

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 1-6

論 文

## Al-Mg-Si 系合金の曲げ加工性に及ぼす第2相粒子の影響\*

浅野峰生\*\* 内田秀俊\*\*  
吉田英雄\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 1-6

## Effect of Second Phase Particles on the Bendability of an Al-Mg-Si Alloy

Mineo Asano, Hidetoshi Uchida and Hideo Yoshida

## Al-Mg-Si 系合金の曲げ加工性に及ぼす第2相粒子の影響\*

浅野 峰生\*\* 内田 秀俊\*\*  
吉田 英雄\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 1-6

Effect of Second Phase Particles  
on the Bendability of an Al-Mg-Si Alloy

Mineo Asano, Hidetoshi Uchida and Hideo Yoshida

The effect of second phase particles on the bendability of Al-Mg-Si alloy was investigated by changing solution heat treatment condition and quenching rate. Fast quenching rate made good bendability, because the number of second phase particles on the grain boundaries decreased. No crack by bending test was observed with short solution heat treatment time. However, cracks were observed with long solution heat treatment time. The depth of the crack increased with solution heat treatment time to maximum value and then decreased. The number of second phase particles decreased with solution heat treatment time. The formation of shear bands by deformation increased with solution heat treatment time. When shear bands form significantly and many second phase particles exist, the crack occurs easily along the shear bands and the second phase particles.

## 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、その中の一つとしてボディパネルが挙げられる。アルミニウム合金のボディパネル用材料として、日本では Al-Mg 系合金が主に使用されてきた。しかし近年、塗装焼付硬化性を持ち、リサイクル性にも優れることから、Al-Mg-Si 系合金使用の検討が進められてきている。現に欧米では Al-Mg-Si 系合金がボディパネル用材料の主流となっている<sup>1)</sup>。フードやドア等のアウトパネルは縁でインナーパネルをかしめる曲げ加工（ヘム加工）を行うが、Al-Mg-Si 系合金は Al-Mg 系合金と比較して曲げ加工性が劣る。そのため、Al-Mg-Si 系合金をボディパネルへ適用する際の課題の一つとして、曲げ加工性の向上が挙げられる。Al-Mg-Si 系合金の曲げ加工性には第2相粒子や結晶粒径等が大きく影響を及ぼすと考えられ、これまで粒界に析出するシリコン相の影響<sup>2)</sup>、結晶粒径の影響<sup>3)</sup>等多

くの報告がなされている。しかし、第2相粒子に大きく影響を及ぼすと考えられる溶体化処理時間の影響については報告された例がない。

そこで本研究では、溶体化処理条件を変化させ、Al-Mg-Si 系合金の曲げ加工性に及ぼす第2相粒子の影響について調査を行った。

## 2. 実験方法

Table 1 に示す化学組成を有する Al-Mg-Si 系合金鋳塊を均質化処理、熱間圧延、中間焼鈍、冷間圧延により 1.0mm の板材とした。この冷間圧延板を塩浴炉にて 550℃で 15s, 45s, 75s, 300s, 1800s および 3600s の溶体化処理を行い、その後水冷（冷却速度 300℃/s）、強制空冷（冷却速度 20℃/s）、放冷（冷却速度 2℃/s）で焼入れを行った。

曲げ試験は、圧延方向に対して平行方向に長さ 200mm、

Table 1 Chemical composition of specimens (mass %).

Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
1.02	0.15	Tr.	0.08	0.46	Tr.	Tr.	0.04	Bal.

\* 軽金属学会第100回春期大会（平成13年5月）にて一部発表，軽金属，52（2002），448 に一部掲載

\*\* 研究開発センター 第一部

\*\*\* 研究開発センター 第一部，工学博士



幅 25mm で切り出した板材に 15% 引張予ひずみを加えた後、押し曲げ法 (JIS Z2248) により 180° 曲げ試験を行った。曲げ部の割れ深さ測定は曲げ試験後の断面を光学顕微鏡を用いて観察し、表層から垂直方向に割れ先端までの深さを測定した。各供試材より圧延方向に対して平行方向に JIS 5 号引張試験片を採取し、インストロン型引張試験機を用いて引張試験を行った。曲げ試験および引張試験は溶体化処理後、常温 (20°C) で 7 日間保持した後にを行った。

各供試材について、第 2 相粒子の分布測定は光学顕微鏡を備えた画像解析装置を用いて行った。結晶粒界上の第 2 相粒子の分布測定は透過電子顕微鏡を用いて、単位長さ当たりの結晶粒界上の個数を計測することにより行った。このとき透過電子顕微鏡は日本電子製 JEM-200 CX を用い、加速電圧 200kV で観察を行った。

### 3. 結果及び考察

#### 3.1 供試材の機械的特性と曲げ加工性

Fig. 1 に溶体化処理後、水冷、強制空冷、放冷で焼入れを行った試料の 0.2% 耐力と溶体化処理時間の関係を示す。耐力は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ともなって増加し、溶体化処理時間 75s 以上ではほぼ一定の値となった。溶体化処理時間が同じ場合、焼入れ速度が小さいほど低くなった。

Fig. 2 に溶体化処理後、水冷、強制空冷、放冷で焼入れを行った試料の曲げ割れ深さと溶体化処理時間の関係を示す。いずれの焼入れ速度においても溶体化処理時間 15s では割れの発生はなかった。しかし、溶体化処理時間が長くなると割れが発生し、割れ深さは溶体化処理時間の増加とともに増加し、最大値を示した後、減少した。また、割れ深さの最大値は焼入れ速度が小さいほど大きくなった。

#### 3.2 焼入れ速度の影響

各焼入れ速度において割れ深さの大きかった溶体化処

理時間 75s で溶体化処理を行った試料の曲げ試験後の断面光学顕微鏡組織を Fig. 3 に示す。放冷で焼入れを行った試料 (Fig. 3 (c)) は矢印で示したように一部粒界割れしていると思われる場所が観察される。一方、水冷および強制空冷で焼入れを行った試料 (Fig. 3 (a) および (b)) は粒界割れしていると思われる場所は観察されない。そこで、割れ深さに及ぼす焼入れ速度の影響を調査するために、第 2 相粒子分布および結晶粒界上の第 2 相粒子分布に及ぼす焼入れ速度の影響について調査を行った。

各焼入れ速度において溶体化処理時間 75s で溶体化処理を行った試料の透過電子顕微鏡組織を Fig. 4 に示す。焼入れ速度が小さいほど結晶粒界上の第 2 相粒子数およびサイズは増加しており、放冷で焼入れを行った試料の第 2 相粒子サイズは最大 2 $\mu$ m であった。また EDX 分析の結果、結晶粒界上の第 2 相粒子は Mg<sub>2</sub>Si もしくはシリコン相であった。各焼入れ速度における結晶粒界上の第 2 相粒子分布を Fig. 5 に示す。結晶粒界上の第 2 相粒子数に及ぼす溶体化処理時間の影響はみられず、焼入れ速度の影響のみみられ、焼入れ速度が小さいほど結晶粒界上の第 2 相粒子数は増加した。

水冷および放冷で焼入れを行った試料の全第 2 相粒子分布 (粒界および粒内すべての第 2 相粒子分布) を Fig. 6 に示す。全第 2 相粒子数に及ぼす焼入れ速度の影響はみられなかった。Fig. 5 で示した放冷で焼入れを行った試料の結晶粒界上の第 2 相粒子サイズは平均 1 $\mu$ m であり、透過電子顕微鏡の観察面積で単位面積あたりの個数を計算し Fig. 6 と比較した場合、1/10 程度であった。このことから、Fig. 6 で示した 2 $\mu$ m 未満の全第 2 相粒子数の大半は溶体化処理で固溶しなかった第 2 相粒子であると考えられる。また、これらの第 2 相粒子は溶体化処理で固溶しないことから、主に Al-Mn-Si 系および Al-Fe-Si 系の析出物であると考えられる<sup>4)</sup>。

以上のことから、Fig. 2 において溶体化処理時間が同じ条件で焼入れ速度が小さいほど割れ深さが大きくなっ

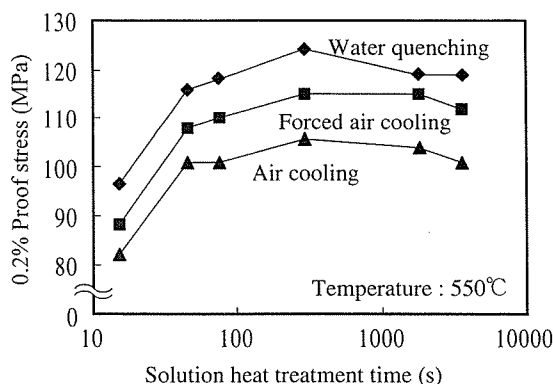


Fig. 1 Effects of solution heat treatment time and quenching rate on 0.2% proof stress. The samples were solution heat treated at 550°C.

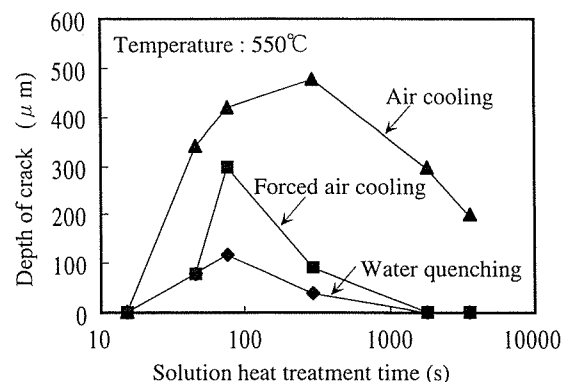
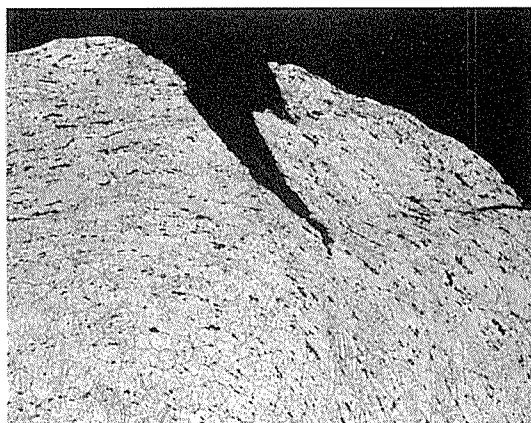


Fig. 2 Effects of solution heat treatment time and quenching rate on the depth of a crack. The samples were solution heat treated at 550°C.

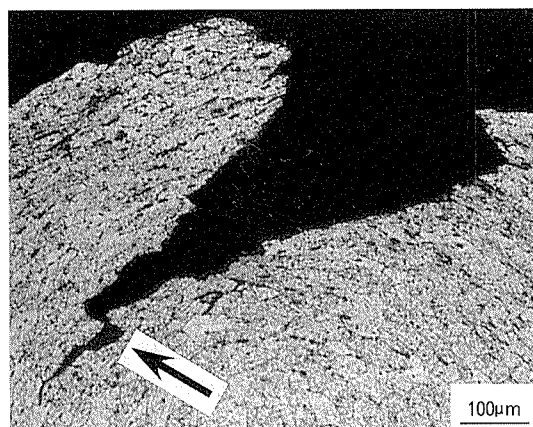
たのは、結晶粒界上の第2相粒子数の増加により、粒界が剥離し易くなったためと考えられる。しかし、Fig. 2において割れ深さが溶体化処理時間の増加とともに増加し、最大値を示した後、減少した実験結果は説明することができない。そこで、割れ深さに及ぼす溶体化処理時間の影響について調査を行った。



(a) Water quenching



(b) Forced air cooling

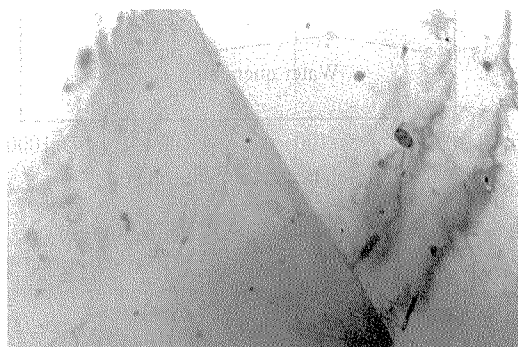


(c) Air cooling

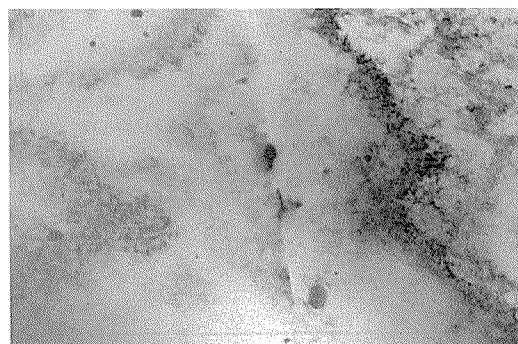
Fig. 3 Microstructures of specimen after bending test. The samples were solution heat treated at 550°C for 75s.

### 3.3 溶体化処理時間の影響

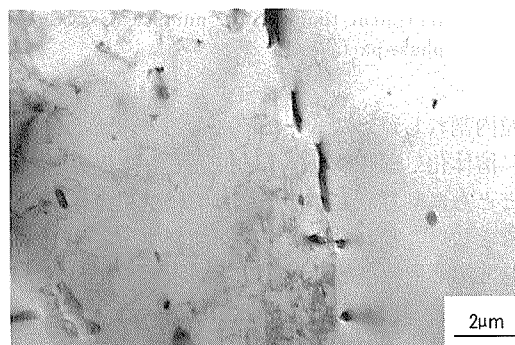
Fig. 6 から全第2相粒子に及ぼす溶体化処理時間の影響はみられ、溶体化処理時間の増加とともに2μm以上の第2相粒子は減少した。このことから、Fig. 2において溶体化処理時間75s以降（放冷で焼入れを行った試料は300s以降）で溶体化処理時間の増加とともに割れ深さが減少したのは、2μm以上の第2相粒子の減少によ



(a) Water quenching



(b) Forced air cooling



(c) Air cooling

Fig. 4 Transmission electron micrographs after quenching. The samples were solution heat treated at 550°C for 75s.

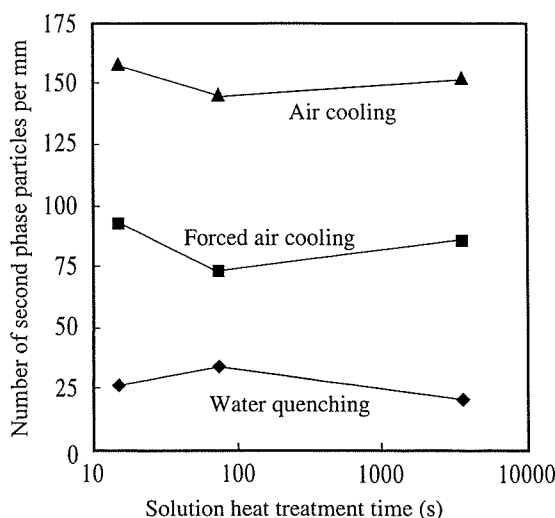


Fig. 5 Effects of quenching rate and solution heat treatment time on the number of second phase particles on the grain boundaries.

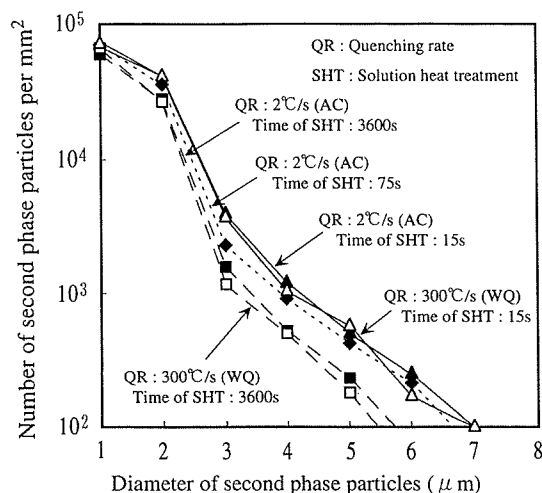
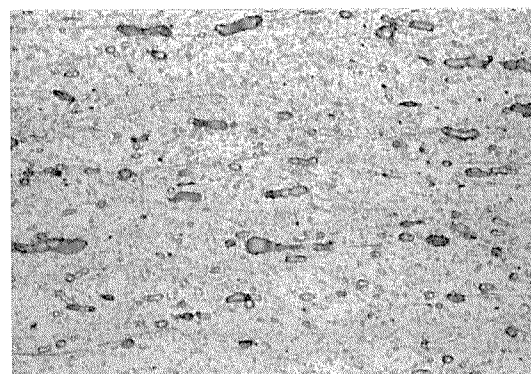


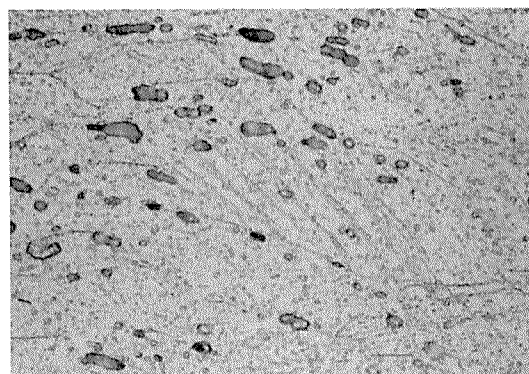
Fig. 6 Effects of quenching rate and solution heat treatment time on the number of second phase particles.

り、粒内割れし難くなったためであると考えられる。しかし、溶体化処理時間 0s~75s 付近で溶体化処理時間の増加とともに割れ深さが増加した実験結果は説明することができない。割れ深さに影響を及ぼすと考えられる因子として第 2 相粒子の他に変形中の組織変化が挙げられる<sup>5)</sup>。そこで、変形中の組織変化に及ぼす溶体化処理時間の影響について調査を行った。

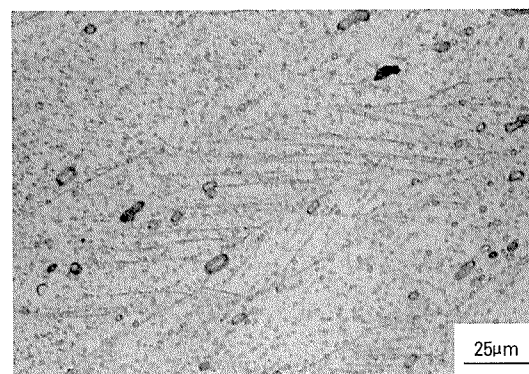
各溶体化処理時間において水冷で焼入れを行った試料の曲げ試験後の表層から 200μm 付近の断面光学顕微鏡組織を Fig. 7 に示す。溶体化処理時間 15s では明瞭なせん断帯の形成はみられず、溶体化処理時間 75s および 3600s では著しいせん断帯の形成がみられた。なお、強



(a) Solution heat treatment time : 15s



(b) Solution heat treatment time : 75s



(c) Solution heat treatment time : 3600s

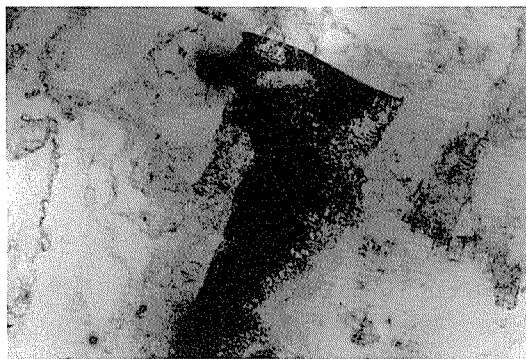
Fig. 7 Microstructures of specimen after bending test. The samples were quenched in water after solution heat treatment at 550°C.

制空冷、放冷で焼入れを行った試料についても同様の傾向がみられており、各焼入れ条件での違いはみられなかった。ここでせん断帯とは光学顕微鏡で観察されるレベルの結晶粒界をまたぐ変形帯のことであり、せん断帯は透過電子顕微鏡で観察されるレベルの微小なせん断帯（マイクロバンド）により形成されると定義した<sup>6, 7)</sup>。そこで、せん断帯形成に及ぼす溶体化処理時間の影響を明確にするため、水冷で焼入れを行った試料を 15% 引張りひずみ負荷した後に透過電子顕微鏡観察を行った。各溶体化処理時間における（L-LT 面、板厚中心部）透過電子顕微鏡組織を Fig. 8 に示す。溶体化処理時間 15s ではマイクロバンドの形成はみられず、溶体化処理時間

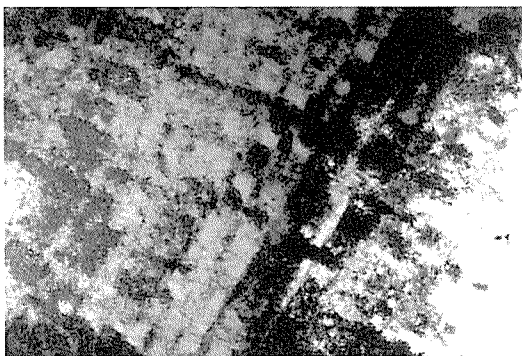
75s および 3600s でのみマイクロバンドの形成がみられた。溶体化処理時間 75s および 3600s でのマイクロバンドの形成状態に違いはみられなかった。

曲げ試験片割れ近傍の断面光学顕微鏡組織を Fig. 9 に示す。割れは引張応力の負荷される外側表層付近の第2相粒子を発生起点 (Fig. 9 (a) 実線矢印) および経路 (Fig. 9 (b) 実線矢印) として、せん断帯に沿った様な直線的な伝播 (Fig. 9 (b) および (c) 点線矢印) をして

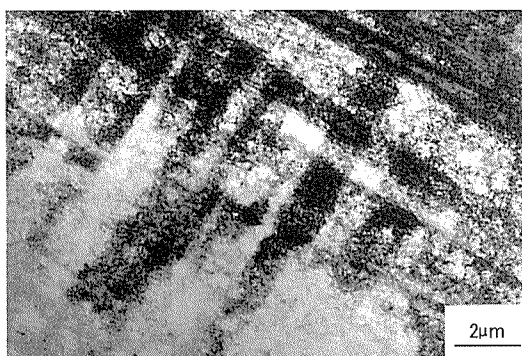
いるのが観察される。引張応力の負荷される外側表層付近において、第2相粒子とマトリックスの界面では剥離により、微小空洞 (マイクロボイド) が発生する<sup>8)</sup>。割れは第2相粒子の周りに発生したマイクロボイドを発生起点とし、その後、マイクロボイドとせん断帯に沿って伝播すると考えられる。以上のことから、Fig. 2 において溶体化処理時間 0s~75s 付近で溶体化処理時間の増加とともに割れ深さが増加したのは、変形時に著しいせん断帯の



(a) Solution heat treatment time : 15s



(b) Solution heat treatment time : 75s



(c) Solution heat treatment time : 3600s

Fig. 8 Transmission electron micrographs after 15% strained. The samples were quenched in water after solution heat treatment at 550°C.

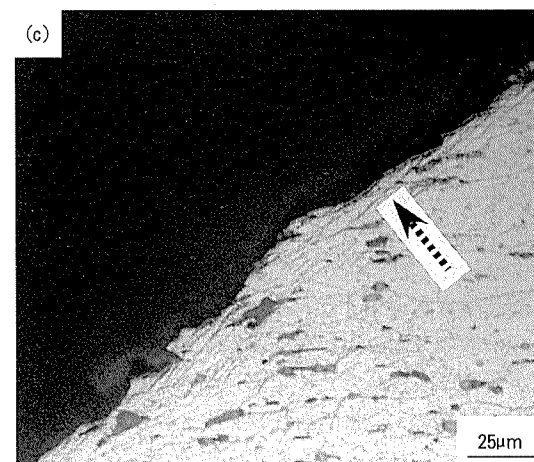
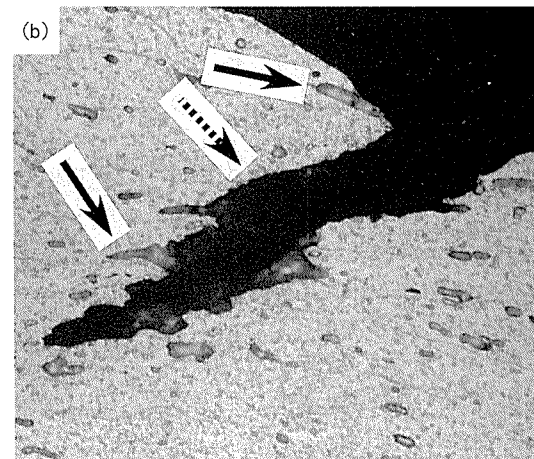
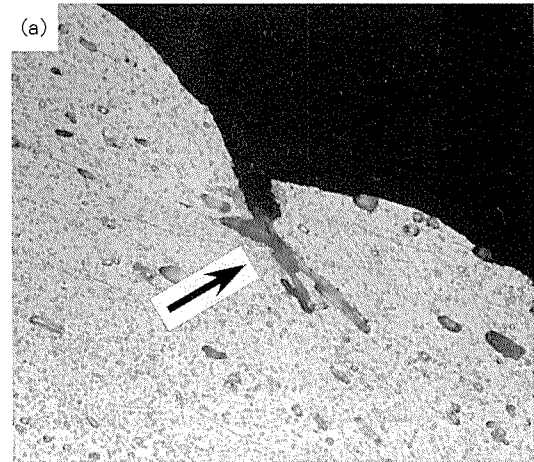


Fig. 9 Microstructure of specimen after bending test. The samples were quenched in water after solution heat treatment at 550°C for 75s.

形成がみられるようになり、かつ第2相粒子が多く存在していたためであると考えられる。

Fig. 7から溶体化処理時間15sでは明瞭なせん断帯の形成はみられず、溶体化処理時間75sおよび3600sでは著しいせん断帯の形成がみられた。このことから、溶質原子量の増加もしくはGPゾーンの形成はせん断帯の形成に影響を及ぼすと考えられる。すなわち、塑性変形による転位の移動が溶質原子もしくはGPゾーンによって妨げられ、その結果としてせん断帯が形成されたと考えられるが、これらの詳細についてはさらに検討する必要がある。なお、内田ら<sup>9)</sup>はAl-Mg系合金において、溶質原子量の増加により引張変形後のせん断帯の形成が著しくなると報告している。

#### 4. 曲げ割れ発生メカニズムの考察

3. 3項から、溶体化処理時間で変化するのは全第2相粒子数と変形時にはせん断帯の形成であり、溶体化処理時間の増加にともなって2 $\mu$ m以上の全第2相粒子数は減少し、変形時には著しいせん断帯の形成がみられるようになることが分かった。このことから、Fig. 2において割れ深さが溶体化処理時間の増加とともに増加し、最大値を示した後、減少したのは次のように考えられる。溶体化処理時間15sでは全第2相粒子数は多いが、明瞭なせん断帯は形成されていない。そのため、マイクロボイドは多く形成されるが、マイクロボイド間での割れは伝播せず、割れが発生しなかったと考えられる。溶体化処理時間3600sではせん断帯は著しく形成されているが、全第2相粒子数が少ない。そのため、マイクロボイドの形成が少なく、割れが発生しなかったと考えられる。一方、溶体化処理時間75sでは全第2相粒子数が多く、せん断帯も著しく形成されている。そのため、マイクロボイドとせん断帯に沿った割れの伝播が起こり易くなり、割れが発生したと考えられる。

結晶粒界上の第2相粒子が多い場合、マイクロボイドは第2相粒子とマトリックスの界面だけでなく、結晶粒界上の第2相粒子の周りでも結晶粒界が剥離することにより形成されることが考えられる。3. 2項から、焼入れ速度で変化するのは結晶粒界上の第2相粒子数であり、焼入れ速度が小さいほど2 $\mu$ m未満の結晶粒界上の第2相粒子数は増加することが分かった。このことから、Fig. 2において溶体化処理時間が同じ条件で焼入れ速度が小さいほど割れ深さが大きくなったのは、結晶粒界上の第2相粒子数の増加により、粒界が剥離し易くなり、マイクロボイドが多く形成されたためと考えられる。

以上のことから、曲げ割れの発生メカニズムはFig. 10のように考えられる。せん断帯が形成されない場合には全第2相粒子数および結晶粒界上の第2相粒子数に関わらず割れは発生しない。せん断帯が著しく形成され、引張応力の負荷される外側表層付近に2 $\mu$ m以上の第2相

Second phase particle  
with cavity

Shear bands

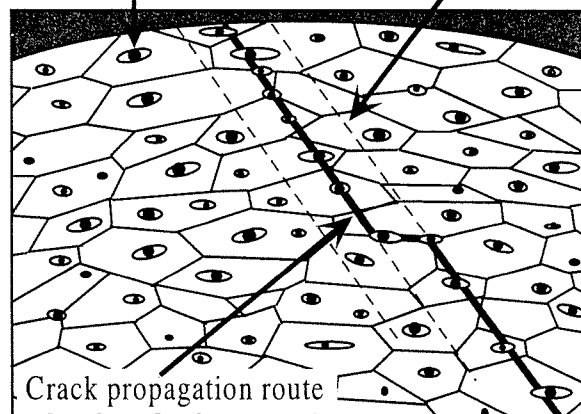


Fig. 10 Schematic diagram of the crack formation by bending process.

粒子および2 $\mu$ m未満の結晶粒界上の第2相粒子が多く存在している場合、割れが発生する。割れが発生した後、せん断帯と2 $\mu$ m以上の第2相粒子もしくはせん断帯と2 $\mu$ m未満の結晶粒界上の第2相粒子に沿って割れが伝播する。但し、Fig. 3(c)から結晶粒界上の第2相粒子が多い場合は一部せん断帯に沿わない結晶粒界に沿った割れの伝播も起こると思われる。

#### 5. 結 言

溶体化処理時間の増加にともなって全第2相粒子数(2 $\mu$ m以上)が減少し、変形時には著しいせん断帯の形成がみられるようになる。焼入れ速度が小さいほど結晶粒界上の第2相粒子数(2 $\mu$ m未満)は増加する。せん断帯の形成と全第2相粒子数が共に多い場合もしくはせん断帯と結晶粒界上の第2相粒子数が共に多い場合、曲げ加工性は低下する。

#### 参 考 文 献

- 1) 西村嘉彦：金属，65 (1995)，1194.
- 2) 佐賀 誠，佐々木行雄，川崎 薫，菊池正夫，朱 岩，松尾 守：軽金属学会第90回春期大会講演概要，(1996)，285.
- 3) 高木康夫，増田哲也，櫻井健夫：軽金属学会第97回秋期大会講演概要，(1999)，177.
- 4) 馬場義雄，高島 章：本誌，10 (1969)，210.
- 5) B.Bay, N.Hansen and D.Kuhlman-Wilsdorf：Mat.Sci. and Eng., A185 (1992)，41.
- 6) 川崎宏一，松尾宗次：鉄と鋼，70 (1984)，1808.
- 7) J.GREWEN, J.HUBER and M.HATHERLY：Metals Forum, 1 (1978)，115.
- 8) 小林俊郎編著：アルミニウム合金の強度，内田老鶴圃，(2001)，105.
- 9) 内田秀俊，吉田英雄：本誌，37 (1996)，1.



住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 7-13

論文

# 7475系アルミニウム合金温間圧延材の微細粒組織形成に 及ぼすロール温度の影響\*

田 中 宏 樹\*\* 江 崎 宏 樹\*\*\*  
箕 田 正\*\*\* 洪 江 和 久\*\*  
吉 田 英 雄\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 7-13

## Effect of Roll Temperature on Formation of Refined Grains of Warm Rolled 7475 Based Aluminum Alloy Sheets

Hiroki Tanaka, Hiroki Esaki, Tadashi Minoda,  
Kazuhisa Shibue and Hideo Yoshida

# 7475系アルミニウム合金温間圧延材の微細粒組織形成に及ぼすロール温度の影響\*

田 中 宏 樹\*\* 江 崎 宏 樹\*\*\*  
 箕 田 正\*\*\* 渋 江 和 久\*\*  
 吉 田 英 雄\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 7-13

## Effect of Roll Temperature on Formation of Refined Grains of Warm Rolled 7475 Based Aluminum Alloy Sheets

Hiroki Tanaka, Hiroki Esaki, Tadashi Minoda,  
 Kazuhisa Shibue and Hideo Yoshida

The effect of temperature of the rolls from 2°C to 110°C in the warm roll process at 350°C was investigated in an attempt to refine the structure of the 7475 based aluminum alloy sheets including Zr which were heated after each roll pass. It was found that a lower temperature of the rolls led the alloy sheets to coarser grain structure after solution heat treatment. The {100}<011> Diagonal Cube component appeared in the surface layer, which suggested that strong shear bands had been formed during rolling in the layer. It was thought that these shear bands acted as nucleation sites for the recrystallized grains in solution heat treatment and contributed to the development of the coarse grain structure in the surface layer. Regarding the center region of the rolled plates, low temperature of the roll did not cause sufficient plastic deformation because of the cyclic occurrence of hardening and softening at the surface layer in the warm rolling process. Consequently, the center region also became coarse grain structure after solution heat treatment. On the contrary, in the case of a higher temperature of the rolls, the subgrain structure less than 3μm was formed uniformly through the thickness of the plates after solution heat treatment with the strong Brass texture component.

### 1. 緒 言

構造用アルミニウム合金の高強度化は、それを用いた輸送機等の軽量化に直結する重要な課題である。Hall-Petch の経験則<sup>1), 2)</sup>で知られるように、材料の強度と結晶粒径とは相関があり、従って微細粒化は材料強度を向上させるために有効な手段である。7000 系アルミニウム合金の組織の微細化は以前から検討されており、铸造

欠陥低減を目的とした熱間圧延前の加工熱処理の開発<sup>3), 4)</sup>や熱間圧延以降の加工熱処理の開発<sup>5)</sup>によって、溶体化処理後に粒径 10μm 程度の微細化が達成されている。著者らはこれまで 7475 ベースに Zr 添加 (Cr 無添加) した合金を 350°C に加熱して 1 パス再加熱を繰り返す圧延 (以下、恒温圧延と称す) を施すことで、溶体化処理後も 3μm 以下のサブグレイン組織から成る熱的安定な下部組織が形成されるプロセスを開発してきた<sup>6), 7)</sup>。この方法で得られた微細粒組織を有する板材は冷間圧延工程で試作した 7475 アルミニウム合金板材に比べ、同等以上の強度で耐応力腐食 割れ性に優れる特性をもつ

\* 軽金属, 52 (2002), 231 に主要部掲載

\*\* 研究開発センター 第一部

\*\*\* 研究開発センター 第一部, 工学博士

ことがわかった<sup>7)</sup>。

上述の恒温圧延プロセスの課題として、溶体化処理後の粗大粒発生を完全には抑制できていない点がある。実用材では大型素材の製造が必要となるが、その際粗大粒の発生は大きな問題となることが予想される。これまで検討してきた恒温圧延では素材の加熱条件のみに着目してプロセス制御してきたが、素材が接触する加工装置の温度、つまり圧延ロールの温度は制御していなかった。素材がロールに接触している時間はごく短時間ではあるが、ロール温度が素材の組織形成に及ぼす影響を調査することは必要であると思われる。圧延ロール温度がアルミニウム合金の組織形成に及ぼす影響については、これまでほとんど研究事例が見当たらない。

そこで本研究では恒温圧延時のロール温度を2℃～110℃まで変化させて、得られた板材の金属組織の熱的安定性を調査した。

## 2. 実験方法

供試材として Table 1 に示す合金を溶製し、半連続鋳造法によって直径90mmのビレットを得た。ビレットを100mm長さに切断後、Table 2 に示す工程で板を作成した。まず大気炉で470℃-10hの均質化処理を行い、350℃-10hの予備加熱後350℃で鍛造を開始して厚さ40mmに仕上げた。さらに機械加工によって30mmまで面削を行った後、100×100mmに切断して350℃で恒温圧延を行った。この際、350℃に昇温保持した大気炉を用い、1パス毎に30分間の再加熱を行って1mmまで圧延した。恒温圧延時のロール温度は Table 3 に示す条件に制御した。A, B工程は1mmまでの圧延をロール温度がそれぞれ2℃～10℃、20℃～30℃の範囲で行った。C, D工程用にはB工程の途中板(8mm厚さ)を用い、

Table 1 Chemical composition of specimen (mass%).

Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Zr	Al
0.02	0.03	1.64	<0.01	2.40	<0.01	5.55	0.03	0.17	Bal.

Table 2 Experimental procedure.

Stage	Condition
Casting	Semicontinuous direct chill techniques into billets of 90 mm in diameter
Homogenization	470℃-10h
Pre-heating	350℃-10h
Forging	350℃, 100mm→40mm
Machining	30mm×100mm×100mm
Isothermal rolling	350℃, re-heating/pass, 14passes
Annealing	350℃-30min
Solution heat treatment	480℃-5min W.Q.

Table 3 Roll temperature of each experimental process.

Process	Thickness of plate		
	30mm	8mm	1mm
A		2~10℃	2~10℃
B		20~30℃	20~30℃
C		↑	60~80℃
D		↑	90~110℃

それぞれ60℃～80℃、90℃～110℃のロール温度で1mmまで圧延した。トータルのパス数は14パスで、30mmから8mmまでを7パス、残りを7パスで行った。圧延ロールの直径は250mm、ロール回転数は60rpmで圧延を行った。圧延時の潤滑剤として、市販のマシン油を用いた。ロール加熱は中心軸にカートリッジヒーターを差し込んで行った。カートリッジヒーターの能力上の制約から、ロールを110℃より高温に加熱することはできなかった。最終圧延後に350℃-30minの熱処理を大気炉で行い、さらに溶体化処理として塩浴炉で480℃-5minの熱処理後、水焼入れを施した。金属組織の状態を調べるため、光顕組織及びTEM組織を観察した。また溶体化処理前後の集合組織変化を(111)極点図を用いて調査した。さらにBungeが提唱した級数展開法<sup>8)</sup>を用いて結晶方位分布関数(Crystallite Orientation Distribution Function, 略してODF)を求め、集合組織の三次元方位解析を行った。ODF解析は偶数項の展開次数を22、奇数項の展開次数を19として計算した。

## 3. 実験結果

### 3.1 温間圧延後の試料温度

Fig. 1 に各パス終了後の試料温度測定結果を示す。温

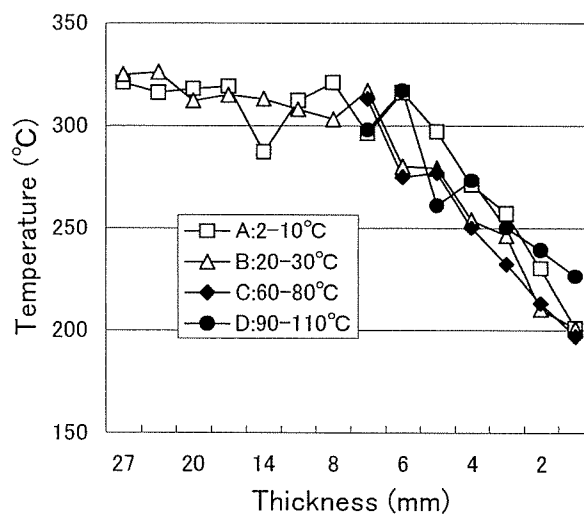


Fig. 1 Temperature changes of the warm rolled sheets with different thickness after each pass. Roll temperature at (A) 2-10℃, (B) 20-30℃, (C) 60-80℃ and (D) 90-110℃.



度測定は接触式温度計を用い、圧延終了後 10s 以内に測定した。板厚 8mm までは 300℃程度の温度を保っているが、板厚が小さくなるにつれてロールへの放熱の影響が顕著となり、圧延後の材料温度低下量が增大する傾向が見られる。最終パス後の材料温度は D 工程材が他の工程材に比べ約 20℃高くなったが、それ以前のパスにおいて工程間の有意差は認められない。

### 3.2 溶体化処理後の結晶粒組織

A～D工程で試作した材料の溶体化処理後の L-ST 面偏光顕微鏡組織を Fig. 2 に示す。ロール温度が 60℃以上である C, D 工程材では粗大粒の発生が認められず、全域が繊維状組織となっている。ロール温度が 20℃～30℃である B 工程材は板表面の一部に粗大粒の発生が認められるが、内部のほとんどの領域は繊維状組織となっている。ロール温度を 2℃～10℃とした A 工程材はごく一部に繊維状組織の残存が見られるものの、ほとんどの領域で粗大粒の形成が顕著となっている。A 工程材は表層部よりも中心部の方がより粗大粒化する傾向が認められる。

溶体化処理後の板厚中心部の TEM 組織を Fig. 3 に示す。光顕組織観察で繊維状組織を呈していた B～D 工程材は、3μm 以下の微細粒組織となっていることがわかる。A 工程材の場合、若干微細粒組織となっている領域が認められるが、ほとんどの領域は粗大粒組織である。各工程材に見られる微細なスポットは Al-Zr 系化合物によるものである<sup>9)</sup>。

### 3.3 集合組織

恒温圧延の途中段階（8mm 厚さ）と最終パス後の (111) 極点図を Fig. 4 に示す。各試料の板表面及び板厚中心面の集合組織を調べた結果である。まず板厚中心

面の極点図を工程間で比較すると、いずれの条件においても集合組織に大きな差は認められず、Brass 方位 {011} <211> が優先方位となっていると考えられる。最終パス後の板厚中心面における優先方位の強度レベルは A 工程材が最も低く、ロール温度が高くなるほど強度レベルは上昇する傾向が認められる。板表面部はロール温度が低い場合と高い場合で集合組織が異なる。A 工程材は恒温圧延の途中段階で Diagonal Cube {100} <011> と考えられる方位<sup>9)</sup>の集積が認められ、最終パス後も同じ集合組織が認められる。B 工程材の場合 8mm 厚さの時点では Brass 方位が優先方位と考えられるが、最終パス後は Diagonal Cube 方位の形成が示唆される。C 及び D 工程材は最終パス後も板厚中心面と同じ Brass 方位が優先方位と考えられる。優先方位を正確に求めるため、最終パス後の供試材の ODF 解析を実施した。その結果を Fig. 5 に示す。A 工程材の板表面には Diagonal Cube 方位の集積が明瞭に認められる。B 工程材の板表面は Diagonal Cube 方位と Brass 方位の両方の集積が認められる。C 及び D 工程材の表面部は Brass 方位が優先方位となっていることがわかる。この Brass 方位の集積は D 工程材の方が先鋭である。板厚中心面はいずれの工程材でも Brass 方位が優先方位であることがわかる。極点図の強度レベル同様、ODF 解析上のレベルもロール温度が高いほど上昇する。

Fig. 6 に溶体化処理後の (111) 極点図を示す。A 工程材の板表面は再結晶に伴う結晶方位のランダム化が生じ、明瞭な優先方位は認められない。A 工程材の板厚中心面は粗大粒発生に伴い、部分的に集積度が高くなっている。他の工程の板厚中心面は Brass 方位の強度レベルが下がることなく維持されている。

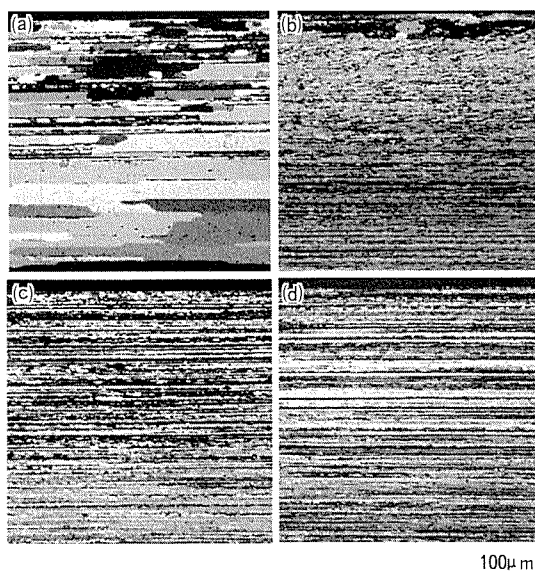


Fig. 2 Optical micrographs after solution heat treatment on the sheets rolled with the roll temperature at (a) 2–10℃, (b) 20–30℃, (c) 60–80℃ and (d) 90–110℃.

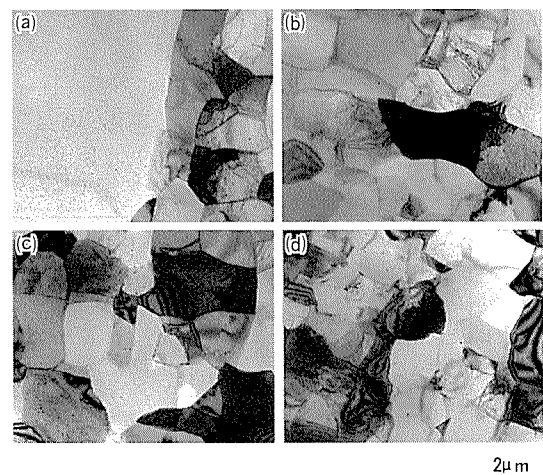
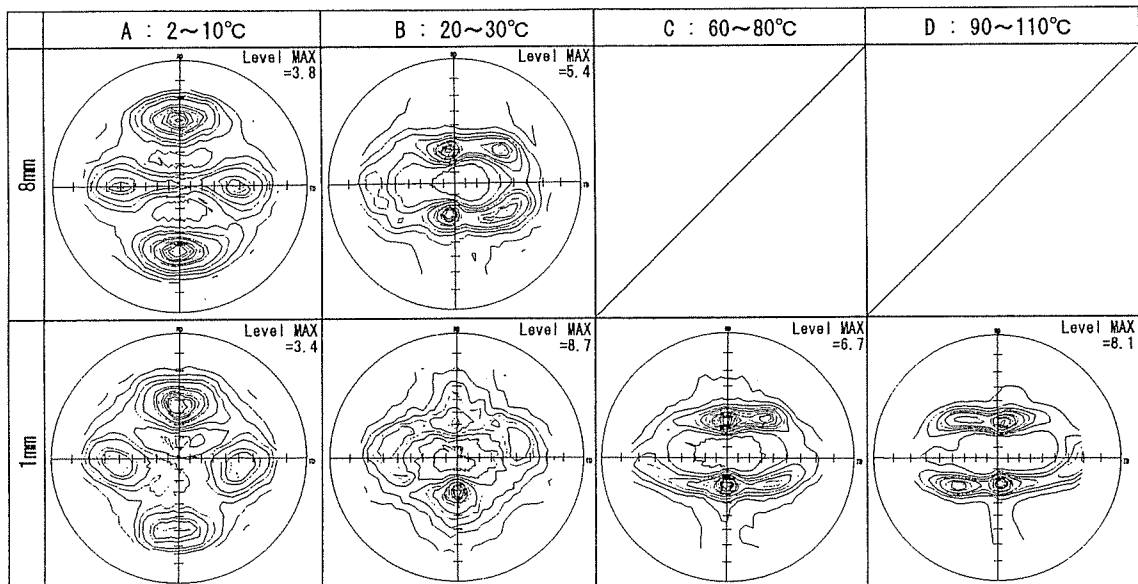


Fig. 3 TEM images after solution heat treatment on the sheets rolled with the roll temperature at (a) 2–10℃, (b) 20–30℃, (c) 60–80℃ and (d) 90–110℃.

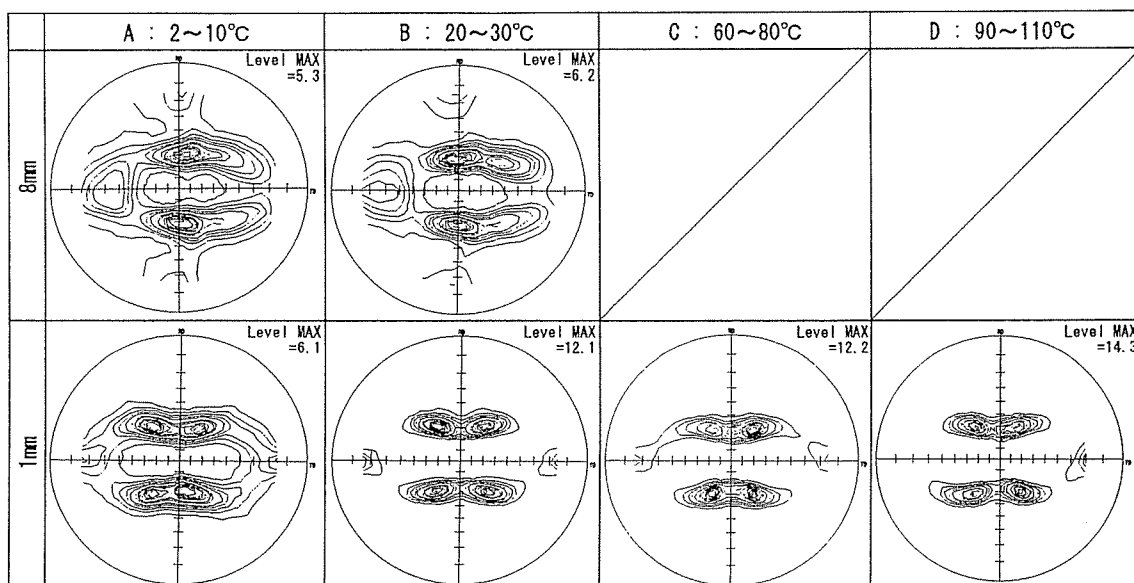
#### 4. 考 察

恒温圧延の際、ロールを加熱することで溶体化処理後の粗大粒発生を抑制でき、均一な微細粒組織形成が可能となることがわかった。逆にロール温度が低くなると本合金の場合、溶体化処理時に粗大粒の発生が顕著になる。溶体化処理後の A 工程材ではほぼ全域に粗大粒が認められるが、表層部と中心部ではその形態に差がある。これは粒の粗大化のメカニズムが異なるためではないかと考えられる。A 工程材の板表面には Diagonal Cube 方位が形成されていた。最終パス後の A 工程材を表面から深さ方向に 100 $\mu$ m ピッチで研磨し、その都度 ODF 解

析を実施して Diagonal Cube 方位の形成状態を調査した。Fig. 7 に板表面から 300 $\mu$ m 深さ面までの ODF 解析結果を示す。Diagonal Cube 方位は 200 $\mu$ m 深さの位置で確認されなくなり、Brass 方位が先鋭となる。このことから Diagonal Cube 方位は極表層部のみに形成されていることがわかる。Diagonal Cube 方位は B 工程材の板表面にも確認される。Diagonal Cube 方位は圧延時の摩擦係数が大きい場合<sup>10)</sup> やせん断変形が強く作用する際に生じる<sup>9)</sup> との報告がある。せん断帯が形成されると、溶体化処理時にせん断帯に沿った再結晶が起きることが考えられ、これが A, B 工程材表層部における粗大粒発生の原因と推察される。



(a) Surface



(b) Center

Fig. 4 (111) pole figures showing the texture on the surface layer and at the center layer in the thickness of 8mm and 1mm, (a) surface, (b) center.

Fig. 3 で示した通り、溶体化処理前の板厚中心部の状態を比較すると、ロール温度が低いほど Brass 方位の強度レベルは低下していた。A 工程材と D 工程材とでは明らかにその差が認められた。これは中心部の加工量に差が生じたためと思われる。Fig. 8 に A 及び D 工程材の最終パス後 (1mm 厚さ) の L-ST 面マイクロ組織を示す。さらにマイクロビッカース硬さ計を用い、最終パス後とそれを 350°C-30min の熱処理を行った後の状態で硬さ分布を測定したデータもあわせて示す。350°C-30 min 処理は恒温圧延時の再加熱と同じ条件である。マイクロ組織上、A 工程材の表層部にはエッチング感受性の高

い領域が明瞭に認められる。一方、D 工程材ではエッチングによる深さ方向のコントラストの差異はあまり認められない。エッチング感受性の違いは、Mg-Zn 系化合物<sup>11)</sup>等の第二相粒子の析出状態を反映したものと考えられ、析出量が多いほどエッチングされやすくなる。加工による転位の増加は第二相粒子の析出を促進させることはよく知られた現象である<sup>12)</sup>。A 工程材に見られるエッチング後のコントラストの違いは、表層部と中心部に加工量の差異が生じたことを示唆する現象と考えられる。一方、均一にエッチングされる D 工程材は、板厚方向の加工量に差異が少ないことが推察される。このことを

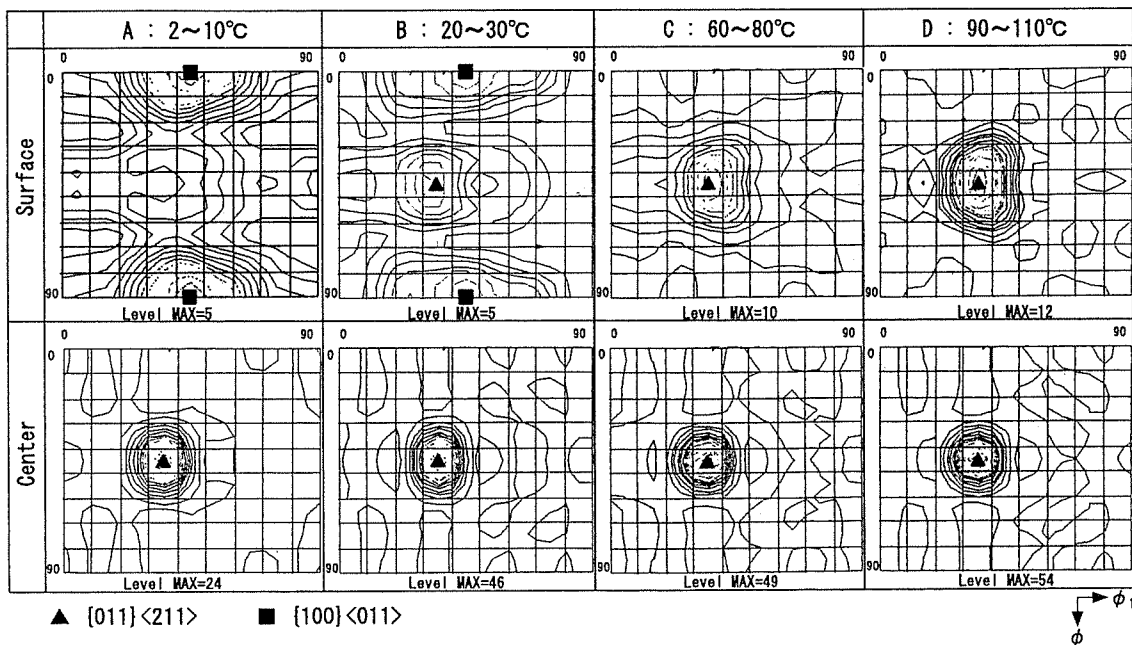


Fig. 5 ODFs of the sheets on the surface layer and at the center layer before solution heat treatment.

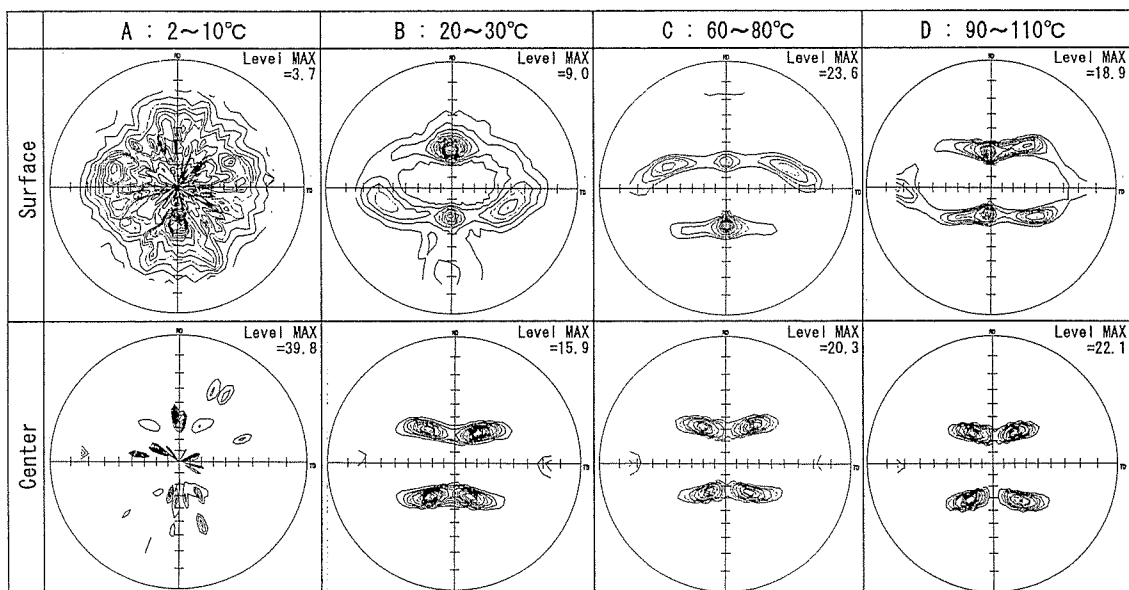


Fig. 6 (111) pole figures showing the texture on the surface layer and at the center layer after solution heat treatment.

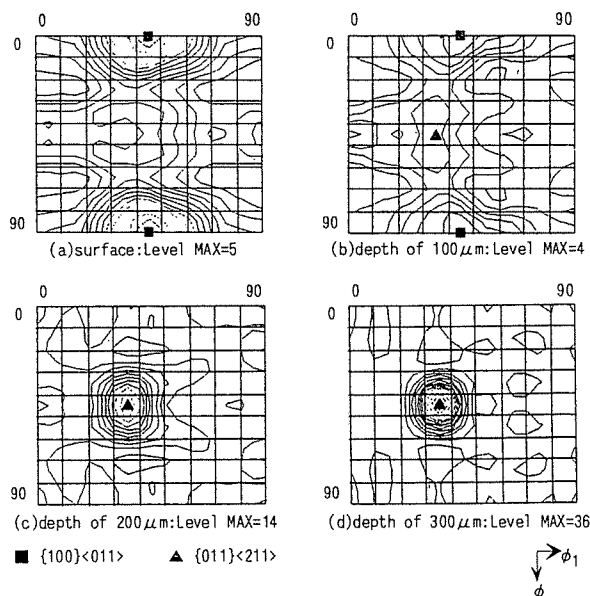


Fig. 7 ODFs of the sheet by A process at different thickness positions before solution heat treatment.  $\phi_2=0^\circ$ .

ビッカース硬さ変化から検討した。A 工程材の溶体化処理前 (as WR) ではエッチングを受けやすい領域の硬さが中心部 (500 $\mu\text{m}$  位置) より高く、350 $^\circ\text{C}$ 処理を行うとそれが逆転する。一方、D 工程材の溶体化処理前の硬さ分布は深さ方向により均一で、350 $^\circ\text{C}$ 処理後もその状態が維持される傾向が認められる。これらのことから次のような推察がなされる。A 工程材の表層部は恒温圧延時に加工による硬化と再加熱時の軟化を繰り返し、圧延時表面の軟化部のみが加工を受けやすく中心部は加工されにくい状況となって、結果的に中心部は弱加工状態が引き起こされ熱的安定な下部組織が形成されなかったと考えられる。ロール温度が高い D 工程材では恒温圧延時の加工が深さ方向に均一に施され、全域に渡って熱的安定な下部組織が形成されたものと考えられる。

以上のことから、ロール温度が低い場合の溶体化処理後に見られた粗大粒化のメカニズムを Fig. 9 の模式図に示す。恒温圧延時のロール温度が低い場合、板表層部にせん断帯が形成され、せん断帯に沿った再結晶が溶体化処理時に発生する。またロール温度が低い状態では圧

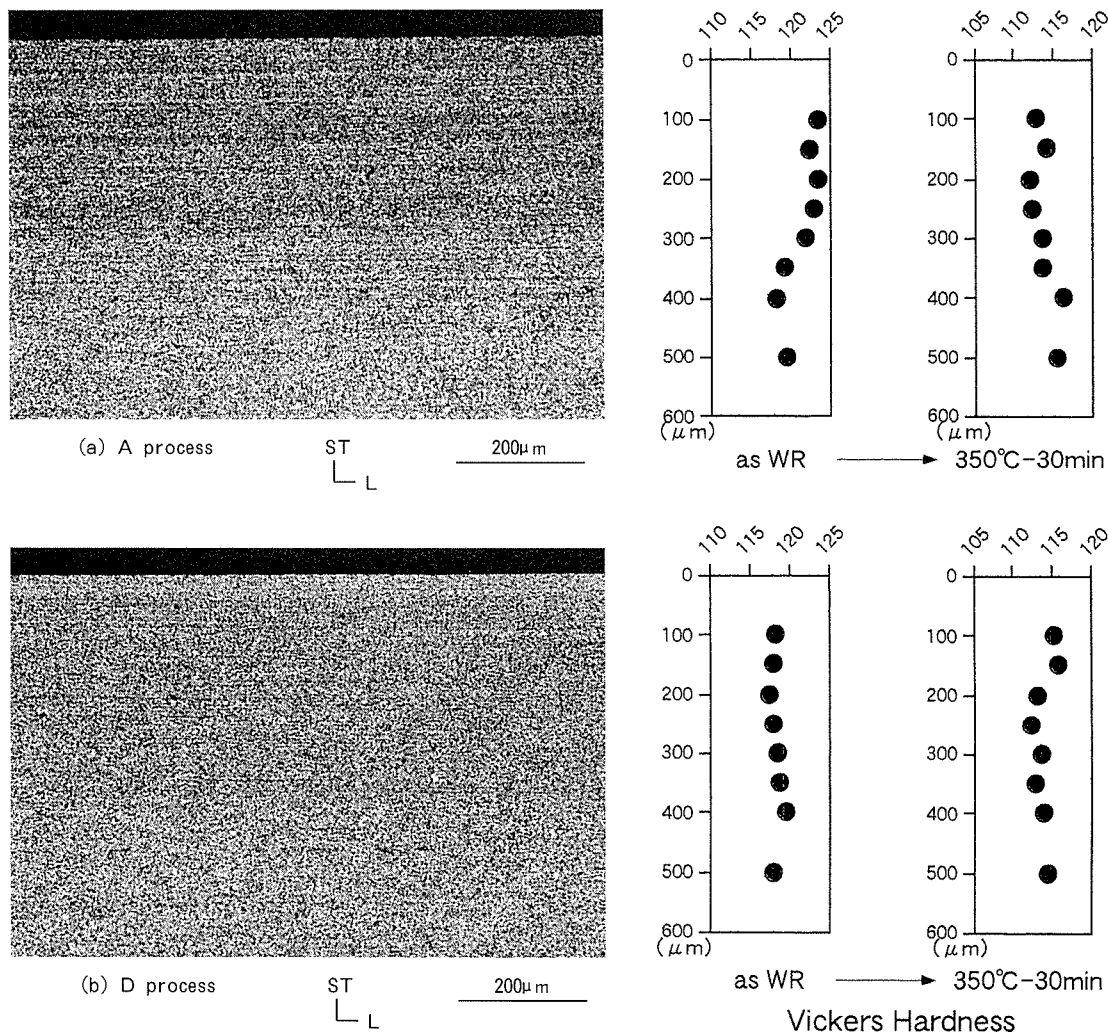


Fig. 8 Microstructures of A and D process sheets before solution heat treatment and microhardness data as a distance from surface to center in as rolled and annealed conditions.

延によって表層部が硬化し、再加熱時に軟化することを繰り返すことで表層軟化部のみが主に圧延によって加工を受け中心部の弱加工状態が引き起こされる。このため中心部では熱的安定な下部組織が形成されにくい状態となる。温間圧延の各パス後の材料温度測定ではロール温度の影響が明確に認められなかったが、これは抜熱や加工発熱による局所的な温度変化が短時間で均一化されてしまうためと考えられる。

恒温圧延時のロール加熱は板表層部のせん断帯形成抑制や深さ方向に均一加工を行えるという点で、溶体化処理時の粗大粒化抑制に効果がある。板材組織に影響する他の因子としてロール及び板の熱容量や潤滑条件等も検討の余地がある。

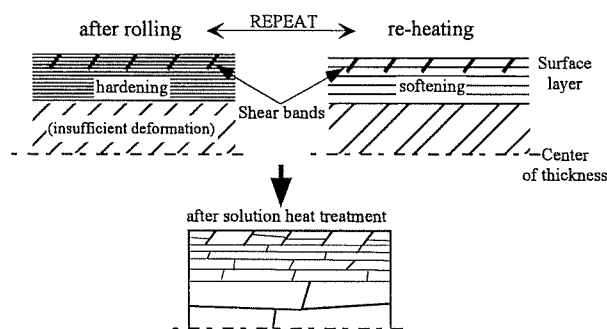


Fig. 9 Schematic illustration of the coarsening mechanism in A process.

## 5. 結 言

恒温圧延時のロール温度を  $2^{\circ}\text{C}$  ~  $110^{\circ}\text{C}$  まで変化させて得られた板材組織の熱的安定性を調査した結果、次のことが明らかとなった。

(1) 恒温圧延時のロール温度は 7475 系アルミニウム合金板材の熱的安定な下部組織形成に大きな影響を及ぼす。ロール温度が低い場合、溶体化処理時に粗大粒が発生しやすい。

(2) 粗大粒の発生は、板表層部のせん断帯形成や板中心部の弱加工化が原因と考えられる。

(3) ロール温度を高くすることで板厚方向に均一な加工が施されるようになり、素材全域に渡って熱的安定な下部組織が形成される。

本研究は、新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) から (財) 金属系材料研究開発センター (JRCM) への委託研究「スーパーメタルの技術開発」の一環として行ったものである。

## 参 考 文 献

- 1) E. O. Hall : Proc. Phys. Soc., **64** (1951), 747.
- 2) N. J. Petch : Iron Steel Inst., **25** (1953), 197.
- 3) E. di Russo, M. Conserva, M. Buratti and F. Gatto : Mater. Sci. Eng., **14** (1974), 23.
- 4) J. Waldman, H. Sulinski and H. Markus : Met. Trans., **5** (1974), 573.
- 5) J. A. Wert, N. E. Paton, C. H. Hamilton and M. W. Mahoney : Met. Trans., **12A** (1981), 1267.
- 6) 箕田 正, 田中宏樹, 渋谷和久, 吉田英雄 : 軽金属, **51** (2001), 651.
- 7) 田中宏樹, 箕田 正, 江崎宏樹, 渋谷和久, 吉田英雄 : 同上, **52** (2002), 29.
- 8) H. J. Bunge : *Texture analysis in materials science*, Butterworths, (1982).
- 9) P. J. Regenet and H. P. Stuwe : Z. Metallkde., **54** (1963), 273.
- 10) 上城太一, 関根和喜, 松川 靖, 野口延夫 : 日本金属学会誌, **36** (1972), 669.
- 11) L. F. Mondolfo : *Aluminium Alloys, Structures and Properties*, Butterworths, (1976), 578.
- 12) K. Holm and E. Hornbogen : J. Met. Sci., **5** (1970), 655.

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 14-23

TECHNICAL PAPER

# Effect of Grain Boundary Characteristics on Intergranular Corrosion Resistance of 6061 Aluminium Alloy Extrusion\*

Tadashi Minoda\*\* and Hideo Yoshida\*\*

# Effect of Grain Boundary Characteristics on Intergranular Corrosion Resistance of 6061 Aluminium Alloy Extrusion\*

Tadashi Minoda\*\* and Hideo Yoshida\*\*

The intergranular corrosion (IGC) behavior of 6061 aluminium alloy extrusions was investigated. After the IGC test in accordance with ISO/DIS 11846 (method B), heavy IGC was observed at the surface of the extrusion. However, little IGC occurred at the center plane of the extrusion thickness. It was considered that IGC was caused by the existence of precipitate-free zones (PFZs) because PFZs were clearly observed in the surface layer of the extrusion but were not clearly observed in the center position of the extrusion thickness. Furthermore, it was considered that the formation of PFZs was associated with the grain boundary characteristics. That is, most of the grain boundaries had random high angles and connected with each other in the surface layer of the extrusion. On the other hand, 60 pct of the boundaries were lower than 0.26 rad (15 deg) in the center plane of the thickness, and the connections of the random high-angle boundaries were small over 300- $\mu$ m depth. To verify this hypothesis, the center plane was cold rolled, recrystallized and examined using the IGC test. As a result, heavy IGC was observed, while the center plane, in this case, had almost all random high-angle boundaries.

## 1. Introduction

The extrusions of the 6061 aluminium alloy are widely used for structural components because of their good extrudability and relatively high strength. However, it is well known that copper addition to Al-Mg-Si alloys reduces their resistance to intergranular corrosion<sup>1,2)</sup> limiting their use in corrosive environments such as at sea. By the way, the application of Al-Mg-Si alloys as automobile body sheets is increasing, and there are some reports about improvement in intergranular corrosion resistance of Al-Mg-Si-Cu alloys by controlling the artificial aging condition or lowering the corrosion potential by zinc addition<sup>1)</sup>. For use as body sheets, solution heat treatments are carried out after cold rolling. On the other hand, most of the Al-Mg-Si alloy extrusions are produced by press quenching, which is a method of combining solution heat

treatment and extrusion<sup>3)</sup>. It is important to determine the behavior of Al-Mg-Si-Cu alloy extrusions with regard to intergranular corrosion because their microstructures are different from sheet materials.

In this study, the behavior of the 6061-T6 extrusions with regard to intergranular corrosion was investigated and the effect of the microstructures and grain boundary characteristics on the intergranular corrosion was discussed.

## 2. Experimental procedure

The 6061 aluminium alloy billet shown in Table 1 was prepared by direct chill casting with a diameter of 250 mm and then homogenized at 550°C. After homogenization, the billet was heated to 520°C for about 300 seconds us-

Table 1 Chemical composition of 6061 aluminium alloy extrusion (mass pct).

Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
0.54	0.23	0.33	0.03	1.03	0.06	0.03	0.02	Bal.

\* This paper is based on one published in Metallurgical and Materials Transactions A, 33A (2002), 2891.

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

ing an induction heater and was extruded into the shape shown in Fig. 1 at a speed of 133mm/s. The extrusion was then press quenched with water. Artificial aging was carried out at 175 °C for 8 hours.

The 50 x 60-mm specimens for the intergranular corrosion tests were cut from the upper part of the extrusions. The intergranular corrosion tests were carried out in accordance with ISO/DIS 11846 (method B). The specimens were degreased with acetone and treated with mixed acid for surface preparation prior to the corrosion tests. After pretreatment, the specimens were immersed at room temperature in an aqueous solution containing 3 mass pct NaCl and 1 vol pct HCl. The corrosion tests were then carried out for 24 hours as the standard condition and 96 and 240 hours as the extended test periods. For the 96- and 240-hour tests, the solutions were renewed every 24 hours.

To clarify the differences in the intergranular corrosion behavior between the surface of the extrusions and the center thickness, the specimen was ground to half-thickness and polished with a #1200 abrasive paper, and then the intergranular corrosion test was carried out for 24 hours. Furthermore, to clarify the effect of solution heat treatment for long period on IGC behavior, the specimen was heat treated at 550 °C for 100 hours, quenched into water, aged at 175 °C for 8 hours, and then the intergranular corrosion test was carried out for 24 hours.

After the corrosion tests, the specimens were washed in water and the longitudinal-short transverse (L-ST) cross sections were

observed. Furthermore, optical microstructures of the L-ST cross section before the corrosion tests were observed, the Orientation Distribution Functions (ODFs) were calculated with the incomplete pole figures (111), (200), and (220) measured by the X-ray reflection technique, and the grain boundary misorientation of the L-LT cross sections were measured using electron backscattered diffraction (EBSD) equipment with a scanning electron microscope (SEM). Moreover, the microstructures around the grain boundaries were observed using a JEM-200CX transmission electron microscope (TEM).

To identify the misorientation angle of the boundaries, which easily exhibit intergranular corrosion, a polished L-ST cross section of the extrusion underwent intergranular corrosion testing. After the test, the specimen was desmutted with concentrated nitric acid, etched with dilute HF solution, and the grain boundary misorientation angles were measured with an SEM with EBSD.

For the purpose of investigating the effect of decreasing low-angle boundaries on the intergranular corrosion behavior, two specimens of 6061-T4 extrusion after press quenching were ground to a 3-mm thickness. One specimen was cold rolled with a reduction of 25 pct and the other was not cold rolled. A solution heat treatment at 520 °C for 1 hour followed by quenching into water and artificial aging at 175 °C for 8 hours was then carried out on both specimens. These specimens next underwent intergranular corrosion testing, calculation of the ODFs, and observation of the optical microscope (OM) and TEM structures. Moreover, the grain boundary misorientation angles of the cold-rolled specimen after artificial aging were measured using the SEM with EBSD.

### 3. Results and discussion

#### 3.1 Intergranular corrosion behavior of the extrusion

Fig. 2 shows the effect of the immersion time on the intergranular corrosion. Severe intergranular corrosion to a 300- $\mu$ m depth occurred at 24 hours. However, the corrosion depth did

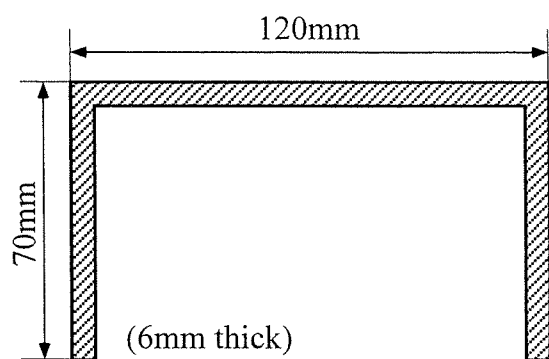


Fig. 1 Geometry of extruded section.



not increase with time and then the corrosion propagated into the matrix for a long period. Fig. 3 shows the results of the intergranular corrosion test with a specimen that was ground to half-thickness. Little intergranular corrosion was observed in Fig. 3. These results show that the resistance to intergranular corrosion was different in the surface layer and inside the extrusion; that is, intergranular corrosion easily occurred in the surface layer, while it hardly occurred on the inside of the extrusion. Fig. 4 shows the effect of solution heat treatment for long period on intergranular corrosion. Severe intergranular cor-

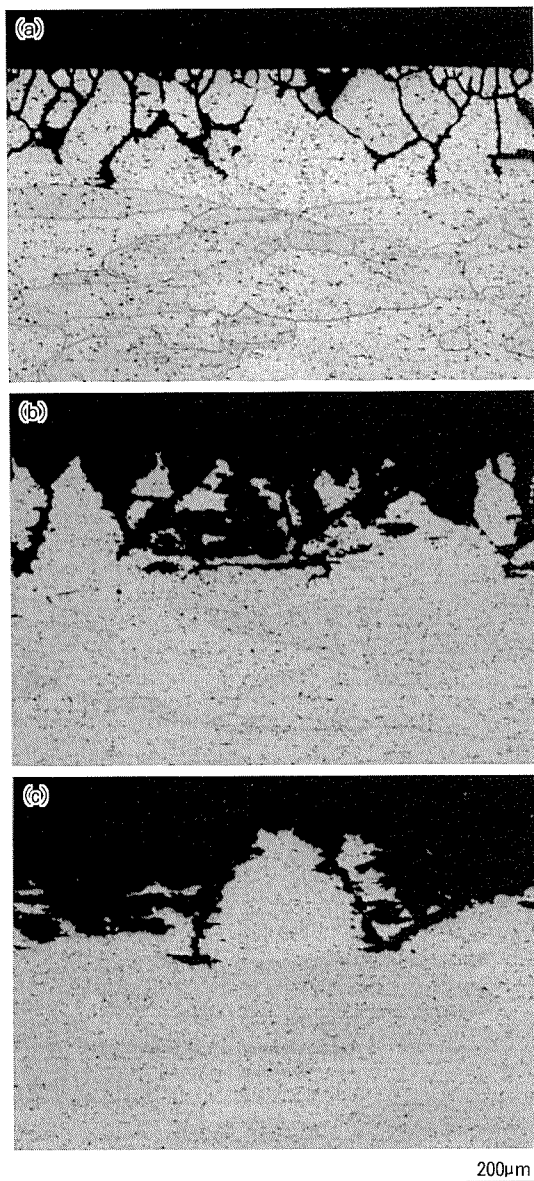


Fig. 2 Effect of immersed time on IGC. Specimens were immersed in an aqueous solution for (a) 24h, (b) 96h, and (c) 240h.

rosion occurred in the surface layer in spite of longer solution heat treatment time and higher quenching rate. This result suggests that the cooling rate during press quenching was sufficient. Fig. 5 shows the microstructures of the surface layer and the center of the extrusion. It seems that the amount of the precipitates in the surface layer and in the center of the extrusion is the same. Fig. 6 shows the TEM micrographs and the selected area diffraction patterns of the precipitates. Both precipitates were identified as  $Mg_2Si$ . The amount of  $Mg_2Si$  precipitates is almost the same in the surface layer and in the center of the extrusion, and then the difference of the resistance to intergranular corrosion did not result from the distribution of the precipitates. Fig. 7 shows the TEM micrographs of the specimen.

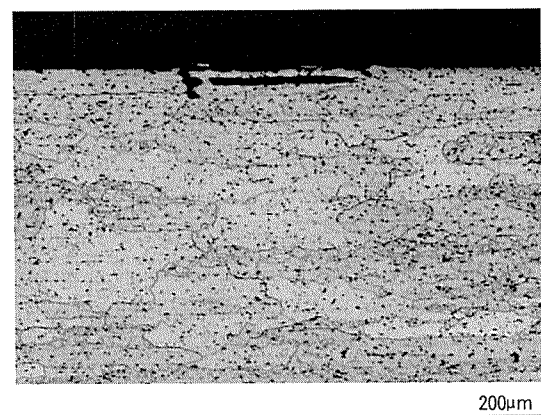


Fig. 3 Cross section of a specimen after an IGC test. The specimen was ground to half-thickness before the IGC test.

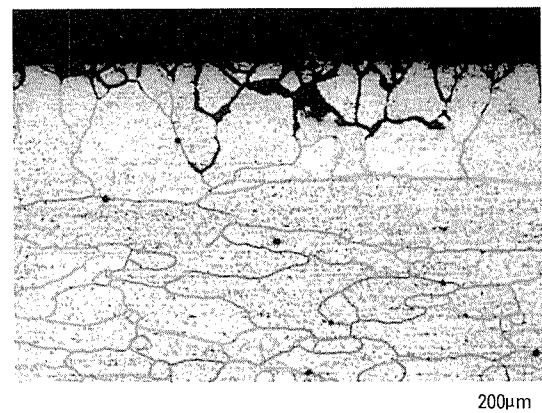


Fig. 4 Cross section of a specimen after an IGC test. The specimen was solution heat treated at 550°C for 100h and aged at 175°C for 8h before the IGC test.

Precipitate-free zones (PFZs) were clearly observed at most of the grain boundaries in the surface layer, while they were not clearly observed at most of the grain boundaries in the

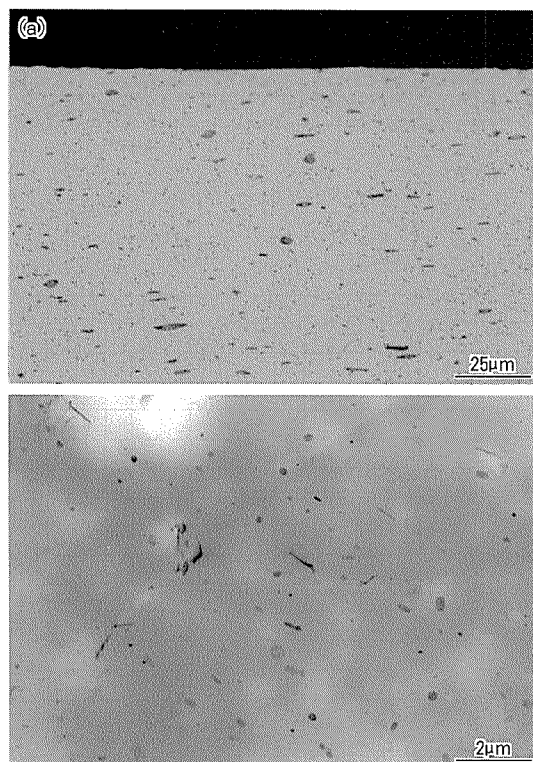


Fig. 5 OM and TEM structures of a 6061-T6 extrusion: (a) surface and (b) center of the sample.

center of the specimen. **Table 2** shows the electrode potentials of aluminium alloys<sup>4)</sup>. The electrode potential of 6061-T4 alloy is the highest, that of T6 alloy is the second highest, and that of pure aluminium is the lowest in these three alloys. Because PFZs are solute-depleted zones, the electrode potential of PFZs is lower than that of the matrix. That is, the matrix with precipitates is more noble, while the PFZs

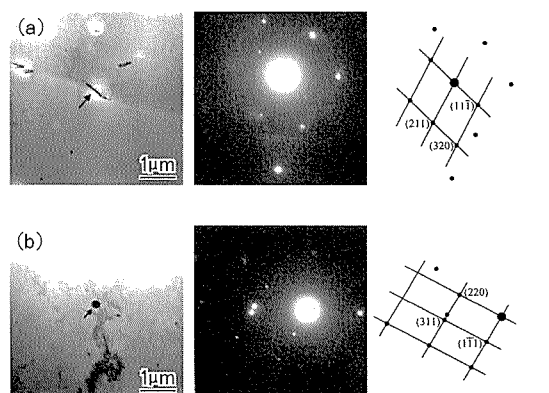


Fig. 6 TEM structures and the selected area diffraction patterns of the precipitates: (a) on the grain boundary and (b) in the matrix. Both precipitates were identified as  $Mg_2Si$ .

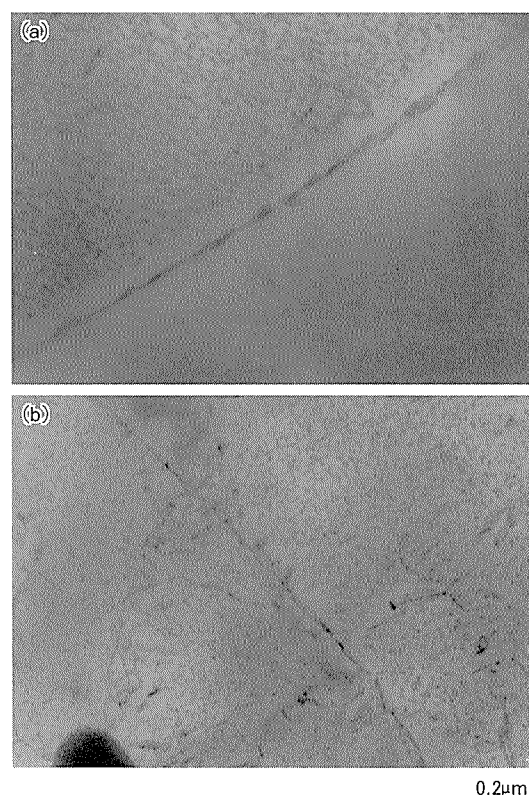
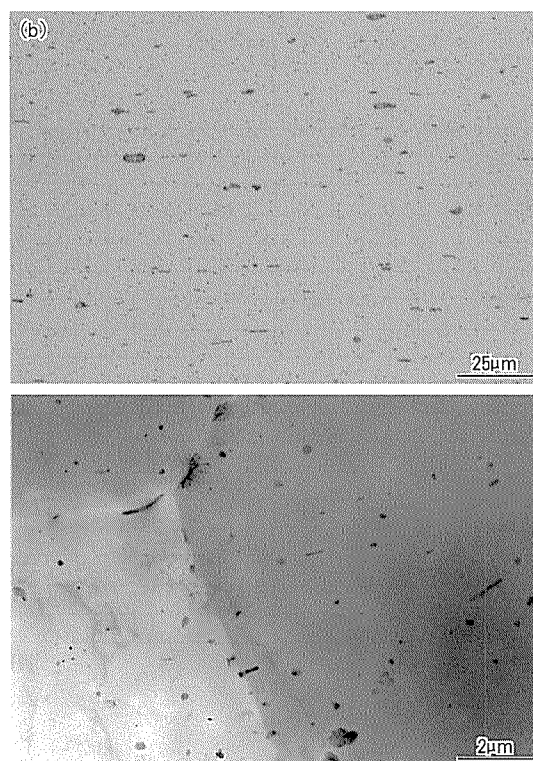


Fig. 7 TEM structures of a 6061-T6 extrusion: (a) surface and (b) center of the sample.

are less noble in a peak-aged Al-Mg-Si-Cu alloy. In addition, the electrode potential of the  $\text{Mg}_2\text{Si}$  particle is higher than that of PFZs<sup>1)</sup>. It is generally said that dissolution of the PFZs is due to the potential gap between the matrix, grain boundary precipitates, and PFZs<sup>1, 5)</sup>. For the 6061-T6 extrusions, it is considered that the electrode potentials of the matrix in the surface layer and the center of the extrusion are the same because the amount of  $\text{Mg}_2\text{Si}$  precipitates is the same, as shown in Fig. 5. Then, the difference in the resistance to intergranular corrosion is due to the difference in PFZs. Intergranular corrosion easily occurred with anodic dissolution of the PFZs in the surface layer, because the PFZs were clearly observed in the surface layer. On the other hand, intergranular corrosion hardly occurred in the center layer of the extrusion because the PFZs were not clearly observed. Fig. 8 shows the orientation distribution plots of the L-LT cross sections. The texture results were quite different. ND- and RD-rotated cube textures ( $\{100\}\langle 011\rangle$  and  $\{110\}\langle 001\rangle$ ) were observed at the surface layer, but the intensity was very low. On the other hand, a cube texture ( $\{100\}\langle 001\rangle$ ) was observed in the center layer, and the intensity was 101x random. Fig. 9 shows the optical microstructures of the L-ST cross sections. The grains show a clear contrast in the surface layer of the extrusion, which is not observed at the center of the specimen. It appears that the recrystallized grains are present in the surface layer because shear stress and heat generation caused by the friction against the die bearing were greater than those inside the extrusion. Fig. 10 shows the grain boundary misorientation of the extrusion. Most of the boundaries are higher than 0.26 rad (15 deg) at the surface, while 60 pct of the boundaries were lower than 0.26 rad (15 deg) at the center plane of the extrusion.

### 3.2 Effect of grain boundary characteristics

The PFZs were clearly observed at most of the grain boundaries and intergranular corrosion easily occurred in the surface layer of the extrusion, while PFZs were not clearly observed at the most of the grain boundaries and intergranular corrosion did not easily occur

Table 2 Electrode potentials of aluminium alloys<sup>4)</sup>.

Alloy	Potential, V*
99.95 Al	-0.85
6061-T6	-0.83
6061-T4	-0.80

\* 0.1N calomel scale

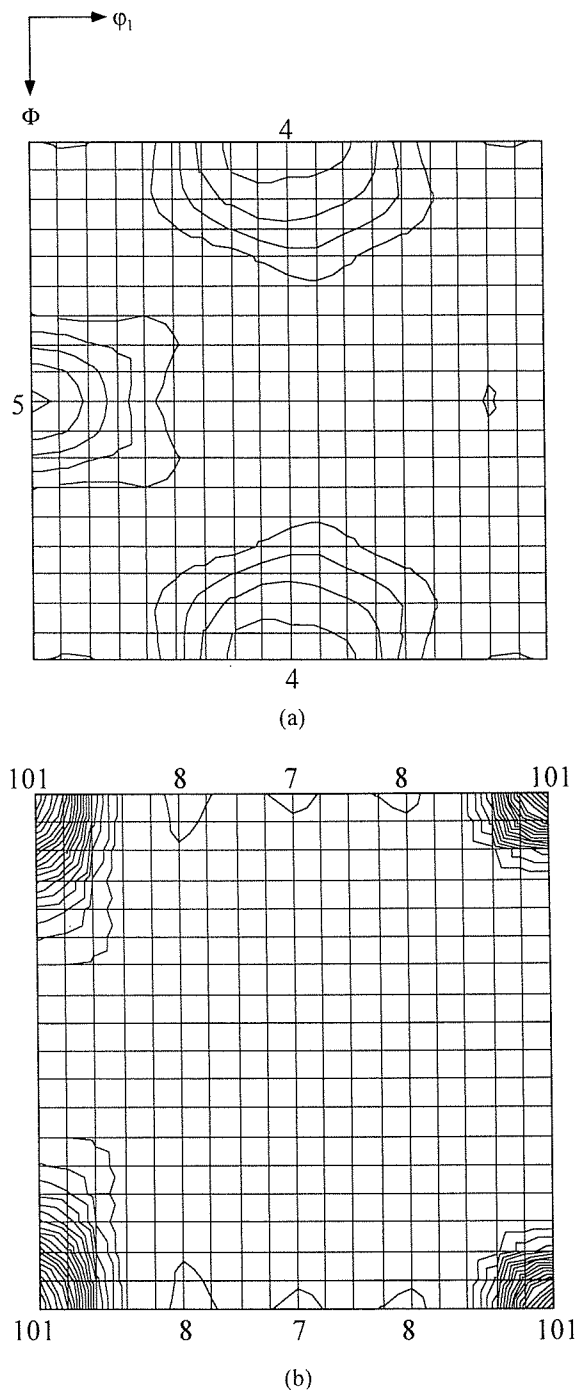


Fig. 8 Orientation distribution plots for a 6061-T6 extrusion in  $\Phi_2=0$  deg orientation :  
(a) surface and (b) center of the sample.

inside the extrusion. In addition, most of the grain boundaries were high angle in the surface layer, while 60 pct of the grain boundaries were low angle inside the extrusion. By the way, it was reported that the grain boundary characteristics affect the nucleation and growth of the grain boundary precipitates in the Al-Zn-Mg alloy<sup>6)</sup>. Furthermore, it is known that the weld decay of austenite stainless steel is caused by the chromium-depleted zones, which are caused by grain boundary precipitates of  $\text{Cr}_{23}\text{C}_6$ , and it is considered that the grain boundary characteristics affect the formation of the chromium-depleted zones. It was reported that the width of the chromium-depleted zones was smaller in coherent boundaries such as low-angle boundaries and coincidence cite lattice (CSL) boundaries, while it was greater in random boundaries<sup>7)</sup>. In general, it is said that the grain boundary energy is lower at coherent boundaries, while it is higher at incoherent boundaries<sup>8)</sup>. Thus, it is considered that the amount of grain boundary precipitates changes with the difference in the grain boundary energy. It is suggested

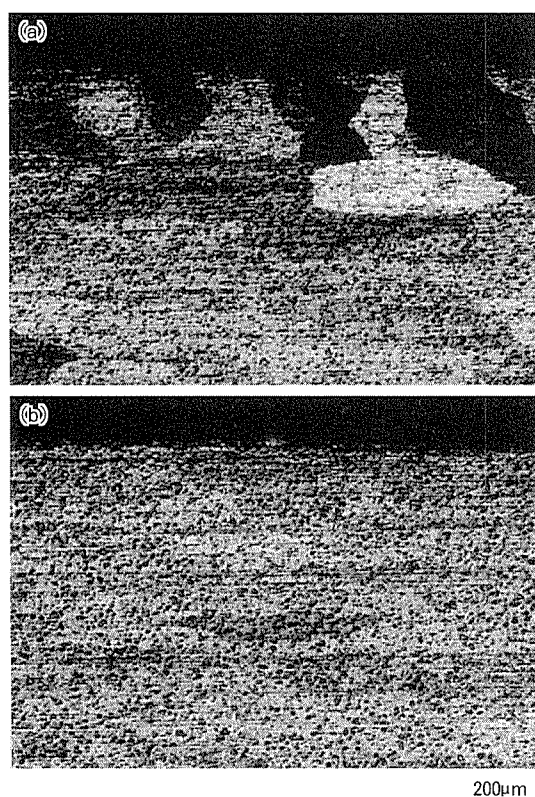
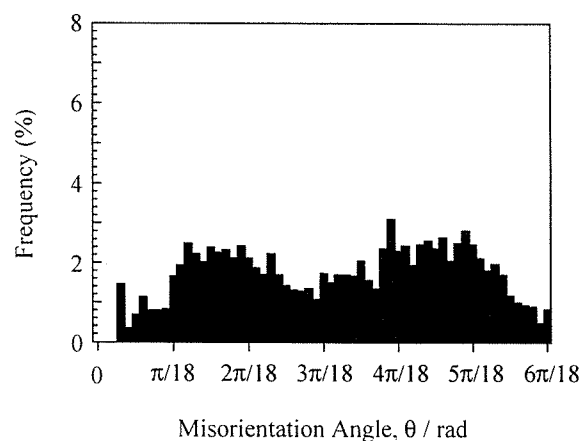


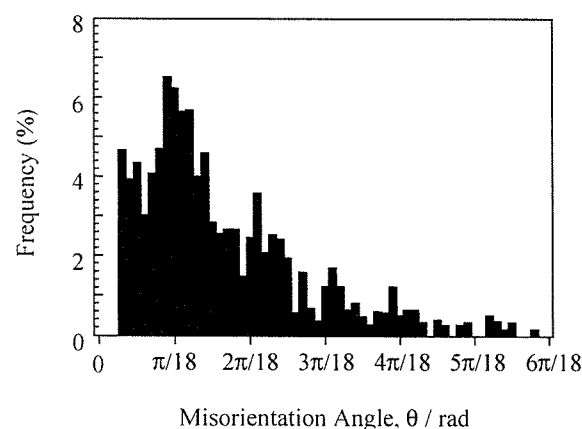
Fig. 9 Optical microstructure of L-ST cross section: (a) surface and (b) center of the sample.

that grain boundary precipitates and PFZs easily form along random high-angle boundaries, while they hardly form along low-angle boundaries in 6061 extrusions as well as in stainless steel.

Fig. 11 shows the optical microstructure of the L-ST cross section after the intergranular corrosion test and the angles of the corroded boundaries. In addition, Fig. 12 shows the misorientation angle distribution of the grain boundaries in which intergranular corrosion occurred. The angles of all the boundaries are greater than 0.26 rad (15 deg), so the boundaries below 0.26 rad (15 deg) have a resistance to intergranular corrosion. Fig. 13 shows the TEM structure of the grain boundaries and the Kikuchi lines from the grains. The misorientation angle is 0.40 rad in Fig. 13 (a), while is 0.05 rad in Fig. 13 (b). Actually, it be-



(a)



(b)

Fig. 10 Grain boundary misorientation angle distributions: (a) surface and (b) center of the sample.

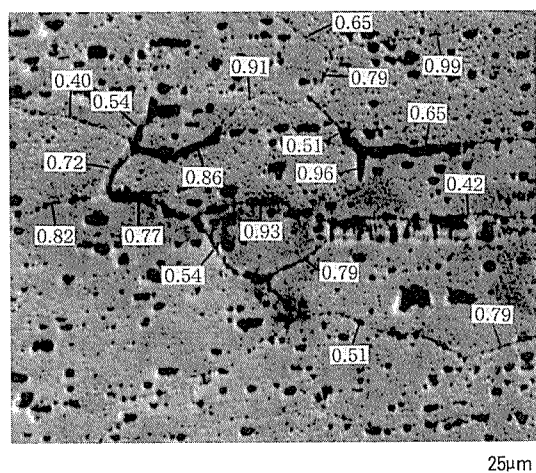


Fig. 11 Optical microstructure of the L-ST cross section after an IGC test. The numbers in this figure show the misorientation angle of the corroded boundaries (rad).

