

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	タンデム式縦型高速双ロールキャスト法によるアルミニウム合金クラッド材の省工程製造プロセスの開発
Title(English)	
著者(和文)	中村亮司
Author(English)	Ryoji Nakamura
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9506号, 授与年月日:2014年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:熊井 真次,加藤 雅治,里 達雄,寺田 芳弘,曾根 正人
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9506号, Conferred date:2014/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Type(English)	Doctoral Thesis

# 目 次

## 第 1 章 緒論

1.1	アルミニウム合金クラッド材とその特性	1
1.2	一般的なアルミニウム合金クラッド材の製造方法	1
1.3	アルミニウム合金クラッド材製造における省工程化	2
1.3.1	ベルトキャスト法および横型双ロールキャスト法を利用した省工程化	2
1.3.2	DC 鑄造法を利用した省工程化	2
1.4	ロールキャスト法によるアルミニウム合金クラッド材の作製	3
1.5	本研究の目的および本論文の構成	3
	参考文献	5

## 第 2 章 タンデム式縦型高速双ロールキャストの考案と試作

2.1	緒言	13
2.2	クラッド材作製用ロールキャスト	13
2.2.1	単ロール法による 2 層クラッド材の作製方法	13
2.2.2	単ロール法による 3 層クラッド材の作製方法	14
2.2.3	横型双ロール法による 3 層クラッド材の作製方法	14
2.2.4	縦型高速双ロール法によるクラッド材の作製	15
2.3	タンデム式縦型高速双ロールキャストの試作	16
2.3.1	装置概要	16
2.3.2	ロール材質	16
2.3.3	ノズルプレートならびにサイドダムプレート	17
2.3.4	注湯方法	17
2.3.5	ロール荷重	17
2.4	試作装置による 3 層クラッド材の作製	18
2.4.1	ステンレス線による芯材先端の第 2 双ロールへの誘導	18
2.4.2	3 層クラッド材の作製手順	19

2.4.3 試作装置による 4045/3003/40453 層クラッド材の作製	19
2.5 小括	20
参考文献	20

### 第3章 クラッド材を構成するアルミニウム合金の種類と接合界面との関係

3.1 緒言	34
3.2 実験方法ならびに鑄造条件	34
3.2.1 製造プロセスおよび装置の概要	35
3.2.2 供試材	35
3.2.3 鑄造条件	36
3.3 実験結果および考察	36
3.3.1 芯材合金の液相線温度が皮材合金の液相線温度より高い場合：(1)の断面組織	36
3.3.2 芯材合金の液相線温度が皮材合金の液相線温度より低い場合：(2)の断面組織	37
3.3.3 芯材と皮材に同じ合金を用いた場合：(3)の断面組織	38
3.3.4 広い固液共存領域を有する合金を皮材に用いた場合：(4)の断面組織	38
3.6 小括	40
参考文献	41

### 第4章 タンデム式縦型高速双ロールキャストによる 4045/3003/4045 合金クラッド材の作製

4.1 緒言	55
4.2 実験方法	56
4.2.1 供試材	56
4.2.2 製造プロセスおよび装置概要	56
4.2.3 鑄造条件	56
4.2.3.1 皮材合金の注湯温度の影響に関する調査	57
4.2.3.2 第2双ロールの初期荷重の影響に関する調査	57
4.2.3.3 繰返し曲げ試験方法	57
4.2.3.4 引張試験および引張せん断試験	57

4.3	実験結果および考察	58
4.3.1	接合界面における溶質元素の拡散と皮材凝固組織に及ぼす 皮材合金の注湯温度の影響	58
4.3.2	皮材の凝固組織に及ぼす第 2 双ロールの初期荷重の影響	59
4.3.4	クラッド材の引張特性ならびに引張せん断特性	59
4.4	小括	60
	参考文献	61

## 第 5 章 タンデム式縦型高速双ロールキャストにより作製した

### 4045/3003/4045 合金クラッド材の接合界面

5.1	緒言	75
5.2	実験方法	75
5.2.1	装置概要ならびにクラッド材の製造方法	75
5.2.2	鑄造条件	76
5.3	実験結果および考察	77
5.3.1	3 層クラッド材の断面組織	77
5.3.2	接合界面組織	78
5.3.3	層状領域の形成過程	79
5.4	小括	80
	参考文献	81

## 第 6 章 タンデム式縦型高速双ロールキャスト法における 4045/3003/4045 合金

### クラッド材のクラッド率制御法の開発

6.1	緒言	94
6.2	実験方法	94
6.2.1	装置概要ならびにクラッド率の制御方法	94
6.2.2	鑄造条件	96
6.2.2.1	第 1, 第 2 双ロールを用いた 3 層クラッド材の作製条件	96

6.2.2.1 第 1, 第 2, 第 3 双ロールを用いた 5 層クラッド材の作製条件	96
6.3 実験結果および考察	97
6.3.1 3 層クラッド材の作製によるクラッド率の制御	97
6.3.2 5 層クラッド材の作製によるクラッド率の制御	98
6.4 小括	99

## 第 7 章 熱間圧延接合法とタンデム式縦型高速双ロールキャスト法で作製した

### 4045/3003/4045 合金クラッド材の組織と力学的性質

7.1 緒言	110
7.2 実験方法および実験条件	110
7.2.1 供試材	110
7.2.2 熱間圧延接合法およびタンデム式縦型高速双ロールキャスト法	111
7.2.3 冷間圧延ならびに熱処理	112
7.2.4 組織観察ならびに力学的性質の評価	112
7.2.5 導電率測定	113
7.3 実験結果および考察	113
7.3.1 板厚 6.0mm の熱延材と双ロール材のマイクロ組織	113
7.3.2 冷間圧延後の断面組織および力学的性質	114
7.3.3 400°C - 2h 焼鈍後の断面組織と力学的性質	115
7.3.4 ろう付加熱後の断面組織および力学的性質	117
7.4. 小括	119
参考文献	119

第 8 章 結論	139
----------	-----

## 第 1 章 緒論

### 1.1 アルミニウム合金クラッド材とその特性

アルミニウム合金板と異種金属や合金板を重ねたり，あるいは挟んで層状構造にしたものはアルミニウム合金クラッド材と呼ばれ，単一合金板だけでは実現できない特性や付加価値を有している．代表的なアルミニウム合金クラッド材として，航空機の外板や，ラジエーターやコンデンサと呼ばれる自動車用熱交換器に使われているブレイジングシート<sup>1)</sup>が挙げられる．航空機の外板には，比強度に加え，耐食性が求められる．そのため，アルミニウム合金中，最高強度の超々ジュラルミンとして知られている 7075 合金の表層に耐食性の良い純アルミニウムがクラッドされている．ブレイジングシートには，従来熱伝導率の高い銅が用いられていた．しかし近年，軽量化への要求のため，特に自動車用熱交換器において，銅からアルミニウムへの材料置換が進められた<sup>2)</sup>．しかし，アルミニウムは銅と比較して低融点であるため，溶接が難しい．そこで，芯材に融融温度の高いアルミニウム合金板を用い，その表層に融融温度の低いアルミニウム合金板(皮材)を積層し，3層クラッド材とする方法が開発された．これより，熱交換器に3層クラッド材からなるブレイジングシートを組み込んだ後，皮材の融融温度まで加熱し，芯材を溶解させることなく，接合させることが可能となった<sup>2)</sup>．このようなアルミニウム合金製ブレイジングシートの芯材には，強度と耐食性を有する 3 x x x 合金 (Al-Mn 系合金)が，皮材には溶解時の流動性を考慮し，4 x x x 合金(Al-Si 系合金)が用いられる．一般的なブレイジングシートのクラッド率 ((各層の板厚/総板厚) × 100) は，8~12%程度である．

### 1.2 一般的なアルミニウム合金クラッド材の製造方法

アルミニウム合金クラッド材の製造工程は，通常アルミニウム合金板の製造と比較すると極めて多工程かつ複雑である．Fig.1-1 にクラッド材の一般的な製造工程を示す．これは，芯材，皮材それぞれの板の製造工程と，熱間圧延を繰返す接合工程から成っている<sup>3)-6)</sup>．まず，DC 鋳造<sup>7)</sup>より，幅 600mm，厚さ 200mm 程度のスラブを作製する．スラブは表面研削，その後の熱間や冷間圧延の繰返しにより，所定の板厚に整えられ，板表面に付着した潤滑剤の洗浄が行わ

れる。接合工程は、芯材用、皮材用のアルミニウム合金板を重ね合せ、仮付溶接し、その後、加熱、熱間圧延、冷却を何度も繰り返して接合する。目標板厚まで冷間圧延し、所定の厚さのクラッド材とする。このような方法は、熱間圧延接合法と呼ばれている。非常に多くの複雑な工程を必要とし、また歩留まりも低い。

### 1.3 アルミニウム合金クラッド材製造における省工程化

近年、地球温暖化防止のための CO<sub>2</sub> 排出量削減や原油価格高騰に対処するため、自動車をはじめとする輸送機器の燃費向上が要望されている。これらを実現するための手段として、走行時を対象とした車体の軽量化とともに<sup>8)~13)</sup>、自動車用部品の製造工程の簡略化、省工程化による製品製造に関するエネルギー削減も重要である。このようなことから従来のアルミニウム合金クラッド材製造における省工程化も試みられてきた。

#### 1.3.1 ベルトキャスト法および横型双ロールキャスト法を利用した省工程化

出発材として DC 鋳造で作製した厚いスラブを使用するのではなく、溶湯から直接製造したアルミニウム合金薄板を使用することで、スラブ表面の研削や熱間圧延工程が削減できる。Fig.1-2 に DC 鋳塊から薄板を作製する場合と溶湯から直接薄板を作製する場合の製造工程の比較を示す。溶湯から直接薄板を作製する場合は、DC 鋳塊から薄板を作製する場合よりも省工程である。この方法で作製した薄板は、板厚が 8mm 程度であり、スラブの板厚(600mm)よりもはるかに薄いため、熱間圧延を必要としない。直接薄板製造法の例として、Fig.1-3 にベルトキャスト法<sup>15)</sup>、Fig.1-4 に横型双ロールキャスト法<sup>16)~18)</sup>、Fig.1-5 に双ブロック法を示す。これらの方法で作製した薄板は急冷凝固により、結晶粒や晶出物が微細化されるため、力学的特性の向上も期待される。

#### 1.3.2 DC 鋳造法を利用した省工程化

Novelis Fusion 社は DC 鋳造法を利用して溶湯から直接 3 層クラッドスラブを作製する方法を開発した。これは、Fusion 法<sup>31)</sup>と呼ばれている。Fig.1-6 に示すように、2 種、場合によっては 3 種の異なる溶湯を同時に鋳型に流し込みスラブ状のクラッド材を作製する。芯材の表面を凝

固させ、生成した凝固層を皮材の溶湯で加熱することによって芯材と皮材を接合する。一般的にスラブ鑄塊作製時の金型引き込み速度は非常に遅く、芯材と皮材の接合面は溶湯で加熱される時間が長い。そのため、芯材と皮材の接合界面には、厚さ数十  $\mu\text{m}$  程度の合金化領域が形成する。この合金化領域は、例えばクラッド材をブレイジングシートとして用いる場合、ろう付後の耐食性や力学特性低下の原因となる。

#### 1.4 ロールキャスト法によるアルミニウム合金クラッド材の作製

近年、双ロールキャストの生産能力の向上に関する研究やロールキャストの応用に関する研究が行われている<sup>19)~21)</sup>。一般的な横型双ロールキャストでは、ロール表面で溶湯を凝固させるだけでなく、製造した板の熱間圧延にも利用している。これに対し、羽賀らは、ロールを純銅製のロールにし、溶湯を凝固させることだけに用い、ロール間隙に加える荷重も、ロール表面と凝固殻の密着性を保つために必要な最低域にした双ロールキャストを開発した。生産能力は数十倍に向上すると報告されている。また双ロールキャスト法を利用して、溶融合金から1工程で直接アルミニウム合金クラッド材を作製する方法も開発されている<sup>22)~27)</sup>。これには、単ロール法、双ロールキャスト法、異径双ロールキャスト法等があり、2層クラッド材が作製可能である。しかし、溶融した合金から1工程でブレイジングシートのような3層クラッド材や多層クラッド材を作製する手法は未だ開発されていない。

#### 1.5 本研究の目的および本論文の構成

以上示したように、ブレイジングシートのような3層アルミニウム合金クラッド材の製造には、スラブからの薄板作製、熱間圧延、熱処理を含む数多くの工程を要する。溶融金属から1工程でクラッド材を作製できるような方法を開発できれば、クラッド材製造において大幅な省工程、省エネルギー化につながり、クラッド材の利用拡大に大きく貢献すると考えられる。さらに溶融金属から直接製造したクラッド材の組織や接合界面がどのような形態を示し、どのような特性を有するかについては金属凝固学の観点からも極めて興味深い。

そこで本研究では、まず溶融金属から3層アルミニウム合金クラッド材を1工程で製造可能

な装置を考案し、その試作を行った。その試作装置を用いて、3層アルミニウム合金クラッド材を作製し、そのマイクロ組織ならびにクラッド材の接合性について調査した。そして、試作装置で作製したクラッド材の接合界面のマイクロ組織や力学的特性を、汎用法である熱間圧延接合法で作製したクラッド材と比較し、本装置で作製したクラッド材の特徴とその利点を明らかにした。以上の点を踏まえ、新しい省工程クラッド材製造プロセスの考案と、本法により作製したクラッド材のマイクロ組織や力学的特性を、熱間圧延接合法で作製したクラッド材と比較し、新しい省工程クラッド材製造プロセスとしての本法の有用性を明らかにすることを目的とする。以下、本論文の構成を示す。

第1章「緒論」では、アルミニウム合金クラッド材の利用状況とその特性について記述し、一般的なアルミニウム合金クラッド材の製造方法とこれまでに行われた省工程化に向けての取組みについて解説した。それらを踏まえて取り組むべき課題について記し、本研究の目的を述べた。

第2章「タンデム式縦型高速双ロールキャストの考案と試作」では、芯材の熔融温度が皮材の熔融温度よりも高いアルミニウム合金の組合せについて、単ロール法及び双ロール法を応用し、熔融金属から1工程でアルミニウム合金クラッド材が作製可能なタンデム式縦型高速双ロールキャストを試作して、クラッド材の作製を行った。

第3章「クラッド材を構成するアルミニウム合金の種類と接合界面との関係」では、種々の熔融温度のアルミニウム合金を芯材、皮材に使用してクラッド材を作製し、それらの接合界面について調査を行い、平滑で合金化領域のない強固な接合界面を持つクラッド材を得るための合金の組合せについて検討を行った。さらに皮材に広い固液共存温度範囲を有する合金を用いた場合に発生する接合界面の鑄造欠陥について調査し、欠陥を防止するための鑄造条件を明らかにするとともに、欠陥発生メカニズムについて検討した。

第4章「タンデム式縦型高速双ロールキャストによる4045/3003/4045合金クラッド材の作製」では、タンデム式縦型高速双ロールキャストを用いてブレイジングシートに使用される4045/3003/4045合金クラッド材を作製し、クラッド材の作製が可能か否か、皮材用合金の注湯温度や第2双ロールの初期荷重が皮材の凝固組織に与える影響について調べた。さらに接合界面における溶質元素の拡散挙動について検討した。また引張、引張せん断試験により、クラッド材の接合強度を調べた。

第5章「タンデム式縦型高速双ロールキャストにより作製した4045/3003/4045合金クラッド材の接合界面」では、タンデム式縦型高速双ロールキャストを用いて作製した4045/3003/4045アルミニウム合金クラッド材の接合界面組織を光学顕微鏡，走査型電子顕微鏡，透過型電子顕微鏡による詳細な観察を行い，接合界面の形成過程について検討した。

第6章「タンデム式縦型高速双ロールキャスト法における4045/3003/4045合金クラッド材のクラッド率制御法の開発」では，本キャストにおいてクラッド率を調整する方法（ロール周速，凝固距離，双ロールの多段化）について検討を行い，クラッド率が10%の3層クラッド材を3つの双ロールをタンデム式に配置することによって作製する方法について示した。

第7章「熱間圧延接合法とタンデム式縦型高速双ロールキャスト法で作製した4045/3003/4045合金クラッド材の組織と力学的性質」では，タンデム式縦型高速双ロールキャスト法ならびに汎用的な熱間圧延接合法で4045/3003/4045アルミニウム合金クラッド材を作製し，圧延，熱処理，ろう付熱処理等，種々の製造段階における組織と力学的性質の変化について比較・検討し，双ロールキャスト法によるクラッド材作製の利点について述べた。

第8章「結論」では，各章で得られた成果を総括し，結論を述べた。

## 参考文献

- 1)伊東章郎,岩井克夫,長良敏夫,宮木美光,藤本日出夫,瀧川淳: 軽金属, 44(1994),246-252.
- 2)今泉重威: 軽金属,29(1979),115-127.
- 3)D.M.Turriff, S.F.Corbin and M.Kozdvas: Acta Materialia, 58 (2010) 1332-1341.
- 4)J.S.Yoon, S.H.Lee and M.S.Kim: Journal of Materials Processing Technology, 111 (2001) 85-89.
- 5)S.Tievce, N.Peberé, C.Blanc, C.Casenave, Q.Mankowski and H.Robidon: Electrochimica Acta, 52 (2006) 1092-1100.
- 6)F.Gao, H.Zhao, D.P.Sekulic, Y.Qian and L.Walleer: Materials Science and Engineering A, 337 (2002) 228-235.
- 7) 松尾守: 軽金属, Vol.44, (1994), 510-529.
- 8) 稲葉隆: 神戸製鋼技報, Vol.52, No.3, (2002), 79-82.
- 9) 吹沢一徳, 小池精一, 柴田一雄: まてりあ, Vol.39, No.1, (2000), 17-24.

- 10) 梶川義明：まてりあ, Vol.39, No.1, (2000), 25-30.
- 11) 丸山正明：まてりあ, Vol.39, No.1, (2000), 31-37.
- 12) 里達雄, 松田健二：軽金属, Vol.53, No.11, (2003), 449-453.
- 13) 村松俊樹：軽金属, Vol.53, No.11, (2003), 490-495.
- 14) 土田繁雄：軽金属協会 第4回技術講座, 1.
- 15) A.I. (Ed) Nussbaum：Light Metal Age, Vol.49, No.3,4 (1991), 8.
- 16) Catrin Kammer：TALAT Lecture 3210, (1999), 2-27.
- 17) 遠山直人, 阿保秀年, 新井宏, 義村博：鉄鋼の急速凝固部会報告書, (1989), 241.
- 18) 渋谷清, 小沢三千晴：鉄鋼の急速凝固部会報告書, (1989), 171.
- 19) T.Haga, M.Ikawa, H.Watari, S.Kumai：Journal of Achievements in Materials and Manufacturing Engineering, Vol.17,(2006), 337-340.
- 20) T.Haga, M.Ikawa：Journal of Achievements in Materials and Manufacturing Engineering, (2003), 359-363.
- 21) T.Haga, K. Hirooka, H. Watari, S.Kumai：Archives of Materials Science and Engineering, Vol.30, (2008), 117-120.
- 22) 羽賀俊雄, 高階健太：日本機械学会講演論文集, No.024-1 (2002) 9-53, 9-54.
- 23) 羽賀俊雄：日本機械学会年次大会講演論文集, (2000) 379, 380.
- 24) 羽賀俊雄, 石原勝之, 片山 剛, 西山丈司：軽金属, 第48巻, 第12号 (1998), 613-617.
- 25) T.Haga and S.Suzuki: Journal of Materials Processing Technology, 143-144(2003),895-900.
- 26) T.Haga,K.Takahashi,M.Ikawa and H.Watari: Journal of Materials Processing Technology, 140(2003),610-615.
- 27) T.Haga,K.Takahashi,M.Ikawa and H.Watari: Journal of Materials Processing Technology:153-154(2004),42-47.

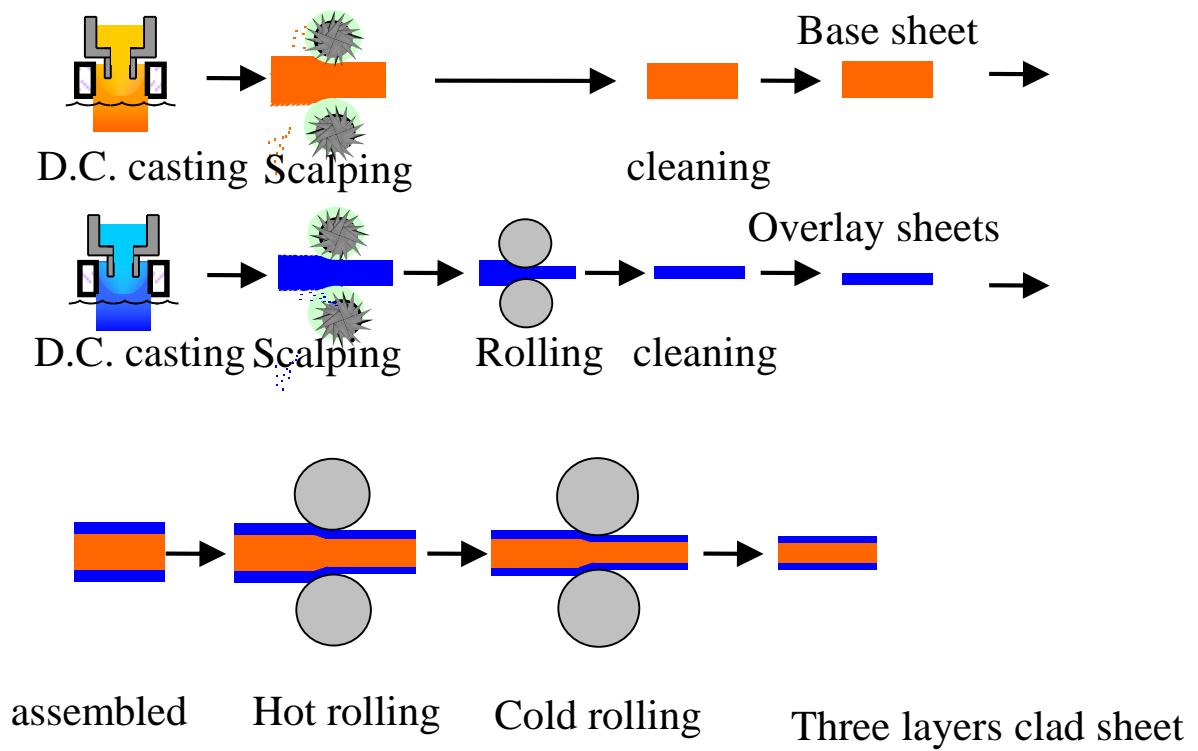


Fig.1-1 Fabrication route of the clad sheet using D.C. casting and hot roll bonding process.

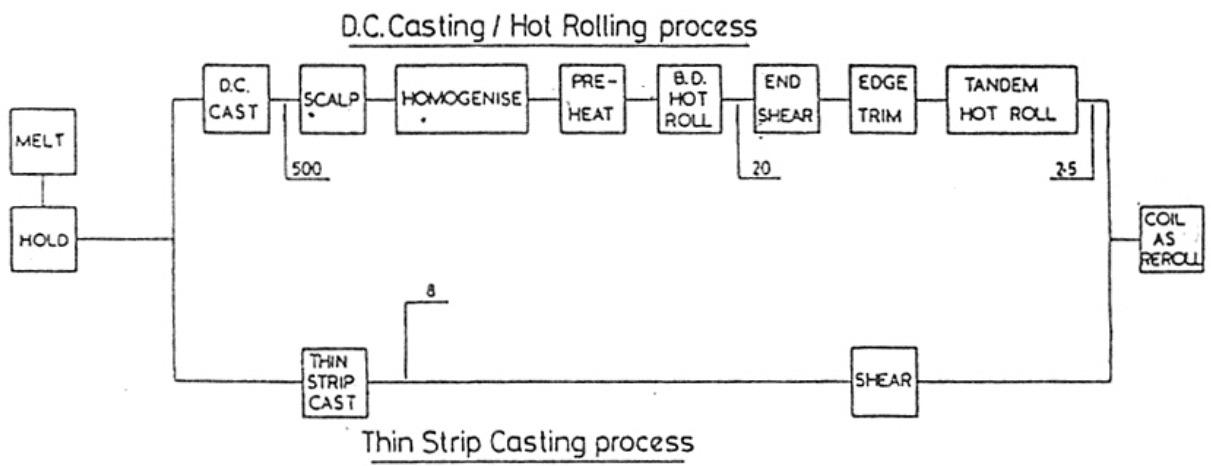


Fig.1-2 D.C.casting/Hot rolling process and thin strip casting process. 500, 20, 2.5 and 8mm are the sheet thicknesses after previous casting or rolling.

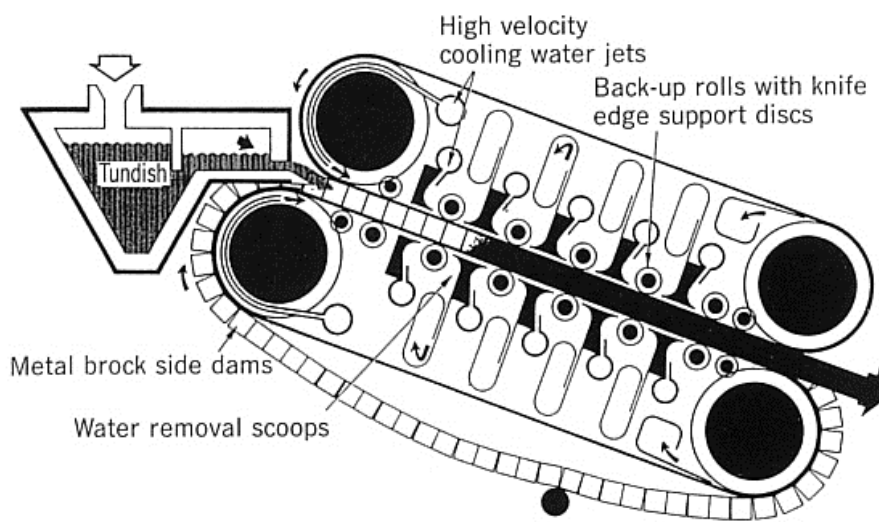


Fig.1-3 Belt casting process

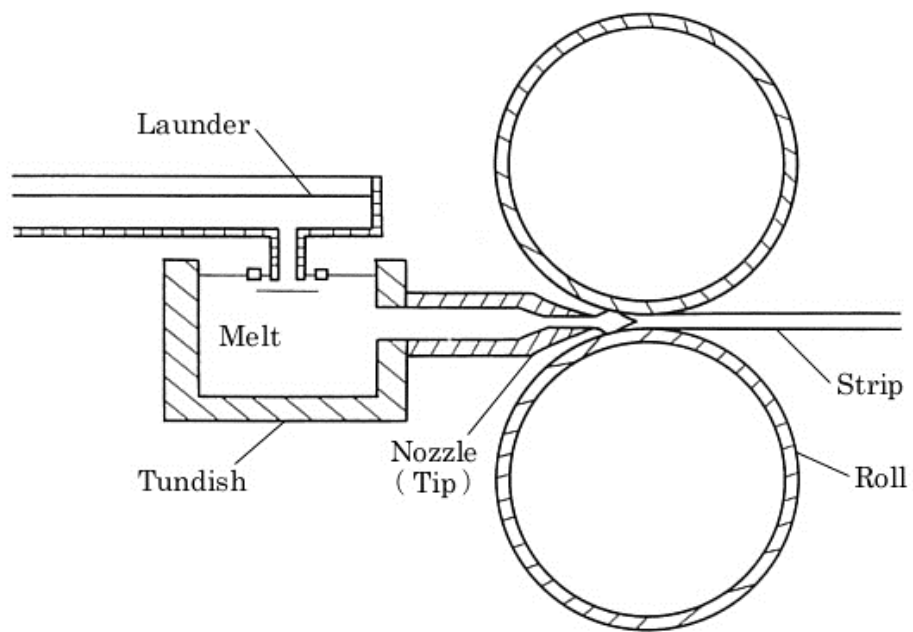


Fig.1-4 Horizontal-type twin roll casting process.

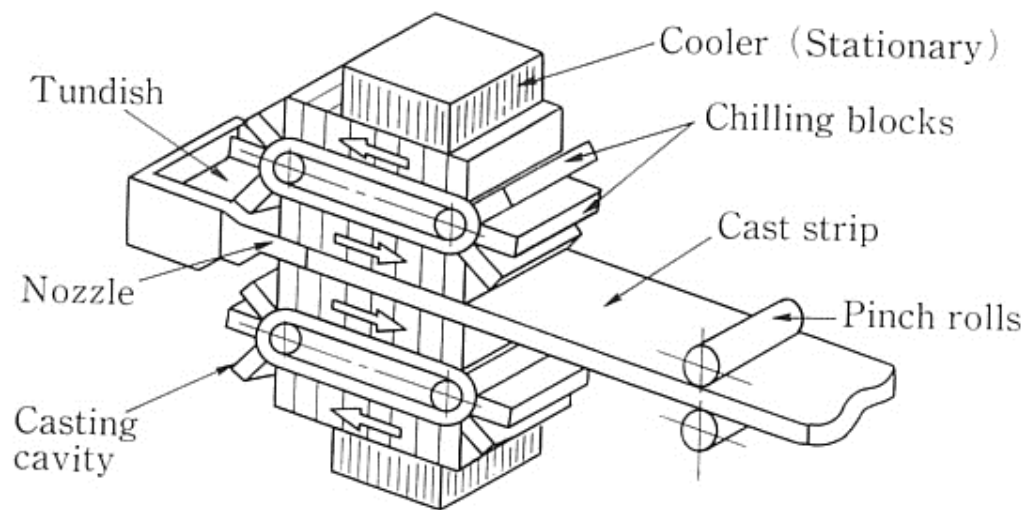


Fig.1-5 Launder block cast process

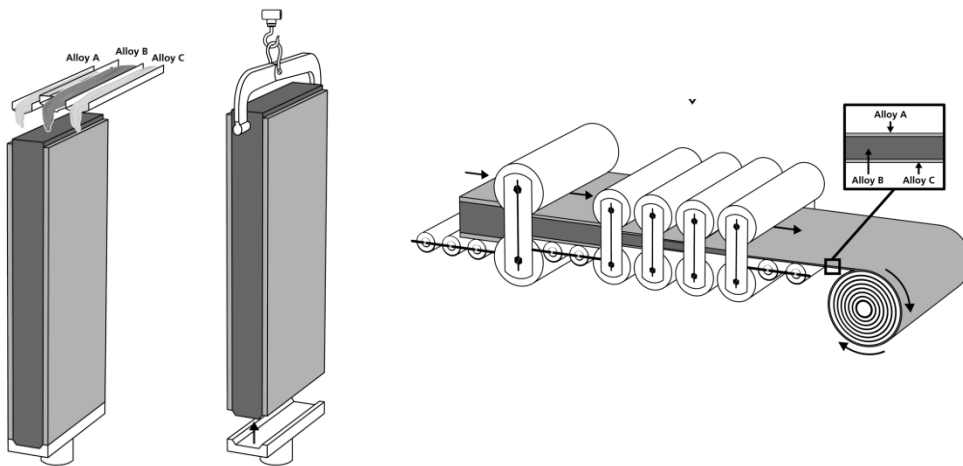
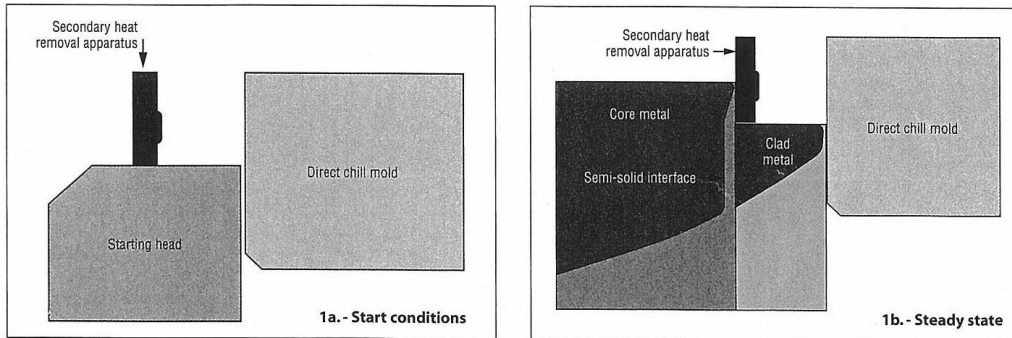


Fig.1-6 Fusion process.

## 第2章 タンデム式縦型高速双ロールキャストの考案と試作

### 2.1 緒言

一般的なクラッド材の製造は、スラブを出発材とする各層の薄板作製工程と接合工程で構成され、多工程である。これに対し、ロールキャスト法は、溶湯から直接薄板を鋳造できる。よってスラブを出発材とする場合と比較して、極めて省工程、省エネルギーで板材を作製できる利点がある。このことから本手法に着目した。

本章では、単ロール法及び双ロール法を応用したクラッド材作製用ロールキャストの考案と試作について述べる。試作装置で作製するクラッド材は、ブレイジングシートのようにアルミニウム合金を組合せたもので、芯材に溶解温度の高い合金、皮材に溶解温度の低い合金を使用した。なお、ここでの溶解温度とは、合金の固相線温度を指す。

### 2.2 クラッド材作製用ロールキャスト

#### 2.2.1 単ロール法による2層クラッド材の作製方法

Fig.2-1 に単ロール法（メルトドラッグ法）によるクラッド材の作製方法を示す<sup>1)~6)</sup>。本手法では、純銅製単ロールと2つのノズルを使用し、各々のノズルより異なった合金溶湯を供給することでクラッド材を作製する。下方ノズル内の溶湯とロールが接触すると、凝固殻が形成され、この凝固殻がロール回転方向にドラッグされ、第1層が形成される。この第1層は、第2層の溶湯が溜められたノズル内に引き込まれる。第2層の溶湯は第1層の凝固殻を通して、ロールに抜熱され、第1層の凝固殻上に第2層の溶湯が凝固する。第1層の溶解温度が第2層の溶解温度より高ければ、第1層の凝固殻は溶融せず、極短時間では第1層と第2層での固相拡散も制限されるため、合金化領域の形成は抑えられると考えられる。Fig.2-2 は第1層の溶解温度が第2層の溶解温度より低い場合を示す。この組合せでは、第1層の凝固殻が上方のノズル内に導入されると凝固殻先端が再溶解すると考えられる。するとたとえ極短時間であっても形成された第1層の比較的平滑な凝固殻は再溶解により、diffusely（荒れた）状態となり、さらに第2層の合金溶湯の溶質と第1層の合金溶湯の溶質の拡散により、接合界面は、両成分の合金

化領域が形成されるものと考えられる。

### 2.2.2 単ロール法による3層クラッド材の作製方法

単ロールによるメルトドラッグ法で3層クラッド材を作製する方法について検討した。Fig.2-3にその原理を示す。以下、第1層に溶解温度の低い合金、第2層に溶解温度の高い合金、第3層に溶解温度の低い合金を想定する。ここでは、1つの純銅製ロールに3つのノズル内に異なる合金溶湯を入れたノズルを取付け、3層クラッド材を作製しようとするものである。第1ノズル内の合金溶湯（溶解温度の低い合金）が、まずロール表面に接触し、そこで第1層の凝固殻が形成され、ロール回転方向にドラッグされる。この第1層の凝固殻（先端）は第2ノズル内の（溶解温度の高い合金）溶湯と接触する。ロールによる抜熱により第1層の上に第2層の凝固殻が形成し、第1層と第2層が接合した凝固殻がロール回転方向にドラッグされ、2層クラッド材となる。2層クラッド材は、第3ノズル内の（溶解温度の低い）合金溶湯と接触し、この合金の凝固殻がさらに生成することによって3層クラッド材となる。しかし、このようにすると、溶解温度の高い第2層の合金溶湯が、第1層の凝固殻先端を再溶解するため、第1層と第2層の接合界面は合金化領域を伴う diffusely な界面となると考えられる。以上示したように単ロール法を用いたメルトドラッグ法では、第1層に溶解温度の低い合金、第2層に溶解温度の高い合金、第3層に溶解温度の低い合金を用いる場合において、平滑で合金化領域のない接合界面を有する3層クラッド材を作製することは困難であると考えられる。

### 2.2.3 横型双ロール法による3層クラッド材の作製方法

Fig.2-4 (a) に双ロール法によるクラッド材作製方法を示す<sup>7),8)</sup>。一对の純銅製ロールに各々ノズルを取付け、各ノズル内に異なる合金溶湯を供給し、クラッド材を作製する。下側のロールにより板を作製する方法は一般的にメルトドラッグ法と呼ばれているのに対し、上側のロールにより板を作製する方法は下方メルトドラッグ法と呼ばれている。ここで示す双ロール法によるクラッド材の作製方法は、これら2つを組合せたものである。下側のロールは、第1層の凝固殻のみをロール回転方向にドラッグする。上側のロールは第2層の凝固殻をロール回転方向に引出す役割を果たす。この際、ロール表面での凝固殻の成長量（厚さ）が、ノズルとロール表面との間に設けた間隙よりもわずかに小さくなるような条件で casting を行うと、凝固殻の表

面が合金の融液の膜で被われた状態でドラッグされ、これが下側のロールによりドラッグされてできた凝固殻と合流する地点でパドルを形成する。このパドルは接着剤のような役割を果たす。パドルは双ロールの間隙で凝固し、クラッド材ができる。さらに横型双ロール法により 3 層クラッド材を作製する方法についても検討を行った。Fig.2-4 (b) にその原理を示す。ここでは、上側のロールに 2 つのノズルを取付けている。クラッド材の各層を下側から第 1 層、第 2 層、第 3 層と呼ぶ。それぞれの合金の溶解温度は、これまでと同様、第 1 層が溶解温度の低い合金、第 2 層が溶解温度の高い合金、第 3 層が溶解温度の低い合金である。下側ロール表面から凝固殻が成長し、ロール回転方向に凝固層のみがドラッグされて第 1 層が形成される。また上側ロール表面から凝固殻が成長し、ロール回転方向にドラッグされて第 3 層が形成される。さて、ドラッグされた第 3 層は、ひきつづきノズル内の第 2 層の合金溶湯と接触し、この際第 3 層の溶解温度は第 2 層の凝固温度より低いため、第 2 層の凝固殻の局所的な溶解が起こると考えられる。さらに、第 2 層の凝固殻上の合金融液の膜により生じたパドルは、第 1 層の合金よりも溶解温度が高いため、パドルがロール間隙に挟まれ、凝固する前に第 1 層の凝固殻の一部が再溶解する可能性がある。このように、横型双ロール法を用いても平滑で合金化領域のない接合界面を有する 3 層クラッド材の作製は困難であると考えられる。

#### 2.2.4 縦型高速双ロール法によるクラッド材の作製

以上示したように、メルトドラッグ法や双ロール法を利用して芯材に溶解温度の高い合金を用い、それを溶解温度の低い合金の皮材で挟んだ 3 層クラッド材を作製することは困難である。よって、ここまでの考え方とは異なる手法を考える必要がある。

そこで、ここでは板の排出方向を縦とした縦型双ロール法を用いた手法について検討する。Fig.2-6 にその原理を示す。2 台の縦型双ロールキャストを垂直方向に並べる。上側を第 1 双ロール、下側を第 2 双ロールと呼ぶ。3 層クラッド材の合金は、芯材に溶解温度の高い合金、皮材に溶解温度の低い合金とし、第 1 双ロールで芯材となる凝固殻を作製し、第 2 双ロールで皮材となる凝固殻を作製する。第 1 双ロールの各ロール表面で成長した凝固殻は、ロール間隙で合体して、一枚の板となり、垂直方向に排出され、さらに皮材の溶湯内を通過して第 2 双ロール間隙に誘導される。この際、芯材合金の溶解温度は、皮材の合金溶解温度より高く、さらに、この間の時間は非常に短いため、芯材表面は溶解することなく、第 2 双ロールの各のロール表面

から成長する皮材の凝固殻に挟み込まれ、接合され、3層クラッド材となる。このように本手法を用いれば、芯材の溶解温度が皮材の融解温度より高い合金を用いて平滑で合金化領域ない接合界面を有する3層クラッド材が作製可能であると考えられる。そこでこの原理を用いてキャストの試作を行った。

## 2.3 タンデム式縦型高速双ロールキャストの試作

### 2.3.1 装置概要

一台の縦型双ロールキャストは、1対のロール、2枚のノズルプレート、2枚のサイドダムプレートで構成される。ロール上にノズルを設置し、ロールとノズルを横側からサイドダムプレートで挟み込み、これらによって囲まれた空間に上方から注湯を行う。ロール径は、200mmとした。ロール径を比較的に小さくしたのは、第1双ロールと第2双ロールの間隔を短くするためである。この間隔が大きくなると第1双ロールで製造した芯材が皮材溶湯に入るまでの距離が大きく、芯材が大気と触れる時間が長くなり、これを最小限にするためである。ロール幅は、第1双ロールを40mm、第2双ロールを45mmとした。第2双ロールの幅を広めたのは、第1双ロールで作製される芯材が、第2双ロールのロール間隙に誘導される際、同じロール幅では第1層の誘導が難しいと考えられるためである。試作したタンデム式縦型双ロールキャストの外観を Fig.2-7 に示す。全長1900mm、高さ1950mm、幅750mmである。

