


UACJ Technical Reports

Vol. **5**
2018 No.1





世界へアルミニウムを
とどけよう。

グローバルに展開する製造拠点からとどく

UACJの多彩なアルミニウム。

ものづくりへの熱い思いと技術を共有しながら

それぞれの地で新たな生命を吹き込まれ、

UACJのアルミニウムは、世界中のあらゆる産業へ、

そして、世界の人々の暮らしのなかへ。

UACJ Technical Reports

Vol.5 No.1 (2018)

UACJ Technical Reports

Vol.5 No.1 (2018)

目次

巻頭言		
R&Dセンター「先駆け」 (株)UACJの高機能アルミニウム 材料開発と将来展望	渋江 和久	2
論文		
Effect of Grain Refiners on Aluminum Twin Roll Casting Process	Yu Matsui Koichi Takahashi	14
1050アルミニウム熱間圧延材の回復・再結晶速度に及ぼす 固溶した不純物の影響	吉田 英雄 玉田 裕子 浅野 峰生 大久保 喜正	20
Strain Rate Dependence of the Material Strength in 5xxx Series Aluminum Alloys and the Evaluation of Their Constitutive Equation	Hiroyuki Yamada Tsuyoshi Kami Ryota Mori Tomoyuki Kudo Minemitsu Okada	32
Al-Si系合金単層材を用いたろう付の接合性と 耐変形性に及ぼすSi量の影響	黒崎 友仁 村瀬 崇子 寺山 和子 石 雅和 戸次 洋一郎 二宮 淳司 新倉 昭男	45
Al-Cu-Mg系合金の時効挙動に及ぼす 銅, マグネシウム添加量と焼入れ速度の影響	鈴木 太一 八太 秀周 吉田 英雄	55
技術展望・技術解説		
熱間ブロー成形によるアルミ・アルミ合金の加工	新里 喜文 浅野 峰生	64
アルミニウム圧延における境界潤滑	野瀬 健二 渡邊 貴道	69
軽量アルミニウム合金の高耐食化と腐食解析	京良 彦 大谷 良行 兒島 洋一	74

Products

アルミニウム協会賞 平成29年度開発賞受賞 親水性および排水性に優れたプレコートフィン材の開発	荻原加奈 藤村涼子 笹崎幹根	80
飲料容器用アルミニウム合金板材	水谷博之	84
冷媒配管用火無し継手 RG プレス®	佐藤好生 若林広行 常川雅功 田中 正 勝	87



Technical Column

アルミニウム技術史 – ジュラルミンから超々ジュラルミンまで – (第三回) 日本におけるジュラルミンおよび超ジュラルミンの研究および製造技術の発展	吉田英雄	92
アルミニウム技術史 – ジュラルミンから超々ジュラルミンまで – (第四回) 超々ジュラルミンと零戦(1) 五十嵐勇博士と超々ジュラルミンの発明	吉田英雄	106
適材適所	山本裕介	122
米国 TRI-ARROWS ALUMINUM 赴任で大胆なアプローチを学ぶ	工藤智行	124
UACJ (Thailand) Co., Ltd. への赴任経験から	山本大	126
Al-Mg 合金の均一変形増大の謎?	内田秀俊	128

◎ 公表資料一覧

2018年1月から2018年12月までに公表した資料	130
----------------------------	-----

UACJ Technical Reports

Vol.5 No.1 (2018)

Contents

Foreword		
R&D Center "Taking the Initiative" UACJ's R&D Activities for the Functional Aluminum and its Future Vision	Kazuhiisa Shibue	2
Papers		
Effect of Grain Refiners on Aluminum Twin Roll Casting Process	Yu Matsui Koichi Takahashi	14
Effect of Dissolved Impurities on the Rate of Recovery and Recrystallization in a 1050 Aluminum Hot-Rolled Sheet	Hideo Yoshida Yuko Tamada Mineo Asano Yoshimasa Ookubo	20
Strain Rate Dependence of the Material Strength in 5xxx Series Aluminum Alloys and the Evaluation of Their Constitutive Equation	Hiroyuki Yamada Tsuyoshi Kami Ryota Mori Tomoyuki Kudo Minemitsu Okada	32
Influence of the Si content on the Bonding Ability and the Deformation Resistance during Brazing in Al-Si Alloy Single Layer Materials	Tomohito Kurosaki Takashi Murase Kazuko Terayama Masakazu Seki Yoichiro Betsuki Junji Ninomiya Akio Niikura	45
Effects of Copper and Magnesium Contents and the Quenching Rate on Artificial Age Hardening Behavior of Al-Cu-Mg Alloys	Taichi Suzuki Hidenori Hatta Hideo Yoshida	55
Reviews		
Aluminum Processing by Hot Blow Forming	Yoshifumi Shinzato Mineo Asano	64
Boundary Lubrication in Aluminum Rolling	Kenji Nose Takamichi Watanabe	69
Improvement in the Corrosion Resistance of the Light Aluminum Alloy and the Corrosion Analysis	Yoshihiko Kyo Yoshiyuki Oya Yoichi Kojima	74



Products

Development Award of Japan Aluminum Association in 2017 Development of Pre-coated Aluminum Fin Stock with Excellent Hydrophilicity and Drainage	Kana Ogihara Ryoko Fujimura Mikine Sasazaki	80
Aluminum Alloy Sheets for Beverage Container	Hiroyuki Mizutani	84
Flame-Free Fittings “RG-press” for the Refrigerant Piping of Air Conditioners	Yoshio Sato Hiroyuki Wakabayashi Masanori Tsunekawa Masakatsu Tanaka	87



Technical Column

History of the Aluminum Technology from Duralumin to Extra Super Duralumin (Part 3) Development of Research and Fabrication Technology about Duralumin and Super Duralumin in Japan	Hideo Yoshida	92
History of the Aluminum Technology from Duralumin to Extra Super Duralumin (Part 4) Extra Super Duralumin and Zero Fighter (1) Dr. I. Igarashi and the Invention of Extra Super Duralumin	Hideo Yoshida	106
The Light Aluminum in the Right Place	Yusuke Yamamoto	122
Learn Drastic Approach from TRI-ARROWS ALUMINUM, U.S.	Tomoyuki Kudo	124
My Working Experience in UACJ (Thailand) Co., Ltd.	Dai Yamamoto	126
Why Does the Uniform Strain of Tensile Test Increase with Mg Content in Al-Mg Alloys?	Hidetoshi Uchida	128

Published Papers

Papers and Proceedings Published from Jan. 2018 to Dec. 2018	130
--	-----

R&Dセンター「先駆け」



R&Dセンター 所長
取締役兼専務執行役員
渋江 和久

「UACJ Technical Reports Vol.5 No.1」発刊にあたり、一言ご挨拶申し上げます。

2013年10月1日の経営統合後、株式会社UACJとしてはや6年目を迎え、2018年5月からは第二期中期経営計画がスタートしました。これは前中期経営計画の基盤強化に続く3年間を、世界的なアルミメジャーグループへの成長加速の期間と位置づけ、以下の4点を重点方針として策定し邁進しております。

1. 成長市場（アジア・北米）、成長分野（自動車）に注力継続
2. 先行投資の着実な回収
3. 資本効率の向上（ROIC重視）
4. 行動理念の共有と浸透“UACJウェイ”

さて、UACJグループの研究開発では旧2社の技術融合を図り、その伝統的な技術開発のDNAを継承しつつ、UACJとしての新しいDNAを一層進化させてきています。その中樞を担うとのミッション明確化のため、2018年4月これまでの「技術開発研究所」から「R&Dセンター」と改名し、環境整備のため本拠である名古屋地区のR&D 1号館をリニューアルしました。全外壁をアルミハニカムパネルとし、1階にはオープンイノベーションエリアを設けました。お客様にアルミおよび銅材料の特性とともに、当社開発材料並びに開発技術を身近にご覧いただき、次世代の新製品・新技術開発の共創の場となることを期待しております。

また、これまでの深谷地区、福井地区でのR&D分駐に加え、北米（シカゴ）、アジア（タイ）地域に新たにR&D拠点を開設しました。成長市場、成長分野での研究開発に関わる迅速な対応を図ってまいります。さらに国内では、国立研究開発法人 産業技術総合研究所と連携しアルミニウムに関わる研究ラボを設置し、最先端の研究開発を進める体制も整えました。

これら諸策にて研究開発を積極的に推進しますが、これを担う人材とその育成が最重要である点は変わりありません。伝統的で地道な研究開発とともに最先端技術も積極的に取り入れ、お客様や異業種の皆様方との協業を通して、お客様や生産現場の要望に迅速かつ能動的に行動する人材の育成を進め、R&Dセンターを働きがいのある職場、やりがいのある研究開発の場として深化させてまいります。

本誌ではこれまで同様、UACJグループにおける研究開発の成果とともに最新技術情報を提供してまいります。その一端として、最近の研究開発のいくつかの事例とともに、今後の展望を後述致しました。

皆様にはより一層のご指導とご鞭撻を賜りますよう、お願い申し上げます。

R&D Center “Taking the Initiative”

Chief Executive, R&D Division
Senior Managing Executive Officer, Member of the Board
Kazuhisa Shibue

Upon publication of “UACJ Technical Reports Vol.5 No.1”, I would like to draw your attention to the following.

After business integration on October 1, 2013, the UACJ Corporation began its sixth year, and from May 2018 started a new mid-term management plan spanning from fiscal 2018 to 2020. Aiming for acceleration of continuous growth in the global market, UACJ created the following four major policies and we have been vigorously pushing forward while boosting capital efficiency and generating returns on investments implemented during the period of the previous mid-term management plan.

1. Continue focusing on the growing automotive industry and growth markets in Asia and North America
2. Steadily generate returns on past investments
3. Increase capital efficiency with an emphasis on ROIC
4. Promote shared principles of conduct as the UACJ Way

Regarding the research and development of UACJ group, by merging technologies and inheriting the DNA of the traditional technology development of two former companies, we have evolved a new DNA of UACJ and still advancing it. To clarify the mission of the Research & Development Division as a core of R&D promotion, we have changed our Japanese name to the “R&D Center” from the conventional “Technical Development Laboratory” in April, 2018 and renovated the R&D Building No.1 of the Nagoya district basement for environmental maintenance. The completion of Building No.1 that had all outer walls consisting aluminum honeycomb panels was February, 2019 and we provided an open innovation area in the first floor. We trust all of our customers and other concerned companies will look closely at not only the characteristics of aluminum and copper but also our development material and technology. We hope we will be able to co-create the new products and technology in the next generations by the exchange of information in this area.

In addition, we have newly established R&D bases in North America (Chicago) and Asian (Thailand) area added to the current Japan locations in the Fukaya and Fukui districts. We will plan a quick correspondence to be connected with a growing market and the research and development in the growth area.

Furthermore, in Japan, we installed an aluminum laboratory in cooperation with The National Institute of Advanced Industrial Science and Technology and established a system which pushed forward the highest level of research and development.

We push forward our R&D activities, however, there is no change in the talented personnel and the cultivation of human resources in this area is the most important factor in the promotion of these developments. We will continue to cultivate the human resources that promote traditional, steady research and development, and adopt the advanced techniques and also act quickly and proactively to the need of customers and production sites through the cooperation with customers and/or new businesses. Furthermore, we will continue improving workplace as the R&D center and deepening the worthwhile research and development.

In this report, we will continue to offer state-of-the-art information based on the results of the research and development by the UACJ group. In addition, I have mentioned future prospects later with some examples of recent research and development.

We sincerely appreciate your further input and guidance.

(株) UACJの高機能アルミニウム 材料開発と将来展望*

渋江 和久**

UACJ's R&D Activities for the Functional Aluminum and its Future Vision*

Kazuhisa Shibue**

1. はじめに

株式会社UACJ (以後UACJ) は古河スカイと住友軽金属工業の二社が2013年に経営統合して誕生した軽圧メーカーである。UACJはアルミニウム関連事業において100年を超える歴史を有し、新合金の開発や製品化において日本の素材産業をリードしてきた。2018年時点で圧延板の生産量として世界第三位グループに属し、日本発のアルミニウムメジャーとしての歩みを始めている。本報ではUACJのアルミニウム研究開発のいくつかの事例を概説するとともに、今後の展望について述べる。

2. アルミニウム産業の世界動向とUACJの役割

世界におけるアルミニウム板の需要は年率3.9%で拡大し、2021年には年間3000万トンに達すると予想されている¹⁾。この急速な需要拡大は新興国における飲料缶や空調機器の普及、先進国における輸送機器へのアルミニウムの採用増加により説明づけられる。輸送機器の中では特に自動車用のパネル材の伸びが高く、各国の自動車燃費規制に伴い軽量かつ高強度のアルミニウムが採用されつつある。他方、EV (電気自動車) 化の流れは航続距離の延長のため軽量化が本質的であり、アルミニウムが多用されることが期待される。EVにはLIB (リチウムイオン電池) その他のバッテリーが多用されるため、電極材としてのアルミニウムが大きな新市場を形成し、2016年度の年間5万トンから10年間で約4倍の市場規模に達すると予想されている。

このようなアルミニウム材料の市場の拡大において

は、新たな製品用途向けのスペックに適応するため、合金開発や製品開発をグローバル競争の中で進めていく必要がある。また、飲料缶や空調機器用に代表される既存市場では、東南アジアなど新市場での顧客のビジネスへの対応が求められる。ここでは、研究開発活動もローカル適用およびグローバル化を避けることが出来ない。UACJでは社内生産技術および顧客支援をも含む研究開発機能をグローバル化するとともに、各分野でコアとなる技術の競争力を高め、製品を通じて世界の顧客に満足と信頼を与えることを目標としている。

本報では新技術が生み出す価値に着目し、自動車用材料をはじめとするいくつかの研究開発事例を紹介する。

3. 自動車用板材・構造材

地球温暖化対策として全世界的にCO₂排出量の低減が大きな目標となっている。日本におけるCO₂排出量は2016年の統計で年間約12億トンであり、そのうち、自動車走行時に排出するCO₂量は1億9000万トンと全体の約15%を占める。このように自動車の走行によるCO₂排出量は多く、その低減のため、燃費向上への要求は非常に大きいといえる。このため、各国ではそれぞれに燃費向上に向けた法規制を策定している。例えば米国では自動車メーカーごとに基準が設定される燃費目標 (CAFE) が定められ、その基準を満たさないと多額の罰則金を課せられる仕組みが採用されている。この燃費目標は燃費性能の向上がCO₂の総排出量に与える影響の大きい車種や部品を研究開発におけるターゲットとして明示する点で優れ、市況変化や競合とい

* 本稿は京都大学水曜会誌, 25 No.1 (2018), 3-13. に大会記念講演として掲載された内容を加筆修正したものである。
This paper was the revision of the paper published in Suiyokwai-Shi, Vol. 25 No.1 (2018) pp3-13, for Memorial lecture in the annual meeting of Suiyokwai, Kyoto University.

** (株) UACJ R&Dセンター 所長 取締役兼専務執行役員
Chief Executive, R&D Division, Director, Member of the Board, Senior Managing Executive Officer

った外部要因ではなく、研究課題の面で燃費向上を主題に据えることを促す仕組みであると考えられる。これらが契機となり、自動車メーカー各社は本質的な技術革新を通して燃費向上に取り組んできた。

日本においては2016年の全車平均燃費はJCO8と呼ばれるモードで21.9 km/Lとなっており、2000年当時の13.2 km/L (10・15モード) から66% (モードの差を考慮すると80%程度) も向上している。この向上はエンジン、トランスミッションの改良、ハイブリッド化など主にパワートレインの革新によるところが大きく、ここ4～5年は燃費向上が頭打ちとなっている。

自動車の軽量化は当然、燃費向上に有効であるが、衝突安全性強化への対応、各種快適化装備の充実など、むしろ必要となる車体構造の重量は増加傾向にあり、

それを補う目的でアルミなどの軽量化素材の使用量も増加している。今後もアルミや樹脂などの軽量化素材を多く使った思い切った軽量化はEV化と並ぶトレンドとなると予想される。

上述のCAFEに対応するため、米国で年間80万台以上の生産量がある北米最量産車種であるフォードF150シリーズのアップーボディは、Fig. 1に示すようにほぼオールアルミ化された²⁾。これを契機として北米での自動車用アルミ材の需要が急増しているが、多くの自動車では、主にフロントフード (ボンネット)、バックドア/リアゲート、フェンダー、ドアなどのパネル類のアルミ化が進んでいる。Table 1に自動車の部材ごとに要求される特性とそれを達成するために必要な各材料の物性と、それによって達成できる軽量化効果を示す。



Fig. 1 Material selection for each part of the upper body for Ford F150.

Table 1 Required property of each vehicle part and the comparison of its weight using both materials.

Items	Factors	Factors for thickness decision					Product, Remarks
		Tensile stiffness	Anti-dent strength	Component stiffness	Durable strength	Impact stiffness	
Outer Panel		◎	○		△	○	Hood, Door
Inner Panel		◎	△	○	○	○	Floor, Dashboard
Structure component	Stiffness			◎	○	○	Body side, Crossbar
	Durability			○	◎	○	Side demister mount bar
	Strength			○	○	◎	Door impact beam Sidebar, Bumper
Parameter		Et^3	$\sigma_y t^2$	Et	σTS	$\sigma_y^{0.6} t^{1.8}$	
		t w	t w	t w	t w	t w	
Normal steel		1 100	1 100	1 100	1 100	1 100	Thickness (t) and weight (w) comparison between Steel and Aluminum
High-tension steel	45 kg/mm ²	1 100	0.72 72	1 100	0.68 68	0.8 80	
	50 kg/mm ²	1 100	0.65 65	1 100	0.6 60	0.75 75	
	60 kg/mm ²	1 100	0.56 56	1 100	0.52 52	0.68 68	
	80 kg/mm ²	1 100	0.48 48	1 100	0.39 39	0.62 62	
Aluminum (Al-4.5Mg)		1.44 50	1.1 38	2.96 102	1.1 38	1.07 37	

パネルへの応用では張り剛性が重要であり、軟鋼板をハイテン化しても軽量化効果が少なく、アルミが有利な部材であるといえる。フードやドアなどは外板と内板の二重構造となっており、外板は飛来した石などでへこみ(デント)が生じないように剛性ととも高い耐力が必要である。パネル用材料として、当初は成形性が優れた5000系合金が使われていたが、塗装焼付け時に時効硬化で耐力が増加(ベークハード)する6000系合金は耐デント性に優れ、外板に特に適しているため、現在ではパネル用板材の主流となっている。

外板用6000系合金に求められる特性は、ベークハード性に加えてプレス成形時のリジングマークの抑制、ヘム曲げ時の割れ抑制などがある。特にヘム曲げ性は自動車外板への応用における大きな課題であった。Fig. 2にヘム曲げの概要を示すが、フードなどの外板と内板を繋ぐ際に、外板を折り曲げ、内板にかしめるヘミングと呼ばれる工程があり、この時の180°の曲げ加工で外板に割れが発生することがある。ヘム曲げ性

は材料の伸びと必ずしも対応せず、自然時効で強度が増大するにつれて悪化することが知られていた。この対策としては溶体化温度の低温化や第二相粒子を小さくするための高純度化などが行われてきたが、必ずしも充分ではなかった。

UACJではヘム曲げ性に及ぼす結晶方位の影響に関して、各種の方位を持つ単結晶板を作製して検討した結果、Cube方位が他の方位と比較して圧倒的にヘム曲げ性が良好であることを明らかにした。これは、Cube方位は曲げのような大ひずみ変形を与えても加工硬化が少なく、せん断帯が発生し難いためであることによるが、この知見を得てFig. 3に示すように通常が多結晶体においてもCube方位を持つ結晶粒を多くすることにより、ヘム曲げ性が向上することが確認された。この技術は量産材にも適用され、材料の組織制御により顧客工程で求められる加工性を担保する事例となっている。

アルミが有利なパネル類とは異なり、自動車の構造

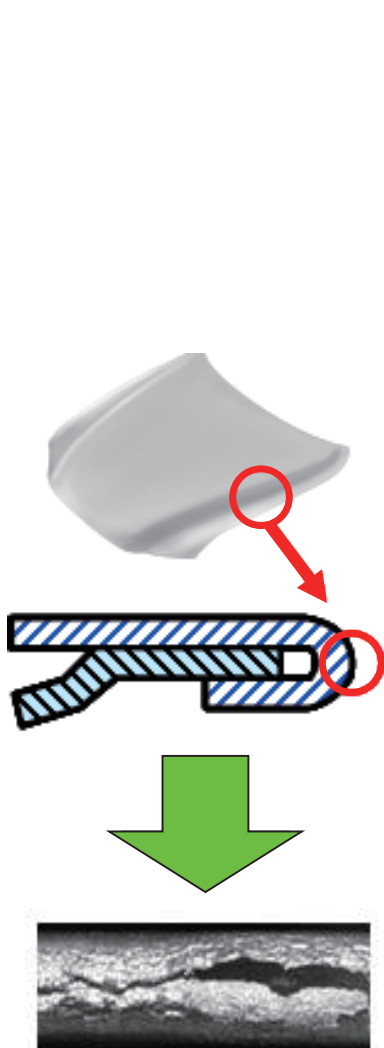


Fig. 2 Image of the hemming bend.

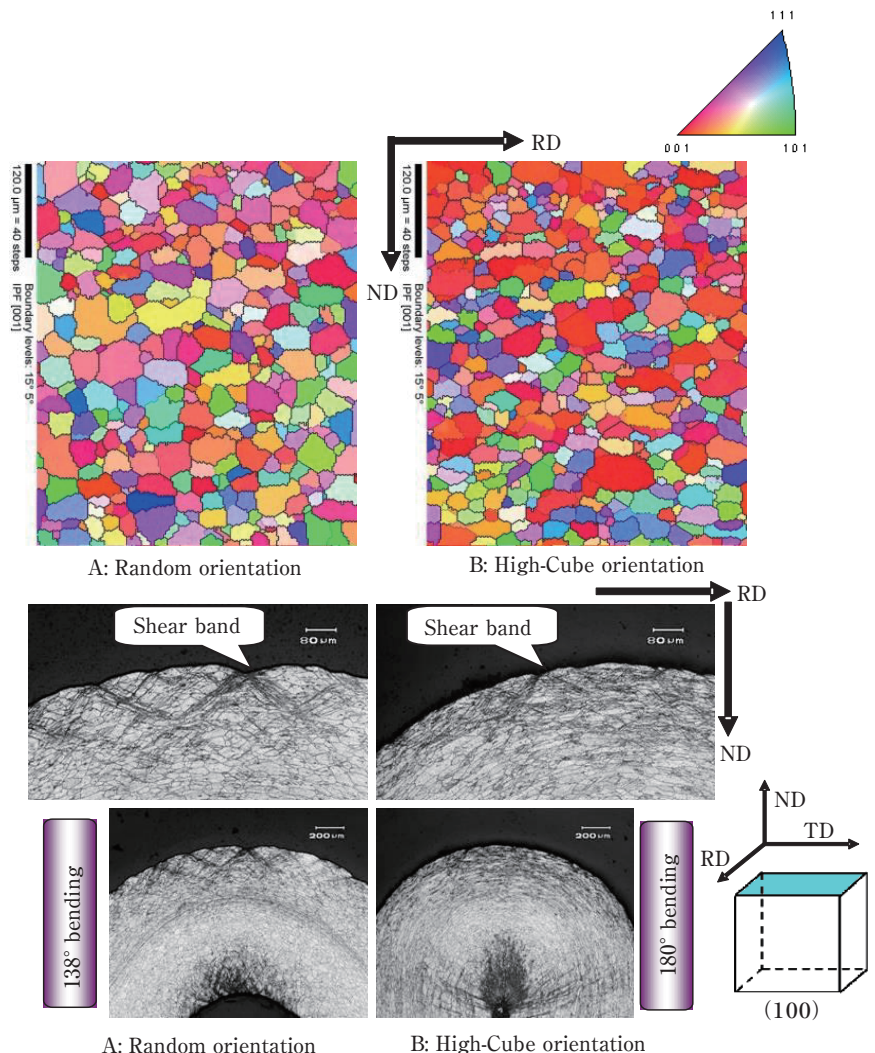


Fig. 3 Improvement of the hemming bendability by the crystal orientation control.

材は高い強度が要求されハイテンとの比強度と価格の上での直接の競争が生じる。近年、強度が1GPaを越える超ハイテンが実用化され、自動車の構造材として使用されるようになってきている。アルミで対抗するためには超ハイテンに匹敵する比強度を有する、いわゆる超々ジュラルミンと呼ばれるAl-Zn-Mg-Cu 4元系7000系合金が必要となる。超々ジュラルミンは主に航空機用に開発・使用されてきた。この合金では専用の溶体化・焼き入れ装置などが必要であり、自動車向けとしては価格的に折り合いをつけることが困難であるとされてきた。近年、超ハイテン用に高温でプレスし、そのまま焼きを入れるホットスタンプが普及してきており、この手法をアルミに利用することで超々ジュラルミンの自動車への適用の可能性が生まれた。これは加工技術の進展に伴い既存合金の用途が広がる好例であると言える。

一方で、アルミ押出材の特徴である自由な断面形状を使ってハイテンに対抗する試みも行われている。その一例として軽量バンパーシステムが挙げられる。バンパー付近の複雑な構造を加工自由度の高いアルミにより実現する動きである。Fig. 4にマツダ ロードスターに採用されたフロントバンパーを示すが、これは閉断面形状が可能なホロー押出で作製した7000系合金ZK-170のレインフォースと6063のクラッシュボックス、5052のセットプレートを組み合わせたものであり、従来の鋼製バンパーより2.4 kg軽量化することができた。これらの各部材は、Fig. 5に示すようにそれぞれの要求特性に合わせて組織を最適化しており、優れた衝突安全性を持っている。このように、合金の多様性を生かし、多面的な要求特性を満足する構造を高い生

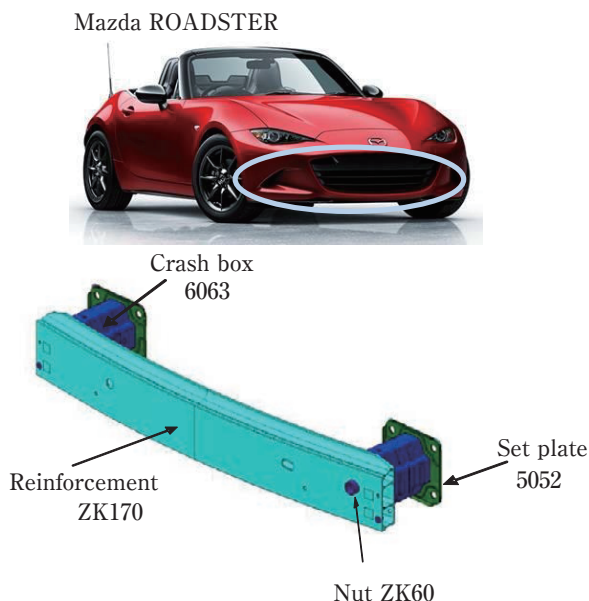


Fig. 4 Front bumper system with aluminum alloys.

産性の下で実現できる点にも、アルミ合金の優位性を見ることができる。

このような構造材としてのアルミの応用においては、他の部品との接合が重要となる。従来、アルミの溶接は鋼材と比較して難易度が高く、施工上の課題となっていた。その中で、1990年代にイギリスのTWIがアルミの高温での低い変形抵抗を活かしたFSW（摩擦かくはん接合：Friction Stir Welding）と呼ばれる手法を開発した。これはピンとショルダーのついた工具をアルミ材料中に挿入して回転させ、その摩擦熱でアルミ材料を塑性流動させることで接合するものである（Fig. 6）。FSWは溶融させない固相接合であるため、入熱が少なく“そり”などの溶接後の変形を低く抑えることが出来る画期的な手法と言える。また溶接に伴うスパッタの発生が無いなど、作業環境面からも優れた手法である。

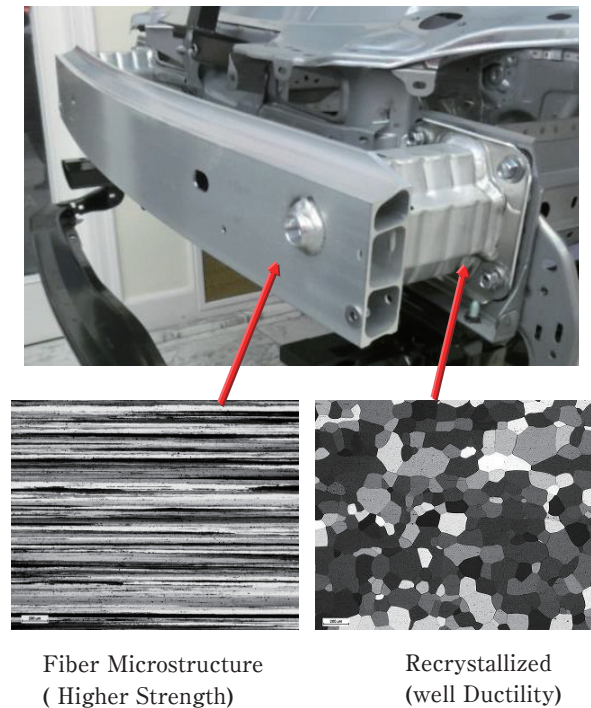


Fig. 5 Metallurgical structure of the aluminum alloys in the bumper system.

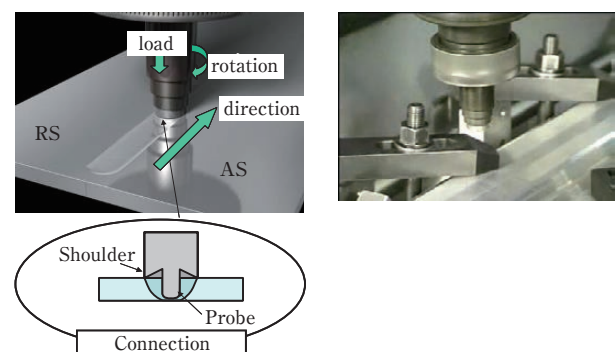


Fig. 6 Illustration of the friction stir welding (FSW).

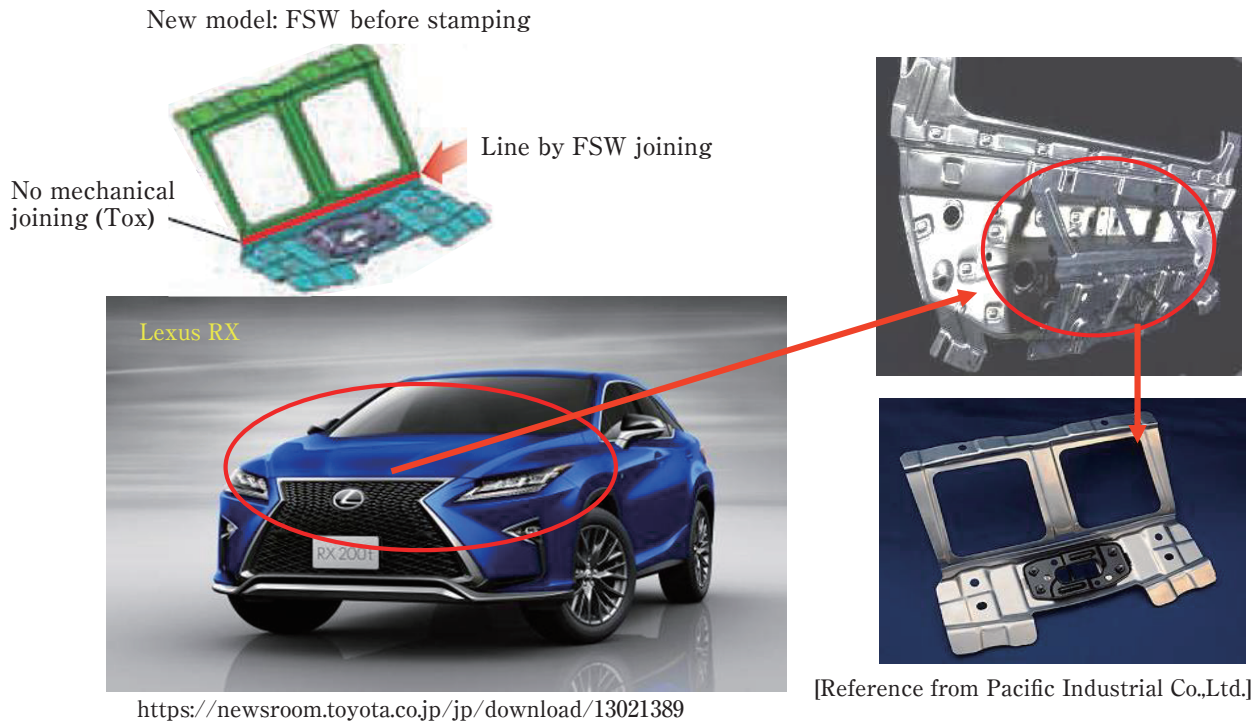


Fig. 7 Tailored blanking aluminum sheet welded by FSW.

現在このFSWを使った接合法がアルミの接合に広く用いられており、その一例としてFig. 7にフロントフード内のレインフォース部品をFSWで接合したテーラードブランクを示す。テーラードブランクは板厚および材質が異なる材料を事前に接合し、一体として成形する手法である。テーラードブランクは製造プロセスの簡素化およびコストダウンが可能であり、主に鋼材で使用されてきた。本例はアルミにおける最初のテーラードブランクの実用化であり、FSWの優れた特性を活かした事例であると言える。

今後、構造部材にアルミを適用する際はアルミ同士だけではなく他の材料との接合も必要となってくることから、信頼性とコストに優れた異材接合技術の開発が重要となりつつある。

4. リチウムイオン電池用アルミニウム材料 —加工軟化現象の製品適用—

上述のように環境保護の観点から自動車におけるEV化の動きも活発になっている。特にヨーロッパはその気運が高く、イギリス・フランスでは2040年以降はガソリン車の販売を認めない政府方針が示され、欧州自動車メーカーはEV開発に舵を切りつつある。

この商用車におけるEV化を実現したデバイスがLIB(リチウムイオン電池: Lithium-ion Battery)である。Table 2に示すように、LIBはこれまでの電池に比べ出

Table 2 Characteristics comparison on secondary batteries.

Battery	Specs	Nominal Voltage (V)	Energy density (Wh/kg)	Power (W/kg)	Charge-discharge efficiency (%)
Lead acid		2.1	30-40	180	50-92
NiFe		1.2	50	100	65
NiMH		1.2	30-80	250-1000	65
Li-ion		3.6	160	1800	80-90

力および単位重量あたりのエネルギー密度が高く、自動車の動力源として内燃機関を置き換える原動力となっている。LIBモジュールにはFig. 8に示す通り、多くの部品にアルミニウムが用いられる。LIBセル構造の一例をFig. 9に示す。この中でケース、封口板、正極板(箔)にアルミニウムが使われる。

ここで、材料学的な知見を活かしたLIB用の製品開発の一例を示す。集電体用極(箔)材はゲージダウンのために高強度化が求められる。また、通電性を考慮すると、電気抵抗の小さい(導電率の高い)特性が求められる。これまで高強度化のためにAl-Mn(3003)合金箔が利用されていたが、Mn添加により導電率は低下する。ここでは、Mn添加のない1000系合金の高強度化プロセスを開発し、Fig. 10に示す高強度・高導電性1000系アルミニウム合金箔の量産に成功した。

角型ケースは飲料缶ボディと同様、DI(しぼり、し

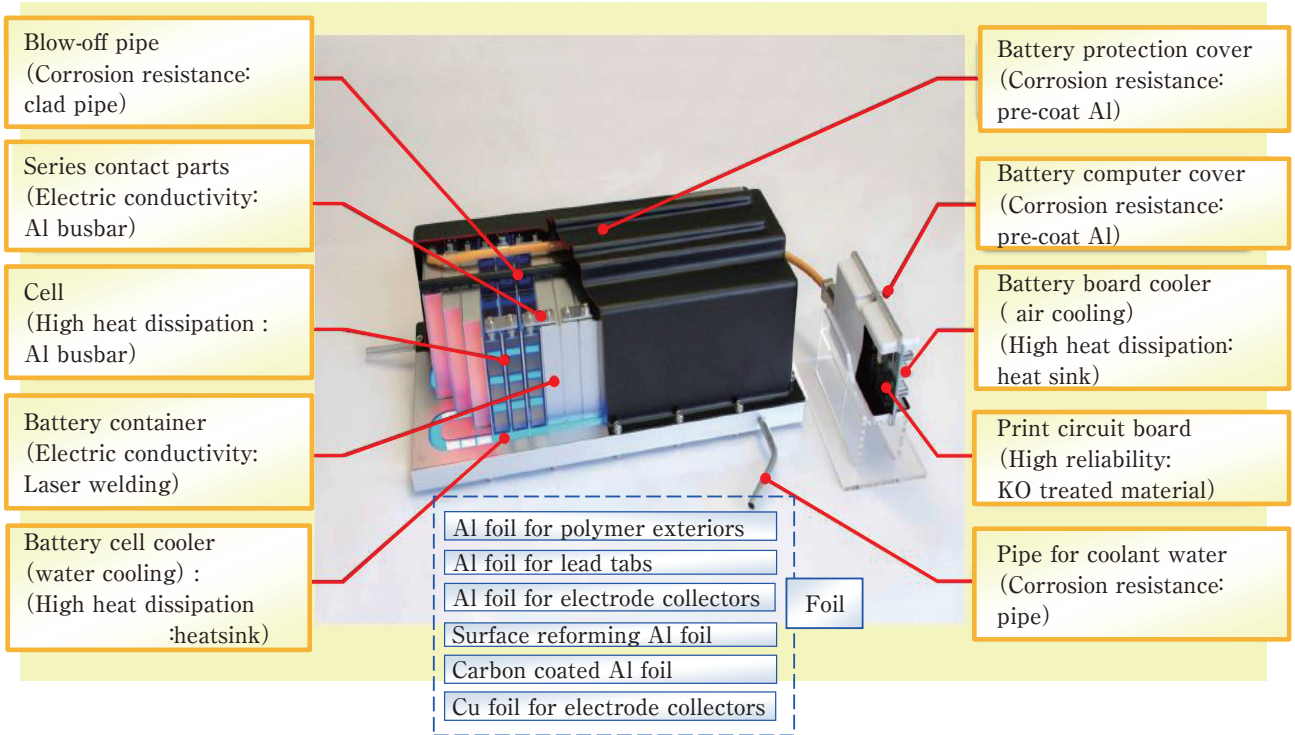


Fig. 8 Example of LIB module for an automobile.

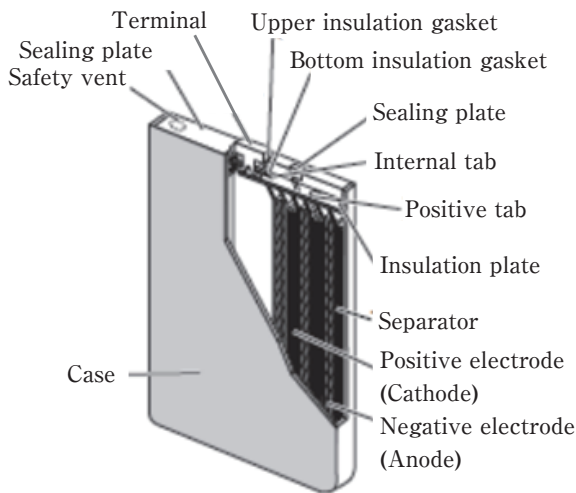


Fig. 9 Structure of prismatic LIB.

ごき)加工で成型される。ダイス鋼との焼付きを抑えるため、缶ボディ材と同じAl-Mn系合金が選ばれている。LIBは充放電を繰り返し使用するが、温度の上昇と内部構造体の膨張で、ケースが内圧を受けてクリープ変形することがある。このクリープ変形を抑制するにはMgやCu添加が有効で、これらを添加した合金成分調整がなされている。

ケースを密封するための封口板は所定の内圧に耐えるため、1000系アルミニウム合金よりも強度の高い3003

Realization of the reduction in thickness and the higher conductivity of the foil for the electrode collector.

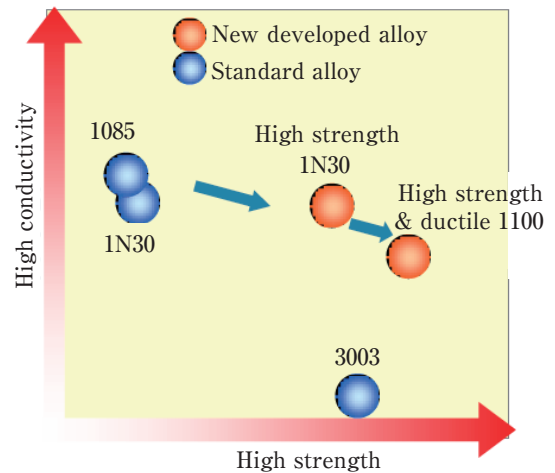


Fig. 10 The properties of the aluminum foil for the cathode current collector.

合金が用いられている。内圧が上限値以上に上昇する異常事態においてケースが破裂する事態を避けるため、封口板には防爆弁が設けられている。防爆弁は局部的に薄い領域を有し、内圧が高くなると部分的に亀裂が生じて内圧を開放するよう作動する。すなわち、ハードウェア的にも破裂や爆発を回避する仕組みが取り入れられている。この防爆弁を生産プロセスの上で形成する手順として、封口板相当部に穴を開け、内側に1000系合金箔をレーザー溶接する手順が採用されている。こ

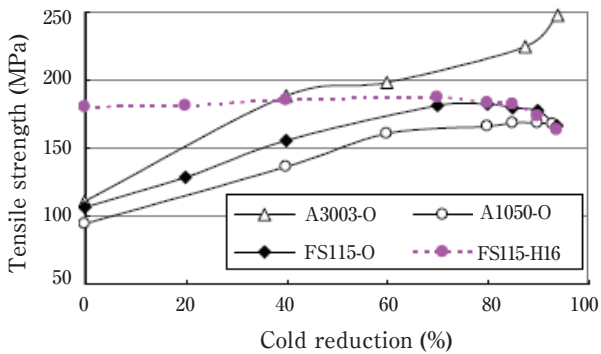


Fig. 11 Work hardening and work softening properties of each alloy.

の部品をプレス加工で成形できれば、溶接に比べて生産性は大幅に向上するが、3003合金は加工硬化能が高いため、プレス加工が採用できなかった。他方、1000系合金ではプレス加工によって防爆弁を成形することができるが、元板強度が低いため封口板として使用には適さなかった。この問題を解決するために、加工軟化現象を利用する材料設計を行った。

一般に冷間加工を加えると金属材料は加工硬化するが、前田³⁾は加工軟化現象を見出している。その発生機構には不明な点が多く、これまでに工業製品に積極的に利用されてこなかった。しかし、加工において局部的に軟化する特性は、封口板の防爆弁加工と使用に適すると考え、製造工程も含めた改良検討を行った。結果として、Fig. 11に示す特性の加工軟化材 (FS115) を量産することに成功し、一つの材料において、局部的に加工部が軟化することで防爆弁として機能する部品が実現された。

5. 熱交換器と防食設計 —耐食銅管“DANT[®]”の材料開発—

アルミニウムの優れた加工性と熱伝導性、耐食性から熱交換器用にアルミニウムが幅広く利用されている。特に軽量化が必要な自動車用の熱交換器には、冷媒循環のための押出多孔管と外気との熱交換のためのフィン材とがろう付けにより接合された、複雑かつ生産性の高い構造が用いられている。屋外で使用される熱交換器としては、製品全体の耐食性が重要な性能指標となる。アルミニウムは表面に緻密な酸化皮膜(不動態皮膜)が自然に形成されるために高い耐食性を示す。

しかしながら環境中に塩化物イオンが存在すると、この不動態皮膜の一部が破壊され、孔食といわれる局部的な腐食が発生することがある。孔食は、材料の厚さ方向への腐食速度が非常に高いため、貫通が製品の機能損失に直接かかわる熱交換器の冷媒流路において

は製品寿命を律速する腐食現象となる。アルミニウム熱交換器の孔食の防食方法として、犠牲防食(カソード防食)の技術が適用されている。犠牲防食とは、防食する側の電極電位を防食される側の溶解電位よりも卑に保ち、製品の厚さ方向への孔食発生を抑制する方法である。すなわち、一つの製品の中においても、板のクラッドや表面への異種材料の溶射および塗布などの技術の組み合わせにより、機能低下につながる腐食を抑制した熱交換器を実現することができる。

UACJでは、電気化学的知見に基づく防食技術および、幅広い腐食解析技術を組み合わせた防食設計技術を駆使し、使用環境において犠牲防食を最大限に発揮できる熱交換器用高耐食アルミニウム合金を開発している。

他方、エアコンなどに用いられる熱交換器においてはコストと生産性の両面から銅管が使用されている。銅における局部腐食の一種である蟻の巣状腐食は、ギ酸や酢酸といったカルボン酸との接触により発生することが知られている⁴⁾。腐食の断面形状は文字通り“蟻の巣”のように複雑に入り組んでおり、腐食の間口が数 μm ～数十 μm と非常に微小で肉眼で見つけることは困難な上、深さ方向への進行が速いという特徴がある。

エアコン用銅管については、給水・給湯用および冷凍空調用などの水道水や、冷却水が流れる場合と比較して発生する腐食の種類は少なく、蟻の巣状腐食が主要な腐食問題として位置づけられている。最近では環境要因によって、外面側から発生する蟻の巣状腐食が世界中で増加している。

これまで蟻の巣状腐食の発生機構は概ね明らかにされてきたが、有効な対策材は存在しなかった。蟻の巣状腐食の材料要因として銅中のリンの影響が指摘されており、リンを含まない無酸素銅(C1020)に比べて、リンを微量含むリン脱酸銅(C1220:0.015～0.040mass%P)では、蟻の巣状腐食が激しくなることが知られていた^{5)～7)}。

UACJでは蟻の巣状腐食の発生に及ぼす銅中のリン濃度の影響をより広く検討し、リンを一定量以上に増量すると蟻の巣状腐食に対する耐性が劇的に向上するという、新たな知見を発見し、耐食性に優れた銅管“DANT[®]”を開発し、市場に供給している。

本開発においてはまず、蟻の巣状腐食挙動に及ぼす銅中のリン添加濃度の影響を検討するため、リン濃度を0(無酸素銅)～1mass%の範囲で含有するCu-P合金板材を作製し、蟻の巣状腐食試験を行った。Fig. 12にギ酸暴露試験20日後の、銅中のリン添加濃度と最大腐食深さの関係を示す⁶⁾。従来の知見どおり、蟻の巣状

腐食による腐食深さは、無酸素銅 (C1020) よりもリンを微量含有するリン脱酸銅 (C1220) でより深くなった。しかしながら、リン濃度がさらに増加すると、腐食深さが大幅に抑制されることが見出された。実際に使用されている伝熱管の肉厚は0.25 mm程度であるため、リン添加量を0.2mass%以上とすることが蟻の巣状腐食による異常発生防止に有効であると結論付けられた。

この結果に基づき、本開発合金を用いた高耐食銅管 (DANT[®]) を試作し、その耐食性を前述の試験法にて評価した。リン添加濃度は従来材である0 (C1020), 0.027 (C1220) および0.22, 0.24, 0.29mass% (DANT[®]) として比較したところ、リン添加濃度が0.2mass%以上 (DANT[®]) では、80日経過後も腐食の進行が非常に緩慢であり、腐食深さは最大でも150 μm 未満に抑制されていた。一方、従来材であるC1220およびC1020では、わずか20日以内に肉厚を貫通する腐食が生じた。試験80日後の断面観察結果をFig. 13に示す⁶⁾。DANT[®]では浅い半球状の腐食形態を呈しており、蟻の巣状腐食が抑制されていることがわかる。

本開発事例においては、通常は腐食特性に悪影響を与えると考えられていたリンを想定以上に添加した場合の挙動というセレンディピティの発見が新製品開発の源となっている。腐食試験という長期の性能評価において、こうした予想外の結論を見出した点に材料開発と製品化の難しさと面白さを見ることができる。

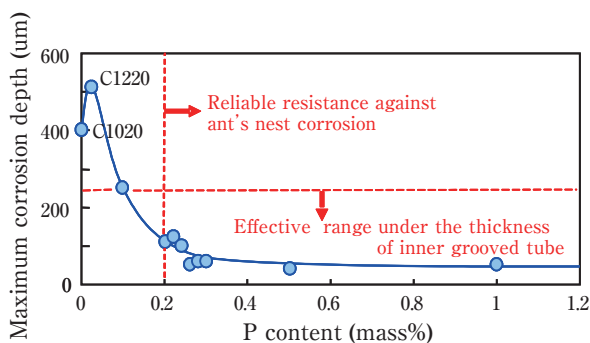


Fig. 12 Maximum corrosion depth of copper alloy tubes after 20 days exposure to 0.1% formic acid vapor as a function of the phosphorus content.⁶⁾

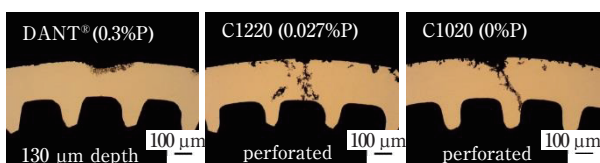


Fig. 13 Cross-section of the deepest corrosion pit occurred on the inner grooved copper tubes after 80 days exposure to 0.1mass% formic acid vapor.⁶⁾

6. 航空機用材料

従来、航空機用材料としては軽量で強度が高い2000系、および7000系アルミニウム合金が主に使用されており、代表的な長距離大型機であるボーイング777 (初飛行1994) では構造材料の70%をアルミニウム合金が占めている。

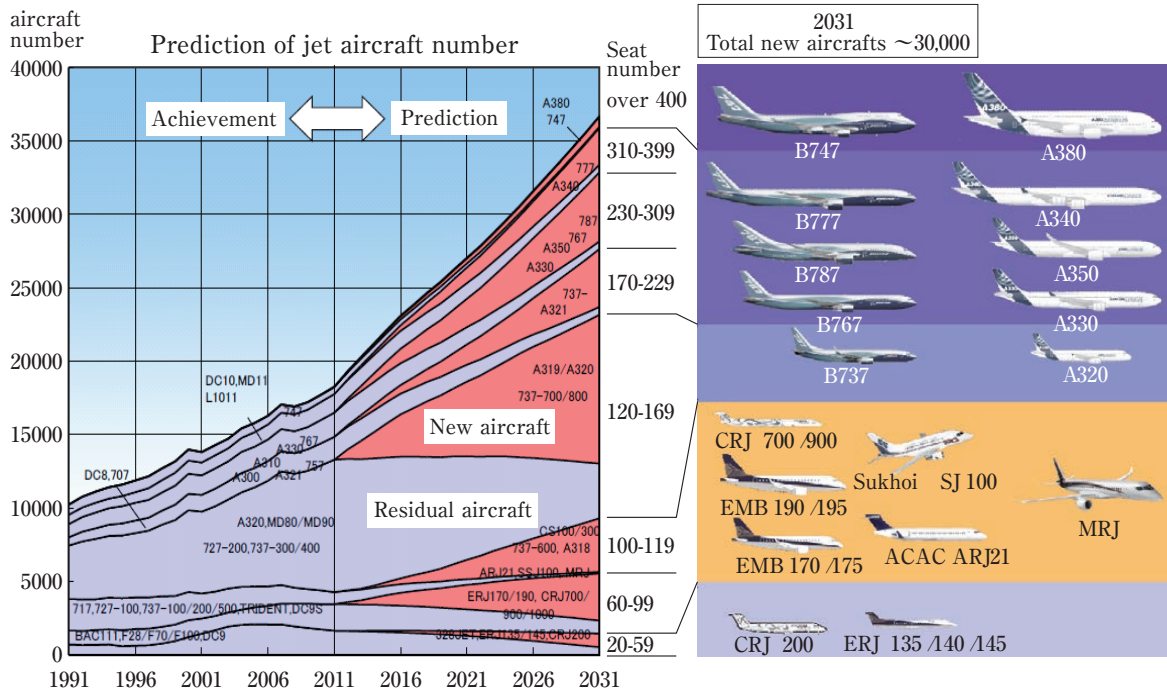
その一方でCFRPを始めとする繊維/樹脂複合材の開発が進み、年々構造材に占める比率を上げてきている。その中で2009年に初飛行したボーイング787では複合材の比率が50%となり、アルミニウム合金の20%を大きく超えた。続くエアバスA350XWBにおいても複合材の比率が50%を超え、航空機の構造材の主流は複合材に移ったことが示されている。

これらの事例から航空機用としてのアルミニウム合金の利用が縮小する印象が強くなるが、実際にはこれとは反対の動きも多く見られる。例えば、開発中の国産リージョナルジェットであるMRJではアルミニウム合金が構造材料の83%を占め、アルミ合金製の航空機と言っても過言ではない。こうしたリージョナルジェットの分野ではシェアトップのエンブラエル社 (ブラジル) の次期主力機であるE-2シリーズでも同様にアルミニウム合金主体の設計がなされている。こうしたアルミニウム合金の多用は、小型機では複合材による軽量化効果が比較的小さいことに加えて、生涯経費における燃料費が大きい大型長距離機に対して、小型近距離機では機体取得費の比率が高いため、安価で実績のあるアルミニウム材料が選定されていることにより説明される。

Fig. 14に今後新造される旅客機の座席数ごとの数量予測を示すが、2031年までに製造される機体の60%が座席数169以下の小型機であり、このことから将来も多くのアルミニウム合金が使用され続けると予想される⁸⁾。

代表的な航空機用アルミニウム合金として7075合金が挙げられる。これは戦前、日本で開発されたESD合金と類似する合金であり、現在も焼入れ性や破壊靱性を改良した7050, 7150などの合金が航空機用材料の主流として使用されている。

一方、1950年代から旧ソ連や米国ではLiを添加したAl-Li合金が開発され、1980年代になると民間機にも適用されるようになってきた。Al-Li合金は比重が小さく、高い比強度と比剛性が得られるため航空宇宙機用材料として注目されてきたが、Liは化学的な反応性が高く、 castingに特殊な雰囲気制御が必須であるなど、量産には多くの技術開発と設備投資が必要となる。日本においても1989年に共同研究開発会社アリシウムが設



From "The current status and issues of Japan aircraft industry" (2013), METI.

Fig. 14 Demand trend of jet aircraft by number of seats⁸⁾.

立され、技術開発が行われ実用化の目処が立ったが、投資に見合う市場が無いとの判断で量産化には至らなかった。しかし航空機産業が大きい欧米ではその後もAl-Li合金の量産と開発が行われ、2000年代からはLi添加量が低く、比重の低下は少ないものの、多くの欠点を克服した第三世代Al-Li合金と呼ばれる2055, 2195などが使用されるようになった。

このように日本と欧米ではAl-Li合金に関する実用化技術において大きな差が開いてしまった中、伝統の7000系合金によりAl-Liに対抗できる新合金を開発すべ

く2013年から10年計画で「革新的新構造材料等研究開発プロジェクト」が国のプロジェクトとして開始された。Fig. 15にその目標性能を示すが、新たな合金およびプロセスを用いることで、従来の強度-伸びの関係から一段上のラインの実用材料の開発を目指している。具体的な最終目標値としては引張強さ750 MPa以上、耐力700 MPa以上、伸び12%以上が掲げられている。これは従来の7000系合金の延性、靱性を維持したまま、強度を25%向上させるものであり、Fig. 16に示すように第三世代Al-Li合金である2055より高い比強度が得

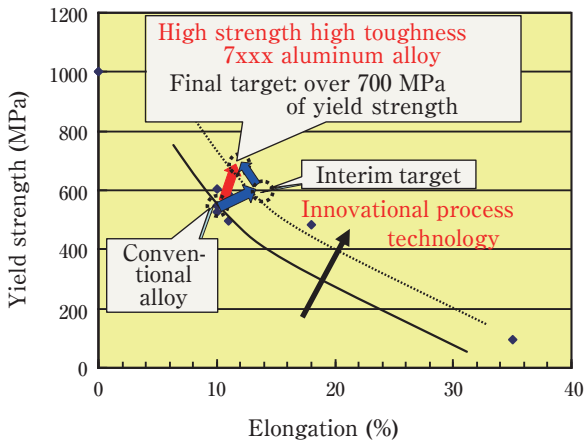


Fig. 15 Target of high strength and high toughness 7000 series aluminum alloy.

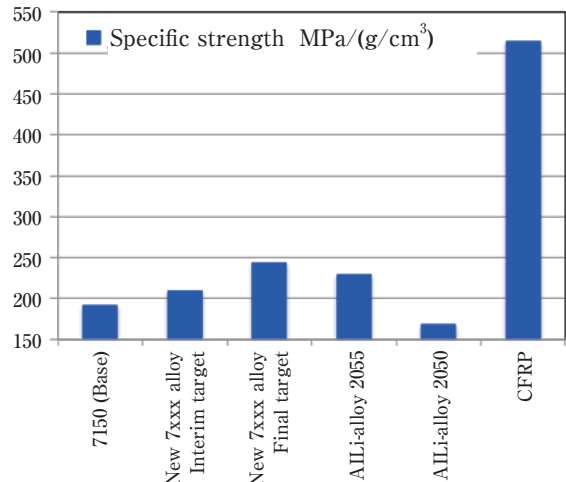


Fig. 16 Specific strength of the materials for aircrafts.

<Target> Benchmark was 7150 alloy with highest strength in current material.

	TS, MPa	YS, MPa	EL, %
7150-T77511	≥572	≥545	≥9
Interim target	≥660	≥600	≥14
Final target	≥750	≥700	≥12



Test mill: ISMA Chitose lab.(UACJ)



Size comparison between the rolled alloy sheet (TS : 735MPa, YS : 687MPa, EL : 10%) of 450 mm width and a beverage can.

Fig. 17 Sheet size and mechanical properties of new developed alloy.

られる。生産技術に関しては、既にFig. 17に示す比較的大きなサイズの板材が製造可能であることが実証されており、中間目標値を超える特性が得られている。小径のラボサイズに限れば最終目標をクリアした押出材も得られている。この開発合金はAl-Li合金よりも低コストで製造することが可能であり、欧米のAl-Li合金と充分競合できると期待されている。航空機材は自動車材ほどの市場規模は期待できないが、日本のアルミニウム製造業の国際競争力を維持するためには欠かせない製品のひとつとして、今後も研究開発を続けていく予定である。

7. 新製錬プロセス：イオン液体からの電解析出

各種アルミニウム材の使用拡大に伴い、膨大な電力を消費するAl新地金製錬（ホール・エルー法）の環境負荷低減と低コスト化が課題となっている。また、電気自動車の普及が進めば、これまでAlスクラップの主な用途であったエンジン用の鋳物合金の需要が減少し、再利用できないAlスクラップが増大することが予想される。

そこで、地金製造法として、エネルギー効率に優れたAl新地金の革新的な製法である室温電解製錬（イオン液体法）の開発、およびイオン液体を利用した独自のAlスクラップ再生技術の開発がおこなわれている。このAlの室温電解製錬プロセスでは、ボーキサイトから水酸化アルミニウム（ $\text{Al}(\text{OH})_3$ ）を従来のバイヤー法により合成し、その後、 $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ を経てAl地金を製造するものである（Fig. 18）。本プロセスにおいては、 $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ の脱水反応により AlCl_3 を合成してからAl

地金を製造する方法と、 AlCl_3 を経由しないその他の方法とが考えられる。現在、①室温電解製錬のプロセス、②Alスクラップを高純化するプロセス、③電解液から箔状のAl地金の回収プロセス（Fig. 19）、の開発と生産性向上を進めている。

Alの析出電位（ -1.66 V vs. NHE ）は、水からの水素発生電位よりもかなり卑であるため、金属Alを電気化学的に得るためには非水系の電解液を用いる必要がある。従来のAl新地金製錬において用いられるホール・エルー法の電解液（フッ化物系溶融塩）も非水系であるが、これを室温において実施する点にプロセスとしての新規性と高い将来性がある。イオン液体法においては、金属Alの析出に寄与するイオン種の濃度を高くできる塩化アルミニウム（ AlCl_3 ）と1-エチル-3-メチルイミダゾリウムクロライド（1-ethyl-3-methylimidazolium chloride (EMIC)) から構成されるイオン液体を主に使用する^{9),10)}。このEMIC- AlCl_3 イオン液体から金属Alを析出させると液中の AlCl_3 が消費されるが、外部から AlCl_3 を供給することで連続的に金属Alを析出させることが可能となる。

UACJが実現を目指す室温電解製錬（イオン液体法）の基本的な考え方は、ボーキサイトから容易に得られる $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ から、 AlCl_3 を合成するプロセスを開発し、 AlCl_3 を前述のEMIC- AlCl_3 イオン液体に供給して連続的に金属Alを析出させるものである。また、 $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ から直接、金属Alを析出させるプロセスも研究開発課題の一つとなっている。

EMIC- AlCl_3 イオン液体を用いた金属Al析出プロセスのもう一つの特徴として、アノード電極にAlを用いた場合にAlが電解液に溶出し、電解液中のAl濃度を一

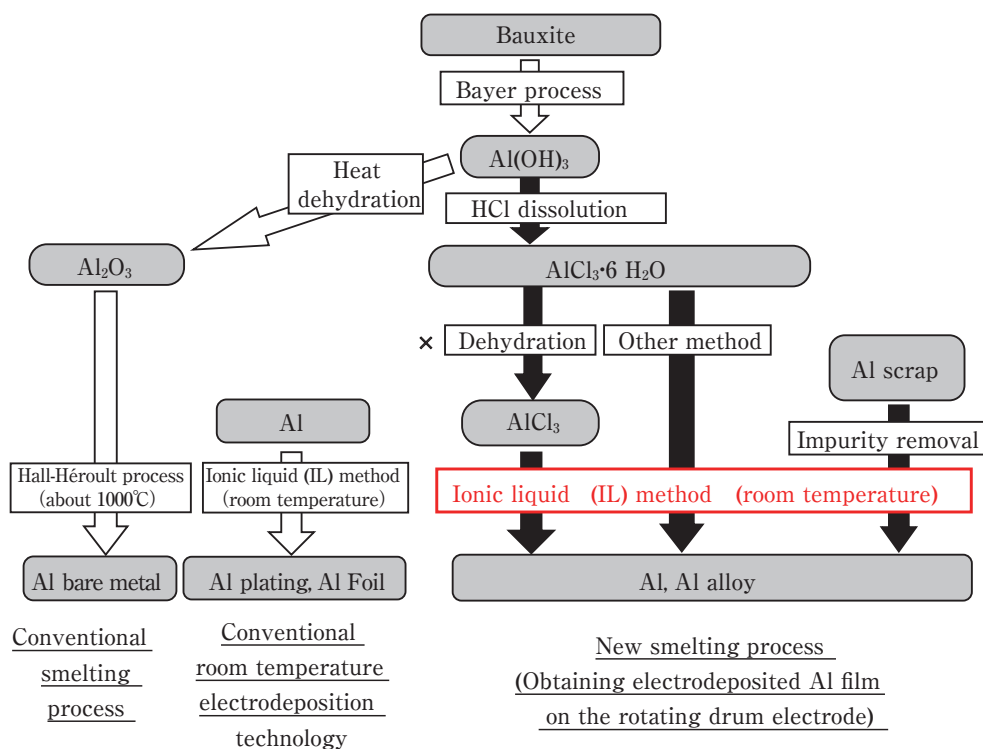


Fig. 18 Comparison between the conventional and new smelting process.

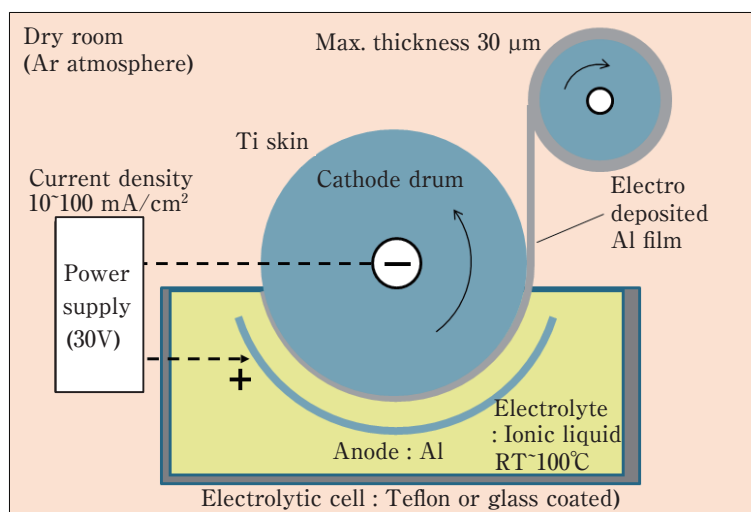


Fig. 19 Schematic illustration of continuous electrodeposition equipment.

定に保つことができる点が挙げられる。この特徴を利用して、アノード電極に低純度のAlを用いてAl供給源とすることで、カソード電極上に高純度のAlを析出させることができる。本手法により実際に得られた高純度Alを電子線マイクロアナライザー（EPMA）で分析したところ、溶出前のアノードよりもAl純度が向上することが確認されている。現在、電解セルの構造および浴成分の安定化手法を工夫することで、より効率の高い高純化技術を開発中である。

従来の製錬法であるホール・エルー法は、操業時の

槽内温度が約1000℃であり、製錬された液状のAl地金を連続的に槽の底部から取り出す。一方、室温電解製錬（イオン液体法）により得られるAl地金は固体であり、連続的に槽外へ取り出すためには、ドラム基板に電析させたAl薄膜を剥離し回収する手法が効率的であると考えられる。連続操業を想定し、チタン（Ti）製のカソードドラムを回転させながら析出したAl箔をカソードドラムから剥離させて回収する技術（Fig. 19）も同時に開発している。これらの検討により、ボーキサイト由来のAlCl₃・6H₂OからAlを含む電析物を回収する

プロセス確立の可能性を見出した。本研究は、国立研究開発法人 新エネルギー・産業総合開発機構 (NEDO) の委託業務として実施中である。

8. まとめ

－これからのアルミニウム材料開発－

本報ではアルミニウムの市場動向を概観し、新たなニーズに対応したUACJの材料開発の事例を紹介した。飲料缶用アルミニウムは第二次大戦後のエポックメイキングな製品であるが、ここではアルミニウム材料は高度に規格化された顧客工程に対して、比較的少数のアルミニウムメジャーが大量に板材を供給するという構図を有していた。これらの研究開発は開発要素が極めて強く、基礎研究からやや離れた存在であった。日本国内の大学や研究機関においてアルミニウムの研究が他の材料ほど盛んになされなかったのは、こうした産業構造にも由来すると考えられる。

他方、本講演では需要が伸びつつある自動車や電池用途において、基礎研究までさかのぼる技術開発が、市場における製品の競争力に直結する例が多数見受けられる。製品化の歴史が浅く、産業全体での最適化を目指した試行錯誤の途上にあるこれらの製品においては、普遍化された金属材料に関する知見の横展開が、製品開発においても重要となる段階にあると考えられる。これは、より多くの技術者に活躍の場が残されている分野であるともいえる。

関連分野の多くの研究者・技術者ともに、技術を通じて世界のアルミニウム産業の発展に寄与することを願い、本報のまとめとする。

謝 辞

本報は2018年6月1日、京都大学水曜会大会における発表「(株)UACJの高機能アルミニウム 材料開発と将来展望」をまとめたものである。伝統ある本会において発表の機会をいただきことを、関係者各位に深く感謝する。

参考文献

- 1) CRU Aluminium Rolled Products Market Outlook November 2017.
- 2) <http://blog.caranddriver.com/in-depth-with-the-2015-ford-f-150s-aluminum>
- 3) 前田新平：軽金属, **11** (1961), 231-245.
- 4) 能登谷武紀, 河野浩三：伸銅技術研究会誌, **37** (1998), 27-33.
- 5) 宮一普：材料と環境, **61** (2012), 438-442.
- 6) 河野浩三, 鈴木忍, 金森康二, 玉川博一, 京良彦, 大谷良行：銅と銅合金, **55** (2016), 140-145.
- 7) 伊藤真一, 細木哲郎, 渡辺雅人, 土屋昭則：銅と銅合金, **55** (2016), 130-134.
- 8) 藤江壮 MRJの開発状況 <http://jasst.jp/archives/jasst11n/pdf/S1.pdf>
- 9) 上田幹人, 宇井幸一：表面技術, **60** (2009), 491-496.
- 10) J. S. Wilkes, J. A. Levisky, R. A. Wilson, and C. L. Hussey: Inorg. Chem., **21** (1982), 1263-1264.



渋江 和久 (Kazuhisa Shibue)

(株)UACJ R&Dセンター 所長,
取締役兼専務執行役員

Effect of Grain Refiners on Aluminum Twin Roll Casting Process*

Yu Matsui** and Koichi Takahashi***

The purpose of this study is to investigate the effect of adding the Al-Ti-B grain refiner to the aluminum twin roll casting. The authors analyzed the microstructure of the as-cast strip produced by the twin roll casting based on several casting conditions. The results showed that the amount of the TiB_2 particles and the temperature gradient in the solidification area are the key factors for enhancing the effect of the grain refining. Additionally, this study simulated the behavior of the TiB_2 particles in the aluminum melt. The temperature distribution of the aluminum between the twin rolls was also calculated. The authors clarified the relationship between the grain refiner particles and the temperature gradient for the grain refining effect during the twin roll casting.

Keywords: twin roll casting, strip casting, grain refining, cooling rate

1. Introduction

Twin roll casting (TRC) is the one of the casting methods for aluminum sheets. This process can provide thin strips directly from molten metal so that it requires no scalping and hot-rolling which are required for direct chill (DC) casting and has been accepted worldwide as a cost-effective method for the past half-century¹⁾. In the TRC process, it is well known that grain refinement is less effective than in the DC casting. Two reasons are presumed for this effect. One of the reasons is the high cooling rate, but this effect is poorly understood, although several mechanisms have been suggested²⁾. Another one is the low metal flow rate. TRC's production rate is much lower than that of the DC casting so that the metal flow rate is also very low and the TiB_2 particles, which play a role for the heterogeneous nucleation sites, settle in the metal during casting. A fluid flow analysis has been done for optimizing the metal feeding uniformity³⁾. However, the study for determining the behavior of particles has not been sufficiently examined.

For the mass production of a thin strip, it is necessary to directly determine the effect of grain refiners on the TRC. The purpose of this study is to

clarify the factors for the grain refining during the TRC.

2. Preliminary experiment

2.1 Experimental procedure

This study was conducted on cast strips of the 1050 alloy (Al-Fe-Si) cast at 710°C before the casting machine. The chemical composition of the metal before adding the grain refiners is listed in **Table 1**. A pilot caster (**Fig. 1**), which is capable of casting 6 mm thick and 300 mm wide strips, was employed to produce 500 mm length strips. The strips were cast at three

Table 1 Chemical compositions of 1050 alloy. (wt.%)

Al	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Zn	Cr	Ti	B	V
Rem.	0.05	0.25	0.001	0.001	0.001	0.002	0.001	0.015	<0.001	0.014

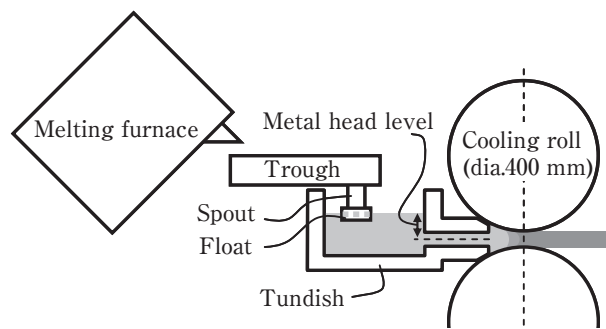


Fig. 1 Pilot caster.

* The main part of this paper has been published in Light Metals 2017 (2017), 803-810.

** Casting Technology Department, Nagoya Works, Flat Rolled Products Division, UACJ Corporation

*** Research Department I, Research & Development Division, UACJ Corporation

different grain refining conditions, namely, no-added and Al-5%Ti-1%B (mass%), and two different casting speeds, namely, 0.62 and 0.68 m/min. The grain refining conditions are listed in **Table 2**.

2.2 Results and Discussion

The macrostructures of the longitudinal cross section of the as-cast strips are shown in **Fig. 2**. Without adding a grain refiner A1 and A2, feather crystals were observed at the two different casting speeds and their observed areas were wider in A1 than A2. With the sufficient Al-5%Ti-1%B rod, the whole area was covered with very fine and equiaxed grains regardless of the casting speed. The center of the strips, however, was not refined and feather crystals were slightly observed at the low addition rate. This result indicates that feather crystals grow in the low Ti melt and at a low casting speed.

It is presumed that giant grains, for example feather crystals, tend to be formed when aluminum

solidifies at a high cooling rate, high temperature gradient and no disturbance of the metal flow⁴. The cooling rate is equal to the product of the temperature gradient and solidification-interface speed. Their relation is described as:

$$Cv[^{\circ}C/sec]=G[^{\circ}C/mm]\times V[mm/sec] \quad (1)$$

$$G[^{\circ}C/mm]=\frac{T_L-T_S[^{\circ}C]}{l[mm]} \quad (2)$$

where Cv is the cooling rate, G is the temperature gradient, V is the solidification-interface speed, T_L is the liquidus temperature, T_S is the solidus temperature, and l is the mushy zone length.

Compared to the DC casting, the temperature gradient is bigger in the TRC because the mushy zone length in the TRC is shorter than that in the DC casting. The solidification-interface speed, which is equal to casting speed in the center of the strip thickness in the TRC, is then faster than it in the DC casting. Moreover, the melt is more stable than in the DC casting because the mushy zone length in the TRC is shorter and the metal flow rate is lower than in the DC casting. For these reasons, the TRC is the casting method in which giant crystals easily occur.

The reason why the grains of B1, B2, C1 and C2 were finer than those of A1 and A2 is that TiB_2 particles in the grain refiner rods played a sufficient role as heterogeneous nuclei added to the melt of B1, B2, C1 and C2. Nonhomogeneous nucleation in the molten metal occurs by heterogeneous nuclei as the trigger. The number of TiB_2 particles in C1 and C2 is about 4.3 times greater than in B1 and B2 such that the C1 and C2's grains are finer than the B1 and B2's.

The solidification between the twin rolls is shown in **Fig. 3**. We define the "solidification-interface" as the solidus temperature line in this paper. When the

Table 2 Experimental condition.

	Grain refining condition		Casting speed (m/min)
	Grain refiner	Addition rate (ppmTi)	
A1	-	-	0.62
A2			0.68
B1	Al-5%Ti-1%B rod	30	0.62
B2			0.68
C1		130	0.62
C2			0.68

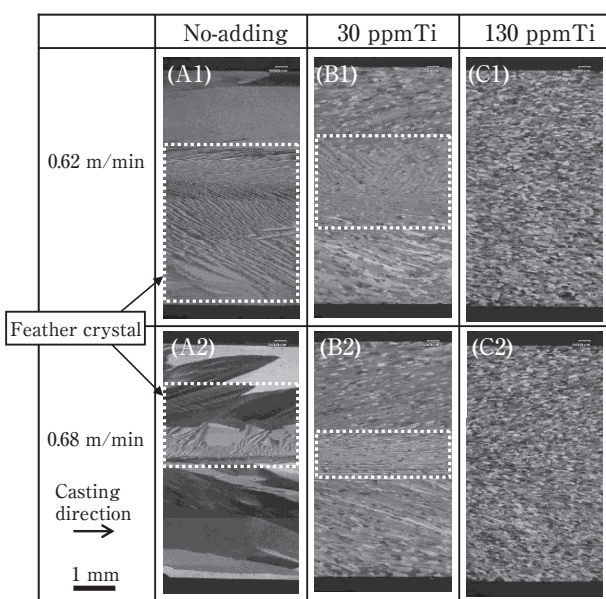


Fig. 2 Macrostructure of longitudinal cross section of the as-cast strips cast at six different conditions.

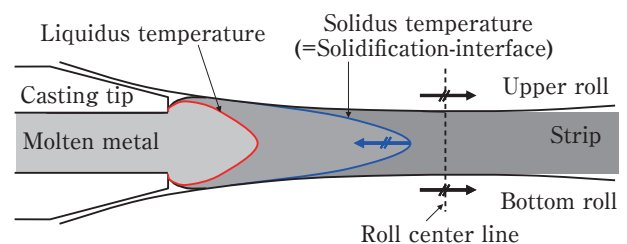


Fig. 3 Solidification between twin rolls.

casting speed increased, the solidification-interface moves toward the roll center line and the liquidus temperature line does not move very much as the solidification-interface. The mushy zone length then becomes longer than in the case of the low casting speed. It seems that the solidification-interface speed becomes faster, but the temperature gradient becomes smaller. Therefore, the solidification structure changes from anisotropy to equiaxed grains⁵⁾.

To clarify if the mushy zone becomes wider by increasing the casting speed, a calculation was carried out using the thermal equation (Fig. 4).

The calculation indicates that the temperature gradient and cooling rate monotonically decrease by increasing the casting speed. On the other hand, the measurement of the dendrite cell size (DCS) has been done. It is known that the dendrite cell size or the

second dendrite arm spacing (DAS) is in inverse proportion to the cooling rate⁶⁾. The measurement proved that the cooling rate decreased by increasing the casting speed in the range of the preliminary experiment. The measurement results then agree with the above calculation result.

The preliminary experiment leads to the following hypothesis:

“A high speed casting makes grain refiners more effective because the cooling rate decreases”.

To confirm this idea, we determined if the high casting speed lowers the cooling rate and decrease the grain size.

3. Verification experiment

3.1 Experimental procedure

The verification experiment was conducted using cast strips of the 1050 alloy (Al-Fe-Si) cast at 700°C before the casting machine. The chemical composition of the metal before adding the grain refiners is given in Table 3. A mass production casting machine (Fig. 5), which is capable of casting 6 mm thick and 1500 mm wide strips, was employed to produce 1000 mm length strips. The experimental conditions are given in Table 4. Strips were cast at four different casting

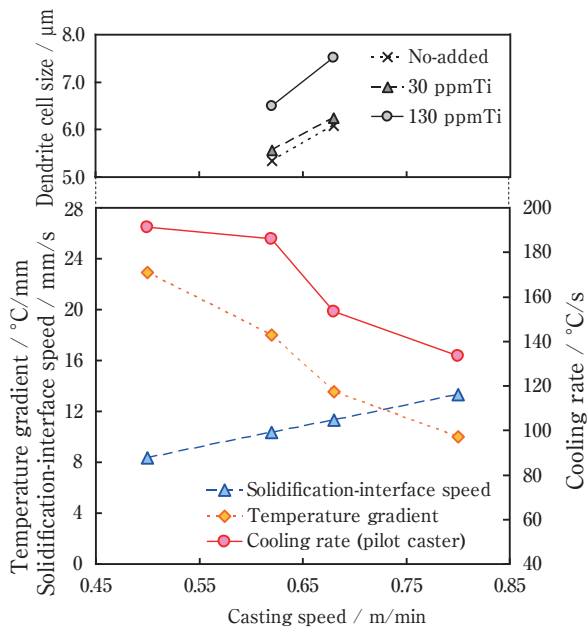


Fig. 4 DCS measurement and the casting parameters calculated by thermal equation of the preliminary experiment

Table 3 Chemical compositions of 1050 alloy. (wt.%)

Al	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Zn	Cr	Ti	B	V
Rem.	0.12	0.27	<0.001	0.002	0.001	0.004	0.001	<0.01	<0.001	0.014

Table 4 Experimental conditions.

