合金と Al-6%Zn-1.8%Mg-1.5%Cu 合金に Cr を 0.1~0.7% 添加して時効特性や耐応力腐食割れ性などを調査した⁹³⁾。その結果、Fig. 71 に示すように耐応力腐食割れ性の向上には 0.2% 以上の Cr を添加し均質化温度 450°C での熱処理が最も効果的であり、T4 材より T6 材が優れていること、Al-6%Zn-1.8%Mg-1.5%Cu 合金 T6 材では 1000 時間でも全く割れを生じないことがわかった。しかしながら、この均質化温度で製造した材料の 150°C 時効では室温時効時間が少ないと強度がでにくいことも明らかとなった。電子顕微鏡観察から 450°C 均質化処理すると Cr 系化合物 (E 相) が最も析出し、亜結晶粒を形成して耐応力腐食割れ性が向上すること、しかし E 相近傍では PFZ が

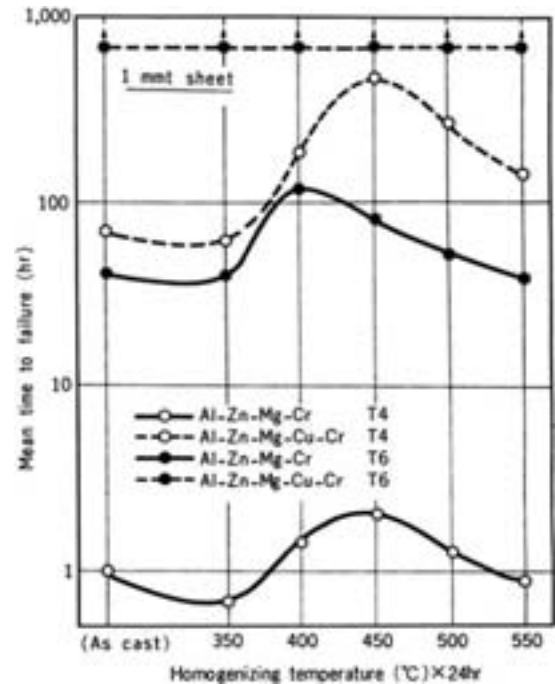


Fig. 71 Effects of homogenizing temperature on the resistance to stress corrosion of Al-6%Zn-1.8%Mg-1.5%Cu-0.1%Cr alloys, water quenched from 450°C and aged at room temperature for 30 days (T4) or aged at 150°C for 20hrs after the natural aging⁹³⁾.

形成されやすく、Mg や Zn が E 相界面で η 相として析出しやすいため強度がでにくいと考えられた。一方、Zr の役割については、著者等は Al-6%Zn-1.8%Mg 合金と Al-6%Zn-1.8%Mg-1.5%Cu 合金に Zr を 0.1~0.3% 添加して同様に時効特性と焼入れ感受性、耐応力腐食割れ性などを調べた⁹⁴⁾。その結果、いずれの合金系も 450°C の均質化処理で最も高い強度が得られ、耐応力腐食割れ性も優れていることがわかった。特に 0.2%Zr が添加された Al-Zn-Mg 合金では Fig. 72 に示すように、450°C だけでなく、400°C の均質化処理でも安定な亜結晶粒が生成する。またこの条件下では Zr は准安定相で L1₂ 構造を有し、マトリックスと整合性を持つ面心立方晶 Al₃Zr として析出することと関係している。この化合物界面では Cr 系化合物と違って η 相が析出しにくいいため、焼入れ感受性が鈍い。なお、500°C 以上での高温での均質化処理では平衡相 DO₂₃ の構造をもつ体心立方晶 Al₃Zr となり再結晶粒が生成しやすくなる⁹⁵⁾。

なお、馬場らは Cr, Mn, Zr, Ti が添加された合金に Cu 添加が 0.2% 以下であれば、溶接性あるいは押出性に特に悪い影響を与えることなく肉厚方向の耐応力腐食割れ性が向上することを見出した^{96~98)}。住友の Al-Zn-Mg 系合金には微量の Cu が添加されている。

3.2.2 Mn 添加と機械的特性

3003 や 3004 合金では製造時に Al₆(Fe, Mn) の化合

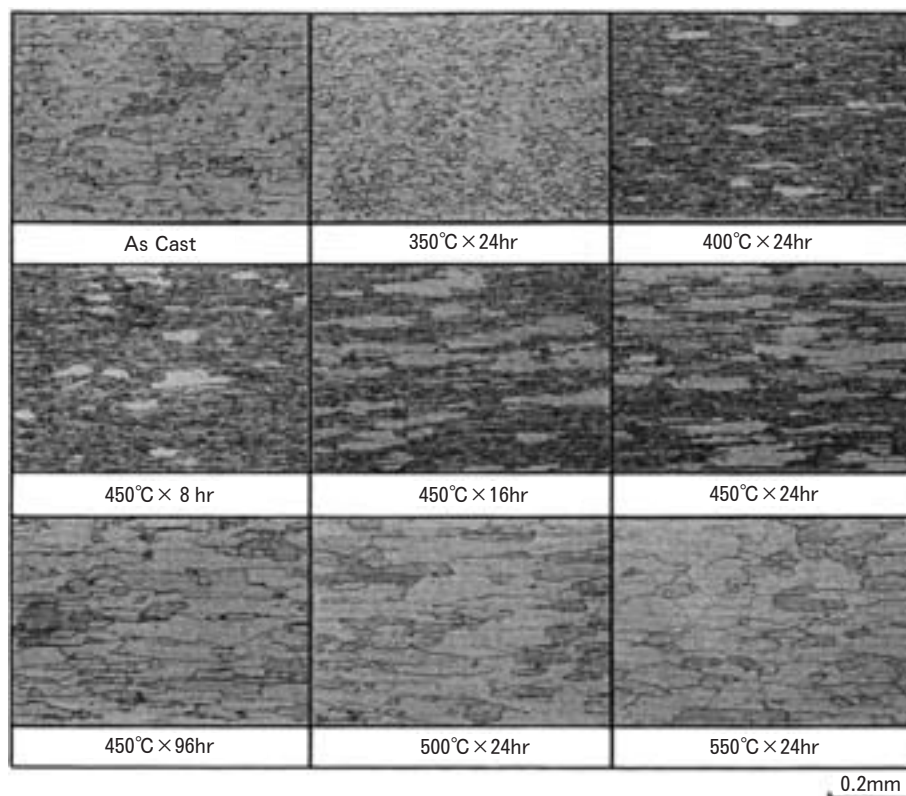


Fig. 72 Effect of homogenizing conditions on the microstructures (cross-section) of Al-6%Zn-1.8%Mg-0.2%Zr alloy sheet⁹⁴⁾.

物が晶出するが、この晶出物は高温加熱時に α -Al(Fe, Mn)Si 相 ($\text{Al}_{12}(\text{Fe, Mn})_3\text{Si}$) に相変態する⁹⁹⁾。3004 合金におけるこの相変態の TTT 曲線は 550°C 付近に C 形曲線を示す。Mg が増えると Mg_2Si が優先して晶出するため α 相の生成は抑制される。一方、Si が増えると α 相が多く晶出する。この α 相が多いと缶材などの DI 加工でのゴーリングの発生を抑制できる。ゴーリングは工具表面への素材の焼きつき現象であり、潤滑条件はもとより素材の影響も大きい。なお、高温加熱温度、時間、冷却速度で粒内の析出状態も変化する。Fig. 73 はその一例で、高温加熱 530°C 保持なし、610°C 9 時間保持、610°C 27 時間保持で、いずれも 20°C/h で冷却した鋳塊の電顕組織である^{100~102)}。析出相はいずれも α -Al(Fe, Mn)Si である。析出物は低温ほどまた時間が短いほど微細になる。高温長時間ほど析出物の密度が減少し、PFZ が増大し、立方体方位ができやすくなるといわれている¹⁰²⁾。

Mn を含む 3000 系合金は室温で使用される部品だけでなく複写機のヒートローラー等の 200°C 程度まで加熱される部材としても使用されるようになってきている。高温でのクリープ特性が要求されるために結晶組織や Mn の固溶・析出状態の影響を明らかにすることは重要である。八太らは再結晶組織と繊維状組織の違いの影響

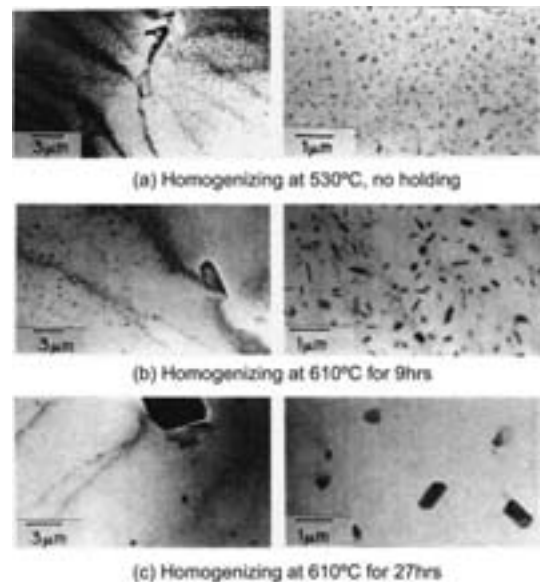


Fig. 73 TEM micrographs of Al-1.05%Mn-1.20%Mg-0.45%Fe-0.20%Si alloy homogenized slabs^{100~102)}.

を明らかにするために、固溶度をほぼ同じとし 200°C で 49MPa の応力負荷状態でクリープ試験したところ、再結晶組織が早くクリープ変形することがわかった。また繊維状組織であっても、Mn の固溶度の大きい方がクリープ破断までの時間が長いことがわかった¹⁰³⁾。

Mn 微量添加により耐軟化特性を高めることもできる。缶蓋材には Al-Mg-Mn 系合金が使用され、一般には冷間圧延された蓋材は防食効果のために高分子樹脂の塗装が施される。塗装焼付け温度は 200°C 以上であるが、この熱処理温度域では素材強度が低下してしまう。このため、田中らは第二相粒子の析出状態を変えることを目的として中間焼鈍条件の影響を調べたところ、Fig. 74 のように 200°C で中間焼鈍を施した材料では軟化の程度が小さいことがわかった。200°C での析出を電子顕微鏡で観察すると、0.1 μ m の析出物に混じって従来報告されたことのない 0.01 μ m 以下の微細な析出物が多く観察された。サイズは違うが、これらは Fig. 75 に示す電子線回折から正十角形相と呼ばれる準結晶構造を有する化合物であることがわかった¹⁰⁴⁾。これらの析出物は、転位組織を安定化させ、耐軟化特性を高めたと考えられている。

3.3 主要添加元素

3.3.1 二段時効特性

(1) Al-Zn-Mg 系合金

7000 系合金は焼入れ後室温で保持すればするほど高温時効後の強度が高くなることが知られている。このため Aluminum Association の Aluminum Standards and Data では 7005 合金の場合、熱処理条件として室温で 72 時間保持後、107°C/8h+149°C/16h の二段時効が推奨されている。室温予備時効の効果は Zn, Mg が少ないほど顕著であることも知られている。神田らは 7% の亜鉛を含有する Al-Zn-Mg 合金において、50°C/h の昇温速度で 160°C の高温時効を行うと、0.36%Mg では室温予備時効で高温時効後の硬度が高くなったが、

1.09%Mg では室温予備時効の効果なかったことを報告している¹⁰⁵⁾。竹村らも 4.6~4.7%Zn を含有した 7N01 合金鍛造材で Mg 量が 1.1~1.9% の範囲では室温予備時効の効果がないことを報告している¹⁰⁶⁾。

このため、箕田らは 7N01 合金 (Zn: 4~5%, Mg: 1~2%) の化学成分で Zn, Mg 量の影響を調べた。この結果を Fig. 76 に示す¹⁰⁷⁾。室温予備時効 (PA) は 5°C, 20°C, 40°C で行い、その後高温時効は 150°C/8h の一段時効と、100°C/3h+150°C/8h の二段時効の二条件で行った。この結果から Zn, Mg 量が多くなればなるほど室温予備時効の影響が少なくなることが分かる。また一段時効のほうが二段時効より室温予備時効の影響の大きいことが分かる。Zn, Mg が少ない場合、室温予備時効の影響が大きいのは室温予備時効温度が高く、時間が長いほど GP(I) が多く生成し、室温で生成した GP(I) は昇温過程で一旦分解するが、そのまま 70°C 以上になると GP(II) へ遷移する。100°C でさらに GP(II) が生成するが、150°C への昇温過程で η' 相に遷移すると考えられる。高 Zn, 高 Mg 合金で室温予備時効の影響が少ないのは、マトリックス中の Zn, Mg 量が十分多いために、高温時効の昇温過程で GP(I) および GP(II) が十分に生成した結果と考えられた。150°C への昇温速度が早い場合には高 Zn, 高 Mg 合金でも一段時効では高い硬度が得られないので、昇温過程での GP(II) の生成が重要であることがわかる。この析出過程を模式化したのが Fig. 77 である¹⁰⁷⁾。

著者等は Al-6%Zn-0.75%Mg 合金の時効析出過程を反応速度の観点から明らかにした。Fig. 78 に示したのは室温で 120 分と 10220 分保持後 160°C で高温時効したときの硬度変化とそれらを新しい速度式 (1)

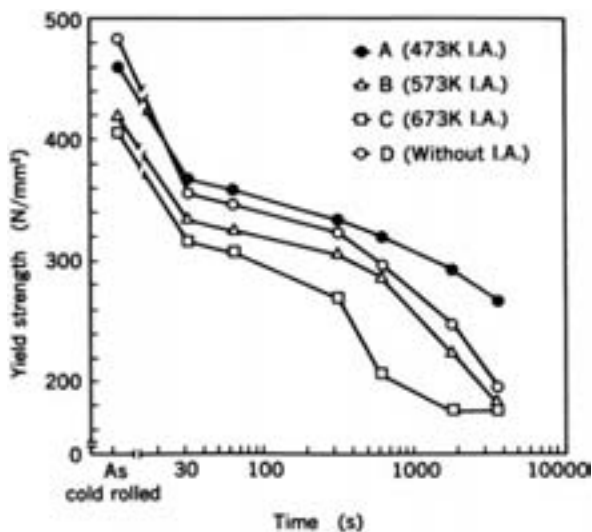


Fig. 74 Effect of annealing conditions on the yield strength of Al-5%Mg-0.65%Mn alloy cold rolled sheet followed by annealing at 523K (250°C)¹⁰⁴⁾.

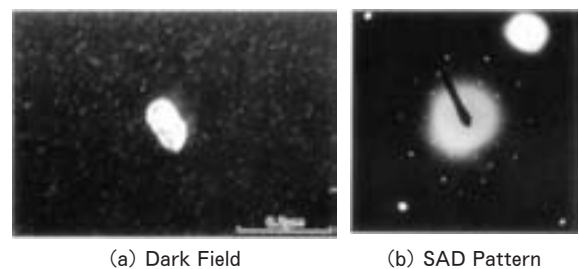


Fig. 75 Precipitation in the annealed sheet at 473K (and re-annealed at 723K for 10s to remove the dislocations). Precipitates with 0.1 μ m diameter and less than 0.01 μ m diameter are observed. These precipitates have same structure, quasi-crystal with Decagonal from diffraction pattern¹⁰⁴⁾.

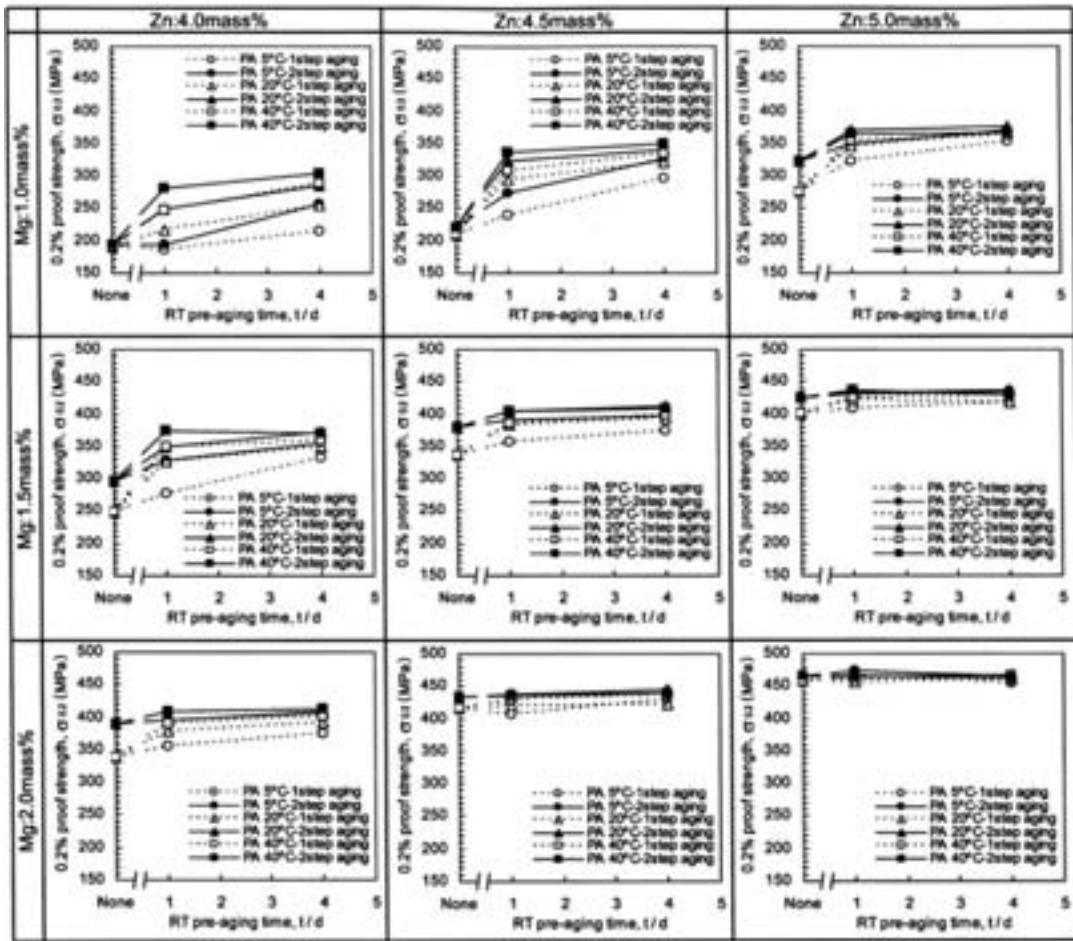


Fig. 76 Effect of pre-aging at room temperature, artificial aging conditions and the contents of Zn and Mg within the range of 7N01 on the 0.2% proof strength of 7N01 aluminum alloys¹⁰⁷⁾.

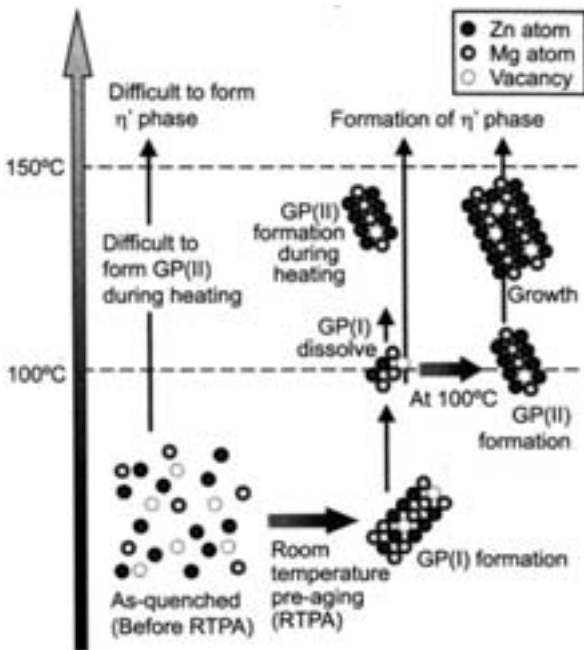


Fig. 77 Schematic diagram of the sequence of clustering and precipitation in an Al-4.0%Zn-1.0%Mg alloy¹⁰⁷⁾.

$$y = Ay_1 + By_2$$

$$= A \left[1 - \exp \left\{ - \left(\frac{t}{\tau_1} \right)^{n_1} \left[1 - \exp \left(- \frac{t}{\tau_2} \right) \right]^{n_2} \right\} \right]$$

$$= B \left[1 - \exp \left\{ - \left(\frac{t}{\tau_3} \right)^{n_3} \left[1 - \exp \left(- \frac{t}{\tau_4} \right) \right]^{n_4} \right\} \right] \quad (1)$$

でカーブフィッティングさせた結果である¹⁰⁸⁾。いずれも二種類の析出が生じていることを示している。前半の析出は微細な板状（塊状）析出物 η' に対応し、後半は棒状（針状）析出物 η に対応している。

(2) Al-Mg-Si 系合金

Al-Mg-Si 系合金の高温時効後の強度は室温での保持時間の影響を受けることがよく知られている。馬場らは、30°C と 90°C で時効させた後に 175°C、200°C で時効させたときの結果を Fig. 79 にまとめており、6061 合金 (Al-1.0%Mg-0.6%Si) で二段時効の負の効果を示し、6063 合金 (Al-0.5%Mg-0.4%Si) では正の効果を示す¹⁰⁹⁾。工業的には 6063 や 6N01 合金では冬場と夏場で強度が異なり、冬場ではなかなか強度が上がらず、規格を満たさない場合もある。八太は実際の条件に近い 5°C、

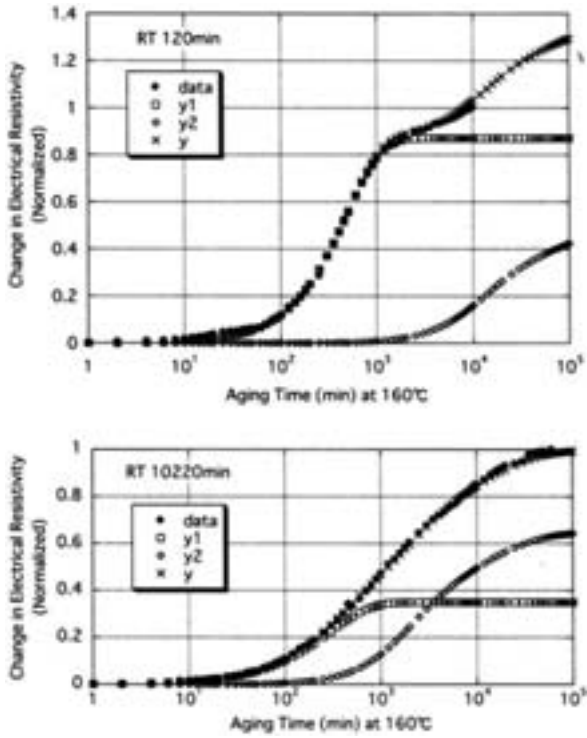


Fig. 78 Calculated curves superimposed on the electrical resistivity data using a new equation for holding at 120min and 10220min at room temperature (RT) followed by aging at 160°C¹⁰⁸⁾.

Values of the parameters in equation (1) for the 160°C aging.

Holding time at RT (min)	A	τ_1	n_1	τ_2	n_2	B	τ_3	n_3	τ_4	n_4
120	0.64	490	1.2	1	1	0.36	25000	0.5	10000	1
10220	0.35	290	1	1	1	0.65	4800	0.5	1500	1

20°C, 40°C で一日保持後, 180°C で8時間時効後の強度と保持なしで時効した時の強度を比較した。この結果を Fig. 80 に示す¹¹⁰⁾。6063 合金では, 5°C の場合には負の効果, 40°C では正の効果を示すことがわかる。最近の研究から, 室温で形成される Mg 原子と Si 原子でできたクラスター (I) と 70°C 以上で形成されるクラスター (II) が存在することが明らかになってきた¹¹¹⁾。これを模式的に Fig. 81 に示す。クラスター (I) (図では Si-rich cluster と表記) は β' に遷移し, クラスター (II) (図では GP_{zone} と表記) は β'' に遷移すると考えられる。強度には β'' の寄与が大きい。八太らは, 低温ほど比抵抗の上昇量が大きくなることから, 自然時効温度が低温ほど, また室温時効時間が長いほど, 高濃度 Mg₂Si 合金ほど時効硬化に寄与する β'' に遷移しないクラスター (I) の形成が多いと考えている。さらに 0.5%Mg₂Si 程度の低濃度合金の DSC 分析では室温保持の有無にかかわらず β'' の析出がほとんどなく, β' の析出のみで, 室

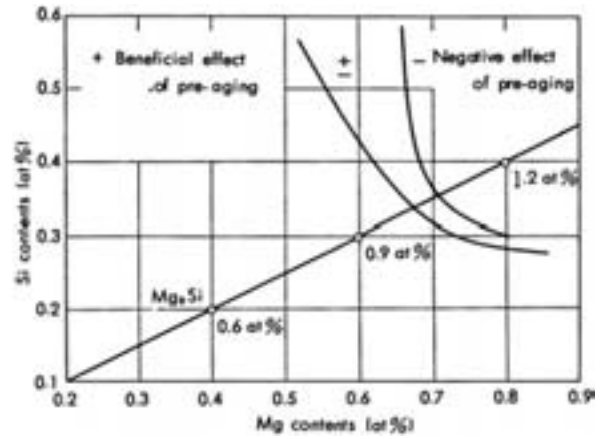


Fig. 79 Effect of the content of Mg and Si on the two-step aging of Al-Mg-Si alloy aged at 175°C and 200°C after pre-aging at 30°C and 90°C¹⁰⁹⁾.

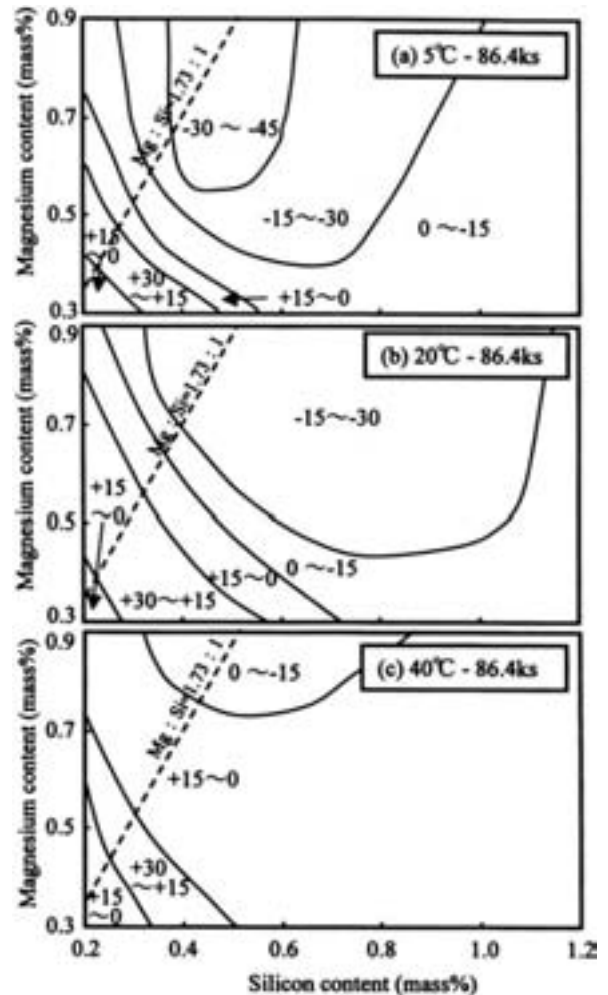


Fig. 80 Effect of natural aging conditions on the tensile strength of various Al-Mg-Si alloys after aging at 180°C for 21.6ks, natural aging for 86.4ks, (a) at 5°C, (b) at 20°C and (c) 40°C. Numeric values in the figure show the difference between the strength of artificial aging with natural aging and without one¹¹⁰⁾.

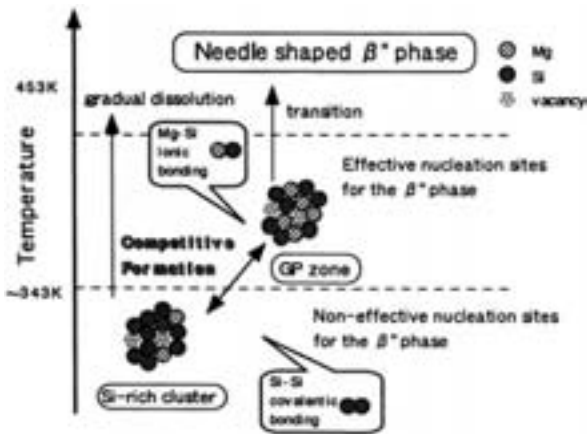


Fig. 81 Schematic diagram of the mechanism for two-step aging behavior of Al-Mg-Si alloys, Si-rich cluster is now named as cluster (I) and GP zone is as cluster (II) by Prof. Sato (J. JILM, 56 (2006), 592.)¹¹¹⁾

温でできるクラスターが多いほど β' に遷移して β'' ほどではないが強度を上げて正の効果となる。

自動車のベークハード性では、T4状態で成形でき、成形後の塗装焼付けで170°Cから180°Cの短時間で耐力を上げることが要求される。ボディシートに使用されるAl-0.5%Mg-1.0%Si合金では負の効果を示す。このため、室温で保持せず、すぐに100°C近傍で予備時効するか、225°C近傍で復元処理をすると室温でできるクラスター(I)が形成されず、その分解過程がないために、時効速度が速く、短時間で時効硬化する¹¹²⁻¹¹⁴⁾。

3.3.2 復元現象とその利用

室温で形成されたクラスターやGPゾーンは高温に加熱されると分解して、焼入れ直後の硬度に戻ることがある。この現象は古くから知られており、復元と呼ばれている。最近、復元現象を利用して加工性や時効硬化性を高めることが行われている¹¹⁵⁾。前述のAl-Mg-Si系の自動車ボディシートのベークハード性向上においても復元現象が利用されている¹¹⁶⁾。

加工性向上の観点から、Al-Zn-Mg-Cu系合金への復元現象の適用例を示す^{115,117)}。航空機のフレームには7075合金が用いられているが、このフレームの加工では通常O材コイル材が用いられ、曲げ加工を主としたロール成形の後に焼入れ、ストレッチ矯正、人工時効を行う。この工程の製造コスト低減のために、W材(またはT4材)を用いることができれば焼入れ、矯正が省けてコスト低減になる。しかしながらW材、T4材ともに自然時効で強度が高くなるために、加工前に復元処理を行って曲げ加工性を調査した。その結果、復元処理を入れることで曲げ加工性が改善されたが、Fig. 82に示すように復元処理後の硬度は焼入れ直後の値まで低下しないことがわかった。これはCu添加の影響と考えら

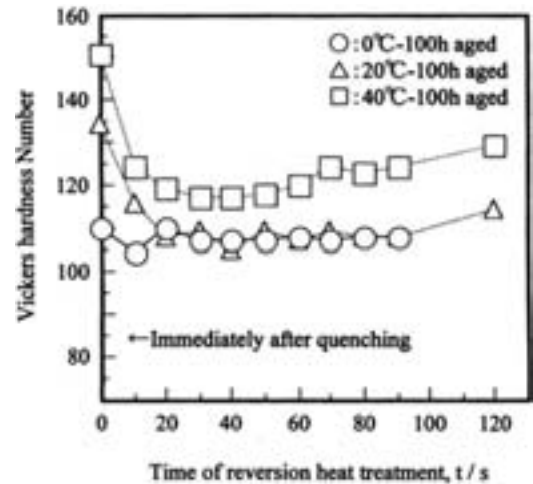


Fig. 82 Effect of reversion time at 180°C on the Vickers hardness of 7475 aluminum alloy sheet aged at 0, 20 and 40°C for 200h^{115,117)}.

れたので、Al-5.7%Zn-2.5%Mg合金にCu添加を0~1.6%と変化させた合金を作製し180°C40秒間の復元処理の影響を調べたのがFig. 83である。Cuが無添加の場合にはほぼ焼入れ直後の硬度になるが、Cu添加が多いほど復元処理後の硬度低下は小さい。Fig. 84は各種7000系合金について、460°Cから水焼入れ後、直ちに150°Cで人工時効したときの硬度変化である¹¹⁸⁾。Cu添加量の増加に伴い、30秒程度の時効でも急激な硬さの上昇が見られた。これはCuを含有することにより、 η および η' 相の析出が促進され、復元と同時に析出硬化も起こったためと考えられる。

また、7050-T4材の押出管においても拡管加工性の向上を目的に復元処理の検討も行われた¹¹⁹⁾。自然時効とともに強度は上昇するが限界拡管率は低下するが、120°C600秒または160°C45秒の復元処理で限界拡管率は向上した。なお、復元処理時間を長くすると、強度は復元処理前と同じで限界拡管率の向上することも明らかとなった。これは復元処理中に η 相が析出し、多重すべりが生じて均一変形が向上したためと考えられた。

復元処理の応用として耐応力腐食割れ性向上がある。7000系合金の応力腐食割れ性はT4調質が最も悪く、次いでT6調質で、過時効処理したT7調質が最も良好である。最近ではT6調質と同等の強度を有しつつ、T73調質と同等の耐応力腐食割れ性を付与できるRRA(Retrogression and Re-aging)処理が開発され、T77処理として実用化されている^{115,120)}。この処理はFig. 85に示すように、T6調質後に171-260°Cで短時間の復元処理を行い、さらにT6調質と同等の人工時効処理を行うものである。T6調質後に粒内のGPゾーンは復元処理によって分解するが、再時効処理でT6と同様な組織に戻ることによって強度が上昇する。一方、粒界ではT6処理で生成した η 相があるが、復元処理では分解せずに、

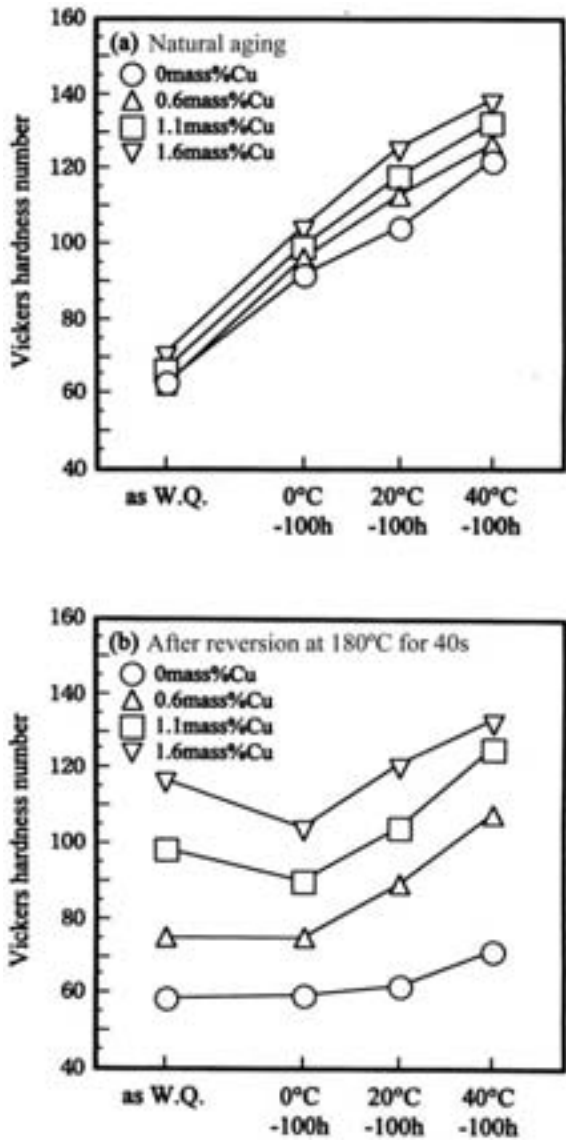


Fig. 83 Effect of copper content on the natural aging properties (a) and the reversion one (b) at 180°C for 40s of Al-Zn-Mg alloys in several natural aging conditions^{115, 117}.

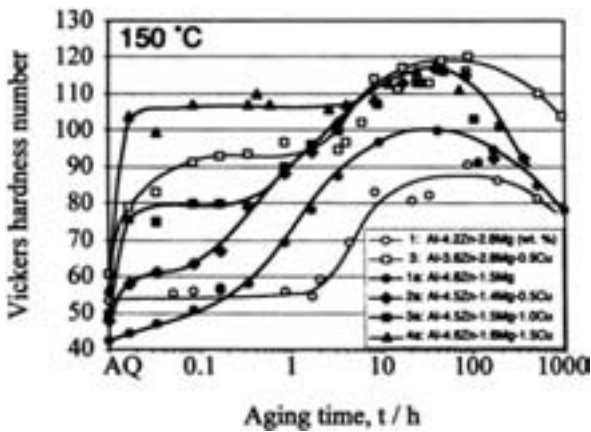


Fig. 84 Aging curves of various 7000 series alloys at 150°C¹¹⁸.

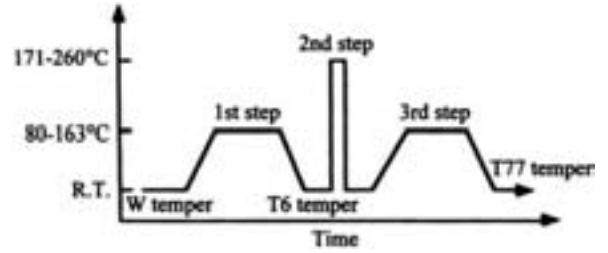


Fig. 85 Schematic diagram of RRA (Retrogression and Re-aging) treatment¹²⁰.

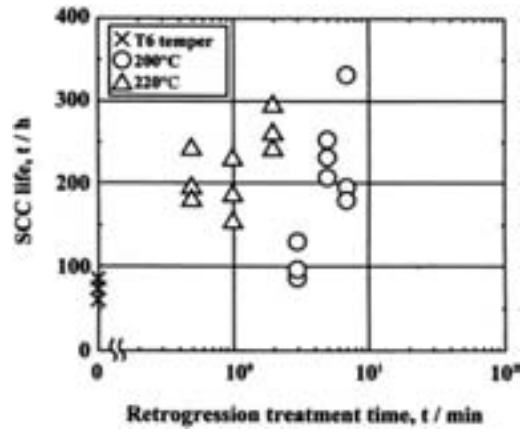


Fig. 86 Effect of RRA treatment on the SCC life of 7475 alloy sheet^{120, 121}.

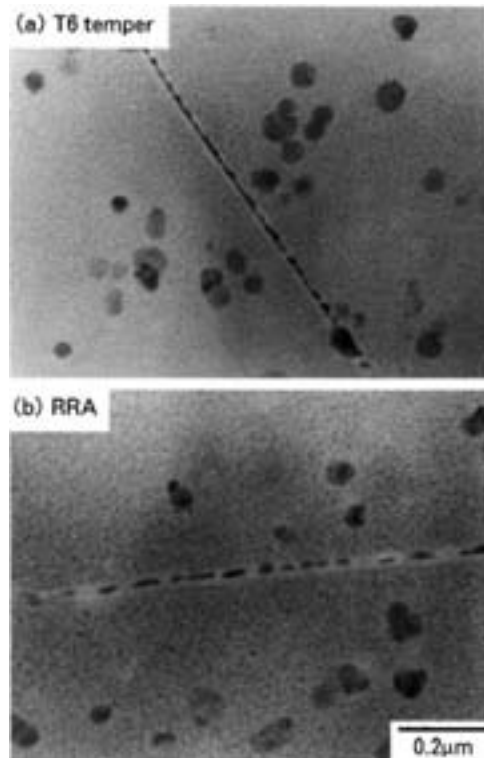


Fig. 87 Microstructures of the grain boundaries in 7475 alloy sheet, (a) T6 temper and (b) RRA treated^{120, 121}.

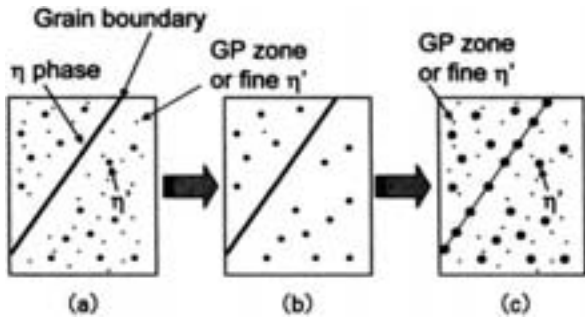


Fig. 88 Schematic diagram of the changes in the microstructure by RRA treatment, (a) T6 temper, (b) after retrogression and (c) after re-aging¹²⁰⁾.

再時効で η 相が粗大化して T73 状態と同等な分散状態になる。Fig. 86 に 7475 合金の耐応力腐食割れ性に及ぼす RRA 処理の影響を示す^{120, 121)}。RRA 処理することで割れまでの寿命がのびていることがわかる。Fig. 87 に T6 材と RRA 処理材の結晶粒界の電顕組織を示す^{120, 121)}。またその模式図を Fig. 88 に示す¹²⁰⁾。

3.3.3 Al-Mg 系合金の粒界腐食、応力腐食割れ

Al-Mg 合金は実用的には Mg が 6% までで、それ以上添加されると加工硬化のため圧延が困難であることと応力腐食割れ感受性が高まるために利用されていない。Mg が多く添加されると時効硬化特性を示す。馬場は Al-9 at%Mg 合金に微量元素を添加してその時効硬化特性を調べた。Fig. 89 は Cr, Ag, Be, Cu, Zr を 0.1at% 添加して 400°C あるいは 450°C から焼入れし 200°C で時効させたときの硬度変化である¹²²⁾。Cr や Zr は時効初期から高い硬度を示す。Ag, Be も 300 分から急激に時効硬化する。これに対し、Cu は無添加の場合とあまり変わらない。Fig. 90 は 450°C から焼入れし、等時焼鈍したときの電気抵抗変化である。Cu 以外の添加元素では無添加の場合と同様に -20°C にピークを持つが、Cu が添加されると 40°C と 110°C 近傍に二つのピークが観察される。最初のピークが他の添加元素より高温であることは、Cu 原子が凍結原子空孔の濃度減少をもたらす sink として作用するために Mg のクラスタリングが遅くなることと関連している。第二のピークは Cu 原子を含むクラスター生成と関連していると馬場は考察している。Cr, Zr は転位、亜粒界、不溶性化合物を形成し、 β 相の優先析出サイトとして析出を促進させる。Ag, Be などは PFZ の形成を抑制し微細析出に寄与するとしている。

以上の添加元素の中で Cu や Zr 添加は Al-Mg 合金の耐応力腐食割れを改善することを馬場は見出した。Fig. 91 は Al-8%Mg 合金に Cu と Zr を単独及び複合添加して 400°C から焼入れ (空冷) して 130°C で 7 日間時効させた試料に応力を負荷して 3.5%NaCl 中で割れ

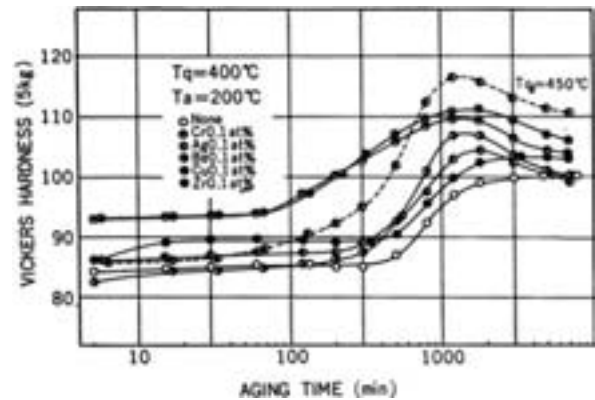


Fig. 89 Effect of additional elements on the age hardening at 200°C in Al-9 at%Mg alloy quenched from 400°C or 450°C¹²²⁾.

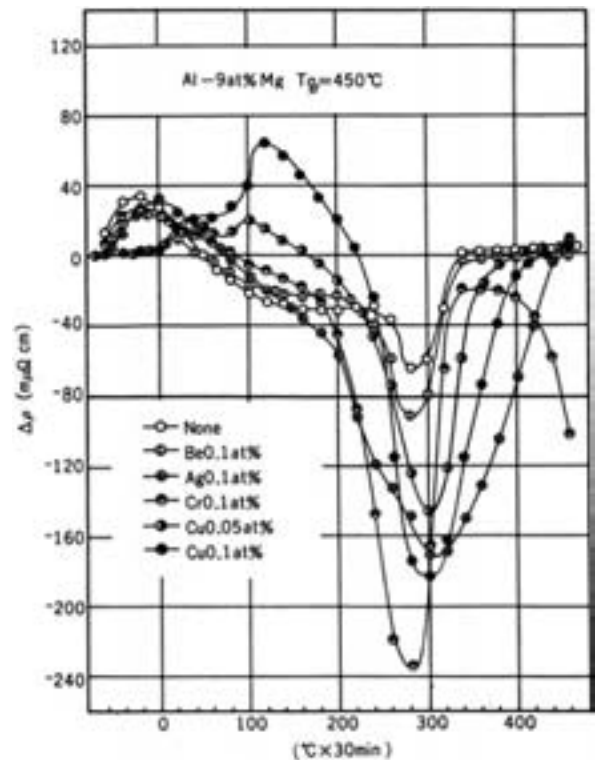


Fig. 90 Effects of Cu and some additional elements on the isochronal annealing for Al-9%Mg alloy quenched from 450°C¹²²⁾.

るまでの寿命を示している¹²³⁾。複合添加した合金の寿命が大きく伸びて割れのしきい応力も高くなっている。水冷よりも空冷の方がしきい応力が高くなることも明らかとなった。さらに Bi と Zr が同時添加されると Cu と Zr の同時添加よりも応力腐食割れが改善される¹²⁴⁾。Bi は Bi_2Mg_3 を形成し、この金属間化合物の優先溶解が結晶粒界に析出した β 相の優先溶解を抑制しているため応力腐食割れ感受性が低下したと考えられた。

実用合金でも応力腐食割れが問題となる¹²⁵⁾。土田らは冷間圧延した 5182 合金の粒界腐食試験して応力腐食

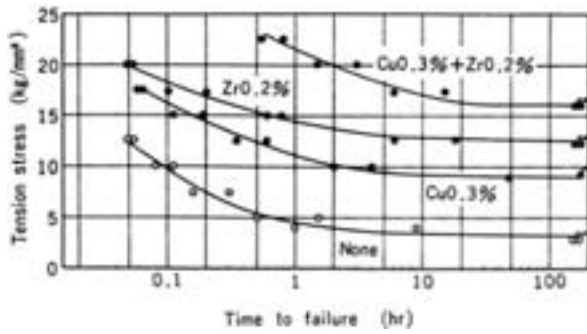


Fig. 91 Effects of Cu and Zr on the stress corrosion cracking of Al-8%Mg alloy air-cooled from 400°C and aged at 130°C for 7 days, tested by the constant load method in 3.5%NaCl alternate immersion¹²³⁾.

割れの原因になることを明らかにした。5182合金を60%の冷間圧延を行い、150°C～350°Cで1～1000分加熱し、NaCl 0.1%、クエン酸 0.3%を脱イオン水に溶かしてpH=2.5にした液を95°Cに加熱して、この中に30mm角に切断した冷間圧延板を入れて40°Cに15日間放置して腐食減量を調べた。その結果をFig. 92に示す¹²⁶⁾。1000分間放置した試料では175°Cで熱処理したときに腐食量最大となる。このときのマイクロ組織をFig. 93に示す。粒界が優先溶解して結晶粒が脱落した様子がわかる。粒界に析出したβ相をFig. 94に示す。β相の自然電極電位はマトリクスに比べて著しく卑で、塩素イオンが存在する水溶液中では優先的にアノード溶解する。田中らは、5182合金に0.15～0.5%Cu、0.10～2.0%Zn添加して粒界腐食試験を行った。CuはMgと化合物を形成し、β相の粒界析出を抑制したため粒界腐食感受性が低下したが、ZnはMgZn₂の析出状態で変わり、MgZn₂が粒界析出すると感受性が高まり、中間焼鈍で粒内析出させれば感受性が低下することが明らかとなった。

3.3.4 Al-Cu系合金

Al-Cu系合金の時効析出については古くから多くの研究があり、微量添加元素のCd, Sn, Inなどは室温時効を抑制し、高温時効を促進することが報告されている。Fig. 95はAl-4.5%Cu合金にZr, Cr, Mn, Cd, Agを添加したときの170°Cでの時効特性に及ぼす添加元素の影響を示す¹²⁷⁾。0.44%Cd (0.1at%)が170°Cでの初期の時効硬化は抑制するが、その後の時効を促進し結果的に高温での時効硬化を増加させる。Fig. 96はAl-4.5%Cu-1.5%Mg合金にCr, Cd, Agを添加したときの170°Cでの時効特性に及ぼす影響を示す¹²⁷⁾。二つの極大が現れるが、最初はGPゾーンの形成で、第二は中間相の析出によるものと考えられる。第二の極大がCd, Ag添加で大きく増大する。AgはAl-Cu合金ではほとんど影響を及ぼさなかったが、Mgが添加されていると

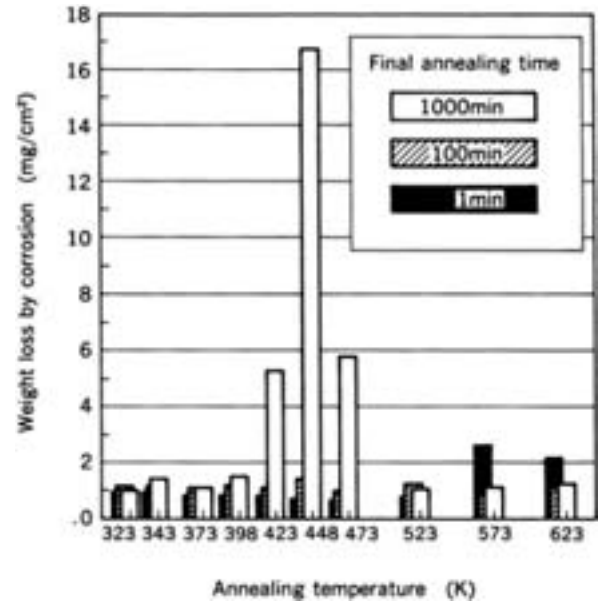


Fig. 92 Weight loss of the strain hardened 5182 sheets in the immersion test in the model solution^{125, 126)}.

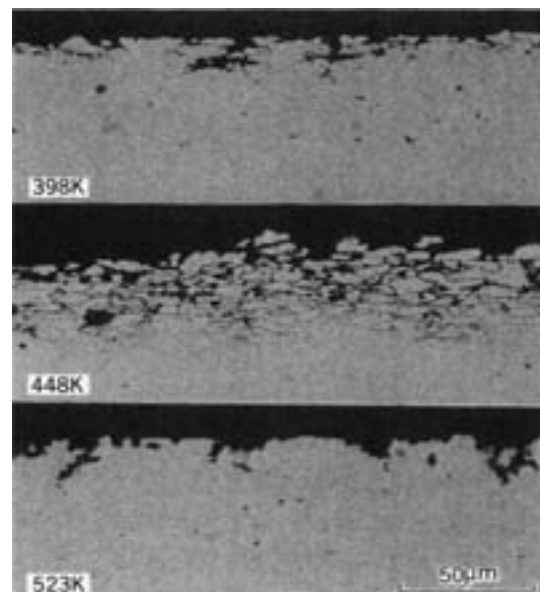


Fig. 93 Cross sections (LT-ST) of the corroded portions in the 5182 hardened sheets annealed at 398, 448 and 523K for 1000min^{125, 126)}.

高い硬度を示す。Cd, Snの室温時効抑制に関しては、木村らのSn原子が空孔との結合エネルギーが高いため焼入れ過剰原子空孔を捕獲するVacancy-trappingモデルが一般的であった¹²⁸⁾が、これに対し、鈴木らはSnやCdは添加されると、α中のCu固溶量は著しく減少し、時効速度が低下すると考えた¹²⁹⁾。最近では分子軌道法を用いてGPゾーンの安定性を検討することも行われている^{71, 130, 131)}。GPゾーン中に添加元素を含有させ

て凝集エネルギーとエネルギーの揺らぎ (動的安定性, 反応の起こりやすさ) を計算すると, Ge, Cd, In, Sn が添加された場合, エネルギーの揺らぎが大きくなることがわかった。すなわち GP ゾーンとして安定的に存在できないことが計算からも裏付けられた。

3.3.5 航空機用 2013 合金

航空機用 Al-Cu 系合金としては, 歴史的にジュラルミンが 2017 合金, 超ジュラルミンが 2024 合金として登録され, 古くから用いられてきた。しかしながら, 航空機用として使用する場合, 板材で成形するには一度 O 材にして成形し, その後焼入れ処理をする必要があった。

焼入れ処理をするとひずみ矯正工程が大変でコストアップの要因となっていた。一方, 自動車ボディシート材では通常 T4 状態で成形するのでこのような問題が発生しない。この自動車ボディシートの考え方が航空機材に適用できないかどうか川崎重工業と共同で研究した。この結果 6000 系合金に Cu を添加し Cu 量が 1.7% 程度であれば, 十分 T4 で成形できることが確認でき, 強度も 2024-T3 の規格を満足できることがわかった¹³²⁾。また押出にもこの合金を適用したところ中空押出形材が製造できることが明らかとなった^{133,134)}。Fig. 97 に示すように従来の 2024 合金では押出可能な範囲が狭くて中空押出が困難であったのに対し, 2013 合金の中空押出の可能な範囲は広い¹³⁵⁾。このため同じく川崎重工業と共同

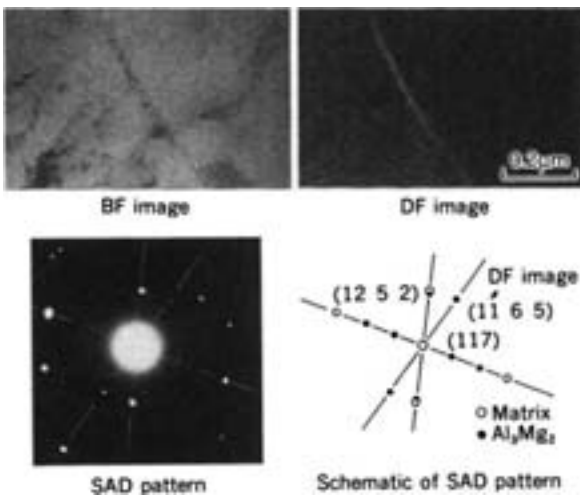


Fig. 94 Precipitates of β -phase along the grain boundary in the strain hardened 5182 sheet^{125, 126)}.

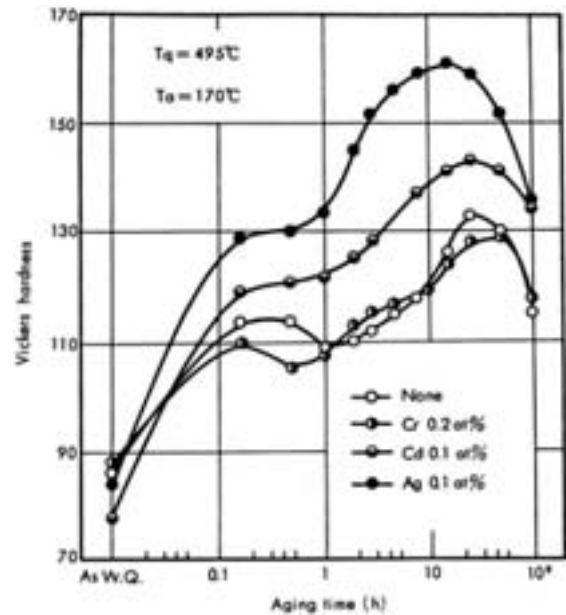


Fig. 96 Effect of the additional elements, Cr, Cd and Ag on the age hardening at 170°C in Al-4.64%Cu-1.45%Mg (Al-1.9at%Cu-1.7at%Mg) alloys quenched from 495°C¹²⁷⁾.

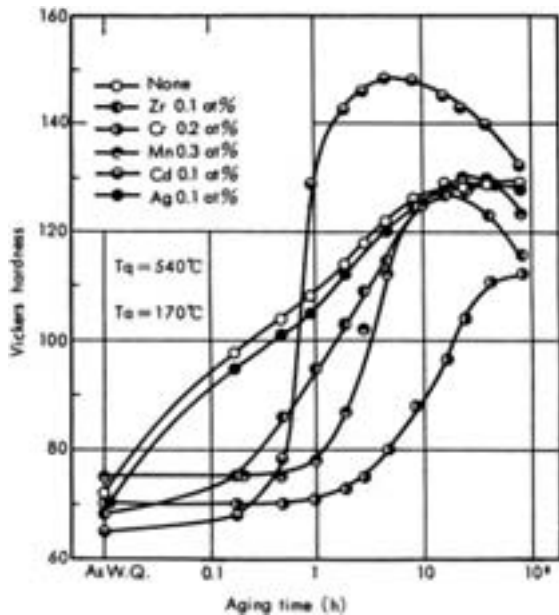


Fig. 95 Effect of additional elements on the age-hardening at 170°C in Al-4.64%Cu (Al-1.9at%Cu) alloy quenched from 540°C¹²⁷⁾.

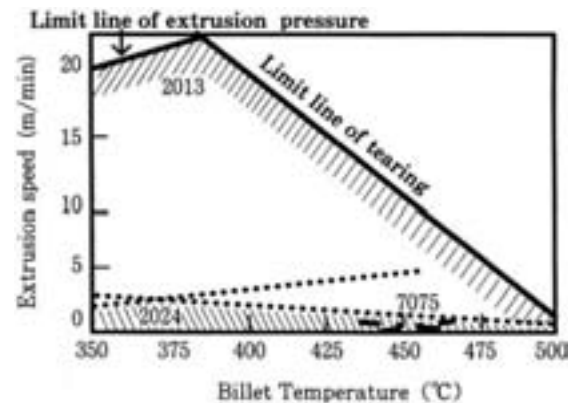


Fig. 97 Extrusion diagram of hollow pipes in 2013, 2024 and 7075 alloys from laboratory test¹³⁵⁾.

で航空機部品の一体化成形の開発を行い、重量低減、コスト低減に寄与できる合金であることがわかり、Aluminum Association に国際登録し 2013 合金となった^{135~138}。戦後わが国初めての航空機用アルミニウム合金の国際登録となった。またこの合金押出材はアメリカの規格 MMPDS (Metallic Materials Properties Development and Standardization) に登録された。

3.3.6 焼入れと粒界析出

熱処理型合金は一般に水焼入れを行いその後の焼戻しで高い強度を得ることが出来る。合金によっては水焼入れをしなくても良い合金もある。6000 系合金では 6063 や 6N01 合金が、7000 系合金では 7003 合金や 7N01 合金が空冷でも焼きが入るため生産性がよく多方面で利用されている。これは溶質原子の濃度が低く過飽和固溶体の分解過程が遅いため空冷程度 (1~10°C/秒) の速度でも安定相の析出が少ないことによる。溶質原子の濃度が高くなると過飽和固溶体の分解が速く、冷却中に安定相が析出してくるため、水冷する必要がある。大角粒界の結晶粒界や Cr 系化合物などの第二相粒子界面が析出サイトとなる。

6000 系合金では 6N01 合金のように過剰 Si 合金にすると、ファン冷却などの強制空冷で高い強度が得られるが、粒界析出を伴って伸びが減少しやすい^{139~143}。粒界析出は Mg や Si 量とも関係し、Fig. 98 はバランス合金と過剰 Si 型合金の引張強さや伸びと時効時間との関係を示す。過剰 Si 型合金は Si が Mg₂Si を微細析出させるため高い強度が得られるが、粒界析出も伴いやすいのでピーク時効になると伸びは極端に低下しやすい^{139, 143}。Fig. 99 はこれら合金の粒界破壊と粒内破壊の比率と時効時間の関係を示すが、過剰 Si 型ほど粒界破壊の比率が高い。Fig. 100 は過剰 Si 型合金押出材 (強制空冷) の引張試験後の破断部であるが、極端な粒界破壊を示し、

伸びがほとんどない場合もある¹³⁹。

なお、Al-Li 合金は焼入れ感受性が極めて鈍感で Fig. 101 に示すように、200°C 24 時間後の時効強度を比較すると炉冷でも水冷材とほぼ同等の強度を示す¹⁴⁴。これは焼入れの冷却中に δ (Al₃Li) 相が析出してくるが、この相は比較的安定で、安定相の δ 相に遷移しないためである。従って炉冷材では冷却ままで T 6 処理材と同等の強度が得られる。実用合金 8090 や 2090 合金では Zr や Cr が添加されるとこれらの化合物に優先的に析出し、Cr の場合には PFZ が形成され、若干焼入れ感受性が増すが 7000 系合金ほど敏感ではない¹⁴⁴。

3.3.7 最終加工熱処理法

航空機用アルミニウム合金は焼入れの熱処理を行うが、焼入れで問題となるのは材料のひずみはもとより焼入れ

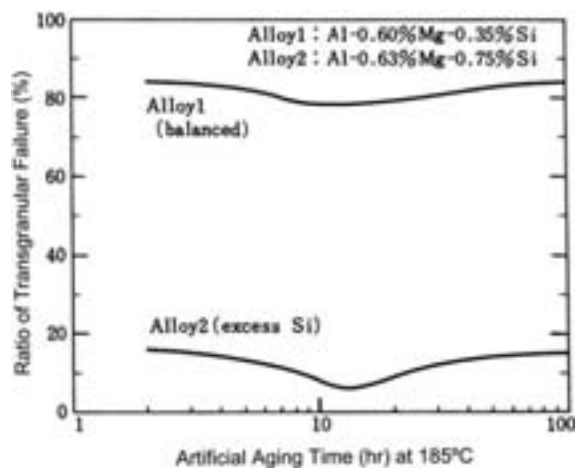


Fig. 99 Effect of aging time at 185°C on the ratio of transgranular failure to the fracture surface in Alloy 1 (Al-0.60%Mg-0.35%Si) and Alloy 2 (Al-0.63%Mg-0.75%Si)^{139, 143}.

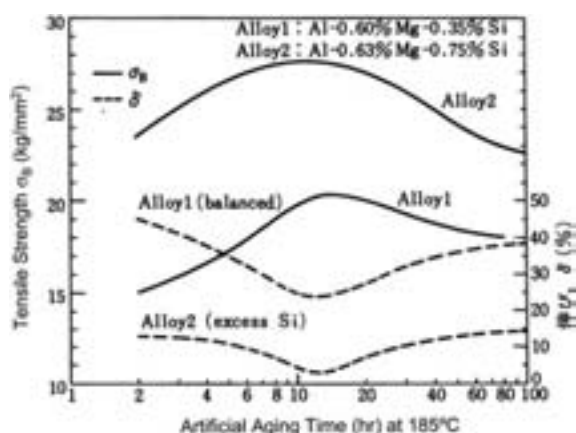


Fig. 98 Relationship between tensile strength and artificial aging at 185°C in Alloy 1 (Al-0.60%Mg-0.35%Si) and Alloy 2 (Al-0.63%Mg-0.75%Si)^{139, 143}.

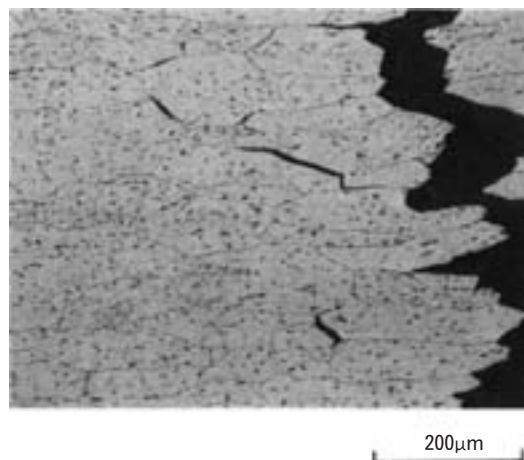


Fig. 100 Microstructure near the failure of the tensile test specimen in excess Si type Al-Mg-Si alloy aged at the peak strength¹³⁹.

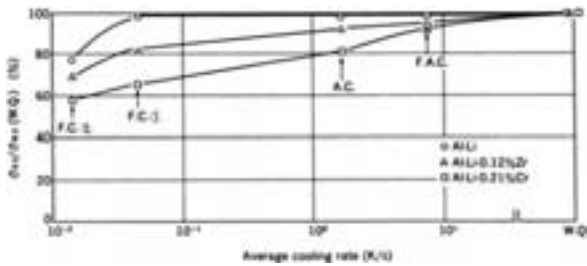


Fig. 101 Effect of cooling rates on yield strength of Al-2.5%Li based alloys, solutionized at 813K for 3.6ks followed by cooled and aged at 473K for 86.4ks¹⁴⁴⁾.

遅れである。焼入れ遅れが生じると粒界腐食が生じやすくなる問題がある。焼入れ遅れ時間とは炉出ししてから水槽に入るまでの時間であるが、この時間は規格で決められている。最近ではシャワー焼入れを備えた連続焼入れラインを用いるようになってきていて、溶体化処理時間は従来のバッチ式炉に比べて短時間であるので、十分固溶させて強度が得られるかどうかの確認と炉から出てシャワーがかかるまでに焼入れ遅れが生じないかの確認が必要である。このため宇野らは連続焼入れ炉を模擬してソルトバスにて加熱し水冷して連続焼入れ炉の使用が可能化調査した。Fig. 102 は 7075 合金厚さ 2.5mm 板を 480℃ で 5 分間溶体化処理を行って焼入れした時の焼入れ遅れ時間と強度 (T6) の関係である¹⁴⁵⁾。規格の焼入れ遅れ時間が 15 秒以内であればこの溶体化処理条件で十分なことがわかる。またこの時間内であれば粒界腐食も生じないことが Fig. 103 からわかる。2024 合金もほぼ同様な結果であった¹⁴⁶⁾。

焼入れ遅れを生じずに焼入れができて、人工時効後の粒界近傍には Fig. 104 に示すように PFZ が形成され粒界析出を伴う¹⁴⁷⁾。Al-6%Zn-1.5%Mg 合金を 460℃ から焼入れし 120℃ で 96 時間時効したときの引張破面を Fig. 105 (a) に示す¹⁴⁸⁾。典型的な粒界破壊である。(b) は破面 (a) を拡大した SEM 像である。0.3μm 間隔のマイクロディンプルが観察される。伸びは Fig. 106 にも示すが 1% 程度である。460℃ で焼入れ後 150℃ 16 時間時効させた試料に引張変形を加えたときの粒界近傍の変形状態を Fig. 107 に示す¹⁴¹⁾。Fig. 107 (a) に示すように塑性変形の容易な PFZ で優先変形する。さらに外力が加わると (b) のように粒内変形するが、粒内は整合性を有した析出物のために高い変形応力が必要となる。このため PFZ で塑性変形が進行して転位が集積される。この転位の一部は粒界に吸収されるが、一部は PFZ と粒内の境界に集積して転位壁が生じる。マイクロディンプルは粒界析出物との界面で空洞ができこの PFZ 内で形成され粒界延性破壊を示す。このような粒界破壊を防止するために焼入れ後冷間圧延してその後人工時効する最終加工熱処理法 (FTMT: Final Thermomechanical Treatment) が開発された^{17, 19, 142)}。

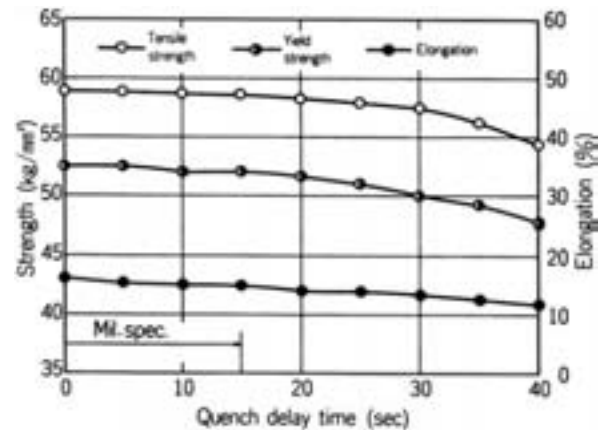


Fig. 102 Effect of quench delay time on the tensile properties in 7075-T6 sheet¹⁴⁵⁾.

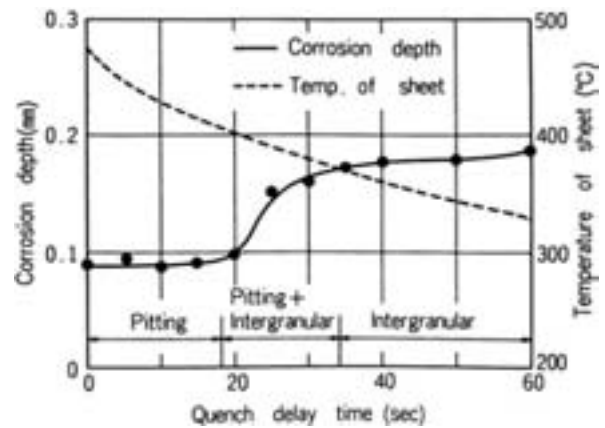


Fig. 103 Effect of quench delay time on intergranular corrosion depth in 7075-T6 sheet¹⁴⁵⁾.

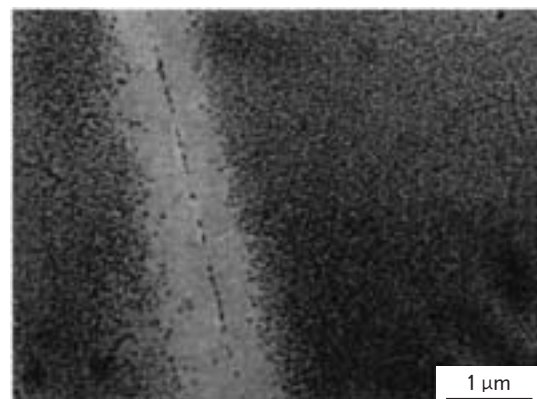


Fig. 104 PFZ (precipitate free zone) in Al-6%Zn-1.8%Mg alloy quenched into water from 465℃ and immediately aged at 200℃ for 1h¹⁴⁷⁾.

上記合金で焼入れ後 20%, 50% の冷間圧延を行い人工時効させたときの耐力と伸びを Fig. 106 に示す。最高の耐力は同じ程度であるが、圧延なし材の 1% に対し、7~10% となり、伸びの向上していることがわかる。破

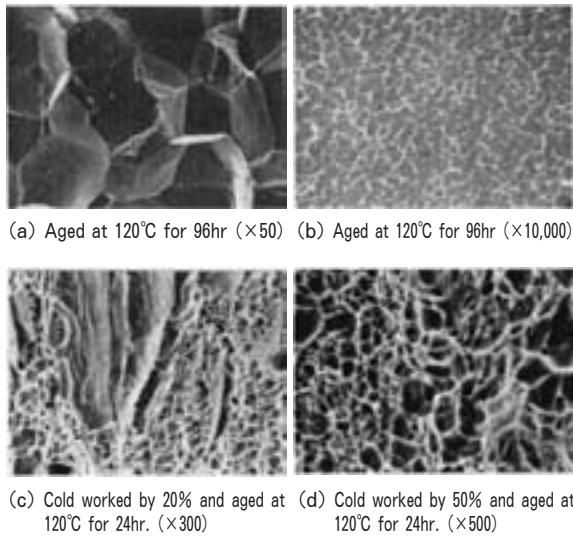


Fig. 105 SEM micrographs of fracture surface in Al-6%Zn-1.5%Mg alloy quenched into water from 460°C. (a), (b) aged at 120°C for 96hrs, (c), (d) cold rolled by 20% (c) and 50% (d) followed by aging at 120°C for 24hrs^{148, 149}.

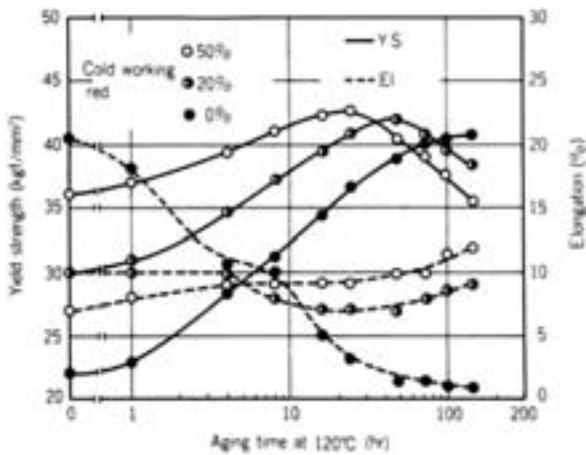


Fig. 106 Effect of cold rolling and aging on tensile properties in Al-6%Zn-1.5%Mg alloy quenched into water from 460°C, cold rolled and aged at 120°C^{148, 149}.

壊形態も粒界破壊から、Fig. 105 (c), (d) に示すように粒内破壊に移行していることもわかる。Fig. 108 から粒界近傍では粗大な粒界析出物も PFZ もなくなっていることがわかる^{141, 149}。このような加工熱処理法は Al-Cu 系、Al-Mg-Si 系でも同様な結果を示すが、Zr が添加された合金ではこのような加工熱処理による伸びの改善効果があまり見られなかった¹⁴⁹。

実用合金 7075 や 7178 合金でこの加工熱処理法を適用した場合、加工の前に 100°C で予備時効を行うと強度も伸びも向上することが報告されている。予備時効で微細均一な析出組織が形成され、さらに加工による転位組織も均一になるためと考えられている¹⁵⁰。

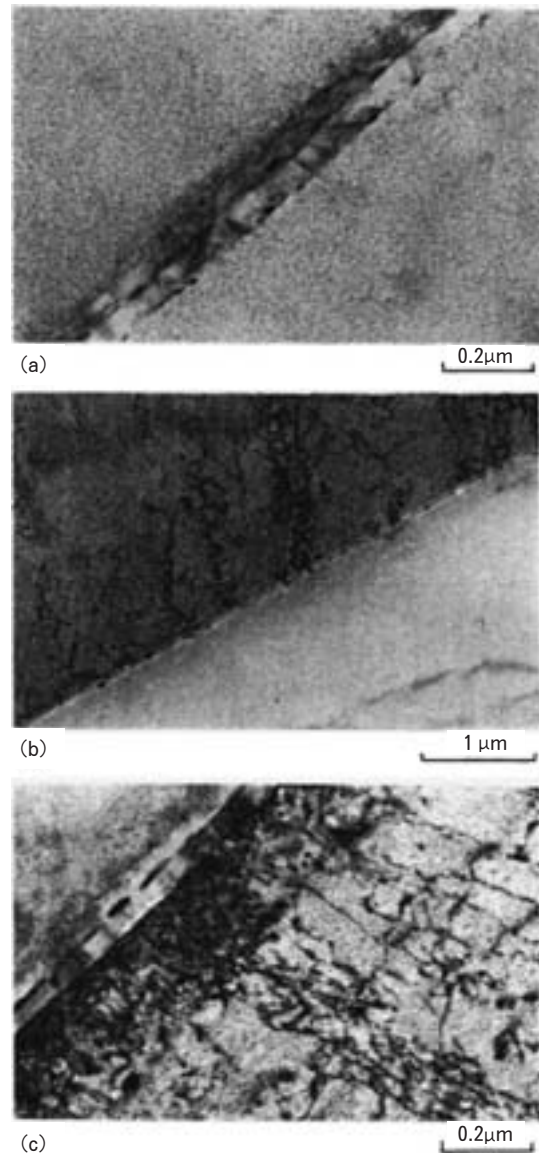


Fig. 107 Deformation near the PFZ along the grain boundary in Al-6%Zn-1.5%Mg alloy quenched into water from 460°C for 1hr, aged at 150°C for 16hrs and then stretched by 0.5% (a), (b) and 2% (c)¹⁴¹.

3. 3. 8 Al-Zn-Mg(-Cu)系合金の析出処理と成形性、加工性

自動車ボディシートのような 6000 系合金は T4 状態でも成形可能であるが、7075 合金のような高強度合金板は通常焼鈍して軟化させた O 材でプレス成形に供する。平野等は微細再結晶粒を有する 7075 合金の調質と引張性質や成形性の関係を調べた。この結果を Table 4 に示す¹⁵¹。ここで調べた O 材の条件は 350°C で 6 h 時間と 410°C で 1 時間の 2 条件である。T4 材は焼入れ後室温で 2 週間保持したものである。この表からわかるように T4 材の伸びは高いがエリクセン高さとか曲げ加工性は O 材に比べて劣ることがわかる。また O 材でも 350°C 焼鈍材の方が 410°C 焼鈍材より成形性に優れてい

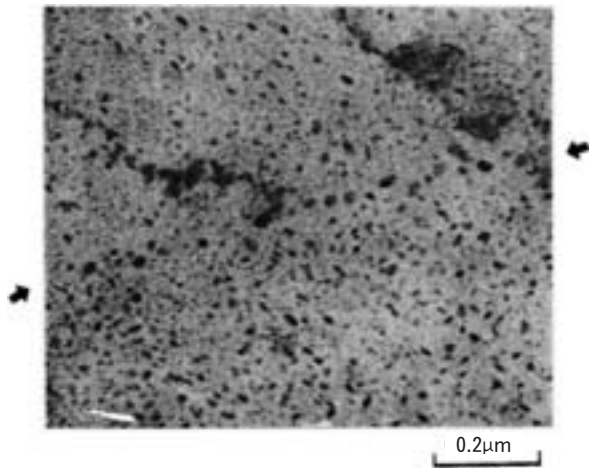


Fig. 108 TEM micrograph near the grain boundary in Al-6%Zn-1.5%Mg alloy quenched from 460°C and immediately cold rolled by 50% followed by aging at 120°C for 24hrs^{140, 141, 149)}.

Table 4 Effect of temper conditions on tensile and formability properties in 7475 alloy sheet with fine grains¹⁵¹⁾.

Material	Tensile direction (degree)	σ_B (MPa)	$\sigma_{0.2}$ (MPa)	e_t (%)	e_u (%)	$e_t - e_u$ (%)	Erichsen cup height (mm)	Bending ^{*)}	
								R=0 _t	R=1 _t
O-350	0	209	90	22	16	6	10.4	○	○
	45	206	91	22	17	5			
	90	209	92	22	17	5			
O-410	0	207	88	20	17	3	9.4	×	○
	45	204	87	18	16	2			
	90	204	88	18	16	2			
T 4	0	479	310	23	22	1	8.4	×	×
	45	472	309	26	25	1			
	90	477	312	24	22	2			

*) ○ : No fracture
× : Fracture

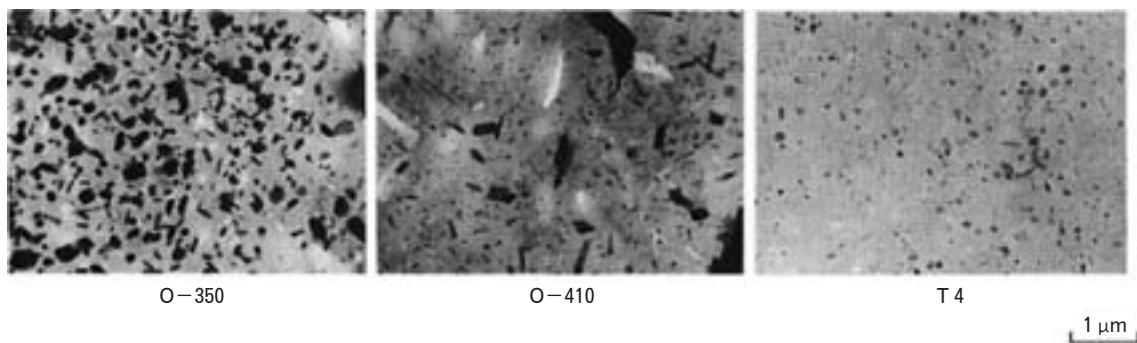


Fig. 109 Effect of temper conditions on the precipitation in 7475 alloy sheet¹⁵¹⁾.

る。T 4 材では一様伸びは高いが局部伸びは少ない。このためエリクセン試験や曲げ試験のように変形が局部的に集中する場合には剪断変形が形成され破断しやすい。また同じ O 材でも 350°C 焼鈍材の方が析出量は多く、また Fig. 109 に示すように第二相粒子の分布も均一で、

固溶量の少ないだけ変形中の動的回復が容易で一様伸びも局部伸びも高くなると考えられる。

Al-Zn-Mg 系 7N01 合金押出材について冷間加工を行う場合、JIS 規格では 415°C での熱処理後炉冷が推奨されているが、この条件で熱処理すると O 材の規格を満足せず、加工性が低下してしまうことがある。このため、松田等は適正な熱処理条件を検討した。220~410°C で 1 時間熱処理後炉冷 (25°C/h) し、熱処理後 1 週間後に引張試験した結果を Fig. 110 に示す¹⁵²⁾。330°C 以上の高温で熱処理すると引張強さが高く、伸びが低いことがわかる。高温での熱処理では熱処理直後では O 材の規

格を満足し、強度も低く伸びも高いが、室温で保持して行くと、保持時間とともに強度が増加する。

各温度で熱処理後の室温時効による硬度変化を Fig. 111 に示す。300°C 以下の低温であればほとんど室温時効の影響を受けないことがわかる。各熱処理後の導電率を Fig. 112 に示すが、高温ではまだ固溶した溶質原子が多く存在していることがわかる。このため炉冷でも焼きが入り室温時効硬化を示したものと考えられる。低温では 0.1μm オーダーの η 相析出物が均一に分散し、動的回復を促進した結果、加工硬化を抑制し伸びの増加に繋がったものと考えられる。

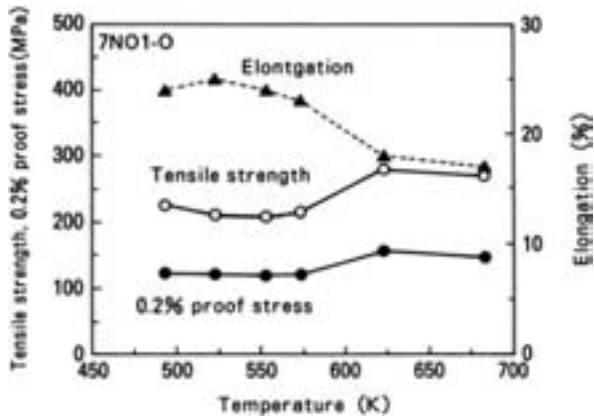


Fig. 110 Effect of annealing temperature on the tensile properties in 7N01 alloy extrude bar¹⁵²⁾.

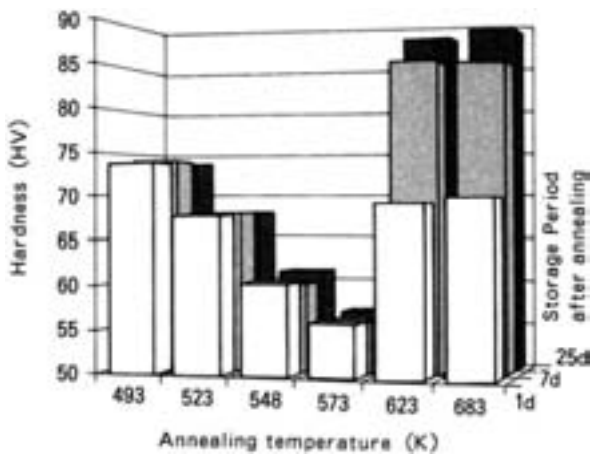


Fig. 111 Effect of annealing temperature on increase of hardness during room temperature aging 1, 7 and 25d after annealing¹⁵²⁾.

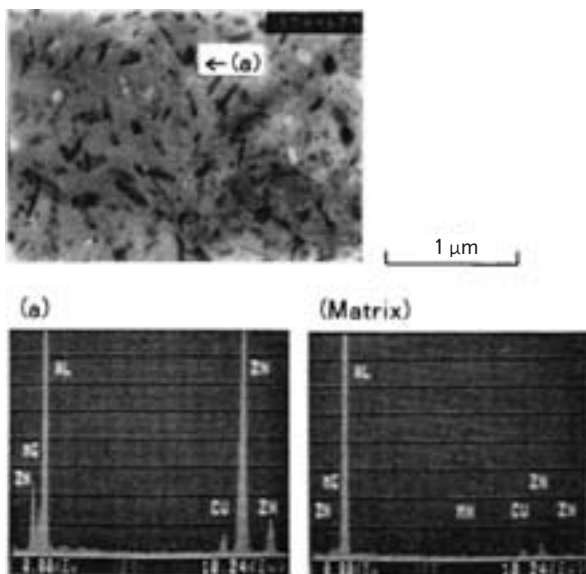


Fig. 112 EDX analyses of the precipitates in the specimen annealed at 548K. (a) η -phase and (b) matrix¹⁵²⁾.

4. ま と め

住友軽金属で研究されてきた組織制御について、住友軽金属技報に掲載されてきた論文や解説を中心にまとめてきた。我々が最も利用している組織制御としては結晶粒と析出状態があり、それらは相互に関係していて切り離して議論はできないが、それぞれ、その解析手法はほぼ確立されてきている。結晶粒については画像処理法が発達してきて、その結晶粒測定が簡単にでき、また結晶方位の測定でも X 線での三次元結晶方位分布関数 ODF や EBSD での結晶方位のマッピングが当たり前の時代になってきた。析出状態に関しても硬度、電気抵抗測定や熱分析による温度や時間による析出過程、X 線や電子顕微鏡による析出物の構造解析、方位解析、EDX による微小部の成分分析も日常的に行われている。さらには、三次元アトムプローブ (3DAP) 装置を用いて原子の 3 次元的空間分布と原子の種類も解析できる。最近では、放射光を用いて三次元的な解析も行われ、動的な変化も非破壊で測定出来るようになってきている。このように機器が発達してくると、昔考えられてきたような金属組織学の古典的な基本概念の再構成も必要になってくるものと考えられる。アルミニウム合金の回復・再結晶過程など金属組織の形成過程を考察するうえで、温度、時間変化に対して何が安定性をもたらしているかを考えることは非常に重要で、不純物や溶質原子が関与しているかは経験的には明らかであるが、不純物や溶質原子の役割を検討に入れた考察や速度論的な解析は不十分であるといわざるを得ない。特に熱間加工では回復・再結晶と析出が同時進行しているので、これらを視野に入れた理論構築が必要である。またこれらに寄与する不純物は非常に微量で効果を発揮することがわかっている。微量であるために粒界偏析などその存在状態を把握することが難しいのが現状であるが、いずれ分析機器の発達で原子オーダーでの存在位置も明確となるであろう。またそもそも、溶質濃度が粒内で均一であるかどうかも十分検討しておく必要がある。不均一であれば加工組織も不均一とならざるを得ないであろう。最終的には、理論とは普遍性を求められるので、高純度アルミニウムから 7000 系合金まで回復・再結晶過程が統一的に説明できることが必要である。また析出過程での焼入れ空孔の関与が当たり前のようになっているが、Al-Li 合金や Al-Zn-Mg 合金で冷却速度が遅くても十分強度が得られる場合の空孔の存在状態や役割は何であるのかも基本的に立ち返って考察することが求められる。さらにアルミニウム合金にとって GP ゾーンの役割は重要で、その安定性も不純物や溶質原子で変化するので、その構造安定性も化学結合論的な視点での検討が必要である。

現在観察できたものだけで説明しようとすると難しいことも多い。現在は観察が困難かもしれないがいずれ見えてくると考え、見えない部分も想定しながら、観察で

きた部分も含んだ理論構築が必要である。以上のような基本的な問題に関して産学でさらに検討していく環境が重要と考えられる。産側の我々はこうした日頃接している課題を抽出して学に伝え、学は新たな学問の課題として捉え、産学連携で金属学の更なる深化を図っていくことを期待するものである。

参 考 文 献

- 1) 森山 勉, 吉田英雄, 土田 信: 軽金属, **39** (1989), 184., 本誌, 30 (1989), 1.
- 2) 吉田英雄, 大久保喜正: 軽金属学会第 124 回春期大会講演概要, (2013), 201.
- 3) 日本国特許庁: 特許番号第 886002 号, 出願昭 40-14292, 公告昭 45-87781.
- 4) 馬場義雄: アルミニウム, Vol. 7, No.35, Mar/Apr. (2000), 80.
- 5) 馬場義雄: 本誌, **41** (2000), 91.
- 6) Y. Baba: Trans. JIM, **7** (1966), 224.
- 7) Y. Baba: Proc. ICSMA, Supplement to Trans. JIM, **9** (1968), 356.
- 8) 馬場義雄: 日本金属学会誌, **31** (1967), 910., 本誌, **9** (1968), 24.
- 9) 馬場義雄: 日本金属学会会報, **17** (1978), 498.
- 10) 馬場義雄, 高島 章: 軽金属, **24** (1974), 216., 本誌, **15** (1974), 287.
- 11) 吉田英雄, 馬場義雄: 同上, **31** (1981), 20., 同上, **22** (1981), 42.
- 12) 馬場義雄, 吉田英雄: 本誌, **18** (1977), 68.
- 13) 軽金属研究会昭和 29 年第 6 回春季講演会第一回分科会記録: 軽金属, **13** (1954), 102.
- 14) 畑 榮一: 日本金属学会誌, **16** (1952), 355., 住友金属, **4** (1952), 424.
- 15) 鈴木 覚: 軽金属, **61** (2011), 421.
- 16) J. J. Theler und P. Furrer: Aluminium, **50** (1974), 467.
- 17) 馬場義雄, 宇野照生, 吉田英雄: 本誌, **21** (1980), 123.
- 18) 吉田英雄, 田中宏樹, 土田 信: 同上, **29** (1988), 58.
- 19) 吉田英雄: 塑性と加工, **34** (1993), 764., 本誌, **36** (1995), 37.
- 20) E. di Russo, M. Coserva, M. Buratti and F. Gatto: Mater. Sci. Eng., **14** (1974), 23.
- 21) J. Waldman, H. Sulinski and H. Markus: Met. Trans., **5** (1974), 573.
- 22) J. Waldman, H. Sulinski and H. Markus: *Aluminium Alloys in the Aircraft Industry*, AIM and ISML, Technology Limited, (1978), 105.
- 23) R. J. Wanhill and G. F. J. A. van Gestel: Aluminium, **54** (1978), 573.
- 24) 吉田英雄: 本誌, **54** (2013), 「超々ジュラルミンと零戦」, 264.
- 25) 松田眞一, 平野清一, 吉田英雄: 軽金属学会第 38 回秋期大会講演概要, (1992), 47.
- 26) 松田眞一, 吉田英雄: 本誌, **39** (1998), 116.
- 27) 山田 徹, 藤田秀嗣, 武笠秀利, 山川英人, 吉田英雄, 松田眞一: アルトピア, **29** (1999), 9.
- 28) 早坂敏明, 壇 博貴, 松田眞一, 藤田浩一, 薬科永充: アルミニウム **15** (2008), 81.
- 29) J. A. Wert, N. E. Paton, C. H. Hamilton and M. W. Mahoney: Met. Tran., **12A** (1981), 1267.
- 30) J. A. Wert: *Superplastic Forming of Structural Alloys*, ed. by N. E. Paton and C. H. Hamilton, TMS-AIME (1982), 69.
- 31) 吉田英雄: 軽金属, **41** (1991), 331., 本誌, **32** (1991), 151.
- 32) 吉田英雄: 本誌, **37** (1996), 90.
- 33) 吉田英雄: 軽金属, **41** (1991), 338., 同上, **32** (1991), 228.
- 34) H. Yoshida, M. Kumagai and Shi-ichi Matsuda: Sumitomo Light Metal Technical Reports, **31** (1990), 203.
- 35) 吉田英雄: 軽金属, **41** (1991), 446., 本誌, **33** (1992), 36.
- 36) 吉田英雄: 同上, **41** (1991), 453., 同上, **33** (1992), 67.
- 37) H. Yoshida, S. Hirano, Y. Baba, T. Tszuku and A. Takahashi: 4th Int. Al-Li Conf., Ed. by Champier et al., J. de Physique, **C3** (1987), 269., 本誌, **28** (1987), 119.
- 38) 吉田英雄, 田中宏樹, 土田 信: 軽金属, **39** (1989), 817., 本誌, **30** (1989), 169.
- 39) H. Tanaka, H. Yoshida and S. Tsuchida: Mater. Sci. Forum, **204-206** (1996), 467.
- 40) 吉田英雄, 内田秀俊: 軽金属, **61** (2011), 568, 684., 本誌, **52** (2011), 57.
- 41) K. Takiguchi, H. Uchida and H. Yoshida: Sumitomo Light Metal Technical Reports, **39** (1998), 7.
- 42) 吉田英雄, 田中宏樹: 本誌, **49** (2008), 87.
- 43) H. Uchida, M. Asano and H. Yoshida: Sumitomo Light Metal Technical Reports, **40** (1999), 12.
- 44) 馬場義雄: 本誌, **31** (1990), 65.
- 45) T. Uno, H. Yoshida and Y. Baba: *Aluminum Alloys, Their Physical and Mechanical Properties*, Vol. 1, Conference Proceedings (ICAA 1), Ed. by E.A. Starke, Jr and T. H. Sanders, Jr., EMAS, (1986), 371.
- 46) 田中宏樹, 吉田英雄: 本誌, **42** (2001), 164.
- 47) 江崎宏樹, 渋谷和久, 吉田英雄: 同上, **42** (2001), 43.
- 48) 江崎宏樹, 田中宏樹, 渋谷和久, 神鳥基哉, 吉田英雄: 同上, **42** (2001), 175.
- 49) 渡辺良夫, 渋谷和久, 吉田英雄: 同上, **42** (2001), 168.
- 50) 江崎宏樹, 田中宏樹, 渋谷和久, 吉田英雄: 同上, **42** (2001), 181.
- 51) 箕田 正, 田中宏樹, 渋谷和久, 吉田英雄: 同上, **42** (2001), 31.
- 52) 田中宏樹, 箕田 正, 江崎宏樹, 渋谷和久, 吉田英雄: 同上, **42** (2001), 37.
- 53) 田中宏樹, 江崎宏樹, 箕田 正, 渋谷和久, 吉田英雄: 同上, **43** (2002), 7.
- 54) 田中宏樹, 吉田英雄: 同上, **43** (2002), 133.
- 55) *Aluminum: Properties and Physical Metallurgy*, ed. by J. E. Hatch, ASM, (1984), 131.
- 56) D. G. Altenpohl: *Aluminum: Technology, Applications, and Environment, A Profile of a Modern Metal*, 6th Edition, TMS, (1998), 159.
- 57) Y. Ozeki, T. Minoda, H. Tanaka and H. Yoshida: Sumitomo Light Metal Technical Reports, **49** (2008), 46.
- 58) 土田 信, 吉田英雄: 軽金属, **39** (1989), 587., 本誌, **31**

- (1990), 126.
- 59) 中村拓郎, 浅野峰生, 吉田英雄: 軽金属学会第121回秋期大会講演概要, (2011), 59.
- 60) 当摩 建, 竹内 庸: 日本金属学会会報, **18** (1979), 349.
- 61) 寺井士郎, 馬場義雄: 日本金属学会誌, **27** (1963), 79., 本誌, **4** (1963), 255.
- 62) I. Dover, St. Lucia and H. Westengen: *Aluminium*, **60** (1984), E668.
- 63) 大野恭男: アルトピア, 7号, (1979), 26.
- 64) 畑 榮一, 馬場義雄: 日本金属学会会報, **12** (1973), 21., 本誌, **16** (1975), 38.
- 65) 円谷和雄, 本間一光, 渡辺俊一: 軽金属, **27** (1977), 599.
- 66) 武井広見, 佐藤謙一, 横田 稔: 同上, **30** (1980), 826.
- 67) 当摩 建, 竹内 庸: 同上, **26** (1976), 510.
- 68) US Patent 3, 397, 044, (1968).
- 69) Y. Ohno and H. Nakamura: *Aluminium*, **53** (1977), 539.
- 70) 山本 悟, 水野正隆, 切畑敦詞, 日本金属学会誌, **56** (1992), 142, 757.
- 71) 山本 悟: デモクリトスの原子論と材料学, 電子・光子の相互作用と材料の結合, 構造, 物性, 反応, 昭和堂, (2005), 166.
- 72) 馬場義雄, 宇野照生, 吉田英雄: 本誌, **21** (1980), 123.
- 73) 馬場義雄: 同上, **29** (1988), 29.
- 74) 吉田英雄, 宇野照生, 馬場義雄: 軽金属, **34** (1984), 698., 同上, **25** (1984), 221.
- 75) J. H. Mulherin and H. Rosenthal: *Met. Trans.*, **2** (1971), 427.
- 76) 岩村信吾, 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属, **60** (2010), 75., 本誌, **51** (2010), 68.
- 77) 吉田英雄, 内田秀俊: 本誌, **34** (1993), 87.
- 78) E. C. Beatty: *International Extrusion Technology Seminar*, sponsored by The Aluminum association and The Aluminum Extruder's Council, Paper No.10, (1969).
- 79) 箕田 正, 早川秀哉, 吉田英雄: 軽金属, **49** (1999), 253., 本誌, **40** (1999), 22.
- 80) 寺井士郎: 本誌, **10** (1969), 119.
- 81) 寺井士郎, 馬場義雄: 同上, **10** (1969), 42.
- 82) 馬場義雄, 高島 章: 軽金属, **20** (1970), 468., 同上, **11** (1970), 293.
- 83) 馬場義雄: 軽金属, **27** (1977), 616.
- 84) 馬場義雄: 同上, **30** (1980), 520.
- 85) 堀内 良: 同上, **23** (1973), 556.
- 86) 堀内 良, 金子純一: 同上, **20** (1970), 213.
- 87) W. Grule and G. Scharf: *Z. Metallkde*, **57** (1966), 597.
- 88) 箕田 正, 内田秀俊, 渋江和久, 吉田英雄: 同上, **53** (2003), 523., 本誌, **44** (2003), 6.
- 89) 馬場義雄: 日本金属学会誌, **31** (1967), 910., 本誌, **9** (1968), 24.
- 90) 寺井士郎, 杉山禎彦, 馬場義雄, 福井利安: 本誌, **7** (1966), 197.
- 91) 馬場義雄: 同上, **41** (2000), 91.
- 92) 馬場義雄: アルミニウム, **7** (2000), 80.
- 93) 馬場義雄, 高島 章: 軽金属, **24** (1974), 216., 本誌, **15** (1974), 287.
- 94) 吉田英雄, 馬場義雄: 同上, **31** (1981), 20., 同上, **22** (1981), 42.
- 95) 堀 茂徳, 佐治重興, 小林富夫: 軽金属, **23** (1973), 194.
- 96) 馬場義雄, 高島 章: 本誌, **17** (1976), 28.
- 97) 吉田英雄, 福井利安, 馬場義雄: 軽金属, **28** (1978), 57., 本誌, **19** (1978), 95.
- 98) 馬場義雄: 日本金属学会会報, **17** (1978), 498.
- 99) 渡辺英雄, 大堀紘一, 竹内 庸: 軽金属, **33** (1983), 149.
- 100) 梶山 毅, 深田和博: アルミニウムの組織と性質, 軽金属学会, (1991), 217.
- 101) 鈴木 覚: 軽金属, **61** (2011), 421.
- 102) K. Fukada, M. Mizouchi and T. Kajiyama: *Aluminum Alloys, Their Physical and Mechanical Properties, Vol. 1*, Conference Proceedings (ICAA 1), Ed. by E. A. Starke, Jr and T. H. Sanders, Jr., EMAS, (1986), 483.
- 103) 八太秀周, 松田眞一, 吉田英雄: 軽金属, **52** (2002), 417., 本誌, **43** (2002), 24.
- 104) 田中宏樹, 土田 信: 本誌, **33** (1992), 217.
- 105) 神田知之, 松田眞一, 吉田英雄: 軽金属学会第104回春期大会講演概要, (2003), 291.
- 106) 竹村英貴, 橋内 透: 軽金属学会第116回春期大会講演概要, (2009), 279.
- 107) 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属, **61** (2011), 718., 本誌, **53** (2012), 1.
- 108) H. Yoshida and S. Yamamoto: *Sumitomo Light Metal Technical Reports*, **51** (2010), 25.
- 109) 馬場義雄, 高島 章: 軽金属, **19** (1969), 90., 本誌, **10** (1969), 210.
- 110) 八太秀周, 松田眞一, 吉田英雄: 本誌, **47** (2006), 66., **49** (2008), 24.
- 111) 山田健太郎, 里 達雄, 神尾彰彦: 軽金属, **51** (2001), 215.
- 112) 八太秀周, 田中宏樹, 松田眞一, 吉田英雄: 同上, **54** (2004), 412. 本誌, **45** (2004), 29.
- 113) H. Hatta, S. Matsuda, H. Tanaka and H. Yoshida: *Sumitomo Light Metal Technical Reports*, **6** (2005), 55.
- 114) 八太秀周, 松田眞一, 田中宏樹, 吉田英雄: 軽金属, **59** (2009), 248. 本誌, **50** (2009), 25.
- 115) 箕田 正, 吉田英雄: 同上, **56** (2006), 602., 同上, **47** (2006), 110.
- 116) 内田秀俊, 吉田英雄: 同上, **46** (1996), 427., 同上, **39** (1998), 1.
- 117) 箕田 正, 吉田英雄, 都筑隆之: 同上, **49** (1999), 161., 同上, **40** (1999), 1.
- 118) S. K. Maloney, I. J. Polmear and S. P. Ringer: *Mater. Sci. Forum*, **331** (2000), 1055.
- 119) 中井康博, 箕田 正, 松田眞一, 吉田英雄: 軽金属, **56** (2006), 651., 本誌, **47** (2006), 73.
- 120) 箕田正: 軽金属溶接, **45-2** (2007), 1., 本誌, **48** (2007), 95.
- 121) 箕田 正, 吉田英雄, 伊原木幹成ほか: 低コスト胴体構造部品加工法の開発, 航空機部品・素材産業振興に関する調査研究成果報告書, No.807, 日本航空宇宙工業会, (1994), 67.
- 122) 馬場義雄: *Tran. JIM*, **13** (1972), 76, 本誌, **13** (1972), 210.
- 123) 馬場義雄: 日本金属学会誌, **36** (1972), 341., 本誌, **14** (1973), 15.
- 124) 馬場義雄, 萩原理樹, 浜田淳司: 日本金属学会誌, **36** (1972), 1070., 本誌, **14** (1973), 63.
- 125) 吉田英雄, 内田秀俊: 軽金属, **61** (2011), 568, 684., 本誌, **52** (2011), 57.

- 126)土田 信, 田中宏樹:本誌, **34** (1993), 128.
127)馬場義雄:本誌, **10** (1969), 91.
128)木村 宏:軽金属, **24** (1974), 126.
129)鈴木 寿, 菅野幹宏ら:同上, **22** (1972), 576, 599, **23** (1973), 120, **24** (1974), 279. など.
130)S. Yamamoto: Acta mater. **45** (1997), 3825.
131)山本 悟:軽金属, **44** (1994), 733.
132)(社)日本航空宇宙工業会, 航空機部品・素材産業振興に関する調査研究, 成果報告書, No.806 (1994), No.903 (1995).
133)(社)日本航空宇宙工業会, 航空機部品・素材産業振興に関する調査研究, 成果報告書, No.1004 (1996), No.1102 (1997).
134)佐野秀男, 谷 真一, 吉田英雄, 駒沢真一, 岩上敏男, 吉野保明:本誌, **38** (1997), 44.
135)佐野秀男, 松田真一, 吉田英雄:軽金属, **53** (2003), 513., 本誌, **45** (2004), 168.
136)佐野秀男, 加藤勝也:本誌, **46** (2005), 126. **51** (2010), 166.
137)小関好和, 岩村信吾, 上向賢一, 山田悦子:同上, **51** (2010), 61.
138)岩村信吾, 小関好和, 吉田英雄:同上, **51** (2010), 32.
139)馬場義雄, 吉田英雄:軽金属, **31** (1981), 195.
140)馬場義雄, 吉田英雄:日本金属学会誌, **22** (1983), 115.
141)吉田英雄:本誌, **24** (1983), 141.
142)吉田英雄, 内田秀俊:軽金属, **45** (1995), 41., 同上, **38** (1997), 177.
143)J. Aucote and D. W. Evans: Metal Sci., **12** (1978), 57.
144)平野清一, 吉田英雄, 宇野照生:本誌, **30** (1989), 59.
145)宇野照生, 吉田英雄, 馬場義雄:同上, **25** (1984), 16.
146)宇野照生, 吉田英雄, 馬場義雄:同上, **25** (1984), 153.
147)畑 榮一, 馬場義雄:日本金属学会会報, **18** (1979), 478.
148)宇野照生, 馬場義雄:本誌, **26** (1985), 203.
149)宇野照生, 馬場義雄:同上, **20** (1979), 3.
150)宇野照生, 馬場義雄:軽金属, **26** (1976), 347, 同上, **17** (1976), 116.
151)平野清一, 吉田英雄:本誌, **38** (1997), 95.
152)松田真一, 吉田英雄:同上, **37** (1996), 7.

アルミニウム合金の連続鋳造における鋳造組織制御

常川 雅功*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 106-121

Microstructural Control in Cast Structures on Continuous Casting for Wrought Aluminum Alloys

Masanori Tsunekawa

The casting process is the first stage in the manufacturing of aluminum materials widely used in industry. It is known that the cast structures have a significant effect on the quality of the final product in spite of undergoing the rolling or extrusion process. Therefore, the demand for cast structures with grain refining, reduction of the sub-surface band and macrosegregation is growing. In response to these concerns, a number of advanced technologies have been developed, such as the LHC mold, Low Frequency Electromagnetic Casting and Fusion Technology. This paper describes the control technology of cast structures on the DC and CC casting processes.

1. はじめに

工業的に使用される様々なアルミニウム材料は、そのほとんどが鋳造プロセスを出発点として製造されており、鋳造工程で形成された鋳造組織は、その後の圧延や押出の工程を経ても最終製品の品質特性に大きな影響を及ぼすことが知られている。そのため、最近では、鋳造組織に対する要求が高まっており、それに応じた技術開発も進展している。ここでは、展伸材の主要な製造プロセスである鋳型半連続鋳造法（Direct Chill Casting, DC 鋳造法）や連続鋳造法（Continuous Casting, CC 鋳造法）における鋳造組織の制御技術について解説する。

2. DC 鋳塊における鋳造組織のあるべき姿

2.1 DC 鋳造法

DC 鋳造法は、アルミニウム合金展伸材の主要な製造プロセスで、介在物の混入や巣が少なく、組織が比較的均一で鋳塊品質に優れるのみならず、多様な合金にも対応できて生産性も高いことから、国内外で適用されている¹⁾。Fig. 1 に示すように、DC 鋳造法では、鋳型による冷却と鋳型下の直接水冷による冷却によって溶湯を凝固させながら、鋳型底部に設置したボトムブロックを連

続的に降下させて鋳塊を製造する。溶湯は樋からスパウトを介して鋳型内に供給され、鋳型内で所定の湯面レベルに達したら、ボトムブロックを降下して鋳造を開始する。この降下速度、すなわち鋳造速度は湯漏れを防止するために初期は低速とし、所定の鋳造速度まで徐々に増速するのが一般的である。

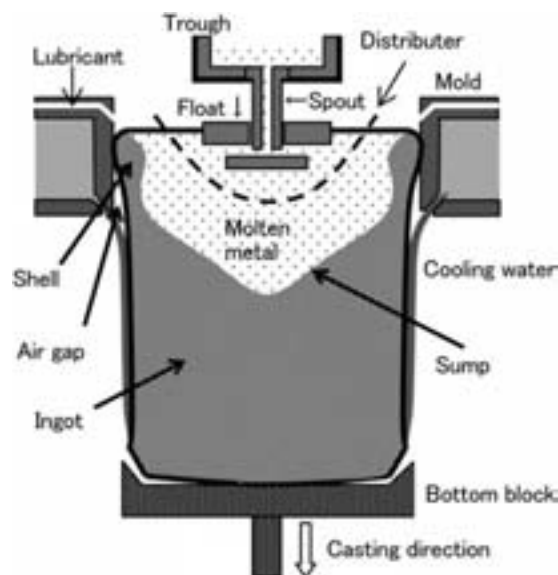


Fig. 1 Schematic diagram of DC casting process.

* 研究開発センター 第一部

鋳型内に注湯された溶湯はまず鋳型によって冷却（一次冷却）され、鋳型近傍の鋳塊表層部が凝固殻として形成される。鋳型の素材には、通常、アルミニウム合金が用いられるが、鋳型内面は水による冷却がなされているため、溶湯接触面でも温度上昇が少なく、溶湯熱で溶損することはない。ただし、固着防止のため潤滑油を鋳型表面に供給する必要がある。

次いで、鋳型から出た鋳塊は直接水冷（二次冷却）帯に入り、鋳型下部から吐出された冷却水が鋳塊表面に衝突し、下方に流れることで鋳塊が冷却される。鋳塊の凝固に必要な抜熱の90%程度がこの二次冷却で行われる。

このような一次、二次冷却による抜熱が鋳塊側面から行われるため、鋳塊中心に近いほど凝固が遅れる。その結果、サンプル形状と呼ばれる凝固界面の形状は Fig. 1 に示すように V 字型となり、中心部の界面位置が最も深くなる。DC 鋳造法に特有のこの抜熱方法により、鋳塊表層部から中心にかけて冷却速度が大きく異なるため、必然的に特徴的な鋳造組織が形成されることになる。

鋳塊表層部の特徴的な鋳造組織として、発汗（逆偏析）^{2,3)}、粗大セル層⁴⁾があり、鋳塊内部の鋳造組織として結晶粒やデンドライト⁵⁾、浮遊晶^{6,7,8)}、羽毛状晶^{9,10)}、樅の木組織^{11,12,13)}、巨大金属間化合物^{14,15,16)}、ポロシティ^{17,18)}がある。その他では、溶質元素の濃度分布に関してマイクロ偏析¹⁹⁾やマクロ偏析^{20,21)}、異物という観点で水素ガス^{22,23)}や介在物²⁴⁾も鋳造組織に内在する特徴である。また、鋳塊形状としては、鋳塊底部のそり上がりによる変形²⁵⁾や、凝固時の熱応力による鋳塊割れ^{26,27)}も DC 鋳塊に現れる特徴である。

2.2 DC 鋳塊における鋳造組織のあるべき姿

DC 鋳造法によるアルミニウム合金鋳塊において、鋳塊割れが無く断面形状が矩形で歩留が高いことは無論であるが、鋳造組織のあるべき姿として、DC 鋳造法に特有の異常組織がなく、均一かつ微細な凝固組織を有し、水素ガスなどの不純物や介在物を含まないことが挙げられる。均一微細な凝固組織であれば、下工程での加工や熱処理において品質不良が生じにくく、最終製品の品質特性も安定する。さらに、製造条件の自由度も増すため、これまでにない新たな品質特性の発現も期待できる。このあるべき姿に近づくために、鋳造条件の最適化や数々のプロセス改良、技術開発がなされている。ここではそれらを整理し、鋳造組織制御技術に関して述べる。

3. DC 鋳塊における鋳造組織制御技術

3.1 鋳造組織の形成

アルミニウム合金溶湯（液相）の温度が下がり、凝固温度に近づくと、初晶（固相）の核となる結晶構造に近いエンブリオが生成される。凝固は安定なエンブリオが液相中で成長することによって開始され、Fig. 2 に示すような樹枝状に結晶が成長する⁵⁾。これをデンドライト

成長と呼び、その結果、形成される組織をデンドライト組織、また、最初の突起を一次アーム、その直角方向の突起を二次アーム、と呼ぶ。Fig. 3 は凝固過程をモデルで示したものである⁵⁾。液相中に核生成し、デンドライト成長した結晶はやがて互いに衝突し、結晶粒界を形成する。デンドライト間や結晶粒界は最終的に凝固する部分（最も融点が高い部分）であり、共晶型合金の共晶部分に相当し、溶質濃度が高い。Fig. 4 には 6063 合金の鋳造組織を示す²⁸⁾。Fig. 4 (a) は結晶粒組織を示し、200 μm 前後の結晶粒が白黒のコントラストで明瞭に観察できる。コントラストは結晶の方位の違いに起因する。結晶粒の中の線状黒色部分がデンドライト境界であり、拡大すると Fig. 4 (b) のように観察され、粒子が確認できる。この粒子は共晶組織の一部であり、金属間化合物と呼ぶ。

3.2 鋳造組織の微細化

結晶粒やデンドライト組織は微細なほど材料としての品質特性が向上し、特に結晶粒の微細化は鋳造時の熱応

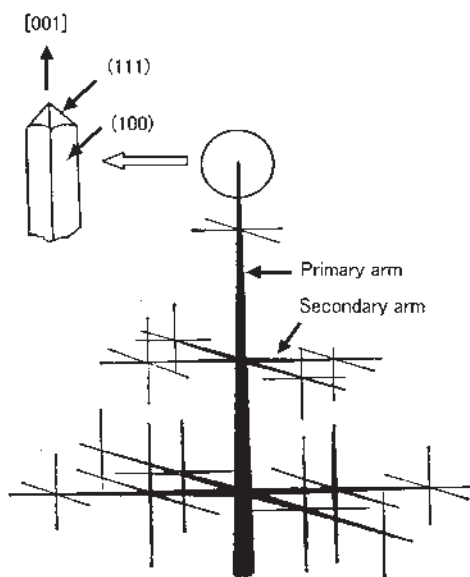


Fig. 2 Dendritic growth⁵⁾.

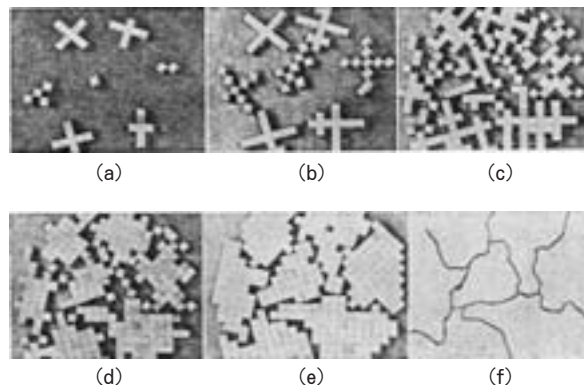


Fig. 3 Model of Solidification process⁵⁾.

力に対する抵抗を高め、鑄造割れを防止する作用もある。鑄造組織が微細化できるプロセスとして、非常に速い冷却速度が得られる双ロール連続鑄造圧延法^{29,30)}に関しては後述するが、スプレーフォーミング法³¹⁾、半熔融、半凝固状態³²⁾で加工を行う方法、などの組織微細化プロセスは本稿では割愛する。

3.2.1 結晶粒の微細化

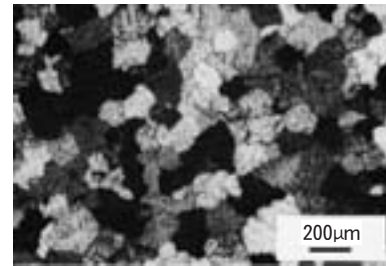
DC 鑄塊における結晶粒の微細化は、溶湯中に Al-Ti, Al-Ti-B, Al-Ti-C 合金を添加することによって行われる。これらの合金によって溶湯中に導入される Al_3Ti , TiB_2 や TiC の粒子が異質核生成サイトとして作用するためと考えられている^{33,34)}。微細化の性能は Al-Ti-B 合金が最も優れ、Ti 量を 3~5%, B 量を 0.2~1% 程度に調整した Al-Ti-B 合金が工業的に広く用いられている。Al-Ti-B 合金による微細化機構は、溶湯中に導入された TiB_2 粒子が異質核生成サイトとなり、包晶型の初晶として Al_3Ti が核生成し、包晶反応により格子定数の近い α アルミが晶出するという説が広く支持されている。鑄造ラインにおいて、Al-Ti-B 合金の添加は保持炉で行われることもあるが、 TiB_2 粒子は沈降凝集化しやすいため、直径 10mm 程度のロッド形状にしたものを鑄造直前の樋内溶湯にゆっくり送入して添加することが多い。Fig. 5 に市販されているロッド形状の Al-Ti-B 合金微細化剤のマイクロ組織を示す。数 μm サイズの TiB_2 粒子と 50 μm サイズの Al_3Ti 粒子が観察される。溶湯中で TiB_2 粒子は安定で分解しないが、 Al_3Ti 粒子は一旦溶解し、 Al_3Ti 生成の Ti 供給源となる。Fig. 6 には純アルミニウムの結晶粒径に及ぼす Ti 量と B 量の影響を示す³⁵⁾。添加量が多いほど、結晶粒が微細化されることが明らかである。

しかし、Zr や Cr を含む合金において Al-Ti-B 合金を用いた微細化ではその効果が低下することが知られている³⁶⁾。これは溶湯中で生成した Al_3Ti に Zr や Cr が取り込まれることで格子定数が変化し、 α アルミが晶出しにくくなるためである。Zr や Cr を含む合金では、Al-Ti-C 合金による TiC 粒子の添加が有効とされている。

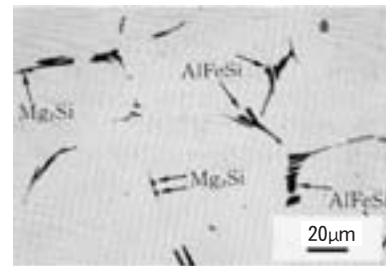
その他の異質核として、 Al_3Sc を生成する Sc 添加³⁷⁾、微細なステンレス粉末³⁸⁾ や酸化物粒子³⁹⁾ を利用する報告もあるが、いずれも実用化には至っていない。

一方、Al-Ti-B 合金による微細化では、溶湯中に添加された TiB_2 粒子のうち 1% 程度が核生成に寄与するのみで低効率であること、また、残余の TiB_2 粒子は、特に凝集粗大化すると介在物として有害に作用すること、などから微細化剤粒子に依らない新たな結晶粒微細化の技術開発が進められている。

それらのなかに、低周波の電磁攪拌を用いた CREM 法 (Casting Refining Electromagnetic process)⁴⁰⁾ や LFEC 法 (Low Frequency Electromagnetic Casting)^{41,42)} がある。これらのプロセスは、後述の高周波を用いた電磁場鑄造法 (Electro Magnetic Casting,

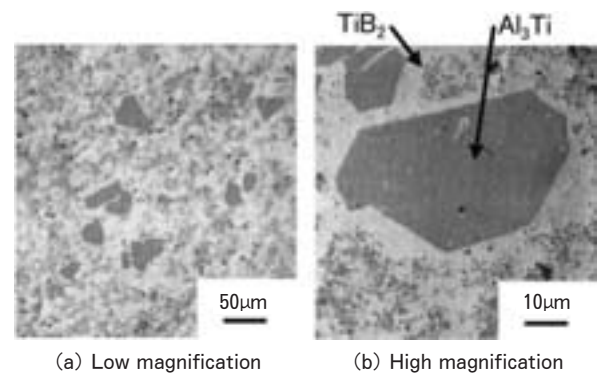


(a) Grain structure



(b) Microstructure

Fig. 4 Cast structure of 6063 alloy²⁸⁾.



(a) Low magnification

(b) High magnification

Fig. 5 Microstructures of Al-5%Ti-1%B grain refiner.

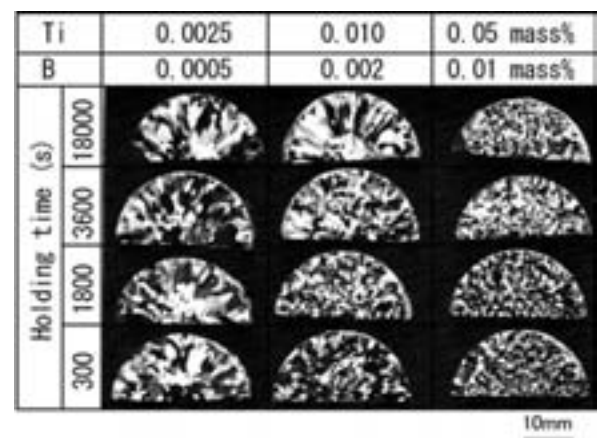


Fig. 6 Effect of Ti and B addition on grain size of 99.97%Al³⁵⁾.

EMC)⁴³⁾とは異なり、溶湯の内部領域にまで電磁力が作用するため、鑄塊内部の鑄造組織改善に有効である。Fig. 7 に LFEC 法の模式図と鑄塊のマクロ組織写真を

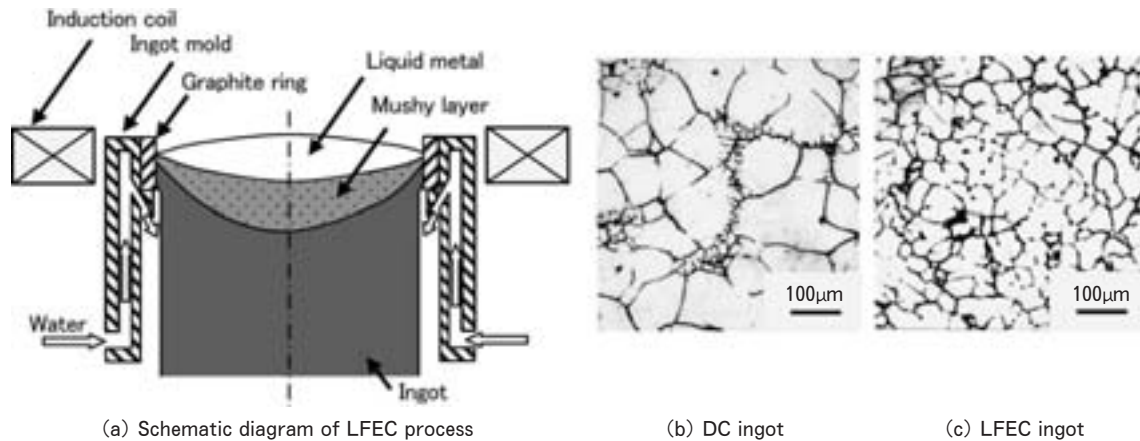


Fig. 7 Schematic diagram of LFEC process and microstructures of ingot center in Al-Zn-Mg-Cu Alloy⁴¹⁾.

示す⁴¹⁾。DC 鋳塊の平均結晶粒径が $150\mu\text{m}$ であるのに対して、LFEC 鋳塊では $45\mu\text{m}$ に微細化されている。鋳型内の溶湯攪拌により溶湯温度が全域で液相線直下となることから、鋳型近傍で核生成した結晶粒の成長が抑制され、また、凝固界面のデンドライト晶が溶湯流により分断される、などの作用で結晶粒の微細化が図られる。これらの技術の適用で現行よりもさらに微細な結晶粒に鋳造組織を制御することは、設備コストとの兼ね合いもあるが、今後の DC 鋳造プロセスで指向される方向性の一つと言える。

3.2.2 晶出物の微細化

最終製品における品質特性の要求レベル向上に伴い、鋳塊中の晶出物の微細化も不可欠になってきている。後述する巨大金属間化合物とは異なり、DC 鋳造法の冷却速度域で生じる数 μm サイズの晶出物までも問題視される場合がある。磁気ディスク基板などの用途では、Fe や Si 量を規制することで Al-Fe (-Si) や Mg-Si 系の晶出物サイズの制御を行っている⁴⁴⁾。

Al-Si 系合金では、P 添加による初晶 Si 粒子の微細化⁴⁵⁾の他に、溶湯中に浸漬したホーンから超音波振動を与え、キャピテーションが圧壊する際のエネルギーや溶湯中の音響流により初晶 Si 粒子を微細化する技術の開発が進められている⁴⁶⁾。また、共晶 Si 相の微細化も行われている。共晶組織における Si 相は長く成長した形態であるため、その先端に応力が集中して割れが発生しやすく、Si 相と α アルミの境界に沿って割れが急速に伝播してしまう問題がある。共晶 Si 相の微細化には Na や Sr を 100ppm 程度添加し、凝固時に共晶 Si 相の界面エネルギーを低下させることで、粒状微細な Si 相にすることができる⁴⁷⁾。加えて、 TiSi_2 粒子を異質核として添加することで、 α Al-Fe-Si 系晶出物が微細化することも報告されている⁴⁸⁾。さらに、凝固時の溶湯に直流磁場と交流電場を同時に印加することで生じる電磁振動力を利用して、キャピテーションを生じさせ、この圧壊により初晶を破碎して鋳造組織を微細化する方法も開

発されている⁴⁹⁾。

3.3 DC 鋳造法特有の鋳造組織

3.3.1 粗大セル層

Fig. 1 に示した DC 鋳造プロセスにおいては、水冷鋳型による一次冷却で凝固殻が形成され、その後、凝固殻の収縮により鋳型と凝固殻が離れて、いわゆるエアギャップを形成する。このエアギャップに対応する鋳塊領域では徐冷され、次の冷却水による二次冷却により鋳塊は強冷却される。その結果、Fig. 8 に示すように鋳塊の表層部から内部にかけて、チル層、粗大セル層 (Sub-surface band, SSB)、微細セル層の凝固組織が形成される^{17,50)}。この粗大セル層では徐冷により冷却速度が遅いために、デンドライト組織や結晶粒が粗大となる。このような表層部から内部にかけての鋳造組織の変化は、DC 鋳造プロセスに起因するもので材質を問わず不可避と言える。

しかし、圧延用鋳塊の面削面に粗大セル層が残存すると、Fig. 9 に示すように圧延後の板表面には多数の筋模様が見られ、板のきめが粗くなる不具合が生じる⁹⁾。これに対して、粗大セル層を完全に除去した部分の板表面は、きめが細かく高品位である。板表面の品質向上の観点から、粗大セル層を除去すべく鋳塊の表層近傍部を面削する必要がある。しかし、表層近傍の面削量が增大すると、鋳塊歩留が低下する。このため、粗大セル層の狭小化あるいは解消できる技術の開発が進められてきた。

粗大セル層の狭小化のために、DC 鋳造法では鋳型内の湯面レベル低下が行われてきた。鋳型での一次冷却と冷却水による二次冷却の間の距離を短くすることで、エアギャップで凝固する鋳塊領域を減らし、二次冷却による強冷却を早いタイミングで行うことができる。この究極の形態が Fig. 10 に示す鋳型を使用しない EMC である⁴³⁾。EMC では従来の鋳型の代わりに電磁力で溶湯を保持するため一次冷却がなく、5182 合金でも Fig. 11 に示すように平滑な鋳肌が得られ、Fig. 12 のように表層部に不均質組織はほとんど発生しない⁵¹⁾。しかし、湯

面レベルの変動によって铸塊断面形状が変化する問題があり、湯面レベルの高精度な制御技術を必要とすること、無面削圧延が可能な表層の品質レベルにまでは至らなかったこと⁵²⁾、さらには設備コストが高価なこと、などから普及しなかった。そのために、海外では、低湯面レベ

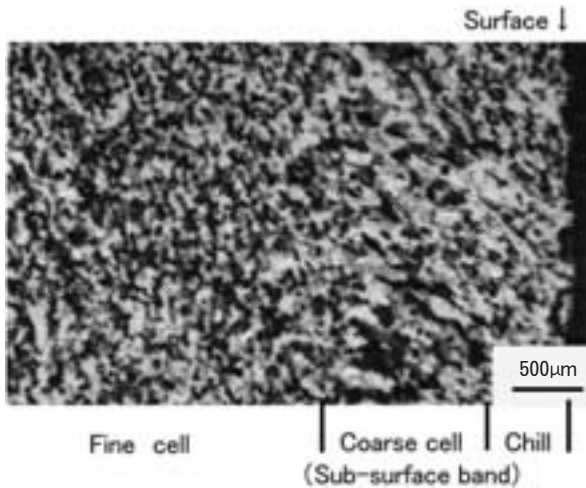


Fig. 8 Typical microstructure of sub-surface band in DC cast ingot¹⁷⁾.

ルで铸造を行う特殊な铸型として、スラブでは Fig. 13 のような LHC (Low Head Composite mold) 铸型^{53, 54)}が、また、ビレットではホットトップ (Hot Top mold, HT) 铸型^{55, 56, 57)}が、それぞれ考案され、実用化されている。

Fig. 14 に示すように、LHC 铸型⁵⁴⁾ではその内面に高潤滑、低熱伝導のグラファイトがライニングされているため、铸型潤滑油量の削減と一次冷却の緩和が可能になっている。この铸型に高精度な湯面レベル制御技術を組み合わせ、低湯面铸造を行うことによって、铸肌も改善できる。また、LHC 铸型には二次冷却が2系統あり、第1の二次冷却では铸塊に対して40度以上の高角度で冷却水を供給し、第2の二次冷却では25度以下の低角度となるように設計されている。铸造初期は第2の冷却システムから少量の冷却水を供給し、膜沸騰冷却を利用して铸塊を徐冷する。これによって、CO₂冷却⁵⁸⁾などの初期徐冷システムを用いずに铸塊底部の変形を軽減できる。定常状態では、第1の冷却システムも併用して铸塊を強冷する。通常、高角度で冷却水が铸塊に衝突すると、水の跳ね返りが生じてその下側での冷却が弱くなるが、LHC 铸型では第2の冷却水で第1の冷却水の散乱を防止でき

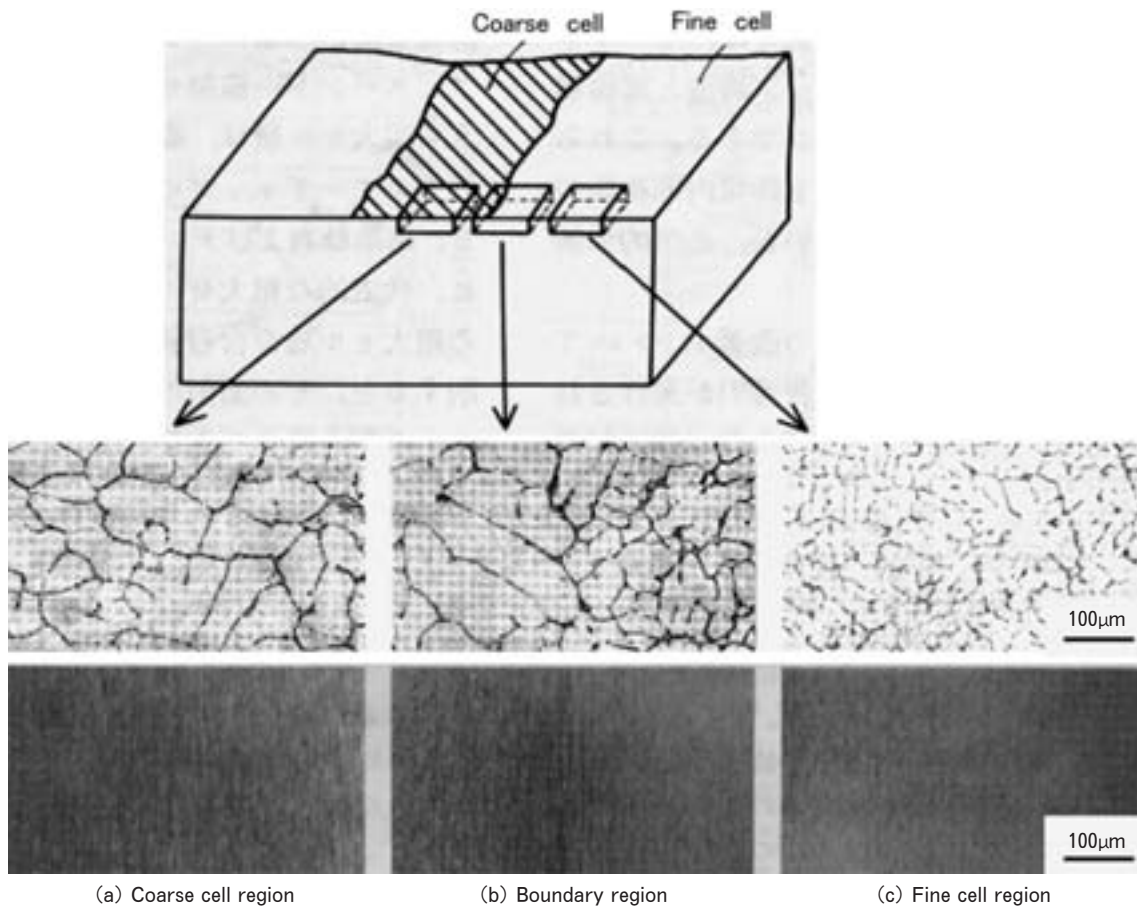


Fig. 9 Streaks on anodized rolled sheet caused by residual coarse cell region⁹⁾.
Upper : microstructures of sliced specimens
Lower : surface appearance of anodized sheet

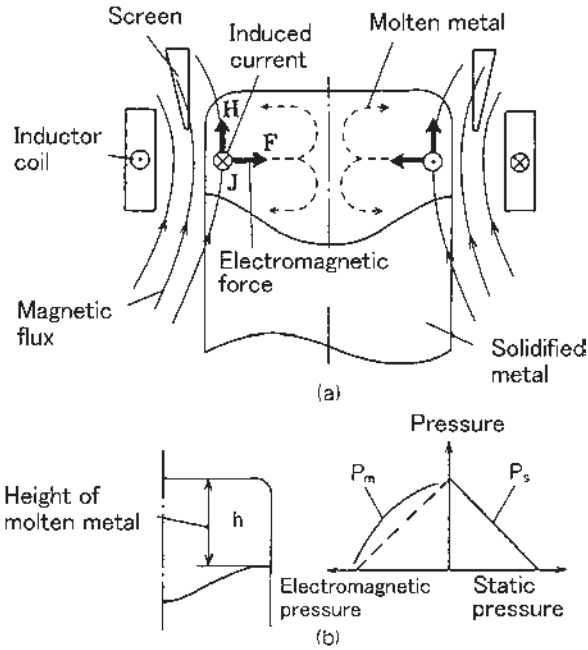


Fig. 10 Principle of EMC⁴³⁾.

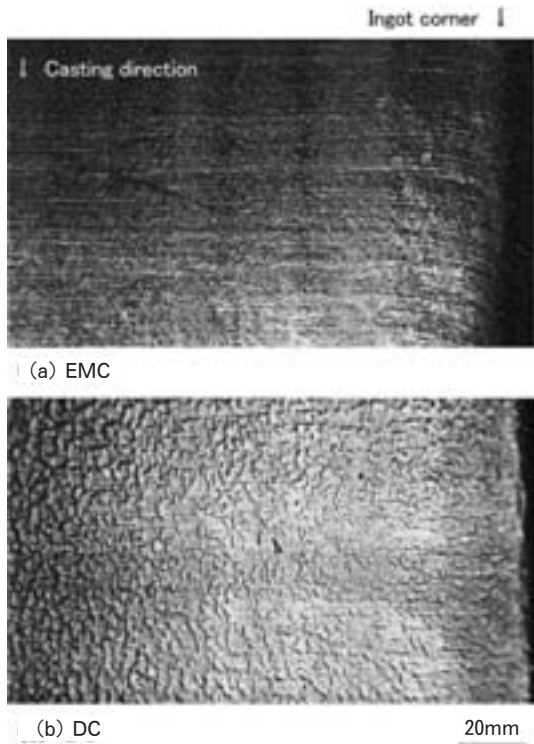


Fig. 11 Comparison of EMC and DC slab surface⁵¹⁾.

るため安定した強冷却が得られ、鋳造速度を増加できる。この LHC 技術は⁵⁹⁾、粗大セル層を表層近傍側へ移動させ、また、その層の幅も狭小化されることから、面削量低減による鋳塊歩留向上に有効である。そのため、広く海外で普及している。

一方、HT 鋳造法では Fig. 15 (a) に示すように鋳型上部に断熱材をセットして断熱材まで溶湯を満たすため、

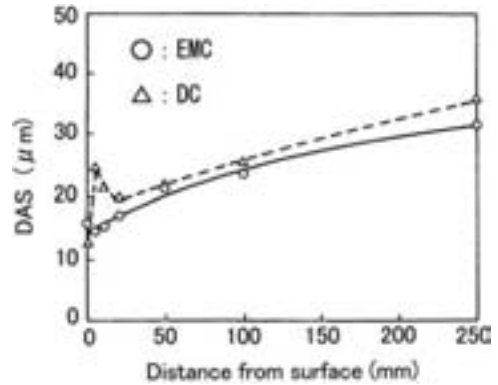


Fig. 12 Variation of dendrite arm spacing in ingots cast by EMC and DC casting process⁵¹⁾.

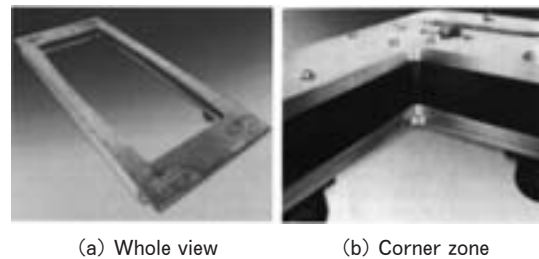


Fig. 13 View of LHC mold⁵³⁾.

鋳型と溶湯の接触位置が常に一定になり、安定した低湯面鋳造を実現できる。HT 鋳造法を改良した気体加圧 HT 鋳造法 (Fig. 15 (b)(c)) では、鋳型と溶湯の間に潤滑油とともにエアを導入することによって一次冷却の著しい緩冷却も達成し、不均質層の生成をほぼ抑制できるようになっている^{56,57)}。また、HT 鋳造法や気体加圧 HT 鋳造法では断熱材内の湯面の微調整が不要であるため、スパウトやフロートなど従来必要であった溶湯供給装置を廃止して樋から鋳型に直接溶湯を供給でき、同時鋳込み本数の増加や小径棒の鋳造が可能になっている。品質や生産性の高い HT 鋳造法は広く国内外に普及しているが、材質ごとに多数本の鋳造条件を精密に制御することや、断熱材のオーバーハング長さや黒鉛リングの面粗度などの設備条件の管理が重要とされている。

3.3.2 浮遊晶

DC 鋳塊の鋳造組織の中で、Fig. 16 のように局部的にデンドライト組織が粗大になっている部分を浮遊晶と呼ぶ⁶⁾。この部分は周囲と化学的な性質が異なるため、圧延板などでは筋模様の表面欠陥になる場合がある。浮遊晶はデンドライトが粗いことから、冷却速度が遅く、固液共存温度範囲内で比較的長い時間停留した結晶と推定される。原因は、エアギャップに対応した結晶粒界の再溶解で遊離した結晶粒とするもの⁷⁾と、鋳型内の局部的な低温域 (例えば、鋳型コーナー部) で核生成し、徐冷成長した結晶粒 (アイスバーグ) とするもの⁸⁾がある。前者の場合は湯面レベルの低下や鋳造速度の増加、後者

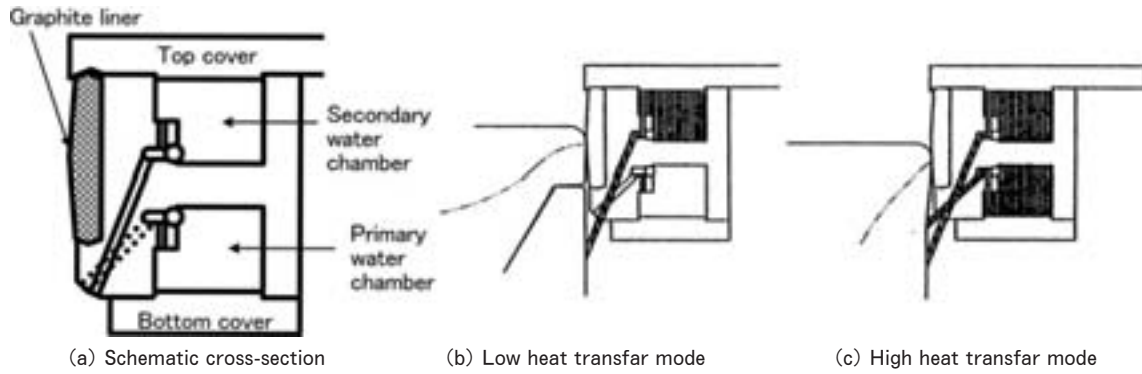


Fig. 14 Schematic diagram of LHC mold⁵⁴⁾.

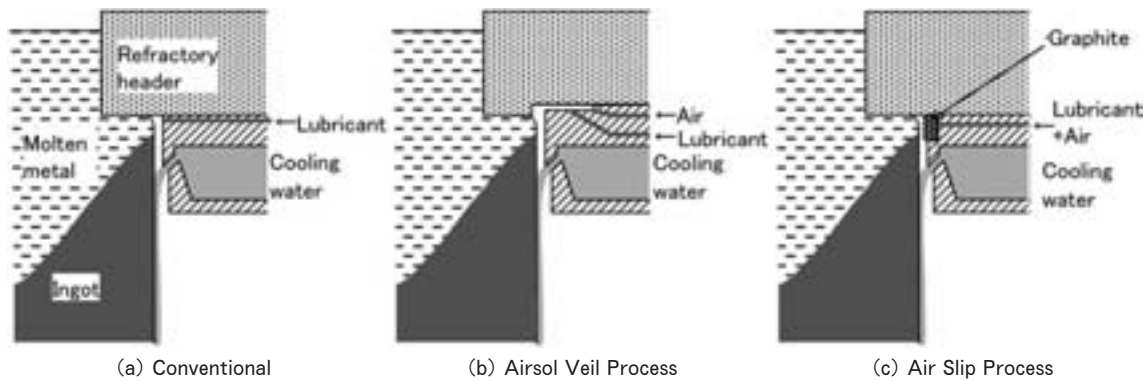


Fig. 15 Schematic diagrams of various HT casting process^{56,57)}.

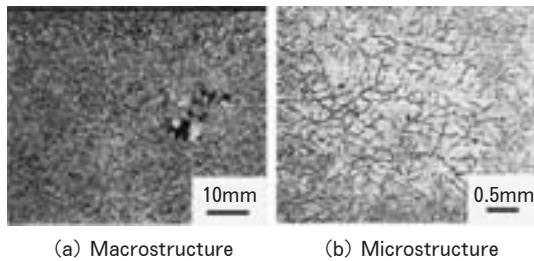


Fig. 16 Macro and microstructure of coarse floating crystal⁶⁾.

の場合は溶湯温度の高温化が有効な対策となる。

3.3.3 羽毛状晶

羽毛状晶は Fig. 17 に示すように鳥の羽毛状に観察される粗大な結晶粒である^{9,10)}。羽毛状晶を有する DC 鋳塊を圧延した板に陽極酸化処理を施すと筋模様の表面欠陥が発生するとともに、板製品では強度及び延性の異方性が著しく、材料特性が安定しない不具合が生じる。Fig. 18 には 7050 合金板の引張特性に及ぼす引張方向の影響を示す⁶⁰⁾。羽毛状晶の DC 鋳塊による板では、粒状晶の DC 鋳塊による板に比べて、強度や延性が低く、また、異方性を持つことがわかる。これらのことは、羽毛状晶が板面に平行に存在することと、羽毛状晶の境界にマイクロ偏析があるためである。さらに、羽毛状晶の存在により鋳塊の均質化時間が増大すること⁶¹⁾や、圧延

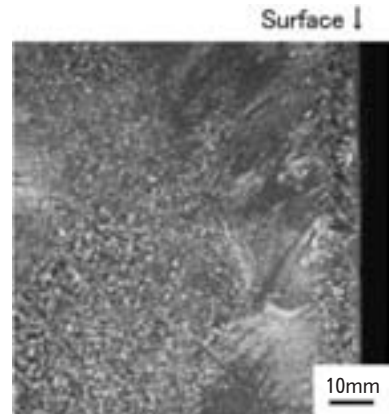


Fig. 17 Feathery structure in 5052 ingot.

板の耳率のばらつきが大きくなること⁶²⁾、などの不具合も報告されている。一方、羽毛状晶の利点として、粒状晶に比べて押出時の変形抵抗が低く押出性に優れることや、押出後に羽毛状晶はダイス出口付近で再結晶し、均一な粒状晶に変化すること、など羽毛状晶を積極的に活用する試みもなされている^{63,64)}。羽毛状晶は、一つの共通したサイトから成長した数十層の薄板状双晶で、双晶面は (111)、その成長方向は $\langle 110 \rangle$ や $\langle 112 \rangle$ で、アルミニウムのデンドライトの優先方位 $\langle 100 \rangle$ とは異なる。また、羽毛状晶の成長はデンドライトよりも先行しており、ある条件下では柱状晶や粒状晶よりも安定な組

織となる。羽毛状晶が生成、成長しやすい条件としては、凝固界前方で温度勾配が大きいこと、凝固速度が大きいこと、溶湯の乱流がないこと、などが挙げられる^{65,66)}。

しかし、一般的なアルミニウムの DC 鋳造法においては、TiB₂粒子などの結晶粒微細化剤を添加して、粒状晶などの不均質核生成のサイトを増大させることで羽毛状晶の生成を容易に抑制でき、粒状晶に制御することができる。

3.3.4 縦の木組織

Al-Fe-Si 系合金や Al-Mg-Fe-Si 系合金などの鋳塊断面を化学的に処理（陽極酸化処理など）すると、Fig. 19 のように縦の木に類似した模様が現れることがあり、こ

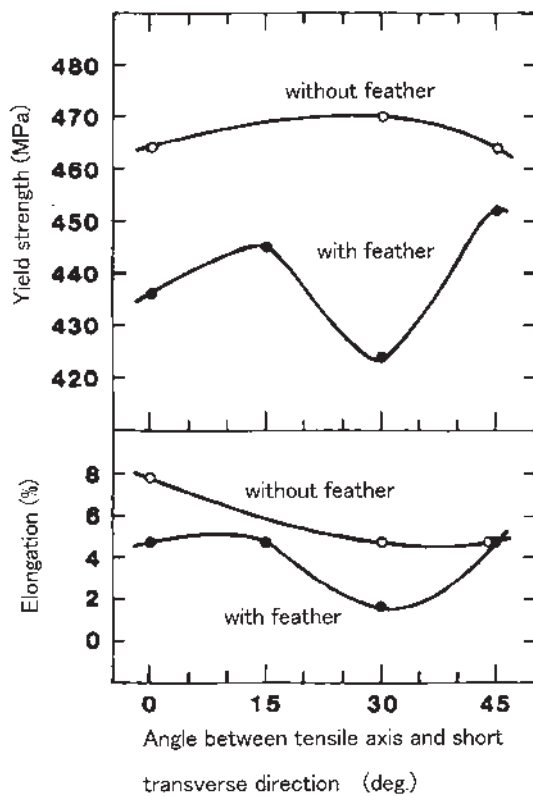


Fig. 18 Tensile properties as a function of the angle between tensile axis and short transverse direction in 144mm thick 7050-T736651 plate⁶⁰⁾.

の組織を縦の木組織¹⁷⁾と呼んでいる。この組織を含む鋳塊の圧延板や押出材製品を陽極酸化処理すると色調ムラが生じることがあり、外板パネル材などの用途では適用できない場合もある。

原因は Al-Fe 系金属間化合物の種類が縦の木組織の内側と外側で異なることにある。溶湯を徐冷し、平衡に近い状態を維持しながら凝固させれば、金属間化合物の形態は合金組成だけに依存し、平衡相が晶出する。しかし、実際の鋳造では Table 1¹²⁾ に示すように、冷却速度に依存して化学的性質の異なる非平衡相が種々晶出する。また、冷却速度は一次冷却とエアギャップ、二次冷却に対応して Fig. 20¹³⁾ のように変化するため、粗大セル層に相当する位置の低冷却速度域と微細セル層に相当する高冷却速度域の境界が縦の木の模様を形成することになる。鋳造工程で発現した縦の木組織は、熱処理や加工などの後工程を経ても消滅することがないため、鋳造工程における改善が必須である。そのため、Fig. 21 に示すように主要元素や Fe/Si 比⁶⁷⁾のほか、Ca などの不純物元素⁶⁸⁾、結晶粒微細化剤の添加⁶⁹⁾、鋳造条件、などによる縦の木組織発現への影響が調査されているが、根本的なメカニズム解明には至っていない。特に、縦の木組織境界のゆらぎ現象に関する論理的な解釈はこれまでになされていない。

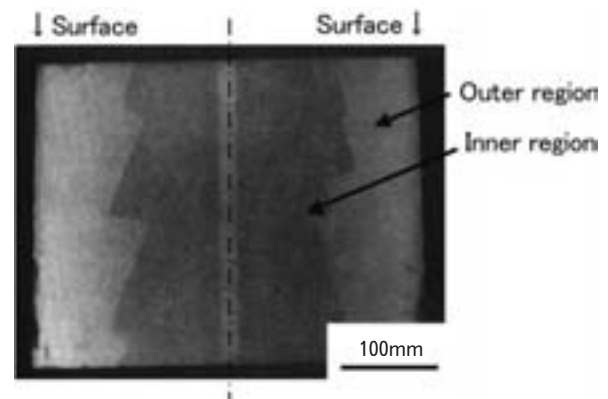


Fig. 19 Fir-tree structure in 5050 alloy ingot¹⁷⁾.

Table 1 Chemical properties of intermetallic compounds of Al-Fe system¹²⁾.

Intermetallic compound	Color of compound after etching with 0.5%HF solution	Anodic oxidation in 15%H ₂ SO ₄ solution	Color of anodic coating film
FeAl ₃	Dark brown	Yes	Light gray
FeAl ₆	Light brown	No	Dark gray
FeAl _m	Dark brown	Yes	Light gray
Fe ₂ Al ₉	Unknown	Unknown	Unknown
α-AlFeSi	Colorless	Yes	Light gray
β-AlFeSi	Dark brown	No	Gray

3.3.5 巨大金属間化合物

アルミニウム合金には再結晶の防止や微細化、強度向上、応力腐食割れ性やクリープ特性の改善などのために Mn, Cr, Zr などの遷移元素が添加される。Al-Cu 系や Al-Mg-Si 系合金では再結晶粒微細化のために Mn を添加し、Al-Zn-Mg-Cu 系合金では耐応力腐食割れ性向上のために Cr や Mn を添加する。最近の材料開発の進展とともに、添加量は増加する傾向にある。特にこれらの元素は、添加量が微量であっても高融点の金属間化合物を形成し、初晶として晶出するため、晶出温度域に長時間保持されたり、冷却速度が遅いと粗大に成長し、Fig. 22 のような巨大な金属間化合物となる。一般に、巨大金属間化合物を含む DC 鋳塊では圧延や押出などの熱加工工程において割れが発生しやすくなる。また、製造された板や押出製品は、成形加工や切削加工などの際に表面欠陥が発生したり、強度や靱性などの機械的性質、耐応力腐食割れ性が低下するといった多くの問題がある⁷⁰⁾。

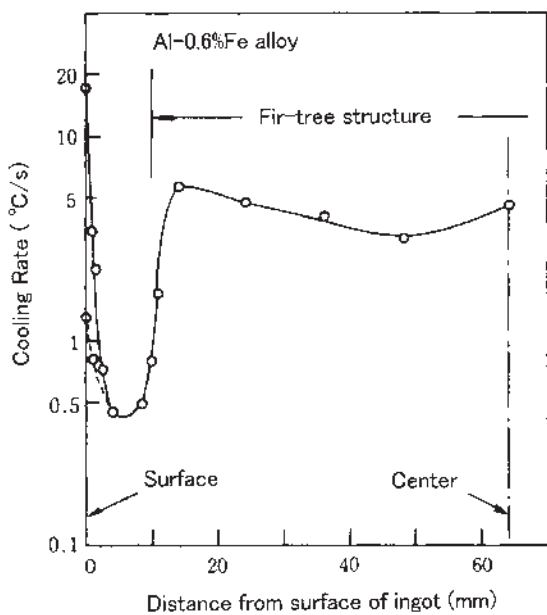


Fig. 20 Variation of cooling rate during solidification¹³⁾.

鋳造時の溶湯中に初晶として生成する金属間化合物として、Al-Mn 系合金では Al_6Mn ¹⁴⁾ が、Al-Mg 系合金では Al_7Cr ¹⁵⁾、Al-Zn-Mg-Cu 系合金では Al_7Cr や Al_3Zr ¹⁶⁾ がよく知られている。いずれも遷移金属の添加量が多いほど、また、溶湯温度が低いほど、生成しやすい傾向にある。これらの巨大金属間化合物においては、他の遷移元素が一部置換しており、Mn, Cr や Zr の生成対象元素の他に、Ti, V などの不純物元素の量にも注意が必要である。特に、純度の低い地金を使用する場合はなおさらである。Fig. 23 には 7N01 合金における Zr 量と巨大金属間化合物の生成温度の関係を示す⁷¹⁾。Zr 量が多いほど、高温から生成されることが明らかである。

DC 鋳造法においては、鋳型内で溶湯流動が停滞し低温化しやすいフロート下部や、鋳型コーナー部近傍の湯面付近で巨大金属間化合物が生成される懸念がある。そのため、鋳型内の溶湯温度を適正に管理するとともに、不純物元素量も制御して、その生成を抑制する必要がある。

3.3.6 成分偏析

マイクロ偏析は凝固組織スケールの狭い領域で形成される溶質濃度の不均一である。デンドライトの凝固において、初期凝固部の溶質濃度は低く、最終凝固部で高くなるので、デンドライトアーム間への溶質分配やデンドライト境界への第 2 相の非平衡晶出も生じる¹⁹⁾。Al-Cu 系合金などでは、最大固溶限以下の溶質濃度でも最終凝固部で共晶組織が観察される場合がある。これはデンドライト間の残留液相の溶質濃度が溶質分配によって上昇し、共晶組成を上回るためである。マイクロ偏析は、Ti などの拡散係数の低い遷移元素を除けば熱処理によりほぼ解消できるとされている。

マクロ偏析は鋳塊スケールの広い領域で生じる溶質濃度の不均一で、DC 鋳塊では厚さ方向に溶質濃度分布を持つことが Fig. 24 のように知られている²¹⁾。共晶型の元素の場合、表層部は発汗に代表される逆偏析のために溶質濃度が濃化し、その内部は表層逆偏析の供給源となるために希薄化している。さらにその内部ではやや濃化した後、中心に向かって徐々に希薄化する傾向がみられ、

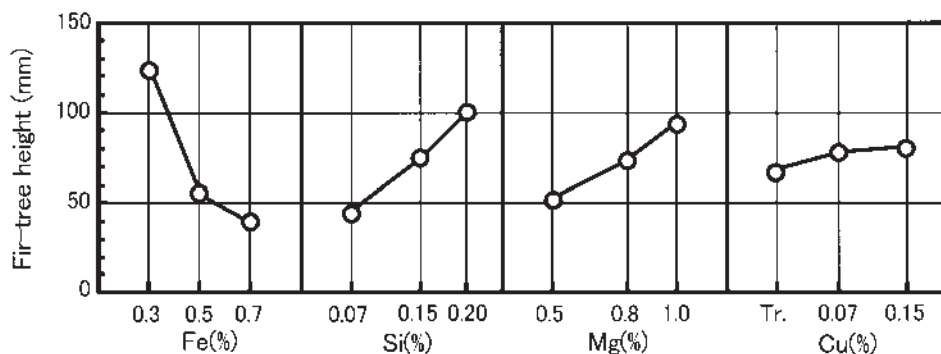


Fig. 21 Effect of alloy element on Fir-tree height in 5005 alloy⁶⁷⁾.

中心では顕著な負偏析となる。逆に、Ti などの包晶型の元素の場合には、中心で濃化した正偏析となる。DC 鋳塊におけるこれらのマクロ偏析により陽極酸化処理後

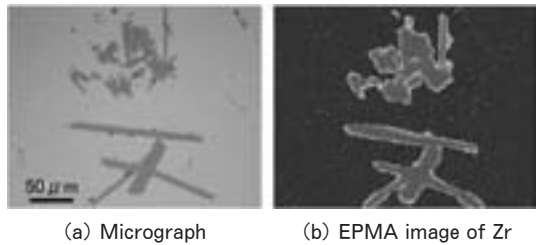


Fig. 22 Al₃Zr giant intermetallic compounds observed in Al-Zn-Cu-Zr alloy.

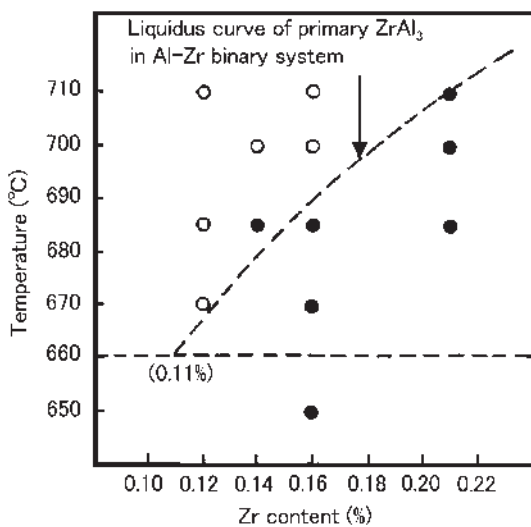


Fig. 23 Influence of zirconium content and holding temperature on crystallization of primary giant Al-Zr-Ti intermetallic compounds in 7N01 alloy⁷¹⁾.
● : Formed. ○ : Not formed.

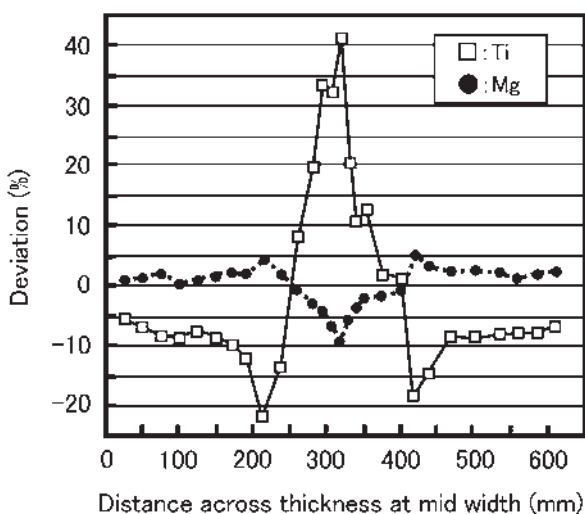


Fig. 24 Positive and negative centerline segregation²¹⁾.

の板材に色調ムラや筋模様を生じる問題や、板厚方向で材料特性が異なる不具合もある。マクロ偏析は、熱処理や展伸加工などの後工程を経ても消滅することがないため、鋳造工程での改善が必要である。

鋳塊中心部のマクロ偏析の原因として、鋳型近傍で晶出した Ti などの包晶元素が多い α アルミ初晶が、溶湯流動や重力により鋳塊中心に集積する初晶沈降説や、固液共存域において溶質元素が濃化した液相が移動する溶質拡散流動説が挙げられている^{20, 72, 73)}。さらに、微細化剤条件、溶湯温度などの鋳造条件もマクロ偏析に影響することが把握されているが、その機構は十分に解明されていない。

なお、大型鋳塊のマクロ偏析を軽減する技術として、一方向凝固によって厚さ方向の溶質濃度分布を制御できる Planar Solidification 鋳造法⁷⁴⁾も考案されているが、実用化までには至っていない。一方、鋳塊厚さ方向で意図的に溶質の濃度分布を持たせたクラッド鋳塊の製造技術が開発され、既に熱交換器用材料などに実用化されている。従来、心材と皮材の DC 鋳塊を合わせて熱間圧延することにより接合する工程を、一度の DC 鋳造法で製造する方法である。この技術は Novelis Fusion Technology⁷⁵⁾と呼ばれており、Fig. 25 のように DC 鋳型の内側に冷却水を吐出しない冷却板を設置して、内側溶湯を凝固させ、DC 鋳型で外側溶湯を凝固させるものである。内側鋳塊の外表面温度を固液共存域に管理することで、密着性の高いクラッド鋳塊を製造することができる。しかしながら、鋳塊長さ方向におけるクラッド率のばらつきや残材のリサイクル性などの課題があるとされている。

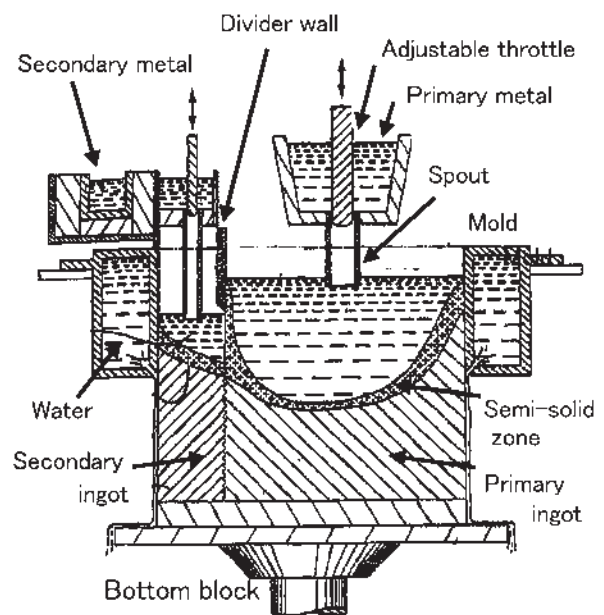


Fig. 25 Schematic diagram of Novelis Fusion Technology⁷⁵⁾.

3.4 ミクロポロシティと水素ガス

3.4.1 ミクロポロシティ

dendライト間や結晶粒界には一般に共晶反応によって金属間化合物が晶出するが、同時に空隙が形成されることがあり、これをミクロポロシティと呼んでいる^{17,18)}。典型的なミクロポロシティを Fig. 26 に示す¹⁷⁾。ミクロポロシティは材料の熱間加工性を低下させるため、特に高濃度合金で問題にされることがある。比較的加工度の低い厚板においては、ポロシティが残存すると、機械的性質が低下することもある。

ミクロポロシティの原因の一つは水素ガスであり、溶湯に溶解していた水素が dendライト間の最終凝固部に排出されて生成すると言われている。また、最終凝固部での収縮を補う凝固に対して溶湯の供給が不十分なことによって生じる。このため、凝固温度範囲（液相線温度から固相線温度までの範囲）が広い合金で凝固時の温度勾配が小さくなる場合に特に生成しやすい。最近では、X線マイクロトモグラフィ法によりミクロポロシティの3次元的な形態を高精度で観察できるようになってきており⁷⁶⁾、この分野の評価技術の進展は目覚ましい。

3.4.2 水素ガス

Fig. 27 に示すように水素ガスを多く含む材料を熱処理すると、表面でふくれを生じることがある⁷⁷⁾。製造工程中に生じたふくれは、つぶれて剥離し表面欠陥となり、最終熱処理で生じたふくれは外観上も大きな問題となる。ふくれの原因として、次の2点が知られている。一つはアルミニウム溶湯中の水素溶解度は大きいものの固体アルミニウム中では小さいため、凝固時に過飽和となった水素が気泡を形成しボイドを生ずる。熱処理においてボイド部分の圧力増加が発生すると、その部分を押し広げてふくれとなること。他方は、固体アルミニウムを熱処理する場合、アルミニウムと雰囲気中の水分との反応によって、酸化アルミニウムと原子状水素が生じ、この水素が材料内に侵入して特定箇所分子状水素となり、圧力増加によってその部分を押し広げて、それがふくれになることである。なお、ふくれに関しては、水分以外にも casting や切削などの工程で使用された潤滑油の材料表面での残存もガス発生源でありその原因の一つである。

水素ガスによる材料特性への影響に関しては、Al-Zn-Mg-Cu 系合金の応力腐食割れが水素脆化によることが知られており⁷⁷⁾、また、一部の材質では材料特性に及ぼす影響が調査されている^{78,79)}。しかし、 casting から製品までの製造工程における水素ガスの侵入、排出挙動や、アルミニウム合金の材料特性に及ぼす水素ガスの影響が解明されているとは言いがたい。Fig. 28 にアルミ押出材の製造工程における材料中の水素ガス量変化の一例を示す。今後、材料中の水素ガスの挙動が明らかにされれば、水素ガスによる不具合を軽減できるのみならず、水素ガス量の低減による材料特性の安定化、ばらつき低減

や、新たな特性の創生につながる可能性もある。さらに、水素を積極的に活用した組織制御にも期待が高まる。材料中への水素ガスの主な混入源は casting 工程であり、 casting 工程における水素ガス量の低減が不可欠である。通常の DC casting ラインでは、保持炉とインライン脱ガス装置^{80,81)}において溶湯中へ Ar ガスを吹込むことで casting 中

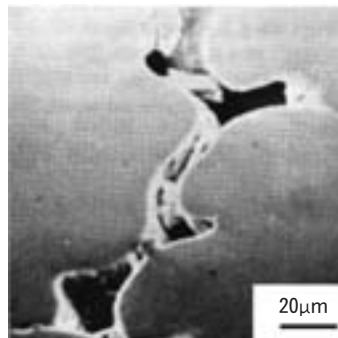
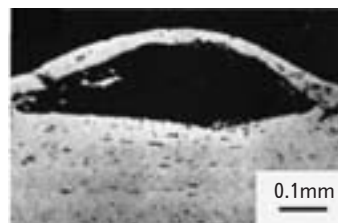


Fig. 26 SEM image of microporosity in 5083 ingot¹⁷⁾.



(a) Outside view



(b) Cross section view

Fig. 27 Blister on rolled sheet by heating in Al-Cu-Mg alloy⁷⁷⁾.

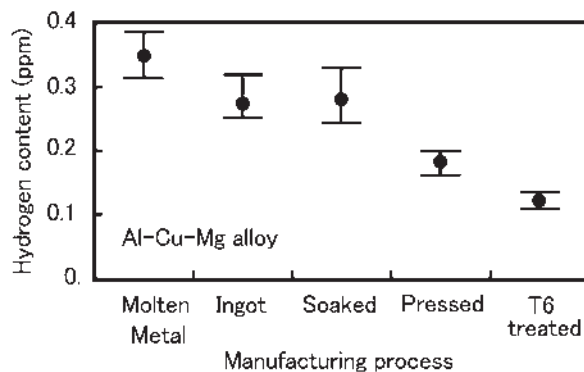


Fig. 28 Variation of hydrogen content in manufacturing process.

の水素ガス量を 0.1~0.2cc/100gAl (0.09~0.18ppm) 程度までに低減しており、このレベルが現在の工業的な設備能力の限界と言える。つまり、溶湯中への Ar ガスの吹込みにより Ar ガス気泡中に水素を捕捉して湯面から大気中に放出しても、湯面近傍で大気中の水分が分解し、再度、水素が溶湯中に溶解することが並行して生じているためである。

今後、鋳造工程における更なる水素ガス量の低減には、原料の真空脱ガス溶解^{82,83)}や、DC 鋳造ラインの湯面雰囲気真空化や Ar ガス置換、などの技術を組み合わせる必要がある。

4. 鋳造組織制御への数値シミュレーションの適用

1980年代から鋳造プロセスの数値シミュレーションが盛んになり、当初はエネルギー保存則に基づく熱(凝固)解析のみであったものが⁸⁴⁾、近年では、溶湯流動、溶質分布、デンドライト成長、結晶粒分布、熱応力・歪など凝固に関する多くの現象を同時に計算できるようになっている。溶湯流動や凝固伝熱、応力を連成解析できる PROCAST や ABAQUAS などのソフトウェアも商用化されている。また、これらの数値シミュレーションを実用的に展開するためには、平衡状態図など熱力学的なデータベースが必須であるが、Thermo-Calc などの統合型熱力学計算ソフトウェアも商用化されるとともに、DC 鋳造プロセスにおける一次冷却や二次冷却に関する境界条件^{85,86)}や固液共存域も含めた高温域における力学特性^{87,88)}の定量化も進んでいることから、数値シミュレーションしやすい環境が整いつつある。計算によって実際に鋳造しなくても鋳造組織や応力の状態、変形の程度などを知ることができ、鋳塊割れや異常鋳造組織の対策、新しい鋳造条件の妥当性評価などに適用されている。Fig. 29 には DC 鋳塊における DAS (Dendrite Arm Spacing) 分布⁸⁹⁾、Fig. 30 にはマクロ偏析⁷³⁾に関する計算結果の一例を示す。Fig. 29 では鋳肌近傍の粗大セル層が再現されており DAS 分布の傾向は一致している。Fig. 30 の溶質拡散モデルによる計算値は実験値とよく一致している。

また、ミクロ的な凝固組織形成に関しては、従来のセル・オートマトン法に加えて、フェーズフィールド法による解析も報告されている。フェーズフィールド法⁹⁰⁾では、Fig. 31 に示すように計算領域が狭いものの精度良くデンドライト成長をシミュレートできるようになってきている。

今後、さらに数値シミュレーションを活用した鋳造条件の最適化や鋳造組織制御は高精度化され、対象範囲の拡大が予想される。また、凝固組織形成のようなミクロ現象と鋳塊割れのようなマクロ現象の連動解析も進展するはずである。いずれも計算上の仮定も多くあるので誤っ

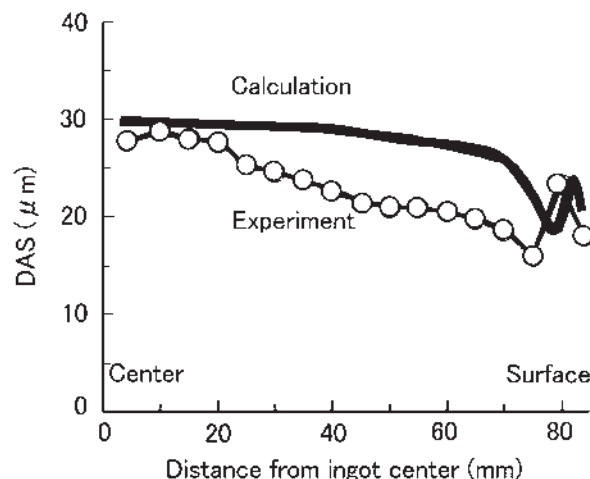


Fig. 29 Comparison of DAS distribution in calculation and experiment⁸⁹⁾.

