

衛星型多段圧延機による高機能薄板の圧延法

大阪大学 工学部 材料物性工学科

教授 齋藤好弘

(昭和62年度研究開発助成 AF - 87004)

1. 研究の目標

衛星型多段圧延機（サテライトミル）は著者らによって開発された一種のコンパクトミルであり、その構造の概略を図1に示す。このミルは直径が胴長より大きい1本の駆動された作業ロール（中心ロール）とその外周上に等間隔に配置された複数の小径作業ロール（衛星ロール）が組み合わされており、中心ロールと衛星ロールの間に連続圧延が実現されるコンパクトミルである。各衛星ロールはリングギヤによって中心ロールと等周速で駆動される。このような圧延を安定に行うため、各衛星ロール間にはガイドシューおよびサイドガイドが備え付けられている。ガイドシューは条が隣接する衛星ロール間に張り出さないように案内するとともに座屈波の発生を抑制する。そのため、各ロールが等周速で駆動されることによって延伸が抑制され、横断面内のメタルフローが促進される。したがって条の拡幅圧延、異形断面条の圧延、従来の材料と異なる集合組織を有する条の製造、通常の圧延法では縁割れを発生する脆性材料の圧延などへ応用できる可能性を有している。

特に異形断面条は板幅方向に板厚段差を有する条で、パワートランジスタ用リードフレーム、電子機器用のコネクタや端子などの素材として銅合金材の需要が最近増加しており、生産性の高い圧延法の適用が検討されている。しかしながら通常の孔型圧延法を異形断面条の製造に適用する場合、薄肉部の過剰伸びによる座屈波を防止するために横断面内のメタルフローを生じさせねばならず極めて困難である。サテライトミルはこの点で有利であると考えられる。