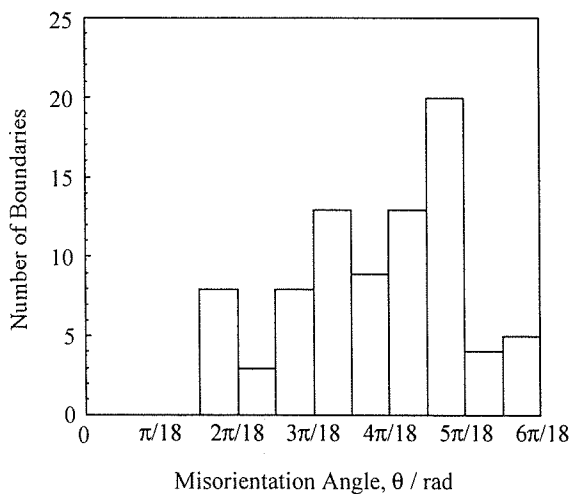


Fig. 12 Misorientation angle distribution of the grain boundaries in which intergranular corrosion occurred.

came clear that the misorientation of the grain boundary that did not show PFZ clearly had low angle. By the way, CSL boundaries also have a lower energy, like the low-angle boundaries. Especially, the lower  $\Sigma$  boundary has a lower energy; therefore, it is considered that intergranular corrosion does not easily occur in these boundaries. Actually, a previous study showed that the  $\Sigma 3$  boundaries have a resistance to stress corrosion cracking in austenitic alloys<sup>9)</sup>. Table 3 shows the grain boundary characteristics and their rate in the surface layer and in the center of the specimen measured by EBSD. The rate of the  $\Sigma 3$  boundaries is only 1.4 pct in the surface layer

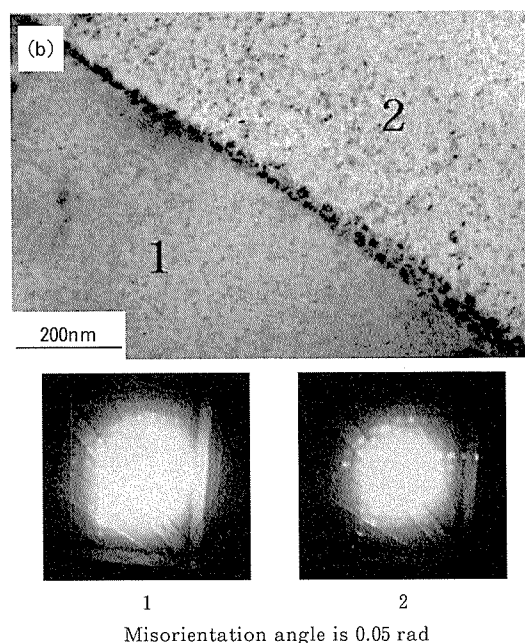
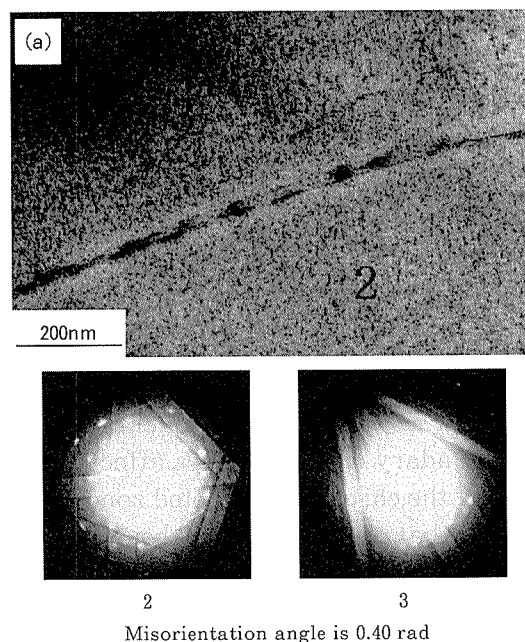


Fig. 13 TEM structures of the grain boundaries and the Kikuchi lines from the grains : (a) PFZ is observed clearly and (b) PFZ is not observed clearly.

Table 3 Grain boundary characteristics and their ratios measured by EBSD.

Type of boundary	Surface layer	Center
Low angle *	18.3 pct	59.8 pct
$\Sigma 3$	1.4 pct	0 pct
$\Sigma 5-11$	3.1 pct	2.7 pct
Random	77.2 pct	37.5 pct
* Below 0.26 rad		



and 0 pct in the center. Moreover, the  $\Sigma 5-11$  boundaries are only 3.1 pct in the surface layer and 2.7 pct in the center of the extrusion. Because the effect of CSL boundaries is very small, only low-angle boundaries can be taken into account in this study.

Fig. 14 shows the distribution of high-angle boundaries ( $>0.26$  rad) in the surface layer. Most of the high-angle boundaries connect with each other within 300- $\mu\text{m}$  depth from the surface, while their connections are small over 300- $\mu\text{m}$  depth. Then, it is considered that intergranular corrosion propagates easily in the surface layer because of the large connection of high-angle boundaries; however, it does not propagate more than 300- $\mu\text{m}$  depth because of the small connection of high-angle boundaries.

### 3.3 Intergranular corrosion behavior of recrystallized sample

It became clear that intergranular corrosion did not easily occur due to the amount of low-angle boundaries; therefore, it is suggested that intergranular corrosion will easily occur even at the center of the sample where most of the grain boundaries have random high angles. Fig. 15 shows the optical microstructures of the 6061 extrusion after grinding to half-thickness, polishing, cold rolling, solution heat treatment, and artificial aging. For the speci-

men without cold rolling in Fig. 15 (b), the grains still show an indistinct contrast. However, for the cold-rolled specimen in Fig. 15 (a), the grains show a clear contrast. Fig. 16 shows the results of the intergranular corrosion tests. Intergranular corrosion was only slightly observed in the specimen without cold rolling, while heavy intergranular corrosion was observed in the cold-rolled specimen. The orientation distribution plots of the specimens are shown in Fig. 17. Cube and rotated cube textures were observed in the specimen without cold rolling in Fig. 17 (b). It is considered that the press-quenched specimen showed strong cube texture in the center of the sample, as shown in Fig. 8 (b), because the time between the extrusion and quenching was so short that the specimen was quenched during recrystallization. Therefore, the rotation of grains from the cube texture occurred during the solution heat treatment. The random high-angle boundaries then increased and intergranular corrosion easily occurred. On the

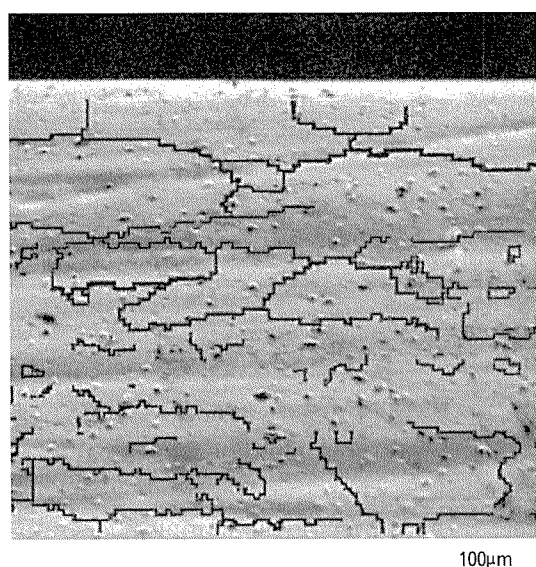


Fig. 14 L-ST cross section in the surface layer of the extrusion. The lines show the high-angle boundaries with more than 0.26 rad.

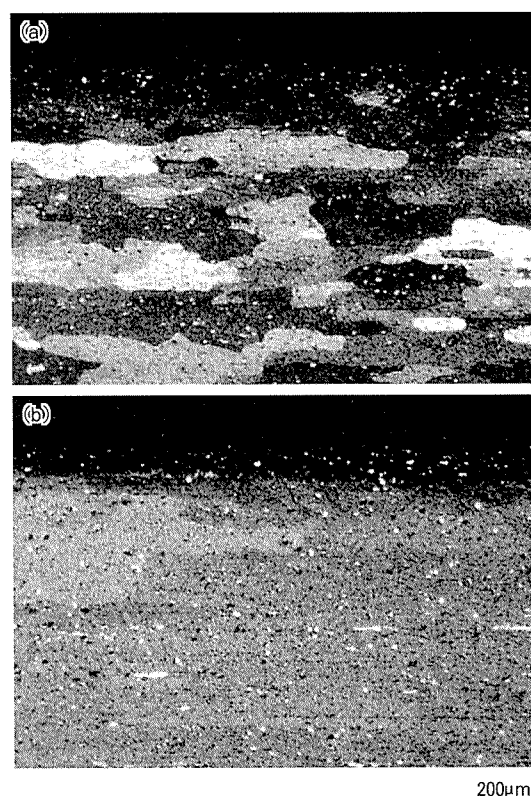


Fig. 15 Effect of the reduction of cold rolling on the recrystallized grains after cold rolling, solution heat treatment, and artificial aging. The reductions in cold rolling were (a) 30 pct and (b) 0 pct.

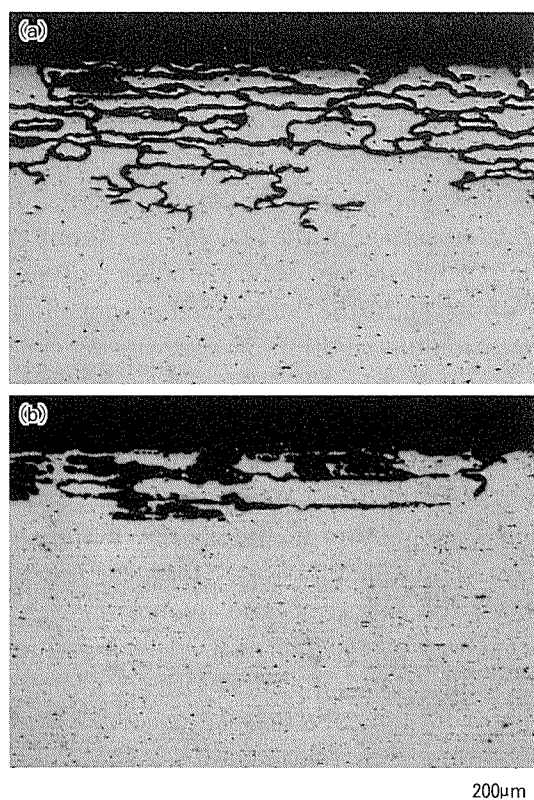


Fig. 16 Cross section of recrystallized specimens after the IGC test. The reductions in cold rolling before solution heat treatment were (a) 30 pct and (b) 0 pct.

other hand, the grains were randomly oriented in the cold-rolled specimen. Fig. 18 shows the TEM micrographs. The PFZs were not clearly observed in the specimen without cold rolling in Fig. 18 (b), while they were clearly observed in the cold-rolled specimen in Fig. 18 (a). Fig. 19 shows the grain boundary misorientation angle distribution of the cold-rolled specimen after artificial aging. Most of the boundaries were higher than 0.26 rad (15 deg). Therefore, it became clear that the grain boundary characteristics affect the formation of the PFZs in the 6061 extrusions.

#### 4. Conclusions

(1) The intergranular corrosion test of the 6061-T6 extrusion indicated that severe intergranular corrosion to a 300- $\mu$ m depth occurred at 24 hours. However, the corrosion depth did not increase with time and then the corrosion propagated into the matrix for a long period.

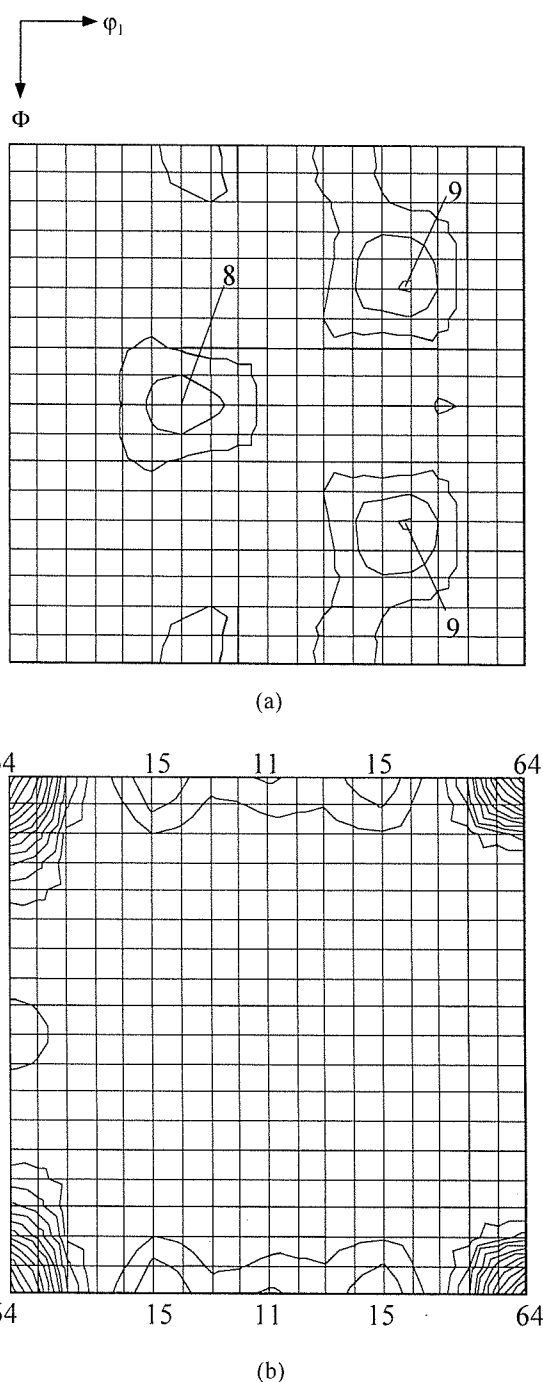


Fig. 17 Orientation distribution plots for the recrystallized specimens in  $\Phi_2=0$  deg orientation. The reductions in cold rolling before solution heat treatment were (a) 30 pct and (b) 0 pct.

(2) The PFZs were clearly observed at the surface layer, while they were not clearly observed in the center of the sample. It is apparent that the dissolution of the PFZs occurs during the intergranular corrosion test because of the potential gap between the matrix, grain boundary precipitates, and PFZs.

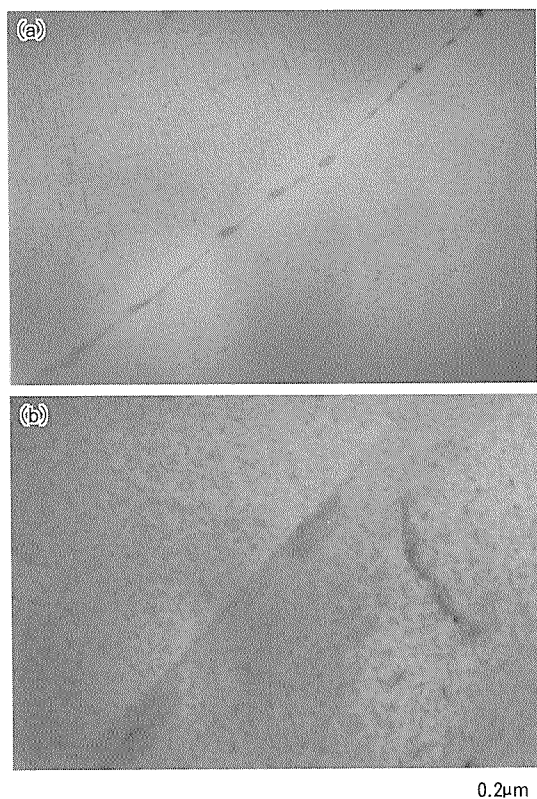


Fig. 18 TEM structures of recrystallized specimens. The reductions in cold rolling before solution heat treatment were (a) 30 pct and (b) 0 pct.

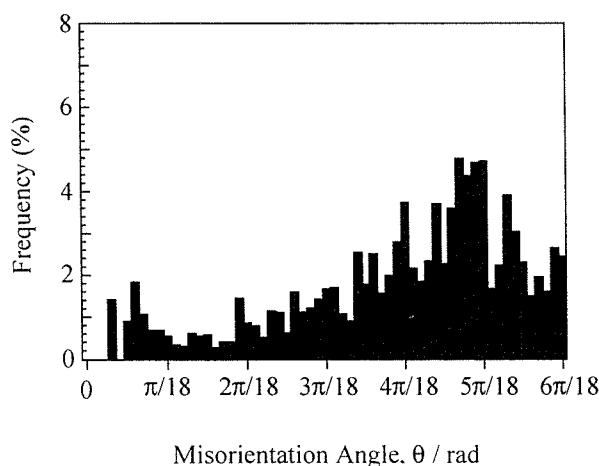


Fig. 19 Grain boundary misorientation angle distribution of the cold-rolled and recrystallized specimens after artificial aging.

(3) Most of the boundaries were higher than 0.26 rad (15 deg) in the surface layer, while 60 pct of the grain boundaries were lower than 0.26 rad (15 deg) in the inside of the extrusion.

(4) It was concluded that the PFZs accelerate intergranular corrosion, and the grain boundary characteristics affect the formation of the

grain boundary precipitates and PFZs. Intergranular corrosion easily occurs at a random high-angle boundary, where grain boundary precipitates and PFZs easily form, while intergranular corrosion does not easily occur at the low-angle boundaries, where grain boundary precipitates and PFZs are rare.

### Acknowledgements

The authors acknowledge Professor Z. Horita, Kyushu University in Japan, for the measurements of the grain boundary misorientations by Kikuchi-lines of TEM structures. Thanks are also due to Professors K.Ikeda, K.Maruyama and H.Kokawa, Tohoku University in Japan, for valuable discussions.

### References

- 1) K.Yamaguchi and K.Tohma : Proc. 6th Int. Conf. on Aluminum Alloys (The Japan Institute of Light Metals), (1998), 1657.
- 2) M.Bloek and J.Timm : Aluminium, **70** (1994), 87.
- 3) T.Sheppard : *Extrusion of Aluminium Alloys*, Kluwer Academic Publishers, (1999), 186.
- 4) Kent R.Van Horn : *Aluminum Vol. I, Properties, Physical Metallurgy and Phase Diagrams*, ASM, (1967), 210 & 212.
- 5) R.Dif, D.Bechet, T.Warner and H.Ribes : Proc. 6th Int. Conf. on Aluminum Alloys (The Japan Institute of Light Metals), (1998), 1991.
- 6) P.Czurratis, R.Kroggel and H.Loffler : Z.Metallkde, **79** (1988), 307.
- 7) H.Kokawa : Materia Japan, **35** (1996), 655.
- 8) F.J.Humphreys and M.Hatherly : *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*, Pergamon, (1996), 57.
- 9) V.Y.Gertsman and S. M. Bruemmer : Acta mater., **49** (2001), 1589.



住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 24-28

論文

3003 合金押出材のクリープ特性に及ぼすマンガンの  
固溶・析出およびミクロ組織の影響\*

八 太 秀 周\*\* 松 田 眞 一\*\*  
吉 田 英 雄\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 24-28

Effects of Manganese Contents in Solid Solution  
and Microstructures on Creep Behavior of  
3003 Aluminum Alloy Extrusions

Hidegori Hatta, Shinichi Matsuda and Hideo Yoshida

# 3003 合金押出材のクリープ特性に及ぼすマンガンの 固溶・析出およびミクロ組織の影響\*

八 太 秀 周\*\* 松 田 眞 一\*\*  
吉 田 英 雄\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 24-28

## Effects of Manganese Contents in Solid Solution and Microstructures on Creep Behavior of 3003 Aluminum Alloy Extrusions

Hidegori Hatta, Shinichi Matsuda and Hideo Yoshida

The creep behavior of AA3003 alloy extrusions with various manganese contents in solid solution and different microstructures was investigated. Yield stress decreased with heat treatment time at 400°C both fibrous and recrystallized structures. These microstructures did not change during annealing. Specimen with high manganese contents in solid solution showed higher creep strength than that with low manganese contents even if yield stress were same at 200°C. Further, in the same manganese contents in solid solution, the specimen with the fibrous structure showed higher creep strength than the recrystallized one due to subgrain structures.

### 1. 緒 言

Al-Mn 系合金押出材は、成形性や耐食性が優れることから、自動車用配管材をはじめ、様々な用途に使用されている。最近では、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た。Al-Mn 系合金の高温特性として、クリープ特性や高温強度などの報告はいくつか行われているが、これらの報告の多くは一般的な工程で製造された 3003 合金あるいは 3004 合金の特性を調査したものが多く<sup>1), 2)</sup>。

一方、Al-Mn 系合金押出材においては、均質化処理、押出および熱処理などの製造条件により、マンガンの固溶・析出状態や再結晶、繊維状組織といったミクロ組織が大きく変化し、最終製品の特性が大きく変化することが報告されている<sup>3)~5)</sup>。しかし、それらとクリープ特性の関係について調査した例は少ない。

そこで、本研究では製造条件によりマンガンの固溶・析出状態およびミクロ組織を変化させた 3003 合金押出材を用いて、実際の工業製品として使用されることを想定して、一定荷重下におけるクリープ特性を調査し、高温特性に及ぼすマンガンの固溶・析出状態およびミクロ組織の関係について検討した。

### 2. 実 験 方 法

まず、Table 1 に示す成分を有する 3003 合金を大気中で溶解し、直径 90mm のビレットに半連続鋳造した。その後、Table 2 に示す条件で均質化処理および押出を行い 3 種類のサンプルを得た。通常の工業生産では、570~610°C で数時間保持し放冷する均質化処理<sup>6)</sup>が一般に行われるが、本実験では鋳造時に過飽和に固溶したマンガンが、均質化処理後の冷却時に析出することを抑制

\* 軽金属学会第 96 回春期大会（平成 11 年 5 月）で一部発表、軽金属, 52 (2002), 417 に掲載

\*\* 研究開発センター 第一部

\*\*\* 研究開発センター 第一部, 工学博士

Table 1 Chemical compositions of alloy 3003 (mass%).

alloy	Mn	Fe	Si	Cu	Al
3003	1.19	0.47	0.13	0.17	Bal.

するために、均質化処理なしあるいは 630℃で 10 時間の保持後水冷の均質化処理条件とした。また、通常の Al-Mn 系合金の押出は、400~550℃で押出されることが多いが、マイクロ組織を制御する目的で、押出温度を 450℃および 300℃の 2 条件とした。

得られた押出材について、マンガン固溶量および強度の調整のため 400℃で 0~64h の熱処理を行った（以下、サンプル名を、押出条件-熱処理時間で記す）。本合金における導電率はマトリックス中のマンガン固溶量と相関があることが知られていることから、マンガン固溶量を把握する目的で、渦電流法により導電率を測定した。また、高温引張試験およびクリープ試験は、供試材の試験温度での析出挙動を安定させるために、あらかじめ 200℃で 100h 暴露した試験片を用いて、200℃で試験を行った。なお、引張試験片は平行部径 7mm、平行部長さ 30mm、標点間距離 25mm とし、初期ひずみ速度  $1.0 \times 10^{-4}/s$  で試験に供した。また、クリープ試験片は平行部径 6mm、標点間距離 30mm の試験片とした。偏光マイクロ組織観察は押出平行断面を、また、クリープ試験後の電子顕微鏡観察は破断部近傍にて行った。

### 3. 結 果

#### 3.1 導電率

Fig. 1 に導電率と熱処理時間の関係を示す。押出ままでは、C-0h 材の導電率が A-0h 材と B-0h 材より低

Table 2 Homogenizing and extruding conditions.

Sample	Homogenizing conditions	Extruding conditions	
		Temperature (°C)	Diameter of rod (mm)
A	630°C-10h (WQ)	450	φ 20
B	630°C-10h (WQ)	300	
C	non (as cast)	450	

WQ : water quenching

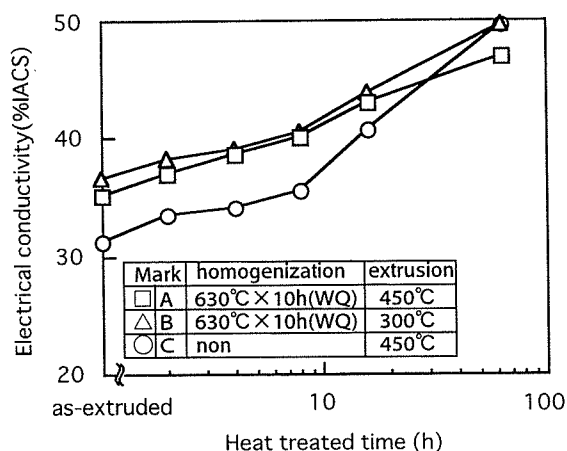


Fig. 1 Change in electrical conductivity during heat treatment at 400°C.

い値を示すことから、A-0h 材および B-0h 材に比べ、C-0h 材のマンガン固溶量が多いものと推測される。つぎに、マンガンの固溶量を調整する目的で、400℃で熱処理を行った。3 種類のサンプルとも、時間の増加に伴い導電率が大きくなる。これはマトリックス中のマンガンが  $Al_6Mn$ 、 $AlMnSi$  および  $AlMnFeSi$  として析出したものとみられるが、この際、押出ままの状態でも導電率の低い C 材は、A 材および B 材よりも導電率の増加量が多い。このことは、C 材のマンガンの析出速度が、A 材および B 材より速いことを示唆している。また、本実験中の最長の軟化時間である 64h の軟化を行うことにより、固溶マンガンが多く析出し、固溶量がほぼ同等なる。

#### 3.2 ミクロ組織

偏光マイクロ組織を Fig. 2 に示す。A-0h 材は、約 90μm の結晶粒径を有する再結晶組織であるのに対し、B-0h 材および C-0h 材は繊維状組織となっている。この再結晶組織および繊維状組織の形成についてはこれまでにいくつかの報告がなされており、第 2 相粒子とセル境界の成分偏析が影響するといわれている<sup>9)</sup>。この得られたサンプルを 400℃で 64h 熱処理しても、A 材は再結晶組織、B 材と C 材は繊維状組織であり大きな変化は認められない。

#### 3.3 クリープ特性

クリープ特性に及ぼすマイクロ組織の影響を調査することを目的とし、400℃で 64h の熱処理を行い、マンガンを多く析出させ、導電率をほぼ同一、すなわち固溶量をほぼ同一としたサンプルについてクリープ試験を行った結果を Fig. 3 に示す。A-64h 材では耐力とほぼ同等の負荷応力であるため短時間で破断に至り、B-64h 材ではそれより破断時間が長く約 30h で、均質化処理なしの C-64h 材はさらに長い 55h にて破断に至る。すなわち、過飽和に固溶したマンガンを多く析出させ、マトリックス中のマンガン固溶量をほぼ同一にした場合、繊維状組織の C-64h 材および B-64h 材が、再結晶組織の A-64h 材よりクリープ破断までの時間が長い。

さらに、繊維状組織を有する B 材および C 材を用いて、クリープ特性に及ぼすマンガンの固溶・析出の影響を調査した。Fig. 4 に同一強度で、導電率が異なるサンプルのクリープ曲線を示す。導電率の小さい B-8h 材は、導電率の大きい C-64h 材に比較して、その 2 倍以上の破断時間の約 135 時間で破断する。この結果は、同一強度の素材で、かつ繊維状組織どうしであっても、マンガンの固溶量が多い方が、200℃でのクリープ破断に至る時間が長いことを示唆している。

### 4. 考 察

#### 4.1 ミクロ組織の影響

Fig. 5 に 200℃高温引張特性を示す。400℃×64h 熱処

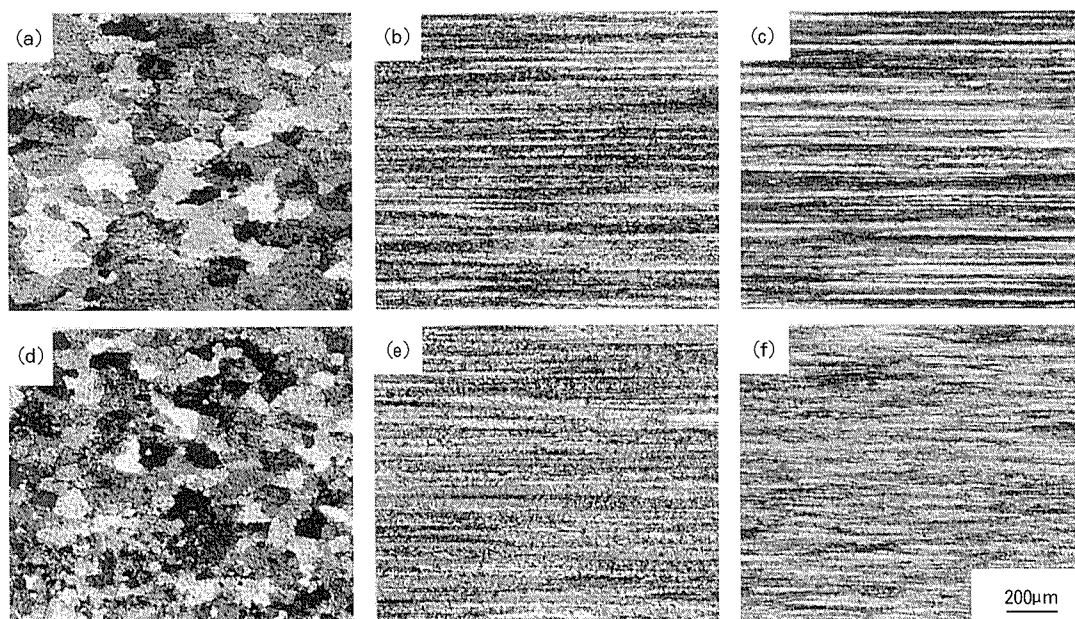


Fig. 2 Effects of manufacturing conditions on microstructures before and after heat treatment at 400°C.  
(a) A-0h (b) B-0h (c) C-0h (d) A-64h (e) B-64h (f) C-64h.

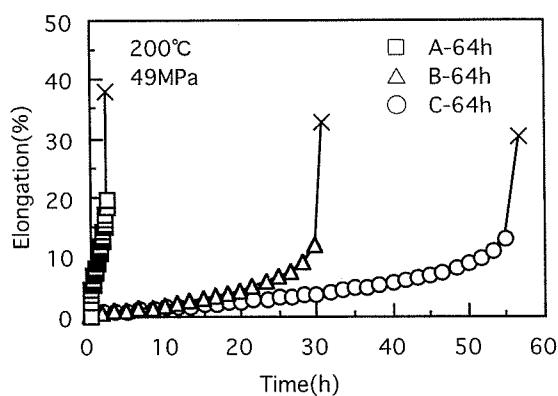


Fig. 3 Creep curves of specimens heat treated at 400°C for 64h, which had same electrical conductivities but different microstructures.

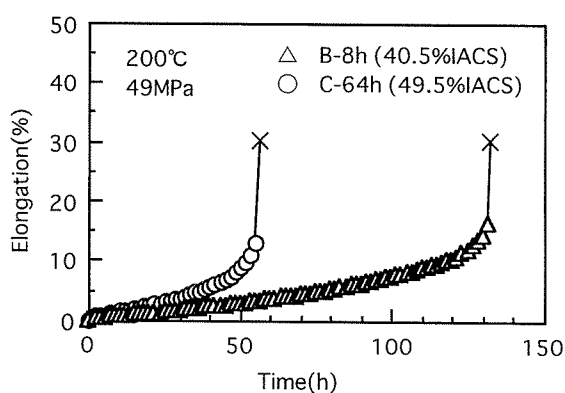


Fig. 4 Creep curves of specimens, which had same yield stress but different electrical conductivities. The microstructures of both specimens were fibrous.

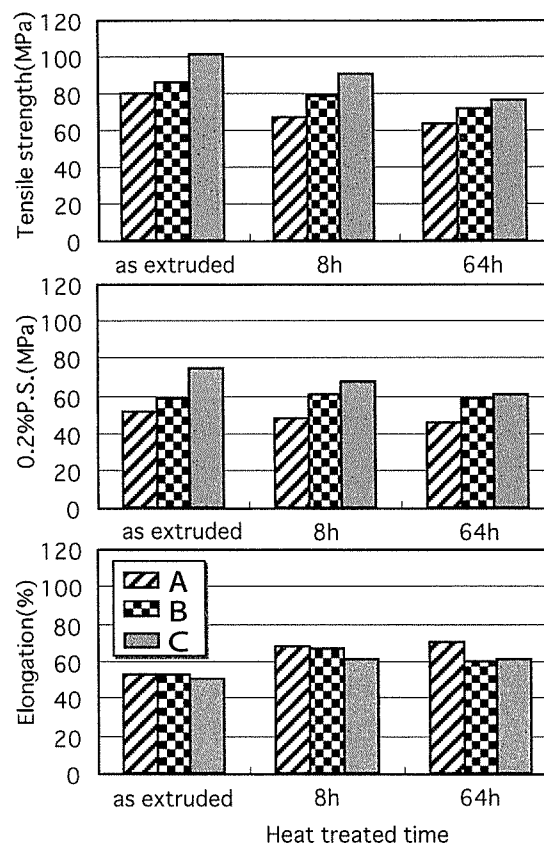


Fig. 5 Tensile properties of specimens at 200°C after exposed at 200°C for 100h. Specimens were heat treated at 400°C for 0h, 8h and 64h.

理材のクリープ試験において、最も破断時間が長い C-64h 材の耐力は B-64h 材とほぼ同じで、A-64 材が小さくなっている。これは B-64h 材と C-64h 材では繊維状組織であるのに対し、A-64 材では再結晶組織であるためと考えられる。このことより、素材の強度およびマイクロ組織がクリープ特性に大きく影響すると考えられる。Fig. 6 に 400℃で 64h 熱処理後の TEM 組織を示す。繊維状組織の B-64h 材および C-64h 材ではサブグレインが形成された組織である。これらの材料では、このサブグレインの形成により転位が動きにくくなるため耐力が高いものと考えられる。従来、軟質材のクリープ特性は結晶粒径と関係することが報告されており、微細結晶粒の場合は粒径が小さいほど、サブグレイン組織の場合はその亜結晶粒径が大きいほどクリープ速度が高くなるといわれている<sup>7)</sup>。本実験のように、同一組成の素材でサブグレインを有する繊維状組織と再結晶組織を比較

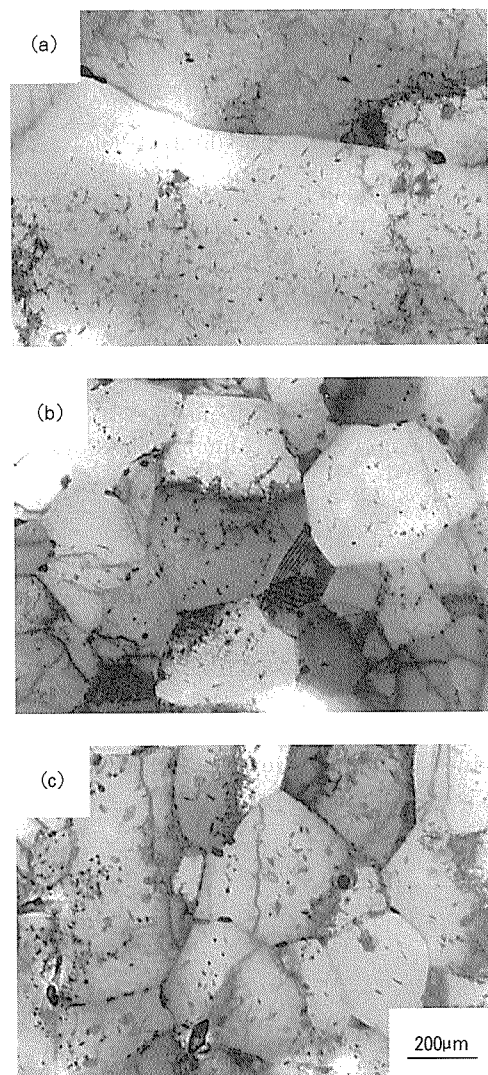


Fig. 6 Transmission electron micrographs of AA3003 extrusion heat treated at 400℃ for 64h.  
(a) A-64h (b) B-64h (c) C-64h.

すると、繊維状組織の方がサブグレインにより転位の移動が遅くなり、耐力およびクリープ強度が高くなるものと考えられる。

#### 4.2 マンガンの固溶の影響

Fig. 7 に B-8h 材と C-64h 材のクリープ試験後の破断部近傍の電子顕微鏡写真を示す。両サンプルとも破断近傍でもサブグレインが認められ、その大きさに差は認められない。これらを高倍で観察すると、クリープ特性に優れていた B-8h 材の方は、C-64h 材に比較して、導入されて絡み合った転位が部分的にみられる。この結果は、転位の溶質原子ひきずり抵抗が大きくなるとともに、マンガン溶質原子の増加によりクリープ変形中の動的回復が生じにくくなることを示唆している。従来の Al-Mg 合金のクリープ特性に関する報告では、マグネシウムの場合は固溶量にかかわらず転位密度が一定とされているが<sup>8)</sup>、本実験のような遷移元素のマンガンが固溶した場合では異なることが考えられる。Fig. 8 にクリープ試験における最小ひずみ速度と負荷応力の関係を示す。最小ひずみ速度は負荷応力の増大に伴い大きくなり、その傾きにサンプルによる差はほとんどみられない。また、マンガン固溶量が同等でマイクロ組織の異なる A-64h 材、B-64h 材、C-64 材において、同一負荷応力の場合、最小ひずみ速度に大きな差がみられるのに対し、繊維状組織でマンガン固溶量の異なる B-8h 材と C-64h 材の最小ひずみ速度の差は小さい。このことから、3003 押出材のクリープ特性は、再結晶、繊維状組織といったマイクロ組織およびマンガン固溶量の両因子とも影響するものの、特に前者の影響が大きいと考えられる。

## 5. 結 言

本実験では製造条件によりマンガンの固溶・析出状態およびマイクロ組織を変化させた 3003 合金押出材のクリープ特性を調査し、以下の結論を得た。

(1) マンガン固溶量が同一の 3003 合金押出材において、200℃における耐力、クリープ強度は繊維状組織の方が再結晶組織より高い。これは繊維状組織ではサブグレインを有することに起因する。

(2) 繊維状組織の 3003 合金において、耐力が同じ場合でもマトリックス中のマンガン固溶量の高い方が高クリープ強度を示す。これは溶質原子の増加により転位の溶質原子ひきずり抵抗が高くなるためと考えられる。

(3) 3003 押出材のクリープ特性は、再結晶、繊維状組織といったマイクロ組織およびマンガン固溶量の両因子とも影響するが、特に前者の影響が大きい。

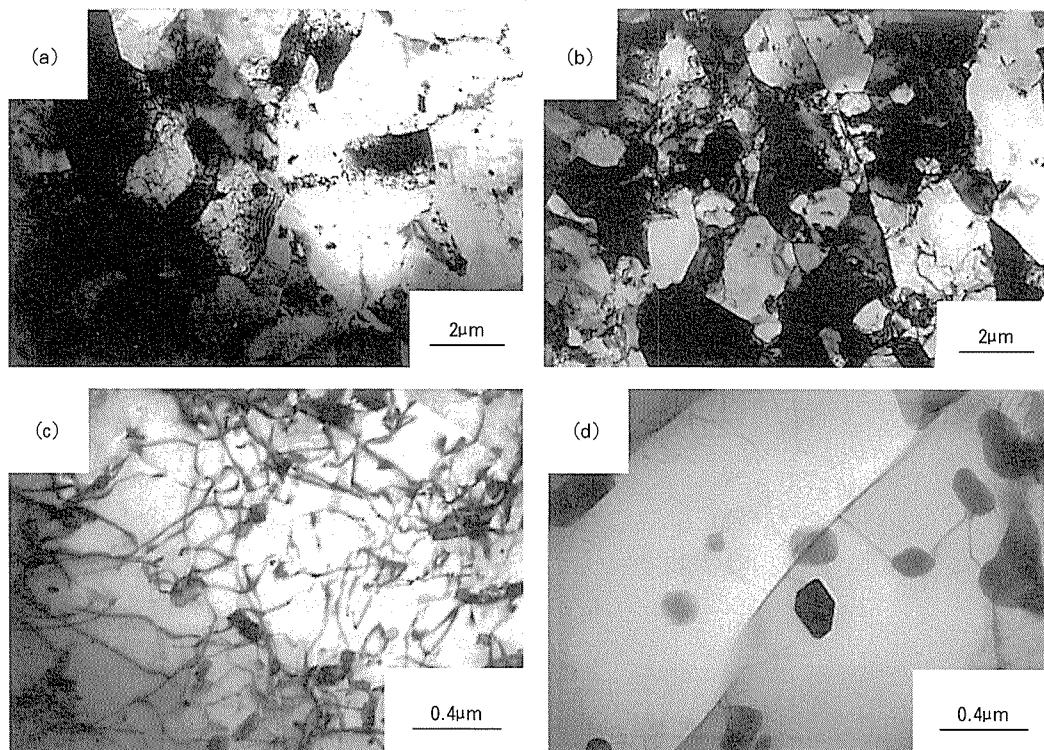


Fig. 7 Transmission electron micrographs of specimens after creep tests. (a)(c) B-8h (b)(d) C-64h.

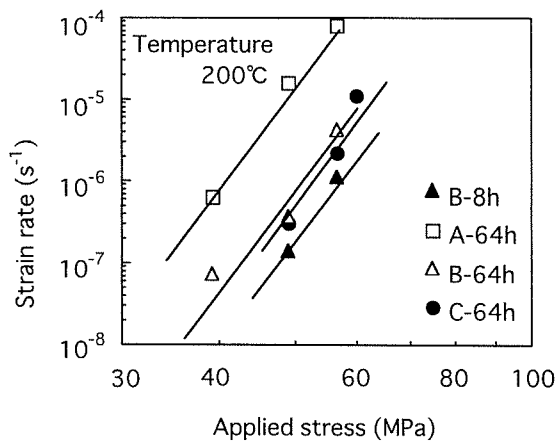


Fig. 8 Minimum creep rate dependence on applied stress at 200°C.

#### 参考文献

- 1) D.O.Northwood and L.Smith : Materials Forum, 13 (1989), 187.
- 2) X.Meng and D.O.Northwood : Metallography, 21 (1988), 293.
- 3) P.C.M. de Haan, van Rijkom, J.A.H.Sontgerath : Proc. 5th Int. Conf. on Aluminium Alloys, (1995), 765.
- 4) 八太秀周, 駒澤真一, 松田眞一, 吉田英雄 : 軽金属学会第95回春期大会講演概要, (1998), 195.
- 5) 箕田 正, 吉田英雄 : 軽金属, 47 (1997), 691.
- 6) 大塚良達 : アルミニウム材料の基礎と工業技術, (編集村上陽太郎), 軽金属協会, (1991), 1.
- 7) 丸山公一, 中島英治 : 高温強度の材料科学, 内田老鶴圃, (1997), 163.
- 8) H.Oikawa : *Hot Deformation of Aluminium Alloys*, (Edited by T.G.Langdon et al.), The Minerals, Metals & Materials Society, (1991), 153.

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 29-34

論 文

# 純アルミニウム箔の重合面うねりに及ぼす 金属間化合物の影響\*

本 居 徹 也\*\* 福 岡 潔\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 29-34

## Effect of Intermetallic Compounds on Corrugation Wave of Double Rolled Commercial Purity Aluminium Foils

Tetsuya Motoi and Kiyoshi Fukuoka

# 純アルミニウム箔の重合面うねりに及ぼす 金属間化合物の影響\*

本 居 徹 也\*\* 福 岡 潔\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 29-34

## Effect of Intermetallic Compounds on Corrugation Wave of Double Rolled Commercial Purity Aluminium Foils

Tetsuya Motoi and Kiyoshi Fukuoka

For the production of double rolled foils in aluminium alloy, it is important to obtain fine mat surface. Because pin holes on the thin foil formed by connection corrugation wave on mat surface and oil pits on bright surface. We have investigated that size and morphology of intermetallic compounds, linking with pin hole numbers. As results, it become clear that spherical AlFeSi compounds increased non-flattening mat surface than plate AlFe compounds. The spherical AlFeSi compounds and the pin hole numbers in the foil were decreased by increasing Fe/Si ratio or homogenization annealing at higher temperature. These facts suggest that pin hole formation on the fine mat surface is more difficult than on the rough mat surface with spherical AlFeSi compounds.

### 1. 緒 言

主に包装用として用いられるアルミニウム箔の圧延最終工程は通常重合圧延が行われ、材料が圧延ロールと接触する面は光沢面（以下、ブライツ面）となるが、重合面は自由変形するため「うねり」が生じて艶消し面（以下マツ面）となる。ピンホールは、このマツ面のうねりとブライツ面に存在するオイルピツが連結して生じるため、マツ面粗度が低いほど少なくなる<sup>1)</sup>。そのため、これまでマツ面粗度に及ぼす各要因について多くの研究がされている。しかしこれらの研究は圧延条件<sup>2),3)</sup>、潤滑条件<sup>4)</sup>に関するものが多く、マツ面粗度およびピンホールに及ぼす材料側因子についての検討は少ない。これは上述したように、ピンホール形成に影響を及ぼすマツ面粗さやブライツ面のオイルピツ等が圧下量、張力および潤滑条件等に代表される圧延条件で

変化することと、最終圧延時の材料厚さが5~7 $\mu$ mと極薄になるため材料側の因子を見極めにくいことが要因と考えられる。しかしながら、包装用アルミニウム箔においては1N30系の純アルミニウム系箔よりも8079系や8021系に代表されるAl-Fe系合金箔のほうが、ピンホールが少ないことが一般に知られており、ピンホール形成に及ぼす材料因子は少なくない。本研究では、材料側因子としてアルミニウム箔中に存在する金属間化合物に着目し、マツ面のうねりに及ぼす金属間化合物の影響について調査すると共に、ピンホール数が少ない純アルミニウム系箔作製における最適な組成及び製造条件について検討した。

### 2. 実 験 方 法

#### 2.1 マツ面うねりに及ぼす金属間化合物の影響

マツ面うねりに及ぼす金属間化合物の影響を調査するために用いた供試材（Commercial 1N30及び8021）の化学成分をTable 1に示す。工業ラインにおいてDC鋳造シートインゴットを作製し、均質熱処理→熱間圧延→冷間圧延→中間焼鈍→冷間圧延工程を経て製造した厚

\* 軽金属学会第96回春期大会（平成11年5月）にて一部発表、軽金属、52（2002）、226に掲載

\*\* 研究開発センター 第四部

\*\*\* ハイドロアルミニウム・ジャパン（株）（元 住友軽金属工業（株）研究開発センター）



さ 0.3mm の箔地コイルを用いて、6.5 $\mu$ m の箔を作製した（最終圧延は重合圧延）。重合圧延された最終箔は、通常、セパレーターによって分離され、ピンホール検査が行われるが、ここでは重合圧延のままの圧延平行断面を SEM 観察することによりマット面うねりと金属間化合物の関係について調査した。またブライト面に存在するオイルピットの深さ測定は非接触式レーザー表面形状測定顕微鏡（KEYENCE 製 VF-7500）を用い、ランダムに選出したオイルピット 300 個の深さ測定を行った。

## 2.2 ピンホール形成に及ぼす金属間化合物相の影響

金属間化合物相と化学成分及び製造条件の関係について検討するため、Table 1（Laboratory alloy A-D）に示した化学成分からなる 175 $\times$ 175mmDC 鋳造インゴットを研究ラインで作製し、厚さ 34mm にスライスした後、それぞれのインゴットスライスを 773K、813K、873K にて 10 時間加熱した。上記箔コイル製造と同工程にて 0.3mm の冷延板を作製し供試材とした。熱フェノール法を用いて供試材中の金属間化合物を抽出分離し、濾

過残渣の X 線回折および SEM 観察を行った。濾過残渣の半定量解析のために  $\alpha$ -AlFeSi 相の  $d=0.214\text{nm}$  における X 線回折ピーク強度を用いた。さらに、X 線回折ピーク強度の変化が単なる相変化を示しているのか、あるいは数や形態の変化を伴う変化なのかを確認するため、X 線回折に用いた残渣の SEM 観察を行い、 $\alpha$ -AlFeSi 晶出物の存在状態を確認した。

また工業ラインにおいて、金属間化合物相が異なる箔のピンホール数を調査するため Table 1（Commercial 1N30（A'、B'、C'））に示す成分の DC 鋳造インゴットシートを製造し、各温度で 10h の均質化処理を行った。このようにして得られたインゴットシートから、熱間圧延→冷間圧延→中間焼鈍→冷間圧延工程を経て 0.3mm の箔地コイル製造し、最終圧延を重合圧延で行い 6.5 $\mu$ m の箔を作製した。ピンホール数はセパレーターで分離後に測定した。

## 3. 実験結果及び考察

### 3.1 マット面うねりに及ぼす金属間化合物の影響

Fig. 1 に 1N30 系と 8021 系アルミニウム箔の代表的な重合圧延箔断面観察結果を示す。1N30 系箔については、球状の  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物<sup>5)</sup>と板状の  $\text{Al}_3\text{Fe}$  あるいは  $\text{Al}_6\text{Fe}$  の金属間化合物が存在するため、それぞれ 2 種類の形態の金属間化合物について大きさとマット面うねり高さの測定を行った。うねりの高さについては、金属間化合物が存在し箔厚が増加する側を A として、逆に減少する側を B として測定を行った。これらの測定結果を Fig. 2, 3 に示す。1N30 系箔において、金属間化合物が大きくなるほどマット面うねりが大きくなると共に、○△（板状金属間化合物によるマット面うねり）と●▲（球状  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物によるマット面うねり）の差から球状の  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物は同サイズの板状  $\text{Al}_3\text{Fe}$  あるいは  $\text{Al}_6\text{Fe}$  に比べてマット面うねりを大きくする傾向が強いことが認められた。一方、8021 系箔では球状の  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物が存在しないことに加え、 $\text{Al}_3\text{Fe}$  あるいは  $\text{Al}_6\text{Fe}$  晶出相が 1N30 材に比べて微細に分布しているため、大きなマット面うねりが生じていない。

以上より、金属間化合物のサイズが大きくなるとマット面うねりが大きくなり、特に球状の  $\alpha$ -AlFeSi はマット面うねりに及ぼす影響が大きいことが明らかとなった。そこで工業的に作製した 1N30 系 DC 鋳造インゴットシート中に含まれる  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物の直径を測定し、Fig. 2 に示した金属間化合物相の大きさとマット面うねり高さの関係式からマット面うねり高さを推算した。 $\alpha$ -AlFeSi の直径を測定する方法は熱フェノール溶解法により抽出分離した残渣を SEM で観察することにより行った。観察された  $\alpha$ -AlFeSi の代表的な形態を Fig. 4 に、ランダムに 250 個測定した  $\alpha$ -AlFeSi の直径ヒストグラムを Fig. 5 に示す。 $\alpha$ -AlFeSi の直径は 2~10 $\mu$ m の

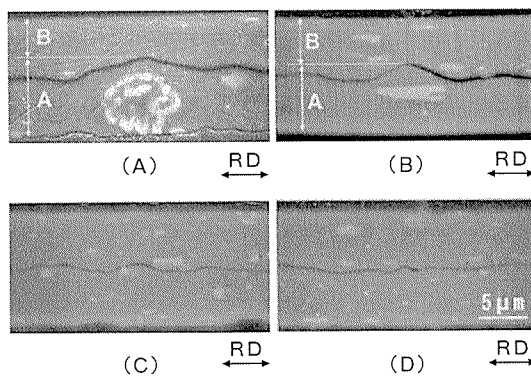


Fig. 1 SEM observations of the cross section for double rolled foils.

(A) Spherical compound in 1N30,  
(B) Plate like compounds in 1N30,  
(C), (D) Plate like compounds in 8021

Table 1 Chemical compositions and homogenize conditions of specimens.

Alloy	Chemical compositions (mass%)			Homogenization (K)
	Si	Fe	Fe/Si ratio	
Commercial	0.12	0.44	3.7	
Commercial	0.05	1.34	26.8	
Laboratory A	0.12	0.44	3.7	773, 813, 873
Laboratory B	0.08	0.44	5.5	773, 813, 873
Laboratory C	0.08	0.61	7.6	773, 813, 873
Laboratory D	0.08	0.84	10.5	773, 813, 873
Commercial 1N30 (A')	0.12	0.44	3.7	813
Commercial 1N30 (B')	0.07	0.45	6.4	813, 853
Commercial 1N30 (C')	0.07	0.56	8.0	813, 853

範囲にあり直径  $6\mu\text{m}$  の晶出物の頻度が最も高かった。ここで観察された  $\alpha\text{-AlFeSi}$  晶出物の直径により予想されるマット面のうねり高さ (A) は Fig. 2 より  $8.2\sim 10.7\mu\text{m}$  と概算され、 $6.5\mu\text{m}$  のダブリング箔においてマット面うねりによるピンホールが生じるためには、

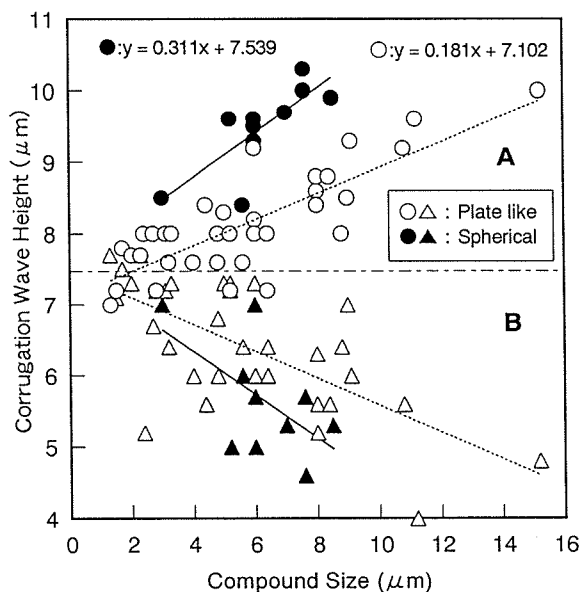


Fig. 2 Relationship between the size of intermetallic compounds and the corrugation wave height of commercial 1N30 foil. (○△ : plate like compounds, ●▲ : spherical compounds, ○● : corrugation wave of Aside, △▲ : corrugation wave of Bside)

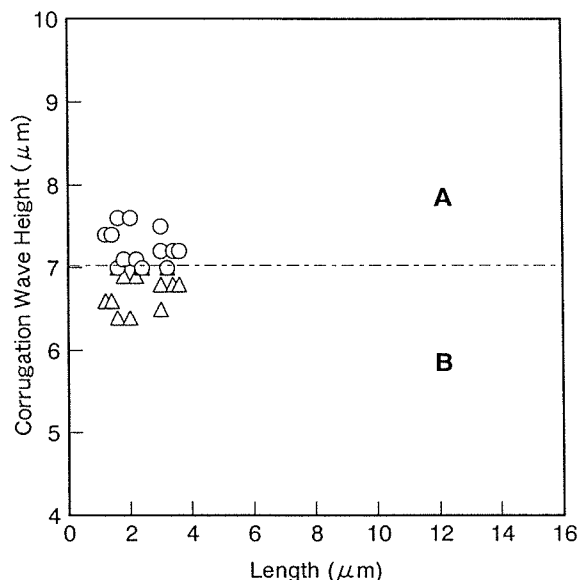


Fig. 3 Relationship between the size of intermetallic compounds and the corrugation wave height of commercial 8021 foil. (○△ : plate like compounds, ○ : corrugation wave of Aside, △ : corrugation wave of Bside)

ダブリング箔厚と同等 ( $13\mu\text{m}$ ) のマット面うねりが必要とされるが上記概算の最大値でも約  $2.3\mu\text{m}$  不足している。しかしながら異物や介在物要因以外で形成されたピンホールの大半は Fig. 6 (A) に示したようにブライト面のオイルピット内に形成し、マット面側から観察すると大きな凹型うねりの谷に形成している (Fig. 6 (B))。そのため  $6.5\mu\text{m}$  ダブリング箔の場合、深さ  $2\mu\text{m}$  程度のオイルピットがブライト面に多く存在すると、粗大な  $\alpha\text{-AlFeSi}$  晶出物によって形成されたマット面うねりとオイルピットが直接連結してピンホールを形成する可能性がある。しかしながら、Fig. 7 に示したオイルピット深さ測定結果では深さ約  $0.6\sim 0.9\mu\text{m}$  のオイルピットが多くを占め、深さ  $2\mu\text{m}$  程度のオイルピットは認められなかった。よって、マット面うねりが直接オイルピットと連結してピンホールを形成するのではなく、重合圧延時の張力により、マット面うねりとブライト面のオイルピットにより極薄肉化した領域が局部的に引き裂かれてピンホールが形成すると思われる。

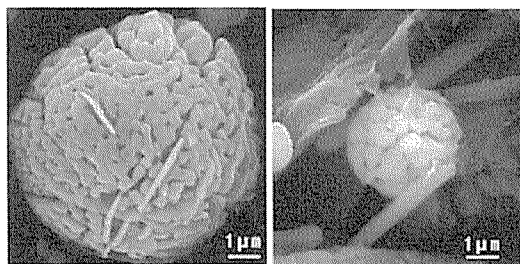


Fig. 4 SEM observation of typical  $\alpha\text{-AlFeSi}$  compounds extracted from commercial 1N30 ingot sheet by phenol method.

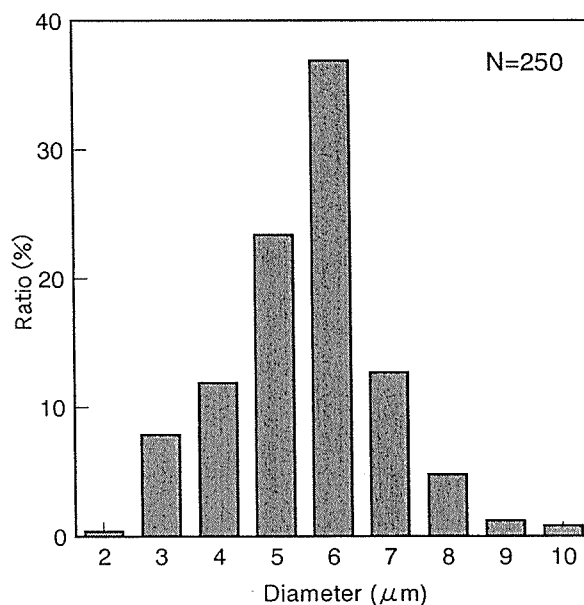
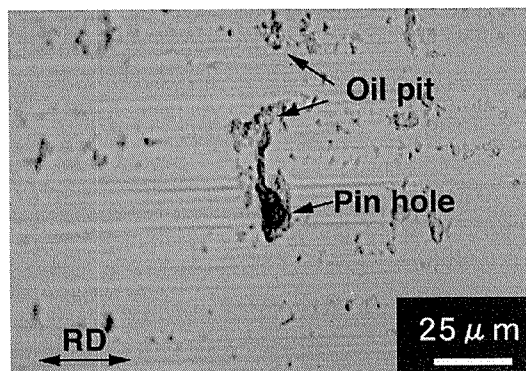


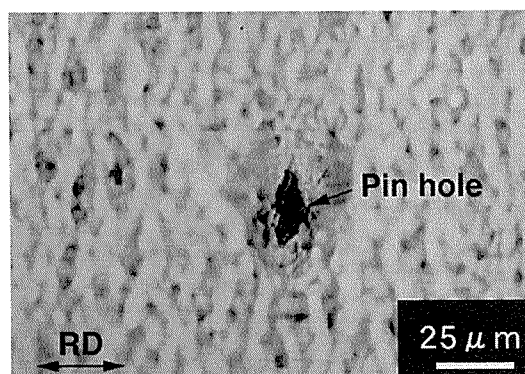
Fig. 5 The ratio of diameter of  $\alpha\text{-AlFeSi}$  compounds in commercial 1N30 ingot sheet.

### 3.2 球状 $\alpha$ -AlFeSi 晶出物の生成量とピンホールの関係

Table 1 に示す Laboratory alloy A (均質化処理温度: 773K) の熱フェノール抽出における X 線回折パターン



(A)



(B)

Fig. 6 Typical morphology of pin hole on double rolled foil. (A) Bright surface, (B) Mat surface

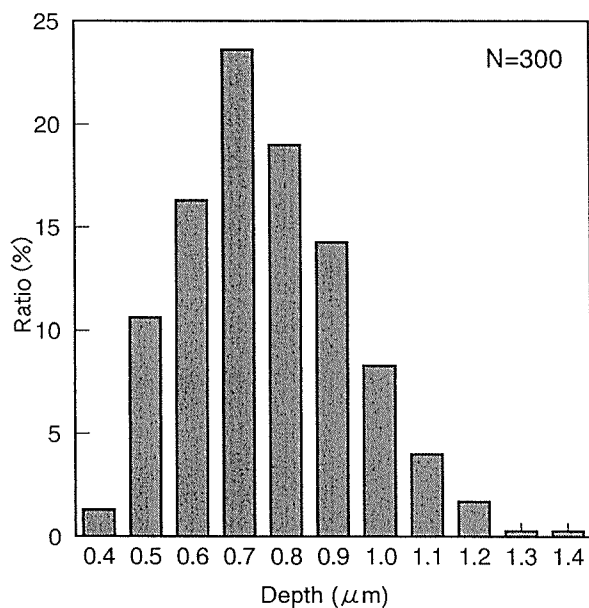


Fig. 7 The ratio of depth of oil pit formed on the bright surface of commercial IN30 foil.

ンを Fig. 8 に示す。同様に、各温度にて均質化処理を行った Laboratory alloy A~D の熱フェノール抽出残渣の X 線回折を行い、 $\alpha$ -AlFeSi 晶出物の  $d=0.214\text{nm}$  におけるピーク強度と均質化処理温度および Fe/Si 比の関係を Fig. 9 示した。これより  $\alpha$ -AlFeSi のピーク強度は Fe/Si 比が高くなるほど、また均質化処理温度が高温になるほど、減少することが認められた。さらに X 線回折に使用した抽出残渣を SEM 観察した結果、Fig. 10 に示したように球状の  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物は Fe/Si 比の増加及び均質化処理温度の高温化で検出できなくなるため、X 線回折パターンの変化は球状  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物が分解・固溶する変化と考えることが出来る。したがって、Fe/Si 比を高くすることおよび均質化処理温度の高温化により、 $\alpha$ -AlFeSi 球状晶出物の総量が減少すると考えられる。

前述したように、球状の  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物はマット面うねりを大きくするためピンホールを形成させやすい化合物であると予想され、Fe/Si 比を高くする、あるいは

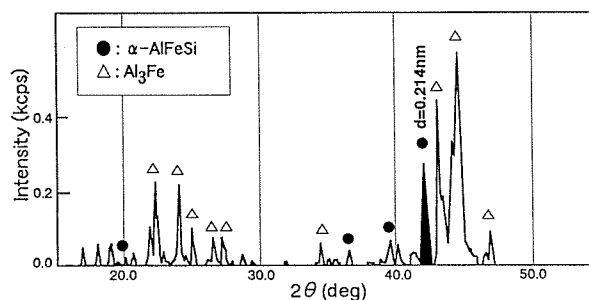


Fig. 8 The X-ray diffraction pattern of specimen (Laboratory alloy A, homogenization: 773K).

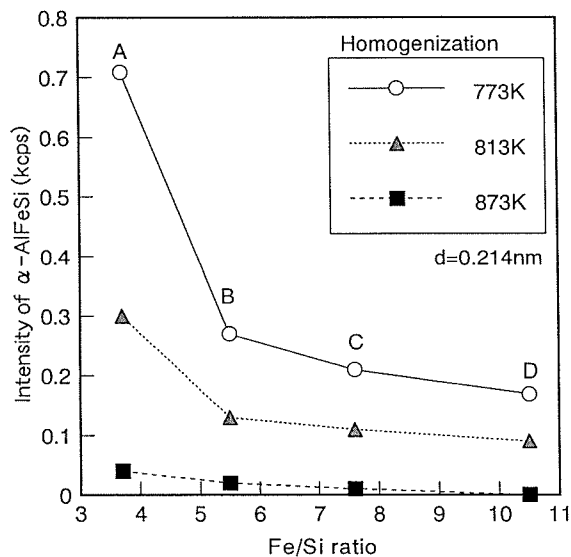


Fig. 9 Relationship between the  $\alpha$ -AlFeSi intensity and Fe/Si ratio of laboratory alloy A~D.

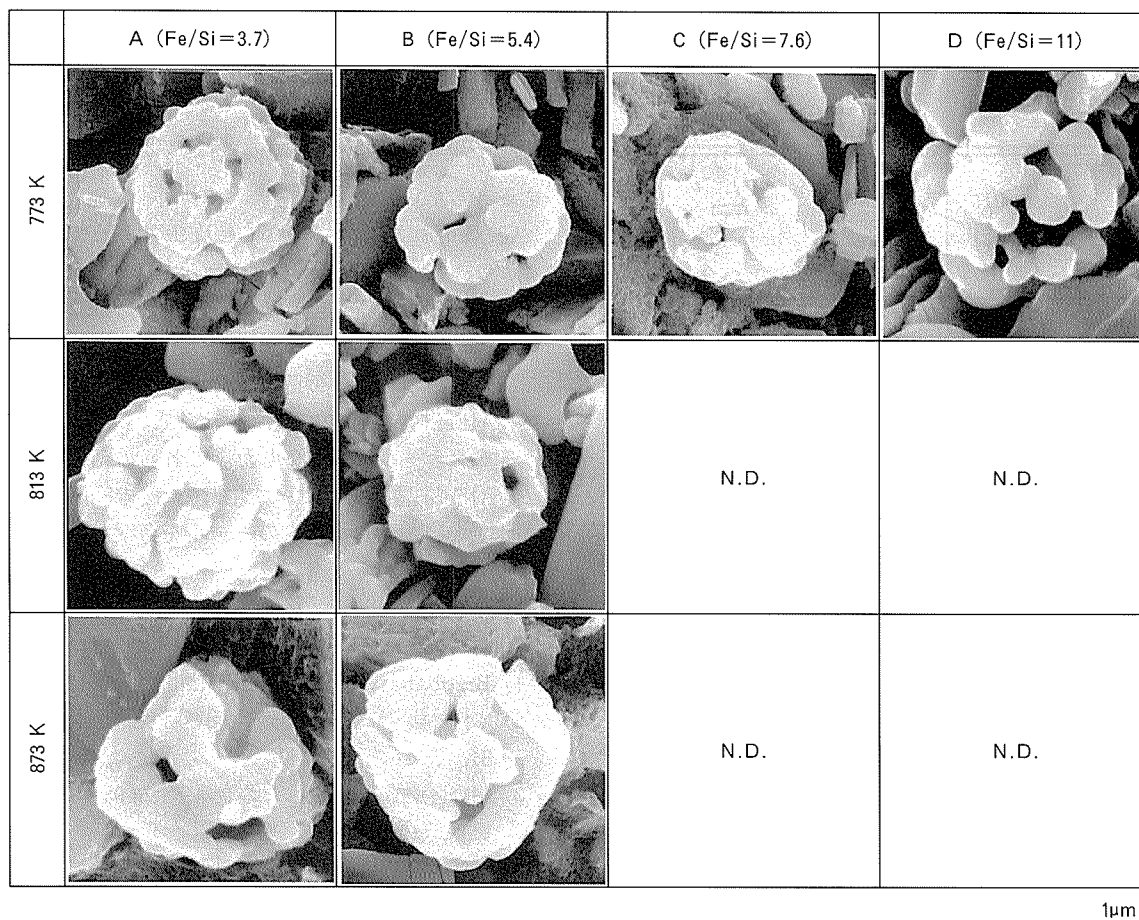


Fig. 10 SEM observation of typical  $\alpha$ -AlFeSi compounds extracted from laboratory alloy A-D.

は均質化処理温度を高くすると球状  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物数が減少することが明らかとなった。そこで Table 1 に示した Fe/Si 比および均質化処理温度が異なる Commercial 1N30 A' B' C' の重合圧延箔のピンホール数を測定し、この結果を Fig. 11 に示した。これよりピンホール数は  $A' > B' > C'$  の順であったので、Fe/Si 比を高くすることまたは均質化処理温度の高温化によって低減することが確認された。言い換えれば、球状  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物の数が少ない材料は、Fig. 12 に示したようにこの金属間化合物で形成される大きなマット面うねりが少ないため、ピンホールが発生しにくいと考えられる。

#### 4. ま と め

純アルミニウム箔の重合圧延時におけるピンホール形成に及ぼす金属間化合物の影響を検討した結果、以下の知見を得た。

(1) 材料中に存在する晶出物は、重合圧延時に形成されるマット面うねりを大きくする。特に球状  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物は箔厚と同程度の直径を有するため、板状の  $Al_3Fe$  あるいは  $Al_6Fe$  金属間化合物よりもマット面うね

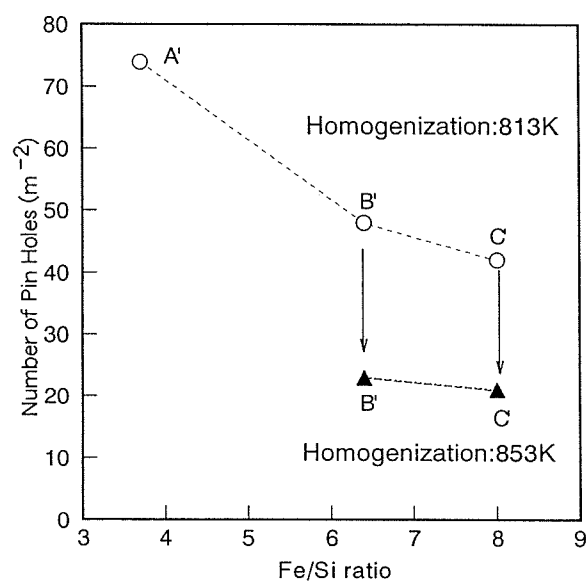


Fig. 11 Relationship between the number of pin holes and Fe/Si ratio of commercial 1N30 A', B', C'.

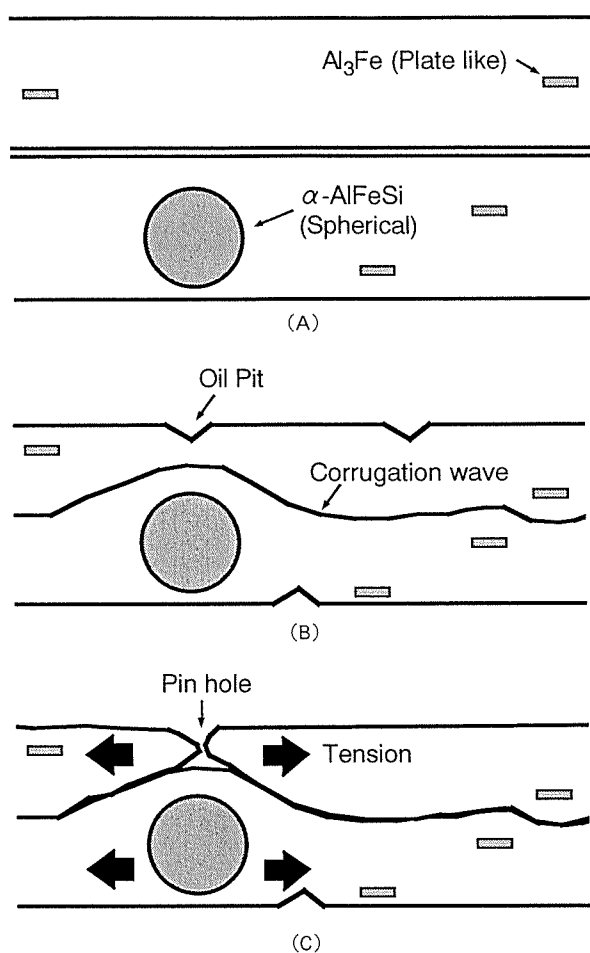


Fig. 12 Schematic model for the formation of pin hole caused by intermetallic compounds. (A) Before double rolling, (B) During double rolling (formation of corrugation wave), (C) During double rolling (local tear)

りを大きくする。

(2) 球状  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物によるマット面うねりは、対となる箔のブライト面に存在するオイルピットと直接連結するほど大きく変化せず、極薄肉化された領域が、圧延時の張力で部分的に引き裂かれてピンホールが形成すると考えられる。

(3) Fe/Si 比を高くすること及び均質化処理の高温化により、 $\alpha$ -AlFeSi 晶出物の数が減少することを熱フェノール溶解法による抽出残渣の SEM 観察及び X 線回折で確認した。

(4) 上記の適切な製造条件で材料中に含まれる球状の  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物数を低減させると、重合圧延箔におけるピンホール数が減少した。これらの結果から、球状  $\alpha$ -AlFeSi 晶出物によって生じるマット面うねりと関係づけたピンホール発生モデルを考案した。

#### 参 考 文 献

- 1) Brzobahaty : Sheet Metal Ind., 39 (1962), 341.
- 2) 木村 紘 : 軽金属学会第 70 回春期大会講演概要, (1986), 34.
- 3) 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), 64.
- 4) 澤部寿宏, 佐藤克行, 柴田潤一 : 石油学会第 43 回研究発表会前刷集, (1993), 34.
- 5) 本居徹也, 福岡 潔, 吉田英雄 : 軽金属, 48 (1998), 624.

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 35-42

TECHNICAL PAPER

# The Behavior of Aluminum Foil for Electrolytic Capacitors during Early Stage of DC Etching\*

Nobuo Osawa\*\* and Kiyoshi Fukuoka\*\*\*

# The Behavior of Aluminum Foil for Electrolytic Capacitors during Early Stage of DC Etching\*

Nobuo Osawa\*\* and Kiyoshi Fukuoka\*\*\*

This paper, aimed to clarify the pit nucleation mechanisms and to establish the fundamentals of etching technology, describes the results of an investigation of the behavior of the anodic dissolution of high-purity aluminum foils for electrolytic capacitors based on electrochemical analyses and surface electron microscopic observations of the etched surfaces. To elucidate the pit nucleation mechanism, the effects of lead on the etching behavior were investigated during DC etching. Pits changed their shapes from hemispherical to half-cubic during the early stage of DC etching. Hemispherical pits were formed and then grew under the diffusion control of aluminum ions in the electrolyte bulk during the high potential period. Pits with facets grew under the steady-state potential.

## 1. Introduction

The capacitance of aluminum foils used in electrolytic capacitors is determined by their surface area after the etching. The methods of etching are selected according to the working voltages. DC etchings are usually adopted for the anode foils of high and low voltage capacitors. High-purity aluminum foils with high cubicity are generally used for DC etching because of the selective dissolution of the (100) faces. The initial pits continue to grow and then form tunnels<sup>1)</sup>. The morphologies of the tunnel pits are affected by the segregation of trace elements in the surface layer caused by the heat-treatment.

It is important for determining the etching mechanism to investigate the nucleation processes of pit formation. In-situ observations of pitting attacks in a NaCl solution have been studied by potentiostatic electrolysis<sup>1)~3)</sup>. Many studies have also discussed the growth of pits using high-purity aluminum foils dur-

ing DC etching in hot HCl solutions with respect to the effect of electrolytic conditions on the pit shape<sup>4)</sup>, the morphology of the early stages of the pitting corrosion<sup>5)</sup>, the tunnel pit growth rate<sup>6), 7)</sup> and the effect of impurities on the DC etching behavior<sup>8)~10)</sup>. The principal purpose of the present work was to observe the morphologies of pit nucleation and to study the relation between changes in the electrode potential during the early stage of DC etching and pit structures.

## 2. Experimental method

Three kinds of high-purity (>99.99%) aluminum foils with different lead contents<sup>8)</sup> as shown in **Table 1** were used for the DC etching. The thickness was 104 $\mu$ m, and the cubicity was above 95%. All specimens were annealed at 560 °C in an Ar gas atmosphere for 5h. The specimens were galvanostatically etched up to 50ms

Table 1 Chemical compositions of specimens (ppm).

Specimen	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ga	Ti	Pb	Al(%)
A	5	6	44	<1	<1	<1	<1	<1	<1	0.1	99.99
B	8	8	43	<1	<1	<1	<1	<1	<1	0.5	99.99
C	8	9	43	<1	<1	<1	<1	<1	<1	0.8	99.99

\* The main part of this paper was presented at Corrosion Science, 42 (2000), 585.

\*\* No.4 Department, Research & Development Center, Dr. of Eng.

\*\*\* Hydro Aluminium Japan KK (formerly No.4 Department, Research & Development Center)

in 1.5~7.6M HCl solutions at 70°C.

A constant current density of  $200\text{mAcm}^{-2}$  was supplied by a potentio/galvanostat (HA-501G, Hokuto Denko). The potential changes were measured by a digital oscilloscope (R9211B, Advantest). The morphology of the etched specimens was studied by observations of resin replicas (PETROPOXY 154, Palouse Petro Products)<sup>11)</sup> in a scanning electron microscope (S800 FE-SEM, Hitachi). A transmission electron microscope (JEM-200CX, JEOL) was used to observe the pit structures of the films which were stripped from the etched foil in  $\text{I}_2$  methanol solution<sup>12)</sup>. The same electrochemical cell was used for both DC etching and anodic polarization. A counter electrode was Pt, and a Calomel reference electrode was connected to the cell by a capillary. Specimens were anodically polarized at a sweep rate of  $50\text{mVmin}^{-1}$  in 0.1~7.6M HCl solution at 70°C. The surface area of an aluminum foil exposed to the electrolyte was  $1\text{cm}^2$ . The rest of specimen was masked with polyester tape. After being immersed in the electrolyte for 30s, the specimens were etched or polarized.

### 3. Experimental results

#### 3.1 Changes in electrode potential and pit nucleation behavior during the early stage of DC etching

Changes in the electrode potential of the initial DC etching are shown in Fig. 1. The electrode potential during DC etching is initially high and then becomes steady with a transition period of up to a few ms.

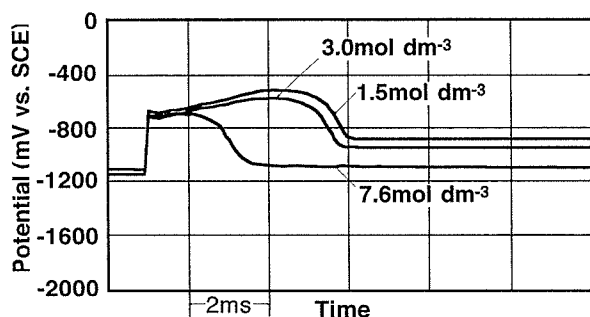


Fig. 1 Changes in electrode potentials for specimens A~C during the early stage of DC etching at a current density of  $200\text{mAcm}^{-2}$  in 1.5M HCl solution at 70°C.

Scanning electron micrographs of the resin replicas obtained from specimen C after the initial DC etching up to 10ms are shown in Fig. 2. Pits varied in structure from a hemispherical pit to a half-cubic pit with a cluster of hemispherical pits. Pits with crystallographic dissolution of (100) faces and facets are observed after a 10ms DC etching. Other morphologies are shown in Fig. 3. Clusters consisting of multiple pits are observed after 5ms in Figs. 2 (d) and 3 (a). The rest of the faces with crystallographic dissolutions, which are considered (111) faces, are observed at the tip of the pit in Fig. 3 (b). Thus, selective dissolution of the (100) faces is initiated in the

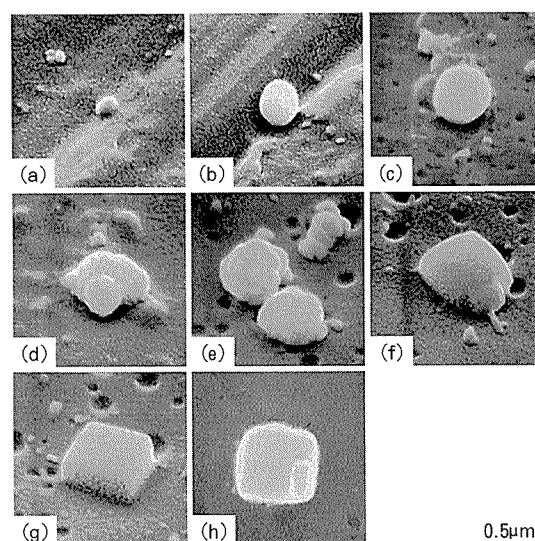


Fig. 2 Scanning electron micrographs of resin replicas obtained from specimen C etched at a current density of  $200\text{mAcm}^{-2}$  in 1.5M HCl solution at 70°C for (a), (b) 2ms, (c), (d) 5ms, (e), (f) 7ms and (g), (h) 10ms. Stage tilts for all specimens are 45° except for (h) of 0°.

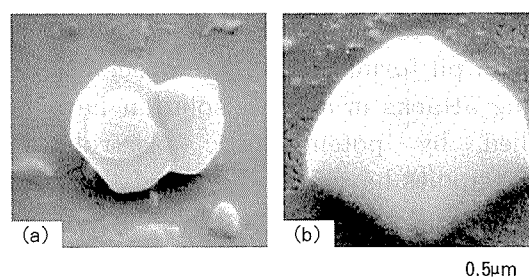


Fig. 3 Scanning electron micrographs of resin replicas showing crystallographic dissolutions of (100) faces, etched at a current density of  $200\text{mAcm}^{-2}$  in 1.5M HCl solution at 70°C for (a) 5ms with specimen B and (b) 15ms with specimen A.



hemispherical pit grown by the nucleation process.

Transmission electron micrographs of the pit structure of specimen A after a 50ms DC etching are shown in Fig. 4. Films are ob-

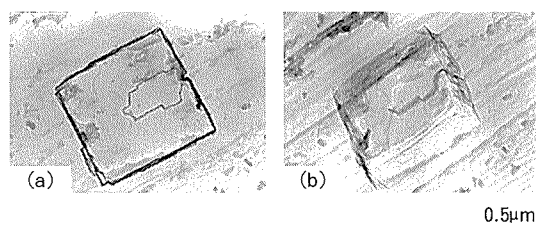


Fig. 4 Transmission electron micrographs of a film removed from specimen A etched at a current density of  $200\text{mAcm}^{-2}$  in 1.5M HCl solution at  $70^\circ\text{C}$  for 50ms. Stage tilts for (a) and (b) are  $0^\circ$  and  $45^\circ$ , respectively.

served on the side walls and on part of the tip of the half-cubic pit. Judging from the result after observation of the films, it is realized that the side walls are passive, and that tunnels grow due to the dissolution at the tips of the pits<sup>4)</sup>.

The distribution of pits after a 50ms etching is shown in Fig. 5. The average pit sizes indicating widths and lengths of the half-cubic pits and pit densities over a  $4000\mu\text{m}^2$  area were measured using scanning electron micrographs for each specimen. The frequencies of pit sizes are shown in Fig. 6. The products NS given by the pit densities N and average pit areas S are  $2.0 \times 10^{-2} \sim 2.6 \times 10^{-2}$  as shown in Table 2. The current densities per one pit calculated by  $I/NS$  are  $7.7 \sim 10.0\text{Acm}^{-2}$ , where I is

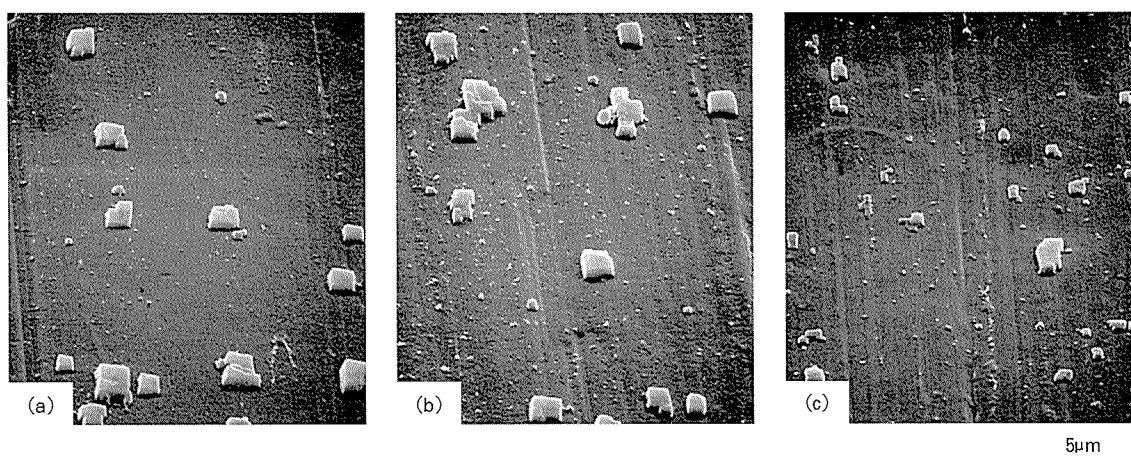


Fig. 5 Scanning electron micrographs of resin replicas showing pit distributions of (a) specimen A, (b) specimen B and (c) specimen C etched at a current density of  $200\text{mAcm}^{-2}$  in 1.5M HCl solution at  $70^\circ\text{C}$  for 50ms. Stage tilts for all specimens are  $45^\circ$ .

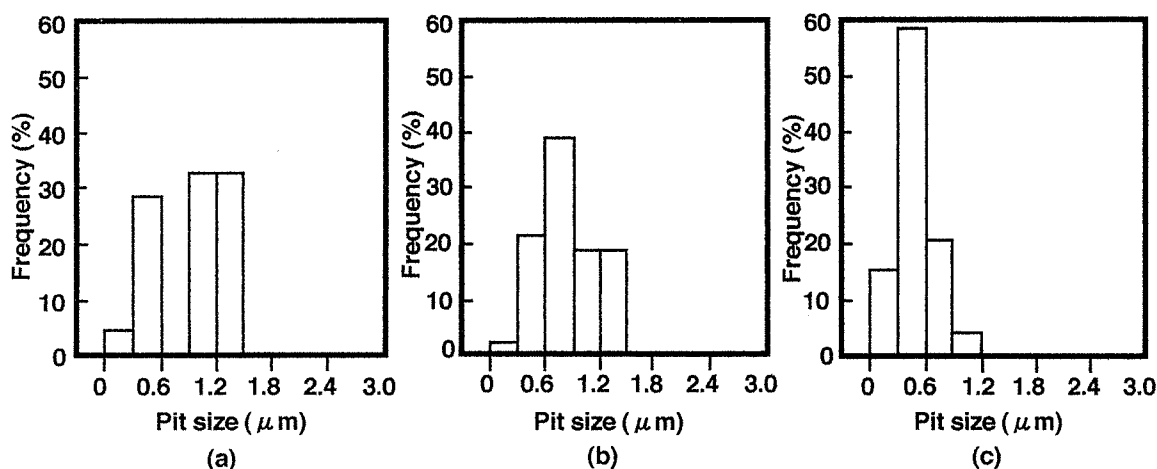


Fig. 6 Frequency distributions of pit sizes based on scanning electron micrographs of  $4000\mu\text{m}^2$  for (a) specimen A, (b) specimen B and (c) specimen C etched at a current density of  $200\text{mAcm}^{-2}$  in 1.5M HCl solution at  $70^\circ\text{C}$  for 50ms.

the applied current density. On the other hand, the pit growth rates  $dl/dt$  were measured by triangle waves of 2Hz at  $200 \pm 60 \text{ mAcm}^{-2}$ , then the current densities per one pit  $i_d$  calculated by  $(dl/dt)(z\rho F/M)$  were  $8.1 \sim 9.8 \text{ Acm}^{-2}$ <sup>7)</sup>. The values calculated by I/NS agreed with  $i_d$ , indicating that aluminum dissolves at the tips of the pits.

The length, width and depth of 10 individual pits with facets were measured for each specimen. Since facet dissolution indicates an etched structure with tunnels along  $\langle 100 \rangle$  directions, the selected pits are substantially regarded as the initial tunnel pits. Examples of the pit structures are given in Fig. 7. The average ratios of (length) : (width) : (depth) were

1 : 0.86 : 0.45 (specimen A), 1 : 0.95 : 0.45 (specimen B), and 1 : 0.95 : 0.50 (specimen C). As they are regarded as 1 : 1 : 0.5 in general, the shapes of initial tunnel pits are half-cubic<sup>5)</sup>.

The growth rate of the hemispherical pit is given as<sup>13)</sup>:

$$dr/dt = (i_L M) / (z\rho F) = (DC_s M) / (\rho r) \quad (1)$$

Since the shapes of the initial tunnel pits are half-cubic, the radius of pit  $r$  is given as  $w/2$ , and the integrated equation is

$$w/2 = \sqrt{(2DC_s M t) / \rho} \quad (2)$$

where  $C_s$  : concentration of saturated  $\text{AlCl}_3$  in electrolyte ( $\text{molcm}^{-3}$ )

$D$  : diffusivity of  $\text{Al}^{3+}$  in electrolyte ( $\text{cm}^2\text{s}^{-1}$ )

$i_L$  : limiting current density at the mouth of a hemispherical pit ( $\text{Acm}^{-2}$ )

$r$  : radius of hemispherical pit (cm)

$F$  : Faradaic charge

$z$  : chemical electric charge of aluminum

$M$  : atomic weight of aluminum

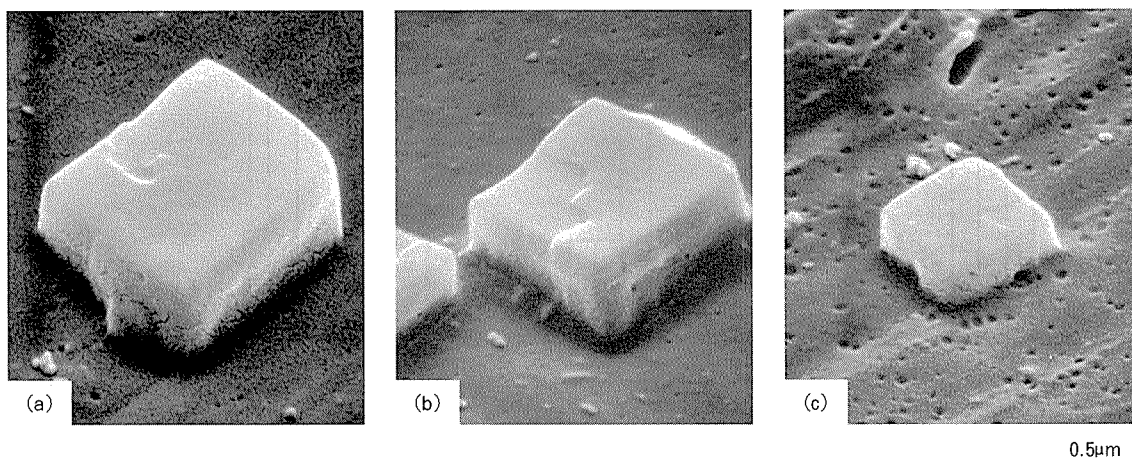
$\rho$  : density of aluminum ( $\text{gcm}^{-3}$ )

$t$  : etch time (s)

When  $C_s = 2.6 \times 10^{-3} \text{ molcm}^{-3}$ ,  $D = 6.0 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ <sup>14)</sup>, and when  $w$  indicates the average pit sizes given in Table 2, then the periods of pit formation are calculated as shown in Table 3. Thus, the formation of a pit requires a long period with the increasing size of pit  $w$  when

**Table 2** Average pit sizes and densities measured with scanning electron micrographs over  $4000 \mu\text{m}^2$  for (a) specimen A, (b) specimen B and (c) specimen C etched at a current density of  $200 \text{ mAcm}^{-2}$  in 1.5M HCl solution at  $70^\circ\text{C}$  for 50ms.

Specimen		A	B	C
After 50ms	Average pit size : $w(\mu\text{m})$	0.9	0.8	0.5
	Pit density : $N(\text{cm}^{-2})$	$1.8 \times 10^6$	$3.3 \times 10^6$	$6.5 \times 10^6$
	Average pit area : $S(\text{cm}^2)$	$1.1 \times 10^{-8}$	$0.8 \times 10^{-8}$	$0.3 \times 10^{-8}$
	NS	$2.0 \times 10^{-2}$	$2.6 \times 10^{-2}$	$2.0 \times 10^{-2}$
Pit growth rate : $dl/dt (\mu\text{m s}^{-1})$		3.4 ( $i_d = 9.8 \text{ Acm}^{-2}$ )	2.8 ( $i_d = 8.1 \text{ Acm}^{-2}$ )	3.0 ( $i_d = 8.7 \text{ Acm}^{-2}$ )



**Fig. 7** Scanning electron micrographs of resin replicas showing pit structures of (a) specimen A, (b) specimen B and (c) specimen C etched at a current density of  $200 \text{ mAcm}^{-2}$  in 1.5M HCl solution at  $70^\circ\text{C}$  for 50ms.

the diffusion of  $\text{Al}^{3+}$  in the electrolyte is the rate determining step. Fig. 8 shows  $C_s$  plotted by using the value of concentration of saturated  $\text{AlCl}_3$  in various  $\text{HCl}$  concentrations from references<sup>[6], [15]</sup>, while the temperature dependence of the solubility was ignored. High potential periods almost agree with the calculated values.

### 3.2 Relation between pitting potential and steady-state potential during early stage of DC etching

Anodic polarization curves of specimen A in various  $\text{HCl}$  concentrations are shown in Fig. 9. For all specimens (A~C), a good correlation between  $\log [\text{Cl}^-]$  and the pitting potential<sup>[6]</sup> is shown in Fig. 10. Pitting potentials ( $E_{\text{pit}}$ ) are given as:

$$\text{Specimen A : } E_{\text{pit}} = -0.901 - 0.162 \log [\text{Cl}^-]$$

$$\text{Specimen B : } E_{\text{pit}} = -0.932 - 0.181 \log [\text{Cl}^-]$$

$$\text{Specimen C : } E_{\text{pit}} = -0.942 - 0.190 \log [\text{Cl}^-]$$

The morphology of an aluminum surface

Table 3 Comparison of high potential period and calculated value.

Specimen	A	B	C
High potential period (ms)	5.0	4.0	3.0
Calculated value (ms)	6.5	5.1	2.0

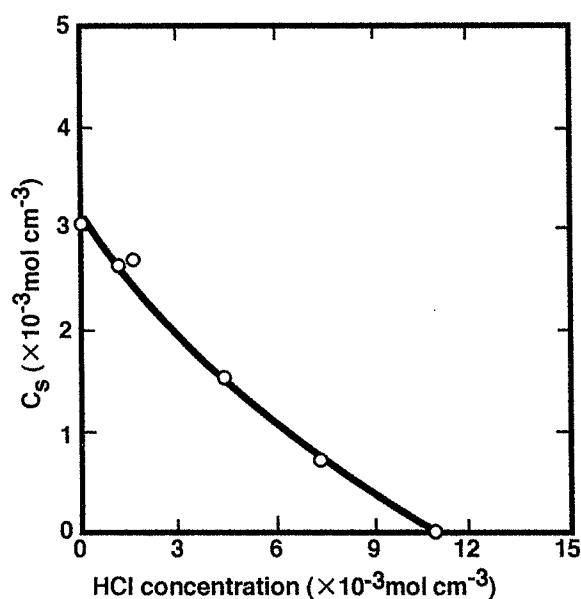


Fig. 8 Concentration of saturated aluminum chloride  $C_s$  in hydrochloric acid [6,15].

after the anodic polarization (current density ;  $0.1 \text{ A cm}^{-2}$ ) is shown in the scanning electron micrographs of Fig. 11. Crystallographic dissolutions are randomly formed at low  $\text{Cl}^-$  concentrations. Tunnel dissolutions growing along the  $\langle 100 \rangle$  directions parallel to the original surface are clearly found with the increasing  $\text{Cl}^-$  concentration. The surface dissolution area is larger on specimen C than on specimen A.

Fig. 12 shows the effect of various  $\text{HCl}$  concentrations on the change in the electrode potential for specimen A. As shown in Fig. 13, the steady-state potential shifts to a less noble value with the increasing  $\text{Cl}^-$  concentration similar to the pitting potential.

The limiting current density at the mouth of a hemispherical pit,  $i_L$ , is given as<sup>[14]</sup>:

$$i_L = 3FDC_s/r = 3F\sqrt{(DC_s\rho)/(2Mt)} \quad (3)$$

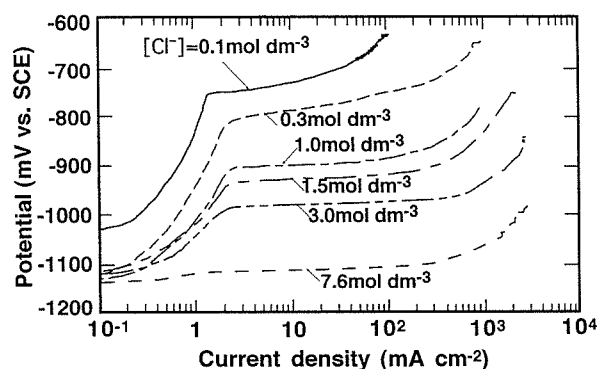


Fig. 9 Anodic polarization curves of specimen A in  $0.1 \sim 7.6 \text{ mol dm}^{-3}$   $\text{HCl}$  solutions at  $70^\circ\text{C}$  with sweep rate of  $50 \text{ mV min}^{-1}$ .

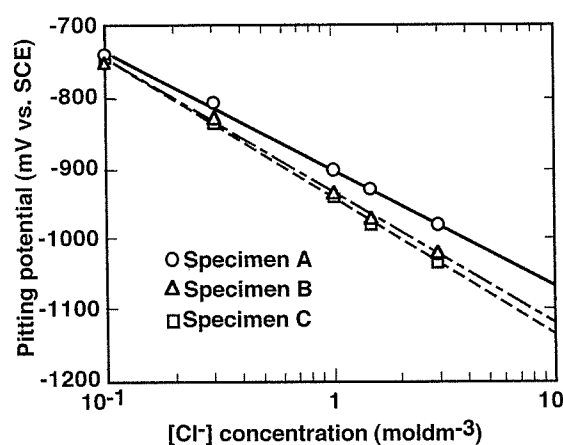


Fig. 10 Relation between  $\text{Cl}^-$  concentration and pitting potential.