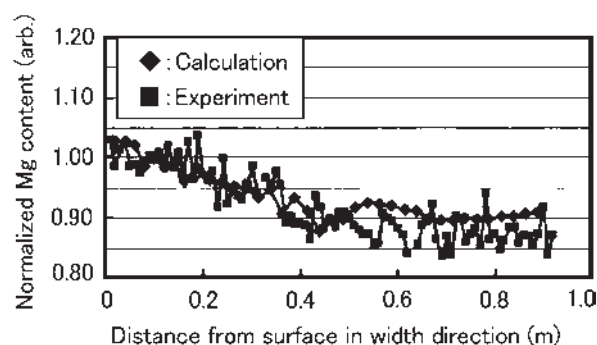


Fig. 30 Comparison of Mg content profile in calculation and experiment⁷³⁾.

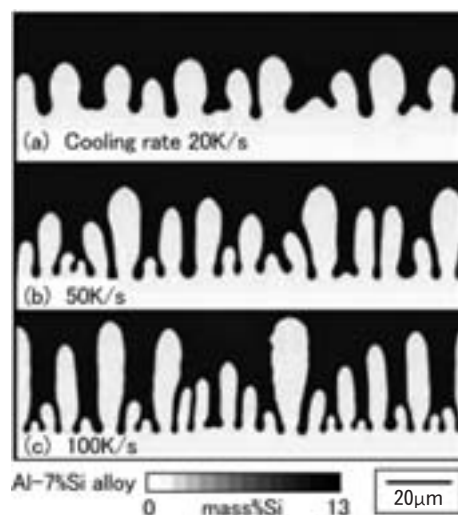


Fig. 31 Calculated Si content distribution in different cooling rate⁹⁰⁾.

た判断をしないためにもシミュレーションのモデル内容を熟知した上で活用する必要がある。

5. CC 鋳塊における鋳造組織のあるべき姿と組織制御技術

5.1 CC 鋳塊における鋳造組織のあるべき姿

CC 鋳塊における鋳造組織は、DC 鋳塊と同様に均一で微細であることが第一であり、特に、高冷却速度が得られる CC 鋳造法では鋳造組織の大幅な微細化や溶質元素の固溶量拡大が望まれている。また、CC 鋳塊の鋳肌は、直接、製品板面となる場合が多いことから、表面品質に対する要求も高い。さらに CC 鋳造法特有の表面欠陥や中心線偏析などの内部欠陥のない CC 鋳塊の製造のために、プロセス改善がなされている。

5.2 水平連続鋳造

水平連続鋳造は Fig. 32⁹¹⁾ に示すように、豎型 DC 鋳造の鋳造方向を鉛直から水平に変更した形式である。これにより連続操業が可能となり生産性の向上や、鋳塊非定常部の解消による歩留の向上が達成できる。しかし、一次冷却や二次冷却が重力の影響を受け、鋳塊の上下で鋳造組織に差異が生じやすいため、鍛造用素材としての小径ビレットの生産に限定適用されている。

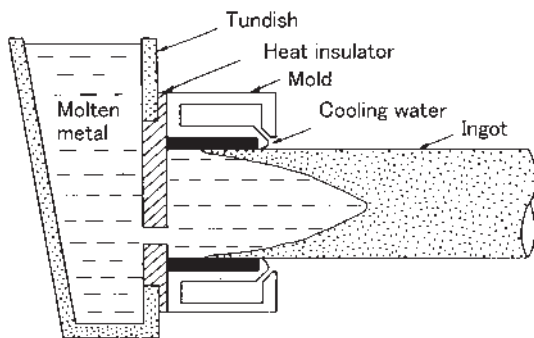


Fig. 32 Schematic diagram of horizontal continuous casting process⁹¹⁾.

5.3 薄板の連続鋳造

溶湯から薄板を連続鋳造する技術として、ベルトキャスターやブロックキャスター、さらには双ロール式連続鋳造圧延法²⁹⁾などが開発されている。その中で Fig. 33 に示す双ロール式連続鋳造圧延法は熱間圧延が不要で設備費を安くできるため、世界的に普及している。一対のロール間に鋳造ノズルを介して溶湯を供給し、ロールによる抜熱で薄板を直接鋳造する。鋳造板厚は 3 mm 以下の鋳造も可能になっており、鋳造された薄板は冷間圧延コイルとして使用される。この方法ではロール間で凝固した板が若干の圧下を受けることから熱伝達が高くなり、冷却速度は 1000°C/s にも達する。このため、鋳造組織は Fig. 34 のように非常に微細になり、この特徴を利用した新しい材料開発も盛んに行われている。Fig. 35 には、その一例として 6063 (+2%Fe 添加) 合金の CC 材の鋳造組織を示す⁹²⁾。CC 材の高冷却速度により Al-Fe-Si 系の金属間化合物を微細化して、延性、特に曲げ性を改善する試みがなされている。

また、不純物の多いアルミニウム地金の利用による材料コストの低減を目的に、自動車用ボディパネルの製

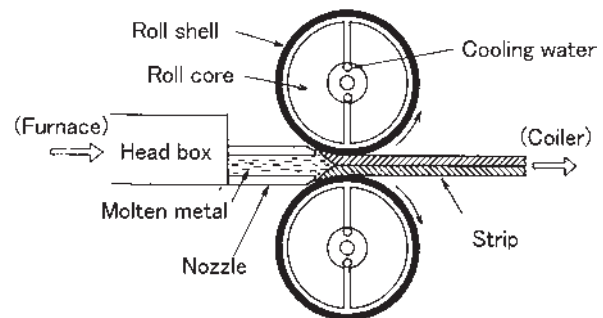


Fig. 33 Schematic diagram of twin-roll continuous casting process.

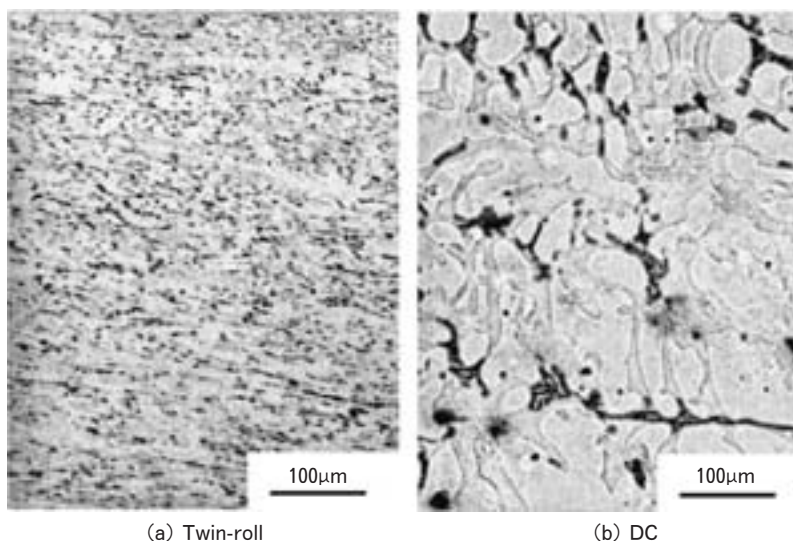


Fig. 34 Microstructures of 3004 alloy by different casting process.

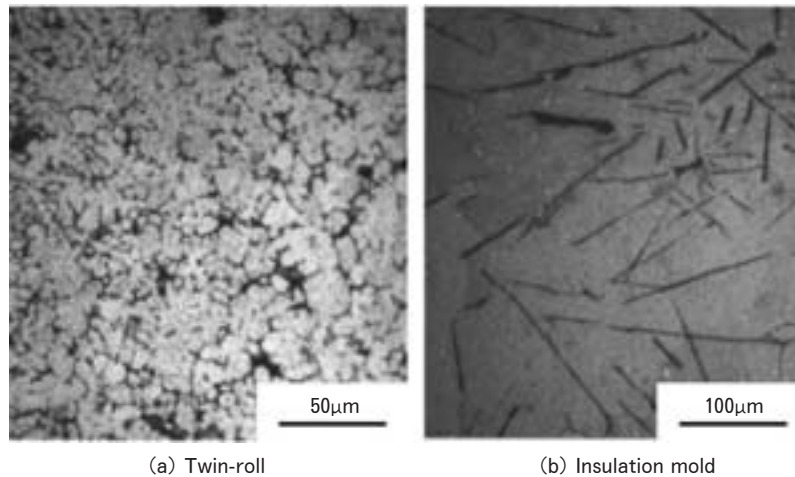


Fig. 35 Microstructures of 6063+2%Fe alloy by different casting process⁹²⁾.

造方法として注目され⁹³⁾、例えばフード内部材などへの適用例もある。しかし、このプロセスでは Fig. 36 に示すような中心線偏析⁹⁴⁾やリップルマーク⁹⁵⁾と呼ばれる板面模様など特有の欠陥が発生する。中心線偏析は材料特性の低下のみならず偏析に対応する表面上に筋状模様が観察される場合もあり最終成形品では表面品質への影響も懸念される。また、リップルマークは casting 方向と垂直の濃淡部からなる縞状欠陥である。冷間圧延した後も残存し、糸鋸の起点となりやすく、最終製品の耐食性を低下させる恐れがある^{96,97)}。これらの欠陥は casting 速度やセットバック（ノズル先端からロール中心位置までの距離）、ロール面に対するノズルの角度、などのプロセス条件を適正化することで改善できることが示唆されている。

このように、双ロール式連続 casting 圧延法では、溶湯から薄板を直接 casting できるため省工程、省エネルギーで、また、比較的安価で設備規模も小さくて済むという利点がある。さらに急冷凝固による casting 組織の微細化、材料特性の改善が期待できる。しかし、従来の横型双ロール casting では、 casting 速度が遅いことや casting できる合金に制限があるなどの欠点も指摘されている。そこで、最近では高速化を可能にするため、縦型の高速双ロール casting 法のプロセス開発が大学を中心に行われている^{98,99)}。さらにクラッド材を製造する新プロセス開発の試みもなされている。Fig. 37 に示すように複数の双ロールを縦方向に連結した縦型タンデム高速双ロールキャスターを用い、3000系と4000系合金のクラッド材を溶湯から直接製造する新しい手法が提案されている¹⁰⁰⁾。また、これらのプロセスを活用して長繊維や粒子を添加した複合材料の開発もなされており²⁹⁾、今後の新たなプロセス開発や材料開発の発展が期待される。

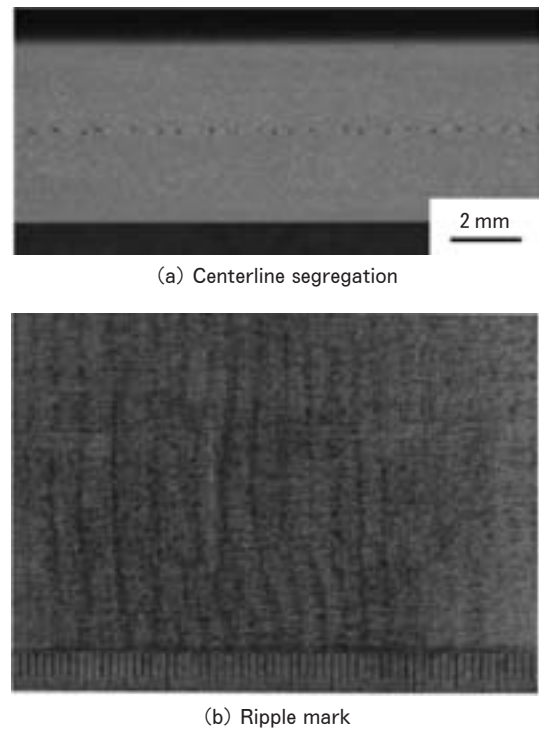


Fig. 36 Typical defects of twin-roll strip^{94,95)}.

6. おわりに

DC casting や CC casting プロセスにおける casting 組織制御は、これまで積極的に行われてきたわけではないが、より高度化する品質要求に対して、さまざまなアプローチで改善や新規技術開発がなされてきている。今後は casting 組織へのニーズに応じた技術開発のみならず、 casting 組織のあるべき姿からのシーズ開発による新たな品質特性の創生、新規用途の開拓がなされる革新的な技術開発を期待したい。

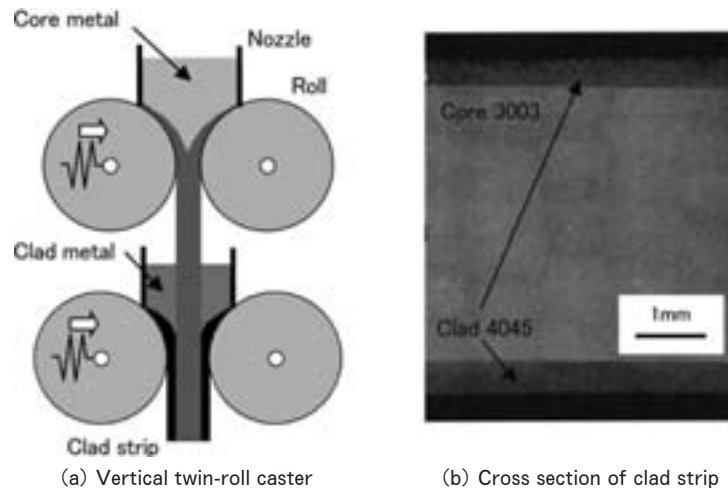


Fig. 37 Schematic diagram of vertical twin-roll caster for clad strip¹⁰⁰⁾.

参考文献

- 1) 渡辺良夫：本誌，**49** (2008)，107.
- 2) K. Buxmann：Light Metals, (1978), 313.
- 3) 軽金属学会編：研究部会報告書 No.26, (1992), 82.
- 4) 小菅張弓：日本金属学会会報，**19** (1980)，178.
- 5) 須田 一，田村今男，西沢泰三：金属組織学，丸善，(1972)，16.
- 6) 軽金属学会編：铸造凝固部会報告書，(1981)，22.
- 7) 松尾 守，古屋雅美，梶山 毅：軽金属学会第 55 回秋期大会講演概要，(1978)，15.
- 8) 犬丸 晋，吉田政博，城谷正人：本誌，**20** (1979)，125.
- 9) 犬丸 晋：同上，**20** (1979)，50.
- 10) D. Granger：J. Metals, **35** (1983)，54.
- 11) 軽金属協会編：アルミニウム材料の基礎と工業技術，昭栄社，(1985)，46.
- 12) 小菅張弓：軽金属，**30** (1980)，217.
- 13) 小菅張弓，水上一郎：同上，**25** (1975)，48.
- 14) 吉川克之，坂本敏正，森 隆資，高田 寿：同上，**29** (1979)，144.
- 15) 吉川克之，坂本敏正：同上，**33** (1983)，602.
- 16) 吉川克之，安藤優一，坂本敏正，飯塚健三：同上，**44** (1994)，715.
- 17) 軽金属学会編：研究部会研究書 No.6, (1981)，38.
- 18) 長海博文：軽金属，**49** (1999)，471.
- 19) 神尾彰彦：軽金属学会第 19 回シンポジウム，(1981)，45.
- 20) M. Chu and J. Jacoby：Light Metals, (1990)，925.
- 21) B. Garipey and Y. Caron：ibid., (1991)，961.
- 22) 塚本敏之：Al-ある，No. 6，(2006)，20.
- 23) 伊藤吾朗：軽金属，**63** (2013)，79.
- 24) 軽金属学会編：研究部会研究書 No.29, (1995)，2.
- 25) M. Tsunekawa, N. Hayashi and T. Uno：本誌，**37** (1996)，50.
- 26) 松原和男，大瀧光弘，高橋功一：軽金属学会第 115 回秋期大会講演概要，(2008)，247.
- 27) 森下 誠，阿部光宏，徳田健二，吉田 誠：軽金属，**59** (2009)，417.
- 28) 軽金属学会編：研究部会報告書 No.26, (1992)，107.
- 29) 羽賀俊雄：軽金属，**59** (2009)，509.
- 30) 渡辺良夫，渋江和久，吉田英雄：本誌，**42** (2001)，168.
- 31) 時實直樹，佐野秀男，渋江和久，大久保喜正：同上，**35** (1994)，117.
- 32) 鎌土重晴，小島 陽：軽金属，**50** (2000)，682.
- 33) W. Schneider, M. Kearns and M. McGarry：Light Metals, (1998)，953.
- 34) R. Carver, G. Boone and F. Koch：ibid., (1990)，845.
- 35) 軽金属学会編：研究部会研究書 No. 1, (1979)，4.
- 36) M. Kearns, S. Thistlethwait and P. Cooper：Light Metals, (1996)，713.
- 37) A. Norman, P. Prangell and R. McEwen：Acta Mater., **46** (1998)，5715.
- 38) 小宮良樹，大島直起，塚本英明，佐藤 尚，渡辺義見：軽金属学会第 123 回秋期大会講演概要，(2012)，147.
- 39) G. Scamans, H. Li and Z. Fan：Proc. 13th International Conference on Aluminum Alloys, (2012)，1395.
- 40) C. Vives：Metal. Trans. B, **B20** (1989)，623.
- 41) J. Dong, J. Cui, F. Yu, C. Ban and Z. Zhao：Metall. Trans. A, **35A** (2004)，2487.
- 42) 長海博文，鷺坂栄吉，吉川 勝，堀 雄一：軽金属学会第 116 回春期大会講演概要，(2009)，265.
- 43) 吉田政博：本誌，**28** (1987)，140.
- 44) 加藤良則，梅田秀俊，星野晃三：神戸製鋼技報，**55** (2005)，81.
- 45) 岡 一嘉，吉田政博：本誌，**28** (1987)，1.
- 46) 石渡保生，織田和宏，コマロフ セルゲイ：軽金属学会第 115 回秋期大会講演概要，(2008)，251.
- 47) 安達 充：軽金属，**34** (1984)，361.
- 48) 磯部智洋，織田和宏，岡田 浩：軽金属学会第 121 回秋期大会講演概要，(2011)，171.
- 49) 三輪謙治：工業技術，**40** (1999)，13.
- 50) 小菅張弓：軽金属，**30** (1980)，217.
- 51) 林 典史，長江光司，宇都秀之，永山 克：本誌，**34** (1993)，8.
- 52) N. Hayashi, K. Nagae and M. Nagayama：本誌，**36** (1995)，18.
- 53) 三松宏光：軽金属，**51** (2001)，138.
- 54) A. Nussbaum：Light Metal Age, **53-1** (1995)，58.
- 55) W. J. Bergmann：Aluminium, **51** (1975)，336.
- 56) W. Schneider：Light Metals, (1994)，985.

- 57) I. Faunce, F. Wagstaff and H. Shaw : *ibid.*, (1984), 1145.
58) H. Yu : *ibid.*, (1980), 613.
59) F. Wagstaff, R. Wagstaff, K. Dean and M. Ekenes : *ibid.*, (1993), 709.
60) D. Granger and J. Liu : *J. Metals*, **35** (1983), 54.
61) 雄谷重雄 : 軽金属, **30** (1980), 568.
62) J. Herenguel : *Metal Treatment and Drop Forging*, **16** (1949), 133.
63) 堀 茂徳 : 軽金属, **21** (1971), 529.
64) 室町繁雄 : 同上, **30** (1980), 537.
65) 中谷義三 : 同上, **18** (1968), 217.
66) 渡辺修一郎 : 同上, **19** (1969), 279.
67) 松尾 守, 古屋雅美, 梶山 毅 : 軽金属学会第 59 回秋期大会講演概要, (1980), 3.
68) 松尾 守, 古屋雅美, 梶山 毅 : 軽金属学会第 58 回春期大会講演概要, (1980), 109.
69) 浅見重則, 西辻孝三, 田中孝一 : 軽金属学会第 53 回秋期大会講演概要, (1977), 11.
70) 深井誠吉, 竹内勝治 : 本誌, **2** (1961), 215.
71) 佃 市三 : 軽金属学会第 19 回シンポジウム, (1981), 60.
72) 三木 功, 平沢宏章, 古谷 勝 : 軽金属学会第 44 回春期大会講演概要, (1973), 25.
73) 高橋功一, 石川宣仁 : 軽金属学会第 123 回秋期大会講演概要, (2012), 133.
74) M. Chu, A. Giron and W. Cassada : *Proc. 13th International Conference on Aluminum Alloys*, (2012), 1367.
75) M. Anderson : US Pat. No. 482229, (2003).
76) H. Toda, T. Hidaka, M. Kobayashi, K. Uesugi, A. Takeuchi and K. Horikawa : *Acta Mater.*, **57** (2009), 2277.
77) 大西忠一 : 軽金属, **39** (1989), 235.
78) 大西忠一, 原 龍郎, 毛利好孝, 中谷義三 : 軽金属, **27** (1977), 473.
79) 西 成基, 品田与志栄, 黒淵達史 : 同上, **24** (1974), 130.
80) 吉田政博, 犬丸 晋 : 本誌, **26** (1985), 81.
81) 渡辺良夫 : 同上, **43** (2002), 152.
82) 広沢栄一 : 同上, **15** (1974), 299.
83) 今林 守 : 軽金属, **22** (1972), 120.
84) Y. Watanabe and N. Hayashi : 本誌, **37** (1996), 44.
85) 常川雅功, 武藤伸之, 林 典史, 宇野照生 : 同上, **35** (1994), 97.
86) 常川雅功, 林 典史, 宇野照生 : 軽金属, **46** (1996), 132.
87) 坂口信人, 常川雅功, 渡辺良夫 : 本誌, **52** (2011), 1.
88) 千葉浩行, 植木 徹, 鳥山隆成, 遠藤 至, 小林昂光, 吉田 誠 : 軽金属, **61** (2011), 135.
89) 谷 真一, 渡辺良夫 : 軽金属学会第 109 回秋期大会講演概要, (2009), 185.
90) 棗 千修 : 神戸製鋼技報, **58** (2008), 35.
91) 松尾 守 : 軽金属, **44** (1994), 510.
92) 阪口 洋, 羽賀俊雄, 乾 秀喜, 熊井真次, 渡利久規 : 鋳造工学, **79** (2007), 523.
93) 宇都秀之 : 本誌, **48** (2007), 119.
94) 江崎宏樹, 渡辺良夫, 箕田 正, 宇都秀之, 渋江和久 : 同上, **48** (2007), 81.
95) 江崎宏樹, 渡辺良夫, 上田 薫, 宇都秀之, 渋江和久 : 同上, **47** (2006), 52.
96) 上田 薫, 江崎宏樹, 初野圭一郎, 渋江和久 : 同上, **47** (2006), 59.
97) 上田 薫, 江崎宏樹, 渋江和久 : 同上, **51** (2010), 75.
98) 藤原高礎, 堀 康治, 新井悦行, 下坂大輔, 熊井真次 : 軽金属学会第 115 回秋期大会講演概要, (2008), 227.
99) 羽賀俊雄, 中村亮司 : 軽金属学会第 116 回春期大会講演概要, (2009), 263.
100) 柘植浩志, 石原拓也, 羽賀俊雄 : 軽金属学会第 123 回秋期大会講演概要, (2012), 153.

アルミニウム合金の熱間圧延における組織制御

岡村 義英* 浅野 峰生**

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 122-132

Microstructural Control in Hot Rolling of Aluminum Alloys

Yoshihide Okamura and Mineo Asano

In this paper, we review the basic deformation behavior, and introduce the research results about the microstructures, surface defects and tearing of aluminum alloys during hot rolling. The deformation behavior during the hot rolling of aluminum alloys is observed, such as static recovery after dynamic recovery, static recrystallization after dynamic recovery and static recrystallization after dynamic recrystallization. For the hot rolled plate of high strength aluminum alloys, on intermediate thermomechanical treatment is effective for improving the mechanical properties or the stress corrosion resistance, due to reducing the grain boundaries of the ingots. Recently, the influence of the hot rolling pass schedule on the recrystallization structure of the 1100 aluminum plate was investigated. Roll coating, which is generated during the aluminum hot rolling, influences the surface properties of the rolled sheets. A too thick or nonuniform roll coating causes surface defects. Also, the surface texture is significantly affected by the lubrication between the roll and the rolling material. Especially, the lack of lubricating oil during hot rolling leads to surface defects called "heat scratch". The occurrence of heat scratch during the hot rolling of pure aluminum and Al-Mg alloy is observed by direct measurement of roll surface temperature in contacting arc, and their relations have been investigated. Finally, the hot cracking phenomena of high-purity aluminum and Al-Mg alloys during hot rolling are shown, and the causes and the effective countermeasures of the high-temperature embrittlement of Al-Mg alloys have been clarified. The study of the high-temperature deformation of aluminum alloys has been previously carried out, and especially, research has progressed in the field of creep and superplasticity deformation. On the other hand, the metallographic research of hot rolling has not been sufficiently elucidated due to the complexity of the metal structural changes. In the future, the further promotion of the research and development about the microstructural formation of aluminum alloys with the cooperation of the industrial, administrative and academic sectors would be desired.

1. はじめに

熱間圧延は、再結晶温度以上に加熱した鋳塊（スラブ）を圧延加工して所定の板厚に減少させるとともに、加工組織制御を行い、圧延材の機械的性質を決定する重要な工程である。圧延材は加熱により軟化した状態であるため、大圧下加工を施すことが可能である。熱間圧延工程

* 研究開発センター 第一部, 工学博士

** 研究開発センター 第一部

は通常、粗圧延工程と仕上げ圧延工程に分けられる。熱間圧延ラインの設備構成としては、Fig. 1に示すように、(a) 可逆式の粗圧延機と非可逆式タンDEM仕上げ圧延機、(b) 可逆式の粗圧延機及び仕上げ圧延機、(c) 可逆式圧延機のみで粗圧延から仕上げ圧延まで行う3つの仕様に大別される^{1,2)}。熱間圧延では、鋳造工程で作られた板厚400~600mm前後のスラブを400℃~600℃程度の高温に加熱し、可逆式の粗圧延機で多段のパススケジュールにより板厚30mm程度に圧延した後、単スタンド或

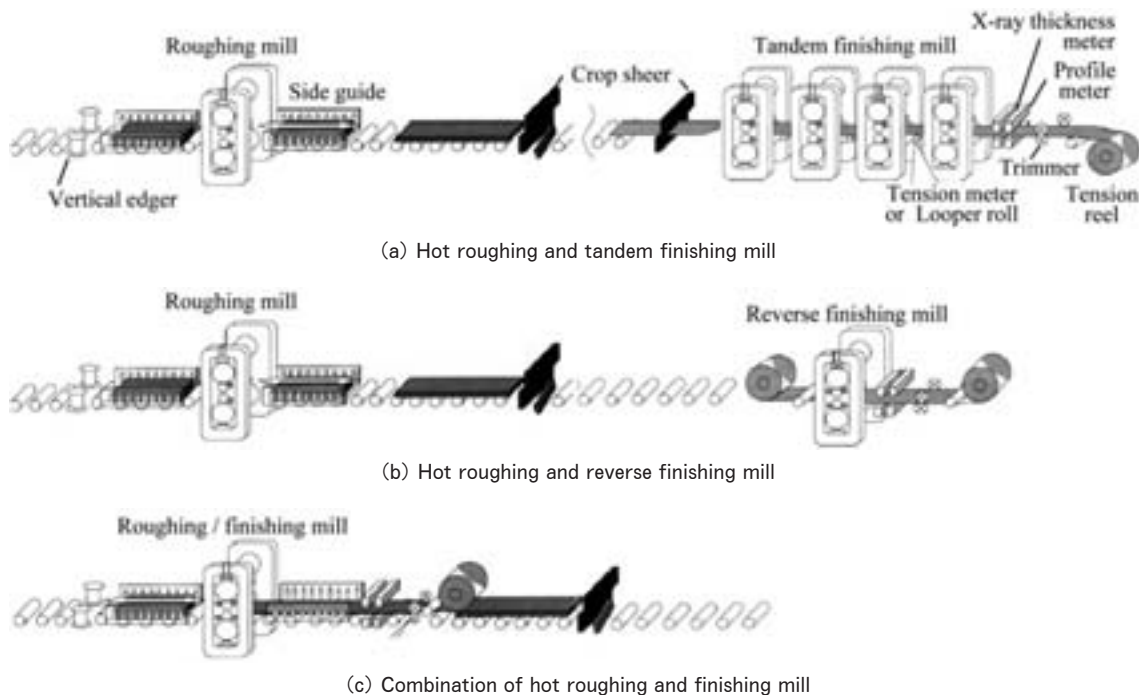


Fig. 1 Schematic diagrams of hot rolling mill layout¹⁾.

いはタンデム式の圧延機で板厚 2~10mm 程度に仕上げ圧延してコイル状に巻き取る。この過程で動的回復や再結晶が進行し、圧延材の組織は casting 組織から加工組織へと変化する。また圧延により鑄塊内部に存在する微小な巣（空隙）や、ブローホールなどの欠陥を圧着、消滅させることができる³⁾。本稿では、アルミニウム合金における熱間圧延時の組織形成メカニズム、高温変形時の表面欠陥、及び熱間割れなどの変形挙動について概説する。

2. 熱間加工中の組織形成

2.1 圧延時の応力状態とひずみ速度⁴⁾

板の変形は、板縁近傍を除きほぼ平面ひずみ圧縮状態になっている。また圧延材の変形抵抗は、温度、ひずみ、及びひずみ速度の関数であり、二次元変形を仮定すれば平面ひずみ圧縮試験から直接、あるいは単純圧縮試験、引張試験、または振り試験の結果から、降伏条件を用いて算出することができる。圧延における板のひずみ速度は、一般に平均ひずみ速度で評価している。この平均ひずみ速度は、圧下率に対応する相当ひずみを、圧延速度から求まる板のロール接触弧通過時間で割ることによって算出することが多く、たとえば Ekkelund によれば次式のように近似される⁵⁾。

$$\dot{\epsilon} = \frac{\nu_R}{\sqrt{R'h_1}} \cdot \frac{2}{2-r} \cdot \sqrt{r} \quad (1)$$

ここで $\dot{\epsilon}$ は平均ひずみ速度、 ν_R はロール周速度、 R'

は扁平ロール半径、 h_1 は圧延前の板厚、 r は圧下率である。

2.2 動的回復、動的再結晶⁴⁾

熱間加工の特徴としては、加工中に加工硬化とほぼ平衡するように動的復旧過程（dynamic restoration process）が働く。さらに冷却中には静的復旧過程が働く。アルミニウムのように高い積層欠陥エネルギーを有する金属では、動的回復と静的な回復あるいは再結晶が生じる⁶⁾。動的回復は、材料の変形時の真応力-真ひずみ曲線では、Fig. 2 に示すように真応力が一定の状態を保持しているときに生じる⁷⁾。またひずみ速度が増加しても、温度が低下しても、一定の応力 σ_{SS} (steady-state value) を示し、

$$\sigma_{SS} = \dot{\epsilon}^m \exp(Q/RT) \quad (2)$$

の関係式で表すことができ、定常クリープ変形と類似している。ここで m はひずみ速度感受性を示すパラメータ、 Q は活性化エネルギー、 R は気体定数、 T は材料の絶対温度である。金属組織では、ほぼ等軸の亜結晶粒 (subgrain) が形成され、そのサイズは応力 σ_{SS} の逆数に比例する。

一方、動的再結晶は、Fig. 3 に示すように降伏応力がひずみ量 ϵ_D で最高応力 σ_{max} に到達した後、応力はひずみ量とともに低下し、一定の応力 σ_{SS} になる単一ピーク型か、低ひずみ速度あるいはより高温での変形で、応力ひずみ曲線が振幅を示す多重ピーク型を示す⁷⁾。いずれの場合も、 ϵ_p までは動的再結晶は生じない。この多重

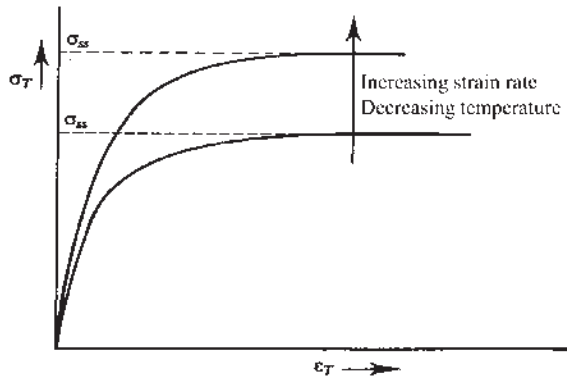


Fig. 2 Schematic diagram of stress-strain curves showing dynamic recovery⁷⁾.

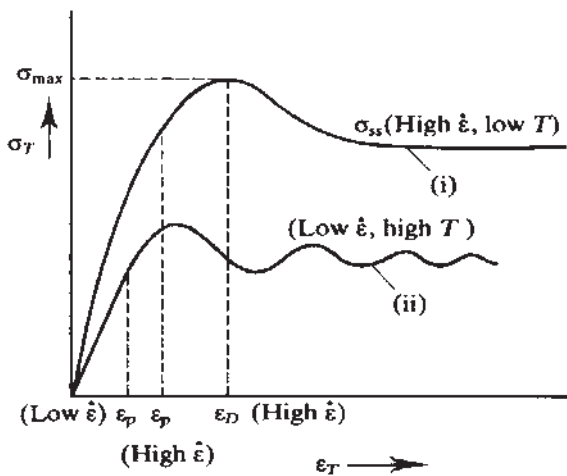


Fig. 3 Schematic diagram of stress-strain curves showing dynamic recrystallization⁷⁾.

ピークになるかどうかは、再結晶が開始するまでの時間と再結晶が完了するまでの時間との関係で決まり、再結晶が完了して次の再結晶が開始するまでの時間が長い場合には、このような振幅が現れると考えられている。動的再結晶は、これまでステンレス鋼や銅、ニッケルなどの積層欠陥エネルギーが小さい金属で生じ、アルミニウムのような積層欠陥エネルギーが高い金属では生じないとされていたが、最近アルミニウムでも、5N高純度アルミニウムで動的再結晶が生じることが報告されている⁸⁾。またAl-Mg合金では、高温変形で粒界がうねりだして、この領域の亜結晶粒が動的に再結晶することも報告されている⁹⁾。

2.3 熱間圧延時の組織変化⁴⁾

熱間圧延中の組織変化の模式図を Fig. 4 に示す⁷⁾。(a) は圧延中に動的回復し、その後静的回復が生じている場合である。また (b) は圧延中に動的回復し、圧延後に再結晶(静的再結晶)が生じる場合である。一方 (c) は熱間圧延中に動的再結晶し、圧延後に静的再結晶する場合である。圧延中に動的回復のみか、あるいは動的回復と再結晶がみられるかは、ひずみ量、ひずみ

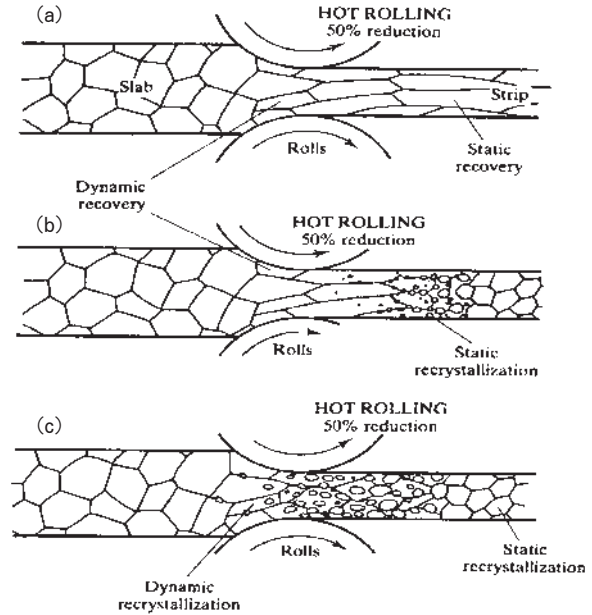


Fig. 4 Schematic diagram of microstructural changes possible during hot working⁷⁾. (a) dynamic recovery occurs during forming followed by static recovery, (b) the grains recrystallized after deformation (static recrystallization), (c) dynamic recrystallization followed by static recrystallization.

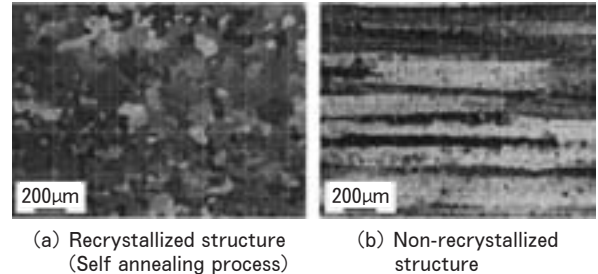


Fig. 5 Microstructures of commercial pure aluminum alloy sheets after hot rolling⁴⁾.

速度、及び圧延温度に依存する。Fig. 5 は純アルミニウムの熱間圧延後のマイクロ組織⁴⁾で、(a) は圧延終了後、コイルに巻き取った段階で余熱により再結晶した組織 (self-annealing 工程) で、(b) では圧延終了温度が低く、非再結晶組織となっている。

厚板のように粗圧延だけで製造する場合には、加工度が小さいために casting 組織が伸びて圧延後そのまま回復し、溶体化処理などで再結晶するが、 casting 時の結晶粒界を残留したままパンケーキ状の組織となることがある。Fig. 6 は、熱間圧延後、溶体化処理した 7050 合金厚板の組織¹⁰⁾である。この場合、特に板厚方向での延性、韌性、耐応力腐食割れ性が劣るため、航空機用合金では加工熱処理と称して析出処理と温間圧延を行い、さらに高温で再結晶させて結晶粒を微細化させた後に熱間圧延することで、上述の諸特性の改善を行うことがある¹¹⁾。

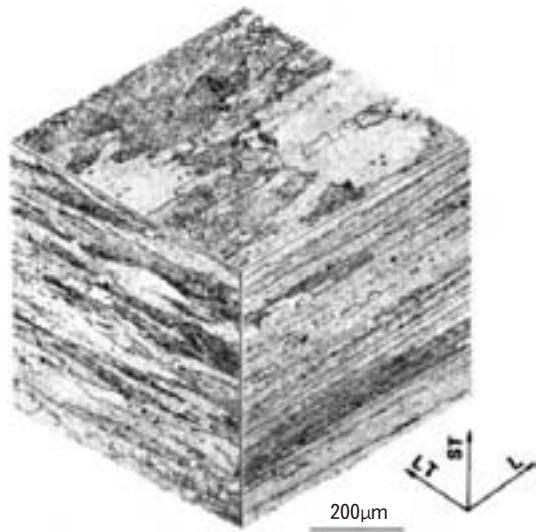


Fig. 6 Microstructures of 7050-T7451 plate in the thickness of 30mm¹⁰⁾.

2.4 Zパラメータと結晶粒径, 変形抵抗⁴⁾

定常変形での亜結晶粒のサイズ d とひずみ速度の関係は次式で与えられる。

$$d^{-m} = a + b \ln[\dot{\epsilon} \exp(Q/RT)] \quad (3)$$

ここで a , b , m , R は定数であり, Q は前述の活性化エネルギーで, 自己拡散の活性化エネルギーに近い値である。(3) 式右辺の [] 内は, 次式で示す Zener-Hollomon パラメータ (温度補償ひずみ速度因子とも呼ばれる) である。すなわち,

$$Z = \dot{\epsilon} \exp(Q/RT) \quad (4)$$

とおくと, (3) 式はつぎのように表せる。

$$d^{-m} = a + b \ln Z \quad (5)$$

Fig. 7 は Al-Mg-Mn 合金と純アルミニウムについて, Z パラメータと亜結晶粒径との関係を示したものである¹²⁾。一般的には m が 0.5~1.0 の値で, よい相関が得られている。また同じ Z 値であっても, Al-Mg 合金の亜結晶粒径のほうが細かいのは, 第二相分散粒子のためである。アルミニウムの高温変形は, 広いひずみ速度範囲において空孔の拡散を伴う転位の上昇運動による動的回復に律速されると考えられることから⁶⁾, 高温でのアルミニウム材料の変形抵抗 (変形応力) σ と Z の関係は, 次式のように与えられることが知られている。ただし A , α , 及び n は定数である。

$$Z = A \{\sinh(\alpha\sigma)\}^n = \dot{\epsilon} \exp(Q/RT) \quad (6)$$

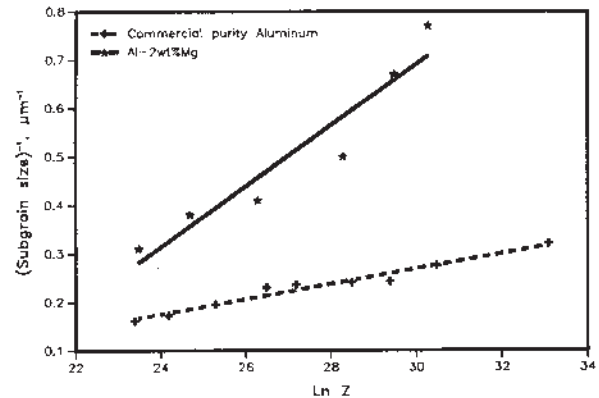


Fig. 7 Effect of hot deformation process parameters (defined in Z) on subgrain size¹²⁾.

2.5 熱間圧延での組織制御

熱間圧延では, 粗圧延工程のような短い保持時間を挟んで多パスで圧延を行う際の加工速度や温度変化が, 圧延中に進行する Fe, Si の析出や回復再結晶に影響を及ぼす。最近の大型で高速化された熱間圧延設備による諸条件の変化により, 圧延材にも従来とは異なる材料特性をもたらすものと考えられる。土田は, 熱間圧延のパススケジュールが冷間圧延した純アルミニウム板の再結晶に及ぼす影響について, 大型熱間圧延機での圧下率配分を変更して圧延した, 純度 99% 以上のアルミニウム合金の冷間圧延板を焼なまししたときに得られる, 深絞り耳の変化について調査している¹³⁾。調査に用いた 2 種類の試料の圧延条件は Table 1 に示す通りであり, 熱間圧延設備は Fig. 1 (a) に類似の形式で, 可逆式の 4 段粗圧延機と 3 スタンドのタンデム式 4 段仕上げ圧延機を用いている。試料 A では, 粗圧延機で各パス 30% 以下の圧下率で 11 パスを行い, 仕上げ圧延機での各スタンド圧下率を約 53% としている。一方比較用試料 B では, 試料 A と同様の化学成分の量産材で, 粗圧延機では 13 パス, 仕上げ圧延機での各スタンド圧下率を約 43% としている。冷間圧延条件は試料 A および B と同じで, 厚さ 1 mm まで 3 パス圧延した後に最終焼なましを行い, 耳率などを測定している。

試料 A について, 加熱速度と温度を種々変更して焼なましを行なったときに得られた 45° 深絞り耳率を Fig. 8 に, 一方で試料 B については, 焼なまし温度及び時間を 673K, 1 h の条件で行なったときの, 冷間圧下率と深絞り耳率との関係を Fig. 9 に示した。試料 A では冷間圧延板の 45° 耳が試料 B よりも小さく, 焼なまししても 45° 耳が試料 B のように顕著に小さくない。また加熱速度を変化させても, 1 h 保持によって昇温直後よりも 45° 耳が大きくなる傾向となっている。これは試料 A のほうが粗圧延終了時の板厚が試料 B に

Table 1 Hot rolling condition of 1100 aluminum¹³⁾.

	Rougher inlet		Rougher exit		Finisher exit	
	Thick. (mm)	Temp. (K)	Thick. (mm)	Temp. (K)	Thick. (mm)	Temp. (K)
Specimen A	480	768	38	646	4	498
Specimen B	480	773	22	638	4	488

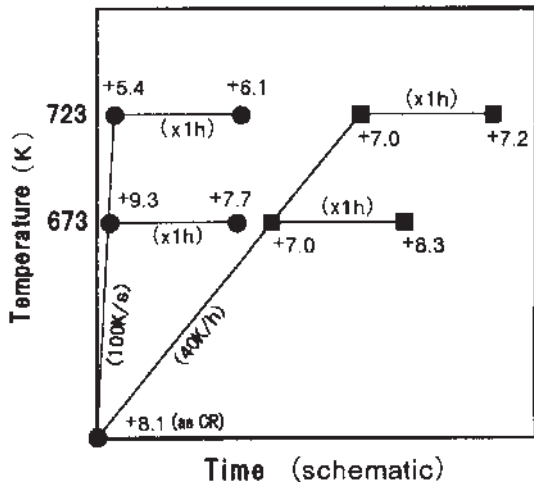


Fig. 8 Fraction of ears for the annealing temperature and holding time of the specimen A (+ mark means 45° ears)¹³⁾.

比べて厚く仕上げ温度も 10K 程度高いことから、熱間圧延中及び圧延直後に再結晶と軟化がより進行しやすく、熱間圧延板に残る圧延集合組織が減少し、冷間圧延時の圧延集合組織の発達が悪くなるためと考えられている。また試料 A の焼なましで 45° 耳が減少しにくいのは、新たな方位の再結晶粒の成長を妨げる微細な第 2 相粒子が大量に析出して連続再結晶が起きていることによるが、前述のように圧延集合組織の発達が弱いことも一因と考えられている。さらに急速加熱の焼なましで昇温直後よりも 1 h 保持で 45° 耳が大きくなるのは、連続再結晶の進行が遅かったためではないかと考えられている。

熱間圧延時の動的析出を利用した組織制御により、最終製品板の超塑性特性や深絞り成形性を改善する試みもされている。吉田ら¹⁴⁾は、Al-Li 系合金である 2090 および 8090 の析出ノーズと熱間加工温度の関係を調べている。Fig. 10 に示す通り、析出ノーズ温度域で熱間加工することにより、超塑性特性が向上すること (500°C の引張試験で 400% 以上の伸びが得られること) を明らかにしている。この超塑性特性は、その下部組織の状態と関連し、析出ノーズ温度域で加工した場合、熱的に安定な組織を有し、超塑性変形中の粗粒化が抑制されると考えられている¹⁴⁾。また田中ら¹⁵⁻¹⁹⁾は、Zn, Cu, Zr を添加した 5083 ベース合金および 5083 標準合金において同様な研究を行っており、熱間圧延中の動的析出物を利用

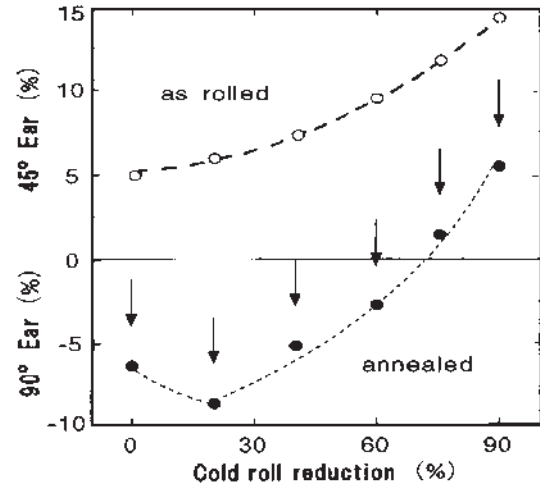


Fig. 9 Fraction of ears after the cold rolling and followed annealing at 673K for 1 h of the specimen B¹³⁾.

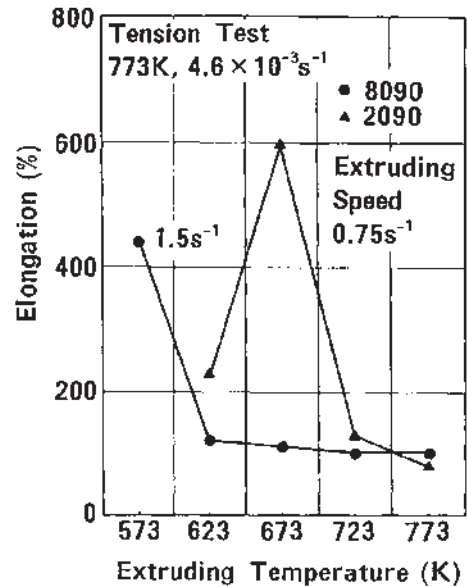


Fig. 10 Effect of extruding temperature on superplasticity¹⁴⁾.

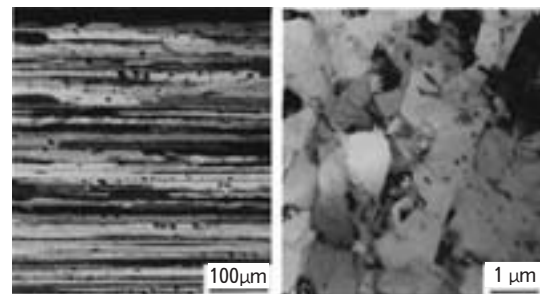


Fig. 11 Optical microstructure and TEM image of Al-5%Mg-0.7%Mn-1%Zn-0.3%Cu-0.15%Zr alloy sheet warm-rolled at 400°C, taken after final two-step annealing at 350°C for 1 h and at 400°C for 1 h^{15, 16)}.

することにより、Fig. 11 に示すような熱的安定なサブグレイン組織を有する板材が得られ、その板材は深絞成形性に優れることを明らかにしている。

3. 熱間加工と表面欠陥

アルミニウム熱間圧延においては、圧延中に生成するロールコーティング（ロール表面に付着するアルミニウム粉）が圧延材の表面性状に影響を及ぼす。ロールコーティングが不均一に、あるいは過剰に厚くなり過ぎると、Fig. 12 に示すように、生成したロールコーティングが圧延材に移着することで表面欠陥が発生する。逆にロールコーティングが薄すぎると、摩擦係数が低くなってしまい、ロールへの噛み込み不良やロールと圧延材間のスリップが発生して圧延が不安定となりやすい。熱間圧延時のロールコーティング生成挙動に関しては、ロールコーティングはアルミニウム薄片が層状に堆積したものと考えられること²⁰⁾、ロールコーティングが増加すると、Fig. 13 に示すように圧延材の表面に生成される結晶粒が微細化された組織層が厚くなること²¹⁾、また Fig. 14 に示すように、圧延油の組成の違いがロールコーティングに影響を及ぼすこと²²⁾などが明らかとなっている。このようにロールコーティング量は、圧延油の潤滑特性

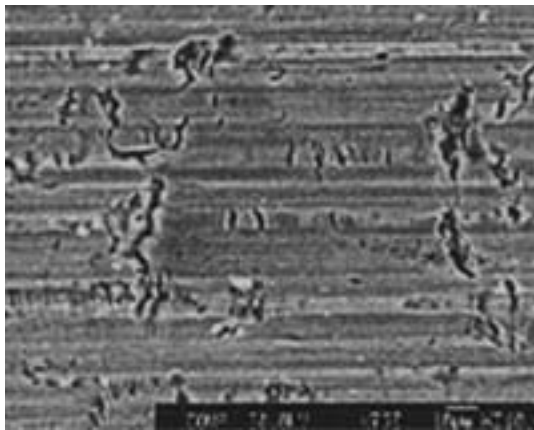


Fig. 12 Surface defects due to excessive roll coating²⁾.

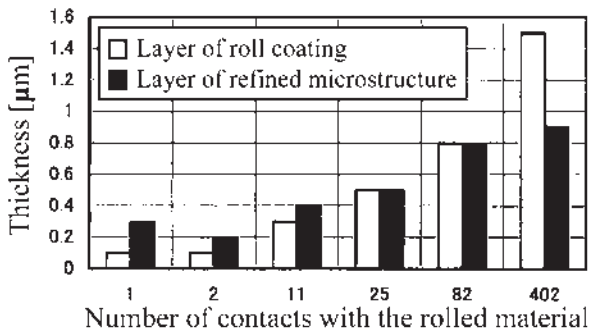


Fig. 13 Changes of layer of roll coating and refined microstructure²¹⁾.

はもとより、圧延温度、圧下量、圧延速度などの圧延条件によっても影響されるため、適正なロールコーティングとなるよう圧延条件を設定することが重要である³⁾。

またロールと圧延材間の潤滑状態によっても、表面性状は大きく影響を受ける。特に熱間圧延においては、圧延油の供給量が十分でないと、ロール表面と圧延材表面との焼付きが発生し、圧延材の表面損傷が起きやすくなる。熱間圧延で発生したこのような焼付きは、当然のことながら冷間圧延後の表面品質にも影響するので、熱間圧延時の表面欠陥をいかに防止するかが重要となる。焼付きにはロール温度と圧延材温度が関係するため、これらの関連性についての検討が行われている^{23,24)}。圧延中のロール表面温度を高精度に測定するため、Fig. 15 及び Fig. 16 に示すロール表面温度計測装置が検討された。そして純アルミ材と Al-Mg 合金材を対象として、潤滑条件、圧延材初期温度、圧下率などを変更してロール表面温度を測定する実験を行い、焼付きとの関連性に

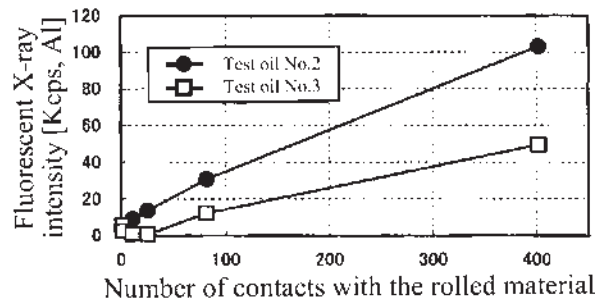


Fig. 14 Changes in roll coating²²⁾.

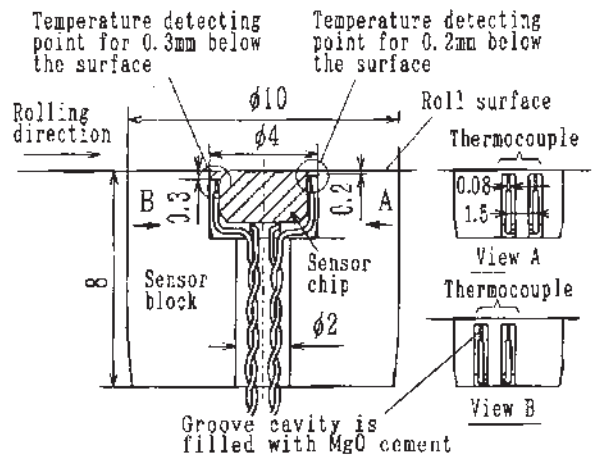


Fig. 15 Structure of the temperature sensor²³⁾.

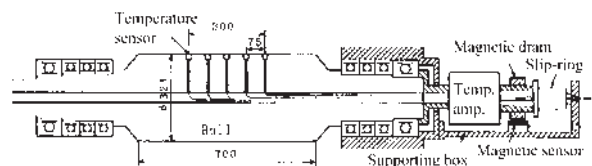


Fig. 16 Work roll equipped temperature sensors²³⁾.

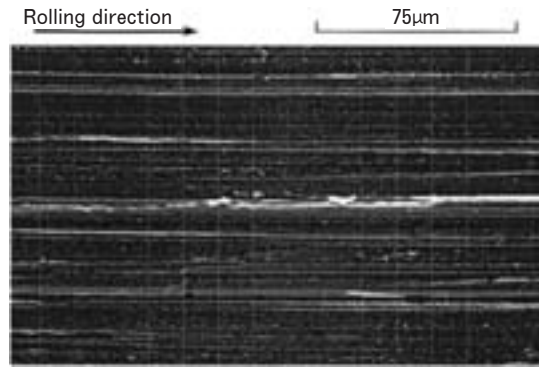
Table 2 The factor for the occurrence of the heat scratch²³⁾

First factor	Second factor	Third factor	Forth factor	Heat scratch occurrence
Sheet material	Lubrication	Initial sheet temperature	Reduction ratio	
Al-Mg alloy	Emulsion	460°C	60%	much
	↑ Oil	↑ 300°C	↑ 10%	↑ little
Pure aluminum	No lubricant	460°C	60%	much
	↑ Emulsion	↑ 300°C	↑ 10%	↑ little
	↑ Oil			

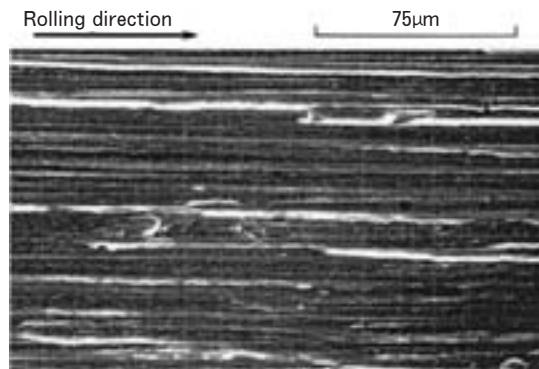
ついて検討がなされている。**Table 2**はそのときの圧延条件と焼付きの傾向をまとめたものである。Al-Mg合金材圧延において、圧下率及び圧延材初期温度を、それぞれ60%及び460°C程度として圧延を行った場合、通常のエマルジョン潤滑状態では圧延材の表面が白化する焼付きが発生した。油潤滑を行い、圧下率及び圧延材温度、それぞれ10%及び300°C程度まで下げると焼付きの発生を抑えることができている。このときの圧延材の表面状態を**Fig. 17**に示す。焼付きが発生している箇所では、部分的に表面がむしれた状態となっていることが観察できる。これは圧延材の表面の一部が圧延中に焼付いて固着し、ロール出口で引きはがされることにより亀裂が入ったものと考えられる。一方純アルミ材の圧延では、通常のエマルジョン潤滑で焼付きは発生しなかった。圧延材入口温度450°Cで潤滑を止め、潤滑量を減らしていくと、ロール表面に圧延材が密着して焼付きが発生した。このときの圧延材の表面状態を**Fig. 18**に示す。焼付きの状態はAl-Mg合金材ほどではないものの、それと同様にむしれた状態が確認できる。これらの表面観察結果から焼付き発生の過程を推定した模式図を**Fig. 19**に示す。焼付きはロールと圧延材の接触域の入口端において、圧延材の表面の一部がロール表面に固着し、この部分がロールの周速によって引きずられ、圧延出口でロール表面からはがされることで、圧延材表面がむしれて亀裂が入るものと考えられる。また同じエマルジョン潤滑状態において、顕著な焼付き状態と比較的軽微な焼付き状態における、ロール表面温度の計測値を比較した結果を**Fig. 20**に示す。焼付きが顕著な場合においては、比較的軽微な焼付き状態の場合に比べて、接触弧内でロール表面温度が大きく変動することが確認されている。

4. 熱間割れ

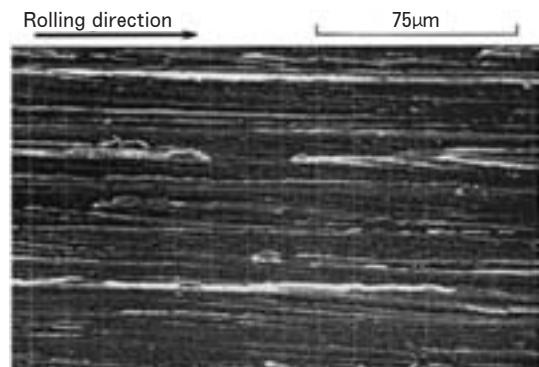
材料を高温で変形すると、大きく分けて**Fig. 21**に示すような三種類の破壊様式が観察される²⁵⁾。それらは、



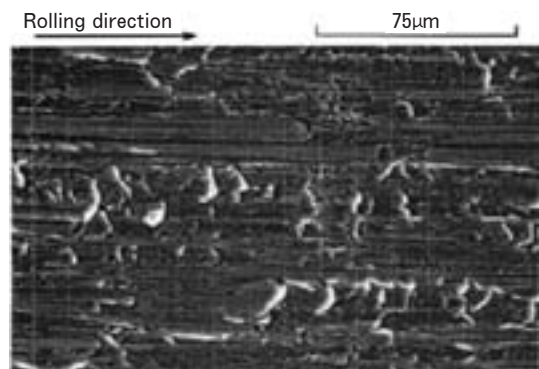
(a) Rolled with emulsion lubrication



(b) Rolled with no lubricant

Fig. 17 Surface of the pure aluminum rolled sheet²³⁾.

(a) Rolled with oil lubrication



(b) Rolled with emulsion lubrication

Fig. 18 Surface of the Al-Mg alloy rolled sheet²³⁾.

(a) 脆性的粒界破壊, (b) 延性をともなう粒界あるいは粒内破壊, 及び (c) ラプチャーである。ラプチャーとは高温で 100% の断面収縮を示す延性破断である。破断部は動的再結晶を起し、細粒化していることが多い。高応力では粒内破壊し、粒内介在物の表面にできたキャビティが粒内変形で成長するとともに、局部的なくびれでキャビティが連結し破壊する。低応力では典型的な脆性的粒界破壊を示す。

高純度のアルミニウムにおいても、熱間圧延で粒界割れを生じることがある⁴⁾。Fig. 22 は 99.99% の高純度アルミニウム鋳塊を、熱間圧延前に 450°C, 96 時間の均質化熱処理した後、350°C で圧延したときに発生した割れの状態を示したものである²⁶⁾。Fig. 23 に示すように粒界にはポイドも観察されており、鋳造時に過飽和に固

溶された水素が高温の熱処理により粒界に拡散し、圧延時に割れに至ったと考えられる²⁶⁾。

鋳造時に形成されたポロシティ (キャビディ, ポイド) は、均質化処理や熱間圧延中にサイズや分散状態が変化することが知られており、熱間圧延時の割れや熱処理時の膨れ等に繋がることもある。Fig. 24 に 5052 鋳塊の均質化処理前のポロシティ分散状態, Fig. 25 に同じ鋳塊の均質化処理後のポロシティ分散状態を示す²⁷⁾。均質化処理は 500~550°C, 1~3 h の条件で行っているが、均質化処理前と比較して、均質化処理後のポロシティサイズは全体的に大きくなり、その数も多くなっている。これは、Fig. 23 でも述べたように、高温加熱することによって、水素ガスの拡散速度が高くなり、鋳塊に固溶している水素がすでに存在しているポロシティに拡散して集まるためと考えられている²⁷⁾。また、金属間化合物 (晶出物) 周りに拡散してきて粗大化するとも考えられている²⁷⁾。戸田ら²⁸⁾は、X 線トモグラフィーにより、

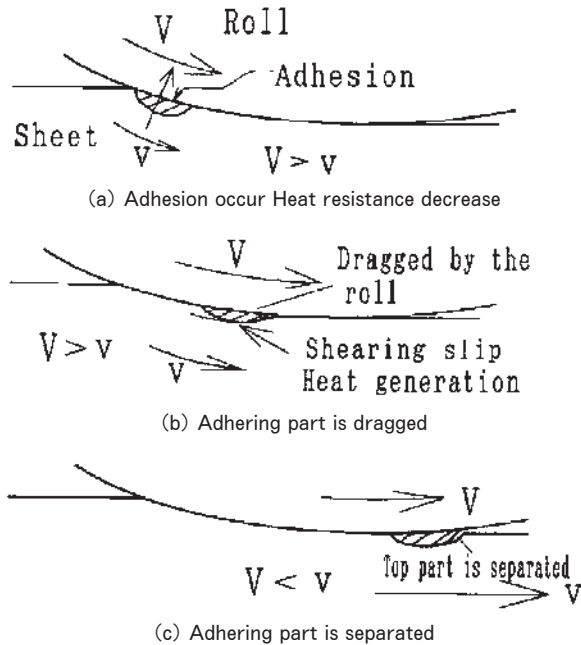


Fig. 19 Heat scratch phenomenon model²³⁾.

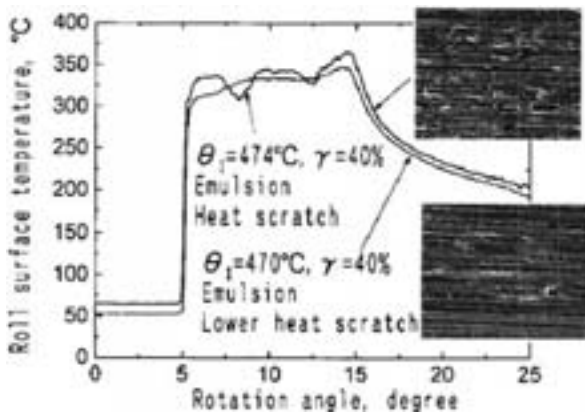


Fig. 20 Comparison of the roll surface temperature in the contacting arc between in the case of heat scratch and that of low heat scratch in the rolling of Al-Mg alloy sheet²³⁾.

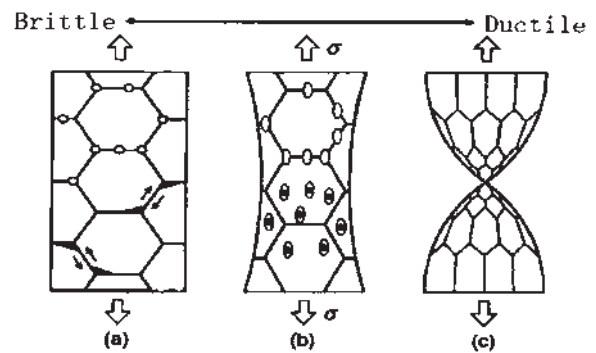
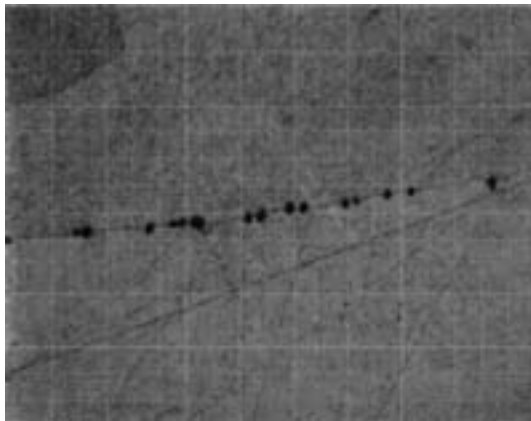


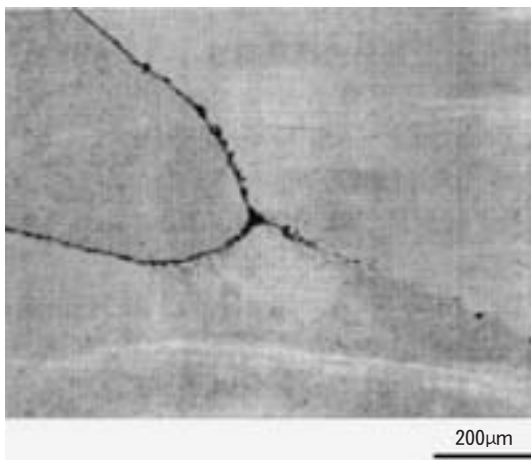
Fig. 21 Type of fractures deformed at high temperature²⁵⁾. (a) intergranular creep fracture, (b) growth of voids by power-law creep, (c) rupture due to dynamic recovery or recrystallization.



Fig. 22 Intergranular fracture of hot rolled sheet in 99.99% aluminum²⁶⁾.



(a) Formation of voids after homogenization



(b) Cracks along grain boundaries during hot rolling

Fig. 23 Micro defects in 99.99% aluminum during homogenization and hot rolling²⁶⁾.

均質化処理およびその後の高温保持におけるポロシティの体積率の変化を調査しており、Fig. 26 に示すように、水素を含む Al-5.5%Mg 合金鑄塊は高温保持時間の増加に伴ってポロシティの体積率が増加することを明らかにしている。また、99.99%Al 鑄塊は水素を含んでいても、高温保持によるポロシティの体積率の増加はほとんどみられないことを明らかにしている。Fig. 27 に 5052 鑄塊の均質化処理および熱間圧延中の板厚中心部におけるポロシティサイズの変化、Fig. 28 に同じ鑄塊の熱間圧延中の板厚中心部におけるポロシティの変化を示す²⁷⁾。ポロシティサイズは熱間圧延の圧下量に伴って増加し、最大値を示した後、減少する。これは、板厚中心部に付与される応力が熱間圧延初期（板厚 500~300mm）と後期（板厚 300~100mm）で異なるためと考えられており、初期には圧縮応力が小さく、かつ圧延方向に引張応力を受けるため、ポロシティサイズが大きくなり、後期には圧縮応力が大きくなるため、ポロシティサイズが小さくなることが数値解析により明らかにされている。

一方 Al-Mg 系合金においては、熱間加工時に耳割れ

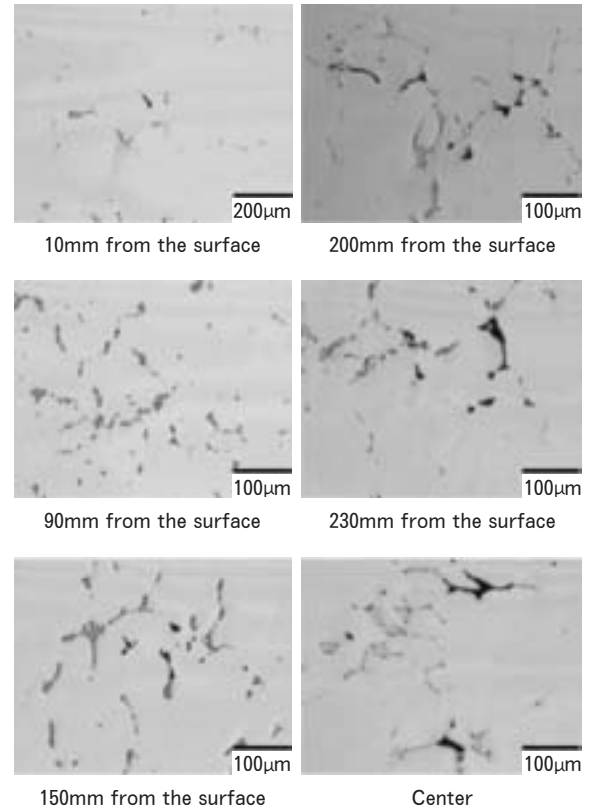


Fig. 24 Distribution of porosity in as cast ingot of 5052 alloy²⁷⁾.

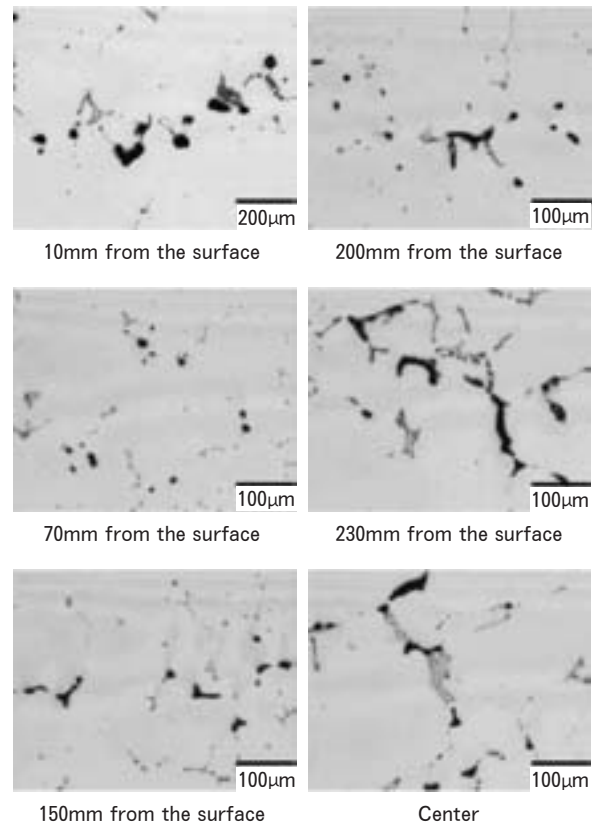


Fig. 25 Distribution of porosity in ingot of 5052 alloy after homogenized at 500~550°C for 1~3 h²⁷⁾.

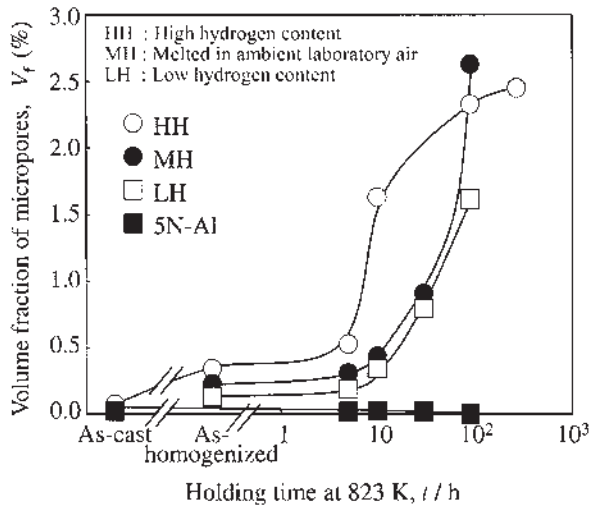


Fig. 26 Change in volume fraction of porosity on Al-5.5%Mg and 5N-Al at 823K²⁸⁾. HH, MH, LH were Al-5%Mg ingots included hydrogen, 5N-Al was 99.999%Al ingot included hydrogen.

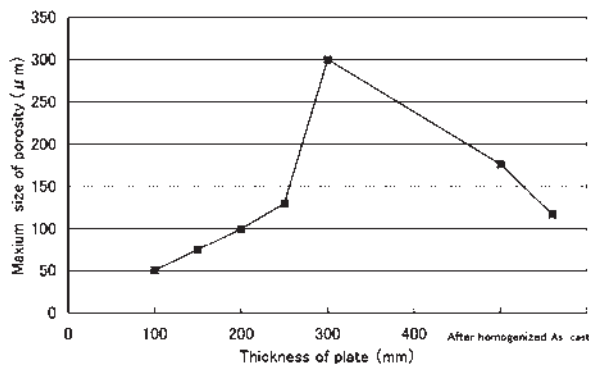


Fig. 27 Change of porosity size in DC cast ingot of 5052 alloy after homogenized at 500~550°C for 1~3 h and after hot rolling²⁷⁾.

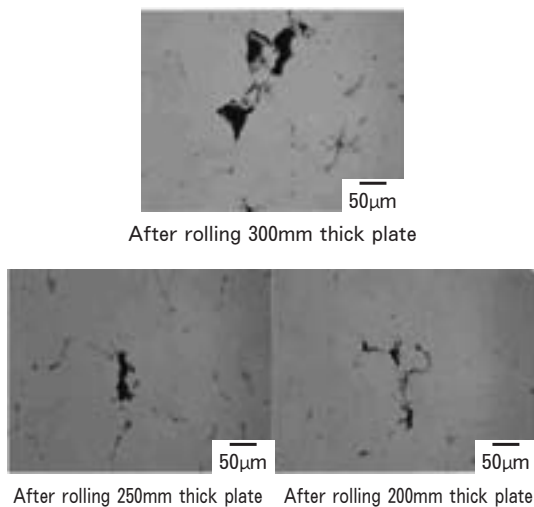


Fig. 28 Change of porosity in the center of thickness of 5052 alloy plate during hot rolling²⁷⁾.

を生じやすく、熱間加工の困難な合金とされており、高温変形時の延性低下が耳割れと密接に関連しているものと考えられている。Fig. 29ではAl-5%Mg合金を室温から500°C程度の温度域で引張り試験を行った結果として、中間温度域である200°Cから400°C付近で延性が低下することが示されており²⁹⁾、低温側は動的ひずみ時効に起因した延性低下、高温側は高温脆化である⁶⁾。Al-Mg系合金の高温脆化は、合金中の極微量不純物に大きく依存することが報告されている³⁰⁾。菅野ら³¹⁾によれば、Al-Mg系合金の高温脆化について、変形中に水素が粒界偏析して脆化に関与していると同時に、水素以外にAlやMgの地金に混入してくる極微量のNaが脆化に関与してくることが明らかにされている。Fig. 30は高純度素材を用いてアルゴン溶解したAl-5%Mg合金の高温延性に及ぼす極微量Na量の影響を調査した結果である³¹⁾。これによれば、Na量の増加とともに断

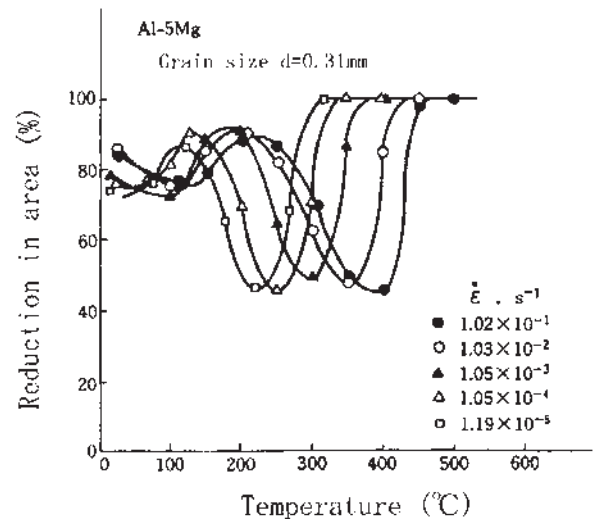


Fig. 29 Effects of temperature and strain rate on the reduction in area in Al-5%Mg alloys²⁹⁾.

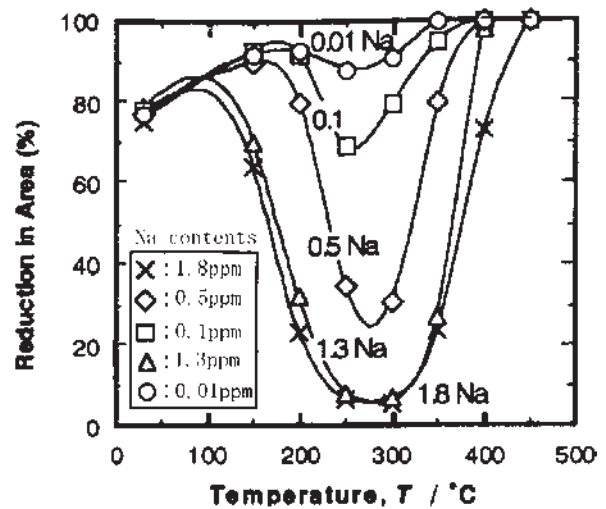


Fig. 30 Effects of Na contents on high temperature elongation in Al-5%Mg alloys³¹⁾.

面減少率は減少しており、Na量によって高温延性が大きく変化することが確認できる。この高温延性の低下に対しては、2 at.ppmのSb添加が有効であることが明らかにされている。

5. おわりに

アルミニウム合金の高温変形に関する研究は古くから実施されており、その中でもクリープ変形や超塑性等の分野は比較的研究が進展しており、実用化の面でもいくつかの成果があげられている^{32~36)}。一方で熱間圧延のような大変形・高ひずみ速度域での金属組織学的な研究は、その金属組織変化が複雑であり、十分な解明がなされているとはいえない状況である⁴⁾。今後、組織変化の解明が進展し、さらに予測ができるようになれば、工業的にも重要であると同時に、製品品質や歩留の向上などに大いに寄与するものと考えられる。そのためには、集合組織や結晶粒径などの組織内部の予測を精度よく行えるシミュレーション技術の開発はもとより、材料内部温度や結晶粒径などの各種計測の可能性や、評価を含めた要素技術をさらに発展させていく必要がある。欧州ではVIR[*]プロジェクトが行われ、鑄造、圧延、押出、成形等の各分野で大学、研究機関、企業が共同となって、シミュレーション技術を駆使した研究開発を進めてきた³⁷⁾。我が国でも、今後産官学が一体となって、アルミニウム材料の組織形成に関する研究開発をさらに推進していくことが望まれる。

参考文献

- 1) 軽金属学会：アルミニウム圧延における計測技術とそのデータ活用 (2007)。
- 2) 日本アルミニウム協会：現場で活かす金属材料シリーズアルミニウム、工業調査会 (2007), 197。
- 3) 小林博幸, 渡辺昌英：軽金属, **58** (2008), 473。
- 4) 吉田英雄, 田中宏樹：本誌, **49** (2008), 87。
- 5) 日本鉄鋼協会：板圧延の理論と実際, (1984), 10。
- 6) 軽金属協会：アルミニウム材料の基礎と工業技術 (1991), 94。
- 7) T. H. Courtney : *Mechanical Behavior of Materials*, McGraw-Hill, (1990), 309。
- 8) 例えば, 山縣 裕：軽金属, **44** (1994), 2。
- 9) 例えば, 酒井 拓：再結晶・集合組織とその組織制御への応用, 日本鉄鋼協会, (1999), 2。
- 10) 吉田英雄, 宇野照生, 馬場義雄：軽金属, **34** (1984), 689。
- 11) E. di Russo, M. Conserva, M. Buratti and F. Gatto : *Materials Science and Engineering*, **14** (1974), 23。
- 12) M. A. Zaidi and J. A. Wert : *Aluminum Alloys - Contemporary Research and Applications*, Academic Press, (1989), 137。
- 13) 土田 信：軽金属, **59** (2009), 290。
- 14) 吉田英雄, 田中宏樹, 土田 信：軽金属, **39** (1989), 817。
- 15) 田中宏樹, 長井康礼, 吉田英雄：軽金属, **53** (2003), 570。
- 16) 田中宏樹, 長井康礼, 吉田英雄：本誌, **45** (2004), 49。
- 17) H. Tanaka, Y. Nagai, Y. Oguri, M. Asano and H. Yoshida : *Sumitomo Light Metal Technical Reports*, **48** (2007), 73。
- 18) 田中宏樹：本誌, **50** (2009), 49。
- 19) H. Tanaka and M. Asano : *Proceedings of ICAA-12* (2010), 1207。
- 20) 渡邊貴道, 細見和弘, 吉貝寿伸, 村松将邦, 喜多良彦：軽金属学会第114回春期大会講演概要集, (2008), 213。
- 21) 村松将邦, 吉貝寿伸, 渡邊貴道, 細見和弘, 竹田恭一, 喜多良彦：軽金属学会第116回春期大会講演概要集, (2009), 191。
- 22) 喜多良彦, 渡邊貴道, 村松将邦, 細見和弘, 吉貝寿伸, 竹田恭一：軽金属学会第117回秋期大会講演概要集, (2009), 203。
- 23) T. Yoneyama, A. Fujita, H. Asaoka, H. Kimura, I. Hoshino and M. Kokubo : *Sumitomo Light Metal Technical Reports*, **39** (1998), 38。
- 24) 米山 猛：塑性と加工, **42-483** (2004), 305。
- 25) 丸山公一, 中島英治：高温強度の材料科学 (改訂版), (2002), 139。
- 26) 吉田英雄：本誌, **24** (1983), 141。
- 27) 長海博文：軽金属, **55** (2005), 451。
- 28) H. Toda, T. Hidaka, M. Kobayashi, K. Uesugi, A. Takeuchi, K. Horikawa : *Acta Mater.*, **57** (2009), 2277。
- 29) 大塚正久, 堀内 良：日本金属学会誌, **48** (1984), 688。
- 30) 堀川敬太郎, 倉本 繁, 菅野幹宏：軽金属, **48** (1998), 371。
- 31) 菅野幹宏：軽金属, **56** (2006), 550。
- 32) 坂口信人, 田中宏樹, 吉田英雄：軽金属学会第112回春期大会講演概要, (2007), 183。
- 33) 坂口信人, 田中宏樹, 吉田英雄：軽金属学会第113回秋期大会講演概要, (2007), 149。
- 34) 吉田英雄：軽金属, **41** (1991), 446。
- 35) H. Yoshida, S. Hirano, Y. Baba, T. Tsuzuku and A. Takahashi : *Sumitomo Light Metal Technical Reports*, **28** (1987), 119。
- 36) 吉田英雄：本誌, **46** (2005), 99。
- 37) Ch. Leroy and L. Berneri : *Aluminium*, **80** (2004), 550。

押出材の組織制御

箕田 正* 吉田 英雄**

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 133-142

Microstructural Control in Extrusion

Tadashi Minoda and Hideo Yoshida

In this paper, the research and development of the crystal grain control, crystal orientation control, material properties control, surface defects control and extrudability control by Sumitomo Light Metal are explained. For the crystal grain control, the stability of the fibrous structure and the control of abnormal grain growth were mainly investigated, and the main points were the controls of the cell boundary segregations, precipitates in the grains, solute atoms and optimization of the extrusion conditions. For the crystal orientation control, the grain boundary characteristics and the crystallographic texture were investigated. For the material properties control, the quench sensitivity, weld-cracking, stress corrosion cracking, toughness and creep were controlled. The surface defects controls were related to the pick-up defects, surface roughness and blister. For the extrudability control, a new process, which could double the productivity, was developed.

1. 緒 言

アルミニウム合金押出材は、単純な丸棒形状から複雑断面形状の形材まで、多種多様な製品を製造しているが、その使用環境や要求特性に応じて材料開発を行ってきた。ここでは住友軽金属における押出材料の研究開発についてまとめる。

2. 押出材料における結晶粒制御

アルミニウム押出材料は、一般にビレット鋳造、均質化処理、熱間押出、熱処理の工程によって製造される。棒や管では引抜加工を熱処理前に行うことがあるが、形材などは冷間加工がなく、熱間押出によって形成された組織がそのまま製品特性に影響する。押出加工で形成される組織形態は、主として再結晶組織と繊維状組織に分かれ、前者は低強度～中強度合金、後者は中強度～高強度合金に多くみられる。繊維状組織は熱間加工によって押出方向に伸長した組織が、再結晶せずに安定した状態であり、内部は回復による亜結晶（サブグレイン）組織である。

押出材料の結晶粒制御には、遷移元素が大きな役割を

持つ。市販のアルミニウム合金で添加される遷移元素は Mn, Cr, Zr が主であり、その歴史は Mn が最も古く、Cr, Zr の順に新しい。また Sc も結晶粒制御には有効な元素であるが、比較的高価であるため市販材料での実用例は多くない。いずれも均質化処理によってその粒子サイズが制御され、押出材の再結晶挙動に影響を及ぼす。

Fig. 1 に示すように、Mn を主要添加元素とする 3003 合金において、630°C で均質化処理を行うと、鋳造でセル境界に晶出した Al-Fe(Mn)-Si 系化合物は分断され凝集化する¹⁾。均質化処理後の冷却を水冷 (WQ) にした場合には、粒内に析出する 0.1μm 以上の大きさの化合物は少なく、炉冷 (FC) にした場合には多い。そのようなビレットを熱間押出すると、いずれも再結晶組織を形成するが、Fig. 2 に示すように前者は比較的粗大、後者は微細な組織になる。また、500°C での均質化処理後炉冷を行った場合には、セル境界の晶出物の分断が不十分となり、さらに粒内には 0.1μm 以下の析出物が高密度で分散することから、押出材は再結晶が抑制され、繊維状組織になる。630°C での均質化処理後に水冷を行い、さらに 500°C に昇温保持してから炉冷を行うと、セル境界の晶出物は分断されるが、粒内には 0.1μm 以下の微細析出物が分散することから、押出材内部は繊維状組織になる。しかし、押出材表面近傍は再結晶が抑制されず、粗大再結晶組織になる。このように、押出材の

* 住軽テクノ名古屋 名古屋製作所, 工学博士

** 研究開発センター 工学博士

再結晶挙動（繊維状組織の安定化）には、セル境界の成分偏析（晶出物形態）と粒内の析出物の両方が影響する。

Mnと同様、CrやZrも押出材の再結晶を抑制し、繊維状組織を安定化する元素として広く用いられる。これらの元素は均質化処理を450℃近辺で行うことにより、再結晶抑制に大きな効果をもたらす^{2,3)}。Fig. 3はZr添加したAl-Zn-Mg合金の例であり、560℃で均質化処理を行った場合には押出材表面で粗大再結晶を生じるが、450℃の均質化処理では粗大再結晶はわずかである²⁾。また押出材頭部に比べ、尾部側では表面の粗大再結晶は

深くなる。このことから押出中のコンテナおよびダイスと材料間のせん断変形を小さくすることも表面の粗大再結晶の抑制には効果がある。

さらに繊維状組織の安定性には、遷移元素だけでなく、析出強化を目的とした主要添加元素の固溶も影響する⁴⁾。Fig. 4に2024-T4押出材の断面マイクロ組織に及ぼす、均質化処理後の冷却条件と押出時のピレット加熱温度の影響を示す。いずれも押出ままでは繊維状組織を形成していたが、均質化処理後の冷却が速く、かつピレット加熱温度が高いほど、溶体化処理後も繊維状組織が安定に存

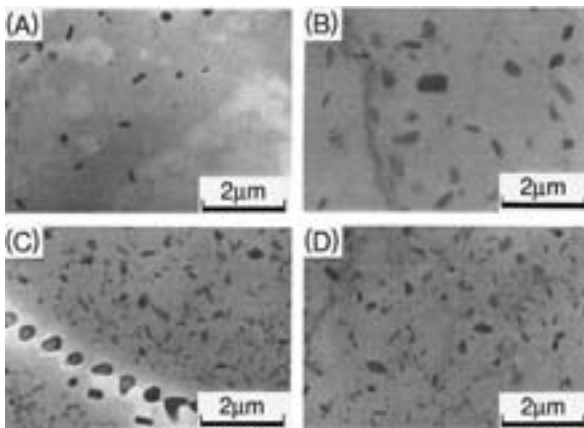


Fig. 1 Microstructures of 3003 aluminum alloy billets after homogenization heat treatments, (A) 630°C (WQ), (B) 630°C (FC), (C) 500°C (FC), (D) 630°C (WQ)+500°C (FC)¹⁾.

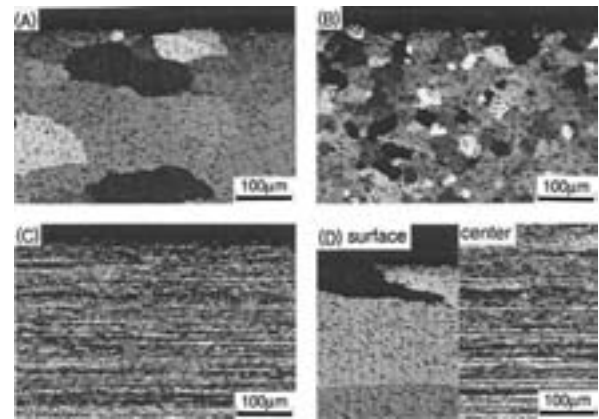


Fig. 2 Microstructures of 3003 aluminum alloy extrusions. The homogenization heat treatments were, (A) 630°C (WQ), (B) 630°C (FC), (C) 500°C (FC), (D) 630°C (WQ)+500°C (FC)¹⁾.

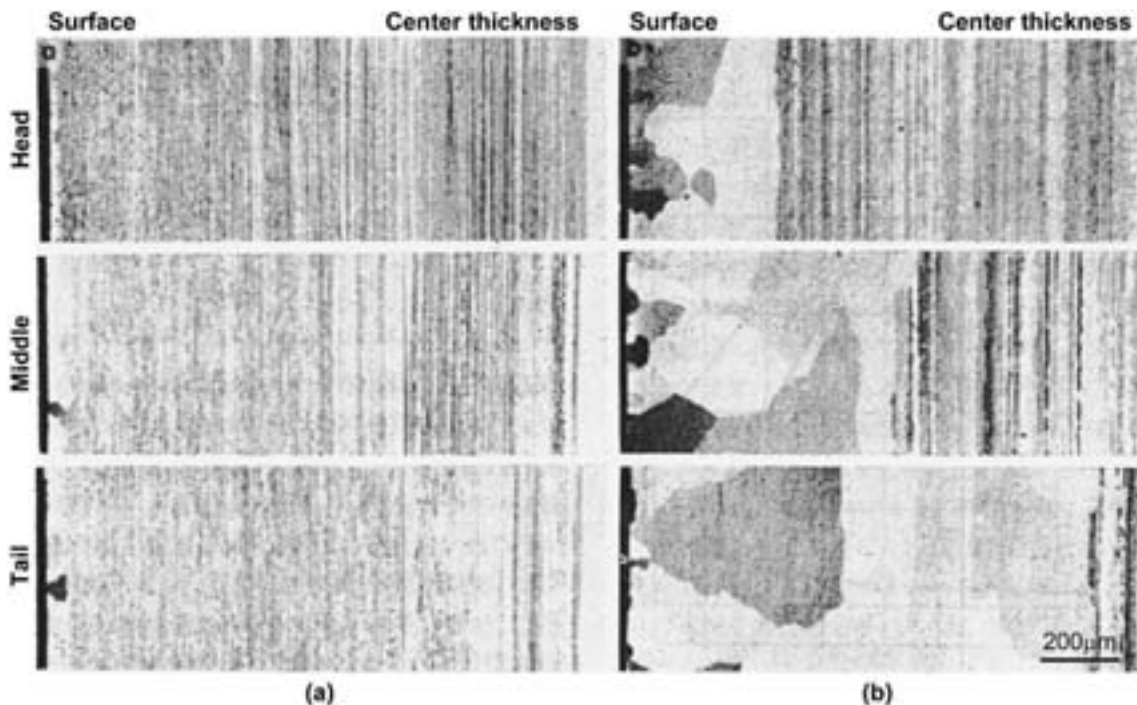


Fig. 3 Influence of homogenization heat treatment and extrusion temperatures on abnormal grain growth formation of Al-6Zn-0.8Mg-0.16Zr-0.18Mn (mass%) alloy extrusion²⁾. Homogenization temperatures were (a) 450°C and (b) 560°C, and extrusion temperatures were (a) 440°C and (b) 520°C.

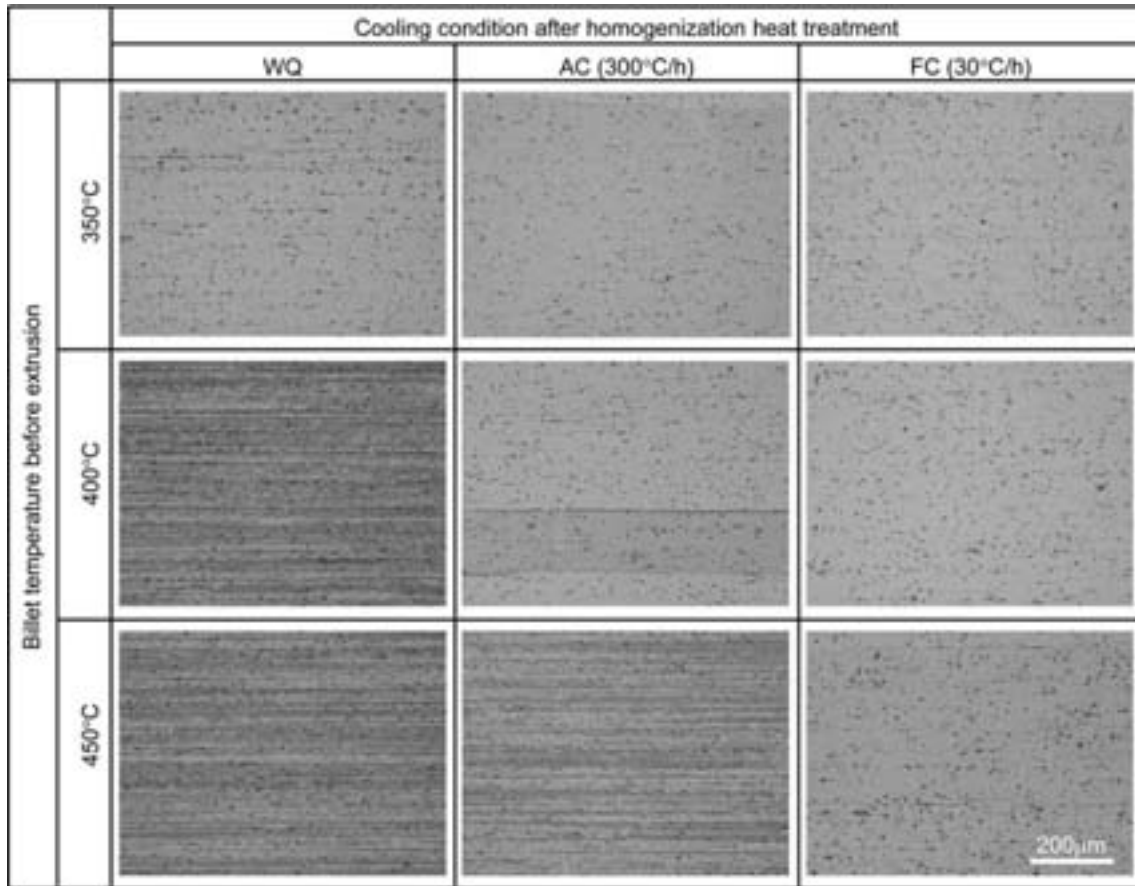


Fig. 4 Influence of cooling rate after homogenization heat treatment and billet temperature before extrusion on the microstructures of 2024-T4 extrusions⁴⁾.

在する。また Fig. 5 に示すように、主要添加元素 (Cu, Mg) を無添加にしたり、遷移元素 (Mn) の添加量を半減すると、繊維状組織の安定性は低下する。このように、繊維状組織の安定性には主要添加元素と遷移元素の両方が影響しており、均質化処理後の冷却速度を大きくすることで Cu, Mg, Mn の固溶量を多くし、Mn 系化合物の析出ノーズに近い温度で押出加工を行うことで、これら元素の析出が促され、繊維状組織は安定化する。これは押出中に粒界上に析出した Cu, Mg 元素が再結晶を抑制するとともに、固溶 Mn の析出も再結晶抑制に働き、これらの効果により押出後に繊維状組織が得られる。そして溶体化処理を行うと、昇温中は粒界上に S 相が凝集しながら Cu, Mg は固溶するが、Mn が再結晶を抑制するため、溶体化処理後においても繊維状組織は維持されると考えられる。

押出材において、繊維状組織を有する材料は再結晶組織の材料に比べ、強度が 10% 以上高くなる。この特性を利用し、高強度 6000 系合金鍛造材を自動車の足回り部品として実用化している。Fig. 6 に示すように、新合金 SG210 は 6061 合金に比べて強度が 30% 以上高く、靱性も高い⁵⁾。これは化学成分の最適化に加え、鋳塊の均質化処理条件、押出加工条件、熱間鍛造条件を最適に

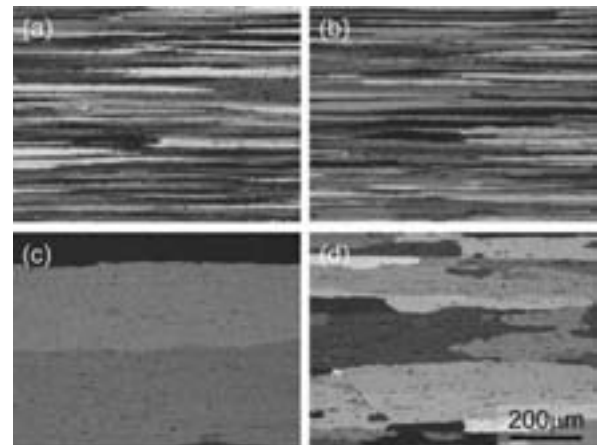


Fig. 5 Effects of the chemical compositions on the stability of the fibrous structure after solution heat treatment,

- (a) Al-4.6mass%Cu-1.6mass%Mg-0.6mass%Mn,
- (b) Al-2.3mass%Cu-0.8mass%Mg-0.6mass%Mn,
- (c) Al-0mass%Cu-0mass%Mg-0.6mass%Mn,
- (d) Al-4.5mass%Cu-1.7mass%Mg-0.3mass%Mn⁴⁾.

組み合わせ、鍛造後の T6 処理でも再結晶することなく繊維状組織を維持することで、高強度高靱性を達成している。

3. 押出材料の結晶方位制御

押出材料において、その集合組織は材料特性に影響を及ぼすことから制御が必要である。Fig. 7 に示すように、0.06mass%Cr を含有する 6061-T6 押出材の粒界腐食試験において、表面から 300 μ m 程度の深さまでは粒界腐食が顕著であるが、それより内部には腐食が進展しにくい^{6,7)}。Fig. 8 に示すように、本材の表面近傍は大角度粒界が多いのに対し、内部は小角粒界の割合が大きい。さらに Fig. 9 に示すように、TEM 組織において前者は PFZ が明瞭に観察されるが、後者は PFZ が明瞭ではない。大角度粒界では人工時効処理中の粒界析出が生じやすく、母相と PFZ 間の電位差によって粒界腐食が進展しやすいが、小角粒界では粒界析出が生じにくいいため、粒界腐食が進展しにくい。そのため、大角度粒界の割合が大きい表面近傍では結果的に粒界腐食が生じやすくなる。6061 合金において、微量の Cr 添加もバンド状の組織形成を促す⁸⁾。そのため押出材内部はバンド状組織形成によって小角粒界の割合が大きくなるが、表面近傍は押出加工中のせん断が大きいいため、再結晶がランダムに生じ、大角度粒界の割合が大きくなる。

ほとんどの 7000 系アルミニウム合金押出材は、Cr ま

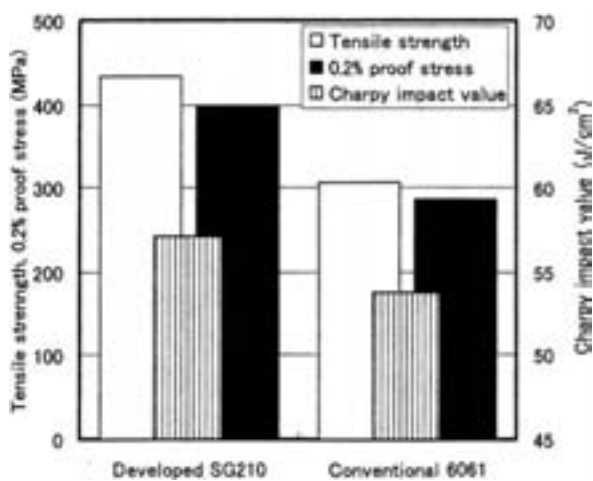


Fig. 6 Mechanical properties of new developed 6xxx forged alloy⁵⁾.

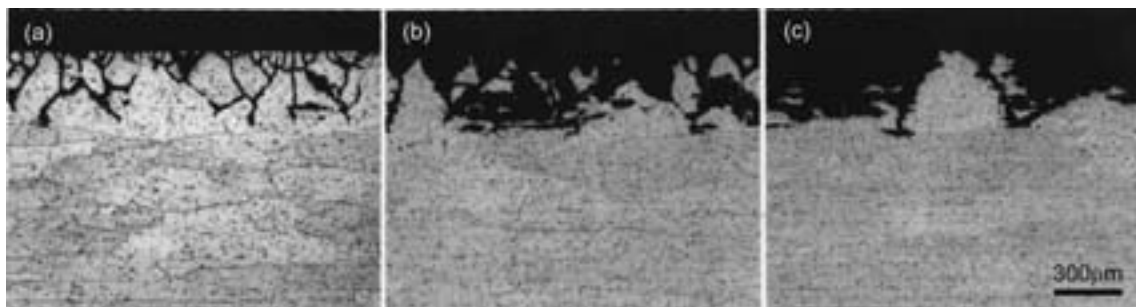


Fig. 7 Influence of immersed time on intergranular corrosion (IGC). Specimens were immersed in a solution for (a) 24h, (b) 96h, (c) 240h⁶⁾.

たは Zr を添加し繊維状組織にすることで、強度、韌性、耐応力腐食割れ性を制御している。しかし、押出材の断面形状によって集合組織が変化すると、その強度も変化する。Fig. 10 に示すように、断面が四角形で、正方形（断面アスペクト比 = 1）の場合、押出方向（ED 軸）に対して $\langle 111 \rangle$ 方位粒の集積が最も強く、押出方向の強度は高くなる⁹⁾。一方、Fig. 11 に集合組織の一例を示すが、長方形で断面アスペクト比が大きくなるほど、押出方向への集積は $\langle 111 \rangle$ 方位から $\langle 211 \rangle$ 方位に徐々に変化して強度は低下し、断面アスペクト比 5 以上では Brass 方位 ($\{011\} \langle 211 \rangle$) が主方位となり、強度は一定になる。これらの強度変化は、テーラー因子と相関がみられる。

4. 材料特性制御

第 2 章で述べたように、Zr は押出材の再結晶抑制を目的として微量添加されるが、物性にも有利に作用する。Fig. 12 は Al-Zn-Mg 合金の焼入れ感受性に及ぼす添加元素の影響を示すが、Cr に比べて Zr の方が焼入れ感受性は低い¹⁰⁾。このことから 7075 合金に代表される初期の 7000 系合金では Cr が添加されていたが、その後開発された 7050 合金などでは Cr の代わりに Zr が添加され、肉厚材の焼入れ時の強度低下を抑制している¹¹⁾。参考として、7150A 合金 (Zr 添加合金) と 7475 合金 (Cr 添加合金) の焼入れ感受性比較を Fig. 13 に示す¹²⁾。なお Fig. 14 に示すように、焼入れ感受性は Zr 添加量に伴って増大するとともに、均質化処理温度によっても影響を受け、再結晶抑制効果が最も大きい 450 $^{\circ}$ C で最も増大する¹¹⁾。これは焼入れ時の冷却速度が遅い場合、 Al_3Zr とマトリックスの界面 (misfit surface) が平衡相の析出サイトになり、焼入れ中に平衡相が析出するために焼入れ感受性が敏感になったためと考えられている。

Al-Zn-Mg 合金は溶接構造材に広く用いられるが、Zr 添加は溶接割れ感受性を低下する。Fig. 15 にフィッシュボーン試験での溶接割れ長さに及ぼす Zr 添加量の影響を示すが、Zr 添加量 0.1~0.2mass% にかけて溶接割れ

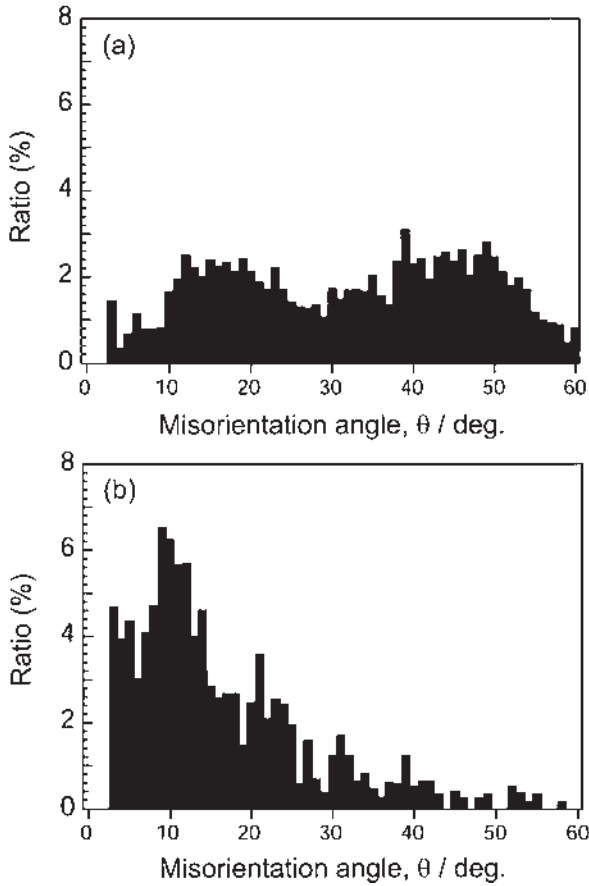


Fig. 8 Grain boundary misorientation angle distributions of 6061-T6 extrusion : (a) surface and (b) center of thickness⁷⁾.

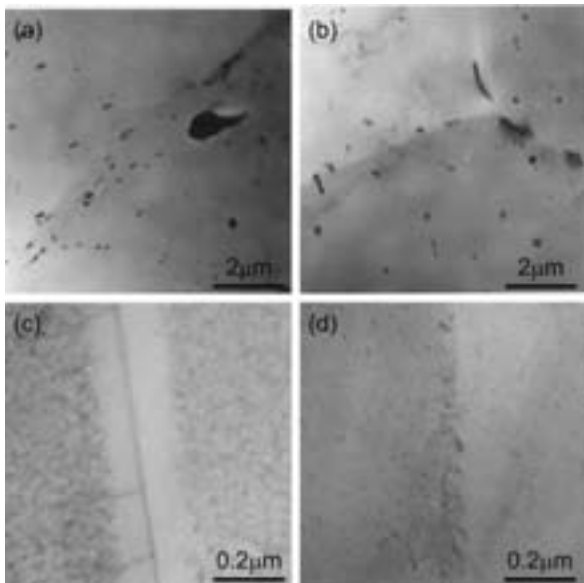


Fig. 9 Microstructures of 6061-T6 extrusion of (a),(c) surface, (b),(d) center of thickness⁶⁾.

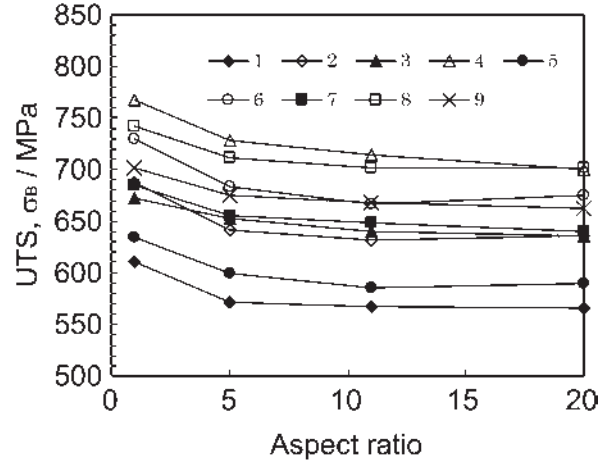


Fig. 10 Influence of aspect ratio of cross section on tensile strength of several 7xxx alloy extrusions in T6 condition⁹⁾.

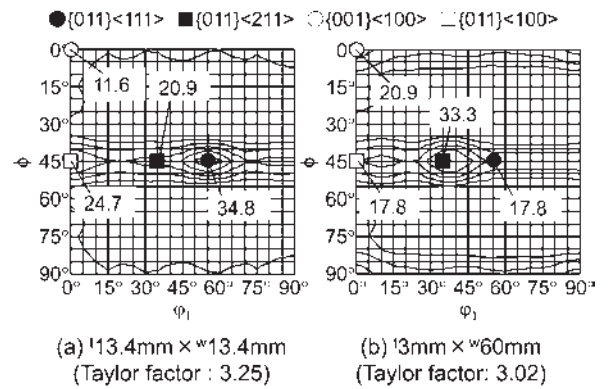


Fig. 11 ODFs of Al-6.0Zn-1.5Mg-1.5Cu-0.15Zr(mass%) alloy extrusions in T6 condition. ($\phi_2 = 0^\circ$)⁹⁾.

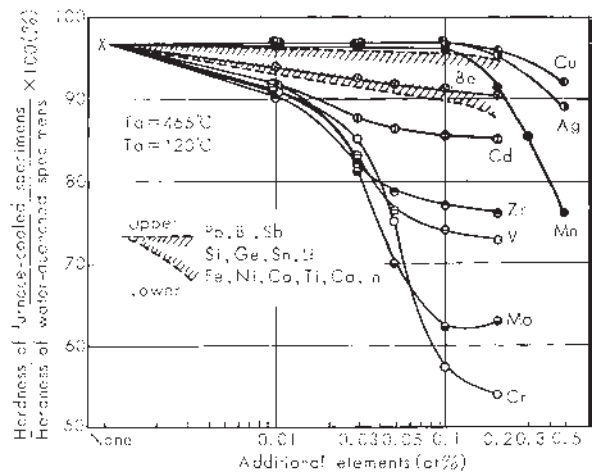


Fig. 12 Influence of additional elements on the quench sensitivity of Al-2.5Zn-2Mg (at%) alloys. Specimens were aged at 120°C to the maximum hardness after water quenching or furnace cooling (15°C/min)¹⁰⁾.

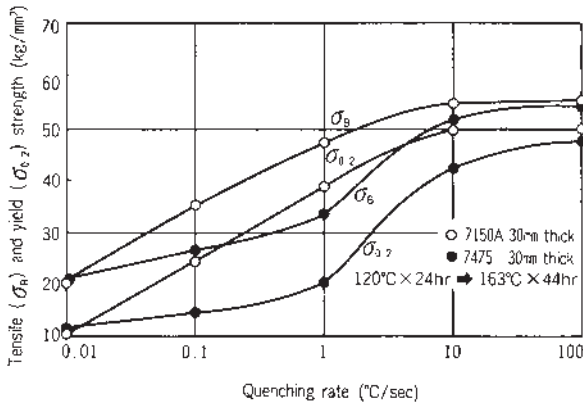


Fig. 13 Comparison of quench sensitivity between 7150A (Zr added alloy) and 7475 (Cr added alloy) alloys¹²⁾.

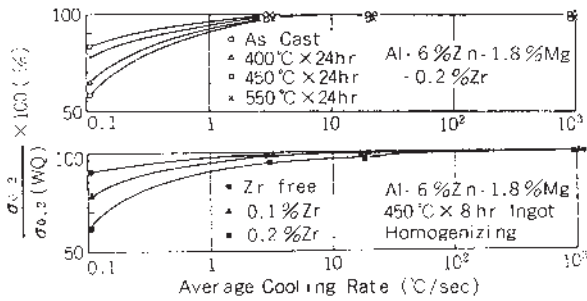


Fig. 14 Effects of ingot homogenization and Zr content on quench sensitivity of Al-6Zn-1.8Mg (mass%) alloy in T6 condition¹¹⁾.

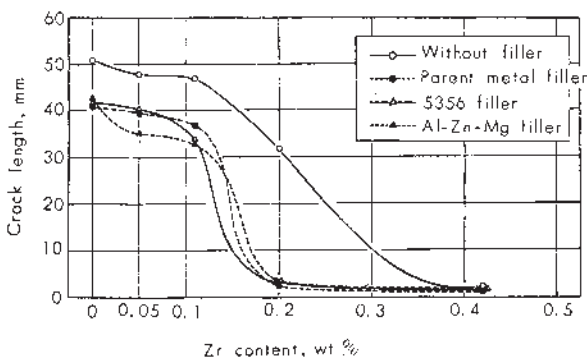


Fig. 15 Effect of Zr addition on weld-cracks of Al-4.5Zn-1.5Mg (mass%) alloys. (Fish-Bone cracking test)¹³⁾.

は大幅に改善される¹³⁾。

また、Al-Zn-Mg 合金は応力腐食割れ感受性を有するが、微量添加元素によってその感受性は変化する。Fig. 16 に応力腐食割れ感受性に及ぼす微量添加元素の影響を示す¹⁴⁾。遷移元素によって感受性は低下するが、微量の Cu 添加によっても低下する。このことから、Al-Zn-Mg 合金では 0.1~0.2mass% 程度の微量 Cu を添加することが多い。

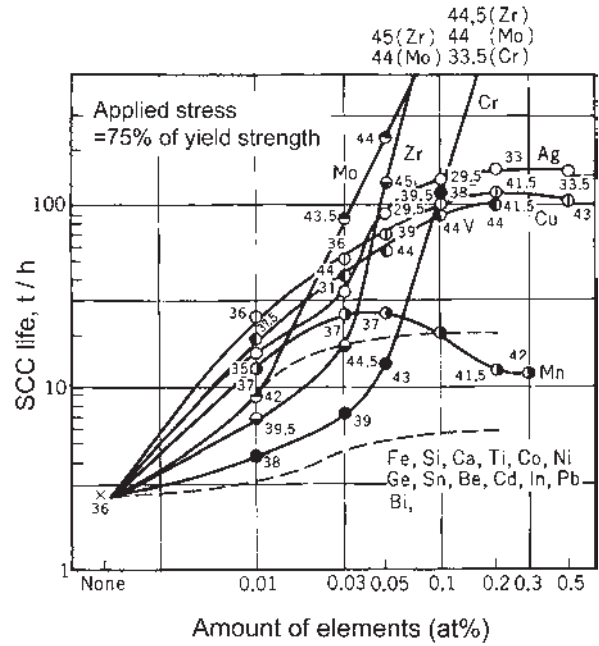


Fig. 16 Influence of trace elements on stress corrosion cracking property of Al-6Zn-1.8Mg (mass%) alloy. The values in this figure show 0.2% yield strength (x9.8 MPa)¹⁴⁾.

上述のような微量元素は、組織制御や物性制御に重要な働きを持つため、意図的に添加しているが、Fe や Si などは不純物元素として含有されており、含有量によって材料特性に影響を及ぼす。Fig. 17 に 7475 系合金の破壊亀裂進展速度に及ぼす不純物元素レベルと質別の影響を示すが、Fe、Si が少ない場合、亀裂進展は遅くなる¹²⁾。一方、7150 系合金における同様のデータを Fig. 18 に示すが、7150 系合金では不純物による影響が小さく、さらに 7475 系合金よりも亀裂進展速度が大きい。一般に不純物元素が多いほど靱性が低下すると考えられているが、微量添加されている Zr と Cr の違いによっても靱性が大きく変化する。Zr 系化合物は準安定相でマトリックスと整合性を有しやすいが、Cr 系化合物は安定相として析出するため、整合性を有していない。そのため、これら化合物周囲への Zn や Mg の析出挙動に違いがあり、靱性に影響していると考えられる。

Al-Mn 系合金は自動車用配管材などで多く使用されているが、複写機のヒートローラなどの用途でも使用される。この場合には 200°C 程度まで加熱されることから、クリープ特性が要求特性の一つになる。Fig. 19 に 3003 合金押出材のクリープ特性に及ぼすマイクロ組織と固溶元素量の影響を示す¹⁵⁾。再結晶組織よりも繊維状組織の方がクリープ強度が高いが、これはサブグレイン組織を有するためと考えられる。また、Mn 固溶量が多い方がクリープ強度が高いが、溶質原子による転位のひきずり抵抗が高いためと考えられる。従って、繊維状組織を有し、固溶元素量が多い材料はクリープ特性に優れる。さ

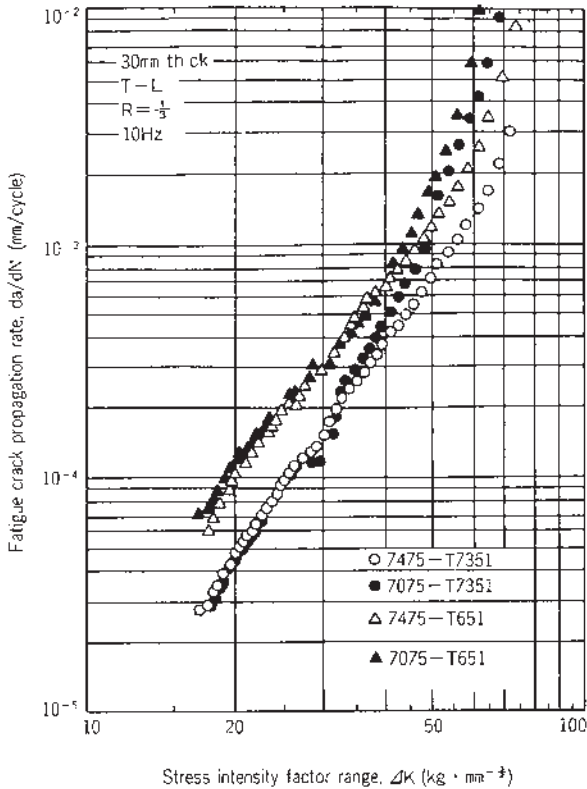


Fig. 17 Effects of impurity levels and temper conditions on fatigue crack propagation rates of 7475 alloys. The impurity levels were 7075 : 0.06Si-0.18Fe and 7475 : 0.04Si-0.04Fe (mass%)¹²⁾.

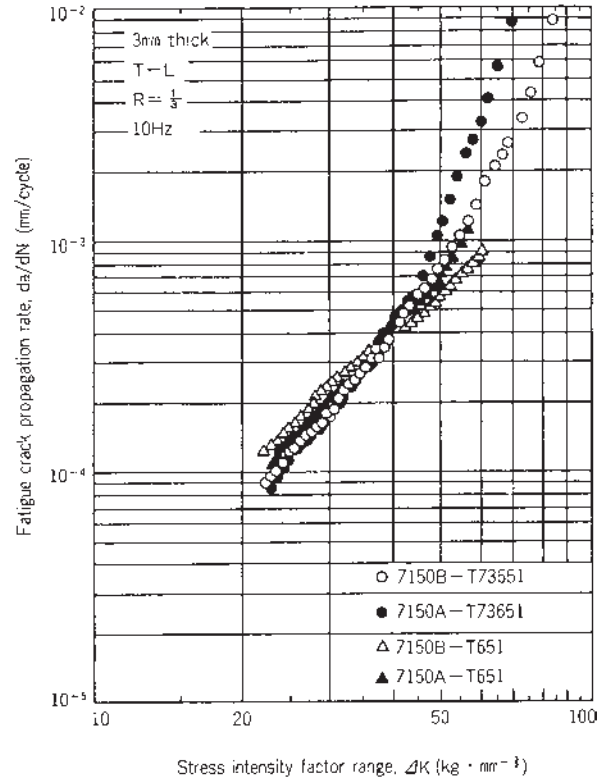


Fig. 18 Effects of impurity levels and temper conditions on fatigue crack propagation rates of 7150 alloys. The impurity levels were 7150A : 0.07Si-0.13Fe and 7150B : 0.05Si-0.05Fe (mass%)¹²⁾.

らに、3003合金にCuやMgなどの元素を添加することでクリープ強度は向上する¹⁶⁾。

5. 押出材料の表面欠陥制御

押出材の表面欠陥の一つにピックアップ欠陥があり、これはムシレ状の欠陥であることから、ステレオパネルのような装飾性が必要とされる製品では抑制が必要である。Fig. 20に示すように、6063合金押出材のピックアップ欠陥には、ビレットのAlFeSi晶出物の形態が大きく影響を及ぼす¹⁷⁾。 casting時にβ-AlFeSi (Al₅FeSi)が晶出するが、均質化処理による相変態でα-AlFeSi (Al₈Fe₂SiまたはAl₁₂Fe₃Si₂)化率が高くなるほど、ピックアップ欠陥は減少する。α化率が低い場合には、Fig. 21に示すように570℃を超えると、晶出物周囲で局部溶解が発生する。ピックアップ欠陥の発生機構をFig. 22に示すが、晶出物として生成するβ-AlFeSiとMg₂Si化合物が共存すると、押出加工発熱によって576℃を超えた際、包晶反応によって液相が生成し、結晶粒が脱落することでピックアップ欠陥が発生する。ビレットの均質化処理によってβ-AlFeSiをα化させると包晶反応が起こらず、結晶粒の脱落が生じないため、ピックアップ欠陥は抑制できる。また、β-AlFeSiが存在しても、Mg₂Siがその周囲に存在しないとピックアップ

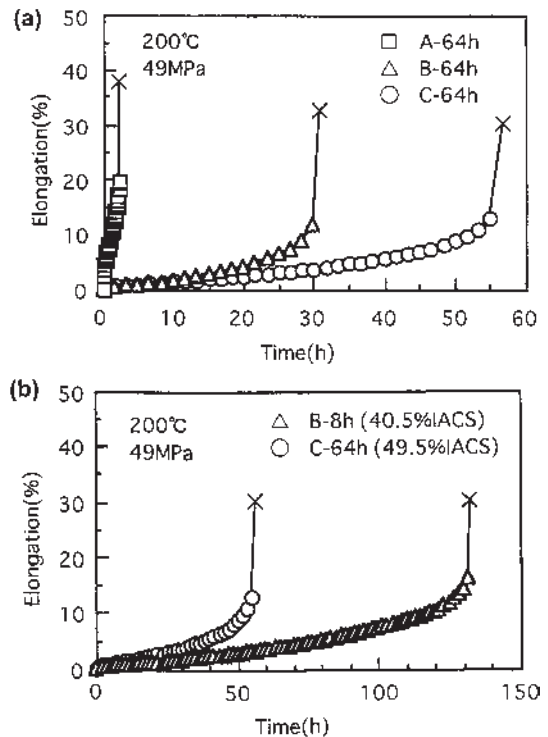


Fig. 19 Creep curves of 3003 alloy extrusions. Sample A had recrystallized structure and samples B and C had fibrous structure¹⁵⁾.

欠陥は発生しない。

また、6063 合金押出材の表面品質には、Fe 量も影響する。Fig. 23 に示すように、Fe 量が実用的な範囲である 0.1mass%~0.3mass% では、Fe 量の増加につれて均質化処理後の α -AlFeSi 比が高くなり、ピックアップ欠陥は減少する¹⁸⁾。これは Fe 量が多くなると Fe/Si 比が大きくなり、組成比が α -AlFeSi に近づくため α 化しやすくなるためと考えられる。一方、Fig. 24 に示すように、全体的な表面粗さを示す R_a は Fe 量が多いほど大きくなる。Fe 量が多くなると、変形抵抗が増大することでダイスとの摩擦が大きくなることや、AlFeSi 化合物がダイスのベアリング面を荒らすことによりダイスラインが強くなり、 R_a が大きくなったと考えられる。このように、Fe 量が増加すると表面粗さは大きくなるため、表面品質に対する Fe 量の制御は重要である。

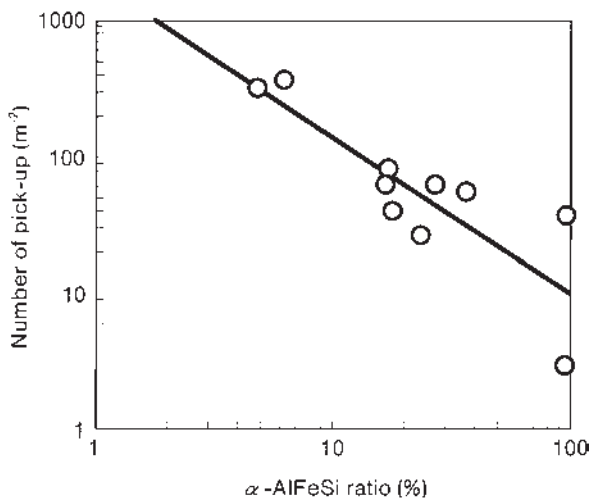


Fig. 20 Relationship between the number of pick-up defects and the α -AlFeSi ratio¹⁷⁾.

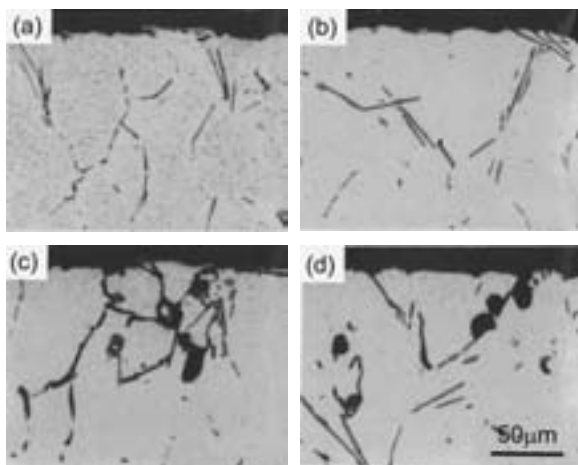


Fig. 21 Traces of peritectic melting of Al, Mg_2Si and AlFeSi in segregation zones of a low α ratio billet. Samples were heat treated for 10 minutes at (a) before heat treatment, (b) 570°C, (c) 580°C, (d) 590°C¹⁷⁾.

7000 系などの高力合金では、溶体化処理時に Fig. 25 に示すようなふくれが生じることがある。このふくれは、材料中の水素が溶体化処理時に表面近傍の欠陥に集まって発生するものと考えられており、欠陥としては Ti や Zr 系の粗大な化合物も検出されている。さらにふくれは、雰囲気中の水蒸気が高温のアルミニウムと反応して水素が内部に侵入して生じる、「高温酸化」によっても生じる。高温酸化の防止には、ホウフッ化アンモニウムなどを用いて、雰囲気を制御することが有効である^{19,20)}。

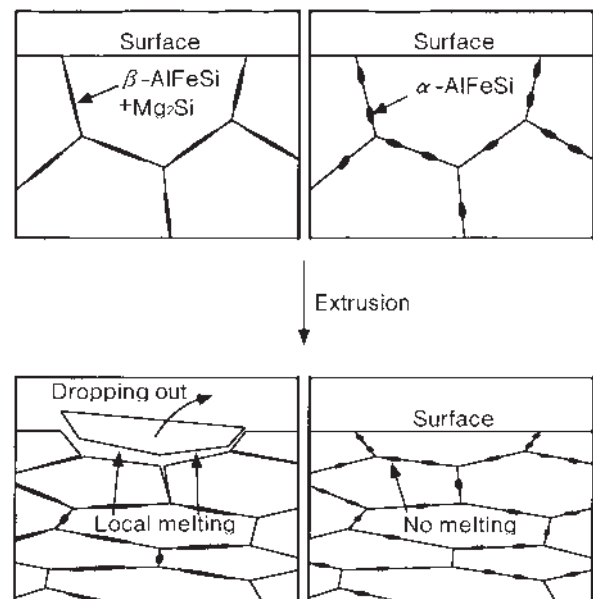


Fig. 22 Schematic model of pick-up formation. The left figures are the case of low α ratio billet and the right figures are of high α ratio billet¹⁷⁾.

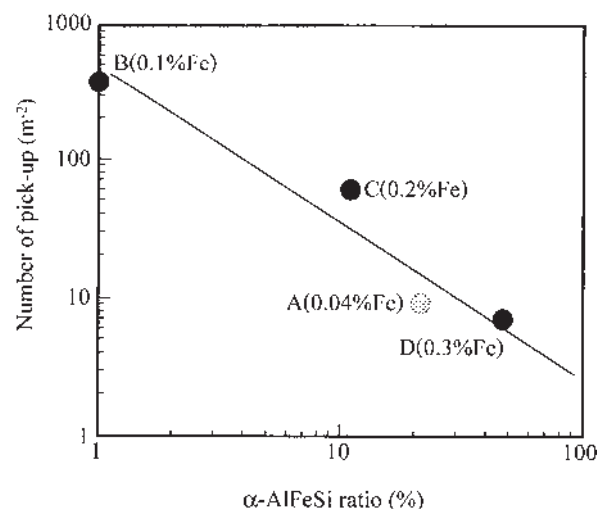


Fig. 23 Influence of iron content on pick-up formation of 6063 alloy extrusions¹⁸⁾.

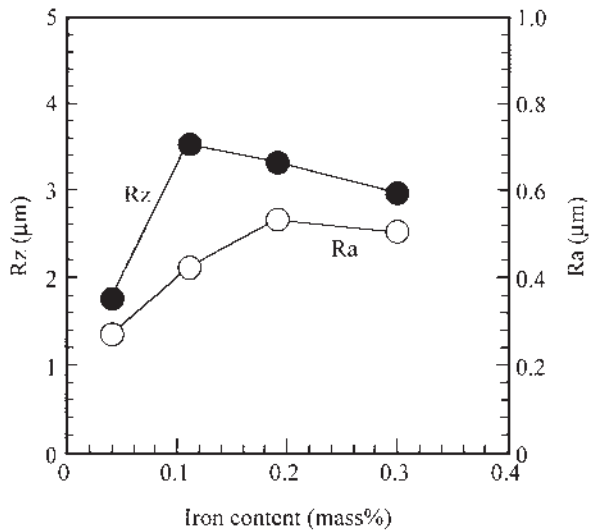


Fig. 24 Influence of iron content on roughness of the extruded surfaces of 6063 alloy extrusions¹⁸⁾.

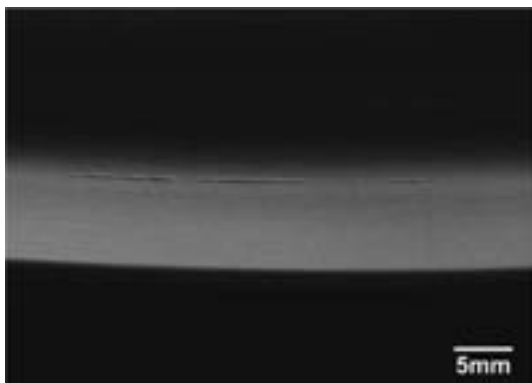


Fig. 25 Appearance of blister occurred on an Al-Zn-Mg extrusion after solution heat treatment.

6. 押出加工性の制御

アルミニウム合金の押出加工性は合金によって大きく異なる。純アルミは押出性に優れるが、7000系四元合金は固相線温度が低く、材料温度が固相線を超えると熱間割れを生じるため、比較的低温で押出を行う方が良いが、CuやMgの添加量が多いために熱間変形抵抗が高く、低温での押出には高いプレス圧力が必要となる。そこで鋳塊の均質化処理において、Fig. 26に示すように鋳塊中の溶質原子を最適なサイズおよび分布で析出させ、押出時の変形抵抗を抑え、従来プロセスに比べて生産性を2倍以上に高めたプロセスを開発、実用化している^{21, 22)}。

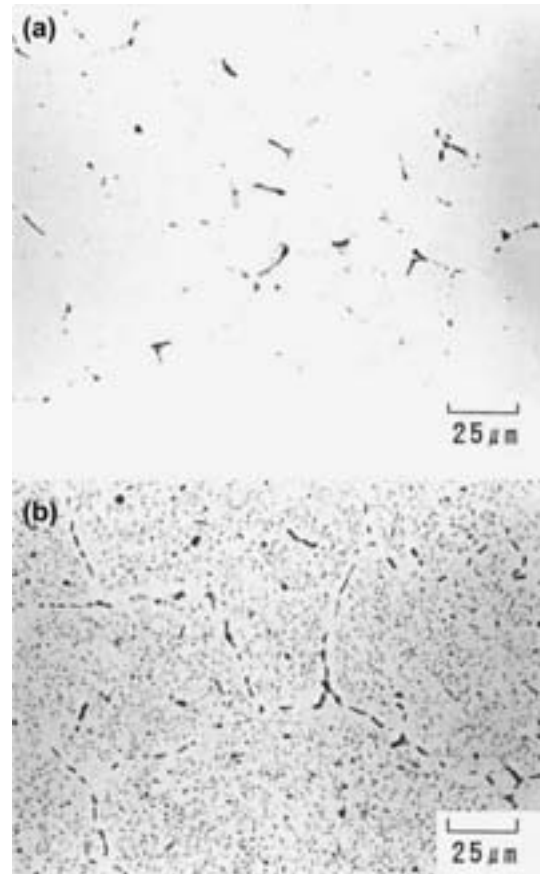


Fig. 26 Microstructures of Al-Zn-Mg-Cu alloy billets after homogenization heat treatment, (a) conventional and (b) developed process^{21, 22)}.

7. 結 言

住友軽金属では材料開発から組織制御、材料特性制御、生産性の向上など多岐にわたる研究開発とその実用化を進めてきた。近年、中国を筆頭としたアジア圏でのアルミニウム押出材の生産が伸びてきており、国内の押出メーカーではその差別化が生き残るための必須要件といえよう。今後も海外を含めた押出メーカーの追随を許さない研究開発と実用化により、お客様に満足してご使用いただけるアルミニウム押出材を製造する所存である。

参 考 文 献

- 1) 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属, 47 (1997), 691-695.
- 2) 馬場義雄, 吉田英雄: 住友軽金属技報, 18 (1977), 68-78.
- 3) 馬場義雄, 高島 章: 住友軽金属技報, 15 (1974), 287-298.
- 4) 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属, 60 (2010), 451-457.
- 5) 松田 眞一: 住友軽金属技報, 50 (2009), 56-59.
- 6) 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属, 49 (1999), 548-552.
- 7) T. Minoda and H. Yoshida: Met. Mat. Trans. A, 33A (2002), 2891-2898.
- 8) 加藤勝也, 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属学会第114回春期大会講演概要, (2008), 119-120.
- 9) 新里喜文, 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属, 63 (2013), 218-

- 222.
- 10) 馬場義雄：住友軽金属技報, **9** (1968), 24-31.
- 11) 吉田英雄, 馬場義雄：住友軽金属技報, **22** (1981), 42-52.
- 12) 吉田英雄, 宇野照生, 馬場義雄：住友軽金属技報, **25** (1984), 221-237.
- 13) 杉山禎彦, 福井利安：住友軽金属技報, **8** (1967), 106-114.
- 14) 馬場義雄：Trans. Japan. Inst. Metals., **11** (1970), 404-410.
- 15) 八太秀周, 松田眞一, 吉田英雄：住友軽金属技報, **43** (2002), 24-28.
- 16) 八太秀周, 松田眞一, 吉田英雄：軽金属学会第 98 回春期大会講演概要, (2000), 235-236.
- 17) 箕田 正, 早川秀哉, 吉田英雄：軽金属, **49** (1999), 253-257.
- 18) 箕田 正, 早川秀哉, 吉田英雄：軽金属, **50** (2000), 491-494.
- 19) 土田 信, 吉田英雄, 平野清一：軽金属技報, **31** (1990), 126-143.
- 20) 内田秀俊, 吉田英雄：軽金属技報, **38** (1997), 177-190.
- 21) 吉田英雄, 毛利英一, 平野清一, 箕田 正, 日比野壮美, 岡島賢三, 伊藤日出国, 塚本鎮正：軽金属, **46** (1996), 89-96.
- 22) 松田眞一, 吉田英雄：住友軽金属技報, **39** (1998), 116-121.

急冷凝固アルミニウム粉末冶金合金の組織制御

大久保 喜 正*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 143-151

Microstructural Control in Rapid Solidification and Powder Metallurgy Alloys

Yoshimasa Ohkubo

Rapid solidification and powder metallurgical (P/M) processing including spray forming provides much finer and homogeneous microstructure in comparison to ingot metallurgy. The P/M processing is capable of creating new aluminium alloys and discontinuous reinforced aluminium matrix composites that have better mechanical properties and physical properties at room temperature and elevated temperature. We studied the P/M alloys and the manufacturing process for about 15 years. In that time, some new wear-resistant and heat-resistant alloys were developed and used in a variety of applications, e.g. VTR cylinders, compressor vanes and engine pistons. This paper describes the microstructures of the P/M alloys that we had studied and developed.

1. 緒 言

アルミニウム合金は、軽量で強度が高く、耐食性も良いことから建材、輸送機器、飲料缶、台所用品、装飾品等のさまざまな分野で使用されている。更に、省エネルギーや構造材の軽量化ニーズの中でアルミニウム合金の特性向上に対する要求は常に存在し、特性改善のために合金設計、製造プロセス制御、表面処理などがされ続けている。急冷凝固技術を利用した粉末冶金法 (Powder Metallurgy 法) の利用もそのひとつである。粉末冶金法 (以下、急冷凝固の意も含めて P/M 法とする) とは、アルミニウム合金溶湯を微細な液滴に噴霧化するとともに噴霧ガスで急速に冷却、凝固させ、得られたアルミニウム合金粉末をホットプレスや押出などにより固化し、アルミニウム合金のバルクを製造する方法である。

P/M法を利用すると、通常のアルミニウム合金の製造法、すなわち溶製法 (Ingot Metallurgy 法: I/M法) では得ることのできない化学組成や微細な組織を持つ合金を製造することができ、その結果、優れた特性を得られる可能性がある。そのため、自動車や航空機分野他へのアルミニウム合金の新たな用途を期待して 1980 年代~90 年代に国内外で合金開発およびその実用化研究が積極的に行われた。当社も、1983 年より国内アルミ

* 研究開発センター 加工品開発部 次席研究員

メーカー 9 社により開始した通産省産業活性化技術研究開発補助金制度を利用した「アルミニウム粉末冶金技術の研究開発¹⁾」の中心会社として活動し、また、自社開発した新合金の事業化を図ってきた。P/M 法および P/M 合金については数多くの報告^{1~6)}があるので参考にされたい。本報では、組織制御の観点から過去に当社で研究された急冷凝固技術および開発合金について紹介する。

2. 急冷凝固粉末冶金技術

急冷凝固粉末冶金技術は、急冷凝固粉末を製造する技術および粉末を固化する粉末冶金技術からなる。合金組織は両方の工程に影響を受けるので、以下、それぞれについて説明する。

2.1 急冷凝固技術

アルミニウム合金溶湯を凝固させるとき、冷却速度を高めるほど次の作用がもたらされる。

- ① 溶質元素の固溶限拡大
- ② 結晶粒や晶出物の微細化
- ③ 偏析の抑制

従って、急冷凝固することにより添加できる溶質元素の種類や量を増大でき、合金設計の自由度を高めることができる。

しかしながら、通常の鋳造では工業的に 10^2 °C/s 以上の冷却速度を得ることは容易でなく、急冷させるために様々な方法が開発されている。ガスアトマイズ法は最もよく利用される方法で、 10^3 °C/s 以上の冷却速度が得られる。ガスアトマイズ装置の模式図を Fig. 1 に示す。ろつば底部のノズルから溶湯流を流出させ、これにガス流を適当な角度で衝突させると、溶湯は微細な液滴に飛散し、直ちにガスによって急冷凝固するものである。ガスには、コスト面から空気が一般的であるが、窒素、あるいは不活性ガスも用いられる。粉末の SEM 像を Fig. 2 に示す。不活性ガス（ヘリウムガス、窒素ガス、アルゴンガス）アトマイズ粉は球形であるが、エアアトマイズ粉は液滴表面で酸化するため異形状となる。高い冷却速度を得るためには、すなわち、微細な組織を得るためには、篩により微粉末を分級採取すること、ガス圧を高くしたり、特殊アトマイズノズルを利用したりして微粉末を製造すること、抜熱能の高いヘリウムガスを利用することなどがある⁷⁾。当社の実験用粉末製造装置には Grant の考案したハルトマンのショックウェーブの原理を利用した超音波アトマイズノズル⁸⁾(Fig. 1 (c)) を装着していた。粉末の断面組織を同じ化学成分の I/M 鋳塊と対比した例を Fig. 3 に示す。Fig. 3 (a) は A2024, Fig. 3 (b) は Al-33mass%Cu 共晶合金, Fig. 3 (c) は Al-17Si-6Fe 系でそれぞれ粉末内の DAS (デンドライトアームスペーシング), 共晶間隔および針状の AlSiFe 金属間化合物サイズが鋳塊と比較して小さいことが明瞭である。2024 粉末の DAS は約 $3 \sim 4 \mu\text{m}$ で

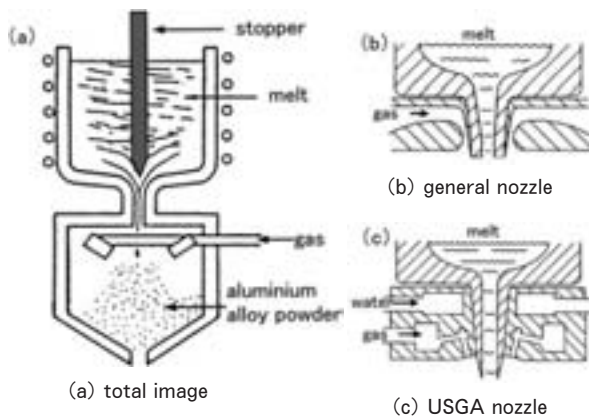


Fig. 1 Schematic of air atomization process.

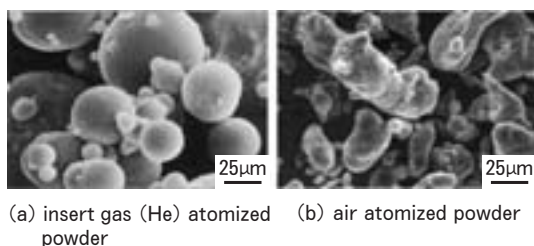


Fig. 2 Scanning electron micrographs of powder.

あり (Fig. 3 (b)), DAS と冷却速度の代表的な関係式⁹⁾

$$d = 41 \cdot C^{-0.32} \quad (1)$$

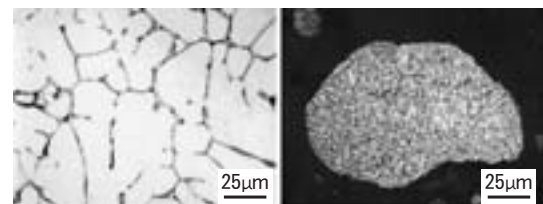
d : DAS (μm)

C : 冷却速度 (K/s)

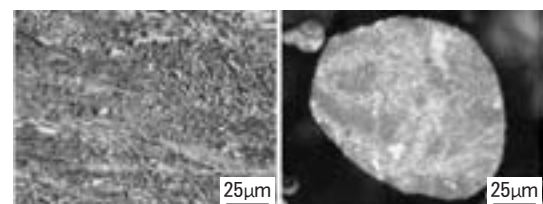
に従えば、この冷却速度は $1.4 \times 10^3 \sim 3 \times 10^3$ °C/s 程度と算出できる。

ガスアトマイズ法より冷却速度を大きくするために開発された方法に噴霧ロール法¹⁰⁾がある。当社は、本法の工業規模の生産を実証するパイロットプラントを有していた¹⁾。この装置模式図を Fig. 4 に示す。ガスアトマイズして飛散した液滴を凝固前に回転する金属ドラムに衝突させて、急冷凝固させるもので、冷却速度は $10^4 \sim 10^7$ °C/s とされていた。得られる凝固体は、Fig. 5 に示すように数 mm~数十 mm の薄いフレーク状で、このマイクロ組織を Fig. 6 に示す。ガスアトマイズ粉末よりも微細組織となるが、フレーク状では固化のための取り扱いが悪いため細断、更にボールミルやロッドミルなどで粉砕して粉末化する必要がある。溶湯を金属に衝突させて急冷凝固させる方法は、他に単ロール法やピストンアンビル法など幾つもあるが説明は省略する。

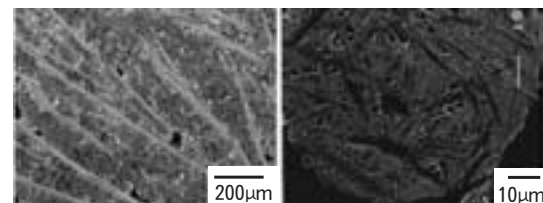
急冷凝固ではないが、I/M 法では得ることのできない微細組織や化学組成を持つ粉末を製造する技術としてメカニカルアロイング法¹¹⁾がある。この装置と合金化



(a) A2024 alloy



(b) Al-33mass%Cu eutectic alloy



(c) Al-17Si-6Fe-4.5Cu-0.5Mg alloy

Fig. 3 Comparison of microstructures between ingot (left) and rapidly solidified powder (right) on the same composition.

の模式図を Fig. 7 に示す。数種の原料粉末とプロセス制御剤（ステアリン酸などを焼付防止剤として使用、また、これが酸化物や炭化物の供給源にもなる）を乾式高エネルギーボールミル（アトライター）の中で、混合・合体・粉碎を繰り返し、粉末の合金化を図ったり、粉末中に酸化物や炭化物を分散させる方法である。Fig. 8 に、原料粉として純 Al 粉末、純 Mg 粉末、AlLi 化合物粉末を、Al-4Mg-1.5Li 合金になるように配合し、これにステアリン酸を添加し、メカニカルアロイングされる過程を示す。アトライターで長時間処理するにつれ原料粉末同士が混ざり合って均一化していく様子が分かる。

2.2 粉末冶金技術

粉末を材料として使用するには、粉末を固化してバルクにしなければならない。そのための技術を粉末冶金技術と呼ぶ。セラミック粉末、鉄粉や高融点金属粉末などの場合、通常、圧粉体を成形し、これを長時間高温保持して原子の拡散を利用した焼結を行うが、急凝固アル

ミニウム粉末の場合、表面に焼結を阻害する酸化被膜が存在するために、更に、せっかく得た微細組織を高温に曝して粗大化させたくないために、できるだけ高温にすることなく粉末にせん断力のかかる塑性加工を加えて粉末表面の酸化被膜を破壊させながら 100% 密度に固化する特有の P/M 法を取る。通常の P/M 法を Fig. 9 に示す。アルミニウム粉末表面には酸化被膜に結合する結晶水および吸着水分が存在するので¹²⁾、粉末をこのまま

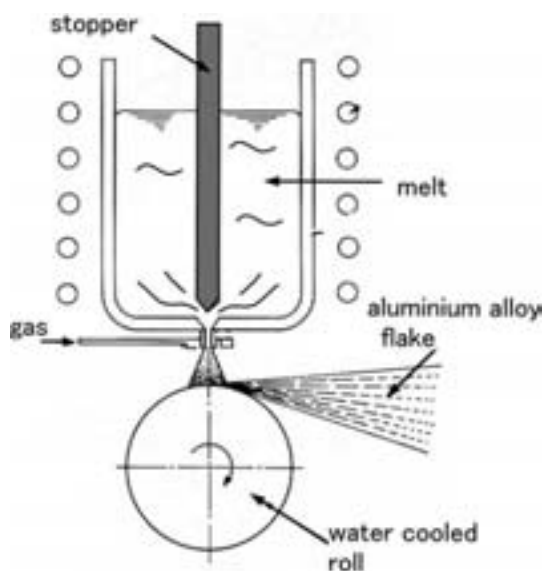


Fig. 4 Schematic of atomization-rolling process.



Fig. 5 Appearance of flake.

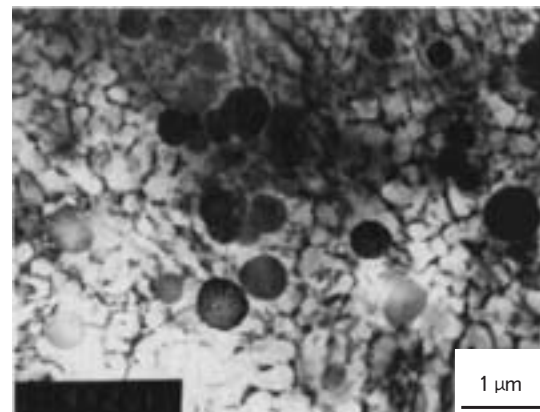


Fig. 6 TEM micrograph of Al-8Fe-2V-2Mo-1Zr alloy flake.

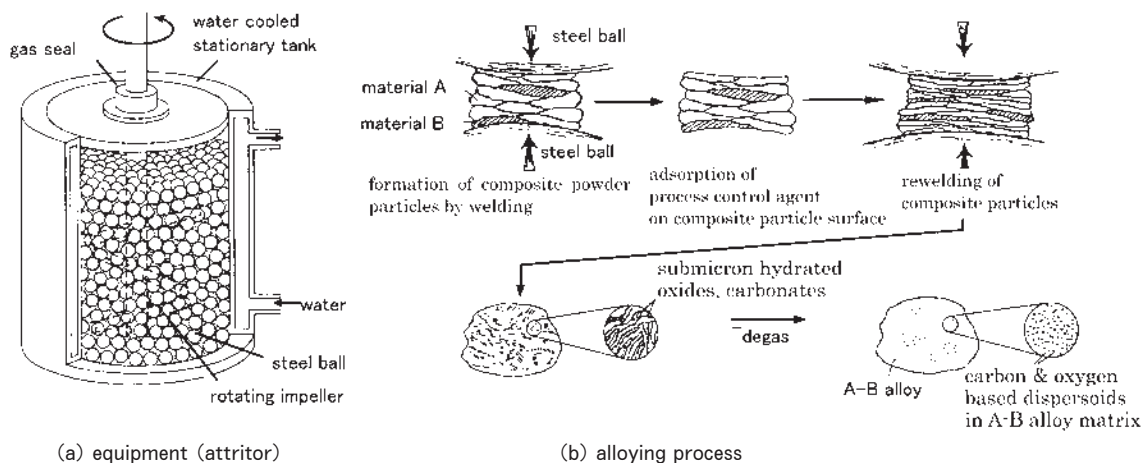


Fig. 7 Schematic of mechanical alloying.

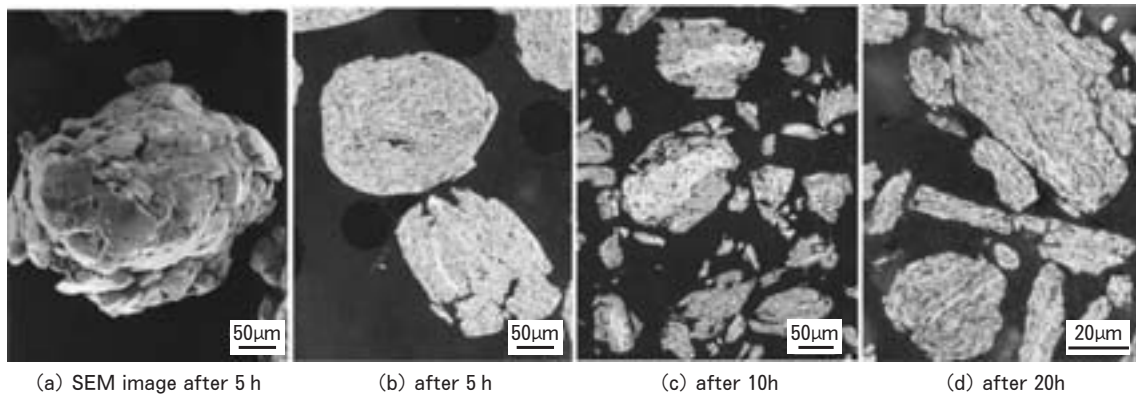


Fig. 8 Microstructures of mechanically alloyed Al-4Mg-1.5Li alloy powder.

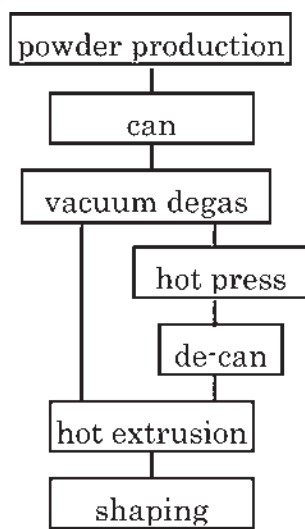


Fig. 9 General P/M process.

固化すると、 300°C を超えたときに水分が水蒸気となり、更にこれがアルミニウムと反応して水素ガスを発生させて材料内にブリストアを発生させてしまう。従って、固化の最初の工程で水分を除去する脱ガスを行わなければならない。水分は粉末を加熱・保持すれば解離するが、効果的に行うには粉末を缶に入れ $400\sim 500^{\circ}\text{C}$ に加熱しながら缶に接続した管から内部を真空引きし、水分とともに粉末間の空気も除去するのがよい。ここで、加熱保持は水分除去のために必要であるが、一方で高温になるにつれ、また、長時間になるにつれ組織の粗大化と強度低下を引き起こすので注意が必要である。真空引きした後は水分の再吸着と空気の侵入を防ぐため管を圧着し、缶内部を真空に保持する。その後、緻密化させるために $400\sim 450^{\circ}\text{C}$ の熱間押出がよく用いられる。酸化被膜を破壊、分散させ良好な性質を得るには、合金によって異なるが押出比は5~10程度必要である^{12,13)}。押出材が丸棒あるいは角棒であれば脱ガスの缶ごと押出することができるが(缶材は押出材の外皮にのみ存在するので外削により除去が可能)、異形状の押出や多孔ダイスでの押出では押出材の内部に缶材が入り込まないように押出

前にホットプレスして粉末を緻密化した後、缶材を削除しておく必要がある。長尺の押出材のまま製品となるものは少ないので、更に、切削や鍛造等で形状付与し、必要に応じT6処理等の熱処理を経て製品とする。

このように通常のP/M法は多工程を要し、その工程ごとに工数の発生と材料歩留りを低下させるため、粉末製造コストに加え、固化工程で一層コスト高になる欠点があった。そのため合理化した方法も開発されている。これらをFig. 10に示す。Fig. 10(a)は粉末鍛造法¹⁴⁾でCIP(Cold Isostatic Pressing)あるいは冷間金型圧縮で予備成形した製品1個分の相対密度70~80%の圧粉体を大気中あるいは雰囲気中で加熱し、そのまま鍛造して製品を得るものである。Fig. 10(b)は放電プラズマ焼結法¹⁵⁾(Spark Plasma Sintering: SPS法)で、粉末を焼結型に充填し、一軸加圧下で大電流のON-OFF直流パルス通電を焼結型および粉末に直接印加しながら相対密度98~100%の圧粉体を成形する方法である。通電初期には火花放電が粉末表面の浄化・活性化効果を与え、中・後期にはジュール加熱と電磁エネルギーによる熱拡散と電磁拡散効果が緻密化の進行を促進されると言われている。更に、焼結チャンバ内を不活性雰囲気にも減圧することもでき十分な脱ガス効果も兼ね備えている。焼結体はこの後鍛造により形状付与される。粉末鍛造法もSPS法も工程短縮と歩留り向上によりコストを抑えることが可能とされ、更に、工程中に受ける加熱の積算時間が短くなるため急冷凝固組織を保持することができ、高強度材を得られる効果もある。Fig. 10(c)はスプレイフォーミング法(Spray Forming: SF法)である。工業的生産技術を英国Osprey社(現在Sandvik Osprey社)が開発¹⁶⁾したためオスプレイ法とも呼ばれる。これは、ガスアトマイズされた液滴を半凝固状態でコレクター上に堆積させて直接急冷凝固バルクを得る方法である。当社はOsprey社より技術導入し、1992年に実験を兼ねた生産装置を設置した。この装置の概要をFig. 11に示す。窒素ガスでアトマイズされた液滴を完全に凝固する前に回転するコレクター上に堆積

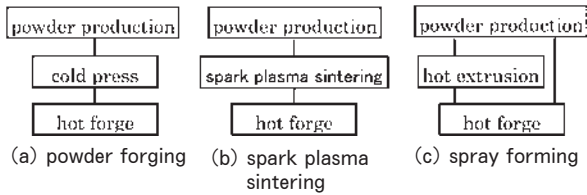


Fig. 10 Simplified P/M processes.

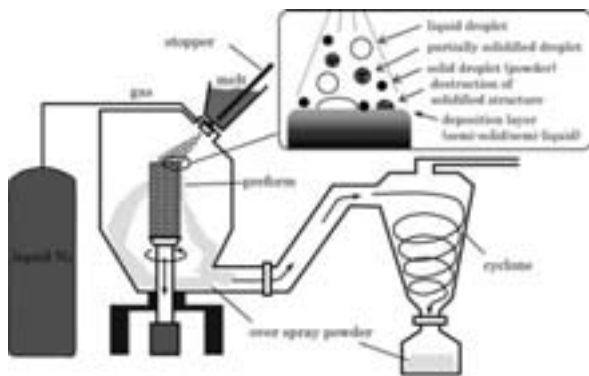
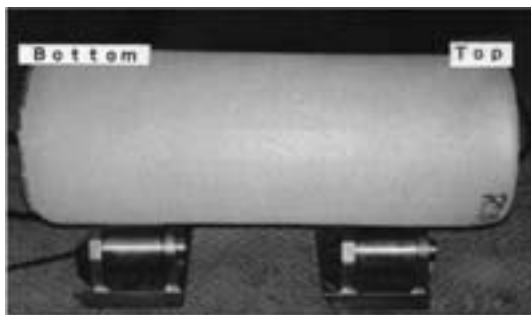
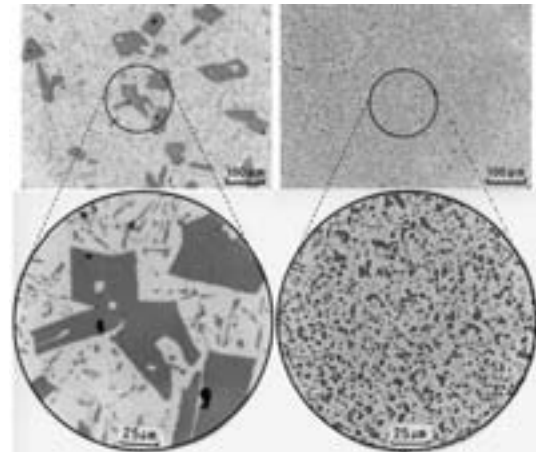


Fig. 11 Schematic of Spray forming (Osprey process).

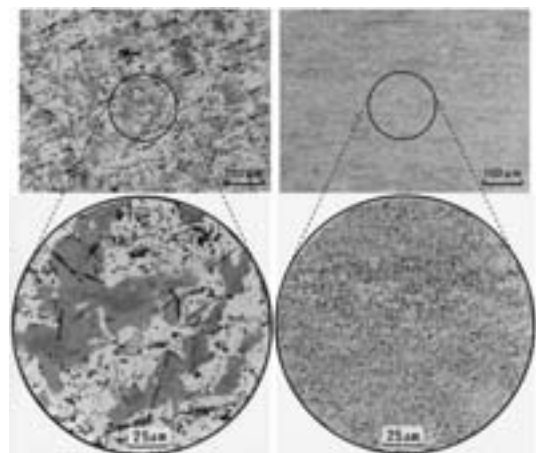
Fig. 12 Appearance of spray formed preform ($\phi 350 \times 1000\text{mm}$, 260kg).

させながら、堆積分だけコレクターを引下げ、相対密度が95%~99%以上の $\phi 20$ インチ径までの円柱形プリフォームを作製するものである。プリフォームの外観をFig. 12に示す。プリフォームはその後、押出あるいは鍛造に供される。なお、アトマイズされた液滴は全て堆積するのではなく、30~40%は副産物の粉末として回収される。

各種製法による合金のマイクロ組織例をFig. 13, 14に示す。Fig. 13はAl-20Si系合金およびAl-8Fe系合金をI/M法（押出困難な組成であるため铸造のまま）とP/M法（通常法、押出後）で製造したときの組織比較で、P/M法において分散する化合物が著しく微細である。Fig. 14はAl-20Si系合金をPM法（Fig. 14 (a)）、SF法（Fig. 14 (b)）、およびSPS法（Fig. 14 (c)）で製造したときのマイクロ組織である。SF法ではP/M法と比較してSi粒径はやや大きい。SF法では液滴を半溶融状態で堆積させるため、凝固組織はP/M法より大き



(a) Al-20Si-2Cu-1Mg alloy



(b) Al-8Fe-2Si-2V-1Zr-2Cu-1Mg alloy

Fig. 13 Comparison of microstructures between I/M alloys and P/M alloys

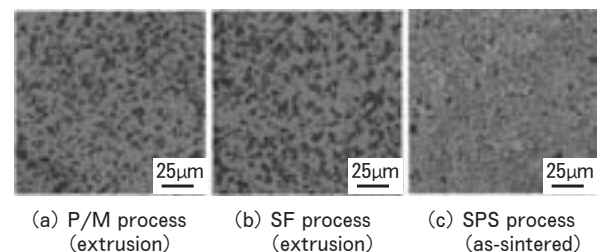


Fig. 14 Comparison of microstructures of Al-20Si-2Cu-1Mg alloy in different processes.

い傾向がある。ただし、堆積歩留りを多少犠牲にしてアトマイズガス圧を高くすればP/M法と同等組織に近づけることは可能である¹⁷⁾。SPS法ではP/M法よりもSi粒径が小さい。本材は、450°CでSPSを行っており、495°Cで脱ガス処理したP/M材よりも製造工程中のSi粒子の粗大化が抑えられて、粉末の微細状態が保たれていることによる。

3. 急凝固粉末冶金合金

各種合金系がある中で、急凝固の効果を生かし機械部品や車両部品に期待されたものは、主に、Al-Fe系耐熱合金とAl-Si系耐摩耗性合金である。Znを高添加して高強度化する試みもあり、引張強さ800MPa級合金の開発や耐応力腐食割れ性を改善した合金開発例もあるが、航空機産業の乏しい我が国においては開発は盛んでなかった。また、Al-Cu系やAl-Mg-Si系は、強度がT6処理により得られるため、すなわち、強度が溶体化温度における溶質の固溶量で決まるため、急凝固による高強度化の効果が十分得られない。以下に耐熱性合金と耐摩耗性合金について記す。

3.1 耐熱型合金

超耐熱合金として知られるNi基超合金の高温強度が高い理由は、熱的に安定で高温においても強度が高く、しかも粗大化速度の遅い γ' 相(Ni₃Alを基本組成とする金属間化合物の準安定相)が高体積率に微細に整合析出しているためである。同じ考えで、耐熱アルミニウム合金を得ようとしたとき、Al-高Fe系、あるいはAl-高Cr系のように遷移元素を添加した合金を急凝固して金属間化合物を多量に微細分散させることが考えられる。FeやCr等の遷移元素が選ばれるのは、アルミニウム中の固溶度が小さく、拡散係数が小さく、更に、形成す

る金属間化合物と母相のアルミニウムとの界面エネルギーが小さいため、高温でも金属間化合物が粗大化しにくいからである。これらをI/M法で製造した場合、金属間化合物が粗大に晶出してしまい、オロワンの強化機構(転位が分散粒子のまわりを湾曲しながら移動する強化機構)が機能するような粒子間距離の小さい微細組織を得ることができない。従って、P/M法を利用することにより耐熱アルミニウム合金の製造が可能となる。凝固速度が速いほど晶出する金属間化合物は小さくなるので耐熱性を高くすることができる。また、固化工程の中で高温に長時間曝されると金属間化合物が粗大化するので、できるだけ低い温度で固化させることが望ましい。Al-Fe系は、粉末製造の溶解時、Fe添加による融点の上昇が比較的小さいため高添加しやすく、また、実験から高温強度の上昇が大きかったことから、耐熱合金として最も着目された。更に、耐熱性を高めるため第3, 4...元素の添加(Mo, V, Zr, Ti等)も検討され、幾種もの合金が開発された^{18~21)}。当社で開発した主な合金をTable 1に示す。PA105は最も高温強度が高い合金で、その引張強さは200℃で400MPa以上、300℃で300MPa以上である。ただし、靱性、疲労強度が低い欠点がある。靱性を改良したものがPA115、疲労強度を改良したものがPA107である。PA105とPA107の組織をFig. 15(a)(b)に示す。PA105には、針状や不定

Table 1 Properties of SLM's heat-resistant Al-Fe alloys.

alloy	composition	RT Tensile properties			200°C Tensile properties (100 h exposure)			Young's modulus (GPa)	density (g/cm ³)	coefficient of thermal expansion (×10 ⁻⁶ /K)	thermal conductivity (W/m°C)	application
		$\sigma_{0.2}$ (MPa)	σ_B (MPa)	δ (%)	$\sigma_{0.2}$ (MPa)	σ_B (MPa)	δ (%)					
PA105-T1	Al-8Fe-2V-2Mo-1Zr	450	510	3	360	410	4	90	2.96	20.4	88	turbocharger rotor
PA115-T1	Al-8Fe-1V-1Mo-0.5Zr	396	495	8	318	374	4	86	2.92	20.7	105	
PA115S-T1	PA115と同じ	540	597	7	390	434	5	↑	↑	↑	↑	
PA107-T4	Al-8Fe-2Si-2V-1Zr-Cu-Mg	500	635	2	300	360	15	92	2.91	19.5	92	connecting rod

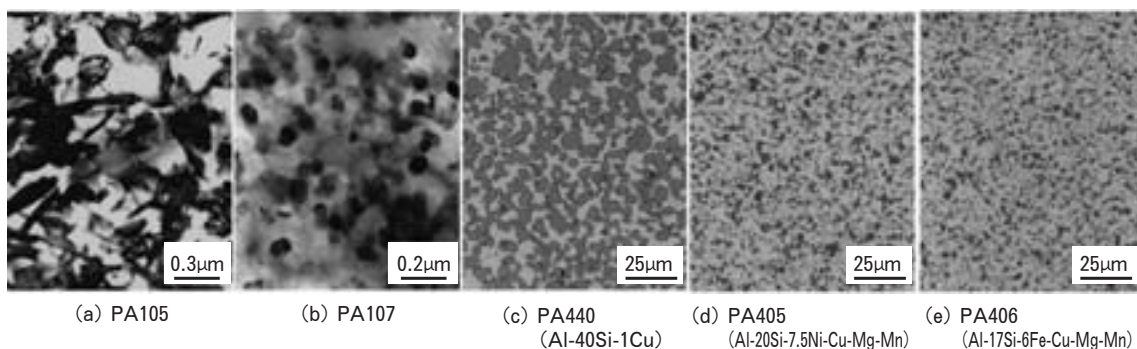


Fig. 15 Microstructures of various alloys.