そこで衛星ロールが5本の5段サテライトミルの試作機を製作し、圧延実験を行い、変形・負荷特性および製品特性を明らかにすることを目的とした。

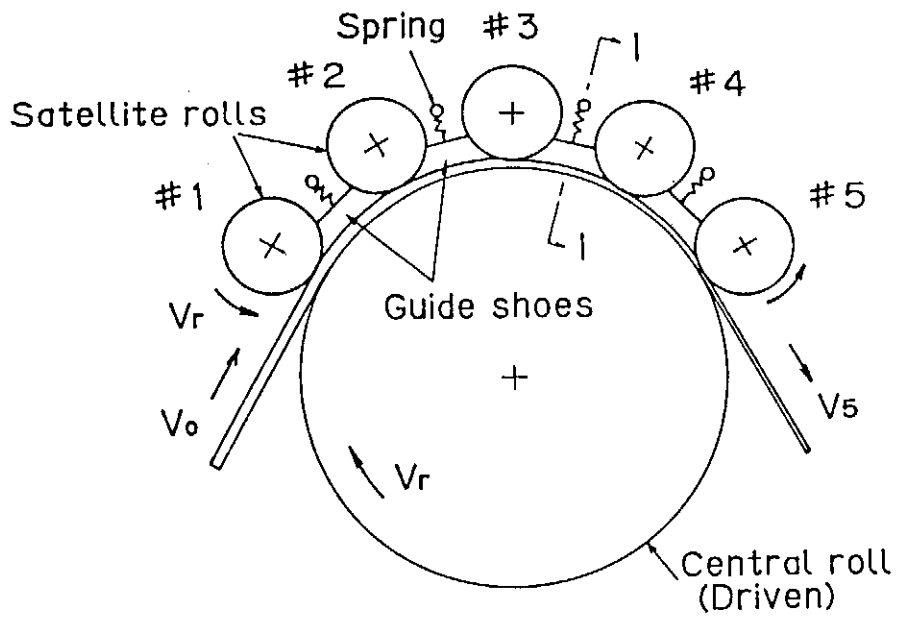
2. 研究成果の概要

(1) 平ロールによる平条の拡幅圧延

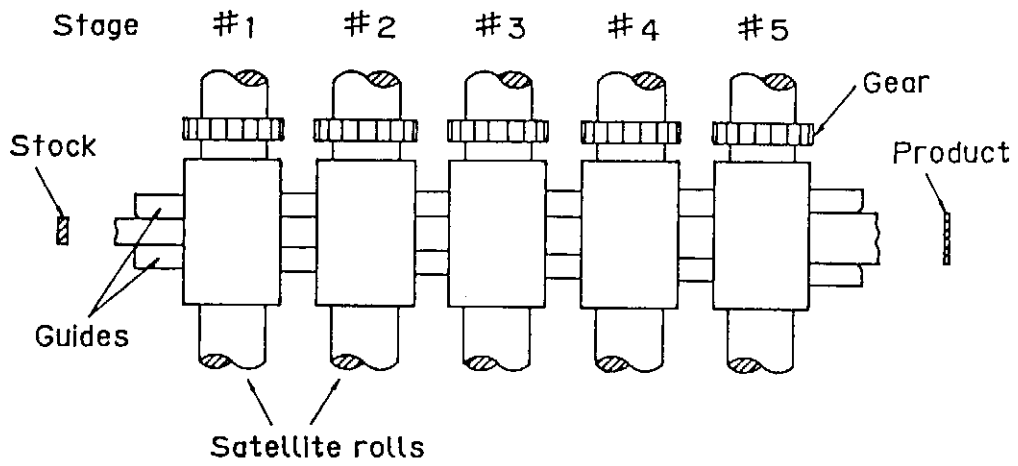
中心ロールと衛星ロールの両方に平ロールを用いて板厚2mm、板幅10mmまたは20mmの純アルミニウム平条を圧延した。その結果、長手方向に圧縮応力が発生し、通常圧延法に比べて極めて大きな幅広がりが生じた。幅広がり率は圧下率55%のとき素材幅10mmの材料で約63%、素材幅20mmの材料で38%であった。幅広がりは特に拘束の大きい中流段で生じ、延伸は逆に抑制された。先進特性については通常の圧延法と同様に圧下率の増加とともに先進率が増加し、中立点は出口側へ移動した。衛星ロール荷重の分布は入口・出口段では低く、中流段で高く、全体としてフリクションヒルを形成した。中心ロール駆動トルクは成形段数（衛星ロールの本数）・圧下率・板幅の増加とともに急激に増加することが明らかになった。また各衛星ロール間で規則的で微細な座屈波が発生することがあるが、この波は最終段で消滅した。

(2) 孔型衛星ロールによる平条の拡幅圧延

1段目から4段目までの衛星ロールに深さ1.5mm、側面の勾配1/2の台形溝を加工し、1段毎に板の両端部から薄肉部の幅を増加させ、最終段の平ロールで平条に成形する凹型衛星ロール法を開発し、この方法を用いて板厚2mm、板幅20mmおよび30mmのアルミニウム平条を拡幅圧延した。その



(a) Front view



(b) Plan view

☒1 Basic Layout of rolls in the five-stage Satellite mill

結果、5段サテライトミル圧延は、通常圧延に比べて延伸は著しく抑制され、大きな幅広がりが生じた。幅広がり率は素材幅20mm、全圧下率50%のときで78%であった。しかしながら5段サテライトミル圧延の衛星ロール荷重分布は下流段ほど高い不均一分布であった。また、5段サテライトミル圧延は、通常圧延に比べて約3倍の大きな圧延エネルギーを要した。製品横断面内の硬さ分布は、板幅中央に高いピークをもつ山型となった。

さらに1段目から4段目までの衛星ロールに高さ1.5mm、側面の勾配1/5の突起部を加工し、1段毎に板の中央部から薄肉部の幅を増加させ、最終段で平条に成形する凸型衛星ロール法を開発し、実験を行った。その結果、凸型衛星ロール法をもちいて素材幅20mmの材料を50%圧延した際の幅広がり率は約53%であり、凹型衛星ロール法に比べて幅広がり率は少なかった。製品横断面内の硬さ分布は両端にピークを持つ比較的均一な谷状の分布となった。焼鈍後の硬さ分布は凹型衛星ロール法では分布が残留するのに対し、凸型衛星ロール法で均一となった。

(3) 孔型中心ロールによるT形異形断面条の圧延

深さ1mm、幅20mmの長方形溝を加工した中心ロールと平衡星ロールを用いて平条からT形異形断面条を圧延する孔型中心ロール法を開発した。この方法では各段において板幅方向の同一部分を圧下するため横断面内のメタルフローは生じにくい。複雑形状のガイドシュエを必要とせず、多品種の製造に適し、また材料の突起部は中心ロールの孔型溝部に存在するので蛇行を生じにくく作業性に優れている。板厚2mm、板幅30mmおよび40mmの純アルミニウムを用いて実験を行い、板厚比(厚肉部の板厚/薄肉部の板厚)が2までの異形断面条を製造した。板厚比が2以上では薄肉部に座屈波が発生した。この成形限界は成形段数3段以上では成形段数にほとんど依存しないことがわかった。また製品の断面形状についてはサテライ