	Grain refining condition		Casting speed (m/min)
	Grain refiner	Rod speed (mm/min)	
a	Al-5%Ti-1%B rod	220	0.85
b			0.95
c			1.00
d			1.10

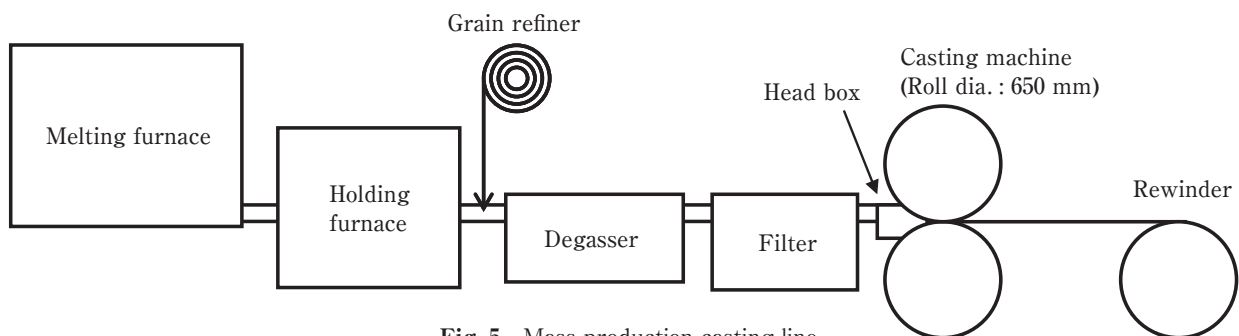


Fig. 5 Mass production casting line.

speeds, namely, 0.85, 0.95, 1.0, and 1.1 m/min. The Ti composition and grain size of each strip were measured by an OES analysis and grain counting method.

3.2 Results and Discussion

The macrostructures of the as-cast strips are shown in Fig. 6. When casting at 0.85 m/min, columnar crystals were observed in the center of the strip (a). At the other casting conditions at and above 0.95 m/min, the columnar crystals disappeared and fine equiaxed crystals were observed in the whole area (b), (c) and (d).

The measurements of the grain size and Ti amount are shown in Fig. 7. The most refined strip was cast at 0.95 m/min. The grain size becomes smaller in association with the decreasing Ti amount, except at 0.85 m/min. Though columnar crystals exist in the casting at 0.85 m/min, the Ti amount is higher than

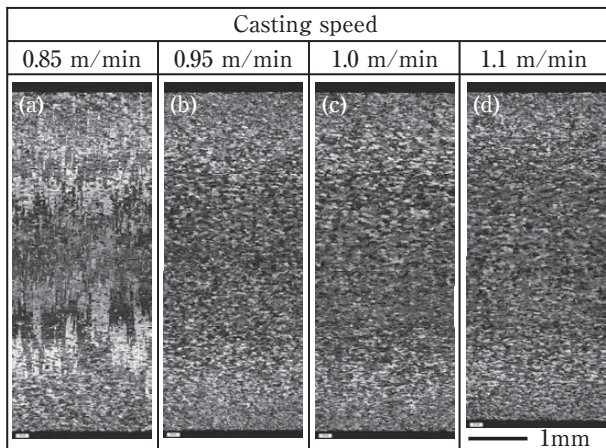


Fig. 6 Macrostructure of lateral cross section of the as-cast strips cast at four casting speeds.

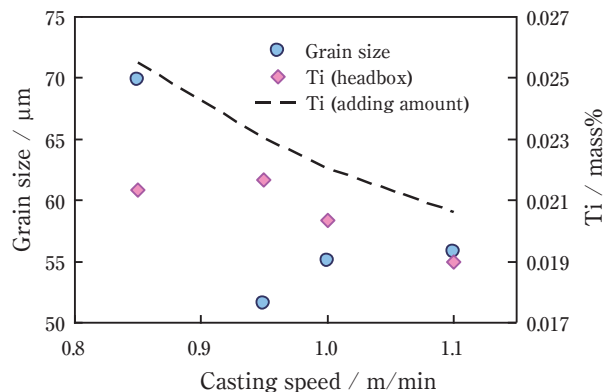


Fig. 7 Grain size and Ti amount versus casting speed.

1.0 m/min. Hence, the reason why the strip cast at 0.85 m/min was not refined is not fewer TiB₂ particles, but an insufficient solidification condition.

The temperature gradient and the cooling rate were calculated by the same thermal calculation used in the preliminary experiment. The dendrite cell sizes were also measured by the same method as in the preliminary experiment. The measurement result is compatible with this calculation result (Fig. 8).

In the verification experiment, the temperature gradient monotonically decreases when the casting speed increases the same as in the preliminary experiment. The cooling rate does not monotonically decrease with the increasing casting speed.

Therefore, if the temperature gradient is reduced, it is easy to obtain fine grains for strip casting whether the cooling rate is high or low.

3.3 The points of grain refining in the TRC

As has been noted, we need to take care of the following points to make the grains of the strip fine:

1. An adequate amount of heterogeneous nuclei (for example, TiB₂ particles) which are obtained by adding grain refiners to the molten metal.
2. Low temperature gradient which is achievable by increasing the casting speed.

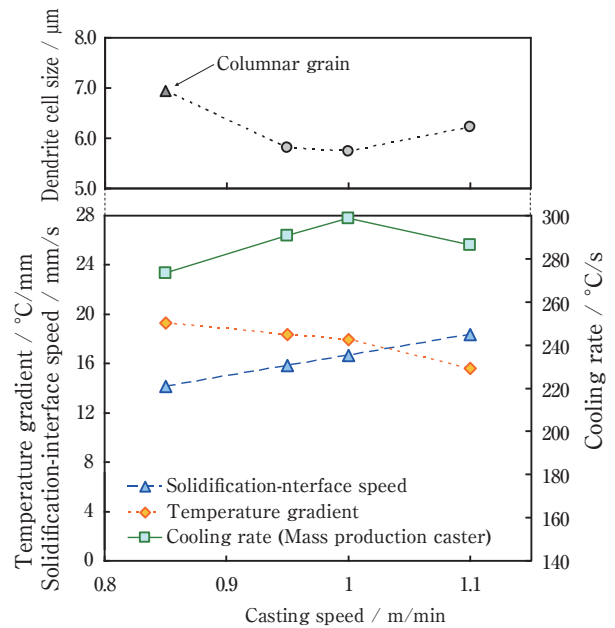


Fig. 8 DCS measurement and the casting parameters calculated by thermal equation of the verification experiment.

3.4 The behavior of the TiB₂ particles

Fig. 7 indicates that the TiB₂ particles settle as sediment during the casting. At each casting speed, the actual Ti values are less than the theoretical values. The added yield at 0.85 m/min is 83.7% and it is the lowest in the four speed conditions. Therefore, it is presumed that if casting at a low speed, the amount of the grain refiners increases because of adding at a uniform rod speed, but the heterogeneous nuclei tend to settle and not reach the casting machine.

To clarify the behavior of the TiB₂ particles, we calculated the number of particles which reach the casting machine on the mass production model.

4. Numerical simulation

4.1 Calculation procedure

The goal of the present study is to analyze the behavior of the TiB₂ particles from the trough to the headbox and the tip. A fluid flow analysis of the molten metal was performed by employing specifically designed 3-dimensional finite element software. The calculation condition is given in **Table 5** and the modeled metal flow path is shown in **Fig. 9**.

4.2 Results and Discussion

It was clarified that TiB₂ particles collect where the metal is stagnant, for instance, the corner in the headbox (**Fig. 10**). Especially, bigger particles tend to collect.

The TiB₂ particles of each size were then divided into two groups. One is the effective particles which have reached the casting machine and the other one is the non-effective particles which have settled or collected before the tip outlet. The total added yield

of the TiB₂ particles, which was calculated by the nucleus number of the two groups, decreased when the casting speed decreased (**Fig. 11**).

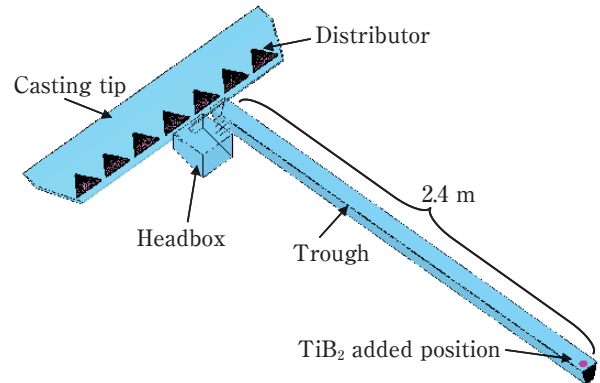


Fig. 9 Calculated model of metal flow path.

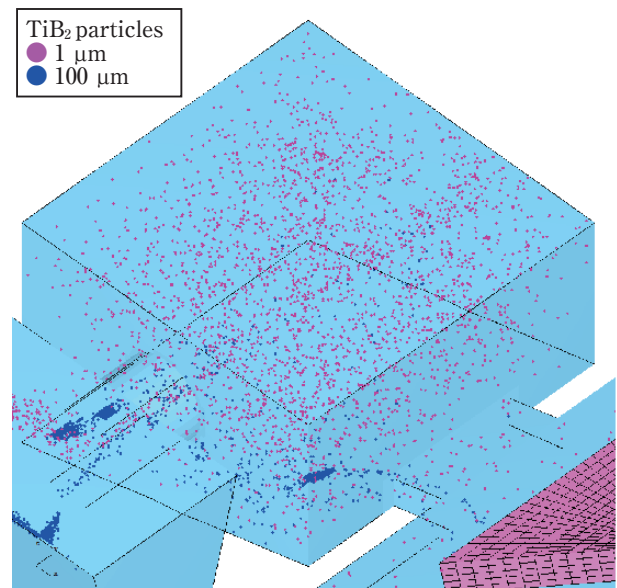


Fig. 10 TiB₂ particles which collect in the headbox.

Table 5 Calculation condition.

Fundamental equation	Uncompressed Navier-Stokes equation	
Turbulence model	k-epsilon model	
Calculation method	Metal flow : Steady analysis	
	Particle transport : Transient analysis	
Molten Al	Density (kg/m ³)	2350
	Viscosity (Pa·s)	0.001
TiB ₂ particles	Density (kg/m ³)	4510
	Shape	Sphere
	Diameter (μm)	1, 10, 100
	Adding number (parts/sec)	100

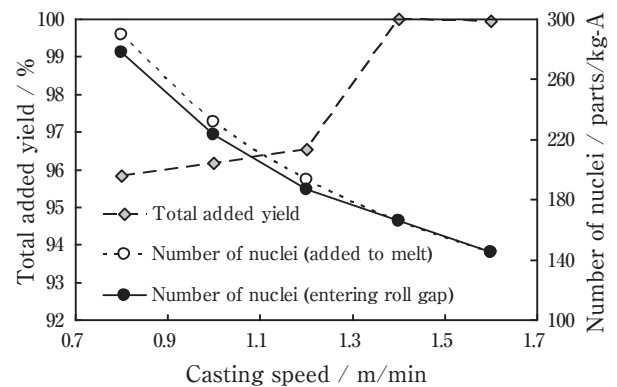


Fig. 11 Total added yield of TiB₂ particles.

5. Conclusion

The following can be concluded from this investigation:

1. The proper amount of heterogeneous nuclei and low temperature gradient are required to decrease the grain size in the TRC.
2. A low temperature gradient is obtained by increasing the casting speed.
3. A low casting speed is likely to make the heterogeneous nuclei settle or collect in the metal flow path.
4. The amount of heterogeneous nuclei, temperature gradient and metal flow path should be optimized to maximize the effect of the grain refiners.

REFERENCES

- 1) E. Romano and C. Romanowski: "Reinventing Twin Roll Casting for The 21st Century", *Light Metals* 2009, 895-900.
- 2) S. Ertan et al.: "The Effect of Casting Parameters on Twin Roll Cast Strip Microstructure", *Light Metals* 2000, 667-666.
- 3) K. Sarioglu et al.: "Computer Simulation of Metal Feeding System Used in Twin Roll Casting", *Light Metals* 2000, 663-666.
- 4) Y. Murakami et al. eds.: *Basis and Industrial Technology of Aluminum*, Japan Light Metal Association, (1985), 46-47.
- 5) W. Kurz and D. J. Fisher: *Fundamentals of Solidification*, Trans Tech Publications, (1984), 88-92.
- 6) H. D. Merchant et al. eds.: *Continuous Casting of Non-Ferrous Metals and Alloys*, TMS, (1988), 1-66.



Yu Matsui

Casting Technology Department,
Nagoya Works,
Flat Rolled Products Division,
UACJ Corporation



Koichi Takahashi

Research Department I,
Research & Development Division,
UACJ Corporation

1050 アルミニウム熱間圧延材の回復・再結晶速度に及ぼす 固溶した不純物の影響*

吉田 英雄**, 玉田 裕子***, 浅野 峰生****, 大久保 喜正*****

Effect of Dissolved Impurities on the Rate of Recovery and Recrystallization in a 1050 Aluminum Hot-Rolled Sheet*

Hideo Yoshida**, Yuko Tamada***, Mineo Asano**** and Yoshimasa Ookubo*****

The effect of the soaking conditions of ingots on the rate of recovery and recrystallization in 1050 hot-rolled sheets during annealing at 350°C was investigated. The rate of recovery and recrystallization in no soaking and 600°C/8 h WQ (water quenching) was slower than that of 450°C/8 h FC (furnace cooling). Many dissolved impurities Fe, Si etc., which were contained in no soaking and 600°C/8 h WQ cause the delay of recovery and recrystallization. Particularly, in no soaking, no precipitation was observed within grains of the ingot and the hot-rolled sheet. On the other hand, in 450°C/8 h FC, the recovery and recrystallization is too fast. Fine granular precipitates with less than 0.1 μm in diameter were observed and there were few dissolved impurities in the ingot and the hot-rolled sheet. The pinning of sub-grain boundaries by these fine precipitates was not observed. The normalized change of Vickers hardness and electrical resistivity was divided into a recovery reaction and a recrystallization one respectively by a new developed rate equation. The role of impurities in the recovery and recrystallization was explained and made clear by the obtained values of parameters in this equation.

Keywords: soaking condition of ingot, dissolved impurities, rate of recovery and recrystallization, hot-rolled sheet, rate equation

1. 緒言

工業用純アルミニウムの回復・再結晶速度は不純物であるけい素や鉄の量やそれらの固溶量で変わってくることはよく知られている^{1)~3)}。これらのけい素や鉄は鑄塊ソーキングや熱間圧延だけでなく、回復・再結晶の焼きなまし過程で析出してくることも明らかになってきた^{4)~8)}。前報では、1050アルミニウム熱延板の回復・再結晶速度に及ぼす鑄塊ソーキングの影響を調べ、固溶したけい素や鉄が転位セルや亜結晶粒界上に

偏析、析出して回復・再結晶を制御していることを速度論的な解析で明らかにした^{9), 10)}。浅野らもまた1200アルミニウム冷間圧延板の250°C焼きなまし時の亜結晶粒界を最新の収差補正走査・透過電子顕微鏡とEDS分析を用いて観察し、**Fig. 1**に示すように亜結晶粒界上に不純物であるけい素と鉄の濃度偏析が生じることを明らかにした¹¹⁾。アルミニウムにおける回復・再結晶段階での不純物の偏析を観察した事例は、従来のTEMでは検出できなかったためほとんどない。浅野らの観察結果は、回復・再結晶速度は不純物が亜結晶粒界

* 本稿は軽金属, **67** (2017), 284-291に掲載された論文に加筆, 補正したものである。

This paper is the revision of the paper published in Journal of The Japan Institute of Light Metals, **67** (2017), 284-291.

** 超々ジュラルミン研究所, 博士(工学), (元(株)UACJ R & Dセンター 顧問)

ESD Laboratory, Dr. Eng., (Formerly, Research & Development Division, UACJ Corporation, Adviser)

*** (株)UACJ R & Dセンター

Research & Development Division, UACJ Corporation

**** (株)UACJ 板事業本部 名古屋製造所

Flat Rolled Products Division, Nagoya Works, UACJ Corporation

***** (株)UACJ 鑄鍛 技術部

Technical Department, UACJ Foundry & Forging Corporation

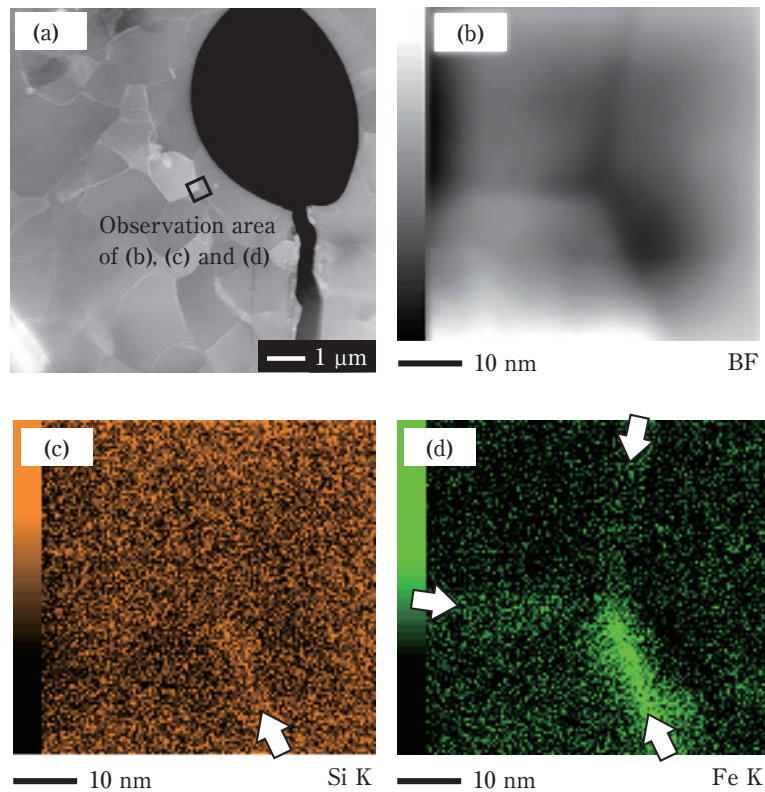


Fig. 1 SEM and EDS mapping images of a 1200 cold rolled aluminum sheet annealed at 250°C for 50 min. (a) HAADF-STEM image, (b) bright field image, (c) and (d) EDS mapping images of Si and Fe¹¹⁾.

上に偏析することで制御されることを示唆する。前報の論文^{9), 10)}では、ソーキングなし材の再結晶速度がソーキング後の冷却速度に関わらず600°C/8 hソーキング材に比べて遅いことが分かった。その原因として、熱間圧延温度を500°Cで行ったので、熱間圧延前の予備加熱や熱間圧延中に第二相粒子が析出し、その析出状態が回復・再結晶速度に影響することが考えられた。このため不純物の固溶度の回復・再結晶速度に与える影響を明確にするために、熱間圧延中の不純物の析出を抑制することが必要で、本研究では熱間圧延温度をAl-Fe-Si系化合物の析出が抑制できる300°C以下とした⁷⁾。本研究の目的は、ソーキング条件で不純物の固溶量を変え、かつ熱間圧延での不純物の析出を抑制して、熱延板の焼きなまし過程での回復・再結晶速度に及ぼす固溶した不純物の役割を明確にすることである。

2. 実験方法

ラボの連続鋳造設備で造塊した1050鋳塊(Fe 0.29mass%, Si 0.09mass%, **Table 1**)を、不純物の固溶度と析出の影響を調べるために鋳塊のソーキングなし(No soaking), 600°C/8 h水冷(WQ)と450°C/8 h炉冷(FC)の3条件で鋳塊熱処理を行った。これらの鋳塊

を、300°Cに再加熱し厚さ10 mmから5 mmまで1パスで熱間圧延を行い、熱間圧延は約200°Cで終了した。熱間圧延終了温度は接触式温度計で測定した。焼きなまし処理のために、この熱間圧延材をソルトバスにて350°Cで所定時間保持した。以上のプロセスを**Fig. 2**に示す。この焼きなましを行なった試料について、回復・再結晶過程での不純物の役割を明らかにするために硬度変化、電気伝導度変化、ミクロ組織、TEM組織、SEM組織などを調べた。硬度は板厚中心でビッカース硬度(荷重49N)3点測定してその平均値を求めた。ミクロ組織およびTEM組織もその板厚中央面を観察し、回復・再結晶過程での結晶粒の生成・成長を調べた。電気伝導度は日本フェルスター製のSIGMATESTで測定(有効数字は4桁)した。TEM組織観察には日本電子製JEM-2010を、SEM組織観察にはCarl-Zeiss製のFE-SEM(ULTRA plus)を、EDS分析にはBruker製測定装置を用いた。

3. 結果

3.1 鋳塊ソーキング後と熱間圧延後の電気伝導度

Fig. 3に鋳塊ソーキング後と熱間圧延後の電気伝導度を示す。ソーキングによって電気伝導度に変化して

Table 1 Chemical composition of a 1050 ingot.

											(mass%)
Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	B	Ni	V	Ga
0.09	0.29	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.02	0.00	0.00	0.01	0.01

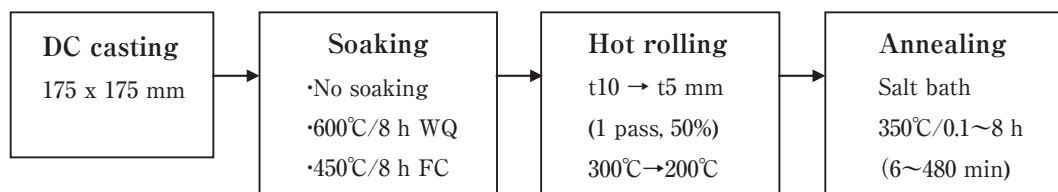


Fig. 2 Fabrication processes and their conditions of a 1050 hot-rolled aluminum sheet from casting to annealing.

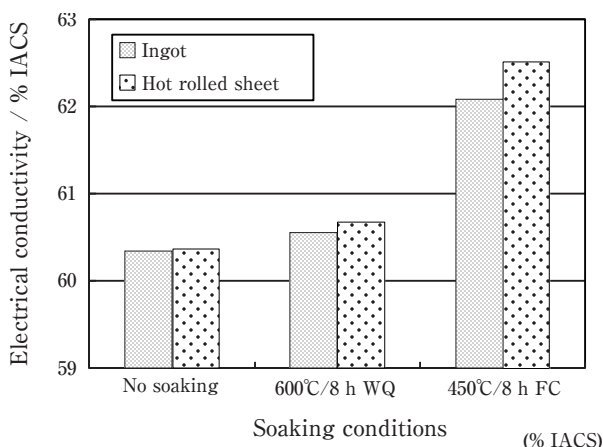


Fig. 3 Electrical conductivity of ingots and hot-rolled sheets.

いることが分かる。ソーキングを行うことで析出が生じ、ソーキングなし材に比べて600°C/8 h WQ材では約0.2% IACS、450°C/8 h FC材では電気伝導度が約1.7% IACS増加した。450°C/8 h FC材では電気伝導度が大幅に増加し、析出がかなり生じていることが分かる。300°Cでの熱間圧延では、ソーキングなし材や600°C/8 h WQ材は電気伝導度の変化はわずかであるが、450°C/8 h FC材では電気伝導度が約0.5% IACS程度増加した。この電気伝導度の増加量の違いについては4.3で考察する。

3.2 350°C焼きなましでの硬度変化と電気伝導度変化

3.2.1 ソーキング条件の影響

各ソーキング材の熱間圧延板を350°Cで焼きなまししたときの硬度変化と電気伝導度変化をFig. 4とFig. 5に示す。なお、焼きなまし直後(0.01 min)の硬度はAs rolled材と同じとした。Fig. 4からは450°C/8 h FC材が最も回復・再結晶が速く、ソーキングなし材と600°C/8 h

WQ材の回復・再結晶は遅いことが分かる。ソーキングなし材と600°C/8 h WQ材の差はわずかであるが600°C/8 h WQ材の方がソーキングなし材より若干速い。またFig. 5の電気伝導度の変化からは、ソーキングなし材と600°C/8 h WQ材の電気伝導度の絶対値での変化量は大きく、固溶した不純物原子の多くが焼きなまし過程で析出してくることが分かる。一方、450°C/8 h FC材はソーキングで多くの溶質原子が析出していたため、焼戻しでの絶対値の変化量は小さい。

3.2.2 規格化された硬度変化と電気伝導度変化の比較

Fig. 6はFig. 4の硬度変化から、反応の開始と終了の差を1として反応開始からの硬度変化量を規格化した図である。Fig. 7も同様にFig. 5の電気伝導度の変化を規格化して表示している。Fig. 7の450°C/8 h FC材において長時間側で規格化したデータが大きく変動しているのは、Fig. 5で示すように450°C/8 h FC材の絶対値の変化量が小さく、測定時のわずかな変動を拾ったためである。なお、規格化するとデータのばらつきのために1.0をわずかに越す場合もあるので、縦軸の最大値を1.2とした。Fig. 6とFig. 7を比べると、ソーキングなし材と600°C/8 h WQ材では硬度と電気伝導度の時間変化が同じでなく、電気伝導度の変化が硬度変化より早く始まったことが分かる。前報の結果^{9), 10)}では硬度変化も電気伝導度の変化もほぼ同じ時間変化を示し、ミクロの再結晶挙動も同じ変化を示したが、今回の電気伝導度の結果は前報と異なることが分かった。これは前報と異なり圧延温度を300°Cとしたことが影響していると考えられ、以下の考察の中で述べる。

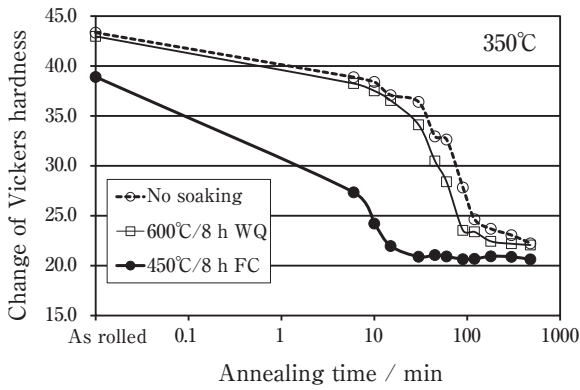


Fig. 4 Effect of soaking conditions on the change in the Vickers hardness in a 1050 aluminum sheet annealed at 350°C.

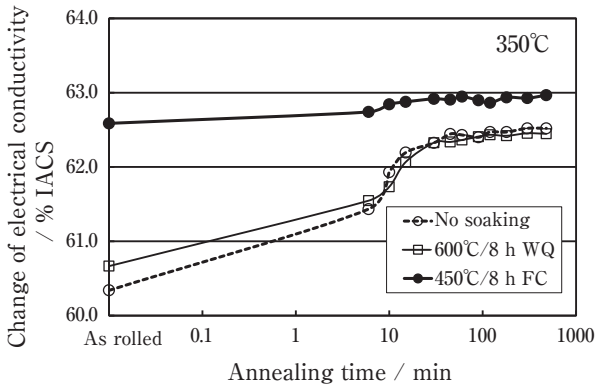


Fig. 5 Effect of soaking conditions on the change in the electrical conductivity in a 1050 aluminum sheet annealing at 350°C.

4. 考察

4.1 解析に用いた速度式とそのパラメータ

4.1.1 速度式の導出

回復・再結晶に及ぼすソーキング条件の影響に関して、その速度論的解析を前報と同様に山本の速度式^{12)~14)}をベースに導出した速度式で解析する。

Johnson-Mehl-Avrami (JMA) 式は一般に新相の割合 y で表されることが多い^{15)~18)}。

$$y = 1 - \exp\left\{-\left(\frac{t}{\tau}\right)^n\right\} \quad (1)$$

n は指数 (時間指数) である。 τ は時定数 (寿命) すなわち原子が旧相にとどまる平均寿命を表す¹²⁾。この式は粒子生成速度 dN/dt が一定と仮定されて導出されているために、粒子生成速度が一定でない場合には適用できない。これに対し山本は析出などの相変態における核生成は統計的集団現象として生じるものであるから、その数の増加は指数関数的に変化し、時刻 $t=0$ の旧相粒子数を N_0 、その時定数を τ_2 とすると時刻 t で

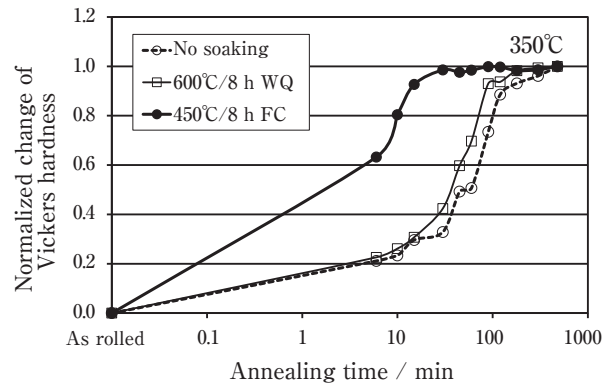


Fig. 6 Normalized change of the Vickers hardness shown in Fig. 4.

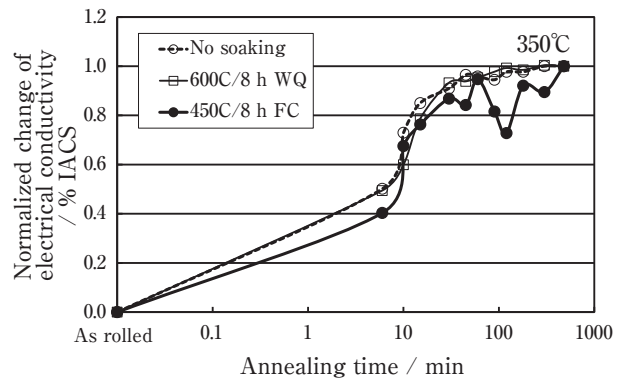


Fig. 7 Normalized change of the electrical conductivity shown in Fig. 5.

の新相粒子数 N は次式で表されるのが自然と考えた。旧相粒子には新相粒子が形成されるサイトである格子欠陥が含まれる。

$$N = N_0 \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right\} \quad (2)$$

新相粒子の数の増加速度 I は次式で表される。

$$I = \frac{dN}{dt} = \frac{N_0}{\tau_2} \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \quad (3)$$

この旧相粒子は複数の格子欠陥やその生成条件などが関与して形成されるために、式 (2) を拡張して、次式で表せるとした。

$$N = N_0 \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right\} \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_3}\right) \right\} \dots \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_n}\right) \right\} \cong N_0 \left\{ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right\}^{n_2} \quad (4)$$

山本は粒子数変化を示す式 (4) を式 (1) に組み込むことで新しい反応速度式を提案した。次式が山本の速度

式である。 y は生成した新相粒子の割合を示す。

$$y = 1 - \exp \left[- \left(\frac{t}{\tau} \right)^{n_1} \cdot N \right]$$

$$= 1 - \exp \left[- \left(\frac{t}{\tau_1} \right)^{n_1} \left\{ 1 - \exp \left(- \frac{t}{\tau_2} \right) \right\}^{n_2} \right] \quad (5)$$

式(5)の中に粒子数の変化を表す粒子数項が含まれることがわかる。式(5)は粒子生成速度 $I=dN/dt$ が一定とすると、Johnson-Mehl-Avramiの式(1)になる。 n_1, n_2 は指数で、 τ_1, τ_2 は時定数である。前報と同様に回復過程と再結晶過程の二つの反応が生じているとして、次式を用いて解析した。

$$y = A \cdot y_1 + B \cdot y_2$$

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

$$+ B \cdot \left\{ 1 - \exp \left[- \left(\frac{t}{\tau_3} \right)^{n_3} \left\{ 1 - \exp \left(- \frac{t}{\tau_4} \right) \right\}^{n_4} \right] \right\} \quad (6)$$

$$\tau_1 = \frac{1}{D} \cdot \left\{ \frac{k}{N_0} \right\}^{\frac{1}{n_1}} \cdot \left(\frac{C_\beta - C_E}{C_I - C_E} \right)^{\frac{n_1-1}{n_1}} \quad (7)$$

式(7)の導出については前報で報告している^{9),10)}。ここで k は定数、 C_I は母相の溶質原子濃度、 C_β は析出相である β 相の溶質濃度、 C_E は β 相と母相との界面での溶質原子濃度である。 τ_3 も式(7)の n_1 を n_3 に置き換えて同様に表記できる。 n_3 および n_4 は指数で、 τ_3 および τ_4 は時定数である。 A, B はそれぞれの反応の比率を表す。 $A+B \approx 1$ である。前報でも述べたように長時間の析出ではわずかではあるが凝集化などによる第三の反応も考えられるので $A+B=1$ とならない場合もある。

4.1.2 速度式のパラメータ、指数と時定数の物理的意味

一次元拡散が支配的な場合は指数 $n_1=0.5$ で、二次元拡散が支配的な場合は指数 $n_1=1.0$ となる。三次元拡散が支配的な場合は前報で述べたように指数 $n_1=1.5$ となる^{9),10)}。それぞれの指数での τ_1 は式(7)から以下のようになる。

$$\text{(一次元)} \quad \tau_1 = \frac{k^2}{DN_0^2} \cdot \left(\frac{C_I - C_E}{C_\beta - C_E} \right) \quad (8)$$

$$\text{(二次元)} \quad \tau_1 = \frac{k}{DN_0} \quad (9)$$

$$\text{(三次元)} \quad \tau_1 = \frac{1}{D} \cdot \left\{ \frac{k}{N_0} \right\}^{\frac{2}{3}} \cdot \left(\frac{C_\beta - C_E}{C_I - C_E} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (10)$$

式(8), (9)および(10)で表される旧相(格子欠陥)の時定数 τ_1 から、固溶した溶質原子濃度(以下、不純物濃度と記す) C_I や初期の粒子数 N_0 、本研究では析出粒子の析出サイト数を意味するが、これらの影響を調べることができる。指数 $n_1=0.5$ の場合は、一次元拡散(転位パイプ拡散)による転位上への析出を意味し、式(8)に示すように母相の不純物濃度 C_I に比例し、濃度が高くなると反応の時定数 τ_1 が大きくなる。すなわち回復や再結晶の反応が遅くなることを意味する。指数 $n_1=1$ は式(9)の二次元の場合で、二次元拡散(粒界拡散)による粒界面上への析出を意味し、不純物濃度 C_I に無関係となり、 $n_1=1.5$ は三次元拡散(格子拡散)による粒内析出を意味し、式(10)の τ_1 から不純物濃度 C_I の1/3乗で反比例する。すなわち不純物原子濃度が高いほど回復・再結晶の反応が速くなる。また、いずれの指数の場合も初期の析出サイト数 N_0 には指数乗で反比例し、初期の析出サイト数が多いほうが時定数 τ_1 は小さくなる。すなわち反応は短時間で終了する。

4.2 速度式による解析結果

Fig. 8 (a), (b) および (c)はFig. 6に示したソーキングなし材、600°C/8 h WQ材、450°C/8 h FC材の規格化された硬度変化を式(6)で解析した結果である。測定された硬度変化のデータは図中にexperimental data (Exp. Data)として示した。いずれの実験データも前報と同様に y_1 と y_2 の2つの式の重ね合わせとして表すことができた。なお、カーブフィッティングで得られた y_1 と y_2 の2つの式による曲線およびその重ね合わせの曲線上に元の実験データのプロットと同じ時間の計算結果のプロットも表示している。これは各曲線が重なって見えにくいためと実験データと計算結果の差異を分かりやすくするためである。同様に、**Fig. 9 (a), (b), (c)**はFig. 7に示したソーキングなし材、600°C/8 h WQ材、450°C/8 h FC材の規格化された電気伝導度変化を式(6)で解析した結果である。この変化も y_1 と y_2 の2つの式の重ね合わせとして表すことができた。硬度変化と電気伝導度変化の解析に用いた各パラメータの値を**Table 2**に示す。硬度変化と電気伝導度変化のいずれのソーキング条件も式 y_1 の反応は $n_1=0.5$ 、式 y_2 の反応は $n_3=1$ で解析できることが分かる。これは前報の結果と同じである^{9),10)}。前報では式(6)の y_1 の時定数 τ_1 は硬度変化でも電気伝導度の変化でもほぼ同じ値を有していたが、今回の結果は、硬度ではソーキングなし材が $\tau_1=10$ 、600°C/8 h WQ材が $\tau_1=12$ であるのに対し、電気伝導度ではそれぞれ、 $\tau_1=4$ あるいは $\tau_1=5$ と時定数が小さくなっており、これらの値は電気伝導度変化が硬

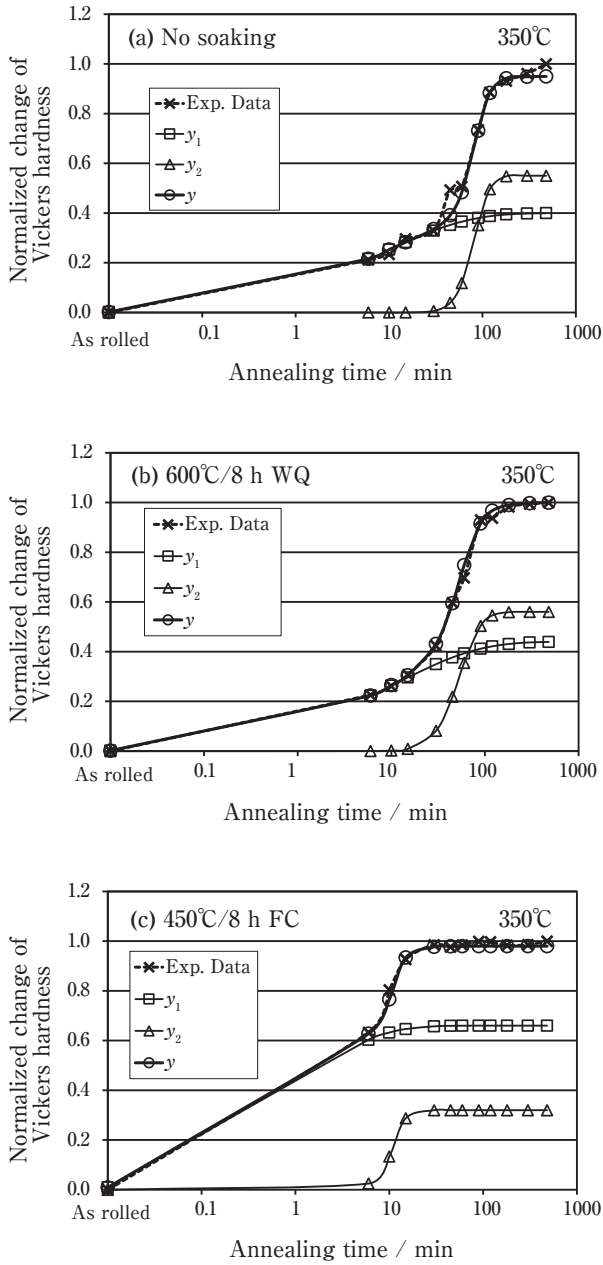


Fig. 8 Superimposition of the new rate equation on the normalized experimental data of the Vickers hardness.

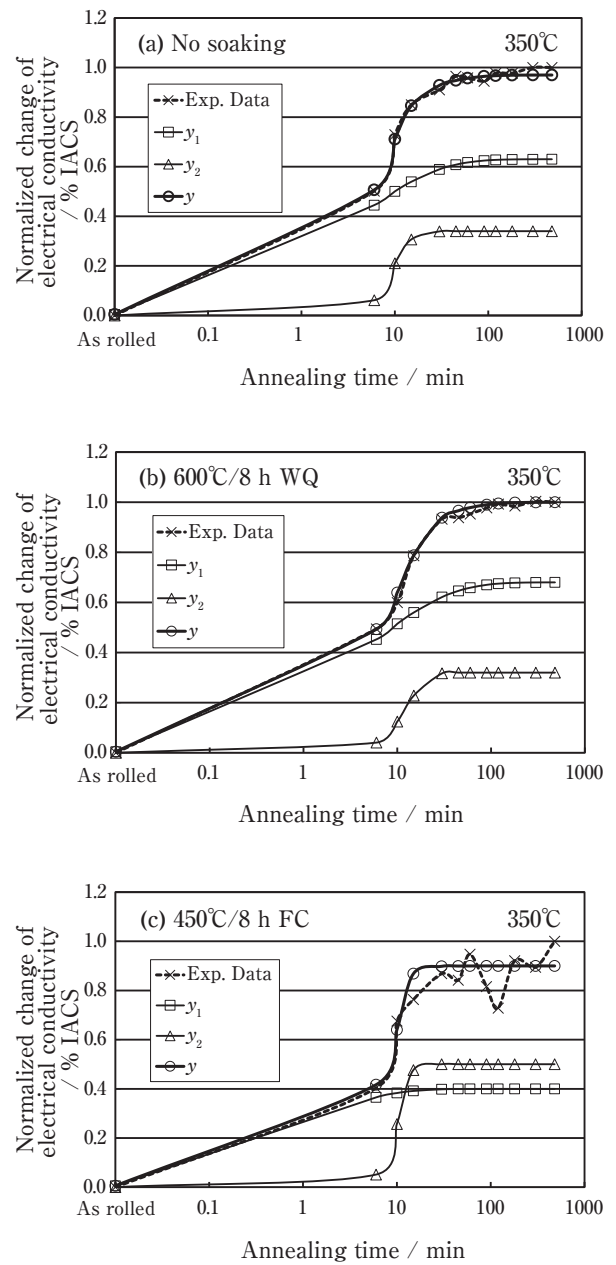


Fig. 9 Superimposition of the new rate equation on the normalized experimental data of the electrical conductivity.

Table 2 Values of parameters obtained by curve-fitting of the normalized experimental data of the Vickers hardness and the electrical conductivity using equation (6).

	Soaking	A	n_1	τ_1	n_2	τ_2	B	n_3	τ_3	n_4	τ_4
Vickers hardness	No soaking	0.40	0.5	10	0.5	0.5	0.55	1	25	5	60
	600°C/8h WQ	0.44	0.5	12	0.5	0.5	0.56	1	28	3	40
	450°C/8h FC	0.66	0.5	1	0.5	0.5	0.32	1	0.2	3	40
Electrical conductivity	No soaking	0.63	0.5	4	0.5	0.5	0.34	1	5	5	5
	600°C/8h WQ	0.68	0.5	5	0.5	0.5	0.32	1	4.8	2	15
	450°C/8h FC	0.38	0.5	1	0.5	0.5	0.50	1	0.15	3	40

度変化よりも短時間で生じることを意味する。これは y_2 の時定数 τ_3 も同様であった。以上のことは、3.2で述べたようにソーキングなし材と600°C / 8 h WQ材に関しては硬度と電気伝導度の時間変化が同じでなく、電気伝導度の変化が硬度変化の前に先行して早く始まったことが反応式の時定数に反映されていることが分かる。電気伝導度変化はマトリックスの固溶原子の変化を示し、硬度変化は格子欠陥の安定性を示すものと考えられる。

硬度変化については工業用純アルミニウムの強化機構は主要には鉄原子と転位の反応による加工硬化であり工業的にも利用されている。本研究の硬度変化では不純物量が少ないため固溶体硬化などの硬化機構の影響を考慮する必要はないと考える。回復と再結晶の比率、AとBについては、けい素や鉄の不純物の析出と関連していると考えられるが、詳細な検討は今後の課題である。

4.3 組織観察

4.3.1 ソーキング後の組織

鋳塊ソーキング後の析出状態を観察したのがFig. 10である。上段が光学顕微鏡によるマイクロ組織で、下段がTEM組織である。ソーキングなし材では、鋳塊の結晶粒界あるいはデンドライトセル境界上に鋳造時に生成した晶出物が観察されるのみである。600°C / 8 h WQ材では、デンドライトセル境界や結晶粒界にあった晶出物は熱処理により分断化、粒状化していた。TEM組織では粗大な棒状の晶出物以外に粒内に数 μm 程度の Al_3Fe の析出物 (Fig. 10では三角形にみえている) が観察された。これは鋳塊のソーキング時に生成し

た化合物である¹⁾。450°C / 8 h FC材では、マイクロ組織から晶出物はソーキングが低温なため分解せずに結晶粒界やセル境界に残存しているのが分かる。また粒内には微細な析出物が均一に析出しているように見えるが、TEMで観察すると直径が0.1 μm 以下の粒状化合物が線状に析出していることが分かった。このような線状に析出する理由は不明である。この微細析出はFig. 3のソーキング後の電気伝導度の変化からも裏付けられる。

4.3.2 熱間圧延後の組織

Fig. 11は熱間圧延後のTEM組織である。(a)のソーキングなし材や(b)の600°C / 8 h WQ材には多くの転位や転位セル、1~2 μm 径の亜結晶粒が観察されるのに対し、(c)の450°C / 8 h FC材では亜結晶粒と微細粒子が観察される。(c)の破線で示した白枠内をさらに拡大したのが(d)で、この微細粒子は亜結晶粒界と関係なく存在し、亜結晶粒をピン止めする様子は観察されていない。この微細粒子はFig. 12のSEM像では約0.1 μm 幅0.2 μm 長さの楕円体粒子として観察されたが、EDS分析から明らかのようにAl-Fe-Si系化合物である。この微細粒子はソーキングなし材や600°C / 8 h WQ材の熱間圧延材には観察されていないので、Fig. 10に示した450°C / 8 h FC材の鋳塊ソーキング時に析出した化合物が粗大化したものである¹⁾。これはソーキング後と熱間圧延後の微細粒子に関して、その数密度がFig. 10とFig. 11 (d)を比較すると熱間圧延中に粒子数は約半減し、粒子を球状と仮定して計算するとその全体積比

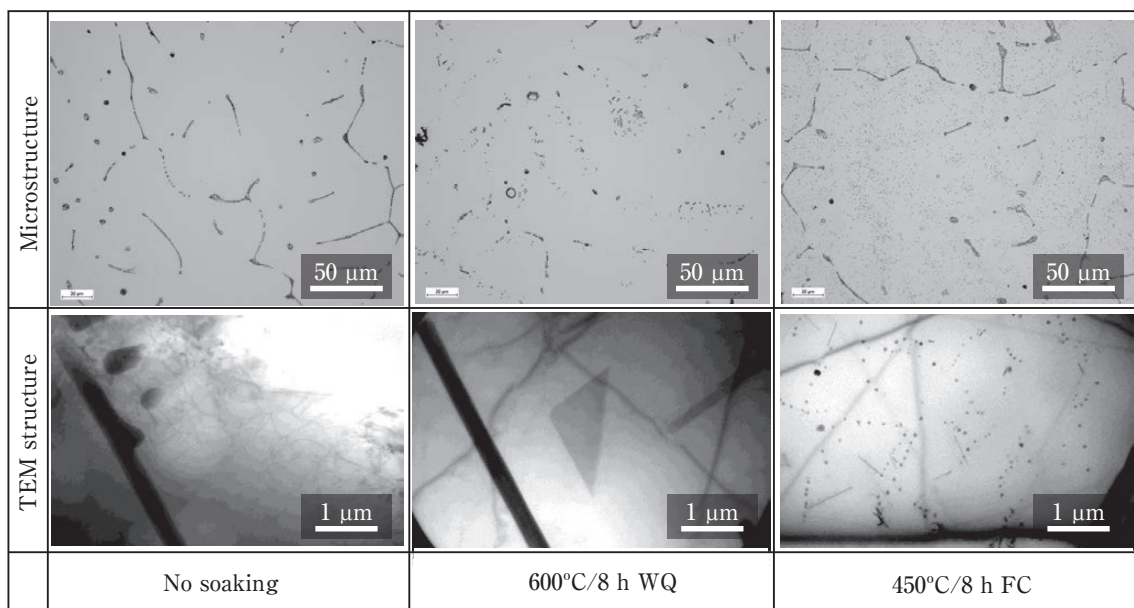


Fig. 10 Effect of soaking conditions on the micro- and TEM structures of ingots.

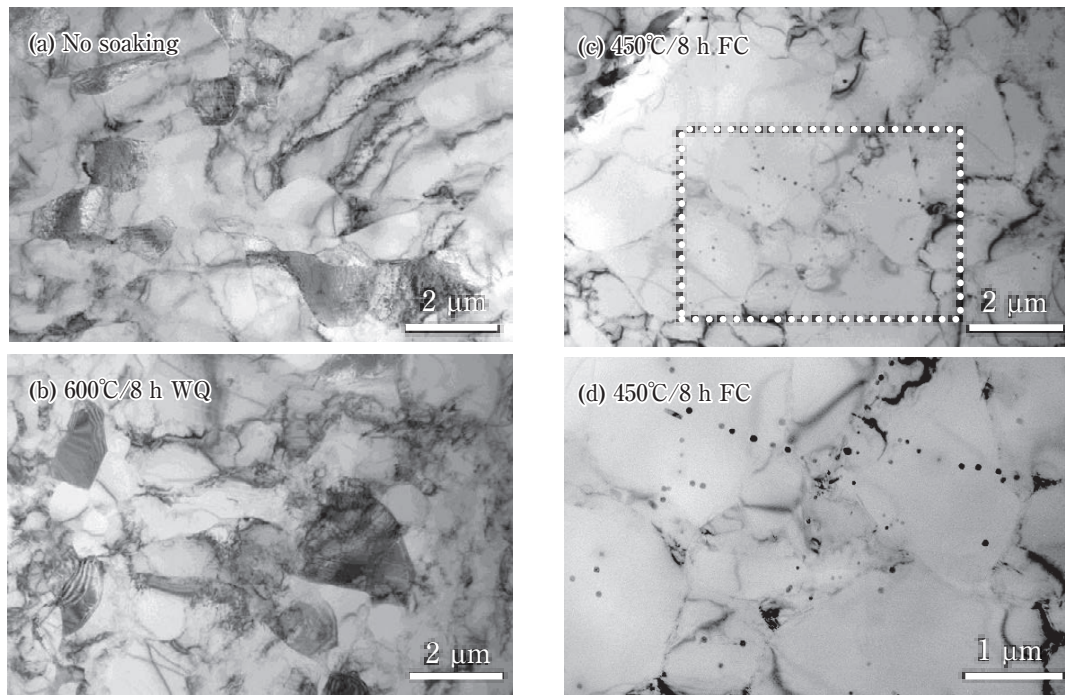


Fig. 11 Effect of soaking conditions on the TEM structures of as hot-rolled sheets. The area surrounded by the white dotted line in (c) was enlarged in (d).

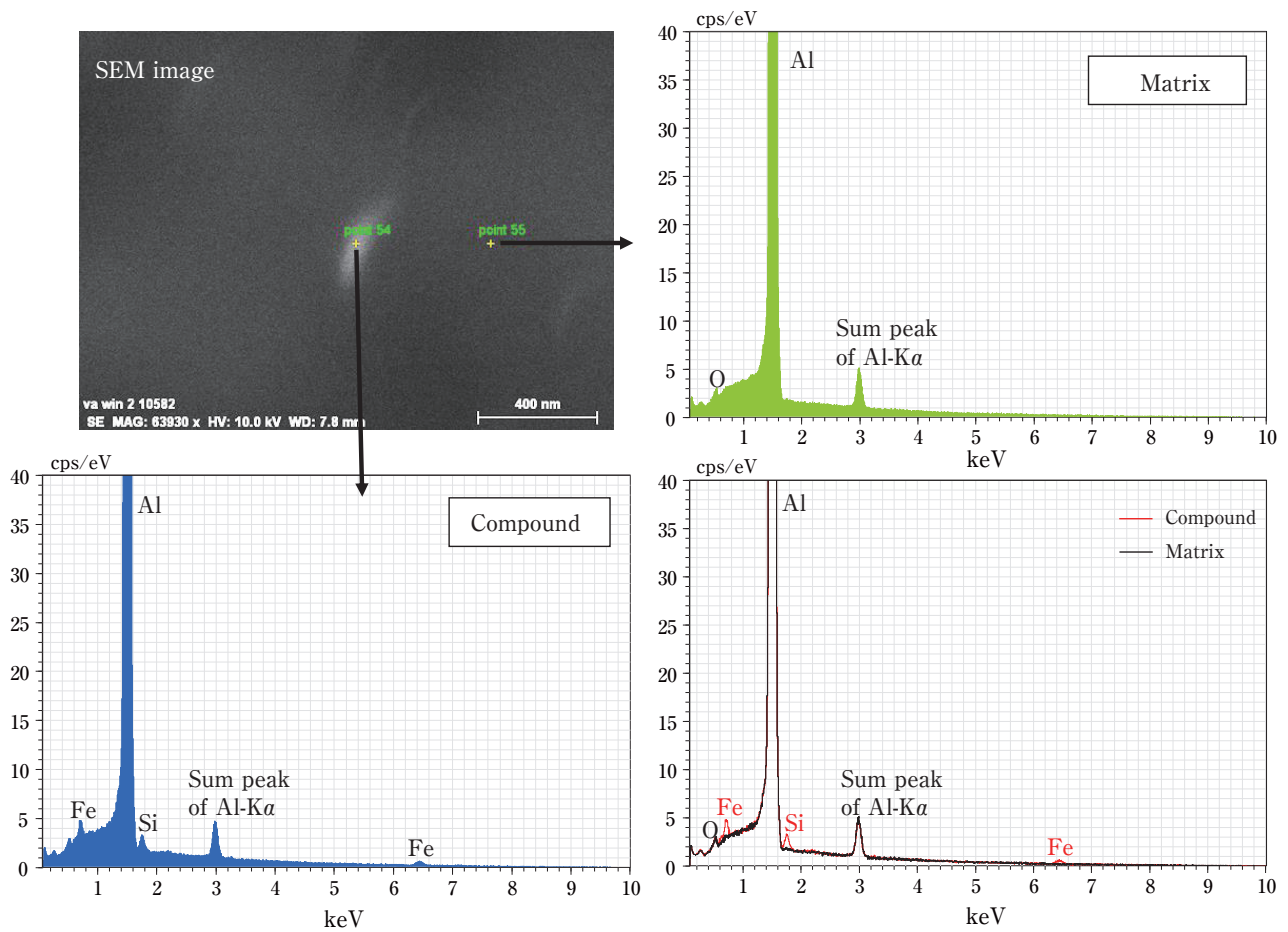


Fig. 12 SEM/EDS analyses of fine compounds and matrix in the hot-rolled sheet soaked at 450°C/8 h FC. Sum peak is a kind of ghost peak and should be ignored.

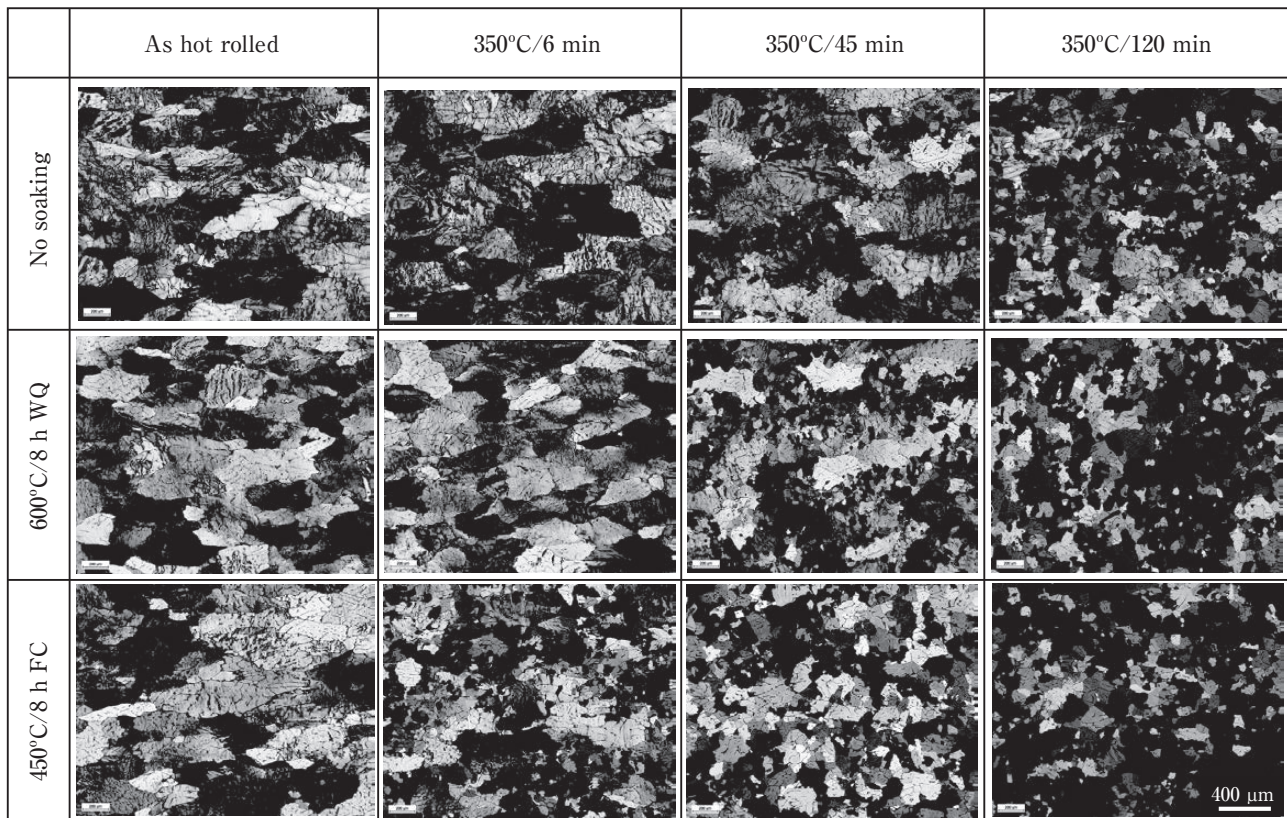


Fig. 13 Effect of soaking conditions on the change of the microstructures in the center plane (L-LT plane) of a 1050 aluminum sheet annealed at 350°C.

は約1.3倍に増加していたことから裏付けられる。すなわちソーキング時に析出した粒子はオストワルド成長により小さな粒子は再固溶して析出物の数密度は減少し、大きな粒子は成長する。さらにこの粒子上に固溶していた不純物原子が析出したと考えられる。このことはFig. 3の熱間圧延前後の電気伝導度変化(熱間圧延後の電気伝導度からソーキング後の鋳塊の電気伝導度を引いた値)で、450°C/8 h FC材ではその変化量が約0.5%で他のソーキング条件よりも大きくなり、300°C以下にも関わらず熱間圧延中に析出が促進されたことから分かる。

4.3.3 焼きなまし後の組織

熱間圧延板の350°C焼きなましでの板厚中央面における回復・再結晶過程の組織変化をFig. 13に示す。ソーキングなし材では45 minで再結晶が始まったところで、600°C/8 h WQ材の45 minでは再結晶がすでに約4割進行していた。これに対し、450°C/8 h FC材では6 minで再結晶が進行していて、45 minでは完了していた。これらの傾向はFig. 4やFig. 6の硬度変化とほぼ対応している。

Fig. 14はソーキングなし材の350°C/300 min焼きな

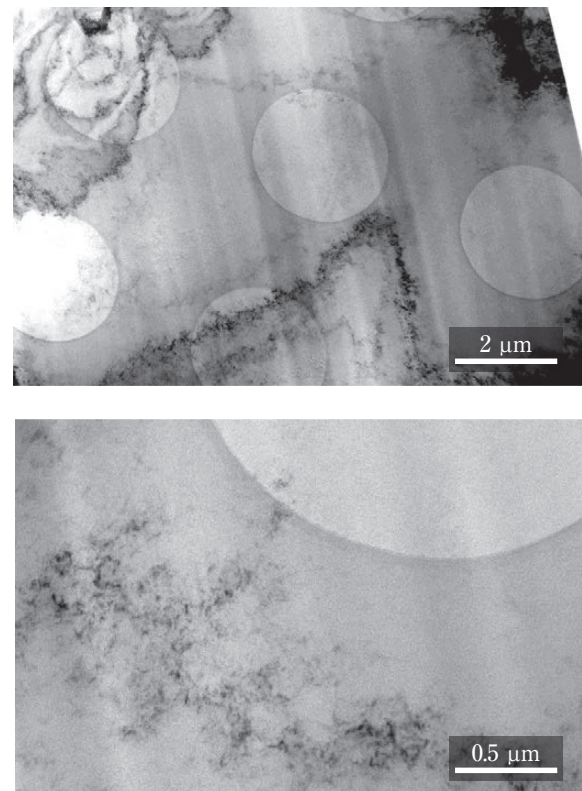


Fig. 14 Dislocation structures (low and high magnification) within the grain after annealing at 350°C/300 min in the hot-rolled sheet produced using no soaking ingot.

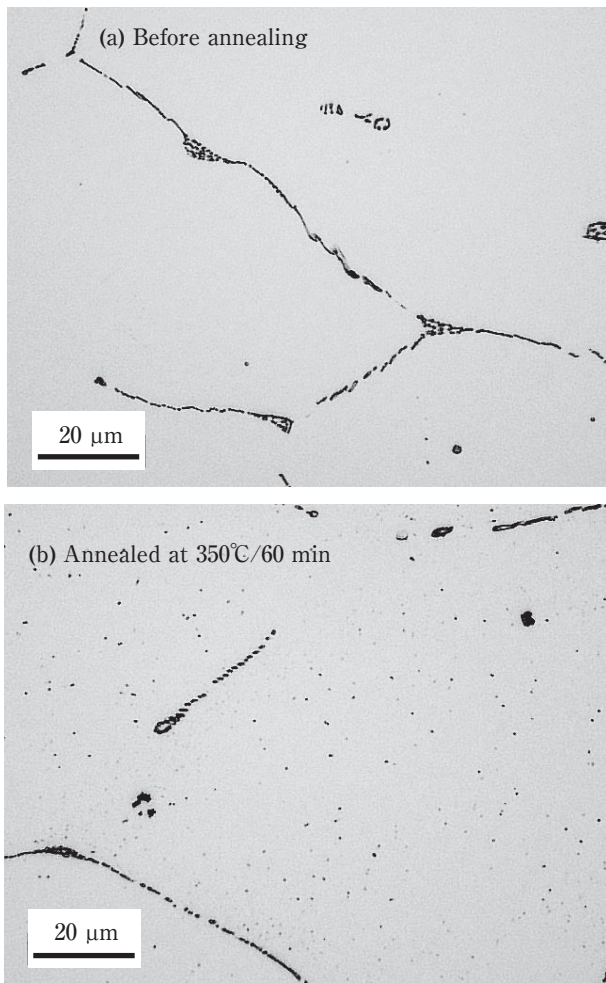


Fig. 15 Effect of annealing on the microstructures of the hot-rolled sheet produced using no soaking ingot. Fine Al-Fe-Si compounds precipitate during annealing at 350°C.

まし後の低倍率と高倍率のTEM写真である。焼きなまし過程で電気伝導度が大きく変化したソーキングなし材や600°C / 8 h WQ材では再結晶後も粒内に多くの転位が残存しているのが観察された。これらの転位は熱間圧延で導入された転位が残存したものである。またFig. 15に示すように、ソーキングなし材の焼きなまし前後のマイクロ組織から微細なAl-Fe-Si系化合物が焼きなまし過程で粒内に析出することがわかった。この焼きなましで析出した化合物の形成は、Fig. 1にも示したように、亜結晶粒界形成過程で不純物であるけい素や鉄が亜結晶粒界への偏析、析出して亜結晶粒の成長を抑制し¹¹⁾、その後凝集化したため粒界移動が容易になり、結晶粒成長と共に結晶粒界を外れて再結晶粒内に残存したと推定される。ソーキングなし材や600°C / 8 h WQ材の焼きなまし時の電気伝導度の大幅な増加はこの微細化合物の析出によるものと考えられる。

4.4 回復・再結晶速度と速度式のパラメータ

4.4.1 指数 n_1 および n_3 と固溶した不純物の析出機構

速度論的解析から、硬度変化も電気伝導度も y_1 と y_2 の2つの式に分離することができた。前報^{9),10)}でも明らかにしたように、 y_1 は指数 n_1 が0.5で主としてけい素の転位や転位セル境界上への偏析、析出を意味し、転位セルから亜結晶粒が形成される回復過程を表す。 y_2 は指数 n_3 が1.0でけい素と鉄、中でも鉄の二次元拡散、すなわち界面への偏析、析出を意味し、亜結晶粒が消滅して再結晶粒が生成する再結晶形成過程を表す。すなわち、固溶した不純物の亜結晶粒界への偏析、析出が進行し、その後凝集化して化合物粒子を形成する。その結果粒界移動が生じやすくなり、亜結晶粒が消滅して再結晶粒が生成する過程である。さらに再結晶粒界にも同様に不純物が偏析、析出し再結晶粒成長を抑制すると考えられる。硬度変化の速度論的解析結果は前述したようにFig. 13に示すマイクロ組織の変化に対応する。

4.4.2 硬度変化と電気伝導度変化の時定数の違い

電気伝導度の変化は前報^{9),10)}と異なり、硬度変化と一致せず、硬度ではソーキングなし材と600°C / 8 h WQ材の τ_1 がそれぞれ10および12であるのに対し、電気伝導度では τ_1 がそれぞれ4および5と小さくなり、電気伝導度の変化が硬度変化より早く生じる。この理由は熱間圧延温度が前報の500°Cに比べ300°Cと低く、Fig. 11に示すように熱間圧延時に導入された転位が固溶した不純物原子（特に鉄）と反応し熱間圧延後も多くの転位などの格子欠陥が残存し、不純物原子の析出が容易になったためと推定される。これは式(8)の N_0 が大きくなり、時定数 τ_1 が小さくなることを意味し、この結果、電気伝導度の変化が早く生じた。しかしながら、不純物原子が析出しても、Fig. 14に示すように転位、亜結晶粒界などの格子欠陥は容易に消滅しないために、硬度の変化は電気伝導度の変化より遅くなったと考えられる。これは欠陥の安定化に鉄原子が大きく寄与しているためである。粒内の転位が残存しやすいことは、Fig. 4に示すように350°Cで長時間焼なましても450°C / 8 h FC材と同程度までは硬度が低下しないことによっても裏付けられる。またソーキング条件の影響では硬度変化や電気伝導度変化いずれも450°C / 8 h FC材の時定数 τ_1 が小さくなる。これは式(8)の C_1 から分かるように固溶度が影響して、450°C / 8 h FC材では固溶した不純物濃度が小さいからである。

4.4.3 粒子数項のパラメータ n_2 , τ_2 , n_4 , τ_4

回復過程 y_1 の粒子数項のパラメータ n_2 , τ_2 はソーキ

ング条件に依存せず硬度変化も電気伝導度変化も $n_2=0.5$, $\tau_2=0.5$ であった。一方、再結晶過程 y_2 では粒子数項のパラメータは $n_4=2\sim 5$, τ_4 は硬度ではあまり変動はないが、電気伝導度ではソーキング条件で変動した。

回復過程は析出サイトも指数関数的に変動するが、指数 n_2 が 0.5 で転位や転位セルなどの格子欠陥が特にけい素の析出により消滅していくことに対応するものと考えられる。この回復過程は Fig. 9 に示すように電気伝導度の観点からみると、ソーキングなし材や 600°C / 8 h WQ 材では再結晶反応終了後も長時間進行する。これは Fig. 14 に示すように転位組織の残存のためと考えられる。一方、再結晶過程は亜結晶粒界や再結晶粒界への析出が考えられ、この析出サイトの生成過程は偏析や析出物の凝集化による亜結晶粒の成長や合体、粒界上での第二相粒子の形成などいくつかの複合反応によって決まってくるので n_4 は大きな値を示す。

4.4.4 ソーキングで析出した化合物の役割

Fig. 10 の鋳塊や Fig. 11 の熱間圧延板に示すように 600°C / 8 h WQ 材においても数 μm の Al_3Fe の析出粒子が粒内に観察されるが、熱間圧延板の TEM 組織はソーキングなし材と大差なく、また焼きなましでの回復・再結晶速度はソーキングなし材と大差ないので、これらの粗大な化合物は熱間圧延中の動的回復や焼きなまし時の回復・再結晶を速める役割はほとんど担っていないと考えられる。

450°C / 8 h FC 材ではソーキング中に微細粒子が析出することで、粒内の固溶度が減少するために残存できる転位が少なくなり、また熱間圧延中に導入された転位は微細粒子近傍で動的回復が生じて消滅しやすくなる。これは Fig. 11 の TEM 組織で転位が少ないことや Fig. 4 に示すように 450°C / 8 h FC 材の As rolled の硬度が他のソーキング条件に比べ小さくなることから裏付けられる。また焼きなまし時も固溶した不純物が少ないために回復の反応も速く、回復過程での硬度変化も電気伝導度変化も Table 2 に示すように τ_1 はともに 1 となった。

5. 結 言

(1) 1050 熱間圧延材の焼きなましによる回復・再結晶過程を硬度、電気伝導度および組織観察より調べた結果、ソーキングなし材と 600°C / 8 h WQ 材の回復・再結晶が遅く、450°C / 8 h FC 材が非常に速いことが明らかとなった。

(2) 電気伝導度の測定結果から、ソーキングなし材と 600°C / 8 h WQ 材の回復・再結晶が遅いのは固溶した不純物であるけい素と鉄が多く、450°C / 8 h FC 材の回復・再結晶が速いのは不純物の固溶度が少ないことに対応する。固溶した不純物であるけい素と鉄が回復・再結晶速度を制御している。

(3) 焼きなまし時の硬度変化と電気伝導度変化を次式の数式で、回復速度式 y_1 と再結晶速度式 y_2 の和として表すことができた。

$$y = A \cdot y_1 + B \cdot y_2$$

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

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

いずれのソーキング条件も回復での速度式の指数は $n_1=0.5$ 、再結晶での速度式では $n_3=1$ となった。これは固溶した不純物の回復段階では転位あるいは転位セル上へ、再結晶段階では亜結晶粒界への偏析および析出が関与していることを示唆するものである。

(4) ソーキングなし材においては、熱間圧延後も粒内には微細析出物は全く観察されず、多くの転位を含む転位セルや亜結晶粒で構成されていた。よってソーキングなし材の再結晶速度が遅いのは微細析出物によるピン止め効果ではないといえる。一方、450°C / 8 h FC 材では Al-Fe-Si 系の 0.1 μm 以下の微細な粒状化合物がソーキング時析出したが、再結晶速度は微細析出物がない場合よりも遅くならず、微細析出物によるピン止め効果は見られなかった。むしろこれらの微細析出物はマトリックスの固溶度を減少させ、動的回復を促進させ再結晶速度を早めていることが明らかとなった。

(5) 不純物と回復・再結晶過程との関係は、焼きなまし時に固溶した不純物が焼きなまし時に転位セル境界あるいは亜結晶粒界に偏析、析出して亜結晶粒の成長を抑制し、その後析出物が凝集化することで亜結晶粒が成長して粒界を外れる。その結果再結晶した粒内に多くの微細化合物が観察される。純アルミニウムの回復・再結晶過程は固溶した不純物の偏析、析出および凝集化が関与していて、これらの反応が回復・再結晶速度を律速している。

参考文献

- 1) 小菅張弓, 岡田浩: 軽金属, **61** (2011), 274-294.
- 2) 記念出版部会編: アルミニウムの組織と性質, 軽金属学会, (1991), 171-191.
- 3) 吉田英雄: 住友軽金属技報, **54** (2013), 62-105.
- 4) 森山勉, 吉田英雄, 土田信: 軽金属, **39** (1989), 184-189.
- 5) 森山勉, 吉田英雄, 土田信: 住友軽金属技報, **30** (1989), 1-7.
- 6) 吉田英雄: 軽金属, **64** (2014), 179.
- 7) 東海林了, 藤倉潮三: 古河電工時報, **No.84** (1989), 116-121.
- 8) 松尾守, 村松俊樹, 浅沼彰, 梶山毅, 福田政志: 軽金属, **38** (1988), 400-406.
- 9) 吉田英雄, 大久保喜正: 軽金属, **64** (2014), 285-291, UACJ Technical Reports, **1** (2014), 45-54.
- 10) H. Yoshida and Y. Ookubo: Materials Transactions, **56** (2015), 1960-1967.
- 11) 浅野峰生, 中村拓郎, 吉田英雄: 軽金属, **64** (2014), 279-284.
- 12) 山本悟: 新しい反応速度論の試み, 昭和堂, (1979).
- 13) 山本悟, 久保田耕平: 日本金属学会誌, **46** (1982), 917-924.
- 14) 久保田耕平, 山本悟: 日本金属学会誌, **9** (1982), 908-916.
- 15) W.A. Johnson and R.F. Mehl: Trans. AIME, **135** (1939), 416-458.
- 16) M. Avrami: J. Chem. Phys., **7** (1939), 1103-1112.
- 17) M. Avrami: J. Chem. Phys., **8** (1940), 212-224.
- 18) M. Avrami: J. Chem. Phys., **9** (1941), 177-184.



吉田 英雄 (Hideo Yoshida)
超々ジュラルミン研究所, 博士(工学),
(元(株)UACJ R&Dセンター 顧問)



玉田 裕子 (Yuko Tamada)
(株)UACJ R&Dセンター



浅野 峰生 (Mineo Asano)
(株)UACJ 板事業本部 名古屋製造所



大久保 喜正 (Yoshimasa Ookubo)
(株)UACJ 鋳鍛 技術部

Strain Rate Dependence of the Material Strength in 5xxx Series Aluminum Alloys and the Evaluation of Their Constitutive Equation*

Hiroyuki Yamada**, Tsuyoshi Kami***, Ryota Mori****
Tomoyuki Kudo*****, and Minemitsu Okada*****

The effect of strain rate on the mechanical properties of 5xxx series aluminum alloys containing solute Mg atoms (5005, 5021, 5082 and 5182) and pure aluminum (1070) was investigated within a wide strain rate range of 1.0×10^{-4} to $1.0 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ at room temperature. The 1070 exhibited a positive strain rate dependence of material strength at the investigated strain rates. However, the 5xxx series aluminum alloys primarily exhibited the negative strain rate dependence of material strength and serration caused by the Portevin-Le Chatelier effect on the Mg content and strain rate. As a result of using the material constitutive equation for the negative strain rate dependence, it was found that the flow stress may change in the dynamic strain rate range. However, it was found that the strain rate dependence of material strength differed in the 5082 and the 5182 alloys. It would be caused by less solute Mg of the Al phase in the 5182 alloy than in the 5082 alloy, because more Mg_2Si compounds precipitated on Mn bearing particles as precipitation sites in the 5182 alloy.

Keywords: serration; strain rate; dynamic; impact; constitutive equation; Al-Mg alloy; pure aluminum;

1. Introduction

Many constitutive equations have been proposed for the strain rate and temperature effect¹⁾. In these equations, the flow stress is expressed as a function of various parameters, as follows:

$$\sigma = f(\varepsilon, n, Y, \dot{\varepsilon}, T) \quad (1)$$

where ε is the strain, n is the work hardening rate, Y is the yield stress, $\dot{\varepsilon}$ is the strain rate, and T is the testing temperature. Therefore, it is necessary to conduct experiments within a wide strain rate range and testing temperature. Typically, experiments have been conducted by using a universal testing machine for the quasi-static strain rate in the range of 10^{-5} to 10^{-1} s^{-1} , and the Split Hopkinson Pressure (SHB) method^{2, 3)} for the high strain rate. The SHB method applies the one-dimensional elastic wave propagation

theory, which has become the commonly accepted test method for the impact strain rates in the range of 10^2 to 10^4 s^{-1} . However, material properties at the dynamic strain rate in the range of 10^0 to 10^1 s^{-1} have barely been investigated because it is difficult to measure the dynamic tests in principle by using the SHB method. In the dynamic strain rate range, it is known that the flow stress starts to increase rapidly. Thus, the material properties at those strain rates are important.

The 5xxx series aluminum alloys containing solute Mg atoms (Al-Mg alloys) can be cited as an example of materials that exhibit various strain rate sensitivity. The Al-Mg alloy has been tested at various strain rates and testing temperatures because it exhibits high strength and corrosion resistance. Tests with the Al-Mg alloy have shown that the serrated flow stress occurs frequently in a stress-strain curve called "serration". This happens because the solute Mg atoms interact with the dislocations^{4)~8)}.

* The main part of this paper has been published in *Metals* **8** (2018), 576.

** Department of Mechanical Engineering, National Defense Academy

*** Graduate School of Science and Engineering, National Defense Academy

**** Development Department I, Research and Development Division, UACJ Corporation

***** Development Department I, Research and Development Division, UACJ Corporation

***** No.1 Product Design Section, Quality Assurance Department, UACJ (Thailand) Co., Ltd.

This phenomenon is known as the Portevin-Le Chatelier (PLC) effect and depends on the strain rate and temperature⁹. This serration phenomenon has been reported for various metallic materials besides aluminum alloys^{10~13}. When serration occurs, a pattern may be formed on the material surface. For this reason, it is desirable to suppress the serration industrially, and many previous studies have investigated the serration occurrence conditions^{14, 15}.

Previous studies have reported that a negative strain rate dependence of the material strength has been observed for Al-Mg alloys at a quasi-static strain rate^{4, 14, 15}. In contrast, a positive strain rate dependence of material strength has been confirmed for a high strain rate^{15, 16}. This results from the effect of the solute Mg atoms, which can effectively lock the dislocation at a low strain rate and moderate the temperature (e.g., room temperature). However, the interaction between the Mg atoms and the dislocations decreases as the strain rate increases^{15, 16}.

The strain rate at which the strain rate dependence shifts from negative to positive has not yet been clarified^{4, 15}. For example, the boundary of the strain rate at which the negative strain rate dependence of the 5182 aluminum alloy (containing 4.5 wt.% Mg) is not observed at room temperature has been proposed as the dynamic strain rate of 10^0 s^{-1} ¹⁵. Therefore, it is important to determine the material properties of the Al-Mg alloys at the dynamic strain rate. Additionally, there exist few studies on the influence of the dynamic strain rate on the 5xxx series aluminum alloys with different amounts of Mg content.

In this study, in order to clarify the strain rate dependence of the serration behavior of Al-Mg alloys, tensile tests were conducted at room temperature and within a wide strain rate range, including the dynamic range. We also attempted to apply the constitutive equation to the material, including the strain rate effect.

2. Materials and Methods

2.1 Specimen

In this study, various 5xxx series aluminum alloys, namely, 5005, 5021, 5082, and 5182 aluminum alloys, with different amounts of Mg content were selected

and will be hereinafter referred to as the 5005 alloy, 5021 alloy, 5082 alloy, and 5182 alloy, respectively. In comparison with the 5082 and 5182 alloys, the Mg content amount was almost the same; however, the amount of the Mn content was different. In comparison with these Al-Mg alloys, commercial pure aluminum, namely, 1070 pure aluminum was also prepared. The chemical compositions and the average grain size of the investigated alloys are listed in **Table 1**.