The average current density for all the side walls of the half-cubic pit,  $i_w$ , is given as :

$$i_w = i_L/3 = F\sqrt{(DC_s\rho)/(2Mt)} \quad (4)$$

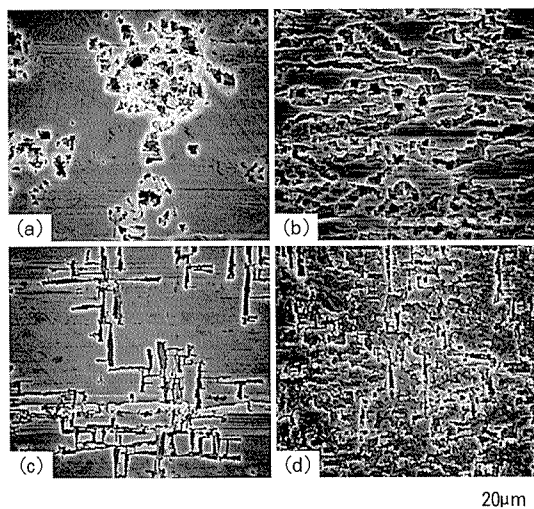


Fig. 11 Scanning electron micrographs of surfaces after anodic polarization at a current density of  $0.1\text{Acm}^{-2}$  in (a), (b) 0.1M and (c), (d) 7.6M HCl solutions at  $70^\circ\text{C}$  with sweep rate of  $50\text{mVmin}^{-1}$  showing changes in structures from clusters of crystallographic dissolutions to tunnel dissolutions with increasing  $\text{Cl}^-$  concentration in the bulk electrolytes. (a), (c) and (b), (d) are specimens A and C, respectively.

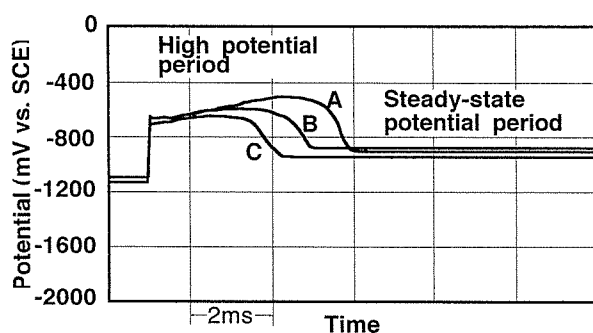


Fig. 12 Changes in electrode potentials of  $3.0\sim 7.6\text{mol dm}^{-3}$  HCl solutions at  $70^\circ\text{C}$  for specimen A during the early stage of DC etching at a current density of  $200\text{mAcm}^{-2}$ .

because a half-cubic pit consists of four half-square side walls and one square bottom face. If the  $\text{Cl}^-$  concentration in the bulk solution and the half-cubic pit are taken as  $C_{\text{Cl}}^\circ$  and  $C_{\text{Cl}}$ , respectively, assuming the  $\text{H}^+$  concentration in the pit,  $C_{\text{H}}=0$  because of the uncertainty for the hydrolysis of  $\text{AlCl}_3$ , then

$$C_{\text{Cl}} = (\Delta\Sigma C + 2C_{\text{Cl}}^\circ)/(1 + 1/z) \quad (5)$$

with the requirement to be electrically neutral<sup>17)</sup>, where

$$\Delta\Sigma C = (2i_w r)/(zFD) = (i_w w)/(zFD) \quad (6)$$

and  $\Delta\Sigma C$  is the difference in the total ion concentration between the pit and the bulk solution ( $\Sigma C_i - \Sigma C_i^\circ$ ).

Concerning the concentration of  $\text{Cl}^-$  in a pit during DC etching, Table 4 shows the calculated value of  $C_{\text{Cl}}$  using equations (4)~(6) when the time during high potential is taken as  $t$ , and  $C_s$  is from Fig. 8. Hence the dashed line in Fig. 13 is obtained. If the effect of the I.R. drop on the potential is considered, the dashed line will more closely approach the solid line.

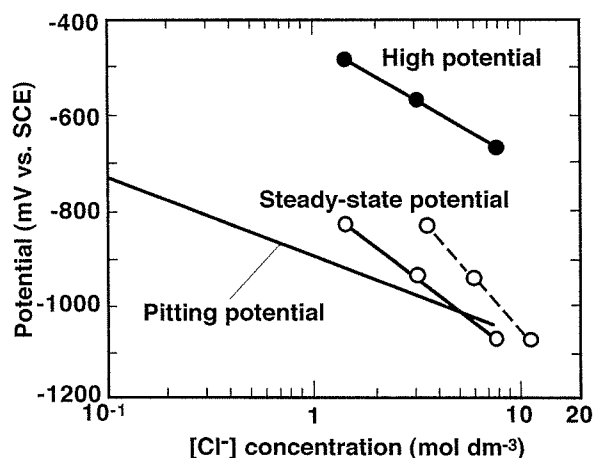


Fig. 13 Relation between  $\text{Cl}^-$  concentration and electrode potential.

Table 4 The calculated value of  $C_{\text{Cl}}$ .

HCl concentration (M)	High potential period (ms)	$C_s$ [Fig.8] ( $\text{molcm}^{-3}$ )	$r$ [Eq.2] (cm)	$i_L$ [Eq.3] ( $\text{Acm}^{-2}$ )	$i_w$ [Eq.4] ( $\text{Acm}^{-2}$ )	$\Delta\Sigma C$ [Eq.6] ( $\text{molcm}^{-3}$ )	$C_{\text{Cl}}$ [Eq.5] ( $\text{mol dm}^{-3}$ )
1.5	5.0	$2.6 \times 10^{-3}$	$4.0 \times 10^{-5}$	114	38	$1.7 \times 10^{-3}$	3.6
3.0	4.9	$2.0 \times 10^{-3}$	$3.4 \times 10^{-5}$	101	34	$1.3 \times 10^{-3}$	5.5
7.6	3.3	$0.7 \times 10^{-3}$	$1.7 \times 10^{-5}$	73	24	$0.5 \times 10^{-3}$	11.8

#### 4. Discussion

The potential peak, which was observed during the early stage of DC etching, was more noble than the steady-state potential. The formation of a salt film has been discussed. It was found that a continuous aluminum chloride film was formed at high anodic potentials<sup>18)</sup>. The formation of a salt film is accompanied by the concentration of  $\text{Cl}^-$  and the diffusion of  $\text{Al}^{3+}$ . On the other hand, hemispherical and crystallographic dissolutions were confirmed at high potentials and at the pitting potential, respectively, by in-situ observations<sup>19)</sup>. The current densities for the anodic polarization curves are limited above the pitting potentials (as shown in Fig. 9). The pitting potentials shift to less noble values, and the surface morphologies vary in structures from clusters of crystallographic dissolutions to tunnel dissolutions with increasing  $\text{Cl}^-$  concentration in the bulk electrolytes. The increase in the  $\text{Cl}^-$  concentration also makes the high potential period short, and also makes the stability potential less noble. The solubility of  $\text{AlCl}_3$ , Cs, is reduced with increasing HCl concentration. Therefore, the formation of a salt film<sup>20)</sup> is enhanced in a pit with the concentration of  $\text{Cl}^-$ . The high potential period is considered to be for pit nucleation. As shown in Fig. 14, pits continue to nucleate within a pit or other active sites until continuous aluminum chloride films are formed. During this period, the diffusion of  $\text{Al}^{3+}$  in the electrolyte is the rate determining step. The crystallographic dissolutions of the (100) faces occur after the growth of the hemispherical pits, and then form half-cubic pits. Pits with facets grow at the steady-state potential which is regarded as the pitting potential.

It is known that foils with a high lead content show a serious rolling line effect after DC etching, and lead atoms are concentrated at the surface of the aluminum foils<sup>6)</sup>. Other impurities in the aluminum foils, such as indium<sup>9)</sup>, bismuth and so on<sup>10)</sup>, are also well-known to affect the etching behavior. In addition, pitting attacks depend on the defects in the surface oxide layer caused by the  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  spinel or

$\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  crystals, both of which are at the metal ridges on the aluminum substrates as shown in Fig. 15<sup>21)</sup>. Three kinds of aluminum foils with different lead contents were used in this study. The results indicated that the difference in the lead content affected the number of initial pits and the pitting potential during the early stage of DC etching. It appears that the lead atoms, which are distributed at the surface of the aluminum foils, provide the nucleation sites for the pitting attacks, although such behavior has never been directly observed with electron microscopes.

#### 5. Conclusions

The relation between changes in the electrode potential during the early stage of DC etching and pit structures have been studied.

- (1) The electrode potential of high purity aluminum foils for electrolytic capacitors moves from a high potential period to a steady-state period during the early stage of DC etching.
- (2) Hemispherical pits occur and then grow under the diffusion control of aluminum ions in the electrolyte during the high potential period.
- (3) The crystallographic dissolutions of the

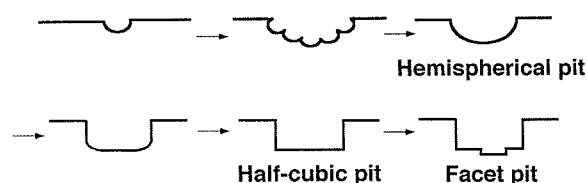


Fig. 14 Schematic diagram for change in pit structure during nucleation.

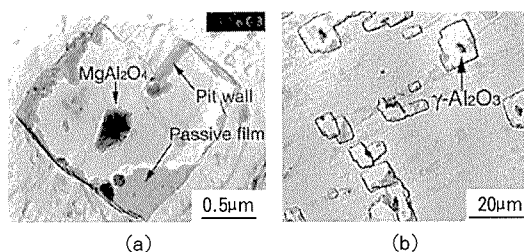


Fig. 15 Transmission electron micrographs of pits around (a)  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$  spinel and (b)  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  crystals after a DC etching at a current density of  $200\text{mAcm}^{-2}$  in  $1.5\text{M HCl}$  solution at  $70^\circ\text{C}$  for  $50\text{ms}$ <sup>21)</sup>.

(100) faces occur after the growth of the hemispherical pits, and then form half-cubic pits.  
(4) Pits with facets grow under the steady-state potential which is regarded as the pitting potential.

#### References

- 1) H.Kaesche : Werkst. Korros., **39** (1988), 153.
- 2) M.Baumgärtner and H.Kaesche : Corros. Sci., **29** (1989), 363.
- 3) M.Baumgärtner and H.Kaesche : Proc. Conf. Corrosion Chemistry within Pits, Crevices and Cracks, HMSO, London, (1987), 511.
- 4) R.S.Alwitt, H.Uchi, T.R.Beck and R.C.Alkire : J.Electrochem. Soc., **131** (1984), 13.
- 5) B.J.Wiersma and K.R.Hebert : *ibid.*, **138** (1991), 48.
- 6) K.Hebert and R.Alkire : *ibid.*, **135** (1988), 2447.
- 7) N.Osawa, K.Fukuoka and Z.Tanabe : J.Surf. Finish. Soc. Jap., **42** (1991), 236.
- 8) W.Lin, G.C.Tu, C.F.Lin and Y.M.Peng : Corros. Sci., **38** (1996), 889.
- 9) W.Lin, G.C.Tu, C.F.Lin and Y.M.Peng : *ibid.*, **39** (1997), 1531.
- 10) K.Arai, T.Suzuki and T.Atsumi : J.Electrochem. Soc., **132** (1985), 1667.
- 11) Y.Tanno and E.Suganuma : J.Surf. Finish. Soc. Jap., **38** (1987), 341.
- 12) Y.Tanno and E.Suganuma, : *ibid.*, **38** (1987), 492.
- 13) T.R.Beck and R.C.Alkire : J.Electrochem. Soc., **126** (1979), 1662.
- 14) T.R.Beck : Electrochim. Acta, **33** (1988), 1321.
- 15) Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie, System-Number 35 : Aluminum, Teil B-Lieferung 1-2, (1935), 202.
- 16) K.Sugimoto : J.Surf. Finish. Soc. Jap., **32** (1981), 355.
- 17) S.Tsujikawa : Boshoku Gijutsu, **31** (1982), 488.
- 18) T.R.Beck : Electrochim. Acta, **29** (1984), 485.
- 19) M.Baumgärtner and H.Kaesche : Corros. Sci., **31** (1990), 231.
- 20) T.R.Beck : Electrochim. Acta, **30** (1985), 725.
- 21) N.Osawa and K.Fukuoka : J.Surf. Finish. Soc., **50** (1999), 643.

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 43-49

論文

アルミニウムクラッドフィン材のろう付性に及ぼす  
芯材およびろう材のけい素濃度の影響\*

久 富 裕 二\*\* 正 路 美 房\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 43-49

The Effect of Silicon Content of Core and Filler Alloys  
on Brazeability of Aluminum Clad Fins

Yuji Hisatomi and Yoshifusa Shoji

# アルミニウムクラッドフィン材のろう付性に及ぼす 芯材およびろう材のけい素濃度の影響\*

久 富 裕 二\*\* 正 路 美 房\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 43-49

## The Effect of Silicon Content of Core and Filler Alloys on Brazeability of Aluminum Clad Fins

Yuji Hisatomi and Yoshifusa Shoji

The brazing behavior of aluminum clad fin with thickness from 60 to 80 $\mu$ m for automotive heat exchangers was studied in order to improve the fillet forming ability which usually declines with reduction of fin thickness. Three types of core alloys (Al-1.2mass%Mn-0.06~0.57mass%Si-1.5mass%Zn) and four types of filler metals (Al-7.35~9.50mass%Si) were used. The fillet area, formed on the fin and tube joints, increased with increasing the silicon content of both core alloys and filler metals. The result was caused by the diffusion of silicon from the filler into the core alloy during the heating processes of intermediate annealing and brazing. Consequently, the reduction of silicon concentration in filler metal became small with the increase in the silicon content of core alloy. The flow factor decreased with decreasing the fin thickness due to the residual filler with constant quantity on the surface of clad fin. The fillet area tended to increase in proportion to the average concentration of silicon in clad fin. Then, the fillet was not formed at the low silicon concentration, whereas the fin deformed due to the erosion of core alloy contacting with molten filler metal at the high silicon concentration.

### 1. 緒 言

自動車用のアルミニウム合金製熱交換器は Al-Si 系合金を用いてろう付接合されているが、ろう材の熔融温度が高いことから、熔融ろうが母材を侵食することがあり、それに関する研究が盛んに行われている<sup>1)~6)</sup>。

特にフィン材は板厚が薄いために、熔融ろうの母材への侵食によって座屈変形が生じ易く、ろう材中の Si 濃度の選定やクラッド率の調整とともにろう付加熱途中で生じる再結晶後の粒度を粗大化させるように母材成分および製造条件の調整等が行われている<sup>1), 2), 7), 8)</sup>。フィンにクラッド材を用いる場合には、表面全体が熔融ろうで覆われるため、ろうによる芯材の侵食を抑制するための

条件設定はより厳密にしなければならない。また、ろう付加熱中に生じるろうから芯材への Si の拡散も芯材の再結晶粒径を変動させ、座屈変形に影響するとの報告もなされている<sup>9)</sup>。

近年、構成材料の軽量化および製造コスト低減の観点から、ろう付製品の薄肉化がさらに進行している。クラッドフィン材では、上述のような工夫を施してもろうの流動不足あるいは熔融ろうの芯材への侵食による座屈が生じる場合があるが、良好なろう付を得るための諸条件に関しては不明な点が多い。

本報では極めて薄いクラッドフィン材におけるフィン材のフィレット形成におよぼす芯材およびろう材の Si 添加量の影響について調査した。

### 2. 実 験 方 法

本研究では、Si 濃度を 0.06, 0.29, 0.57mass% に変え

\* 軽金属学会第 93 回秋期大会 (平成 9 年 11 月) にて一部発表, 軽金属, 52 (2002), 256 に掲載

\*\* 研究開発センター 第四部

\*\*\* 研究開発センター 第四部, 工学博士



た3種類の Al-1.2Mn-1.5Zn-Si 合金芯材に Si 濃度を 7.35~9.50mass% に変えた4種類の Al-Si 合金ろう材を両面に貼り合わせたブレイジングシートのフィン材を用いた。Table 1 にろう材および芯材の化学成分を示す。

芯材を溶解鑄造後、500℃×8h の均質化処理を施し、クラッド率が10%となるようにろう材と組み合わせて熱間圧延を行い、板厚 3.0mm のクラッド材を作製した。その後冷間圧延を行い、420℃×1h の中間焼鈍を行った後、さらに圧下率 40% の最終冷間圧延を行って、板厚 60, 70, 80 $\mu$ m のクラッドフィン材に仕上げた。

これらの供試材をコルゲート成形し、純 Al 製の押し多穴管を用いて、Fig. 1 に示すようなミニコアに組み付けた。水で希釈したフッ化物系のフラックスを吹き付けて乾燥した後、ミニコア試験片を窒素雰囲気ろう付炉に挿入した。ろう付は、予備加熱として約 13min で 450℃まで加熱した後、約 10min で 600℃のろう付温度まで加熱し、約 3min の保持を行った後、炉内で 500℃まで冷却したのち炉外に搬出する条件で実施した。ろう付炉内は、ミニコアの温度が 600℃に達した時に酸素濃度を 100ppm 未満、露点を -40℃未満になるように N<sub>2</sub> 流量を調節した。

ろう付加熱後のミニコア試験片について、ろう付部の断面観察を行い、フィレット面積を測定し、フィン材の

流動係数を算出した。ここで流動係数とは、フィレット面積をフィン材の初期のろう材量で除した値である。Fig. 2 にろう付性の試験方法を示す。

### 3. 実 験 結 果

Fig. 3 に主なろう材 Si 濃度 (7.66, 8.56mass%) および芯材 Si 濃度 (0.06, 0.29, 0.57mass%) のフィン材 (板厚 70 $\mu$ m) を用いたミニコアろう付部の断面写真を

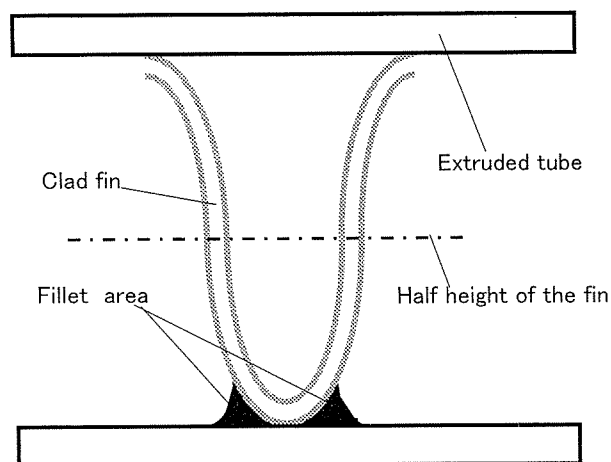


Fig. 2 Evaluation of brazeability.

- a) Fillet area : cross sectional area of brazed fillet formation area  
b) Flow factor : fillet area/cross sectional area of both sizes of filler metal before brazing from the joint point of tube to the half height of the fin

Table 1 Chemical composition of core and filler alloys (mass%).

Specimen	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Zn	Al
filler	A	7.35	0.16	0.01	0.00	0.01	0.03
	B	7.66	0.16	0.04	0.01	0.01	0.04
	C	8.56	0.13	0.00	0.00	0.01	0.02
	D	9.50	0.10	0.00	0.00	0.00	0.01
core	1	0.06	0.18	0.05	1.24	0.00	1.24
	2	0.29	0.21	0.05	1.26	0.00	1.28
	3	0.57	0.20	0.05	1.27	0.00	1.30

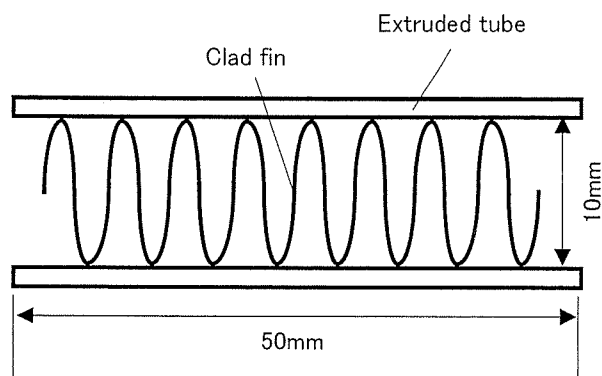


Fig. 1 An assembly of mini-core with clad fin and extruded tube.

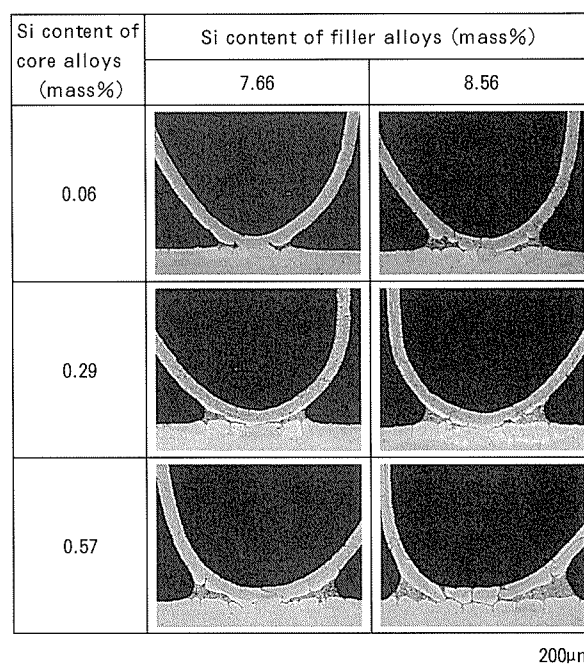


Fig. 3 Effect of Si content of core and filler metals of clad fin on the cross section of mini-core joints after brazing (thickness of clad fin : 70 $\mu$ m).

示す。ろう材および芯材の Si 濃度がともに低いフィン材ではフィレットが充分形成されなかった。一方、ろう材および芯材 Si 濃度がともに高いフィン材では溶融ろうの芯材への侵食が認められ座屈が生じていた。

Fig. 4 にろう材の Si 濃度が 7.66mass% で板厚 60 および 80 $\mu\text{m}$  のフィン材を用いたミニコアのろう付部の断面写真を示す。同一のろう材および芯材の Si 濃度の場合、板厚が厚い (80 $\mu\text{m}$ ) フィン材はフィレットが大きく、芯材の Si 濃度にかかわらず良好な接合が得られていた。一方、板厚が薄い (60 $\mu\text{m}$ ) フィン材の場合は、芯材の Si 濃度が低い試料ではフィレットが認められず、高い試料では溶融ろうの芯材への侵食による座屈が認められた。板厚が薄いフィン材に認められた以上のような不健全なろう付状態は、ろう材の Si 濃度が異なる試料でも同様であった。すなわち、板厚が薄いほど、ろう材あるいは芯材の Si 濃度の変化によってろう付不良が生じやすい傾向が認められた。

Fig. 5 に板厚 70 $\mu\text{m}$  のフィン材のフィレット面積に及ぼすろう材および芯材 Si 濃度の影響を示す。Fig. 5 から明らかなように、ろう材あるいは芯材の Si 濃度の増加に伴ってフィレット面積は増加した。

Fig. 6 にろう材 Si 濃度が 7.66mass% のフィン材の流動係数に及ぼす芯材の Si 濃度および板厚の影響を示す。いずれのフィン材においても、板厚の減少により流動係数は低下した。つまり、フィン材の板厚が薄くなるにつれて、流動するろうの割合は低下する傾向が認められた。

なお、フィン材のろう付加熱後の芯材組織はいずれも平均粒径 500~700 $\mu\text{m}$  (円相当径換算) の粗大な再結晶組織であり、ろう付性に及ぼす影響は小さいと考えられた。

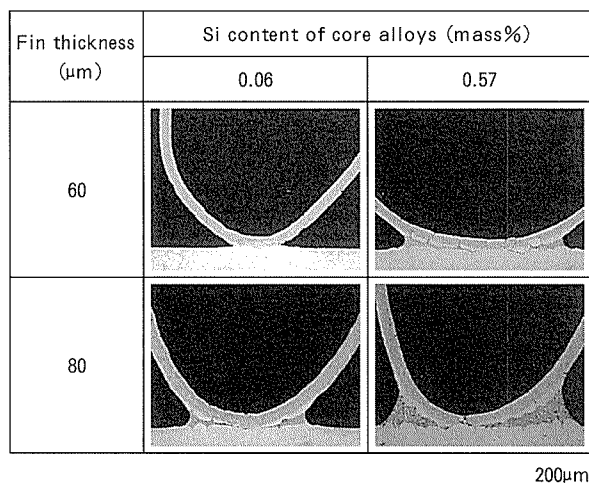


Fig. 4 Effect of thickness of clad fin on the cross section of mini-core joints after brazing. (Si content of filler metal : 7.66mass%)

## 4. 考 察

### 4.1 ろう付性に及ぼす芯材の Si 濃度の影響

#### 4.1.1 各加熱過程における芯材の Si 濃度変化

ろう材の Si 濃度の上昇に伴うフィン材のフィレット面積の増加は、Al-Si 系状態図からも明らかなように、加熱温度が液相線よりも低い場合には Si 濃度とともに液相率が増加するためである<sup>6)</sup>。ところが、Fig. 5, Fig. 6 にみるように芯材の Si 濃度もフィレット面積に関与し

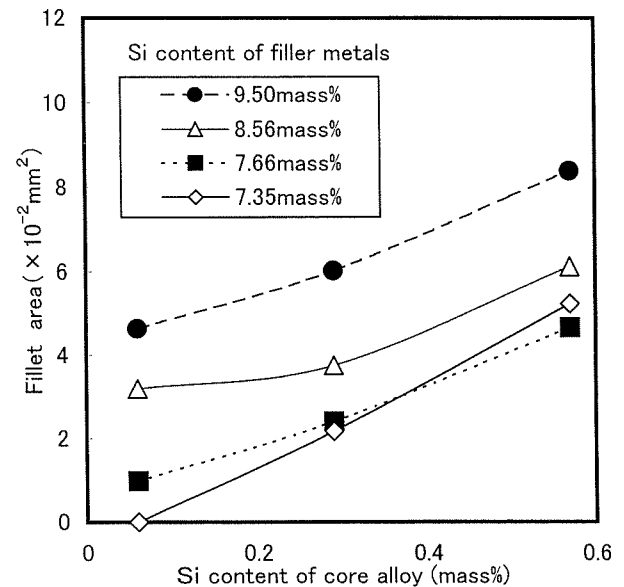


Fig. 5 Effect of Si content of core and filler metals on the area of fillet formation of clad fin after brazing (thickness of clad fin : 70 $\mu\text{m}$ ).

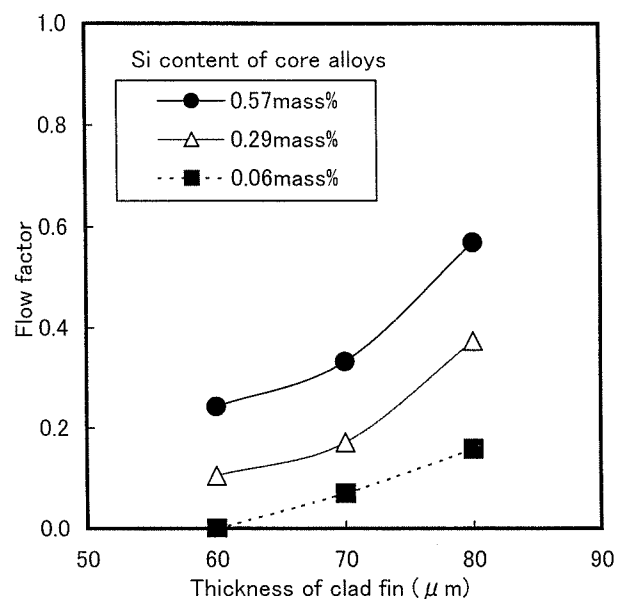


Fig. 6 Effect of fin thickness and Si content of core alloys on the flow factor of clad fin after brazing. (Si content of filler metal : 7.66mass%)

ており、芯材のSi濃度が異なる試料ではろうの熔融温度時のろう材のSi濃度が初期の添加量と異なっていたと推定される。ろう材のSi濃度が初期の添加量と異なるのは、フィン材の製造時およびろう付時の各加熱工程においてクラッド材のろう材と芯材との間にSiの拡散が生じるためと考えられる。

そこで、フィレット形成に及ぼす芯材のSi濃度の影響を明確にするために、フィン材の製造過程およびろう付加熱過程における芯材中のSi濃度の変化について調査した。試料は、ろう材のSi濃度は7.66mass%で、芯材のSi濃度が0.06mass%および0.57mass%のフィン材を用いた。

Fig. 7に中間焼鈍前後、ろう付における600℃到達時およびろう付処理終了後のフィン材について、芯材部分の板厚方向におけるSi濃度をEPMAで線分析した結果を示す。ろう付における600℃到達時の試料は、600℃に到達後直ちに水冷した。

Fig. 7より、芯材中のSi濃度が0.06mass%の試料では、中間焼鈍加熱によってろう/芯材の界面から板厚の中心に向けて拡散によるSiの濃度勾配が生じていた。また、ろう付温度が600℃に到達した直後はSiの濃度勾配が認められたが、ろう付処理終了後ではSiの濃度勾配が無くなり均一化されていた。それに対して芯材のSi濃度が0.57mass%の試料は、中間焼鈍前後、ろう付における600℃到達時およびろう付処理終了後のいずれの過程もSiの濃度勾配がほとんど認められなかった。同一加熱条件にもかかわらず芯材Si濃度の違いによってフィン材断面のSi濃度の分布状態が異なる原因は、芯材中のSiの固溶限に関係があると考えられる。つまり、芯材のSi濃度が0.57mass%の試料は、中間焼鈍前およびろう付加熱温度600℃の時点では芯材中のSi濃度がそれぞれの温度のほぼ固溶限（400℃では0.29mass%、

600℃では1.00mass%）近くになっているため<sup>10)</sup>、中間焼鈍後およびろう付処理終了後にも芯材のSi濃度がほとんど変化しなかったと考えられる。Fig. 8はFig. 7の各加熱過程における分析結果から算出した芯材部分の平均Si濃度を示す。Fig. 8から、中間焼鈍の前後、およびろう付加熱温度到達からろう付処理終了後に至る過程において、芯材の平均Si濃度の変化が2つの試料で異なることがわかる。これら加熱過程では、芯材のSi濃度が0.06mass%のフィン材のほうが0.57mass%のものより芯材の平均Si濃度の増加率が大きい。すなわち、芯材Si濃度が低い（0.06mass%）試料のほうが、中間焼鈍およびろう付処理の間にろう材のSi濃度がより著しく低下し、その結果、ろう付時の液相率も低下したと考

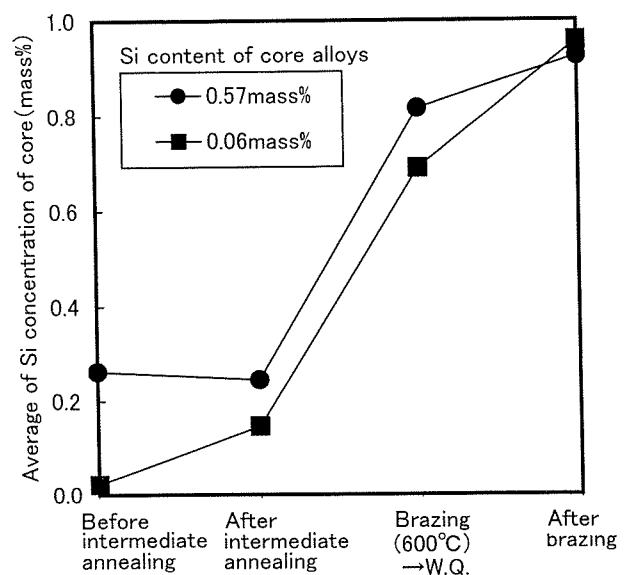


Fig. 8 Average of Si concentration of core alloys determined from EPMA line scan shown in Fig. 7.

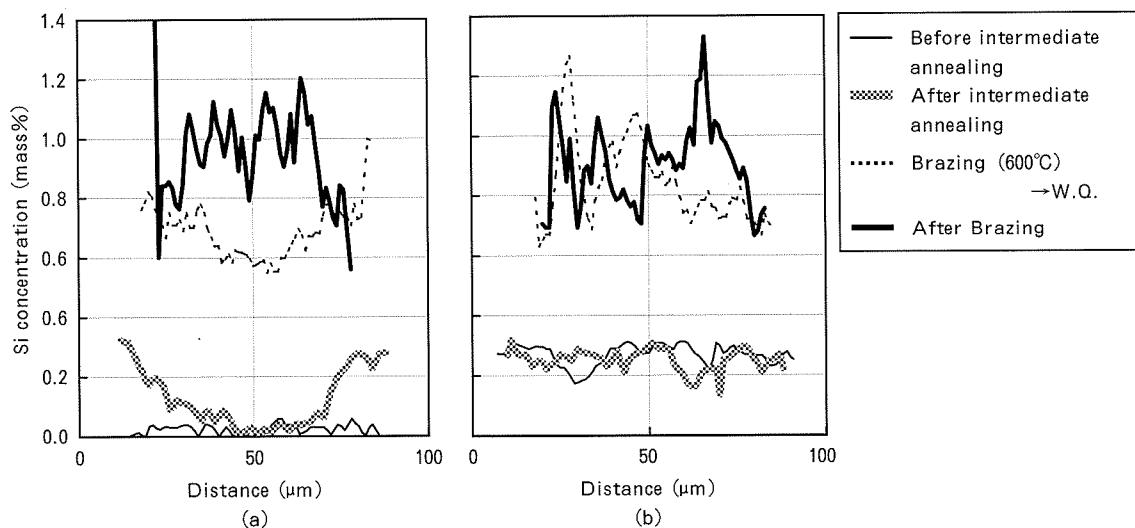


Fig. 7 Result of EPMA line scan of Si across the thickness of clad fin in the course of several processes.  
(Si content of filler metal : (a) (b) 7.66mass%, Si content of core alloys : (a) 0.06mass%, (b) 0.57mass%)

えられる。**Fig. 8**で増加した芯材のSi濃度が全て、ろう材から拡散したと仮定して、ろう付後のろう材Si濃度を以下の計算により求めた。

ろう付後のろう材Si濃度  $Sf_2$  (mass%) [計算式]

$$Sf_2 = (2 \times Cf \times Sf_1 + (100 - 2 \times Cf) \times (Sc_1 - Sc_2)) / (2 \times Cf)$$

$Sf_1$  : 中間焼鈍前のろう材中のSi濃度 (mass%)

$Sc_1$  : 中間焼鈍前の芯材中のSi濃度 (mass%)

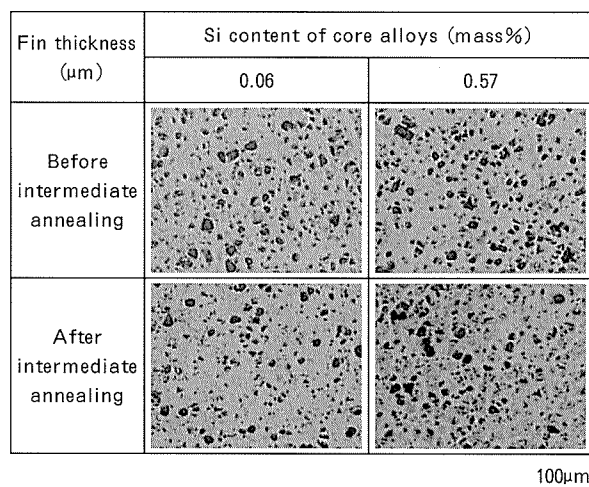
$Sc_2$  : ろう付後の芯材中のSi濃度 (mass%)

$Cf$  : ろう材のクラッド率 (%)

計算結果によれば、ろう付後のSi濃度は、芯材のSi濃度が0.06mass%の試料は3.92mass%、0.57mass%の試料は5.01mass%になり、いずれも添加したろう材よりもSi濃度が著しく低下し、芯材に添加したSi濃度が低いほうがろう付後のろう材Si濃度が低くなると推測される。

#### 4. 1. 2 各加熱過程におけるろう材のSi濃度変化

前述の芯材のSi濃度の変化に対応して、各加熱過程におけるろう材のSi濃度の変化についても調査した。**Fig. 9**に中間焼鈍前後のろう材表面のSi粒子の分布状態を示す。また、**Fig. 10**には各加熱過程でのろう材表面のSi粒子の占有率を測定した結果を示す。ここで、**Fig. 9**は、圧延痕をバフで研磨したろう材表面の光学顕微鏡写真であり、**Fig. 10**はその写真からSi粒子の占める割合を画像解析処理によって数値化したものである。**Fig. 9**および**Fig. 10**から、芯材のSi濃度が0.06mass%の試料は0.57mass%のものに比べてろう材表面のSi粒子占有率が中間焼鈍後に著しく低下しており、中間焼鈍後から570℃までのろう付加熱においてはその減少率は

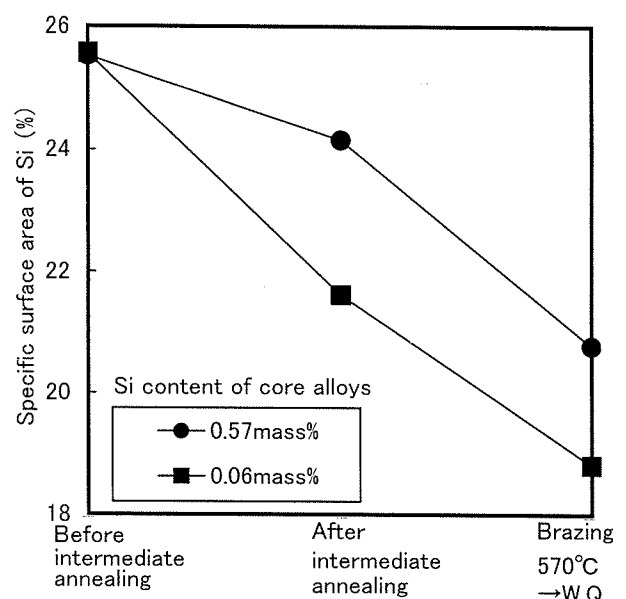


**Fig. 9** Microstructure of the surface of filler metals before and after intermediate annealing. (thickness of clad fin : 117 $\mu\text{m}$ , Si content of filler metal : 7.66mass%)

ほぼ同等であった。このように、芯材のSi濃度が0.06mass%の試料は0.57mass%のものに比べてろう材のSi濃度が中間焼鈍後に大きく低下したことがわかる。すなわち、極めて薄いクラッドフィン材では、各加熱過程におけるろう材のSi濃度は芯材のSi添加量によって変化することが示唆される。

#### 4. 2 ろうの流動性に及ぼす板厚の影響

**Fig. 6**にみられたように、フィン材の板厚の減少によって、流動するろうの割合すなわち流動係数は低下した。また、一般の厚いクラッド板(1.2mm)の流動係数<sup>6)</sup>に比べて、本研究にて調査したフィン材の流動係数は全般に低かった。薄いフィン材の流動係数が低い理由は、4.1項で考察したように、全体のろう材Si量に対するろう材から芯材に拡散したSi量の比率が薄板ほど増加するためとみられる。しかしながら、ろう付処理後にはSiが芯材中にほぼ一定の濃度で分布するような薄いフィン材は、初期のろう材および芯材のSi濃度およびクラッド率が同一であれば、4.1項で用いたろう付後のろう材Si濃度の式から、板厚によらずろう付処理後のろう材Si濃度は同じになる。それにもかかわらず流動係数が低下する原因としては、一部のフィン材はSiが芯材中にほぼ一定の濃度で分布せずに平衡状態に達していないこと、あるいは板厚によらず一定量の流動できない溶融ろうが板表面に残存する等のが推定される。そこで、Siが芯材中に一定濃度に分布するのに最も多くのろう材Si量を要する試料(板厚80 $\mu\text{m}$ , 芯材Si濃度:0.07mass%, ろう材Si濃度:7.66mass%)を用いて、ろう付後の板厚方向における芯材Si濃度をEPMA線分析で確認し、また、板厚60, 80 $\mu\text{m}$ の試料におけるろう付処理後の板表面のろうの残存状態をEPMA面分析で確認した。



**Fig. 10** The specific surface area of Si in filler measured by Image-Processor-Analyzer shown in **Fig. 9**.

Fig. 11 に EPMA 線分析の結果を示す。板厚 80 $\mu\text{m}$  のフィン材でもろう付処理後の芯材 Si 濃度は均一に分布していた。この結果から、全ての試料において Si が均一に分布していると考えられ、同じ芯材 Si 濃度の場合、板厚によらずろう付け後のろう材 Si 濃度はほぼ同じと推定される。

Fig. 12 にろう付処理後における板表面の EPMA 面分析の結果を示す。板表面には板厚にかかわらず一度溶融して凝固したと考えられる高濃度の Si が点在していた。このような板表面の Si の存在状態に加え、4.1 項で計算したろう付後のろう材推定 Si 濃度が 3.92%であり、Al-Si 系状態図から求めたその組成での液相率が約 33mass

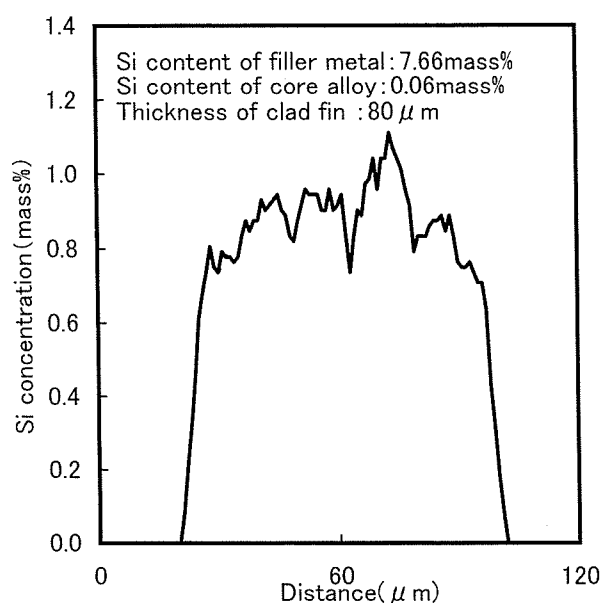


Fig. 11 Result of EPMA line scan of Si across the thickness of clad fin after brazing.

%と低いことを考慮すると、フィン材表面には溶融して流動できない一定量のろうが残存すると考えられる。

したがって、ろう付前のろう材量と板表面に残存するろう量との差が流動可能なろう材量と考えられ、芯材表面にはある一定量のろうが残存するので、板厚が薄いほど流動可能なろう材量が減少する。このため、板厚の減少に伴って流動係数が低下したと考えられる。

#### 4.3 クラッド構成とフィレット面積との関係

ろう材および芯材の Si 濃度によってフィレット面積が異なるということは、クラッド材全体を平均した Si 濃度とフィレット面積とに相関性があるものと考えられる。Fig. 13 に各板厚のフィン材におけるクラッド材全体の平均 Si 濃度とフィレット面積との関係を示す。

ここでクラッド材全体の平均 Si 濃度は、計算式は以下のように示されるが、本報では測定誤差を小さくするために、フィン材を一塊にして熱間鍛造を行った試料について Si 濃度を湿式分析した値を用いた。

クラッド材全体の平均 Si 濃度  $S_a$  (mass%) [計算式]

$$S_a = \{2 \times S_f \times C_f + S_c \times (100 - 2 \times C_f)\} / 100$$

$S_f$ : ろう材中の Si 濃度 (mass%)

$S_c$ : 芯材中の Si 濃度 (mass%)

$C_f$ : ろう材のクラッド率 (%)

Fig. 13 より、フィレット面積は板厚が薄いほど減少するが、いずれの板厚においてもクラッド材全体の平均 Si 濃度に比例して増加しており、その増加勾配はほぼ同じであることがわかる。平均 Si 濃度が低い場合はフィレットが形成されず、高い場合は溶融ろうの芯への侵食・座屈が生じる。また、健全なフィレットが形成される平

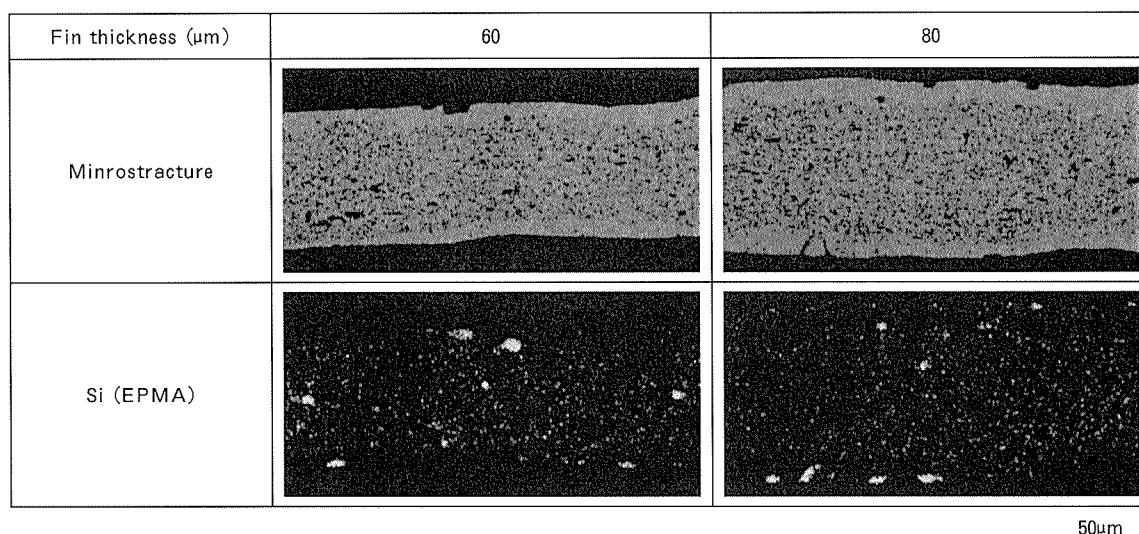


Fig. 12 Microstructure and EPMA area scan of Si on the cross section of clad fin after brazing.  
(Si content of filler metal : 7.66mass%)

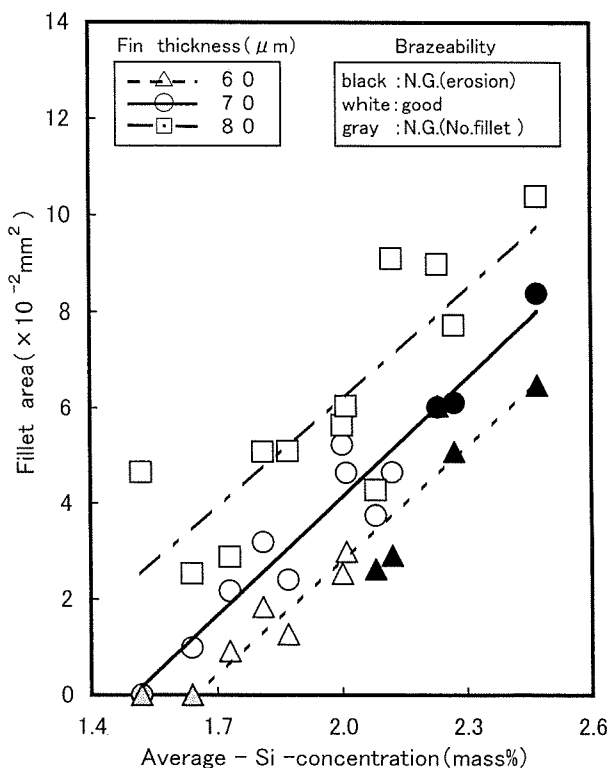


Fig. 13 Relationship between fillet area and "Average-Si-Concentration" of clad fin.

Cf. Average-Si-Concentration is refer to the value of chemical analysis in a mass of hot forged clad fin.

均Si濃度の範囲は、板厚が薄いほど狭くなることがわかる。板厚が80 $\mu\text{m}$ のフィン材では、今回の試験の全ての試料、すなわち平均Si濃度が1.52~2.47mass%の範囲で健全なフィレットが得られる。それに対して、板厚が70 $\mu\text{m}$ のフィン材では平均Si濃度が1.64~2.12mass%で、また、板厚が60 $\mu\text{m}$ のフィン材では平均Si濃度が1.73~2.00mass%で健全なフィレットが得られる。したがって、ろう材と芯材のSi濃度およびろう材のクラッド率を考慮した平均Si濃度を算出することによって、薄肉クラッドフィン材のろう付性をある程度推定することが可能になり、その設計は板厚が薄いほど厳密に行なう必要があることがわかる。なお、フィレット形成状態には、前述

したように製造条件、ろう付加熱条件等の様々な因子が影響するため、クラッドフィン材を更に薄肉化した場合には、ろうの枯渇あるいは溶融・座屈等の不具合が生じ易くなり、薄肉化の限界が存在するものと推測される。

## 5. 結 言

ろう材および芯材のSi濃度を種々に変えた薄肉クラッドフィン材（板厚60~80 $\mu\text{m}$ ）を用い、ろう付加熱後のフィレット形成状態を調査した結果、以下のことが明らかになった。

(1) フィレット面積は、ろう材のみならず芯材のSi濃度が高くなるほど増加した。これは、中間焼鈍前後およびろう付加熱過程におけるアルミニウム中のSiの固溶限によってろう材のSiが芯材に拡散する量が異なることに起因しており、芯材のSi濃度が高いほどろう材Si濃度の低下が少なくなるためと考えられる。

(2) 板厚が薄いほど、ろう材の流動する割合すなわち流動係数が減少し、ろう付性が低下した。これは、板表面に流動できない一定量のろうが残存するためと考えられた。

(3) フィレット面積は、クラッド材全体を平均したSi濃度に比例して増加した。平均Si濃度が低い場合はフィレットが形成されず、高い場合は溶融ろうの芯材への侵食により座屈が生じ、健全なフィレットが形成される平均Si濃度の範囲は板厚が薄いほど狭くなった。

## 参 考 文 献

- 1) 鈴木寿, 伊藤吾朗, 小山克己: 軽金属, **34** (1984), 708.
- 2) 当摩建, 麻野雅三, 竹内庸: 同上, **37** (1987), 119.
- 3) 伊藤吾郎, 菅野幹宏: 同上, **37** (1987), 754.
- 4) アルミニウムブレージングハンドブック編集委員会: アルミニウムブレージングハンドブック, 軽金属溶接構造協会, (1992), 85.
- 5) 藤谷涉, 坂本和夫, 堀茂徳, 田井英男, 芝柳敏哉: 軽金属, **42** (1992), 327.
- 6) 前田興一, 伊藤泰永: 本誌, **35** (1994), 57.
- 7) 土公武宜, 浅見重則, 石川和徳: 軽金属, **40** (1990) 138.
- 8) 時實直樹, 山内重徳: 本誌, **34** (1993), 72.
- 9) 新倉昭男, 土公武宜, 石川和徳: 軽金属学会第92回春期大会講演概要, (1997), 279.
- 10) J.R.Terril: Weld.J., **45** (1996), 202S.

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 50-55

TECHNICAL PAPER

# The Effect of Lankford's r-value Anisotropy on Deep Drawing and Stretch Formabilities of Aluminum Alloy Sheets\*

Kenji Yamada\*\*, Hideo Mizukoshi\*\* and Koushi Okada\*\*

# The Effect of Lankford's r-value Anisotropy on Deep Drawing and Stretch Formabilities of Aluminum Alloy Sheets\*

Kenji Yamada\*\*, Hideo Mizukoshi\*\* and Koushi Okada\*\*

In this study, the effects of material properties for aluminum alloy sheets (6XXX-T4) on the deep drawing and the punch stretching formability were investigated by using FE simulation (LS-DYNA V950). Especially, the effect of Lankford's r-value anisotropy on the deep drawing formability has been noticed. The simulation results almost agreed with experimental ones. Limiting Dome Height increased with n-value. Limiting Drawing Depth decreased with yield stress and increased with n-value and averaged r-value. Averaged draw-in at the edge of blank was related with Limiting Drawing Depth. Deep drawing formability of the materials with anisotropy of r-value was lower than that of the isotropic materials, because of the different draw-in for each direction of the anisotropic materials. But the effect of anisotropy of r-value on deep drawing formability was smaller than that of the n-value, averaged r-value. Furthermore the effect of material anisotropy on forming limit was small when the forming shape was not axial symmetric.

## 1. Introduction

There were many test methods to evaluate the sheet metal formabilities. The deep drawing and punch stretching formability tests (cup test) have been operated as the basic formability test for automotive sheet metal. There are many studies to investigate the relationship between material properties and these formabilities<sup>1)</sup>.

Generally, Lankford's r-value was used for an anisotropy parameter of the sheet metal. As the fracture of sheet metal occurred by reducing of thickness, local necking, Lankford's r-value was very important. The sheet metals have a texture formed by rolling deformation, so they have an initial anisotropy. But there are a few papers that are related with the effect of r-value anisotropy on these formabilities<sup>2)</sup>.

On the other hand, there were many studies to investigate sheet metal formabilities by

using FE simulation, because of the rapid development of FE simulation technique<sup>3)</sup>.

It is well known that many factors affected on deep drawing formabilities. Therefore, it is very difficult to investigate the effect of these factors on its formabilities, separately. The effect on the deep drawing and punch stretching formabilities can be separately evaluated by using FE simulation.

In this paper, the deep drawing and punch stretching formabilities of 6XXX aluminum alloy sheets, which have various yield stress, tensile stress, n-value and r-value, were investigated by using commercial FEM software "LS-DYNA V950".

## 2. Simulation

### 2.1 Base material

Test material is an Al-Mg-Si alloy sheet (6XXX-T4, t1.0mm). Table 1 shows the mechanical properties of the base material.

### 2.2 Formability test model

As the basic formability test for sheet metal, cup deep drawing and punch stretching test have been used. Fig. 1 (a) shows the equipment of cup deep drawing test. Cup deep

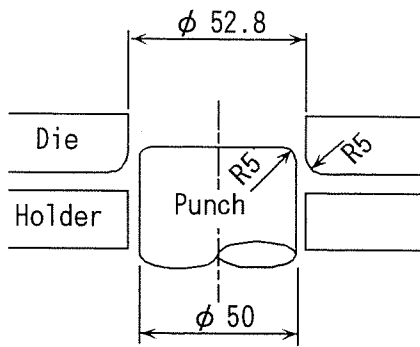
\* The main part of this paper was presented at the 7th International Conference on Technology of Plasticity (7th ICTP), Yokohama, Japan, October 27-November 1, (2002).

\*\* No.1 Department, Research & Development Center

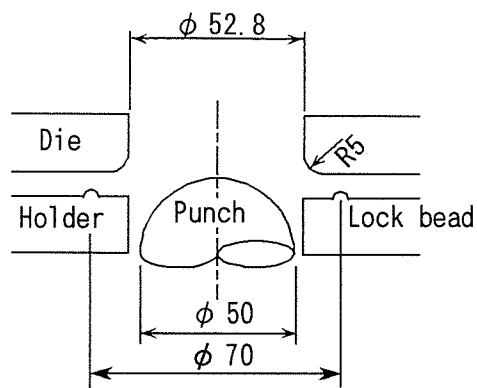


**Table 1** Mechanical properties of the base aluminum alloy sheet.

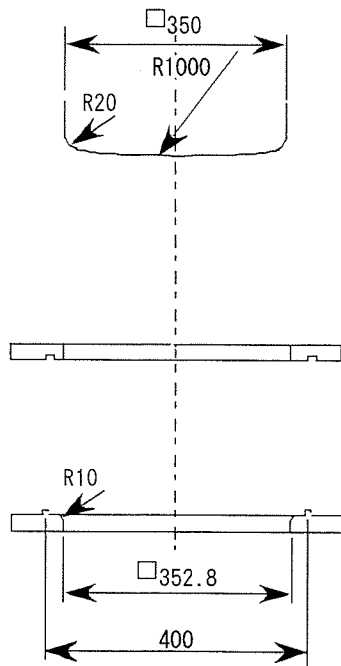
Material	Tensile direction	Yield stress (MPa)	Tensile stress (MPa)	Elongation	n-value	r-value
6XXX-T4	0°	126	235	0.30	0.27	0.78
	45°	123	231	0.33	0.27	0.40
	90°	120	228	0.30	0.27	0.68
	Average	123	231	0.31	0.27	0.57



Blank diameter :  $\phi 112.5$   
Blank holding force : 33kN  
(a) Cup deep drawing test



Blank diameter :  $\phi 120$   
Blank holding force : 40kN  
(b) Punch stretching test



Blank size :  $\square 480$   
Blank holding force : 200kN  
(c) square panel forming test

**Fig. 1** Cup test model.

drawing test have been carried out by using flat head punch (punch diameter,  $\phi$  50mm),  $\phi$  112.5mm diameter blank and 34kN blank holding force.

Fig. 1 (b) shows the equipment of punch stretching test. Punch stretching test have been carried out by using hemisphere punch (punch diameter,  $\phi$  50mm),  $\phi$  120.0mm diameter blank and 40kN blank holding force.

The square panel forming test has been used for a part of test materials. Fig. 1 (c) shows the equipment of square panel forming test. The square panel forming test have been carried out by using 350mm cylindrical punch with R1000mm, 480mm square blank, 200kN blank folding force.

### 2.3 Analysis model

Simulations were performed on the 1/4 symmetric area. The blank and the tools were modeled by using 4node-shell element (Belytschko-Tsay shell), and the tools were assumed as rigid bodies. Friction coefficient for coulomb model between the blank and the tools was 0.14. The forming speed of simulation was 1000mm/s. The stress-strain curve was converted to the true stress-logarithmic

plastic strain, and approximated as the multi line. As material constants, Young's modulus was 68.6GPa, and Poisson's ratio was 0.33. An anisotropic yield function model "Barlat model (1989)" that expressed anisotropy of r-value was used. Barlat model (1989) was suitable for aluminum alloy sheets<sup>4)</sup>. And the exponent index of Barlat model M was 8.0. The number 8.0 was the typical number for Face-Centered Cubic materials (e.g. Aluminum, Copper).

### 2.4 Fracture criterion

The state of principle strain of each element during plastic deformation was compared with the forming limit diagram (FLD) measured by an experiment. The forming limit was defined as the punch stroke where its state of principle strain crossed FLD line.

## 3. Estimated virtual material

The virtual materials were created by changing the yield stress, tensile stress and r-value of each direction based on the base material (Table 1). Table 2 shows the material properties of estimated virtual materials. The

Table 2 Mechanical properties of estimated virtual materials and calculation results.

No.	Y.S. (MPa)	T.S. (MPa)	n-value	r-value						Forming Limit (mm)	
				0°	45°	90°	$\bar{r}$	$\Delta r$	$r_{diff}$	LDD	LDH
0	123	231	0.27	0.78	0.40	0.68	0.57	0.33	0.38	9.7	16.5
1	123	231	0.25	0.80	0.60	0.40	0.60	0.00	0.40	9.8	16.1
2	110	210	0.24	0.80	0.60	0.40	0.60	0.00	0.40	9.6	15.8
3	110	231	0.27	0.80	0.60	0.40	0.60	0.00	0.40	9.9	16.6
4	123	210	0.21	0.80	0.60	0.40	0.60	0.00	0.40	9.3	15.4
5	123	231	0.25	0.40	0.40	0.40	0.40	0.00	0.00	10.4	16.5
6	123	231	0.25	0.60	0.60	0.60	0.60	0.00	0.00	11.0	16.5
7	123	231	0.25	0.80	0.80	0.80	0.80	0.00	0.00	11.4	16.6
8	123	231	0.25	0.90	0.60	0.30	0.60	0.00	0.60	9.1	15.8
9	123	231	0.25	0.80	0.50	0.60	0.60	0.20	0.30	10.1	16.1
10	123	231	0.25	0.60	0.70	0.40	0.60	-0.20	0.30	10.2	15.8
11	123	231	0.25	0.90	0.45	0.60	0.60	0.30	0.45	10.0	16.1
12	123	231	0.25	0.60	0.75	0.30	0.60	-0.30	0.45	10.0	15.3

※ : No. 0 is the base material. Y.S. (Yield stress), T.S. (Tensile stress),

LDD (Limiting Drawing Depth), LDH (Limiting Dome Height)

$$\bar{r} = \frac{r_0 + 2r_{45} + r_{90}}{4}, \Delta r = \frac{r_0 + r_{90}}{2} - 2r_{45}, r_{diff} = r_{max} - r_{min}$$

conventional  $\Delta r$  and the difference ( $r_{\text{diff}}$ ) between maximum r-value and minimum one were used as the parameter of r-value anisotropy.

#### 4. Calculation results and discussion

Table 2 also shows the Limiting Drawing Depth (LDD) and the Limiting Dome Height (LDH) calculated FE simulations. Fig. 2 shows the comparison of forming limit of the base material between calculation and experimental results. As the forming limit calculated by FE simulation was in good agreement with the experimental results of the base material, the analysis model has enough accuracy.

Fig. 3 and Fig. 4 show the relationship between the forming limit and n-value and averaged r-value. Limiting Dome Height increases with n-value. Limiting Drawing Depth increases with n-value and averaged r-value. These trends were in good agreement with the experimental and analytical results. It was noticeable that Limiting Drawing Depth increases with the difference between the tensile stress and yield stress. The  $\Delta r$  used as the parameter of anisotropy doesn't have related with the Limiting Drawing Depth, but this Depth decreases with the parameter  $r_{\text{diff}}$  ( $r_{\text{max}} - r_{\text{min}}$ ).

The draw-in at the edge of the blank was noticeable. Fig. 5 shows the relationship between the averaged draw-in and the Limiting Drawing Depth. The Limiting Drawing Depth increases with the averaged draw-in. Fig. 6 shows the relationship between r-value of the

perpendicular direction and draw-in. The draw-in decreases with the r-value of the perpendicular direction. Fig. 7 shows the relationship between r-value, draw-in and expected break point. When anisotropy of r-value existed, there was the difference in the draw-in in each direction. The fracture occurred at the die shoulder where the draw-in was smaller. On deep drawing of axial symmetric,  $r_{\text{diff}}$  ( $r_{\text{max}} - r_{\text{min}}$ ) would be suitable for the parameter of r-value anisotropy than  $\Delta r$ .

Fig. 8 shows the calculation results of square panel forming by using material No.6 (isotropic material) and No.12 (anisotropic material). The disposition of the blank for curvature of punch was changed. But forming limit of anisotropic material was similar to that of isotropic material. When the forming shape was not axial symmetric, the effect of material anisotropy on forming limit was small.

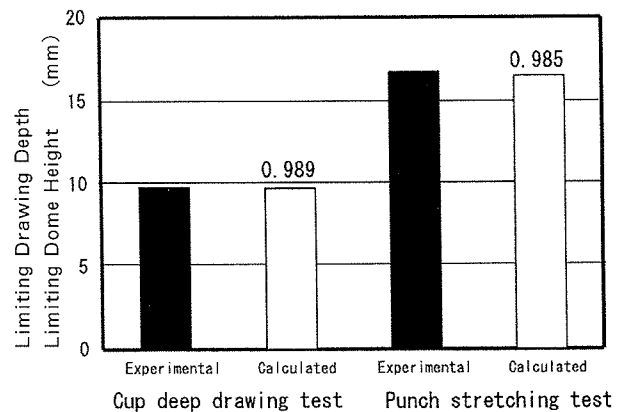


Fig. 2 Comparison of the forming limit of the base material between calculated and experimental results.

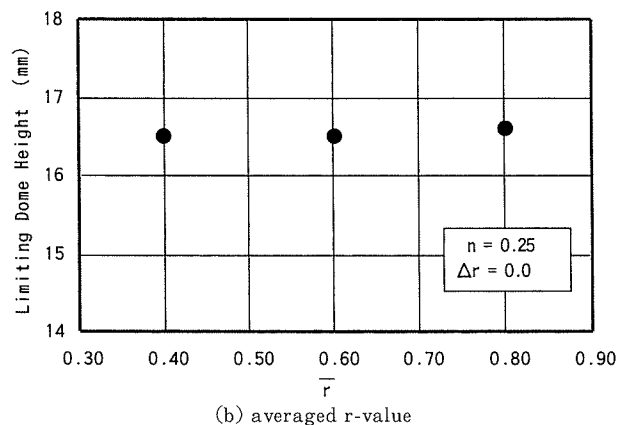
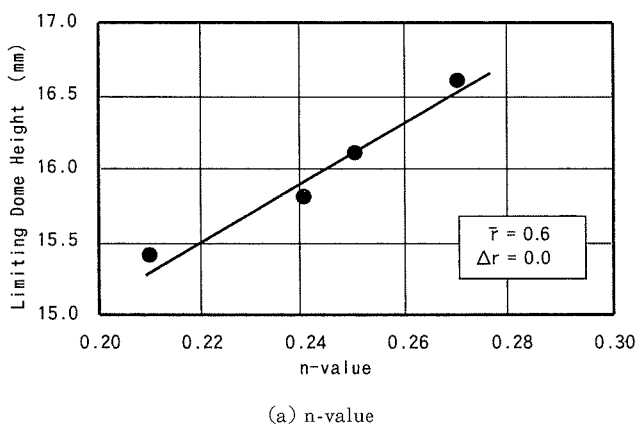


Fig. 3 The relationship between n-value, averaged r-value and the Limiting Dome Height.

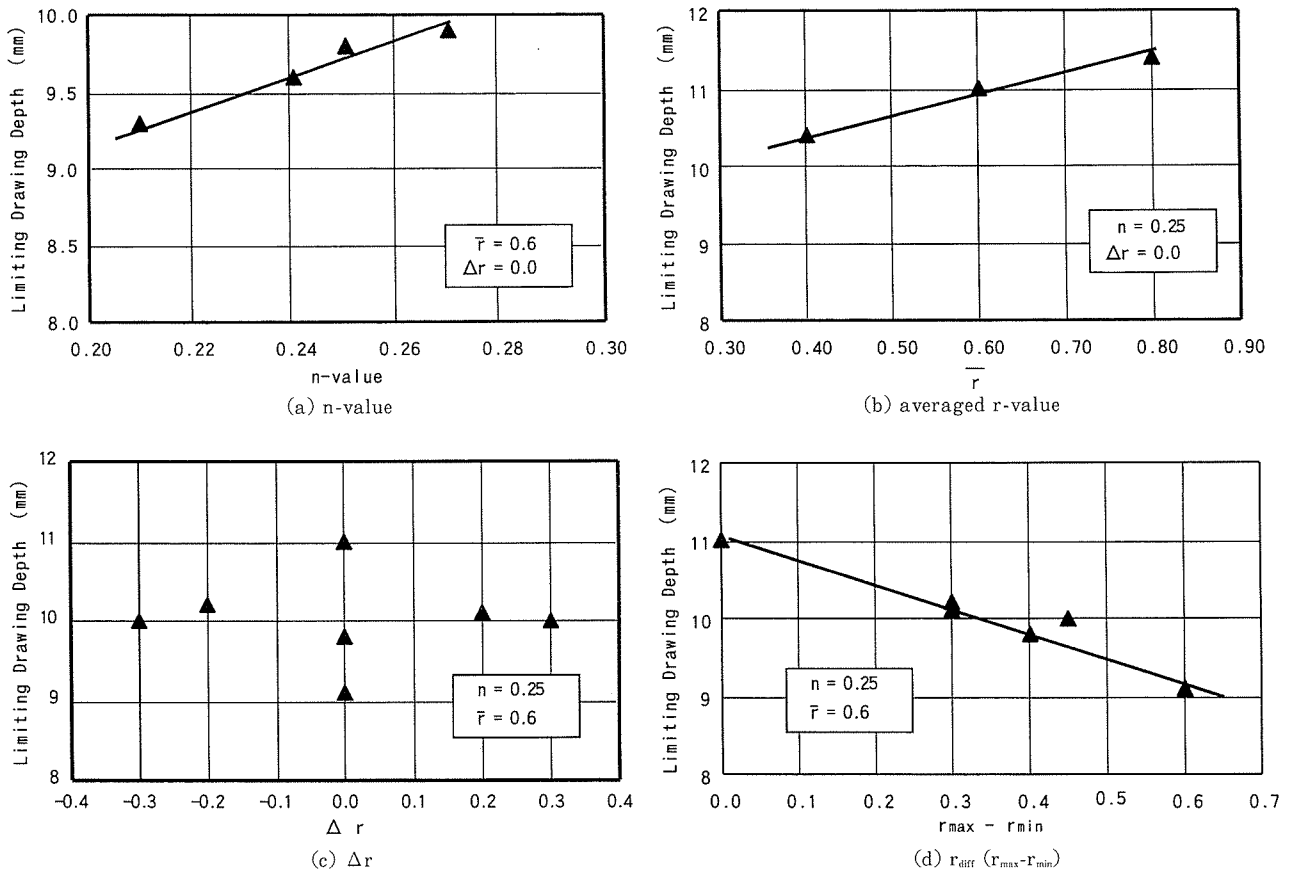


Fig. 4 The relationship between n-value, averaged r-value,  $\Delta r$ ,  $r_{diff}$  and the Limiting Drawing Depth.

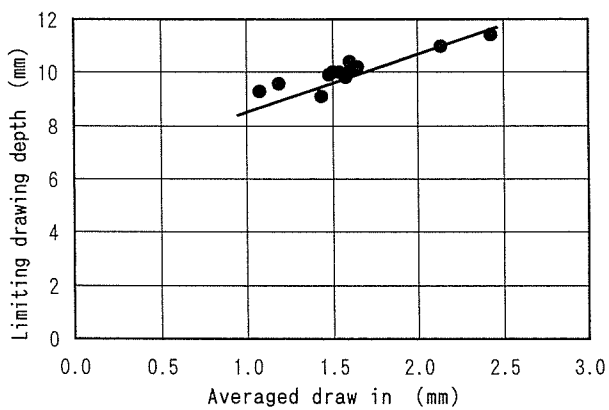


Fig. 5 The relationship between the Limiting Drawing Depth and averaged draw-in.

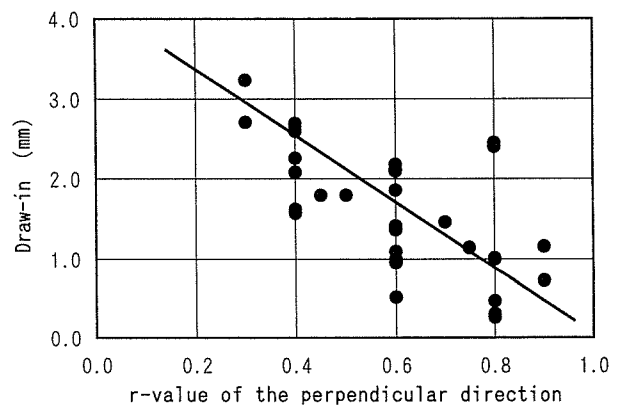


Fig. 6 The relationship between the draw-in and r-value of the perpendicular direction.

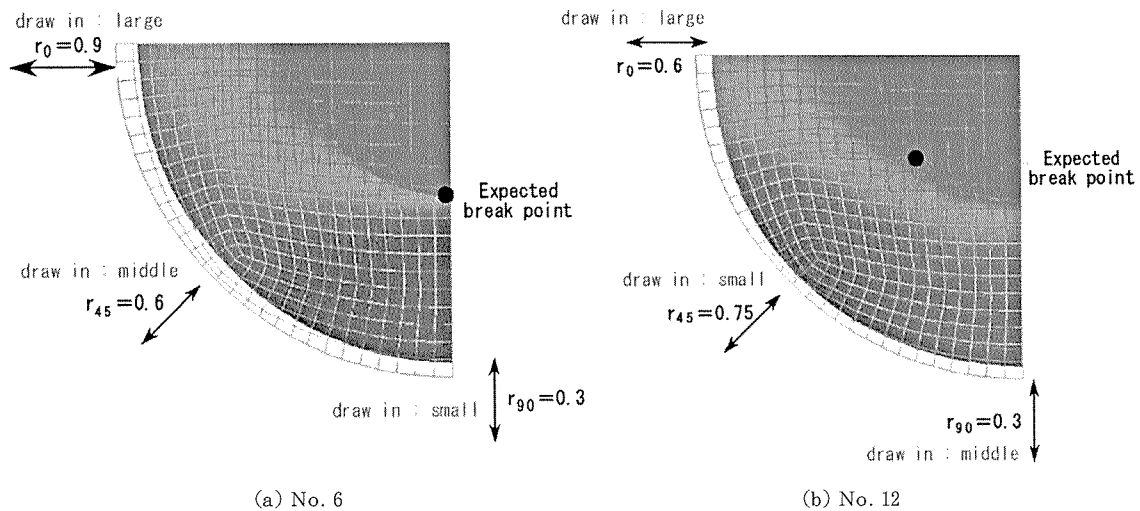


Fig. 7 The relationship between r-value, draw-in and expected break point.

## 5. Conclusions

The effect of an anisotropy of Lankford's r-value for aluminum alloy sheets on formability was investigated by using FE simulation. The main results are as follows,

- (1) The simulation results almost agreed with experimental results. Limiting Dome Height increase with n-value. Limiting Drawing Depth decreases with yield stress and increase with n and averaged r-value.
- (2) Averaged draw-in at the edge of blank was related with Limiting Drawing Depth.
- (3) Deep drawing formability of the materials with anisotropy of r-value was lower than that of the isotropic materials, because draw-in of the anisotropic materials for each direction was different. But the effect of anisotropy of r-value on deep drawing formability was smaller than that of n and averaged r-value.
- (4) When the forming shape was not axial symmetric, the effect of material anisotropy on forming limit was small.

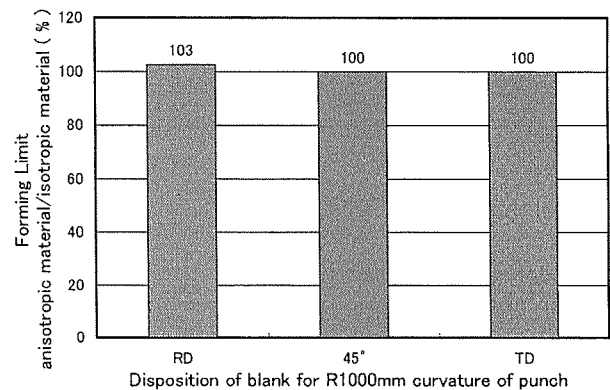


Fig. 8 Comparison of square panel forming limits between anisotropic and isotropic material.

## References

- 1) T.Kuwabara: Journal of the JSTP, 38 (1997), 448 (in Japanese).
- 2) Y.Yamada : ibid., 5 (1964), 183 (in Japanese).
- 3) Proc.Numisheet'93, ed. A.Makinouchi, E.Nakamachi, E.Onate, R.H.Wagoner, (1996), Isehara, Japan.
- 4) F.Barlat and J.Lian : Int. J.of Plasticity, 5 (1989), 51.

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 56-61

論文

半導体レーザーのアルミニウム合金溶接への適用性\*

前 田 興 一\*\* 阿 部 信 行\*\*\*  
熊 谷 正 樹\*\*\*\* 難 波 圭 三\*\*\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 56-61

Applicability of Diode Laser  
to Aluminum Alloy Welding

Koichi Maeda, Nobuyuki Abe, Masaki Kumagai and Keizo Namba

住友軽金属工業株式会社研究開発センター

## 半導体レーザのアルミニウム合金溶接への適用性\*

前 田 興 一\*\* 阿 部 信 行\*\*\*  
熊 谷 正 樹\*\*\*\* 難 波 圭 三\*\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 56-61

### Applicability of Diode Laser to Aluminum Alloy Welding

Koichi Maeda, Nobuyuki Abe, Masaki Kumagai and Keizo Namba

Diode lasers are widely used for various devices such as optical communication and so on now. But, those output power is low, so it was not able to process for metal. Recently, a high power diode laser equipment with 6kW power has been developed. A high power diode laser is expected for welding. However, there are little literatures about aluminum alloy welding using with diode laser.

In this report, we studied basically about applicability to aluminum alloy welding.

We used the direct diode laser with 4kW. The profile of laser beam was a narrow and long oval shape. The power density was approximately 20kW/cm<sup>2</sup>. Its level was between conventional laser (CO<sub>2</sub> or Nd : YAG laser) beam and arc heat source.

A 5000 series alloy (SLM's alloy GC45 similar to AA5022) and a 6000 series alloy (SLM's alloy SG112 similar to AA6016) for automotive body sheet were used. Melt-run welds on the above alloys sheets were performed with high power diode laser. During welding, spatters or plumes were not observed. The bead surfaces were very smooth. Full penetration weld was possible up to 7m/min for GC45, and 5m/min for SG112 and good lap-fillet weld was obtained, too.

Aluminum alloys can be weld by heat source of high power direct diode laser.

#### 1. は じ め に

半導体レーザは炭酸ガスレーザやNd : YAGレーザに比べて、高効率、小型、軽量、長寿命等の特徴を持つためにレーザプリンタやオーディオ用または光通信やバーコードリーダ等の光情報処理等の光源として広く使用されている。近年では高出力化、性能の向上、各種波長の開発などもあって、その需要も増大してきた。現在では、半導体素子の高輝度化、ダイオードバーやダイオードスタック技術の向上によって、出力6kWを越える高出力半導体レーザ発振機が開発されている<sup>1)</sup>。従来は低出力

のために、用途が情報処理などであったが、高出力化に伴ってマーキング、はんだ付け、表面硬化などの金属加工への応用の可能性が広がってきている<sup>2)</sup>。最近では溶接に比べて、低温、低出力でも加工が可能なはんだ付け用については半導体レーザ加工機が市販される例も見られるようになってきた<sup>3)</sup>。

アルミニウム合金のレーザ加工については、従来は炭酸ガスレーザによる切断が主であったが、レーザビームのファイバ伝送が可能なNd : YAGレーザの高出力化に伴い、溶接に関する量産適用事例が増加してきている。例えば、携帯電話等に使用されているリチウムイオン電池ケース蓋の接合<sup>4)</sup>や、最近では量産自動車のボンネットでのヘム部<sup>5)</sup>やスペースフレーム車体の接合に用いられている例<sup>6)</sup>も報告されている。しかしながら、半導体レーザを用いた量産品への加工適用事例は表面硬化やステンレスの溶接等で一部見られるが<sup>7)</sup>、アルミニウム合金の溶接に関して、実用例はほとんど見られない。また、

\* 溶接学会 第3回高エネルギー加工シンポジウム(平成13年11月)にて一部発表、レーザ協会誌, 27-3,4 (2002), 25 に一部掲載

\*\* 研究開発センター 第一部

\*\*\* 大阪大学, 工学博士

\*\*\*\* 研究開発センター 第一部, 工学博士



系統的に検討を行った例についてもほとんど見られない<sup>2), 3), 8)</sup>。

本報では、高出力半導体レーザー熱源を用いて、アルミニウム合金、主に自動車ボディシート用薄板溶接への適用性について検討を行った。

## 2. レーザ加工機

半導体レーザー加工機の特徴を従来のレーザー加工機と比較して Table 1 に示す<sup>2)</sup>。

半導体レーザー加工機の特徴としては、電気から光への変換が従来レーザーに比べて高効率である。そのため、装置の小型化が可能となり、設置の自由度が大幅に向上する。また、電力使用量の低減が可能であり、エネルギーコストの点で有利である。ただし、現状ではそのレーザー発振の特性からレーザービームが発散するために、十分にビームを絞ることができず、細長いビームとなっている。従って、高出力化されたとはいえ、ビーム品質が劣るために、パワー密度としては従来レーザーに比べて高くはない。ただし、Fig. 1 に示すように炭酸ガスレーザーや Nd : YAG レーザの波長に比べて、金属表面での吸収率が高い<sup>9)</sup>。そのために、劣るとされるビーム品質を多少は補える可能性が考えられる。

本報では、最大出力 4kW の高出力半導体レーザー加工機を用いて、アルミニウム合金の溶接実験を行った。実

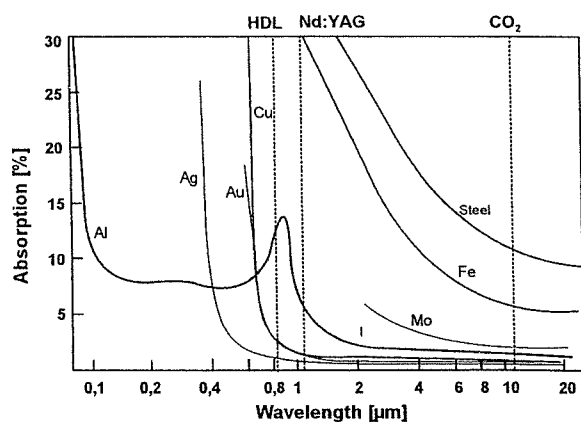


Fig. 1 Comparison of the absorption rate of different metals<sup>8)</sup>.

験に使用した半導体レーザー加工機的主要仕様を Table 2 に示す。レーザービームの周波数は 805nm の単波長である。ビーム伝送は光ファイバを使用せずに、直接照射とした。また、今回使用した光学系では加工ヘッドから焦点位置までの加工距離（ワークディスタンス）は 40mm 程度であり、従来レーザーの 150 ～ 200mm よりも短い。

レーザービームについては、そのプロファイルを測定した。その結果を Fig. 2 に示す。実測したビームの寸法は約 10×2 (mm) と公称よりもさらに細長い状態であった。そのエネルギー密度としては 20kW/cm<sup>2</sup> 程度であった。これは炭酸ガスレーザーや Nd : YAG レーザ（例えば、出力 4kW、スポット径 1mm の場合：510kW/cm<sup>2</sup>）の数％（数十分の一）であるが、従来のアーク熱源と比べると数十倍のエネルギー密度である。熱源としては両者の中間的な状態と言えよう。

## 3. 供 試 材

供試材としては汎用 5000 系アルミニウム合金である 5083 (Al-4.5Mg-Mn) 及び自動車ボディシート用アルミニウム合金として、5000 系では当社開発合金 GC45 を、6000 系についても開発合金 SG112 を用いた。これらは各々 AA5022 及び AA6016 相当合金である。板厚はアルミボディシート材として一般的に使用されている t1mm とした。

- (1) 5083-O, t8mm
- (2) GC45-O, t1mm
- (3) SG112-T4, t1mm

Table 2 Specification of the laser.

Item	Specification
Manufacturer	Nuvonyx INC.
Machine No.	ISL-4000
Wavelength	805 (nm)
Beam size (nominal)	6×0.25 (mm)
Head	6.8 (kg)

Table 1 Comparison of various laser machines<sup>2)</sup>.

Item	CO <sub>2</sub> laser	Lump-pumped Nd : YAG laser	Diode-pumped Nd : YAG laser	Diode laser
Wavelength	10600nm	1060nm	1060,530,353nm	940,808nm
Maximum power	60kW	10kW	6kW	4kW
Machine size	Big	Middle	Middle (Small)	Small
Efficiency	~10%	~3%	~10%	~40%

#### 4. 実験方法

溶接の各実験は直前に脱脂を行った供試母材を裏当て及び治具によって拘束し、それらが固定されたテーブルを移動させて溶接を行った。溶接方向はレーザビーム径の長径方向とした。本実験では、レーザはファイバ伝送ではなく、直接母材へ照射して溶接施工を行った。なお、溶接時には溶融池を Ar ガスによってシールドした。実験装置の模式図は Fig. 3 に示す。今回の溶接継手形状はビードオンメルトラン及び重ね隅肉とした。これら作製した試験片の溶接部について外観及び断面の観察を行った。

また、溶接現象解明の一助とするために、溶接時の状況を高速度ビデオカメラによって撮影を行い、溶融池の状態等についての観察も行った。

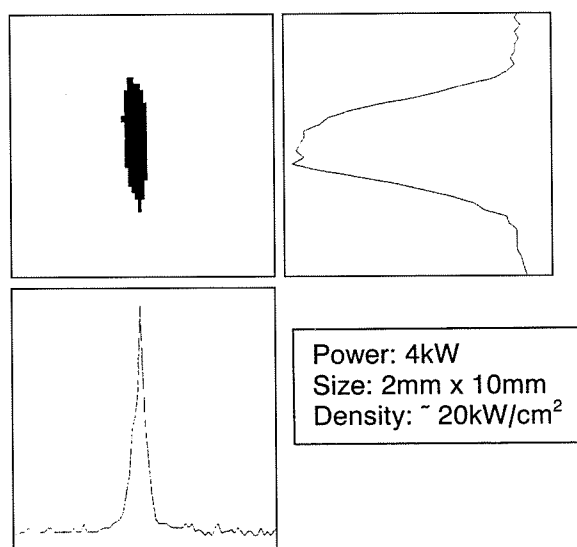


Fig. 2 Diode laser beam profile.

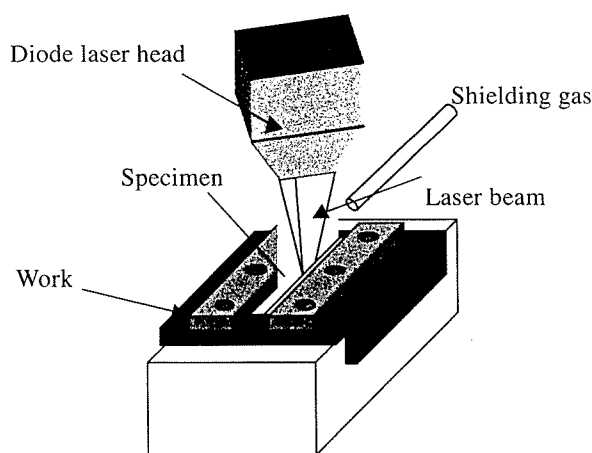


Fig. 3 Experimental apparatus.

#### 5. 実験結果及び考察

##### 5.1 焦点距離が溶込みに及ぼす影響

まず、半導体レーザの溶融特性を調査するために 5083 合金を用いて、ワークディスタンスの変化が溶込み形状へ及ぼす影響について調査を行った。ここでの溶接速度は 1.2m/min 一定とした。各条件における溶接ビードの深さ、幅及び溶融断面積の測定結果を Fig. 4 に示す。

溶込み形状はいずれの条件においても熱伝導型であった。これは従来の炭酸ガスレーザや Nd:YAG レーザによる場合のキーホール型とは異なっていた。この溶込み形態はエネルギー密度の差に起因する。本実験条件範囲ではその溶込み深さはいずれも 2mm 程度であった。また、今回の条件範囲ではワークディスタンスの変化は溶込み深さへの影響がほとんど認められなかった。すなわ

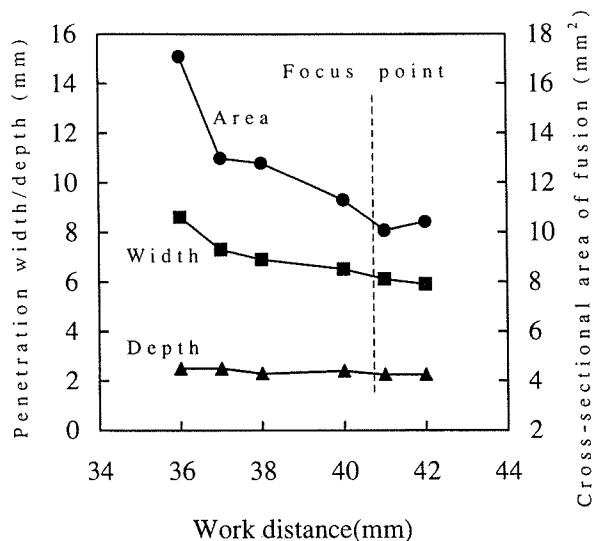
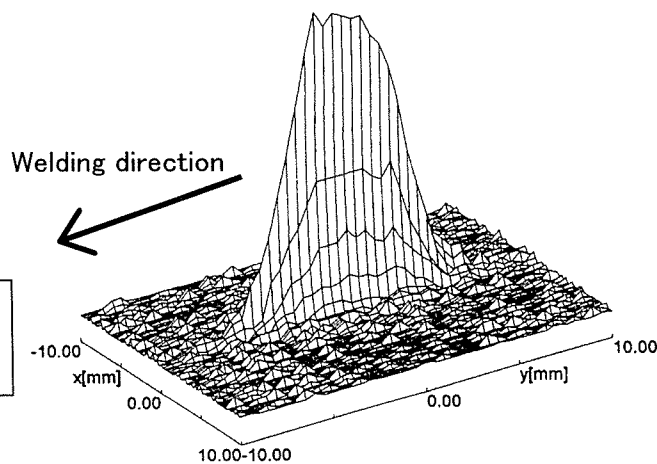


Fig. 4 Effects of work distance on penetration.

ち、焦点位置の上下変化に対する裕度が広がる可能性が示唆された。

## 5.2 ビードオンメルトラン溶接実験

母材として GC45-O 及び SG112-T4 のビードオンメルトラン溶接を行った。溶接時にはスパッタやプルームの発生はほとんど観察されなかった。代表的な溶接ビード外観を Fig. 5 に示す。ビード表面は表裏とも従来の炭酸ガスレーザーや Nd : YAG レーザに比べると非常に平滑で、滑らかなリップルであった。

また、溶接ビード断面を Fig. 6 に示す。従来レーザーで発生しやすいアンダーカット<sup>10)</sup>等は認められなかった。

共晶融解や割れなどの欠陥も認められず、健全な状態であった。

溶接速度が溶込みビード幅に及ぼす影響を Fig. 7 に示す。GC45 合金については溶接速度 7m/min 程度まで貫通溶込みが可能であった。また、SG112 合金では 5m/min 程度まで貫通溶込みとなった。比較的高速での溶接が可能であった。

ここで各合金での貫通溶込み可能な溶接速度の上限が異なった要因は、各合金の温度伝導率の差であると考えられた。SG112 合金では温度伝導率が大いいために、所定の溶込みを得るためには、入熱量を増加させる（溶接

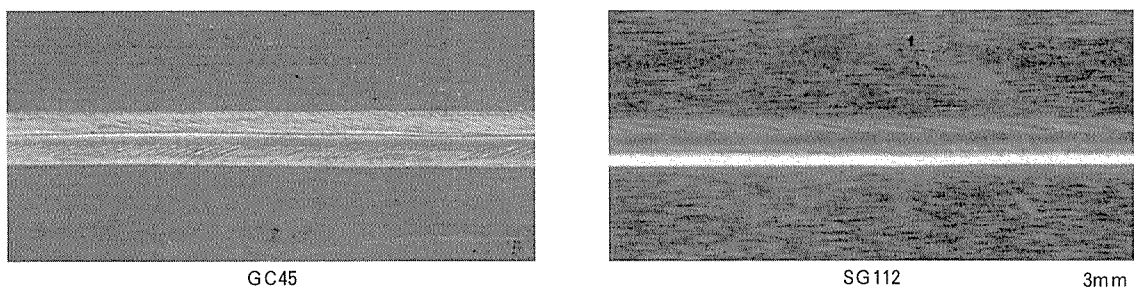


Fig. 5 Top bead appearances of melt-run weld by the diode laser.

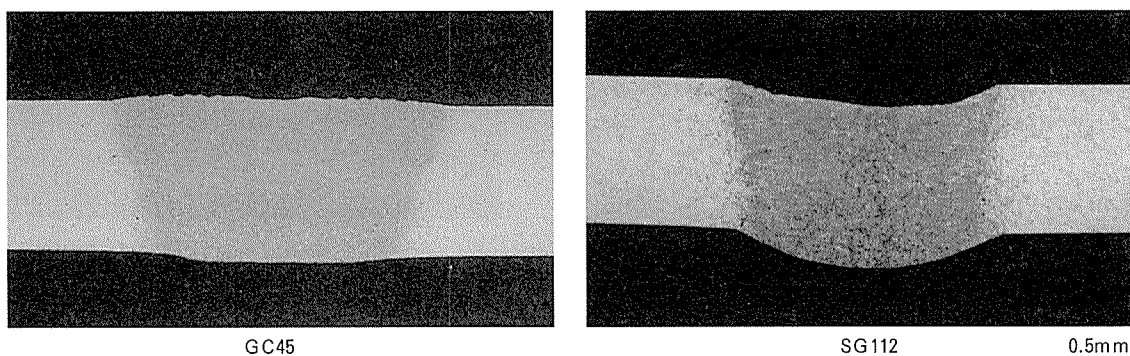


Fig. 6 Cross-sectional views of melt-run weld by the diode laser.

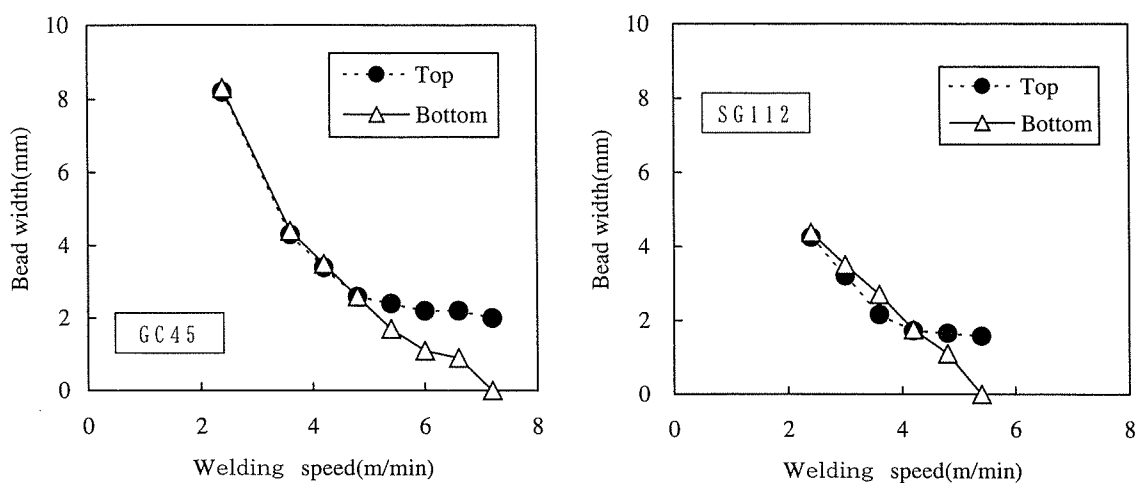


Fig. 7 Effect of welding speed on bead width.

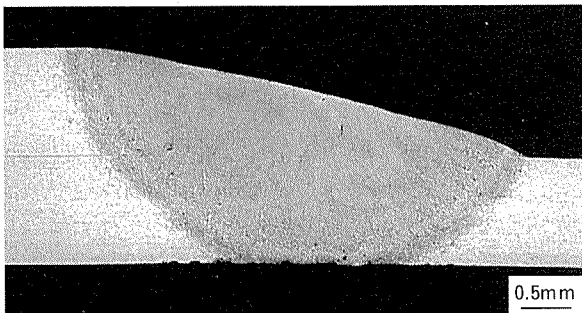


Fig. 8 Cross-sectional view of lap-fillet weld with diode laser (GC45).

速度を低下させる) 必要がある。

### 5. 3 重ね隅肉溶接実験

母材に GC45 合金を用いて、重ね隅肉溶接を行った。良好であった代表的な溶接ビードの断面を Fig. 8 に示す。共晶融解などの欠陥等は見られず健全な溶接部が得られた。ただし、一部の条件ではアーク溶接の場合と同様に、上下板の境界部に融合不良及びそれに起因する割れが認められた。

重ね隅肉継手溶接でオフセット量及びワークディスタンスの条件を変化させて行った実験の結果を Fig. 9 に示す。

上下板の重ね界面付近に焦点を合わせた場合には、貫通溶接が可能な条件がもっとも広くなり、オフセット量で 1mm 程度の裕度を得られた。従来の炭酸ガスレーザや Nd : YAG レーザにおいてはその裕度は 0.5mm 程度であり、溶接施工時の寸法精度を従来レーザよりも緩和できる可能性がある。

### 5. 4 レーザ溶接現象の観察

高速度ビデオによって撮影された半導体レーザ溶接時(メルトラン)の画像例を Fig. 10 に示す。溶融池はそのレーザビームと同様に細長くなっていた。しかし、溶融池の幅はレーザビームのそれよりも広がっていた。その溶融池は深溶込み溶接時の様な表面での窪みなどは認められず、全面滑らかに溶融していた。

また、従来の炭酸ガスレーザや Nd : YAG レーザでは溶融池からスパッタやブルームが激しく発生するが<sup>11)</sup>、半導体レーザではそれらはほとんど認められず、その溶接状況は非常に穏やかであった。これは熱伝導型溶込みのためであろう。

## 6. ま と め

高出力半導体レーザを用いてアルミニウム合金の溶接実験を行い、次の結果が得られた。

(1) 溶接施工時にスパッタやブルームはほとんど観察されなかった。

(2) メルトラン溶接では、そのビード表面は非常に平

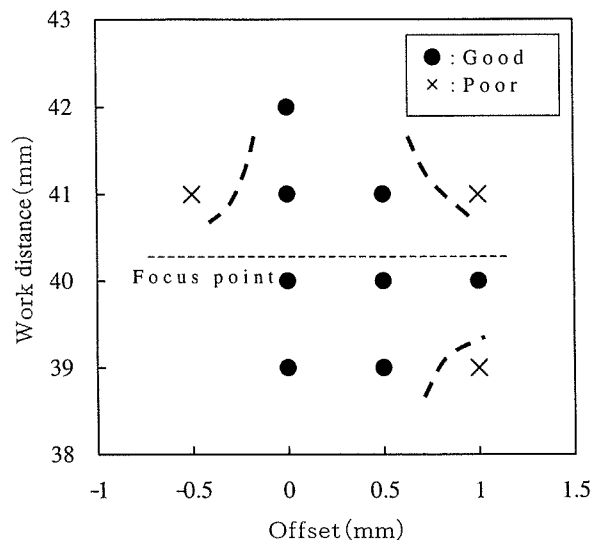


Fig. 9 Effect of work distance and offset on lap-fillet weld (GC45).