トミル圧延では、同一の孔型の通常圧延に比べて孔型への充満性が良いため、通常圧延材にくらべて良好な断面形状が得られた。しかしながら実験条件の範囲内では材料は凸部裏側に若干ひけを生じ、孔型溝部に完全には充満しなかった。

(4) 孔型衛星ロールによるT形異形断面条の圧延

中心ロール(平ロール)と5本の孔型衛星ロールを用いて板厚2mm、板幅40mmのアルミニウム平条からT形異形断面条を製造する孔型衛星ロール法を開発した。1段目から4段目までの衛星ロールには深さ1.5mm、側面の勾配1/2の台形状孔型が加工されており、1段毎に板の両端部から圧下幅を4mmずつ増加させる。最終段には深さ1.0mm、幅20mmの直角溝が加工されているT形異形断面条を成形する。この場合もサテライトミル圧延では、通常圧延に比べて延伸が著しく抑制され、孔型への充満性が優れ、断面形状が良好であった。本実験条件では板厚比2.2の完全なT形異形断面条が得られた。また、孔型衛星ロール法は孔型中心ロール法と比較すると、孔型への充満性が優れていること、薄肉部の座屈波が生じにくいこと、圧延荷重も全体として低いことが明らかとなった。

さらに板厚比が高い異形断面条を製造するため、下流段ほど溝幅・溝深さが減少し、側面の勾配が増加する異なった形状の台形溝を加工した新しい孔型衛星ロール用の孔型を開発した。この孔型を用いて板厚2mm、板幅20mmの銅平条よりT形異形断面条を成形した。その結果、板厚比3までの完全な異形断面条の製造が可能であった。製品横断面内の硬さ分布は厚肉部と薄肉部でそれぞれほぼ一様であるが、段差部と薄肉部の境界付近に硬さのピークが存在することが明らかとなった。さらに剛塑性有限要素法を用いた解析を行い、サテライトミル圧延の横断面内のメタルフローは、拡張一般化平面ひずみ圧縮モデルで近似できること、段差部付近にひずみが集中することが明らかとなった。

最後に本研究をご支援下さった天田金属加工機械技術振興財団に対し深甚なる謝意を表す。

3. 発表論文

- 1) 齋藤好弘・宇都宮裕・山田正・加藤健三：「衛星型多段圧延機による平条連続圧延の変形・負荷特性」、昭和63年度 塑性加工春期講演会講演論文集、P.253 - 256.
- 2) 齋藤好弘・宇都宮裕・雨澤隆生・加藤健三：「衛星型多段圧延機によるT型異形断面条の製造（孔型中心ロール圧延法）」、平成元年度 塑性加工春期講演会講演論文集、P.627 - 630.
- 3) 齋藤好弘・宇都宮裕・林孝雄：「サテライトミルによる平条の幅出し圧延の変形・負荷特性（孔型衛星ロール圧延法）」、平成2年度 塑性加工春期講演会講演論文集、P.281 - 284.
- 4) 齋藤好弘・宇都宮裕・林孝雄：「サテライトミルによるT型異形断面条の製造第2報（孔型衛星ロール圧延法）」、平成2年度 塑性加工春期講演会講演論文集、P.285 - 288.
- 5) 齋藤好弘：「サテライトミルによる異形断面条

の圧延」、第128回 塑性加工シンポジウムテキスト（1990）、P.59 - 67.