### 2.3.2 ロール材質

従来のAl合金用横型双ロールキャストでは、鋼製ロールが使用されている。薄板の鋳造と同時に熱間圧延を行う必要があるため、ロール材質にはSKD61などの熱間工具鋼が用いられている。これに対し、本研究では、熱伝導性の良い銅製のロールを使用した。銅製ロールは抜熱能が高く、溶湯の急冷が可能であることに加え、ロールが、溶湯と接触しない間、ロール表面温度が下がり易く、総合的に鋼製ロールよりも冷却能力が高いと考えられるためである。また、本装置の双ロールは、熱間圧延を目的としていない。よって熱間工具鋼のような材質は必要なく、比較的柔らかい銅製ロールを使用することが可能である。ロールは0.75kWのインバータ式無段変速のモータによって駆動し、最大75m/min (1.25m/s)のロール周速が可能である。従

来のロールキャストでは板とロールの固着を防ぐために、ロール表面に離型剤を噴霧しながら薄板の鋳造を行う。しかし、離型剤は溶湯とロール間の熱伝達を妨げる。本研究では離型剤は使用しない。銅製ロールは鋼製ロールに比べ、熱伝導率が高く、ロール表面が薄板を固着する温度まで上昇しないため、離型剤を使用しなくても薄板の作製が可能である<sup>40)</sup>。なおロール表面は、実験前に#120のエメリー紙で研磨される。

### 2.3.3 ノズルプレートならびにサイドダムプレート

ノズルプレートとサイドダムプレートを取付けた装置概略図を Fig.2-8 に示す。ノズルプレートの役割のひとつは、凝固距離の調節である。凝固距離とは、ロールと凝固層が接触する長さのことである。凝固距離を調節することによって、板厚を変化させることができる。ノズルプレートには、鋼板の内側表面に断熱材を貼りつけたものを使用する。第1双ロール、第2双ロールのロール上方にノズルプレート、サイドダムプレートを取り付けた状態の写真を Fig.2-9 に示す。

2枚のサイドダムプレートと2枚のノズルプレートで囲まれた空間に注湯を行う。第2双ロール上に配置したノズル内の皮材合金溶湯の高さは、第1双ロールで製造した芯材が皮材溶湯に浸漬される距離に対応する。この高さを一定にするため、サイドダムプレートの高さをロール間隙から 100mm に固定し、これ以上の高さになると皮材溶湯はノズルからオーバーフローするように設計した。

### 2.3.4 注湯方法

縦型双ロールキャストの注湯方法としては、2通りの方法が考えられる。1つ目は、ロール上方からロール回転軸に対して平行に注湯をする方法、2つ目、ロール回転軸に対して垂直に注湯する方法である。第1双ロールへの注湯は、ロール上方からロール回転軸に対して垂直に行った。第2双ロールへの注湯は、ロール上方からロール回転軸に対して、平行に行った。

### 2.3.5 ロール荷重

従来の Al 合金用横型双ロールキャストでは、薄板の鋳造と同時に熱間圧延を行うため、ロールに単位幅あたり 1~10kN/mm の高荷重が加えられている<sup>9)~12)</sup>。よって、薄板がロールに固着

しやすい。これを防ぐために、ロール表面に離型剤を噴霧している。しかし、離型剤は熱抵抗となり、溶湯－ロール間の熱伝達の低下を招く。よって本方法では離型剤は使用しない。本装置では、もう一方のロールは、固定であるが、もう一方のロールは可動式であり、荷重をかけて使用する。荷重は、2本のばねにより負荷する。ばねは、軽小荷重（ばね定数 56.44N/mm）、中荷重（ばね定数 220.49N/mm）、極重荷重（ばね定数 706.11N/mm）の3種類を使用し、ロール単位幅あたりの荷重は、0.01~0.32kN/mmとした。本研究では予めばねによりロールにかける荷重を初期荷重と呼ぶ。これに対し、成形荷重は、板がロール間隙に挟まれたときの荷重のことである。初期荷重と成形荷重の関係を Fig.2-10 に示す。板作製中、すなわち板がロール間隙を通過する際には、板には初期荷重より大きい荷重がかかることになる。しかし、成形荷重と初期荷重の大きさをと比較すると初期荷重の方が十分大きい。よって、本研究ではロール荷重は初期荷重の値を用いて表現する。

## 2.4 試作装置による3層クラッド材の作製

本研究では、第1双ロールで芯材を、第2双ロールで皮材を作製する。芯材は皮材溶湯内に入り、第2双ロールに誘導され、皮材の凝固殻に挟み込まれることで芯材と皮材が接合される。従って、もし適切に芯材先端を第2双ロール間隙に誘導することができなければ、クラッド材は作製できない。そこで芯材先端を第2双ロールへ誘導する際に生じるであろう問題点とそれらの解決方法について検討した。Fig.2-11 に想定される問題点の例を示す。芯材先端が曲がり、第2双ロールのノズルプレートなどに当たり、芯材を第2双ロールに誘導できない場合を示している。これを解決するには、芯材先端を引張り、板の曲がりを矯正しながら芯材先端を第2双ロールへ誘導する必要がある。

### 2.4.1 ステンレス線による芯材先端の第2双ロールへの誘導

羽賀らは、横型双ロールキャストで板を作製する際に長繊維を板内部に挿入することによって、複合材料を作製することを試みている。その際の長繊維挿入方法を Fig.2-12 に示す<sup>7)</sup>。この方法は、予めロール間隙に長繊維を通しておき、上下各々のロールによりドラッグされた凝固殻がロール間隙で合わさる際、この長繊維を挟み込むことを利用したものである。そこで、

本研究では、この手法を利用し、細いステンレス線を用いて芯材先端を誘導する方法を考案した。Fig.2-13 に本装置における芯材への直径 0.5mm のステンレス線の挿入方法を示す。注湯前に予めステンレス線を第 1 双ロール上方から第 1, 第 2 双ロール間隙に通しておく。芯材溶湯が注湯されると、ロール表面から凝固殻が成長し、凝固殻先端はステンレス線を板厚中央方向に押す。そうすると、ロール間隙で凝固殻が合わさる際に、ステンレス線は芯材の板厚中央部に挿入され、芯材は第 2 双ロール間隙に通されているステンレス線に沿って第 2 双ロールの間隙へと誘導される。ステンレス線は側面に近い端部に芯材先端から 1m 程度の距離に渡って挿入した。

#### 2.4.2 3層クラッド材の作製手順

直径 0.5mm のステンレス線を予め第 1, 第 2 双ロール間隙に通しておく。まず、芯材の溶湯を第 1 双ロールのノズル内に注湯させる。するとそれぞれのロール表面から凝固殻が成長し、ロール間隙で一枚の板となる。その際、板厚中央部にステンレス線を挟み込むので、芯材はステンレス線に沿って第 2 双ロール間隙に誘導される。芯材先端が第 2 双ロール間隙を通過するタイミングで、皮材溶湯を注湯する。それぞれのロール表面から皮材の凝固殻を形成し、芯材を挟み込み、第 2 双ロール間隙で芯材と皮材が接合してクラッド材となる。

#### 2.4.3 試作装置による 4045/3003/4045 3層クラッド材の作製

芯材に 3003 合金を用い、皮材に 4045 合金を用いて 3 層クラッド材を作製した。ロール周速は第 1, 第 2 とともに 40m/min とした。第 1 双ロール、第 2 双ロールの凝固距離は各々 60, 80mm とした。注湯温度はそれぞれの液相線より 15°C 高い温度とした。初期荷重は、第 1 ロールを 2.2kN, 第 2 ロールを 1.1kN とした。Fig.2-14 に示すように本装置を用いて連続的に 3 層クラッド材を作製することが可能であった。Fig.2-15 に作製した 3 層クラッド材のマイクロ組織を示す。芯材と皮材が接合し、接合界面は平滑であった。このようにタンデム式縦型高速双ロールキャストを用いることによって溶湯から直接 3 層クラッド材を作製することが可能となった。

## 2.5 小括

単ロール法や双ロール法を利用して芯材に溶解温度の高い合金を用い、それを溶解温度の低い合金の皮材で挟んだ3層クラッド材を作製することは困難である。

芯材に溶解温度が高い合金、皮材に溶解温度の低い合金を用いた溶湯から1工程で3層クラッド材が作製可能な縦型双ロールキャストを垂直方向に配置した「タンデム式縦型高速双ロールキャスト」を開発した。これにより接合界面が平滑な3層クラッド材を作製可能であることがわかった。

## 参考文献

- 1) 鈴木進輔, 羽賀俊雄, 本村 貢: 軽金属, (1997), 638-643.
- 2) 羽賀俊雄, 石原勝之, 片山 剛, 西山丈司: 軽金属, 第48巻, 第12号 (1998), 613-617.
- 3) 西田進一, 本村 貢: 軽金属, 第60巻, 第9号 (2010), 421-426.
- 4) 西田進一, 本村 貢: 軽金属, 第57巻, 第10号 (2007), 439-443.
- 5) 羽賀俊雄: 日本機械学会講演論文集, No.004-1 (2000) 10-39, 10-40.
- 6) 鈴木進輔, 羽賀俊雄: 軽金属, Vol.45, No.12, (1995), 685-690.
- 7) 羽賀俊雄, 高階健太: 日本機械学会講演論文集, No.024-1 (2002) 9-53, 9-54.
- 8) 羽賀俊雄: 日本機械学会年次大会講演論文集, (2000) 379, 380.
- 9) M.Yun, D.J.Monaghan, X.Yang, J.Jang, D.V.Edmonds, J.D.Hunt, R.Cook, P.M.Thomas: Cast Metals, Vol.4, No.2, (1991), 108.
- 10) D.V.Edmonds, J.D.Hunt, D.J.Monaghan, X.Yang, M.Yun, D.J.Browne, R.Cook, P.M.Thomas: Extraction Refining and Fabrication of Light Metals, CIM, Ottawa, (1991), 257.
- 11) S.A.Lockyer, M.Yun, J.D.Hunt, D.V.Edmonds: Materials Characterization, Vol.37, (1996), 301.
- 12) 羽賀俊雄: 軽金属, 第59巻, 第9号, (2009), 510-511.

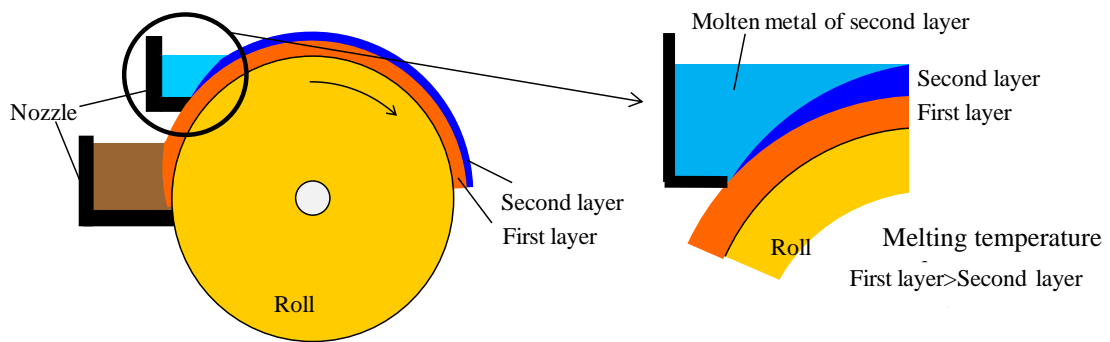


Fig. 2-1 Single roll caster for clad strip fabrication.  
 (Melting temp. of the first layer > Melting temp. of the second layer)

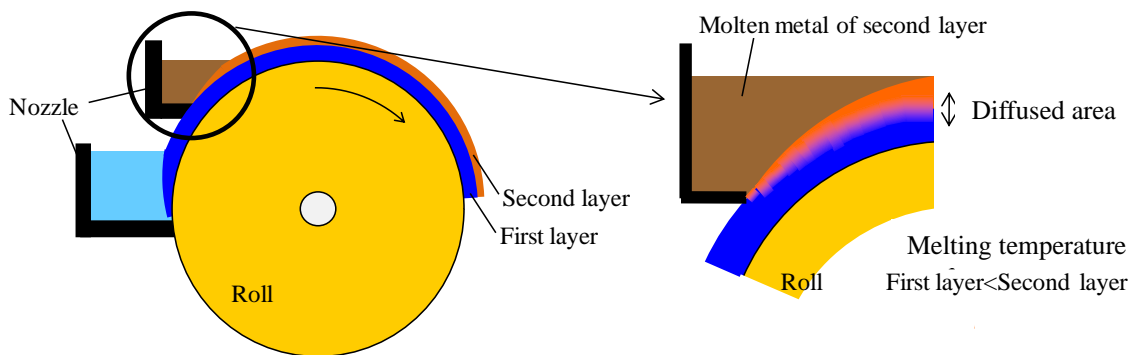


Fig. 2-2 Single roll caster for fabrication clad strip.  
 (Melting temp. of the first layer < Melting temp. of the second layer)

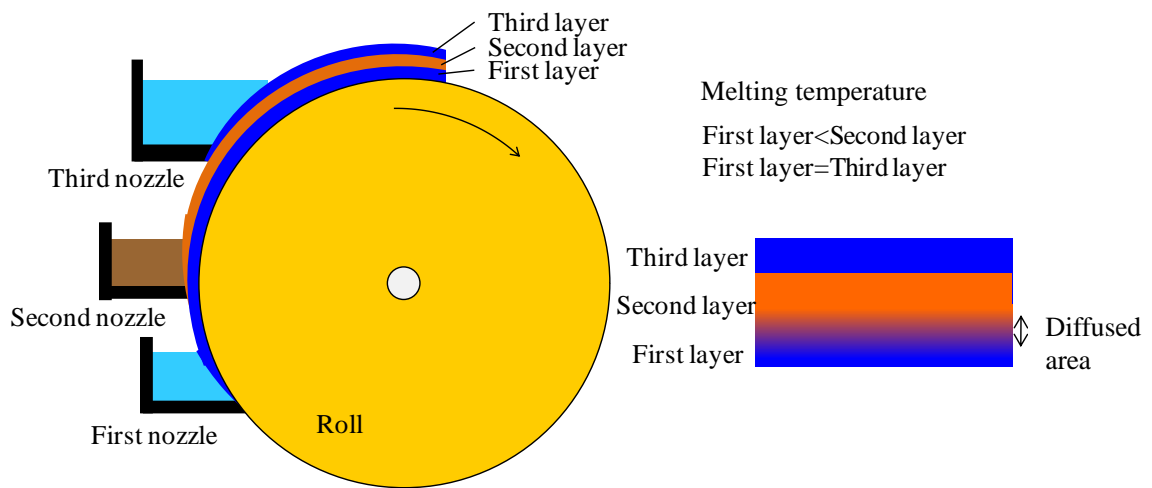
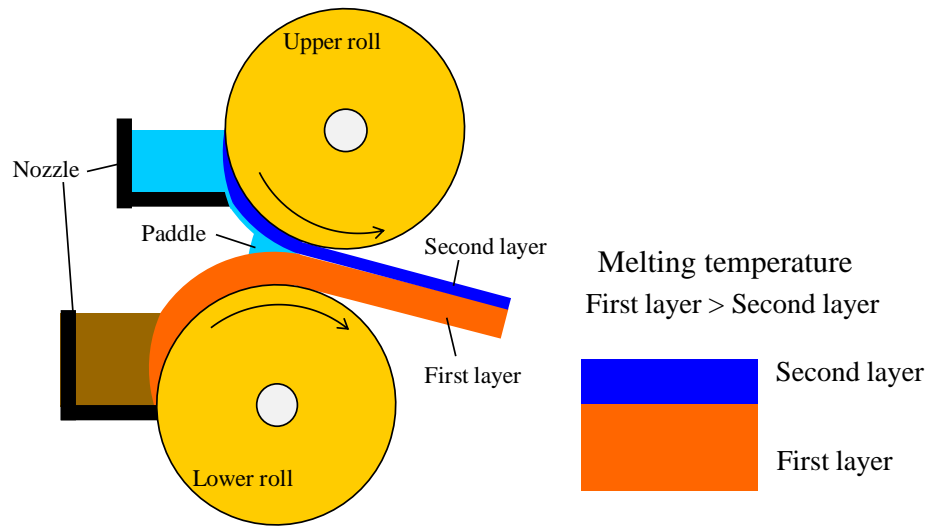
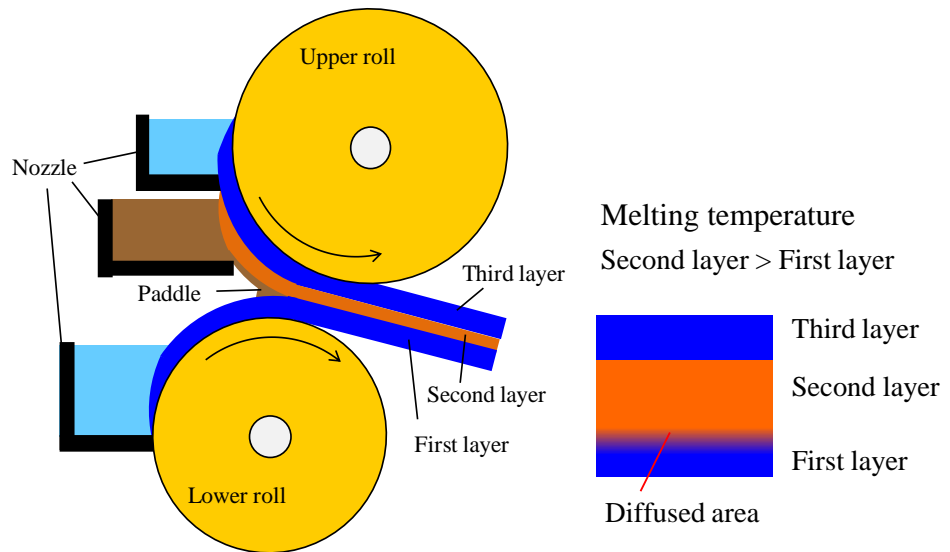


Fig. 2-3 Single roll caster for fabrication of three-layered clad strip.



(a) Horizontal type twin roll caster for fabrication of clad strip.



(b) Horizontal type twin roll caster for fabrication of three-layered clad strip.

Fig. 2-4 Horizontal twin roll cast process.

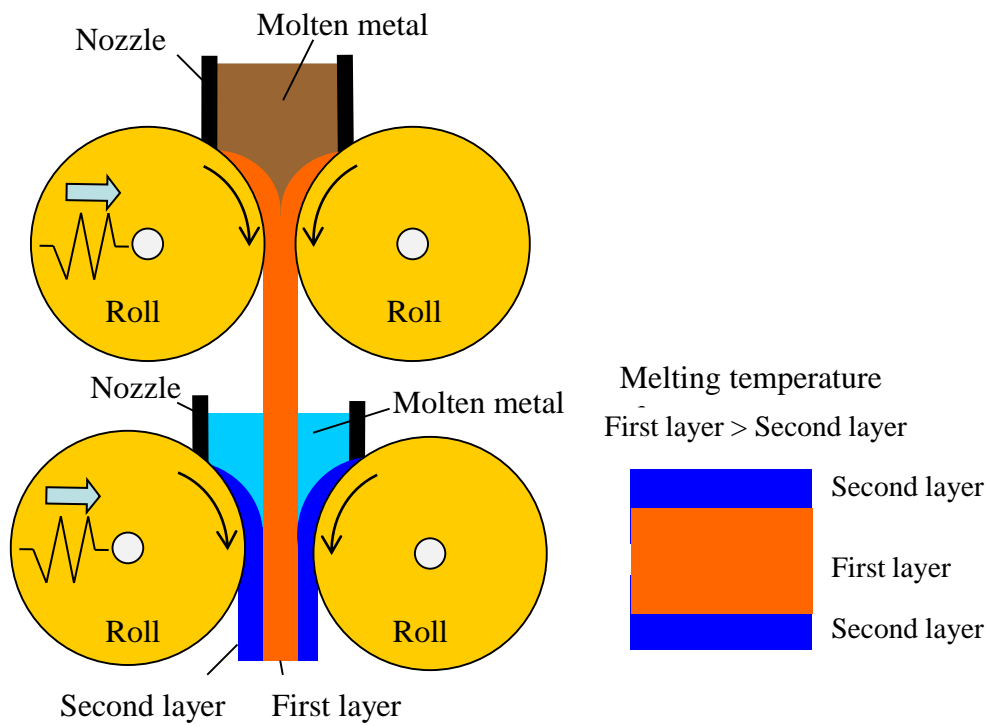


Fig. 2-6 Vertical-type high-speed tandem twin-roll caster for fabrication of three-layered clad strip.

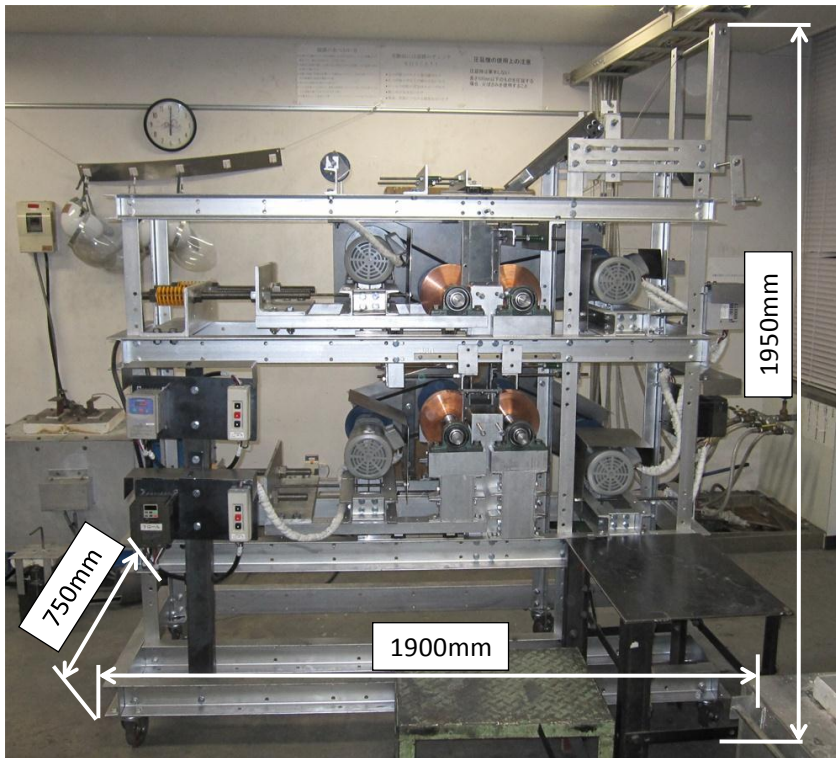
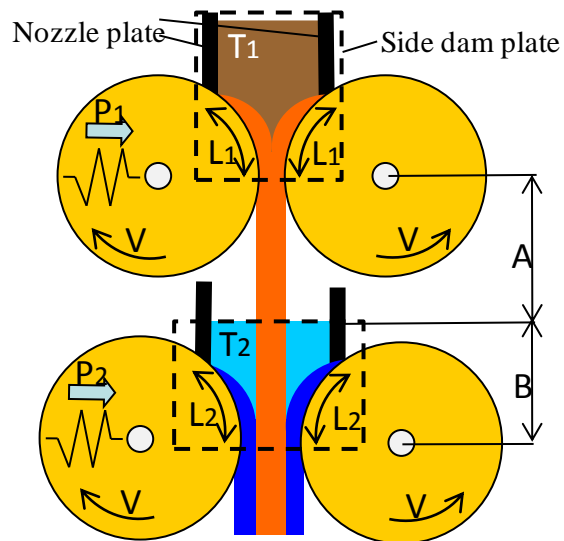
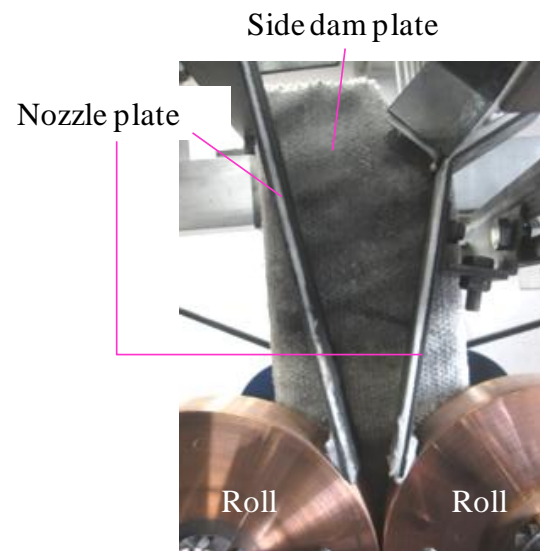


Fig. 2-7 Outlook of the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster.

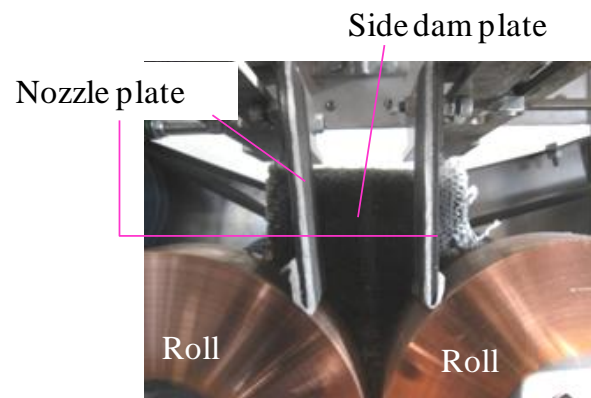


- $V$ : Roll speed(m/min)
- $T_1$ : Melt temperature of the base strip( $^{\circ}\text{C}$ )
- $T_2$ : Melt temperature of the overlay strips( $^{\circ}\text{C}$ )
- $L_1$ : Solidification length of first caster(mm)
- $L_2$ : Solidification length of second caster(mm)
- $P_1$ : Initial load of first caster(kN)
- $P_2$ : Initial load of second caster(kN)
- $A$ : Cooling length of the base strip(mm)
- $B$ : Heating length by molten metal of overlay strip(mm)

Fig. 2-8 Schematic illustration of the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster.

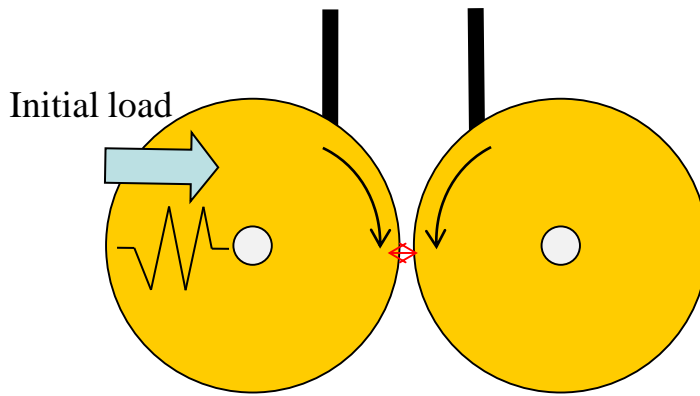


(a) First caster

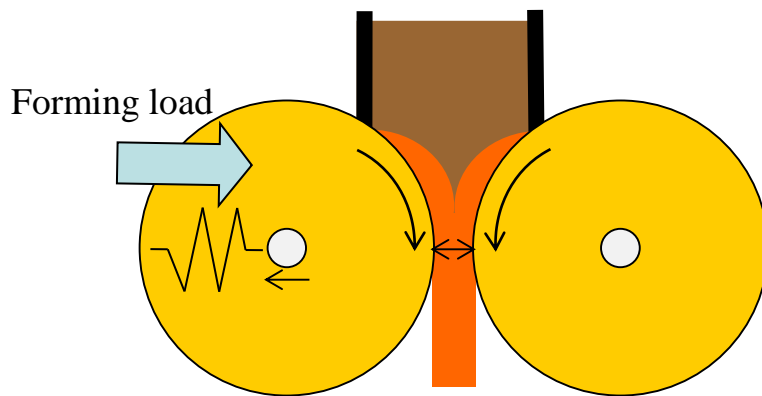


(b) Second caster

Fig. 2-9 Outlook of the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster equipped with the nozzle and side dam plate.

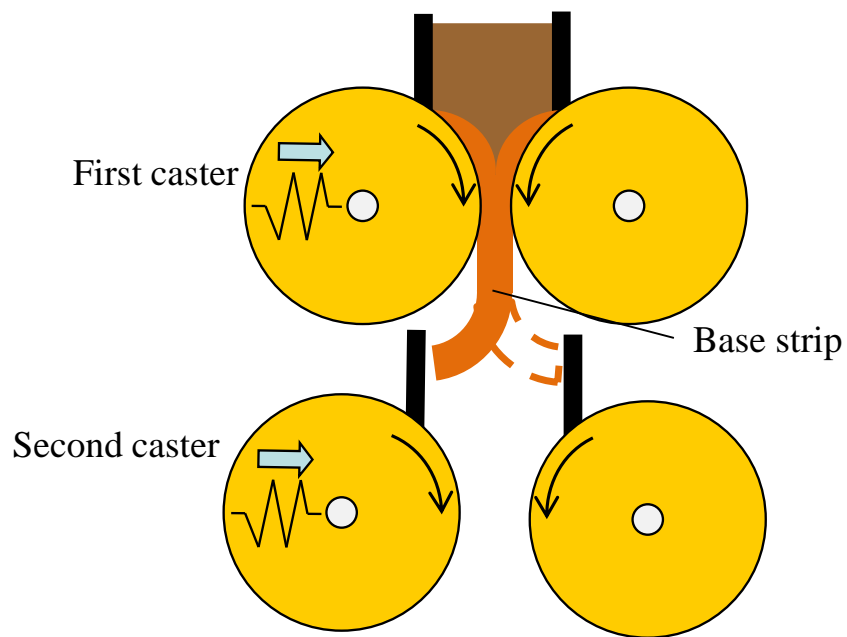


(a) Before casting



(b) During casting

Fig. 2-10 Relationship between the initial load and forming load.



The warping of the tip of base strip

Fig. 2-11 An example of the problem occurring before the base strip goes to the roll gap of the second caster.

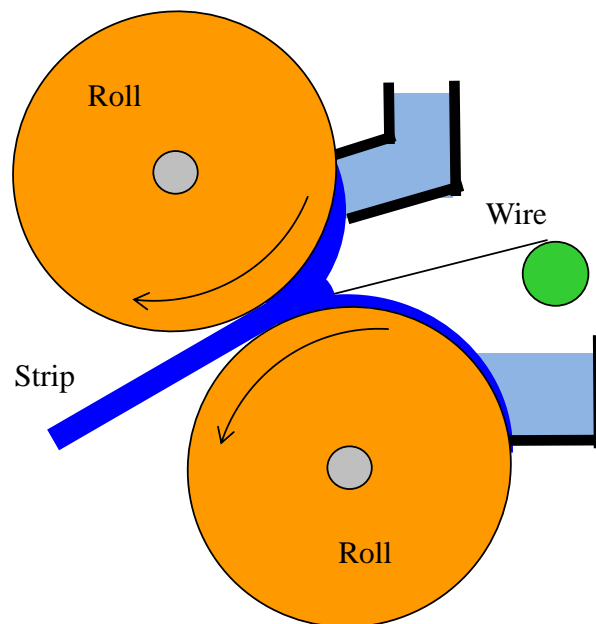


Fig. 2-12 The twin roll caster for fabrication of wire-inserted composite strip.

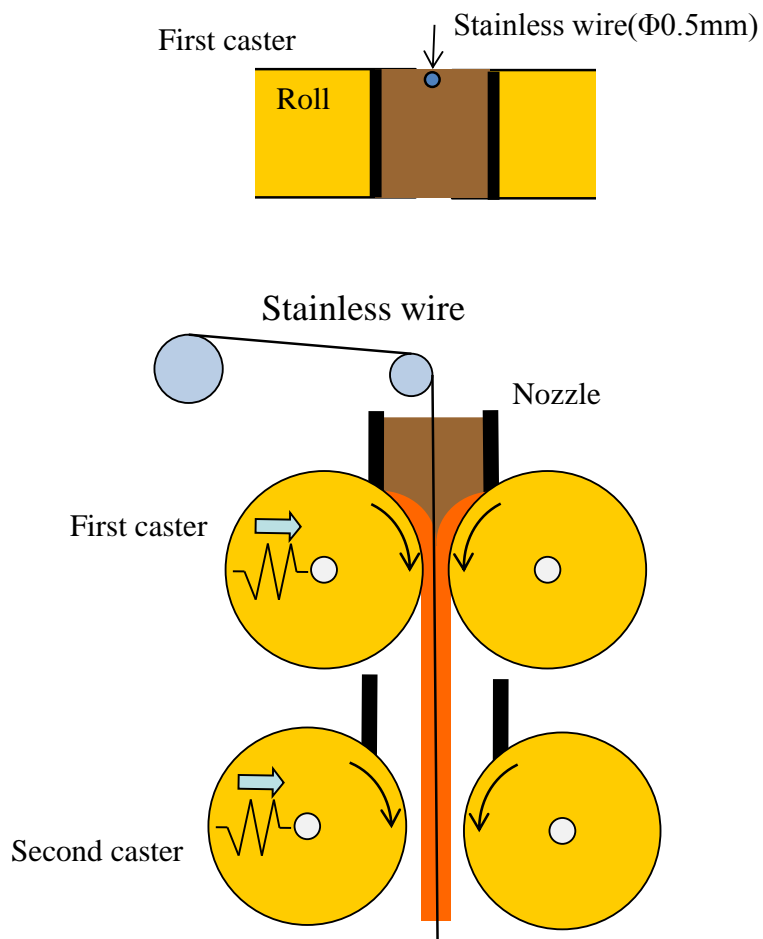


Fig. 2-13 The vertical-type high-speed tandem twin-roll caster for fabrication of the wire-inserted composite strip. The upper figure is the top-view of the caster showing the position of the stainless wire.



Three-layered clad strip

Fig. 2-14 Outlook of three-layered clad strip fabricated by using the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster.

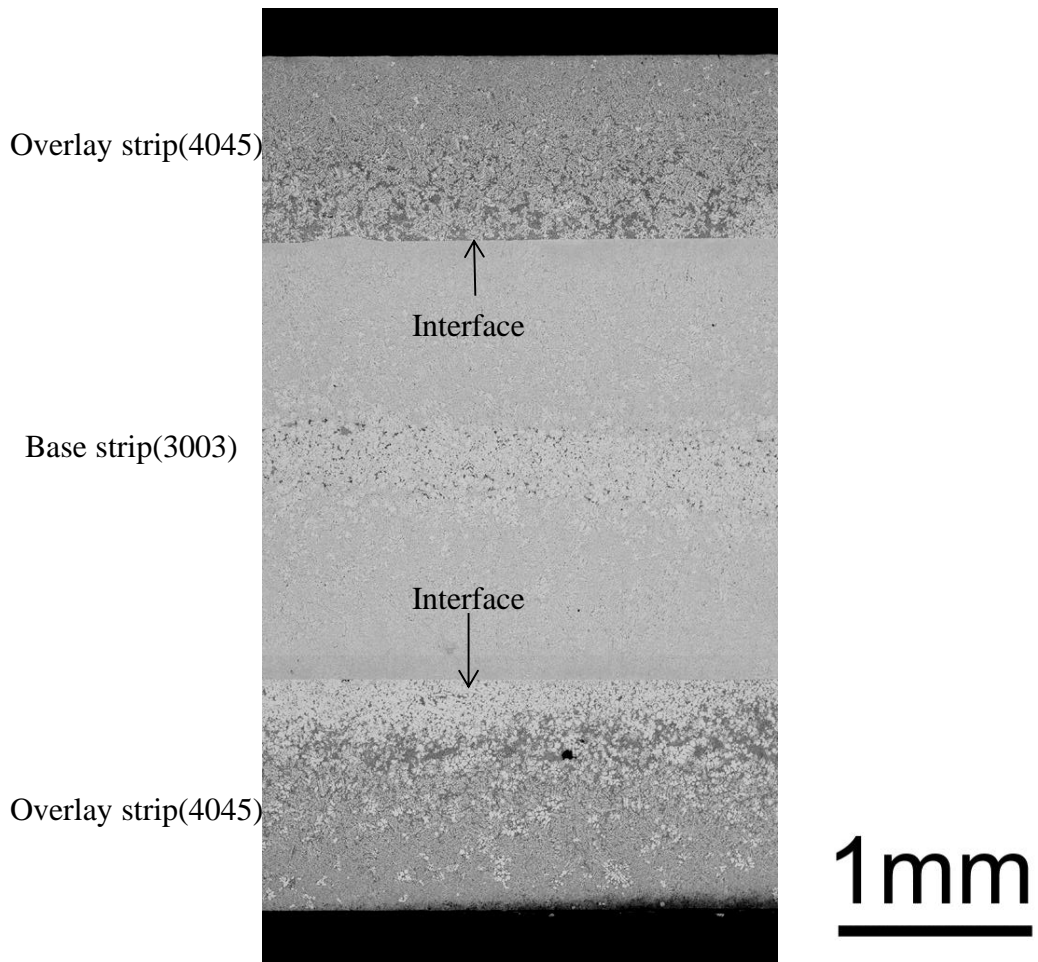


Fig. 2-15 Microstructure of the cross section of three-layered clad strip .