The specimen geometry is shown in **Fig. 1**. All specimens were machined from rolled materials using a lathe. The gauge length of the specimen was 8 mm and its diameter was 5 mm. All of the specimens were annealed at 618 K in air. The annealing time was 3.6 ks for 1070 and 7.2 ks for the Al-Mg alloys, respectively. Subsequently, the specimens were furnace cooled to room temperature. Tensile tests were conducted three times for each strain rate using these specimens.

2.2 Tensile Test

2.2.1 Quasi-Static Test

Quasi-static tensile tests were performed at room temperature by using a universal testing machine (Instron, 5500R, USA). The initial strain rates ($\dot{\epsilon} = V/l$)

Table 1 Chemical compositions and the average grain size of the investigated alloys (mass. %).

Alloy	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al	Grain Size (μm)
1070	0.04	0.18	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.01	99.77	26
5005	0.16	0.29	0.03	0.02	0.76	0.00	0.01	0.01	Bal.	99
5021	0.13	0.27	0.07	0.25	2.28	0.03	0.03	0.03	Bal.	54
5082	0.11	0.20	0.03	0.14	4.50	0.06	0.02	0.01	Bal.	32
5182	0.09	0.20	0.05	0.34	4.40	0.02	0.03	0.02	Bal.	29

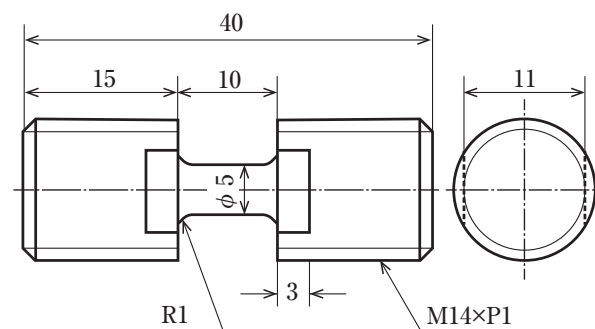


Fig. 1 Specimen geometry (mm).

$L: V$ is the crosshead speed and L is the gauge length) were chosen in the range of 1.0×10^4 to $1.0 \times 10^1 \text{ s}^{-1}$.

2.2.2 Dynamic Test

A dynamic tensile test¹⁷⁾ was conducted at room temperature by using the servo-hydraulic testing machine (Institute of Space Dynamics, HVUT-H-10T, Japan). The configuration of the testing apparatus is shown in **Fig. 2**. The capacity of the load cell, which was developed by our laboratory, was located at the end of the fixed rod and amounted to 10 kN. The displacement of the specimen was measured by using a laser displacement sensor (KEYENCE, LK-H155, Japan). The sampling rate was 100 kHz.

First, to stabilize the flow of the hydraulic system,

the piston moved downward without the load. Then, since the piston pulled the moving rod, the tensile load was applied to the specimen. Additionally, the displacement increased with the plastic deformation of the specimen. The specimen deformation was calculated by subtracting the outputs of two displacement sensors (sensor ① and ②). Because the pressure of the servo-hydraulic system increased slightly during the test, the strain rate also increased. The average strain rate during the test was calculated.

2.2.3 Impact Test

The SHB method^{2),3)} was used in the impact tensile test. **Fig. 3** shows the configuration of the SHB apparatus (Institute of Space Dynamics, ST-R-5000,

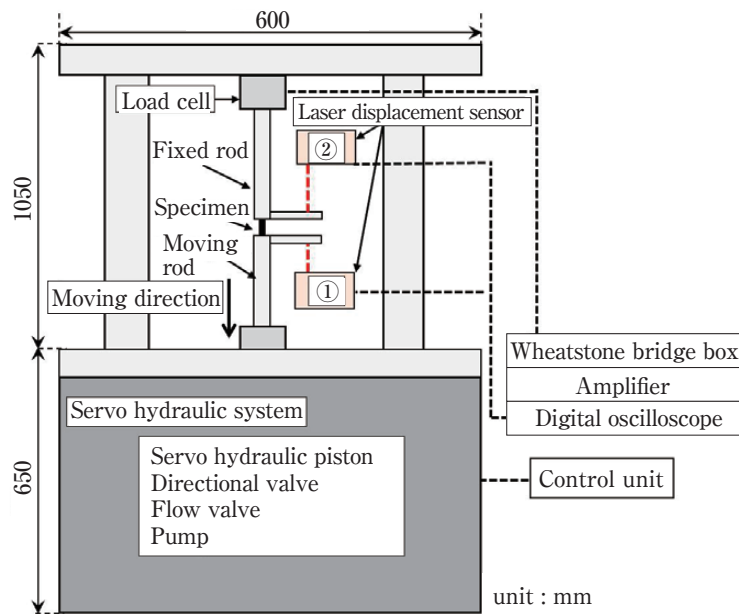


Fig. 2 Configuration of the servo-hydraulic testing apparatus¹⁷⁾.

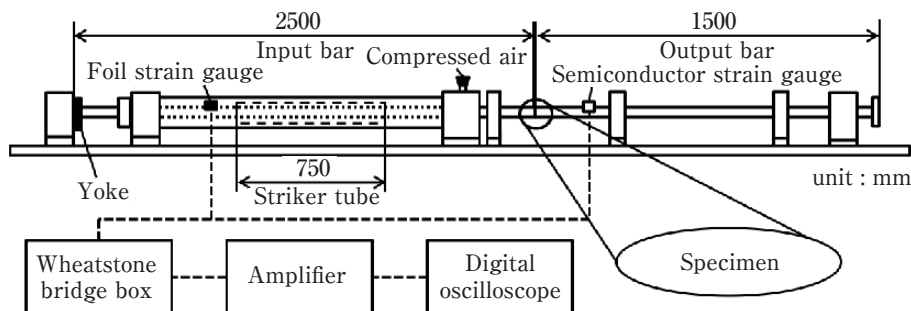


Fig. 3 Configuration of the split Hopkinson pressure (SHB) apparatus¹⁸⁾.

Japan)¹⁸⁾. The main components of this apparatus are the striker, input bar, and output bar. After the striker impacts the yoke, the tensile stress wave propagates through the input bar. When the wave reaches the specimen, part of it propagates through the output bar and the remaining part is reflected on the specimen. These waves were measured by using a foil strain gauge (KYOWA, KFG-2-120-C1-16, Japan) and semiconductor strain gauge (KYOWA, KSP-I-350-E4, Japan), which attached to the input and output bars, respectively. The sampling rate was 1 MHz.

By applying the one-dimensional elastic wave propagation theory, we were able to derive the nominal stress ($\sigma(t)$), nominal strain ($\varepsilon(t)$), and strain rate ($\dot{\varepsilon}(t)$) in the specimen, as follows:

$$\sigma(t) = \frac{AE}{A_S} \varepsilon_t(t) \quad (2)$$

$$\varepsilon(t) = \frac{2c_0}{l_s} \int_0^t [\varepsilon_i(t) - \varepsilon_t(t)] dt \quad (3)$$

$$\dot{\varepsilon}(t) = \frac{2c_0}{l_s} [\varepsilon_i(t) - \varepsilon_t(t)] \quad (4)$$

where A_s is the cross-sectional area of the specimen; A and E are the cross sectional area and Young's modulus of the input and output bars, respectively; c_0 is the velocity of the elastic wave; l_s is the gauge length of the specimen; $\varepsilon_i(t)$ and $\varepsilon_t(t)$ are the incident and transmitted waves, respectively. The average strain rate during the test was calculated by Equation (4).

3. Results

The stress-strain relationship of the 1070 is shown in **Fig. 4**. The flow stress increased significantly with the strain rate. It can be said that the 1070 exhibited a positive strain rate dependence, which is common behavior for 1100^{19), 20)}.

Fig. 5a-d shows the stress-strain relationship of the 5xxx series aluminum alloys and these enlarged views. In the 5005 alloy, a positive strain rate dependence was observed. However, in the 5021 alloy, which had a larger amount of Mg in comparison with

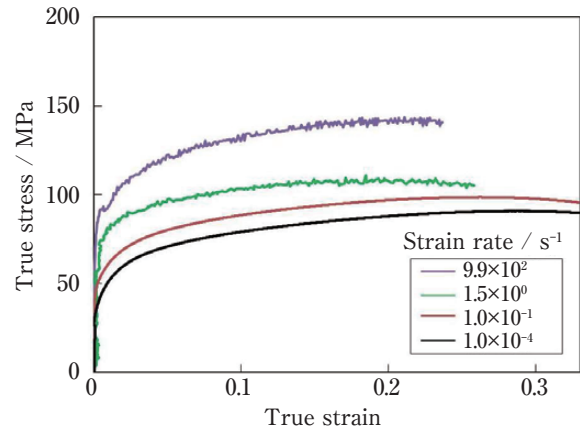


Fig. 4 Stress-strain relationship of 1070.

the 5005 alloy, the serration behavior could be confirmed in the strain rate range of 10^4 to 10^2 s^{-1} . Additionally, the negative strain rate dependence could be confirmed. However, the flow stress at the impact strain rate (7.9×10^2 s^{-1}) increased in comparison with the results obtained by the quasi-static test. In contrast, in the 5082 and 5182 alloys, the negative strain rate dependence was strong because the added Mg amount was large and induced serration in the quasi-static strain rate range of 10^4 to 10^1 s^{-1} . For the 5182 alloy, the flow stress increased slightly from the strain rate of 10^1 s^{-1} to the impact strain rate. This result was different from the result obtained with the 5082 alloy, which contained almost the same amount of Mg.

4. Discussion

4.1 Previous Studies on Serration Theory¹⁷⁾

In previous studies, the following mechanism of serration occurrence was proposed^{21), 22)}. First, the movement of the dislocations is prevented by short-range obstacles such as the forest dislocation and solute atom. Secondly, the dislocations are temporarily arrested for a certain amount of time, which is defined as the waiting time t_w . Finally, the dislocations overcome the obstacles and move to other obstacles. These processes are repeated and the movement of dislocation is discontinuous owing to interaction with the solute Mg atoms.

During the waiting time (t_w), the solute Mg atoms can move to the dislocations and temporarily lock

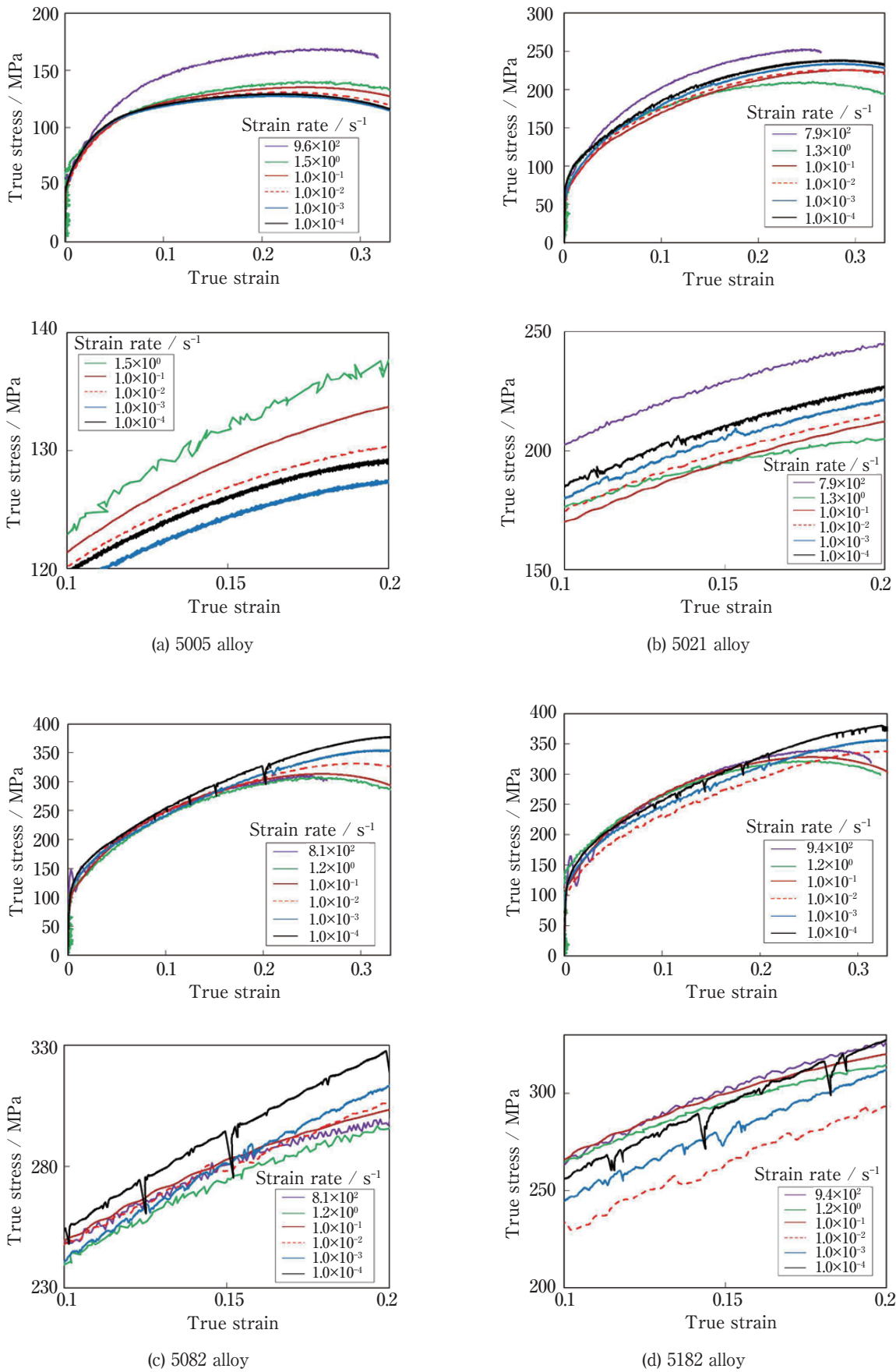


Fig. 5 Stress-strain relationship of (a) 5005 alloy, (b) 5021 alloy, (c) 5082 alloy, and (d) 5182 alloy and these enlarged views.

them. The waiting time is related to the strain rate as follows^{21), 22)}:

$$t_w = \frac{\rho b L}{\dot{\epsilon}} \quad (5)$$

where ρ is the dislocation density, b is the Burgers vector, and L is the average distance between the obstacles. If the dislocations are sufficiently locked by the solute Mg atoms, the serrations will start to appear²¹⁾. The condition necessary for the appearance of serration can be expressed as follows^{21), 23)}:

$$t_w \geq t_a \quad (6)$$

where t_a is the time required for the solute Mg atoms to fully lock the dislocations. It can be said that the smooth flow stress is observed if t_w is less than t_a ²¹⁾. Additionally, a previous study suggested that a negative strain rate dependence is closely related to the occurrence of serration⁴⁾.

4.2 Effect of Strain Rate on Serration Behavior

Here, we discuss the results obtained with the 5xxx series alloys in which serration occurred. From Equation (5), it can be said that t_w is sufficiently larger than t_a at low strain rate. This resulted in the negative strain rate dependence at low strain rates owing to the Mg atoms-dislocation interaction. In such cases, a large force is required to break the atmosphere of the Mg atoms. As the strain rate increased ($t_w < t_a$), the solute Mg atoms-dislocation interaction decreased²¹⁾. In fact, a smooth stress-strain curve was observed over the dynamic strain rate. It is known that the deformation of metals at a high strain rate can be understood by the thermal activation theory of dislocation motion²⁴⁾. According to this theory, overcoming short-range obstacles depends on the strain rate value. The deformation of pure aluminum is governed by this theory²⁰⁾, and can also be inferred from Fig. 4. For example, in the 5021 alloy, at high strain rate, the flow stress increased at strain rates from 1.0×10^0 to 7.9×10^2 s⁻¹. This suggests that the deformation mechanism of the 5021 alloy at these strain rates was similar to the deformation mechanism of 1070. At high strain rate, the thermal activation

theory became the dominant mechanism because the Mg atoms could not migrate to the dislocation at such high strain rate. The effect of the strain rate in other alloys will be discussed in detail in the next section.

As mentioned above, the effect of the solute Mg atoms depends on the strain rate. This exerts a significant effect on the mechanical properties of the Al-Mg alloy. To determine the dependence of the material strength on strain rate, it is important to obtain the material properties within a wide strain rate range. In particular, the dynamic strain rate range from 10^0 to 10^1 s⁻¹ is very important because the strain rate dependence of this alloy changes at those strain rates and significantly affects the development of the constitutive equation.

4.3 Positive Strain Rate of Flow Stress

The relationship between the flow stress and the strain rate of materials with a positive strain rate dependence is often used in the Johnson-Cook equation²⁵⁾. In this study, we attempted to fit the Johnson-Cook expression to the experimental results obtained with 1070. However the error in the experimental results was large. A previous study has reported that the relationship between the strain rate and the flow stress could not be expressed by the Johnson-Cook equation¹⁾.¹⁹⁾ For example, it is known that the flow stress of pure aluminum, such as the 1070 used in this study, exhibits an exponential curve as the strain rate increases¹⁹⁾. For this reason, to improve the Johnson-Cook equation, Khan et al. proposed the following expression^{15), 19)}:

$$\sigma = \left[A + B \epsilon^{n_0} \left(1 - \frac{\ln \dot{\epsilon}}{\ln D} \right)^{n_1} \right] \left(\frac{\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}_{\text{ref}}} \right)^C T^{*m} \quad (7)$$

where σ is the flow stress, ϵ is the plastic strain, $\dot{\epsilon}$ is the strain rate, $\dot{\epsilon}_{\text{ref}}$ is the reference strain rate, and T^* is the normalized temperature $T^* = (T_m - T) / (T_m - T_r)$, where T_m is the melting point temperature, T is the testing temperature, and T_r is the reference temperature. A , B , n_0 , D , n_1 , C , and m are material constants, and D is considered as 10^6 s⁻¹. In this study, for testing at room temperature, $T = T_r$. Thus, T^* was not considered. Additionally, $\dot{\epsilon}_{\text{ref}}$ was set to 10^{-4} s⁻¹, which was the slowest strain rate in this experiment.

Table 2 summarizes the material constants that

were determined to minimize the error between Equation (7) and the experimental result obtained with 1070. **Fig. 6** shows the relationship between the flow stress and the strain rate at the true strains of 0.05, 0.1, and 0.2 in the 1070. The curve obtained from Equation (7) is also shown in Fig. 6. The increase in the flow stress as the strain rate increased had a tendency that was similar to the relationship between the flow stress and the strain rate of the 1100 aluminum²³.

4.4 Negative Strain Rate of Flow Stress

There are few material constitutive equations that express a negative strain rate dependence. It is known that the negative strain rate dependence is closely related to the occurrence of serrations and greatly affected by the temperature and strain rate. This is because the pinning of dislocation largely depends on the diffusion rate of the Mg atoms and the movement rate of dislocation.

Many discussions have been conducted with regard to the temperature and strain rate conditions required for the serration to occur. In a previous study, it was reported that serration occurred in a 5182 alloy when the testing temperature was between 193 K and 383 K and the strain rate was 10^{-1}

s^{-1} or less. Kabrian et al.¹⁵⁾ investigated the strain rate dependence of the 5182 alloy and found that a negative strain rate dependence occurred under a temperature between 296 K and 373 K and strain rate of $10^0 s^{-1}$ or less. Therefore, they suggested the constituent rule expressed by the following equation:

$$\sigma = \left[A + B \varepsilon^{n_0} \left(1 - \frac{\ln \dot{\varepsilon}}{\ln D} \right)^{n_1} T^{*m_1} \right] \left\{ (\exp(K_1 \dot{\varepsilon}) - [C_1 \exp(-K_2 \dot{\varepsilon}) \left(\frac{T}{T_m} \right)^{m_2} \left(\frac{\varphi}{1+|\varphi|} \right)]) \right\} T^{*m_3} \quad (8)$$

where m_1 , K_1 , C_1 , K_2 , m_2 , and m_3 are constants. The other constants were the same as those in Equation (7). φ is a value representing the temperature dependence of serration occurrence and is defined by the following equation:

$$\varphi = \frac{T - T_C}{T_C} \quad (9)$$

where, T_C is the boundary temperature where the strain rate dependence changes from negative to positive. Kabrian et al. [15] set T_C to 373 K, and the same value was used in this study.

4.4.1 Effect of Mg Content

The material constants of the 5xxx series aluminum alloys were determined by changing the constants of Equation (8) and are summarized in **Table 3**. The relationship between the flow stress and the strain rate of the 5021 and 5082 alloys indicated a typical behavior, as shown in **Fig. 7**. The curves obtained from Equation (8) are also shown in this figure. The change of the flow stress with the increasing strain rate roughly agreed with the model shown in Equation (8). For both the 5021 and 5082 alloys, it was possible to confirm a negative strain rate dependence up to the strain rate of approximately $10^0 s^{-1}$.

Table 2 Parameter values of 1070 aluminum for Equation (7).

A	B	n_0	n_1	C
33	97	0.185	-0.64	0

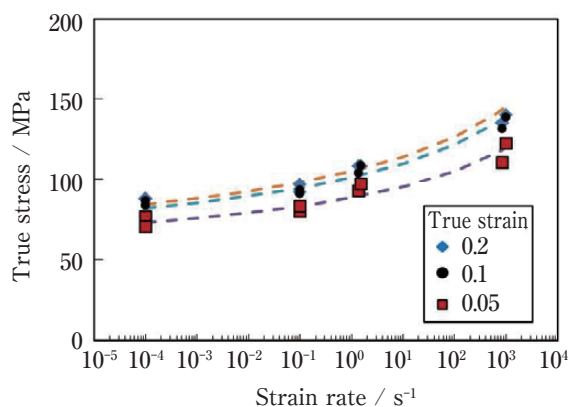


Fig. 6 Stress and strain rate relationship of 1070 aluminum. The curves indicated by broken line were obtained from Equation (7).

Table 3 Obtained parameters of Equation (8) in 5xxx series aluminum alloys.

Alloy	A	B	n_0	n_1	K_1	C_1	K_2	m_2
5005	23.11	154.70	0.20	-0.07	0.00016	0.00	0.00	0.00
5021	25.41	359.60	0.38	0.02	0.00016	1.06	693.62	1.09
5082	78.00	507.13	0.50	0.00009	0.00001	59.6	1358.60	4.38
5182	79.90	485.88	0.50	0.00	0.00013	1.03	599.89	0.28

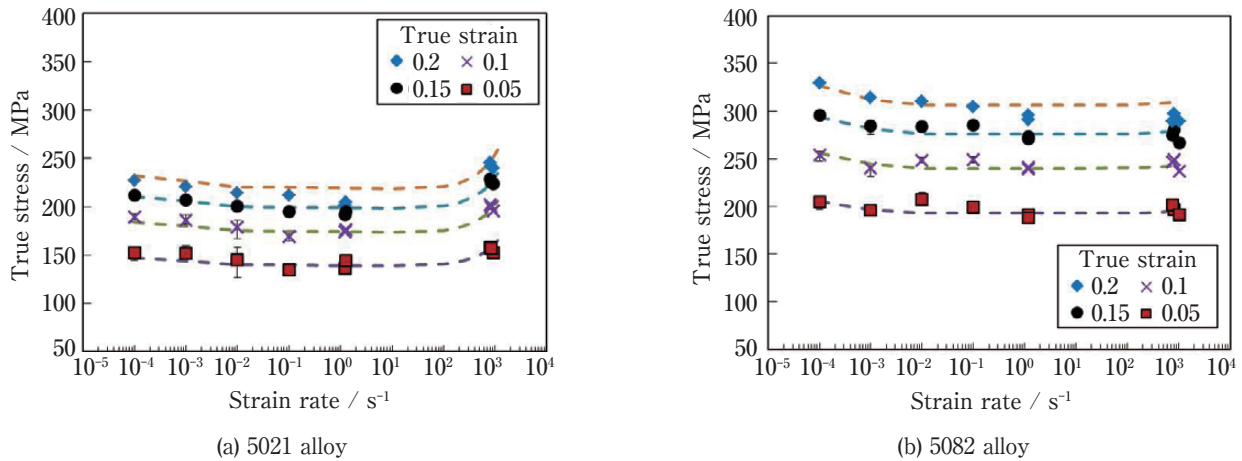


Fig. 7 Stress and strain rate relationship of (a) 5021 and (b) 5082 aluminum alloys. Curves indicated by dashed lines were obtained from Equation (8).

Fig. 8 summarizes the relationship between the flow stress and the strain rate at the true strain of 0.2 in the investigated pure aluminum and aluminum alloys. As the amount of Mg increased, the strength increased by the solid solution hardening, while the negative strain rate dependence increased at a low strain rate. This occurred because the deformation resistance inside the material increased by the pinning of dislocation as a result of the Mg solution, which was strongly affected by the large amount of Mg content and the low strain rate, as mentioned above. The effect of the solid solution hardening caused by the Mg content was confirmed even with the 5005 alloy, whose Mg content was smaller than that of other alloys. However, the pinning effect of the dislocation was weak since the amount of Mg addition was small. Therefore, it was assumed that the positive strain rate dependence was confirmed, because in the 5005 alloy with a small amount of Mg content, the chemical composition tended towards that of pure aluminum. However, the positive strain rate dependence was smaller than that of 1070, since the 5005 alloy had more obstacles preventing the dislocation movement, as compared with 1070.

4.4.2 Effect of Mn Content

In the 5182 alloy, the flow stress decreased monotonically as the strain rate increased from 1×10^{-4} to 1×10^2 s^{-1} . However, the flow stress increased when the strain rate increased from 1×10^1 s^{-1} to

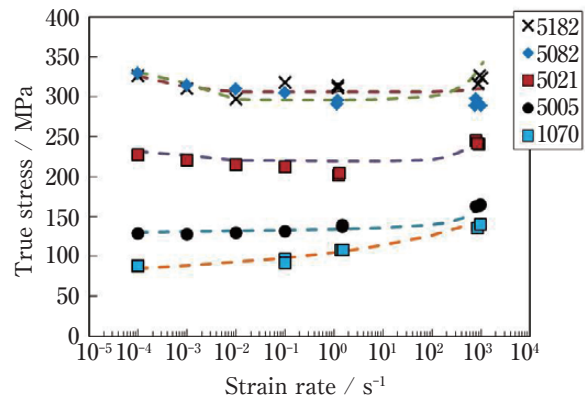


Fig. 8 Relationship between the flow stress and the strain rate at the true strain of 0.2 in the investigated pure aluminum and the aluminum alloys.

approximately 1×10^3 s^{-1} in comparison with above strain rate range. This behavior was similar to the relationship between the strain rate and the flow stress of the same alloy, which has been reported by a previous study²⁶⁾. However, it was different from the behavior of the 5082 alloy, which contained almost the same Mg amount. Because the average grain sizes of the 5082 and 5182 alloys were 32 and 29 μm , respectively, as shown in Table 1, it was considered that their influence was negligible. Thus, the effect of additives was considered because both alloys differed in the amount of Mn content.

Essentially, the Mn element behaves as a solid solution, similar to the Mg element in an aluminum alloy. However, it has been reported that some Mn elements produce the dispersive phases of Al_6Mn

(intermetallic compound)²⁷. Therefore, to confirm the influence of the microstructure by the added Mn content, the observation of the dispersive phase in the 5082 and 5182 alloys was attempted by using a Transmission Electron Microscope (TEM). The thin film for the TEM was prepared by electro-polishing. Constituted elements of the particles observed in TEM images were also analyzed by Energy Dispersive Spectroscopy (EDS). **Fig. 9** shows the bright-field TEM images of the 5082 and the 5182 alloys. According to TEM observation, microstructures were significantly different between the 5082 and the 5182 alloys. Comparatively coarse particles and fine particles were observed in the 5082 alloy. In contrast, spherical particles and needle-like particles adjacent to the

spherical particles were observed in the 5182 alloy, and both particles size was as large as the coarse particles in 5082 alloy. By EDS analysis (**Fig. 10**), the coarse particles in the 5082 alloy were Mg_2Si compound and fine particles were Al-Mn-Fe or Al-Cr compound. In the 5182 alloy, spherical and needle-like particles were Al-Mn-Fe-Si compound and Mg_2Si compound, respectively. Number densities of particles in the 5082 and the 5182 alloys were $2.9/\mu m^3$ and $4.9/\mu m^3$, respectively.

As the solute Mg of Al phase increased, the negative strain rate dependence expanded to a high strain rate because of the Portevin-Le Chatelier (PLC) effect. The 5082 and the 5182 alloys homogenization treatment carried out at around 773 K for 21.6 ks after casting. In

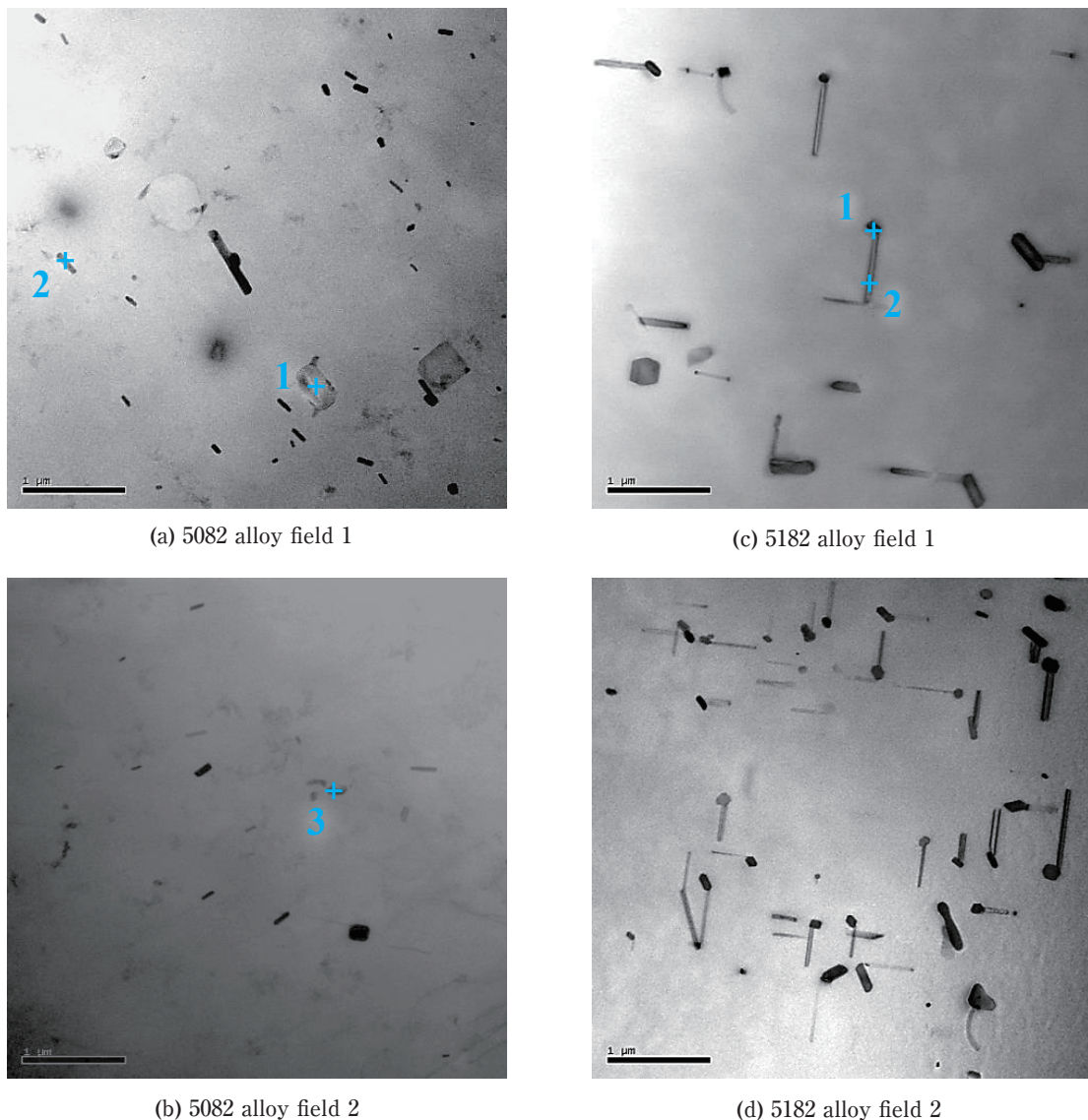
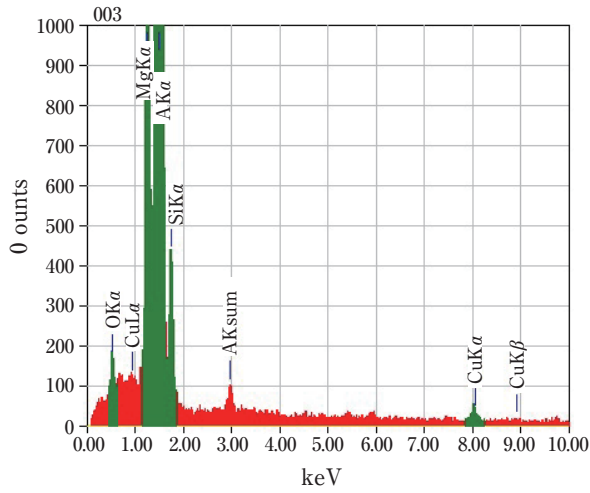
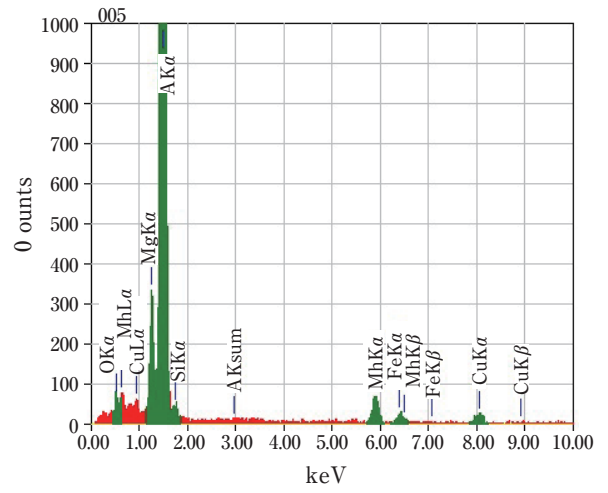


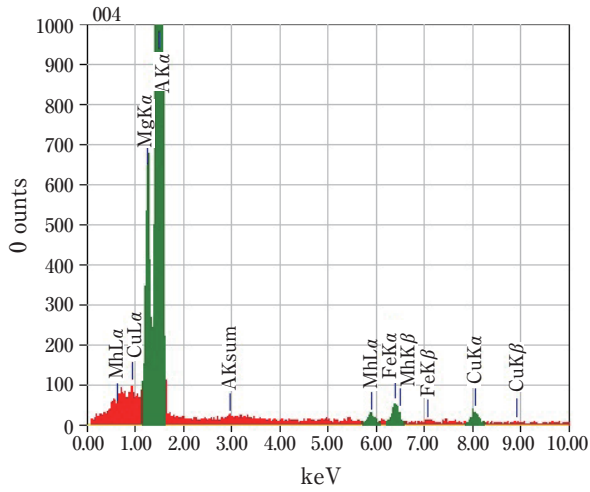
Fig. 9 TEM images of 5082 and 5182 alloys. (a) 5082 alloy field 1, (b) 5082 alloy field 2, (c) 5182 alloy field 1, (d) 5182 alloy field 2.



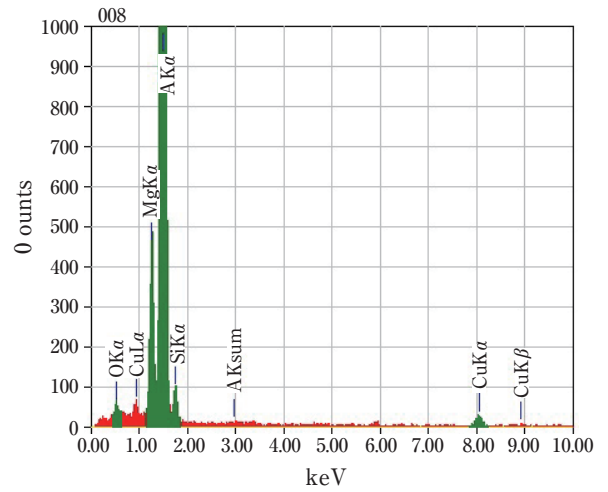
(a) Coarse particle 1 (Mg_2Si)
5082 alloy



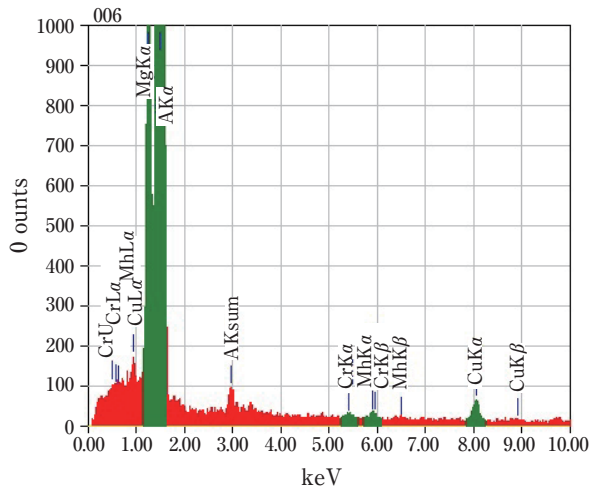
(d) Spherical particle 1 (Al-Mn-Fe compound)
5182 alloy



(b) Fine particle 2 (Al-Mn-Fe compound)
5082 alloy



(e) Needle-like particle 2 (Mg_2Si)
5182 alloy



(c) Fine particle 3 (Al-Cr compound)
5082 alloy

Fig. 10 EDS analysis of the particles for 5082 and 5182 alloys in Fig.9. (a) Coarse particle 1 (Mg_2Si) in 5082 alloy, (b) Fine particle 2 (Al-Mn-Fe compound) in 5082 alloy, (c) Fine particle 3 (Al-Cr compound) in 5082 alloy, (d) Spherical particle 1 (Al-Mn-Fe compound) in 5182 alloy, (e) Needle-like particle 2 (Mg_2Si) in 5182 alloy.

the 5182 alloy, including more Mn than the 5082 alloy, Al-Mn-Fe-Si compounds precipitated and coarsened during homogenization treatment. Then, Mg₂Si compounds precipitated on Al-Mn-Fe-Si compounds as precipitation sites, and grew to the needle-like shape during annealing at 618 K for 7.2 ks, whereas in the 5082 alloy, precipitation of Mn bearing compounds would be prevented during homogenization treatment; as a result, there might be less precipitation sites of Mg₂Si in the 5082 alloy. According to the precipitation of Mg₂Si, solute Mg of Al phase in the 5182 alloy would be less than that in the 5082 alloy. Thus, it is suggested that the negative strain rate dependence in the high strain rate would disappear and flow stress would increase in the 5182 alloy. Additionally, in the 5182 alloy, the particle size was larger and number of precipitates was more than the 5082 alloy, which would cause the increase of flow stress.

Fig. 10 EDS analysis of particles for 5082 and 5182 alloys in Fig. 9. (a) Coarse particle 1 (Mg₂Si) in 5082 alloy, (b) Fine particle 2 (Al-Mn-Fe compound) in 5082 alloy, (c) Fine particle 3 (Al-Cr compound) in 5082 alloy, (d) Spherical particle 1 (Al-Mn-Fe compound) in 5182 alloy, (e) Needle-like particle 2 (Mg₂Si) in 5182 alloy.

4.4.3 Influence of Temperature Increase Caused by Adiabatic Heating in Impact Test

In a previous study on Al-Mg alloys, the tendency of the negative strain rate dependence was confirmed up to the strain rate of approximately 10^3 s^{-1} ²⁶⁾. Additionally, it was proposed that the temperature increase caused by adiabatic heating may also affect the pinning effect of the Mg atoms in the impact test²⁶⁾. This temperature increase is expressed by the following equation¹⁵⁾:

$$\Delta T = \frac{\eta}{c\rho} \int_0^{\varepsilon} \sigma d\varepsilon \quad (10)$$

where ε is the plastic strain, η is the ratio representing the transformation of the plastic work transformed into heat, and c , and ρ are the specific heat and density of the materials, respectively. The value of η was 0.9 for pure aluminum²⁸⁾, and this value was also used in this study. The values of c and ρ were taken from the literature²⁹⁾ and were $900 \text{ J}/(\text{kg} \cdot \text{K})$ and $2660 \text{ kg}/\text{m}^3$,

respectively. In the impact test of the 5082 alloy, the temperature increase that was calculated from the plastic work up to the strain of the maximum stress was approximately 20 K. It was surmised that this temperature increase did not affect the change in the flow stress. However, the effect of the temperature increase on the pinning effect was undeniable. In future work, it will be necessary to clarify the effect of the temperature and strain rate on the basis of the thermal activation theory of dislocation in the Al-Mg alloy.

5. Conclusions

In this study, we investigated commercial pure aluminum (1070) and commercial aluminum alloys with different Mg content amounts (5005 alloy, 5021 alloy, 5082 alloy, and 5182 alloy) and obtained their tensile properties within a wide strain rate range of 1.0×10^{-4} to $1.0 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ under room temperature. The dynamic and the impact tensile tests were conducted by using the servo-hydraulic testing machine and SHB apparatus, respectively. The 1070 exhibited the positive strain rate dependence governed by thermal activation theory of dislocation motion. On the other hand, it was found that the 5xxx series aluminum alloys exhibited mainly negative strain rate dependence and serration depending on the Mg content and the strain rate, which was caused by the PLC effect. However, the flow stress increased at high strain rate in investigated Al-Mg alloy. Therefore, the thermal activation theory became the dominant mechanism because the Mg atoms could not migrate to the dislocation at such high strain rate. As a result of using the material constitutive equation for the negative strain rate dependence, which has been proposed by Kabirian et al.¹⁵⁾, it was found that the flow stress may change in the dynamic strain rate range. However, by comparing the results obtained with the 5082 and the 5182 alloys, it was found that the strain rate dependence differed. It would be caused by less solute Mg of Al phase in 5182 alloy than 5082 alloy, because more Mg₂Si compounds precipitated on Mn bearing particles as precipitation sites in 5182 alloy. In addition, it was surmised that the temperature increase caused by adiabatic heating did not affect the change in the flow

stress in the investigated Al-Mg alloys.

Acknowledgments: The authors would like to thank Kinya Ogawa from the Institute of Space Dynamics (Japan) for assisting with the conduct of the dynamic and impact tensile test.

References

- 1) Huh, H., Ahn, K., Lim, J.H., Kim, H.W. and Park, L.J.: "Evaluation of dynamic hardening models for BCC, FCC and HCP metals at a wide range of strain rates," *J. Mater. Proc. Tech.*, **214** (2014), 1326–1340.
- 2) Hopkinson, B.: "A method of measuring the pressure produced in the detonation of high explosives or by the impact of bullets," *Philos. Trans. R. Soc. London A*, **213** (1914), 437–456.
- 3) Kolsky, H.: "An investigation of the mechanical properties of materials at very high rates of loading," *Proc. Phys. Soc. Sect. B*, **62** (1949), 676–700.
- 4) Reed, J.M. and Walter, M.E.: "Observations of serration characteristics and acoustic emission during serrated flow of an Al-Mg alloy," *Mater. Sci. Eng. A*, **359** (2003), 1–10.
- 5) Fan, G.J., Wang, G.Y., Choo, H., Liaw, P.K., Park, Y.S., Han, B.Q. and Lavernia, E.J.: "Deformation behavior of an ultrafine-grained Al-Mg alloy at different strain rates," *Scr. Mater.*, **52** (2005), 929–933.
- 6) Picu, R.C., Vincze, G., Ozturk, F., Gracio, J.J., Barlat, F. and Maniatty, A.M.: "Strain rate sensitivity of the commercial aluminum alloy AA5182-O," *Mater. Sci. Eng. A*, **390** (2005), 334–343.
- 7) Coër, J., Manach, P.Y., Laurent, H.M., Oliveira, C. and Menezes, L.F.: "Piobert-Lüders plateau and Portevin-Le Chatelier effect in an Al-Mg alloy in simple shear," *Mech. Res. Commun.*, **48** (2013), 1–7.
- 8) Cai, Y., Yang, S., Fu, S., Zhang, D. and Zhang, Q.: "Investigation of Portevin-Le Chatelier band strain and elastic shrinkage in Al-based alloys associated with Mg contents," *J. Mater. Sci. Tech.*, **33** (2017), 580–586.
- 9) Brindley, B.J. and Worthington, P.J.: "Serrated yielding in Aluminium-3% Magnesium," *Acta Metall.* **17** (1969), 1357–1361.
- 10) Eremin, V. I.: "Effect of sample cross-section geometry and loading type on low temperature unstable plastic deformation," *Scr. Metall. Mat.* **25** (1991), 2215–2219.
- 11) Zhu, S.M. and Nie, J.F.: "Serrated flow and tensile properties of a Mg-Y-Nd alloy," *Scr. Mater.*, **50** (2004), 51–55.
- 12) Garat, V., Cloue, J.-M., Poquillon, D. and Andrieu, E.: "Influence of Portevin-Le Chatelier effect on rupture mode of alloy 718 specimens," *J. Nuclear Mater.*, **375** (2008), 95–101.
- 13) Wang, Z., Li, J., Yuan, B., Wu, R., Fan, J. and Wang, B.: "Serration behavior in Pd_{77.5}Cu₆Si_{16.5} Alloy," *Metals*, **6** (2016), 191.
- 14) Rusinek, A. and Rodríguez-Martínez, J.A.: "Thermo-viscoplastic constitutive relation for aluminium alloys, modeling of negative strain rate sensitivity and viscous drag effects," *Mater. Des.*, **30** (2009), 4377–4390.
- 15) Kabirian, F., Khan, A.S. and Pandey, A.: "Negative to positive strain rate sensitivity in 5xxx series aluminum alloys: Experiment and constitutive modeling," *Int. J. Plast.*, **55** (2014), 232–246.
- 16) Huskins, E.L., Cao, B. and Ramesh, K.T.: "Strengthening mechanisms in an Al-Mg alloy," *Mater. Sci. Eng. A*, **527** (2010), 1292–1298.
- 17) Kami, T., Yamada, H. and Ogasawara, N.: "Dynamic behaviour of Al-Mg aluminum alloy at a wide range of strain rates," *EPJ Web Conf.* (accepted).
- 18) Yamada, H., Tsurudome, M., Miura, N., Horikawa, K. and Ogasawara, N.: "Ductility loss of 7075 aluminum alloys affected by interaction of hydrogen, fatigue deformation, and strain rate," *Materials Science and Engineering, A*, **642** (2015), 194–203.
- 19) Khan, A.S. and Huang, S.: "Experimental and theoretical study of mechanical behavior of 1100 aluminum in the strain rate range 10⁻⁵-10⁴ s⁻¹," *Int. J. Plast.*, **8** (1992), 397–424.
- 20) Huang, S. and Khan, A.S.: "Modeling the mechanical behaviour of 1100-0 aluminum at different strain rates by the bodner-partom model," *Int. J. Plast.*, **8** (1992), 501–517.
- 21) McCormick, P.G.: "A model for the Portevin-Le Chatelier effect in substitutional alloys," *Acta Metall.*, **20** (1972), 351–354.
- 22) Kubin, L.P.; and Estrin, Y.: "Evolution of dislocation densities and the critical conditions for the Portevin-Le Chatelier effect," *Acta Metall. Mater.*, **38** (1990), 697–708.
- 23) Wang, C., Xu, Y. and Han, E.: "Portevin-Le Chatelier effect of LA41 magnesium alloys," *Front. Mater. Sci. China*, **1** (2007), 105–108.
- 24) Salvado, F.C., Teixeira-Dias, F., Walley, S.M., Lea, L.J. and Cardoso, J.B.: "A review on the strain rate dependency of the dynamic viscoplastic response of FCC metals," *Prog. Mater. Sci.*, **88** (2017), 186–231.
- 25) Johnson, G.R. and Cook, W.H.: "A constitutive model and data for metals subjected to large strains, high strain rates, and high temperatures," *Proc. 7th Inter. Sympo. Ballistics* 1983, 541–547.
- 26) Mukai, T., Ishikawa, K. and Higashi, K.: "Strength and ductility under dynamic loading in fine-grained IN905XL aluminum alloy," *Metall. Mater. Trans. A*, **26A** (1995), 2521–2526.
- 27) The Japan Institute of Light Metals: "Structures and Properties of Aluminum," *The Japan Institute of Light Metals*, (1991), 221.
- 28) Hayashi, T., Yamaura, H. and Shigeru, O.: "Temperature measurement of metals under high velocity deformation," *Proc. 20th Japan Cong. Mater. Res.*, (1977), 94–98.
- 29) Zhao, K. and Fan, R.: "The effect of pulse electric current on the mechanical properties and fracture behaviors of aluminum alloy AA5754," *J. Eng. Mater. Tech.*, **138** (2016), 041009.



Hiroyuki Yamada
Department of Mechanical Engineering,
National Defense Academy



Tomoyuki Kudo
Development Department I ,
Research and Development Division,
UACJ Corporation



Tsuyoshi Kami
Graduate School of Science and Engineering,
National Defense Academy



Minemitsu Okada
No.1 Product Design Section,
Quality Assurance Department,
UACJ (Thailand) Co., Ltd.



Ryota Mori
Development Department I ,
Research and Development Division,
UACJ Corporation

Al-Si系合金単層材を用いたろう付の接合性と耐変形性に及ぼすSi量の影響*

黒崎 友仁**, 村瀬 崇***, 寺山 和子****, 石雅和*****
戸次 洋一郎**, 二宮 淳司*****, 新倉 昭男*****

Influence of the Si content on the Bonding Ability and the Deformation Resistance during Brazing in Al-Si Alloy Single Layer Materials*

Tomohito Kurosaki**, Takashi Murase***, Kazuko Terayama****, Masakazu Seki*****
Yoichiro Betsuki**, Junji Ninomiya*****, and Akio Niikura*****

In the conventional brazing method, a filler material is required. The filler material melts at the brazing temperature and bonds the members. This study demonstrates a new brazing method where the aluminum members are bonded without a filler material by using the liquid phase provided from the Al-Si alloy single-layer material. In the new method, the Al-Si alloy single layer material partially melts and provides the liquid phase during brazing. Generally, the amount of liquid phase is influenced by the Si content. Therefore, we investigated the influence of Si content on the bonding ability and deformation resistance in a single-layer material. The bonding ability was evaluated by using a test piece made of fin and base materials, and the deformation resistance was evaluated by a sagging test. The bonding ability increased with Si content, but the deformation resistance decreased. We clarified that the trade-off between these properties can be avoided by using Al-2.5mass%Si alloy at 600°C brazing. We also investigated the influence of Si content on the metal structure and changes in the metal structure during brazing. Accordingly, we clarified that a spherical liquid phase formed from the Si phase and a laminar liquid phase formed through the grain boundaries.

Keywords: Al-Si alloy; brazing; semi-solid;

1. 緒言

自動車用熱交換器、デバイス用ヒートシンクなどのように多数の接合点を金属接合する製品では、アルミニウム部材同士のろう付が利用されている¹⁾⁻⁵⁾。ろう

付ではろう材を層状に張り合わせたクラッド材^{6),7)}や置きろうなどが使用されている。しかしクラッド材を製造するためには、心材とろう材を casting 時や熱間圧延時にクラッドする必要があり、単層材を製造するより著しく生産性が低く、コストが高いという課題があっ

* 本稿の主要部分は、軽金属, 68 (2018), 125-132に掲載。

The main part of this paper has been published in the Journal of Japan Institute of Light Metals, 68 (2018), 125-132.

** 株式会社UACJ R&Dセンター 第一研究部

Research Department I, Research & Development Division, UACJ Corporation

*** 乳源東陽光UACJ精箔有限公司

Ruyuan Dongyangguang UACJ Fine Aluminum Foil co., Ltd.

**** 株式会社UACJ 板事業本部深谷製造所 品質保証部

Quality Assurance Department, Fukaya Works, Flat Rolled Products Division, UACJ Corporation

***** 株式会社UACJ 板事業本部深谷製造所 製造部

Production Department, Fukaya Works, Flat Rolled Products Division, UACJ Corporation

***** 株式会社UACJ R&Dセンター 研究企画業務部

Research Planning & General Service Department, Research & Development Division, UACJ Corporation

***** 株式会社UACJ R&Dセンター 第二・第三開発部, 博士(工学)

Develop Department II and III, Research & Development Division, UACJ Corporation, Ph. D. (Eng.)

た。また、板厚が0.05 mmを下回るような薄い材料やクラッド率が低い材料では、ろう材層を安定的に形成することができず製造が困難であった。一方、置きろうを使用する場合、あらかじめ製造した置きろうをろう付け前に製品に合わせて設置する必要があった。これらの課題の解決には、従来のクラッド材において心材が担っていた構造を保つ役割と、ろう材が担っていた継手を接合する役割を単層の材料で担わせることが必要である。すなわち、ろう付時に大きな変形をせず構造を保ちつつ、ろう付時に液体となって接合部を充填し接合部材同士を金属接合する役割である。そこで我々は、単層材を用いてろう付加熱中に部分的に液相を生成させ固相部分で構造を保つ方法を検討した。

単層材において部分的に液相を生成させて接合する技術として、半熔融状態の材料に接合部材を差し込んで接合する技術⁸⁾や、半熔融状態で突合せ圧力を加えながら接合する技術⁹⁾が検討されている。しかしこれらは、半熔融した単層材に変形を伴う点や特定の方向に強く圧力を掛けながら接合する点から、多数の接合点を同時に接合して構造体を製造するろう付に不向きであった。一方、ろう付に関する過去のクラッド材の知見¹⁰⁾から、ろう材のケイ素量を低減すると発生する液相量が減少すると共に、残存する固相量が多くなりろう材層が流出せず、ろう付後も残存する現象が確認されていた。

我々はこの現象に着目し、さらにケイ素量や金属組織を制御することで、構造体としての形状を維持しつつ、接合に必要な液相を供給できる単層材が実現できるのではないかと考えた。しかしケイ素量を低減すると液相量が減少し、接合性を確保するのが困難になる懸念があった。また、半熔融状態では液相量の増加により急激に材料の強度が低下することが報告されている¹¹⁾ことから、ケイ素量が多すぎると耐変形性を維持できない懸念があった。上述の観点から、本報では単層材によるろう付の実現のために、Al-Si系合金単層材における接合性と耐変形性へのケイ素量の影響を明らかにする。

2. 実験方法

本実験に検討したろう付用材料の化学成分を **Table 1** に示す。Al-Si系合金から成る単層材はDC 鋳造、熱間圧延、冷間圧延、中間焼鈍と最終冷間圧延を行い、板厚0.2 mm及び0.07 mmのH12調質にて作製した。クラッド材は3003アルミニウム合金にZnを2.5mass%添加した心材の両面に4343アルミニウム合金を10%クラッドし、前記単層材の工程に準じて板厚0.07 mm、H14調質にて作製した。**Fig. 1** にAl-2.5mass%Si単層材とクラッド材の断面光学顕微鏡観察像を示す。Fig. 1 (a)の単層材では板厚方向で第二相粒子分布の明確な変化はないが、Fig. 1 (b)のクラッド材では図中の上部及び下部の皮材部分に比較的大きな粒子が存在していた。

これらのろう付用材料を用いて、**Fig. 2**に示す形状の試験片を作製した。板厚0.2 mmのろう付用材料はベース材として用いるため、幅16 mm、長さ70 mmに切断した。組み合わせるフィン材には板厚0.05 mmのろうを生成しないAl-Mn系合金ベア材を使用した。板厚0.07 mmのろう付用材料はフィン材として用いるため、幅16 mm長さ300 mm程度に切断した後、フィン高さ5 mm、フィンピッチ2.5 mm、先端曲率半径0.3 mmのコレットフィン形状に成形し長さ60 mmに切断した。組み合わせるベース材にはろうを生成しない工業用純アルミニウム製の多穴管を使用した。Al-Mn系合金や工業用純アルミニウムは共にろう付温度において液相が生成せずかつフラックスと反応を起こしにくい材料、相手材として使用した。板厚0.2 mmのろう付用材料は参考文献¹⁰⁾で使用されているクラッド材の板厚を模擬し、ケイ素量による影響を明らかにする基礎検討のために使用した。板厚0.07mmのろう付け用材料はフィン材への適用を想定し、一般的クラッドフィン材と特性を比較するために使用した。組立はフィン材を挟むようにベース材を設置し、さらにその両外側に幅16 mm、厚さ1 mmのベース材よりも約50 mm長いステンレス製板材を設置し、ステンレス製板材の両端に取り付けられたねじとボルトを締め両ステンレス製

Table 1 Chemical composition of the alloys.

Alloys	Composition (mass%)								
	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
Al-2.0mass%Si	1.94	0.03	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	0.01	Bal.
Al-3.0mass%Si	2.92	0.04	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	0.01	Bal.
Al-4.0mass%Si	3.94	0.05	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	0.01	Bal.
Al-2.5mass%Si	2.52	0.04	0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	0.01	Bal.
3003+2.5Zn	0.51	0.17	0.16	1.06	<0.01	<0.01	2.39	0.01	Bal.
4343	7.60	0.20	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	0.01	0.01	Bal.

板材を固定することで、ベース材とフィン材を間接的に固定した。固定の強さはベース材とフィン材が落下しない程度の最小限に留めた。

このように組み立てた試験片に対して、フッ化物系フラックス（森田化学社製、製品名称FL7）を5mass%含む溶液に浸漬し、70℃の恒温槽で600 s乾燥した。その後、雰囲気制御ろう付炉（ノコロックブレージング炉）にて窒素雰囲気中で600℃、180 sのろう付加熱を行い、フィンとチューブを模した試験片を作製した。この時窒素雰囲気中の酸素濃度は50 ppm以下、露点は-50℃以下に管理した。炉中の温度は600～610℃に制御し、試験片に設置した熱電対の温度が600℃±2℃を示す状態で180 s保持した。試験片は各組み合わせにつき一つ作製した。

作製した試験片を長さ20 mm程度に切断し、幅方向に垂直な断面を観察できるようにエポキシ系樹脂に埋め込んだ。樹脂硬化後、エメリー紙及びバフを使用して

鏡面研磨した。その後ケラー氏液に常温で20 sec浸漬してエッチングを施し、接合部断面観察用サンプルとした。上記サンプルのフィン材とベース材が接合している部位を光学顕微鏡で観察し、接合部長さを測定することで接合性を評価した。接合部長さは各組合せの試験片一つずつからそれぞれ一つ切り出したサンプルを使用し、光学顕微鏡で接合部を三箇所撮影した画像から画像解析ソフト（ImageJ）を用いて測定した。接合部長さの測定例をFig. 3 (a)に示す。接合部に形成されているフィレットにおける両方のR部が最も近づく2点を直線で結び、長さを測定した。また、板厚0.2 mmのろう付用材料をベース材に使用した実験では、同じ光学顕微鏡観察像からベース材の変形量を測定して耐変形性を評価した。変形量の測定例をFig. 3 (b)に示す。変形量はベース材の下側の板表面のうち未変形部を結ぶ補助線を引き元の板形状を再現し、補助線から最もベース材が離れている点と補助線との距離を画像解析ソフト（ImageJ）で測定して求めた。フィン材として使用した板厚0.07 mmのろう付用材料は耐変形性をサグ試験¹²⁾で評価した。サグ試験ではろう付用材料を幅16 mm、突き出し長さ30 mmに調整し、サグ試験用のジグにセットした状態でろう付模擬加熱に供した。加熱条件は600℃、180 sとし、雰囲気は窒素雰囲気とした。窒素雰囲気中の酸素濃度は50 ppm以下、露点は-50℃以下とした。サグ試験はろう付加熱中の材料の耐変形性を相対的に評価する手法である。所定の突き出し長さで片持ち梁の状態ですらう付模擬加熱を行い、加熱中に自重で変形し垂れ下がる量を加熱後に垂下量として測定した。本研究では、一緒に加熱したAl-2.5mass%Si単層材とクラッド材の垂下量を比較して耐変形性を相対的に評価した。

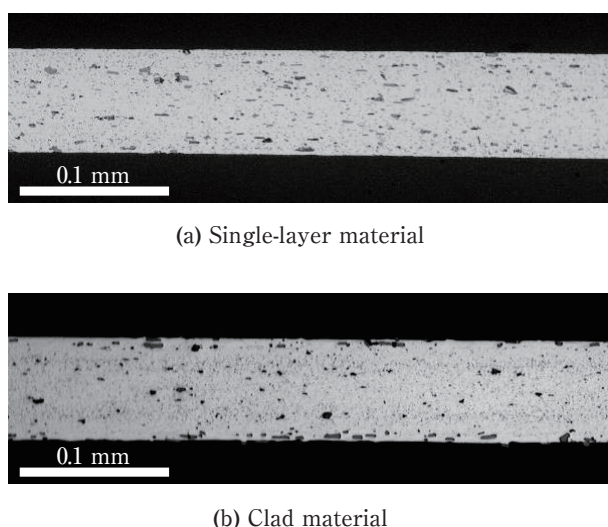


Fig. 1 Difference in the cross-sectional microstructures between the single-layer material and the clad material before brazing.

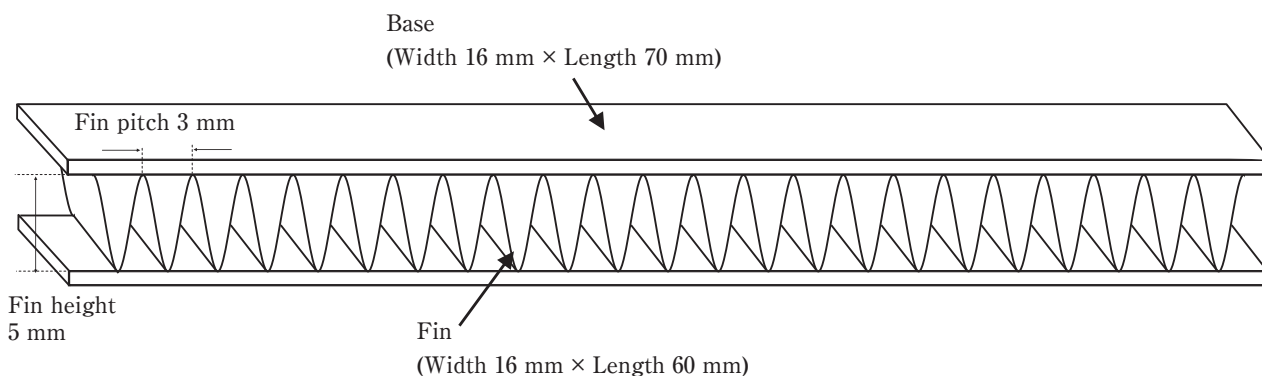


Fig. 2 Schematic of the test piece.

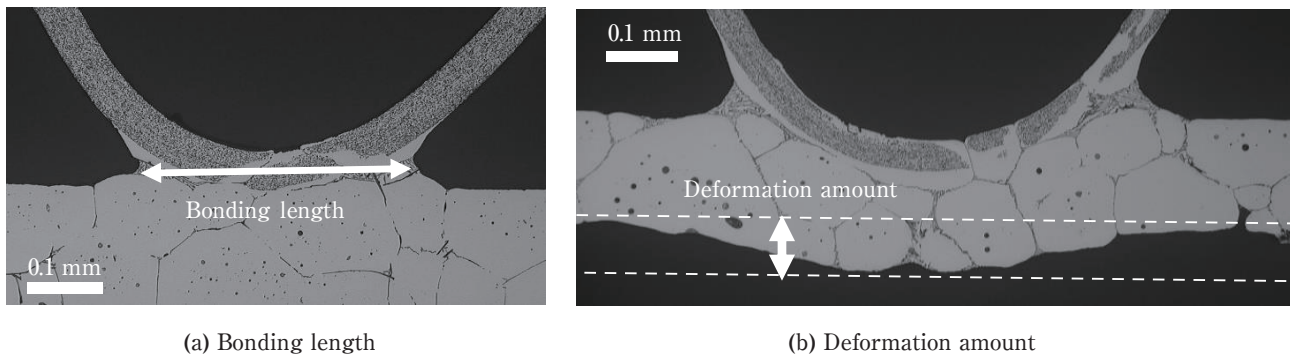


Fig. 3 Examples of the measurement.

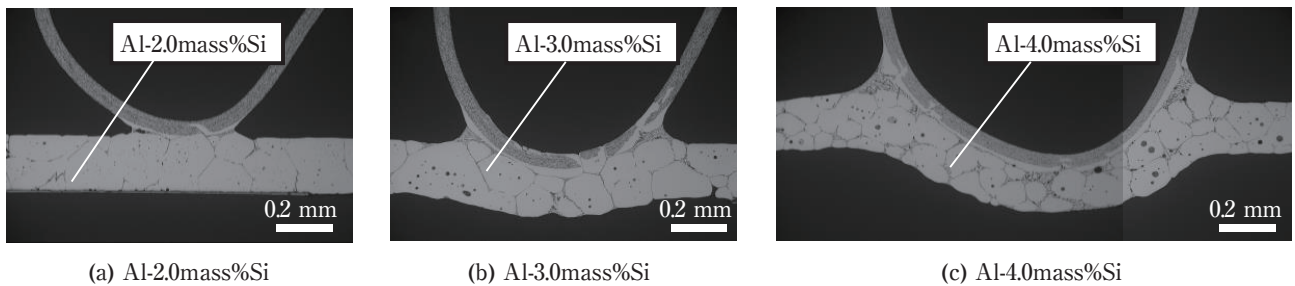


Fig. 4 Cross-sectional optical micrographs of brazed test pieces made of Al-Si alloys with a thickness of 0.2 mm.

3. 結果

Fig. 4に板厚0.2 mmのろう付用材料を使用してろう付した試験片の断面光学顕微鏡観察像を示す。ケイ素量が増加すると共に、接合部長さとベース材の変形量が増加する傾向が確認された。また、フィン材とベース材の接合部にフィレットが形成されていた。

Fig. 5にケイ素量と接合部長さの関係を示す。ケイ素量2%で十分なフィレットが形成されており、ケイ素量の増加に伴い接合部長さは直線的に増加していた。

Fig. 6にケイ素量と変形量の関係を示す。ケイ素量が2mass%ではほとんど変形しないが、3mass%以上では大きな変形が確認された。また3mass%以上では変形量のバラツキが大きかった。この結果から形状を維持した上で可能な限り接合部長さを確保する為には、ケイ素量を2mass%以上3mass%未満の範囲とするのが適切であると考えられた。

Fig. 7に板厚0.07 mmのろう付用材料を使用して作製した試験片の断面光学顕微鏡観察像を示す。Al-2.5mass%Si単層材をフィン材に使用した試験片 (Fig. 7 (a)) は、クラッド材をフィン材に使用した試験片 (Fig. 7 (b)) と同様にフィンが座屈することなく、フィレットが形成されていた。Fig. 7の観察像から接合部長さを各3点ずつ測定した。Al-2.5mass%Si単層材は

接合部長さが0.50 mmであり、接合部長さが0.45 mmであったクラッド材に対して同等以上の接合性を示した。

Fig. 8にサグ試験結果を示す。Al-2.5mass%Si単層材は、クラッド材に比べ垂下量が高く、耐変形性は相対的に低かった。ただし、Fig. 7の結果から、本実験においてフィンが座屈しない程度の耐変形性を有していることが確認された。

4. 考察

4.1 ケイ素量によるろう付性及び耐変形性への影響

Fig. 5及びFig. 6に示すように、ケイ素量の増加に伴いろう付性が向上し耐変形性は低下した。その理由はケイ素量の変化によりろう付時に材料中に発生する液相量が増加したためと考えられる。

ろう付中に材料中に発生する液相量を測定することは困難であるが、平衡状態図から推定することができる。Al-Si 2元系平衡状態図¹³⁾にて示されるとおり、Fig. 5及びFig. 6で使用したAl-2.0～4.0mass%Siでは、600℃は共晶温度以上であり液相と α -アルミニウム相の共存領域である。その際、この原理によりケイ素量が多いほど液相の割合が多い。ケイ素量とこの原理で求めた液相率の関係をFig. 9に示す。ケイ素量が

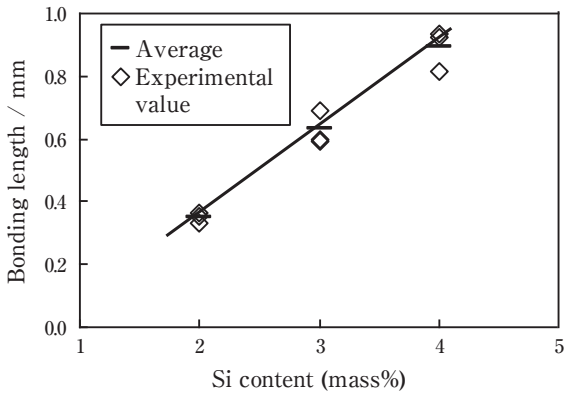


Fig. 5 Relationship between the Si content and the bonding length.

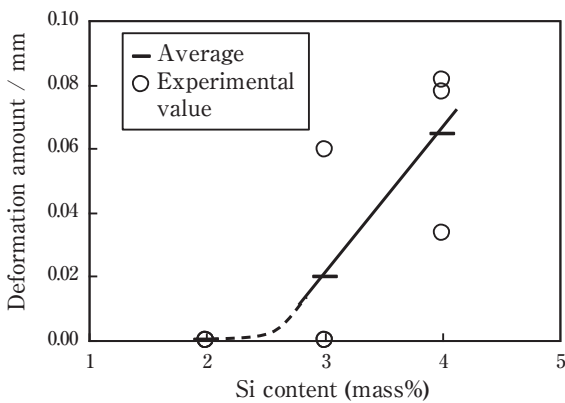
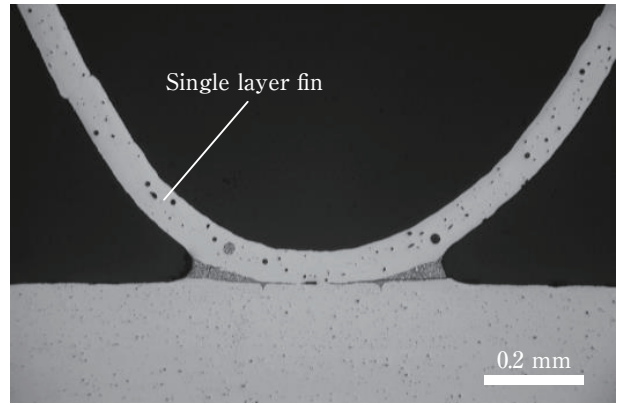


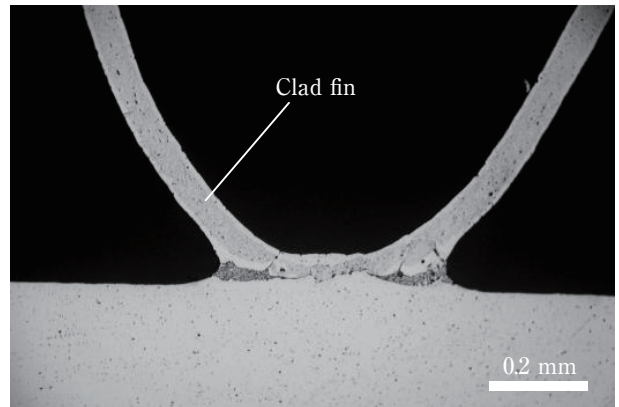
Fig. 6 Relationship between the Si content and the deformation amount.

増えるとともに液相率が直線的に増加していた。従って接合部長さと変形量は、材料中に発生する液相量の増加に伴い直線的に増加したと考えられる。また、本実験から2.5mass%以上のケイ素量で耐変形性が低下することが明らかとなったが、このケイ素量で状態図から算出された液相率は約20%であった。従って20%程度の液相率で耐変形性が低下することが示唆された。

ケイ素量変化に伴う液相率変化と金属組織との対応を調査するために、2.0～4.0mass%のケイ素量を有する板厚0.2 mmのろう付用材料を使用して作製した試験片の、ベース材の断面観察像をFig. 10に示す。接合部の変形等の影響を除外するため、接合部から離れた部位を観察した。いずれのケイ素量においても、形態から見て粒界に沿っていると推定される膜状の第二相と、粒内の球状の第二相が形成されていた。Fig. 10に示した画像は2次元の断面像であるが、画像中のどこにおいても粒界に沿っていると推定される第二相は線状に観察され粒内の第二相は円状に観察されたことから、



(a) Single layer fin



(b) Clad fin

Fig. 7 Cross-sectional optical micrographs of brazed test pieces made of brazing materials with a thickness of 0.07 mm.

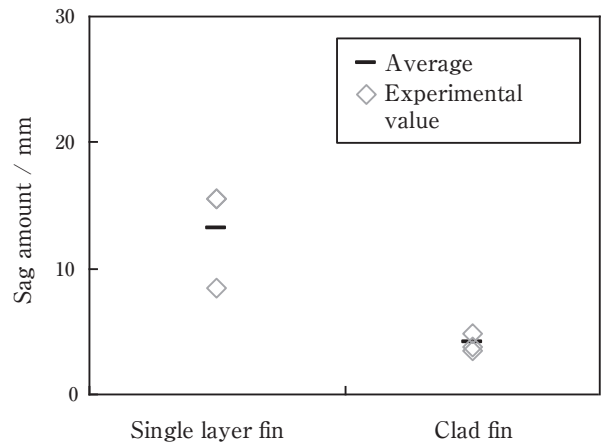


Fig. 8 Sag amount of the brazing materials with 0.07 mm in each thickness.

それぞれ三次元的には膜状及び球状であるものと判断した。第二相をより詳しく観察するために、更に拡大したものをFig. 11に示す。矢印部で示すように、膜状及び球状の第二相はラメラ状の共晶組織になっている

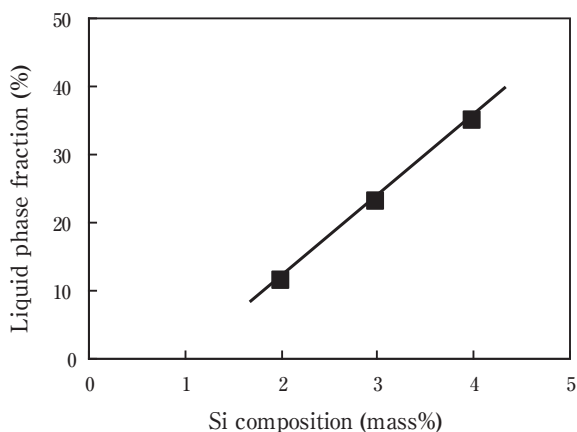


Fig. 9 Relationship between the Si content and the liquid phase fraction.

ことが分る。

Fig. 12に Al-2.0mass%Siの断面EPMA分析結果を示す。ケイ素が球状及び膜状に濃化していることが確認された。以上から、ろう付後に観察された膜状及び球状の第二相は液相が凝固した際に形成されたアルミニウムとケイ素の共晶組織であり、その形態はろう付中の液相の形態と対応していると考えられる。すなわち、ろう付け時は粒界に沿った膜状の液相と粒内の球状の液相が存在していたと考えられる。

Fig. 10で使用された各ケイ素量の材料において、球状の共晶組織の面積率及び平均径を画像解析(旭化成社製 A像君を使用)によって測定した。その結果を **Fig. 13**に示す。1つの材料につき観察像3枚分の画像

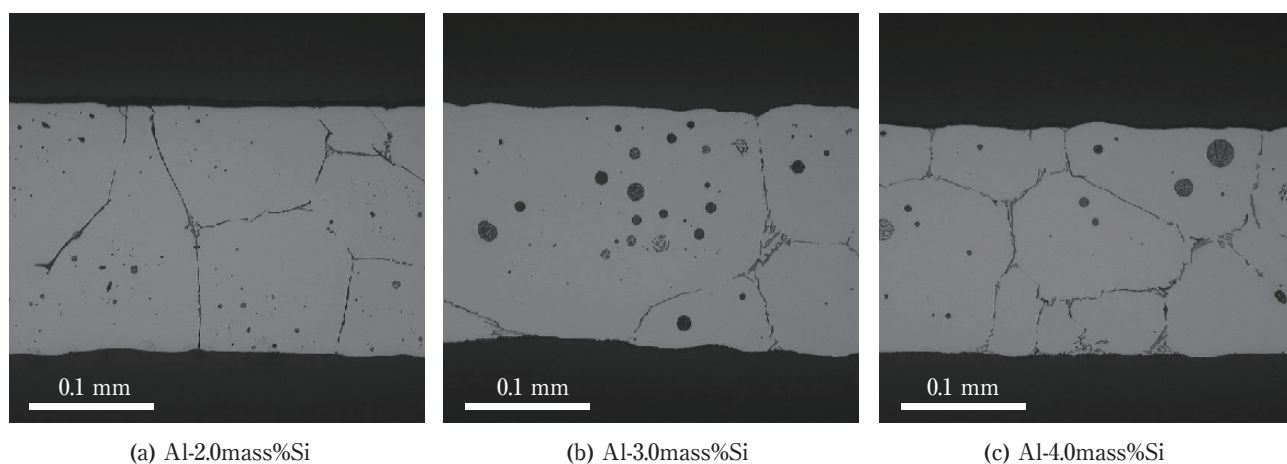


Fig. 10 High magnification cross-sectional optical micrographs of each Al-Si alloy base materials with the thicknesses of 0.2 mm after brazing.

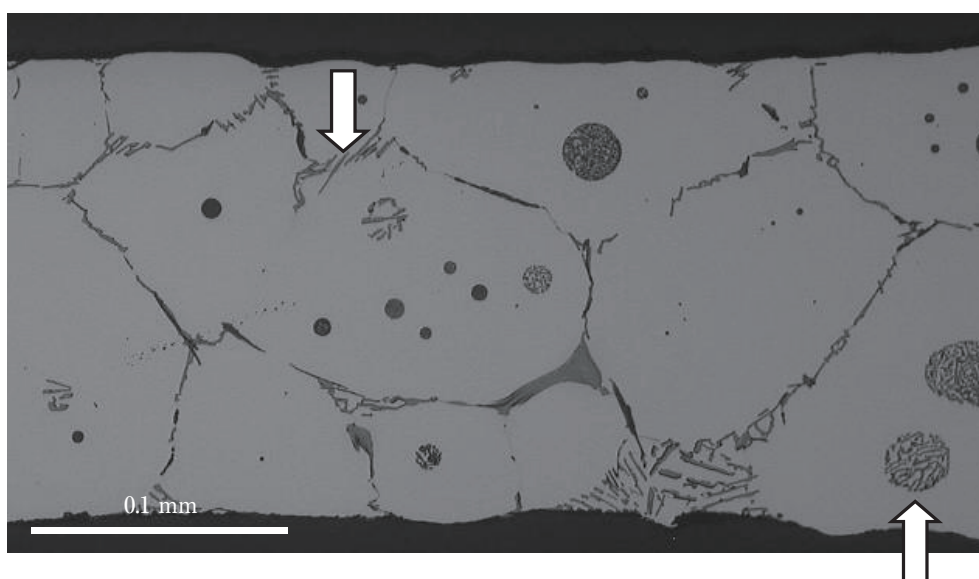


Fig. 11 Magnified image of the lamellar and the spherical eutectic structures of Al-4.0mass%Si after brazing.