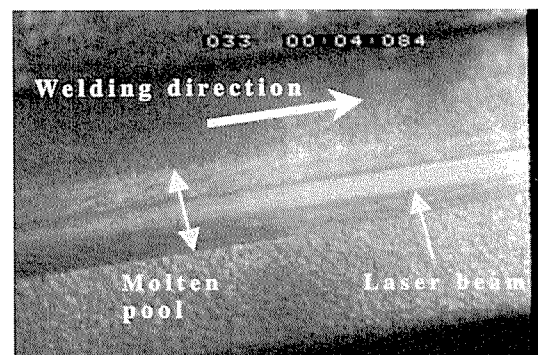


Fig. 10 Picture of diode laser welding with high speed video.

滑で、健全な溶接部が得られた。溶込み形状は熱伝導型であった。

(3) 貫通溶接が可能であった溶接速度は GC45 合金では 7m/min 程度、SG112 合金では約 5m/min であり、比較的高速な溶接が可能であった。

(4) 重ね隅肉溶接でも、そのビード表面は非常に平滑で、ほぼ健全な溶接部が得られた。また、下板表面付近での焦点位置で、オフセット量の裕度が最も大きく、1mm 程度であった。

(5) 高速ビデオによる溶接時の観察では、溶融池はレーザビームと同様に細長くなっており、その表面は滑らかであった。

(6) 高出力半導体レーザ熱源によるアルミニウム合金薄板の溶接は可能と判断できた。

## 参 考 文 献

- 1) 武田 晋：レーザ協会誌，26-1 (2001)，36.
- 2) 阿部信行：2001 年度精密工学会秋季大会シンポジウム資料，(2001)，72.
- 3) 平澤一成，栗秋博幸，村上喜作：軽金属溶接，40 (2002)，391.
- 4) 窪田恵一，鷺尾邦彦：レーザ熱加工研究会誌，6-2 (1999)，23.
- 5) 加藤喜久生，坂野律男，猪 一郎：シンポジウム自動車用アルミニウム合金接合技術の現状と将来動向（軽金属溶接構造協会），(2001)，111.
- 6) C.Schinzl, B.Hohenberger, F.Dausinger, H.Hugel : ICALEO1998, Section F, 57.
- 7) R.Diehl : *High-Power Diode Lasers*, Springer, (2000), 330.
- 8) 辻 正和：レーザ協会誌，26-1 (2001)，48.
- 9) E.Schbert, I.Zerner, G.Sepold : ICALEO1998, Section G, 112.
- 10) 前田興一，宇都秀之：軽金属学会第 88 回春期大会講演概要，(1995)，285.
- 11) 例えば，松縄 朗：溶接学会誌，68 (1999)，87.

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 62-68

TECHNICAL PAPER

# Joining Dissimilar Alloys between A5083 and A6N01 by Friction Stir Welding\*

Sunao Tanaka\*\* and Masaki Kumagai\*\*\*

TECHNICAL PAPER

# Joining Dissimilar Alloys between A5083 and A6N01 by Friction Stir Welding\*

Sunao Tanaka\*\* and Masaki Kumagai\*\*\*

Friction Stir Welding (FSW) succeeded in producing high quality dissimilar welds with A5083 and A6N01 (Japanese Industrial Standard) evaluated by microstructures and a root bend test. To weld sound joint between A5083 and A6N01, it was found that A6N01, which had a wide optimum range of welding conditions, should be placed on the retreating side. The optimum welding condition of the dissimilar alloys between A5083 and A6N01 was wider than that of A5083, which is difficult to weld by FSW. In the opposite arrangement, it was difficult for A6N01 on the advancing side to flow into A5083 on the retreating side in front of the tool. The pores were observed in inappropriate welding conditions. Large pores occurred in a lower rotation speed of tool while small discontinuous pores did in a higher one.

## 1. Introduction

FSW is a new welding technique for aluminum alloys invented by The Welding Institute, Cambridge, U.K., in 1991<sup>1)</sup>. A number of studies<sup>2)</sup> have shown that FSW is very well suited for high productive joining of A5083 and A6N01 (Japanese Industrial Standard)<sup>3)</sup>, which are most frequently used for railway cars<sup>4), 5)</sup> and ships because of high joint efficiency.

In all constructions including various materials, there is a need for joining dissimilar alloys. The FSW technique has an obvious potential not only for dissimilar joining of aluminum alloys, but also for joining other material combinations. Some results have been published on dissimilar joining of aluminum alloys<sup>6)~8)</sup>. However, no systematic study aiming at exploring the effects of welding parameters such as a rotation speed of tool appears to be available in the open literature.

The present investigation has focused on the dissimilar joining of A5083 and A6N01 by FSW. The properties of dissimilar joints were dis-

cussed in terms of welding condition such as a rotation speed of tool and welding speed. The optimum welding condition of the dissimilar alloys was compared from that of the similar alloys. The effect of arrangement of the dissimilar alloys relative to the welding direction on the optimum welding condition was investigated. Further, the forming mechanism of pores in welding the dissimilar alloys was discussed by observing the shape of pores and the metal flow.

## 2. Experiment

### 2.1 Welding conditions and materials

Aluminum Alloys 5083 (Al-4.5%Mg) and 6N01 (Al-0.65%Si-0.6%Mg) were selected in this investigation. The extruded bars (4mm thick, 150mm wide) of A5083-H112 and A6N01-T5 were used in the FSW operation. Welding speeds, rotation speeds of tool and the arrangement of the dissimilar alloys relative to the welding direction were changed in this experiment to obtain the optimum welding condition. An originally designed tool of FSW was used in all experiments. Rotation speeds of tool were changed from 400rpm to 3600rpm and welding speeds were changed from 250mm/min to 800mm/min.

### 2.2 Metallography and mechanical test

Every specimen was evaluated by micro-

\* This paper was presented at 3rd international Friction Stir Welding Symposium, Kobe, Japan, June 27-28, 2001.

\*\* No.1 Department, Research & Development Center

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

structures and a root bend test. The specimens with 18mm wide and 150mm long for the root bend test were cut from the welds along the transverse direction to welding line. The root bend test was performed with a bending angle of  $180^\circ$  and an inner diameter of 6.3 times thickness of the specimen. The crack in the root surface was evaluated by the root bend test. The evaluated criteria of the crack were as follows ; ○ no defect, △ partial defects, ▲ crack on the whole root surface, × fracture or more than 1mm deep crack, ● no root surface defect but inner defects included.

### 3. Results and discussion

#### 3.1 The optimum welding condition of the similar alloys

The optimum welding condition in the similar alloys of A5083 or A6N01 was obtained. The results in the root bend test of the A5083 joints are shown in Fig. 1.

In A5083 welds, the specimen at a rotation speed of less than 600rpm was fractured by the root bend test, while the specimens at 700rpm and 900rpm were cracked. Large pores in the bottom of the advancing side were observed at a rotation speed of 600rpm. As a ro-

tation speed increased to 3600rpm, some small inner pores were observed. No crack was observed on the root surface in the bent specimen despite of including small inner pores. Small inner pores didn't make an influence on the result of the root bend test. As a welding speed increased to 320mm/min, at rotation speeds of less than 1000rpm, cracks occurred on the root surface by root bend test. The faying face was not stirred because increasing of a welding speed made stir zone narrow. Many small pores were observed in the cross section of the joint at a welding speed of 400 mm/min and a rotation speed of 3000rpm. The size of those pores at a high rotation speed was smaller than that of the pores at a low one.

The results in the root bend test of the A6N01 joints are shown in Fig. 2. In A6N01 welds, the specimens at rotation speeds of less than 900rpm were fractured from inner pores by the root bend test and the faying face around the root surface was left unstirred. Because stirring was not enough at a low rotation speed. As a rotation speed increased to 3600rpm, stir zone spread without pores. As a welding speed increased to 500mm/min, stir zone was not enough at a rotation speed of

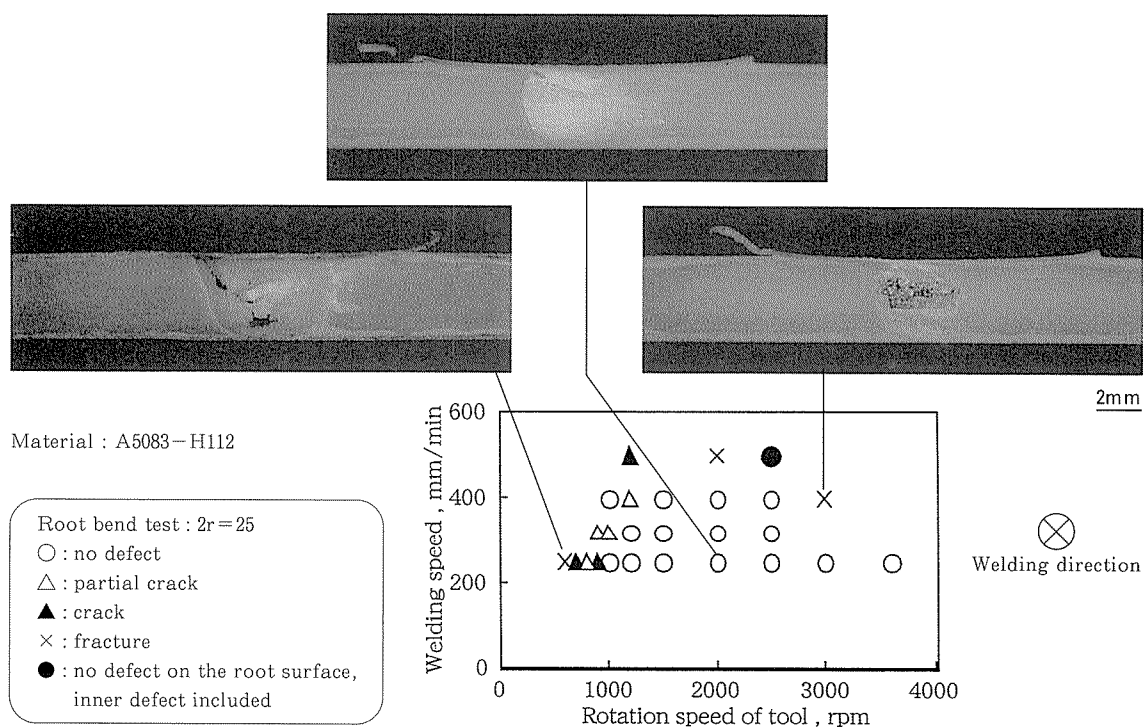


Fig. 1 Optimum welding condition of A5083 by FSW.



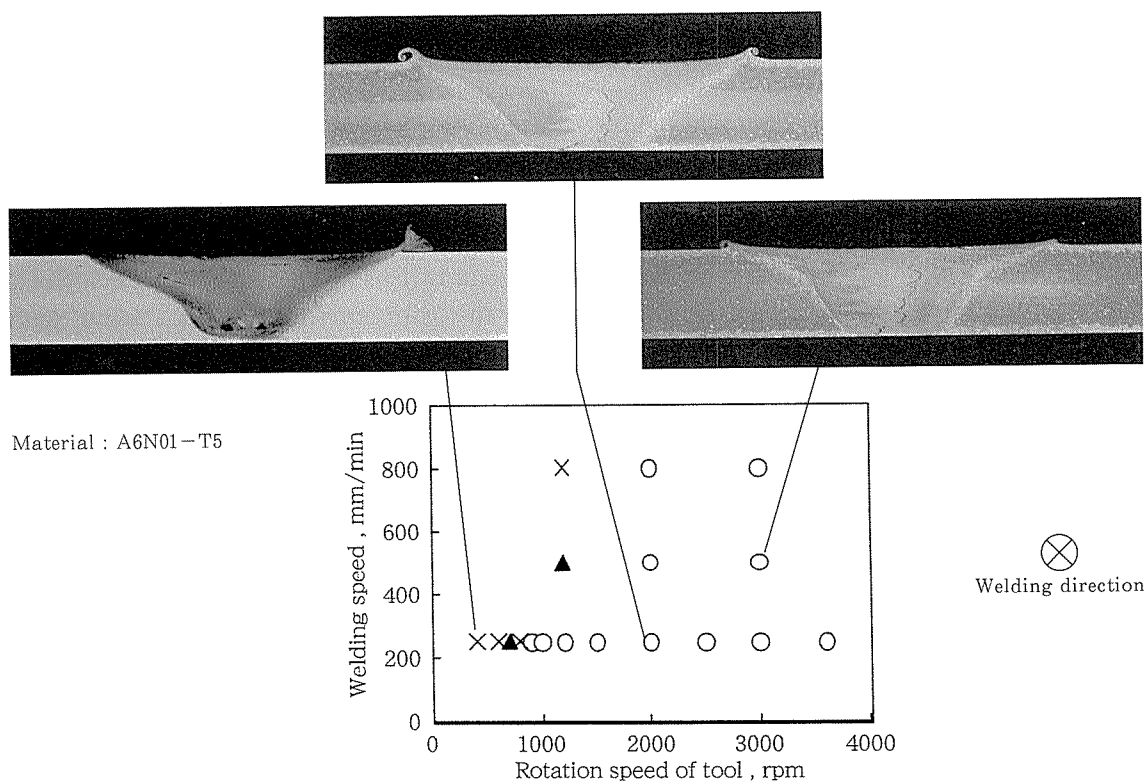


Fig. 2 Optimum welding condition of A6N01 by FSW.

1200rpm and the faying face in the bottom could not be stirred. In the above rotation speed crack occurred on the root surface by root bend test. As a rotation speed increased to more than 2000rpm, stir zone spread without pores even at a high welding speed of 800 mm/min. As can be seen by comparing the optimum welding condition of the similar alloys in the welding test, the optimum range of A6N01 was wider than that of A5083.

### 3.2 The optimum welding condition of the dissimilar alloys

It was found that the arrangement of the dissimilar alloys relative to the welding direction influenced the optimum welding condition. The optimum welding conditions of FSW with A5083 on the retreating side and A6N01 on the advancing side are shown in Fig. 3. The specimen at a welding speed of 250mm/min and a rotation speed of 800rpm was fractured by the root bend test. Large pores in the bottom of stir zone at rotation speeds of less than 800rpm were observed. Crack occurred at rotation speeds from 900rpm to 1500rpm but did not occur on the root surface at rotation speeds from 2000rpm to 2500rpm by the root

bend test. As a rotation speed increased to 3000rpm, many pores were observed in the stir zone. As a welding speed increased to 400mm/min and 500mm/min, large holes were observed in the stir zone.

The optimum welding conditions of FSW with A5083 on the advancing side and A6N01 on the retreating side are shown in Fig. 4. Some partial cracks occurred on the root surface at rotation speeds of less than 700rpm and a welding speed of 250mm/min by the root bend test. As a rotation speed increased to 800rpm, no crack occurred on the root surface by the root bend test. As a rotation speed increased to 3000rpm and 3600rpm, some small pores were observed in the retreating side, while no crack occurred on the root surface. As a welding speed increased to 400mm/min, no crack occurred. Cracks occurred on the root surface at a rotation speed of 3000rpm. No crack occurred at a rotation speed of 2000rpm and a welding speed of even high 800 mm/min by the root bend test.

These results indicate that a metal which has wider optimum welding range should be placed on the retreating side. This result did

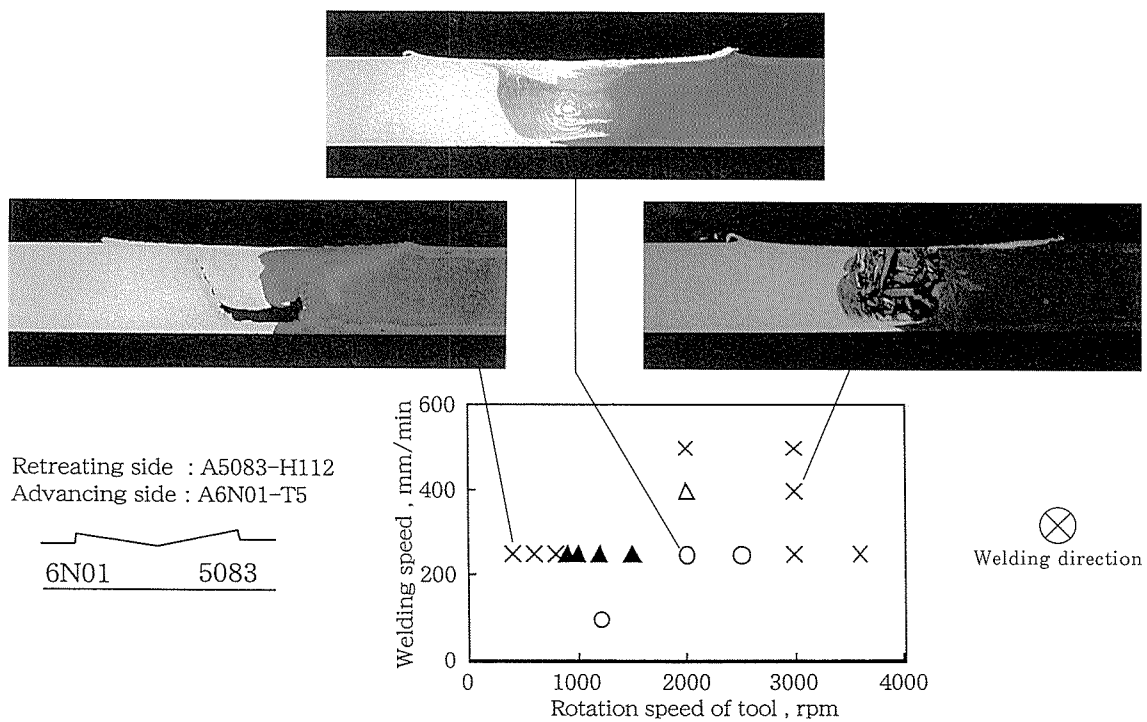
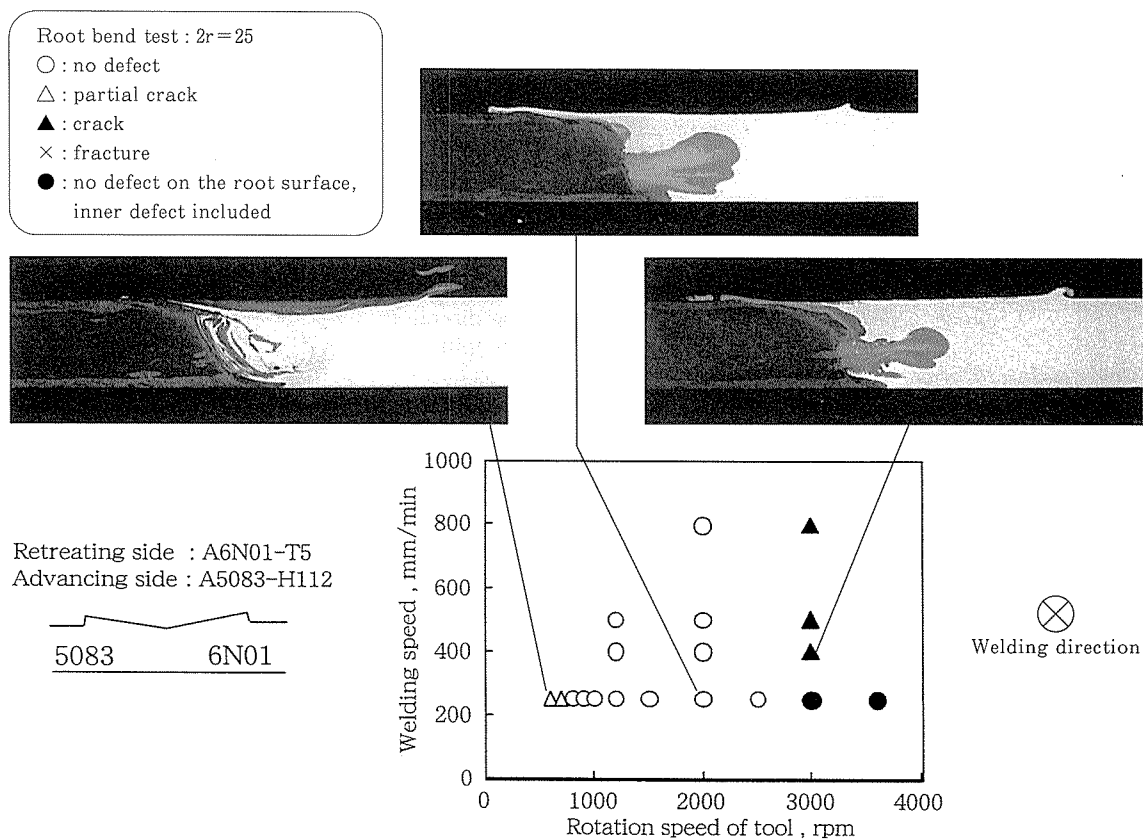


Fig. 3 Optimum welding condition of the dissimilar alloys between A5083 on the retreating side and A6N01 on the advancing side by FSW.



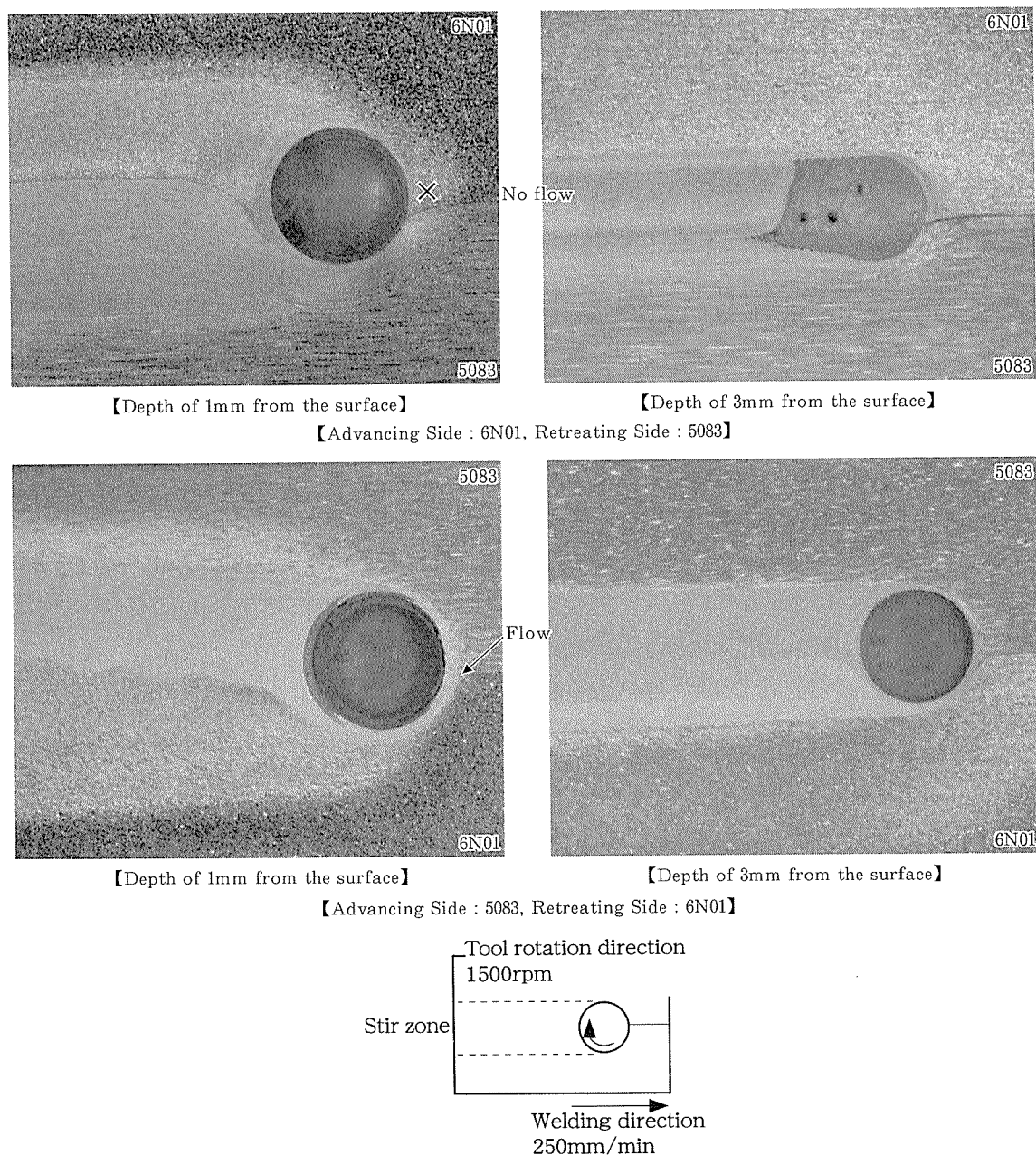


Fig. 5 Influence of the arrangement on metal flow.

not agree with the paper by Helena Larsson<sup>6)</sup> et al. It was difficult for A6N01 on the advancing side to flow into A5083 on the retreating side in front of the tool. This metal flow on friction stir welding is shown in Fig. 5.

### 3.3 Formation mechanism of pores at unsuitable rotation speeds

Small pores were observed at a rotation speed of 3000rpm and a welding speed of 250 mm/min on placing A6N01 on the retreating side and A5083 on the advancing side. The microstructures polished from the surface are shown in Fig. 6. Small pores were observed in

a surface depth of 3mm. As a rotation speed increased, the appearance of face bead and the microstructure in a surface depth of 1mm changed discontinuously. This result indicated that discontinuous stirring often made pores which was not tunnel holes.

In a low rotation speed, large pores were observed in the stirring area. In lower rotation speeds, a wide groove was observed behind the tool. It was thought that stirring energy to get sound joint is not enough at a low tool rotation speed. Thermometry should be performed at a low tool rotation speed.

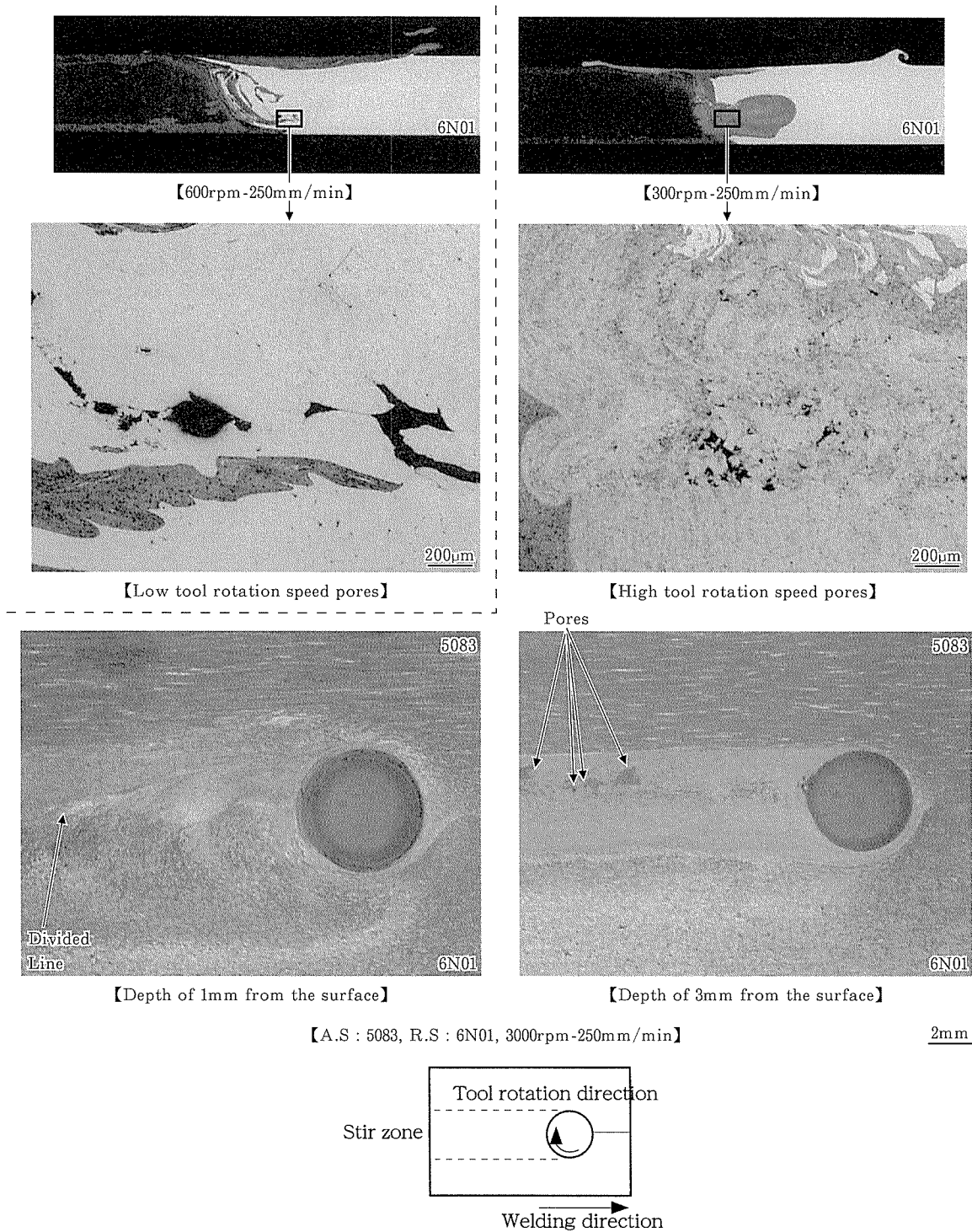


Fig. 6 Influence of the tool rotation speed on metal flow.

#### 4. Conclusions

1. As can be seen by comparing the optimum welding condition of the similar alloys between A5083 and A6N01, the optimum welding condition of A6N01 was as wide as that of A5083 at a welding speed of less than 250mm/min. As a welding speed increased to 500mm/min, the

optimum welding condition of A6N01 was clearly wider than that of A5083. It is clearly easy to weld A6N01 compared with A5083 by FSW.

2. The arrangement of the dissimilar alloys relative to the welding direction influenced the optimum welding condition. A6N01 should be placed on the retreating side because it was

easy for A5083 on the advancing side to flow into A6N01 on the retreating side in front of the tool.

#### References

- 1) Wayne Thomas and Dave Nicholas : European Patent Specification 0615480B1 (1995).
- 2) Stephan W.Kallee : Proc 4th Int. Forum on Aluminium Ships, (2000).
- 3) Sunao Tanaka and Masaki Kumagai : Proc. of 95th conf. of Japan Inst. of Light Metals, October (1998), 257.
- 4) Hisashi Hori, Shinya Makita, and Harumichi Hino : Proc. 1st FSW Symposium, Rockwell Science Center, California, (1999).
- 5) Takeshi Kawasaki and Toshiaki Makino : Proc.2nd FSW Symposium, Gothenburg, Sweden, (2000).
- 6) Helena Larsson, Leif Karlsson : ibid.
- 7) Takenori Hashimoto and Masatoshi Enomoto : Proc. Conf. "INALCO'98", Cambridge, U.K., (1998).
- 8) Ying Li, L.E.Murr and J.C.McClure : Scripta Materialia, 40 (1999), 1041.

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 69-74

TECHNICAL PAPER

# Integral Wing Panel for Airplanes Produced by Friction Stir Welded Extrusion Shapes\*

Masaki Kumagai\*\*, Sunao Tanaka\*\*\*, Hidenori Hatta\*\*\*,  
Hideo Yoshida\*\* and Hiroaki Sato\*\*\*\*

# Integral Wing Panel for Airplanes Produced by Friction Stir Welded Extrusion Shapes\*

Masaki Kumagai\*\*, Sunao Tanaka\*\*\*, Hidenori Hatta\*\*\*,  
Hideo Yoshida\*\* and Hiroaki Sato\*\*\*\*

Friction stir welding is suited for joining process of high strength aluminum alloys which are difficult to weld by conventional fusion welding. We investigated friction stir welded joints of aluminum alloys 2024, 7475 and 7050 for airplane structures. A joint of alloy 7050 produced by the following process, solution heat treatment, aging and friction stir welding (SHT—aging—FSW) had high joint efficiency of more than 80%, however it had low resistance to stress corrosion. While a joint by SHT—FSW—aging process had high resistance to stress corrosion as well as base metal. We evaluated friction stir welded large panels from alloy 7050 extruded shapes as integral wing panels for airplanes.

## 1. Introduction

High strength aluminum alloys like 2000 or 7000 series have been used to aircrafts. Those alloys are difficult to join by conventional fusion welding because heat crack occurs during welding. In case of conventional fusion processes as gas metal arc welding (GMAW) or gas tungsten arc welding (GTAW), large distortion occurs due to high thermal expansion and large shrinkage of solidification. Airplanes are made of skin/stringer structures by riveting. Skin panels with small ribs such as integral wing panels for airplanes are manufactured by machining from thick plates, then a quantity of materials and a lot of times are spoiled. A large panel which is produced by joining extruded shapes to the transverse direction is expected to reduce the riveting operation. Friction stir welding (FSW) which was invented by The Welding Institute<sup>1)</sup> has been successfully applied to wide aluminum

alloy panels<sup>2)</sup>. FSW is expected for reliable joining method without melting for 2000 or 7000 series alloys that have high fusion welding crack sensitivity. Tensile and fatigue strength of 2000 and 7000 series alloys joints as friction stir weld were investigated<sup>3),4)</sup>. It was cleared that stress corrosion cracks occurred at the stir zone of alloy 7050 joint by FSW<sup>5)</sup>. We tried to make sound joints of those alloys by the optimum joining/heat treatment process and evaluate the properties for the wing constructions. To evaluate this process for mass production, we produced integral wing panels by FSW from alloy 7050 extruded shapes.

## 2. Procedure

The concept of this work is the development of manufacturing process of large panels for airplanes by FSW for cost saving as shown in Fig. 1. Representative heat treatable alloys 2024, 7475 and 7050 were selected for extruded shapes. Table 1 shows the chemical compositions of those materials. Table 2 shows some joining/heat treatment processes for those shapes. Process A is an ordinary process for heat treatable aluminum alloys such as welded structures with 6000 series alloys. Process B is

\* The main part of this paper was presented at the 3rd International Symposium on Friction Stir Welding, Kobe, Japan, September 27—28, (2001).

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

\*\*\* No.1 Department, Research & Development Center

\*\*\*\* Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.

a developed process to strengthen the joint performance. Process C is complete hardening process but large distortion occurred after solution heat treatment. Specimens were extruded to bars of 4 mm thick and 50 mm wide. The specimens were firmly clamped to a steel

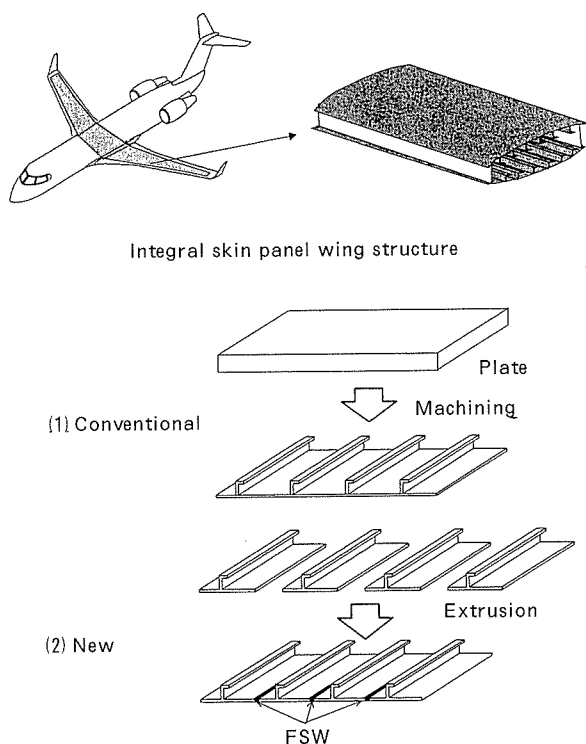


Fig. 1 Concept of an integral wing panel for airplanes.

backing jig and friction stir welded by an originally designed cylindrical tool with a shoulder. We found the optimum welding condition that rotating speed of the tool was 800 rpm and welding speed was 125 mm/min for all alloys. The joints were evaluated by surface appearances, microstructure observations, tensile tests, measurements of hardness distribution, axial fatigue test (stress ratio = -1, 30 Hz) and stress corrosion cracking test. Dimensions of those test specimens are shown in Fig. 2. For fatigue test specimens, top or bottom surfaces of the welding bead were skimmed.

For large extrusion panels, 7050 - T451 shapes of about 150mm wide with a T rib were extruded from a billet of 153mm in diameter. Ten pieces of 7050-T451 shapes were friction stir butt welded in parallel. The welding distortion was measured after welding. The large panel was machined to reduce the thickness of the skin and the ribs, and then bent to 5000mm in radial curvature by brake press bending.

### 3. Results and discussion

Alloys 2024, 7475 and 7050 butt joints had good surface and root appearance after FSW in the condition of tool rotating speed of

Table 1 Compositions of specimens (mass%).

	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Zr
2024	0.10	0.15	4.96	0.66	1.55	<0.01	0.05	0.01	<0.01
7475	0.05	0.08	1.62	<0.01	2.57	0.22	5.96	<0.01	<0.01
7050	0.05	0.08	2.00	<0.01	2.36	<0.01	6.29	0.02	0.11

Table 2 Joining/heat treatment processes of alloys 2024, 7475 and 7050.

Alloy	Process	Base metal *		FSW	Post heat treatment after welding
		Temper	Heat treatment		
2024	A	T351	492°C - 55min → WQ → Natural aging	Rotation tool speed 800rpm  Welding speed 125mm/min	(Natural aging 1 month)
7475	A	T7351	465°C - 55min → WQ → 107°C - 7h → 177°C - 7h		(Natural aging 1 month)
	B	T451	465°C - 55min → WQ		107°C - 7h → 177°C - 7h
7050	A	T7451	466°C - 90min → WQ → 120°C - 6h → 163°C - 27h		(Natural aging 1 month)
	B	T451	466°C - 90min → WQ		120°C - 6h → 163°C - 27h
	C	T7451	466°C - 90min → WQ → 120°C - 6h → 163°C - 27h		466°C - 1.5h → WQ → 120°C - 6h → 163°C - 27h

\* : all specimens were stress-relieved after WQ (water quench).



800rpm and welding speed of 125mm/min. No defect on the root surface of all the joints was checked by the penetration test. Fig. 3 shows macrostructures in the transverse cross section of the joints. No tunnel pore was detected in the weld. Stir zone of 7000 series alloys was larger than that of alloy 2024. Fig. 4 shows the results of tensile test. Joint efficiency (ratio of tensile strength of joint to base metal) of alloy 2024 was 82%. Joint efficiency of alloy 7475 was 92% in process A and 89% in process B. Joint efficiency of alloy 7050 was 88% in process A and 79% in process B. All the joints had the same static strength performance against the base metals. Fig. 5 shows the result of the fatigue test of the alloy 7050 joints. The fatigue strength of friction stir weld was almost the same as that of the base metals. The fracture occurred at heat affected zone which was the lowest hardness in the joint. It was proposed that all the alloys were enough to use under

skin of the wing due to high fatigue strength of the joints. Alloy 7050 was selected for following investigation in detail because it was expected for the upper wing structure which needs high compressive strength.

Hardness distribution in the cross section of the alloy 7050 joint is shown in Fig. 6. Hardness distribution of both processes A and B showed almost the same W configuration. The lowest hardness position in heat affected zone was the same position of fracture in the tensile tests. Process C was relatively homogenized hardness distribution because aging after solution heat treatment of the joint re-

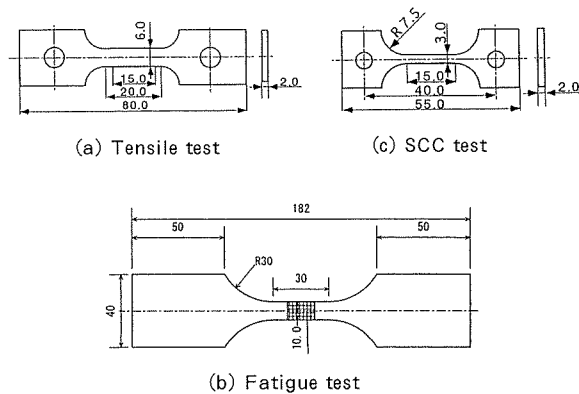


Fig. 2 Specimens of tensile test, stress corrosion cracking test and fatigue test (mm).

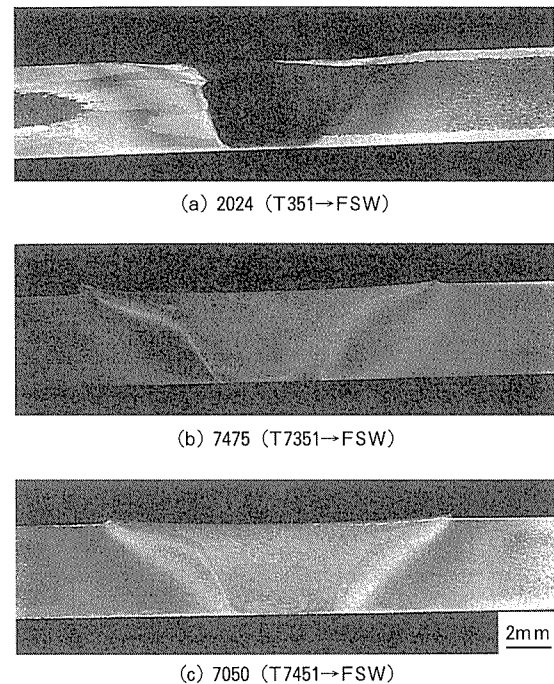


Fig. 3 Macrostructures of FSW joints.

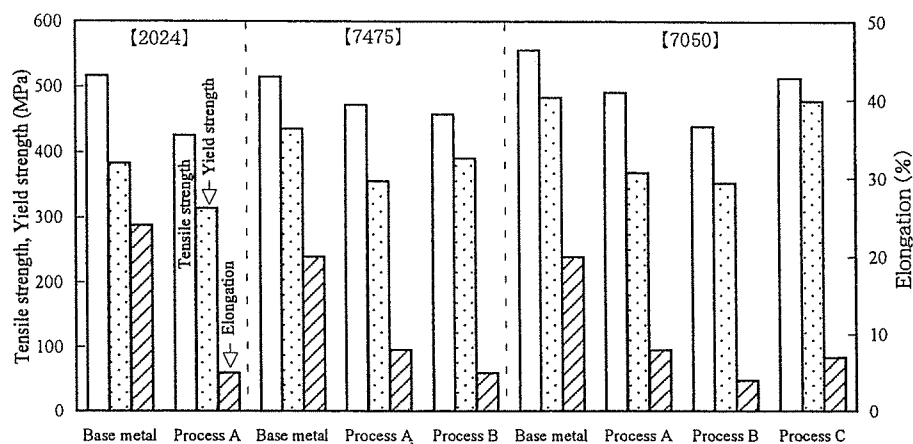


Fig. 4 Tensile properties of FSW joints.

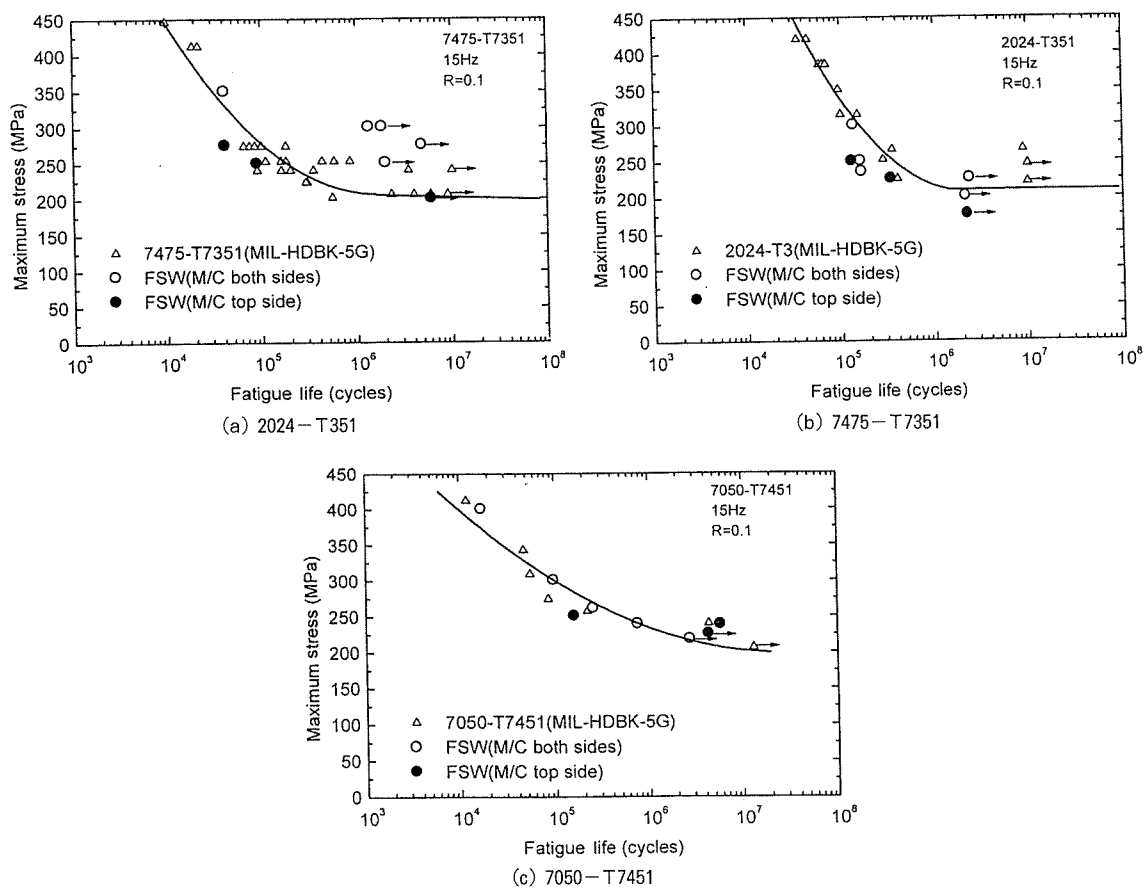


Fig. 5 Fatigue properties of FSW joints.

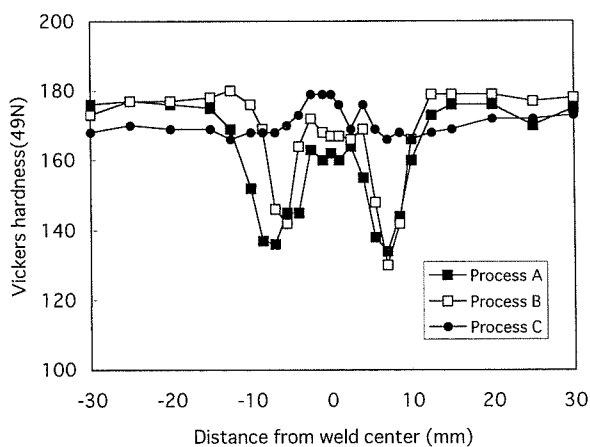


Fig. 6 Hardness distributions of cross section of 7050 joints in various processes.

covered hardness including weld. Fig. 7 shows the microstructures of alloy 7050 joint. The stir zone consisted of fine recrystallized grains from 5 to 10 micron meters while the base metal consisted elongated grains of about 100 micron meters. The microstructure of heat affected zone was similar to the base metal with

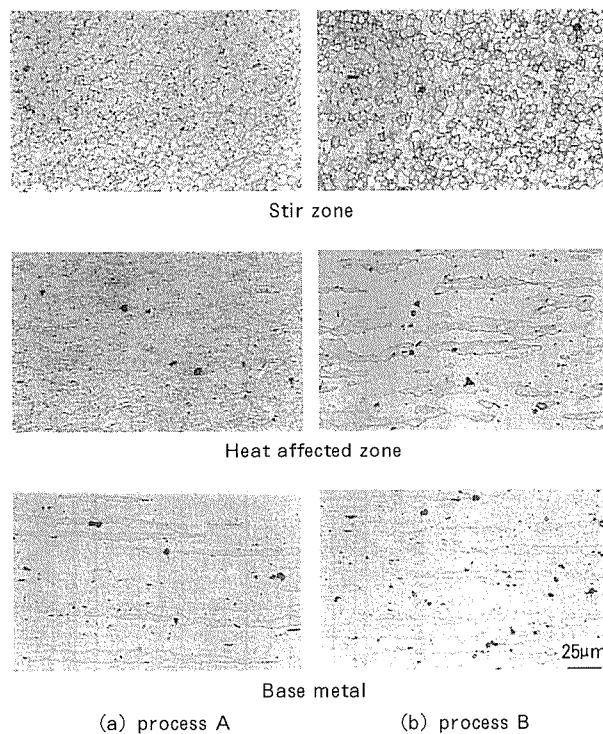


Fig. 7 Microstructures of 7050 joints.

a little recrystallized grain. Fig. 8 shows TEM structures of the alloy 7050 joint. In process A, stir zone consisted of solid solution structure, while base metal consisted of aging structure with many precipitates of  $\eta'$  ( $\text{MgZn}_2$ ). In the heat affected zone, both coarse precipitates not contributing to the strength and fine precipitates were existed. Therefore, partial resolving reaction should occur because electrical conductivity of heat affected zone was lower than that of the base metal. In process B, stir zone was aged like the base metal. At the heat affected zone, it was suggested that overaging occurred because electrical conductivity of heat affected zone was higher than that of the base metal in that process.

Fig. 9 shows the results of the stress corrosion cracking test of the 7050 joints both in processes A and B. Cracks in the joint of process A occurred in the stir zone in the short term even at low applied stress. No crack in the joint of process B occurred for more than 800 hours at high applied stress of 400MPa. Fig. 10 shows the microstructure of cross section and the SEM image of fracture surface of 7050 specimen in process A after the stress corrosion cracking test. The crack occurred near the interface between the stir zone and

heat affected zone (thermo-mechanically affected zone). It was cleared that the crack propagated along grain boundaries such as the typical stress corrosion cracking.

Fig. 11 shows parent 7050 extruded shapes which were consisted of a base plate and a rib of 5mm thick (the width of the plate, 153.3mm). The extruded shapes were abreast welded with rotating tools. Fig. 12 shows a large friction stir welded panel of 1531mm wide and 2700mm long. Shrinkage was less than 0.3mm per weld line. Fig. 13 shows the distortion of the transverse and the longitudinal directions of the large panel measured by stringing a thread from both edge of the panel. The flatness of the panel in the trans-

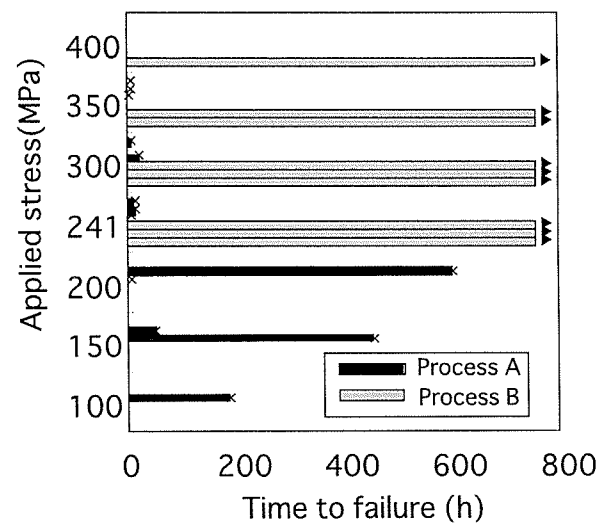


Fig. 9 Results of stress corrosion cracking test (X : fracture).

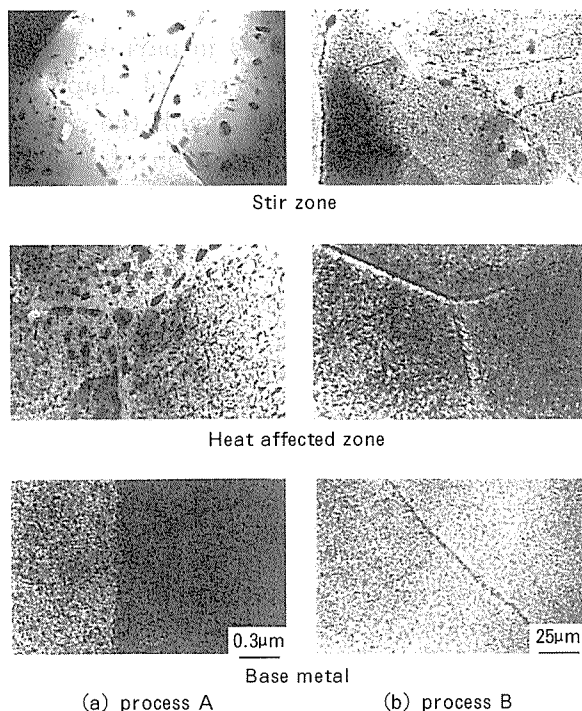


Fig. 8 TEM structures of 7050 joints.

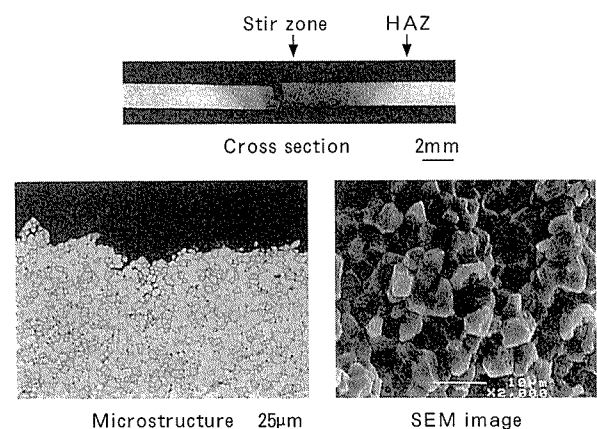


Fig. 10 Microstructure and SEM image of stress corrosion crack in a 7050 joint produced by process A.

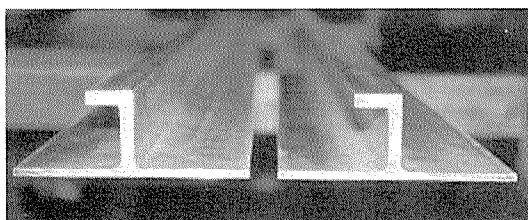


Fig. 11 Parent 7050 extruded shapes for a friction stir welded wide panel.

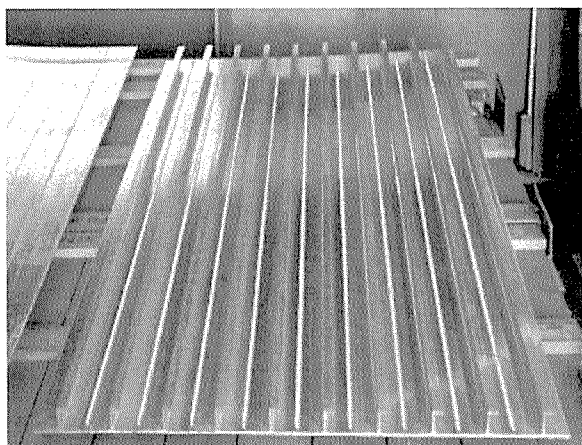


Fig. 12 Friction stir welded large extrusion panel (W1531mm, L2700mm).

verse and the longitudinal direction were less than 3mm. Fig. 14 shows the large panel after machining the base plate of inside surface and ribs and bending to radius of 5000mm. Machining of the panel on a vacuum backing jig was possible. Bending after machining was operated on a half width at the left of the panel as shown in Fig. 14. Bending was succeeded to check by a jig with the same radius.

#### 4. Conclusion

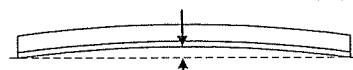
Friction stir welding of alloys 2024, 7475 and 7050 was succeeded and the joint properties were investigated. The 7050 joint by SHT – aging – FSW process indicated high joint efficiency of more than 80%, however they had low resistance to stress corrosion cracking. The joint by SHT – FSW – aging process had high joint efficiency and high resistance to stress corrosion cracking as well as the base metal. It was evaluated that friction stir welded large panels from alloy 7050 extrusions had sufficient performances for integral wing panels.

Weld line	-	1	2	3	4	5	6	7	8	9	-
Top	0	3	3	3	3	2.5	0	1	2	2.5	0
Middle	0	2	3	3	3	1.5	0	0	0	1	0
End	0	1.5	2	0	0	0	0	0	1	2.5	0



Flatness

Rib	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Center	4.5	5	5.5	6.5	6	5.5	6	5	4	4



Straightness

Fig. 13 Measurement of distortion after FSW (mm).

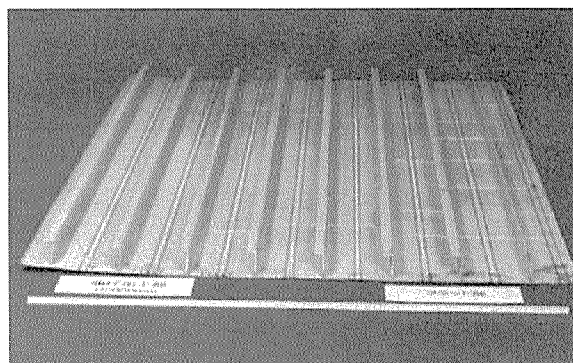


Fig. 14 Friction stir welded large integral wing panel after machining and bending.

#### Acknowledgement

This work was supported in part by a research fund of the Society of Japanese Aerospace Companies. We thank the society for the permission of publication of this report.

#### References

- 1) W.M.Thomas et al. : International Patent Application No. PCT/GB92/0220 and GB Patent Application No. 9125978.8 (1991).
- 2) M.Kumagai and S.Tanaka : Proc. 1st International Symposium on Friction Stir Welding, Thousand Oaks, California, (1999).
- 3) M.W.Mahoney, C.G.Rhodes, J.G.Flintoff, R.A.Spurling and W.H.Bingel : Metallurgical and Materials Transactions A, **29A** (1998), 1955.
- 4) G.Bussu and P.E.Irving : Proc. 1st International symposium on Friction Stir Welding, Thousand Oaks, California, (1999).
- 5) J.Lumsden III, M.Mahoney, G.Pollock, D.Waldron and A.Guinasso : *ibid.*

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 75-81

論文

# アルミニウム合金の抵抗スポット溶接に及ぼす諸条件の影響\*

熊谷正樹\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 75-81

## Influence of Several Factors on Resistance Spot Welding of Aluminum Alloys

Masaki Kumagai

## アルミニウム合金の抵抗スポット溶接に及ぼす諸条件の影響\*

熊谷正樹\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 75-81

## Influence of Several Factors on Resistance Spot Welding of Aluminum Alloys

Masaki Kumagai

We developed an excellent electrode material for resistance spot welding of aluminum alloys. An Cu-Ag-O alloy, which has high electrical conductivity and softening temperature, decreases heating at the electrode tip and keeps on an optimum electrical current density with flatness on the tip surface because of softening only tip surface of the electrode for a long term. To confirm the effect of the electrode material, influence on several factors like surface condition of base metal, welding machine and composition of base metal was investigated. Electrode lives of the electrode material was 2-10 times longer than those of a conventional Cu-Cr alloy.

## 1. はじめに

近年、環境重視の観点から燃費向上対策として自動車の軽量化が積極的に進められ、アルミニウム合金が多用されるようになってきた<sup>1)</sup>。アルミニウム合金板を抵抗スポット溶接する際には、鋼板用のクロム銅やジルコニウムクロム銅電極が流用されている<sup>2)</sup>が、アルミニウム合金は鋼に比べて導電率および熱伝導度が高いため、溶接には大電流での短時間通電が必要であり、鋼板の溶接に比べて電極の損耗が激しく、長期にわたる正常なナゲット形成が困難である<sup>3)</sup>。自動車の組立ラインでは頻繁に電極のドレッシングや交換が行われており、電極寿命の向上はアルミニウム合金板のスポット溶接を行う上で重要な課題である。電極寿命向上の方策として、溶接条件、母材の改良、および電極材の改良がある (Fig. 1) が、現行設備の活用や溶接性以外に母材に要求される諸特性の確保を考えると限界がある。そこで、アルミニウム合金板のスポット溶接に適した電極材の開発を行った。

ここでは、成形性および耐食性に優れることから使用されている 5000 系 (Al-Mg) 合金ボディシート材を中心に、開発した電極材をクロム銅と比較評価した結果を報告する。最も多用されている成形用潤滑油の付いた板の単相交交流溶接機による溶接を標準条件としたが、

酸洗した板のスポット溶接性が良好であるとの報告もあり<sup>2)</sup>、表面酸化膜を除去した母材を用いた評価も行った。また、直流溶接機を使用した場合に電極寿命が短いことが予想される<sup>4)</sup>ことから、インバータ式直流溶接機を用いての評価も行った。一方、強度が重視されることから塗装焼付硬化性に優れた 6000 系 (Al-Si-Mg) 合金ボディシート材が使用されており、この合金系についても評価を行うことを目的とした。

## 2. 電極の損耗について

アルミニウム合金のスポット溶接の場合の電極損耗過

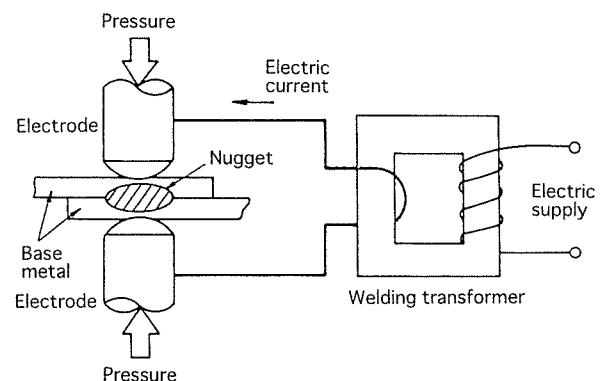


Fig. 1 Principle of resistance spot welding.

\* 軽金属溶接, 40 (2002), 304 に一部掲載

\*\* 研究開発センター 第一部, 工学博士

程は Fig. 2 のように考えられる<sup>5)</sup>。まず電極先端にアルミニウムが付着し、溶接の余熱あるいは次の溶接の発熱により付着したアルミニウムへの銅の固相拡散が生じ、低融点の共晶組成となる。溶接時の発熱により共晶融解が生じ、アルミニウム側および電極側にマクロ的な固液拡散が生じる。融解部はアルミニウム側に付着し、電極側に溝が残され、その内部に共晶成分が残る。このような現象は電極先端温度が高いほど顕著である。銅とアルミニウムが接触した状態で温度が上昇すると、821K で共晶融解が生じ、マグネシウムが共存すると 722K でも局部的に共晶融解が生じる可能性がある<sup>6)</sup>。Fig. 3 に示すように、アルミニウム合金板と軟鋼板では電極損耗のメカニズムが異なる。アルミニウム合金では電極中央で共晶融解が生じて窪むため電流が流れにくい。軟鋼板の場合は電極先端が軟化して広がるだけで電流密度は下がるが、接触面積は確保されるので寿命が長い。

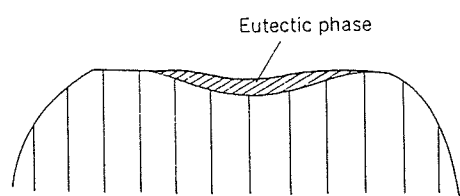
これらのことから、アルミニウム合金板の抵抗溶接では、銅とアルミニウムの拡散と共晶融解の軽減が電極損耗を抑制するのに有効であることが明らかであり、電極損耗を抑えるためには発熱が小さく熱放散性の良い導電性の高い電極材が適していることが判る。さらに正常なナゲットの形成を長期にわたって得るには高温暴露のもとで軟化しにくく、電極先端面の大きな変形が生じない材料が適することが考えられた。そこで、導電率と軟化温度の異なる市販の電極材を用いて、アルミニウム合金板のスポット溶接性に及ぼす材料特性を評価した結果、導電率の電極寿命への影響が大きく (Fig. 4)、耐熱性の影響は少ないとの結果を得た。即ち、Fig. 5 のように耐熱性を少々犠牲にしても従来の鉄系材料用の電極材以

上の高導電性を有する材料が、アルミニウム合金用電極材料として望ましいと考えられた。高い導電率と適度な耐熱性を兼ね備えた Cu-Ag 系合金に着目し、銀含有量、酸素含有量、冷間加工度の影響等を調査し、アルミニウム合金板スポット溶接用電極材として加工調質した Cu-0.1Ag-0.01O (mass%) 合金を開発した<sup>7)</sup>。

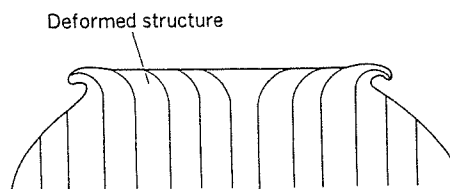
### 3. 実験方法

#### 3.1 電極

開発した Cu-Ag-O 合金 (以下, STAR 電極とする; Sumitomo tough and robust の略) および市販のクロム銅の径 16mm 棒の化学分析結果および諸特性を



(a) Electrode in spot welding of aluminum



(b) Electrode in spot welding of mild steel

Fig. 3 Difference of electrode wearing phenomena between an aluminum alloy sheet and a mild steel one.

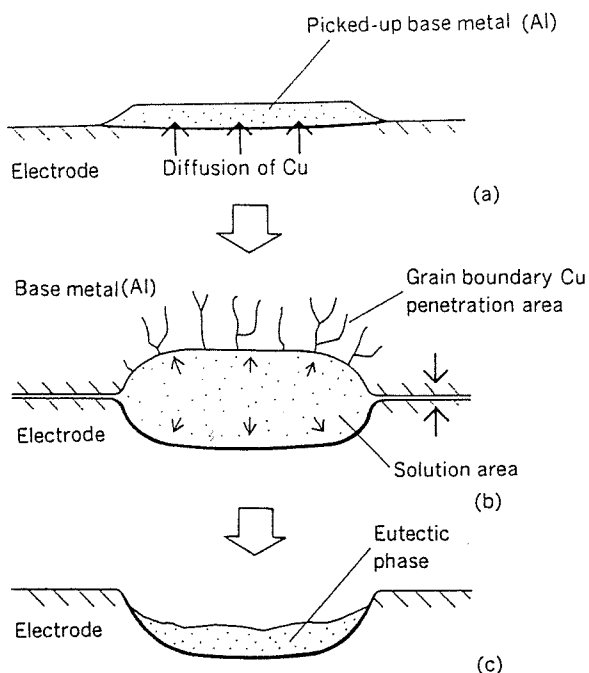


Fig. 2 Mechanism of electrode wearing in the resistance welding of aluminum alloys.

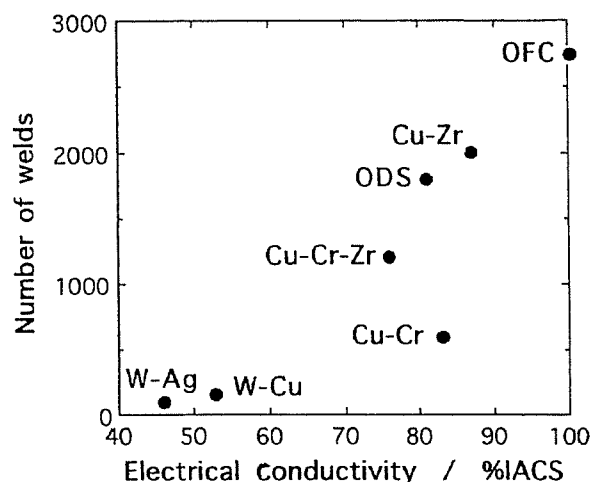


Fig. 4 Relation between electrode conductivity and electrode life.

Table1 に示す。軟化温度は大気中で 3.6ks の焼鈍によりビッカース硬さが半減した最低温度とした。STAR 電極材料は比較材のクロム銅に比べて硬さおよび軟化温度は低かったが、導電率は高かった。この素材から Fig. 6 に示す先端径 6mm 40R の DR (ドームラジアス) 型キャップチップ電極を成形し溶接試験に供した。

### 3.2 母材

母材には、5000 系合金として自動車ボディ用に広く使用されている板厚 1mm の Al-4.5Mg-0.3Cu (mass%) 合金 O 材のショットダルフイニッシュ仕上げの板を用いた。これを 353K の希酸浴に浸漬して表面酸化膜を除去した後、表面に成形用潤滑油 0.2g/m<sup>2</sup> を塗布したものを塗油材として溶接試験に供した。また、酸洗材として表面酸化膜を除去したままのものも溶接試験に供した。6000 系合金として板厚 1mm の Al-1.1Si-0.5Mg (mass%) 合金 T4 材のミルフィニッシュの酸

Table 1 Chemical compositions and various properties of electrode materials for aluminum alloy sheets.

Electrode	Content/mass%				Conductivity %IACS	Hardness HV	Softening Temperature K
	Ag	O	Cr	Cu			
STAR	0.09	0.012	—	bal.	97.8	105	625
Cu-Cr	0.00	0.002	1.05	bal.	85.0	150	775

Table 2 Chemical compositions of base metals.

Base Metal	Content/mass%						Conductivity %IACS	Hardness HV
	Mg	Cu	Fe	Si	Mn	Al		
5XXX	4.45	0.37	0.06	0.05	0.01	bal.	34	77
6XXX	0.50	0.01	0.15	1.10	0.07	bal.	48	60

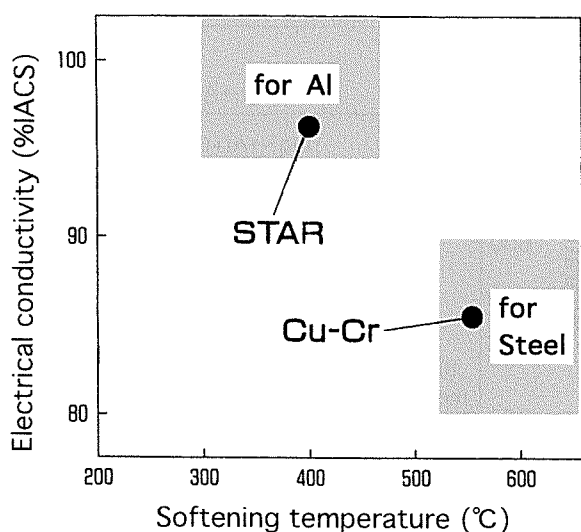


Fig. 5 Concept of development in electrode materials for aluminum alloys.

洗した板材を用いた。各母材の成分分析結果および諸特性を Table 2 に示す。

### 3.3 溶接試験条件

実験には単相交流定置式スポット溶接機を用いた。溶接条件は、WES7302 に準じ、径 5mm のナゲットが得られる条件とした。なお、溶接速度は 1 回/2s、冷却水量  $5 \times 10^{-5} \text{ m}^3/\text{s}$  とした。また、インバータ直流式定置式スポット溶接機を用いて、Fig. 6 に示す条件で同様に溶接試験を行った。

### 3.4 評価方法

前述の条件下で連続的に溶接を行い、20 回毎に溶接継手をサンプリングし、引張剪断荷重が初めて JIS B 級基準下限値 (1.29kN) 以下となった打点数 (強度下限値到達打点) を比較した。溶接試験は、1 条件につき最低 2 回ずつ行い、低い方の値にて評価した。また、溶接試験中電極と母材の間に通電せず感圧紙をはさみ、電極と母材の接触状況を観察し、電極径拡大の程度や損耗状態を調査した。母材に形成された圧痕の外観についても逐次比較を行った。

## 4. 結果および考察

### 4.1 電極材料の影響

Fig. 7 に単相交流溶接機による 5000 系合金塗油材の溶接継手の引張剪断荷重の連続打点の経時変化を示す。クロム銅電極では 500 打点付近で引張剪断荷重が大きく低下して寿命に至ったのに対し、STAR 電極では 3000 打点以上まで引張剪断荷重が高く安定し、3200 打点付近からナゲットが 2 分割し始めて引張剪断荷重の変動が大きくなり、3600 打点付近で寿命に至った。Fig. 7 に STAR 電極およびクロム銅電極の溶接試験中の感圧紙圧痕の変化を示す。STAR 電極はクロム銅電極に比べて電極先端径の拡がりが遅く、クロム銅電極が 500 打点で先端中央に大きな孔がみられるのに対して、STAR 電極は健全であり、2000 打点付近まで顕著な孔はみられなかった。

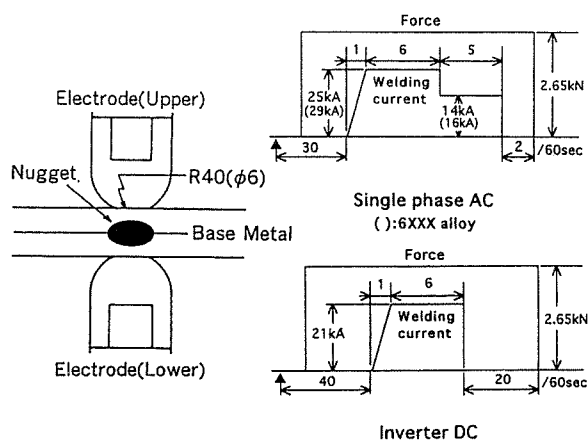


Fig. 6 Conditions of consecutive welding tests.



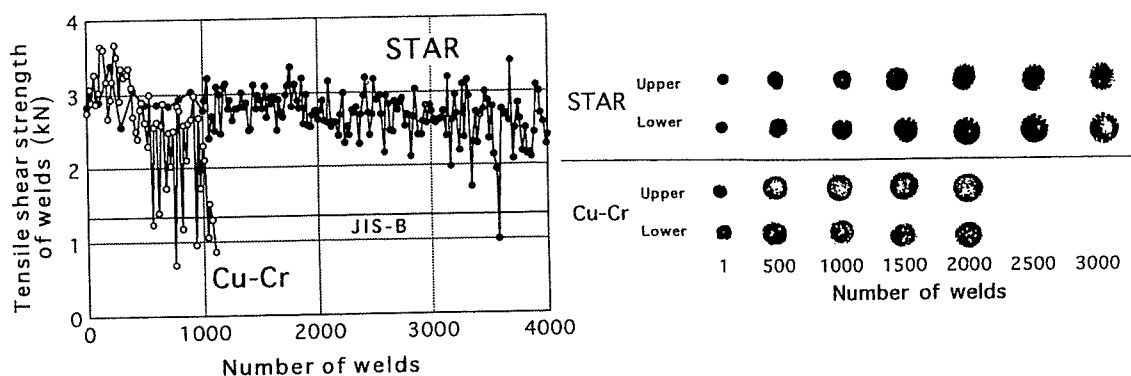


Fig. 7 Effect of the number of welds on tensile shear strength of welds and transformation of electrode tips for lubricant coated Al-Mg alloy sheets using AC welding machine.

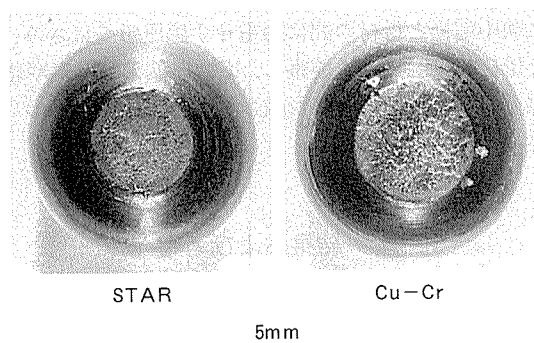


Fig. 8 Surface appearance of electrodes after 500 welds for lubricant coated Al-Mg alloy sheets using AC welding machine.

以下、STAR 電極とクロム銅電極を、感圧紙圧痕に顕著な差が現れ始めた 500 打点において比較する。Fig. 8 に 500 打点後の電極先端の外観を示す。クロム銅電極先端には多くの溝がみられ、明らかに STAR 電極より径が大きくなり、中央が窪んでいた。STAR 電極の先端面は比較的平坦で、一部に浅い溝がみられるだけであった。この溝の周辺の組織は、Fig. 9 に示すように、溝を中心に放射状に変形しており、溝を埋めるように最表面が塑性変形し、電極と母材の接触面積を維持する効果があるものと考えられる。一方、クロム銅電極の先端には大きな溝が多数みられ、溝の周辺はほとんど変形しておらず、加工組織のままであった。クロム銅電極では STAR 電極にみられたような最表面での塑性変形がみられず、後述の電極損耗過程により溝が多数形成され、接触面積の低下が激しいものと考えられた。EPMA 分析によるといずれも溝の内部に一部マグネシウムを含む  $\text{CuAl}_2$  が存在し、共晶融解を生じたものと考えられる。

Fig. 10 に単相交流溶接機を用いた場合の 5000 系合金板と電極の温度分布シミュレーション結果を示す。これによると、溶接中の STAR 電極先端の温度はクロム銅電極先端の温度より約 100 度低い。導電率が高い STAR 電極は、クロム銅電極に比べて電極先端温度が上昇しに

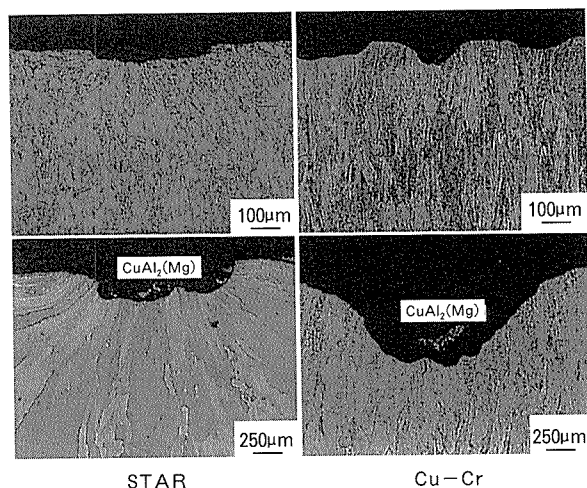


Fig. 9 Cross section of electrode surface after 500 welds for lubricant coated Al-Mg alloy sheets using AC welding machine.

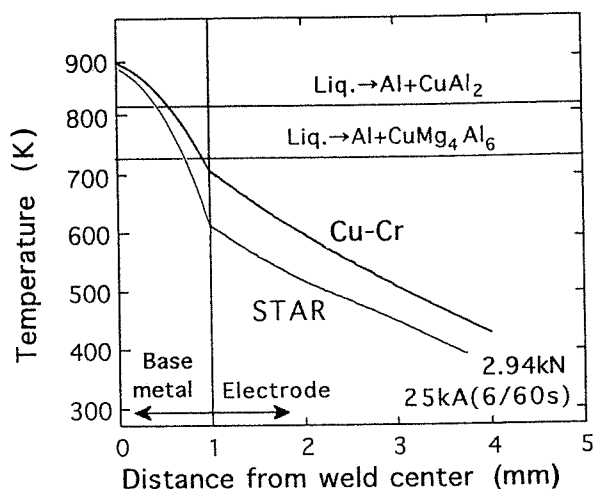


Fig. 10 Simulation of temperature distribution in spot welding of Al-Mg alloy sheets using AC welding machine.

くく、共晶融解による電極先端の損耗が生じにくいものと考えられる。また、STAR 電極はクロム銅電極に比べて軟らかく、軟化温度も適度に低いため、電極先端に凹凸が生じて塑性流動により電極先端面が平坦に保たれるものと考えられる。母材との接触面積が維持されるので、局所的な通電による過度の発熱や、偏ったナゲットやリング状ナゲットが生じにくいものと考えられる。

Fig. 11 に示すように、STAR 電極では電極先端に溝が生じにくいいため、クロム銅電極に比べて滑らかな圧痕が長打点にわたり維持された。これも STAR 電極の場合に電極先端の温度上昇が小さく、銅とアルミニウムの共晶融解による溝の形成が遅いことによるものであり、溶接部の外観が重視される用途においても STAR 電極はクロム銅電極よりもドレッシング間隔を長くすることができ、有用であると考えられる。

#### 4.2 母材表面の影響

Fig. 12 に単相交流溶接機による 5000 系合金酸洗材の溶接試験結果を示す。Fig. 7 に示した塗油材の結果と比較して判るように酸洗材は電極寿命が長く、クロム銅電極では強度下限値到達打点が 2000 打点、STAR 電極では 15000 打点以上と非常に長かった。塗油材に比べて酸洗材の電極寿命が長かった原因は、接触面に油が存在することにより接触抵抗が増し、電極先端の発熱が大き

く、共晶融解や軟化が生じやすいためと考えられる。また、発熱による油の気化に伴い電極と母材の接触面から油が噴出し電極先端面に溝を生じ、窪みの成長が促進されるため電極寿命が短くなることも推測される。

#### 4.3 溶接機の影響

Fig. 13 に示すようにインバーター直流溶接機の場合は、交流溶接機の場合に比べて電極寿命が短く、下側（正極側）電極の損耗が非常に早かった。直流溶接機を使用した場合にも、STAR 電極はクロム銅電極より強度下限値到達打点は長かったが、交流溶接機の場合に比べて初期から引張剪断荷重のばらつきは大きかった。

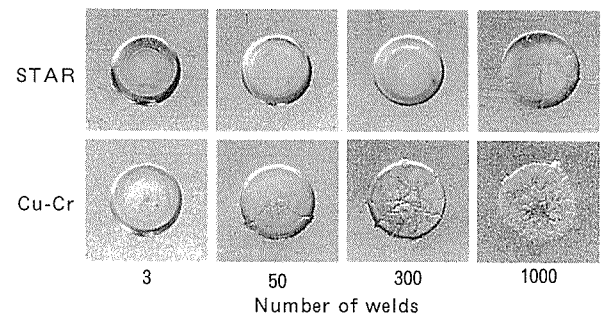


Fig. 11 Surface appearance of lubricant coated Al-Mg alloy sheets using AC welding machine.

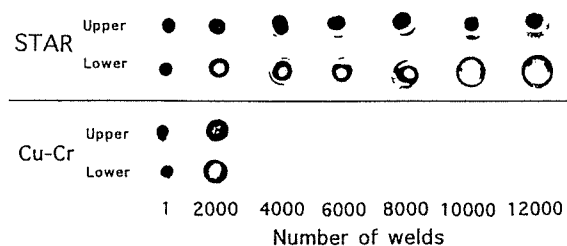
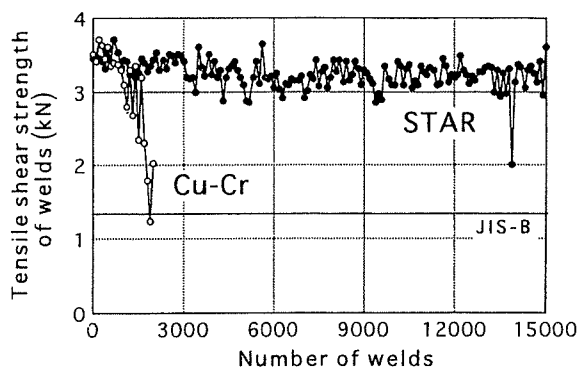


Fig. 12 Effect of the number of welds on tensile shear strength of welds and transformation of electrode tips for acid cleaned Al-Mg alloy sheets using AC welding machine.

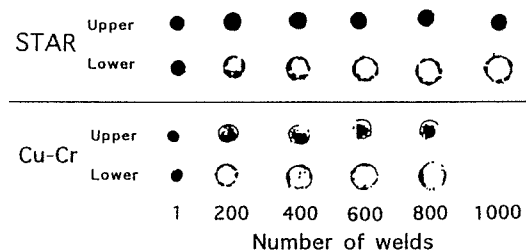
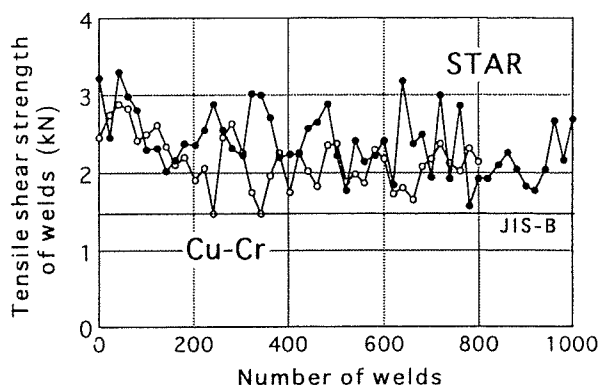


Fig. 13 Effect of the number of welds on tensile shear strength of welds and transformation of electrode tips for lubricant coated Al-Mg alloy sheets using inverter DC welding machine.

Fig. 14 に示すように直流溶接機ではナゲットが正極側に偏り、溶融部が板表面まで達するものもあった。これは、導電率の異なる物質間に電流が流れた時に生じるペルチェ効果の影響で、導電率の低い母材から導電率の高い電極に電子が移動する際に接触面で発熱が生じるため、電極の損耗が激しくなると考えられる。負極側では逆に吸熱が起こり、電極の損耗が少ないものと考えられる。従って、アルミニウム合金板のスポット溶接には、電極寿命の点から交流溶接機が適すると考えられるが、直流溶接機にも電源効率が高いことや溶接ガンを軽量化できる等利点もあるので、直流溶接機における正極側電極の

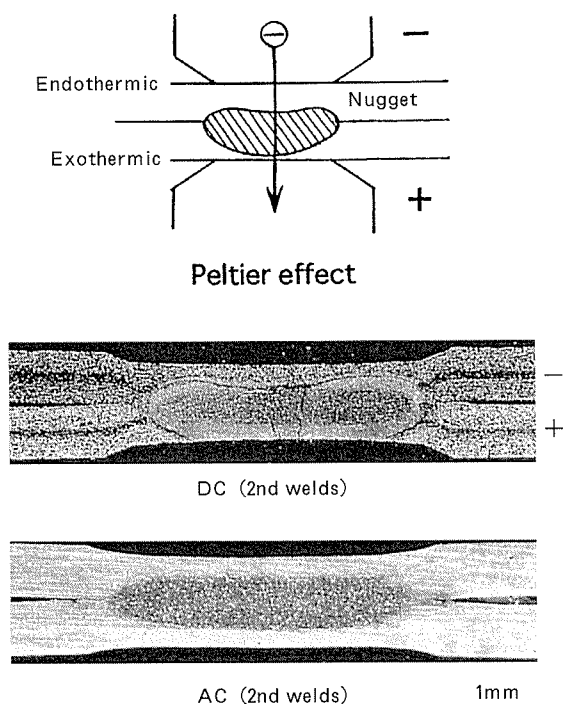


Fig. 14 Inclination of nugget by Peltier effect in DC welding.

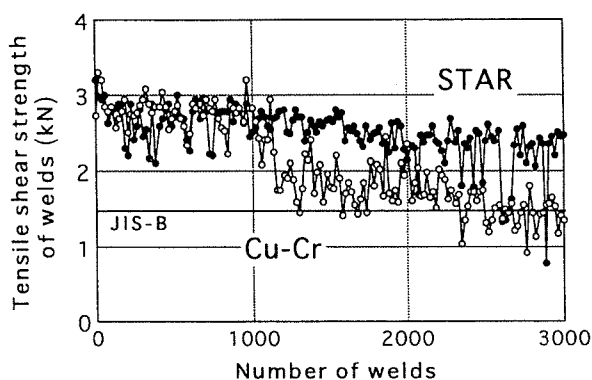


Fig. 15 Effect of the number of welds on tensile shear strength of welds and transformation of electrode tips for acid cleaned Al-Mg-Si alloy sheets using AC welding machine.

損耗についての対策が必要である。対策として、電極の極性を適当な間隔で繰り返し逆転させる、異材の溶接では導電率の高い板側あるいは板厚の厚い側を正極にする、等が考えられる。

#### 4.4 母材成分の影響

Fig. 15 に STAR 電極とクロム銅電極の 6000 系合金板の溶接での電極寿命（強度下限値到達打点）を示す<sup>8)</sup>。電極寿命は 5000 系合金の場合より短く、強度のばらつきが大きかった。本合金は前述の 5000 系合金よりも導電率が高いため、健全なナゲットを形成させるには 4kA も高い電流が必要となる。このため電極先端の発熱が大きく電極の損耗が激しいものと考えられる。STAR 電極はこの場合にもクロム銅電極より優れた電極寿命を有していた。

STAR 電極は亜鉛めっき鋼板に対してもクロム銅を上回る電極寿命を示す場合があり、アルミニウム合金板と亜鉛めっき鋼板が同時に流れる工場ラインでの利用が期待される。

## 5. 結 言

連続打点性評価結果を Fig. 16 にまとめて示す。

1) STAR 電極は、従来のクロム銅電極に比べて著しく優れた 5000 系アルミニウム合金塗油材のスポット溶接特性を有していた。これは、本電極材が高い導電率と適度な軟化温度を有しており、電極先端の温度上昇が小さく、共晶融解等が生じにくかつ電極先端径の拡がりも少ないことによるものと考えられた。

2) 塗油材に比べて酸洗材の電極寿命が長かった。STAR 電極は、クロム銅電極の 5000 系アルミニウム合金酸洗材の電極寿命が約 2000 打点であるのに対し、15000 打点以上の非常に長い寿命を有していた。

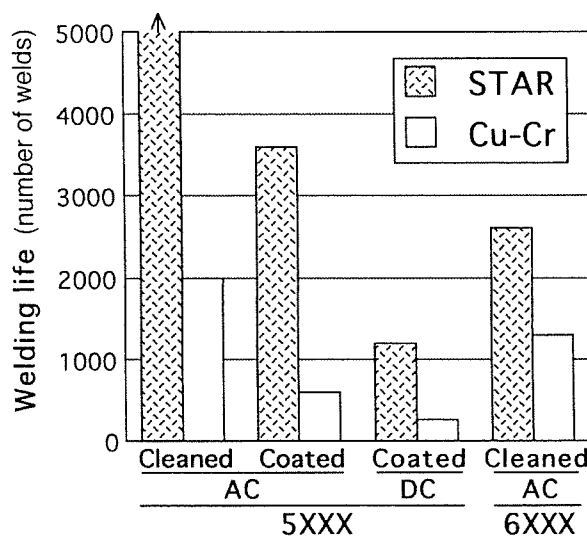


Fig. 16 Comparison of electrode lives of aluminum alloy sheets in several conditions.

3) 交流溶接機に比べて直流溶接機（インバータ式）の方が電極寿命が短かった。これはペルチェ効果による発熱で正極側電極の損耗が促進されたためであると考えられた。直流溶接機の場合にも STAR 電極はクロム銅電極より優れた特性を示したが、交流溶接機に比べて溶接部の強度のばらつきが大きかった。

4) 6000 系アルミニウム合金は、5000 系合金の場合に比べて電極寿命が短かった。これは、6000 系合金の方が導電率が高いため、健全なナゲットを得るにはより高い電流が必要であり、電極先端の温度上昇が増すためだと考えられる。

## 6. 謝 辞

抵抗スポット溶接の温度シミュレーションに関して、多大なご協力をいただいた住友金属工業株式会社 福井清之様に深く御礼申し上げます。

## 参 考 文 献

- 1) 細見彌重：本誌，32（1991），1.
- 2) 難波圭三，佐野啓路，水越秀雄，長谷川義文：同上，32（1991），56.
- 3) 笹部誠二：溶接技術，41-3（1993），68.
- 4) 松山欣一：同上，34-3（1986），19.
- 5) 熊谷正樹，永田公二，難波圭三，佐野啓路：伸銅技術研究会誌，31（1992），151.
- 6) L.F.Mondolfo：Aluminium Alloys, Structure and Properties, Butterworth & Co.,Ltd., (1976), 497.
- 7) 熊谷正樹，永田公二，佐野啓路，難波圭三：伸銅技術研究会誌，33（1994），1.
- 8) Masaki Kumagai：Proceedings of International Body Engineering Conference, Material & Body Testing, 14（1995），32.

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 82-89

論文

制約論理プログラミングによる加熱炉への  
スラブ装入本数最大化\*

高 柳 仁 史\*\*      岡 村 義 英\*\*\*  
星 野 郁 弥\*\*\*\*    田 地 宏 一\*\*\*\*\*  
                         田 村 担 之\*\*\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 82-89

Maximizing the Number of Slabs Charged in  
an Aluminium Reheating Furnace by  
Using a Constraint Logic Programming

Hitoshi Takayanagi, Yoshihide Okamura, Ikuya Hoshino,  
Kouichi Taji and Hiroyuki Tamura

論文

## 制約論理プログラミングによる加熱炉への スラブ装入本数最大化\*

高柳 仁 史\*\*      岡村 義 英\*\*\*  
星野 郁 弥\*\*\*\*    田地 宏 一\*\*\*\*\*  
田村 担 之\*\*\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 82-89

## Maximizing the Number of Slabs Charged in an Aluminium Reheating Furnace by Using a Constraint Logic Programming

Hitoshi Takayanagi, Yoshihide Okamura, Ikuya Hoshino,  
Kouichi Taji and Hiroyuki Tamura

This paper discusses a complex arrangement problem for maximizing the number of charging slabs in an aluminium reheating furnace. It is important to decide the slabs arrangement that many number of slabs can charge into a furnace for improvement of the productivity and reduction of the fuel costs. This problem is similar to the combinatorial optimization problem such as a cutting stock problem or a rectangle-packing problem. But it is quite different from them in considering the constraint of rolling sequence, slab transportation, and change of constraint dynamically when the slabs are extracted from a furnace according to rolling sequence. In this paper, we propose an approach based on a constraint logic programming (CLP). The remarkable points are the addition of redundant constraints and application of slab grouping method to reduce the solution time. The effectiveness of the proposed approach has been confirmed by some numerical experiments to obtain a satisfying solution in a practical time.

### 1. 緒 言

近年、製造業においては顧客ニーズの多様化、製品の短納期化が進むにつれ、いかに効率良い生産を行っていくかが重要な課題となっている。そのため生産スケジューリング技術への期待は急速に高まり、各企業で積極的に取り組まれていることが、数多くの適用事例<sup>1), 2)</sup>よりうかがい取れる。

本論文では、アルミ板製造への生産スケジューリング

技術適用の一例として、熱間圧延工程における加熱炉へのスラブ装入本数最大化問題を取り上げる。加熱炉へのスラブ装入本数最大化とは、できるだけ多くのスラブを加熱炉に装入するための最適配置を決定することであり、板取り問題や方形パッキング問題とよく似た配置問題である。しかし圧延順序や搬送クレーン用の隙間を考慮する必要がある点と、スラブを取り出すタイミングとなる圧延順序により制約条件が動的に変化する点を考慮する必要があるため、前述の配置問題と大きく異なる。また本問題に対する一つのアプローチとしてヒューリスティックによる方法<sup>3)</sup>が報告されているが、数例のモデルケースにおいて極めて短い時間で求解が可能となるものの、スラブの配置をある程度限定することが前提であるため、汎用面での課題が残る。このような複雑な配置問題への

\* システム制御情報学会論文誌, 15 (2002), 438 に掲載  
\*\* 研究開発センター 第二部  
\*\*\* 研究開発センター 第二部, 工学博士  
\*\*\*\* 元研究開発センター 第二部, 工学博士 (故人)  
\*\*\*\*\* 大阪大学大学院基礎工学研究科

有力な手法として、制約論理プログラミング<sup>4)</sup> (Constraint Logic Programming : CLP) が考えられる。CLP とは、人工知能の分野で成立・発展してきた歴史があり、最近では組合せ最適化問題等で注目されている手法である。CLP の基本的なアルゴリズムは制約伝播と分枝限定法で構成<sup>2), 5)</sup>されており、効率よく広域的な解探索を行う特徴を持つ。また問題の定式化能力にも定評があり、本論文で取り扱うような複雑な制約条件も容易に定式化することができると考えられる。

上述した理由から本論文では、CLP をベースとした解法を提案し現実規模を想定したケースに対して、従来の方法であるパターン法との比較を行った。本論文で提案する解法の特徴は、問題の性質を活かした解探索手順の調整とスラブのグルーピングとの併用により、動的に変化する制約への対応が容易となる点、これらにより解探索規模が効果的に低減され CLP での解探索が大幅に効率化される点にある。このことにより、実用的な時間内で最大数のスラブを加熱炉に装入できる配置を決定することが可能となる。

## 2. アルミニウム熱間圧延工程の概要

Fig. 1 にアルミニウム熱間圧延工程を示す。熱間圧延工程は、被圧延材であるスラブを、複数のピット式加熱炉において所定の温度まで加熱する加熱工程と、加熱されたスラブをコイルに加工する圧延工程から構成される。本論文で対象とする熱間圧延工程においては、加熱炉へのスラブ装入本数が1チャンスの熱延処理量を決定する大きな要因となっており、生産性向上を図るため加熱炉に最大数のスラブを装入することが重要となる。

## 3. 加熱炉へのスラブ装入問題と定式化

### 3.1 問題概要

加熱炉へのスラブ装入問題とは、圧延順序が決定したスラブを制約条件を満足させて、装入本数が最大となる配置を決定する問題である。問題の特徴として、圧延順

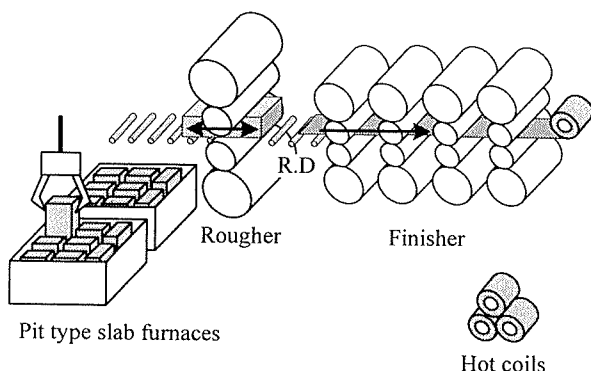


Fig. 1 Schematic diagram of aluminium hot rolling process.