- 6) Y.Saito, H.Utsunomiya, T.Amezawa and K. Kato : " Deformation and Force Characteristics in Rolling of Profiled Metal Sheet on the Satellite Mill", Advanced Technology of Plasticity 1990, vol.2, P.741 - 747.
- 7) 齋藤好弘・宇都宮裕・灘英輝・勅使河原聡・森賀幹夫：「サテライトミルによるT型異形断面条の製造 第3報（高板厚比用孔型の開発）」、平成3年度 塑性加工春期講演会講演論文集、P.611 - 614.
- 8) 齋藤好弘・宇都宮裕・森田耕成・林孝雄：「サテライトミルによる平条の幅出し圧延の研究 第2報（凸型衛星ロール圧延法）」、平成3年度 塑性加工春期講演会講演論文集、P.607 - 610.
- 9) 森賀幹夫・豊島史郎・服部重夫・中尾正和・宇都宮裕・齋藤好弘：「一般化平面歪による異形断面条圧延の解析」、平成3年度 塑性加工春期講演会講演論文集、P.615 - 618.

圧電セラミックスによる振動を用いた成形機器の研究

小山職業訓練短期大学校 電子技術科

教官 岡野一雄

(昭和62年度研究開発助成 AF - 87018)

1. 研究の背景

BaTiO₃セラミックスは圧電素子としてよく知られた材料であり^{1) - 3)}、この圧電素子を利用して成形機器に振動を与えながら成形することにより、均一な成形品を製造することが期待される。ところが、このBaTiO₃セラミックスの電気物性は製造条件に大きく依存するため^{4) - 6)}、圧電素子のような電子デバイスへの応用を検討する際には、その製造条件と特性の関係を明確にしていく必要がある。

2. 研究の目的

そこで、本報ではこれらの一連の研究のうち、最も基礎的な部分として、BaTiO₃セラミックスの製造条件と電気物性の関係を明らかにする事を目的として検討を行った。なお、製造条件としてはBaTiO₃の特性に顕著に影響を及ぼすと考えられる焼結助剤(SiO₂)の添加量を選び⁷⁾、電気物性としては測定が容易でありかつ、高い精度で測定可能な電気伝導度及びその温度依存性を選んだ。

3. 実験方法

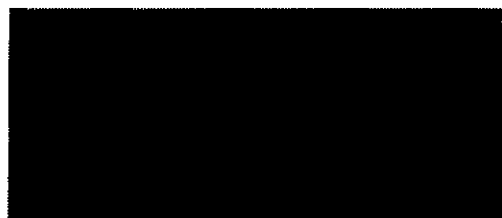
出発原料として関東化学社製のTiO₂(98.5%)とをBaCO₃(99%)を用いて、TiとBaが等モル比になるように配合を行い、その配合粉にドナとしてLa₂O₃を0.02wt%、焼結助剤としてSiO₂を0.5~3.5wt%の範囲で添加した。これらの混合粉をベンゼンを媒体としてボールミルで24時間湿式混合した。その後、凍結乾燥を行い、乾燥したパウダを100MPaで一軸加圧成形しφ20mmのペレット状にした。焼成は酸素雰囲気中で焼成温度1300℃、1時間行った。焼成後、セラミックスの

表面を#600のダイヤモンドホイールで研削し、アルミニウム電極を真空蒸着法により蒸着して電気物性測定用の試料とした。また、試料の表面を鏡面研磨し、エッチング処理して走査型電子顕微鏡(SEM)により観察した。電気伝導度の測定は四端子法により行った。なお、電気伝導度の温度依存性は30℃~400℃の温度範囲で測定した。また、電気伝導度の周波数依存性は100Hz~500kHzの範囲で測定した。

4. 結果

図1はSiO₂の添加量が0.5~3.5wt%のBaTiO₃セラミックスのSEM写真である。SiO₂の添加量3.0wt%以下の試料の平均粒径はすべて30μm程度であり、粒子の形状、気孔の状態も類似した微構造を示している。一方、SiO₂の添加量3.5wt%の試料の平均粒径は3μm程度と他の試料に比べ著しく小さくなっている。

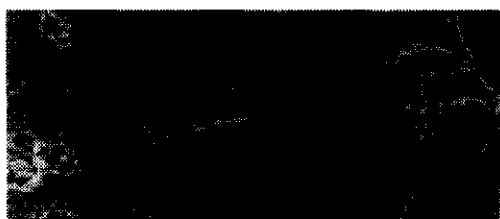
これらの試料について、電気伝導度の温度依存性を測定した結果を図2に示す。この図において、SiO₂の添加量3.0wt%以下の試料は類似した特性を示している。すなわち、300Kにおける電気伝導度は約10⁻¹~10⁻²S/mであり、測定温度30℃~120℃の範囲で電気伝導度は温度の上昇に伴い若干上昇し、その活性化エネルギーは約0.15~0.25eVを示している。120℃~230℃の範囲での電気伝導度は約3~4桁減少し、PTC効果が現れている。230℃以上の温度では電気伝導度は再び上昇し、活性化エネルギーは約0.9~1.39eVを示している。一方、SiO₂を3.5wt%添加した試料の300Kにおける電気伝導度は、約10⁻¹¹S/mであり、測定温度30℃~230℃の範囲での電気伝導度は温度