## 第3章 クラッド材を構成するアルミニウム合金の種類と接合界面との関係

### 3.1 緒言

前章では、単ロール法や双ロール法で芯材合金の溶解温度が皮材合金の溶解温度より高い場合において、3層クラッド材のいずれかの接合界面は溶解し、そのため芯材合金と皮材合金に含まれる種々の合金化領域が形成される可能性があることを示した。そこでこの問題を解決するため縦型双ロール法を利用した、溶湯から1工程で3層クラッド材を作製することが可能な「タンデム式縦型高速双ロールキャスト」を考案、試作し、実際に芯材の合金の溶解温度が皮材合金の溶解温度より高い場合において、平滑で合金化領域を持たない接合界面を有するクラッド材を作製できることを示した。

本章では、このタンデム式縦型高速双ロールキャストを用い、実際に芯材合金と皮材合金の溶解温度の大小関係が異なる種々のアルミニウム合金の3層クラッド材を作製し、それらのミクロ組織、特に接合界面組織について調査した。これに加え、皮材に液相線温度と固相線温度との差が大きい、すなわち、固液共存温度範囲が広い合金を用いて、皮材合金の凝固組織形態と鑄造欠陥の発生の有無について調査を行った。

### 3.2 実験方法ならびに鑄造条件

次の4種類の3層クラッド材について調査を行った。

- (1) 芯材に液相線温度の高いアルミニウム合金、皮材に液相線温度の低いアルミニウム合金を使用した3層クラッド材
- (2) 芯材に液相線温度の低いアルミニウム合金、皮材に液相線温度の高いアルミニウム合金を使用した3層クラッド材
- (3) 芯材と皮材に同じ合金を用いた3層クラッド材
- (4) 皮材に広い固液共存領域を有する合金を用いた3層クラッド材

### 3.2.1 製造プロセスおよび装置の概要

Fig.3-1 にタンデム式縦型高速双ロールキャストの概略図を示す。第 1 双ロールで芯材を、第 2 双ロールで皮材を製造する。ロールは純銅製で、直径は 200mm である。第 1, 第 2 双ロールのロール幅は、それぞれ 40, 45mm で、第 2 双ロールのロール幅は第 1 双ロールより 5mm 広い。各々のロールの上にはノズルを設置している。第 2 双ロール状のノズルは、皮材溶湯高さが 100mm 以上になるとオーバーフローするように設計した。これは、第 1 双ロールから出た芯材が皮材合金溶湯に浸漬する長さを一定にするためである。第 1, 第 2 双ロールとも一方のロールは強固に固定されているが、他方のロールはばねを介して固定されているため可動であり、板がロール間隙を抜げる際、板にばねによる荷重がかかる仕組みとなっている。3 層クラッド材の作製は、次のようにして行う。まず、芯材の合金溶湯を第 1 ロールのノズル内に注湯する。すると両ロール上で凝固殻が成長し、これらがロール間隙で合流して合体し、ばねを押し広げながら芯材となって、第 2 双ロールの間隙に向かって降下する。芯材の先端が第 2 双ロール間隙を通過するタイミングで、皮材の合金溶湯を第 2 双ロールのノズル内に注湯する。芯材は第 2 双ロール上で形成された凝固殻（皮材）に挟まれながらロール間隙を通過し、3 層クラッド材が得られる。

### 3.2.2 供試材

実験には 3003 合金, 4045 合金, 8079 合金, 6022 合金と純 Al を用いた。これらの組成を Table3-1 に示す。3003 合金, 4045 合金, 8079 合金, 6022 合金の液相線温度ならびに純 Al の融点は、それぞれ 655, 595, 661, 655, 660℃である。3003 合金, 4045 合金, 8079 合金, 6022 合金の固相線温度は、それぞれ 643, 577, 655, 604℃である。6022 合金の液相線温度は 655℃, 固相線温度は 604℃であるため、固液共存温度範囲は 51℃である。芯材と皮材の合金の組合せは以下の通りである。

- (1) 芯材の液相線温度が皮材の液相線温度より高い合金の組合せによる皮材/芯材/皮材：  
4045/3003/4045 合金
- (2) 芯材の液相線温度が皮材の融点より低い組合せによる皮材/芯材/皮材：純 Al/4045/純 Al
- (3) 芯材と皮材の液相線温度が同じ合金の組合せ：芯材, 皮材ともに 3003 合金
- (4) 皮材に広い固液共存領域を有する合金を用いた組合せによる皮材/芯材/皮材：

### 3.2.3 鑄造条件

Table 3-2 に (1), (2), (3) の場合の鑄造条件を示す。ロール周速は第 1, 第 2 双ロールともに 40m/min とした。第 1 双ロール, 第 2 双ロールの凝固距離は各々 60, 80mm である。注湯温度はそれぞれの液相線より 15°C 高い温度とした。初期荷重は, 第 1 双ロールを 2.2kN, 第 2 双ロールを 1.1kN とした。Table 3-3 は (4) の合金組合せの鑄造条件である。ロール周速は第 1, 第 2 双ロールとも 30m/min とした。第 1, 第 2 双ロールの凝固距離は各々 60, 80mm とした。第 1 双ロールの初期荷重は, 2.2kN, 芯材合金の注湯温度は 700°C とした。皮材合金の溶湯温度は, 芯材と皮材の接合状態に大きな影響を及ぼすと考えられる。そこで, 670, 700, 750°C の 3 種類について調査した。第 2 双ロールの初期荷重は, ロール間隙で芯材と皮材の凝固層にかかる力であり, これもまた 3 層クラッド材の接合状態に大きな影響を及ぼすと考えられる。そこで, 2.2, 8.8, 16kN の 3 種類について調査した。合金溶湯は第 1, 第 2 双ロールともに樋を用いて注湯した。注湯量は, 1 回あたり, 芯材用合金溶湯が約 1.0kg と皮材用合金溶湯が約 1.5kg であり, これより長さ 4m, 幅 45mm の 3 層クラッド材が作製できる。作製した 3 層クラッド材の板厚は, 板厚安定部内で約 4.5mm である。

クラッド材の板厚安定部について, 光学顕微鏡 (OM) を用い, 断面組織観察を行った。さらに接合界面近傍に対し, EPMA による線分析を行った。OM 観察, EPMA 解析用試料は, エメリー研磨紙で #120~#2000 まで機械研磨後, 3 $\mu$ m の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粒子の混濁液を用いてバフ研磨し, 鏡面に仕上げ, 2%HF 水溶液を用いて常温で 30 秒間腐食した。

## 3.3 実験結果および考察

### 3.3.1 芯材合金の液相線温度が皮材合金の液相線温度より高い場合 : (1) の断面組織

Fig.3-2 に 4045/3003/4045 合金クラッド材の断面組織を示す。HF で腐食すると芯材 (Al-1.15wt.%Mn) と皮材 (Al-10wt.%Si) は異なるコントラストを呈するため, 芯材と皮材の境界(界面)を知ることができる。このように平滑な接合界面が得られている。Fig.3-3 に EPMA による Si の線分析結果を示す。解析は, 芯材と皮材の界面を含む組織について行った。Fig.3-3

(b) は SEM-SEI 像で，下側が皮材，上側が芯材である．Si の分析結果と SEM 像を併せて観察すると，皮材内では Si が検出されるが，芯材内では，Si は検出されないことがわかった．この理由として Si の拡散時間から考察してみる．芯材表面が溶湯高さ 100mm の皮材溶湯と接触する間，溶湯中の Si は芯材中に拡散すると考えられる．拡散距離  $d$  は，

$$d = \sqrt{Dt} \quad (3-1)$$

で表わされる．ここで  $t$  は拡散時間 (s)， $D$  は拡散係数 ( $\text{m}^2/\text{s}$ ) である．拡散係数  $D$  は次式により算出され，それは

$$D = D_0 \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \quad (3-2)$$

となる． $D_0$  は拡散定数 ( $\text{m}^2/\text{s}$ )， $Q$  は活性化エネルギー (J/mol)， $R$  は気体定数 (J/K·mol)， $T$  は絶対温度 (K) である． $T$  を皮材の注湯温度 883K とし，拡散定数  $D_0$ ，活性化エネルギー  $Q$  は絶対温度 617~904K の範囲で，それぞれ  $3.5 \times 10^{-5}$  ( $\text{m}^2/\text{s}$ )， $124 \times 10^3$  (J/mol) であるため，これらを式 3-2 に代入すると， $D = 2.3 \times 10^{-12}$  ( $\text{m}^2/\text{s}$ ) となる．ここでロール周速は 40 (m/min) であるから，芯材が皮材溶湯高さ (100mm) を通過する時間  $t$  は 0.15 (s) と見積もられる．よって，これらの  $D$  と  $t$  の値を式 3-1 に代入すると， $d = 0.49 \mu\text{m}$  が得られる．このように本縦型高速双ロールキャスト法ではロール周速が速いため，芯材表面が皮材溶湯と接触する時間が短く，これより芯材内部への Si の拡散が抑制されるものと考えられる．

### 3.3.2 芯材合金の液相線温度が皮材合金の液相線温度より低い場合：(2)の断面組織

Fig.3-4 に芯材に 4045 合金，皮材に純 Al を用いて作製した 3 層クラッド材の断面組織を示す．このように芯材 (Al-10wt%Si) と皮材 (純 Al) の接合界面は不明瞭である．板厚中央部付近ならびに板表面付近について SEM-SEI 観察を行い，さらにその領域について EPMA による Si の線分析を行った．Fig.3-5 に SEM 像と EPMA による Si の線分析結果を示す．SEM 像において，暗いコントラストは初晶  $\alpha$ -Al 母相，明るい粒状のコントラストが共晶 Si 粒子である．このように純 Al の皮材内においても共晶 Si 相が観察されている．第 1 双ロールで凝固した芯材は，第 2 双ロールの皮材溶湯プール内に入り，ロール間隙でロール表面から凝固した皮材凝固殻と接触し，板がロール荷重を受けることで皮材と接合する．しかし，この場合は，皮材の溶解温度 (ここでは純 Al の融点) は芯材の溶解温度より高い．よって，芯材の 4045 合金のデンドライト間の共晶相が再溶解すると考えられる．そのため，板表面の形状は維持されず，芯材の初

晶  $\alpha$ -Al デンドライト相や未溶解の共晶 Si 相粒子が皮材溶湯内に流動し、その結果、皮材組織内に Si 相粒子が観察されたものと考えられる。このように、この場合は、3層クラッド材組織は板厚全体に渡って大きく変化し、クラッド材とは言い難い組織となる。

### 3.3.3 芯材と皮材に同じ合金を用いた場合：(3)の断面組織

Fig.3-6 に芯材と皮材の両方に 3003 合金を用いて作製した 3 層クラッド材の断面組織を示す。芯材表面は細かい結晶粒組織を呈し、接合界面近傍の皮材の結晶粒組織とは組織の細かさが大きく異なるため、芯材と皮材の接合界面を特定することができる。このように接合界面は平滑であった。3003 合金の芯材組織を観察すると、表面部の結晶粒は非常に細かく、板厚中央に向かって、徐々に粗くなっていた。また、板厚中央部には粒状晶の帯が観察された。芯材は、第 1 双ロールの各々のロール表面から成長した凝固殻が合体して板となるため、板厚中央部を境に上下対称の組織となっている。皮材の組織は板表面では微細な結晶粒組織である。接合界面方向に向かって、柱状晶、等軸晶、粒状晶、粗大な等軸晶組織と変化している。皮材溶湯がロール表面と接触することにより、凝固殻が形成するが、ロール間隙において荷重を受けるため、凝固殻とロール表面の密着性が増加する。これより残液が凝固する。このときの凝固組織は等軸晶と粒状晶からなる。一方、芯材は皮材溶湯内を通過するが、その際芯材表面が皮材の合金溶湯の異質核として作用するため、芯材表面からも皮材合金の固相が成長すると考えられる。接合界面で観察される粗大な等軸晶はこのようにして形成されたものであると考えられる。

### 3.3.4 広い固液共存領域を有する合金を皮材に用いた場合：(4)の断面組織

まず、第 2 双ロールの初期荷重を 8.8kN に固定して、皮材注湯温度のみを変化させた際の結果について述べる。Fig.3-7 は、各々皮材合金の注湯温度 670, 700, 750°C で作製したクラッド材の接合界面近傍の組織である。すべての注湯温度で、接合界面付近の皮材側に欠陥が観察された。欠陥は、その形状によりポロシティ ( $\Delta$ ) と内部割れ ( $\times$ ) に分類できる。注湯温度 670°C のときは、 $\Delta$  が生じていた。注湯温度 700°C の場合もポロシティ ( $\Delta$ ) が生じていた。これに対し、注湯温度 750°C では、内部割れが観察された。

次に皮材の注湯温度を 670°C と固定し、第 2 双ロールの初期荷重のみを変化させた際の結果を示す。Fig.3-8 は初期荷重 2.2, 8.8, 16.0kN で作製したクラッド材の接合界面近傍組織である。

初期荷重 2.2, 8.8kN ではポロシティ ( $\Delta$ ) が観察された。一方, 初期荷重 16.0kN では, どの欠陥も観察されなかった。さらに, Table 3-3 の条件で追加実験を行い, Fig.3-9 に示す結果を得た。図中, 縦軸は初期荷重, 横軸は注湯温度で, 各々の条件における欠陥の状況を○ (健全な接合界面),  $\Delta$  (皮材にポロシティ),  $\times$  (皮材に内部割れ) と分類してプロットしている。○は初期荷重 16.0kN, 注湯温度 670, 700°C のときであった。 $\Delta$  は, 初期荷重 2.2, 8.8kN, 注湯温度 670, 700°C のときであった。注湯温度 750°C ではどの初期荷重でも内部割れ ( $\times$ ) が観察された。初期荷重が 8.8kN 以下, 注湯温度が 700°C 以下の条件では, ポロシティ ( $\Delta$ ) が観察された。このように, 初期荷重 16.0kN, 注湯温度 700°C 以下では欠陥のない健全な接合界面 (○) をもつクラッド材の作製が可能であった。

皮材に使用した 6022 合金で  $\times$  や  $\Delta$  の欠陥が生じる原因について検討する。6022 合金の主たる添加元素は Si であるため, ここでは, 6022 合金を 2 元系 Al-Si 合金に簡等化して考えることにする。Fig.3-10 に Al-Si の 2 元系平衡状態図<sup>1)</sup>を示す。6022 合金には, Si を約 1wt% 含んでいる。この組成を図中二点鎖線で示す。液相線と固相線間の温度が, 固液共存温度範囲であるが, Al-1wt%Si の場合, その温度範囲は約 54°C である。Al-Si 合金の鋳物に関する過去の研究により, この固液共存温度範囲は準固相線によって 2 つの領域に分けられることが知られている。液相線と共晶線と準固相線で囲まれた領域は準液相と呼ばれる。また固相線と共晶線と準固相線で囲まれた領域は準固相と呼ばれる。準液相領域は, 金型などに注湯された溶湯が液相線に達し, 初晶  $\alpha$ -Al 相がデンドライト成長し始めた凝固の初期段階に対応する。この領域では多少の固相はあるが液相が多いため, 強度を持たず, 流動することが可能である。準固相領域では, デンドライトの成長が進み, 固相量が多くなる。ここではデンドライト同士の接触や結合が生じるため, 流動性はなく, また若干の強度を持つ。準液相温度範囲と準固相温度範囲の大小は, 凝固収縮に伴う引け欠陥への溶湯の補給しやすさを変えると考えられる<sup>2), 3)</sup>が, Al-1wt%Si 合金の場合, 固液共存温度範囲の約 8 割 (約 40°C) が準固相温度範囲にある。

まず皮材合金の注湯温度が 750°C で生じる  $\times$  の欠陥が生じる原因について考察する。皮材合金は, ロール表面と接触し, デンドライト成長し, 凝固殻を形成する。凝固殻は, ロール回転方向に引き込まれ, ロール間隙で荷重を受けるが, 皮材合金の注湯温度が高いことに加え, その固液共存温度範囲は広くマッシー型凝固するため, クラッド材は皮材凝固殻と芯材の間に未凝固層が含まれた状態でロール間隙を通過すると考えられる。未凝固層を含む板がせん断負荷

を受けると、それは液膜上に板長手方向に広がると考えられる。この液膜がロール間隙から板が排出された後に凝固するため、連続した内部割れとなる。

一方、皮材注湯温度 700℃以下、初期荷重 8.8kN 以下では、皮材凝固殻と芯材の間は準固相温度範囲の固液共存状態にあると考えられる。ロール間隙において、この固液共存領域の液相は凝固するが、すでに固相率が高いため、クラッド材がロール間隙から出た後、皮材内の残留液相の凝固に伴う凝固収縮部への液相の供給が十分に行われず、引け欠陥であるポロシティが発生したと考えられる。

健全な接合界面をもつクラッド材は、注湯温度 700℃以下で、初期荷重 16.0kN のときに得られたが、これは初期荷重が高いため、ロール間隙において皮材の凝固が完了し、残留液相が残らなかったためであると考えられる。

### 3.6 小括

タンデム式縦型高速双ロールキャストを用い、芯材合金と皮材合金の溶解温度の大小関係が異なる種々のアルミニウム合金の 3 層クラッド材を作製し、それらのマイクロ組織、特に接合界面組織について調査した。これに加え、皮材に固液共存温度範囲が広い合金を用いて、皮材合金の凝固組織形態と铸造欠陥の発生の有無について調査を行った。

芯材合金の液相線温度が皮材合金の液相線温度より高い場合では、芯材内で皮材合金の溶質元素である Si が検出されなかった。これは、ロール周速が速いため、芯材内部への Si の拡散が抑制されるものであると考えられる。

芯材合金の液相線温度が皮材合金の液相線温度より低い場合では、芯材と皮材の接合界面は不明瞭であり、クラッド材とは言い難い組織となる。これは、皮材の溶解温度が芯材の溶解温度より高いため、芯材のデンドライト間の共晶相が再溶解して、芯材の初晶  $\alpha$ -Al デンドライト相や共晶 Si 相粒子が皮材溶湯内に流動するためであると考えられる。

広い固液共存領域を有する合金を皮材に用いた場合では、注湯温度 750℃、すべての初期荷重において皮材に内部割れが生じ、注湯温度 700℃以下、初期荷重 8.8kN 以下において皮材にポロシティが生じる。これらの欠陥は、クラッド材が皮材凝固殻と芯材の間に未凝固層が含まれた状態でロール間隙を通過後、残留液相が凝固するためである。その未凝固層の固相率によっ

て欠陥は変わり，固相率が低い場合において内部割れが生じ，固相率が高い場合においてポロシティが生じると考えられる．注湯温度 700℃以下で，初期荷重 16.0kN のときに得られたが，これは初期荷重が高いため，ロール間隙において皮材の凝固が完了し，残留液相が残らなかったためであると考えられる．

## 参考文献

- 1) 磯部，久保田，北岡：鑄物，47(1975)，345.
- 2) 高橋，工藤，吉年：日本金属学会誌，43(1979)，1086.
- 3) 雄谷，本間，神戸：鑄研報告，43(1987)，1.

	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
3003	0.25	0.61	0.16	1.13	0.01	0.01	0.02	0.03	Bal.
4045	9.78	0.16	0.01	0.02	0.01	0.01	0.02	0.01	Bal.
8079	0.15	1.0	0.05	0	0	0	0.1	0	Bal.
6022	1.0	0.14	0.01	0.1	0.6	0	0	0.02	Bal.
Pure-Al	0.04	0.09	0	0	0	0	0	0	Bal.

Table 3-2 Casting conditions for (1)4045/3003/4045,  
(2)Pure-Al/4045/Pure-Al and (3)3003/3003/3003

First caster	Material	3003	4045	3003
	Casting temperature(°C)	670	610	670
	Solidification length(mm)	60	60	60
	Initial load(kN)	2.2	2.2	2.2
Second caster	Material	4045	Pure-Al	3003
	Casting temperature(°C)	610	675	670
	Solidification length(mm)	80	80	80
	Initial load(kN)	2.2	2.2	4.4
Roll speed(m/min)		40	40	40

Table 3-3 Casting conditions for (4)6022/8079/6022

First caster	Material	8079
	Casting temperature(°C)	700
	Solidification length(mm)	60
	Initial load(kN)	2.2
Second caster	Material	6022
	Casting temperature(°C)	670, 700, 750
	Solidification length(mm)	80
	Initial load(kN)	2.2, 8.8, 16.0
Roll speed(m/min)		30

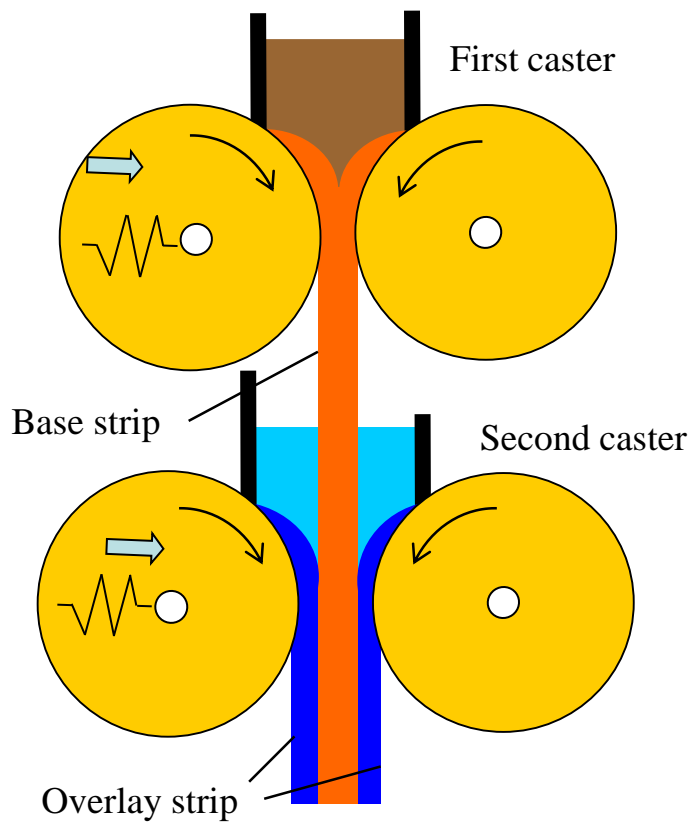


Fig. 3-1 Schematic illustration of the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster.

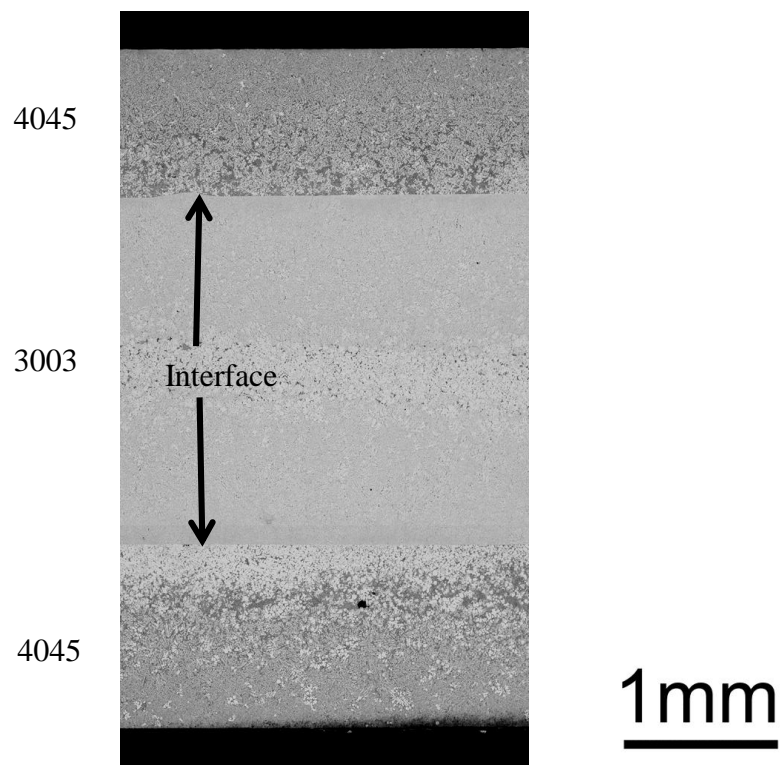


Fig. 3-2 Microstructure of the three-layered clad strip.

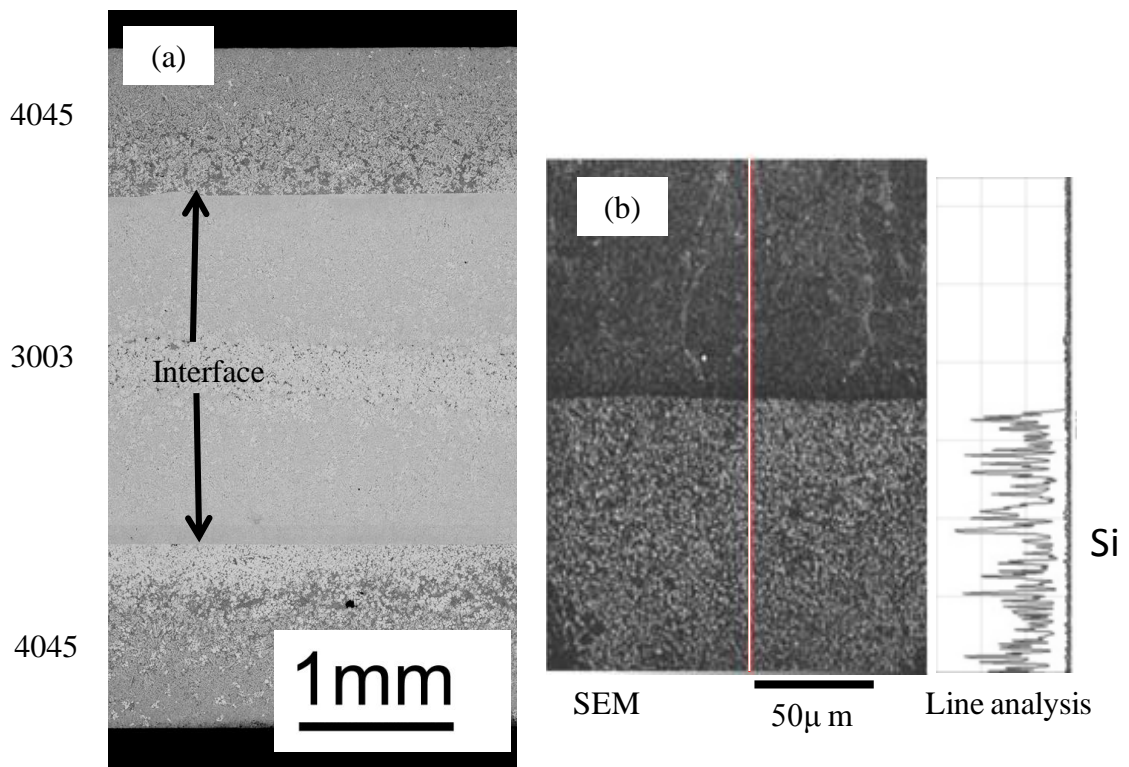


Fig. 3-3 Line analysis of the joint interface by EPMA. (a): microstructure of the clad strip, (b): SEM image and line analysis of Si.

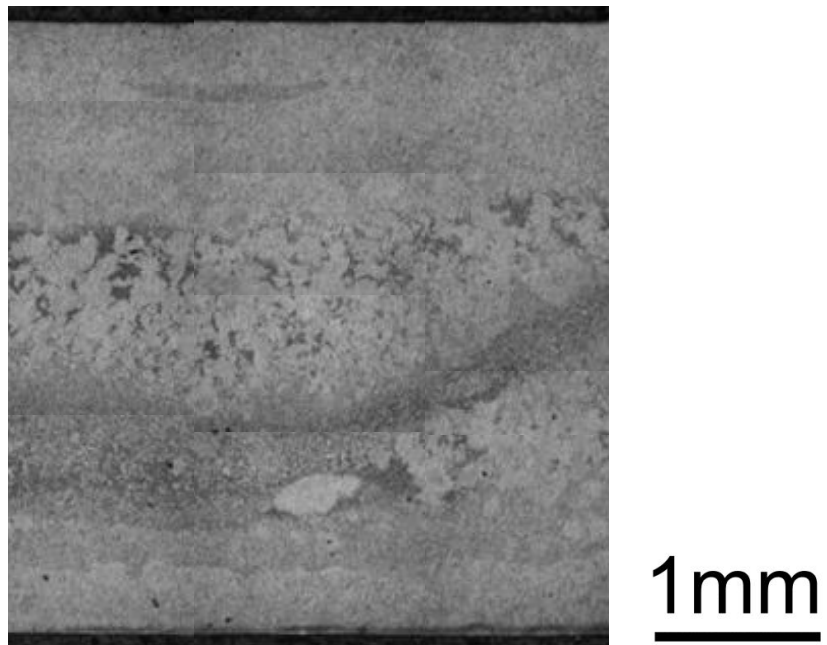


Fig. 3-4 Microstructure of pure Al/ 4045/ pure Al clad strip.

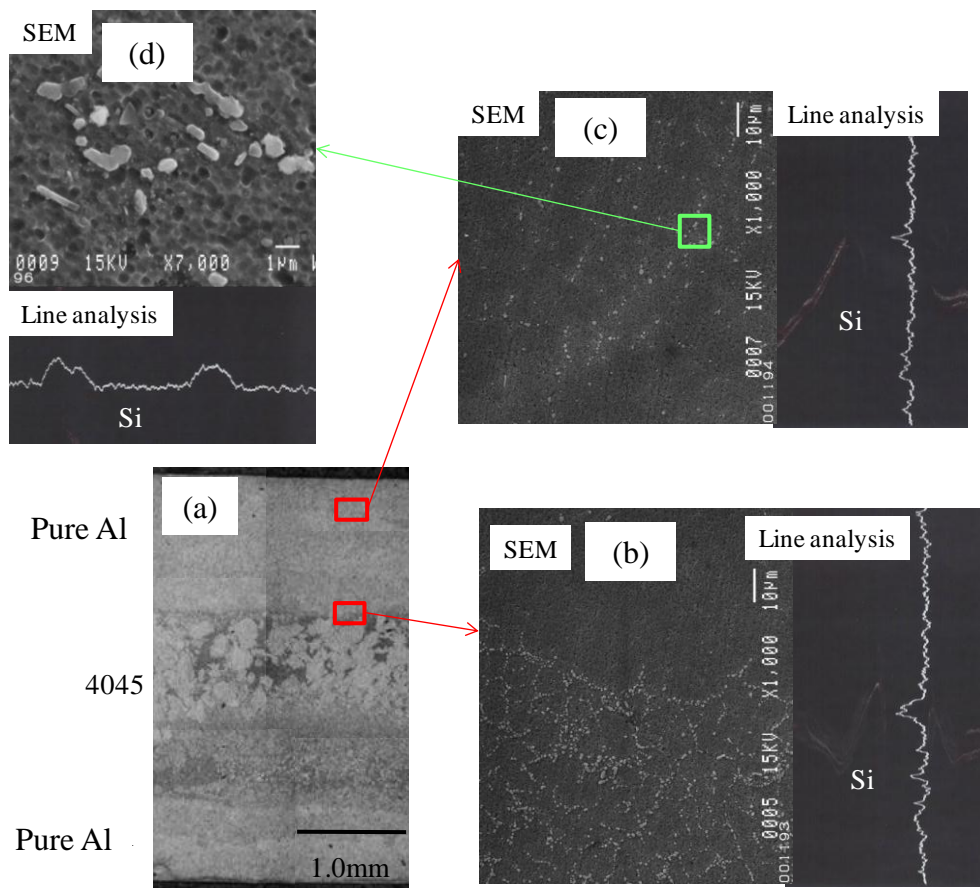


Fig. 3-5 Line analysis of pure Al/ 4045/ pure Al clad strip. (a): Microstructure of the clad strip, (b): SEM image and line analysis near central area in (a), (c): SEM image and line analysis near surface area in (a), (d): SEM image and line analysis in (c).

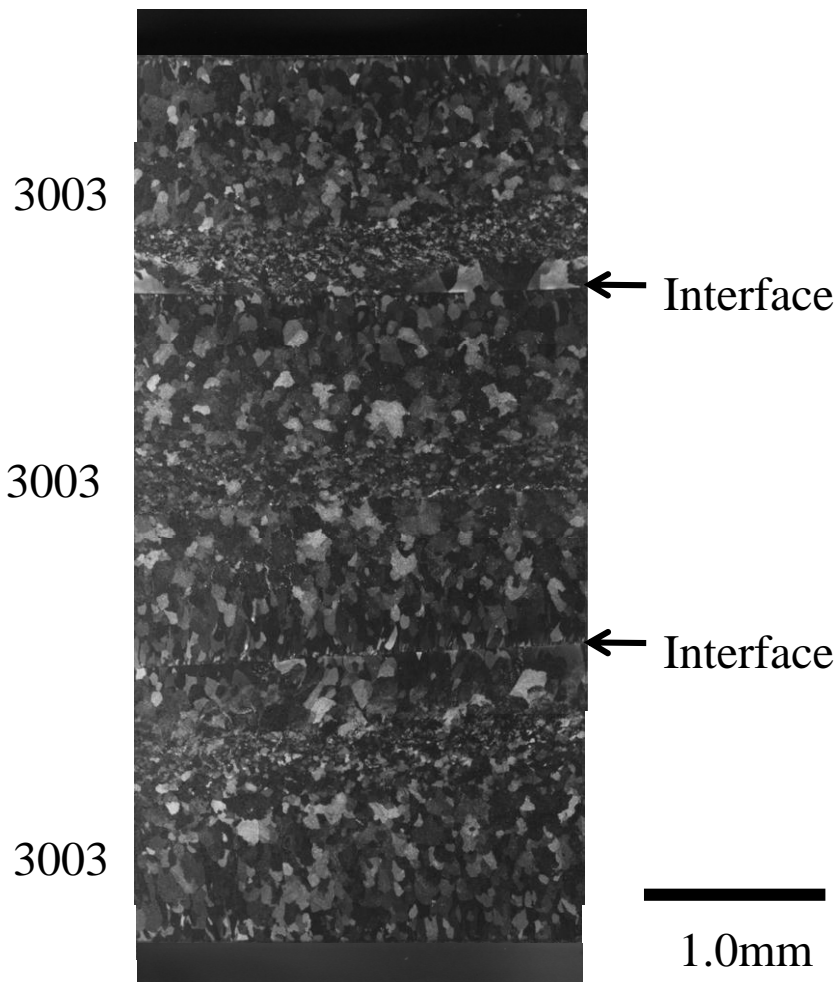


Fig. 3-6 Grain structure of 3003/ 3003/ 3003 clad strip.

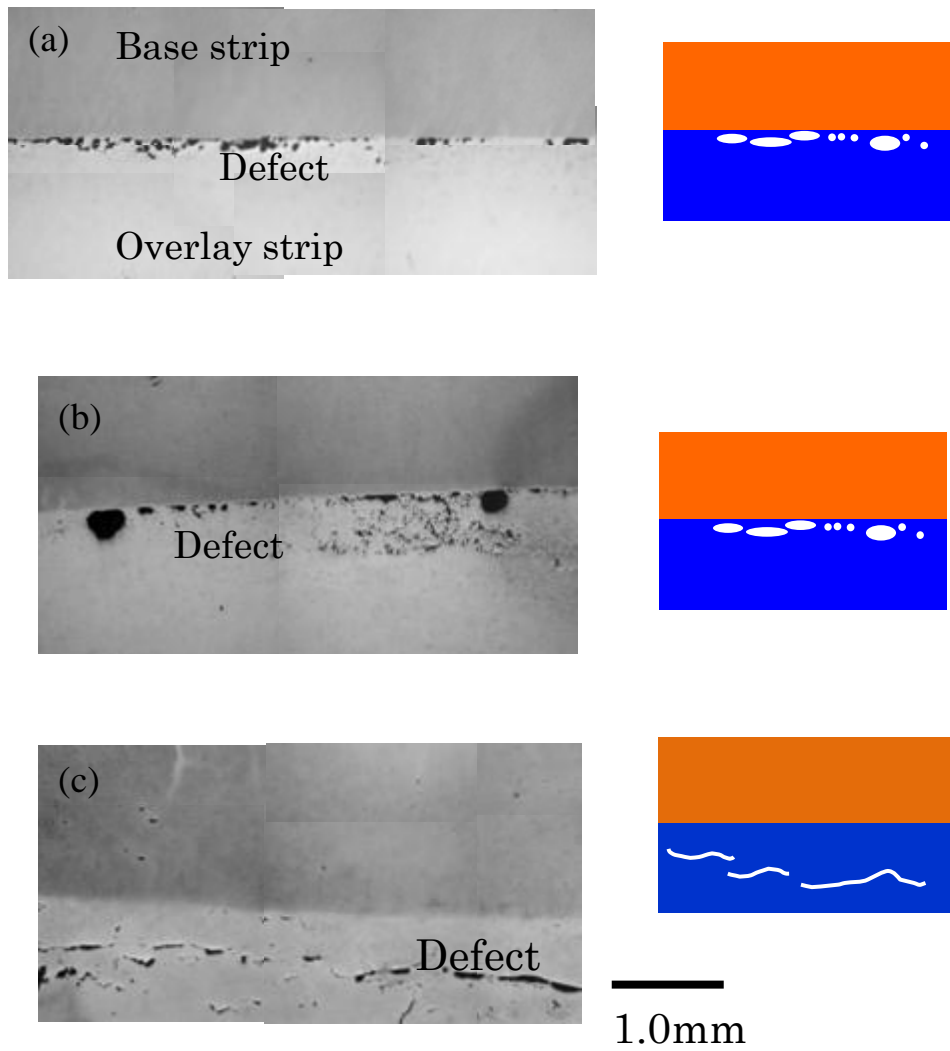


Fig. 3-7 Microstructure and illustration of the interface between the base strip and overlay strip of the clad strip cast by three different casting temperatures of overlay strip.(a):670°C, (b):700°C, (c)750°C

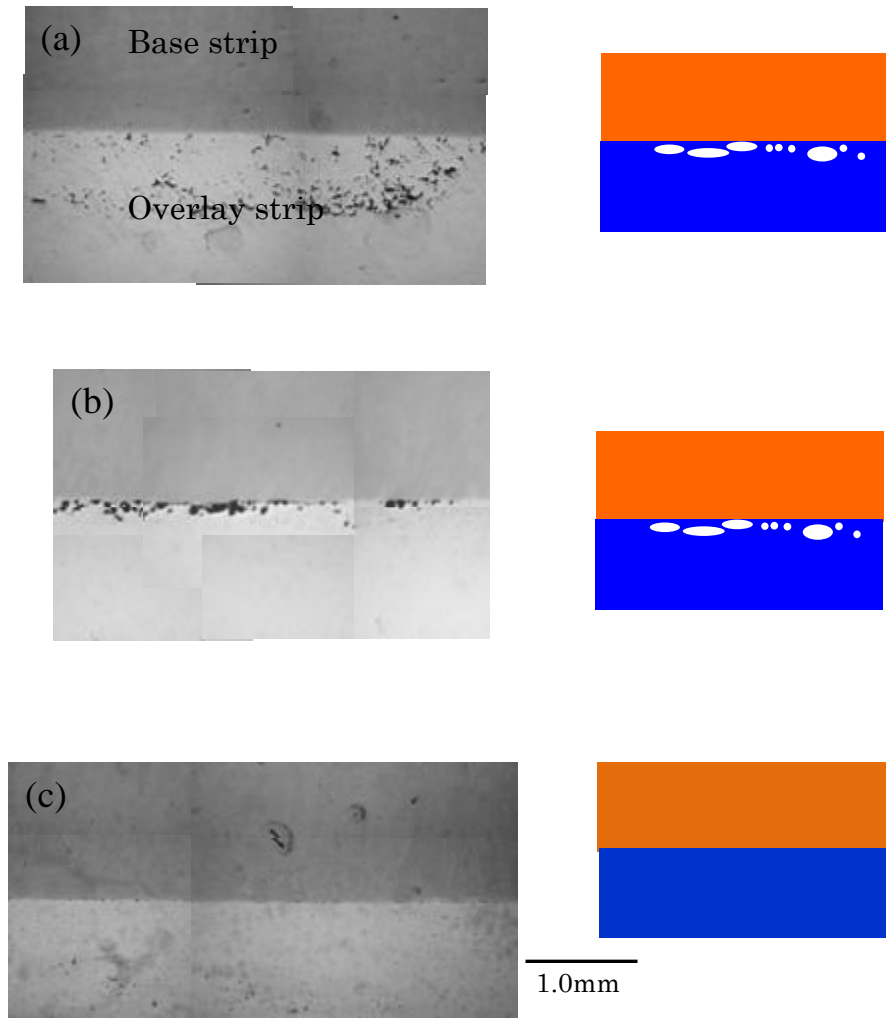


Fig. 3-8 Microstructure and illustration of the interface between the base strip and overlay strip of the clad strip cast by three different initial loads of the second caster.(a):2.2kN, (b):8.8kN, (c)16.0kN

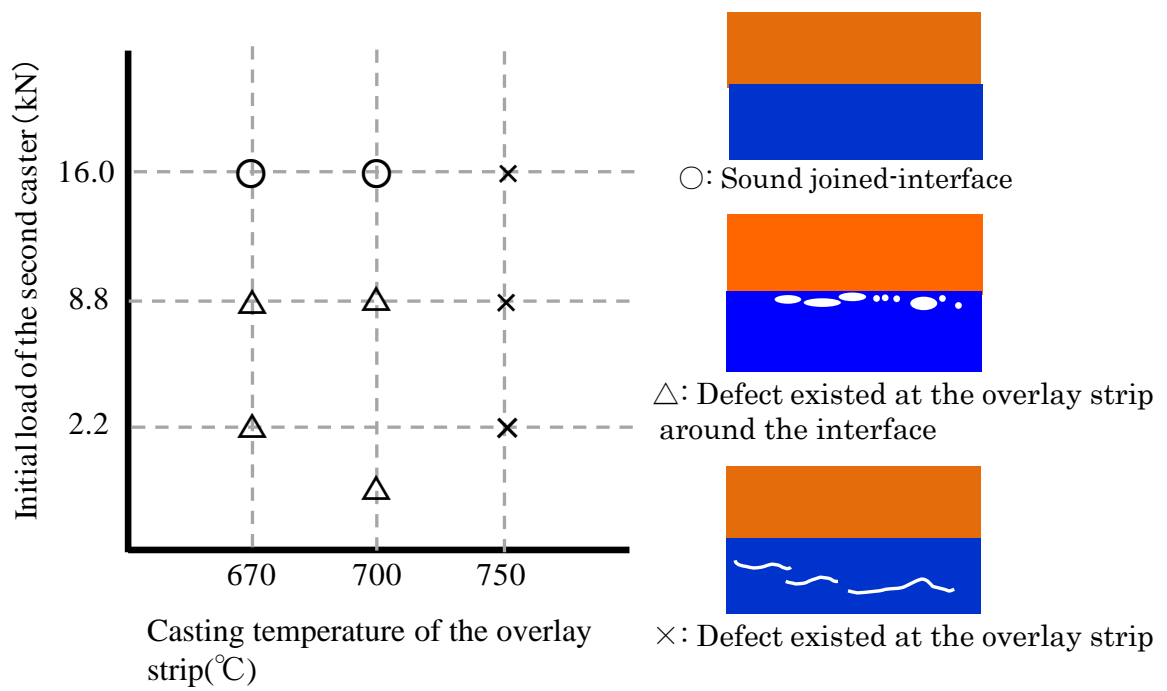


Fig. 3-9 Relationship among the casting temperature of the overlay strip, initial load of the second caster and condition of the overlay strip.