序と搬送クレーンがスラブをつかむための隙間を考慮する必要があること、取り出し順序に応じた隙間制約の変化を考慮する必要があること、装入するスラブのサイズが一定ではないこと、加熱炉内でのスラブ配置方法は縦・横・斜めの配置が許されており極めて自由度が高いことがあげられる。このように、制約条件が複雑で配置の組合せ要素が多い問題であることから、熟練者の経験と勘によりある一定のパターンを設けてスラブ配置を決定しているのが実状である。Fig. 2 に、縦・横・斜めの配置を駆使した加熱炉へのスラブ配置の一例を示す。

### 3.2 制約条件

加熱炉へスラブを配置する際の制約条件を以下に示す。

- (A) スラブの配置は加熱炉内部であること。
- (B) スラブの重複配置不可。
- (C) 炉壁－スラブ間、スラブ－スラブ間に搬送クレーンがスラブをつかむための隙間が必要。
- (D) 圧延順序通り取り出し可能であること。

以上に示した制約条件のうち (A)・(B) に関しては、配置問題等でよく扱われる一般的な制約条件であるが、(C)・(D) は本問題の特徴的な制約条件であり、スラブの配置と取り出すタイミングとなる圧延順序により、隙間の制約が動的に変化する。Fig. 3 に加熱炉からスラブをクレーンで搬送する際の模式図を示す。スラブの配置には配置済みスラブ間、炉壁間に搬送クレーンのつかみ隙間が必要となる。また加熱炉へ装入するスラブには圧延順序が与えられており、圧延順序通りに取り出し可能な配置でなければならない。その例として、Fig. 4 (a) では、一見すると制約に違反する配置であっても、圧延の進行にともなってスラブが取り出され、制約を満足する配置へと変化して実行可能な解となるが、Fig. 4 (b) では、圧延順序通りの取り出しができず実行不可能な解となる。

### 3.3 問題の定式化

問題の定式化に際して、本論文では Fig. 5 に示すように、幅と長さが  $f_l \times f_w$  の加熱炉を、左下を原点とする2次元座標系で表現することとした。加熱炉内へ装入

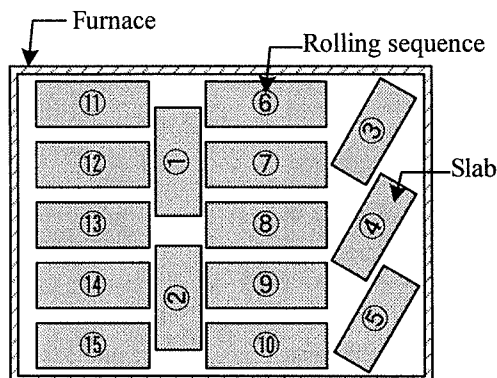


Fig. 2 Example of slab arrangement.

するスラブの配置は  $(x_i, y_i, \theta_i)$  で表現し、それぞれ各スラブの  $x$  軸,  $y$  軸方向の座標と、加熱炉内でのスラブの配置状態を表すパラメータで構成することとする。ここでは Fig. 5 に示すように、加熱炉に対してスラブが横向きに配置されている状態を  $\theta = 0$ 、縦向きに配置されている状態を  $\theta = 1$  とする。また添字で使われる  $i$  は、スラブの圧延順序を表している。

まず、目的は加熱炉へ装入するスラブ数の最大化であるから次のように表せる。

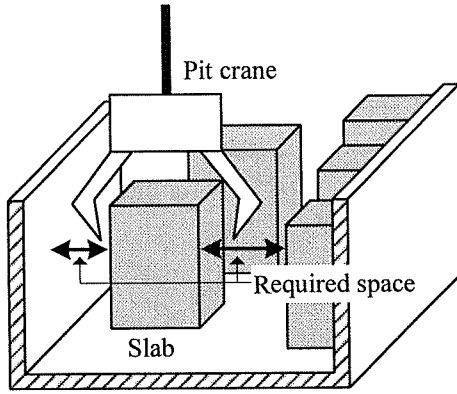


Fig. 3 Cross section of the slab furnace.

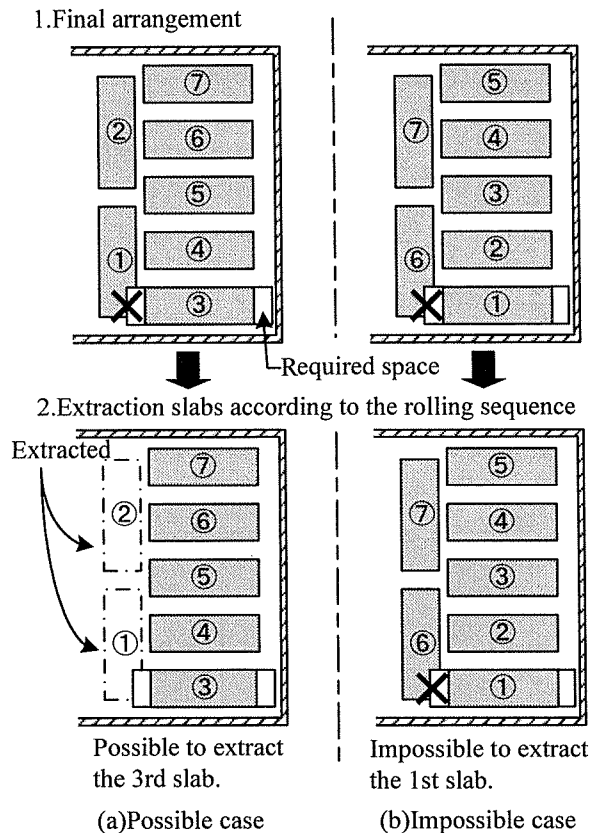


Fig. 4 Example of extraction slab according to rolling sequence.

《目的》

$$Max : N \quad (1)$$

$N$  : 装入スラブ本数

《制約条件》

(A) スラブは加熱炉内に配置されなければならない。

$$E_s(i) \subseteq E_f \quad (i = 1 \sim N) \quad (2)$$

$E_s(i)$  :  $i$  番目のスラブの占有する領域

$E_f$  : 加熱炉の占有する領域

(B) スラブは重複しないように配置しなければならない。

$$E_s(i) \cap E_s(j) = \phi \quad (i = 1 \sim N-1, j = i+1 \sim N) \quad (3)$$

(C) 搬送クレーン用の隙間として、加熱炉壁との間に一定以上の隙間が必要。

$$P_{w-s}(i) \in E_f \quad (i = 1 \sim N) \quad (4)$$

$P_{w-s}(i)$  :  $i$  番目のスラブと炉壁間に必要な隙間条件を満たす座標

(D) スラブの取り出しには、加熱炉内に停留しているスラブとの間に一定以上の隙間が必要。

$$P_{s-s}(i) = g(i, k) \quad (i = 1 \sim N-1, k = i+1 \sim N) \\ P_{s-s}(i) \not\subset E_s(k) \quad (5)$$

$k$  :  $i$  番目のスラブを取り出す時に加熱炉内に停留しているスラブの圧延順序

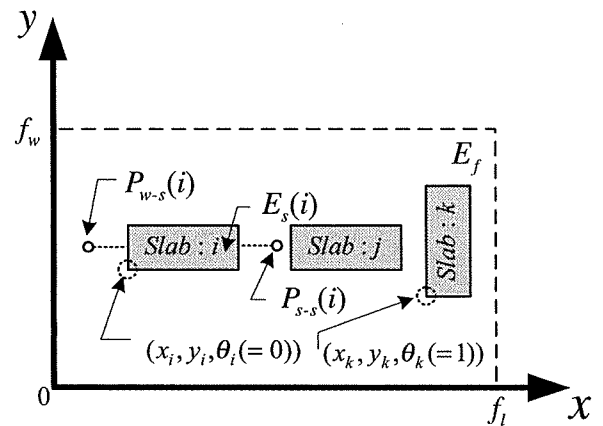


Fig. 5 Model of the slab arrangement problem.



$P_{s-s}(i)$  : 関数  $g$  により決まる, 取り出すスラブと停留スラブ間に必要な隙間条件を満たす座標

なお本論文では上述の制約条件について, 以下のように簡略化を行った。

(A) 加熱炉内でのスラブ配置は, 縦・横・斜めと自由度が大きい, 簡単化のため縦・横 ( $\theta = 0, 1$ ) の2通りに限定する。

(B) 搬送クレーンがスラブをつかむために必要な隙間は, スラブサイズと炉壁・隣接スラブとの高低差により 150~500mm 程度変化するが, 本論文ではすべて一定値とする。

## 4. 問題解決のアプローチ

### 4.1 最大装入本数決定手順

最大装入本数の決定手順として, Fig. 6 に示す段階的な方法を採用することとした。この方法では, 与えられた圧延順序で必ず装入可能な初期候補数から開始する。まず初期候補での装入可能な配置を探索し, 装入可能な配置が一つでも見つければ, 圧延順序を保ちながら候補数を増やし再度配置を探索する。そして装入不可能となる候補数までループ演算し, 最大装入可能本数を求める。また1ループでの配置探索に許容する時間は, 実用面を考慮して120秒までと制限し, 制限時間内で解を得られない場合は装入不可能と判断する。

### 4.2 制約論理プログラミングの適用

Fig. 7 に, 制約論理プログラミングの大きな特徴である制約伝播のイメージを示す。制約伝播とは, 解の探索過程で解候補となる変数の値の範囲と制約条件から, 他の変数の値の範囲を絞り込み, その影響でさらに他の変数の値の範囲を連鎖的に絞り込んでいくという技法である。本問題に対しては, 制約伝播を適用することで加熱

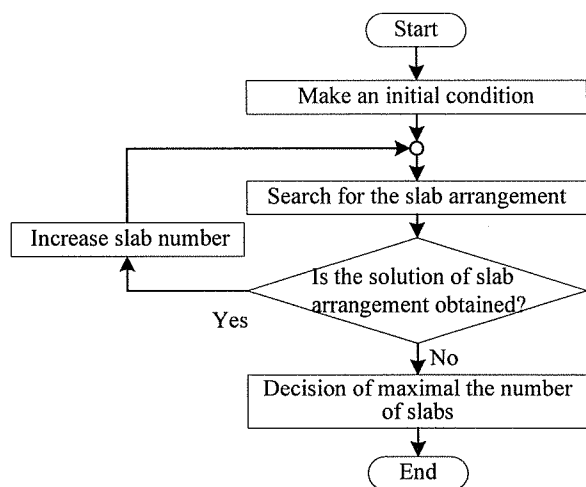


Fig. 6 Searching method of proposed optimal slab arrangement.

炉内のスラブ配置スペースに対し, 前述した制約を違反する配置場所をあらかじめ除外し, 制約を満足する配置場所のみ探索候補に絞り込むことができる。また探索途中においても, 配置探索中のスラブを各配置場所候補に配置した場合の影響を制約条件から計算し, 未装入スラブの配置場所候補を連鎖的に絞り込むことで, 効率良く配置探索を進めることができると考えられる。

CLP では制約伝播と分枝限定法を併用して効率よく解探索を行っていくが, 問題規模が大きくなるにつれて探索を必要とする解候補領域も増大し, 必ずしも実用的な時間内に解を得られない可能性がある。そこで, 解探索のさらなる効率化をはかるため以下のことを行った。

#### 4.2.1 冗長制約の追加

CLP では, 制約条件が多いほど制約伝播での解の絞り込みが有利となる。そこで, 既に存在している制約条件と同義の制約を, 表現のみ変えて追加することを考える。この冗長制約は, 基本的に既にある制約と同じ意味

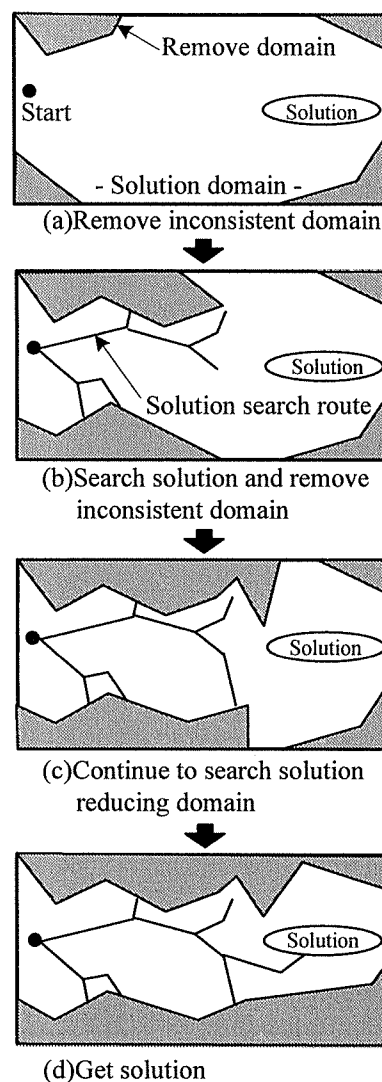


Fig. 7 Image of searching solution by the CLP method.

を持つことから、求まる解の質を変化させることはない。今回採用する冗長制約は次の通りである。

#### 《冗長制約》

Fig. 8 に示すように、2次元座標系で表現した加熱炉の幅（ $x$ 軸）・長さ（ $y$ 軸）方向の任意の法線上に存在するスラブの合計占有長は、それぞれ加熱炉の幅・長さを超えてはならない。

$$L_x(l) \leq f_w \quad (l = 0 \sim f_l) \quad (6)$$

$$L_y(m) \leq f_l \quad (m = 0 \sim f_w) \quad (7)$$

$L_x(l)$  :  $x = l$  法線上に存在するスラブの合計占有長

$L_y(m)$  :  $y = m$  法線上に存在するスラブの合計占有長

この制約は、先に説明した制約条件（2）式を含んでおり、（2）式の制約を満足すれば必ず（6）式、（7）式を満たすこととなる。

#### 4.2.2 解探索手順の調整

CLP による求解を行う場合、最も計算時間に影響を与えるのは解の探索方法である。CLP では、スラブの配置状態を示すパラメータ  $(x_i, y_i, \theta_i)_{i=1 \sim N}$  に各種制約条件を満足する値を割り当てながら、最大装入可能となる組合せを探索して行くため、配置パラメータの取り扱い方、値の割当て方で解探索効率が大きく変化する。そこで解探索の効率化をはかるため、以下のことを行った。

〈パラメータの取り扱い単位〉

スラブ配置に関する制約表現は、スラブ単位毎の制約となっているため、効率よく制約伝播を行えるように、制約表現と同様にパラメータの扱いもスラブ単位とし、制約を満足する配置（スラブ単位  $[x_i, y_i, \theta_i]_{i=1 \sim N}$  の配置可能な組合せ）のみを対象とする。

〈パラメータへの値の割当てルール〉

スラブ配置を表すパラメータへの値の割当てルールと

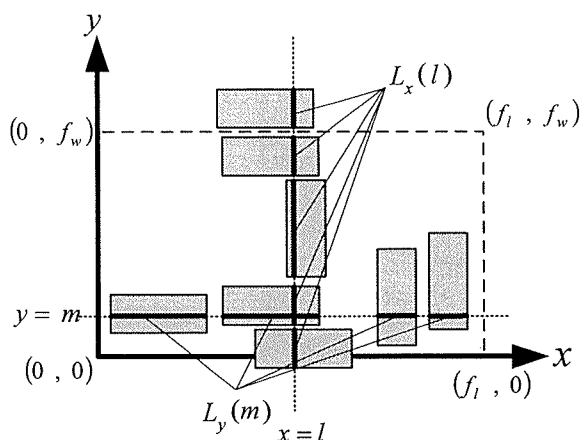


Fig. 8 Redundant constraint.

して、圧延順序の遅いスラブから順に加熱炉の片側から詰めるような配置を優先的に探索させることとした。これは圧延順序の逆順で各種制約条件を満足する配置を考えれば、圧延順序通りの取り出しも可能な配置となるため、取り出し順序に応じて動的に変化する制約を考慮するのに有利と考えられるためである。さらに加熱炉内で分散させて配置するよりも片側から詰めて配置して、次のスラブ配置のためのスペースを少しでも大きく残すことで、多くのスラブを装入できるという経験にもとづいた方法である。なお、ここでは探索の優先順を付加するだけであり、探索範囲を限定するわけではないため、全探索性を失うことはない。

#### 4.2.3 スラブのグルーピング

CLP は制約伝播と分枝限定法により、効率よく解探索を行うが、基本的には全探索をベースとしているため、解候補が多数存在すれば、一般に探索時間も多く必要となる。そのため、さらなる解探索の効率化には、解候補の厳選による探索領域の縮小が必要と考えられる。そこで、類似の配置が存在するケースに対して、類似配置を

Table 1 Data of model cases.

		case1	case2	case3
Furnace size (fl×fw)		30×28	29×20	30×24
Total slab quantity		20	14	17
Rolling sequence & slab content #1	①	S3 (8×4)	S3 (8×4)	S1 (10×4)
	②	S3 (8×4)	S3 (8×4)	S3 (8×4)
	③	S3 (8×4)	S3 (8×4)	S3 (8×4)
	④	S2 (9×4)	S3 (8×4)	S3 (8×4)
	⑤	S2 (9×4)	S1 (10×4)	S0 (12×4)
	⑥	S3 (8×4)	S1 (10×4)	S0 (12×4)
	⑦	S3 (8×4)	S1 (10×4)	S0 (12×4)
	⑧	S1 (10×4)	S1 (10×4)	S3 (8×4)
	⑨	S1 (10×4)	S1 (10×4)	S3 (8×4)
	⑩	S1 (10×4)	S1 (10×4)	S0 (12×4)
	⑪	S1 (10×4)	S1 (10×4)	S2 (9×4)
	⑫	S1 (10×4)	S1 (10×4)	S1 (10×4)
	⑬	S1 (10×4)	S1 (10×4)	S1 (10×4)
	⑭	S1 (10×4)	S1 (10×4)	S2 (9×4)
	⑮	S1 (10×4)	—	S2 (9×4)
	⑯	S1 (10×4)	—	S2 (9×4)
	⑰	S1 (10×4)	—	S2 (9×4)
	⑱	S1 (10×4)	—	—
	⑲	S1 (10×4)	—	—
	⑳	S1 (10×4)	—	—
Required space		1	1	1

※1 for example  
 S1 (10×4)  
 |  
 slab type ID      slab size

包括する代表的な配置のみを解候補とするための手段として、スラブのグルーピングを行うこととした。詳細は次章で説明する。

## 5. 数 値 計 算 例

### 5.1 パターン法と CLP との比較

数値計算例で用いる 3 種類のケースを Table 1 に示す。Table 1 の各ケースは、通常の操業でよく見られる代表的なケースであり、現実規模のスラブ本数を想定したものである。

本問題に対して、熟練者の配置方法をパターン化したもの（パターン法）を適用した場合と、CLP を適用した場合について Fig. 6 の装入本数決定手順により、初期装入候補数 ( $N = 1$ ) から最大装入本数を求めるまでを計算させ比較した。今回採用する配置パターンは、日々の操業において代表的な 2 種類の配置方法をパターン化したものである。

Table 1 に示す 3 ケースに対して、パターン法と CLP の適用結果の比較を Table 2 に示す。またパターン法による配置結果を Fig. 9, CLP による配置結果を Fig. 10 に示した。

パターン法による配置方法では、あらかじめ定められた手順通りにスラブを配置するため、短時間で比較的良好な解が得られる。しかし、Fig. 9 (a), (c) のように、装入するスラブサイズの傾向に合わせて配置をアレンジする柔軟性が無いため、必ずしも最大となる配置を求めることができない。

CLP による計算結果では、Table 2 で示されたように case1, case3 において、パターン法を上回る装入結果が得られた。しかし case3 では、16 本以上装入するケースでの解を求めることができず、制限時間一杯まで探索を継続するため求解に時間がかかる。一方 case2 では、計算時間、装入本数ともにパターン法を下回る結果となった。この探索では、case2 で必要とされる、横置きスラブ間の隙間を利用する特殊な配置まで、制限時間内に探索が及ばないことが原因と考えられる。

### 5.2 グルーピングによる求解時間短縮

実用的な時間内で、最大数のスラブを装入可能とする配置を得るためには、探索が必要となる解候補領域を厳選し、より早く目的の解にたどり着く必要がある。その対策として、解候補の中から対称性のある類似配置を取り除くことが考えられる。たとえば、圧延順序が連続する同サイズのスラブが存在する場合には、これらの配置を入れ替えても見かけ上は同じ配置となる。したがって、このような対称性のある類似配置は、その中の代表的な配置のみを探索対象とし、余分な探索を回避することが必要である。配置の対称性を取り除くには、色々な方法が考えられるが、本論文では、圧延順序が近い同サイズのスラブを一つのグループと見なし、対称性のある類似配置の発生を抑えることとした。またグルーピングを行うことで、見かけ上配置を決定すべきスラブ本数を減らすことができ、最終的に探索すべき解候補領域の縮小にも期待ができる。

このグルーピングでは、パターン法による配置結果の考察から、圧延順序の早いスラブは適用除外とする。こ

Table 2 Comparison between the pattern method and the CLP method.

	Pattern method			CLP		
	case1	case2	case3	case1	case2	case3
Charge quantity	19	14	14	20	12	15
Calculation time	less than 1[s]	less than 1[s]	less than 1[s]	less than 1[s]	120[s]	120[s]

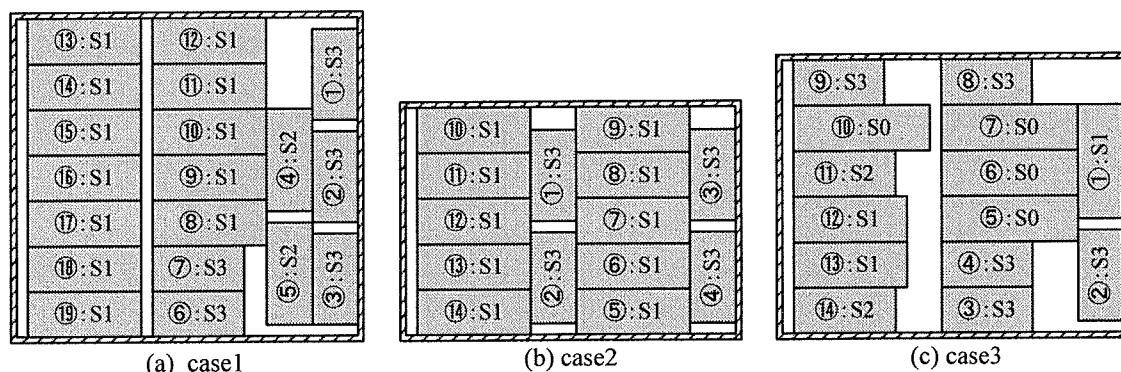


Fig. 9 Solutions of slab arrangement by the pattern method.

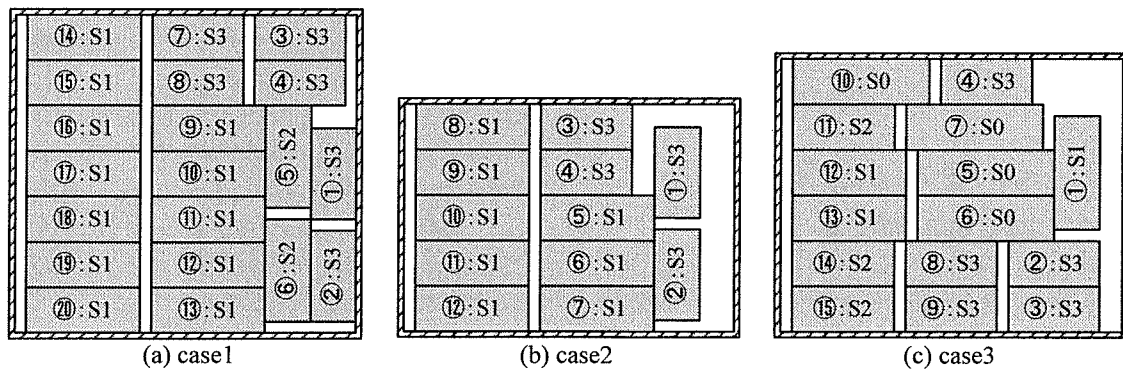


Fig. 10 Solutions of slab arrangement by the CLP method.

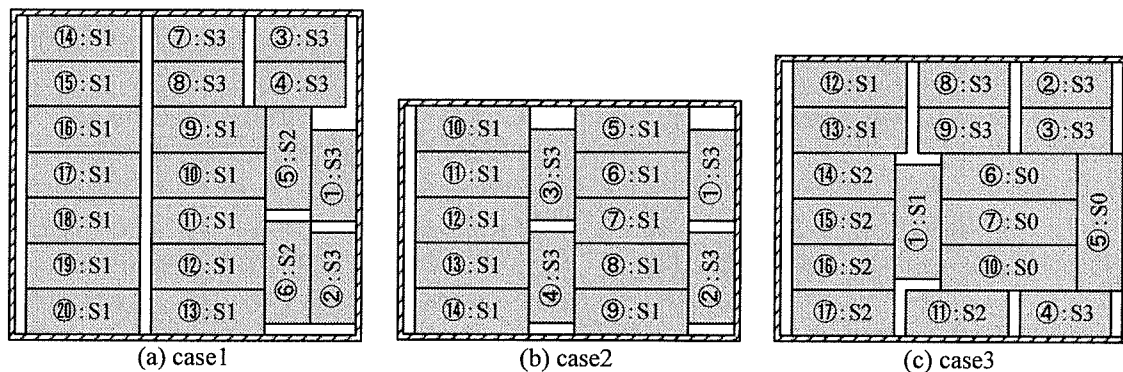


Fig. 11 Solutions of slab arrangement by the Grouping+CLP method.

Table 3 Result of the Grouping+CLP method.

	Grouping+CLP		
	case1	case2	case3
Charge quantity	20	14	17
Calculation time	less than 1[s]	less than 1[s]	90[s]

れは、圧延順序の早いスラブは、加熱炉からの取り出しタイミングも早く、他スラブの配置に及ぼす影響が小さいためである。このようなスラブは、配置の自由度が大きく取れるため、その自由度を最大限活かすことが、多くのスラブを加熱炉へ装入する上で重要となる。また、あまりにも多くのスラブを一つのグループとして扱ってしまうと、問題規模は縮小するが、スラブ配置の自由度が減少するという危険性がある。そのため予備実験の結果、最大で3本までを一つのグループとして見なすこととした。グルーピングを併用したCLPを適用し、Fig. 6の装入本数決定手順により最大装入本数を求めた結果をTable 3及びFig. 11に示す。グルーピングを併用することで、case2では装入本数、計算時間とも改善されパターン法と同等な結果を得ることができた。また、case3では、若干の計算時間を要するものの、CLPやパ

ターン法では得られなかった最大装入解も得ることが出来る。これは主に、グルーピングを併用することで、短時間により広範囲な探索を実現できたためと考えられる。

## 6. 結 言

本論文では、アルミニウム熱間圧延工程における加熱炉へのスラブ装入問題に対してCLPを適用する方法について検討した。本問題は、一般的な配置制約に加え圧延順序や隙間の制約等があり、スラブの取り出しタイミングとなる圧延順序により隙間制約が動的に変化していく非常に複雑な問題である。また装入対象となるスラブ本数が増加していくと、組合せ規模が指数関数的に増加していくため、実用的な時間内での求解が困難であった。そのため、CLPを適用するにあたり冗長制約の導入や解探索順序の調整、さらにグルーピングの併用を行うことで、効率的な探索を行う方法を提案した。

今後の課題としては、より複雑なケースや、簡略化を行わない場合についての適用可能性を追求していくとともに、CLPの求解効率向上に有効な新たな方策についても検討を進めていきたいと考えている。

なお、本研究の一部は、人工知能研究振興財団の援助を受けて行われたことを付記し、感謝の意を表します。

## 参 考 文 献

- 1) 上野信行：システム制御情報学会誌, **37** (1993), 237.
- 2) 谷 茂：オペレーションズ・リサーチ, **43** (1998), 598.
- 3) 田地宏一, 原田貴子, 田村担之, 高柳仁史, 岡村義英, 星野郁弥：第 44 回システム制御情報学会 研究発表講演会 講演論文集, (2000), 367.
- 4) 淵一 博, 溝口文雄, 古川康一, J-L.Lassez：制約論理プログラミング, 共立出版, (1989) .
- 5) 羽島彰一, 降旗勝男：オペレーションズ・リサーチ, **42** (1997), 317.

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 90-94

論 文

給湯器用熱交換器銅管に発生する孔食とその対策\*

鈴木 忍\*\* 渥美 哲郎\*\*  
山田 豊\*\*\* 河野 浩三\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 90-94

Pitting Corrosion and Its Prevention of  
Copper Heat Exchanger Tubes for Water Heater

Shinobu Suzuki, Tetsuro Atsumi,  
Yutaka Yamada and Kozo Kawano

## 論文

# 給湯器用熱交換器銅管に発生する孔食とその対策\*

鈴木 忍\*\* 渥美 哲郎\*\*  
山田 豊\*\*\* 河野 浩三\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 90-94

## Pitting Corrosion and Its Prevention of Copper Heat Exchanger Tubes for Water Heater

Shinobu Suzuki, Tetsuro Atsumi,  
Yutaka Yamada and Kozo Kawano

Copper heat exchanger tubes in water heater have been similarly suffering from type I' pitting corrosion, which have been experienced in the pass-through soft copper plumbing tubes, under well water. Classification analysis for corrosion troubles of copper heat exchanger tubes for water heater revealed that type I' pitting corrosion had been restrictedly occurred at the water inlet tube and the coiled tube, which were usually in the cold conditions.

To solve this problem, the performance of 4 type heat exchangers was investigated by field test under well water. Pitting corrosion resistance of the heat exchanger manufactured using tin coated copper tube was very poor because the tin layer on the inner surface had changed to nonhomogenous Cu-Sn alloy layer by interdiffusion during brazing in furnace. The heat exchanger manufactured using Cu-Sn alloy tube of which Sn content was 0.2% or less, also showed unsatisfactory performance compared with that made of copper tube because of non-formation of stable tin oxide on the inner surface of tube. The heat exchanger with copper tubes treated by tin coating after manufacturing showed the excellent resistance against pitting corrosion due to the stable tin oxide formation on the tin coating surface. The experiences of this type of heat exchanger have been satisfactory over 8 years service without type I' pitting corrosion under well water.

### 1. はじめに

ガスおよび石油給湯器用の熱交換器（以後、熱交と略す）の配管には、優れた加工性、伝熱性からリン脱酸銅管（JIS H3300 C1220、以下銅管と記す）が使用されている。しかし、使用環境によっては、稀に銅管の腐食によって漏洩事故が発生する場合がある。

次項に示す熱交用銅管（以後、熱交銅管と略す）の漏洩事故発生状況では、疲労割れに次いで、孔食による漏洩事故が多く、特に地下水（地下水を水源に使用した上

水を含む）使用時に発生している。その対策として銅管内面にスズ被覆処理を施した熱交が既に実用化され、孔食発生地域にて8年以上にわたり良好に使用され続けている。

本研究では、地下水を用いた場合に熱交銅管にしばしば経験される孔食の発生状況を調査するとともに、各種銅系材料ならびに内面スズ被覆処理材を用いて通水試験を行い、耐孔食性を調査した。

### 2. 事例調査

1991年から2001年までの11年間に著者らが調査した熱交銅管の漏洩事故発生状況をFig.1に示す。孔食による漏洩事故は全体の25%と多く、この孔食による漏洩事故18件中、17件が地下水使用時に発生したもの

\* 第48回材料と環境討論会、伸銅技術研究会第41回講演会にて主要部を発表、銅と銅合金、41 (2002), 148に掲載

\*\* 研究開発センター 第四部

\*\*\* 研究開発センター 第四部、工学博士

であった。Fig. 2 に熱交銅管各部の名称を、Table 1 に熱交銅管各部の孔食による漏洩事故発生件数を示す。17 件の漏洩事故は、入水パイプ（1 件）、巻水パイプ（16 件）のみに発生していた。漏洩事故が発生した熱交に使用された地下水では、Ca 硬度が 50ppm 以上、M アルカリ度が 50ppm 以上、 $\text{HCO}_3^-$  が 65ppm 以上であり、その他の特徴として遊離炭酸が 15ppm 以上と多く含まれていた。孔食が発生した熱交銅管の内面には、管全面に緑青色のスケールが生成し、局所的に緑青色マウンドが観察された。孔食はこのマウンドの下に成長し、調査した熱交のほとんどが 1.5 年未満の使用期間で漏洩していた。腐食生成物は、主に塩基性炭酸銅、亜酸化銅で、塩基性硫酸銅や塩基性塩化銅が検出される場合もあった。

### 3. 実験方法

#### 3.1 供試材

Table 2 に示す各種仕様の熱交を供試材として通水試験を実施した。Fig. 3 に供試材の作製工程を示す。供試材は、加工油を使用して各種の銅管を曲げ加工し組み立てを行い、炉中ろう付（燃焼ガス雰囲気、予・加熱（800℃）×0.5h、冷却×0.5h、BCuP2 使用）をして作製

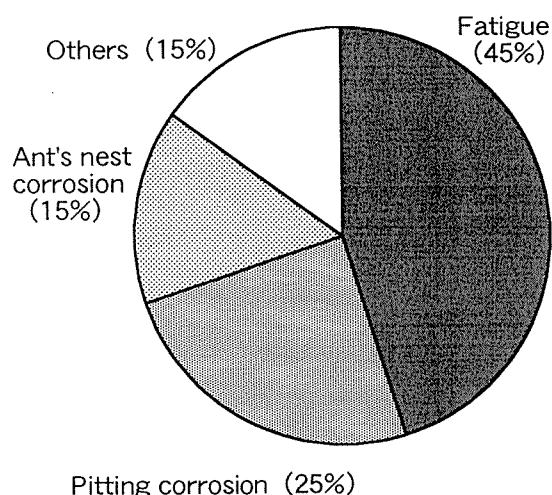


Fig. 1 Classification of failures for copper heat exchanger tubes of water heater.

Table 1 Analysis of the pitting corrosion troubles for copper heat exchanger tubes of water heater.

Copper heat exchanger tubes	Case of the pitting corrosion
Water inlet tube	1
Coiled tube	16
Copper finned tube	0
Hot water outlet tube	0

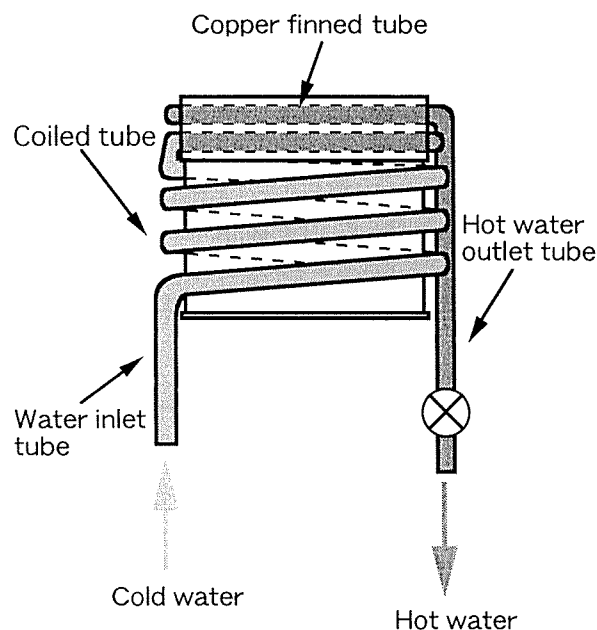


Fig. 2 Details of copper heat exchanger tubes of water heater.

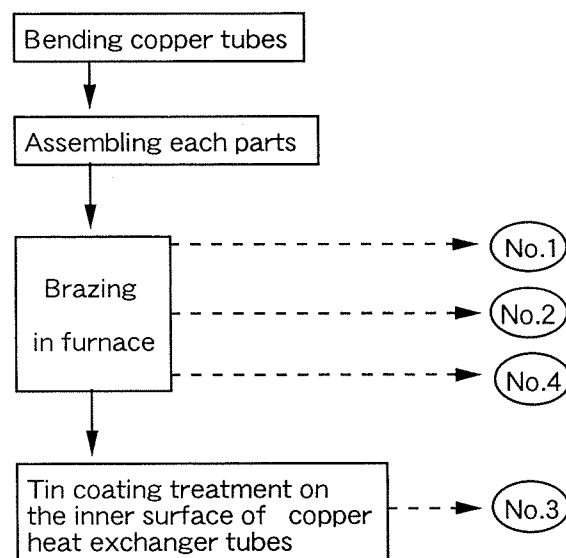


Fig. 3 Manufacturing process of test heat exchangers.

Table 2 Test heat exchangers.

No. 1	Heat exchanger manufactured using tin coated copper tube
No. 2	Heat exchanger manufactured using Cu-Sn alloy tube
No. 3	Heat exchanger with copper tubes treated by tin coating after manufacturing
No. 4	Heat exchanger manufactured using copper tube (Control)



した。No.1 熱交には内面スズ被覆銅管を、No.2 熱交には市販の Cu-Sn 合金管を用いた。また、No.3 および No.4 熱交には銅管を使用し、No.3 熱交は熱交組立て後に銅管内面にスズ被覆処理を施した。管寸法はいずれも外径 14mm、肉厚 0.6mm とした。

### 3.2 試験条件

通水試験は、No.1~4 の供試材を直列に接続し、これに、4 回/日、6 時間毎に地下水を 0.05m<sup>3</sup> 通水して行った。通水時以外は供試材管内に試験水を滞留させた。Table 3 に使用した地下水の水質分析結果を示す。なお、水温は 288±3K であった。

### 3.3 調査項目

通水試験開始 4 ヶ月後、8 ヶ月後の熱交銅管の管内面、および断面状況を観察して腐食発生状況を調査した。なお、腐食状況の調査は、各熱交銅管ともに事例調査において最も孔食による漏洩事故件数が多かった巻水パイプを対象とした。

Table 3 Typical analysis of test water.

pH	6.5
Conductivity (μS/cm)	343
Total hardness (CaCO <sub>3</sub> ppm)	98
Ca hardness (CaCO <sub>3</sub> ppm)	69
M alkalinity (CaCO <sub>3</sub> ppm)	29
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (ppm)	34
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (ppm)	35
Cl <sup>-</sup> (ppm)	24
Free carbon dioxide (ppm)	20

## 4. 実験結果

Fig. 4 に各試験期間終了後の供試材の管内面および断面状況を示す。内面スズ被覆銅管を炉中ろう付処理した No.1 熱交の管内面には、試験期間 4 ヶ月で緑青色のスケールが全面に見られた。局所的に緑青色マウンドも観察され、このマウンドの一部に肉厚を貫通する孔食が確認された。市販の Cu-Sn 合金管を用いた No.2 熱交および銅管製の No.4 熱交では、試験期間 4 ヶ月の場合には緑青色のスケールがわずかに確認されるのみであったが、試験開始 8 ヶ月後にはほぼ全面に緑青色のスケールが生成し、散見される緑青色マウンドの下部に孔食が確認された。熱交作製後の銅管内面にスズ被覆処理を施した No.3 熱交の管内面には、試験開始 8 ヶ月後においても緑青色のスケールおよび緑青色マウンドの生成は全くなく、孔食は確認されなかった。

Fig. 5 に各供試材の最大孔食深さを示す。No.1 熱交は試験期間 4 ヶ月で最大深さ 0.6mm（肉厚貫通）の孔食が、No.2 熱交、No.4 熱交には試験開始 8 ヶ月後にそれぞれ、最大で深さ 0.2mm、0.1mm の孔食が確認された。一方、No.3 熱交では試験期間 8 ヶ月後でも全く孔食発生は認められなかった。

## 5. 考 察

### 5.1 地下水使用時の熱交銅管に発生する孔食

事例調査における水質の特徴から、地下水使用時に発生する熱交銅管の孔食は、同様の環境で一過式の給水・給湯用銅配管に経験される I' 型（冷水型）孔食と同一と判断された<sup>1)</sup>。I' 型孔食は銅管内面に付着したカーボン皮膜量が 5mg/m<sup>2</sup> 以上の場合に生じやすいとされ

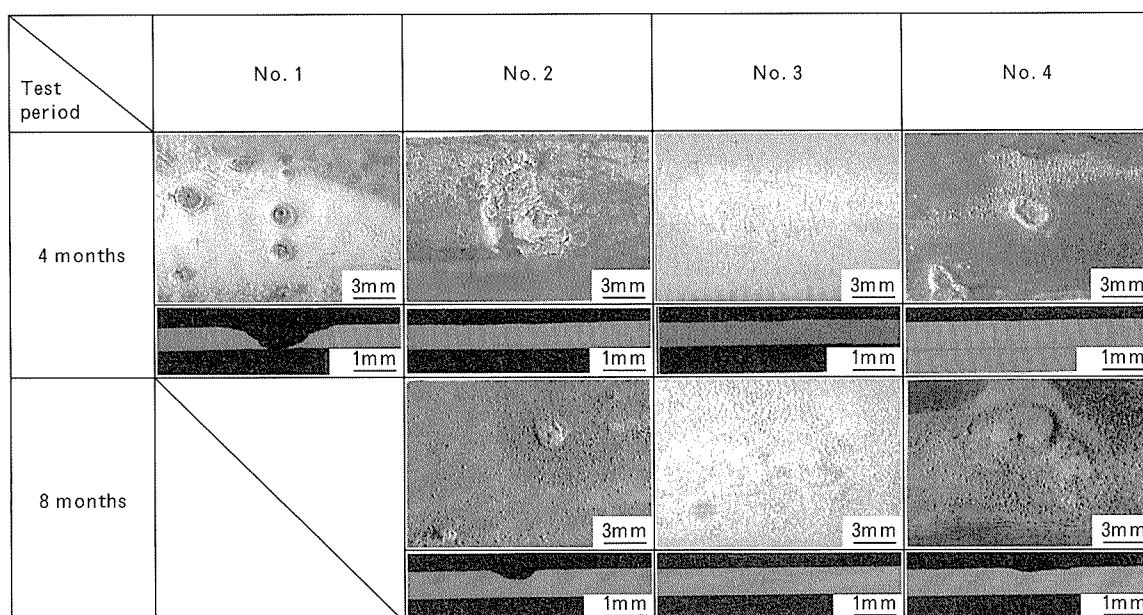


Fig. 4 Appearance of the inner surface and the cross section of test heat exchanger tubes tested for 4 and 8 months.

ている<sup>1)</sup>。ただし、熱交銅管では、製造時に生成した原管のカーボン皮膜に加え、曲げ加工の際の残油が炉中ろう付時の加熱によってカーボン皮膜となるため、孔食の発生がさらに助長されるものと考えられた。発生位置は入水パイプおよび巻水パイプに限定され、熱交パイプ、出湯パイプでは発生していない。上記の通り I' 型孔食は水中の遊離炭酸と銅管内面のカーボン皮膜の作用によって発生する。熱交パイプおよび出湯パイプのカーボン皮膜量は孔食が発生した入水パイプ、巻水パイプと同等以上であるが、事例調査の結果によれば熱交パイプ、出湯パイプの管内面には遊離炭酸に起因する緑青色のスケール（塩基性炭酸銅）はほとんど認められなかった。これらのことから、熱交パイプ、出湯パイプ内では、導入された地下水の遊離炭酸が給湯器使用時の加熱によって分解されるため、孔食の発生が抑制されたものと推察され、さらに熱交パイプ内に装着された乱流板によって流水に乱れが生じるために銅管内表面近傍の水質が均一化されることで孔食の発生を抑制していることが考えられるが未だ明確でない。

## 5.2 銅系材料の耐孔食性

Fig. 6 に内面スズ被覆銅管を炉中ろう付処理した No.1 熱交の試験前の管内面 SEM 像を示す。No.1 熱交の管内面は不均質で、晶出物とみなされる粒子（一例を Fig. 6 の矢印にて示す）が散見された。EPMA 点分析の結果、この晶出物の Sn 濃度は 33% で、その周囲の 8% より高かった。ここで、この内面状態における腐食状況を調査するために酸性銅エッチング液中での腐食状況を調査した。Fig. 7 にエッチング液浸せき前後の同一位置の SEM 像を示す。浸せき前では晶出物および粒界が明確に観察された。一方、浸せき後には晶出物は確認されたが、粒界の観察は困難であった。これは、晶出物が

カソードとなって周囲が優先的に侵食されたためと考える。これらのことから、No.1 熱交では、炉中ろう付の加熱の際に管内面に被覆されたスズ皮膜の Sn と母材の

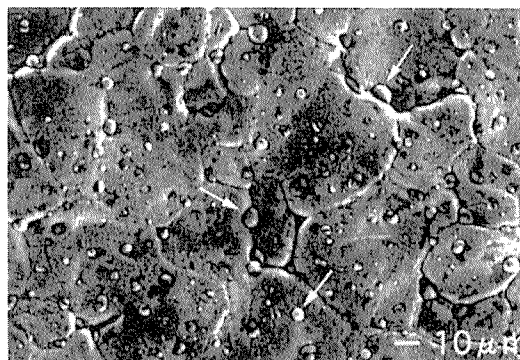


Fig. 6 SEM micrographs of the inner surface in No.1 heat exchanger tube before test.

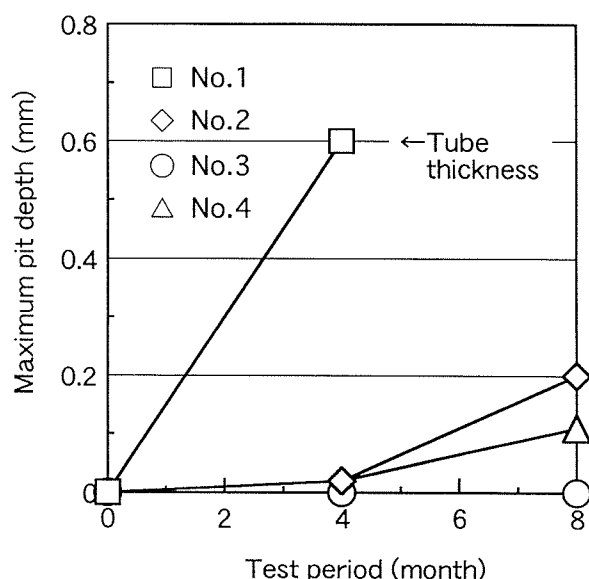


Fig. 5 Variation of maximum pit depth of test heat exchanger tubes.

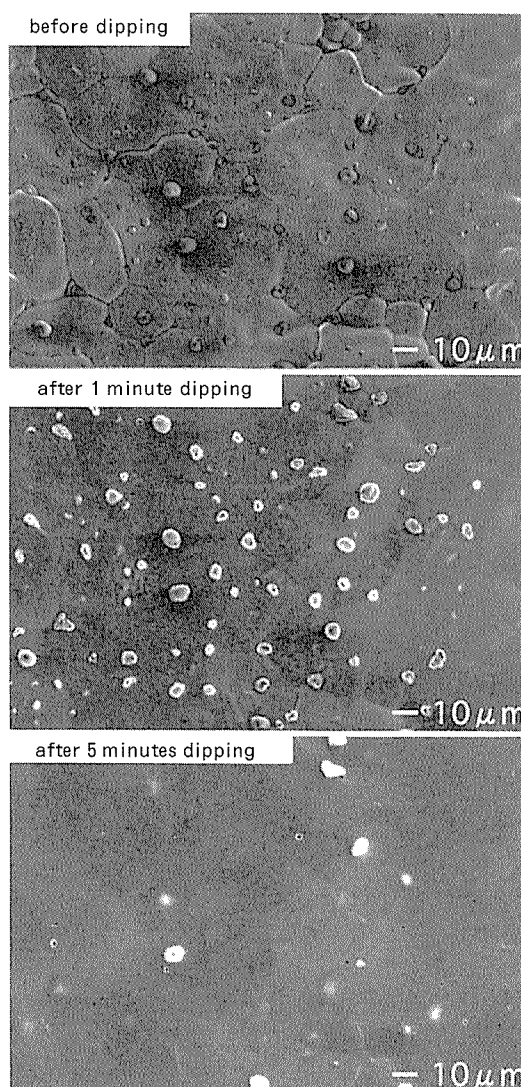


Fig. 7 SEM micrographs of the inner surface in No.1 heat exchanger tube after dipping in etching solution.

Cu との相互拡散が生じ、Cu-Sn 合金層と局部的に組成の異なる晶出物が形成され、この晶出物がカソードとして作用するために孔食が顕著に進行したものと推察した。

Cu-Sn 合金管では、一般に使用中の管内表層にスズ酸化物 ( $\text{SnO}_2$ ) が形成されることで耐食性が向上し、 $\text{SnO}_2$  を形成させるために必要な Sn 濃度は 1% 以上とされている<sup>2)</sup>。しかしながら、今回使用した市販の Cu-Sn 合金管の Sn 濃度は 0.2% 程度と低く、Fig. 8 に示した試験期間 4 ヶ月供試材の断面の EPMA 面分析結果では管内表層に Sn の濃縮層は認められないため  $\text{SnO}_2$  は形成されていないものとみなされた。このことが市販の Cu-Sn 合金管を用いた No.2 熱交に十分な耐孔食性が得られなかった要因と考えられた。

一方、熱交作製後の銅管内面にスズ被覆処理を施した No.3 熱交では、試験後の管内面に安定な  $\text{SnO}_2$  が X 線回折で確認され、これにより良好な耐孔食性が保持されたものと考えられた。

## 6. 結 言

地下水使用時の給湯器用熱交換器に使用された銅管にしばしば経験される孔食の発生状況を調べ、各種銅系材料を用いた熱交換器による通水試験によって耐孔食性を調査し、以下の結論を得た。

(1) 地下水使用時に給湯器用熱交換器に使用された銅管に経験される孔食は、給水・給湯用銅配管に生じる孔食と同様の I 型 (冷水型) 孔食であり、特に遊離炭酸が 15ppm 以上と多い水質の場合に発生した。その発生位置は、孔食発生傾向を示す水質が維持される入水パイプと、この水質の特徴に加えて管内のカーボン皮膜の多い巻水パイプのみに限定された。

(2) 内面スズ被覆銅管を炉中ろう付処理した熱交換器、市販の Cu-Sn 合金管を用いた熱交換器では銅管製熱交より耐孔食性が低下した。前者は熱交組立時の炉中ろう付時に、管内面に Sn 濃度の不均質な Cu-Sn 合金層が形成され、これによって耐孔食性が低下するものと推察された。また、後者の場合には含有する Sn 濃度が低いた

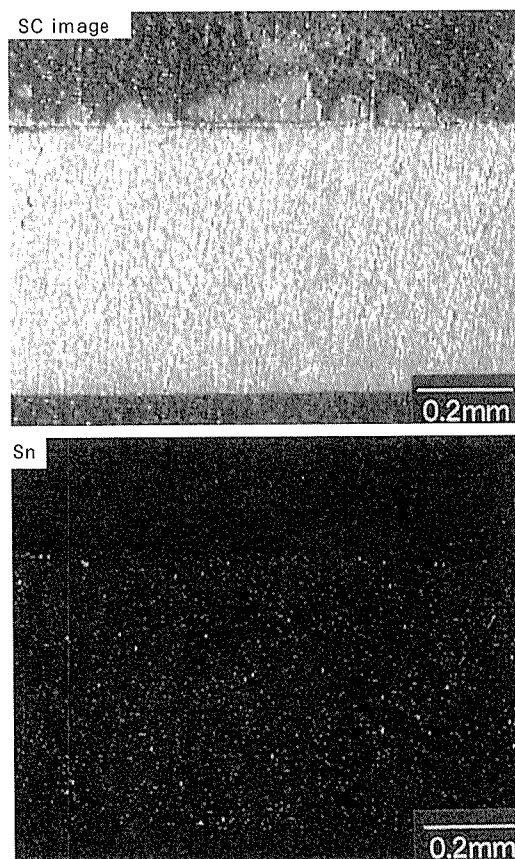


Fig. 8 Result of EPMA mapping analysis for Sn.

めに十分な耐孔食性が得られなかったものとする。

(3) 炉中ろう付後の銅管内面にスズ被覆処理を施した熱交換器では良好な耐孔食性が示された。これは、使用中の管内面に安定な  $\text{SnO}_2$  が形成されるためと考えられた。

## 参 考 文 献

- 1) 山田 豊, 河野浩三, 鈴木 忍, 渥美哲郎: 材料と環境, 48 (1999), 647.
- 2) 浜元隆夫, 熊谷正樹: 本誌, 29 (1988), 175.

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 95-99

論 文

## 電気伝導度を用いた銅管孔食ハザードマップの作成\*

山 田 豊\*\* 境 昌 宏\*\*\*  
世 利 修 美\*\*\* 荒 川 昌 伸\*\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 95-99

## Hazard Mapping for Pitting Corrosion of Copper Tube by Using Electric Conductivity

Yutaka Yamada, Masahiro Sakai,  
Osami Seri and Masanobu Arakawa

## 電気伝導度を用いた銅管孔食ハザードマップの作成\*

山 田 豊\*\* 境 昌 宏\*\*\*  
世 利 修 美\*\*\* 荒 川 昌 伸\*\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 95-99

# Hazard Mapping for Pitting Corrosion of Copper Tube by Using Electric Conductivity

Yutaka Yamada, Masahiro Sakai,  
Osami Seri and Masanobu Arakawa

The quality of tap water in West-Iburi district (the southern part of Hokkaido) where the moundless pitting has frequently occurred has been investigated. It is found that the electric conductivity of tap water in the pitting area is strongly correlated with total hardness,  $\text{SO}_4^{2-}$  and residuals. The electric conductivity in the pitting area shows a high value in winter and a low value in summer. We propose that the electric conductivity in winter will be utilized for an estimation of the pitting occurrence rate. A hazard map for the pitting corrosion of copper tube was drawn using electric conductivity measurement.

### 1. 緒 言

銅管は施工性や耐食性に優れていることから建築用の配管材料として広く使用されている。その普及に伴い配管および給湯機用熱交換器に使用されている銅管に稀に孔食による漏洩事故を経験することがある<sup>1)~4)</sup>。孔食の発生には水質が関連することが指摘されている。一般に銅管の孔食は、(1)遊離炭酸が多くpHが低い地下水を使用した環境で生じるI型孔食、(2) $\text{SO}_4^{2-}/\text{HCO}_3^-$ 比が高い環境の水を使用した場合に発生しやすいII型孔食、(3)硫酸イオンおよび溶解性シリカ濃度が高く、源水に温泉水や鉱泉水が混合する水質環境で発生しやすいマウンドレス型孔食、に分類される<sup>5)</sup>。

本報では(3)のマウンドレス型孔食の多発地域として知られる北海道西胆振地区の登別市・室蘭市を取り上げて、河川水を取水源とする各浄水場系統の水質調査をおこなった。そして、孔食発生地区、非発生地区の水質

を比較することにより、銅管孔食対策マップ（以後、ハザードマップと呼ぶ）の作成を試みた。

### 2. 調 査 方 法

室蘭市および登別市の上水は主に千歳浄水場、幌別浄水場、登別温泉浄水場の3系統により供給されている。各系統から配水されている水について、pH、電気伝導度、Mアルカリ度、全硬度、Ca硬度、 $\text{HCO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、全シリカ、 $\text{Cl}^-$ 、Feおよび蒸発残留物の11項目の分析を行い、その経年変化や水系ごとの差異ならびに孔食発生の指標となる水質項目を調査した。なお、水質分析はJIS K0101工業用水試験法に準拠し、一部、イオンクロマトグラフ法も用いた。そして、水質分析結果から選定した孔食発生の指標となる水質項目と、当該市の孔食による漏洩事故発生状況の調査結果から、登別市・室蘭市のハザードマップを作成をした。

### 3. 結果および考察

#### 3.1 水質分析結果

1998年1月から1999年9月までの21カ月間の水質分析結果平均値をTable 1に示す。水質項目のうち、電気

\* 平成13年度空調和・衛生工学会学術講演会（京都、2001年）で主要部を発表、材料と環境、51（2002）、227に主要部掲載

\*\* 研究開発センター 第四部、工学博士

\*\*\* 室蘭工業大学、工学博士

\*\*\*\* (株) 荒川設備

伝導度, 全硬度, Ca 硬度, 硫酸イオンおよび蒸発残留物で千歳浄水場の方が幌別浄水場および登別温泉浄水場よりも高い値を示し, その他はほぼ同等であった。差異が見られた水質項目の数値は千歳浄水場が電気伝導度 15mS/m, 全硬度 45CaCO<sub>3</sub>mg/ℓ, Ca 硬度 38CaCO<sub>3</sub>mg/ℓ, 硫酸イオン 42mg/ℓ および蒸発残留物 115mg/ℓ であり, 幌別浄水場と登別温泉浄水場はほぼ同値で, 電気伝導度 8mS/m, 全硬度 22CaCO<sub>3</sub>mg/ℓ, Ca 硬度 17CaCO<sub>3</sub>mg/ℓ, 硫酸イオン 9mg/ℓ および蒸発残留物 78mg/ℓ と千歳浄水場の方が 2~4 倍高かった。

全硬度, Ca 硬度, 硫酸イオンおよび蒸発残留物は電気伝導度の変化に影響を及ぼす因子であることから, 3.2 でも述べるが年間の電気伝導度変化が大きかった千歳浄水場の水について, 電気伝導度との関係で相関を調べた結果を Fig. 1 に示す。なお, Ca 硬度については, 全硬度 (Ca 硬度と Mg 硬度の和) と連動することから省いた。電気伝導度と全硬度, 電気伝導度と硫酸イオン, および電気伝導度と蒸発残留物にそれぞれ相関係数は各々  $r=0.92, 0.88, 0.84$  と高い正の相関関係があることが分かった。すなわち, 千歳浄水場の電気伝導度の変化は水中の全硬度, Ca 硬度, 硫酸イオンおよび蒸発残留物の変化に依存しているものと考えられた。

### 3.2 水質指標項目の調査結果

水質分析結果から電気伝導度, 硫酸イオン, 全硬度および蒸発残留物が西胆振地区の水系を区分する上で有用な水質指標になるものと考えられた。この中で, 水質成分の変化が推定でき, かつ容易に測定可能な電気伝導度を水質指標として用いることにした。各水系の 1998 年 1 月から 1999 年 9 月までの電気伝導度の経時変化を Fig. 2 に示す。幌別浄水場, 登別温泉浄水場は年間を通じて 7~9mS/m であり, 顕著な季節変動は認められない。一方, 孔食発生頻度の高い千歳浄水場の電気伝導度は, 冬期間には 15~19mS/m, 夏期前後には 10mS/m

の値を示し, 季節変動の大きいことが分かった。

1989 年 1 月から 1994 年 2 月までの約 5 年間の月別電気伝導度と降雨量の関係を調べた結果を Fig. 3 に示す。

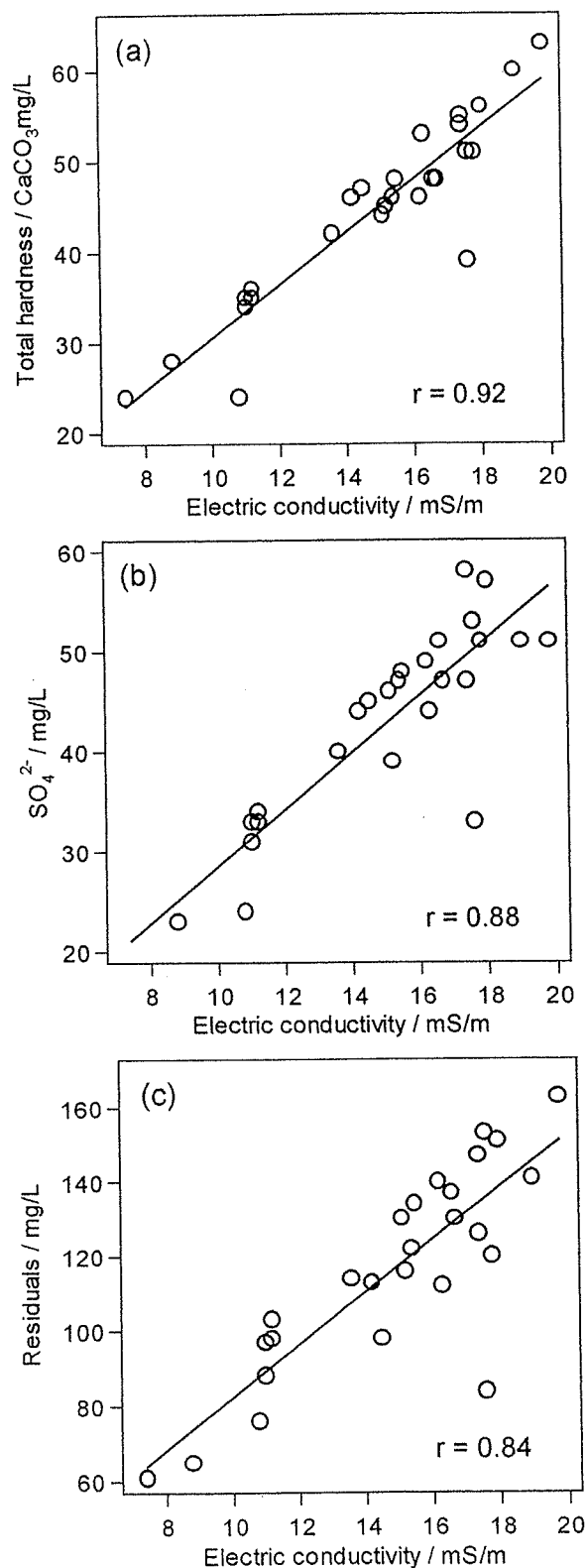


Fig. 1 Relationships between electric conductivity and ; (a) Total hardness, (b) SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>, (c) Residuals.  $r$  ; correlation coefficient.

Table 1 Chemical compositions of tap water supplied by Chitose, Horobetsu and Noboribetsu-osen water treatment plants.

	Chitose	Horobetsu	Noboribetsu -Onsen
pH(25°C)	7.0	7.2	7.1
Conductivity (mS/m)	14.8	8.3	7.6
M-alkalinity (CaCO <sub>3</sub> mg/L)	10	17	15
Total hardness (CaCO <sub>3</sub> mg/L)	45	22	21
Ca hardness (CaCO <sub>3</sub> mg/L)	38	17	16
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (mg/L)	12	21	18
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (mg/L)	42	8	10
Total SiO <sub>2</sub> (mg/L)	31	33	41
Cl <sup>-</sup> (mg/L)	8	8	6
Total Fe (mg/L)	<0.1	<0.1	<0.1
Residuals (mg/L)	115	76	79

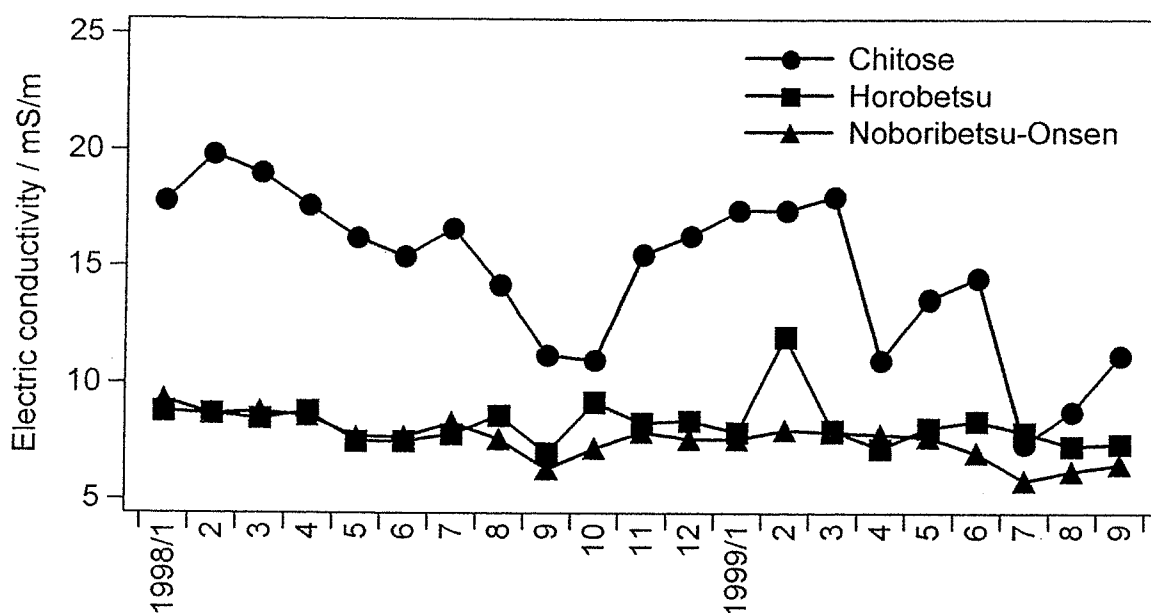


Fig. 2 Changes of electric conductivity of tap water.

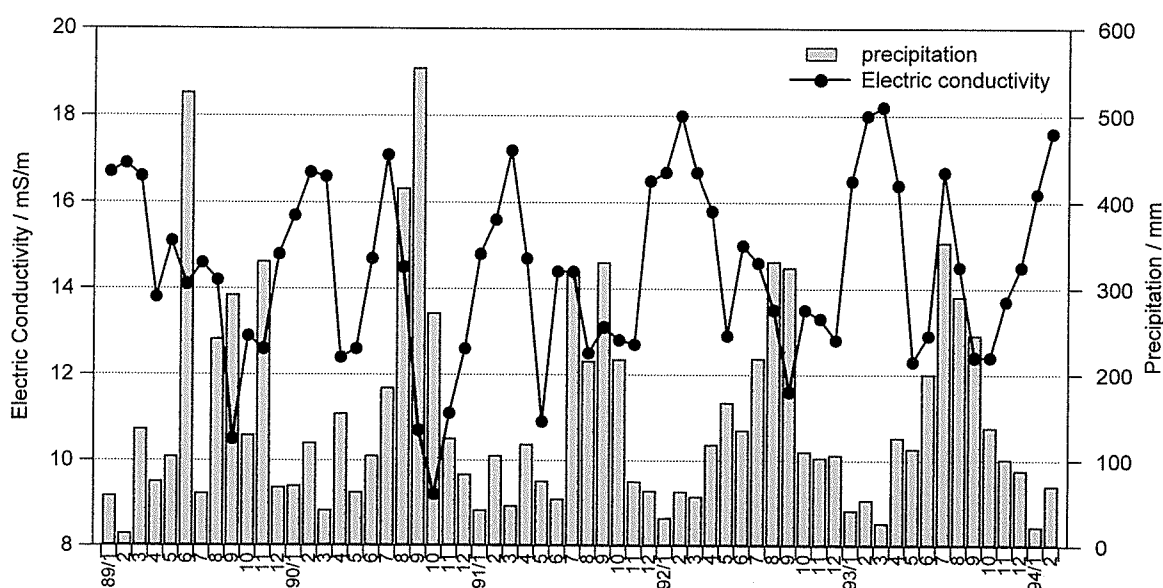


Fig. 3 Changes of precipitation and electric conductivity of tap water supplied by Chitose water treatment plant.

積雪により河川の水位が減少する冬期間（12～3月）に電気伝導度が増加し、4月の雪解けによる増水時期や夏前後の降雨量の増加時期に電気伝導度が低下する傾向があることが分かった。3.1より電気伝導度と硫酸イオンとは強い正の相関関係があることから、冬期間は、銅管の腐食に影響を及ぼすと言われている硫酸イオン濃度<sup>6)</sup>の高い水が供給されている時期と考えられた。以上の結果から、本地区の水質を区分する指標として、千歳浄水場と他の浄水場とで顕著な差がみられる冬期間の電気伝導度を採用することとした。

登別市と室蘭市の一部の地域における戸建住宅の水道水の電気伝導度を41地点で測定し、地図上にプロット

した結果をFig. 4に示す。測定は千歳浄水場と他の浄水場との電気伝導度の差が最も大きい冬期間に行った。このマップで水系ごとの電気伝導度の大小の区分が明瞭に把握することができた。

#### 4. ハザードマップの作成

北海道は従来から孔食発生の多い地域として知られている。しかし、腐食に関する情報があるにもかかわらず十分な整理・周知がなされていない。このため、漏洩事故に対しては、実際に事故が発生してからの修理、交換といった事後対策しかとられていないのが実状がある。

そこで、マウンドレス型孔食の多発している西胆振地区をとりあげ、過去の孔食漏水事故の記録を地図上にプロットし、孔食発生状況をまとめた結果を Fig. 5 に示す。

なお、西胆振地区は浄水場系列ごとに区分してある。この結果、電気伝導度が  $14\text{mS/m}$  以上の地域は千歳浄水場系列とほぼ一致していることが分かった。幌別浄水場、

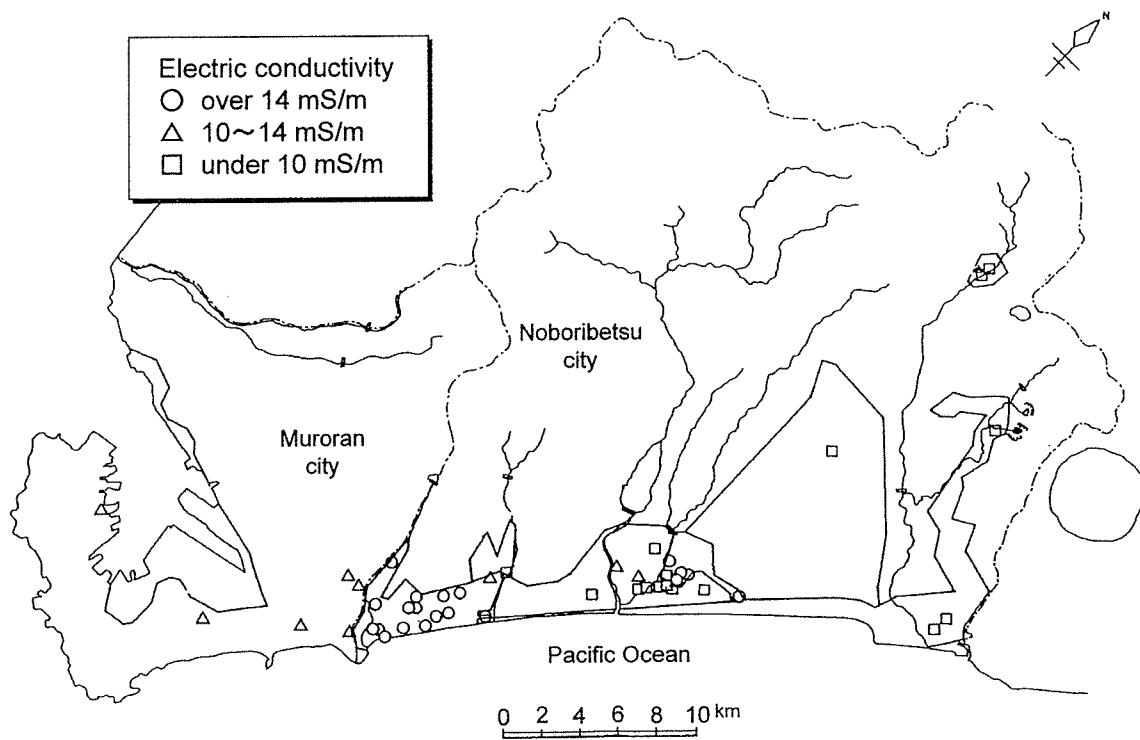


Fig. 4 Electric conductivity distribution of tap water obtained from 41 houses' data.

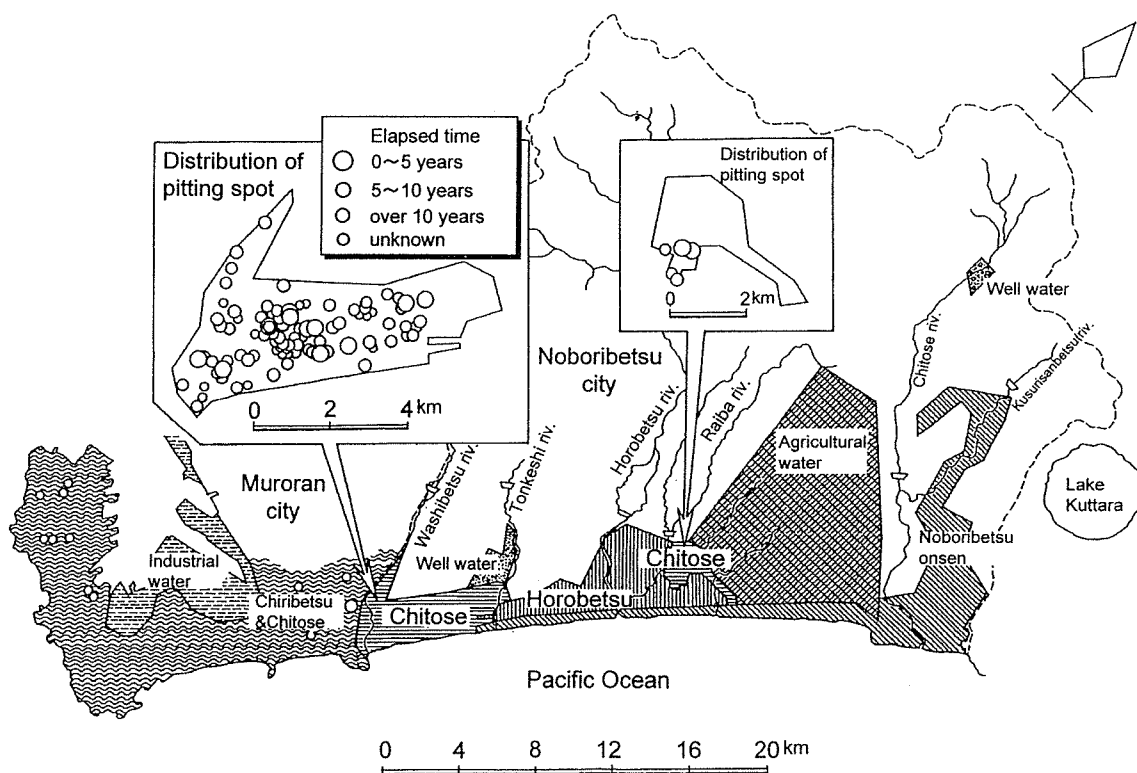


Fig. 5 Distribution map of pitting spot : ○; spot of pitting occurred.



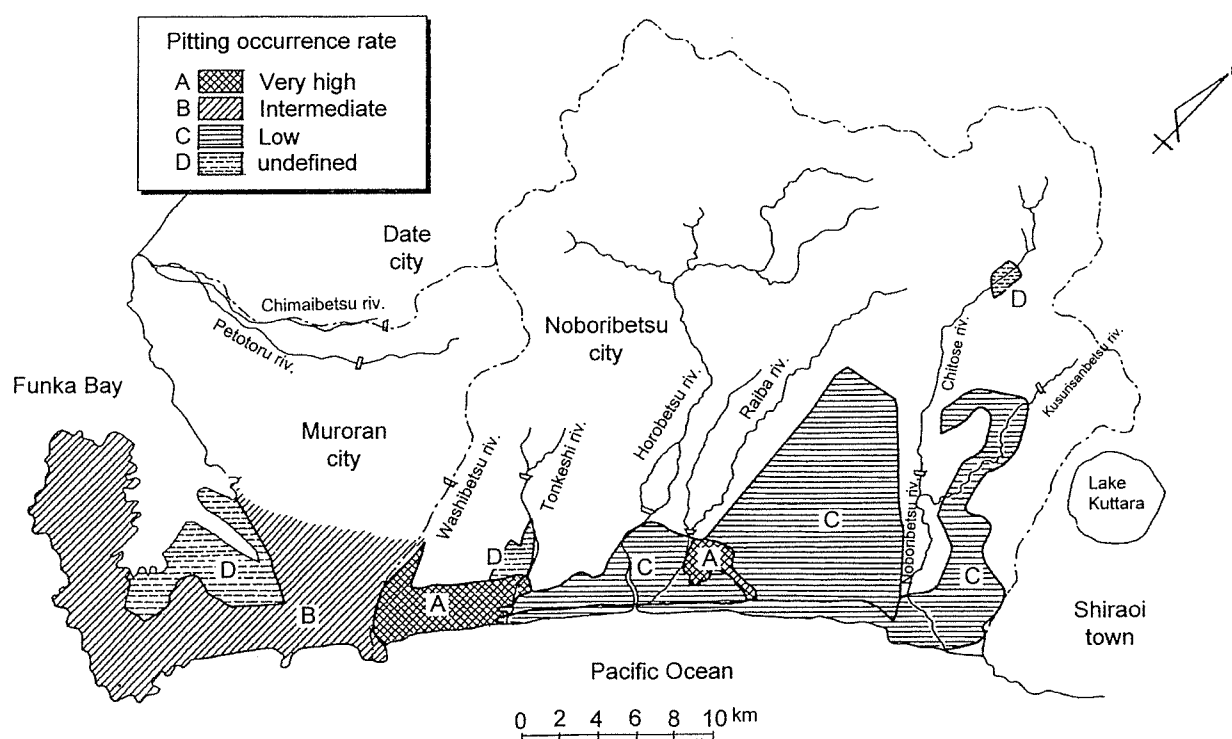


Fig. 6 Hazard map for pitting corrosion of copper tube in West-Iburi district where is the southern part of Hokkaido.

登別温泉浄水場系列は10mS/m以下、千歳浄水場系列と他の浄水場系列の水を混合して使用している室蘭市の知利別浄水場系列は前二者の中間の数値を示していることが分かった。これらの結果をもとにTable 2に示すようなA～Cの危険度判定区分を行った。この判定基準をもとに作成したハザードマップをFig. 6に示した。このような西胆振地区における銅管孔食ハザードマップの提案は初めての試みであるが、銅管孔食地区の建設業者、配管設備業者、地方自治体等に、情報提供しておくことは、孔食による漏洩事故を事前に防ぐために極めて有用であると考えられる。

## 5. 結 論

(1) 水質分析により、孔食発生地区である千歳浄水場の水質は電気伝導度、硫酸イオン濃度、蒸発残留物、全硬度が高い水環境であることが分かった。特に、電気伝導度は西胆振地区において、有用な水質指標となることが分かった。

(2) 孔食地区水系の電気伝導度は、水質の連続観測結果から冬期間および降水量の少ない時期に高くなることが分かった。この要因として、水中の蒸発残留物と硫酸イオンの濃度が関係しているものと考えられる。

(3) 電気伝導度を指標として孔食発生地区のゾーニング区分を行い、ハザードマップを作成した。

Table 2 Definition of pitting occurrence rate by electric conductivity.

Rank	Pitting occurrence rate	Index of pitting occurrence	Annual ave. of electric conductivity
A	very high	Electric conductivity	over 14mS/m
B	intermediate	ditto	10～14mS/m
C	low	ditto	under 10mS/m

## 参 考 文 献

- 1) 荒川昌伸, 谷 正一, 鈴木弘明, 山田 豊: 空気調和・衛生工学会北海道支部第29回学術講演論文集, 43 (1995), 129.
- 2) 荒川昌伸, 鈴木弘明, 山田 豊, 谷 正一, 世利修美: 北海道応用地学合同研究論文集, 7 (1996), 95.
- 3) 荒川昌伸, 谷 正一, 鈴木弘明, 山田 豊: 空気調和・衛生工学会北海道支部第32回学術講演論文集, 46 (1998), 177.
- 4) 荒川昌伸, 鈴木弘明, 谷 正一, 甲斐幹規, 山田 豊: 空気調和・衛生工学会北海道支部第34回学術講演論文集, 48 (2000), 129.
- 5) 山田 豊: 材料と環境, 50 (2001), 88.
- 6) 建築配管用銅管腐食対策指針, (社) 日本銅センター (1987).

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 100-104

論 文

## 高信頼性内面チタン二重管の性能評価\*

安 藤 哲 也\*\* 渥 美 哲 郎\*\*  
渡 邊 俊 彦\*\*\* 石 黒 則 充\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 100-104

## Evaluation of Performance of Highly Reliable Internal Titanium Lining Duplex Tube

Tetsuya Ando, Tetsuro Atsumi, Toshihiko Watanebe and  
Norimitsu Ishiguro

住友軽金属工業株式会社研究開発センター

論文

## 高信頼性内面チタン二重管の性能評価\*

安藤 哲也\*\* 渥美 哲郎\*\*  
渡邊 俊彦\*\*\* 石黒 則充\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 100-104

## Evaluation of Performance of Highly Reliable Internal Titanium Lining Duplex Tube

Tetsuya Ando, Tetsuro Atsumi, Toshihiko Watanebe and  
Norimitsu Ishiguro

The Duplex tube, composed ultra thin titanium tube clad inside or outside of aluminium brass tube by the hydraulic expansion method, shows perfect corrosion resistance and sufficient heat transfer rate in heat exchanger applications. In the case of internal titanium lining duplex tube under the high temperature conditions in chemical plants, however, the degradation of heat transfer performance raises from the difference of heat expansion co-efficient between inner and outer composed materials.

To prevent the degradation of heat transfer performance, "High Temperature Hydraulic Expansion Method" by which outer tube was pre-heated over the temperature as an applied heat exchanger has been developed. It was deduced that Duplex tubes expanded by H. T. H. E. Method show perfect corrosion resistance and sufficient heat transfer rate under the high temperature condition in monitor and actual heat exchangers. Consequently it is expected that the application of Duplex tubes expanded by H. T. H. E. method can convert existing condenser and heat exchanger into high performance and reliable ones even in chemical plants.

### 1. はじめに

石油精製や石油化学のプラント（以下まとめて石油プラントと略称）ではコンデンサーやクーラーとして多数の多管式熱交換器が用いられている。その多くは伝熱管の内面側に冷却水が流れ、伝熱管の外側でプロセス流体の凝縮や冷却がおこなわれる。わが国の石油プラント熱交換器では冷却水に海水を使用しているものが多く、熱交換器の伝熱管にはアルミニウム黄銅管が標準材料として使用されている。その使用実績は、各種防食防汚対策の適用、ならびに検査技術の向上からほぼ満足すべき状況にあるが、使用環境、運用条件によっては海水側から腐食が生じ、その程度によっては管の取り替えが必要

となる。

近年、高信頼性材料としてその採用傾向が高いチタン管はこの種の問題がなく、取り替え材の候補となりうる<sup>1,2)</sup>が、種々の問題が指摘されており<sup>3,4)</sup>、その対策としての管厚肉化による伝熱性能の低下、あるいは既存設備の大幅な改造による高コスト化といった弊害を招く。アルミニウム黄銅-チタン二重管は、アルミニウム黄銅管の高伝熱性ならびに拡張装着性を生かしつつ、耐食性確保のためその内面側あるいは外面側に超薄肉チタン溶接管を複合させ、既設アルミニウム黄銅管熱交換器の取り替え用として開発、実用化したものである。アルミニウム黄銅-チタン二重管は、高い伝熱特性、良好な拡張装着性を示すとともに、発電プラント復水器において極めて良好な使用実績を収めていることが確認されている<sup>4,5)</sup>。

本稿では、発電プラント復水器と比較し使用温度が比較的高温となる石油プラント熱交換器用に開発、実用化

\* 石油学会第32回装置部会（平成13年12月）において主要部発表、予稿集に掲載

\*\* 研究開発センター 第四部

\*\*\* 生産本部 伸銅所 製造部

した内面チタン二重管の製造原理および石油プラント熱交換器における使用実績について報告する。

## 2. 製造原理

変形抵抗の大きく異なる2種の材料からなる二重管の製造方法として、高圧水による拡管法<sup>6)</sup>が最適であり、前述の復水器用内面チタン二重管についても温水を用いて本法を適用している。ただし、使用温度が比較的高温となる石油プラント海水熱交での使用を考えた場合、外管である銅合金管の線膨張係数は内管であるチタン管の約2倍と大きいため、材料の温度が高くなるにつれ両材質管の熱膨張差が大きくなる。両材質管の熱膨張差が大きくなると、外管の収縮力すなわち両管の界面密着力が低下し、結果として伝熱性能が著しく低下する。この低下抑制のため、予め拡管前に熱交換器管としての使用温度以上に外管を加熱して熱膨張させ、その状態で従来と同様に高圧水で拡管をおこなう“高温拡管法”を考案した。冷却による収縮量は、拡管前後の温度差が200℃程度の場合で高々0.38%であり、内管であるチタン管の弾性変形範囲内である。すなわち使用温度が拡管温度以下であれば、外アルミニウム黄銅管の熱膨張に内チタン管は弾性変形により追従し、界面密着力は伝熱性能低下の目安となる規格下限値<sup>4)</sup>以下にはなり得ない。また、外アルミニウム黄銅管の塑性変形量は常温で拡管した場合と同程度であるため、残留応力の増加はわずかであって応力腐食割れの懸念はない。

## 3. 二重管の特性

加熱温度を150℃とした高温拡管法により製造した内面チタン二重管（以下、高温二重管と略称）および従来法により製造された内面チタン二重管（以下、従来二重管と略称）の界面密着力と管外面温度との関係を調査した。界面密着力は、インストロン型引張試験機を用い、外部ヒーターにより外面から加熱した状態で、内外管にそれぞれ同一軸の相対方向に引っ張り荷重を負荷して測定した。所定温度において、内外管にズレが生じた時点での荷重を密着荷重とし、その値を接触面積で除した値を界面密着力とした。結果をFig. 1に示す。いずれの二重管においても、温度上昇につれて界面密着力の低下が生じたが、高温二重管の界面密着力は従来二重管のそれよりも高く、従来二重管の場合で約80℃まで、高温二重管の場合で約150℃までは規格下限値の3.5kPa以上が維持された。

高温二重管の伝熱特性値を従来二重管との比較としてTable 1に示す。伝熱特性の評価には基準管からの伝熱抵抗の増分を表す汚れ係数を用いた。また基準管には石油化学プラント伝熱管の標準寸法である外径19×肉厚1.65mmのアルミニウム黄銅管を用いた。管外面温度が

常温の場合には、従来二重管、高温二重管の各管清浄度に有意差はみられなかった。一方、管外面温度が110℃と高温の場合には、従来二重管では熱膨張差に起因すると推測される界面密着力の低下により汚れ係数の著しい増加がみられたのに対し、高温二重管では汚れ係数に変化は生じなかった。

## 4. モニタークーラーフィールド試験

### 4.1 試験方法

フローティング型シェルアンドチューブ2パス熱交換器に従来二重管および拡管温度を150℃とした高温二重管を装着した。供試管寸法は、アルミニウム黄銅管は当該熱交換器の標準寸法（外径19×肉厚1.65mm）とし、

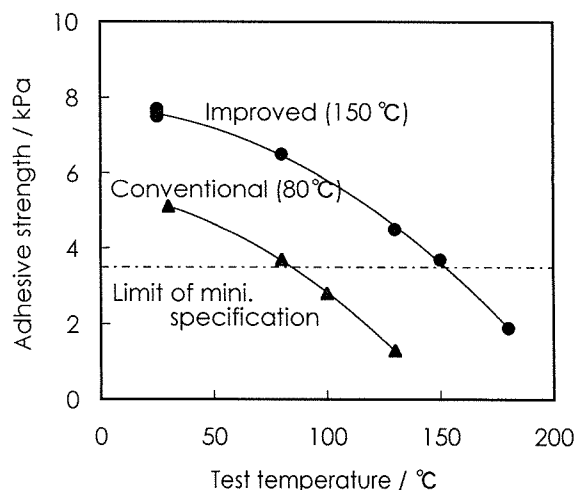


Fig. 1 Dependence of adhesive strength of improved<sup>\*1</sup> and conventional Duplex tubes on temperature.  
\*1 : Duplex tube produced by High Temperature Hydraulic Expansion Method

Table 1 Increase in resistance of heat transfer rate of both Duplex tubes.

	Increase in resistance of heat transfer rate <sup>*2</sup> ( $\times 10^{-5} \text{m}^2 \text{K/W}$ ) [Cleanliness factor <sup>*3</sup> (%)]	
	RT : 30°C	HT : 110°C
Improved <sup>*1</sup>	0.2~1.4 [ 97~99 ]	0.2~2.1 [ 96~99 ]
Conventional	0.4~2.1 [ 96~97 ]	10~16 [ 75~83 ]

\*1 : Duplex tube produced by High Temperature Hydraulic Expansion Method

\*2 : Based on the solid aluminium brass tube in the dimension of 19mm diameter and 1.65mm thickness

\*3 : Ratio of heat transfer performance based on the designed value of  $2,000 \text{ W/m}^2 \text{K}$

内面チタン二重管は外径 19×肉厚 1.25mm とした。被冷却媒体には工業用水および蒸気の混合体を用いた。冷却海水を所定流速で通水して試験したが、二重管の部分交換を考慮し、海水へは Fe イオンの 0.1ppm 連続注入および塩素注入をおこなった。また、管端部におけるアルミニウム黄銅管のチタン管界面とのガルバニック腐食対策として、フローティング側に亜鉛犠牲陽極を設置した。

伝熱性能の評価のために、熱交換器を運用状態で冷却管内を流れる海水の入り側および出側の温度を測温抵抗体にて測定した。また、評価対象管の直近の管内面に接触子を取り付けた測温抵抗体を装着し、管外面の最高温度および最低温度を測定した。接触子を用いて測定された管外面温度と被冷却媒体との温度差は予め補正をおこなった。冷却水流量については、熱交換器内冷却水の総流量を流量計にて測定し、冷却管流水断面積比により求めた。この算出方法の妥当性は予めピトー管を用いた差圧法による流量測定をおこない確認した。以上の測定データから、同時に装着したアルミニウム黄銅新管との相对比较により、下記の式を用い伝熱性能の評価をおこなった。

$$K = 4C_p W(t_{Lout} - t_{Lin}) / \pi d^2 L [\text{LMTD}]$$

$$[\text{LMTD}] = (t_{Lout} - t_{Lin}) / \ln((t_{Hin} - t_{Lout}) / (t_{Hout} - t_{Lin}))$$

- $K$  : 熱貫流率 ( $\text{W}/\text{m}^2 \cdot \text{K}$ )  
 $W$  : 冷却水量 ( $\text{m}^3/\text{s}$ )  
 $\rho$  : 冷却水比重量 ( $\text{kg}/\text{m}^3$ )  
 $C_p$  : 冷却水定圧比熱 ( $\text{J}/\text{kg} \cdot \text{K}$ )  
 $t_{Lout}$  : 冷却水出側温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )  
 $t_{Lin}$  : 冷却水入側温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )  
 $d$  : 熱交換器管外径 (m)  
 $L$  : 熱交換器管長さ (m)  
 $t_{Hin}$  : 高温側被冷却媒体面温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )  
 $t_{Hout}$  : 低温側被冷却媒体温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )

約 5 ヶ月間供試した後モニタークーラーから抜管し、使用後の二重管の汚れ係数を約 30 $^{\circ}\text{C}$  の低温蒸気で測定した。また、管の腐食状況について調査した。

#### 4.2 試験結果

高温二重管ならびに従来二重管の初期伝熱性能測定結果を Fig. 2 に示す。従来二重管は、管外面温度が 90 $^{\circ}\text{C}$  までは初期の伝熱性能を維持していたが、100 $^{\circ}\text{C}$  になると伝熱性能は約 10% 低下し、110 $^{\circ}\text{C}$  で著しく低下した。一方、高温二重管は、管外面温度が 130 $^{\circ}\text{C}$  までは初期の伝熱性能を維持していたが、140~150 $^{\circ}\text{C}$  で約 10% 低下し、160 $^{\circ}\text{C}$  以上となると伝熱性能は急激に低下した。すなわち、いずれの二重管においても、管外面の最高温度が拡張温度近くなると 10% 程度の伝熱性能の低下が生

じ、さらに高温になると急激に低下した。管外面が拡張温度以上となると、熱膨張差に起因して内外管の界面密着力が低下し、伝熱性能が低下するが、拡張温度近辺でその低下が徐々に生じるのは、プロセス側に温度勾配があるため界面の緩みが部分的であることが原因と推測される。この推測に基づけば、部分的な界面の緩みは、拡張温度以上での温度上昇に伴いかなり急激に拡大することとなる。

上述の熱交換器において、種々の温度で数ヶ月間使用した高温二重管および従来二重管の伝熱性能測定結果を Fig. 3 にまとめる。高温二重管、従来二重管にかかわらず、初期に伝熱性能が維持されていた管は数ヶ月間使用後においてもその性能が維持された。すなわち、内面チタン二重管は、拡張温度以下で使用することにより初期の伝熱性能が維持できるものと思われた。

約 5 ヶ月間使用された二重管の低温蒸気による汚れ係数測定結果を Table 2 に示す。フィールド試験における伝熱性能測定と同様に、使用温度が拡張温度以下の二重管は初期の性能が維持されていた。一方、拡張温度以上で使用された二重管は抜管後においても汚れ係数は増大したままであった。すなわち、拡張温度以上の高温で使用することにより性能低下した二重管は、高温環境から取り去られた後においても伝熱性能は初期値に復帰しなかった。

管の内面は褐色のスケールに覆われており、そのスケール付着量は同時に供試したアルミニウム黄銅管と同等であった。またスケール除去後の内面、外面ならびに管端部において、二重管には全く異常は認められなかった。内面チタン二重管の内チタン管の水素含有量を測定した。測定装置には、LECO 製 RH-404 を用い、不活性ガス融解クロマトグラフ法により実施した。最も高い個所で 0.040mass% の水素を含有していた。使用前の水素含有量 (0.008~0.010mass%) を考慮すると、約 5 ヶ月の使

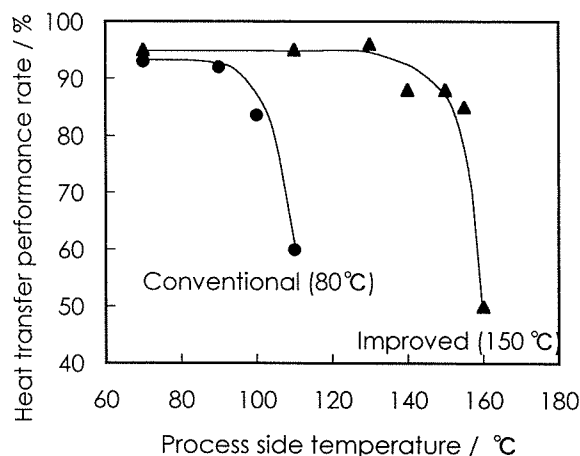


Fig. 2 Heat transfer performance of both Duplex tubes compared with the solid aluminium brass tube in-situ measured in the monitor heat exchanger.