解析を行い、平均値を算出した。ケイ素量が多いほど、球状共晶組織の面積率及び平均径が直線的に増加することが確認された。なお、球状の共晶組織の面積率はFig. 9に示した液相率よりも小さい値を示していた。これは材料中に発生した液相は粒内に球状に形成されたもの以外にも、粒界及び表面に膜状に形成されたものがあるためと考えられる。一方、膜状の共晶組織は厚さを評価することは困難であるが、膜状の共晶組織が交差する三重点において、ケイ素量が多いほど粗大な共晶組織が形成される傾向が見られる。これらの球

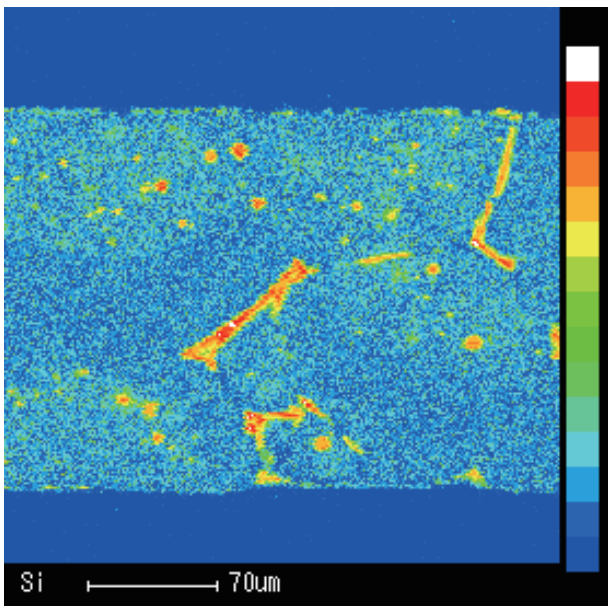
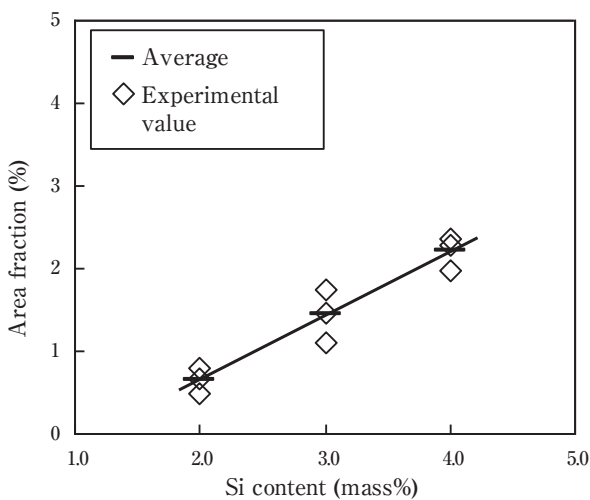


Fig. 12 Cross-sectional EPMA mapping image of Al-2.0mass%Si after brazing.



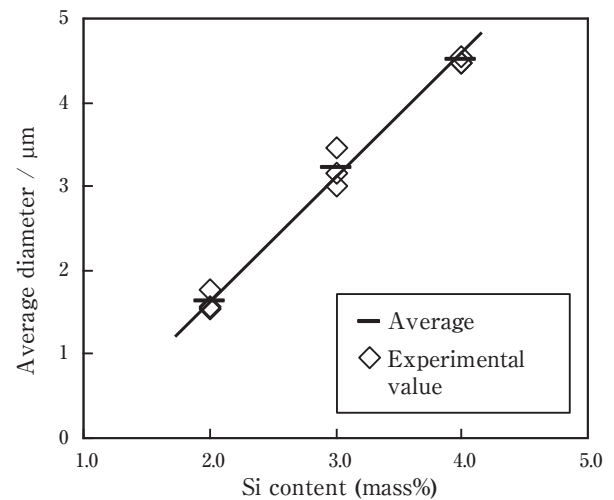
(a) Area fraction

状及び膜状の共晶組織の増加傾向は、前述の状態図から求めたケイ素量と液相率の関係を裏付けている。

4.2 ろう付中の金属組織変化

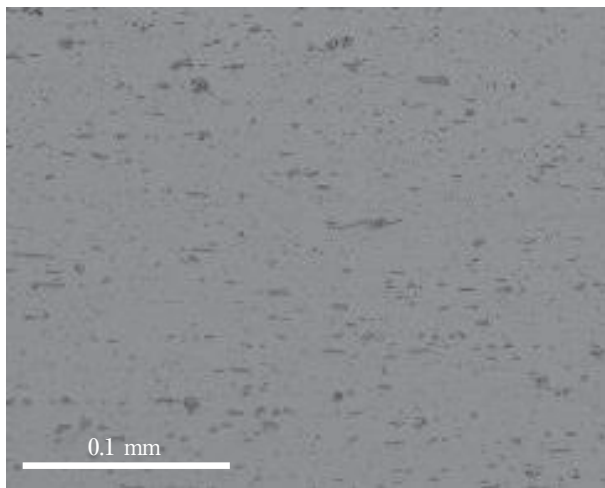
4.1ではケイ素量が増加するほど600℃における材料中の液相率が増加し、金属組織も液相の増加に対応する形態になっていた。しかし、膜状及び球状の液相の形成過程は不明であった。そこで、Al-2.5mass%Siを使用しろう付前後の金属組織変化を調査した。

Fig. 14にAl-2.5mass%Siのろう付前後の板表面光学顕微鏡観察像を示す。板断面では観察視野が狭いため板表面の観察を行った。ろう付前 (Fig. 14 (a)) はケイ素相が分散しているが、ろう付後 (Fig. 14 (b)) は膜状及び球状の共晶組織が観察された。Al-Si 2元系平衡状態図からろう付前に存在するケイ素相は共晶温度を超える温度に加熱されると、アルミニウム相と反応し液相を生成すると推定される。その変化過程をその場観察により調査した。Fig. 15にAl-2.5mass%Siの加熱時の金属組織変化を光学顕微鏡にてその場観察した結果を示す。Al-2.5mass%Si板材の表面を断面観察と同様の方法で研磨及びエッチングを行い米倉製作所製の加熱ステージ (MS-TPS) に設置し、光学顕微鏡を用いて観察した。加熱ステージ内はアルゴン雰囲気とした。加熱速度は520℃まで180 sで急速に加熱し、共晶温度近傍の520℃から600℃までは0.17℃ /sの速度で昇温した。Fig. 15 (a) に示されるように550℃程度まではケイ素相が分散していた。しかし共晶温度を超えた585℃ (Fig. 15 (b)) まで加熱すると、ケイ素相を起点に球状に液相が形成される様子が確認された。また膜状に液

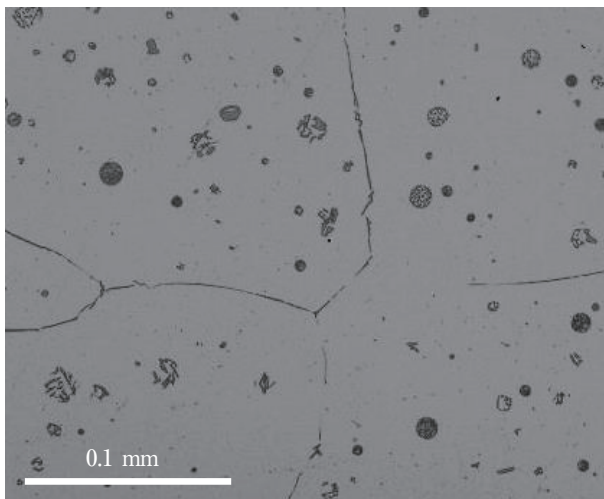


(b) Average diameter

Fig. 13 Relationship between the Si content and (a) area fraction, (b) average diameter of the spherical eutectic structures.



(a) Before brazing



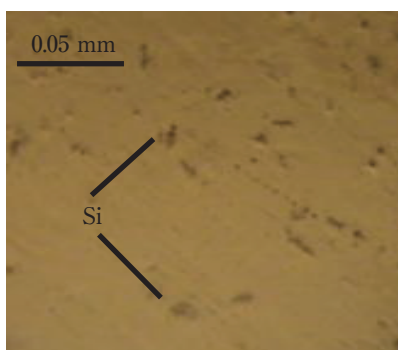
(b) After brazing

Fig. 14 Optical micrographs of the Al-2.5mass%Si before and after brazing in L-LT section.

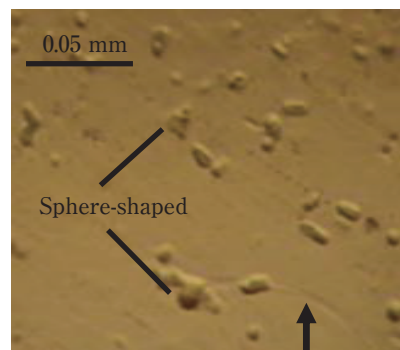
相が形成される様子も観察された。さらに590°C (Fig. 15 (c)) まで加熱を継続すると、球状及び膜状の液相が成長していた。その後は酸化皮膜が表面を厚く覆ってしまい観察が困難であった。以上の結果から、ろう付前に分散しているケイ素相を起点に球状に液相が発生することが確認された。また、膜状の液相も合わせて発生することが確認された。

液相が球状に形成される理由としては、固液界面エネルギーを最小化するように熔融反応が進むためという平衡論的な仮説や、熔融過程における局所的な濃度勾配と拡散のバランスによるという速度論的な仮説などが考えられるが、本実験ではそのメカニズムの解明には至っていない。特に液相中の局所的な濃度勾配や固液界面の位置は凝固時に液相が二相に分離する際にその状態が変わると考えられるため、凝固後の成分分析等から熔融時の状態を推定することが困難である。本材料の熔融時の金属組織挙動をより詳しく解明するためには、計算的な手法と実験的な手法を織り交ぜたアプローチが必要と考える。

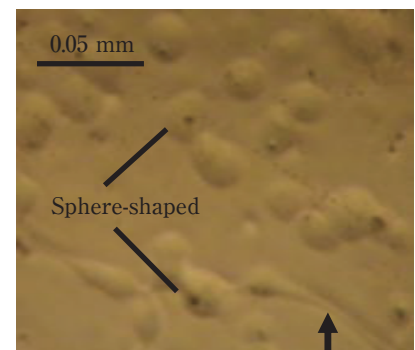
液相が膜状に形成される理由は、その形状や分布から結晶粒界に沿って発生したためと考えられる。そこでろう付加熱後の板表面の結晶粒組織をバーカー氏液を用いた陽極酸化で顕在化させ、偏光フィルターを使用して光学顕微鏡にて観察した結果をFig. 16に示す。結晶粒ごとにアルミニウム相のコントラストが変化しており、コントラストの異なるアルミニウム相の境界が結晶粒界である。また膜状及び球状に黒く観察されるのが第二相である。陽極酸化法の影響により、第二相は実物よりも大きく観察されている点に留意が必要である。Fig. 16から結晶粒界に対応して膜状の第二相



(a) 550°C



(b) 585°C



(b) 590°C

Fig. 15 In situ observation images of the microstructure of Al-2.5mass%Si during brazing.

が形成されており、結晶粒界に沿って液相が形成されていたことが確認された。その理由は以下と考えられる。本材料は母材がH12調質のためろう付け加熱時に再結晶が生じ、その際の粒界移動時に溶質元素が集められ粒界上のケイ素濃度が増大する。加えて、粒界は界面エネルギーによりマトリクスよりエネルギーが高い。以上の2点から、粒界に沿って液相が発生したと考えられる。これらの金属組織変化を模式的にFig. 17にまとめた。

以上の金属組織と接合性及び耐変形性との関係についてさらに考察する。

接合性は材料から接合部に供給される液相量に影響される。観察された金属組織を元に液相が接合部に供給される経路は三つ考えられる。一つ目は元々表面近傍に存在するケイ素相が周囲のアルミニウム相と反応して熔融した際に、表面に流れ出る経路である (Fig. 17の①)。二つ目は、結晶粒界にて生成した液相が結晶粒界を伝って表面に流れ出る経路である (Fig. 17の②)。三つ目は、結晶粒内に球状に形成された液相中のケイ素が、固相拡散によって表面や粒界に移動して液相を供給する経路である (Fig. 17の③)。本実験ではケイ素

量を増加させるほど接合性が良かったが、それは上記三つの経路のいずれの液相量も増加するためと考えられる。

しかし厳密には経路によって液相の供給量が異なる可能性があり、どの経路が支配的に影響しているかは今後の検討課題である。例えば三つ目の経路については、ケイ素が加熱中に拡散できる距離以上には液相は移動しないはずであるという制約がある。本実験のろう付条件である600℃、180 sにおいて、式1で定義される2次元ランダムウォークの平均距離を求めると0.024 mmと算出される。ここで x は移動距離 (mm)、 D は拡散係数 (mm^2/s)、 t は時間 (s) とした。計算を簡単にするためろう付時の昇温及び降温過程は計算から除外した。また D は式2から求めた。この式2の R は気体定数 ($\text{J}/\text{mol}/\text{K}$)、 T は温度 (K) とし、 D_0 及び Q は文献値¹⁴⁾を使用した。この計算結果から、本実験の条件では表面や粒界から0.024 mm以上離れた粒内の液相は接合部に供給される経路がないと考えられる。

$$x = \sqrt{2Dt} \quad \dots\dots\dots \text{(式1)}$$

$$D = D_0 \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \quad \dots\dots\dots \text{(式2)}$$

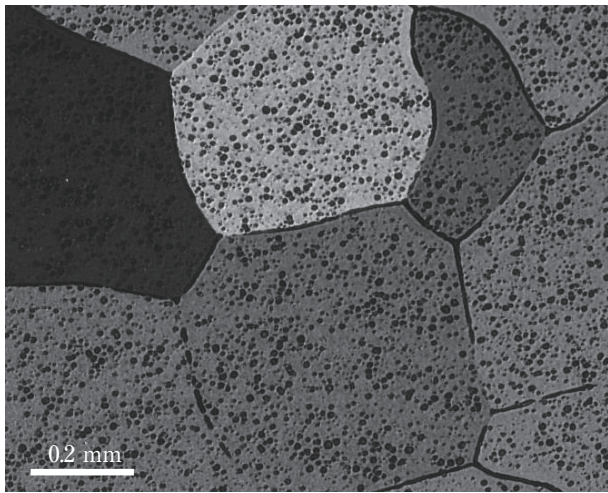


Fig. 16 Grain structure of Al-2.5mass%Si after brazing.

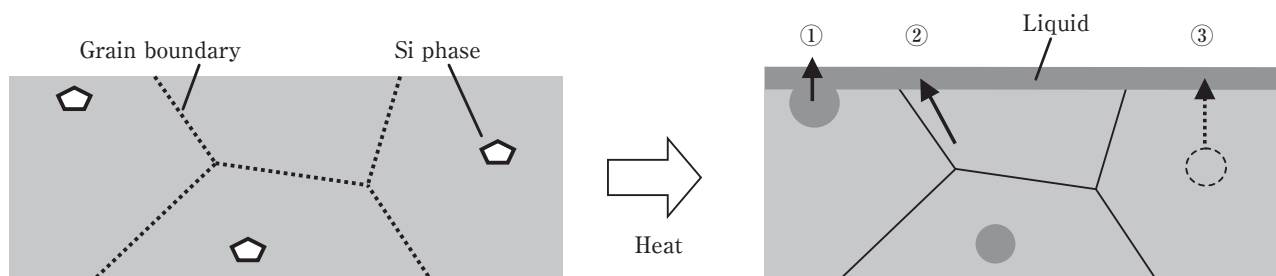


Fig. 17 Schematic liquid flow of Al-Si alloy during brazing.

たとえられる。しかし、結晶粒界に形成された液相量を判別することは容易ではないため、その影響を解明するのは今後の課題である。

5. 結言

Al-Si系合金単層材におけるケイ素量による接合性及び耐変形性への影響を調査し、以下の点が明らかとなった。

- (1) ケイ素の組成が高いほど、接合部長さが長く接合性が増加していた。
- (2) ケイ素の組成が高いほど、変形量が大きく耐変形性は低下していた。
- (3) Al-2.5mass%Si単層材を板厚0.07 mmのフィン材として用い、顕著な変形を起こすことなく金属接合された試験片を作製することができた。
- (4) ろう材を用いずに単層材のみでろう付が可能なが示された。

参考文献

- 1) 川瀬寛：アルミニウムブレージングハンドブック，アルミニウムブレージングハンドブック編集委員会，軽金属溶接構造協会，(2004)，3-13.
- 2) 川瀬寛：軽金属，**48** (1998)，426-431.
- 3) 中村雅勇：アルミニウム技術便覧，軽金属協会，カロス出版，(1996)，826-836.
- 4) 納康弘：軽金属溶接，**30** (2000)，130-142.
- 5) 竹内桂三：軽金属，**41** (1991)，208-220.
- 6) 大家正二郎：アルミニウム技術便覧，軽金属協会，カロス出版，(1996)，1233-1238.
- 7) JIS Z 3263 (2002).
- 8) 木内学，柳本潤，杉山澄雄：生産研究，**51** (1999)，105-108.
- 9) 圓城敏男，池内建二：溶接学会論文集，**2** (1984)，599-605.
- 10) 手島聖英，杉浦慎也，根倉健二，大河内隆樹，長谷川恵津夫，渥美哲郎，田中宏和，久富裕二：軽金属，**64** (2014)，150-156.
- 11) 坂口信人，常川雅功，渡辺良夫：軽金属，**63** (2013)，229-233.
- 12) 杉原諄，瀧川淳：アルミニウムブレージングハンドブック，アルミニウムブレージングハンドブック編集委員会，軽金属溶接構造協会，(2004)，130-133.
- 13) T. B. Massalski：Binary alloy phase diagrams，**I** (1986)，165.
- 14) 小菅張弓：アルミニウム材料の基礎と工業技術，「アルミニウム材料の基礎と工業技術」編集委員会，軽金属協会，(1998)，57.
- 15) 丸山公一，中島英治：高温強度の材料科学，内田老鶴圃，(1997)，15-22.



黒崎 友仁 (Tomohito Kurosaki)
(株)UACJ R&Dセンター 第一研究部



村瀬 崇 (Takashi Murase)
乳源東陽光UACJ精箔有限公司



寺山 和子 (Kazuko Terayama)
(株)UACJ 板事業本部深谷製造所 品質保証部



石 雅和 (Masakazu Seki)
(株)UACJ 板事業本部深谷製造所 製造部



戸次 洋一郎 (Yoichiro Betsuki)
(株)UACJ R&Dセンター 第一研究部



二宮 淳司 (Junji Ninomiya)
(株)UACJ R&Dセンター 研究企画業務部



新倉 昭男 (Akio Niikura)
(株)UACJ R&Dセンター 第二・第三開発部
博士(工学)

Al-Cu-Mg系合金の時効挙動に及ぼす 銅, マグネシウム添加量と焼入れ速度の影響*

鈴木 太一**, 八太 秀周***, 吉田 英雄****

Effects of Copper and Magnesium Contents and the Quenching Rate on Artificial Age Hardening Behavior of Al-Cu-Mg Alloys*

Taichi Suzuki**, Hidenori Hatta*** and Hideo Yoshida****

The effect of the copper and magnesium contents and quenching rate during quenching on the artificial age hardening behavior of Al-Cu-Mg alloys was investigated. For the higher copper-containing specimens as conventional 2000 series aluminum alloys, like 2024, precipitation of the stable phases increased as the quenching rate decreased under the as-quenched conditions. The maximum hardness after the artificial aging of air cooled (AC) specimens was much lower than that of the water quenched (WQ) specimens. On the other hand, for the lower copper-containing specimens, coarse precipitation did not increase even in the case of the AC specimens. The age hardening behaviors of the WQ and AC specimens were very similar such that the maximum hardness and aging rate were almost the same. Many parts of the fine precipitates that increased the hardness were thought to be the GPB zone or fine S' phase for the WQ specimens and relatively coarse S' phase for the AC specimens. From the calculated CCT diagrams, the lower copper-containing specimens could maintain the copper and magnesium in the solid solution state during air cooling, so they could be quenched at a rather slower quenching rate like air cooling.

Keywords: Al-Cu-Mg alloy; quenching rate; artificial age hardening; precipitation; CCT diagrams;

1. 緒言

主要添加元素として銅やマグネシウムを含有する2000系アルミニウム合金 (Al-Cu-Mg系合金) は代表的な熱処理型合金の一つである。この合金系は時効析出により高い強度が得られることから輸送機材料や構造部品などに広く用いられている。ただし熱処理型合金のうち特に2000系や銅添加量の多い7000系合金は一般に焼入れ感受性が高く、焼入れ時の冷却が不十分であると溶体化処理後の冷却時に固溶した溶質元素の粗大析出が進行し、母相中の固溶量が減少して時効硬化能が低下する。このため時効処理後に十分な強度を得るには焼入れ時の析出を抑制することが必要であり、多く

の熱処理型合金では、実用的には溶体化処理直後に水冷で焼入れするなどの手法がとられている。しかしこのような焼入れは工業的に大規模な処理設備が必要となるため、熱処理型合金の焼入れ感受性を低く抑えることができれば、すなわち水冷での焼入れを不要にできれば、より簡便な工程での生産が可能になると期待される。2000系合金においては、これまで主要添加元素に加えマンガン、クロム、ジルコニウムなどの微量元素量を調整することで焼入れ感受性を低くする検討はいくつか例があるものの、主要添加元素である銅やマグネシウム添加量、特に2024アルミニウム合金等の一般的な2000系合金に比べ銅、マグネシウム添加量が少ない場合の焼入れ感受性に関する検討はあまり見られな

* 本稿の主要部分は、軽金属, 68 (2018), 333-338に掲載

The main part of this paper has been published in the Journal of Japan Institute of Light Metals, 68 (2018), 333-338.

** 株式会社UACJ R&Dセンター 第四開発部

Development Department IV, Research & Development Division, UACJ Corporation

*** R&D center (North America), UACJ North America, Inc., Dr. Eng.

**** 超々ジュラルミン研究所 (元株式会社UACJ R&Dセンター), 博士 (工学)

ESD Laboratory, Dr. Eng. (Former UACJ Corporation, Research & Development Division)

い。また時効特性に関する研究の多くは焼入れ時に水冷等冷却速度の大きな手法を用いており、水冷よりも冷却速度が小さい場合に注目した報告例は少ない^{1)~3)}。

そこで今回銅、マグネシウム添加量を変化させ、さらに焼入れ時の冷却を水冷(WQ)、空冷(AC)、炉冷(FC)の条件にて実施し、Al-Cu-Mg系合金の焼入れ感受性に及ぼす銅、マグネシウム添加量と焼入れ速度の影響について調査を行った。

2. 実験方法

供試材として銅、マグネシウム添加量を銅：1.0～4.0mass% (以下%と表記)の範囲、またマグネシウムは0.5%及び1.5%とした6種類の合金を作製した。供試材成分をTable 1に示す。なお供試材のうち4.0Cu-1.5Mgは2024に相当する成分である。これらの合金成分を有する直径90 mmのピレットを半連続鋳造法により鋳造し、470℃で8 hの均質化処理を施した後、誘導加熱炉にて500℃に約5 minで昇温し、35 mmw×3 mmtの形状へ熱間押出加工を行った。この時押出速度は5 m/minとした。

上記で作製した押出材に対し、大気炉にて500℃で1 hの溶体化処理を施し、その後水冷、空冷、炉冷にて室温まで冷却した。各条件の冷却速度をTable 2に示す。冷却後はただちに熱処理用オープンを用いて190℃にて人工時効処理を施した。

冷却中の析出状態を調査するため、溶体化処理後冷却ままの供試材断面組織を走査型電子顕微鏡(SEM)にて観察した。また時効挙動を調査するため、供試材は人工時効処理中に所定の時間にて取り出し、その時点での硬さおよび導電率を測定した。人工時効処理後の供試材は析出相の同定を行うため、透過型電子顕微鏡(TEM)観察および示差走査熱量分析(DSC)を実施した。

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

Alloy	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
1.0Cu-0.5Mg	0.07	0.15	0.96	0.62	0.47	<0.01	<0.01	<0.01	Bal.
1.0Cu-1.5Mg	0.07	0.14	0.98	0.62	1.43	<0.01	<0.01	<0.01	Bal.
2.0Cu-0.5Mg	0.07	0.15	1.94	0.62	0.48	<0.01	<0.01	<0.01	Bal.
2.0Cu-1.5Mg	0.07	0.15	1.99	0.61	1.47	<0.01	<0.01	<0.01	Bal.
4.0Cu-0.5Mg	0.07	0.14	3.85	0.61	0.47	<0.01	<0.01	<0.01	Bal.
4.0Cu-1.5Mg	0.07	0.14	3.95	0.61	1.46	<0.01	<0.01	<0.01	Bal.

Table 2 Quenching rate of each quenching method.

Quenching method	Quenching rate (°C/s)
Water quenching (WQ)	approx. 30
Air cooling (AC)	1
Furnace cooling (FC)	0.008

3. 実験結果

3.1 断面SEM観察結果

SEMによる断面組織観察結果をFig.1に示す。図中には溶体化処理後冷却ままの導電率も併せて示した。

1.0Cu-0.5Mgや1.0Cu-1.5Mg、2.0Cu-0.5Mg、2.0Cu-1.5Mgでは冷却速度による析出状況の差は小さく、冷却速度が小さい炉冷の場合でも粗大な析出物はわずかしら観察されなかった。また導電率の変化も小さく、特に水冷と空冷を比較するとその差は数%程度であった。

一方で4.0Cu-0.5Mgや4.0Cu-1.5Mgでは水冷、空冷、炉冷と冷却速度が遅くなるにつれて粒界析出物や粗大な安定相が多く観察された。また導電率の変化も大きく、特に炉冷では水冷に比べ導電率の値で10%IACS (International Annealed Copper Standard) 以上の値の差を示した。

3.2 硬さ測定結果

人工時効処理中の硬さ測定結果をFig.2に示す。まず冷却ままの硬さの値は、いずれも空冷>水冷>炉冷の順に大きくなる傾向が見られた。

時効処理時間の増加とともに硬さの値も大きくなるが、1.0Cu-0.5Mg、1.0Cu-1.5Mg、2.0Cu-0.5Mg、2.0Cu-1.5Mgでは水冷と空冷でほぼ同様に二段階の時効硬化挙動を示した。またピーク時効時の硬さについては水冷と空冷で同等か空冷の方がやや大きい値であり、焼入れ後の冷却速度による差は小さい結果となった。なおピーク時効までの時間は1.0Cu-0.5Mg、1.0Cu-1.5Mgでは70 h～100 h付近、また2.0Cu-0.5Mg、2.0Cu-1.5Mgでは20～50 h付近であり、いずれも水冷材に比べ空冷材の方で時効速度が遅くなる傾向が見られた。

一方従来2000系合金程度の銅を含有する合金では、4.0Cu-0.5Mgで水冷と空冷で良く似た時効挙動を示すものの、ピーク時効時の硬さは空冷の方が明確に小さい値となった。また4.0Cu-1.5Mgは水冷材では従来2024と同様の時効挙動を示していたが、空冷材では時効の初期から硬さがあまり変化せず、ピーク時効時の値で硬さに20以上の差が出る結果となり、溶体化処理後に空冷で冷却したことによる時効硬化能の大きな低下が認められた。なおピーク時効までの時間はいずれも水冷材が20 h程度であったのに対し空冷材は5～10 h程度であり、その後は硬さが大きく低下していることから、空冷材では過時効側に移行するまでの時間が短くなる結果となった。

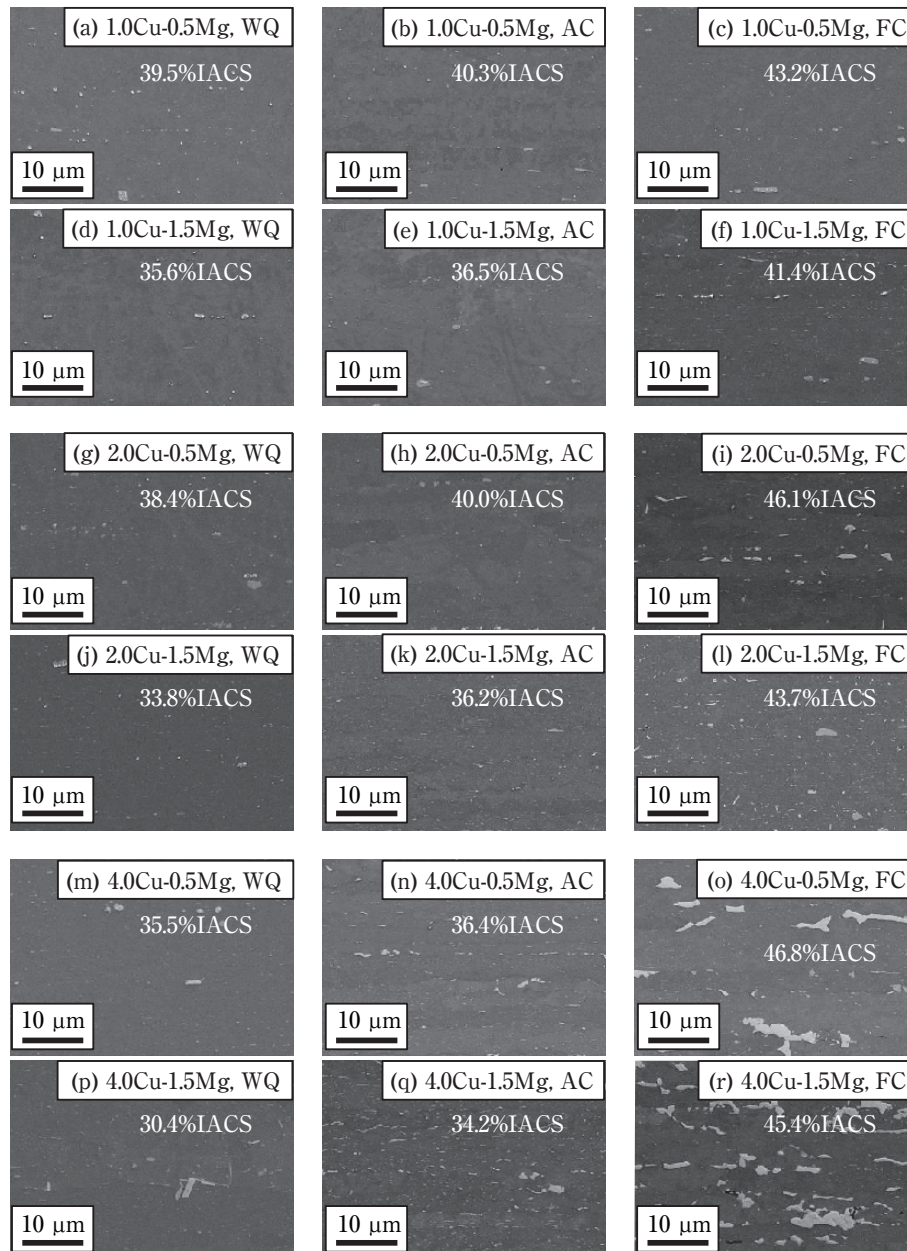


Fig. 1 SEM images of specimens under the as-quenched conditions. The electrical conductivity of the conditions is indicated in the second line in upper right of each image.

炉冷材についてはいずれの合金でも冷却ままだから硬さがほとんど変化しておらず、時効処理による硬さの上昇は認められなかった。

3.3 導電率測定結果

人工時効処理中の導電率測定結果を **Fig.3** に示す。冷却ままの導電率は前述の通り水冷<空冷<炉冷と冷却速度が小さくなるにつれて大きな値を示した。水冷、空冷材ではいずれの供試材も人工時効とともに導電率は上昇する傾向が見られ、特に添加した銅の量が多いほど導電率の変化が大きい結果となった。なお炉冷材では時効による硬さの上昇は認められなかったものの、

時効が進むとともにわずかに導電率も上昇する結果となった。

3.4 TEM 観察結果

各供試材のうち水冷材と空冷材のみについて、析出物を TEM により観察した結果を **Fig.4** に示す。いずれの供試材も水冷材では点状または微細な棒状の GPB ゾーンや長さ 0.2 μm 程度の微細なラス状の S' 相が観察されるが、空冷材ではそれらは減少し、比較的粗大なラス状の S' 相が多く観察された。なお 1.0Cu-0.5Mg, 2.0Cu-0.5Mg, 4.0Cu-0.5Mg の水冷材では転位ループや転位ループ上への S' 相の析出が観察された^{4),5)}。

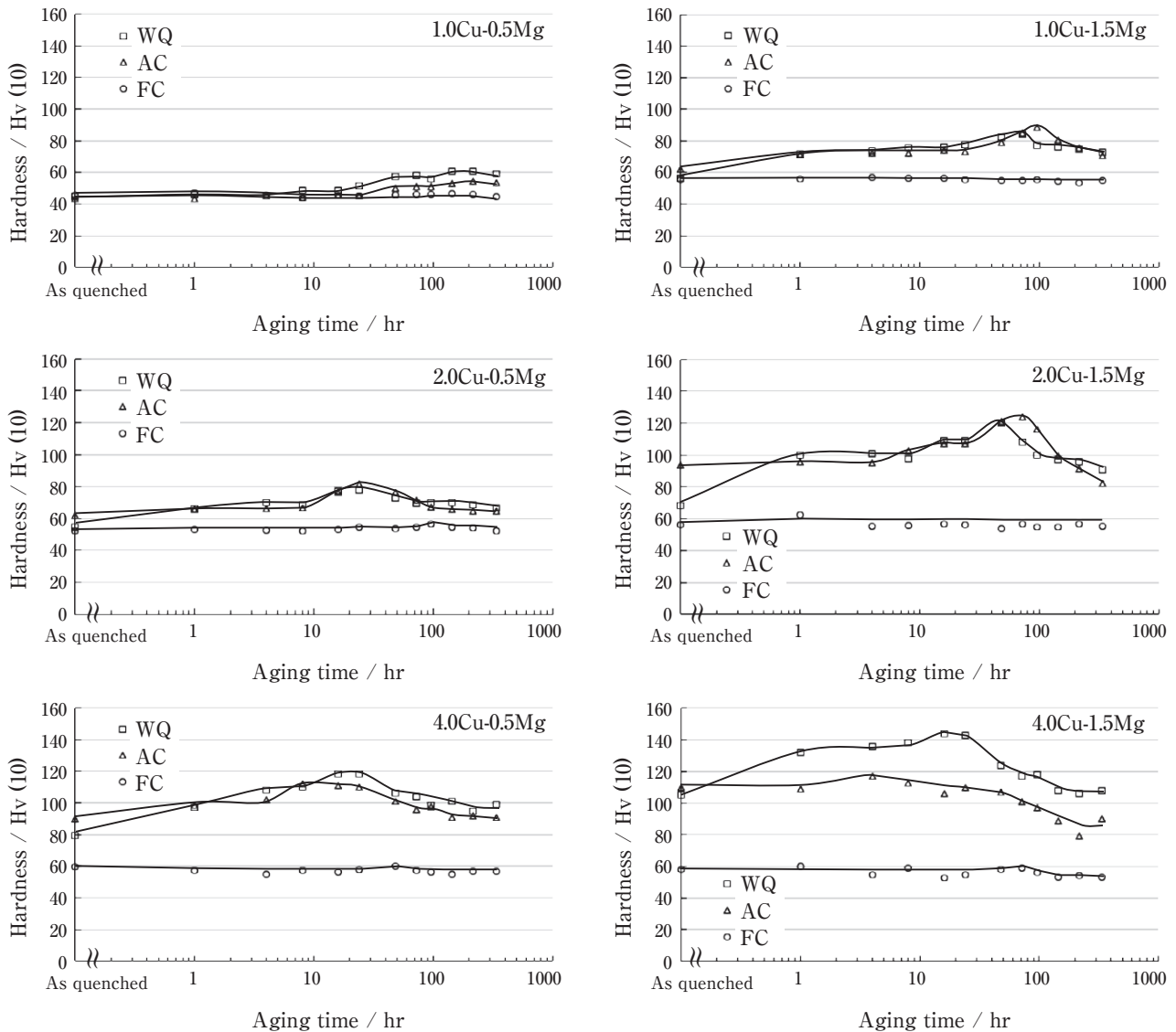


Fig. 2 Vickers hardness after the artificial aging at 190°C.

3.5 DSC分析結果

DSC分析の結果をFig.5に示す。図中には推定される各析出相の吸熱，発熱ピークをI～VIで示した。まずいずれの供試材とも220°C～250°C付近でGPゾーンまたはGPBゾーンの分解に伴う吸熱ピークが認められた^{6),7)}。水冷材と空冷材を比較すると，全体として水冷材の方が吸熱量が多くなる傾向が見られたが，1.0Cu-0.5Mg，1.0Cu-1.5Mg，2.0Cu-0.5Mgでは水冷材と空冷材で大きな差は認められなかった。2.0Cu-1.5Mg空冷材では水冷材の半分程度の吸熱量であった。一方4.0Cu-0.5Mg，4.0Cu-1.5Mgでは空冷材の吸熱量は水冷材の半分未満と大きく低下する結果となった。これはTEM観察にて水冷材でGPBゾーンが多く観察された結果と一致するものであった。またS', S, θ' , θ 各相の析出(それぞれピークIIまたはIV)に関しては，300°C～350°C付近の温度域におけるピーク高さに注目した場合4.0Cu-0.5Mgでは後述するように θ' 相もしくは

θ 相の析出に伴う発熱ピーク⁸⁾が，それ以外の合金ではS'相もしくはS相の析出に伴う発熱ピークが認められるが，その発熱量は空冷材の方が小さい結果となり，特に銅を2%以上含有する合金で顕著であった。

4. 考察

4.1 各供試材の析出相

前述の通り，DSC分析の結果より合金成分により異なる発熱・吸熱ピークが認められた。ここで，各供試材成分における析出相を整理する。

銅とマグネシウムを含有する2000系合金における時効析出過程は

- ① $a \rightarrow GP(1) \rightarrow GP(2) \rightarrow \theta' \rightarrow \theta$
- ② $a \rightarrow GPB \rightarrow S' \rightarrow S$

の二つの反応に分類される。合金組成の比，すなわち含有する銅とマグネシウムの重量比(Cu/Mg)により

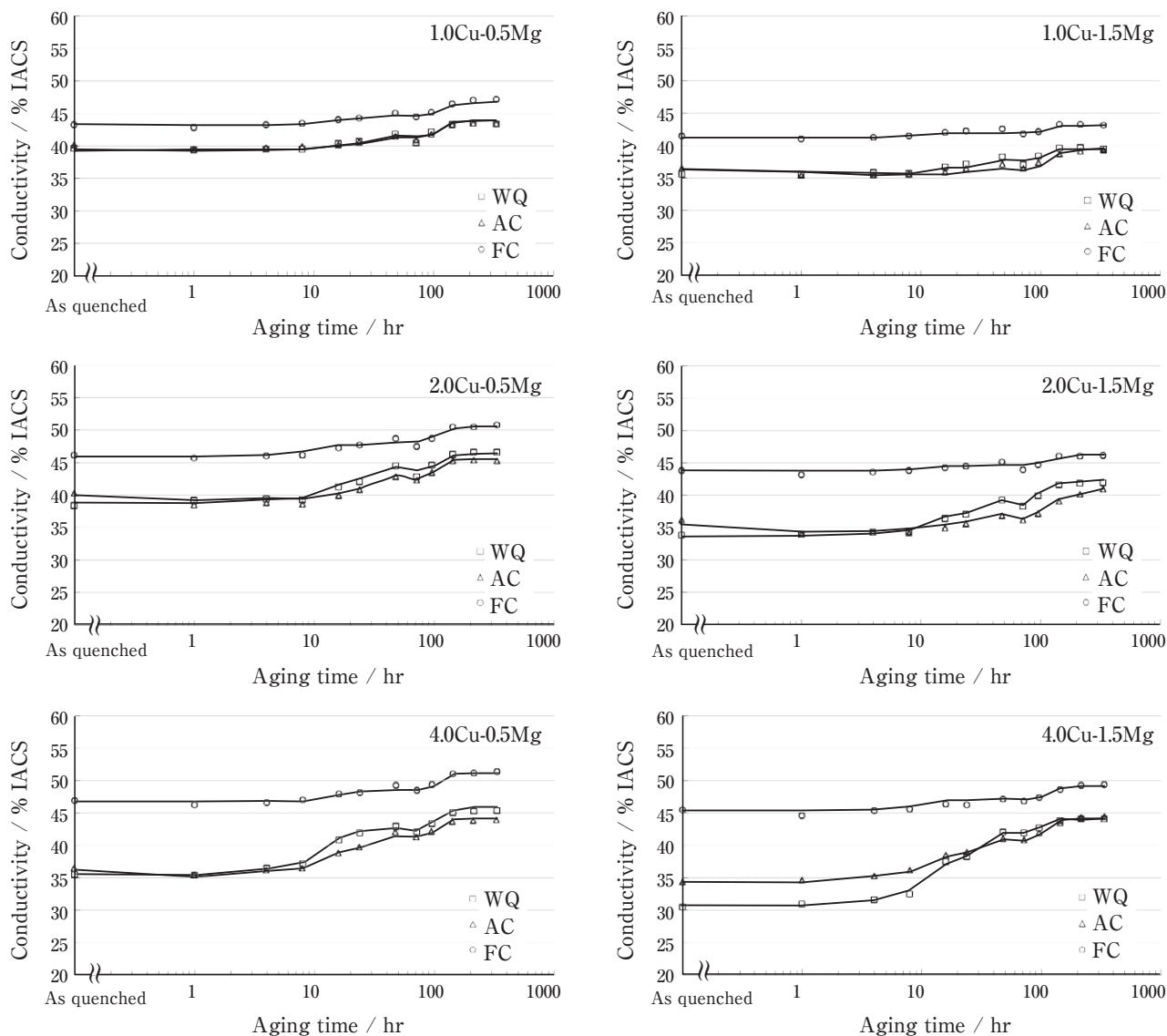


Fig. 3 Electrical conductivity after the artificial aging at 190°C.

時効析出過程は異なり， $\text{Cu}/\text{Mg}>8$ では①の反応が， $4<\text{Cu}/\text{Mg}<8$ では①と②の反応の両方が， $1.5<\text{Cu}/\text{Mg}<4$ では②の反応が進行すると考えられている⁹⁾。なお $\text{Cu}/\text{Mg}<1.5$ の場合にも，Al-Mg-Cu合金での検討結果¹⁰⁾から②の反応が進行すると考えられる。上記より，今回の供試材成分においては4.0Cu-0.5Mgで①の反応が，2.0Cu-0.5Mgで①と②の反応が，その他の供試材では②の反応が主に進行すると考えられた。

4.2 溶体化処理後冷却中の析出

SEM観察の結果，銅添加量が1.0～2.0%と2017や2024などの従来2000系合金よりも少ないものでは冷却速度による粗大析出の差は小さかったが，銅添加量が2017や2024と同程度である4.0Cu-0.5Mgや4.0Cu-1.5Mgでは，水冷よりも冷却速度が小さい場合に粗大な安定相の析出が進行していた。

溶体化処理後冷却中の析出について考察を行うため，

JMatProを用いて各供試材のCCT線図を作製した。その結果をFig.6に示す。なお今回作製したCCT線図においてはGPゾーンとGPBゾーンは計算ソフトの仕様上区別されていない。

CCT線図より，まず銅及びマグネシウムの添加量とともに少ない1.0Cu-0.5Mg，2.0Cu-0.5Mgでは炉冷の場合を除き冷却中にS相や θ 相等の安定相の析出ノーズを通過しない。このため冷却中の粗大析出量が少なかったと考えられた。ただしS'相や θ' 相等の準安定相については冷却中に析出ノーズ付近を通過するため，実際には時効硬化能を低下させない程度にこれらの相の析出が進行していると考えられる。

一方これらに対しマグネシウム量を増加させた1.0Cu-1.5Mgや2.0Cu-1.5Mgあるいは4.0Cu-0.5Mg，4.0Cu-1.5Mgでは，同様に炉冷の場合を除き安定相の析出ノーズ自体は通過しないものの，S'相や θ' 相，GPB等準安定相の析出ノーズやその付近を通過する。特に

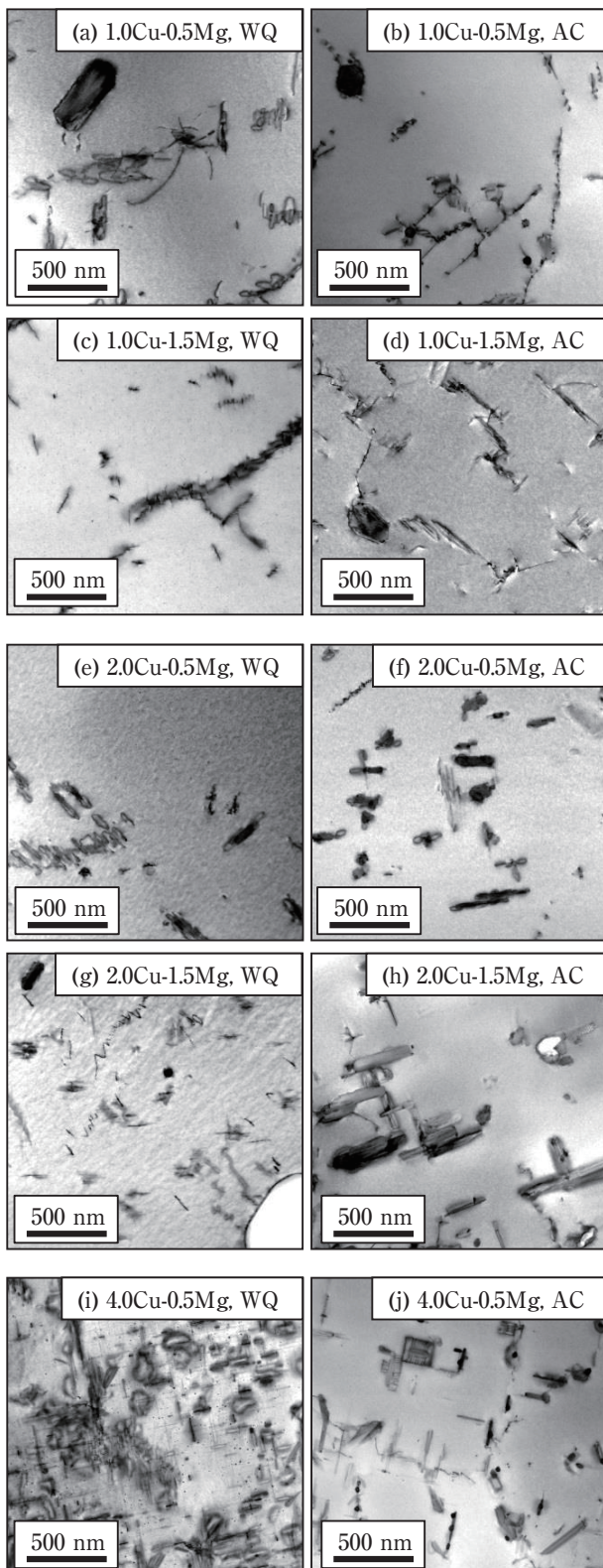


Fig. 4 TEM images of (100), aged at 190°C for 8 h.

2024に相当する4.0Cu-1.5Mgでは空冷の場合には安定相の析出ノーズ付近を通過する。このため、実際にはSEM観察の結果のように水冷、空冷、炉冷と冷却速度が遅くなるにつれて安定相が粗大に析出したものと考えられた。

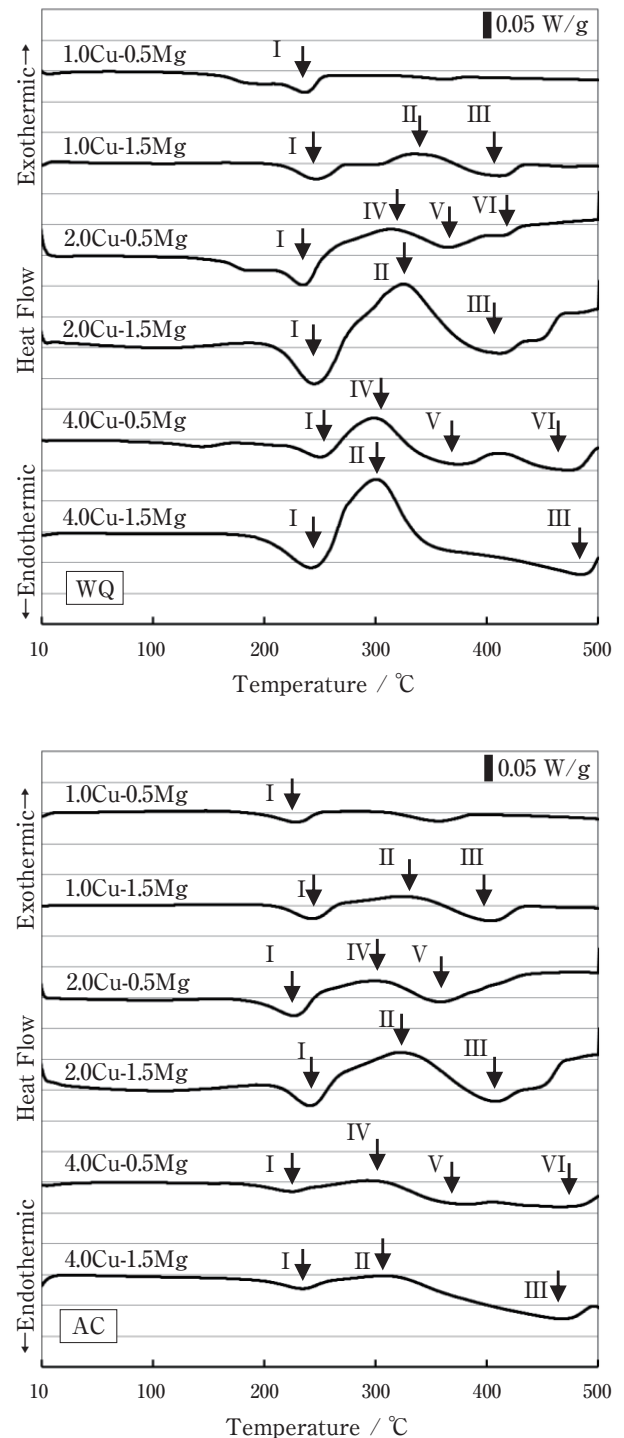


Fig.5 DSC analysis, aged at 190°C for 8 h. I: GP(GPB) dissolution, II: S'(S) formation, III: S'(S) dissolution, IV: θ' (θ) formation, V: θ' dissolution, VI: θ dissolution.

4.3 溶体化処理後の冷却速度が異なる場合の時効挙動

これまでの結果を踏まえ、溶体化処理後の冷却速度が異なる場合の時効挙動について考察を行った。まず4.0Cu-0.5Mgや4.0Cu-1.5Mgのように銅が2024などと同

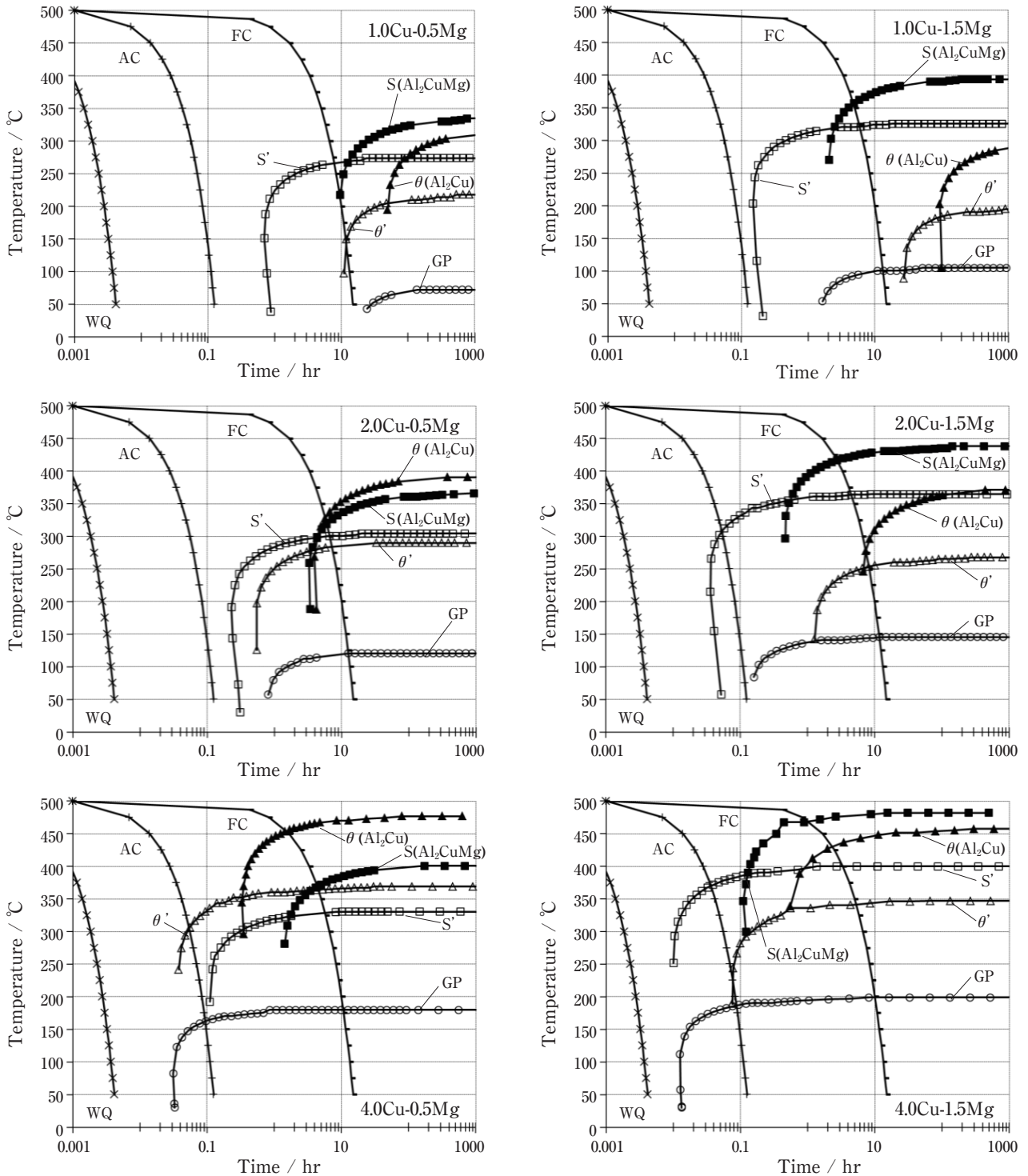


Fig.6 CCT diagrams calculated by JMatPro.

程度含まれる場合には、空冷程度の冷却速度では安定相であるS相や θ 相、また準安定相であるS'相や θ' 相の粗大な析出が進行すると考えられる。なお冷却ままの硬さを比較してみると空冷の方が大きい値を示すことから、時効初期においては冷却中に析出した準安定相は硬さの上昇にわずかに寄与していると考えられる。ただしその後の時効挙動としては4.0Cu-1.5Mgで

顕著なように安定相の粗大析出により母相中の溶質元素が消費されており、かつ上記準安定相の粗大化が進行するため、その後時効処理を施した際の時効硬化能が水冷の場合と比べて大きく低下する。

一方でその他供試材のように2024などよりも銅添加量が少ない場合には、空冷程度の冷却速度でも安定相の粗大析出が進行しにくい。またS'や θ' 等の準安定相

析出ノーズ付近を通過するため、これらの相の析出は進行するものの、溶質元素の量が比較的少ないため冷却中には粗大化しにくいと考えられた。特に2.0Cu-1.5Mgではその後時効処理を施すことで、TEM観察およびDSC分析の結果より水冷ではGPBゾーンの析出を生じ、また空冷では冷却中にS'相の析出を生じてGPBゾーンの生成が抑制され時効初期の時効速度が遅くなっているため、主としてS'相の析出が進行し硬さが上昇していくと考えられる。しかしながら冷却中の粗大析出による溶質元素の消費が抑制され固溶量の低下が少ないことから、空冷材でも水冷材とほぼ同様の時効挙動を示したものと考えられる。なおピーク時効時の硬さは特に1.0Cu-1.5Mg、2.0Cu-0.5Mg及び2.0Cu-1.5Mgで水冷材よりも空冷材の方がわずかに高い結果となった。これは前述の通り冷却中に析出した準安定相が粗大化しておらず、強度向上に寄与するS'相の数密度が空冷材の方が多かったためであると考えられる。

4.4 焼入れ感受性の比較

以上の結果より銅添加量が2%程度と2024などよりも少ない場合には、溶体化処理後の冷却速度が空冷程度であっても冷却中の粗大析出を抑制でき、焼入れ感受性が低くなると考えられた。このように焼入れ感受性が低い熱処理型合金では、例えば押出材であれば押出直後に水冷するダイクエンチ押出だけでなく、空冷しただけであっても正式焼入れ材と同等程度もしくは近い強度を確保できると考えられた。

そこで2.0Cu-0.5Mg、2.0Cu-1.5Mg、4.0Cu-0.5Mg及び4.0Cu-1.5Mgについて①熱間押出後に空冷で室温まで冷却後500℃で溶体化処理し水冷焼入れ（正式焼入れ）、②500℃で熱間押出後ダイクエンチで室温まで冷却、③

熱間押出後空冷で室温まで冷却、を行い190℃で24 hの人工時効処理を施し、機械的性質を比較した（Fig.7, Table 3）。なお強度の差を比較するため各冷却手法で得られた供試材の引張強さについて、正式焼入れ材の強度を分母にとり、正式焼入れ材との強度の差を分子として、これを百分率に換算した強度低下率を求めた。

その結果、4.0Cu-0.5Mgや4.0Cu-1.5Mgのように2024程度の銅添加量では正式焼入れしたもの以外では強度が低下し、特に4.0Cu-1.5Mgの押出後空冷まま材では正式焼入れ材と比べ30%近い強度低下率を示した。一方で2.0Cu-0.5Mgや2.0Cu-1.5Mgでは押出後ダイクエンチ材であれば正式焼入れ材と同等程度の強度であり、また押出後空冷ままでも10%以下の強度低下率に止まり、熱間押出後の冷却速度が空冷程度であっても焼き入れが可能であることが確認された。

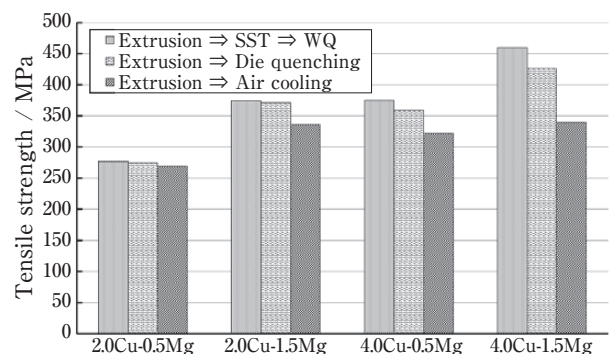


Fig.7 Mechanical properties of the specimens. Each specimen was quenched in (1) WQ after SST at 500℃, (2) Die quenching just after extrusion, (3) Air cooling after extrusion, followed by the artificial aging at 190℃ for 24 h.

Table 3 Mechanical properties of the specimens after each quenching followed by the artificial aging at 190℃ for 24 h. TS: Tensile Strength, YS: Yield Strength, EL: Elongation.

Alloy	Quenching method	TS	YS	EL	TS decrease ratio vs WQ (%)
		MPa	MPa	%	
2.0Cu-0.5Mg	Extrusion => SST => Water quenching (WQ)	278	187	18	-
2.0Cu-1.5Mg		375	271	17	-
4.0Cu-0.5Mg		376	283	14	-
4.0Cu-1.5Mg		461	379	12	-
2.0Cu-0.5Mg	Extrusion => Die quenching	276	192	17	1
2.0Cu-1.5Mg		372	273	16	1
4.0Cu-0.5Mg		360	271	15	4
4.0Cu-1.5Mg		427	347	12	7
2.0Cu-0.5Mg	Extrusion => Air cooling	270	192	17	3
2.0Cu-1.5Mg		337	217	17	10
4.0Cu-0.5Mg		323	225	15	14
4.0Cu-1.5Mg		341	231	13	26

5. 結言

Al-Cu-Mg系合金において主要添加元素である銅、マグネシウム添加量および溶体処理後の冷却速度を変化させ、これらが焼入れ感受性に及ぼす影響を調査し、以下の結論を得た。

(1) 焼入れ後冷却ままの断面組織観察より、銅添加量が1.0%～2.0%と2024などの従来の2000系アルミニウム合金よりも少ない場合には冷却速度による析出状況の差は小さく、冷却速度の大小によらず粗大な析出物はわずかしら観察されなかった。

一方で2024などと同程度の銅を含む場合には水冷、空冷、炉冷と冷却速度が遅くなるにつれて粗大な安定相や粒界析出物が多く観察された。

(2) 焼入れ後190℃にて人工時効処理を施し硬さを測定した結果、銅添加量が2.0%以下では水冷と空冷ではほぼ同様の時効挙動を示し、またピーク時効時の硬さについては水冷と空冷で同等か空冷の方がやや大きい値であり、焼入れ後の冷却速度による差は小さい結果となった。

一方で銅添加量が4.0%の場合にはピーク時効時の硬さは空冷の方が明確に小さい値となり、溶体化処理後に空冷で冷却したことによる時効硬化能の大きな低下が認められた。

炉冷材についてはいずれの合金でも冷却ままから硬さがほとんど変化しておらず、時効処理による硬さの上昇は認められなかった。

(3) TEM観察およびDSC分析の結果、いずれの供試材も水冷材では点状または微細な棒状のGPBゾーンが多く認められたが、空冷材ではそれらは減少し、代わりにラス状の比較的粗大なS'相の析出が観察された。

(4) CCT線図より銅添加量が2024などと同程度含まれる場合には、空冷程度の冷却速度では安定相であるS相や θ 相また準安定相であるS'相や θ' 相の粗大な析出が進行したため、時効処理を施した際の時効硬化能が水冷の場合と比べて大き

く低下したと考えられた。

一方で銅添加量が2%以下と少ない場合には、空冷程度の冷却速度でも安定相の粗大析出が進行しにくいため時効硬化能が低下せず、焼入れが可能であったと考えられた。

参考文献

- 鈴木 壽, 伊藤吾朗: 軽金属, **36** (1986), 157-161.
- 菅野幹宏, 鈴木 壽, 糸井一博: 軽金属, **36** (1986), 616-621.
- 河野紀雄, 佐久間孝, 室町繁雄, 渡辺久藤: 軽金属, **38** (1988), 172-176.
- J. M. Silcock: Journal of the Institute of Metals, **89** (1960), 203-210.
- J. M. Silcock, T. J. Heal and H. K. Hardy: Journal of Institute of Metals, **82** (1953), 239-248.
- N. Gao, L. Davin, S. Wang, A. Cerezo and M.J. Starink: Materials Science Forum, **396-402** (2002), 923-928.
- M. J. Starink, N. Gao, L. Davin, J. Yan and A. Cerezo: Philosophical Magazine, **85** (2005), 1395-1417.
- M. J. Starink and P. van Mourik: Materials Science and Engineering, **A156** (1992), 183-194.
- 里達雄, 北岡山治, 神尾彰彦: 軽金属, **38** (1988), 558-578.
- 里達雄: 軽金属, **56** (2006), 592-601.



鈴木 太一 (Taichi Suzuki)

(株)UACJ R&Dセンター 第四開発部



八太 秀周 (Hidenori Hatta)

R&D center (North America),
UACJ North America, Inc., 博士(工学)



吉田 英雄 (Hideo Yoshida)

超タジュラルミン研究所, 博士(工学)
(元株式会社UACJ R&Dセンター)

熱間ブロー成形によるアルミ・アルミ合金の加工*

新里 喜文**, 浅野 峰生***

Aluminum Processing by Hot Blow Forming*

Yoshifumi Shinzato** and Mineo Asano***

1. はじめに

熱間加工温度域に加熱したアルミニウム合金板は低応力で大きな伸びを有し、冷間におけるプレス成形性よりも大きな成形能を有する。この特徴を生かし、自動車分野等に熱間ブロー成形が適用されている。本稿では熱間ブロー成形の特徴、UACJの熱間ブロー成形用アルミニウム合金に対する取り組みなどについて紹介する。

2. 超塑性および熱間ブロー成形の特徴

超塑性は、材料を高温で変形させるとあたかも水飴のように数100%以上伸びる現象とも説明される。結晶粒径を10 μm以下までに微細化した材料を高温の400～550℃に加熱し、 10^{-3} /sオーダーのひずみ速度域で加工すると、結晶粒界でのすべりが主な変形機構として働く。よって、微細な結晶粒組織を有する材料の方が変形に寄与する粒界面積が多くなるため、巨大な伸びが得られる。この現象を利用し、アルミニウム合金板を高温に加熱することで、低応力で大きな伸びが得られ、ガス圧による熱間ブロー成形（超塑性成形）が可能となる。Fig. 1に熱間ブロー成形の装置概略図を示す¹⁾。熱間ブロー成形の利点は下記の通りである。

- ・製品の一体成形が可能であるため、部品点数、接合点数の低減による軽量化、低コスト化などが可能である。
- ・金型への転写性も優れるため設計自由度が高い。
- ・金型は雄型若しくは雌型のどちらか一方のみで成形が可能であるため、金型費を節約できる。

・冷間プレスで問題になるストレッチャーストレインマークが発生しない。

通常の冷間プレスと熱間ブロー成形の特徴をTable 1に示す。熱間ブロー成形は冷間プレスに比べ成形時間が長い大量生産には不適で、加工コストが高くなるため利用分野としては、航空機部品などの高付加価値製品および少量～中量生産部品（50～10000個/年間）に好適とされている。また、熱間ブロー成形は完全張出成形であるため、板厚減少が大きく、板厚分布制御が課題である。

従来、この不均一な板厚分布を改善するため、高温かつ低ひずみ速度域での熱間ブロー成形が行われてき

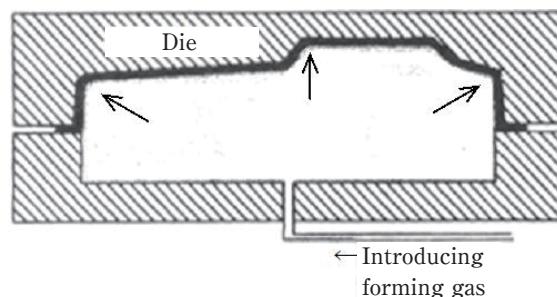


Fig. 1 Schematic illustration of blow forming device. ¹⁾

Table 1 Comparison between cold press forming and hot blow forming.

	Cold press forming	Hot blow forming
Forming temperature	Room temperature	500℃
Strain rate	1~10/s	10^{-2} /s
Sheet thickness distribution after forming	Small	Larger thickness reduction, compared to cold press forming

* 本稿の主要部分は、プレス技術, 54-12 (2016), 52-55に掲載。

The main part of this review has been published in the journal of Press Working, 54-12 (2016), 52-55.

** (株)UACJ R&Dセンター 第二開発部

Development Department II, Research & Development Division, UACJ Corporation

*** (株)UACJ 板事業本部 名古屋製造所

Flat Rolled Products Division, Nagoya Works, UACJ Corporation

Table 2 Typical aluminum alloys for superplasticity.

Alloy	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Others	Al
2004	0.20	0.20	5.5-6.5	0.10	0.50	-	0.10	0.05	0.03-0.50Zr	Bal.
5083	0.40	0.40	0.40	0.4-1.0	4.0-4.9	0.05-0.25	0.25	0.15	-	Bal.
7475	0.10	0.12	2.4-3.0	0.05	0.25	0.05	0.10	0.15	-	Bal.
8090	0.20	0.30	1.0-1.6	0.10	0.6-1.3	0.10	0.25	0.10	2.2-2.7Li 0.04-0.16Zr	Bal.

た。古くから知られている2004合金(Supral 150)や7475合金といった超塑性用アルミニウム合金は熱処理型合金に分類され、成形後に焼き入れや析出硬化のための熱処理が必要であることおよび耐食性などの問題から使用用途は航空機などの少量かつ多品種の生産に適用されてきた^{2)~4)}。この点を解決するためにAl-Mg合金での超塑性材料が研究された。Al-Mg合金は非熱処理型合金であり、成形後の熱処理も必要なく、耐食性や溶接性にも優れ、さらに素材も比較的安価であることから実用化が進んでいる。特に中強度構造用合金である5083合金に超塑性現象が報告されて以来⁵⁾、自動車用にも使用されている。超塑性成形用アルミニウム合金の化学成分をTable 2に示す。

3. 高速ブロー成形

先述したように熱間ブロー成形では粒界すべりが主な変形機構として働く。粒界すべりは $10^{-3}/s$ オーダーの非常に小さいひずみ速度域でのみ働くため、成形速度を高めると伸びが低下する。そのため、熱間ブロー成形は生産性が低いという欠点がある。一方、5000系合金では、結晶粒を微細化しない場合においても超塑性現象が発現するという報告例がある。結晶粒径を約 $50\ \mu m$ としたAl-5.5%Mg-0.3%Cu合金を種々のひずみ速度で高温引張試験を行った結果をFig. 2に示す^{6),7)}。Fig. 2中のAl-5.5%Mg-0.3%Cu合金は通常の5083合金(ひずみ速度： $2 \times 10^{-4}/s$)と比較して、比較的低温かつ高ひずみ速度($10^{-2} \sim 10^{-1}/s$)で高い伸びが得られ、Fig. 3に示すようにキャビティの発生が極端に少ないため、高い熱間ブロー成形性を示す^{6),7)}。このような比較的低温で高速の超塑性挙動を示すことに対して、溶質雰囲気引きずり運動(Solute drag creep)によるものと考えられている^{8),9)}。

この比較的低温で高速の成形条件にて、高い延性を示す現象を利用した熱間ブロー成形を従来の熱間ブロー成形と区別して、高速ブロー成形とここでは定義する。従来の熱間ブロー成形と高速ブロー成形の特徴比較をTable 3に示す。粒界すべりを変形機構とする熱間ブロー成形では、高速ブロー成形よりも大きな伸び

が得られ、成形後の板厚分布が均一であるという特徴がある反面、粒界すべりにより粒界三重点でひずみが蓄積して、キャビティと呼ばれる微小空洞欠陥が発生しやすい傾向がある。

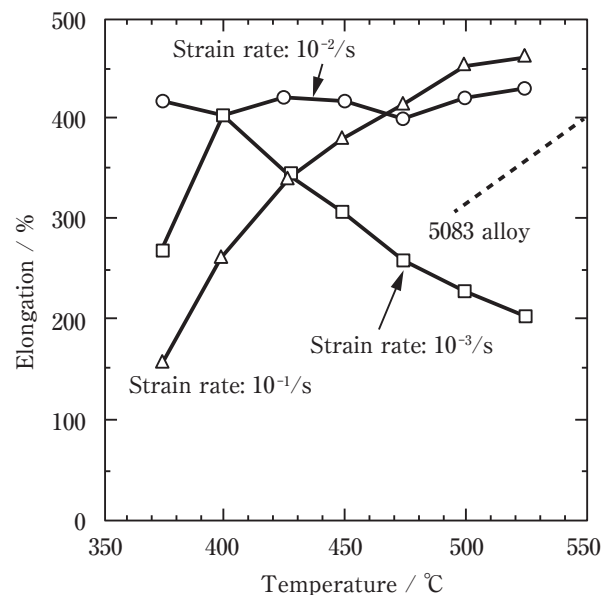


Fig. 2 Relationship between temperature and elongation of Al-5.5Mg-0.3Cu.

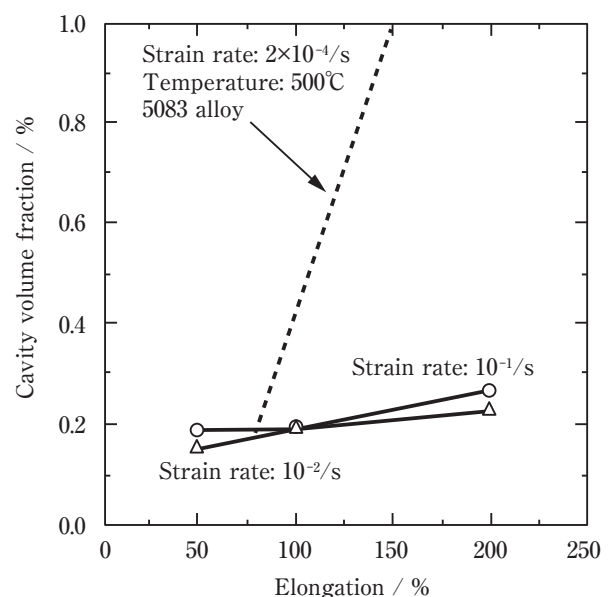


Fig. 3 Relationship between elongation and cavity of Al-5.5Mg-0.3Cu.

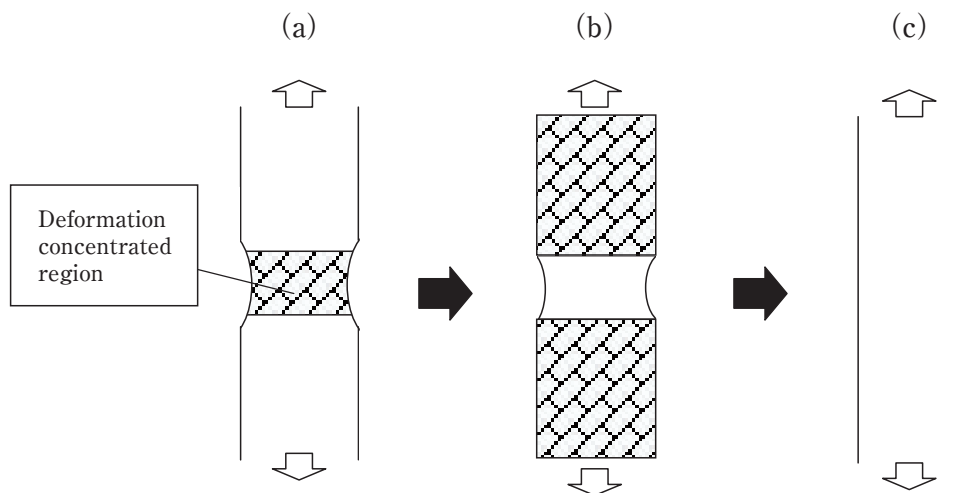
Table 3 Characteristic comparisons between conventional blow forming and high speed blow forming.

	Conventional blow forming	High speed blow forming
Desirable grain size	Less than 10 μm	Fine grain structure is not required
Forming temperature	500°C	400-500°C
Strain rate	10 ⁻³ /s	10 ⁻² /s
Forming mechanism	Grain boundary slip	Solute drag
Sheet thickness distribution after forming	Larger thickness reduction compared to cold press forming, smaller thickness reduction compared to high speed blow forming	Larger thickness reduction compared to conventional hot blow forming
Cavitation	Easy to form	Hard to form

超塑性はJIS規格内では、「多結晶材料の引張変形において、変形応力が高い歪速度依存性を示し、局部収縮（ネッキング）が生じることなく数100%以上の巨大な伸びを示す現象」と定義される¹⁰⁾。ひずみ速度感受性は変形応力の歪速度依存度を示す値である。ひずみ速度感受性指数（ m 値）が正の値を持つ材料は高温変形時に大きな伸びが得られる。その理由を説明する。変形は材料全体が変形する均一変形と、その後くびれ発生に伴い開始する局部変形に分けられる。アルミニウム合金の全変形量に占める局部変形量の割合は通常小さいため、材料の伸びは均一変形の大小によって決まる。そのため、均一変形の継続を妨げるくびれが発生しにくい材料ほど、大きな伸びを示す。くびれの発生しにくさを表す指標として、応力と歪み速度の関係式を微分して導くことができる m 値があり、ある一定温度において、 m 値は (1) 式で表される。

$$m = d(\ln \sigma) / d(\ln(d\varepsilon/dt)) \quad (1)$$

ここで、 σ は変形応力、 $d\varepsilon/dt$ はひずみ速度を示す。 m 値が正の値の場合にひずみ速度の増大に伴い、変形応力が増大することを意味する。 m 値が正の値を有する場合の変形中に発生した微小くびれの挙動を Fig. 4 に模式的に示す。この微小なくびれにおいて変形が集中することにより、他の部分に比較して局部的にひずみ速度が増大する。このとき、 m 値が正の値であるため、くびれ部の局所的な変形応力が高まり、微小くびれ部の局部変形の進行が妨げられる。その後、変形は硬化した微小くびれ部以外で進行し、やがて微小くびれが消滅し、再び均一変形が継続される。 m 値が大きいほど、ひずみ速度の変化に伴う変形応力の増分が大きいためくびれ発生が抑制され、大きな伸びが得られる。 m 値は粒界すべり（従来の熱間ブロー成形）の場合に約0.5、溶質雰囲気ひきずり運動（高速ブロー成形）の場合は約0.3の値となり、高速ブロー成形で得られる伸びは m 値が小さくなるため従来の熱間ブロー成形で得られる伸びと比較して小さくなる。

**Fig. 4** Necking suppression of material with positive m value.¹¹⁾

- Flow stress increases with increasing strain rate in a deformation concentrated region.
- No more deformation proceeds in the region because of increased flow stress, and then deformation progress in the other region.
- Uniform deformation proceeds again after small necking disappears.