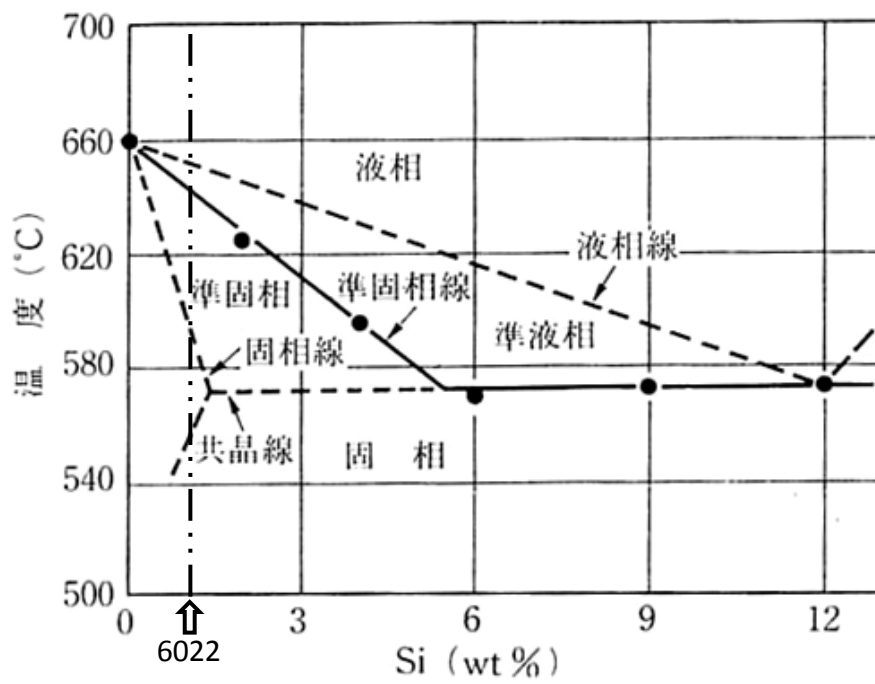


Fig. 3-10 Solidification temperature range of Al-1wt.%Si alloy.

## 第4章 タンデム式縦型高速双ロールキャストによる 4045/3003/4045 合金 クラッド材の作製

### 4.1. 緒言

自動車用熱交換構成部品の一つにブレイジングシートがある。代表的なブレイジングシートは3層クラッド材であり、芯材として耐食性の良い Al-Mn 系の 3xxx 系合金、皮材として比較的融解温度の低い Al-Si 系の 4xxx 系合金を用い、ろう材として利用するという特徴がある<sup>1)-3)</sup>。第1章でも述べたように、このブレイジングシートの製造工程は非常に複雑である。まず DC 鋳造によって、溶湯から各合金のスラブを作製する。スラブを表面研削し、所定の厚さまで熱間、冷間圧延する。その後、それぞれの板を重ね合せ、仮付溶接を行い、加熱、熱間圧延、冷却を繰り返して行って接合し、最後に目標の板厚まで冷間圧延する<sup>3)-6)</sup>。本研究では、このような複雑かつ数多くの工程を削減可能な溶湯から1工程でクラッド材が作製できる装置を開発した。これが縦型双ロールキャストを垂直方向に並べた「タンデム式縦型高速双ロールキャスト」である。第3章では、芯材と皮材の合金溶融温度の大小関係に注目し、種々の組合せにおける芯材と皮材の接合界面の状態について検討を行った。その結果、芯材の溶融温度が皮材の溶融温度より高い合金の組合せでは、本手法におけるロール周速が十分速いため、芯材と皮材溶湯の接触時間が短く、皮材に含まれる溶質元素の芯材への拡散が抑えられ、その結果、合金化領域を有しない平滑な接合界面が得られることを明らかにした。

そこで本章では、芯材と皮材合金の溶融温度の関係がこのような組合せである 4045/3003/4045 合金クラッド材を対象とし、特に皮材の凝固組織に与える皮材合金の注湯温度および第2双ロールの初期荷重の影響について調査した。また接合界面における溶質元素の拡散について詳細な検討を行った。さらに、引張試験ならびに引張せん断試験を行って、クラッド材の接合強度について調べた。

## 4.2 実験方法

### 4.2.1 供試材

芯材に 3003 合金，皮材に 4045 合金を使用した．Table4-1 に両合金の化学成分を示す．

### 4.2.2 製造プロセスおよび装置概要

Fig.4-1 にタンデム式縦型高速双ロールキャストの概略図を示す．第 1 双ロールで芯材を，第 2 双ロールで皮材を製造する．ロールは純銅製で，直径は 200mm である．第 1，第 2 双ロールのロール幅は，それぞれ 40，45mm であり，第 2 双ロールのロール幅は第 1 双ロールより 5mm 広い．各々のロールの上にはノズルを設置している．第 2 双ロール上のノズルは，皮材合金の溶湯高さが 100mm 以上になるとオーバーフローするように設計している．これは，芯材が皮材溶湯に浸漬する長さを一定にするためである．第 1，第 2 双ロールとも一方のロールは強固に固定されている．他方のロールはばねを介して固定されているため可動であり，板がロール間隙を拡げる際，板にばねによる荷重がかかる仕組みとなっている．3 層クラッド材の作製は，次のようにして行う．まず，芯材の合金溶湯を第 1 ロールのノズル内に注湯する．すると両ロール上で凝固殻が成長し，これらがロール間隙で合流して合体し，ばねを押し広げながら芯材となって，第 2 双ロールの間隙に向かって降下する．芯材の先端が第 2 ロール間隙を通過するタイミングで，皮材の合金溶湯を第 2 ロールのノズル内に注湯する．芯材は第 2 ロール上で形成された凝固殻(皮材)に挟まれながらロール間隙を通過し，3 層クラッド材が得られる．

### 4.2.3 製造条件

第 1 双ロールの初期荷重を，2.2kN 一定，芯材注湯温度を 670°C，第 1，第 2 双ロールの凝固距離を，それぞれ 60mm，80mm とした．それぞれの合金溶湯は第 1，第 2 双ロールともに樋を介して注湯した．1 回あたりの注湯量は芯材用合金溶湯が約 1.0kg と皮材用合金溶湯が約 1.5kg で，これより長さ 4m，幅 45mm の 3 層クラッド材が作製できる．3 層クラッド材の板厚は，注湯開始時は薄いですが，ノズル内の溶湯プール高さの上昇とともに厚くなり，溶湯プール高さが一定となると厚さも一定となる．そしてその後，注湯終了時に溶湯プール高さの減少に伴い再び薄くなる．得られたクラッド材の板厚安定部のマイクロ組織を光学顕微鏡(OM)を用いて，観察し

た．さらに接合界面近傍について，EPMA による線分析を行った．OM 観察，EPMA 解析用試料は，エメリー研磨紙で＃120～＃2000 まで機械研磨後，3 $\mu$ m の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 粒子の混濁液を用いてバフ研磨し，鏡面に仕上げし，2%NaOH 水溶液を用いて常温で 90s 間腐食した．

#### 4.2.3.1 皮材合金の注湯温度の影響に関する調査

皮材の合金溶湯は，芯材表面と接触する．そこで，皮材の注湯温度を，芯材の固相線温度(643 $^{\circ}$ C)以下の 610 $^{\circ}$ C，芯材の液相線温度以上の 700 $^{\circ}$ C の 2 種類とした．ここでは第 2 双ロールの初期荷重は 1.1kN 一定，凝固距離は 80mm 一定，ロール周速は 20m/min である．

#### 4.2.3.2 第 2 双ロールの初期荷重の影響に関する調査

第 2 双ロールの初期荷重は，第 1 双ロールで作製した芯材と第 2 双ロールのロール表面から凝固した皮材凝固層の間の接触圧力を変化させる．そこで第 2 双ロールの初期荷重を 0.5, 1.1, 4.4, 8.8kN の 4 種類に変化させた．ここでは皮材の注湯温度は 610 $^{\circ}$ C 一定，ロール周速は 40m/min である．

#### 4.2.3.3 繰返し曲げ試験方法

作製したクラッド材について，芯材と皮材の接合界面での剥離が起こるか否かについて調査するための繰返し曲げ試験を行った．作製した as-cast の幅 45mm の板厚安定部のクラッド材の側面部を左右 5mm ずつ切断し，幅 35mm (板幅方向) のクラッド材とし，それより長さ 50mm ( casting 方向) の曲げ試験片を採取した．繰返し曲げは，試験片を長さ 25mm になるように万力に固定し，板上端を板が破断するまで左右に 90 $^{\circ}$  曲げを繰り返して行った．

#### 4.2.3.4 引張試験および引張せん断試験

作製した 3 層クラッド材を板厚 1.0mm まで冷間圧延し，それより Fig.4-2 に示す JIS7 号試験片を放電加工機によって切り出した．その後，450 $^{\circ}$ C で 2 時間の焼鈍処理を行った．

引張せん断試験片は，作製した 3 層クラッド材を 3.5mm まで冷間圧延し，75mm (圧延方向)  $\times$  15mm (板幅方向)  $\times$  3.5mm (板厚方向) の立方体とした後，芯材と皮材厚さを断面観察から測定し，直径 1mm のエンドミルで 2 か所に切り欠きを導入して Fig.5-3 に示すように 1 つ目の

切り欠きは皮材（4045 合金）のみに、2 つ目の切り欠きは、皮材 1 層と芯材に渡る 2 層分に導入した。引張、引張せん断試験は、インストロン型試験機を用いて行い、室温、クロスヘッド速度 0.5mm/min で行った。

### 4.3 実験結果および考察

#### 4.3.1 接合界面における溶質元素の拡散と皮材凝固組織に及ぼす皮材合金の注湯温度の影響

Fig.4-4 に皮材合金の注湯温度が各々 610, 700℃で作製したクラッド材の接合界面組織を示す。接合界面はほぼ平滑であった。注湯温度が高い（700℃）場合の接合界面に対し EPMA 分析を行い、芯材内に Si が検出されるかどうか調査した。Fig.4-5 に接合界面の SEM-SEI 像とその領域内の Si の分析結果を示す。SEM 像では、下側が芯材、上側が皮材である。このように芯材側で Si は全く検出されなかった。これは、ロール周速が速いため（20m/min=333.3mm/s）、芯材が皮材の合金溶湯中（100mm）を通過する時間が 0.3s と短く、Si が芯材へ拡散することができないためであると考えられる。Fig.4-6 に 610℃, 700℃の場合の皮材の板表面近傍、板表面と皮材内部、芯材との接合界面近傍の凝固組織を示す。いずれも皮材は微細な初晶  $\alpha$ -Al デンドライトと共晶組織からなっている。急冷凝固による  $\alpha$ -Al 相のセル状成長のため、初晶  $\alpha$ -Al デンドライト形態が明瞭でない表面部を除いた領域において交線法によりデンドライト 2 次アーム間隔（DAS）を測定した。注湯温度 610℃では、DAS が板表面近傍で 4.4 $\mu$ m、表面と接合界面の間で 4.6 $\mu$ m、接合界面近傍で 6.2 $\mu$ m であった。注湯温度 700℃では、板表面近傍で 4.7 $\mu$ m、表面と接合界面の間で 5.2 $\mu$ m、接合界面近傍で 6.7 $\mu$ m であった。このように、皮材表面から接合界面方向に向かって、DAS はわずかに増加していた。また 700℃の方が 610℃に比べ、全体的にやや DAS は小さかった。次に Fig.4-7 は Fig.4-6 に比べやや倍率の高いマイクロ組織写真である。板表面近傍の共晶 Si 粒子は、粒径が 1 $\mu$ m 程度で非常に微細であった。これは皮材溶湯が銅ロール表面に接触し、急冷凝固されたためであると考えられる。接合界面近傍の共晶 Si 粒子は、表面近傍と比較すると幾分大きくなり、1~3 $\mu$ m 程度でその形態は棒状や板状を呈していた。

#### 4.3.2 皮材の凝固組織に及ぼす第2双ロールの初期荷重の影響

Fig.4-8 は第2双ロールの初期荷重が各層の板厚に及ぼす影響について示したものである。初期荷重が変化しても、総板厚約 3.8mm、芯材厚さ約 2.0mm、各々の皮材厚さ約 0.9mm でほぼ一定値であった。次に初期荷重の変化に伴う皮材のマイクロ組織の変化を Fig.4-9 に示す。初期荷重 0.5kN では、表面近傍の初晶  $\alpha$ -Al 相や共晶凝固組織は微細であるが、接合界面に近づくとつれて、それらは粗大になり、接合界面近傍にポアも観察された。これに対し、初期荷重 1.1, 4.4, 8.8kN の断面組織では、表面近傍から接合界面まで初晶  $\alpha$ -Al 相や共晶凝固組織が微細であり、ポアは観察されていない。Fig.4-10 にそれぞれの条件の皮材表面と接合界面組織をさらに拡大した写真を示す。ポアが観察されなかった初期荷重 1.1~8.8kN では、荷重の増加とともに共晶 Si 粒子の寸法が細かくなっている。皮材の凝固過程を考えてみると、まず、皮材の合金溶湯がロール表面と接触すると、 $\alpha$ -Al デンドライトが線成長し、ネットワークを形成する。デンドライト間の残留液相はその後凝固するが、その際ロール間隙で荷重を受けるため、凝固殻とロール表面の接触状態は、このときの急冷速度に大きな影響を及ぼす。すなわち荷重が大きいほどロールと凝固殻の接触状態が良くなり抜熱が促進され、デンドライト間隙のほぼ共晶組成の合金融液は急冷されるため、より微細な共晶 Si 粒子となるのである。一方、初期荷重 0.5kN では、板材全体に渡って共晶凝固組織は粗い。特に接合界面近傍の Si 相が粗く板状なのは、ロール間隙で板が受ける荷重が小さいため、凝固殻とロール表面の接触状態がそれほど良くなく、十分な抜熱効果が得られないため、ロール間隙通過後の板内に液相が残存し、それが空冷されるため、粗い共晶凝固組織になるためであると考えられる。ポアの形成についても同様の理由で説明できる。0.5, 1.1, 8.8kN の初期荷重で作製したクラッド材に対し、繰返し曲げ試験を行った。Fig.4-11 に繰返し曲げによる破断後の試験片の断面組織を示す。このように接合界面で剥離することなく、芯材と皮材は各々の母相破断していた。これは本クラッド材の接合強度の強さを示唆している。

#### 4.3.4 クラッド材の引張特性ならびに引張せん断特性

皮材注湯温度 610°C、初期荷重 1.1kN で作製したクラッド材に対し、引張試験を行ったところ、引張強さとして 146MPa が得られた。本縦型高速双ロールキャストを用いて同様に作製した単層の 3003 合金、4045 合金板に対して引張試験したところ、3003 合金板の引張強さは 150MPa、

4045 合金の引張強さは 131MPa であることがわかった。本クラッド材を並列型の複合モデルで取り扱う。 $\sigma_f$  を 3003 合金板の引張強さ、 $V_f$  を 3003 合金のクラッド率、 $\sigma_m$  を 4045 合金板の引張強さとする、3 層クラッド材の引張強さ  $\sigma$  は次式で表わされる。

$$\sigma = \sigma_f V_f + \sigma_m (1 - V_f) \quad (4-1)$$

Fig.4-12 に示す 3 層クラッド材の断面組織より 3003 合金の体積率  $V_f$  を見積もると 52% となる。この値を 4-1 式に代入すると、 $\sigma = 141\text{MPa}$  が得られる。このように実験的に求めたクラッド材の引張強さは複合則により予測した引張強さとよく一致する。このことはクラッド界面において強固な接合が達成されていることを示している。

次に 3 層クラッド材の接合強度を評価するために引張りせん断試験を行った。作製した試験片の切り欠き部の写真を Fig.4-13 に、引張せん断試験後の試験片の断面を Fig.4-14 に示す。切り欠き間長さは 1mm、試験片幅は 35mm であるため、せん断面積を  $35 \times 10^6 \text{ (mm}^2\text{)}$  として、せん断応力を見積もったところ、80MPa となった。芯材はせん断方向に延び、接合界面で剥離せず、破断は芯材母相で起きていると考えられる。このことは本手法で作製した 3 層クラッド材の芯材と皮材が強固に接合されていることを表している。

#### 4.4 小括

タンデム式縦型高速双ロールキャストで 4045/3003/4045 合金クラッド材を作製して、皮材の凝固組織に与える皮材溶湯温度および第 2 双ロールの初期荷重の影響について調査した。また接合界面における溶質元素の拡散について詳細な検討を行った。さらに、引張試験ならびに引張せん断試験を行って、クラッド材の接合強度について調べた。

皮材凝固組織や接合状態におよぼす皮材合金の注湯温度の影響は小さい。これは、ロール周速が速く、芯材への皮材合金の溶質元素である Si の拡散が進まないためである。

皮材凝固組織におよぼす第 2 双ロール荷重の影響は大きい。大きな荷重は、ロール間隙でデンドライト間の液相の凝固速度を速くするため、Si 粒子が細くなり、かつポアの発生も防止できる。

3 層クラッド材の引張強さは複合則（並列モデル）より求めた引張強さで整理できる。引張せん断試験の結果、芯材はせん断方向に伸び、芯材母相で破断していた。これらのことは、3

層クラッド材の接合界面が強固に接合されていることを示している。

#### 参考文献

- 1)伊東章郎,岩井克夫,長良敏夫,宮木美光,藤本日出夫,瀧川淳: 軽金属, 44(1994),246-252.
- 2)今泉重威: 軽金属,29(1979),115-127.
- 3)D.M.Turriff, S.F.Corbin and M.Kozdvas: Acta Materialia, 58 (2010) 1332-1341.
- 4)J.S.Yoon, S.H.Lee and M.S.Kim: Journal of Materials Processing Technology, 111 (2001) 85-89.
- 5)S.Tievce, N.Peberé, C.Blanc, C.Casenave, Q.Mankowski and H.Robidon: Electrochimica Acta, 52 (2006) 1092-1100.
- 6)F.Gao, H.Zhao, D.P.Sekulic, Y.Qian and L.Walleer: Materials Science and Engineering A, 337 (2002) 228-235.

Table4-1 Chemical composition									(wt.%)
	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
3003	0.25	0.61	0.16	1.13	0.01	0.01	0.02	0.03	Bal.
4045	9.78	0.16	0.01	0.02	0.01	0.01	0.02	0.01	Bal.

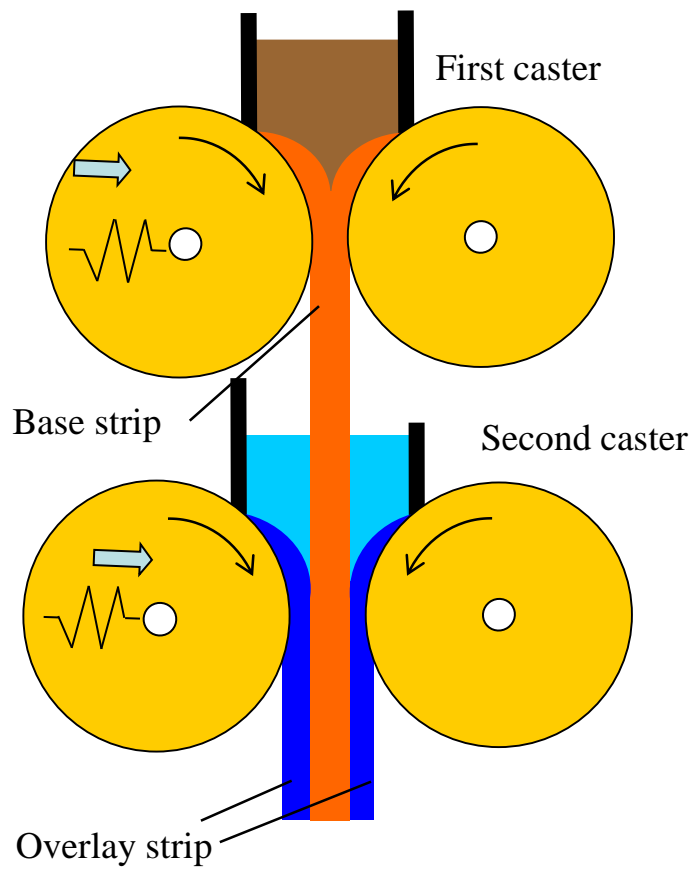


Fig. 4-1 Schematic illustration of the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster.

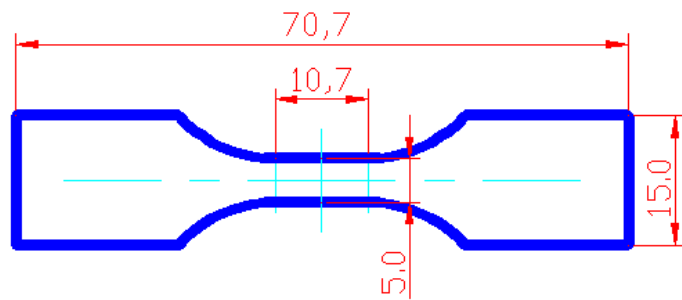


Fig. 4-2 Tensile test specimen(Thickness:1.0mm).

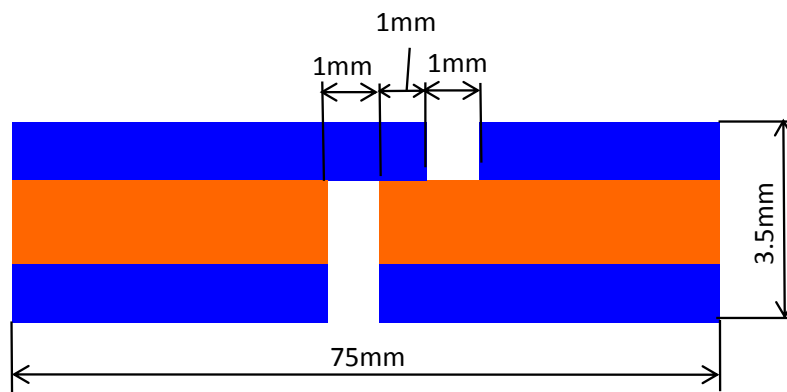


Fig. 4-3 Tensile shear test specimen(Width:15mm).

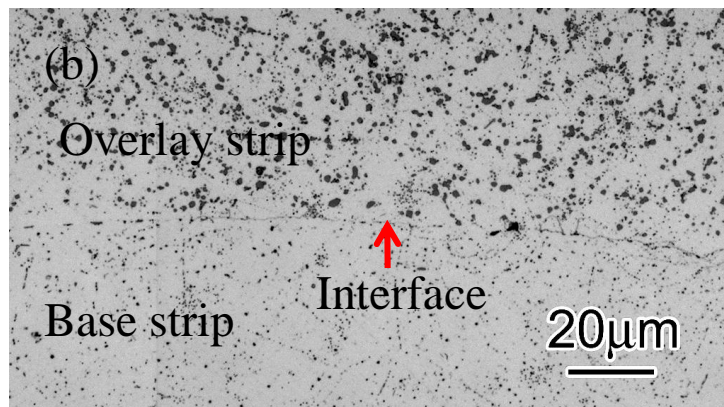
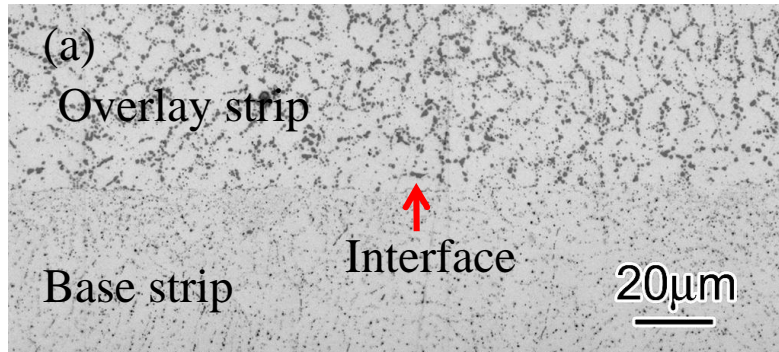


Fig. 4-4 Microstructure of the interface between the base strip and overlay strip.(a): Casting temperature of the overlay strip was 610°C, (b): Casting temperature of the overlay strip was 700°C.

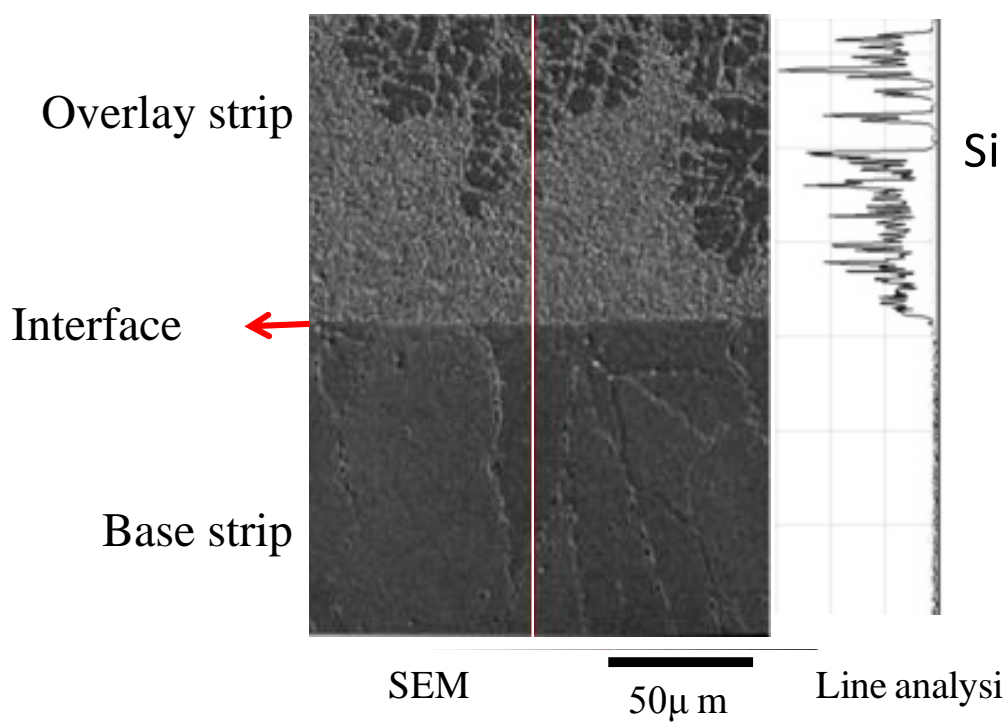


Fig. 4-5 SEM image and line analysis of the joint interface by EPMA.

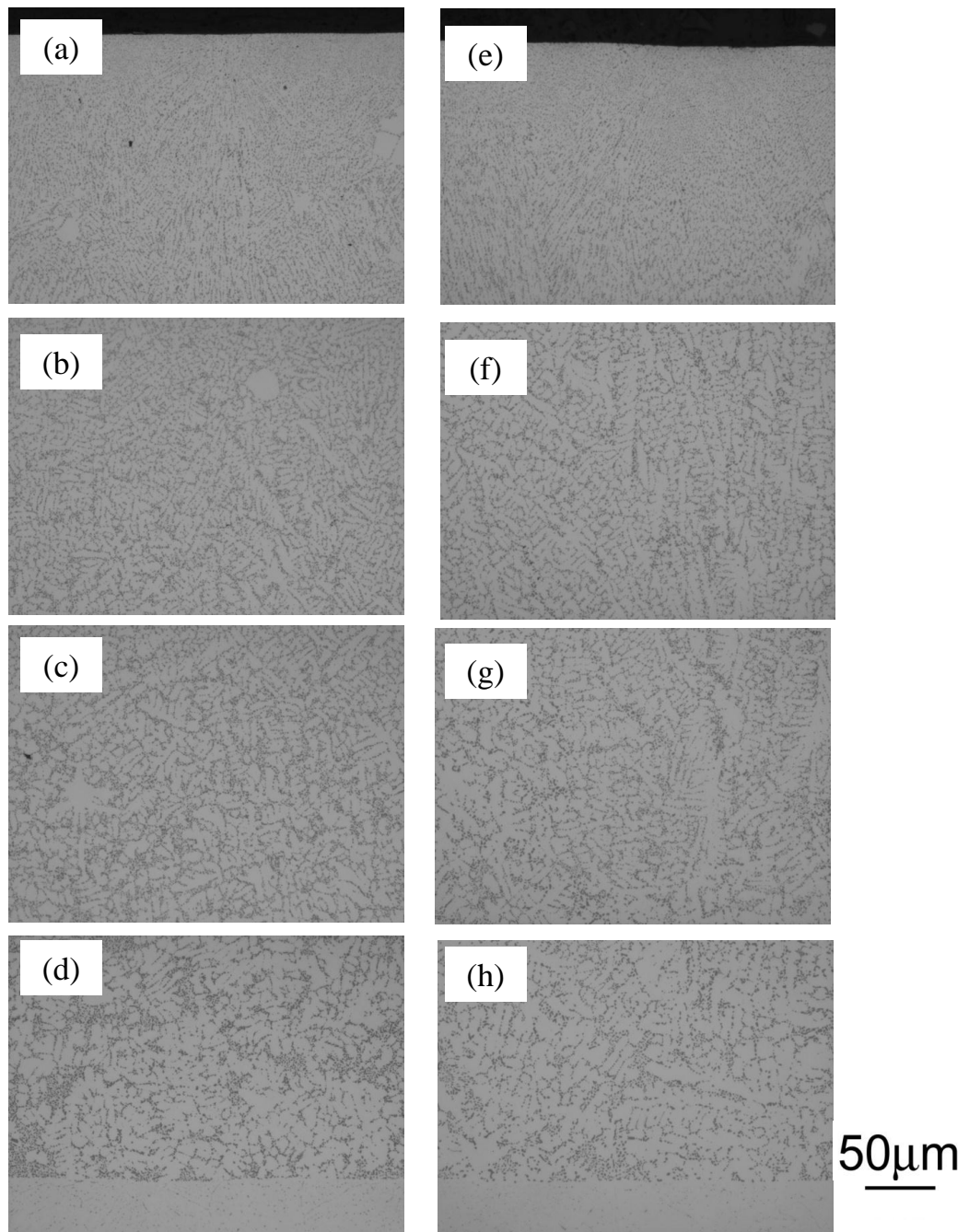


Fig. 4-6 Microstructure of the overlay strip.(a):Strip surface region(610°C), (b): Near surface region(610°C), (c): Region between surface and interface (610°C), (d): Interface region(610°C), (e):Strip surface region(700°C), (f): Near surface region(700°C), (g): Region between surface and interface (700°C), (h): Interface region(700°C).

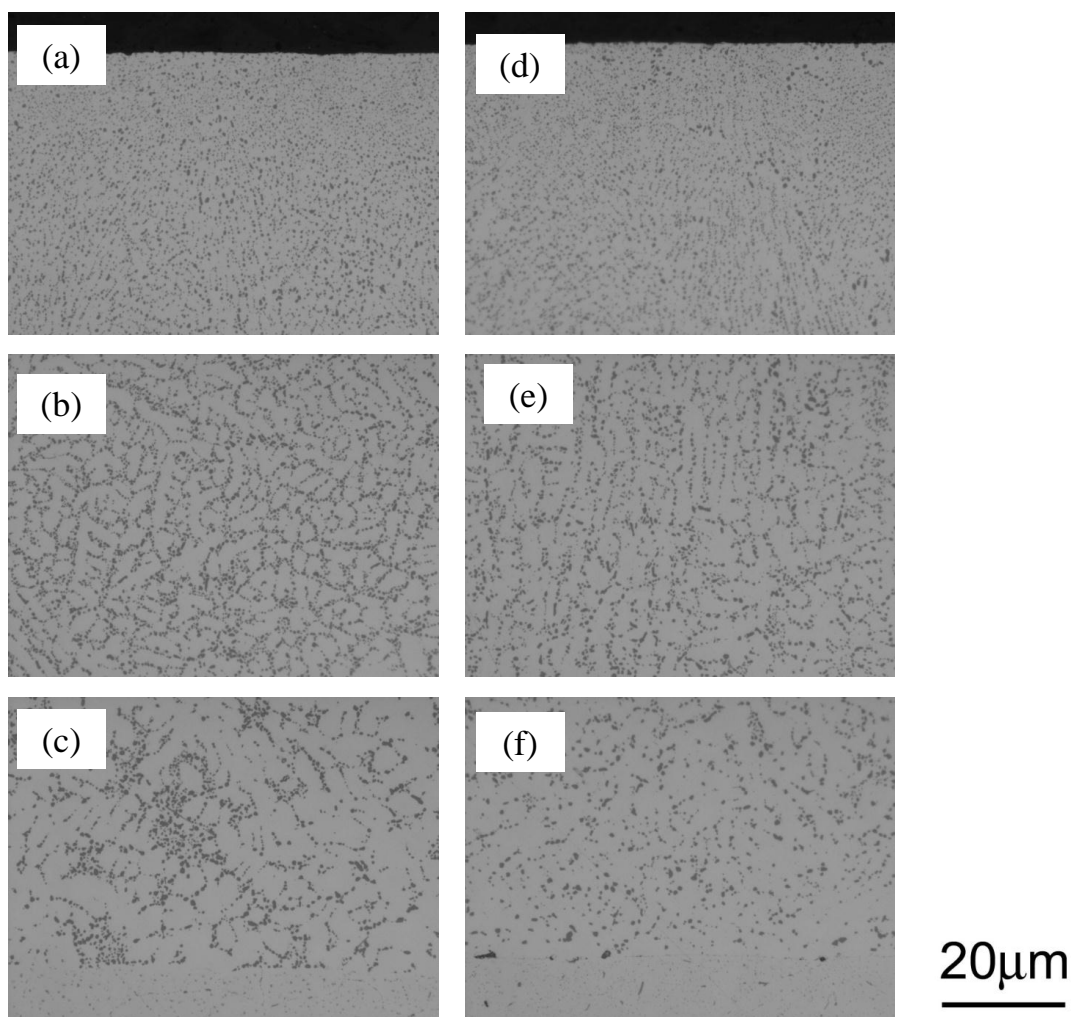


Fig. 4-7 Microstructure of the overlay strip.(a):Strip surface region(610°C), (b): Region between surface and interface (610°C), (c): Interface region(610°C), (d):Strip surface region(700°C), (e): Region between surface and interface (700°C), (f): Interface region(700°C).

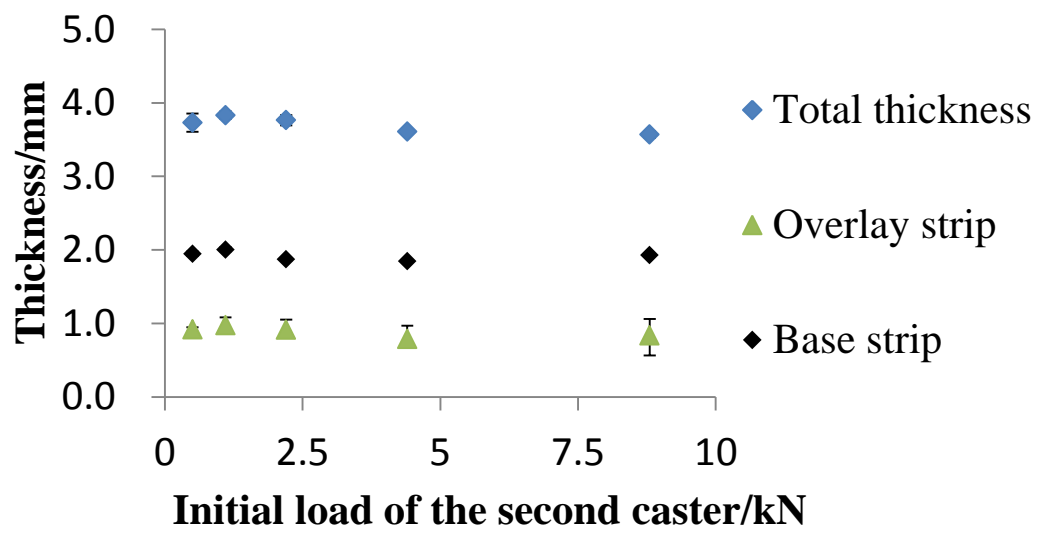


Fig. 4-8 Relationship between the strip thickness and initial load of the second caster.

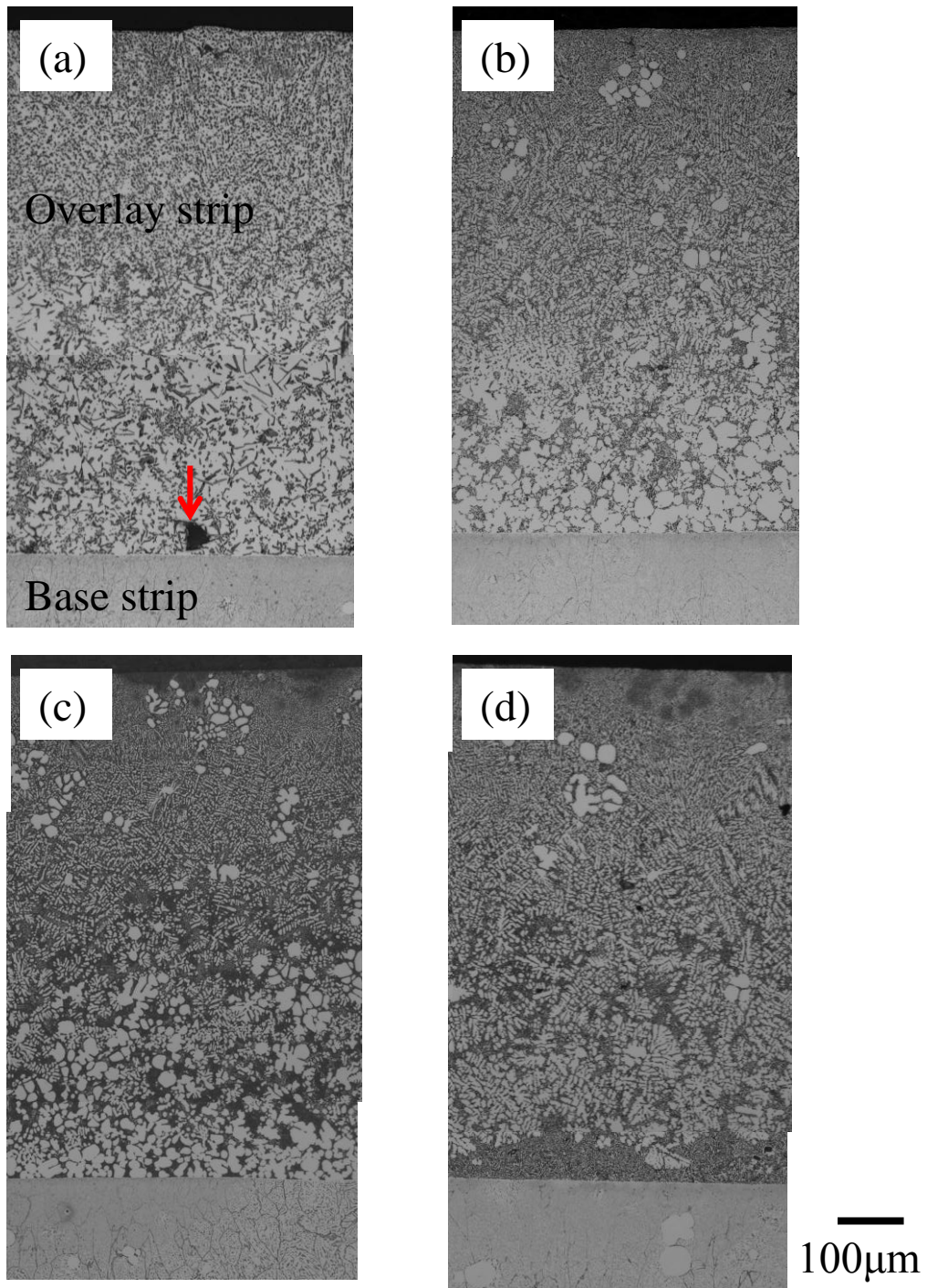


Fig. 4-9 Microstructure of the overlay strip with different initial load before casting. (a): 0.5kN, (b): 1.1kN, (c): 4.4kN, (d): 8.8kN.