用により最高0.03mass%程度の水素吸収が生じていたが、この程度の水素含有量では水素化物の存在は確認されず、水素脆化は問題ないものとみなされた。

## 5. 実機使用実績

重質油をプロセス流体とする熱交換器において約1年間使用された高温二重管の性能調査をおこなった。本二重管の目標耐用温度は150℃である。プロセス流体の流

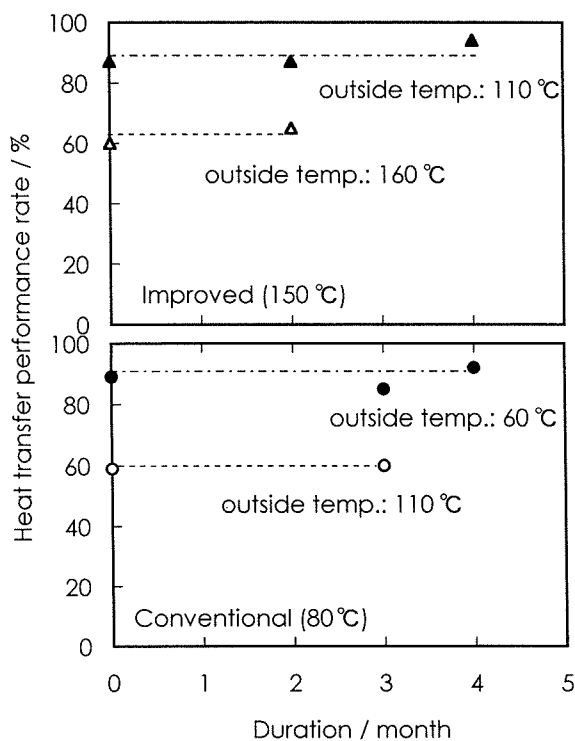


Fig. 3 Heat transfer performance of both Duplex tubes compared with solid aluminium brass tube at various process side temperature for several months.

Table 2 Heat transfer performance of improved<sup>\*1</sup> Duplex tube applied in monitor heat exchanger for about 5 months.

Temperature of outer surface of tube (°C)	Increase in resistance of heat transfer rate <sup>*2</sup> ( $\times 10^{-5} \text{m}^2 \text{K/W}$ )	Cleanliness factor <sup>*3</sup> (%)
160	9.6	84
110	0.2	99

\*1 : Duplex tube produced by High Temperature Hydraulic Expansion Method

\*2 : Based on the solid aluminium brass tube in the dimension of 19mm diameter and 1.65mm thickness

\*3 : Ratio of heat transfer performance based on the designed value of  $2,000 \text{ W/m}^2 \text{K}$

入温度は約170℃、流出温度は約35℃であった。二重管装着位置およびプロセス流体流入出温度から推定される二重管外面温度は、上段からそれぞれ160℃、130℃および110℃であり、160℃位置に装着された二重管には伝熱性能の低下が予測された。

使用後の二重管の汚れ係数を約30℃の低温蒸気で測定した結果をTable 3に示す。目標耐用温度以下で使用された二重管は製造直後と同等の優れた伝熱性能を示した。一方、目標耐用温度よりも高温で使用された二重管の汚れ係数は、製造直後よりも高い値を示し、Fig. 3にみられた性能低下が生じていることが示唆された。常温および150℃における界面密着力測定結果をTable 4に示す。伝熱性能と同様、目標耐用温度以下で使用された二重管は常温、150℃ともに3.5kPa以上の界面密着力を示したが、目標耐用温度を超える高温で使用された二重管の界面密着力は常温において3.5kPaを下回り、150℃では測定不能であった。以上の結果より、高温二重管は目標耐用温度以下の使用であれば、約1ヶ年の使用後においても初期の性能が維持されることを確認した。

Table 3 Heat transfer performance of improved<sup>\*1</sup> Duplex tube applied in actual heat exchanger for about a year.

Temperature of outer surface of tube (°C)	Increase in resistance of heat transfer rate <sup>*2</sup> ( $\times 10^{-5} \text{m}^2 \text{K/W}$ )	Cleanliness factor <sup>*3</sup> (%)
160	7.3	87
130	1.6	97
110	1.5	97

\*1 : Duplex tube produced by High Temperature Hydraulic Expansion Method

\*2 : Based on the solid aluminium brass tube in the dimension of 19mm diameter and 1.65mm thickness

\*3 : Ratio of heat transfer performance based on the designed value of  $2,000 \text{ W/m}^2 \text{K}$

Table 4 Adhesive strength at room temperature and 150℃ of improved<sup>\*1</sup> Duplex tube applied in actual heat exchanger for about a year.

Temperature of outer surface of tube (°C)	Adhesive strength (kPa)	
	RT : 30℃	HT : 150℃
160	1.2	—
130	6.9	3.9
110	4.7	3.6

\*1 : Duplex tube produced by High Temperature Hydraulic Expansion Method

約1ヶ年使用された二重管内面は褐色のスケールに覆われており、そのスケールを除去することにより新生なチタン表面が現れた。全長において腐食は全く生じておらず、内チタン管は完全な耐食性を示していた。また管端部において、外アルミニウム黄銅管には何ら異常は認められず、亜鉛犠牲陽極によりガルバニック腐食は完全に抑制された。アルミニウム黄銅管外面においても応力腐食割れ等の異常は全く認められなかった。内面チタン二重管の内チタン管の水素含有量を測定した。最も高い箇所では0.030mass%の水素を含有していた。使用前の水素含有量(0.008~0.010mass%)を考慮すると、約1ヶ年の使用により、最高0.02mass%程度の水素吸収が生じていたが、この程度の水素含有量では水素化物の存在は確認されず、水素脆化は問題ないものとみなされた。

## 6. ま と め

被冷却媒体が比較的高温となる石油プラント海水熱交を対象とした内面チタン-アルミニウム黄銅二重管を開

発した。製造方法として、内外管の熱膨張差に起因する伝熱性能低下を抑制するため、予め熱交換器管としての使用温度以上に外管を加熱して拡管をおこなう“高温拡管法”を考案した。高温拡管された二重管はその使用環境が製造温度以下であれば初期の伝熱性能が維持されることを、フィールド試験、実機使用実績により確認した。また、管内面、外面、界面のいずれにおいても完全な耐食性を示すことを実証した。

## 参 考 文 献

- 1) 佐藤史郎, 下野三樹雄, 山内重徳: 石油学会誌, **20** (1977), 985.
- 2) 永田公二: 本誌, **35** (1994), 74.
- 3) R. L. Jacobs and J. A. McMaster: Mater. Protect. and Perform., **11**-No.7 (1972), 33.
- 4) 渥美哲郎, 渡邊俊彦, 永田公二, 梅田典孝: 火力原子力発電, **46** (1995), 272.
- 5) 渥美哲郎, 山田 豊, 安藤哲也, 渡邊俊彦: 同上, **49** (1998), 775.
- 6) 佐藤史郎, 渡辺敏彦: 特許第 824895 号 (昭和 51 年 8 月).

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 105-109

論文

## Bi 置換型快削黄銅の被削性向上<sup>\*</sup>

安 藤 哲 也<sup>\*\*</sup> 渥 美 哲 郎<sup>\*\*</sup>  
吉 川 善 浩<sup>\*\*\*</sup>

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 105-109

## Improvement of Machinability of Bismuth Substituted Free-Cutting Brass

Tetsuya Ando, Tetsuro Atsumi and Yoshihiro Yoshikawa

住友軽金属工業株式会社研究開発センター



## Bi 置換型快削黄銅の被削性向上\*

安 藤 哲 也\*\* 渥 美 哲 郎\*\*  
吉 川 善 浩\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 105-109

## Improvement of Machinability of Bismuth Substituted Free-Cutting Brass

Tetsuya Ando, Tetsuro Atsumi and Yoshihiro Yoshikawa

Some features of bismuth substituted free-cutting brass with small amount of lead were investigated. Observation in an SEM and X-ray analysis revealed that added lead in this alloy made distributed particles be fine by existing at the same site of bismuth as beta lead. It was deduced the small amount of lead reduced the wettability of bismuth with grain boundaries of alpha copper than that of lead free one. As a result of refinement of particles and lowered wettability, both machinability and hot workability of this alloy were improved to the same level as those of leaded free-cutting brass. With an increase in the lead content of this alloy, lead release into drinking water increased linearly. In regard to lower limitation of lead release in drinking water from 50 micrograms a liter to 10 micrograms a liter, it would be content by means of restriction of lead content less than a fifth of the current leaded free-cutting brass which is satisfied with the current regulation. Thus it would be possible to utilize a proper amount of the scrap of traditional leaded free-cutting brass for production of bismuth substituted free-cutting brass.

## 1. は じ め に

現在 0.05mg/L である飲料水中への鉛溶出規制上限値が, 2003 年より 0.01mg/L に強化される。これを受け, 従来の鉛入り快削黄銅の機械加工性を損なわない鉛レスあるいは鉛フリー黄銅材料の開発が要求されており, その開発には鉛をビスマスに置き換えたビスマス置換型快削黄銅が最も容易とみなされてきた。筆者ら<sup>1)</sup>はビスマス添加した  $\alpha + \beta$  黄銅展伸材の被削性に及ぼすビスマスの存在形態の影響について調査し, 切りくずを微細に分散させるためには, ビスマス濃度を増加させるよりも, 分散ビスマス粒子数を増加させることが有効であることを報告した。しかしながら, 熔融ビスマスと熔融鉛との濡れ特性の差により, ビスマス粒子は鉛粒子と比較して粗大化し易く, ビスマス添加材の被削性は鉛添加材のそれ

よりも劣る傾向にあった。

ビスマス置換型快削黄銅と従来の鉛入り快削黄銅が混在した場合, ビスマス置換型快削黄銅の機械加工に鉛入り快削黄銅と同じ設備を使用することが想定される。しかしながら, 鉛入り快削黄銅の切りくずを設備内から完全に除去することは実作業上困難であり, ビスマス置換型快削黄銅スクラップとして管理したとしても, 鉛入り快削黄銅くずの混入が避けられない。また, 現在市場には大量の鉛入り快削黄銅のスクラップが流通しているが, 仮に鉛入り快削黄銅がすべてビスマス置換型快削黄銅に置き換わった場合には, それら多量の鉛入り快削黄銅スクラップが使用できなくなる。

本稿では, ビスマス置換型快削黄銅の被削性向上を目的とし, スクラップからの混入が想定される鉛を微量添加した Cu-Zn-Bi 合金の諸特性について述べた。

## 2. 実 験 方 法

60%Cu-Zn-2%Bi 合金および 58%Cu-Zn-1.5%Bi 合金

\* 銅と銅合金, 41 (2002), 97 に主要部掲載

\*\* 研究開発センター 第四部

\*\*\* 新日東金属(株) 製造部

をベースとし、0.3～1.0%の鉛を添加し、高周波溶解炉により大気中で溶解し、落とし込みにより铸造した。得られた鋳塊を外削後、押し温度 650℃、押し比 20 で熱間押しをおこない、この押し棒を用いてビスマス粒子の分散状態に及ぼす鉛濃度の影響を調査した。ビスマス分散状態の調査には、走査電子顕微鏡 (SEM) による反射電子線像を用いた。また Table 1 に示す切削条件により、被削性の調査をおこなった。被削性は、切りくず形状の流れ型、せん断型にかかわらず、切りくず長により評価した。さらに、650～750℃でアップセット率 70%とし、自由鍛造により、熱間加工性の調査をおこなった。また鉛溶出試験として、厚生労働省令の試験法<sup>2)</sup>に準じ、アルカリ度 35mg/L、硬度 45mg/L、残留塩素 0.3mg/L、pH7.0 の浸出液中に、23℃の室温下で 16 時間、試験片を浸漬した。浸漬後の浸出液中に含有される鉛量を発光分光分析により測定し、同時に試験に供した CDA C36000 (2.5～3.7%Pb 入り快削黄銅) の鉛溶出量との比較をおこなった。なお、試験前のコンディショニングは実施しなかった。コンディショニングとは、試験前の 14 日間供試サンプルを浸出液に浸漬し、その間に 9 回以上浸出液を交換する処理のことである。

### 3. 実験結果

60%Cu-Zn-2%B<sub>i</sub> における鉛濃度とビスマス粒子径との関係を Fig. 1 に示す。鉛濃度の増加につれて平均分散粒子径は減少したが、その低減効果は鉛濃度の増加と共に小さくなり、0.5%以上の鉛含有量による平均分散粒子径低減効果はほとんど得られなかった。

切削試験結果として、鉛濃度と突っ切りによる切りくず長との関係を Fig. 2 に示す。鉛含有量が 0.5%までは鉛濃度の増加につれて切りくずが微細に分断され、それ以上の鉛濃度増加に伴う切りくずの微細化は生じなかった。また、複合添加されたビスマスと鉛の合計濃度が、単独添加されたビスマス濃度と同一の場合には、複合添加の方が切りくずを微細にする効果は大きかった。すなわち、切りくずの微細化には、平均分散粒子間距離を低減することが効果的であった。

Table 1 Cutting test condition for 60%Cu-Zn-2%B<sub>i</sub> with small amount of Pb.

Cutting mode	Grooving
Tool material	K10
Diameter of cut material	15mm
Cutting speed	7.9～23.6m/min. (500rpm)
Feed rate	0.1mm/rev.
Lubricant	none

鉛添加した 58%Cu-Zn-1.5%B<sub>i</sub> における熱間鍛造試験の結果を Table 2 にまとめる。鍛造温度が低いほど、また鉛濃度が増加するほど割れは軽減され、鉛添加による熱間加工性の改善がみられた。鉛添加した 60%Cu-Zn-2%B<sub>i</sub> についての鉛溶出試験結果を Fig. 3 に示す。鉛濃度の増加につれて鉛溶出量は増加し、鉛含有量と鉛溶出量の間には比例関係があった。

## 4. 考 察

### 4.1 切りくず分断効果

Fig. 1 および Fig. 2 において、平均分散粒子間距離低減効果の大きかった鉛含有量 0.5%までは、鉛濃度の増加につれて切りくずが微細に分断されたが、鉛含有量 0.5%以上の場合には鉛濃度増加に伴う切りくずの微細

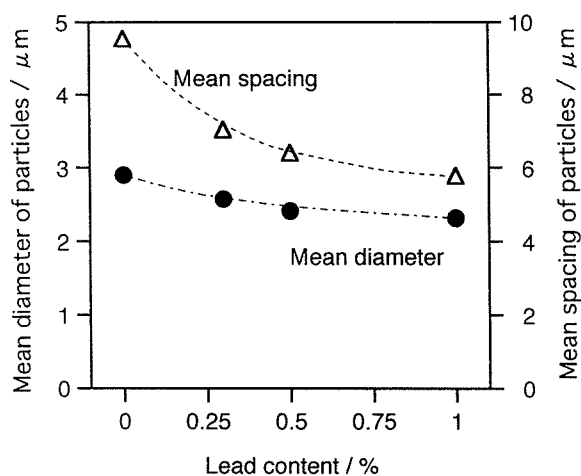


Fig. 1 Relationship between mean diameters, mean spacings of distributed particles and Pb content of 60%Cu-Zn-2%B<sub>i</sub> alloys.

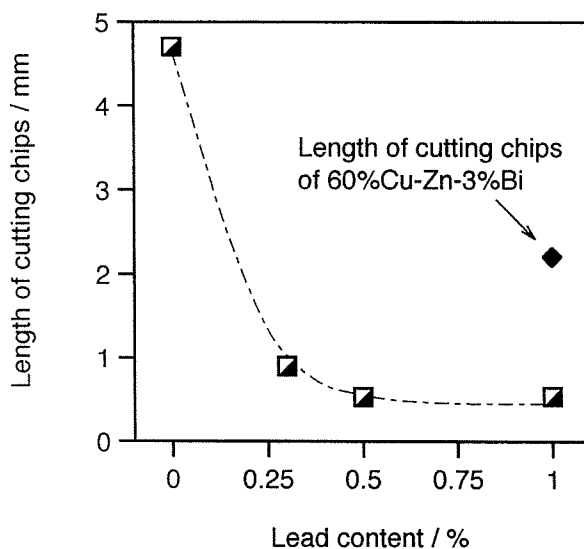


Fig. 2 Effect of Pb content on length of chips for 60%Cu-Zn-2%B<sub>i</sub> alloys.

化は生じなかった。また、切りくずを微細にする効果は、ビスマスと鉛複合添加の場合の方が、ビスマス単独添加で同一濃度の場合よりも大きかった。すなわち、切りくずの微細化には、平均分散粒子間距離を低減することが効果的であることが、より明確となった。

#### 4.2 ビスマス微細化機構

EPMA によりビスマスの存在状態を調査した結果を Fig. 4 に示す。Fig. 4 より、Bi と Pb は同一位置に存在していた。また、X 線回折の結果、Bi と  $\beta$  Pb の存在が確認された。以上の結果、ならびにビスマス、鉛共に銅合金中にほとんど固溶しないこと、またビスマス濃度が鉛濃度の約 1.5 倍以上の場合には、Bi- $\beta$  Pb として共晶を形成することを考慮すると、本合金の組成でビスマスと鉛が共存している場合には、Bi- $\beta$  Pb 共晶化合物として存在しており、その結果  $\alpha$  相への濡れ性が低い鉛<sup>3)</sup>がビスマスの濡れ性を低下させ、ビスマス粒子が微細化したものと考えられる。

#### 4.3 熱間加工性改善効果

鉛濃度の増加につれて割れは軽減され、熱間加工性の改善がみられた。この機構は上述した様に、鉛によりビスマスの濡れ性が低減されたことが原因と推測された。この効果を確認するため、650℃で熱間鍛造した鉛無添

加材と 0.5%含有材との、ビスマスの存在形態について SEM 観察により調査した結果を Fig. 5 に示す。Fig. 5 より、割れが著しい鉛無添加材では、ビスマスが層状に存在しているのに対し、鉛を 0.5%含有した材料では、比較的粒状に存在している。すなわち、鉛無添加材では、溶融ビスマスが結晶粒界に層状化し、そこに引張応力が負荷されたことにより、割れとして顕在化したのに対し、鉛添加された場合には、溶融ビスマスの粒状化によって結晶粒界への拡がりが抑制され、粒界での割れが軽減されたものと推測された。

#### 4.4 鉛溶出特性

微量の鉛を添加したビスマス置換型快削黄銅の鉛含有量と鉛溶出量との関係を調査した結果、鉛濃度の増加につれて鉛溶出量は増加し、鉛含有量と鉛溶出量の間には比例関係があった。

現行の飲料水中への鉛溶出規制上限値が 0.05mg/L に対し、2003 年強化案が 0.01mg/L であること、鉛入り快削黄銅が現行の規制値を満足すること、ならびに本試験

Table 2 Results of forged test for 58%Cu-Zn-1.5%Bi with small amount of Pb.

Pb content	0%	0.3%	0.5%
750℃	×	×	△
700℃	×	△	○
650℃	×	○	○

○ : no crack  
△ : fine cracks  
× : severe cracks

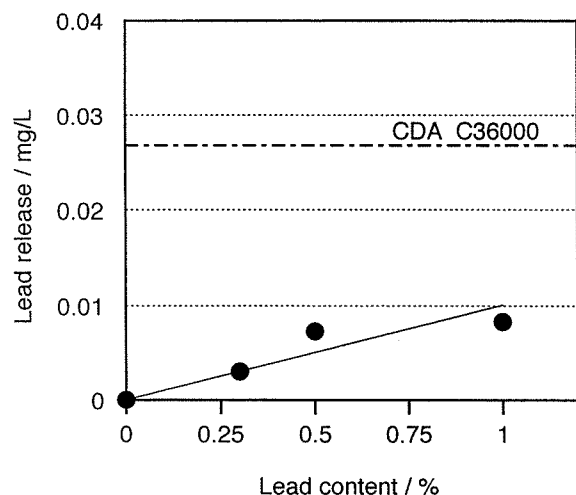


Fig. 3 Relationship between Pb content and Pb release into test water.

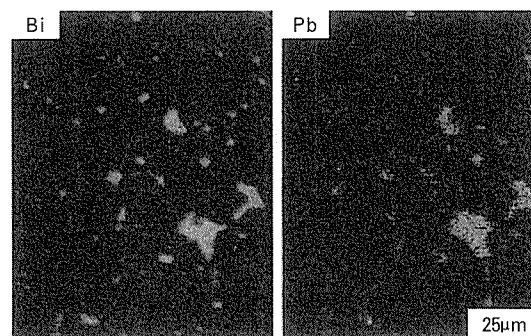


Fig. 4 EPMA images of Bi and Pb of 60%Cu-Zn-2%Bi-0.5%Pb alloy.

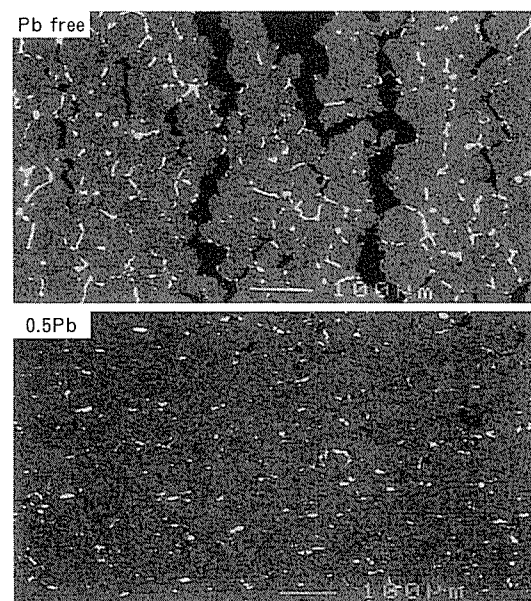


Fig. 5 SEM images of forged 58%Cu-Zn-1.5%Bi alloys with 0.5% Pb and Pb free.

結果を考慮すると、鉛含有量を1/5以下とすることにより、2003年強化案を満足するものと推測された。さらに、被削性への影響を考慮すれば、0.5%程度の含有で十分と考えられた。

## 5. 実 機 適 用

前述の実験結果をもとに、鉛溶出量および切りくず分断効果の観点から、60%Cu-Zn-2.5%Bi-0.5%Pb合金を連続鋳造により造塊し、押出し温度約650℃、押出し比約270で熱間押出し後、約15%の冷間引抜き加工をおこなった。同一製造工程で製造した60%Cu-Zn-3.0%Pb合金と比較するために、被削性評価ならびに前述と同様の方法により鉛溶出試験をおこなった。なお鉛溶出試験結果は、試験液容積および試験材表面積で規格化した。

Table 3 Cutting test conditions for 60%Cu-Zn-2.5%Bi-0.5%Pb.

Cutting mode	Cylindrical turning
Tool type	TPGN160304
Holder type	CTGPR2525H3
Tool geometry	(0 5 11 6 30 0 0.4)
Tool material	K10, P20
Cutting speed	126m/min. (2500rpm)
Feed rate	0.05, 0.10, 0.20mm/rev.
Depth of cut	1.5mm
Lubricant	none

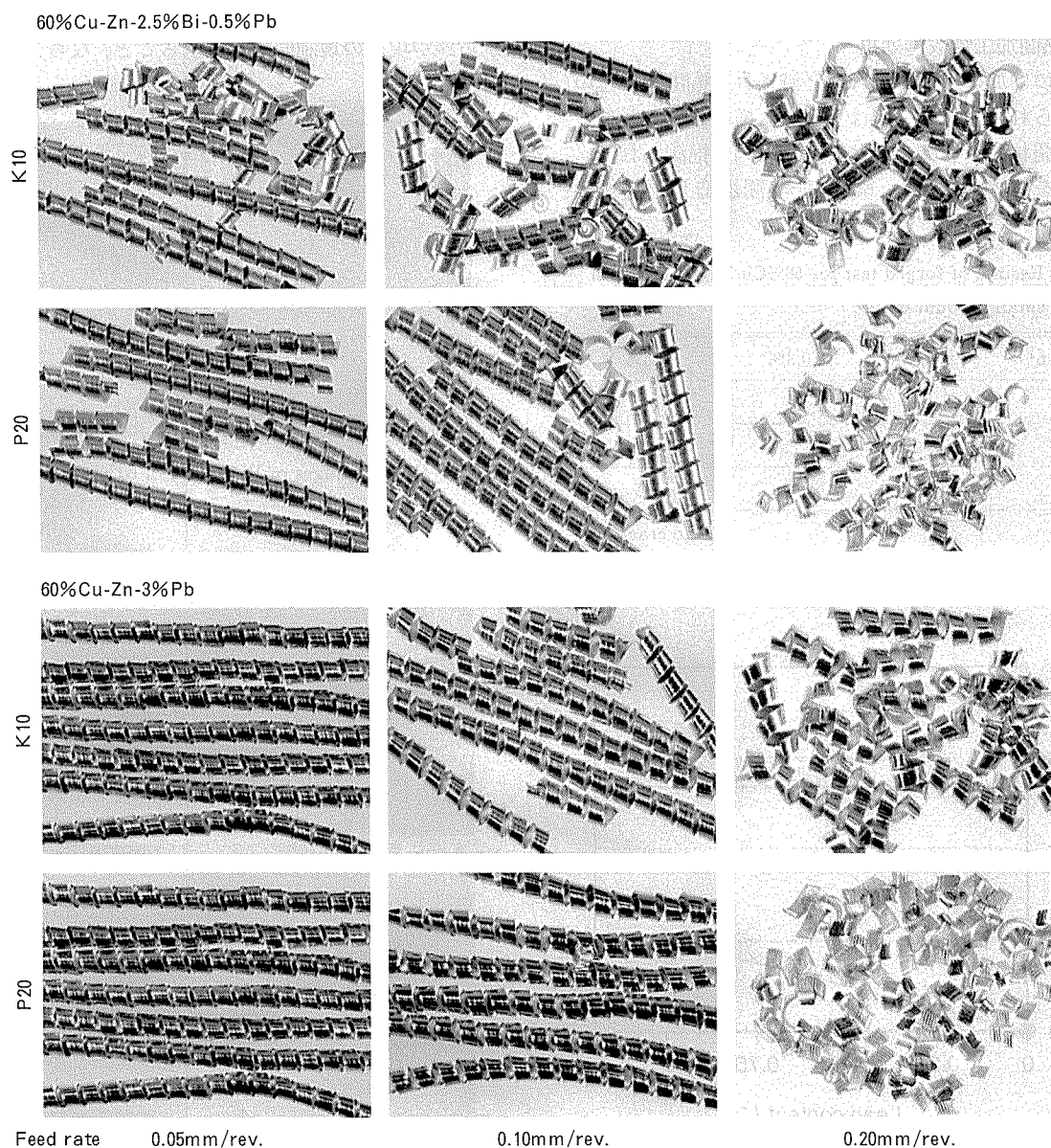


Fig. 6 Appearance of chips of 60%Cu-Zn-2.5%Bi-0.5%Pb and 60%Cu-Zn-3.0%Pb.

被削性評価における切削条件を **Table 3** に、切りくずの外観を **Fig. 6** に示す。切りくずの形状は、送り量が 0.1mm/rev.以下のときには流れ型であり、送り量が 0.2 mm/rev.のときには、工具材質が K10 の場合には流れ型、P20 の場合にはせん断型へ移行中の形状となった。供試材の切りくずは、比較材よりも分断する傾向がみられたが、その優位差はわずかなものであった。

鉛溶出試験の結果、比較材の鉛溶出量が 0.804[mg/L・表面積 cm<sup>2</sup>/浸出液容積 cm<sup>3</sup>] に対し、供試材の鉛溶出量は、0.113 [mg/L・表面積 cm<sup>2</sup>/浸出液容積 cm<sup>3</sup>] であり、**Fig. 3** の結果と同様、鉛含有量と鉛溶出量の間にはおおよそ比例関係があった。また、鉛溶出量の経時変化を調査した結果、鉛溶出量は初期が最も高く、日数の経過と共に減少した。すなわち、従来の鉛入り快削黄銅が現行の規制値を満足することを考慮すると、鉛溶出量が初期状態で鉛入り快削黄銅の 1/5 以下を満足するこの材料は、鉛溶出規制強化値をクリアするための必要条件を満たした材料と言える。

## 6. ま と め

鉛を微量添加した Cu-Zn-Bi 合金の諸特性を調査した。

Bi と  $\beta$ Pb が共晶として存在することにより、ビスマスの  $\alpha$  粒子に対する濡れ性が低下し、その結果、分散粒子が微細化され、分散粒子間距離が低減された。また分散粒子の微細化、分散粒子間距離の低減により、被削性および熱間加工性は、鉛無添加の場合よりも改善された。

鉛溶出特性を調査した結果、鉛濃度の増加につれて鉛溶出量は増加し、鉛含有量と鉛溶出量の間には比例関係があった。

以上の結果から、ビスマス置換型快削黄銅に鉛を微量添加することにより、鉛溶出規制を満足しつつ、被削性の向上が可能となる。具体的には、0.5%までの鉛含有が許容され、その結果、鉛入り快削黄銅スクラップの混入または積極的な使用が可能となる。

## 参 考 文 献

- 1) 安藤哲也, 渥美哲郎, 吉川善浩: 伸銅技術研究会誌, **40** (2001), 253.
- 2) 『給水装置の構造及び材質の基準に関する省令』, 厚生労働省令第 14 号, (1997).
- 3) J. T. Plewes and D. N. Loiacono: Advanced Materials and Processes, **140** (1991), 23.

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 110-115

TECHNICAL PAPER

# Air-Cooled Cross-Fin-Tube-Type Heat Exchanger Performances\*

Naoe Sasaki\*\*, Shiro Kakiyama\*\* and Hiroyuki Morita\*\*\*

# Air-Cooled Cross-Fin-Tube-Type Heat Exchanger Performances\*

Naoe Sasaki\*\*, Shiro Kakiyama\*\* and Hiroyuki Morita\*\*\*

The performance of air-cooled heat exchangers consisting of several kinds of tubes were experimentally investigated and compared in this study. The experiments were performed with the heat exchanger installed in the inner unit of an actual air-conditioner for residential use. It was confirmed that the heat capacity of the heat exchanger consisting of inner grooved tubes during condensation was evidently higher than that of smooth tubes and significantly affected by the deformation of the groove profile due to the tube expanding with bullets. For evaporation, the capacity of the heat exchanger consisting of inner grooved tubes was approximately equal to that of the smooth tubes and the effect of the deformation on the capacity was smaller than that during condensation.

## 1. Introduction

Recently, the global environmental issues such as stratospheric ozone depletion and global warming are of worldwide concern. The revised law for energy-saving was enforced in 1999 to control the global warming in Japan. Air-conditioners were one of the specified machinery and tools regulated by this law in which the "Top-runner" method was applied and an objective coefficient of performance (COP) was established for every range of cooling capacity. In this method, air-conditioners with a cooling capacity of 2.2 to 2.5 kW have to realize a mean COP weighted by shipped sets of 5.27 by 2004.

Thus the manufacturers of air-conditioners have realized that they have to tackle the difficult problem of improving the COP<sup>1)~3)</sup>. Therefore, the manufacturers of heat transfer tube need to develop high performance tubes for air-conditioners because this can improve the performances of the air-conditioner without a big change in the system design. The de-

gree of improvement in the performance of the air-conditioner only by applying a high performance tube becomes lower year by year due to the unbalance of the heat transfer coefficient between the air side and refrigerant side. For the manufacturers of heat transfer tubes, improvement in the performance of the heat exchanger is more important than that of the heat transfer tube<sup>4),5)</sup>.

In this paper, we present the experimentally investigated data for the unit heat exchanger performance and consider the effect of the tube shape, i.e., smooth tube and several kinds of inner grooved tubes, the change in tube shape by the tube expanding with bullets, and the heat transfer properties inside the tube sampled from the tested heat exchanger on the unit heat exchanger capacity.

## 2. Experiments

### 2.1 Experimental apparatus

A schematic diagram of the experimental apparatus used for the capacity measurement of the tested heat exchangers is shown in Fig. 1. The air under fixed conditions was drawn over the heat exchanger by a wind tunnel installed in the hermetic testing room and the refrigerant was supplied to the heat exchanger by the refrigerant supply device.

The wind tunnel was composed of the test

\* The main part of this paper was presented at Third International Conference on Compact Heat Exchangers and Enhanced Technology for the Process Industries, Davos, Switzerland, July 1-6, (2001).

\*\* No.4 Department, Research & Development Center

\*\*\* Production Department, Copper Works, Production Division

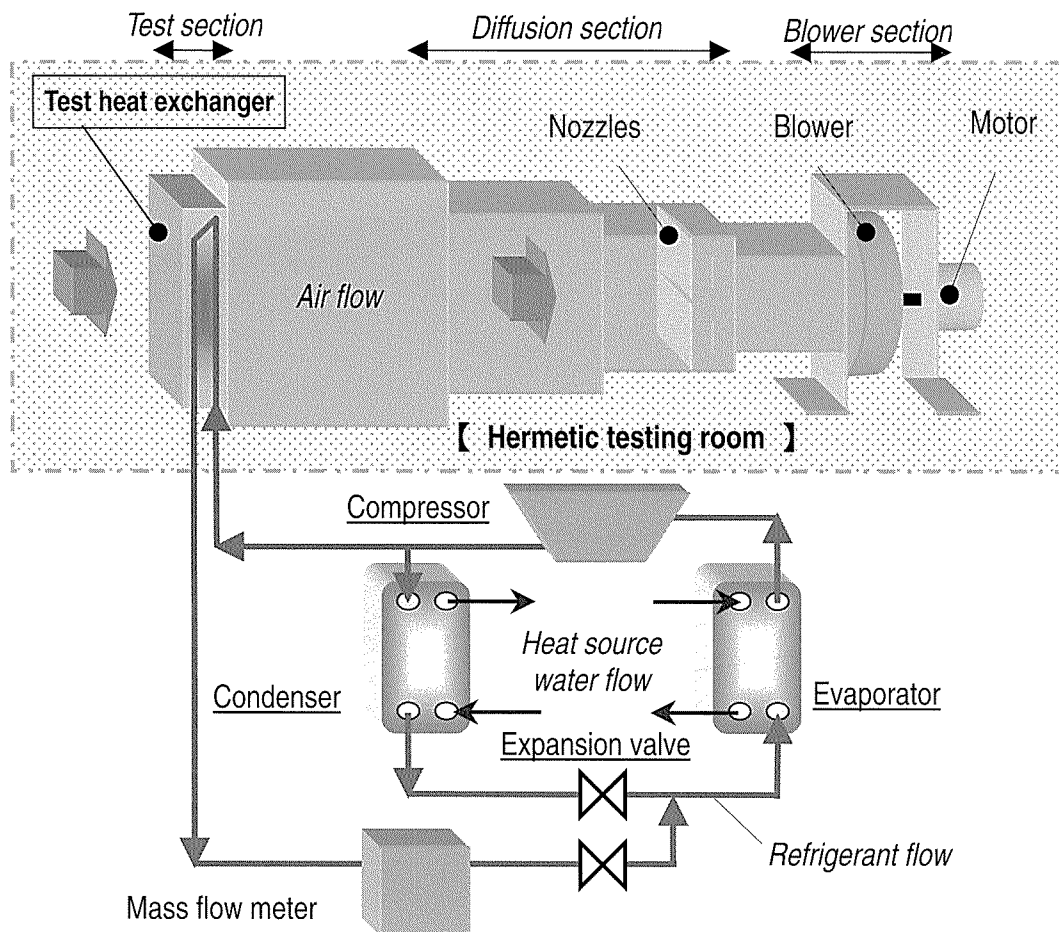


Fig. 1 Schematic diagram of the experimental apparatus.

section, the diffusion section, and the blower section. The blower sucked the air from the wind tunnel, and the air flow rate used to calculate the frontal air velocity was determined from the measurement of the static pressure differences across the calibrated nozzles.

The refrigerant supply device consisted of a compressor, a condenser, two expansion valves, an evaporator, and a mass flow meter.

## 2.2 Test heat exchanger

Schematic illustrations and specifications of the heat exchanger tested in these experiments are shown in Fig. 2. The table lists information on the fin and tube that composed the test heat exchanger. The heat exchanger was placed on the test part of the wind tunnel and connected to the refrigerant supply device.

Dimensions of the heat transfer tubes that are component parts of test heat exchanger are shown in Table 1. The heat transfer tube

No.1, No.2, and No.3 are inner spirally grooved tubes, and the No.4 heat transfer tube is a smooth tube. The tube arrangement of the test heat exchanger is schematically shown in Fig. 3. The heat transfer tubes were positioned in a staggered array with two rows. Parallel and counter refrigerant flows were applied to the test heat exchanger during evaporation and condensation, respectively, to evaluate the heat exchanger performances for HCFC-22.

## 2.3 Experimental conditions

The experimental conditions during evaporation and condensation are shown in Table 2. The frontal air velocity ranged from 0.6 to 1.2 m/s. The evaporation and condensation temperatures of the refrigerant were determined from the saturation temperature corresponding to the refrigerant pressures measured at the outlet and inlet of the test heat exchanger during evaporation and condensation,



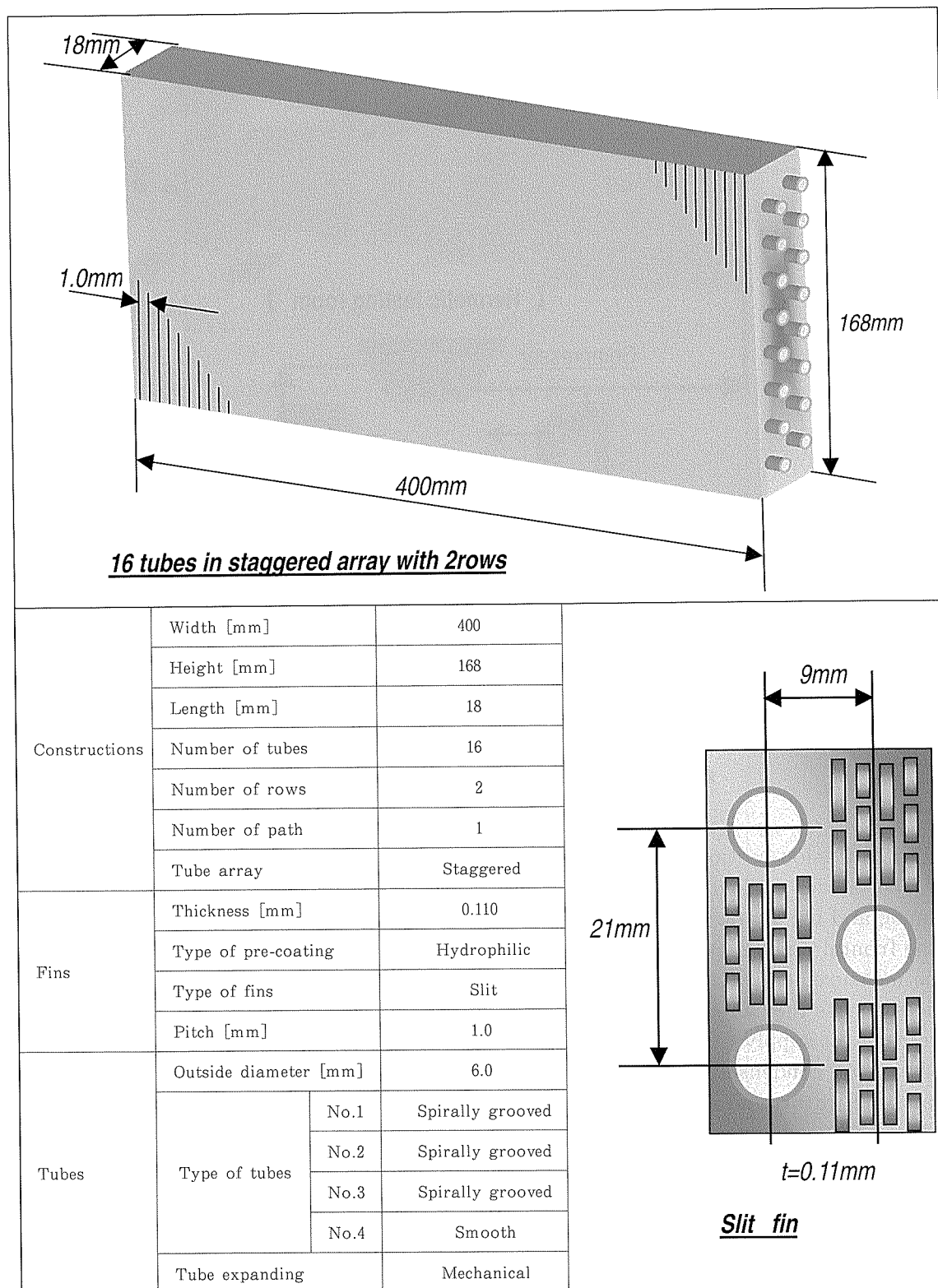


Fig. 2 Schematic illustration of the test heat exchangers.

respectively.

## 2.4 Data reduction

The capacity of the heat exchanger,  $Q$ , was defined by the following equation :

$$Q = G \Delta h \quad (1)$$

where  $G$  and  $\Delta h$  are the refrigerant mass flow rate and the enthalpy difference between the inlet and outlet of the refrigerant, respectively.  $\Delta h$  was found by the following equations (2) for evaporation and (3) for condensation.

$$\Delta h = h_o - h_i \quad (2)$$

$$\Delta h = h_i - h_o \quad (3)$$

where  $h_o$  is the outlet enthalpy of the refrigerant and  $h_i$  is the inlet enthalpy of the refrigerant. On the other hand,  $Q$  was given by the following equation :

$$Q = \rho c_p u A \Delta T \quad (4)$$

where  $\rho$  is the density of the air,  $c_p$  is the specific heat of the air,  $u$  is the frontal velocity of the air,  $A$  is the area of the heat exchanger, and  $\Delta T$  is the temperature difference of the air between the inlet and outlet of the test section.

Table 1 Dimensions of installed tubes.

No.		1	2	3	4
Outside diameter [mm]	a	6.24	6.24	6.24	6.30
	b	6.00	6.00	6.00	6.00
Wall thickness [mm]	a	0.25	0.25	0.25	0.27
	b	0.25	0.25	0.25	0.30
Groove depth [mm]	a	0.16	0.16	0.09	—
	b	0.19	0.19	0.17	—
Apex angle [deg]	a	18	25	—	—
	b	23	30	23	—
Helix angle [deg]	a	18	17	18	—
	b	14	13	14	—
Number of grooves	a	45	50	40	—
	b	45	50	40	—
Type of tubes		Spirally grooved			Smooth

a : After tube-expanding, b : Before tube-expanding.

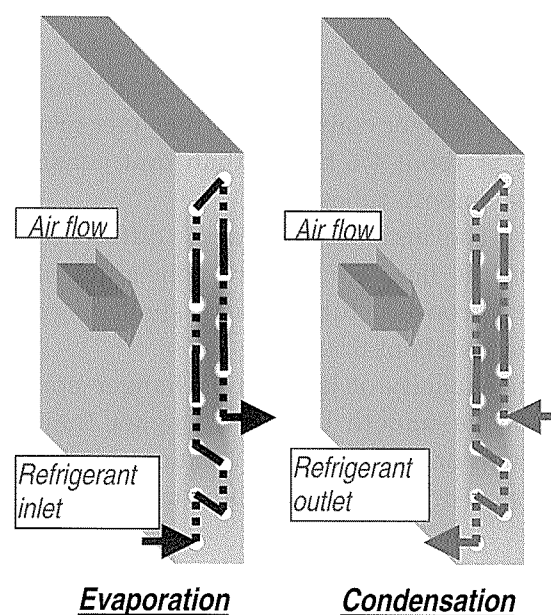


Fig. 3 Tube arrangement of the test heat exchangers.

Table 2 Experimental conditions.

Type of test			Evaporation	Condensation
Air side	Dry bulb temperature [K]		300	293
	Wet bulb temperature [K]		292	288
	Frontal air velocity [m/s]		0.6 to 1.2	
Refrigerant side	Saturation temperature [K]		281	319
	Inlet conditions	Quality	0.22	—
		Degree of superheat [K]	—	34
	Outlet conditions	Degree of superheat [K]	2	—
		Degree of subcooling [K]	—	13

The heat balance between the refrigerant side and the air side was found to be in good agreement within 3%. Therefore, the capacity of the heat exchanger was defined by the capacity on the refrigerant side.

### 3. Results and discussions

#### 3.1 Capacity during evaporation

The relationship between the capacities during evaporation of the test heat exchangers and the frontal air velocity is shown in Fig. 4. Comparisons between the capacities of the test heat exchangers at 1.0m/s for the frontal air velocity that is almost equal to that in an actual heat exchanger installed in the inner unit of residential air conditioners reveal the following results :

(1) The capacity of the highest performing heat exchanger consisting of the inner grooved tubes is about 4% higher than that consisting of the smooth tubes.

(2) The maximum capacity difference between the heat exchangers consisting of the inner grooved tubes with similar groove shapes is about 6%.

The capacity of the heat exchanger consisting of the smooth tubes was higher than our expectation. The effect of a decrease in the pressure drop in the smooth tubes seemed to

be considered as the reason. Decreasing of the pressure drop would make the increasing of the temperature difference between the air and refrigerant around the inlet of the refrigerant.

#### 3.2 Capacity during condensation

The relationship between the capacities during condensation of the test heat exchangers and the frontal air velocity is shown in Fig. 5. Comparisons between the capacities of the test heat exchangers at a 1.0m/s frontal air velocity reveal the following results :

(1) The capacity of the highest performing heat exchanger consisting of the inner grooved tubes is about 16% higher than that consisting of the smooth tubes.

(2) The maximum capacity difference between the heat exchangers consisting of the inner grooved tubes with similar groove shapes is about 8%.

The capacity difference between the heat exchangers consisting of the inner grooved tubes with similar groove shapes was greater than our expectation. It seemed to be the influence of the groove shape deformation in the tube expanding process using bullets.

### 4. Conclusions

Evaluation of the unit performance of the air-cooled heat exchangers consisting of three

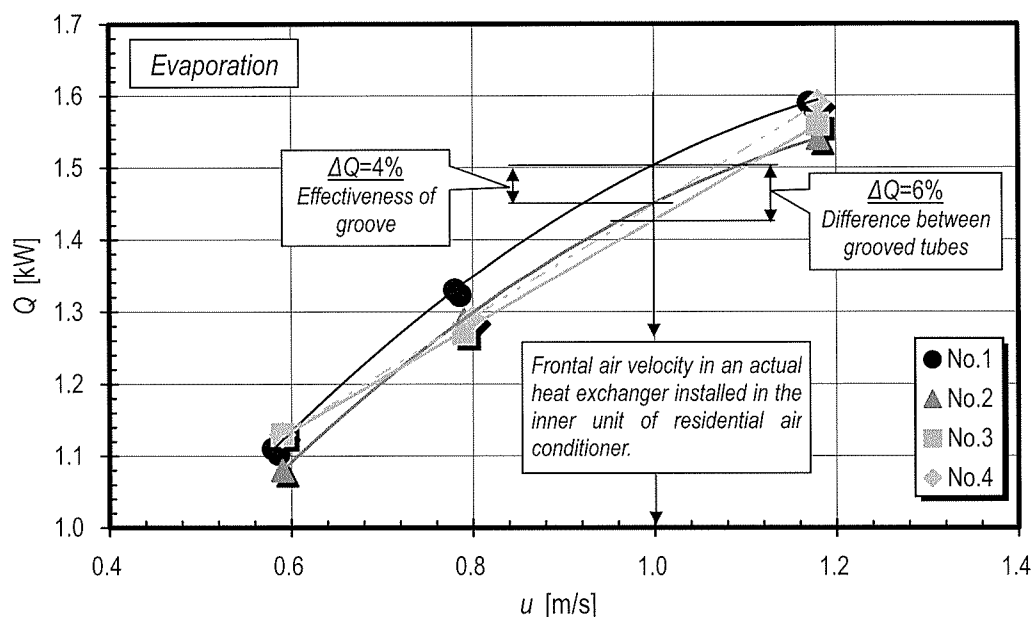


Fig. 4 Capacity of the heat exchangers during evaporation.

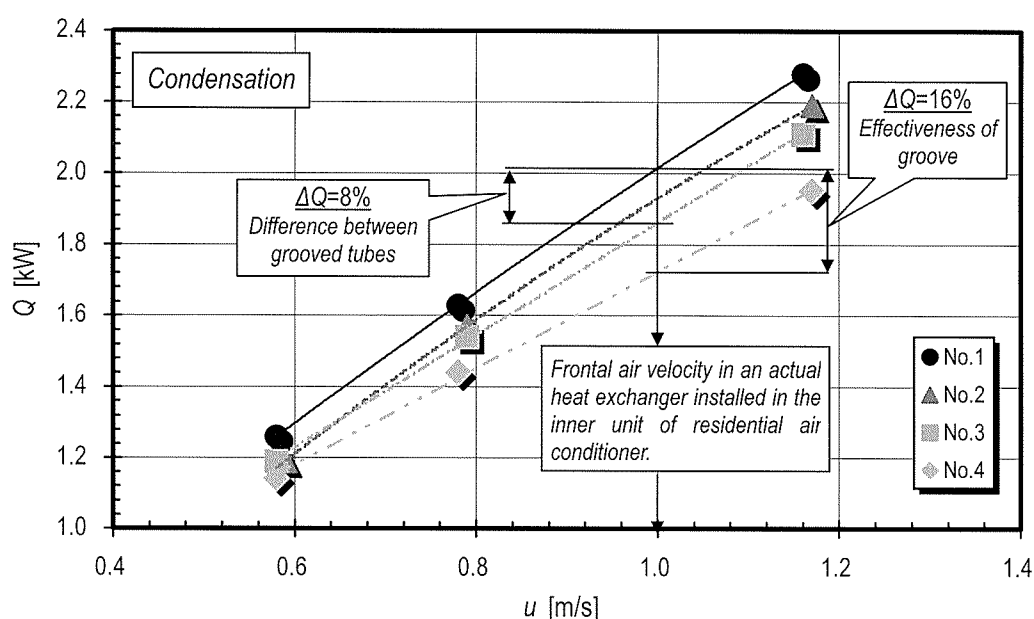


Fig. 5 Capacity of the heat exchangers during condensation.

kinds of inner spirally-grooved tubes and the smooth tubes was experimentally carried out in this study. We obtained the following conclusions.

(1) The capacity of the cross-fin-tube-type heat exchanger consisting of the inner grooved tubes during condensation was evidently higher than that of the smooth tubes and significantly affected by the deformation of the groove shape due to the tube expanding using bullets.

(2) The capacity of the cross-fin-tube-type heat exchanger consisting of the inner grooved tubes during evaporation was approximately equal to that of the smooth tubes, and the effect of the deformation of the groove shape on the capacity was smaller than that during condensation.

#### References

- 1) T. Ebisu, K. Kasai, and K. Torikoshi : Proceedings of 3rd KSME / JSME Thermal Engineering Conference, 3, (1996), 179.
- 2) T. Ebisu, K. Yoshida, K. Torikoshi, and Y. Ohkubo: Proceedings of the 30th Japanese Joint Conference on Air-conditioning and Refrigeration, (1997), 65 (in Japanese).
- 3) K. Torikoshi and T. Ebisu : Proceedings of the International Conference on Compact Heat Exchangers and Enhancement Technology for the Process Industries, (1998), 17.
- 4) S. Kakiyama, N. Sasaki, and H. Morita : Proceedings of 39th Copper Technological Research Meeting Lecture Meeting, (1999), 25 (in Japanese).
- 5) N. Sasaki, S. Kakiyama, and H. Morita : Proceedings of 37th National Heat Transfer Symposium of Japan, Vol. 3, (2000), 673 (in Japanese).

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 116-122

TECHNICAL PAPER

# The Observer-based Loop Control for a Bullblock Drawing Machine\*

Hiroki Yamanashi\*\*, Ikuya Hoshino\*\*\*,  
Yoshihide Okamura\*\*\*\* and Haruo Tanaka\*\*\*\*\*

## TECHNICAL PAPER

# The Observer-based Loop Control for a Bullblock Drawing Machine\*

Hiroki Yamanashi\*\*, Ikuya Hoshino\*\*\*,  
Yoshihide Okamura\*\*\*\* and Haruo Tanaka\*\*\*\*\*

This paper describes the observer-based loop control for a bullblock drawing machine. The salient features of this design are that the disturbance observer is constructed as a constitutive control loop without a conventional PI control loop. The mathematical model of plant, the measurement of plant gain, the design procedure of control system, the block diagram of control system, numerical simulation results of the conventional and the new control and practically obtained results are shown in this paper. The new control system is characterized to be stable in the case when the mismatch of plant gain between the model and the actual is assumed to be 50%, and the magnitude of loop variation has been reduced to about two-thirds in the plant. The new system has also the merit that makes it easy to tune the controller, because the controller parameters are directly determined using the plant parameters without numerical calculation.

## 1. Introduction

Bullblock drawing is the main process in copper tube manufacturing and the improvement of the drawing speed is one of the most important technical subjects in copper tube plants. To improve the drawing speed, it is important to well regulate the vibration caused by the variation in the material loop quantity.

In this paper, the mathematical model which will clarify the mechanism of the loop quantity variation in a bullblock drawing machine is described and the new control system based on the disturbance observer is presented. The general design methodology, which positively uses the disturbance observer, has been proposed by Kimura<sup>1)</sup> based on the design theory established by Wonham and his co-workers. The effectiveness of this method has been clarified through various application results

<sup>2)~5)</sup> but these application objects are all theoretically stable plants. The plant in this paper is unstable which has an explicit integrator and the effectiveness of the observer-based design method has been shown for such an unstable plant. The emphasis is on the fact that the disturbance observer is constructed as a constitutive control loop without a conventional PI control loop and the system design is accomplished in a more consistent way than the method which uses the disturbance observer in addition to the conventional control.

## 2. Outline of the plant

### 2.1 Bullblock drawing machine

Fig.1 shows a schematic diagram of a

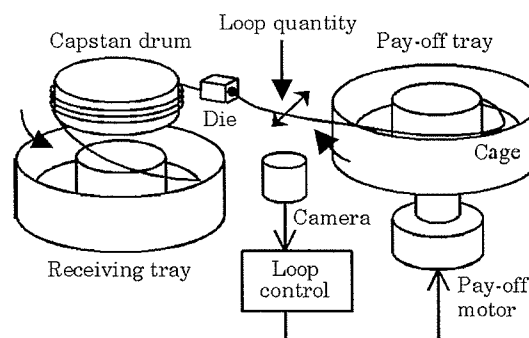


Fig. 1 Schematic diagram of a bullblock drawing machine.

\* This paper was presented at Trans. SICE, 38 (2002), 73.

\*\* Engineering & Maintenance Dept., Copper works, Production Division

\*\*\* No.2 Dept., Research & Development Center, Dr. of Eng., died on 9th March 2000.

\*\*\*\* No.2 Dept., Research & Development Center, Dr. of Eng.

\*\*\*\*\* General Affairs Dept., Copper works, Production Division

bullblock drawing machine. Copper tube in a cage on a pay-off tray is threaded through a die, wiped around a capstan drum, drawn continuously and the tube with a reduced diameter is put in a cage on a receiving tray. The speed difference between the capstan drum and the pay-off tray determines the loop shape of the tube on the pay-off side which generate the tube vibration. The loop quantity is detected by a CCD camera and controlled by manipulation of the rotation speed of the pay-off motor as shown in Fig. 1.

## 2.2 Mathematical model

The loop quantity is proportional to the difference between the tube wind up length by the capstan drum and the wind off tube length by the pay-off tray as follows.

$$\Delta L_x \cong f(\Delta W) \cong K_g \Delta W \quad (1)$$

$\Delta L_x$  : loop quantity

$\Delta W$  : difference between the wind up length and the wind off length

$K_g$  : proportional relation between  $\Delta L_x$  and  $\Delta W$  (plant gain)

$\Delta W$  is the integral of the difference between the capstan drum speed and the pay-off cage speed as follows.

$$\Delta W = \int_0^t \{(1-r) V_C - V_{POR}\} dt \quad (2)$$

$r$  : reduction (mass reduction by drawing)

$V_C$  : capstan drum speed

$$V_{POR} = V_{POR}^{line} + \Delta V_{POR} \quad (3)$$

$\Delta V_{POR}$  : pay-off cage speed variation

$V_{POR}^{line}$  : pay-off cage base speed

Here, the variation from a ideal value for the difference between the pay-off cage speed and capstan drum speed is recognized as the disturbance,  $d$ , which is given as follows.

$$d = (1-r) V_C - V_{POR}^{line} \quad (4)$$

From equations (2), (3) and (4), the following equation is formulated.

$$\Delta W = \int_0^t (-\Delta V_{POR} + d) dt \quad (5)$$

From equations (1) and (2), the loop quantity is given as follows.

$$\Delta L_x = K_g \int_0^t (-\Delta V_{POR} + d) dt \quad (6)$$

The speed change of the pay-off motor,  $\Delta V_{POR}$ , is represented as follows.

$$\Delta V_{POR} = G_M(s) \Delta V_{POR}^{ref} \quad (7)$$

$G_M(s)$  : transfer function of the pay-off motor

$\Delta V_{POR}^{ref}$  : speed change reference of the pay-off motor

Here, the transfer function of the pay-off motor is supposed to be a two degree system as follows.

$$G_M(s) = \frac{\omega_n^2}{s^2 + 2\xi\omega_n s + \omega_n^2} \quad (8)$$

$\omega_n$  : natural frequency

$\xi$  : damping factor

$s$  : Laplace operator

From equations (6), (7) and (8), the loop quantity,  $\Delta L_x$ , is represented as follows. Equation (9) gives the mathematical model of the plant.

$$\Delta L_x = \frac{K_g}{s} \left( -\frac{\omega_n^2}{s^2 + 2\xi\omega_n s + \omega_n^2} \Delta V_{POR}^{ref} + d \right) \quad (9)$$

The block diagram of the plant is shown in Fig. 2. The plant is an unstable system with an explicit integrator.

## 2.3 Plant gain

The major factor of the plant characteristic variation is the dependence of the plant gain

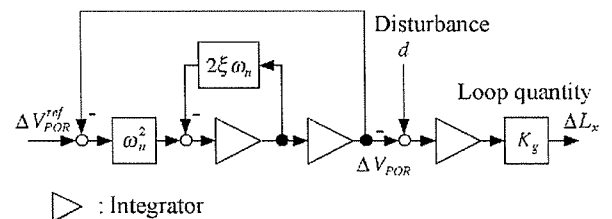


Fig. 2 Block diagram of the plant.

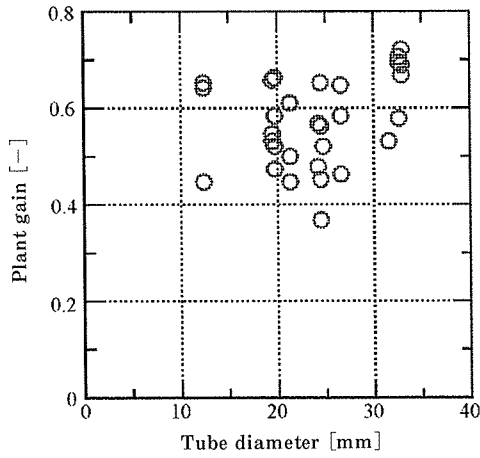


Fig. 3 Plant gain variation range.

on the tube size and so on. Fig. 3 shows the plant gain measured from the ratio of the loop quantity and the manual pulled tube length from the die side under the steady state, that is, the bullblock is stopped. The variation range of the plant gain is from 0.4 to 0.7 under the non operation state and a wider variation range is supposed under the operation state. Therefore, it is desirable to be improved the model accuracy and important to design a robust controller which can admit such model error.

In this paper, the observer-based synthesis method has been proposed to address the disturbance positively. One of the salient features of this design method is that the controller parameters are analytically derived from the plant parameters and makes it easy to tune the controller in actual implementation.

### 3. Control system design

#### 3.1 Design procedure

The design procedure is composed of the following three steps.

(Step 1) Improve the response characteristics by state feedback. (*Internal Compensation*)

(Step 2) Compute the feedforward control input to counterbalance the disturbance. (*Feedforward Control*)

(Step 3) Implement the feedforward control by feedback control based on the estimation of the disturbance by the observer. (*Feedback Realization*)

The object plant is unstable with a pole at the origin point as shown in Fig. 2. Therefore, the state feedback of step 1 is necessary to stabilize the plant.

In this paper, a step type model is applied as the mathematical model of the disturbance which is required to construct the disturbance observer for step 3.

#### 3.2 Internal compensation and feedforward control

The state feedback is given as follows.

$$\Delta V_{POR}^{ref} = k_1 \Delta L_x + k_2 \Delta V_{POR} + k_3 \Delta \alpha + \Delta V_{FF} \quad (10)$$

Here,  $k_1$ ,  $k_2$  and  $k_3$  are the state feedback gains, and  $\Delta V_{FF}$  is an additional feedforward input to compensate the disturbance. The control objective is to achieve the regulation as follows.

$$\Delta L_x \rightarrow \Delta L_x^{ref}(t \rightarrow \infty) \quad (11)$$

The feedforward input to counterbalance the disturbance is given as follows.

$$\Delta V_{FF} = (1 - k_2)d - k_1 \Delta L_x^{ref} \quad (12)$$

Here,  $\Delta L_x^{ref}$  is the reference of  $\Delta L_x$  and is usually equal to zero.

#### 3.3 State observer and disturbance observer

The state estimation is given as follows.

$$\begin{aligned} \Delta \hat{\alpha} &= s \cdot \hat{G}_M(s) \Delta V_{POR}^{ref} \\ \Delta \hat{V}_{POR} &= \frac{1}{s} \Delta \hat{\alpha} \end{aligned} \quad (13)$$

Here,  $\Delta \hat{\alpha}$ ,  $\hat{G}_M(s)$  and  $\Delta \hat{V}_{POR}$  are estimates of  $\Delta \alpha$ ,  $G_M(s)$  and  $\Delta V_{POR}$ , respectively. The above equations are the so called state observer which gains are equal to zero. Because the initial values of the state variables of the actuator are known, the observer gains could be equal to zero.

If the model of the disturbance is assumed to be a step type as follows,

$$\frac{d}{dt}d = 0 \quad (14)$$



the disturbance observer is given by the following equation.

$$\hat{d} = F(s) \left( \Delta \hat{V}_{POR} - \frac{1}{K_g T_o} \Delta L_x \right) + \frac{1}{K_g T_o} \Delta L_x \quad (15)$$

Here,

$$F(s) = \frac{1}{T_o s + 1} \quad (16)$$

$1/T_o$  is the observer gain and corresponds to the time constant of the disturbance estimation speed.

Using the estimates of the state variable and the disturbance, the control input is given from equations (10) and (12) as follows.

$$\Delta V_{POR}^{ref} = k_1 \Delta L_x + k_2 \Delta \hat{V}_{POR} + k_3 \Delta \hat{\alpha} + \Delta V_{FF} \quad (17)$$

$$\Delta V_{FF} = (1 - k_2) \hat{d} - k_1 \Delta L_x^{ref} \quad (18)$$

### 3.4 Designed result

Equations (13), (15), (17) and (18) give the final result of the controller. The block diagram of the control system is shown in Fig. 4.

### 3.5 State feedback gain and observer gain

If the state feedback gains are given as follows,

$$k_1 = \frac{\omega_s \omega_p^2}{\omega_n^2 K_g}, \quad k_2 = 1 - \frac{\omega_p^2 + 2\eta \omega_p \omega_s}{\omega_n^2}, \quad k_3 = \frac{2\xi \omega_n - 2\eta \omega_p - \omega_s}{\omega_n^2} \quad (19)$$

the characteristic equation of the feedback system becomes

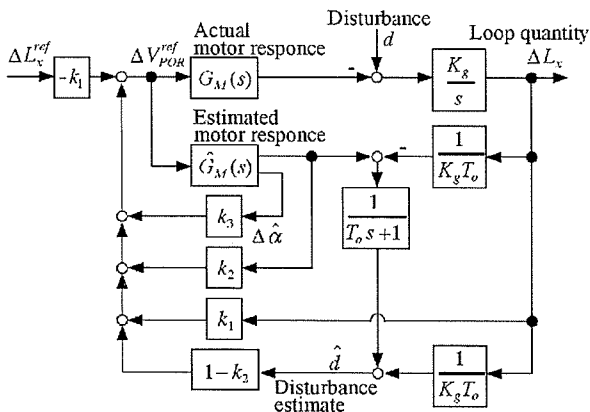


Fig. 4 Observer based control system.

$$(s + \omega_s)(s^2 + 2\eta \omega_p s + \omega_p^2) = 0 \quad (20)$$

Here,  $\omega_p$  and  $\eta$  are given as coincidence with the motor characteristics, respectively and  $\omega_s$  is almost equal to  $\omega_p$  or larger than  $\omega_p$ . The observer gain,  $1/T_o$ , is given as almost equal to  $\omega_s$  and  $\omega_p$ .

## 4. Results

### 4.1 Simulation results

The numerical simulation results of the conventional PI control and the new control are shown in Fig. 5. The conventional control is tuned by the Ziegler and Nicholes method. The tube vibration, that is, the loop quantity is further reduced by the new control than by the conventional one. The new system is also stable in the case that a 50% mismatch of the plant gain,  $K_g$ , between the model parameter and the actual parameter is assumed.

Fig. 6 shows a comparison of the controller

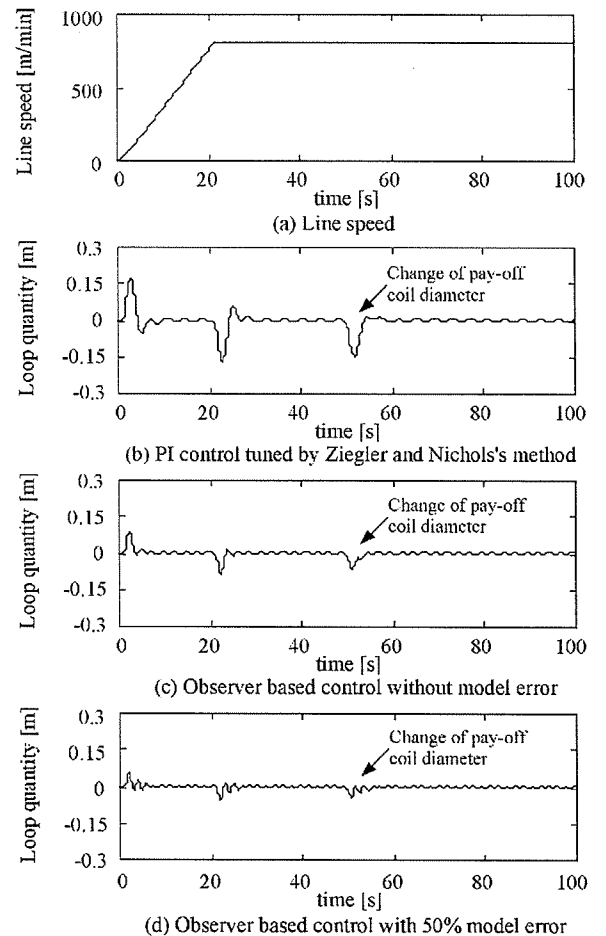


Fig. 5 Simulation results.

transfer characteristics. The new control, that is, the observer based control has phase lead characteristics in the frequency range from 1 to 10 rad/s. The effect of the phase lead characteristics makes it possible to set the controller gain higher and to obtain an improved sensitivity in the new control system.

#### 4.2 Practical results

The practical results used in the actual plant are shown in Fig. 7. The variation in the loop quantity is reduced to about two-thirds. The remained loop quantity variation in the new

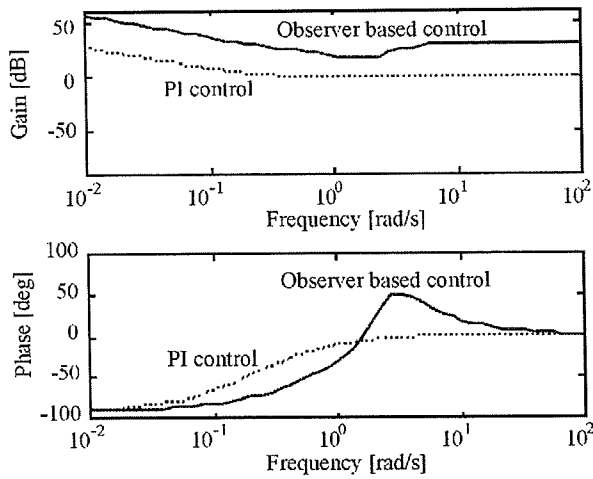


Fig. 6 Controller transfer characteristics.

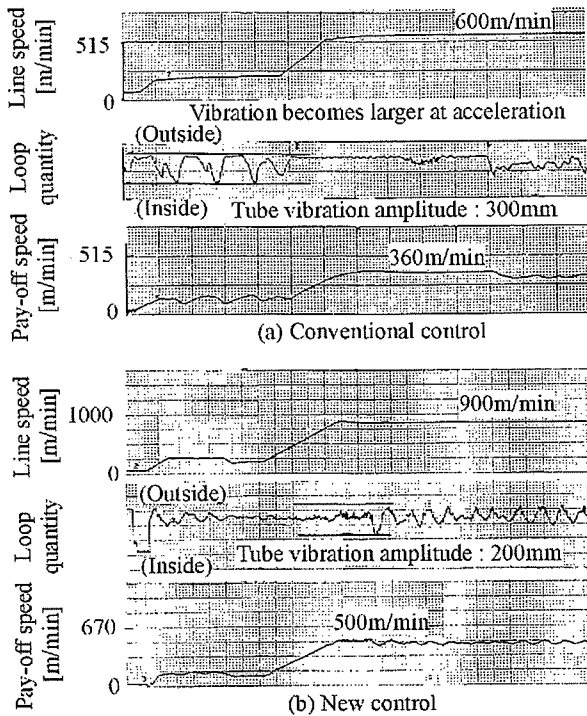


Fig. 7 Practical results.

system, 100mm, is caused by the mechanical backlash between the pay-off motor and the tray.

### 5. Discussion

#### 5.1 Additional use of disturbance observer

Some application results of the disturbance observer have been presented in the area of motion control technology such as robot control<sup>6)~10)</sup>. In these applications, the disturbance observer is additionally used to a main controller such as the PI controller to improve the sensitivity characteristics for the disturbance. The result of this method applied to the plant reported in this paper is shown in Fig. 8.

Here, the controller transfer characteristics are as follows.

$$\Delta V_{POR}^{ref} = \frac{s}{K_g(T_0s+1-\hat{G}_M(s))} \Delta L_x - \frac{(T_0s+1)K_p(T_is+1)}{(T_0s+1-\hat{G}_M(s))T_is} (\Delta L_x^{ref} - \Delta L_x) \quad (21)$$

Here,  $K_p$  is the proportional gain and  $T_i$  is the integral time of the PI control.

The relation,  $\lim_{s \rightarrow 0} \hat{G}_M(s) = 1$  gives the following equation.

$$\lim_{s \rightarrow 0} \frac{(T_0s+1)K_p(T_is+1)}{(T_0s+1-\hat{G}_M(s))T_is} = \frac{K_p}{T_0T_i} \quad (22)$$

This equation shows that the controller has a second order integrity that is redundant for the step type disturbance. The following equation shows the transfer characteristics from the reference and the disturbance to the output.

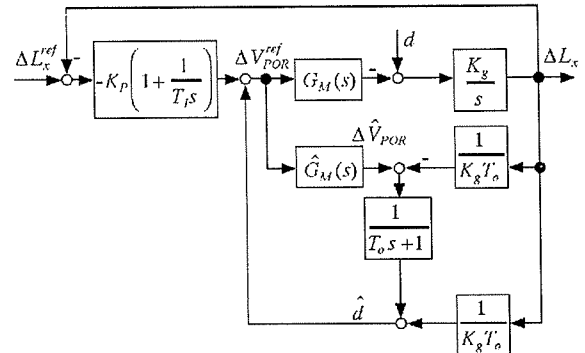


Fig. 8 Disturbance observer with PI control.

$$\Delta L_x = \frac{K_g G_M(s) K_p T_s + K_g G_M(s) K_p}{T_s^2 + K_g G_M(s) K_p T_s + K_g G_M(s) K_p} \Delta L_x^{ref} + \frac{K_g T_i (1 - F(s)) \hat{G}(s) s}{T_s^2 + K_g G_M(s) K_p T_s + K_g G_M(s) K_p} d \quad (23)$$

The transfer function from the reference to the output includes a zero which means that the output response to the reference change is easy to over shoot. These illogical results are caused by the separative design of the main controller and the disturbance observer, that is, the additional use of the disturbance observer to the main controller, and suggests the importance of the constitutive and systematic design methodologies.

The controller transfer characteristics of the new control system is as follows.

$$\Delta V_{POR}^{ref} = \frac{k_1 + (1 - k_2)(1 - F(s))/(K_g T_o)}{1 - k_2 \hat{G}_M(s) - k_3 s \hat{G}_M(s) - (1 - k_2) F(s) \hat{G}_M(s)} \Delta L_x - \frac{k_1}{1 - k_2 \hat{G}_M(s) - k_3 s \hat{G}_M(s) - (1 - k_2) F(s) \hat{G}_M(s)} \Delta L_x^{ref} \quad (24)$$

The relation,  $\lim_{s \rightarrow 0} \hat{G}_M(s) = 1$  gives the following equation.

$$\lim_{s \rightarrow 0} \frac{k_1 + (1 - k_2)(1 - F(s))/(K_g T_o)}{1 - k_2 \hat{G}_M(s) - k_3 s \hat{G}_M(s) - (1 - k_2) F(s) \hat{G}_M(s)} = \frac{k_1}{T_o(1 - k_2) - k_3} \quad (25)$$

This equation shows that the controller has a first order integrity that is sufficient for the step type disturbance.

The following equation shows the transfer characteristics from the reference and the disturbance to the output of the new system.

$$\Delta L_x = \frac{-K_g G_M(s) k_1}{k_3 \hat{G}_M(s) s - (1 - k_2 \hat{G}_M(s)) s - K_g G_M(s) k_1} \Delta L_x^{ref} + \frac{K_g (k_3 \hat{G}_M(s) s - 1 + k_2 \hat{G}_M(s) + (1 - k_2) F(s) \hat{G}_M(s))}{k_3 \hat{G}_M(s) s^2 - (1 - k_2 \hat{G}_M(s)) s - K_g G_M(s) k_1} d \quad (26)$$

The transfer function can be tuned by the state feedback gains. The transfer function from the reference to the output is not affected by the observer gain and we can see

that the observer gain tuning is independent of the response to the reference change.

## 5.2 Tuning during actual implementation

One of the most significant features of the design method which positively use the disturbance observer is that the controller parameters are analytically derived from the plant model parameters. This feature makes it easy to tune the control system when its implementation is in actual progress. For example, sometimes the values of the plant parameters could be tentatively known at the stage of the control system design and the actual values are measured when the plant is implemented and begins its operation. As a result, in the case when the controller parameters are numerically derived, a huge estimation error in the plant parameters have to be initially supposed or the controller parameters have to be recalculated by a personal computer using the measured plant parameters off to the side of the implemented plant.

In the case when the controller parameters are analytically derived as shown in this paper, the controller parameters are easily determined using the measured plant parameters without numerical calculation which makes it easy to tune the controller and easy to apply in actual operation.

## 6. Conclusion

In this paper, a new loop control system based on the disturbance observer of bullblock drawing machines has been developed and its effectiveness has been shown in actual implementation. The applied result shows that the tube vibration has been reduced to two-thirds. The feature of the design method is to use the disturbance observer as a constitutive control loop without a conventional control loop and the system design is accomplished in a more consistent way than the method which use the disturbance observer in addition to a conventional control.

## References

- 1) H. Kimura : Department of Control Engineering, Osaka University Technical Report, 85-04 (1985).
- 2) I. Hoshino, Y. Maekawa, T. Fujimoto, Hiroshi Kimura and Hidenori Kimura : Automatica, 24 (1988), 741.
- 3) I. Hoshino, M. Kawai, M. Kokubo, T. Matsuura, Hiroshi Kimura and Hidenori Kimura : Control Eng. Practice, 1 (1993), 917.
- 4) I. Hoshino, T. Abe, Hiroshi Kimura and Hidenori Kimura : Trans. of SICE, 31 (1995), 1114. (in Japanese)
- 5) I. Hoshino and H. Kimura : Automation in Mining, Mineral and Metal Processing, (1998), 251.
- 6) K. Ohnishi : JRSJ, 11 (1993), 486. (in Japanese)
- 7) G. S. Buja, H. Fujita and K. Ohnishi : Recent Advances in Motion Control, Nikkan Kogyo Shimbun, 3/12 (1990).
- 8) A. Fujimori, H. Nishida, S. Ito, Y. Todaka and Y. Mastui : 7th SICE Symposium on Control Engineering, (1999), 345. (in Japanese)
- 9) K. Asano, T. Kaji, H. Aoki, M. Ibaraki and S. Moriwaki : Trans. SICE, 30 (1994), 836. (in Japanese)
- 10) Y. Imai, H. Miyake, M. Takeshita, H. Bitoh, S. Vichai and M. Nakano : ibid., 34 (1998), 1897. (in Japanese)

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 123-132

技術資料

## 薄箔用アルミニウム合金の最近の開発動向

日比野 淳\* 福岡 潔\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 123-132

## Recent Technical Trend on Aluminium Alloys for Light Gauge Foil

Atsushi Hibino and Kiyoshi Fukuoka

住友軽金属工業株式会社研究開発センター

## 薄箔用アルミニウム合金の最近の開発動向

日 比 野 淳\* 福 岡 潔\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 123-132

### Recent Technical Trend on Aluminium Alloys for Light Gauge Foil

Atsushi Hibino and Kiyoshi Fukuoka

Aluminium foils are widely applied for food, beverage, medicine and cosmetic packaging having a number of excellent properties such as light weight, good gas barrier action and high thermal conductivity.

On the other hand, the progress of gauge down for cost saving is making serious problems such as increasing of pinhole and deterioration of mechanical properties.

In this paper, the study for the improvement of pinhole and the trend of development on Al-Fe foils to have better mechanical property is reviewed.

#### 1. 緒 言

アルミニウムは、軽量でかつ耐食性、熱および電気伝導性に優れるほか、加工性が良いことから6 $\mu\text{m}$ 程度の厚さにまで圧延することが可能である。そ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、医薬品などの包装材に使用される以外に、エッチング性に優れることから電解コンデンサを中心とした電気部品にも広く適用されている。2000年度の国内需要量は、Fig. 1に示すように135,922トンで過去最高を記録すると共に、対前年比5.2%の大きな伸びを記録したものの、その内訳は包装用がほとんど伸びていないのに対しコンデンサを含む部品・産業資材用の伸びが大きく、用途による差が見られた<sup>1)</sup>。但し、箔懇話会資料によれば、1988年度に対する2000年度の食品用アルミニウム箔の使用面積は107.9%、1,410,923 $\text{km}^2$ と増加している<sup>1)</sup>。これは製品の箔厚が薄くなっていることを示し、平均箔厚は計算上10.1 $\mu\text{m}$ から9.3 $\mu\text{m}$ に7.3%薄肉化されたことになる。これはユーザー側からの薄肉化に対する要求に呼応したものであり、箔厚の減少による機械的な特性の低下とともにピンホールの急激な増加によるガスバリアー性の低下の改善に向け、

多岐に渡る研究が続けられている。

本報は、ガスバリアー性に直接つながるピンホールに関する研究成果と箔の機械的特性の改善を目的としたAl-Fe系合金箔の開発成果についてまとめたものである。最大用途の電解コンデンサ用アルミニウム箔については、既報<sup>2), 3)</sup>の技術資料を参照されたい。また、箔の製造方法<sup>4)~9)</sup>、フィルムとの接着性<sup>10), 11)</sup>および歴史、用途、リサイクル等の総説<sup>12), 13)</sup>については、他に優れた解説があるのでそちらを参照していただきたい。

#### 2. ピンホールの発生要因とその影響

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きわめて高く、厚さ20 $\mu\text{m}$ 以上ではほとんどガスを通さないと考えて差し支えない。しかし、箔厚の減少と共にピンホールの発生は避けられなくなり、ガスバリアー性低下の原因となる。箔に存在するピンホール数については、例えば厚さ7 $\mu\text{m}$ の箔では40個/ $\text{m}^2$ <sup>8)</sup>から120個/ $\text{m}^2$ <sup>9)</sup>までの範囲の測定結果がある。Fig. 2には、7 $\mu\text{m}$ 箔のピンホールの大きさを顕微鏡を用いて測定した結果を示すが、ここからピンホールの大きさは平均 $3.87 \times 10^{-6} \text{cm}^2$ と算出される。1 $\text{m}^2$ あたりのピンホール数を100個と仮定すると透湿度は $2.66 \text{g}/\text{m}^2/24\text{hr}$ と見積もられ<sup>14)</sup>、厚さ18 $\mu\text{m}$ のポリエチレンフィルムの透湿度が $43.7 \text{g}/\text{m}^2/24\text{hr}$ であることを考え合わせると、その優位

\* 研究開発センター 第四部, 工学博士

\*\* ハイドロアルミニウム・ジャパン(株) (元 住友軽金属工業(株) 研究開発センター)

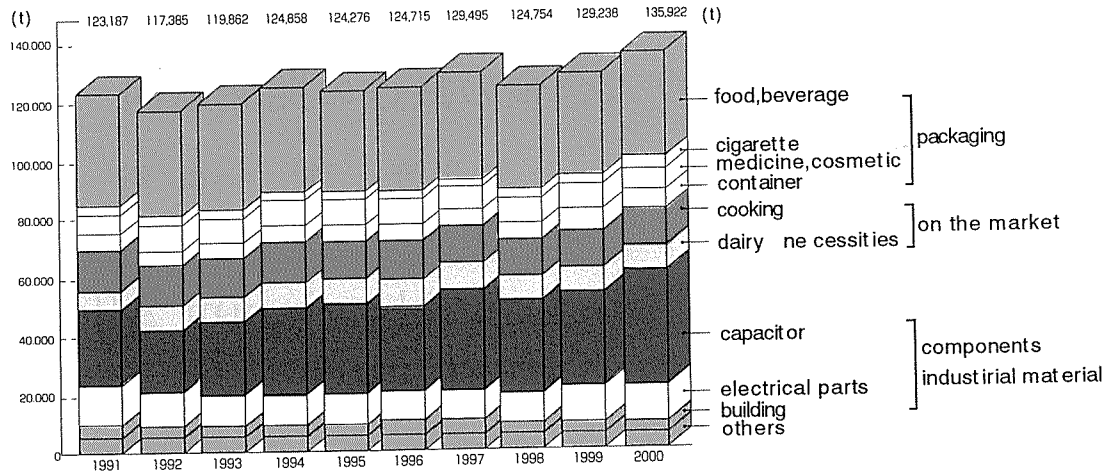


Fig. 1 Annual consumption of aluminium foil in Japan from 1991 to 2001<sup>1)</sup>.

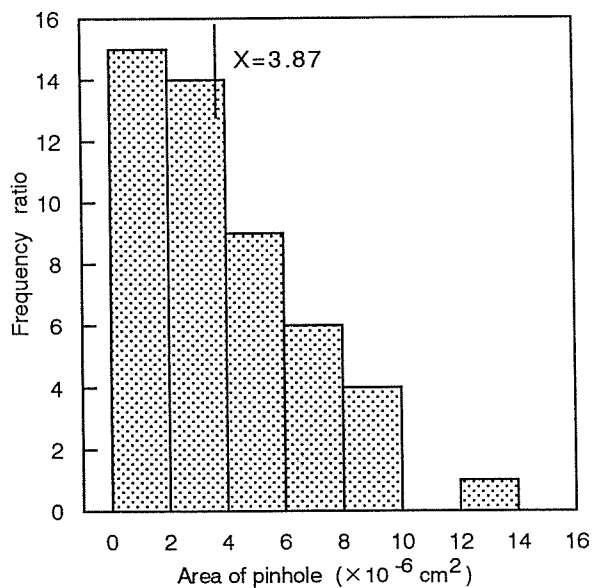


Fig. 2 Distribution of pinhole area in 7 $\mu$ m 1N30 aluminium foil<sup>14)</sup>.

性が理解できる。さらに、フィルムとの貼合せや表面への樹脂コーティング等により、透湿度を0に近いレベルまで減少させることも可能である。なお、Fig. 3には箔厚7 $\mu$ 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が、ここから、ピンホール数と透湿度はいずれも箔厚が薄くなるとともに急激に増加することがわかる<sup>5)</sup>。

また、ピンホールがガスバリアー性の他に箔の機械的な性質にも影響を及ぼすかを市販の7種類の10~15 $\mu$ m箔を用いて調査した結果をFig. 4に示す。ピンホールの増加により引張り強さが低下するのに対し、伸びには影響しないことがわかる<sup>15)</sup>。

ピンホールの発生原因については、アルミニウム片や

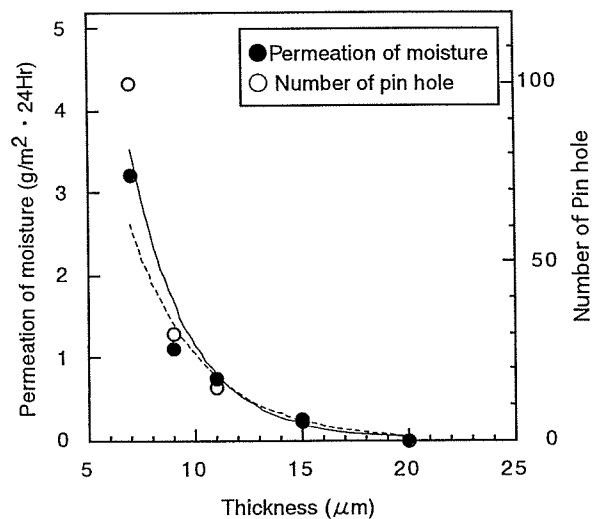


Fig. 3 The influence of thickness on permeation of moisture and number of pinhole<sup>5)</sup>.

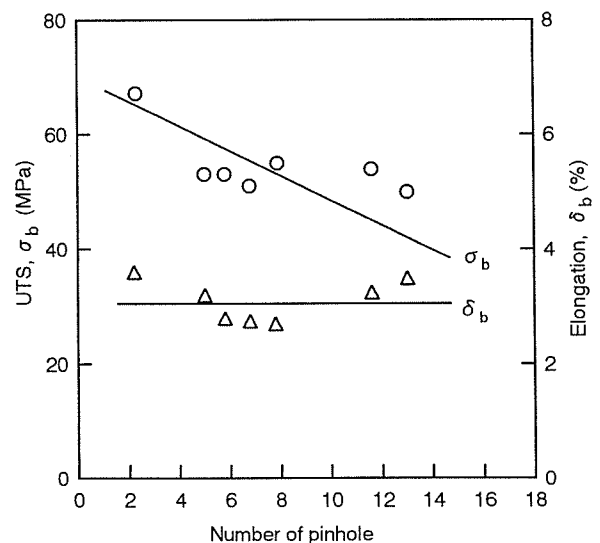


Fig. 4 The influence of number of pinhole on tensile strength and elongation<sup>15)</sup>.

介在物、粉塵等の異物の押し込みによるものの他に重合圧延したアルミニウム箔に特有なマット面のうねり等が挙げられる。Fig. 5 に各種ピンホールの例<sup>16)</sup>を示すが、酸化アルミ、鉄片、 $\text{SiO}_2$ 等の砂塵<sup>8)</sup>や鑄塊組織微細化材の $\text{TiB}_2$ <sup>17)</sup>等の異物が押し込まれたピンホールは比較的大きな穴となったり、穴が圧延で引伸ばされた線状であるのに対し、マット面のうねりに起因するピンホールはFig. 6 に示すようにそのサイズも小さく<sup>16)</sup>、発生数も非常に多い特長を有する。マット面のうねりは、ピンホール発生最大の要因と考えられ、Brzobahaty<sup>18)</sup>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マット面のうねりの大きなところ (Fig. 7) が光沢面のオイルピットと連結するためピンホールになることを提唱し、木村<sup>19)</sup>はこれをテストミルの圧延で確認 (Fig. 8) した。Kerth ら<sup>4)</sup>はマット面のうねり発生機構について、圧延面に対し  $35^\circ$  の方向で生じる shear band に沿う不均一変形が原因 (Fig. 9) であると提唱した。これに対し、やはり木村<sup>20)</sup>が2次元重ね合わせ圧縮試験により確認し、Fig. 10 に示すモデルを提案している。この他にもマッ

ト面のうねりに及ぼす要因については多くの研究が行われ、Fig. 11 に示すように圧下率が大きく<sup>21), 22)</sup>、重合面の潤滑性が良い場合にうねりが大きくなること、ロール径とロール面粗さの影響はほとんど無いこと<sup>21)</sup>、また、Fig. 12 に示すように後方張力の影響は大きいが前方張力の影響は小さいこと<sup>21)</sup>等の圧延条件の影響について報告されている。

また、圧延条件以外にもアルミニウム中に存在する金

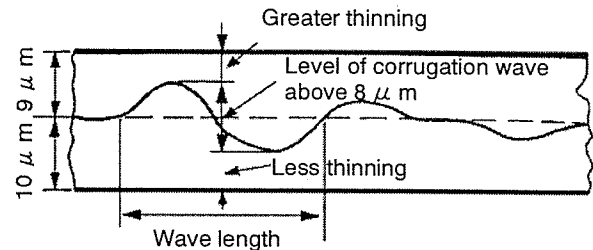


Fig. 7 Diagram of corrugation of pair-rolled foils, 9 and 10 microns thick<sup>18)</sup>.

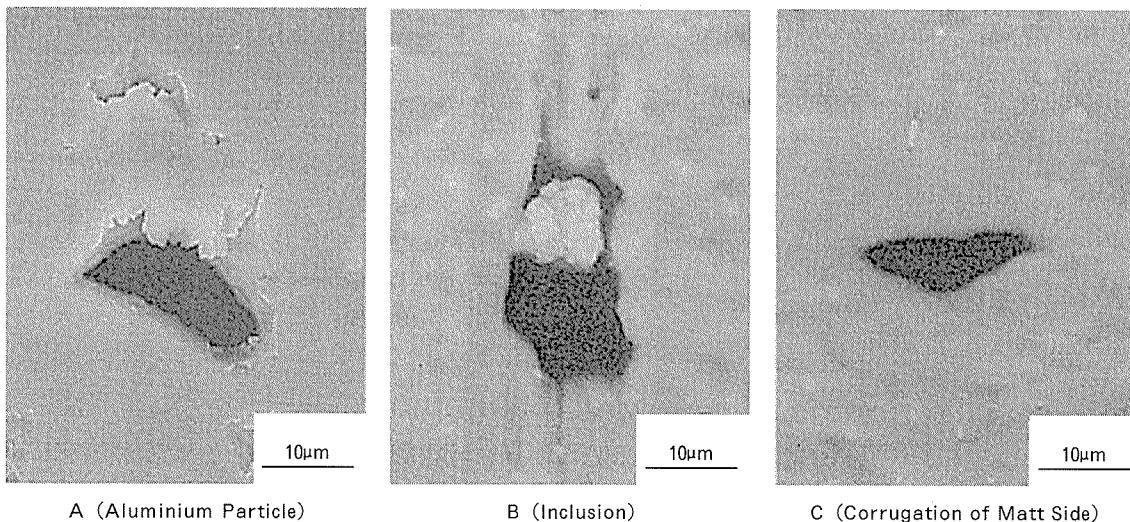


Fig. 5 Classification of pinholes in aluminium foil<sup>16)</sup>.

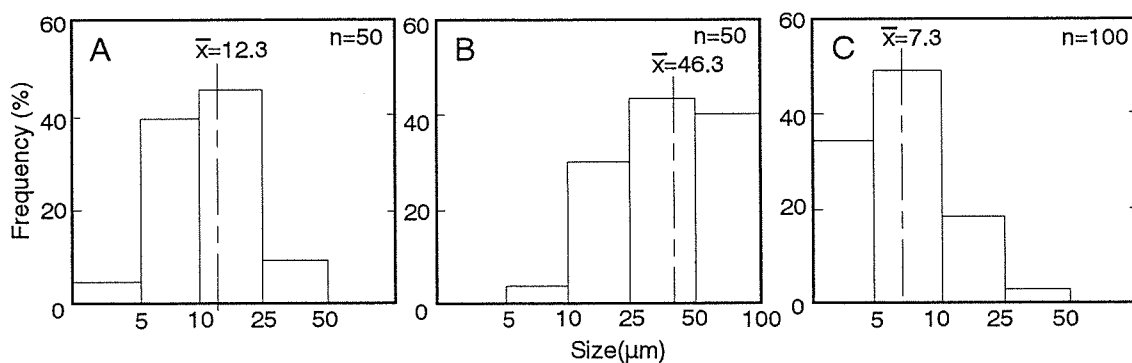
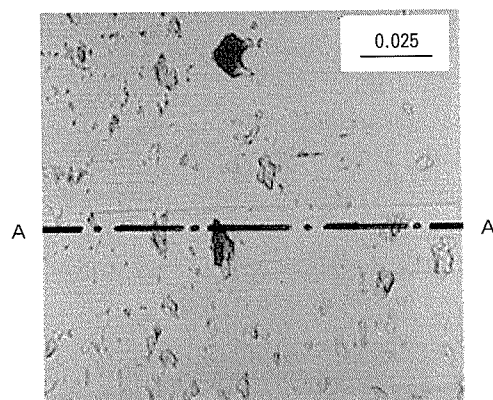
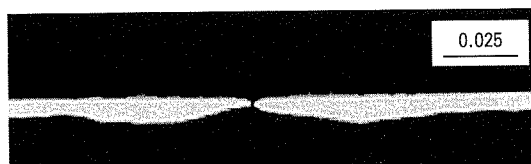


Fig. 6 Size distribution of pinholes in each type (A, B and C)<sup>16)</sup>.

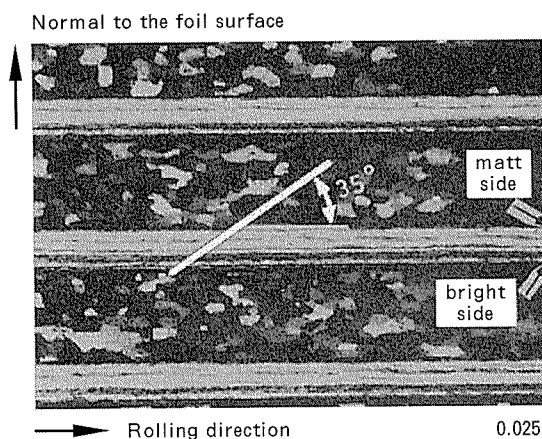




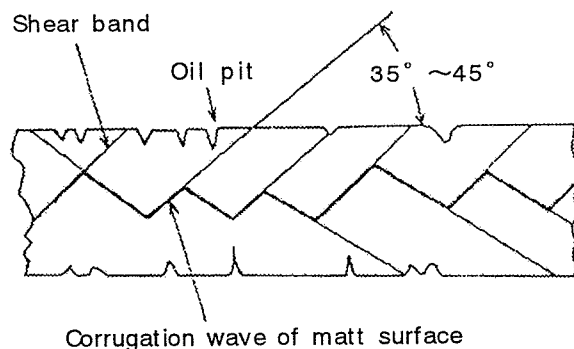
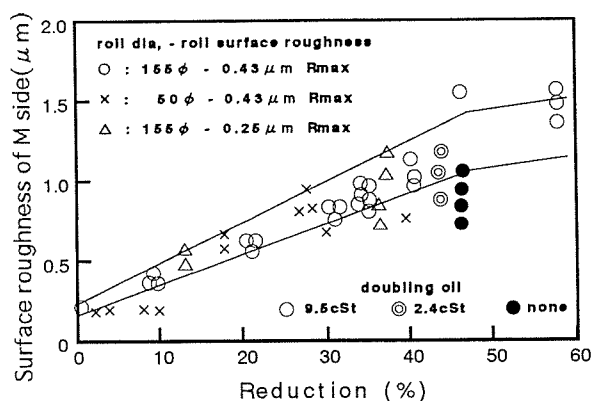
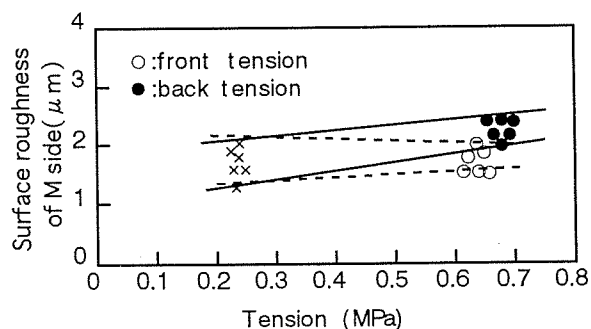
Bright side of rolled foil surface



Cross section A-A

Fig. 8 Images of pinhole observed from surface and cross-section<sup>19)</sup>.Fig. 9 Cross-section of foil showing shear bands under angle of  $\sim 35^\circ$ ; sample is Barker oxidized<sup>4)</sup>.