4. 熱間ブロー成形の自動車への実用化例およびUACJの熱間ブロー成形の取り組み

熱間ブロー成形の自動車への実用化に関して、日本国内では本田技研工業、海外ではGeneral Motorsなどで適用されている。本田技研工業では、S2000のハードトップルーフ¹²⁾、レジェンドのフェンダやトランク¹³⁾に5083合金および5182合金が適用され、生産性を高めるために、高速ブロー成形を行っている。また、サイクルタイムの短縮のため、急速予備加熱を外段取りで行い、金型に投入後、従来の超塑性成形の3倍の成形圧力で成形することにより、従来の12倍の生産性を達成している。General Motorsでは熱間ブロー成形の手法として、quick plastic forming (QPF) を実用化しており、従来のsuperplastic formingと区別している¹⁴⁾。

UACJでは、先述した耐食性や溶接性に優れた5083合金を中心に材料開発および実用化を進めてきた。アルノービ1は5083合金をベースとし、化学成分および製造プロセスの最適化により開発された合金である¹⁵⁾。アルノービ1は遷移元素のMn, Crの微細析出物が結晶粒界をピンニングするため、熱間ブロー成形時に粒界の移動が起こりにくく、その結果結晶粒の成長が比較的少ないという特徴がある。また、熱間ブロー成形材に求められる性能として、成形中の微小空洞欠陥の発生現象であるキャビテーションが少ないことが重要である。アルノービ1はキャビテーションの起点となる粗大な金属間化合物を抑えるため、Fe, Si量を低減し、航空機や自動車などの難加工品に使用されている。

アルノービ1は優れた特性を有しているが、成形温度の低温化、成形時間の短縮などの生産性の向上が求められている。そこで、アルノービ1よりも低温におけ

る加工および高速加工が可能であり、ブロー成形性を向上させたアルノービUを開発した。アルノービUはアルノービ1よりも微細な結晶粒を有する。アルノービUの非常に微細な結晶粒は遷移元素の添加および製造条件の最適化により達成したものである¹⁶⁾。アルノービUの性能に関して簡単に紹介する。Fig. 5にアルノービUとアルノービ1の成形温度とひずみ速度に対する高温伸びの関係を示す¹⁷⁾。アルノービUはアルノービ1と比較して高い延性を示す。アルノービ1は470℃で最大の伸びを示すが、アルノービUは成形温度40～50℃低くしてもアルノービ1と同等の伸びが得られるため、成形温度の低温化が図れる。また、ひずみ速度を2～3倍速くしても同等の伸びが得られるため、成形時間を1/2～1/3に短縮できる。Fig. 6に室温における各種5000系合金の引張性質を示す。アルノービUは5000系としては高い引張性質を有しており、強度が求められる自動車用外板にも適用可能である。

5. おわりに

アルミニウム合金は熱間ブロー成形により成形性を向上させることができ、様々な形状や材料特性を付与することができる。この特徴を利用して、自動車分野をはじめとする世界中の広い分野への適用が期待される。

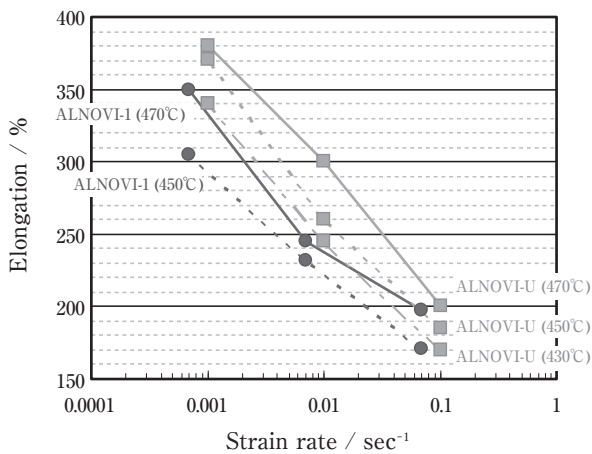


Fig. 5 Relationship between strain rate and elongation in tensile properties at high temperature of ALNOVI-1 and ALNOVI-U.

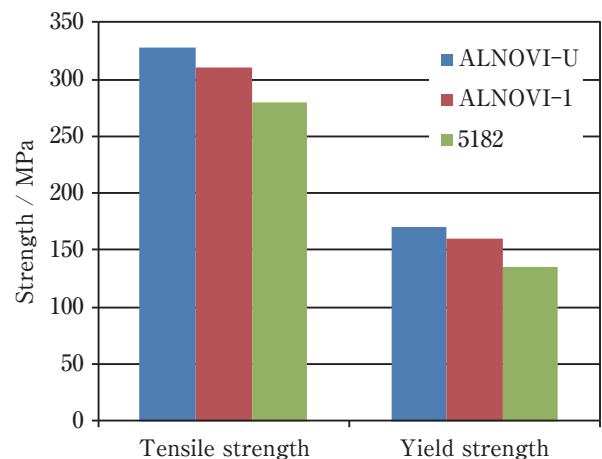


Fig. 6 Strength at room temperature of ALNOVI-1, ALNOVI-U and 5182 alloy.

参考文献

- 1) 阿部佑二：アルミニウムの加工方法と使い方の基礎知識，(2004)，152-158，軽金属製品協会
- 2) 超塑性研究会編：超塑性と金属加工技術，(1980)
- 3) 吉田英雄，熊谷正樹，松田真一：住友軽金属技報，**31** (1990)，203-209.
- 4) 吉田英雄：住友軽金属技報，**37** (1996)，90-98.
- 5) D. J. Lloyd: Metall. Trans., **11A** (1980), 1287-1294.
- 6) H. Uchida, M. Asano and H. Yoshida: Material Science Forum, 304-306 (1999) 309-314.
- 7) H. Uchida, M. Asano and H. Yoshida: Sumitomo Light Metal Technical Report, **40** (1999) 12-15.
- 8) 伊藤勉，駒正幸，柴崎聡，大塚正久：日本金属学会誌，**66** (2002)，476-484.
- 9) E. M. Taleff, D. R. Lesure and J. Wadsworth: Met. Mater. Trans., **27A** (1996), 343-352.
- 10) JIS H7007, 金属系超塑性材料用語，(1995)
- 11) Furukawa-Sky Review, No.4 (2008), 66-69.
- 12) 中尾敬一郎，横山鎮，渡辺二郎：アルミニウム No.53, **10** (2003)，103-105.
- 13) 柴田勝弘：アルトピア，(2005)，4月号，9-14.
- 14) J. G. Schroth: Advances in Superplasticity and Superplastic Forming Ed. By E. M. Taleff, TMS (2004), 9-20.
- 15) 田形勉：金属，**73** (2003)，324-329.
- 16) K. Ichitani and T. Tagata: Materials Science Forum, 539-543 (2007) 357-361.
- 17) 工藤智行：UACJ Technical Reports, **1** (2014)，131-133.



新里 喜文 (Yoshifumi Shinzato)
(株)UACJ R&Dセンター 第二開発部



浅野 峰生 (Mineo Asano)
(株)UACJ 板事業本部 名古屋製造所

アルミニウム圧延における境界潤滑*

野瀬 健二**, 渡邊 貴道***

Boundary Lubrication in Aluminum Rolling*

Kenji Nose** and Takamichi Watanabe***

1. はじめに

アルミニウム（以下アルミ）は高い比強度や導電率、耐食性といった優れた特性を有し、飲料缶や医薬品容器、輸送材料などに広く用いられている。アルミは金属材料の中でも塑性加工性に優れ、生産効率の観点で圧延との相性が良い材料といえる。表面特性に関しては、圧延されたアルミは一般に美しい金属光沢を有し、そのまま製品表面として利用される場合も多い。近年では異種材料や塗膜との接着などの点も含め、表面特性に関する様々な要求がなされている。

アルミの圧延においては、ロールとアルミとの凝着が生じやすい。すなわち、アルミの圧延において対象となるトライボロジカルな作用面は、鋼製のロールとアルミ材ではなく、ロール表面に形成されるアルミ層と被圧延材とにある場合が多い。特に境界潤滑域で行われる熱間圧延（以下熱延）においてはその傾向は顕著である。この、ロール表面に形成されるアルミ層は一般にロールコーティングと呼ばれる。材種、クーラントおよび圧延条件から複雑な影響を受けるロールコーティングの制御は工業的な圧延プロセスにおける1つのキーテクノロジーといえる。

本解説記事ではアルミ圧延材の製造工程を概説し、熱間および冷間圧延（以下冷延）における金属表面やロール面の制御などの側面から境界潤滑を議論する^{1), 2)}。

2. アルミ圧延の製造工程とトライボロジー

アルミ合金板の製造工程では半連続鋳造により得られるバルク材（スラブ）から圧延を開始するプロセスが

広く用いられている。地金の重量単価の高さ、金属元素の中での融点と比熱の低さ、沸点が比較的高いこと、加工と熱履歴による組織制御の自由度が高いことが、こうしたプロセスを選択せしめている。また、アルミ板材の高リサイクル性と製品ライフサイクルにおける低環境負荷も、板製造プロセスにより担保されているといえる。

アルミ板材の製造工程の概略をFig. 1に示す。鋳造されたスラブは、面削された後に均熱処理により結晶組織および析出相が制御される。処理時間は数時間から24時間、温度は融点の7割から9割程度である。この時点でのスラブの厚さは300～600 mmであり、熱延により高い効率で板厚を減じられる。粗圧延機は英語圏ではbreak down millと称されるように、圧延による加工量が大きいことを一番の特徴としている。

熱延工程での材料温度はおおよそ350℃以上である。各種圧延パラメータから求められる先進率から、Bland & Fordの仮定の下で摩擦係数を求めれば0.1から0.4程度となる。すなわち、乾燥摩擦から境界潤滑域で加工がおこなわれていることとなる。ロールコーティングの厚さは数nmから数百nm程度であるが、その厚さや状態（組成や組織）は、圧延油と圧延条件に強く影響される。また、ロールコーティングからの凝着や板からの脱離に由来する構造欠陥も生じうる。

熱延における圧延油は板およびロールの冷却（クーラント）と潤滑の維持の2つの側面から、エマルション型の潤滑油が広く用いられている。エマルションはoil in water (O/W)型が一般的であり、油分濃度（数%）と粒径（数μm）が乳化剤と機械攪拌により制御されている。潤滑性向上のために、油性剤として高級脂肪酸や

* 本稿は、トライボロジスト, 62 (2017), 485-489より転載

This review was reprinted from Journal of Japanese Society of Tribologists, 62 (2017), 485-489.

** (株)UACJ R&Dセンター 第二研究部 博士(工学)

Research Department II, Research & Development Division, UACJ Corporation, Ph.D.

*** (株)UACJ R&Dセンター 第五開発部

Development Department V, Research & Development Division, UACJ Corporation

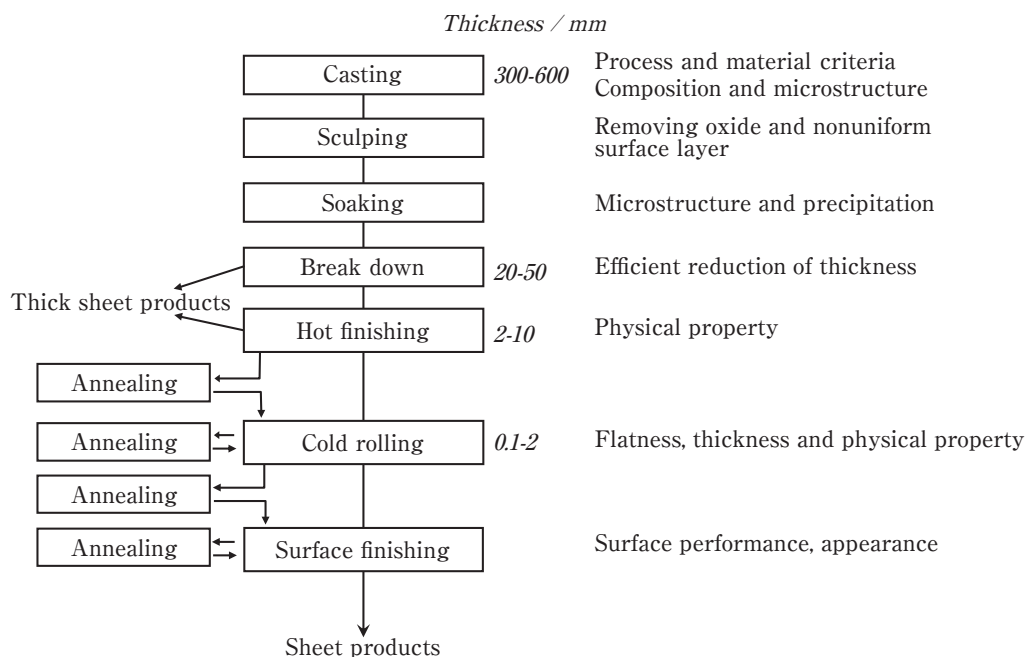


Fig. 1 A production process of aluminum sheets.

油脂，エステルが添加されている^{3,4)}。これらの成分を単価，乳化安定性や長期耐久性，発生するアルミニウム微粒子の分散性⁵⁾などの観点でバランスさせつつ，圧延材や圧延機の条件ごとに最適化するノウハウが圧延メーカーおよび加工油メーカーが保有する技術といえる。極圧添加剤も用いられることがあるが，上記のロールコーティングとの関連で，その作用機構は未解明である部分が多い。鋼材に対するS系およびZn系の極圧剤の表面終端構造は，鋼材とは電子構造が異なる(s,p軌道主体の)アルミ合金にそのまま適用できるとは考えにくく，この分野の基礎研究は今後，学術的にも産業的にも大きなブレークスルーに結びつくと考えられる。

生産設備としての熱延システムは動的安定に近い形で管理する必要がある。すなわち，系内で摩擦により生じるAI微粒子と高級脂肪酸との反応において金属石鹸が生成されるとともに，各種成分が熱投入による蒸散と濃化を生じ，これらが供給/排出のバランスの下で制御される。どの項目を制御パラメータとするかは，設備や操業状態により変わり得る。熱延は圧延機あたりにおける生産性(単位時間あたりの圧延ton数)が高いために，製造所に粗熱延，仕上げ熱延が一組設置され，複数の冷延機との組み合わせで使用されることが多い。

数十mm以上の厚板のまま製品となる航空機用材料，LNGタンク用材料などでは，この後に超音波探傷などによる製品検査が行われる。厚さ数mm程度以下の製品に関しては，熱延板はコイル形状に巻き取られ冷延工程に送られる。

冷延工程では通板速度が高い(1000 m/min程度のため，圧延界面に導入される油膜導入量も必然的に多くなり，摩擦係数は一般に0.03から0.1程度となる。冷延油としては鉱油に高級アルコールやエステルを数%程度添加したものが使われることが多い。40℃動粘度として数cStのものが選ばれる。圧延ロールと材料との界面への油膜導入量は，通板速度や圧下率(数十%)の変化幅により，数nmから1 μm程度の範囲で変化する。このため，圧延条件に依存した潤滑状態が操業条件(板のスリップ)や表面状態(光沢や焼き付き不良)に強く影響を与える。冷延油に関しても発生したアルミ粉を濾過除去するフィルターと部分置換により性状が管理される。

熱間および冷間の双方の加工油に関していえば，使用による変化(劣化)だけでなく，置換や濾過，精製，排出を伴いながら，動的に制御される特徴を有している。このため，圧延油は加工材料だけでなく，圧延条件と性状管理手法との組み合わせにおいて性能が議論されなければならない。このため，加工油メーカーと圧延メーカーとの間の技術的なすりあわせが重要となる。

3. 粗熱延における摩擦係数とスラブ噛み込み性

粗熱延における生産性をトライボロジー的な一側面から議論する。粗熱延油の性能指標の一つとしてスラブの噛み込み性が挙げられる。高い圧下率において表面性状を向上するためには，高粘度かつ油性の強い油設計が好ましい。しかしながら，ワークロール径と大

大きく変わらないスラブを数十%以上の圧下率で加工する場合には、物理的に板がロールの間に噛みこまず、圧延が開始できないという現象が発生しうる。

以下に限界噛み込み角度と呼ばれるこの条件が、粗熱延の生産性にどのように影響を与えているかを議論する。圧下量とスラブ厚さにより決定される限界噛み込み角度 α (Fig. 2) は、マクロには摩擦係数 (μ) により決定される。すなわち

$$\mu p \cos \alpha > p \sin \alpha \quad (1)$$

より

$$\arctan \mu > \alpha \quad (2)$$

となる。この式に基づき、ワークロール直径500 mm、スラブ厚500 mm→50 mm時の限界噛み込み角度、摩擦係数および圧下率の関係を示したのがFig. 3である。当然、1パス目で設定可能な圧下率は小さく、パスが進むにつれてワークロール径/板厚の比率が上昇し、大きな圧下率をとることが可能となる。

摩擦係数が決定する限界噛み込み角度で最も効率的に圧延を繰り返した場合の圧延回数(パス数)を算出する。 $\mu = 0.2$ から0.1への変化において、必要な圧延回数は12回から25回へと倍増する。産業的には効率よく板厚を減ずるプロセスが求められるが、噛み込み角度は摩擦係数とトレードオフの関係があることが分かる。このため、単純に高い潤滑性が求められるだけでなく、圧延材に適した圧下配分を実現可能とするように摩擦係数を調整する必要がある。複数の材種を通板する熱延ラインにおいては、この問題の最適解を得る困難が増すことは推測しやすい。

熱延における潤滑設計においては、熱延油のロール表面でのプレートアウト現象(熱延油の表面への残存)の理解が重要となる。熱延におけるロールおよびスラブの表面温度は高く、クーラントの水分は蒸発しなが

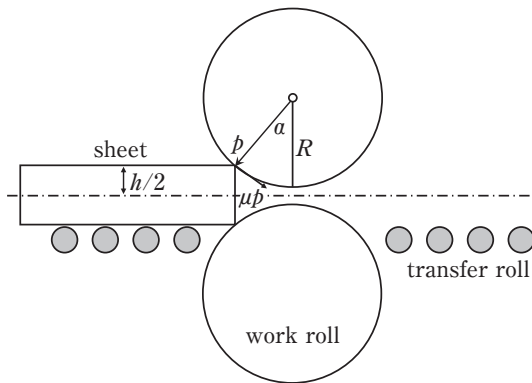


Fig. 2 Schematic diagram of slab biting in a break-down mill.

ら(ロールの冷却)、バイトに油滴を到達させる機構が重要となる。一般にはロール温度が100℃を超えると、表面への油滴の供給量が減少し始めることが知られている。これは沸騰膜の形成により油滴が物理的に反跳することにより説明されることが多いが、明確な実験的証拠は得られていない。技術対策としては油滴の粒径を数 μm 程度以上に安定化させることで、ロールに到達する油量を増やす方策がとられる。圧延時にバイトに導入される油膜厚さ(t_d)の式をFig. 4に示す。ここで、 R はロール半径、 Δh は圧下量、 r はリダクション、 η は油の粘度、 p は面圧である。これにより圧延に必要な油膜厚さはたかだか数十nm程度(数十 mg/m^2)であることを推測させるが、これを上回る十分な量の油をロールに残すことが熱延潤滑の必要条件となる。既報⁶⁾によれば、100℃前後のロール温度におけるプレートアウト量は1 g/m^2 のオーダーにあり、通常の圧延条件においてはプレートアウトした油の大半はバイトから排出されながら圧延が進行している挙動が推測される。

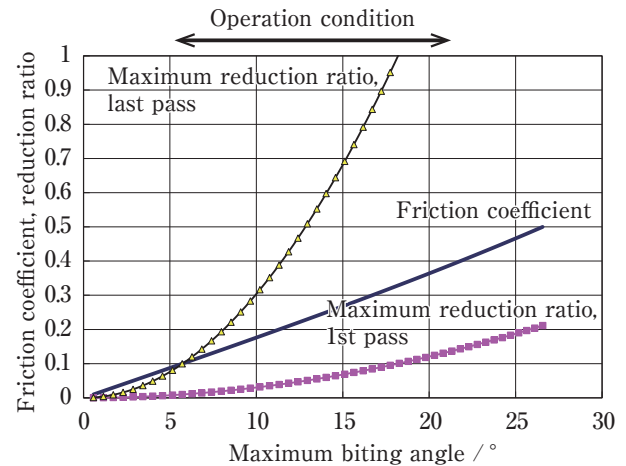


Fig. 3 Friction coefficient and maximum reduction ratios plotted against maximum biting angle.

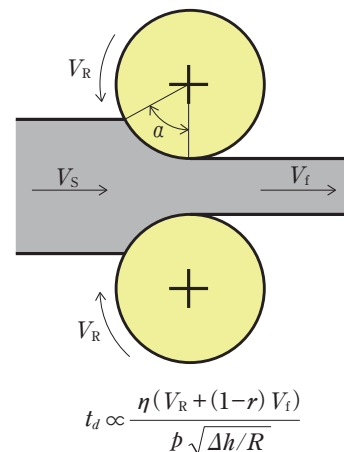


Fig. 4 Oil film thickness in rolling.

4. 熱延におけるロールコーティング

ロールコーティングを定量化することは熱延油の油性の設計や圧延条件の最適化の出発点となる。Fig. 5にはラボ圧延機において観察されるロールコーティングの外観を示す。通板した板幅の領域でロール表面状態が変化していることが目視でも確認される。異なる圧下率において、圧延枚数ごとにロールコーティングがどのように変化するかを測定した結果をFig. 6に示す。ロールコーティング量は圧延枚数に応じて増加していくことが確認できる。その厚さは圧下率によって大きく異なる。もちろん、クーラント中の油性剤や板温度の影響も受ける。ここではラボ圧延機において通板枚数に依存した値として示してあるが、Fig. 6の横軸は圧延長としてとらえることが可能である。実際にはただか数十m程度の圧延長でロールコーティングの厚さは100 nm程度に達することが分かる。上述の油膜導入量との比較でいえば、ロールコーティングの凹凸と油膜が同等の厚さとなり、境界潤滑状態がシビアに影響を受けることが推測される。

実際に、過剰なロールコーティングが板面の形状欠陥に結びつく例を示す。Fig. 7には熱延板面に生じる鱗片形状の表面欠陥のSEM像を示している。図中のRDは圧延方向を示す。ラボ圧延機において、圧下率

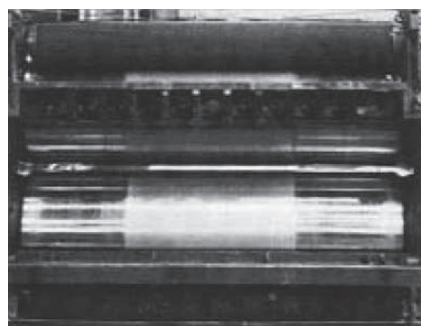


Fig. 5 Roll coating formed in a lab mill⁹⁾.

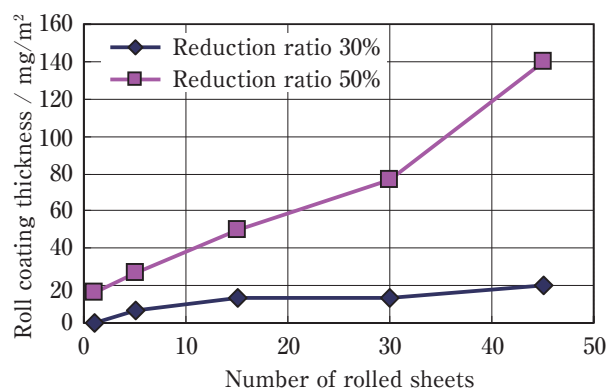


Fig. 6 Roll coating thickness plotted against numbers of rolled sheets with reduction ratios of 30 and 50%.

40%にて通板枚数に応じてこの形状がより明確に観察される。圧延枚数(量)に応じて欠陥がより顕著となることが分かる。ロールコーティングの成長に伴い、面内に数十 μm といった比較的大きなサイズのロールコーティング厚さの分布が形成される。これらの凹凸が圧延の先進域、後進域において板面に転写されることでこのような形状が形成されることが確認されている⁷⁾。実際の生産ラインにおいてはロール表面を機械的に研磨するロールブラシが採用されており、ロール表面状態を一定に保つことで、潤滑条件を安定化させる工夫がなされている。

5. 冷延における境界潤滑

冷延の潤滑制御にはロールバイト内への導入油膜量が重要となる。導入油膜量はFig. 4中の式で概算できる。すなわちロール周速(V_R)および動粘度(η)に比例し、圧延圧力 p に反比例した油膜厚さ(t_d)が得られることとなる。油膜等量の多寡は潤滑状態に影響を与えるだけでなく、板面にオイルピットと呼ばれるロールの転写痕の間の溝状の微細構造を形成しうる(Fig. 8)。そのサイズは可視光の波長程度であり、目視での板面

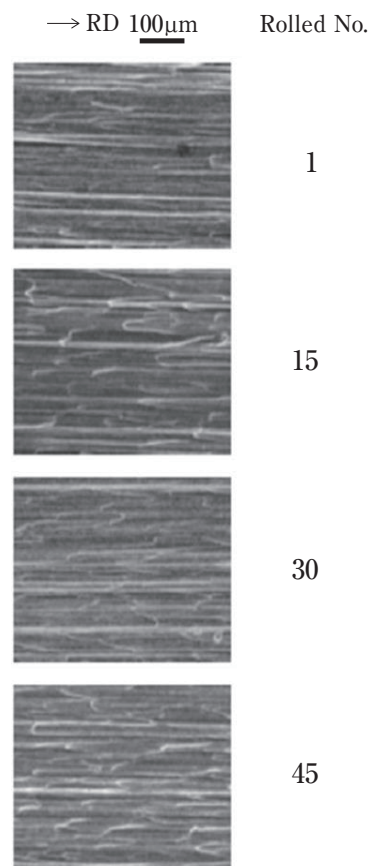


Fig. 7 Squamiform patterns on Al sheets formed by roll coating structures.

の色調に直接影響を与えうることが推測される。板面の圧延模様が製品の外観を決める板材においては、色調は重要な品質の1つであり、機械特性だけでなく、外観も冷延のパススケジュールを決める要因となる。

Fig. 9には冷延で通板速度を変化させた時の板面の明るさ(拡散反射率)がどのように変化するかを示す。導入油膜量は速度に比例して増加するが、これに応じてオイルピットの形状および面密度が変化することで板面の反射率が変化する様子が確認できる。圧延における長さの増大に比例し、それ以前の圧延パスの影響は減少する。このため、組織制御と表面の両観点から最適なパススケジュールが選択されることとなる。

冷延においても大きな圧下率においては境界潤滑の影響が強く現れうる。アルミ合金の冷延では、脂肪酸に比べてアルコールが境界潤滑性に優れていることが知られている。これは酸化皮膜への反応性の高さにより説明される。アルコールとアルミ表面との反応性に関しては、基油中に芳香族を含む場合において吸着活性が向上することが報告されている⁴⁾。環境負荷低減や作業環境の改善のために低芳香族基油が好まれる傾向にあり、芳香族鉱油成分を含まずとも新生面への反

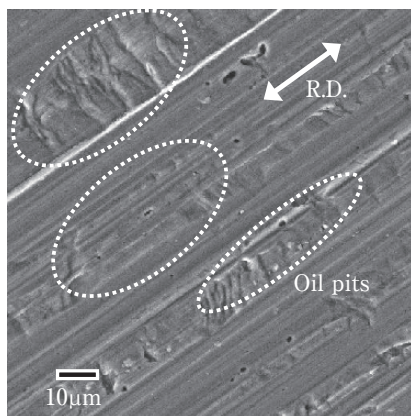


Fig. 8 Surface SEM image of a cold-rolled Al sheet.

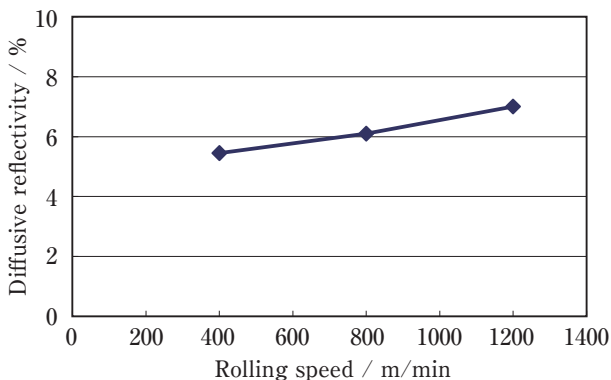


Fig. 9 Diffuse reflectivity of Al sheets plotted against sheet speed in cold-rolling.

応活性を高めた冷延油添加剤が検討されている。他方、表面への反応活性や終端の強さは、レビンダー効果によるアルミ粉発生の促進といった負の効果も生みうる⁸⁾。圧延におけるAl粉の発生は生産量の増大とともに増加する傾向にある。ここでも、潤滑特性だけでなく、洗浄性や蒸散性との兼ね合いで潤滑油と加工条件の設計がなされなければならない。

6. まとめ

アルミの熱間および冷間圧延での圧延油、プロセス条件および板面形状について潤滑制御が重要となる事例を紹介した。圧延潤滑の設計においてはロールコーティングの堆積や油性剤のアルミ新生面への吸着といったマイクロな条件だけでなく、導入油膜量やプレートアウトといったマクロな現象を捉える必要があり、基礎研究としても興味深いテーマとなり得ると考えられる。

参考文献

- 1) 菱川滋, 小林博幸: アルミニウムの板圧延技術, Furukawa-Sky Review 4 (2008) 1-9.
- 2) 渡邊貴道: アルミニウム合金の圧延におけるトライボロジー, トライボロジスト, 55 12 (2010) 847-853.
- 3) 上田薫, 初野圭一郎, 細見和弘: アルミニウムの熱間圧延性に及ぼすエステルの影響, トライボロジー会議予稿集2013-10 (2013) E10.
- 4) 柴田潤一: 環境負荷低減アルミニウム用圧延油における潤滑性向上技術, トライボロジスト, 53 7 (2008) 437-442.
- 5) 市本武彦, 森大記, 石井克広: アルミニウム板用熱間粗圧延油の紹介, 日本パーカライジング技報, 28 (2016) 49-51.
- 6) 細見和弘, 間瀬俊朗: トライボロジー会議予稿集, 東京 1997-5 (1997) 36-37.
- 7) アットナローング チャローンジット, 山田隆太, 野瀬健二, 渡邊貴道: トライボロジー会議予稿集, 新潟 2016-10 (2016) 472-473.
- 8) 柴田潤一, 関 克巳, 小倉茂稔, 若林利明: アルミニウムの冷間圧延における摩耗粉発生挙動の研究(第1報) - 摩耗粉発生機構について -, トライボロジスト, 47 4 (2002) 306-312.



野瀬 健二 (Kenji Nose)

(株)UACJ R&Dセンター 第二研究部
博士(工学)



渡邊 貴道 (Takamichi Watanabe)

(株)UACJ R&Dセンター 第五開発部

軽量アルミニウム合金の高耐食化と腐食解析*

京 良彦**, 大谷 良行***, 兒島 洋一****

Improvement in the Corrosion Resistance of the Light Aluminum Alloy and the Corrosion Analysis*

Yoshihiko Kyo**, Yoshiyuki Oya*** and Yoichi Kojima****

1. はじめに

アルミニウムは銅や鉄に比べて、歴史的には“若い金属”であるとよく言われる。紀元前から使われている銅や鉄に対して、ハンフリー・デービーによる金属アルミニウムの発見が1807年、アルミニウムの工業的製法である電解製錬法（ホール・エルー法）の発明は、今からわずか130年ほど前の1886年の出来事である。今年（2018年）が明治元年から数えて150年目にあたることを考えると、その“若さ”が実感できるだろうか。しかしながら、アルミニウムはその軽さ（密度）、強さ（比強度）、美しさ（耐食性、表面処理）といった優れた特長ゆえに急速に普及し、現在では生活用品をはじめ、飲料缶、IT機器、航空・宇宙機、車両、船舶、建材および熱交換器など、現代社会を支える基盤材料としてきわめて広範に用いられている。

アルミニウムの標準電極電位は $E^{\circ}_{\text{Al}} = -1.67 \text{ V vs. SHE}$ と、 Zn ($E^{\circ}_{\text{Zn}} = -0.76 \text{ V vs. SHE}$)と比べても非常に低く、元来非常に活性な金属であるが、大気中や水中では表面に保護性の高い緻密な酸化皮膜がすみやかに形成されるため、高い耐食性を示す。しかしながら、強酸・強塩基環境や、塩化物イオン (Cl^-) 環境においては、不動態皮膜が破壊され腐食が生じる可能性がある。また腐食環境中において、より貴な金属とアルミニウムが接触している場合、アルミニウム側の腐食が促進される異種金属接触腐食が生じる懸念がある。アルミニウムを適切に使用するためには、その腐食挙動を十分に理解することが重要である。本報では、アルミニウムの腐食・防食の基礎について概説する。

2. アルミニウムの耐食性

大気環境中におけるアルミニウムの優れた耐食性を示す例として、日本アルミニウム協会が実施した53年間大気暴露試験の結果が挙げられよう^{1,2)}。Fig. 1は名古屋（現在の(株)UACJ R&Dセンター屋上）にて暴露試験された各種アルミニウム合金（1200：純Al, 3203：Al-Mn系, 5052：Al-Mg系, 6061：Al-Mg-Si系）の最大腐食深さを示したものである。離岸距離が約7 kmと比較的海に近く、周囲は工場や交通量が多い環境であるが、いずれのアルミニウム合金も試験片の一部に深さ100～150 μm程度の腐食孔が生じたのみであり、機械的性質もほとんど変化していなかった。一方、同時に設置されていた炭素鋼や亜鉛めっき鋼板は、暴露10～20年程度でほぼ原型を留めないほどに腐食していた。

元来非常に活性な金属であるアルミニウムが高耐食性を示す理由は、前述のように表面に保護性の酸化皮膜が自然に形成されるためであり、仮に機械的な損傷を受けてもすぐに再生する。酸化皮膜は、厚さ1～数nm程度で緻密な非晶質アルミナからなるバリアー層と、その上部に形成される多孔質な水和酸化物からなるポーラス層の二層構造をとる。バリアー層は保護性が高く、室温ではほぼ一定の厚さである。ポーラス層は保護性に劣り、高湿度環境や水中では最大で厚さ数μm程度に成長することがある。また環境によっては、ポーラス層の成長によって表面が黒色～褐色に変色するウォーターステインが生じる場合がある。これは腐食とは異なり貫通孔を生じるものではないが、審美性の観点から問題になることがある。

* 電気化学, 86-Autumn (2018), 226-230より転載

This review was reprinted from *Denki-Kagaku*, 86-Autumn (2018), 226-230 published by the Electrochemical Society of Japan.

** (株)UACJ R&Dセンター 第二研究部, 博士(工学)

Research Department II, Research & Development Division, UACJ Corporation, Dr. Eng.

*** (株)UACJ R&Dセンター 第二研究部, 博士(工学)

Research Department II, Research & Development Division, UACJ Corporation, Ph. D. (Eng.)

**** (株)UACJ R&Dセンター 第一研究部 兼 第二研究部, 博士(工学)

Research Department I & II, Research & Development Division, UACJ Corporation, Ph. D.

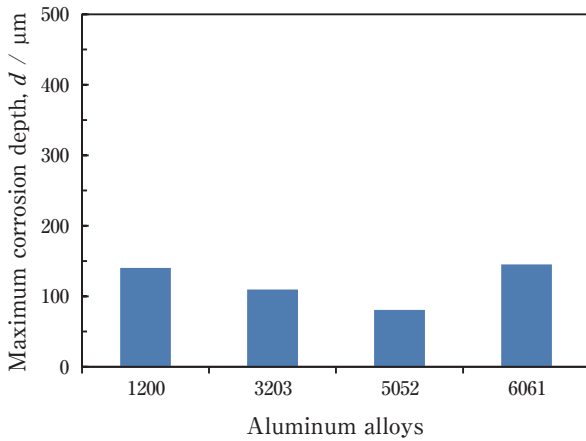


Fig. 1 Maximum corrosion depth of the various aluminum alloys after the 53-year atmospheric exposure test at Nagoya²⁾.

3. アルミニウムの腐食形態

アルミニウムの腐食形態は、均一腐食(全面腐食)と、孔食に代表される局部腐食の2つに大別される。均一腐食は酸化皮膜が全体的に溶解する場合であり、局部腐食は酸化皮膜が部分的に破壊される場合である。Fig. 2にアルミニウムの電位-pH図³⁾を示す。強酸性・強アルカリ性環境では酸化皮膜は不安定となり、 Al^{3+} もしくは AlO_2^- として溶出していく。鉄とは異なり、アルミニウムはアルカリ側にも腐食域が存在する両性金属であることが特徴である。このとき、アルミニウムは比較的大きな速度で全面が溶解している均一腐食の状態にあり、pHがより低いもしくは高いほど均一腐食速度は大きくなる傾向にある。一般的に強酸性・強アルカリ性環境中ではアルミニウムの使用は適さないが、実際の溶解速度は酸・塩基の種類や濃度および温度などの影響で大きく変化し⁴⁾、pHのみで決まるわけではない。中性付近には $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ の安定領域が存在しており、保護性の高い酸化皮膜を形成することで、アルミニウムの耐食性が発現している。酸化皮膜が安定な状態ではその溶解度は非常に小さいため³⁾、アルミニウムはきわめて耐食的である。しかしながら、 Cl^- に代表されるハロゲン化物イオンが存在すると、酸化皮膜が部分的に破壊され、孔食などの局部腐食が生じる可能性がある。孔食以外に、すき間腐食、粒界腐食、糸状腐食および異種金属接触腐食なども局部腐食の一種である。なお、電位-pH図は溶液中の金属イオン濃度がある値とした場合(腐食系では $10^{-6} \text{ mol dm}^{-3}$ とするのが通例)の熱力学的な平衡計算に基づくものであり、速度論や Cl^- などの影響は考慮されていない点に

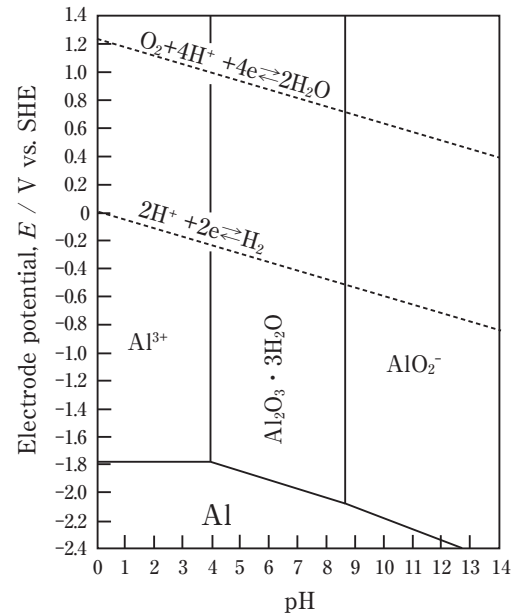


Fig. 2 Potential-pH diagram for the Al-H₂O system³⁾ (25°C, $[\text{Al}^{3+}] = [\text{AlO}_2^-] = 10^{-6} \text{ mol dm}^{-3}$).

は注意を要する。例えば、Fig. 2ではpH 4付近に Al^{3+} と $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ の境界線が存在しているが、腐食促進試験(SWAAT (ASTM G85)など)に用いられるpH約3の酢酸酸性人工海水の中では、アルミニウムの腐食形態は局部腐食となる。前述のように均一腐食が問題となるのは強酸性・強アルカリ性環境中であり、通常はアルミニウムの使用が想定されない。したがって実環境で問題となるアルミニウムの腐食形態は孔食などの局部腐食である。なお、アルミニウムで「孔食」という場合、基本的に酸化皮膜が局部的に破壊されて生じる局部腐食(電気化学的には孔食電位(E_{pit})以上で生じる腐食)のことを指しており、腐食部の形状が孔状になることとは必ずしも一致しない。例えば、酸性塩化物環境中では、微細な孔食が表面全体に発生する場合がある。逆に、均一腐食が局所的な領域に発生すると、外観上は孔状となりうる。しかし、腐食部をミクロ的に観察すると両者は侵食形状が異なっており、孔食の場合は幾何学的(ファセット状)な方位性ピット、均一腐食の場合は半球状(ディンプル状)となることから、腐食孔の成因を推定することが可能である。Fig. 3は、大気暴露試験後の1000系合金(純Al系)に生じた腐食孔の内部を、腐食生成物を除去した後に電子顕微鏡で観察したものである。立方体が集積したような幾何学的な侵食形状が見られ、 Cl^- による孔食が発生していたことがわかる。なお侵食形状が幾何学的になる理由は、各結晶粒表面の溶出速度が面方位によって異なり、 $\{100\}$ が溶け残り面となるためである^{5), 6)}。

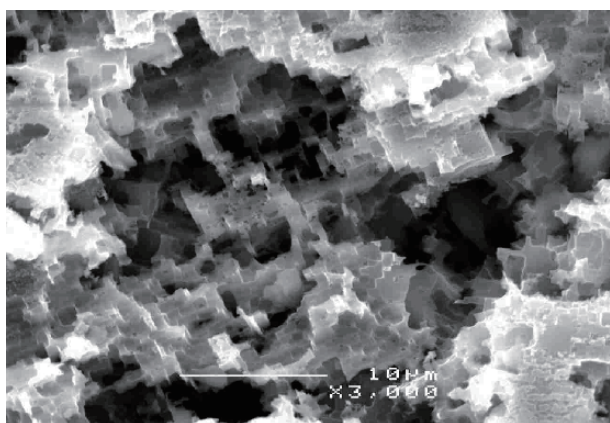


Fig. 3 SEM image inside a pitting corrosion occurred on 1100 aluminum alloy after the atmospheric exposure test.

4. アルミニウムの電気化学的性質

実環境で問題となるアルミニウムの腐食形態は孔食（局部腐食）であることから、アルミニウムの耐食性を判断するためには、孔食発生に対する感受性を評価することが重要である。孔食発生の感受性は、分極曲線から得られる孔食電位の貴卑で定量化できる。Fig. 4に6000系（Al-Mg-Si系）アルミニウム合金の、5mass% NaCl水溶液中（NaOHでpH 7に調整）における分極曲線の測定結果を示す。供試材には測定直前に前処理（60°C 5mass% NaOH × 30 s浸漬 → 純水洗 → 25°C 30mass% HNO₃ × 60 s浸漬 → 純水洗）を施しているが、これは表面酸化皮膜をいったん除去し、初期表面の差異による影響をなくすためのものである（なお前処理後の表面には酸化皮膜がすぐに再生している）。供試材を溶液中に1800 s浸漬した後、自然電位（ E_{corr} ）からアノードまたはカソード方向へ20 mV s⁻¹の走査速度で動電位分極を行った。アノードはAr脱気下、カソードは大気開放下での測定結果である。したがって、この場合はカソード分極曲線上の E_{corr} が、実環境における E_{corr} に該当する。アルミニウムの E_{corr} は、酸化皮膜の存在により金属Alの平衡電位よりもはるかに貴な値をとる。アノード分極曲線では、 E_{corr} から約-700 mV vs. SSE（飽和KCl 銀-塩化銀電極基準）において、電流密度が小さく、かつ緩やかに増加する区間が見られる。これはアルミニウムの不働態領域に相当し、表面はごく小さな速度で全面溶解している状態にある。電流密度の急増が観測される約-690 mV vs. SSEが供試材の孔食電位（ E_{pit} ）であり、表面の酸化皮膜が局部的に破壊されて成長性孔食が発生したことに対応する。逆に、アルミニウムの電極電位を E_{pit} よりも卑に制御し、不働態領域に保ち続けることで孔食発生を抑制で

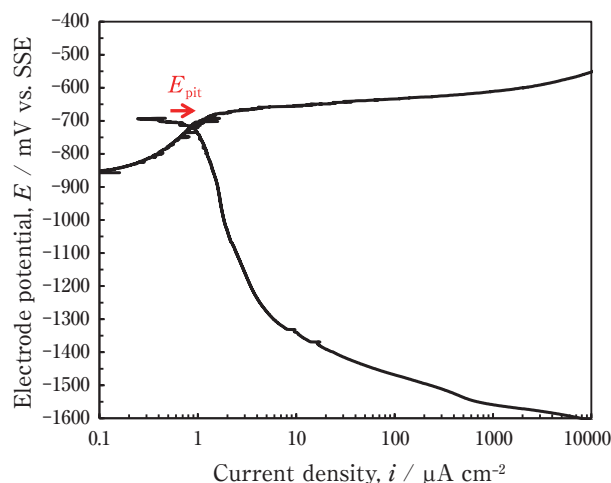


Fig. 4 Polarization curves of 6xxx aluminum alloy measured in pH 7 5mass% NaCl (anodic: de-aerated with Ar, cathodic: open-to-air).

きる。この場合、不働態領域における溶解速度は工学的には無視できる程度であるため、アルミニウムを耐食的に使用することが可能である。このように E_{pit} はアルミニウムの防食設計において非常に重要な指標となる。また E_{pit} は材料と溶液環境によって決まり、後述するようにアルミニウム中の合金元素や、溶液中のイオン種によって大きく影響を受ける。なお、溶液中のCl⁻濃度が高い場合などでは、アノード分極曲線上に不働態領域が見られない場合があるが、これは E_{pit} が卑化して $E_{\text{corr}} \approx E_{\text{pit}}$ となったためである。

一方、カソード分極曲線に着目すると、 $E_{\text{corr}} \sim$ 約-1300 mV vs. SSEにおいて見られる溶存酸素の還元電流は、鉄などで通常観測される拡散限界電流である20 $\mu\text{A cm}^{-2}$ に比べて1桁程度小さい。これは、酸化皮膜の存在により表面のカソード活性が低いためであり、アルミニウムが高耐食性を示す理由の一つとなっている。逆に、表面のカソード活性が高くなるような場合には、アルミニウムの耐食性は低下する。例えば、母相よりも貴な金属間化合物はカソードサイトとして働くため、これらを表面から選択除去した場合や⁷⁾、高純度アルミニウム⁸⁾ではカソード反応がより不活性となる。また、溶液中にCu²⁺などの重金属イオンが存在すると、アルミニウム表面に析出してカソードサイトを形成し耐食性を低下させる。

5. アルミニウムの孔食電位（ E_{pit} ）の測定法

アルミニウム耐食性の指標としての E_{pit} の重要性は、前節で述べたとおりである。 E_{pit} はアノード分極曲線の測定によって決定されるが、より簡便な手法として、

$E_{\text{corr}} \approx E_{\text{pit}}$ となる溶液中での E_{corr} の測定結果をもって E_{pit} の代用とする方法が幅広く用いられており、日本アルミニウム協会⁹⁾やASTM (G69) などによって規格が制定されている。これらの規格では、測定溶液として5mass%程度のNaCl水溶液に酸化剤を添加したものをを用いており、酸化剤でカソード反応を増大させ、 E_{corr} を $E_{\text{corr}} \approx E_{\text{pit}}$ にまで貴化させている。酸化剤は E_{pit} に与える影響が小さいものである必要から、日本アルミニウム協会では酢酸、ASTMでは過酸化水素水を用いている。なおアルミニウムで単に「電位」と呼称する場合、その電位が測定された溶液中での E_{pit} を指していることが多いため、文脈によっては E_{corr} と E_{pit} の混同に注意が必要である。

6. 耐食性に影響する材料因子

アルミニウムは純アルミニウムとしても幅広く使用されているが、強度やその他特性の改善を企図して様々な合金元素が添加される。アルミニウムに用いられる主要な添加元素はCu, Mg, Mn, Si, Znなどである。アルミニウムの E_{pit} は母相中の固溶元素の種類と濃度によって大きく変化し、Znは E_{pit} を卑に、CuやMnは E_{pit} を貴に変化させる。Si, Mgが E_{pit} に及ぼす影響は比較的小さい。添加元素による E_{pit} の調整は、アルミニウムの防食設計において重要である。またCu添加は E_{pit} を貴化させるものの、一般的にAl-Cu系合金の耐食性は低い傾向にある。これは、Cuを含有する貴な金属間化合物の存在や、表面から溶出したCuの再析出によって、カソード反応が活性化されるためである。他にSn, In, Gaといった元素は、微量の添加でもアルミニウムの E_{pit} を大きく卑化させるため、これを利用したアルミニウム空気電池の開発が行われている¹⁰⁾。

固溶元素以外にも、アルミニウム中の第二相粒子の存在は耐食性に大きく影響する。特にアルミニウムへの固溶量が小さい重金属などの元素は、晶析物として第二相粒子を形成しやすい。第二相粒子は母相との界面が酸化皮膜の欠陥部となるほか、自身の電気化学的性質が母相と異なることが多いため、腐食の起点となることが多い。アルミニウム中の微量不純物であるFeやSiは母相よりも貴なAl-Fe (-Si) 系化合物として存在し、カソードサイトとして作用することでその周囲が腐食の起点となる^{11), 12)}。Al-Mn系化合物は母相との電位差が小さいため、耐食性への影響はないとされる。また、 Al_3Mg_2 は母相よりも卑なため優先的に溶解する¹³⁾。 Mg_2Si は中性環境溶解初期においては母相よりも卑でありMgの選択溶解が生じるが、中性環境中では

表面にSiが濃化し徐々に貴化する^{14), 15)}。このように、第二相粒子自体や母相の電気化学的性質の理解は非常に重要であるため、微小セルを用いた分極測定などが盛んに研究されている^{12), 17)}。またAl-Mg系(高Mg)、Al-Cu系およびAl-Zn-Mg系合金などでは、第二相粒子の粒界析出によって、粒界腐食を生じる場合がある。粒界腐食が生じると短期間で貫通に至る恐れがあるが、熱処理の適正化によって防止することができる。

7. 耐食性に及ぼす環境因子

アルミニウムの耐食性に及ぼす環境因子としては、溶液中に存在するイオンの影響が大きい。重金属イオンは前述のようにアルミニウム表面に析出することでカソード反応を増大させ、耐食性を低下させる作用がある。またカチオンが及ぼす影響について、淡水中でHSAB則における硬い金属イオンが酸化皮膜中に取り込まれることが報告されている¹⁸⁾。Cl⁻に代表されるハロゲン化物イオンは孔食誘起性のアニオンであり、Cl⁻濃度の対数に比例して E_{pit} が卑化することが知られている^{19), 20)}。Cl⁻による孔食発生メカニズムは諸説あり、完全な解明には至っていない^{21)~23)}。NO₃⁻やSO₄²⁻ほか多くのアニオンは、Cl⁻に対して一定量以上存在するとインヒビターとして作用し、 E_{pit} を貴化させる^{19), 24)}。これはCl⁻とのアルミニウム表面への競争吸着によるものと理解されており^{19), 24)}、未解離状態ではこの作用は見られない²⁴⁾。一方で、Cl⁻を含む酸性水溶液中にNO₃⁻とSO₄²⁻が共存すると逆に腐食が増大することが報告されており²⁵⁾、SO₄²⁻によって酸化皮膜の性質が変化することが原因であると推定されている。さらに、SO₃²⁻(亜硫酸イオン)はアルミニウムに対して酸化剤として作用し、孔食を促進させる^{26), 27)}。

このように環境中のイオンによる影響は複雑である。また溶液中に酢酸を添加するとカソード反応を増加させる作用があるため、アルミニウムの電位測定法や腐食促進試験に用いられている。これは、酢酸は弱酸であることから酸解離定数が小さく、溶液中には存在する多量の未解離の酢酸分子がH⁺イオンの供給源として働くためである²⁸⁾。その他に、付着塩の潮解による大気腐食を模擬した実験から、特に高温の濃厚MgCl₂水溶液中においてはカソード反応が異常増大し、NaClやCaCl₂といった他の塩種に比べてアルミニウムの腐食量が増加することが報告されている^{29), 30)}。

8. 異種金属接触腐食

異種金属接触腐食とは電位の異なる金属が電氣的に接触している際に、貴な金属が防食され卑な金属の腐食が促進される現象である。ほとんどの実用金属はアルミニウムよりも貴であるため、異種金属と接触して使用される場合には注意が必要である。金属以外でも導電性があり電位が貴なCFRPとの接触で異種金属接触腐食を生じる場合がある³¹⁾。アルミニウムの異種金属接触腐食は、貴な相手材との電氣的な接触によりアルミニウムの局部腐食が加速される現象であるから、①異種金属との電氣的な接触、②水の存在、③Cl⁻の存在が必要条件となる。異種金属接触腐食は相手材との電位差が大きいほど加速される傾向にあるが、実際の腐食速度は電位差のみでは決まらず、相手材のカソード活性や接触面積比および使用環境などの影響が非常に大きい。ステンレス鋼の電位はアルミニウムよりも貴であるがカソード活性が小さいため、接触部の水はけがよく濡れ時間が短い場合には実用上問題にならないことが多い³²⁾。ただし、異種金属接触腐食の影響が無視できない場合には、相手材との絶縁対策や水の侵入を防止する措置が必要である。アルミニウムがより卑な金属との接触はアルミニウムが防食される側になり、Znはアルミニウムの腐食を抑制する。しかし電位が非常に卑なMgとの接触は過防食となり、カソードとなるアルミニウム表面がアルカリ化するため、かえって腐食量が増大する。またアルミニウム合金どうしであっても、両者の E_{pit} の差が大きい場合には異種金属接触腐食が生じ、より貴な E_{pit} を持つアルミニウム合金側が防食される。これを利用することで、アルミニウムを防食する犠牲防食法が広く用いられている。

9. アルミニウムの犠牲防食

アルミニウムの防食法として、陽極酸化(アルマイト)、塗装、化成処理および犠牲防食などが実用的に用いられているが、最後に犠牲防食法について解説する。鉄の犠牲防食とは、より電位が卑なZn等によって金属Feが熱力学的に安定になる電位を与えることを指す。アルミニウムの犠牲防食は鉄とは異なっており、何らかの方法でアルミニウムの電極電位を E_{pit} より卑な不働態領域に保ち、孔食の発生と成長を防止することを意味する。前述のとおり、中性環境中の不働態領域ではわずかな均一腐食が生じているのみで、その速度は事実上無視できるからである。逆に、均一腐食速度が無視できない強アルカリ環境中などでは、犠牲防食は

成立しない。

アルミニウムの犠牲防食は、特に配管材や熱交換器など、貫通腐食の発生が製品にとって致命的となる分野においてきわめて重要な技術である。そこで、相対的に卑なAl-Zn系合金を材料表面に配置する方法が広く用いられている。卑な合金を表層(犠牲陽極材)に貴な合金を内部(心材)にクラッドした板では、表層が心材を犠牲防食するため、腐食の進行方向が水平方向となる。これにより、肉厚方向への腐食の進行が抑制され貫通寿命が劇的に向上する。すなわち、心材単独の材料に孔食が発生した場合、穿孔に対する余裕度(腐食代(しろ))は実質的に板厚方向への1次元的な距離しかないため、短時間で貫通に至る可能性がある。しかし犠牲陽極層の存在によって、その有効体積分だけ3次元的に余裕度を稼ぐことができる、という考え方である。アルミニウム表層にZnを付与する方法としてはクラッド板以外に押出クラッド管、Zn溶射やろう付に用いるフラックスにZnを添加しておく方法などが用いられ、犠牲陽極材と被防食材間の E_{pit} に50~200 mV程度の差を持たせる場合が多い^{33),34)}。また被防食材である心材は、機械的強度の向上と E_{pit} の貴化を兼ねてMnやCuなどが添加されることが多い。その他、熱交換器の設計においてフィン材に卑なアルミニウム合金を配置することで、冷媒が流れるチューブ材を犠牲防食する防食設計法も広く用いられている。

10. おわりに

アルミニウムは耐食性に優れた材料であるが、その腐食特性は材料因子と環境因子に大きく左右される。冒頭で述べたように、アルミニウムは“若い”金属であり、まだまだ大きな可能性を秘めている。アルミニウムの可能性を引き出し使いこなしていくためには、腐食挙動の十分な理解が必要不可欠である。

参考文献

- 1) 社団法人 軽金属協会 大気ばく露試験委員会：アルミニウム合金板の耐候性—20年間の大気ばく露試験結果一、(1977)。
- 2) 一般社団法人 日本アルミニウム協会 耐食性評価試験委員会：アルミニウム合金板の耐候性—50年間の大気暴露試験結果一、(2012)。
- 3) M. Pourbaix : Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solutions, NACE, TX, p.171 (1974).
- 4) S. D. Cramer and B. S. Covino, Jr. : ASM Handbook vol.13B, ASM international, OH, (2005), 120.
- 5) 久松敬弘 : Denki Kagaku (presently Electrochemistry) , **38** (1970) , 691.
- 6) 昆謙造 : 防食技術, **32** (1983) , 593.
- 7) 世利修美, 小澤健 : 軽金属, **54** (2004) , 328.

- 8) 杉本克久, 沢田可信, 森岡進: 日本金属学会誌, **34** (1970), 312.
- 9) 一般社団法人 日本アルミニウム協会 耐食性評価試験委員会: 軽金属, **67** (2017), 16.
- 10) D. R. Egan, C. Ponce de Leon, R. J. K. Wood, R. L. Jones, K. R. Stokes and F. C. Walsh, J.: Power Sources, **236** (2013), 293.
- 11) J. O. Park, C. H. Paik, Y. H. Huang and R. C. Alkire, J.: Electrochem. Soc., **146** (1999), 517.
- 12) Yuto Sakaizawa, Izumi Muto, Yu Sugawara, Yoshiyuki Oya, Yoshihiko Kyo and Nobuyoshi Hara: ECS Trans., **80** (2017), 553.
- 13) S. Jain, M. L. C. Lim, J. L. Hudson and J. R. Scully: Corros. Sci., **59** (2012), 136.
- 14) F. Eckermann, T. Suter, P. J. Uggowitzer, A. Afseth and P. Schmutz: Electrochim. Acta, **54** (2008), 844.
- 15) O. Gharbi and N. Birbilis: J. Electrochem. Soc., **165** (2018), C497.
- 16) K. A. Yasakau, M. L. Zheludkevich, S. V. Lamaka and M. G. S. Ferreira: Electrochim. Acta, **52** (2007), 7651.
- 17) N. Birbilis and R. G. Buchheit: J. Electrochem. Soc., **155** (2008), C117.
- 18) K. Otani, M. Sakairi, R. Sakaki, A. Kaneko, Y. Seki and D. Nagasawa: J. Solid State Electrochem., **18** (2014), 325.
- 19) H. Böhni and H. H. Uhlig: J. Electrochem. Soc., **116** (1969), 906.
- 20) 西山貞雄, 当摩建: 材料と環境, **42** (1993), 569.
- 21) G. S. Frankel: J. Electrochem. Soc., **145** (1998), 2186.
- 22) J. O'M. Bockris and Y. Kang: J. Solid State Electrochem., **1** (1997), 17.
- 23) P. M. Natishan and W. E. O'Grady: J. Electrochem. Soc., **161** (2014), C421.
- 24) 大谷良行, 本川幸翁, 兒島洋一: 軽金属学会第125回秋季大会講演概要 (2013), 221.
- 25) 村田拓哉, 大谷良行, 小山高弘, 兒島洋一: 軽金属学会第127回秋季大会講演概要 (2013), 93.
- 26) 大谷良行, 本川幸翁, 兒島洋一: 材料と環境, **63** (2014), 394.
- 27) 兒島洋一, 岸元努, 辻川茂男: 材料と環境, **45** (1996), 305.
- 28) 大谷良行, 兒島洋一: 軽金属, **62** (2012), 244.
- 29) 島田隆登志, 大谷良行, 本川幸翁, 兒島洋一, 武藤泉: 材料と環境, **62** (2013), 56.
- 30) 藤村涼子, 小山高弘, 内田秀俊: 軽金属, **63** (2013), 175.
- 31) 境昌宏, 坂本千波: 材料と環境, **64** (2015), 224.
- 32) 社団法人 日本アルミニウム協会: アルミニウムハンドブック第7版, (2007), 64.
- 33) 磯部保明: 材料と環境, **48** (1999), 469.
- 34) 加藤健志, 池田洋: 住友軽金属技報, **37** (1996), 112.



京 良彦 (Yoshihiko Kyo)
(株)UACJ R&Dセンター 第二研究部
博士(工学)



大谷 良行 (Yoshiyuki Oya)
(株)UACJ R&Dセンター 第二研究部
博士(工学)



兒島 洋一 (Yoichi Kojima)
(株)UACJ R&Dセンター
第一研究部 兼 第二研究部
博士(工学)

アルミニウム協会賞 平成29年度開発賞受賞

親水性および排水性に優れたプレコートフィン材の開発*

荻原 加奈**, 藤村 涼子**, 笹崎 幹根**

Development of Pre-coated Aluminum Fin Stock with Excellent Hydrophilicity and Drainage*

Kana Ogihara**, Ryoko Fujimura** and Mikine Sasazaki**

1. はじめに

エアコンは一般家庭内で最も電力消費量が多い電気機器のひとつであり、環境への負荷を低減するために電力消費量削減による省エネルギー化が厳しく求められている。一方、消費者からは電気代削減という面からの省エネルギー化の他に、室内での快適性向上が求められる。快適性を阻害する要因として、冷房運転では室内の場所による温度のばらつき、暖房運転では定期的に発生する冷気の吹き出しなどが挙げられる。暖房運転時には、室外機の熱交換器を利用して、外気から熱を吸収し、その熱を室内へと運搬する。外気から熱を吸収するためには室外機の熱交換器を外気温以下にする必要がある、その温度は大抵氷点下となる。この時に、空気中に含まれる水蒸気が熱交換器付近で冷却されることにより、霜となってフィンの表面に付着する。フィン表面に付着した霜は徐々に厚い層となっていく、最終的にはフィン間を閉塞させ、熱を吸収することが困難となってしまう (Fig. 1)。そこで、定期的に除霜運転を行う。除霜運転中は暖房運転が停止するため、暖気を作ることができず、室内には冷気が吹き出すこととなる。従って、快適性を向上させるためには、除霜運転をする回数を減らし、その時間を短くすることが有効である。すなわち、フィン間に付着する霜の成長を抑制し、フィン間が閉塞するまでの時間(着霜時間)が長くなり、かつ除霜時に霜が落ちやすい性質を有するフィン材の開発が望まれている。これまでの研究¹⁾から、着霜時間の延長と除霜時間の短縮にはフィン表面の性能が支配的であることが分かっている。

本報では、親水性及び排水性に優れたプレコートフィン材を実用化したので紹介する。

2. 開発目標

エアコン用プレコートフィン材は、水滴がフィン表面に付着すると、フィン間を閉塞させてしまうため、表面を親水性にすることが要求されてきた。表面を親水性にした場合、水滴が付着しても濡れ拡がり、水膜となるため、フィン間を閉塞させることは抑制される。一方、暖房運転中の室外機では、熱交換器が氷点下となるため、この水膜を起点として霜が発生して成長し、結果的にフィン間の閉塞が促進されてしまう。そこで当社では、2014年に着除霜性に優れたフィン材として親水性でありながら、付着した水滴が滑落する(滑水性)という、相反する性能を合わせ持つ「親水滑水フィン」

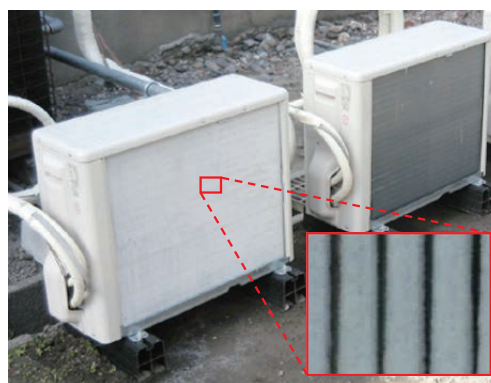


Fig. 1 Appearance of outside unit of frosted air conditioner.

* 本稿はアルミニウム 25-103 (2018), 5-8に掲載された内容を改訂

This paper was the revision of the paper published in Aluminum 25-103 (2018), 5-8 for the special features of Development Award of Japan Aluminum Association in 2017.

** (株)UACJ R&Dセンター 第五開発部

Development Department V, Research & Development Division, UACJ Corporation

を開発した。当社での熱交換器単体評価試験において、親水滑水フィンとは親水フィンと同等の熱交換性能を有しながら、霜がフィンに付着してフィン間を閉塞させるまでの時間（着霜時間）が16%延長されることを確認した。着霜時間の延長が可能となった理由として、塗膜表面に付着した水滴がその場にとどまらず滑落するため、起点となる水膜ができず、霜の成長が遅いことが挙げられる。また、親水滑水フィンは除霜時にも、溶けた霜がすばやく滑落することから、除霜にかかる時間も短縮可能であった。これらの性質から、熱交換器からの水の排出しやすさ（排水性）には塗膜表面における水の滑落しやすさ（滑水性）が寄与していると考えられる。そこで、除霜時間をより短縮すべく、親水性でありながら塗膜表面の滑水性を向上させたプレコートフィン材の開発に取り組んだ。親水性の目標は、接触角 30° 以下、滑水性の目標は転落角 13° 以下とした。

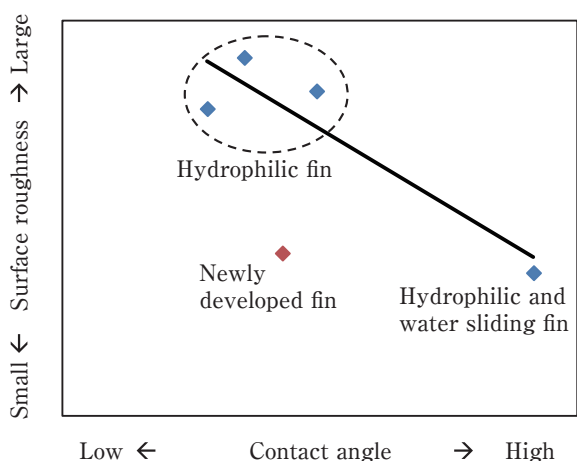


Fig. 2 Relationship between surface roughness and contact angle.

Table 1 Relationship between surface roughness and water sliding angle.

	Surface roughness	Water sliding angle
Hydrophilic fin①	Large	No water sliding
Hydrophilic fin②		
Hydrophilic fin③		
Hydrophilic and water sliding fin	Small	13°
Newly developed fin (target value)	< Hydrophilic and water sliding fin	< 13°

Table 2 Surface roughness of developed fin.

Sample	Roughness (nm)
Newly developed fin	30 ~ 50
Hydrophilic fin	300 ~ 400
Hydrophilic and water sliding fin	20 ~ 40

現在、当社にて量産している親水フィンおよび親水滑水フィンの表面粗さと接触角を測定すると、親水性が良好な親水フィンは表面粗さが大きく、親水性の劣る親水滑水フィンは表面粗さが小さくなっている (Fig. 2)。これはWenzelの式(1)に表されており、 θ_w を粗い面上での接触角、 θ を同じ材質の平坦面での接触角とすると、 $\theta < 90^\circ$ では $\theta_w < \theta$ となることが分かる。すなわち、表面粗さの増加に伴い、親水性表面では接触角が低くなる。

$$\cos \theta_w = r \cos \theta \quad (1)$$

一方、滑水性を向上させる手段としては、塗膜表面を平滑にすることが挙げられる (Table. 1)。

これらの相反する性質を両立すべく、表面粗さが小さくても親水性を発現し、滑水性も発現するような塗膜を目標とした。実際の開発フィンの表面凹凸は親水滑水フィンよりも大きくなってはいたが、接触角は低くなり、良好な親水性を示した (Table. 2)。

3. 親水性および滑水性

3.1 供試材

今回開発したプレコートフィン材に加え、2014年に開発した親水滑水フィンおよび汎用的に用いられている親水フィンを比較材として、3種のフィン材の親水性および滑水性を評価した (Table. 3)。基材はいずれも0.1 mm厚のアルミニウム化成処理板を用い、各供試塗膜が厚さ $1 \mu\text{m}$ になるよう塗装した。塗装はいずれもラボにて実施し、バーコータを用いて塗装した。

3.2 評価方法

3.2.1 親水性

初期親水性の評価は、塗装したフィン材の上に純水 $2 \mu\text{L}$ を滴下し、30秒後に水滴両端の水接触角を測定した。接触角の測定には協和界面科学製全自動接触角計 (DM-701) を使用し、 $\theta/2$ 法にて測定した。

次に、親水持続性の評価は、塗装したフィン材を純水に2分浸漬し、6分風乾することを1サイクルとし、1200サイクル後の水接触角を測定した。

Table 3 Specification of surface treatment.

Sample	Resin	Coating thickness (μm)
Hydrophilic fin	Acrylic resin	1
Hydrophilic and water sliding fin	Acrylic resin	1
Newly developed fin	Acrylic resin	1

3.2.2 滑水性

初期滑水性の評価は、塗装したフィン材の上に純水 10 μL を滴下し、30秒経過後から1°/secの速度でフィン材を傾斜させ、水滴の前進端が0.2 mm動いた時の角度（転落角）を測定した。転落角の測定には前述の接触角計を使用した。なお、滑水時に後進端が動かなかった場合、滑水せずと判定した。

次に、滑水持続性の評価は、前述の親水持続性と同様のサイクル試験を実施し、1200サイクル後の転落角を測定した。

3.2.3 低温における滑水速度

JIS B 8615-1:2013 6.暖房試験におけるH2温度条件（乾球温度2℃、湿球温度1℃）に設定した恒温恒湿槽内にて滑水速度を評価した。

滑水速度は、塗装したフィン材を垂直な板に貼り付け、水滴10 μL が100 mm滑り落ちるまでの時間を測定した。

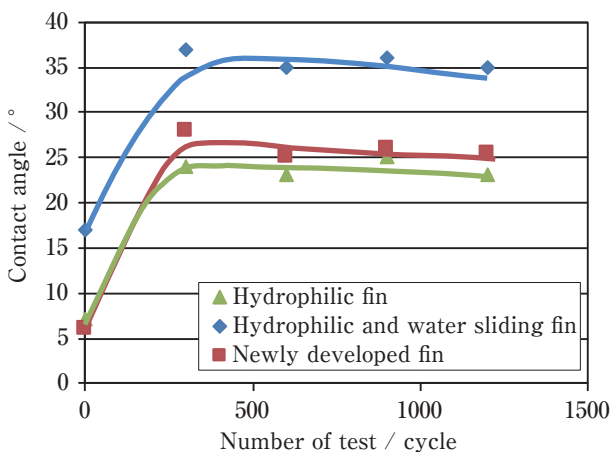


Fig. 3 Results of contact angle.

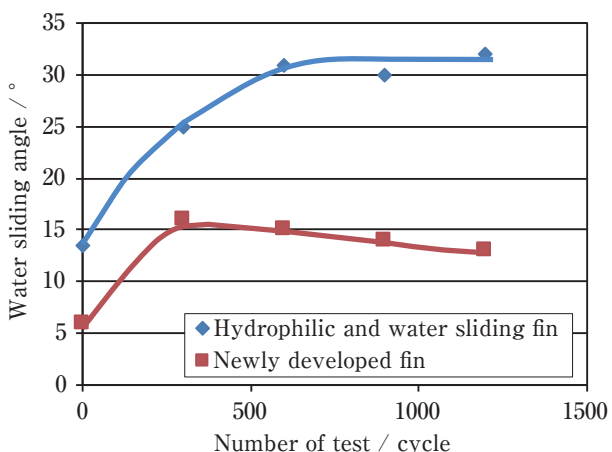


Fig. 4 Results of water sliding angle.

3.3 性能評価結果

3.3.1 親水性

各種フィン材における親水性および親水持続性を比較した結果をFig. 3に示した。開発フィン材は初期親水性および親水持続性のいずれも接触角30°以下であり、目標を達成した。

3.3.2 滑水性

各種フィン材における滑水性および滑水持続性を比較した結果をFig. 4に示した。開発フィン材は、初期滑水性および滑水持続性（1200サイクル時点）のいずれも転落角13°以下であり、目標を達成した。なお親水フィン材は、後退角が動かず水膜となってしまう、転落角は測定不可であった。

3.3.3 低温における滑水速度

各種フィン材の低温における滑水速度の評価結果をFig. 5に示した。室温2℃において、開発フィン材は親水滑水フィン材の約2.2倍速く滑水し、室温25℃では約3倍速く滑水することを確認した。開発フィン材は低温条件においても滑水性を発現することから、低温暖房条件においても良好な排水性を示すことが期待される。

4. まとめ

開発したプレコートフィン材は、現行の親水フィン材同等の親水性を示し、かつ親水滑水フィン材よりも良好な滑水性を示した。また、低温条件においても良好な滑水速度を示すことを確認した。これらの性能から、開発したプレコートフィン材は排水性の向上に貢献し、

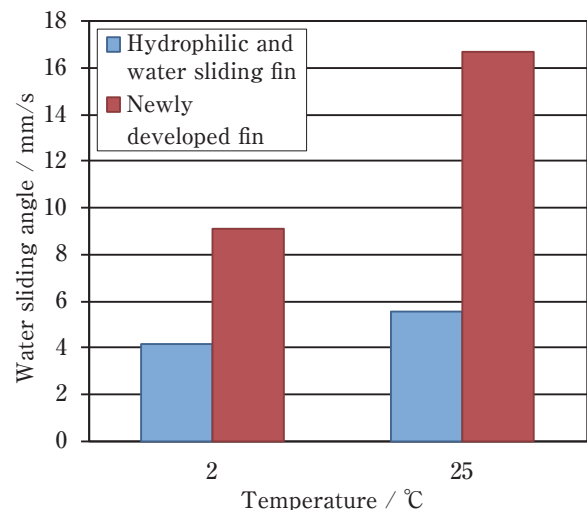


Fig. 5 Result of sliding speed at low temperature.

着除霜性が向上した。

エアコンの室外機用プレコートフィン材に求められる究極の性能として、霜がつかないこと（無着霜）が挙げられる。これまでは滑水性と着除霜性について検証してきたが、今後は滑水性以外の表面性能と着除霜性の関係を明らかにし、お客様にご満足いただける塗膜の開発に取り組む。

お問い合わせ

(株)UACJ 板事業本部 営業第二部
〒100-0004 東京都千代田区大手町1丁目7番2号
東京サンケイビル
TEL：03-6202-2672 FAX：03-6202-2031

UACJ Corporation, Flat Rolled Products Division,
Sales Division II
Tokyo Sankei Bidg., 1-7-2 Otemachi,
Chiyoda-ku, Tokyo 100-0004 Japan
TEL: 03-6202-2672 FAX: 03-6202-2031

参考文献

- 1) 笹崎幹根：UACJ Technical Report, 2-1 (2015), 38-40.



荻原 加奈 (Kana Ogihara)
(株)UACJ R&Dセンター 第五開発部



藤村 涼子 (Ryoko Fujimura)
(株)UACJ R&Dセンター 第五開発部



笹崎 幹根 (Mikine Sasazaki)
(株)UACJ R&Dセンター 第五開発部



飲料容器用アルミニウム合金板材

水谷 博之*

Aluminum Alloy Sheets for Beverage Container

Hiroyuki Mizutani*

1. はじめに

1959年、米国Coors社がオールアルミニウムのビール缶を上市して以来、本年で60年が経過した。気に入った場所で、気に入った飲料を楽しむということが、ごく当たり前のこととなり、アルミニウム缶はひとつの飲料文化へ貢献をしてきたと言える。1967年にReynolds社によりDI(Drawn & Ironing)成形技術が確立され半世紀が経過した。昨今では、1分間で500缶も製缶できる機械が登場し、印刷や検査を高速処理する技術も確立され、1製缶ラインあたり3000缶/分の能力で大量生産する製缶工場も複数ある。

日本では、炭酸飲料やコーヒー用途のアルミニウム缶が、PETボトル容器の普及により減少している。しかし依然として、ビールや酎ハイなどの低アルコール飲料用途に使用され、市場での存在感を維持しており、年間で40万トンを超えるアルミニウム板材が使用されている。海外においては、PETボトル容器が遮光性や気密性に劣り長期保管に適さず、PETボトル容器が安っぽく見えること、プラスチック汚染への懸念などを理由に、アルミニウム缶市場は続伸している。アルミニウム飲料缶用板材は、世界中で、年間450万トン以上使用され、当社グループにとって重要な製品のひとつとなっている。当社グループは、福井製造所、名古屋製造所、タイ王国ラヨン製造所および米国Logan Aluminum Inc.から、合わせて年間70万トンの缶用板材を供給し、世界中のお客様にご使用頂いている。

2. 特長

代表的なアルミニウム飲料缶である2ピース缶は、ブランキング、絞りおよび再絞り成形の後、側壁をしごき加工をして薄くかつ硬化させた容器型缶ボディと、

これとは別の材料を絞り成形し、開口をするためのタブを取り付けた缶エンドで構成される。良好な絞り成形性としごき加工性さらに耐食性が求められる缶ボディ材には3000系のAl-Mn系合金が、強度と耐食性が求められる缶エンド材には5000系のAl-Mg系合金が使用される。当社グループが提供している缶用アルミニウム合金をTable. 1に示す。

缶ボディ用合金は1990年初期まで3004合金が主流であったが、リサイクルが推進されるとともにUBC(Used Beverage Can)を主とするアルミスクラップの利用比率が高まり、SiおよびFeの上限を緩和した3104合金が製品に加わり、3104合金が現在主流の缶ボディ用合金となっている。さらに、缶体の薄肉軽量化を目的とした高強度化のニーズに答えるため、MnおよびMgの上限を高めた3204合金も製品化している。缶エンド用合金は、用途に応じて5182合金と5021または5052合金を製品としている。5182合金はビールや炭酸飲料あるいは窒素充填された飲料缶、すなわち缶内部が常温で正圧になる用途に選定され、5021合金ないし5052合金はスチール缶ボディと巻き締められたコーヒーなど、缶内部が常温で負圧になる用途に選定される。

国内外市場で収集した代表的な12オンス(350 ml)アルミニウム缶の缶ボディおよび缶エンドにおけるそれ

Table 1 Alloy specification for beverage container.

(mass%)

	alloy	Si	Fe	Cu	Mn	Mg
For Can Body	3104	0.60	0.80	0.05-0.25	0.8-1.4	0.8-1.3
	3004	0.30	0.70	0.25	1.0-1.5	0.8-1.3
	3204	0.30	0.70	0.10-0.25	0.8-1.5	0.8-1.5
For Can End	5182	0.20	0.35	0.15	0.20-0.50	4.0-5.0
	5021	0.40	0.50	0.15	0.10-0.5	2.2-2.8
	5052	0.25	0.40	0.10	0.10	2.2-2.8

Composition in percent maximum unless shown as a range

* (株)UACJ R&Dセンター 第一開発部

Development Department I, Research & Development Division, UACJ Corporation

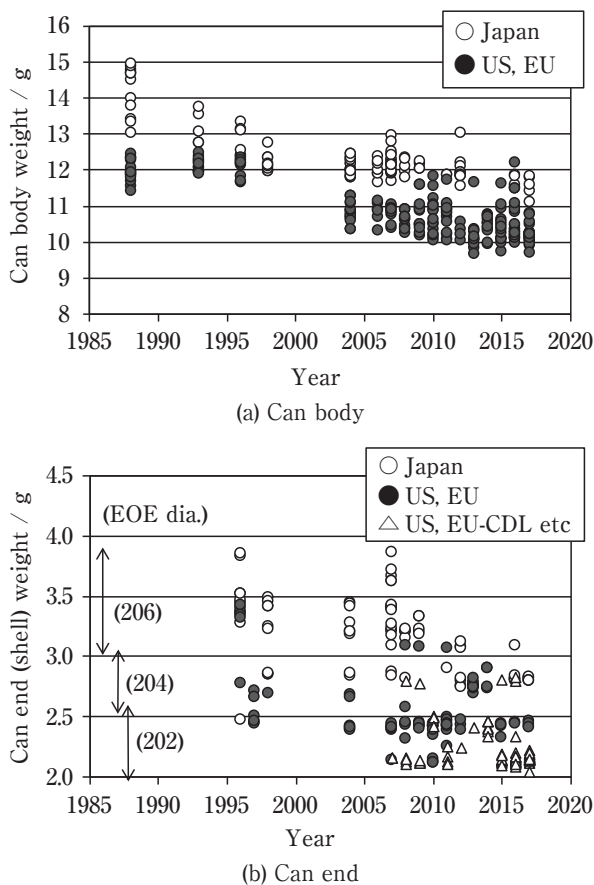


Fig. 1 Can weight retailed in global market.