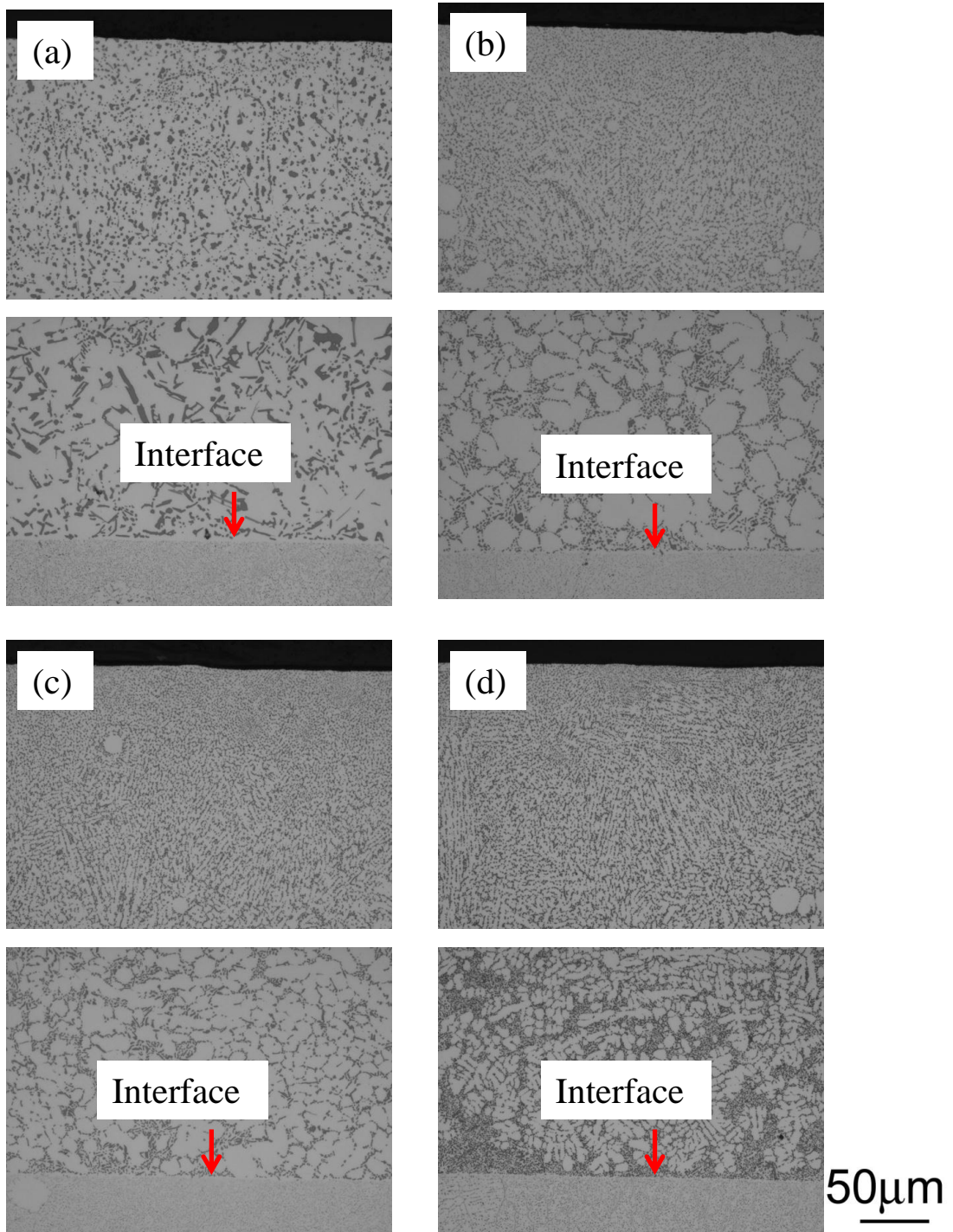


Fig. 4-10 Microstructure of surface region and the interface region of the overlay strip with different initial load before casting. (a): 0.5kN, (b): 1.1kN, (c): 4.4kN, (d): 8.8kN.

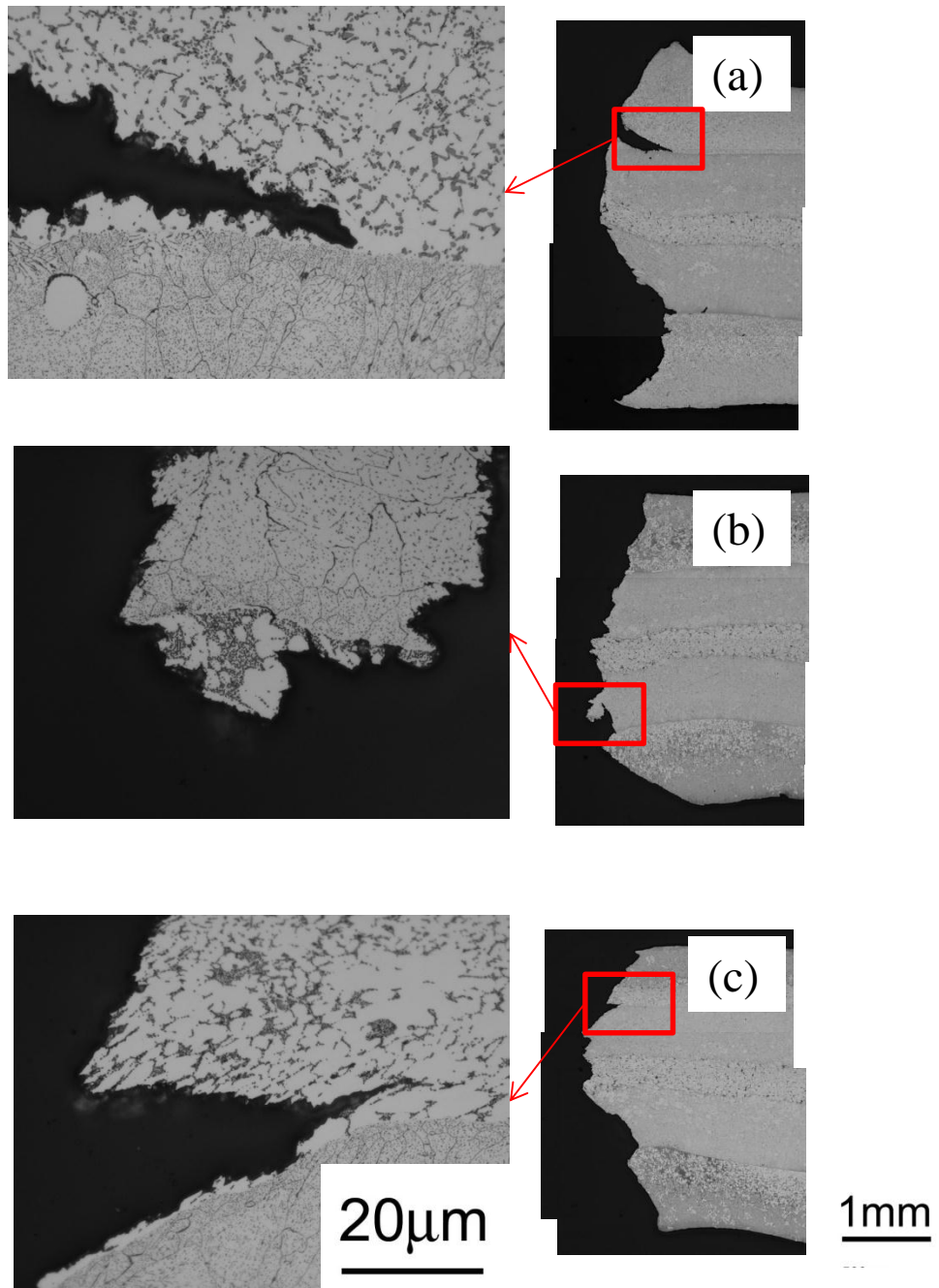


Fig. 4-11 Macro- and Microstructure of the cross section of the fractured by tensile tests with different initial load before casting. (a): 0.5kN, (b): 1.1kN, (c): 8.8kN.

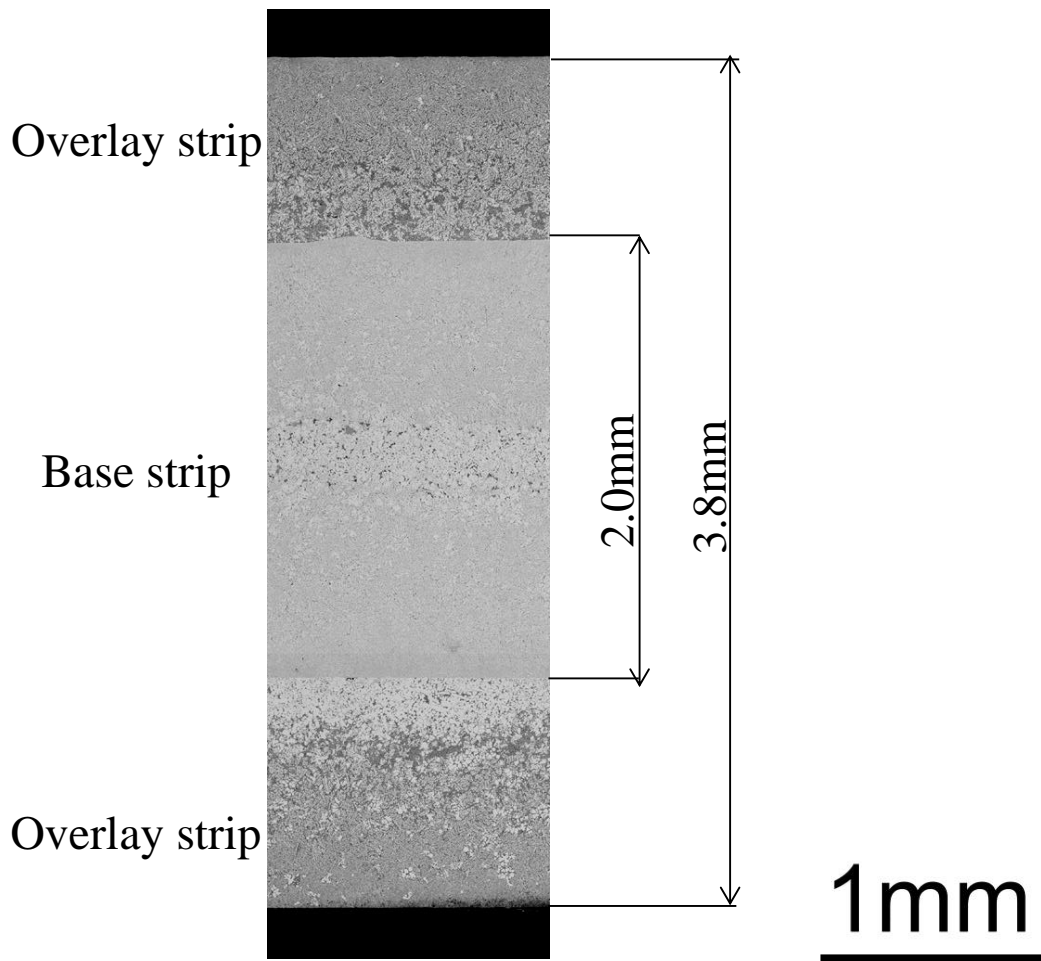


Fig. 4-12 Microstructure of the clad strip(The initial load of the second caster: 1.1kN, the casting temperature of the overlay strip: 610°C).

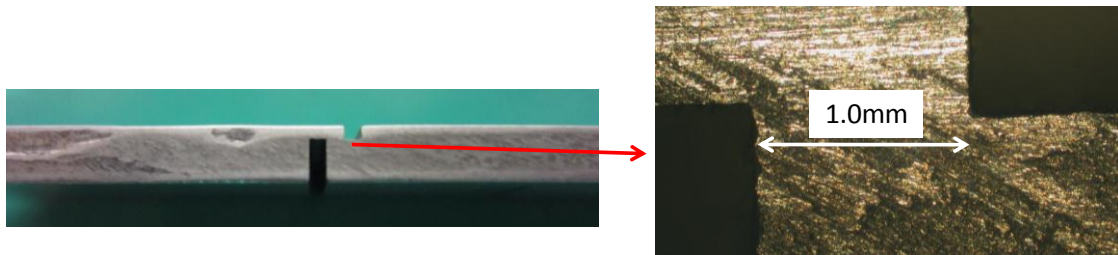


Fig. 4-13 Photograph of the specimen for tensile shear test.

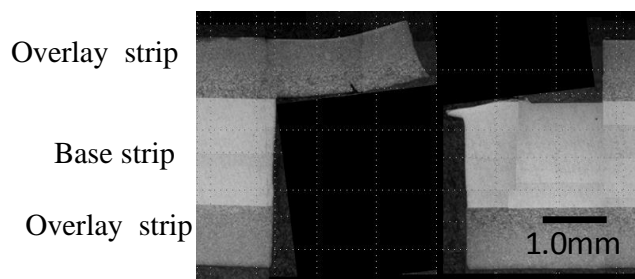


Fig. 4-14 Cross section of the fractured specimen after tensile shear test.

## 第 5 章 タンデム式縦型高速双ロールキャストにより作製した 4045/3003/4045 合金クラッド材の接合界面

### 5.1 緒言

前章までにタンデム式縦型高速双ロールキャストを用いて 4045/3003/4045 合金 3 層クラッド材を溶湯から 1 工程で作製できること、さらに得られたクラッド材は、as-cast 状態で繰返し曲げ試験しても、接合界面に剥離や割れが発生しないことを示した。これは本双ロールキャスト法では、その優れた急冷能力により凝固組織の微細化が可能であり、製造に要する時間が極めて短いため、接合界面における合金間の反応、溶質元素の拡散や組織の粗大化が大幅に抑制されるためであると考えられる。

そこで本章では、タンデム式縦型高速双ロールキャストで作製した 4045 合金と 3003 合金クラッド材の接合界面について詳細なマイクロ組織観察を行い、どのようにして強固な芯材と皮材の接合界面が形成されるかについて検討を行った。

### 5.2 実験方法

#### 5.2.1 装置概要ならびにクラッド材の製造方法

タンデム式縦型高速双ロールキャストの模式図を Fig.5-1 に示す。本装置は、2 台の縦型双ロールキャストを垂直方向に並べたものである。第 1 双ロールで芯材を、第 2 双ロールで皮材を製造する。ロールは純銅製で、直径は 200mm である。第 1、第 2 のロール幅は、それぞれ 40、45mm であり、第 2 のロール幅は第 1 より 5mm 広い。各々のロールの上にはノズルを設置している。第 1 のロール軸と第 2 のロール軸の間隔（図中の A+B）は 400mm とした。ここで A は、第 1 双ロールで製造した芯材が皮材の合金溶湯に入るまでの距離に対応する。この間、芯材は大気と触れる。B は、皮材溶湯の上部から第 2 双ロールの最小ロール間隙（ロール軸の位置）までの距離であり、皮材の合金溶湯の高さに対応する。第 2 双ロール上のノズルは、皮材の合金溶湯高さが 100mm 以上になるとオーバーフローするように設計されている。第 1、第 2 ととも一方のロールは強固に固定されているが、他方のロールはばねを介して固定されているため可

動であり、板がロール間隙を抜げる際、板にはばねによる荷重 ( $P_1$ ,  $P_2$  (kN)) がかかる仕組みとなっている。3層クラッド材の作製は、次のようにして行う。まず、芯材の溶湯 (3003) を第1双ロールのノズル内に注湯する。両ロール表面で凝固殻が成長し、これらがロール間隙で合流してばねを押し広げながら芯材となり、第2双ロールの間隙に向かって降下する。芯材の先端が第2双ロールのロール間隙を通過するタイミングで、皮材の合金溶湯 (4045) を第2双ロールのノズル内に注湯すると芯材は、第2双ロール上で形成された凝固殻(皮材)に挟まれながらロール間隙を通過し、3層クラッド材となる。クラッド材の板厚ならびにクラッド率 ((皮材厚さ/総板厚) × 100) は、溶湯とロールとの接触時間によって決まり、ロール周速 ( $V$  (m/min)) と凝固距離 ( $L_1, L_2$  (mm)) により制御することが可能である。

### 5.2.2 鋳造条件

Table 5-1 に芯材および皮材用合金の組成を示す。ロールキャストの条件を Table 5-2 に示す。ロール周速は第1, 第2ともに共通の 40m/min とした。第1, 第2双ロールの凝固距離は各々 60, 80mm とした。注湯温度はそれぞれの液相線より 15°C 高い 670, 610°C とした。ロール荷重は、第1双ロールを 2.2kN, 第2双ロールを 1.1kN として実験を行った。皮材の合金溶湯高さ (B) は、100mm とした。それぞれの溶湯を第1, 第2双ロールともに樋を用いて注湯する。注湯量は、1回あたり芯材用合金溶湯が約 1.0kg, 皮材用合金溶湯が約 1.5kg で、長さ 4m, 幅 45mm の3層クラッド材が作製できる。作製した3層クラッド材の板厚は、注湯開始時と定常部と注湯終了時で異なっている。本実験では、芯材合金の溶湯から注湯を開始し、芯材先端の板厚は約 1.5mm であるが、ノズル内の溶湯高さが増加するにつれて徐々に芯材板厚が増加していく。芯材溶湯高さを約 100mm で一定に保つと芯材板厚は約 2mm で一定となる。板厚が安定する長さは約 2.5m である。注湯が終了し、芯材溶湯高さが減少すると板厚も薄くなる。皮材溶湯は芯材先端が第2双ロール間隙を通過後に注湯する。芯材と同じように皮材溶湯高さは増加していき、100mm で一定となり、その時の板厚は各層 1mm 程度となる。皮材の板厚が安定する長さは約 2.0m である。芯材と皮材の板厚安定部が重なった部分を3層クラッド材の板厚安定部と定義すると、3層クラッド材の板厚安定部の長さは約 1.5m であり、板厚は 4.5mm 程度でとなる<sup>1)</sup>。

板厚安定部のクラッド材の断面組織を、光学顕微鏡 (OM), 走査型電子顕微鏡反射電子・組

成像 (SEM-BEI), 透過型電子顕微鏡 (TEM), 走査型透過電子顕微鏡 (STEM) で観察した。OM, SEM 観察用試料は, エメリー研磨紙で #120~#4000 まで機械研磨後, ダイヤモンドペー  
スト 3 $\mu$ m, 1 $\mu$ m でバフ研磨し, コロイダルシリカ懸濁液により鏡面に仕上げ, 2%NaOH 水溶液  
を用いて常温で 90 秒間腐食した。TEM 用薄膜は, 芯材と皮材の接合界面を含む領域を機械研  
磨で 80 $\mu$ m 以下まで薄くし, 過塩素酸:エタノール=3:7 (容積比) を用い, 液温 -10 $^{\circ}$ C, 電  
圧 13V の条件で電解研磨して作製した。TEM 観察は, 超高電圧・超高真空・高分解能電子顕  
微鏡を用い, 加速電圧 1020kV で行い, さらに回折図形を投影して方位解析を行った。STEM  
観察用薄膜は, 接合界面を含む領域を 400 $\mu$ m の厚さで切り出し, 機械研磨で 100 $\mu$ m 以下まで  
薄くした後, 過塩素酸:エタノール=3:7 (容積比) を電解液とし, ツインジェット型電解研  
磨装置により電圧 15V, 温度-5 $^{\circ}$ C の条件で作製した。STEM 像は加速電圧:200kV, スポット径:  
0.7nm で撮影し, エネルギー分散型 X 線解析装置 (EDS) を用いて, 接合界面の組成分析を行っ  
た。

### 5.3 実験結果および考察

#### 5.3.1 3層クラッド材の断面組織

3層クラッド材の板厚安定部の板の長手方向の垂直断面組織を Fig.5-2 に示す。図中, 板の長  
手方向が CD, 板厚方向が ND, 板の幅方向が TD である。接合界面は明瞭かつ平滑であった。  
総板厚は約 4.4mm, 芯材の厚さは約 2.3mm, 皮材の厚さは各々約 1.0mm であった。3003 合金  
芯材表面部の結晶粒は非常に細かく, 板厚中央に向かって, 徐々に粗くなっていた。また, 板  
厚中央部には粒状晶の帯が観察された (Fig.5-2, Fig.5-3 (c))。芯材は, 第1双ロールの各々の  
ロール表面から成長した凝固殻が合体して板となるため, 板厚中央部を境にして上下対称と  
なっている。Fig.5-3 は, Fig.5-2 中の (a), (b), (c) に対応する芯材のマイクロ組織である。  
(a) は, 芯材の表面近傍の領域, (b) は芯材の表面から板厚方向 1/4 の領域, (c) は芯材の板  
厚中央部の領域の組織である。白い部分は  $\alpha$ -Al 母相であり, 結晶粒内および粒界に晶出して  
いる黒い粒状あるいは棒状の部分は,  $\alpha$ -Al 母相と  $Al_6Mn$  の共晶相や Al, Mn, Fe などの金属  
間化合物を含む Al-Mn 系の分散相である。Fig.5-4 は, Fig.5-2 中 (d), (e), (f) の 4045 合金皮  
材のマイクロ組織である。皮材表面から接合界面に向かって, 微細な初晶  $\alpha$ -Al デンドライト組織

が見られた (Fig.5-4 (d)). 皮材表面は急冷凝固されるため、初晶  $\alpha$ -Al 母相がセル状成長していた。この領域についてはデンドライト 2 次アームの識別ができないため、この部分を除いた場所について、交線法によりデンドライト 2 次アーム間隔 (DAS) を測定した。皮材表面近傍の DAS は約  $3.3\mu\text{m}$  であった。接合界面に近づくにつれ、DAS は徐々に増加し、Fig.5-4 (e) の DAS は  $4.3\mu\text{m}$ 、Fig.5-4 (f) の接合界面近傍の DAS は  $5.7\mu\text{m}$  であった。初晶  $\alpha$ -Al デンドライト間の共晶 Si 粒子は、直径約  $1\mu\text{m}$  と非常に微細な粒状を呈していた。これは皮材溶湯が銅ロール表面に接触し、急冷凝固されたためである。接合界面近傍の共晶 Si 粒子は、表面近傍と比較すると幾分大きく、長さ  $1\sim 3\mu\text{m}$  程度の棒状や板状形態を呈していたがやはり微細であった。最小ロールギャップでロール荷重がかかる直前までは、皮材は残留液相を含んだ状態であるが、ロール間隙でロール荷重を受けると接合界面付近の固相中の残留液相は、銅ロール表面と皮材の凝固殻の密着性が増加するため、急冷凝固される。Kim らは、A6022 合金や Al-Si 合金板の縦型高速双ロールキャスト中の板厚中央部の温度変化を直接熱電対により測定し、板がロール間隙でロール荷重を受ける時、冷却速度が増加することを明らかにしている<sup>2),3)</sup>。このような理由で皮材の凝固組織中の共晶 Si 相粒子は、接合界面近傍においても、微細な組織であったと考えられる。

### 5.3.2 接合界面組織

芯材と皮材の接合界面近傍の拡大写真を Fig.5-5 に示す。上側が皮材 (4045 合金)、下側が芯材 (3003 合金) である。図中の矢印で示すように、接合界面には共晶 Si 粒子、Al-Mn 系の分散相のいずれも観察されない厚さ約  $1\sim 2\mu\text{m}$  の層状領域が観察された。Fig.5-6 はこの領域をさらに拡大した SEM-BEI 像である。暗いコントラストが  $\alpha$ -Al 母相で、図の上側の皮材中の  $1\sim 3\mu\text{m}$  程度の粒子が共晶 Si 粒子、下側の芯材の結晶粒内ならびに粒界に晶出している明るいコントラストの粒状のものが Al-Mn 系の分散相である。接合界面の層状領域には、分散相は観察されない。芯材と皮材の  $\alpha$ -Al 母相のコントラストと比較すると、芯材の方が明るいことがわかる。芯材は、第 1 双ロールで急冷凝固された  $\alpha$ -Al 母相が Mn を多く固溶しているため、皮材に比べ、明るいコントラストを呈したものと考えられる。Fig.5-7 は層状領域近傍を拡大した光学顕微鏡写真である。これより層状領域は芯材の結晶粒単位で粒界により途切れていることが明らかとなった。そこで、この層状領域が皮材をクラッドする前から、すなわち接合前の芯材

表面に既に存在していたのかどうか確認するため、第1双ロールのみを使って3003合金単層板の作製を行い、その断面組織を観察した。Fig.5-8はその芯材の表面近傍の断面組織を示している。板表面から柱状晶が成長しており、結晶粒界が板表面から板厚方向に沿って明瞭に観察できる。またAl-Mn系分散相は表面近傍の結晶粒内においても観察されている。これをFig.6-6,6-7と比較すると、層状領域は、Fig.6-8には存在していないことがわかる。芯材を皮材でクラッドする際に生成したものであることが明らかとなった。接合界面についてさらに詳細に調べるために、接合界面をSTEM観察と、接合界面近傍の組成のEDS分析を行った。Fig.5-9に明視野像を示す。写真上側が皮材、下側が芯材である。写真中の○～+は、EDSにより組成分析を行った箇所とその結果を示している。○はAlのみ、□はAlとSi、△はAlとMn、+はAl、Mn、Fe、その他Cu等の元素が検出されたことを表している。皮材中、粒状の暗いコントラストに対応する領域からはAlとSiが検出されたが、その周囲の母相からはAlのみが検出された。一方、芯材中の細かい分散粒子からは、Al、Mnに加えて、Fe、Si、Cuが検出された。芯材母相からは、Al、Mnが検出された。このMnは母相中に固溶しているMnであると考えられる。層状領域ではAlのみが検出された。芯材母相ではAlとMnが検出されているので、このことより、層状領域は皮材の合金の $\alpha$ -Al相が成長したものであると考えられる。

### 5.3.3 層状領域の形成過程

層状領域を含む芯材のTEM明視野像をFig.5-10(a)に示す。写真中央に斜めに観察されているのが層状領域で、左下の部分が芯材に対応する。芯材中に見られる直径0.3 $\mu$ m程度の暗いコントラスト粒子は、Al-Mn系分散相である。Fig.5-10(b)は、層状領域に[112]晶帯軸から電子線を入射させたときに得られた電子回折図形である。Fig.5-10(a)のTEM明視野内のAの部分、すなわち層状領域は、晶帯軸入射に近いブラッグ条件を満たすため、黒いコントラストを呈した。ここで試料の傾斜角度を変えずに視野を芯材内のB部分に移動した。このときに得られた電子回折図形をFig.5-10(c)に示す。層状領域Aと芯材内Bでは、同じ面指数を呈し、かつ回折強度もほぼ同一であった。これは、層状領域Aと芯材の結晶粒Bが同一方位を有していることを示している。さらにFig.5-10(a)の明視野像の左端のCの部分には芯材の結晶粒界が見られる。層状領域の方位とこのCの部分の方位は異なり、ブラッグ条件を満たしていないため、Cの部分は暗いコントラストを呈していない。また芯材領域のBの部分とCの部分の比

較すると結晶粒界を境にコントラストが変化していることがわかる。これは Fig.5-7 で示したように接合界面の層状領域が結晶粒によって区切られていることとよく対応する。以上の観察結果は、層状領域は、皮材の Al-Si 合金の初晶  $\alpha$ -Al 相が、芯材表面の各結晶粒の方位を引継いで成長してできたことを示唆している。すなわち、層状領域は、芯材が 40m/min の速度で皮材溶湯内を移動中に、皮材の初晶  $\alpha$ -Al 相が芯材表面からエピタキシャル成長して形成されたものと考えられる。以上のことから皮材溶湯の大半は、ロールによる抜熱によってロール表面から芯材表面に向かって、凝固するが、これに加え芯材表面からもエピタキシャル成長により厚さ 1 $\mu$ m 程度の初晶  $\alpha$ -Al 相が凝固することが明らかとなった。

接合界面における酸化皮膜の存在について考える。アルミニウムは酸素との化学親和性が強いので、大気にさらされると表面には数 nm 程度の薄い自然酸化皮膜ができることが知られている<sup>4)</sup>。本ロールキャストにおいても、第 1 双ロールで作製された芯材が第 2 双ロールの溶湯に浸漬するまでの間、芯材の表面は大気にさらされるため、酸化被膜が形成される可能性がある。しかし、本手法においては、その時間は約 0.5s と極めて短く、さらに TEM による電子回折図形の観察でも、接合界面には酸化皮膜の存在を示すハローパターンは認められなかった。以上の結果より、3 層クラッド材の接合界面には接合を阻害するような厚い酸化被膜は生成していないと考えられる。

## 5.4 小括

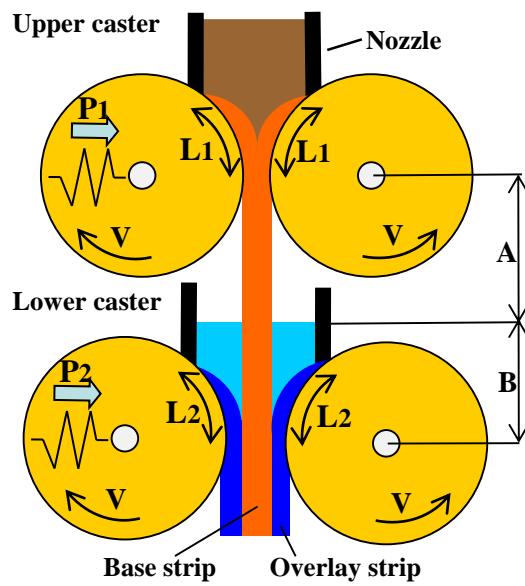
タンデム式縦型高速双ロールキャストによって作製した 4045/3003/4045 アルミニウム合金クラッド材の断面組織を詳細に調査し、芯材と皮材の接合界面の形成過程について検討した。

作製した 3 層クラッド材の接合界面は、明瞭かつ平滑であった。また酸化被膜の存在は認められなかった。

皮材は、その厚さの大半はロール表面から成長した凝固殻であり、微細な初晶  $\alpha$ -Al アルミニウムデンドライトと共晶 Si 粒子で構成されているが、接合界面近傍には芯材表面から成長して厚さ約 1 $\mu$ m の  $\alpha$ -Al 相からなる層状領域も観察された。この層状領域は、第 1 双ロールで作製された芯材が第 2 双ロールに誘導されて皮材溶湯に浸漬する間、皮材の初晶  $\alpha$ -Al 相が、芯材表面からエピタキシャル成長することによって形成されたと考えられる。

## 参考文献

- 1) M.S.Kim and S.Kumai: Materials Transactions, 54 (2013) 1930-1937.
- 2) M.S.Kim and S.Kumai: Materials Transactions, 52 (2011) 856-861.
- 3)M.S.Kim, Y.Arai, Y.Hori and S.Kumai: Materials Transactions, 51 (2010) 1854-1860.
- 4)W.W.Smeltzer: Journal of the Electrochemical Society, 103 (1956) 209-214.



V: Roll speed(m/min)

$L_1$ : Solidification length of upper caster(mm)

$L_2$ : Solidification length of lower caster(mm)

$P_1$ : Initial load of upper caster(kN)

$P_2$ : Initial load of lower caster(kN)

A: Cooling length of the base strip(mm)

B: Heating length by molten metal of overlay strip(mm)

Fig.5-1 Schematic illustration of the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster.

Table 5-1 Chemical composition									(wt.%)
	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
A3003	0.25	0.61	0.16	1.13	0.01	0.01	0.02	0.03	Bal.
A4045	9.78	0.16	0.01	0.02	0.01	0.01	0.02	0.01	Bal.

Table 5-2 Casting conditions

Upper caster	Casting temperature(°C)	670
	Solidification length(mm)	60
	Initial load(kN)	2.2
Lower caster	Casting temperature(°C)	610
	Solidification length(mm)	80
	Initial load(kN)	1.1
Roll speed(m/min)		40

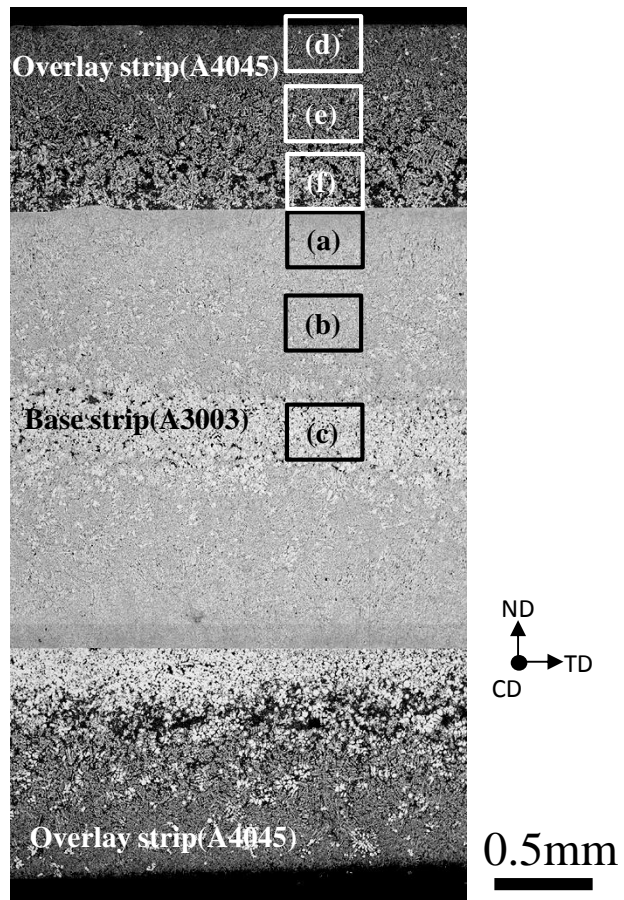


Fig.5-2 Microstructure of three-layered clad strip.

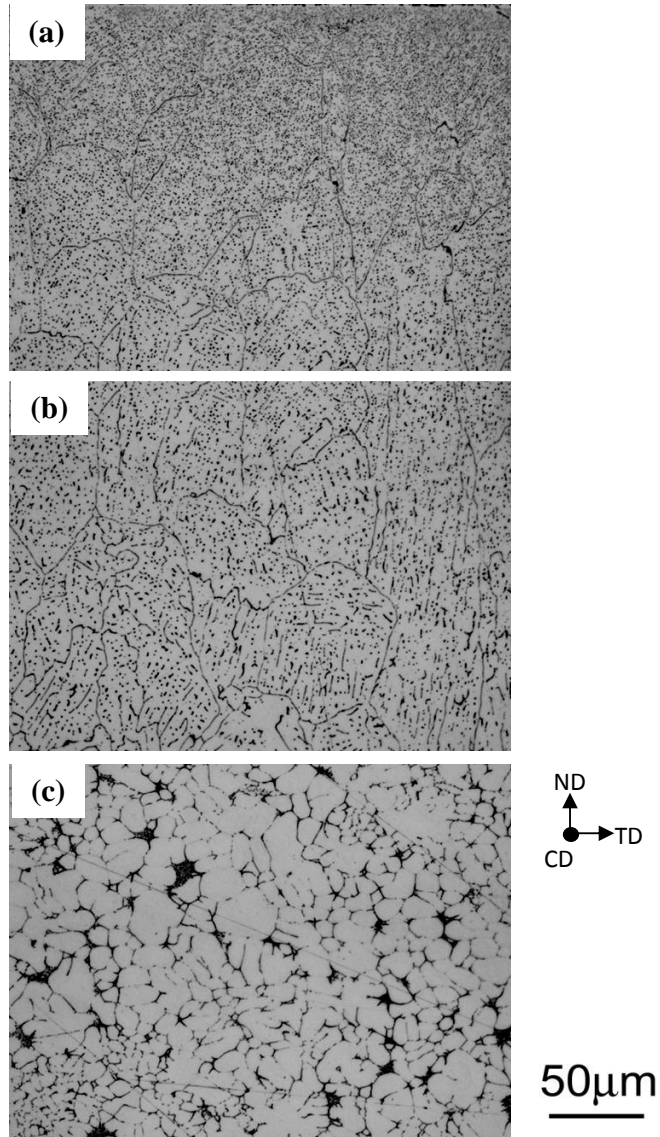


Fig.5-3 Microstructure of the base strip in Fig.2 (a), (b), (c). (a)surface region, (b)region between the surface and center, (c)center region.

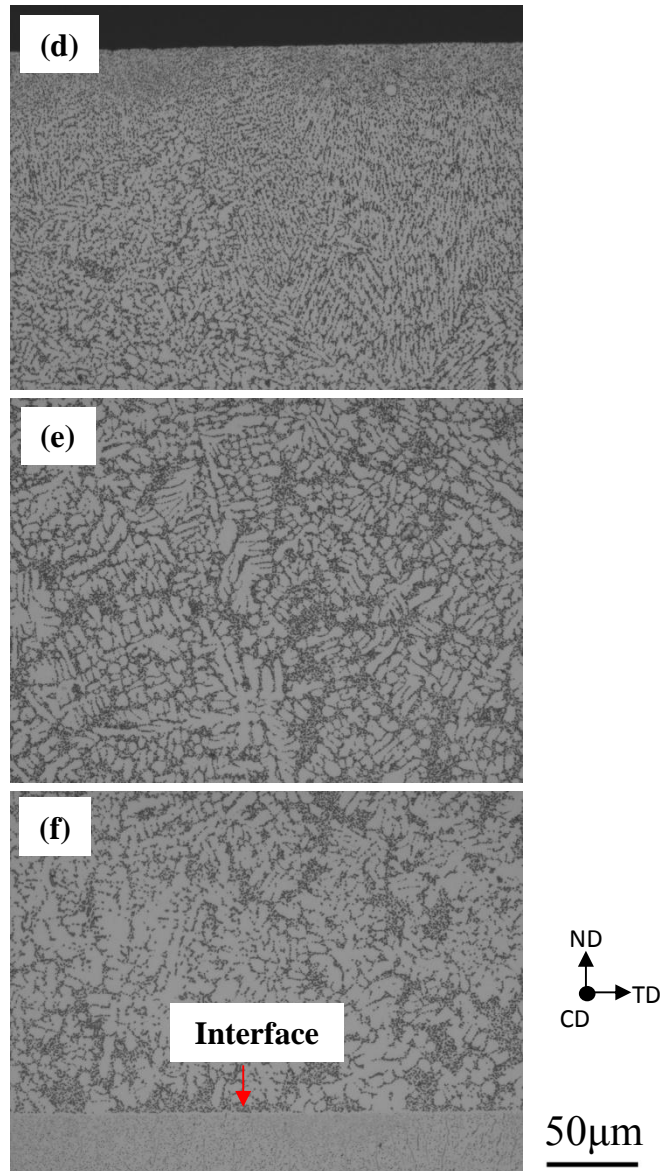


Fig.5-4 Microstructure of the overlay strip in Fig.2 (d), (e), (f). (a) surface region, (b) region between the surface and interface (c) region near the interface.

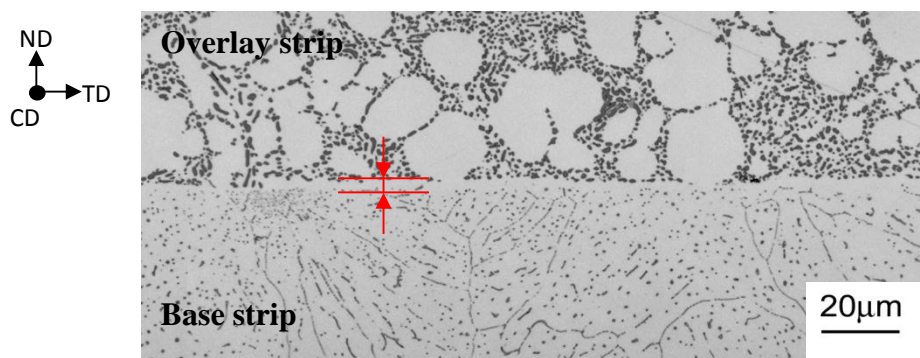


Fig.5-5 Microstructure of the interface between the base strip and overlay strip.

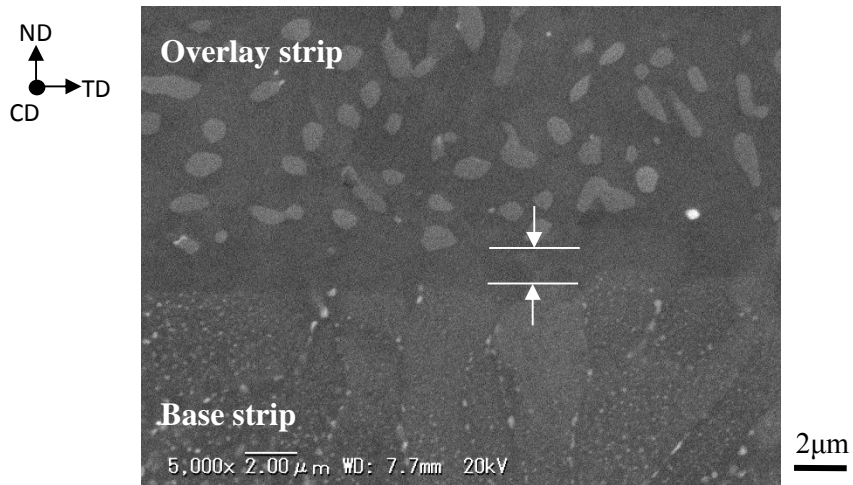


Fig.5-6 SEM-BEI image of the interface between the base strip and overlay strip.

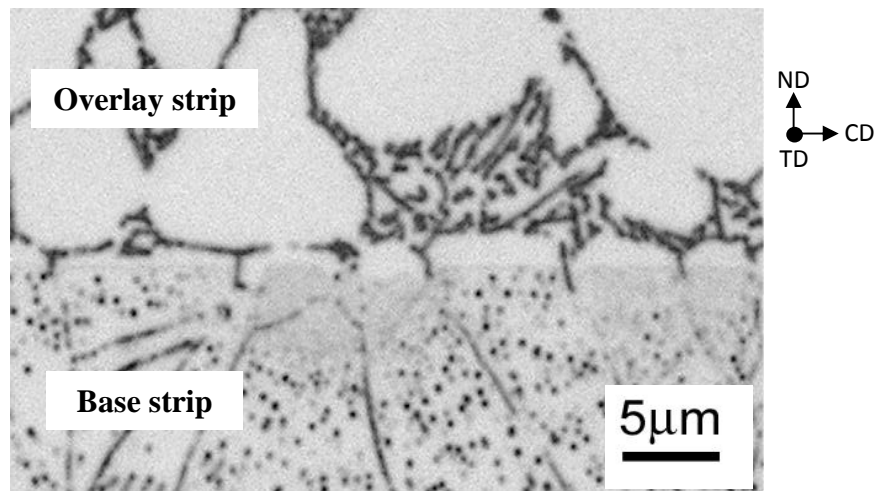


Fig.5-7 Microstructure of the thin layer between the base strip and the overlay strip.

