アルミニウム新合金・新製品の研究開発 「企業における研究開発：私の体験より」

馬場 義雄*

Journal of Japan Institute of Light Metals, Vol. 50, No. 8 (2000), pp. 398-408

Research and Development of New Aluminum Alloys and Products “Corporate Research and Development: from My Experience”

Yoshio BABA*

Keywords: *Al-Zn-Mg-Zr, Al-Fe-Si nonearing sheet, fine grained 7075 sheet, Al-high Mg, Al-Mg-B, advanced materials*

1. はじめに

1958年(昭和33年)に大学を卒業以来、42年間の永きにわたり、アルミニウム関連の仕事に従事してきた。1960年にはわが国のアルミニウムの総需要は年間20万トンにすぎなかったが、1970年代には100万トンはおろか200万トンを突破し、1987年には300万トンに達した。この間は、筆者が住友軽金属工業㈱で研究者あるいは研究管理者として、直接研究開発にタッチした時代であり、今振り返ってみると、わが国のアルミニウム産業の成長期で、アルミニウム新合金・新製品の研究開発の全盛時代であったと思われる。それまでは強度のみを追求した航空機材となべ、かまの器物以外にほとんど用途がなかったアルミニウムが、建築材、輸送機材、包装材あるいは家電・情報機器材として広く利用されるようになり、それぞれの用途に適した新合金・新製品の開発が望まれた。

企業における研究開発の目的は、私の場合はアルミニウム新合金・新製品を生み出し、これが会社に寄与することであった。工場のトラブルを解決することも大きな仕事であり、研究室が工場に隣接しているが故に、かなりの時間トラブル解決に費やされることもあったが、基本的には新合金・新技術・新製品の開発であり、これが会社の売上げ、利益を伸ばして行くことであった。ものまねではない新しい製品、新しい技術に対しては当然特許性があるはずで、絶えず特許を取ることを心がけた。

以下に述べる数件の研究開発の事例は、とくに筆者の印象に残っているものであり、まだ実用化が不十分で、企業における研究開発としては必ずしも成功したとは言えないものも含んでいるが、何らかの意味で読者の今後の参考になれば幸いである。

2. 構造用 Al-Zn-Mg 系三元合金の研究開発と実用化

Al-Zn-Mg 系合金はわが国では HD 合金 (ホンダジュラ

ルミン) として Al-Zn-Mg-Cu 系の ESD 合金 (超々ジュラルミン) よりも押出加工性がよく、強度もかなり高い合金として知られていたが、一般に溶接性が劣るために、Al-Mg 系の非熱処理型合金に比べて溶接構造材としての利用はほとんどなかった。この Al-Zn-Mg 系三元合金が溶接構造用として最初に発表されたのは、1961年オーストリアのレオーベン市で開催された第4回軽金属国際会議 (4ILMT) である。当時、欧州ではこの系合金 (Al-Zn-Mg 1, Unidur) が、溶接後室温放置で著しく強度が回復するのに着目し、車両、橋梁などの大型構築物に利用され、かなり成功しているとの報告¹⁾があった。少し遅れてカナダおよび米国でも AA7004 (Alcan), AA7005 (Alcoa), AA7039 (Kaiser) 合金などが試作研究されるようになった。通常、これらの三元合金は応力腐食割れ防止のために微量の Cr と Mn が添加されていた。わが国でも通称“アルミ三元合金”の名で、1964年に山陽電鉄の3000型オールアルミ車両の台枠に、ついで1965年にはJR301型車両や営団地下鉄に使用された。最初数々あった問題点も各メーカーの努力により順次解決され、1970年には鉄道車両におけるアルミ三元合金の地位は確立した^{2)~4)}。

さて、ESDの開発以来、Al-Zn-Mg系あるいはAl-Zn-Mg-Cu系合金の応力腐食割れ防止に微量のCrを添加することは常識となっていた。しかし、筆者が研究を始めた頃のA7075合金のCrの成分範囲は0.18~0.35% (以下とくにことわりなき場合はmass%) で、Cr量が上限近くで大型連铸塊の場合、Cr系の巨大化合物が発生し、製品の靱性を低下させる恐れがあった。これを防止するためにCrの量を0.2%程度に減らし、0.1%のZrを共存させることがCr系の巨大化合物の発生を防止し、しかも耐応力腐食割れ防止に著しい効果があることを見出した (図1および図2参照)⁵⁾。早速Al-Zn-Mg系合金にも微量のZrを添加して、耐応力腐食割れ性改善の効果を確認するとともに溶接強度の改善にも効果大なることを見出し、1961年末に特許出願した。つぎに実用化を目的として、微量のCrとZrを共存したAl-Zn-Mg系

* 住友軽金属工業㈱常任顧問 (〒455-8670 名古屋市港区千年3-1-12)
受理日: 平成12年5月17日

図1 Al-5.5%Zn-2.5%Mg-1.6%Cu 合金-T6 材(1 mm 厚)の応力腐食割れに及ぼすCrとZrの影響(曲げ半径12.5 mm, 3%食塩水浸漬)

図2 CrとZrを含むAl-5.5%Zn-2.5%Mg-1.6%Cu 合金板の応力腐食割れ断面写真(×100)