属間化合物等の材料側因子もマット面のうねりに影響を及ぼす。Fig. 13 には 1N30 系と 8021 系アルミニウム箔の代表的な重合圧延箔断面形態を示す<sup>23)</sup>。1N30 系では  $\text{Al}_3\text{Fe}$  で代表される板状の金属間化合物の他に球状の  $\alpha\text{-AlFeSi}$  晶出物が存在し、両者はいずれもマット面のうねりに影響を及ぼす。Fig. 14 には金属間化合物が存在し、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サイズとマット面のうねり高さとの関係を示すが、マット面のうねりは、 $\alpha\text{-AlFeSi}$  晶出物の影響の方が大きいことがわかる<sup>23)</sup>。これは、 $\alpha\text{-AlFeSi}$  晶出物の直径が  $6\mu\text{m}$  程度と比較的大きく、箔厚と同程度で

Fig. 10 Mechanism of the generation of matt surface wave<sup>20)</sup>.Fig. 11 The effect of reduction on the matt side wave<sup>21)</sup>.Fig. 12 The effect of tension on the matt side wave<sup>21)</sup>.

あることに起因する。球状の  $\alpha\text{-AlFeSi}$  晶出物が少ない材料の採用によりマット面のうねりは小さくできるが、そのためには鋳塊の均質化処理温度を高くすること、Fe/Si 比を高くすることの効果が大きい<sup>23)</sup>。また、球状の  $\alpha\text{-AlFeSi}$  は、鋳造時の凝固中に発生する水素ガス泡中に晶出することから、ガス泡が小さくなる条件、即ち凝固速度を速くすることで小径化が可能となる<sup>24)</sup>。

一方、箔圧延ではロール径/材料厚さ比が大きいため油膜の引込み量が多く、光沢面の欠陥であるオイルピットが形成されやすい。オイルピットの発生に対しては、Fig. 15, Fig. 16 に示すように圧延速度と圧延油の粘度

の影響が大きく、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はいずれも増加する<sup>25)</sup>。オイルピットの深さは圧延速度の影響は受けないものの、圧延油粘度の影響を受け、高粘度になるほど深くなる<sup>25)</sup>。このようにアルミニウム薄箔のピンホール発生原因となるマット面のうねりと光沢面のオイルピットは材料の性質の他、圧延条件および圧延油の性質も大きく影響するため、これら因子の組合せを十分に考慮することが必要である。

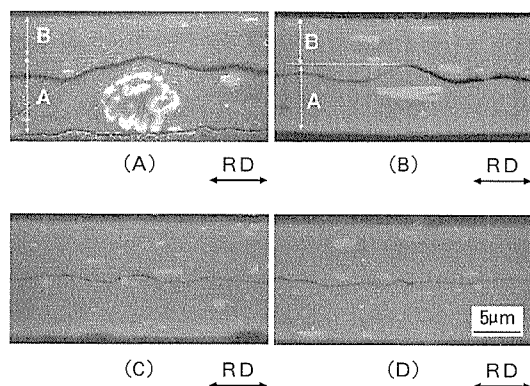


Fig. 13 SEM micrographs of the cross section for pair-rolled foils.  
(A) Spherical compound in 1N30,  
(B) Plate like compounds in 1N30,  
(C), (D) Plate like compounds in 8021<sup>23)</sup>.

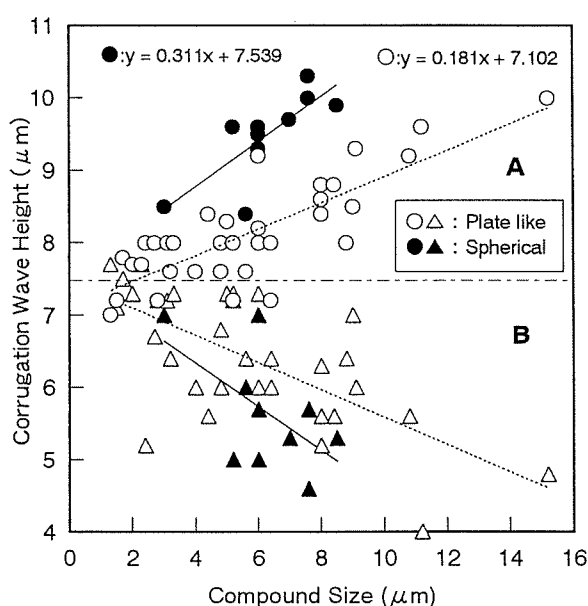


Fig. 14 Relationship between the size of intermetallic compounds and the corrugation wave height of commercial 1N30 foil (○△: plate like compounds, ●▲: spherical compounds, ○●: corrugation wave of A side, △▲: corrugation wave of B side)<sup>23)</sup>.

### 3. アルミニウム-鉄系合金箔

従来、薄箔用には1N30を代表とする純アルミニウムが広く用いられて来たが、高強度、高延性の箔としてAl-Fe(-Mn)系合金箔が提案されるようになってきた。

箔用に用いられる材料のFeおよびMnの範囲をFig. 17に示す。これらの材料の引張強さと伸びにはFig. 18に示す関係<sup>26)</sup>があり、FeおよびMn含有量が高

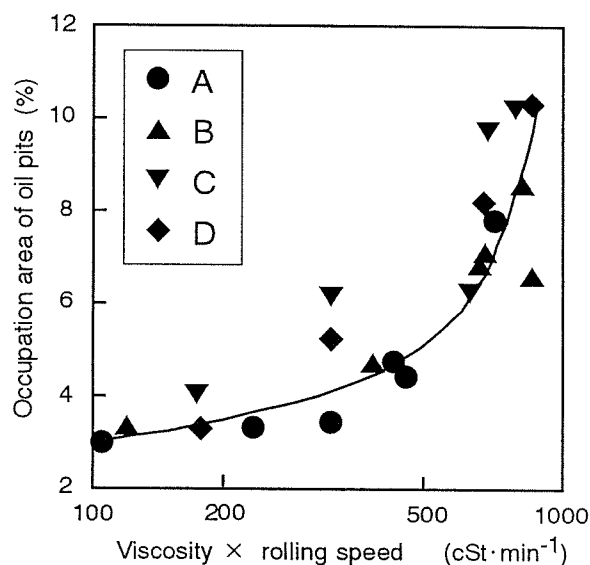


Fig. 15 Relationship between occupation area of oil pits and viscosity × rolling speed (kinematic viscosity; A 1.21cSt, B 1.45cSt, C 1.76cSt, D 1.97cSt)<sup>25)</sup>.

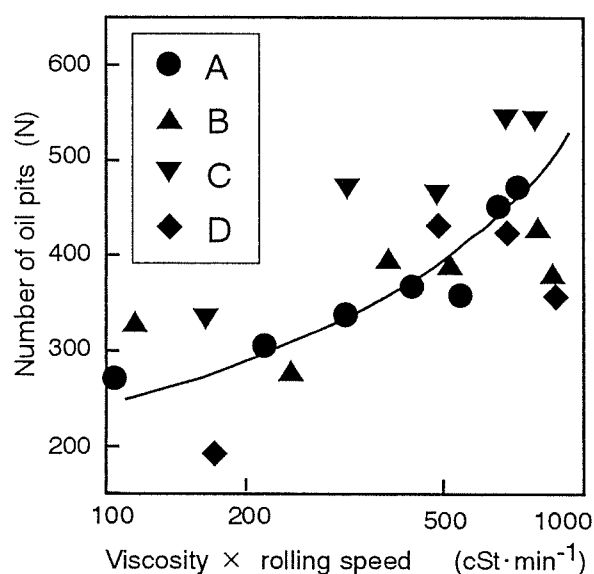


Fig. 16 Relationship between number of oil pits and viscosity × rolling speed (kinematic viscosity; A 1.21cSt, B 1.45cSt, C 1.76cSt, D 1.97cSt)<sup>25)</sup>.

い AA8014 が強度と伸びを兼ね備えた材料であることが示されている。また、JIS には 1.2~1.7% の Fe を含む 8021 合金箔 (AA8021 と同じ成分) が登録されており、Fig. 19 に示すように 8079 合金箔 (0.7~1.3% Fe) より 10% 以上高い引張り強さと 30% 程度高い伸びが報告されている<sup>27)</sup>。Al-Fe 系合金箔の結晶粒径は、Fig. 20 に示すように AA8079 より AA8014 の方が大きく<sup>27)</sup>、さらに箔懇話会資料<sup>28)</sup>によれば A8021 の方が一層細かい。これらは Fig. 21, Fig. 22 に示すように Fe 含有量の影響と考えられる<sup>29)</sup>。一般に、結晶粒径と応力の間には Hall<sup>30)</sup>-Petch<sup>31)</sup> の関係式が成り立つことから、上記の強度と伸びの向上には再結晶粒の微細化効果が関与して

いると考えられる。また、Fig. 23 には破断近傍の加工硬化指数  $n$  と一様伸び限界歪み量  $\varepsilon$  の比を箔厚方向の結晶粒の数で整理した結果を示す。厚さ方向に含まれる結晶粒の数が 5~6 個以上では  $\varepsilon/n=1$  となり、それ以下では箔の伸びが理論値に達していないことが示されており<sup>32)</sup>、箔の厚さ方向での結晶粒径の数も関係する。しかし、箔厚 20 $\mu\text{m}$  以下に薄くなると、引張り強度の低下が著しくなる (Fig. 19)。この要因として山口ら<sup>33)</sup>は変形に伴う肌荒れが板厚に対して大きくなること、また池<sup>34)</sup>は板厚/結晶粒径比が小さくなるための内部的な不均一変形を挙げている。

また、Fig. 24 には Al-1.2%Fe 合金箔を用い、中間

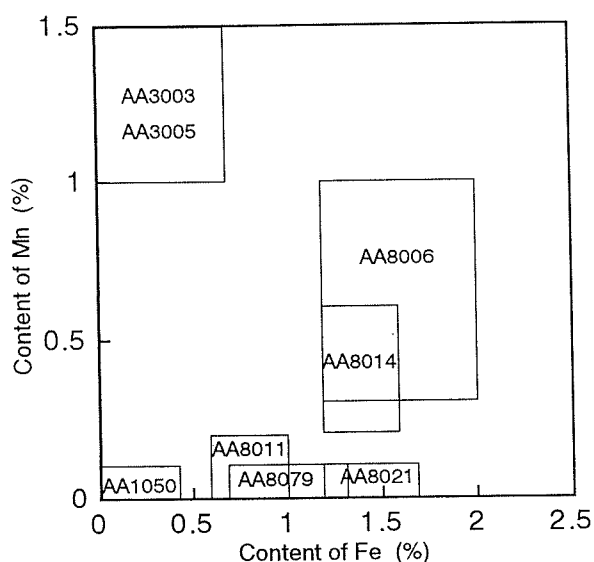


Fig. 17 Fe and Mn content for light gauge aluminium foils<sup>26)</sup>.

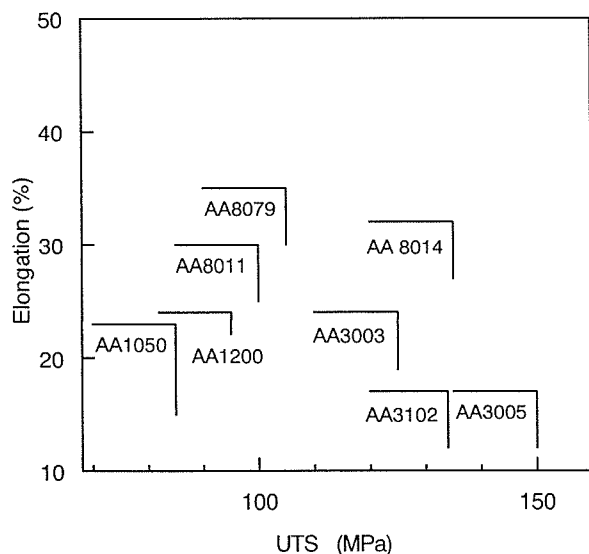


Fig. 18 Relationship between elongation and ultimate tensile strength on commercial product foils (~100 $\mu\text{m}$ )<sup>26)</sup>.

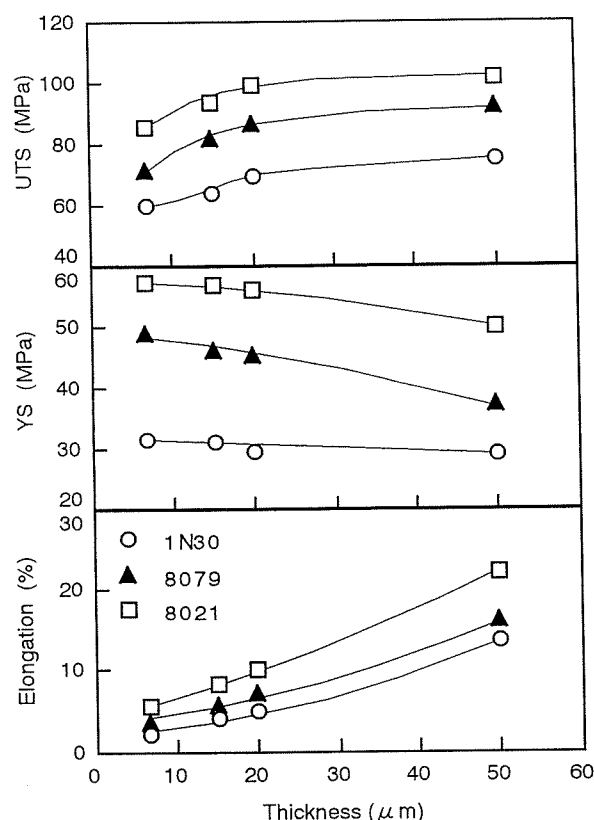


Fig. 19 Mechanical properties of 1N30, 8079 and 8021 aluminium foils<sup>27)</sup>.

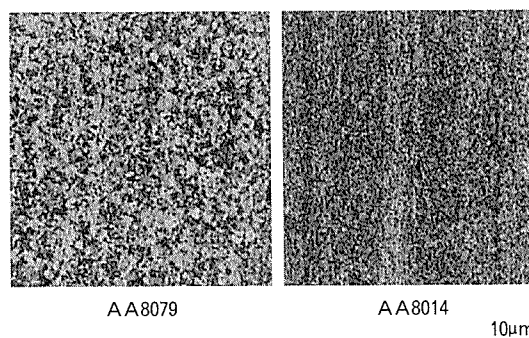


Fig. 20 Optical microstructures of AA8079 and AA8014<sup>27)</sup>.

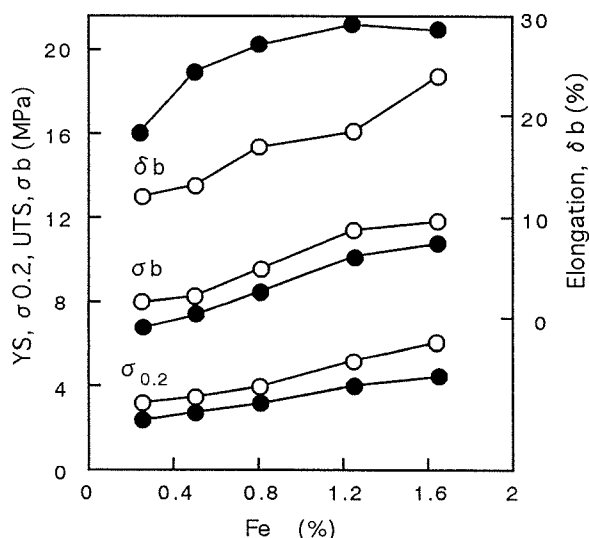


Fig. 21 Effect of Fe content and intermediate annealing on tensile properties (parallel to rolling direction); ○ : without I.A., ● : I.A. 673K<sup>29)</sup>.

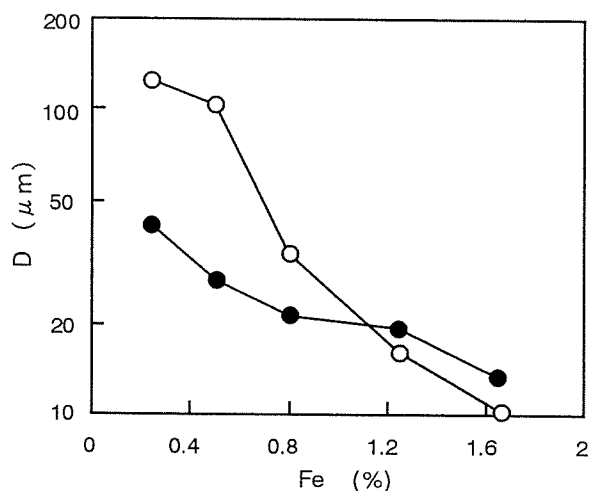


Fig. 22 Effect of Fe content and intermediate annealing on grain size (D grain diameter); ○ : without I.A., ● : I.A. 673K<sup>29)</sup>.

焼鈍および最終焼鈍条件と再結晶粒径との関係を調査した結果を示す<sup>35)</sup>。例えば、厚み 0.6mm で中間焼鈍を行い、0.1mm まで冷間加工後に最終焼鈍した箔では、急速加熱した場合に再結晶粒が粗大化する。また、中間焼鈍後の冷却速度が速く、かつ最終焼鈍時の昇温速度が遅い場合に結晶が細くなる現象が認められた。この要因は Fe および Si 固溶量と歪み蓄積量との関係で説明されているが、微細結晶粒で優れた機械的性質を有する箔を得るためには、Fe 量のみならず製造条件にも十分に注意を払う必要がある。

また、Al-Fe 系合金については、加工とともに著しい軟化が起こる加工軟化現象<sup>36)~39)</sup>が多数報告されてい

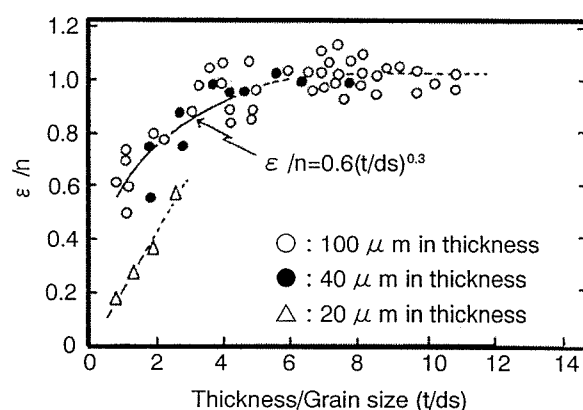


Fig. 23  $\epsilon/n$  versus number of grains in thickness direction  $t/ds$ . ○ : 100  $\mu\text{m}$ , ● : 40  $\mu\text{m}$ , △ : less than 20  $\mu\text{m}$  in thickness<sup>32)</sup>.

る。Fig. 25 には、1N30 および 8079 材の圧延硬化曲線を示すが<sup>6)</sup>、8079 材では、全圧下率が 90% を超えた領域で加工硬化の停滞ないしは若干の軟化現象が現れる。この傾向は、Fig. 26<sup>40)</sup> に示す Fe および Si 含有量と冷間加工度（対数ひずみ）との関係からも明らかのように、Fe 量の増加あるいは Fe/Si 比の増加によって顕著になり、低い加工度でも強度の低下が始まるようになる。また、Fig. 27 には 2 条件で予備焼鈍と中間焼鈍を行った試料の 1/2 軟化温度（強度が半減する温度）と添加 Fe 濃度および中間焼鈍後の加工度との関係を示すが、加工硬化の停滞、軟化の発生は Fe 含有量と焼鈍温度によっても変化し、焼鈍温度が低い場合には、添加 Fe 濃度と加工度の増加に伴い再結晶開始温度は著しく低下する<sup>41)</sup>。こうした加工軟化現象は固溶 Fe 量の影響によるものと考えられ、固溶濃度が小さい場合ほど、冷間加工度の増加とともに大きな歪みエネルギーが蓄積され、圧延中の動的回復または圧延後の静的回復の駆動力が増大するためと考えられる。

この系の箔は機械的特性に優れ加工性が良く、且つ内在する Al-Fe 系微細析出物により、重合圧延時に自由変形するマット面のうねりが Fig. 28 に示すように小さく押えられているため<sup>27)</sup>、これに起因するピンホール数も少ない (Fig. 29)<sup>28)</sup> といった優れた特性を有していることから、JIS への登録と共にラミネート用の極薄箔から容器用の中厚箔まで幅広い範囲にその用途を広げつつある。

また最近では、最近の抗菌性への関心の高まりに即して、Al-Fe 系箔ではないものの抗菌性を備えた合金箔も開発されている。抗菌性の表面処理法については各種の方法<sup>42)</sup>が挙げられるが、無機系抗菌剤として知られる銅をアルミニウムに添加することで Table 1 に示す優れた抗菌性を有する<sup>43)</sup>「抗菌性アルミニウム箔」が提案され<sup>44)</sup>、家庭用箔やアルミニウム箔カップ用に実用化されている。

Table 1 The properties on antimicrobe<sup>43)</sup>.

Bacteria	Factor	Normal foil	Anti-bacterial foil
Escherichia coil	the number of bacteria after 0hr	$1.4 \times 10^5$	$2.3 \times 10^5$
	attrition rate of after 24hr, 308K	0%	99.9%
Staphylococcus Aureus	the number of bacteria after 0hr	$1.2 \times 10^5$	$1.6 \times 10^5$
	attrition rate of after 24hr, 308K	0%	99%

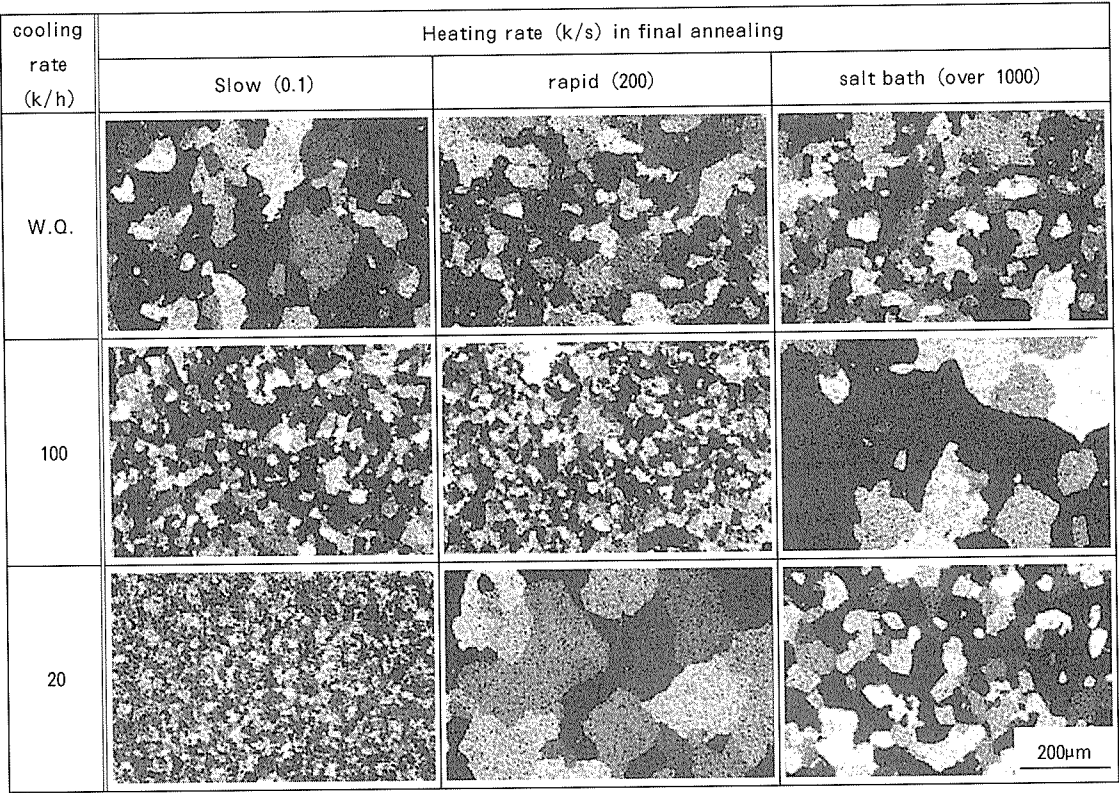


Fig. 24 Effect of cooling rate after aging at 673K for 12h on recrystallized structure of Al-1.2%Fe foil<sup>35)</sup>.

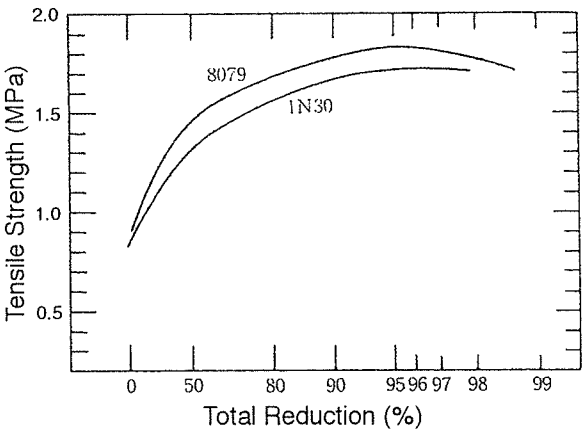


Fig. 25 Effect of total reduction on the tensile strength of the foil<sup>6)</sup>.

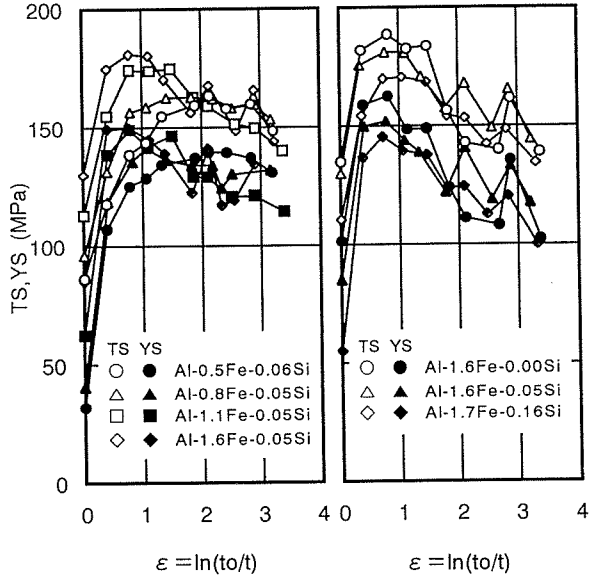


Fig. 26 The variation in tensile and yield strength with cold-rolling strain<sup>40)</sup>.

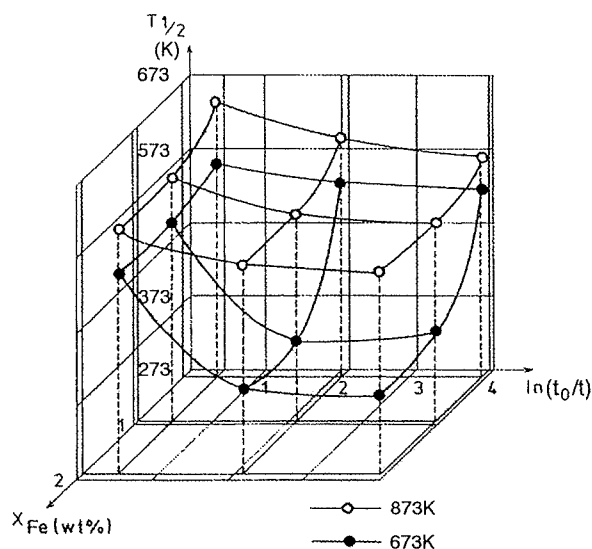


Fig. 27 Effect of Fe concentration and cold working ratio on half softening temperature of Al-Fe alloys preannealed and intermediately annealed at 873K and 673K<sup>41)</sup>.

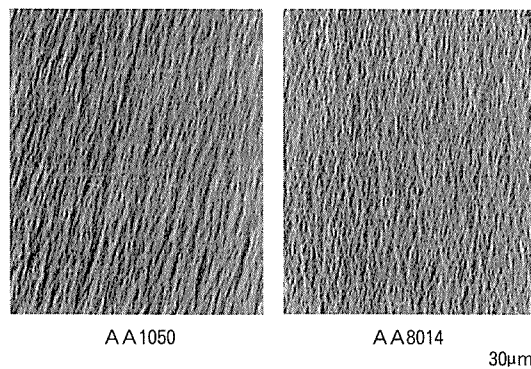


Fig. 28 SEM micrographs of matt side surfaces (55° tilt angle)<sup>27)</sup>.

#### 4. ま と め

薄箔用アルミニウムは、使用量こそ頭打ちとなっているものの、薄肉化により使用面積では依然として増加傾向にある。今後も、コストダウンのための薄肉化に対する要求は強まると考えられる。一方、箔の生産性の面からは、圧延の高速化、切れ回数の低減などが求められており、こうした中で薄肉化されてもピンホールの発生が少なく、加工性に優れた箔材の開発が求められている。また、高強度、高延性であり、かつピンホールの少ない箔材として Al-Fe 系箔が提案され、包装用を中心にその用途を広げつつあるが、性能、箔の加工性等は Fe 含有量のみならず、製造プロセスの影響も受け易く、今後も条件の最適化が必要である。本報はこれらについて現状をまとめたものであるが、今後も種々のニーズに応えるための材料開発を続けていかねばならない。

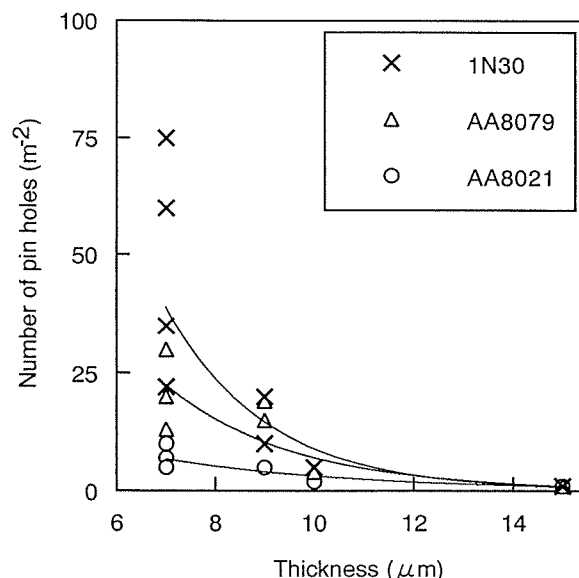


Fig. 29 Relationship between number of pinhole and thickness in 1N30, 8079 and 8021 foil<sup>28)</sup>.

#### 参 考 文 献

- 1) アルミニウム箔懇話会：アルミニウム箔NOW, 15 (2001), 5.
- 2) 福岡 潔：本誌, 40 (1999), 85.
- 3) 福岡 潔：同上, 42 (2001), 131.
- 4) W.Kerth, E.Amann, X.Raeber and H.Weber : International Metallurgical Reviews, 20 (1975), 185.
- 5) 佐竹 進：塑性と加工, 19 (1978), 335.
- 6) 小林保夫：軽金属, 32 (1982), 325.
- 7) 吉田左千雄, 千田憲雄：軽金属学会第 32 回シンポジウム, (1988), 1.
- 8) 奥川卓爾：水曜会誌, 21 (1993), 692.
- 9) 横手隆昌, 福井康司, 宮永睦美, 和辻 隆：軽金属, 45 (1995), 162.
- 10) 磯山永三, 内山利光：同上, 35 (1985), 176.
- 11) 前田重義：表面技術, 44 (1993), 2.
- 12) 福井康司, 清水 遵, 牧本昭一：軽金属, 40 (1990), 712.
- 13) 福井康司：「アルミニウムの製品と製造技術」, (2001), 83.
- 14) 中桐 靖, 岡崎和美：神戸製鋼技報, 23 (1973), 52.
- 15) S.Kohara : Proceedings of the 3rd International Conference on Aluminium Alloys, (1993), 327.
- 16) K.Matsui : Science and Engineering of Light Metals (RASELM'91), (1991), 851.
- 17) W.Schneider : Aluminium, 64 (1988), 70.
- 18) M.Brzobahaty : Sheet Metal Industries, 39 (1962), 341.
- 19) 木村 紘：軽金属学会第 70 回春期大会講演概要, (1986), 65.
- 20) 木村 紘：同上, (1986), 69.
- 21) 木村 紘：同上, (1986), 67.
- 22) 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.
- 23) 本居徹也, 福岡 潔：軽金属, 52 (2002), 226.
- 24) 本居徹也, 福岡 潔, 吉田英雄：同上, 48 (1998), 624.
- 25) 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.
- 26) Juergen Timm：Schweizer Aluminium Rundschau, 6 (1984), 11.
- 27) R.J.Dean, W.Hauser：Proceedings of BNF 6th International Conference, No.6 (1986), 1.
- 28) 軽金属協会アルミ箔懇話会技術委員会資料，(1993).
- 29) T.Uchiyama, M.Sakaguchi：Aluminium, 60 (1984), 752.
- 30) E.O.Hall：Proc.Phys.Lond, 64 (1951), 747.
- 31) N.J.Petch：J.Iron Steel Inst., 174 (1953), 25.
- 32) 坂口雅司，山ノ井智明，長谷川実：軽金属，38 (1988) 84.
- 33) 山口克彦，西村信吾，高倉章雄，福田正成：塑性と加工，21 (1980)，315.
- 34) 池 浩：第25回塑性加工連合会講演会論文集，(1974)，273.
- 35) M.Sakaguchi, T.Yamanoi, M.Hasegawa：Z.Metallkde., 78 (1987), 80.
- 36) 大野恭男，中村 熙：軽金属学会第47回秋期大会講演概要，(1974)，83.
- 37) 当摩 建，竹内 庸：軽金属，26 (1976)，456.
- 38) 福井康司：軽金属学会第32回シンポジウム，(1988)，10.
- 39) 渡井孝彦，伊藤久和，西川泰久：軽金属学会第80回春期大会講演概要，(1991)，77.
- 40) H.Saitoh, K.Ohori, G.Fuchizawa：Science and Engineering of Light Metals (RASELM'91)，(1991)，253.
- 41) 武井広見，佐藤謙一，横田 稔：軽金属，30 (1980)，626.
- 42) 高麗寛紀：表面科学，6 (1999)，235.
- 43) 福田明夫，坂口政明：特開平2000-178674.
- 44) アルミニウム，6 (1999)，235.

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 133-138

技術資料

# アルミニウム系スーパーメタル研究開発の成果と展望\*

田 中 宏 樹\*\* 吉 田 英 雄\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 133-138

## Noteworthy Achievement and Future Prospect of Aluminum Super Metal Project

Hiroki Tanaka and Hideo Yoshida



## アルミニウム系スーパーメタル研究開発の成果と展望\*

田中宏樹\*\* 吉田英雄\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 133-138

Noteworthy Achievement and Future Prospect  
of Aluminum Super Metal Project

Hiroki Tanaka and Hideo Yoshida

Aluminum super metal project has been started from 1997 as a five year project in order to develop high performance aluminum alloy sheets with ultra fine grains less than  $3\mu\text{m}$  in diameter. To date, some innovative methods that are ECAP, ARB, strip casting, controlled warm rolling and differential speed rolling have been confirmed as a suitable process to the above aim. In these feasible studies, three processes that are strip casting, controlled warm rolling and differential speed rolling were selected in order to be modified for a substantial process. Finally, Al-2~2.5%Mn - 2.5%Mg alloy sheets with ultra fine grain structure were developed as a coil sheet by strip casting process, which has high strength and good resistance to stress corrosion cracking (SCC) comparing with conventional Al-Mg (5083) alloy sheets. A new warm rolling method has also been developed by heating roll system for constant temperature control of aluminum alloy sheets during warm rolling. By making use of the new warm rolling method, a large plate of Al-Zn-Mg-Cu alloy was produced successfully. This warm rolled sheet had very good resistance to SCC without decreasing strength and high Lankford value. Differential speed rolling method also showed a good performance on Al-Si-Mg alloy containing Sc and Zr to the aim of this project.

## 1. はじめに

スーパーメタルの技術開発プロジェクトは産業科学技術研究開発制度に基づき、新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) が取りまとめを行って、平成9年度から5カ年計画で行われた。アルミニウム系スーパーメタルの研究は金属系材料研究開発センター (JRCM) と名古屋研究所 (住友軽金属工業)、神戸研究室 (神戸製鋼所)、深谷研究室 (スカイアルミ)、蒲原研究室 (日本軽金属)、日光研究室 (古河電気工業)、裾野研究室 (三菱アルミニウム) の6社とで共同体を組織し、「 $3\mu\text{m}$  程度以下の極微細結晶粒径を有する組織制御材料で、工業的特性 (強度、耐食性等) が現在使用されている同種材料の1.5倍以上、かつ板幅が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」ことを開発目標と

して研究を進めてきた。さらにこれまで大阪大学、九州大学、富山大学、千葉工業大学、宇都宮大学が再委託先として研究に参加し、集中管理体制を構築し効率的な研究開発を進めた。

Table 1 にアルミニウム系スーパーメタルプロジェクトの全体計画を示す。最初の3年間は微細粒組織形成を目指し種々のプロセスの可能性を確認した。アルミニウム合金において、再結晶により微細再結晶粒組織を得るためには、再結晶の駆動力となるひずみを蓄積し、再結晶核を均一に多量に生成させるとともに、再結晶粒の成長を抑制して粗大化を抑制することが重要である。加工前の組織中に均一核生成サイトを導入する方法として、凝固時の冷却速度が大きく晶出物の微細分散化が可能な溶湯圧延 (Strip casting) の有効性を確認した<sup>1)</sup>。次にひずみの付加方法として、できる限り大きなひずみを与えてその後熱処理を行うことで微細粒化を図るアプローチと、温間域での回復を制御して微細粒化を図るアプローチを検討した。前者には ECAP (Equal-Channel

\* 素形材, 43-No.6 (2002), 1 に一部掲載

\*\* 研究開発センター 第一部

\*\*\* 研究開発センター 第一部, 工学博士

Angular Pressing), 繰り返し重ね接合圧延 (ARB: Accumulative Roll-Bonding) 及び異周速圧延 (Differential speed rolling) の方法があり,  $3\mu\text{m}$  以下の微細粒組織を達成できることを証明した<sup>1)</sup>。極低温圧延 (Cryogenic rolling) は高ひずみ付与を狙った方法であったが, 目標とする微細粒組織は得られなかった。後者のアプローチとして, 温間域での圧延で微細粒化の可能性が見いだされた<sup>2)</sup>。

4年目以降は実用化を念頭に置き, プロセスの選択と大型素材の創製に向けて研究を集中した。大型素材の開発を目標に選択されたプロセスは溶湯圧延法, 異周速圧延法及び温間圧延法である。本報告では4年目, 5年目の成果を中心にその要点を概説し, 実用化に向けた課題について述べる。

## 2. 微細結晶粒組織創製プロセスの方法と成果

### 2.1 溶湯圧延法を利用したコイル材製造

本プロジェクトで導入した溶湯圧延機を用いると, 工業的規模で行われる半連続鋳造 (DC) 法に比べて20倍程度速い凝固時の冷却速度が得られる。この特性を生かし, DC法では健全な素材が得られない Al-2~2.5%

Mn系合金の製造に成功した (Fig. 1)。適当な熱処理と90%程度の冷間圧延の後, 急速加熱することで $15^\circ$ 以上の方位差をもつ, いわゆる大角粒界の比率が高い $3\mu\text{m}$ 以下の微細再結晶粒組織が得られた。実用的な視点から工業プロセスを考えると Fig. 2 のようになる。このプロセスの妥当性を検証するため, 本プロジェクトで導入した製造設備を一貫して使用して, コイル化のシミュレーション試験を行った。Fig. 3 に試作工程を示す。合金は Al-2%Mn-2.5Mg 及び Al-2.5%Mn-2.5Mg の2合金を溶湯圧延で作成した。Fig. 4 に最終熱処理で使用した急速加熱装置の概略図と, 実際の熱処理状況を示す。板面のひずみがほとんどない健全な材料をコイルの状態で製造することに成功した。このコイル材の結晶粒組織を SEM-EBSP で測定した結果を Fig. 5 に示す。面積法による平均結晶粒径は $3\mu\text{m}$ であり, 本プロジェクトの目標を達成した。Al-2~2.5%Mn-2.5Mg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<sup>3)</sup>ことも判明した (Fig. 6)。以

Table 1 Master plan of the project.

Study item	F. Y.				
	1997	1998	1999	2000	2001
1. Fundamental experiment	→				
2. Feasibility study					
Cryogenic rolling			→		
ECAP			→		
ARB			→		
Differential speed rolling			→		
Strip casting			→		
Controlled warm rolling			→		
3. Modification of feasibility process for a substantial process				→	
4. Trial of a substantial process					→

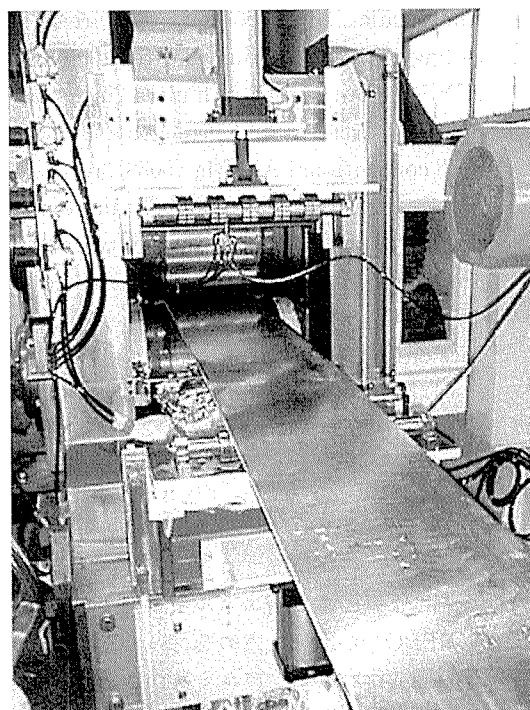


Fig. 1 Appearance of strip casting equipment.

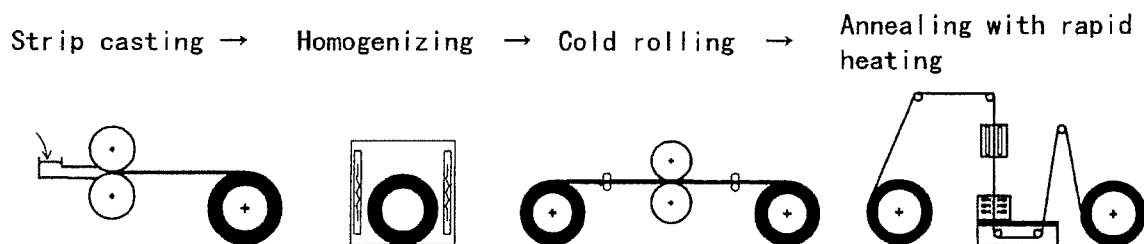


Fig. 2 Schematic illustration of process example for Al-Mn strip cast alloy sheets.

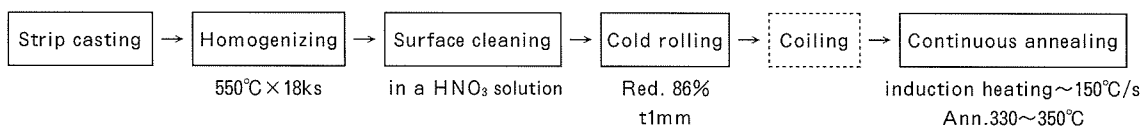
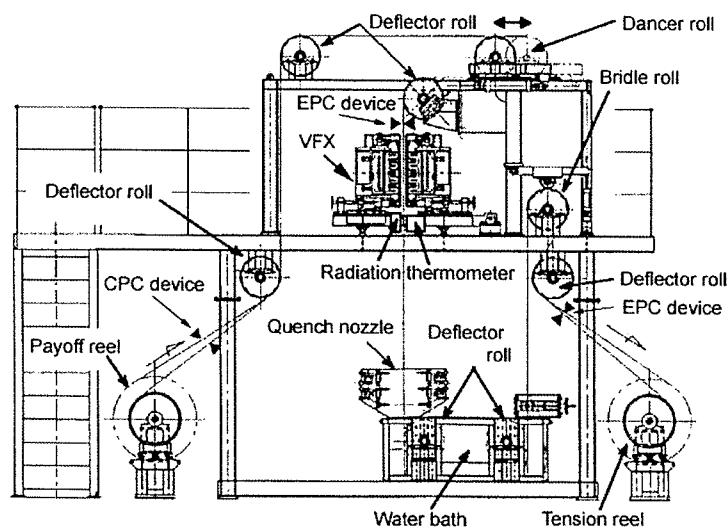
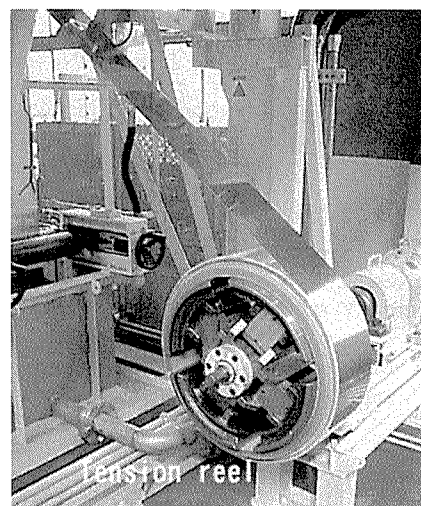
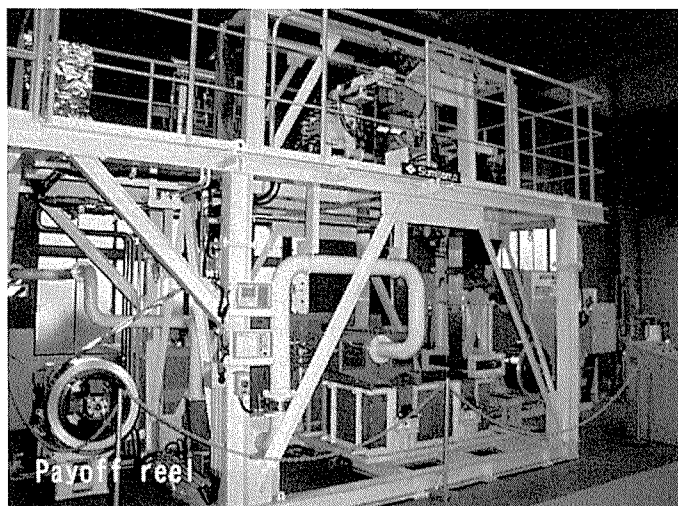


Fig. 3 Process for making a coil sample of Al-high Mn alloy.



(a) Schematic illustration of the rapid heating system



(b) Appearance of the rapid heating test

Fig. 4 Schematic illustration of the rapid heating system and appearance of rapid heating test.

上に示した通り、溶湯圧延法を用いて従来（DC）法より高いMnを有するAl-高Mn合金を製造し、急速加熱装置を利用して連続熱処理を行うことで、平均結晶粒径が $3\mu\text{m}$ の微細粒組織を有するアルミニウム合金板材のコイル化に世界で初めて成功した。

## 2.2 恒温制御加工技術を取り入れた温間圧延法

再結晶温度以下での加工と回復を適切に制御できれば、微細粒化の可能性があることは過去の研究事例から推察された。5083合金を $100^\circ\text{C}$ に加熱して1パスで70%の

大圧下を施し、圧延後の材料温度を $350^\circ\text{C}$ 以上にする実験において、表層部 $=3\mu\text{m}$ で中央部 $=8\mu\text{m}$ の微細粒化が達成された。さらにZrを添加した7475系合金を用い、 $350^\circ\text{C}$ で繰り返し圧延を施すことで溶体化処理（ $480^\circ\text{C}$ 処理）後も $3\mu\text{m}$ 以下のサブグレイン組織が維持されることが見いだされた。このような微細サブグレイン組織を有する材料のT6材は、従来工程の7475-T6材よりも良好な耐応力腐食割れ性を示すことが分かった<sup>4)</sup>。さらなる研究により、圧延ロールへの抜熱を抑えた温間多パ

ス圧延によって、全板厚を均一に微細粒化できる新しい制御技術を開発した。Fig. 7 に温間圧延時のロール温度が熱的安定な下部組織形成に及ぼす影響の一部を示す。ロール温度が低い場合は抜熱の影響を受け、これが熱的安定な組織形成を阻害し、溶体化処理時に粗大粒の発生を招くことがわかった<sup>5)</sup>。この一連の研究から、最適な温度域内で材料を加工する恒温温間制御圧延プロセスを開発した<sup>6)</sup>。具体的には圧延ロール自体を加熱するシステムを構築し、圧延前後の材料温度変化を小さくできるようにした。Fig. 8 に新しく開発した加熱ヒーター内蔵

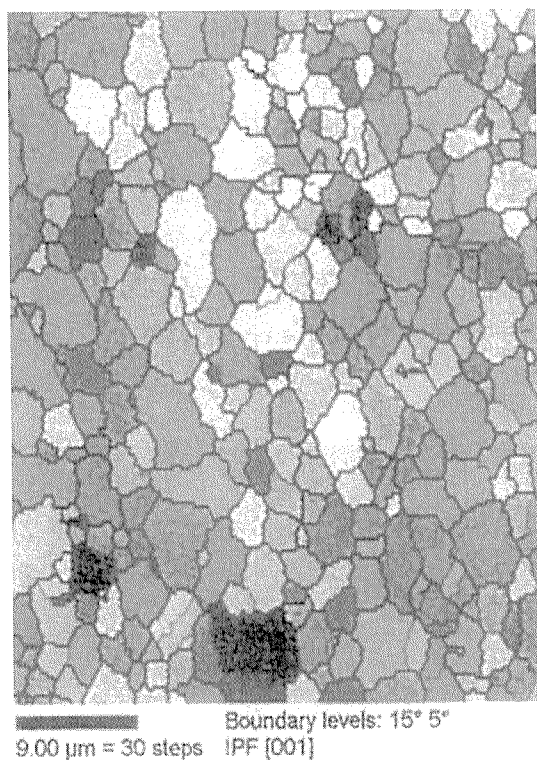


Fig. 5 EBSP map of Al-high Mn strip cast alloy sheet annealed by rapid heating system.

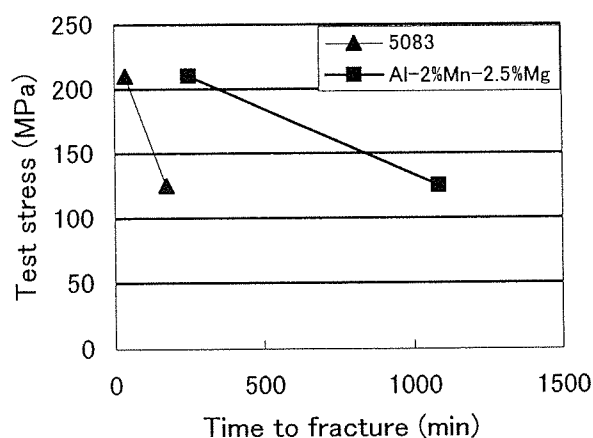


Fig. 6 SCC life time : 25°C, 3.5%NaCl, 50% and 80% of YS, Electric density = 5mA/cm<sup>2</sup>.

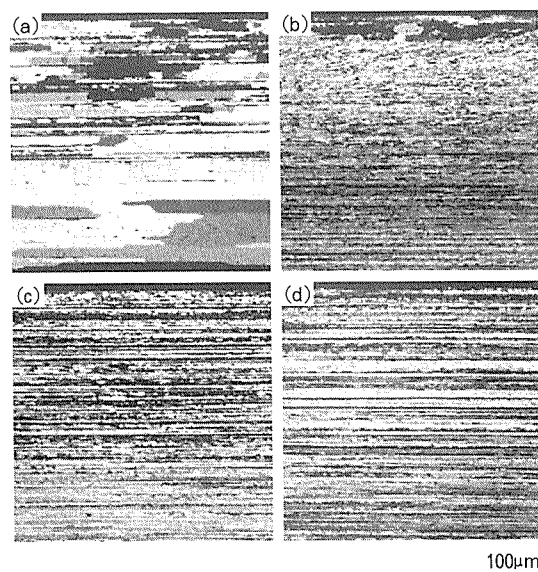


Fig. 7 Optical micrographs after solution heat treatment on the 7475 based alloy sheets rolled with the roll temperature at (a) 2~10°C, (b) 20~30°C, (c) 60~80°C, (d) 90~110°C.

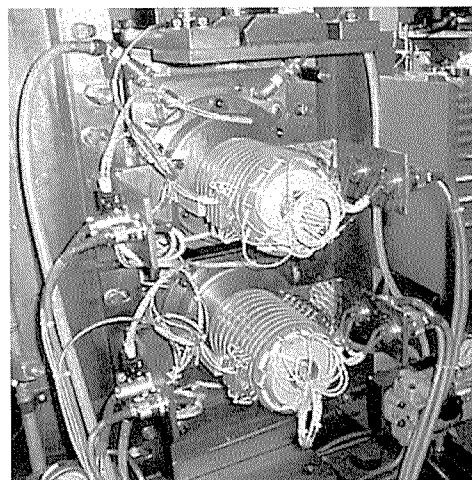
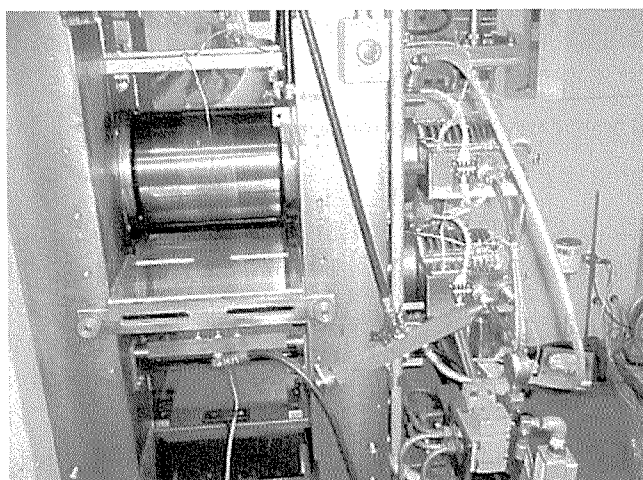


Fig. 8 New type of work roll with heating system.

ロールの外観を示す。直径 $\phi$ 260mm ワークロール二段式になっており、8本のカートリッジ式ヒーターでロール表面を400℃程度まで加熱できる。この圧延機を用いてZrを添加した7475系合金の200mm幅大型シート材の製造に成功した。溶体化処理後の組織は3 $\mu$ m以下の微細サブグレイン組織を有し、非常に先鋭なBrass方位{011}<211>を示すことが特徴である (Fig. 9)。この集合組織の特徴が起因し、Fig. 10に示す通り、これまでアルミニウム合金では報告されることがない大きなランクフォード値(r値)を示すことが明らかとなった。5083系合金もこの恒温温間圧延によって微細粒化を達成できた。恒温温間制御圧延プロセスは結晶粒組織制御のみならず集合組織制御も含めた新しい加工方法を提供する技術である。

### 2.3 異周速圧延法

異周速圧延とは上下のロール周速を変えて圧延することで、材料に付加せん断変形を板厚中央部にまで入れることが可能な方法である。つまり大きな変形を均一に材料に与えることができ、その後の熱処理によって微細粒化を図るものである。5083合金を冷間異周速圧延し、345℃で熱処理すると平均結晶粒径が2.5 $\mu$ mの微細粒組織が得られた。さらにZrとScを微量添加した6061系合金に温間異周速圧延を施すと、540℃の溶体化処理後も微細粒組織が維持されることがわかった<sup>3)</sup>。

本プロジェクトにおいては異周速圧延法による200mm幅大型素材の製造はさらなる技術開発が必要のため、今後の課題である。

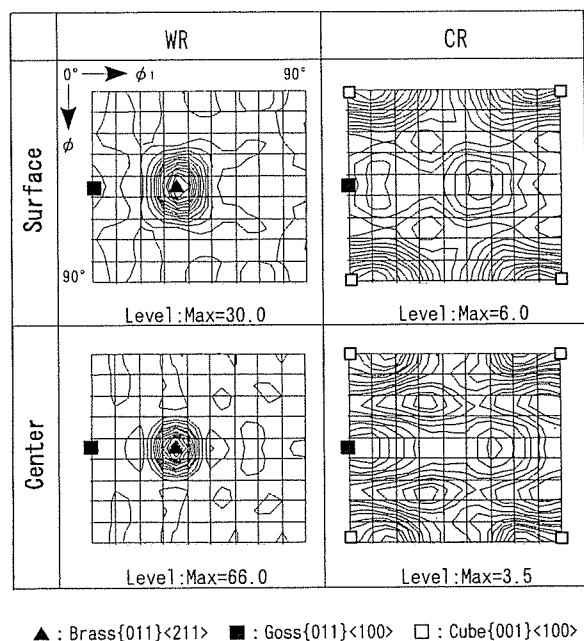


Fig. 9 ODFs of warm rolled sheet (WR) and cold rolled sheet (CR) after solution heat treatment.  $\phi_2=0^\circ$

### 3. まとめと今後の展望

5年間のプロジェクト期間中に、3 $\mu$ m以下の微細粒組織を有するアルミニウム合金の創製プロセスとしてECAP, ARB等のいくつかの独創的な加工方法の可能性を確認した。その中から量産化の可能性が高いと判断された次の3プロセスに絞って大型素材創製に取り組んだ。

(1) 溶湯圧延法を用いたAl-high Mn系合金を製造し、冷間圧延を施した試料をコイル状に整えて急速加熱した材料は、平均結晶粒径が3 $\mu$ mを示した。さらに2.5%Mg添加により、5083合金並の強度が得られた。

(2) ロール加熱システムを導入した恒温温間圧延機を用いて、7475系合金の200mm幅プレート材製造に成功した。溶体化処理後の組織は3 $\mu$ m以下のサブグレイン組織を示し、良好な耐応力腐食割れ性と平均ランクフォード値が2を越える極めて優れた特性を有した。

(3) ZrとScを微量添加した6061系合金に温間異周速圧延を施した板材は、540℃の溶体化処理後も微細粒組織が維持された。

上述の通り、本プロジェクトでは特筆すべきいくつかの成果を得ることができた。量産規模への展開を念頭においた視点からこれらのプロセスを評価すると、溶湯圧延-急速加熱プロセスは現有技術にて量産化が可能と判断される。恒温温間制御圧延及び異周速圧延は、大型素材の量産化に関して板厚制御や表面品質など、なお取り組むべき課題がある。実用化においては用途に応じて詳細な評価を進めることも必要である。今回のプロジェクトで確認された数々の優れた材料特性を有するスーパーメタルの実用化が、近い将来実現されることが期待される。

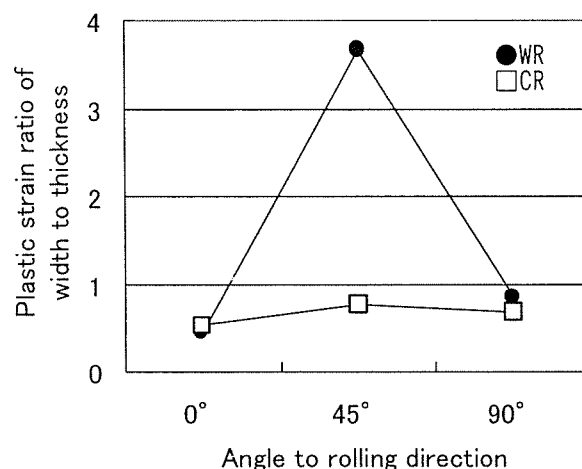


Fig. 10 Lankford value of warm rolled 7xxx alloy sheets (WR) comparing with cold rolled 7475 alloy sheets (CR) aged at 120°C for 24h.

本研究は、新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO) から(財)金属系材料研究開発センター(JRCM) への委託研究「スーパーメタルの技術開発」の一環として行ったものである。

#### 参 考 文 献

- 1) 金属系材料研究開発センター，次世代金属・複合材料研究開発協会：第2回スーパーメタルシンポジウム講演集，(1999)。
- 2) 金属系材料研究開発センター，次世代金属・複合材料研究開発協会：第3回スーパーメタルシンポジウム講演集，(2001)。
- 3) 金属系材料研究開発センター，次世代金属・複合材料研究開発協会：第4回スーパーメタルシンポジウム講演集，(2001)。
- 4) 田中宏樹，箕田正，江崎宏樹，渋谷和久，吉田英雄：軽金属，52 (2002)，29。
- 5) 田中宏樹，江崎宏樹，箕田正，渋谷和久，吉田英雄：同上，52 (2002)，231。
- 6) 江崎宏樹，田中宏樹，渋谷和久，吉田英雄：本誌，42 (2001)，181。

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 139-147

技術資料

## アルミニウム合金接合技術の最近の動向\*

熊谷正樹\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 139-147

## Trend on Welding Technologies of Aluminum Alloys

Masaki Kumagai

住友軽金属工業株式会社研究開発センター

## アルミニウム合金接合技術の最近の動向\*

熊谷正樹\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 139-147

## Trend on Welding Technologies of Aluminum Alloys

Masaki Kumagai

Aluminum alloys have been available variously for lightweight vehicles recently and welding technologies of its alloys is more and more important. The accurate and development of welding technologies such as friction stir welding, laser welding, inert gas arc welding, resistance spot welding and brazing are introduced in this paper.

## 1. はじめに

最近、地球環境保護あるいは省エネルギーの観点から、輸送機器の軽量化が精力的に進められている。自動車の軽量化では軽量材料の使用が最も有効であり、ボディおよび部品の鋼からアルミニウムへの転換が盛んに検討されている。アルミニウム合金の特長を十分引き出す品質と生産性を兼ね備えた要素技術の開発に力が入れられ、特に自動車の組立においては接合技術が最も重要と言われている。アルミニウム合金は Table 1 に示すように鋼と物性が大きく異なるため、これらの物性を考慮に入れて接合方法を開発、選定する必要がある。

アルミニウム合金の接合に関する最近の発表では、摩擦撹拌接合 (FSW: Friction Stir Welding) およびレーザー溶接の報告が増えている。従来技術であるアーク溶接、抵抗溶接、ろう付に関しても新しい技術開発がなされている。ここでは、これらの比較的新しいアルミニウム合金の接合技術について解説する。

## 2. 摩擦撹拌接合

1991年に The Welding Institute により金属を固相のまま撹拌して接合する摩擦撹拌接合法が考案された<sup>1)</sup>。これは Fig. 1 に示すように、アルミニウム合金板を突合せ、硬質の裏当てに拘束し、突合せ面に先端に突起の付いた硬質の回転工具を回転させながら差し込み、突合せ

面に沿って移動させることにより、母材を溶かすことなく接合する方法である。母材は溶けないので従来の回転摩擦圧接とは根本的に違う全く新しい接合方法である。Fig. 2 に 6N01 合金の接合部の断面組織を示す。接合部は母材に近い微細な組織であり、溶接特有のブローホールや高温割れ等の欠陥がない。溶接に比べて入熱が著しく少ないため、熱処理合金や加工硬化材でも熱影響部の強度低下は少なく、歪みも少ない。溶加材や不活性ガスが要らず、閃光、スパッター、スマットも発生しないので非常に環境に優しいトレンドにマッチした接合法である。完全溶け込みでも裏面が平坦で、表側もほぼ平坦であるので、用途によっては余盛除去が不要である。6000 系合金なら 1~50mm の板厚が 1 回で接合できる。アーク溶接では割れ感受性が高く、溶接が困難な Al-Cu 合金や Al-Zn-Mg-Cu 合金でも接合でき、鋳物や複合材、異材質の接合も可能である。材質によっては MIG 溶接に近い速度で接合でき、生産性、ランニングコストの点でも有利といわれている。

Fig. 3 に新幹線の床材に使用された例を示す<sup>2)</sup>。この床材は 4 枚の 6N01 合金押出型材を並列に FSW し、幅 1.3m、長さ 5m のパネルとした。このように薄肉の小型押出型材を幅方向に FSW することにより、歪みが少なく複雑な形状の大型型材が得られ、船舶<sup>3)</sup>やトラックの架装等にも使用されている。

研究例では、6000 系合金の FSW 継手強度が接合後の時効処理により回復すること (Fig. 4)<sup>4)</sup>、アーク溶接の困難な鋳物や 7000 系合金<sup>5)</sup>でも健全な接合が可能であること等、FSW に関する多数の報告がなされつつある。

\* 溶接学会誌, 71 (2002), 382 に一部掲載

\*\* 研究開発センター 第一部, 工学博士



Table 1 Comparison of weldability between aluminum and steel.

Properties		Aluminum alloys	Steel	Influence on weldability of aluminum alloys
Heat input for melting	per mass	0.8	1	Difference of heat input
	per volume	0.33	1	
Heat conductivity		4~5	1	High welding current for resistance welding
Electrical conductivity		3~5	1	
Heat expansion coefficient		2	1	Large welding tolerance
Solidification shrinkage coefficient		1.5	1	Formation of shrinkage
Oxidation		Easy to be oxidized Stable oxide film	—	Lack of fusion Require of cleaning action
Change of hydrogen solubility between liquid and solid		9	1	Formation of porosity
Sensitivity of welding crack		Depend on alloy composition	—	Shrinkage or microfissure

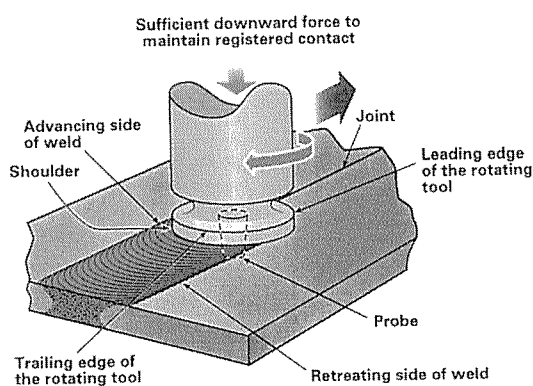


Fig. 1 Principle of friction stir welding.

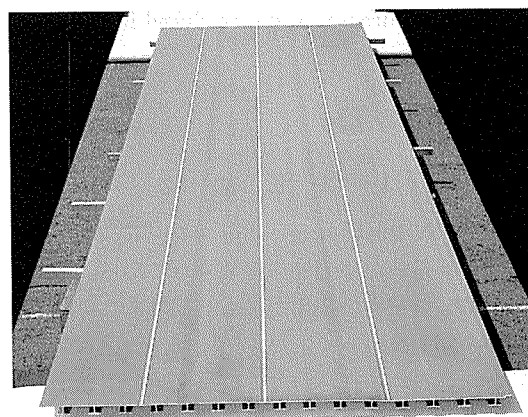


Fig. 3 The 700 Series Shinkansen floor panel produced by friction stir welding.

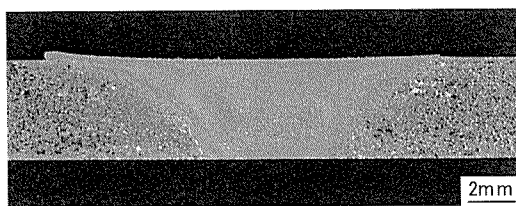


Fig. 2 Cross section of friction stir weld of 6N01 alloy.

実用例としてはヒートシンク (Fig. 5)<sup>6)</sup>, パラボラアンテナ (Fig. 6), 橋梁床版等の FSW 製品の紹介がなされている<sup>7)</sup>. 鉄道車両外板への適用についてもダブルスキン押出型材を用いた例 (Fig. 7) を含めて報告されている<sup>8)</sup>. 欧米では, 航空宇宙関係での研究開発が盛んで, ロケット燃料タンクの組立接合法として実用化されている (Fig. 8)<sup>9)</sup>. 自動車では足周り部品であるアーム類の自動接合にも適用されている<sup>10)</sup>. 複雑な形状の接合を目的とした3次元のロボット接合機も考案されており, 抵

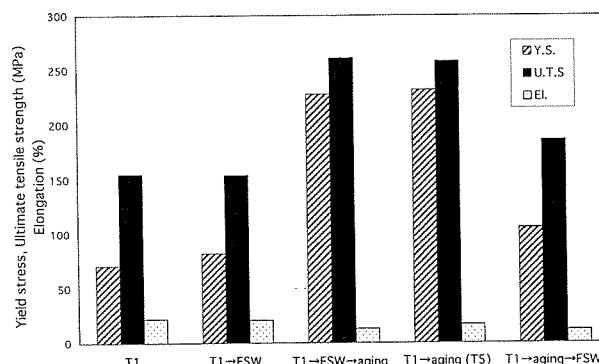


Fig. 4 FSW/heat treatment process for 6N01 alloy with joint efficiency of 100%.

抗スポット溶接に代わる点接合にも応用されつつある<sup>11)</sup>.<sup>12)</sup> FSW はこれまでの熔融溶接の種々の欠点を払拭する画期的な方法であり, 今後盛んに活用されるであろう。

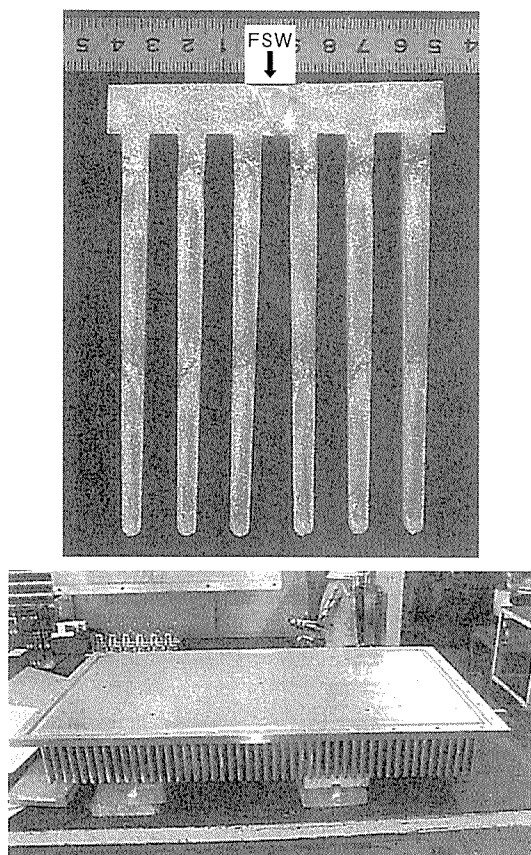


Fig. 5 Wide heat-sink with high fin height/pitch ratio by friction stir welding.

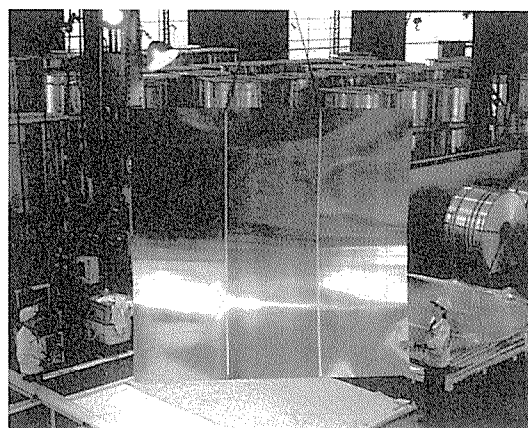


Fig. 6 Large plate for a parabola antenna.

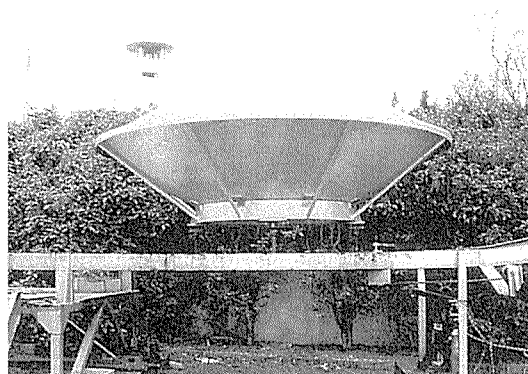


Fig. 7 FSW of double-skin extrusion shapes for rolling stocks.

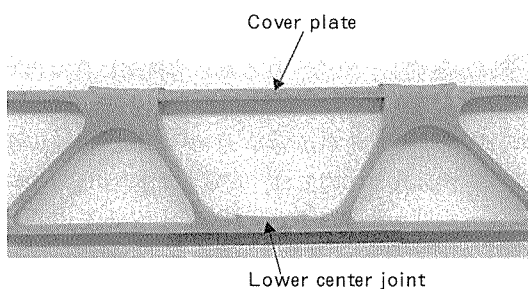


Fig. 8 FSW of fuel tanks for the Delta rocket.

### 3. レーザ溶接

YAG (Yttrium Aluminum Garnet) レーザを用いたアルミニウム合金の溶接の研究が、欧州を中心に盛んになされている。Audi の A2 は、重ね継手を抵抗スポット溶接を用いず、YAG レーザ溶接あるいは機械的接合法の一種であるセルフピアシングリベットで行っている。YAG レーザ溶接は、Fig. 9 に示すようにレーザを光ファイバーで伝送でき、ロボットに搭載して複雑な形状の溶接を行うのに適する。レーザはアークに比べてエネルギーを集中でき、Fig. 10 に示すように溶融部の幅が小さく、歪みや熱影響による強度低下が少ない<sup>13)</sup>。

しかし、テーラードブランクのような突合せ継手の場合、接合部の隙間の問題があり、ギャップが大きいとレーザ光が貫通し安定した溶接ができない。ボディシート並みの薄板に対する突合せギャップ裕度はせいぜい 0.3mm 以下である。6000 系合金の溶接の場合のように、溶加材をとまう際にはビームが溶加材からずれないように注意が必要である。この点についてはビームを振らせたり、焦点をばかしたりしてある程度は改善ができる。また、マグネシウムや亜鉛を含む合金では溶接時にこれ

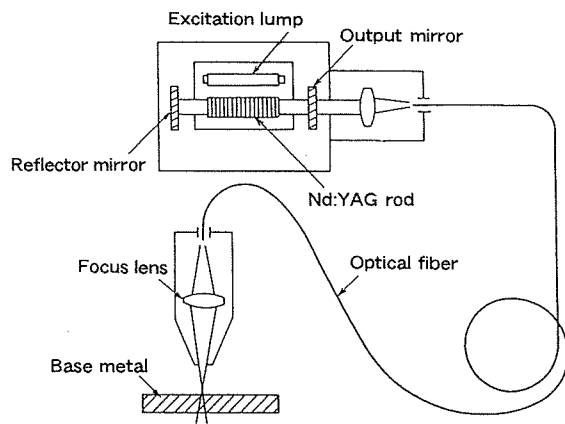


Fig. 9 Principle of YAG laser welding system.

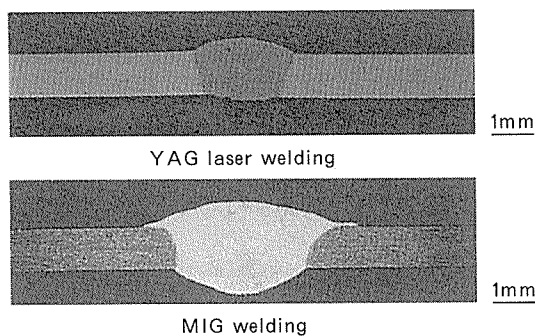


Fig. 10 Cross sections of YAG laser and MIG welds.

らの金属が蒸発し、急冷されるため溶接部に孔（ポロシティ）が残しやすい。アルミニウム合金は鋼よりもレーザーの吸収率が低く効率が悪いいため、現状の4kW級のYAGレーザー装置の出力では、安定した溶け込みを得るには3mm程度が限界である。深い溶け込みを得るため、レーザー溶接と後述のミグやティグ、あるいはプラズマ等のアーク溶接を組み合わせたハイブリッド溶接法<sup>14)</sup>や、レーザー同士を組み合わせたツインビーム溶接法<sup>15)</sup>が考案されている。ランプ励起に比べて長持ちする半導体励起YAGレーザーも使われ始めている。アルミニウム合金に向いているレーザー溶接法として、アルミニウムへの吸収率の高い半導体レーザー（ダイレクトダイオードレーザー）溶接<sup>16)</sup>技術が開発されつつあり、高品質で安価なレーザー溶接機として注目されている。Fig. 11にその特長を示す。YAGレーザーがキーホール溶接であるのに比べ、アーク溶接に近い熱伝導型の溶け込みとなり、ビード形状が滑らかでプレス成形用のテーラードブランク等にも適している。今後、ビームを絞り込む技術や半導体自体のコストが下がり、大出力の装置が容易に得られるようになれば、アルミニウム合金のレーザー溶接の主役となる可能性がある。

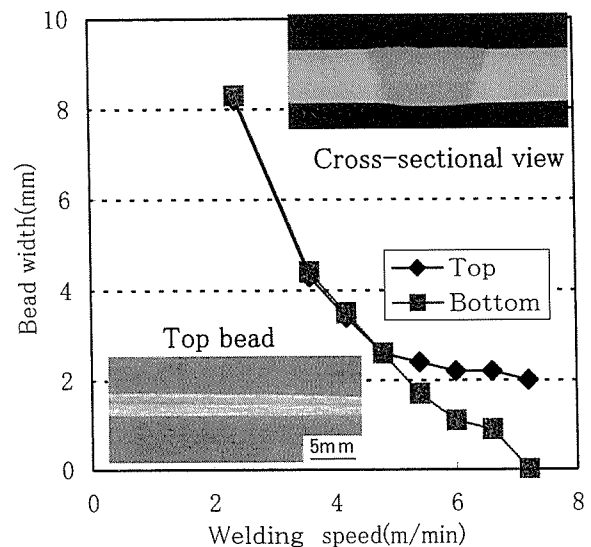
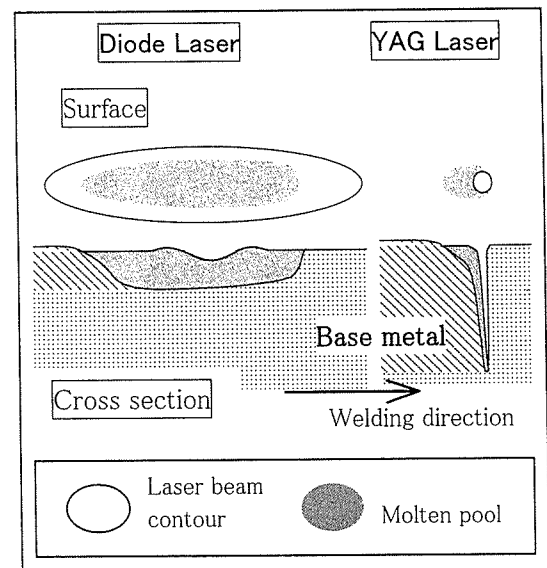


Fig. 11 Diode laser welding of aluminum alloys.

#### 4. 不活性ガスアーク溶接

アルミニウム合金構造物の溶接には、まだ不活性ガスアーク溶接が最も良く用いられている。その代表的なものは、ミグ（MIG: Metal Inert Gas Arc）溶接およびティグ（TIG: Tungsten Inert Gas Arc）溶接である。一般に、ミグ溶接は溶接速度が速いが、溶け込み制御等が難しい。ティグ溶接はブローホール等の欠陥が生じにくい、溶接入熱が大きく熱処理合金や加工硬化材では強度低下が大きい。アルミニウム合金にCu, Si, MgおよびMg<sub>2</sub>Siがある濃度で含まれると、その母材の溶接割れ感受性が高くなる。自動車のスペースフレーム構造では押出性の良い6000系合金形材が多く用いられるが、強度を上げようとするMg<sub>2</sub>Si量を増やさねばならない。このような合金では溶加材の選定を間違えなければ溶接金属には割れは生じないが、溶融部に隣接する母材

の熱影響部では溶接時の応力や入熱過多により粒界に析出した低融点の  $Mg_2Si$  を起因とする粒界割れ（マイクロフィッシャー）が生じることがある。押出材の結晶組織を微細かつ均一にすることにより、マイクロフィッシャーの生じにくい溶接構造用材料が得られる。

アルミニウム合金の溶接構造物の量産を考える際、フレーム同士の接合には溶接速度が比較的速く、トーチがコンパクトでロボットへの搭載による溶接の自動化が容易なミグ溶接が妥当と考えられる。最近の溶接電源の進歩はめざましく、従来のミグ溶接ではできなかった細かい溶接条件の制御が可能となっている。フレームの組立のような短溶接長の溶接の場合には、アークスタートでの溶け込み不足や、溶加材が母材と溶け合わないオーバーラップ等の不良が出やすいが、電流の立ち上がりが速いインバータ電源を用いることにより改善される。最近ではミグ溶接機のほとんどがインバータ電源による50～500Hz程度のパルス制御機能を備えており、溶接電流波形の高速で精密な制御が可能となっている。ミグ溶接は、Fig. 12に示すようにBMWやベンツの自動車足周り部品であるサブフレームの溶接に用いられ、分解調査の結果、健全な溶接状態であることが確認されている。

アルミニウム合金の薄板に適する溶接法として、交流パルスミグ溶接法が開発されている<sup>17)</sup>。交流パルスミグ溶接は、Fig. 13に示すように溶け落ちが少なく、ギャップ裕度に優れているため、自動車の骨格に板を溶接する等の薄板の接合に適している。また、低周波パルスミグ溶接<sup>18)</sup>は、Fig. 14に示すように数100Hzのパルス電流

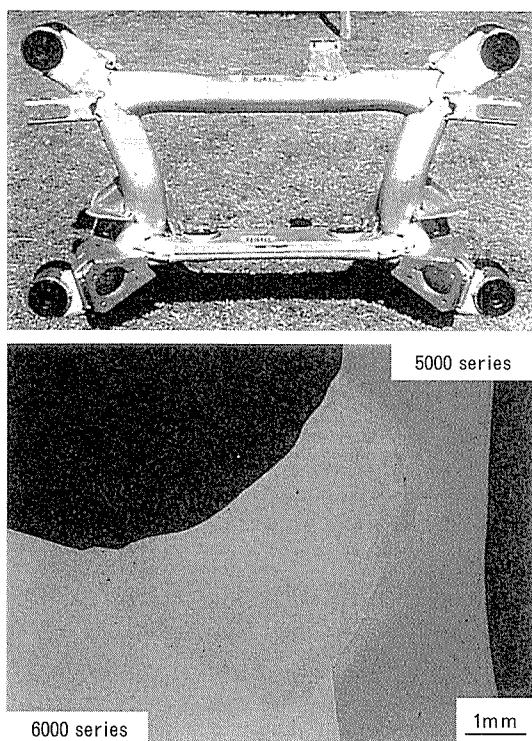






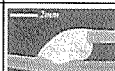


Fig. 12 Sub-frame of BMW's car.

に1～10Hz程度の低周波を重畳し、アーク長を変化させながら溶接することが可能で、溶け込みの制御が容易である。比較的大きな重ね隅肉溶接のギャップに対しても溶け落ちなく溶接ができ、複雑な形状の部材を自動溶接する際、部材の組み付け時にある程度の隙間があっても許容できる。さらに、熔融池の搅拌作用によりブローホールの発生が抑えられ、溶接割れ感受性も改善される。

Wire: A5356, $\phi$ 1.2mm		Wire feed rate: 380cm/min		
Base metal: A5052, t1.0mm		Welding speed: 100cm/min		
Gap	0.0mm	0.5mm	1.0mm	1.5mm
DC pulse				
AC pulse (EN=20%)				

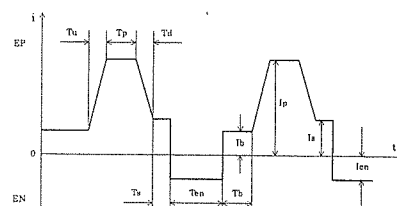
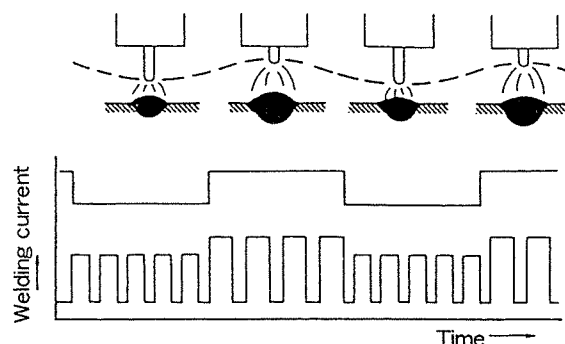


Fig. 13 AC pulsed MIG welding.



Wire : 5183-1.2mm	
Frequency	Bead appearance
2Hz	
4Hz	
Without low pulse (100Hz)	

Fig. 14 Low pulsed MIG welding.

ダブルワイヤ溶接はミグ溶接の1種であり、Fig. 15に示すように電極ワイヤ（先行ワイヤ）でアークを発生させ、消耗ワイヤを電極ワイヤに平行に溶融池に入れる方法である。2本のワイヤを溶融池に供給するため、従来の溶接に比べて溶着量が多くなり、厚板における溶接の層数を減らすことができ、溶接速度が上げられる。1層溶接でも、通常のミグ溶接と同じ電流値で約2倍の溶接速度が得られる。溶着量が多いため、大きなギャップの溶接にも対応できる。消耗ワイヤが直接溶融池に入ることにより溶融池の温度が低く保たれ、薄板の溶接時にも熱歪みが生じにくく、溶け落ちも生じにくい等、多くの利点がある<sup>19)</sup>。ミグ溶接でマグネシウムを多く含むアルミニウム合金のワイヤを用いて同材質の溶接を行う際、溶接部の周辺に黒粉が多量に付着し、その除去に手間取ることがあるが、ダブルワイヤ溶接にてアークが発生する電極ワイヤに純アルミ系の溶加材を、消耗ワイヤにAl-Mg合金ワイヤを用いることにより、黒粉をほとんど発生させることなく継手強度を確保することが可能である<sup>20)</sup>。本法は2本のワイヤの位置関係を保ちながら溶接する必要があり、複雑な部位の溶接には向かない。2002年の国際ウェルディングショーでは、電極として働く2本のワイヤを用いたタンデム溶接も登場し、こちらも高速溶接が可能となっている。

フレームの接合等でさらに深い溶け込みが必要な場合にはティグ溶接法の適用も考えられるが、タングステン電極とワイヤの位置を保ちながら溶接する必要があり、これも複雑な部位の溶接には制限がある。部品の溶接部の手直しには作業性の良い手動ティグ溶接が使われる場合がある。ここではワイヤを使用しないティグ溶接を自動車部品であるテラードブランクに適用した例を紹介する。プレス成形前にあらかじめ材質あるいは板厚の異なるボディシート材をつなぎ合わせて構成される、テラードブランクの利用が鋼板で広まっている（Fig. 16）。鋼板の場合には、レーザ溶接あるいはマッシュシーム溶接により、プレス成形に耐えるブランク材を作製することができる。アルミニウム合金では、溶接の極性をうまく利用した DCEN-TIG（Direct Current Electrode Negative TIG）溶接により、高速での差厚溶接が可能

である<sup>21)</sup>。DCEN-TIG はタングステン電極側を負極として溶接を行うことにより、深い溶け込みを得る方法であり、溶け込み形状の安定した制御が可能である。この方法により、異なる厚さの板や異なる材質のアルミニウム合金の突合せ溶接がレーザ溶接並みの速度で可能である。5000系合金の焼鈍材では溶加材なしで約7m/分の速い溶接速度で健全な溶接が可能であり、Fig. 17に示すように溶接部の断面形状は滑らかで欠陥はみられない。バルジ成形試験においても接合部で破断することなく薄板母材で破断し、接合部が成形に悪い影響を及ぼさないことが確認されている。熱処理合金である2000および6000系合金においても、溶接速度が速く熱影響が少ないため溶接部の強度低下は少ない。DCEN-TIG溶接を用いることにより、適当な引張特性と成形性を有するテラードブランクの製造が、比較的安価なコストで可能である。このDCEN-TIG溶接技術は、もともと10mm前後の厚板を1パスで溶接する方法としても実用化されていたものであり、従来技術を最新ニーズに適用した好例である。

## 5. 抵抗スポット溶接

アルミニウム合金の抵抗スポット溶接を行う上で最も大きな問題は、鋼の溶接時に比べて極端に短い電極寿命である。アルミニウム合金は鋼に比べて電気抵抗が小さ

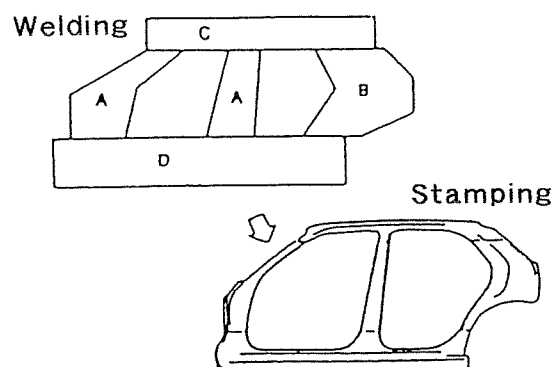


Fig. 16 Application of tailored blanks to car body.

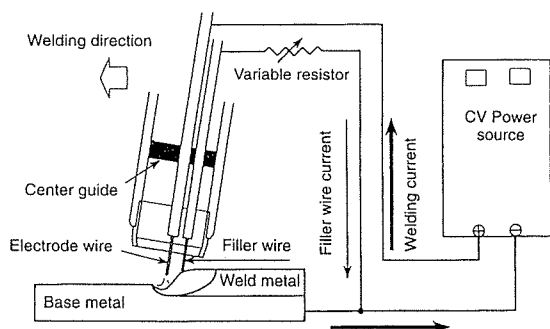


Fig. 15 Principle of double wire welding.

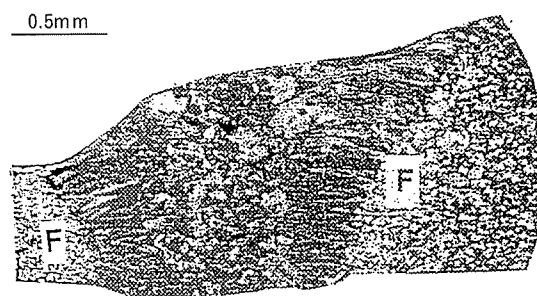


Fig. 17 Cross section of DCEN-TIG weld in different thickness sheets.

く、高い熱伝導度を有するため、鋼板の約3倍の大きな電流をおよそ半分の時間で流さないと十分な強度を有する溶融部（ナゲット）を得ることはできない。鋼板用の従来の電極材料であるクロム銅をアルミニウム合金の抵抗スポット溶接に用いると、電極表面へ付着したアルミニウムが溶接時の発熱により共晶融解を誘発し、電極先端の損耗が激しく生じる<sup>22)</sup>。ボディシートに用いられる5000系合金は、成形性に有利であることから通常焼鈍材が用いられるため、酸化マグネシウムを主とする酸化皮膜が厚く、溶接時に電極との接触面で発熱しやすい。また、成形性向上のために塗布される油の影響で電極先端の損耗が激しくなる。従来の交流溶接機に代わり、電源が小さく軽いインバーター直流溶接機が選択されるようになってきたが、直流溶接機を用いると、ペルチェ効果により正極側の電極が著しく発熱し損耗するため薦められない。成形時には軟らかく、焼き付け塗装の加熱時に時効させることにより高い強度が得られるベイクハード性が好まれ、6000系合金のボディシートが使用されるようになってきた。6000系合金は5000系合金に比べて導電率が高く、抵抗溶接には大きな電流を必要とするため、電極の損耗はさらに激しい。

これらの問題を解決する方策として、母材側、溶接条件、および電極の改良が考えられる。母材に関しては他の特性も考慮すると困難であるが、5000系合金の場合は焼鈍後酸洗等で酸化皮膜を除去することにより電極寿命が伸びることが確認されている。溶接条件の改良も効果があると思われるが、既存の設備を考えると限界がある。そこで、電極を変えるだけで電極寿命の向上がはかれるかどうか、アルミニウム合金に適した電極材料の開発を試みた結果、Fig. 18に示すように電極材料の導電率と軟化温度の影響が大きいことが判明した。成分および調質の最適化をはかり、Table 2に示すCu-Ag-O合金（STAR: Sumitomo Tough And Robust）電極材

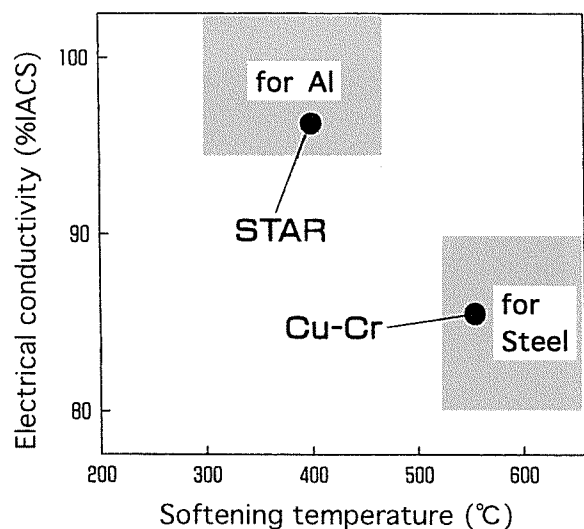


Fig. 18 Relationship between electrical conductivity and softening temperature of electrode materials.

料が開発された<sup>23)</sup>。この材料は高い導電率を有するため電極自体が発熱しにくく、電極先端に付着するアルミニウムと銅の共晶融解が生じにくい。また、適度な硬さと軟化温度に調質することにより、電極先端面に損耗が生じてもそれを埋めるように表層部が塑性変形し、長期にわたって母材と電極の接触面積が確保される。この電極材料は、Fig. 19に示すように母材や溶接機の条件にもよるがクロム銅電極の2～7倍の寿命を示し、酸洗後塗油した5000系合金に対する単相交流抵抗スポット溶接において、亜鉛めっき鋼板並みの電極寿命を達成している。

抵抗溶接のアルミニウム合金への適用例として、点接合の他に抵抗シーム溶接による重ね線接合により燃料タンクが製造されている。プレス加工によりハット形にしたアルミニウム合金板のつばの部分を重ね合わせて、円盤型の電極輪で挟み、通電しながら電極輪を全周転がして密封する。

抵抗溶接を異種金属接合に利用している例を紹介する。アルミニウム合金板と鋼板の直接溶接は、接合面にアルミニウムと鉄の脆い金属間化合物（ $Al_5Fe_2$ ）が形成され、その厚さが $1\mu m$ を超えると接合強度が著しく低下する。そこで、Fig. 20に示すように接合面にアルミニウムと鋼のクラッド板を挟んで抵抗スポット溶接することにより、優れた機械的性質の重ね継手が得られるトランジション溶接法が開発されている<sup>24)</sup>。

Table 2 Properties of STAR electrode.

Specimen	Content/mass%				Electical conductivity %IACS	Hardness HV	Softening temperature K
	Ag	O	Cr	Cu			
STAR	0.09	0.012	—	Rem.	97.8	105	625
Cu-Cr	0.00	0.002	1.05	Rem.	85.0	150	775

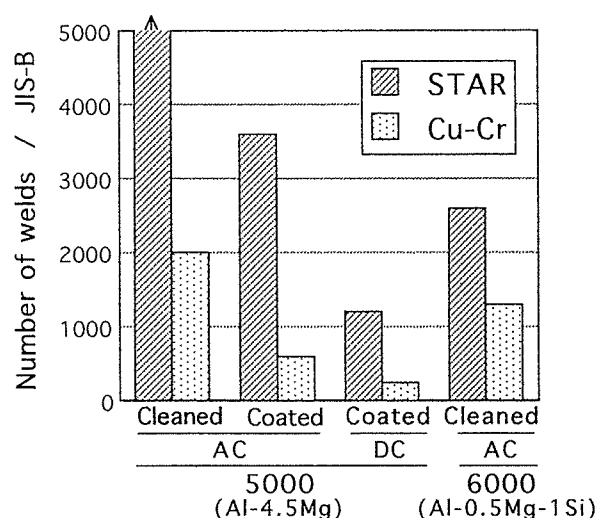


Fig. 19 Electrode life in various welding conditions.