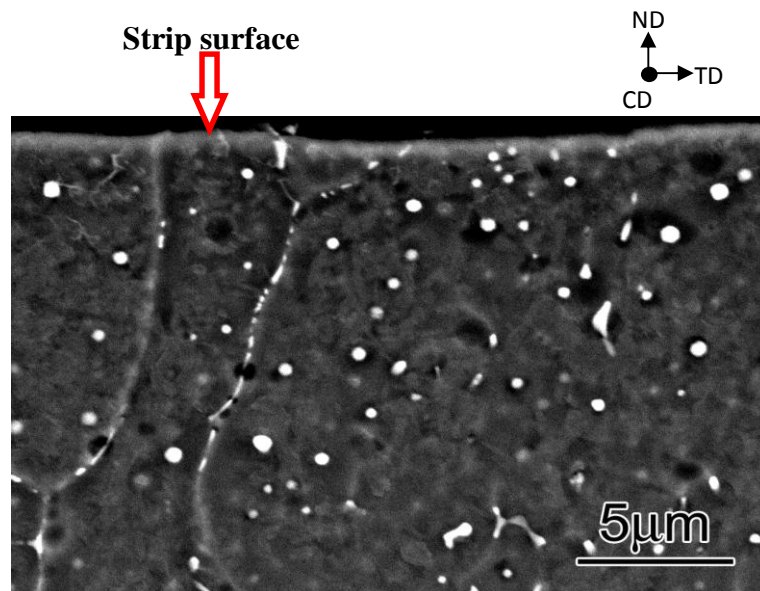


Fig.5-8 SEM-BEI image of the base strip surface.

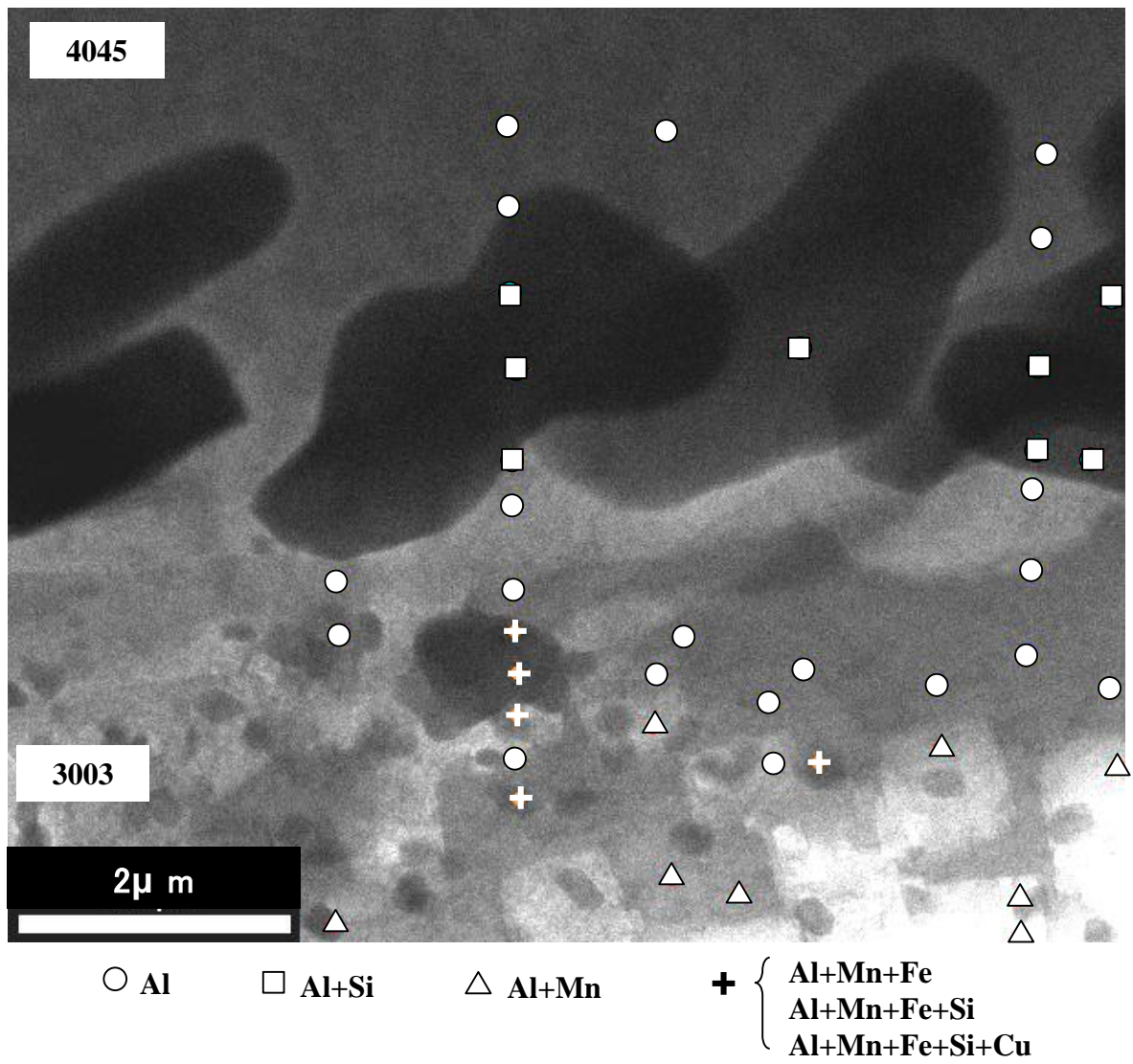


Fig.5-9 EDS analysis using an STEM.

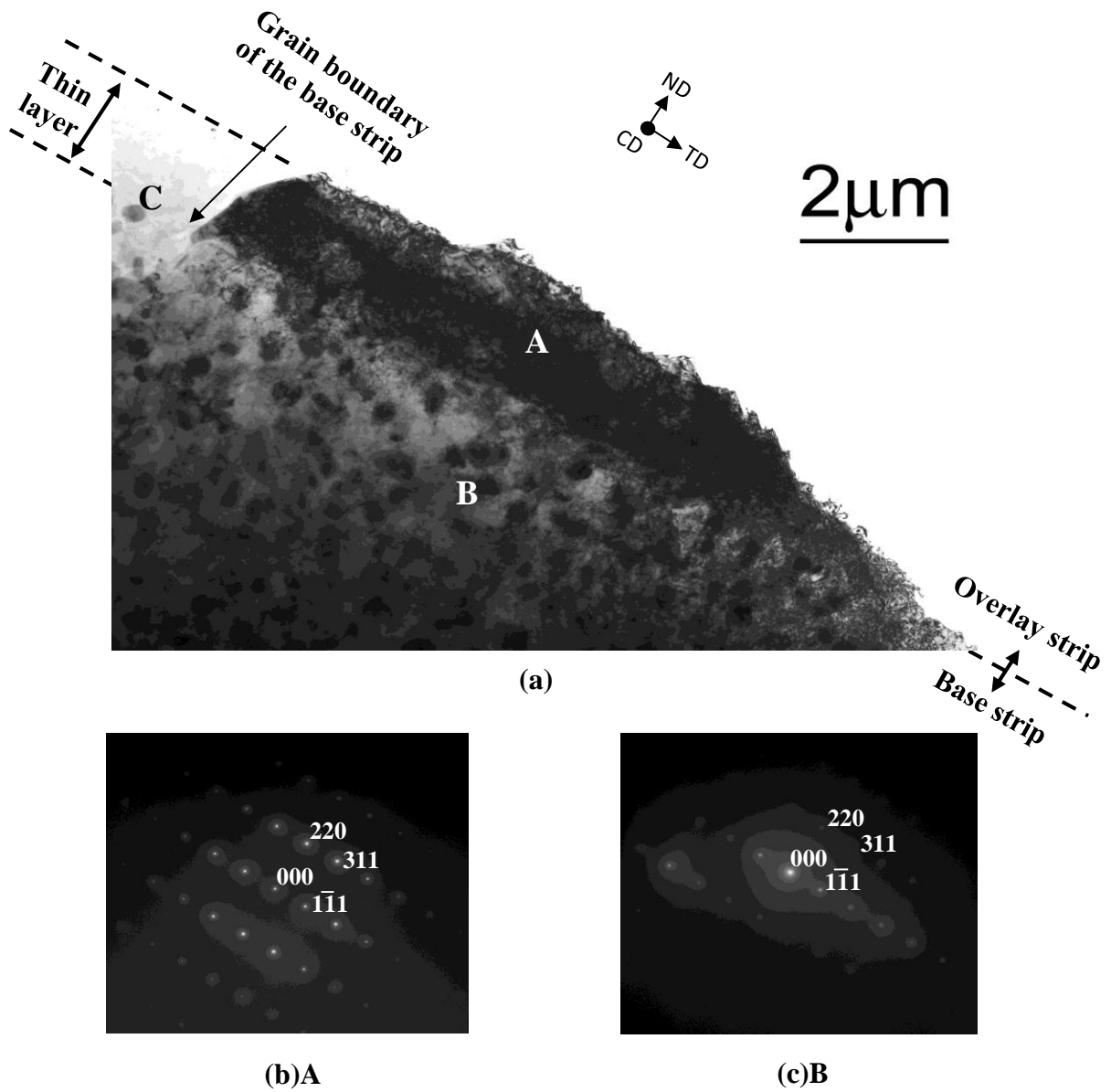


Fig.5-10 Orientation analysis of the interface. (a)TEM bright field image, (b) diffraction pattern of the thin layer , (c) diffraction pattern of the base strip.

## 第 6 章 タンデム式縦型高速双ロールキャスト法における 4045/3003/4045 合金クラッド材のクラッド率制御法の開発

### 6.1 緒言

前章までにタンデム式縦型高速双ロールキャスト法により自動車用熱交換器用ブレイジングシートである 4045/3003/4045 合金クラッド材を溶湯から直接作製することが可能であることを示した。作製に成功した 4045/3003/4045 合金クラッド材は、総板厚約 3.8mm、芯材厚さ 2.0mm、皮材厚さ 0.9mm であり、クラッド率（(皮材厚さ/総板厚)×100）は約 23%であった。しかし、通常使用されている汎用ブレイジングシートは、クラッド率 8~12%のものが多い。従って、もし本装置でも、クラッド率 10%の 3 層クラッド材が作製可能であるならば、熱間圧延接合法とタンデム式縦型高速双ロールキャスト法で作製されているクラッド材と組織や特性について直接比較することができ、タンデム式縦型高速双ロールキャスト法で製造したクラッド材の有効性を示すことができると考えられる。

そこで、本章では、タンデム式縦型高速双ロールキャスト法による 4045/3003/4045 合金クラッド材のクラッド率制御法について検討を行った。

### 6.2 実験方法

#### 6.2.1 装置概要ならびにクラッド率の制御方法

ここでは 2 種類の方法によりクラッド率の制御を試みた。一つは、第 1、第 2 双ロールの溶湯とロールとの接触時間を調節する方法である。もう一つは、第 1、第 2 双ロールに加えて新たに第 3 双ロールを追加する方法である。ここでは、第 1、第 2 双ロールで作製するクラッド材を 3 層クラッド材と呼び、第 3 双ロールを追加して作製するクラッド材を 5 層クラッド材と呼ぶ。

一つ目の方法に用いたタンデム式縦型高速双ロールキャストの模式図を Fig.6-1 に示す。本装置は、2 台の縦型双ロールキャストを垂直方向に並べている。第 1 双ロールで芯材を第 2 双ロールで皮材を製造する。ロールは純銅製で、直径は 200mm である。第 1、第 2 のロール幅は、そ

それぞれ 40, 45mm であり、第 2 のロール幅は第 1 より 5mm 広い。各々のロールの上にはノズルを設置している。第 1, 第 2 とも一方のロールは強固に固定されているが、他方のロールはばねを介して固定されているため可動であり、板がロール間隙を拡げる際、板にはばねによる荷重がかかる仕組みとなっている。3 層クラッド材の作製は、次のようにして行う。まず、芯材の溶湯を第 1 双ロールのノズル内に注湯する。両ロール上で凝固殻が成長し、これらがロール間隙で合流してばねを押し広げながら芯材となり、第 2 双ロールの間隙に向かって降下する。芯材の先端が第 2 双ロールのロール間隙を通過するタイミングで、皮材溶湯を第 2 双ロールのノズル内に注湯すると芯材は、第 2 双ロール上で形成された凝固殻（皮材）に挟まれながらロール間隙を通過し、3 層クラッド材となる。

クラッド材の板厚ならびにクラッド率（皮材厚さ/総板厚×100%）は、溶湯とロールとの接触時間によって決まる。よって、ロール周速（ $V$  (m/min)）と凝固距離（ $L_1, L_2$  (mm)）によって制御できると考えた。ロール周速は、第 1, 第 2 双ロールとも同一にしなければ、芯材が第 1, 第 2 双ロールの間で詰まったり、第 2 双ロールに引張られたりし、破断するため、連続的にクラッド材を作製することは困難であると考えられる。それに対し、凝固距離は、第 1, 第 2 双ロールでそれぞれ独立に調節することが可能である。しかし、凝固距離は、ロール径により制限されている。直径 200mm のロールでは、凝固距離は 40mm~100mm の範囲で調節可能である。第 2 双ロールの凝固距離は、あまり短いとクラッド材作製が困難になると考えられる。この理由について説明する。Fig.6-2 に第 1 双ロールの凝固距離が長く、第 2 双ロールの凝固距離が短い場合を示す。第 2 双ロール上に配置したノズルとノズルの幅は凝固距離の減少とともに短くなる。よってこのノズル間の幅があまり狭くなると、第 1 双ロールで作製された芯材先端が第 2 双ロール間隙に誘導される際、第 2 双ロール上のノズルに接触する可能性がでてきてしまう。このようにロール周速や凝固距離を変化させて、各層の厚さを制御することは容易ではない。

次に、第 3 双ロールを追加した装置でのクラッド材の作製方法について説明する。Fig.6-3 に、第 3 双ロールを追加したタンデム式縦型双ロールキャストの写真と概略図を示す。ロールは純銅製で、直径 200mm、幅 50mm である。ロール上には、第 1, 第 2 双ロールと同様、ノズルを設置している。ここでは、第 1, 第 2 双ロールで同じ合金を铸造し、厚い芯材を作製する。そして、第 3 双ロールで、異なる合金の皮材を作製して、クラッドし、これによりクラッド率を変化させる。また一般に縦型高速双ロールキャストで作製した板は、ロール表面の組織は微細

であるが、板内部に向かう程、粗い組織になる。これに対し、本手法のように第1, 第2双ロールで同じ合金板を別々に製造すれば、組織の細かい薄い凝固殻を接合させることになるため、本手法は、板内部まで微細な組織をもつ厚板の作製にも利用できる可能性がある。

## 6.2.2 鋳造条件

### 6.2.2.1 第1, 第2双ロールを用いた3層クラッド材の作製条件

Table 6-1 に芯材、皮材に用いた合金の組成を示す。第1の手法を用いたクラッド材作製条件を Table 6-2 に示す。第1双ロール、第2双ロールの凝固距離は各々60, 80mm, 注湯温度はそれぞれの合金の液相線より15°C高い670, 610°Cとした。初期荷重は、第1双ロールを2.2kN, 第2双ロールを1.1kNとした。ロール周速は20, 40, 60m/minの3通りとした。それぞれの溶湯は第1, 第2双ロールともに樋を用い注湯した。注湯量は、1回あたり芯材用合金溶湯が約1.0kgと皮材用合金溶湯が約1.5kgである。これより長さ4m, 幅45mmの3層クラッド材を作製した。作製した3層クラッド材の板厚は、注湯開始時と定常部と注湯終了時で異なるため、断面組織観察は板厚安定部について行った。

### 6.2.2.1 第1, 第2, 第3双ロールを用いた5層クラッド材の作製条件

第1, 第2, 第3双ロールキャストを用いたクラッド材作製条件を Table 6-3 に示す。第1, 第2双ロールで、3003合金溶湯を鋳造し、第3双ロールで、4045合金溶湯を鋳造した。ロール周速は、第1, 第2, 第3双ロールとも40m/minである。第1, 第2, 第3双ロールの凝固距離は各々60, 80, 80mmとした。注湯温度はそれぞれの液相線より15°C高い670, 670, 610°Cとした。初期荷重は、第1双ロールを2.2kN, 第2双ロールを1.1kN, 第3双ロールを4.4kNとした。それぞれの溶湯は、すべて樋を用いて注湯した。注湯量は、1回あたり芯材用合金溶湯が約1.0kg(第1双ロール), 1.5kg(第2双ロール)と皮材用合金溶湯が約1.5kgで、長さ4m, 幅50mmの5層クラッド材を作製した。断面組織観察は板厚安定部について行った。

観察用試料は、エメリー研磨紙で#120~#4000まで機械研磨後、ダイヤモンドペースト(粒度3 $\mu$ m, 1 $\mu$ m)でバフ研磨し、コロイダルシリカ懸濁液により鏡面に仕上げ、2%NaOH水溶液を用いて常温で90秒間腐食した。芯材の結晶粒組織は、3.3% $\text{HBF}_4$ 水溶液中で陽極酸化(25V,180s)

を用いて現出し、光学顕微鏡により観察した。

### 6.3 実験結果および考察

#### 6.3.1 3層クラッド材の作製によるクラッド率の制御

Fig.6-5 に各ロール周速で作製した3層クラッド材のマイクロ組織を示す。ロール周速にかかわらず、接合界面は平滑であった。ロール周速の増加に伴い、芯材、皮材の厚さはともに減少した。皮材は芯材を挟んで上下に2層あるが、厚さの違いは0.1mm以下であり、ほぼ同じ厚さである。板厚は、溶湯とロール表面の接触時間に依存すると考えられる。そこで断面組織から5カ所について板厚を測定し、その平均値を求めた。ロール周速20m/minでは、総板厚、芯材、各皮材厚さは、それぞれ約5.0、2.5、1.3mm、ロール周速40m/minでは、約3.8、2.0、0.9mm、ロール周速60m/minでは、約2.9、1.5、0.7mmであった。芯材の凝固時間は、凝固距離(mm)/ロール周速(mm/s)で求められ、ロール周速20m/min(333mm/s)、40m/min(667mm/s)、60m/min(1000mm/s)で、それぞれ0.36、0.18、0.12(s)、一方各皮材の凝固時間は、それぞれ0.24、0.12、0.08(s)である。Fig.6-6に示すように縦軸に芯材 $d_b$ (mm)と各皮材の厚さ $d_o$ (mm)、横軸に凝固時間を $t^{1/2}$ ( $s^{1/2}$ )の形で、プロットした。厚さと $t^{1/2}$ には直線関係があることがわかる。そこで直線の傾き $C$ を求めたところ、芯材は $C_b=4.3$ ( $mm/s^{1/2}$ )、皮材は $C_o=2.5$ ( $mm/s^{1/2}$ )となった。これより、総板厚 $d$ (mm)、芯材 $d_b$ (mm)、各皮材 $d_o$ (mm)の厚さは

$$\text{芯材厚さ } d_b = 4.3 \times t^{1/2} \quad (6-1)$$

$$\text{各皮材厚さ } d_o = 2.5 \times t^{1/2} \quad (6-2)$$

$$\text{総板厚 } d = d_b + 2 \times d_o \quad (6-3)$$

で表わすことができる。ロール周速や凝固距離とクラッド率との関係をこれらの式によって検討すると以下のようなになる。今、ロール径とロール周速をそれぞれ200mm、40m/minと設定し、皮材厚さが0.7mm(凝固距離53mm)のクラッド率10%の3層クラッド材を作製するためには、芯材厚さを5.2mmにする必要がある。この厚さの芯材を得るには、 $t^{1/2}=1.209$ ( $s^{1/2}$ )が必要で、このためには第1双ロールの凝固距離を488mmとしなければならない。直径200mmのロールでは、円周は628mmであるため、凝固距離488mmは達成できない。以上より、直径が200mmの第1、第2双ロールだけでは、クラッド率10%の3層クラッド材を作製することは困難であ

ると考えられる．次にロール周速を固定し，凝固距離のみを変化させたときのクラッド率の変化について考える．凝固距離  $L$  (mm) は 40～100mm まで変化させることができる．よってロール周速  $V=40\text{m/min}$  のとき，芯材の凝固時間  $t^{1/2}$  は  $t^{1/2}=0.35\sim 0.54$  ( $\text{s}^{1/2}$ ) まで変わり，各皮材の凝固時間は， $t^{1/2}=0.25\sim 0.39$  ( $\text{s}^{1/2}$ ) まで変化する．この場合，芯材の板厚の変化幅は， $d_b=1.5\sim 2.3\text{mm}$  で，各皮材の板厚の変化幅は， $d_o=0.63\sim 0.98\text{mm}$  となる．よって，第 1，第 2 双ロールの凝固距離を調節することで，18～28%の範囲であればクラッド率が変化した 3 層クラッド材を作製できると考えられる．

### 6.3.2 5 層クラッド材の作製によるクラッド率の制御

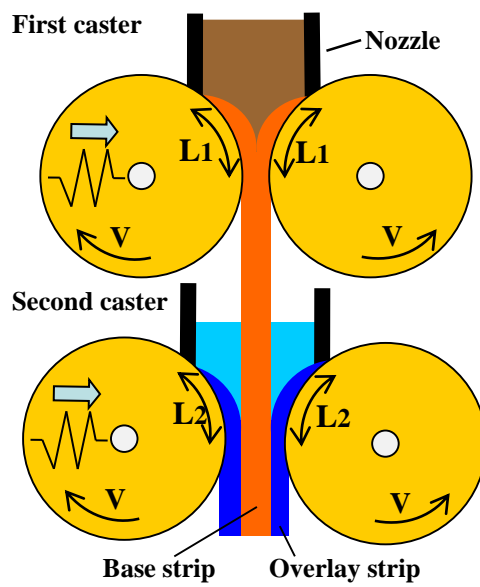
第 1，第 2 双ロールに 3003 合金溶湯を鋳造し，第 3 双ロールキャストに 4045 合金溶湯を鋳造して，芯材厚さを厚くした 5 層クラッド材を作製することに成功した．5 層クラッド材の外観を Fig.6-7 に示す．NaOH 腐食後と陽極酸化後の 5 層クラッド材の断面組織を Fig.6-8(a), (b) に示す．ここでは，第 1 双ロールで製造した 3003 合金板を第 1 層，第 2 双ロールで製造した 3003 合金板を第 2 層，第 3 双ロールで製造した 4045 合金板を皮材と呼ぶ．5 層クラッド材の総板厚は 6.1mm であった．第 1 層，片側の第 2 層，片側の皮材の厚さは，それぞれ約 2.0，1.4，0.6mm であった．これより，クラッド率（皮材厚さ/総板厚×100）は，約 10%であり，クラッド率 10%のクラッド材が作製可能であることがわかった．このように大幅にクラッド率を変化させるためには，縦型双ロールキャストを追加することが有効である．NaOH による腐食により第 1 層と第 2 層の間，第 2 層と皮材の間の接合界面を観察することができる．いずれの接合界面も平滑であった．芯材中の第 1 層と第 2 層の接合界面は，結晶粒組織の違いから判断できる．陽極酸化後の皮材については，芯材と陽極酸化条件が異なるため結晶粒を現出できていないが皮材と第 2 層の接合界面は，明瞭に観察できる．縦型高速双ロールキャストでは，溶湯はロール表面から凝固するため，板表面部は非常に微細な組織となるが，板厚内部に向かうにともない，幾分組織は粗大化し，板厚中央部には粒状晶帯が形成される．板厚中央から皮材表面の上側半分の 5 層クラッド材の結晶粒組織は，板厚中央部に粒状晶帯があり，そこから皮材表面方向に向かって，等軸晶，柱状晶，微細な結晶粒と変化する．一方，皮材表面方向へは，粒状晶，等軸晶，柱状晶，微細な結晶粒と変化する．皮材と第 2 層の接合界面に達する．そのため，第 1 層と第 2 層の接合界面は，板厚中央部から皮材表面方向に向かい，最初に微細な結晶粒が

ある箇所とその上側に粒状晶がある箇所の中に存在すると考えられる。Fig.6-8 (a) 中、強く侵食された部分が第1層と第2層の接合界面に対応する。強く侵食されるのは、ここに隙間があるのではなく、この部分の結晶粒が微細であり、またこの Al-Mn 系分散相が多く存在するからである。Fig.6-8 (b) に示すように1層と第2層の接合界面は結晶粒の細かさの違いからも確認できる。このように同じ合金を用いてあえて3層クラッド材とすることにより、板厚方向全体に渡って微細な結晶粒組織を有する芯材の作製が可能であることも、本5層クラッド材の利点である。

#### 6.4 小括

本章では、タンデム式縦型高速双ロールキャスト法による4045/3003/4045合金クラッド材のクラッド率の制御方法について検討を行った。

第1、第2双ロールの凝固距離を変化させることにより、クラッド率を変化できるが、本手法で可能なクラッド率の制御範囲は18~28%までであることがわかった。これに対し、第1、第2双ロールに第3双ロールを追加した装置を用い、第1、第2双ロールで芯材を凝固させることにより芯材を厚くすることができ、クラッド率10%の5層クラッド材を作製することができた。このようにクラッド率を大幅な変化させるためには、双ロールキャストの追加が有効であることがわかった。また、本手法は芯材の凝固組織の微細化にも有効であることが明らかとなった。



V: Roll speed(m/min)  
 L1: Solidification length of upper caster(mm)  
 L2: Solidification length of lower caster(mm)

Fig.6-1 Schematic illustration of the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster.

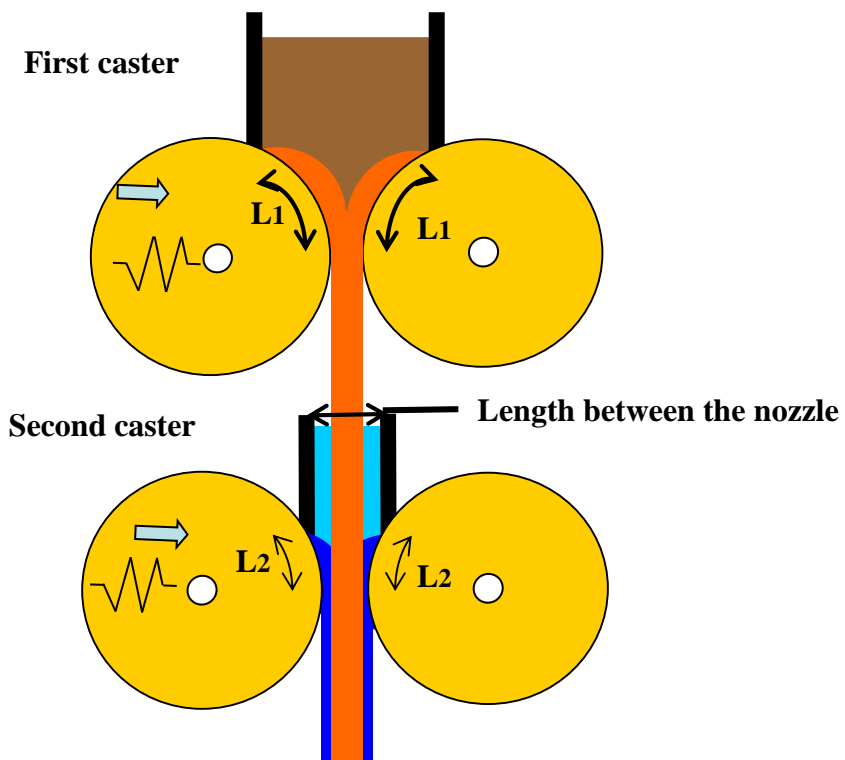


Fig.6-2 Schematic illustration of the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster.  
 $L_1$  is longer than  $L_2$ .

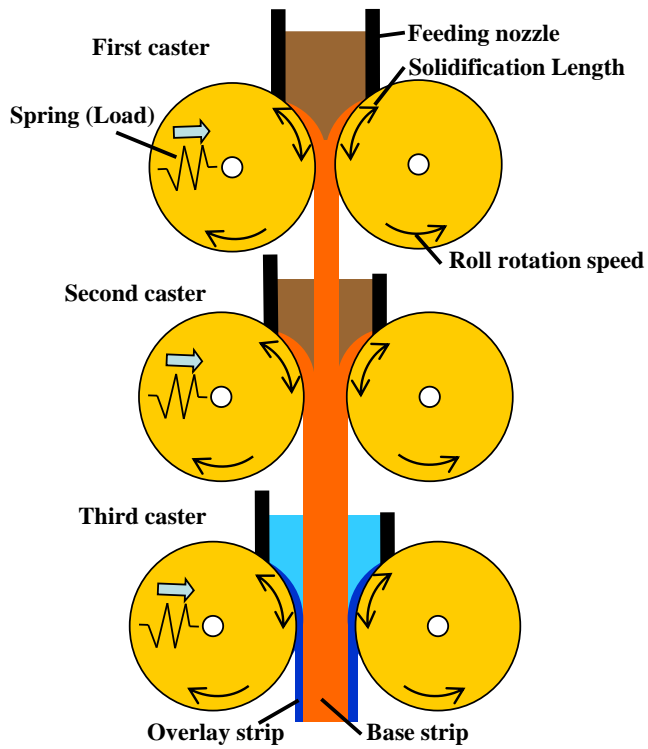


Fig.6-3 Schematic illustration of the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster.

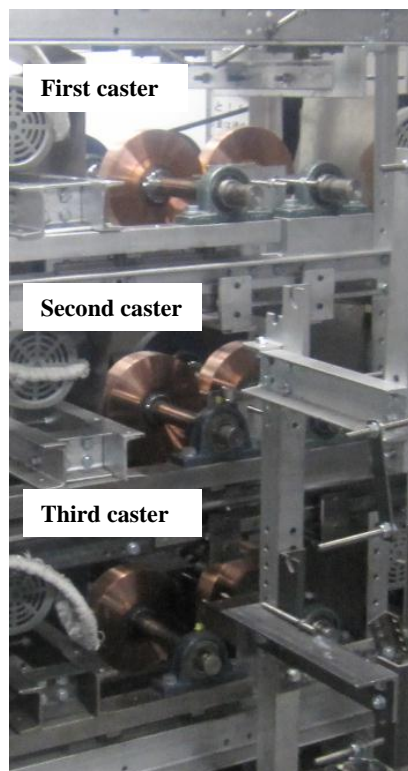


Fig.6-4 Photo of the vertical-type tandem high-speed twin-roll caster.

	Table 6-1 Chemical composition (wt.%)								
	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
3003	0.25	0.61	0.16	1.13	0.01	0.01	0.02	0.03	Bal.
4045	9.78	0.16	0.01	0.02	0.01	0.01	0.02	0.01	Bal.

Table 6-2 Casting conditions

First caster	Casting temperature(° C)	670
	Solidification length(mm)	60
	Initial load(kN)	2.2
Second caster	Casting temperature(° C)	610
	Solidification length(mm)	80
	Initial load(kN)	2.2
Roll speed(m/min)		20,40,60

Table 6-3 Casting conditions

First caster	Melt temperature(°C)	670
	Solidification length(mm)	60
	Initial load(kN)	2.2
Second caster	Melt temperature(°C)	670
	Solidification length(mm)	80
	Initial load(kN)	4.4
Third caster	Melt temperature(°C)	610
	Solidification length(mm)	80
	Initial load(kN)	4.4
Roll speed(m/min)		40

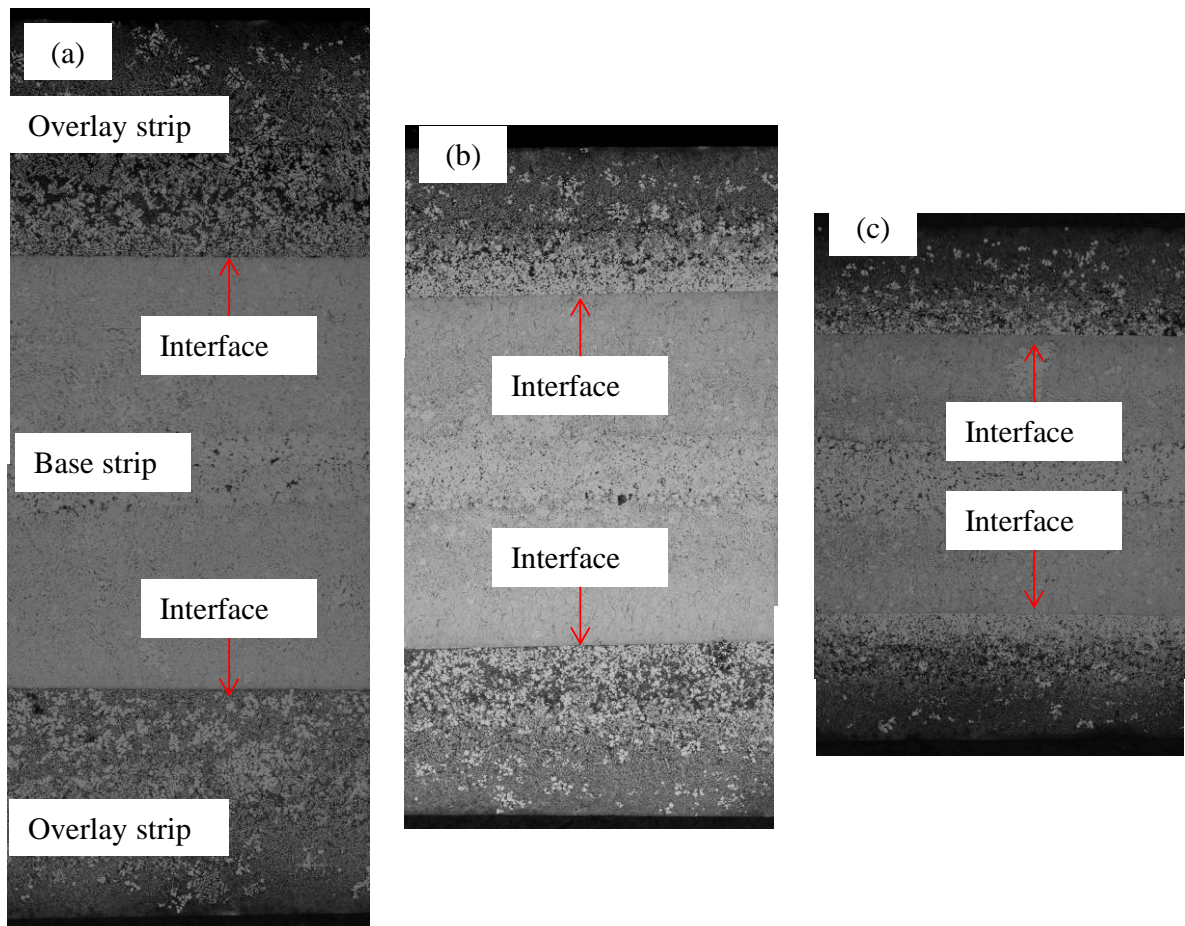


Fig.6-5 Microstructure of the clad strips fabricated with the roll rotation speed of (a)20m/min, (b)40m/min, (c)60m/min.

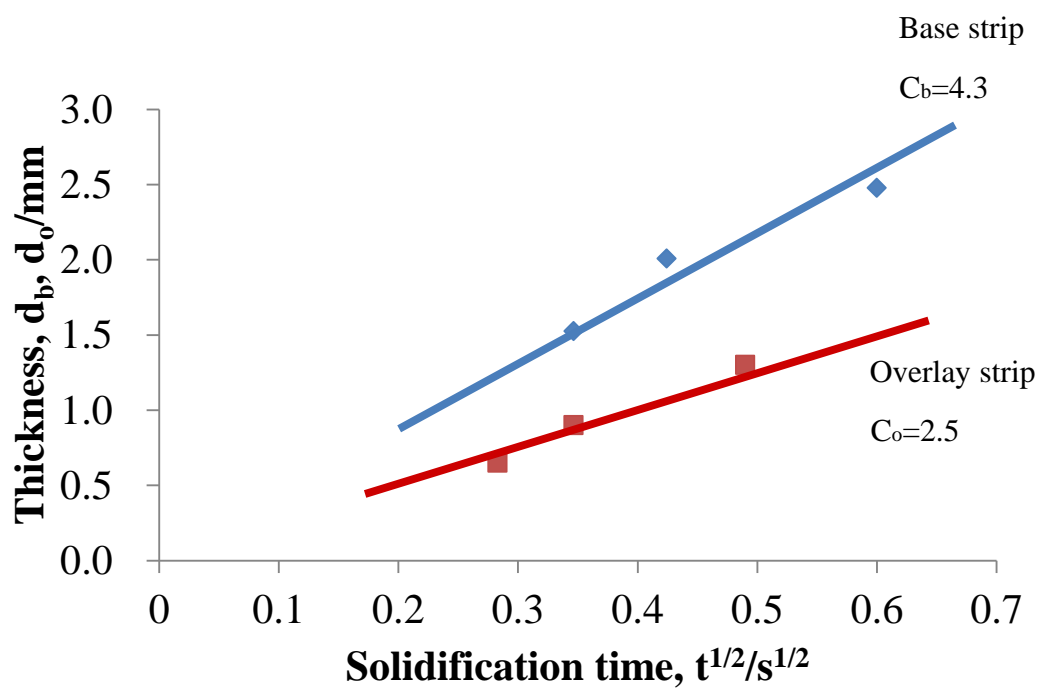


Fig.6-6 Relationship between the strip thickness and the square root of the solidification time.

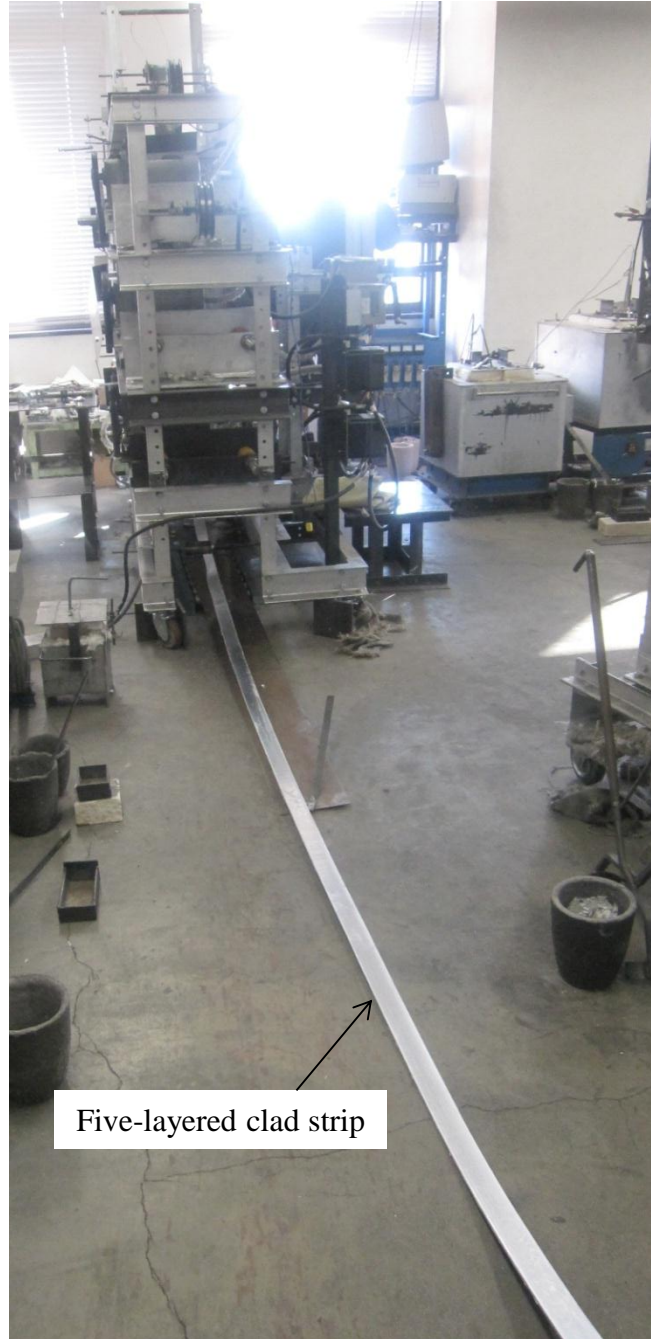


Fig.6-7 Appearance of the five-layered clad strip fabricated by using the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster.