それぞれの重量の変化を Fig. 1 に示す。日本市場における缶ボディ 1 個あたりの重量は、1985 年に約 14 g であったが、2018 年には約 11 g まで軽量化され、欧米においては約 10 g まで軽量化された。缶ボディの軽量化は、素材の板厚を薄くすることに加えて、缶壁の厚さを薄くするとともに、缶ボディのネック部および缶底接地部の径を小さくすることにより進められてきた。さらに、缶ボディの壁の厚さは 0.09 mm ほどであり、市場で孔があかないようにするにはほぼ限界のようである。それでも、他の部位を薄くするなど軽量化の動きは続いている。缶エンドの軽量化は板厚を薄くすることに加えて、缶エンドの径を小さくすることで進められてきた。最近では CDL (Container Development Ltd.) 形状のエンドに代表されるような、チャックウォール部を斜めに傾けて内圧による反転剛性を高めた形状を採用することにより、欧米では 2 g ほどの缶エンドも登場している。

缶の薄肉軽量化は、成形しやすい一方で高強度となる素材の提供が必要である。当社グループは、お客様に最適な素材を提供することを目的とし、合金組成や製造条件を調整し、缶成形時のしわや割れなどを抑制し、寸法や形状を安定させ、耐食性に優れた缶用アル



Fig. 2 Bottle cans retailed in US market.

ミニウム板材の開発に取り組んでいる。

最近では、清涼飲料、お茶、コーヒーにて PET ボトルが使用されているが、PET ボトルの長所である再栓機能を付与したアルミニウムボトル缶が 2000 年に国内で登場した。2014 年以降、ボトル缶は海外市場にも普及し、ネック部を細長く絞りこみガラス瓶のような形状に成形されるボトル缶も登場し (Fig. 2)、成形不良が発生しない素材の開発にも取り組んでいる。

3. 環境への貢献

アルミニウム缶のリサイクル率は日本をはじめ、ノルウェー、ドイツおよびブラジルにおいて 90% 以上を達成している。缶用合金はアルミニウムスクラップを使用することができる化学成分であり、持続可能な社会を実現できる素材である。一方、PET ボトルの回収率は、90% 以上であるが、PET ボトルとして再利用されるのは僅か 10% であり、40% は海外に輸出され燃料として使用されていた。2018 年、主輸入国の中国が深刻な環境問題で輸入禁止として以来、国内の再生業者で処理待ちのプラスチックゴミが大量に保管されているとも言われている。

当社は、環境に優しい素材であるアルミニウム缶材を安定的に供給することが環境課題を解決する手段の 1 つと捉え、社会課題の解決に取り組むとともに、次世代の子どもたちへの教育支援などを通じ、持続可能な未来の実現に向けた社会貢献活動を推進している。

4. おわりに

アルミニウム缶は中身を守るという機能だけでなく、長期間保管でき衛生的で多様にデザインされ、飲料文化を50年間支えてきた。今後も持続可能な飲料容器素材の開発を継続し、ステークホルダーとともに社会貢献を継続していきたい。



水谷 博之 (Hiroyuki Mizutani)
(株)UACJ R&Dセンター 第一開発部

お問い合わせ

(株)UACJ 板事業本部 営業第一部
〒100-0004 東京都千代田区大手町1丁目7番2号
東京サンケイビル
TEL : 03-6202-2671 FAX : 03-6202-2031

UACJ Corporation, Flat Rolled Products Division,
Sales Department I
Tokyo Sankei Bldg., 1-7-2 Otemachi,
Chiyoda-ku, Tokyo, 100-0004, Japan
TEL: 03-6202-2671 FAX: 03-6202-2031



冷媒配管用火無し継手 RGプレス^{®*}

佐藤 好生^{**}, 若林 広行^{**}, 常川 雅功^{**}, 田中 正勝^{***}

Flame-Free Fittings “RG-press” for the Refrigerant Piping of Air Conditioners^{*}

Yoshio Sato^{**}, Hiroyuki Wakabayashi^{**}, Masanori Tsunekawa^{**} and Masakatsu Tanaka^{***}

1. はじめに

従来、業務用エアコンの冷媒用銅配管は継手を用いたろう付接合で施工されるのが一般的であったが、建築現場での火災予防の観点から火気の使用が制限される方向にある。これを解決する方法として各種火無し継手が開発されてきている。

当社でも15年前から拡管-ナット締付けタイプのRGジョイントを市場に提供してきた¹⁾。しかしながら、近年ではろう付技能者の不足に加え、工事期間の短縮や施工負荷の低減およびコストの低減などの要求が高まってきた。それらを解決する新たな火無し継手として、施工者の技能に左右されない安定した接合品質を確保しつつ、施工時間短縮、軽量および低価格を実現したRGプレスを開発した。

2. RGプレスの開発コンセプト

新たに市場に提供するRGプレスの開発コンセプトは以下の通りである。

- ・施工時間短縮 当社従来品比1/2
- ・継手重量低減 当社従来品比1/3
- ・価格低減 当社従来品比1/2
- ・接合品質確保 油圧工具でのプレスカシメ加工
- ・性能・信頼性 ISO14903性能証明取得

3. RGプレスの構造と仕様

3.1 RGプレスの構造

RGプレスの外観をFig. 1に、構造をFig. 2に示す。冷媒は特殊HNBR製Oリングによってシールされる。管内の冷媒作動圧力に起因した継手接合部の管軸方向に作用する引張り力によって生じる冷媒用銅配管の抜



Fig. 1 Appearances of RG-press.

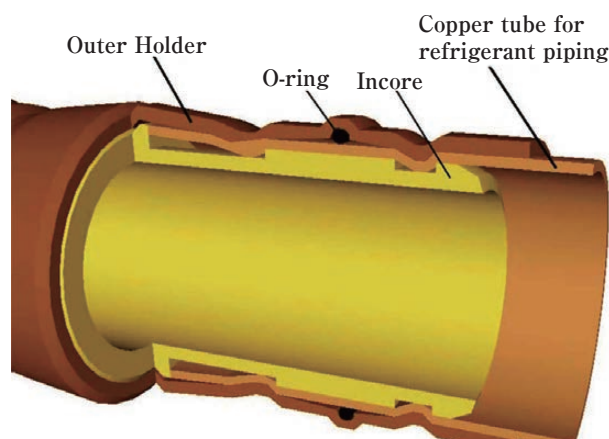


Fig. 2 Structure of RG-press (size 12.70 ~ 41.28).

* 本稿は、建築設備と配管工事, 56-14 (2018), 28-31に掲載されたものを改訂。
Revision of Heating Piping and Air Conditioning, 56-14 (2018), 28-31.

** 東洋フィットテング(株)品質保証技術部
Quality Assurance & Technical Department, TOYO FITTING Co., Ltd.

*** 東洋フィットテング(株)製造部
Production Department, TOYO FITTING Co., Ltd.

け出しは、専用油圧工具によるプレスカシメ加工によって高強度銅管 (C1862) 製の外筒を介して継手内部に装入された真鍮 (C3604) 製のインコアへ冷媒用銅配管を噛み込ませることによって阻止している。ただし、管軸方向の引張り力が比較的小さい銅管外径 6.35 mm および 9.52 mm に対応した RG プレスは、りん脱酸銅管 (C1220) 製の外筒と冷媒用銅配管の噛み込み摩擦のみで抜け出しを阻止している。

3.2 仕様

RG プレスの仕様を **Table 1** に示す。RG プレスは業務用エアコンの冷媒用銅配管の接合を対象に開発され

Table 1 Specifications and the product parameters of RG-press.

Applications	Joint copper tube for refrigerant piping of air conditioner		
Approved refrigerants	R32, R407C, R410A		
Approved tubing tolerance	JIS H 3300 C1220T-O, 1/2H		
Adapted tube size	6.35×0.8	9.52×0.8	12.70×0.8
Outer-diameter × wall thickness	15.88×1.0	19.05×1.0	22.22×1.0
	25.40×1.0	28.58×1.0	31.75×1.1
	38.10×1.35		41.28×1.45
Fitting method	Press crimping by hydraulic tool		
Sealing method	O-ring		
Maximum rated pressure	4.3 MPa		
Proof pressure	21.5 MPa		
Operating temperature	-40°C~130°C		

Table 2 Evaluation results of the fitting function performance based on ISO14903 (Tightness control level ; A1 in the hermetically sealed joints category)²⁾.

Test items	Test condition	
PTV-test (Pressure-Temperature Vibration tests)	Test 1	Cycle conditions ; 140°C internal pressure 4.3 MPa 2 min ⇔ -40°C Atmospheric pressure 2 min Repetition number ; 50 times
	Test 2	Cycle conditions ; 140°C internal pressure 4.3 MPa ⇔ 140°C Atmospheric pressure Repetition number ; 200 times
	Test 3	Amplitude ; 0.15~0.25 mm, Frequency ; up to 200 Hz, Repetition number ; 2 million times
	Test 4	Helium leakage test 7.5×10 ⁻⁷ Pa·m ³ /s or less on 4.3 MPa, 5 min
Freezing test	Test 1	Freeze cycle conditions ; -15°C 30 min ⇔ Atmospheric temperature water 30 min Repetition number ; 30 times
	Test 2	Helium leakage test 7.5×10 ⁻⁷ Pa·m ³ /s or less on 4.3 MPa, 5 min
Pressure test	Test 1	Pressure ; 21.5 MPa 1 min
	Test 2	Helium leakage test 7.5×10 ⁻⁷ Pa·m ³ /s or less on 4.3 MPa, 5 min
Vacuum test	Test 1	Pressure ; Reduce internal pressure to about 6500 Pa abs Criteria ; Rise after 1 hour and below 200 Pa
	Test 2	Helium leakage test 7.5×10 ⁻⁷ Pa·m ³ /s or less on 4.3 MPa, 5 min
Compatibility screening test	Test 1	Conditions ; O-ring was sealed for 14 days in a container set at 50°C with refrigerant (R32, R407C and R410A) and refrigerating machine oil Criteria ; Hardness change wet ± 1 IRHD dry ± 10 IRHD, Volume change wet -5% to 25% dry ± 10% Mass change wet ± 12% dry ± 7%
	Test 2	Helium leakage test 7.5×10 ⁻⁷ Pa·m ³ /s or less on 4.3 MPa, 5 min
Fatigue test	Test 1	Cycle conditions ; Internal pressure 4.3 MPa with water ⇔ Atmospheric pressure Repetition number ; over 250,000 times
	Test 2	Helium leakage test 7.5×10 ⁻⁷ Pa·m ³ /s or less on 4.3 MPa, 5 min

ており、HFC系のR32, R407CおよびR410Aに対応している。HCFC系およびCFC系冷媒には対応していない。

4. RG プレスの継手性能

4.1 ISO14903に沿った性能評価

ISO14903に沿った継手性能の評価方法を **Table 2** に、性能評価試験状況の例を **Fig. 3** に示す。RG プレスは ISO14903に規定された気密レベル A1 を満足している。

4.2 業務用エアコン実装試験

弊社内に設置した業務用エアコンの冷媒用銅配管への RG プレス実装状態を **Fig. 4** に示す。現時点で2年が経過しており、冷媒漏れの発生は無く、機器は正常に稼働している。

5. RG プレス専用油圧工具での施工

5.1 RG プレス専用油圧工具

RG プレス専用の小型油圧工具とダイスの外観を **Fig. 5** に示す。RG プレスは配管サイズに応じたダイスを取り付けた油圧工具でプレスカシメ加工される。6.35 mm 用から 31.75 mm 用の小径銅配管用 RG プレスには小型油圧工具を、また大きなプレスカシメ力の必要な 38.10

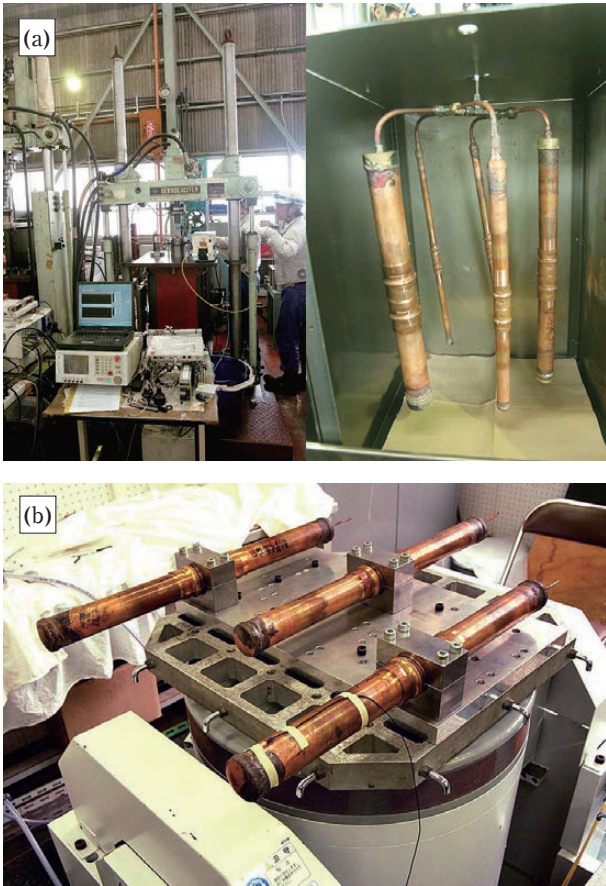


Fig. 3 Examples of the evaluation tests.
 (a) pressure test
 (b) vibration test

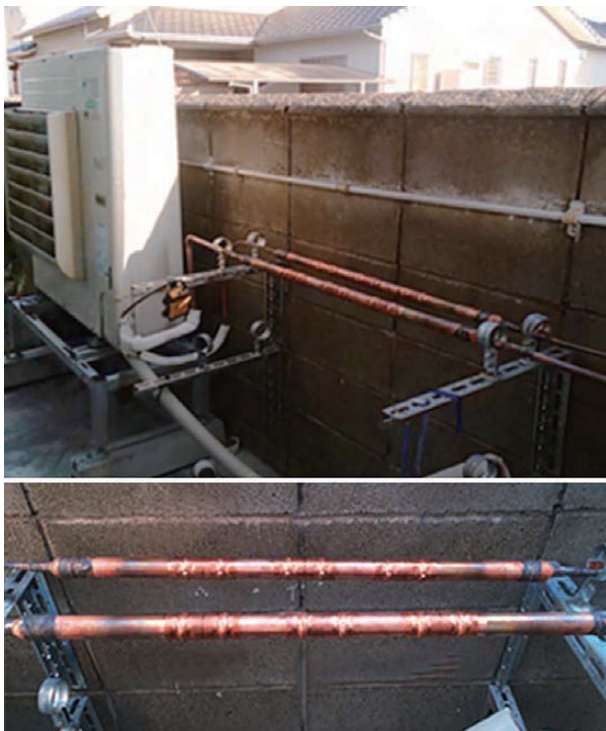


Fig. 4 RG-press mounting test on the air conditioner for professional use.

mm用および41.28 mm用の大径銅配管用RGプレスには大型油圧工具を使用する。

5.2 RGプレスの施工

RGプレスの施工方法をFig. 6に示す。油圧工具の作動スイッチを押した後、ピストンの油圧が所定圧力に到達すると、状態表示ランプが点灯し、プレスカシメ加工の完了を確認できる。プレスカシメ加工に要する

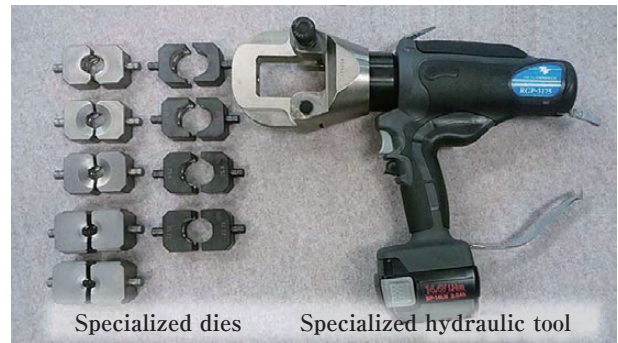


Fig. 5 Specialized hydraulic tools for RG-press.

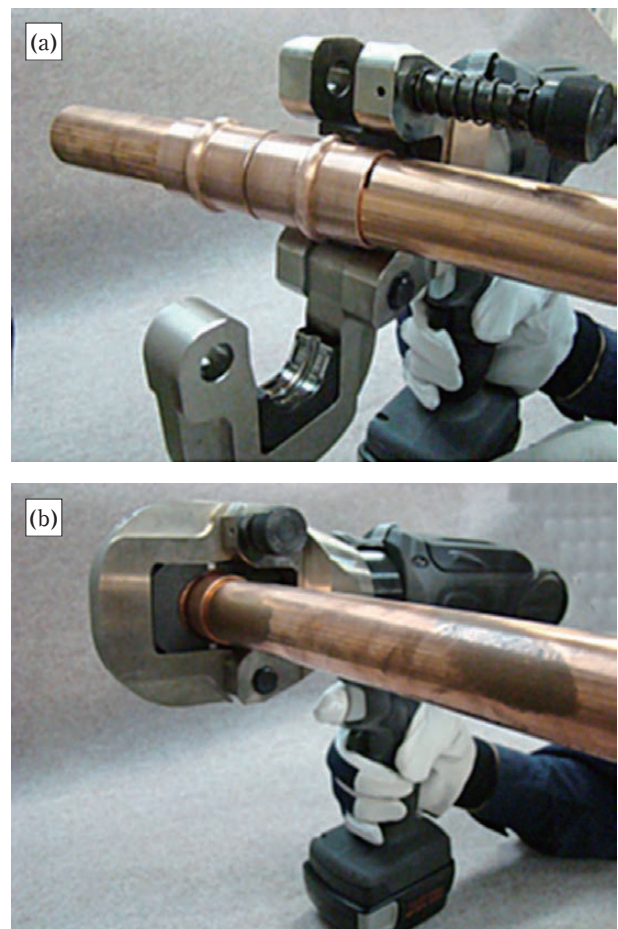


Fig. 6 Operation procedures of RG-press.
 (a) set and attach to the specialized hydraulic tool
 (b) push the button for the press-crimping processing

時間は一カ所（継手片側）当たり小型油圧工具で10秒程度、大型油圧工具で40秒程度である。プレスカシメ後のRGプレスの外観例をFig. 7に示す。

5.3 接合品質の確認

最終的な接合品質は、目視確認に加えて専用ゲージを通過させることで容易に確認できる（Fig. 8）。

6. RGプレスの施工実績

施工実績をTable 3に示す。また、施工の事例をFig. 9に示す。工場現場、工場事務所やオフィスビルなどの火気使用が制限される改修工事のみならず、施工時間の短縮効果や施工品質の安定性の点で新設工事にも採用され始めている。



Fig. 7 Appearance of RG-press after the press-crimping.



Fig. 8 Press-crimping quality check using the specialized gauge.

7. 今後

現時点では業務用エアコンの冷媒用銅配管の施工における火無し継手の採用率は5%程度と推定している。この普及が進まない要因としては、火無し継手は構造が複雑ゆえ、ろう付継手に比べて10倍程度高価格であること、並びに施工作业における負荷が必ずしも小さくないことが挙げられる。施工時間短縮と軽量並びに低価格を実現したRGプレスは、低コストで冷媒用銅配管の施工生産性の向上に必ずや貢献できるものと考えている。したがって、リニューアル用途への普及だけでなく、新設物件へも採用が拡大していくことを期待したい。

参考文献

- 1) 若林広行:建築設備, 714-7 (2010), 32-35.
- 2) ISO14903:2017, Refrigerating systems and heat pumps - Qualification of tightness of components and joints.

Table 3 Construction results of RG-press.

Date	Region in Japan	Condition
Apr.2016	Chubu	Repair piping Factory office
Mar.2017	Chubu	Repair piping Factory control room
Oct.2017	Hokkaido	Repair piping Office building
Apr.2018	Chubu	New piping Factory office
May.2018	Chubu	New piping Factory machinery facilities
Aug.2018	Chubu	New piping Factory production line
Aug.2018	Kantou	Repair piping Tenant shop in a large store
Aug.2018	Kansai	New piping Room in a temple
Aug.2018	Kansai	New piping Office building
Sep.2018	Chubu	New piping Office building
Sep.2018	Chubu	New piping Office building

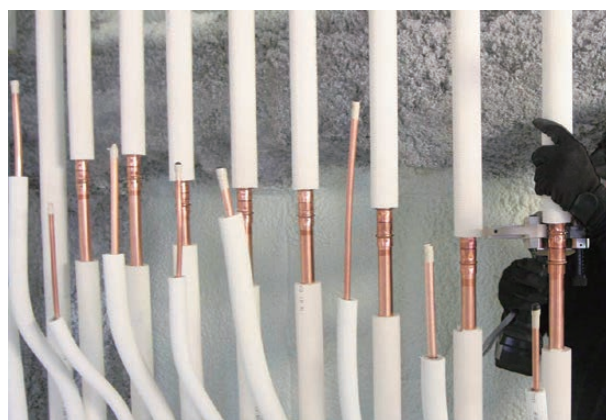


Fig. 9 Construction example using RG-press.

お問い合わせ

(株)UACJ銅管販売 営業部 東京支店
〒103-0026 東京都中央区日本橋兜町6番5号
兜町第6平和ビル
TEL : 03-5847-2988 FAX : 03-3663-7320
Website : <https://ucts.uacj-group.com/>

UACJ Copper Tube Sales Corporation
Sales Department Tokyo branch
Kabutocho Heiwa Bldg. No.6, 6-5 Nihonbashi
Kabutocho, Chuo-ku, Tokyo 103-0026, Japan
TEL: +81-3-5847-2988 FAX: +81-3-3663-7320
Website : <https://ucts.uacj-group.com/>



佐藤 好生 (Yoshio Sato)
東洋フイツテング(株) 品質保証技術部



若林 広行 (Hiroyuki Wakabayashi)
東洋フイツテング(株) 品質保証技術部



常川 雅功 (Masanori Tsunekawa)
東洋フイツテング(株) 品質保証技術部



田中 正勝 (Masakatsu Tanaka)
東洋フイツテング(株) 製造部



アルミニウム技術史 –ジュラルミンから超々ジュラルミンまで– (第三回) 日本におけるジュラルミンおよび超ジュラルミンの研究 および製造技術の発展*

吉田 英雄**

History of the Aluminum Technology from Duralumin to Extra Super Duralumin (Part 3) Development of Research and Fabrication Technology about Duralumin and Super Duralumin in Japan*

Hideo Yoshida**

1. はじめに

Zeppelin 飛行船の骨材が日本に持ち込まれて以来、日本でジュラルミンの研究およびその製造が始まった。ジュラルミンの研究においてはなぜ室温時効で硬くなるのかといった基本的な問題に日本でも多くの研究者が取り組んだ。また製造技術の面でも鋳造を含めて生産技術の確立が大きな課題であった。ここでは主に、住友(住友伸銅所, 住友伸銅鋼管, 住友金属)での技術の発展を取り上げる。ここでの取り組みが一番早かったのと、ジュラルミンの製造を始めた頃の古い研究報告書や論文、資料が多く残されていることによるものである。最後に、何故日本では、24Sのような超ジュラルミン開発ができなかったのか考察する。

2. ジュラルミンの調査と製造^{1)~4)}

2.1 Zeppelinの骨材調査とジュラルミンの試作

C. M. HallとP. L. T. Héroultがアルミニウムの電解精錬法を発明した1886年の翌年には、少量のアルミニウムが陸軍砲兵工廠に輸入され、貴重品扱いで金庫に保管されたようである。その後、軍需用器物として使用されたのは1894年からである。住友伸銅場は1897年安治川に開設され、翌年、陸軍砲兵工廠から地金を受取り、アルミニウムを圧延して納入した。1913年7月、住友伸銅所(同年6月に伸銅場から伸銅所と改称)は農

商務省技師で金属製品の分析・試験に従事していた杉浦稠三(しげぞう)氏を招いて試験係に任じた。1916年には、杉浦氏は「自身で研究開発しなければ、何時までたっても外国の下位に立たねばならない」、「工場に研究が専属することによって、官立の試験所では出来ないような工場規模の研究が行える」と発案し研究課が設けられた²⁾。日本で工場に研究課が設置されたのはこれが最初である。1916年末海軍艦政本部、大阪海軍監督官長経由でFig. 1に示すようなZeppelinの骨材が住友伸銅所に持ち込まれ、翌年この材料の調査を行ったのが研究課の杉浦氏であった。その分析結果や英国金



Fig. 1 Part of the framework of Zeppelin Airship shot down near London, brought into the Japanese Navy and stored in UACJ Corporation^{2), 4)}.

* 本稿は軽金属, 65(2015), 627-637に掲載された論文に加筆, 補正したものである。

This paper is the revision of the paper published in Journal of The Japan Institute of Light Metals, 65(2015), 627-637.

** 超々ジュラルミン研究所, 博士(工学), (元)株)UACJ R&Dセンター 顧問

ESD Laboratory, Dr. Eng., (Formerly, Research & Development Division, UACJ Corporation, Adviser)

属学会誌JIMの文献をもとに、工場における試作研究を開始し、1919年工場試作が完了し、「住友軽銀」(ジュラルミンとルビがふられた)と命名された。この住友軽銀の成分はCu 4%, Mg 0.5%, Mn 1.0%, Al残である。海軍から住友伸銅所にこの調査依頼した経緯は明らかでないが、杉浦氏は戦後の航空機用軽金属材料に関する座談会で「当時は金属に関する研究機関が少なく、住友伸銅所は一つの独立した金属専門の研究部門を持っていたためではないか」と述べている^{1), 5)}。1921年伸銅所は初めてジュラルミンの工業生産を行い、横須賀海軍工廠において英国Vickers社製SS式軟式飛行船を国産化するために吊り船やそのほかの構造材料として板管棒計1トン余りを受注した^{1), 2)}。海軍が1919年英国Vickers社に発注した飛行船は、ゴンドラ(吊船)を木製からジュラルミン製に変えたSS式1号飛行船であり、1921年完成したが、2ヶ月後格納庫で試験中に爆発した。このため設計図と予備部品をもとにして1922年国産化を行った。これをSS式3号飛行船(Fig. 2)⁶⁾と呼んだ。この飛行船もその後全面改修されたが1924年空

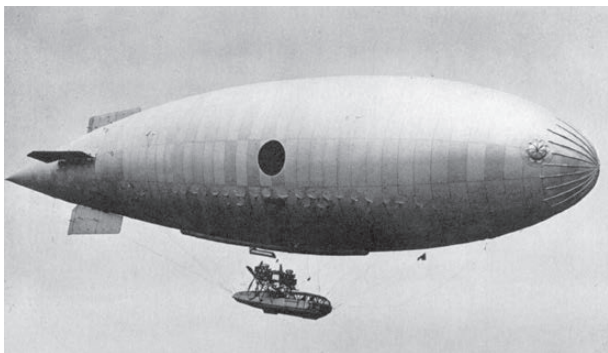


Fig. 2 SS-type No.3 airship manufactured by the Japanese Navy⁶⁾.

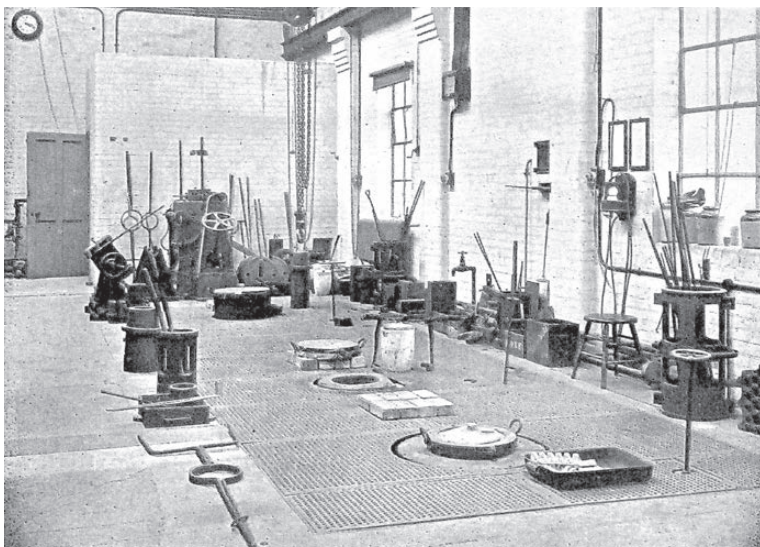


Fig. 4 Experimental foundry and machine for combined clamping and cross tilting of slab molds at the National Physical Laboratory (NPL)⁹⁾.

中爆発を起こし、5名が殉職した⁷⁾。Hindenburg号爆発の13年も前のことである。

当時のジュラルミン製造技術はきわめて初歩的なものであったため、海軍は飛行艇を建造するため招聘した技術者の中で、T.W. Paganを伸銅所に推薦してきた。彼はNPL (National Physical Laboratory) のRosenhainに師事していて英国のアルミニウム製造技術を把握していたことによる。1922年1月から8ヶ月間、住友伸銅所に嘱託として採用され、鑄造、圧延、押出、抽伸の各部門と波板と型材の製造方法について指導した。また、従来造塊方法であるFig. 3に示すような鑄型に鑄込み、湯道は凝固後タガネで落とし、中央部の押し湯を切削して圧延に供する「平流し法」や、鑄型を立てて上から鑄込む「縦流し法」は、傾斜鑄造法に改められた。傾斜鑄造法は、NPLのRosenhain博士の考案によるもので、Fig. 4にNPLの当時の鑄造実験室と傾斜鑄造機を示す⁸⁾。Fig. 5のように鑄型を傾斜させ、溶湯を注ぎ込

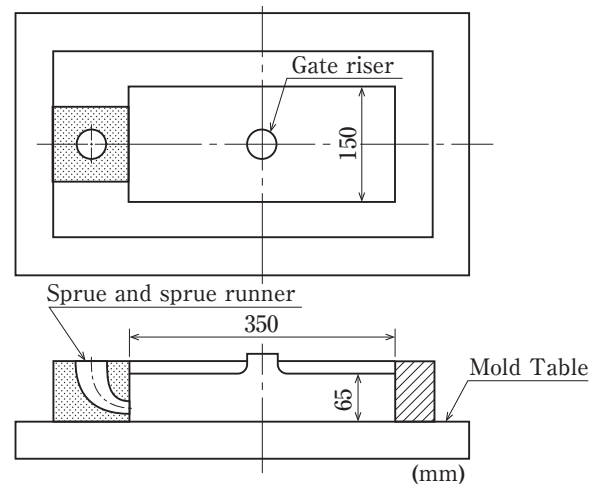
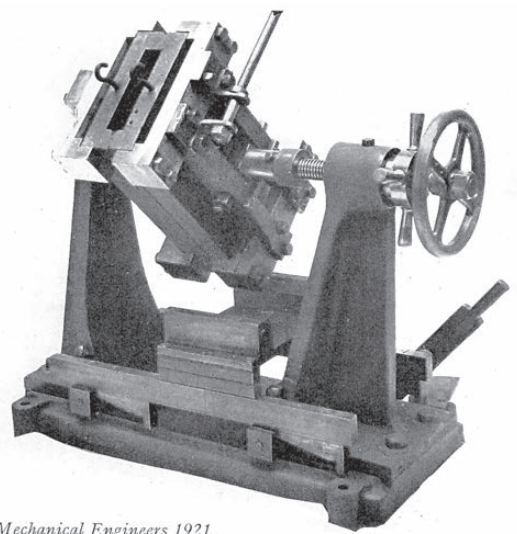


Fig. 3 Horizontal flat mold¹⁾.



Mechanical Engineers 1921.

みながら徐々にハンドル操作で機械的に鑄型を立てていく方式である⁹⁾。鑄型には当初aのように湯道をつけたが、切断ロスや切断工数がかかるため、bのように端面を屋根形状にした。Paganはハンドル操作の代わりに鑄型の下に隅にチェインブロックをつけて傾斜させた。これによりジュラルミン鑄塊は板用が厚さ57 mm (2.25 in)、棒用が直径89 mm (3.5 in)となった。焼入れにも彼の指導で硝石炉を使用するようになった¹⁾。

この年の4月中島式Breguet型飛行機(中島B-6 複葉機)の機体構造にはじめて伸銅所製ジュラルミンが使われ、「軽銀」号と命名された(Fig. 6)^{11), 12)}。ジュラルミンの本格的採用は1930年以降の全金属製の機体となつてからである。Fig. 7に示す九二式重爆撃機¹³⁾や九三式重爆撃機並びに九三式双軽爆撃機は、Junkers社の機体をベースに設計されたためにJunkers式の波板構造の全金属機で、波板外板によって覆われていた。

2.2 ジュラルミン製造技術習得団

1922年第一次世界大戦が終わり、日本は戦勝国としてドイツから賠償の1つとして何百台かの飛行機を受け取るようになっていたが、「飛行機を得るのは全くの一時の利得であり、むしろ、その製作技術、例えば機体の設計とか軽合金の製法を習得する方が国家百年の大計である」¹⁾とされ、その結果ジュラルミン製造技術習得団が派遣されることになった。1922年3月、習得団は海軍造機大佐石川登喜治(ときじ)¹⁴⁾(Fig. 8. *)



Fig. 6 Breguet 14 type aircraft, named “Keigin” fabricated by Nakajima Aircraft Industries, (1922)¹¹⁾.

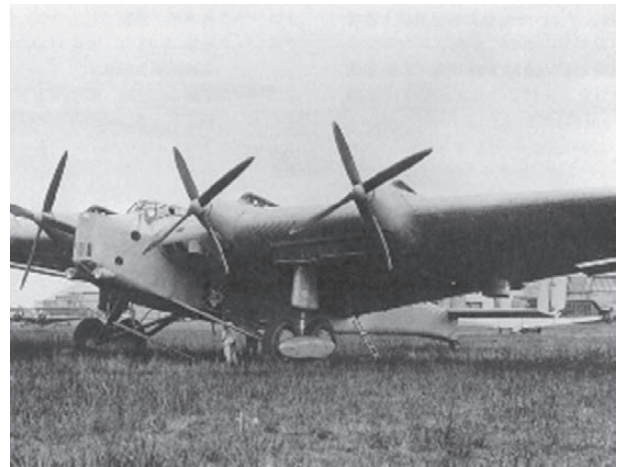


Fig. 7 Type 92 Heavy Bomber (1931)¹³⁾.

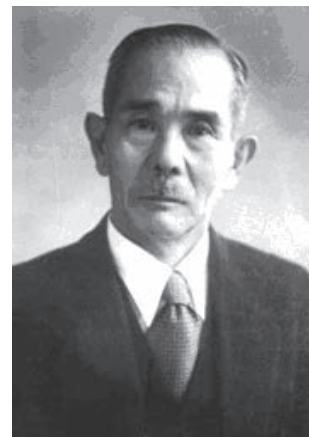


Fig. 8 Prof. Tokiji Ishikawa¹⁴⁾.

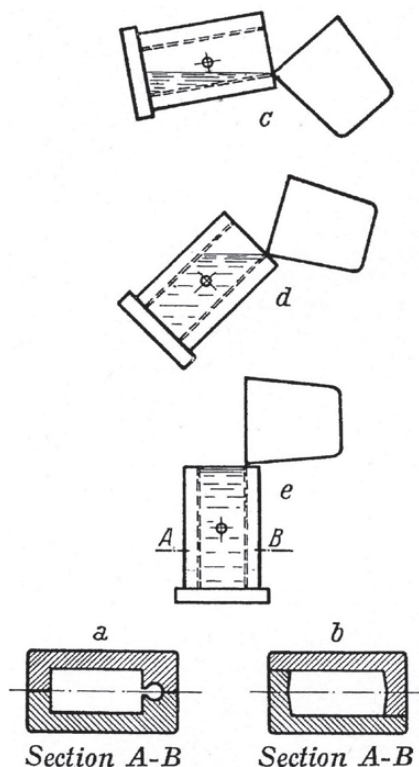


Fig. 5 Tilting-mold method and cross sections of mold¹⁰⁾.

脚注*1

石川登喜治：1879年(明治12年)に九州の柳川市に生まれ、東京帝国大学を卒業後、海軍佐世保工廠に勤務、その間に英国に留学。1919年には船用プロペラの材質、マンガン青銅の研究で帝国学士院賞を受賞。その後、1930年に海軍造機中將を退き、当時の日本鑄物協会(現：日本鑄造工学会)の初代会長を務めた。住友金属工業の顧問となる。1937年1月、早稲田大学は石川登喜治博士を招聘。早稲田大学教授に就任し、鑄物研究所を創立し初代所長となる。鑄造技術は全ての金属製品を作る根底をなすものであるから、鑄物研究所をわが国の金属工業は勿論、工業全般の進歩に寄与する存在にしたいと考えていた。その後、鍛造・圧延・プレス・押しなどの塑性加工の実験棟を建設。1946年3月所長辞任。1964年(昭和39年)6月23日、享年84歳で逝去。(早稲田大学各務記念材料技術研究所のホームページより⁸⁾)

を団長とし、陸海軍それぞれ若干名と住友伸銅所の技術者4名をもって組織された。1922年4月20日出発、7月下旬Dürenに到着し、9月中旬まで、Dürener Metallwerke A.G.でジュラルミン製造技術を実習、その後ドイツと英国の工場を見学して、翌年2月23日帰国した。Dürener Metallwerke A.G.では「同社の作業員と同様に勤務して習得した内容を毎週取りまとめ、同社提供のジュラルミン製造方法習得書と照合検討の上、疑問点は質問して技術の真髄を習得するように努めた」とのことである。なお、ジュラルミンは同社がWilmの特許を工業化したもので、当時、英米仏等の諸国に特許を分譲していた関係から、一行の技術習得に関して住友の名において有償契約の締結が要望され、その結果、陸海軍関係者も形式上は住友派遣員として実習した。なお、ジュラルミン製造技術習得団とともに金属機体製造技術習得団も渡独している。

ジュラルミン製造技術習得団に関しては、団長の石川登喜治博士が、戦後、日本経済新聞の昭和33年3月16日付けに「ジュラルミン秘話」と題して書かれた記事があるので、これを紹介する。「戦勝国はドイツからの戦利品を早いもの勝ちでとりあった。アメリカなどはいち早く、Zeppelin号二台と飛行機数十台を確保してしまった。日本は出足がおくれて、もらい分というのはいち早くはなかった」そうである。石川博士によると、「実は日本ではほしいのはZeppelin飛行船である。さらに突っ込んでいえば、Zeppelinの材料であるジュラルミンの秘密なのだ。この合金をどうやって冶金するか。どうやって薄くのばすか。どうやってそれをまげるか等々の秘密なのである」。石川博士には1915-1916年、英国のGlasgow大学に留学した時に、Doverで撃墜されたZeppelin飛行船のジュラルミンのかけらをひろい日本にもちかえたものの、それを作る方法がわからずそれに近いものは出来るのだが、金属としてずっと性能の低いものしかできなかったという苦い経験があった。こういった事情があつて、Zeppelin二台分を作る材料をもらいたいと申し入れた。その結果、Dürener Metallwerke A.G.に図面の提供と管、板、アングルなどを作ってもらうことに契約がまとまり、現地の工場見回りとして派遣されたとのことである。いよいよ製作が始まると、肝心なところに来ると私たちに見せないようにする。工場内ではノートを出してメモをとってはいけないうことになっており、すべては目で見ただけの習得でなくてはならなかった。日本ではその工場で行っているのと同じスケジュールでジュラルミンを作る態勢をととのえていて、同じものをつくりつつあった。工場で知りえたことは秘密電報で本国

に送り、本国ではその知識にもとづき製作をするといった段取りであった。まえもって相当研究してかかったが、分からないこともあった。たとえばジュラルミンの板がでこぼこになっているのが一晩立つとピンと平らになる。技師長に質問すると「これは夜になると伸びるんです」といって追及を避けた等々。詳細は記事を読んでいただくとしていろいろな苦労話があったようで、これがその後の製造技術の発展の礎になった。

なお1921年、日本も戦利品としてZeppelin飛行船L37 (LZ75) 1隻と飛行船格納庫1棟を受け取るようになったが、これを日本に運ぶことは無理と考えたのか、2年間も格納庫に入れたままにしたため劣化してしまい、飛行船はその場で解体して、船首部、尾部、ゴンドラおよび船体の一部と気囊、計器、無線電信機、発動機(六基)が運ばれてきたという。一方、格納庫は霞ヶ浦に移築され、東京駅が二つ入ってしまう大きさだといわれた。この格納庫は日本海軍が飛行機の格納に使用していたが、1929年にGraf Zeppelin号が日本に立ち寄った際に一時的にこの飛行船の格納庫として使用された^{7), 8)}。

2.3 住友におけるジュラルミン製造技術の確立 (桜島新工場建設)

1923年、Paganの指導と「ジュラルミン製造技術習得団」によってもたらされた技術を組み合わせることによって、新しい製造設備を起業する計画が立てられた。溶解には圧風式可傾炉を用い、200 mm (8 in) 角型鋳塊を傾斜鋳造機にて造塊し、この鋳塊を1000トン型水圧機で鍛造後、帯状圧延しようとする製造法である。しかしこの計画は工場移転の議が起こり、1928年の桜島新工場移転まで持ち越された。この間、1926年住友合資会社より分離して住友伸銅管株式会社が設立され、Alcoaとの提携が1928年成立した。Alcoaは地金販路拡大のため、日本の加工会社との提携を模索しており、1925年株式会社住友電線製造所との提携が成立、この関係から住友伸銅管もAlcoaと提携し、溶解炉とアルミ板専用の圧延工場を建設することとなった。なお、Alcoaは1928年5月、カナダ法人のAluminum Limited (Alcan) を設立したため提携先も海外事業を主とするAlcanに変わった。1930年、Alcanとの合弁で桜島の板工場と八尾の箔工場を母体に住友アルミニウム株式会社(現、東洋アルミニウム)が設立された。

桜島移転に伴い、プロペラ翅素材やクランクシャフトなどの大型鍛造品、薄板を板曲げとダイ抽伸で製造するプロファイル品、さらに鋳造、圧延、押出並びに抽伸に関する設備の拡充と新技術の採用が行われた。当時の飛行船などの骨組みに使用されたのはジュラルミ

ン板を曲げ加工しその後ダイス抽伸を数回繰り返して製造するプロフィールである。大量生産になるとロール成形に置き換わった。Fig. 9上はジュラルミン・プロフィールの断面形状である。押出形材の最小肉厚は3 mmが限度であったため、板からのプロフィールが用いられた。プロフィールは厚さが0.4 ~ 0.6 mm程度、長さが4 ~ 5 mである。Fig. 9下に示す引抜機には4段のペアに配置されたロールが設置されている¹⁰⁾。1939年頃になると押出最小肉厚は1.2 mmとなり、これより薄くする場合には圧延と抽伸で仕上げた。

2.3.1 鑄造技術

この桜島新工場の鑄造設備は、可傾炉4基と坩堝炉48基である。最初は80 kg角型鑄塊、直径140 mmの40 kg鑄塊が傾斜鑄造法で鑄込まれたが、1931年には鍛造素材用に280 ~ 330 mm (11 ~ 13 in)角型鑄塊 (110 ~ 120 kg) が、管用には直径150 mmの30 kg鑄塊または直径230 mm (9 in)の50 kg鑄塊が造塊され、逐次大型化に移行した。鑄型もFig. 10のように、湯口付き鑄型で湯口から注がれた溶湯は金網を通過して徐々に底部から鑄型内に流入するDüren方式 (左) から予め鑄型片面に金網付湯口をつけた方式 (右) に改良された。いずれもフィルターとして金網が用いられている。溶解炉はAlcanと協議した結果9トン反射炉を初めて採用した。

反射炉の前にはFig. 11のように4列に各4基配列された合計16基の傾斜鑄造機が配置され、朝8時半から鑄込み開始し午後3時半鑄込み終了、炉内清掃し、夜間に11トン溶解する一日一溶解方式であった。鑄型はブ

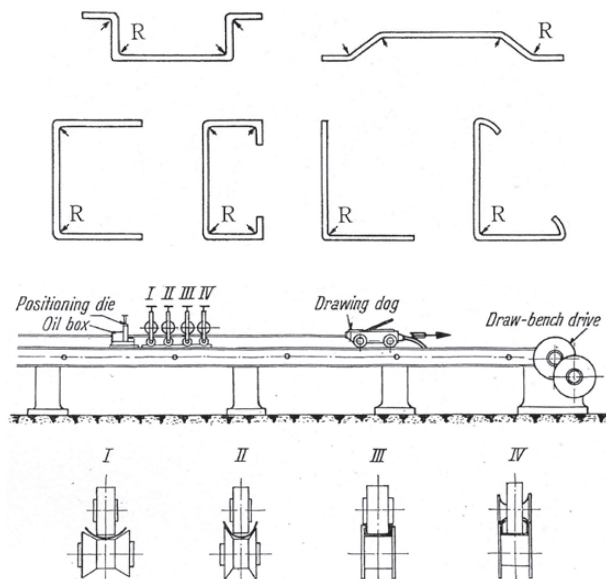


Fig. 9 Shapes of profiles and roll forming machine¹⁰⁾.

ックモールドで、鑄造方法は反射炉より溶湯を取鍋に入れ、60度傾斜している鑄型に鑄込み始め、鑄型を徐々に回転させ垂直になって鑄込みが終了する。この当時の板用鑄塊寸法は110 × 280 × 610 mm (4.5 × 11 × 24 in) (約53 kg)であった。Fig. 12は当時のAlcoaでの圧延用インゴットを製造する様子を示した写真である¹⁵⁾。

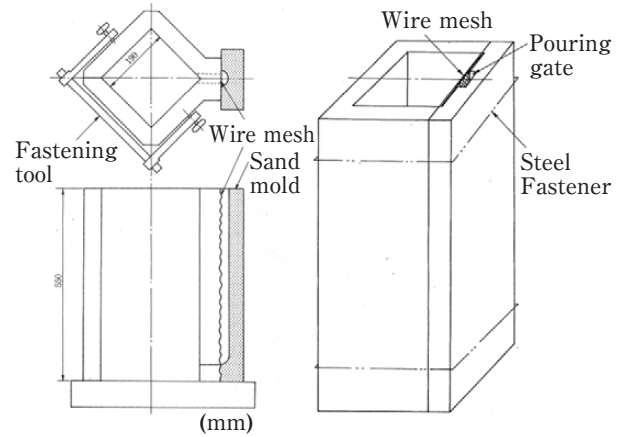


Fig. 10 Düren-type mold (left) and the modified-type (right)¹⁾.

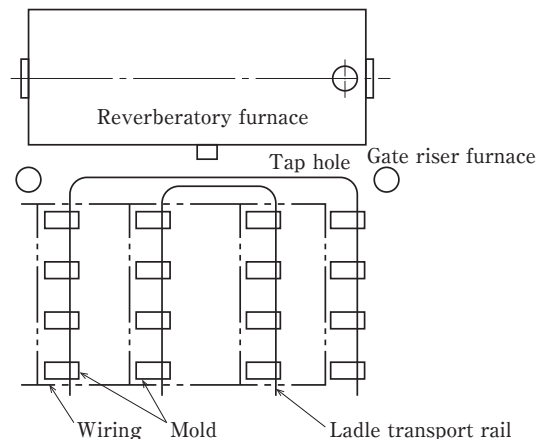


Fig. 11 Layout of reverberatory furnace and molds¹⁾.



Fig. 12 Open-hearth furnace, tilting type, for remelting aluminum; rolling ingots in foreground¹⁵⁾.

1928年にプロペラ翅素材の鍛造が始まり、大型鋳塊の必要が生じた。プロペラ翅鍛造用鋳塊はバケツ型で、1931年頃は上部直径330 mm、下部直径305 mm、高さ483 mm、110 kgで、これが次第に大きくなって、1942年頃には上部直径が600 mm、下部直径が800 mm、500 kg鋳塊が用いられている。材質は25S (Al-4.5%Cu-0.8%Si-0.8%Mn) である。

1931～1940年鋳型を木炭で加熱後、反射炉から注湯し空タンク内に入れ、鋳型の下部を周囲から放水して冷却し逐次、放水を鋳型上部に移して凝固させる方式を採用しており、水冷鋳型法と称した。問題は鋳塊の中心に巨大金属間化合物が生じやすいことである。これを改良するためにFig. 13に示すような加熱水冷式鋳造法 (SKS - II 式, SKSはSumitomo Kinzoku Sindoshoの略) が開発された¹⁾。溶湯を入れた鉄製取鍋を木製水槽の中に徐々に降下させ冷却させるが、水槽に入るまでをガスバーナーと水スプレーで冷却速度を調節する方式である。

2.3.2 圧延技術

板工場の主要設備は三段熱間圧延機1基、大型二段圧延機10基、小型二段圧延機12基、板引張矯正機1基、石炭炉10基であった。その内新設したものは幅1,230 mm (4 ft) 迄圧延可能なKrupp社製三段熱間圧延機、英国Robertson社製小幅用圧延機、石炭炉はRockwell社から購入した特許に基づいて製作された炉であった。

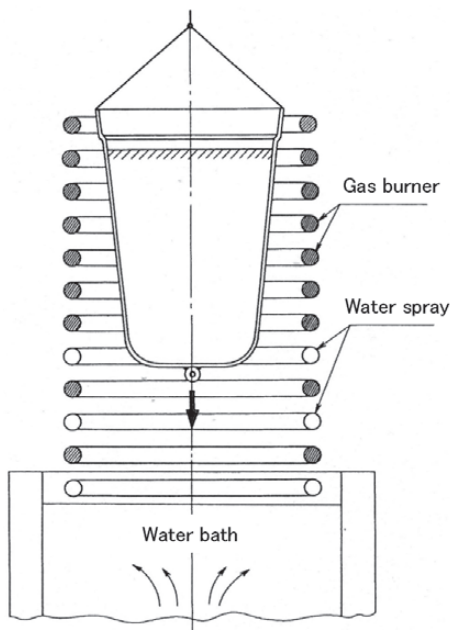


Fig. 13 Casting mold with controlling cooling rate by gas burner and water spray named SKS-II type¹⁾ (SKS: Sumitomo Kinzoku Shindosho).

三段熱間圧延機は現在でも使用している会社もあるが、その外観と圧延方式の模式図をFig. 14に示す¹⁰⁾。ロール回転を逆回転しなくてもよいので、二段熱間圧延機より効率がよいことが特徴である。鋳塊はすべて傾斜鋳造法によるものであり、1931～32年頃の60 kg鋳塊から80 kgへ、さらに鋳塊端面が丸型の70, 90 kg、1939年頃には120 kg鋳塊が使用された。

熱間圧延の工程はジュラルミンの場合、500℃、8時間の均質化処理を施したのちに、440℃で鋳塊厚さ120 mmを75 mmまで圧延し、その後面削したのちに再加熱し、同じく440℃で熱間圧延して6.4 mmまで圧延する工程である。この工程をFig. 15に示す。ここで特徴的なことは、鋳塊をまずその厚さの2/3程度までに圧延を行

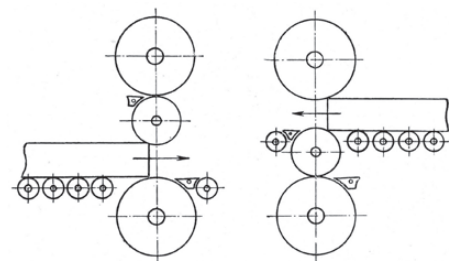
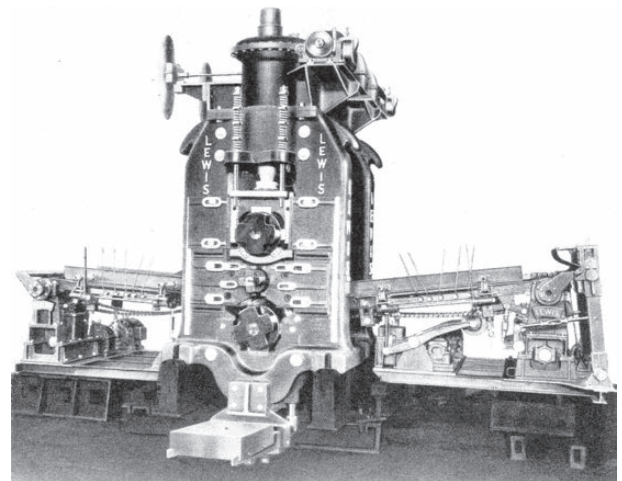


Fig. 14 Three-high hot rolling mill and its principle¹⁰⁾.

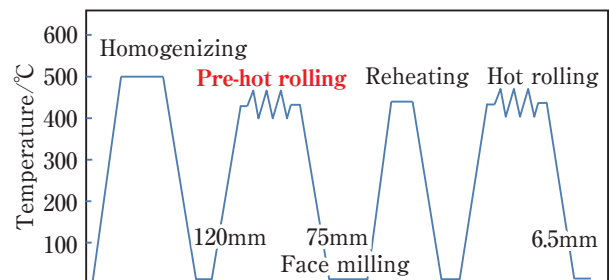


Fig. 15 Pre-hot rolling process (numerical values in the figure indicate plate thickness)¹⁾.

い面削で疵を除去後再加熱し、通常の熱間圧延を行う圧延方式である。通常圧延の前の圧延を「押え圧延」と称した¹⁾。押え圧延の考え方は、戦後の高靱性高強度合金の開発の中で提唱された中間加工熱処理の考え方の原型となるもので、鑄造組織を予備圧延(鍛錬)によって如何に壊すかということが課題である。他社では押え圧延の代わりにプレフォーミングと称して熱間鍛造が行われた。クラッド材については、鑄塊の両面に所定の厚さに圧延した皮材を被覆し、鉄のバンドで締め付けたあと熱間圧延で圧着したが、その後、鑄造時に皮材を溶着させてからは皮付き鑄塊を用いて前述の工程で熱間圧延された。

冷間圧延では、大板は910×1830 mm (3×6 ft), 1220×2440 mm (4×8 ft), 1520×3050 mm (5×10 ft) 並びに1000×2000 mmの4種類、小板は400×1200 mm, 500×1200 mmの2種類が標準寸法で、大板の最小板厚は0.5mm, 小板は0.3 mmであった。大板の圧延には二段圧延機660×1670 mm (26×66 in) が用いられ、6.4 mm (0.25 in) 熱間圧延板を焼鈍後圧延し、中間焼鈍を施してから途中で2枚合わせにし、0.8 mmまで圧延した。0.6 mm, 0.5 mm板は3枚重ねの圧延である。焼入れ後は冷間スキンパス上がりが主で、引張矯正は必要に応じて行った。板厚1.0～1.5 mmのものはすべてロール矯正である。小板圧延には、Schmitz社製2基とFarrel社製1基の小型帯板圧延機を用いた。プロファイル用素板には長さ5000 mmに切断後、引張矯正したがコイルで出荷したのもあった。

2.3.3 押出技術

管・棒・線用としてはKrupp社製1000トンの横型水圧押出機が1基で、1935年頃にSchloemann社製2000トン1基が設置された。前者にはコンテナヒータがなく、薪を焚いて暖めた。鑄塊は直径140 mm (5.5 in) のものが使用された。後者は複動型で、コンテナはガスバーナー方式で、鑄塊は180 mm (7 in) のものが使用された。堅型水圧押出機はHydraulik社製600トン2基が設置され、小径管の素管の押出に使用された。そのほか、丸棒の熱間圧延と管の熱間マンドレル圧延用に3段溝ロール圧延が3基、2段溝ロールが2基用いられた。

ジュラルミン押出材の製造に使用されたのはKrupp社製の1000トン横型押出機で、大まかな形状を押し出し圧延と抽伸で仕上げた。その後、Schloemann社製2000トンも使用された。

2.3.4 鍛造技術

鍛造にはプロペラ翅素材用として1930年6トンエア

ーハンマーが設置された。その後、1000トンの堅型水圧機3基とスクリーブプレス4基並びに3トンエアハンマーが2基設置された。

3. 材料開発

3.1 住友の材料開発, ジュラルミンから超ジュラルミンへ

3.1.1 各種の超ジュラルミン

当時(1929年頃)の住友伸銅所のジュラルミンをTable 1に示す¹⁾。D₂が一般にジュラルミンと称されて、引張強さは410～440 MPa (42～45 kg/mm²)程度である。この強度レベルを超える合金は合金系に拘らずどれも超ジュラルミンと呼ばれた。

住友伸銅所では日本で初めて工場に研究課を新設した杉浦稷三氏を継いで、ジュラルミンや伸銅などの研究を行ってきたのが、松田孜(つとむ)博士である。さらに松田博士の後を受けて田邊友次郎博士、その後に五十嵐勇博士が登場してくる。

日本においても、1931, 32年頃になると飛行機の性能向上につれて、材料の比強度の向上が要求された。1933年10月の陸軍航空本部技術部(立川)への出張報告(松田, 研究報告No.2270, 1933.10)や「超Duralumin見本提出ニ至ルマデノ二・三ノ試験」(五十嵐, 中田, 研究報告No.2363, 1933.12)をみると、この当時、二種類の「超」ジュラルミンが記されている。五十嵐博士らの社内報告書では第一種超ジュラルミンとして、Al-4.2%Cu-0.70%Mg-0.65%Mn-0.65%Si-0.45%Fe合金が、第二種超ジュラルミンとして、Al-6.0%Mg-4.0%Zn-0.45%Mn-0.15%Si-0.36%Fe合金の試験結果が報告されている。前者の第一種超ジュラルミンは含ケイ素超ジュラルミンで、後者の第二種超ジュラルミンはAl-Mg-Zn系合金である。後者の合金は海軍技術研究所の五百旗頭(いおきべ)中佐の指示によるものである(「五百旗頭式超Duralumin製作に関して海軍技術研究所へ出張報告」, 五十嵐, 研究報告No.2167, 1933.8.7)。この五百旗頭中佐の下に、二年後超々ジュラルミンを五十嵐勇博士と一緒に開発することになる北原五郎技手がいた。

Table 1 Duralumin based alloys in Sumitomo (1929)¹⁾.
(mass%)

Alloy	Cu	Mn	Mg	Si	Al
D ₀	4	0.30	0.50	0.30	R
D ₁	4	0.55	0.53	0.30	R
D ₂ (Duralumin)	3.85	0.45	0.53	0.30	R
D ₃	2.50	-	0.30	-	R

3.1.2 世界の動向調査

田邊博士は1933年8月から1934年4月にかけて、松田博士も1935年10月から1936年4月欧米に相次いで出張し航空機用アルミニウム合金や銅合金の調査を行った。この背景としては、アルミニウム合金では各国で航空機用の超ジュラルミンやピストン用合金の開発がしのぎを削っていたことによるものと思われる。住友金属工業・研究報告に掲載された田邊博士の報告、「欧米に於ける航空機用非鉄合金に就て」¹⁶⁾では、当時の状況を「ご承知の如く世界は其の何れの国たるを問わずナショナリズムの波澎湃として其岸を洗ひ、工場見学は極めて困難で、航空機に関して殊に甚しい。就中ドイツに於てはゲーリングが航空相として極度の秘密主義を採り航空研究所の見学すら思ふに任せぬ」とある。こうした状況の中、精力的に欧米を視察してきた。

ドイツに於ける軽合金については、「之は独りドイツのみではないが、航空機用強力鍛錬アルミニウム合金としては依然としてジュラルミンが斯界の王座をすべっていない。併しながら、引張強さ440 MPa (45 kg/mm²)以上、出来得べくんば490 MPa (50 kg/mm²)以上のものを得んとする即ち超ジュラルミンの研究が盛んである」と¹⁶⁾。Dürener Metallwerke A. G.では従来の超ジュラルミン681ZB (Al-4.2%Cu-0.9%Mg-0.6%Mn-0.5%Si)とその強度10%向上させたDM31 (Al-4.2%Cu-1.2%Mg-1.2%Mn-0.5%Si)と称する超ジュラルミン合金を開発している。米国に於ける軽合金では、Alcoaの開発に係わるもので、「現今最も注目すべきは24ST及び24SRTである。その組成はAl-4.2%Cu-1.5%Mg-0.6%Mnで、これらのクラッド材もある」と報告している。英国では

RR56やRR59のピストン材を調査している。Table 2は欧米各国の超強力鍛錬合金一覧を示す^{16), 17)}。

3.1.3 米国24Sの情報と調査

1933年頃には米国の24S合金の情報が入ってくると、住友は海軍航空本部からの「御注意」もあり、9月にAlcoa製の24SRT材を注文して、12月には入手しすぐに確性調査を行っている。12月の「米国製“24SRT”板試験成績(第1報)」(松田, 研究報告No.2381, 1933.12)では、成分に関して、Al-3.98%Cu-1.59%Mg-0.46%Mn-0.16%Si-0.22%Feで、「注意すべき点は、普通のジュラルミンに比し、(1) Mgの量の非常に大なること、(2) Siの量の小なること、(3) Feの量の小なること、(4) 各板の成分よく一致せること、等で、Mgは焼入状態における引張強さ、降伏点を増し、伸びをも増加する性質を有する点より特にその量を増加したるもの…」と記している。24SRT材は従来の超ジュラルミンよりも、Mg量が多く、Si量の少ないことが特徴であった。入手した材料は引張強さ470 MPa (48 kg/mm²)、耐力390 MPa (40 kg/mm²)、伸び16%であるが、反復屈曲回数がかかなり小さいことが指摘されている。これは焼入れ後常温圧延を行うことで耐力が上昇したことによるものと考えられた。

3.1.4 含ケイ素超ジュラルミン合金

Alcoa製の24Sを調査したにもかかわらず、1934年当時の研究報告書を見る限り、住友では、ドイツの681ZBやDM31合金と同様に焼入れ焼戻しする含ケイ素超ジュラルミンが研究開発の対象であり、前述の第一種超ジュ

Table 2 High strength aluminum alloys in Europe and USA (from the review of “Aluminum alloys for airplanes in Europe and USA” (1934) written by Dr. Tanabe¹⁶⁾).

		Cu	Ni	Mn	Mg	Fe	Si	Ti	Cr	Yield Strength MPa	Tensile strength MPa	Elongation %
Germany	DM31-1*1	3.5-4.5 3.66		0.9-1.5 1.17	0.9-1.5 1.38	0.29	0.2-0.9 0.65			310-390	450-510	16-10
	DM31-2*2									390-410	490-510	12-10
Germany	681ZB-1*1	4.2		0.6	0.9		0.5			270-330	410-450	18-12
	681ZB-2*2									350-370	450-470	12-10
USA	24ST*1	4.2		0.6	1.5					290	450	20
	24SRT*2									360	470	13
USA	C17ST	4		0.5	0.5		1.25			340-380	430-480	14-8
France	Avial	1.5-3.5	0.5-1.5		0.25-1.0		0.5		0.5-1.0	290-370	430-530	20-10
Great Britain	DTD252 Duralmin F	3.5-4.7		0.4-1.5	0.4-1.5	<0.7	0.7-1.5			340	>430	>10
Great Britain	RR56	1.5-3.0 2	0.5- 1.51.3		0.4-1.0 0.8	0.8-1.5 1.35	<1.0 0.6	<0.2 0.08		380-420	430-490	20-10

*1 -1, T: quenching and aging at RT

*2 -2, RT: quenching and aging at RT + cold work at RT

ラルミンをSD (Al-4.2%Cu-0.75%Mg-0.7%Mn-0.7%Si), またSA1 (Al-1.2%Mn-0.8%Cu) を被覆した合わせ板をSDC (Super Duralclad) と称して, これらの合金を社内で制定したばかりで, これらの合金の評価を専ら行っていた。制定された時期は明確でないが, SDCの名称が研究報告書で初めて使われたのが1934年9月8日の報告書からである。1934年8月31日海軍航空廠にて, SDC研究会が開催されているが, ここでの議論も前述の含ケイ素超ジュラルミンSDC, 440 MPa (45 kg/mm²) ジュラルミン板材の特性評価と各種形状での強度試験結果についてであった(「SDC研究会概況」(8月31日海軍航空廠), 研究報告No.2731, 1934.9.18)。1935年2月付けの研究報告書(松田, 研究報告No.2965, 1935.2)をみると, 「超ジュラルミン及超ジュラルミンクラッドノ規格ハ板ニ就テハ, サキニ海, 陸軍相次イテ制定發布セラレ, 陸軍ニ就テハ, 最近更ニ, 管及棒ノ規格發布セラレ, 超ジュラルミンクラッドノ規格モ亦近ク發布ノ筈デアル。…参考トシテ米国の24S系合金ノ規格モ知ラレ居ル丈ケ収録シタ」とあり, SD及びSDC規格制定の動向が書かれている。成分規格をみると海軍と陸軍で異なり, 海軍はCu: 3.5-4.5%, Mg: 0.4-1.0%, Mn: 0.4-1.0%, Si: 0.4-1.0%, Fe: 0.6%以下で, 陸軍はCu: 4.0-4.5%, Mg: 1.0%以下, Mn: 1.0%以下, Si: 1.0%以下, Fe: 0.7%以下である。クラッド材の被覆合金は, 海軍, 陸軍ともに同じで, Mn: 1.0-2.0%, Mg: 0.4-1.0%, Cu: 0.25%以下, Si: 0.3%以下, Fe: 0.6%以下である。ちなみに, 米国の24Sはこの報告書によるとCu: 3.6-4.7%, Mg: 1.25-1.75%, Mn: 0.3-0.9%である。

3.1.5 24Sへの方向転換

しかしながら, 1935年5月頃からの社内の報告書を見ると, T3およびT3C合金の試験結果が報告されるようになる。「従来, SD及SDC板ニ代ワツテ, コノ数ヶ月以前カラ, 新配合ノT3(従来, SDヨリMg多シ)並ニ之ノ中味トスルT3C板ノ製造ガ開始セラレタ」とある(「T3及T3C板ニ就テ(第1報)」(東尾, 研究報告No.3200, 1935.6)。住友軽金属の年表と符合する。T3合金押出材の成分はAl-4.14%Cu-1.36%Mg-0.68%Mn-0.14%Si-0.28%Feで, まさに24S合金である(武富, 研究報告No.3202, 1935.6)。この頃から, 住友は超ジュラルミンに関して大きく舵を切ることとなる。当時, 松田孜研究部長のもとで副長をしていた田邊友次郎博士は7月31日付けの研究報告「所謂「超ジュラルミン」ヲ載ル」(研究報告No.3306, 1935.7.31)で次のように総括して今後の方向を述べている。

「1) 超ジュラルミンには, 大別して, Al-Cu-Mg系,

Al-Zn系, Al-Mg系があるが, 薄板の工業生産可能なものはAl-Cu-Mg系に限られている。

- 2) 現行のSD合金(筆者注: 含ケイ素超ジュラルミンのこと)は焼入れ焼戻しを行うが殆ど完璧に近い。Cu, Mgをさらに増加すれば, 多少韌性は犠牲となるが, より高い強度が得られる。
 - 3) 米国の24Sは99.8%のような高純度地金が相当自由に使える国柄で発達したものである。大勢ならば致し方ないが, 日本がこれを採用するには疑問を持つ。米国でも24Sは高価すぎて, 一般材として最近SD合金そっくりの27S (Al-4.5%Cu-0.8%Mg-0.8%Si)を採用したではないか。
 - 4) そうは言っても, Mg量を1.5%まで上げたことはアルコアの努力に深甚なる敬意を表せざるを得ない。かのデュレナ社もジュラルミンのMg量の範囲を0.2-0.7%から0.2-2.0%と上げている。世界の大勢に我等は盲目であってはならぬ。将来, 高級超ジュラルミンはSiフリー, Feフリーの字義通り, Al-Cu-Mg合金によって支配さるべきは確信にて疑わざる処。
 - 5) 我等は, 我国は, 徒に24Sに心酔せず, 欧州各国の事例を参照し, 我国独自の立場を, 今しばらくとるべきではあるまいか。99.8%地金の輸入が途絶えた暁はどうするか, 深く思わざるべからず。
 - 6) Al-Zn系, E合金(筆者注, 英国Rosenhainが開発, Al-20%Zn-2.5%Cu-0.5%Mg-0.5%Mn), Scleron (Al-12%Zn-3%Cu-0.5%Mg-0.6%Mn-(0~0.1)%Li系), Constructal 8 (Al-7%Zn-2.5%Mg-1%Mn-0.2%Si系)⁶⁾など圧延が困難として, すでに過去の遺物となっているが, 再認識して合金開発すべきではないか。五十嵐君発見のAl-Zn-Li系は何とか完成させたいものである。Al-Mg系も地金純度が上がると可能性はあるので, 注目を忘れるべからず。」
- この直後に, 五十嵐勇博士の超々ジュラルミンの研究開発開始の意思を示した8月10日付けの「強力軽合金の探求 (No.1)」(研究報告No.3326, 1935.8.10)がでてくる。
- 14S系超ジュラルミンから24Sに転換した背景には, 焼戻しが必要とのことでコストが高くなることや, 14S系がT6で使用するために, 24S-T3に比べて伸びが小さくなることや粒界腐食性が劣るといった性能面での問題があった。しかしながら住友が容易に24S系に踏み切れなかったのは, 当時, 国策として国産アルミニウムを使うことが前提とされていたが, 日本に併合されていた満州の礬土頁岩や朝鮮半島の明礬石から製錬した国産アルミニウム地金には不純物が多い問題もあ

った^{18), 19)}。1935年, 台湾の高雄に日本アルミニウムのアルミナ並びに電解工場が設立され, オランダ領ビタン島からのボーキサイトが入手できるようになって, 不純物の問題は解消された。しかし, 1940年5月にオランダがボーキサイトの禁輸措置を講じたことが引き金となって, 日本軍の仏印進駐となり太平洋戦争に突入したと言われている^{19), 20)}。

3.1.6 24Sの工業生産

焼入れ焼戻し型の超ジュラルミンSD合金は, その後24Sに代わることとなった^{21), 22)}。住友社内の研究報告書の調査からは, 住友軽金属年表にあるような「24S系の工業化の研究に移り, 昭和10年(1935年)4月ころ, それに成功した」といえるのか分からなかったが, 24S型超ジュラルミンT3はSD, その合わせ板T3CはSDCと称されるようになった。SDCの皮材はSA3 (Al-1.5%Mn-0.55%Mg)合金で, 純アルミニウムを皮材としたAlcoaの24SCより高強度の合わせ板となった^{1), 4)}。

押出型材については, 住友は1924年頃, Krupp社製1000トン横型水圧押出機を用いて, 一辺が50 mm, 肉厚3 mm以上のジュラルミンL型型材の製造に成功し, 川西機械(株)の水圧機のプロトの小骨に使用されたのが実用化の最初と言われている。1928年安治川から桜島に新工場を移転してからも前述の一基のみで需要がなかった。当時は大凡の形状を作り圧延と抽伸で仕上げたようである。1935年, Schloemann社製2000トン横型水圧押出機(複動型)が設置された。このことで住友の超ジュラルミンSD(24S)は, 1936年, 全金属製低翼単葉機の九六式艦上戦闘機(Fig. 16)に採用され, 軍用機全盛時代の需要期を迎えることになった。

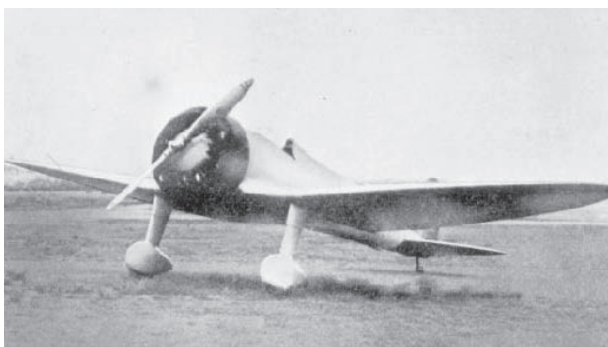


Fig. 16 Mitsubishi Navy Type 96 Carrier-Based Fighter adopted Super Duralumin for the spar of main wing. (<http://www.mhi.co.jp/cats/airplane/photo/presea/96sento.html>)

4. ジュラルミン・超ジュラルミンの基礎研究

日本で公表されたジュラルミンの研究は, 1921年(大正10年)9月に本多光太郎教授のもとで研究を行っていた今野清兵衛博士の発表が最初である^{5), 23), 24)}。11月には, 海軍航空技術廠の大谷文太郎博士が学士会館で軽合金という名称を用いて発表した。軽合金という名称が使われたのはこれが最初である⁵⁾。NPLが1921年8月英国機械学会でE合金やY合金, Al-Mg-Si合金を報告したのとほぼ同時期である。住友の杉浦氏が発表したのは海軍との秘密保持の関係で1925年になってからである。西村秀雄教授および大日方一司教授の論文に掲載された時効硬化研究の発展史に若干追記した年表をTable 3に示す^{21), 22), 25), 26)}。時効硬化の研究では多くの日本人研究者も活躍していることがわかる。

ここでは超ジュラルミンの研究に関して, 主として住友の五十嵐博士と京都大学の西村教授との研究を紹介する。奇しくも, 両氏は同年(1892年)の生まれである。

五十嵐博士は1937年, 「住友金属工業, 研究報告」に「超ジュラルミン“SD”及超ジュラルクラッド“SDC”に就て」を報告している²⁷⁾。社内の研究報告書を見ると, 研究自体は1935年頃行われている。丁度, 住友が超ジュラルミンとして24Sに舵を切った頃である。五十嵐博士は99.8%地金を使用し, Mn量は0.6%と固定して, Cu量, 2.4~5%, Mg量を0.5~3.8%と変化させ, 505~515°Cから水焼入れ後7日間時効したときの強度マップをFig. 17に示す^{27)~29)}。この図から, Cu, 4.1~4.7%, Mg, 1.2~1.8%で引張強さ50 kg/mm²が得られることがわかる。

京都大学の西村秀雄教授(Fig. 18左)も, 1925年頃, 銅マグネシウムを含んだ合金を調べようとして, 状態図の研究を始めたが, その頃まだ日本にマグネシウムはできておらず純粋なものが手に入るのが困難な状況で研究は中断したことを述べている³⁰⁾。この当時「ジュラルミンの時効の原因は(NPLのGayler女史らの研究で), Al₂CuとMg₂Siという化合物の析出に関係したものと考えられていた。硬化の機構はとにかく, この化合物がアルミニウムに固溶していたものが時効によって析出する過程に硬化が生じる, と信じられていた。しかし, 実際Al₂Cuのみを含むアルミニウム銅合金も, Mg₂Siのみを含むアルミニウム合金も, どれも焼入れして常温では時効をあまりしない。Mg₂Siを含む合金などは全く硬化を示さないのである。これが両方の化合物を含んだ時に, どうして常温で硬化が著しいのか不思議でならなかった。アルミニウム, マグネシウム,

銅の三元系合金になると、どうしてジュラルミンのように常温時効が進むのか、この疑問に答えるような研究はなかった」ので、1934年頃状態図の研究を再開した³¹⁾。「その結果Alと平衡すべき三元化合物にSと名称を与え、その固溶度が24Sの時効の原因をなすこと

を提唱した」と述べている³²⁾。

西村教授は日本金属学会誌第1巻第1号(1937)に「Alを主成分とせるAl-Cu-Mg-系合金の状態図に就て」³³⁾、同第2号に「Alを主成分とせるAl-Cu-Mg-系合金の時効硬化に就て」²⁵⁾、同第7号に「超ジュラルミンの研究(第

Table 3 History of the research on the age hardening of aluminum alloys (added to the tables made by Prof. Nishimura and Prof. Obinata)^{21), 22), 25), 26)}.

Year	Researcher	Research topics	Reference
1906 ~1911	Wilm	Discovery of age hardening phenomena in an Al-Cu-Mg alloy (Duralumin).	Metallurgie, 8 (1911), 225.
1919	Merica, Waltenberg & Scott	Age hardening in Duralumin is due to the solid solubility of Al ₂ Cu in aluminum. Precipitation of Al ₂ Cu caused age hardening.	Sci. Pap. Bur. Stand., No.347 (1919), AIME, (1919), 913.
1921	Jeffries & Archer	Proposal of slip interference theory.	Chem. Met. Eng., 24 (1921), 1057.
1921	Rosenhain, Archbutt, Hanson & Gayler	Determination of quasi-ternary phase diagram: Al-Al ₂ Cu-Mg ₂ Si. Age hardening of Duralumin was due to the change of solid solubility of Al ₂ Cu and Mg ₂ Si.	Eleventh Report of Alloy Research Committee, J. Inst. Mech. Eng. London, 26 (1921), 321. J. Inst. Metals, 29 (1923), 491.
1922	Imano	Special intermediate state (β) before precipitation caused age hardening of Duralumin because no change of crystal lattice by X-ray occurred during aging hardening.	Science Report, Tohoku Imperial University, 11 (1922), 269. Research of Metals, 2 (1925), 13.
1925	Sugiura	A kind of internal change of solid solution caused age hardening.	On the research of Duralumin and the hardening effect of single solid solution alloy by quenching and heating at low temperature.
1928	Goto	Hardening was due to lattice distortion caused by the change of atom displacement to nucleate compounds.	Reports of Aeronautical Research Institute, Tokyo Imperial University, 39 (1927), 271. Alloy Theory, (1929), 267.
1929	Gayler & Preston	Hardening was due to the lattice distortion caused by the precipitation of compounds. Lattice distortion estimated by precise X-ray method.	J. Inst. Metals, 41 (1929), 191.
1930	Honda & Kokubo	Age hardening in Duralumin was due to the lattice distortion caused by the movement of solute atoms in the supersaturated solid solution.	Research of Metals, 7 (1930), 343. Science Report, Tohoku Imperial University, 24 (1930), 365.
1926 ~1930	Schmid & Wassermann	Denial of precipitation theory because no change in X-ray was observed during aging.	Naturwiss., 14 (1926), 980. Metallwirtsch., 7 (1928), 1329; 9 (1930), 421.
1930	Meissner	Development of silicon containing Super Duralumin. 681B, 681B1/3.	J. Inst. Metals, 44 (1930), 204.
1931	Hengstenberg & Wassermann	From the result of measuring the spread of the width of the reflective line during aging of Duralumin, it was presumed that the solute atoms gathered locally in the supersaturated solid solution.	Z. Metallkunde., 23 (1931), 114.
1935	Wassermann & J. Weert	During the artificial aging of Al-Cu alloys, the intermediate phase (tetragonal) prior to the precipitation of Al ₂ Cu was discovered.	Metallwirtsch, 14 (1935), 605.
1936 ~1937	Nishimura	Determination of Al-Cu-Mg ternary phase diagram. Age hardening of Duralumin was mainly due to the change in the solubility of S compound.	Journal of the Mining and Metallurgical Institute of Japan, 52 (1936), 381. J. Japan Institute of Metals, 1 (1937), 8, 59, 262.
1936	Toba	The effect of Si content on the aging properties of the 24S based super duralumin was investigated.	Furukawa Electric Review B (1936), 1.
1936	Fink & Smith	In the Debye-Scherrer photograph, the interference line of the intermediate phase was observed, and the new phase was named θ' for the θ phase of the equilibrium phase Al ₂ Cu.	AIME, Met. Div., 122 (1936), 284.
1937	Igarashi	Relationship between tensile strength of Al-Cu-Mg alloy and Cu, Mg content was clarified.	Sumitomo Metals, Technical Reports, Vol.2, No.10 (1937), 991.
1938	Preston	Intermediate phase appearing at 200°C had a plate shape parallel to the {001} plane of matrix. Aggregates of solute atoms were discovered in the early stage of aging by irradiating Al-Cu alloy single crystal with monochromatic X-ray.	Phil. Mag., 26 (1938), 855. Nature, 142 (1938), 570.
1938 ~1939	Guinier	Aggregates of solute atoms with Al-Cu alloy were discovered in the early stage of aging using X-ray small angle scattering method. The change in the early stage of aging was the formation of GP zone and weak age hardening at high temperature was the precipitation of intermediate phase.	Nature, 142 (1938), 569. J. Inst. Metals, 6 (1939), 177.