三元合金を工場試作したが、今一步押出材の生産性(押出速度と焼入れ性)に満足できなかった。

アルミ三元合金の実用化が進みだした頃、学会でもアルミニウム合金の時効・析出のメカニズムを研究しようとする気運が盛り上がってきた。筆者も微量のZrを含むアルミ三元合金の実用化を急ぐとともに、基礎研究として各種微量添加元素の役割と時効のKineticsを明らかにし、さらに優れた新合金を開発すべく日夜研鑽に励んだ。一般にAl-Zn-Mg系合金ではマグネシウム量が多いほど強度が向上するが、とくに微量のCrが添加された合金では焼入感受性が敏感になり、押出材T5熱処理(押出空冷後焼戻し)で強度が低下しやすい。図3⁶⁾に、Al-2.5 at% (6 mass%) Zn-2 at% (1.8 mass%) Mg合金の焼入感受性に及ぼす微量添加元素の影響を示す。縦軸には各試料を465°Cから15°C/minで冷却後120°Cで時効した際の最高硬さ値と水冷後同様に時効して得た最高硬さ値の100分率比をとり、横軸には各元素の添加量

図3 Al-6%Zn-1.8%Mg合金の焼入性に及ぼす微量添加元素の影響

図4 Al-6%Zn-1.8%Mg-0.17%Cr合金を465°Cから10°C/minの速度で冷却後160°Cで7 h時効した材料の透過電子顕微鏡観察(Cr系不溶性化合物への平衡相の析出とその周辺のPFZに注意)

をとっている。これによると、微量添加元素を含まない三元合金では徐冷による硬さの低下は少なく、最高でも3~5%低下するのみで焼入感受性は鈍い。一方、Cr添加材の焼入感受性は最も強く、Cr量が0.03~0.05 at% (0.06~0.1 mass%)以上になると徐冷材の硬さ値の低下が著しくなり、0.1~0.2 at% (0.2~0.4 mass%)添加した場合には水冷材に比して50~60%の時効硬化しか認められない。この理由として、透過電子顕微鏡観察および高精度電気抵抗測定の結果から、溶体化处理温度(465°C)ですでに析出している、大きさ0.05~0.15 μmのCr系金属間化合物(不溶性化合物と呼称)が徐冷中に平衡相(MgZn₂またはT相)の析出を促進し、強度低下に到ることを確かめた。また、微量のZrとMnも焼入感受性に影響を与えるが、それぞれの不溶性化合物の量、大きさ、分散度が異なり、マトリックスとの非整合界面(misfit surface)が少なくなることによりCrに比べて影響度は半分以下であることを確かめた(図4、図5参照)^{7),8)}。

早速、Crを添加しない新合金を1965年2月特許申請した。内容は「Zn 3~8%, Mg 0.5~3%, Zr 0.05~0.3%, Mn 0.1~0.5%, そしてZrの効果を出すために400°C以上で鋳塊の熱処理を行うこと」を特徴としている。なお、この系合金では微量のZrを添加することにより、溶接割れ感受性も少なくなることが認められている(図6)⁹⁾。

住友軽金属では、Zr添加のAl-Zn-Mg系三元合金をZK

図5 (a) Cr 0.17%, (b) Zr 0.33%を含む Al-6%Zn-1.8%Mg 合金の不溶性化合物

図6 各種アルミニウム合金の溶接割れ感受性の比較 (Fish-bone cracking test)

シリーズの名称で統一し、実用化した。開発当初は Zr が比較的高価であるという理由であまり脚光を浴びることがなかったが、その後改良された AA7004, AA7005 合金には必須成分として Zr 0.1~0.2% が添加されるようになり、図 7 に示す世界の代表的な Al-Zn-Mg 系三元合金には Zr が必須成分となっている。弊社で実用化された ZK シリーズ合金の中で、最も多く生産されたのは ZK60 合金である。ZK60 合金は通常の三元合金 7N01 と違って Mg 含有量を 1% 未満にし、とくに押出加工性（薄肉広幅、薄肉中空形材）を改善した点が特徴である。ZK60 相当合金は JIS 化され 7N02 合金と呼ばれていたが、1975 年 AA (Aluminum Association) に国際合金 A7003 として登録された。わが国で開発された合金が国際合金として登録されたのは、この A7003 合金が最初である。

A7003 合金の用途は鉄道車両以外にも広範囲にわたり、たとえばトレーラ、バン、トラック、海上コンテナのフレーム、オートバイと自転車のリム、あるいは自動車のバンパー補強材（中空形材）等である。A7003 合金は 7N01 合金と同様、引張強さは 35 kg/mm² 程度であるが、その後オートバイリムとフレーム用にさらに強度アップが要求され、引張強さ

図7 代表的 Al-Zn-Mg 三元合金の組成範囲

50 kg/mm² 級の ZK55 合金 (AA7021 相当) が新たに開発され実用化されている。以上の新しい三元合金の研究開発に対して、本学会より第 9 回小山田記念賞を受け¹⁰⁾ アルミニウム関係の国際会議でも発表した^{11), 12)}。

3. PP キャップ用ノンイヤシートの開発と実用化¹³⁾

1960 年代に入って、従来の王冠とスクリーキャップとは別に、アルミ・クロージャーの代表的な PP キャップ (Pilfer Proof Cap) が開発された。ピルファープルーフ性とは、一般に泥棒よけあるいは詰替防止等と訳され、食品あるいは飲料メーカーが中味を壺に詰め、シールした後商品購入者が開栓、開封するまで、メーカーの元詰保証が行えることを意味している。このピルファープルーフ性はすぐれた成形加工性と容易な開栓、開封性を兼ね備えたアルミニウム製キャップだからこそ持ち得たものといえよう (図 8 参照)。

さて、この PP キャップ用ノンイヤ材をつくるに際して、最初は市販純度の 99.5% Al または 99.0% Al 板で試作しようとした。当時は、住友軽金属に新たに導入された大型の熱間圧延機 (タンデム型) が本格稼働に入ったばかりであり、この圧延機では熱間圧延材の組織の粗大化が顕著で、最終製品で深絞り時にフローマークが発生しやすく、また板幅方向で耳率のばらつきがみられた。微量の Ti あるいは B を添加し、銑塊組織を微細化することにより、これらの現象をかなり抑制することができたが、まだ板全域にわたって完全なノンイヤ材はできなかった。