形の金属間化合物が分散しているのに対し、PA107では粒状化した金属間化合物が分散し、更に、母相には少量のCuとMgが固溶している。PA115SはPA115の熱間押出棒を更に熱間鍛造により押出方向と同じ方向に強加工したもので、PA115より強度が大幅に高くなっている。原因を深く探求していないが、母相の加工組織が非常に安定化して回復が抑えられているため、あるいは針状のAl-Fe金属間化合物が押出方向へ強く配向したためと考えられる。

3.2 耐摩耗性合金

硬質なSi粒子の分散したAl-Si系合金は、アルミニウム合金の中で良好な耐摩耗性を持つことが知られている。しかし、I/M法による製造では、共晶組成以上のSi量、すなわち12.6mass%以上のSiを添加すると凝固時に粗大な初晶Si粒子が晶出し、塑性加工性や切削性が著しく低下するため、過共晶Al-Si系合金の利用は限定的であった。P/M法では初晶Si粒子を微細に分散できるため塑性加工も切削も容易となり、多量のSiを自由に添加でき、耐摩耗性を一層高めることが可能である。なお、過度にSi粒子を微細化すると耐摩耗性が低下することも知られており²²⁾注意が必要である。更に、Siの添加量に応じて、同時に線膨張係数の低下(1mass%当たり約 $0.25 \times 10^{-6}/K$ 低下)、および弾性率の上昇(1mass%当たり約0.8GPa上昇)ももたらされるので機械部品に好適である。Fig. 15(c)は、Siを40mass%添加したAl-Si系合金のマイクロ組織である。P/M法においてもSiを高添加するにつれSi粒径は増加する傾向があるが、Al-40%Si合金でもSi粒径は10 μ m程度で、Fig. 13(a)に示した鋳物の初晶Si粒径50~100 μ mと比較すれば非常に微細である。Al-Si系合金にFe, Ni, Mn等の遷移元素を添加して、強度や耐

食性等の特性を付与させることもできる^{23,24)}。当社開発合金をTable 2に示す。Table 2中の合金は、いずれも耐摩耗性に優れ、更に、線膨張係数が低く、縦弾性率が高い。FeやNi等が添加されたPA405, PA406, PA421は200 $^{\circ}$ Cにおける強度も高く、高温の用途にも利用可能である。PA405およびPA406のマイクロ組織をFig. 15(d)および(e)に示す。PA405にはSi粒子とAl₃Niの微細化合物が多量に分散し、PA406にはSi粒子とAlSiFe系微細化合物(主に β -AlSiFe)が多量に分散している。

4. 複合材料

母材となるアルミニウム合金粉末に、セラミック粒子あるいは金属粒子といった強化相を所定の量だけ混合機を使って混合し、以降の工程はアルミニウム合金と同様のP/M法により、母材のアルミニウム合金の特性に強化相から得られる特性を付与させた複合材料を製造することができる^{25,26)}。代表的な付与特性として、縦弾性率の向上、線膨張係数の低減、耐摩耗性の向上などがある。複合材料の製造方法として粉末冶金法他に、溶湯中へセラミック粒子を添加・攪拌する方法、セラミックプリフォームに溶湯を含浸させる方法、あるいは、溶湯中で強化相を生成させるin-situ法などの鑄造技術を利用するものがあるが、これらと比較しP/M法では、

- ① 母相成分を自由に選択できる
- ② 母相に急冷凝固粉末特有の合金を利用できる
- ③ 強化相の種類、粒径、量を自由に選択できる
- ④ 複数種の強化相を同時に添加できる
- ⑤ 強化相を母相の中に均一に分散できる

といった利点がある。

Table 2 Properties of SLM's wear- and heat-resistant Al-Si alloys.

alloy	composition	RT Tensile properties			200 $^{\circ}$ C Tensile properties (100 h exposure)			Young's modulus (GPa)	density (g/cm ³)	coefficient of thermal expansion ($\times 10^{-6}/K$)	thermal conductivity (W/m $^{\circ}$ C)	application
		$\sigma_{0.2}$ (MPa)	σ_B (MPa)	δ (%)	$\sigma_{0.2}$ (MPa)	σ_B (MPa)	δ (%)					
PA420-T6	Al-20Si-2Cu-1Mg	363	412	2				88	2.65	18.5	147	VTR cylinder
PA430-T6	Al-30Si-2Cu-1Mg	392	440	0.5				95	2.62	15.8	147	VTR cylinder
PA440-T1	Al-40Si-1Cu	172	265	1				102	2.54	13.5	156	
PA405-T6	Al-20Si-2Cu-1Mg-7.5Ni	421	490	1	206	294	5	99	2.82	16.4		compressor vane
PA406-T6	Al-17Si-6Fe-Mn-Cu-Mg	460	539	1.5	210	290	8	99	2.85	17.2	105	connecting rod
PA421-T1	Al-20Si-5Fe-1Zr	256	373	5	187	250	12	95	2.75	17.0	130	combustion piston

また、前述したSF法によっても複合材を得ることができる。当社は、インジェクターを設置し、強化相を噴霧ガス中に吹込んで、強化相をアルミニウム合金液滴とともに堆積させてプリフォームを製造し、押出や鍛造を行い、複合材を試作していた。欠点は、凝集性のある $5\mu\text{m}$ 以下のセラミック粒子を利用困難であったことや添加量の厳密な制御が困難であったことである。Fig. 16にP/M法およびSF法により製造した複合材のマイクロ組織例を示す。I/M法では製造困難な母材の種類や強化相の種類・量・粒径の選択が自由にできることが分かる。Fig. 16(d)はSF法により製造したものである。実用化された当社複合材をTable 3に示す。いずれもSiC粒子の添加量が2~5 mass%と少量であるが、少量でも耐摩耗性への十分な効果を確認できたため、切削性の低下を抑えるためにそうした。PD601の母材が6N01なのは、ポートホール押出とプレス焼入れができるようにしたためである。

5. 実用化製品

各社で開発されたP/M合金および複合材料はレース車両部品、市販車両部品、業務用機械部品、市販機械部品等の多くの用途に実用化された。当社で実用化した幾つかの製品例をFig. 17に示す。大半が性能と信頼性が

評価され、一過性の使用でなく長期継続使用された。

6. おわりに

急冷凝固粉末冶金合金は従来のアルミニウム合金にない優れた特性を有していたため、自動車のエンジン部品等、過酷な環境化での用途に期待されることが多かった。そして、そのような用途の実用化は容易でなく、ユーザー側研究者とメーカー側研究者が一緒になって評価し、それが長期化し、挙げ句に材料コスト高や性能未達のため実用化断念という事態が多かった。このような研究活動主体の状況化では営業体制と生産体制を整えることが困難であった。また、製造工程の複雑さはメーカーにとっても障害で、工程管理が煩わしいことに加え、人手に頼った生産から脱却できず、生産規模の拡大も困難であった。

当社は、製造工程が合理化されたスプレイフォーミング法に期するところがあったが、アトマイズガスに窒素を使用していたこと（液体窒素を購入し、気化）、液滴の堆積歩留が70%前後と低かったこと、プリフォームを外削しなければ押出ビレットにならなかったことなどから期待した低コスト化を果たせなかった。結局、需要の拡大を果たせなかったため、1999年にスプレイフォーミングを含む急冷凝固粉末冶金の研究開発活動を停止し、2009年に顧客向け生産活動からも撤退した。ただし、

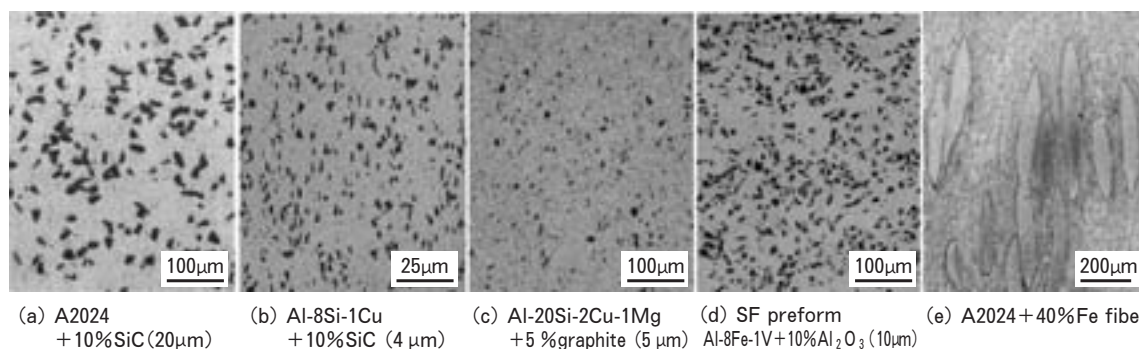


Fig. 16 Microstructures of various composite materials.

Table 3 Properties of SLM's composites.

alloy	composition	RT Tensile properties			200°C Tensile properties (100 h exposure)			Young's modulus (GPa)	density (g/cm ³)	coefficient of thermal expansion ($\times 10^{-6}/\text{K}$)	thermal conductivity (W/m°C)	application
		$\sigma_{0.2}$ (MPa)	σ_B (MPa)	δ (%)	$\sigma_{0.2}$ (MPa)	σ_B (MPa)	δ (%)					
PD601-T5	A6N01+2%SiC(5μm)	334	363	20				71	2.70	23.9	190	mountain bike rim
PD422-T7	Al-17Si-5Fe-1Zr-Cu-Mg+5%SiC(5μm)	420	525	2	198	272	17	97	2.80	17.4	116	combustion piston
PD423-T7	Al-17Si-5Fe-1Zr-Cu-Mg+25%SiC(5μm)	410	520	2	195	270	17	95	2.79	17.6	106	combustion piston



Fig. 17 Examples of commercial products.

これまでに多くの研究者が材料研究，材料開発，用途開発および製造に携わり，各人の研究財産となっている。

参 考 文 献

- 1) アルミニウム粉末冶金技術研究組合：アルミニウム粉末冶金のすべて，(1989) 12.
- 2) ASM International：ASM HANDBOOK vol. 7 Powder Metal Technologies and Applications, (1998), 840.
- 3) 軽金属学会：研究部会報告書 No.28 アルミニウム合金 P/M 材の組織と性質，(1992).
- 4) 山内重徳：本誌，29 (1988), 69.
- 5) 石原 知：豊田中央研究所 R&D レビュー，30, 2 (1995), 13.
- 6) 金子純一，村上 雄，古城紀雄：軽金属，39, 2 (1989), 147.
- 7) 渋江和久，山内重徳，犬丸 晋：本誌，25 (1984), 81.
- 8) U. S. Patent 4, 485, 834 (1984).
- 9) H. Matyza, B. C. Giessen and N. J. Grant：J. Inst. Metals, 96 (1968), 30.
- 10) 渋江和久，佐野秀男，山内重徳，犬丸 晋：本誌，28 (1984), 181.
- 11) J. S. Benjamin and R. D. Schelleng：Metall. Trans. A, 12A (1981), 1827.
- 12) Y. W. Kim, W. M. Griffith and F. H. Froes：J. of Metals, 37 (1985), 27.
- 13) 佐野秀男，山内重徳：軽金属学会第 72 回春期大会講演概要，(1987), 97.
- 14) 徳岡輝和，鍛冶俊彦，西岡隆夫，池ヶ谷明彦：SEI テクニカルレビュー，167 (2005), 96.
- 15) 鴫田正雄：ニューセラミックス，10 (1997), 43.
- 16) U. K. Patent No. 1 379 261, (1972).
- 17) 時實直樹，佐野秀男，渋江和久，大久保喜正：本誌，35 (1994), 117.
- 18) 山内重徳，渋江和久，佐野秀男，伊藤清文，犬丸 晋：軽金属，37 (1987), 704.
- 19) D. J. Skinner and K. Okazaki：Scripta Met., 18 (1984), 5.
- 20) G. J. Marshall：Mat. Sci. Tech., April (1986).
- 21) Yoshimasa Ohkubo, Kazuhisa Shibue, Hideo Mizukoshi, Shigenori Yamauchi and Susumu Inumaru：本誌，31 (1990), 105.
- 22) 大久保喜正，渋江和久，山内重徳：軽金属学会第 73 回秋期大会講演概要，(1987), 103.
- 23) 平野忠男，藤田達生：軽金属，37 (1987), 670.
- 24) 藤田達生，清田文夫，平野忠夫，小島 陽：軽金属，37 (1987), 677.
- 25) 大久保喜正，佐野秀男，犬丸 晋：本誌，32 (1991), 102.
- 26) 大久保喜正，渋江和久：本誌，35 (1994), 184.

熱処理型合金の析出制御

八 太 秀 周* 吉 田 英 雄**

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 152-165

Precipitation Control in Heat-treatable Aluminum Alloys

Hidenori Hatta and Hideo Yoshida

Many high strength aluminum alloys, such as Al-Cu-Mg alloys, Al-Mg-Si alloys, and Al-Zn-Mg (-Cu) alloys, have been developed in the past 100 years. As for these alloys, the strength has been improved by the precipitation hardening phenomenon. It is important to understand the precipitation phenomenon during aging. There are many technical issues to improve, such as stress corrosion cracking and fracture toughness, for the high-strength alloys. These issues are improved by control of the microstructure using a special heat treatment like RRA or adding transition elements. This paper reviews the precipitation control techniques of heat-treatable aluminum alloys.

1. はじめに

アルミニウム合金の時効硬化現象がウィルム (Alfred Wilm) の研究によって 1906 年に発見されて以来¹⁾, その後わずか 100 年余りで時効硬化を利用した多くの高強度材が開発, 実用化されてきた。特に比強度が重要な航空機では, まずジュラルミンがツェッペリン (Zeppelin) 飛行船に適用され, その後も航空機の構造用材料として使用するため, さらに高強度な超ジュラルミン, 超々ジュラルミン等の合金が開発された²⁾。現在では, 航空機はもちろんであるが, 自動車や鉄道車両などの輸送機器, 産業機器, スポーツ用品などに時効硬化を利用した高強度アルミニウム合金の用途が広がっている。

アルミニウム合金は主要添加元素によって 1000 系から 8000 系の合金系に分類されるが, 時効硬化は主に 2000 系 (Al-Cu 系), 6000 系 (Al-Mg-Si 系), 7000 系 (Al-Zn-Mg(-Cu) 系) 合金等の熱処理型合金で得られる。これらの合金は, アルミニウム合金の中でも中強度から高強度が得られる合金であり, 添加元素およびその熱処理によって, それぞれ **Table 1** に示すような各種析出物が生成し強度を高めている³⁾。析出物のサイズ, 形態, あるいは結晶構造に伴って強度への寄与も変化する。時効中の析出に関する研究は現在も盛んに行われており, 強度以外のその他の特性についても, 添加元素や材料の

マイクロ組織制御等によって種々の改善が進められている。これら熱処理型合金における時効析出の挙動を理解し, 制御することは, 中・高強度アルミニウム合金を製造する上で重要である。

そこで本報では, 中強度から高強度合金の熱処理型合金の開発において重要な添加元素の役割, 析出の制御, 析出物を利用した材料組織制御について解説する。

2. Al-Cu(-Mg)系合金

(1) 代表的合金

Al-Cu-Mg 系合金として, 2017 合金, 2014 合金, 2024 合金等が代表的な合金である。ウィルムの研究によって Al-Cu-Mg 合金で初めて時効硬化現象が発見され¹⁾, その後デュレナ・メタルヴェルケ社によって製品化が行われジュラルミンの生産が開始された²⁾。ジュラルミンと称される 2017 合金は T4 調質で多く用いられ, 強度および伸びともに高く, 冷間加工性も可能な合金である。2017 合金の高強度化を図るために Si を添加した合金として, 2014 合金が開発された。溶体化処理および焼入れ後, 人工時効処理することで高強度が得られる。しかし 2014-T6 材は 2017-T4 材より高強度ではあるものの, 伸びが低くなることから, 鍛造品として主に使用されている。超ジュラルミンとして知られる 2024 合金は溶体化処理および焼入れ後, 1.5~3% 程度の引張加工等を施す T351 調質などの処理を行うことで残留応力

* 研究開発センター 第二部, 工学博士

** 研究開発センター 顧問, 工学博士

Table 1 Metastable and stable phases of heat treatable alloys.³⁾

合金系	GP ゾーン	中間相	平衡相
Al-Cu	GP(1), Cu 1 原子層 GP(2) あるいは θ'' Al 3 原子層をはさんだ 2 原子 Cu 層 整合, 板状, $\{100\}_\alpha$ 面上	θ' -CuAl ₂ , 正方晶 半整合, 板状 $\{100\}_\alpha$ 面上	θ -CuAl ₂ , 体心正方晶 非整合
Al-Cu-Mg	GPB (Cu, Mg) ゾーン $\langle 100 \rangle_\alpha$ 方向のロッド状 整合	S'-Al ₂ CuMg, 斜方晶 半整合, ラス状 $\{210\}_\alpha$ 面上 $\langle 001 \rangle_\alpha$ 方向	S-Al ₂ CuMg, 斜方晶 非整合
Al-Mg-Si	針状 GP ゾーン $\langle 100 \rangle_\alpha$ に平行	β' -Mg ₂ Si, 六方晶 半整合, ロッド状 $\langle 100 \rangle_\alpha$ 方向 (001) $_{\beta'}$ //(100) $_{\alpha}$; [100] $_{\beta'}$ //[011] $_{\alpha}$	β -Mg ₂ Si, 面心立方晶 $\{100\}_\alpha$ 面上, 小板状 (100) $_{\beta}$ //(100) $_{\alpha}$; [110] $_{\beta}$ //[100] $_{\alpha}$
Al-Zn-Mg	球状 GP ゾーン 整合, 2 種類のゾーン	η' -MgZn ₂ , 六方晶 (0001) $_{\eta'}$ //(111) $_{\alpha}$; [1120] $_{\eta'}$ //[112] $_{\alpha}$ T'-Mg ₃₂ (Al, Zn) ₄₉ , 六方晶 (0001) $_T$ //(111) $_{\alpha}$; [1011] $_T$ //[112] $_{\alpha}$	η -MgZn ₂ , 六方晶 T-Mg ₃₂ (Al, Zn) ₄₉ (190°C 以上)

除去とともに強度も向上する。2017 合金より高強度の材料であり、疲労強度が優れるため、航空機用材料としても多く使用されている。

(2) 耐熱アルミニウム合金

Al-Cu-Mg 系合金は耐熱性にも優れた合金である。イギリスとフランスが共同開発した超音速旅客機コンコルド (Concorde) は、マッハ 2 程度の速度で巡航することが可能であった。その速度で巡航すると機体外面温度が 130°C~150°C 程度まで上昇することから、2024 合金等の従来合金では耐熱性が不足していた。そこで、Fig. 1 に示すように耐熱性の向上を図るため、Ni および Fe を添加し、これらの元素の化合物の分散することで耐熱性を向上した A-U2GN 合金 (RR58, 2618 合金) が開発された⁴⁾。

最近では、耐熱性と疲労強度のさらなる向上が求められ、当社では 2618 合金の高温疲労強度をさらに向上した合金として、Ni および Fe 量の添加に加え、Cu や Mg 等の溶質元素の添加量を調整するとともに、Zr を添加し亜結晶粒を有する繊維状組織に組織制御した高強度耐熱合金 CG29 を開発した。小野式回転曲げ試験による疲労試験結果を Fig. 2 に示すが、CG29-T6 材は 2618-T6 材に比べ室温および高温域とも優れた疲労強度が達成されている。

(3) 微量添加元素の影響

Fig. 3 に Al-Cu-Mg 合金への微量添加元素の影響を示す⁵⁾。Al-Cu-Mg 合金へ Ag を添加すると、時効硬化量が大きくなる。これは Al-Cu-Mg 合金で生成する GP (1) ゾーンとは別に、Cu/Mg/Ag/vacancy のクラスターが GP_{III} ゾーンの異質核生成サイトとして働き、GP_{III} ゾーンの形成を促進するためである⁶⁾。

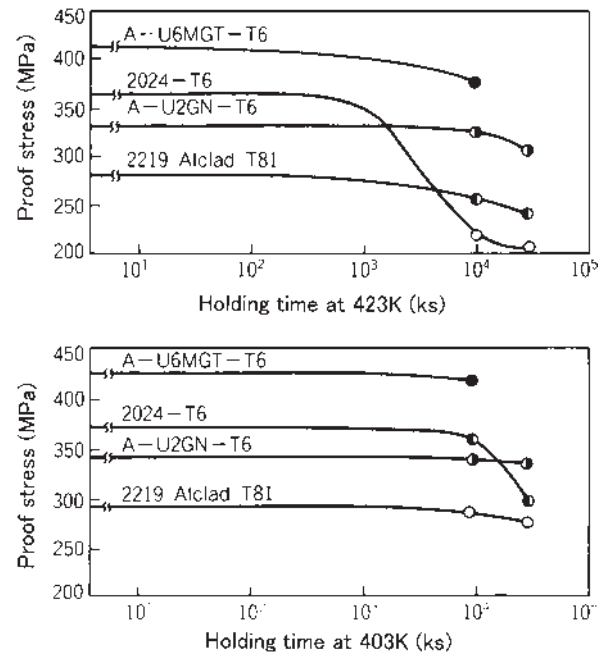
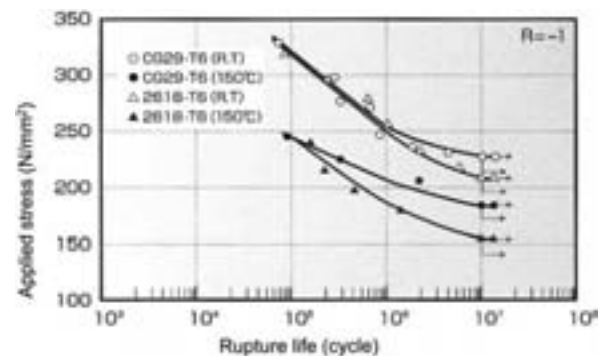
Fig. 1 Proof strength of Al-Cu-Mg alloys.⁴⁾

Fig. 2 S-N curves of the CG29-T6 and 2618-T6.

Al-Cu 合金に Sn を微量添加すると、低温時効での変化が抑制され、高温側での変化が促進されることが、木村らや菅野らによって報告されている^{7,8)}。また、Cd の添加も、Fig. 4 に示すように初期の時効硬化を抑制し、その後の時効硬化を促進する。一方、Cr の添加は時効初期およびその後の時効とも抑制され、Zr および Mn も Cr の添加に近い傾向を示す⁵⁾。これは、Zr, Mn, Cr の元素が焼入れ温度でも安定な不溶性化合物として

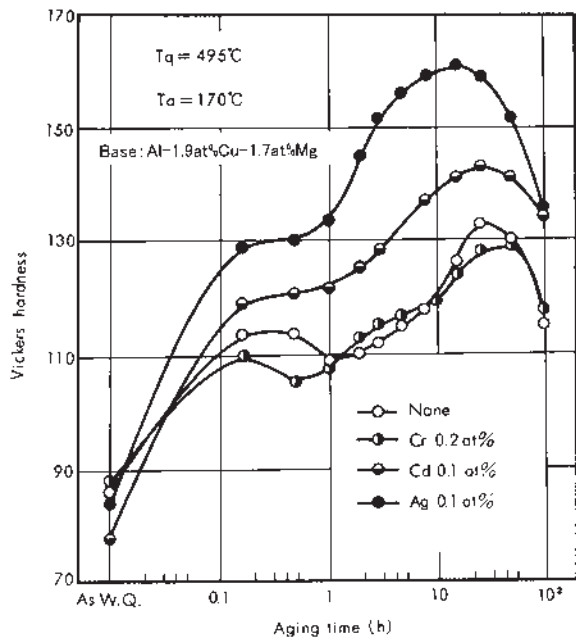


Fig. 3 Influence of addition of Cr, Cd or Ag on the age-hardening at 170 °C for Al-4.4%Cu-1.5%Mg alloys quenched from 495°C.⁵⁾

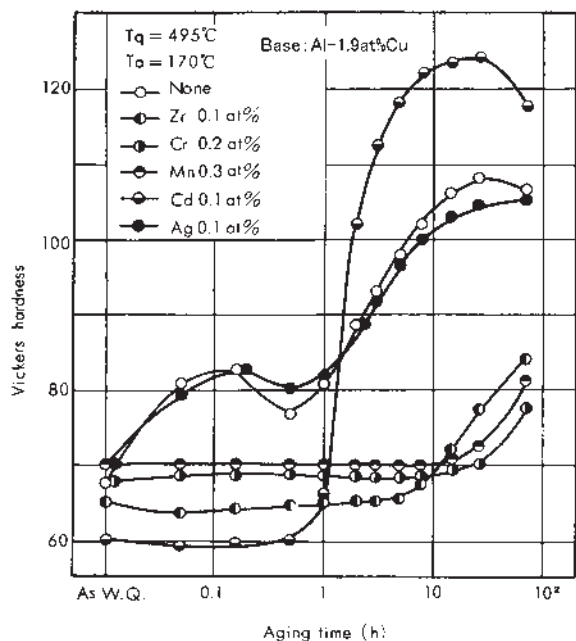


Fig. 4 Influence of additional elements on the age-hardening at 170°C for Al-4.4%Cu alloys quenched from 495°C.⁵⁾

微細に分布して、溶質元素のクラスタの生成を遅延させるためと考えられている。

切削時の切り屑の分断性を高めるためには Pb, Bi, Sn 等の低融点金属の添加が効果的である。これらの金属はアルミニウム母相中にほとんど固溶せず晶出することから、切削加工時の発熱および加工応力により切り屑が分断する。従来、Al-5.5%Cu 合金に Pb と Bi を添加した 2011 合金が使用されてきた。しかし昨今の環境意識の高まりから、Pb を排除するため、Pb, Bi, Sn を単体あるいは複合添加した合金の特性が調査された。その結果、切り屑の分断性は低融点金属を複合添加することにより、低融点元素の共晶融解によって切り屑が分断しやすいものの、Fig. 5 に示すように⁹⁾、高温などの環境ではシャルピー衝撃値が低くなる特性が確認されている。そのため、適正な環境での使用が必要である。

(4) 靱性の改善

高強度合金の開発においては、靱性が低下しないように考慮する必要がある。破壊靱性に及ぼす地金純度の影響を Fig. 6 に示す¹⁰⁾。Fe および Si 量を低減することにより破壊靱性値が向上する。これは不純物元素である Fe, Si が製造時の過程で Al_7Cu_2Fe , $\alpha(AlFeSi)$, $(Fe, Mn)Al_6$ 等の脆い不溶性化合物を形成するためである。Al-Zn-Mg-Cu 系合金でも同様の傾向がみられる。

Al-4.6%Cu 二元合金において、最高強度が得られるような時効条件では粒界破壊が生じやすい。そこで、Fig. 7 に示すように焼入れ後に適度な冷間加工と時効処理を施すことによって、伸びの改善が報告されている¹¹⁾。しかも粒界破壊から粒内破壊へ延性的な破壊形態へと変化する。これは、PFZ の形成および顕著な粒界析出が抑制され、 θ' 相が粒内に均質微細に析出するためと考えられている。

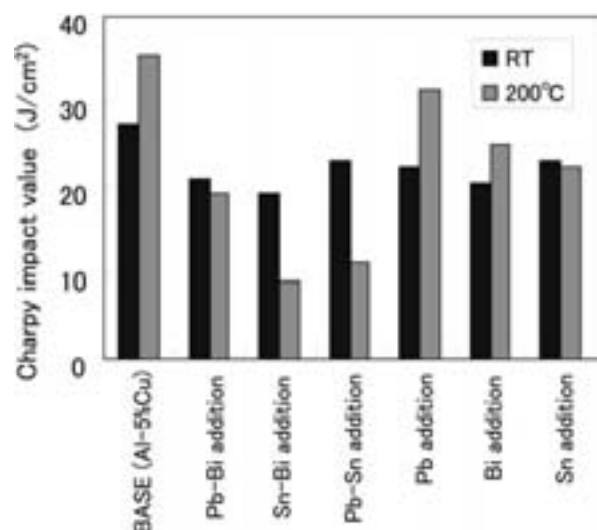


Fig. 5 Effect of additional elements on the Charpy impact value of Al-5%Cu alloy treated T 8 temper.⁹⁾

(5) 押出性の改善

超ジュラルミンとして知られる 2024 合金は疲労強度が高く、航空機用としても多く使用されている。しかし、Al-Cu-Mg 系合金は圧延や押出などの塑性加工を行う際の熱間変形抵抗が高い。そのため例えばポートホール押出による中空材ができない。一方、Al-Mg-Si 系合金は熱間変形抵抗が低くポートホール押出が可能であることから、Al-Mg-Si 合金をベースとして Cu および Mg 添加量を増加することで、 β'' 相および Q' 相等の析出強化を促進させ、さらに組織微細化のため微量添加元素を適正化することで、2013 合金が開発された¹²⁾。この合金

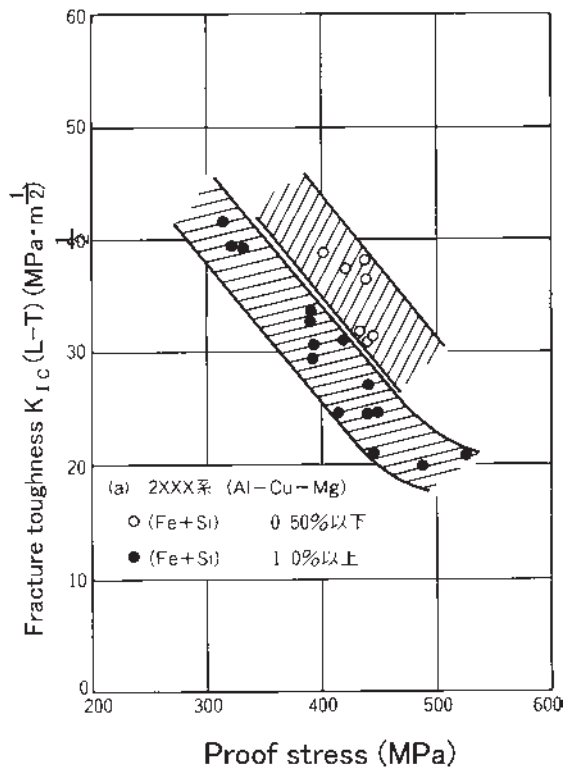


Fig. 6 Effect of Fe and Si content on fracture toughness of 2XXX.¹⁰⁾

は Fig. 8 に示す押出限界線図のように、押出性が大幅に向上しており¹³⁾、Al-Cu-Mg 系の合金でありながら、ポートホール押出が可能となった。Table 2 に 2013-T6511 の引張特性を示す¹³⁾。2013-T6511 の耐力は、2024-T351 の同等以上の耐力であることから、今後、ますます高強度材として利用の拡大が期待される。

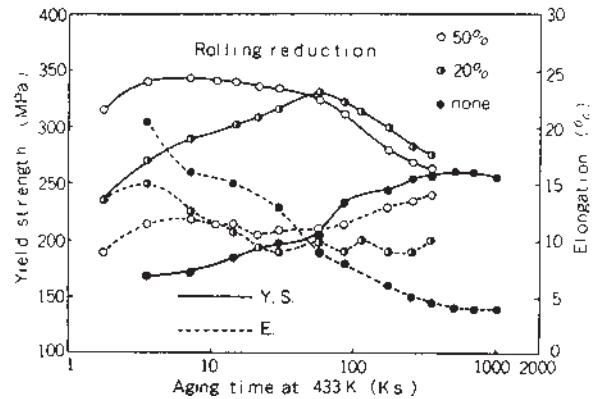


Fig. 7 Effect of cold work on tensile properties of Al-4.6%Cu alloy quenched from 803K, cold-worked and aged at 433K.¹¹⁾

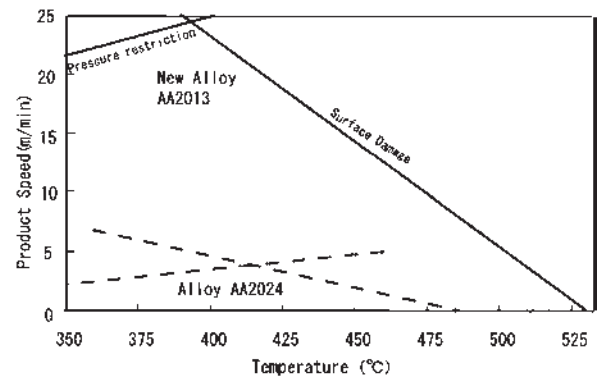


Fig. 8 Extrusion limit diagram of 2013 and 2024 alloy.¹²⁾

Table 2 Design allowable of mechanical properties.¹³⁾

	Tensile properties (MPa)		Compressive strengths (MPa)	Shear strengths (MPa)	Bearing properties (MPa)			
	Fty	Ftu			Bearing values (e/D=2.0)		Bearing values (e/D=1.5)	
			Fcy	Fsu	Fbry	Fbru	Fbry	Fbru
2013-T6511 A-value *	365	400	365	283	662	910	565	717
2024-T3511 A-value *	290	393	234	200	490	745	421	579
Increasing ratio	× 1.3	× 1.0	× 1.6	× 1.4	× 1.2 - 1.4			

* At least 99 percent of the population of values is expected to equal or exceed the A-value with a confidence of 95 percent.

3. Al-Mg-Si 系合金

(1) 代表的合金

Al-Mg-Si 系合金として、6063 合金、6N01 合金、6061 合金がよく知られている。6063 合金は熱間変形抵抗が低く複雑な形状に押出が可能で、アルマイト性も良好であることから、サッシ等の建材用として多く使用されている。主要添加元素の Mg と Si の添加量が 6063 合金より多い 6N01 合金は、6063 合金より高い強度が得られることから鉄道車両用や自動車用押出型材としても多く生産されている。これらの合金より高い強度が得られる 6061 合金は Mg および Si 量および微量の Cu を含有する。さらに高強度材として、Mn, Cr, Zr 等の遷移元素を添加し亜結晶粒を有する繊維状組織として引張強さ 400MPa 級を達成した SG210 等の合金や Cu の添加量を増加し β' 相の析出促進と Q' 相の析出により強度を高めた GS310 等の高強度 6000 系合金が実用化されている。これらの合金は、2000 系や 7000 系の合金と比較して耐食性が優れることから、自動車、産業機械、スポーツ用品など幅広い分野で使用されている。

(2) 均質化処理条件の影響

熱間加工性を改善することは、工業生産において重要な問題であり、そのため均質化処理と呼ばれる鋳塊の加熱処理が行われる。一般に、加熱温度が高く長時間である方が効果的であるが、加熱保持後の冷却速度の制御が重要である。Fig. 9 に示すように 6063 合金において冷却速度が遅いと押出速度は向上するが、押出材の時効硬化が低下するため 200~500°C/h 程度の冷却速度が適当であると報告されている¹⁴⁾。均質化処理は Al-Mg-Si 系合金のみならず、Al-Cu-Mg 系や Al-Zn-Mg 系合金においても熱間加工性が改善される。

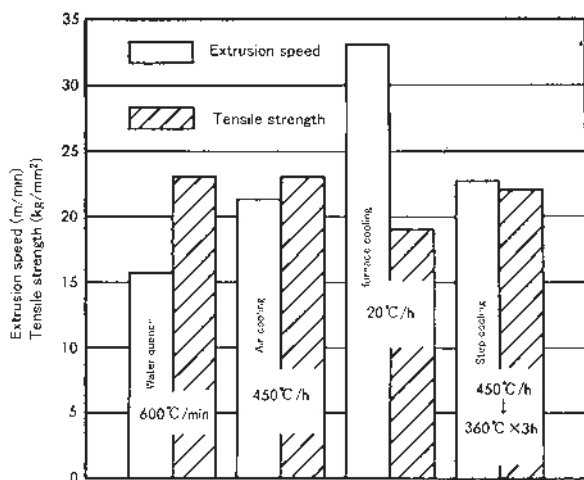


Fig. 9 Effect of cooling rate after homogenization on the extrusion speed and strength of 6063 after aging at 160°C for 16h.¹⁴⁾

(3) 押出温度の影響

6063 合金は押出材として用いられる代表的な Al-Mg-Si 合金である。6063 合金は押出後空冷で焼きが入りその後の時効処理で時効硬化が得られる。Fig. 10 に押出温度と引張強さおよび伸びとの関係を示す¹⁵⁾。押出温度の上昇に伴い引張強さが向上する。これは押出時の加熱および加工発熱で溶質元素が母相中に固溶し、時効処理によって析出強化が得られるためである。また、押出後の冷却を空冷するのに対し、水冷すると強度が高くなる¹⁵⁾。これは焼入れ時の冷却中の粗大析出が抑制され、固溶量を高く維持でき、その後の人工時効で微細で均一に析出するためである。

(4) 二段時効

Al-Mg-Si 合金では焼入れ後から人工時効を開始するまでの自然時効の有無あるいはその条件が人工時効後の最終強度に影響を与える^{16,17)}。Fig. 11 に示すように Mg と Si 添加量を変化した Al-Mg-Si 合金において、焼入れ直後に人工時効処理した場合と 20°C で 604.8ks の自然時効を施した後に人工時効した場合を比較すると、Mg, Si 量が多い合金では自然時効を行った方が T6 処理後の強度が低くなるいわゆる負の効果が生じる¹⁷⁾。これは山田らによって提案されている Fig. 12 のメカニ

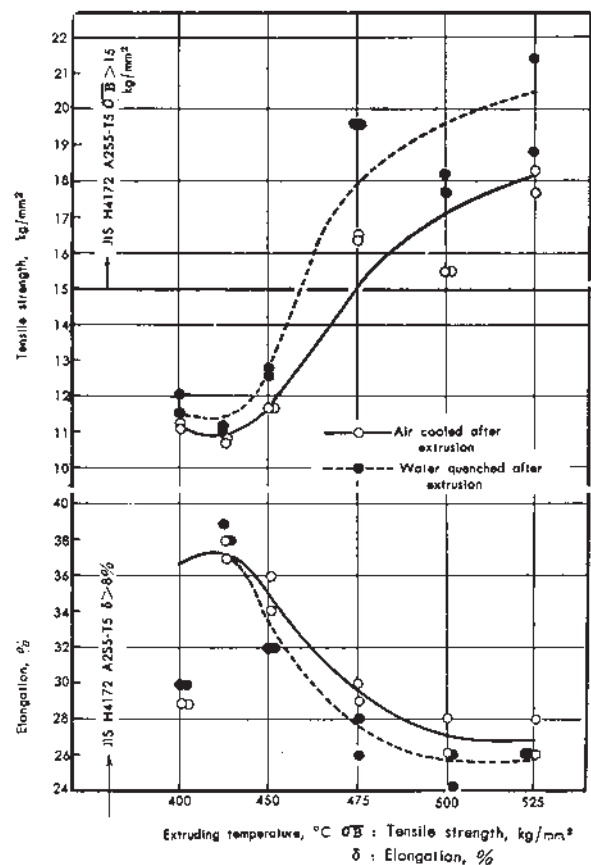


Fig. 10 Mechanical properties of extruded products of 6063 alloy precipitated at 175°C for 8 h.¹⁵⁾

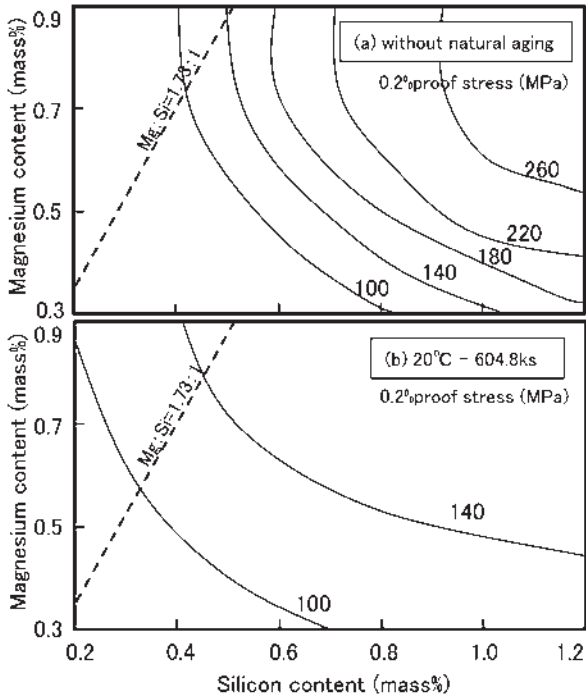


Fig. 11 Proof stress of the Al-Mg-Si alloys baked at 170°C for 1.2ks after 2% stretch, (a) without natural aging and (b) with natural aging at 20°C for 604.8ks.¹⁷⁾

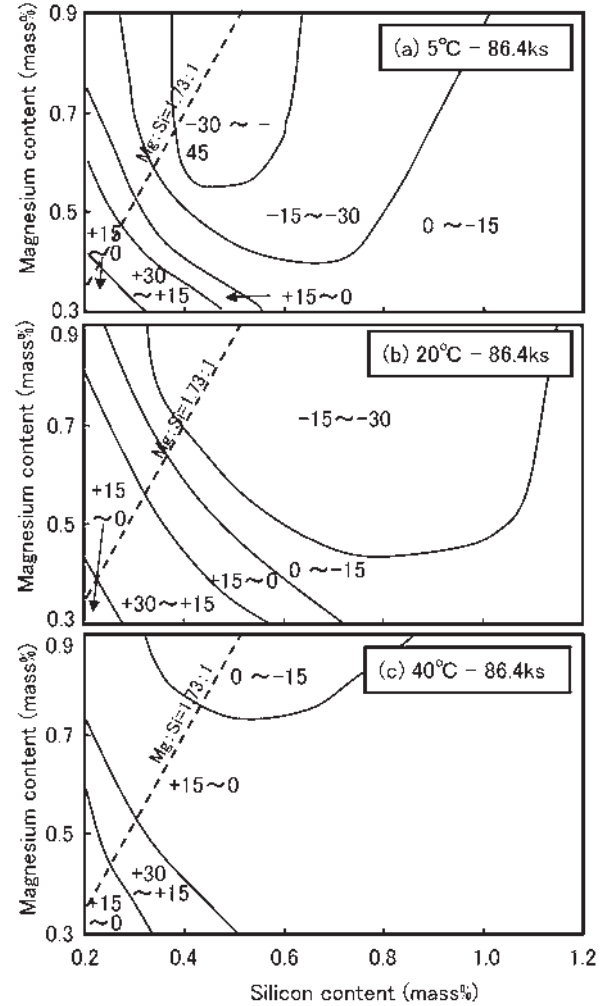


Fig. 13 Influence of natural aging compared with the samples without natural aging on the tensile strength of various Al-Mg-Si alloys after aging at 180°C for 21.6ks, (a) natural aging at 5°C for 86.4ks, (b) at 20°C for 86.4ks and (c) at 40°C for 86.4ks.¹⁷⁾

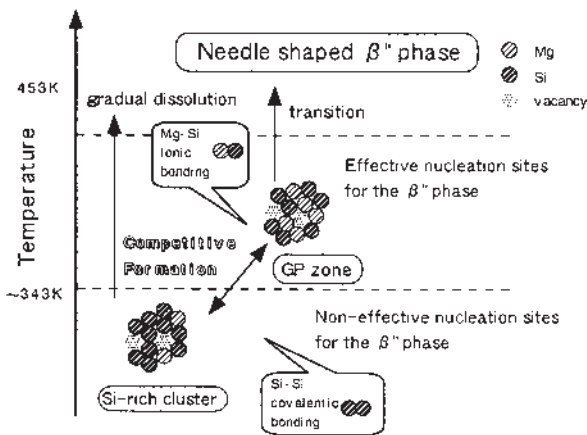


Fig. 12 Proposed mechanism for the two-step aging behavior of Al-Mg-Si alloys.¹⁸⁾

ズム¹⁸⁾のように、自然時効中にβ'相に遷移しないクラスターが生成するためと考えられる。反対に Mg, Si 量が少ない合金では自然時効を行った方が T6 処理後の強度が高くなる正の効果が生じる。これは低濃度合金では自然時効中に生成するクラスターが、人工時効中に析出するβ'相の析出を促進するためと考えられる。Fig. 13 に焼入れ直後に時効処理した耐力に対する自然時効を施した時の正負の効果を示したものである¹⁷⁾。特に Mg と Si のバランス組成 (Mg : Si = 1.73 : 1) である Mg₂Si 量が多いほど負の効果となりやすく、また自然時効温度が低い場合に顕著となる。

(5) BH (bake hardening) 性

Al-Mg-Si 系合金は時効硬化性を有することから、自動車の外板用としての適用が増加している。素材メーカーから T4 調質で出荷することで、耐力の低い状態でプレス成形ができることからスプリングバック量を小さくすることができる。その後、塗装焼き付け工程における加熱を利用して時効硬化させる。しかし、塗装焼き付け時の加熱は、国内では 170~180°C 付近でかつ 20~30min 程度の短時間であることから、短時間での時効硬化能を高める必要がある。特に、自動車外板用として使用される Al-Mg-Si 合金は過剰 Si 型の合金が用いられることが多く、そのため Fig. 14 に示すように焼入れ後のごく短時間の自然時効を有するだけで、急激に時効硬化性が低下する¹⁹⁾。この原因として、自然時効中にクラスターが生成し、それが強化相であるβ'相に遷移しないためと考えられている。そこで、BH 性を高める熱処理方法

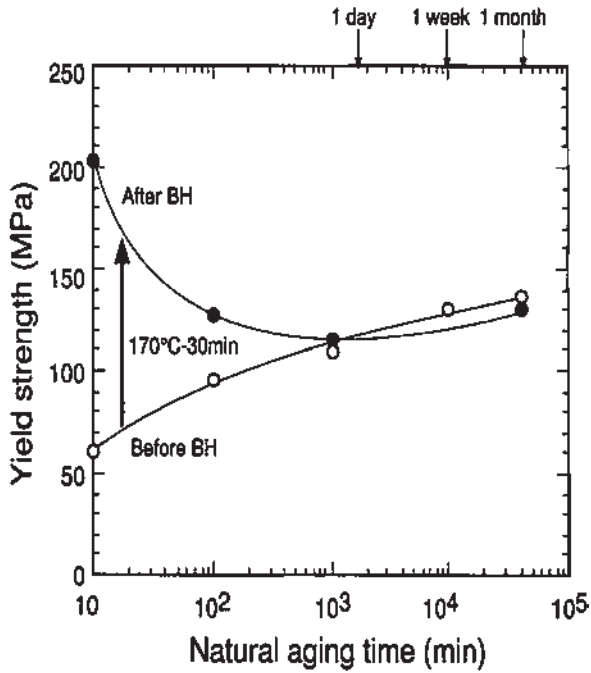


Fig. 14 Effect of natural aging on paint bake hardenability. (WQ→Natural aging (20°C)-7 d→BH).¹⁹⁾

が開発されている。一つ目は Fig. 15 に示すように復元処理をする方法である¹⁹⁾。溶体化処理後の自然時効で生成したβ”相に遷移しないクラスターを復元処理にて再固溶することにより、その後のBH処理で高いBH性を得ることができる。二つ目は、Fig. 16 に示すように焼入れ直後に高温で予備時効を行う方法である。この方法では自然時効でクラスターが生成する前に、適切な時間の高温予備時効を行いβ”相に遷移するクラスターを優先して生成させることで、自然時効を行った場合でも高いBH性が得られる²⁰⁾。

Fig. 17 に Al-0.6%Mg-1%Si 合金に Cu を添加した合金におけるBH処理前後の耐力に及ぼす自然時効の影響を示す²¹⁾。自然時効による硬化速度はCu添加量が多いほど抑制されるが、BH処理後の耐力はCu添加量が多いほど高くなる。すなわちBH前後の耐力の差で表されるバークハード量(ΔBH)は、Cu添加量が多いほど、自然時効が長時間まで高いバークハード性が維持されることが示されている。Fig. 18 に同合金の自然時効中の電気比抵抗の変化を示す²¹⁾。Cu無添加材に比較して0.8%Cu合金の方が電気比抵抗の上昇を長時間低く抑えられている。また高温予備時効も電気比抵抗の上昇を抑えられることがわかる。これらのことから、Cuを添加し、さらに高温予備時効を施すと、β”相に遷移しないクラスターの生成を遅滞でき、BH性の改善ができることが示されている。

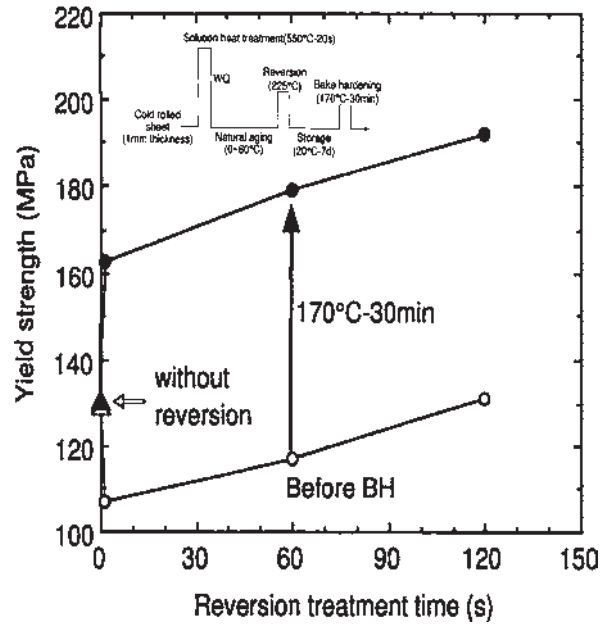


Fig. 15 Effect of reversion treatment on paint bake hardenability. (WQ→20°C-7 d→Rev.→Storage→BH).¹⁹⁾

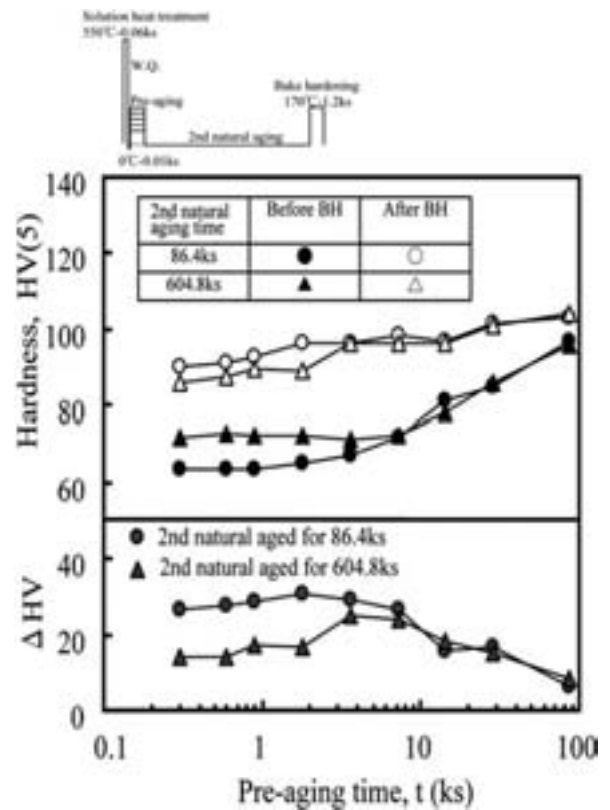


Fig. 16 Changes in hardness with pre-aging time at 100°C before BH treatment and after BH treatment at 17°C for 1.2 ks.²⁰⁾

4. Al-Zn-Mg(-Cu) 系合金

4.1 三元系合金 (Al-Zn-Mg 系)

(1) 代表的合金

Al-Zn-Mg 系合金として、7003 合金、7N01 合金等が代表的な合金である。これらの合金は押出後空冷で焼きが入り、その後の時効処理で強度が増す。また、溶接した際にはその直後には強度が低いが、自然時効により熱影響部は強度が回復するため、溶接構造材としても多く使用されている。

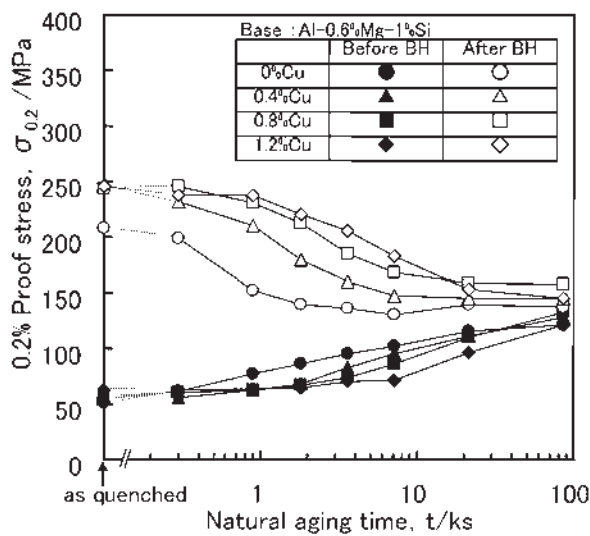


Fig. 17 Effect of natural aging time at 20°C on the 0.2% proof stress of the alloy before and after BH treatment at 170°C for 1.2ks. ²¹⁾

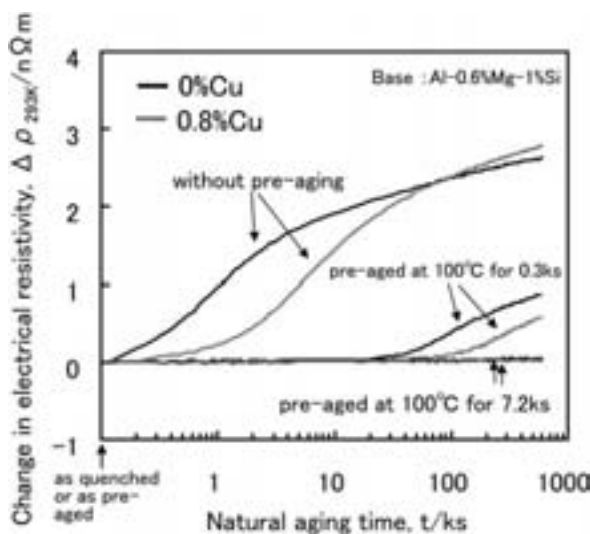


Fig. 18 Changes in the electrical resistivity at 20°C during natural aging at 20°C after quenching and pre-aged at 100°C for 0.3ks or 7.2ks. ²¹⁾

(2) 応力腐食割れ性の改善

ESD の開発において、Al-Zn-Mg-Cu 合金に Cr を添加することによって応力腐食割れが改善され、その後 Al-Zn-Mg 三元系合金においても、同様に Cr の添加によって改善が確認された。Fig. 19 のように Cr と Zr の複合添加により、さらに耐応力腐食割れ性の向上の効果が認められた。Cr の添加は Fig. 20 に示すように焼入れ感受性を増大させる ²²⁾ ことから、Cr の上限を規制し、0.10~0.20% の Zr の添加を必須とした当社の ZK60 合金が開発された。ZK60 は JIS 7N02 として登録され、その後 AA 規格において 7003 合金として登録された。

Fig. 21 に示すように Zr, Mo, Cr の添加は応力腐食割れの改善が顕著にみられる ²³⁾。Zr, Mo, Cr の添加元素からなる粒径 0.01~0.1μm の不溶性化合物が、また Mn を含む合金では粒径 0.1~1 μm の不溶性化合物が多く存在する。応力腐食割れの効果を増すために、鋳塊を 400~500°C で均質化処理を行い、多くの微細な不溶性化合物を析出させ、その後熱間加工中あるいはその後の熱処理中の亜結晶粒の成長を抑制し、応力腐食割れ性が改善される。

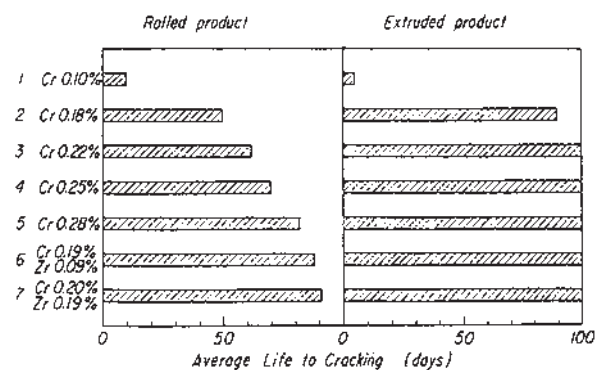


Fig. 19 Stress corrosion test for Al-5.5%Zn-2.5%Mg-1.6%Cu alloy sheet (1 mm) containing Cr and Zr in 3% brine water. Bending radius 12.5t. ²²⁾

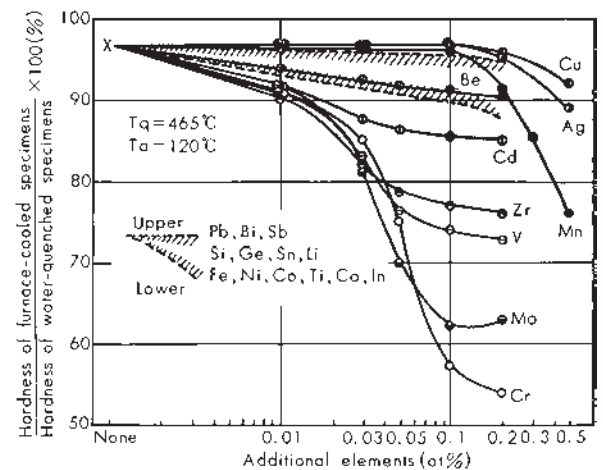


Fig. 20 Effects of additional elements on the quench sensitivity of Al-6%Zn-1.8%Mg. ²²⁾

応力腐食割れ性は、Zr 添加と均質化処理を適切な条件で実施することで大きな改善効果が得られる。Fig. 22 に Al-6%Zn-1.8%Mg 合金鑄塊のマイクロ組織に及ぼす Zr 添加量と均質化処理条件の影響を示す²⁴⁾。Zr は鑄塊を 400°C 以上で均質化処理することにより、Al-Zr 系の微細な化合物を析出する。Al-Zn-Mg に Zr を添加した合金では、L₁₂ の結晶構造である微細な Al₃Zr の球状粒子が分散し、これが亜結晶粒界の成長を妨げ、繊維状組織を維持し、Table 3 に示すように耐応力腐食割れ性が改善される²⁴⁾。均質化処理温度がより高温になると、Fig. 23 に析出粒子が凝集して球状から DO₂₃ 構造の棒状となり、大きく成長するとともに密度が減少する。そのため粗大な再結晶組織になりやすくなり、耐応力腐食割れ性の改善効果が低下する。

Al-Zn-Mg 合金の応力腐食割れの改善として、微量の

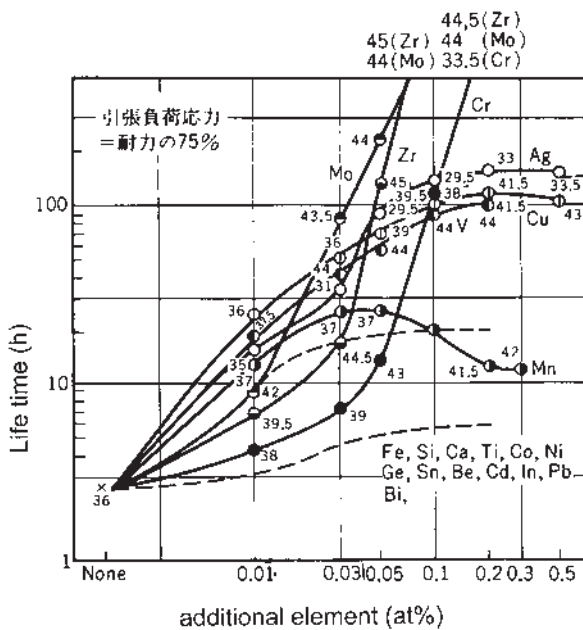


Fig. 21 Effects of additional elements on SCC properties of Al-6%Zn-1.8%Mg alloy.²³⁾

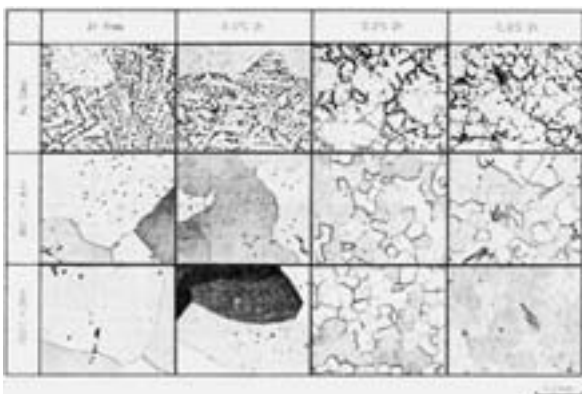


Fig. 22 Effects of Zr content and homogenizing condition on the microstructures of Al-6%Zn-1.8%Mg alloy ingots.²⁴⁾

Cu 添加も有効である。Fig. 24 に応力腐食試験結果を示す。微量の Cu を添加した B 合金の方が、応力腐食割れが生じにくくなる。これは微量 Cu の添加により結晶粒界と結晶粒内の電位の差が減少し、結晶粒界の犠牲的溶解が減少するためと考えられる²⁵⁾。

(3) 焼入れ感受性

Al-6%Zn-1.8%Mg 合金におけるジョミニー焼入れ材の硬さ分布に及ぼす Cr 添加量の影響を Fig. 25 に示す²⁶⁾。120°C で 48h 時効した材料において Cr 量が 0.05at% 以上になると水冷端から離れるとともに硬さが低下する。このように Cr の添加により焼入れ感受性が強くなる。

Fig. 26 に焼入れ速度が硬さにおよぼす微量元素添加の影響を示す²⁶⁾。Zr の添加は Cr の添加にくらべると

Table 3 Effect of ingot homogenizing and additional elements on stress-corrosion cracking (accelerated S.C.C. test).²⁴⁾

Alloy	As Cast	350 °C		400 °C		450 °C		500 °C		550 °C	
		24hr	24hr	8 hr	16hr	24hr	24hr	24hr	24hr		
1	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●
2	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●
3	●	●	○	○	○	○	○	○	○	○	○
4	●	●	○	○	○	○	○	○	○	○	○
5	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●
6	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●
7	●	●	●	○	○	○	○	○	○	○	○
8	●	●	●	○	○	○	○	○	○	○	○

● large crack ● middle crack ● small crack
○ minute crack ○ no crack

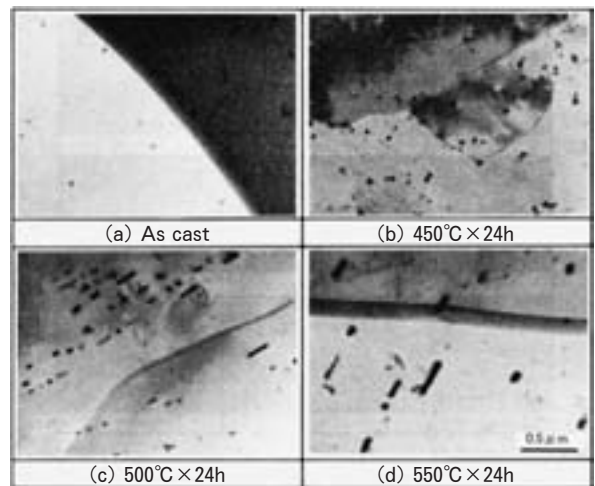


Fig. 23 Electron micrographs of Al-Zr precipitates in Al-6%Zn-1.8%Mg-0.2%Zr alloy sheet.²⁴⁾

焼入れ感受性に及ぼす影響は小さい。これは析出サイトの数密度には大きな差はないものの Al-Zr 系の化合物は、Al-Cr 系の化合物よりも粒径で半分以下であり、misfit 界面の占める面積が小さいためと考えられている。

溶体化処理温度からの冷却速度が低い場合には、Fig. 27 に示す²⁷⁾ ように粒界に沿って形成される PFZ (Precipitate-Free Zones) が生じる。PFZ は機械的性

質の低下を招いたり、耐応力腐食割れ性にも影響するため、工業生産において冷却速度の管理が重要である。

(4) 二段時効

Al-Zn-Mg 合金では、焼入れ後から人工時効を開始するまでの間に、自然時効を施すことによって人工時効後の最終強度が高くなる。いわゆる自然時効の正の効果が得られる合金であり、そのため工業的にも焼入れ後に自然時効を施すことが一般的となっている。最近のより詳細な研究で、Zn および Mg の含有量により室温予備時効条件の影響が大きく異なることを明らかにされている。Fig. 28 に²⁸⁾ 示すように Zn, Mg 添加量の少ない合金において、自然時効後に人工時効処理を行った方が、自然時効なしに人工時効処理するよりも強度が高くなる。自然時効を行わない場合には GP (I) や GP (II) がほとんど形成されず強化相である η' 相が不均一かつ粗大析

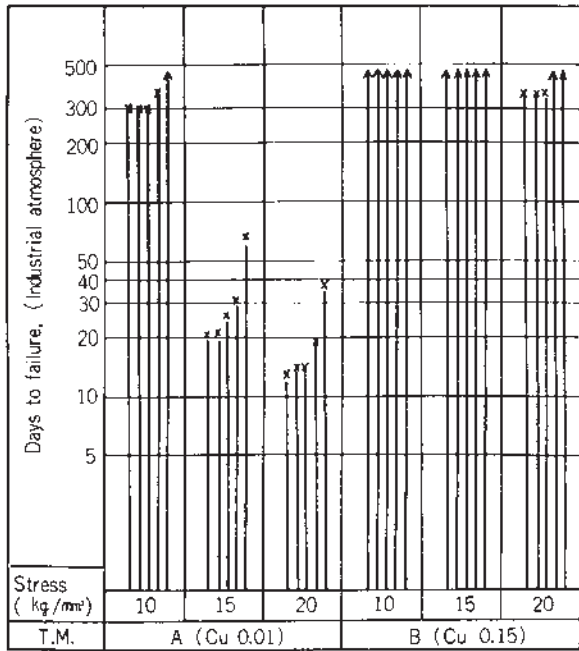


Fig. 24 Relative resistance to stress corrosion cracking of Al-4.3%Zn-1.6%Mg-0.35%Mn-0.20%Cr-0.07%Ti-0.14%Zr-Cu alloys. (T6 plate).²⁵⁾

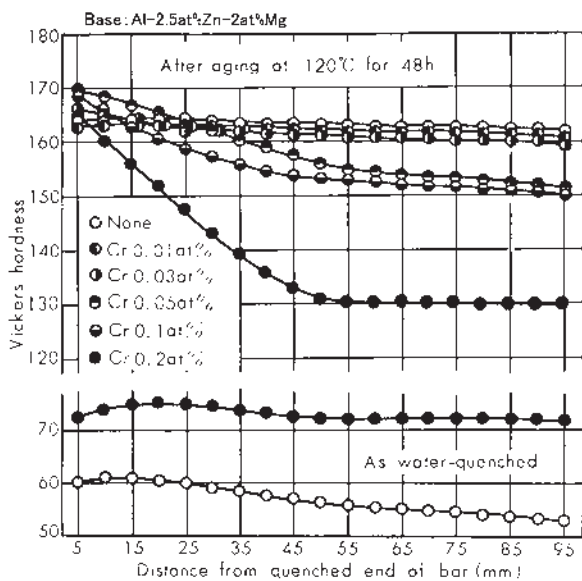


Fig. 25 Results of Jominy test for Al-5.9%Zn-1.7%Mg alloys containing small amounts of Cr, quenched from 465°C.²⁶⁾

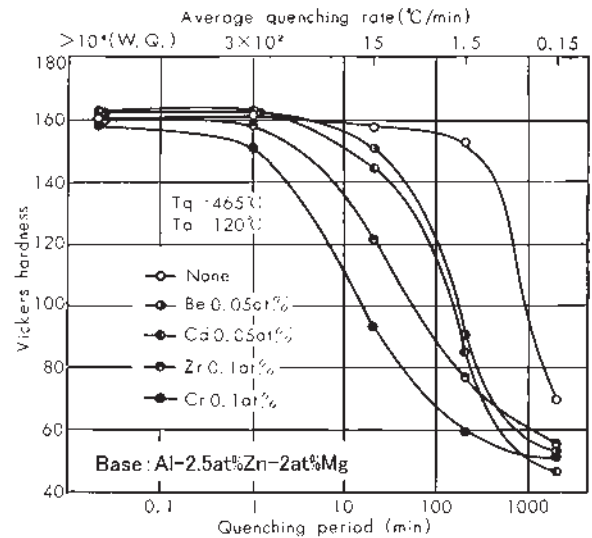


Fig. 26 Influence of quenching rate on the hardness of Al-5.9%Zn-1.7%Mg alloys containing some additional elements, aged at 120°C to the maximum hardness after the quenching from 465°C.²⁶⁾

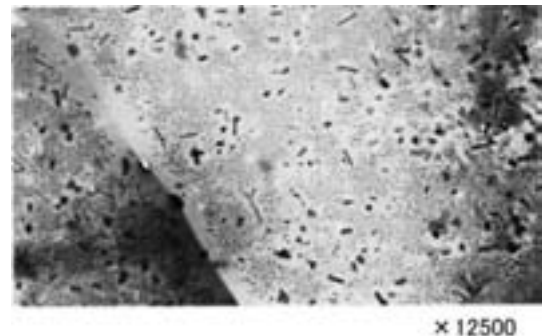


Fig. 27 Thin foil electron micrograph of Al-5.9%Zn-1.7%Mg-0.19%Cr alloy quenched from 465°C at the rate of 10°C/min and aged at 160°C for 7 h.²⁷⁾

出するが、十分に自然時効すると、GP (I) が生成し、その後の人工時効の昇温過程で分解して GP (II) を生成し、 η' 相に遷移して微細かつ高密度に析出し大きな強度上昇が得られる。Zn および Mg 添加量が多い合金では、自然時効の有無が人工時効後の最終強度に与える影響は小さくなる。これは、固溶 Zn, Mg 原子量が多いため、自然時効を行わずに人工時効処理を行った場合でも、人工時効処理の昇温過程で GP (I) および GP (II) が十分に生成し、 η' 相が微細高密度に析出するためと考えられる²⁸⁾。

4.2 四元系合金 (Al-Zn-Mg-Cu 系)

(1) 代表的合金

Al-Zn-Mg-Cu 系合金として、7075 合金、7050 合金等が代表的な合金である。ESD と同様に、7075 合金でも Cr が添加されることによって、応力腐食割れ性の改善がされた。その後、Zr 添加の 7050 合金が開発され、

これらの合金は高力合金として、航空機や二輪車、産業機械などに使用されている。さらに最近ではより高強度材として、Zn 添加量が多くまた Zn/Mg 比も高い組成の合金を、後述する復元処理を用いた熱処理の適用により実用化した 7055- T77 材が開発されている。

(2) 添加元素量の影響

ESD の開発において、Zn 添加量の多い合金も検討され、その際に課題であった応力腐食割れに対して Cr の添加によって改善が行われた。最近では応力腐食割れの改善により効果のある Zr の添加が一般的となっている。そのため Zr 添加した合金として、広範囲の Zn および Mg, Cu 量を変化させた合金の研究もおこなわれている。Al-6~9%Zn-1.5~2.5Mg-1.5~2.5%Cu 系合金の T6 材の強度、靱性、耐応力腐食割れ性におよぼす成分の影響を調査した研究では、強度への寄与は特に Mg および Zn の大きいこと、靱性への寄与は Mg および

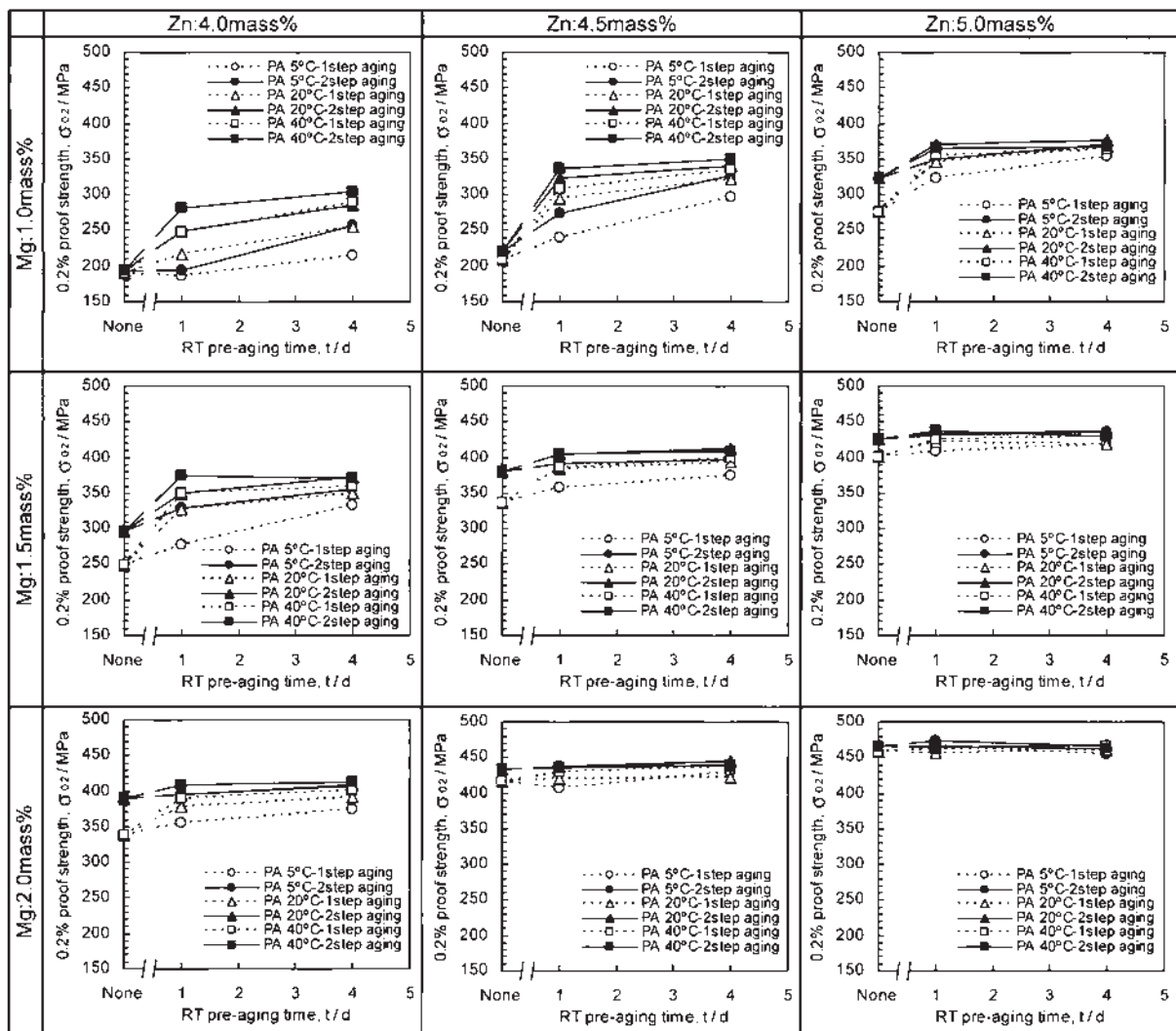


Fig. 28 Influence of room temperature pre-aging and artificial aging conditions on the 0.2% proof strength of 7N01 aluminum alloys.²⁸⁾

Cu の影響が大きいこと、応力腐食割れは Cu/Mg 原子比が高いほど顕著にあることが明らかにされている²⁹⁾。各用途に合わせて材料特性を調整する必要がある。

(3) 復元処理

焼入れ直後は強度が低く、時効後の材料に比較して冷間加工も施しやすい。Fig. 29 に 433K および 453K での復元処理時間とビッカース硬さの関係を示す²⁸⁾。7475 合金の復元処理として、453K で 40s 程度行うことによって硬さを低下でき、Table 4 に示すように曲げ加工性の改善が認められる³⁰⁾。これは GP ゾーンおよび η '相を復元処理することで、微細析出物は再溶入化させ、それ以上のサイズは高温で時効促進することによって硬さを低下し加工性の改善に繋げている。

また、復元を利用して T6 材と同等の強度を維持しつつ、T73~T76 材相当の耐応力腐食割れ性が得られる RRA (Retrosession and Re-aging) と呼ばれる熱処理方法が開発されている³¹⁾。Fig. 30 にその熱処理の模式図を示す。T6 処理の後に 171~260°C で短時間の復元処理を行い、その後さらに T6 調質と同等の人工時効処理を行う。この熱処理を行うと、Fig. 31 に示すように粒界の η 相が粗大化するとともに粒子間隔が大きくなり過時効材と同様の粒界組織になる³²⁾。そのため耐応力腐食割れ性が向上する。粒内では T6 処理で析出した GP ゾーンや η 相が復元処理によって分解されるが、その後の人工時効でそれらの相が析出して強度が上昇し、T6 処理材相当の強度が得られる。

(4) 析出制御による押出性の改善

Al-Zn-Mg-Cu 合金は熱間加工中に割れが生じやすい課題がある。これは Zn, Mg, Cu 等の溶質原子がアルミニウム母相中に多く固溶していることから、変形抵抗が高く、変形能を低下させるためと考えられている。そこで、鋳塊の均質化処理において、溶質原子を適切なサイズで均一に析出させる手法が開発された。Fig. 32 に示すように溶質元素を均一に析出させると熱間加工性を向上でき、Fig. 33 に示すように押出時の熱間割れが生じにくくなる³³⁾。

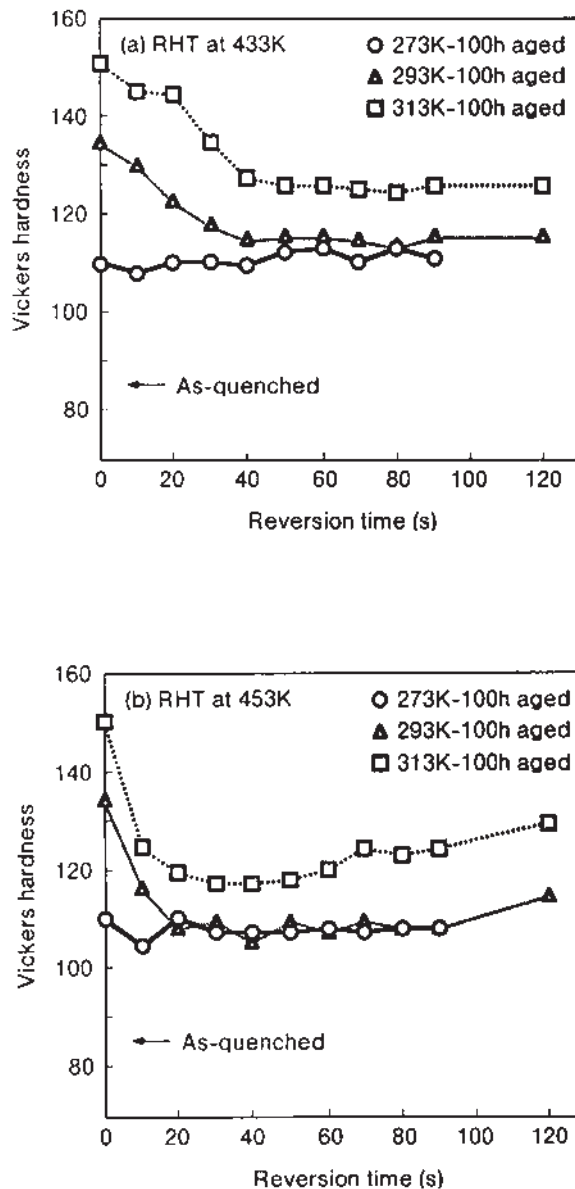


Fig. 29 Effect of reversion time on the hardness of 7475 aluminum alloy sheet (a) at 433K, (b) at 453K.³⁰⁾

Table 4 Bending properties before and after reversion (reversion : 453K-40s).³⁰⁾

Aging condition		273K-100h		293K-100h		313K-100h	
Reversion		Before	After	Before	After	Before	After
Vickers hardness		110	107	134	105	144	117
Bending radius	0 mm	×	×	×	×	×	×
	0.25mm	×	×	×	×	×	×
	0.50mm	○	○	×	○	×	○
	1.0mm	○	○	○	○	×	○

(○ : no crack, × : crack)

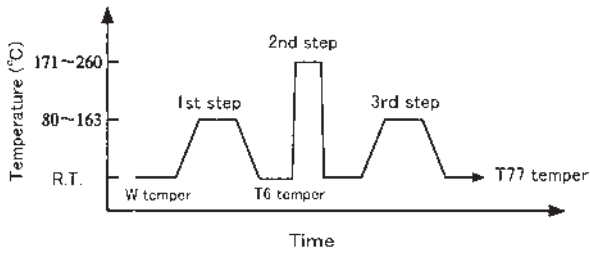


Fig. 30 Schematic diagram of RRA treatment.^{31, 32)}

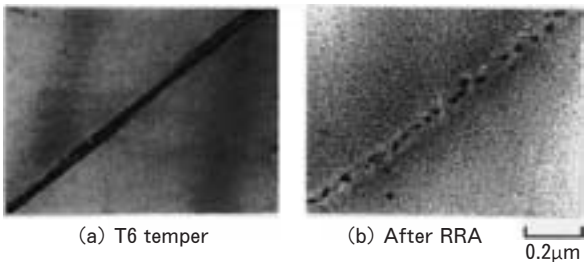


Fig. 31 Electron micrographs of 7150 alloy (a) after T6 temper and (b) after RRA.^{31, 32)}

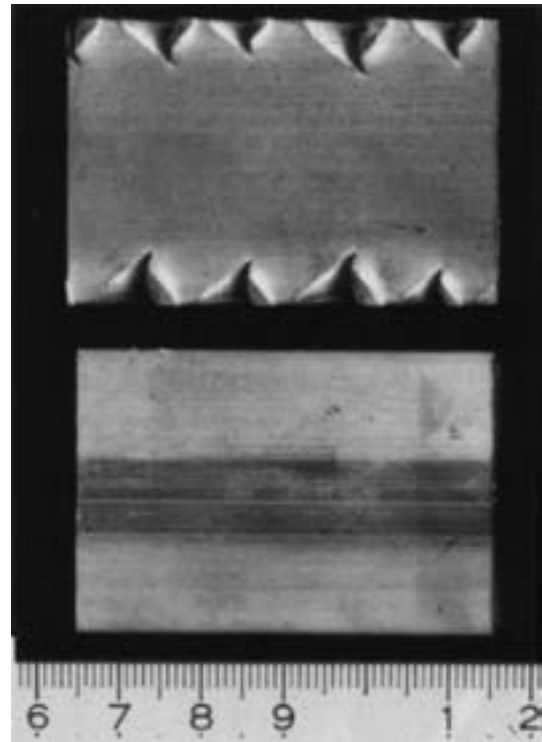
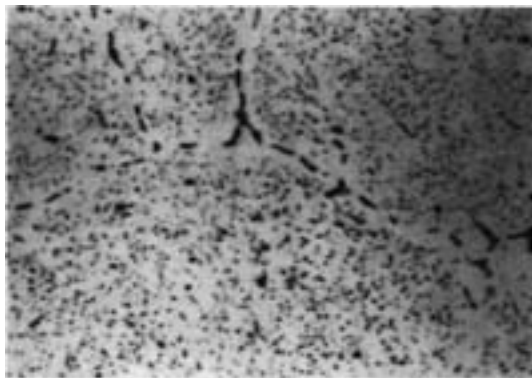


Fig. 33 Effect of soaking on the surface of extruded bar.(upper : conventional, lower : improved soaking).³³⁾



(a) Conventional process



(b) Improved process

Fig. 32 Microstructure of ingots soaked by conventional and improved process respectively.³³⁾

5. おわりに

時効硬化はアルミニウム合金の重要な強化方法の一つである。ウィルムが時効硬化を発見してわずか 100 年余りの間に、この時効析出を利用して飛躍的にアルミニウム合金の特性が向上し、またメカニズム解析も積極的に行われてきた。今後、素材に対する要求はますます高くなると予想されることから、これまでの多くの研究成果を踏まえ、さらなる発展に向けて析出制御技術の向上とその挙動の解明がますます重要になるであろう。

参考文献

- 1) A. Wilm : Metallurgie, 8, (1911), 225.
- 2) 吉田英雄 : アルトピア, 1, (2013), 14.
- 3) アルミニウム材料の基礎と工業技術, 軽金属協会, (1985).
- 4) 馬場義雄 : 本誌, 29, (1988), 29.
- 5) 馬場義雄 : 本誌, 10, (1969), 91.
- 6) 実用金属材料分野ナノメタル技術開発成果報告書(平成 15 年度) : 新エネルギー・産業技術総合開発機構, (2003).
- 7) 木村 宏 : 日本金属学会会報, 4, (1965), 513
- 8) 菅野幹宏, 坂野茂治, 鈴木 寿 : 軽金属, 25, (1975), 444.
- 9) 八太秀周 : 軽金属学会第 110 回春期大会講演概要, (2006), 225.
- 10) M. O. Speidel : Proceedings of 6th International Conference on Light Metals, Leoben, (1975), 67.
- 11) 宇野照生, 馬場義雄 : 本誌, 20, (1979), 3.

- 12) 航空機部品・素材産業振興に関する調査研究成果報告書 No.903, 高強度高成形 6000 系新合金の開発: 日本航空宇宙工業会, (1995).
- 13) K. Kato, T. Minoda, H. Sano : Proceedings of the tenth international aluminum extrusion technology seminar, (2012), 221.
- 14) 馬場義雄, 高島 章: 本誌, **11**, (1970), 293.
- 15) 寺井士郎, 馬場義雄: 本誌, **1**, (1960), 196.
- 16) 馬場義雄, 高島 章: 本誌, **10**, (1969), 210.
- 17) 八太秀周, 松田眞一, 吉田英雄: 軽金属, **56**, (2006), 667.
- 18) 山田健太郎, 里 達雄, 神尾彰彦: 軽金属, **51**, (2001), 215.
- 19) 内田秀俊, 吉田英雄: 軽金属, **46**, (1996)427.
- 20) 八太秀周, 松田眞一, 田中宏樹, 吉田英雄: 軽金属, **59**, (2009), 248.
- 21) 八太秀周, 松田眞一, 田中宏樹, 吉田英雄: 軽金属, **59**, (2009), 439.
- 22) 馬場義雄, 寺井士郎: 日本金属学会誌, **28**, (1964), 102.
- 23) Y.Baba : Trans.-JIM, **7**, (1966), 224.
- 24) 吉田英雄, 馬場義雄: 本誌, **22**, (1981), 42.
- 25) 馬場義雄, 高島 章: 本誌, **17**, (1976), 28.
- 26) 馬場義雄: 本誌, **9**, (1968), 24.
- 27) 馬場義雄, 高島 章: 本誌, **12**, (1971), 75.
- 28) 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属, **61**, (2011), 718.
- 29) 岩村信吾, 箕田 正, 吉田英雄: 軽金属, **60**, (2010), 75.
- 30) 箕田 正, 吉田英雄, 都築隆之: 軽金属, **49**, (1999), 161.
- 31) B. M. Cina : US Patent 3,856,584, (1974).
- 32) 内田秀俊, 吉田英雄: 軽金属, **45**, (1995), 41.
- 33) 松田眞一, 吉田英雄: 本誌, **39**, (1998), 116.

自動車板材料の成形性向上のための組織制御

浅野峰生* 吉田英雄**

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 166-184

Microstructural Control to Improve the Formability of Automotive Sheet Stock

Mineo Asano and Hideo Yoshida

In recent years, many investigations to improve the formability of Al-Mg alloy and Al-Mg-Si alloy sheets for automotive body panels have been performed. In the sheet press forming, the elongation with various strain ratios is a very important material property. The elongation in uniaxial deformation and plane strain could be explained by a change in the work hardening coefficient (n value) with the increasing strain. The n value of aluminum alloys was not constant. The n value increased to a maximum, and then decreased with the increasing strain. An increasing n value indicated an increase in the work hardening such as an increasing dislocation density. On the other hand, a decreasing n value indicated a dynamic recovery such as the formation of microbands. Therefore, the stability of the n value after reaching a maximum value was more important than the maximum n value to obtain a high elongation. The stability of the n value was significantly influenced by the chemical compositions, crystal orientations and strain rate during the tensile test. In particular, the influence of the crystal orientation on the elongation at various strain ratios (Forming limit diagram) has also been studied by numerical analysis based on the crystal plasticity theory. The Al-Mg alloy and the Al-Mg-Si alloy sheets for automotive outer body panels have been required a bendability. The mechanism of cracking by bending has been proposed as described below. The cracking was caused by coarse second phase particles which were more than $2\mu\text{m}$ in diameter and shear bands which formed in the grains. Microvoids formed around the coarse second phase particles during bending, and they lower the bendability. On the other hand, cracks tend to propagate along the shear bands, then lower the bendability. The formation of shear bands is significantly influenced by the chemical compositions and crystal orientations (and aging condition in the case of the Al-Mg-Si alloy sheet). Control of the high Cube orientation density and a retrogression heat treatment have been developed to improve the bendability.

1. 緒 言

自動車の軽量化を目的として、各種部品のアルミニウム化が進められており、板材としては、ボディパネル、ヒートインシュレータ、バスバー等への適用が進められている^{1~4)}。アルミニウム合金板を各種自動車部品へ適用する際の課題として、プレス成形性の向上が挙げられる^{5~8)}。特にボディパネルはデザイン性や安全対策等の

機能性から複雑な形状であることが多く、アウターパネルでは外観品質も重要視されるため、プレス成形が難しくなる。また、ボディパネルに多く適用されている5000系および6000系アルミニウム合金板は軟鋼板と比較して強度、延性、曲げ加工性等に劣ることから、適用できるプレス条件の幅が狭く、量産安定性が課題になることがある。

板プレス成形はFig. 1^{5,9)}に示す通り、主に4種類に分類される。いずれの成形においても、割れの発生原因や成形中の変形挙動は塑性加工学の観点だけでは解明す

* 研究開発センター 第一部

** 研究開発センター 顧問, 博士 (工学)

ることが難しく、材料学の観点も含んだ説明が必要である。本稿では、自動車板材料のうちボディパネル用アルミニウム合金板に焦点を絞り、ボディパネル用アルミニウム合金板の基本特性および基本特性に及ぼす材料組織の影響について述べる。また、Fig. 1 に示した4種類の成形の中から曲げ成形および張出し成形の2種類に関して、それぞれの成形性に及ぼす材料組織の影響を調査した研究事例を紹介し、成形性向上のための組織制御指針について述べる。

2. ボディパネル用アルミニウム合金板の基本特性および基本特性に及ぼす材料組織の影響

自動車ボディパネルへのアルミニウム合金板の適用に関して、歴史は古いが、軽量化による燃費向上を目的とした本格的な適用の検討は、石油危機以降の米国で1970年代から始まった。時期を同じくして、国内でも研究開発が開始され、多くの解説が書かれている^{10~21)}。国内における量産車への採用は1985年のマツダRX-7が最初である²²⁾。その後、自動車の大型化、高級化、高性能化、安全対策強化などにより生じた車両重量の増加を低減するため、アルミニウム化が進化した。アルミニウム合金板材の使用部位は国内外ともにフードが多く、他の部位への使用例は少ないのが現状である。これは、自動車ボディパネルに多く適用されている5000系および6000系アルミニウム合金板のプレス成形性やプレス成形後のパネル精度が軟鋼板と比較して劣ることが原因である。本章では、5000系および6000系アルミニウム合金板の基本特性として、引張試験にて得られる特性およびその特性に及ぼす材料組織の影響について述べる。

2.1 5000系 (Al-Mg) 合金

2.1.1 引張性質

非熱処理型の5000系合金は、適度な強度を有し、プレス成形性、耐食性、溶接性等に優れていることから、国内外で成形加工用材料として、広い範囲に使用されている。自動車ボディパネル用としては、軟鋼板相当の強度を有し、プレス成形性や耐食性に優れる5182, 5022,

5023等が代表として挙げられる。本系合金の主要添加元素であるマグネシウムは、アルミニウムに対する固溶度が高く、固溶体硬化を示す。5000系合金焼きなまし材のマグネシウム量と引張性質の関係をFig. 2^{23, 24)}に示す。引張強さおよび耐力はマグネシウム量の増加に伴って増加する。また、引張強さと耐力の差が大きくなる。伸びはマグネシウム量の増加に伴って減少し、添加量2~3mass%で極小値を示した後、増加する。したがって、自動車ボディパネル用としては、強度および伸びを考慮して、マグネシウムが4~6mass%添加された5000合金が一般的に用いられる。

Fig. 2で示した伸びの変化はひずみの増加に対する加工硬化指数(n値)の変化で説明できる。Fig. 3^{23~26)}に各マグネシウム量におけるn値-真ひずみ線図を示す。Fig. 2でも示した通り、マグネシウム添加量が1.5mass%および3.0mass%において、最も一様伸びが減少している。純アルミニウムのn値は真ひずみ約0.10まで徐々に減少した後、0.26~0.28でほぼ一定の値を示す。一方、マグネシウム添加合金のn値はひずみの増加に伴って、増加し、最大値を示した後、減少する。

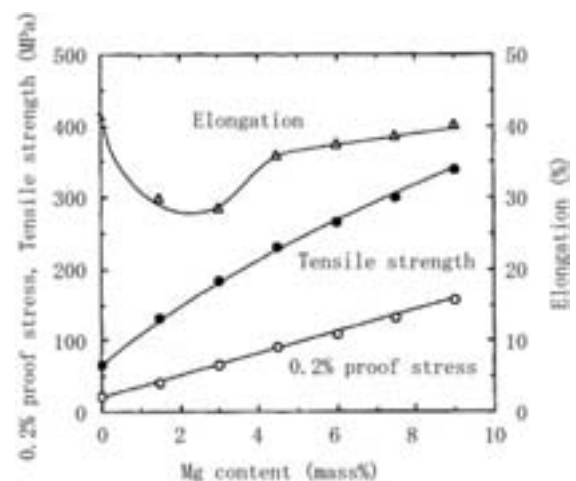


Fig. 2 Effect of Mg content on the tensile properties of Al-Mg alloy sheets (L direction)^{23, 24)}.

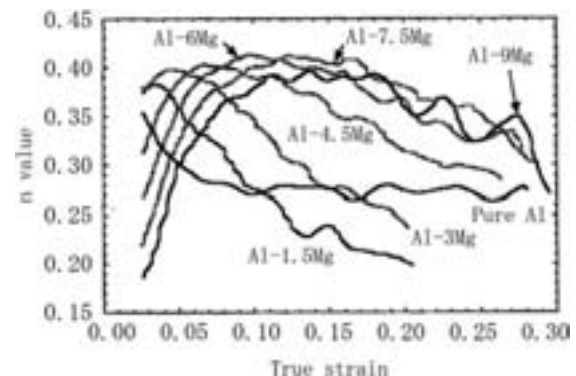


Fig. 3 Effect of Mg content on the change in n value with strain of Al-Mg alloy sheets^{23~26)}.

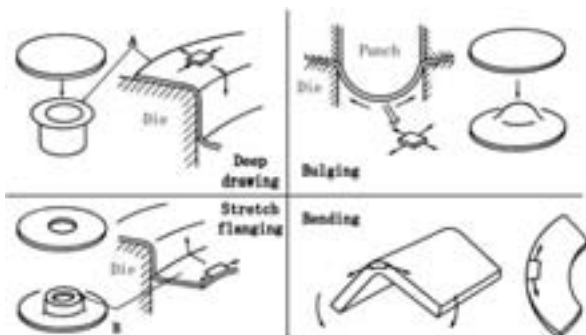


Fig. 1 Type of the sheet press forming^{5, 9)}.

低ひずみ域における n 値の増加の割合はいずれのマグネシウム量においても同程度であるが、最大値を示した後の高ひずみ域における n 値の減少の割合はマグネシウム量の増加に伴って、小さくなる傾向を示す。これらの n 値の挙動はマグネシウム添加量によって、引張変形中に形成される転位組織が異なるためである。Fig. 4^{23, 24)} に各マグネシウム量における 15% 予ひずみ後の TEM 像, Fig. 5^{24~26)} に n 値の変化と組織の対応について模式図を示す。 n 値が安定な領域では、転位組織に大きな変化は無く、安定な転位セル組織を示す。一方、 n 値が変化する場合、転位組織も変化する。 n 値の増加は転位セル組織を形成するまでの転位密度の増加を示し、加工硬化能が増大する。 n 値の減少は転位セル組織が形成されることによる動的回復の促進を示し、加工硬化能が減少する。最終的には、転位の局在化によってマイクロバンドが形成され、せん断帯を形成し、ネックングから破断に至る。以上のことから、延性には n 値の絶対値よりも安定性が重要であり、高ひずみ域における n 値の減少変化が少なく、より安定な n 値を示す材料が延性に優れると考えられている^{23~26)}。

2.1.2 降伏現象およびセレーション

Fig. 6²⁷⁾ に 5000 系合金の代表的な応力-ひずみ線図(模式図)を示す。応力はひずみの増加に伴って、降伏

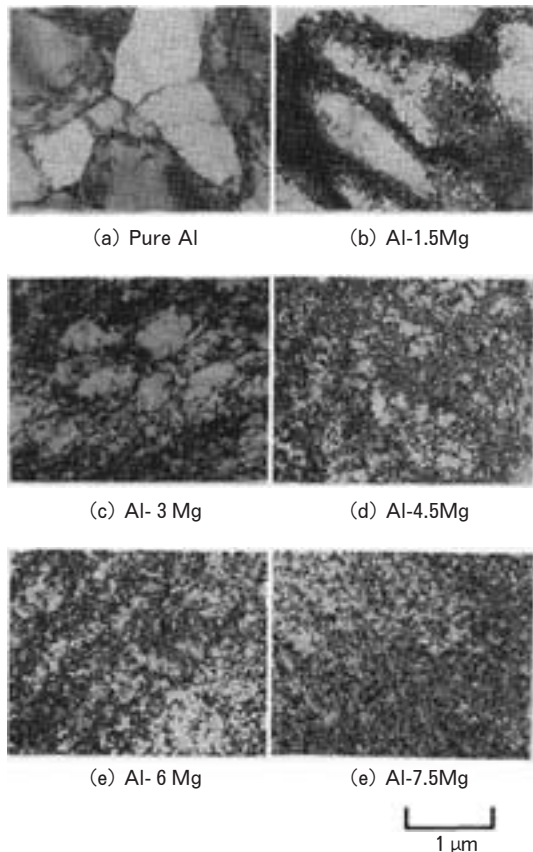


Fig. 4 TEM structures of 15% tensile strained pure Al and Al-Mg alloy sheets^{23, 24)}.

点まで増加した後、減少あるいは一定となり、これを降伏現象あるいは降伏点伸びと呼ぶ。ひずみがさらに増加すると不連続な降伏が繰り返し生じるセレーション (Serration) が現れ、これはポルトバン・ルシャトリエ効果 (Portevin-LeChatelier Effect, 略して PL 効果) と呼ばれている。このような不均一な変形により、引張変形後の板面には Fig. 7²⁸⁾ に示すような 2 種類のタイプのストレッチャストレインマーク (Stretcher Strain Markings) と呼ばれるひずみ模様が發生し、表面欠陥となる。第一のタイプはランダムマークと呼ばれ (Foliated Markings, Flamboyant Markings と呼ばれる)、数% 以下のひずみ量で發生し、降伏現象あるいは降伏点伸びに関連する。Fig. 8²⁹⁾ にランダムマークの断面の板厚分布を示す。表面凹凸から、これはキックの一種と考えられている。また、ランダム状になるのは応力分布が不均一なためと考えられている³⁰⁾。第二のタイプはパラレルバンド (Parallel Bands) と呼ばれ、数% 以上のひずみ量で發生し、セレーションに関連する。これは、転位の溶質雰囲気による固着と負荷応力による固着からの解放によって生じると考えられており、降伏

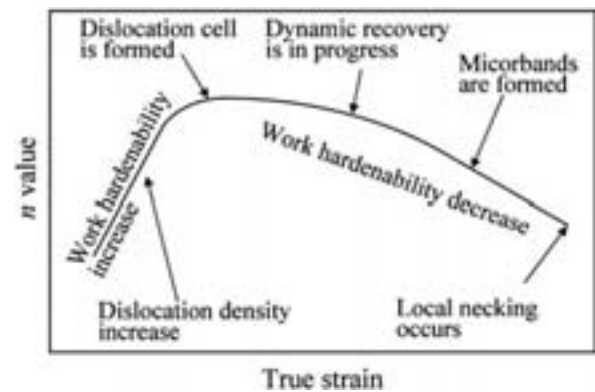


Fig. 5 Schematic diagram of microstructure variation on n value changes with strain^{24~26)}.

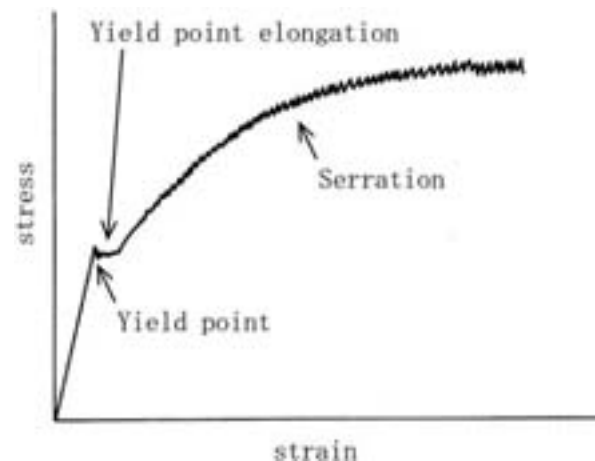


Fig. 6 Schematic diagram of stress-strain curve of Al-Mg alloy²⁷⁾.

点現象が繰返し起こることから、繰返し降伏現象とも呼ばれる³¹⁾。

自動車ボディパネルのプレス成形では、その形状により、様々なひずみ分布が生じる。そのため、ボディパネルでストレッチャストレインマークが発生した場合にはFig. 7で示したストレッチャストレインマークとは異なるひずみ模様が生じる。ランダムマークは、ひずみ比により、畳目、火炎状、筋状の模様となり、パラレルバンドは円弧状の模様になる³²⁾。

ストレッチャストレインマークの防止法としては、ランダムマークの場合、焼なまし後のスキンパスあるいはローラー矯正がよく知られている。パラレルバンドにつ

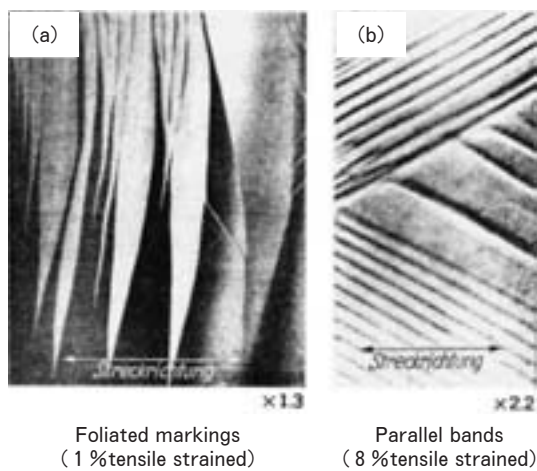


Fig. 7 Stretcher strain markings of Al-Mg alloy, (a) foliated markings (flamboyant markings), (b) parallel bands²⁸⁾.

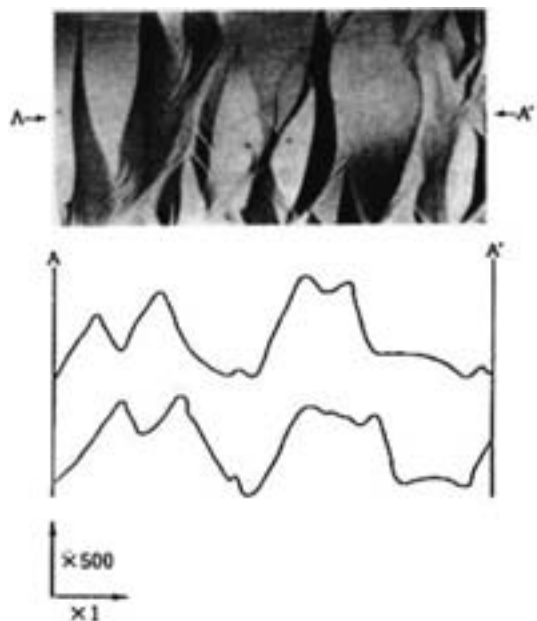


Fig. 8 Stretcher strain markings of Al-3.11mass%Mg alloy annealed at 400°C for 2 h after 0.5% tensile strained²⁹⁾.

いては、結晶粒径や時効処理等による改善の検討が行われているが、完全に抑制することは困難であり、加工条件の選択が主な防止法になる。例えば、二軸引張変形の場合、パラレルバンドは目立たなくなると言われている³²⁾。Table 1³³⁾に Al-5.5%Mg-0.3%Cu (mass%) 合金の焼なまし材 (結晶粒径 55 μ m) におけるパラレルバンドの発生に及ぼす応力比の影響を示す。応力比が等二軸引張変形に近い場合、パラレルバンドは発生しない。これは Fig. 9^{33~35)} に示すように、単軸引張変形では <110> 方向に平行なマイクロバンドが一方向に発達し、不均一変形するが、等二軸引張変形では活動すべり系の増加により、直交するバンドが発達し (不動転位が多く形成し)、不均一変形が抑制されたためと考えられている。この活動すべり系には変形による集合組織の変化も重要であることが指摘されている^{33~35)}。また、引張変形中の温度とひずみ速度を制御することでも、セレーシヨンの発生 (パラレルバンドの発生) を防止することができる³⁰⁾。

いずれのストレッチャストレインマークにおいても、その防止には結晶粒を大きくすることが効果的であるが、結晶粒径が 50 μ m を超える場合、オレンジピール (Orange Peel) と呼ばれる表面欠陥 (肌荒れ) が生じ易くなる³⁶⁾。

5000 系合金焼なまし材の応力-ひずみ線図に及ぼすマグネシウム量と引張試験温度の影響を Fig. 10³⁷⁾ に示す。前述の通り、室温 (25°C) での伸びはマグネシウム量の増加に伴って減少し、添加量 2~3 mass% で極小値を示した後、増加する。一方、高温 (250°C) での伸びはマグネシウム量の増加に伴って増加し、セレーシヨンも消滅する。この特性を利用し、オイルパンやドアイ

Table 1 Relationship between stress ratio ($\sigma_{RD} : \sigma_{TD}$), strain, stress state and type-B Lüders bands (parallel bands) formation³³⁾.

Stress ratio	Major strain *	Minor strain *	Stress state	Lüders bands **
8 : 0	0.093	-0.046	Uniaxial	Observed, 57°
8 : 2	0.065	-0.014		Observed, 66°
8 : 4	0.053	0.001	Plane strain	Observed, 90°
8 : 5	0.053	0.003		Observed, 90°
8 : 6	0.048	0.009		Observed, 90°
8 : 7	0.039	0.018		Not Observed
8 : 8	0.033	0.033	Balanced biaxial	Not Observed

* Tensile tests were stopped when the tensile load became 15.5kN in major strain direction.

** The angles show the direction of Lüders bands to the major strain.

ンナ等の難成形部品を温間加工により成形することも試みられている^{38, 39)}。また、結晶粒径を10 μm 程度以下に微細化すると、400~500 $^{\circ}\text{C}$ の温度で超塑性特性を示す。

2.1.3 超塑性

結晶粒径を10 μm 程度以下まで微細化した超塑性材料に関する研究は古くから行われており⁴⁰⁾、5000系合金以外に7000系合金(Al-Zn-Mg-Cu合金)や8000系合金(Al-Li合金)等の研究も盛んに行われてきた^{41, 42)}。一方、5000系合金において、結晶粒を微細化しない場合においても超塑性伸びは発現する。田中ら⁴³⁾はAl-5.5mass%Mg合金(C-0)とAl-5.5mass%Mg-

0.3mass%Cu合金(C-3)において、押出、引抜き加工、熱処理を行い、結晶粒径350 μm と100 μm の丸棒を製作し、300~480 $^{\circ}\text{C}$ の温度域において、ひずみ速度 10^{-2}s^{-1} で引張試験を行っている。この時の伸びをFig. 11⁴³⁾に示す。結晶粒径100 μm を有するAl-5.5mass%Mg-0.3mass%Cu合金の試料は400 $^{\circ}\text{C}$ 以上で超塑性伸びの指標である300%以上の伸びを示し、Cu添加により顕著な伸びの向上が得られる。滝口ら⁴⁴⁾はマグネシウム量を3~8mass%、銅量を0.01%以下および0.3mass%の範囲で変更し、前述の田中らと同様な引張試験および電子顕微鏡観察を行っている。Al-8mass%Mg合金の電子顕微鏡観察から、結晶粒界にMgが偏析し、 Al_3Mg_2 (β 相)が形成されることを明らかにしている⁴⁴⁾。また、Cu添加により伸びが向上する理由について、Fig. 12^{43, 44)}に示すように、Cuが添加されている場合、マグネシウムは銅と結合し、 $\text{Al}_6\text{Mg}_4\text{Cu}$ (T相)が形成され、これが結晶粒界への β 相の連続析出を抑制し、伸びが改善されると考えている。内田ら⁴⁵⁾はAl-5.5mass%Mg-0.3mass%Cu合金の結晶

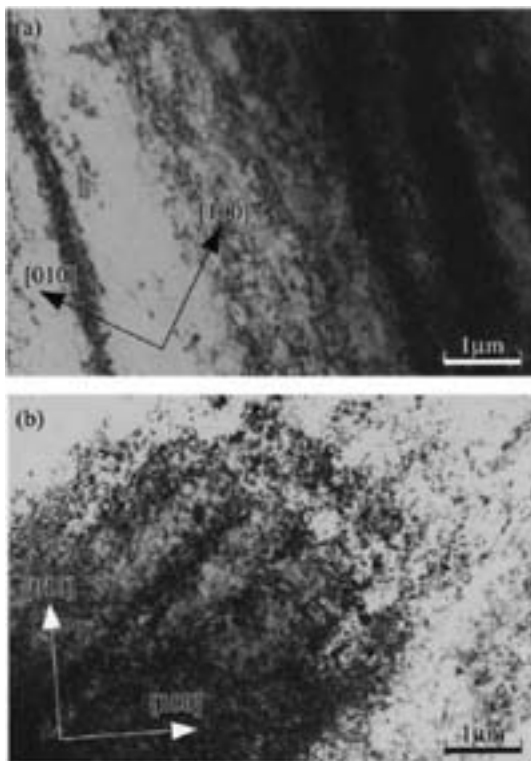


Fig. 9 TEM structures of Al-5.5mass%Mg-0.3mass%Cu alloy sheet after the biaxial tensile tests. Stress ratio ($\sigma_{RD} : \sigma_{TD}$) were (a) 8 : 0 and (b) 8 : 8^{33~35)}.

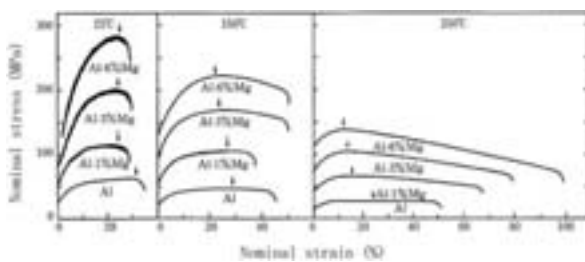
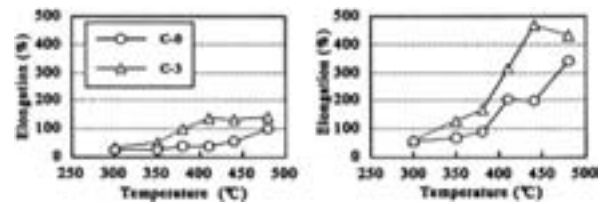


Fig. 10 Stress-strain curves of the uniaxial tensile tests at 25 $^{\circ}\text{C}$, 150 $^{\circ}\text{C}$, 250 $^{\circ}\text{C}$ on pure Al and Al-Mg alloys (Initial strain rate : $2.9 \times 10^{-3}\text{s}^{-1}$). The arrows indicated the position of uniform elongation was maximized³⁷⁾.



(a) Coarse grain specimens (b) Fine grain specimens

Fig. 11 Elongation of the high temperature cylindrical tensile tests (Temperature : 300-480 $^{\circ}\text{C}$, Strain rate : 10^{-2}s^{-1}) on Al-5.5mass%Mg alloy (C-0) and Al-5.5mass%Mg-0.3mass%Cu alloy (C-3). The grain size of coarse grain specimens and fine grain specimens were 350 μm and 100 μm , respectively⁴³⁾.

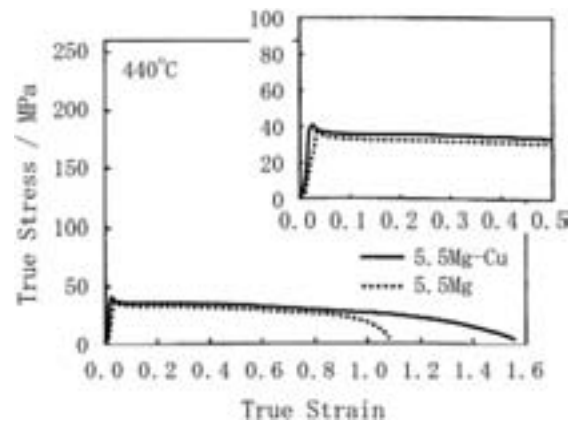


Fig. 12 Stress-strain curves of the high temperature cylindrical tensile tests at 440 $^{\circ}\text{C}$ on Al-5.5mass%Mg alloy and Al-5.5mass%Mg-0.3mass%Cu alloy (The grain size of specimens were 100 μm)^{43, 44)}.

粒径約 50 μm を作製し、ひずみ速度を変更した高温引張試験を行っている。Fig. 13^{45, 46)} に示すように Al-Mg-Cu 合金は通常の 5083 合金 (ひずみ速度: $2 \times 10^{-4}\text{s}^{-1}$) と比較して、比較的低温かつ高ひずみ速度 ($10^{-2} \sim 10^{-1}\text{s}^{-1}$) で高い伸びが得られ、Fig. 14^{45, 46)} に示すようにキャビティの発生が極端に少ない。そのため、高い熱間ブロー成形性を示す⁴⁶⁾。このような比較的低温で高速の超塑性挙動を示すことに関して、伊藤ら⁴⁷⁾、Taleff ら⁴⁸⁾ はマグネシウム量や結晶粒径の影響を調べ、溶質雰囲気引きずり運動 (Solute Drag Creep) に律速された変形により、超塑性伸びが発現し、結晶粒径が小

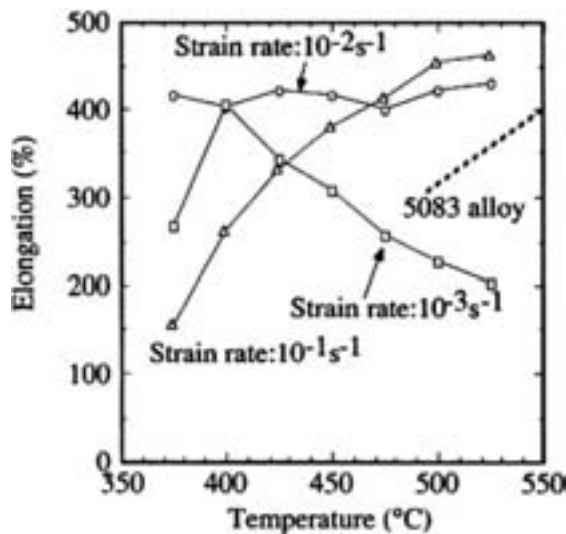


Fig. 13 Effect of tensile temperature and strain rate on the elongation of Al-5.5%Mg-0.3%Cu. The conventional SPF 5083 alloy was shown as a comparison^{45, 46)}.

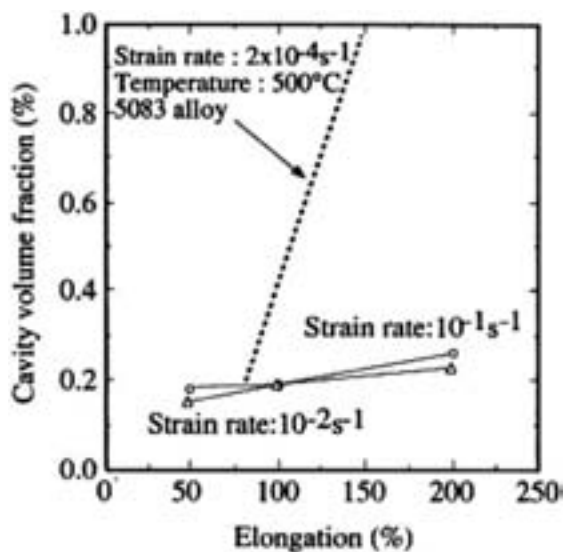


Fig. 14 Effect of elongation on the cavity volume fraction of Al-5.5mass%Mg-0.3mass%Cu and the conventional SPF 5083 alloy^{45, 46)}.

さくなるにつれて、付随的変形機構としての粒界すべりの寄与が増し、最大伸びを示すひずみ速度が高速側に移行する傾向があると述べている。M. A. Kulas ら⁴⁹⁾ は、各社の 5083 超塑性材 (平均結晶粒径 7 μm) の高温変形特性を調査しており、高温でひずみ速度が低い領域では粒界すべりクリープ (Grain Boundary Sliding Creep) が支配的であること、低温でひずみ速度が高い領域では溶質原子引きずりクリープ (Solute Drag Creep) が支配的であることを明らかにしている。

超塑性材料の実用化に関して、国内では本田技研工業、海外では General Motors, Panoz 等で 5083 超塑性材をボディパネルへ適用している。本田技研工業では S2000 のハードトップ⁵⁰⁾、レジェンドのフェンダおよびトランクリッド⁵¹⁾ に 5083 超塑性材を適用しており、熱間ブロー成形の懸念事項である生産性を高めるために、従来の成形温度より低温かつ高速でブロー成形を行っている⁵¹⁾。General Motors では高速超塑性成形の手法として、“Quick Plastic Forming (QPF)” を実用化しており、従来の “Superplastic Forming (SPF)” と区別している⁵²⁾。

2.2 6000 系 (Al-Mg-Si) 合金

2.2.1 引張性質

6000 系合金は中強度の熱処理型合金であり、6063, 6061, 6N01 等が代表として挙げられる。これらの合金は押出性・圧延性が良好であり、焼入れ感受性も小さく、生産性に優れていることから、建材、鉄道車両、自動車部品等に多用されている。自動車ボディパネル用としては、優れたバークハード性 (塗装焼付硬化性: Paint Bake Hardenability) を付与させるため、過剰 Si 型である 6016, 6022, 6111 等が代表として挙げられる。これらの合金は一般的に、成形性や精度の観点から、低耐力の T4 調質でプレス成形を行い、耐デント性の観点から、バークハード性を利用して、塗装焼付処理時に耐力を大幅に増加させる。Fig. 15¹⁸⁾ に 6000 系合金および 5000 系合金の塗装焼付による耐力変化の模式図を示す。いずれの合金においても、プレス成形後には加工硬化により耐力は増加する。その後の塗装焼付により、5000 系合金の耐力はわずかに増加もしくは低下する。一方、6000 系合金の耐力は最適な塗装焼付温度を選定することにより、顕著に増加する。一般的な塗装焼付温度は 170 $^{\circ}\text{C}$ 前後と低く、時間も 20 分程度と短いため、通常の焼入れ処理 (T4 処理) では、塗装焼付時の顕著な耐力増加は見込めない。そのため、低温・短時間の塗装焼付処理で高バークハード性を得るための研究開発が進められてきた。例えば、焼入れ処理後に復元処理^{53, 54)} や予備時効^{55~58)} のような熱処理を追加することで、低温・短時間の塗装焼付処理でも顕著な耐力増加が可能となる。

自動車ボディパネル用として使用される 6000 系合金の T4 調質材は 5000 系合金の O 調質材と比較して、深絞り成形性や曲げ加工性に劣るため、実用上問題になる

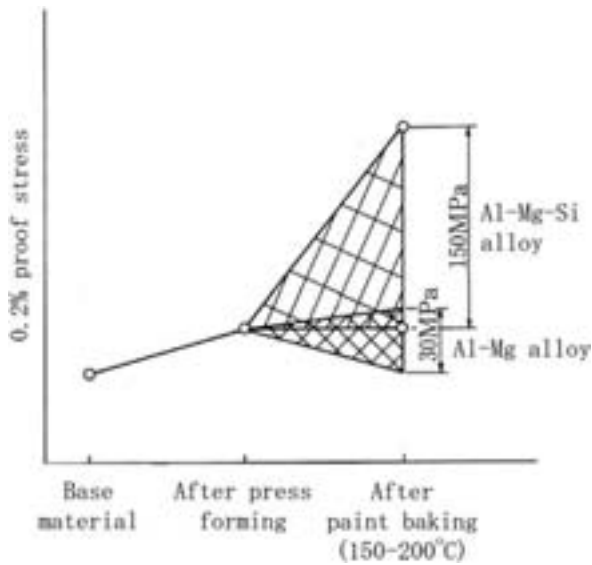


Fig. 15 Change in yield strength of Al-Mg alloy O sheet and Al-Mg-Si alloy T4 sheet with press forming and paint baking¹⁸⁾.

ことがある。また、深絞り成形し難いことから張出し成形性(延性)が問題になることもある。そのため、6000系合金で優れたプレス成形性を得るための研究開発が進められてきた^{2, 15, 18, 21)}。各成形の種類に関する研究事例は第3章で述べることにするが、6000系合金のT4調質材の引張性質は添加元素や集合組織の影響を大きく受ける。

引張性質に及ぼす添加元素の影響に関して、6016-T4を基準にケイ素量を変更した際の引張性質をFig. 16^{59, 60)}に示す。引張強さおよび耐力はケイ素量の増加に伴って増加し、1.1mass%Si以上では緩やかに増加する。伸びはケイ素量の増加に伴って増加し、1.1mass%Si以上では一定の値を示す。6016合金のケイ素量は1.0~1.5mass%の範囲であり、引張強さ、耐力、伸びが急激に増加するケイ素量を超えた範囲で規定されている。Fig. 16で示した伸びの変化はFig. 3で示した5000系合金と同様に、ひずみの増加に対するn値の変化で説明できる。Fig. 17^{59~61)}に各ケイ素量におけるn値-真ひずみ線図を示す。0.5mass%Si (0.5Si)は真ひずみ0.04でn値が最大値を示し、0.7mass%Si (0.7Si)は真ひずみ0.06で最大値を示し、いずれの合金においても、その後は急激に減少する。一方、1.1mass%Si (1.1Si)~1.6mass%Si (1.6Si)は真ひずみ0.08以降でn値が最大値を示し、その後減少する。すなわち、ケイ素量が多いほど、最大値を示した後のn値の減少変化が小さい。これらのn値の挙動はケイ素添加量によって、引張変形中に形成される転位組織が異なるためであり、Fig. 18^{59, 60)}に各ケイ素量における8%予ひずみ後のTEM像を示す。0.5mass%Siおよび0.7mass%Siでは、すでに転位の局在化を示すマイクロ

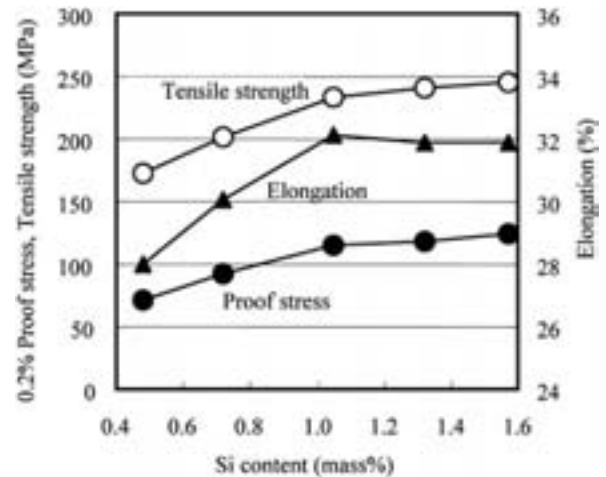


Fig. 16 Effect of Si content on the tensile properties of Al-Mg-Si alloy sheets^{59, 60)}.

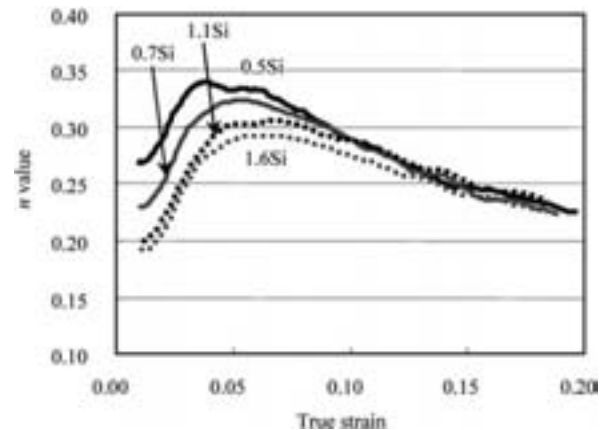


Fig. 17 Effect of Si content on the change in n value with strain of Al-Mg-Si alloy sheets^{59~61)}.

バンドが観察される。一方、1.1mass%Siでは、マイクロバンドが形成し始めている状態であり、1.3%massSiおよび1.6%massSiでは、微細な転位組織のみである。

引張性質に及ぼす集合組織の影響に関して、著者ら⁶²⁾は、Al-1.0%Si-0.5%Mg-0.1%Mn (mass%)合金のT4調質材において、Cube方位密度の異なる2種類の板材を作製し、圧延方向に対して0°および45°の2方向で引張試験を行っている。いずれの板材もCube方位が主方位であり、方位密度(ランダム比)はそれぞれ20 (LC: Low-Cube), 65 (HC: High-Cube)である。Fig. 19⁶²⁾に応力-ひずみ線図を示す。伸びはHCの45°方向が最も高く、次いでLCの45°方向、LCの0°方向が高く、HCの0°方向が最も低い。すなわち、Cube方位密度が高いほど、伸びの面内異方向性が大きくなる。Fig. 20⁶²⁾にn値-真ひずみ線図を示す。いずれの板材および引張方向においても、n値はひずみの増加に伴って増加し、0.06~0.08の真ひずみで最大値を示す。

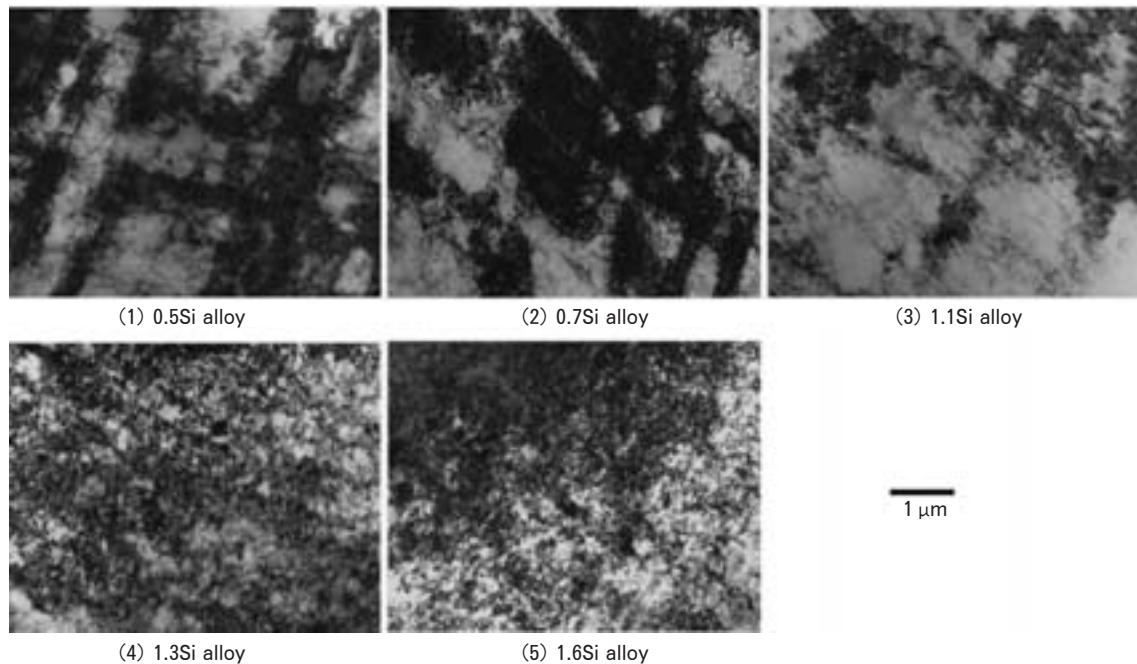


Fig. 18 TEM structures of 8% tensile strained Al-Mg-Si alloy T4 sheets (true strain : 0.08)^{59, 60)}.

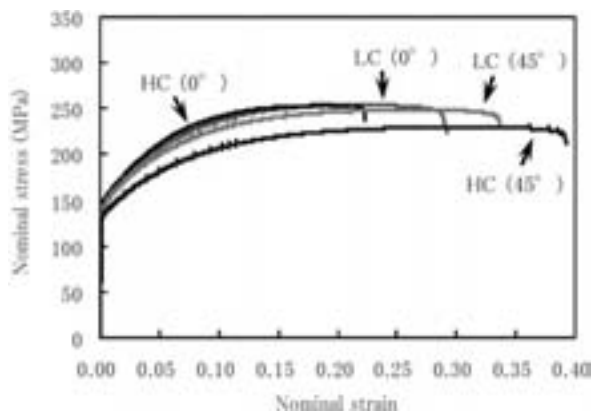


Fig. 19 Stress-Strain curves of Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T4 sheets with the difference Cube orientation density (HC : High-Cube, LC : Low-Cube, tensile directions were 0° and 45°)⁶²⁾.

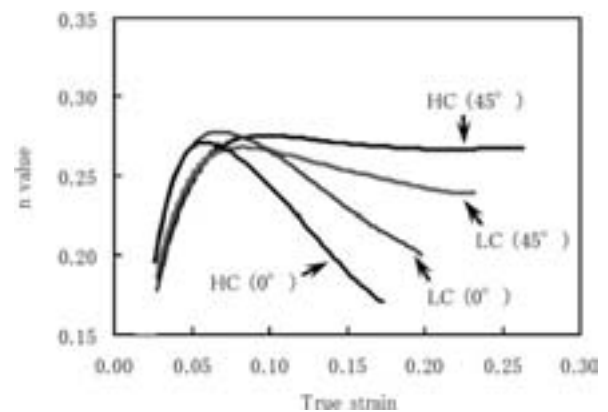


Fig. 20 Effect of Cube orientation density on the change in n value with strain of Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T4 sheets (HC : High-Cube, LC : Low-Cube, tensile directions were 0° and 45°)⁶²⁾.

その最大値はいずれも 0.27~0.28 で大きな差は認められない。最大値を示した後の n 値の減少変化が各板材および各引張方向で異なる。HC の 45° 方向は最大値のまま一定の値を示し、それ以外はひずみの増加に伴って減少する。その減少変化は HC の 0° 方向が最も大きい。これらの n 値の挙動も Fig. 18 で示した結果と同様に引張変形中に形成される転位組織が異なるためである。Fig. 21⁶²⁾ に 15% 予ひずみ後の TEM 像を示す。HC の 0° 方向では転位の局在化を示すマイクロバンドが観察される。一方、HC の 45° 方向ではマイクロバンドの形成が不明瞭である。以上のように、最大値を示した後の n 値の減少変化が小さいほど伸びが大きくなることは、n 値の減少がマイクロバンドの形成を示していることは、

Fig. 3 および Fig. 4 で示した 5000 系合金の O 調質材と同様の結果である。すなわち、6000 系合金の T4 調質材においても、延性には n 値の絶対値よりも安定性が重要であり、高ひずみ域における n 値の減少変化が少なく、より安定な n 値を示す材料が延性に優れると考えられている^{59~64)}。

2.2.2 リジングマーク

6000 系合金はプレス成形された際、圧延方向に沿って、10~30μm 深さの筋状(带状)の凹凸が発生することがあり、発生した場合には表面欠陥となる。この筋状の凹凸はリジングマークと呼ばれ(Ridging Markings, Roping と呼ばれる)、似通った結晶方位を有する結晶粒が筋状に集合体として存在し、それぞれの筋の塑性

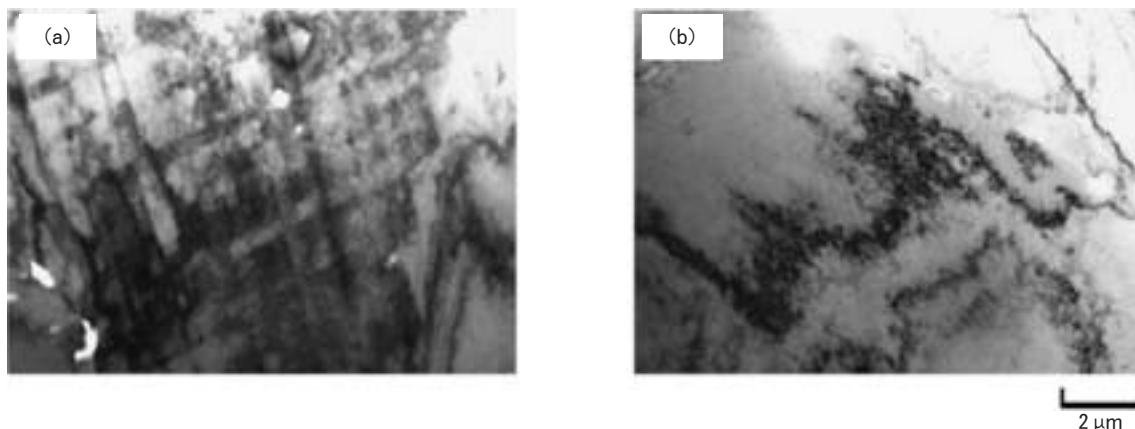


Fig. 21 TEM structures of 15% tensile strained Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T4 sheets with High-Cube orientation density. Tensile directions were (a) 0° and (b) 45° .

変形挙動が異なることが発生原因と考えられている⁶⁵⁻⁷¹). 15% 予ひずみ後の 6111-T4 板材の外観写真を Fig. 22⁶⁷⁾ に示す。予ひずみは圧延垂直方向 (写真の水平方向) に付与しており、圧延方向 (写真の上下方向) に沿って、1~2 mm 間隔で筋模様が観察される。Fig. 23⁶⁶⁾ に引張変形後の 6111-T4 板材で観察されるリジングマークの概略図を示す。リジングマークは一般的に板材の表裏面に凹凸が対応しないことが多い (図中の "Irregular" 部分)。P. D. Wu ら⁶⁷⁾ は、SEM/EBSD を用いた結晶方位解析および結晶塑性有限要素法を用いた数値解析により、6111-T4 のリジングマーク発生に及ぼす集合組織の影響を調査しており、筋状に存在する $\{112\}\langle 110\rangle$ 粒の集合体がリジングマークの発生に著しい影響を及ぼし、 $\{112\}\langle 110\rangle$ 粒と $\{001\}\langle 100\rangle$ 粒の集合体もしくは $\{112\}\langle 110\rangle$ 粒と $\{011\}\langle 100\rangle$ 粒の集合体を共存させないことで、リジングマークを大幅に改善できると述べている。また、小関ら⁷¹⁾ は、SEM/EBSD を用いた結晶方位解析により、 $\{001\}\langle 100\rangle$ および $\{011\}\langle 100\rangle$ への集積が異なる 6016-T4 のリジングマーク発生に及ぼす集合組織の影響を調査しており、Fig. 24⁷¹⁾ に示すように、筋状に存在する $\{001\}\langle 100\rangle$ 粒と $\{011\}\langle 100\rangle$ 粒の集合体が多く存在すると顕著なリジングマークが発生すること、リジングマークの発生程度には引張方向による相違がみられ、 45° 方向に引張変形を付与すると顕著に発生することを明らかにしている。

3. ボディパネル用アルミニウム合金板の曲げ加工性および張出し成形性に及ぼす材料組織の影響

自動車ボディパネル用として使用されている 5000 系合金の O 調質材および 6000 系合金の T4 調質材は軟鋼板と比較して、Fig. 1 に示した 4 種類のいずれの成形においても、成形性に劣る。そのため、各成形性を改善するための研究開発が活発に行われてきた。本章では、4

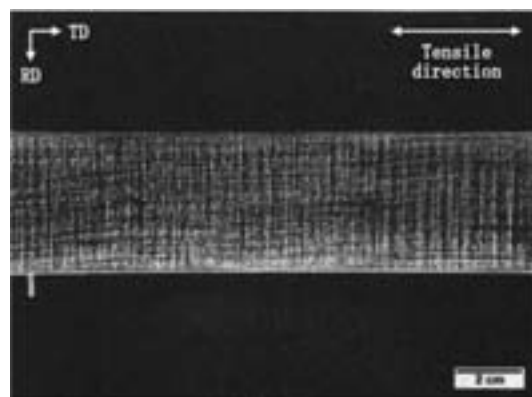


Fig. 22 Ridging marking (roping) topography for 6111-T4 under uniaxial tension in the transverse direction at 15% elongation⁶⁷⁾.

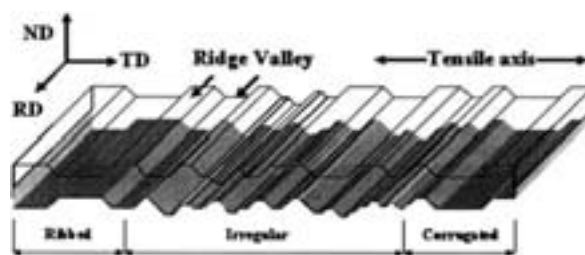


Fig. 23 Schematic representation of ridging marking (roping) observed in 6111-T4 after tensile deformation in the transverse direction⁶⁶⁾.

種類の成形の中から曲げ成形および張出し成形の 2 種類に焦点を絞り、それぞれの成形性に及ぼす材料組織の影響に関する研究事例を紹介し、成形性向上のための組織制御指針について述べる。

3.1 曲げ加工性

6000 系合金はストレッチャストレインマークが発生せず、バークハード性を有することからアウトパネル

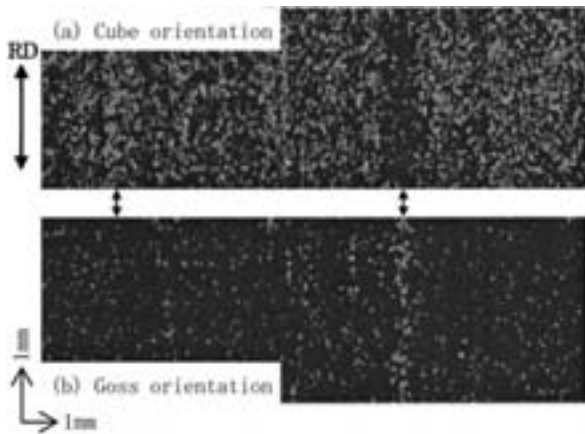


Fig. 24 EBSD map of the surface part on 6016-T4 sheet. (a) Cube, (b) Goss⁷¹⁾.

へ適用する利点が多い。しかしながら、6000系合金のT4調質材は5000系合金のO調質材と比較して、曲げ加工性に劣るため、ヘミング（Hemming：アウターパネルの縁部でインナーパネルをかしめる曲げ加工）で割れが発生し易く、実用上問題になることがある。そのため、自動車ボディパネル用アルミニウム合金の曲げ加工性に関する研究は6000系合金のT4調質材を主として行われてきた^{72, 73)}。

3.1.1 曲げ割れ発生メカニズム

著者ら^{74, 75)}は、Al-1.0%Si-0.5%Mg-0.1%Mn (mass%)合金において、溶体化処理条件および焼入れ条件を変更した試験を行い、その試験結果から曲げ割れ発生メカニズムを提案している。Fig. 25^{74, 75)}に550℃に昇温保持した塩浴炉で15~3600sの溶体化処理を行い、冷却速度を変化させて焼入れを行った板材の曲げ試験結果を示す。溶体化処理時間15sにおいて、割れの発生はみられないが、溶体化処理時間の増加に伴って、割れ深さが増加し、最大値を示した後、減少する傾向を示す。また、割れ深さの最大値は焼入れ速度が低いほど、大きくなる。Fig. 26^{74, 75)}に全第2相粒子分布（結晶粒界および結晶粒内すべての第2相粒子分布）に及ぼす溶体化処理時間および焼入れ速度の影響を示す。いずれの焼入れ速度においても、溶体化処理時間の増加に伴って、2μm以上の全第2相粒子数が減少する。一方、焼入れ速度が低いほど、冷却中にMg-Si系化合物が粒界析出し易くなるため、結晶粒界上の第2相粒子数は増加するが、その平均サイズは約1μmであり、個数は全第2相粒子数の1/10程度である。よって、減少した2μm以上の第2相粒子は主に結晶粒内に存在する第2相粒子である。本合金の結晶粒内に存在する第2相粒子は主にAl-Fe-Si系化合物、Al-Mn-Si系化合物、Mg-Si系化合物（およびSi単相）であり、溶体化処理で固溶が進む金属間化合物はMg-Si系化合物である。よって、2μm以上の減少した第2相粒子はMg-Si系化合物と考えられる。Fig. 27^{74, 75)}に曲げ試験後の断面光学顕微鏡組織

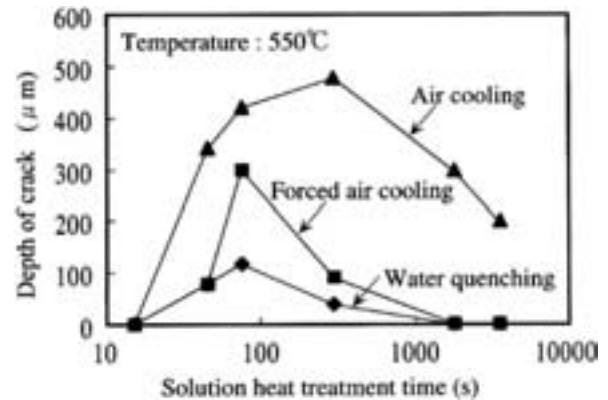


Fig. 25 Effect of solution heat treatment time and quenching rate on the depth of a crack. The samples were solution heat treated at 550 °C of Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T 4 sheets^{74, 75)}.

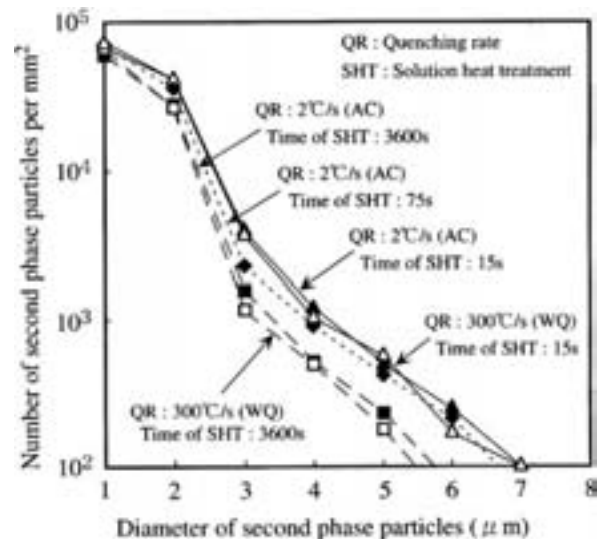
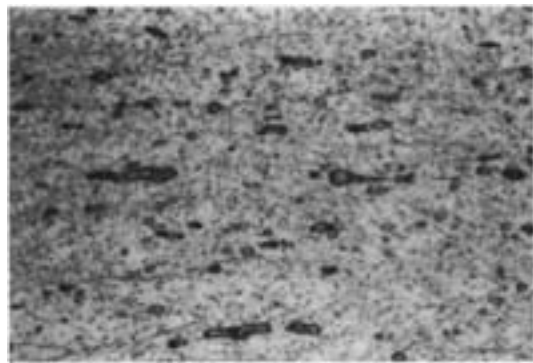
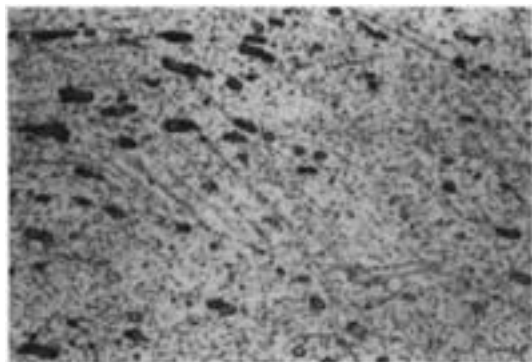


Fig. 26 Effect of quenching rate and solution heat treatment time on the number of second phase particles of Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T 4 sheets^{74, 75)}.

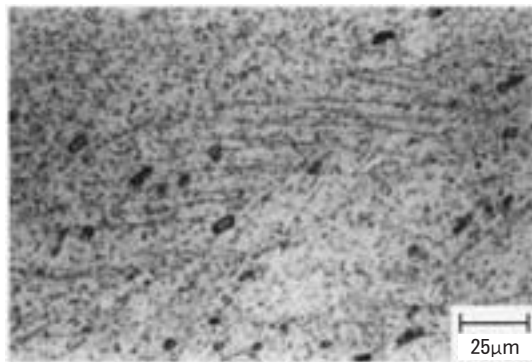
を示す。溶体化処理時間15sではせん断帯（結晶粒界をまたぐ変形帯）の形成が観察されないのに対し、75sおよび3600sではせん断帯の形成が観察される。以上の結果を基に、提案した曲げ割れ発生メカニズムをFig. 28^{74, 75)}に示す。Fig. 29⁷⁶⁾に示すように、曲げ加工により、表層および表層付近に存在する2μm以上の第2相粒子が砕かれた隙間および周りでマイクロボイドが形成される。さらに、せん断帯が形成されると、マイクロボイドおよびせん断帯に沿った割れが発生する。マイクロボイドはせん断帯上で顕著に形成されるため、割れの伝播は主にせん断帯に沿うが、結晶粒界上の第2相粒子が多い場合には結晶粒界に沿った伝播も発生する。Fig. 30^{77~79)}に曲げ試験後の割れ近傍部の断面光学顕微鏡組織を示す。



(a) Solution heat treatment time : 15s



(b) Solution heat treatment time : 75s



(c) Solution heat treatment time : 3600s

Fig. 27 Optical microstructures of Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T4 sheets after bending test. The samples were quenched in water after solution heat treatment at 550°C^{74, 75)}.

破断部にはマイクロボイドの痕跡が観察され、破断面と平行にせん断帯が発達している様子も観察される。以上のことから、曲げ割れの発生を抑制するためには、2 μm以上の第2相粒子の形成を抑制し、粒界析出を抑制すること、もしくはせん断帯の形成を抑制することが必要である。第2相粒子およびせん断帯の形成状態に影響を及ぼす因子としては、化学成分が挙げられ、せん断帯の形成状態に影響を及ぼす因子としては、時効、集合組織が挙げられる。

3.1.2 化学成分の影響

曲げ加工性に及ぼす化学成分の影響については、ケイ

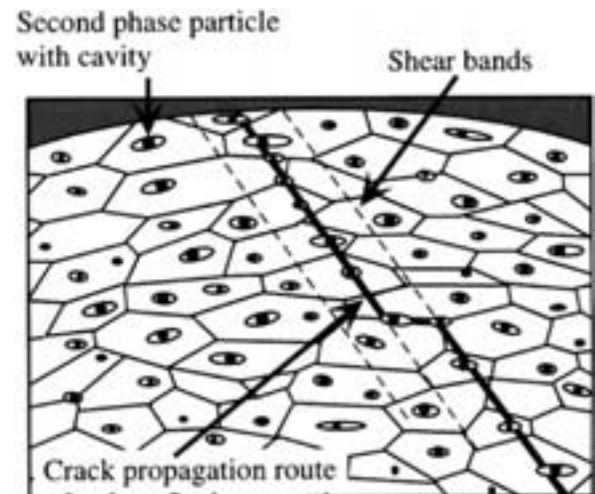


Fig. 28 Schematic diagram of the crack formation by bending process^{74, 75)}.

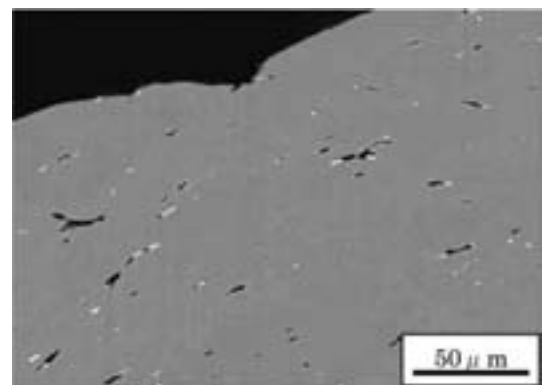


Fig. 29 SEM image of Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.2mass%Fe-0.1mass%Mn alloy T4 sheet after bending test. The black points were micro-voids and the white points were Al-Fe-Si series particles⁷⁶⁾.

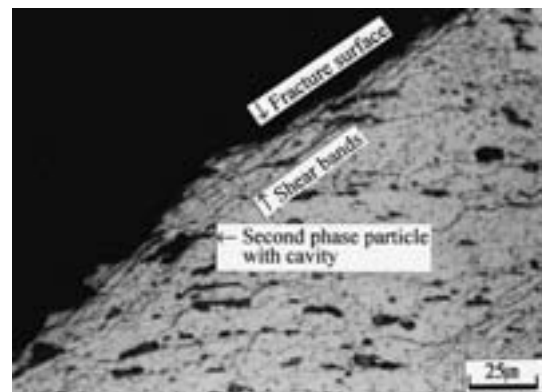


Fig. 30 Optical microstructure near fracture surface of the bent sample at 0.5mass% of iron content of Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T4 sheet^{77~79)}.

素⁸⁰⁾, 鉄^{77~79)}, 銅^{81, 82)}, マンガン⁸³⁾, マグネシウム⁸⁴⁾等に関して報告されている。

ケイ素は 6000 系合金の主要添加元素であり, 自動車ボディパネル用としては延性およびベークハード性を向上させるために, 過剰にケイ素が添加されている⁸⁵⁾。マグネシウム量を 0.6mass% 一定とし, ケイ素量を 0.7~1.6mass% まで変化させた際の曲げ割れ発生状況を Fig. 31⁸⁰⁾ に示す。ケイ素量の増加に伴って, 曲げ加工性は低下する。これは 2 μm 以上の第 2 相粒子数が増加すること, かつ Fig. 32⁸⁰⁾ に示すように, せん断帯の形成が顕著になることが原因である。また, せん断帯の形成は溶質原子濃度が高いと顕著になると考えられている⁸⁰⁾。

一般的に, 6000 系合金における鉄は不純物元素であるが, 一方で溶体化処理時の再結晶粒粗大化を防止する機能を有する。また, 自動車ボディパネルをリサイクルする場合, ヒンジやロック等の鉄部品が混入し, 鉄量が増加する可能性がある。Al-1.0%Si-0.5%Mg-0.1%Mn (mass%) 合金をベースとして, 鉄量を 0.1~1.0mass% まで変化させた際の限界曲げ半径 (割れが発生しない最小の内側曲げ半径) を Fig. 33^{77~79)} に示す。鉄量が 0.1~0.5mass% の範囲では, 鉄量の増加に伴って, 限界曲げ半径が大きくなる (曲げ加工性が低下する)^{77~80)}。本結果は, 化学成分が異なる 6111-T4 においても, 同様の傾向を示すことが明らかにされている^{86, 87)}。鉄量が 0.5~1.0mass% の範囲では, 0.5mass%Fe で限界曲げ半径が最も大きく (最も割れが発生し易く), 0.8mass%Fe および 1.0mass%Fe では 0.5mass%Fe と同等以下の限界曲げ半径を示す。これは, Table 2^{77~79)} に示すように, 鉄量の増加に伴って, 2 μm 以上の第 2 相粒子数は増加するが, せん断帯が形成され難くなるためである。また, 鉄量の増加に伴ったせん断帯形成量の減少は Al-Fe-Si 系化合物の形成による固溶ケイ素量の減少で説明できると考えられており^{77~79)}, 鉄量の増加に伴う固溶ケイ素量の減少分と同量のケイ素量を添加すると, せん断帯が形成され易くなり, 曲げ加工性が低下することが明らかにされている^{88, 89)}。

銅は強度を向上させ, 深絞り成形性を改善する効果を有することから, 高い深絞り成形性を必要とする場合に銅を添加した 6000 系合金が用いられる。著者ら^{81, 82)} は Al-1.0%Si-0.5%Mg-0.1%Mn (mass%) 合金をベースとして, 銅量を 0.01mass% 未満 (銅の添加無し), 0.4 mass%, 0.8mass% 添加した際の曲げ加工性を調査しており, 銅量の増加に伴って, 曲げ加工性は低下し, 0.8mass%Cu で顕著な割れが発生することを明らかにしている。この銅量増加による曲げ加工性の低下は, 銅量の増加に伴って, 銅の溶質原子量が増加し, Fig. 34^{81, 82)} に示すように, せん断帯の形成が容易になることが原因であると考えられ, さらに, 曲げ加工中にせん

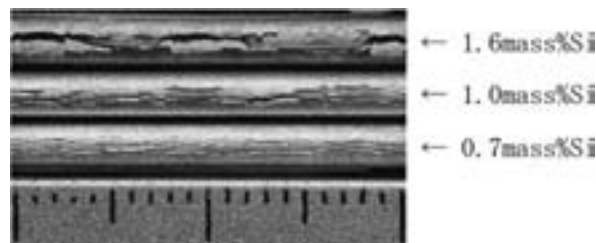


Fig. 31 Appearances of hemming cracks with different silicon content on Al-Mg-Si Alloy T4 sheets. The 0.2% proof stress of the samples before bending test were almost 120MPa⁸⁰⁾.

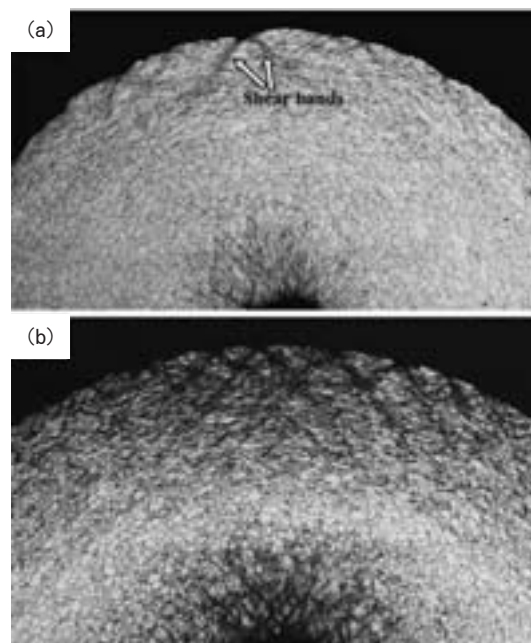


Fig. 32 Shear bands of various bent samples of Al-Mg-Si alloy T4 sheets in transverse section. The bending test was operated until small cracks were visible on the surface with out pre-strain. (a) 0.7mass%Si, bending angle 180° and 0.25mm bending radius, (b) 1.6mass%Si, bending angle 160° and 0.5mm bending radius⁸⁰⁾.

断帯へ銅が濃化し, せん断帯に沿った割れが発生し易くなる可能性もあることを述べている。

マンガンは遷移元素であり, 溶体化処理時の再結晶粒粗大化を防止する機能を有する。趙⁸³⁾ は Al-0.8%Si-0.6%Mg-0.2%Fe (mass%) 合金をベースとして, マンガン量を添加無し, 0.1mass%, 0.2mass% 添加した際の曲げ加工性を調査しており, マンガンを添加すると曲げ加工性が向上することを報告している。このマンガン添加による曲げ加工性の向上は, ①結晶粒の微細化とマンガン系微細分散粒子によるせん断帯形成の抑制, ② Al-Fe-Si 系晶出物の形態が針状 β 相から塊状 α 相に変化し, 曲げ加工時にマイクロボイドが形成され難いことが

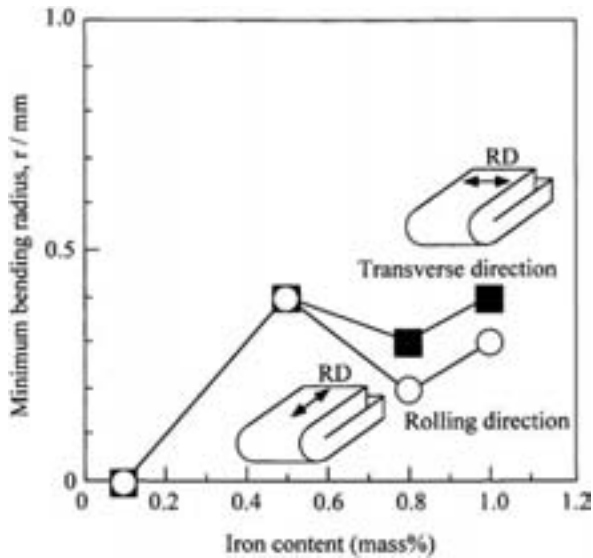


Fig. 33 Effect of iron content on the bendability of Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T 4 sheet⁷⁷⁻⁷⁹⁾.

Table 2 Effect of iron content on the number of second phase particles, shear bands and bendability of Al-1.0mass%-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T 4 sheet⁷⁷⁻⁷⁹⁾.

Iron content (mass%)	0.1	0.5	0.8	1.0
Number of second phase particles (mm^{-2})	4400	7300	9400	12900
Number of shear bands (mm^{-1})	157	167	122	83
Minimum bending radius (mm)	0	0.4	0.2	0.3

原因であると考えられている。

マグネシウムは6000系合金の主要添加元素であり、自動車ボディパネル用としてはベークハード性を向上させるために、必要不可欠な元素である。著者ら⁸⁴⁾はAl-1.0%Si-0.4%Mg-0.1%Mn (mass%)合金をベースとして、マグネシウム量を0.4mass%、0.6mass%、0.8mass%添加した際の曲げ加工性を調査しており、マグネシウム量の増加に伴って、曲げ加工性は低下し、0.8mass%Mgで顕著な割れが発生することを明らかにしている。このマグネシウム量増加による曲げ加工性の低下は、マグネシウム量の増加に伴って、 $3\mu\text{m}$ 以上の第2相粒子(Mg-Si系化合物)が増加し、Fig. 35⁸⁴⁾に示すように、せん断帯の形成が著しくなることが原因であると考えている。また、せん断帯の形成にはクラスターの形成量が関与していることも述べている。

以上のように、第2相粒子およびせん断帯の形成状態に及ぼす化学成分の影響は顕著であり、化学成分を変更

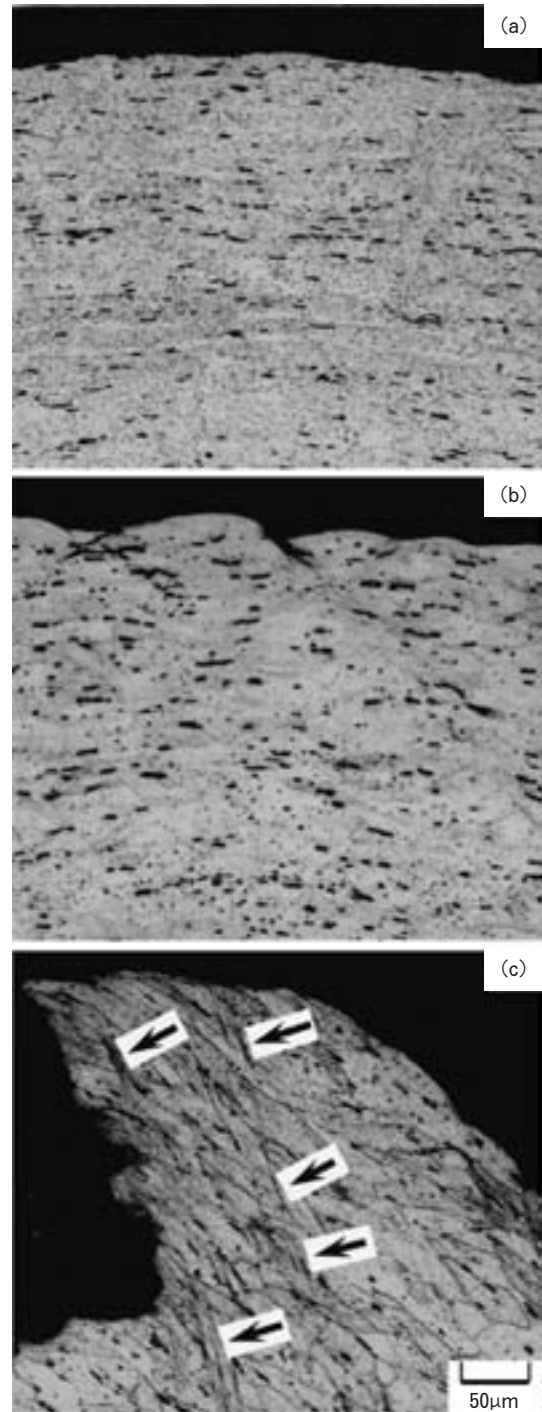


Fig. 34 Optical microstructures of Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T 4 sheets after bending test. The samples were quenched in water after solution heat treatment at 550°C for 75s. The copper content of samples were (a) $<0.01\text{mass}\%$, (b) $0.4\text{mass}\%$, (c) $0.8\text{mass}\%$ ^{81,82)}.

することで曲げ加工性を大幅に改善することができる。しかしながら、化学成分は自動車ボディパネル用材料として要求されるベークハード性、耐食性、表面処理性、接合性等にも大きな影響を及ぼすため、これらの特性を

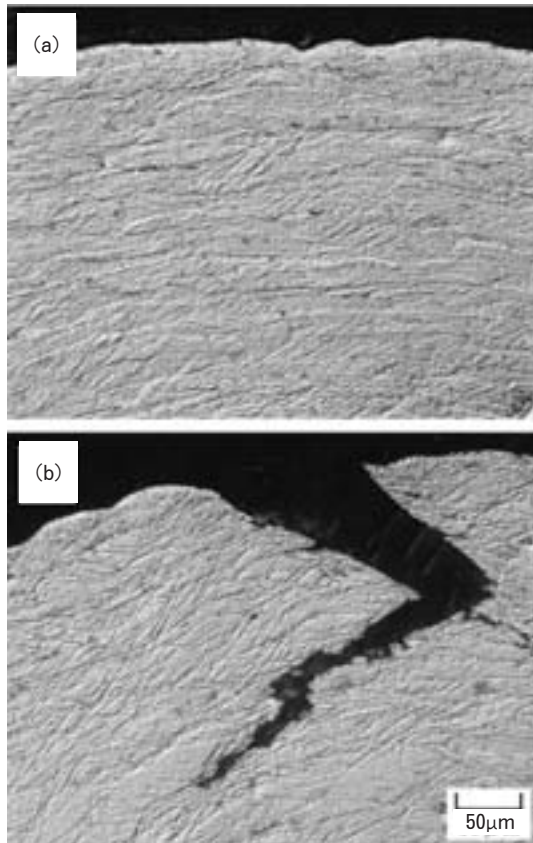


Fig. 35 Optical microstructures of Al-Mg-Si alloy T4 sheets after bending test. The samples were quenched in water after solution heat treatment at 550°C for 75s. The magnesium content of samples were (a) 0.4mass%, (b) 0.8mass%⁸⁴⁾.

考慮した上で最適化を図る必要がある。

3.1.3 時効の影響

自動車ボディパネル用として使用されている 6000 系合金の T4 調質材は焼入れ後の自然時効日数によって、強度変化が生じ、曲げ加工性も変化する^{84, 90)}。Fig. 36⁹⁰⁾ に曲げ割れ深さに及ぼす時効温度および 0.2% 耐力の影響を示す。いずれの時効温度においても、0.2% 耐力が 100MPa 以下では割れは発生せず、100MPa 以上で 0.2% 耐力の増加、すなわち時効時間の増加に伴って、曲げ割れ深さが増加する。また、0.2% 耐力が同程度の場合には時効温度の影響はみられない。この時効時間の増加に伴った曲げ加工性の低下は、Fig. 37⁹⁰⁾ に示すように、時効時間の増加に伴って、せん断帯の形成が著しくなるためである。また、このせん断帯の形成には、前項で述べた通り、クラスターの形成量が関与していると考えられる⁸⁴⁾。しかしながら、せん断帯の形成に及ぼす時効析出の影響は不明な点が多く、現在も継続した研究が続けられている。最近の研究では、 β'' 相の析出状態がせん断帯の形成状態に大きく影響を及ぼし、微細かつ高密度に析出しているほどせん断帯の形成が著しく

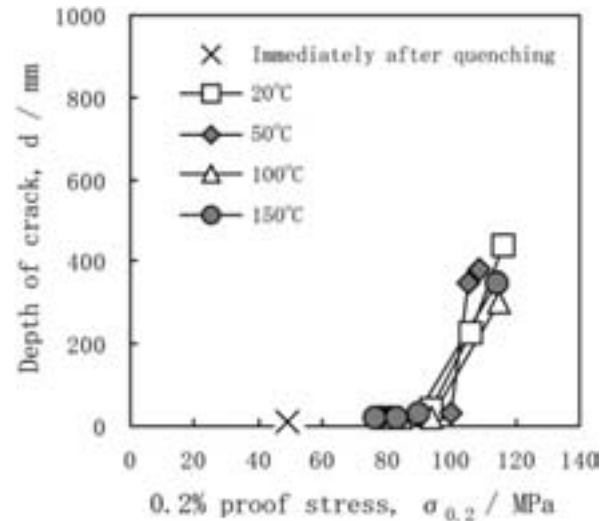


Fig. 36 Effect of aging temperature and 0.2% proof stress on the depth of cracks after bending test of Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T4 sheets⁹⁰⁾.

なり、曲げ加工性が低下することが明らかにされている⁹¹⁾。

T4 調質材のクラスターの形成状態を制御する手法として復元処理が挙げられる⁹²⁾。米国では、6111-T4 の曲げ加工性を改善する手法として、曲げ加工前に局所的な復元処理を行うプロセスが開発されており⁹³⁾、Fig. 38⁹⁴⁾ に示すように、復元処理による曲げ加工性の改善効果が確認されている。

3.1.4 集合組織の影響

6000 系合金の T4 調質材はプロセス条件を変更することで、比較的容易に集合組織を変更できる。そのため、曲げ割れ発生メカニズムが解明された 2000 年以後、せん断帯の形成に及ぼす結晶方位の影響に関して、活発な研究開発がなされてきた。著者ら⁹⁰⁾ は、曲げ加工を行った際、バンド状のせん断帯の形成が少ない結晶粒は TD 軸に対して {001} 面が直交する方位に配向していることを明らかにしている。また、日比野ら⁹⁵⁾ は、同一組成の 6022-T4 を用い、Cube 方位密度を ODF の強度レベルでランダム比約 6 (サンプル A) と約 65 (サンプル B) の 2 水準に変化させた場合、Table 3⁹⁵⁾ に示すように、Cube 方位密度の高い方が曲げ加工性に優れることを示している。この理由として、Cube 方位が発達すると、圧延平行方向あるいは圧延垂直方向の加工硬化量が小さくなることから、Cube 方位粒では加工によるひずみ蓄積が緩和されると考えられている。すなわち、Cube 方位粒では曲げ加工時に生じるせん断帯の発達を抑制されると考えられている。その後、せん断帯の形成に及ぼす結晶方位の影響をより明らかにするため、6000 系合金 T4 調質材の単結晶を用いた研究^{96~99)}、結晶塑性有限要素法を用いた研究^{96, 98~102)} が行われている。著者ら^{96, 98, 99)} は、Al-1.0%Si-0.5%Mg-0.1%Mn (mass%)

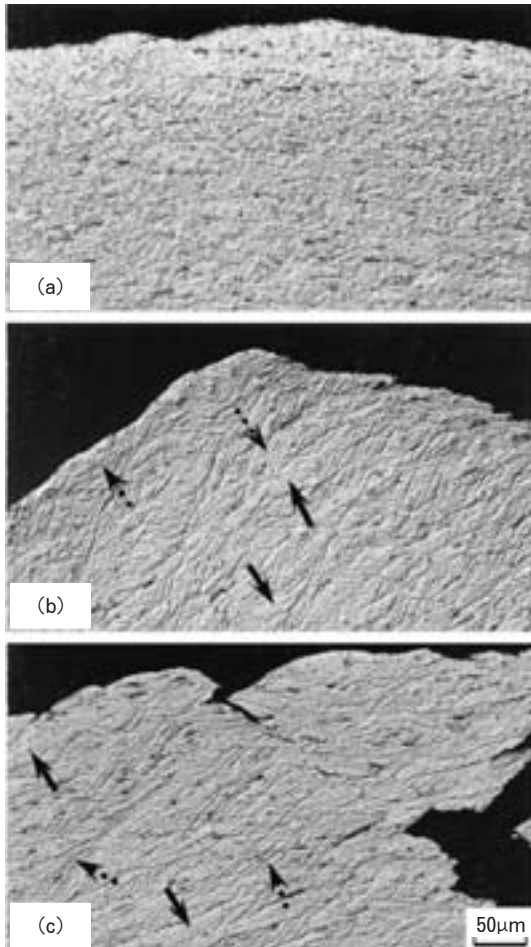


Fig. 37 Optical microstructures of Al-1.0mass%Si-0.5mass%Mg-0.1mass%Mn alloy T4 sheets after bending test. The samples were quenched in water after solution heat treatment at 550°C for 75s. The aging condition of samples were (a) immediately after quenching, (b) 20°C-7500min, (c) 150°C-32min⁹⁰⁾.