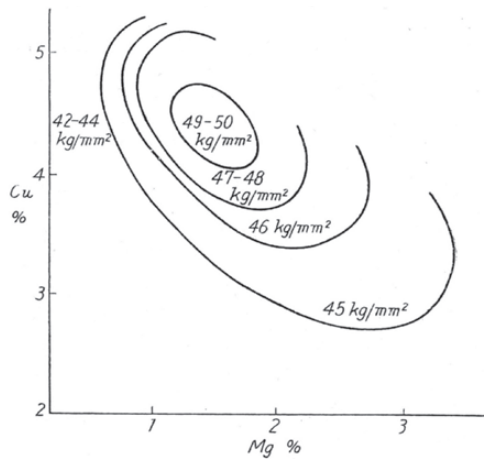


Fig. 17 Effect of the content (mass%) of Cu and Mg on the tensile strength of Al-Cu-Mg alloys, from Dr. Igarashi's data in Prof. Nishimura's textbook (Fig. 18)²⁷⁾⁻²⁹⁾.

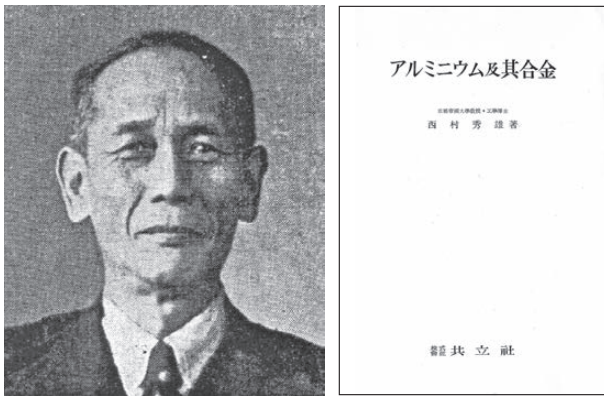


Fig. 18 Prof. Hideo Nishimura and his textbook²⁸⁾.

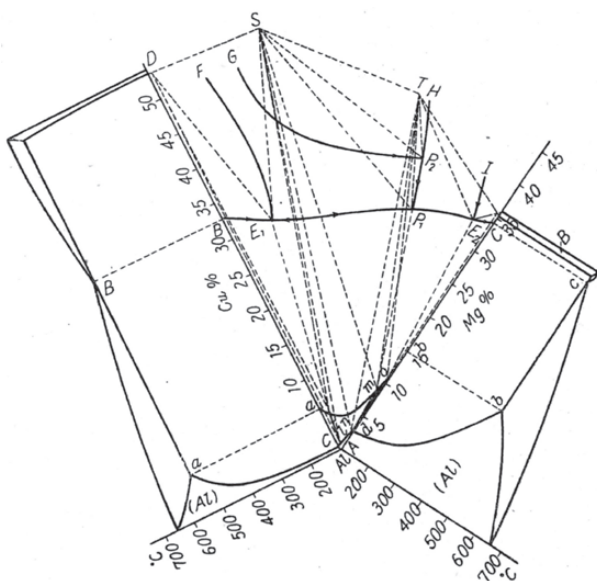


Fig. 19 Ternary phase diagram of Al-Cu-Mg alloys devised by Prof. Nishimura^{25), 33)}.

1報)³⁴⁾を立て続けに発表している。1941年にはこれらの研究成果も入れて、「アルミニウム及其合金」(Fig. 18右)を上梓している²⁸⁾。この本はアルミニウムの歴史から製錬、各種アルミニウム合金の状態図と性質、鋳造から加工(表面処理、溶接)まで、基礎からわかりやすく書かれている。これだけ全般にわたり、一人で執筆されていて、アルミニウムに関して幅広い関心があったと推察される。この関心の広さは随筆「軽合金史」にも反映されている。この本では一章を割いて「ジュラルミン及超ジュラルミン」について解説している。Fig. 19は西村教授の研究によってできたAl-Cu-Mg系三元状態図である。Cu:Mgの量比を変えた実験を行い、Al固溶体から Al_2Cu およびS化合物の析出する区域の合金では常温時効による硬化の割合が大きく、Cu量4%を標準とするとMg量0.5~1.0%を含む合金の常温時効硬化の割合が高く、Mg量が1.5~2.5%程度を含む合金では時効硬化によって硬度が最高値に到達することを明らかにした²⁸⁾。Siの影響についてはFig. 20に示す²⁸⁾。Fig. 20は西村教授の著書に掲載された古河電工の鳥羽安行氏のデータ³⁵⁾をもとに作成した図で500℃、30分加熱後焼入れし、7日後の引張特性である。Siが多く含まれると常温時効後の引張強さも伸びも低くなる。超ジュラルミンにSiが多く含まれると、 Mg_2Si を形成するためS化合物を形成するMg量が減少し時効硬化が阻害されてくる。S化合物は今日では Al_2CuMg と表記されている。

S相を見出しAl-Cu-Mg系合金の時効析出現象を解明したことは西村教授の大きな業績であり、日本の金属学のレベルの高さを示したものである。しかしながら残念なことに、西村教授、五十嵐博士、鳥羽氏などの研究はいずれもAlcoaの24Sが発表された後のことである。

不純物のFeの影響も明らかにされた。田邊博士のもとで超ジュラルミンを研究していた中田氏は「時局の進展と共に資源の節約が益々重要な問題となってくる」として24Sに対する鉄の影響を検討した³⁶⁾。99.8%のアルミニウム地金を用いて鉄量を0.2~1.2%、0.2%ごとに変化させた鋳塊を圧延により1mm板にして、475~505℃で1時間加熱し室温時効させた材料の引張強さと伸びをFig. 21に示す。鉄が増えることで引張強さも伸びも低下することがわかる。鉄が増加することでAl-Cu-Fe系の晶出物や析出物が増加して、銅の濃度低下の原因となる。これらの化合物は溶体化処理では分解せずに残存し伸びの低下の原因ともなっている。

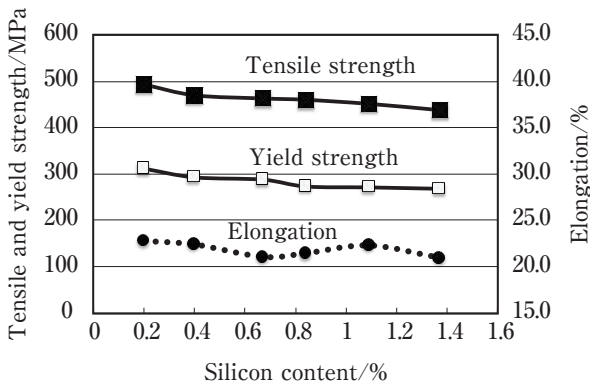


Fig. 20 Effect of Si content on the tensile properties in Duralumin (Al-3.7%Cu-1.6%Mg-0.55%Mn-0.24%Fe)^{28), 35)}.

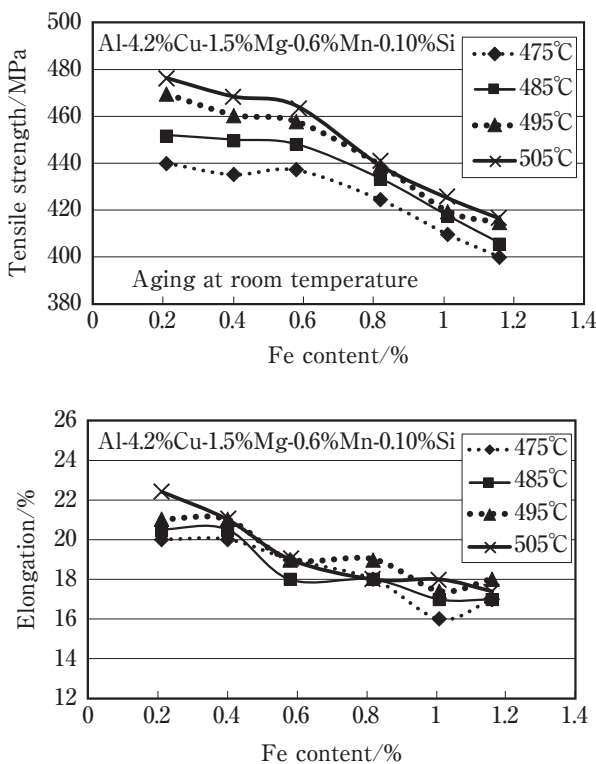


Fig. 21 Effect of iron content on the tensile strength and the elongation in 24S based Super Duralumin (Al-4.2%Cu-1.5%Mg-0.6%Mn-0.10%Si)³⁶⁾.

5. おわりに

この連載の最初に、1906年のジュラルミンの発明以後、1931年の24S超ジュラルミン開発まで25年の時間を要しているが、何故すぐに開発できなかったのだろうかという疑問を述べた。もちろん時効析出という考え方が定着するまでにはそれなりの時間を要することは分からないわけではないが、Wilmの成分が最適かどうか、もっといい成分はないかと探求するのは現場

の技術者であればすぐにでも行うように思う。五十嵐博士が研究したように銅とマグネシウムの量を変えて室温時効させてみることは理屈がなくともすぐに実験すれば分かることである。なぜこのようなことがすぐにできなかったのか。GaylerらのMg₂Siの発見は大きな功績であり、ジュラルミンの析出はAl₂CuとMg₂Siによるものとされて以降、世界中の研究者や技術者がその方向に走って行って14S系のような合金開発に繋がったが、西村教授のようにケイ素が添加されるとなぜ室温時効はしなくなるのかという疑問はなぜすぐには出てこなかったのか、鳥羽氏のようなケイ素量を変えた実験はすぐにでもできそうに思えるが。日本の研究者、技術者もまた欧米の動向にとらわれすぎたようにも思える。

ではAlcoaはなぜ24Sが開発できたのかを別稿にも述べたが³⁷⁾、この問いの答えは田邊博士の超ジュラルミン開発の総括を述べた「米国の24Sは99.8%のような高純度地金が相当自由に使える国柄で発達したものである」という文章の中にあると思う。すなわち従来の地金では不純物が多くて目標とした強度や伸びを出すことができなかったが、Alcoaが開発した高純度アルミニウム地金を用いることで高強度高延性の超ジュラルミン24Sが開発できたと考えられる。1919年AlcoaのWilliam Hoopesにより開発された三層電解法による高純度化技術が完成し、Hoopesの亡くなる1924年までに多くの特許が登録されていることから、1925年頃までに工業化にほぼ成功し、それまで純度が99.7%までだったのが平均純度99.80%の地金が得られるようになったものと考えられる³⁸⁾。Hoopesは1899年にAlcoaに入り、主任電気技師として1901年には溶融塩電解での高純度化の試みを行っており、また1908年には亜鉛メッキした鋼線を芯にしたアルミニウム電線材料を開発している^{39), 40)}。当然高純度地金の工業化は当初からの課題であったろうと考えられる。こうした背景があって、AlcoaのArcherの1926年の論文では「ジュラルミンの時効硬化がMg₂Siによるに非ずしてAl-Cu-Mg系のある種の化合物によるものであること」と述べたものと考えられる³¹⁾。そしてまた五十嵐の最適組成や鳥羽、中田らが明らかにした不純物の影響もAlcoaは把握していたものと思われる。その結果として1931年の24S開発に繋がったものと考えられる。

逆に、日本が24S系の超ジュラルミンの開発ができなかったのは、日本がアルミニウムの製錬事業の開始が遅くまた高純度のアルミニウムも容易に入手あるいは生産ができなかったこと、このためジュラルミンの時効硬化が不純物のケイ素によってもたらされたとい

う英国のGaylorらの主張を鵜呑みにして含ケイ素超ジュラルミンの開発に走ってしまったことが原因と考えられる。これは英国やドイツも同じであった。

参考文献

- 1) 竹内勝治: アルミニウム合金展伸材 - その誕生から半世紀 -, 軽金属溶接構造協会, 1986.
- 2) 竹内勝治: 技術の歩み, 住友軽金属工業株式会社, 1995. (非売品)
- 3) 吉田英雄: 住友軽金属技報, **53** (2012), 60-78.
- 4) 吉田英雄: 住友軽金属技報, **54** (2013), 264-326.
- 5) 第一回軽金属座談会記録: “軽金属工業発達史 (其の一), 航空機用軽金属材料について”, 軽金属, **6** (1953), 103-137.
- 6) 世界の翼別冊: “航空70年史I, ライト兄弟から零戦まで1900-1940”, 朝日新聞社, (1970).
- 7) 秋本実: 日本飛行船物語, 光人社NF文庫, (2007), 292.
- 8) 牧野光雄: 飛行船の歴史と技術, 成山堂書店, (2010), 105.
- 9) W. Rosenhain, S. L. Archbutt and D. Hanson: Eleventh Report to The Alloys Research Committee: on Some Alloys of Aluminium, Inst. of Mech. Engrs. August, (1921).
- 10) A. von Zeerleder: The Technology of Aluminium and Its Light Alloys, Nordemann Publishing Company, Amsterdam, (1936), 108.
- 11) <http://www.ne.jp/asahi/airplane/museum/nakajima/nakajima.html>
- 12) 松崎豊一, 鴨下示佳: 図説 国産航空機の系譜 上, グランプリ出版, (2004), 59.
- 13) 秋本実: 別冊航空情報 日本陸軍制式機大艦, 酣燈社, (2002), 56.
- 14) <http://www.waseda.jp/zaiken/history.html>
- 15) J. D. Edward, F. C. Frary and Z. Jeffries: The Aluminum Industry, Aluminum Product and Their Fabrication, McGraw-Hill Book Company, (1930), 247.
- 16) 田邊友次郎: 住友金属工業研究報告, **2** (1934), 147-159.
- 17) 田邊友次郎: 日本金属学会誌, **1** (1937), 107-128.
- 18) グループ38: アルミニウム製錬史の断片, カロス出版, (1995), 8.
- 19) 秋津裕哉: わが国のアルミニウム製錬史にみる企業経営上の諸問題, 建築資料研究社, (1995), 59.
- 20) 藤井非三四: 「レアメタル」の太平洋戦争, 学研パブリッシング, (2013).
- 21) 幸田成康: 時効硬化研究の歩み, 合金の析出, 幸田成康監修, 1972, 丸善, 1-53.
- 22) 幸田成康: 金属学への招待, アグネ技術センター, (1998), 135.
- 23) 今野清兵衛: 東北帝大理科報告, **11** (1922), 269.
- 24) 今野清兵衛: 金属の研究, **2** (1925), 13.
- 25) 西村秀雄: 日本金属学会誌, **1** (1937), 59-71.
- 26) 大日方一司: 日本金属学会誌, **3** (1939), 81-86.
- 27) 五十嵐勇: 住友金属工業研究報告, **2** (1937), 991-1030.
- 28) 西村秀雄: アルミニウム及其合金, 共立社, (1941), 231.
- 29) 五十嵐勇: 航空機用材としての軽合金の研究 (学位論文), 大阪帝国大学 (1939), 37.
- 30) 西村秀雄: 随筆・軽合金史 (其15), 軽金属時代, **186** (1950), 2.
- 31) 西村秀雄: 随筆・軽合金史 (第23回), 軽金属時代, **194** (1950), 17.
- 32) 西村秀雄: 続・軽合金史, (第六回), 軽金属時代, **227** (1953), 22.
- 33) 西村秀雄: 日本金属学会誌, **1** (1937), 8-18.
- 34) 西村秀雄: 日本金属学会誌, **1** (1937), 262-270.
- 35) 鳥羽安行: 古河電工, B号, (1936), 1.
- 36) 中田兵次: 住友金属・研究報告, **4** (1941), 329-334.
- 37) 吉田英雄: まてりあ, **57** (2018), 263-270.
- 38) J.D. Edward: The Aluminum Industry Vol.I, Aluminum Products and Their Fabrication, by J.D. Edwards, F.C. Frary and Z. Jeffries, McGraw-Hill Book Company, (1930), 1-15, 299-335.
- 39) G.D. Smith: From Monopoly to Competition, The Transformation of Alcoa, 1888-1986, Cambridge University Press, (1988).
- 40) M.B.W. Graham and B.H. Pruitt: R&D for Industry, A Century of Technical Innovation at Alcoa, Cambridge, (1990).



吉田 英雄 (Hideo Yoshida)
超々ジュラルミン研究所, 博士 (工学),
(元 (株) UACJ R&D センター 顧問)



アルミニウム技術史 –ジュラルミンから超々ジュラルミンまで– (第四回) 超々ジュラルミンと零戦 (1) 五十嵐勇博士と超々ジュラルミンの発明*

吉田 英雄**

History of the Aluminum Technology from Duralumin to Extra Super Duralumin (Part 4) Extra Super Duralumin and Zero Fighter (1) Dr. I. Igarashi and the Invention of Extra Super Duralumin*

Hideo Yoshida**

1. はじめに

本シリーズ第三回 (本号に掲載) で、住友の田邊友次郎博士は1935年7月31日付けの社内の研究報告「所謂「超ジュラルミン」ヲ截ル (きる)」 (研究報告No.3306, 1935.7.31) で超ジュラルミンの開発について総括して今後の方向を述べていることを書いた¹⁾。著者には、田邊博士の超ジュラルミン開発でAlcoaの24Sに匹敵する合金を作ることができなかったことの悔しさと今後これに勝るものを作ろうとした決意のようなものを感じた。この合金開発は、部下であった五十嵐勇博士に託するわけであるが、本号では、超ジュラルミンの強度を越えた超々ジュラルミンの開発の経緯を述べるとともに、この合金が五十嵐博士の指導のもとで1935年の研究開発開始から1936年の特許出願までの約1年程度の短期間でなぜできたのかを振り返ってみることは今後の材料開発の参考になるものと考え。

2. 五十嵐勇博士と超々ジュラルミンの研究開発の背景

2.1 五十嵐勇博士の経歴

超々ジュラルミンの発明は五十嵐博士の主導によってなされたものであるが、この五十嵐博士 (Fig. 1) の経歴と研究のバックグラウンドを振り返っておきたい。

五十嵐博士 (1892-1986) の生家は、現在の玉名市溝上にある浄土真宗大谷派東光明寺で、父、善立 (第11世住職) と母、ミキの三男四女の長男として1892年1月



Fig. 1 Dr. Isamu Igarashi (1892-1986).

15日出生した。東光明寺は現在、五十嵐博士の末弟秀雄氏 (第12世住職) の長男で、勇博士とは甥にあたる五十嵐聖氏が第13世住職となられている²⁾。五十嵐博士は1913年広島高等師範学校卒業後、台湾の中学で教鞭を執った後1919年京都帝国大学に入学、1922年同大学理学部物理学科を卒業後、30歳で住友合資会社に入社し、同伸銅所に勤務した。同年5月より翌年7月まで、住友家が本多光太郎博士の発明したKS鋼や研究所設立を支援した関係からか、東北帝国大学金属材料研究所に留学し、所長の本多博士に師事した。金属材料研究所は、1922年その前身の鉄鋼研究所が研究対象を鉄と銅だけでなく銅合金や軽合金などにも拡げるために改

* 本稿は軽金属, 66 (2016), 26-38に掲載された論文に加筆, 補正したものである。

This paper is the revision of the paper published in Journal of The Japan Institute of Light Metals, 66 (2016), 26-38.

** 超々ジュラルミン研究所, 博士 (工学), (元 (株) UACJ R&Dセンター 顧問)

ESD Laboratory, Dr. Eng., (Formerly, Research & Development Division, UACJ Corporation, Adviser)

称されたものである。1924年には月刊誌「金属の研究」が発刊され、その第一巻には五十嵐博士の「焼入合金の時効に就て」や松田博士の「青銅、アルミニウム青銅及び真鍮の変態に就て」の論文が掲載されている。住友金属からも多くの研究者が派遣された。1935年超々ジュラルミンの開発に取り組み、1936年にはその合金特許を出願した。1939年、「航空機用材としての軽合金の研究」で大阪帝国大学より工学博士を授与された。1941年名古屋製造所研究部長、1943年住友金属工業株式会社金属研究所長兼伸銅所研究部長、金属研究所は伸銅所と名古屋軽合金製造所の研究技術部門を横断的に統括するために1943年設立、1945年技師長兼名古屋製造部技術部長を歴任し、1946年退社した。その後、東北帝国大学に講師として招聘され、翌年工学部教授、1951年秋田大学鉱山学部教授を兼務、1958年岩手大学教授、1962年定年により退職、住友軽金属工業株式会社研究顧問、1970年同顧問を退く。この間、1968年勲三等旭日中授章、1974年公益財団法人本多記念会の本多記念賞が授与された。博士は熊本市島崎で余生をおくり、1986年3月7日他界した。享年94歳であった。

2.2 入社後の研究

五十嵐博士は、入社当時はシルミンなどのAl-Si、Al-Si-ZnやAl-Si-Cu系の鋳物材やSander合金、E合金系のAl-20%Zn-3%Cu材への0～2.0%Mg添加の影響を

調査している。その後、銅合金、鋳物用及び鍛錬用マグネシウム合金やその耐食性に関する一連の研究も行っている。社内の研究報告書を見ると、Al-Cu-Mg-Ni-Fe系Y合金などのピストン用鋳物合金、ジュラルミン、Al-Cu-Si系のLautal合金、Al-Mg-Si系のAludur合金、Al-Zn-Mg系のSander合金、Al-Mg-Mn系合金の3S、4S、SA3 (Al-1.2%Mn-0.55%Mg)、Al-5～7%Mg系Hydronalium合金、クラッド材などの各種アルミニウム合金の機械的性質や耐食性を一通り調査、研究している。1937年発行の共著「軽金属及軽合金最近の進歩」(工業図書株式会社、Fig. 2)には、これらの研究結果も一部取り入れ、「耐食性アルミニウム合金」の章を執筆している³⁾。このような入社して10年間くらいの幅広い合金の研究がその後の超々ジュラルミンの開発に大いに役立っていると考えられる。

なお、上記の本には、各分野の当時の大家が執筆しているが、超々ジュラルミンと並んで、戦前の日本のアルミニウムに関する二大発明の一つ、アルマイトに関しても理化学研究所の宮田聡博士が執筆している。理化学研究所のアルマイトの研究については小野幸子先生の随想を参照されたい⁴⁾。

「軽金属」誌の「研究室の片隅から」という五十嵐博士の随想に、超々ジュラルミンの開発を始めた頃の話が掲載されている⁵⁾。

「前々号から先輩諸賢の華やかな御話、勇ましい思い

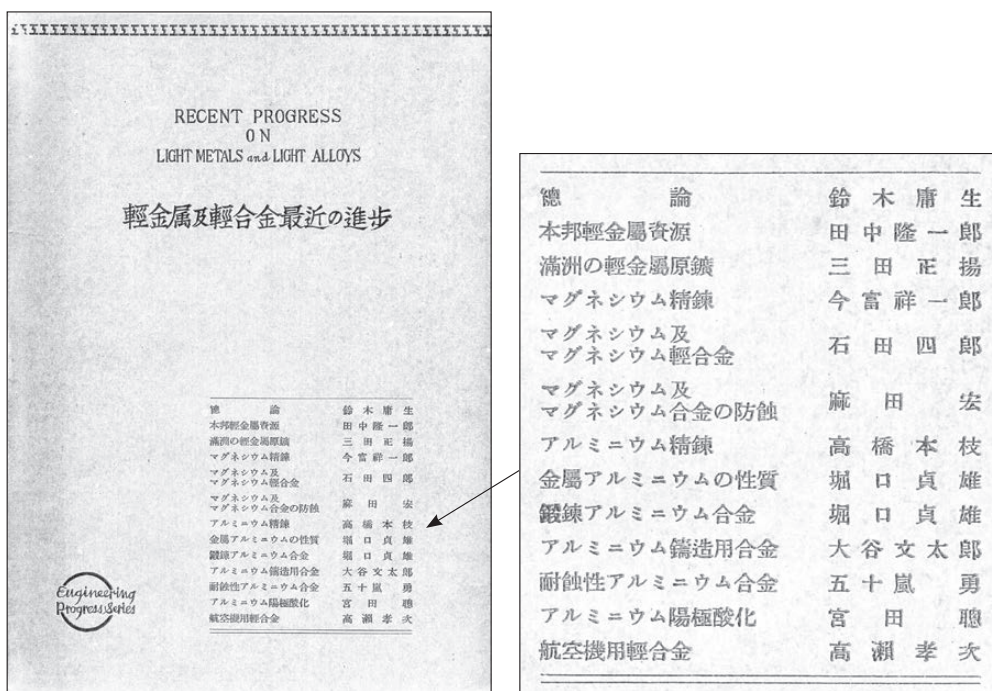


Fig. 2 Cover and authors of "Recent Progress on Light Metals and Light Alloys", which written about the progress of research in the 1930's³⁾.

出興味深く拝見していた。ところが此度は僕に軽金属工業の回顧を書くようにとのことだが、研究室の片隅にジメジメと一生をおくつた僕にはそれ等と逆な想い出のみに過ぎない。だが然し谷があつての山で皆が山ならば山はなくなる。勇ましい御話の引立役にジメジメした回顧も一つ位あつてもよからう。

僕は学校を卒業以来会社の研究室でずっと軽金属を弄(いじ)つていた。はじめはアルミニウムという事だったが丁度日本に於けるアルミ合金の勃興期で先輩諸賢が皆アルミに手をつけられるので大変気楽にボヤボヤしていることが出来た。

やがてマグネシウムを取扱わねばならぬ時代が来た。僕はその方の手伝をする事になった。マグネシウムは取扱にくいので誰も手を出さぬ。不精な僕も止むを得ずいろんな実験をやらねばならなかつた。」

「先輩が夫々立身出世されると馬鹿な我輩も止むを得ず研究の凡てを見ねばならぬことになった。丁度その頃デュラルミンは板につきSD(注、超ジュラルミン)、SDC(注、SDに皮材としてSA3(Al-1.2%Mn-0.55%Mg合金)をクラッドした合わせ板)も工業化出来てやれやれと思つていてトム合金と云うものが華やかに宣伝された。第一次大戦当時英国にはE合金というのがある。其の後独乙にSander合金と云うのがある。別にめづらしい合金ではないが時期割れがあるので使いものにならぬ。学業成績は優秀でもLoadがかけられない秀才たようなものである。とはいつても世間はうるさいし。止むを得ず吾々は使いものにするようにしようではないかと相談した。」

2.3 超々ジュラルミンの萌芽的研究

2.3.1 Al-Zn-Mg系の研究

1935年までに超々ジュラルミンの萌芽的な研究も行っている。研究報告「鍛錬用軽合金ノ研究、其ノ1、サンダー氏合金ニ就テ」(佐藤 質, 五十嵐 勇)(1928.3.14)では、「一昨年、W. Sander氏は上の三元系の一截面(せつめん)Al-MgZn₂系合金の研究を発表した⁶⁾。第二図(省略)は其の平衡断面図である。それによるとMgZn₂のAluminiumに対するsolid solubilityは温度とともに可なり大なる変化がある。従つて、Duralumin式の焼入効果、焼入時効効果並びに高温時効効果等がなければならぬと云うので、その試験を行った結果、驚くべき高強力の合金を得た(下線は原文まま)」とある。試験した合金は、Al-5.93%MgZn₂、Al-7.85%MgZn₂、Al-10.19%MgZn₂、Al-5.25%MgZn₂-1.68%Cu、Al-7.67%MgZn₂-1.55%Cuであり、超々ジュラルミンに近い成分まで試験している。Al-10.19%MgZn₂

(Al-8.4%Zn-1.6%Mg)の引張強さは500℃焼入れ後、120℃で8時間の時効で引張強さ515 MPa(52.5 kg/mm²)、伸び10%であった。Al-7.67%MgZn₂-1.55%Cu(Al-6.5%Zn-1.2%Mg-1.55%Cu)では同時効条件で430 MPa(44 kg/mm²)、伸び16%であった。現在から見れば、まだ時効硬化の途中で比較している部分もあるので、もう少し時効時間を長くするとか、室温時効の影響を考慮すればもう少し高い値も得られたであろう。時効のメカニズムがわからない当時ではこれが限界であったかもしれないが、惜しい限りである。

2.3.1 クロム添加の効果

また、超々ジュラルミン開発の決め手となったクロム添加も住友では各種合金系ですでに試みられていた。1926年、田邊博士は、Al-4~6%Cuにクロムを0.5~1%添加し、焼入れままでは差はないが、焼戻しすることで強度が向上することを報告している。その後、1932年、田邊博士の上司の松田博士もジュラルミンに各種微量元素を1%以下で添加し、その強度を比較し、クロムは0.6%までは多少強度を増加させるが、多すぎると有害であることを述べている(研究報告No.1842, No.1935)。1933年、五十嵐博士も5.5%Mg合金に銅、クロム、コバルト、バナジウム、タングステン、モリブデンを添加し、強度と耐食性を比較して、銅添加は耐食性を劣化させ、クロム添加は最も良いと報告している(研究報告No.2136)。

超々ジュラルミンの開発を開始した直後の1935年10月、五十嵐博士は溶体化処理時に芯材の24Sの銅がクラッド材の皮材(純アルミニウム)に拡散して耐食性を阻害し強度や伸びを低下させるとして、皮材へ銅が拡散しにくくするためにクロムを約0.3%添加した皮材(Al-Cr合金)を開発した(研究報告No.3455)。これを「クラールクラッド(Cralclad)」と称した^{7), 8)}。住友は、すでにアルコアの純アルミニウムよりも強度や耐食性に優れた皮材SA3(Al-1.2%Mn-0.55%Mg合金)を開発していたが⁹⁾、クラールクラッドではこのSA3よりも銅の拡散が少ない結果を得ている。Fig. 3は焼入れでの溶体化処理に銅が皮材に拡散の様子を示した断面ミクロ組織である。SDとSA3とのクラッド材SDCも24Sとクラール材とのクラールクラッド材も、圧延のままでは芯材と皮材の境界は明瞭である(Fig. 3(a), (c))が、SDC材では1時間の溶体化処理で皮材と芯材の境界が不明瞭になる(Fig. 3(b))。一方、クラールクラッド材では6時間の溶体化処理でも明瞭で銅がほとんど拡散していない(Fig. 3(d))ことがわかる。クラールクラッド材の銅の皮材への拡散量は、板厚にもよるがSDC材

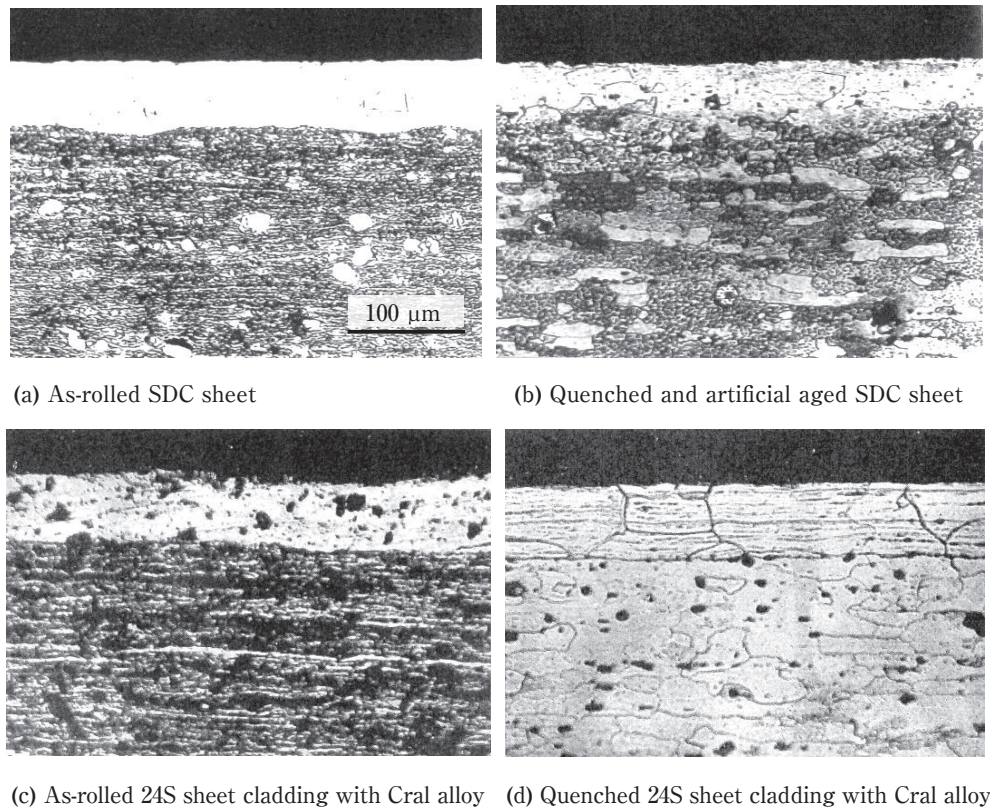


Fig. 3 Microstructures (cross section) of SDC (SD clad with SA3)⁹⁾ and Cralclad sheets (24S cladding with Cral alloy (Al-0.3%Cr)), (a) and (c) as-rolled, (b) quenched and artificial aged (510°C /1 h WQ → 170°C /22 h), (d) quenched (495°C /6h WQ), 1mm thick sheet⁸⁾.

* SD: Al-4.2%Cu-0.75%Mg-0.7%Mn-0.7%Si, SA3: Al-1.5% Mn-0.55% Mg.

From the research report "Alclad and SA3-clad (SDC) sheets produced in the same condition as US " written by Higashio (December 1934, No. 2852).

に比べて約1/20～1/5程度であった(研究報告No.3455)。1935年11月、超ジュラルミン24Sにクロムを0.55%添加した合金の強度、耐食性を調査し、耐食性でやや悪い結果がでたが、これはAl-Cr系の化合物が多いためであろうと結論付けている(研究報告No.3480)。これらの試験結果をもとに、1935年12月には心材の24Sにクロム0.13%、皮材にクロム0.23%添加した新SDC材を開発した。

Alcoaも24Sクラッド材の皮材(純アルミニウムでcoating材と称した)への銅の拡散は非常に気にしている詳細な研究を行っている^{9),10)}。Fig. 4左は皮材の中に銅が拡散して拡散層(Diffusion Zone)を形成する様子を模式化した図で、銅が粒界拡散すると、粒界近傍で偏析した銅の濃度が高くなる。皮材表面をケラー試薬でエッチングしたのがFig. 4右(Fig. 4(a)～(d))である。時間とともに拡散層が板表面に近づくにつれて粒界近傍からエッチングされていく様子がわかる。板表面で粒界近傍(カソード)と粒内(アノード)の電位差が生じ、(NaCl+H₂O₂)水溶液による腐食試験をすると粒内が優先的に腐食を生じた組織となる。Fig. 5はその

模式図と組織写真である。溶体化処理時に銅の皮材への拡散が甚だしくなると、クラッド材が腐食しやすくなり、強度や伸びの低下になる。これは板厚が薄いほど顕著になる。また焼入れ時の冷却速度が遅いと心材で粒界析出を生じ、粒界腐食の原因となる。これはPFZでの固溶度が減少して粒内に比べてアノードとなりやすいためである^{11),12)}。また銅を含む粒界析出物がPFZよりカソードになるため粒界近傍が腐食されやすいとも言われている¹³⁾。

五十嵐博士は銅の拡散を抑制するにはマトリックスの銅の固溶量を減少させる元素がよいと考えクロム添加を考えたとのことである^{3),7),8)}が、クロム添加で全体の銅の固溶量はあまり変化しないとの計算ソフトJMat Proの結果もあるので、銅の拡散に及ぼすクロム添加の効果はもっと別のところにあると考えられる。

3. 超々ジュラルミンの研究開始から発明まで¹⁴⁾

3.1 研究開始宣言

1935年8月10日付けの社内の研究報告No.3326、五十

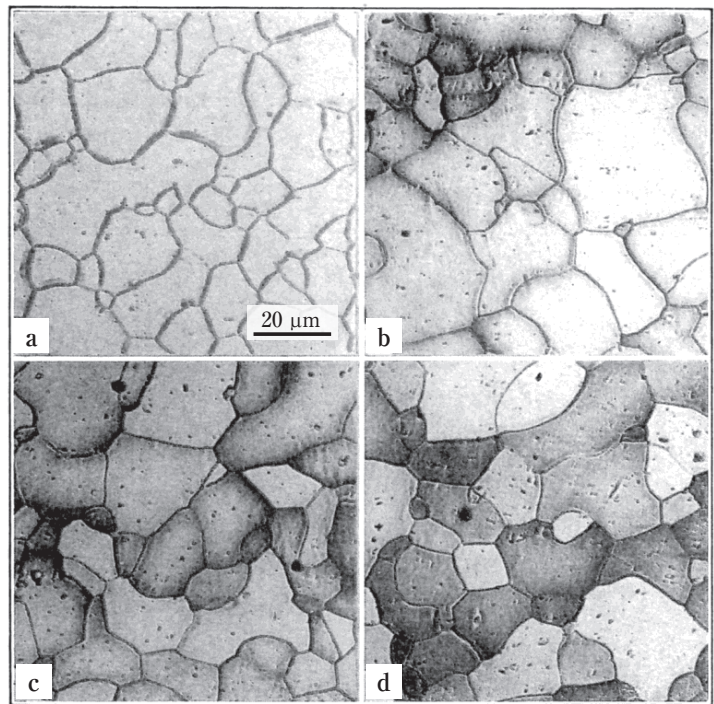
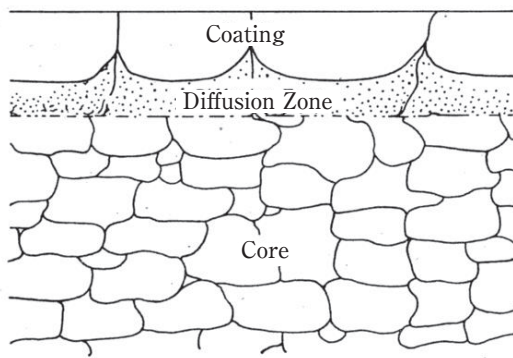


Fig. 4 Sketch showing the formation of a diffusion zone in Alclad 24S-T4 sheet (Left). Microstructures of the coated surface of 0.4 mm thick Alclad 24S-T4 sheet etched for exactly 60 seconds in Keller's etch. The depth of color developed is an indication of the amount of copper that has diffused to the surface of the alclad coating (Right)¹⁰⁾. The time of solution heat treatment is (a) 5 min, (b) 15 min, (c) 30 min, and (d) 60 min, respectively.

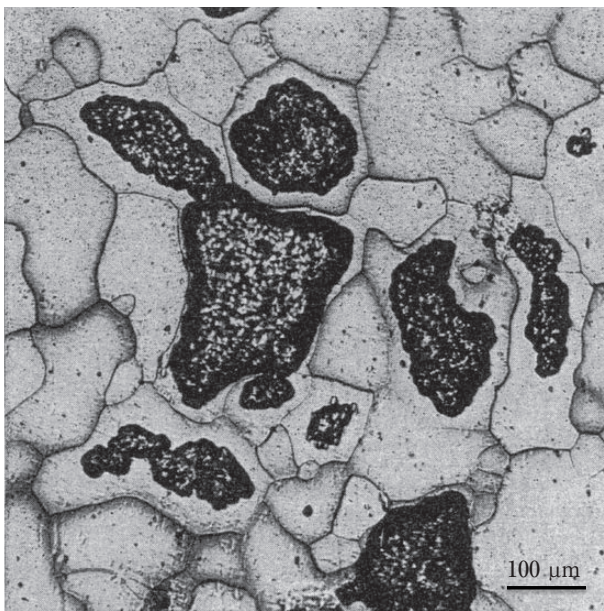
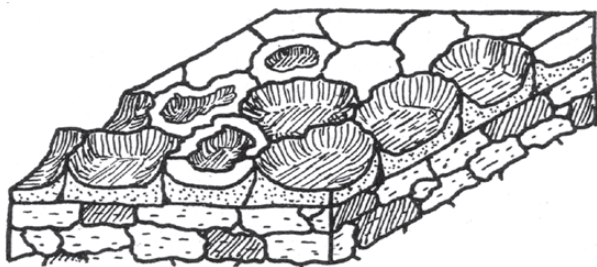


Fig. 5 Appearance of hill and valley corrosion on the surface of partially diffused Alclad 24S-T4 (Top). Surface of partially diffused Alclad 24S-T4 sheet, 0.5 mm thick, after 72 hours exposure in standard sodium chloride-hydrogen peroxide test¹⁰⁾ (Bottom). Keller's etch.

嵐「強力軽合金の探求 (No.1)」(Fig. 6)がある。これが超々ジュラルミン開発の第一報である。ちょうど住友が24Sの生産を始めた年である。五十嵐博士は43歳で、彼の上司は彼より3歳若い田邊博士である。その第一章はしがきに五十嵐博士はこう述べている。「最近、日本電工75 kg/mm²軽合金の声が高い。はたして、それが何物であるかは本年中頃には自然とわかって来る。が、周囲の時勢は其余裕を許さない。命を受けて、ここに強力軽合金の探求をはじめ。幸なる哉、時に北原五郎君(*1)の来援あり。君は先に海軍技術研究所にありて、松山博士と共に超々ジュラルミンの発見あり(抗

脚注*1

北原五郎氏(1892-1971)は秋田鉱山専門学校(秋田大学鉱山学部の前身)卒業後、海軍技術研究所に入所。20数年勤務後、1935年住友伸銅管(株)入社。名古屋工場誕生とともに研究課長として名古屋に移り、1945年堅田鋳物製作所研究部長となった。22歳年下で、同時期に入社した住友軽金属元常務取締役深井誠吉氏は、「当社が世界に誇る強力合金ESDの発明開発について五十嵐博士の片腕として、もっと端的にいえは、五十嵐、北原両雄の名コンビがあったからこそESDは誕生したと思います」。さらに「北原さんの人柄を語ることは後輩の私には不可能ですが、非常に善良でまた性急な人でした。私もよく聴きましたが『俺は兎に角実験するのだ、考えるのはその後だ。余り考えたり参考文献を調べると迷いが出る』といった調子でいわゆる『手が早くて』しかも実験が上手で、広範囲にわたる実験をする人でした。五十嵐さんがアイデアを出し北原さんがそれを実験する、というこの組合せは誠に絶妙であったと思います。『研究とか開発には、明晰な頭脳と立派な指導者は欠くことのできぬ要素ではありますが、もう一つスピードが必要だと思います。どんな優秀な発明も他に先んじられては影が薄くなります。ESDのような大きな仕事が極く短時日の間に完成されたのは北原さんの『迅速なる手』が大きな要因であったかも知れません』と述べている(『北原五郎氏の逝去を悼む』、社内報、住友軽金属、昭和46年11月)。

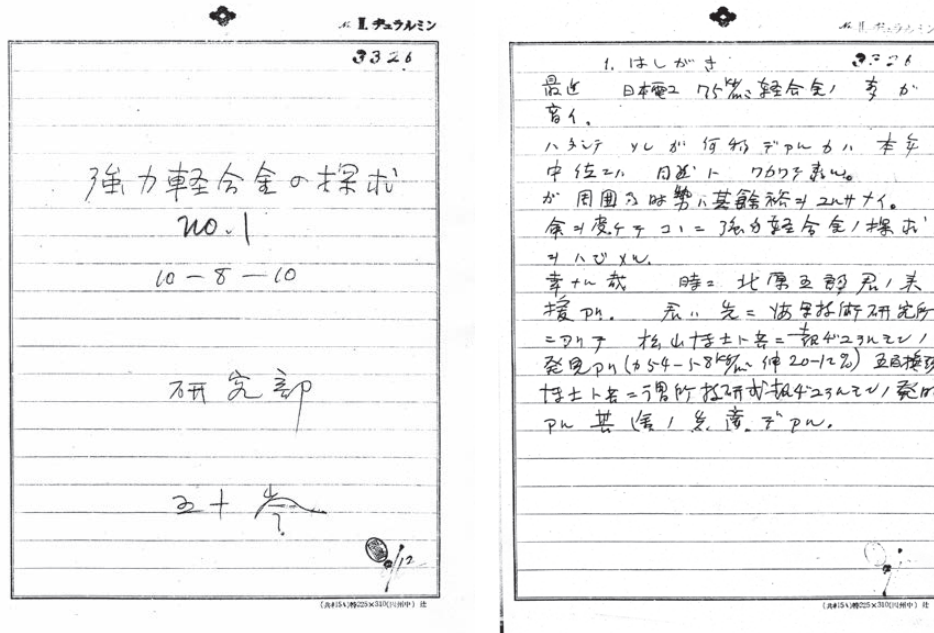


Fig. 6 Cover and introduction of the research report, "Exploration of a high strength aluminum alloy (No. 1)" declaring the start of the research on Extra Super Duralumin.

張) 力500 ~ 570 MPa (54 ~ 58 kg/mm²), 伸び20-12%)。五百旗頭 (いおきべ) 博士と共に, 所謂, 技研式超ジュラルミンの発明がある。其途の先達である」。

ここで日本電工 (のちの昭和電工) の740 MPa (75 kg/mm²) 軽合金 (トム Thom 合金) とは, 西村教授の言葉を借りると, 「トム合金は喧伝されたが, 海外までそのニュースが伝わってドイツなどでも問題となった。しかし応力割れの問題が解決されてなかったので, 実用にならなかった。しかし, トム合金がESDの誕生の動機を造ったことは明白であるから, 日本火工株式会社 (日本電工系, 現在の日本冶金) 松永陽之助氏が昭和10年12月13日に (特許) 申請したアルミニウム合金を茲に紹介したい。これはMg 3 ~ 6%, Zn 6 ~ 14%, Fe 0.1 ~ 0.5%, Si 0.1 ~ 0.7%, Mn 0.1 ~ 1.5%, Ti 0.1 ~ 0.5%, Ni 1 ~ 5%を含むアルミニウム合金で, 熱処理すると引張強さ780 MPa (80 kg/mm²) になるといふ」合金で, 「唯, 時期割れに関して注意の払われていなかったことは, その記述から知ることは出来るが, 惜しいことであった」¹⁵⁾とある。

トム合金に関しては, 海軍も相当気にして、松永陽之助氏が海軍大学で講演をした後, 当時海軍航空本部の材料主務者であった大谷文太郎氏は上層部から呼びつけられ, こういう良い材料があるのに何をしているのかと言われたことがある¹⁶⁾。これに対し大谷氏は「これはすでにザンダーが10年前に発表したものである。これがシーズンクラックを何とか解決して実用に供したいと思って, すでに住友に指令しております」と回答した。「住友としてはこの指令の前にどの程度研究が進んで居ったかこの点は知りませんが。共研

究指令を出した覚えがあります。それより前に陸軍としては, このトム合金の仮規定を採用しました。海軍としては時期割れ防止の解決研究なきトムは採用出来ぬとして住友の研究を待ち, この研究結果を航空廠の川村君と相談研究会を度々開いて検討してあれを採用した。採用する時は実に悲壮な決意を持って採用した。但し, その採用する時分には板はいかん, まず押出型材を特に採用しました。華嚴の滝から飛んだようなつもりであった。そして規格に制定してESDを初めて世の中にだしたのである」と回想している。柳田邦男氏の「零式戦闘機」(文芸春秋社)¹⁷⁾では, この開発研究を命じたのは, 海軍航空廠発動機部員で材料研究者担当の川村宏矣機関中佐とのこと。この本の中で, 「当時すでに45キロ超ジュラルミンが開発されていましたが, 将来戦闘機を飛躍させるには, 同じように軽く, しかももっと強力な, 一平方ミリメートル当たり五十キロから六十キロ位の張力にまで耐えられるような軽合金が欲しいということになりましたね。それで住友金属に対し, 海軍航空廠として, 研究開発を要請したのですよ」と川村氏は述べている。残念ながら, 戦後すぐに焼却されたのか, これに関する公式記録は現在のところ見つからない。

3.2 高強度で加工性に優れた合金の探求

3.2.1 各種合金の研究

かくして, 先人たちの研究をベースに軽合金の探求が開始された。Al-Zn-Cu系E合金, Al-Zn-Mg系Sander合金, Al-Cu-Si系Lautal合金, 海軍技術研究所のAl-10%MgZn₂系の松山合金, Al-6%Mg-3.5%Zn系の

五百旗頭合金, 住友伸銅所の Al-8.5% Zn-1.5% Mg-1.5% Mn 系の松田合金などのデータをベースに, まずは強度と加工性から合金系の予備検討がなされた。これはかつて圧延加工で大いに苦しんだことによるものであろう。興味深いことに Al-Zn-Mg-Li も検討された。ここで E 合金というのは, NPL の Rosenhain らの開発合金でその組成は Al-20%Zn-2.5%Cu-0.5%Mg-0.5%Mn, 亜鉛を 20% まで含み Zinc Duralumin として知られていた。圧延材の強度は 1.04 mm 板を 400°C で焼入れ後, 時

効したときの引張強さ 615 MPa (62.7 kg/mm²), 耐力 478 MPa (48.7 kg/mm²), 伸び 11% であった (1935.8.10, 研究報告 No.3326)。しかしながら, 亜鉛が高い合金は引張強さに比べて十分小さい応力でも長時間の負荷で割れを生じる時期割れ (応力腐食割れ) が問題であった。腐食雰囲気では割れは促進されたが, Mn 添加で結晶粒が伸長して割れの感受性は低下したと報告されている。超々ジュラルミン合金開発の合金選定の経緯を示す研究報告書の一覧を **Table 1** に示す¹⁴⁾。

Table 1 Technical reports of Sumitomo Metal on super high strength aluminum alloys¹⁴⁾.

Report Number	Title and subtitle	Creation date	Content
No. 3326	Research on super high strength aluminum alloys (No.1)	1935.8.10	Declaration of start in this study.
No. 3363	ibid. (No.2)	1935.8.29	Effect of MgZn ₂ on mechanical properties of Lantal alloys (Al-4%Cu-2%Si-0.5%Mg).
No. 3379	ibid. (No.3)	1935.9	Effect of contents on hardness of E alloys (Al-20%Zn-2.5%Cu-0.5%Mg-0.5%Mn).
No. 3385	ibid. (No.4)	1935.9.10	Natural and artificial age hardening of Al-(Al ₃ Zn ₆ Mg ₇) alloys and Al-(Al ₆ Mg ₄ Cu) alloys.
No. 3427	ibid. (No.5)	1935.10	Estimation of properties in E alloys.
No. 3479	ibid. (No.6) Tensile test about new kind of aluminum alloys	1935.11.5	Tensile properties (1 mm thick sheet) in Lantal alloys with 8~10% (Al ₃ Zn ₆ Mg ₇) and Al alloys with 10~14% (Al ₃ Zn ₆ Mg ₇).
No. 3538	ibid. (No.7) Relationship between heat treatment and mechanical properties in No.23 and 24 alloys	1935.12.17	Examination in the optimum condition of heat treatment on the alloys in the previous report.
No. 3586	ibid. (No.8) On the ternary alloys, based on D-S-E alloys	1936.2.4	Research by assuming that the optimum alloy exists in Al-Cu-Zn-Mg alloy system combined with D, S and E alloys.
No. 3719	ibid. (No.9) On the mechanical properties of 60 kgf class Duralumin sheet	1936.4.25	Next four alloys were chosen based on the result in No.8 Report and the mechanical property of them (1 mm thick sheet) was examined. Al-9.6%Zn-1.2%Mg-2.0%Cu-0.5%Mn, Al-10%Zn-1.3%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn, Al-6.5%Zn-3.0%Mg-0.5%Mn, Al-7.5%Zn-3.5%Mg-0.5%Mn.
No. 3800	ibid. (No.10) On the mechanical properties of 60 kgf class Duralumin extruded bar	1936.6.2	Next two alloys were extruded into round bar with 30 mm diameter and examined the tension test. Al-10%Zn-2.5%Cu-1.5%Mg-0.5%Mn, Al-9.0%Zn-1.0%Cu-2.0%Mg-0.5%Mn. These bars quenched followed by artificial aging show yield strength is more than 60 kg/mm ² , tensile strength is more than 65 kg/mm ² and elongation is more than 8%. The end of extrusion is very hard and has remarkable high strength compared with the top.
No. 3810	ibid. (No.10-2) On the mechanical properties of 60 kgf class Duralumin	1936.6.8	Mechanical properties of sheets and extruded shapes were investigated. Sheets show yield strength is 50~52 kg/mm ² , tensile strength is 60 kg/mm ² and elongation is 10~15%. Extruded shapes have the same tensile properties as bars.
No. 3851	ibid. (No.10-3) Effect of additional elements on the properties of super high strength aluminum alloys	1936.6.26	Mechanical properties and corrosion resistance to sea water were investigated in Al-10%Zn-1.3%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn and Al-8%Zn-3%Mg-0.5%Mn alloys added with Ni, Fe, Cr, Ca, Ti, V and etc. The additions of Cr (minor) and Ca, V and Ti did not reduce the these properties and increase corrosion resistance.
No. 3852	ibid. (No.10-4) On the workability of super high strength aluminum alloys	1936.6.26	Bending property by bending test of sheets was compared between alloy T415 (ESD: Al-10.1%Zn-1.61%Mg-2.3%Cu-0.52%Mn-0.28%Fe-0.18%Si), and alloy T418 (Thom alloy: Al-9.33%Zn-2.0%Mg-1.0%Cu-0.53%Mn-0.28%Fe-0.21%Si).
No. 3854	ibid. (No.10-5) Mechanical Property of E.S.D.C (Extra Super Duralclad) alloy	1936.6.30	E.S.D.C alloy with cadding alloy containing Cr was rolled. Adhesion of clad is good and the diffusionability of Cu by heating increase remarkably in a long time, but it is not necessary to regard within the regulated time.
No. 3859	ibid. (No.10-6) Heat treatment of E.S.D. alloy	1936.7.4	Determination of optimum quenching temperature and artificial aging time.
No. 3865	ibid. (No.10-7) Corrosion resistance to sea water of E.S.D. alloy	1936.7.6	Measurement of the weight reduction and tensile test after dipping into 3% brine water as testing method. In bare sheet, intergranular corrosion occurred since corrosion resistance to sea water was not good, while this property improved remarkably in the clad sheet with cladding alloy containing Cr.
No. 3892	ibid.(No.10-8) Artificial aging temperature of E.S.D. alloy	1936.7.18	Investigation of optimum artificial aging temperature and time.

3.2.2 ESD合金の候補材の選定

最終的にはSanderのAl-MgZn₂系合金, 超ジュラルミンのA-Cu-Mg系合金, そして英国のRosenhainのE合金をベースに成分が検討された。学位論文には, 「第一のもの(S)はMg-Zn, 第二のもの(D)はCu-Mg, 第三のもの(E)はCu-Zn-Mgを主成分とするアルミニウム合金である。Zn, MgおよびCuはAgを除いては, Alと最も多く固溶体を作り, またその温度による溶解度の変化も最も多いものである。従って最強力にして最熱処理効果大なる実用合金(Agの如き貴金属の添加は工業用合金としては面白くない)は此の系にあることが想像される。航空機構成材料としては強度の大なる事は勿論必要であるが薄板及び型材に製作可能という事はその強力材料を生かし使用する上にかく可らざる必要条件である。従って先づ此のS, D, 及びE,の三元系に於いて焼鈍状態に於いて最軟く熱処理状態に於いて最も強い, 即加工性最大にして熱処理効果最大なる点」⁷⁾を見いだすことで合金探索が行われたとある。この点が工業的には非常に重要な視点である。

それぞれの合金成分は,

D : Al-4%Cu-1.5%Mg-0.5%Mn,

S : Al-8%Zn-1.5%Mg-0.5%Mn,

E : Al-20%Zn-2.5%Cu-0.5%Mg-0.5%Mn

である。まず「D-S-E三元系の全系に渡る金型鋳物を鋳造し400℃, 450℃, 500℃に各4時間保ち投水し7日間時効し後其ブリネル硬度を測定し, 尚此等を150℃に24時間焼戻しを行ひ再び其硬度を測定し, 次に300℃に5時間焼鈍し炉冷して三度其硬度を測定した」。D, S, E合金の比率を変えて実験した詳細なデータ(時効後と炉冷後の硬さ)をTable 2に示す^{8), 18), 19)}。

次に「焼鈍した硬度を基礎とし之と焼入焼戻により得られた硬度とを比較して其硬化率(注: 硬化率 = (最高硬度 - 焼鈍硬度) ÷ 焼鈍硬度)を求める。此硬化率の大なる事は最高硬度の高き割合に焼鈍状態に於いて軟らかき材質なる事を示すものなるが故に加工等も容易に出来得る筈である」^{8), 18), 19)}との確信に基づいての事である。この結果, No.57, No.61が硬く, 「其成分は亜鉛8及10%, 銅2.5%前後である」として, 三つの合金が選

Table 2 Hardness and hardenability of combination alloys with D, S and E alloys^{8), 18), 19)}.

Alloy Number	D (%)	S (%)	E (%)	Zn (%)	Mg (%)	Cu (%)	Mn (%)	400°C/4 h WQ		450°C/4 h WQ		500°C/4 h WQ		300°C/5 h WQ	Hardenability (%)
								RT/7 d	150°C/24 h	RT/7 d	150°C/24 h	RT/7 d	150°C/24 h		
39	80	20	0	1.6	1.5	3.2	0.5	94.2	93.0	116.0	109.0	107.0	113.0	52.8	120
40	60	40	0	3.2	1.5	2.4	0.5	96.8	99.2	110.0	106.2	96.4	105.0	63.0	75
41	40	60	0	4.8	1.5	1.6	0.5	102.0	132.4	109.0	131.2	95.0	126.4	56.2	136
42	20	80	0	6.4	1.5	0.8	0.5	114.0	140.0	101.0	137.4	95.0	147.2	62.6	136
43	80	0	20	4	1.3	3.7	0.5	105.8	104.0	121.0	118.0	108.0	120.0	59.8	102
44	60	0	40	8	1.1	3.4	0.5	120.0	138.8	130.0	153.2	107.4	145.8	83.6	74
45	40	0	60	12	0.9	3.1	0.5	130.0	154.6	140.2	161.2	120.0	147.2	83.0	94
46	20	0	80	16	0.7	2.8	0.5	153.0	156.4	143.0	153.2	114.0	131.2	95.4	64
47	0	80	20	10.4	1.3	0.5	0.5	116.0	147.2	125.2	158.0	110.0	156.0	76.4	107
48	0	60	40	12.8	1.1	1	0.5	134.8	162.7	140.2	161.2	127.6	158.0	63.6	89
49	0	40	60	15.2	0.9	1.5	0.5	134.8	158.0	140.0	151.6	130.0	144.4	94.8	67
50	0	20	80	17.6	0.7	2	0.5	147.2	161.2	141.6	159.6	118.0	138.8	95.4	69
51	80	10	10	2.8	1.4	3.45	0.5	102.0	97.6	113.0	116.0	108.0	113.0	57.4	102
52	10	80	10	8.4	1.4	0.65	0.5	119.0	151.6	110.0	147.2	109.0	159.6	73.0	116
53	10	10	80	16.8	0.7	2.4	0.5	153.0	165.8	150.0	153.2	119.0	131.2	97.6	116
54	60	20	20	5.6	1.3	2.9	0.5	109.0	119.0	115.0	130.0	117.0	132.4	77.6	74
55	20	60	20	8.8	1.3	1.3	0.5	117.0	150.0	122.0	154.8	109.0	153.2	67.6	129
56	20	20	60	13.6	0.9	2.3	0.5	145.8	161.2	144.4	164.2	127.6	145.8	86.6	137
57	40	30	30	8.4	1.2	2.35	0.5	126.4	156.4	125.2	161.2	109.0	123.0	65.0	148
58	30	40	30	9.2	1.2	1.95	0.5	124.0	154.8	128.8	169.4	120.0	159.6	73.6	129
59	30	30	40	10.4	1.1	2.2	0.5	131.2	156.4	115.0	150.0	115.0	145.8	74.0	112
60	20	40	40	11.2	1.1	1.8	0.5	127.6	153.2	131.2	161.2	103.0	140.2	75.6	113
61	40	20	40	9.6	1.1	2.6	0.5	122.0	150.0	130.0	167.6	118.0	151.6	67.6	148
62	40	40	20	7.2	1.3	2.1	0.5	113.0	115.0	116.0	162.7	116.0	148.6	71.2	128
63	100	0	0	0	1.5	4	0.5	94.2	93.6	113.0	105.0	113.0	117.0	53.6	118
64	0	100	0	8	1.5	0	0.5	108.2	136.0	112.0	143.0	111.0	148.6	73.8	101
65	0	0	100	20	0.5	2.5	0.5	158.0	161.0	145.8	144.4	124.0	124.0	89.8	79

定されたとある^{8), 18), 19)}。

・ Al-10%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn-0.01%Ti

(ESD No.1 合金)

・ Al-8%Zn-1.5%Mg-2%Cu-0.5%Mn-0.01%Ti

(ESD No.2 合金)

・ Al-8%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn-0.01%Ti

これらの合金の板、棒、押出形材、管について各種の特性を調査し、「新強力軽合金E.S.Dは耐力350～640 MPa (36～65 kg/mm²), 引張強さ570～690 MPa (58～70 kg/mm²), 伸び8～20%, 硬度150～200を有し、現在使用されつつある軽合金に比して著しく優秀なる機械的性質を有し航空機構成材料として画期的な新材料と思われる。然るに、本合金は或る特殊な状態の下に於て時刻の経過に従って亀裂を生ずるが如き致命的な欠陥を有する。独逸のSander合金及び英のE合金が優秀なる機械的性質を有するにかかわらず実用化されざる所以のものは、主として此の種の欠陥あるによる」(学位論文より)⁸⁾として時期割れの対策の検討に入る。

社内の研究報告でE.S.D.合金の名称が表題に出てくるのは、研究報告No.3854「超強力軽合金の研究(第10-5), E.S.D.合金の「クラッド」材の機械的性質」(1936.6.30)からである。多分この頃、合金の方向性が決まったことによるものと考えられる。E.S.D.の各アルファベットの後ろにピリオドがある表現になっている。この名称に決まった背景については研究報告には特に記述がない。深井誠吉氏によると超々ジュラルミンをESD (Extra-Super-Duralumin) と名付けたのは住友金属専務取締役で伸銅所所長の古田俊之助氏で1936年5～6月頃とのことであるが、住友軽金属年表では、「1937年、研究の基礎となったE合金, S合金, D合金(超ジュラルミン)の頭文字をとってESDと命名した」²⁰⁾とある。

3.3 トム合金

興味深いことに、1936年の5, 9, 11月の社内の研究報告では、「アルミニウム軽合金界に一大センセーショナルを投げた」引張強さ75 kg/mm²と称する日本電工製のトム合金板材、棒材、鍛造丸棒を入手して性能の確性調査を行っている。西村教授が先に述べたように如何にこのニュースの衝撃が大きかったかを物語るものである。研究報告No.3738「Thom Alloy に就いて」(1936.5.5)で、この入手したトム合金板材の組成はAl-9.05%Zn-2.15%Mg-0.9%Cu-0.49%Mn-0.22%Fe-0.27%Siで引張強さは605 MPa (61.7 kg/mm²), 耐力424 MPa (43.2 kg/mm²), 伸びは13%であった。この合金は「60 kgジュラルミン」と成分、機械的性質とも

によく類似す」と報告書にはコメントが付記されている。この「60 kgジュラルミン」とはE.S.D.のことであろう。

3.4 時期割れ(応力腐食割れ)の評価方法の確立

3.4.1 時期割れの発生の詳細な観察

さて、ここからが五十嵐、北原のコンビが本領を発揮した時期割れ対策である。1936年8月20日の社内の研究報告No.3939「E.S.D.新合金の「割れ」に就いて(第一報)」がそれである。この研究報告の概要を少々長い重要なので引用する。執筆者はその筆跡からして北原氏によるものと思われる。

「E.S.D軽合金の残留内部応力の下に於ける割れを発生する特殊現象を調査し且つ現象の防止対策に就き考究した。

(1) 割れの試験方法としては下記三方法を使用した。

1. 刻印法 2. 圧搾法 3. 屈曲法

(2)

i) 銅を含むと否とに係らず本系合金は残留内部応力の下に於いて自然に割れる傾向性を有す。勿論これはその成分又は状態の如何によりて多少の緩急の差はあるもいずれも割れる。

ii) 割れは静的外力を受けた場合よりも衝撃外力を受けた場合が遙かに甚だしい。

iii) 割れ疵は常に結晶境界線に沿っておる。また故意に破壊せし処も同様に概ね境界線に沿って割れる傾向にある。これは結晶の大きさに密接な関係があると思う。

iv) 焼入時効せるものは刻印法及び圧搾法では本試験の期間内では疵を生じないが屈曲法では割れる。

v) Al-Zn二元合金ではZn20%を含有するものが、その焼入れ時効せるもの300℃焼鈍せるものが割れを生じ、焼入焼戻せるもの圧延せるものは起こらない。勿論20%以下のものはいずれの状態においても疵を生ぜず(屈曲法)。

vi) 本合金は「ジュラルミン」で「リベッチング」せるも割れを生じない。

vii) 本現象は本系軽合金の本質的特性が所謂 Season Crackingに類似せる物と考えるのが妥当である。

(3) 本系合金の割れの現象は焼入及び焼戻温度の適当なる調節により、緩和する事を得、例えばE.S.D.合金の430℃焼入100℃焼戻せるものは刻印法及び圧搾法で割れを生じない。然し屈曲法によ

れば時間の長短はあるが焼入時硬せんものでさえも割れを生ずるに到る。即ち焼入及び焼戻温度の調節では割れを完全に防止する事はできない。

- (4) 本系合金の割れの現象はその金相学的組成上 Al-Zn 系合金に於ける γ 相 (注, 最近の状態図では α 相) の存否に影響するところ多いという仮説にもとづき下記五種合金につき試験した。

Al-8%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn (製鋳失敗),

Al-8%Zn-1.5%Mg-2%Cu-0.5%Mn,

Al-7.5%Zn-3%Mg-0.5%Mn,

Al-7.0%Zn-3%Mg-0.5%Mn,

Al-6.5%Zn-3%Mg-0.5%Mn

1) 銅の少量の添加は割れを緩和する作用があるらしい。

2) 銅を含有せざる三種は Cu 入に比して著しい

3) 之等合金中 Al-8%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn 合金がもっとも良質で割れを生じ難く, 他のものは焼入時効せるものも割れたるも, 之は割れず而もその抗張性は E.S.D. と伯仲である。

4) Al-8%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn 及び E.S.D 合金の割れに及ぼす焼戻温度の effect は 125°C 最悪でそれより高くも低くも順次良好となる傾向を有す。

5) Al-8%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn 合金は実用上下記 (図略) 程度の屈曲には十分堪え得るものと考えた。

- (5) 本系合金並びに Al-4%Zn-3%Mg-1~2%Cu-0.5%Mn 合金は之に Ti0.1% 内外の添加によりて著しく割れの減少を阻止し屈曲法実施後五日後経過するも猶割れず, 先本問題を解決せらるるのではないかと思わる。然し予断は許されない。機械的性質は E.S.D. に伯仲す。」

とあり, まずは簡便な試験方法で時期割れの実験結果をよく観察していることがわかる。

3.4.2 時期割れの評価方法：応力負荷方法

実験方法を更に詳しく見てみよう。実験方法は日本金属学会誌¹⁹⁾や住友金属・研究報告²⁰⁾に報告されているのでこれをもとに紹介する。時期割れの評価方法は「元来時期割れと称せらるる現象は銅合金就中真鍮に特有なものとして一般には好く知られて居る。これに関する研究論文は内外通じて沢山にある。軽合金に於いても亜鉛の多くを含むアルミ合金の時期割れを起こす傾向のある事は相当古くから言われて居るものの研究文献に至っては内外国を通じて全然皆無と言っても差し支えないであろう」^{18), 19)} ということで, 実験・評価

方法の確立から始まる。Fig. 7 に試験方法を示す。

「(1) 刻印法

試料の表面に 7mm 角大きさの英字又は数字の鑿を持って刻印し亀裂の生ずる状況を検するに図に示す様に概ね文字の角立てる部分に早きは刻印後数時間にして割れを生じた。

(2) 圧搾法

エリキセン試験機により最大深度をそのエリキセン値とし, 種々の深度に圧搾し放置せるに深度の甚だしきものは十数時間後に早くも割れを生じた。圧搾度の少なきものは数日後更に少なきものは数ヵ月後を経過するも割れを生じない。

(3) 屈曲法 (湾曲法)

幅 25mm, 長さ 180mm の試片を Fig. 8 に示すように両端を以って湾曲し略ぼ両端より 15mm 内外の所でその間隔を色々に変えて銅線にて束ね室内に放置して割れの発生を調査した。試験結果はその間隔が零のものは言い換えれば全く密着せるものは僅々数十分に於て割れを生じ, その距離を次第に遠ざくるに従って割れるまでの経過時間は大となり, 或る距離以上に達すると殆ど割れを生じない。換言すれば湾曲試料片の頂部に於ける屈曲半径の大きさに比例して割れるまでの経過時間は増減する。即ち割れは一定以上の応力を必要とする。」^{18), 19)}

そのほかに, 管の扁平試験や「時期割れの発生は複合応力の引張応力に依り, 圧縮応力に依りては絶対的に起こらないと言われ, 又は以上の諸実験に於ける割れが常に引張応力の働く側に限られて起る事実を照らしても明らかなことである」として引張試験が行われた。

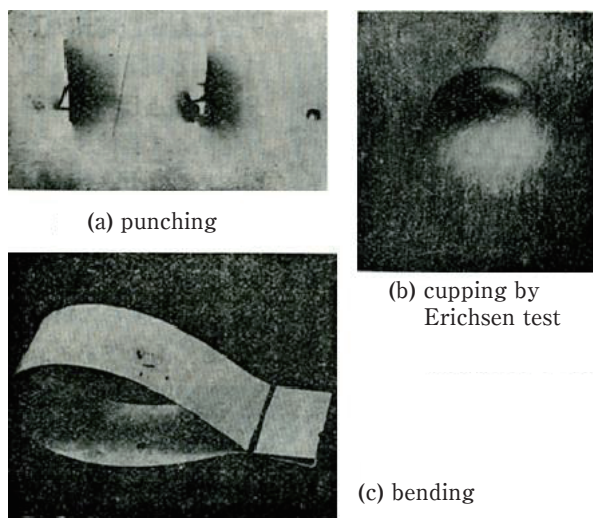


Fig. 7 Estimation method of season cracking (stress corrosion cracking)^{18), 19)}.

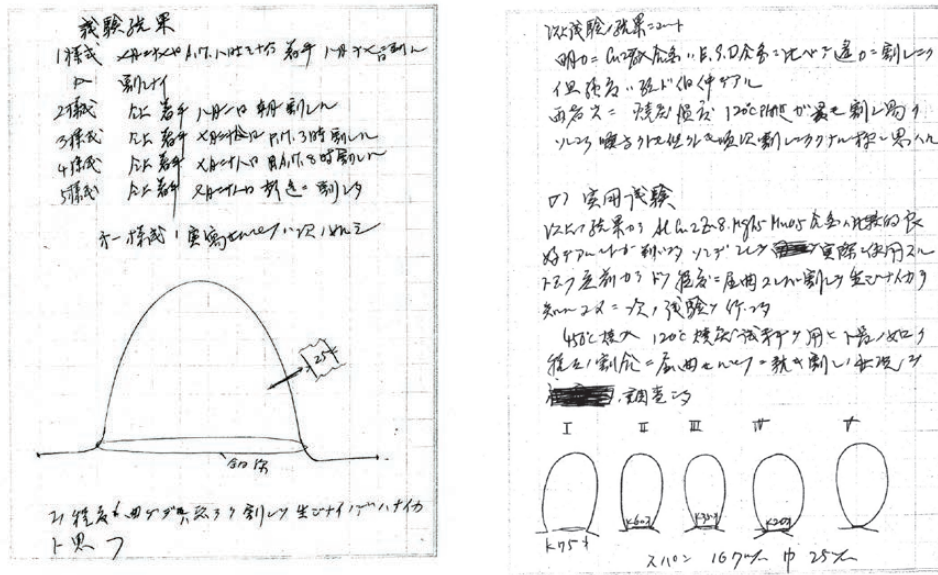


Fig. 8 Estimation of season cracking by bending test.

「引張応力と時期割れを生ずる迄の経過時間との関係曲線に依れば時期割れは応力の小なるに従って起り難くなり、而も曲線の傾向から判断して大約15 kg/mm²以下の応力では割れは起り得ないのではないと思われる」として時期割れの生じる応力に関して閾値の存在を示唆している。

3.4.3 腐食環境

「時期割れは結晶粒界に沿うこと及び合金の引張強さよりも遥かに小なる応力でさえも割れを生ずることの実験的事実から考えて応力が時期割れに対する充分にして満足なる条件とは考えられない。また金属の内部的变化に依るが如き本質的な例証も認められない。さすれば応力と外部的要因との合成作用によるものと考えざるを得ない」ということで試験環境の影響を検討した。真鍮の時期割れは純粋な空気中やNiメッキを施した場合には生じないとのことで、大気中のいかなる要素がもっとも影響があるものかを確かめるために、大気中、乾燥空気、酸素、窒素、水素、真空中で湾曲法により試験した。この結果、水蒸気中に於ける場合がもっとも激烈で大気中での約十分の一で割れた。なお特に顕著なことは大気中では30分内外で割れを生じるものが真空中では割れを生じないことであった。次に、結晶粒界に沿って割れることから、結晶間腐食性を有する水溶液も割れを促進すると考え、各種水溶液で試験した所、食塩水及び塩酸水溶液中でその効果が甚だしいことが判明した。さらに真鍮や銅は半田付け時に

応力を負荷しながら行なうと容易に亀裂を生じることから、80℃の低融点金属 (PbSn, BiCd) の溶液に浸すと1~2分で割れた。これも時期割れの一種とみなしてもよいと考えた。外部的要素をなくするために合わせ板で試験した所全く時期割れを生じなかったと報告している。

3.5 時期割れに及ぼす合金元素の影響

前節の1936年8月作成の第1報に引き続き、板厚0.5 mm 板を製作し屈曲曲げによる時期割れの研究がなされた。Table 3に時期割れに対する合金元素の影響に関する社内の研究報告書の一覧を示す。同年12月作成の第11報 (No.4144) の最後に総括として、「今、超強力軽合金 (E.S.D.) の化学成分を仮定すれば次の如し。Al, R (残), Cu 2%, MgZn₂ 11~12%, Mn 0.5%, Cr 0.3%, Cu, Cr, Mnの添加量に関しては更に研究を要す。機械的性質は引張強さ540 MPa (55 kg/mm²), 耐力440 MPa (45 kg/mm²), 伸び8%以上」とある。Fig. 9は学位論文に掲載された時期割れに及ぼす添加元素の影響を示す。クロムが0.17%添加された合金はこの実験範囲内では時期割れを示さないことがわかる⁸⁾。

この間の事情を五十嵐博士は次のように語っている⁵⁾。
「割れるやつなら大いに割つて見ようと云うので最も時期割れの甚だしいのを作つてそのよつて来る原因をつかもうとつとめた。種々の気体の中、液体の中、真空中、等で割らして見た。その結果から此の種の時期

Table 3 Technical Reports of Sumitomo Metal on season cracking (stress corrosion cracking)¹⁴⁾.

Report Number	Title and subtitle	Creation date	Content
No.3939	On the season cracking of new E.S.D. alloy (No.1)	1936.8.20	Investigation about the occurrence of special cracking under residual stress in E.S.D alloy and consideration to the prevention of cracking.
No.3988	On the season cracking of E.S.D. alloy (No.2)	1936.9.19	Commercial production of E.S.D. alloy with low Zn (Al-4%Zn-3%Mg-1or2%Cu), and E.S.D.No.2 alloy (Al-8%Zn-1.5%Mg-2%Cu-0.5%Mn) is possible because of good artificial aging property.
No.4017	ibid. (No.3)	1936.9.30	E.S.D.No.2 alloy is available. Season cracking is prevented by addition of Ti, Mo.
No.4030	ibid. (No.4)	1936.10.12	Grain growth and season craking are prevented by addition of Mn 1.2 or 1.5%. The addition of Li was investigated.
No.4047	ibid. (No.5)	1936.10.23	E.S.D.No.1(Al-10%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu), with more than Mn 1.2% prevent season cracking remarkably.
No.4092	ibid. (No.6)	1936.11.18	Addition of 0.5~1.67%Mo to E.S.D.No.2. The addition of less than 1%Mo improve remarkably the time to season cracking.
No.4099	ibid. (No.7)	1936.11.27	Addition of Mo,Cr,Co,Ti,Cu,Mg and Be to E.S.D. No.1(Al-10%Zn-1.5%Mg-2.5%Cu-0.5%Mn). The additon of Co is effective to tensile strength and the addition of Cr is excellent in preventing season cracking. The addition of Mo is not effective compared with No.2. The addition of Mn 1.5% is too much.
No.4112	ibid. (No.8)	1936.12.1	Addition of Mn 0.5, Mo 0.3, Cr 0.3, Ti 0.1 and Mo 0.3, Cr 0.3, Ti 0.1 to E.S.D. No.2 alloy. It is good to prevent season cracking.
No.4113	ibid. (No.9)	1936.12.2	Addition of Mn, Cr separately or together to E.S.D. No.1 and E.S.D. No.2 alloy. No.2 alloy is superior .
No.4121	ibid. (No.10)	1936.12.5	Addition of Ni to E.S.D. No.1 alloy. Tensile strength increases. However it is not effective to season cracking.
No.4144	ibid. (No.11)	1936.12.21	Addition of Ag,Ca, Si, Sn to E.S.D. No.1 alloy. The prevention of season cracking is not improved.
No.4244	ibid. (No.12)	1937.2.24	Effect of addition of Cu, Zn, Cr, Bi, Sb to E.S.D. No.2 alloy on season cracking. The occurrence of season cracking is not changed within the range 0.1~0.35% Cr. Effect of addition of Sb, Bi on season cracking is small.

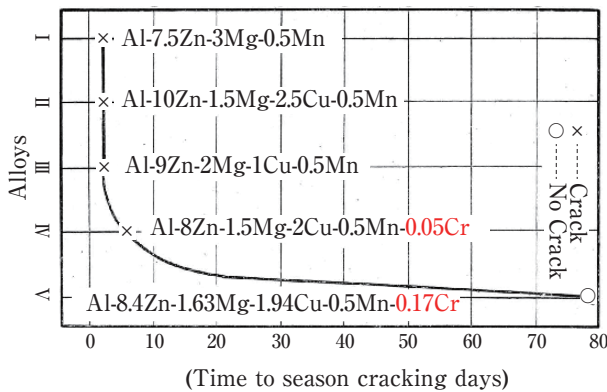


Fig. 9 Effect of chromium addition on the season cracking of Al-Zn-Mg alloys⁸⁾.