この PP キャップではミシン目で切れやすくするために、Mg や Mn の合金元素を添加することは好ましくなかった。たまたま同時期に某ユーザから欧州でステルキャップに 98%

図8 ピルファーブルーフキャップ (PP Cap) と開封前の断面図

図9 Al-Fe-Si 三元状態図の500°Cでの等温断面 (Al 隅) (Phillips)

Al板を使用している情報を得、また文献¹⁴⁾からもFeとSi量の合計を1%以上にしたAl 98.5の再結晶方位に関する基礎データも得た(図9参照)。早速Fe/Si量比を検討し、Al-Fe (0.8~0.9%) - Si (0.5~0.6%) 系合金をベースに大型連铸塊によるノンイヤ材(厚さ0.3 mm以下)の製造技術を確立した。

住友軽金属のPPキャップ用ノンイヤ材の工場生産が始まったのは1968年~1969年である。できあがったAl-Fe-Si系合金ノンイヤ材は、(1)深絞り加工の際のフローマークの発生が少ない、(2)深絞り耳が小さく、とくに板幅、長手方向の耳率のばらつきが少ない、(3)深絞り性、とくに再絞り性が優れている、(4)再結晶粒が細かく(粒径約25 μm)、超深絞りでも肌あれしない、(5)PPキャップの開栓性、ひきちぎれ性がよい、これは均一分散したAl-Fe-Si系化合物の破壊特性によるものと思われる、(6)その他圧延加工性、強度、耐食性、印刷性などの点でもまったく遜色のないものであった。なおこの類似合金が米国で1970年にAA8011合金として登録されている。

図10 米国・ボーイング社 B767機と胴体(テープストリング使用)

4. 微細結晶粒の航空機テープストリングの開発と実用化

1978年頃、米国ボーイング社の航空機 B767製作(図10参照)に日本の機体メーカーである三菱重工、川崎重工、富士重工等が協力することになり、そこへわれわれアルミ材料メーカーが素材を納入することになった。素材としては7075および2024合金の押出型材およびポリッシュドスキン用の広幅の24 SC クラッド板およびストリング用の75 S-O コイル板であった。従来、ストリング(縦通材)はフレーム(円框)とともに押出型材が用いられていたが、B747ではより軽量化を図るために、長手方向で部分的に肉厚を変える圧延板のロール成形材が一部採用されるようになり、B767では全面的に板成形のストリング材が用いられるようになった。図11からも明らかとなり、一般に、厚さ3~4 mm、幅150 mm、長さ10 mの7075合金板を圧延し、段階的に薄くして先端は厚さ1 mmにまでテーパ加工される。これを高温に溶体化処

図11 テーパー圧延ストリングの主要製造工程

図12 テーパストリング用 A7075合金板コイルの製造工程の比較図 (上: 新工程, 下: 従来工程)

理水焼入れ後、ハット型に成形し、ジョグリング（背切り加工）して仕上げるのであるが、通常の7075合金板ではハット型に成形した際に粗大結晶粒による肌あれ、コーナ割れが多発して製品の歩留りがきわめて悪い（当時3割以上の不良率）という問題があった。また、でき上がった製品も疲労強度が十分でなく、材料的な解決を求められた。

当時、工場で量産する厚さ3~4 mm板7075合金焼なましコイル（約2~3トン）の結晶粒径は60~120 μm 以上が当たり前、これを板厚1 mmにまでテーパー圧延加工するということは途中に10~30%の加工度の部分があり、この部分は高温に加熱した際にさらに結晶粒が粗大化する恐れがあった。そこで、工場製の冷間圧延板を急速加熱し、再結晶粒の微細化したコイルをテーパー圧延加工前に再焼なましする工程をとった。図12と図13が新工程と従来工程の比較および結晶粒度の比較である。再焼なまし温度が260~280℃と比較的低いのが特徴である。従来の7075合金板のO材軟化処理（410~360℃加熱後炉冷280~260℃以下放冷）ではどうしても得ることができなかった、微細結晶粒のテーパストリング用素材が誕生したわけである。

早速特許出願したのが1979年12月、かなり短期間のタイム

図13 テーパストリング用 A7075合金板コイルの結晶粒度に及ぼすテーパーロール加工度の影響 (0~80% ロール加工後475℃で30分間溶体化処理)

リーな研究開発であった。わが国はもちろん主要世界各国で特許を得るとともに、1986年第1回のICAA（米国、バージニア大学）で発表した¹⁵⁾。

この材料の量産工程の一部には、当時別の目的で導入した最新鋭の連続焼鈍炉が利用され、1981年よりB767向けに量産が開始された。その後、この材料はB757, B777にも使用され、それらの実績が認められて、三菱重工と共同で「航空機テーパーロールストリング用高力アルミニウム合金板材およびその加工技術の開発」により、1996年第9回中日産業技術通商産業大臣賞を受けた。

5. Al-高Mg系合金の研究開発

Al-Mg系合金は適度な強度を有する耐食アルミニウム合金として広く用いられており、A5052, A5182およびA5083合金などが代表的な合金である。Al-Mg系の平衡状態図（図14）からも明らかとなおり、Al側では400℃で10%を越すMgの固溶度があり、100℃でも2%位のMgが固溶している。これまでもMg量2.5%のA5052合金はもちろんのこと、