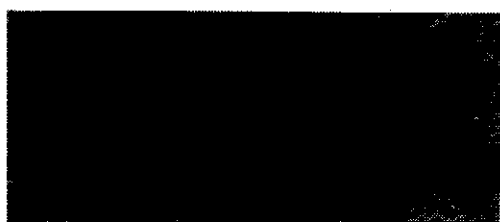
SiO₂=0.5wt%



SiO₂=1.0wt%



SiO₂=3.0wt%



SiO₂=3.5wt%

50 μm

⊠1 Scanning electron micrographs of etched surfaces of sintered BaTiO₃ with 0.5~3.5wt% SiO₂.

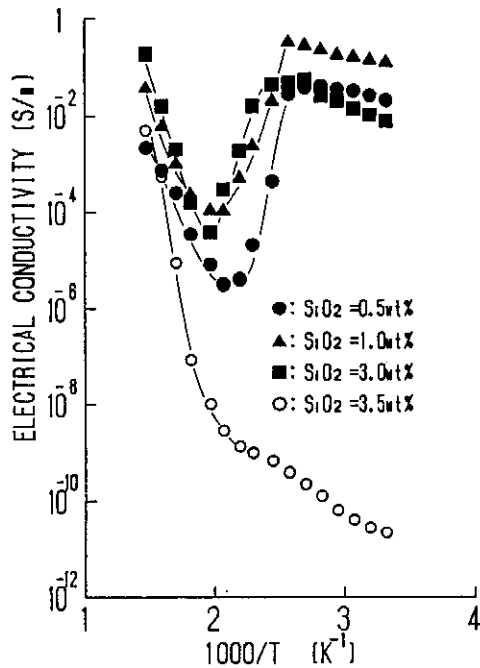


図2 Electrical conductivity of sintered BaTiO₃ as a function of temperature.

の上昇に伴って高くなり、その活性化エネルギーは約0.39eVを示している。230°C以上での電気伝導度の温度依存性は顕著になり、その活性化エネルギーは約2.35eVを示している。

図3は電気伝導度の周波数依存性を測定した結果である。この測定において試料は2種類とした。すなわち、PTC効果を示した試料として、SiO₂の添加量が3.0wt%以下の試料の中からSiO₂の添加量0.5wt%の試料を選び、PTC効果を示さなかった試料としてSiO₂の添加量3.5wt%の試料の2種類を用いた。また、測定温度は転移前の温度として30°C、転移後の温度として250°Cを選んだ。

この図において、SiO₂を0.5wt%添加した試料の場合、測定温度が30°Cの時は100kHz以上の周波数領域で電気伝導度の周波数依存性が認められる。また、250°Cでは100Hz以上で電気伝導度の周波数依存性が認められる。一方、SiO₂を3.5wt%添加した試料は、30°Cおよび250°C共に電気伝導度は100Hz以上で周波数依存性を示している。そこで、30°Cと250°Cで測定した結果を比較する

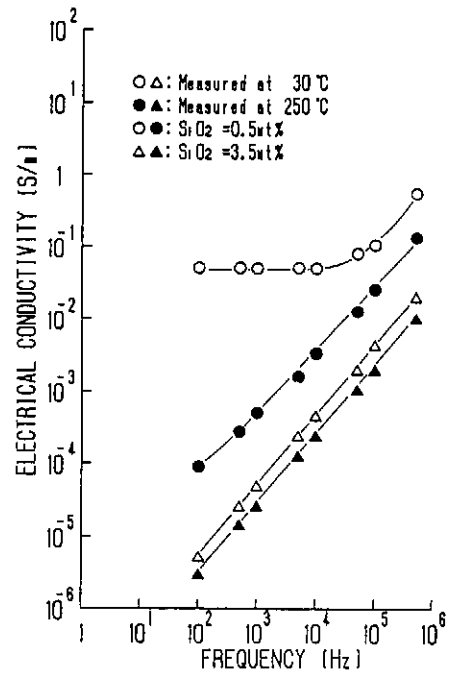


図3 Electrical conductivity of sintered BaTiO₃ as a function of frequency.