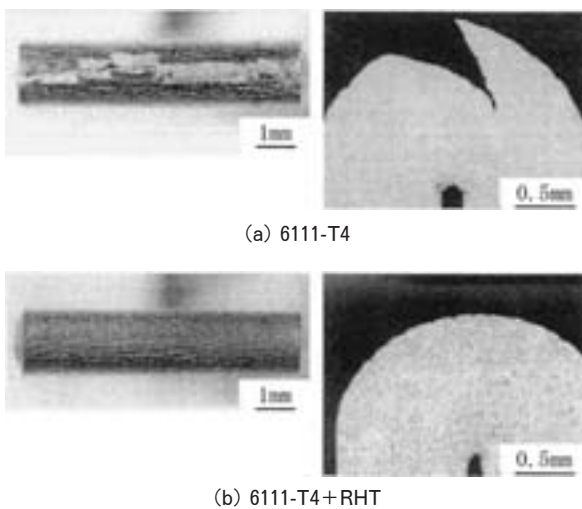


Fig. 38 Improvement of bendability by retrogression heat treatment (RHT)⁹⁴⁾.

Table 3 Effect of Cube density on the bendability of 6022-T4 sheet. The bent surfaces were ranked from 1 to 10, and the rank 1 is the worst⁹⁵⁾.

Cube density		6		65	
Angle to the rolling direction (°)		0	90	0	90
0.2% proof stress, $\sigma_{0.2}$ /MPa	120	3	8	10	10
	135	1	5	10	9
	150	1	4	9	8

合金において、結晶粒径が数 cm の T4 調質材を作製し、Cube 方位および Goss 方位の単結晶について、曲げ加工性を調査しており、各曲げ方向における割れの発生程度と結晶塑性有限要素法を用いた解析結果の比較を行っている。Fig. 39^{98, 99)} に示すように、Cube 方位粒において、割れは発生せず、Goss 方位粒において、0°方向では割れが発生せず、90°方向で著しい割れが発生する。これは、せん断帯の形成状態が結晶方位および曲げ方向によって大きく変化するためであり、Fig. 40^{98, 99)} に示すように、結晶塑性有限要素法を用いた解析においても同様の傾向が得られる。すなわち、曲げ加工におけるせん断帯の形成はシュミット則 (Schmid's Law) で整理できることを述べている。また、竹田ら⁹⁷⁾ は、6016-T4 の単結晶粒を作製し、曲げ加工性に及ぼす結晶方位の影響を調査しており、<001>//ND 方位を有する結晶粒の曲げ加工性が最も良好であり、Fig. 41⁹⁷⁾ に示すように、曲げ加工性はテーラー因子 (Taylor Factor) の低下に伴って向上することを明らかにしている。

以上のように、曲げ割れ発生に大きな影響を及ぼすせん断帯の形成に対して、集合組織 (結晶方位) が大きな影響を及ぼすことが明らかにされている。また、曲げ割れは板材の表層部から発生するため、必ずしも全板厚にわたる集合組織を制御する必要はない。例えば、板厚 1.0mm に対して、表層部に厚さ 0.1mm のせん断帯が形成され難い層を存在させることができれば、曲げ加工性を改善できることが明らかにされている^{101, 102)}。なお、著者らは、2µm 以上の第 2 相粒子を低減し、かつ集合組織制御によって、曲げ加工時に形成されるせん断帯の発達を抑制した曲げ加工性に優れた自動車ボディパネル用 6000 系合金板材を開発している^{103, 104)}。

3.2 張出し成形性

自動車ボディパネルのプレス成形は、一般的に張出し成形と深絞り成形が複合化されており、明確に分類することが難しい。例えば、フェンダーの絞り工程 (プレス成形の第一工程) であれば、全体的には材料を流入させる深絞り成形になるが、ホイールアーチ部等では局所的に張出し成形になる⁶⁾。また、簡易的な成形性評価でよく用いられる円筒 (平頭) 深絞り試験においても、動摩擦係数が比較的高い低粘度油等の潤滑剤を用いた場合に

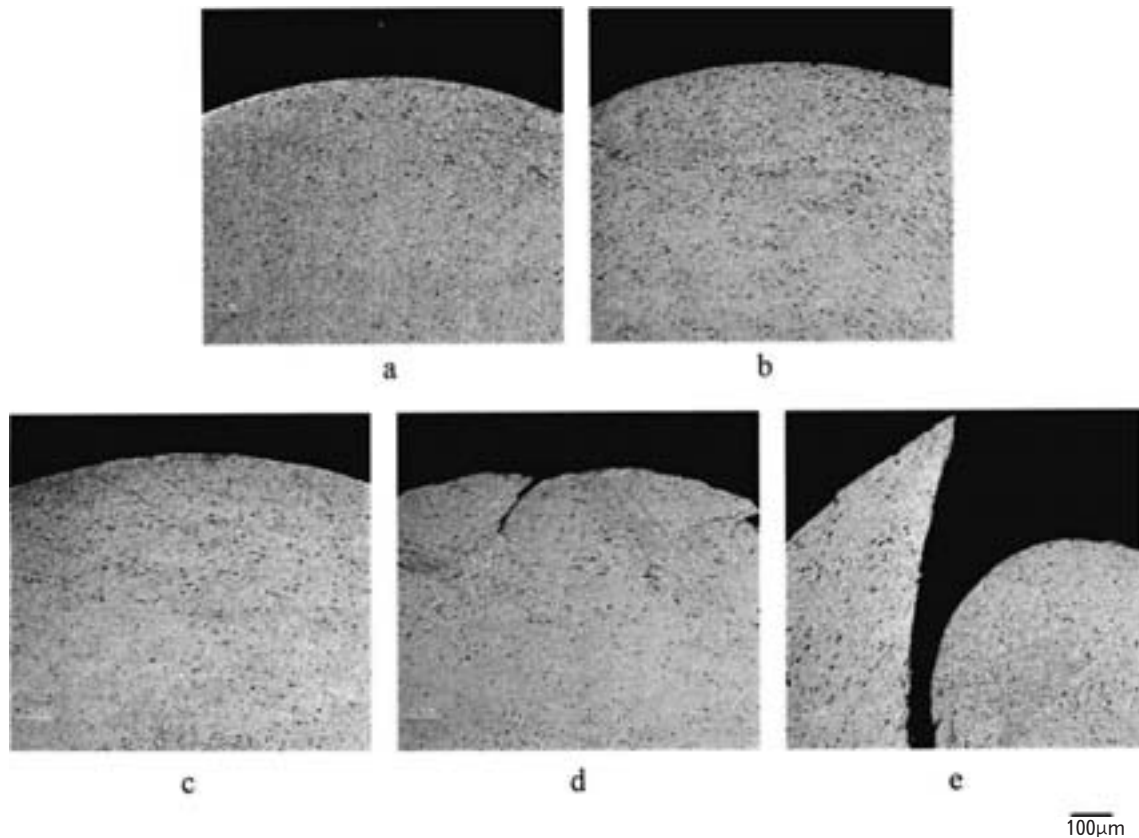


Fig. 39 Optical microstructures of 6016-T4 sheets after bending test. The crystal orientations and the bending directions were (a) Cube, 0° , (b) Cube, 45° , (c) Goss, 0° , (d) Goss, 45° , (e) Goss, 90° ^{98,99}.

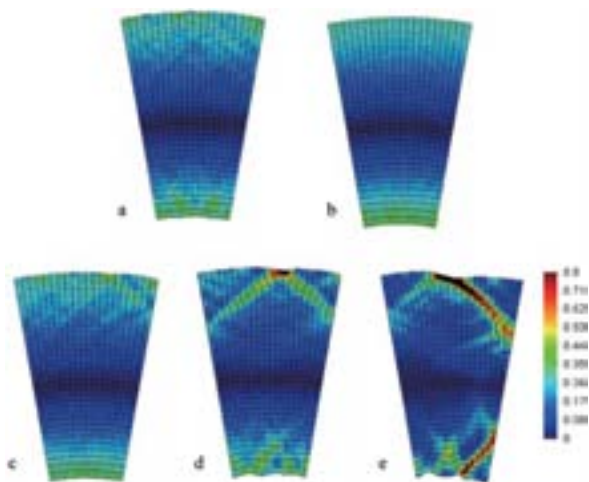


Fig. 40 Deformed meshes and contours of maximum principal logarithmic strain. The crystal orientations and the bending directions were (a) Cube, 0° , (b) Cube, 45° , (c) Goss, 0° , (d) Goss, 45° , (e) Goss, 90° ^{98,99}.

は、パンチ肩 R 部で破断 (α 破断) するのが一般的であり、破断現象としては張出し成形に分類される。従って、ここでは、プレス成形時の主な破断原因となる張出し成形性に焦点を絞って議論することにする。本章の冒

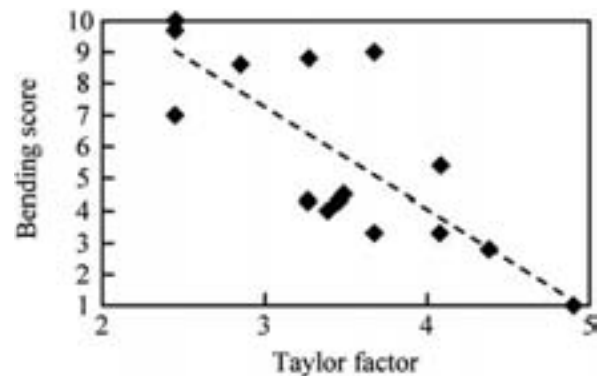


Fig. 41 Effect of Taylor factor on the bendability (bending score) of Al-1.0mass%Si-0.6mass%Mg alloy sheets. The bent surfaces were ranked from 1 to 10, and the bending score 1 is the worst⁹⁷.

頭でも述べたように、自動車ボディパネルに多く適用されている 5000 系合金の O 調質材および 6000 系合金の T4 調質材は軟鋼板と比較して、プレス成形性に劣ると判断される。その大きな理由は、各ひずみ比 (単軸、平面ひずみ、等二軸) における延性、すなわち張出し成形性が軟鋼板と比較して劣るためである¹⁰⁵)。そこで本項では、各ひずみ比における材料の延性を表現した成形限

界線図 (FLD : Forming Limit Diagram) に及ぼす材料組織の影響について、主に述べる。

FLD はプレス成形性の優劣の判断や金型設計を行う際の指標として古くから用いられている。近年では、成形シミュレーションの技術が進歩したため、成形シミュレーションを行う際の破断判定の指標として使用されることが多く、実プレス成形に適した高精度な FLD を採取するための条件に関する研究が多くなされている¹⁰⁶⁾。Fig. 42^{107, 108)} に Mg 量が異なる 2 種類の 5000 系合金 (5052-O, 5023-O) の FLD を示す。単軸引張～平面ひずみ引張の領域では、5023-O の成形限界ひずみが 5052-O のそれよりも大きくなり、大半の二軸引張領域では、5052-O の成形限界ひずみが 5023-O のそれよりも大きくなっており、成形限界ひずみの逆転現象が観察される。この逆転現象は古くから Mg 量の影響であることは分かっているが¹⁰⁹⁾、現在においても、その現象の発生メカニズムは十分には解明されていない。成形限界ひずみに影響を及ぼす材料因子としては、化学成分以外に 2.2.1 項で述べた集合組織が挙げられる。結晶塑性論を用いた数値解析により求めた各結晶方位の FLD を Fig. 43^{110, 111)} に示す。例えば、Cube 方位と Random 方位の成形限界線を比較した場合、単軸引張～平面ひずみ引張の領域では、Random 方位の成形限界ひずみが Cube 方位のそれよりも大きくなり、二軸引張領域では、Cube 方位の成形限界ひずみが Random 方位のそれよりも大きくなっており、Fig. 42 で示した成形限界ひずみの逆転現象と同じ傾向が得られている。また、FLD に及ぼす Cube 方位密度の影響についても、結晶塑性論を用いた数値解析が行われており、Cube 方位密度の増加に伴って、単軸引張～平面ひずみ引張領域の成形限界ひずみは減少し、二軸引張領域の成形限界ひずみは増加すること

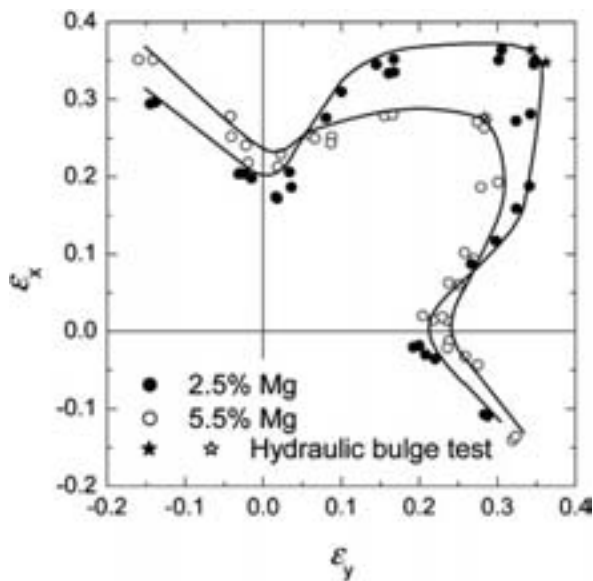


Fig. 42 Experimental forming limit curves of 5052-O (2.5%Mg) and 5023-O (5.5%Mg)^{107, 108)}.

が明らかになっている¹¹²⁾。

以上のように、FLD には化学成分や調質の他に集合組織が大きな影響を及ぼすことが明らかになってきている。しかしながら、実験的に検証を行っている研究例が非常に少なく、今後の研究に期待したい。

4. おわりに

自動車ボディパネル用アルミニウム合金板材の適用を拡大するために、プレス成形性の向上は重要な課題であり、各アルミメーカーとも精力的に研究・開発を行ってきた。その結果、プレス成形性には化学成分や調質だけでなく、集合組織 (結晶方位) が大きな影響を及ぼし、製造プロセス制御が今後の大きな課題であることが明らかになっている。本稿で述べたように、曲げ成形に関しては、曲げ割れ発生メカニズムが解明され、組織制御の方向性が明らかになってきている。しかしながら、張出し成形、深絞り成形、伸びフランジ成形に関しては、割れ発生メカニズムの解明や成形予測技術の確立が不十分であり、今後も精力的な研究・開発が必要であるといえよう。

参考文献

- 1) 細見彌重：本誌，32 (1991)，1.
- 2) 吉田英雄，池田 洋，渋谷和久，西村嘉彦：本誌，38 (1997)，53.
- 3) Y. Baba：Sumitomo Light Metal Technical Report, 38 (1997)，147.
- 4) 宇都秀之：本誌，46 (2005)，84.
- 5) 竹島義雄，疋田達也，宇都秀之：本誌，32 (1991)，39.
- 6) 竹島義雄，疋田達也，宇都秀之，広瀬洋三：本誌，33 (1992)，83.
- 7) 竹島義雄，疋田達也，宇都秀之：本誌，34 (1993)，59.
- 8) 竹島義雄：本誌，44 (2003)，111.
- 9) 高橋政司，須藤忠三，小嶋正康：金属，42-7 (1972)，59.
- 10) 田中孝一，藤倉潮三：軽金属，27 (1977)，145.
- 11) 網谷俊男，福井利安，西村嘉彦：本誌，20 (1979)，62.
- 12) 宇野照生，馬場義雄：本誌，21 (1980)，32.
- 13) 竹内勝治，馬場義雄，西村嘉彦：本誌，24 (1983)，56.
- 14) 宇野照生，吉田英雄：本誌，27 (1986)，198.
- 15) 吉田英雄，平野清一：本誌，32 (1991)，20.
- 16) 宇野照生，杉江明士：本誌，32 (1991)，32.
- 17) 阿部祐二，吉田正勝，野口 修，松尾 守，小松原俊雄：塑性と加工，33 (1992)，365.
- 18) 宇野照生：本誌，40 (1999)，76.
- 19) 宇野照生：本誌，42 (2001)，100.
- 20) 宇都秀之，渋谷和久：本誌，44 (2003)，89.
- 21) 内田秀俊：本誌，51 (2010)，137.
- 22) 宗藤修義，西村嘉彦：本誌，27 (1986)，191.
- 23) 内田秀俊，吉田英雄：軽金属，45 (1995)，193.
- 24) 内田秀俊，吉田英雄：本誌，37 (1996)，1.
- 25) 内田秀俊，吉田英雄：軽金属，58 (2008)，290.
- 26) 内田秀俊，吉田英雄：本誌，50 (2009)，18.
- 27) 吉田英雄，平野清一：本誌，32 (1991)，21.

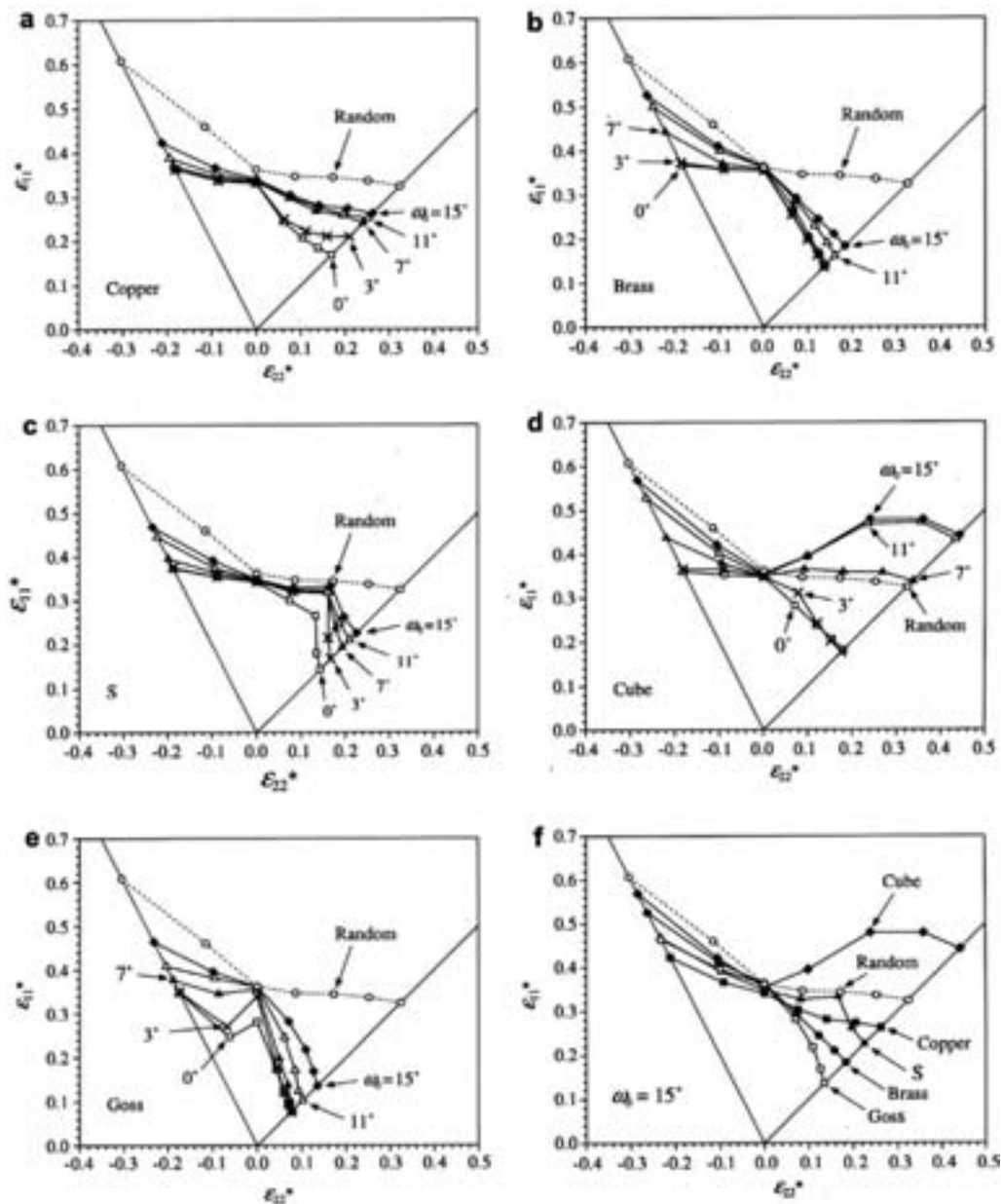


Fig. 43 Computed forming limit diagrams (FLDs) for the five texture components, (a) Copper, (b) Brass, (c) S, (d) Cube, (e) Goss, (f) comparison of FLDs for $\omega_0 = 15$ at rolling direction^{110,111}.

28) D. Altenpohl : Aluminium und Aluminium Legierungen, Springer-Verlag, (1965), 286.
 29) W. H. L. Hooper : JIM, **81** (1952-53), 563.
 30) E. Pink and A. Grinberg : Aluminium, **60** (1984), E601, E646.
 31) 吉永日出男, 栗下裕明 : 軽金属, **31** (1981), 359.
 32) 宇都秀之, 竹島義雄 : 本誌, **45** (2004), 128.
 33) 箕田 正, 渋江和久, 吉田英雄 : 本誌, **45** (2004), 55.
 34) T. Minoda and H. Yoshida : Sumitomo Light Metal Technical Reports, **46** (2005), 72.
 35) 箕田 正, 渋江和久, 吉田英雄 : 軽金属, **54** (2004), 110.
 36) 軽金属学会編 : アルミニウムの組織と性質 (1991), 106.
 37) R. A. Ayres : Met. Trans., **10A** (1979), 849.
 38) 山崎 淳 : 塑性と加工, **33** (1992), 404.
 39) 阿部佑二, 吉田正勝, 田形 勉, 松尾 守, 川並高雄 : 軽

金属, **50** (2000), 7.
 40) K. Matsuki, Y. Uetani, M. Yamada and Y. Murakami : Met. Met. Sci., (1976), 235.
 41) H. Yoshida, M. Kumagai and S. Matsuda : Sumitomo Light Metal Technical Reports, **31** (1990), 203.
 42) 吉田英雄 : 本誌, **37** (1996), 90.
 43) H. Tanaka, H. Yoshida and S. Tsuchida : Mater. Sci. Forum, 204-206 (1996), 467.
 44) K. Takiguchi, H. Uchida and H. Yoshida : Sumitomo Light Metal Technical Reports, **39** (1998), 7.
 45) H. Uchida, M. Asano and H. Yoshida : Mater. Sci. Forum, 304-306 (1999), 309.
 46) H. Uchida, M. Asano and H. Yoshida : Sumitomo Light Metal Technical Reports, **40** (1999), 12.
 47) 伊藤 勉, 駒 正幸, 柴崎 聡, 大塚正久 : 日本金属学会

- 誌, 66 (2002), 409, 476.
- 48) E. M. Taleff, D. R. Lesure and J. Wadsworth : *Met. Mater. Trans.*, **27A** (1996), 343.
- 49) K. A. Kulas, W. P. Green, E. M. Taleff, P. E. Krajewski and T. R. McNelley : *Met. Mater. Trans.*, **36A** (2005), 1249.
- 50) 中尾敬一郎, 横山 鎮, 渡辺二郎 : アルミニウム, **53** (2003), 103.
- 51) 柴田勝弘 : アルトピア, (2005.4), 9.
- 52) J. G. Schroth : *Advances in Superplasticity and Superplastic Forming*, ed. by E. M. Taleff, et al., TMS, (2004), 9.
- 53) 内田秀俊, 吉田英雄 : 軽金属, **46** (1996), 427.
- 54) 内田秀俊, 吉田英雄 : 本誌, **39** (1998), 1.
- 55) 櫻井健夫, 大家正二郎, 岩村 宏, 高木康夫 : 軽金属学会第 87 回秋期大会講演概要, (1994), 185.
- 56) 佐賀 誠, 佐々木行雄, 菊池正夫, 朱 岩, 松尾 守 : 軽金属学会第 87 回秋期大会講演概要, (1994), 187.
- 57) 八太秀周, 松田眞一, 田中宏樹, 吉田英雄 : 本誌, **50** (2009), 25.
- 58) 八太秀周, 松田眞一, 田中宏樹, 吉田英雄 : 本誌, **51** (2010), 46.
- 59) 内田秀俊, 吉田英雄 : 本誌, **49** (2008), 35.
- 60) 内田秀俊, 吉田英雄 : 軽金属, **58** (2008), 285.
- 61) 内田秀俊, 吉田英雄 : 軽金属, **58** (2008), 290.
- 62) 浅野峰生, 内田秀俊, 吉田英雄 : 軽金属学会第 112 回春期大会講演概要, (2007), 179.
- 63) 浅野峰生, 吉田英雄 : 軽金属学会第 116 回春期大会講演概要, (2009), 159.
- 64) 浅野峰生, 吉田英雄 : 軽金属学会第 117 回秋期大会講演概要, (2009), 29.
- 65) A. J. Beaudoin, J. D. Bryant and D. A. Korzekwa : *Met. Mater. Trans.*, **29A** (1998), 2323.
- 66) G. J. Baczynski, R. Guzzo, M. D. Ball and D. J. Lloyd : *Acta Mater.*, **48** (2000), 3361.
- 67) P. D. Wu, D. J. Lloyd, A. Bosland, H. Jin, S. R. MacEwen : *Acta Mater.*, **51** (2003), 1945.
- 68) P. D. Wu, D. J. Lloyd, S. R. MacEwen : *Scripta Mater.*, **48** (2003), 1943.
- 69) P. D. Wu, D. J. Lloyd : *Acta Mater.*, **52** (2004), 1785.
- 70) H. Jin, D. J. Lloyd : *Mater. Sci. Eng.*, **A403** (2005), 112.
- 71) 小関好和, 箕田 正, 田中宏樹, 吉田英雄 : 軽金属学会第 110 回春期大会講演概要, (2006), 241.
- 72) 箕田 正, 浅野峰生 : 塑性と加工, **46** (2005), 119.
- 73) 箕田 正, 浅野峰生 : 本誌, **46** (2005), 93.
- 74) 浅野峰生, 内田秀俊, 吉田英雄 : 軽金属, **52** (2002), 448.
- 75) 浅野峰生, 内田秀俊, 吉田英雄 : 本誌, **43** (2002), 1.
- 76) 山本裕介, 浅野峰生, 吉田英雄, 小林正和, 戸田裕之 : 軽金属学会第 123 回秋期大会講演概要, (2012), 235.
- 77) 箕田 正, 内田秀俊, 渋江和久, 吉田英雄 : 軽金属, **53** (2003), 523.
- 78) 箕田 正, 内田秀俊, 渋江和久, 吉田英雄 : 本誌, **44** (2003), 6.
- 79) T. Minoda, M. Asano and H. Yoshida : *Sumitomo Light Metal Technical Reports*, **47** (2006), 47.
- 80) 日比野旭, 村松俊樹, 佐賀 誠, 高田 健 : 軽金属, **53** (2003), 534.
- 81) 浅野峰生, 箕田 正, 小関好和, 吉田英雄 : 軽金属, **56** (2006), 371.
- 82) M. Asano, T. Minoda, Y. Ozeki and H. Yoshida : *Sumitomo Light Metal Technical Reports*, **47** (2006), 41.
- 83) 趙 丕植 : 軽金属, **55** (2005), 227.
- 84) 浅野峰生, 小関好和, 箕田 正, 吉田英雄 : 軽金属学会第 109 回秋期大会講演概要, (2005), 211.
- 85) 内田秀俊, 吉田英雄 : 軽金属学会第 95 回秋期大会講演概要, (1998), 135.
- 86) W. B. Lievers, A. K. Pilkey, D. J. Lloyd : *Mater. Sci. Eng.*, **A361** (2003), 312.
- 87) J. Sarkar, T. R. G. Kutty, D. S. Wilkinson, J. D. Embury, D. J. Lloyd : *Mater. Sci. Eng.*, **A369** (2004), 258.
- 88) 箕田 正, 浅野峰生, 吉田英雄 : 軽金属, **55** (2005), 222.
- 89) 箕田 正, 浅野峰生, 吉田英雄 : 本誌, **46** (2005), 61.
- 90) 浅野峰生, 箕田 正, 吉田英雄 : 軽金属学会第 106 回春期大会講演概要, (2004), 5.
- 91) 中西英貴, 浅野峰生, 吉田英雄 : 軽金属学会第 124 回春期大会講演概要, (2013), 285.
- 92) 内田秀俊, 吉田英雄 : 軽金属, **46** (1996), 427.
- 93) US Patent # 5, 948, 185.
- 94) *Aluminium International Today*, Nov./Dec. (2002), 36.
- 95) 日比野 旭, 村松俊樹, 小松原俊雄, 佐賀 誠, 高田 健 : 軽金属学会第 106 回春期大会講演概要, (2004), 89.
- 96) 浅野峰生, 井川慎吾, 松田公一, 吉田英雄 : 軽金属学会第 111 回秋期大会講演概要, (2006), 3.
- 97) 竹田博貴, 日比野旭, 高田 健 : 軽金属, **60** (2010), 231.
- 98) S. Ikawa, M. Asano, M. Kuroda, K. Yoshida : *Mater. Sci. Eng.*, **A528** (2011), 4050.
- 99) S. Ikawa, M. Asano, M. Kuroda, K. Yoshida : *Sumitomo Light Metal Technical Reports*, **52** (2011), 16.
- 100) M. Kuroda and V. Tvergaard : *Int. J. Plast.*, **23** (2007), 244.
- 101) 伊川慎吾, 浅野峰生, 黒田充紀, 吉田健吾 : 軽金属, **61** (2011), 53.
- 102) 伊川慎吾, 浅野峰生, 黒田充紀, 吉田健吾 : 本誌, **52** (2011), 8.
- 103) 浅野峰生, 箕田 正, 小関好和, 渋江和久 : 平成 17 年度 塑性加工春季講演会講演論文集, (2005), 5.
- 104) 箕田 正, 浅野峰生, 渋江和久 : 自動車技術会 2005 年春季大会学術講演会前刷集, **19-5** (2005), 9.
- 105) 軽金属学会編 : **自動車車体用アルミニウム合金薄板の成形性データブック** (1996), 48.
- 106) 上間直幸, 浅野峰生 : 平成 24 年度塑性加工春季講演会講演論文集, (2012), 71.
- 107) 桑原利彦, 梅村昌史, 吉田健吾, 黒田充紀, 平野清一, 菊田良成 : 軽金属, **56** (2006), 323.
- 108) 桑原利彦, 梅村昌史, 吉田健吾, 黒田充紀, 平野清一, 菊田良成 : 本誌, **48** (2007), 65.
- 109) 小原嗣朗, 勝田基嗣 : 軽金属, **28** (1978), 277.
- 110) K. Yoshida, T. Ishizaka, M. Kuroda, S. Ikawa : *Acta Mater.*, **55** (2007), 4499.
- 111) K. Yoshida, T. Ishizaka, M. Kuroda, S. Ikawa : *Sumitomo Light Metal Technical Reports*, **49** (2008), 51.
- 112) P. D. Wu, S. R. MacEwen, D. J. Lloyd, K. W. Neale : *Mater. Sci. Eng.*, **A364** (2004), 182.

飲料缶用アルミニウム材料の組織制御

横 井 洋* 岡 田 峰 光*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 185-195

Microstructural Control in Aluminum Alloys
for Beverage Can Stocks

Hiroshi Yokoi and Minemitsu Okada

The development of can materials in SLM was begun since 1965 by producing AA5052-H34 practical for the flat-panels. Then, the research and the development have been continued to optimize the strength, anisotropic, etc., about the both of the can end and can body stocks, with the use of the can making equipments. This paper reviews the circumstance of those developments, and comments about the direction of a future development subject.

In our company, the can material was researched especially to make the stabilization of the material characteristic represented by the strength and the earing behavior, even if the manufacturing process was made as simple as possible. The mainly researched subjects in can end stocks were the manufacturing conditions which control the softening behavior at the paint-baking process, the anisotropy (earring), and the resistance of stress corrosion cracking. And the relationship of the alloying element and hot workability was researched. Moreover, in can body stocks, there were researches of the controlling the solid-solution/precipitation state in order to obtain excellent ironing formability and the stability of the recrystallization structure in hot-rolled bands. And the optimization of the plastic anisotropy and the relationship between the manufacturing process condition and the neck flange formability were also researched.

Future's research of the further improved quality and the production efficiency is required for can material. For that purpose, probably, the establishment of the technology which predicts and controls material structure is needed. Moreover, the beverage cans will be required for design nature or functionality, and this can-making technology will be applied widely for the other uses with it. In order to cope with such situations, it is presumed to be important that the further comprehension of the reasons why the 3000 and 5000 series alloys is selected for a beverage can.

1. はじめに

現在の国内で消費されるアルミニウム合金板において、約40%もの大きな需要があるのが飲料缶用材料である¹⁾。また、世界でも飲料容器のうちアルミニウム缶が約85%と推定され、この市場は南米やアジアを中心に更に増加することが予想されている。

この飲料缶においてアルミニウム合金は、ビールや炭酸飲料等の陽圧缶の缶胴(ボディ)と缶蓋(エンド)に、また、コーヒー等のスチール缶胴の陰圧缶の缶蓋(エンド)に使用されている。これらの成形方法は、スライス

開発された弾丸の薬莖の製造技術がヒントとなり1955年に開発されたDI(Drawn and Ironed)缶ボディと、1963年に開発されたブルトップタイプのイーザーオープンエンド(Easy Open End)の技術が現在でも用いられている。

飲料用アルミニウム缶の需要拡大において、安定した生産に加え、薄肉軽量化によるコストダウンが常に求められ、絶え間ない成形加工技術と材料の改良や開発が続けられてきた。当社ではそれに関わる技術をいち早く知るために市販缶により調査してきたが^{2~9)}、軽量化は限界に近いようである⁹⁾。最近では、缶ボディのエンボス加工等による意匠性やボトル缶等に代表される機能性の

* 研究開発センター 第一部

要求も高まり、基本的な成形技術は変わらないものの、飲料缶は変化し続けている。

これらアルミニウム缶用材料には、非熱処理型合金である Al-Mn-(Mg) 系や Al-Mg 系合金が採用されてきた^{10,11)}。現在では Table 1 に示す合金が用いられているが、開発当初からほとんど変化していない。

アルミニウム缶用材料の研究は、薄肉軽量化が大きく進展した 1970 年代後半より活発に行われてきた。アルミニウム缶には、薄板の代表的な成形方法である深絞り、しごき、張り出し、フランジ、せん断、曲げ等の幅広い加工性能が、また容器として耐食性や強度特性が求められる、薄板の成形限界を決定する因子としての強度や伸び、加工硬化性、破断の起点やしごき成形性に重要な金属間化合物、円筒容器成形に重要な異方性等に関する制御技術の開発が行われてきた。その成果について 1990 年代に米国で 3 度開催された「Aluminum Alloys for Packaging」と冠したシンポジウム¹²⁻¹⁴⁾で、量産材に多くの課題を抱えていた圧延会社と、新たな課題を求めている大学が連携して、幅広い研究報告がなされた。しかしながら、このシンポジウムでは、新しい技術開発につながるような内容が乏しかったのか一過性の活動で終わっており、その後も缶材料に関わる研究開発成果の報告は少ない。

当社における缶用材料開発は、1965 年のフラットパネル用実用化した AA5052-H34 が始まりである。その後、缶エンド材、ボディ材ともに、強度や異方性の最適化などを実機レベルの製缶装置を導入し改良や開発を続けてきた。ここでは、缶エンド、ボディ用材料の開発における当社のこれまでの取り組みを振り返り、今後の開発課題の方向性について考える。

2. 缶エンド材

2.1 合金成分の検討

缶エンドが開発された当初は、5000 系合金の中でも

比較的歴史が古く、今日でも様々な用途に使用されている 5052 合金が採用され、当社でも 1965 年にビール用のフラットパネル用で生産を開始したが、1968 年には、日本でも EOE が採用されるとともに高強度化されている。1973 年には Mg 量を増加した 5082 合金が、更に 1975 年には Mn を添加した 5182 合金へと変遷してきた¹⁵⁾。その後、中間焼鈍が Batch 炉から連続焼鈍炉 (CAL) で行われるようになり、また有機樹脂皮膜をコイルコートするようになるなど、製造条件の変化はあるものの、世界各国で使用されている合金は、ほとんどが Al-Mg-Mn 系の 5182 合金である⁹⁾。

いっぽう、国内で主流の 200 径陰圧缶用エンドには、陽圧缶用に比べて高い強度が要求されないことから、近年まで 5052 合金が用いられてきた¹⁵⁾。しかしながら、この合金は添加元素として Cr を含むため、リサイクル性向上の観点から、他の缶材料と共通の Mn を添加元素とする 5021 合金への代替が進められ¹⁶⁾、2006 年に JIS へ登録された¹⁷⁾。

缶エンドの開口に必要なタブには、陽圧、陰圧缶用に関わらず、ほとんどが 5182 合金が使われている。但し、開口時や開口動作の繰り返しによるタブ裂けを抑制するために、Mn 添加量の少ない 5082 合金が用いられる場合もある¹⁸⁾。

2.2 高強度化の検討

缶エンドに要求される基本的な強度特性に耐圧が上げられる。耐圧を向上させることは、エンド材の薄肉化によるコストダウンにつながるため、これまで種々のエンド形状の改良^{19,20)}に加え、素材特性の影響についても詳細に検討された。その一例として、Fig. 1 に材料パラメータおよびパネルハイト H_p と耐圧の関係を示すが²¹⁾、板厚の寄与度に加え、耐力 $\sigma_{0.2}$ 、引張強さ σ_B 、またそれらの平均 σ_m との相関が認められること、更に、エンド成形時の加工硬化を考慮した降伏比 $\sigma_{0.2}/\sigma_B$ を用いることで、耐圧が良く説明でき、材料設計における強度特性の指針が明確となった。エンド形状については、

Table 1 Chemical composition for can body, end and tab stock alloys (mass%).

	Alloy No.		Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ga	V	Ti	Others		Al
	JIS	AA											Each	Total	
Body	3004	3004	≤0.30	≤0.7	≤0.25	1.0-1.5	0.8-1.3	—	≤0.25	—	—	—	≤0.05	≤0.15	bal.
	3104	3104	≤0.6	≤0.8	0.05-0.25	0.8-1.4	0.8-1.3	—	≤0.25	≤0.05	≤0.05	≤0.10	≤0.05	≤0.15	bal.
	—	3204	≤0.30	≤0.7	0.10-0.25	0.8-1.5	0.8-1.5	—	≤0.25	—	—	—	≤0.05	≤0.15	bal.
End	5052	5052	≤0.25	≤0.40	≤0.10	≤0.10	2.2-2.8	0.15-0.35	≤0.10	—	—	—	≤0.05	≤0.15	bal.
	5021	5021	≤0.40	≤0.50	≤0.15	0.10-0.50	2.2-2.8	≤0.15	≤0.15	—	—	—	≤0.05	≤0.15	bal.
Tab	—	5042	≤0.20	≤0.35	≤0.15	0.20-0.50	3.0-4.0	≤0.10	≤0.25	—	—	≤0.10	≤0.05	≤0.15	bal.
	5082	5082	≤0.20	≤0.35	≤0.15	≤0.15	4.0-5.0	≤0.15	≤0.25	—	—	≤0.10	≤0.05	≤0.15	bal.
End, Tab	5182	5182	≤0.20	≤0.35	≤0.15	0.20-0.50	4.0-5.0	≤0.10	≤0.25	—	—	≤0.10	≤0.05	≤0.15	bal.

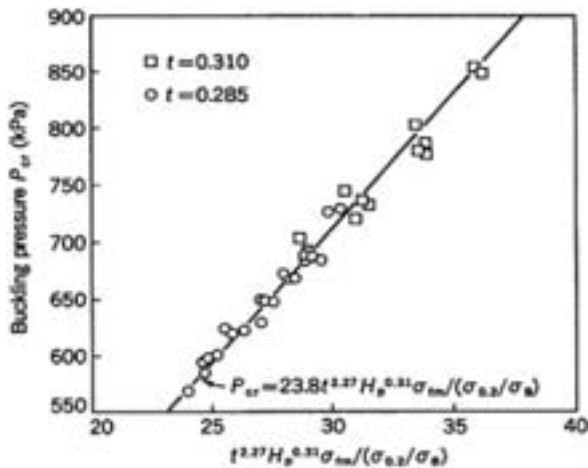


Fig. 1 Relationship between $t^{2.27} H_p^{0.31} \sigma_{fm} / (\sigma_{0.2} / \sigma_B)$ and buckling pressure.

FullForm²⁰⁾, 更に SuperEnd などの軽量エンドの採用が拡大しているが⁹⁾, 成形時の材料の変形挙動は複雑化しているため, 耐圧に重要な部位の加工度は増加していると考えられる。今後更に拡大していく小径薄肉軽量エンドにおいて, 素材の加工硬化性の寄与度は大きくなり, その制御は重要視されるものと推定される。

缶エンドに用いられている 5000 系合金は, 主要元素として Mg が添加されているため, 加工硬化性に優れている。この特性について, Al-Mg 二元系合金で詳細に調査したところ, 一軸引張による加工硬化指数 n 値が Mg 量の増加とともに向上する現象は, 転位密度の増加および転位組織 (セル組織) の微細化に対応していた。また Mg 量の比較的少ない場合, n 値はある歪み量で最大値を示したのち減少する傾向が認められるが, Mg 量の増加と共に n 値が最大値を示す歪み量は増加し, 更に最大値を示した後の n 値の現象の割合は低下した。これは Mg 量の増加に伴う動的回復の抑制によると考察した²²⁾。

缶エンド材では, 冷間圧延により硬質に調質されたのち, 有機樹脂の塗装焼付け工程で回復・軟化するため, この強度低下も併せた材料設計が必要となる。Fig. 2 に Al-5%Mg-0.65%Mn 合金の 523K (250°C) 保持中の強度変化を示す²³⁾。中間焼鈍温度の異なるサンプル (A~C) と中間焼鈍なしのサンプル (D) を比較すると, 473K (200°C) における I.A. 材 (A) は, 圧延ままの状態では D よりも強度が低いものの, 523K (250°C) 熱処理による強度低下は少なく, 300s 保持以降の耐力低下も B, D に比べて小さい。これは 0.05 μ m 以下の微細な第二相粒子を析出させ, その後の冷間圧延で熱的に安定な転位網を形成させることで, 中間熱処理をしない場合に比べて焼付け後の強度を高くできることを意味する。なおこの微細析出物からは, Decagonal (正十角形) 相と思われる電子線回折パターンが得られ, 安定相の前段階に形成される準結晶構造の中間相と推察される。

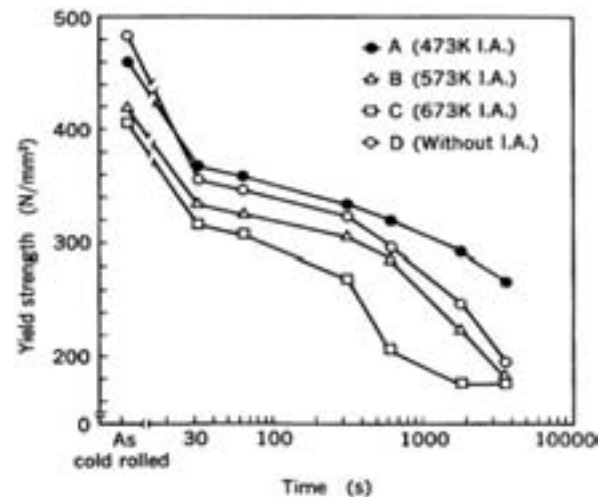


Fig. 2 Changes of 0.2%-yield strength by isothermal annealing at 523K (in cold rolled Al-5 mass%Mg-0.65Mn alloy sheets).

缶エンド材は, 塗装焼付け後もエンド成形時の加工硬化や充填後の殺菌処理など複雑な加工熱履歴を経る。加えて圧延とエンド成形による加工モードの違いや複雑化する成形工程での歪み経路の変化, 更にそれらと素材の集合組織との関係も加工硬化性に影響すると考えられる²⁴⁾。最近では, 軽量エンドの採用が拡大する中で, 加工条件に応じた加工硬化性の向上が素材改良のひとつの方向性となる。但し, Mg を主要添加元素としているため, エンド成形による加工硬化を利用できる一方で, 時効軟化による性能の経時変化を抑制することが重要となる²⁵⁾。

2.3 高成形性の検討

缶エンドで強加工を受ける部位として, 開口部のスコア, タブを取り付けるリベット, そしてタブ回転を防止するディンプルがある。スコア成形は, 圧縮モードで加工されるため, 成形割れの恐れは小さい。但し, 開口時の開け易さや, 流通時の不意開口抑制には, 材料強度, 靱性や疲労特性が複雑に関係すると考えられるが, この観点からの報告例は少なく²⁶⁾, 今後の課題と言えよう。リベット成形については, タブを取り付ける前の突起部を多段張出成形により加工する工程が最も重要である。5000 系合金の場合, Mg 添加量の増加とともに一軸引張伸びは増加するが²²⁾, 平面歪みおよび等二軸引張状態では, この傾向が逆転することが示されている^{27~31)}。多くの調査は, 軟質材での結果であるため, 缶エンド材のような硬質材について詳細に調査した。その結果を Fig. 3 に示す³¹⁾が, Mg 量の多い合金ほど平面歪みに近い $e_2 = 0.02 \sim 0.04$ の成形限界は低くなる。一軸引張の場合, Mg 固溶量の増加により, 積層欠陥エネルギーが低下して交差すべりが困難となり, その結果, 加工硬化性が增大して一様伸びが大きくなるとされているが³²⁾, 成形限界に及ぼす歪み状態の影響を材料組織の

観点から説明するには不明な点が多い。リベット成形性に及ぼす因子としては、缶エンド材の塗膜の潤滑性や加工条件の寄与が大きいと、これらを考慮した成形限界を高める研究は、更なる成形性向上において重要な知見をもたらすものと考えられる。

2.4 面内異方性（耳率）制御

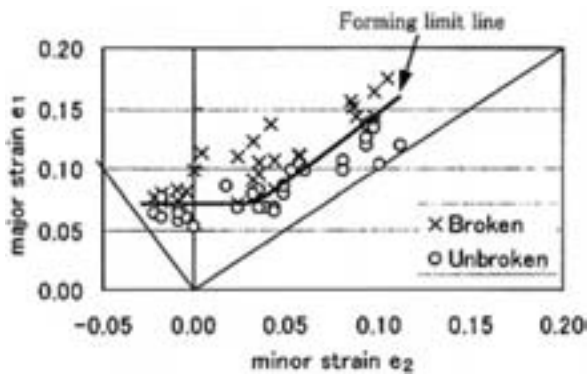
缶エンドのシェル成形は、浅い絞り成形のため、成形品の外縁部に耳が生じる。この外縁部の高さをリップハイトと称するが、缶エンドの場合、リップハイトが周方向で均一でないと、充填後の缶ボディとの巻締め工程において均一な巻締寸法が得られず、缶の密封性が損なわれる。但し、素材特性として耳の生じないノンイヤ材が要求される訳ではなく、素材の耳形状にあわせてエンド成形設備の円板（ブランク）を打ち抜く金型（カットエッジ）形状を非円にしているのが一般的である。その場合、

所定の耳形状からのバラツキの少ない量産安定性が求められるとともに、金型形状に適合した所定の耳形状への調整が必要となる。

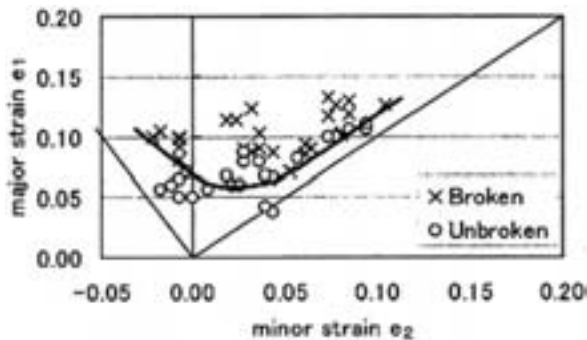
缶材料に限らず、アルミニウム合金の異方性制御技術は古くから論じられているが、缶エンド材に用いられる5000系合金については、比較的報告例が少ないようである。Mgを主要元素とする5000系合金は、Si、Fe等の不純物元素量を規制する傾向にあるため、缶ボディ材に比べて均質化熱処理工程でのこれら溶質元素の析出量が少なく、異方性への影響が鈍感である。しかし製造工程系列によって耳形状が大きく変わるため、中間焼鈍条件との関係^{33~35)}や、DC 鋳造材と溶湯圧延材の違い³⁶⁾などが報告されている。Fig. 4に、5182合金熱延板を76%冷間圧延したのち、昇温速度を変えて723K(450°C)まで加熱し、直ちに冷却した焼鈍板の耳率を示す³⁵⁾。昇温速度の増加と共に45°耳率は低下したが、これは昇温速度の増加と共にCube方位密度が増加する一方で、R方位に属する成分の方位密度が低下し、両者がバランスした結果耳率が低下したものである。昇温速度と再結晶集合組織の関係には不明点も多いが、昇温速度が比較的遅い場合は再結晶温度が低く、粒界やせん断帯など特定のサイトで再結晶核が生成・成長しやすいことが、特定の優先方位発達に結びつくものと考えられる。

2.5 耐食性・応力腐食割れ性

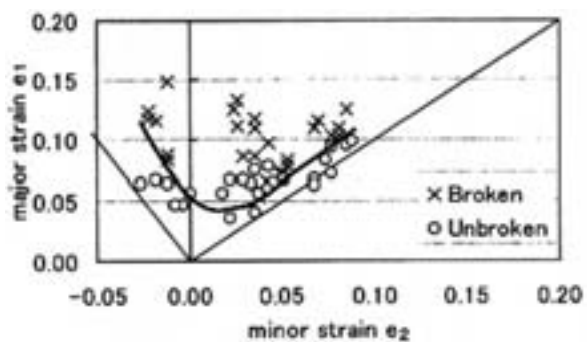
缶エンド材に用いられる5000系合金は、アルミニウム合金の中では比較的耐食性が良いとされるが、熱処理や冷間加工度によっては応力腐食割れのリスクが高まる事が知られており、多くの研究がなされている。Al-Mg二元系では中間相にβ相(Al₁₇Mg₁₂)が存在するが、これはマトリクスと比べて電気化学的に卑である。β相は473K(200°C)以下の温度で粒界に析出し、優先的に腐食させるため、応力腐食割れ感受性を高める。33%程度の冷間加工は、転位の導入によりMg原子の



(a) AA5021 (Mg 2.2%)



(b) AA5042 (Mg 3.5%)



(c) A5182 (Mg 4.1%)

Fig. 3 Forming limit diagrams of Al-Mg alloys.

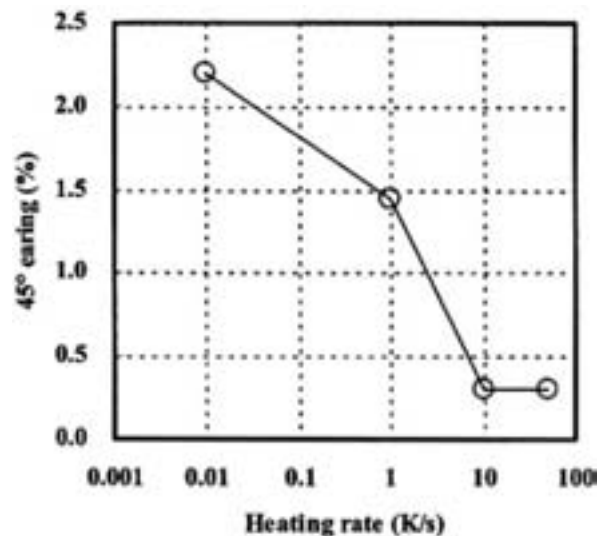


Fig. 4 45°earing of annealed sheets.

パイプ拡散を促進するため応力腐食割れ感受性を高めるが、加工度を50%に増加すると逆に感受性を低下させる。これは粒内転位セルへの β 相析出も促進されるためと考えられている³⁷⁾。

また、缶エンド材を想定した製造条件の範囲内で、冷延途中の中間焼鈍条件と最終冷延率などを変えて、5182合金をベースでMn, Mg, Cu, Znの影響を調査している^{38,39)}。これら因子の関係は複雑であり一概に述べることは困難であるが、最終熱処理時に、中間焼鈍での旧粒界に析出する β 相を抑制する製造条件では耐食性が向上するという方向性は共通である。即ち、 β 相を全面析出させる中間焼鈍条件や電気化学的に β 相よりも貴なT相($\text{Al}_6\text{Mg}_4\text{Cu}$)を析出させるCu添加は、固溶Mg量を低下させることで最終熱処理時の β 相粒界析出を低下させる。上述の冷間加工度の影響も同様である。また、このような粒界腐食感受性の高い材料のアノード分極曲線は孔食開始点付近の腐食電流の増加率が穏やかであり、孔食電位 E_p とその直前の変曲点を示す電位 E_p' の差で粒界腐食感受性を評価できる。Fig. 5に、 E_p と E_p' の関係を示す模式図を示す。5182冷延板と、これを423K(150°C)で熱処理して粒界腐食感受性を高めたサンプルのアノード分極曲線を比較した場合(Fig. 6), a材は自然電極電位、孔食電位ともにb材と比べて卑であることに加え、孔食電位直前での曲がり角が鈍く、 E_p と E_p' の差が大きい。5182合金のCu, Mn量と冷延途中の中間焼鈍条件を変えたサンプルについて、浸漬試験による腐食重量減と E_p と E_p' の差の関係を整理すると(Fig. 7), 両者の間に良い相関が得られる。またそれらの電位間で定電位電界することで、 β 相の析出した粒界を選択的に溶解させられることも確認された。

缶エンド材は、成形前に有機樹脂皮膜を塗装し、473K(200°C)を超える温度での焼付け工程がある。Alに対するMgの固溶限は温度の上昇とともに急激に増加し、この温度域では β 相が再固溶するため、応力腐食割れに対する感受性は低い状態になっている。しかし、エンド成形、充填・巻締めによる冷間での加工、更にその後の殺菌処理や輸送・保管中の温度上昇を経て、結露などによる腐食環境下に曝されると、応力腐食割れによるスコアリークが生じることがある⁴⁰⁾。特に東南アジアでは、高温・高湿の気候や、多様な流通経路などからこのような不具合が生じる可能性が指摘されており、今後の同地域でのアルミ缶使用量増加に伴い、この対策が重要となろう。

また陰圧用にはスチール缶ボディと、アルミニウム合金製のエンドが組み合わされている。この場合、両材料間の電気化学ポテンシャル差によるガルバニック腐食が懸念される。またアルミ缶の場合であっても、缶ボディに用いられる3104(3004)合金と比べて缶エンドの5182合金は電気化学的に卑なため、同様の問題が生じる恐れがある。しかし、これらの間のガルバニック電流

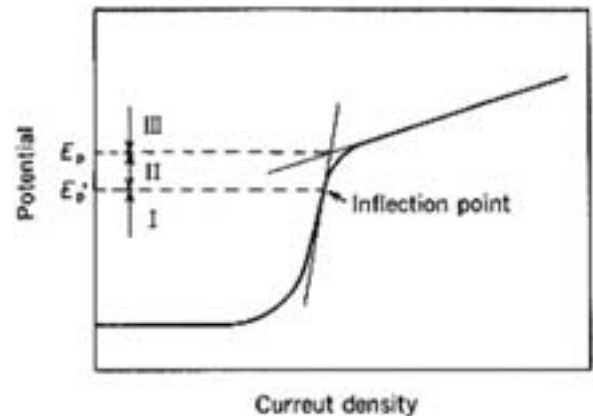


Fig. 5 Tentative definitions of the pitting potential E_p and E_p' .

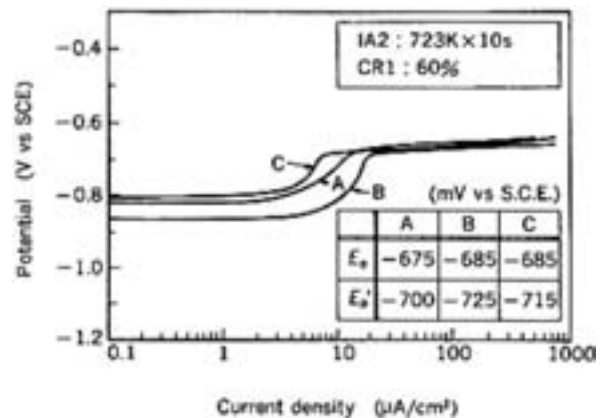


Fig. 6 Anodic polarization curves for the two 5182 sheets in 0.1mol/dm^3 NaCl solution.

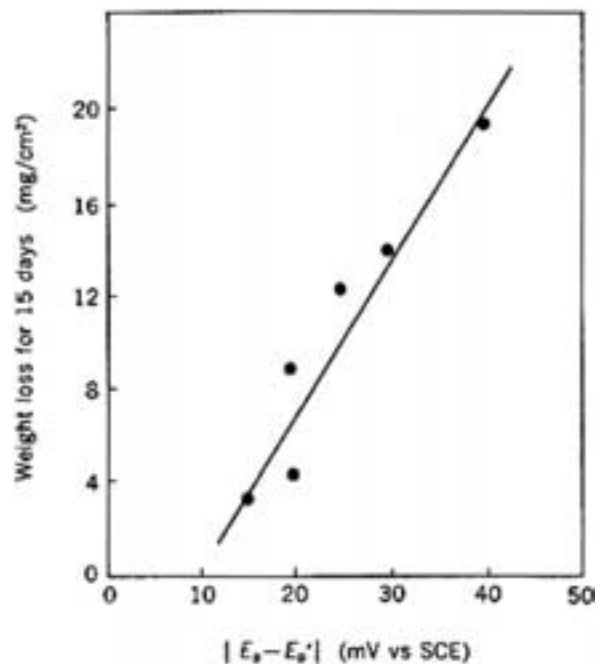


Fig. 7 Relation between the weight loss and the potential difference.

は数 $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ 以下であり、 $10\mu\text{A}/\text{cm}^2$ に達することもあるスチール缶に比べて小さいため、孔食による穿孔のリスクは低い。このガルバニック腐食については、スチール缶における内容物種とガルバニック電流の関係、塩素濃度と孔食の関係、またアルミ缶においても塩素濃度、pH、溶存酸素、温度の影響などの研究例が報告されている^{41,42)}。当社においても、健康飲料用スチール缶のEOEに使用するエンド材を想定し、スチールよりも自然電極電位を貴にすることでガルバニック腐食を抑制する指針のもと、3000系および5052をベースにCu添加量を増加した合金を検討している⁴³⁾。

2.6 化合物粒子の制御

鋳造工程での晶出物や均質化熱処理などでの析出物は、その種類やサイズにより再結晶挙動や集合組織形成挙動に影響するため、製品板の面内異方性、強度特性に大きく影響する。また、エンドの成形性や開口性に影響するともされている。5182成分規格内で Mg_2Si は多くの報告で共通しているものの、FeおよびMnを含む化合物については、 $\text{Al}_3(\text{Fe}, \text{Mn})$ 、 $\text{Al}_6(\text{Fe}, \text{Mn})$ 、 $\text{Al}_m(\text{Fe}, \text{Mn})$ ($m=4.1\sim 4.4$) および $\alpha\text{-Al}_{12}(\text{Fe}, \text{Mn})_3\text{Si}$ などが報告されている。これら生成する化合物種を決める因子としてはSi量、Fe/Si比などの化学成分のほか、鋳造・凝固時の冷却速度などが挙げられる^{44~46)}。更に均質化熱処理時の相変態(分解反応)もあり⁴⁷⁾、これらの生成条件や挙動を把握することは容易ではないのが現状である。今後のリサイクル性向上の課題を考えると、SiやFe量などの増加による構成相の変化が、製品特性に大きく影響する可能性があるため、今後、材料組織制御をするうえで着眼すべき課題である。

2.7 熱間加工性の向上

Al-Mg合金は、Mg量の増加とともに熱間脆性が生じることが知られており、その対策は生産性向上において重要である。これは破面が粒界破壊の形態を呈すること、粒径・温度・歪み速度依存性を示すことなどから、この脆化は体積拡散により律速されていると考えられている⁴⁸⁾。5182合金でも、耳割れなど生産性の観点から熱間加工性に及ぼす諸因子について報告されている^{49,50)}。両者が同一の機構によるかは慎重に議論する必要があるが、Mg添加による固溶体硬化で変形応力が高い5000系合金で生じやすい現象と言えるであろう。

また食品・飲料容器として缶が求められる品質に密封性が挙げられるが、鋳造工程で非金属介在物が鋳塊に混入すると、エンド成形工程で割れを引き起こす恐れがあり、溶湯浄化技術が重要となる。しかし溶湯処理装置のセラミック・チューブフィルターなどからNa、Caが溶出する恐れがあり、更にCaの溶出には溶湯中のMgが大きく関わっているため⁴⁹⁾、これら元素が熱間加工性を低下させる懸念がある。吉田らは実験室規模の熱間鍛造試験で、Na量5ppmの5182合金をベースとした場合、Ca量が7ppmから35ppmに増加すると、ま

たNa量が5ppmから25ppmに増加すると熱間加工割れが助長されることを示した。更にBi、Pb添加は、これら割れの助長を抑制する効果があることを示した。Bi、Pbによる割れ抑制効果については、Na、Caと高温でも安定な金属間化合物を形成し、これらの元素を無害化している可能性を示唆している。Doutreらも熱間圧延により同様の調査をしており、Na量が1ppmに満たない場合は、Ca量が100ppmまで増加しても熱間割れに影響しないが、Na量が4ppmに増加すると、Ca量の増加と共に割れが助長されることを示している。熱間加工性に及ぼすこのような微量元素の影響については、不明点も多い。前節同様、リサイクル性の向上のためには、着目すべき元素種やそれらの相互作用を把握する上での組み合わせも多くなることから、着実な検証と整理が必要である。

3. 缶ボディ材

3.1 合金成分の検討

世界各国でつくられているアルミニウムDI缶ボディに用いられる材料は、Table 1に示したAl-Mn-Mg系の3004合金や、その不純物成分(Si, Fe)範囲を拡大してリサイクル性を向上させることができる3104合金がほとんどである。最近では更なる高強度用合金として3104合金に対してMnとMgを更に添加できる3204合金の利用も検討されているが、缶ボディの成形性に問題があるようで、基本合金である3004合金に近い成分が主流である⁹⁾。

DI缶ボディに求められる特性には、製缶工程において絞り成形性、しごき成形性、ネック成形性やフランジ成形性が、製品として缶体強度、塗装前の脱脂洗浄と表面処理性、内容物と外部環境に対する耐食性などが挙げられる⁵¹⁾。缶体強度には、内圧に耐える缶底耐圧、充填時などに求められる座屈強度に加え、最近では側壁部の穴あきし難いための強度が要求される。

この中で缶ボディ材には、薄肉軽量化と高速成形性の要求が強く、DI成形性と缶体強度の両立が重要な課題であった。この課題に適した材料を開発するため、古くからDI成形の力学的解析^{52~54)}や、工具形状に関する実験⁵⁵⁾などの研究がなされ、成形技術が理解されていった。いっぽう、素材開発においては、種々の材料における絞り成形性やしごき成形性の調査により、機械的性質やn値等の影響が調査され、絞り成形と1段しごき成形にはn値は大きい方が良いのに対して、多段しごき成形では逆の傾向になること、また、軟質材に比べて硬質材が優れるなどの結果が報告されている^{56~59)}。

当社でも小型成形試験評価に加え、DI成形装置をいち早く導入し、その成形方法と素材開発の方向性について研究してきた^{60~65)}。Fig. 8に各種アルミニウム合金の1段しごき成形における破断限界を調査した結果を示

す。図中の棒の長さはしごきテストでの破断バラツキを示し、丸印は各材料の強度（引張強さ、耐力）を示している。5000系合金のように強度の高い材料ほど、しごき成形時の破断限界は低い。また調質では全般の傾向としてO材はH18材よりも強度は低いものの、しごき成形による破断限界は高い。缶ボディ材には、強度が高いことが望まれることから、強度が比較的高く、しごき成形の破断限界が高い3004-H18が好適であることがわかる⁶¹⁾。この3004合金のしごき限界については、ポンチ荷重の実測と初等解析により研究しDI成形の理解を深めてきた⁶²⁾。現在でも、当社における薄肉高成形性用の缶ボディ材の開発において、DI成形中の荷重測定による定量化は、材料組織制御に加えて表面特性の最適化や潤滑油の選定などにも重要な知見をもたらしている。

缶ボディ材の合金選定において、しごき成形性と関連する外観の鮮鋭さは重要な要求特性である。この特性を得るには、鋳造時に晶出したAl(Mn, Fe)化合物が、均質化処理時に α 変態したより硬い数 μm サイズの α -

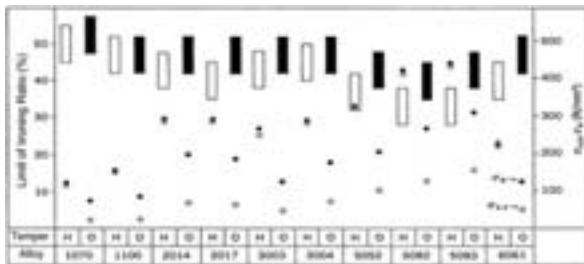


Fig. 8 Limit of Ironing Ratio for Aluminum Alloy Sheets (Drawing Ratio=1.6).

Al(Mn, Fe) Si相により、しごきダイスに凝着したアルミを削り取る作用（クリーニング効果）があると一般的に言われており、熱処理条件や添加元素の影響について調査されている⁶⁶⁾。 α 変態は550°C付近にノーズを有し、その律速過程はAlマトリクス中でのMn原子の拡散である。それを促進するのがSi量の増加で、Mg量の増加は抑制される。

いっぽう、これらの化合物が増加すると引き裂き強度は低下⁶⁷⁾する。また、晶出物のサイズが大きくなるとしごき成形やフランジ成形時の割れの起点となるため、巨大晶出物の生成限界についても研究がなされており⁶⁸⁾、合金成分とプロセスの最適化は重要な課題として取り組まれてきた。

MnやFe等を多く含む缶ボディ材は、均質化処理や熱間圧延でマトリクスの固溶や析出状態が大きく変化する。そこで当社では、3004合金を中間熱処理条件によりFig. 9のように大幅に異なる析出状態にして、しごき成形後の表面状態の変化を調査した。その結果、破断強度は析出状態によって変化するものの、外観にはFig. 10に示したように実用上問題となる差異は認められなかった。このため、缶壁の光沢を維持しながら、マトリクスの組織制御によって集合組織や再結晶挙動を制御し、高強度や耳率の小さい材料の検討が可能であることが示唆され⁶⁹⁾、現在では、SiやFe量等が増加したりサイクル性の優れる3104合金でも、薄肉軽量化が可能なDI成形性に優れる材料⁷⁰⁾の製造が可能となった。

しごき成形は、飲料缶だけでなく各種容器製造における軽量化や省資源化に大きく貢献できる技術である。しかし、この缶壁部の鮮鋭性に及ぼす金属間化合物による

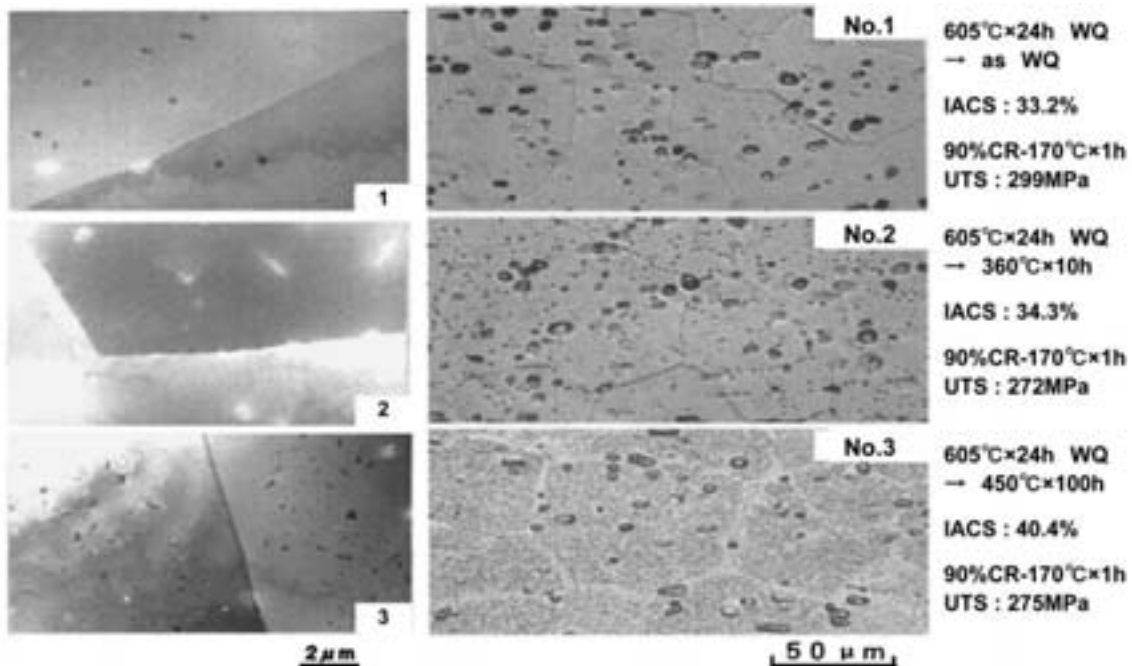


Fig. 9 Precipitates in the testing materials.

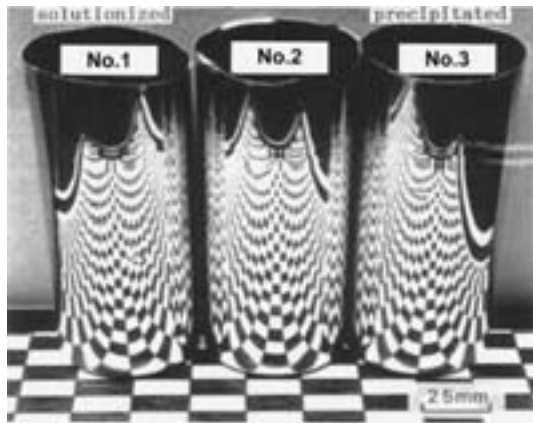


Fig. 10 Surface of D&I can bodies of the testing materials.

クリーニング効果に関する実証は、純アルミニウムとの比較⁷¹⁾で説明されているに過ぎない。そこで土田は、この鮮鋭性について主な添加元素を0.35%ずつ添加したAl-X合金板をDI加工して調査している⁷²⁾。その結果をFig. 11に示すが、鮮鋭性(Bright Point; 5点評価)はMn, Fe, Crを含む合金では高く、Mg, Zn, Cuを含む合金では低い。図中には鮮鋭性の他に表面粗さも示しているが、これらの対応は判然としない。また、これら材料の金属間化合物とも相関は認められないとの結果で、鮮鋭性はクリーニング効果によるとは判断できない結果が得られている。凝着に関しては、金属原子の外殻電子の欠如が自己凝着性に影響するとの報告例もある⁷³⁾ことから、DI缶の強みである缶壁の鮮鋭さ(高しごき成形性)を生み出すメカニズムについては、他用途の展開も考えると今後解明すべき課題と考える。

3.2 高強度・高成形性の検討(固溶析出制御)

3004合金は、非熱処理型合金に分類されているが、圧延された製品板を200°C以下の低温で加熱すると引張強度が上昇する。この現象は、DI缶を作る工程で成形加工後の塗装焼き付け時に起きるため、缶材においてベークハード現象と呼び、薄肉缶用の高強アップに利用された。この強度上昇は連続焼鈍炉(CAL)を使用してMg, Si, Cuを固溶させ、その後の冷間圧延やDI成形によって形成される加工組織上に低温熱処理で析出させ、引張りなどの変形時に加工硬化を大きくすることで起こるひずみ時効に似た現象である。この現象を利用した材料開発が1980年後半から1990年代半ばにかけて軽圧各社において活発に行われ、この析出については、Al-Cu-Mg系析出物であるGPBゾーンまたは、S'相であるとした報告^{74, 75)}や、Al-Cu-Mg-Si系のQ相の準安定相であるとした報告がある⁷⁶⁾。

いっぽう、1991年頃からDI缶の軽量化としてのエンド縮径が本格的に進展し始め、ネック成形性やフランジ成形性(耐フランジ割れ性)が重要視されるようになった。縮径のためのネック成形技術として、スムーズダイ

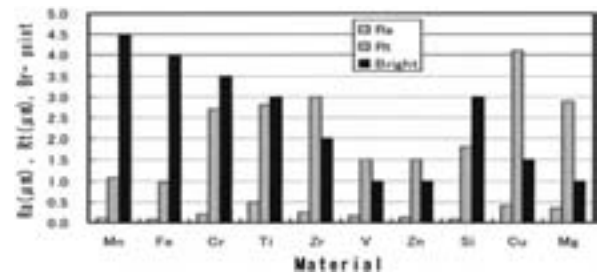


Fig. 11 Roughness parameter and bright point of D&I can wall of Al-0.35%X alloys.

ネッキング、スピネッキング、スピフローネッキングが機械メーカーから次々に紹介され、この成形技術に最適な材料を見極めるため、Table 2に示す素材製造工程による特徴を調査し、耳形状や硬さ特性の変化がネック成形方法により異なることを明らかにした。特に世界的で使用されているダイネッキング方式においては、冷間圧延途中で熱処理を施さない工程の材料が、DI成形後の塗装焼き付けでAl-Cu-Mg系化合物による析出強化はせず、ネック成形時に加工軟化が起こる。この現象はバウシinger効果と考えられ、この工程で製造した材料がネック成形性に優れることを示した⁷⁷⁾。また、フランジ成形性については、伸びフランジ成形性が最適となる素材の製造工程について研究した^{78, 79)}。その結果、冷間圧延途中で溶体化熱処理を施すと、DI成形後の塗装焼き付けを想定した熱処理において、伸びフランジ成形性が極端に低下する結果となった⁷⁹⁾。この原因として、高強度化には有効であった微細なAl-Cu-Mg系化合物の析出により、加工硬化しやすい下部組織を形成したため、限られたすべり帯に変形が集中し、局部くびれが発達しやすくなったと推定した。これら加工面と素材面による検討から、エンドの縮径に対応した材料の製造工程として、冷間圧延途中で熱処理の無い工程が望ましいことを明らかにした。その後、エンドの小径化に伴う缶の積層性(スタッカビリティ)の要求と、薄肉軽量化による缶底耐圧向上の観点から、缶底接地径の小径化が進められた。それにより、缶ボディ材は高強度材の追求から、DI成形性やネック成形性の更なる向上へと課題がシフトし、当社においてもこのネック・フランジ成形性に優れたエネルギーやCO₂排出量も削減できる中間熱処理の無い工程へ転換していった。

缶ボディの更なる薄肉化や高生産性、リサイクル性の向上などの要望に応えるためには、より機械的特性のパラッキが小さく高精度な素材特性にする必要がある。現在の缶ボディ材は、Table 2の最も工程が簡略な工程Aのため、材料組織において熱間圧延後の再結晶状態の制御がとても重要となる。特に3000系合金の主な添加元素であるMnの固溶/析出状態は均質化処理をはじめ、熱間圧延条件により変化するため、これらが再結晶や加工硬化挙動に及ぼす影響の解明について取り組んでい

る^{80~82}。Al-0.66%Mn 合金において Mn の固溶析出のバランスを熱処理条件により変化させた 3 種類の材料を作製し、80% 冷間圧延後に 623K (350°C) で保持した時の再結晶挙動を調査した結果を Fig. 12 に示す。固溶 Mn 量が多いほど再結晶し難くなるのがわかる。これは、一般的な PSN (Particle Stimulated Nucleation) による再結晶核の増加が影響していると考えられる。いっぽう、析出材の結晶粒組織を比較した場合、Fig. 13 に示すように、固溶 Mn 量の多い PS 材では粗大不均一な組織となった。これは再結晶核の減少よりも、固溶 Mn 量や 350°C 保持中に析出した微細な粒子による粒界移動の抑制が影響していると考えられる⁸²が、このような再結晶挙動の解明については、材料組織を制御する上で重要であり今後も検討していく。

Table 2 Manufacturing process for can body sheets.

Material	Process
A	Homo ... HR CR
B	Homo ... HR ... CAL • IA CR
C	Homo ... HR ... CR ... CAL • IA ... CR
D	Homo ... HR ... CR BAT • FA

HR : Hot rolling, CR : Cold rolling,

IA : Intermediate annealing, FA : Final annealing

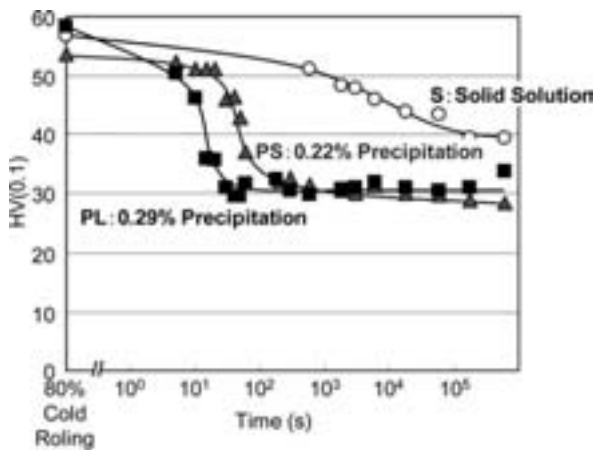


Fig. 12 Annealing curves of 80% cold sheets.

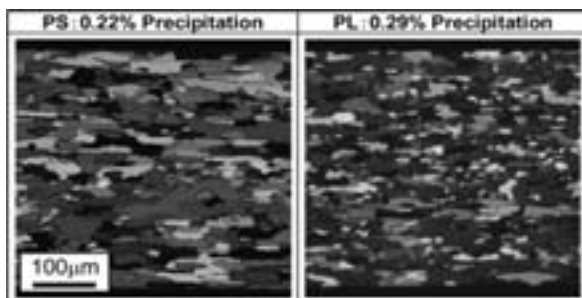
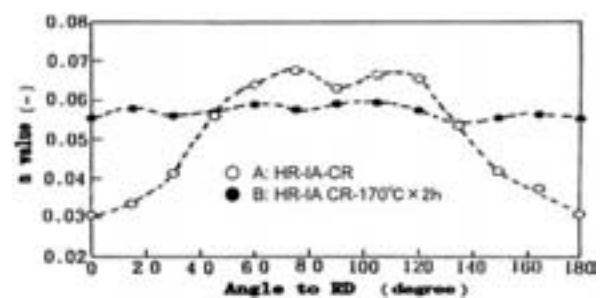


Fig. 13 Grain structure of material PS and PL annealed at 350°C for 600ks.

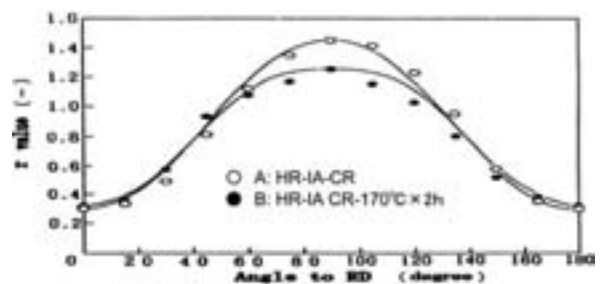
3.3 面内異方性制御

缶ボディの成形で最も重要であるしごき成形は、その前に行う絞りカップや再絞りカップの出来具合に左右される。その出来具合のひとつに、カップ口端部に発生する耳が挙げられる。この耳が大きいと、材料の歩留まりが悪化するだけでなく、製缶搬送時の引っ掛かりや、先端がちぎれて、その破片の混入による材料破断を招くことから、この耳を小さくするための多くの研究がなされてきた^{83~91}。缶ボディ材は熱間圧延のあとに冷間圧延のみの加工となるため、熱間圧延終了時の再結晶組織に及ぼす Fe 量⁸³、ソーキングから熱間圧延条件^{84~87}や、耳と集合組織の関係^{88~91}について報告されている。当社においても、成分をはじめとし熱間圧延中の温度履歴やひずみ速度等について最適化してきた。

いっぽう、加工硬化指数 (n 値) や塑性ひずみ比 (r 値) の異方性についての研究は少ない。これらは、カップ壁部の硬さや厚さの分布に影響し、この分布が不均一になると、円筒にしごき加工する際に発生する応力が、周方向に不均一となり加工中に破断を招くほか、缶高さの不均一や缶胴の真円度の低下による座屈強度不足を招く。そこで、これらのパラメータを冷延後の低温熱処理 (170°C × 2h) により変更させ、それらの面内異方性の変化とカップへの影響について調査した⁹²。Fig. 14 に示すように、n 値は低温熱処理を施すことにより 0° 付近が上昇し、90° 近傍では低下し、異方性が低減する。また r 値は、低温熱処理によって 90° 近傍が低下する。この特性変化により、Table 3 に示すように張り出し限界高さや限界絞り比は上昇するが、耳率はほとんど変化しない。これは、冷延板の n 値や r 値の面内異方性が、



(a) Distributions of n-value in the material A and B



(b) Distributions of r-value in the material A and B

Fig. 14 Distributions of n-value and r-value.

Table 3 Plastic properties of the test materials.

Material	L. D. R	Earing (%)	E. V. (mm)
A HR-IA-CR	1.78	3.0 (0°/45°-6)	4.5
B HR-IA-CR-170°C×2h	2.05	3.1 (0°/45°-6)	5.3

冷間圧延で強く発達した不均一変形組織の異方性に依存し、低温熱処理によってその異方性が低減されるのは、析出状態の変化よりも、転位組織の回復とそれによる異方性のある変形組織の一部消滅が主たる原因と考えられる。この結果から、当社において冷間圧延後の素材の回復程度を冷間圧延の温度などを制御しながら、薄肉軽量化に適した高成形性材料を製造している。

最近では、缶ボディ材の熱間圧延をはじめとした上工程での集合組織制御の検討に加え、集合組織から絞り成形時に発生する耳形状を結晶塑性有限要素法により予測できる技術開発も取り組んでいる^{93~95)}。

4. おわりに

これまでの缶材の組織制御研究は、製造工程をいかにシンプルで、かつ強度や耳に代表される素材特性を安定化させるかが課題であった。そのために、加工技術の研究から、素材の固溶析出に代表されるような組織制御の研究まで幅広く行い、薄肉軽量化や高生産性化に対応してきた。今後も、更なる品質向上や歩留まり向上など地道な研究は必要であるが、その根底となる材料組織を予測し制御する技術の確立が重要となるであろう。また、これからの飲料缶には、意匠性や機能性が重要視され、また、製缶技術は他用途へ拡大していくであろう。これらに 대응するためには、組織制御に関する基礎研究が重要になる。また、新しい加工技術を理解していくことも重要ではあるが、飲料缶の加工において3000系や5000系合金が選定されている理由を掘り下げてみることも今後の課題と考える。

参考文献

- アルミニウム協会調べ
- 馬場義雄, 木村 紘, 齋藤莞爾, 河合三弘: 本誌, **16** (1975), 124.
- 齋藤莞爾, 福田康廣, 平田勝彦: 本誌, **25** (1984), 184.
- 竹島義雄, 伊藤清文, 木村博政, 久田貞夫: 本誌, **29** (1988), 210.
- 伊藤清文, 土田 信: 本誌, **34** (1993), 258.
- 菊田良成, 水谷博之, 横井 洋, 花木和宏: 本誌, **37** (1996), 77.
- 横井 洋, 平野清一: 本誌, **40** (1999), 99.
- 横井 洋, 伊川慎吾, 平野清一: 本誌, **46** (2005), 133.
- 横井 洋, 竹田委千央, 岡田峰光: 本誌, **51** (2010), 121.
- B. N. PEAK, Jr.: Light Metal Age, (1965. 2), 6.
- 宮坂寿雄: 軽金属, **21** (1971), 413.
- Aluminum Alloys for Packaging: TMS, (1992).
- Aluminum Alloys for Packaging II: TMS, (1996).
- Aluminum Alloys for Packaging III: TMS, (1998).
- S. Tsuchida and Y. Baba: Aluminum Alloys for Packaging, TMS, (1993), 17.
- 平野清一: 本誌, **42** (2001), 124.
- JIS H 4000: 2006
- 馬場義雄: 本誌, **41** (2000), 91.
- S. R. MacEwen and R. Perrin: Aluminum Alloys for Packaging, TMS, (1993), 85.
- 大西健介: アルミニウム, **1** (1994), 9.
- 伊藤清文, 土田 信: 本誌, **33** (1992), 18.
- 内田英俊, 吉田英雄: 本誌, **37** (1996), 1.
- 田中宏樹, 土田 信: 本誌, **33** (1992), 217.
- P. A. Hollinshead: Aluminum Alloys for Packaging II, TMS, (1996), 117.
- M. S. Nagorka and T. C. Sun: Aluminum Alloys for Packaging II, TMS, (1996), 223.
- 岡田峰光: 軽金属学会第120回春期大会概要, (2011), 389.
- 小原嗣郎, 勝田基嗣: 軽金属, **28** (1978), 277.
- 土田 信: 本誌, **16** (1975), 14.
- 野村 優, 平野清一: 軽金属学会第99回秋期大会概要, (2000), 151.
- 桑原利彦, 梅村昌史, 黒田充紀, 二階堂仁之, 伊川慎吾: 54回塑性加工連合講演会講演論文, (2003), 209.
- 菊田良成: 52回塑性加工連合講演会講演論文, (2001), 357.
- 柳川政洋, 大家正二郎: 軽金属, **41** (1991), 119.
- 平野清一, 野村 優: 軽金属学会第97回秋期大会講演概要 (1999), 171.
- 野村 優, 平野清一: 軽金属学会第103回秋期大会講演概要 (2002), 329.
- M. Okada, S. Hirano: *ibid.*, **53** (2012), 14.
- 渡辺良夫, 森山 勉, 宇野照夫: 軽金属学会第80回春期大会講演概要 (1991), 95.
- 馬場義雄, 萩原理樹, 浜田淳司: 本誌, **14** (1973), 212.
- 土田 信, 田中宏樹: 本誌, **34** (1993), 128.
- 田中宏樹, 土田 信, 平野清一: 本誌, **37** (1996), 14.
- T. D. Burleigh, E. H. Gillespie and S. C. Biondich: Aluminum Alloys for Packaging, TMS, (1993), 323.
- 当摩 建, 竹内 庸, 西山貞雄, 川島敏彦: 軽金属, **35** (1985), 168.
- 当摩 建, 西山貞雄, 竹内 庸: 軽金属, **35** (1985), 168.
- 伊藤秀男, 土田 信, 福田康廣, 田部善一: 本誌, **28** (1987), 55.
- S. C. Flood, P. V. Evans, J. M. Brown and J. Worth: Light Metals (1995), 1127.
- G. J. Marshall, A. J. E. Flemming and R. A. Ricks: Light Metals (1996), 257.
- Y. J. Li, L. Arnberg: Acta Mater., **52** (2004), 2673.
- Y. J. Li, L. Arnberg: Acta Mater., **52** (2004), 2945.
- 堀内 良: 軽金属, **31** (1981), 431.
- 吉田政博, 岡 一嘉, 飯島泰正: 本誌, **26** (1985), 195.
- D. A. Doutre and P. A. Wycliffe: Mater. Sci. Forum, **693** (2011), 256.
- 川島敏彦: 軽金属, **40** (1990), 856.
- R. Hill, J: Iron Steel Inst., **161** (1949), 41.

- 53) G. Sachs and J. D. Lubahn : J. Appl. Mechanics, **11** (1944), 199.
- 54) 福井伸二 : 塑性と加工, **12** (1971), 701.
- 55) G. S. A. Shawki : Sheet Metal Industries, **47** (1970), 855.
- 56) 碓井栄喜, 稲葉 隆 : 軽金属, **34** (1984), 236.
- 57) 碓井栄喜, 稲葉 隆 : 軽金属, **34** (1984), 317.
- 58) 金子純一, 菅又 信, 竹島正博 : 軽金属, **35** (1985), 12.
- 59) 勝田基嗣, 小原嗣郎, 青木頭一郎 : 軽金属, **35** (1985), 696.
- 60) 木村 紘, 斎藤莞爾, 岡本庄司 : 本誌, **18** (1977), 42.
- 61) 岡本庄司, 土田 信 : 軽金属学会第 55 回秋期大会概要, (1978) 73.
- 62) 岡本庄司, 土田 信 : 本誌, **20** (1979), 23.
- 63) 疋田達也, 竹島義雄 : 本誌, **30** (1989), 78.
- 64) 疋田達也, 竹島義雄 : 本誌, **30** (1989), 129.
- 65) 伊藤清文, 土田 信, 竹島義雄 : 本誌, **30** (1991), 177.
- 66) 渡辺英雄, 大堀紘一, 竹内 庸 : 軽金属, **33** (1983), 149.
- 67) 迫田正一, 東海林 了, 藤倉潮三 : 軽金属学会第 74 回大会概要, (1988), 91.
- 68) 吉川克之, 坂本敏正 : 軽金属, **33** (1983), 602.
- 69) 土田 信 : 本誌, **25** (1984), 238.
- 70) 横井 洋, 永田恵一 : 特許第 3690784 号 (2005).
- 71) L. D. Kenny and H. Sang : Metal Transfer and Galling in Metallic Systems, TMS, (1986), 117.
- 72) 土田 信 : 学位論文, 非熱処理型アルミニウム合金硬質板の組織制御と材料特性に関する研究 (2009. 6)
- 73) 松原 清 : トライボロジー摩擦・摩耗・潤滑も科学と技術, 産業図書 (1985), 21.
- 74) 稲葉 隆, 碓井栄喜, 信濃 昇 : 軽金属, **39** (1989), 3.
- 75) 照田伸二, 深田和博, 溝野政文 : 軽金属, **39** (1989), 94.
- 76) 小山克己, 神林 幹, 藤倉潮三 : 古河電工時報, No.87 (1990), 27.
- 77) 菊田良成, 土田 信, ジェームス E. プリチャード : 本誌, **39** (1998), 60.
- 78) 菊田良成, 土田 信, ジェームス E. プリチャード : 本誌, **39** (1998), 65.
- 79) 土田 信, 横井 洋 : 本誌, **37** (1996), 20.
- 80) 小川和代, 岩村信吾 : 第 121 回軽金属学会講演大会概要, (2011), 15-16.
- 81) 岩村信吾, 小川和代 : 第 121 回軽金属学会講演大会概要, (2011), 17-18.
- 82) 小川和代, 岩村信吾, 横井 洋 : 第 123 回軽金属学会講演大会概要, (2012), 27-28.
- 83) W. B. Hutchinson, A. Oscarsson, Å. Karlsson : Mat. Sci. and Tech., **5** (1989), 1118.
- 84) 浅見重則, 土公武宜, 八木啓介 : 軽金属, **39** (1989), 94.
- 85) S. L. Palmer and Z. Li : JOM, **6** (1996), 30.
- 86) J. Hirsch, P. Wagner, H. Schmiedel : Materials Science Forum Vols.217-222 (1996), 641.
- 87) 高橋恒夫, 村上 雄, グェン・コン・ダン : 軽金属, **28** (1978), 35.
- 88) Anders Oscarsson, Hans-Erik Ekström : Aluminum Alloys For Packaging II, TMS, (1996), 63.
- 89) A. Oscarsson, P. Bate : Materials Science Forum Vol.217-222 (1996), 559.
- 90) Baolute Ren : TMS Annuaik Meetin, (1998).
- 91) Hiroaki Inagaki : Z. Metallkde, **82** (1991), 361.
- 92) 土田 信 : 軽金属, **59** (2009), 63.
- 93) 伊川慎吾, 石坂拓巳, 黒田充紀, 桑原利彦 : 第 57 回塑性加工連合講演会, (2006), 351.
- 94) 石坂拓巳, 伊川慎吾, 黒田充紀, 桑原利彦 : 第 57 回塑性加工連合講演会, (2006), 353.
- 95) 野村哲郎, 桑原利彦, 黒田充紀, 伊川慎吾 : 第 57 回塑性加工連合講演会, (2006), 355.

アルミニウム箔および PS 版用アルミニウム板材の 組織制御

本 居 徹 也

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 196-209

Microstructural Control in Aluminum Foil and the Aluminum for the PS Plate

Tetsuya Motoi

Aluminum foil is nonpoisonous, and it excels in the barrier properties of light or gas, printing properties, adhesiveness, etc. Therefore, aluminum foil has many uses, such as the packaging of food or medical supplies. Moreover, since it excels in electrical conductivity and etching properties, it is also widely applied in electronic components, such as the collector in lithium ion batteries and electrolytic capacitors. The PS plate (Pre-sensitized Plate) is also a product using the etching properties which are excellent in aluminum. This review summarizes the properties of aluminum foil for packing, the aluminum foil for electrolytic capacitors, and the aluminum plate for PS plates.

1. はじめに

アルミニウム箔は加工のしやすさ、展性の良さを利用し、薄さが重用される用途に用いられる。金属箔には手打ちで加工される金箔、電解で製造される電解銅箔などがあるが、アルミニウム箔の工業的な製造は圧延により行われ、6 μm 程度の厚さまで加工が可能である。JISでは厚さ0.2 μm 以下を「はく」と規定している。Table 1にJISより抜粋したアルミニウム箔に用いられる種類

を示す。アルミニウム箔の用途は多岐に渡り、無毒で光やガスのバリアー性、印刷性、接着性等に優れることから、食品や医薬品の包装材に使用される。また電気伝導性やエッチング性に優れることからリチウムイオン電池の集電体や電解コンデンサなどの電子部品にも広く適用されている。同様に印刷版 (PS 版) もアルミニウムの優れたエッチング性を利用した製品である。本報では包装用アルミニウム箔、電解コンデンサ用アルミニウム箔

Table 1 Kind of the aluminum foil.

	Chemical compositions (wt%)								Application
	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Zn	Ti	Al	
1 N99	0.010	0.004						99.99	electrolytic capacitor
1 N90	0.080	0.030						99.90	
1070	0.20	0.25	0.04	0.03	0.03	0.04	0.03	99.70	telecommunications packing, collector
1 N30	Si+Fe 0.7		0.10	0.05	0.05	0.05		99.30	
3003	0.6	0.7	0.05~0.20	1.0~1.5		0.10		bal.	container, collector
8021	0.15	1.2~1.7	0.05					bal.	packing
8079	0.05~0.30	0.7~1.3	0.05			0.10		bal.	

およびPS版用アルミニウム板材の特性について解説する。

2. 包装用アルミニウム箔

アルミニウム箔のガスバリアー性は他の包装材料に比べて極めて高く、厚さ20 μ 以上ではほとんどガスを通さない。しかし、箔厚の低下と共にピンホールの発生は避けられなくなり、ガスバリアー性が低下する。Fig. 1は箔厚7 μ mで存在するピンホール数を100とした場合のピンホール数とガスバリアー性の指標となる透湿度に及ぼす箔厚の影響を示す¹⁾。ピンホール数と透湿度はいずれも箔厚が薄くなると急激に増加することが分かる。アルミニウム箔とフィルムとの貼り合わせや、樹脂コーティングなどで、透湿度を限りなく0に近づけることも可能であるがアルミニウム箔単体では、ピンホール数の少ないことが求められる。ピンホールの発生原因は、アルミニウム片、鋳塊介在物や粉塵等異物の押し込みによるもの、他、最終圧延工程を重合圧延したアルミニウム箔では、重合面のうねりが挙げられる。異物等の押し込みで発生するピンホールは比較的大きな孔であるが、重合面うねり起因で発生するピンホールは、そのサイズは小さいが、発生数は非常に多い。Brzobahatyは、重合圧延時の重合面が自由変形するために形成されるうねりの大きいところが光沢面に存在するオイルピットと連結するためピンホールとなる (Fig. 2) ことを提唱し²⁾、木村は³⁾、これをテストミルの圧延で確認した (Fig. 3)。さらにKerthらは、重合面のうねり発生機構について、圧延面に対し35°の方向で生じるShear bandに沿う不均一変形が原因であることを提唱し⁴⁾、木村が2次元重ね合わせ試験によりこれを確認し、Fig. 4に示すモデルを提案した⁵⁾。重合面うねりに及ぼす圧延条件の影響につい

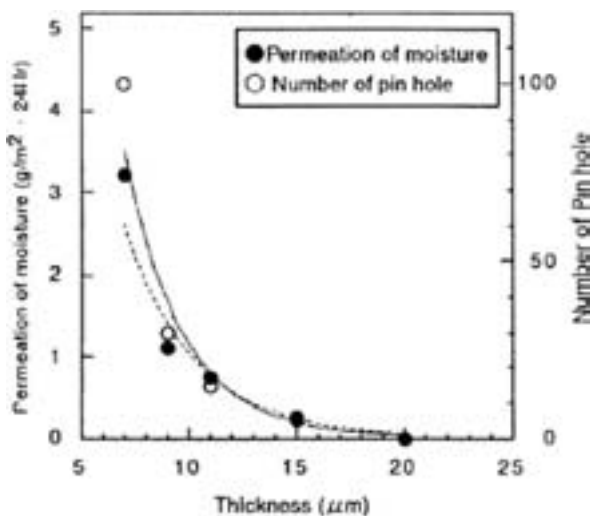


Fig. 1 Influence of thickness on permeation of moisture and number of pinhole¹⁾.

て、多くの研究が行われた。圧下率が大きく、重合面の潤滑性が良い場合に重合面うねりが大きくなること^{6,7)}、ロール径とロール面粗さの影響はほとんどないこと⁶⁾、また前方張力の影響はほとんどなく、後方張力

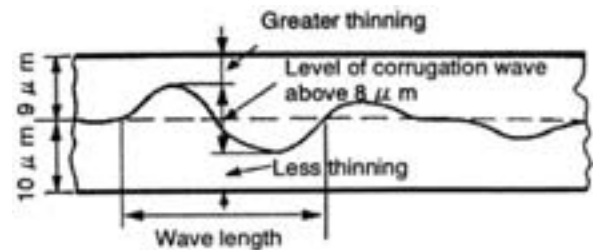


Fig. 2 Diagram of corrugation of pair-rolled foils, 9 and 10 microns thick²⁾.

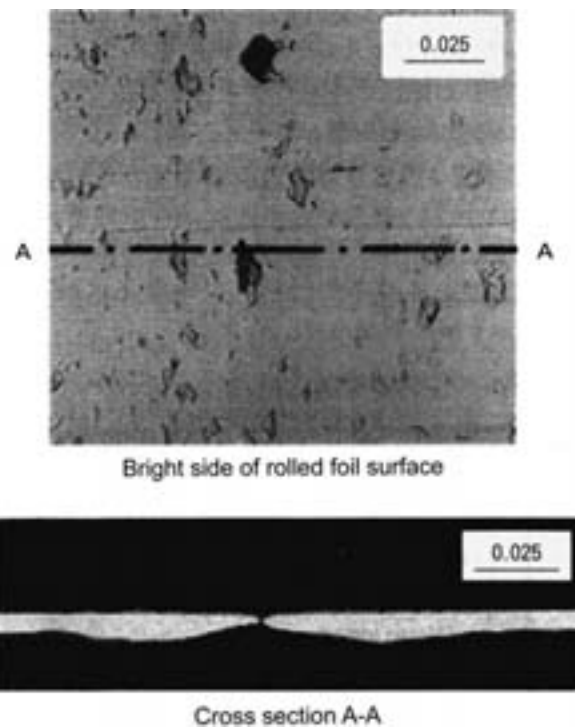


Fig. 3 Image of pinhole observed from surface and cross-section³⁾.

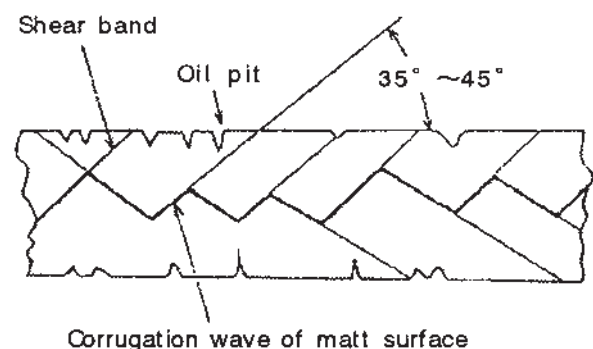


Fig. 4 Mechanism of the generation of matt surface wave⁵⁾.

が大きくなると重合面うねりが大きくなること⁶⁾などが報告されている。重合面うねりと結合することによりピンホールを形成する光沢面のオイルピットの発生に関しては、圧延速度と圧延油の粘度の影響が大きい(Fig. 5, Fig. 6)。高速、高粘度になるにつれてオイルピット占有面積, 発生数, ピット1個当たりの平均面積が増加することが確認されている⁸⁾。またオイルピット深さは圧延速度の影響は受けないものの, 圧延油の粘度の影響を受け, 高粘度ほど深くなることを確認されている⁸⁾。こ

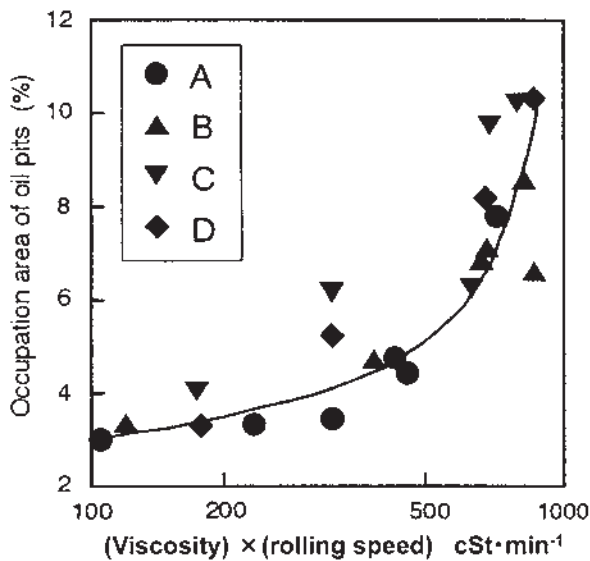


Fig. 5 Relationship between occupation area of oil pits and viscosity, rolling speed⁸⁾.
(kinematic viscosity : A 1.21cSt, B 1.45cSt, C 1.76cSt, D 1.97cSt)

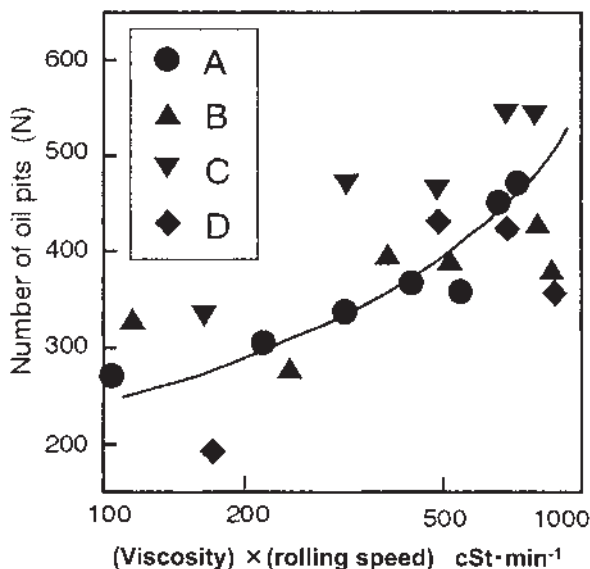


Fig. 6 Relationship between number of pits and viscosity, rolling speed⁸⁾.
(kinematic viscosity : A 1.21cSt, B 1.45cSt, C 1.76cSt, D 1.97cSt)

のように圧延条件でピンホールの形成が変化するが, アルミニウム箔中に存在する金属間化合物も重合面うねりに影響することが確認されている。従来より, 包装用には1N30系の純アルミニウム箔が多く用いられてきた。1N30系アルミニウム重合圧延箔の断面形態をFig. 7に示す⁹⁾。1N30系には Al_3Fe に代表される板状の金属間化合物の他に, 球状の $\alpha\text{-AlFeSi}$ 晶出物(Fig. 8)が存在し, 両者はいずれもマット面うねりに影響を及ぼす。Fig. 9は金属間化合物が存在し, 重合面うねりにより箔厚が増加する側をA, 反対側をBとした場合の金属間化合物と重合面うねりの大きさを示す⁹⁾。重合面うねりは, $\alpha\text{-AlFeSi}$ 晶出物の影響が大きいことが分かる。これは球状 $\alpha\text{-AlFeSi}$ 晶出物の平均直径が $6\mu\text{m}$ 程度と比較的大きく, 箔厚と同程度であることに起因する。板状で存在する Al_3Fe は厚さ方向が箔厚方向に対してほぼ平行に配置するため, 球状形態よりも影響度が小さい。すなわち球状の $\alpha\text{-AlFeSi}$ 晶出物が少ない材料の採用により, 重合面うねりを小さくし, ピンホール数を少なくすることが出来る。 $\alpha\text{-AlFeSi}$ 晶出物を減少させるには, Si添加量の減少によりFe/Si比を低下させることで, casting中に形成する $\alpha\text{-AlFeSi}$ 晶出物の減少が可能である。

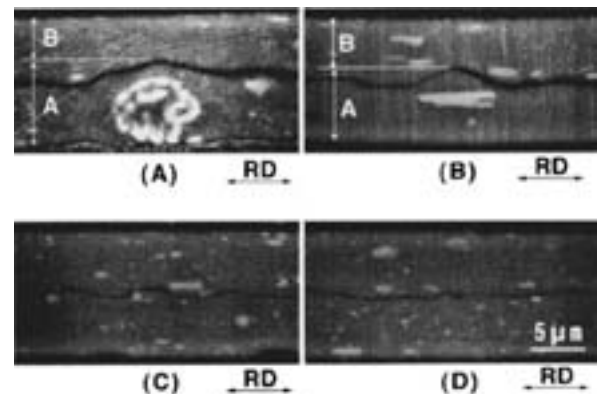


Fig. 7 SEM micrographs of the cross section for pair-rolled foils⁹⁾.
(A) Spherical compound in 1N30,
(B) Plate like compounds in 1N30,
(C),(D) Plate like compounds in 8021.

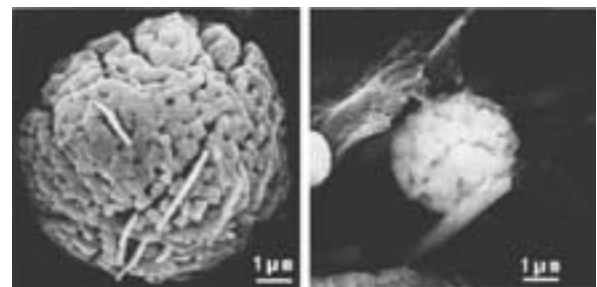


Fig. 8 SEM observation of typical $\alpha\text{-AlFeSi}$ compounds extracted from commercial 1N30 ingot sheet by phenol method⁹⁾.

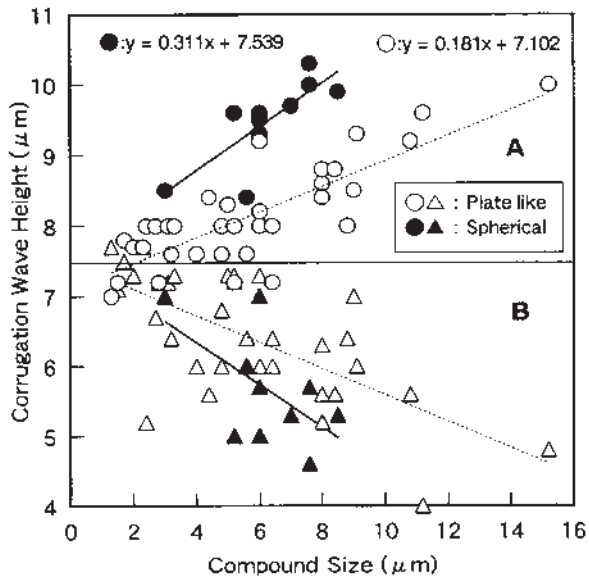


Fig. 9 Relationship between the size of intermetallic compounds and the corrugation wave height of commercial 1N30 foil⁹⁾.
(○△ : plate like compounds, ●▲ : spherical compounds, ○● : corrugation wave of A side, △▲ : corrugation wave of B side)

さらにスラブの均質化処理を約 600°C に高温化することでも、 α -AlFeSi 晶出物の分解、低減が可能である。この確認には熱フェノール法を用いて、不溶解残渣の SEM 観察および X 線回折 ($d=0.214\text{nm}$ におけるピーク強度) で評価を行っており、 α -AlFeSi のピーク強度が小さい材料を用いた重合圧延箔で、ピンホールの低下が確認されている⁹⁾。さらに球状の α -AlFeSi 晶出物は、鋳造時の凝固中に発生する水素ガス泡中に形成することから¹⁰⁾、ガス泡径の小さくなる条件、即ち凝固速度を速くすることで小径化が可能となる。従来、薄箔包装用には、上述したように、1N30 系の純アルミニウムが用いられてきたが、今日では高強度、高延性の箔として、Al-Fe 合金箔も多く使用されている。1.2~1.7% の Fe を含む 8021 合金箔および 0.7~1.3% の Fe を含む 8079 合金箔がその代表である。これらの合金系に内在する金属間化合物は、純アルミ系箔に比べて微細であり、重合面うねりを大きくしないため (Fig. 10)、うねりに起因するピンホール数も少ない (Fig. 11)¹¹⁾。

3. 電解コンデンサ用アルミニウム箔

アルミニウム電解コンデンサは高容量・小型・安価である特徴を活かし、その用途は、スイッチング電源やインバーター回路など多岐に渡り、電気製品にとってなくてはならない電子部品である。アルミ電解コンデンサは陽極箔と陰極箔および電解液で構成され、各電極箔の静電容量は、 $C = \epsilon_r \epsilon_0 S/d$ (C : 静電容量, ϵ_0 : 真空の誘電率, ϵ_r : 誘電体の比誘電率, S : 表面積, d : 誘電率

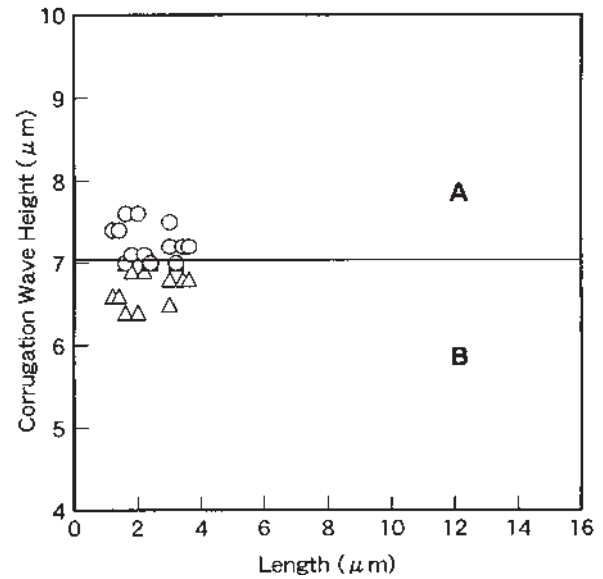


Fig. 10 Relationship between the size of intermetallic compounds and the corrugation wave height of commercial 8021 foil⁹⁾.
(○△ : plate like compounds, ○ : corrugation wave of A side, △ : corrugation wave of B side)

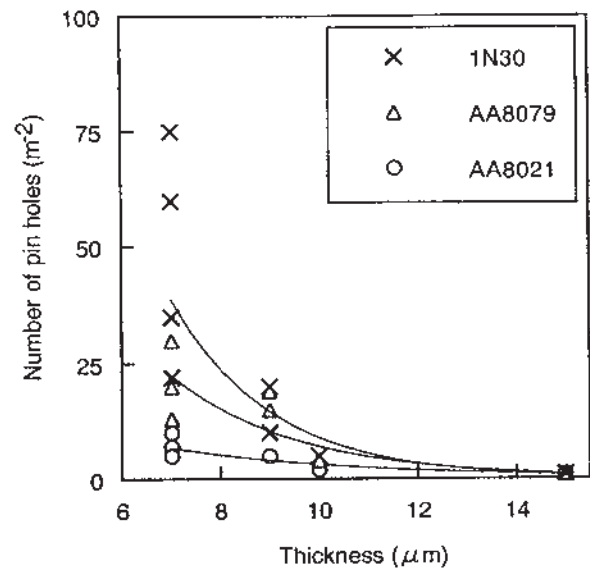


Fig. 11 Relationship between number of pinhole and thickness in 1N30, 8079 and 8021 foil¹¹⁾.

の厚み) で示される。陽極箔は耐電圧に応じた厚みの誘電体皮膜、すなわち陽極酸化皮膜 (化成皮膜) で表面が覆われ、陽極酸化電圧により高圧用 (200V 以上) と低圧用 (150V 以下) に分類される。高圧用は高い陽極酸化電圧で形成した厚い誘電体皮膜でもピットが埋まらないように、比較的大きな径のトンネルピットを直流エッチングで形成する。低圧用は微細な海綿状ピットを交流エッチングで形成し、表面積の拡大効果が得られる。陽極には三層電解法あるいは偏析電解法による純度

99.98% 以上の高純度アルミニウムが用いられる。近年では原料価格の面から、偏析純化法を用いた高純度アルミニウムスラブを用いることが多い。静電容量の向上は、エッチング技術と材料設計の組み合わせによる表面積 (S) の拡大と陽極酸化処理技術による誘電率 (ϵ) の向上および耐電圧あたりの皮膜厚さ (d) の減少で達成される。ここでは、高圧用箔と低圧用箔に分けて、エッチング特性に及ぼす材料特性について解説する。

3.1 高圧電解コンデンサ陽極用アルミニウム箔

3.1.1 結晶面方位

高圧電解コンデンサ陽極用アルミニウム箔は、直流エッチングを行い、(100) 面に垂直なトンネルピットを発生させることで表面積を拡大し、静電容量を高めている。このため、最終焼鈍で立方体方位を強く発達させることが求められる。その最も効果的な方法として、熱間圧延板を冷間加工し、部分焼きなまし (240~260°C)、圧延率 15~20% の軽压下圧延というプロセスを追加した上で最終熱処理を行うことで、立方体方位粒の集積度が飛躍的に向上する。この方法で立方体方位が発達する理由については、(100) 面結晶粒が歪み誘起粒界移動によって優先成長するものと考えられており、多数の研究がなされているので参照されたい^{12, 13, 14, 15})。また部分焼きなまし後の試料を軽压下圧延する際、それまでの圧延方向に対して、角度をつけて軽压下圧延を行うと、Fig. 12 に示すように 45° 圧延材にて最終焼鈍後の立方体方位粒が著しく低下することが確認されている¹⁶)。角度をつけた軽压下圧延により、最終焼鈍前の組織に立方体方位粒が消失してしまうことが、その原因と考えられる (Fig. 13)。同様に 90° 圧延材においても立方体方位面積率が低下するが、これは圧延集合組織が S 方位から Brass 方位へ変化していることが影響していると考えられ、高い立方体方位面積を得るには、部分焼きなまし後の立方体方位粒の存在と周囲の集合組織との方位関係が重要であることを示している。酸溶液中におけるピッチングポテンシャルにも結晶方位面による違いが確認されている。1.5mol/l 塩酸中におけるピッチングポテンシャルは、(100) 面が最も貴で (110) 面、(111) 面の順に卑となることが確認されている¹⁷)。また結晶面によりピット発生密度に差があり、(100) 面ではピット発生場所が局部的であるのに対して、(111) 面ではほぼ全面であり、(110) 面ではその中間となる (Fig. 14)。一方、塩酸-硫酸系電解液で直流エッチングした高圧用箔の表面ピット形態は、Fig. 15 に示すように、結晶粒によりピット密度が粗な領域と密な領域が存在する。EBSP 解析より立方体方位からの回転角度とピット密度の関係を求めると、Fig. 16 に示すように、立方体方位からの回転角度が大きくなるほど、ピット密度は直線的に低下する傾向が認められている¹⁸)。

3.1.2 結晶性酸化物

直流エッチングにおけるピット開始点制御としてアル

ミニウム箔表面の結晶性酸化物についても検討されている¹⁹)。Fig. 17 は Mg を 41ppm 添加したアルミニウム箔の酸化皮膜 TEM 像である。スピネル $MgAl_2O_4$ が圧延方向に沿って分布し、エッチング初期に $MgAl_2O_4$ 周囲より溶解し、半球状ピットを経て、半立方体ピットへ成長する様子が観察されている (Fig. 18)。Mg を添加しないアルミニウム箔では $\gamma-Al_2O_3$ が多数存在し、スピネル $MgAl_2O_4$ と同様に、この周囲から半立方体ピットが形成される (Fig. 19)。アルミニウム箔表面には圧延で形成された突起部が存在し、スピネル $MgAl_2O_4$ 、 $\gamma-Al_2O_3$ いずれも突起部近傍に存在する。

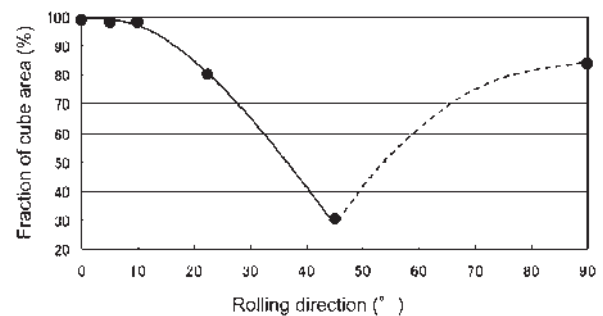


Fig. 12 Relation between rolling direction and the fraction of cube area¹⁶).

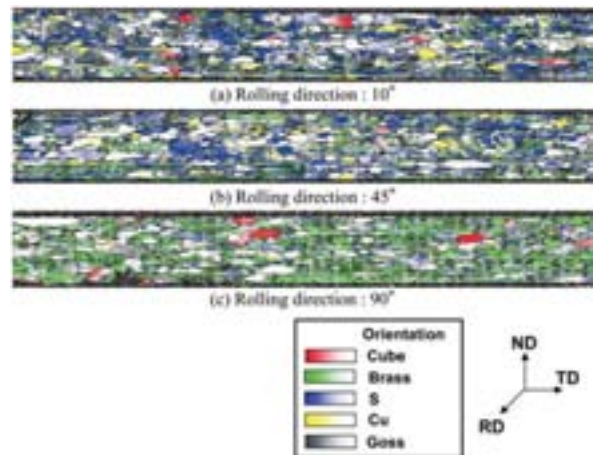


Fig. 13 Crystal orientation distribution maps of Aluminum foil rolled at various angles¹⁶).

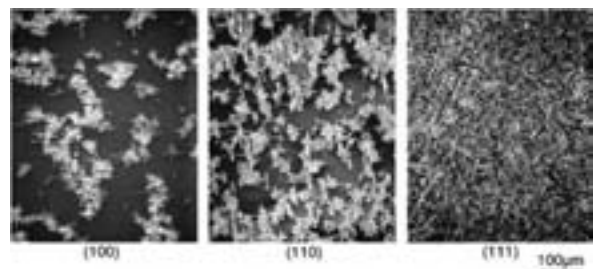


Fig. 14 Scanning electron micrographs of resin replicas of pits formed during anodic polarization measurement in the 1.5mol/l HCl¹⁷).

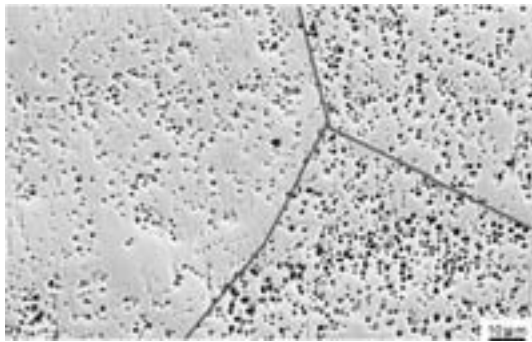


Fig. 15 SEM photograph of surface of etched aluminum foil in HCl-H₂SO₄ solution¹⁸⁾.

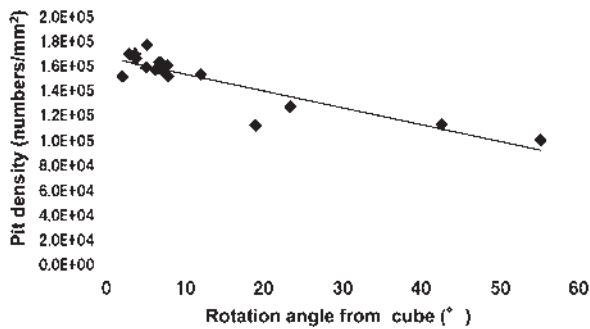


Fig. 16 Relation between angle of rotation from cube and pit density¹⁸⁾.

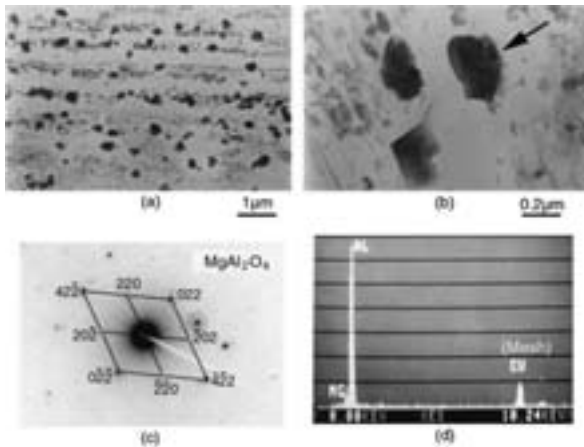


Fig. 17 TEM micrographs of oxide film on aluminum foil¹⁹⁾.
(a)(b) Surface oxide film, (c) Selected area diffraction pattern. (d) EDX spectra.

この原因は突起部近傍の無定形酸化皮膜にクラックが発生し、酸素分子とアルミニウムが直接反応することに起因する。よって、結晶性酸化物を核としたピットが形成されることは、結晶性酸化物部に多くのクラックが存在していることを示唆している。このことから、アルミニウム箔の表面形態は酸化皮膜特性およびピット形成に影響し、組織に並び重要な制御因子であることを示している。

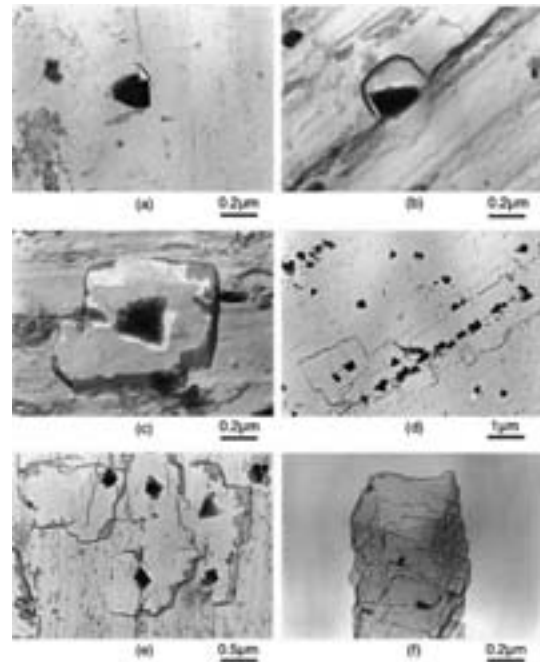


Fig. 18 TEM micrographs of nucleation of pits around MgAl₂O₄ crystals during early stage of DC etching¹⁹⁾.
(a) 5 ms, (b) 10ms, (c) 50ms, (d) 500ms, (e) 1 s, (f) 15s

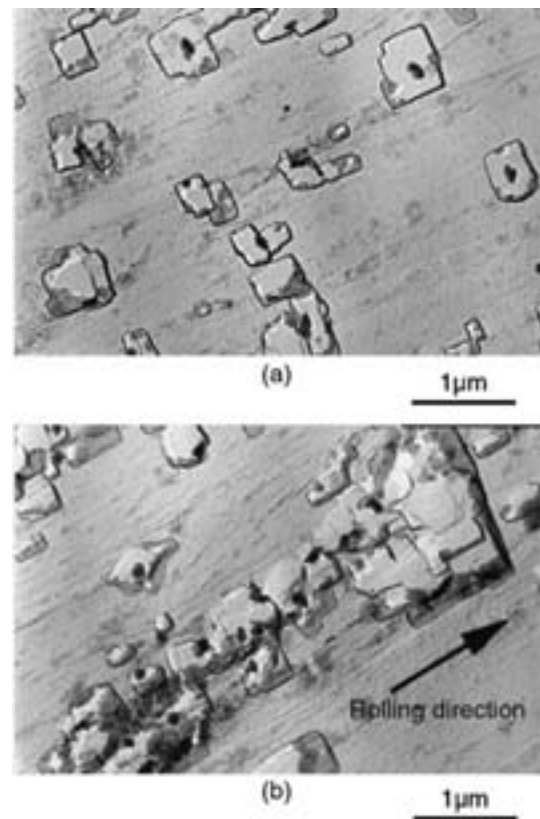


Fig. 19 TEM micrographs of pit distribution after 50ms etching¹⁹⁾.
(a) Pits around γ -Al₂O₃ crystals.
(b) Cluster of pits along the rolling direction.

3.1.3 表面濃化微量元素

直流エッチング性を高める元素として、Pb²⁰⁾、Bi²¹⁾、In²²⁾およびSn²³⁾等が知られている。これらの元素はいずれも融点が低く、アルミニウムに対する固溶限が小さいという特徴を有する²⁴⁾。また焼鈍温度によって表面濃化状態が変化することが知られている。Fig. 20はPb、Bi、InおよびSn添加箔の最終焼鈍温度と静電容量の関係を示したものである²⁵⁾。Bi添加箔は、焼鈍温度に対する静電容量の変化は、比較材である blanks とほぼ同等の挙動を示し、明確な添加効果は認められていないが、その他の元素については、焼鈍温度の上昇とともに静電容量が増加する傾向が確認されている。焼鈍温度の上昇とともに立方体方位占有率も増加するが、450℃以上ではほぼ同等となる。一方、各元素が最も濃化する焼鈍温度はPb：580℃ (Pb 0.8ppm)²⁰⁾、Bi：550℃ (Bi 2ppm)²¹⁾、In：300℃ (In 0.01%、In 5ppm)²²⁾、Sn：350℃ (Sn 0.01%)²³⁾であることが知られている。この

ことは静電容量が焼鈍後の立方体方位占有率のみならず、添加元素の表面濃化の影響を強く受けていることを示唆している。各元素が最も表面濃化すると考えられる温度で焼鈍した試料についてSIMS分析によるデプスプロファイルを示す (Fig. 21) に示す (スパッタ速度 0.4Å/sec)。各元素添加箔の焼鈍温度は、1.2ppmPb添加箔：550℃、2.0ppmBi添加箔：550℃、1.1ppmIn添加箔：300℃、3ppmSn添加箔：350℃である。いずれの添加箔も試料表面への明確な濃化が確認され、その領域は表層から約0.05μm程度であった。またこれら添加元素のSIMS分析におけるサイクル数による深さ方向のイオン像変化より、濃化した元素は、粒界あるいは特定方向の結晶粒への濃縮は認められず、アルミ箔表面に存在する圧延条痕に沿って濃縮している様子が伺えることから、上述した結晶性酸化皮膜と同様に表面形態が表面濃縮元素の分布状態にも影響し、それによりピット形成挙動も変化することを示している。Alよりも電位的に貴なPbが表面

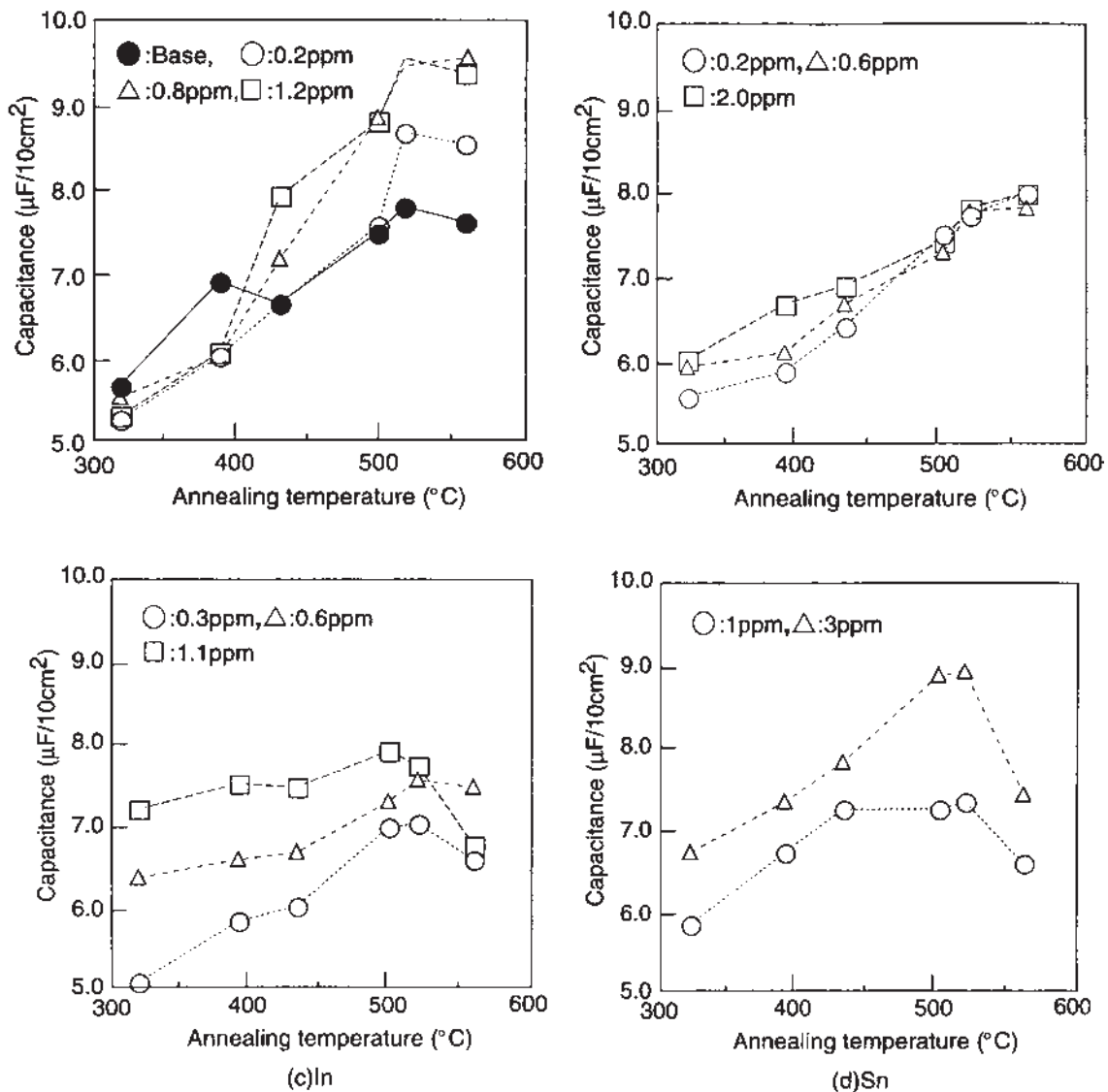


Fig. 20 Effect of annealing temperature on capacitance after DC etching²⁵⁾.

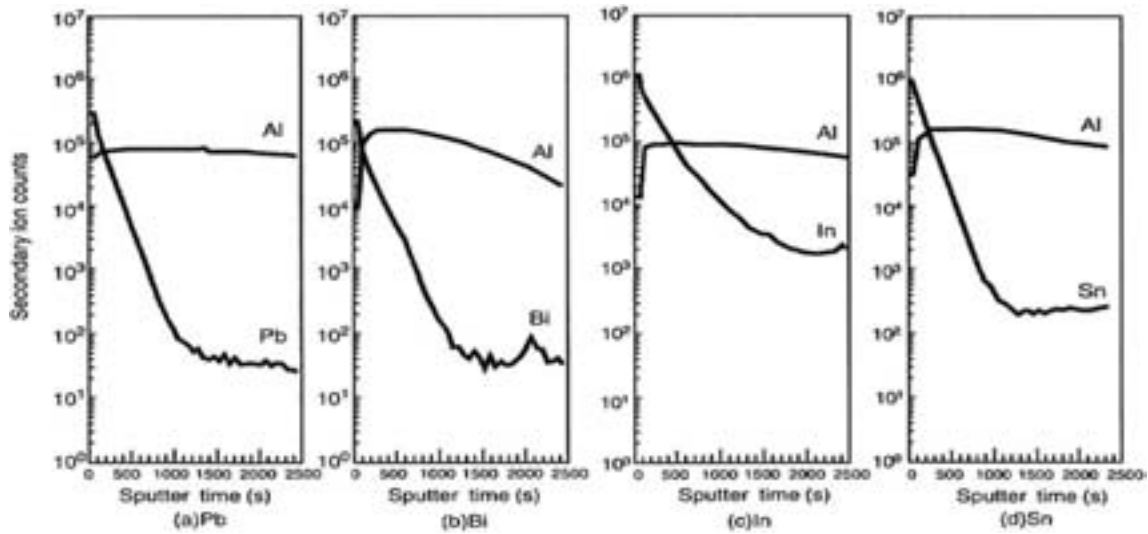


Fig. 21 SIMS depth profile of (a) Pb, (b) Bi, (c) In and (d) Sn²⁵⁾.

に濃縮することで、直流エッチング時の活性点が増加し、トンネルピットが増加するため、静電容量が増加することが述べられている²⁶⁾。Pbが表面近傍に大量に濃化した箔では、活性点が多いためエッチング初期には表面の全面溶解に電流が消費されてしまうことから容量が低く、Pbを含まない箔では活性点が少ないためトンネルピットが少ないため静電容量が低い。両者の間の程よい活性点をもたらすPbが存在することを示している。Pb量が過剰で静電容量が低い場合、定電流電解エッチング時の初期電位が、孔食電位 (E_{pit}) に達しないため、孔食の一種であるトンネルピットが形成しない (Fig. 22)。定電流電解エッチング時の電位は、その後貴に変化し、孔食電位に達した後、トンネルピットが形成し始めるが、孔食電位以下で推移した時間は、表面積拡大に寄与しない表面溶解に消費されているため、所定エッチング時間内で効率的に表面積拡大が行われず、静電容量が低下する²⁷⁾。所定エッチング時間内で効率的に表面積を拡大できる状態は、定電流電解エッチングの初期から、ほぼ孔食電位よりやや貴な電位で推移する状態であり、電解エッチングの前処理条件や電解エッチングの電流密度に応じた最適な表面濃縮Pb量を制御することで達成される。

3.2 低圧電解コンデンサ陽極用アルミニウム箔

比較的低い化成電圧で使用される低圧電解コンデンサ陽極用アルミニウム箔には、交流電解エッチングで0.5 μm 前後の均一で微細なエッチピットを形成させ、表面積を拡大する。エッチピット開始点の密度と、ピットの伝播を制御し、エッチング層に欠落部を生じさせないようにすることが、高い静電容量を得る上で重要である。ピット開始点と伝播を制御するためには、エッチング条件は元より、アルミニウム箔の組織も大きく影響する。FeはAlとの金属間化合物が化学溶解性を著しく大きくするため²⁸⁾、Fe添加量の適正化とともに、均質化温

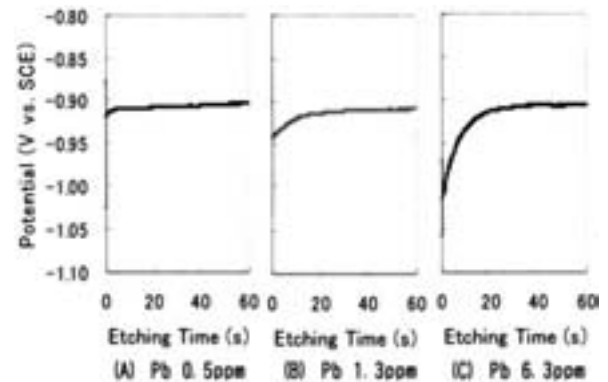


Fig. 22 Change in electrode potential during galvanostatic DC etching²⁷⁾.

度や中間焼鈍温度を適切な条件とし、金属間化合物を制御することが重要である。Siが析出した場所では、酸化皮膜が発達しにくいことから、交流エッチングのカソード半サイクルで形成されるエッチフィルムを他の場所より薄くする。次のアノード半サイクルでは、エッチ皮膜が薄い場所からエッチングが進行するため、析出Siが多い250°C焼鈍箔では、エッチピットが均一に形成され、静電容量も最高値を示す (Fig. 23)。Tiは添加量の増加と共に、Fig. 24に示すように箔厚方向へのピット伝播性を低下させ、静電容量を低下させる²⁹⁾。1 ppm Ti添加材と6 ppm Ti添加材を用いて電気化学的な検討も行われている³⁰⁾。サイクリックボルタンメトリーによる分極測定でTi添加量の影響を検討した結果、水素発生開始電位 (E_H) が、Tiの増加とともにアノード側へシフトすることが確認された。またアノード時のピーク電流はサイクル数の増加に伴い、減少する傾向が確認された (Fig. 25)。このことから、カソード半サイクルにおける水素発生反応が大きくなり、エッチ皮膜の生成が促進されることが分かる。この皮膜により、新たなピッ

ト発生点が抑制されるためピットの伝播性が低下すると考えられる (Fig. 26)。1 サイクルの交流波形でエッチングした後、ヨウ素-メタノール法ならびにジェット・

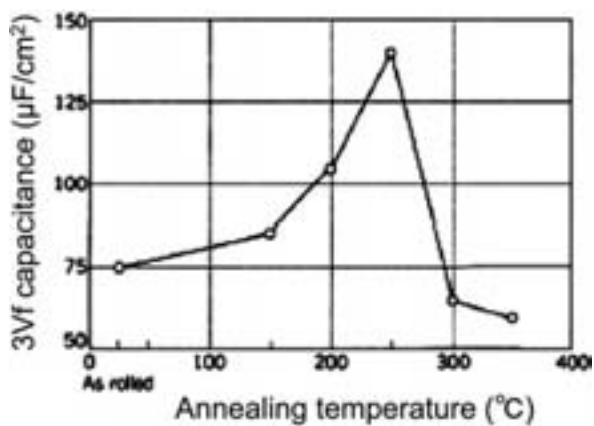


Fig. 23 Effect of annealing temperature of aluminum cathode foil on capacitance after AC-etching²⁸⁾.

エレクトロ研磨により TEM 観察試料を作製し、ピット開始点と材料の関係を検討することも試みられた³⁰⁾。

Fig. 27 はこの方法で観察されたピットの発生位置である。硬質アルミニウム箔のピット開始点は、亜粒界であることが明確である。軟質箔では In の添加によりピット開始点が分散し、箔表面および面内で均一なピットが分散することで、静電容量が向上することが確認されている³¹⁾。これは焼鈍時に In が表面に濃縮して箔の孔食電位が卑に移行するためであるが、60°C の 5% 苛性ソーダ水溶液中に浸漬し、約 0.5μm 除去した箔では、ほとんど差はなくなったことから (Fig. 28), In 添加によるエッチング性の変化は、箔表面に限定され、内部には及ばないこと示している。

4. 印刷版 (PS 版) 用アルミニウム板材

近年の多くの印刷に PS 版が用いられている。PS 版

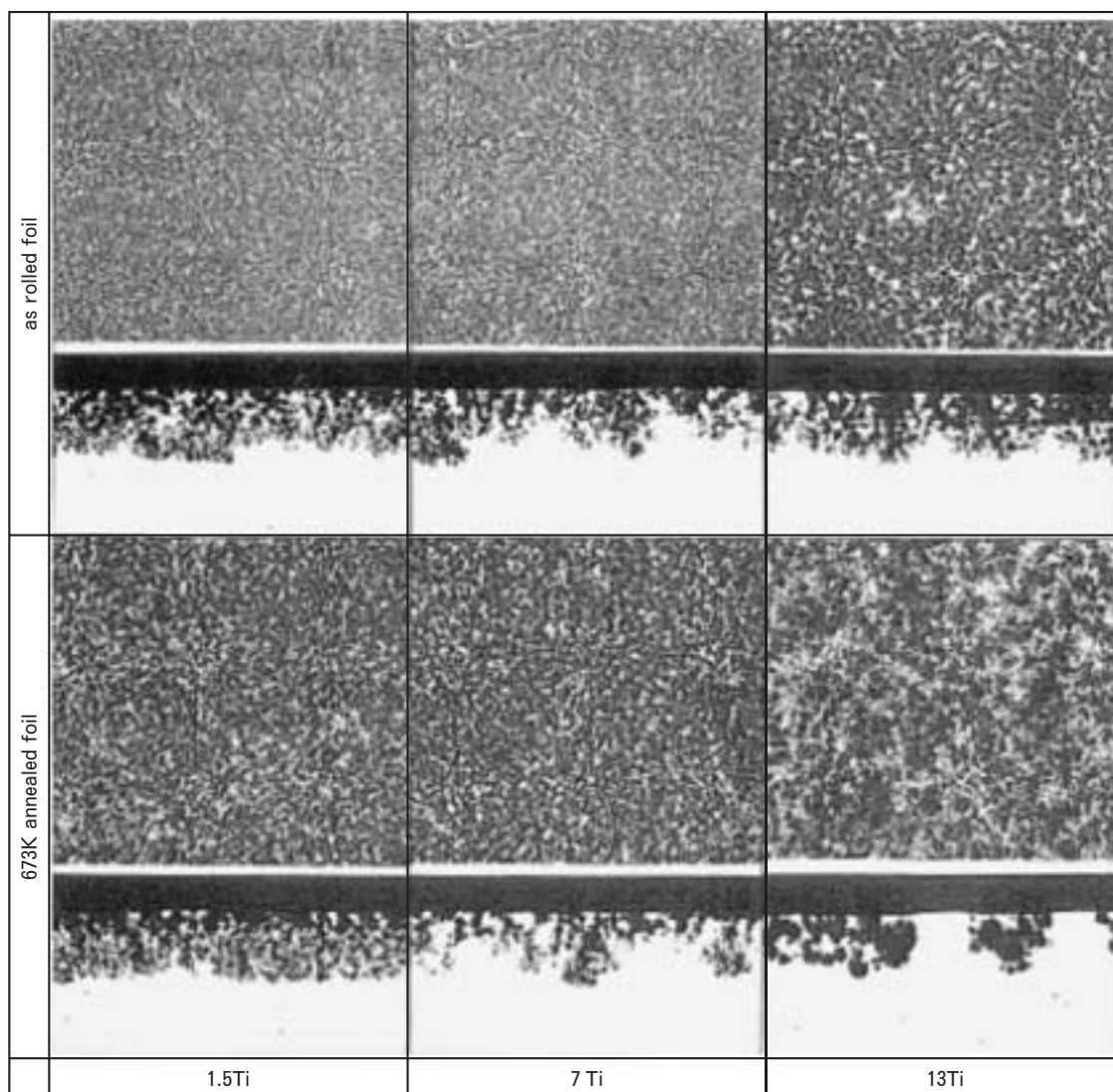


Fig. 24 Surface and cross section of 450s AC etched foil in hydrochloric acid at 305K²⁹⁾.

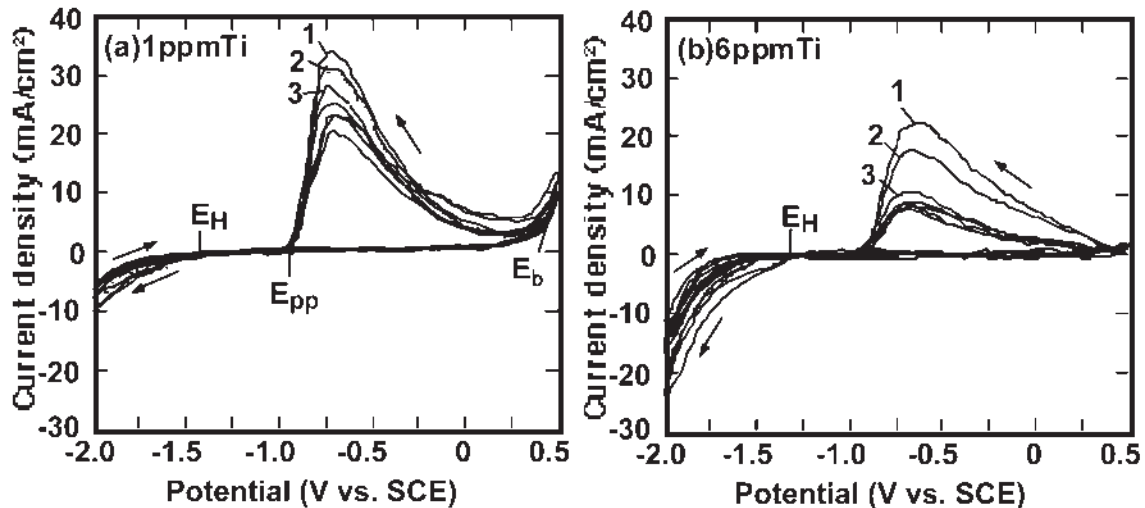


Fig. 25 Cyclic voltammograms for 1 ppm Ti (a) and 6 ppm Ti (b) in 1 mol/l HCl solution at 30°C. Scan rate : 9.9 V/s³⁰⁾.

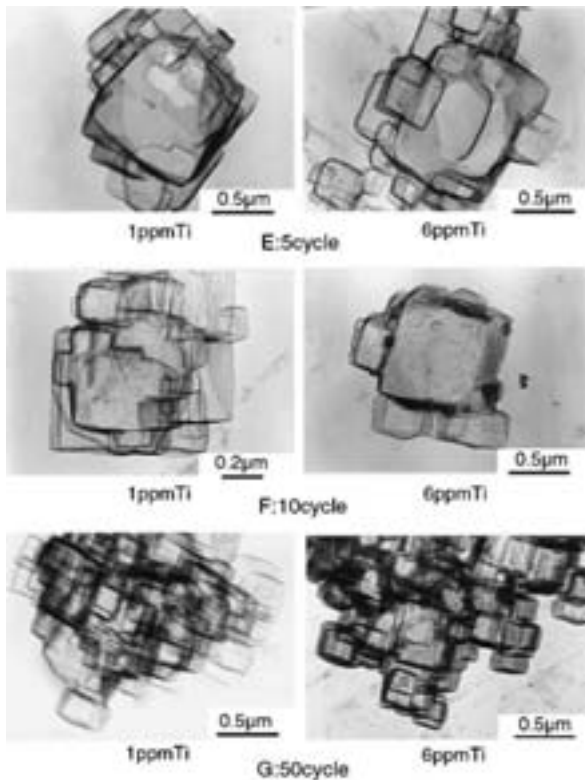


Fig. 26 TEM micrographs of pits produced by 5~50 AC cycle etching³⁰⁾.

とは Pre-sensitized Plate の略であり、印刷に直接機能する感光膜 (厚さ 1~3 μm) と支持体としてのアルミニウム板 (厚さ 0.2~0.3 mm の硬質材) から成る。

平板印刷方式と呼ばれる PS 版を用いた印刷方式は、印刷インキ以外に湿し水が使用され、画像部 (感光層) と非画像部 (アルミニウム) を区別する方式が用いられる (Fig. 29)。一般に PS 版は、前処理 (degrease) → デスマット (desmut) → 研磨 (graining) → 後処理 (des-

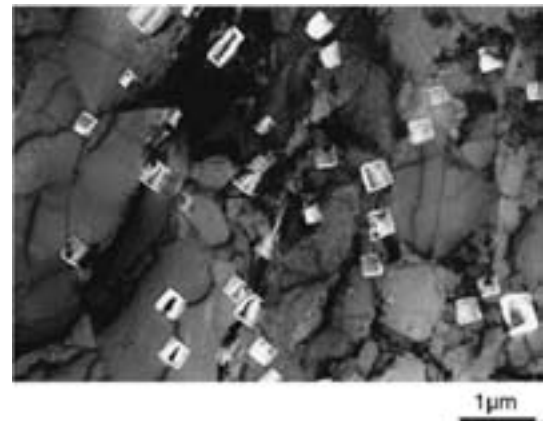


Fig. 27 TEM micrographs of pits formed at subgrain boundary³⁰⁾.

mut) → 陽極酸化処理 (anodizing) → 親水処理 → 感光膜塗布、から成る工程にて加工される³²⁾。保水性向上や耐刷性 (length of run), 調子再現性 (tone reproduction) などの印刷適正を向上させるため、支持体であるアルミニウムに行われる処理が粗面化処理である。粗面化処理として、ブラシ研磨、電解グレイニングおよびブラシ研磨後に電解グレイニングがある³³⁾。

4.1 電解グレイニング

電解グレイニングは塩酸浴および硝酸浴中で、交流電流を通じることで処理される。交流電流による電解により、アルミニウムの溶解反応と酸化皮膜形成反応の相反する反応が生じ、塩酸、硝酸などの一塩基酸の場合は、溶解反応が優るため、エッチング反応が起こり、表面に凸凹形態 (砂目) が形成する。Huang³⁴⁾ は、1050, 1100, 3003 のアルミニウムを用い、表面のピット形態について調査を行った。3003 を用いた場合、ピットが局在化して不均一な砂目になることを示し (Fig. 30), 添加元素と非金属介在物の性質によるものとしている。

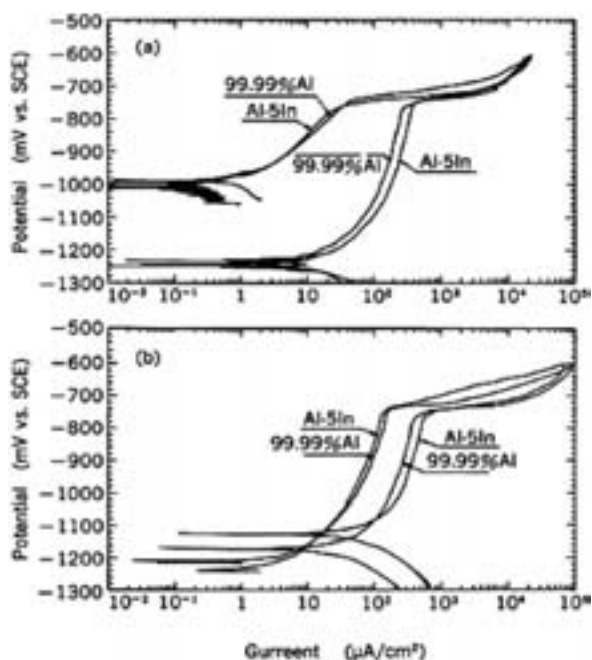


Fig. 28 Anodic polarization characteristics in deaerated 2.67% AlCl_3 solution at 303K. (a) as annealed foils, (b) after 30s immersion in 5% NaOH solution at 333K³¹⁾.

また Dowell³⁵⁾は、99.6%のアルミニウムを用いて、塩酸浴中における金属間化合物の影響を詳細に調査した。光学顕微鏡を用いたビデオ観察より、金属間化合物の多くがピットの核となり、さらに Mg, Si, Mn はピット形態に影響せず、Cu, Zn はピット形状を浅くし、平坦部（プラトー部）が増えることを報告している。Marshall³⁶⁾は、1050 合金を用いて硝酸浴中における金属組織の影響を調査した。ピットの形成サイトは転位組織であり、粗大な金属間化合物の影響は小さいとした。また 99.999% アルミニウムを用いて、固溶元素の影響も調べている。99.999% アルミニウムに形成するピットは不規則であるが、0.03% の Fe を添加することでピットの規則性を改善する。0.42% Si はピットの発生数を抑制し、すでにあるピットから次のピットが形成しやすくなるため、不均一で粗大なピットになることを報告している。林³⁷⁾は無接触通電方式によるコイル処理装置³⁸⁾を用いて、硝酸浴および塩酸浴中 100A/dm³以上の電流密度で短時間交流エッチングを行った後の表面ピット形態を調査した。硝酸浴では開口径 2~6 μm 程度、塩酸浴中では 5~15 μm のクレーターが発生する粗面化が得られることを示した (Fig. 31)。また硝酸浴中における表面あさは通電量に比例し、Fe 不純物含有量が多い 1100 は 1050 よりも表面あさが大きくなることを確認した (Fig. 32)。Si 含有量および中間焼鈍 (IA) 条件が表面あさに及ぼす影響について、表面の白色度 (L 値) を用いて調査を行った³⁹⁾。Si が 0.06%, 0.11% では IA 温度が高いほど L 値が大きくなり (ピット密度

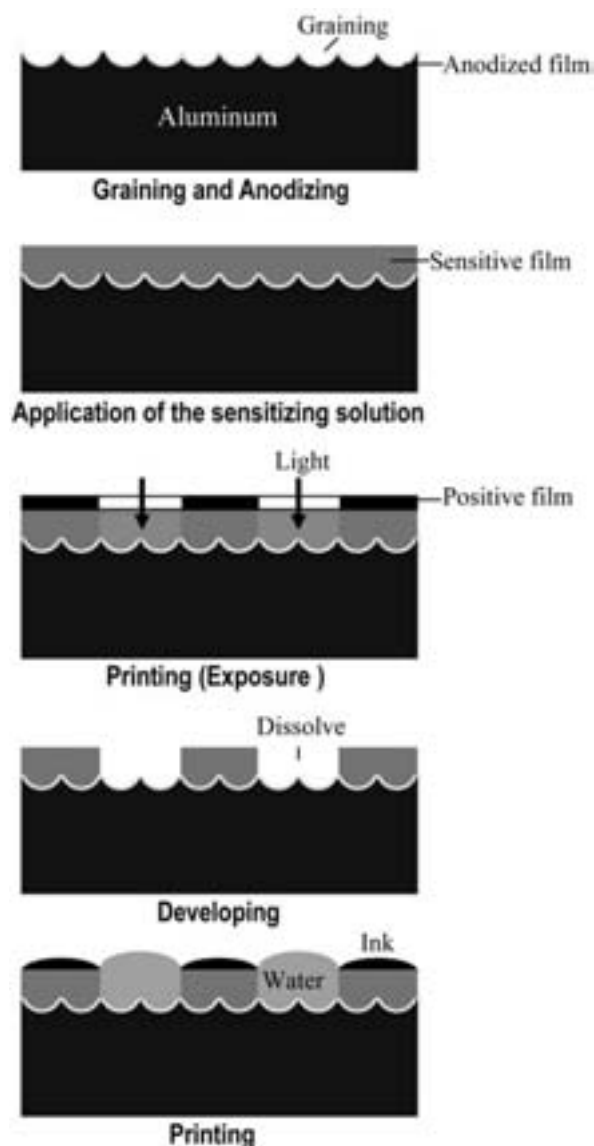


Fig. 29 Structure of the imaging in the positive type PS plate.

が多くなり), Si が 0.15% の場合には IA 温度にほとんど影響されていない (Table 2)。Si 量および IA 温度により、アノード電解低電位時に形成される不動態皮膜の組成および構造が変化し、高電位時の絶縁皮膜を破壊してピットが生じる挙動に影響していると推測している。また Si は Fe との共存により、単体 Si, α -AlFeSi, Al_3Fe などの析出相を形成し、このうち単体 Si は、電解グレイニング後に行われる陽極酸化皮膜中に欠陥を形成する。陽極酸化皮膜中の欠陥は非画像部となる領域の親水性を低下させ、画像部からのインキが混入するため、印刷物に汚れとなって現れると考えられている。単体 Si の析出ピークは 290°C であり、焼き鈍し後の冷却時に析出することが示されている⁴⁰⁾。PS 版用アルミニウム合金の製造時は、単体 Si の析出を抑制する成分設計および製造条件が必要となる。

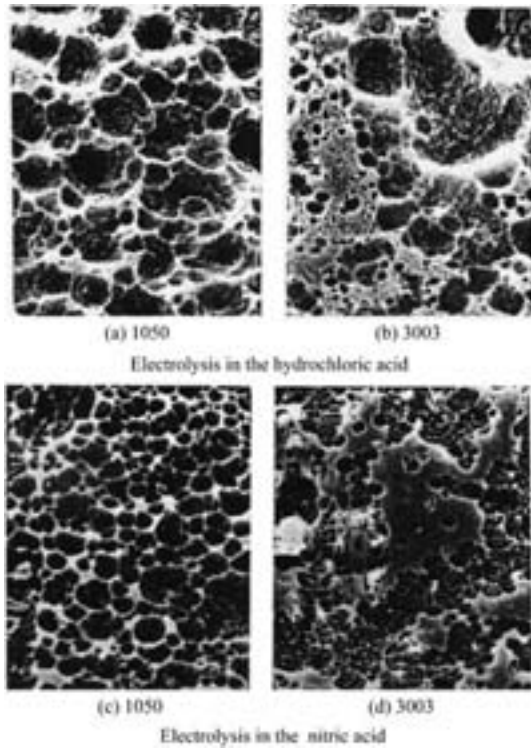


Fig. 30 The pit shape of 1005, 3003 after graining³⁴⁾.

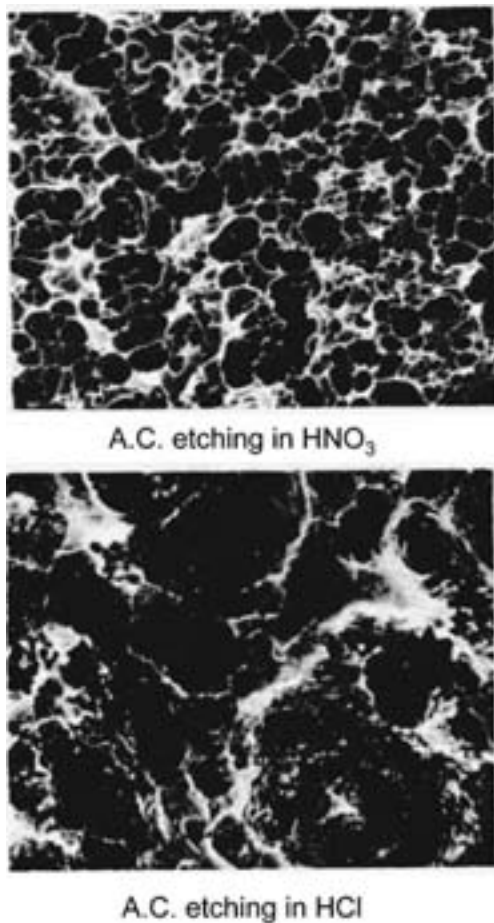


Fig. 31 SEM micrographs of 1050 aluminum after A.C. etching³⁷⁾.

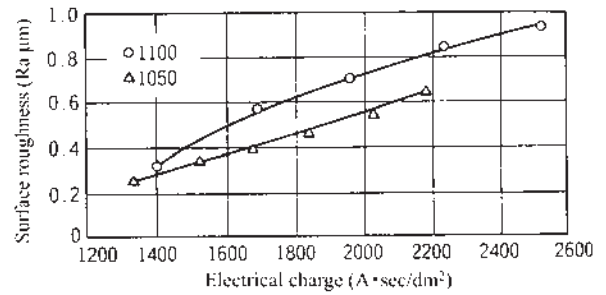


Fig. 32 The relation of the electrical charge in alternative current etching, and surface roughness³⁷⁾.

Table 2 Influence of the amount of Si and temperature of intermediate annealing on the degree of whiteness (L value) after alternating current electrolysis³⁹⁾.

Si (%)	tA(°C)	L value							
		50	52	54	56	58	60	62	64
0.06	330	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████
	380	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████
	420	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████
	460	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████
0.11	330	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████
	380	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████
	420	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████
	460	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████
0.15	330	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████
	380	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████
	420	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████
	460	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████	████████

Condition of electrolytic etching : 20ml/l HNO₃
AC 6A/dm², 30sec

電解グレイニングによる粗面化において、所望の表面形状を得るためには、電解液組成、温度および濃度、電流密度、周波数、波形などの電解条件の制御が必要である⁴¹⁾。一方、支持体としてのアルミニウムも合金元素、金属間化合物の種類、密度、結晶粒界、結晶方位など多くの因子が電解グレイニング性に影響する。

4.2 PS 版の機械的特性

PS 版に用いられるアルミニウム合金には、1050 などの純アルミ系、3003 などの合金系があり、1050 は電解グレイニング用がほとんどで、3003 はブラシ研磨用に使われている。3000 系合金の特徴は Mn 等を含有するため、1050 に対して強度が高く、その結果折曲強度も高くなっている。そのため 3003 合金を用いた PS 版は折れや凹みに対する耐性が強く、取扱性において優れている。また PS 版を用いた印刷では現像処理後の工程で、対刷性向上を目的としたバーニング処理 (260~300

℃で数分間の熱処理)されることがある。1050は3000系合金に比べてバーニング処理における耐軟化性が劣るとされていたが、1050の耐軟化性の改善は中間焼鈍工程で改善されている。Fig. 33は99.5%アルミニウムを用いてPS版のバーニング工程に近い条件(230~270℃, 10分)でのバッチ式中間焼鈍温度と軟化挙動の関係である⁴²⁾。高温で中間焼鈍するほど耐軟化特性が向上していることが分かる。Fig. 34は99.4%アルミニウムを用いて、連続焼鈍(CAL-IA)とバッチ式焼鈍(BATCH-IA)で中間焼鈍を行った場合の軟化挙動である⁴³⁾。連続焼鈍の方がバッチ式より約40℃高い軟化完了温度を示すことから、耐軟化性が高いと言える。これらの挙動はFeの固溶量で整理される。Fig. 35は計算により求められたFe固溶量と220℃-5h焼鈍後の耐力との関係を示したものである⁴⁴⁾。Fe固溶量が多いほど耐力値が高くなることが分かる。このことから冷間加工後の中間熱処理では、連続焼鈍の方がバッチ式焼鈍よりもFe固溶量が高いため、耐軟化性が高いと考えられる。すなわ

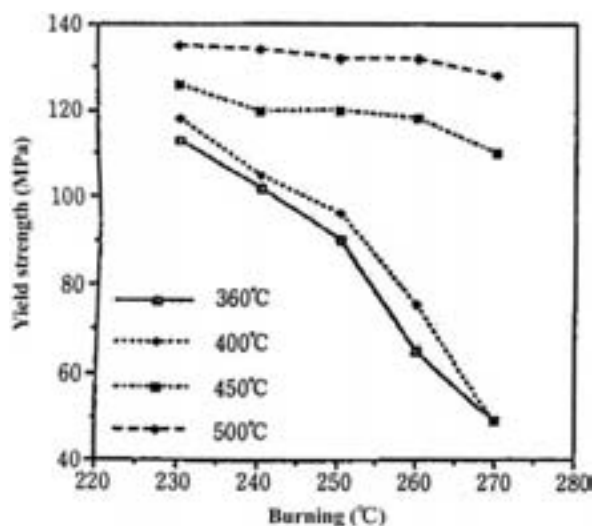


Fig. 33 Influence of the temperature of intermediate annealing on a softening curve⁴²⁾. (99.5% Al, intermediate annealing +88% reduction)

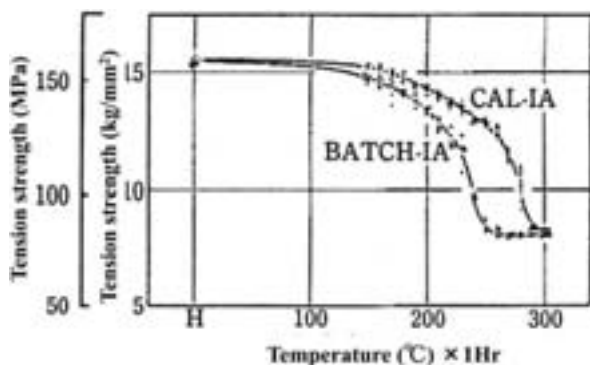


Fig. 34 softening curve of BAT-IA and CAL-IA⁴³⁾.

ちPS版のバーニング特性を向上させるためには、Fe固溶量のある値以上に高くすることが必要である。しかしながら上述したように電解グレイニング特性に Al_3Fe 等の金属間化合物分布が影響するため、バーニング特性と電解グレイニング特性を両立させる成分および製造条件の選定が必要となる。

5. ま と め

包装用アルミニウム箔、電解コンデンサ用アルミニウム箔およびPS版用アルミニウム板材の諸性能に及ぼす組織制御について紹介した。電解コンデンサ用箔およびPS版用アルミニウム板材は、電気化学的な表面処理を行うアルミニウム製品であり、エッチング特性に結晶組織、金属間化合物の種類、分布さらには固溶状態も影響するため、それら個々の影響を考慮して材料設計を行う必要がある。また表面処理条件で大きく結果が変わることも事実であり、表面処理設計と材料設計の融合が高レベル製品を製造する上で重要である。

包装用アルミニウム箔は、アルミニウムの特性の一つである「加工のしやすさ」を最大限利用し、厚さ6μm程度まで加工を行う。それは圧延制御理論を駆使した高い加工技術により達成されるものであるが、やはり材料特性も大きく最終製品の性能に影響し、加工プロセス設計と材料設計との融合で高レベル製品が産み出される。

参 考 文 献

- 1) 佐竹 進：塑性と加工, 19, (1978),335.
- 2) M. Brzobahaty：Sheet Metal Industries, 39, (1962), 341.
- 3) 木村 紘：軽金属学会第70回春期大会講演概要, (1986), 65.
- 4) W. Kerth, E. Amann, X. Raeber and H. Weber：International Metallurgical Reviews, 20, (1975), 185.
- 5) 木村 紘：軽金属学会第70回春期大会講演概要, (1986), 69.

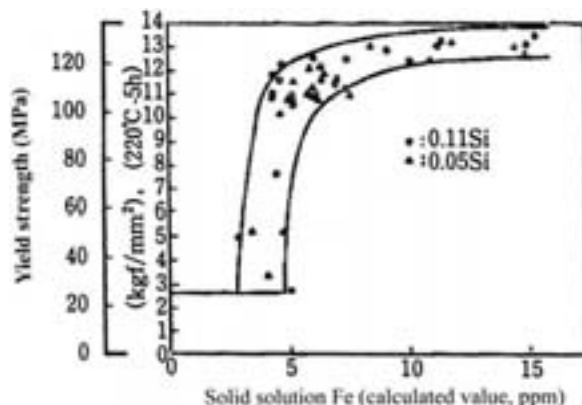


Fig. 35 Relation between the amount of solid solution Fe, and the proof stress after annealing (220℃-5h)⁴⁴⁾.