図14 Al-Mg 二元平衡状態図

図15 Al-Mg 系合金焼なまし板の機械的性質に及ぼす Mg 添加の影響

Mg 量 4.5% の A5182 合金および A5083 合金ともに非熱処理型の高強度材として、前者は H19 硬質薄肉板材が缶エンドとして、後者は溶接構造材として使用されてきた。図15⁶⁾に示す Al-Mg 系合金焼なまし板の機械的性質に及ぼす Mg 量の影響からも明らかとなり、7~8% Mg 含有合金は引張強さ 30 kgf/mm² 以上で伸びも 30% 以上である。このようにすぐれた機械的性質を有するにもかかわらず 5~6% Mg 以上の Al-Mg 系合金の実用化がなされなかった理由は、一つは熱間加工がかなり困難であり、もう一つは応力腐食割れの恐れがあるからと思われる。

1970 年頃、Al-Mg-Si、Al-Zn-Mg、Al-Cu 系の一連の時効硬化性アルミニウム合金に及ぼす微量添加元素の影響についての研究が一段落したので、Al-Mg 系についても同様な研究を行うこととした。Al-Mg 系合金の時効に及ぼす添加元素の影響については、Ag 添加の効果^{17),18)}を除いてはあまり時効硬化の特徴がみられないので研究は少なかった。しかしながら、この研究は、4~5% Mg 以上の Al-Mg 合金における粒界アタックと析出の様子にある種の密接な関連があることから、耐応力腐食割れ性改善の観点から極めて重要であると考えた。そこで主として Al-8% Mg 合金の時効と析出および応力腐食割れに及ぼす微量添加元素の影響を調べた^{19),20)}。

図16に400°Cから焼入れた Al-8% Mg 合金の -25°C での等

図16 Al-8% Mg 合金の -25°C における等温時効に及ぼす微量添加元素の影響

図17 Al-8% Mg 合金の 130°C における等温時効に及ぼす微量添加元素の影響

温時効に及ぼす添加元素の影響を示す。純二元合金では比抵抗は時効中増加し、急降下を伴う抵抗ピーク (GP ゾーンの臨界サイズ) はみられない。この Mg 原子の移動による比抵抗増加の速度は Cu 0.03 at% (0.06 mass%) の添加によりかなり減少する。Al-Mg 合金の GP ゾーンは温度を上げると容易に分解固溶するので、約 100°C 以上で抵抗の減少が観察されることはよく知られている²¹⁾。図17に400°Cから焼入れた Al-8% Mg 合金の 130°C での等温時効に及ぼす添加元素の影響を示す。Cu を 0.05 at% (0.13 mass%), 0.1 at% (0.26 mass%), 0.3 at% (0.7 mass%), 0.5 at% (1.2 mass%) 添加した合金のみ比抵抗の増加が認められる。さらに長時間 (100 h 以上) 時効を続けていくと突然比抵抗の急激な低下がみられ、これは中間相 (β') あるいは平衡相 (β) の析出によるものと考えられる。そしてこれらの析出速度は Cu 0.1 at% (0.26 mass%) の添加により遅らされるようである。上記の結果は、Al-Mg-Cu 合金の平衡状態図において β 相 (Al_3Mg_2) 以外に T 相 (Al_6CuMg_4) が存在することが確認されているので、微量添加の Cu は Mg とともに GP ゾーンを形成し、かなり高温 (100~200°C) まで存在するとともに、中間相あるいは平衡相の析出を抑制することにより時効軟化を防止することを暗示している。

以上の結果から、微量 Cu の添加により Mg の拡散が抑えられ、Al-Mg 系合金の応力腐食割れが改善されることが大いに期待されたが、実験の結果今一步不十分なものであ

表1 Al-6%Mg系合金とA5083合金の化学成分と工場試作熱間圧延板(厚さ50 mm)の引張性質

Alloy identification	Compositions (mass%)								0.2% proof stress (kgf/mm ²)	Tensile strength (kgf/mm ²)	Elongation (%)
	Mg	Mn	Cr	Bi	Cu	Zr	Fe	Si			
5083	4.5	0.60	0.18	—	—	—	0.17	0.06	13.5~15.5	30.0~32.5	20~30
Al-4.5Mg-MnCrBi	4.6	0.60	0.16	0.26	—	—	0.18	0.07	13.5~15.5	30.0~32.5	20~30
Al-6Mg-MnCrBi	6.0	0.57	0.09	0.29	—	—	0.20	0.07	16.5~18.5	33.5~36.0	22~32
Al-6Mg-CuZr	6.2	—	—	—	0.24	0.18	0.17	0.09	14.5~16.5	32.0~34.0	23~33

Element at %	None	Zr, Cr	Bi	Be, Ag, Zn, Ti, V, Mn, Ca, Si, Ge, Sn, Cu, Li, Cd, In, Mo, Fe, Co, Ni, Pb, Sb
0.05	●	○	○	●
0.10	●	○	○	●

● failed, ○ failed a little, ○ unfailed

図18 Al-8%Mg合金板のU字曲げ応力腐食割れ性に及ぼす微量添加元素の影響
400℃水冷後33%冷間圧延加工, さらに130℃×7日間時効処理後, 90℃の腐食液(K₂CrO₇, CrO₃, NaCl)に30分間浸漬