## 6. ろ う 付

アルミニウム合金のろう付は、自動車用熱交換器の組立で数多くの実績がある。ラジエタ等の自動車用熱交換器のろう付は、一般にフラックスを用いた窒素ガス炉中ろう付である。真空ろう付によるものもあるが、フラックスが製品に残留しない利点がある反面、クリアランスが0.1mmを越えると接合が困難である。不活性ガスを吹き付けながら行うトーチろう付も一部で実用されている。

通常、ろう付部材には Al-Si ろうがクラッド圧延されているブレージングシートが用いられる。しかし、最近では Si 粒をフラックスおよびバインダーとともにアルミニウム合金押出多穴管に塗布し、炉中ろう付する Nocelok Sil Flux<sup>25)</sup> による新ろう付法が実用化されている (Fig. 21)。この方法によると、母材に特殊なクラッド材を用いる必要が無く、複雑な部材にも適用しやすい。その他、ろう付のトレンドとしては、従来の 600℃ 近いろう付温度を下げる方向で研究が進んでいる。ろうおよびフラックスの組成の改善がポイントである。

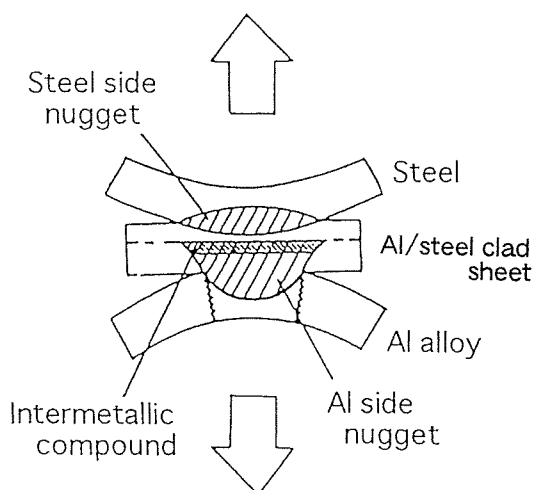


Fig. 20 Transition welding of aluminum and steel sheets.

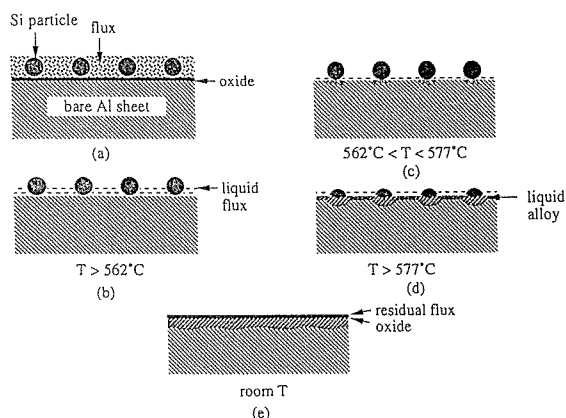


Fig. 21 Novel brazing method with Nocelok Sil Flux.

素材として開発されたろう付パネルは、六角形あるいは波形の板のアルミニウム製コアの両面にアルミニウム製面板を、真空ろう付して作製されるサンドイッチ構造のパネルで、軽量で剛性が高いので自動車の軽量化に最適である。ろう付ハニカムパネル (BP: Brazed Honeycomb Panel) は、Al-Si ろうをクラッドした面板を用いて真空ろう付され、ハニカムコアと面板は脚長を持った強固な接合となる。剛性を一定にした質量の比較ではアルミニウム板の約 1/6 の軽さである。また、ろう付ハニカムパネルはオールアルミであるため、アルミニウムの特性をそのまま引き継ぎ、溶接や曲げ加工も可能であり、リサイクルも容易である。本パネルを利用して軽量、高剛性の自動車ボディの試作が行われてきた<sup>26)</sup>。

Fig. 22 にコンセプトカーのアンダーボディに使われた例を示す。ろう付ハニカムパネルは強度と平滑性に優れることから 500 系のぞみ型新幹線車両の構体全体にも使用されている。最近、生産合理化によりコストが大幅に下がっており、広範囲での利用が期待される。

## 7. お わ り に

ここに挙げた他にも、機械的接合、超音波半田付、電子ビーム溶接、回転摩擦圧接、高周波溶接、スタッド溶接、接着接合等、新しく開発された技術や従来技術をうまく改良した接合方法がアルミニウム合金の接合に実用化されている。これらの接合技術をうまく組み合わせることにより、アルミニウム車体および部品等の生産コストが大幅に軽減され、輸送機器の軽量化が大きく推進されるであろう。さらに土木、建築、IT 関連等の分野にも

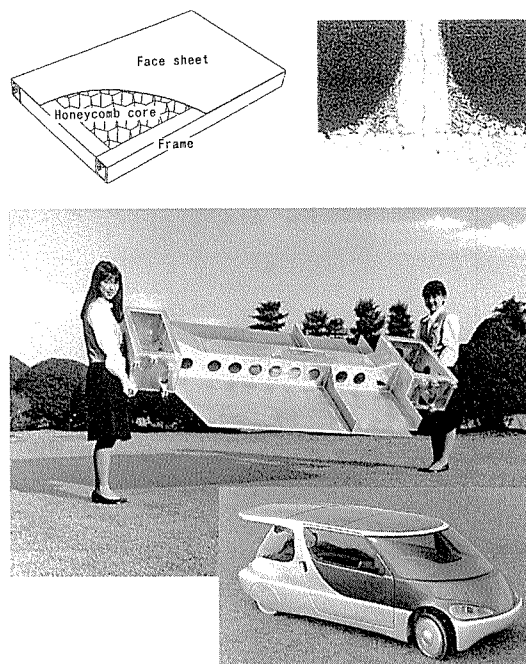


Fig. 22 Application of brazed honeycomb panels to car under-body.

これらの技術を利用することにより、アルミニウム材料の持つ軽量、加工性、耐食性、高伝導性、リサイクル性等の優れた特性が存分に活かされることを期待する。

#### 参 考 文 献

- 1) C.Dawes : Welding & Metal Fabrication, No.1 (1995), 13.
- 2) 熊谷正樹, 田中 直 : 軽金属学会第 94 回講演概要, (1998), 239.
- 3) 熊谷正樹, 田中 直 : 軽金属溶接, 39 (2001), 22.
- 4) M.Kumagai and S.Tanaka : 1st Int. Sympo. on Friction Stir Welding, Thousand Oaks, Jun. (1999), CD-ROM.
- 5) 田中 直, 熊谷正樹, 八太秀周, 吉田英雄, 佐藤広明 : 軽金属学会第 100 回講演概要, (2001), 241.
- 6) 中嶋祐司, 松本史朗 : 軽金属溶接, 39 (2001), 321.
- 7) 熊谷正樹, 田中 直 : 同上, 39 (2001), 22.
- 8) H.Takai : 3rd Int. Sympo. on Friction Stir Welding, Kobe, Sep. (2001), CD-ROM.
- 9) M.Johnson : Welding Journal, 78 (1999), 35.
- 10) M.Enomoto : 3rd Int. Sympo. on Friction Stir Welding, Kobe, Sep. (2001), CD-ROM.
- 11) R.Sakano, M.Fujimoto et.al. : ibid., CD-ROM.
- 12) 熊谷正樹, 田中 直 : 軽金属学会第 102 回講演概要, (2002), 247.
- 13) 前田興一, 宇都秀之 : 軽金属学会第 88 回講演概要, (1995), 285.
- 14) 真鍋幸男, 渡部祐二郎, 銭谷 哲, 根石哲行, 和田宏一 : 溶接学会概要第 68 集, (2001), 38.
- 15) 柴田公博, 粕川 実, 岩瀬孝邦, 坂元宏規 : 同上, (2001), 20.
- 16) 前田興一, 難波圭三, 阿部信行 : 溶接学会概要第 70 集, (2002), 114.
- 17) 全 紅皐, 上山智之 : 軽金属溶接, 39 (2001), 328.
- 18) 山本英幸, 原田章二, 上山智之, 小川俊一 : 溶接学会論文集, 10 (1992), 233.
- 19) 高野英明, 中田実雄, 中原雄治, 宮内秀樹 : 溶接技術, 40 (1991), 82.
- 20) 杉山禎彦, 中田実雄, 宮内秀樹 : 軽金属溶接, 30 (1992), 353.
- 21) E.Pickering, M.A.Glagola, R.M. Ramage and G.A. Taylor : SAE Technical Paper 950722, (1995), 67.
- 22) 熊谷正樹, 永田公二, 難波圭三, 佐野啓路 : 本誌, 33 (1992), 246.
- 23) 熊谷正樹, 佐野啓路, 永田公二, 難波圭三 : 同上, 35 (1994), 145.
- 24) 泰山正則, 小川和博, 高 隆夫 : 溶接学会概要第 51 集, (1992), 302.
- 25) R.Timsit and B.Janeway : Welding Journal, 73 (1994), 119-s.
- 26) 伊藤泰永 : アルトピア, 1 (1993), 49.



住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 148-151

技術資料

新機能プレコートアルミニウム合金板「スミカラー」\*

宇佐見 勉\*\* 伊藤 秀男\*\*  
玉置 充宏\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 148-151

Pre-coated Aluminium Alloy Sheet “Sumi-color”  
with New Functions

Tsutomu Usami, Hideo Itou and Mitsuhiro Tamaki

## 新機能プレコートアルミニウム合金板「スミカラー」\*

宇佐見 勉\*\* 伊藤 秀男\*\*  
玉置 充宏\*\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 148-151

Pre-coated Aluminium Alloy Sheet “Sumi-color”  
with New Functions

Tsutomu Usami, Hideo Itou and Mitsuhiro Tamaki

“Sumi-color” is the aluminium alloy strip roller-coated with various paints including alkyd, acrylic, epoxy, polyester, polyvinyl fluoride and polyvinylidene fluoride, following the surface treatment for the good paint adhesion. Although a substantial volume of aluminium is painted both for corrosion protection and for decoration, painted metal is considered unattractive for many applications and some customers. We have developed “Sumi-color” products with new additional functions in reply to our customer needs.

In this paper we introduced new products featuring self-lubrication, high conductivity, high infrared-reflectivity, stain resistance and resistance against microbes and funguses.

## 1. はじめに

スミカラーは、アルミニウム合金条に下地処理を施した後、ロールコーターにより多種多様な有機樹脂塗料を焼付け塗装した製品であり、一般的には、プレコートアルミと呼称される。プレコートとは、金属板を成形加工した後に塗装するポストコートと対比する言葉であり、成形加工前に条の状態で塗装することを意味する。

Fig. 1 に示すように、プレコート材の使用により、成形加工後のスプレー塗装やアルマイト処理に伴う汚染物質の環境への排出をなくすることができるだけでなく、製造工程を短縮しコストの低減を図ることも可能である。

塗装の2大目的は、アルミニウム合金に意匠性と耐食性を付与することであるが、その他の様々な新しい機能を付加したプレコート材を顧客の要望に沿って開発してきたので、その一部を紹介する。

## 2. 新機能プレコート材の種類と用途

## 2.1 記録メディア用プレコート材

記録メディア用プレコート材は、Fig. 2 に示すように、マイクロフロッピーディスク、光磁気ディスク、光ディスクのヘッドアクセス用開口部の開閉を行うシャッター部材に使用され、クリアをはじめ、ステン色、黒色、黄金色の中から選択できる。従来、シャッター用材料とし

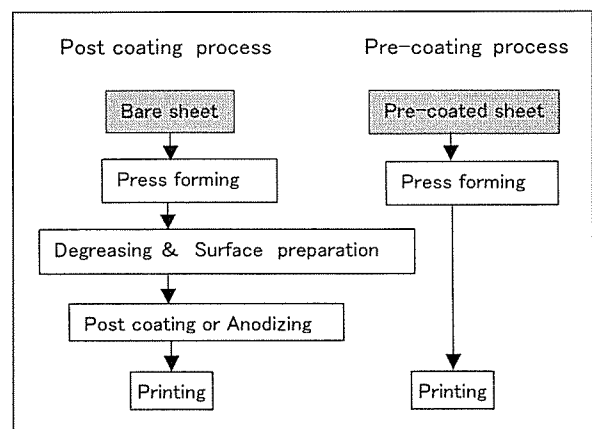


Fig. 1 Manufacturing process of press-formed aluminium product.

\* 軽金属, 50 (2000), 623 に一部掲載

\*\* 研究開発センター 第三部

\*\*\* 生産本部 名古屋製造所 板生産技術部

ては、主としてステンレス鋼、高分子合成樹脂、一部に、陽極酸化処理を施したアルミニウム合金が使用されてきた。

ステンレス鋼や高分子樹脂は、インクとの密着性が悪く、印刷文字が脱落しやすいという問題点があり、後者の場合は、印刷前にコロナ放電加工などの前処理を行う必要があった。アルミニウム材料としては、A5052 合金の H38 調質材などが提案されているが、強度が十分でなく、アルミニウム素地のまま使用した場合には、耐指紋性が劣るという問題点もあった。

本プレコート材は、ステンレス鋼に匹敵する高強度アルミニウム合金とエポキシアクリル樹脂やエポキシ樹脂塗膜を組み合わせたものであり、高強度で、かつ、折り曲げ加工性、耐指紋性、印刷性、耐傷付き性に優れている (Table 1)。

## 2.2 潤滑処理プレコート材

潤滑処理プレコート材は、有機樹脂塗膜に含まれる潤滑剤の働きにより、表面の摩擦係数が極めて小さく、アルミニウム合金板にプレス油を塗布した場合を上回る成形性を示す (Table 2, Fig. 3)。このため、プレス油を使用せずに、高速で連続深絞り加工や張出し加工ができるだけでなく、成形後のプレス油の脱脂工程が省略でき、製造コストの大幅な低減ができることから、幅広い用途に使用されている (Fig. 4)。さらに、耐食性に優れた

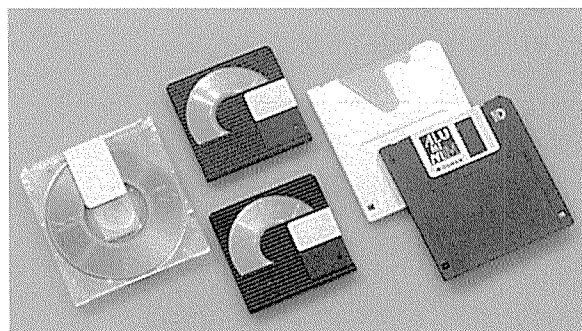


Fig. 2 Pre-coated aluminium shutters for floppy disk, mini disk and MO disk.

塗膜は、アルマイト皮膜の代替も期待できる。

本プレコート材には、用途に応じ、内装用、耐候性に優れた外装用、厚膜着色用、食品容器用がある。

## 2.3 導電性プレコート材

導電性プレコート材は、有機樹脂にニッケルなどの金属、黒鉛、カーボンブラックなどの導電性フィラーを添加し、塗膜に導電性を付与している。導電性フィラーの種類、形状及び大きさや塗膜厚さを制御することにより、Fig. 5 に示すように接触抵抗値を広い範囲で制御するこ

Table 1 Properties of pre-coated aluminium alloy sheet for various record disk shutters.

● Mechanical properties		
GM145-H36	Tensile strength (N/mm <sup>2</sup> )	340~430
	Yield strength (N/mm <sup>2</sup> )	280~340
	Elongation (%)	>3

## ● Coating performance

Coating weight	25mg/dm <sup>2</sup>
Ink adhesion (Scratch-tape peeling)	100/100
Bending test	0T (No cracking)
Salt spray test (240h)	>Rating No. 9

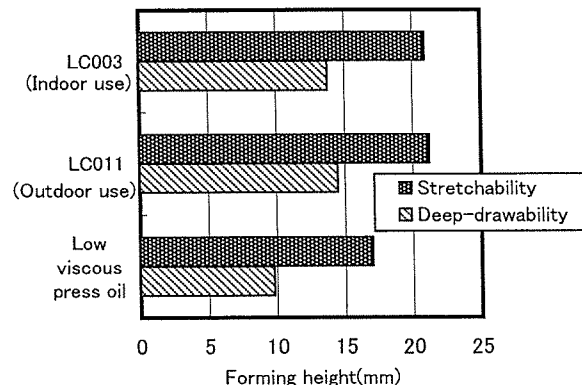


Fig. 3 Formability of pre-coated aluminium alloy sheets with self-lubrication.

Table 2 Characteristics of pre-coated aluminium sheets with self-lubrication.

	LC011	LC003	Note
Resin type	Acrylic/urethane	Epoxy	
Film thickness	2μm	2μm	
Friction coefficient	0.04	0.04	Bowden-Leben friction tester
Adhesion	100/100	100/100	Scratch-tape peeling
Corrosion resistance	>Rating No. 9	>Rating No. 9	Salt spray test (240h)
Acid resistance	No change	No change	5% H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> , rt, 72h
Finger print removability	Easy to remove	Easy to remove	White vaseline

とが可能である。塗膜には、潤滑性も付与されており、折り曲げ加工や絞り加工が施され、接地が必要な電子機器などの筐体に使われている。

#### 2.4 耐汚染性プレコート材

耐汚染性プレコート材は、塗膜の架橋密度を上げることで、汚染物質の塗膜への浸透を抑制し、耐汚染性、特に、耐雨筋汚れ性に優れている。また、従来のポリエステル系塗料と同程度の加工性を確保するために、高架橋密度でも伸びのあるポリエステルとアクリルの複合樹脂を使用した。

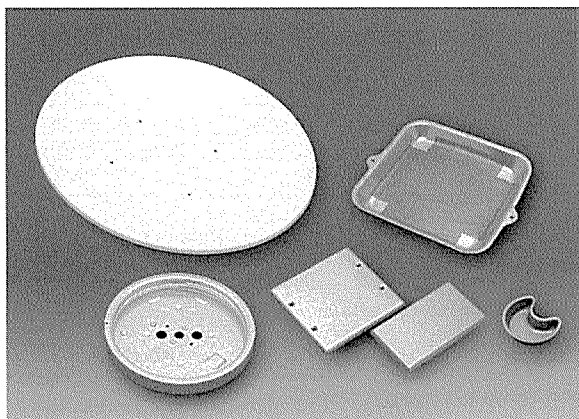


Fig. 4 Various products of pre-coated aluminium sheet with self-lubrication.

塗装アルミニウム合金板の耐久性能を支配するものは、アルミニウム合金の腐食や塗膜劣化というよりも、環境からの付着物による外観汚染と言っても過言ではない。特に、建物の外壁では、排気ガス等による油分が砂塵や埃と結合して、雨水の流れる跡に筋状に溜まる、いわゆる

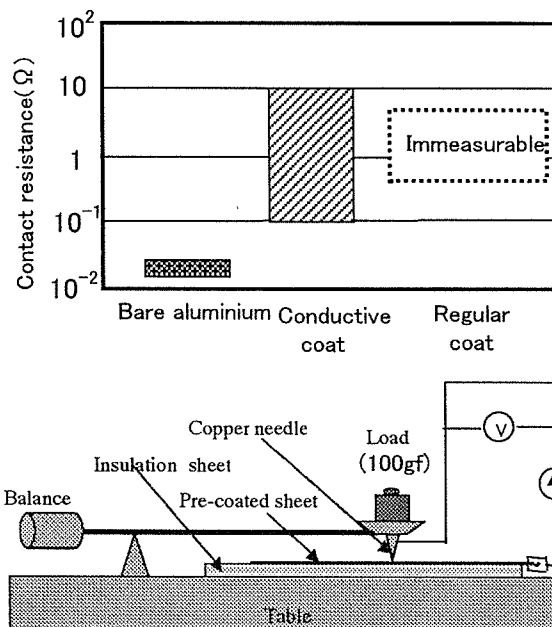


Fig. 5 Result and test method of contact resistance of conductive coated sheet.

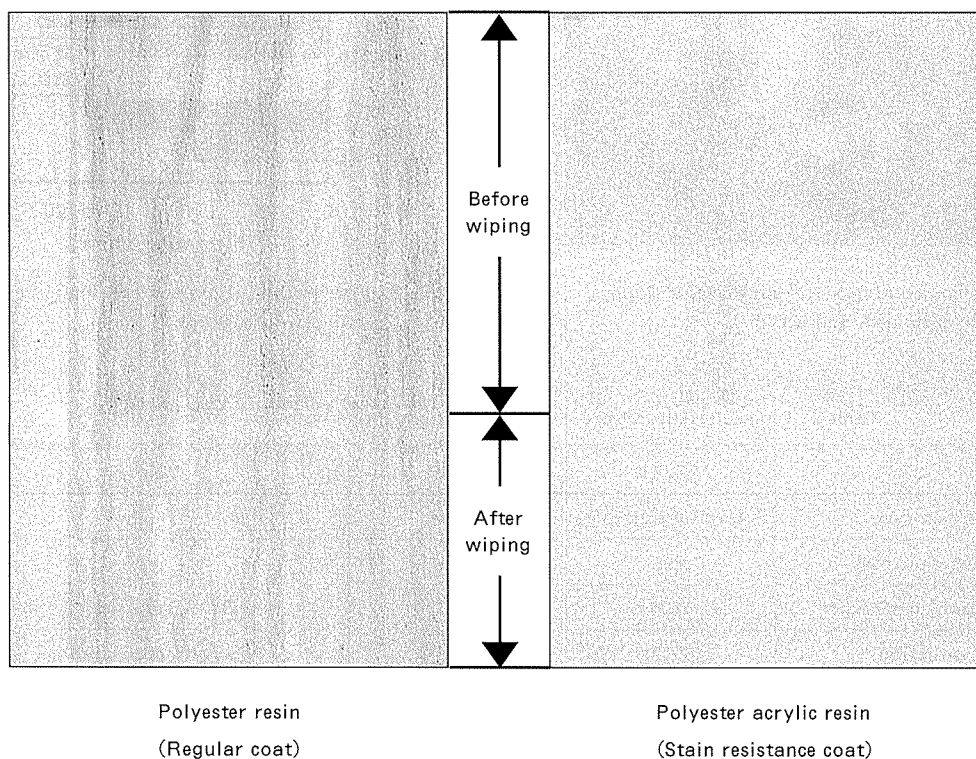


Fig. 6 Test specimens after 4 months exposure in an industrial area (Nagoya city).

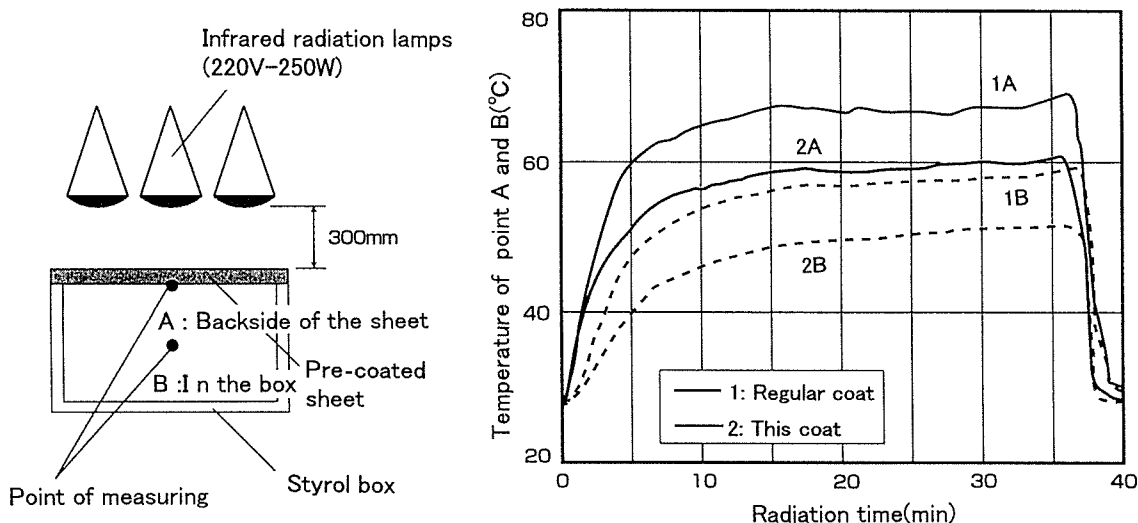


Fig. 7 Infrared radiation test result of brown painted sheet.

Table 3 Performance of antimicrobial and antifungal pre-coated aluminium alloy sheet.

	This coat			Regular coat		
Antimicrobial activity test*	$3.2 \times 10^5$			$3.2 \times 10^5$		
Viable count after 24h (cfu/specimen)	→50			→ $5.0 \times 10^6$		
Antifungal activity test**	1w	2w	3w	1w	2w	3w
Growth area ratio	0%			<10%	20%	30%

\* Staphylococcus aureus

\* \* 5 mixed funguses

• Aspergillus niger

• Penicillium citrinum

• Cladosporium cladosporioides

• Aureobasidium pullulans

• Gliocladium virens

る雨筋汚れの解消が求められてきた。Fig. 6 に名古屋市港区の工業地帯に4ヶ月間暴露した雨筋汚染性試験片の外観を示す。耐汚染性プレコート材は、通常のプレコート材に比較し、雨筋汚染が目立ちにくいだけでなく、水拭きにより容易に除去できる。

### 2.5 赤外線反射プレコート材

赤外線反射プレコート材は、太陽熱を遮蔽するために近赤外線を効率よく反射する特殊セラミックが有機樹脂に添加してある。金属屋根の屋外構造物に本プレコート材を使用することにより、室内の温度上昇を抑制することができ、冷房費の削減が期待できる。茶褐色のプレコート材で赤外線照射試験を実施した結果をFig. 7に示す。本試験では、プレコート板の裏面温度で7℃、箱内温度で10℃の差が確認できた。

### 2.6 抗菌・防かびプレコート材

抗菌・防かびプレコート材は、安全で耐久性のある複数の抗菌剤と防かび剤を塗料に添加することにより、従

来のプレコート材に抗菌性と防かび性を付与したもので、衛生的な環境が求められる食品類の輸送コンテナなどに最適である。フィルム密着法による抗菌性試験結果とカビ抵抗性試験結果をTable 3に示す。24時間後の生菌数は、本プレコート材では著しく低下するのに対し、従来のプレコート材では若干の増加が認められた。かび抵抗性試験においても、本プレコート材はかびの発育が認められないのに対し、従来のプレコート材では、時間の経過とともにカビの発育面積が拡大し、3週目で30%に達した。

## 3. おわりに

ここに紹介したプレコート材は、顧客の要望に応じて開発してきた結果、上市できたものである。今後とも顧客の要望に沿って、新しい機能を有するプレコート材を開発してまいりたい。

住友軽金属技報 第43巻 第1号 (2002) 152-164

技術資料

展伸用アルミニウム合金の溶解・鋳造における  
最近の技術と課題\*

渡 辺 良 夫\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 152-164

Melting and Casting for Wrought Aluminum Alloys  
—Recent Technologies and Future Challenges—

Yoshio Watanabe

## 展伸用アルミニウム合金の溶解・鋳造における 最近の技術と課題\*

渡 辺 良 夫\*\*

Sumitomo Light Metal Technical Reports, Vol. 43 No. 1 (2002), pp. 152-164

### Melting and Casting for Wrought Aluminum Alloys —Recent Technologies and Future Challenges—

Yoshio Watanabe

In order to lighten the burden on the global environment and improve product performance, a number of advanced technologies regarding melting, molten metal treatment and DC casting of wrought aluminum alloys have been developed. The objectives for most of new melting processes are the reduction of metal loss and energy consumption. In molten metal processing divided into furnace and in-line treatment, effective fluxing technologies with salt fluxes have been developed to increase treatment performance and to decrease atmospheric emissions, and studies of new filtration system have been carried out to improve molten metal cleanliness. There are remarkable progresses in the optimization technique of mold and casting parameters in DC casting process. This paper describes the current and newly developed technologies as well as future challenges.

#### 1. は じ め に

展伸用アルミニウム合金は加工・熱処理によって様々な性能を発揮するため、輸送、電気、建築、食品などの産業分野で幅広く使用されている。国内での生産量はここ数年 230 万トン前後で推移しているが、近年の温暖化対策の一環として軽量化に有利なアルミニウムを用いた製品開発<sup>1)</sup>が進められ、今後の需要増加が期待できる金属のひとつである。その一方で、缶材に代表されるように既存アルミニウム素材の薄肉化<sup>2)</sup>、広幅化への要求や、環境負荷不可低減に向けての社会的な運動の高まり、さらには製造コスト削減に対する要求もあり、展伸用アルミニウム素材メーカーを取り巻く環境は年々厳しくなっている。鋳造工場においては、省資源や原料コスト削減のため、溶解原料に占めるスクラップの割合が増加し、粗悪な原料をもとに、環境に配慮しながら高品質の鋳塊を効率よく製造する必要性が増している。このため、溶解では燃料消費量や NO<sub>x</sub> などの放出量、溶解ロス削減

に主眼を置いた炉体構造や原料装入方法、溶解雰囲気管理、加熱方法に関する技術開発が継続的に行われている。溶湯処理では溶湯からの有害不純物除去に用いる塩素ガスの使用量低減を目的として、処理効率の向上やフラックスによる代替処理に関する技術が開発されているほか、新しい溶湯ろ過システムや溶湯清浄度の評価技術の研究も進められている。一方、鋳造ではスラブ鋳造における EMC 鋳造法、ビレット鋳造における気体加圧ホットトップ鋳造法の開発以後、革新的な技術は少ないが、要素技術の最適化による鋳塊の大型化や同時鋳込み数の増加、鋳造不良部の低減など鋳造生産性の向上を目指した技術に進展がみられる。

本報では、展伸用アルミニウム合金の最近の溶解、溶湯処理、DC (Direct Chill) 鋳造技術をレビューし、今後の技術課題について私見を述べる。

#### 2. 溶 解 技 術

##### 2.1 DC 鋳造工場における溶解

DC 鋳造工場ラインは一般に溶解炉、保持炉、インライン処理装置、鋳造機で構成され、溶解炉には燃料燃焼

\* 軽金属学会東海支部平成 14 年度第 1 回講演会にて一部発表

\*\* 研究開発センター 第二部

方式の反射炉が多く用いられている。反射炉は炉の形状、原料の装入方法などで分類されるが、従来は設計の自由度が高い角型サイドチャージ式反射炉が多く用いられ、DC 鑄造工場における主力溶解炉であった。しかし、炉壁側面から原料を装入するために装入時間が長くなるほか、熱膨張がコーナー部に集中する問題があり、近年の鑄塊の大型化や同時鑄造本数の増加に対応した溶解量を確保することが難しく、大型炉では円型トップチャージ式反射炉が増加している。この炉は Fig. 1<sup>3)</sup> に示すように、天井が大きく開口するため様々な形態の溶解原料を短時間で装入でき、全体としての熱効率も高いという特徴を持つ。近年では 100 トン前後の溶解能力を持った炉も実用化されている<sup>4)</sup>。

溶解原料は新地金、再生塊、中間合金、工程屑、市中屑など多岐に渡る。工程屑や市中屑の中には塗装などの固有機分や切り屑のように切削油が付着したものがあり、溶解ロスが多くなるため、このような歩留の低い原料の溶解には鑄造ラインとは別に設置される屑溶解炉が用いられる。この場合の代表的な溶解炉は前炉付溶解炉、いわゆるウェル炉である。Fig. 2 は一般的なウェル炉を示す。ウェル炉では下湯にスクラップを装入することによって、原料を急速溶解するとともに雰囲気酸化性ガスとの接触を抑制し、酸化ロスを削減できる構造になっている。

## 2.2 溶解時の課題

最近の溶解技術の開発動向は、次の二つに大きく分けられる。

- ・ 燃焼システムの改善による放出物の低減と熱効率の向上

- ・ 溶解方法の改善による溶解ロスの削減

## 2.3 燃焼システム

従来、反射炉では燃料燃焼バーナーによる直接加熱で炉内温度を上げ、炉壁からの輻射熱を利用していたが、アルミニウムは輻射熱を吸収しにくい特性をもつため、近年ではバーナー火炎を高速で直接原料にあてて加熱す

るとともに、対流を利用する方式によって熱効率を高めるバーナーが多く使用されている。対流型伝熱を強化することによって入熱量を 40% 削減できるという報告もあり<sup>5)</sup>、熱効率の向上に対するバーナーシステム改善の効果は大きい。また、燃焼排ガスによる熱損失は入熱量の 30% 以上に達することから、その廃熱を回収することによって熱効率を向上させる装置も開発されている。現在はレキュペレータを用いて廃熱を回収することが多いが、最近、廃熱の回収効率が 80~90% に達するレジェネレーティブバーナーが開発され<sup>6)</sup>、一部実用化されている。レジェネレーティブバーナーは Fig. 3 に示すようにバーナーと蓄熱器と一体となっていて、燃焼と排気を行える構造になっているのが特徴である。一般にはバーナーを向い合うように配置して、一方のバーナーが蓄熱器に蓄えた廃熱を利用して燃焼している間、他方のバーナーは排気を行い、蓄熱器に廃熱を蓄える。燃焼と排気を一定時間 (30~90s) で切替えることによって操業する。燃焼用空気は炉内雰囲気温度近く (1000℃) まで加熱され、燃料消費量は 30% 前後達成できることが実証されている<sup>6)</sup>。

燃焼に伴う主な放出物は  $\text{CO}_2$  と  $\text{NO}_x$  であるが、 $\text{CO}_2$  は燃焼効率を高め、燃費を改善することによってその排出を低減できる。これに対して、 $\text{NO}_x$  は別の対策が必要

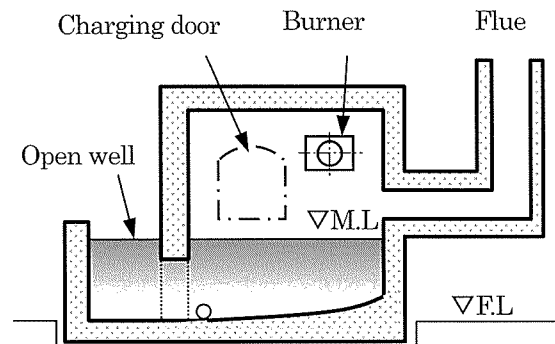


Fig. 2 Sidewell reverberatory melting furnace.

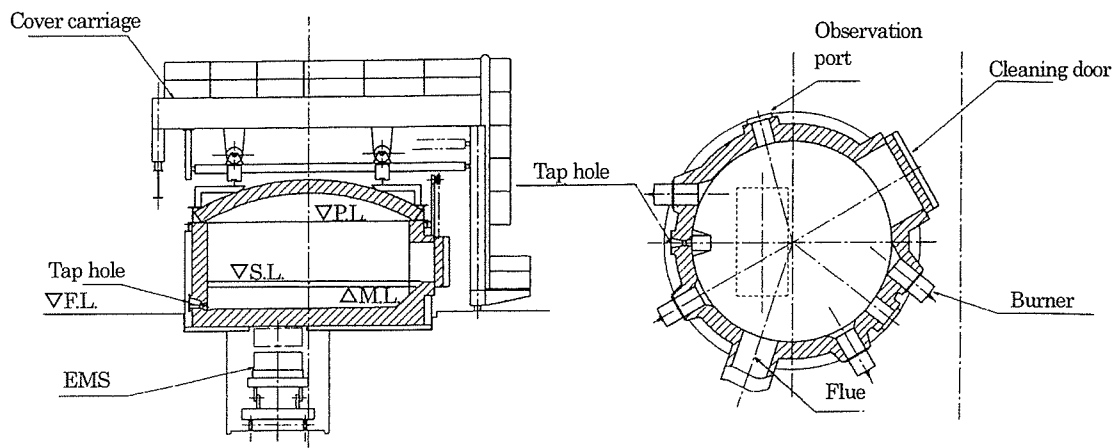


Fig. 1 Circular top charged reverberatory melting furnace<sup>3)</sup>.



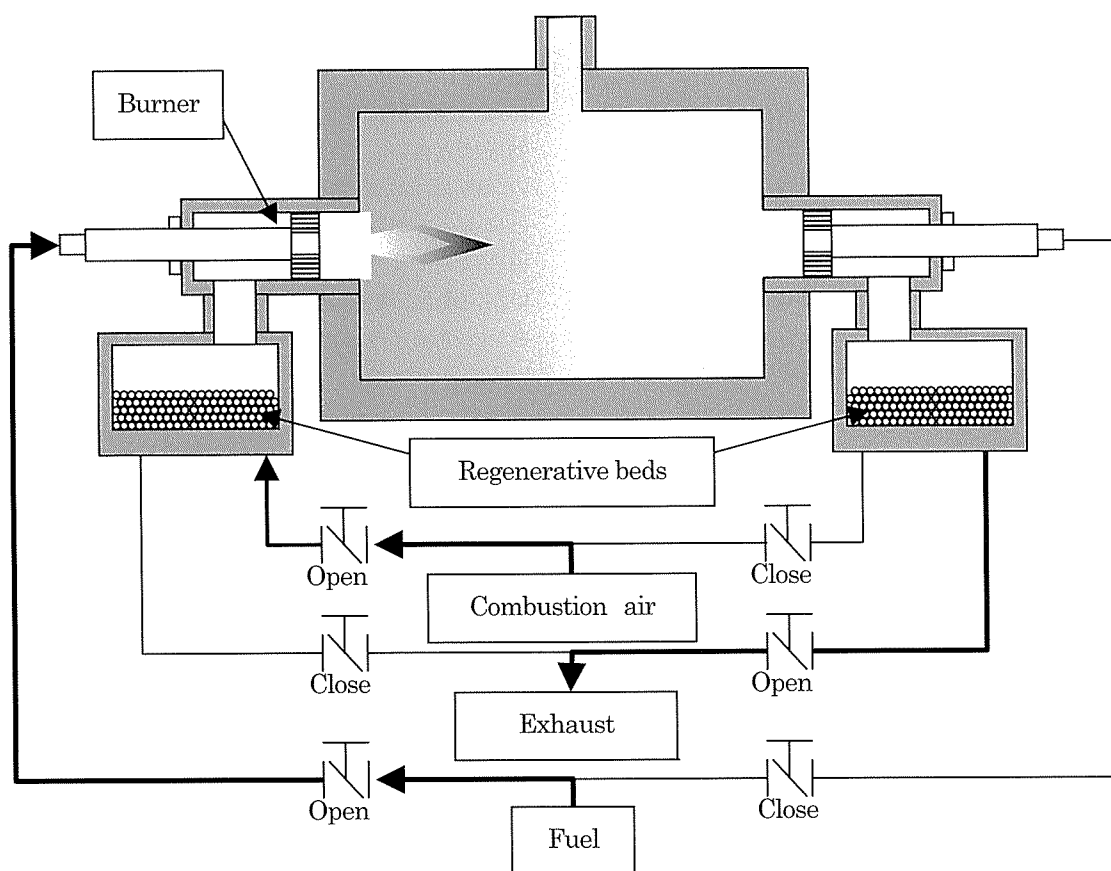


Fig. 3 Concept of regenerative burner system.

となる。NO<sub>x</sub>の生成メカニズムについてはまだ不明な点もあるが、燃焼域での酸素濃度の低減、高温域での燃焼ガス対流時間の短縮、局部高温域の低減の何れかあるいはその組合せを利用することで低減できる<sup>7)</sup>。現在多く用いられている低NO<sub>x</sub>バーナーは、燃焼空気の供給を2段階にして急激な燃焼反応を抑制し、火炎温度の上昇と局部的な高温域の出現を防止してNO<sub>x</sub>発生量を低減している。最近では、二段燃焼を応用し、バーナーへの燃料の供給量を周期的に変化させる濃淡燃焼方式も開発されている<sup>8)</sup>。その他、燃焼後のガスを燃焼域に再導入してNO<sub>x</sub>を低減する方法<sup>9)</sup>や、酸素や高濃度酸素を用いて熱効率向上とNO<sub>x</sub>低減を達成する方法<sup>10)</sup>など、様々な燃焼技術が報告されている。ただし、バーナーの効果については、設置する炉や操業条件で左右されることがあるため、炉に適したバーナーを選択することが大事だと言われている。

#### 2.4 溶解方法

溶解方法に関する技術開発のほとんどは酸化に伴う溶解ロスの低減を目的としているため、その多くは溶解ロスの多い軽量、薄肉スクラップの溶解を対象としている。従来、屑溶解炉にはFig. 2に示したウェル炉が使用され、下湯に原料が装入されるが、軽量、薄肉のスクラップは高比重が小さく、溶湯に浮いた状態で溶解し、必ずしも

高い歩留は得られていない。このため、効率よくスクラップを浸漬させる炉がいくつか開発されている<sup>11)~13)</sup>。

Fig. 4に示すPremelt Vortex Well<sup>13)</sup>はその代表例であり、円形のウェル内に発生させた溶湯の渦流を利用してスクラップを浸漬溶解するプロセスである。溶解炉内の炉床側の溶湯をガスリフトポンプによって円形ウェル炉の上部に供給し、ウェル炉の底部から溶解炉の底部に戻すことによって渦流を発生させる。ガスリフトポンプは窒素ガスの浮上力で溶湯を移動させるため、駆動部分がなく、メンテナンス性に優れる。Premelt Vortex Wellでの歩留はチップ、箔、UBCで96%を超えると報告されている<sup>13)</sup>。

Vertical Floatation Melterは従来のウェル炉とは全く異なる発想に基づくユニークなプロセスである<sup>14)</sup>。このプロセスでは、円錐状の装置内に熱風の上昇流を発生させ、その中に軽量スクラップを装入して浮遊させながら溶解する。熱風の流れの方向に流路が広がっているため、ガスの上昇速度は下側で大きく、上側で小さくなり、この速度差に応じて広範囲なサイズのスクラップを浮遊させることができる。スクラップは熱風による対流伝熱で急速溶解し、溶解した後は液滴が流線型となって上昇流に対する抵抗が小さくなるため、下の炉に落下し回収される。このプロセスでは従来の反射炉における輻射伝

熱と比べて10倍程度高い熱伝達が得られ、比較的低温のガスで急速溶解できるという特徴を持つ。種々のスクラップでの歩留は92~98%（塗装付き UBC：92%，塗装無 UBC：97~98%）と報告されている<sup>14)</sup>。

以上紹介した二つのプロセスは軽量スクラップに限定されるが、Fig. 5 に概略を示した HYM<sup>15)</sup> は DC 鋳造ラインの溶解炉にも適用可能な技術である。HYM は溶解

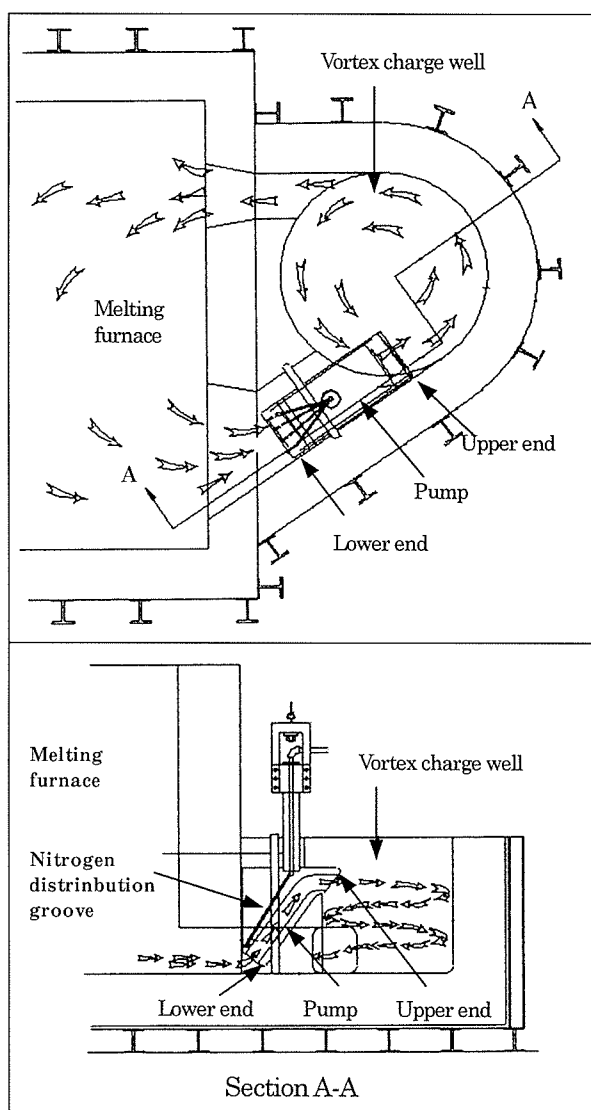


Fig. 4 Vortex charge well with Premelt gas lift pump<sup>13)</sup>.

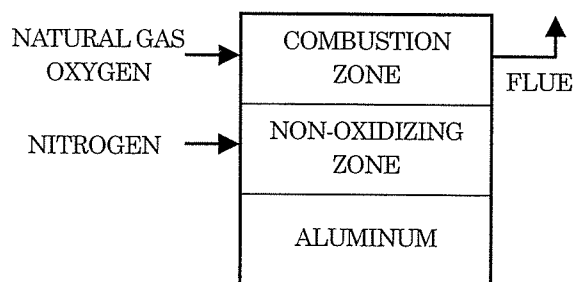


Fig. 5 Concept of Praxair high yield melting process<sup>15)</sup>.

原料や溶湯の酸化防止のため、不活性ガスによる酸化防止層をバーナーから発生する燃焼ガス層と溶解原料の間に安定して形成させることが特徴であり、スクラップ溶解での酸化ロスを85%削減できると報告されている。この技術では、対流が発生しない超低速バーナーを使用して燃焼ガスと酸化防止層との混合を防ぐことと、排気口やバーナー、不活性ガス供給ポートの位置を適性化することがポイントとなる。

ところで、アルミニウムは固体では熱伝導度が高いが、溶解すると熱伝導が著しく低下する。このため溶湯表面からの加熱が支配的な反射炉では深さ方向に著しい温度勾配が発生し、溶湯表面では温度上昇に伴って酸化が促進される。この結果、溶解ロスが増加するとともに、表面酸化物が断熱層の役割を果たし、熱効率を低下させるため、反射炉では溶湯の攪拌が必要となる。攪拌棒を取り付けたフォークリフトで攪拌する場合もあるが、現在では Fig. 6 に示す攪拌技術<sup>16)~19)</sup>が実用化されている。反射炉では電磁攪拌装置が多く使用され、従来は炉下に設置するのが主であったが、サイドに設置するタイプも考案されている<sup>19)</sup>。

## 2.5 今後の課題

溶解工程での技術開発は上記のように溶解ロスの削減、熱効率の向上、放出物量の削減を対象とし、過去から現在にかけて変わっていない。今後も開発動向に変化はないと思われるが、溶解工程の副産物であるドロスの需要が限られている現在、アルミニウムの需要の増大に伴ってドロスが増加すれば産業廃棄物になる危険性もあり、溶解ロスの削減に対する技術開発が特に重要になることが予想される。このため、燃焼システムとしては、燃料・燃焼用空気の影響によるバーナーに代わって、発熱量の大きい燃料・酸素バーナーによって溶解時間を短縮し、酸化を軽減する技術の実用化が進むと考えられる。また、これまでの熱源のほとんどは化石燃料であり、溶解ロスや放出物の問題がついて回っている。溶解雰囲気制御しやすく、急速溶解が可能な誘導炉やアーク式溶解炉等の技術開発も今後は必要と思われる。

## 3. 溶湯処理

### 3.1 処理目的と処理工程

溶湯中の不純物除去を目的として、鋳造工場では保持炉内での処理と保持炉・鋳造機間でのインライン処理が行われる。不純物としては、水素ガス、非金属介在物、アルカリ金属があり、アルミニウム製品の性能を著しく損なうことが広く知られている。

### 3.2 炉内処理技術

保持炉で実施する炉内処理は主に塩素ガスと不活性ガスの混合ガスを溶湯中に導入することによって行うことが多い。不純物除去の模式図を Fig. 7 に示す。介在物は塩素と溶湯成分の Al や Mg の反応生成物である塩化

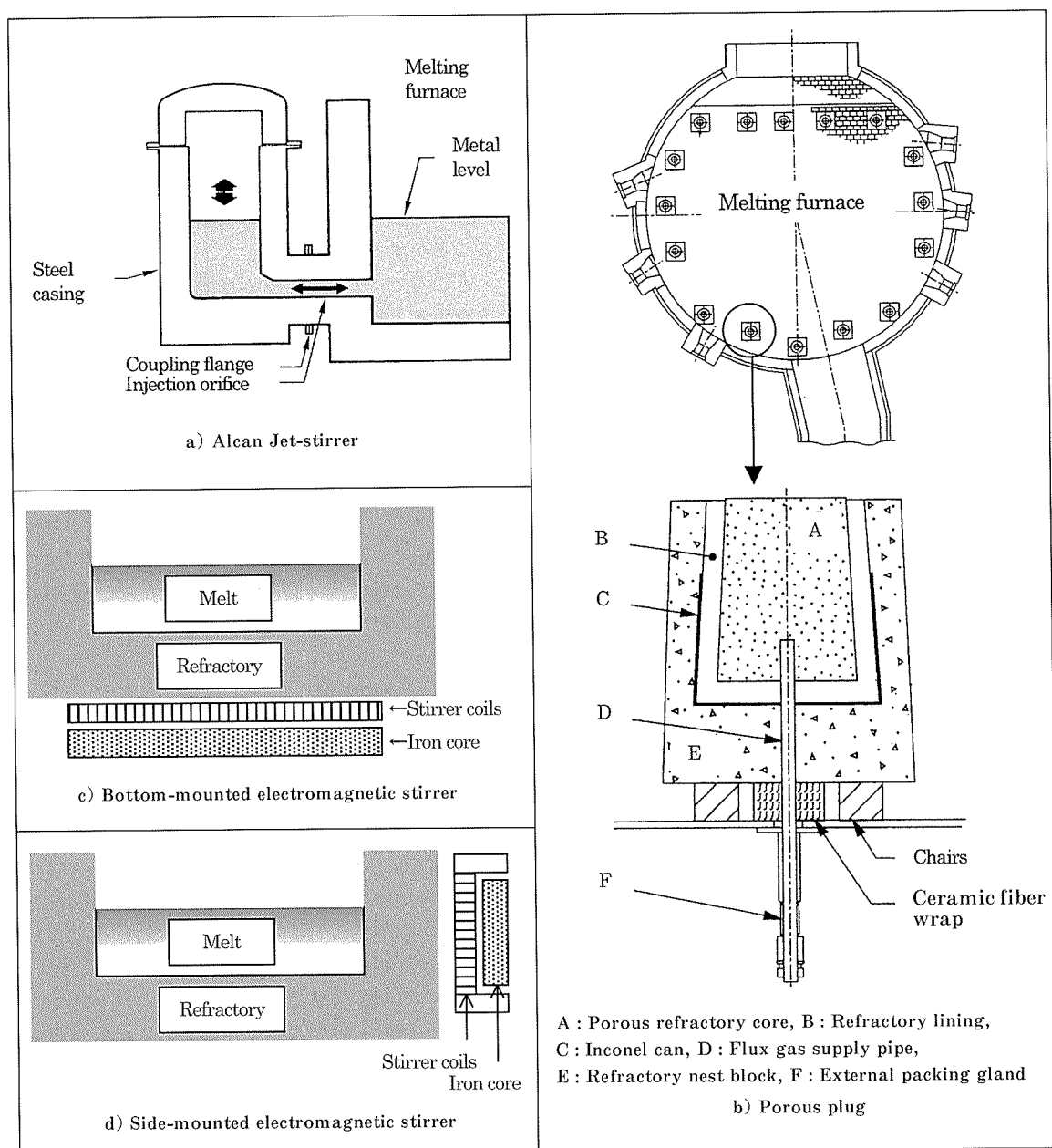


Fig. 6 Schematic drawing of stirring technologies for reverberatory melting furnace<sup>16)~19)</sup>.

物 ( $\text{AlCl}_3$ ,  $\text{MgCl}_2$ ) に吸着して湯面に浮上分離され、アルカリ金属は塩素と容易に反応して塩化物の形で除去される。また、水素ガスは  $\text{AlCl}_3$  ガス気泡や不活性ガス気泡と溶湯中の水素分圧の違いから、気泡中に移動して除去される。このように、塩素ガスは不純物除去に有効であるが、一方で  $\text{HCl}$ ,  $\text{Cl}_2$  などの有害ガスを発生させ、環境面から使用量の削減が望まれている。溶湯中への処理ガスの吹込みにはランスパイプを用いるのが一般的であるが、気泡径が大きいために反応効率が低く、生産性や環境面で問題が多い。対策として、ランスの数を増やしたり、炉床に設置したポーラスプラグから微細気泡を発生させる技術<sup>17)</sup>が実用化されている。最近では、従来インライン処理で多く用いられてきたロータリーガスイン

ジェクション技術を炉内処理用に改良した技術も開発されている<sup>20), 21)</sup>。Alcan で開発された装置を Fig. 8<sup>20)</sup> に示す。スクリー型ローターを高速で回転させることによって気泡が微細化されるとともに溶湯が攪拌されるため、処理の均一性と高い反応効率が得られ、塩素量を大幅に削減できる。また、塩素ガスだけでなく、粒状の固体フラックスの吹込みにも適用でき、塩素ガス使用の廃止にむけて効果的な技術といえる。 $\text{MgCl}_2$  系の固体フラックスの吹込みでは、従来のランスパイプによる塩素ガス吹込みと同等の品質を達成した上で、放出物量を著しく減少させることができるようになっている<sup>20)</sup>。

### 3.3 インライン処理技術(脱ガス処理技術)

脱ガス処理はアルミニウム工業で広く行われ、アルゴ

ンあるいはアルゴンと塩素の混合ガスをロータリーガスインジェクターによって溶湯中に分散させる方法が主流となっている。SNIF<sup>22)</sup>, GBF<sup>23)</sup>, Alpur<sup>24)</sup>など、いくつか装置が開発されているが、いずれも脱ガス効率を高めるには微細ガス気泡を発生させることが必要という認識

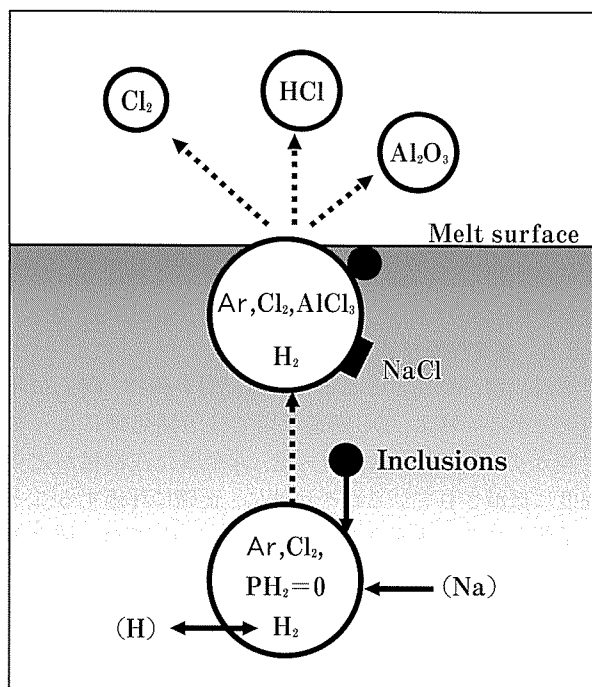


Fig. 7 Schematic drawing of impurity removal mechanism by Ar-Cl<sub>2</sub> gas fluxing.

の基に開発されているため、装置が類似し、ほぼ同じ処理性能を発揮すると言われている。Alcanで開発されたACD<sup>25)</sup>も同様の考えに基づく処理技術であるが、SNIFやGBFはライン内に専用の処理槽を組込む必要のあるのに対してACDは樋を利用するため、装置をコンパクトにでき、残湯量が少なく作業性が改善されるという利点がある。この方法では、Fig. 9<sup>26)</sup>に示すように隔壁で分割した樋を処理槽として利用し、複数のロータリーガスインジェクターによってアルゴン雰囲気下で処理する。脱ガス効率は、溶湯の滞留時間、処理ガス表面積、処理槽容量、処理槽数に依存するが、樋内処理では溶湯深さが200~250mm程度と浅いため気泡と溶湯の接触時間

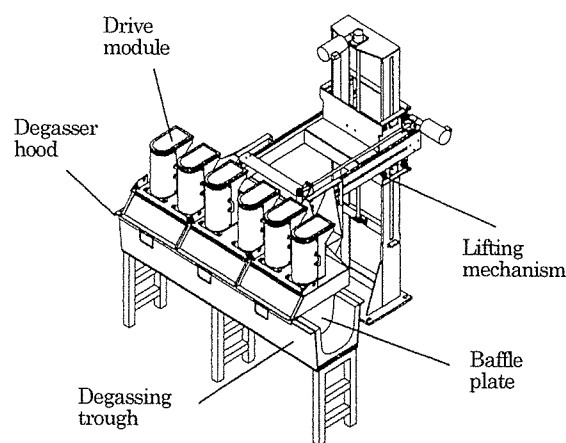


Fig. 9 Schematic drawing of the Alcan compact degasser<sup>26)</sup>.

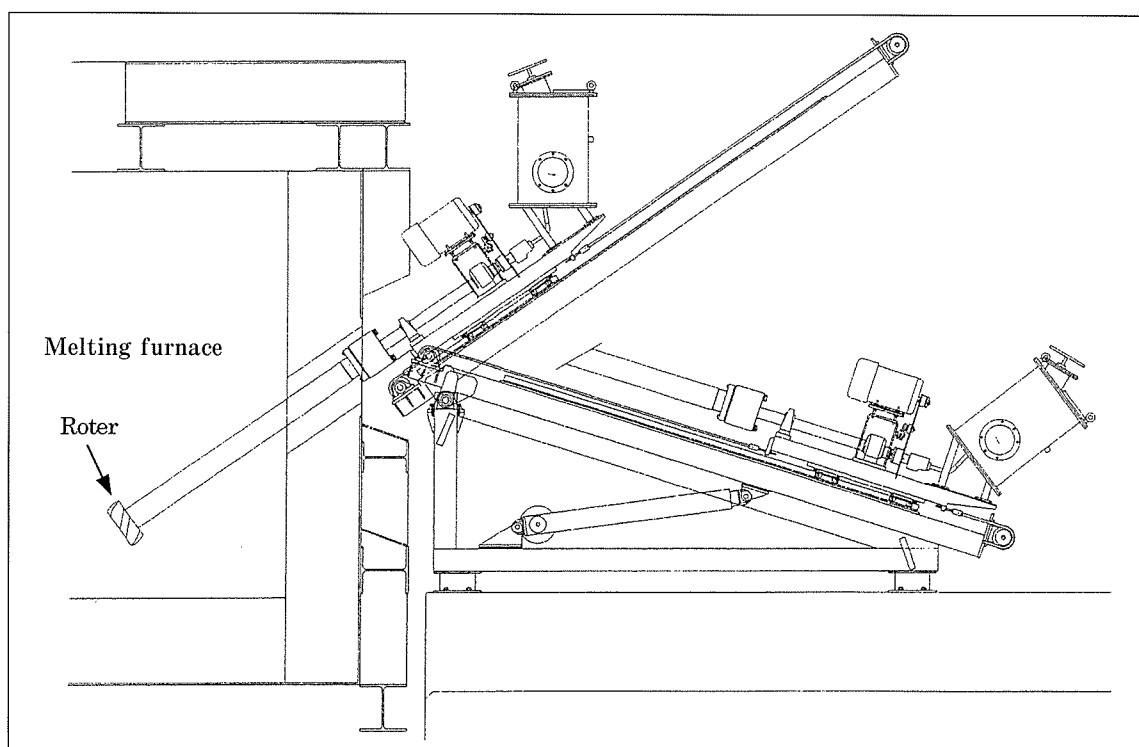


Fig. 8 Schematic illustration of a fixed industrial rotary flux injection unit<sup>20)</sup>.

を確保しにくく、処理槽容量も大きくできないため、処理ガス気泡を微細化して表面積を増加させたり、ローター数を増加することで処理性能を確保する必要がある。以上のロータリーガスインジェクターはいずれも脱ガスに対する効果が高いだけでなく、非金属介在物の除去効果もあることが実証されている<sup>27)</sup>。

### 3.4 インライン処理技術（ろ過技術）

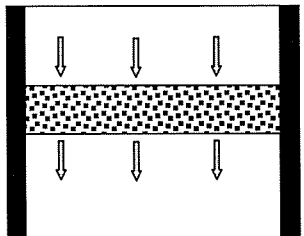
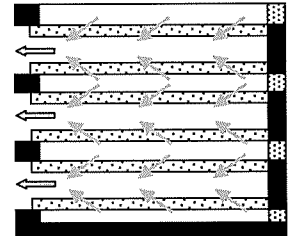
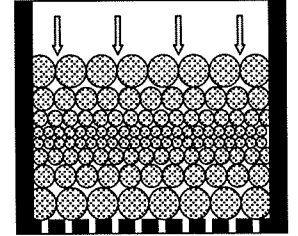
現在多く使用されているフィルターは、セラミックフォームフィルター（CFF）、チューブフィルター（RMF）、ディープベッドフィルター（DBF）であり、Table 1 に示すようにそれぞれ一長一短がある。板状多孔質のCFFは小型で取扱いが容易であり、装置をコンパクトにでき、残湯が少ないという利点がある。しかし、ろ過面積が小さく、溶湯流速が大きくなるため、使用する厚みやメッシュサイズが制限され、ろ過効率はよくない。アルミナボールやフレークなどのメディアをベッド層に充填したDBFは海外で多く使用されている。ろ過量は数百から数千トンに達し、メディアは洗浄して再利用できる。ろ過流速が小さく、フィルター層が厚いため、ろ過効率は高いが、ろ過流速に敏感な内部ろ過機構が支配的であるため、ろ過初期の非定常状態で介在物が流出しやすい。また、槽内での残湯が多く、材質交換が少ない鋳造工場でなければメリットが少ない。国内で普及しているRMFは円筒状多孔質のセラミックであり、数本から数十本を組合せて使用する。表面ろ過機構が支配的となるため閉塞しやすいが、フィルター数を増加することでろ過面積を大きくすることができ、数百トンから1000トン以上の溶湯をろ過できる。最近、表面ろ過が支配的

であったフィルターのメディア表面にNaBrを塗布して内部ろ過機構も働かせ、ろ過効率を向上させる技術も報告されている<sup>28)</sup>。NaBrは溶湯温度付近で半溶融状態となって介在物を吸着し、従来のフィルターではろ過が困難であった20 $\mu$ m以下の微細な介在物を内部ろ過で除去できると言われている。以上のフィルターでは主に固体の非金属介在物がろ過されるが、塩素ガスやフラックスによる処理で溶湯内に導入される溶融塩化物については十分にろ過できない。Mgを含む溶湯の塩素ガス処理で生成するMgCl<sub>2</sub>は湯面に浮上すると雰囲気中の水分と反応してMgOとなり、ろ過後の溶湯酸化を促進したり、鋳塊に混入して介在物となることがある。このため、溶融塩化物との濡れ性が高いポーラスなメディアをフィルターに適用し、溶融塩化物を分離する研究も進められている<sup>29)</sup>。

### 3.5 品質検査技術

溶湯品質を把握することは製品品質の維持、向上に不可欠である。特に、DC鋳造工場では溶湯処理によってアルカリ金属濃度、水素ガス量、非金属介在物量がどの程度に低減されているかを迅速に、正確に評価することが重要となる。水素ガスの測定方法については、種々の方法が開発され、それぞれの測定原理や特徴は他の文献で詳細に紹介されている<sup>30)</sup>ので、参照されたい。その中で、DC鋳造工場ではオンライン評価ができるテレガス法やその改良型のAISCAN、水素濃淡電池を利用したプロトン導電性セラミック法（NOTORP）を用いることが多い。テレガス法はプローブの先端から溶湯に吹込んだ不活性ガスを回収、循環させ、水素ガスを不活性ガス

Table 1 Comparison of filtration systems.

	CFF	RMF	DBF
Metal flow rate	Little	Medium	Large
Media cell size	Large	Small	Medium
Open porosity of media	Large	Small	Small
Pre-heat time	Short	Long	Medium
Filtration surface area	Small	Medium	Large
Filtration depth	Shallow	Shallow	Deep
Internal velocity	Fast	Slow	Medium
Unit footprint	Small	Medium	Large
Filtration performance	Low	High	High
Schematic of filtration			

中に飽和させてその熱伝導を測定することによって水素ガス量を評価する方法である。連続測定が可能であるが、溶湯に強い流れがある場合はその影響を受ける。AISCANの測定原理はテレガス法と同じであるが、溶湯中に浸漬した多孔質セラミック内で不活性ガスを循環させる点がテレガス法と異なり、溶湯の流れの影響を受けにくいという特徴を持つ。Fig. 10<sup>31)</sup>に示す NOTORP は溶湯中の水素濃度と比較となる水素濃度の差によって生じる起電力から水素濃度を測定する方法であり、操作性

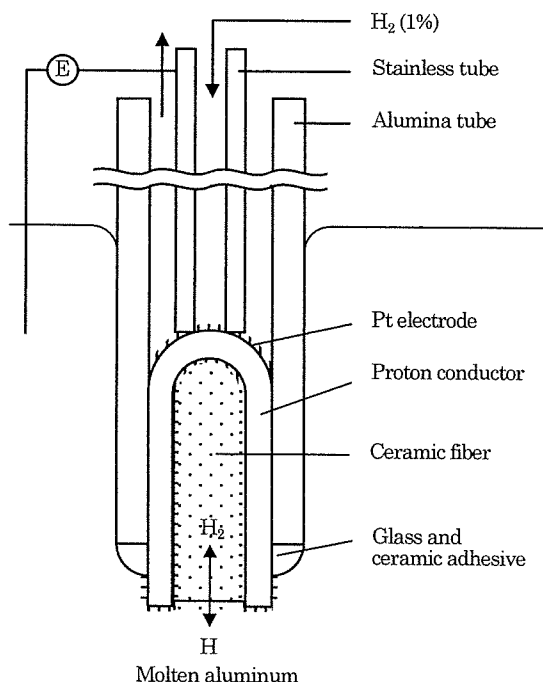


Fig. 10 Schematic drawing of NOTORP probe<sup>31)</sup>.

が高く、短時間で測定できる。テレガス、AISCAN、NOTORPの開発によって、水素ガス評価技術はほぼ確立され、この分野ではここ10年ほど新しい技術はみられない。

介在物についても種々の方法が開発されている。現在用いられている主な方法は、ろ過法と電気抵抗法である。ろ過法はPoDFA<sup>32)</sup>に代表され、微細ポアフィルターで溶湯をろ過し、フィルター上の介在物を顕微鏡観察で評価する方法であり、介在物の種類の特特定量化ができる。しかし、評価結果がでるまでに長時間を要するため、最近PoDFAを改良し、ろ過速度を測定することで介在物量を迅速に評価する技術も開発されている<sup>33)</sup>。電気抵抗法はLiMCAの名で知られる。この方法ではFig. 11<sup>32)</sup>に示すように絶縁体セルに設けられたオリフィスを通して溶湯を吸引し、介在物が通過するときの電圧変化からサイズ、数を測定する方法である。介在物種類の特特定量や気泡と介在物の区別ができないという問題があるが、唯一オンライン評価が可能な装置であることから広く普及し、介在物評価の世界的な標準となりつつある。その他、オンライン評価が可能な方法として超音波センサーを用いた測定技術の研究も進められている<sup>34)</sup>が、まだ実用化には至っていない。

なお、アルカリ金属については成分分析の範疇にはいり、分析方法は確立されているのでここでは割愛する。

### 3.6 今後の課題

炉内処理、インライン脱ガス処理ではいずれも反応槽としての考えに立ち、反応効率の向上を目指した技術開発が進められてきた。これらの技術を基に塩素ガス使用量の削減やフラックスへの切替えは今後急速に進むと考えられるが、環境保全に対する意識が世界的に高まる中

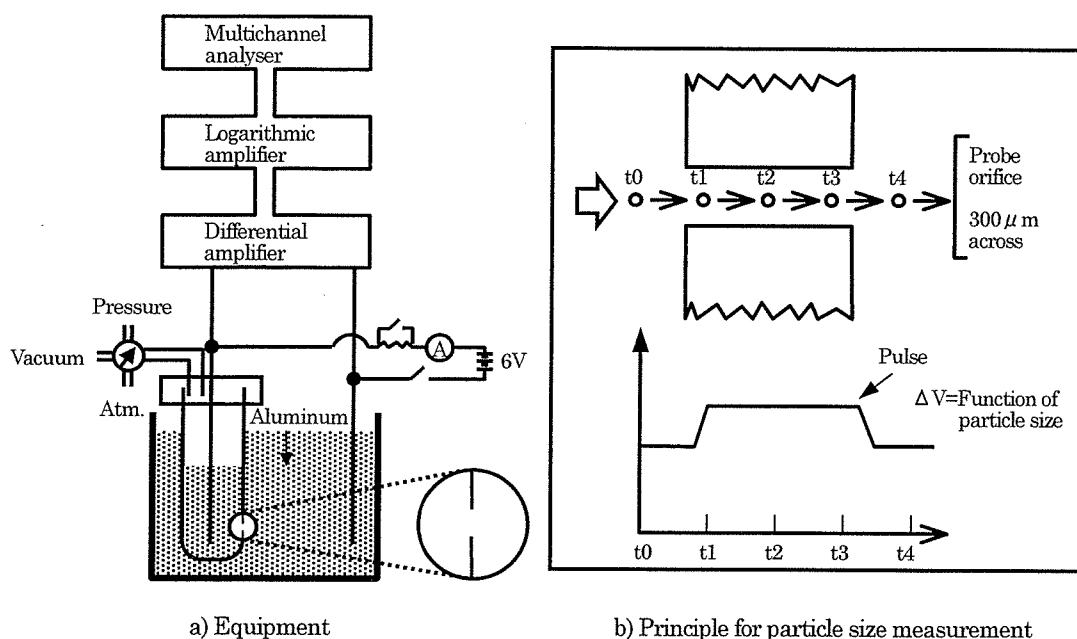


Fig. 11 Schematic of LiMCA<sup>32)</sup>.

で将来は塩素ガスだけでなく、塩化物系フラックスも使わない処理技術や処理後の排ガスを大気に放出させない技術の開発が今後の大きな課題になると思われる。また、類似した処理を行っている炉内処理、インライン脱ガス処理の組合せを最適化し、インラインろ過を含めてライン全体として効率を向上できるシステムも必要である。溶湯ろ過については、鑄造ライン内における介在物除去の最後の砦であり、なによりも信頼性が要求される。特に今後は、鑄塊の大型化や同時鑄込み本数の増加によりろ過流速が大きくなることや、製品の高品質化に伴ってこれまで問題にならなかった微細な介在物の除去を求められることも予想され、高流速下でも安定したろ過効率とろ過性能を維持できるフィルターの開発が必要と考えられる。介在物評価はLiMCAによってオンライン測定が可能になったが、検査量は1分当たり0.02kg弱であり溶湯全体量と比較して著しく少ない。介在物はその比重や溶湯の流れの影響で位置による濃度差が現れやすいため、溶湯全量評価が可能でしかも安価で操作性の高い介在物検査装置が望まれる。

## 4. DC 鑄造

### 4.1 DC 鑄造の課題

アルミニウムのDC鑄造法は1936年に発明され、当時すでに水冷鑄型と鑄型下の直接冷却で構成されていた。この基本原理は現在でも大きく変わっていないが、鑄肌直下に形成される偏析層と粗大セル層の抑制、鑄造割れや変形の抑制、非金属介在物の混入防止、結晶粒やセルの微細化、生産性の向上などを課題として様々な技術が開発されている。本項では、鑄肌改善に関する鑄型冷却技術と割れ・変形防止に関する直接冷却技術の開発動向を中心に紹介する。

### 4.2 鑄肌改善技術

DC鑄造では鑄肌直下の表層部に偏析層や粗大セル層が発生しやすく、この不均質組織はFig. 12に示すように鑄型冷却に起因するエアギャップ域での断熱作用や内部溶湯による再加熱によって形成することがよく知られている。特に鑄型内での湯面位置と直接冷却間との距離が大きいと、エアギャップが生成しやすく、組織異常も顕著になるため、低湯面鑄造や鑄型冷却の緩和に関する技術開発が積極的行われてきた。ビレット鑄造で普及しているHT (Hot Top) 鑄造法<sup>35)</sup>は低湯面鑄造の代表例である。この方法では鑄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、鑄型と溶湯の接触位置が常に一定になり、安定した低湯面鑄造を実現できる。HT鑄造法を改良した気体加圧HT鑄造法<sup>36)</sup>では、鑄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鑄型冷却の著しい緩冷却化も達成し、不均質層の生成をほぼ抑制できるようになっている。また、HT鑄造法や気体加圧HT鑄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鑄型に溶湯を供給でき、同時鑄込み本数の増加や小径棒の鑄造が可能になっている。スラブ鑄造ではビレットと比べて鑄塊が大きく、矩形の鑄型内で溶湯の流れを均一にするのが困難であるほか、後述の鑄塊低部の変形に関する問題もあり、HT鑄造による低湯面レベル鑄造の実用化は進んでいないが、鑄型冷却の緩冷却化では革新的な技術としてFig. 12に

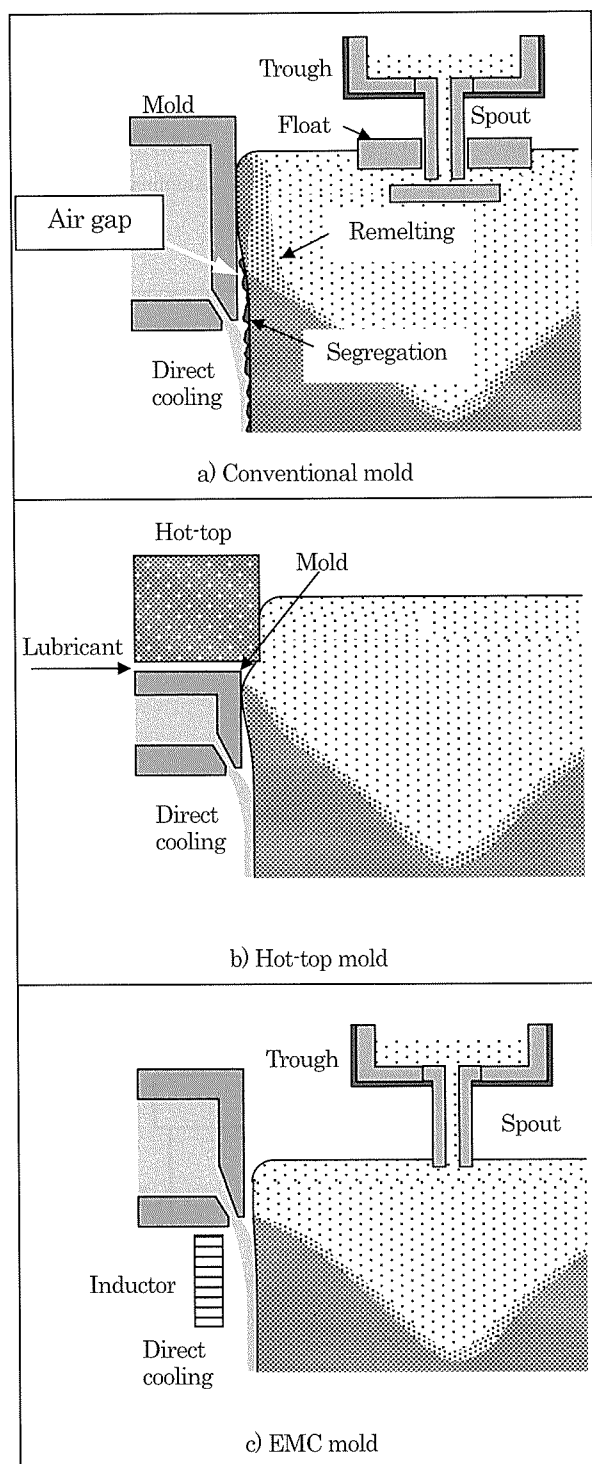


Fig. 12 Schematic drawing of DC, HT and EMC casting process.

示す EMC が開発されている<sup>37)</sup>。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鋳型冷却がなく、表層部に不均質組織はほとんど発生しない<sup>38)</sup>。しかし、湯面レベルの変動によって鋳塊断面形状が変化する問題があり、湯面レベルの高精度制御技術を必要とする。この技術は通常の DC 鋳造における低湯面鋳造や自動鋳造化にも不可欠である。このため、従来のフロート式やストップ式のレベル制御に代わり、計測したレベルを電気信号に変換し、それを基に注湯量を制御する技術が開発されている<sup>39)</sup>。その一例を Fig. 13<sup>38)</sup>に示す。これにより高精度の湯面レベルが達成され、EMC では鋳肌に凹凸のないスラブが鋳造でき、DC 鋳造では後述するように低湯面鋳造が可能になった。

### 4.3 割れ・変形防止技術

#### 4.3.1 ビレットの割れ防止技術

ビレット鋳造では鋳造中に表層部と中心部に温度差が生じ、それに伴う熱応力によって中心部が割れることがある。対策として、結晶粒を微細化し、割れに対する抵抗を増加させることが広く行われている。微細化には Al-Ti-B 系の中間合金を用い、樋内の溶湯にロッドで添加することが多いが、最近では Al-Ti-C 系の中間合金ロッドも開発<sup>40)</sup>され、実用化されつつある。Al-Ti-B 系では  $TiB_2$  粒子が  $\alpha$ -Al 相の核となり結晶が微細化されるが、Zr を含む合金では Zr と B が結合し、微細化能が失われる。これに対して Al-Ti-C 系ではその心配がなく、Zr 含有合金の微細化剤として有望である。しかし、他の合金での微細化能は Al-Ti-B 系と比べて弱く、鋳造する合金によって使い分ける必要がある。熱応力を緩和して割れを抑制する方法としては鋳造速度減が一般的であるが、

直接冷却を制御する多段冷却技術も開発されている<sup>41)</sup>。また、ビレットの鋳造割れは特に鋳造初期に発生しやすいため、ボトムブロックの形状が割れ対策となる場合もある。初期割れは、ビレット底部の凝固によってボトムブロックからの冷却が弱くなるのに対して鋳肌面からの直接冷却が強くなり、中心部と表層部の温度差が顕著となって生じる。このため、ボトムブロック中心部を盛り上げ、ビレット底部中心部の冷却を強化する方法が実用化されている<sup>42)</sup>。

#### 4.3.2 スラブ底部変形対策技術

スラブでは熱応力による不具合として底部の変形が問題となることが多い。この変形は“そり”と呼ばれ、直接冷却帯に達した鋳塊底部が長辺方向に大きく収縮し、短辺側が持ちあがる現象であり、直接冷却帯での強冷却が原因と考えられている。変形が大きいと、鋳塊の安定性が損なわれるほか、鋳造割れやブレイクアウトが生じることもある。鋳造初期の冷却水量を減らして直接冷却を緩和し、変形を低減することが一般に行われているが、定常状態の強冷却を前提にデザインされた鋳型で冷却水量を減少させると、水切れによって冷却が不均一となり、ブレイクアウトや表面割れなどの問題が発生する。このため、緩冷却と均一冷却を両立できる初期徐冷技術として Fig. 14 に示すパルス冷却<sup>43)</sup>、 $CO_2$  システム<sup>44)</sup>、ターボ法<sup>45)</sup>などが開発、実用化されている。一方、ボトムブロックのデザインによって直接冷却を受ける前に鋳塊底部に凝固殻を十分発達させ、変形に対する抵抗を強化することも効果的であることが確認されている<sup>46)</sup>。Fig. 15 は変形に対する  $CO_2$  冷却とボトムブロックの効果の一例を示す。

### 4.4 最新技術

DC 鋳造における新しい技術として Fig. 16 に示す Low Head Casting Mold (LHC) が開発されている<sup>47)</sup>。この LHC は Wgstaff 社の低湯面鋳造鋳型 (Low Head Composite Mold) に Alcan 社の直接冷却制御技術を組合せた技術であり、次に示す二つの特徴がある。一つは Wagsutaff 社が気体加圧ホットトップ鋳造法で開発した鋳型と同様に鋳型内面にグラファイトをライニングしていることである。グラファイトは潤滑性が高く、熱伝達を小さくできるため、鋳型潤滑油量の削減と鋳型冷却の緩冷却化に効果ある。これに高精度湯面レベル制御技術を適用し、低湯面鋳造を行うことによって、鋳肌を改善できる。もう一つは直接冷却を 2 系統にしていることである。1次の直接冷却では鋳塊に対して 40 度以上の高角度で冷却水が供給され、2次は 25 度以下の低角度となるようにデザインされている。鋳造初期は 2 次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鋳塊を徐冷する。これによって、 $CO_2$  冷却などの初期徐冷システムを用いずに底部変形を軽減できる。定常状態では、1次の冷却システムも働かせ、鋳塊を強冷する。通常、高角度で冷却水が鋳塊に衝突すると、水の跳ね返りが生じ

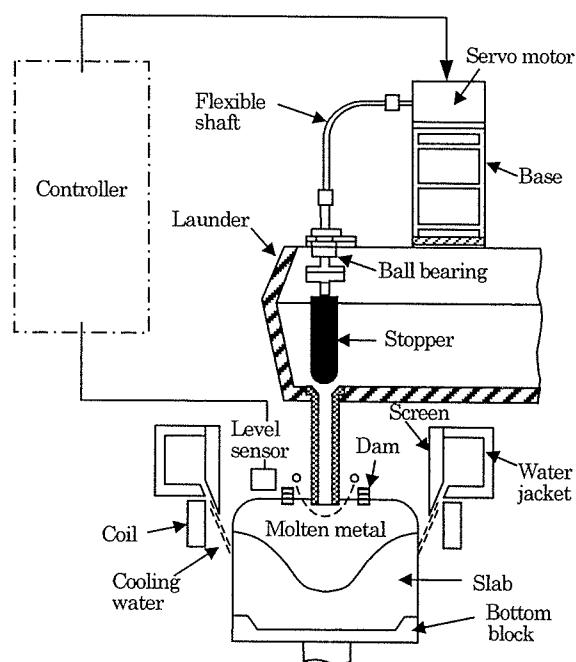


Fig. 13 Automatic metal level control system for EMC<sup>38)</sup>.



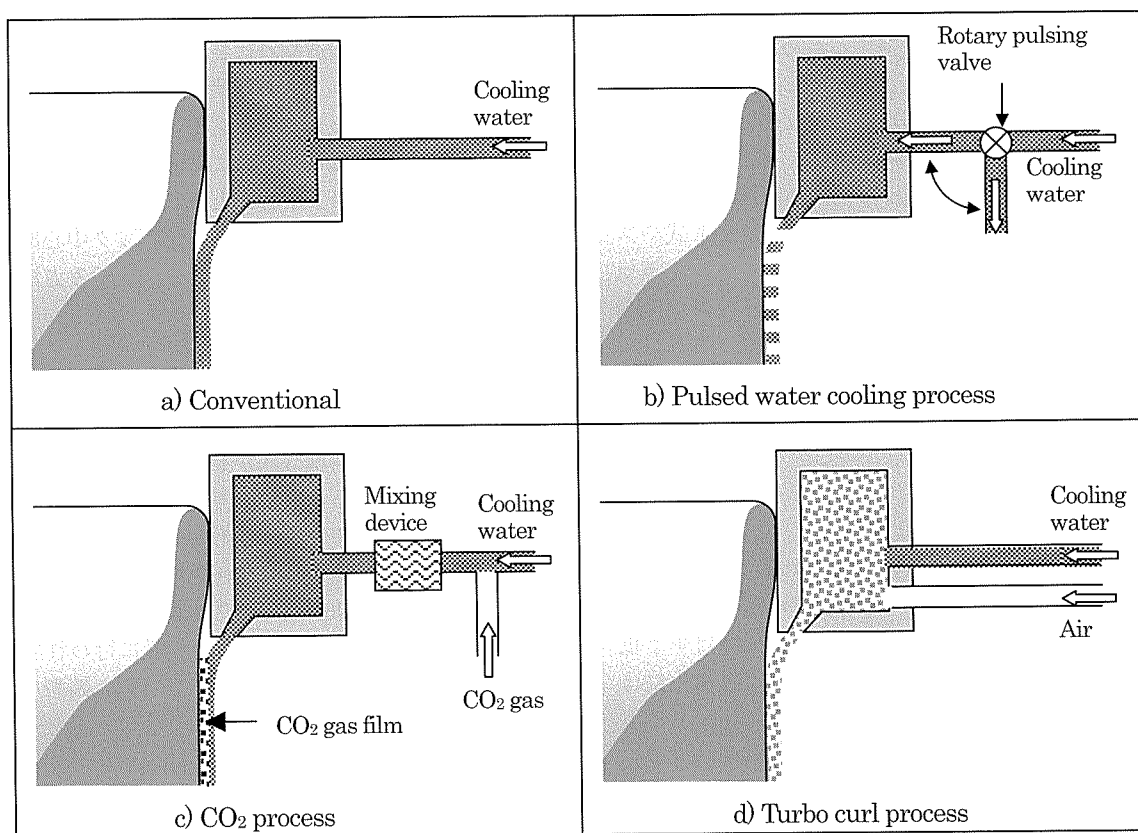
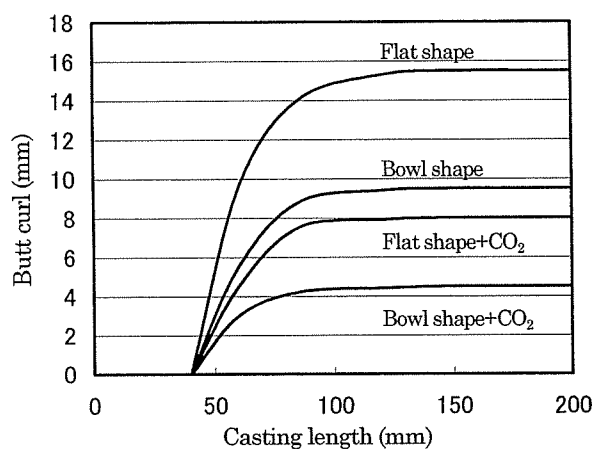


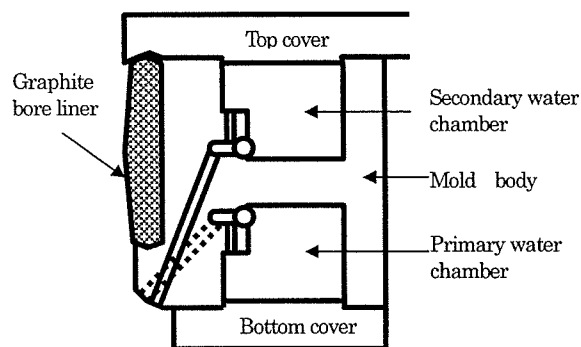
Fig. 14 Direct cooling techniques for starting the DC casting process.



Casting conditions;  
 Slab size : t170 × w540mm  
 Casting speed : 50mm/min  
 CO<sub>2</sub> ratio : 25%  
 Bottom block depth of bowl shape: 50mm

Fig. 15 Effect of bottom block shape and CO<sub>2</sub> process on butt curl.

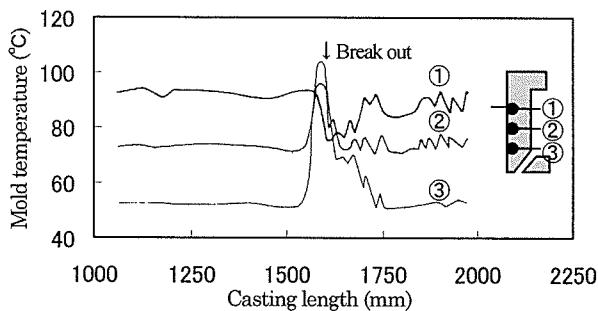
てその下側での冷却が弱くなるが、LHC では2次の冷却水で1次冷却水の散乱を防止できるため安定した強冷却が得られ、 casting速度を増加できる。最近、以上の技術による超大型スラブ（厚み 600mm、幅 3000mm）の casting

Fig. 16 Schematic drawing of LHC<sup>47)</sup>.

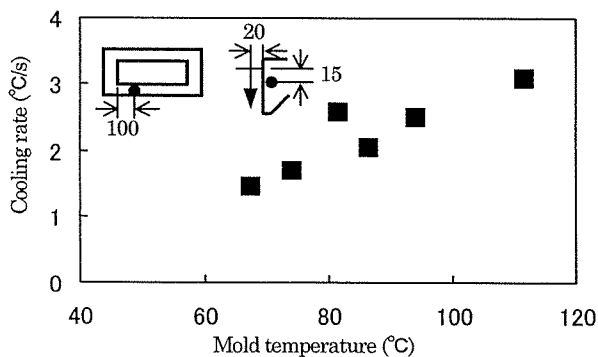
造が検討されている<sup>48)</sup>。

#### 4.5 今後の課題

铸肌の改善や割れ・変形の防止など、DC 铸造の課題を達成できる技術が開発され、その技術に必要な条件設定を適切に行えば、品質の高いスラブやビレットを铸造できるようになっている。今後は、設定通りに条件が管理され、所定の効果が得られているかを確認し、異常があれば条件を制御して、品質と铸造の安定化を図れるシステム作りが必要になると思われる。そのためには、Fig. 17 に示すように铸造トラブルや铸塊の冷却速度を把握できる铸型温度<sup>49)</sup>や冷却水温の変化を測定し、凝固状態を可視化するモニタリング技術が不可欠である。



a) Mold temperature profiles at break-out point



b) Relation between mold temperature and slab cooling rate

Fig. 17 Information from mold temperature during slab casting<sup>49)</sup>.

その他、残された技術課題として鋳型内の湯流れと水質を考慮した直接冷却条件の制御が挙げられる。スラブ鋳造での鋳型内湯流れ制御にはグラスクロスフィルターが主に使用されているが、鋳型内溶湯温度の均一化に対して必ずしも適切な方法とは言えない。また、最近の研究で鋳型への初期注湯時にグラスクロスフィルターに付着した酸化物が鋳造中にリリースされる場合があることも明らかなり<sup>50)</sup>、グラスクロスフィルターに代わるディストリビュータの開発が望まれている。直接冷却についてはその冷却能に対する水温、水量や冷却水吐出方法の影響が定量化され、直接冷却条件の管理に利用されている。しかし、水質については Fig. 18 に示すように冷却能に及ぼす影響があるにもかかわらず、管理や制御の対象外であり、今後高精度が要求される鋳造に対して水質を考慮した直接冷却の制御技術が必要になると思われる。

## 5. お わ り に

アルミニウム業界に限らず、省資源、省エネ、環境保全のための技術開発は世界的な流れである。展伸用アルミニウム合金の製造では溶解原料以外の資源の投入量や有害物の排出量を少なくし、高品質の鋳塊を鋳造する必要があり、過去から現在までこれらの課題に対する様々

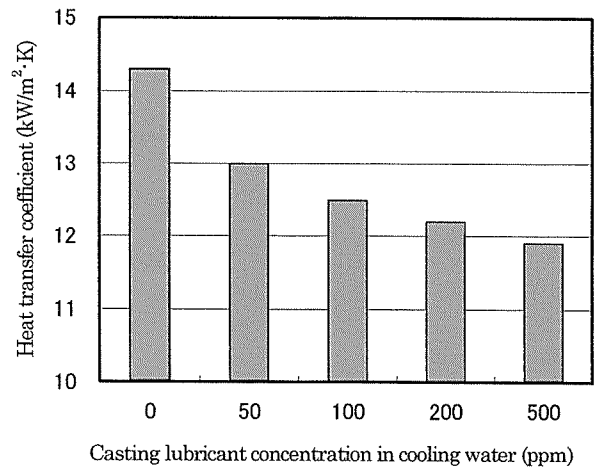


Fig. 18 Effect of casting lubricant on heat transfer coefficient between direct cooling water and slab surface.

な技術開発が行われてきた。その一部は鋳造工場で実用化され、成果を挙げている。また、その効果を確認するための評価技術も整備されつつある。残された課題も多いが、各プロセスの要素技術には確実な進歩がみられる。近い将来、溶解から鋳造までのプロセス全体を制御し、製品の量や品質に応じて無駄なく製造できるシステムが構築されることを期待する。

## 参 考 文 献

- 1) 宇野照生：本誌，42（2001），100.
- 2) 横井 洋，平野清一：同上，40（1999），99.
- 3) 軽金属学会：アルミニウム技術便覧・新版，カロス出版，（1996），312.
- 4) 高井美樹，足立俊輔，他：本誌，34（1993），253.
- 5) J.S.West and J.A.Marino：Aluminum Industry Conversation Workshop V，（1981），230.
- 6) 二宮純一：軽金属，51（2001），131.
- 7) 産業公害防止協会：公害防止の技術と法規，丸善，（1978），118.
- 8) K.Tierney：Pollution Engineering，32（2000），10.
- 9) F.L.Beighner：Light Metals，（1999），995.
- 10) L.T.Tap：Proceedings of the 4th Australasian Asian Pacific Conference on Aluminium Cast House Technology，（1995），67.
- 11) C.T.Vild and J.H.L.van Linden：ET2000 Proceedings Vol.2，（2000），143.
- 12) A.M.Peel：Proceedings of the 4th International Symposium on Recycling of Metal and Engineered Materials，（2000），915.
- 13) L.D.Areux and P.Corio：Light Metals，（1999），999.
- 14) R.DeSaro，W.Bateman and R.Jain：Proceedings of the 4th International Symposium on Recycling of Metal and Engineered Materials.，（2000），887.
- 15) F.F.Jebrail，A.W.Francis，Jr. and H.Kobayashi：U.S.Patent No.5563903（1996）.
- 16) M.A.Thibault，F.Tremblay and K.C.Pomerleau：Light Metals，（1991），1005.

- 17) J.R.Guttery : *ibid.*, (1993), 899.
- 18) A.F.Saavedra : *ibid.*, (1993), 739.
- 19) M.Eidem, G.Tallback and P.J.Hanley :  
*ibid.*, (1996), 861.
- 20) G.Belald, C.Dupuis, G.Riverin, R.Desmeules and  
L.Rose : *ibid.*, (1998), 843.
- 21) P.J.Flisakowski, J.M.McCollum and R.A.Frank :  
*ibid.*, (2001), 1041.
- 22) A.G.Szekely : *Metall. Trans.*, **7B** (1976), 259.
- 23) J.H.Hicter : *Light Metals*, (1983), 1005.
- 24) 大塚良達, 谷本茂美, 豊田一雄, 坂口雅司 : *軽金属*,  
**40** (1990), 290.
- 25) P.Waite and P.Thiffault : *Light Metals*, (1996), 1001.
- 26) S.Lavoie, E.Pilote, M.Thibault and J.Pomerleau :  
*ibid.*, (1996), 1007.
- 27) C.J.Simensen : *Metall. Trans.*, **13B** (1982), 31.
- 28) K.Oosumi, Y.Nagakura, R.Masuda, Y.Watanabe  
and T.Ohzono : *Proceedings of the 4th International  
Symposium on Recycling of Metal and Engineered  
Materials*, (2000), 951.
- 29) K.R.Butcher, D.D.Smith and Leonard Aubrey :  
*Light Metals*, (2000), 803.
- 30) 北岡山治 : *鑄造工学*, **72** (2000), 66.
- 31) 矢嶋 保 : *アルトピア*, Sept. (1992), 17.
- 32) 軽金属学会 : *研究報告* 29, (1995), 52&54.
- 33) P.G.Enright, I.R.Hughes : *The Foundrymen*, **89-11**  
(1996), 390.
- 34) D.Sommerville, N.D.G.Mountford and L.C.B.  
Martins : *Light Metals*, (2000), 721.
- 35) E.Lossack : *ibid.*, (1976), 413.
- 36) I.P.Faunce, F.E.Wggstaff and H.Shaw :  
*ibid.*, (1984), 1145.
- 37) J.C.Weber and R.Sautebin : *ibid.*, (1986), 869.
- 38) 林 典史, 長江光司, 宇都秀之, 永山 克 : *本誌*,  
**34** (1993), 8.
- 39) 林 典史 : *同上*, **33** (1992), 56.
- 40) A.Hardman and D.Young : *Light Metals*, (1998), 983.
- 41) J.L.Dassel and Y.C.Zinniger : *ibid.*, (1982), 12.
- 42) E.K.Jensen and W.Schneider : *ibid.*, (1990), 937.
- 43) N.B.Bryson : *Light Metal Age*, **32-6** (1994), 45.
- 44) H.Yu : *Light Metals*, (1980), 613.
- 45) R.E.Greene, J.L.Kirby, J.M.Ekenes and  
F.E.Wagstaff : *ibid.*, (1989), 859.
- 46) M.Tsunekawa, N.Hayashi and T.Uno : *本誌*,  
**37** (1996), 50.
- 47) A.I.Nussbaum : *Light Metal Age*, **33-2** (1995), 58.
- 48) G.P.Grealy, J.L.Davis, E.K.Jensen, P.A.Tondel  
and J.Moritz : *Light Metals*, (2001), 805.
- 49) 常川雅功, 長江光司, 武藤伸之, 林 典史, 宇野照生 :  
*本誌*, **37** (1996), 180.
- 50) M.Tsunekawa, S.Tani, H.Okazaki and N.Hayashi :  
*同上*, **42** (2001), 64.