- 6) 木村 紘：軽金属学会第70回春期大会講演概要，(1986)，67.
- 7) 細野晋一郎，星野晃三：軽金属学会第95回秋期大会講演概要，(1998)，127.
- 8) 小倉茂稔，柴田潤一，関 克己，佐藤克行，小高良輝，谷村幸男：第44回塑性加工連合講演会講演論文集，(1993)，135.
- 9) 本居徹也，福岡 潔：住友軽金属技報，**43**，(2002)，29.
- 10) 本居徹也，福岡 潔，吉田英雄：軽金属，**48**，(1998)，624.
- 11) 軽金属協会アルミ箔懇話会技術委員会資料，(1986)，1.
- 12) 高橋恒夫，村上 雄，グエン・コン・ダン：軽金属，**28**，(1978)，35.
- 13) 関 史江，上城太一：軽金属，**48**，(1998)，507.
- 14) 池田賢一，津曲兼一郎，吉田冬樹，中島英治，安部 弘：軽金属，**51**，(2001)，119.
- 15) 梶原 桂，徳田健二，杉崎康昭，関 勇一：軽金属，**51**，(2001)，182.
- 16) 小原共平，本居徹也：軽金属学会第119回秋期大会講演概要，(2010)，127.
- 17) 福岡 潔，大澤伸夫：住友軽金属技報，**35**，(1994)，90.
- 18) 大澤伸夫，小原共平：電解蓄電器評論，**63**，(2012)，57.
- 19) 大澤伸夫，福岡 潔：住友軽金属技報，**40**，(1999)，16.
- 20) 沖 猛雄，興戸正純，市野良一，竹内宏充：軽金属学会第80回春期大会講演概要，(1991)，123.
- 21) K. Arai, T. Suzuki, T. Atsumi : J. Electrochem. Soc., **132**, (1985), 1667.
- 22) 福岡 潔，倉橋正晴：住友軽金属技報，**34**，(1993)，205.
- 23) 後藤博己，当麻 建：軽金属学会第82回春期大会講演概要，(1992)，213.
- 24) 神尾彰彦：アルミニウムの組織と性質，軽金属学会，(1991)，363.
- 25) 大澤伸夫，日比野 淳：住友軽金属技報，**44**，(2003)，12.
- 26) 新井浩三：電解コンデンサ用アルミニウム箔のエッチング挙動に関する研究(学位論文)，(1985)，88.
- 27) 本居徹也：軽金属学会第105回秋期大会講演概要，(2003)，63.
- 28) 福岡 潔，倉橋正晴：住友軽金属技報，**28**，(1987)，7.
- 29) 福岡 潔，佐々木 茂明，倉橋正晴：住友軽金属技報，**36**，(1995)，7.
- 30) 大澤伸夫，福岡 潔：住友軽金属技報，**41**，(2000)，23.
- 31) 福岡 潔，倉橋正晴：住友軽金属技報，**34**，(1993)，7.
- 32) 米澤輝彦：PS版概論，印刷学会出版部，(1993)，18.
- 33) 榊 博和：軽金属，**40**，(1990)，640.
- 34) J. Huang : Proc. Symp. Alum. Surf. Treat. Tech., (1986)，2.
- 35) A. J. Dowell : Trans. IMF, **57**, (1979), 138.
- 36) G. J. Marshall, R. J. Ward : Mater. Sci. Technol., **11**, (1995), 1015.
- 37) 鈴木敏夫，林 美克：金属表面技術，**30**，(1979)，541.
- 38) 林 美克：住友軽金属技報，**21**，(1980)，39.
- 39) 林 美克：第67回学術講演大会要旨集，金属表面技術協会，(1983)，78.
- 40) 西川泰平，島野美佐子，山岡壮太郎，高岡秀男：軽金属学会第72回春期大会講演概要，(1987)，41.
- 41) 林 美克：住友軽金属技報，**25**，(1984)，47.
- 42) G. J. Marshall, R. A. Licks, P. K. F. Limbach : Mater. Sci. Technol., **8**, (1991), 263.
- 43) 馬場義雄，金子純一：軽金属，**31**，(1981)，553.
- 44) 梶山 毅，松尾 守，村松俊樹，小松伸也，村上陽太郎，立松一穂：軽金属学会第67回秋期大会講演概要，(1984)，11.

工業用純アルミニウムと Al-Fe 系合金の組織制御

田 中 宏 樹

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 210-222

Microstructural Control in Commercially Pure Aluminum and Al-Fe Alloys

Hiroki Tanaka

Commercially pure aluminum alloys have been widely used due to good formability, corrosion resistance, weldability, etc. In order to improve the properties of the alloys, many studies have been carried out. In this report, information about the effects of the microstructures of the alloys on their properties is reported. Additionally, the history of the development of aluminum fin materials for heat exchangers used in room air conditioners and pilfer proof cap is summarized.

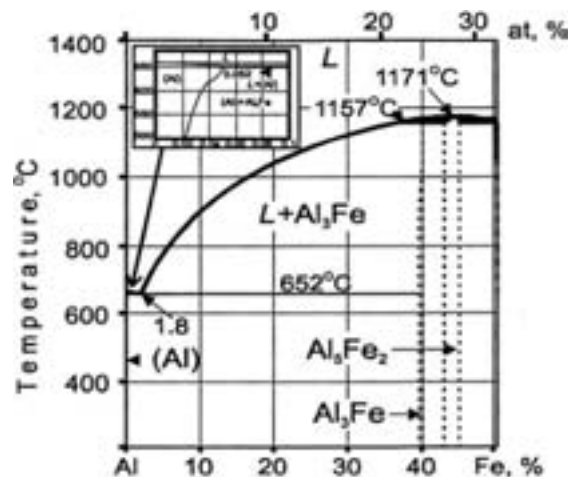
1. はじめに

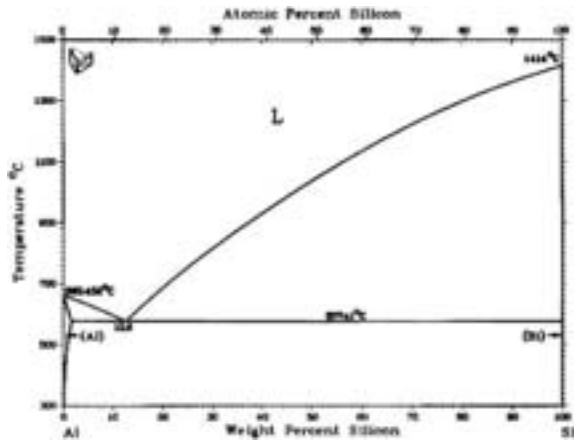
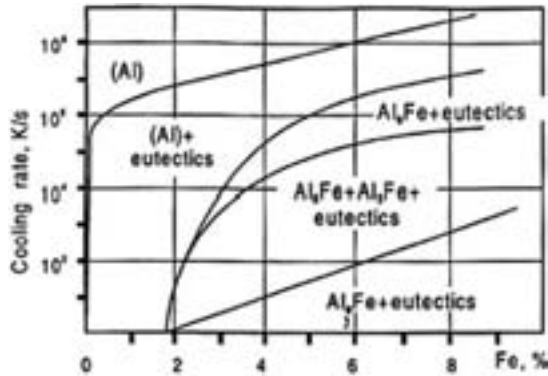
工業用純アルミニウムは加工性、耐食性、溶接性等に優れるため器物、建材、包装、建設、電気、運輸などの分野に広く用いられている。主な添加元素は Si と Fe であるが、製造条件によって第二相粒子の組成や結晶構造が変化し、製品性状に大きな影響を与えるため、その形成過程を制御する必要がある。本報では 1000 系合金および Al-Fe 系合金の特性、特に表面色調、加工硬化、加工軟化、再結晶、集合組織、成形性に焦点を絞って解説する。また、工業用純アルミニウムの主要用途である空調用フィン材と PP キャップ材についても、開発の経緯を記述する。これまでいくつかの解説記事があるので、あわせてこれらの文献^{1,2,3,4)}も参照されたい。

2. 生成相と固溶限

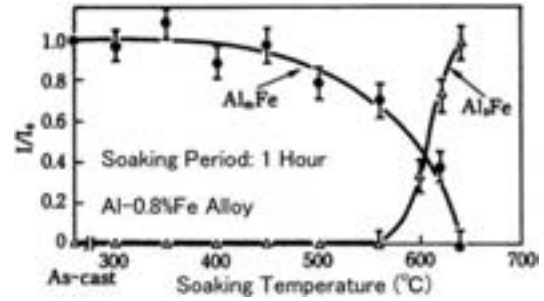
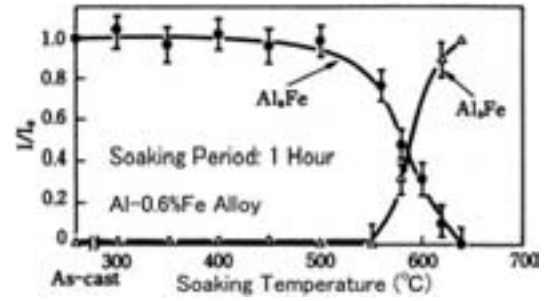
Al-Fe 二元系平衡状態図を Fig. 1⁵⁾ に、Al-Si 二元系平衡状態図を Fig. 2⁶⁾ に示す。 casting 時の Fe 量や凝固の冷却速度によって安定相の Al₃Fe (monoclinic ; a=1.549nm, b=0.808nm, c=1.248nm) と準安定相の Al₆Fe (orthorhombic ; a=0.649nm, b=0.744nm, c=0.879nm) の形成が変化する。Fig. 3 はブリッジマン法を利用して、Fe 量と冷却速度の変化による第二相粒子の形成条件を示す⁵⁾。通常、鋳塊には均質化処理が施される。この処理中に、準安定相から安定相への相変化が進行する。Fig. 4 は準安定相の Al₆Fe と Al_mFe

(body-centered tetragonal ; a=0.884nm, c=2.160nm) の加熱による変化を X 線回折強度で調査した結果を示している⁷⁾。Al₆Fe と Al_mFe はともに 500°C 付近から減少し、640°C でゼロとなっている。一方、安定相の Al₃Fe は 560°C 付近から存在が認められ、加熱温度が上昇するに従い増加する。他の化合物は検出されないため、中間相を経ずに直接 Al₃Fe 相へ変化したものと考えられる。準安定相は casting 条件によって他の結晶構造となる。Table 1 に工業用純アルミニウムで形成が認められた化合物を示す¹¹⁾。これらの化合物は Si 量や Fe 量および熱処理条件によって形成が決まる。Fig. 5 に 500

Fig. 1 The Al-Fe phase diagram in the Al-rich region⁵⁾.

Fig. 2 The Al-Si phase diagram⁶⁾.Fig. 3 The phase-structure diagram of Al-Fe alloys⁵⁾.

°C 加熱時の形成相を示す¹¹⁾。加熱温度による析出相変化についてはモデル計算も試みられている。Fig. 6 は 1100 合金に現れる析出物の温度-時間曲線 (Time-Temperature Precipitation curve ; TTP curve) を示

(a) Al_mFe and Al_3Fe in Al-0.8%Fe alloy(b) Al_6Fe and Al_3Fe in Al-0.6%Fe alloyFig. 4 Variation of X-ray diffraction intensity of the intermetallic compounds with soaking temperature⁷⁾.Table 1 Comparison between composition and structure of phases in commercially pure aluminum alloys¹¹⁾.

Name	Composition reported elsewhere	Observed composition	Structure reported elsewhere	Observed structure
Al_3Fe	$Al_{3.2-3.6}Fe$ $Al_{3.6}Fe$ $Al_{3.4}Fe$	$Al_{3.3-3.5}FeSi_{0-0.05}$	Monoclinic, C2/m $a=15.487$, $b=8.0831$ $c=12.4776\text{\AA}$, $\beta=107^\circ43'$	Weak spots were sometimes observed for $h+k=2n+1$
Al_6Fe	$Al_{6.3}Fe$		C-centered orthorhombic $a=6.49$, $b=7.74$, $c=8.79\text{\AA}$	
$\alpha-AlFeSi$	$Al_{12}Fe_3Si$ $Al_{15}Fe_3Si$ $Al_{11.3}Fe_3Si_{1.6}$ $Al_{10.9}Fe_3Si_{1.9}$	$Al_{12.7}Fe_3Si_{1.0}$ $Al_{12.9}Fe_3Si_{1.5}$	Cubic, $a=12.54\text{\AA}$ Bodycentered cubic, $a=12.56\text{\AA}$	Both primitive cubic and bodycentered cubic particles were observed
$\alpha'-AlFeSi$	$Al_{11.8}Fe_3Si_{1.7}$ $Al_{12}Fe_3Si_2$ Al_8Fe_2Si	$Al_{12.6}Fe_3Si_{1.6}$ $Al_{12.0}Fe_3Si_{2.0}$	Hexagonal, $a=12.3$, $c=26.2\text{\AA}$	
$\alpha_V-AlFeSi$	Al_9Fe_2	$Al_{14.6}Fe_3Si_{1.0}$ $Al_{12.4}Fe_3Si_{2.1}$	Monoclinic, $a=8.69$, $b=6.35$, $c=6.32\text{\AA}$, $\beta=93.4^\circ$	Monoclinic, $a=8.47$, $b=6.35$, $c=6.10\text{\AA}$, $\beta=93.4^\circ$
$\alpha_T-AlFeSi$		In the α region		20.4\AA , 15.4\AA
$\beta-AlFeSi$	$Al_9Fe_2Si_2$ Al_9FeSi $Al_{13.6}Fe_3Si_{3.05}$ $Al_{13.3}Fe_3Si_{3.3}$	$Al_{14}Fe_3Si_{3-}$ $Al_{13.2}Fe_3Si_{3.8}$ Average : $Al_{13.6}Fe_3Si_{3.4}$	Monoclinic, $a=6.12$, $b=6.12$, $c=41.5\text{\AA}$, $\beta=91^\circ$	

す¹²⁾。このような検討から Fe 固容量の変化を定量的に予測できる。

Table 2 に Fe および Si の固溶限の温度依存性を示す²⁾。Fe 固容量は電気抵抗法⁸⁾とメスバウア法⁹⁾で求めた値で、Si 固容量は Mondolfo¹⁰⁾ の報告を参照している。

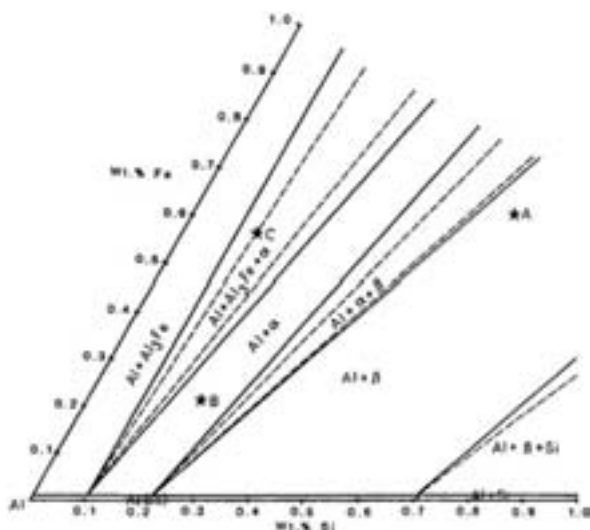


Fig. 5 The Al corner of 773K isothermal section redrawn¹¹⁾.

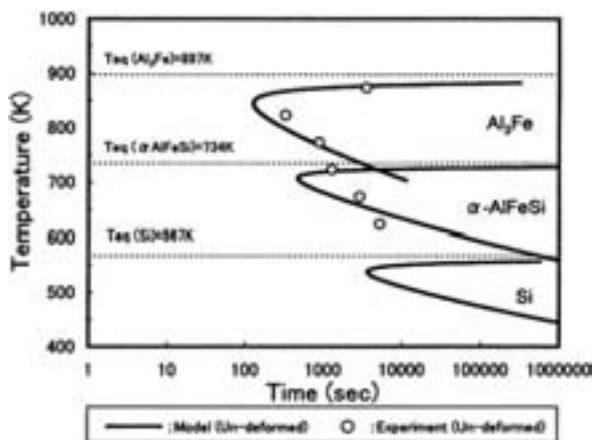


Fig. 6 Calculation results of TTP curves for Al_3Fe , $\alpha\text{-AlFeSi}$ and elemental Si precipitates in undeformed Al-Fe-Si alloys compared with experimental results¹²⁾.

3. 表面色調

ネームプレートや器物などの装飾的要素の強い用途に使用する場合、表面の色調変化は商品価値を下げる。圧延板に見られるマクロ組織上の筋模様は、第二相粒子の分散状態と粗粒形成に起因するものがある¹³⁾。第二相粒子の影響として Al-Fe-Si 系の化合物が正常部より多く存在し、焼鈍しても二次再結晶させても筋模様は消失しない¹³⁾。この対策として、熱間圧延中に進行する Fe, Si の析出を制御することが有効で、タンデム式熱間圧延機における材料の強制冷却方法が確立した^{14,15)}。粗粒に関しては、結晶方位差によってエッチング特性が異なることに起因する。板表面の筋模様に関係する塊組織は、主に巨大晶（浮遊晶）、サブサーフェスバンド、縦の木組織、羽毛状晶の 4 つがある¹⁶⁾。縦の木組織や陽極酸化による自然発色は、Table 3 に示すように化合物によってその影響が変化するためである¹⁷⁾。Table 3 中の 1st~3rd 領域は縦の木組織の外側にあり、4th の領域は縦の木組織の内側に存在する。 Al_mFe と Al_3Fe は 15%- H_2SO_4 により陽極酸化されるが、 Al_6Fe は陽極酸化されずに皮膜中に残るので、自然発色の変化が生じる。この自然発色現象を積極的に利用した商品として建築用アルミニウム合金がある。硫酸浴陽極酸化で Al-Si 系（当社合金 SF10, SG40）合金は灰黒色に、Al-Fe 系（当社合金 FC13）合金は 550°C 以下の熱処理では青み

Table 2 The maximum solubility of Fe and Si in $\text{Al}^{2)}$.

Temp. (K)	Fe (mass%)		Temp. (K)	Si ¹⁰⁾ (mass%)
	electric resistance ⁸⁾	Mössbauer ⁹⁾		
928	0.052	—	850	1.65
913	—	0.051	825	1.30
903	—	0.043	800	1.10
873	0.025	0.033	750	0.70
843	—	0.021	700	0.45
823	0.013	—	650	0.25
811	—	0.017	600	0.10
773	0.006	0.011	550	0.04
723	—	0.005	500	0.01

Table 3 Chemical properties on intermetallic compounds¹⁷⁾.

Region	Colour of anodized surface	Chemical properties of eutectics		Constituents	
		0.5% HF etching	15% H_2SO_4 anodizing	X-ray diffraction	Electron diffraction
1 st	Light grey	Darkened	Oxidized	Al_3Fe and b.c.t. Al_mFe	b.c.t. Al_mFe Al_3Fe
2 nd		Darkened	Oxidized		Al_3Fe
3 rd		Darkened	Oxidized		Al_3Fe
4 th	Dark grey	Slightly darkened	Not oxidized	Al_6Fe	Al_6Fe

グレーで 550°C 以上では乳白色に変化する¹⁸⁾。また有機酸による一次電解発色の研究も多く実施され、当社ではスミトーン法 (p-フェノールスルホン酸+硫酸) が開発された^{18,19)}。Al-Mn-Si 系 (当社合金 SM11) 合金にスミトーン処理を施すと黒色となり、硬質アルマイトに匹敵する硬さを有し、耐摩耗性に優れている¹⁸⁾。これらの自然発色を利用した材料は、製造条件の変動で色調が変化するため、均一な製造を心がける必要がある。

4. 加工硬化, 加工軟化

アルミニウムの加工硬化の挙動は圧延率や Si, Fe といった不純物の固溶, 析出状態で変化する。アルミニウムの加工硬化機構として、量子力学的な考察が提唱されている²⁰⁾。溶媒原子と異なる結晶構造をもつ溶質原子が固溶していた場合、互いの結合軌道は対称性が大きく異なるため、溶質原子が溶媒原子の格子上に固溶しても、互いの結合軌道は重ならない。格子が加工によって破壊され、互いに重なりあえる原子配置になると、共有結合が形成すると考えられる。この結合形態は強固な結合であり、転位が移動しにくくなることから、加工硬化しやすい状態となる。アルミニウムは面心立方格子で、Mn (体心立方), Mg (六方晶系), Zn (六方晶系), Si (六方晶系), Fe (体心立方) はアルミニウムと大きく異なる結合軌道を有するので、これらが固溶していると加工硬化率が高くなる。Fig. 7 は 99.4mass%Al を連続焼鈍炉 (CAL; 723K) とバッチ焼鈍炉 (Batch; 653K) で処理した材料の、加工硬化による強度変化を示す²¹⁾。高圧延率領域では、連続焼鈍材の方が加工硬化率は高くなる。この要因は連続焼鈍材の Si 固溶量が多くなるためと思われる。

高純度のアルミニウムは加工硬化の後に加工軟化を示し、微量の不純物で単調な加工硬化の傾向に変化する。Fig. 8 は純度の異なるアルミニウムを 673K でソーキング、熱間圧延および中間熱処理した板を冷間圧延した際の硬さ変化を示している²²⁾。99.999mass%Al は冷間圧

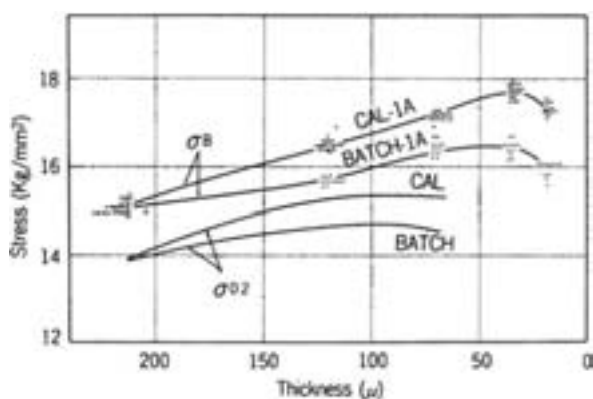


Fig. 7 Effect of flash annealing on strength of cold rolled foils²¹⁾.

延率 40% 以上で加工軟化が生じているが、99.6mass%Al と 99.99mass%Al は著しい加工硬化を示し、純度が低い程高い硬さを示す。このように極微量の不純物が加工硬化, 加工軟化に決定的な影響を及ぼすことがわかる。さらに Fe 量を 0.5~1.9mass% 程度まで添加すると、また加工軟化が生じるようになる^{22,23)}。Fig. 9 に示す通り、Fe の添加量が多いほど低圧延率で加工軟化を起こす傾向にある²²⁾。さらに、熱間圧延を

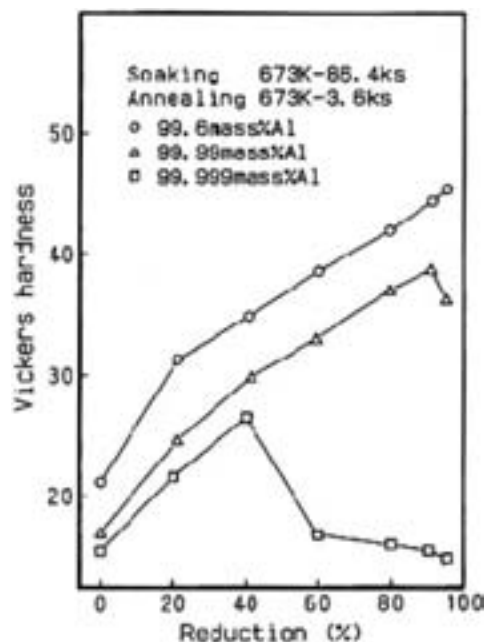


Fig. 8 Effect of Al purity on change of Vickers hardness²²⁾.

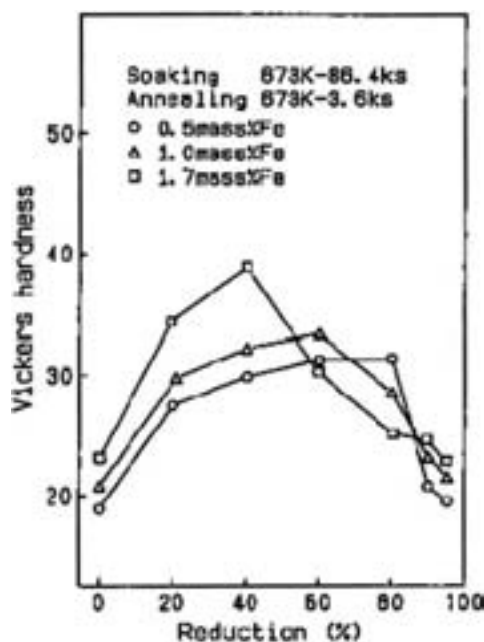


Fig. 9 Effect of Fe content on change of Vickers hardness²²⁾.

施さないと、このような加工軟化が発現しないことも指摘されている²²⁾。これらのことから、加工軟化現象はマトリックスの清浄化により回復が起こっている現象であると考えられ、熱間圧延で生じた第2相 (Al₃Fe 等) が固溶した Fe の析出場所として作用しているものと考えられる。この推察の妥当性を示すため、冷間圧延中の Si, Fe といった固溶元素の挙動を分析する新しい技法が望まれる。

5. 回復, 再結晶

固溶原子が存在すると転位と相互作用してその移動速度を低下させ、回復や再結晶を抑制する傾向に働く。Fig. 10 に示す通り、特に遷移元素はアルミニウムの再結晶温度を高める効果が顕著である²⁴⁾。再結晶界面が移動すると固溶原子はそこに掃き集められるので、極微量の元素も再結晶過程に影響する。Fig. 11 は 99.99mass%Al ベースに Cu を 12~32ppm 添加した 90 μm 箔の軟化特性を示す²⁵⁾。Cu 量が 12ppm と 21ppm

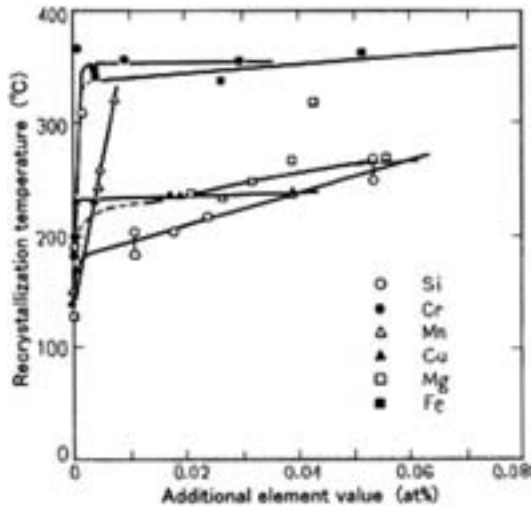


Fig. 10 Effect of additional elements on recrystallization temperature of aluminum alloys²⁴⁾.

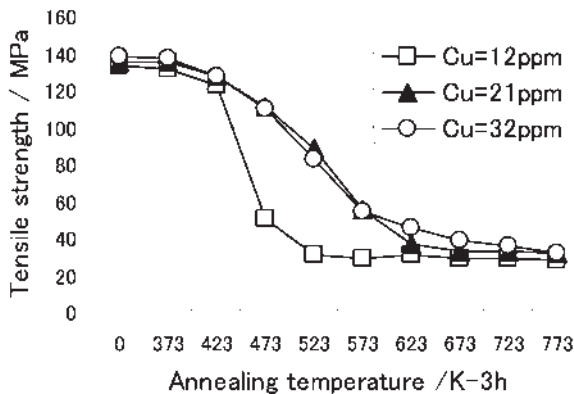


Fig. 11 Effect of Cu content on annealing curves of high purity aluminum foils²⁵⁾.

では軟化特性が異なり、Cu 量が 21ppm 以上になると再結晶温度が高温側にシフトする。中間熱処理条件によっても固溶量が変化するため、軟化特性が変化する。

Fig. 12 は Fig. 7 で示したサンプルのうち、210μm 厚さに圧延した板を各温度で 1 h 加熱したときに得られた軟化特性を示す²¹⁾。冷間圧延まま (H) の状態では連続焼鈍材とバッチ焼鈍材に強度差がない。しかしながら、軟化完了温度は連続焼鈍材がバッチ焼鈍材よりも約 40K 上昇する。これは Si の固溶量の差によるものと思われる。

軟化特性は冷間加工率によっても変化する。Fig. 13 は 99.99mass%Al ベースに Fe 添加量を 0.12~1.93mass% に変化させ、673K で中間熱処理してその後の加工率を ε = 0.47 と 3.95 にした試料の軟化特性を示す²³⁾。加工率が大きくなると Fe 添加量が多い試料の方が軟化しやすくなる。これは冷間加工中に固溶 Fe が析出してマトリックスの清浄化が進み、再結晶しやすくなったと考えられる。つまり加工軟化した Al-Fe 合金材は、低温で軟化しやすくなるといえる。

Fig. 14 に 1050 合金硬質板の軟化特性を示す²⁶⁾。再結晶途中の延性は熱処理前の状態よりも低下してから上昇することがある。この試料を再結晶した段階で TEM 観察すると、Fig. 15 に示す通り、直径 1 μm 前後の Si 単体のリング状析出が多数確認される。このことから、回復時のサブグレイン粒界に Si が析出することでリン

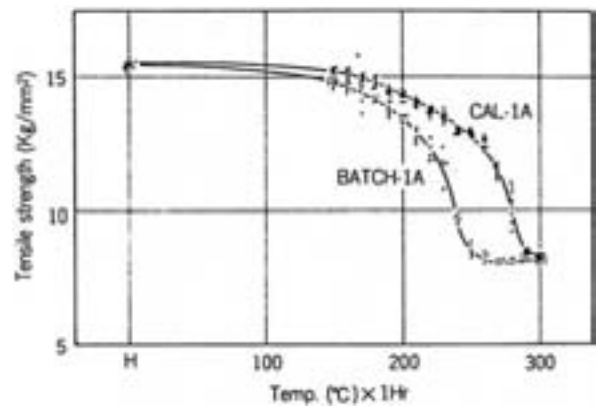


Fig. 12 Annealing curves of 99.4%Al (210μm)²¹⁾.

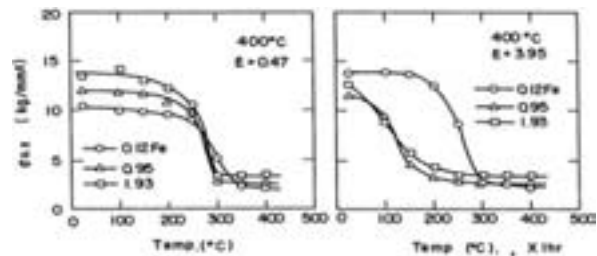


Fig. 13 Isochronal annealing curves of Al-Fe alloys intermediately annealed at 400°C and drawn up to ε = 0.47 and ε = 3.95²³⁾.

グ状となり延性を低下させ、再結晶粒形成によってリング状 Si 析出物は粒内に包括されて、再結晶粒界が清浄化することで延性が向上するものと考えられる。また、延性はひずみ速度によっても変化する^{27,28)}。Fig. 16 は純度の異なるアルミニウム板を、引張速度を 2 段階に変えて試験した際の公称応力-公称ひずみ線図である²⁸⁾。2N(99.0%)-Al では低引張速度で 10% を超える伸びを示し、高引張速度では 4% 程度に低下する。これは固溶量に伴う加工硬化性の変化と回復の速度が影響しているものと思われる。

6. 集合組織

多結晶体を塑性加工や再結晶処理すると特定の方位の配向が生じる。これを集合組織と呼ぶ。Table 4 はアルミニウムの圧延加工と再結晶処理で優先的に形成する方位を示している²⁹⁾。圧延集合組織は β^- 方位群とも呼ばれ、Cu {112} <111>, S {123} <634>, Brass {011} <211> 方位が優先方位として知られている。再結晶集合組織は Table 3 に示す 7 方位がよく観察される。R {124} <211> 方位は S 方位に近く、その場 (in situ) 再結晶的に形

成するため、両者を区別することは難しい。再結晶集合組織と圧延集合組織は <111> 軸に対して特定の関係にある。Fig. 17 は Al-0.04mass%Fe と Al-0.16mass%Fe 合金冷間圧延板の再結晶集合組織に及ぼす圧延前熱処理と焼鈍条件の影響を示す³⁰⁾。圧延前熱処理温度が低く Fe 固溶量が少ないと cube 方位が発達する。圧延前熱処理温度が高温で焼鈍温度が中間の場合、再結晶前に析出が生じた高角粒界は移動が妨げられるため、その場 (in situ) 再結晶して、S 方位に近い R 方位成分の強い集合組織となる。

Al-0.04mass%Fe に Si を添加した場合の cube 方位比率の変化を Fig. 18 に示す³¹⁾。焼鈍温度の変化に伴う cube 方位比率の変化は、Si 添加合金も同様な傾向を示すが、R 方位を含むランダム方位成分が増える。固溶 Fe, Si 量が増えると cube 方位形成は抑制され、R 方位の形成を促す傾向となる³¹⁾。

熱間圧延板には cube 方位粒が圧延方向にのばされ、cube バンドを形成する。Fig. 19 は 1050 合金を 598K で熱間圧延した板の cube 方位分布を示す³²⁾。この cube バンドが新たな cube 方位再結晶粒の発生場所となる (Fig. 20)³³⁾。再結晶した cube 方位粒の成長は隣接す

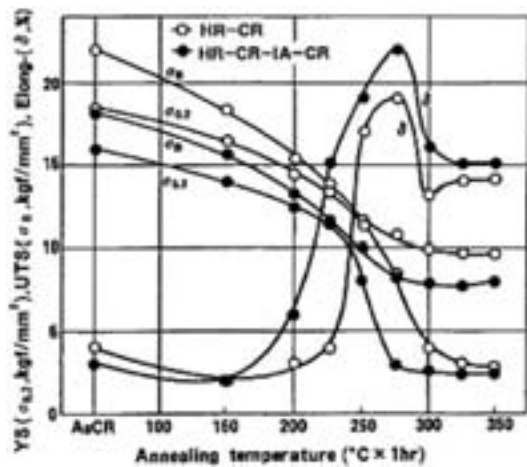


Fig. 14 Final annealing curve of 1050 alloy sheet²⁶⁾.

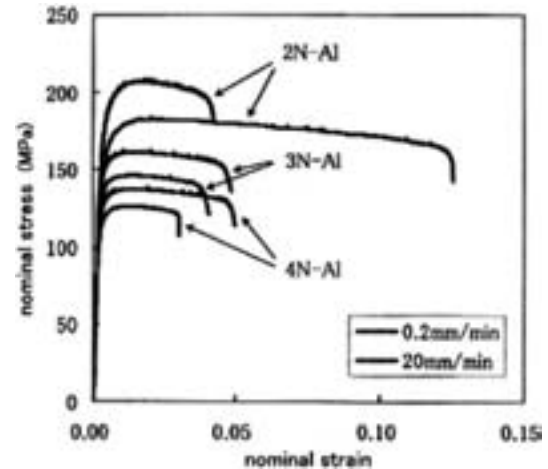


Fig. 16 Nominal stress-nominal strain curves²⁸⁾.

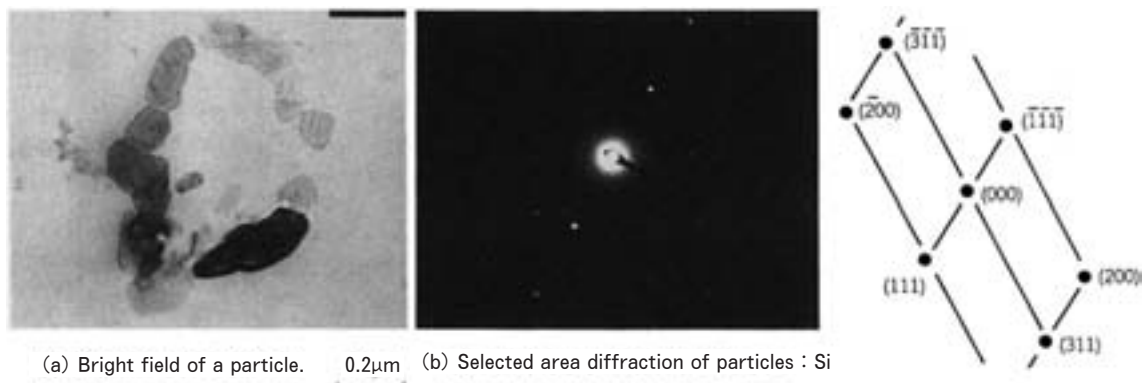


Fig. 15 Electron micrographs of 1050 alloy sheet finally annealed at 275°C²⁶⁾.

Table 4 Euler angles and Miller indices of the most important orientations observed in aluminum alloys²⁹⁾.

	Notation	Euler angles			Miller indices {hkl} <uvw>	Nucleation site	40° <111> relation to
		φ_1	ϕ	φ_2			
Rolling	C	90°	30°	45°	{112} <111>	—	—
	S	58°	29°	63°	{123} <634>	—	—
	B	35°	45°	0°/90°	{011} <211>	—	—
Recrystallization	Goss	0°	45°	0°/90°	{011} <100>	Shear bands	S/B
	Cube	0°	0°	0°/90°	{001} <100>	Transition bands	S
	Cube _{ND}	22°	0°	0°/90°	{001} <310>	Particles	C
	Cube _{RD}	0°	22°	0°/90°	{013} <100>	Transition bands	B
	R	59°	37°	63°	{124} <211>	Grain boundaries	S
	Q	45°	15°	10°	{013} <231>	Shear bands	S/C
	P	70°	45°	0°/90°	{011} <122>	Transition bands	S

る方位の影響を受け、S方位を蚕食して優先的に成長することが観察されている³⁴⁾。詳細な理由は解明の余地があるが、cube方位とS方位は40° <111>の幾何学的関係にあることや、cube方位よりS方位粒内の蓄積エネルギーが高いことがcube方位の再結晶駆動力となってS方位を蚕食して成長しやすと考えられる³³⁾。

7. 成形性

板成形では変形様式と破断形態から成形区分がなされ、①深絞り成形、②張出成形、③伸びフランジ成形、④曲げ成形の基本要素に分類される³⁵⁾。実際の複雑形状の成形は、これらの要素の組み合わせにより解析されている。

7.1 深絞り性

一般に深絞り限界は、パンチ肩部の材料強度とフランジ部材料の変形抵抗との大小関係で定まり、前者が大きければ成形可能であるが、その逆の場合は破断が生じる。深絞り性とランクフォード(r)値との関係が古くから議論されており、軟鋼板においては理論的にも裏付けられている^{36,37)}。Fig. 21に高純度アルミニウムと1100相当軟質材の r 値と限界絞り比(LDR)を軟鋼板と比較する³⁸⁾。両材料では各々勾配が異なっており、全体的には r 値とLDRとの相関は軟鋼板に比べ小さい。河合³⁹⁾は破断方向およびフランジ部とパンチ肩部の力の伝達に関する難易を考慮に入れて、深絞り性は加工硬化指数(n)との関係で $n < 0.2$ では r_{\min} に、 $n > 0.2$ では r_{\min} と平均 r 値の双方に支配されるものとしている。角筒絞りに関しては藤倉らの報告^{40,41)}を参照されたい。

7.2 張り出し成形性

張出成形ではパンチ頭部に接する材料が円周方向、半径方向のいずれにも伸び変形し、板厚の減少によって所定の形状が得られる。材料特性値としては加工硬化指数(n)が大きいほど均一な変形を与えやすく張出性に優れるとされている⁴²⁾。また、Fig. 22に示すとおり、破断

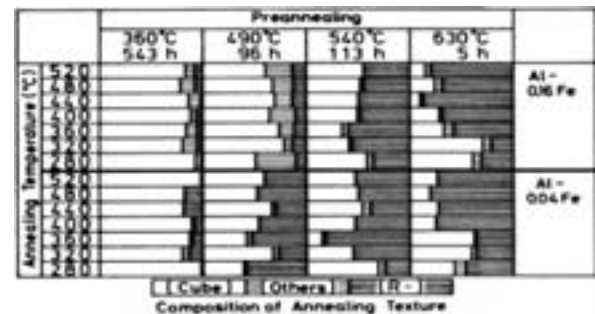


Fig. 17 Compositions of the recrystallization textures of both Al-Fe alloys after various pre-annealing and final annealing temperatures³⁰⁾

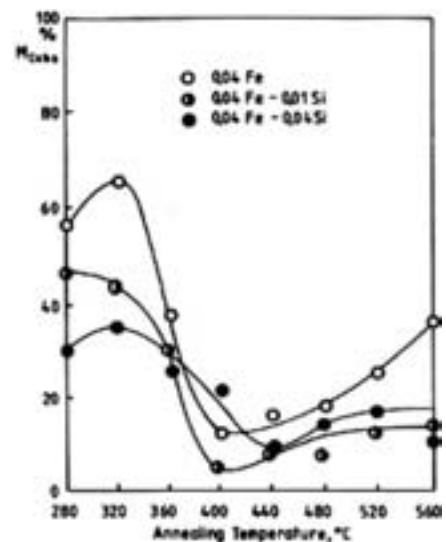


Fig. 18 Recrystallization texture represented by M_{cube} as function of the annealing temperature for the alloys Al-0.04%Fe, Al-0.04%Fe-0.01%Si and Al-0.04%Fe-0.04%Si³¹⁾.

伸び(全伸び)とエリクセン値に相関が見られる⁴²⁾。Table 5に各種アルミニウム合金と調質条件によるエリクセン値の測定例を示す⁴³⁾。軟質材の場合、純アルミ

ニウム系が最も優れ、純度が高いほど良好な傾向にある。

7.3 伸びフランジ成形

あらかじめ素材にあけた穴をパンチにより押し拡げる成形で、穴の縁は一軸引張りと同様な変形となる。破断発生状態には材料の強度不足に起因したパンチラジラス部もしくはダイラジラス部で円周方向に割れが生じる場合 (α 破断) と、材料の延性不足に起因して穴縁で半径方向に割れが生じる場合 (β 破断) がある⁴⁴⁾。Fig. 23 に 1100 各種調質材の引張り強さと成形性の関係を示す⁴⁵⁾。このことから、伸びフランジ成形性は張出成形性と同様に、材料の延性と対応があることがわかる。

7.4 曲げ成形

曲げ成形は突き曲げ、押え巻き、送り曲げの 3 種類に大別される⁴⁶⁾。一般のプレス成形ではほとんどが突き曲げであり、V 曲げ、L 曲げ、U 曲げが基本形式である。曲げ成形ではスプリングバックやそり、肉減り (板厚減少) などの形状不良が問題となる。Fig. 24 は各種アルミニウム合金の V 曲げにおけるスプリングバック角を示す⁴⁷⁾。材料の耐力が高いほど、また曲げ R が大きくなるほどスプリングバックが大きくなる。実際の曲

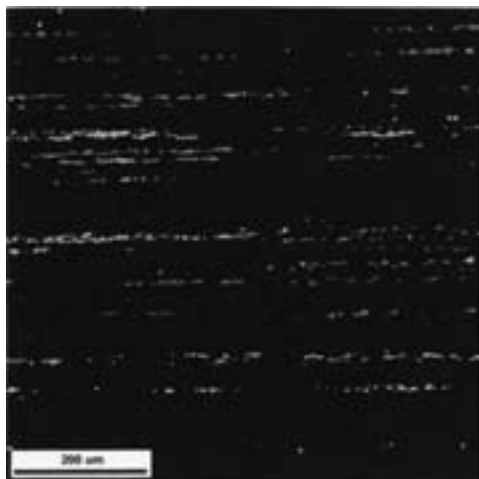


Fig. 19 Orientation map with the cube component highlighted (white) to show the spacing of the cube bands³²⁾.

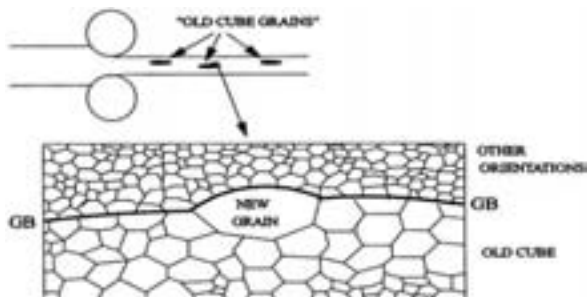


Fig. 20 Schematic diagram of nucleation mechanism for cube recrystallization texture showing old cube grains that are deformed to bands which act as nucleation sites³³⁾.

げ加工においては、これらの値を見込んだ金型設計が必要である。

7.5 成形限界曲線 (Forming Limit Diagram, FLD)

薄板の成形性を評価する方法として成形限界曲線 (Forming Limit Diagram, FLD) がある。Fig. 25 に 1 mm 厚さの 1050 と 1100 合金板の LDR を示す^{48,49)}。合金差はあまり見られず、調質の影響が大きく、O 材より H14 や H24 の半硬質状態の方が成形性は低下する。

1100 合金板を用い、板厚の影響を調査した結果を Fig. 26 に示す⁴⁹⁾。0.6mm と 1.0mm の板では、厚さは 67% 増加しているが、限界ひずみは、平面ひずみ変形領域で 0.06、張出し変形領域の中央部で 0.09、等二軸変形領域で 0.06 程度の増加を示している。一方、1.0mm と 1.5mm の板では、厚さは 50% 増加しているが、限界ひずみは、上記の各領域に対しては、それぞれ 0.05、

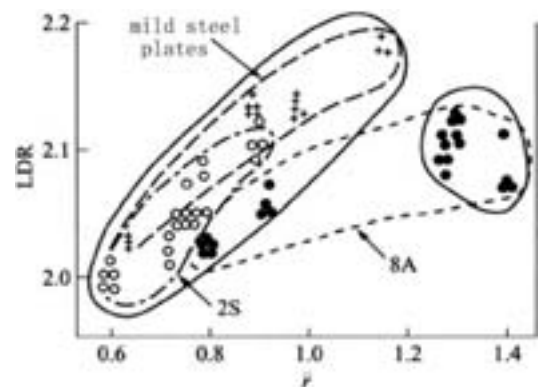


Fig. 21 Relation between average r value and LDR on high purity aluminum alloy sheets (8A), 1100 aluminum sheets (2S) and mild steel plates³⁸⁾.

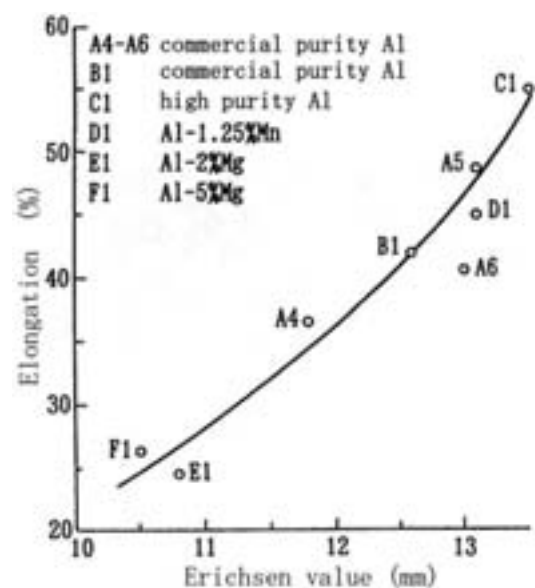


Fig. 22 Relation between elongation and Erichsen value of annealed aluminum alloy sheets⁴²⁾.

0.07 および 0.04 程度増加している。このように、板厚の増加に対する限界ひずみの増加は、板厚の値および変形領域によって変化するので、両者の間の定量的な関係を求めることは難しい。

Table 5 Formability of non heat-treatable aluminum alloy sheets⁴³⁾.

Material		LDR		Erichsen value (mm)	hole expansion rate (%)
Alloy	Temper	cylindrical punch	capitate punch		
1070	O	2.04	2.11	12.4	70
	H24	2.10	1.95	10.6	30
1050	O	2.04	2.09	12.1	68
	H24	2.10	1.92	10.3	25
1100	O	2.06	2.09	11.8	59
	H24	2.11	1.90	10.2	20
	H18	2.00	1.72	6.8	8
3003	O	2.06	2.06	11.3	58
	H24	2.11	1.80	8.2	19
3004	O	2.02	1.97	10.1	39
	H34	2.07	1.75	7.6	16
5052	O	2.09	2.05	9.8	46
	H34	2.14	1.88	7.8	20
	H38	1.95	1.65	4.3	3
5182	O	2.11	2.12	10.0	39
SPCC		2.14	2.20	12.3	—

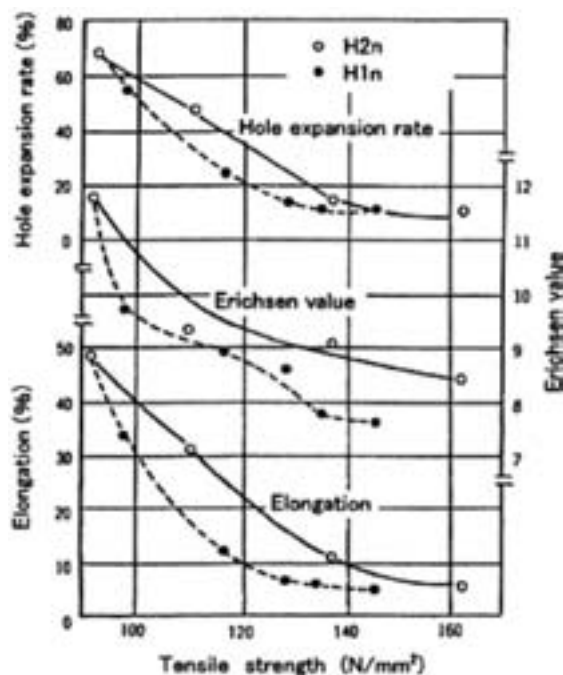


Fig. 23 Effects of tensile strength on elongation, Erichsen value and hole expansion rate of 1100 aluminum sheets⁴⁵⁾.

7.6 しごき加工

しごき加工は径に対して高い円筒形状を得る場合に適用される。また、成形性の劣る材料でも適用できることからDI缶、ルームクーラーフィン、日用品器物等に利用される。**Fig. 27**におもなアルミニウム材料のO材とH材のしごき加工限界を示す⁵⁰⁾。各合金とも、H材よりO材の方が限界しごき率は高くなる傾向が認められる。しごき加工性と引張特性との関係を求めた結果、 n 値が高くなるほどしごき加工性が優れることが理論解析⁵¹⁾でもしめされている。しごき加工後のアルミ表面性状も、製品品質上は重要な特性である。Alに0.35%の元素を添加した二元合金板をしごき加工したところ、Mn, Feを添加した合金では金属光沢のあるしごき加工面が得られ、Cu, Mgを添加した合金では筋状痕(ゴーストリング)が激しくなる⁵²⁾。

7.7 絞り成形時の耳形状

耳形状は集合組織の影響を受け、集合組織は固溶、析出状態によって変化する。**Fig. 28**は99.5%純度のアルミニウム連铸塊に予備加熱処理を400~550°Cの範囲で行い、一旦室温まで下げた後、400°C熱間圧延-冷間圧延で仕上げた板を350°Cで焼鈍した材質の耳率を示す⁵³⁾。予備加熱が500°C以上の場合、焼鈍後の耳は45°耳となる。この集合組織は圧延集合組織に近い方位⁵³⁾で、いわゆるR方位が形成したために45°耳になったと考えられる。高純度アルミニウムの場合、このような铸塊予備加熱条件の耳形状への影響は認められない⁵³⁾。しかし、99.9%純度のアルミニウム板の焼鈍温度を変化させた場合、280°Cでは45°耳となり、320°C

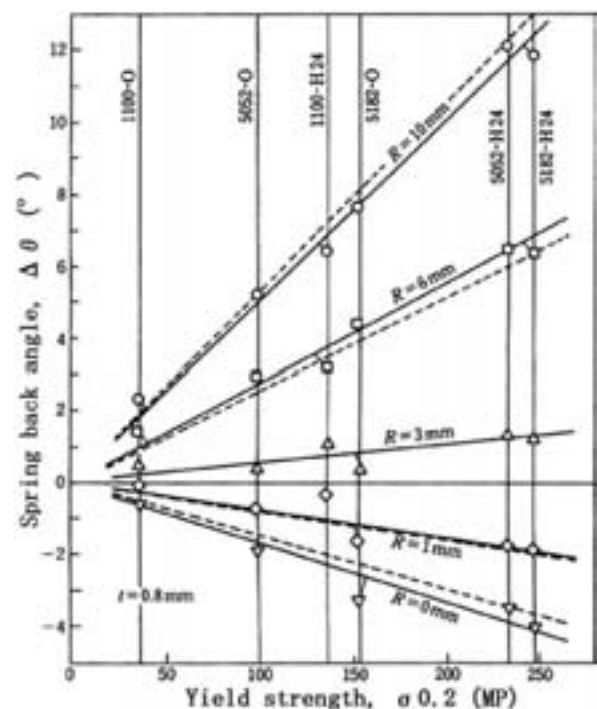


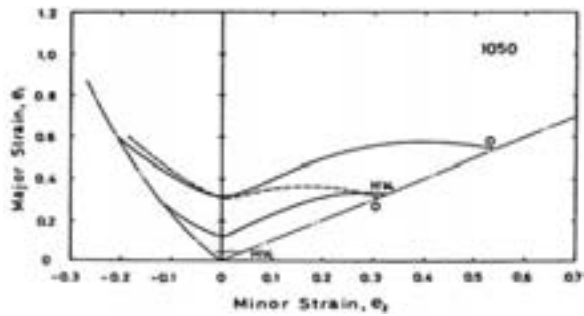
Fig. 24 Springback angle in V-shaped bending test⁴⁷⁾.

以上では 90° 耳となる⁵⁴⁾。280°C 焼鈍では R 方位が形成したと考えられ、320°C 以上では cube 方位が形成するため、このような耳形状の変化が生じたと理解できる。Fig. 29⁵⁵⁾ は鋳塊予備加熱温度が導電率、耳形状および限界絞り比に与える影響を示している。300°C から 500°C での導電率上昇は、Al-Fe-Si 系化合物の析出により、

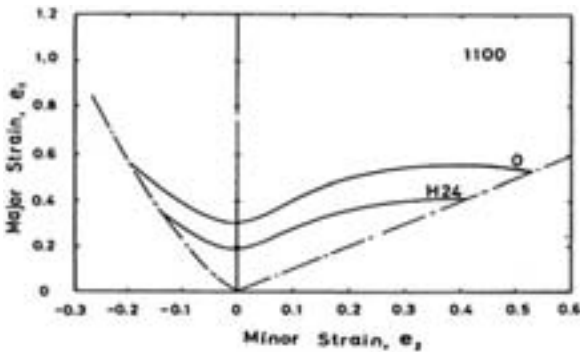
Si と Fe の固溶量が減少したためである。鋳塊予備加熱温度が 450°C 以上で 90° 耳から 45° 耳に変化する。限界絞り比は 90° 耳よりも 45° 耳の方が高い値を示す。

8. 空調用熱交換器アルミニウムフィン材

昭和 30 年に住友金属工業で開発された航空機用アルミニウムろう付け熱交換器が、国産アルミニウム熱交換器の先鞭であった。その後、住友金属工業から住友軽金属工業と住友精密工業が独立し、材料と加工をそれぞれ分担して開発を進めてきた歴史がある⁵⁶⁾。家庭用ルーム・クーラーの普及により、アルミニウム材料の大きな市場となってきた。初期の米国製オールアルミクーラーの部材は冷媒管に 1200-O 管やアルクラッド 3003-O 管、フィン材には 7072-H12 材が使用されていた⁵⁷⁾。フィン



(a) 1050-O and 1050-H14 aluminum sheets



(b) 1100-O and 1100-H24 aluminum sheets

Fig. 25 Forming limit curves for 1050 and 1100 aluminum sheets^{48, 49)}.

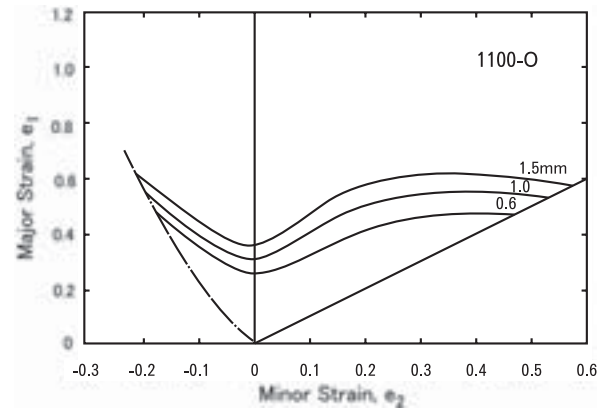


Fig. 26 Effect of sheet thickness on forming limit curves for 1100-O aluminum sheet⁴⁹⁾.

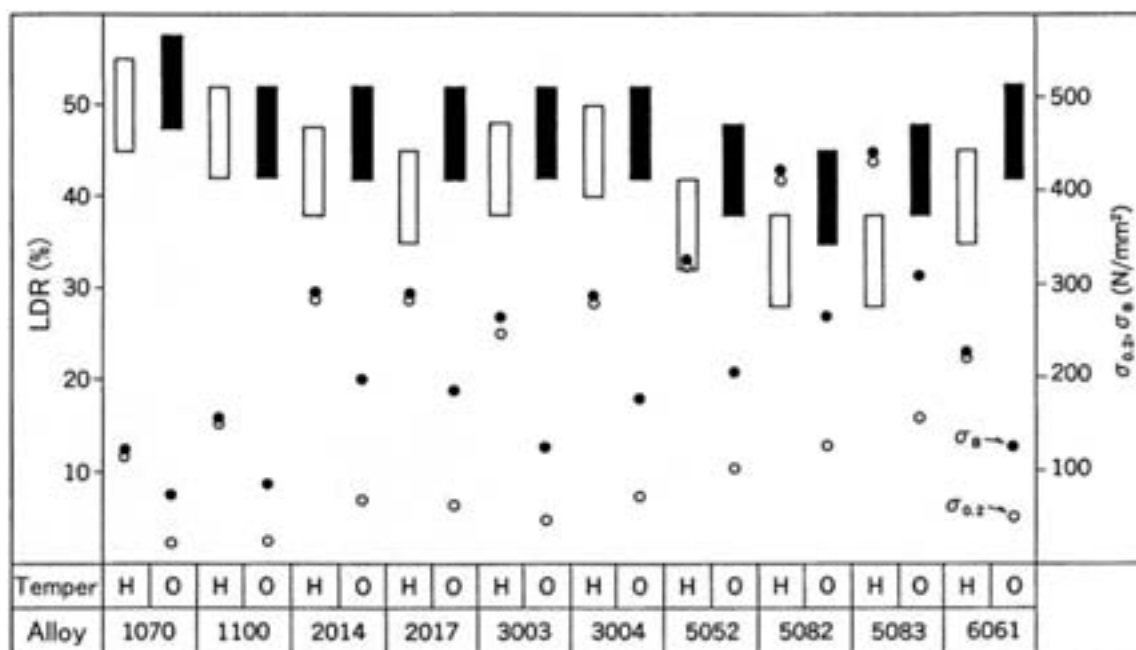


Fig. 27 LDR values of various aluminum alloy sheets⁵⁰⁾.

材に関しては実機試験の結果、1050でも使用可能と判断された⁵⁸⁾。プレートフィンの加工方法は大きく分けて2種類ある。一つは張出加工を利用したドロー方式フィンで、4工程の絞り加工-孔開け加工-バーリング加工-フレア加工が連続的に行われることで製造される。他方はフィンの薄肉化からフィン高さを確保するために開発されたしごき加工を利用する方法で、しごき加工性と伸びフランジ性が素材に求められる⁵⁹⁾。Table 6 にアルミニウムフィン材の化学成分と機械的性質を示す⁶⁰⁾。ドロー方式は当初から採用されてきた方式で、要求される強度、耐食性の観点から材質が選択される。しかし、素材の薄肉化を図るには、張出性の低下が著しく、0.115mm以下の薄肉化が困難であった。しごき加工によれば比較的薄肉化が容易となる。しごきフィン材として、Zr を添加したFK03-H26 が開発され、1050-H26 よりも良好な伸びフランジ性を有する特性が得られた⁵⁹⁾。伸びフランジ性が劣るとフレア割れが生じ、熱交換器の熱交換性能が低下する⁶¹⁾。さらに、しごき加工性を改善する目的でZrの代わりにMn添加したMF02が開発された。しごき加工面の健全性を向上させるため、Mn添加量を増やしたMF03の開発につながる。当初のアルミフィン材は無処理(ベアー)状態で使用されていたが、室内器、室外器ともに水滴を水膜として流下させることが通

風抵抗低減の観点から求められるようになった。この市場要求に応えるため、表面処理フィン材(CCシリーズ)が開発された⁶⁰⁾。現在では耐食性やプレス成形性機能も改善した表面処理フィン材が開発され⁶⁰⁾、素材は低コストの1100合金材などが利用されている。

9. PP キャップ用ノンイヤ材

1960年代に入ってPPキャップ(Pilfer Proof Cap)が開発された。Pilfer Proof性とは詰替防止等と訳され、商品購入者が開封するまでメーカの元詰保証が行えることを意味している。このPPキャップには絞り加工時のフローマーク防止、ノンイヤ化、開栓性(引きちぎれ性)が求められる。当初、99.0~99.5%Alでの試作が行われたが、粗粒化によるフローマーク発生や、板幅方向での耳率のばらつきが認められた⁶²⁾。このためTi、B添加による铸塊組織微細化、Fe、Si添加による再結晶粒微細化やノンイヤ安定化および開栓性向上を達成した(当社合金FS109、FS08)⁶³⁾。特に熱間圧延中のFe、Si析出を制御するため、540℃で熱間圧延を開始して強制冷却工程を入れて260℃以下で熱間圧延を終了するプロセス開発が特筆すべき点である⁶³⁾。

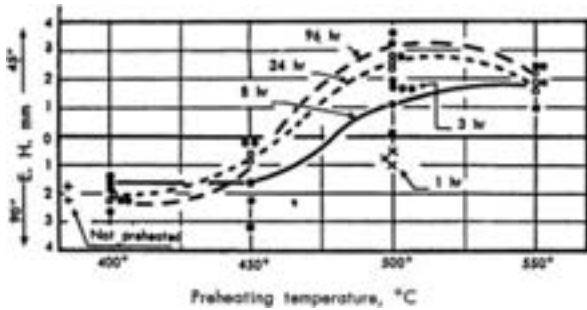


Fig. 28 Earing of annealed commercial purity aluminum sheet, showing effect of pre-heating temperature⁵³⁾.

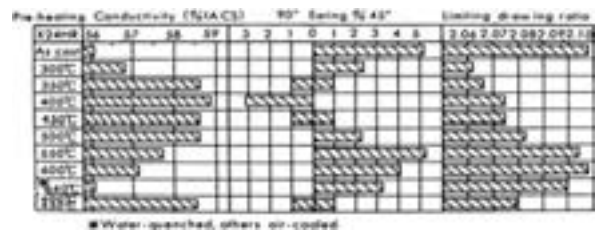


Fig. 29 Influence of pre-heating on the electrical conductivity, earing and limiting drawing ratio of commercially pure aluminum⁵⁵⁾.

Table 6 Aluminum fin materials of heat exchanger for room air conditioner⁶⁰⁾.

Type	Aluminum fin			Chemical composition (mass%)										Mechanical properties		
	SLM term	AA	Temper	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Zr	Al	Y.S. (×9.8 MPa)	T.S. (×9.8 MPa)	El. (%)
Draw less	MF03	—	H26	0.08	0.17	0.02	0.23	0.01	<0.01	<0.01	0.07	<0.01	R	13.5	14.6	14
	FM02	—	H26	0.06	0.14	0.02	0.10	0.01	<0.01	<0.01	0.07	<0.01	R	13.0	13.8	18
	FK03	—	H24	0.09	0.29	0.07	0.01	0.04	<0.01	<0.01	0.01	0.11	R	17.2	18.5	5
BurrOak	A30	A1100	O	0.16	0.61	0.08	0.01	0.01	<0.01	<0.01	0.01	—	R	3.2	9.0	40
	A100	A1200	H11	0.10	0.71	0.01	0.01	0.01	<0.01	<0.01	0.02	—	R	4.0	10.1	37
	A50	A1050	H22	0.11	0.30	0.01	0.01	0.01	<0.01	<0.01	0.01	—	99.55	12.6	13.2	20

10. ま と め

1000 系合金および Al-Fe 系合金の特性と、工業用純アルミニウムの主要用途の一つである空調用フィン材についての概要を紹介した。本系合金は Si と Fe を含む単純な合金組成であるが、実に様々な析出形態と固溶量変化を示す。これが金属組織や特性の変化をもたらすので、析出物だけではなく固溶状態も考慮して材料設計を行う必要がある。本報では紹介しなかったが、工業用純アルミニウムの casting 組織に及ぼす Al-Ti-B 添加の影響⁶⁴⁾、均質化処理中の不純物 (Si, Fe) の変化⁶⁵⁾、熱間-温間-冷間圧延後の TEM 組織^{66, 67, 68)}、溶接熱影響部の再結晶挙動⁶⁹⁾、クリープ変形機構⁷⁰⁾、腐食挙動⁷¹⁾、極低温圧延⁷²⁾、低温環境下での引張特性⁷³⁾などの報告もなされているので、必要に応じて参照されたい。

参 考 文 献

- 小菅張弓：軽金属, **38** (1988), 292.
- 小菅張弓, 岡田 浩：軽金属, **61** (2011), 274.
- 馬場義雄：住友軽金属技報, **31** (1990), 65
- 小林保夫：軽金属, **32** (1982), 325.
- N. A. Belov, A. A. Aksenov and D. G. Eskin : *Iron in Aluminum Alloys*, (2002), Taylor & Francis, 5-6.
- T. B. Massalski : *Binary Alloy Phase Diagrams Vol. 1*, American Society for Metals, (1986), 165.
- 小菅張弓, 高田秀男：軽金属, **29** (1979), 64.
- J. K. Edgar : *Trans. AIME.*, **180** (1949), 225.
- 西尾通卓, 那須三郎, 村上陽太郎：日本金属学会誌, **34** (1970), 1173.
- L. F. Mondolfo : *Aluminum Alloys, Structure and Properties*, Butterworths, (1976).
- A. L. Dons : *Z. Metallkde.*, **75** (1984), 170.
- 梶原 桂, 杉崎康昭, 関 勇一：軽金属, **54** (2004), 273.
- 馬場義雄, 浜田淳司：住友軽金属技報, **11** (1970), 169.
- 寺井士郎：住友軽金属技報, **21** (1980), 6.
- 寺井士郎, 馬場義雄, 高島 章, 加藤靖弘：特許第 619580 号.
- 犬丸 晋, 吉田政博, 城谷正人：住友軽金属技報, **20** (1979), 125.
- 小菅張弓, 水上一郎：軽金属, **25** (1975), 48.
- 森山 勉, 土田 信：住友軽金属技報, **33** (1992), 268.
- 寺井士郎, 鈴木敏夫：住友軽金属技報, **5** (1964), 330.
- 竹田真帆人, 田辺晃生, 埴 健三, 山本 悟：**合金論の歴史と論理**, ミューズ・コーポレーション, (2007), 149.
- 土田 信, 馬場義雄：住友軽金属技報, **24** (1983), 27.
- 山本 悟, 水野正隆, 切畑敦詞：日本金属学会誌, **56** (1992), 142.
- 武井広見, 佐藤謙一, 横田 稔：軽金属, **30** (1980), 626.
- 伊藤邦夫：軽金属, **26** (1976), 44.
- 佐々木茂明：未発表
- 森山 勉, 吉田英雄, 土田 信：軽金属, **39** (1989), 184.
- 中村拓郎, 浅野峰生, 吉田英雄：軽金属学会第 122 回春期大会概要集, (2012), 81.
- 中村拓郎, 浅野峰生, 吉田英雄：軽金属学会第 123 回秋期大会概要集, (2012), 251.
- O. Engler and K. Lücke : *Scripta METALLURGICA et MATERIALIA*, **27** (1992), 1527.
- K. Ito, K. Lücke and R. Rixen : *Z. Metallkde.*, **67** (1976), 338.
- K. Ito, F. Seki, H. Abe and K. Lücke : *Z. Metallkde.*, **74** (1983), 772.
- M. H. Alvi, S. W. Cheong, J. P. Suni, H. Weiland and A. D. Rollett : *Acta Mater.*, **56** (2008), 3098.
- H. E. Vatne, T. Furu and E. Nes : *Mat. Sci, Tech.*, **12** (1996), 201.
- R. K. Bolingbroke, G. J. Marshall and R. A. Ricks : *Mater. Sci. Forum*, (1994), 1145.
- 薄鋼板成形技術研究会編：**プレス成形難易ハンドブック**, 日刊工業新聞社, (1983), 371.
- 薄鋼板成形技術研究会編：**プレス成形難易ハンドブック**, 日刊工業新聞社, (1983), 434.
- 長島晋一：集合組織, 日本金属学会, (1966).
- 平野, 小久保, 宮原：第 20 回塑性加工連合講演会論文集, (1969), 305.
- 河合 望：軽金属学会, 日本塑性加工学会シンポジウム予稿集, (1975), 1.
- 藤倉潮三, 山崎 淳：軽金属学会第 58 回春期大会講演概要, (1980), 41.
- 藤倉潮三, 山崎 淳：軽金属学会第 55 回秋期大会講演概要, (1978), 75.
- 小西晴之, 田尻 彰：軽金属, **58** (2008), 622.
- 藤倉潮三：軽金属, **30** (1980), 664.
- 軽金属学会編：研究部会報告書 No.23 「アルミニウム合金薄板のプレス加工データブック」, (1991), 89.
- 竹島義雄：住友軽金属技報, **44** (2003), 111.
- 日本塑性加工学会編：**プレス加工便覧**, (1975), 199.
- 軽金属学会編：研究部会報告書 No.23, (1991), 120.
- 小原嗣朗, 勝田基嗣, 青木頭一郎：軽金属, **31** (1981), 90.
- 勝田基嗣, 小原嗣朗, 青木頭一郎：軽金属, **32** (1982), 95.
- 土田 信, 田中宏樹：住友軽金属技報, **31** (1990), 268.
- 福井伸二：塑性と加工, **12** (1971), 701.
- 土田 信：学位論文「非熱処理型アルミニウム合金硬質板の組織制御と材料特性に関する研究」, (2009), 183.
- 網谷俊男：住友軽金属技報, **2** (1961), 116.
- 網谷俊男：住友軽金属技報, **2** (1961), 237.
- 広沢栄一, 直江正久：住友軽金属技報, **10** (1969), 14.
- 赤山二郎：住友軽金属技報, **15** (1974), 186.
- 竹内勝也, 杉山禎彦, 伴 又寿, 姫野 健：住友軽金属技報, **14** (1973), 141.
- 萩原理樹, 入江 宏, 姫野 健：住友軽金属技報, **14** (1973), 151.
- 齊藤莞爾, 土田 信, 関谷仁司, 前田利徳：住友軽金属技報, **23** (1982), 42.
- 野世溪精, 前田利徳, 竹島義雄, 知念武廣, 西野正男, 森山 勉：住友軽金属技報, **28** (1987), 101.
- 佐藤好生：軽金属学会第 120 回春期大会概要集, (2011), 77.
- 馬場義雄：住友軽金属技報, **41** (2000), 91.
- 馬場義雄：住友軽金属技報, **23** (1982), 36.
- 馬場義雄, 浜田淳司：住友軽金属技報, **15** (1974), 156.
- 広沢栄一, 直江正久：住友軽金属技報, **10** (1969), 14.

- 66) 広沢栄一：住友軽金属技報, **9** (1968), 114.
67) 広沢栄一：住友軽金属技報, **8** (1967), 245.
68) 広沢栄一：住友軽金属技報, **7** (1966), 109.
69) 難波圭三, 福井利安, 杉山禎彦：住友軽金属技報, **15** (1974), 244.
70) 北菌幸一：軽金属, **59** (2009), 458.
71) 世利修美：軽金属, **53** (2003), 121.
72) 古井光明, 川上貴之, 佐治重興, 箕田 正, 江崎宏樹, 田中宏樹, 吉田英雄：軽金属, **52** (2002), 339
73) 鷹合徹也, 中山英治：軽金属, **39** (1989), 717.

自動車熱交換器用材料の組織制御

田中宏和* 伊藤泰永**
小山高弘*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 223-234

Microstructural Control in Heat Exchanger Materials

Hirokazu TANAKA, Yasunaga ITOH and Takahiro KOYAMA

The automotive heat exchangers used in car air conditioners and engine cooling equipments are made by brazing the aluminum rolling and extruding materials. Prior to the brazing, such as the vacuum brazing and CAB (controlled atmosphere brazing), these materials are formed by pressing, roll-forming, high-frequency welding, etc. It is necessary for the heat exchanger materials to have a good formability, and brazeability. Furthermore, from the point of view of reliability, good corrosion resistance and fatigue durability are demanded for these materials. A number of studies to improve these characteristics have contributed to the lightweight and high performance of heat exchangers. In this paper, studies about the improvement of these materials by the microstructure control are reviewed and future prospects are described.

1. はじめに

カーエアコン部品のエバポレータ、コンデンサやヒータ、エンジン冷却部品のラジエータなどの自動車熱交換器は、アルミニウム板材を様々な形状に成形・加工した部材や押出形材を組み合わせた後、ろう付により製造される。成形・加工法としては、プレス成形、高周波溶接、ロールフォーミングなどがあり、ろう付工法としては不活性ガス雰囲気ろう付や真空ろう付などがある。素材には、これらの様々な成形・加工やろう付に適した特性や、熱交換器の疲労耐久性や防食を維持するための特性が求

められている。

上述の諸特性の向上を目的として、数多くの研究が進められ、自動車熱交換器の性能向上や薄肉・軽量化の進展に貢献している。本報では、過去の研究の中から、組織制御に関する成果について概説するとともに、今後の材料研究の展望を示す。

2. 自動車熱交換器の種類と変遷

自動車に搭載される熱交換器は、エアコンのエバポレータ、コンデンサやヒータ、エンジン冷却用のラジエータ、

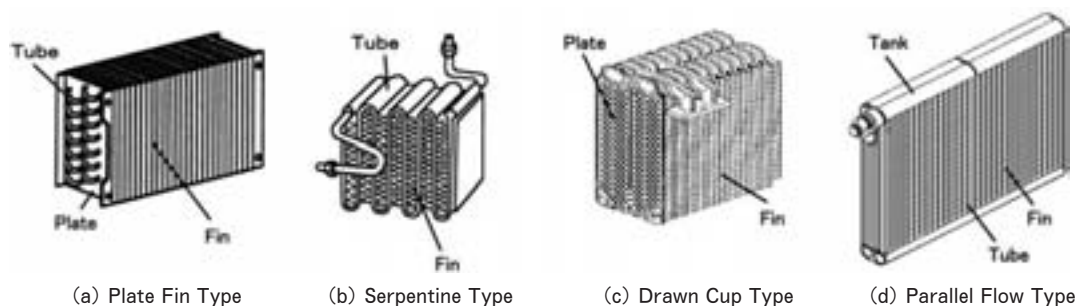


Fig. 1 Trend of type of evaporator

* 研究開発センター 第四部

** 研究開発センター 第二部

各種作動油冷却用のオイルクーラ，過給機冷却用のインタークーラなどがある。例としてエバポレータの形状の変遷を Fig. 1 に示す¹⁾。プレートフィン型に始まり，サーペントイン型，ドロンカップ型，パラレルフロー型へと変化している。熱交換器のチューブ，プレート，フィンなどの部材にはアルミニウム合金板材や形材が多用されている。板材には，3000 系合金心材の片面あるいは両面に 4000 系合金ろう材をクラッドしたブレイジングシートが，形材には 1000 系の多穴管が使用される。市

販熱交換器のチューブ材板厚の変遷を Fig. 2¹⁾ に，多穴管断面積の変遷を Fig. 3²⁾ に示す。熱交換器の高性能・軽量化に伴い部材の薄肉化の進展は著しく，2010 年代の板厚は，1980 年代と比較して 40% にまで低減されている。

ブレイジングシートと多穴管の製造工程を Fig. 4 と Fig. 5 にそれぞれ示す。ブレイジングシートの場合，一般的な板材の製造工程に対し，心材と皮材を組み合わせた Fig. 4 の⑧に示すクラッドメイキングと，それらを

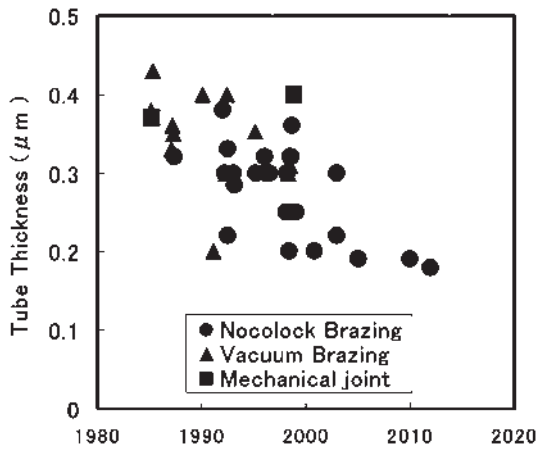


Fig. 2 Gauge-down trend of tube for radiator

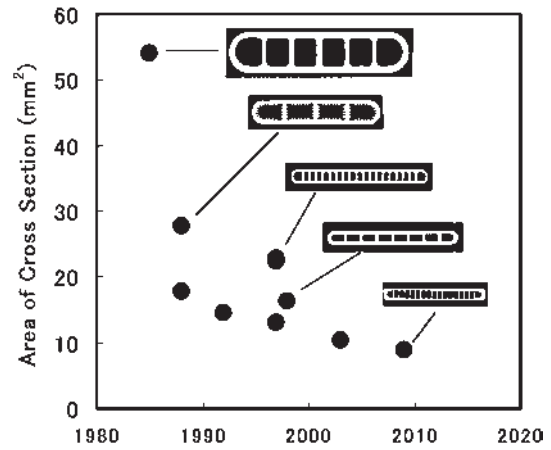


Fig. 3 Gauge-down trend of multi port tube for condenser

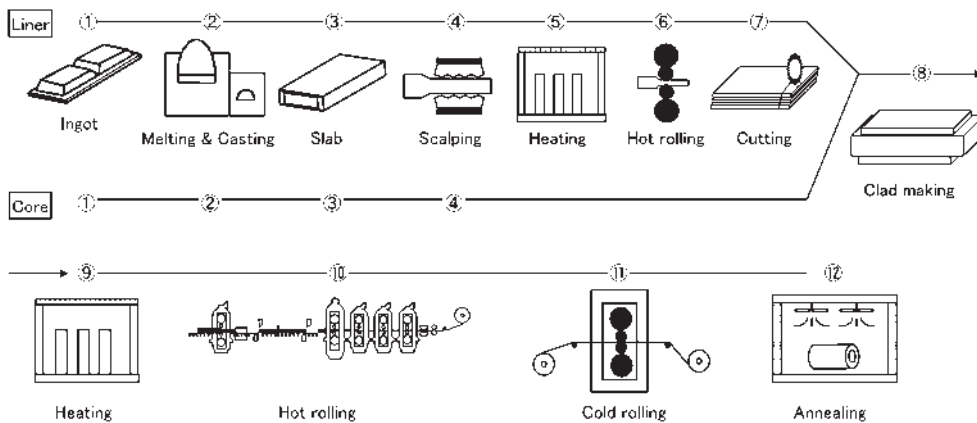


Fig. 4 Production process of clad sheet

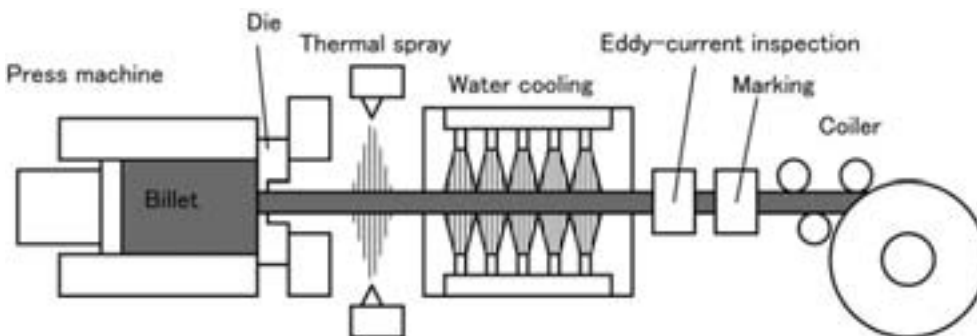


Fig. 5 Production process of multi port tube

固相拡散接合するための熱間圧延が追加される。多穴管の製造工程は、一般的な形材と同様であるが、特徴は、微細構造を形成するための特殊なダイス形状と、防食層の形成を目的として押出直後に亜鉛溶射される点である。

3. 成形性とろう付性

ここでは、熱交換器を製造するための各種成形加工におよぼす金属組織の影響について述べる。

3.1 プレス成形

ドロンカップ型のエバポレータのプレートやラジエータのヘッダの加工にはプレス成形が用いられている。プレス加工においては、数十%の強加工が施されるため、肌荒れ・プレス割れの抑制のため結晶粒径の細やかな制御が必要となる。グレんサイズとしては、 $150\mu\text{m}$ 以下に制御するのが好ましい。また、プレス加工ではないが、配管材の末端に施される拡管加工などにおいても同様の配慮が必要である。

Fig. 6 に表面性状におよぼす結晶粒径の関係を示す。結晶粒径が $150\mu\text{m}$ を超えると、目視で肌荒れを確認できる。但し、肌荒れ抑制のために結晶粒径を小さくした場合には、後工程のろう付においてエロージョンを生じることがある。ろう付性を阻害することのない結晶粒径は、経験的に $50\mu\text{m}$ 以上であることが知られている。上述から、加工性とろう付性の両立には結晶粒径を $50\sim 150\mu\text{m}$ に制御する必要がある。なお、ろう付におよぼす結晶粒径の影響については後述する。

3.2 ロールフォーミングと高周波溶接

ラジエータやヒータのチューブ成形には、ロールフォーミングと高周波溶接が用いられている。ロールフォーミング後の高周波溶接においては、チューブ材の薄肉化の進展にともない極めて高い突合せ精度が要求される。従来、チューブ材の質別はH14やH24が一般的であったが、近年では、中間焼鈍で再結晶をさせることなく最終冷間圧延したH12からH14の質別（繊維状H1nと記載）が選択される。

一般的な再結晶温度以上で中間焼鈍したH12やH14（再結晶H1nと記載）の場合、粒内と粒界近傍の変形挙動が異なり、ロールフォーミング時の成形が不均一になるため、突合せ精度が低下する。また、H2nの場合、耐力と引張強さのばらつきが大きくなり、ロールフォーミング時のスプリングバック量が不安定となり、満足な成形性を得ることができない。

これに対し、金属組織を繊維状H1nとした場合、粒界近傍での局部変形がなく、機械的性質のバラツキが小さくなり、安定した成形性を得ることができる。

さらに、高周波溶接においては、近年チューブ材の心材として多用されている3N33のようにSiとCuをそれぞれ0.5%以上含む合金の場合には、粒界近傍に析出した溶質元素の影響による粒界割れが懸念される。繊維状H1n組織はこの粒界割れ対策にも有効である。

再結晶H1nと繊維状H1nそれぞれで溶接した後の、溶接部の断面マイクロ組織と断面偏光マイクロ組織をFig. 7に示す。再結晶H1nにおいては、目違いを生じたり、突合せ部で粒界割れを生じているのに対し、繊維状H1nにおいては健全に接合されている。

3.3 コルゲート成形

熱交換器のフィンの成形には、コルゲート成形が多用されている。フィン材の薄肉化とともに、コルゲート成形の山高さやフィンピッチのばらつきの抑制が要求される。フィン材の質別については、板厚、成形性、ろう付性などを考慮し、再結晶H1n、H2n、繊維状H1nが適宜選択される。

板厚が 0.1mm 程度の場合、コルゲート成形時の粒界近傍の局部変形によるフィン山高さやフィンピッチのバラツキ抑制のため、繊維状H1nが選択される。板厚が 0.05mm 程度にまで薄肉化された場合には、フィン山高さやフィンピッチのバラツキに及ぼす粒界近傍の局部変形が軽減されるため、ろう付性を重視した再結晶H1n、中でも最終冷間圧延の加工度を小さくしたH12が選択される。

Fig. 8 に、コルゲート成形後のフィン山高さバラツキ

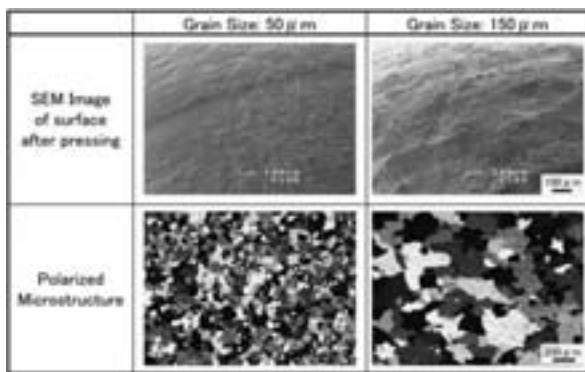


Fig. 6 Relationship between surface quality and grain structure

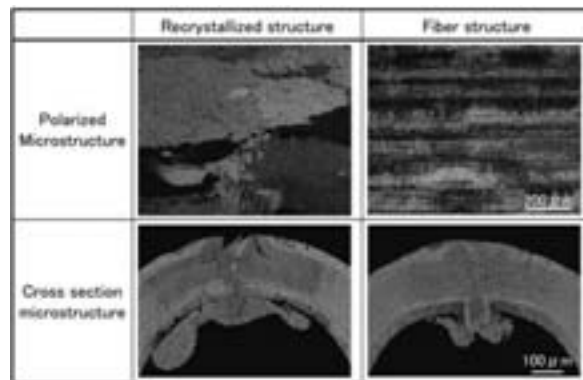


Fig. 7 Influence of microstructure on high-frequency weldability

におよぼす平均結晶粒径の関係を示す。繊維状H1nの山高バラツキは、再結晶H1nの平均結晶粒径が200 μm 以上の場合に対して50%に軽減できる。

Fig. 9に、チューブ材と組み合わせてろう付されたフィン材の断面マイクロ組織を示す。再結晶H12の場合にはフィンの局部溶融や座屈がなく健全な接合継手が得られているのに対し、H16の硬質の場合には、局部溶融と座屈を生じている。なお、ろう付性の詳細については後述する。

4. ろう付性

ここでは、熱交換器を製造するためのろう付におよぼす金属組織の影響について述べる。ろう付性に影響する金属組織としては、母材(心材)の結晶粒径と再結晶挙動、ならびに、ろう材のSi粒径がある。その他、ミクロ的にはMg等の粒界偏析もろう付性に影響を及ぼす。

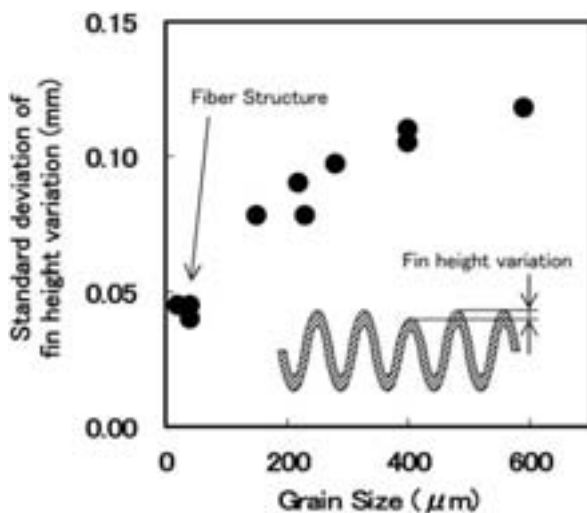


Fig. 8 Influence of Grain Size on Variation of Fin height

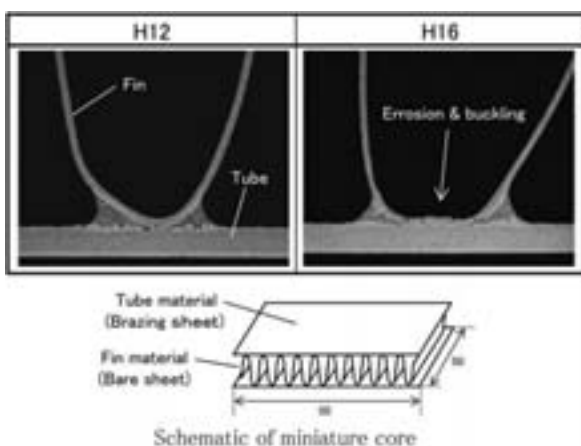


Fig. 9 Cross section of fin top of miniature core after brazing

4.1 フィンの高温変形と溶融

自動車用熱交換器に使用されるフィン材の厚さは0.05~0.1mmと薄肉であり、熱交換器のろう付加熱時にFig. 9のように変形して局部溶融や座屈を生じやすい。フィン材にはベア材とブレイジングシートとがあるが、高温変形が問題になるのはブレイジングシートの場合が多く、ここでは両面にろう材をクラッドした両面ブレイジングフィン材のろう付挙動について概説する。

ブレイジングフィン全体の変形には心材の再結晶挙動が影響する。低加工を与えたブレイジングシートを加熱すると、溶融したろうが心材中に激しく浸透することが知られており、ろうの浸透は加工度によってFig. 10のように変化する³⁾。Fig. 10に示すように、低加工(20%未満)の場合、結晶粒の中に生じた転位はろう付時の加熱で消滅しにくく、亜結晶粒界にろうが浸透する粒内浸透(sub-boundary penetration)を生じている。粒内浸透が発生するとフィンは極度に变形しやすくなり、その一方で、本来はフィレットを形成すべきろうが消費されるため、熱交換器全体に縮みを生じたり、接合不良を発生したりする。ろうの粒内浸透を回避するには、予め20%以上の歪みが付加されている質別H12からH14のフィン材を使用するのが有効である。

フィン先端部(フィレットが形成される接合部)での変形には心材の結晶粒径が影響する。結晶粒径が小さいフィン材では溶融したろうが結晶粒界に浸透しやすく、その粒界浸透(grain boundary penetration)によってフィンの先端部が潰れ、熱交換器の縮み量が增大する不具合を生ずる。結晶粒径と粒界浸透の関係は明らかにされていないが、粒界浸透の先端部では、Fig. 11に示すように、固-液界面エネルギー γ_{SL} と粒界エネルギー γ_{gr} の大きさによって接触角 θ (dihedral angle)が決まり、その

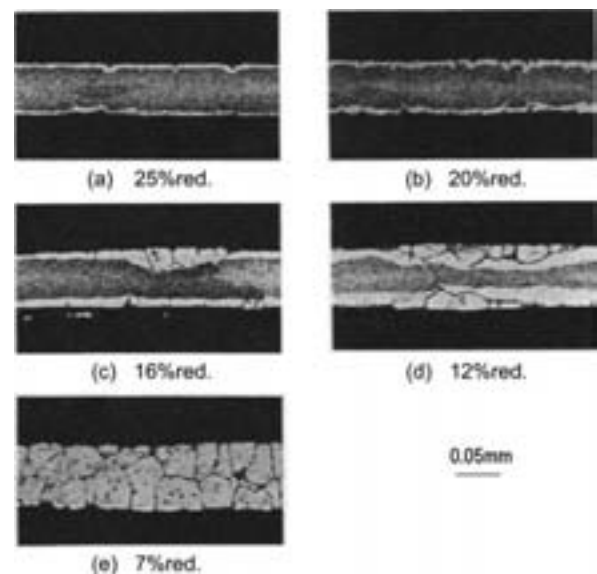


Fig. 10 Effect of cold reduction on clad diffusion into core metal after brazing³⁾

平衡関係は式 (1) で与えられるとの推察がある⁴⁾。

$$\cos(\theta/2) = \gamma_{gr} / (2\gamma_{SL}) \quad (1)$$

ここで $\gamma_{gr} \geq 2\gamma_{SL}$ であれば $\theta = 0$ であり、粒界浸透は活発に進行すると推察されている。

また、結晶方位と粒界浸透の関係も明らかではないが、溶融ろうは小傾角の亜結晶粒界に対して急速に浸透することから、結晶方位と式 (1) との因果関係も推察される。いずれにせよ、フィン先端部の粒界浸透を防止するには、心材の結晶粒径を大きくすることが有効であるが、加工度が50%を超えると結晶粒が微細化し、粒界浸透を生じるようになる。

粒内浸透と粒界浸透は、いずれも溶融ろうが心材に浸透して心材を侵食（溶解，溶融）させる現象であり、侵食あるいはエロージョン（erosion）とも呼ばれている。侵食が発生したフィンでは変形しやすくなり、フィンの高温変形（sag）は低加工領域と高加工領域のそれぞれで Fig. 12 のように顕著となる。

4.2 プレート材の加工ひずみと溶融

ろう付前にプレス加工などの成形加工を加えるプレート材には軟質材が適用されるが、軟質のブレージングシートをプレス加工などの成形加工後にろう付すると、加工度の低い部分で前述の粒内浸透が発生することがある。粒内浸透が広域で発生した場合には、ろうが大量に消費されて接合不良が広範囲に発生することもある。そのため、成形加工を前提としたブレージングシートには加工の影響を受けにくくする工夫が必要であり、心材の Al-Mn-Si 系析出物を粗大にするのが有効である。プレス加工で導入される加工ひずみが5%程度の低加工の場合、Al-Mn-Si 系の微細な析出物がろう付加熱中の転移

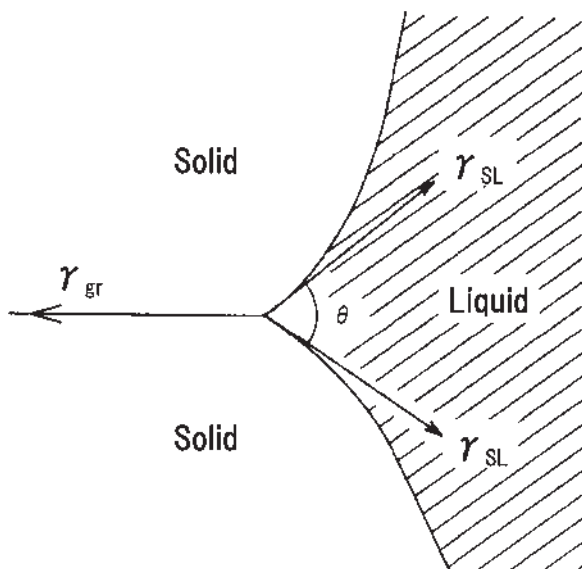


Fig. 11 The balance between solid and liquid in grain boundary.⁴⁾

の移動をピン止めし、ろうが溶融する 577°C においても亜結晶粒を残存させ、ろうが亜結晶粒界を浸透することにより侵食（エロージョン）を発生させるからである。

Fig. 13 に 3000 系心材の TEM 組織を、Fig. 14 に加工度とエロージョン深さの関係を示す⁵⁾。Al-Mn-Si 系析出物を粗大にし、0.1 μ m 以下の微細析出物を減じた条件 C の場合に、5% 前後の低加工領域でのエロージョン深さが最も小さくなっている。

4.3 ろうの流動

継手形状と加熱条件が一定であれば、Fig. 15 に示す通り、ろうの流動はろう材の Si 濃度とろう材厚さ（ろう材量）によって大方は決定される⁶⁾。ところが、特定の条件下ではろう材中の Si 粒子径がろうの流動に影響を及ぼす。例えば、1950~1970 年代に主流であった浸

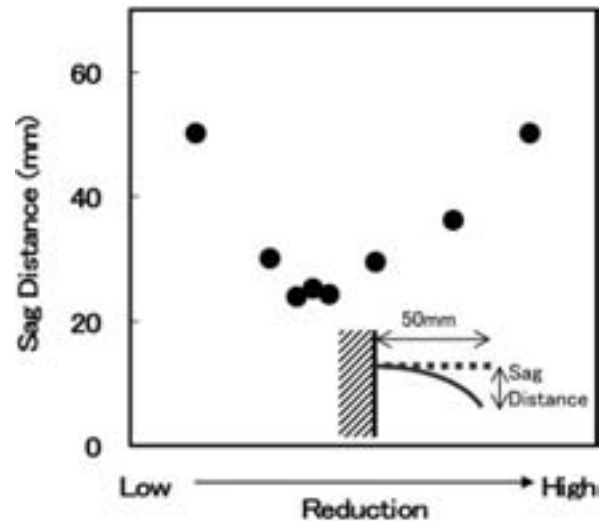


Fig. 12 High-Temperature Deformation of Fin during Brazing

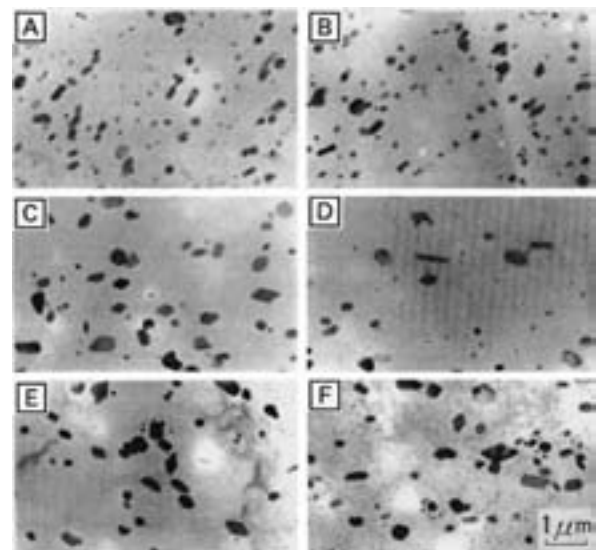


Fig. 13 TEM micrographs of the core alloys showing the precipitate dispersion.⁵⁾

漬ろう付法においては、Fig. 16 及び Fig. 17 に示す通りろう材中の Si 粒子径が小さいものほど、ろうの溶融後の全温度域において流動性が良いと報告されている⁷⁾。一方、現在主流の不活性ガス雰囲気ろう付、いわゆるノコロックろう付法による最近の検討では、Si 粒子径の流動性への影響が明確に認められるのは、ろうの溶融～590℃ までの低温度領域であることが報告されている^{8,9)}。ろうが流動するプロセスでは溶融と溶解、溶融ろうの心材への浸透、心材への Si の拡散が同時に進行しており、ろう材の各部では流動によって Si 濃度が変化し、残留固相による流動抵抗も刻々と変化している。それら個々の現象と Si 粒子径との関係は温度因子を含めると非常に複雑であるが、精密なろう付を実施するには Si 粒子径の影響解明と組織制御が必要になる。

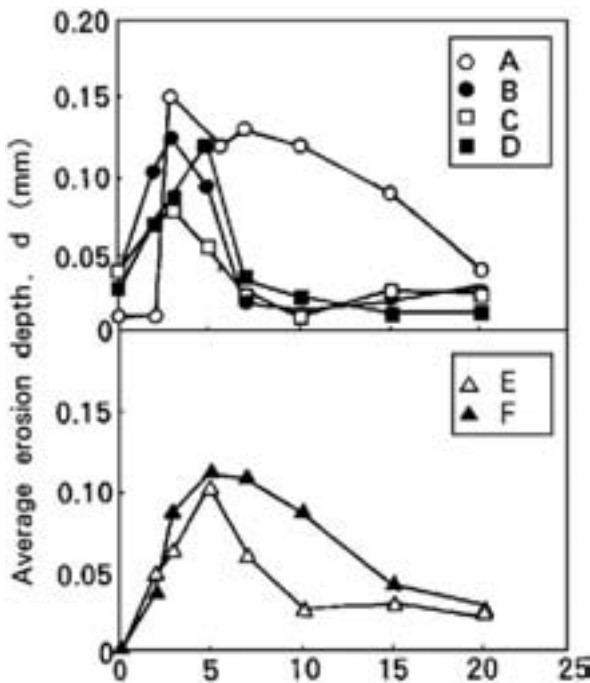


Fig. 14 Relation between cold reduction before brazing and average erosion depth.⁵⁾

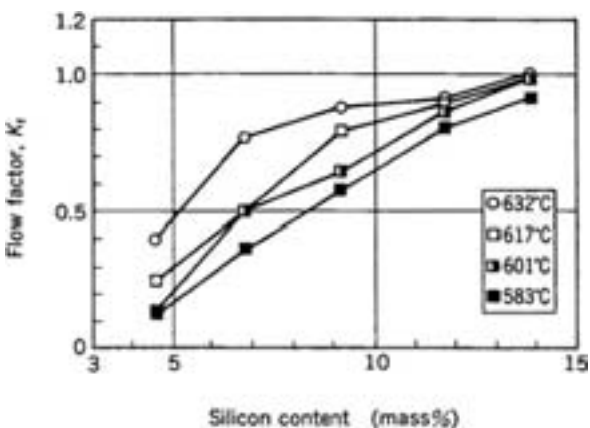


Fig. 15 Effect of Si content in filler metal on K_f .⁶⁾

5. 疲労耐久性

疲労耐久性向上のために、熱交換器を構成する各部材の引張強さ向上が追及されている。ここでは、クラッド材特有のろう付加熱中の成分元素の拡散を利用した強度向上、並びに、疲労寿命におよぼすろう材面の性状について述べる。

5.1 ろう付中の元素拡散による強度向上

Fig. 18¹⁰⁾ に示す通り、アルミニウムの疲労強度は引張強さにともない高まることが示されている。これを根拠に熱交換器の疲労耐久性向上のため、各部材の強度向

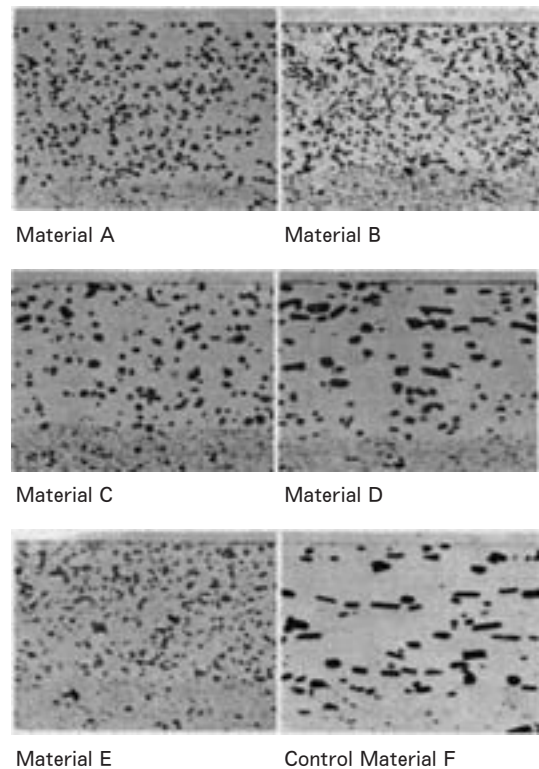


Fig. 16 Brazing alloy cladding structures⁷⁾

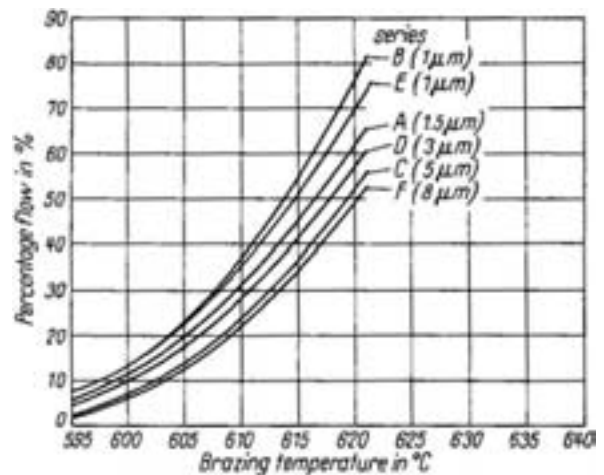


Fig. 17 Flow over a range of silicon particle sizes⁷⁾

上が追及されてきた。

例えば、ラジエータチューブの場合、3N03のように3003に対して高濃度のSiやCuを添加することにより高強度化が図られてきた。さらに、Fig. 19¹¹⁾に示す通り、チューブ内面にクラッドされた防食層である内皮にMgを添加し、Fig. 20¹¹⁾に示すようにろう付加熱を利用してMgを心材に拡散させた後に急冷し、室温時効によりMg₂Siを微細析出させる時効析出強化も利用されている。これにより、Fig. 19¹¹⁾に示す通り、チューブ材の引張強さは従来の3003の110MPa程度から200MPa近くまで飛躍的に向上した。なお、心材にMgを直接添加しないのは、Mgがろう付加熱中にろう材に拡散してろう付性を阻害するためである。

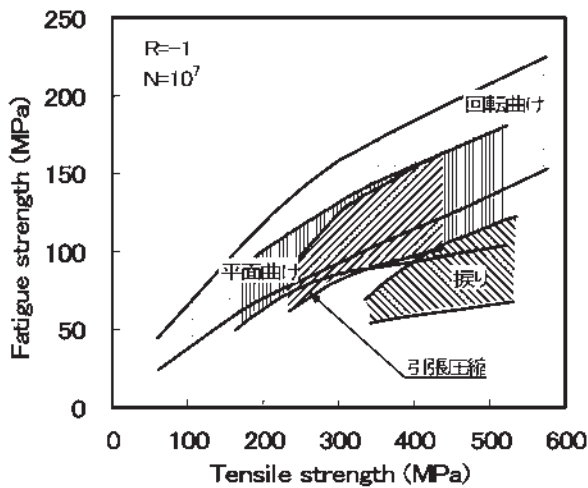


Fig. 18 Relationship between fatigue strength and tensile strength¹⁰⁾

5.2 疲労寿命におよぼす表面性状の影響

ブレイジングシートのろう材層は、ろう付中に熔融・凝固するため、ろう付後の金属組織は、不均一な凝固組織になっている。この場合、展伸材の均一な組織に比べて、粗大な第二層粒子が疲労亀裂の起点となり、疲労寿命の低下を招く場合がある。

Fig. 21¹²⁾に、ベア材とブレイジングシートの屈曲曲げ疲労試験結果を示す。ブレイジングシートには、ろう付条件を変化させることにより、第二相粒子である共晶Siの量を制御したものが用いられている。ベア材の疲労寿命が最も長く、第二層粒子である共晶Siの少ない長時間加熱、共晶Siの多い短時間加熱の順に疲労寿命が短くなっている。

また、集合組織の制御による疲労寿命向上も試みられ

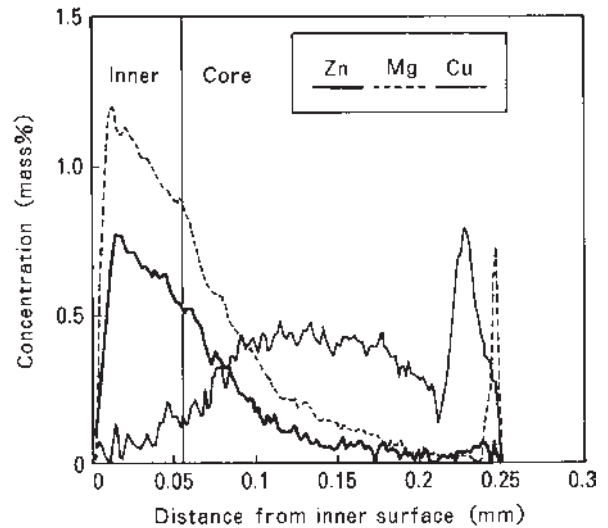


Fig. 20 Results of EPMA line analysis of cross section after brazing

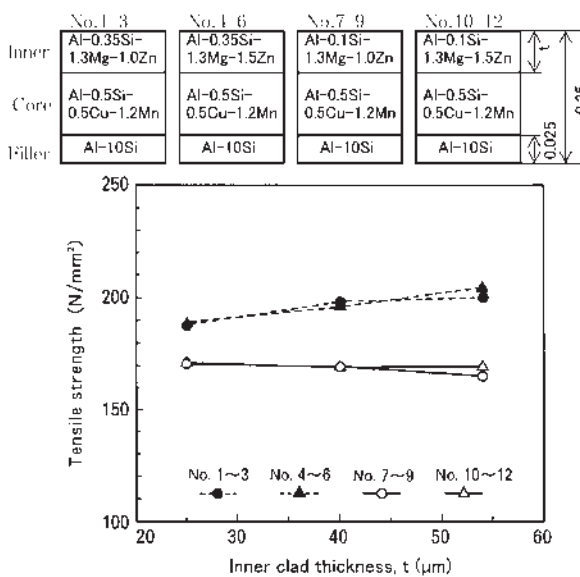


Fig. 19 Relationship between tensile strength after brazing and inner clad thickness

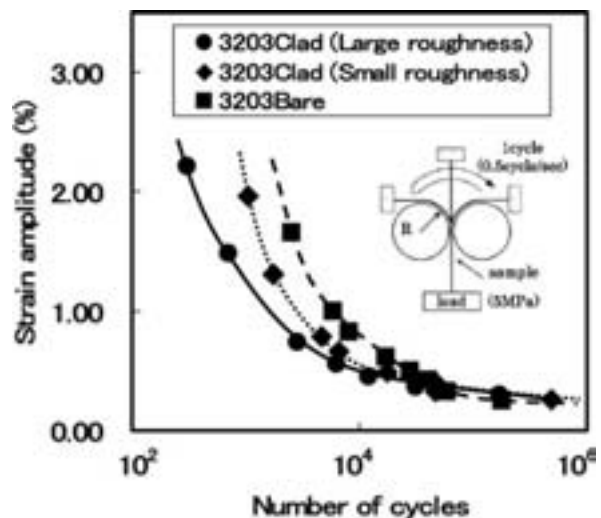


Fig. 21 Influence of surface property on number of cycles to failure
Bending Angle : 90°, Frequency : 1 Hz

ており、Cube 方位の面積率を 10% 以上にするのが疲労特性向上に有効であると示されている¹³⁾。

6. 耐 食 性

自動車熱交材料の最大の腐食問題はチューブなどの孔食による漏洩であり、孔食を効果的に抑制するためには主に犠牲陽極作用による陰極防食が用いられてきた¹⁴⁾。長期間の寿命を得るためには、各部（チューブ、フィン、犠牲陽極皮材など）の電位バランスが適切な値となるような各構成合金部材の組み合わせを設計をすることが第一に重要である。

一方、合金設計をするに当たっては、材料組織の観点からの耐食性に関する種々の着目すべき検討がなされている。粒界腐食については熱交換器の寿命を損なう場合があり、多数の検討が行われている。逆に Ti 添加により積極的に層状腐食を起こすことで孔食を抑制する技術も開発されている。以下、特にろう付を前提とした自動車熱交換器の組織と耐食性に関する技術を述べる。

6.1 ろう付後の組織と粒界腐食

自動車用熱交換器には、強度とろう付性の観点から

Al-Mn 系合金が多用される。Al-Mn 系合金は分散第 2 相の Al_6Mn とマトリックスの電位差が小さいため、一般に耐食性に優れ、粒界腐食感受性も少ないとされている。しかし熱交換器用の合金では、ろう付時の冷却速度の影響や Mn 以外の微量添加元素の影響により粒界腐食が問題となる場合がある。

Fig. 22¹⁵⁾ に、Al-1.2%Mn-0.5%Fe-0.15%Si 合金を、ろう付相当の 600°C で加熱後、冷却速度を調整した供試材について、0.1N NaCl 水溶液中でアノード電解試験を行った結果を示す。冷却速度が遅い場合には粒界腐食の発生が顕著となることがわかる。冷却速度が遅い場合、冷却中に粒界に優先して Al_6Mn 、 $Al_6(MnFe)$ と α Al(Mn, Fe)Si 化合物が析出することに起因すると考えられる。

粒界への Mn 系化合物の析出が粒界腐食を起こすメカニズムを検討するため、Al-1.2Mn-0.4Fe を、400°C、20h 加熱し、Mn 系化合物の粒界析出を促進させた供試材についての粒界近傍の TEM 像および Mn 量の測定結果を Fig. 23、および Fig. 24¹⁶⁾ に示す。Mn 量は粒界近傍で著しく低くなっており、粒界からの距離と共に高くなることからわかる。Mn の濃度差により粒界近傍の孔

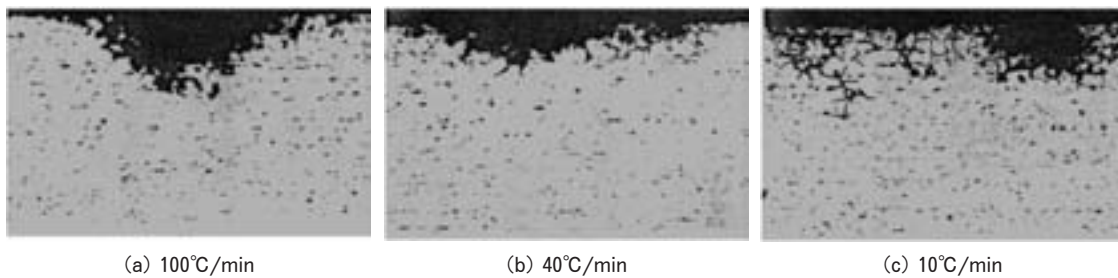


Fig. 22 Micrographs of Al-1.2%Mn-0.5%Fe-0.15%Si alloy heated at 600°C for 1 hr showing effect of cooling rate on intergranular corrosion ($\times 100$).

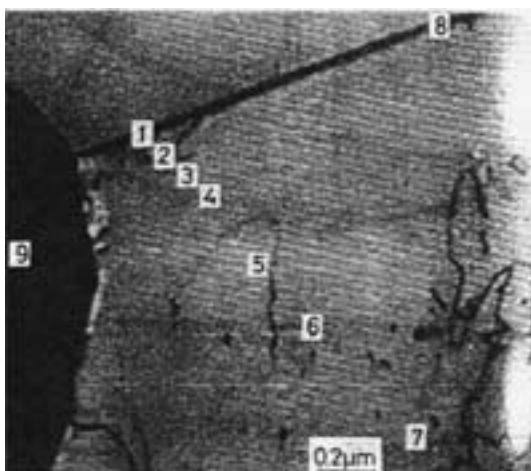


Fig. 23 Microstructure around grain boundary on Al-1.2%Mn alloy after reheating.
1, 8 : grain boundary
9 : Al-Mn-Fe compound

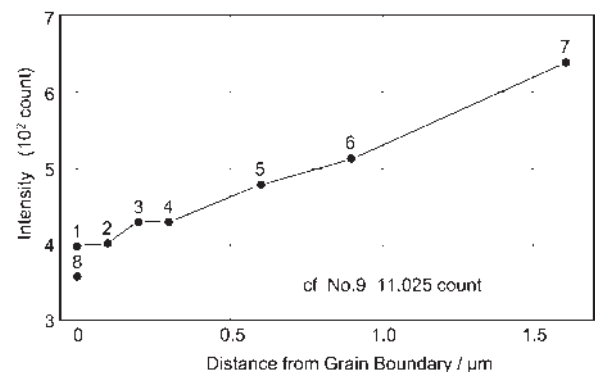


Fig. 24 Variation of Mn content in solid solution with the distance from grain boundary shown in Fig. 23.

食電位が卑になることで粒界腐食が発生すると考えられる。

Mn 以外の微量添加元素の影響として、Al-1.2%Mn 合金への Cu 添加量と 600°C 加熱後の冷却速度を変化させた場合の粒界腐食感受性を調査した結果を、Table 1¹⁷⁾ に示す。Cu 添加量が増加すると同一の冷却速度において粒界腐食感受性が増加することがわかる。熱交換器ではろう付性の観点から Al-Mn 系合金が多用されるが、強度や電位の調整のため、Cu などその他の微量添加元素が添加される場合も多く、ろう付加熱による組織変化を踏まえた上で粒界腐食感受性の変化にも着目すべきである。

6.2 Ti の層状分布による孔食の抑制

先に述べたように、自動車用熱交換器の孔食を効果的に抑制するためには犠牲陽極による陰極防食が最適であるが、陰極防食に加えてさらなる寿命の延長、あるいは設計上陰極防食を行わない部材についての耐食性改善として、Ti 添加による耐食性改善が実用化されている。

Al-Mn 合金に微量の Ti を添加すると、包晶反応によって凝固時に Ti の濃度分布が形成され、圧延加工時に Fig. 25¹⁴⁾ のように板厚方向に層状の分布となる。Ti は拡散係数が小さいためろう付加熱を経ても加熱前の Ti の濃度分布が維持される。Ti 固溶量と孔食電位は Fig. 26 のような関係が有り、腐食環境で Ti 濃度が低く孔食電位が卑な部分が優先的に腐食し、Fig. 27¹⁸⁾ のような層状腐食を生じる。

Fig. 28¹⁹⁾ に Ti 添加量を変えた Al-Mn-Mg-Si-Cu 合金の浸漬試験後の腐食深さの推移を示す。Ti 添加した材料は、横方向の層状腐食が進行することで板厚方向の孔食が抑制され、腐食深さが浅くなることわかる。

6.3 金属間化合物の分散によるアルカリ腐食の抑制

ラジエータの冷却水にはエチレングリコールおよび腐食抑制剤を添加した中性から弱アルカリ性の LLC (ロ

ングライフクーラント) が使用されており、基本的には冷却水の腐食抑制剤により防食されている。ラジエータのチューブ材には 3 層のブレイジングシートが多用されており、その場合、冷却水が接する内面には、孔食の抑制のため犠牲陽極材として Al-Zn 系合金の内皮がクラッドされ、LLC の腐食抑制剤の作用が不十分になった場合にも直ちに漏えいが起きないような対処がなされている。しかし、まれに弱アルカリ環境で犠牲陽極が有効に作用せず、短期間で深い孔食が発生することが報告された。弱アルカリ環境における孔食に関しては、金属間化

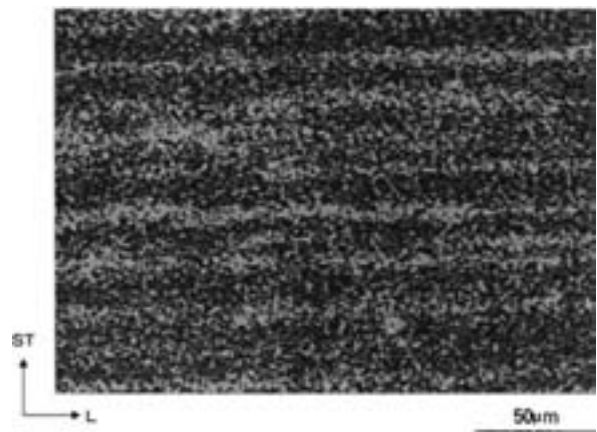


Fig. 25 Result of EPMA mapping analysis for Ti K_{α} signal on the cross section of Al-1.2Mn-0.2Ti core alloy of brazing sheet.

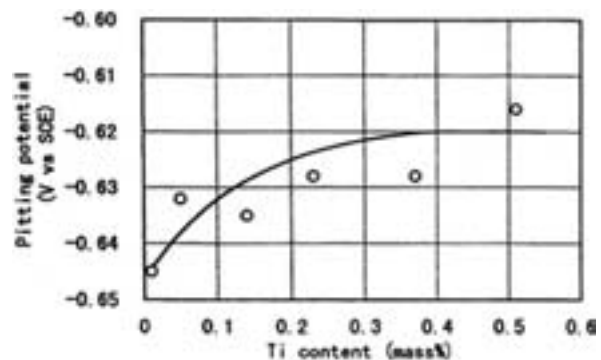


Fig. 26 Relation between the pitting potential and Ti content on rapid solidified Al-1.1Mn-0.6Si-0.3Cu alloy 3 mass% NaCl aqueous solution (deaerated, pH3)²²⁾.

Table 1 The influence of cooling rate on intergranular corrosion of Al-1.2Mn alloy

Cu	cooling rate (°C/min)					
	WQ	250	100	40	25	10
0	○	○	○	○	◐	●
0.05	○	○	○	○	◐	●
0.1	○	○	○	◐	●	●
0.3	○	○	◐	●	●	●
0.5	○	◐	●	●	●	●

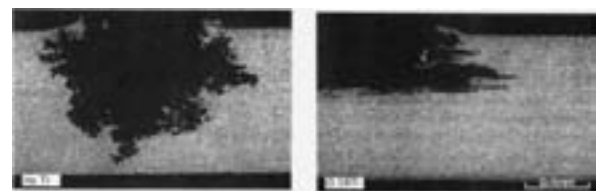


Fig. 27 Cross section of corrosion pit of Al-1.1%Mn-1%Mg-0.6%Si-0.5%Cu alloy sheet after SWAAT (336h).

合物がカソードとなり、その周囲が強アルカリ化して溶解する特異な孔食であり、一般的な塩化物による孔食のような陰極防食による対策では抑制できないことが明らかにされた²⁰⁾。

このような弱アルカリ環境での孔食に対して、材料組織面からの対策としてカソードとなる金属間化合物を多数分散させ、局部カソードへの電流集中を抑制し孔食を抑制する方法が有効であることが確認された。ラジエータチューブの内皮に 7072 および 7072 に Fe および Ni を添加した Table 2 に示す供試材について、pH10 の不凍液中で浸漬試験を行った後の腐食断面および腐食深さを Fig. 29 および Fig. 30²¹⁾ に示す。内皮が 7072 の場合、犠牲陽極効果が作用せずに深い孔食を生じたが、7072 に Fe または Ni を添加した場合、カソードが分散されることで深い孔食の成長が抑制された。

6.4 Zn 拡散による防食

コンデンサーの押出多穴管などの表面に Zn を溶射した後、ろう付加熱により Zn を拡散させると Zn 拡散層が形成され、犠牲陽極として作用し孔食を抑制する。

良好な防食効果を得るためには、形成する Zn 拡散層を適切に制御するために Zn 溶射時の Zn 付着量、およ

びろう付加熱条件の最適化が必要である。亜鉛溶射した材料単体としての亜鉛拡散層の深さおよび表面亜鉛濃度と耐食性の関係を Fig. 31¹⁴⁾ に示す。ただし、コンデン

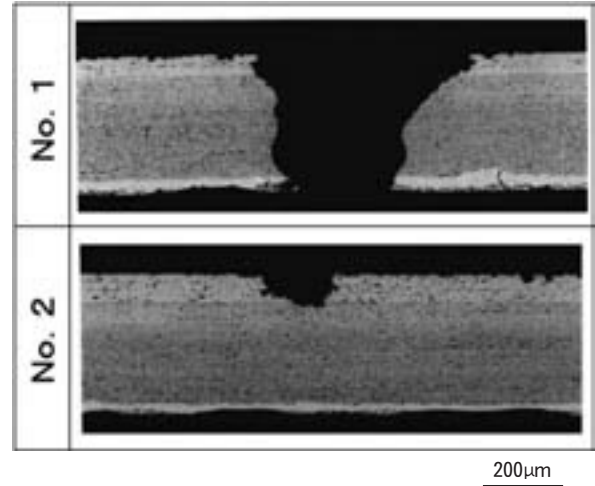


Fig. 29 Cross section after 2688h immersion in pH10-30vol% coolant solution (See Table 2 for the specimens)

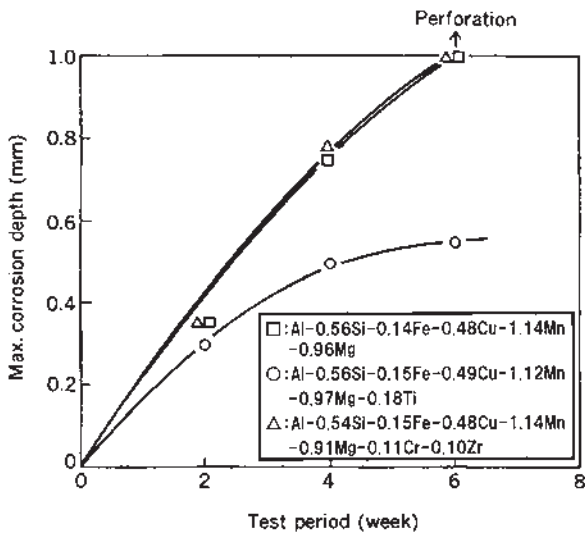


Fig. 28 Maximum corrosion depth after alternate immersion test.

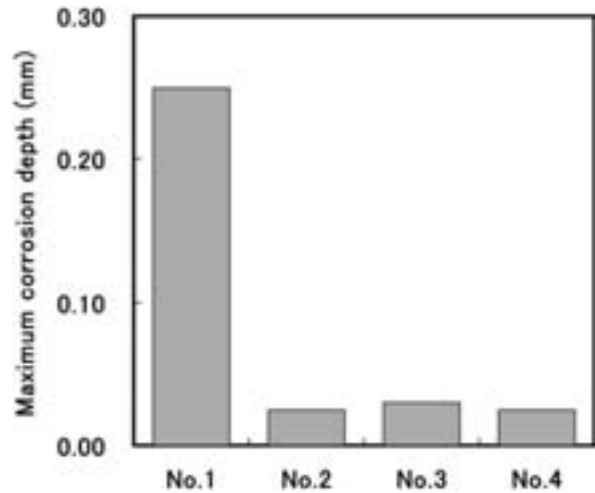


Fig. 30 Maximum corrosion depth after 2688h immersion in pH10-30vol% coolant solution (See Table 2 for the specimens)

Table 2 Alloys and structure of the specimens for the immersion test

No.	Inner anode (test side)		Core	Filler		Total Thickness (mm)
	Alloy	Thickness (mm)		Alloy	Thickness (mm)	
1	A7072	0.040	A3003	A4045	0.025	0.25
2	A7072+1.0Fe	0.040	A3003	A4045	0.025	
3	A7072+1.0Ni	0.040	A3003	A4045	0.025	
4	A7072+1.0Fe-0.5Ni	0.040	A3003	A4045	0.025	

サーなどの実際の熱交換器では、チューブ単体での Zn 拡散層の状態とともに、チューブ、ろう付フィレット及びフィンの相互の電位関係も重要であり、これらの電位関係が不適切な場合にはフィンの剥落が生じる場合がある。したがって実際の熱交換器においては Zn の付着量やろう付加熱条件は、熱交換器全体の電位バランスを考慮して決定する必要がある。

6.5 耐食性におよぼす製造方法の影響

自動車用熱交換器のフィン材は、高強度、高電導性が求められる。このような要求に対して最近では双ロールキャストなどの連続鋳造法 (Continuous casting, CC) が適用されつつある。CC では凝固速度が極めて大きいため、化合物の分散状態や組成が従来の DC 鋳造と比べて大きく異なり、機械的性質や導電性の向上が可能となる²²⁾。

このような CC と DC の凝固速度の違いによる組織の差は、耐食性にも影響を及ぼす。Fig. 32 および Fig. 33²³⁾ に鋳造時の凝固速度を変えて作成した薄板 (0.06mm, H14) の腐食試験 (SWAAT) 時の腐食減量を示す。CC 相当の高い冷却速度である H 材は、冷却速度が低い場合 (M 材, L 材) と比較して重量減が増加した。この原因は、冷却速度が高い場合には化合物の組成が変化することと微細に分散することでカソード反応が増加したためと考えられている。

7. おわりに

過去20年間、自動車熱交換器部材の薄肉化は大きく進展し、チューブ材厚さは 0.20mm、フィン材厚さは 0.05mm にまで到達した。しかしながら、従来取り組まれてきた多層のブレイジングシートの改良と不活性雰囲気ろう付の組み合わせによる薄肉化は限界に近づいている。

今後、薄肉化をさらに進展させるには、材料強度、ろう付性、疲労耐久性、耐食性など、全ての特性をバランス良く向上させる必要がある。材料強度とろう付性の向上に対しては、缶材などで利用されている集合組織の制御が有望である。疲労耐久性に対しては、ろう材面の表面性状の改良と共に、継手のフィレット形状に影響をおよぼすろうの流動の制御も有効であろう。また、耐食性に対しては、薄い犠牲陽極層でも防食を可能にするために、ブレイジングシートの各層の腐食速度を低減する金属組織の制御が求められる。

その他、ろう付に代わる新たな接合方法の開発、耐孔食性に優れた塗装・表面処理の開発、高耐久防錆剤の開発なども期待されることである。

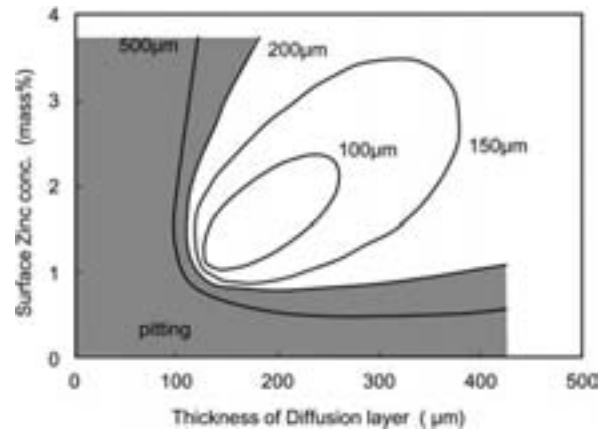


Fig. 31 Mapping of maximum corrosion depth after 4 months AIT (alternative immersion test) in terms of surface Zn concentration and the thickness of diffusion layer¹³⁾. (Pitting was observed in hatched area. See Table 4 for the testing condition.)

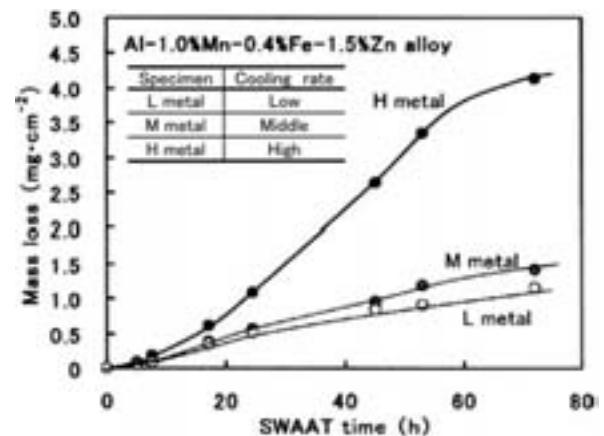


Fig. 32 Effect of cooling rate during solidification on the corrosion rate for Al-1.0mass%Mn-0.4mass%Fe-1.5mass%Zn alloy.

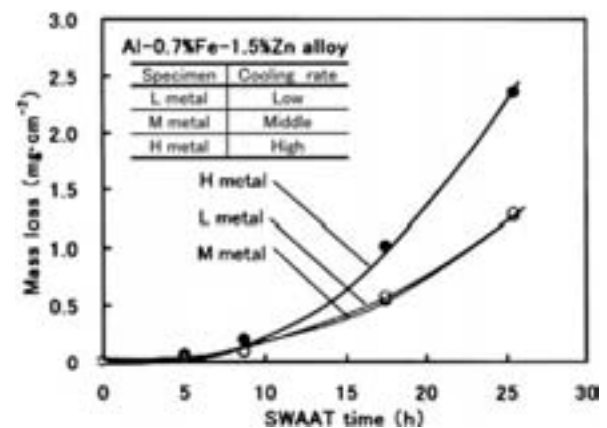


Fig. 33 Effect of cooling rate during solidification on the corrosion rate for Al-0.7mass%Fe-1.5mass%Zn alloy.

参 考 文 献

- 1) 池田 洋：住友軽金属技報, **41** (2000), 134.
- 2) 永田公二：軽金属, **55** (2005), 515.
- 3) 田部善一, 馬場義雄, 宇野照生, 萩原理樹：住友軽金属技報, **27** (1986), 1
- 4) Nikoljas Bredzs, Harry Schwartzbart : Weld. J., **38** (1959), 305s.
- 5) 山内重徳, 加藤健志：軽金属, **41** (1991), 238.
- 6) 前田興一, 伊藤泰永, 難波圭三：住友軽金属技報, **35** (1994), 57.
- 7) R. A. Woods : Aluminium,(1978), 444.
- 8) 土公武宜, 柳川 裕, 田中 哲：Furukawa-Sky Review, **1** (2005), 27.
- 9) 田中寿和, 田中宏和：第 124 回軽金属学会講演概要, (2013), 7.
- 10) 竹内勝治：アルミニウム合金の疲労強度, 軽金属溶接構造協会, (1990), 59.
- 11) 加藤健二, 池田 洋：住友軽金属技報, **37** (1996), 112.
- 12) 尾崎良太：第 122 回軽金属学会講演概要, (2012), 297.
- 13) 田村栄一, 松本克史：日本国特許 開 2010-168632, (2010).
- 14) 池田 洋：住友軽金属技報, **41** (2000), 134.
- 15) 海部昌治, 藤本日出男：軽金属, **32** (1982), 135.
- 16) 当摩 建：日本金属学会誌, **46** (1982), 973
- 17) 海部昌治, 藤本日出男, 竹本政男：第 58 回軽金属学会講演概要, (1980), 137.
- 18) Shigenori Yamauchi, Yoshifusa Shoji, Kenji Kato, Yuji Suzuki, Keizo Takeuchi, Yasuaki Isobe : SUMITOMO LIGHT METAL TECHNICAL REPORTS, **34** (1993), 140.
- 19) 正路美房, 山内重徳：住友軽金属技報, **31** (1990), 99.
- 20) 田中宏和, 池田 洋：第 92 回軽金属学会講演概要, (1997), 317
- 21) 田中宏和, 池田 洋：第 97 回軽金属学会講演概要, (1999), 123
- 22) Go Kimura, Akira Kawahara, Akio Niikura, Takeyoshi Doko, Takahiro Shinoda, Jonggag Kim, Dinos Mantis : Furukawa-Sky Review No. 4 (2008), 50
- 23) 吉野路英, 江戸正和, 黒田 周：軽金属, **61** (2011), 396.

接合における組織制御

熊谷正樹*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 235-242

Microstructural Control in Joining

Masaki Kumagai

Microstructural control in the joint of aluminum alloys is important for the weight reduction of vehicles. Improvement of an arc-welded joint properties of aluminum alloys was done by grain refining of the weld metal by the addition of a slight amount of Zr or Ti. Microfissures of 6000 and 7000 series alloys were improved by welding condition with a low heat input and using an extrusion with small grains. The joint strength of the 7000 series alloys recovers as the base metal by natural aging even after welding. Friction stir welding is an effective method for producing stable and sound joints due to only being a solid solution process. We developed a thermo-joining process without weak heat affected zone for tailored blanks by FSW and reversion. A dissimilar joint interface between aluminum and steel with no brittle intermetallic compound was achieved by welding with a low heat input.

1. ま え が き

1960年代から1970年代にかけて、アルミニウム合金の需要の増加に伴い溶接用材料開発が進んだ。当時の各種アルミニウム合金の不活性ガスアーク溶接性に関する先駆者の研究成果は、今でも広く利用されている。当初はAl-Mg合金が強度と耐食性で船舶などの溶接構造物に多く用いられていたが、アーク溶接後に自然時効で継手強度が戻る7000系合金の溶接性を改善して構造物に用いる研究開発が盛んに行われた。鉄道車両には押出性の良い6000系合金が用いられ、ミグ溶接により軽量で剛性の高い構体の生産が行われている。最近では、固相接合である摩擦攪拌接合(FSW)で歪みの少ない鉄道車両や橋梁床版が生産されている。

軽量化のニーズが高まり自動車にもアルミニウム合金が多用される様になり、鋼板と同様に抵抗スポット溶接が適用されたが、銅電極と母材の共晶融解により電極寿命が問題となった。最近では、固相接合の摩擦攪拌点接合(FSSW)、セルフピアシングリベット、フロードリルスクリー等により自動車車体の組立が行われている。

電池、容器類、熱交換機、IT部品などにもアルミニウムが広範囲に利用され、レーザ溶接、超音波接合、ろう付、電磁圧接、機械的接合、接着など各種接合法が適

材適所に使われている。それぞれの継手の性能は母材の組織の影響を受けると同時に、入熱や加工履歴により連続的に変わる組織が継手の性能を左右するため、その研究とデータの構築が重要である。

2. 不活性ガスアーク溶接性に優れた材料開発

溶接構造用アルミニウム合金の不活性ガスアーク溶接継手の金属組織はFig. 1のように総括される¹⁾。アルミニウムの合金成分としてCu, Mg, Znなどを添加すると母材強度が上昇するが、組成によっては凝固冷却時に固液共存温度範囲が広く、凝固収縮時に溶接割れを生じやすい。母材の溶接性は、材料自体の高温割れ感受性により決定付けられ、本質的には鋳物と同様、合金の組成が大きく影響する。結晶粒界は共晶成分の偏析のためマトリックスより融点が低く、入熱によりこの部分で優先的に局部溶融を生じたものが共晶融解である。共晶融解のセル部分に溶接部の熱膨張とその後の収縮に伴う熱応力、あるいは外部からの拘束力が負荷されるとCavityを生じ、微小割れになる。

溶接割れの機構に関して一般的なものが、J. C. BorlandによるGeneralized theoryである。その総括をFig. 2²⁻⁵⁾に示す。Stage 1からStage 2にかけて局部溶融と全体の熱膨張および熱変形が生じ、これがStage

* 研究開発センター、工学博士

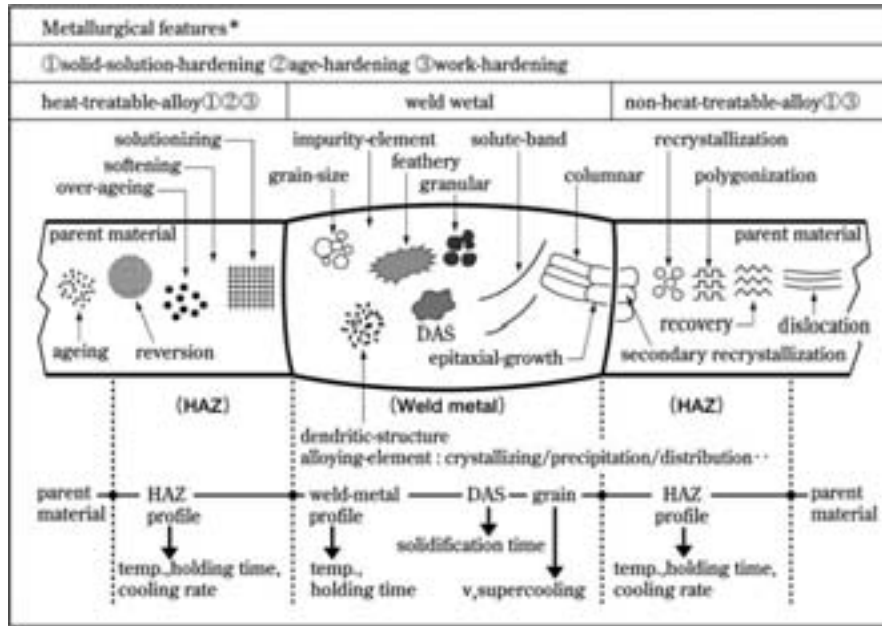


Fig. 1 Microstructure morphology of butt joint by inert gas arc welding for aluminum alloys.¹⁾

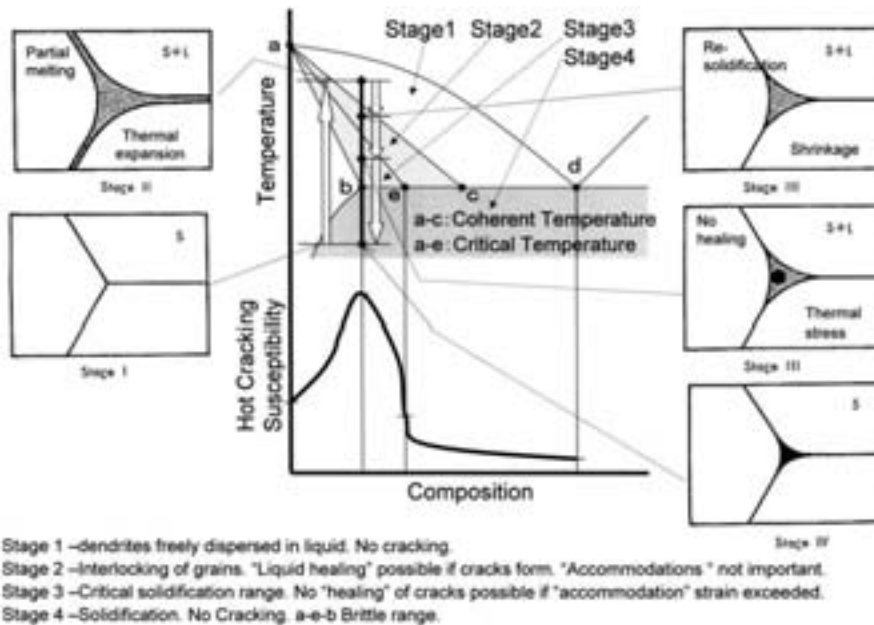


Fig. 2 Influence elements of crack sensitivity on binary phase diagram.⁵⁾

3を経て Stage 4 に至る過程で凝固がほぼ完了し一部粒界で共晶組成や低融点化合物などの液相がフィルム状に存在する。メタルの充填が不十分であると収縮孔が形成される。フィルム状の液相は主として急冷凝固により非平衡的に形成される共晶組成であるが、主として Al_3Mg_2 (Al-Mg 系), Mg_2Si (Al-Mg-Si 系), Al_2Cu および S 化合物 (Al-Cu 系), Zn_2Mg および T 相 (Al-Zn-Mg 系) および Al_3Fe (全般) などである。従って、状態図における液相線温度と固相線温度間の凝固範囲が問題となるので、母材や溶加材または両者によって生成される溶接金属の組成の影響が大きく、溶接方法や

条件は継手品質を決める二次的な要因となる。

合金成分による熱間割れ感受性につき総括すると Fig. 3⁶⁾ のように示される。割れの傾向は、アルミと共晶をつくる成分の増加とともに激しくなり、それ以上成分が増加すると減少する。各種アルミニウム合金の溶接割れにおよぼす Zr および Ti 添加の影響を Fish-bone cracking test で調べた結果を Fig. 4⁴⁾ に示す。各合金は Zr を 0.2~0.3% 添加することにより著しく割れ感受性が小さくなり、Al-5%Zn-2%Mg 合金は Ti を 0.2% 添加することにより割れ感受性が小さくなる。

2.1 非熱処理合金

非熱処理合金の加工硬化材は溶接によりほぼ軟質材程度まで継手強度が低下し、溶接時の入熱（最高到達温度や保持時間）の増加とともに熱影響部（HAZ；Heat Affected Zone）の幅が増加する。Mg を主要成分とする5000系合金は、溶接割れ感受性の高いMg量が1%前後のものは実用合金では少なく、共材の溶加材で比較的容易にアーク溶接が可能である。但し、溶接熱により熱影響部の粒界のβ（Al₃Mg₂）相の晶出量が増えたり、

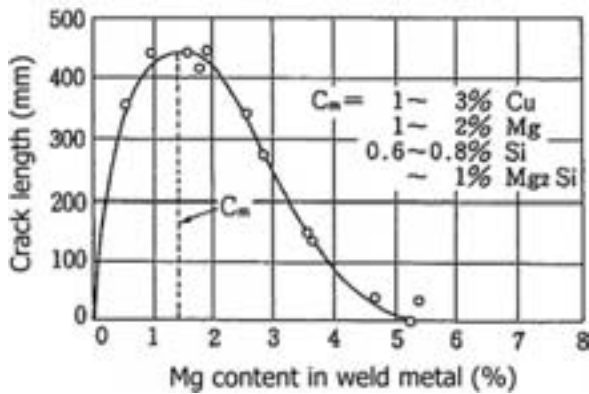


Fig. 3 Tendency of welding crack sensitivity of binary aluminum alloys.⁶⁾

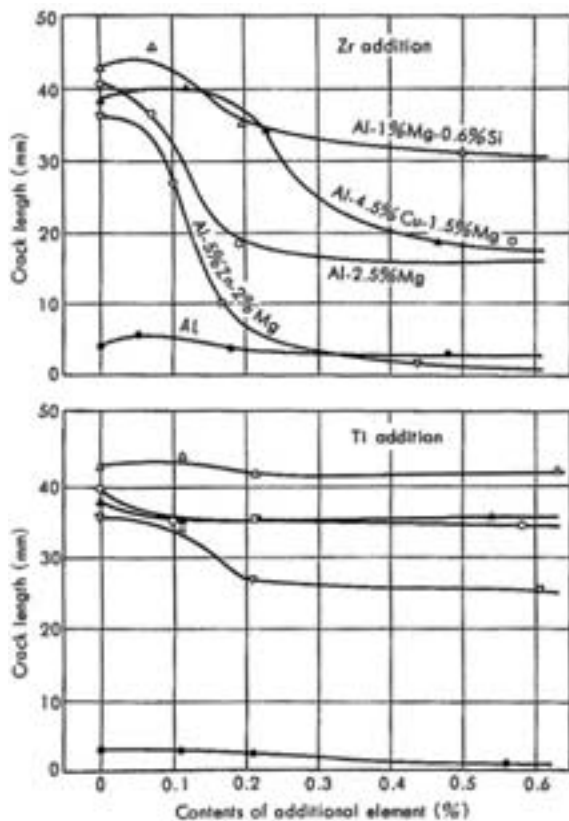


Fig. 4 Relation between crack length of fish-bone test and Zr and Ti content in various series aluminum alloys.⁴⁾

Mg 濃度の高い領域が生じることがあり、その部分では応力腐食割れ感受性が增大するため、注意が必要である。

2.2 6000系合金

6000系合金はMgおよびSi量によっては溶接割れを生じやすく、溶接金属を割れが生じにくい組成にするため4000系あるいは5000系合金の溶加材を用いるのが一般的である。

熱影響部の割れ感受性に及ぼすMgとSi量と結晶組織の影響の調査結果が報告されている⁷⁾。Fig. 5に種々の合金成分の6000系合金の母材を用いてパッチ溶接割れ試験を行ない熱影響部の割れの程度を比較した結果を示す。MgとSiの割合がMg₂Si線上に近い成分の割れ感受性は低く、過剰Siになるほど熱影響部の割れ感受性は高くなる傾向を示す。母材の結晶粒を微細化することにより、溶接金属近傍の母材熱影響部の結晶粒界の微小割れ（マイクロフィッシャー）が抑制される。

2.3 7000系合金

Al-Zn-Mg系合金は他の熱処理型合金に比べて固溶体範囲が広く、溶体化が容易で、焼入れ感受性が鈍く、室温で時効硬化が進んで高強度が得られるなどの優れた特性がある。但し、粒界に低融点の共晶を生じやすいため溶接割れ感受性の高い成分であり、溶加材や溶接条件の選定が重要である。Fig. 6にAl-Zn-Mg合金の成分とリング溶接割れ試験の割れ長さの関係を示す⁸⁾。Zn量が7%かつMg量が1%のものが最も割れ感受性が高い。割れ感受性の高い成分でも、母材にZrを0.2%以上添加することにより、溶接金属の結晶粒が微細になり

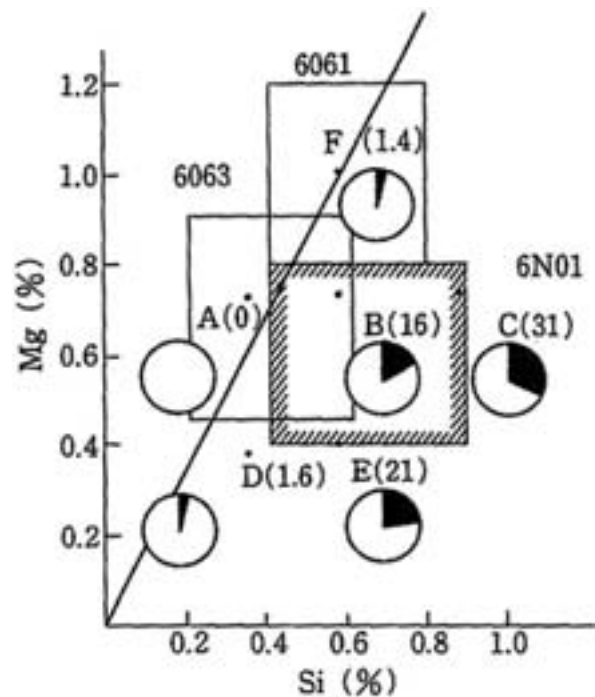


Fig. 5 Penetration test results of HAZ crack of various 6000 series alloys.⁷⁾

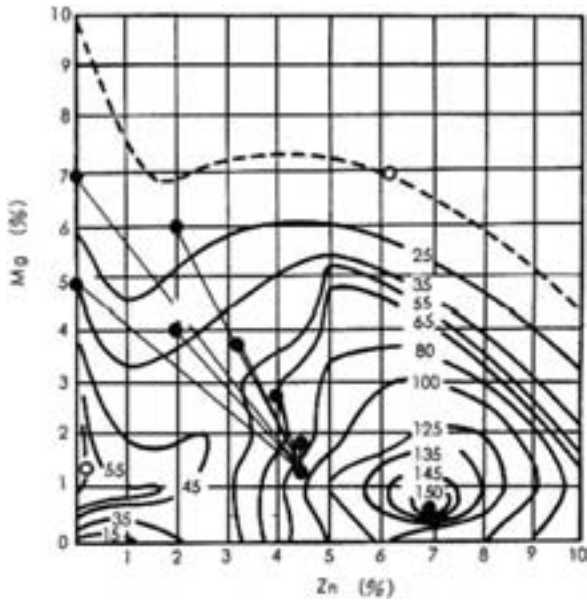


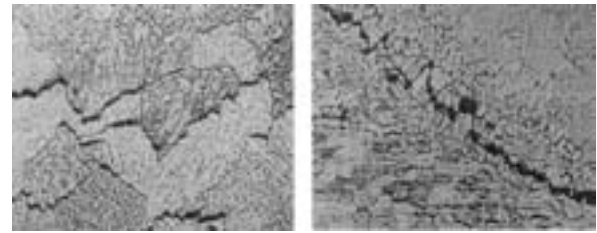
Fig. 6 Relation between crack length of ring welding test and contents of Zn and Mg in Al-Zn-Mg alloys.⁸⁾

大幅に割れが抑制される⁹⁾。また、母材へのTiの添加もMg量の多い溶加材を使用する場合には有効である¹⁰⁾。Al-4.5%Zn-1.5%Mg合金に0.12%Zrおよび0.10%Tiを同時に添加した場合に、溶加材無しの溶接でも割れが大幅に抑制されることが明らかになっている。また、この合金にCuを添加しさらに高強度とすることが可能であるが、溶加材を5356合金に変えることにより、溶接金属のZnおよびCuが希釈混合されて溶接割れが抑制される¹¹⁾。最近では、Sc添加の結晶粒微細化による溶接金属の割れ抑制効果が著しいことが報告されている。

微小割れは、過大な入熱条件で溶接した場合に溶接部近傍の熱影響部の粒界に共晶融解が生じ、また多層溶接で層間温度が高い場合に先行層の粒界が溶融する割れである。Fig. 7にAl-Zn-Mg合金の多層溶接材に見られる典型的な微小割れを示す¹²⁾。母材や先行層に過大な入熱を与えないような溶接条件選定が対策として考えられる。

7000系合金の継手強度は溶接後の自然時効で戻ってくるが、母材がT6やT7の人工時効材の場合よりも時効前のT4の場合の方が強度が高い。これは人工時効材が溶接熱サイクルを受けた際に、熱影響部が過時効組織になるからである。また、Al-Zn-Mg合金の溶接金属のシャルピー衝撃値は、母材のFeおよびSi量の増加とともに低下する¹³⁾。Al-Zn-Mg合金継手について、母材のZnおよびMg量が多いと応力腐食割れが生じやすくなるが、CrおよびZrの添加により緩和される¹²⁾。

7000系合金の継手強度についての詳細な報告¹⁴⁾によると、熱処理型の7000系合金はFig. 8に示すように溶接



(a) Weld metal (b) Weld interface

Fig. 7 Microfissures in multi pass welding joint of Al-4.5%Zn-1.5%Mg alloy.¹²⁾

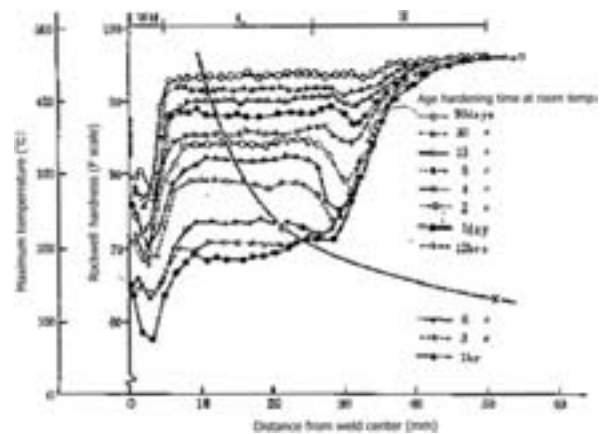


Fig. 8 Hardness distribution in inert gas arc weld of Al-Zn-Mg alloy (7N01).¹⁴⁾

した場合、熱影響部は入熱によって復元から再溶体化域まで一旦軟化するものの、その後、常温時効によって強度が回復して高くなる。溶接時の各析出物の存在形態につき以下の報告¹⁵⁾がある。溶接中の昇温過程では、固溶は急速に起こり、350°C以上で結晶粒内の η (MgZn_2)相、T ($\text{Mg}_3\text{Zn}_3\text{Al}_2$)相等は固溶し、結晶粒界や亜粒界での η 相、T相やその他の析出物等は400°C以上で固溶する。溶接後の冷却過程では、冷却速度が非常に大きいため、 η 相やT相の均一析出も起こりにくく、準安定相も見られる。溶接後の熱影響部の析出状態については、溶接後室温時効させた継手では溶接金属から350°Cに達する温度域では母相中の η 相やT相等は再固溶し、溶接後の室温時効によりG.P.ゾーンを形成する。300°C以下の部位ではT相のみを形成し、更に低温の部位では η' 相の変態により η 相を形成する。溶接後90日間の常温時効で継手の引張強さの回復はほぼ最高域に達する。CrやMnなどの元素は焼入れ性を低下させる傾向が強くなり、徐冷の場合には強度の低下問題を起こすので必要以上にこれら元素を入れてはならない。Agの添加は、 MgZn_2 の中間析出相を微細にする効果があり、添加によって強度が上昇する。

融接で入熱を極力少なくする工法として高エネルギー密度のレーザ溶接が開発され、電池ケースの蓋や端子の接合に用いられている。ケースに使われるアルミニウム

合金は強度や成形性だけでなく、レーザ溶接で異常ビードの出ない安定した深い溶け込みを得る溶接性も重要な要求特性となっており、その改良には合金成分の調整とともに組織制御が有効である。

3. FSW 材の接合熱処理プロセス開発

FSW は、ツールを回転させながら接合部に差し込んで移動させるだけで、摩擦熱により母材に塑性流動を生じさせて一体化させる固相接合法で、融点の低いアルミニウムに適する接合法である。アーク溶接では不可能な、鋳物や急冷凝固粉末合金などの接合も可能である (Fig. 9)。Fig. 9 (a) は ADC12 ダイカスト材同士の FSW 継手の断面であるが、母材に存在する小孔が FSW 時の塑性流動により潰されて消失している。Fig. 9 (b) は急冷凝固粉末合金 (Al-8 Fe-1 V-1 Mo-0.75Zr) の TIG 溶接と FSW の継手断面の比較であるが、TIG 溶接では母材と溶接金属の境界部で化合物が針状に粗大化し強度に寄与しなくなるのに対し、FSW では攪拌部でも化合物が分断されるだけで微細なままであり、母材と同等の継手強度を維持する。航空機用材料として多用されている 7050 合金について、FSW と熱処理のタイミングを考慮

したプロセスが開発されている¹⁶⁾。Table 1 に比較した各接合熱処理プロセスを示す。プロセス A は通常の熱処理合金が溶接構造物に使われる際のプロセスで、時効処理後に FSW を行う。プロセス B は開発プロセスで、FSW 後に時効処理を行うことにより接合部の継手強度の回復をねらう。比較のプロセス C は FSW 後に溶体化処理および時効処理を行う完全強度回復プロセスであるが、溶体化処理温度が高いために接合材に熱歪みによる変形が生じるという欠点がある。また、継手の 500°C 近い加熱により攪拌部の異常な再結晶粒粗大化が生じ、強度および耐食性に問題が生じる恐れがあるため不利である。

7050 合金の厚さ 4 mm の押出材を回転数 800rpm、接合速度 125mm/min で突合せ FSW し、継手の断面組織観察および強度評価をしている。継手効率はいずれの合金も 80% 以上をほぼ満足し、継手の疲労強度は母材と同等であった。7050 合金の継手の硬さ分布を Fig. 10 に示す。プロセス A、B とともに母材熱影響部が軟化した W 型の硬さ分布であり、プロセス C は接合後の溶体化処理と時効処理によって硬さが回復し、比較的均一な硬さ分布となっている。継手の光学顕微鏡組織は、母材が結晶粒径約 100 μ m の加工組織であるのに対し、攪拌部

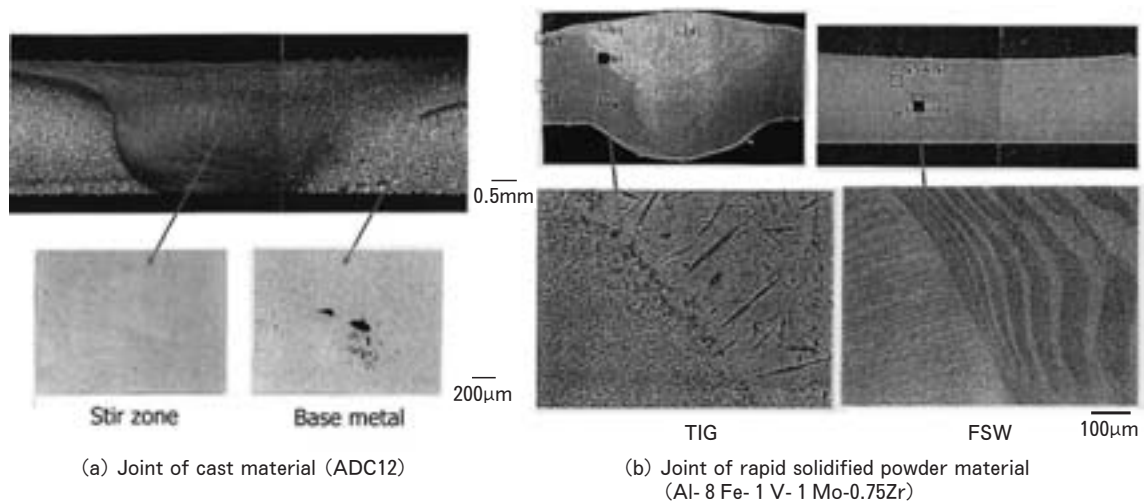


Fig. 9 Advantage of friction stir welding comparing with fusion welding.

Table 1 Base metal and welding condition in various thermo-joining processes.

Alloy	Process	Base metal *		FSW	Post heat treatment after welding
		Temper	Heat treatment		
7050	A	T7451	466°C-90min → WQ → 120°C-6 h → 163°C-27h	Rotation tool speed 800rpm	(Natural aging 1 month)
	B	T451	466°C-90min → WQ		120°C-6 h → 163°C-27h
	C	T7451	466°C-90min → WQ → 120°C-6 h → 163°C-27h	Welding speed 125mm/min	466°C-1.5h → WQ → 120°C-6 h → 163°C-27h

* : all specimens were stretched after solution heat treatment (water quenching).

は5~10 μ mの微細な再結晶粒からなっておりプロセス間で大差はない。Fig. 11は継手の電子顕微鏡組織である。プロセスAでは、攪拌部はFSW時に温度が融点の8割近くまで上がるため溶体化組織になっており、母材は多くの η' (MgZn₂)相が析出した時効組織である。熱影響部は強度に寄与しないくらい粗い析出物と微細な析出物が混在しており、熱影響部の導電率が母材より低いことから、析出物の凝集化と部分再固溶が起こっている。プロセスBでは、攪拌部は母材と同様に時効組織で、熱影響部では母材より導電率が高いことから過時効が生じていると考えられた。Fig. 12はプロセスAおよびBの7050合金継手の応力腐食割れ試験の結果である。プロセスAの継手では、低い応力下で短時間で攪拌部に割れが生じたが、プロセスBでは400MPaという高い応力下でも800時間以上割れが生じなかった。図中に応力腐食割れ試験後のプロセスAの試料の断面組織と破面のSEM像を示す。割れは攪拌部の中の母材と攪拌部の境界近くで生じていた。これは、溶体化された結晶粒界に沿って割れる典型的な応力腐食割れである。これらの結果から、溶体化、FSW、時効のプロセスが有効であることが明らかにされている。

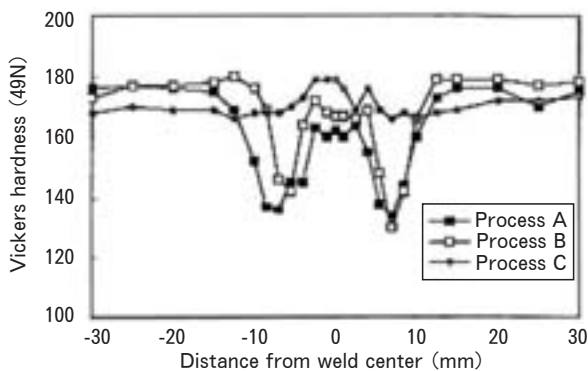


Fig. 10 Hardness distribution of FSWed 7050 joints.

4. テーラードブランクの成形性改善

アルミニウムの非熱処理合金の加工硬化材や熱処理合金の時効硬化材は、溶接入熱により母材熱影響部(HAZ)が軟化し、継手の強度は母材より低下する。特に接合後にプレス成形を行う板材の場合、その成形性に大きな影響を及ぼす。鋼板に盛んに適用されているレーザー溶接では、ポロシティが生じ易く、6000系合金ではフィラーワイヤが必要となるため、この用途の接合にはFSWが適する。ここでは組織制御により、HAZを成形性に問題が無い程度まで改善したテーラードブランクの例を示す¹⁷⁾。

6016-T4の厚さ1mm板同士のFSWにおいて、復元処理の有無による引張試験片外観および継手断面硬さ分布の違いをFig. 13に示す。復元処理なしでは攪拌部と母材の硬さがほぼ同等であるが、HAZで硬さの低下がみられ、引張試験を行うとHAZで破断が生じる。復元処理材は母材で破断が生じ、攪拌部では幅の減少量が小さく、母材で大きく塑性変形したため伸びが大きく改善された。復元処理材の断面硬さ分布をみると、母材の硬さがHAZと同レベルまで低下している。従って、復元処理による延性改善は、母材強度がHAZと同レベルまで低下することで達成される。

Fig. 13にみられた硬さ分布の形成メカニズムは以下のように推察される。FSWの攪拌部は摩擦発熱により500 $^{\circ}$ C前後まで上昇するため、接合前のT4状態で形成されていたGPゾーンやクラスタは分解され、接合後に復元処理を行っても組織変化が生じない。そのため、復元処理後の時効硬化速度は通常の水冷材と同等であり、自然時効によって十分な強度上昇が起こる。一方、FSWで生じたHAZは、接合後の復元処理により復元が2回行われた状態になり、何も起こらないか若干の時効硬化が生じる。さらに、母材はGPゾーンやクラスタが残存しているため、復元処理を行うとHAZと同レベルまで強度低下が起こる。すなわち、攪拌部はT4状態

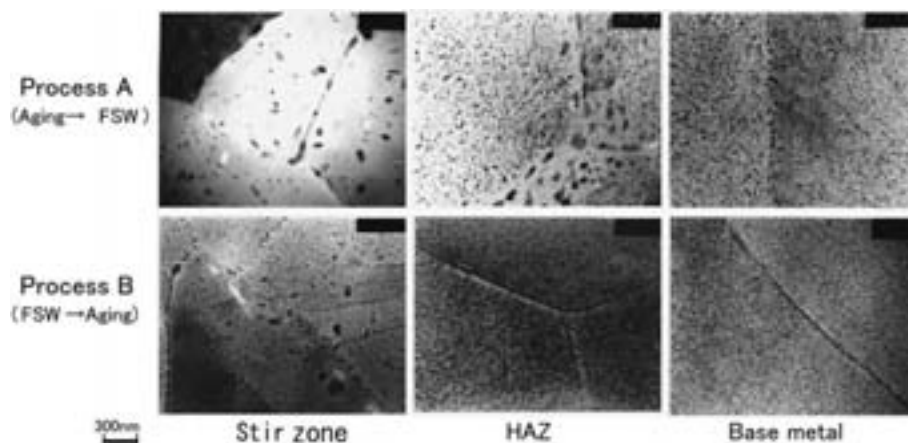


Fig. 11 Microstructure between thermo-joining process.

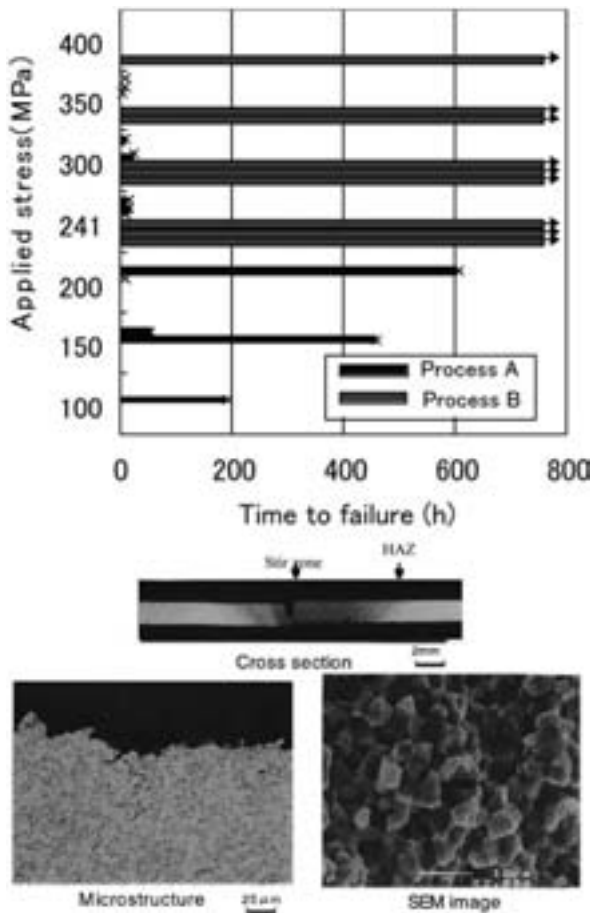


Fig. 12 Stress corrosion cracking properties of FSWed joint.

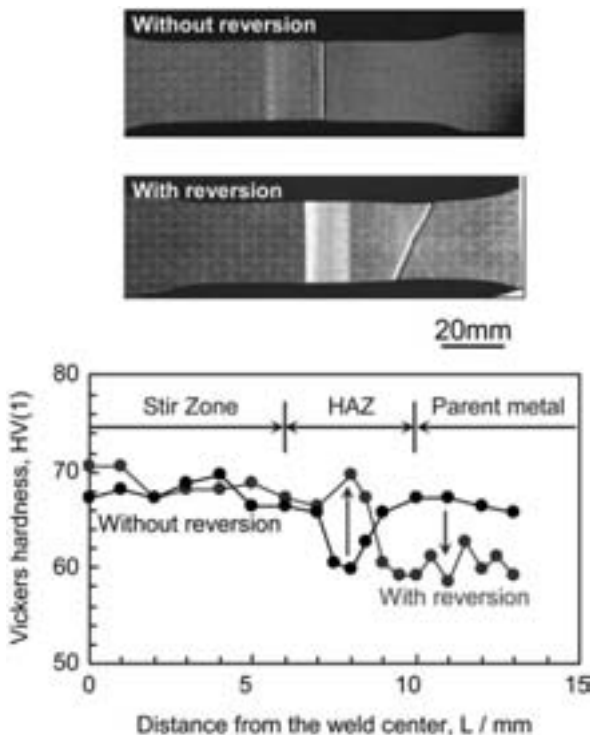


Fig. 13 Change of the hardness profile by reversion heat treatment.

が維持され、HAZ および母材は復元状態になるため、攪拌部で最も硬さが大きく、母材の硬さが HAZ と同レベルに小さくなったと考えられる。

5083 超塑性材の重ね FSW テーラードブランクについても組織制御を伴う研究を行っている。FSW により接合した 2 枚の超塑性材を片側に金型を当接した状態で 500℃ 近傍まで加熱し、板の間に窒素ガスを導入して膨らませて擬似部品形状に超塑性成形している。攪拌部では結晶粒の粗大化が生じ、成形途中で粒界に割れを生じるものがあった。FSW 条件の影響が大きく、ツール回転数が速く、接合速度が遅い方が粗大再結晶は少なかった (Fig. 14)¹⁸⁾。結晶粒粗大化が生じなかったものは、FSW 時の入熱量が多いため再結晶が完了したものと推定される。一方、FSW 時に入熱量が少なかったものは、温間で弱加工が加わった状態となり、熱処理時に結晶粒が粗大化したものと考えられた。FSW 時の母材への入熱量を制御することにより、接合材の超塑性成形性が改善されることが明らかになった。

5. 異種金属の FSSW 界面組織制御

鋼とアルミニウムを通常の融接で行うと界面に脆い金属間化合物が生成し健全な品質の継手を得ることができない。FSSW をアルミニウム合金板と鋼板の異種金属重ね接合に適用することで、界面で脆い金属間化合物の生成が抑制された。6016-T4 の厚さ 1 mm の板と厚さ 0.7mm の軟鋼板の FSSW 継手は、回転工具先端をアルミニウム合金側から界面上 0.1~0.3mm の位置まで差込み、鋼と接触させることなくアルミニウム合金を攪拌することによって十分な強度が得られた。FSSW の継手強度は抵抗スポット溶接よりも高く、常にアルミニウム合金母材で栓抜け破断となる継手を得られた。接合界面には脆い金属間化合物は認められず、酸素を含む厚さ数 nm のアモルファス層が形成されていた (Fig. 15)¹⁹⁾。

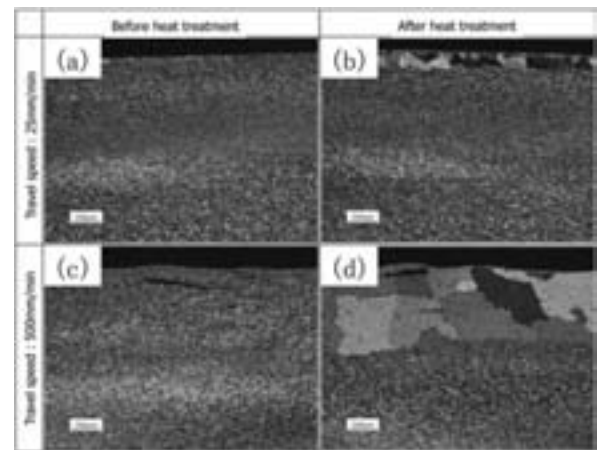


Fig. 14 Microstructure in stir zone of superplastic material.