た。通常, 溶接構造材として使用されているA5083合金も冷間加工を加えて時効析出処理(増感処理あるいは鋭敏化処理とも言う)を行うとMgの結晶粒界への析出が促進され応力腐食割れを起こしやすくなる。図18はAl-8%Mg合金の増感処理後の応力腐食割れに及ぼす微量添加元素の影響を調べた結果である。再結晶温度の増大と結晶粒の微細化に効果のあるZrとCrが, 応力腐食割れ防止にかなりの効果を発揮したが, CuあるいはZnは添加量も少し不足していた関係もあり, 本増感処理では十分な改良効果が認められなかった。一方, Bi 0.05~0.1 at% (0.2~0.4 mass%)の添加によりほぼ完全な改良効果が認められた。この理由として, 「Biの添加はAl-Mg合金の結晶粒度と時効挙動に何ら影響を与えず, 合金の自然電極電位を著しく卑にし, 合金の全面腐食を増大させる。添加されたBiは凝固時にBi₂Mg₃として晶出し, 加工によって分散する。この金属間化合物の優先溶解が結晶粒界に析出したβ相(Al₃Mg₂)の優先溶解を抑制し, Al-Mg系合金の応力腐食割れ感受性を低下させる」と考えた²²⁾。

早速, 微量Biを含むAl-高Mg系合金の実用化に取り組んだ。しかしながら, Al-8%Mg系合金はどうしても熱間圧延がうまくできず, 断念した。結局, 工場での3トン鋳塊による試作はAl-6%Mg系合金である。工場実験はA5083相当の合金, これにBiを添加した合金, 強度を増すためにMg量を多くしたAl-6Mg-MnCrBi合金およびAl-6Mg-CuZr合金の4種類である。いずれも厚さ340 mmの連鋳塊を用いて450℃で24 h均熱処理後熱間圧延により50 mm厚板をつくり, これを試料元板とした。表1に各合金の化学成分と50 mm熱間圧延板の引張性質を示す。Al-6%Mg系合金はA5083合金に比べて強度, 伸びともに10~20%高い値を示している。各合金を1 mmまで冷間圧延後, 400℃で溶体化処理し, 130℃で時効した試料を1年間応力腐食割れ試験した

表2 AA5083, AA5383およびAlustar合金の化学成分(mass%)

	AA5083	AA5383	Alustar
Si	max. 0.40	max. 0.25	max. 0.5
Fe	max. 0.40	mac. 0.25	max. 0.5
Cu	max. 0.10	max. 0.20	max. 0.4
Mn	0.40~1.0	0.70~1.0	0.6~1.2
Mg	4.0~4.9	4.0~5.2	5.0~6.0
Cr	0.05~0.25	max. 0.25	max. 0.3
Zn	max. 0.25	max. 0.40	0.4~1.5
Ti	max. 0.15	max. 0.15	max. 0.2
Zr	—	max. 0.20	0.05~0.25

図19 調質O/H111における機械的性質(最小値)の比較(厚さ: 2~40 mm)

結果, A5083およびBi入り合金は応力腐食割れを生じなかった。Al-6Mg-CuZr合金も130℃で2日間時効処理したものでは割れを発生しなかったが, 溶体化処理水冷後130℃で7日間時効したものにも一部応力腐食割れが生じた。このように水冷後時効がかなり進行した状態においてその耐応力腐食割れ性が劣るようであったが, Cu添加の効果が結晶粒界へのMg原子の拡散を遅らせることと関連があると考ええると, 今回の実験結果もうなずけると同時に, Cuの改良効果に限界があることがわかった。一方, 冷間加工と時効を組合せた苛酷な増感処理試験から, Bi入り合金ではMg 4.5%合金ではA5083合金より耐応力腐食割れ性のはるかに優れており, Mg 6%合金でもA5083合金と同等の耐応力腐食割れ性を示し, しかもこの場合は強度的にも10~20%優れていることが明らかにされた。当時, 車両, 船舶等に応用を試みたが, 材質の認定がとれていないこと, あるいは熱間加工性が劣ることなどもあって, これまでまだ商品化には成功していな

表3 自動車ボディパネル用アルミニウム合金

合金系	合金成分 (重量%)					引張性能代表値		
	Mg	Mn	Cu	Zn	Si	TS (kg/mm ²)	YS (kg/mm ²)	E (%)
SPCC (鋼)						31	18	42
A5182 AlMgMn	4.5	0.35				27	13	28
30-30 AlMgZnCu	4.5		0.35	1.5		31	15	30
A5022 AlMgCu	4.2		0.35			28	14	30
A5023 AlMgCu	5.6		0.35			29	14	33
A6016 AlMgSi	0.43				1.25	24	13	30
						(26)	(17)	(27)

() 塗装焼付後

い。

最近, Hoogovens Aluminium Walzprodukte GmbH (ドイツ) が新合金 Alustar (A5059) を発表している²³⁾。表2のとおり, A5083合金に比べMg, Mn, Zn量が多く, 微量のZrを添加している。図19に調質O/H111の機械的性質をA5083系合金と比較して示したが, 耐力, 引張強さ, 伸びのすべてにおいてAlustarが優れている。高耐食性を有し, アルミニウム製高速フェリー用としてすでに実用化されているとのことである。いつかはA5083合金の性能を上回る新合金が実用化される日が来ることを予想していたが, このAlustarが名実ともにA5083合金に取ってかわることができるのか注意深く見守る必要があろう。