割れは水分による結晶粒界の局部腐蝕が重大なる原因をなすことがわかった。そこで腐るものに腐るなどは無理な話だから腐りたければ大いに腐らしてやろう。それも局部腐蝕などケチな事云わずに全面腐らすようにもって行こう。それには全面に析出するMnを増して1.2%にもって行けば全面腐蝕になり時期割れはなくなる。処が大物鋳塊ではMn化合物が大きく発達して物にならぬ。そこでMnを減じてCrで補うことにし

た。そしてそのlimitがESDのMn, Crの成分になった。他の成分は量産の目的で最も加工し易い点をとった。量産を考えないならば780 MPa (80 kg/mm²) 程度は出せる。」

ほぼ成分も固まり、いよいよ工業的試作の段階に入る。研究報告No.4241「E.S.D.軽合金の研究, E.S.D.-No.2試作品の二三性能に就いて」(1937.2.22)では、E.S.D.No.2 (Al-8% Zn-1.5% Mg-2% Cu-0.5% Mn)とE.S.D.No.2+Cr0.3について工場試作し、E.S.D.No.2+Cr0.3は引張強さ570~590 MPa (58~60 kg/mm²), 耐力470~510 MPa (48~52 kg/mm²), 伸び10~16%で所定の規格(引張強さ520 MPa (53 kg/mm²)以上, 耐力440 MPa (45 kg/mm²)以上, 伸び8%以上を満足し、180°曲げ試験で半径3tと良好、耐破壊性でも二ヶ月以上経過しても割れないで極めて優良であると結論づけている。これ以降のE.S.D.No.2合金に関しては0.2~0.3% Crが添加されている。ほぼ2月の時点でESDの合金成分はAl-8%Zn-1.5%Mg-2%Cu-0.5%Mn-0.25%Crとなったと考えられる。

その後の研究報告No.4352「超強力軽合金E.S.D.-No2に就いて, E.S.D.-No.2クラッド材の性能」(1937.4.27)で

は、皮材にAl-2.5%Zn-0.5%Crを用いたクラッド材の性能調査を行っている。引張強さは540 MPa (55 kg/mm²), 耐力480 MPa (49 kg/mm²), 伸び10%で裸材に匹敵し、耐破壊性、耐食性は良好との結果であった。このクラッド材に就いては5月の時点で特許申請中との事であった。

3.6 特許出願と論文発表

3.6.1 特許

ESDに関する基本特許は、「鍛錬用強力軽合金」として、1936年6月9日に出願されている。公告は1939年10月24日、特許としては第135036号としては1940年2月28日成立。発明者は五十嵐勇と北原五郎で、特許権者は住友金属工業株式会社である。この特許の第一ページをFig. 10に示す。

「発明の性質及び目的の要領」

本発明は亜鉛3乃至20%, 「マグネシウム」1乃至10%, 銅1乃至3%, 「クローム」0.1乃至2%を含み「マンガン」0.1乃至2%を含み、又は含まず残部「アルミニウム」より成ることを特徴とする鍛錬用強力軽合金に係り其の目的とする処は強力にして時期割性無き鍛錬用軽合金を得んとするにある。

1935-1937年かけて五十嵐博士により出願された

Al-Zn-Mg系に関する合金特許はTable 4に示すように5件で、それもCrに関するもの2件のみである。それらの特許は関連のあるものも含めて出願順に表に示す。なお、このESD関連特許に関しては1938年頃から米国、英国、ドイツ、フランス、イタリアに特許出願している。

ここで興味深いことはESDの特許「鍛錬用強力軽合金」の出願が1936.6.9であることだ。この時点でどこまでCrによる時期割れ改善の問題を把握していたかが不明である。Crを添加した合金について言及した報告書は研究報告No.3851「超強力軽合金の研究(第十の三)、超強力軽合金の性質に及ぼす他元素の影響」(1936.6.26)まで見当たらない。それも時期割れのための試験ではない。時期割れに及ぼすCr添加の影響については、研究報告No.4099「E.S.D.合金のCrackingに就いて(第七報)」(1936.11.27)の報告書が最初と思われる。

勿論、実験結果と報告書執筆では現在でも数ヶ月のタイムラグのある場合もあるので、実験結果はもっと早く出ていただろうと推定されるが、多分、ESD合金の制定の6月頃には、簡便な方法での時期割れの評価結果は出ていて、この結果に基づいて特許が出願されたものと考えられる。

3.6.2 論文発表と学位授与

論文に関しては、五十嵐と北原連名で、1937年2月住友金属・研究報告「新強力軽合金の研究(其1)」を発表している²¹⁾。(其3)がなく、1938年3~10月に「新強力軽合金の研究」(其4~6)^{22)~24)}を、其2は少し遅れて1939年5月に「新強力軽合金の研究(其2)、超々ジュラルミン”ESD”及び其のクラッド材”ESDC”に就て」²⁵⁾で、次いで、1939年9月に「高力Al合金の時期割れと其防止に就て」¹⁹⁾が報告されている。其2ではESD(ピリオドはなくなっている)をExtra-Super-Duralminと呼び、ESDとそのクラッド材ESDC(Extra-Super-Duralclad)の皮材の成分が明らかにされており、このためか、(其2)の発表時期が遅らされていると考えられる。

「鉄と鋼」²⁶⁾や日本金属学会誌¹⁸⁾に、住友金属・研究報告で報告された内容とほぼ同じものが報告されている。ESDの成分が明らかにされたのは、ESDの基本特許である特許135036が公告として公開された時期と重なっていることがわかる。問題は米軍がこの論文に目を通していかだ。

五十嵐博士は以上の研究論文と、これまでに発表してきたジュラルミン、超ジュラルミン、4.5~8%Mgを含むHydronaliumなどの耐食性合金、3Sや4Sなどの

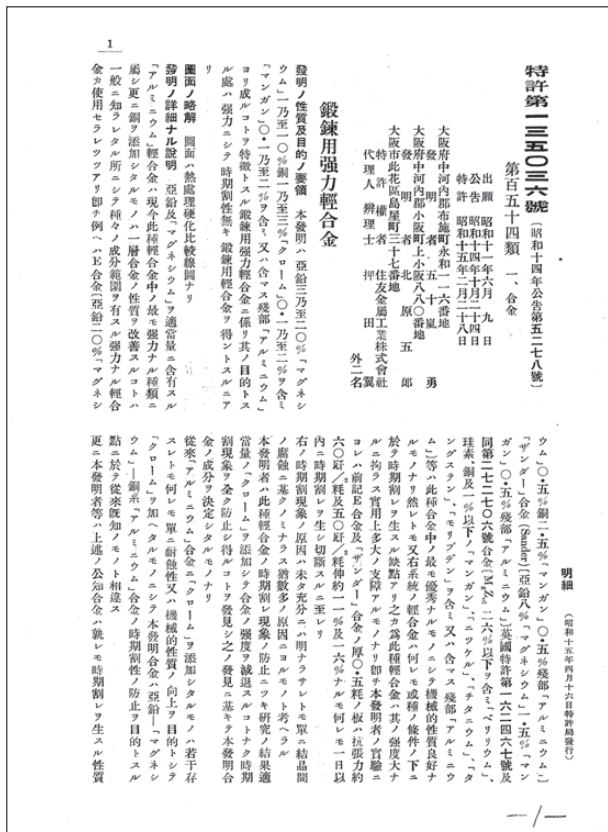


Fig. 10 Patent on Extra Super Duralumin.

Table 4 Patents of Sumitomo Metal on Al-Zn-Mg alloys¹⁴⁾.

Patent	Title	Inventor	Application (A) Notification (N) Registration (R)	Claims
114321	High hardened aluminum alloy	Igarashi	A: 1935.4.5 N: 1935.10.25 R: 1936.2.4	Zn: 5~25%, Mg: less than 5%, Li: less than 3%
135036	High strength wrought aluminum alloy	Igarashi, Kitahara	A: 1936.6.9 N: 1939.10.24 R: 1940.2.28	Zn: 3~20%, Mg: 1~20%, Cu: 1~3%, Cr: 0.1~2%, (Mn: 0.1-2%) no season cracking
133183	High strength aluminum alloy	Igarashi, Kitahara	A: 1936.9.9 N: 1939.8.12 R: 1939.11.13	Zn: 4~20%, Cu: 1~3%, Mg: 1~3%, Ti: 0.01~0.5%, Mn: 1.2~3%
145112	Aluminum alloy	Igarashi, Kitahara, Kosaki	A: 1936.9.19 N: 1941.4.30 R: 1941.8.22	CuAl ₂ : 0.5~10%, Mg ₂ Si: 0.5~5%, MgZn ₂ : 2~20%, Mn: 1.2~2.0, Cr: 0.1~0.5%, Ti: 0.1~0.5, Mo: 0.1~2% Prevention of grain growth
133193	High hardened aluminum alloy	Igarashi, Kitahara	A: 1936.10.15 N: 1939.8.12 R: 1939.11.13	(Additional invention to No. 114321) Zn: 5~25%, Mg: 1~5%, Li: less than 3%, Cu: less than 3%, Supplement (Brinell hardness: more than 150)
155806	High strength aluminum alloy clad sheet with zinc	Koizumi	A: 1939.10.14 N: 1942.12.26 R: 1943.4.2	Cladding sheet containing Zn: 0.5~1.5, Mn: 0~2% to aluminum alloy with Zn, Corrosion resistance
161892	High strength wrought light alloy	Kitahara kodama	A: 1942.5.29 R: 1944.2.19	Zn: 3~20%, Mg: 1~10%, Cu: 1~3%, Cr: 0.1~2%, Bi: 0.01~0.2%, (Mn: 0.1~2%), no season cracking

Al-Mn系合金, ジュラルミン系プロペラ用鍛造品, 鋳材, マグネシウム合金の防食性についてまとめ, 1939年4月学位論文として大阪帝国大学工学部に提出し工学博士が授与された。

3.7 なぜESDは短期間で開発できたのか？

住友軽金属の元専務取締役で技術研究所長であった寺井士郎博士はESDが開発できた要因を次の六点にまとめている²⁷⁾。

(1) 具体的なニーズ

1935年当時は, 準戦時下であり, 列国より優位な軍事力, 特に優秀な戦闘機の開発それに伴う機体構造材としての高力アルミニウム合金の強度向上に対する軍の要求は切実であった。引張強さ60 kg/mm²級の新強力軽合金の開発が海軍航空本部より要求された。

(2) 非凡なる発想

応力腐食割れの解決の難しさから, リスクの少ないAl-Cu-Mg系合金を選択せずに, 強度的にはAl-Zn-Mg系合金に勝る合金なしと考え, 応力腐食割れ防止によって実用化せんとした積極的発想と, アルミニウム合金の応力腐食割れが局部的な結晶粒界での割れであることに着目し, むしろ全面的に腐食させることで割れを防止しようとした, 逆転の発想は非凡である。

(3) 的確な実験対象

実験対象として, D合金, S合金, E合金を選定し, それぞれの配合比率と強度マップの関係からの的確な合金を選択したこと, 粒内に全面に析出させて全面腐

食させる微量添加元素の選択が的確であったこと。

(4) 系統的な実験

応力腐食割れ防止について金属組織, 環境, 応力, 成分及び熱処理に関し系統的な実験を短期間に実施し, MnおよびCrの微量添加が有効であるとの結論を得て, 合金特許を取得した。

(5) 創造に対する執念

五十嵐博士は, 「研究室で出来たものが, 工場で出来ない筈がない。必ず物にするという執念で事に当たれば, 自然が, これでもか, これでもかと呼び掛けてくれるものだ。この自然の呼び掛けを聞く耳をもたねばならない」とよく言われていた。

(6) 優れた協力者

ESDは工場生産技術者の協力なしでは, 工業製品としては恐らく開花しなかったであろう。当時の生産技術は, 製造部長の丸山五男氏の献身的な協力に負うところが多かったと五十嵐博士は述懐している。

五十嵐博士から直接指導を受けた元常務取締役深井誠吉博士との対談(社内報「住友軽金属」, No.68 (1965年頃))では, 五十嵐博士は時期割れに関して次のように語っている。

「今度は考え方を全く変えて, どのように割れるかを研究することにした。そこで, いろいろ研究して, 一番割れやすいものを作った。普通なら時期割れは1カ月から2年ほどの間に起るが, 曲げて5~10分で割れるのができた。割れは結晶粒界で起こる。ここが腐って割れるので, 酸, アルカリにつけて腐らせてみたら

もっと割れやすくなると思った。ところがより割れるはずなのが割れない。人間の考えがいかに馬鹿なものであるか、これで明らかである。頭から割れるはずだと思込んでいたものが割れない。

そこで割れの原因を調べてみると、空気中でも割れるので、その因子を調べるために、酸素、窒素、いろいろやってみたが、一番影響するのは水蒸気。次に調べねばならないのは、金属それ自体が、割れるかということですね。そこで真空中で調べた。普通なら4~5分で割れるのが1日たっても、2日たっても割れない。それでわかった。つまり水蒸気があると割れる。純アルミで割れないのはわかっている。そこで酸、アルカリにつけると全面が腐るので割れなくなる。ここで問題が決ってくるわけですね。

結局、結晶粒界と同じ速度で全面を腐らせる。全面が平均して腐るためには微細な析出物を全面に作る。そうすると全面の腐り方と結晶粒界の腐り方の歩調がそろろう。こうすれば割れない。結局1ミリ腐るのに、何年もかかるから、金属の腐食が進む前に、飛行機の方が駄目になる。研究はこれで終り。後は何を何%、何を何%と実験すればすぐできる。それから先は、アメリカ流にサーッとやればよい。」と。

時期割れの対策に関しては「逆転の発想」ということで寺井博士が紹介されたが、同じく元社長で技術研究所長の佐藤史郎博士はセレンディピティの観点から次のように述べている²⁸⁾。

「五十嵐博士から、我々研究に当たる者に対して、最も心すべきこととして対象を徹底的に観察することの重要性を説かれた。“ものをよく見よ。理屈(理論)は後からつけたらよい。もし誰かがつけてくれるならばそれでよい。とにかく、ものをよく見よ”と。「応力腐食割れに関しては「光学顕微鏡で応力腐食割れの組織を観察すると、結晶粒界が割れている。応力腐食割れに析出物が関与していることは明白である。そこで、応力腐食割れを徹底的に観察しようという魂胆もあった。これらの合金の試験片の応力腐食割れ試験を実施した結果、意外なことに応力腐食割れが著しく改善(抑制)されている合金があった。その添加元素がCrであり、Cr添加が組織を微細化し、析出物の析出形態を粒界析出型から粒内均一析出型へ変えていた」ことを見だし、ESDの発明に繋げた。すなわち、入念な光学顕微鏡観察と柔軟な洞察—セレンディピティと言うに十分値する—により達成されたものであることは疑う余地がない」と述べている。

4. おわりに

最初の、「この合金が1935年の研究開発開始から約1年程度の短期間でなぜできたのか」という疑問に対しては、寺井博士の述べられたとおりで、ESDが短期間に実用化できたことは五十嵐博士の優れた資質や指導力と製造技術の協力なしではなし得なかったが、著者は1935年の開始までに超々ジュラルミンESDの発明のための準備はほぼできていたのではないかと考えている。ESDの元になるE合金、Sander's合金、Super-Duraluminについての特性はほぼ把握していて、これらの合金で最高の強度を得るための合金成分の影響も把握していたものと考えられる。答はそれらの組合せの中にあると考えたのであろう。それにトム合金も発表されていたので強度についてはあまり心配しなかったと思う。むしろ加工性、生産性を非常に気にしていたことがわかる。問題は時期割れの問題で、クロムをどのように発見したかであるが、この研究開始前後に、クロムを添加したクラールクラッド材を発明し、さらに24Sにクロム添加することを行っていて、ESDにもある程度可能性がある感触を早い段階から得ていたのではないかと推定している。実験報告書の日付よりも特許申請の日付が半年ほど早いのはそのためであろう。膨大な研究は、半ば仮説を検証するために系統的な実験を行ったとも考えられる。超々ジュラルミンの発明は決して偶然できたものではなく、それまでの研究の積み重ねこそ重要であることを教えてくれる。クロム添加についても仮説を考えながら実験を行っている。その仮説は現在から見ると正しいかどうかはあらためて検証することも必要であるが、当時の学問の状況や観察の限界からすれば仕方のない部分もある。しかし、全体を大局的にみることで、結果は正しい方向に導いている。発明発見は一朝一夕にできるものではないことをあらためて思い知らされる。

参考文献

- 1) 吉田英雄：軽金属, **65** (2015), 627-637.
- 2) 吉田英雄：軽金属, **62** (2012), 502-503.
- 3) 五十嵐 勇：軽金属及軽合金最近の進歩, 工業図書株式会社, (1937), 182-197.
- 4) 小野幸子：軽金属, **60** (2010), 333-335.
- 5) 五十嵐 勇：軽金属, **5** (1952), 29.
- 6) V.W Sander: Z. f. Anorg. Chemie, **154** (1926), S146.
- 7) 五十嵐 勇：住友金属・研究報告, 第2巻, 第12号, (1937), 1280-1294.
- 8) 五十嵐 勇：航空機用材としての軽合金の研究(学位論文), (1939), 37.
- 9) 五十嵐 勇：住友金属・研究報告, 第2巻, 第10号 (1937), 991-1020.

- 10) F. Keller and R.H. Brown: Trans. AIME, Institute of Metals Division, **156** (1944), 377-386.
- 11) F. Keller: Physical Metallurgy of Aluminum Alloys, ed. by W.L. Fink, F. Keller, W.E. Sicha, J.A. Nock, Jr. and E.H. Dix, ASM, (1949), 93-128.
- 12) W.W. Binger, E.H. Hollingsworth and D.O. Sprowls: Aluminum, Vol.I, Properties, Physical Metallurgy and Phase Diagrams, ed. by K.R. Van Horn, ASM, (1967), 209-276.
- 13) H.P. Godard et al: Aluminum, Properties and Physical Metallurgy, ed. by J.E. Hatch, ASM, (1984), 242-319.
- 14) 吉田英雄: 住友軽金属技報, **54** (2013), 264-326.
- 15) 西村秀雄: 随筆・軽合金史(其29), 軽金属時代, No.200 (1951), 10.
- 16) 軽金属工業発達史(其の一), 航空機用軽金属材料について, 第一回軽金属座談会記録, 軽金属, No.6 (1953), 103-137.
- 17) 柳田邦男: 零式戦闘機, (文春文庫), 文芸春秋社, (1980), 288.
- 18) 五十嵐 勇, 北原五郎: 日本金属学会誌, 3 (1939), 66-76.
- 19) 五十嵐 勇, 北原五郎: 住友金属・研究報告, 第3巻, 第6号 (1939), 531-552.
- 20) 住友軽金属年表(平成元年版), 住友軽金属工業株式会社, 1989年.
- 21) 五十嵐 勇, 北原五郎: 住友金属・研究報告, 第2巻, 第9号 (1937), 883-899.
- 22) 五十嵐 勇, 北原五郎: 住友金属・研究報告, 第3巻, 第1号 (1938), 1-17.
- 23) 五十嵐 勇, 北原五郎: 住友金属・研究報告, 第3巻, 第3号 (1938), 232-246.
- 24) 五十嵐 勇, 北原五郎: 住友金属・研究報告, 第3巻, 第3号 (1938), 247-256.
- 25) 五十嵐 勇, 北原五郎: 住友金属・研究報告, 第3巻, 第6号 (1939), 455-474.
- 26) 五十嵐 勇, 北原五郎: 鉄と鋼, **23** (1937), 447-451.
- 27) 寺井士郎: 住友軽金属技報, **29** (1988), 93-98.
- 28) 佐藤史郎: アルミニウム, **11** (2004), 38-43.



吉田 英雄 (Hideo Yoshida)

超々ジュラルミン研究所, 博士(工学),
(元) (株) UACJ R&Dセンター 顧問



適材適所*

山本 裕介**

The Light Aluminum in the Right Place*

Yusuke Yamamoto**

ご安全に！私は2008年に住友軽金属工業（現UACJ）に入社以来、自動車用アルミ板材を始めとした各種製品の基礎研究を行ってきました。そこから研究を製品に落とし込む開発室、そして実際に生産するものづくりの現場へと立場を変えながら、アルミニウムの製造に関わっています。さて、仕事の話はこのくらいにして、ここでは仕事以外の活動を紹介したいと思います。

入社以来、冬はスキー、オフシーズンはフットサルという一年を過ごしています。弊社スキー部の主な活動場所は、長野県の西側中央にある「聖地：野麦峠スキー場」。私の勝手な定義では、ここは「定番の広瀬香美や浜崎あゆみが全く流れず、スキーと雪面間の摩擦音およびリフトのモータ音しか聞こえない環境下で、斜面の往復により繰り返し応力を太腿に付与し、疲労寿命に到達したところで、ペンションの温泉浴に浸漬。

315 K-1800 sec保持後、ただちにタンパク質とビールにて復元処理を行う場所」です。九州大学の戸田先生とご一緒させて頂いた回では、夜、その日のスキーの感想/反省と、戸田研OBで現UACJのDr. 坂口の豊橋技術科学大学時代のここでは書けない武勇伝をひとしきり話した後、自然とスキーと材料の話になりました。スキーに来て材料を語るのが、冶金屋の性（サガ）。その際の議論の結論は、「スキー板としての適度な弾性率、強度、軽さを求めると、今でも木材が非常に優れた材料である」だったと記憶しています。

アルペン用のスキー板の心材には、グラスファイバやカーボンファイバが用いられるようになってきましたが、マイナースポーツのクロスカントリースキーやスキージャンプのスキー板心材には、軽さとコストに重点が置かれ、今でも木材が使われています。ちなみ



Fig. 1 One scene at Nomugi Ski resort.

* 本稿の主要部分は、軽金属, 66-2(2016), 114に掲載。

The main part of this paper has been published in the Journal of Japan Institute of Light Metals, 66-2 (2016), 114.

** (株)UACJ 板事業本部 名古屋製造所 生産技術部

Production Technology Department, Flat Rolled Products Division, Nagoya Works, UACJ Corporation



Fig. 2 Image of cross-country skiing.
(Source: Petr Novák, Wikipedia)

に汎用のストックには、軽さと耐衝撃性に優れた高強度アルミ押出材が多く使われています。しかし、私が大学時代に取り組んでいたクロスカントリースキーは、30 kmを走破する間に1万回ほどストックを突くので、軽さの重要性が増し、CFRP製のストックを使用します。大学生にとってCFRPのストックは非常に高価で、転んでしまったときは、ストックが折れないように、

体より先にストックを投げ出して、ストックを守りながら転んでいました。ちなみに、スキージャンプも同時に取り組んでいましたが、「安全第一」であまり遠くへ飛ばないジャンプだったため、パツとした成績は残せませんでした。ただ、エピソードは豊富なので、別の機会に紹介できればと思います。

まとまりのない話の結論は、「金属材料も適材適所に使われるのが最も良い」。私たちは、長所も短所もあるアルミを適材適所に使いきれていないはずで、そのひとつが自動車用ボディパネルかもしれません。自動車用ボディパネルはコスト、強度および曲げ加工性も含めた成形性など、改良すべき点は多くあると思いますので、お客様に満足してご使用頂ける軽量材料となるよう日々精進しつつ、冬を待ちたいと思います。



山本 裕介 (Yusuke Yamamoto)
(株)UACJ 板事業本部 名古屋製造所 生産技術部



米国 TRI-ARROWS ALUMINUM 赴任で大胆なアプローチを学ぶ*

工藤 智行**

Learn Drastic Approach from TRI-ARROWS ALUMINUM, U.S.*

Tomoyuki Kudo**

海外赴任は出来れば避けたい。内示を言い渡される前、私はこう思っていました。海外から安価なアルミニウム材料が入ってきて国内軽圧も海外進出が求められている昨今、ずっと国内で働き続けることは難しくなっているとわかってはいました。海外赴任の内容は「1年の語学研修と1年半の実務研修」。海外で働く人材を育成するために設立された当社の研修システムです。海外志向が強いわけではなかった私はその内示を受けたとき頭が真っ白になりました。何度か海外出張は経験していましたが、長期間外国に住んで、外国の会社に赴任するということが当時の私には想像ができませんでした。しかし2年半の米国赴任を経験して帰国した今「海外赴任を経験して良かった」と心から思っています。それは英語が学べたとか、最先端の技術を学べたとか、色々な場所を旅行できたということだけではなく（もちろんそれは大きいですが）、これまで日本にいて培った考え方とは異なる考え方を知り、肌で感じる事ができたからだと思います。

私は実務研修として米国グループ会社である TRI-ARROWS ALUMINUM (以下TAA) に赴任していました。TAAは、生産拠点である Logan Aluminum (以下 Logan) から年間40万トン近い缶材を供給していた ARCOをUACJ、住友商事、伊藤忠メタルズ、伊藤忠商事で買収して設立した会社です。私はここでLoganの生産技術を学んでいましたがTAAで働くアメリカ人の考え方は日本人のそれとは大きく異なるものでした。私が感じた大きな違いを2つ記します。1つ目は、「アメリカ人はより全体像を重視する」ということです。Loganは非常にシンプルで生産性が重視された工場です。合金の数を限定し、同じものを大量に安価に生産しています。日本は文化的にユーザーごとに適し

たものをオーダーメイドで製造する傾向があります。材料としては優れたものとなりますが、工場全体の生産性を考えると最適なものではありません。アメリカでは「スペックを最低限満足するものを効率よく製造する」という考えがあり、工場全体の生産性を第一に考えて生産計画を立てています。以前、日本人から性能が高い合金をTAAに提案したことがありましたが、熱延のパス数が数回増えるという理由で製造を拒否されました。彼らの工場最適化の考え方は一貫しています。材料としてベストな性能は得られないとしても、より低コストな材料をユーザーに供給する。世界でも有数の生産性を持つ工場をつくるという考え方がここにあるのだと思いました。

2つ目は「アメリカ人は失敗を失敗と考えない」ということです。TAAでは米国での自動車軽量化の流れを受けて、自動車用アルミニウム板材の製造を立ち上げています。私はOJTとして自動車材の表面品質の改善に取り組んでいました。日本では大きな損失を防ぐために、ラボで入念に検証した後に工場の実機でトライ



Fig. 1 Logan Aluminum which is Al sheet production plant of TAA.

* 本稿の主要部分は、軽金属, 68-9 (2018), 510に掲載。

The main part of this paper has been published in the Journal of Japan Institute of Light Metals, 68-9 (2018), 510.

** (株)UACJ R&Dセンター 第一開発部

Development Department I, Research & Development Division, UACJ Corporation

を行うのが常です。そのためアメリカ人の上司にもその考えに沿った開発スケジュールを報告しました。すると「Youの計画はアメリカでは遅すぎる。ラボの検証結果を待つのではなく、実機でトライする計画をどんどん考えろ」と2時間ほど指導を受けました。当時これには驚きましたが、考えてみると理にかなっています。アメリカ人は失敗を失敗とせず、「失敗によって貴重な情報が得られる」と考えます。ラボでの現象はあくまでシミュレーションであって、実機で何が起こるかを検証するには実機でトライすることが一番です。そのため、同じ失敗するのであれば、より早く失敗し、得られたフィードバックをいち早く次のトライに反映させる。アメリカでの意思決定のスピードはとても早く、日本の感覚だと「そんなに大きな変更をこんな短期間に行うのか」ということを頻繁に行います。その根本には失敗を肯定的にとらえる風土があるのだと思いました。

誤解がないように書くと、アメリカ人が全く事前検討なしに何もかもトライする訳ではなく、持ちうる情報から可能な限り検討して、より迅速に決断を下すということです。こういった風土は技術者としてとても

有難く、より広い発想で大胆なチャレンジをすることが出来ると思います。こういった考えを学んだとき、これまで日本にいて思っていた常識が、常識ではないと実感できました。それと同時に日本の良さを感じることもできました。よく「視野が広がる」と言いますが、正にそのような感覚でした。自分の根が日本人であることに変わりませんし（性格までは変わりませんでした）、日本には日本に適したやり方があると思います。ただより広い考えを受け入れ、違った視点で考えること、これは海外赴任によって得られた最も大きな財産だと思います。海外に出ることに一歩踏み出せないでいる方には、ぜひ思い切って異なる環境に飛び込んで欲しいと思います。



工藤 智行 (Tomoyuki Kudo)
(株)UACJ R&Dセンター 第一開発部



UACJ (Thailand) Co., Ltd.への赴任経験から*

山本 大**

My Working Experience in UACJ (Thailand) Co., Ltd.*

Dai Yamamoto**

2015年秋、UACJ (Thailand) Co., Ltd. (以降、ラヨン製造所と省略)で本格的に熱間圧延ラインが立ち上がったのに伴い、自動車熱交換器用材料のタイ一貫生産立ち上げのためタイに赴任した。これまでタイはおろか東南アジアに旅行した経験すらなく、井の中の蛙であった私は、タイに対して古めかしいイメージしかなく、日本の田園風景のような風景が広がっているものと考えていた。しかし、実際に訪れたバンコクには、東京と遜色ないほどの数々の摩天楼がそびえたっており、数多くの日本車 (しかも新車) が渋滞をなし、人々は最新のスマートフォンでSNSに興じるなど、極めて現代的な都市であることに少し驚きを隠せなかった。また、高速道路を走れば随所に日本企業 (主に自動車やエアコン関係) の看板が見受けられ、街中の至る所で日本語を見かけ、日本文化が広く受け入れられている印象を感じた。

一方で、ラヨン製造所の存在するアマタシティ工業団地は、バンコクから南東に200 km程離れた、チョンブリ県とラヨン県の境界付近の自然豊かな場所にある。高速道路は舗装されているものの、一般道ではまだ舗装されていない凸凹道もあり、果物園や野菜畑の広がるローカルな地域である。ここには、主に東北地方出身の労働者が多く、ラヨン製造所も然りである。大卒以上のエンジニアについてはタイ全土から集まっており、その点は日本と変わらないように感じた。大卒人口は多いものの、大学院まで修了する人は日本ほど多くないようである。

海外で働く際には、お互いの文化に違いがあることを認識し、理解して受け入れることが重要であると思う。私自身、約2年間タイで働いた中で、当初は思い通りにいかず悩む機会も多かった。言語が違うのはもちろんのこと、仕事に対する考え方や思想 (タイは熱心



Fig. 1 Group photo with my colleagues in UATH.

* 本稿の主要部は、軽金属, 68-9 (2018), 513に掲載。

The main part of this paper has been published in the Journal of The Japan Institute of Light Metal, 68-9 (2018), 513.

** (株)UACJ R&Dセンター 第四開発部 博士 (工学)

No.4 Development Department, Research & Development Division, UACJ Corporation, Ph.D.

な仏教国), 料理のスタイルなど, 違いを挙げればきりが無い。日本人は仕事のし過ぎだとはよく聞かすが, 逆にタイ人はオン/オフの切替がしっかりしており, 定時過ぎて周囲を見渡すと残るのは日本人ばかり, という状況に苦笑いしたことが懐かしい。アドバイザーという立場で赴任したが, 日本風の考え方をただ押し付けるのはよくなく, 現地の文化になじむようにうまく橋渡しすることが赴任者の役割であると感じた。

教育という観点で言えば, 教科書などの教育ソースが不足しているように感じた。タイ人エンジニアの話では, 大学の理数系科目はほぼ英語の教科書をベースに, 英語あるいはタイ語で講義が行われているようである。そのため, 英会話の能力については日本人と比較しても優れており, 日常会話には支障ないレベルと言える。一方で, 日本と比べると街中に書店が少なく, 学術的な専門書については(もちろん探せばあると思われるが)小職が行動する範囲内においては見かけなかった。タイ語で書かれた専門書がもっと普及してほしいと感じた(外国語で書かれた教科書が読みにくいのは小

職だけではないと思う)。街中にそういった専門書が見受けられない分, 教育には飢えているように感じた。例えば, 課内で週に1度勉強会を開催していたが, タイ人エンジニアは積極的に参加して知識を吸収しようとする姿勢が強く見受けられた。

タイは微笑みの国と言われるが, 個人的にはまさにその通りだと思った。彼らは人懐っこく, 先輩から後輩への指導も非常に面倒見が良く感じた。ラヨン製造所はまだ設立から5年の若い会社であるが, UACJグループの主力工場としての期待が非常に大きい。一人の材料技術者としても今後もラヨン製造所を通し, タイの発展に貢献していきたい。



山本 大 (Dai Yamamoto)
(株)UACJ R&Dセンター 第四開発部 博士(工学)



Al-Mg合金の均一変形増大の謎?*

内田 秀俊**

Why Does the Uniform Strain of Tensile Test Increase with Mg Content in Al-Mg Alloys?*

Hidetoshi Uchida**

アルミニウム合金の成形性を改善するにあたり、引張試験の伸びとその応力挙動について検討していた。

Al-Mg合金はマグネシウム添加量に従い強度が増加するが、伸びは2~3%のマグネシウム添加量で最小値を取り、その後添加量とともに増加することが知られていた。ただしその理由は明確になっておらず、その原因を検討した。そのために純アルミニウムおよび各種マグネシウム量を含む試験片について、一定量の引張変形を与えて転位組織を観察すると、同じひずみ量でも **Fig. 1** に示すようにマグネシウム添加量によって転位セル組織の形成が大きく異なることが分かった。純アルミニウムはひずみ量によらずほぼ同じサイズのセル組織が形成されており、変形によるひずみ導

入と転位セル形成によるひずみ緩和がバランスして高い伸びを示すと考えられた。一方Al-Mg合金は、マグネシウム添加量に伴い転位セルサイズが小さくなる。マグネシウムの添加によってこれほど転位組織が異なるのか!と驚いたことを記憶している。ただし、Al-Mg合金の転位セル組織は純アルミニウムとは異なり、転位セルがある程度形成された後に、さらにひずみを加えるとバンド状転位組織(マイクロバンド)が形成されるようになる。このマイクロバンドが形成されると加工硬化能が低下し不均一変形の原因となり、さらにせん断帯形成となり引張破断すると考えた。Al-2~3% Mg合金は、マイクロバンドが形成されやすいため伸びが低下すると考えられた。当時、引張試験のn値は一

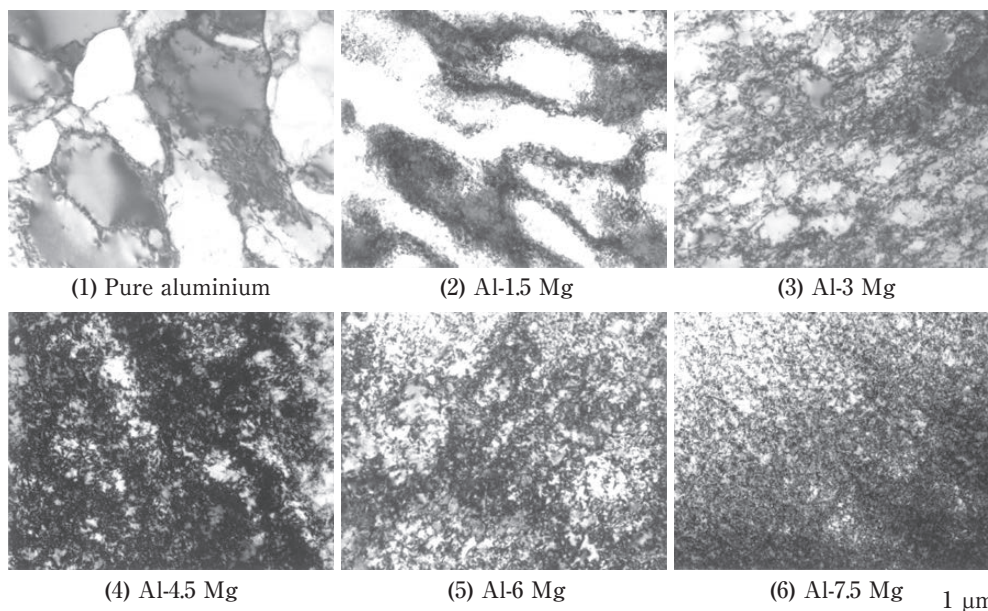


Fig. 1 TEM Microstructures of 15% stretched pure aluminum and Al-Mg alloys.

* 本稿は、軽金属, **66** (2016), 44の「私の一枚」シリーズに掲載されたものを改訂。
Revision of "My one shot" series of Journal of The Japan Institute of Light Metals, **66** (2016), 44.

** (株)UACJ R&Dセンター 第二開発部
Development Department II, Research & Development Division, UACJ Corporation

定値をとると考えられていたが、実際に計算してみるとひずみ量により値がかなり変化することが分かった。この引張変形中の n 値の変化からも転位組織の挙動が説明でき、マクロ的な引張試験データとミクロ的なTEM観察結果に相関がある考察ができたと考えている¹⁾。つまり動的回復を抑制することで加工硬化能が維持でき均一変形が増大することにより伸びの向上が図れると考えられる。

引張試験は手軽にできる試験であり、この結果からある程度の転位組織の変化が推察できることは非常に面白いと感じた。この手法を用いて6000系合金の延性に関する研究にも応用して多くの材料において変形による転位組織を調査し、引張試験における伸び値との関係をまとめることができた²⁾。具体的には、過剰Si

の増加やCu添加によりマイクロバンドの形成が抑制されることを転位組織で確認し、引張試験の n 値の変化でもこの組織変化が推定できることを検証している。

参考文献

- 1) 内田秀俊, 吉田英雄: 軽金属, **45** (1995), 193-197.
- 2) 内田秀俊, 吉田英雄: 軽金属, **58** (2008), 290-294.



内田 秀俊 (Hidetoshi Uchida)
(株)UACJ R&Dセンター 第二開発部


 公表資料一覧

2018年1月から2018年12月までに公表した資料

Papers, Reviews and Proceedings Published from Jan. 2018 to Dec. 2018

■ 論文

No.	題 目	著 者	掲載誌
1	Al-Si系合金単層材を用いたろう付の接合性および耐変形性に及ぼすケイ素量の影響	黒崎友仁, 村瀬 崇, 寺山和子, 石 雅和, 戸次洋一郎, 二宮淳司, 新倉昭男	軽金属, 68 (2018), 125-132.
2	Innovative Dot Codes on Press Through Packages (PTP) for Visually Impaired Patients	(Yokohama University of Pharmacy) Mikio Murata, Masaho Hayashi, Kiyoshi Kubota, Masahiro Sumi and Kiyomi Sadamoto (UACJ) Hiroshi Nishio	The Pharma Innovation Journal, 7 (2018), 665-668.
3	Al-Cu-Mg系合金の時効挙動に及ぼす銅, マグネシウム添加量と焼入れ速度の影響	鈴木太一, 八太秀周, 吉田英雄	軽金属, 68 (2018), 333-338.
4	Al-Mg-Si系合金の集合組織形成に及ぼす圧延と熱処理の影響	日比野 旭, 黒崎友仁	軽金属, 68 (2018), 555-557.
5	Cu-P合金の疲労特性に及ぼすりん濃度の影響	(室蘭工大) 安藤哲也, 加藤暁生, 榎本峻汰 (UACJ) 河野浩三 (UACJ銅管) 玉川博一	銅と銅合金, 57 (2018), 282-285.

■ 解説 (コラム等含む)

No.	題 目	著 者	掲載誌
1	視認できないコードを印刷した包装材料「Ai-PAC II」の開発	(UACJ) 西尾 宏, 北田有希絵 (UACJ製箔) 田中 徹, 小池明宏 (シンク・ラボラトリー) 重田龍男	アルミニウム, 25-101 (2018), 3-5.
2	第1回研究交流会, 第33回若手の会, 若手育成のための合同会合	中西英貴	軽金属, 68 (2018), 55.
3	技術教育創造の世界第20回「エネルギー利用」技術作品コンテスト表彰	村松俊樹	軽金属, 68 (2018), 115.
4	潤滑プレコートアルミニウム材	小澤武廣, 上田 薫	プレス技術, 56-2 (2018), 49-52.
5	蟻の巣状腐食に対する耐食性に優れた銅管“DANT®”の開発	(UACJ) 京 良彦, 河野浩三, 鈴木忍, 金森康二, 大谷良行 (UACJ銅管) 玉川博一	まてりあ, 57-3 (2018), 114-116.
6	アルミニウムのトライボロジー研究部会	鈴木 忍	軽金属, 68 (2018), 240-241.
7	アルミニウム単層材を用いた新ろう付技術の開発	黒崎友仁	溶接技術, 66-6 (2018), 47-50.
8	(株)UACJの高機能アルミニウム材料開発と将来展望	渋谷和久	京都大学水曜会誌, 25-1 (2018), 3-13.
9	軽金属学会 年間レビュー (溶接・接合)	(UACJ) 近野佑太郎 (東北大学) 藤井啓道	軽金属, 68 (2018), 435-437.
10	親水性および排水性に優れたプレコートフィン材の開発	(UACJ) 荻原加奈, 藤村涼子, 笹崎幹根 (関西ペイント) 荻田康成 (UACJトレーディング) 清水洋二	アルミニウム, 25-103 (2018), 5-8.
11	アルミニウム接合技術ロードマップ	「軽金属溶接協会 技術調整委員会 ロードマップ作製ワーキンググループ」 (大阪大学) 小椋 智, (日本大学) 前田将克, 渡邊満洋, (三菱アルミ) 江戸正和, (神戸製鋼) 海読一正, (UACJ) 加藤 治, (太陽日酸) 亀井俊和, (IHI) 真崎邦崇, (日軽金) 吉田 諒	軽金属溶接, 56 (2018), 395-430.
12	米国 TRI-ARROWS ALUMINUM 赴任で大胆なアプローチを学ぶ	工藤智行	軽金属, 68 (2018), 510.
13	UACJ (Thailand) Co., Ltd. への赴任経験から	山本 大	軽金属, 68 (2018), 513.

■ 学会・協会の講演大会での口頭・ポスター発表

No.	題目	発表者	講演大会・掲載要旨集
1	Nitridation Reaction of Aluminum and Magnesium in 5XXX Series Aluminum Alloy	Yu Matsui, Masaru Morobayashi, Hirohisa Shiomi, Koichi Takahashi	Light Metals 2018, TMS 147th Annual Meeting & Exhibition, (2018), 885-893.
2	透過電子顕微鏡内簡易電場観察法の高分解能化Ⅲ	(UACJ) 佐々木勝寛 (古河電工) 佐々木宏和 (名古屋大学) 五十嵐信行, 丹司敬義	日本金属学会 2018年春期(第162回)講演大会概要集, (2018), No.128.
3	1000系アルミニウム合金の機械的特性に及ぼす微量元素の影響	(東京大学) 原 聡宏, 江草大佑, 阿部英司 (UACJ) 田中宏樹, 三原麻未	日本金属学会 2018年春期(第162回)講演大会概要集, (2018), No.359.
4	進歩賞記念講演 アルミニウム合金の局部腐食に関する電気化学的研究	大谷良行	材料と環境2018, (2018).
5	マイクロ電気化学システムによるAl-Fe合金の孔食発生挙動のin situ観察と溶解挙動に与える晶出物組成の影響	(東北大学) 柿沼 洋, 武藤 泉, 菅原 優, 原 信義 (UACJ) 大谷良行, 京 良彦	材料と環境2018 講演集, (2018), 17-18.
6	連続ねじり加工を利用した高強度材料の開発	菅野能昌, 宇田川智史	軽金属学会 第134回春期大会講演概要, (2018), 49-50.
7	移動磁界攪拌の交番印加による結晶粒微細化効果	皆川晃広, 高橋功一	軽金属学会 第134回春期大会講演概要, (2018), 71-72.
8	マクロ電気化学システムによるAl-Fe合金の溶解挙動のin situ観察	(東北大学) 柿沼 洋, 武藤 泉, 菅原 優, 原 信義 (UACJ) 大谷良行, 京 良彦	軽金属学会 第134回春期大会講演概要, (2018), 127-128.
9	フラックスフリーろう付のろう付性におよぼすマグネシウム添加とろう付雰囲気の影響	鈴木太一, 山吉知樹, 柳川 裕, 山下尚希	軽金属学会 第134回春期大会講演概要, (2018), 167-168.
10	ろう付用Al-Si系単層材における接合性及び耐変形性に対するマンガン量及びろう付条件の影響	黒崎友仁, 村瀬 崇, 寺山和子, 戸次洋一郎, 二宮淳司, 新倉昭男	軽金属学会 第134回春期大会講演概要, (2018), 169-170.
11	A5182アルミニウム合金板における2次再結晶時の優先方位成長に及ぼす粒界性格の影響	山本裕介, 浅野峰生	軽金属学会 第134回春期大会講演概要, (2018), 209-210.
12	1000系アルミニウム合金の機械的特性に及ぼす微量元素の影響	(東京大学) 原 聡宏, 江草大佑, 阿部英司 (UACJ) 田中宏樹, 三原麻未	軽金属学会 第134回春期大会講演概要, (2018), 199-200.
13	pH Dependence on the Influence of Acids on the Pitting Potential of Aluminum in Chloride Solution	Yoshiyuki Oya, Yoichi Kojima	8th Aluminium Surface Science and Technology Symposium (ASST 2018), Abstract 86.
14	Effect of the Film Structure for Whitening Using New Electrolyte	Junji Nunomura, Yoichi Kojima	8th Aluminium Surface Science and Technology Symposium (ASST 2018), Abstract 129.
15	Porous Anodic Oxide Film on Aluminum Using A.C. Anodization Process in Alkaline Solution for Enhanced Adhesion	Yoshihiko Kyo, Hironori Watanabe, Yoichi Kojima	8th Aluminium Surface Science and Technology Symposium (ASST 2018), Abstract 130.
16	電子線ホログラフィーと影像歪法によるGaAs中Pn接合電位分布観察	(UACJ) 佐々木勝寛, 斉藤聡平 (古河電工) 佐々木宏和	日本顕微鏡学会 第74回学術講演会, (2018), 2pB-I4-11.
17	Al-Si系合金単層材を用いた新ろう付方法	黒崎友仁, 村瀬 崇, 寺山和子, 石 雅和, 戸次洋一郎, 二宮淳司, 新倉昭男	2018年度 軽金属溶接協会 年次講演大会 講演概要集, (2018), No.7.
18	Orientation-preferential Growth during Secondary Recrystallization in AA5182 Sheet	Yusuke Yamamoto, Mineo Asano	Proceedings of the 16th International Aluminum Alloys Conference (ICAA16), (2018), 400413.
19	Effect of Copper and Magnesium Contents and Quenching Rate on Age Hardening Behavior of 2000 Series Aluminum Alloys	T. Suzuki, H. Hatta, Y. Yoshida	Proceedings of the 16th International Aluminum Alloys Conference (ICAA16), (2018), 401526.
20	Investigation of Innovative Dot Code with Press Through Package (PTP) for Visually Impaired Patients	(Yokohama University of Pharmacy) Mikio Murata, Masaho Hayashi, Kiyoshi Kubota, Kiyomi Sadamoto (UACJ) Hiroshi Nishio	The 21th IAPRI World Conference on Packaging, iapri2018, (2018) DOI:10.12783/iapri2018/24392.
21	視認できないコードを施した包装材料の開発(第4報)	(UACJ) 西尾 宏 (シンク・ラボラトリー) 重田 核, 高橋栄治, 村田智子	第27回日本包装学会年次大会 研究発表会予稿集, (2018), 20-21.
22	Differential Potential Distribution Observation in Transmission Electron Microscope with Conventional Thermal Electron Gun	(UACJ) Katsuhiko Sasaki, Sohei Saito (Furukawa Electric) Hirokazu Sasaki	Proceedings of Microscopy & Microanalysis 2018, Microsc. Microanal. 24 (Suppl 1) (2018), 26-27.
23	空調用熱交換器のプレコートアルミニウムフィンの開発 - 高機能化への取り組み事例 -	八重樫起郭, 笹崎幹根	2018年度日本冷凍空調学会 年次大会, (2018), A141.
24	オールアルミ熱交換器の伝熱性能に対する腐食形態の影響	塩見幸平, 井神 浩, 外山智章, 深田紗代	2018年度日本冷凍空調学会 年次大会 (2018), A143.

No.	題 目	発表者	講演大会・掲載要旨集
25	Observation GaAs p-n Junction Using Electron Holography, Electron Diffraction Microscopy, Differential Phase Contrast STEM and Shadow Image Distortion Method	(Furukawa Electric) Hirokazu Sasaki (UACJ) Katsuhiko Sasaki (JFCC) Satoshi Anada, Ikuo Yamamoto, Tsukasa Hirayama (Osaka Univ.) Jun Yamazaki (Tokyo Univ.) Naoya Shibata	Proceedings of 19th International Microscopy Congress (2018), 1144.
26	密閉構造を有するAl合金のろう付性と雰囲気酸素分圧の関係(ポスター発表)	(千葉工大) 長島充宏, 松本卓也, 篠田智之, 小澤俊平 (UACJ) 柳川 裕, 鈴木太一	溶接学会 平成30年度秋季全国大会(ポスター発表), (2018).
27	混酸電解液を用いた白色アノード酸化皮膜における皮膜構造の影響	布村順司, 児島洋一	表面技術協会 第138回講演大会 講演概要集, (2018), 14E-15.
28	Visualization of Metal Flow and Adhering of Aluminum Alloy in Three-layer Clad Rolling	(UACJ) Gaku Torikai, Mineo Asano, Akio Niikura (Gifu University) Yoshinori Yoshida	17th International Conference on Metal Forming, Metal Forming 2018, Procedia Manufacturing, 15 (2018), 144-151.
29	Cu-Ni-P合金の時効特性に及ぼす低温時効の影響	(UACJ) Gaku Torikai, Mineo Asano, Akio Niikura (Gifu University) Yoshinori Yoshida	日本金属学会2018 秋期(第163回)講演大会概要集, (2018), No.69.
30	透過電子顕微鏡によるAl-Al金属間化合物間の界面電位観察	(UACJ) 佐々木勝寛, 京 良彦, 富野麻衣, 大谷良行 (古河電工) 佐々木宏和	日本金属学会2018 秋期(第163回)講演大会概要集, (2018), No.233.
31	Al合金のろう付継手のフィレット形成におよぼす酸素分圧の影響	(千葉工大) 長島充宏, 松本卓也, 篠田智之, 小澤俊平 (UACJ) 柳川 裕, 鈴木太一	日本金属学会2018 秋期(第163回)講演大会概要集, (2018), No.376.
32	技術開発賞受賞講演 蟻の巣状腐食に対する耐食性に優れた銅管“DANT®”の開発	(UACJ) 京 良彦, 河野浩三, 鈴木 忍, 金森康二, 大谷良行 (UACJ銅管) 玉川博一	日本金属学会2018 秋期(第163回)講演大会概要集, (2018), No.223.
33	Direct Chill Casting with Reversing Rotational Electromagnetic Field	(Kagawa College) S. Shimazaki (UACJ) A. Minagawa	9th International Symposium on Electromagnetic Processing of Materials (EPM2018), Materials Science and Engineering, 424 (2018) 012055.
34	In Situ Microscopic Observation of Pitting Corrosion Behavior of Al1050-O	(Tohoku University) H. Kakinuma, I. Muto, Y. Sugawara, N. Hara (UACJ) Y. Oya, Y. Kyo	ECS and SEMQ joint International Meeting, (AIMES 2018), Abst.579.
35	Cu-0.93mass%Ni-0.24mass%P 薄肉間の時効特性	(室蘭工大) 稲垣 達, 安藤哲也 (UACJ銅管) 玉川博一 (UACJ) 河野浩三	日本銅学会 第58回講演大会 講演概要集, (2018), 67-68.
36	リン含有量の異なる銅管の有機酸溶液中における腐食挙動	(室蘭工大) 境 昌宏, 橋 裕之 (UACJ) 京 良彦, 河野浩三, 鈴木 忍	日本銅学会 第58回講演大会 講演概要集, (2018), 139-140.
37	Effect of Acids on Corrosion Behavior of Aluminum in Chloride Solution	Yoshiyuki Oya	18th Asian Pacific Corrosion Control Conference, (2018), Abst.62.
38	Effect of the SO ₄ ²⁻ and NO ₃ ⁻ on the Corrosion Behavior of 3xxx Alloy in Anion Coexistence Environment	Takuya Murata, Yoshiyuki Oya, Takahiro Koyama, Yoichi Kojima	18th Asian Pacific Corrosion Control Conference, (2018), Abst.65.
39	透過電子顕微鏡によるAl/Al金属化合物界面接触電位差測定を試み	(UACJ) 佐々木勝寛, 京 良彦, 富野麻衣, 大谷良行 (古河電工) 佐々木宏和	軽金属学会 第135回秋期大会講演概要, (2018), 255-256.
40	親水性および排水性に優れたプレコートフィン材の開発	(UACJ) 荻原加奈, 藤村涼子, 笹崎幹根 (関西ペイント) 芦田康成 (UACJトレーディング) 清水洋二	軽金属学会 第135回秋期大会, (2018), 企業招待講演.
41	1000系アルミニウム合金箔の機械的特性に及ぼす微細組織の影響	(東京大学) 原 聡宏, 江草大佑, 阿部英司 (UACJ) 三原麻未, 田中宏樹	軽金属学会 第135回秋期大会講演概要, (2018), 29-30.
42	冷間圧延がAl-3Mg-1Cu合金の時効硬化挙動に及ぼす影響	(東工大) 陳 宣良, 小林郁夫 (UACJ) 三原麻未	軽金属学会 第135回秋期大会講演概要, (2018), 45-46.
43	二軸応力下における6000系アルミニウム合金板の高精度材料モデリング	(東京農工大) 小笠原 柚, 桑原利彦 (UACJ) 竹田博貴	軽金属学会 第135回秋期大会講演概要, (2018), 177-178.
44	3104アルミニウム合金冷間圧延板の深絞り・しごき成形による変形集合組織の発達	小林亮平, 工藤智行, 岡田峰光	軽金属学会 第135回秋期大会講演概要, (2018), 187-188.
45	第10回軽金属女性未来賞 受賞講演 アルミニウムの表面分析における測定精度と迅速性の最適化	富野麻衣	軽金属学会 第135回秋期大会講演概要, (2018), 223-224.
46	アルミ合金スラブ鋳造における初期鋳塊反り挙動	三瓶祐子, 久保貴司, 高橋功一	軽金属学会 第135回秋期大会講演概要, (2018), 249-250.
47	ろう付用Al-Si系合金材を用いたポーラスアルミニウムの接合における気孔構造変化	(UACJ) 黒崎友仁, 田中宏樹, 箕田 正 (名古屋大学) 小橋 眞, 高田尚記, 鈴木飛鳥	軽金属学会 第135回秋期大会講演概要, (2018), 269-270.
48	Al-Mg-Si合金の集合組織形成に及ぼす加工と熱処理の影響	三原麻未, 黒崎友仁, 日比野 旭	軽金属学会 第135回秋期大会講演概要, (2018), 319-320.

■ その他(シンポジウム・研究会・講習会での講演, 書籍など)

No.	題 目	講演者・著者	講演会・他
1	自動車へのアルミニウム適用の現状と展望	渋江和久	リードエグジビション ジャパン 軽量化革新フォーラム2018, (2018).
2	アルミニウム材新製造プロセス	布村順司	新構造材料技術研究組合 (ISMA) 革新的新構造材料等研究開発 平成29年度成果報告会, (2018).
3	自動車用アルミニウム材料(展伸材・板)	山本裕介	日本アルミニウム協会 自動車アルミ化委員会 自動車のアルミ化技術講習会, (2018).
4	自動車用アルミニウム材料の表面処理	大谷良行	日本アルミニウム協会 自動車アルミ化委員会 自動車のアルミ化技術講習会, (2018).
5	銅管の蟻の巣状腐食に及ぼすリン含有量の影響	(室蘭工大) 橘 裕之, 境 昌宏 (UACJ) 京 良彦	機械学会北海道支部 卒業研究講演会, (2018).
6	アルミニウム合金板の塑性加工特性	野口 修	JSOL 塑性加工セミナー 2018, (2018).
7	実用アルミニウム合金の組織と機能的特性	戸次洋一郎	軽金属学会 第34回軽金属セミナー, (2018).
8	自動車部品についての技術動向	水越秀雄	リードエグジビション ジャパン 第5回関西高機能金属展 専門技術セミナー, (2018).
9	(株)UACJの高機能アルミニウム材料開発と将来展望	渋江和久	京都大学水曜会大会, 京都大学水曜会誌, 25-1 (2018), 3-13.
10	アニオン共存環境における3000系合金の腐食挙動に及ぼす SO_4^{2-} と NO_3^- の影響	村田拓哉, 大谷良行, 小山高弘, 兒島洋一	日本アルミニウム協会耐食性評価試験委員会平成30年度耐食性研究発表交流会 概要集, (2018).
11	自動車技術動向から見た熱交換器	勘坂隆司	日本アルミニウム協会 NEDOエネ環新技術先端研究-エネルギー損失削減のための熱交換・熱制御技術-, (2018).
12	自動車へのアルミニウム適用の現状と展望	戸次洋一郎	自動車技術会 人とくるまのテクノロジー展 2018名古屋, (2018).
13	電解コンデンサ用アルミニウム箔の組織制御およびエッチング挙動	林 知宏	軽金属学会 九州支部例会, (2018).
14	アルミニウム合金の半連続製造技術	高橋功一	東北大学 第44回的回場記念川渡セミナー, (2018).
15	各種アルミニウム合金とその特徴	菅野能昌	軽金属学会東海支部 若手研究者・技術者ための軽金属基礎講習会, (2018).
16	6000系合金の集合組織に及ぼす熱処理の影響	三原麻未, 黒崎友仁, 日比野 旭	軽金属学会 第6回アルミニウムの再結晶集合組織形成モデル化研究部会, (2018).
17	自動車ボディ用アルミニウム材料の開発経緯と最新状況	戸次洋一郎	リードエグジビション ジャパン 軽量化革新フォーラム2018 クルマの軽量化技術展, (2018).
18	アルミニウムの接合技術	福田敏彦	大阪府工業協会 金属材料基礎講座「アルミニウムの基礎と活用」, (2018).
19	混酸電解液を用いたアルミニウムの白色アノード酸化	布村順司, 兒島洋一	表面技術協会 ARS研究会 第35回ARS浜名湖コンファレンス, (2018).
20	アルミニウム合金板の塑性加工特性	野口 修	日本塑性加工学会 第232回塑性加工技術セミナー, (2018).
21	身近にあふれるアルミニウム製品の話 at 女性の目	上田 薫	なごや環境大学教育講座 ごきそテクノカフェ, (2018).
22	BtoB企業での研究開発とプライベート	上田 薫	名古屋工業会 名工大OB/OGセミナー, (2018).
23	自動車へのアルミニウム適用の現状と展望	新倉昭男	福岡県商工部自動車産業振興室 北部九州自動車産業アジア先進拠点推進会議 軽量化研究会, (2018).
24	Aluminum Can and Its Rolled Metal for Sustainable Future	Hiroyuki Mizutani	Reed Tradex, Metalex 2018, The 7th Metallurgy Forum, (2018).
25	皮膜構造の制御によるアルミニウムアノード酸化皮膜の白色化	布村順司, 兒島洋一	表面技術協会中部支部 平成30年度 表面技術若手研究者・技術者研究発表会 要旨集, (2018).
26	UACJ の機能性アルミニウムと製品開発	渋江和久	リードエグジビション・ジャパン 第5回高機能金属展基調講演, (2018).
27	製品技術-車両、航空機、建材、電子部品など-	日比野 旭	日本アルミニウム協会 富山大学 特別出張講座, (2018).

No.	題 目	講演者・著者	講演会・他
28	輸送機材用アルミニウム開発経緯と最新動向	戸次洋一郎	大阪大学工学研究科マテリアル生産科学専攻特別出張講座, (2018).
29	アルミニウムの表面処理技術	竹田委千央	大阪府工業協会 金属材料講座「アルミニウム」, (2018).
30	アルミニウムの接合技術	福田敏彦	大阪府工業協会 金属材料講座「アルミニウム」, (2018).
31	非鉄金属材料の腐食と防食技術	小山高弘	日立製作所 総合教育センター日立総合技術研究所 出張講座, (2018).
32	アルミニウム合金の諸特性とその成形事例	竹田博貴	日本塑性加工学会 第156回塑性加工工学講座, (2018).
33	接合(溶接)	伊藤清文	アルミニウム建築構造協議会 第20回アルミニウム建築構造物製作管理技術者のための講習会, (2018).
34	アルミニウム材料	日比野 旭	名古屋市工業研究所 中小企業技術者教育研修「金属材料技術」, (2018).
35	アルミニウムの腐食と防食技術	京 良彦	日本アルミニウム協会 「アルミニウム・夏の学校」(関西・関東), (2018).
36	アルミニウムの薄板成形	野口 修	軽金属学会 平成30年度軽金属基礎技術講座, (2018).
37	アルミニウムの圧延	堂前行宏	軽金属学会 平成30年度軽金属基礎技術講座, (2018).
38	アルミニウムの表面処理技術	竹田委千央	大阪府工業協会 金属材料講座「アルミニウム」, (2018).
39	アルミニウム合金の製造技術/熱処理	中西英貴	日本アルミニウム協会 富山大学 特別出張講座, (2018).
40	輸送機材用アルミニウム材料の開発経緯と最新動向	戸次洋一郎	名古屋工業大学 大学院工学研究科 特別出張講座, (2018).
41	自動車用アルミニウム材料(展伸材・板)	竹田博貴	日本アルミニウム協会 自動車アルミ化委員会 平成30年度自動車のアルミ化技術講習会, (2018).
42	自動車用アルミニウム材料の表面処理	京 良彦	日本アルミニウム協会 自動車アルミ化委員会 平成30年度自動車のアルミ化技術講習会, (2018).
43	アルミニウム合金の自動車用アルミニウム材料の成形・表面処理・接合	中西英貴	日本アルミニウム協会 富山大学 特別出張講座, (2018).



～お客様と共に創る未来へ～
 ～To the future to Co-create with customers～

当社のコア技術を
 “見て、触れて、感じて”
 いただく

イノベーションルーム
 An innovation room where
 guests can see, touch, and
 feel our core technologies.

R&Dセンターに、イノベーションエリア 『U-AI Lab.』をオープンしました。

We opened the Innovation Area "U-AI Lab." at R & D Division.



当社は、UACJの技術と歴史をご理解いただき、共に新たなイノベーションを創出するエリアとして、R&Dセンター内に『U-AI Lab. (ユーアイラボ)』を新設しました。

私たちは、アルミニウムのもつ可能性を最大限に活かし、付加価値をもつ“ソリューション”として提供することで、お客様とともに未来を描きます。

We established the U-AI Lab. in our R&D Division as an area for guests to gain an understanding of UACJ's technologies and history and join us in co-creating new innovation. We will use the potential of aluminum to the maximum and provide solutions with added value to co-create the future with our customers.

開発の歴史を
 ご理解いただき、
 共に未来を想い描く

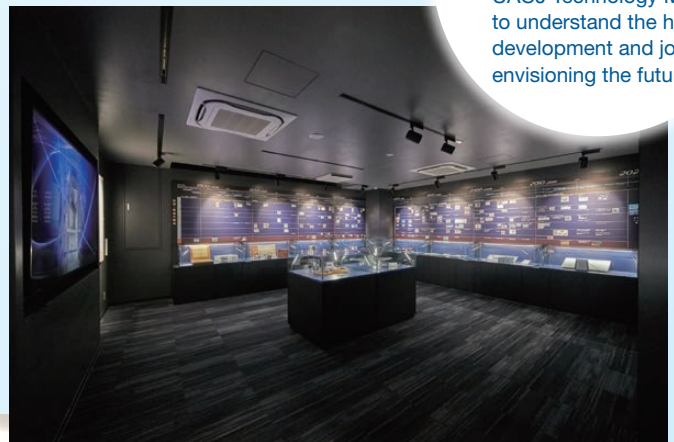
歴史・未来館

UACJ Technology Museum
 to understand the history of
 development and join us in
 envisioning the future.

お客様をお迎える
 広く開放的な

エントランス

A large, spacious
 entrance greets
 customers.



お客様の技術と
 当社の技術を融合し、共創する
ディスカッションルーム

A discussion room for
 integrating the technologies of
 our customers and our own
 technologies for co-creation.



「日本発のグローバルアルミニウムメジャーグループ」として、 世界市場で存在感を発揮してまいります。

板事業



缶材・クロージャー材



自動車用材料



航空・宇宙機材



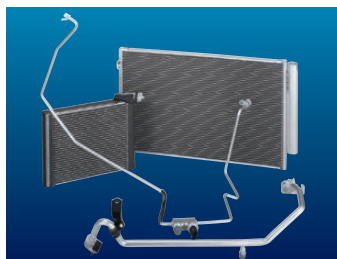
LNGタンク材

世界最大級の生産能力を活かして 高品質な板製品を供給

UACJの板事業は、世界最高水準の板厚制御技術や全長400 m、幅4.3 mにおよぶ世界最大級の大型圧延機など、世界でもトップクラスの生産能力を誇ります。これら高度な生産技術と長年にわたり培ってきた独自のノウハウを結集し、万全の品質保証体制のもと、幅広い産業分野に向けて、さまざまな用途・ニーズに最適な製品を供給しています。

- 缶材・クロージャー材
- 自動車用ボディシート材
- 航空・宇宙機材
- エアコン用フィン材
- 印刷板用材
- 自動車熱交換器材
- LNGタンク材
- IT関連材
- 液晶・半導体製造装置用厚板
- 建築用板

押出事業



自動車熱交換器材・配管材



二輪車フレーム材

業界をリードする総合的な技術力を活かして 幅広い分野のニーズに対応

製造、金型設計、さらには各種の成形加工において、各分野の技術者が、豊富な経験に裏付けられた技術力を活かし、高品質な押出製品や押出加工製品を生産。こうした総合力を活かして、自動車、産業機器、航空機、OA製品など、幅広い分野のニーズにお応えします。より高度な品質要求に対応すべく、国内外の生産拠点において、技術と品質のさらなる向上に努めています。

- 自動車熱交換器材・配管材
- 複写機用感光ドラム材
- 二輪車フレーム材
- 機械部品材

箔事業



リチウムイオン電池集電体用箔



医薬品・化学品用箔

リチウムイオン電池など電池分野をはじめ 先端ニーズに応える製品開発に注力

食料品や医薬品などの包装材から、家庭用ホイルなどの日用品、電解コンデンサや電池用の電極材料などの産業用途まで、さまざまな分野に高品質なアルミニウム箔や金属箔を提供しています。環境・エネルギー問題を背景に、燃料電池や蓄電池など電池関連分野のニーズが高まるなか、リチウムイオン電池用の集電体をはじめ、先端ニーズに応える箔製品を開発・供給しています。

- リチウムイオン電池集電体用箔
- コンデンサ箔
- 食品・包装用箔
- 建材用箔
- 医薬品・化学品用箔
- 日用品用箔

鍛造事業



ターボチャージャ用
コンプレッサホイール



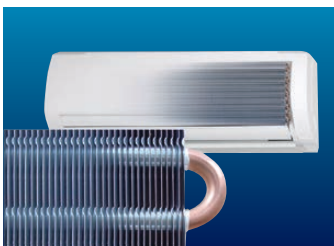
15,000 t大型鍛造プレス機

高度な技術力と生産体制を活かして 高い競争力を持った製品を実現

鋳物分野では、精密鋳造技術を活かした世界シェア1位のターボチャージャ用コンプレッサホイールをグローバルに供給。鍛造分野では、国内最大規模の鍛造プレス機を駆使して、大型鍛造品のニーズに応えています。

- ターボチャージャ用高精度コンプレッサホイール鋳物
- 航空・宇宙機材用鍛造品
- 鉄道車両用鍛造品
- 液晶製造装置用鍛造品

銅管事業



エアコン用内面溝付銅管



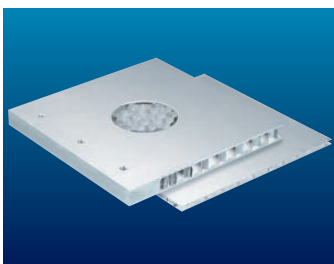
復水器用銅合金管
(コンデンサチューブ)

銅の優れた素材特性を活かして 幅広いニーズに応える銅管を提供

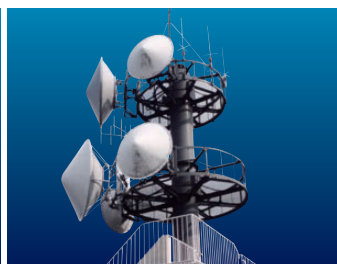
1世紀以上にわたる技術とノウハウの蓄積を活かして、高品質な銅管・銅合金管・チタン管および応用製品を、さまざまな形にしてお届けしています。熱伝導性や耐食性、加工性、抗菌性といった素材特性を活かして、エアコンなどの冷暖房設備向けをはじめ、給水・給湯配管、自動車や医療機器の配管、さらには電子機器冷却用のヒートパイプまで、多様な産業分野のニーズに応える製品を供給しています。

- エアコン用内面溝付銅管
- 給湯器用銅管
- 建築・冷媒用配管
- 各種熱交換器
- 復水器用銅合金管(コンデンサチューブ)
- 復水器用チタン管

加工品事業



ハニカムパネル



パラボラアンテナ

多彩な設備と技術を活かして あらゆる加工ニーズに対応

成形加工から接合加工、表面処理、塗装まで、あらゆる加工ニーズに対応できる設備と技術を有しています。多様なサイズ、形状、機能を持った加工品を生産し、幅広い産業分野のニーズに応えています。

- 構造製品
- 溶接加工製品
- 放熱・冷却製品
- 機能材製品

R&Dセンター

アルミニウムの豊富な知見を融合し、
新たなイノベーションの創出を目指します

アルミニウムの可能性を追求し、新たな価値を創出するため、UACJは、グループの研究開発拠点である「UACJ R&Dセンター」を軸に、お客様とともに次世代の製品や技術の開発を推進しています。



拠点一覧

本社	東京都千代田区大手町1丁目7番2号 東京サンケイビル	中部支社	愛知県名古屋市中区金山1丁目13番13号 金山ブレイス
名古屋製造所	愛知県名古屋港区千年3丁目1番12号	関西支社	大阪府大阪市北区中之島3丁目3番3号 中之島三井ビルディング
福井製造所	福井県坂井市三国町黒目21-1番地	九州支社	福岡県福岡市中央区天神1丁目1番1号 アクロス福岡
深谷製造所	埼玉県深谷市上野台1351番地	北海道支店	北海道札幌市中央区北三条西3丁目1番25号 NREG北三条ビル
日光製造所	栃木県日光市清滝桜ヶ丘町1番地		
R&Dセンター	愛知県名古屋港区千年3丁目1番12号		

国内グループ会社

板事業	株式会社UACJカラーアルミ 株式会社UACJ深谷サービス 株式会社UACJ名古屋アルパック 株式会社三泉 株式会社古河UACJメモリーディスク	銅管事業	株式会社UACJ銅管 株式会社UACJ銅管販売 東洋フィットテング株式会社 株式会社UACJ銅管パッケージ
押出事業	株式会社UACJ押出加工 株式会社UACJ押出加工小山 株式会社UACJ押出加工名古屋 株式会社UACJ押出加工群馬 株式会社UACJ押出加工滋賀 軽金属押出開発株式会社 日本クーラー株式会社	加工品事業	株式会社UACJ金属加工 株式会社ナルコ郡山
箔事業	株式会社UACJ製箔 株式会社日金 株式会社UACJ製箔産業 株式会社UACJ製箔サービス	その他	株式会社UACJトレーディング 泉メタル株式会社 鎌倉産業株式会社 株式会社UACJ Marketing & Processing 株式会社UACJアルミセンター 株式会社ACE21 株式会社メタルカット 株式会社UACJ物流 株式会社UACJグリーンネット
鋳鍛事業	株式会社UACJ鋳鍛 東日本鍛造株式会社		

海外グループ会社

板事業	UACJ (Thailand) Co., Ltd. (タイ) Tri-Arrows Aluminum Holding Inc. (米国) Tri-Arrows Aluminum Inc. (米国) Logan Aluminum Inc. (米国) Bridgnorth Aluminium Ltd. (英国) 乳源東陽光優艾希杰精箔有限公司 (中国) UPIA Co., Ltd. (韓国)	加工品事業	UACJ Metal Components North America, Inc. (米国) UACJ Metal Components Mexico, S.A. de C.V. (メキシコ) UACJ Metal Components Central Mexico, S.A. de C.V. (メキシコ) UACJ Metal Components (Thailand) Co., Ltd. (タイ) P. T. Yan Jin Indonesia (インドネシア) 日鋁全綜(無錫)鋁材加工有限公司 (中国)
押出事業	日鋁全綜(天津)精密鋁業有限公司 (中国) PT. UACJ-Indal Aluminum (インドネシア) UACJ Extrusion (Thailand) Co., Ltd. (タイ) UACJ Extrusion Czech s. r. o. (チェコ)	その他	UACJ Automotive Whitehall Industries, Inc. (米国) UACJ North America, Inc. (米国) 優艾希杰東陽光(上海)鋁材銷售有限公司 (中国) UACJ MH (Thailand) Co., Ltd. (タイ) 優艾希杰(上海)鋁材有限公司 (中国) UACJ ELVAL Consulting S.A. (ギリシャ) UACJ ELVAL HEAT EXCHANGER MATERIALS GmbH (ドイツ) UACJ Trading (Thailand) Co., Ltd. (タイ) 優艾希杰商(上海)貿易有限公司 (中国) 優艾希杰商(昆山)金属制品有限公司 (中国) 優艾希杰商(香港)貿易有限公司 (中国) 優艾希杰商(大連保稅区)貿易有限公司 (中国) UACJ Trading Czech s. r. o. (チェコ) UACJ Trading (America) Co., Ltd. (米国) UACJ Marketing & Processing America, Inc. (米国) UACJ Marketing & Processing Mexico, S.A. de C.V. (メキシコ) UACJ Australia Pty. Ltd. (豪州) Boyne Smelters Ltd. (豪州)
箔事業	UACJ Foil Malaysia Sdn. Bhd. (マレーシア)		
鋳鍛事業	UACJ Foundry & Forging (Vietnam) Co., Ltd. (ベトナム)		
銅管事業	UACJ Copper Tube (Malaysia) Sdn. Bhd. (マレーシア)		

編集後記

改元が決まり使い古された「平成最後」ですが、目まぐるしい流れの中で一旦立ち止まって振り返ることも、今後を考える上では意義あることと思います。当社にとっての平成は、やはり経営統合に集約され、今後の努力が極めて重要になっています。

当社グループの研究開発の中核を担うR&Dセンターでは、環境整備のため1号館のリニューアル工事が実施されました。諸事情により研究員が居住し業務を行いながらの工事となり、結果的に長期間にわたりました。工事は一段落し竣工式もつつがなく終えましたが、工事の調整に多大な労力を費やした関係各位に深く感謝するとともに、大幅な空間変更のため予想外の騒音と都度の引っ越しに耐えた全研究員の忍耐力も誇りましょう。

アルミハニカムパネルに覆われたR&Dセンター1号館は、同じ敷地内の名古屋製造所本館と統一された景観となりました。また共創をテーマに、お客様に開かれた展示ラボも設置されています。将来に向けたひとつの形として活用され、進化することが期待されます。

さてR&Dセンターが発行する本Technical Reports Vol.5は、前任者から編集を引き継ぎ何とか発刊にこぎつけました。今回は、R&Dセンターへの改名と1号館リニューアルを機に、当社グループの研究開発の方向性とグローバル市場への展開及びお客様との共創を踏まえた構成としました。解説付の巻頭言に加えて論文5編、技術解説3編、製品紹介3編、技術コラム6編とし、コラムでは吉田博士のアルミニウム技術史を連載しています。また、特集ではR&Dセンターの展示ラボを掲載しました。

本Technical Reportsの内容についてのご質問、ご意見、ご要望などがございましたら、ご遠慮なくお問合せ或いはお申し出ください。(tech-repo@ml.uacj.co.jp)

編集委員

UACJ Technical Reports, Vol.5, No.1 (2018)

(2019年3月発行)

禁無断転載

発行所	株式会社UACJ	Publisher Office	UACJ Corporation
	本社		Headquarters
	〒100-0004 東京都千代田区大手町1丁目7番2号		Tokyo Sankei Bldg., 1-7-2, Otemachi Chiyoda-ku, Tokyo 100-0004, Japan
	東京サンケイビル		TEL: +81-3-6202-2600 FAX: +81-3-6202-2021
	TEL: (03) 6202-2600 (代表) FAX: (03) 6202-2021		Research & Development Division
	R&Dセンター		Chitose 3-1-12, Minato-ku, Nagoya-shi, Aichi 455-8670, Japan
	〒455-8670 愛知県名古屋港区千歳3丁目1番12号		TEL: +81-52-651-2100 FAX: +81-52-651-8117
	TEL: 052-651-2100 (代表) FAX: 052-651-8117		E-mail: tech-repo@ml.uacj.co.jp
	E-mail: tech-repo@ml.uacj.co.jp		
発行人	渋谷 和久	Publisher	Kazuhiisa Shibue
編集	株式会社UACJ R&Dセンター	Editorial Board	Research & Development Division, UACJ Corporation
編集委員	委員長: 渡辺 良夫	Editor in Chief:	Yoshio Watanabe
	細見 和弘 兒島 洋一 水谷 博之 新倉 昭男	Technical Editor:	Yasuhiro Hosomi, Yoichi Kojima, Hiroyuki Mizutani, Akio Niikura, Takeyoshi Doko, Atsushi Hibino, Tetsuro Atsumi
	土公 武宜 日比野 淳 渥美 哲郎		
製作監修	株式会社UACJ 広報IR部 澤地 隆 江原 達広	Production Supervisor	Public and Investor Relations Department, UACJ Corporation
製作	古河テクノロジーサーチ株式会社		Ryu Sawachi, Tatsuhiro Ehara
印刷所	株式会社昭栄社印刷所	Production	Furukawa Research, Inc.
		Printing	Shoeshisa Printing Corporation

“UACJ”、UACJ は、日本、米国、中国および欧州連合商標 (EUTM) などにおける株式会社 UACJ の登録商標です。

“UACJ” and UACJ are registered trademarks of UACJ Corporation in the U.S.A., China, Japan, and other countries, and are also registered as EUTM (European Union Trade Marks).

株式会社UACJ

UACJ Corporation

本社

〒100-0004

東京都千代田区大手町1丁目7番2号 東京サンケイビル

TEL: (03) 6202-2600 (代表) FAX: (03) 6202-2021

Headquarters

Tokyo Sankei Bldg., 1-7-2 Otemachi

Chiyoda-ku, Tokyo 100-0004, Japan

TEL. +81-3-6202-2600 FAX. +81-3-6202-2021

<http://www.uacj.co.jp>