と、電気伝導度が周波数に依存している領域において、SiO₂の添加量に関係なく30°Cで測定した場合の方が高い電気伝導度を示している。また、SiO₂の添加量が0.5wt%の試料とSiO₂の添加量が3.5wt%の試料の電気伝導度を比較すると、測定温度に関係なくSiO₂の添加量が0.5wt%の試料の方が高い電気伝導度を示している。

4. 考 察

以上の実験結果から、SiO₂の添加量によりBaTiO₃セラミックスの粒径は著しく変化し、電気伝導度は2種類に大別できることが明らかになった。しかし、SiO₂は結晶粒子内にほとんど拡散しないことが報告されている¹⁰⁾。従って、この電気物性の変化はSiO₂が直接的に電気物性を制御しているのではなく、SiO₂の添加により粒径が制御され、この粒径の変化が間接的に電気物性を制御していると考えられる。そこで、このような見地から今回の実験結果を考察する。

考察を行うに当たり、まずBaTiO₃セラミックス

の微構造モデル、電荷分布モデル、エネルギーバンドモデル、等価回路を提案する。BaTiO₃セラミックスは、N型のBaTiO₃結晶粒子と粒界からなる複合体であり、結晶粒子内はN型の単結晶半導体である。一方、粒界は結晶方向の異なる粒子が接触する界面であり、さらに、粒界にはBaTiO₃粒子内の不純物の析出、焼結助剤として添加したSiO₂の析出があるため、粒界には高濃度のダングリングボンドが存在している。そこで、BaTiO₃の結晶粒子を図4 (a) のように球でモデル化する。また、粒内の電子は粒界のダングリングボンドにトラップされるため、図4 (b) に示すように、粒界に負、粒界近傍に正の空間電荷が分布すると考えられる。このような電荷分布に基づいて粒界近傍には電界が発生し、この電界により粒界の両側には図4 (c) に示すようなシンメトリショットキバリアが形成される。このようなエネルギーバンド構造を持つBaTiO₃セラミックスの等価回路は、図4 (d) に示すような抵抗成分とキャパシタンス成分からなる並列回路で示すことができる。この図においてキャパシタンスC_{GB}はショットキバリアの空乏層に基づくキャパシタンス成分であり、抵抗R_{GB}はショットキバリアを横切って流れる直流電流に対する抵抗成分である。また、抵抗R_Gは粒内の抵抗成分である。

このようなモデルにおいて、結晶粒子の粒径をD、粒界のトラップ濃度をN_t、結晶粒子内のドナ濃度をN_d、空乏層幅をWとする。ここで、空乏層内でイオン化したドナに基づく電荷量と表面にトラップされた電荷量は等しいから、

$$N_d e \frac{4}{3} \pi \left[\left(\frac{D}{2} \right)^3 - \left(\frac{D}{2} - W \right)^3 \right] = 4\pi \left(\frac{D}{2} \right)^2 \frac{N_t}{2} e \quad (1)$$

従って、結晶粒子内の空乏層幅Wは、

$$W = \frac{D}{2} - \left[\left(\frac{D}{2} \right)^3 - \left(\frac{3N_t}{2N_d} \cdot \left(\frac{D}{2} \right)^3 \right) \right]^{1/3} \quad (2)$$

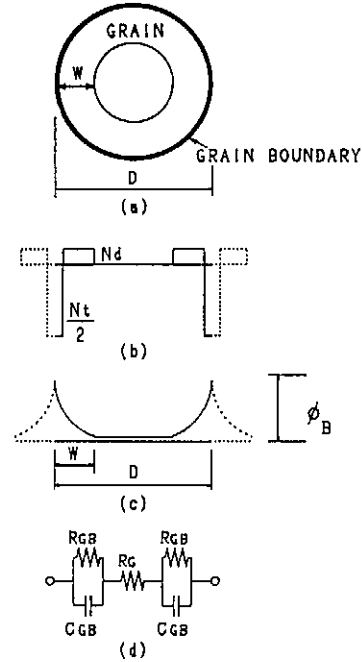


図4 Sketch of models of N-type BaTiO₃.