筆者のAl-高Mg系合金の研究開発は, 溶接構造材としてはまだ成功していないが, 自動車車体用合金材(ボディシート)としては一部役立ったと思っている。Al-Mg系の自動車ボディシート用合金として, それまでA5182-O (SSF) が開発され, 実用化されていたが, 引張強さは約27 kg/mm², 伸びは28(25)%以下と低く成形性の点で問題があった。1975年(第6回軽金属国際会議 Leoben/Wien) から1976年(自動車のアルミニウム化に関する国際会議 Düsseldorf) にかけて自動車のアルミニウム化気運が盛上り, 自動車ボディシート用として強度と成形性に優れたアルミニウム新合金の開発が望まれた。当時, 自動車用に使用されていた冷延鋼板の引張強さは28 kg/mm²以上, 伸びは36%以上であり, これを参考にして, われわれの第一目標は引張強さ30 kg/mm², 伸び30%, いわゆる30-30合金であった。図15からも明らかとなっており, Al-7~8%Mg合金は強度と成形には問題はないが, 熱間圧延が非常に困難であり微量添加元素なしでは応力腐食割れに問題があった。結局Mg 4.5%をベースにして, 伸びを低下させずに強度を増大させる元素ZnとCuを添加した新合金Al-4.5%Mg-1.5%Zn-0.35%Cuを開発した。引張強さ30 kg/mm², 伸び30%, 耐力腐食割れ性も優れており, 実際に大型連鋳塊を用いて工場試作した結果, 熱間加工性も問題なかった。高強度, 高成形性の自動車ボディシート用新合金として, 1980年のSAEで発表²⁴⁾するとともに, 実用化に努め, 1985年マツダのスポーツカー「New RX-7」のフロントフードに初めて採用された²⁵⁾。

その後, この種の合金を他の車種に適用しようとしたところ, 3か月間以上長期間室温に放置しておくとも耐力が増大する経時変化が起り, スプリングバックにばらつきがみられ

た。現在ではあくまでも成形性重視の観点から, 少し強度を犠牲にしてZnを添加しない合金(A5022), 熱間圧延に少し困難が伴うが強度と成形性からZnを添加しないかわりにMg量を5.0~6.2%に増加した合金(A5023)が各社の5000系ボディシートの主流となっている(表3参照)。いずれにせよ微量の添加元素Cuを含むAl-Mg合金は, プレス加工後のベーキング(短時間の塗装焼付150~200°C)による軟化が少なく, 経時変化も少ないことから多用されている。また, 最近では170°C程度の温度で硬化する高強度・成形性6000系合金が開発されたため, 現在の自動車パネルの薄肉化が可能になりストレッチャーストレインマークの発生の心配がないことから, 今後6000系合金は注目されよう。

以下, 蛇足ではあるが, Al-Mg系合金のGPゾーン形成における微量Cuの役割や, Al-Mg-Si系合金(6000系)の2段階時効の機構の解明等の基礎研究が自動車ボディシートの塗装焼付処理に関連して実際に役立っていることを見逃してはならない。なお, 1992年末に新聞発表された古河電工のFA594A合金(34 kg/mm², 40%), FA594B合金(36 kg/mm², 38%)にも注目している。Mg8%台で微量添加元素, スラブ組織の改良, 熱間圧延条件の最適化等の組合せが発表の要約で, 用途は自動車パネル用とのことである。Al-高Mg合金の実用化には温間圧延・制御圧延等も有効であり, 今後の発展に期待したい。

6. 原子炉使用済燃料保管庫用材料の開発

1973年(昭和48年)には日本のアルミニウムの総需要が待望の200万トン台にのりこれからと思われた頃, 第一次オイルショックに次ぐ総需要抑制, そして空前の大不況に見舞われたアルミニウム業界は, 各社ともに生産調整で会社は週休3~4日の時期もあった。このような状況での原子炉使用済燃料保管庫(ラック)用材料すなわち中性子遮蔽効果の優れた構造用耐食アルミニウム合金XW15の開発であった。従来用いられていた通常のアルミニウム合金による保管庫は, 原子力発電所内の水プールに浸漬して使用され, その使用年限は40年程度と非常に長い。使用済燃料の増加に伴い燃料貯蔵プールでの高密度化を図るため, 中性子吸収能力を高めた材料(板)を格子状に組合せる平板式ラックが考えられた。某ユーザから中性子吸収断面積の大きいボロンを添加したアルミニウム合金板の製作を依頼され, その開発に取り組んだ。表4²⁶⁾に主要元素の熱中性子吸収断面積による分類(barn)

表4 主要元素の熱中性子吸収断面積による分類 (barn)

1 barn 以下		1~10 barn		10 barn 以上	
C	0.004	Zn	1.1	Mn	13
Be	0.009	Nb	1.1	W	19
Bi	0.032	Ba	1.2	Ta	21
Mg	0.059	Sr	1.2	Ci	35
Si	0.13	K	2.0	Ag	60
Pb	0.17	Ge	2.3	Li	67
Zr	0.18	Fe	2.4	Au	94
Al	0.22	Ga	2.7	Hf	115
Ca	0.43	Cr	2.9	Hg	380
Na	0.49	Tl	3.3	Ir	440
Sn	0.65	Cu	3.6	B	750
		Ni	4.5	Cd	2400
		Te	4.5	Sm	6500
		V	4.7	Gd	44000
		Sb	5.4		
		Ti	5.6

図20 XW15の断面写真 (×6)

を示すが、添加するボロン量は1.3%以上と決められた。ラック用合金としては、熱中性子の遮蔽効果以外に溶接性と強度、さらに耐食性とくに水に対する耐食性が要求された。何度も試作を繰返し、最終的にAl-1.7%Mg合金にBを1.3%以上添加した合金を芯材とし、その両面に耐食性の優れた純アルミニウムをクラッドしたXW15 (図20) 合金板の試作に成功した。表5にXW15の化学成分の実績値の一例を示し、表6にXW15の機械的性質の実績値の一例を示す。

XW15合金板の量産で最大の問題点は鑄造であった。最初研究室レベルで3~5 kgのAl-1.7%Mg-1.5%B合金をAl-4%B中間合金を使用して製造しているときは、溶湯の攪拌も十分でほとんど偏析を心配することはなかった。しかしよく考えてみるとAl-1.5%B合金のLiquidus温度は1200℃であり、Al-Mg-B合金の溶解温度(800~900℃)では当然大きな数ミクロンのAlB₂系化合物が溶湯中に介在物として浮遊している。AlB₂の比重は3.17でアルミニウムより大きいために溶解炉で沈降しやすい。生産量が少なければ攪拌のきく1トンの低周波炉で数チャージ溶解すればよいが、約100