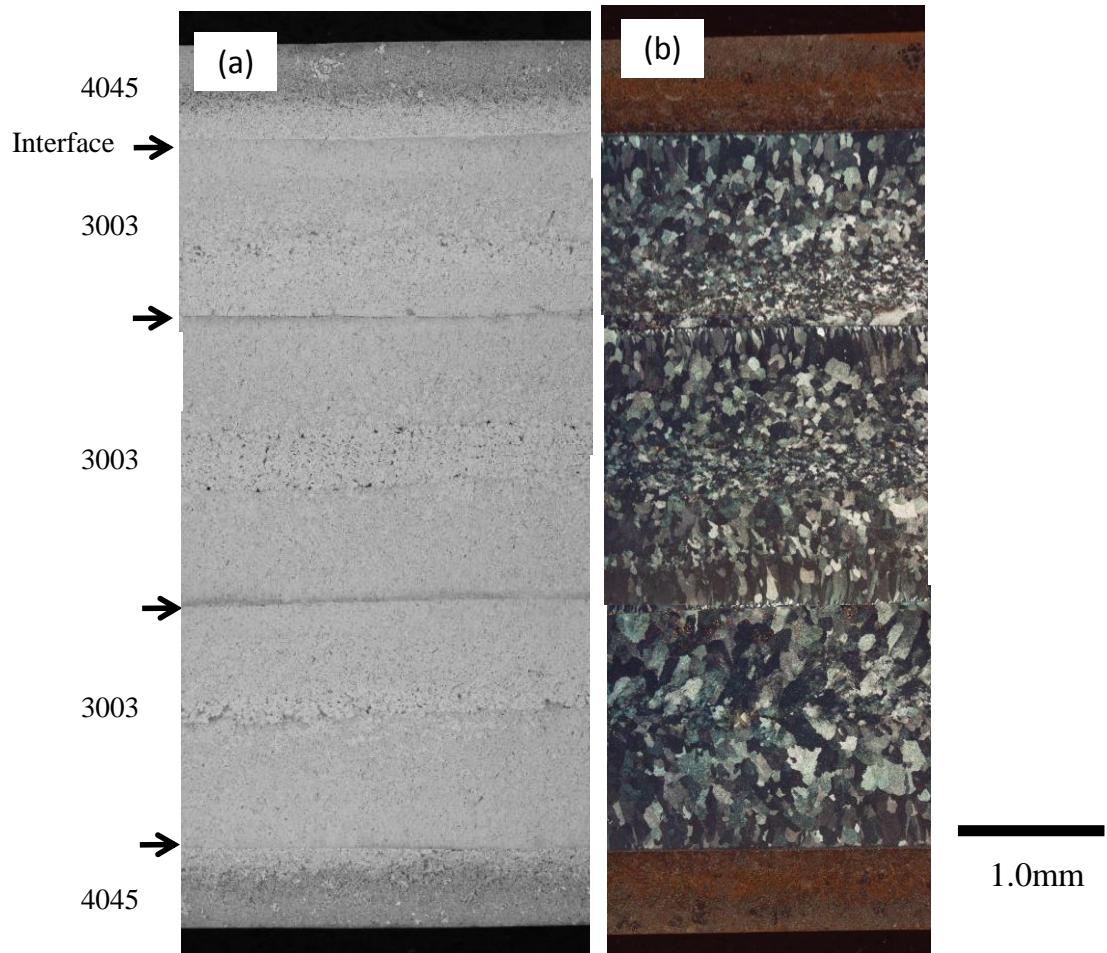


Fig.6-8 Microstructure of the five layer-clad strip. (a) Etched with NaOH, (b) Grain structure revealed by anodizing.

## 第 7 章 熱間圧延接合法とタンデム式縦型高速双ロールキャスト法で作製した 4045/3003/4045 合金クラッド材の組織と力学的性質

### 7.1 緒言

自動車用熱交換には、アルミニウム合金 3 層クラッド材であるブレイジングシートが使われている。代表的なブレイジングシートは芯材に 3xxx 系合金、皮材に 4xxx 系合金が使われており、これにより簡便にろう付が行える。このブレイジングシートの製造工程は非常に多工程であり、かつ複雑である。第 1 章でも述べたように、クラッド材の製造は通常、次のようにして行われる。まず溶湯から各合金のスラブを DC 鋳造によって作製する。スラブを表面研削し、所定の厚さまで熱間、冷間圧延する。その後、それぞれの板を重ね合せ、仮付溶接を行い、加熱、熱間圧延、冷却を繰り返すことにより接合し、最後に目標の板厚まで冷間圧延する。このような複雑かつ数多くの工程を削減するため、本研究では、1 工程でクラッド材が作製可能な装置の開発を行った。これが複数の縦型双ロールキャストを垂直方向に並べた「タンデム式縦型高速双ロールキャスト」である。本手法でクラッド材製造すれば、Fig.7-1 に示すように大幅な製造工程削減が可能であり、さらなるクラッド材の利用拡大に大きく貢献すると考えられる。

そこで、本章では、考案した「タンデム式縦型高速双ロールキャスト法」ならびに汎用的な熱間圧延接合法の両方で同じクラッド材を作製し、それらの組織、熱処理による力学的性質の変化について詳細に調べて比較検討することにより、本装置で作製したクラッド材の特性と利点について明らかにする。

### 7.2 実験方法および実験条件

#### 7.2.1 供試材

芯材には 3003 合金、皮材には 4045 合金を用いた。3003 合金と 4045 合金の組成を Table 7-1 に示す。

## 7.2.2 熱間圧延接合法およびタンデム式縦型高速双ロールキャスト法

熱間圧延接合法（以下、熱延法）とタンデム式縦型高速双ロールキャスト法（以下、双ロール法）の2種類の方法でクラッド率約10%のクラッド材を作製した。熱延法では、ラボスケールで铸造したDC鋳塊の表面を面削して作製した板厚43mmの3003合金板と、同じくDC鋳塊を480℃で加熱後、板厚50mmから板厚7.0mmまで熱間圧延して作製した4045合金板を重ね合わせた。この総板厚57mmの板を460℃で加熱後、熱間圧延を10~20パス繰返すことにより、接合させ、板厚6.0mmのクラッド材を作製した。板厚を6.0mmとしたのは、As-castの双ロール材と熱間圧延材の板厚を同じにすることで、両者の組織の直接比較を可能にするためである。

双ロール法の概略図をFig.7-2に示す。すべてのロールは、純銅製で直径200mmである。第1、第2、第3双ロールのロール幅はそれぞれ40mm、45mm、50mmとした。各々のロールの上にはノズルを設置している。第1、第2、第3双ロールとも一方のロールは強固に固定されているが、他方のロールはばねを介して固定されているため可動である。そのため、板がロール間隙を拡げる際、板にはばねによる荷重がかかる。これにより溶湯の凝固時に生じる凝固収縮にロールが追従し、ロールと凝固殻の密着性の低下を防いで、冷却能を維持することができる。クラッド材の作製は次のようにして行う。まず、芯材の溶湯を第1双ロールのノズル内に注湯する。双方のロール上で凝固殻が成長し、これらがロール間隙で合流してばねを押し広げながら芯材となり、第2双ロールの間隙に向かって降下する。芯材の先端が第2双ロール間隙を通過するタイミングで、第1双ロールと同じ合金溶湯を第2双ロールのノズル内に注湯する。すると芯材は、第2双ロール上で形成された凝固殻に挟まれながらロール間隙を通過し、3層クラッド材となる。その後、芯材（3003合金）は第3双ロール間隙に向かって降下する。芯材先端がロール間隙を通過するタイミングで第3双ロールのノズル内に4045合金溶湯を注湯する。芯材は、第3双ロール上で形成された凝固殻（皮材：4045合金）に挟まれながらロール間を通過し、5層クラッド材となる。双ロール法の铸造条件をTable 7-2に示す。ロール周速は第1、第2、第3双ロールともに40m/minとした。第1、第2、第3双ロールの凝固距離は各々60、80、80mmとした。注湯温度はそれぞれの液相線より15℃高い670、670、610℃とした。初期荷重は、第1双ロールを2.2kN、第2双ロールを4.4kN、第3双ロールを4.4kNとした。それぞれの溶湯は第1、第2、第3双ロールともに樋を用いて注湯した。注湯量は、1回あたり芯材用合金

溶湯が約 1.0kg と皮材用合金溶湯が約 1.5kg で、これにより長さ 4m、幅 50mm、板厚約 6.0mm の 5 層クラッド材を作製できる。3003 合金を 1, 2 段目に注湯することで芯材板厚を厚くし、クラッド率が約 10%になるように調節した。

### 7.2.3 冷間圧延ならびに熱処理

クラッド材の冷間圧延ならびに熱処理フローの説明図を Fig.7-3 に示す。まず熱延法と双ロール法でそれぞれ作製した板厚約 6.0mm のクラッド材を、板厚 6.0mm から板厚 0.17mm まで冷間圧延した。その後、それぞれの板を 400℃で 2 時間焼鈍し、さらに板厚 0.10mm まで冷間圧延した。焼鈍は、冷間圧延で導入された加工ひずみを取り除き、成形性を回復させるために行うが、これに加えて、結晶粒寸法を増加させ、ろう付加熱において溶解した皮材が芯材内部に浸食する経路となる結晶粒界を減少させる目的もある。最後に、ろう付を模擬した 600℃で 3 分間の加熱（以下、ろう付加熱）を併せて行った。

### 7.2.4 組織観察ならびに力学的性質の評価

熱延材と双ロール材の板厚 6.0mm、板厚 0.17mm の焼鈍前後、板厚 0.1mm のろう付加熱前後について、OM（光学顕微鏡）、SEM（走査型電子顕微鏡）、TEM（透過型電子顕微鏡）を用い、断面組織観察を行った。OM、SEM 観察用試料は、エメリー研磨紙で#120～#4000 まで力学研磨後、粒径 3 $\mu$ m、1 $\mu$ m のダイヤモンドペーストを用いてバフ研磨し、コロイダルシリカ懸濁液により鏡面仕上げして、2%NaOH 水溶液を用いて常温で 90 秒間腐食した。結晶粒組織は 3.3% HBF<sub>4</sub> 水溶液中で陽極酸化(25V,180 秒)して、光学顕微鏡により観察した。TEM 用薄膜は、板厚 0.10mm まで冷間圧延した試料から採取し、過塩素酸：エタノール=3：7（容積比）を用い、液温-10℃、電圧 13V の条件で電解研磨して作製した。TEM 観察は、超高電圧・超高真空・高分解能電子顕微鏡を用い、加速電圧 1020kV で行った。

板厚 6.0mm から板厚 0.17mm まで冷間圧延を行った状態、焼鈍後、ろう付加熱後、各状態における熱延材と双ロール材の力学的性質を引張試験により評価した。引張試験片の形状と寸法を Fig.7-4 に示す。標点間距離 10mm、幅 5mm、全長 50mm で掴み部の幅 14mm、フィレット半径 15mm の引張試験片を圧延方向と試験片の荷重軸方向が平行になるよう放電加工機で切り出した。引張試験は、インストロン型試験機を用いて行い、室温、クロスヘッド速度 0.5mm/min

で行った。荷重はロードセル、変位は試験片の標点に取付けた測定用ロッドの間隔変化から求めた。0.2%耐力、最大引張応力、破断ひずみは、N=3の結果を平均して求めた。

### 7.2.5 導電率測定

As-cast、焼鈍前後の双ロール材と焼鈍後の熱延材の導電率を周波数 500 kHz、プローブ径 12.7 mm のデジタル導電率計（オートシグマ 3000）を用いて室温で測定した。試験片は、鑄造方向もしくは圧延方向が 50 mm、板幅方向が 30 mm の板状であり、プローブ径よりも十分大きい。導電率は、試験片を絶縁体の上に置き、表面にプローブを押しつけて測定し、3 ヶ所の平均値から算出した。導電率は、軟銅を基準とした %IACS (The International Annealed Copper Standard) で表示した。

## 7.3 実験結果および考察

### 7.3.1 板厚 6.0mm の熱延材と双ロール材のマイクロ組織

板厚 6.0mm の熱延材と双ロール材 (As-cast) の断面組織を Fig.7-5 と Fig.7-6 に示す。図中、板の長手方向が CD、板厚方向が ND、板の幅方向が TD である。熱延材と双ロール材ともにクラッド率は 10~12% であり、どちらのクラッド材も隙間なく接合されていた。熱延材は、DC 鑄造後、熱間・冷間圧延されたクラッド材の一般的な組織を呈しており、母相の結晶粒は圧延方向に伸長している。熱延材の皮材 (4045 合金) の共晶 Si 粒子は、粒子径が数  $\mu\text{m}$  ~ 10 $\mu\text{m}$  で、母相中に均一に分散していた (Fig.7-5 (a))。Al-Mn 系化合物は長さ約 10 $\mu\text{m}$  以上の板状あるいは針状の形態を有していた (Fig.7-5 (b))。一方、双ロール材は、圧延材ではなく、As-cast 状態であるため、凝固組織を呈していた。凝固はロール表面から固相が成長して進行するので、板表面の凝固組織は非常に微細で、板厚中央部に向い徐々に粗大な組織となり、板厚中央部には粒状晶帯が形成される<sup>(12)</sup>。この粒状晶帯は、注湯の際、樋上やロール表面で生成した初晶  $\alpha\text{-Al}$  相が溶湯内を浮遊し、ロール表面から成長した凝固殻に押されて、板厚中央部に形成されたものと考えられる。Fig.7-6 中の矢印で示すように、双ロール材には 4 つの接合界面が観察される。第 1 双ロールおよび第 2 双ロールで 3003 合金板を鑄造し、第 3 双ロールで 4045 合金板を鑄造している。そのため、第 1 双ロールで作製した板と第 2 双ロールで作製した板には、当然なが

ら接合界面が存在する。この接合界面は as-polished の状態では観察されないが、凝固組織の細かさが違うため、腐食すると第 1 双ロールで鋳造された板表面のチル層領域が暗いコントラストを呈するため識別が可能となる (Fig.7-6)。もちろん Fig.7-6 では 3003 合金板と 4045 合金板の接合界面も明瞭に区別でき、接合界面が平滑であることがわかる。芯材組織の結晶粒は、板表面付近で柱状晶を呈し、板厚中央に向かうに従い、等軸晶に遷移していた。また板厚中央部では粒状晶帯が見られた (Fig.7-7 (a), (b), (c))。芯材中の結晶粒界ならびに粒内に晶出、析出した Al-Mn 系分散第 2 相は、接合界面近傍で微細であり、板厚中央部に向かう程、粗大になっていた。Fig.7-8 に Fig.7-6(d),(e)を拡大したマイクロ組織を示す。皮材表面は急冷凝固されるため、皮材表面から接合界面に向かって、微細な初晶  $\alpha$ -Al デンドライトが観察されている (Fig.7-8 (d))。接合界面に近づくにつれ、徐々にデンドライト組織は粗大になった (Fig.7-8 (e))。初晶  $\alpha$ -Al デンドライトは共晶凝固組織で取り囲まれている。板表面近傍では、共晶 Si 粒子の直径は約  $1\mu\text{m}$  と非常に微細であった。接合界面近傍の共晶 Si 粒子は、表面近傍に比べ、やや粗大で、長さ  $1\sim 3\mu\text{m}$  の粒状や棒状形態を呈していた。

### 7.3.2 冷間圧延後の断面組織および力学的性質

熱延材と双ロール材を板厚 6.0mm から板厚 0.17mm まで冷間圧延した試料の結晶粒組織を Fig.7-9 に示す。熱延材、双ロール材いずれの場合も、冷間圧延によってクラッド率は変化しなかった。熱延材の芯材の結晶粒は、板厚 6.0mm の場合と同様、繊維状を呈していた。一方、双ロール材は、板厚 6.0mm から板厚 0.17mm まで冷間圧延されることにより、凝固組織は加工組織へと変化し、芯材は、繊維状組織を呈していた。Fig.7-10 に板厚 0.17mm まで冷間圧延した熱延材と双ロール材の SEM-BEI 像 (反射電子像) を示す。ここでは、灰色のコントラストが母相  $\alpha$ -Al で、皮材中の  $1\sim 3\mu\text{m}$  程度の粒子が共晶 Si 粒子、芯材中の結晶粒内あるいは粒界に晶出もしくは析出している明るいコントラストの相が Al-Mn 系の分散相である。熱延材では、板厚が 6.0mm の場合には、皮材の共晶 Si 粒子や芯材の Al-Mn 系分散相は均一に分散していたが、板厚 0.17mm では、皮材の共晶 Si 粒子や芯材の Al-Mn 系分散相の分散が粗くなっていた。熱延材の 4045 合金と 3003 合金の接合界面を観察すると、芯材母相と皮材母相にはコントラスト差がなく区別できなかった。これは、繰返し熱間圧延接合されることによって Si や Mn の拡散が起き、接合界面で芯材と皮材が合金化したためであると考えられる。一方、双ロール材は、板

厚 0.17 mm まで冷間圧延されても、皮材の共晶 Si 粒子や芯材の Al-Mn 系分散相は、微細で均一に分散していた。さらに 4045 合金と 3003 合金の接合界面では、母相の組成が異なるため 4045 合金の母相と 3003 合金の母相のコントラストに明瞭な差が見られた。これは凝固時間が極めて短いので、接合界面において皮材成分の Si や芯材の Mn の相互拡散がほとんど生じないためであると考えられる。

次に、板厚 0.17mm まで冷間圧延した状態の熱延材と双ロール材の試料を引張試験した。Fig.7-11 にそれぞれの代表的な応力-ひずみ曲線を示す。熱延材は、最大引張応力：261MPa、0.2%耐力：234MPa、破断ひずみ：0.0458 であった。双ロール材は、最大引張応力：259MPa、0.2%耐力：244MPa、破断ひずみ：0.0393 であった。このように引張特性には大きな違いは見られなかった。これは、Fig.7-10 に示すように両組織において分散相の寸法や分布は異なるものの、その引張特性は冷間圧延により導入された転位密度に支配されていると考えられ、ここでは両組織に同程度の加工ひずみが加えられているため、ほぼ同じ強度、破断ひずみを呈したと考えられる。

### 7.3.3 400°C - 2 h 焼鈍後の断面組織と力学的性質

板厚 0.17mm の熱延材と双ロール材に対し 400°C で 2 時間の焼鈍を行った試料に対し、引張試験を行った。Fig.7-12 にそれぞれの代表的な応力-ひずみ曲線を示す。熱延材では、最大引張応力：124MPa、0.2%耐力：52.5MPa、破断ひずみ：0.143 あった。双ロール材では、最大引張応力：145MPa、0.2%耐力：81.8MPa、破断ひずみ：0.186 であった。Fig.7-13 に 400°C で 2 時間の焼鈍を行った熱延材と双ロール材の結晶粒組織を示す。熱延材の芯材は、400°C で 2 時間の焼鈍により繊維状組織から再結晶組織に変化していた。一方、双ロール材の芯材では再結晶組織中に繊維状組織が混在し、さらに芯材ならびに皮材中の第 2 相粒子も微細で均一に分散していた。0.2%耐力、最大引張応力、破断伸びは双ロール材の方が熱延材より各々 30MPa、20MPa、0.04 程度高い。0.2%耐力、最大引張応力が高いのは、繊維状組織が残っていること、第 2 相粒子が微細で均一に分散していることによる分散強化が寄与したと考えられる。破断伸びが高いのは、双ロール材は芯材ならびに皮材の第 2 相の粒子径が小さく、割れや剥離を生じる粗大な粒子が少ないためであると考えられる。

熱延材と双ロール材の再結晶挙動について考察する。再結晶挙動は、加工ひずみ量、第 2 相

粒子 (Al-Mn 系分散相) の大きさ, 母相の過飽和度 (Mn の固溶量) によって変化することが知られている. 加工ひずみ量については, それぞれの冷間圧延まま材の最大引張応力, 0.2%耐力が同程度であり, 蓄積されているひずみエネルギーは同程度であると考えられる. 第2相粒子の大きさは再結晶挙動に影響すると考えられている<sup>2)</sup>. 母相中の粗大な分散粒子は, 母相に局所的に転位密度の高い領域を生じさせる原因となる. この転位密度の高い領域は, 優先的な再結晶核サイトとなり, 再結晶核の発生を促進する可能性がある. また粗大な分散粒子の粒界移動のピン止め効果は小さく, 再結晶粒の成長を妨害しない. 熱延材と双ロール材の母相の過飽和度について検討する. 3003 合金に含まれる Mn は急冷凝固により強制固溶されることが知られている. Mn が強制固溶された合金の再結晶挙動については多くの研究が行われている<sup>3),4)</sup>. Nes ら<sup>4)</sup>は, 異なる量の Mn を母相に強制固溶させた 3003 合金板に冷間圧延を加え, 種々の焼鈍の温度と時間における軟化曲線の作成を行っている. その結果, 母相に 0.5%Mn, 0.4%Mn が各々強制固溶された合金を, 各々 375, 300°C 以下の温度で焼鈍したところ, 再結晶粒の生成に先行して母相から Al<sub>6</sub>Mn が析出し, この析出物が転位運動や再結晶粒の成長を妨害して, 母相の再結晶が遅れたと報告している. 双ロール材の場合, 急冷凝固により母相には多量の Mn が強制固溶されていると考えられる. ここではこれを確認するために導電率測定を行った. しかし, 導電率は母相中の溶質元素の固溶量だけでなく, 試験片のひずみ量によっても変化する. そこで, まず鑄造ままの双ロール材 (板厚 6.0 mm) と板厚 0.17 mm まで冷間圧延した双ロール材の導電率を測定し, 比較した. 導電率は, それぞれ 28.3 %IACS と 27.9 %IACS で, その差は 0.4 %IACS であった. 次に, 同程度の引張強度を持つ熱延材 (板厚 0.17 mm) と双ロール材 (板厚 0.17 mm) の導電率を測定したところ, それぞれ 44.8 %IACS, 28.3 %IACS が得られ, その差は 16.5 %IACS であった. 前者のひずみ量の増加によると考えられる導電率の変化が 0.4 %IACS であったのに対し, 後者の熱延材と双ロール材の導電率の間は, 16.5 %IACS の差があり, これは双ロール材が, 熱延材に比べ, 母相中により多くの Mn を固溶していることを示唆している. よって双ロール材においては, 再結晶粒の核生成前に析出が起これ, これが核生成を遅らせ, さらに析出物のピン止め効果により再結晶粒の成長も遅らせたのではないかと考えられる. これが, 熱延材では全体が再結晶粒となる温度, 時間条件であっても, 双ロール材では完全には再結晶せず, 繊維状組織と再結晶粒組織が混在した組織であった理由であると考えられる.

### 7.3.4 ろう付加熱後の断面組織および力学的性質

板厚 0.10mm まで冷間圧延した板に対し、ろう付を模擬した 600°C、3 分間の熱処理を行った。Fig.7-14 (a) , (b) に熱処理後の断面組織を示す。熱延材、双ロール材ともに表面近傍には、粗大な初晶  $\alpha$ -Al 相と共晶 Si 相が観察された。接合界面は凹凸であり、溶解した皮材は芯材に堆積し、芯材表面は浸食されていた。皮材合金の芯材への浸食過程は次のように考えられる。皮材 (4045 合金) は、577°C で Al-Si 共晶相が溶解するため、一部溶解した共晶組成の合金融液は、主として結晶粒界を経路として芯材を浸食するが、このとき皮材成分と芯材成分の合金化が生じる。浸食はその部分の合金組成が Al-9wt.%Si 組成になると、その液相線温度が熱処理温度の 600°C と一致するため、固化し始め、皮材合金融液の浸食がおさまりに始め、やがて停止する。

ろう付加熱後の熱延材および双ロール材の引張試験を行った。Fig.7-15 にそれぞれの代表的な応力-ひずみ曲線を示す。熱延材は、最大引張応力が 140MPa、0.2%耐力が 56.7MPa、破断ひずみが 0.11 であった。双ロール材は、最大引張応力が 134MPa、0.2%耐力が 46.7MPa、破断ひずみが 0.12 であった。芯材の Al-Mn 系粒子の寸法や分布には両者で大きな違いがあるものの、最大引張応力、0.2%耐力、破断ひずみは同程度であった。同程度の引張強度を呈する原因について、双ロール材と熱延材の芯材母相へ固溶される Mn 量、芯材の析出物のサイズとその粒子間隔、芯材の再結晶粒の大きさから検討する。まず、Mn 固溶量に関しては、600°C で加熱により析出が起きるため、熱延材と双ロール材の芯材母相の Mn 固量は同程度になると考えられる。3003 合金の析出物を超高電圧・超高真空・高分解能電子顕微鏡を用いて観察し、低倍率 (5000 倍) の暗視野像を撮影し、その画像を用いて析出物の粒子サイズ、粒子間距離を測定した。Fig.7-16 に 600°C で 3 分加熱後の熱延材と双ロール材の析出物の粒子サイズ分布を示す。析出物の粒子サイズは熱延材、双ロール材ともに 0.1  $\mu\text{m}$  ~ 0.2  $\mu\text{m}$  程度であり、両者で大きな違いは見られなかった。交線法により任意の直線上に何個の析出物粒子があるかを測定して、析出物の粒子間距離を求めたところ、熱延材と双ロール材では、それぞれ 0.31  $\mu\text{m}$ 、0.18  $\mu\text{m}$  であり同程度であった。Fig.7-17 にろう付加熱後の熱延材と双ロール材の結晶粒組織を示す。結晶粒寸法はほぼ同じであった。これは、板厚 0.17 mm から 0.10 mm までの冷間圧延により、導入された加工ひずみ量は熱延材、双ロール材で同等であり、その後の熱処理条件も全く同じであったためと考えられる。このように芯材母相への固溶 Mn 量、芯材の析出物サイズならびに粒子間距

離，芯材の再結晶粒組織，これらが熱延材と双ロール材でほぼ同じであったため，熱延材と双ロール材の引張強度が同程度になったものと考えられる。

さて，本実験で用いた芯材と皮材，各合金の組成や，圧下率，焼鈍条件，ろう付加熱条件は，すべて汎用的な熱延材について最適となるよう定められたものである。本研究では，その条件に合わせて双ロール材の組成や特性を評価したが，双ロール材には，双ロール材に最適な芯材，皮材の合金組成や圧延，焼鈍，ろう付条件があると考えられる。よって，双ロール材に最適な条件を見出すことができれば，熱延材以上に優れた力学特性を有するクラッド材を得ることができる可能性がある。いずれにしても現時点において，すでに極めて省工程なプロセスで熱延法と比肩し得る力学的特性を有するクラッド材の作製に成功している。よって，「タンデム式縦型高速双ロールキャスト法」はアルミニウム合金クラッド材を作製するための新しいプロセスとして有用であると言える。

#### 7.4. 小括

4045/3003/4045 合金クラッド材をタンデム式縦型高速双ロールキャスト法ならびに汎用的な熱間圧延接合法で作製し，それらの組織，熱処理による力学的性質の変化について比較することにより，双ロールキャスト法で作製したクラッド材の特性と，本手法のクラッド材の省工程製造プロセスとしての有効性について検討を行った。

出発材である板厚 6.0 mm の状態では，双ロール材は凝固組織を呈していたが，熱延材は加工組織を呈していた。

板厚 0.17 mm まで冷間圧延した状態で比較すると，双ロール材においては，Al-Mn 系分散相，共晶 Si 粒子がともに熱延材に比べ，より微細で均一に分散していた。熱延材の接合界面では，芯材母相と皮材母相とが区別できず，両成分の合金化が生じていると考えられる。一方，双ロール材の接合界面では，芯材母相と皮材母相が明瞭に区別でき，合金化領域は形成されていなかった。熱延材の芯材は，400℃で2時間の焼鈍により，すべて再結晶していたのに対し，双ロール材の芯材には，再結晶粒組織と繊維状組織が混在していた。これは双ロール材の母相には熱延材に比べより多くの Mn が強制固溶されているため，焼鈍中，再結晶粒の核生成に先立ち Al-Mn 系粒子の析出が起きること，さらに双ロール材中の微細かつ密に分散した Al-Mn 系分散粒子が

ピン止め効果によって、再結晶粒の成長を遅らせることが原因であると考えられる。双ロール材の0.2%耐力、最大引張応力、破断伸びは熱延材に比べて高かった。

板厚0.10 mmまで圧延し、600°Cで3分間のろう付加熱を行った熱延材と双ロール材は、ほぼ同等の引張特性を示した。

このようにタンデム式縦型高速双ロールキャスト法を用いることにより、熱延法と比べ極めて省工程で、熱延法と比肩し得る力学特性を有するアルミニウム合金クラッド材を作製することができた。

## 参考文献

- 1) M.S.Kim and S.Kumai: *Materials Transactions*, 54(2013),1930-1937.
- 2) F.J.Humhreys and P.N.Kalu: *Acta metall.*, 35(1987),2815-2829.
- 3) Y.J.Li, L.Arnberg: *Acta Materialia*, 51(2003), 3415–3428.
- 4) E.Nes: *Aluminium*, 52(1976),560-563.

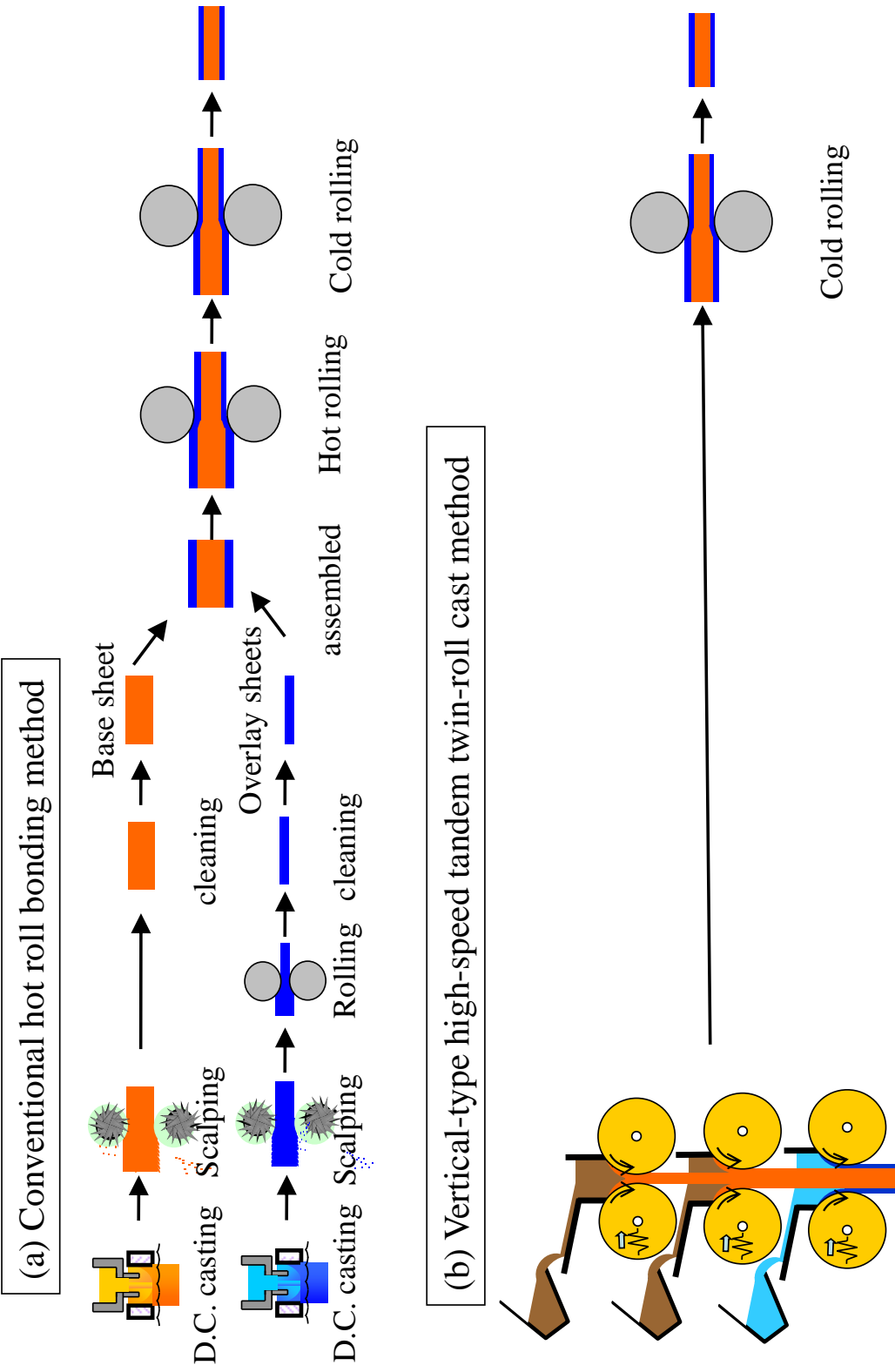


Fig. 7-1 Clad sheet fabrication by the conventional hot roll bonding method (a) and the vertical-type high-speed tandem twin-roll cast method (b).

	Table7-1 Chemical composition (wt.%)								
	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
3003	0.25	0.61	0.16	1.13	0.01	0.01	0.02	0.03	Bal.
4045	9.78	0.16	0.01	0.02	0.01	0.01	0.02	0.01	Bal.

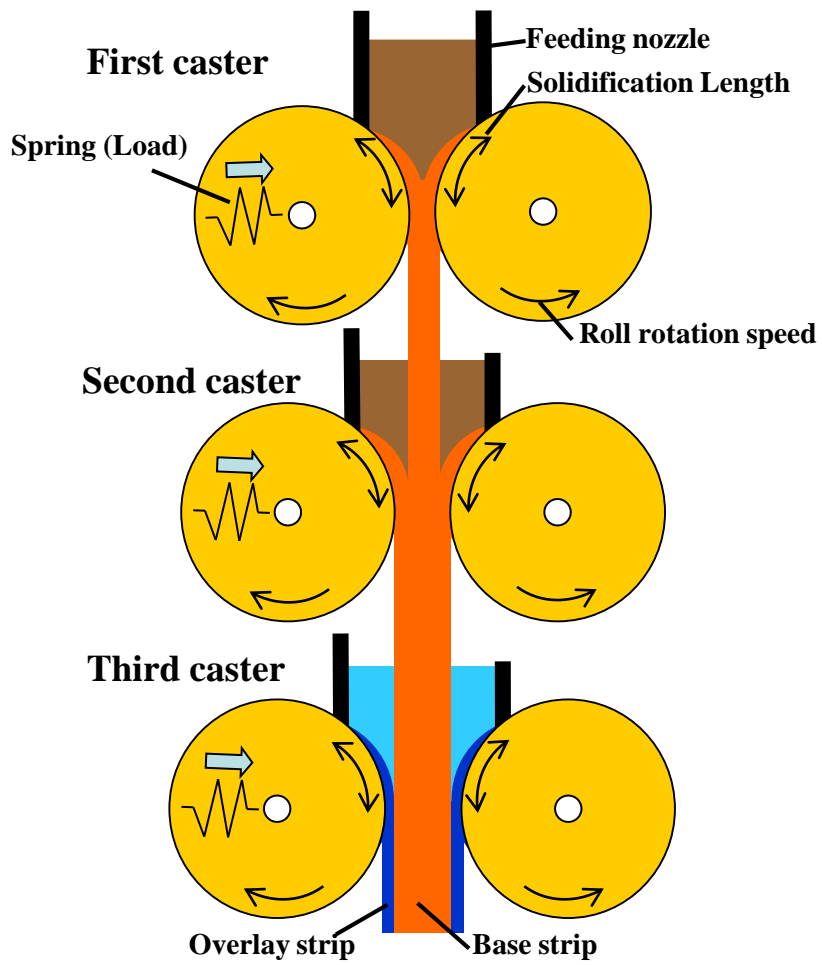


Fig. 7-2 Schematic illustration of the vertical-type high-speed tandem twin-roll caster.

Table 7-2 Casting conditions

First caster	Casting temperature(°C)	670
	Solidification length(mm)	60
	Initial load(kN)	2.2
Second caster	Casting temperature(°C)	670
	Solidification length(mm)	80
	Initial load(kN)	4.4
Third caster	Casting temperature(°C)	610
	Solidification length(mm)	80
	Initial load(kN)	4.4
Roll speed(m/min)		40

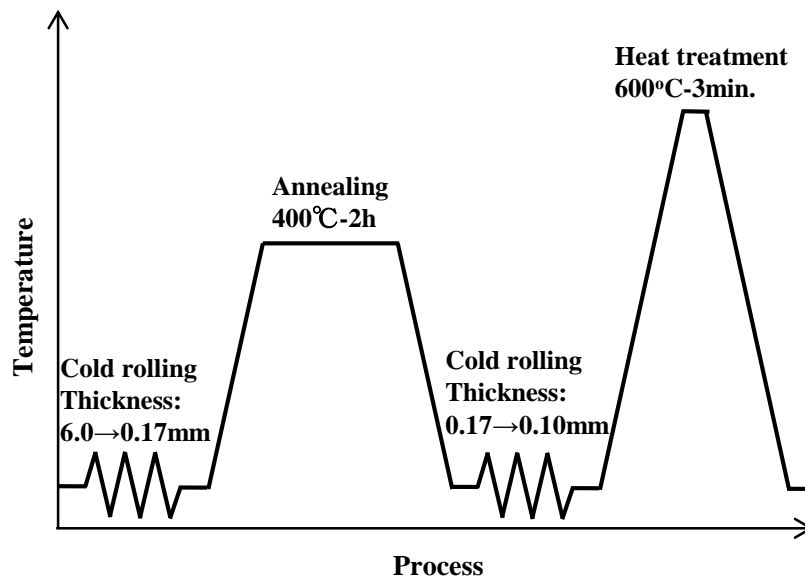


Fig.7-3 Illustration of the process flow.

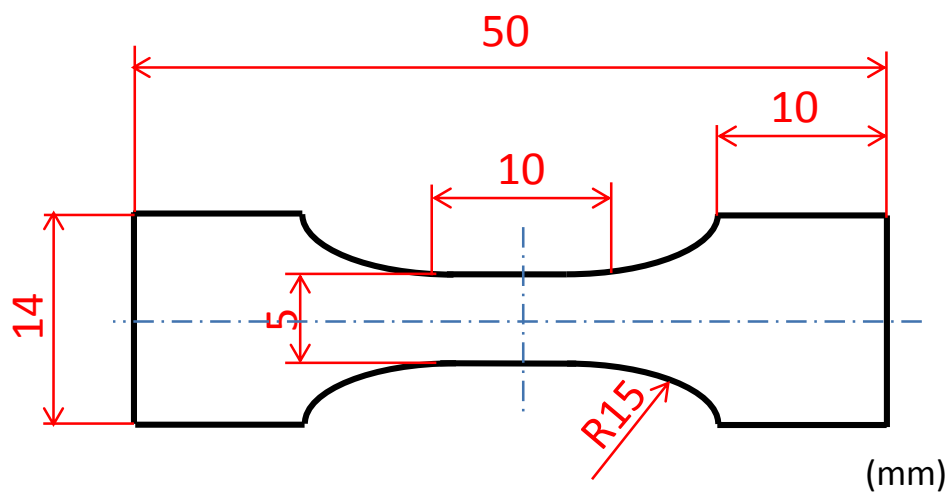


Fig.7-4 Specimen for the tensile test.

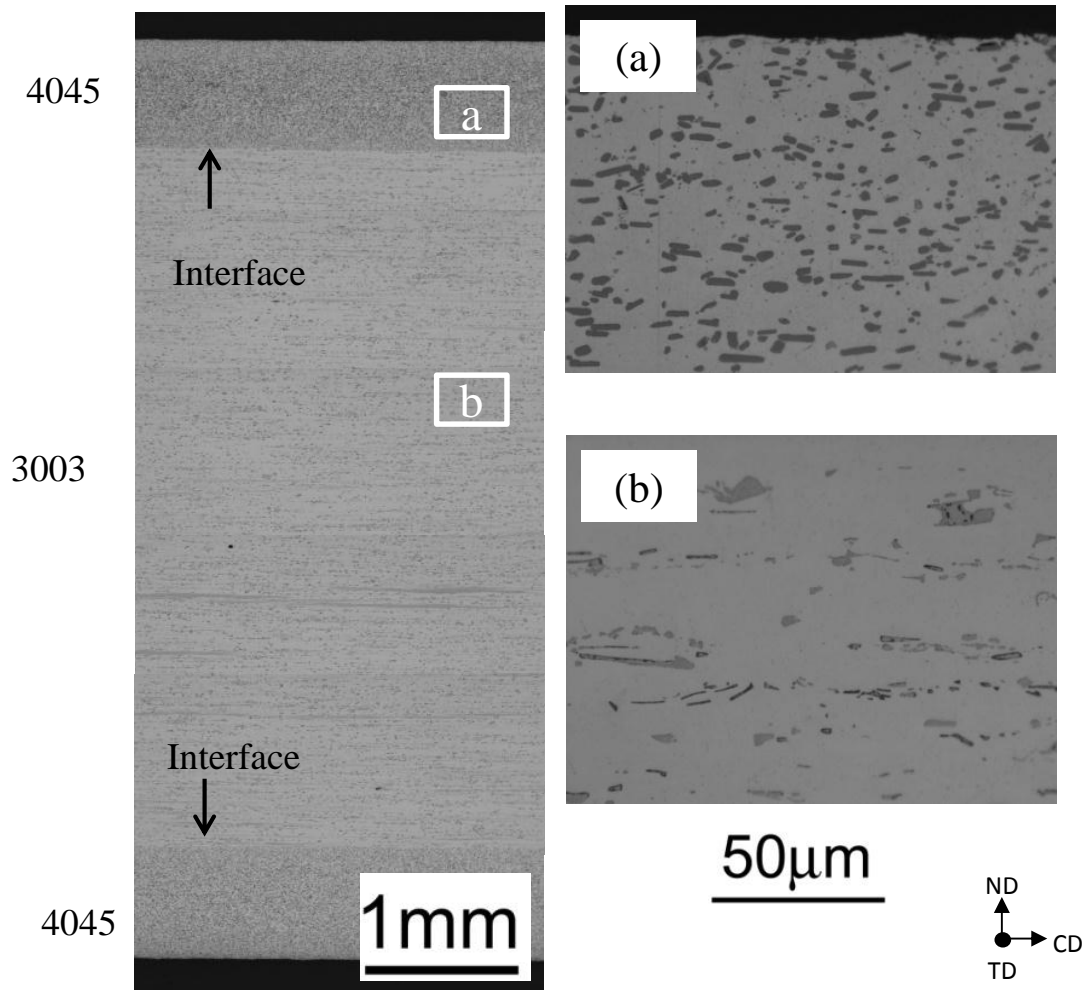


Fig. 7-5 Microstructure of the clad sheet fabricated by the hot roll bonding. (a): 4045 region, (b) : 3003 region.