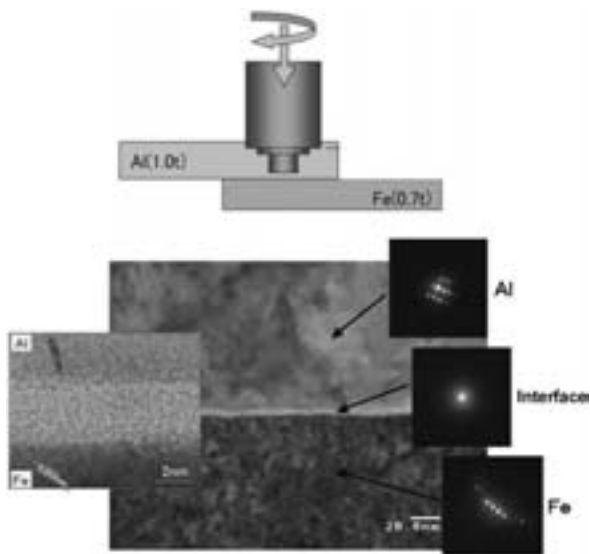


Fig. 15 FSSWed interface between aluminum and steel.

回転数と差込深さを制御することにより、摩擦熱で塑性流動に適する 500°C 近辺まで自動的に温度上昇し短時間で冷却されるため、界面の酸化皮膜や汚れが強い攪拌力で攪拌部に分散され、新生面が現れて拡散接合される。

このように入熱制御による異種金属接合のメカニズムが明らかになったことから、アーク溶接でもアルミニウム合金と亜鉛めっき鋼板の接合を試みた。汎用のアルミニウムの溶接用の溶加材を用いて、上板をアルミニウムにして重ね隅肉溶接が可能となった。界面には μm オーダーの厚さの金属間化合物層が形成されるが、低入熱で溶接を終えることにより、最も脆い Fe_2Al_5 の生成量を少なくし、溶接止端部に応力を集中させた曲げ試験においても剥離破断しない異材継手を得ることができるようになった²⁰⁾。これも接合界面組織制御の一例である。

6. おわりに

アルミニウム合金の接合と組織制御が密接に関係する研究開発事例について紹介した。健全な継手を得るための母材の状態、接合法、接合条件の選定が重要であることは言うまでも無く、金属組織が連続的に変化している接合部の、静的および動的強度、耐食性や成形性などの性能や品質を確保するため、金属組織学的理解とその制御は溶接構造物の製造に欠かすことのできない要素技術である。

参考文献

- 1) 難波圭三：軽金属溶接, 45 (2007), 149.
- 2) 福井利安：本誌, 11 (1970), 139.
- 3) J. C. Borland : British Weld.J., 7 (1960), 508.
- 4) 福井利安：本誌, 9 (1968), 258.
- 5) 福田敏彦：軽金属溶接, 48 (2010), 2.
- 6) 内田 彰：軽金属溶接, 13 (1964), 590.
- 7) Al-Mg-Si 合金押出材の溶接性試験, 軽金属溶接構造協会施工法委員会, (1990).
- 8) 寺井士郎, 馬場義雄：本誌, 10 (1969), 42.
- 9) 杉山禎彦, 馬場義雄：本誌, 6 (1965), 97.
- 10) 杉山禎彦, 福井利安：本誌, 8 (1967), 106.
- 11) 福井利安, 杉山禎彦, 馬場義雄：本誌, 17 (1976), 38.
- 12) 馬場義雄, 萩原理樹, 福井利安, 高島 章：本誌, 13 (1972), 25.
- 13) 福井利安：本誌, 13 (1972), 198.
- 14) アルミニウム材料の基礎と工業技術, (1985), 299.
- 15) N. Ryum : Z. Metallkde, Bd. 66 (1975), 377.
- 16) 都筑隆之, 佐藤広明, 吉田英雄, 熊谷正樹, 大久保喜正, 八太秀周, 田中 直：日本航空宇宙工業会平成 12 年度先端航空機部品・素材技術に関する調査研究成果報告書 No.1502 “摩擦接合を用いたアルミ合金製大型押出部材の航空機への適用化研究”, (2001).
- 17) 熊谷正樹, 箕田 正, 田中晃二, 浅野峰生：自動車技術会秋季学術講演会, (2005), 13.
- 18) 松田公一, 浅野峰生, 熊谷正樹, 吉田英雄：軽金属学会第 113 回秋期大会講演概要, (2007), 13.
- 19) 田中晃二, 熊谷正樹, 吉田英雄：軽金属, 56 (2006), 317.
- 20) 福田敏彦, 中山英介, 西畑ひとみ：溶接学会春季全国大会講演概要, 90 (2012), 60.

アルミニウム工業におけるシミュレーション技術の最近の進展

岩村 信吾*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 243-249

Recent Advance of Integrated Computational Material Engineering in Aluminum Industry

Shingo Iwamura

In recent decades, the methods of Integrated Computational Material Engineering (ICME) have been developed that is different from the conventional methods which are based on experimental trials and theoretical studies. Especially, the VIR[*] project that was carried out by European universities and companies collaboratively from 2000 to 2004 succeeded in developing the model which predicts the microstructure evolution of aluminum alloys during industrial process (casting, homogenization, rolling, extrusion, annealing, etc.). The model was constructed by integration of the sub-models calculating metallurgical phenomena (work hardening, recovery, recrystallisation, texture, etc.). By coupling with the sub-models of the mechanical properties, finally, the prediction models through the production process to the final application were realized. The trials brought not only the through process modeling but also the sophistication of the theoretical and experimental aspects.

1. はじめに

アルミニウムの工業生産が開始された 1890 年代以降、凝固、加工硬化、回復/再結晶、固溶/析出など、基礎的な冶金理論に基づいた組織制御技術により、多様なアルミニウム合金が開発されてきた。また、理論の検証を行うための実験技術も併せて進歩してきた。例えば 1970 年代には、転位論の実験的検証のために TEM による観察技術が発展した。また、1990 年代には集合組織の解明を目的に SEM-EBSP 法が開発された。その他、精緻な組織情報が得られる様々な実験技術が開発されている。しかしながら、工業製品は複雑な加工熱履歴で製造されるため、理論や実験のみでは高度な製品設計は困難であった。そのため、工業生産においては、例えば熱間加工と回復/再結晶が繰り返される熱間圧延、焼鈍時の熱履歴の差から生ずる同一コイル内での特性バラツキなど、制御が難しい現象も未だ多く残されている。結果、工場での製造条件は、試作と評価を繰り返して最適化を図る方法が常であった。

* 研究開発センター第一部、博士 (工学)

一方、コンピューターが発達した 1970 年代以降、冶金理論をベースにした組織予測技術の研究も進められてきた。例えば第一原理計算¹⁾による粒界特性予測²⁾やモンテカルロ法³⁾による再結晶挙動の予測⁴⁾など、コンピューターによるモデル化を通して基礎原理の解明と理解が深められた。さらに、これらの組織予測技術を工業的な課題に利用する例も現れた。例えば、Phase-Field 法⁵⁾による凝固組織の予測⁶⁾、FEM⁷⁾による圧延中の歪分布予測⁸⁾、KW モデル (Kampmann-Wagner Model)⁹⁾による溶接部での析出挙動の予測¹⁰⁾などである。特に着目したいのは、1992 年に Sellars ら¹¹⁾により発表された多パス熱延モデルである。これは、熱間圧延中に繰り返される熱間加工とパス間での回復/再結晶を物理式あるいは実験式に基づいて解析し、熱間圧延板の再結晶組織を予測するものである。熱間加工と静的再結晶という 2 種類の冶金現象を組み合わせたこの手法は、Vante ら¹²⁾によって改良され、下部組織 (転位構造、サブグレイン) や再結晶組織 (結晶粒径、集合組織) といった、より多くの組織情報を含むモデルが開発された。Sellars や Vante のモデルの目標は、既存の冶金理論を

活用することで、複雑な加工熱履歴で製造される工業製品の組織変化を理解し、製造条件を最適化することになった。

近年では、個々の冶金理論を連成して工業製品の製造に適用するという方法は、さらに大きな枠組みに発展しており、鋳造、圧延、焼鈍など、工業生産を模した一連の製造工程における組織予測が試みられている。この分野は統合計算材料技術 (ICME : Integrated Computational Material Engineering) として、急速な広がりを見せている¹³⁾。ICMEは、2000年~2004年に欧州で実施された共同研究プロジェクトにて、大きな発展を遂げた。本稿では、このVIR[*]プロジェクトと呼ばれる取り組みを中心に、組織予測技術の概要を述べる。

2. VIR[*]プロジェクト

2.1 概要

VIR[*]は、約20億円(企業負担率は約50%)の予算で2000年~2004年に実施された、欧州のアルミニウム業界をけん引する大学・研究機関・企業が集結したプロジェクトである¹⁴⁾。実験的検討および冶金理論に基づく考察という従来の開発手法に対し、各製造工程における材料組織変化をモデル化することで、「コンピューターによる検討」という第三の手法を確立することが、VIR[*]の目的であった。プロジェクトは、鋳造組織を取り扱うVIR[CAST]、圧延や焼鈍などの加工熱処理を取り扱うVIR[FAB]、製品の成形を取り扱うVIR[FORM]の3つのグループから構成された (Fig. 1)¹⁵⁾。発足当時の参加メンバーと所属グループを Fig.

2に示す¹⁴⁾。これらグループにより構築された各工程の材料組織予測モデルを連結することで、鋳造から製品までの材料組織の変化を、さらには製品特性までを一貫して予測できるスループロセスモデル (TPM : Through Process Model) となった¹⁶⁾。結果、VIR[*]プロジェクトにより、ICMEは飛躍的な発展を遂げた。

2.2 取り組み内容

2.2.1 鋳造組織 (VIR[CAST])

鋳造工程のモデル化はVIR[CAST]グループによって進められ、鋳塊組織(結晶粒、デンドライト、マイクロ偏析)および、均質化処理中の組織変化(第二相粒子)を予測するモデルが構築された。これらのモデルにより得られる鋳塊組織の情報は、下工程の加工熱処理(圧延、押出、焼鈍など)における初期条件として参照された。また、VIR[CAST]では、鋳造工程で特に重要な現象である熱間割れのメカニズム解明およびモデル化にも注

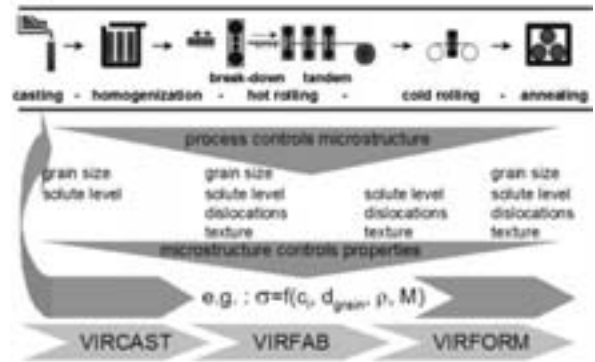


Fig. 1 The VIR[*] approach. ¹⁵⁾



Fig. 2 Overview of the VIR[*] members. ¹⁴⁾

力された。

(1) 鑄造組織

凝固組織の形成過程は、溶湯の対流を考慮した上で、結晶の核生成および結晶粒成長をベースにモデル化された¹⁷⁾。また、実験的な確認のため、電磁攪拌により溶湯の対流速度を変えた検討が行われている¹⁸⁾。マイクロ組織の予測には、固液界面の発展を計算する2D-PFT法が用いられた。この手法はVIR[*]期間中に多元系合金における第二相の凝固も含むモデルに拡張され、例えばFig. 3に示すように、多元合金におけるマイクロ偏析が予測可能となった¹⁹⁾。これらのモデルにより、鑄塊の結晶粒径、DAS、晶出物の分散状態、マイクロ・マクロ偏析などが予測されている²⁰⁾。

(2) 均質化処理による組織変化

均質化処理中の第二相粒子の析出挙動は、核生成および成長理論に基づくLanger-Schwartzの手法²¹⁾により、粒子サイズ分布の時間変化として計算された (Fig. 4)²²⁾。さらに、熱力学データベースを組み合わせることで、複雑な合金成分、熱履歴で、複数種類の粒子を取り扱った。これにより、工業的な均質化処理の熱履歴における固溶量および析出粒子の分散状態がモデル化された (Fig. 5)²²⁾。

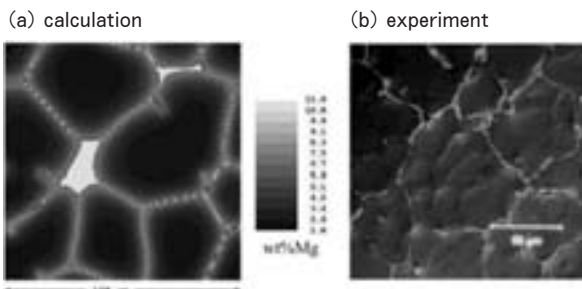


Fig. 3 Mg concentration field in AA5182 alloy.¹⁹⁾

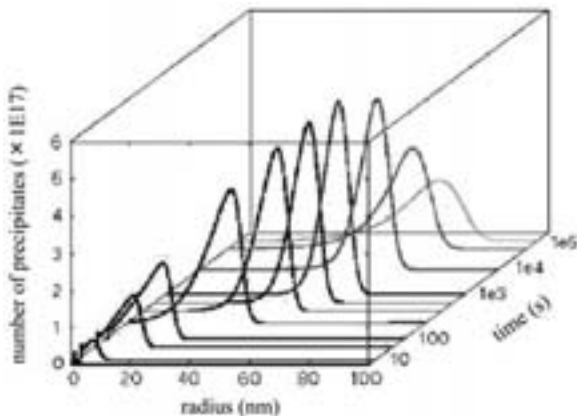


Fig. 4 Calculated evolution of the precipitate size distribution during isothermal holding at 500°C in AA3003 alloy (after heating at 20°C/s)¹⁹⁾

(3) 熱間割れ

凝固収縮によって生ずる熱間割れをモデル化するため、固液共存領域のデンドライト間に存在する液相の流れと圧力、そして凝固収縮に伴う固相の変形状態と応力を計算する2相モデルが開発された (Fig. 6)²³⁾。また、凝固の進行に伴う初晶同士の結合を予測するモデル²³⁾も組み込むことで、凝固中に固液共存領域にかかる応力が求められた。固液共存領域の破断限界は、半熔融状態での引張試験など、実験的な手法で決定された²⁴⁾。こうしてモデル化された熱間割れ現象は、様々な冷却条件での実機鑄造テストにより、妥当性が確認された²⁵⁾。

2.2.2 加工熱処理 (VIR[FAB])

加工熱処理においては、変形、回復/再結晶、固溶/析出など、様々な冶金現象がある。そのため、VIR[FAB]には多くのサブモデルがあり、それぞれが組み合わせられることで、圧延、押出、焼鈍などの加工熱処理中の組織変化を予測するモデルとなった。以下に、主要なサブモデルと、関連の取り組みについて紹介する。

(1) 圧延加工

圧延における歪量、歪速度、温度の空間分布は、FEMによって求められた²⁶⁾。これらは、熱電対を埋め込んだスラブを圧延して温度を実測したラボ実験結果に

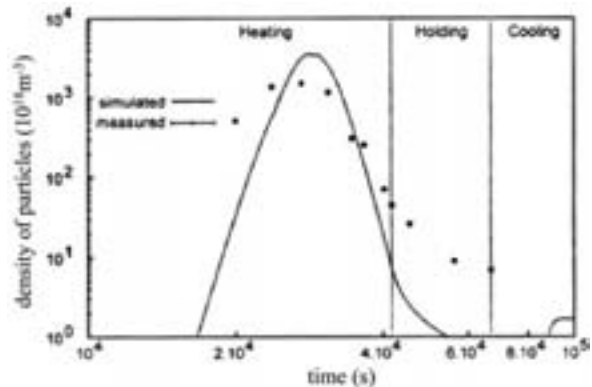


Fig. 5 Evolution of the density of particles in AA3003 alloy during homogenization.²²⁾

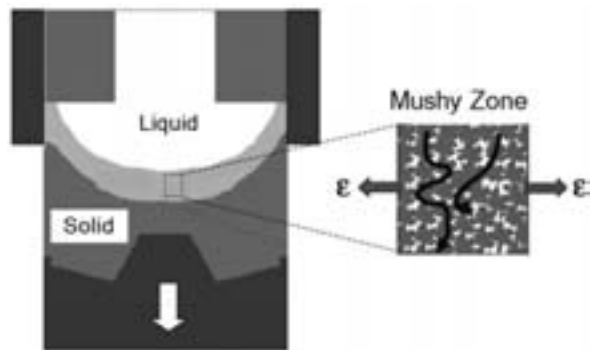


Fig. 6 Interdendritic melt flow caused by solidification shrinkage and the thermally induced deformation.²³⁾

基づいている。また、熱間圧延中の温度測定のために、オンラインの非接触温度計も開発されている²⁷⁾。

(2) 加工硬化

代表的なモデルとして、Alflow²⁸⁾や3IVM²⁹⁾などがある。これらのモデルは、すべり面上の転位の移動を素過程として、加工に伴うサブグレインの形成および転位密度の増加を定式化したものである。これにより、Fig. 7のように、加工中の流動応力の変化を表現した。これら加工硬化モデルは、圧延、押出、製品の成形など、様々な工程における変形抵抗および加工組織の予測に広く用いられた。

(3) 回復・再結晶

回復速度はサブグレインサイズの増加速度と転位密度の減少速度に、再結晶速度は核生成および成長速度に基づいて予測された。両現象を組み合わせたモデルの例として、Alsoft³⁰⁾がある。Alsoftでは、再結晶核の生成サイトとして、旧粒界、残存した立方体方位粒の粒界、粗大粒子に起因するPSNの3パターンが考慮されている。このモデルにより、例えばFig. 8に示すように、様々な加工条件、熱処理条件における再結晶組織が評価できる。

(4) 集合組織

変形集合組織は、GIAモデル³¹⁾により求められた。これは、隣接する結晶粒同士に働く拘束力から加工による結晶粒の回転を計算し、変形後の集合組織を得るものである。このモデルはFEMによる圧延シミュレーションと組み合わせられ、圧延集合組織の予測に用いられた。また、後述するVIR[FORM]での成形性評価においても、GIAモデルによって機械的性質の異方性が検討されている。

(5) 固溶・析出

固溶・析出状態は、熱力学データベースによる計算状態図を用い、核生成および粒子成長の古典論をベースにモデル化されている³²⁾。この手法は、基本的にはVIR[CAST]の均質化処理でも用いられたモデルと同じである。実験的検討として、圧延による第二相粒子のサイズ分布の変化の追跡³³⁾や、熱起電力による固溶元素量の測定³⁴⁾も試みられている。

2.2.3 最終製品の特性 (VIR[FORM])

VIR[FORM]では、材料組織の情報をもとに、強度、異方性、成形性など、最終製品の機械的性質を予測するモデルが構築された。カップ成形や引張試験など、様々な成形における歪量をFEMで予測し、それにより生ずる微細組織の変化をAlflowにより求めた。ここに変形集合組織を求めるGIAモデルを組み込むことで、カップ成形後の耳率や強度の異方性 (Fig. 9)³⁵⁾を評価することを可能とした。さらに、変形によって第二相粒子の周囲に発生するボイドに着目し、破断限界を予測するダメージモデルを組み込んだ³⁶⁾。これにより、成形時の破断を考慮し、FLDも検討可能となった (Fig. 10)³⁷⁾。

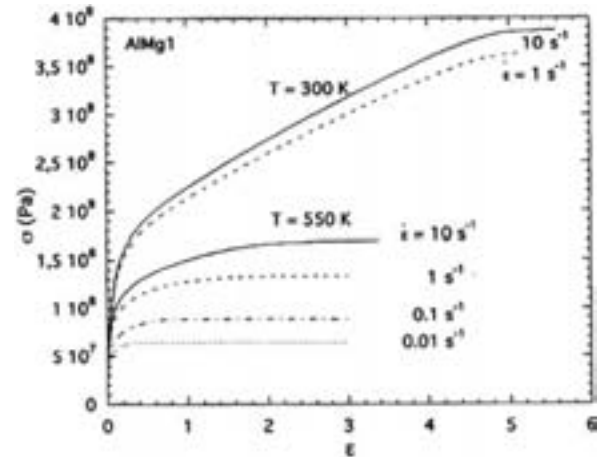
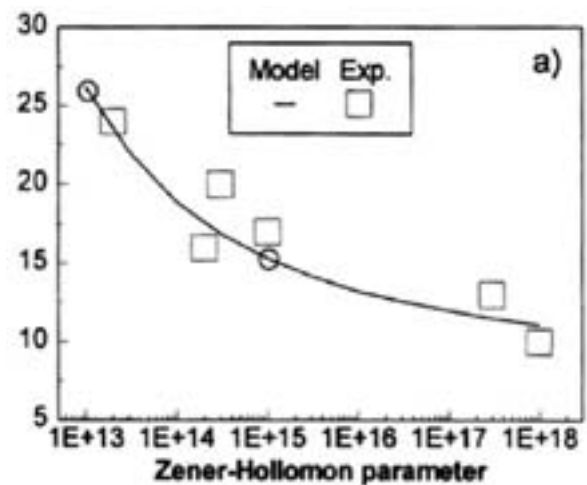
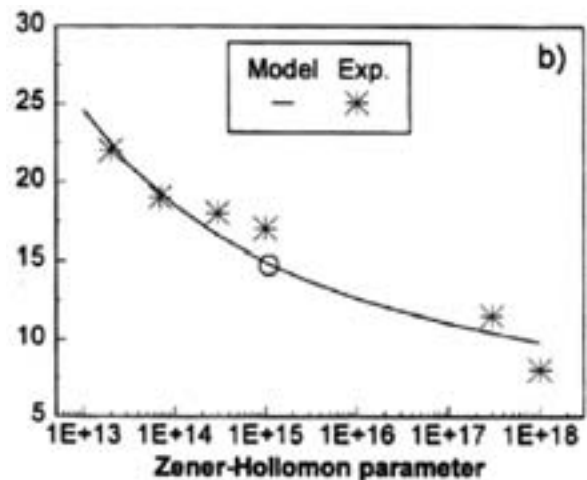


Fig. 7 Calculated stress-strain curve in Al-1Mg at various temperatures and strain rates.²⁸⁾



(a) Cube fraction [%]



(b) Recrystallised grain size [μm]

Fig. 8 (a) Predicted cube fraction and (b) recrystallized grain size in AA3004 alloy for various Zener-Hollomon parameter.³⁰⁾

ボイドの発生に対する実験的アプローチは、X線トモグラフィーにて行われている³⁸⁾。

2.2.4 スループロセスモデリング

上述の VIR[CAST], VIR[FAB], VIR[FORM] を連携させることで、鋳造から製品特性までを模擬するスループロセスモデル (TPM) となる¹⁶⁾。VIR[CAST] で得た均質化処理後の鋳造組織の情報 (結晶粒径, 添加

元素の固溶/析出状態) は, VIR[FAB] に受け渡され, 様々な条件で熱間加工, 冷間加工, 焼鈍のモデルに供される。そうして予測された製品の材料組織に基づき, VIR[FORM] によって強度や耳率など, 製品特性が推察される。板材の TPM におけるフローチャートの例¹⁶⁾ を Fig. 11 に示す。その他の TPM の事例は, 板材については文献 (32), (39), (40) を, 押出材については文

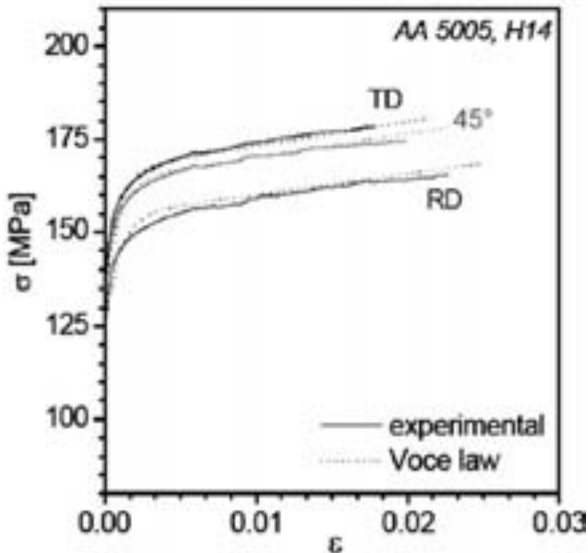


Fig. 9 Impact of texture on the evolution of flow stress during plastic deformation in AA5005-H14 alloy.³⁵⁾

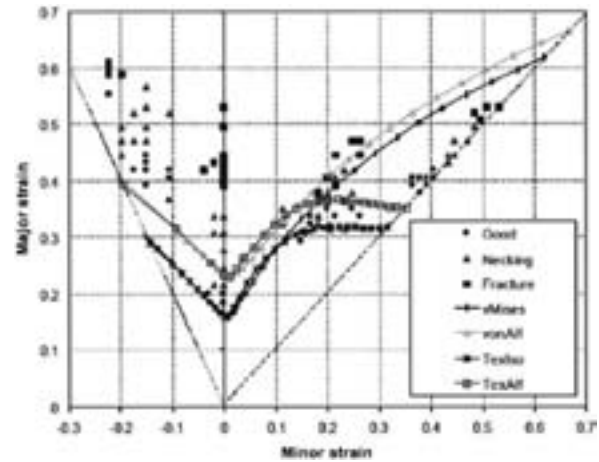


Fig. 10 Experimental (marks) and predicted (full lines) FLD in AA3003-O.³⁷⁾
vMises : conventional hardening, vonAlf : Alflow, Texso : conventional hardening and texture taken into account, TexAlf : Alflow and texture taken into account

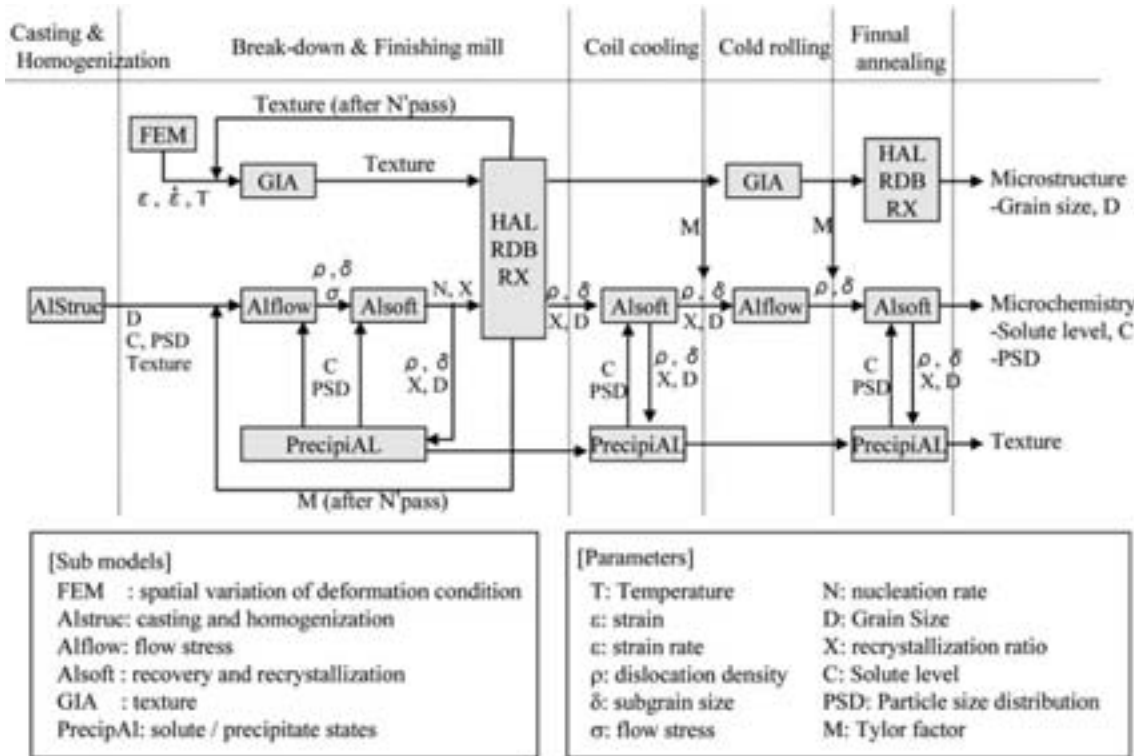


Fig. 11 Example of flow chart of models and parameter transfer in TPM.¹⁶⁾

献 (41) を参照されたい。これらモデルの大きなメリットは、熱間圧延や熱間押出のように、現物での調査が不可能な工程における組織変化を検討できることである。これにより、特性向上につながる製造上のポイントを明らかにできるほか、加工熱履歴に起因する組織異常 (例えば Self-Annealing 不良) も未然に察知できる。コンピューターによる予測技術により、製品開発に際して行う実験的試行の回数を大幅に減らすことができ、より高度なプロセス設計および製品開発に繋がる。TPM に代表されるモデリング技術を実用レベルまで進歩させたことは、VIR[*] の大きな成果であった。

3. その他の ICME の取り組み

欧州の VIR[*] 以外にも、ICME の動きは広がっている。例えば米国では、ICME を自動車用の鋳物部品の開発に利用した例がある。また、この動きはマグネシウムに展開され、2007 年～2012 年に Ford, GM および大学により、ICME のプロジェクトが実施された。このプロジェクトには中国の大学も多数参加している。また、それ以外にも、3000 系アルミニウム合金の熱交換器用押出多孔管の粗大粒形成シミュレーションなど、押出材のスループロセスモデルの例も見られる⁴²⁾。2011 年からは ICME の国際学会もスタートしており、2013 年には第 2 回目の会議として、“ICME2013” が開催されようとしている。また、ICAA においても、2012 年に開催された第 13 回大会から、ICME のセッションが新設された。以上のように、ICME の動きは確実に規模を増している。

4. まとめと今後の展望

現在では、アルミニウムの合金成分および製造工程は複雑化しており、求められる製品特性もより高度となっている。そのため、これまで行われてきた実験による検討と冶金理論による考察のみでは、最適な製造条件を見出すことが難しくなっている。このような背景で、従来の冶金理論を工業的な製造プロセスに適用する ICME が発達したのは、自然な流れであったように思われる。もちろん、ICME のベースとなるのは冶金理論およびその根拠となる実験的検討であり、これらの従来手法がなくなることはありえない。ICME は、実験および理論の組み合わせから生まれた第三の検討手法という位置づけであろう。

これまで、アルミニウムの研究開発は、原理・原則の解明については大学などの研究機関が、製品を作るための実践的な検討は企業の開発従事者が主に行ってきた。ICME の発展には両者の連携が不可欠であり、VIR[*] プロジェクトはその成功例であった。特筆すべきは、“Extraordinary Collaborative” な雰囲気⁴³⁾ の中で産

学官が連携し、科学技術、工業の両面にわたって成果を残したことである。産学官が密に連携することで、大学の研究者は工場生産における実践的な問題を知り、企業の R&D 従事者は原理・原則をより深く学ぶ機会となった。この取り組みを通して培った欧州のパートナーシップは続いており、プロジェクトが終了した後も、産学官の共同研究が盛んにおこなわれている⁴⁴⁾。VIR[*] の例にみられるように、ICME は、学問と工業を結びつける研究分野として、今後も発展していくものと思われる。

参考文献

- 1) 例えば、上杉徳照, 東 健司: 軽金属, **54** (2004), 82.
- 2) T. Uesugi, Y. Inoue, Y. Takigawa, K. Higashi: Mat. Sci. Forum, **551-552** (2007), 331.
- 3) 例えば、小林: 軽金属, **54** (2004), 159.
- 4) M. Kobayashi, Y. Takayama, H. Kato: Mat. Trans., **42** (2001), 2308.
- 5) 例えば、小山敏幸: までりあ, **42** (2003), 397.
- 6) A. Karma, W. J. Rappel: Phys. Rev., **E57** (1998), 4323.
- 7) 柳本 潤: 塑性と加工, **43** (2002), 316.
- 8) 仲町英治, 倉前宏行: 軽金属, **62** (2012), 25.
- 9) R. Kampmann, R. Wagner: Mat. Sci. Tech., **5** (1991), 213.
- 10) O. R. Myhr, Ø. Grong, H. G. Fjær, C. D. Marioara: Acta Mat., **52** (2004), 4997.
- 11) C. M. Sellars, J. A. Whiteman: Met. Sci., **13** (1979), 187.
- 12) H. E. Vante, K. Marthinsen, R. Ørsund, E. Nes: Met. Trans., **27A** (1996), 4133.
- 13) J. Hirsh: Proc. ICAA13 (TMS), (2012), 311.
- 14) M. R. Winden, G. -U. Grün, T. Furu, K. Asbøell, C. Leroy: Aluminum, **80** (2004), 566.
- 15) J. Hirsh, K. F. Karhausen: Proc. 1st World Congress on Integrated Computational Material Engineering, (2011), 203.
- 16) K. F. Karhausen, J. Hirsch: *Virtual Fabrication of Aluminum Products*, ed. J. Hirsh, (2006), 315.
- 17) H. Combeau, B. Appolaire, B. Dussoubs, N. Houti, N. Cedex: Aluminum, **80** (2004), 614.
- 18) D. Daloz, H. Combeau, S. Sferdjella, N. Cedex, B. Commet, P. Jarry: Aluminum, **80** (2004), p. 603.
- 19) Q. Du, A. Jacot, M. Rapaz: Aluminum, **80** (2004), 634.
- 20) E. P. Klaveren, H. Combeau, N. Cedex, R. Kieft: Aluminum, **80** (2004), 609.
- 21) J. S. Langer, A. J. Schwartz: Phys. Rev., **A21** (1980), 948.
- 22) M. Serriere, C. A. Gandin, M. Dehmas, E. Gautier, P. Archambault, N. Cedex: Aluminum, **80** (2004), 592.
- 23) A. Mo, M. M'Hamdi: Aluminum, **80** (2004), 587.
- 24) P. Grasso, B. Commet, J. Drezet, Y. Ju, L. Arnberg, M. Rappaz: Aluminum, **80** (2004), 572.
- 25) R. Kieft, E. K. Jensen, S. Dobler, B. Commet: Aluminum, **80** (2004), 628.
- 26) J. T. Silva, J. H. Beynon: *Virtual Fabrication of Aluminum Products*, ed. J. Hirsh, (2006), 247.
- 27) R. Gärtner, P. Klatt, H. Loose, N. Lutz, K. P. Mollmann, F. Pinno, F. Muilwijk, S. Kalz, H. Stoppinglia:

- Aluminum, **80** (2004), 642.
- 28) K. Marthinsen, E. Nes : Mar. Sci. Tech., **17** (2001), 376.
- 29) R. Roters, D. Raabe, G. Gottstein : Acta Met., **48** (2000), 4181.
- 30) H. E. Vante, T. Furu, R. Ørsund, E. Nes : Acta Met., **44** (1996), 4463.
- 31) O. Engler, M. Crumbach, S. Li : Acta Met., **53** (2005), 2241.
- 32) L. Lochte, M. Schneider, G. Gottstein : Aluminum, **80** (2004), 685.
- 33) E. Anselmino, A. Miroux, S. Zwaag : Aluminum, **80** (2004), 680.
- 34) Z. J. Lok, L. Löchte, S. Zwaag : Aluminum, **80** (2004), 647.
- 35) O. Engler : Aluminum, **80** (2004), 719.
- 36) P. Franciosi, E. Maire, A. Vincent, J. C. Grenier, D. Daniel : Aluminum, **80** (2004), 724.
- 37) S. He, A. Van, P. V. Houtte : Aluminum, **80** (2004), 715.
- 38) E. Maire, P. Franciosi, A. Vincent, J. C. Grenier, D. Daniel : Aluminum, **80** (2004), 696.
- 39) K. Marthinsen, S. Abtahi, K. Sjolstad, B. Holmedal, E. Nes, A. Johansen, J. A. Saeter, T. Furu, O. Engler, Z. J. Lok, J. T-Silva, C. Allen, C. Liu : Aluminum, **80** (2004), 729.
- 40) M. Goerdeler, M. Crumbach, P. Mukhopadhyay, G. Gottstein, L. Neumann, R. Kopp : Aluminum, **80** (2004), 666.
- 41) T. Furu, A. Johansen, J. A. Sæter, A. L. Dons, K. Pedersen, T. Berstad, O. G. Lademo, B. Holmedal, K. Marthinsen, O. S. Hopperstad, E. Nes, D. Mortensen : Aluminum, **80** (2004), 707.
- 42) W. Poole, M. Wells, N. Parson : Proc. ICAA13 (TMS), (2012), 293.
- 43) M. Winden, G. U. Grün, T. Furu, K. Asbøll : *Virtual Fabrication of Aluminum Products*, ed. J. Hirsh, (2006), 305.
- 44) 例えば O. Engler, L. Löchte, J. Hirsch : Acta Met, **55** (2007), 5449.

これからの航空機産業とアルミニウム*

吉田 英雄**

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 250-263

Future of the Japanese Aircraft Industries
and Aluminum

Hideo Yoshida

The history and future of the relationship between the Japanese aircraft industries and aluminum alloys for airplanes are reviewed. Especially it has been made clear why the highest strength aluminum alloy, ESD (Extra Super Duralumin), was invented in Japan before World War II. The development of Japanese commercial airplanes, i.e, the YS-11, MU-2, and MU-100, and the relationship between the national project of YX, YXX and the Boeing airplanes, B767 and B777, are summarized after World War II. Furthermore, the development of aluminum alloys in Japan after World War II is reviewed and the technical subject about the aluminum alloys in the future are clarified by disclosing the present issues of using aluminum alloys in airplanes. Finally, it is claimed that a national project is needed to solve these issues in cooperation with industry, government and academia.

1. はじめに

航空機産業とアルミニウムの関わりについて、材料開発の観点から戦前、戦後の歴史をまとめる。まず戦前、何故超々ジュラルミンのような優れた材料ができたのかを明らかにする。次に日本における戦後の民間航空機の開発、YS-11, MU-2, MU-100 や YX, YXX, YSX と B767, B777 の関わりについてまとめる。さらに戦後の航空機用アルミニウム合金の開発状況をまとめ、現在の航空機用アルミニウム材料が抱えている課題を整理し、今後の航空機に求められるアルミニウムの技術課題を明らかにする。最後にこの技術課題を解決するためには、産官学の連携した国家プロジェクトが必要であることを述べる。

2. 戦前の航空機産業とアルミニウム^{1~5)}

2.1 ジュラルミン

日本のアルミニウム産業が航空機と関わるようになっ

たのは、1916年ロンドン駐在の海軍監督官が墜落したツェッペリン飛行船から骨材 (Fig. 1) を入手し、海軍が住友伸銅所に調査依頼したところから始まる。これを入手した伸銅所は、その分析結果や英国金属学会誌の文献をもとに工場における試作研究を開始した。1919年工場試作が完了し、「住友軽銀」と命名された。ジュラルミンは1906年ドイツのウィルムによって Al-Cu-Mg 合金で時効硬化現象が発見され、これをデュレナ・メタルヴェルケ社によって製品化された合金で、組成は Al-4.2%Cu-0.5%Mg-0.6%Mn である。この合金は従来の合金よりも強度が高いために、早速ツェッペリン飛行船の骨組みに採用された。このドイツのツェッペリン飛行船は第一次世界大戦で活躍し、ロンドンなどの空襲で爆弾投下し、ロンドン市民を恐怖に陥れた。その後、ドイツのユンカーズ社は、1917年に単発複葉攻撃機 J 4 にジュラルミンを使用し、1919年には波板状ジュラルミンを使用した全金属製旅客機 F.13 (Fig. 2) を開発した。

第一次世界大戦後は各国で飛行船の製造が行なわれ、日本では海軍が英国ビッカース社に発注した SS 型軟式飛行船の第 2~4 船を横須賀海軍工廠において国産化することになった。SS とは Submarine Scout の頭文字を

* 本稿はアルトピア, Vol.43, No.1, Jan.(2013), 14. およびアルミニウム, No.87, 20 (2013), 9. に掲載されたものに加筆して転載したものである。

** 研究開発センター 工学博士



Fig. 1 Part of frame of Zeppelin Airship shot down near London, brought into Japanese Navy and stored in Sumitomo Light Metal



Fig. 2 Yunkers F.13 fabricated with corrugated panels of Duralumin sheets
(<http://www.idflieg.com/junkers-f13.htm>, ©2006 Andi Szekeres)

採ったもので、対潜水艦哨戒用であることを意味する⁶⁾。1921年、住友伸銅所は初めてジュラルミンの工業生産を行ない、この飛行船の吊り船やそのほかの構造材料として板管棒計1トン余りを受注した。1922年4月、中島式ブレゲー型飛行機B-6型(Fig. 3)の機体構造にはじめて伸銅所製ジュラルミンを使った。この飛行機は「軽銀」と命名された。1925年には川崎航空機(株)から陸軍のドルニエ試作重爆撃機(陸軍制式は八七式重爆撃機)の外板等を受注した。本機は胴体、翼とも木製骨格に羽



Fig. 3 Breguet 14 type aircraft, named "Keigin" fabricated by Nakajima Aircraft Industries Ltd.
(<http://www.ne.jp/asahi/airplane/museum/nakajima/nakajima.html>)

布張りの複葉単発機で、機体前部のエンジン周辺だけ金属製となっていた。ジュラルミンの本格的採用は1930年以降の全金属製の機体となってからである。九二式および九三式重爆撃機、九三式双軽爆撃機は、ユンカース社の機体をベースに設計されたためにユンカース式の波板構造の全金属機で波板外板によって覆われていた。

ジュラルミン製造にあたっては、海軍が飛行艇を建造するために英国から招聘した技術者のペーガン氏の指導と第一次世界大戦で戦勝国となった日本がドイツから賠償の一環として、ジュラルミンの製造技術をデュレナ社から学んだことが大きい。さらに、アルコア社(1928年以降はアルコア社から分離したアルキャン社に変わった)は地金販路の拡大のために住友と提携し、住友はアルコア社の協力のもとに1928年大阪桜島に溶解炉とアルミ板専用の圧延工場を建設することとなった。板だけでなく、管、棒、線材や押出型材のための押出機、プロペラ翅用の鍛造機も導入され、ジュラルミン製造技術も確立していった。ジュラルミンは米国では17Sと呼称された。17S-T4は 44kg/mm^2 の引張強さであった。

2.2 超ジュラルミン¹⁾

合金開発ではさらに高強度が求められ、世界中でジュラルミンを超える超ジュラルミンの研究開発が進行した。当時の超ジュラルミンはジュラルミンの強度レベルを超える合金はどれも超ジュラルミンと呼ばれた。超ジュラルミンという名称を最初に用いたのは、1927年アルコア社のジェフリースが米国機械学会で高強度合金について報告したのが最初といわれている。アルコア社はまず、1928年、Siを添加した14S(Al-4.4%Cu-0.4%Mg-0.9%Si-0.8%Mn)を開発した。14Sは焼入れ焼戻し(T6調質)で耐力 42kg/mm^2 が得られたが、伸びが13%と低いので、板材としてよりも鍛造品で多く用いられた。当時、ケイ素を多く含有した超ジュラルミンを含ケイ素型超ジュラルミンと称していた。1931年、24S(Cu 4.5%, Mg 1.5%, Mn 0.6%)が同じくアルコア社によって開発された。ジュラルミン中のMg量を1.5%まで増加させたもので、含ケイ素型超ジュラルミンが人工時効を必要とするのに対し、24Sは室温時効だけでジュ

ラルミンを越える強度に達する特徴がある。これを 24S 型超ジュラルミンと称した。現在では超ジュラルミンという用語と 24S を指すことが多い。24S-T3 は、代表値で引張強さ 49kg/mm^2 、耐力 35kg/mm^2 で、ジュラルミンの 17S-T4 は引張強さ 44kg/mm^2 、耐力 28kg/mm^2 で、17S に比べ耐力が 20% 高い。T3 調質では圧延材や押出材を焼入れ後矯正あるいは残留応力を最小限にするために 1.5~3% の引張加工をすることで強度も向上する。この合金は強度が高いためすぐに 17S-T4 に取って代わった。そして純アルミニウムを皮材としたクラッド材 Alclad 24S-T3 は旅客機の胴体の材料としていまなお使われているが、その最初の飛行機が DC-3 (Fig. 4) である。

日本においても、1931~32 年頃になり飛行機の性能は向上し全金属製の機体になると、材料の比強度の向上が要求された。当時の日本では、住友でも焼戻し型超ジュラルミンが開発されていたが、この合金は焼戻後の耐食性に問題があり、また焼戻に時間を要して生産性が劣るため焼戻を必要としない 24S に代わることとなった。1935 年、24S 型超ジュラルミンは SD、その合わせ板は SDC と称され、SDC の皮材は SA3 (Al-1.5%Mn-0.55%Mg) 合金で、アルコアの 24SC より高強度の合わせ板となった。住友の超ジュラルミン SD は全金属製低翼単葉機の九六式艦上戦闘機 (Fig. 5) に採用された。

2.3 超々ジュラルミン、ESD と零戦²⁾

海軍から将来戦闘機の性能を飛躍させるには、同じように軽く、しかももっと強力な引張り強さ $50\sim 60\text{kg/mm}^2$ を有するアルミ合金が必要ということになり、住友に開発が命じられた。住友の方も、SD、SDC が工業化できた段階であったが、他社が 75kg/mm^2 級高強度合金「トム合金」を華やかに宣伝し始めたため、上層部からも早く開発せよとの指示が五十嵐勇博士にきた。開発を担当した住友の五十嵐博士は、合金開発の最大の問題点は時期割れ（応力腐食割れ）対策だとの認識で 1935 年 8 月合金探索を開始した。まずは強度と加工性から合金系の予備検討がなされ、最終的にはザンダーの S 合金 (Al-8%Zn-1.5%Mg-0.5%Mn)、D 合金 (超ジュラルミン, Al-4%Cu-1.5%Mg-0.5%Mn)、そして英国のローゼンハインの E 合金 (Al-20%Zn-2.5%Cu-0.5%Mg-0.5%Mn, 亜鉛を 20% まで含み Zinc Duralumin として知られていた) をベースに成分が検討された。最大の懸案事項である応力腐食割れに対しては、クロムの微量添加が非常に有効であることが明らかとなり、その結果、新合金の代表組成は Al-8%Zn-1.5%Mg-2%Cu-0.5%Mn-0.25%Cr となった。この合金は 1936 年 6 月「鍛錬用強力軽合金」として特許出願され、1940 年 2 月特許になっている。この合金は、1936 年 5~6 月頃、ベースとなった E 合金、S 合金、D 合



Fig. 4 DC-3 fabricated with Alclad 24-T3 sheets
(from www.louisvilleartdeco.com)



Fig. 5 Type 96 carrier-based fighter
(The visual encyclopedia of Mitsubishi A6M Zero, Shinsei Publisher, 2011)

金の頭文字をとって ESD (Extra-Super-Duralumin)、超々ジュラルミンと命名された。

1937 年 10 月 6 日、三菱重工業名古屋航空機製作所の主任設計技師の堀越二郎は課長からカナまじりの和文タイプで打たれた一通の書類を受け取った。それは、「十二試艦上戦闘機計画要求書」であった。「十二試」とは昭和 12 年試作発令、艦上戦闘機とは航空母艦上から発着する戦闘機のことである。堀越氏は「この要求書は、当時の航空界の常識ではとても考えられないことを要求していた。もし、こんな戦闘機がほんとうに実現するのなら、それはたしかに、世界のレベルをはるかに抜く戦闘機になるだろう」と述べている。これが零戦、零式艦上戦闘機の開発の始まりであった。堀越二郎氏は、次期戦闘機の開発に際して、最大の難関は重量軽減対策と考え、このため一律であった安全率の見直しや、グラム単位での重量軽減のために、「肉落とし」と称して、強度に関係のないところをくりぬくことも行われた。さらにもどのような材料を選択するかが課題となった。内部構造で最も重要な主翼の桁について、前の九六式艦戦のときは 45 キロ超ジュラルミン SDH (住友の超ジュラルミンで焼入れ後常温時効した材料) が開発され、その押出型材が生産されていたので、翼を薄くし、重量軽減に大い

に役立った。十二試艦戦では、九六式艦戦よりも素早く上昇でき時速 500km 以上が出せ、しかも航続距離が長く、空戦性能に優れた性能などが要求されたため、機体がさらに大きくなり重量増加が避けられなかった。九六式艦戦と同じ超ジュラルミンでは、桁用の押出型材を分厚くしなければならずその結果重量増加につながり、桁の部分が分厚くなると翼も厚くせざるをえなくなり、いっそう悪くなると考えられた。もっと高強度の軽い材料はないだろうかと思われていたところに住友の ESD との出会いがあった。住友を訪問してその詳細を聞いて、ESD をさしあたり主翼の桁だけに押出型材を使うとして重量を計算してみると、30kg は軽くなることになり、この新しい金属の使用を航空本部に願い出た。海軍側はむしろ願い出を喜んで、この新材料の使用を認めた。零戦の主翼桁材に適用された ESD 押出型材を Fig. 6 に示す。

1940 年 7 月、十二試艦戦は制式機として採用され、その年が日本紀元 2600 年であったところから、その末尾の零をとって、「零式艦上戦闘機」と名付けられた。「ゼロ戦」というのは外国のパイロットから「ゼロ・ファイター (Zero Fighter)」「ジーク (Zeke)」と呼ばれ、外国の評判などから戦後生まれた零戦の愛称である。太平洋戦争中に、零戦は各型合計すると約 10400 機生産された。1942 年 6 月のミッドウェー海戦での敗北が太平洋戦争の転点となった。同時に行われたアリューシャン作戦で、無人島に不時着したほとんど無傷の零戦一機をアメリカが手に入れた。アメリカは、真珠湾攻撃以来、落ちた零戦の切れ端を集めてまでも、空戦性能に優れた謎の飛行機といわれる零戦の秘密を解き明かそうとしていた。そして、この完全な零戦に飛行試験を含むあらゆる角度からの調査を施し、その長所と短所を完全に知る事ができた。米軍を驚かせたのは機体に使われた超ジュラルミンの強度の高さであった。それは当時、日本の航空機開発技術に対して「欧米に数年は遅れている」と考えていたアメリカの陸海軍や航空機産業関係者の目を覚まさせる一因となった。その後、1943 年アルコア社は超ジュラルミンで応力腐食割れに効果のあるクロムを同様に添加して 7075 合金を完成させ、現在でも、7075

合金は代表的な航空機用アルミニウム合金として用いられている。7075 合金の生みの親は超ジュラルミンということになる。

1938 年末に、海軍航空本部から月産 1364 トンのアルミニウム合金生産の要請があり、既定の増産計画の 3 倍もの要求で、大阪桜島の伸銅所には拡張の余裕がなく、新工場の敷地が検討され、結局航空機製造の中心地となっている名古屋に決定した。敷地は、名古屋市港区千年の水田に、博覧会跡地 4 万余坪を加えた約 19 万坪を入手した。この地域は、1937 年、名古屋市長の大岩勇夫氏が名古屋開港 30 周年、国際都市としての名古屋をアピールするため名古屋汎太平洋平和博覧会を開催した会場跡地になっていた。1941 年 9 月、陸海軍大臣の指揮監督のもと、鑄造、製板、管棒、鍛造を持つ総合的軽合金専門工場である名古屋軽合金製造所が設置された。この工場は、当時伸銅所で開発中であった連続鑄造法による大型鑄塊を用いることを前提としたストリップ方式圧延の製板工場を目標とした。1944 年における桜島の伸銅所製板課第二工場のアルミニウム合金生産量は 500~600 トン/月、名古屋軽合金製造所製板工場は最盛期には 2000 トン/月 (内、ストリップ方式が 1500 トン/月) であった。なお、管棒生産量は伸銅所 (桜島)、名古屋でいずれも 300 トン/月であった。型材生産量は桜島と名古屋でそれぞれ 700 トン/月であった。名古屋では ESD の生産が 500 トン/月であった。なお、古河電工や神戸製鋼も軍からジュラルミン、超ジュラルミン、超ジュラルミンの製造要請を受け、ESD は住友から特許の実施権を委譲されて生産した。

3. 戦後の航空機産業とアルミニウム

3.1 戦後の国産民間航空機^{7,8)}

(1) YS11⁷⁻¹⁰⁾

戦後、GHQ により航空禁止令が布告され、航空機の研究開発、製造は禁止されていたため、戦争中、航空機に携わっていた研究者や技術者の多くは自動車、鉄道車両やモーターサイクル開発に移っていった。しかしながら、朝鮮戦争特需で国内の航空機産業は復活した。1955

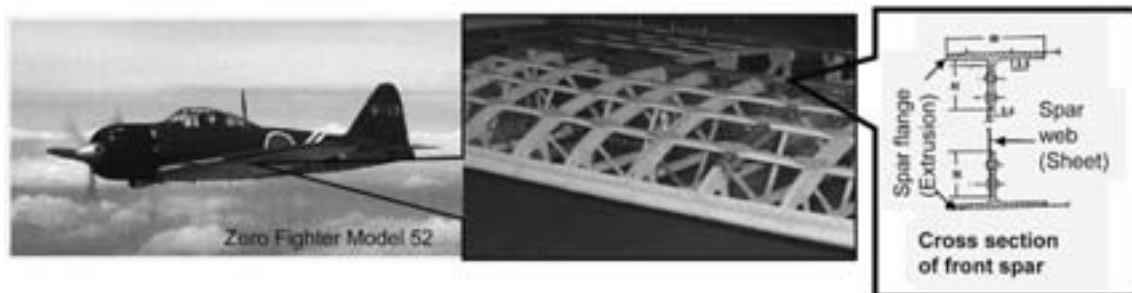


Fig. 6 Zero Fighter and its main wings fabricated with ESD extrusions

年に自衛隊向けに川崎航空機がロッキード T-33A 練習機を、三菱がノースアメリカン F-86F ジェット戦闘機を国内でライセンス生産することが決定した。1957年には飛行機の運航や製造の禁止が全面的に解除された。この間、世界の航空機はジェット機、大型旅客機への転換期を迎えていた。1956年、通産省は国産民間航空機計画を策定し、航空工業会で国産輸送機開発に関する構想を発表した。世界の国際路線では大型ジェット機が就航し、国内路線では DC-3 などのプロペラ機が飛んでいたが、この旧式プロペラ機の代替として、日本が開発した国産航空機を輸出し、日本の航空機工業を輸出産業のひとつとして育てたいとの考えであった。

1957年、財団法人輸送機設計研究協会（輸研）が東大内に設立され、乗客 50～60 人乗りの小型旅客輸送機の設計が始まった。輸研には堀越二郎氏をはじめ、戦前の航空業界を支えた技術者が参加、設計に携わった。試作機を製造するために、1959年官民共同の特殊法人として日本航空機製造（NAMC）が設立されて輸研は解散した。この双発ターボプロップ旅客機は YS11 と名づけられた（Fig. 7）。YS は輸送機設計研究協会の輸送（Y）と設計（S）の頭文字に由来する。日本航空機製造



Fig. 7 YS11 airliner

(from <http://nekocraft.blog.so-net.ne.jp/2012-12-14-1>)

は設計開発、生産管理、品質管理、販売、プロダクトサポートを行い、生産は機体メーカー六社（新三菱重工業、川崎航空機、富士重工業、新明和工業、日本飛行機、昭和飛行機）が分担し、最終組立は新三菱重工業が行った。飛行試作機 1 号機は 1962 年 7 月に新三菱小牧工場でロールアウトし、初飛行は 8 月に行なわれた。その後不具合のため一部設計変更となり各機体メーカーへの量産機の発注は、1963 年 1 月となった。以来 1973 年 5 月に最後の機体が送り出されるまで 10 年間製造された。1964 年に日本の航空局の型式証明を、1965 年にアメリカ連邦航空局（FAA）の型式証明を取得した。

量産に着手して、順調に生産が続いていたが、海外でのセールスでは非常に苦戦しており、事業収支では悪化していた。当初、50～100 機の輸出が期待できると見込まれていたが、日本航空機製造は航空機の製造も販売も初めての経験で、航空機の販売のノウハウもないに等しい状態であり、結局 12 カ国、16 社の航空会社に 75 機が輸出されるにとどまった。その結果、日本航空機製造は 360 億円に及ぶ累積赤字となり、通産省は 1971 年に YS-11 を 182 機で打ち切ることを決定した。日本航空機製造は 1982 年解散し、残務は三菱重工業に引き継がれた。なお、素材のアルミ材料は、日本のアルミ材料メーカーも採用に向けて意欲を示したが、YS-11 に使用する量のみの生産では、量産効果が出ず、輸入品より有利な価格で調達できないため、結局アメリカ製の材料が採用されたとのことである¹⁰⁾。

(2) 三菱 MU-2, MU-300 (Fig. 8)

YS11 の開発が始まった 1960 年頃から、三菱は小型ターボプロッププロペラ機で、北米の社用・自家用のビジネス向け（7～9 人乗客）に独自の設計を進めた。1963 年に試作 1 号機が初飛行し、1965 年、運輸省航空局の型式証明を、11 月にアメリカの連邦航空局（FAA）の型式証明も取得でき、翌 1966 年に MU-2 として発売を開始した。しかしながら、アメリカには国内で飛ばす



(a) MU-2

(b) MU-300

Fig. 8 Mitsubishi business aircrafts

(from http://ja.wikipedia.org/wiki/ファイル:Mits_MU-2.JPG,
<http://ja.wikipedia.org/wiki/ファイル:N417KTatBNA.JPG>)

航空機は、その 50 パーセント以上を米国製の部品で作られていなければならないというバイアメリカン法があり、そのために現地委託して部品を調達したが、うまくいかず三菱が自らやらねばならなくなった。三菱が販売を開始した 1967 年、ようやく 5 機を受注して以降、安定性の高い飛行機として評判が広がり、年産 40 機から 50 機にまで成長した。ところが、1971 年ニクソン・ショックの影響を受け、円は急速に値上がりし、MU-2 も採算割れを起こして赤字が増大した。しかし赤字ながらも販売は好調だった。1973 年秋の中東戦争により世界的なオイルショックとなり、燃料費の高騰によってエアラインは軒並み経営不振となり MU-2 の受注が急減した。1987 年、新型機 MU-300 に販売を集中するため、MU-2 の生産を終了した。総生産数は 757 機、世界 27 カ国で販売され、世界の小型機の中でもベストセラーであった。

MU-2 が好調であった 1969 年、三菱は MU-2 よりもワンランク上の高級ビジネスジェット機を計画した。市場調査の結果、最高速度は約 800km/h、快適な広いキャビンを用意し、高い燃焼効率を持った機体を目指して、1976 年に開発に着手し、1978 年に初飛行した。しかしながら、1979 年（昭和 54）、マクドネル・ダグラス社の DC-10 の航空機事故後、FAA は審査基準を大幅に厳しくすることとなり、FAA の型式証明を取得できたのは 1981 年に入ってからであった。さらに日本は円高不況で売上は伸び悩み、一方、アメリカ政府は高金利政策をとったことで不況に陥り、航空業界も軒並み経営悪化しビジネス機の需要は皆無となった。三菱は、ビーチクラフト社と提携し、BEECHJET 400（ビーチジェット 400）の名で販売することとしたが利益をあげられず、1988 年、設計を含めた生産過程全てをビーチに売り渡す契約に合意し、同年に日本国内での販売も終了した。MU-300 はその後米国のビーチ社の Hawker 400 および米軍の訓練機 T-1A Jayhawk として生産・運用中で、これまでに総計約 800 機が生産されている。なお、富士重工業もロックウェル・インターナショナル社と共同でビジネス用双発プロペラ機 FA-300 を開発して 1975 年初飛行したが、オイルショックの影響により FA-300 は受注が確定する前に販売中止が決まり、すでに生産していた 47 機で生産終了となった。

(3) YX 計画

1966 年、YS-11 に続く民間機の研究のため航空審議会によって「次期民間輸送機のための研究」が始まり、1968 年には「90 席前後のターボジェット旅客機」が発案された。日本航空機製造内に「YX 開発本部」が設置されて、市場調査と基礎設計が行われた。開発費が高騰すると見込まれる中で、1970 年ごろ、外国各社が同クラスの機体の共同開発を持ちかけてきた。1971 年、共同開発先を見極めるため「航空機工業海外調査団」がア

メリカに派遣された。ボーイングは日本を対等パートナーとして 50 パーセントの分担比率を提示したため、YX 開発専門委員会は、「交渉相手として、当面ボーイングを第一対象とする」と決めて、YX 計画は本格的に動き出した。その後 1977 年 7 月の日米交渉において、分担率はボーイング 70 パーセント、アエリタリア 15 パーセント、日本 15 パーセントに決定し、当初の 50 パーセントから大きく後退した。開発の全責任はボーイングが負い、主導権を持つこととなった。

1978 年、ボーイングが 7X7 の受注を獲得したことから、民間航空機開発協会とボーイングの間で基本事業契約が締結され、7X7 の開発が開始された。YX/7X7 は B767 (Fig. 9 (a)) となり、日本では民間航空機開発協会が三菱重工業、川崎重工業、富士重工業に作業を委託し、3 社によって分担開発された。開発部位は三菱が後胴パネル、川崎が前胴・中胴パネル、富士が主翼胴体間フェアリングを担当し、ボーイングに引き渡すこととなった。B767 は 1981 年に初飛行、1982 年 7 月に連邦航空局の形式証明を取得して 9 月に就航した。B767 全シリーズの平成 24 年 12 月までの受注数は 1108 機、そのうち 1040 機が納入されている。

(4) YXX 計画

1979 年 8 月、新たな国産機、「YS-11 の精神を引き継ぐ、日本独自の計画」として「100 席クラスまたはそれよりやや大型」旅客機の開発計画が始まった。これが YXX である。日本航空機開発協会（民間輸送機開発協会が新明和工業と日本飛行機が加盟したことから改組）はボーイングが参加を打診してきた 7J7 を共同開発することを決定した。この YXX/7J7 の概要は、座席数は 147 席から 166 席とし、ターボプロップエンジンより進歩したプロップファンエンジンを搭載した双発プロペラ機で、開発比率はボーイング 75 パーセント：日本 25 パーセントとするものであった。しかし、ターボファンエンジンの高性能化によってジェット機の燃費も向上したため、7J7 の魅力もなくなって、1987 年にはボーイングの 7J7 計画は事実上中止となった。

その後、ボーイングは国際分担によって開発費を減らすことと、日本の高品質低価格の技術力や日本の開発費に関心を示して、747 と 767 の間を埋める 350 席クラスの中型旅客機の共同開発を改めて日本に打診してきた。日本航空機開発協会（JADC、民間輸送機開発協会に 1983 年、新明和工業と日本飛行機が参加して改組）は、アメリカの対日感情悪化を恐れる日本政府に配慮する形で参加を決定した。日本の分担を 21 パーセント（胴体の大部分、中央翼、主翼胴体間フェアリング、主翼リブなど多数）まで伸ばすことができたが、やはり最重要な部分からは締め出された。「日本が主体性をもつ」こととしたはずの YXX も、結局ボーイングの B777 (Fig. 9 (b)) の共同開発となった。1994 年、B777 の 1 号機が



Specifications of B767, B777 and B787

	B767-300	B777-200	B787-8
Length	54.9m	63.7m	56.7m
Wingspan	47.6m	60.9m	60.1m
Height	15.8m	18.5m	16.9m
Engine thrust	21,800kgf × 2	42,500kgf × 2	31,660kgf × 2
Standard seating capacity	261 or 232	268 or 302	186
Cruising speed	862km/h	905km/h	901km/h
Maximum take-off weight	133.8t or 152.0t	213.2t	227.9t
Range	3,280km or 5,510km	8,200km or 12,600 km	14,800km

Fig. 9 Boeing jet airliners, B767, B777 and B787 and their specifications
(from <https://www.jal.co.jp/aircraft/>)

ロールアウトした。1998年より量産事業への移管に伴い、JADCの権利義務は民間航空機株式会社（CAC）に移管された。平成24年12月末現在の受注数は1431機であり、そのうち1066機が納入されている。

(5) YSX 計画

日本航空宇宙工業会はボーイングが絶対的の主導権を握るYXXよりも日本の主体性をもたせた輸送機計画を持つべきだとして、1986年に「民間機調査検討委員会」を設置し、以下の機体の検討をはじめた。①50席から100席の小型機開発の検討、②YS-11の姿勢を引き継ぎ、経験を生かせる機体、③共同開発においても、マーケティング、商品企画、開発、生産、販売、サポートにおいて日本が主体性とメジャーシェアを保つこと。翌1987年、ターボファンエンジンの双発とすることになった。1989年に日本航空機開発協会は、ターボファン双発・75席輸送機の開発と、国際共同開発の可能性の検討をはじめた。1991年には、「小型民間機（YSX）開発調査」が開始された。1994年4月になると、ボーイングが突如YSXへの関心を強めたが、1997年ボーイングはマクドネル・ダグラスMDを吸収合併し、MD-95を「ボーイング717-200」として継続販売すると発表し、事実上のYSXを放棄した。2000年、国家産業技術戦略検討会において、当面YSX開発の可能性はないとして、国としてYSX放棄を発表した。

この間、三菱はボンバルディアとの間で小型リージョナルジェット機の共同開発を次々に進め、川崎重工業もこのころ三菱への対抗上、エンブラエルへの接近姿勢を強めていた。2002年8月末に経済産業省が発表した30席から50席クラスの小型ジェット機開発案「環境適応型高性能小型航空機」で、YSXまでの企業各社横並びの事業を取りやめ、積極的な企業が自己責任で開発を押し進めることとした。この開発が三菱のMRJに繋がる。一方、川崎重工は、2001年（平成13）防衛庁の次期輸送機（CX）と次期対潜哨戒機（PX）の主契約企業となり、YSXの大きさに近いCXとPXの開発に取り組んだ。

1995年に就航開始したB777に次ぐ機種の開発を検討していたボーイングは、将来必要な旅客機は音速に近い速度で巡航できる高速機であると考え、2001年初めに250席前後のソニック・クルーザーを提案した。しかし運航経費を抑えたいという航空会社各社の関心を得ることができず、2002年末にこのソニック・クルーザー開発を断念して通常型7E7の開発に着手した。この通常型7E7は、速度よりも効率を重視したボーイング767クラスの双発中型旅客機である。2004年4月に全日本空輸が50機発注したことによって開発がスタートし、呼称も787（Fig. 9 (c)）に改められた。当初の開発スケジュールは大幅に遅れ、ボーイング787型機が初飛行

を行ったのは、当初の予定から2年以上遅れの2009年12月15日であった。2011年9月28日、初号機となった全日本空輸向けの第1号機が東京国際空港に到着した。ロールアウトから実に4年越しであった。787は767より、航続距離や巡航速度は大幅に上回るとともに、燃費も向上している。炭素繊維を使用した炭素繊維強化プラスチック（CFRP）の複合材料の使用比率が約50%であり、アルミニウムは20%にまで減少した。日本の分担比率は35%である。この間のボーイング機の機体材料の構成比率をFig. 10に示す¹¹⁾。

3.4 戦後の国産航空機用材料, B767用ストリンガー用材料, ポリッシュドスキン材, 鍛造材の開発

戦後、一時期、航空機の研究開発、製造は禁止されていたが、朝鮮戦争特需で復活し、1957年には全面的に解禁された。日本ではYS11, MU-2, MU-300などの国産航空機が生まれたが、販売網やサービス網、円高などの理由で赤字となり生産中止に追い込まれた。その後、日本の航空機メーカーはYX, YXX計画(B767, B777)でボーイング社の機体の分担生産を通して復活してきた。この国内生産に伴い、戦前から航空機材の生産を行ってきた住友軽金属、神戸製鋼、古河電工（現在の古河スカイ）の三社も素材の国産化を行って機体メーカーに供給してきた。特に、古河スカイの最新鋭の福井工場は広幅厚板の航空機材が生産できる製造設備を有している¹²⁾。

ボーイングのB767機体の製造では、従来、7075押出型材を用いたストリンガー（縦通し材）の重量を軽減するため、Fig. 11に示すように、板材を圧延により長手方向で肉厚を変動させ、継手部分のみを厚くしたテーパーストリンガーを全面的に用いようとした。しかしながら、従来の海外製7075板材では、テーパー圧延で弱加工された部分は溶体化処理で結晶粒粗大化が生じて、その後のハット型加工で割れが発生し、疲労強度の低下する問題が発生した。このため弱加工でも結晶粒粗大化しない材料の開発が求められた。住友の馬場、宇野らは連続焼鈍炉を用い急速加熱、急速冷却処理で結晶粒を50 μm 以下に微細化し、その後適正な析出処理により軟化させ

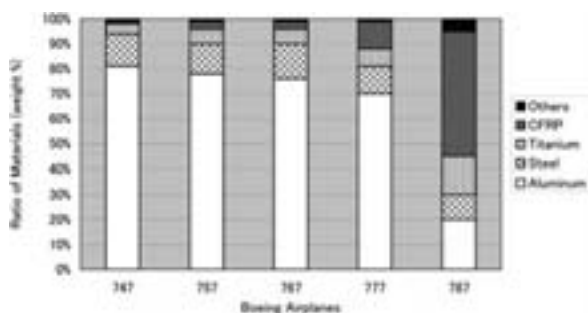


Fig. 10 Component Ratio of Materials in Boeing Airplanes

ることで、テーパー圧延の弱加工・溶体化処理で結晶粒粗大化が生じない加工熱処理法を開発し国産化した¹³⁾。三菱重工はこの加工熱処理を施した板材をハット型に成形し、ボーイングB767, B777のストリンガーに用いることができた。Fig. 12はB767機の胴体部で、ハット型に成形されたテーパーストリンガーと湾曲したフレームと外板がリベットで組み合わされて様子がわかる^{14,15)}。その後、ストリンガーのコストダウンや耐耐力腐食割れの改善のための成分や調質の検討、復元処理利用による加工工程の簡略化を三菱重工業と共同研究した¹⁶⁾。

一方、神戸製鋼や古河スカイは、ポリッシュドスキンの国産化に取り組んだ。航空機は耐食性向上や疵防止のために、表面を塗装しているが、4~5年で塗り替えるため有機溶剤で剥離して環境に負荷を与えることや、塗料の重量が相当なもので、塗装が省ければ燃費の節約にも寄与できることから、ボーイング社では外板を無塗装で使用するようになった。Fig. 13はポリッシュドスキンを採用した航空機である。当初、Bright Rolled Skin（ロールドスキン）が用いられたが、光沢、ロールマーク、デント、スクラッチ等、表面品質が厳しく歩留まりが悪くてコスト的にあわず、多くの会社が撤退した。その後ボーイング社とMPC（Metal Polishing Co.）と共

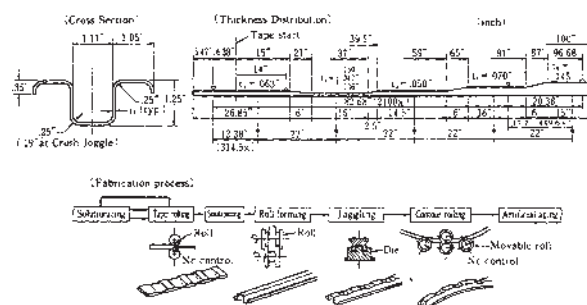


Fig. 11 Manufacturing process of a taper-rolled stringer



Fig. 12 B767's fuselage constructed with frames, skins and taper-rolled stringers

同でポリッシュドスキンを開発し、アルコア社のみが供給できることとなった。ポリッシュドスキンとは、アルミクラッド材を研磨剤で磨き、光沢をだし、表面に形成される自然酸化皮膜で腐食防止をはかる方法である。神戸製鋼と古河スカイは、表面疵、色むらがなく、光沢に優れた表面の評価技術と研磨方法を確立して外板用広幅クラッド材の国産化に成功した¹⁷⁾。ただし、このポリッシュドスキン材も航空機会社が耐食性を維持するために定期的に研磨することが必要である。その他、鍛造材として、神戸製鋼は8000トン精密型鍛造プレスを導入し、鍛造方法と残留応力除去技術を確立してB767の窓枠材を納入した^{18,19)}。古河スカイも15000トンの大型液圧熱間鍛造プレスを導入し、2004年より航空機用大型鍛造品を製造している²⁰⁾。



Fig. 13 B767 Airplane with polished skins
(http://blog.goo.ne.jp/boeing767_fan/e/ebcb9807f00eb82400d40ef80474a987
by Hideo Obayashi 尾林 英夫)

航空機材料の研究は日本航空宇宙工業会の委託研究を受け、住友では7075、7050合金板材、押出材での高靱性アルミニウム合金の開発研究(1980-82、神戸製鋼、古河電工と共同研究)²¹⁾、7475合金、Al-Li合金超塑性材開発と超塑性加工法の開発(1983-88、三菱重工業と共同研究)の研究を実施した^{22,23)}。この7075合金は、熱延板に対し適切な析出処理(過時効処理)を施し、その後温間圧延、冷間圧延と急速加熱処理を行う加工熱処理法を用いると、10 μ m程度まで結晶粒は微細化する。この材料を高温で引張変形させると超塑性が得られることから、ドアパネル等に成形された。この超塑性成形法により、Fig. 14に示すドアパネルでは、従来方法では45個のパーツ、400個のリベットで加工されたパネルに対して、3個のパーツと80個のリベットで組立てができ、コストで30%、重量で15%軽減されることがわかった。

Al-Li合金の研究開発では、最近欧米で復活しつつあるが、1980年代に低密度、高強度、高剛性材料として着目され、Al-Li合金国際会議が盛んに開催された。日本でも欧米をキャッチアップすべく、JRCMの「アルミニウム系新材料の高機能化に関する調査部会」²⁴⁾の構想のもと、(株)アリシウムを設立して1989年から共同研究を開始した。一応予定された範囲の研究は終了したが、靱性で問題があり、価格が高いことなどがあって、実用化には至らなかった²⁵⁾。最近の第三世代のAl-Li合金は、8090、2090といった第二世代のAl-Li合金と比較して、Li添加量を2%以下にして、若干密度を犠牲にして靱性を向上させているのが特徴である。Fig. 15はAl-Li合金開発の流れである²⁶⁾。

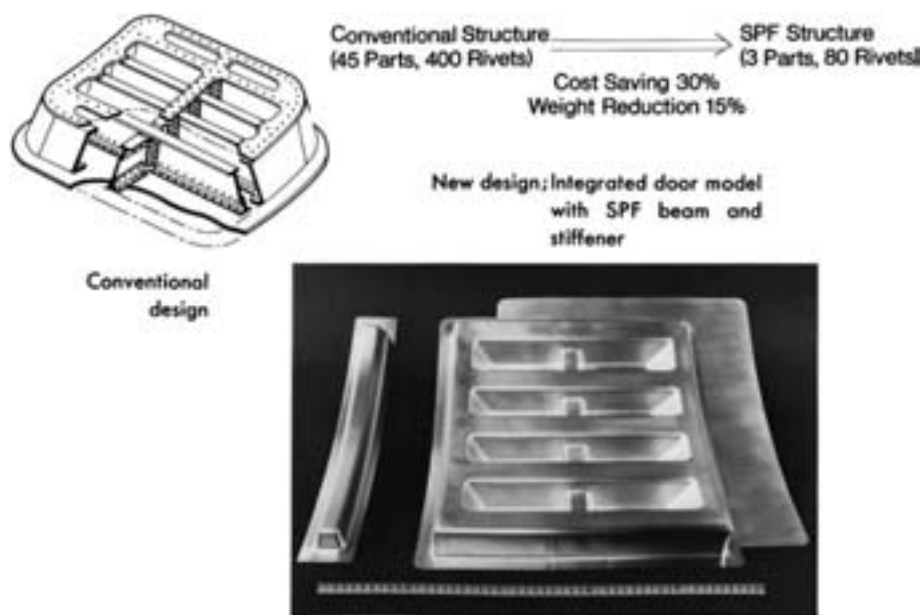


Fig. 14 Door panel model formed using a 7475 superplastic sheet compared with a conventional structure.

4. アルミニウム産業からみた航空機用材料

4.1 航空機用材料の市場、欧米との比較

アルミニウム産業における国内の航空機向けアルミニウム材の生産量は2012年約4100トン²⁷⁾で、アルミニウム圧延品(板, 押出)の年間国内生産量200万トンの0.2%程度である。国内での航空機生産に使用するアルミニウム材料は約26700トンで8割が輸入材である。日本航空宇宙工業会「航空機用アルミニウム合金の生産能力の実態及び課題の調査」(平成14年3月)の資料では2016-2020年民間機(大型機, リージョナル機)用アルミ素材市場推定では世界で約27万トン/年あるといわれている¹²⁾。

日本の航空機メーカーはアルミニウムの素材を、米国をはじめとして圧倒的に海外に依存している。この原因は、大型設備で大量生産された海外製品が安いということと日本国内ではその製造工程が複雑で生産性が低く、それよりも缶材などの製品を大量に生産した方が時間当たりの利益が大きいといったことがあげられる。そのため日本でしか製造できないような特殊な航空機材料しか注文がこないことになる。さらに、アルコア社は7055-T7751といったような特殊な熱処理された合金を特許化して、それをボーイング社に認定させ他社が参入できないようにしていることもあげられる。かくして日本製品は航空機材料市場に入れていないのが現状である。このため高強度材料の開発や製造技術もまた海外勢に遅れを取っている。住友の場合、厚板材から撤退し薄板へ戦略を転換させた。これは熱間圧延設備の制約により他社のように厚板での広幅材が製造できないことにもよる。航空機材では水焼れが可能な連続焼鈍加熱炉を有している

ので薄板のみ生産できる。押出材では縦型の焼入れ炉を有し航空機材料のような高強度合金を製造できるが、これも超々ジュラルミンの延長上としてオートバイのフロントフォークや硬式野球バット用に航空機材並みの高強度材を製造し続けてきたからである²⁸⁾。古河スカイは福井に最新の熱間圧延設備を有し、広幅厚板の航空機材を製造する能力があり航空機材を製造しているが量的には多くない。むしろ最近ではLNGやIT関連の厚板の需要の方が旺盛である。海外勢に対抗するには航空機材の生産性が課題で、生産性をあげ低コスト化をはかるか、短納期で寸法精度が高く残留応力の少ない高品質の素材を生産し、機体メーカーや部品メーカーでの加工コスト低減に寄与できる製品を製造していくかに係っている。いずれにしても機体メーカー、部品メーカーの協力が必要である。マーケットのないところでは技術も研究も廃れていくのは当然である。戦前が国策として航空機のためにアルミニウム産業を育成してきた状況とは大きく異なっている。これは航空機産業についてもいえることである。日本の航空機産業が米国に依存しているうちは新しいアルミニウム合金開発も難しいと考えられる。

4.2 戦後初の国産の航空機用2013合金の開発

最近の航空機材開発の流れは、従来からの超々ジュラルミンを超える高強度高靱性材料の開発ともう一つは航空機製造のコスト低減化に寄与できる材料、技術開発がある。後者における材料開発では、耐食性で優れている6000系合金が注目され、米国では6013合金が開発された。2024合金に比べ耐食性が優れるためクラッド材を用いる必要がなく、さらに腐食環境に晒された後の疲労強度は2024合金と同等である。日本においても、川崎

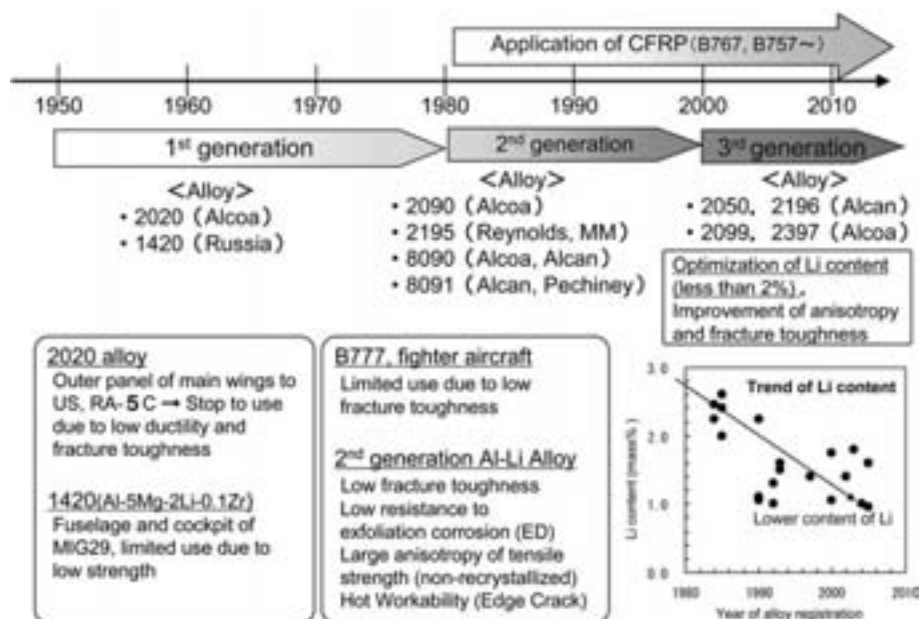


Fig. 15 Trend of the development in Al-Li alloys

重工業と住友軽金属は日本航空宇宙工業会の委託研究として、2024 合金-T3 材の強度に匹敵し、6013 合金より高強度の 6000 系板材を開発し、航空機に適用する検討を行った²⁹⁾。この板材を用いると、従来 2024-O 材で成形し、焼入れしていた工法が、T4で成形し成形後人工時効する工程が可能となり、成形加工後の焼入れによるひずみ矯正が不要で製造コスト低減となる。この合金はまた、Fig. 16 に示すように、従来の 2000 系合金ではできなかった中空薄肉ホロー形材が押出可能で、複雑な形状の航空機部品の一体化成形ができ、従来のリベット接合が不要になり重量軽減が図れ、低コストで製造できることが明らかとなった³⁰⁾。この高強度高成形 6000 系合金は 2013 合金として、米国の Aluminum Association に国際登録され、その押出材は米国の航空機規格 MMPDS を取得している^{31~38)}。日本で最初に MMPDS に登録された国産合金である。この合金は航空機のコスト低減が可能で軽量化に寄与できるもので、今後の航空機の設計に是非織り込んで欲しいと考える。戦後、住友を見学した堀越二郎氏は、現場でホロー形材をみて、こんなものがアルミニウムでできるならばもっと違った航空機も出来ただろうとの感想を述べている³⁹⁾。航空機的设计者がアルミニウムの製造現場を見ていただくのはとても重要なことである。

4.3 航空機用材料の研究開発の意義、高強度高靱性合金の研究開発の必要性

航空機材料は、その用途が航空機だけにアルミニウム材料の中でも最も厳しい品質が要求される材料である。逆にこの品質要求に応えられる材料はどこでも通用できると言えよう。こうした材料を製造できる技術は他の用途の材料も当然高品質で生産できると考えられる。高強度高靱性アルミニウム合金の研究はアルミニウム合金の究極の特性を探求することでもあり、超々ジュラルミンの探求がまさにそれであった。この間の世界の高強度合金開発の歴史を辿ってみると、Table 1 にみるように最

近の合金の成分は超々ジュラルミンの成分に近づいていることがわかる。それだけこの合金は世界でも先進的な発明でもあった。超々ジュラルミンの発見から 80 年近い年月が経っていて、この間の製造技術の進歩も大きく発展しているが、合金成分で見ると限りクロムがジルコニウムに置き換わっただけでありあまり進んでいないとも言える。いま、この超々ジュラルミンを超える材料が求められている。しかし既存のプロセスだけでは限界があることも確かである。強度を上げようとする、延性や靱性が低下してしまうことである。これらの原因の一つに、 casting時に晶出物が生成し、これが粗大化し結晶粒界に残存することである。晶出物の生成を抑制あるいは微細化できる casting技術が必要である。また生成しても、その後の加工熱処理で晶出物を粒内に取り込むことができれば粒界割れを抑制でき、延性、靱性を向上させることが出来るであろう⁴⁰⁾。こうした技術開発は、当然航空機材料以外でも十分活用でき、例えば晶出物の多い Al-Fe 系や Al-Mn 系合金、Al-Si 系合金に適用することで、これらの合金の適用限界も大きく拡大することも可能となる。日本の英知を結集して超々ジュラルミンを超える材料を開発して、世界に通用できる航空機材料として貢献できることが必要である。

5. 今後の航空機用アルミニウム合金開発の課題

5.1 国産旅客機 MRJ の登場

ボーイング 767, 777, 787 の機体の製造を通じて、日本の航空機産業は発展してきた。この間、三菱重工では国産の乗客 9 人乗りの高級ビジネスジェット機 MU300 なども製造してきたが、今また再び国産旅客機 MRJ (Fig. 17) を製造し世界中に販売することとなった。この機体は将来需要が期待される 70~90 人のリージョナルジェットである。将来の需要予測を Fig. 18 に示す^{41,42)}。この分野の航空機としては既にカナダのボンバルディアやブラジルのエンブラエル、さらにロシアや中国が進出しようとしている。ここでの競争に打ち勝つには、自動車と同様にユーザーニーズを的確に把握しこれを機体の性能に反映させることと、一層のコストダウンを図ることが重要である。アルミメーカーにとっては幸いにも MRJ は B787 とは違ってアルミニウムを多く使用する機体であり、材料面でもさらに性能、品質の向上を図って行くことが必要である。できるだけ国産の材料をもちいていただくよう、材料メーカーも努力することが必要である。特に、自動車の分野では自動車メーカーと材料メーカーが一緒になって性能を満足する材料を開発してきている。材料メーカーが自動車メーカーの中に入って一緒に考える仕組みが出来ている。航空機でもこのような仕組みを用いればもっとすばらしい材料が生まれてくるものと考えられる。

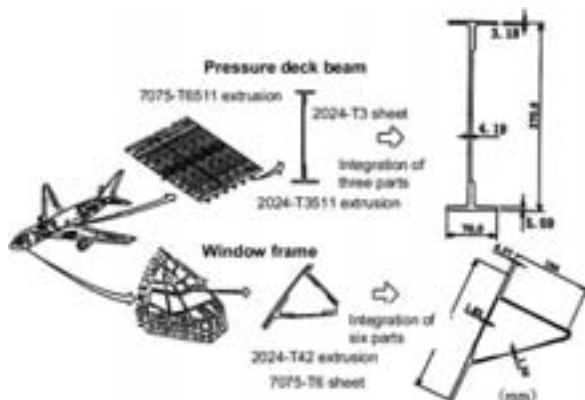


Fig. 16 Applications of new alloy 2013 extrusions to integrated structures in a pressure deck beam and a window frame

Table 1 High strength aluminum alloys for aircrafts developed after World War II

Alloy	Year	Country	Zn	Mg	Cu	Mn	Cr	Zr	Ti	Fe	Si
2024	1954	USA	0.25	1.2-1.8	3.8-4.9	0.30-0.9	0.10		0.15	0.50	0.50
2324	1978	USA	0.25	1.2-1.8	3.8-4.4	0.30-0.9	0.10		0.15	0.12	0.10
2524	1995	USA	0.15	1.2-1.6	4.0-4.5	0.45-0.7	0.05		0.10	0.12	0.06
2026	1999	USA	0.10	1.0-1.6	3.6-4.3	0.30-0.8		0.05-0.25	0.06	0.07	0.05
2027	2001	France	0.20	1.0-1.5	3.9-4.9	0.50-1.2		0.05-0.15	0.08	0.15	0.12
7075	1954	USA	5.1-6.1	2.1-2.9	1.2-2.0	0.30	0.18-0.28		0.20	0.50	0.40
7475	1969	USA	5.2-6.2	1.9-2.6	1.2-1.9	0.06	0.18-0.25		0.06	0.12	0.10
7050	1971	USA	5.7-6.9	1.9-2.6	2.0-2.6	0.10	0.04	0.08-0.15	0.06	0.15	0.12
7150	1978	USA	5.9-6.9	2.0-2.7	1.9-2.5	0.10	0.04	0.08-0.15	0.06	0.15	0.12
7055	1991	USA	7.6-8.4	1.8-2.3	2.0-2.6	0.05	0.04	0.08-0.25	0.06	0.15	0.10
7349	1994	France	7.5-8.7	1.8-2.7	1.4-2.1	0.20	0.10-0.22	Zr+Ti0.25		0.15	0.12
7449	1994	France	7.5-8.7	1.8-2.7	1.4-2.1	0.20		Zr+Ti0.25		0.15	0.12
7040	1996	France	5.7-6.7	1.7-2.4	1.5-2.3	0.04	0.04	0.05-0.12	0.06	0.13	0.10
7085	2002	USA	7.0-8.0	1.2-1.8	1.3-2.0	0.04	0.04	0.08-0.15	0.06	0.08	0.06
7056	2004	France	8.5-9.7	1.5-2.3	1.2-1.9	0.20		0.05-0.15	0.08	0.12	0.10
7140	2005	France	6.2-7.0	1.5-2.4	1.3-2.3	0.04	0.04	0.05-0.12	0.06	0.13	0.10
ESD	1936	Japan	8	1.5	2	0.50	0.25				
ZC88	1999	Sumitomo	8.8	1.7	2.3			0.15			

また川崎重工業では防衛省の大型輸送機（XC-2）や対潜哨戒機（XP-1）（Fig. 19）を製造することで機体の設計製造が総て国産化できる状況になってきている⁴³⁾。この技術を民間機に転用し世界に販売して行くことも日本の技術力をあげていくことに繋がると考えられる。

5.2 現状の課題、軽金属学会東海支部航空機材料部会の活動に即して

軽金属学会東海支部は、2010年、こうした最近の東海地区の航空機産業の状況を鑑みて、アルミニウム材料を継続的に用いていただくために、産として素材製造メーカー、機体製造メーカー、部品加工メーカー、表面処理メーカー、官として中部経済産業局、愛知県労働産業部、産業技術総合研究所、中部航空宇宙技術センター、学として名古屋大学、大同大学などを入れた産官学の航空機材料部会（部会長、名古屋大学金武直幸教授）を発足させた。ここで航空機用アルミニウム材料の現状把握と課題の抽出を行い、素材製造WG、切削加工WG、リサイクルWG、表面処理WGの四つのワーキンググループに分けて、ワーキンググループごとに将来の技術課題を検討した。素材WGからは、型材の寸法精度向上技術、ブリスター発生抑制技術、高強度高剛性合金の開発、大型素材の国産化、切削加工WGからは素材の残留応力低減技術、切削後の変形予測技術、加工発熱の少ない高速加工技術などの開発、リサイクルWGからは can to can



Fig. 17 Mitsubishi regional jet MRJ

のようなリサイクルシステム構築、二輪車部品への再利用技術の開発、表面処理WGからは、素材、表面処理、使用環境が耐食性に及ぼす影響の解明、環境適合でかつ自己修復機能を持った表面処理技術の開発が将来の技術課題として提案された。

5.3 国プロとしての材料開発の意義、海外からの攻勢に対抗して

東海支部航空機材料部会では将来技術課題をまとめたが、これを実行に移していくには個別の会社ごとに取り組むのは非常に難しいのが現状で、是非、国家プロジェクトとして総合的に取り組んでいく必要がある。航空機産業は自動車産業と並んで東海地区の基幹産業で発展の原動力となっている。航空機産業を支えていくには各種の基盤技術の確立が必要であるが、アルミニウムに関してはこのような基盤技術を促進させるセンターがないの

で、国はこれを設立させ基盤技術を牽引していくことが切望される。

最近ではCFRPが注目されているが、アルミニウム材料ですらまだ多くの課題を抱えているのが現状である。小型の航空機はまだまだアルミニウムが利用されると考えられる。日本の自動車産業は、低コストで性能がよいものを作る技術を確立してきたが、これをもっと航空機産業に活用して世界に販路を開拓していくことが重要である。小型のリージョナルジェットでは、カナダ、ブラジル、ロシア、中国が競合相手で、いずれも国家の支援を受けて成長してきている。素材の大型化では大型の生産設備が必要になるが、とても一社だけではリスクが大きく、ここにも国の支援が必要である。また最近欧米で復活してきたAl-Li合金については、機体メーカーとあらためてその必要性を議論したうえで、アルシウムの

経験を踏まえ、合金成分、溶解鋳造について国家プロジェクトとして検討すべき課題であろう。こうした課題を実行していくためにもナショナルセンターが必要である。

6. ま と め

戦前、戦後の航空機産業とアルミニウムの関わりについてまとめてきた。戦前は軍が航空機産業を国策として位置づけ、その指導的役割を果たしてきた。その結果、超々ジュラルミンのような世界に誇れる合金が開発でき、航空機の性能を高めることに貢献できた。合金開発したアルミニウム産業にも確固とした人材と製造技術があったことであり、機体メーカーにも材料の重要性を認識して設計者がいて、官と産がうまく結びついて零戦という優れた航空機に結実したといえよう。戦後は、米国に

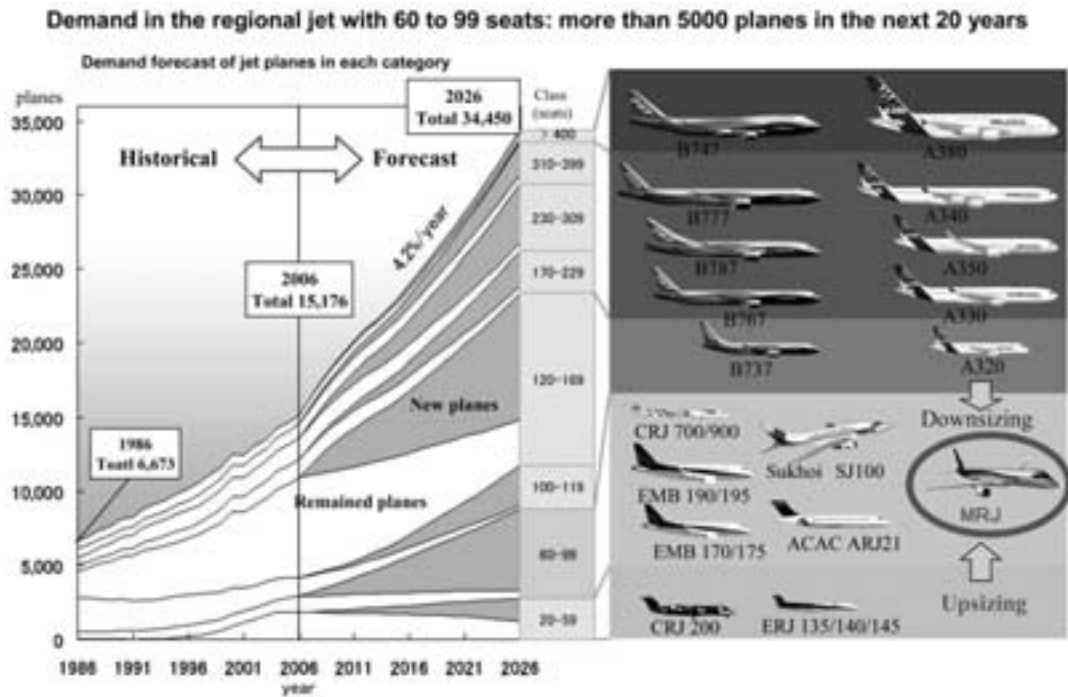


Fig. 18 Demand prediction of jet planes classified by the number of seats and representative planes in each class



Fig. 19 XP-1 (Maritime patrol aircraft) (a) and XC-2 (Military transport aircraft) (b)
 (http://www.khi.co.jp/aero/product/index.html)

よって航空機産業は解体され、その人材が自動車や二輪車のほうに行って戦後の自動車産業を支えてきた。今後日本の産業の発展の一つに航空機産業を位置づけるのであれば、素材製造、機体製造、部品製造が個別に課題を解決していくのでは、とても世界の成長スピードには対応しきれない。戦後、自動車メーカーは、部品メーカー、素材メーカーを取り込んで摺り合わせの技術で優れた品質の自動車を生産してきた。これに倣い、国の指導の下、機体メーカーや部品メーカーと素材メーカーの技術を摺り合わせて、さらに大学での基礎研究も織り込んで、もっと総合的かつ戦略的に問題解決するためのセンターの構築し、ここに産官学の英知を結集して、将来の人材育成も視野に入れて将来の航空機開発に取り組むことが必要である。

参 考 文 献

- 1) 吉田英雄：本誌，53 (2012)，60.
- 2) 吉田英雄：同上，54 (2013)，264.
- 3) 竹内勝治：アルミニウム合金展伸材—その誕生から半世紀—，軽金属溶接構造協会，1986.
- 4) 竹内勝治：技術の歩み，住友軽金属工業株式会社，1995. (非売品)
- 5) 住友軽金属年表 (平成元年版)，住友軽金属工業株式会社，1989年.
- 6) 牧野光雄：飛行船の歴史と技術，成山堂書店，(2010).
- 7) 日本の航空宇宙工業 (平成 25 年度版)：一般社団法人日本航空宇宙工業会，2013.
- 8) ウィキペディア (Wikipedia)：YS-11, MU-2, MU-300, YX, YXX, YSX.
- 9) 横倉 潤：翔べ！YS-11，小学館，2004.
- 10) YS-11 物語，エアライナークラブ編，JTB パブリッシング，2006.
- 11) 伊牟田守：航空機用構造材料の技術開発動向，SOKEIZAI, Vol.51, No.11 (2010)，2.
- 12) 日本航空宇宙工業会：平成 13 年度，航空機用アルミニウム合金の生産能力の実態と課題調査，(2002).
- 13) T. Uno, H. Yoshida and Y. Baba: *Aluminum Alloys; Their Physical and Mechanical Properties*, Vol. 1. ed. by E. A. Stark, Jr. and T. H. Sanders, Jr., EMAS, 371.
- 14) 馬場義雄：本誌，29 (1988)，29., 31 (1990)，65., 41 (2000)，91.
- 15) 住友軽金属技報：新製品紹介，航空機ストリンガー用微細結晶粒 7075 合金板，23 (1982)，120.
- 16) 日本航空宇宙工業会：航空機部品・素材産業振興に関する研究調査，低コスト胴体構造部品加工法の開発，三菱重工業，住友軽金属工業，成果報告書，No.807 (1994)，No.904 (1995).
- 17) 日本航空宇宙工業会：航空技術水準の向上に関する研究調査，航空機用広幅長尺高力アルミ合金板製造技術の研究，神戸製鋼所，No.19 (1980).
- 18) 堀内健文，川手剛雄，上坂辰男，福塚敏夫，西本英敏：神戸製鋼技報，Vol.32, No. 2 (1982)，40.
- 19) 立松武雄，高田与男，黒崎敏夫：同上，Vol.31, No. 1 (1981)，24.
- 20) Furukawa-Sky Review, 新技術紹介，No. 1 (2005)，52.
- 21) 日本航空宇宙工業会：革新航空機技術開発に関する研究調査，高靱性アルミニウム合金の開発の研究，神戸製鋼所，住友軽金属工業，古河アルミニウム工業，成果報告書 No.506 (1981)，No.603 (1982)，No.702 (1983).
- 22) 日本航空宇宙工業会，革新航空機技術開発センター：革新航空機技術開発に関する研究調査，超塑性高力アルミニウム合金の開発および一体化加工法の研究，住友軽金属工業，三菱重工業，No.802 (1984)，No.901 (1985)，No.6001 (1986).
- 23) 日本航空宇宙工業会：航空機部品・素材産業振興に関する研究調査，Al-Li 合金の超塑性材料開発，超塑性加工法の研究，三菱重工業，住友軽金属工業，成果報告書，No. 105 (1987)，No.205 (1988)，No.307 (1989).
- 24) 金属系材料研究開発センター，アルミニウム系新材料の高機能化に関する調査部会：高比強度アルミニウム合金調査 WG の調査研究報告書，(1998)，(1999)，(2000).
- 25) 吉田英雄，内田秀俊：本誌，34 (1993)，87.
- 26) 航空機国際共同開発促進基金【解説概要 24-2】，航空機用アルミニウム合金および航空機産業の最近の動向 http://www.iadf.or.jp/8361/LIBRARY/MEDIA/H24_dokojyoho/24-2.pdf
- 27) アルミニウム協会：アルミニウム圧延品 需要部門別特殊分類出荷実績 (2013).
- 28) 吉田英雄：本誌，46 (2005)，99.
- 29) 日本航空宇宙工業会：航空機部品・素材産業振興に関する調査研究，高強度高成形 6000 系新合金の研究，住友軽金属工業，川崎重工業，成果報告書，No.806 (1994)，No.904 (1995).
- 30) 日本航空宇宙工業会：航空機部品・素材産業振興に関する調査研究，新 6000 系合金の航空機用鍛造/押出材の開発，住友軽金属工業，川崎重工業，成果報告書，No.1004 (1996)，No.1102 (1997).
- 31) 佐野秀男，松田眞一，吉田英雄：本誌，45 (2004)，168.
- 32) 佐野秀男，加藤勝也：本誌，46 (2005)，126.
- 33) 加藤勝也，佐野秀男：本誌，47 (2006)，105.
- 34) 佐野秀男，加藤勝也：本誌，51 (2010)，166.
- 35) 日本航空宇宙工業会：環境調和型航空機技術に関する調査研究 (CD 版)，複雑形状の押出可能な高強度合金 2013 の一次構造体への適用研究，住友軽金属工業，川崎重工業，成果報告書，No.1615 (2005)，No.1705 (2006).
- 36) 日本航空宇宙工業会：環境調和型航空機技術に関する調査研究 (CD 版)，高成形合金 2013 板材の開発及び低コスト構造への適用研究，住友軽金属工業，川崎重工業，成果報告書，No.1914 (2008)，No.2006 (2009).
- 37) 岩村信吾，小関好和，吉田英雄：本誌，51 (2010)，32.
- 38) 小関好和，岩村信吾，上向賢一，山田悦子：本誌，51 (2010)，61.
- 39) 深井誠吉：本誌，29 (1988)，87.
- 40) 吉田英雄：本誌，36 (1995)，37.
- 41) 例えば日本航空機開発協会：民間航空機に関する市場予測 2013-2032，最新版は <http://www.jadc.or.jp/jadc13.pdf> 参照のこと。
- 42) 八代充造：国産旅客機 MRJ 事業への挑戦と適用軽量化材料，平成 22 年度軽金属学会東海支部第一回講演会資料，(2010).
- 43) 野久 徹：大型機開発のトピックス，平成 23 年度軽金属学会東海支部第一回講演会資料，(2011).

超々ジュラルミンと零戦 —超々ジュラルミン開発物語— (その2) *

吉田英雄**

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 264-326

Extra Super Duralumin and Zero Fighter —History of Extra Super Duralumin— Part 2

Hideo Yoshida

The history of the development of the Extra Super Duralumin is divided in three stages; first pre-history before the invention of the ESD, next, the invention of the ESD and its commercial production during World War II, and finally, the development of high strength aluminum alloys after World War II. The pre-history was summarized in a preceding issue. In this issue, the second and third stages are summarized. In the second stage, aluminum was introduced into Japan in 1886 and Sumitomo began to produce aluminum sheets in 1898. In World War I, Sumitomo received part of the frame of the Zeppelin airship from the Japanese Navy in 1916 and produced Duralumin in 1919. To produce the Duralumin, Sumitomo sent engineers to Dürener Metallwerke after the World War I as compensation for the war. Sumitomo also cooperated with Alcoa on manufacturing equipment and it was possible to produce Super Duralumin (SD), similar to 24S, which was used in the Mitsubishi Navy Type 96 Carrier-Based Fighter. The Japanese Navy demanded a higher strength aluminum alloy than 24S. Dr. Igarashi and his cooperators invented Extra Super Duralumin (ESD) with a tensile strength of 60kgf/mm² within 1936 within a short time of period. Immediately, this new alloy, ESD, was applied to the main wing of the Zero Fighter, which became the main fighter for Japan in World War II. To produce Duralumin, SD and ESD in large amounts, Sumitomo developed a new continuous casting facility, and built a new plant in Nagoya and then introduced new rolling mills, new extruding presses, etc. ESD was invented by solving the problem of season cracking (now called stress corrosion cracking), which was prevented by the addition of chromium to the Al-Zn-Mg-Cu alloys. However, US forces found the secret of ESD by investigating a downed Zero Fighter. Based on ESD, Alcoa developed the 7075 alloy in 1943, which is even now a typical aluminum alloy for aircrafts and is available all over the world. After World War II, high strength aluminum alloys were needed for railway cars, motorcycles and automobiles instead of aircraft in Japan. In the railway cars, weldable Al-Zn-Mg alloys were noted in Europe and USA, which were already developed as good extruding alloys during the war and known as Honda Duralumin (HD) in Japan. In Sumitomo, Dr. Baba found through basic research that zirconium decreases the quench sensitivity compared to chromium in the Al-Zn-Mg alloys and prevents the weld crack and stress corrosion cracking, and he and his coworker invented a new Al-Zn-Mg alloy containing zirconium instead of chromium for the first time in the world. He then invented a new extruding Al-Zn-Mg alloy, 7003, with a good extrudability and medium strength the same as the 6061 alloy by air cooling. These alloys were used for the body structure of railway cars and rims, frames of motorcycles and the bumper reinforcement of automobiles. On the other hand, high strength aluminum alloys for aircrafts were used for the front fork of motorcycles and

baseball bats. For airplanes, Dr. Baba and his coworkers invented the 7075 alloy sheet with fine grains for the taper-rolled stringer of the B767. Recently, the 2013 alloy with a good workability was invented in cooperation with Kawasaki Heavy Industries. This alloy sheet is formed in T4 and it is possible to omit the quenching after forming and correction processing. Moreover it is possible to extrude hollow section and form integrated structures with this alloy. Therefore, this alloy has contributed to saving processing costs and reduce the weight. Hereafter, we are expected to develop aluminum alloys available for the Japanese aircraft industries in cooperation with government and academia, taking over the tradition of ESD.

3. 超々ジュラルミンの開発

3.1 アルミニウムの日本への導入^{1,2,3)}

ホールとエルーがアルミニウムの電解精錬法を発明した1886年の翌年には、少量のアルミニウムが陸軍砲兵工廠に輸入され、貴重品扱いで金庫に保管されたようである。その後、軍需用器物として使用されたのは1894年からである。住友伸銅場は1897年安治川に開設され、翌年、陸軍砲兵工廠から地金を受取り、アルミニウムを圧延して納入した。1913年7月、住友伸銅所(同年6月に伸銅場から伸銅所と改称)は農商務省技師で金属製品の分析・試験に従事していた杉浦稠三(しげぞう)氏を招いて試験係に任じた。1916年には、杉浦氏は「自身で研究開発しなければ、何時までたっても外国の下位に立たねばならない」、「工場に研究が専属することによって、官立の試験所では出来ないような工場規模の研究が行える」と発案し研究課が設けられた。日本で工場に研究課が設置されたのはこれが最初である。1916年末、海軍艦政本部、大阪海軍監督官長経由でツェッペリンの残骸が住友伸銅所に持ち込まれ、翌年この材料の調査を行ったのが研究課の杉浦氏であった。その分析結果や英国金属学会誌 JIM (Journal Institute of Metals) の文献をもとに、工場における試作研究を開始し、1919年工場試作が完了し、「住友軽銀」(ジュラルミンとルビがふられた)と命名された。この当時のジュラルミンの成分はCu 4%, Mg 0.5%, Mn 1.0%, Al 残である。海軍から住友伸銅所にこの調査依頼した経緯は明らかでないが、杉浦は「当時は金属に関する研究機関が少なく、住友伸銅所は一つの独立した金属専門の研究部門を持っていたためではないか」と述べている。1921年伸銅所は初めてジュラルミンの工業生産を行い、横須賀海軍工廠において国産化した英国ビッカース社製SS型軟式飛行船の吊り船やそのほかの構造材料として板管棒計1トン余りを受注した^{4,5)}。

当時のジュラルミン製造技術はきわめて初歩的なものであったため、海軍は飛行艇を建造するため招聘した技術者の中で、ペーガン (Pagan) 氏を伸銅所に推薦して

きた。彼はNPL (National Physical Laboratory) のローゼンハイン (W. Rosenhain) に師事して英国のアルミニウム製造技術を把握していたことによる。1922年1月から8ヶ月間、住友伸銅所に嘱託として採用され、鑄造、圧延、押出、抽伸の各部門と波板と形材の製造方法について指導した。また、初めて傾斜鑄造法が紹介され、従来造塊方法である「平流し法」あるいは「縦流し法」が改められた。傾斜鑄造法は、ローゼンハイン博士の考案によるもので、Fig. 1に示すように傾斜させた鑄塊をハンドル操作で機械的に立てながら鑄込む方式である。ペーガン氏はハンドル操作の代わりに鑄型の下隅をチェインブロックで吊り下げ、鑄型を傾斜させ、溶湯を注ぎ込みながら徐々に鑄型を立てていくように改良した。これによりジュラルミン鑄塊は板用が厚さ2.25" (57mm)、棒用が直径35" (89mm) となった。焼入れにも彼の指導で硝石炉を使用するようになった。

この年の4月中島式ブレゲー型飛行機の機体構造にはじめて伸銅所製ジュラルミンを使った。「軽銀」号と命名された。ジュラルミン使用の全金属機が生産されたのは1925年のことである。Fig. 2は東京上野で開催され

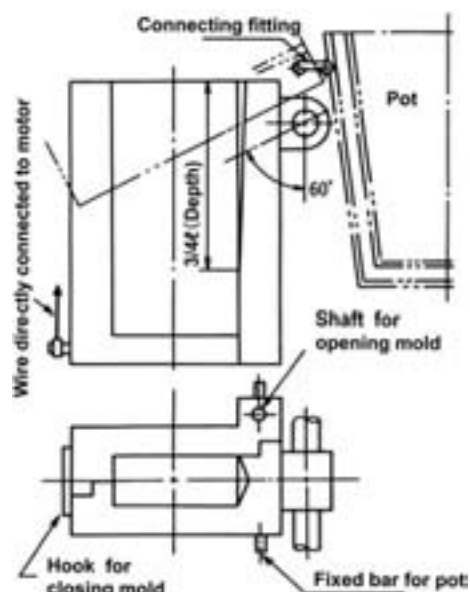


Fig. 1 Inclined Casting¹⁾

* 本稿はアルトピア, Vol.42 (2012), No.12, Vol.43 (2013), No. 1~7に掲載したものに加筆して転載したもの

** 研究開発センター 顧問, 工学博士



Fig. 2 Breguet 14 type aircraft, named "Keigin" fabricated by Nakajima Aircraft Industries Ltd.
(<http://www.ne.jp/asahi/airplane/museum/nakajima/nakajima.html>)

た平和博覧会に展示されたジュラルミンを使用した「中島式 B-6 型 (ブレゲー 14 型) 軽銀号」である⁶⁾。

同年、第一次世界大戦が終わり、日本は戦勝国としてドイツから賠償の 1 つとして何百台かの飛行機を受け取ることになっていたが、「飛行機を得るのは全くの一時の利得であり、むしろ、その製作技術、例えば機体の設計とか軽合金の製法を習得する方が国家百年の大計である」とされ、その結果ジュラルミン製造技術習得団が派遣されることになった。1922 年 3 月、習得団は、海軍造機大佐石川登喜治を団長とし、陸海軍それぞれ若干名と住友伸銅所の技術者 4 名をもって組織された。住友伸銅所からは、工作課の藤井成美氏、管棒工場の野本徳次郎氏、小板工場の柴田吉三郎氏、铸造工場の山本正雄氏が参加した。1922 年 4 月 20 日出発、7 月下旬デュレンに到着し、9 月中旬まで、デュレナ・メタルヴェルケ社 (Dürener Metallwerke A. G.) でジュラルミン製造技術を実習、その後ドイツ、英国の工場を見学して、翌年 2 月 23 日帰国した。デュレナ・メタルヴェルケ社では「同社の作業員と同様に勤務して習得した内容を毎週取りまとめ、同社提供のジュラルミン製造方法習得書と照合検討の上、疑問点は質問して技術の真髄を習得するように努めた」とのことである。なお、同社はウイラムの特許を工業化し、当時、英米仏等の諸国に特許を分譲していた関係から、一行の技術習得に関して住友の名において有償契約の締結が要望され、その結果、陸海軍関係者も形式上は住友派遣員として実習した。なお、ジュラルミン製造技術習得団とともに金属機体製造技術習得団も渡独している。ジュラルミンに関しては、古河電工も 1922 年研究を開始し 1926 年陸軍から試作品の製造を命じられた。

3.2 住友におけるジュラルミン製造技術の確立 (桜島新工場建設)^{1,2,3)}

1923 年、ペーガンの指導と「ジュラルミン製造技術習得団」によってもたらされた技術を組み合わせることによって、新しい製造設備を起業する計画が立てられた。圧風式可傾炉を用い、8" 角型鋳塊を傾斜鑄造機で造塊

し、この鋳塊を 1000 トン型水圧機で鍛造後、帯状圧延しようとする製造法である。しかし、この計画は工場移転の議が起こり、1928 年の桜島新工場移転まで持ち越された。この間、1926 年住友合資会社より分離して住友伸銅鋼管株式会社が設立され、アルコア社との提携が 1928 年成立した。アルコア社は地金販路拡大のため、日本の加工会社との提携を模索しており、1925 年株式会社住友電線製造所との提携が成立、この関係から伸銅鋼管もアルコアと提携し、溶解炉とアルミ板専用の圧延工場を建設することとなった。なお、アルコアは 1928 年 5 月、カナダ法人のアルミニウム・リミティッド (アルキャン) を設立したため提携先も海外事業を主とするアルキャンに変わった。1930 年、アルキャンとの合弁で桜島の板工場と八尾の箔工場を母体に住友アルミニウム株式会社 (現、東洋アルミニウム) が設立された。

桜島移転に伴い、プロペラ翹素材やクランクシャフトなどの大型鍛造品、薄板を板曲げとダイ抽伸で製造するプロフィール品、また鑄造、圧延、押出ならびに抽伸に関する設備の拡充と新技術の採用が行われた。当時の飛行船などの骨組みに使用されたのはジュラルミン板を曲げ加工したプロフィールで、押出型材の最小肉厚は 3 mm が限度であったため、板からのプロフィールが用いられた。プロフィールは厚さが 0.4~0.6mm 程度、長さが 4~5 m である。1939 年頃になると押出最小肉厚は 1.2mm となり、これより薄くする場合には圧延と抽伸で仕上げた。

(1) 鑄造技術

この桜島新工場の鑄造設備は、可傾炉 4 基、坩堝炉 48 基である。最初は 80kg 角型鋳塊、直径 140mm の 40kg 鋳塊が傾斜鑄造法で鑄込まれたが、1931 年には、鍛造素材用に 11~13" 角型鋳塊 (110~120kg) が、管には直径 150mm の 30kg 鋳塊または直径 9" の 50kg 鋳塊が造塊され、逐次大型化に移行した。溶解炉はアルキャンと協議した結果 9 トン反射炉を初めて採用した。反射炉の前には傾斜鑄造機が 4 列、計 16 基が配置され、朝 8 時半から鑄込み開始し午後 3 時半鑄込み終了、炉内清掃し、夜間に 11 トン溶解する一日一溶解方式であった。鑄型はブックモールドで、鑄造方法は反射炉より溶湯を取鍋に入れ、60 度傾斜している鑄型に鑄込み始め、鑄型を徐々に回転させ垂直になって鑄込みが終了する。この当時の板用鋳塊寸法は 4.5" (厚み) × 11" × 24" (約 53kg) であった。1931 年には反射炉を利用してジュラルミンの溶解・鑄造の実験が行われた。

1928 年、プロペラ翹素材の鍛造が始まり、大型鋳塊の必要が生じた。プロペラ翹鍛造用鋳塊はバケツ型で、1931 年頃は上部直径 330mm、下部直径 305mm、高さ 483mm、110kg で、これが次第に大きくなって、1942 年頃には、上部直径が 600mm、下部直径が 800mm、500kg 鋳塊が用いられている。材質は 25S (Al-4.5%Cu-0.8%Si-0.8%Mn) である。

1931~1940 年、鑄型を木炭で加熱後、反射炉から注

湯し、空タンク内に入れ、鑄型の下部を周囲から放水して冷却し、逐次、放水を鑄型上部に移して凝固させる方式を採用しており、水冷鑄型法と称した。問題は鑄塊の中心に巨大金属間化合物が生じやすいことである。これを改良するために Fig. 3 に示すような加熱水冷式鑄造法 (SKS-II 式, SKS: Sumitomo Kinzoku Shindosho の略) が開発された。溶湯を入れた鉄製取鍋を木製水槽の中に徐々に降下させ冷却させるが、水槽に入るまでをガスバーナーと水スプレーで冷却速度を調節する方式である。

(2) 圧延技術

板工場の主要設備は三段熱間圧延機 1 基, 大型二段圧延機 10 基, 小型二段圧延機 12 基, 板引張矯正機 1 基, 石炭炉 10 基であった。内, 新設したものは幅 4' 迄圧延可能な Krupp 社製三段熱間圧延機, 英国 Robertson 社製小幅用圧延機, 石炭炉は Rockwell 社から購入した特許に基づいて製作された炉であった。ジュラルミン板の熱間圧延に使用された二段圧延機はロール径 26"×66"であったが, 1938 年には 26"×80"となった。鑄塊はすべて傾斜鑄造法によるものであり, 1931~32 年頃の 60kg 鑄塊から 80kg へ, さらに鑄塊端面が丸型の 70kg, 90kg, 1939 年頃には 120kg 鑄塊が使用された。熱間圧延の工程は, ジュラルミンの場合, 500°C, 8 時間の均質化処理を施したのちに, 440°C で押え圧延を行い, 面削したのちに再加熱し, 同じく 440°C で熱間圧延する工程である。

鑄塊厚さ 120mm → 押え圧延 75mm → 面削 →
再加熱 → 熱間圧延 6.4mm

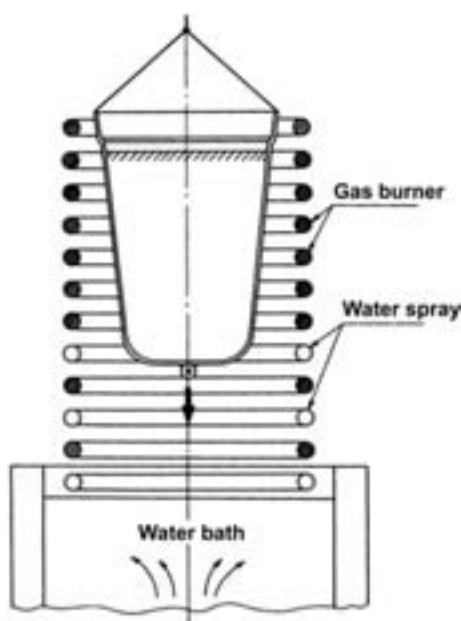


Fig. 3 Casting Mould with controlling cooling rate by gas burner and water spray¹⁾

ここで特徴的なことは, 鑄塊をその厚さの 2/3 程度に圧延し, 面削し疵を除去後再加熱し, 通常の熱間圧延を行う押え圧延である。押え圧延の考え方は, 戦後の高靱性高強度合金の開発の中で提唱された中間加工熱処理の考え方の原型となるもので, 鑄造組織を鍛錬によって如何に壊すかということが課題である。当時, 他社では熱間鍛造で行われていた。クラッド材については, 鑄塊の両面に所定の厚さに圧延した皮材を被覆し, 鉄のバンドで締め付けたあと熱間圧延で圧着したが, 後に鑄造時に皮材を溶着させてからは皮付き鑄塊を用いて前述の工程で熱間圧延された。なお新設の三段熱間圧延機は主に銅及び黄銅板に用いられたが, プロフィール用にも用いられた。

冷間圧延では, 大板は 3'×6', 4'×8', 5'×10' ならびに 1000×2000mm の 4 種類, 小板は 400×1200mm, 500×1200mm の 2 種類が標準寸法で, 大板の最小板厚は 0.5mm, 小板は 0.3mm であった。大板の圧延には二段圧延機 (ロール径 26"×66") が用いられ, 0.25" 熱間圧延板を焼鈍後圧延し, 中間焼鈍を施してから途中で 2 枚合わせにし, 0.8mm まで圧延した。0.6mm, 0.5mm 板は 3 枚重ねの圧延である。焼入れ後は冷間スキンス上がり (T3) が主で, 引張矯正は必要に応じて行った。板厚 1.0~1.5mm のものはすべてロール矯正である。小板圧延には, Schmitz 社製 (胴長 18", 板幅 400mm 用) 2 基と Farrel 社製 (胴長 23", 500mm 用) 1 基の小型帯板圧延機を用いた。プロフィール用素板には長さ 5000mm に切断後, 引張矯正したがコイルで出荷したのもあった。

(3) 押出技術

管・棒・線用としては Krupp 社製 1000 トンの横型水圧押出機が 1 基で, 1935 年頃に Schloemann 社製 2000 トン 1 基が設置された。前者にはコンテナヒータがなく, 薪を焚いて暖めた。鑄塊は直径 5.5" のものが使用された。後者は複動型で, コンテナはガスバーナー方式で, 鑄塊は 7" のものが使用された。堅型水圧押出機は Hydraulik 社製 600 トン 2 基が設置され, 小径管の素管の押出に使用された。そのほか, 丸棒の熱間圧延と管の熱間マンドレル圧延用に 3 段溝ロール圧延が 3 基, 2 段溝ロールが 2 基用いられた。

ジュラルミン押出型材の製造に使用されたのは Krupp 社製の 1000 トン横型押出機で, 大まかな形状を押出し, 圧延と抽伸で仕上げた。その後, Schloemann 社製 2000 トンも使用された。

(4) 鍛造技術

鍛造には, プロペラ翹素材用として 1930 年 6 トンエアハンマーが設置された。その後, 1000 トンの堅型水圧機 3 基, スクリュープレス 4 基, 3 トンエアハンマーが 2 基設置された。

3.3 住友の材料開発, ジュラルミンから超ジュラルミンへ

住友軽金属には住友伸銅所時代からの研究報告が保管されており, 最も古いところで, ツェッペリンの残骸を調査した杉浦氏が1917年に報じた「特殊合金に関する研究報」として報告書3通が保管されている。その一つが, 「軽礬素合金ニ就テ」で, 1915年のStahle und Eisen誌と1916年のJIM誌のH. Schirmeister論文の概要を報告して, アルミニウムにおける添加元素の効果を調べ, 銅がもっとも有効であり, 次いでマグネシウムが有効であることを述べている。ほか二報は, 「特殊合金に関する研究」(第一報, 第二報)として, マグナリウム(Magnalium, Al-6~12%Mg), Al-Cu及びAl-Ni-Mg合金に関するものである。

杉浦氏を継いで, ジュラルミンや伸銅などの研究を行ってきたのが, 松田孜(つとむ)博士である。松田博士(1886-1966)は1914年東北帝国大学工学部(物理)卒業後, 住友総本店伸銅所入所, 杉浦氏の試験係に配属, 1922年, 「真鍮青銅およびアルミニウム青銅に関する研究」で理学博士を取得し, 1932年伸銅所研究部長, 1936年伸銅所所長, 1937年取締役, 1941年住友金属工業株式会社常務取締役, その後専務取締役, 副社長を歴任した。この間, 1940年, 勲四等瑞宝章を授与された。研究所内の報告書以外に公開されたデータとしては当時の住友伸銅鋼管株式会社の製本された研究報告がある。この第1号が1932年3月である。この研究報告の目次をみると当時の研究の全容がほぼ把握できるが, その一番最初が松田博士らの論文, 「鍛錬アルミニウム合金の比較試験」である。ここで比較されている合金は, 1930年頃の代表的な鍛錬用合金で, アルコアのジェフリースらの著書“The Aluminum Industry, Aluminum Products and Their Fabrication”(1930, McGraw-Hill Book Company)にも掲載されている。成分値は実験に用いた試料の組成を示す⁷⁾。

ジュラルミン系では

- 681A (Al-3.53%Cu-0.55%Mg-0.54%Mn-0.46%Fe-0.30%Si, デュレナ・メタルヴェルケ社),
- B17S (Al-3.46%Cu-0.35%Mg-0.44%Fe-0.30%Si, アルコア社),
- 17S (Al-3.99%Cu-0.55%Mg-0.58%Mn-0.45%Fe-0.30%Si, アルコア社, 681Bと同成分),
- C17S (Al-4.01%Cu-0.54%Mg-0.58%Mn-0.47%Fe-1.30%Si, アルコア社, 含ケイ素型スーパー・ジュラルミン),

そのほか, 次の合金が比較されている。

- アルデュール Aldur (Al-0.99%Si-0.65%Mg-0.45%Fe, ジュリアーニ社 (Guilini Werke A. G.), アルコア51Sも同等),

- ラウタル Lautal (Al-4.06%Cu-1.88%Si-0.46%Fe, ラウタヴェルケ社 (Lautawerk)),
- 25S (Al-4.54%Cu-0.79%Mn-0.82%Si-0.44%Fe, アルコア社),
- Y合金 (Al-4.04%Cu-1.58%Mg-2.14%Ni-0.46%Fe-0.13%Si, NPL)
- ザンダー Sander合金 (Al-8.39%Zn-1.65%Mg-0.44%Fe-0.11%Si, ゴールドシュミット社 (Goldschmidt A. G.))

これらの合金で, 引張強さ, 耐力及び硬度はスーパー・ジュラルミン, ザンダー合金がもっとも優良, 耐酸性でアルデュールが最も優れている, これに次いでジュラルミン系, ザンダー合金が最も劣ると報告されている。

ザンダー合金はAl-Zn-Mg系合金で, エッセンのゴールドシュミット社の金属研究室で開発され, ドイツでは“Constructal”と称されていた^{8,9)}。なかでもConstructal 8 (Al-7%Zn-2.5%Mg-1%Mn-0.2%Si)は引張強さ60kg/mm², 伸び9~10%である。Al-Zn-Mg系の状態図は既に1913年Egerによって発表されていたが^{10,11)}, 1923年頃, ザンダーとマイスナーは, この三元系状態図を再検討し, Al-MgZn₂が擬二元系をつくり, しかも溶解度が温度とともに減少し, 475°Cでの最大固溶度28%から室温の4~5%まで変化することがわかった¹²⁾。そこでMgZn₂を4~10%含むアルミニウム合金をつくって時効性を調べたところ, 常温時効するとともに人工時効によってさらに強力なものが得られることがわかった¹³⁾。残念ながら当時は耐食性が悪いとのことで実用化にはならなかった。この件に関して, 西村博士は「随筆軽合金史」の中で, 1927年, 西原清廉氏の卒業論文の実験としてMgZn₂のアルミニウムに於ける固溶度を調べるとともに, 時効硬化を調べてもらったが, 焼入れした試料にブリネル硬度計で窪みを造ると甚だしいときは直に, あるいは時間が経てから, その周辺に割れ目が生じて, 所謂時期割れの現象を認め, この合金は使用し得ないとの結論になったと述べている^{12,14)}。

鍛錬用のアルミニウム合金の研究をもとに, 松田博士は, 1932年1月, 社内研究報告で超「ジュラルミン」の研究(第一報)を報告している¹⁵⁾。調査した合金組成はAl-8.60%Zn-1.57%Mg-1.41%Mn-0.34%Fe-0.14%Siで, ザンダー合金である。この合金の熱処理方法として, 450°C水冷, 室温時効, 100°C/6時間時効, 120°C/22時間時効を選定している。120°C/22時間時効では, 引張強さ51-55kg/mm², 耐力47kg/mm², 伸び10-14%が得られる。この研究は翌年9月の第12報まで続くが, 研究途中で伸び, 反復屈曲回数, 衝撃値が劣るため強度は犠牲にしてこれらの特性を向上させるためMgを

6%に増やした合金に転換した。この間、海軍との情報交換があったかどうか不明であるが、海軍技術研究所の五百旗頭(いおきべ)中佐からの依頼により住友とほぼ同じ合金、技研式超ジュラルミン Al-6%Mg-3.5%Zn-1.2%Mn 合金の試作に携わった¹⁶⁾。1933年7月五十嵐博士もこの合金の加工性、機械的性質を調査した。加工性は熱間で衝撃圧縮試験を行い、割れが生じるまでの程度圧縮できるかで評価した。この詳細は五十嵐博士の学位論文に超ジュラルミンに関する研究の一部として掲載されている¹⁶⁾。焼入れのままでは引張強さ 46kg/mm²、伸び 21%で、160°Cで24時間の焼戻しで引張強さ 54kg/mm²、耐力 41.5kg/mm²、伸び 8%で機械的性質はジュラルミンに比べて優秀で、しかも比重が小さいので比強度を向上させるが、「然しながら本材質は加工性甚だ困難にして非常なる手を要する」。「高温度に於いても尚 25~40%以上圧縮加工は不可能」、「従って本材質は試験的に非常な手をかけて板棒を作ることは出来るが、廉価に多量に製造することは甚だ困難である。之本材質が実用合金となり得ない理由である」¹⁷⁾と結論付けている。

当時(1929年頃)の住友伸銅所のジュラルミンを **Table 1** に示す^{1,18)}。D₂が一般にジュラルミンと称されて、引張強さは 42-45kg/mm²程度である。この強度レベルを超える合金は合金系に拘らずどれも超ジュラルミン(Super Duralumin)と呼ばれた。

伸銅所では松田博士の後を受けて田邊友次郎博士が登場してくる。田邊友次郎博士(1895-1957)は、1919年九州帝国大学工学部応用化学科を出て、住友伸銅所に入り、1927年「焼戻硬化性アルミニウム合金の研究」で学位を取得、1936年研究部長、1943年取締役・伸銅所長、1945年常務となった。復水器管用銅合金、強力耐食性合金「アルブラック」の開発者としてもよく知られている。アルミニウム関係では1925年(大正14年)3月27日の社内報告書に田邊友次郎研究課員翻訳の「「アルデュール」軽合金ノ性質及用途ニ就テ(独文)」がある。さらに田邊氏の「最近のDuralumin類似合金と新軽合金“MC”の特異点」(1925.5.5)と題する報告書で、各社、各研究機関の特許から見た合金特許を調査し、類似合金は、Duraluminタイプ(Al-Cu-Mg-Si)、

Al-Cuタイプ、Al-Mg-Siタイプに分類されることを、さらに自身で開発した合金MCの特徴を述べている。MC合金は、成分はCu 0.5~2.5%、Mg 0.2~1.0%で、焼入れ後冷間加工を施し、その後100-170°Cの低温で軟化を特徴とする合金で、特許と陸海軍への報告書を添付している。同時期に、ジュラルミンに匹敵する合金として新合金C6(Al-6%Cu)の研究開発もいつている(1925.10)。同年、五十嵐勇氏(注1)は「シルミンニ就テ」(1925.7)で文献をレビューしている。

(注1)五十嵐博士(1892-1986)は1913年広島高等師範学校卒業後、台湾の中学で教鞭を執った後1919年京都帝国大学に入学、1922年同大学理学部物理学科を卒業後住友合資会社に入社し、同伸銅所に勤務した。同年5月より翌年7月まで、住友家が本多光太郎博士の発明したKS鋼や研究所設立を支援した関係からか、東北帝国大学金属材料研究所に留学し、所長の本多博士に師事した。金属材料研究所は、1922年その前身の鉄鋼研究所が研究対象を鉄と鋼だけでなく銅合金や軽合金などにも広げるために改称されたものである。1924年には月刊誌「金属の研究」が発刊され、その第一巻には五十嵐博士の「焼入合金の時効に就て」や松田博士の「青銅、アルミニウム青銅及び真鍮の変態に就て」の論文が掲載されている¹⁹⁾。住友金属からも多くの研究者が派遣された。1939年、「航空機用材としての軽合金の研究」で工学博士を授与され、1941年名古屋製造所研究部長、1943年住友金属工業株式会社金属研究所長兼伸銅所研究部長、金属研究所は伸銅所と名古屋軽合金製造所の研究技術部門を横断的に統括するために1943年設立、1945年技師長兼名古屋製造部技術部長を歴任し、1946年退社した。その後、東北帝国大学に講師として招聘され、翌年工学部教授、1951年秋田大学鉱山学部教授を兼務、1958年岩手大学教授、1962年定年により退職、住友軽金属工業株式会社研究顧問、1970年顧問を退く。この間、1968年勲三等旭日中授章、1974年公益財団法人本多記念会の本多記念賞が授与された。

五十嵐博士は後述するように超々ジュラルミンの発明者であるが、入社当時は、シルミンなどのAl-Si、Al-Si-ZnやAl-Si-Cu系の鋳物材やザンダー(Sander)合金、Zinc Duralumin(Al-20%Zn-3%Cu)へのMg 0~2.0%添加の影響を調査している。そのほか、銅合金、鋳物用及び鍛錬用マグネシウム合金やその耐食性に関する一連の研究も行っている。社内研究報告書を見ると、多分実習も含めてか、Al-Cu-Mg-Ni-Fe系Y合金などのピストン用鋳物合金、ジュラルミン、ラウタル合金、アルデュール合金、ザンダー合金、Al-Mn-Mg系合金などの各種アルミニウム合金の機械的性質や耐食性も調査、研究している。こうした初期の幅広い調査研究

Table 1 Chemical compositions (mass%) of Duralumin type alloys at Sumitomo (about 1929)^{1,18)}

Alloy	Cu	Mn	Mg	Si	Al
D ₀	4	0.30	0.50	0.30	remainder
D ₁	4	0.55	0.53	0.30	remainder
D ₂ (Duralumin)	3.85	0.45	0.53	0.30	remainder
D ₃	2.50	—	0.30	—	remainder

が超々ジュラルミンの研究開発に役立っていると考えられる。

軽金属に「研究室の片隅から」という随想を執筆し、研究を始めた頃の話が掲載されている²⁰⁾。

「前々号から先輩諸賢の華やかな御話、勇ましい思い出興味深く拝見していた。ところが此度は僕に軽金属工業の回顧を書くようにとのことだが、研究室の片隅にジメジメと一生をおくった僕にはそれ等と逆な思い出のみに過ぎない。だが然し谷があつての山で皆が山ならば山はなくなる。勇ましい御話の引立役にジメジメした回顧も一つ位あつてもよからう。

僕は学校を卒業以来会社の研究室でずっと軽金属を弄っていた。はじめはアルミニウムという事だったが丁度日本に於けるアルミ合金の勃興期で先輩諸賢が皆アルミに手をつけられるので大変気楽にボヤボヤしていることが出来た。

やがてマグネシウムを取扱わねばならぬ時代が来た。僕はその方の手伝をする事になった。マグネシウムは取扱にくいので誰も手を出さぬ。不精な僕も止むを得ずいろんな実験をやらねばならなかつた。「先輩が夫々立身出世されると馬鹿な我輩も止むを得ず研究の凡てを見ねばならぬことになった。丁度その頃デュラルミンは板につきSD, SDCも工業化出来てやれやれと思っているとトム合金と云うものが華やかに宣伝された。第一次大戦当時英国にはE合金というのがある。其の後独乙にSander合金と云うのがある。別にめずらしい合金ではないが時期割れがあるので使いものにならぬ。学業成績は優秀でもLoadがかけられない秀才見たようなものである。とはいつても世間はうるさいし。止むを得ず吾々は使いものにするようにしようではないかと相談した。」

1931, 32年頃になると飛行機の性能向上につれて、材料の比強度の向上が要求された。1933年頃には米国の24S合金の情報が入ると、松田博士は海軍からの「御注意」もあり、9月にアルコア製の24SRT材を注文して、12月には入手しすぐに確性調査を行っている。12月の「米国製“24SRT”板 試験成績(第1報)」(研究報告No.2381)では、成分に関して、「注意すべき点は、普通のジュラルミンに比し、(1) Mgの量の非常に大なること、(2) Siの量の小なること、(3) Feの量の小なること、(4) 各板の成分よく一致せること、等で、Mgは焼入状態における引張強さ、降伏点を増し、伸びをも増加する性質を有する点より特にその量を増加したるもの…」と記し、24SRT材は従来の超ジュラルミンよりも、Mg量が多く、Si量の少ないことが特徴である²¹⁾。引張強さは48kg/mm²、耐力は40kg/mm²、伸びは16%であるが、反復屈曲回数がかなり小さいことが指摘されている。これは焼入れ後常温圧延を行うことによるものと考えた。Table 2は田邊博士の住友金属

Table 2 Tensile properties in US alloys, 24ST and 24SRT²²⁾

Alloy and temper	Yield strength kg/mm ²	Tensile strength kg/mm ²	Elongation %
24ST	30.1	45.5	20
24SRT	37.1	47.6	13
Alclad 24ST	28.0	42.0	18
Alclad 24SRT	34.5	43.4	11

Typical composition : Cu 4.2%, Mg 1.5%, Mn 0.6%,
(Fe 0.22%*, Si 0.16%, * Analyzed value²¹⁾)

Temper T : 500°Cquenching and natural aging

Temper RT : 500°Cquenching and natural aging followed by cold working

工業・研究報告に記載されている米国24ST, 24SRTの組成および機械的性質のデータである²²⁾。

田邊博士は1933年8月から1934年4月にかけて、松田博士も1935年10月から1936年4月欧米に相次いで出張し航空機用アルミニウム合金や銅合金の調査を行った。この背景としては、各国で航空機用の超ジュラルミンやピストン用合金の開発がしのぎを削っていることによるものと思われる。住友金属工業・研究報告に掲載された田邊博士の報告、「欧米に於ける航空機用非鉄合金に就て」²²⁾では、当時の状況を「ご承知の如く世界は其の何れの国たるを問わずナショナルイズムの波澎湃として其岸を洗ひ、工場見学は極めて困難で、航空機に関して殊に甚しい。就中ドイツに於てはゲーリングが航空相として極度の秘密主義を採り航空研究所の見学すら思ふに任せぬ」とある。こうした状況の中、精力的に欧米を視察してきた。そのときの出張記録が訪問先の会社案内パンフレットと一緒に今も研究所に保管されている。このときの手紙類を見ると、大学や研究機関は東北大金研所長の本多教授らの紹介状で訪問していることがわかる。New KensingtonにあるアルコアのAluminum Research Laboratoriesの研究所も訪問し、各種の試験機を見学している。応力腐食割れ試験方法も図示して紹介されており、「Simpleにて面白し、一考の価値あり」とコメントがついている。研究所のパンフレットも保管されており、各種性能評価試験機が写真入で紹介され今では貴重な資料である。なお、当時の研究所の状況は、参考文献23にも詳しく紹介されている。

さて、ドイツに於ける軽合金については、「之は独りドイツのみではないが、航空機用強力鍛錬アルミニウム合金としては依然としてジュラルミンが斯界の王座をすべっていない。併しながら、引張強さ45kg/mm²以上、出来得べくんば50kg/mm²以上のものを得んとする即ち超ジュラルミンの研究が盛んである」と²²⁾。デュレナ・メタルヴェルケ社では従来の超ジュラルミン681ZB (Al-4.2%Cu-0.9%Mg-0.6%Mn-0.5%Si) とその

Table 3 High strength aluminum alloys in USA and Europe²²⁾

		Cu	Ni	Mn	Mg	Fe	Si	Ti	Cr	YS kg/mm ²	TS kg/mm ²	E %
Germany	DM31-1 (*1)	3.5-4.5 3.66		0.9-1.5 1.17	0.9-1.5 1.38	0.29	0.2-0.9 0.65			32-40	46-52	16-10
	DM31-2 (*2)									40-42	50-52	12-10
Germany	681ZB-1 (*1)	4.2		0.6	0.9		0.5			28-34	42-46	18-12
	681ZB-2 (*2)									36-38	46-48	12-10
USA	24ST (*1)	4.2		0.6	1.5					30	45.5	20
	24SRT (*2)									37	48	13
USA	C17ST	4		0.5	0.5		1.25			35-38.5	44-49	14-8
France	Avial	1.5-3.5	0.5-1.5		0.25-1.0		0.5		0.5-1.0	30-38	44-54	20-10
UK	DTD252 Duralmin F	3.5-4.7		0.4-1.5	0.4-1.5	<0.7	0.7-1.5			34.5	>44	>10
UK	RR56	1.5-3.0	0.5-1.51		0.4-1.0	0.8-1.5	<1.0	<0.2		39-42.5	44-50	20-10
		2	3		0.8	1.35	0.6	0.08				

*1) - 1, ST : Quenching and natural aging

*2) - 2, SRT : Quenching and natural aging followed by cold working

強度 10% 向上させた DM31 (Al-4.2%Cu-1.2%Mg-1.2%Mn-0.5%Si) と称する超ジュラルミン合金を発売している。米国に於ける軽合金では、アルコア社の発売に係わるもので、「現今最も注目すべきは 24ST 及び 24SRT である。その組成は Al-4.2%Cu-1.5%Mg-0.6%Mn で、これらのクラッド材もある」と報告している。英国では RR56 や RR59 のピストン材を調査している。**Table 3** は欧米各国の超強力鍛錬合金一覧を示す²²⁾。

この当時の日本では、1934 年、ドイツの 681ZB や DM31 合金と類似な焼戻し型超ジュラルミンで SD1 (Al-4.2%Cu-0.75%Mg-0.7%Mn-0.7%Si) と称した超ジュラルミンが、また SA1 (Al-1.2%Mn-0.8%Cu) を被覆した合わせ板も松田博士らによって開発されたが、この合金は焼戻後の耐食性に問題があり、また焼戻に時間を要して生産性が劣るため焼戻を必要としない 24S に代わることとなった。1935 年、24S 型超ジュラルミンは SD (Super Duralumin)、その合わせ板は SDC (Super Duralclad) と称され、前述の SD1 は廃止された。SDC の皮材は、当初 SA1 であったが、のちには SA3 (Al-1.5%Mn-0.55%Mg) 合金となり、24SC より高強度の合わせ板となった。この皮材については米国のアルクラッド材では純アルミニウムが、ドイツのデュラプラット材に耐食性アルミニウム合金が被覆されている。五十嵐博士は学位論文でこの皮材についての研究についても触れ、純アルミニウムと SA3 の表面研磨材と焼入れ材について 3%NaCl 液で電位の測定を行い、表面研磨材ではほぼ同じ電位であるが、焼入れ材では酸化

Table 4 Japanese military specification for aircrafts on Super Duralumin SD and SDC²⁴⁾
(1 mm thick sheet)

Alloy and temper	Yield strength kg/mm ²	Tensile strength kg/mm ²	Elongation %
SDH	28	44	15
SDR	32	44	10
Duralclad : SDCH	27	42	15
Duralclad : SDCR	31	43	10

SD : Cu 3.8-4.8 Mn 0.4-1.0 Mg 1.2-1.8 Fe <0.6 Si <0.6
SDC (Super-Duralclad)

Cladding alloy (SA3) : Cu <0.25 Mn 1.0-2.0 Mg 0.4-1.0
Fe < 0.6 Si < 0.3

Temper H : Quenching and natural aging

Temper R : Quenching and natural aging followed by cold working

皮膜の状態が異なるため電位差が異なり、純アルミニウムでは超ジュラルミンを保護できず、SA3 のみが保護できることを明らかにし耐海水性に優れていることを実証した。さらに心材の銅が皮材に拡散して皮材の耐食性を減じるため、各国は溶体化処理の加熱時間を調整して耐海水性を維持していたが、五十嵐博士は銅の拡散防止のため、皮材の耐食性を劣化させず銅の固溶度を減らす元素として Cr に注目し、Cr0.3% 以上添加した皮材を開発し、クラールクラッドと称した。**Table 4** は日本の超ジュラルミン SD および SDC の海陸航空規格を示す²⁴⁾。

3.4 超ジュラルミンから超々ジュラルミンへ —合金探索—

1935年8月10日付けの社内研究報告書 No.3326, 五十嵐「超高力軽合金の探求 (No.1)」(Fig. 4)がある。これが超々ジュラルミン開発の第一報である。その第一章はしがきに五十嵐博士はこう述べている。「最近、日本電工 75kg/mm² 軽合金の声が高い。はたして、それが何物であるかは本年中頃には自然とわかって来る。が、周囲の時勢は其余裕を許さない。命を受けて、ここに強力軽合金の探求をはじめ。幸なる哉、時に北原五郎君(注2)の来援あり。君は先に海軍技術研究所にありて、松山博士と共に超ジュラルミンの発見あり((抗張)力 54-58kg/mm², 伸び 20-12%)。五百旗頭博士と共に、所謂、技研式超ジュラルミンの発明がある。其途の先達である」²⁵⁾。Fig. 5 に五十嵐博士と北原氏の写真を示す。

ここで日本電工(のちの昭和電工)の 75kg/mm² 軽合金(トム Thom 合金)とは、西村教授の言葉を借り



Fig. 4 Research of Extra Super Duralumin
(1st Report)²⁵⁾



Fig. 5 Dr. Isamu Igarashi (left) and
Mr. Goro Kitahara (right)

ると、「トム合金は喧伝されたが、海外までそのニュースが伝わってドイツなどでも問題となった。しかし応力割れの問題が解決されてなかったの、実用にならなかった。しかし、トム合金が ESD の誕生の動機を造ったことは明白であるから、日本火工株式会社(日本電工系、現在の日本冶金の前身)松永陽之助氏が昭和 10 年 12 月 13 日に特許出願(特許第 133182 号, 登録 1939.11.13)したアルミニウム合金を茲に紹介したい。これは Mg 3~6%, Zn 6~14%, Fe 0.1~0.5%, Si 0.1~0.7%, Mn 0.1~1.5%, Ti 0.1~0.5%, Ni 1~5% を含むアルミニウム合金で、熱処理すると引張強さ 80kg/mm² になるといふ」合金で、「唯、時期割れに関して注意の払われていなかったことは、その記述から知ることは出来るが、惜しいことであった」とある²⁶⁾。

(注2) 北原五郎氏(1892-1971)は秋田鉱専卒業後、海軍技術研究所に入所。20 数年勤務後、1935 年住友伸銅鋼管(株)入社。名古屋工場誕生とともに研究課長として名古屋に移り、1945 年堅田鋳物製作所研究部長となった。22 歳年下で、同時期に入社した住友軽金属元常務取締役深井誠吉氏は、「当社が世界に誇る強力合金 ESD の発明開発について五十嵐博士の片腕として、もっと端的にいえは、五十嵐、北原両雄の名コンビがあったからこそ ESD は誕生したと思います」。さらに「北原さんの人柄を語ることは後輩の私には不可能ですが、非常に善良でまた性急な人でした。私もよく聴きましたが『俺は兎に角実験するのだ、考えるのはその後だ。余り考えたり参考文献を調べると迷いが出る』といった調子でいわゆる『手が早くて』しかも実験が上手で、広範囲にわたる実験をする人でした。五十嵐さんがアイデアを出し北原さんがそれを実験する、というこの組合せは誠に絶妙であったと思います」。「研究とか開発には、明晰な頭脳と立派な指導者は欠くことのできぬ要素であります。もう一つスピードが必要だと思えます。どんな優秀な発明も他に先んじられては影が薄くなります。ESD のような大きな仕事が極く短時日の間に完成されたのは北原さんの『迅速なる手』が大きな要因であったかも知れませんが述べている²⁷⁾。

トム合金に関しては、海軍も相当気にして、松永陽之助氏が海軍大学で講演をした後、当時海軍航空本部の材料主務者であった大谷文太郎氏は上層部から呼びつけられ、こういう良い材料があるのに何をしているのかと言われたことがある。これに対し大谷氏は「これはすでにザンダーが 10 年前に発表したものである。これがシーズンクラックを何とか解決して実用に供したいと思って、すでに住友に指令しております」と回答した。「住友としてはこの指令の前にどの程度研究が進んで居ったかこの点は知りませんが。共研究指令を出した覚え

があります。それより前に陸軍としては、このトム合金の仮規定を採用しました。海軍としては時期割れ防止の解決研究なきトムは採用出来ぬとして住友の研究を待ち、この研究結果を航空廠の川村君と相談研究会を度々開いて検討してあれを採用した。採用する時は実に悲壮な決意を持って採用した。但し、その採用する時分には板はいかん、まず押出型材を特に採用しました。華嚴の滝から飛んだようなつもりであった。そして規格に制定してESDを初めて世の中にだしたのである」と回想している²⁸⁾。柳田邦男氏の「零式戦闘機」(文芸春秋社)では、この開発研究を命じたのは、海軍航空廠発動機部員で材料研究者担当の川村宏矣機関中佐とのこと²⁹⁾。この本の中で、「当時すでに45キロ超ジュラルミンが開発されていましたが、将来戦闘機を飛躍させるには、同じように軽く、しかももっと強力な、一平方ミリメートル当たり五十キロから六十キロ位の張力にまで耐えられるような軽合金が欲しいということになりましたね。それで住友金属に対し、海軍航空廠として、研究開発を要請したのですよ」と川村氏は述べている。残念ながら、戦後すぐに焼却され、これに関する公式記録は残っていない²⁸⁾。

かくして、先人たちの研究をベースに軽合金の探求が開始された。E合金、ザンダー合金、ラウタル合金、海軍技術研究所の松山合金、五百旗頭合金、伸銅所の松田合金などのデータをベースに、まずは強度と加工性から合金系の予備検討がなされた。これはかつて圧延加工で大いに苦しんだことによるものであろう。興味深いことにAl-Zn-Mg-Liも検討された。ここでE合金というのは、NPLのローゼンハインらの開発合金Eでその組成はAl-20%Zn-2.5%Cu-0.5%Mg-0.5%Mn、亜鉛を20%まで含みZinc Duraluminとして知られていた。圧延材の強度は400°Cで焼入れ後、再圧延し時効したときの引張強さ53kg/mm²、耐力45kg/mm²、伸び10%であった。しかしながら、亜鉛が高い合金は引張強さに比べて十分小さい応力でも長時間の負荷で割れを生じる応力腐食割れが問題であった。腐食雰囲気では割れは促進されたが、Mn添加で結晶粒が伸長して割れの感受性は低下したと報告されている。

最終的にはザンダーのAl-MgZn₂系合金、超ジュラルミン、そして英国のローゼンハインのE合金をベースに成分が検討された。学位論文には、「第一のもの(S)はMg-Zn、第二のもの(D)はCu-Mg、第三のもの(E)はCu-Zn-Mgを主成分とするアルミニウム合金である。Zn, MgおよびCuはAgを除いては、Alと最も多く固溶体を作り、またその温度による溶解度の変化も最も多いものである。従って最強力にして最熱処理効果大なる実用合金(Agの如き貴金属の添加は工業用合金としては面白くない)は此の系にあることが想像される。航空機構成材料としては強度の大なる事は勿論必

要であるが薄板及び型材に製作可能という事がその強力材料を生かし使用する上にかく可らざる必要条件である。従って先づ此のS, D, 及びE,の三元系に於いて焼鈍状態に於いて最軟く熱処理状態に於いて最も強い、即加工性最大にして熱処理効果最大なる点¹⁷⁾を見いだすことで合金探索が行われたとある。それぞれの合金成分は、

D: Al-4%Cu-1.5%Mg-0.5%Mn,

S: Al-8%Zn-1.5%Mg-0.5%Mn,

E: Al-20%Zn-2.5%Cu-0.5%Mg-0.5%Mn

である。まず「D-S-E三元系の全系に渡る金型鋳物を鋳造し400°C, 450°C, 500°Cに各4時間保ち投水し7日間時効し後其ブリネル硬度を測定し、尚此等を150°Cに24時間焼戻しを行ひ再び其硬度を測定し、次に300°Cに5時間焼鈍し炉冷して三度其硬度を測定した」。この結果をTable 5に示す。次に「焼鈍した硬度を基礎とし之と焼入焼戻により得られた硬度とを比較して其硬化率(注: 硬化率=(最高硬度-焼鈍硬度)÷焼鈍硬度)を求める。此硬化率(Hardenability)の大なる事は最高硬度の高き割合に焼鈍状態に於いて軟らかき材質なる事を示すものなるが故に加工等も容易に出来得る筈である³⁰⁾との確信に基づいての事である。この結果、No.54, No.61が硬く、「其成分は亜鉛8及10%, 銅2.5%前後である」として、三つの合金が選定されたとある¹⁷⁾。

• Al-10%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn-0.01%Ti

(ESD No. 1合金)

• Al-8%Zn-1.5%Mg-2%Cu-0.5%Mn-0.01%Ti

(ESD No. 2合金)

• Al-8%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn-0.01%Ti

これらの合金の板、棒、押出型材、管について各種の特性を調査し、「新強力軽合金E.S.D.は耐力36~65kg/mm²、引張強さ58~70kg/mm²、伸び8~20%、硬度150~200を有し現在使用されつつある軽合金に比して著しく優秀なる機械的性質を有し航空機構成材料として画期的な新材料と思われる。然るに、本合金は或る特殊な状態の下に於て時刻の経過に従って亀裂を生ずるが如き致命的な欠陥を有する。独逸のザンダー合金及び英のE合金が優秀なる機械的性質を有するにかかわらず実用化されざる所以のものは、主として此の種の欠陥あるによる¹⁷⁾として割れの対策の検討に入る。

社内報告書でE.S.D.合金の名称が表題に出てくるのは、Table 6に超強力軽合金の研究報告書の一覧を示すように、研究報告No.3854「超強力軽合金の研究(第10-5)、E.S.D.合金の「クラッド」材の機械的性質」(1936.6.30)からである。多分この頃、合金の方向性が決まったことによるものと考えられる。E.S.D.の各アルファベットの後ろにピリオドがある表現になっている。この名称に決まった背景については報告書には特に記述がない。深井誠吉氏によると超々ジュラルミンをESD(Extra-Super-Duralumin)と名付けたのは住友

Table 5 Hardness of combination alloys with D, S and E alloys³⁰⁾

Alloy Number	D (%)	S (%)	E (%)	400°C 4 hWQ		450°C 4 hWQ		500°C 4 hWQ		300°C 5 hFC	Hardenability (%)
				RT 7days	150°C24h	RT 7days	150°C24h	RT 7days	150°C24h		
39	80	20	0	94.2	93.0	116.0	109.0	107.0	113.0	52.8	120
40	60	40	0	96.8	99.2	110.0	108.2	98.4	105.0	63.0	75
41	40	60	0	102.0	132.4	109.0	131.2	95.0	126.4	56.2	136
42	20	80	0	114.0	140.0	101.0	137.4	95.0	147.2	62.6	136
43	80	0	20	105.8	104.0	121.0	118.0	108.0	120.0	59.8	102
44	60	0	40	120.0	138.8	130.0	153.2	107.4	145.8	83.6	74
45	40	0	60	130.0	154.8	140.2	161.2	120.0	147.2	83.0	94
46	20	0	80	153.0	156.4	143.0	153.2	114.0	131.2	95.4	64
47	0	80	20	116.0	147.2	125.2	158.0	110.0	158.0	76.4	107
48	0	60	40	134.8	162.7	140.2	161.2	127.6	158.0	83.6	89
49	0	40	60	134.8	158.0	140.0	151.6	130.0	144.4	94.8	67
50	0	20	80	147.2	161.2	141.6	159.6	118.0	138.8	95.4	69
51	80	10	10	102.0	97.6	113.0	116.0	108.0	113.0	57.4	102
52	10	80	10	119.0	151.6	110.0	147.2	109.0	159.6	73.0	118
53	10	10	80	153.0	165.8	150.0	153.2	119.0	131.2	97.6	116
54	60	20	20	109.0	119.0	115.0	130.0	117.0	132.4	77.6	74
55	20	60	20	117.0	150.0	122.0	154.8	109.0	153.2	67.6	129
56	20	20	60	145.8	161.2	144.4	164.2	127.6	145.8	86.6	137
57	40	30	30	126.4	156.4	125.2	161.2	109.0	123.0	65.0	148
58	30	40	30	124.0	154.8	128.8	169.4	120.0	159.6	73.8	129
59	30	30	40	131.2	156.4	115.0	150.0	115.0	145.8	74.0	112
60	20	40	40	127.6	153.2	131.2	161.2	103.0	140.2	75.8	113
61	40	20	40	122.0	150.0	130.0	167.6	118.0	151.6	67.6	148
62	40	40	20	113.0	115.0	116.0	162.7	116.0	148.6	71.2	128
63	100	0	0	94.2	93.6	113.0	105.0	113.0	117.0	53.6	118
64	0	100	0	108.2	136.0	112.0	143.0	111.0	148.6	73.8	101
65	0	0	100	158.0	161.0	145.8	144.4	124.0	124.0	89.8	79

金属専務取締役で伸銅所所長の古田俊之助氏で1936年5～6月頃とのことであるが、住友軽金属年表では、「1937年、研究の基礎となったE合金、S合金、D合金（超ジュラルミン）の頭文字をとってESDと命名した」とある。さらに興味深いことに、この年の5、9、11月の報告書では、「アルミニウム軽合金界に一大センセーションを投げた」引張強さ75kg/mm²と称する日本電工製のトム合金板材、棒材、鍛造丸棒を入手して性能の確性調査を行っている。西村博士が先に述べたように如何にこのニュースの衝撃が大きかったかを物語るものである。研究報告No.3738「Thom Alloyに就いて」（1936.5.5）で、この入手したトム合金板材の組成はAl-9.05%Zn-2.15%Mg-0.9%Cu-0.49%Mn-0.22%Fe-0.27%Siで引張強さは61.7kg/mm²、耐力43.2kg/mm²、伸びは13%であった。この合金は五十嵐博士らの「研究している「60kgジュラルミン」と成分、機械的性質ともによく類似す」と5月の報告書にはコメントが付記されている。この「60kgジュラルミン」とはE. S. D.のことであろう。No.3852の本文中のT415にE. S. D.と追記しているので、このE. S. D.の組成は研究報告No.3814、「超強力軽合金T418、T415の機械的性質」からT415=E. S. D. : Al-10%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn (1936.6.9)と考えられる。この報告書No.3814ではトム合金と同じ成分を合金T418として押出棒を作

り性能を比較してESDとはほぼ同等の性能を示している。

3.5 時期割れ（応力腐食割れ）の評価方法の確立

さて、ここからが五十嵐、北原のコンビが本領を發揮した時期割れ対策である。Table 7に時期割れに関する報告書の一覧を示す。1936年8月20日の社内研究報告No.3939「E. S. D. 新合金の「割れ」に就いて（第一報）」がその対策の第一報である³¹⁾。この報告書の概要を少々長いが必要なので引用する。執筆者はその筆跡からして北原氏によるものと思われる。

「E. S. D. 軽合金の残留内部応力の下に於ける割れを発生する特殊現象を調査し且つ現象の防止対策に就き考究した。

1) 割れの試験方法としては下記三方法を使用した。

1. 刻印法 2. 圧搾法 3. 屈曲法

2) i) 銅を含むと否とに係らず本系合金は残留内部応力の下に於いて自然に割れる傾向性を有す。勿論これはその成分又は状態の如何によりて多少の緩急の差はあるもいずれも割れる。

ii) 割れは静的外力を受けた場合よりも衝撃外力を受けた場合が遥かに甚だしい。

iii) 割れ疵は常に結晶境界線に沿っておる。また故意に破壊せし処も同様に概ね境界線に沿って割れる傾向にあ

Table 6 Technical reports in Sumitomo Metal on super high strength aluminum alloys

Report Number	Title and subtitle	Creation date	Content
No.3326	Research on super high strength aluminum alloys (No. 1)	1935. 8.10	Declaration of start in this study
No.3363	ibid. (No. 2)	1935. 8.29	Effect of MgZn ₂ on mechanical properties of Lantal alloys (Al-4 %Cu-2 %Si-0.5%Mg)
No.3379	ibid. (No. 3)	1935. 9	Effect of contents on hardness of E alloys (Al-20%Zn-2.5%Cu-0.5%Mg-0.5%Mn)
No.3385	ibid. (No. 4)	1935. 9.10	Natural and artificial age hardening of Al-(Al ₃ Zn ₆ Mg ₇) alloys and Al-(Al ₆ Mg ₄ Cu) alloys
No.3427	ibid. (No. 5)	1935.10	Estimation of properties in E alloys
No.3479	ibid. (No. 6) Tensile test about new kind of aluminum alloys	1935.11. 5	Tensile properties (1 mm thick sheet) in Lantal alloys with 8 ~10% (Al ₃ Zn ₆ Mg ₇) and Al alloys with 10~14% (Al ₃ Zn ₆ Mg ₇)
No.3538	ibid. (No. 7) Relationship between heat treatment and mechanical properties in No.23 and 24 alloys	1935.12.17	Examination in the optimum condition of heat treatment on the alloys in the previous report
No.3586	ibid. (No. 8) On the thernary alloys, based on D-S-E alloys	1936. 2. 4	Research by assuming that the optimum alloy exists in Al-Cu-Zn-Mg alloy system combined with D, S and E alloys
No.3719	ibid. (No. 9) On the mechanical properties of 60kgf class Duralumin sheet	1936. 4. 25	Next four alloys were chosen based on the result in No. 8 Report and the mechanical property of them (1 mm thick sheet) was examined. Al-9.6%Zn-1.2%Mg-2.0%Cu-0.5%Mn, Al-10%Zn-1.3%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn, Al-6.5%Zn-3.0%Mg-0.5%Mn, Al-7.5%Zn-3.5%Mg-0.5%Mn
No.3800	ibid. (No.10) On the mechanical properties of 60kgf class Duralumin extruded bar	1936. 6. 2	Next two alloys were extruded into round bar with 30mm diameter and examined the tension test. Al-10%Zn-2.5%Cu-1.5%Mg-0.5%Mn, Al-9.0%Zn-1.0%Cu-2.0%Mg-0.5%Mn These bars quenched followed by artificial aging show yield strength is more than 60kg/mm ² , tensile strength is more than 65kg/mm ² and elongation is more than 8%. The end of extrusion is very hard and has remarkable high strength compared with the top.
No.3810	ibid. (No.10- 2) On the mechanical properties of 60kgf class Duralumin	1936. 6. 8	Mechanical properties of sheets and extruded shapes were investigated. Sheets show yield strength is 50~52kg/mm ² , tensile strength is 60kg/mm ² and elongation is 10~15%. Extruded shapes have the same tensile properties as bars.
No.3851	ibid. (No.10- 3) Effect of additional elements on the properties of super high strength aluminum alloys	1936. 6. 26	Mechanical properties and corrosion resistance to sea water were investigated in Al-10%Zn-1.3%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn and Al- 8 %Zn- 3 %Mg-0.5%Mn alloys added with Ni, Fe, Cr, Ca, Ti, V and etc. The additions of Cr (minor) and Ca, V and Ti did not reduce the these properties and increase corrosion resistance.
No.3852	ibid. (No.10- 4) On the workability of super high strength aluminum alloys	1936. 6. 26	Bending property by bending test of sheets was compared between alloy T415 (ESD: Al-10.1%Zn-1.61%Mg-2.3%Cu-0.52%Mn-0.28%Fe-0.18%Si), and alloy T418 (Thom alloy: Al-9.33%Zn-2.0%Mg-1.0%Cu-0.53%Mn-0.28%Fe-0.21%Si).
No.3854	ibid. (No.10- 5) Mechanical Property of E. S. D. C (Extra Super Duralclad) alloy	1936. 6. 30	E.S.D.C alloy with cadding alloy containing Cr was rolled. Adhesion of clad is good and the diffusionability of Cu by heating increase remarkably in a long time, but it is not necessary to regard within the regulated time.
No.3859	ibid. (No.10- 6) Heat treatment of E. S. D. alloy	1936. 7. 4	Determination of optimum quenching temperature and artificial aging time
No.3865	ibid. (No.10- 7) Corrosion resistance to sea water of E. S. D. alloy	1936. 7. 6	Measurement of the weight reduction and tensile test after dipping into 3 % brine water as testing method. In bare sheet, intergranular corrosion occurred since corrsion resistance to sea water was not good, while this property improved remarkably in the clad sheet with cladding alloy containing Cr.
No.3892	ibid. (No.10- 8) Artificial aging temperature of E. S. D. alloy	1936. 7. 18	Investigation of optimum artificial aging temperature and time

Table 7 Technical Reports in Sumitomo Metal on season cracking (stress corrosion cracking)

Report No.	Title	Create date	Content
No.3939	On the season cracking of new E. S. D. alloy (No. 1)	1936. 8. 20	Investigation about the occurrence of special cracking under residual stress in E.S.D alloy and consideration to the prevention of cracking
No.3988	On the season cracking of E. S. D. alloy (No. 2)	1936. 9. 19	Commercial production of E. S. D. alloy with low Zn (Al- 4 %Zn- 3 %Mg-1or 2 %Cu), and E. S. D. No. 2 alloy (Al- 8 %Zn-1.5%Mg- 2 %Cu-0.5%Mn) is possible because of good artificial aging property.
No.4017	ibid. (No. 3)	1936. 9. 30	E. S. D. No. 2 alloy is available. Season cracking is prevented by addition of Ti, Mo.
No.4030	ibid. (No. 4)	1936.10.12	Grain growth and season craking are prevented by addition of Mn1.2 or 1.5%. The addition of Li was investigated.
No.4047	ibid. (No. 5)	1936.10.23	E. S. D. No. 1 (Al-10%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu), with more than Mn1.2 % prevent season cracking remarkably.
No.4092	ibid. (No. 6)	1936.11.18	Addition of 0.5~1.67%Mo to E. S. D. No. 2 . The addition of less than 1%Mo improve remarkably the time to season cracking.
No.4099	ibid. (No. 7)	1936.11.27	Addition of Mo,Cr,Co,Ti,Cu,Mg and Be to E.S.D. No. 1 (Al-10%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn). The additon of Co is effective to tensile strength and the addition of Cr is excellent in preventing season cracking. The addition of Mo is not effective compared with No. 2 . The addition of Mn1.5% is too much.
No.4112	ibid. (No. 8)	1936.12. 1	Addition of Mn0.5, Mo0.3, Cr0.3, Ti0.1 and Mo0.3, Cr0.3, Ti0.1 to E. S. D. No. 2 alloy. It is good to prevent season cracking.
No.4113	ibid. (No. 9)	1936.12. 2	Addition of Mn, Cr separately or together to E.S.D.No.1 and E. S. D. No. 2 alloy. No. 2 alloy is superior.
No.4121	ibid. (No.10)	1936.12. 5	Addition of Ni to E. S. D. No. 1 alloy. Tensile strength increases. However it is not effective to season cracking.
No.4144	ibid. (No.11)	1936.12.21	Addition of Ag,Ca, Si, Sn to E. S. D. No. 1 alloy. The prevention of season cracking is not improved.
No.4244	ibid. (No.12)	1937. 2. 24	Effect of addition of Cu, Zn, Cr, Bi, Sb to E. S. D. No. 2 alloy on season cracking. The occurrence of season cracking is not changed within the range 0.1~0.35% Cr. Effect of addition of Sb, Bi on season cracking is small.