トンの製品(板サイズ厚さ約13×幅650~1750×長さ4500 mm)を生産するには大型の反射炉が必要であった。攪拌等いろいろの工夫をこらして3トンの連鑄塊を必要量確保した。鑄込み中かなりの頻度で分析サンプルをとり、とくにBの分析には万全を期した。

つぎに熱間圧延であるが、鑄塊面削後裸のままの圧延ではAlB₂系化合物がぼろぼろと落ちて表面がはげ状になり、また他のアルミニウム製品に悪影響を与えるので、耐食性の面も考慮して純アルミニウムをクラッド(皮つけ)して圧延することとした。クラッド材の圧延では膨れなどの問題が発生したり、皮つき不良も出て結局製品歩留りは相当悪いものとなった。製品寸法への鋸刃による切断も大変であった。原子力用ということで検査は万全を期し、品質も十分なものを供給したわけであるが、研究室レベルから一気に量産に走らざるを得ず、工場には相当迷惑をかけた。当時、アルミニウムの生産量が少なく、会社としても引受けて製品化(実用化)したわけであるが、企業における研究開発としては利益をあげられなかった(むしろ損をした)ことで反省の多い事例と

表5 化学成分の実績値の一例 (mass%)

	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	B	Al
皮材	0.06	0.15	0.01以下	0.01以下	0.01以下	0.01以下	0.01以下	0.02	—	99.76
芯材	0.10	0.52	0.01	0.01	1.7	0.01	0.01	0.01	1.6	残部

表6 機械的性質実績値の一例

試験項目 板の方向	引張強さ (kg/mm ²)	耐力 (kg/mm ²)	伸び (%)	180°曲げ 試験	シャルピー 衝撃値 (kg·m/cm ²)	ブリネル硬さ
縦方向	14	9	15	良	4	30
横方向	15	10	10	良	—	

表7 住友軽金属における急冷アルミニウム粉末合金の研究開発経過の概要

1982年	MIT(米国)より、超音波ガスアトマイズ技術導入 同パイロットプラント製作
1983	通産省・補助金研究「アルミニウム粉末冶金技術開発」開始 総研究費2億円 5ヶ年(1983-1987) 耐熱合金: Al-Fe-V-Mo-Zr 合金開発 引張強度 300 MPa/300°C
1983	新材料研究室設立
1987	粉末合金実用化: VTR 用シリンダ (Al-20%Si 系: 耐摩耗性合金)
1992	Osprey 技術導入, パイロットプラント建設
1993	耐熱耐摩耗合金: Al-17%Si-6Fe 系実用化 (リシヨ ルムロータ用) 世界初, スプレイフォーミング アルミニウム合金の実用化
1997	耐熱耐摩耗性アルミニウム複合材 (粉末法) の実用 化 (スノーモービルエンジン用ピストン)

してあげた。1976年から1977年にかけて無事ユーザへ製品を納入完了した時点で特許出願をした。その後再度の引合いもあったが、実際に製品となったのはこのときだけである。

なお、最近の文献²⁷⁾からボロン添加ステンレス鋼を用いてさまざまなラックがつくられていることを知り、当時の苦勞を思い出すとともに、アルミニウム合金よりステンレス鋼の方がすぐれている点を是非知りたいと思っている。

7. アルミニウム先端材料の研究開発

筆者も出席した第6回軽金属国際会議(1975年)では、缶、クロージャ、箔コンテナ等の包装材料とパンパ、ラジエータ、ボディシート等の自動車材料に関するパネルディスカッションとともに、一般講演では、とくに超塑性アルミニウム合金 SUPRAL の実用化と急冷凝固 Al-Fe 粉末合金の研究開発に興味を持った。予備調査後、後者については住友軽金属でも正式に研究テーマとして取上げ、1983年から5年間通産省の産業活性化技術研究開発補助金制度に基づく「アルミニウム粉末冶金技術の研究開発」のプロジェクトにも参画し、急冷凝固粉末の製造技術、合金開発および固化成形技術等の研究を実施した。1992年には大幅に製造工程を短縮できるスプレイフォーミングの技術を英国 Osprey 社より技術導入し²⁸⁾、パイロットプラントを建設してピレットの製造を実施してきた。住友軽金属における急冷アルミニウム粉末合金の研究開発経過の概要を表7に示した。ユーザとの共同開発が実り、一部実用化された製品もあるが、これまでの全経費対効果の点からみて必ずしも成功したとはいえない。製造コストが高い、比較的生産規模が小さい、鋳塊が小さく大板製品ができない等の欠点をかかえているが、とくに製造コストの低減が今後の大きな課題である。

一方、Al-Li 系合金が航空機用として理想的な低密度、高強度、高剛性材料として着目され、近年欧米で意欲的な研究開発が行われ、その成果が集中的に1980年代の国際会議で報告された。(第1回1980年米国、第2回1983年米国、第3回

1985年英国、第4回1987年フランス等) わが国でも欧米をキャッチアップすべく、JRCM の「アルミニウム系新材料の高機能化に関する調査部会」の構想のもと、(株)アリシウムを設立して総経費20億円(基盤技術促進センターが70%、軽圧7社が30%出資)で1989年(平成元年)から共同研究を開始した。現在、一応予定された範囲の研究は終了したが、Al-Li 系開発合金の材料の性質としてはとくに靱性に問題があり、また価格が高いこともあって、世界各国におけると同様、本格的な実用化の目途はたっていない。