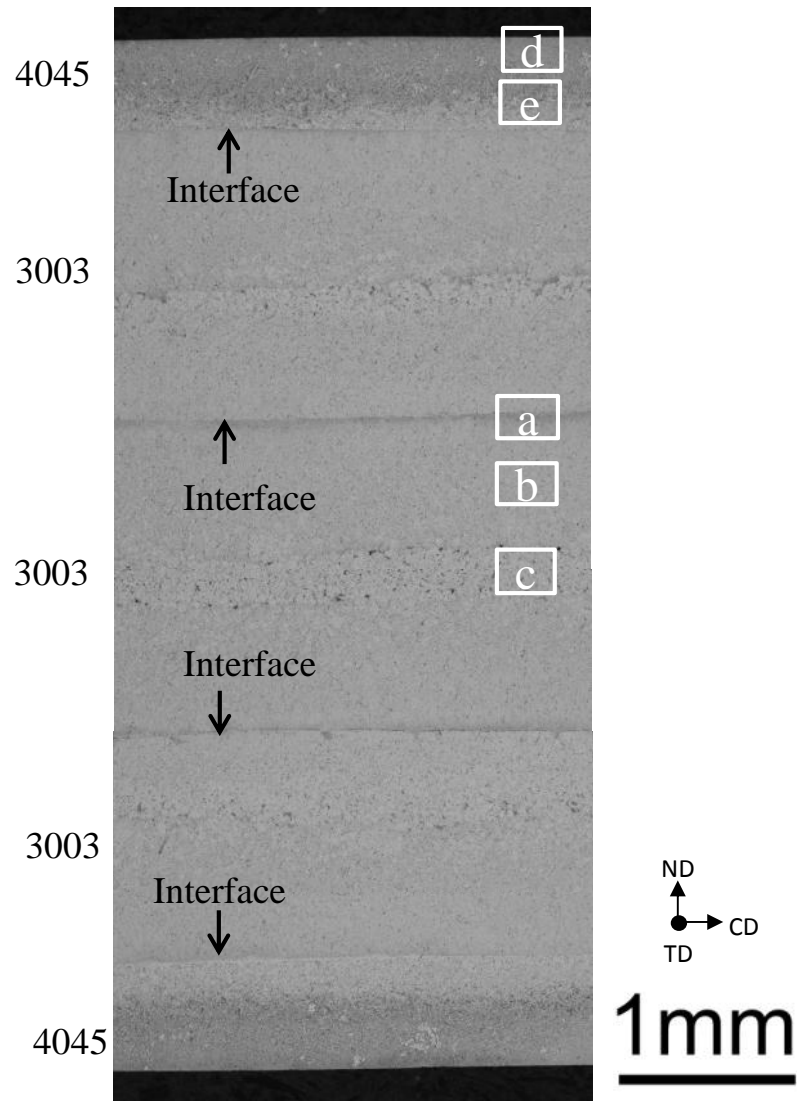


Fig. 7-6 Microstructure of the clad strip fabricated by the vertical-type high-speed tandem twin-roll casting.

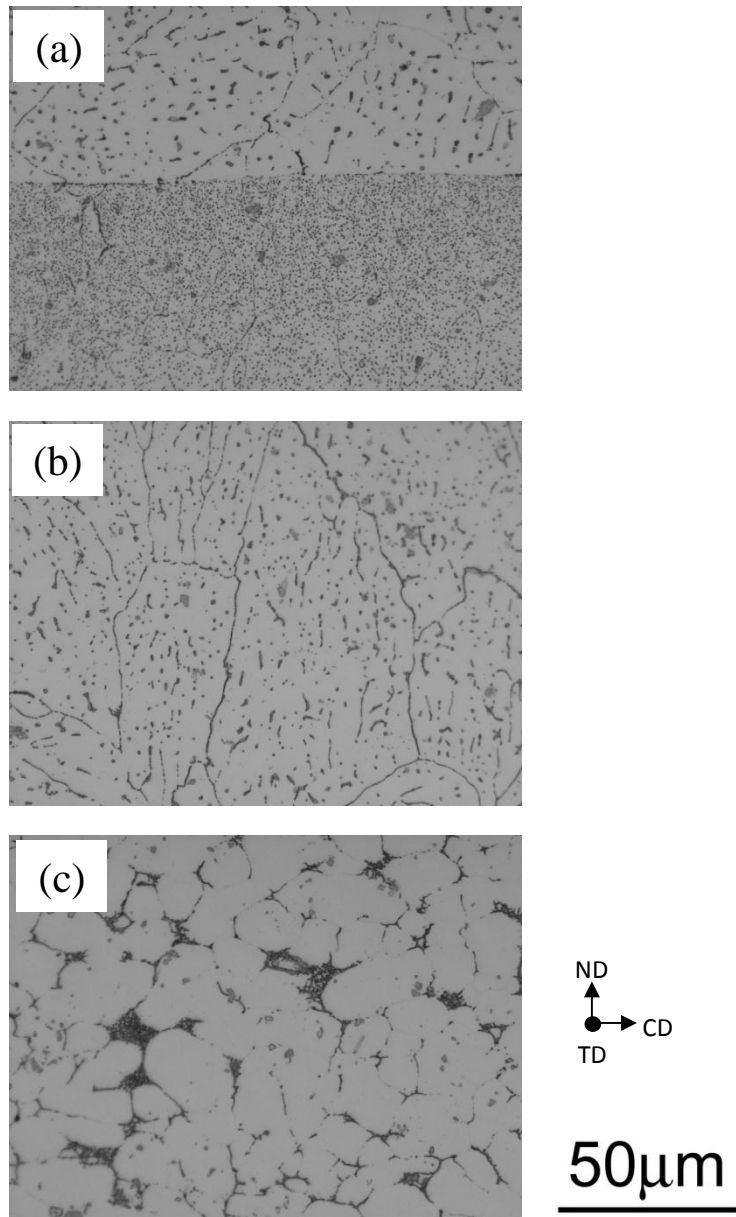


Fig. 7-7 Microstructure of the regions of (a), (b), (c) in Fig. 7-6.  
(a): Surface region of the clad strip, (b): between the central region and interface region, (c): central region.

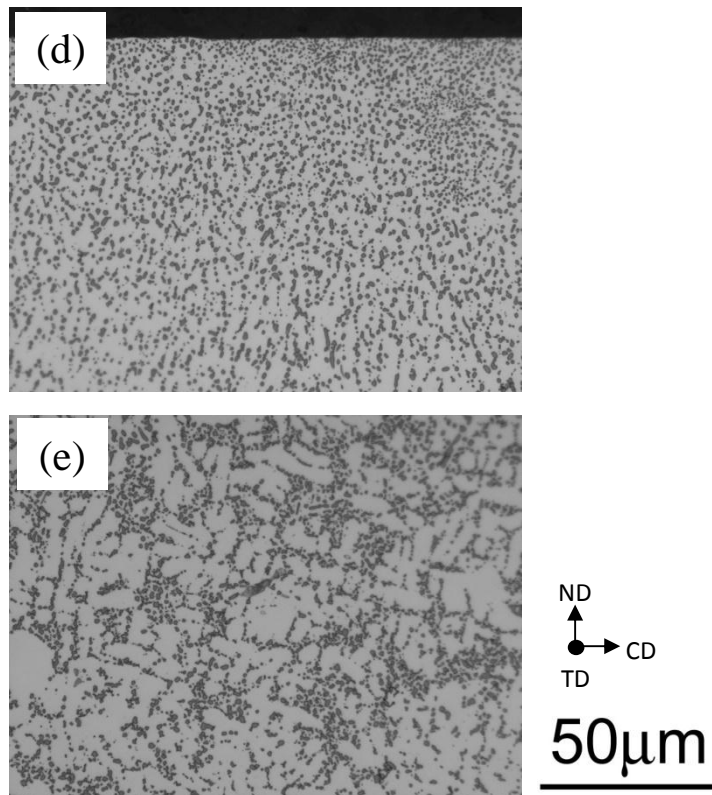


Fig. 7-8 Microstructure of the regions of (d), (e) in Fig. 7-6.  
(d): Surface region of the clad strip, (e): near the interface region.

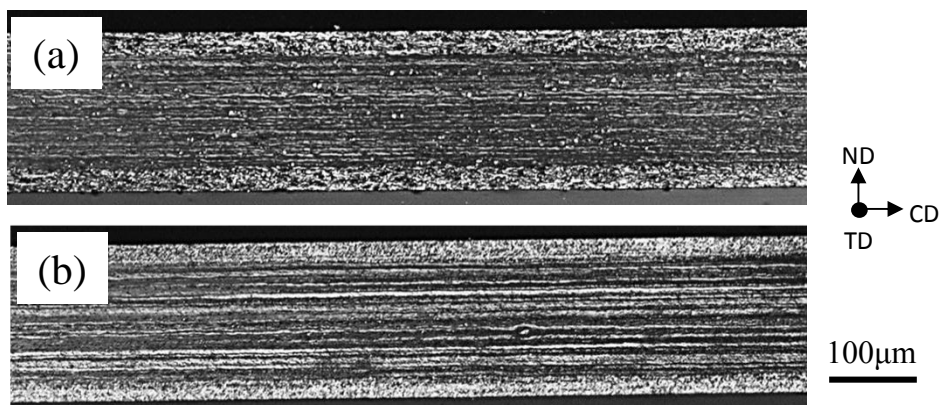


Fig. 7-9 Grain structure of the clad sheets after the cold rolling.  
(a) the hot roll bonding, (b) the vertical type tandem twin roll casting.

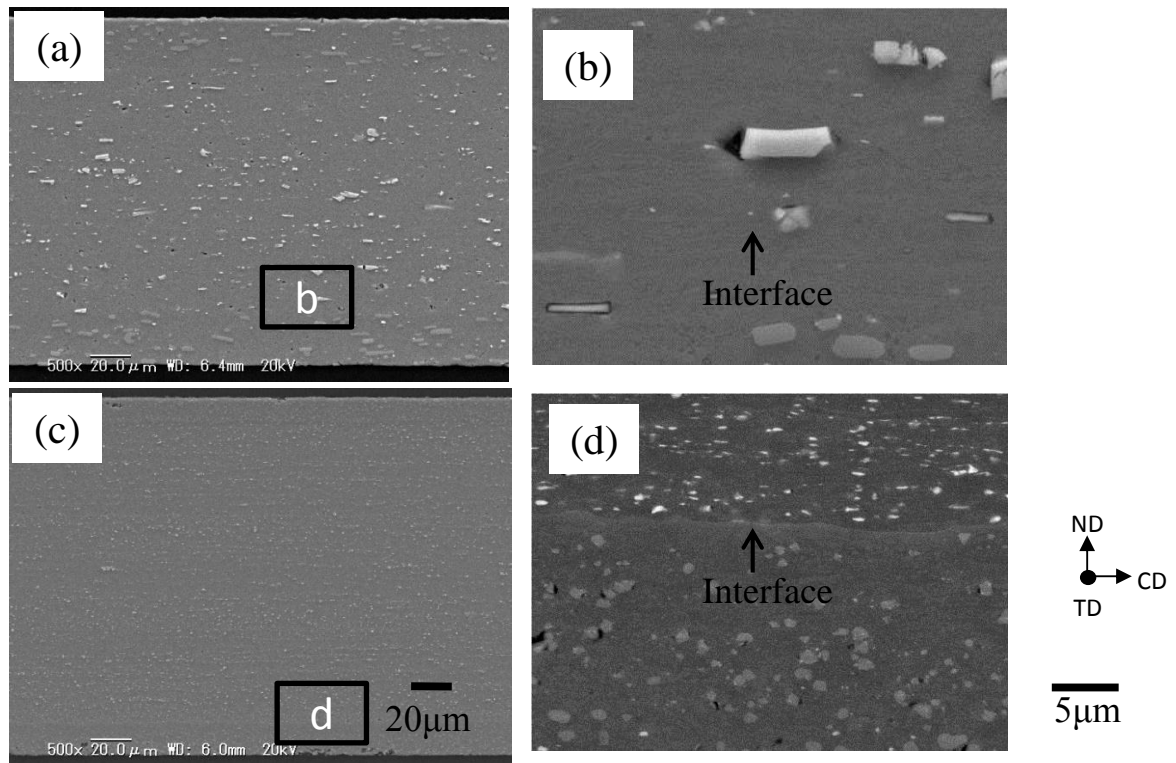


Fig. 7-10 SEM-BEI image of as-cold rolled sheets. (a) hot roll bonding, (b) magnified picture of the interface region in (a), (c) vertical type tandem twin roll casting, (d) magnified picture of the interface region in (c).

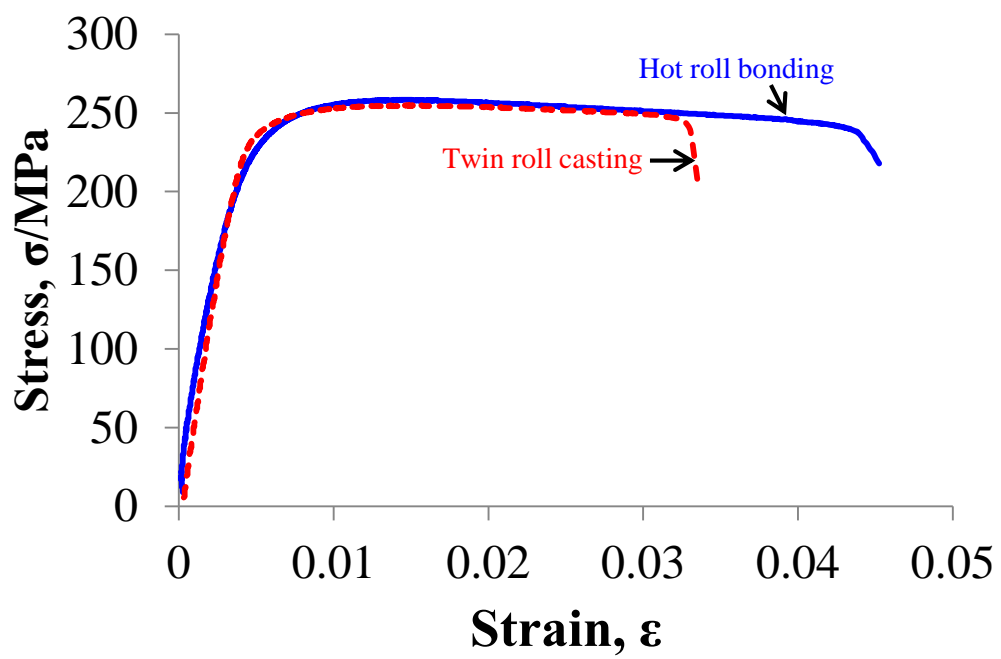


Fig. 7-11 Stress-strain curves of the cold rolled clad sheets (Thickness:0.17 mm).

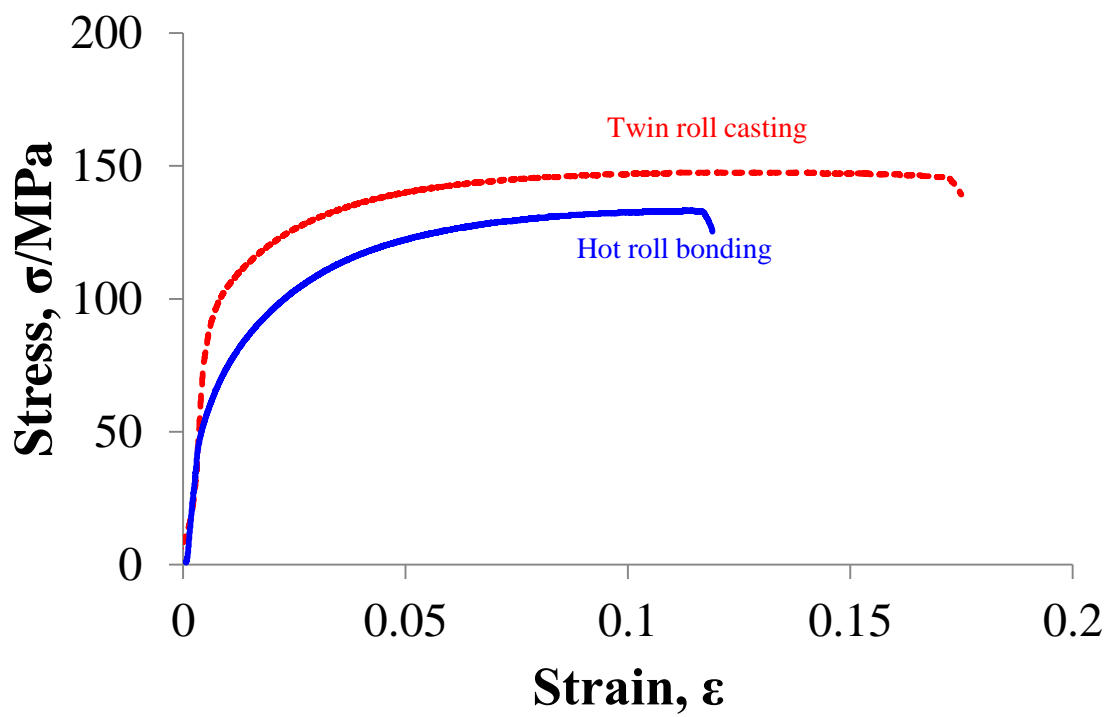


Fig. 7-12 Stress-Strain curves of the annealed clad sheets (Thickness:0.17 mm).

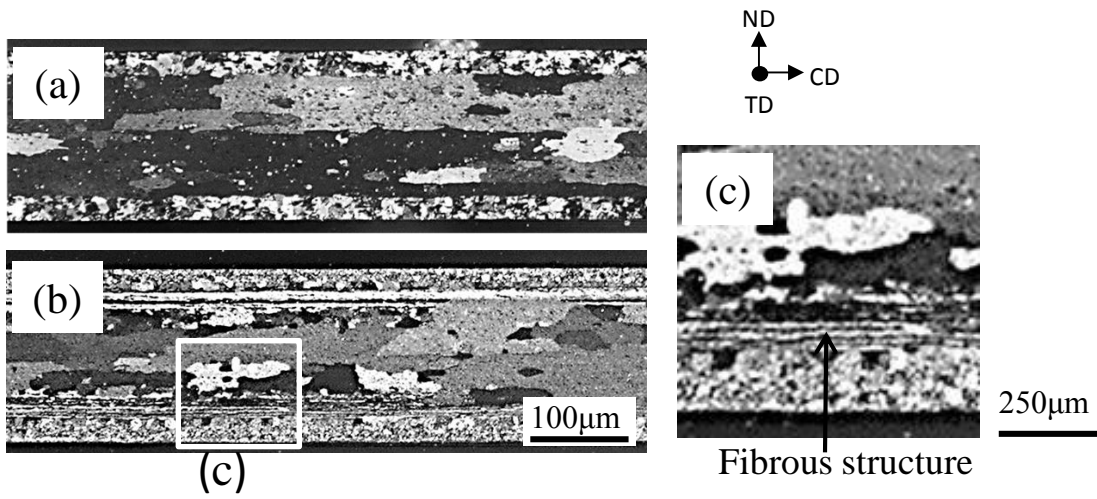


Fig. 7-13 Grain structure of the clad sheets after annealing. (a) hot roll bonding, (b) vertical type tandem twin roll casting, (c) magnified picture of the area in (b).

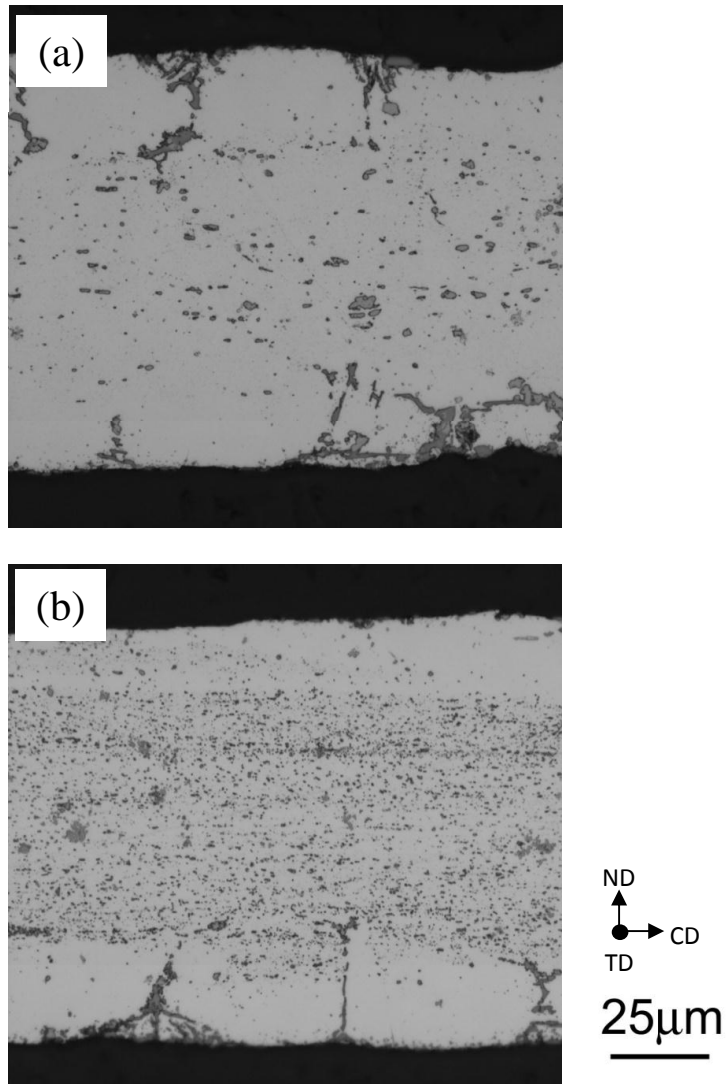


Fig. 7-14 Microstructure of the clad sheets after heat treatment at 600°C for 3 min. (Thickness:0.10 mm). (a) hot roll bonding, (b) vertical type tandem twin roll casting.

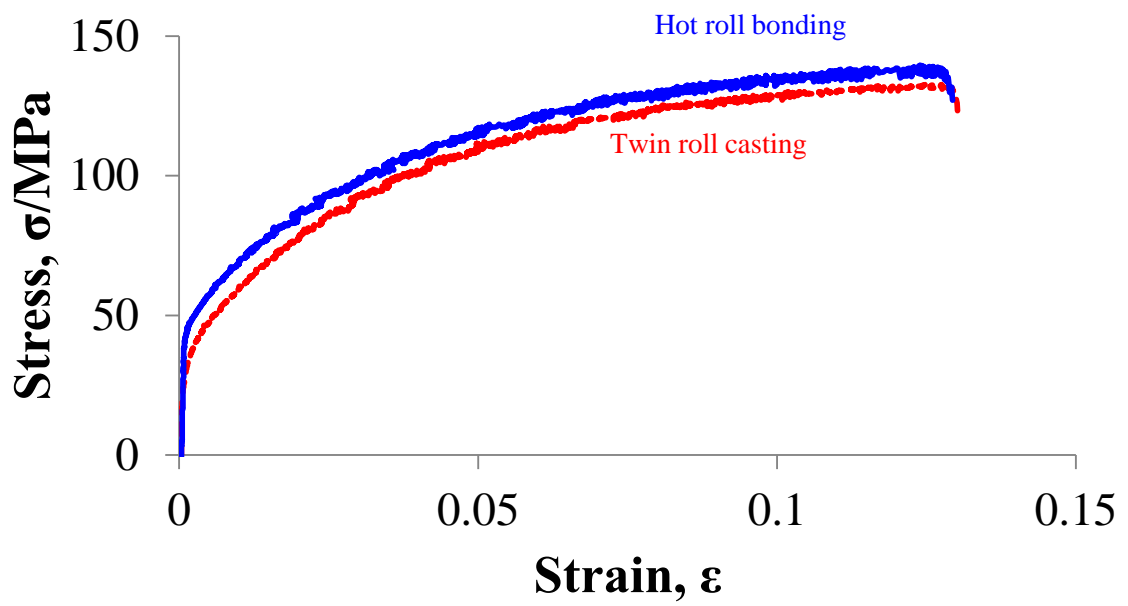


Fig. 7-15 Stress-strain curves of the clad sheets after the brazing heat treatment (600°C-3min.).

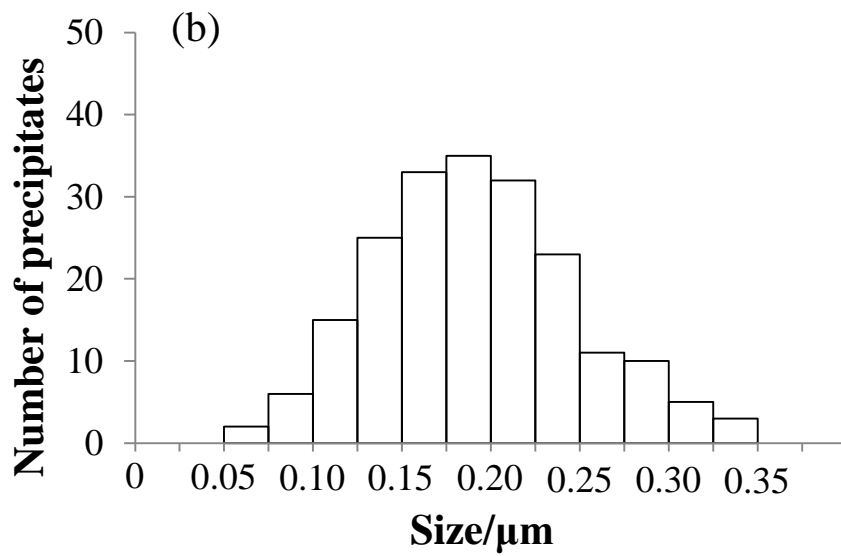
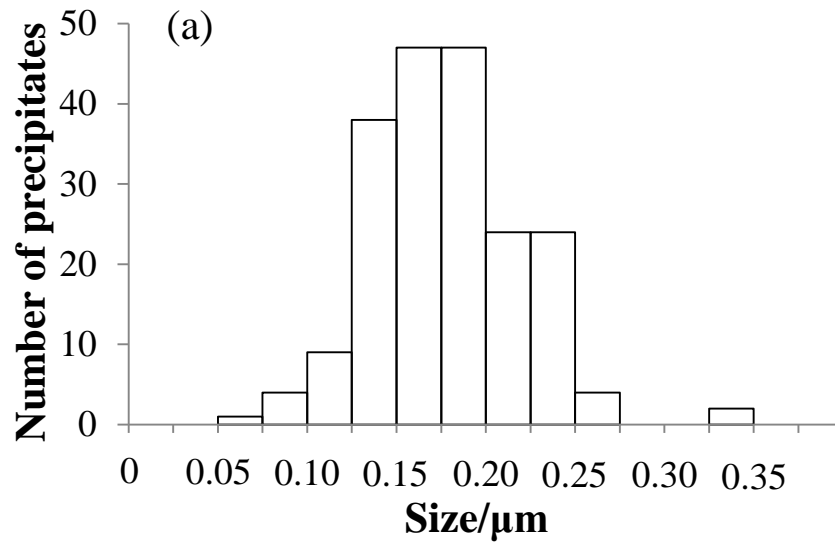


Fig. 7-16 Size distribution of the precipitates in 3003 aluminum alloy after heat treatment at 600°C for 3 min.. (a) hot roll bonding, (b) vertical type tandem twin roll casting.

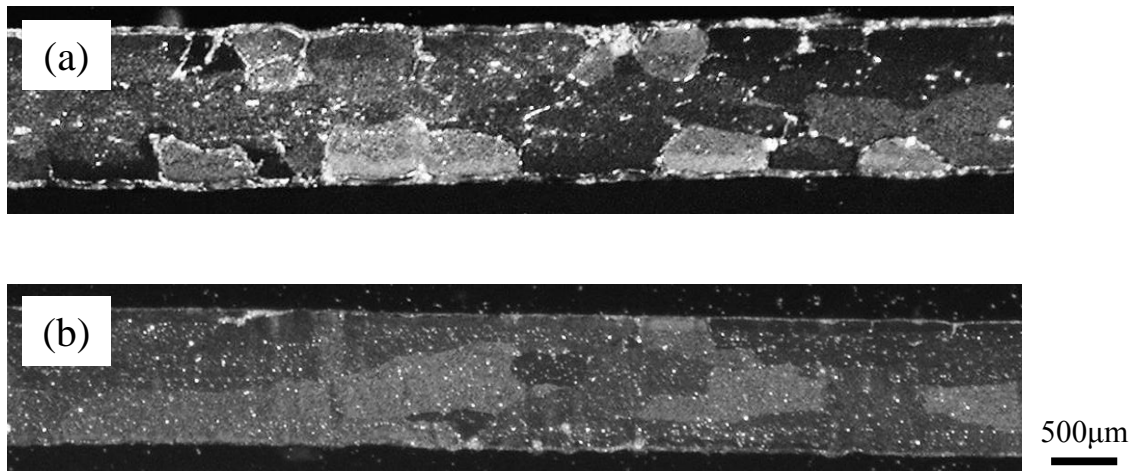


Fig. 7-17 Grain structure of the clad sheet after heat treatment at 600°C for 3 min. (Thickness:0.10 mm). (a) hot roll bonding, (b) vertical type tandem twin roll casting.

## 第 8 章 結論

アルミニウム合金クラッド材は高機能材料として様々な分野において多く使用されている。その代表的な例として自動車用熱交換器用のブレイジングシートが挙げられる。ブレイジングシートのような 3 層クラッド材は、通常、DC 鋳造によって作製した芯材、皮材それぞれのスラブを面削、圧延により板とし、それらを重ね合せて熱間圧延接合するという極めて複雑かつ多工程なプロセスで製造されている。

そこで本研究では、クラッド材作製において大幅な省工程を図ることを目的とした熔融金属から直接 3 層アルミニウム合金クラッド材を 1 工程で製造可能な「タンデム式縦型高速双ロールキャスト法」を考案し、その装置を試作した。さらに本法により作製した 4045/3003/4045 合金クラッド材のマイクロ組織や力学的特性を、汎用法である熱間圧延接合法で作製したクラッド材と比較することにより、新しい省工程クラッド材製造プロセスとしての本法の有用性を明らかにした。

第 1 章「緒論」では、アルミニウム合金クラッド材の利用状況とその特性について述べた。さらに一般的なアルミニウム合金クラッド材の製造方法と、現在までに行われてきた省工程化に関する研究例についてまとめ、それらを踏まえて本分野において取り組むべき課題ならびに本研究の目的を述べた。

第 2 章「タンデム式縦型高速双ロールキャストの考案と試作」では、単ロール法および双ロール法を応用し、芯材合金の溶解温度が皮材合金の溶解温度よりも高いアルミニウム合金からなる 3 層クラッド材が作製可能な装置について検討を行った。そして製造速度が速く、急冷効果に優れた「タンデム式縦型高速双ロールキャスト」を開発し、本キャストを用いることによって接合界面が平滑な 3 層クラッド材が作製可能であることを示した。

第 3 章「クラッド材を構成するアルミニウム合金の種類と接合界面との関係」では、タンデム式縦型高速双ロールキャストにより、芯材合金と皮材合金の溶解温度の大小関係が異なる種々のアルミニウム合金を用いて 3 層クラッド材を作製し、それらのマイクロ組織、特に接合界

面組織について調査した。これに加え、皮材に固液共存温度範囲が広い合金を用いて、皮材合金の凝固組織形態と鑄造欠陥の発生の有無について調査を行った。その結果、芯材合金の溶解温度が皮材合金の溶解温度より高い場合においては、合金化領域がない平滑な接合界面を有するクラッド材が製造可能であること、一方、芯材合金の溶解温度が皮材合金の溶解温度より低い場合には、芯材と皮材の合金化により接合界面が不明瞭になり、健全なクラッド材の製造が困難であることを示した。また広い固液共存領域を有する合金を皮材に用いる場合には、注湯温度を低くし、初期荷重を大きくして、ロール間隙において皮材の凝固を完了させ、残留液相を残さないようにすることで、ポロシティや内部割れのない健全なクラッド材が製造可能であることを明らかにした。

第4章「タンデム式縦型高速双ロールキャストによる4045/3003/4045合金クラッド材の作製」では、皮材である4045合金の凝固組織に及ぼす皮材合金の注湯温度および第2双ロールの初期荷重の影響について調査した。接合界面における溶質元素の拡散に関する検討を行ない、引張試験ならびに引張せん断試験により、クラッド材の接合強度を評価した。皮材合金の注湯温度は皮材凝固組織や接合状態にはほとんど影響しなかった。これに対し、第2双ロールの初期荷重の影響は大きく、皮材の凝固組織を微細化し、かつ鑄造欠陥の発生を防止するためには、初期荷重を大きくする必要があることがわかった。3層クラッド材の引張応力は複合則(並列モデル)により推定した引張応力とよく一致した。また3層クラッド材に対し、引張せん断試験を行ったところ、接合界面で剥離せず、破断は芯材母相で起きていた。これらの結果より、芯材と皮材は強固に接合されていることが明らかとなった。

第5章「タンデム式縦型高速双ロールキャストにより作製した4045/3003/4045合金クラッド材の接合界面」では、作製した4045/3003/4045アルミニウム合金クラッド材の断面組織を詳細に調査し、芯材と皮材の接合界面の形成過程について検討した。

3層クラッド材の接合界面は、明瞭かつ平滑であった。また酸化被膜の存在は認められなかった。皮材の厚さの大半はロール表面から成長した凝固殻で占められており、微細な初晶 $\alpha$ -Alアルミニウムデンドライトと共晶Si粒子で構成されていたが、接合界面近傍には芯材表面から成長した $\alpha$ -Al相からなる厚さが約 $1\mu\text{m}$ の層状領域も観察された。この層状領域は、第1双ロー

ルで作製された芯材の 3003 合金が第 2 双ロールに誘導されて皮材の 4045 合金溶湯に浸漬する間、皮材の初晶  $\alpha$ -Al 相が芯材表面からエピタキシャル成長して形成されたと考えられる。

第 6 章「タンデム式縦型高速双ロールキャスト法における 4045/3003/4045 合金クラッド材のクラッド率制御法の開発」では、4045/3003/4045 合金クラッド材（皮材の厚さ/クラッド材の総板厚） $\times 100$ （%）で定義されるクラッド率の制御法について検討した。クラッド率は本キャストの第 1, 第 2 双ロールの凝固距離により制御できるが、その制御範囲は 18~28%に留まることがわかった。そこで、第 1, 第 2 双ロールに第 3 双ロールを追加した装置を試作し、第 1, 第 2 双ロールで芯材を凝固させることにより芯材を厚くし、それに第 3 双ロールキャストで皮材をクラッドすることによってクラッド率 10%達成することができた。このように幅広い範囲で制御する方法として、第 3 双ロールを追加が有効であることがわかった。

第 7 章「熱間圧延接合法とタンデム式縦型高速双ロールキャスト法で作製した 4045/3003/4045 合金クラッド材の組織と力学的性質」では、4045/3003/4045 合金クラッド材をタンデム式縦型高速双ロールキャスト法ならびに汎用的な熱間圧延接合法で作製し、それらの組織や熱処理による力学的性質の変化について比較、検討した。

出発材である板厚 6.0mm の状態では、熱延材は加工組織を呈し、一方、双ロール材は凝固組織を呈していた。

板厚 0.17mm まで圧延された状態では、双ロール材においては、芯材中の Al-Mn 系粒子、皮材中の共晶 Si 粒子ともに微細均一に分散していた。熱延材では分散粒子は粗大化しており、接合界面には、芯材と皮材の合金化領域が形成されていた。また、双ロール材の接合界面においては、芯材母相と皮材母相の差が明瞭で接合界面に合金化領域は観察されなかった。400°Cで 2 時間の焼鈍を行った双ロール材の組織は、再結晶粒組織と繊維状組織が混在していた。これに対し、熱延材はすべて再結晶粒組織となっていた。双ロール材の 0.2%耐力、最大引張応力、破断伸びは熱延材に比べて高かった。板厚 0.10mm まで冷間圧延した熱延材と双ロール材に対し、600°Cで 3 分間のろう付加熱を行ったところ、両者の引張強度は、同程度となった。

このようにタンデム式縦型高速双ロールキャスト法を用いれば極めて省工程で熱延法と比肩し得る力学特性を有するアルミニウム合金クラッド材を作製できることが明らかとなった。

本研究の内容を総括すると以下のようなになる。

熱間圧延接合法やフュージョン法のような従来のアルミニウム合金クラッド材の製造方法は複雑かつ多工程であり，さらに芯材と皮材の接合界面に両者の合金化領域が形成されてしまう問題を有している．そこで本研究では，製造速度が速く，冷却能に優れた縦型高速双ロール法を利用し，溶融金属から直接3層クラッド材を1工程で製造可能なタンデム式縦型高速双ロールキャスト法を考案した．さらに本手法を用いて，通常，熱間圧延接合法で製造されている4045/3003/4045合金クラッド材を作製した．その結果，合金化領域のない平滑で強固な接合界面を得ることができた．また，本手法で得られたクラッド材は熱間圧延接合法に比べ，マイクロ組織は微細で，力学的特性もほぼ同等であった．このように本研究によって，アルミニウム合金クラッド材を省工程で製造できる新しいプロセスを開発することができた．

## 謝 辞

本研究の遂行ならびに本論文をまとめるにあたり、多くの方々のご支援、ご協力を賜りました。謹んで御礼申し上げます。まず、博士後期課程からの3年間にわたり、終始適切なお指導、ご鞭撻を賜りました熊井真次教授に心から感謝し、厚く御礼申し上げます。研究に対する姿勢、考え方を学ぶと共に、国内外で数多く発表させていただく機会を設けて下さるなど、様々な経験をさせていただきました。また、加藤雅治教授、里達雄教授、寺田芳弘准教授、曾根正人准教授には本論文のご審査ならびに貴重なご意見、ご教示を賜りました。厚く御礼申し上げます。本研究を遂行するにあたり、超高压電子顕微鏡のご指導をいただきました佐藤彰一名誉教授に心から感謝いたします。また、尾中晋教授、藤居俊之教授、木村好里准教授、梶原正憲准教授には講究などで多くのご教示をいただきました。深く御礼申し上げます。熊井研究室の原田陽平助教には日頃から叱咤激励していただくと共に、本研究をまとめるにあたり、多くのご協力、ご意見を賜りました。深く感謝いたします。

本研究で用いた「タンデム式縦型高速双ロールキャスト」の開発、試作で貴重なご意見やご協力いただきました大阪工業大学 工学部 機械工学科 羽賀俊雄教授に深く感謝いたします。

供試材の提供や実験協力していただいた株式会社 UACJ の新倉昭男博士、寺山和子様、安藤誠様、田中寿和様、田中宏和様に深く感謝いたします。

本研究は熊井研究室の皆様のご協力なしでは遂行することができませんでした。日頃から様々なご助言をいただいた鈴木健太博士、金民錫博士、下坂大輔博士に深く感謝します。また、M2 の筒井あかりさんには、研究の方向性や考察について、有益な議論をし、本研究の一部を共に協力して遂行していただきました。高立君、西脇淳人君、高山雄介君、山本裕晃君、田中裕太郎君には鑄造の際にご協力いただきました。また、佐田雄太郎君、山田洋希君、相澤祐輔君にも色々と助言いただきました。謹んで御礼申し上げます。

最後に博士後期課程修了に至る長期間を経済的、精神的に支え続けてくれた両親・兄弟に心から感謝し、謝辞と致します。

2014年2月25日

中村 亮司