る。これは結晶の大きさに密接な関係があると思う。

iv) 焼入時効せるものは刻印法及び圧搾法では本試験の期間内では疵を生じないが屈曲法では割れる。

v) Al-Zn 二元合金では Zn20% を含有するものが、その焼入れ時効せるもの 300°C 焼鈍せるものが割れを生じ、焼入焼戻せるもの圧延せるものは起こらない。勿論 20% 以下のものはいずれの状態においても疵を生せず(屈曲法)。

vi) 本合金は「ジュラルミン」で「リベッチング」せるも割れを生じない。

vii) 本現象は本系軽合金の本質的特性が所謂 Season Cracking に類似せる物と考えるのが妥当である。

3. 本系合金の割れの現象は焼入及び焼戻温度の適当なる調節により、緩和する事を得、例えば E. S. D. 合金の 430°C 焼入 100°C 焼戻せるものは刻印法及び圧搾法で割れを生じない。然し屈曲法によれば時間の長短はあるが焼入時硬せんものでさえも割れを生ずるに到る。即ち焼入及び焼戻温度の調節では割れを完全に防止する事はできない。

4. 本系合金の割れの現象はその金相学的組成上 Al-Zn 系合金に於ける γ 相 (注、最近の状態図では α 相) の存否に影響するところ多いという仮説にもとづき下記五種合金につき試験した。

Al- 8 %Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn (製鉄失敗), Al- 8 %Zn-1.5%Mg- 2 %Cu-0.5%Mn, Al-7.5%Zn- 3 %Mg-0.5%Mn, Al-7.0%Zn- 3 %Mg-0.5%Mn, Al-6.5%Zn- 3 %Mg-0.5Mn

1) 銅の少量の添加は割れを緩和する作用があるらしい。

2) 銅を含有せざる三種は Cu 入に比して著しい

3) 之等合金中 Al- 8 %Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn 合金がもっとも良質で割れを生じ難く、他のものは焼入時効せるものも割れたるも、之は割れず而もその抗張性は E. S. D. と伯仲である。

4) Al- 8 %Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn 及び E. S. D 合金の割れに及ぼす焼戻温度の effect は 125°C 最悪でそれより高くも低くも順次良好となる傾向を有す。

5) Al- 8 %Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn 合金は実用上、下記程度の屈曲には十分堪え得るものと考えた。

(実物写しの図あり)

5. 本系合金並びに Al-4%Zn-3%Mg-1~2%Cu-0.5%Mn 合金は之に Ti0.1% 内外の添加によりて著しく割れの減少を阻止し屈曲法実施後五日後経過するも猶割れず、先本問題を解決せらるるのではないかと思わる。然し予断は許されない。機械的性質は E. S. D. に伯仲す。」とあり、まずは実験方法を決めて、実験結果をよく観察していることがわかる。実験方法を更に詳しく見てみよう。日本金属学会誌や住友金属研究報告に報告されているのでこれをもとに紹介する。

時期割れの評価方法は「元来時期割れと称せらるる現象は銅合金就中真鍮に特有なものとして一般には好く知られて居る。これに関する研究論文は内外通じて沢山にある。軽合金に於いても亜鉛の多くを含むアルミ合金の時期割れを起こす傾向のある事は相当古くから言われて居るものの研究文献に至っては内外国を通じて全然皆無と言っても差し支えないであろう」³²⁾ ということ、実験・評価方法の確立から始まる。勿論、当時住友では銅合金の復水器管の研究も行なっており、真鍮の応力腐食割れは当然知られており、銅合金の応力腐食割れの研究も当然参考にしたものと考えられる。上記の研究報告にあった評価方法も含めて少し詳しく述べる。今では当たり前になっている方法も、過去には文献もなく、一から評価方法を確立して材料開発した先人の苦勞を少しだけでも理解できればと思う。Fig. 6 に試験方法を示す³²⁾。

「1) 刻印法

試料の表面に 7 mm 角大きさの英字又は数字の鑿を持って刻印し亀裂の生ずる状況を検するに図に示す様に概ね文字の角立てる部分に早きは刻印後数時間にして割れを生じた。

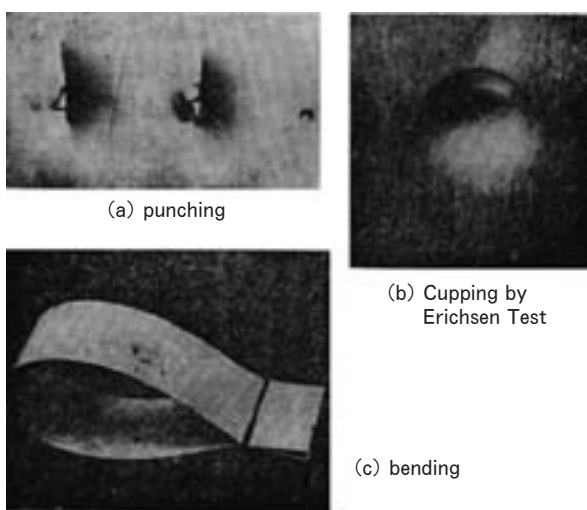


Fig. 6 Estimating method of season cracking (stress corrosion cracking)³²⁾

2) 圧搾法

エリクセン試験機により最大深度をそのエリクセン値とし、種々の深度に圧搾し放置せるに深度の甚だしきものは十数時間後に早くも割れを生じた。圧搾度の少なきものは数日後更に少なきものは数ヵ月後を経過するも割れを生じない。図(略)にその亀裂の一例を示す。

3) 屈曲法(湾曲法)

幅 25mm, 長さ 180mm の試片を Fig. 7 に示すように両端を以て湾曲し略両端より 15mm 内外の所でその間隔を色々に変えて銅線にて束ね室内に放置して割れの発生を調査した³¹⁾。試験結果はその間隔が零のものはい換えれば全く密着せるものは僅々数十分にして割れを生じ、その距離を次第に遠ざくるに従って割れるまでの経過時間は大となり、或る距離以上に達すると殆ど割れを生じない。換言すれば湾曲試料片の頂部に於ける屈曲半径の大きさに比例して割れるまでの経過時間は増減する。即ち割れは一定以上の応力を必要とする。

4) 管の扁平試験

外径 20mm, 肉厚 1 mm の所定熱処理を施せる押出管を取り、長さ 30mm の円筒試片を作りこれを小型万力に挟み色々の割合に圧縮したる儘放置して試験せるに、粘性的変形を生ずるまで圧縮せるものは比較的短時間にして割れを生じたるも、然からざるものは遙かに長時間を経過するも割れを生じない。而も割れは常に管軸に経線的に起こる。

5) 引張試験

時期割れの発生は複合応力の引張応力に依り圧縮応力に依りては絶対的に起こらないと言われ又は以上の諸実験に於ける割れが常に引張応力の働く側に限られて起る事実に照らしても明らかなことである。然し均等な引張応力下における時期割れに関しては嘗て試みられた事を聞かない。仍って本合金に就いて応力と時期割れとの関係を定量的に明らかにすると共に単純なる引張応力の下に割れを生ずるものかどうかを明らかにする為、図(略)に示す形状寸法の試片を作り、水平型弾性率測定試験機にて割れを試験した。図(略)は引張応力と時期割れを生ずる迄の経過時間との関係曲線を示す。これに依れば時期割れは応力の小なるに従って起り難くなり而も曲線の傾向から判断して大約 15kg/mm² 以下の応力では割れは起り得ないのではないかと思われる。要するに引張応力は合金の時期割れに対して少なくとも一つの重要な因子で、割れを生ずるに必要にして充分なる応力には自ずから限度がある。而もその限度は周囲の状況その他色々な条件に依りて変化する事は言う迄もない事である。」

以上の実験方法を確立し、「時期割れは結晶粒界に沿うこと及び合金の引張強さよりも遙かに小なる応力でさえも割れを生ずることの実験的事実から考えて応力が時期割れに対する充分にして満足なる条件とは考えられない。また金属の内部的変化に依るが如き本質的な例証も認められない。さすれば応力と外部的要因との合成作用

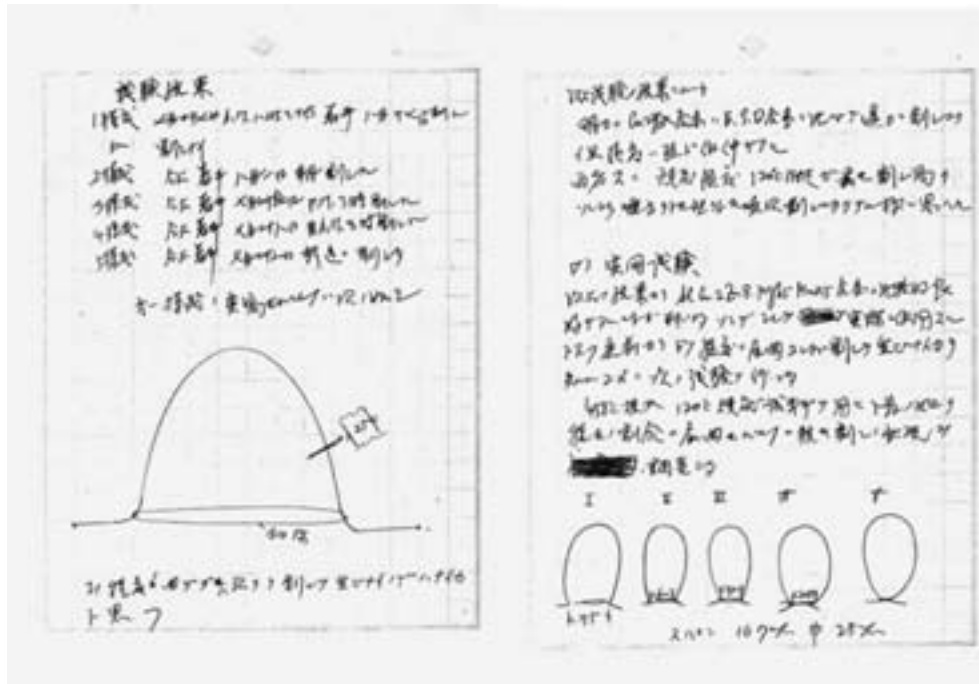


Fig. 7 Estimation of season cracking by bending test
 屈曲試験による割れ評価³¹⁾

によるものと考えざるを得ない」ということで試験環境の影響を検討した。真鍮の時期割れは純粋な空気中やNiメッキを施した場合には生じないとのことで、大気中のいかなる要素がもっとも影響があるものかを確かめるために、大気中、乾燥空気、酸素、窒素、水素、真空中で湾曲法により試験した。この結果、水蒸気中に於ける場合がもっとも激烈で大気中での約十分の一で割れた。なお特に顕著なことは大気中では30分内外で割れを生じるものが真空中では割れを生じないことであった。次に、結晶粒界に沿って割れることから、結晶間腐食性を有する水溶液も割れを促進すると考え、各種水溶液で試験した所、食塩水及び塩酸水溶液中でその効果が甚だしいことが判明した。さらに真鍮や銅は半田付け時に応力を負荷しながら行なうと容易に亀裂を生じることから、80°Cの低融点金属(PbSn, BiCd)の溶液に浸すと1~2分で割れた。これも時期割れの一種とみなしてもよいと考えた。外部的要素をなくするために合わせ板で試験した所全く時期割れを生じなかったと報告している。

3.6 時期割れに及ぼす合金元素の影響

前節の第一報に引き続き、8月から12月まで集中して、板厚0.5mm板を製作し屈曲曲げによる時期割れの研究がなされた。第11報(1936.12.21)の最後に総括として、「今、超強力軽合金(E. S. D.)の化学成分を仮定すれば次の如し。Al, Cu 2, MgZn₂ 11~12, Mn 0.5, Cr 0.3, Cu, Cr, Mnの添加量に関しては更に研究を要す。機械的性質は引張強さ55kg/mm², 耐力45kg/mm², 伸び8%以上」とある。

ほぼ成分も固まり、いよいよ工業的試作の段階に入る。研究報告No.4241「E. S. D.軽合金の研究, E. S. D.-No. 2試作品の二三性能に就いて」(1937. 2. 22)では、E. S. D.No. 2 (Al-8%Zn-1.5%Mg-2%Cu-0.5%Mn)とE. S. D.No. 2 +Cr0.3について工場試作し、E. S. D.No. 2 +Cr0.3は引張強さ58~60kg/mm², 耐力48~52kg/mm², 伸び10~16%で所定の規格(引張強さ53kg/mm²以上, 耐力45kg/mm²以上, 伸び8%以上)を満足し、180°曲げ試験で半径3tと良好、耐破壊性でも二ヶ月以上経過しても割れないで極めて優良であると結論づけている。これ以降のE. S. D.No. 2合金に関しては0.2-0.3%Crが添加されている。ほぼ2月の時点までにはESDの合金成分は固まったものと考えられる。日本金属学会誌には「ESD No. 2に就いて」を執筆し、1936年ESDを完成したとある³³⁾ので、研究報告No.4241執筆の数ヶ月前には成分は決まったものと考えられる。この日本金属学会誌は1942年9月号で、ESDの成分が学会誌で公にされたのはこれが初めてで、特許出願してから6年後である。ちなみに真珠湾攻撃はその前年1941年12月8日である。なお、アルコアが7075を完成するのは1943年であるから、非常に微妙なタイミングである。

ESDの代表組成: Al-8%Zn-1.5%Mg-2%Cu-0.5%Mn-0.25%Cr

研究報告No.4352「超強力軽合金E. S. D.-No. 2に就いて, E. S. D.-No. 2クラッド材の性能」(1937. 4. 27)で

は、皮材に Al-2.5%Zn-0.5%Cr を用いたクラッド材の性能調査を行っている。引張強さは 55kg/mm², 耐力 49kg/mm², 伸び 10% で裸材に匹敵し, 耐破壊性, 耐食性は良好との結果であった。このクラッド材に就いてはその年の 5 月の時点で特許申請中とのことであった。なお, 研究報告 No.4405 「E. S. D.-No. 2 クラッド材の確性試験」(1937. 5. 27)では「クラッド皮材の拡散性は相当著しきもののように思われる」とある。これ以降の研究報告書は一部なぜか欠落している。

3.7 特許出願と論文発表

ESD に関する基本特許は, 「鍛錬用強力軽合金」として, 1936 年 6 月 9 日に出願されている。公告は 1939 年 10 月 24 日, 特許としては第 135036 号として 1940 年 2 月 28 日成立。発明者は五十嵐勇と北原五郎で, 特許権者は住友金属工業株式会社である。この特許の第一ページを Fig. 8 に示す³⁴⁾。

「発明の性質及び目的の要領」

本発明は亜鉛 3 乃至 20%, 「マグネシウム」1 乃至 10%, 銅 1 乃至 3%, 「クロム」0.1 乃至 2% を含み「マンガ」0.1 乃至 2% を含み, 又は含まず残部「アルミニウム」より成ることを特徴とする鍛錬用強力軽合金に係り其の目的とする処は強力にして時期割性無き鍛錬用軽合金を得んとするにある。

1935-1937 年かけて五十嵐博士により出願された特許は Table 8 に示すように Al-Zn-Mg 系に関する合金特許は 5 件で, それも Cr に関するもの 2 件のみである。

日本火工松永氏のトム合金関係 13 件に比べて意外に少ないことに驚く。それらの特許は関連のあるものも含めて出願順に表に示す。なお, この ESD 関連特許に関しては 1938 年頃から米国, 英国, ドイツ, フランス, イ



Fig. 8 Patent of Extra Super Duralumin³⁴⁾

Table 8 Patents about Al-Zn-Mg alloys

Patent	Title	Inventor	Application (A) Notification (N) Registration (R)	Claims
114321	High hardened aluminum alloy	Igarashi	A : 1935. 4. 5 N : 1935.10.25 R : 1936. 2. 4	Zn : 5 ~ 25%, Mg : less than 5 %, Li : less than 3 %
135036	High strength wrought aluminum alloy	Igarashi, Kitahara	A : 1936. 6. 9 N : 1939.10.24 R : 1940. 2. 28	Zn : 3 ~ 20%, Mg : 1 ~ 20%, Cu : 1 ~ 3 %, Cr : 0.1 ~ 2 %, (Mn : 0.1 - 2 %) no season cracking
133183	High strength aluminum alloy	Igarashi, Kitahara	A : 1936. 9. 9 N : 1939. 8. 12 R : 1939.11.13	Zn : 4 ~ 20%, Cu : 1 ~ 3 %, Mg : 1 ~ 3 %, Ti : 0.01 ~ 0.5%, Mn : 1.2 ~ 3 %
145112	Aluminum alloy	Igarashi, Kitahara Kosaki	A : 1936. 9. 19 N : 1941. 4. 30 R : 1941. 8. 22	CuAl ₂ : 0.5 ~ 10%, Mg ₂ Si : 0.5 ~ 5 %, MgZn ₂ : 2 ~ 20%, Mn : 1.2 ~ 2.0, Cr : 0.1 ~ 0.5%, Ti : 0.1 ~ 0.5, Mo : 0.1 ~ 2 % Prevention of grain growth
133193	High hardened aluminum alloy	Igarashi, Kitahara	A : 1936.10.15 N : 1939. 8. 12 R : 1939.11.13	(Additional invention to No. 114321) Zn : 5 ~ 25%, Mg : 1 ~ 5 %, Li : less than 3 %, Cu : less than 3 %, Supplement (Brinell hardness : more than 150)
155806	High strength aluminum alloy clad sheet with zinc	Koizumi	A : 1939.10.14 N : 1942.12.26 R : 1943. 4. 2	Cladding sheet containing Zn : 0.5 ~ 1.5, Mn : 0 ~ 2 % to aluminum alloy with Zn, Corrosion resistance
161892	High strength wrought light alloy for	Kitahara Kodama	A : 1942. 5. 29 R : 1944. 2. 19	Zn : 3 ~ 20%, Mg : 1 ~ 10%, Cu : 1 ~ 3 %, Cr : 0.1 ~ 2 %, Bi : 0.01 ~ 0.2%, (Mn : 0.1 ~ 2%), no season cracking

タリアに特許出願している。成立した特許は、米国特許第 2166495 号 (米国出願 1938.6.20, 特許 1939.7.18), 第 2166496 号 (米国出願 1938.6.20, 特許 1939.7.18), 第 2208186 号 (米国出願 1938.6.20, 特許 1940.7.16), 英国特許第 510483 号 (英国出願 1938.6.17, 特許 1939.8.2), 519160 号 (英国出願 1938.6.17, 特許 1940.5.19), 仏国特許第 855809 号 (仏国出願 1939.6.6, 特許 1940.5.21), イタリア特許番号不明, ドイツにも出願したが, なかなか承認しなくて最終的に成立したか不明²⁸⁾。外国特許の請求項目には, 日本の特許になかった 0.01-0.2%Ca の同時添加が記載されている。特許成立させるための方策なのか理由は不明である。

ここで興味深いことは ESD の特許「鍛錬用強力軽合金」の出願が 1936.6.9 であることだ。この時点でどこまで Cr による時期割れ改善の問題を把握していたかが不明である。Cr を添加した合金について言及した報告書は研究報告 No.3851「超強力軽合金の研究 (第十の三), 超強力軽合金の性質に及ぼす他元素の影響」(1936.6.26) まで見当たらない。そこには「Cr (少量), Ca, V 及び Ti の各元素添加は基合金の性質を低下させることなく, 而もその耐食性を改善する効果あり」とある。ここでいう耐食性とは 3% 食塩水中に於ける試験で, 熱処理後「その表面を木炭塊にて好く研磨洗浄し「アルコール」中に浸漬乾燥秤量したる後, 腐食液 2 リットルを入れたる「ピーカー」中に硝子保持器にて吊るし 300 時間経過したる時, とり出しその表面の付着物を, 地質を害しない程度にかきとり水洗後秤量した。耐食性は単位面積 (cm^2) に於ける減失量を以て現した」とあり, 時期割れのための試験ではない。

時期割れに及ぼす Cr 添加の影響については, 研究報告 No.4099「E. S. D. 合金の Cracking に就いて (第七報)」(1936.11.27) の報告書の中で, ESDNo. 1 (Al-10%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn) に Mo, Cr, Co, Ti, Cu, Mg, Be 添加。引張強さは Co 添加が, 耐破壊性は Cr 添加が優秀。Mo は No. 2 ほどでない。Mn1.5% は多過ぎと述べられているのが最初と思われる。勿論, 実験結果と報告書執筆では現在でも数ヶ月のタイムラグのある場合もあるので, 実験結果はもっと早く出ていただろうと推定されるが, 多分, ESD 合金の制定の 6 月頃には, 簡便な方法での時期割れの評価結果は出ていて, この結果に基づいて特許が出願されたものと考えられる。

幸田教授によれば「同じ頃, 東京大学航空研究所石田四郎教授らによって, 通称航研超々ジュラルミンが発明され, また古河電気工業株式会社において SSD なる超々ジュラルミンが発明された。前者は Sn 添加により, 後者は Zr 添加によって応力腐食感受性を防止したものである。しかし, ESD ほど効果的でなかったためか, 実用にはならなかった」とある³⁵⁾。

石田教授らの特許は, 特許第 137117 号 (出願 1938.4.15, 公告 1939.8.19, 特許 1940.7.1) で, 五十嵐らより約 2 年遅れて出願されている。成分は Zn 6.0~10.0%, Mg 1.0~3.0%, Cu 1.5~4.5%, Mn 0.5~1.5%, Sn 0.1~1.0%, Si 0.8% 以下, Fe 0.8% 以下である。古河電工の特許は特許第 147525 号 (出願 1938.11.25, 公告 1941.9.30, 特許 1942.1.12) で, 成分は Zn 4~10%, Mg 0.5~3%, Cu 0.5~4%, Mn 0.1~1.5%, Si 0.4~1%, Zr 0.05~1% である。特に, ケイ素とジルコニウム作用により時期割れが防止されたとある。最近の航空機用アルミニウム合金は焼入れ感受性等の理由からクロム添加からジルコニウム添加を基本とする合金に代わってきたが, この特許はその走りとも言えよう。これに関して, 古河スカイの小山克己博士は「当時は十分な組織制御ができなかったためか, 実用化にはいたらなかった」と記している³⁶⁾。

太平洋戦争以後, 航空機材料の生産は急を告げ, 陸軍ならびに海軍の各航空本部から, ESD の特許の実施権を(株)神戸製鋼所と古河電気工業(株)へ委譲する要請があり, 住友はこれを許諾した。1943 年, (株)神戸製鋼所は, 当社にアルミニウム合金に関する技術指導を要請し, その内容は溶解・鋳造・装置・図面・工場実習・特許を含むすべてであったが, 住友は承諾して技術指導等が名古屋軽合金製造所で行なわれた²⁾。

論文に関しては, 五十嵐と北原連名で, 1937 年 2 月発行の住友金属・研究報告第 2 巻第 9 号 (1937) に「新強力軽合金の研究 (其 1)」を発表している。D, S と E 合金を組み合わせて, 加工性の良い $70\text{kg}/\text{mm}^2$ の引張強さを持つ合金ができることを述べている。(其 3) がなくて, 同上第 3 巻第 1 号 (1938) に「新強力軽合金の研究 (其 4)」³⁷⁾ を, 同上第 3 巻第 3 号 (1938) に「新強力軽合金の研究 (其 5)」³⁸⁾ を発表している。内容は強度に及ぼす亜鉛, マグネシウム, 銅の最適な成分範囲を調べたものである。同上第 3 巻第 3 号 (1938) に「新強力軽合金の研究 (其 6) 新合金 RR77 に就て」³⁹⁾ を発表している。RR77 は英国の規格 DTDNo.363 に記載された High Duty Alloys 社の合金で, Ni が添加されている。其の 2 は少し遅れて 1939 年 5 月発行の第 3 巻第 5 号 (1939) に「新強力軽合金の研究 (其 2) 超々ジュラルミン “ESD” 及び其のクラッド材 “ESDC” に就て」⁴⁰⁾ で, 次いで, 1939 年 9 月発行の住友金属・研究報告第 3 巻第 6 号 (1939) に「高力 Al 合金の時期割れと其防止に就て」が報告されている³²⁾。其の 2 では ESD (ピリオドはなくなっている) を Extra-Super-Duralmin と呼び, ESD とそのクラッド材 ESDC (Extra-Super-Duralclad) の皮材の成分が明らかにされており, このためか, 発表時期が遅らされていると考えられる。住友金属・研究報告がどこまで配布されていたかは分からないが, 米軍がその気になれば, 1939 年 5

月の時点で(其の2)を読めばESDの実態は把握できる状況であった。いつ研究発表するかの判断の難しさは後にならないと良く分からないのが実情である。

学会誌関係では「鉄と鋼」23(1937)には、「新強力軽合金の研究(其1)」が掲載されている³⁰⁾。これは1936年10月の日本鉄鋼協会第16回講演大会で講演されたものを論文化したものである。住友金属・研究報告(其1)とはほぼ同じ内容である。日本金属学会誌, 3(1939)には「高力Al合金の時期割れと其防止に就て」が掲載され³²⁾, 住友金属・研究報告第3巻第6号(1939)とはほぼ同じ内容である。クロム添加が明らかにされたのは, ESDの基本特許である特許135036が公告(1939年10月)として公開された時期とほぼ重なっていることがわかる。なお, ESDの成分が明らかにされたのは, 学会誌としては前述したように日本金属学会誌の1942年9月号で, これらの動向を米軍が把握していたかどうか不明であるが, 真珠湾攻撃で撃墜された零戦の残骸を調べれば, 日本のどこで生産していたかは分かるはずで, きっと溯って調査したものと考えられる。

なお, 当時研究部長であった田邊氏は戦後, 「ESDの試作に懸命であった1940年の秋(?)某日, 故山本元帥が中将で海軍航空本部長に内定していた頃であったが, 工場に来られ, 私がESDの経過を話した。「…といった訳で某大要は学界にも発表」と言わせも果てず「発表等はどうでも宜しい。一日も早く実用に邁進せよ!」との言葉が鋭い。何糞!!という訳でクロム添加による時期割れ防止も完成, 遂に今次大戦に間に合った次第であった。往時茫々夢の如し」と回想している⁴¹⁾。

五十嵐博士は以上の研究論文と, これまでに発表してきたジュラルミン, 超ジュラルミン, 4.5~8%Mgを含むHydranaliumなどの耐食性合金, 3Sや4SなどのAl-Mn系合金, ジュラルミン系プロペラ用鍛造品, 鋳材, マグネシウム合金の防食性についてまとめ, 1939年4月学位論文として大阪帝国大学工学部に提出し工学博士が授与された。Fig. 9は生家に保管されていた学位記である⁴²⁾。なお, 1937年発行の共著「軽金属及軽合金最近の進歩」(工業図書株式会社)には「耐食性アル

ミニウム合金」の章を執筆している⁴³⁾。この本では, Fig. 10に示すように当時の軽金属に係わる大家が工学的な視点から執筆している。

3.8 ESDと零戦

1937年10月6日, 三菱重工業名古屋航空機製作所の堀越二郎氏(Fig. 11)は課長からカナまじりの和文タイプで打たれた一通の書類を受け取った。それは, 「十二試艦上戦闘機計画要求書」であった。「十二試」とは昭和12年試作発令, 艦上戦闘機とは航空母艦上から発着する戦闘機のことである。堀越氏は「この要求書は, 当時の航空界の常識ではとても考えられないことを要求していた。もし, こんな戦闘機がほんとうに実現するのなら, それはたしかに, 世界のレベルをはるかに抜く戦闘機になるだろう」⁴⁴⁾と述べている。その要求書はTable 9に示すような内容である。この十二試艦上戦闘



Fig. 10 Cover of book titled Recent Progress on Light Metals and Light Alloys⁴³⁾



Fig. 9 Diploma of Dr. Igarashi⁴²⁾



Fig. 11 Mr. J. Horikosi⁴⁸⁾

機はのちに太平洋戦争で空の王者として君臨した「零戦」の試作段階の呼び名であった。

このような要求が出てきた背景には、当時、日華事変の華中戦線での戦闘機の護衛なしで裸同然の出動した日本海軍自慢の新鋭攻撃機が、予想に反して迎え撃つ敵の戦闘機にばたばたと落とされる事態が起った。その後、攻撃機の護衛についた九六艦戦が、海軍の期待したとおりの強さを発揮した。そこで、あらためて戦闘機によって空の主導権を握ること、つまり制空権を確保することが航空戦の基礎であることがはっきりと実証されたためである。そこで大型機を落とすために20ミリ機銃を持ち、同時に、攻撃機を護衛までして敵地まで長距離を往復し、しかも、そこで待ち構えている敵の戦闘機に打ち勝つ空戦能力をもたせたいという要求が出てきた⁴⁴⁾。

当時、三菱の主任設計技師の堀越氏は、この機体の設計の問題点を四つに整理していた。第一にエンジンの決

定。第二にプロペラの選択、第三に重量軽減対策、第四に空力設計、つまり機体の空気抵抗を少なくし、同時に理想的な安定性、操縦性を実現することであると。第一のエンジンは重量の軽い瑞星を使うことに決め、第二のプロペラは新式の定回転プロペラを使用することになっていた。このプロペラ製造に関しても住友金属は活躍することになるのであるが、これは別途稿をあらためることにする。最大の難関は第三の重量軽減対策であった。このため一律であった安全率の見直しや、グラム単位での重量軽減のために、「肉落とし」と称して、強度に関係のないところをくりぬくことも行われた。重量の軽減には、このほか、どのような材料を使うかということもおおいに関係がある。

特に、内部構造で最も重要な主翼の桁についても、可能な限り軽くてしかも強い材料を使いたかった。前の九六式艦戦のときは45キロ超ジュラルミン(SDH)が開発され、その押出材が生産されていたので、翼を薄く

Table 9 Specifications for Experimental 12-shi Carrier-Based Fighter requested by Navy⁴⁴⁾
十二試艦上戦闘機計画要求書

Item	Specification
Mission	A Fighter capable of intercepting and destroying enemy attack bombers, and of serving as an escort fighter with combat performance greater than that of enemy interceptors. 掩護(えんご)戦闘機として、敵の戦闘機よりもすぐれた空戦性能をそなえ、迎撃戦闘機として、敵の攻撃機をとらえ、撃滅できるもの。
Dimensions	Wingspan less than 12m 全幅、つまり主翼のはしからはしまでの長さが12メートル以内。
Maximum Speed	Maximum speed exceeding 270kt, 500km/h at 4000m in level flight. 高度4000mで270ノット(500km/h)以上
Climb	Climb to 3000m within 3min30sec. 高度3000mまで3分30秒以内で上昇できること
Endurance	Normal flight duration of 1.2-1.5hr with normal rated power (maximum continuous) at 3000m fully loaded with auxiliary fuel tank; 1.2-1.5hr at 3000m using normal rated power, or 6-8hr at maximum cruising power. 機体内に備え付けられたタンクの燃料だけで、高度3000mを全馬力で飛んだ場合、1.2時間ないし1.5時間。 増設燃料タンクをつけた過荷重状態で、同じく1.5時間ないし2.0時間。 ふつうの巡航速度で飛んだ場合、6時間ないし8時間。
Takeoff	Less than 70m with head wind of 12m/sec and approximately 175m in calm win. Must be able to take off from a carrier deck. 航空母艦上から発進できるようにするため、向かい風秒速12mのとき70m以下。(無風ならこの2.5倍内外)
Maneuverability	Equal or better than Type 96 FighterA5M. 九六式艦上戦闘機2号1型に劣らないこと。
Armament	Two Oerlikon Type 99, 20mm machine guns Mk.1, Model 3, and two Type 97, 7.7mm machin guns. 20ミリ機銃2挺。7.7ミリ機銃2挺。
Radio	Type 96-ku-1 airborne radio and Type Ku-3 radio homer ふつうの無線機のほかに、電波によって帰りの方向を正確にさぐりあてる無線帰投方位測定器を積むこと。
Engine	Mitsubishi Zuisai 13 of 875hp at 3600mor Mitsubishi Kinsei 46of 1070hp at 4200m 三菱瑞星13型(高度3600mで最高875馬力)か、三菱金星46型(高度4200mで最高速度1070馬力)を使用のこと。

し、重量軽減に大いに役立った。十二試艦戦では、機体がさらに大きくなるため重量増加が避けられない。九六式艦戦と同じ超ジュラルミンでは、桁用の押出型材を分厚くしなければならずその結果重量増加につながり、桁の部分が分厚くなると翼も厚くせざるをえなくなり、いっそう悪くなると考えられた。

従来のジュラルミンを更に改良したものか、あるいは、別のもっとすぐれた軽い金属はないだろうかを堀越氏が考えていたところに次のような住友のESDとの出会いがあった。

「ある日、会社の材料購入を担当している木村技師が、堀越氏の机にぶらりとやってきて、次のような話をしていた。『堀越さん、いま住友で非常に強い新しい合金ができかかっているらしいですよ』と。話によれば、従来のジュラルミンの成分を少し変えて、強度の高い材料を開発し、試験的に生産に入れる段階だという。私はこの話におおいに興味をそそられた。そこで、住友金属に問い合わせると、担当者が直接私に説明しながら、実物を見せたいという返事がきた。早速、大阪の住友の工場に飛んで行って、五十嵐博士と小関技師から『60kg/mm²の強度があることについては、住友として責任を持って保証できます。海軍の材料規格にはまだ採用されていませんが、時期割れの問題は、押出型材に関する限りすでに技術的には解決しています』^{45,46)}との説明を聞き、実物を見せてもらっているうちに、私は、これは使えるぞ、と判断した。そして、この新材料を使用するにあたって、注意しなければならない点をよく聞いてきた。私は、さしあたり、主翼の桁だけに押出型材を使うとして、大まかに重量を計算してみると、30kgは軽くなることがわかった。そこで、会社からこの新しい金属の使用を航空本部に願い出た。すると、航空本部でもすでにこの金属に注目しており、許可する一歩手前まで来ていたとのことだった。海軍側はむしろ願い出を喜んで、この新材料の使用を認めてくれた」^{29,44,45,46)}。

第四の空力設計は、胴体の形状、主翼の断面と面積、翼端の形状、尾翼の大きさと形状などを検討し、最適な形状を決めていった。空気抵抗を減らすために、引き込み脚や沈頭鉋が採用された。

かくして、堀越氏の言によれば、千篇一律的な安全率の規定を洗い直して、新たな合理性のうえに設計方針を立てるといふ冒険的方法にはじまって、超々ジュラルミンの採用という、日本の航空機史上画期的な事件にいたるまであらゆる手段を研究し取り入れて、1939.3月試作第一号機が完成した。試作機は数個の部分に分解され梱包されて、3月23日午後7時過ぎに、牛車2台に分載されて、名古屋市南はずれ、港区大江町の工場を出発、名古屋市内を夜のうちに通過し、小牧、犬山を経て、まる一日がかりで、約48kmはなれた岐阜県各務原飛行場の片隅に或る三菱の格納庫に着いた。初飛行は4月1日、ほぼ満足のいく結果も得たが、問題点も明らかと

なった。その後、特に設計要件の見直しをすることにより操縦応答性の面で画期的な進歩を遂げた。1940年4月末までに十二試艦戦を前線に送ろうとしていた矢先、3月11日、十二試の2号機が横須賀で空中分解して、パイロットが殉職したとの連絡があり、この原因説明が緊急に必要なになった。3月16日、検討会が開催され、機体強度研究の主任である山名正夫技師が、十二試艦戦で始めて採用した超々ジュラルミンESDの主翼桁の疲労強度に疑わしい点があることと、外板打ち付けのための沈頭鉋が外板にしわが寄るほど強い力が加わったときに、抜けるおそれがあるのではないかと、主翼が単なる衝撃で折れたのか、ESDの時期割れか金属疲労によるひびが入って飛行中に折れたのか実験中であると述べた²⁹⁾。

3月18日の空技廠の事故調査委員会で、折れていた主翼桁の破断面を観察した結果、心配されていた超々ジュラルミンの時期割れの現象は起っていなかったことが確認されたこと、さらに疲労試験も行なったところ、空中分解となるような疲労破壊も起っていなかったこと、ただし桁の削り落とし部分は、段付のシャープコーナーになっているため耐用時間が予想よりかなり短いことが明らかとなった。枕頭鉋も今回の事故と関係がないことが明らかとなった。他に先駆けて採用した超々ジュラルミンに濃厚な疑いをかけられたが、「シロ」ということで落着いた。切り欠き疲労強度の低下はそれ以降のコーナーの形状変更となった²⁹⁾。この事故の原因は昇降舵マスバランスの横揺れ振動が繰り返し起り、次第にその腕に疲労破壊が生じてマスバランスが脱落して、その後尾部でフラッターが起り、空中分解したとの結論に達した。前述の空技廠の川村氏も「主翼の破面が材木を折ったような破面なんで、飛行機の落ちた原因はESDのシーズンクラック（時期割れ）ではないかと随分突っ込んで調査した」と述べている²⁸⁾。

1940年7月、十二試艦戦は制式機として採用され、その年が日本紀元2600年であったところから、その末尾の零をとって、「零式艦上戦闘機^{レイシキ}一一型」と名付けられた。「零戦」とは「零式艦上戦闘機」の略称である。「ゼロ戦」というのは外国のパイロットから「ゼロ・ファイター (Zero Fighter)」「ジーク (Zeke)」と呼ばれ、外国の評判などから戦後生まれた零戦の愛称である。一一型は零戦の改造の型式で、数字はエンジンと機体の変更（改修）回数を表し、最初の数字はエンジンが変更されると「一号、二号」と数え、二番目の数字は機体に変更されると「一型、二型」と呼ばれ、「一一型」は「一号一型」のことである。海軍航空本部は大陸での零戦の目覚ましい活躍でその性能の優秀さを認め、中島飛行機にも零戦を生産させる事を決めた。これは、三菱の量産能力に対し、当時最新鋭だった新設の小泉製作所に、アメリカ流のオートメーション生産ラインを整えた中島飛行機の量産能力が高く評価されたためである⁴⁷⁾。こう

いう場合、「製造権や特許権の問題は、民間同士に於ける場合とは違い、開発を担当した会社に対して適当な額の報償を支払い、海軍が指定した製造を受け持つ会社にいっさいの技術資料と技術援助を与えること」で決着がついた。第67号機以降は、艦上で取り扱いやすいように、左右の翼端を折り曲げられるようにした零戦21型に変更された。その後、主翼翼端の折りたたみ機構を廃止し、高高度では回転数を高い方に切り替えができる二速過給器付きの中島製栄21型エンジンに替えた零戦三二型となった。1941年12月太平洋戦争に突入し、真珠湾攻撃やフィリピン進攻、翌年3月のジャワ作戦、インド洋作戦に至る太平洋戦争中盤までは、その性能を發揮し華々しい成果を上げた。1942年6月のミッドウェー海戦での敗北が太平洋戦争の転回点となった。同時に行われたアリューシャン作戦で、無人島に不時着したほとんど無傷の零戦一機をアメリカが手に入れた。アメリカは、真珠湾攻撃以来、落ちた零戦の切れ端を集めてまでも、謎の飛行機といわれる零戦の秘密を解き明かそうとしていた。そして、この完全な零戦に飛行試験を含むあらゆる角度からの調査を施し、その長所と短所を完全に知る事ができた。調査の結果は、新戦闘機の設計の上でも、零戦との戦術の上でも非常に大きな役割を果たす事になったといわれている。調査の結果、零戦が優れた旋回性能と上昇性能、航続性能を持つ一方で、高速時の横転性能や急降下性能に問題があることや装甲板・防弾燃料タンク・防弾ガラス・自動消火装置などが搭載されておらず防御性能の弱ことが判明し、零戦と普通に戦っては勝ち目のなかったF4F ワイルドキャット戦闘機は急降下し接近して銃撃し、優位速度を維持したまま旋回・離脱、再度急上昇し優位高度を回復する一撃離脱戦法と2機編隊を組んで攻撃するサッチウィーブなどの戦法をとって、零戦に対して優位に立った。このため零戦の翼幅を11mに短縮し、ロケット排気管を採用し最大速度565km/hが出せる五二型に改良された。1943年9月にはアメリカ海軍の新戦闘機グラマン F6F ヘルキャットが「打倒零戦」のかけ声とともに登場してきた。運動性能に優れたF6Fの出現で、零戦の苦闘が始まった。こうした事態に対処するには、質的にさらに勝った新しい戦闘機を投入する必要があったが、設計の人手不足などで後継機をすぐにだすことができずに終戦となった。この間、零戦は各型合計すると約10425機生産された⁴⁸⁾。Fig. 12は零式艦上戦闘機五二型で、主翼桁材にESD押出型材が用いられた。

米軍は撃墜された機体の残骸の回収を行っており、「真珠湾攻撃の際に撃墜された機体も数機分回収されており、まずそれらの分析が進められた。機体の構造や材質については詳細なデータが取られた。米軍を驚かせたのは機体に使われた超々ジュラルミンの強度の高さであった。それは当時、日本の航空機開発技術に対して「欧米に数年は遅れている」と考えていたアメリカの陸海軍や

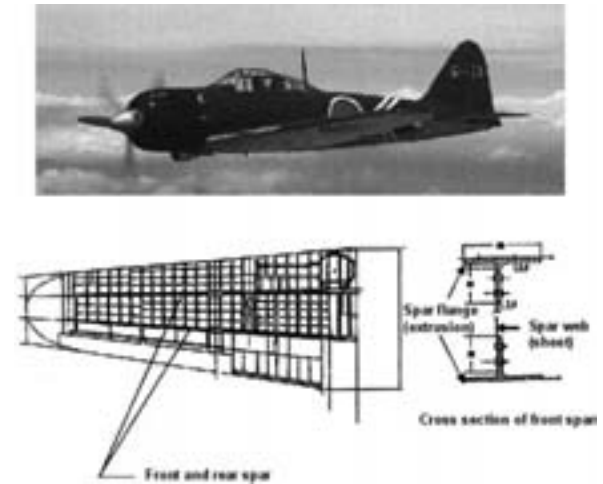


Fig. 12 Zero fighter, Model 52 (A6M5) and the structure of its main wing

航空機産業関係者の目を覚まさせる一因となった」⁴⁹⁾。当然 ESD が主翼桁材に用いられたことは1941~42年にかけて撃墜された零戦からも把握し、アルコア社に伝えられていたと考えられる。

3.9 超ジュラルミン、超々ジュラルミンの増産^{1,2,3)}

1935年、住友伸銅鋼管(株)は(株)住友製鋼所と合併し、住友金属工業(株)が設立された。同年におけるアルミニウム合金の生産高は1400トンであったが、後半から国際情勢の緊迫化による航空戦力の大幅増強の必要から飛行機材料の増産が要求された。1937年2月にはプロペラ需要激増による鍛造工場拡充計画が立案された。さらに、陸・海軍による3回の増産計画により、陸軍は7418トン/年、海軍は4400トン/年の目標が立てられ、大阪桜島の伸銅所に飛行機材料専門の製板課第二工場、管棒課第二工場が建設され、1938~1939年稼動を開始した。1938年末に、海軍航空本部から月産1364トンのアルミニウム合金生産の要請があり、既定の増産計画の3倍もの要求で、伸銅所には拡張の余裕がなく、新工場の敷地が検討された。新工場敷地としては、空襲、天災などの危険も考慮に入れて、各地を物色したが、結局航空機製造の中心地となっている名古屋に決定した。

敷地は、1939年はじめ、航空機事業を手がけていた愛知時計電機(株)青木鎌太郎社長の斡旋で、名古屋市港区千年の水田に、工場付属地として博覧会跡地4万余坪を加えた約19万坪を入手した³⁾。この地域は、1937年、名古屋市市長の大岩勇夫氏が名古屋開港30周年、国際都市としての名古屋をアピールするため名古屋汎太平洋平和博覧会を開催した会場跡地になっていた⁵⁰⁾。もともとこの会場となった南区熱田前新田(現在の名古屋市港区港明・港楽一帯)は、1935年に会場が決定した当時は、港北耕地整理組合が管理する葦の茂る田んぼにすぎない地域であった。大岩氏には名古屋に自動車産業を誘

致して「中京デトロイト」にする構想があり、その一環として、交通網などインフラ整備のため博覧会が開催されたものと考えられる。名古屋汎太平洋平和博覧会 (Fig. 13) は 1937 年 3 月 15 日から 5 月 31 日まで開催され、入場者数は 480 万人、海外からの参加は 29 カ国であった。

1939 年 7 月杉浦稠三氏を部長として臨時名古屋工場建設部が設置され、鑄造、製板、管棒、鍛造を持つ総合的軽合金専門工場の建設にあたった。同時期に、国家総動員法の公布で伸銅所軽合金関係工場、プロペラ製造所全工場などが陸海軍共同管理工場となり、管理官が派遣され、生産または修理の業務に関し、陸海軍大臣の指揮監督を受けることになった。1941 年 9 月名古屋軽合金製造所が設置された。所長に杉浦稠三氏、副所長に丸山正男氏が就任し、五十嵐博士もこのときに研究部長となった。1942 年 2 月名古屋軽合金製造所も陸海軍共同管理工場となった。この工場は、当時伸銅所で開発中であった連続鑄造法による大型鑄塊を用いることを前提としたストリップ方式圧延の製板工場を目標とした。

1943 年に入ってから工場の整備が急速に進み、反射炉 30 基、わが国最初の連続鑄造設備、可逆式二段熱間圧延機ならびに四段冷間圧延機、大型押出型材生産用 3600 トン横型水圧押出機、プロペラ翹素材生産用の 4000 トン縦型水圧機、35000kg-m エアーハンマー等を設備した総合軽合金工場となり、その生産量は最盛期には月産 4000 トンであった。なお、鑄物関係は 1943 年名古屋軽合金製造所鳴海支所と伸銅所豊橋製作所、伸銅所堅田製作所が設置され、そちらに移管された。鑄造、圧延、管棒、型材、鍛造の技術の進歩を紹介する。

(1) 鑄造技術

製板技術の発展に伴い、ストリップ方式で圧延を行う

ためには、高品質でかつ大型鑄塊の必要性が生じてきた。1936 年春頃の外国雑誌に、「これからは連続鑄造法に向かわねばならぬ」という二三行の記事があり、これに着目したのが佐藤新治氏である。1937 年彼は「物事すべて根本は素質である。素質のないものでも努力すれば上手の域に達するが、努力だけでは名人になれない…、しかして、素質のよい鑄塊を作るには連続鑄造法以外にない」という趣旨の報告書を当時の製造部長である丸山五男氏に提出し、許可を得て実験を開始した。その後、建設中の名古屋軽合金製造所は米国の United Engineering 社のストリップ方式圧延設備を導入することとなり、製板用角型大型鑄塊を必要としたため、大型鑄塊連続鑄造技術の完成が必須となった。これを担当した鹿子木立郎氏は銅製鑄型を用い、鑄型内面に塗油し、溶湯注入の工夫や底板にダミーブロックをおくなどして、1941 年 6 月、長さ 1200mm、約 400kg の鑄塊を製造する SKS-V 式と呼ぶ鑄造法を完成させた (Fig. 14) ^{1,2)}。1942 年には、反射炉の前に深さ 5m 余のピットを作り、其の中にダミーブロック付き降下装置を据え付け、鑄型を設置し、二つの取鍋で交互に鑄型の中に樋を通じて溶湯を流しこんで、最大 1400kg、厚さ 220mm、幅 600 及び 800mm、長さ 4000mm 程度のものが造塊された。実際の圧延には 400kg、600kg 鑄塊が用いられたので、一本のスラブから 3 枚取りまたは 2 枚取りされた。当初、Vereinigte Leichtmetallwerke GmbH (VLW 社) の技術導入で製造する予定であったが、古河電工が先に交渉していたため技術導入はできなくなった (注 3)。このため鹿子木氏は 1937 年のドイツの Aluminium 誌に掲載された連続鑄造法に関する記事や VLW 社のイタリア特許を参考に、大型鑄塊の製造の実験を行い、鑄型、形状、鑄込み法、冷却法、亀裂防止、異常結晶粒や発汗の防止に独自の技術を確立し 3 件の特許を取得し、1942



Fig. 13 Poster and site map of Nagoya Pan-Pacific Peace Exhibition (white text shows the present place name) ⁵⁰⁾

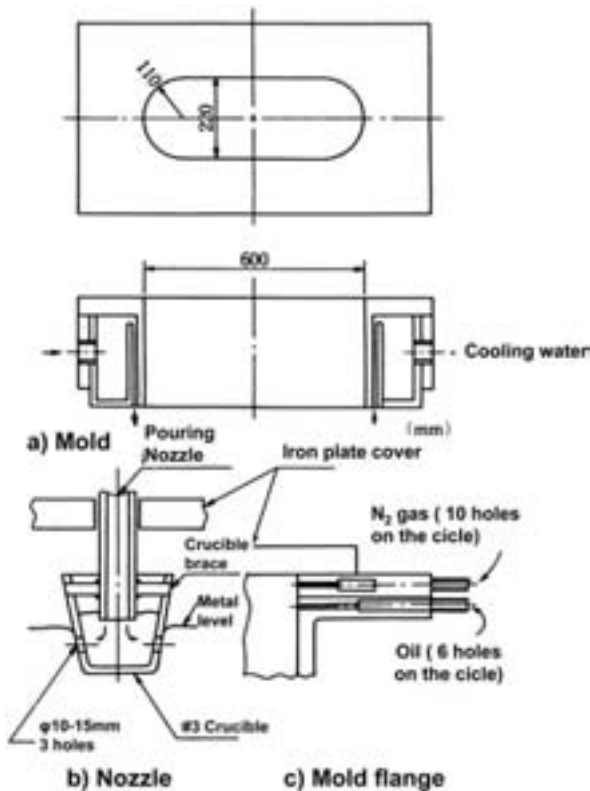


Fig. 14 Continuous casing mold for slab¹⁾

年名古屋軽合金製造所にて量産化した。連続鋳造法の確立は製板工場のストリップ方式圧延設備の生産性向上に大きく貢献した。この連続鋳造法ではジュラルミン、超ジュラルミンだけで、超々ジュラルミンは鋳込んで放置すると割れるといった問題があり、Züblin法（SKS-VI式）が適用された。Züblin法は鋳型の一方の縁を解放しておき、そこから水平な樋で溶湯を流し込み、鋳型を降下させていくと同時に縁の解放された部分を逐次塞いでいく方式である（Fig. 15）^{1,2)}。Züblin法によるESD板用鋳塊は、厚さ120mm×幅400mm×長さ600mm（約80kg）程度のものであった。

（注3）古河電工は1937年9月の工場事業管理令に基づいて、日光と大阪の工場が陸海軍の管理を受けるようになった。特に古河は陸軍からの要請で航空機用アルミニウム合金の大量生産のための新工場の建設が必要になった。新工場建設にあたっては外国の最新の技術導入することが不可欠であった。当時、ALCOAやVLWが第一級の技術を有していた。1938年VLWから技術提携の話があり、鋳塊を作る技術ではVLWが優れていると判断し、1939年8月古河とVLWは契約を結び、溶解鋳造、圧延、鍛造、押出、研究に関して技術導入を行い、技術習得のために三ヵ年で技術者を三回派遣することとなった。派遣されたのは松尾敏彦、川村知、北島正元の三名で、1941年5月シベリア経由でドイツに向かった。6月にベル

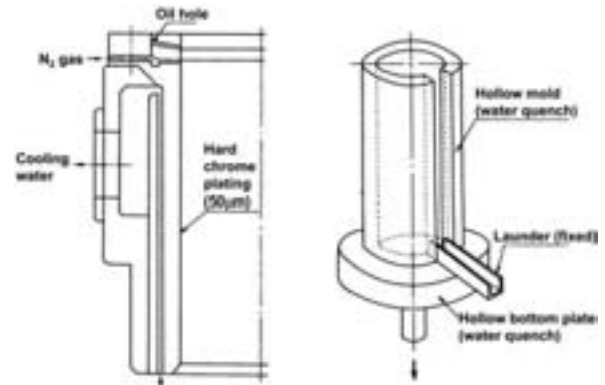


Fig. 15 Continuous casing mold for billet (Left is for Duralumin or Super Duralumin, Right is for Extra Super Duralumin)¹⁾

リンに着いたが、12日後、ドイツはソ連に対し宣戦布告をした。7月にハノーバーに着き、空襲の最中VLWでの研修、VLWの連続水冷鋳造法などの技術習得を行なった。11月にハノーバーを引き上げたが、日米開戦の危機ですぐに帰国することは難しくなった。購入機械類や技術資料は潜水艦で日本に運ばれた。1942年9月、帰国手続きをとったが、ソ連を通過するビザが取れず翌年まで持ち越された。1943年の春、技術資料や駐在員との連絡で日光では連続水冷鋳造設備を作り上げた。その結果、24SはできたがESDは良品ができなかった。1943年10月ようやくソ連通過ビザがおりたが、一社2名までということで北島にはビザは発給されなかった。一人残された北島はベルリンの空襲の中、肺をやられて闘病生活となり、陸軍の計らいでドイツ陸軍傷痍軍人療養所に入った。戦況が悪化し1945年1月にはスイスの結核療養所に移ったが、9月18日39歳で客死した⁵¹⁾。

(2) 圧延技術

a. 伸銅所製板第二工場

1935年ころから、超ジュラルミンが飛行機の外板材として量産に入って多忙を極めた。そこで桜島の伸銅所に大板を専門とする製板課第二工場が建設される。1938年頃から稼働し、主要設備は圧延機12基である。大板の生産には、熱間圧延機として米国Mesta社製の三段圧延機(22", 30")×66" 1基、冷間圧延機にはUnited Engineering (U. E.)社製の三段圧延機(20", 30")×66" 1基と二段圧延機(28"×60") 4基、日立製作所製二段圧延機2基(28"×61", 28"×66"), その他U. E.社製四段帯板圧延機1基有していた。製板第一工場で押え圧延された熱間圧延板を用いて大板が製造された。大板の圧延工程は次のようであった。

加熱→熱間圧延 (0.25") →焼鈍→両耳切断→
地取切断→冷間圧延 (三段圧延機, 3 mm) →
地取切断→焼鈍→傷取り→冷間圧延 (1.5mm)
→焼鈍→二枚合せ圧延→0.8mm →焼入れ→洗
浄→スキンパス (→焼戻し)

熱間圧延での問題点としては、第一に、押え圧延では端面割れが多かったが、時折表面割れも発生し、この場合は両面を5～6mm面削した。第二に、三段圧延機では軽圧減率の加工なのでクロコダイルを発生しやすいことや合せ板圧延開始時に上側皮材が剥離し飛ぶことがあった。第三に、熱間圧延板のキャンパが不揃いであったため、圧延ごとに冷却水量の調整が必要であった。

b. 名古屋軽合金製造所

名古屋軽合金製造所の熱間圧延では連続鋳造法による大型鋳塊をストリップ方式で圧延する、当時としては世界でも極めて新しい試みで圧延が行われた。この方式では幅1000mm板用スラブをU. E. 社製可逆式二段圧延機 (Fig. 16) で厚さ6mmまで熱間圧延後、コイルアップする。

焼鈍後、冷間粗圧延はU. E. 社製2スタンドタンデム四段冷間圧延機 (Fig. 17) で3パス通板し、中間焼鈍を入れて、その後シングルのU. E. 社製4段冷間圧延機で圧減率50%の仕上げ圧延を行い、板厚0.5ならびに0.6mmとした。ストリップ方式で圧延した板はジュラルミン (D2)、超ジュラルミンとその合せ板 (SD, SDC) の3種類で、板厚は0.4～1.2mm、幅1250mm以下である。超々ジュラルミンESDとESDCは従来の圧延方式であった。

可逆式二段熱間圧延での超ジュラルミン合せ板 (SDC) の圧延工程は次のようである。

400kgスラブ→押え圧延 (厚さ135mm×幅850mm) →面削 (片面10mm) →洗浄→皮板付け→加熱→熱間圧延 (厚さ6mm×幅1100mm) →両耳切断 (幅1050mm)

傾斜鋳造法による鋳塊の熱間圧延には、日立製作所製二段圧延機 (30"×70") 2基、冷間圧延にはU. E. 製三段圧延機 ((31", 21")×72") 1基、ならびにU. E. 製二段圧延機 ((32", 36")×(66~96)") 7基が用いられた。小幅コイルの冷間圧延には、Schmitz社製 (500×800mm) 2基、Farrel社製 (20"×32") 1基の二段可逆式圧延機があり、そのコイル単重は50～60kgであった。その他、マグネシウム合金圧延用に日立製作所製二段圧延機 (36"×130") 4基、復水器管板用ネーバル黄銅いた熱間圧延用に日立製作所製二段圧延機 (36"×130") 1基が据え付けられていた。



Fig. 16 Reversible 2 Hi hot rolling mill, R1, restored after World War II
(from *100 Years of Working with Copper and Aliminum, 1897-1996*, Sumitomo Light Metal, 1997)



Fig. 17 4 Hi-2 stands tandem cold rolling mill
(pictured in 1958)
(from *100 Years of Working with Copper and Aliminum, 1897-1996*, Sumitomo Light Metal, 1997)

焼入れには硝石炉を使用し、大板はつり下げ方式であるが、小板の場合には寸法によってコイル (最終単重40～50kg) のまま焼入れしたこともあった。

現在行われているストリップ方式の圧延技術の基礎は、小幅圧延から始まり、連続鋳造法の開発と相俟って、1942年以降、名古屋軽合金製造所によって完成された。これは、戦後公表された欧米各国の技術水準と比較して何等遜色がなかった。

1944年における伸銅所製板課第二工場のアルミニウム合金生産量は500～600トン/月、名古屋軽合金製造所製板工場は最盛期には2000トン/月 (内、ストリップ方式が1500トン/月) である。

(3) 管棒技術

a. 伸銅所管棒課第二工場

1939年頃から稼働開始し、主要設備は横型水圧押出

機4基, 堅型水圧押出機2基, 製管製棒用の二段溝ロール2基, 鎖式抽伸機18基である。横型水圧押出機はHydraulik社製1500トン(鑄塊直径6"), Schleomann社製3600トン(10"), 同2000トン(7"), Southwork社製1000トン(5")の計4基である。前3者は棒材にも使用されたが, 形材が主であった。Southwork社製は主に棒材に用いられた。堅型水圧押出機はHydraulik社製複動型1000トンが2基で, 管専用であった。素管はマンドレル押出方式で製造された。材質はジュラルミン, 超ジュラルミン等で, ESDは比較的少なかった。用途としては飛行機の小骨その他の構造材, 操縦桿, エンジン台座, 給油配管であった。鋁用に線材が製造された。線材は堅型水圧機で八角形断面に鍛造後, 三段溝ロールと二段溝ロールで縮径した後, ドラム抽伸された。

b. 名古屋軽合金製造所管棒工場

1941年, 主要設備として, 横型水圧押出機8基, 堅型水圧押出機および堅型水圧機1基, プロペラ翅素材用の圧延溝ロール3基, 鎖式抽伸機17基, 20トン及び300トン引張り矯正機各1基, リーラ矯正機が設置された。Fig. 18は2000トンの横型押出機である。

いずれの工場でも, ビレットの直径は5", 7", 9", 10"で, 傾斜鑄造法で製造され, 名古屋では連続鑄造法も併用された。焼入れは硝石炉が用いられた。生産量は伸銅所(桜島), 名古屋でいずれも管棒が300トン/月であった。

(4) 形材押出技術

a. 伸銅所管棒課第二工場

押出形材に使用されたのは, 横型水圧押出機はHydraulik社製1500トン(鑄塊直径6"), Schleomann社製3600トン(9", 10"), 同2000トン(7")で, Schleomann社製3600トンは当時としては最大級のもので, 主翼桁用ESD大型形材の生産に用いられた。大型の場合には10"に取り替えた。Schleomann社製2000トンは中型形材の生産に使用された。肉厚は1.2, 1.5mmであったが, 1.0mmの場合には, 1.2mmで押出した後に4"ロールで圧延して1mmとした。なお, 1940~1941年頃クラッド形材やマンドレルを摺動させてテーパ形材の実験をしている。

b. 名古屋軽合金製造所管棒工場

押出形材生産用に横型水圧押出機が7基設置された。その後増設され, 計11基となった。ESDは2000トン級以上の押出機で生産され, 最小肉厚は4mmとしたが, 主に6mm以上の肉厚であった。押出速度はSDが2~2.5m/min, ESDが1~1.5m/minであった。

ESDよりも押出性のよい合金が要求され, Cu量2%を1.1%に減らし, Mg, Zn量を少し増やしたNSD合金(Table 10)¹⁾が作られ, 押出速度が3m/minとSDより優れたものができた。合金の名前のNはNagoyaのNである。合金成分がESDの規格範囲内であるので, 名古屋の海軍監督官が承認し生産に踏み切った。

当時の押出形材生産上の問題は, 押出材尾部の結晶粒粗大化, 押出性が形状寸法に依存すること, 押出材尾部のまくれ込みであった。押出形材の矯正方法は, 引張り矯正, 叩き矯正, プレス矯正, ツイスタによる振り矯正



Fig. 18 Horizontal hydraulic pressure extrusion press for shapes (from *100 Years of Working with Copper and Aluminum, 1897-1996*, Sumitomo Light Metal, 1997)

Table 10 Chemical compositions of ESD and NSD (mass%)¹⁾

	Zn	Cu	Mg	Mn	Cr	Si	Fe	Al
Spec. *1)	7.0~9.0	0.8~1.7	1.2~1.8	0.3~1.0	0.1~0.4	<0.6	<0.6	残
ESD	8	2	1.5	0.45	0.2	(<0.5)	(<0.6)	87.8
NSD	8.5	1.1	1.6	0.45	0.2	(<0.45)	(<0.6)	88.15

*1) Specification for aircrafts 7222 (Chi 263)

である。矯正は傷取りと同様、非常に手数がかり、大海戦術であった。生産量は桜島と名古屋でそれぞれ700トン/月であった。名古屋ではESDの生産が500トン/月であった。

(5) 鍛造技術

a. 伸銅所鍛造工場、葉莖工場

1940年頃、米国Eric社製30000lbs エアーハンマー、1トンエアーハンマー、1000トントリミングハンマー各1基が導入された。葉莖工場には大阪鉄工所製2000トン堅型水圧機、1000トン堅型水圧押出機各1基、抽伸ならびに口絞り用に150トン横型水圧機1基が設置された。ピストンはドイツのワインガルテン社製180トン及び700トンスクリュープレスで、クランクケースは2000トン堅型水圧機で製造された。

b. 名古屋軽合金製造所

設備の大型化、大型クランクプレスの採用、鍛造ロール、アプセッタの使用、黒皮を残す鍛造、製型工場の設置を基本に工場ができた。4000トン堅型水圧機2基、1000トン横型水圧機（アプセッタ）1基、Beche社製35000kg-m カウンタブローハンマ1基、鍛造ロール1基が設置された。小型鍛造品専用にはピストン用スクリュープレス4基、1トン及び3トンエアーハンマ各1基設置、その後米国National社製1500トンクランクプレス2基、国産の700トン3基、200トン2基クランクプレスが増設された。

3.10 ESDとアルコア合金7075

元住友軽金属常務取締役、研究部長であった畑栄一博士は住友軽金属技報の中で、次のように書いている。「戦後、75Sのinventorに会いたいという目的で、米軍の将校が名古屋工場に現れたことがあった。五十嵐博士はすでに東北大学に去られたあとであった。アメリカは捕獲された零戦にESDの使用されていることを知り75Sをつくったとの噂は聞いていたが、五十嵐博士を75Sの発明者として正式に認めていることは、その時初めて知った」とのことである⁵²⁾。米軍は撃墜された零戦の材料を分析し、75Sを開発したことを証拠付ける貴重な証言である。

大平五郎名誉教授は東北大学金属工学科創立75周年

記念誌(2000年, p.112)で次のように語っている。「五十嵐教授着任後のある日、アメリカの海軍研究所の高級技師とアルコア研究所の人が突然やってきた。ESDのことについて質問があり、名古屋の住友金属に伺ったら此処に居るといので仙台まで来たという。そして、教授にすぐにアメリカに来ないかという。先生の返事は唯一つ、「負けた国のものが勝った国へ行って何かいいことがあるか。断る」。その結果は毎月1~2回、ときには3回必ず2~3人の技術者が訪ねてきた。ほぼ2年は続いたと思う。先生は自分のやった仕事だけにこの次は多分これを聞きに来るだろうと話していたが、大体その予想通りになっていたのには敬服した。住友では7~8人でしていた研究を海軍研究所とアルコアでは600人でやっていたという」⁵³⁾。

1941年まで研究部長を務めた田邊氏によると「戦争の末期某米機の或重要部品の巨大な鍛造品がAl-Zn-Mg-Cu系合金である事を知ったがESDよりもZn少なく、Mg多く確か、Crの含入はなかった。思へば是が75S或は其の初期のものであったらしい。敗戦後Alcan(原文まま、Alcoaの間違いか?)社のカタログに依り、75Sの如何なるものなりやを知り、更にMaterials & Methods誌によって其詳細を知り得た。ReynoldsのR303も同種類のものであろう。全く同系統であって其性能も大同小異であり、合せ板の表皮も落ちつく所に結着しているのは愉快である。私共はクロム添加によって時期割れを防止したが75Sに於いても恐らく然りであらう」と⁴¹⁾。

Table 11に住友のESDとアルコア社の7075合金の成分比較を示す⁴¹⁾。アルコア社の7075は当然のことながらESDの米国特許の請求範囲に入る(Table 8の日本特許参照のこと)。Mnは現在では不純物元素扱いであるが、この当時、Mnは必須成分として扱われている。Cr添加の合金が特許としてでてくるのは米国特許2240940(出願1940.9.28, 特許1941.5.6)⁵⁴⁾で、その請求項は次のようである。出願は住友の米国特許が成立した後である。

1) Zn 4-6%, Mg 0.75-2.5%, Cu 0.1-2%, Mn 0.1-1%に、少なくともTi 0.02-0.25%, B 0.005-0.1%, Zr 0.01-0.15%, Mo 0.02-0.25%, W 0.02-0.2%, Co 0.02-0.2%, Cr 0.05-0.5%, V 0.02-0.2%を1種類以上添加

Table 11 Comparison between ESD and 7075 alloys⁴¹⁾

	Zn%	Mg%	Cu%	Mn%	Cr%
Sumitomo ESD	6.0~9.0	1.2~1.8	1.5~2.5	0.3~1.0	0.1~0.4
Coating alloy for Sumitomo ESD	0.5~3.0	—	<0.2	—	0.1~0.4
Alcoa 7075	5.1~6.1	2.1~2.9	1.2~2.0	0.1~0.20	0.15~0.40
Coating alloy for Alcoa 7075	0.75~1.25	0.10	<0.10	<0.10	—

2) Zn 4-6%, Mg 0.75-2.5%, Cu 0.1-2%, Mn 0.1-1%, Cr 0.05-0.5%, Ti 0.02-0.25%,

3) Zn 4-6%, Mg 0.75-2.5%, Cu 0.1-2%, Mn 0.1-1%, Ti 0.02-0.25%

第二項がほぼ 7075 合金に相当する。実施例として Cr を添加した合金はなかった。

田邊氏はさらに続けて、「今両者の優劣を詳細に比較し難いが、75S の 5.5%Zn, ESD の 8%Zn は種々の点で前者に有利になるは否み難く、我国で主として実用した押出型材は規格として引張強さ 58kg/mm²以上を呼号したものであったが、75S の 54kg/mm²でも実用上何等差支えないであろう。こゝろあたりに徒に強力を求める我国の通弊をみる。我国では合せ板はほとんど実用されなかったが、米国では必ずや相当に使われていると思ふが、其実態を知りたいものである。尚又米国では 0.3mm の板も規定されているが、私共は之を 0.5mm に止めた、組成及製造方法の差異はあるが、彼に一日の長がある」⁴¹⁾。

ESD の組成は、現在でも鋳造での鋳塊割れや押出での押出性など生産性で非常に問題が多く、当時の技術でよくこれだけ生産できたものと感心させられる。米国は鋳造性や圧延性、押出性などの生産性を重視したのか、あるいは応力腐食割れを考慮したためか、Zn 量を ESD より大幅に減らしている。また薄板の圧延についても、米国から導入した圧延技術なので、この生産技術面では日本の技術は遅れていたといわざるを得ない。材料規格の件では、当時の空技廠からの無理難題な要求に応えながら成分を決めていかざるを得ない状況がよくわかる。しかし、この要求がなければ世界に誇る材料もできなかったであろう。これは何時の時代も変わらない。

「航空機工業禁止の現時日本ではこの種優秀合金は恐らく活用の道はなからうけれど、兎に角斯界の歴史に些少なりと足跡を残し得た事を五十嵐博士ら舊同僚諸君等と共に喜びたい。尤も、ESD といえども全然新しいものではなく、独の Sander 合金、英の E 合金等先哲の業績を再検討し、E-S-D 系を組織的に開拓して生まれたものであるが、少なくとも其耐時期割れ性増進のためクロム添加の如きは、五十嵐、北原両氏の前人未踏の偉業なることを付記して置く」⁴¹⁾と田邊氏は結んでいる。後述するが、戦後の航空機用高強度アルミニウム合金材料は ESD の成分と同じ方向に開発が進んでいる。

1960~1980 年代、アルコアの航空機材料開発の中心的役割を果たした J. T. Staley は 1989 年、“History of Wrought-Aluminum-Alloy Development”の中で、Al-Zn-Mg-Cu 合金について、アルコア社は 1940 年 7076 (Al-7.5Zn-1.6Mg-0.7Cu-0.6Mn) を鍛造用合金として開発し、2025 合金 (Al-4.25Cu-0.8Si-0.75Mn) より耐磨耗性及び疲労が優れているのでプロペラの翅に用い

た。1938 年までにラボでは板での応力腐食割れの問題は解決できたので、X74S (Al-5.2Zn-2.1Mg-1.5Cu-0.4Mn) を主翼の一部に用いたが、この合金板材はフィールド試験で、時効材を加工して用いると応力腐食割れに敏感になることが判明した。このため、高融点の微量添加元素の影響を調べ、クロムを 0.2 から 0.35% 含む合金が応力腐食割れに強いことがわかった。強度も少し向上させて耐応力腐食割れ性にも良好な、今日良く知られている 7075-T6 を 1943 年開発したと述べている。その後、“Interestingly, chemical analysis of sheet from a downed Japanese Zero fighter aircraft disclosed that the composition was almost the same as that of 7075.”と書いている。この新合金はすぐに機体の設計に反映され、7075-T6 板は B-29 Super Fortress 後期モデルの主翼上部のスキン材やストリンガー材として用いられた。アルコアの研究者が Zero Fighter について記述したのはこれが初めてではないかと推察される⁵⁵⁾。

1930 年以来、応力腐食割れについて研究を続け、アルコアの材料開発で中心的役割を果たした E. H. Dix は “Alcoa 75S, after many years of research, was put into commercial production for clad sheet and extrusions in 1943 and later for nonclad sheet, wire, rod and bar, and forgings.”⁵⁶⁾と述べている

同じく、米国特許 2240940 の発明者でもあり 7075 の開発に関係したアルコアの J. A. Nock, Jr. は、M. B. W. Graham らの著書 “R & D for Industry, A Century of Technical Innovation at Alcoa”⁵⁷⁾で次のように紹介されている。“Ultimately, Joseph Nock, working with small DC ingots cast on the premises at Alcoa Research Laboratories, solved the problem empirically, demonstrating that small amounts of chromium added to Al-Zn-Mg-Cu composition yielded resistance to SCC that had long been sought.”。その Nock は、“This alloy is the culmination of a number of years' intensive work.”⁵⁸⁾と述べ、これはその後の 1949 年 ASM の単行本でも “Years of extensive laboratory investigation, including painstaking studies of susceptibility to stress corrosion cracking, finally terminated in the selection of the alloy composition designated 75S.”⁵⁹⁾述べていて、75S の成分を決めたのは自分たちの研究の成果だと述べている。

アルコアの物理冶金部門のリーダーだった H. Y. Hunsicker もまた然りで、“Continuing alloy development efforts led to the discovery that the addition of a small amount of chromium greatly reduced the sensitivity to stress corrosion.”⁶⁰⁾と述べている。

このように、歴代のアルコアの材料研究者が日本の ESD について敢えて触れてこなかったためか、2008 年ドイツのアーヘンで開催されたアルミニウム合金国際会

議 ICAA11 の最初の基調講演、ヴァージニア大学の E. A. Starke, Jr 教授の “Precipitation Hardening : From Alfred Wilm to the Present” の講演で、Al-Zn-Mg-Cu の開発の歴史が語られたが、彼の示したパワーポイントの図の中には全く ESD が入っていないことに、東京工業大学里教授や小職も含めて日本から来た参加者は驚いた。同時に配布された本の中には “The early alloys were susceptible to stress-corrosion cracking but later examination of small addition, of first Mn and then Cr, proved that alloys containing 0.2 to 0.35% Cr had high resistance to stress-corrosion. In 1940 Sumitomo developed an Al-Zn-Mg alloy for the Mitsubishi A6M2 (Zero) airframe. The chemical composition of the Sumitomo alloy was very similar to the Al-Zn-Mg alloy 7075 developed by Alcoa and introduced in 1943.”⁶¹⁾ と書かれているにも係らず。ここでも住友の発明のプライオリティについては直接触れていない。

これは ESD について、我々日本人による PR が足りないのではないかということで、2010 年横浜で開催された ICAA12 では、Fig. 19 に示すように ESD の開発の歴史と零戦残骸の展示とその材料調査結果を英文ポスターで PR し、そして実行委員長里教授の基調講演 “Innovative Development of Aluminium Research and Technologies in Japan”⁶²⁾ や小職の講演 “Alloy Development for Transportation in Sumitomo Light Metal”⁶³⁾ の中で、ESD 開発の先進性を世界のアルミニウム材料研究者に向かってプレゼンした。

発明というのは、大概同じ時期に同じような研究をし

ているので結果的に同じ結論に達することはホールやエールの発明をみても理解できる。しかしながらどのような研究をしてアルコアが 7075 を開発したのか公表されたデータはほとんどないのが実情である。勿論、特許での ESD の優先性は明らかであるが。

3.11 軍官学共同研究による HD 合金と ND 合金

HD 合金と ND 合金については、西村教授が軽金属時代に「随筆軽合金史」(第 34, 35 回, 第 38 回, 1951 年)として詳しく書いているので、それを紹介する⁶⁴⁾。

1941 年 11 月下旬、本多光太郎教授などが主宰者として、陸軍が後援で日本学術振興会の航空機に関する総合研究をするための特別委員会の準備会合が東京の如水会館で開かれた。第 3 小委員会として強力軽合金に関する研究部会が企画され、本多博士が委員長として、大学側から東北大日向一司教授、早稲田大学石川登喜治教授、京都大学西村秀雄教授、製造業者は住友金属、古河電工、神戸製鋼の三社であった。陸軍が主宰したため海軍からは協力がなかったとのことである。第一回の会合は 1942 年 4 月、初空襲の最中開催された。西村教授によれば「研究方針を定めることになり、どうするかと云って別に案がなかったから、銅を用いなくて超ジュラルミンの代用になるような合金を造ってはどうかと提案した。銅は軽合金に使用される量はさほど多くないが、しかし我国の銅資源は必ずしも豊富とは云えない、少しでも節減が出来るなら時局に役立つではないかという考えであった」。その結果、Al-Zn-Mg 系合金を取り上げることになった。超ジュラルミンと同等の強度で、焼入れして常温で時効硬化を示す様な材料をこの系統の合金で造るこ



Fig. 19 Presentation of two typical inventions before World War II, Extra Super Duralumin (left) and Alumite technology at RIKEN in ICAA12 (12th International Conference of Aluminium Alloys) held at Yokohama in 2010.

とが出来るか検討した。まず成分の目標を定め三社が試作してそれを検討することから始めた。

住友金属から Zn 6%, Mg 2%, Mn 0.8%, Cr 0.25% を目標として造られた板は引張強さ 45kg/mm², 伸び 18% を示し, 超ジュラルミンの規格値 (引張強さ 43kg/mm² 以上, 伸び 14% 以上) を満たしたが, 焼鈍材は規格値以上となり加工性に問題があったので, 「もうこの研究はこれで打ち切って新しい方向に向かうことにしようかと考えたが, 折角研究を始めたのであるから, 鍛造材とか押出型材を造ってみてはということになって, その試作をすることにした。古河電工での Al-6%Zn-2%Mg-0.75%Mn-0.35%Cr 押出材の試作結果は非常に良好で, 引張強さは 50~54kg/mm², 伸びは 12~15%, 超ジュラルミン SD の規格値を十分満足していた」。この時, 「押出が容易で, その速度を数倍にしても差支えないことを知った。これは予期しなかった一つの発見であった。当時, 押出型材の製造が航空機製造の一つの隘路となっていた。急に押出機を製造することは困難であったから, 若し押出性能の良い材料があったならば, それだけ製造能力が増すことになる訳である」から, 注目すべき発見であった。押出性能に関しては, 神戸製鋼でも実験をし, 超ジュラルミンの 2 倍程度の速度が得られた。この合金は HD ということに話が陸軍からの提案でまとまった。これは本多博士が委員長であった関係で H のイニシャルを取ったものである。こうして HD (Honda's Duralumin) という合金が生まれた。化学成分は Zn 5~5.8%, Mg 1.5~2.5%, Mn 0.3~0.8%, Cr 0.1~0.4%, Cu 0.8% 以下, Fe 0.6% 以下, Si 0.5% 以下, Al 残である。この合金は, 後述するが, 戦後, 三元合金として新幹線や二輪車などに適用され大きく発展することとなる。

太平洋戦争も終わりに近づくとつれて, アルミニウム新地金が不足して, 航空機の解体屑やそのほかの返り材 (再生塊) を使用する率が多くなり, Fe, Si, Zn などの不純物の混入が増してきて, 航空機に不可欠の品質の良い超ジュラルミン SD の生産が困難になってきた。そこで, 上記の不純物の許容は範囲を拡げ, SD に匹敵する機械的性質を有する材料の開発が要望され軍官民で開発した合金が ND である。ND は Nippon Duralumin という意味である。その成分は, Cu 4.0~4.8%, Mg 0.6~1.2%, Mn 0.6~1.0%, Fe 0.8% 以下, Si 0.3~1.0%, Zn 1.0% 以下で, 機械的性質は焼入れ後常温時効で引張強さ 44kg/mm² 以上, 耐力 32kg/mm² 以上, 伸び 10% 以上である。西村教授は, 結果的には「アルコアで 14S として既に使用されていたものを多少変えたものに過ぎず, 25S にマグネシウムを加えたものになった。ND と称した材料は軽合金としては止むを得ない事情から造られたものであって, 進歩した材料とは云えない」が, ND の研究から「ケイ素が 0.8% も含まれていても焼入れ時効材の機械的性質が SD のように低下する

こともなく, また鉄も時効を阻止しない理由は不明のまま残っていて, 学術的な問題を提供してくれたので, 無駄な研究ではなかったと述べている。

3.12 なぜ ESD は短期間で開発できたのか?

五十嵐博士は, 戦後, ESD 開発当時を振り返って, 次のように述べている²⁰⁾。

「先輩が夫々立身出世されると馬鹿な我輩も止むを得ず研究の凡てを見ねばならぬことになった。丁度その頃デュラルミンは板につき SD, SDC も工業化出来てやれやれと思っているとトム合金と云うものが華やかに宣伝された。第一次大戦当時英国には E 合金というのがある。その後独乙に Sander 合金と云うのがある。別にめづらしい合金ではないが時期割れがあるので使いものにならぬ。学業成績は優秀でも Load がかけられない秀才見たようなものである。とはいっても世間はうるさいし。止むを得ず吾々は使いものにするようにしようではないかと相談した。

割れるやつなら大いに割つて見ようとするので最も時期割れの甚だしいのを作つてそのよつて来る原因をつかもうとつとめた。種々の気体の中, 液体の中, 真空中, 等で割らして見た。その結果から此の種の時期割れは水分による結晶粒界の局部腐蝕が重大なる原因をなすことがわかつた。そこで腐るものに腐るなどは無理な話だから腐らなければ大いに腐らしてやろう。それも局部腐蝕などケチな事云わずに全面腐らすようにもつて行こう。それには全面に析出する Mn を増して 1.2% にもつて行けば全面腐蝕になり時期割れはなくなる。処が大物鑄塊では Mn 化合物が大きく発達して物にならぬ。そこで Mn を減じて Cr で補うことにした。そしてその limit が ESD の Mn, Cr の成分になった。他の成分は量産の目的で最も加工し易い点をとつた。量産を考えないならば 80kg/mm² 程度は出せる。かくて ESD は出来上つたが素人はおそろしいもので「完全に時期割れはないか」等と詰問されたものである。吾々の見解からすればデュラルミンでも時期割れをおこさせることが出来るのであつて絶対に割れないなどいい切ことは出来ない。実用上差支えないと答える以外に道はない。大事なことは実用の限度と量産と力とのかねあいである。それらを見る人の心にまかせおくよりしかたがない。そして少し成分をいじれば注文通りのものがつくれる」と。

五十嵐博士から直接指導を受けた元常務取締役深井誠吉博士との対談⁶⁵⁾では次のように次のように語っている。

「今度は考え方を全く変えて, どのように割れるかを研究することにした。そこで, いろいろ研究して, 一番割れやすいものを作つた。普通なら時期割れは 1 か月から 2 年ほどの間に起るが, 曲げて 5~10 分で割れるのができた。割れは結晶粒界で起る。ここが腐って割れるので, 酸, アルカリにつけて腐らせてみたらもっと割れやすくなると思った。ところがより割れるはずなのが

割れない。人間の考えがいかに馬鹿なものであるか、これで明らかである。頭から割れるはずだと思込んでいたものが割れない。

そこで別れの原因を調べてみると、空気中でも割れるので、その因子を調べるために、酸素、窒素、いろいろやってみたが、一番影響するのは水蒸気。次に調べねばならないのは、金属それ自体が、割れるかということです。そこで真空中で調べた。普通なら4～5分で割れるのが1日たっても、2日たっても割れない。それでわかった。つまり水蒸気があると割れる。純アルミで割れないのはわかっている。そこで酸、アルカリにつけると全面が腐るので割れなくなる。ここで問題が決ってくるわけですね。

結局、結晶粒界と同じ速度で全面を腐らせる。全面が平均して腐るためには微細な析出物を全面に作る。そうすると全面の腐り方と結晶粒界の腐り方の歩調がそろう。こうすれば割れない。結局1ミリ腐るのに、何年もかかるから、金属の腐食が進む前に、飛行機の方が駄目になる。研究はこれで終り。後は何を何%、何を何%と実験すればすぐできる。それから先は、アメリカ流にサーッとやればよい。」と。

同様に、元専務取締役で技術研究所長であった寺井士郎博士はESDが開発できた要因を次の六点にまとめている⁶⁶⁾。

(1) 具体的なニーズ

1935年当時は、準戦時下であり、列国より優位な軍事力、特に優秀な戦闘機の開発それに伴う機体構造材としての高力アルミニウム合金の強度向上に対する軍の要求は切実であった。引張強さ60kg/mm²級の新高力軽合金の開発が海軍航空本部より要求された。と

(2) 非凡なる発想

応力腐食割れの解決の難しさから、リスクの少ないAl-Cu-Mg系合金を選択せずに、強度的にはAl-Zn-Mg系合金に勝る合金なしと考え、応力腐食割れ防止によって実用化せんとした積極的発想と、アルミニウム合金の応力腐食割れが局部的な結晶粒界での割れであることに着目し、むしろ全面的に腐食させることで割れを防止しようとした、逆転の発想は非凡である。

(3) 的確な実験対象

実験対象として、D合金、S合金、E合金を選定し、それぞれの配合比率と強度マップの関係から的確な合金を選択したこと、粒内に全面に析出させて全面腐食させる微量添加元素の選択が的確であったこと。

(4) 系統的な実験

応力腐食割れ防止について金属組織、環境、応力、成分及び熱処理に関し系統的な実験を短期間に実施し、MnおよびCrの微量添加が有効であるとの結論を得て、合金特許を取得した。

(5) 創造に対する執念

五十嵐博士は、「研究室で出来たものが、工場で出来ない筈がない。必ず物にするという執念で事に当たれば、自然が、これでもか、これでもかと呼び掛けてくれるものだ。この自然の呼び掛けを聞く耳をもたねばならない」とよく言われていた。

(6) 優れた協力者

ESDは工場生産技術者の協力なしでは、工業製品としては恐らく開花しなかったであろう。当時の生産技術は、製造部長の丸山五男氏の献身的な協力に負うところが多かったと五十嵐博士は述懐している。

時期割れの対策に関しては「逆転の発想」ということで寺井博士が紹介されたが、同じく元社長で技術研究所長の佐藤史郎博士はセレンディピティの観点から次のように述べている⁶⁷⁾。

「五十嵐博士から、我々研究に当たる物に対して、最も心すべきこととして対象を徹底的に観察することの重要性を説かれた。“ものをよく見よ。理屈(理論)は後からつけたらよい。もし誰かがつけてくれるならばそれでよい。とにかく、ものをよく見よ”」と。「応力腐食割れに関しては「光学顕微鏡で応力腐食割れの組織を観察すると、結晶粒界が割れている。応力腐食割れに析出物が関与していることは明白である。そこで、応力腐食割れを徹底的に観察しようという魂胆もあった。これらの合金の試験片の応力腐食割れ試験を実施した結果、意外なことに応力腐食割れが著しく改善(抑制)されている合金があった。その添加元素がCrであり、Cr添加が組織を微細化し、析出物の析出形態を粒界析出型から粒内均一析出型へ変えていた」ことを見い出してESDの発明に繋げた。すなわち、入念な光学顕微鏡観察と柔軟な洞察-セレンディピティと言うに十分値する一により達成されたものであることは疑う余地がない」と述べている。

小職は、直接五十嵐博士にお会いしたことはないのですが、研究論文や五十嵐博士本人やその同僚あるいは薫陶を受けられた方々が書かれた内容や先輩からの言い伝えしか知らないのですが、それを基に判断するしかない。寺井博士や佐藤博士が述べているように研究者本人の資質の問題もあるが、やはり研究を支える環境と研究に対する会社の考え方が重要で、それがまた研究所の風土とか姿勢とかが伝統となって受け継がれているように思われる。小職なりにまとめてみる。

(1) 研究開発目標が明確

海軍より米国の24Sよりも高い引張強度(60kg/mm²)を有し、応力腐食割れを生じない材料の開発の要請。軍事がすべてに優先した時代であり、目標達成のために人も物も金も付いてきた。

(2) 実験工場の存在

杉浦氏の先見の明で、我国最初に実験工場を設立させ、工場に近い条件で鑄造、圧延ができたこと。これは現在でもできるだけ工場に近い条件で製造できる実験工場は合金開発や製造条件確立には不可欠である。

(3) 海外文献の豊富さ

1910年代からの文献が揃っていること。当時から海外の情報をいつもウォッチングしていたことがわかる。世界的なレベルでものを考えていたことが重要である。小職が入社した頃、英国の金属学会誌 *Journal of the Institute of Metals* はもとより米独仏の金属学会誌、さらには *Nature* や 1930年代の量子力学形成の頃重要な文献が掲載されていた *Zeitschrift für Physik* がこの研究所に揃っていることに驚きを感じた（これらの文献の一部は1996年産業技術記念館に寄贈された）。海外の図書も豊富で、現在でも図書室は充実していて、この執筆に当たってもそれほど不自由することなく過去の文献や著作を直接調べることが出来た。

(4) 研究成果の記録化、特許化、理論化

研究した内容を報告書として記録として残す風土、必要に応じて特許化すること、また学会等で発表し社外からの評価も受けること、重要な内容は理論化して論文として報告すること、そして学位論文としてまとめること、こうした研究習慣があった。Fig. 20は超々ジュラルミンが開発された頃の研究報告書である。

(5) スタッフを支える優秀な研究者、技能者

五十嵐博士には北原氏というすばらしい研究者がついて実験を担当した。彼の存在なしではESDは発明できなかったものと思われる。技能者については記録がないのでよくわからないが、小職が入社した頃には多くの優秀な技能者がいて、鑄造、圧延、分析、組織観察に長けた方々が多くおられた。現在では優秀な設備があるので、当時ほど必要ではないかもしれないが、研究内容を理解し研究者の目や耳となり、手足となるスタッフがいることは研究を早く進める上では重要である。



Fig. 20 Technical reports (1935~1938) stored now in R&D center of Sumitomo Light Metal

(6) 広範囲の材料の調査研究

五十嵐博士はもとより、当時の研究者はいろいろな材料、銅合金やアルミニウム合金の調査、研究を手がけていた。五十嵐博士は、鑄物材、展伸材などほとんどのアルミニウム合金、銅合金、マグネシウム合金の材料とその防食の研究、工場材クレーム処理や他社材の調査を手がけていて、幅広い視野と観察力が出来ていた。

(7) 現場力、生産技術力

研究した物が形になるには優れた生産技術が不可欠で、この協力なしではユーザーに受け入れられる製品が出来ない。生産技術者との信頼関係が重要で、日頃から生産技術と協力し、ともに生産技術上の問題を解決していくことが必要である。五十嵐博士から直接指導を受けた深井博士は五十嵐博士から、「発明者は、私ということになっているが、その段階における北原さん達のご苦労は勿論、その工業化に際しても当時の、丸山副所長など随分頭を痛められました。すごいスクラップの山でしたから。五十嵐君、こりゃあ、伸銅所が潰れるよ。といわれましてね」と聞きました。また岡村金次郎さん（鑄造工場長）から「決められたことを忠実に実行して、ものにするのが、現場の使命です。難しい事も毎日やっている、上達するものです」と聞きました⁶⁸⁾。

3.13 五十嵐博士の人となり

五十嵐博士について直接お会いしたことも指導を受けたこともない世代なので、どこまで実像に迫れるかわからないが、記録からできるだけ探してみたい。

まず五十嵐博士は、生家が浄土真宗大谷派（本山：東本願寺）に属し、東光明寺（ひがしこうみょうじ）（注4）で長男として出生したこと、これは五十嵐博士のものの考え方、生き方に大きく反映されているように思われる。

（注4）東本願寺（大谷派）の光明寺という意味。近くに西光明寺もある。現在の玉名市溝上に承応3年（1654年）開基。現在は五十嵐勇博士の末弟秀雄氏のご長男である五十嵐聖氏が第13世住職となられている。五十嵐博士は三男四女の長男として出生。博士は先妻いきとの間に一男三女を儲けられた。先妻は1929年、33歳で早世され、後妻シズ江を迎えられた。晩年は熊本市島崎で余生をおくられた。博士の長男の全（たもつ）氏は秋田大学鉱山学部講師として研究をされ、1960年頃には「軽金属」にも勇氏と連名で論文を執筆されていたが、2003年他界された。Fig. 21は1928年頃、東光明寺本堂の前で撮影された五十嵐家の写真である。詳細は文献69を参照のこと。

京都大学に入る前に広島高等師範学校を卒業後、八代中学・台湾中学で教鞭をとり、再び京都大学理学部物理学科に入学される。なぜ教師を辞めて理学部物理学科に入学したのか、最初から金属を研究するつもりであった

のかどうかかわからないが、本誌15周年記念号(1975年)に寄せた巻頭言で述べているように「大自然の理法」を身につけたいとの気持ちはあったようだ。当時の物理学はアインシュタインの相対性理論や光量子仮説の発表、量子論から量子力学の確立に向けて大きく変化を遂げていく段階で、自然に対する価値観も変わっていく激動の時代ではなかったかと思う。日本では長岡半太郎や本多光太郎が活躍していた頃である。7年ほど後にノーベル賞を受賞した湯川秀樹や朝永振一郎が理学部物理学科に入学している。五十嵐博士の求めた「大自然の理法」は、万物は流転するといった古代ギリシアのヘラクレイトスの考え方や仏教の「縁起の理法」とも相通ずるところがあるように思われる。住友軽金属技報の巻頭言では次のように書かれている。

「すべてのものは時とともに永遠に流れてやまない。人間はその流れに節をつくり、句切りをつける。昔は男子生れて15年たては元服のお祝いをした。一人前の男と認められる。今でいえは成人式である。これもひとつの句切りである。句切りができれば、そこを元として新たに出発せねばならぬ。独立独歩、ヘビが出るか、ジャが出るか、大黒様がころげ出ぬとはかぎらぬ。

世の中は非常な速度で変わりつつある。その変化を追ってはいつまでたっても追いつかぬ。15年の経験実績、これが大きな宝である。その中にいろんな鍵が含まれている。鍵は小さい。その小さい鍵を押せば大きな扉



Fig. 21 Photograph of Igarashi Family taken before the main temple of Higashi-Koumyoji at about 1928. The back row ; Dr. I. Igarashi(the second person from the left) and his two younger brothers and sister. The front row ; his father (the center) and mother (the second from the left), his former wife (the right end) and his son and three daughters⁴²⁾.

が開く。

リンゴや柿は熟すれば落ちる。それは当り前のことである。どんな当り前の小さなことでもすべて大自然の理法に従って動いている。その小さいできごとの中に大自然の理法を見る目を養わねばなるまい。一木一草ことごとく大自然の理法のあらわれである。

人間15才ともなれば若い血潮のあふれでるときである。「みんなついて来い」と雄たけびをあげてもよからう。大衆とともに、ナポレオンはフランス国民とともにウオーターローで戦って一敗血にまみれた。だが、フランス国民は今なお健在である。

理屈でなく、実績をもとに立ちあがろう。雄たけびをあげよう。それを我々皆んな拍手をしてたたえよう⁷⁰⁾と。

五十嵐博士は生前に一冊の著書を執筆されている。Fig. 22に示す鉄鋼新聞社発行の「アルミニウム技術入門」(1969年)である。現在でも十分通用する入門書で、必要にして最小限の事柄について書かれている。ところどころ実際に経験していないとわからないようなことを簡潔に書き、ハッと気がつかされることが多い。この本の前書きでは執筆の動機について語っている。

「万物は生成流転する。瞬時もとどまることを知らない。アルミニウムについても広範な新しい業績が山のように集められつつある。集りつつある新しい業績によって新しい理論が組立てられ、ふるいものと代りつつある。日に月に、しかも急速に。

戦後家庭の台所で黒い鉄は白いアルミニウムに代った。金と思った万年筆のキャップはアルミニウムだった。ダラリの帯の金糸銀糸もアルミニウムと聞いて驚いた。ピ



Fig. 22 Introduction to Aluminum Technology written by Dr. Igarashi⁷¹⁾

ルの外壁はアルミニウムのカーテンウォールとなった。時速 250km の新幹線の電車は全アルミニウムで計画されつつある。このときに当ってアルミニウムとはどんなものかを書いてみよう。難かしい理屈や細かい数値は専門家におまかせして、ここではアルミニウムの常識を、そして常識さえあれば必要に応じて情報センターは最新の数値を引きだしてくれることにもなろう。僅かの暇で読めるような素人の常識、だれでもよめばわかる常識、しかもそれは今日の常識であって、新しい事実はたえずこの常識を覆しつつ進歩するであろう。」⁷¹⁾

そのあとがきでは、どのように読むべきかの心構えが書かれている。科学技術に関する五十嵐博士の思いが込められている。

「これからアルミニウムの仕事にはいろいろという新人にアルミニウムとはどんなものかを知ってもらうために、アルミニウムの常識を書いてみた。理屈めいたことはできるだけ簡素化した。また実用に必要な細々としたデータも 2, 3 例を示すにとどめた。科学でもなく、技術でもない、常識である。

科学技術振興が叫ばれている。科学は自由な発想の下で何の牽制も受けないときにのみ、のびのびと発展する。その前によこたわる第一の障壁は官僚化であり第二の障壁は大衆化である。技術は科学を基礎としながらもプロジェクトが与えられて官僚化し、できた結果は大衆化してその効果を増す。呉越同舟ともいべき渾沌たるなかに常識という鶴みたようなものをほり込んでどちらからも叩かれるであろう。だが文句なしに読んでみていただきたい。「アルミニウムができるまで」はスッとよめる。「アルミニウムの性質」はすこしでもややこしいと思った場所とはばしてもよかる。「アルミニウムの合金」はアルミニウム合金そのものの大要である。「アルミニウムの加工」はそれぞれ自分の行く道だけでよかる。そうすれば数時間で済むはずである。ズブの素人はそれで大要がわかる。専門家はおかしな点に気がつかれるはずである。どうか凝の目でその点を睨みかえしていただきたい。そこには大穴がまちかまえて新しい飛躍を待望している。そこに発展があり進歩があり流転してとどまるところを知らないであろう。」⁷¹⁾

戦後については、深井誠吉博士が日本金属学会誌で「名誉員の近況」の中で次のように書かれている。

「終戦直後の昭和 22 年暮、扶桑金属工業株式会社（占領軍の指令により住友金属工業は数年間社名を変更した）を停年退職された五十嵐先生は東北大学工学部、秋田大学鉱山、岩手大学工学部教授として数多くの俊秀を育てられた。」「一応形は顧問ということで研究、技術全般について、敗戦日本を救うものは若人であり、その若人を指導、教育するのが自分の使命であるとの御信念に基づくものであろうか。とくに若い技術陣の指導をお願いしているが、現職のときでもいわゆる指示とか指導

はお嫌いな五十嵐先生は例の調子で悠々閑と構えられ、正に大人の風格がある。他人には寛容、自己にはきわめて厳しい御性格は昔も今も変わらず、朝 9 時から夕方 4 時までキッチンと勤務されている。もともと外国語に堪能な五十嵐先生は内外の文献、図書、あるいは社内の研究報告などは隅々まで精読されて、要点はメモされ、それを五十嵐流に分析、整理される。したがってときどき部屋へ伺って無駄話をしているときでも鋭い閃きを感じ思わずハッとさせられたり、また自分の文献調査が間に合わないときには五十嵐さんのものを利用させていただくが、別に嫌な顔もされない。よき時代、明治に生を享けられた五十嵐先生が、いま最大の関心を持っておられるのは日本の将来というか、文化国家日本が世界の強豪を相手に堂々と太刀打ちするにはどうするか、科学技術の振興も人作りも量の問題ではなくて質の問題である。さらに一步を進めると良質のものとの協調だ、と考えておられるようだ。」⁷²⁾

また五十嵐博士と深井博士の対談⁶⁵⁾では、

1) 企業での研究のあり方について

「技術者は第一にその企業、住友軽金属なら住友軽金属の技術を体得しなくてははいかん。学校を出たと、よその会社で優秀だったとかいって、偉そうなことをいっていても駄目。また単に表向きだけ「ああ、そうか」と頭の中を素通りしただけでは駄目。学校の講義ならそれでいいが、物はとても作れない。だからまずその企業の技術を体得する。これが第一です。次に、少なくとも 4~5 年やって、ここが割れたとか、ここが切れたとか、ここがどうなったとか、その技術自身に附属して起こるいろんな問題をしっかりと把握することです。それで始めて技術が体得されたといえる。ここでやっと技術者の卵が生まれるわけですね。ここまできて始めて、さっきお話ししたような建築の共同研究会等ができた際に、それをどのように応用していくかという市場の開拓ができます。」

2) 基礎研究については、

「技術を体得してやっているうちにわからないところが生まれてくる。それを解明するために基礎研究が必要となってくる。だから基礎研究といっても常に企業と関連のあるものです。そして、そうした基礎研究を徹底させることによって、思いがけない結果がでてくる。これが本当の創造であり、新しいアイデア、新しい商品の生まれてくるゆえんです。

今までできたものをよそに使うとか、よそと一緒にするとかいうことに創造はあり得ません。疑問を当り前だと見過すようでは困ります。どうしてだ、どうしてこうなんだ、と徹底的に突込んでいかななくては駄目です。できるか、できないかわからないけれど、とにかく徹底させる。そこからだけ新しいものが生まれるのです。」

3) 人づくりについて

「それは人によって違う。最近人づくりの話がよく出ますが、近頃の教育のように、なるべく広く常識を養えというのは、一面ではいいが、壁にぶつかったときは駄目ですね。彼等は徹底させることを知らない。アメリカ式の技術屋ならどんどん生まれますが、ぶつかった壁をぶち抜いてゆくだけの徹底した知識を持った人は生まれません。ではどういうふうに教育するかというと、教育で人がつくれると思うことが間違いなんで、本質的な問題ですな。(笑声)」「その辺のところは非常に難しいですな。一般には、今のようにアメリカ式の研究所を考えて、そこで働く人をつくるということならいけますな。しかし、その人がぶつかった壁を切り開くことができるかという、私はそれを望む方が間違っていると思う。」「テーマが大事だとか、そのテーマは誰が選ぶかとか、結局そのテーマが与えられた人は、馬車馬のように走れということですな。そこでテーマを出す人、それは技師長です。」アメリカ式というのは、超々ジュラルミンの開発では住友では7~8人でしていた研究を海軍研究所とアルコアでは600人でやっていたということ意識しての発言かと思われる。

昭和28年卒業の奥田彰氏は東北大学金属工学科創立75周年記念誌(2000年, p.124)で、五十嵐博士の思い出を次のように語っている。「事実、事実が大切なんだ!」。「いろいろ理屈は言わないこと。質問は出るだろうが、何故なんて、分かりもしない理屈は言わないこと。こうやったら、こうなったとだけ言えばいいのだ」これが、卒業論文発表前日の先生からの訓示だったそうであり、その年の春の学会発表当日も同じ注意をいただいたことである。いかにも五十嵐先生らしい話である。「残念だったことは、超々ジュラルミンの体験談は一回も聞

かれなかったことである。お聞きしても、くわえたタバコを唾液でクチャクチャさせながら、ただ笑っていただけかもしれないが、何しろ、自慢話は聞いたことがない。」と、五十嵐博士は大変謙虚な方だったと飯島嘉明元岩手大学教授は、「超々ジュラルミンと五十嵐勇」⁵³⁾の中で付け加えている。

同様に「総て物事は徹底すること、徹底すれば新事実を見出すことができる、真理は理屈ではない、実験の結果が真理である」(深井誠吉氏、五十嵐博士への弔辞より)とまで言い切っている。

住友軽金属に顧問として戻って来られた頃について、当時、研究部軽合金研究室にいた高島章氏は次のように語っている。

日常は顧問室で研究報告書を丹念に見ておられてことと思うが、ある日ちょっと来てくれとのこと。今まで直接お話などしたことのない先生にお叱りでもあるのかと思ひ、直立不動で先生の前に立った。「多くのレポートを見ているが、君の報告書が一番面白い」まさかどこが面白いのかななどと失礼なことは聞けず、「はあ」とだけ言ったら、次に「最近の学会誌はあまり面白くないな。屁理屈が多すぎる。前(軽金属学会の前身である軽金属研究会のことか?)の方が面白かった」

博士の持論の「理屈は結果に対しての討論で、もっと現象というか過程をよく観て、これはと思うことはすぐやれ」と言いたかったのだと思う。博士との話は禅問答のようでもあった⁷³⁾。

元副社長、技術研究所長であった永田公二博士は、以上の五十嵐博士が語った中から、いくつか選んで五十嵐語録(Table 12)なるものを紹介している⁷⁴⁾。

Table 12 Sayings of Dr. Igarashi collected by Dr. Nagata⁷⁴⁾
五十嵐語録

-
1. 自社の歴史、人、技術等の一切を体得することが第一。4~5年はかかる。学校の講義だけでは駄目。
At first, it is necessary to master company's history, persons, technology and so on entirely. It takes 4~5 years to master them. It is insufficient to learn only school's lectures.
 2. 理論も実験も日に日に進んでこそ工業も発展する。未熟な理論を絶対だと考えてもっては困る。
Industries develop by the progress of theory and experimental technology every day. It is not correct to consider immature theory is absolute.
 3. 事実が大切なんだ! あれこれ理屈を言わないこと。思った結果と矛盾した事実が示されたときのみ進歩があり、発展がある。
Fact is important! It is not to say various quibbles. Progression and development are generated when a new fact inconsistent with expected results is found.
 4. 疑問を生じたとき、どうしてだ、どうしてこうなるのかなと繰り返し、徹底的に突っ込んで調べなくては駄目だ。
When questions arise, it is necessary to consider repeatedly why they occur and investigate them thoroughly.
 5. テーマが大事だが、誰がテーマを決めるのか。
Theme is important. But it is problem who decides the theme.
-

以上、先輩諸氏が書かれたものから、五十嵐博士の人となりが見えてくるのを引用してきた。ESDにおけるクロムの発見は偶然であるが、時期割れを評価するための方法論がなければ発見はできなかったという意味で必然である。方法論は対象をよく観察することでできる。しかし必ず解が存在するであろうという自信はどこから来るのであろうか。これは幅広い視野で各種のアルミニウム合金やマグネシウム合金の腐食の挙動をいつも観察してきた結果ではなかろうかと思う。添加元素によって腐食の挙動が色々変化する。それでも駄目なときは最終的にクラッドがあると考えていたのではないかと個人的には考える。クラッド材についてよく研究して学位論文にも掲載していたのだから。ある意味で壁を突破するには何らかの確信と楽観が必要であろう。ESDの発明は個人的な資質によることも多いが、製品となると個人の手を離れてしまう。自分ひとりの手で出来るものではない。発明における個人と会社組織の関係をよく理解していたため、自分一人の手柄にしたくないとの思いがあり、戦後は超々ジュラルミンの発明についてあまり多くを語っていないのではないかと考える。むしろ若い人には、上の語録に示したような自分の経験から得られた教訓を雄弁に語っている。

最後に郷里熊本（熊本市島崎）で悠々自適の生活を送られた五十嵐博士の日記から、日頃の生活を詠んだ詩を引用する。Fig. 23 にその一部を示す（「五十嵐勇 年譜」より⁷⁵⁾）。

陽炎や 媼（おうな）は見たり 花の精
紫陽花は 昔を今に 咲きにけり
野わきして 百日紅（さるすべり）は倒れけり 葉末々々
は 蕾したまま
六尺の頬杖ついて 立ちあがり 春に芽ばえよ 沢に
豊かに
黙鼓子は こすたくりに 変わりはて
大河を流れ 流れてよしあしの 茂みに霜を まつ根

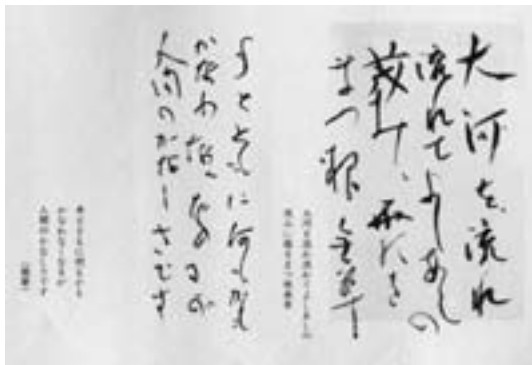


Fig. 23 Poetries in the diary from chronological record of Dr. Igarashi⁷⁵⁾

無草

（絶筆）年とともに何もかも かなわなくなるが
人間のかなしさです

4. 戦後の高強度アルミニウム合金の開発

4.1 戦後の状況

敗戦とともにアルミニウム製錬は軍需産業であったため、連合軍によって生産停止を指令され、製錬設備をカリ肥料、石灰窒素などの生産に転用して細々と経営をはかる事態に追い込まれた。一方、加工企業は戦時中抑制されていた家庭用品の需要が顕在化し、異常なブームを迎えた。加工企業の多くは航空機を解体したアルミニウム合金屑を減量として、鍋・釜をはじめとした家庭用器物の生産を再開した。しかし、これらの製品は耐食性の悪いジュラルミン系合金屑を原料とした粗悪品であったため、アルミニウム製器物は腐食しやすいという誤った印象を与え、その後の製品開発に大きな悪影響を与えた⁷⁶⁾。

戦後復興とジュラルミンの関係は、東京駅にも見られる^{77, 78)}。東京駅丸の内駅舎は、1945年（昭和20年）、戦災により南北のドームと屋根・内装を焼失した。戦後、3階建ての駅舎を2階建て駅舎に復興した。現在、ほぼ完成に近い「保存・復原工事」では、鹿島建設が中心となり、外観を創建時の姿に忠実に再現するのはもちろんのこと、さらに、未来へ継承するため、鉄骨煉瓦造の下に地下躯体を新設し、巨大地震にも耐えうる建築とするため、「免震工法」で施工している。この戦後復興させた駅舎天井の内面（Fig. 24）には、Fig. 25 に示すようにアルミ製リベットで接合された0.8mm厚みの航空機用ジュラルミン板とトタン板が塗装を施して使用されていた。この板の成分分析値はAl-4.2%Cu-0.43%Mg-0.79%Si-0.74%Fe-0.80Znと鉄や亜鉛などの不純物が非常に多いことがわかる。このジュラルミン板は戦争中に製造されたもので、終戦近くなるとスクラップを多く用いていたことを裏付けるものである。

終戦直後の状況を、五十嵐博士はこう書き記している⁷⁹⁾。

「敗戦後早や2年も過ぎようとして居るそのあいだに金物屋は申すに及ばず、百貨店も雑貨屋も電気器具屋も、果は露天商も、すべては白一色かと思はれる程の軽合金の氾濫。これまさに軽金属時代である。

新憲法は発布され政治は民衆のものになったとはいえ、其の足どりは中々だが、戦時中鍋釜まで供出させられた軽金属は、たちまちにして民衆のものとなった。今や大衆は右向いても左向いても白く輝く軽金属にぶつかる。ないないづくめの此の世の中に、たゞあるものは、闇と軽金属だと云ひたい位だ。新日本の文化は軽金属の利用



Fig. 24 Exterior and interior of the dome in Tokyo Station before restoration

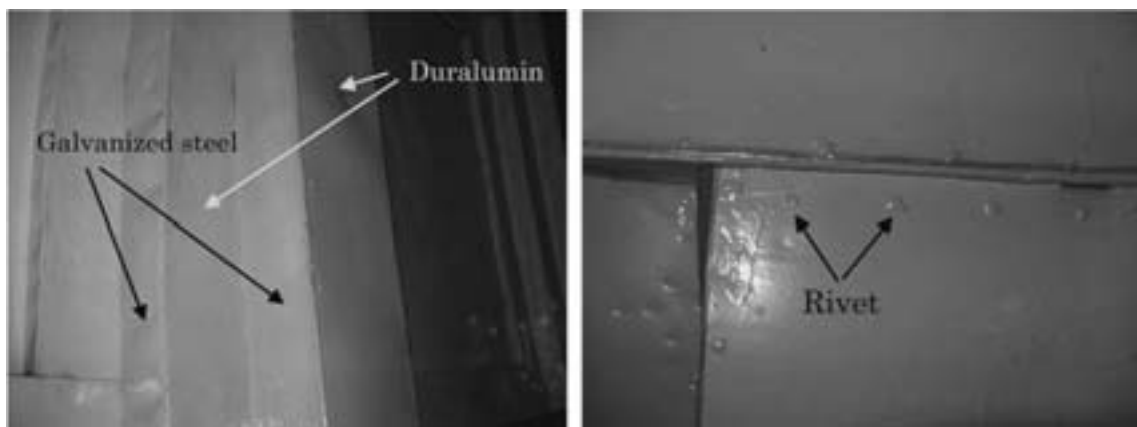


Fig. 25 Photographs of the ceiling

から始まると云つても、過言ではあるまい。

敗戦後間もない時であつた。軽金属を車両に使つたらどうかと推薦に出かけた。早速試作する事になって喜んで焼だされの仮寓（木曾川べりの養蠶堂の一隅）に帰って見れば、塵取が買って来てあつた。SDCと紫インもあざやかに。欧米では10年も前からジュラルミンの高級車は走って居たが、ジュラルミンの塵取とは驚いた。然し考へ直して見れば至極常然の事かもしれない。なにひとつ無い焼け野原では目の前にあるものを何にでも流用する。勿論常道ではあるまい。もったいないとも云へよう。だが自然の勢である。かくて軽金属時代が出現、諸種の実験試験で体験されつつある。」

「ジュラルミンDや超ジュラルミンSDは、御承知の通り構造用材料として少しでも強いようにと苦勞をした材料であるが、各方面に流用する事になれば加工し易いと云ふ事が第一となる。軟くせねばならぬ。焼鈍温度や焼鈍時間が焼入温度や焼入時間にとって代らばならぬ。ものにしようと思ふ人々の一念はむづかしい事を云はなくても、夫々しるるべく物になって行く。然しそれは板や棒がある間の事である。屑を集めて板や棒につくらふと云ふ事になると、そう簡単にはまいらぬ。然しこれも構造材料として少しでも強くと考へればこそ、苦心もし

困難と感じたのであるが、加工が出来ればよろしい、物になりさへすればと云ふ事になれば、少しぐらい不純物（主として鉄）が増加しても、案外楽である（鉄に封して夫々珪素等を添加すれば尚優秀になる）。

だが先にも云つた通り自然の勢として流れて居る材料は、こんな面倒な事は飛び越して鋳物屋のルツボの中にとけ込んで行くにきまって居る。何もかも鋳物でつくつて見る。勿論常道ではない。従つて長続きもすまい。

製造を禁止される軽金属は輸入にまつより道はない。昔舶来とは貴重品の代名詞だった。今後の軽金属は舶来になる。各々其の特性を十二分に發揮せしめ得なければ、新しい軽金属は使へなくなる事は云ふまでもあるまい。」

一方、西村教授は「我が軽金属工業並に学界の進むべき道」と題して以下のように書き記している⁸⁰⁾。

「日華事変以采12年に近くなるその間我が国は戦争目的に供するため乏しい鋳産資源を濫掘し永年貯蔵した資材を消費し尽し、なほ都市を爆撃で失ってしまった。それに道義まで廃棄して現在ではインフレに恨みつつ惨めな姿を世界にさらしている。我々はこの敗戦の苦難の生活を続けながら、国家の再建を計るべき必要があるが、之は容易な業ではない。殊に航空機工業の全般的禁止

は、軽金属材料の工業の前途に全く光明を失はせ、その日暮しの個人と同じく苟生活をなして、唯戦時中に貯蔵した材料を喰ひつぶしているに過ぎない現状である。

最近になり、漸く貿易の再開とか講和会議の開催とか云ふ問題が新聞に見るやうになる、幾分気分が明るくなったやうである。しかし我が国の再建の目途がついたとは云へない。恐らく自由な貿易が出来る日は遠い将来で、当方は総て何事をなすにも指示を受けて初めて許されると云ふ状態がつづくのであらう。

しかし悲観しては何日までも立ちあがれないから、再起の努力を惜しまないことが第一であり、またその時々に対処して方策を樹てゝ進むと同時に、恒久の策をも考へて置かねばならない。」

軽金属工業の進むべき道として、次の点を指摘しているが、予想はほぼ的中したといえよう。

「地を走るものゝ軽金属化：それにはさしづめ地上の輸送機である。鉄道、車輛、トラック、オートバイなどに出来るだけ利用の途を開いて欲しい。これ等の輸送機を海外に輸出するとしても、新しい進歩した設計でスマートな形状とするためにも、重要な軽減の点からも、軽金属材料を使用する要があることは申すまでもない。建築、家具などにも現在既に利用されているが、之も出来るだけ合理的な使用を考へねばならない。例へばデュアルミンはその強さに特徴があるのだが、耐蝕性は劣るから建築方面でも腐蝕が問題となる方面は耐蝕性合金とか、合せ枚とかを用ひるやうにする。かやうに考へると相当研究の余地が残されている。なほ一歩進んで希望を述べると、かやうな加工材も、その適合した製品として、海外にまで輸出したい。」

我が軽金属学界の進むべき方向については、「学徒に不動の信念あれ」として、次のように述べているが、現在でも十分当てはまることではなからうか。

「元来學術の研究は流行を追ふべきものでない。独自の見地から眞理の探究に孜々として進むべきであるから、時代が変わったからとて急に研究の対象を変更すべきでない。状態図を研究するもよいし、時効の現象を追究しても差支へない。唯、現在禁止されている方向にのみ触れなければ差支へない。幸い軽金属材料に関する研究は禁止されていないから、如何なる方向に進出してもよいと思ふ。がしかし国力が甚しく低下した現状で皆が同じ方面に集中したら、無駄な仕事をしないこと、もっと独自の立場で猿の人真似とならぬやう心掛けて貰ひたい。外国の研究を見ると、一人がある題目で研究しているとき、他の人がそれと争って同じ題目の研究をしたりすることは少いやうである。

それにつけても唯是非とも研究して置きたいことは、アルミニウム製錬でも軽金属材料に関しても、戦時中未完成のまゝ残されたものはこの際解決して学界に発表し、日本の研究成果の裏付けをして置きたい。例へば材料でHDとかND、とか云ふやうなものに関する基礎研究の

やうなものが是非望ましい。この他にも同様の例が多いと考へる。」

零戦の設計の責任者であった堀越二郎氏も、昭和30年頃、住友金属に来て、管棒工場にあったポートホールダイスによる中空押出型材に目をとめられて「こんな形が出来るのですか。戦争中、我々は削って削って、それが作業の大半だったのです」と、感慨深くその場に立ち止まられた。「こんなものが出来るなら」と、また新しい構想が浮かんだのでしょうかと元常務取締役の深井誠吉氏は述べている⁶⁸⁾。ポートホール押出が可能で2024-T3材並みの強度を有する2013合金押出材は、この一言がきっかけとなって開発された。

東北大学に移られた後の五十嵐博士については「金属」に書かれた元岩手大学教授飯島嘉明博士の「超々ジュラルミンと五十嵐勇」が詳しい⁶⁹⁾。

「五十嵐勇博士は住友金属の研究所長を辞して、昭和22年、柳行李一つ下げてリュック姿で飄然と仙台にやってきた。空襲で丸焼け後の仙台には下宿などない。金属工学科2階の教授室に畳2枚敷いて自炊生活を始めた。当時は実験室や製図室に学生が寝泊まりしていたので特に不自然でもなかった。」「五十嵐博士は、夕方になると、ちょうど、入院患者の病室に回診にやってくる医者のように、実験室にお見えになって、ディスクッションをして、今後の実験方向を指示して下さい。なにしろ、2階の教授室に畳を2枚持ち込んで寝泊まりしていて、ときどき夜は8時頃になると、「どうじゃ、いっぱいやらんか」と、キングとかアイディアルとかいうウイスキーを飲ませてくれたりしたものだった。なにしろ、昭和27年の頃は、まだ電力事情が悪く、電圧は93~98ボルトほどしかなく、しかも値は一定でなく、絶えず上下しているの、試料の溶解は「徹夜してでも一気に作ったほうがよい」と指示されていた時代である」。戦後は、主に純アルミニウムやアルミニウム合金の再結晶挙動や鑄鉄の凝固過程、黒鉛化に関する研究を行なった。

4.2 戦後の軽金属学 —西村教授、村上教授に即して—

京都大学の冶金学教室金属材料学講座を率いてこられた西村教授とその後を継がれた村上陽太郎教授の執筆された随想や文献、解説に即して戦後の研究の歩みをまとめてみたい。

まず、75Sに対する評価であるが、西村教授は「随筆軽合金史(第40回)」⁸¹⁾で、「75SもHDも亜鉛が多いと応力割れの危険があるから、強さを多少犠牲にして安全な材料として造られたものである。また仏国でも1933年以来、d'Alais, Froges et Camargue会社にてGauthierとVacher両氏によって研究されてZicralと

称しているものである。亜鉛 8.5%，銅 1%，マグネシウム 2.5%，マンガン 0.75% の合金である。いずれも E. S. D に類似しているが、亜鉛はやや低いものが多い。ミネソタ大学の Mackay と Dowdell 両氏が Metal Progress (1949 年, 9 月, p.331) 誌上に強力軽合金の動向という問題の下にこれ等の合金について論評し、そのうちに E. S. D は耐食性が低く圧延並びに押出が困難であったと書いている。恐らく E. S. D についても試験したのであろう。金属材料は一般に信頼性に乏しいものは避けるべきである。単に強力であるという点から使用するのには危険である。殊に応力割れの生じ易いもの、或は焼戻脆性の敏感なものは避けなければならない。将来もし、超強力軽合金の必要がある場合、E. S. D と 75S と何れを求めべきかとの質問に対して、75S と答えざるを得ないであろう。E. S. D は我が国で生まれた材料ではあるが製造の難易からも、かく答えざるを得ないのではなかろうか。」と率直に語っている。これに対し、小職はこんなに製造が難しい合金をよく現場が協力して作ってくれたのだと感心している。現場の製造技術の創意工夫がなくてはとてもできる合金ではない。戦時中だからこそできた合金といえよう。平時には現場からこんな合金できるかと怒られて考え直してこいといわれるのが落ちである。海軍の要求の引張強さ $60\text{kg}/\text{mm}^2$ を満たし、応力腐食割れ防止のためには、ここまでの成分量が必要とされたのだ。応力腐食割れの限界については、どこで線引きするか今でも難しい判断が要求される。しかし戦後の米国の高強度アルミニウム合金開発の合金成分をみると間違いなく超々ジュラルミンの成分に向かっている。このことは ESD の先進性を示すものといえよう。

西村教授によると、英国では Hume-Rothery 氏 (注 5) の指導で Raynor 等の諸氏が Al-Mg-Zn 系合金、それに Mn, Cu などを加えた合金の状態図の研究を発表して基礎研究が続けられている。「ここに研究を忘れないで着々と成果を挙げて行く英国の着実さが見受けられるようである」⁸¹⁾と書いている。日本では、西村教授の下で村上陽太郎教授 (注 6) が Al-Zn-Mg 合金状態図の研究を続けていた。

(注 5) Hume-Rothery (1899-1968) に関しては、多くの方々が述べておられるので、小職如きが述べるのも気が引けるが、学生時代、指導教官の山本悟博士と “The structure of Metals and Alloys, 4th edition”, (W. Hume-Rothery and G. V. Raynor, The Institute of Metals, 1962) や「鉄鋼物性工学入門」(W. ヒューム・ロザリー, 平野賢一訳, 共立出版, 1968) を読んで記憶をなつかしく思い出す。「対話金属基礎論」(鈴木平監訳, アグネ, 1971) では Young Scientist と Old Metallurgist との対話形式で書かれ、自分はどちらなのだろうかと思いつきながら読んだ。最近、このよう

な本が少なくなったことが残念である。若くして聴覚を失ったが故に、これをハンディキャップとせず、雑音に囚われずに熟考できたのではないのかと失礼ながらつい思ってしまう。Hume-Rothery の生涯については小岩昌宏博士の「金属学プロムナード」⁸²⁾に詳しい。

(注 6) 村上陽太郎教授は 1917 年 4 月生まれで、1942 年 9 月京都帝国大学工学部冶金学科を卒業。その後、講師、助教授を経て、1953 年工学部教授に昇進された。この間 1952 年工学博士を授与され、1981 年京都大学を退官し京大名誉教授に、さらに関西大学教授に着任し 1988 年退職。1986 年～1997 年 (財) 大阪科学技術センター付属ニューマテリアルセンター所長、そのほか (財) 軽金属奨学会理事、評議員、軽金属学会副会長、日本金属学会副会長を歴任された。1985 年第 26 回本多記念賞受賞、1990 年第 35 回日本金属学会賞、1991 年勲二瑞宝章受賞、1998 年第 1 回軽金属学会賞を受賞された。村上教授は、ニューマテリアルセンターの所長となられた後、この 22 年間、「NMC ニュースレター」に最新のトピックスを、専門外の方々にも読めるようにわかりやすく執筆され、昨年「新素材・新技術、第 V 集」(ニューマテリアルセンター)⁸³⁾を出版されている。教授の矍鑠と歩かれるお姿とこの知的好奇心の旺盛さにははなはだ驚嘆するものである。Fig. 26, 27 の写真は 2009 年 8 月、名古屋で開催した東海水曜会 (東海地区の京都大学金属系、資源系学会の同窓会) での講演をされる村上教授とそのときのテキスト⁸⁴⁾である。2009 年には 92 歳となられたご高齢の村上教授に東海水曜会にてご講演をお願いした次第である。これはこの前年に京都で開催された第 31 回軽金属学会セミナーで「アルミニウム合金の時効析出にまつわる歴史と進歩」⁸⁵⁾と題して村上教授が講演され、よく通るお声でお話しになる様子を見て、是非東海地区でもご講演くださいとお願いしたところ快くお引き受けいただき講演の運びとなっ



Fig. 26 Lecture of Prof. Murakami at Tokai Suiyokai (graduate's association of Metallurgy and Mining department, Kyoto University)

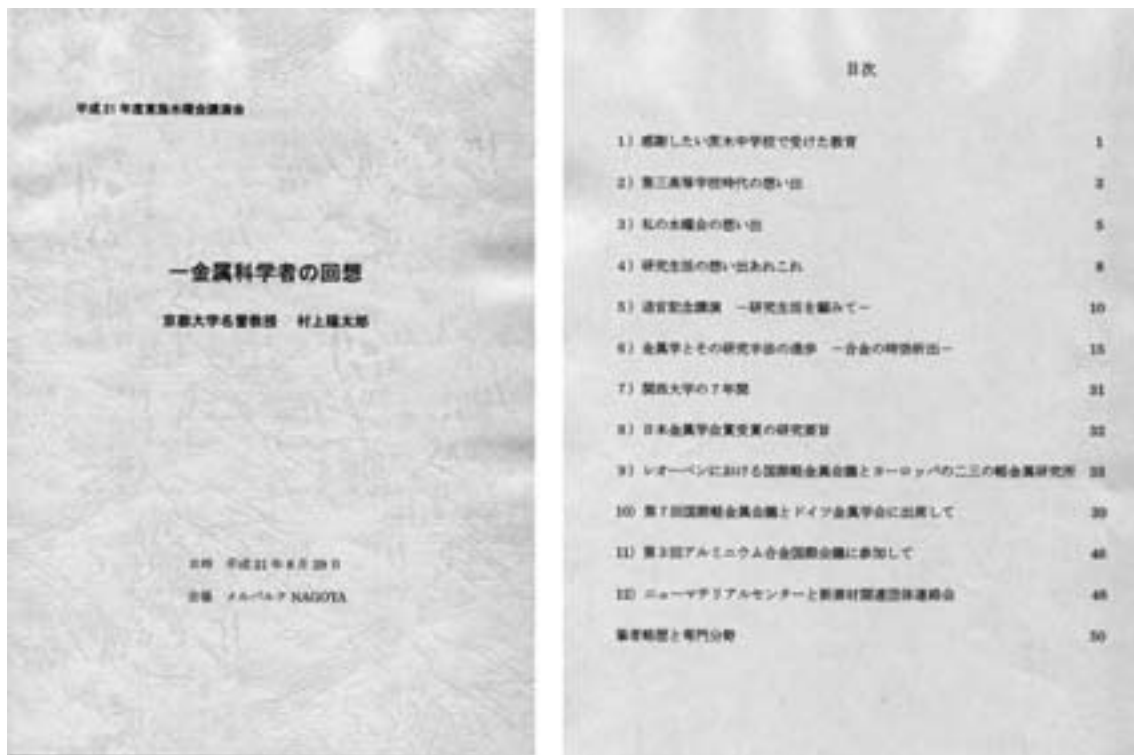


Fig. 27 Cover and table of contents of the text lectured by Prof. Murakami at Tokai Suiyokai⁸⁴⁾

たものである。

村上教授は茨木中学、第三高等学校と進学され、旧制第三高等学校の第三学年には、大学準備を始めたが、「よく知っていた大学生の先輩から、航空機や兵器に金属材料が極めて重要であることを聞き、冶金学科の内容も教えてもらい、合金の開発のような仕事をやってみたいという気持ちが強かったので、隣の京都大学の冶金科(当時の採鋅冶金学科は採鋅科と冶金科に分かれていた)に進学する希望を決めていた」とのことである(アルミニウム:5 (1998), 282)。1939年京都大学に入学し、在学中に発病し一年の休学後復学して1942年9月繰上げ卒業した。健康上の理由で兵役には関係がなくなり、大学に残り西村教授の指導を受けることとなった。西村教授からは、超々ジュラルミンの状態図と時効硬化に関するテーマが与えられ、Al-Zn-Mg-(Cu)系状態図の研究から始めた。「当時の状態図の研究は、多数の試料を溶製し、丹念にデータを取る根気のいる仕事ですが、やれば必ず成果が出ますし、金属組織学の多くの実験手法に習熟できる点で、初心者には恰好のテーマで、大変有難かったと思っています」と退官記念講演(水曜会誌, 19 (1981), 495)⁸⁴⁾で語っている。実験手法は極めてシンプルで、示差熱分析、示差熱膨張、硬さ測定、光学顕微鏡観察などで、X線の手法はかなり高度なものと思われていた。昭和25年工学部紀要に掲載された状態図をFig. 28に示す⁸⁴⁾。一方、時効析出の研究では、示差熱膨張計で研究を行ってきたが、海外に刺激され

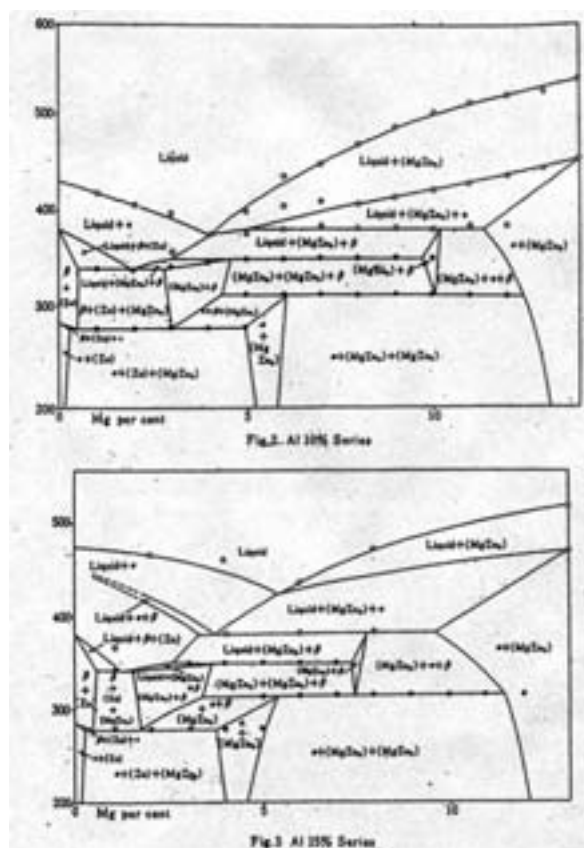


Fig. 28 Cross section of Al-Zn-Mg ternary phase diagram created by Prof. Nishimura and Prof. Murakami⁸⁴⁾

1947~1948年頃から島津製作所と日立製作所で電子顕微鏡の製造が始まった。1948年島津製作所で5万ボルトの電子顕微鏡が試作され、これを用いてアルミニウムの析出組織の研究を始めた。当時、薄膜透過法はまだ知られておらず、酸化皮膜レプリカ法で行なった。この方法で、1万倍程度で極めて明瞭なマイクロ組織が得られ、析出組織の観察には極めて有用なことが初めて判り、このことは当時としては画期的なことであったと述べている。ESDのCrの効果についても電子顕微鏡を用いて研究を行なっている。酸化レプリカ法の観察から、微細な粒界析出物が連続して析出していると、SCC感受性が増すが、析出処理温度を高くし粒界析出物が粗大化し連続性を失うことでSCC感受性が弱くなることが判った。またCrを添加した合金で耐SCC性向上の顕著な効果が得られたのは、粒界が湾曲したり、途中で途切れて不規則になることで割れが起りにくくなることが原因であることを明らかにした。これらは英文で発表し海外でも高い評価を受けたとのこと。

X線回折法も析出現象の解明には重要な手法であった。1942年頃西村研究室にも瓦斯イオン管式シーラー管球が設置されていたが、調整するのに手間がかかり、その後クーリッジ管球を購入したが事情で使用できなくなった。1953年に教授に昇進し、X線装置を充実させ、河野修博士と一緒に、Al-Cu-Mg系、Al-Mg-Si系及びAl-Zn-Mg系合金の析出初期過程に及ぼす塑性変形ならびに添加元素の影響研究を始めた。当初はX線ラウエ法でGPゾーンの研究を行っていたが、1961年、ドイツのマックス・プランク金属研究所に短期間滞在した時に、V. Gerold教授のところで時効初期の研究にX線小角散乱法(SASX法)が活用されていることを知った。その後河野博士がV. Gerold教授のところに留学してSASX法を修得し帰国したが、惜しいことに小職の学生時代に亡くなられた。河野修博士の研究については、本人の書かれた「析出に伴う結晶構造変化」(幸田成康編、「合金の析出」)⁸⁶⁾に詳しい。その後のSASX法は村上先生の後任の長村光造教授に引き継がれた。

加工硬化に関しても戦争中、外国では基礎研究がすすんでいた。金属結晶の本質を知るためには単結晶から始める必要があるが、西村教授によるとアルミニウムの単結晶を造るのに初めて成功したのは英国のカーペンター博士で、歪一焼鈍法と云われている⁸⁸⁾。この博士の講演で「単結晶は極めて柔らかい。すなわち弾性限界が極めて低い。こんな低い応力でどうして変形するのだろうか。金属結晶が一つの面である方向に極めて容易に迂り始めるのは何故だろう。迂りが進むにつれて迂り抵抗が増するのは何故だろう」との疑問に対し、テーラー氏は1934年、原子配列に欠陥があってその欠陥が移動するとの転位説を提唱した。こうした粘り強い研究に対して、西村教授は「英国における塑性変形の研究の伝統の強さ、

ニュートン以来の伝統がものをいうのであろう、そして英国人のもつ根気というか、とにかく学問に誇りをもって仕事をする風が見える。この点わが国での真の意味の学問の伝統を造って行く必要がある。もっとも派閥を造るのではないことを忘れてはならぬが」と英国の研究を評価している。もっとも、村上教授によると後になって知ったとのことであるが、日本においても1929年、理化学研究所にいた山口珪次博士が世界に先駆けて転位の概念を発表されていたとのことである。Al単結晶の変形後のX線ラウエ斑点のぼやけの解析から、結晶格子の湾曲がすべり帯の先端に起こって、それが加工硬化の原因であることと、現在常識になっている刃状転位の集積によって起こる結晶格子の湾曲を示す図と全く同様な図を示されている。今では、加工硬化機構の論文には山口博士の論文が引用されるとのことである^{84,87)}。西村教授も山口博士の研究が転位論の発展の萌芽となったことを「続軽合金史(第11回)」⁸⁹⁾で述べているにもかかわらず、その後の日本金属学会の転位論の代表的な教科書、「転位論の金属学への応用」(日本金属学会金属結晶分科会編、丸善、1957)、「新版転位論—その金属学への応用—」(日本金属学会編、丸善、1971)、「結晶の塑性」(日本金属学会編、金属物性基礎講座8、丸善、1977)では山口博士の研究について触れていないのが不思議である。その後、東京大学の鈴木秀次教授が、日本金属学会会報(1984)で「転位論発展の歴史と将来の展望」⁹⁰⁾の中で、山口博士について言及されているが、教授の代表的な教科書「転位論入門」(アグネ、1967)では述べられていなかった。改めて、西村教授の慧眼に感服した。

1948年、西村教授はこの転位の研究に対して電子顕微鏡を利用することを同研究室の村上教授の弟弟子にあたる高村仁一博士に指示して、迂り線が明瞭に観察できることを明らかにした^{88,89)}。結晶の下部組織として亜結晶粒が存在することについて、HultgrenとHerrlanderが鋼で観察した結果を1946年発表したが、アルミニウムでは99.99%を用いて、ラコンブ(P. Lacombe)とボージャール(L. Beaujard)両氏が1947年発表した。1949年にはCastaingとGuinierが電子顕微鏡で見だしている。ポリゴニゼーション(Polygonization)も一種の亜粒界であるが、わずかに変形した結晶は、X線ではラウエ斑点が変形のために伸びてアステリズムを示し、加熱すると亜粒界が生じ分裂した斑点となり、カーン(R. W. Cahn)とオロワン(E. Orowan)両氏は湾曲した面が多角化したと考え、ポリゴニゼーションと名付けた。電子顕微鏡が発達してくると迂り線以外に変形帯の生成が知られてきた。変形帯については1950年頃から注目されたもので、Honeycomb, Cahn, Chenなどのよって研究された。これも高村教授によって研究がなされ、迂り方向に直角な[110]方向に生じることが認められた。西村教授等は「変形帯というものは単結晶の

両端を固定して引張ると所謂迂りが一定の迂り面で迂り方向に生じるとすると、試片がそのままでは迂り得ない状態に達する。その無理を避けて変形するために生じる一種の迂り現象である」と結論づけている⁸⁹⁾。

その後、析出硬化機構について著しく進歩したが、その理由について、村上先生は、1956年になって、W. BollmannやP. B. Hirschが、ステンレス鋼やAlの薄膜試料を用いて、転位、格子欠陥や内部組織の直接観察を可能にしたことを挙げている⁸⁷⁾。当時一般的であった加速電圧100kVの電子顕微鏡では、約2000Åの厚さの薄膜にする必要がある。ボールマン法やジェット・ポリッシング法が開発され、電解研磨で作成できるようになった。その後、ダイヤモンド・カッターでも良質な薄膜が得られるが加工歪みが問題となることがある。現在ではさらにイオン・ミリング法、特にその一種であるFIB (Focused Ion Beam) 法では観察したい場所をピンポイントで薄くできる。「薄膜の透過電顕観察法が可能になったことで、微細な析出相が観察でき、制限視野電子線回折法で、析出相の構造や母相との方位関係を解析できること、更に高分解能分析電顕では析出物の化学組成が分析できること、一方、結晶中の種々の格子欠陥も直接観察できて、電顕中で加熱や引張応力を与えることで格子欠陥の析出に及ぼす影響、転位と析出物の相互作用や、過飽和固溶体からの析出過程や運動転位と析出物の相互作用が直接観察できるようになりX線、電気抵抗、比熱、機械的性質の測定を併用することによって、析出硬化機構が明らかになってきた」⁸⁷⁾。私事で恐縮するが、小職も学生時代(1972~75年頃)、山本悟博士の指導のもとで、研究室の日本電子製120kV電子顕微鏡を用いて、じっくり観察ができ振動の少ない夜を選んで徹夜で卒業論文、修士論文に取り組んだことを思い出す。白銑中のセメンタイトの生成機構ではセメンタイトの構造や母相との方位関係を、セメンタイトの黒鉛化や球状黒鉛鑄鉄中の黒鉛の生成機構の研究では、空洞の内壁面の各所から黒鉛が双晶関係で積層されて中心方向に成長して球状黒鉛が出来ていること、そしてそのc軸が球の中心方向に向いていることなどを明らかにして、黒鉛化機構や球状黒鉛の形成機構を考える上で電子顕微鏡が有効な手段であることを実感した。ただし当時はウィンドウ法やジェット法による電解研磨しかなかった時代で、また現在のように市販の装置もないため、セメンタイトの観察では、鑄鉄を研磨して薄片とし、高いところから液を流してジェットを作ったことを覚えている。黒鉛の観察結果は「球状黒鉛鑄鉄—基礎・理論・応用—」⁹¹⁾の本に掲載された。こうした研究は、入社後アルミニウム中の球状の晶出物の形成機構を考える上で大いに役立った。その成果は「純アルミニウム中における α -AlFeSi晶出相の球状化機構」⁹²⁾の論文で報告され、平成11年度の軽金属学会論文賞を頂いた。

1965年頃には、各種の新しい機器の利用によって、従来疑問視されていた種々の現象が基礎的に究明されるようになってきた。一方、経済の拡大によりアルミニウム合金の需要も盛んになり、時効硬化性アルミニウム合金もAl-Mg-Si系合金はサッシとして広く利用され、またAl-Zn-Mg系合金は各種の構造物の部材としての用途が拡大し、実用的にも種々の問題がでてきた。その一つが「二段時効」(two-step aging, split aging)問題で、各国で研究された。Al-Zn-Mg系合金は室温で長くおけばおほくほど二段目の高温時効後の強度は高くなる。これに対し、Al-Mg-Si系合金はMg₂Siが多いと室温で放置すればするほど、二段目の高温時効後の強度は低下する。この現象に対して、詳細は村上教授の執筆されたレビュー「アルミニウム合金および銅合金の時効過程」⁹³⁾や「最近の非鉄合金の時効析出における問題その1 アルミニウム合金」⁹⁴⁾に譲るとして、1967年軽金属学会で白熱した議論がなされ、この問題は一応の解決はなされたと先生は述べている⁸⁷⁾。しかし、未解決の問題もあり、先のレビューでは「G. P. ゾーンが中間相の核になることを完全に実証することはできないが、G. P. ゾーンが漸次その構造を変えて中間相に移行することはありそうに思われる。何が強化に寄与しているかも未だ十分明確でもないし、G. P. ゾーンそのものの定義やその構造自体も十分究明されて、はじめてこれらの問題がさらに明確になるものと思われ、そのことが期待される」と結んでいる。この教授の述べられた未解決の問題は今なお続いている課題でもあり、これらの問題は小職も拘った1990年代の自動車板材のベークハード性向上の研究で再び顔を出してくる。

4.3 戦後のアルミニウム産業の動向

アルミニウムの需要は、第二次世界大戦中では需要の大半を航空機用が占めていたが、戦後は大幅に縮小し、まず家庭用器物、日用品の需要が急速に伸び、続いて自動車、車両、機械などの分野に新需要を開拓した。その後、サッシ、ドア、カーテンウォールなどの建築部門、自動車、トラック、トレーラー、鉄道車両、船舶などの輸送機関、テレビ、電気洗濯機などの電機通信機器、電力の送電線、包装容器などの一般民需市場が急速に拡大した。戦後から1960年代中頃までのアルミニウム工業の動向については、佐藤眞住、藤井清隆著の「アルミニウム工業」⁷⁶⁾に詳しいので、それに基づいてまとめた。ロシア、中国、豪州などについては別途稿を改めることにする。

(1) 北米

第二次世界大戦によって、戦争の被害を受けず、かつ大戦に勝利したアメリカの優位は圧倒的で、1939年には年間地金生産約15万トンであったが、1943年には7倍の83万トンに拡大した。軍需を中心としたアルミ

ニウムの需要により、アルコアは自社工場のみならず、政府の建設した8つのアルミニウム工場の受託経営も行うこととなり、アルコアの独占は強化された。しかし、アルコアの独占を恐れたアメリカ政府は、1940年、軽金属加工業者であったレイノルズ社に地金生産の許可を与え、資金を融資し、アメリカのアルミニウム工業の第二の地位に育てた。さらに、アメリカ政府は1949年カイザー社への政府工場の払い下げを行った。カイザー社が進出した1949年のアメリカにおけるアルミニウム生産のシェアは、アルコア51%、レイノルズ29%、カイザー20%となり、戦前に比べてアルコア社のシェアは半減した。1950年アメリカ連邦裁判所はアルコア社がカナダのアルミニウム・リミテッド (Aluminium Limited) を通じてアルミニウムを独占しているとして、アルコアならびにアルミニウム・リミテッドの両社の株主であるメロン、デビス、デュークの三大財閥に対しいずれか一方の株式を売却すべきことを命令した。これによりアルコアとアルミニウム・リミテッドは完全に別個の企業体として活動することとなり、北米はアルコア、レイノルズ、カイザー、アルキャン (アルミニウム・リミテッドの子会社) という四社の寡占状態で発展した。1950年勃発した朝鮮動乱により、アルミニウムの需要は一層増しアルミニウムの拡張計画が進み、新規企業としてハーベイ社 (Harvey Machine Co.)、アペックス社 (Apex Smelting Co.) の参入が認められた。同時に各企業はいずれも建設費の85%の五ヵ年加速償却を認められたうえ、新工場で生産されたもののうち商業ベースで販売しえなかった売れ残りのアルミニウムを政府が買い上げるという優遇措置の恩恵を受けたので、積極的に設備拡張を行なった。その後、アペックス社は撤退したが、ハーベイ社はハーベイ・アルミニウム社 (Harvey Aluminum Co.) を、ついでアナコンダ社 (Anaconda Copper Mining Co.) が参入し、アナコンダ・アルミニウム社 (Anaconda Aluminum Co.) を、オリン社 (Olin Mathieson Chemical Corp.) とレベア・カッパー社 (Revere Copper and Brass Co.) と共同でオーメット社 (Ormet Corp.) を設立した。こうしてアルコア社のシェアは1949年の51%から1958年の38%へと大幅な低下を示した。しかし、アルミニウムの生産量は拡大の一途をたどり、1955年の150万トンから1960年には220万トン、1965年には250万トンへと拡大した。アルコア社の売上高は1960年の約8億ドルから1965年には約12億ドルと延びた。1960年代においても新たな参入があり、1963年スイス・アルミニウム系のコンソリデテッド・アルミニウム社 (Consolidated Aluminum Corp.) が、1964年にアマックス・アルミニウム社 (Amax Aluminum Co.) とフランス、ペシネー系の会社が株式参加したインタルコ・アルミニウム社 (Intalco Aluminum Corp.) が設立された。1970年代、アルコアは積極的に海外展開を図った。2000年、アル

キャン、ペシネー、アルスイス三社の統合を受けて、アルコアはAlumax, Reynolds, Howmetを買収した。2004年、アルミニウム圧延のコモンウェルス社 (Commonwealth Industries, Inc.) はリサイクルメーカーのIMCO Recycling Inc.と合併してアルミニウムのリサイクルと圧延を手がけるアレリス社 (Aleris International, Inc.) を設立した。2006年、アレリス社は欧州圧延メーカーのコーラス社 (Corus Group plc) を買収した。

カナダにおいてもアルキャンは朝鮮動乱を機に生産を拡大していった。1951年にはケベック州の低廉な水力に依存した体制を一新し、ブリティッシュ・コロンビア州のキチマットに世界最大のアルミニウム製錬工場の建設に着手した。1956年には、アルキャンの独占が崩れ、英国のブリティッシュ・アルミニウム系のカナディアン・ブリティッシュ・アルミニウム社 (Canadian British Aluminium Co., Ltd., 後にレイノルズの子会社となる) が地元の企業との共同出資で設立された。1966年Aluminium LimitedはAlcan Aluminium Limitedと改称した。1999年、Alcan Aluminium LimitedはスイスのAlgroup (Aluswiss Lonza Group) とフランスのPechineyの三社の統合を図ろうとしたが、欧州の独禁法の関係ですぐには実現せず、まず2000年にAlgroupを買収し、2001年Alcan Inc.となった。2003年にはPechineyを買収して三社は統合された。2005年にはAlcan Inc.から圧延部門が分離独立し、ノベリス社 (Novelis Inc.) となったが、ノベリス社は2007年Hindalco Industries Limitedに買収された。2007年、Rio TintoがAlcan Inc.を買収し、2009年Rio Tinto Alcanと改称した。加工部門のAlcan Packagingは、2010年豪州のAmcorに買収された。さらに同じくAlcan Engineering Productsは、2011年、Apollo Global Management等が資本参加し、フランスに本社を置くコンステリウム社 (Constellium) となった。

(2) 欧州

戦前、世界第一位を誇ったドイツは、敗戦によって大きな打撃を受け地盤沈下は著しかったが、朝鮮動乱によって復興し、戦後12年にして戦前の最高水準まで回復した。スイス・アルミニウム (元AIAG) 系のアルミニウム・ヒュッテ・ラインフェルデン社 (Aluminium Hutte Rheinfelden G.m.b.H) と国営企業のフェライニッヒテ・アルミニウム社 (VAW ; Vereinigte Aluminiumwerke AG) の二社体制が続いた。両社の地金生産のシェアは、フェライニッヒテ社が80%、AIAGが20%である。1965年、アルキャン社とVAWは合併でアルノルフ社 (Aluminium Norf G.m.b.H) を設立し、アルノルフ社は世界最大の圧延工場となった。そのVAWは2002年、ノルウェーのハイドロ社

(Hydro Aluminium AS) に買収され、アルノルフ社は、現在、ハイドロ社とアルキャン社から出たノベリス社が運営している。1964年、カイザーはドイツのコブレンツ (Koblenz) に圧延工場を建設したが、1987年オランダの鉄鋼資本ホーゴベンス社 (Koninklijke Hoogovens) の傘下に入った。その後、1999年、ベルギーのデュッフェル (Duffel) の圧延工場、押出工場とともにコーラスグループ (Corus Group) に入ったが、アルミニウムの圧延押出事業は2006年に米国のアレリス社に買収された。

フランスは終戦後の回復はドイツより早く、1950年には戦前のピークまで回復し、アルミニウム生産量は1958年には16万トンに達して、アメリカ、カナダ、ソ連に次ぐ世界第四位となった。1960年代に入っても相当発展を示したが、ペシネー社とユジューヌ社の戦前からの二社独占体制は崩れなかった。しかし、1971年、ペシネー社とユジューヌ・クールマンが合併し、持株会社ペシネー・ユジューヌ・クールマン (Pechiney-Ugine-Kuhlmann) となった。電力条件の不利を克服すべく積極的に海外進出を図った。オイルショック後、1982年、化学と特殊鋼の分野を諦めて会社の名前をPechineyとしたが、前述のように2003年Alcanに買収され、その圧延加工部門Alcan Engineered Productsは、2011年Constelliumと名前を変えた。

ノルウェーは西欧ではフランスに次ぐ生産国で、1962年には20万トン台の水準に達した。最大のアーダル・ベルク社 (A/S Årdal og Sunndal Verk) は1948年ノルウェー国会の決定で設立された国営企業である。1966年にはアルキャンと提携したが、1986年ハイドロ社に吸収された。第二位のモスジョアン社 (A/S Mosjøen Aluminium Verk) はノルウェー最大の電気化学メーカーのエレクトロ・ケミスク社 (Elektrokemisk S. A. のちのElkem社) とアルコア社の合併としてできた企業であるが、現在はアルコア社の子会社である。同国で最も古い企業であるデット・ノルスク・ニトリダクテゼルスカブ社 (Det Norske Nitridaktieselskap, DNN) の株式はアルキャンとブリティッシュ・アルミニウムが折半して所有していたが、1976年その一部は国営化された。ノルスク・アルミニウム社 (A/S Norsk Aluminium Co.) もナコー社 (De Norsk Naco-Aktier A/S) とアルキャンが折半で株式を保有していたが、1986年ハイドロの子会社となった。1965年稼働したソール・ノルジュ社 (Sør-Norge Aluminium A/S) はスイス・アルミニウム社とフランスの金融会社が株式の75%、地元資本が25%を保有する合併企業であったが、現在はアルキャンとハイドロの合併会社である。1964年設立されたアルノール社 (A/S Alnor-Aluminium Norway) もノルウェーの電力会社A/S

Norsk Hydro-Electrisk Kvaelfstofakieselskab とハーベイ・アルミニウム社の合併でできたが、現在はハイドロの子会社である。同国企業六社がすべて外国資本との合併企業でできたが、現在モスジョアン社以外はハイドロ社に吸収された。1969年、ハイドロ社の前身であるA/S Norsk Hydro-Electrisk Kvaelfstofakieselskab はノルスク・ハイドロ社 (Norsk Hydro A.S.) と改称した。1972年にはノルウェー政府はノルスク・ハイドロ社の株の51%を所有し、1980年代、軽合金部門を拡張した。まず、アルキャン・アルミニウムリミテッドから欧州の5つの押出工場を買収した。次に1986年には国営のアーダル・ベルク社を合併し、1988年Hydro Aluminium ASと改称し、自動車のエアコン配管材に焦点をあてて押出ビジネスを拡大した。1998年、ハイドロ社は石油とエネルギー、農業、軽金属をコアビジネスと位置づけて非コアビジネスを売却した。2002年、ドイツのVAWを買収して板の圧延品にも進出した。2012年にはハイドロ社がオークラ社 (Orkla ASA) の子会社でスウェーデンのサパ社 (Sapa AB) と押出事業を統合することで合意した。

スイスでは、スイス・アルミニウム社は国内だけでなく、海外にも進出した。1990年にはAlusuisse-Lonza Holdings AGと名称を変更し、さらに1998年にはAlgroupとなったが、2000年にはAlcanに買収された。イギリスには1894年設立されたブリティッシュ・アルミニウム (British Aluminium Ltd.) があるが、1959年、レイノルズとTI Groupが買収した。その後1982年アルキャンに買収され、ブリティッシュ・アルキャン (British Alcan Ltd) と改称した。アルキャンは1996年に投資会社に売り、再びBritish Aluminium Ltd.となり、これをアルコアが買収するといったM&Aの対象となった。

(3) 日本⁷⁶⁾

戦前は、アルミナの製造と電解の一貫メーカーが10社、アルミナ専門メーカーが7社、電解事業メーカーが3社あり、その生産能力はアルミナ年産48万トン、アルミニウム地金年産20万トンであった。日本軽金属、昭和電工、住友アルミ三社が全体の55%を占めていた。戦後は軍の需要を失い、多くの製錬企業は生産を断念し、戦後は先の三社が生き残り寡占状態となった。その後、アルミニウムの大幅な需要で、新規メーカーの参入がでてきた。1960年三菱化成を中心とする三菱グループは直江津にアルミニウム製錬工場の建設を発表し、1963年操業を開始し、第四の製錬企業として登場した。三井グループも1968年三井アルミニウムを設立して、第五勢力として登場した。この間、八幡製鐵もカイザーと組んで、製錬加工の一貫工場を作ろうとしたが、既存圧延業界の猛反対に会い、製錬部門は断念し、加工だけの

「スカイアルミニウム」が1967年操業を開始した。その後、住友軽金属は製錬加工の一貫工場を目指して、1973年アルミニウム製錬を行う「住軽アルミニウム工業」を設立した。

第一次石油危機のあとアルミニウム製錬業界は、電力コストの上昇に伴う国際競争力の喪失、内需の急冷と輸入地金の急増による大幅な需給ギャップの発生で深刻な不況に見舞われた。これに対し、通産省は、1975年産業構造審議会を開き、製錬と圧延の間の垂直統合を実施する一方で、海外製錬を推進することで、危機を打開しようとした。その結果、1975年以降相次いだ石油化学メーカーからの製錬部門の切り離しで、三菱軽金属、住友アルミニウム製錬、昭和軽金属が分離独立したが、垂直統合は製錬、加工メーカー何れも累積赤字のため不調に終わった。海外製錬は水力発電が使える電力コストの安い海外で製錬するというもので、それなりの前進があった。その第一号は1971年操業開始した昭和電工と住友化学の共同投資のエンザスプロジェクトである。続いてカナダでのアルバック、インドネシアでのアサハン、ブラジルのアマゾン、ベネズエラのベルナムなどのプロジェクトが稼動した。しかしながら、国内での各製錬メーカーは、累積赤字が膨らむ中で、全面停止に追い込まれた。1981.9 三菱軽金属、直江津工場を全面停止、1982.5 住軽アルミニウム、酒田工場アルミ製錬全面停止、1982.6 昭和軽金属、大町工場アルミ製錬全面停止、1983.5 アルミ製錬業、特定産業構造改善臨時処置法の対象業種に指定、1984.12 住友アルミニウム製錬、東予工場閉鎖、1988年アルミ製錬業の設置縮小処理終わった。

一方、圧延加工などの二次加工部門では、原料供給の関係から企業系列化が進んだ。1950年那須アルミニウムが日本軽金属の系列に入り、日軽アルミニウム工業に、1953年高田アルミニウムが昭和電工の傘下に入り、昭和アルミニウム工業に、1954年、日本アルミニウム工業が住友軽金属の系列に、大阪アルミニウムが日本軽金属の傘下に入った

北米のアルコア、レイノルズ、カイザー、アルキャンはイギリス、ドイツ、ベネルックスなどの地金輸入が増加の傾向をみせ、これにともなって資本進出したが、日本市場の高い成長性にも注目して、積極的に進出を図ってきた。カナダのアルキャンは、日本軽金属および東洋アルミニウムと資本・技術提携を行ったほか、神戸製鋼および住友軽金属に技術援助を行い、系列化を押しすすめた。1952年アルキャンは日本軽金属と資本提携し、1959年アルコアは古河電工、日本軽金属と合併で古河アルミニウム工業を、1964年レイノルズは三菱化成と合併で三菱レイノルズアルミニウムを、1964年カイザーは昭和電工、八幡製鉄と合併でスカイアルミニウムを設立した。こうした二次加工メーカーは、二次製品の市場

を確保し、新需要の開拓をはかるため、三次加工企業を育成し、系列支配を強化した。1965年頃の日本のアルミニウム産業の系列図を Fig. 29 に示す⁷⁶⁾。その後古河アルミニウムは古河電工に、昭和アルミニウムは昭和電工に吸収された。また東洋アルミニウムは日本軽金属と合併した。2003年に古河電工とスカイアルミニウム両社のアルミニウム事業が統合され、古河スカイが設立された。さらに住友軽金属と古河スカイは今後「グローバルマーケットで確固たる存在感を持つ世界的な競争力を持つアルミニウムメジャー会社となることを目指す」ために、2013年10月に統合され、株式会社 UACJ (United Aluminum Company of Japan の頭文字) が設立される。

4.4 住友の生産再開と生産設備の拡充^{1,2,3)}

(1) 鋳造

1945年8月の終戦により、名古屋軽合金製造所で働いていた1万3000人が動員解除や希望退職で1000人以下となった。10月には名古屋製造所と改称(1947年再び伸銅所と改称)し、連合国総司令部から民需転換の許可が出て、銅合金とアルミニウム合金の生産を開始した。圧延は1946年1月から再稼働したが、鋳造の反射炉が再開したのは試験記録から1948年頃と考えられる。この頃の板製品の主力はR₂(プロペラ材、Al-4.5%Cu-0.8%Si-0.8%Mn)とND合金(ジュラルミンD₂の屑を用いた合金、Al-4.5%Cu-0.8%Mg-0.8%Mn)でいずれも傾斜鋳造法のブックモールドで造塊していた。1949年頃より耐食性の良い純アルミニウム系、3S(3003)、52S、56Sとなり、合金呼称や成分もアルキャン社やアルコア社式に変わっていった。1950年の伸銅所副所長澤田彰逸氏の訪米で、カイザー社やアルコア社の連続鋳造方式、炉が溶解炉と保温炉で構成され、それらを交互に使用していることを見学してその生産性の高さに驚き、早速、従来の反射炉の操業方式一日1チャージ方式を見直し、一日6回チャージの連続操業に変わった。

1950年頃、朝鮮動乱と関連して米国極東空軍からの発注で24S、75S、61S航空機用合金が生産されるようになった。鋳込み方式は、総て傾斜鋳造で、板用は60キロスラブ、棒・型材用は径170ミリビレットが多かった。1951年頃から連続鋳造法による200キロ鋳塊の試験が始まった。75SについてはESDと同様なツープリン法で鋳込んだ。鋳塊の均質化処理や鋳造組織の微細化などの研究も1954年頃から始まった。1961年には当時の技術課長で後の社長、大柏英雄氏のアルキャン社での見学と実習で、アルキャン社の連続鋳造技術の詳細、保持炉からの樋の構造と溶湯の流れ、溶湯濾過用のグラスウールの詳細、湯面自動調節用のフロート、モールド構造などが明らかとなった。これらはすぐに現場の炉に適用され生産性の向上、鋳塊品質の向上に寄与した。この時の出張報告書は、しばらくの間、鋳造課のバイブルに

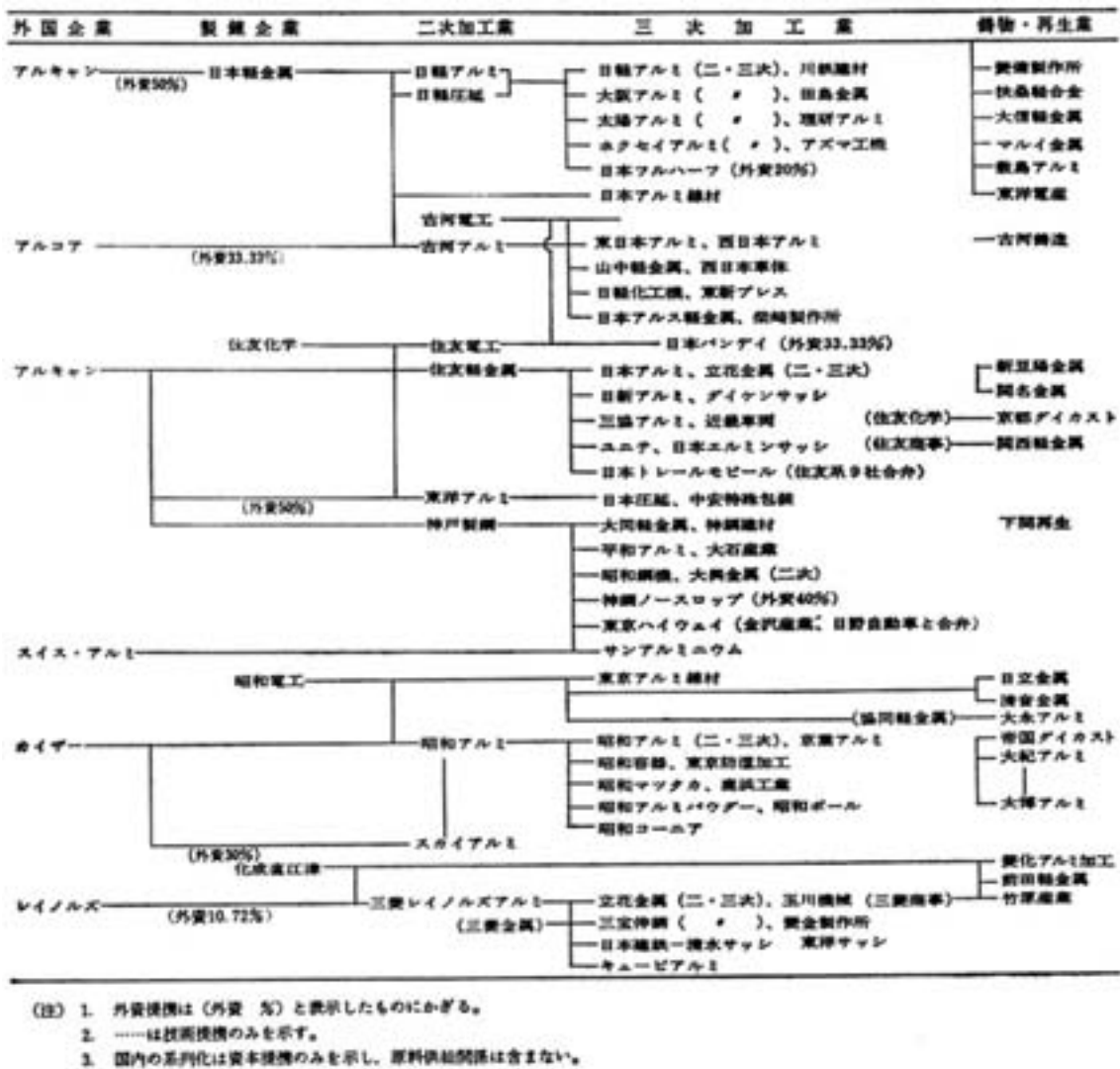


Fig. 29 Affiliation of Japanese aluminum industry in about 1965⁷⁶⁾.