筆者らも航空機以外の用途ではあるが、核融合炉用構造材料として、低放射化高電気抵抗 Al-4%Mg-1%Li 合金厚板(厚さ25×幅1000×長さ2000 mm)を工場試作して名古屋大学プラズマ研究所へ納入した実績はあるが²⁹⁾、実用化はまだまだ先のことであろう。

以上のように、先端材料・新素材の研究開発はその実用化に大きなハードルがあり、今後ともどのように進めて行くべきか、企業としても難しい問題である。

8. むすび

会社生活42年のうち、前半の3分の2は研究担当者あるいはリーダーとしてアルミニウムの材料科学と生産技術の融合に努め、新合金・新製品の研究開発を行ってきた。この間の論文発表は百編、取得した特許も百件を越えている。後半3分の1は主として会社の研究・技術行政に関与してきたが、最後に、企業における研究開発に関する私見を述べる。

まず、企業における研究開発で重要なことは研究テーマの選定である。成功した際のメリットが大きいが、自分だけが成功する確率が高い、特許も取得できる等を考慮すべきである。つぎに、実用化に成功し経営に寄与することである。研究開発ができて実用化に成功しなければ企業における研究開発は成功したとは言えない。そのために、実用化の規模、社内外の協力体制、タイミング等の実用化戦略を十分に練る必要がある。実用化スピードもきわめて重要である。

今後のアルミニウム関連テーマ(分野)ではつぎの3点が考えられる。第1はプロセス制御を重視した研究開発で、キーワードとして、超合理化(コストダウン)、超精密、超塑性、超微細粒、超親水性(耐汚染)等が挙げられる。第2は商品コンセプト重視の研究開発で、従来の素材、部材からさらに進んで部品設計に参入しながら、新技術・新製品の開発に努めるべきであらう。第3はリサイクル・環境調和型のテーマである。以上の具体的テーマとして、アルミニウム産業技術戦略策定「アルミ技術ロードマップ」³⁰⁾が参考になる。

9. 謝 辞

本文をまとめながら、これまでの私の人生とアルミニウムの関係の深さに驚くとともにアルミニウムにこだわり続けてきたことを誇らしく思っています。それぞれの時点において、私を導いて下さり、また支援して下さいました恩師、先輩、会社の上司、同僚、部下の皆様、そしていろいろとお世話になった(株)軽金属学会関係の皆様様に心から御礼申し上げます。

21世紀に向けて学会の益々の発展をお祈り致します。

参 考 文 献

- 1) P. Brenner: Aluminium, 37 (1961), 633.

- 2) 村上陽太郎：軽金属溶接，2 (1964)，1027.
- 3) 馬場義雄：日本金属学会会報，9 (1970)，491.
- 4) 村上陽太郎：軽金属，21 (1971)，366.
- 5) 馬場義雄，寺井士郎：日本金属学会誌，28 (1964)，102.
- 6) Y. Baba: Trans-JIM, 7 (1966)，224.
- 7) Y. Baba: Proc. ICSMA-1, Supplement to Trans. JIM, 9 (1968)，356.
- 8) 馬場義雄：日本金属学会会報，17 (1978)，498.
- 9) 寺井士郎，竹内勝治，杉山禎彦，馬場義雄，福井利安：住友軽金属技報，8 (1967)，42.
- 10) 馬場義雄，福井利安，高島 章：軽金属，25 (1975)，70.
- 11) Y. Baba, et al.: 6th International Leichtmetalltagung, Leoben-Wien, (1975)，99.
- 12) Y. Baba and H. Yoshida: Proc. 2nd Int. Al. Extrusion Technology Seminar, Atlanta, (1977)，301.
- 13) 馬場義雄：軽金属，32 (1982)，261，住友軽金属技報，23 (1982)，36.
- 14) W. Normann: Z. Metallkunde, 58 (1967)，151.
- 15) T. Uno, H. Yoshida and Y. Baba: Proc. 1st Int. Conf. Aluminum Alloys (ICAA), Virginia, (1986)，371.
- 16) E. H. Dix, W. A. Anderson and M. B. Shumaker: Alcoa Technical Paper No. 14 (1958).
- 17) I. J. Polmear and K. R. Sargent: Nature, 200 (1963)，669.
- 18) Y. Murakami, O. Kawano and H. Tamura: Trans. JIM, 5 (1964)，147.
- 19) Y. Baba: Trans. JIM, 13 (1972)，76.
- 20) 馬場義雄，萩原理樹，浜田淳司：日本金属学会誌，36 (1972)，341, 1070, 1075.
- 21) C. Panseri, T. Federighi and S. Ceresara: Trans. AIME, 227 (1963)，1122.
- 22) Y. Baba, M. Hagiwara and J. Hamada: J. Inst. Metals, 100 (1972)，309.
- 23) 広瀬義一：軽金属溶接，37 (1999)，421.
- 24) T. Uno, Y. Baba, T. Amitani and S. Terai: SAE Technical Paper, (1980)，800348.
- 25) 宗藤修義，西村嘉彦：日経ニューマテリアル，(1986，4～7)，63.
- 26) 鈴木弘茂，河村和考：エネルギーと材料，共立出版，(1980)，60.
- 27) 松田将省，菊地 恂，金井秀俊，黒川秀昭：日立評論，80 (1998) 2号，47.
- 28) 佐野秀男，時実直樹，大久保喜正，渋谷和久：住友軽金属技報，35 (1994)，199.
- 29) 正路美房，吉田英雄，宇野照生，馬場義雄，鎌田耕治：住友軽金属技報，26 (1985)，61.
- 30) 川村知一：アルミニウム，34 (2000)，25.