なったとのことである。鋳塊の化学分析についても、従来成分の化学分析に再分析も含めると約一週間もかかっていたが、1955年、米国アプライド・リサーチ・ラボラトリ (ARL) 社のカントメーター (PCQ) が日本で最初に研究部に設置され、オンライン分析により成分調整が容易になった。

1958年頃からスタートした第一期長期計画により、反射炉の増設・大型化がすすんだ。月産1800トンの生産計画に対し、溶解炉20トン、保持炉15トン炉 (F24) が設置された。溶解鋳造に対し、炉温、炉圧、冷却水量等に計器制御技術が取り入れられているのが特徴である。その後、同様な形式の炉が増設された。1961年からの第二期長期計画では、日本で最初のホットチャージ式の純アルミ溶湯の反射炉受け入れが行われた。住友化学工業は、伸銅所の増設計画に対し、隣接地にアルミナ電解工場を建設し、ホットアルミを供給することとした。ホットアルミの受け入れは月2900トンであった。またインライン脱ガス処理を保温炉内で送湯時に行うことや排ガス

の浄化装置も設置された。その後、溶解炉60トン、保持炉55トンの世界最大級の反射炉 (F31) が設置された。

1989年頃から缶材等の需要の大幅な伸びを予想して、月産能力1万トンの鋳造工場の建設に取り掛かった。8トンスラブから20トンスラブにして生産性を上げるため、国内最大級の95トン溶解炉2基と100トン保持炉、最新式の溶湯処理装置、最大2100mm幅、500mm厚の鋳塊を同時に7枚鋳造でき、最大長さ10mスラブ、最大重量28トンスラブが鋳造できる設備を導入した⁹⁵⁾。導入された溶解炉をFig. 30に示す。

(2) 圧延

戦後の圧延は三段冷間圧延機よるジュラルミンNDから始まる。当時は、物資不足で航空機材料のジュラルミンから鍋釜や弁当箱用の板を生産した。圧延方式は戦争中の伸銅所製板第二工場 (桜島) 方式とほぼ同じであったが、1947年頃は被爆した可逆式二段熱間圧延機 (R1)

が復旧していないためにシートバー圧延方式が一時期採用されたこともある。これは幅 150 ミリ、厚さ 25 ミリで押出した ND バーを長さ 1 メートルに切断し、これを二段熱間圧延機で 6 ミリまで幅出し圧延した。圧延時にバーがロールとテーブルに落下しないように行うため危険な作業であった。朝鮮動乱での 75S, 24S, 61S 合金クラッド材の大量発注では、米軍の連邦規格と軍用規格が導入され、その品質管理の厳しさが製品のレベルアップに貢献した。このときのクラッド板用鋳塊はブックモールド鋳型の内側に皮材を貼付けその中に鋳込む方式で作られた。

可逆式二段熱間圧延機 (R1) (Fig. 16) が復旧されたのは 1952 年である。純アルミニウムの 200 キロ鋳塊が最初である。その後鋳塊は 400 キロ、500 キロと大きくなるが、コイルはスリーロールによるガサ巻きだったので、傷防止としてコイル巻きの際に径 6, 7 ミリの木綿の紐を二列に入れて面と面の接触を防ぐ工夫をした。最終圧延は二段冷間圧延機で圧延し、厚さ 1 ミリ前後で、幅 1220 ミリ長さ 2440 ミリの薄板製品とした。1953 年米軍極東空軍の意向もあり、航空機材の順調な生産のために、カナダのアルミニウム・リミティッドの研究所から住軽、神鋼、古河三社に技術指導に来た。その板材生産での質疑応答には、鋳塊切削面の状態、皮付け板の洗浄、ふくれ対策、熱間及び冷間圧延油、二段冷間圧延での問題が取り上げられていた。

1959 年、この年は伊勢湾台風が襲ってきて大きな被害を被ったが、住友軽金属が住友金属から独立した年で、



Fig. 30 Large melting furnace

第一期長期計画として板 1800 トン生産設備起業が決定された。板用鋳塊は 1 トンと大型化し、両面面削機、均質化熱処理用のピット型加熱炉が新設された。可逆式二段熱間圧延機では熱延テーブルの延長、モーターの更新、クーラントシステムの改造のほかに、コイリング方式が大きく変化した。従来はスリーロール方式によるガサ巻きだったが、アッヘンバウハ社製のホットコイラーを設置することでタイトコイルとなり、板面の傷防止が可能となった。四段冷間圧延機では、入側アンコイラーと出側リコイラーの大型化、圧延制御の更新、クーラントシステムのノズル毎の電磁弁によるオンオフ制御への変更などが行われた。1957 年頃から家電製品、アルマイト用装飾品の材料開発では表面品質が重要で、これは製造工程と関連していたため、AlTiB 添加による铸造組織の微細化や熱延温度の管理が重要となった。

1961 年から五カ年にわたる第二期長期計画が立案され、月産 3600 トン生産が目標とされた。新四段冷間圧延機が設置され、板厚制御方式の採用、板形状制御のためのワークロール・ベンディング装置、X 線板厚計、圧延荷重計等の各種計測器の設置などが導入され、製品の形状寸法・品質の飛躍的向上を狙った。第二期長期計画の途中から板月産 6000 トン、付帯設備の増強で 10000 トンまで可能という計画を達成するため新熱延が検討され、粗圧延機 (R100) (Fig. 31) と仕上圧延機 (R101) (Fig. 32) が新設された。いずれも四段圧延機で R100 はロール幅 3 メートル余、R101 は 3 タンデムでロール幅 2.3 メートル弱である。本格稼働は 1966 年 4 月からである。

アルミニウムの需要は器物、家電製品、装飾品から車両、建築など構造用の分野へと著しい発展を遂げていたが、日本は技術革新で欧米より遅れていたため、住友はカナダのアルキャン社と技術援助契約を 1961 年結んだ。技術援助の内容は、アルミニウムとその合金について、铸造、圧延、押出、抽伸等の製造技術並びに建築、運輸、電気、包装等の関連産業分野におけるアルミニウム使用



Fig. 31 Single stand hot roughing reversible mill, R100 (1966)³⁾

についての一般的技術援助であった。この援助期間は調印発効後 15 年間で 1978 年まで続いた。缶エンド材のアルミ化では需要の拡大を見越してその表面処理のために 1969 年連続仕上げライン (SH80) が導入された。表面処理ラインと同じく、連続加熱式コイル焼鈍炉 (F80) も 1969 年設置された。1989 年から始まった板の近代化では仕上げ圧延機のスタンドを増設して 4 スタンド化し、既設スタンドの主モーターを含む電気設備一式の更新、プロセスコンピュータおよび制御装置の更新、さらに面削機、加熱炉の新設を実施し、全面的な改造を行った⁹⁶⁾。Fig. 33 は 4 スタンド化された仕上げ熱間圧延機 R101 である。

(3) 管・棒・形材

1958 年頃のアルミニウム管・棒・形材の生産量は月 100 トン程度で、棒が主であった。ビル用サッシの需要が徐々に始まったのが 1959 年過ぎで、建築業界が一般のアルミサッシに注目するのは 1961 年頃からといわれている。このような需要に対応するために横型単動式油圧押出機が設置されたのは 1959 年である。米国ローウィ・



Fig. 32 Three stands tandem hot finishing mill, R101 (1966)³⁾



Fig. 33 Four stands tandem hot finishing mill added a new stand, R101

ハイドロプレス社製の 2000 トンプレスでピレット径は 7 インチであった。この押出機には自動搬送 (クーリングテーブル, 搬送テーブル), 引張り矯正, 切断と連続的に作業ができる付帯設備があり, サッシ用 6063 合金押出形材の生産に効果的であった。その後需要に応じて複動式を含む横型油圧押出機が 8 機導入された。1962 年頃からビル用サッシのブームが訪れ, 月あたりの片材生産量は 1964 年が 470 トンであったが, 1968 年には 2000 トンに達した。ソリッド材の生産ではフラットダイスが主流で現在のようなフローガイドは使用されていなかった。ホロー材についてはスパイダーダイスカブリッジダイスが主であったが, 薄肉化に伴いポートホールダイスに移行していった。ダイスの製作には 1958 年放電加工機が導入され, 1970 年にはコンピュータ制御のワイヤカット放電加工機が日本で最初に導入された。小物多孔品の押出にはプラーが 1966 年頃設置された。継目無し管の製造には従来の横型水圧押出機方式では扁平率が問題で, 扁平率 5% 以下の要求を目指すために 2660 トン横型複動式油圧押出機が設置された。1969 年には千葉製作所での生産が始まり油圧プレスが導入された。また同年, 軽金属押出開発会社 (KOK) への出資がなされた。また棒の押出では, コンテナとの摩擦がなく, 低温で高速押出が可能な 3000 トン単動式油圧間接押出機が 1973 年設置された。その後加工品への展開が行われ, 千葉アルマイト工場や加工品工場ができた。1985 年バブル景気の最中, 押出設備の近代化, 大型化が計画され, 5600 トンの直間兼用大型複動押出機 (Fig. 34) や大型ブルブロック抽伸機, 縦型焼入れ炉 (Fig. 35) などが導入された⁹⁷⁾。自動車材の海外展開に伴い, 2003 年チェコに, 2012 年タイに自動車熱交換器用多穴管の押出工場が設置された。

4.5 鉄道車両用材料

—7N01, 7003, 6N01 の開発—

日本の鉄道車両の車体にアルミニウム合金が用いられたのは, 1945 年, 終戦直後の物資不足から航空機のジュラルミンが転用されたのが最初であったが, 腐食が激しく改造された。本格的な鉄道車両への採用は, 1962 年にデビューした山陽電鉄 2000 形電車に始まる。当時, 初めてアルミニウム合金をわが国の過酷な使用条件の通



Fig. 34 Direct and indirect 5600ton extrusion machine with double action



Fig. 35 Vertical furnace with quenching equipment

動電車に適用し、数年間の使用実績を見守った結果、実用上の問題は皆無であることがわかった。しかも予定通りの経済性が確認されたので、大都市の地下鉄を中心にアルミ車両を採用する鉄道が相次いだ。

アルミニウム合金製車体の構造の変遷を Fig. 36 にまとめる^{98,99)}。山陽電鉄 2000 形電車に代表される第 1 世代では、当初、鋼製車体の外板の置換えに始まったが、その後、台枠に溶接性の劣る 6061 合金を用いたため、ブロックごとに溶接され、ブロック相互はリベットで結合された車体となった。第 2 世代では、60 年代中期に溶接が可能な Al-Zn-Mg 系の高強度 7N01 合金が開発され、骨組み、外板はもとより台枠も含めた全溶接構造のアルミニウム合金製車体となった。骨組み、台枠の張りには押出材が多用され、従来の鋼製車体の重量に比較して 1/2 以下となった。

Cu の添加されない Al-Zn-Mg 系合金には、戦前開発された HD 合金（ホンダジュラルミン、Al-5.4Zn-2.0Mg-0.55Mn-0.25Cr）があり、ESD より強度は低いが押出性に優れているために、型材として利用されていた。接合に関しては、戦前は溶接技術の未熟さもありリベット接合が主体であったが、戦後は、第二次世界大戦中に米国で高純度ガス生産ができるようになった結果、アルゴンアーク溶接法が研究され、TIG、MIG 法が開発され

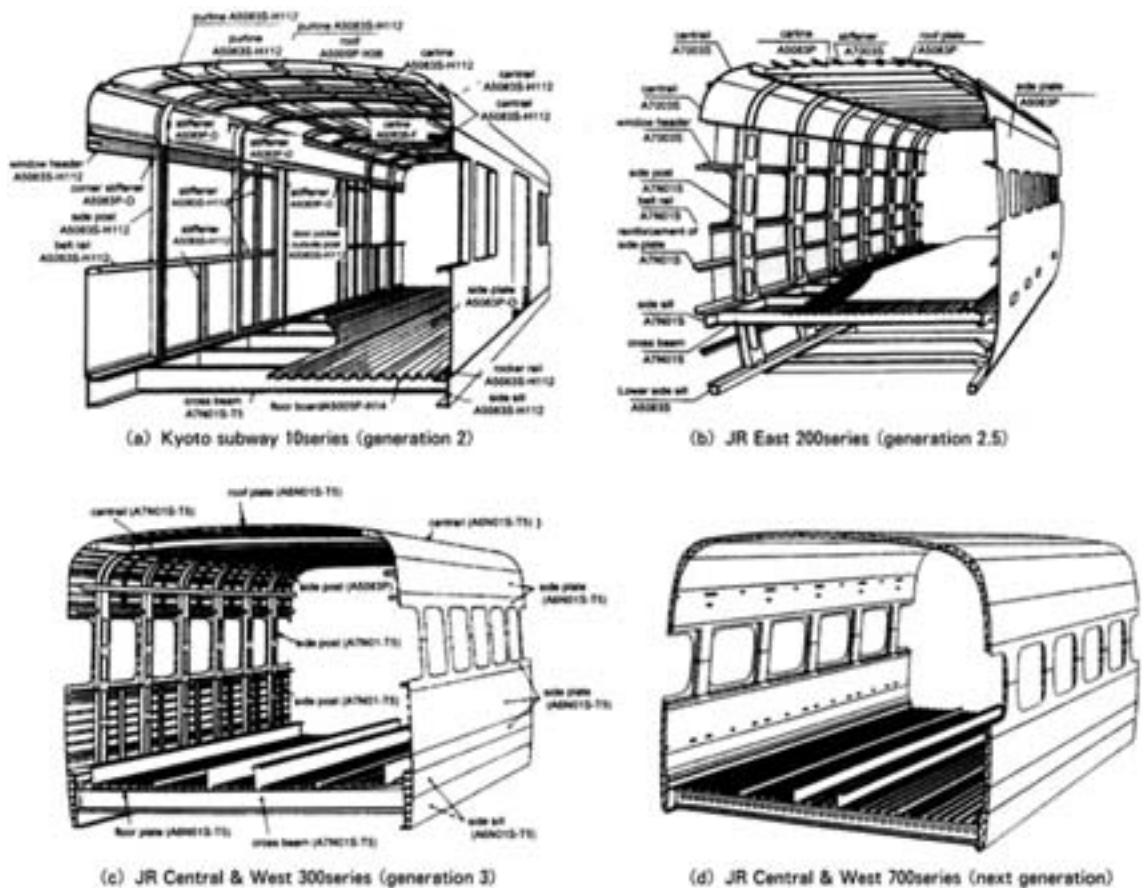


Fig. 36 Trend of the body structures of aluminum railways cars^{98,99)}

た¹⁰⁰⁾。これに伴って、欧米では Al-Zn-Mg 系溶接構造用材料の研究が盛んになり、AlZnMg 1, AlZnMg 2, 7004, 7005 などが開発された。この系の合金は、溶接後も自然時効にて強度が増加し、引張強さは母材強度に近いところまで到達するため、継手効率は高い特徴がある¹⁰¹⁾。

日本においても、住友軽金属の馬場義雄博士(注7)らはいち早く Mn, Cr, Zr の添加の影響を調べ、Cr 添加が最も焼入れ性を低下させることを明らかにし¹⁰²⁾、1965年、Cr は添加せず Zr を必須とする住友合金 ZK41 を開発した¹⁰³⁾。その後欧米でも Zr を必須とするようになった。ここにも住友の合金開発における先進性を見ることができる^{104,105)}。Fig. 37 は焼入れ性と溶接割れ感受性に及ぼす微量元素の影響を示す^{101,102,106)}。この系の合金は押出後も空冷で強度が得られ、冷却による歪も少なく生産性がよいため、各社も開発し、1970年 JIS A7N01 (2005年、The Aluminum Association (AA) にも登録され、AA7204 と呼称) が制定された。しかしながら、腐食環境によっては、剥離腐食や応力腐食割れ性を生じることがあるため、前述の過時効処理や微量添加元素が検討された。特に、肉厚方向での応力腐食割れ

抑制に対しては、0.15% 前後の微量の Cu 添加が有効であることが明らかとなり^{109,110)}、住友合金 ZK141 が制定された¹¹¹⁾。世界各国と住友の Al-Zn-Mg 系合金の成分を Table 13 に示す^{104,105)}。そのほか、クロムやジルコニウム添加については鑄塊の均質化処理条件の影響の大きいことも明らかにした^{106,107)}。

(注7) 馬場義雄博士は1935年生まれ、1958年京都大学工学部冶金学科を卒業、村上陽太郎研究室の出身で、チタンの研究開発に従事したくて住友金属に入社したとのこと。入社翌年、住友軽金属が独立するとともに第一期生となり、アルミニウム合金の研究開発に取り組んだ。1969年、京都大学から工学博士を授与される。1972年、住友軽金属工業(株) 主任研究員。小職が入社時(1975年)は主任研究員であり直接の上司であり、まず Al-Zn-Mg 系三元合金の溶接部の応力腐食割れの研究のテーマが、その後、Al-Zn-Mg-(Cu) 系合金の機械的性質、応力腐食割れに及ぼす Zr 添加の影響の研究テーマが与えられた。1985年、同社取締役、1992年、豊橋技術科学大学客員教授兼任(3年間)、1999年、同社専務取締役退任、顧問。1963

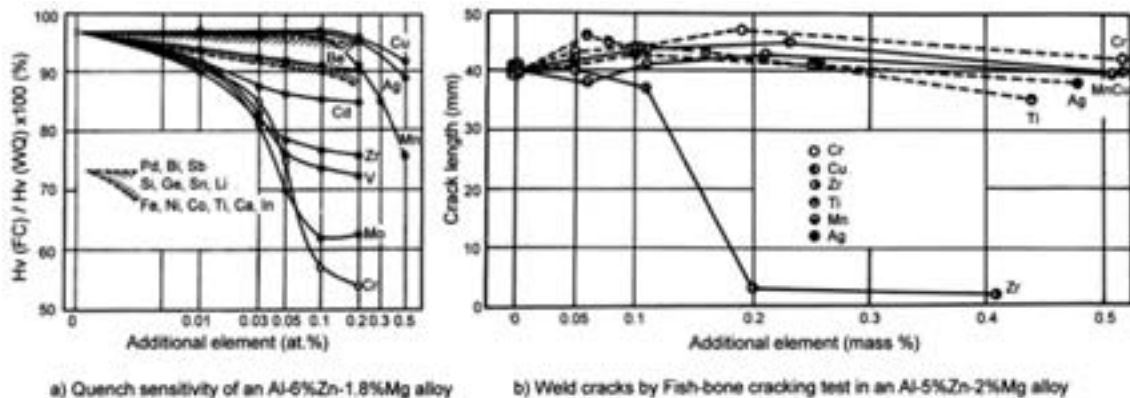


Fig. 37 Effects additional elements on quench sensitivity and weld cracks by fish-bone cracking test in Al-Zn-Mg alloys^{99,101,102)}.

Table 13 Chemical compositions of Al-Zn-Mg alloys in the world (mass%)^{104,105)}

		Zn	Mg	Mn	Cr	Zr	Ti	Cu	Fe	Si
AlZnMg 1	Germany	4.0-5.0	1.0-1.4	0.1-0.5	0.1-0.25	—	0.1-0.2	<0.1	<0.5	<0.5
AlZnMg 2	Germany	4.2-5.3	2.0-3.5	0.1-0.6	0.1-0.3	—	<0.2	<0.10	<0.7	<0.7
7004	USA	4.0-4.6	1.0-2.0	0.2-0.4	0.1-0.3	— (*)	<0.15	<0.2	<0.4	<0.25
7005	USA	4.2-5.0	1.0-1.8	0.20-0.70	0.06-0.20	— (*)	0.01-0.06	<0.10	<0.35	<0.35
ZK41	Sumitomo	3.5-4.5	1.5-2.5	0.2-0.5	<0.10	0.1-0.2	<0.10	<0.10	<0.25	<0.20
ZK141	Sumitomo	3.8-5.0	1.0-2.2	0.2-0.9	<0.30	<0.30	<0.20	<0.30	<0.40	<0.30
7N01, 7204	Japan	4.0-5.0	1.0-2.0	0.20-0.7	<0.30	<0.25	<0.20	<0.20	<0.35	<0.30
ZK60, 7003	Sumitomo	5.0-6.5	0.5-1.0	<0.30	<0.20	0.05-0.25	<0.20	<0.20	<0.35	<0.30

(*) Afterwards, 0.10-0.20% zirconium was added to 7004 and 0.08-0.20% Zr was to 7005.

年、軽金属学会、軽金属論文賞受賞、1968年、第8回日本金属学会ジェフリース賞受賞、1974年、「新しいAl-Zn-Mg系三元合金の研究開発」で第9回小山田記念賞受賞、1978年、第36回日本金属学会功績賞(金属材料部門)受賞、1980年、「焼入れ性の優れた溶接構造用強力Al-Zn-Mg系合金の製造法」で全国発明表彰、1996年、「航空機テーパー・ストリンガー用高力アルミニウム合金板材およびその加工技術の開発」で第9回中日産業技術賞受賞、2000年、第3回軽金属学会賞受賞。2012年惜しくも77歳で逝去。

馬場博士は住友軽金属技報50周年記念号の随想¹¹²⁾の中で、「1961年にドイツのP. BrennerがAluminium誌に欧州における溶接構造材としてのAl-Zn-Mg系合金の利用について発表した。Al-Zn-Mg系合金は我が国ではHD合金として、Al-Zn-Mg-Cu系のESD合金、超々ジュラルミンよりも押出加工性が良く、強度もかなり強い合金として知られていたが、一般に溶接性に劣るため、Al-Mg系の非熱処理型合金に比べて溶接構造材としての利用は少なかった。上司からの勧めもあり本格的にAl-Zn-Mg系合金の研究開発を進めることとした。当時、研究開発の中心は亜鉛3~5%、マグネシウム1~3%を含むAl-Zn-Mg系合金に応力腐食割れ防止にクロムとマンガンをも0.2~0.6%添加した材料の実用化であった。ESDの応力腐食割れ防止にクロムが0.2~0.3%添加されて以来Al-Zn-Mg系合金にもクロムを添加することが当たり前のように思われていたが、空冷での押出加工性を重視した場合、クロムは焼入れ性に悪い影響を与えるので好ましくない。基礎研究の結果、400℃以上の高温での不溶性析出粒子がより微細なジルコニウムの微量添加、0.15~0.2%が応力腐食割れ防止も含めて極めて有効であることを見出した¹⁰²⁾。亜鉛とマグネシウム量も見直し、各種微量添加元素の役割を時効現象と格子欠陥に関連して詳しく調べた。「その結果を住友軽金属技報と金属学会誌に発表し、金属学会第8回ジェフリース賞受賞となった」。これは「住友軽金属技報で論文の書き方を学ぶとともにレベルアップ図った成果が集大成されたものと思っている」と書いている。バランスのとれた基礎研究と開発研究、論文投稿によるレベルアップなど、我々はこれら住友のよき伝統、DNAを受け継いでいく必要がある。

VAWのBrennerの発表について、西村教授のDNAを引き継いだ村上教授も次のように書いている。「この合金(HD合金)は戦後わが国では顧みられることはなかったが、1960年前後に、ヨーロッパで溶接構造用三元合金として研究されていた。筆者が1961年当時の西ドイツのマックス・プランク金属研究所に滞在していた際に、オーストリア、レオーベン市で開催された第4回軽金属国際会議(4. Internationale Leichtmetalltagung, Leoben, 1961)に出席した。その節、ド

イツ・アルミニウムのP. Bennerが、同社が1958年頃から製品化している溶接構造用三元Al-Zn-Mg合金、Konstruktal 21/51 (Al-Zn3.5~4.8, Mg0.5~1.2, Mn0.1~1.0, Cr0.1~0.3)の優れた溶接性と応用例を発表した。屋外に特設されたテント張りの展示場にはこの合金の種々の溶接構造物が陳列されていた状況が今でも想い出すことができる。この合金の最大のメリットは溶接部の強度が、溶接後室温で徐々に回復し、約3ヶ月後には、その強度が母材と同程度に回復することで、この図をみて感動した記憶がある」と述べている^{84,87)}。これもDNAの為せる技かなと思ってしまう。

A7N01のMg量を減らし、Zn量を増加させて、さらに押出性を高めた合金も、1967年馬場博士らによって開発され^{113,114,115)}、その後、日本から初めてAAに7003合金として国際登録された。Fig. 38は7003合金(住友ZK60)と住友ZK61合金の成分範囲と強度、押出性を示す⁹⁹⁾。7003合金により広幅の大型型材の製作が可能となった。1969年には四日市市に圧延業界、精錬業界が共同出資の軽金属押出開発(KOK)が設立され、わが国最大の9500トン押出機が設置された。最大幅520mmの型材が押出可能となり、新幹線車両軒桁に7003合金広幅大型型材が採用された。これが第2.5世代といわれた車両構体(Fig. 36参照)である。その後床板、側構などに大量に使用された。この7003合金は、鉄道車両はもとより、コンテナ、バンおよびトレーラー等の強度メンバー、また中空押出も可能でオートバイや自転車のリム、自動車のバンパーなどにも広く利用されている。

アルミ合金製車両は鋼製車両に比べてイニシャルコストが高いため、さらに押出性、溶接性、耐食性に優れた合金が求められていた。欧州ではAl-Mg-Si系の6005Aが開発され、車両に使われていた。この合金は、Mn+Crを0.12-0.5%含むが、添加量や押出条件次第では結晶粒が粗大化したり、MgとSiの量比如何では、靱性が劣ったり、溶接でマイクロフィシャなどの割れが発生しやすいことがわかった。各社は成分等の最適化を図り、1980年、それらを集約してJIS 6N01合金が制定された⁹⁹⁾。この合金は薄肉で中空の押出型材が製造可能で、構体がすべて押出型材で構成されるようになった。これが第3世代の車両構体である。強度が必要とされる台枠の枕はり・横はり等については7N01が依然として使用された。1990年代に入ってから、次世代車両構体といわれる、中空トラス断面押出型材によるダブル・スキントタイプの構体構造が主流となり、さらに枕はりや横はりも6N01合金に置き換えられている。また新技術として、ろう付けハニカムパネル¹¹⁶⁾や摩擦攪拌接合(FSW)¹¹⁷⁾も利用されるようになっていく。

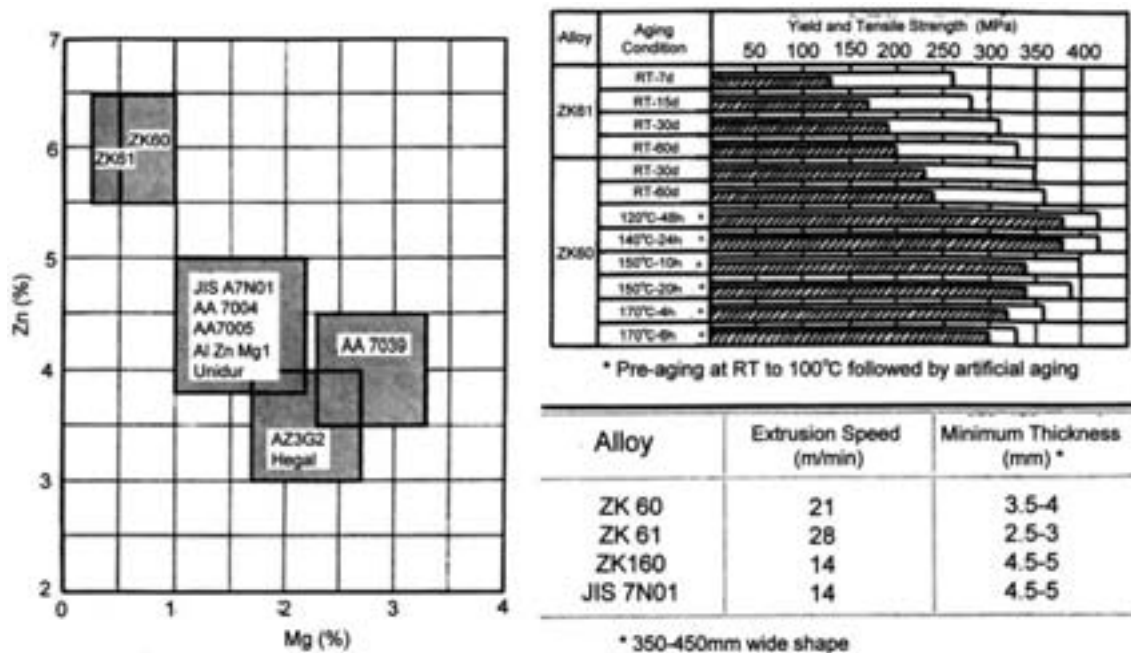


Fig. 38 Development of Al-Zn-Mg alloys (Sumitomo alloys ZK60, ZK61) with high extrudability^{99, 113, 114)}

4.6 二輪車用材料

—高強度高靱性 7000 系合金の開発—

二輪車（モーターサイクル、オートバイ）も戦後大きく発展した分野で、戦前からのメーカー（陸王、みずほ、宮田）以外に戦前の航空機メーカー（中島、三菱、川西）や本田技研など 100 社以上のメーカーが製造に乗り出した。生産台数が伸びるに従いスポーツとしての使われ方がされるようになった。レースでは性能の差が成績となって表れるので、各社の技術競争が始まり、それによって性能向上がもたらされた。レースによって磨かれた技術は市販車にもフィードバックされ、1960 年頃から市販車の性能や品質が向上した。その後世界グランプリへ進出し欧州車を圧倒して世界のナンバーワンとなり、ホンダ、ヤマハ、スズキ、カワサキが競うオートバイ王国へと成長を遂げた⁹⁹⁾。

二輪車も航空機に次いでアルミニウムの使用量の多い輸送機器で、オフロードレーサーではアルミニウム材料は重量の約 3 割を占めているといわれている。二輪車は軽量高性能化へのニーズが高く、早くからアルミニウム部品の採用には積極的であり、シリンダーヘッド・ケースなどエンジンの外郭となる部品は当初よりアルミ合金で設計されてきた。

1980 年ごろより、スポーツ車において軽量化とデザインニーズが高まり、ホイール、フレーム、スイングアーム、ラジエータなどアルミ化が進んだ。比較的早かったのはホイールで、スポークホイールのリムに Al-Zn-Mg 系合金 7003 合金が用いられ始めた。これは高強度で溶接性が良好なためである。通常 O 材で曲げ加工後、フラッシュバット溶接を行い、その後スポーク穴用に張出

し加工を行ってから焼入れをする。最近では、銅が多く添加された Al-Zn-Mg-Cu 系合金も用いられている。

Fig. 39 は高強度 7000 系押出材が用いられている二輪車の部位を示す⁹⁹⁾。

溶体化処理時の結晶粒粗大化はその後の表面研磨、アルマイト処理した後の外観品質に影響を及ぼすため、押出材の組織制御も重要な課題であった。一般に高力系合金押出材は強度、靱性、耐応力腐食割れ等の観点から Mn, Cr, Zr などが微量添加されるため繊維状組織を有するが、押出表面はダイスとのせん断加工を受け再結晶組織となりやすい。溶体化処理で再結晶組織は厚くなるが、この後の研磨、アルマイト加工で再結晶組織と繊維状組織が混在すると、光沢の違いで斑が生じるため、外観上どちらかの組織に制御する必要がある。

フレームのメインパイプ部やスイングアームのアーム部には 7N01, 7003 押出形材が用いられ、ヘッドパイプやブラケット部の鋳造品や鍛造品と溶接で接合された。また一部のプレス成形タイプでは溶接性の良好な 5083 合金板材が採用された。

フロントフォークは車体とフロントタイヤを繋ぐサスペンションで、操舵と緩衝および懸架の役割があり、衝撃を吸収するため二重管で構成され、インナーチューブには高張力鋼が、アウターチューブにはアルミニウム合金鋳造材が用いられてきた。1990 年頃、モトクロスなどのオフロードレーサーではジャンプ着地時に大きな衝撃力が加わるため、鋳造材よりも高強度高靱性合金が必要とされ、航空機用 Al-Zn-Mg-Cu 系合金が目された。この中でも、Zr 添加合金は、間接押出後の表面結晶粒粗大化を抑制でき、また焼入れ感受性が鈍感（焼入れ性

が良好) になるため、水冷に替わりポリアルキレングリコールを用いた縦型焼入れ炉 (図5) を用いることで不均一な残留応力を低減できた。現在ではアルミニウム合金で最も高強度高靱性材料が、フロントフォークのアウトチューブに実用化されている¹¹⁸⁾。戦前の航空機用材料開発の伝統が二輪車用材料の開発に生きている例といえよう。なお、製管の技術は高校の硬式野球バットにも活かされている。春夏の甲子園の高校野球大会で用いられている硬式野球バットの半数以上は住友軽金属の高強度 Al-Zn-Mg-Cu 系合金の押出で製造されたものである。アルミニウム製野球バットの例を Fig. 40 に示す。

4.7 航空機用材料

戦後、一時期、航空機の研究開発、製造は禁止されていたが、朝鮮戦争特需で復活し、1957年には開発が解禁された。しかしながら、戦争中、航空機に携わっていた研究者や技術者は自動車、鉄道車両やモーターサイク

ル開発に移り、航空機もまたジェット機、大型旅客機への転換期を迎えていた。日本の航空機メーカーは米国の航空機のライセンス生産で基盤技術を築き、YS11などの航空機が生まれたが、価格の面で欧米機に比べて不利で、少量生産で終わった。その後、ボーイング機の機体生産を通して復活してきた。

ボーイングの B767 機体の製造では、従来、7075 押出型材を用いたストリンガー (縦通し材) の重量を軽減するため、Fig. 41 に示すように、板材を圧延により長手方向で肉厚を変動させ、継手部分のみを厚くしたテーパストリンガーを全面的に用いようとした。しかしながら、従来の 7075 板材では、圧延で弱加工した部分はその後の溶体化処理で結晶粒粗大化が生じて、その後工程のハット型加工で割れが生じて、疲労強度の低下する問題が発生した。このため弱加工でも結晶粒粗大化しない材料の開発が求められた。馬場博士、宇野照生博士、小職は連続焼鈍炉を用い急速加熱、急速冷却処理で結晶粒を 50



Fig. 39 Motor cycle parts using high strength wrought aluminum alloys in a motocrosser⁹⁹⁾



Fig. 40 Baseball bats made of Sumitomo's high strength aluminum alloys

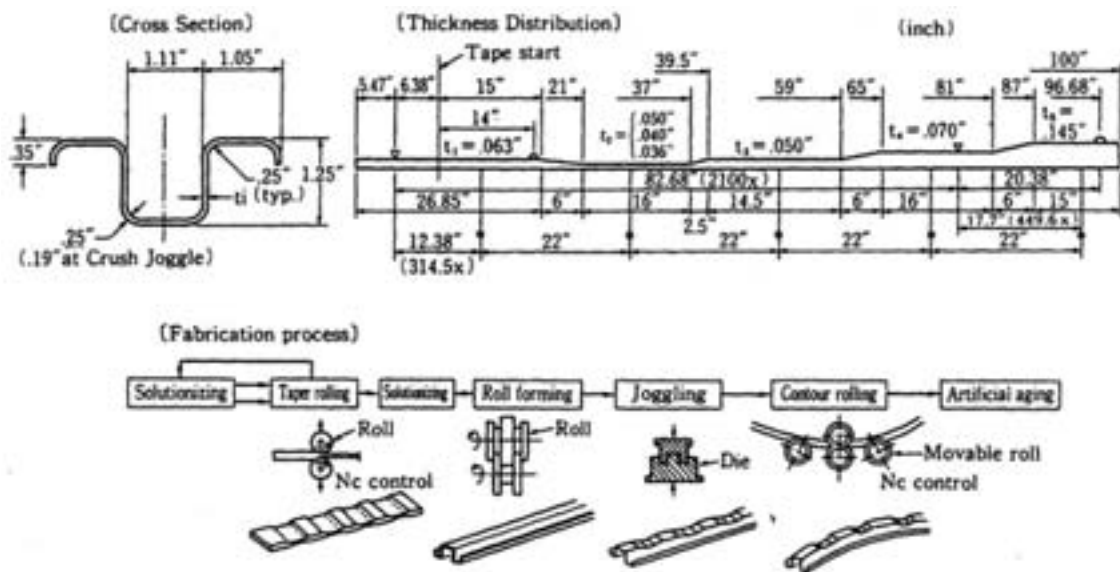


Fig. 41 Manufacturing process of a taper-rolled stringer for airplanes^{99, 104)}.

μm 以下に微細化し、その後適正な析出処理により軟化させることで、弱加工・溶体化処理で結晶粒粗大化が生じない加工熱処理法を開発した¹¹⁹⁾。三菱重工はこの加工熱処理を施した板材をハット型に成形し、ボーイング B767, B777 のストリンガーに用いることができた^{104, 120, 121)}。Fig. 42 は B767 機の胴体部で、ハット型に成形されたテーパーストリンガーと湾曲したフレームと外板がリベットで組み合わされて様子がわかる。早速、1979 年 12 月には「75S 系合金の結晶粒径 $100\mu\text{m}$ 以下のストリンガー材およびその製造方法」で特許出願された。この技術開発に対し、1996 年、三菱重工と共同で中日産業技術通商産業大臣賞を受賞している。

航空機材料の研究は日本航空宇宙工業会の委託研究を受け、小職らは高靱性アルミニウム合金の開発研究(1980~82 年)¹²³⁾、7475 合金、Al-Li 合金超塑性材開発と超塑性加工法の開発(1983~88 年)^{124, 125)}の研究を実施した。この 7075 合金は、熱延板に対し適切な析出処理(過時効処理)を施し、その後温間圧延ないしは冷間圧延と急速加熱処理を行う加工熱処理法を用いると、 $10\mu\text{m}$ 程度まで結晶粒は微細化する。この材料を高温で引張変形させると超塑性が得られることから、Fig. 43 に示すようなドアパネル等に成形された。この超塑性成形法により、図 3 に示したパネルでは、従来方法では 45 個のパーツ、400 個のリベットで加工されたパネルに対して、3 個のパーツと 80 個のリベットで組立てができ、コストで 30%、重量で 15% 軽減されることがわかった¹²⁶⁾。

その後、筆者と内田秀俊博士や佐野秀男博士らによって川崎重工業と 2024 合金と同等の強度を有する高強度高成形 6000 系板材の開発および薄肉ホロー型材の開発

(1993~96 年)^{127, 128)}、2013 合金押出材、板材の開発と適用研究(2004~05 年、2007~08 年)^{129, 130)}あるいは熊谷正樹博士とともに三菱重工業と摩擦攪拌接合による主翼の製造法開発(2000~01 年)を共同研究¹³¹⁾してきた。こうした基礎研究は、航空機以外でモーターサイクルのリム用押出型材やフロンフォーク用管材の開発¹¹⁸⁾、自動車(ホンダ)のフェンダーなどの超塑性成形用材料開発⁹⁹⁾に波及効果をもたらした。



Fig. 42 B767's fuselage constructed with frames, skins and taper-rolled stringers^{99, 104)}

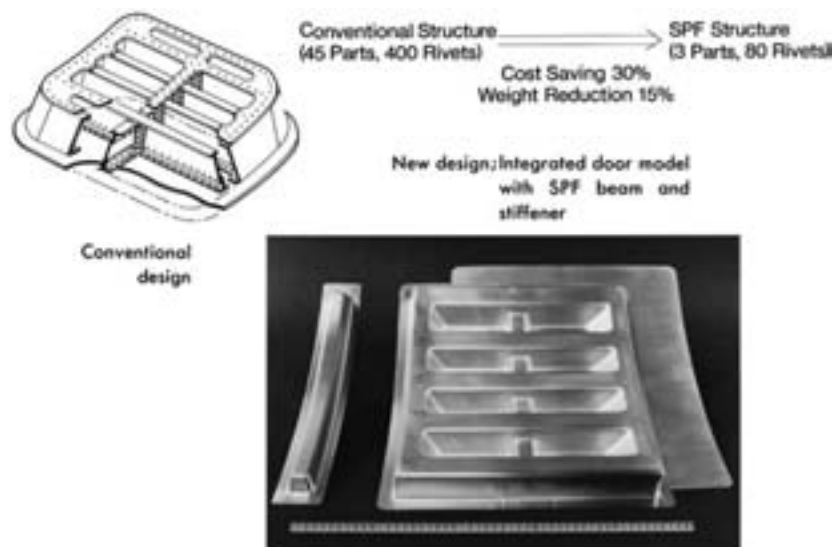


Fig. 43 Door panel model formed superplastically using a 7475 alloy sheet with fine grains compared with a conventional structure⁹⁹⁾.

合金開発では、7075 合金は航空機用材料の代表として、現在でも世界中で多く使用されている。1950 年代、米国で ESD に近い Zn 量を有する 7178, 7001 合金が開発されたが、破壊靱性、損傷許容、応力腐食割れの観点から次第に使われなくなった。その後、破壊靱性や疲労特性を向上させるために、不純物の Fe や Si を減らした 7475 合金が開発された。特に厚板材の靱性、疲労強度等を改善するために各種の加工熱処理法 (TMT: Thermomechanical Treatment) が開発された。中間加工熱処理 (Intermediate TMT) として、鋳造時の晶出物を熱間加工で微細再結晶させることで微細に分散させる方法が開発された¹³²⁾。これを Fig. 44 に示す。この方法は、戦前、ESD を圧延するために用いた「押え圧延」(本稿 3.9 参照) とほぼ同じ方法であり、「押え圧延」は製造現場が経験的に工夫発明した方法である。ここにも先人たちの先進性を見ることが出来る。また剥離腐食や応力腐食割れを抑制する方法として、通常の熱処理条件より高温長時間側で行う過時効処理 (T7) が開発された。さらに、最近では RRA 法と称して、通常の T6 処理した後に、170~260°C の復元温度まで加熱してその後再び 120°C で熱処理する方法である。これを T77 処理と表記している。これは粒界の連続した析出物を高温に加熱することで凝集させ、粒内は若干復元状態となる。その後の熱処理で析出して強度は T6 並で耐力腐食割れ性は T7 相当になる優れた熱処理法である¹³³⁾。1970 年以降は焼入れ性の観点から、Cr の代わりに Zr を微量添加した 7050, 7150 合金などが開発された。さらに最近では Zn も多く添加されるようになり、ESD と同じ 8% 添加された 7055 といった合金も開発され使

用されている。これは製造技術の進歩とともに、材料学的にも、強度、靱性、疲労、応力腐食割れに関する多くの知見が得られ、特性を向上させるための手法も見出された結果である。Table 14 に戦後開発された航空機用 7000 系合金の成分の代表値を示す。住友軽金属においても高強度高靱性合金である高 Zn 合金の ZC88 が開発されている。Zn のレベルでは世界的にもようやく超々ジュラルミンのところまで来たといえる¹³⁴⁾。

1980 年代には航空機の燃費向上のため、一層の軽量化が要求され、低密度で高剛性の Al-Li 合金が注目された。リチウムを 1% 添加すると、密度は 3% 低下し、弾性率は 6% 増加し、2024 や 7075 合金並みに高強度が得られる。このため、欧米では次世代の航空機用合金として注目し、リチウム 2~3% 含む 8090, 8091, 2090, 2091 合金などが開発された¹³⁵⁾。この合金系は焼入れ感受性が鈍感で、空冷でも十分な強度が得られ、高温で超塑性を示し 7075 合金よりも速い成形が可能であるなどの興味ある特徴があり、著者らも基礎研究を行ってきた^{136, 137)}。しかしながら、製造の面では溶解鋳造が非常に困難で、通常の大気溶解では酸化反応が激しく酸化物が形成されやすい、熱延では圧延割れが生じやすい、溶体化処理では表面酸化で脱リチウムが生じるといった問題がでてきて、従来の技術では容易に製造できないことがわかってきた。このため日本でも、欧米の開発競争に遅れないために、軽圧各社が集まり、通産省の支援のもとでアリシウムという研究会を設立し、1990 年度から 7 年間、製造および材料開発に取り組んだ。しかしながら、欧米も含めて、この合金の課題である破壊靱性、疲労亀裂伝播性などで大きな改善ができず、また製造コストも高いためほとんど実用化には到らなかった。しかし、最近、欧米では Li 量を減らした合金が開発され復活の兆しがある¹³⁸⁾。

最近の航空機材開発の流れは、従来からの高強度高靱性材料の開発ともう一つは航空機製造のコスト低減化に寄与できる材料、技術開発がある。材料開発では、耐食性に優れている 6000 系合金が注目され、米国では 6013 合金が開発された。2024 合金に比べ耐食性が優れるためクラッド材を用いる必要がなく、さらに腐食環境に晒された後の疲労強度は 2024 合金と同等である¹³³⁾。日本においても、前述したように川崎重工と住友軽金属は日本航空宇宙工業会の委託研究として、2024 合金-T3 材に匹敵する耐食性に優れた高強度 6000 系板材を開発し、航空機に適用する検討を行った。この板材を用いると、従来 2024-O 材で成形し、焼入れしていた工法が、T4 で成形し、成形後人工時効する工程が可能となり、焼入れによるひずみ矯正が不要で製造コスト低減となる¹³⁹⁾。この合金はまた、Fig. 45 に示すように、従来の 2000 系合金ではできなかった中空薄肉ホロー材材が押出可能で、

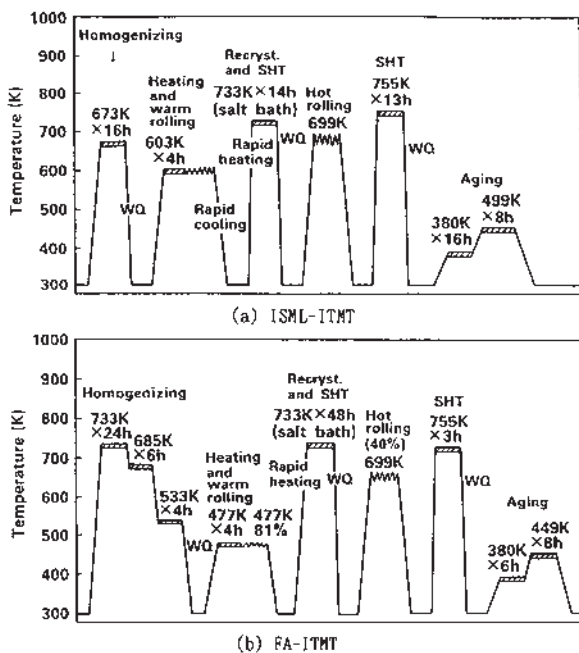


Fig. 44 Intermediate Thermomechanical Treatment for thick plates of airplanes¹³²⁾

複雑な形状の航空機部品の一体化成形ができ、従来リベット接合が不要になり、低コストで製造できることが明らかとなった¹⁴⁰⁾。佐野秀男博士の努力で、高強度高成形

6000系合金は2013合金として、Aluminum Associationに国際登録され、その押出材は米国の航空機規格MMPDSを取得している。接合の分野では、従来、リ

Table 14 Aluminum alloys for aircrafts

Alloy	Year	Country	Zn	Mg	Cu	Mn	Cr	Zr	Ti	Fe	Si
2024	1954	USA	0.25	1.2-1.8	3.8-4.9	0.30-0.9	0.10		0.15	0.50	0.50
2324	1978	USA	0.25	1.2-1.8	3.8-4.4	0.30-0.9	0.10		0.15	0.12	0.10
2524	1995	USA	0.15	1.2-1.6	4.0-4.5	0.45-0.7	0.05		0.10	0.12	0.06
2026	1999	USA	0.10	1.0-1.6	3.6-4.3	0.30-0.8		0.05-0.25	0.06	0.07	0.05
2027	2001	France	0.20	1.0-1.5	3.9-4.9	0.50-1.2		0.05-0.15	0.08	0.15	0.12
7075	1954	USA	5.1-6.1	2.1-2.9	1.2-2.0	0.30	0.18-0.28		0.20	0.50	0.40
7475	1969	USA	5.2-6.2	1.9-2.6	1.2-1.9	0.06	0.18-0.25		0.06	0.12	0.10
7050	1971	USA	5.7-6.9	1.9-2.6	2.0-2.6	0.10	0.04	0.08-0.15	0.06	0.15	0.12
7150	1978	USA	5.9-6.9	2.0-2.7	1.9-2.5	0.10	0.04	0.08-0.15	0.06	0.15	0.12
7055	1991	USA	7.6-8.4	1.8-2.3	2.0-2.6	0.05	0.04	0.08-0.25	0.06	0.15	0.10
7349	1994	France	7.5-8.7	1.8-2.7	1.4-2.1	0.20	0.10-0.22	Zr+Ti0.25		0.15	0.12
7449	1994	France	7.5-8.7	1.8-2.7	1.4-2.1	0.20		Zr+Ti0.25		0.15	0.12
7040	1996	France	5.7-6.7	1.7-2.4	1.5-2.3	0.04	0.04	0.05-0.12	0.06	0.13	0.10
7085	2002	USA	7.0-8.0	1.2-1.8	1.3-2.0	0.04	0.04	0.08-0.15	0.06	0.08	0.06
7056	2004	France	8.5-9.7	1.5-2.3	1.2-1.9	0.20		0.05-0.15	0.08	0.12	0.10
7140	2005	France	6.2-7.0	1.5-2.4	1.3-2.3	0.04	0.04	0.05-0.12	0.06	0.13	0.10
ESD	1936	Japan	8	1.5	2	0.50	0.25				
ZC88	1999	Sumitomo	8.8	1.7	2.3			0.15			

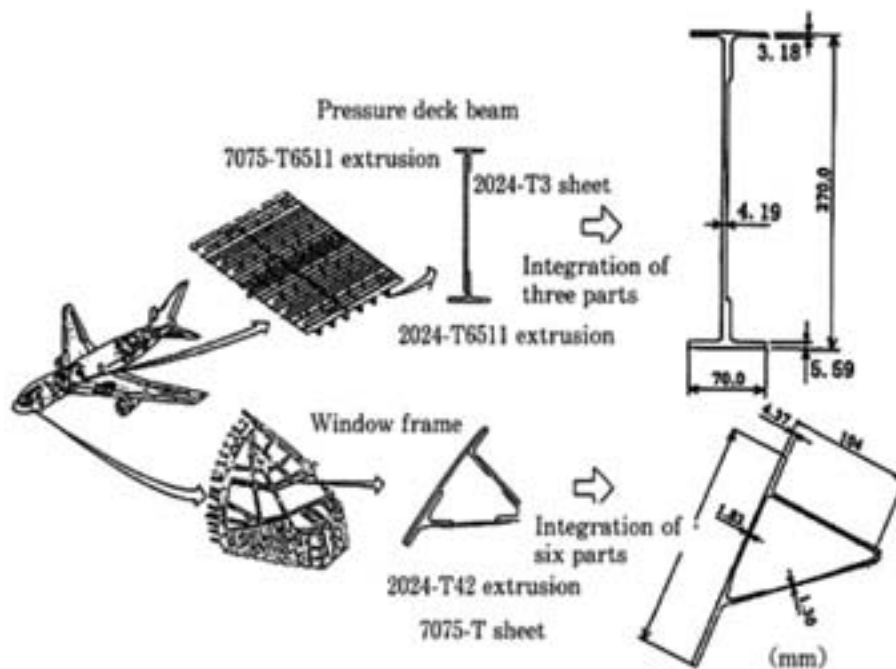


Fig. 45 Application of new alloy 2013 extrusions to integrated structures in a pressure deck beam and a window frame^{128, 129, 140)}

ベット接合でしか接合できなかった 2024, 7075 合金が摩擦攪拌接合 (FSW) で、Fig. 46 に示すような三菱重工と共同で 7050 合金押出型材を FSW で接合して幅の広い主翼が製造できることを明らかにした¹⁴¹⁾。これも従来厚板から大半切削加工して製造していた翼の材料歩留をあげ、航空機製造の低コスト化に寄与できる開発である。

高強度高靱性合金の開発では、従来の ESD の強度を凌駕する合金の開発が求められている。最近、三菱重工が小型近距離旅客機 MRJ (Mitsubishi Regional Jet) の開発、生産、販売を始めるとのことで、再び日本の航空機産業が活性化し始めた。70 年前、名古屋の地に生産拠点を移して航空機材料を製造してきた住友がこの地の利を活かして、これをビジネスチャンスとして捉え、これまでの航空機材料開発の研究成果をもとに、再び航空機材を本格的に製造することはその伝統を引継ぎ、さらに発展をさせるためには必要なことであろう。航空機材料を開発するには、材料面での高度な研究開発力が問われ、製造面でも通常材料に比べて非常に難しいので新たな技術開発力が求められている。住友の DNA を活かして、研究と製造の協体制度が不可欠である。このような研究開発は当然のことながら、そのほかの一般材への性能向上、品質向上への波及効果が期待できる。

4.8 最近の研究 応力腐食割れはどこまで 解明できたか？

2008 年京都で開催された軽金属学会軽金属セミナーの特別講演で、92 歳になられた村上教授は矍鑠とした

口調で「アルミニウム合金の時効析出にまつわる歴史と進歩」を講演された⁸⁵⁾。そのテキストに「筆者の卒業論文のテーマは高力 Al-Zn-Mg 合金の SCC であった。当時から SCC は高力アルミニウム合金の最大とも言うべき課題であった。双結晶試料を調整し、ブリネル硬度計の圧痕で応力を与えて、3%NaCl 中で浸漬して、割れの時間と組織の様相を調べるのに種々苦労した思いが強く残っている。その後も研究室で、黄銅の SCC を含めて多くの研究を行なった。SCC は黄銅では古くから知られているが、アルミニウム合金では必ず粒界から起ることが特徴であることはすでにレプリカ法電顕の筆者の研究でも述べた。SCC は特定の腐食環境と引張応力が同時に作用した場合に著しい脆性破壊を起こす現象で、それらが別々に作用した場合には決して起らない」とある。村上教授が卒業された 1942 年 9 月頃は西村教授らが主導された HD 合金の研究開発が真只中であつたことがわかる。応力腐食割れの研究が村上教授の学生時代からのテーマであつたことはこのとき初めて知った。

さて、Al-Zn-Mg 系合金の応力腐食割れに関しては、1974 年 5 月の「軽金属」の「Al-Zn-Mg 系合金の応力腐食割れ」と題して、馬場義雄博士がまとめたシンポジウムの報告書がある^{142,143)}。このシンポジウムの背景について「ここ数年のあいだにわが国でも急速に車両構造物の強度メンバーとして使用されるようになってきたこの Al-Zn-Mg 系合金も、アルミニウム合金中では比較的応力腐食割れ感受性が強いために、その実用化に際して非常に数多くの研究と努力がなされてきた。現状では一応問題なく使われているものの、熱処理などで故意に強度を下げる場合もあり、材料的には決して十分に完成されたものとはいえない。このシンポジウムでは Al-

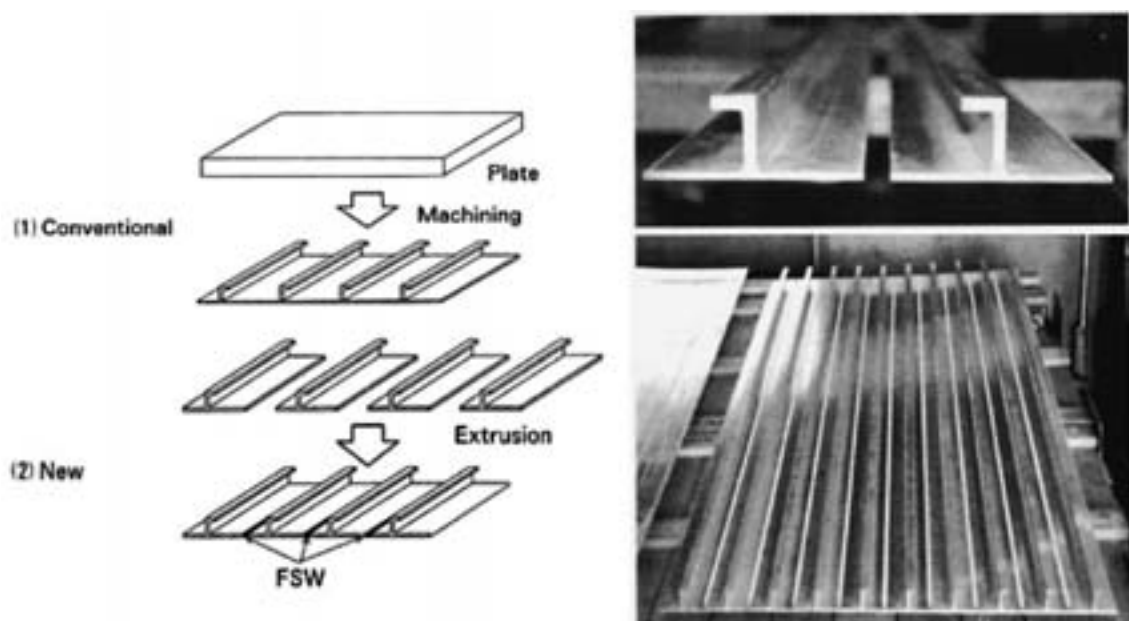


Fig. 46 Large integral wing panel made by friction stir welding^{117,131)}

Zn-Mg 系合金の応力腐食割れに関する現象と機構を多面的に検討して、今後の新しい合金材料開発の指針をつくるのがねらいであった」とあり、シンポジウム最後に村上博士が全体の問題点を総括している。この報告書のむすびで、馬場博士は「応力腐食割れに影響する因子としては、合金組成、微量添加元素、鋳塊の健全性、均質化処理、鍛錬加工法、焼入れ速度、時効熱処理、結晶組織と方向性、粒界構造、無析出帯、粒内析出相の整合と非整合性などきわめて多い。さらに単一の因子が影響するのか、多数の因子の複合効果が大きいのか、とくにこれらに対して定性的でなくより定量的な議論ができることが望ましい。今後さらに深く検討されることを期待したい」と結んでいる。

1981年に、村上教授が「軽金属」に「アルミニウム合金の応力腐食割れ」のレビューを執筆している¹⁴⁴⁾。この中で、「アルミニウム合金は合金の強度が高くなるほど、SCCの感受性が著しくなるので工業的にも極めて重要視され、基礎的にも実用的にも多くの研究が行われ、実用合金ではSCC防止の効果的な対策が判明している、正しい状態で使用する限りでは、大きい問題を起こすことはない」と述べ、むしろSCCのメカニズムに関して陽極溶解機構説と水素脆化機構説の大きな対立があることを明らかにした。ここで従来からいわれてきた陽極溶解説について、村上博士は次のようにまとめている。「一般に、SCCは不動態皮膜などの保護皮膜の形成されやすい合金に起こり、局部腐食が重要な因子と考えられている。不動態皮膜が形成される場合に、機械的な引張応力は表面保護皮膜を破壊する作用を与え、その下から露出した金属は適当な電気化学的条件下で陽極として作用し、そこに優先的な溶解が起こり、クラックの形成が起こる。低温時効ではGPゾーンで強化されているような場合には、GPゾーンは転位によって剪断されやすいので転位は平面的な配列をして表面に大きいすべりのステップを生じ保護皮膜を局部的に破壊する。引張り応力が引き続いて作用すると皮膜の修復作用が起こってもすぐにまた破壊されるので、常に露出状態を生じ、優先的な腐食反応が促進されて破壊が起こる」という説である。「クラック先端に溶解が集中的に起こり、割れの伝播が電気化学的な溶解によって起こるという考え方であるが、このような腐食作用だけでは、実際のSCCの際のクラックの速い伝播速度を説明することに無理があった」ので、これを補足するために機械化学的陽極モデルも提唱されている。連続的な応力集中による塑性変形が直接的に陽極溶解を助ける、すなわち、局部的な塑性変形が局部的な溶解を加速して、溶解が急速に進行するというモデルである。

2008年のセミナーのテキスト⁸⁵⁾では、村上教授は「Al-Zn-Mg系合金のSCCの機構に関する初期の研究では、陽極溶解説が主流であった。時効熱処理によって粒

界にPFZが生じる。PFZは強化に寄与する析出粒子がなくて弱いので応力集中が起こり、メカノケミカルな優先的陽極溶解が起こり、クラックが形成され、その成長・伝播で割れに至るというものである。したがって、PFZの幅、粒界および粒内析出粒子の種類と分布などの因子が考えられていた。1963年頃、ドイツVAWのW. Gruhlが水素脆性説を提唱し始めると、この説が支持を挙げ、現在では陽極溶解説に替わって水素脆性説が一般に受け入れられている」と水素脆性説が有力になっていることを述べている。この水素脆性説を裏付けるものとして、「あらかじめ、湿度の高い雰囲気中で均一化熱処理を行うと、SCCを生じるが、真空処理をしたり、室温で長時間放置すると、耐SCC性が回復すること、この過程が可逆的であること、変形の様式ではモードIがモードIIIよりも著しいSCCを生じること、水素添加によってSCCが生じること、SCC破壊面で析出物の溶解による破壊がみられないことなどによって、Al-Zn-Mg系およびAl-Mg系のSCC中のクラックの進展は陽極溶解によるのではなく、水素脆性によるものと考えられている」。

この水素がSCCとどのように関わっているかそのメカニズムについてまだ不十分であるが、村上教授によるとオージェ電子分光法を用いて粒界での溶質原子の偏析について測定することにより、MgとZnは粒界に偏析し、Znの大部分はMgZn₂析出相を形成するが、かなりのMg原子は原子状態で存在することなどが明らかになっている。この原子状Mgと、MgのHに対する大きな親和力によって、Mg-H相互作用が生じることや「表面酸化膜は粗大粒子の近傍でH₂Oの侵入を許す。Cl⁻があればさらに容易になる。酸化膜が破れ、マイクロクラックが形成されると、H₂Oによって粒界領域に溶解が起こり、クラックの先端のpHは~3.5程度であるので、H⁺+e⁻→Hが生成し粒界に吸着する。MgはHを粒界に引留める役目をし、三軸応力場ではHはクラック先端に濃縮して、クラックを進展させ水素脆性を引き起こす。もし粒界に粗大な粒子が存在していると、Hを再結合させH₂ガスとして放出する」といったメカニズムが現在のところ考えられているとのことである。

小職は日本金属学会会報に馬場博士と連名で「アルミニウム合金の粒界破壊」と題して、アルミニウム合金の粒界破壊に及ぼす要因とその防止法についてまとめた¹⁴⁵⁾。その中で、最後に「合金系によっては水素が粒界でトラップされ金属原子と結合するために、結晶粒界での塑性変形能を失ったり、あるいは結合エネルギーの低下となって、応力腐食割れの原因ともなっている」と書き、アルミニウム中の水素の役割を「塑性変形を担っている金属結合あるいは他の結合も含めた化学結合の観点にまで遡ることが必要であろう」と述べた。この視点は現在でも変わっていない。

最近、水素を直接観察しようとする流れは強まっている。1990年頃、東京大学生産技術研究所の斉藤秀雄博士と(故)石田洋一教授は薄膜電顕試料を用いて電解チャージによりトリチウムを導入して、加熱中の放出特性や試料表面にオートラジオグラフィ用の写真入膜剤を塗布し、トリチウムから放出された β^- 線が照射された塗膜中の臭化銀と反応し、現像処理で銀粒子となり、この現像銀粒子を電子顕微鏡で観察する手法を確立した¹⁴⁶⁾。この手法を用いて鉄や鋼、Al-Li合金などの水素の存在状態を検出した。同じく東京大学の岡田浩博士(現日本軽金属)、伊藤吾朗博士(現茨城大学教授)、菅野幹宏教授らの研究グループは同じくトリチウムオートラジオグラフィを用いて水素の挙動を調べようとしたが、電解(陰極)チャージ法ではチャージ後室温大気中に数日間放置し、応力腐食割れ性に関与する可能性の高い拡散性のトリチウムを試料外に放出させた後に露出を行なう必要があるため、応力腐食割れと直接関係する結果は得られにくいと考え、溶湯とトリチウム水蒸気との反応によって直接トリチウムを添加する溶湯反応法を考案した¹⁴⁷⁾。これによって鑄造で混入する水素の影響がわかる。Al-3%Li合金を溶湯反応法でトリチウムを導入し通常の圧延、焼入れ、時効処理を行なった試料をオートラジオグラフィで観察すると、粒界に析出した δ 相の界面付近に水素が存在することがわかった。茨城大の伊原智章氏、泉孝裕氏、伊藤吾朗教授は、オートラジオグラフィはトリチウムの取り扱いが危険で特殊な設備を有したところでしか実験ができないため、水素マイクロプリント法を用い水素の存在状態を把握しようとした。水素マイクロプリント法は写真用乳剤を試料の片面に被覆することで、材料中から放出される原子状水素を可視化する手法である。材料中から放出される水素は臭化銀を還元して金属銀となる。この銀粒子をSEMで観察することで水素の存在位置を知ることができる^{148,149)}。この手法で、片面に乳化剤を被覆し、もう一方の片面から水素ガス圧0.2MPaで30分負荷し、7075、7475合金の水素透過能を調査した¹⁵⁰⁾。この結果、水素透過量は、再結晶組織のほうが未再結晶組織よりも多く、T6材のほうがT7材よりも多く、また不純物量が増すと多くなることを明らかにした。水素の放出サイトはAl₇Cu₂Feのような晶出物であった。このことは侵入サイトも同じ晶出物と

推定された。なお重結晶粒を構成する転位や析出相と母相の界面のミスフィット転位は水素のトラップサイトとして働くと考えられた。

このような水素透過性は堀川敬太郎准教授らによって高圧水素貯蔵用アルミニウム合金として7000系合金が適正かどうか¹⁵¹⁾、また大崎修平教授らによって水素脆化特性すなわち応力腐食割れ感受性との関連で議論されている¹⁵²⁾。大崎教授らの議論で興味深いことは低ひずみ速度法試験で、7003-T6合金のほうが7N01-T6合金よりも水素脆化感受性が高いという結果になったことである。ここでいう水素感受性指数というのは、乾燥窒素ガス(25℃)雰囲気での引張試験での伸び(X_0)から相対湿度90%の湿潤空気(30℃)での引張試験での伸び(X)を引いた数値を X_0 で割った値(I)($I = (X_0 - X) / X_0$)をいう。この原因として、7N01合金にはMn系分散物が平均粒径82nmとなり大きく、また7003系合金に比べ面積率で2倍以上存在していたことを挙げている。これらの化合物が水素バブルの核発生サイトとしても十分なサイズであり、水素のトラップ、再結合サイトとしてこれらが粒内に水素を停留させる寄与を果たしたものと推定している。表面に露出した第二相粒子は水素の優先的な侵入サイトである可能性が高いばかりでなく、同時にその母相界面は水素再結合サイトにもなると考えている。7N01合金の高い水素脆性の割れ抵抗は表面における水素侵入および粒内での水素トラップあるいは再結合による水素輸送がそれぞれ抑制されることで粒界割れの進行が遅れたためと結論付けている。

九州大学(2013年3月まで豊橋技術科学大学)の戸田裕之教授のグループは精力的にSpring-8での放射光を用いX線トモグラフィの手法で3D、4D観察を行って、Fig. 47に示すようにポアの発生、成長を可視化している^{153,154)}。ポアの大半は固溶限を超えた大量の水素が様々な水素トラップサイトに集積し分子状水素となり形成されたものである。これらのポアは鑄塊の熱処理、加工で成長、合体、消滅と変化するので、こうした水素マイクロポアの制御が今後重要となってくる。また元豊田工業大学の上田一之教授は電子励起イオン脱離法を応用して走査型水素検出顕微鏡を開発し¹⁵⁵⁾た。その結果、空間分解能500nmで水素の二次元分布を可視化できるようになった。教授によると、今後、バルク試料の結晶

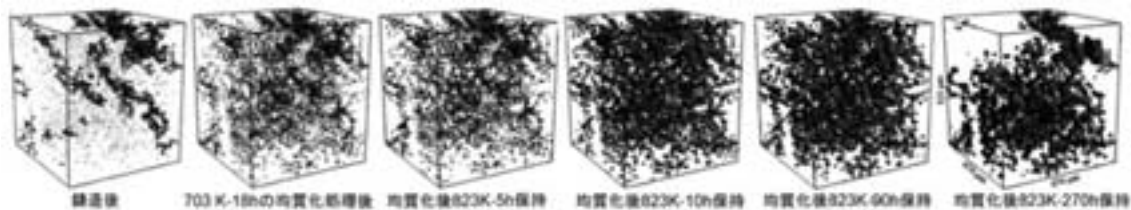


Fig. 47 Growth, coagulation and annihilation of hydrogen micro-pores during heat treatment of Al-5%Mg Cast Material¹⁵³⁾

粒界での水素の状態分析や可視化も可能になるとのことである。

以上の最近の研究で、水素の可視化やその存在状態が明らかになりつつある。これらの結果は従来からの応力腐食割れの原因解明につながっているかどうか問題である。五十嵐博士は、クロム添加で割れ寿命が長くなったのは、クロム添加で局部腐食から全面腐食に変わったからと考えた。戦後はクロム添加で結晶粒界が亜結晶粒界となったために割れにくくなったと考えられた。では同じように亜結晶粒界を形成する微量添加元素 Mn, Cr, Zr に関して、その違いはあるのかどうか、あるとすれば何が効いているのか、クロム添加では Al-Zn-Mg 系は Al-Zn-Mg-Cu 系よりも応力腐食割れに敏感だといわれているがそれはなぜか、また微量 Cu 添加すると肉厚方向の耐応力腐食割れ性はなぜ向上するのか、まだまだ疑問が多い。負荷応力をかけると一定時間後に割れが生じるので、その時間は何に支配されているのか、化学反応との関連で議論を進める必要がある。また水素との関係では、水素ミクロポアと応力腐食割れの関係はどうか、また内在した水素と環境から侵入した水素の区別はつくのか、内在した水素は応力腐食割れには関係しないのか、さらに粒内あるいは粒界を拡散する水素は水素イオンなのか原子状水素であるのかどうか、Mg-H 結合が生じるとした場合、どの程度の結合力か、どの程度上述の結合が生成したら粒界の結合力は弱くなるのか、化学結合論的な検討が必要である。応力腐食割れは材料を高強度化しようとするとき必ず直面する課題であるが、これを完全に防止することは出来ていない。未だ実用的に問題とならない範囲で用いているだけである。化学反応、化学結合の面からの解明が急がれる。こうした現状を踏まえ、軽金属学会研究委員会では「アルミニウム合金中の水素」部会を立ち上げた。総合的な検討を加え、その水素の制御法が明らかになれば材料開発も新たな発展を向かえるであろう。

5. おわりに

本稿を執筆した直接の動機は、既に述べたが、ICAA 国際会議で ESD について世界ではあまり知られていなくて、これは我々の PR が足りないのではないかと思ったことである。もちろん先輩諸氏がいろんなところで書かれたものはあるがまとまったものが少ないのが現状かと思う。小職としては以前から自分の研究の位置づけをするためにも、何らかのアルミニウム合金の発展史が必要だと思い、古くから神田の古本屋街でアルミニウムに関する古書を漁っていたことも背景にあった。さらに竹内勝治博士がすでにこの住友の「技術の歩み」²⁾や「アルミニウム合金展伸材—その誕生からの半世紀—」¹⁾をまとめられており、これを材料屋の観点からまとめてみたいとの思いもあった。この思いは永田公二博士が「超々

ジュラルミンに対していつから始めたのか、ESD のネーミングの経緯は、応力腐食割れはどのようにして解決できたのか」ということを解明するために図書館の奥深く入って調査され、軽金属に「わが国アルミニウム産業の明るい未来を拓くために—温故知新— back to the Future—」⁷⁴⁾を発表されて、その思いは一層強くなった。先輩方の熱き思いを引き継いで後輩たちに伝えるためにも、ESD 開発とその後の歴史をまとめることは航空機材料の開発に携わった小職の使命だと考え、「超々ジュラルミンと零戦」というタイトルで、アルミニウムの歴史および住友軽金属の歴史を書いてきた。ただ戦後の住友軽金属の発展は建材、缶材、熱交換器材、自動車材に支えられていてこれらの発展の歴史も書かねば片手落ちのそりも免れないが、ご容赦願いたい。また材料開発にはそれが実現するためには製造技術の発展がないとできない。製造技術の発展では、竹内勝治博士の著書がなければ本稿はとてどもまとめることはできなかった。それとともに、大いに参考になったのが京都大学西村秀雄教授の「軽金属研究雑話」と称する軽金属研究に関する膨大な随想録は教授の考え方が反映され、その時代の学問の雰囲気を感じることができ、今でも十分通用できる生きた教科書である。この DNA は村上陽太郎教授の著書「新素材・新技術」(I~V)の中にも引き継がれている。

このアルトピアに連載中に二つの大きな出来事に遭遇した。一つは、住友軽金属と古河スカイとの経営統合であり、二つ目は馬場義雄博士の逝去であった。一つ目の古河スカイとの統合は、いずれどこかの統合は予想されたが意外と早く訪れた。小職は直接経営に携わっていないのでどの時点から統合の話になったかは詳らかではない。古河スカイとはほぼ同じ分野で競合していただけに競っていた担当者には複雑な思いがあったようである。しかし日本でのアルミの歴史から見ると戦前は航空機分野でジュラルミン、超ジュラルミン、超々ジュラルミンを同様に製造し、戦後も分野は違うが同じユーザーで競っていたので、実際やっていることは蓋を開けてみればほぼ同じであることはほぼ推測できる。お客が同じであれば同じ要求に応えるために同じように必死になることは当然である。今後は世界にでて外国勢と戦うことが必要になるので、小職にとって同じことを研究・製造している両社の統合は当然の成り行きだと考えている。お互いの文化の違いを乗り越えてお互いの強みを活かして 1+1 が 3 以上になるよう発展していくことを期待するものである。本稿は自分にとっても節目であったが、会社にとっても節目にあたり、住友軽金属の名前がなくなる直前でその歴史をまとめることができたことは偶然とはいえ感慨深いものがある。二つ目は馬場博士の 77 歳での惜しまれる逝去である。この原稿に最初に眼を通していただいたのが馬場博士である。小職にとって直接の上司でもあったが、何よりも五十嵐博士の材料開発を継いだのが戦後は馬場博士との思いが小職にはあるからで

ある。博士は戦後の住友軽金属の材料開発のほとんどを手がけたといえよう。馬場博士からの感想は一言五十嵐博士をあまり神格化するなよと言われたように記憶している。いつもながらクールな馬場博士の言葉である。馬場博士には昨年小職から是非若い研究者に開発初期の苦労話をお願いしますと申しあげたところ、徐々に住友軽金属から配当がでたのでお礼に講演をしようということになった。博士が退社して10年振りの講演である。過去のエピソードを交えた貴重な講演であったが、最後に、締めくくりとして開発に成功するためにはということで、第一に、(最近のTPPを振られたのか、)新製品開発の基本はTP³であり、TP³とは①Timely, ②Professional, ③Production Process and Price (Cost), ④Patent (Key Technology) が重要と考えている。第二に、Seeds 研究は成功するのは難しく、10~20年要する。Needs 研究の方が効率が良い。第三に、やるからにはTopを狙うことであって欲しい。第四に、最低一回は成功体験が必要である。しかし、成功体験は捨てることが重要である。第五に、努力なくして将来なし。最後に、開発をしっかりやって、中国に真似のできないようなものを作ってほしいと述べられた。これが奇しくも最後のメッセージ、遺言となった。我々は、馬場博士の遺言を肝に銘じながら、グローバルで戦う準備をしていく必要がある。

最後に受け継ぐべき住友のDNAは何であるのか、材料屋の立場から考えてみる。我々はいつもユーザーの「無理難題に答える」ことで材料開発をおこなってきたことである。戦前は海軍の要求に答えることでESDを開発してきた。戦後は缶、印刷板、熱交換器、自動車、二輪車、鉄道などのユーザーの要求に答えることで、ユーザーの信頼を勝ち取り、生き残ってきたと言えよう。このことは住友だけとは思えないが、むしろ難題に答えられるだけの研究力や技術力を日頃から培っていることが重要であろう。研究力は優れた観察力とそれを理解する能力であろう。ものを見るというのはある程度予測する能力がないと見えるものも見えてこない。折角の宝物もゴミにしか見えない。大学出たての新人が大学で習ってきた理屈で現象を説明しようとするが、それでできるほど現象は単純ではない。五十嵐博士の言葉を借りるのなら、「自社の歴史、人、技術等の一切を体得することが第一。4~5年はかかる。学校の講義だけでは駄目」で、やはり実際に生じている現象を良く観察して、「どうしてだ、どうしてこうなるのかなと繰り返し、徹底的に突っ込んで」そこから理論を組み立てて行く能力が求められる。「理論も実験も日に日に進んでこそ工業も発展する。未熟な理論を絶対だと考えてもらっては困る」。「思った結果と矛盾した事実が示されたときのみ進歩があり、発展がある」と考え、現象と合わない理論にいつまでも拘泥する必要はない。見えているものだけで説明しようとしないことも重要で、見えないものも見る能力が必要で

ある。機器分析が発展してきて、いずれ見えてくることを想定してそれに耐えられる考え方が重要である。技術力においても、日頃研究者は生産現場と接触していると、自分たちの製造できる技術の枠の中でしかものを考えなくなる。日本にある圧延技術はほとんどアルコアやアルキャンから習得したものである。同じ技術であれば基本的に同じものしか出来ないであろう。過去の研究や鉄鋼などの製造技術も学びそれらの技術も取り込みながら、従来と違った発想で製造することを考えることも重要である。材料屋は何がしたいのかしっかりとメッセージをだせば製造現場も協力してくれるはずである。「決められたことを忠実に実行して、ものにするのが、現場の使命です。難しい事も毎日やっている、上達するものです」という先人の言葉に励まされる。技術も難しい材料をやればやるほど創意工夫が必要である。その点、航空機材料は最も難しい材料の一つで、高性能で高品質が要求される。逆に航空機材料を製造していますということはユーザーの高い信頼を勝ち取ることに繋がる。原理を追求して最短のコースで製造する技術を確認していくことは商品化していく上でとても重要である。どんなにいい材料でも商品化できなければ企業の研究としては成功したとはいえないであろう。先人のいい所を学び、そのDNAを引き継いで新材料・新製品を開発し、世界の企業として飛躍してくれることを期待したい。

参 考 文 献

- 1) 竹内勝治：アルミニウム合金展伸材—その誕生から半世紀—, 軽金属溶接構造協会, 1986.
- 2) 竹内勝治：技術の歩み, 住友軽金属工業株式会社, 1995. (非売品)
- 3) 住友軽金属年表 (平成元年版), 住友軽金属工業株式会社, 1989年.
- 4) 牧野光雄：飛行船の歴史と技術, 成山堂書店, (2010).
- 5) 秋本 実：日本飛行船物語, 光人社, (2007).
- 6) <http://www.ne.jp/asahi/airplane/museum/nakajima/nakajima.html>
- 7) 松田 孜, 東尾伸吉, 田村正郎：研究報告, 住友伸銅鋼管株式会社, 1 (1932), 1.
- 8) W. Sander : Z. Metallkunde, 19 (1927), 21.
- 9) A. von Zeerleder : *The Technology of Aluminium and Its Light Alloys*, Nordemann Publishing Company, Amsterdam, (1936), 26.
- 10) G. Eger : Inten. Z. Metallog., 4 (1913), 29.
- 11) 西村秀雄：随筆・軽合金史 (其 14), 軽金属時代, No.185 (1949), 9.
- 12) W. Sander and K. L. Meissner : Z. Metallkunde, 15 (1923), 180., 16 (1924), 12.
- 13) 西村秀雄：随筆・軽合金史 (其 15), 同上, No.186 (1950), 2.
- 14) 西村秀雄：随筆・軽合金史 (其 25), 同上, No.196 (1950), 2.
- 15) 松田 孜：超「ジュラルミン」の研究 (第一報), 研究報告 (社内), デュラルミン, No.1576.

- 16) 五十嵐 勇：五百旗頭式超 Duralumin 製作に関して海軍技術研究所へ出張報告，研究報告（社内），デュラルミン，No.2167.
- 17) 五十嵐 勇：航空機用材としての軽合金の研究（学位論文），（1939），37.
- 18) 山本正雄：Duralumin 製造の憶ひ出，軽金属時代，198（1951），5.
- 19) 平林 眞編：本多光太郎—マテリアルサイエンスの先駆者—，本多記念会監修，アグネ技術センター，（2004），11.
- 20) 五十嵐 勇：研究室の片隅から，軽金属，5（1952），29.
- 21) 松田 孜：米国製“24SRT”板 試験成績（第1報），研究報告（社内），デュラルミン，No.2381
- 22) 田邊友次郎：住友金属工業・研究報告，第2巻第2号（1934）p.147.
- 23) M. B. W. Graham and B. H. Pruitt：R&D for Industry, A Century of Technical Innovation at Alcoa，Cambridge,（1990），183
- 24) 田邊友次郎：日本金属学会誌，1（1937），107.
- 25) 五十嵐 勇：超高力軽合金の探求（No.1），社内研究報告書，No.3326，（1935）.
- 26) 西村秀雄：随筆・軽合金史（其29），軽金属時代，No.200(1951)，10.
- 27) 深井誠吉：北原五郎氏の逝去を悼む，住友軽金属・社内報，No.144，11月（1971），9.
- 28) 軽金属工業発達史（其の一），航空機用軽金属材料について，第一回軽金属座談会記録，軽金属，6（1953），103.
- 29) 柳田邦男：零式戦闘機，（文春文庫），文芸春秋社，（1980），288.
- 30) 五十嵐 勇，北原五郎：新強力軽合金の研究（其1），鉄と鋼，23(1937)，447.，住友金属・研究報告，第2巻，第9号（1937），883.
- 31) 五十嵐，北原：E. S. D. 新合金ノ「割レ」ニ就テ（第一報），社内研究報告書，デュラルミン，No.3939，（1936）.
- 32) 五十嵐 勇，北原五郎：高力 Al 合金の時期割れと其防止に就て，日本金属学会誌，3（1939），66.，住友金属研究報告，第3巻，第6号（1939），531.
- 33) 五十嵐 勇：日本金属学会誌，6（1942），316.
- 34) 特許第135036号，鍛錬用強力軽合金，五十嵐 勇，北原五郎，昭和15年2月28日.
- 35) 幸田成康：時効硬化研究の歩み，合金の析出（幸田成康監修），丸善，（1973），42.，金属学への招待，アグネ技術センター，（1998），135.
- 36) 小山克己：高強度・耐熱性アルミニウム合金，Furukawa-Sky Review，6（2010），7.
- 37) 五十嵐 勇，北原五郎：新強力軽合金の研究（其の4），住友金属・研究報告，第3巻，第1号（1938），1.
- 38) 五十嵐 勇，北原五郎：新強力軽合金の研究（其の5），同上，第3巻，第3号（1938），232.
- 39) 五十嵐 勇，北原五郎：新強力軽合金の研究（其の6）軽合金RR77に就て，同上，第3巻，第3号（1938），247.
- 40) 五十嵐 勇，北原五郎：新強力軽合金の研究（其の2）超々ジュラルミン“ESD”及其ノクラッド材“ESDC”ニ就テ，同上，第3巻，第5号（1938），455.
- 41) 田邊友次郎：軽合金雑筆—追想と見透—，軽金属時代，186（1950），5.
- 42) 吉田英雄：五十嵐博士の生家を訪ねて，軽金属
- 43) 五十嵐 勇：耐食性アルミニウム合金，軽金属及軽合金最近の進歩，工業図書株式会社，（1937），182.
- 44) 堀越二郎：零戦，その誕生と栄光の記録，カップブックス 光文社，（1970）.，角川文庫，（2012）.
- 45) 堀越二郎，奥宮正武：零戦（文庫版），朝日ソノラマ，（1982），学研M文庫（2013）.
- 46) 吉村 昭：零式戦闘機（新潮文庫），新潮社，（1978）.
- 47) 零戦のしくみ，新星出版社，（2011）
- 48) 堀越二郎：零戦の遺産（光人社NF文庫），光人社，（1995）.
- 49) おちあい熊一：零戦激闘伝説 謎101，学研パブリッシング，（2009）.
- 50) 特集，汎太平洋平和博覧会，ニューズレター，Vol.62（2004），財団法人名古屋都市センター，http://www.nui.or.jp/news_letter/16/pdf/vol62-1.pdf，他に http://underzero.net/html/tz/tz_213_1.htm，<http://network2010.org/article/147> 参照.
- 51) 北島正和：ベルリンからの手紙，第二次世界大戦，大空襲下の一技術者，中央公論事業出版，（2005）.
- 52) 畑 栄一：ESDと割れ，本誌，29（1988），91.
- 53) 飯島嘉明：超々ジュラルミンと五十嵐勇，金属，76（2006），1132.
- 54) US Patent 2,240,940. Aluminum Alloy, J. A. Nock, Jr., ALCOA, Application Sept. 28, 1940. Patented May 6, 1941.
- 55) J. T. Staley：History of Wrought-Aluminum-Alloy Development, Aluminum Alloys-Contemporary Research and Applications, Edited by A. K. Vasudevann and R. D. Doherty, Treatise on Materials Science and Technology, Vol.31, Academic Press, Inc.,（1989），3.
- 56) E. H. Dix, Jr.：Aluminum Alloys-1940 to 1950, Metal Progress,（1950），484.
- 57) M. B. W. Graham：R&D for Industry, A Century of Technical Innovation at Alcoa, Cambridge University Press,（1990），263.
- 58) J. A. Nock, Jr.：75S-Alcoa's New High-Strength Aluminum Alloy, Metals and Alloys,（1944），922.
- 59) J. A. Nock, Jr.：Commercial Wrought Aluminum Alloys, Physical Metallurgy of Aluminum Alloys, ASM,（1949），167.
- 60) H. Y. Hunsicker：History of Precipitation Hardening, The Sorby Centennial Symposium on the History of Metallurgy, ed. by C. S. Smith, Gordon and Breach Science Publishers,（1963），271.
- 61) E. A. Starke, Jr.：Precipitation Hardening：From Alfred Wilm to the Present, Aluminium Alloys, Their Physical and Mechanical Properties, (ICAA11 in Aachen) Vol. 1 Edited by J. Hirsch, B. S. Skrotzki and G. Gottstein, DGM, Wiley-VCH,（2008），3.
- 62) T. Sato：Innovative Development of Aluminium Research and Technologies in Japan, Proceedings of the 12th International Conference on Aluminium Alloys, Edited by S. Kumai and etc. The Japan Institute of Light Metals,（2010），1.
- 63) H. Yoshida：Alloy Development for Transportation in Sumitomo Light Metal, Proceedings of the 12th International Conference on Aluminium Alloys, Edited by S. Kumai and etc. ibid.,（2010），54.
- 64) 西村秀雄：随筆・軽合金史（第34，35，38回），軽金属時代，No.205(1951)，6.，No.206（1951），2.，No.209(1951)，

- 11.
- 65) 五十嵐 勇, 深井誠吉: (対談)研究の今昔とそのありかた, 住友軽金属(社内報), **68** (1965).
- 66) 寺井士郎: ジュラルミンとESD開発における創造性, 本誌, **29** (1988), 93.
- 67) 佐藤史郎: 最近, 想うこと…「セレンディピティについて」, アルミニウム **11** (2004), 38.
- 68) 深井誠吉: ESDについての思い出, 本誌, **29** (1988), 87.
- 69) 吉田英雄: 超々ジュラルミンの発明者, 五十嵐 勇博士の生家を訪ねて, 軽金属, **62** (2012), 502.
- 70) 五十嵐 勇: 住友軽金属技報第15周年を迎えて, 本誌, **16** (1975), 1.
- 71) 五十嵐 勇: アルミニウム技術入門, 鉄鋼新聞社, (1969)
- 72) 深井誠吉: 名誉員五十嵐勇先生の御近況, 日本金属学会誌, (1963年), 149.
- 73) 高島 章: 零戦あれこれ, 軽金属, **60** (2010), 475.
- 74) 永田公二: わが国アルミニウム産業の明るい未来を拓くために-温故知新, Back to the Future-, 軽金属, **60** (2010), 192.
- 75) 五十嵐 勇年譜, 非売品, (1987).
- 76) 佐藤眞住, 藤井清隆: 現在の産業, アルミニウム産業, 東洋経済新報社, (1968), 27.
- 77) 林 章: 東京駅はこうして誕生した (ウェッジ選書24), ウェッジ, (2007), 249.
- 78) JR 東日本パンフレット, 東京駅丸の内駅舎保存, 復元〜いま, 甦る赤レンガ駅舎〜, (2007).
- 79) 五十嵐 勇: 圧延材の関所, 鋳物の奔流, 軽金属時代, **160** (1947), 7.
- 80) 西村秀雄: 我が軽金属工業並に学界の進むべき道, 同上, **160** (1947), 4.
- 81) 西村秀雄: 随筆・軽合金史 (第40回), 同上, No.211 (1952), 3.
- 82) 小岩昌宏: 金属学プロムナード, アグネ技術センター, (2004), 127.
- 83) 村上陽太郎: 新素材・新技術 ~第V集~, 大阪科学技術センター付属ニューマテリアルセンター, (2012).
- 84) 村上陽太郎: -金属科学者の回想-, 平成21年度東海水曜会講演会, (2010).
- 85) 村上陽太郎: アルミニウム合金の時効析出にまつわる歴史と進歩, 第31回軽金属セミナー, (2008),
- 86) 河野 修: 析出に伴う結晶構造変化, 合金の析出, 幸田成康編, 1972, 55.
- 87) 村上陽太郎: 金属学とその研究手法の進歩-研究生生活を顧みて(II), 水曜会誌, **23** (2004), 600.
- 88) 西村秀雄: 続軽合金史 (第10回), 軽金属時代, No.231 (1953), 10.
- 89) 西村秀雄: 続軽合金史 (第11回), 同上, No.232 (1953), 2.
- 90) 鈴木秀次: 転位論発展の歴史と将来の展望, 日本金属学会会報, **23** (1984), 445.
- 91) 吉田英雄: 球状黒鉛鑄鉄-基礎・理論・応用-, 張博, 明智清明, 塙健三共編, アグネ, (1983), 24.
- 92) 本居徹也, 福岡 潔, 吉田英雄: 軽金属, **48** (1998), 624.
- 93) 村上陽太郎: アルミニウム合金および銅合金の時効過程, 合金の時効過程とその解釈, 日本金属学会, 1968, 74.
- 94) 村上陽太郎: 最近の非鉄合金の時効析出における問題, その1, アルミニウム合金, 合金の析出, 幸田成康編, 1972, 403.
- 95) 高井美樹, 足立俊輔, 上原敏彦, 正木克明, 氏家隆之: 名古屋製造所の近代化, その1, 新鑄造設備の紹介, 本誌, **34** (1993), 253.
- 96) 上野順一郎, 藤本隆行, 杉江明士, 星野郁弥, 橋爪雅紀, 今西由幸, 岡村義英: 名古屋製造所の近代化, その2, 熱間圧延ラインの紹介, 同上, **36** (1995), 53.
- 97) 疋田達也, 佐野秀男, 毛利英一, 安保満夫: 名古屋製造所の近代化, その3, 押出製品の製造設備紹介, 同上, **36** (1995), 60.
- 98) 原 純: アルミニウム合金製鉄道車両の動向, アルミニウム, 11巻, 25号 (2004), 23.
- 99) 吉田英雄: 輸送機器向け延伸用アルミニウム合金の開発の歩み, 本誌, **46** (2005), 99.
- 100) 小林藤次郎: アルミニウムおよびその合金の加工技術, アルミニウムおよびその合金のアルゴン・アーク溶接 (1), 同上, **1** (1960), 129.
- 101) 寺井士郎, 馬場義雄: 溶接構造用 Al-Zn-Mg 系合金について, 同上, **10** (1969), 42.
- 102) 馬場義雄: Al-Zn-Mg 合金の焼入感受性および析出物の核形成に対する添加元素の影響, 同上, **9** (1968), 24. Y. Baba: Tran. JIM., **7** (1966), 224.
- 103) 寺井士郎, 竹内勝治, 田中英司, 馬場義雄, 中村 授: 溶接構造用アルミニウム合金 ZK41 の機械的性質について, 同上, **8** (1967), 52.
- 104) 馬場義雄: アルミニウム技術開発の回顧と展望, 同上, **41** (2000), 91.
- 105) 馬場義雄: 企業における研究開発: 私の体験より, アルミニウム, 7巻, 35号 (2000), 80.
- 106) 馬場義雄, 高島 章: クロムを含む Al-Zn-Mg および Al-Zn-Mg-Cu 合金の時効特性と応力腐食割れにおよぼす鋳塊均質化熱処理の影響, 本誌, **15** (1974), 287.
- 107) 吉田英雄, 馬場義雄: Al-Zn-Mg および Al-Zn-Mg-Cu 合金の強度と応力腐食抵抗の改善に及ぼすジルコニウムの役割, 同上, **22** (1981), 42.
- 108) 寺井士郎, 杉山禎彦, 馬場義雄, 福井利安: 構造用 Al-Zn-Mg 合金 ZQ50 の溶接性について, 同上, **7** (1966), 197.
- 109) 馬場義雄, 高島 章: 微量の銅を含む溶接構造用 Al-Zn-Mg 系合金の応力腐食割れと機械的性質, 同上, **17** (1976), 28.
- 110) 吉田英雄, 福井利安, 馬場義雄: すみ肉溶接された実用 Al-Zn-Mg 系合金厚板端面の応力腐食割れに関する研究, 同上, **19** (1978), 95.
- 111) Technical Data Sheet, 構造用 Al-Zn-Mg 合金 ZK141 の諸性質, 同上, **17** (1976), 165.
- 112) 馬場義雄: 住友軽金属技報発刊初期「1960年代」の思い出, 同上, **51** (2010), 185.
- 113) 馬場義雄, 福井利安, 高島 章: マグネシウムの少ない Al-Zn-Mg 系合金の実用化, 同上, **15** (1974), 117.
- 114) 馬場義雄, 吉田英雄: 押出性にすぐれた Al-Zn-Mg 系三元合金, 同上, **18** (1977), 68.
- 115) Technical Data Sheet, 構造用 Al-Zn-Mg 合金 ZK60 の諸性質, 同上, **10** (1969), 49.
- 116) 伊藤泰永, 難波圭三: ろう付けハニカムパネルの開発とその応用, 同上, **39** (1998), 130.
- 117) 熊谷正樹: FSW の実用化と展望, 同上, **52** (2011), 107.
- 118) 吉田英雄, 毛利英一, 平野清一, 箕田 正, 日比野壮美, 岡島賢三, 伊藤日出国, 塚本鎮正: オートバイフロントフォーク用高力アルミニウム合金管の開発と実用化, 同上, **37**

- (1996), 185., 軽金属, 46 (1996), 89.
- 119) T. Uno, H. Yoshida and Y. Baba : Aluminum Alloys; Their Physical and Mechanical Properties, Vol. 1. ed. by E. A. Stark, Jr. and T. H. Sanders, Jr., EMAS, 371.
- 120) 馬場義雄 : 航空機用アルミニウム合金の進歩, 本誌, 29 (1988), 29.
- 121) 馬場義雄 : 最近のアルミニウム展伸材の用途と特性, 同上, 31 (1990), 65.
- 122) 新製品紹介, 航空機ストリンガー用微細結晶粒 7075 合金板 : 同上, 23 (1982), 120.
- 123) 日本航空宇宙工業会 : 革新航空機技術開発に関する研究調査, 高靱性アルミニウム合金の開発の研究, 神戸製鋼所, 住友軽金属工業, 古河アルミニウム工業, 成果報告書 No.506 (1981), No.603 (1982), No.702 (1983).
- 124) 日本航空宇宙工業会, 革新航空機技術開発センター : 革新航空機技術開発に関する研究調査, 超塑性高力アルミニウム合金の開発および一体化加工法の研究, 住友軽金属工業, 三菱重工業, No.802 (1984), No.901 (1985), No.6001 (1986).
- 125) 日本航空宇宙工業会 : 航空機部品・素材産業振興に関する研究調査, Al-Li 合金の超塑性材料開発, 超塑性加工法の研究, 三菱重工業, 住友軽金属工業, 成果報告書, No. 105 (1987), No.205 (1988), No.307 (1989).
- 126) H. Yoshida, M. Kumagai and Shin-ichi Matsuda : Superplasticity of Aluminum Alloys, Sumitomo Light Metal Technical Reports, 31 (1990), 203.
- 127) 日本航空宇宙工業会 : 航空機部品・素材産業振興に関する調査研究, 高強度高成形 6000 系新合金の研究, 住友軽金属工業, 川崎重工業, 成果報告書, No.806 (1994), No.904 (1995).
- 128) 日本航空宇宙工業会 : 航空機部品・素材産業振興に関する調査研究, 新 6000 系合金の航空機用鍛造/押出材の開発, 住友軽金属工業, 川崎重工業, 成果報告書, No.1004 (1996), No.1102 (1997).
- 129) 日本航空宇宙工業会 : 環境調和型航空機技術に関する調査研究 (CD 版), 複雑形状の押出可能な高強度合金 2013 の一次構造体への適用研究, 住友軽金属工業, 川崎重工業, 成果報告書, No.1615 (2005), No.1705 (2006).
- 130) 日本航空宇宙工業会 : 環境調和型航空機技術に関する調査研究 (CD 版), 高成形合金 2013 板材の開発及び低コスト構造への適用研究, 住友軽金属工業, 川崎重工業, 成果報告書, No.1914 (2008), No.2006 (2009).
- 131) 日本航空宇宙工業会 : 先端航空機部品・素材技術に関する調査研究, 摩擦接合を用いたアルミ合金製大型押出部材の航空機への適用化研究, 三菱重工業, 住友軽金属工業, 成果報告書, No.1405 (1999), No.1502 (2000).
- 132) 吉田英雄 : 高強度アルミニウム合金の加工熱処理法とその応用, 本誌, 36 (1995), 37.
- 133) 吉田英雄, 内田秀俊 : 最近の航空機用アルミニウム合金の開発動向, 同上, 34 (1993), 87.
- 134) 新製品紹介, 高強度アルミニウム合金 ZC88, 同上, 40 (1999), 168.
- 135) 宇野照生, 平野清一 : 航空機用アルミニウム合金の研究 その 1, アルミニウム-リチウム合金, 同上, 29 (1988), 47.
- 136) 平野清一, 吉田英雄, 宇野照生 : Al-Li-(Zr, Cr) 合金の焼入れ感受性, 同上, 30 (1989), 59.
- 137) 田中宏樹, 吉田英雄, 土田 信 : Al-Li 合金の超塑性に及ぼす熱間加工条件の影響, 同上, 30 (1989), 169.
- 138) 航空機国際共同開発促進基金 (IADF) : 解説概要 17-5-7 「航空機に於けるアルミリチウム合金の開発動向」(2005).
- 139) 小関好和, 岩村信吾, 上向賢一, 山田悦子 : 高成形合金 2013 板材の開発および低コスト構造への適用研究, 本誌, 51 (2010), 61.
- 140) H. Sano, S. Tani, T. Minoda, T. Iwakami and Y. Yoshino : Properties of Hollow Extrusion of High Strength Al-Mg-Si-Cu Alloy for Aircraft, Sumitomo Light Metal Technical Reports., 39 (1998), 31.
- 141) 熊谷正樹 : 航空宇宙分野への FSW の適用, 本誌, 44 (2003), 142.
- 142) 馬場義雄 : Al-Zn-Mg 系合金の応力腐食割れ, 軽金属, 24 (1974), 227.
- 143) 馬場義雄, 高島 章 : Al-Zn-Mg 系合金の応力腐食割れ, 本誌, 16 (1975), 60.
- 144) 村上陽太郎 : アルミニウム合金の応力腐食割れ, 軽金属, 31 (1981), 748.
- 145) 馬場義雄, 吉田英雄 : アルミニウム合金の粒界破壊, 日本金属学会会報, 22 (1983), 115., 本誌, 24 (1983), 141.
- 146) 材料工学領域における最新オートラジオグラフィの解析とその応用, 齊藤秀雄編集, うらべ書房, (2008) .
- 147) 岡田 浩, 伊藤吾朗, 菅野幹宏 : トリチウムオートラジオグラフィによる水素の微視的解析, 軽金属, 42 (1992), 112.
- 148) 伊原智章, 伊藤吾朗 : 水素マイクロプリント法による Al-Mg 系合金中の水素の挙動解析, 同上, 53 (2003), 575.
- 149) 泉 孝裕, 伊藤吾朗 : 水素マイクロプリント法による高濃度 Al-Mg 系合金中の環境水素の挙動解, 同上, 56 (2006), 478.
- 150) 伊藤吾朗, 泉 孝裕, 遠山拓史 : 7075 系アルミニウム合金における水素挙動に及ぼすマイクロ組織の影響, 同上, 58 (2008), 15.
- 151) 堀川敬太郎 : 高圧水素貯蔵用アルミニウム合金の研究動向, 同上, 60 (2010), 542.
- 152) 大崎修平, 前田悦宏, 森田 到, 中井 学, 藪田 均 : 高湿度空気中における中強度 7000 系アルミニウム合金の水素脆化特性, 同上, 60 (2010), 19.
- 153) 戸田裕之, 小林正和, 鈴木芳生, 竹内晃久, 上杉健太郎 : 3D・4D マテリアルサイエンス : その現状と展望, 非破壊検査, 58 (2009), 433.
- 154) H. Toda, K. Minami, K. Koyama, K. Ichitani, M. Kobayashi, K. Uesugi and Y. Suzuki : Healing behavior of preexisting hydrogen micropores in aluminum alloys during plastic deformation, Acta Materialia, 57 (2009), 4391.
- 155) 上田一之 : 走査型水素検出顕微鏡による水素の 2 次元分布, 金属, 72 (2002), 628. 電子励起を応用した水素顕微鏡, 顕微鏡, 40 (2005), 105.

アルミニウム飲料缶の軽量化動向

横井 洋* 岡田 峰光*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 327-335

Light-weighting Trend of Aluminum Beverage Cans

Hiroshi Yokoi and Minemitsu Okada

This paper presents the trend of light-weighting in aluminum beverage cans in the market from 2011 to 2012, and comments on the performance of the lightweight ends. The lightest weight of the 350ml can is 12.7g in the USA, and that of the 330ml can is 12.8g in Germany, Holland and Vietnam. The weight of these cans has not decreased based on a past investigation. Therefore, it is suggested that a further weight reduction of the cans is not easy to achieve. On the other hand, the light-weighting with the decrease in the thinwall thickness has progressed in Asia and is approaching the that of Europe and the USA. The lightweight end has been adopted in other countries as well as the USA. These ends have several different shapes. Consequently, the characteristic of the deformation caused by the increase in the internal pressure depends on the end shape type. In the future, the design of the materials according to the end shapes and their characteristics may be required.

1. はじめに

飲料用容器としてアルミニウムDI缶 (Drawing and Ironing Can) が米国の Reynolds 社で製造され、またイーザーオープンエンド (Easy Open End, EOE) が Alcoa 社によって開発されてから、50年になる。これらの目覚ましい技術開発により、アルミ缶は、内圧の高いビールや清涼飲料分野で急速に進展してきた。我国でのアルミ缶の消費量も、人口減少やライフスタイルの変化など、マイナス要因があるものの、2011年には過去最高の188.1億缶が消費された¹⁾。このような市場拡大には、他容器との競争力の維持において、缶体の軽量化や高生産性の絶え間ない追求の貢献は大きく、これら技術開発により今後も世界市場の増加が予想される。

このアルミ缶の軽量化や高速生産性が可能な低コストの素材を開発するために、当社では1975年より継続して市販缶を調査し、2010年にこれまでの動向をまとめた²⁾。この中で、軽量化に関しては、ボディは350ml缶で10gが限界に近く、エンドは202径の軽量エンドの採用が拡大しつつあることが特徴として挙げられた。この軽量エンドには、主に米国の缶メーカーによって開発

された SuperEnd³⁾、CDL (Container Development Limited)、LOF (Lid Of Future) がある。これらは、Fig. 1に示すように、主にチャックウォール部の形状を工夫し、従来の FullForm タイプに対して缶内圧増加に伴う変形を小さくして素材の薄肉化とブランクの小径化を可能にしている。

本報では、2011~2012年に市販された325~355mlの標準的な211径(2+11/16インチ径)缶の軽量化動向を調査するとともに、ここ数年使用が拡大している軽量エンドの内圧増加に伴う形状変化について調査した。

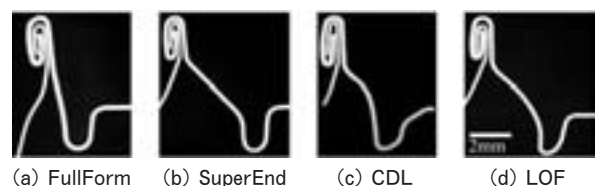


Fig. 1 Cross section shapes of FullForm and light-weighting ends.

* 研究開発センター 第一部

Table 1 Details of cans investigated.

No.	Country	Brand	Volume (ml)	Can size (* 1)		Neck Type (* 2)	End/Tab Type	
				Body	End		End	Tab
1	Japan	Suntory's AKI-RAKU	350	211	204	SFN	FullForm	Stolle
2	Japan	Suntory's KIN-MUGI	350	211	204	SDN	FullForm	Stolle
3	Japan	Asahi's AKI-YOI	350	211	206	Quad	SuperEnd	Stolle
4	Japan	Suntory's KIN-MUGI	350	211	204	SDN	FullForm	Stolle
5	Japan	SUPER DRY	350	211	206	Quad	SuperEnd	Stolle
6	Japan	YEBIS CREAMY TOP	350	211	204	SDN	FullForm	Stolle
7	USA	Budweiser	355	211	202	SDN	LOF	Stolle
8	USA	Miller DRAFT	355	211	202	SDN	CDL	Stolle
9	USA	Budweiser	355	211	202	SDN	LOF	Stolle
10	USA	Coca Cola	355	211	202	SDN	FullForm	Stolle
11	USA	Fanta	355	211	202	SNF	FullForm	Stolle
12	USA	CANADA DRY	355	211	202	SDN	SuperEnd	Stolle
13	USA	PEPSI	355	211	202	SDN	CDL	Stolle
14	Belgium	STELLA ARTOIS	330	211	202	SDN	FullForm	DRT
15	Belgium	STELLA ARTOIS	330	211	202	SDN	FullForm	Stolle
16	Holland	Grolsch Premium Lager	330	211	202	SDN	FullForm	DRT
17	England	FULLER'S LONDON PRIDE	330	211	202	SDN	FullForm	Stolle
18	Germany	GERSTEL	330	211	202	SDN	CDL	Stolle
19	Germany	PROSTEL	330	211	202	SDN	FullForm	Stolle
20	Germany	HOLSTEN	330	211	202	SDN	FullForm	DRT
21	Vietnam	MUGI-TO-TAIYO	330	211	206	SDN	FullForm	Stolle
22	Vietnam	HALIDA	330	211	206	SNF	FullForm	Stolle
23	Vietnam	AMSTEL BEER	330	211	202	SDN	FullForm	DRT
24	Thailand	Fanta	325	211	206	SDN	FullForm	Stolle
25	Thailand	PEPSI	325	211	206	SDN	FullForm	Stolle
26	Korea	MUGI-JIKOMI	350	211	206	SNF	FullForm	Stolle
27	Korea	MACCORI NARA	350	211	202	SNF	CDL	Stolle

(*1) e.g. 206 : 2 + 6 / 16inch

(*2) SDN : Smooth Die Neck SNF : Spin Neck and Flange SFN : Spinflow Neck

2. 軽量化動向

2.1 調査缶

Table 1 に調査した缶の銘柄と形状の特徴を示す。アジア缶の一部は、最近増加している輸入缶であり国内で購入したものである。国内缶のエンド径は、204 (2 + 4 / 16 インチ) 径と 206 径が主流であるが、米国缶や欧州缶は 202 径であり、特に米国缶では SuperEnd 等の軽量エンドが多く採用されている。アジア缶では 206 径が主流ではあるが、202 径もみられるようになってきた。

2.2 調査結果

Table 2 に供試缶の質量と板厚および缶底の特徴を示す。また、Fig. 2 にはボディ、エンドおよびタブの質量を、これまで当社が調査してきた中で最も軽量の缶と比較して示す。なお、質量は国内の 350ml 缶高さに補正 (缶壁薄肉部で調整) したデータを用い、図中のバーは、当社調査における 1975 年以降の最軽量缶のデータを、それより下回る軽量缶を塗り潰して示した。

ボディ、エンドおよびタブの質量は、これまでの調査結果とほとんど変化が認められないが、アジアの一部に

Table 2 Can weight, thickness and bottom characteristics.

No.	Country	Volume (ml)	Can size		Weight (g)					Thickness (mm)				Bottom characteristics	
			Body	End	Total	Body (* 1)		End	Tab	Body		End	Tab	Chime wrinkling	Bottom reform
						(* 2)	Dome center			Thinwall					
1	Japan	350	211	204	15.13	11.63	11.62	2.80	0.39	0.253	0.111	0.235	0.332	—	—
2	Japan	350	211	204	15.38	11.95	11.95	2.76	0.39	0.289	0.104	0.231	0.332	—	—
3	Japan	350	211	206	14.88	11.28	11.27	2.87	0.41	0.268	0.102	0.239	0.350	—	—
4	Japan	350	211	204	15.11	11.65	11.64	2.74	0.38	0.271	0.103	0.230	0.332	—	—
5	Japan	350	211	206	15.15	11.58	11.59	2.86	0.40	0.274	0.099	0.239	0.350	—	—
6	Japan	350	211	204	15.30	11.53	11.52	3.12	0.35	0.269	0.101	0.260	0.310	—	—
7	USA	355	211	202	13.49	10.66	10.64	2.12	0.28	0.264	0.097	0.208	0.255	—	○
8	USA	355	211	202	13.24	10.59	10.57	2.13	0.31	0.270	0.094	0.212	0.273	—	○
9	USA	355	211	202	12.98	10.22	10.20	2.17	0.28	0.262	0.095	0.210	0.254	×	○
10	USA	355	211	202	12.90	10.05	10.04	2.38	0.28	0.274	0.088	0.221	0.240	—	○
11	USA	355	211	202	13.32	10.42	10.41	2.36	0.27	0.257	0.094	0.209	0.243	×	○
12	USA	355	211	202	12.73	10.10	10.09	2.15	0.28	0.257	0.088	0.208	0.245	×	—
13	USA	355	211	202	13.11	10.51	10.49	2.12	0.31	0.287	0.092	0.206	0.279	—	—
14	Belgium	330	211	202	13.36	10.28	10.65	2.43	0.34	0.255	0.096	0.218	0.256	△	○
15	Belgium	330	211	202	13.47	10.41	10.78	2.48	0.31	0.271	0.099	0.227	0.268	△	○
16	Holland	330	211	202	12.80	9.87	10.21	2.39	0.32	0.227	0.096	0.215	0.242	×	○
17	England	330	211	202	13.26	10.01	10.36	2.47	0.28	0.229	0.100	0.221	0.250	△	○
18	Germany	330	211	202	12.80	9.97	10.30	2.24	0.29	0.263	0.093	0.207	0.256	×	○
19	Germany	330	211	202	12.93	10.00	10.35	2.45	0.29	0.233	0.097	0.224	0.249	—	○
20	Germany	330	211	202	12.84	9.88	10.24	2.45	0.32	0.232	0.098	0.213	0.245	△	○
21	Vietnam	330	211	206	15.09	11.03	11.38	3.40	0.33	0.268	0.100	0.268	0.290	—	—
22	Vietnam	330	211	206	14.48	10.50	10.87	3.46	0.31	0.260	0.103	0.279	0.269	—	—
23	Vietnam	330	211	202	12.82	9.84	10.18	2.45	0.32	0.230	0.095	0.221	0.242	△	○
24	Thailand	325	211	206	14.75	10.59	10.95	3.47	0.37	0.269	0.099	0.282	0.330	—	—
25	Thailand	325	211	206	15.07	10.99	11.36	3.44	0.33	0.267	0.100	0.278	0.281	—	—
26	Korea	350	211	206	15.31	11.28	11.28	3.45	0.36	0.273	0.098	0.285	0.316	—	—
27	Korea	350	211	202	14.24	11.14	11.14	2.35	0.32	0.285	0.100	0.225	0.278	×	—

(*1) Delacquered

(*2) Calculated weight equivalent to Japanese 350ml can's height (122.2mm)

軽量ボディが認められた。この缶は、米国や欧州とほぼ同じ設計の可能性はある。エンドの質量は、エンド径や形状によるため軽量エンドの採用が多い米国が最軽量である。タブは、国内が最も重い。その理由のひとつに、タブの剛性を高めることによる開口挙動の安定化が考えられる。

Fig. 3 に部位ごとの板厚測定結果を、Fig. 2 の質量の結果と同様に示す。缶底中央部の板厚は、欧州では0.23mmを下回っていた。缶底は、ドレーミング加工によ

り元板から0.01mm程度張り出されて薄くなるため、欧州で使用されているボディ材の元板厚は0.24mm程度と推定される。この薄肉化の理由のひとつとして、欧州では缶高さの低い330ml缶が主流で、DI加工が350ml缶に比べて容易であることが挙げられるが、スチールとの兼用ラインとして、カップ成形時のカットエッジを併せた設計になっているとの見方もある。このボディ材の薄肉化は、アジアの一部でも進展がみられ、欧州レベルの薄板材が使用されていた。缶底板厚は、缶底特性

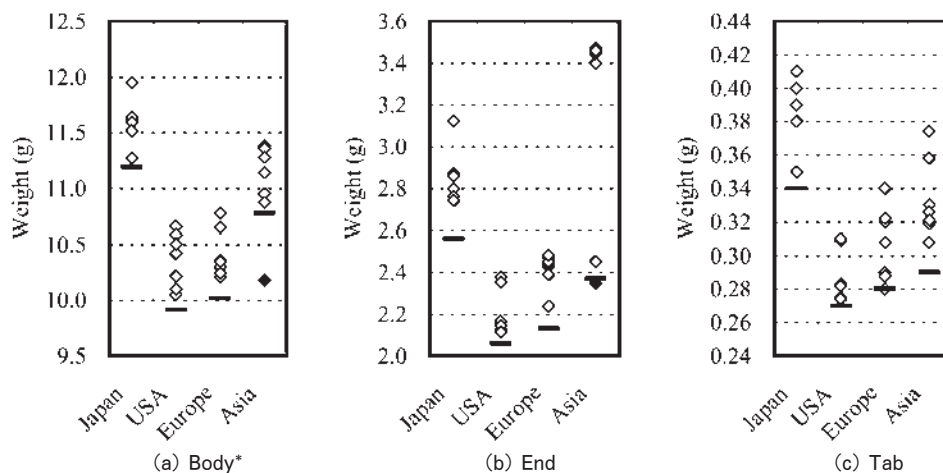


Fig. 2 Weight of each retained can.

— : Lightest can in the past investigation, ◆ : More lightweight can in this investigation

* Calculated weight equivalent to Japanese 350ml can's height (122.2mm)

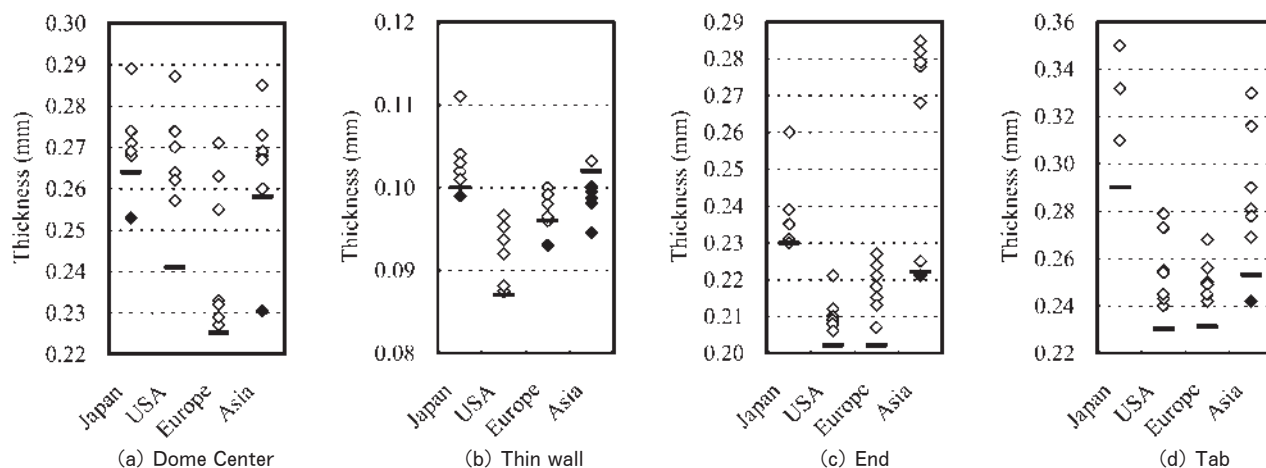


Fig. 3 Thickness of each retained can.

— : Thinnest data in the past investigation, ◆ : Thinner data in this investigation

として重要な缶底耐圧を保証することが選定の一つに挙げられる。欧州では最薄材を用いるために、すべての缶でDI成形後の缶底に後加工によるボトムリフォーム⁴⁾が施されている (Table 2)。また、缶底には外観上の問題として取り上げられる缶底接地部外側のチャイムしわがある。チャイムしわは、再絞り加工工程で、チャイム部に相当する円錐面が形成される際に円錐方向に座屈する現象であり、板厚が薄くなるほど発生しやすい⁵⁾。このチャイムしわは、Table 2で示したように、最薄板を用いている欧州で発生が多いが、板厚だけでは整理できないため、カップの形状や成形面での工夫がなされているものと考えられる。このチャイムしわを抑制する方法として、カップ成形時に予め加工しておくプリフォームドカップ³⁾の技術もあるが、カップングプレスの改造が必要なようで、採用は一部に留まっている。

缶壁は全体質量のうち約70%を占めるため、軽量化にはその薄肉化が重要となるが、缶壁下部は、元板厚か

らのしごき加工による薄肉化において急激な減肉がしごき成形時の破洞につながることで、また、製缶工程における搬送レールでの凹み防止等から薄くできない。また缶壁上部は、DI成形パンチから缶が抜ける際の座屈防止や、ネック成形 (口絞り成形) 時の座屈 (プリーツ) 抑制のため、この部位も減肉が困難である。缶壁中央部 (Thinwall) は、缶壁上下部に比べて減肉が可能な部位である。しかし、充填時の座屈強度や流通時の耐穴あき性 (突き刺し強度) が求められるが、地域によって要求レベルが異なる。この部位の板厚を Fig. 3 (b) に示すが、今回の調査にて多くのアジア缶で薄肉化の進展が認められた。この缶壁薄肉部が最薄なのは、米国缶の0.088mmであった。ここでの調査結果は、缶壁周方向8点の平均値を示しているが、そのばらつきは約±0.005mmであり最薄部では0.083mmであった。

Fig. 3 (c) にエンドの板厚を示す。202径の軽量エンドを採用している米国や欧州缶の0.205~0.210mmが最

薄であった。この軽量エンドの特性についての詳細は次節にて述べる。

Fig. 3 (d) にタブの板厚を示す。タブは国内が最も厚く、欧州や米国は国内に比べて 20% 程度薄肉である。タブは全体質量への影響が僅かであること、容器として重要な開口性に影響するため、国内では厚めの材料が使用されている。

これらの軽量化動向について、これまでの当社調査結果における最薄材のトレンドを Fig. 4 に示す。それぞれの部位において、地域差はあるものの薄肉化は終わりに近いように見える。これからの飲料缶やそれに用いる材料の差別化には、薄肉化よりも生産性と品質の向上が、また、機能性や意匠性が重要になるものと考えられる。

Table 3 に供試缶の化学成分、断面硬さおよび推定製造工程を示す。断面硬さは、ボディ、エンドとも塗装焼き付け条件に左右されるため、元板強度の参考値である。

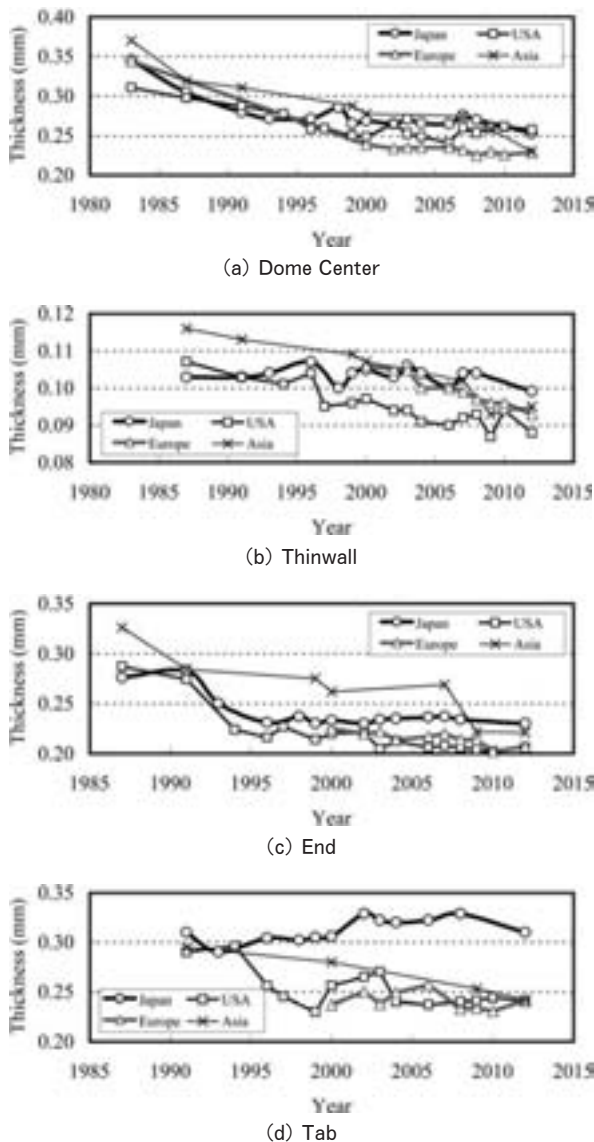


Fig. 4 Thickness trend of the thinnest data in the past investigation.

缶ボディ材は国内の一部を除き、ほとんどが 3104 (3004) 合金である。なお、3004 合金と表記した材料も基本的には 3104 合金規格内である。ボディ材の硬さは、世界的に同レベルである。缶エンド材は、いずれも 5182 合金であり、硬さは欧州や米国が高めであるが、いずれも既報²⁾からの変化は認められない。

Fig. 5 にボディ、エンドおよびタブの板厚と硬さの関係を示す。いずれも板厚との明瞭な関係、すなわち、薄肉化による高強度化の傾向は認められない。材料強度は、それぞれの加工性や品質、あるいはコストの観点から選定されているものと考えられる。ボディ材であれば、DI 成形に適する材料であること、エンド材では強度、リベット成形性や開口性の両立、タブ材では成形性と強度等が考えられ、それぞれについて当社でも最適な材料を開発してきた。今後の高生産性や高品質、付加価値の高い材料を開発するためには、現在使用されている材料の選定理由について掘り下げてみる必要がある。

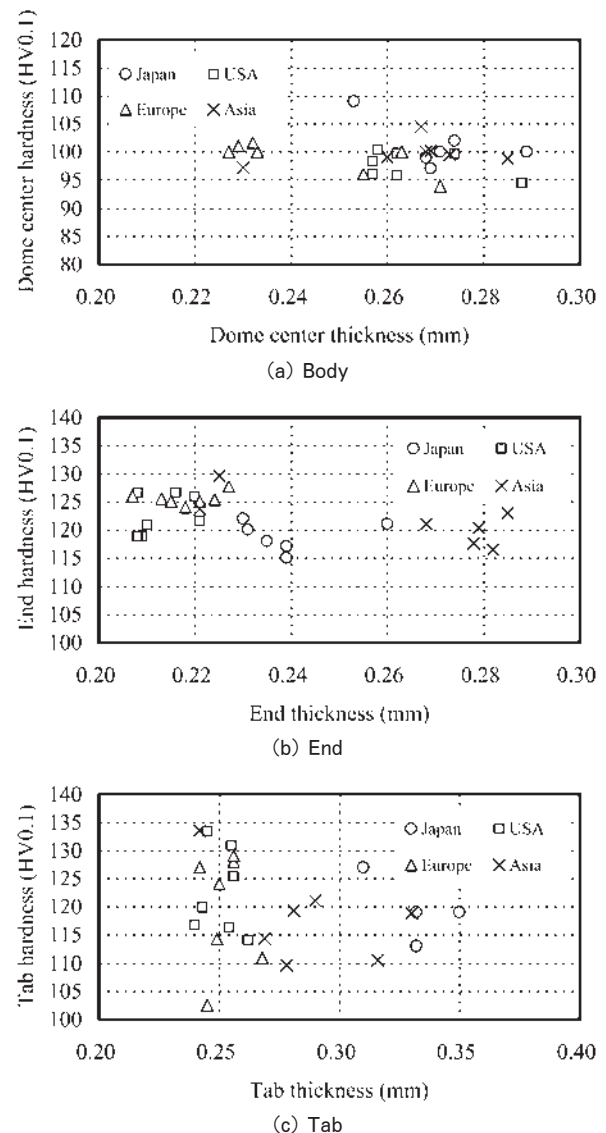


Fig. 5 Relation between thickness and hardness.

Table 3 Can body and end stock characteristics.

No.	Country		Alloy	Chemical composition (mass%)						Hardness (* 1)	Estimated manufacturing Process(* 2)
				Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Al		
1	Japan	Body	(3104)	0.30	0.42	0.39	1.0	1.4	bal.	109	B
		End	5182	0.11	0.22	0.09	0.45	4.8	bal.	118	B
2	Japan	Body	3004	0.27	0.43	0.22	1.0	0.9	bal.	100	A
		End	5182	0.12	0.25	0.10	0.44	4.7	bal.	120	B
3	Japan	Body	3104	0.32	0.52	0.19	0.9	1.1	bal.	99	A
		End	5182	0.11	0.26	0.13	0.44	4.8	bal.	115	B
4	Japan	Body	3104	0.33	0.46	0.23	1.1	1.1	bal.	100	A
		End	5182	0.12	0.23	0.11	0.45	5.0	bal.	122	B
5	Japan	Body	3104	0.32	0.41	0.22	1.1	1.0	bal.	102	A
		End	5182	0.12	0.27	0.15	0.45	4.9	bal.	117	B
6	Japan	Body	3004	0.28	0.44	0.20	1.1	1.2	bal.	97	A
		End	5182	0.15	0.19	0.09	0.45	4.8	bal.	121	B
7	USA	Body	3104	0.19	0.47	0.18	0.9	1.2	bal.	97	A
		End	5182	0.08	0.26	0.05	0.40	4.7	bal.	128	B
8	USA	Body	3104	0.24	0.47	0.17	0.9	1.3	bal.	98	A
		End	5182	0.07	0.23	0.03	0.40	4.6	bal.	128	A
9	USA	Body	3104	0.30	0.44	0.13	0.9	1.4	bal.	100	A
		End	5182	0.09	0.25	0.08	0.34	4.6	bal.	121	A
10	USA	Body	3104	0.22	0.43	0.17	0.9	1.3	bal.	100	A
		End	5182	0.08	0.26	0.05	0.37	4.7	bal.	122	A
11	USA	Body	3104	0.18	0.46	0.18	0.9	1.1	bal.	96	A
		End	5182	0.01	0.33	0.04	0.41	4.7	bal.	119	B
12	USA	Body	3104	0.22	0.54	0.18	0.8	1.1	bal.	98	A
		End	5182	0.08	0.22	0.04	0.38	4.6	bal.	127	A
13	USA	Body	3104	0.22	0.45	0.19	0.8	1.2	bal.	96	A
		End	5182	0.09	0.26	0.04	0.43	4.7	bal.	138	A
14	Belgium	Body	3104	0.28	0.45	0.11	0.9	1.3	bal.	96	A
		End	5182	0.11	0.30	0.10	0.43	5.0	bal.	124	A
15	Belgium	Body	3004	0.18	0.44	0.17	1.0	1.1	bal.	94	A
		End	5182	0.07	0.23	0.08	0.43	4.8	bal.	128	A
16	Holland	Body	3104	0.18	0.44	0.18	0.9	1.2	bal.	100	A
		End	5182	0.07	0.20	0.08	0.43	5.0	bal.	125	A
17	England	Body	3104	0.19	0.43	0.19	1.0	1.1	bal.	101	A
		End	5182	0.07	0.22	0.08	0.41	4.9	bal.	125	A
18	Germany	Body	3104	0.17	0.44	0.19	0.9	1.1	bal.	100	A
		End	5182	0.12	0.32	0.08	0.34	4.9	bal.	126	A
19	Germany	Body	3104	0.20	0.48	0.16	0.9	1.1	bal.	100	A
		End	5182	0.08	0.20	0.04	0.37	4.6	bal.	125	A
20	Germany	Body	3004	0.19	0.45	0.19	1.0	1.3	bal.	102	A
		End	5182	0.09	0.25	0.08	0.39	4.8	bal.	126	A
21	Vietnam	Body	3104	0.29	0.45	0.22	1.0	1.2	bal.	100	A
		End	5182	0.09	0.23	0.05	0.33	4.7	bal.	121	A
22	Vietnam	Body	3004	0.26	0.48	0.16	1.0	1.2	bal.	99	A
		End	5182	0.09	0.28	0.07	0.42	4.8	bal.	120	B
23	Vietnam	Body	3104	0.20	0.49	0.16	0.8	1.2	bal.	97	A
		End	5182	0.11	0.25	0.10	0.38	4.6	bal.	124	A
24	Thailand	Body	3104	0.21	0.52	0.19	0.9	1.1	bal.	100	A
		End	5182	0.11	0.26	0.09	0.39	4.5	bal.	116	B
25	Thailand	Body	3004	0.26	0.44	0.22	1.0	1.0	bal.	105	A
		End	5182	0.11	0.27	0.04	0.37	4.5	bal.	118	B
26	Korea	Body	3104	0.19	0.52	0.16	0.9	1.3	bal.	100	A
		End	5182	0.09	0.24	0.05	0.36	4.7	bal.	123	A
27	Korea	Body	3104	0.20	0.51	0.16	0.9	1.3	bal.	99	A
		End	5182	0.10	0.22	0.05	0.37	4.7	bal.	130	A

(*1) Body : Dome center

(*2) A : Hot rolling - Cold rolling B : Hot rolling - Cold rolling - Intermediate annealing - Cold rolling

3. 軽量エンドの特性

軽量エンドは内圧上昇に対する耐圧確保に有利な形状であるため、素材を薄肉化しても従来の FullForm タイプと同等の耐圧が維持できる。耐圧は、エンドに要求される基本的な強度特性であり、例えば国内のビール用エンドでは 539kPa 保証が要求される⁶⁾。しかし耐圧より低い内圧であっても、エンドのパネル部は内圧増加に伴い膨出し、その変形量が大きいと不具合が生じる。例えば、輸送中の温度上昇によりタブが巻締部上端位置に達すると、タブの先端（タブノーズ）が包装材と接触し、輸送による振動がスコアに伝わって内容物が漏洩する問題がある⁷⁾。軽量エンドを採用する場合、このような低内圧での変形増加が障害になる可能性がある。そこで、市販缶により軽量エンドおよび FullForm エンドの内圧増加によるエンドの変形挙動を調査し、材料特性との関連を調査した。

3.1 市販缶による調査

内圧増加によるエンドの変形は、エンド径の影響を大きく受けるため、Table 4 に示す 202 径のエンドで調査した。Fig. 6 に内圧増加によるタブノーズ位置の変位について、それぞれのエンドタイプから平均的なデータを

2つ選定して示す。また、Fig. 7 には内圧増加によるタブノーズの変化量について、初期のタブノーズ位置を原点として示す。SuperEnd および LOF は、他のタイプに比べて初期（内圧 0 kPa）のタブノーズデプスが深い傾向であった。また、エンドタイプにより、内圧増加に伴うタブノーズ位置の変化が異なっているように見える。この差は、エンドの形状の他に、素材の板厚や強度が影響していると考えられる。これらの関係を確認するために、素材の板厚と硬さの関係を Fig. 8 に示す。FullForm タイプの板厚は 0.215~0.217mm であったが、軽量エンドは板厚および硬さが広範囲であった。そこで便宜上、内圧 150~250kPa の範囲で内圧増加量によるタブノーズ位置の変位（傾き）を算出し、素材の板厚と硬さの積で整理し、Fig. 9 に示す。同一板厚および硬さの場合、軽量エンドの缶内圧増加に伴うタブノーズの変形量は、FullForm タイプと比べて小さいことが明らかである。しかし、同じ硬さであっても板厚が薄い場合は、軽量エンドの変形が大きくなるともいえる。現実的には、この変形抑制には初期のタブノーズデプスが深いほど有利ではあるが、この変形抑制が形状や素材開発の課題になると考える。

Table 4 Details of can-ends investigated.

No.	Country	Brand	Size	Type	Thickness (mm)	Hardness
1	USA	Wittekerke	202	FullForm	0.216	128
2	USA	STELLA ARTOIS			0.215	128
3	Belgium	KAORU-MUGI			0.215	127
4	France	Perrier LIME			0.215	127
5	Holland	Grolsch			0.216	130
6	Mexico	Corona Extra			0.217	131
7	USA	Coca-Cola cherry		CDL	0.206	128
8	USA	Blue Sky (COLA)			0.208	127
9	USA	TEXAS SELECT			0.214	130
10	USA	Yuengling LAGER			0.206	128
11	USA	Diet Coke			0.205	126
12	USA	BLUE MOON			0.214	125
13	Korea	KOKU-NO-MUGI FREE		CDL	0.225	124
14	Korea	FINE DRIVE (ZERO)			0.222	126
15	USA	Dr Pepper		SuperEnd	0.208	126
16	USA	CANADA DRY			0.206	125
17	USA	CANADA DRY			0.206	126
18	USA	BUSCH BEER		LOF	0.206	129
19	USA	BUD LIGHT			0.206	131

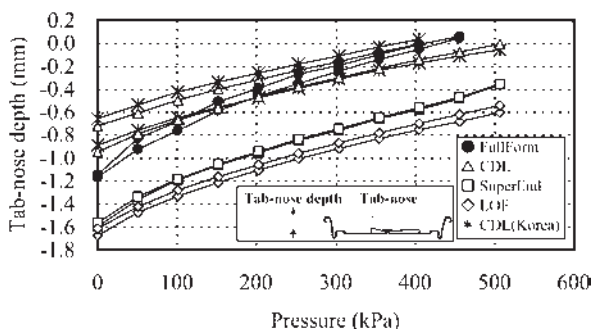


Fig. 6 Relation between tab-nose depth and internal pressure.

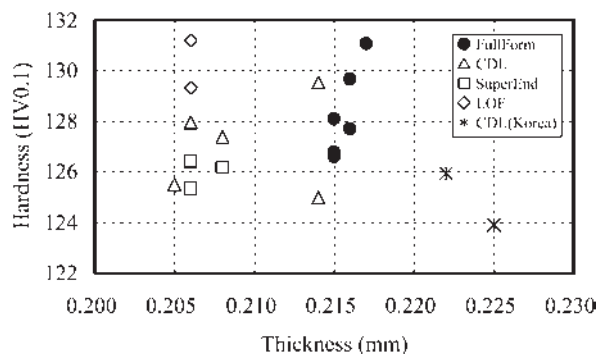


Fig. 8 Relation between thickness and hardness of light-weighting ends.

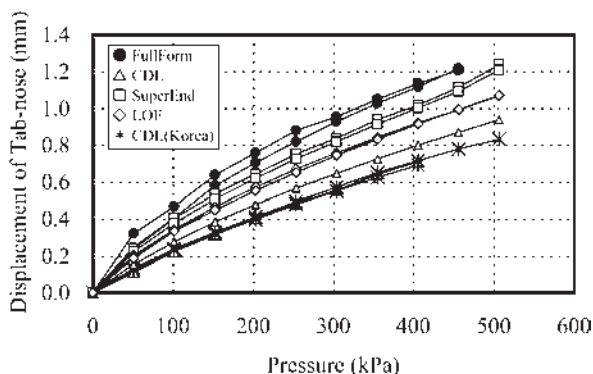


Fig. 7 Bulge deformation with increase of internal pressure.

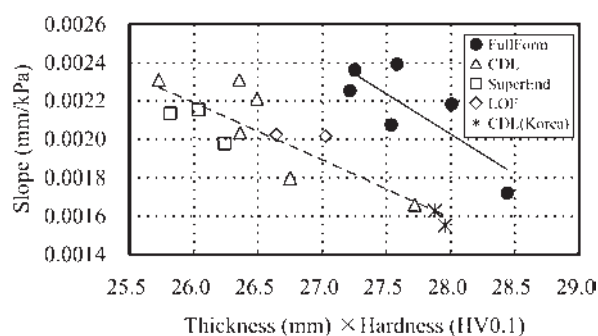


Fig. 9 Relation between rate of bulge deformation and properties of material.

3.2 素材特性の影響調査

内圧増加に伴うエンドの変形には強度特性が影響するが、形状にあった材料を設計する上で引張試験による耐力と引張強さのいずれに着目すべきかを考える必要がある。そこでこれらの影響を明確にするため、Table 5 に示した板厚 0.25mm で両者のバランス異なる材料を用い、204 径 FullForm タイプにシェル成形し、内圧増加によるパネル中央部の変位を測定した。その結果を、圧延方向に対して 0°, 45°, 90° に引張試験したときの耐力および引張強さの重みづけ平均 ((0° + 2 × 45° + 90°) / 4) を横軸にとり Fig. 10 に示す。パネルの変形には引張強さよりも耐力と良い相関が認められた。シェル成形により素材は加工硬化するが、その程度は比較的小さいためにこのような関係が得られたものと推測される。

3.3 軽量エンドの適用拡大に伴う課題について

軽量エンドはその形状によって初期のタブノーズデプスがかかなり異なっている (Fig. 6) ことから分かる通り、形状そのものが多様化していると言える。さらにそれらに用いられているエンド材の板厚や硬さも広い範囲に渡っており (Fig. 8)、対象とするエンドタイプごとに要求性能を満たすための材料仕様が異なっていると予想され、現在は、統一した仕様が確立されるまでの試行錯誤段階という見方もできよう。従って、これから適用が拡大していく軽量エンドに対しては、対象とするエン

Table 5 Tensile properties of specimens.

Mark	Alloy	Thickness (mm)	Tensile direction (°to R.D.)	Tensile strength (MPa)	0.2% proof stress (MPa)
A	5182	0.25	0	370	304
			45	352	284
			90	367	297
B			0	384	316
			45	371	297
			90	379	307
C			0	358	310
			45	351	311
			90	363	321
D			0	391	341
			45	381	340
			90	400	355

ドタイプの設計思想や要求品質を満たすメカニズムを理解することが必要であると考えられる。

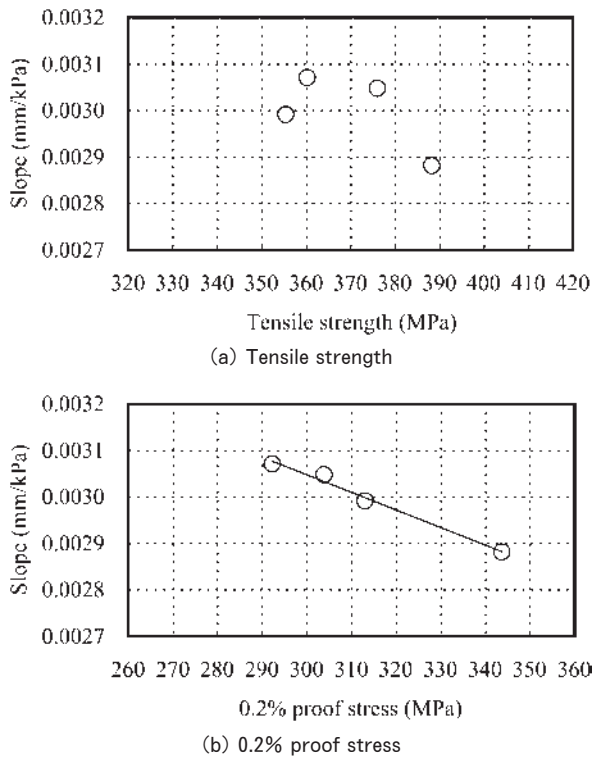


Fig. 10 Relation between rate of bulge deformation and tensile properties of material.

4. おわりに

アルミニウム飲料缶は、米国や欧州の缶が最軽量であり、これらも限界に近いと考えられる。その軽量化として、この数年、米国を中心として軽量エンドの採用が増加している。軽量エンドには、多種形状があり、それぞれ特性も異なる。それらの設計思想や特性に応じた素材の設計が今後必要であろう。

また、2000年以降にはアルミニウム飲料缶の差別化手段として意匠性や機能性が重要視されてきた。最近では、Fig. 11に示すような新しい形状の缶が市場に現れてきている。また、内容物もこれまでのビールや清涼飲料だけでなく、エナジードリンクやコーヒー飲料など多様化している。新容器についての調査解析は今後行う予定ではあるが、内容物や使用環境にあった容器開発には、これまで培ってきた種々のアルミニウム材料開発の応用が必要であろう。



Fig. 11 New design cans recently released in foreign.

参考文献

- 1) アルミ缶リサイクル協会調べ。
- 2) 横井 洋, 竹田委千央, 岡田峰光: 本誌, 51 (2010), 121.
- 3) アルミニウムの製品と製造技術: 社団法人軽金属学会, (2001), 78.
- 4) Selwyn M. Knap: Aluminum Alloys for Packaging II, TMS, (1996), 97.
- 5) William M. Betts: Aluminum Alloys for Packaging II, TMS, (1996), 253.
- 6) 大西健介: アルミニウム, 1 (1994), 9.
- 7) 例えば, 特開 2010-215274.

航空機用 2013 合金引抜き管の特性

佐野 秀 男*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 54 No. 1 (2013), pp. 336-341

Properties of 2013 Alloy Drawn Tube for Aerospace Application

Hideo Sano

AA2013 alloy is able to be extruded into complex shapes including hollow shape, which can achieve integrated structures that contributes to cost reduction and is expected to be the alternative to 2024-T3511 extrusion. The properties of 2013-T6511 extrusion have been registered in Metallic Materials Properties Development & Standardization (MMPDS), which is required for application in the main structure of airframe parts. The physical properties, mechanical properties and corrosion resistance for airplane designs are described in MMPDS. For 2024 alloy, straightening after solution heat treatment of the cold worked -O temper material is required. Since 2013-T4511 has a higher elongation, it can be cold-worked. 2013-T4511 can eliminate the straightening process after solution heat treatment for the cold worked 2024-O.

In this paper, the static properties of 2013-T6511 drawn tubes with an outer diameter of 86mm to 90mm (from 3.40 to 3.55 inch), and thickness of 3 mm to 10mm (from 0.12 to 0.40 inch) are described. These values are almost equal to those of 2024-T3511 drawn tubes, thus 2013 alloy can be an alternative to 2024 alloy. S values of the tensile properties of 2013-T4511 and -T6511 drawn tubes have been registered in AMS4469 and AMS4002 and S values of its static properties and SS curve of tension test have been registered in MMPDS.

1. はじめに

代表的な航空機材料である 2024 合金は引張疲労強度が優れるため、翼下面を始めさまざまな機体部位に用いられるが、耐食性や成形性が問題である。そこで 2024-T3 材と同等以上の静的強度を持ち、耐食性や成形性を改善したアルミニウム合金 2013 を開発した。Table 1 に、化学成分を他の合金と比較して示す。2013 合金で

は、Alcoa 社が 6000 系の高強度化として開発した 6013 合金よりも強度を向上させるため Cu を増量している。Cu が 1.75% と多いため、The Aluminum Association (AA) にて 2000 系合金として登録されたが、その特徴として押出性に優れ、2024 合金などの高強度合金では難しいとされる中空形状や幅広薄肉形状の押出が可能である。これにより、構造一体化による組立や加工コストの低減が可能である¹⁾。

Table 1 Chemical composition of aluminum alloys (mass%).

Alloy	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Al
2013	0.6-1.0	<0.40	1.5-2.0	<0.25	0.8-1.2	0.04-0.35	<0.25	Bal.
6013	0.6-1.0	<0.50	0.6-1.1	0.20-0.8	0.8-1.2	<0.1	<0.25	Bal.
6061	0.40-0.8	<0.7	0.15-0.40	<0.15	0.8-1.2	0.04-0.35	<0.25	Bal.
2024	<0.5	<0.40	3.8-4.9	0.30-0.9	1.2-1.8	<0.01	<0.25	Bal.

* 研究開発センター 第二部 工学博士

新合金が航空機用材料として広く採用されるには、設計許容値の取得が必要である。それには、米国規格である Society of Automotive Engineering 内の Aerospace Material Specification (AMS) や Metallic Materials Properties Development & Standardization (MMPDS : 旧 Military handbook) への登録が必要である。既に、肉厚 5 mm (0.2 インチ) 以下の 2013-T6511 押出材に関し規格登録が完了している。AA にて 2003 年 5 月に 2013 として合金登録され、その後 T6511 と熱処理材の特性が登録された。次に AMS にて 2004 年 11 月に規格書 AMS4326 が発行され、引張特性と剥離腐食特性が登録された²⁾。さらに、翼や胴体などの一次構造体まで広範囲に採用されるには、MMPDS へ疲労特性など様々な設計許容値が掲載される必要があり、物理的性質、静的強度特性に加え疲労特性および耐応力腐食割れ特性³⁾が 2007 年に承認され、Version05 に記載されている。

2013 合金の特徴として T4511 調質での良好な冷間加工性が挙げられる。2024 合金では T3511 調質で延性が低いため 0 調質で冷間加工され、その後の溶体化処理にて熱歪が発生するため歪除去される。一方、2013 合金は T4511 調質で延性が高いので冷間加工が可能であり、その後に人工時効処理すれば加工部は T8511、非加工部は T6511 の特性が得られる。したがって、2013-T4511 材は 2024 合金に必要な歪除去を省略できる。

本報では、航空機用の外径が 86mm から 90mm (3.40 から 3.55 インチ)、肉厚が 3 mm から 10mm (0.12~0.40 インチ) の範囲での 2013-T4511 および T6511 継目無し引抜き管の静的強度特性を紹介する。

2. 供 試 材

2013 合金継目無し引抜き管は、Fig. 1 に示す工程にて作製した。まず、直径 11.25 インチに DC 鋳造し均質

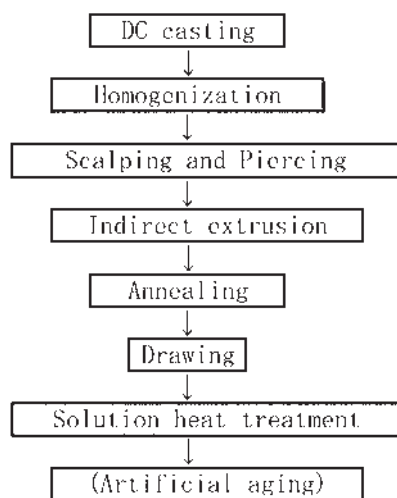


Fig. 1 Manufacturing procedure of seamless 2013 alloy drawn tube.

化熱処理した後、鋳塊を中空形状に外内削し、押出用ピレットとして供した。次に、11 インチのマンドレル方式の間接押出機にて継目無し丸管形状に押し出した後、引抜きし、さらに溶体化熱処理後 1% から 3% の範囲で引張矯正し、T4511 調質とした。一部をさらに人工時効処理し T6511 調質とした。引抜き管の寸法は、外径 86mm (3.40 インチ) では肉厚は 8.4mm (0.33 インチ) とした。外径 90mm (3.55 インチ) では肉厚は 3 mm, 6.5mm, 10mm (0.12 インチ, 0.26 インチ, 0.40 インチ) の 3 種類とした。製造過程でのばらつきを評価するため、鋳造機会が 10 以上、熱処理機会が 10 以上の場合は、統計解析し A 値あるいは B 値として設計許容値が設定できるが、鋳造機会が 3 以上 10 未満の場合 S 値となる。本報では、鋳造機会を 5 とし、熱処理機会を 10 として製造し、各種特性を統計解析し S 値を求めた。ここで、A 値は、母集団の 99% が 95% の信頼性を持って統計解析値 T99 以上となる値と SAE により規定された S 値のどちらか小さい方である。B 値は、母集団の 90% が 95% の信頼性を持って統計解析値 T90 以上となる値である。S 値の算出方法は AMS のガイドラインに記載され、3 Heat (鋳造) から最低 30 個の試験結果が必要とされ、式 1 に示される。ここで k99 は n 数毎に決められ n=30 の場合 3.064 となる。

$$S_{est} = X - k_{99} \cdot s \quad (1)$$

S_{est} : 概数にする前の S 値, X : 平均値, s : 標準偏差, k99 : 0.99 の正規分布と 0.95 の信頼係数に相当する公差限界係数である。

3. 2013-T4511 引抜き管の特性

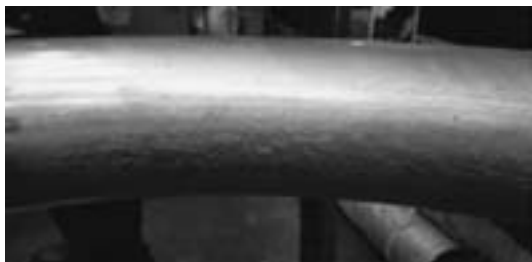
2013 合金の特徴として T4511 調質での良好な冷間加工性が挙げられる。Fig. 2 に、予備試験で試作した外径 90mm, 肉厚 4 mm の引抜き管を R 400mm で曲げた外観を示す。いずれも割れ無く曲げられたが、2024-O 引抜き管の表面には凹凸が見られるが、2013-T4511 引抜き管の表面には凹凸は見られなかった。両者の差異として、2024 合金では表面が粗大な再結晶組織であるが、2013 合金は均一で微細な再結晶組織であることが考えられる。2013-T4511 引抜き管は 2024-O 引抜き管よりも良好な冷間加工性を示し、2024 合金における溶体化処理が不要となり歪除去が省略できることが示された。

2013-T4511 は最終製品の調質でないが、素材メーカーから出荷し、機体部品メーカーが冷間加工後人工時効処理する場合があるため、その特性を航空機材の規格値として AMS に登録する必要がある。出荷検査項目として引張性質が挙げられ、ASTM 規格に基づき試験片を成形し試験した。ただし、引抜き管から試験片を採取する場合、標準寸法の試験片が採取できないため、データを

統計解析し規格値を提案する米国 Battelle 研究所に承認された試験片を作製した。引張試験は、Fig. 3 に示す試験片を用い、ASTM B557 に準拠し、引張降伏応力 (0.2% 耐力 Fty), 引張強さ (Ftu), 伸びを求めた。Table 2 に 2013-T4511 引抜き管の引張試験結果を示す。この結果は Battelle にて統計解析され S 値が求められ、Fty は 145MPa (21.0ksi), Ftu は 275MPa (40.0ksi), 伸びは 20% として、AA にて Temper 登録され、さらに規格書 AMS4469 が発行された。



2013-T4511



2024-O

Fig. 2 Appearance of banded drawn tube of 2013-T4511 and 2024-O.

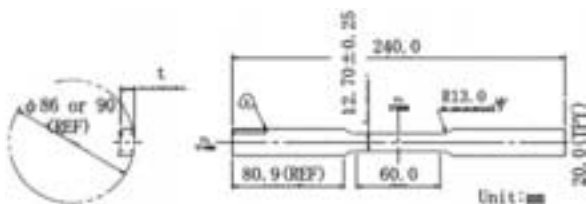


Fig. 3 Specimen for tension test.

Table 2 S values of static properties of 2013-T4511 drawn tube.

		Ftu	Fty	el
Avg.	MPa	343	219	25.8
	ksi	49.8	31.7	25.8
S.D.		2.90	2.30	—
C.V. (%)		5.90	10.40	—
S value	MPa	283	150	21.8 (min.)
	ksi	41.0	21.8	21.8 (min.)

4. 2013-T6511 引抜き管の特性

2013-T6511 引抜き管においては、引張性質、圧縮強度、せん断強度およびベアリング強度を評価した。引抜き管から試験片を採取する場合、標準寸法の試験片が採取できないため、データを統計解析し規格値を提案する米国 Battelle 研究所に承認された試験片を作製した。引張試験は、Fig. 3 に示す試験片を用い、ASTM B557 に準拠し、引張降伏応力 (0.2% 耐力 Fty), 引張強さ (Ftu), 伸びを求めた。圧縮試験は、Fig. 4 に示す試験片を用い、ASTM E9 に準拠し、圧縮耐力 (Fcy) を求めた。せん断試験は、Fig. 5 に示す試験片を用い、ASTM B831 に準拠し、せん断強さ (Stu) を求めた。ベアリング試験は、Fig. 6 に示す試験片を用い、ASTM E238 に準拠し、ベアリング降伏応力 (Fbry), ベアリング強さ (Fbru) を求めた。小穴側の試験片端面から穴中心までの距離 e と小穴直径 D との比 e/D を 1.5 あ

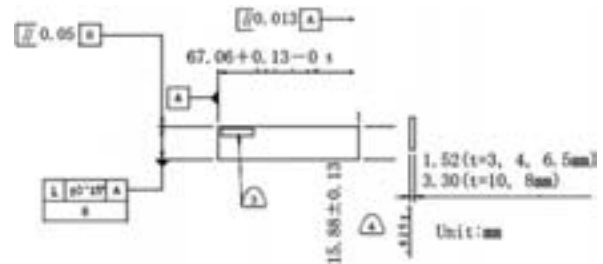


Fig. 4 Specimen for compression test.

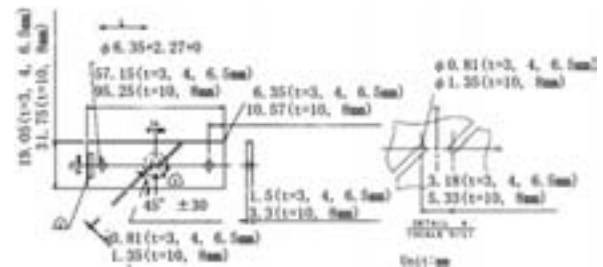


Fig. 5 Specimen for shear test.

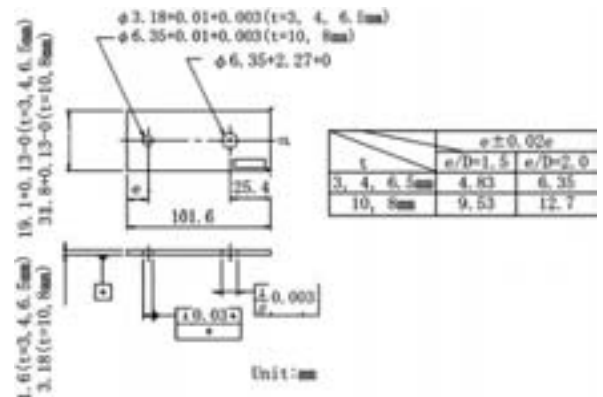


Fig. 6 Specimen for bearing test.

るいは2の2条件とした。

Table 3 に、2013-T6511 引抜き管の静的強度特性の S 値を、MMPDS に記載された 2024-T3511 引抜き管の値と比較して示す。Ftu は 2024 合金とほぼ同等であったが、Fty は 1.3 倍であった。T4511 と同様に、T6511 の引張性質の結果は Battelle にて統計解析され S 値が求められ、Fty は 415MPa (60.0ksi)、Ftu は 385MPa (56.0ksi)、伸び 7% として AA にて Temper 登録され、さらに規格書 AMS4002 が発行された。T6511 押出材の A 値は、Fty で 400MPa (58.0ksi)、Ftu で 365MPa (53.0ksi)、伸び 8% であり、強度は引抜き管の S 値のほうが若干高い。Fcy、Stu、Fbry、Fbru も同様に Battelle にて統計解析され S 値が求められ、Table 4 に示す設計許容値の一覧として MMPDS に記載された。Table 5 にその一覧を SI 単位で示す。

2013-T6511 引抜き管の引張試験における応力歪の n=10 のデータが Battelle にて解析され、Fig. 5 に示す代表的な応力歪線図が MMPDS に登録された。

5. おわりに

2013-T4511 引抜き管は 2024-O 引抜き管よりも良好な冷間加工性を示し、2024 合金における冷間加工後の溶体化処理後が不要になることから歪除去が省略できる。引張性質の規格値 S 値は AMS4469 として登録されている。

2013-T6511 引抜き管は 2024-T3511 引抜き管と同等の静的強度特性を示した。2013-T6511 引抜き管の引張性質の規格値 S 値は AMS4002 として登録されている。さらに圧縮強度、せん断強さ、ベアリング強度を含めた静強度特性の S 値は設計許容値として MMPDS にも登録された。今後、データ数を増やし次第統計解析し A 値として登録を進める。

2013 合金の特徴を生かした適用が進むことで、航空機のコストダウンへの寄与が期待される。

謝 辞

本報にて紹介した 2013 合金引抜き管の特性の評価にご協力頂きました川崎重工業株式会社殿に深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 佐野秀男, 松田真一, 吉田英雄: 軽金属, **53** (2003), 513.
- 2) 佐野秀男, 加藤勝也: 本誌, **46** (2005), 126.
- 3) 加藤勝也, 佐野秀男: 本誌, **47** (2006), 105.

Table 3 S values of static properties of 2013-T6511 drawn tube.

2013-T6511 drawn tube	Tension prop. (L direction)				Compression prop. (L direction)		Shear prop. (L direction)	Bearing prop. (L direction)				
	Ftu	Fty	el	E	Fcy	Ec		e/D=1.5		e/D=2.0		
							Fbru	Fbry	Fbru	Fbry		
Avg.	MPa	436	400	10.0	69.4	392	70.3	274	681	576	879	654
	ksi	63.3	58.0	10.0	10.1	56.8	10.2	39.8	98.8	83.5	127.5	94.9
S. D.		0.59	0.31	—	—	0.57	0.09	0.75	2.52	1.62	3.37	2.84
C. V. (%)		0.93	0.53	—	—	1.00	0.89	1.89	2.55	1.93	2.65	2.99
S value	MPa	422	392	8.3	69.4	379	70.3	258	627	541	805	592
	ksi	61.2	56.9	8.3(min)	10.1(avg)	55.0	10.2(avg)	37.4	90.9	78.4	116.8	85.9
2013-T6511 extrusion (MMPDS A value)	MPa	400	365	8.0(min)	68.3	365	69.0	282.7	724	572	917	662
	ksi	58	53	8	9.9	53	10.0	41	105	83	133	96
2024-T3 (MMPDS A value)	MPa	441	290	14-16	72.4	290	73.8	269	662	407	841	462
	ksi	64	42	14-16	10.5	42	10.7	39	96	59	122	67
2024-T42 (MPDS S value)	MPa	427	262	14-16	72.4	262	73.8	262	641	365	814	421
	ksi	62	38	14-16	10.5	38	10.7	38	93	53	118	61

Table 4 Static properties of 2013-T6511 drawn tube in MMPDS (American unit).

Specification	AMS4326		AMS4469
Form	Extruded Bar, Rod, and Profiles		Drawn Tubing
Temper	T6511		T6511
Thickness, (in.)	≤0.200		0.120-0.400
Outside Dia., (in.)	3.40-3.55		
Basis	A	B	S
Mechanical Properties :			
Ftu, ksi :			
L	58	59	60
LT	57	58	
Fty, ksi :			
L	53	55	56
LT	49	51	
Fcy, ksi :			
L	53	55	55
LT	54	56	
Fsu			
a, ksi :			
L	41	42	37
LT	41	42	
Fbru			
a, ksi (e/D=1.5) :			
L	105	106	94
LT	104	105	
Fbru			
b, ksi (e/D=2.0) :			
L	133	135	117
LT	132	134	
Fbry			
b, ksi (e/D=1.5) :			
L	83	86	79
LT	82	85	
Fbry			
b, ksi (e/D=2.0) :			
L	96	100	88
LT	99	103	
e, percent (S-Basis) :			
L	8		7
LT			
E, 10 ³ ksi :			
L		9.9	
LT		10.1	
Ec, 10 ³ ksi :			
L		10	
LT		10.4	
G, 10 ³ ksi		3.7	
μ		0.34	
Physical Properties:			
ω , lb./in. ³		0.098	
C, K, and α			

Table 5 Static properties of 2013-T6511 drawn tube in MMPDS (SI unit).

Specification	AMS4326		AMS4469
Form	Extruded Bar, Rod, and Profiles		Drawn Tubing
Temper	T6511		T6511
Thickness, (in.)	≤0.200		0.120-0.400
Outside Dia., (in.)	3.40-3.55		
Basis	A	B	S
Mechanical Properties :			
Ftu, MPa :			
L	400	407	414
LT	393	400	
Fty, MPa :			
L	365	379	386
LT	338	352	
Fcy, MPa :			
L	365	379	379
LT	372	386	
Fsu			
a, MPa :			
L	283	290	255
LT	283	290	
Fbru			
a, MPa (e/D=1.5) :			
L	724	731	648
LT	717	724	
Fbru			
b, MPa (e/D=2.0) :			
L	917	931	807
LT	910	924	
Fbry			
b, MPa (e/D=1.5) :			
L	572	593	545
LT	565	586	
Fbry			
b, MPa (e/D=2.0) :			
L	662	689	607
LT	683	710	
e, percent (S-Basis) :			
L	8		7
LT			
E, 10 ³ MPa :			
L		68.3	
LT		69.6	
Ec, 10 ³ MPa :			
L		68.9	
LT		71.7	
G, 10 ³ MPa		25.5	
μ		0.34	
Physical Properties:			
ω , lb./in. ³		2.72	
C, K, and α			

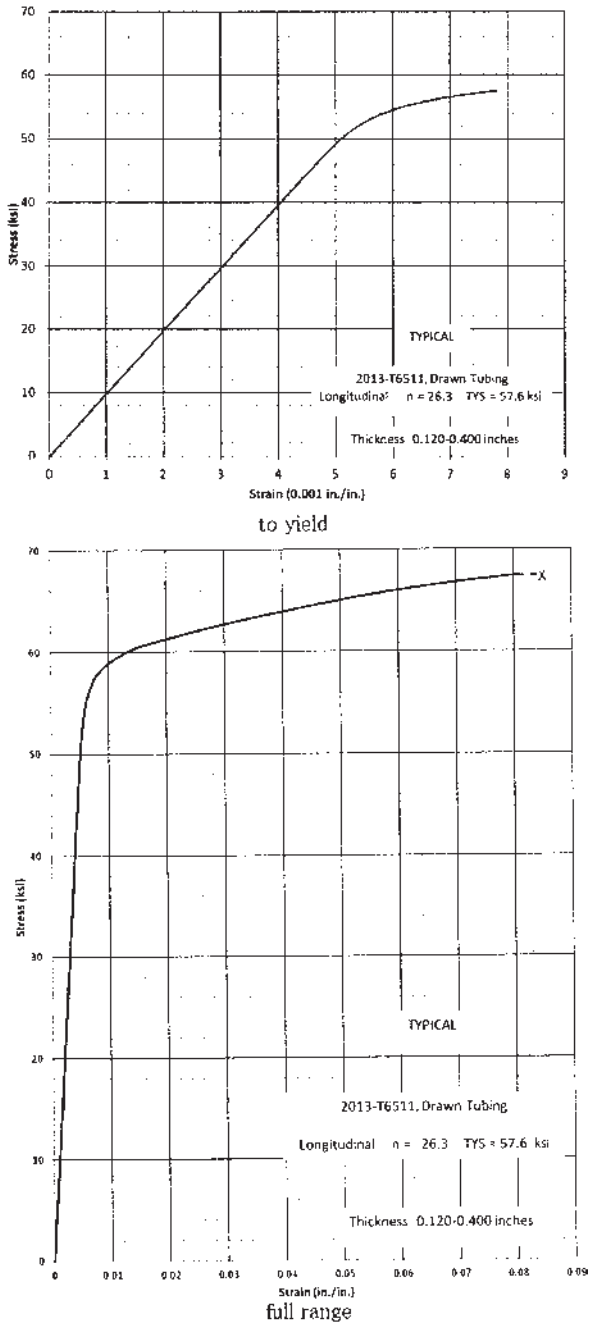


Fig. 7 Typical tensile stress-strain curve of 2013-T6511 drawn tube in MMPDS.

公表資料

論文・講演・資料

1. 論文・技術報告書（学・協会誌，国際会議論文集）

No.	題 目	著 者	掲 載 誌・論 文 集	発 行 月
1	これからの航空機産業とアルミニウム	吉 田 英 雄	カロス出版： アルトピア 第43巻1号	2013.01
2	銅合金の押出し加工におけるビレット表層流れのFEM解析	柴 田 聡 也 高 橋 昌 也	日本塑性加工学会： 塑性と加工 第54巻第624号	2013.01
3	スマートシートとスマートコアパネルの曲げ剛性	高 橋 昌 也 松 本 公 一 橋 本 一 真	日本機械学会： 日本機械学会論文集（A編）79巻 798号	2013.02
4	銅管の走間偏肉測定方法および装置の検討	武 藤 伸 之 (住軽伸銅) 中 村 俊 幸	日本非破壊検査協会： 非破壊検査 第62巻3号	2013.03
5	Al-Mg-Si系合金の腐食に及ぼす塩化物水溶液中のカチオン種の影響	藤 村 涼 子 小 山 高 弘 内 田 秀 俊	軽金属学会： 軽金属 第63巻5号	2013.05

2. 講演発表（学会，協会，講演会）

No.	題 目	発 表 者	講 演 大 会・研 究 発 表 会	発 表 月
1	循環給湯用銅管に発生する潰食とその対策	河 野 浩 三 鈴 木 忍	日本銅学会： 第52回講演大会	2012.11
2	輸送機の軽量化を実現する革新的AI技術	佐 野 秀 男	名古屋国際見本市委員会： 第2回次世代ものづくり基盤技術産業 展	2012.11
3	これからの航空機産業とアルミニウム	吉 田 英 雄	表面技術協会： 「第299回例会」	2013.02
4	電解コンデンサ用アルミニウム箔の表面ならびにピット発生に関する解析	大 澤 伸 夫	電子情報技術産業協会： 電解蓄電器研究会	2013.02
5	アルミ熱間押出しにおける摩擦応力測定とFEM解析への適用	高 橋 昌 也	日本塑性加工学会： プロセス・トライボロジー分科会 第136回研究会	2013.03
6	Al-Mg-Si系合金の曲げ加工性におよぼす時効析出物の影響	中 西 英 貴 浅 野 峰 生 吉 田 英 雄	軽金属学会： 第124回春期大会	2013.05
7	平面ひずみ圧縮試験法を用いた組織観察に関する考察	田 中 宏 樹 長 井 康 礼	軽金属学会： 第124回春期大会	2013.05
8	純アルミニウムの回復・再結晶速度に及ぼす不純物の固溶・析出の影響	吉 田 英 雄 大 久 保 喜 正	軽金属学会： 第124回春期大会	2013.05
9	脱膜型潤滑プレコートによる自動車用板材の成形性向上	上 田 薫 初 野 圭 一郎 戸 谷 友 貴	軽金属学会： 第124回春期大会	2013.05
10	アルミニウムのろうの流動におよぼす継手形状の影響	田 中 宏 和 (デンソー) 伊 藤 智 弘	軽金属学会： 第124回春期大会	2013.05
11	Al-Si系合金ろうの流動係数に及ぼすろう材Si粒径の影響	田 中 寿 和 田 中 宏 和	軽金属学会： 第124回春期大会	2013.05
12	高剛性シェル構造を付与したアルミニウム合金板「スマートシート」の開発	高 橋 昌 也	自動車技術会： 2013年春大会	2013.05
13	車体用アルミニウム展伸材の開発動向と適用事例	伊 藤 清 文	軽金属学会： 第91回シンポジウム	2013.06

3. 講演・解説・寄稿（抜粋）（学術・技術団体などの研究会・委員会、他）

No.	題 目	発 表 者	研究会・委員会・他	実 施 月
1	自動車アルミニウム材料の表面処理技術	竹 田 委千央	日本アルミニウム協会： 平成 24 年度「自動車のアルミ化技術 講習会」	2012.11
2	アルミニウム合金の高剛性シェル構造板の開発	高 橋 昌 也	軽金属学会東海支部： プレス加工部会 第 5 回懇談会	2012.11
3	当社におけるトライボロジー技術の新しい展開	上 田 薫	潤滑油協会： 平成 24 年度潤滑油製造業地方研修会 (名古屋)	2012.11
4	スマートシート関連業務を通じて感じたこと	深 田 紗 代	軽金属学会東海支部： 女性の会第二回講演会	2012.12
5	飲料缶用アルミニウム材料について	小 川 和 代	軽金属学会東海支部： 女性の会第三回講演会	2013.03
6	剛性を飛躍的に高めたアルミニウム合金板 SMARTSHEET を支える技術と適用例	高 橋 昌 也	日経 BP 社： Tech-On セミナー	2013.05
7	アルミニウム合金板の諸特性とその成形事例	岡 田 峰 光	日本塑性加工学会： 第 130 回塑性加工学講座	2013.06
8	集電体用アルミニウム箔の表面改質による 電池特性の向上	本 居 徹 也	サイエンス&テクノロジー株式会社： 企画技術セミナー	2013.06
9	電解エッチング技術の基礎	大 澤 伸 夫	表面技術協会： 第 84 回金属のアノード酸化皮膜の 機能化部会 (ARS) 例会	2013.06

（おことわり）発表者名は連名順序に関係なく，当社社員を先頭部に記載しています。

住友軽金属工業株式会社

本 社	〒105-8601	東京都港区新橋5-11-3 (新橋住友ビル)	☎ (03)3436-9700	FAX (03)3434-6464
大 阪 支 店	〒541-0041	大阪市中央区北浜4-5-33 (住友ビル)	☎ (06)6220-8407	FAX (06)6220-8404
名 古 屋 支 店	〒460-0022	名古屋市中区金山1-13-13(金山プレイス8F)	☎ (052)324-4710	FAX (052)324-4730
北 海 道 支 店	〒060-0003	札幌市中央区北三条西3-1-25 (北三条ビル8F)	☎ (011)241-4651	FAX (011)221-3254
静 岡 支 店	〒420-0857	静岡市葵区御幸町5-9 (静岡フコク生命ビル5F)	☎ (054)255-2471	FAX (054)255-6210
九 州 支 店	〒812-0011	福岡市博多区博多駅前1-2-5 (紙与博多ビル10F)	☎ (092)472-6301	FAX (092)472-6257
名古屋製造所	〒455-8670	名古屋市港区千年3-1-12	☎ (052)654-1111	FAX (052)654-0498
研究開発センター	〒455-8670	名古屋市港区千年3-1-12	☎ (052)651-2100	FAX (052)651-8117

<http://www.Sumitomo-LM.co.jp>

主な関連会社	住軽アルミ箔株式会社	株式会社ナルコ恵那
	株式会社住軽テクノ	住軽エンジニアリング株式会社
	株式会社住軽テクノ名古屋	NALCO (THAILAND) CO., LTD
	株式会社住軽テクノ群馬	P. T. YAN JIN (INDONESIA)
	Sumikei Techno Czech s. r. o.	IWAI METAL (AMERICA) CO., LTD
	Sumikei Techno (Thailand) Co., Ltd.	IWAI METAL (MEXICO) S.A. DE C.V.
	株式会社住軽伸銅	住軽商事株式会社
	スミケイ銅管販売株式会社	泉メタル株式会社
	東洋フイツテング株式会社	株式会社アルミセンター
	住軽(広州)金属製品有限公司	スミケイ運輸株式会社
	SUMIKEI (MALAYSIA) SDN. BHD.	株式会社住軽日軽エンジニアリング
	株式会社ナルコ岩井	軽金属押出開発株式会社

当社製品の主な用途

●アルミ圧延品

板製品 ビール缶、清涼飲料水缶、コーヒー缶、ボトル缶、PPキャップ、各種容器、アルミ箔製品、エアコン放熱器、コンピュータ部品、厨房器具、ビル建築用外装パネル、建築用内外装品(ブラインド、ドア、サイディング)、防音パネル、自動車部品、カーエアコン、ラジエータ、コンテナ、トレーラ、鉄道車両、航空機、船舶、印刷版、ネームプレート、反射板、熱交換器(産業用)、各種機械部品、ほか。

管、棒、形材製品 自動車部品、二輪車部品、トラック用アオリ、コンテナ、船舶、航空機、鉄道車両、高欄、手すり、水門、照明用ポール、電話ボックス、アーバンファニチャー、テレビ・ビデオ部品、ステレオ・ラジオ部品、OA機器部品、カメラ部品、制御機器部品、野球バット、ラケット、スキースtock、トロフィー、電子ピアノ部品、エアシリンダー、熱交換器(産業用)、ブスバー、各種配管、ほか。

●伸銅品

銅・銅合金管 給水・給湯用被覆銅管(プリゾール・チューブ)、STC銅管、建築設備配管、給水・給湯配管、医療ガス配管、空調冷媒用配管、原子力・火力発電所復水器、海水淡水化装置、ほか。

銅管継手・他 継手(エルボ、ソケット、ユニオン、T、おす・めすアダプター等)、電子機器冷却用ヒートパイプ、床暖房パネル、復水器用チタン管、ほか。

当社製品に関する情報は、インターネットでもご覧いただけます。

<URL> <http://www.Sumitomo-LM.co.jp>

複写される方へ

本誌は下記協会に複写に関する権利を委託していますので、本誌に掲載された著作物を複写したい方は、同協会から許諾を受けて複写して下さい。但し(社)日本複写権センター(同協会が権利を再委託)と包括複写許諾契約を締結している企業の社員による社内利用目的の複写ではその必要はありません。(社外頒布用の複写は許諾が必要です。)

なお、著作物の転載・翻訳のような、複写以外の許諾は、同協会では扱いませんので、発行人へ直接ご連絡ください。

権利委託先：(中法) 学術著作権協会
〒107-0052 東京都港区赤坂9-6-41 乃木坂ビル
TEL：03-3475-5618 FAX：03-3475-5619
E-mail：info@jaacc.jp

また、アメリカ合衆国において本誌を複写したい場合は、次の団体に連絡して下さい。

Copyright Clearance Center, Inc.
222 Rosewood Drive, Danvers, MA 01923 USA
Phone +1-978-750-8400 FAX +1-978-646-8600

Notice for Photocopying

If you wish to photocopy any work of this publication, you have to get permission from the following organization to which licensing of copyright clearance is delegated by the copyright owner.

<All users except those in USA>
Japan Academic Association for Copyright Clearance, Inc. (JAACC)
6-41 Akasaka 9-chome, Minato-ku, Tokyo 107-0052 Japan
Phone：+81-3-3475-5618 FAX：+81-3-3475-5619
E-mail：info@jaacc.jp

<Users in USA>
Copyright Clearance Center, Inc.
222 Rosewood Drive, Danvers, MA 01923 USA
Phone：+1-978-750-8400 FAX：+1-978-646-8600

住友軽金属技報 第54巻 第1号 (非売品)

平成25年8月31日 印刷 [無断転載お断り]

平成25年8月31日 発行 (年1回発行)

発行所 住友軽金属工業株式会社研究開発センター
編集兼 洪 江 和 久
発行人

名古屋市港区千年3丁目1番12号
郵便番号 455-8670
電話(案内) (052) 651-2100
ファックス (052) 651-8117
E-mail: RDC_GYOMU@mail.Sumitomo-LM.co.jp

印刷所 株式会社 昭栄社 印刷所
名古屋市中川区十番町3丁目1番地

Issued August 31, 2013, (annually)

SUMITOMO LIGHT METAL TECHNICAL REPORTS VOL. 54 NO.1

SUMITOMO LIGHT METAL INDUSTRIES, Ltd.
Research & Development Center

3-1-12, Chitose, TEL: +81-52-651-2100
Minato-ku, Nagoya, FAX: +81-52-651-8117
455-8670 JAPAN E-mail: RDC_GYOMU@mail.Sumitomo-LM.co.jp

SUMITOMO LIGHT METAL INDUSTRIES, LTD.
RESEARCH & DEVELOPMENT CENTER