- (a) Model for microstructure.
 (b) Charge distribution around a grain boundary.
 N_t: Trap level density,
 N_d: Doner concentration.
 (c) Energy band structure.
 W: Depletion layer width,
 φ_B: Schottky barrier height.
 (d) Equivalent circuit.
 R_{GB}: Resistance based on the Schottky barrier,
 C_{GB}: Capacitance based on the Schottky barrier,
 R_G: Resistance within a grain.

また、球の中心からの距離をrとすると、シンメトリショットキバリアの高さφ_Bは、

$$\phi_B = \int_{D/2-W}^{D/2} \frac{N_t \cdot e \cdot ((4/3)\pi r^3 - (4/3)\pi(D/2-W)^3)}{4\pi r^2 \epsilon_0 \epsilon_s} dr = \frac{N_t \cdot e \cdot (3W^2 - (4/D)W^3)}{6\epsilon_0 \epsilon_s} \quad (3)$$

となる。ここで、ε₀は真空中の誘電率、ε_sはBaTiO₃の比誘電率である。この球粒子の中心と粒子表面の間のキャパシタンスを粒子の固有キャパシタンスCとすると

$$C = \frac{4\pi\epsilon_0\epsilon_s(D/2)(D/2-W)}{D/2 - ((D/2)^3 - (3N_s D^2/8N_d))^{1/3}} \quad (4)$$

で表すことができる。

図2において、300Kの電気伝導度および活性化エネルギーは、SiO₂の添加量3.0wt%以下の試料とSiO₂の添加量3.5wt%の試料では異なった値を示している。また、図3において、同一温度での電気伝導度は試料により異なっている。これらの結果は次のように説明できる。図1において、SiO₂の添加量が3.0wt%以下の試料の平均粒径に比べ、SiO₂の添加量が3.5wt%の試料の平均粒径は小さいことが確認されている。(2)式を(3)、(4)式に代入することにより ϕ_B とCをDだけの関数 $\phi_B(D)$ 、C(D)で表すことができる。ここで、 ϕ_B はDに対して単調減少関数であり、C(D)はDに対して単調増加関数であるため、平均粒径が小さくなるとバリアハイト ϕ_B は高くなりキャパシタンスCは小さくなる。従って等価回路のR_{0B}は大きくなり、キャパシタンスC_{0B}は小さくなったと考えられる。このように、SiO₂の添加量によってBaTiO₃セラミックスの電気物性は変化しているが、これはSiO₂を添加することにより粒径が変化し、このことが間接的に電気物性に影響を及ぼしたと考えられる。

5. まとめ

BaTiO₃セラミックスの電気物性に及ぼすSiO₂の添加量の効果について、検討した結果を以下にまとめる。

(1) SiO₂の添加量が3.0wt%以下の試料と3.5wt%の試料の300Kにおける直流伝導度を比較する

と、3.5wt%添加した試料の方が10桁程度小さかった。また、交流伝導度においても、3.5wt%添加した試料の方が小さかった。すなわち、BaTiO₃の電気物性はSiO₂の添加量が3.0~3.5wt%で急激に変化することが明らかになった。

(2) このようにBaTiO₃セラミックスの電気物性は、SiO₂の添加量と直接関係するのではなく、SiO₂の添加量が粒径を制御し、この粒径が電気物性を制御していると考えられる。

6. 参考文献

- 1) 岡崎 清、セラミックス誘電体工学、株式会社学献社、319 - 368、(1983)。
- 2) Kenji UCHINO、CERAMIC BULLETIN、65、647 - 52 (1986)。
- 3) W.HEYWANG and H. Thomann、Ann. Rer. Mater. Sci., 14、27 - 47 (1984)。
- 4) Makoto.KUWABARA、J.Am. Ceram. Soc., 64、639 - 44 (1981)。
- 5) Osamu.SABURI、J.Am. Ceram. Soc., 44、54 - 63 (1961)。
- 6) J.B.MacCHESNEY and J.F.POTTER、J.Am. Ceram. Soc., 48、81 - 88 (1965)。
- 7) 近藤秀信、田中順三、羽田肇、白崎信一、セラミックス論文誌、97、1245 - 49、(1989)。
- 8) 加藤裕司、武尾政俊、梁瑞林、桑原誠、セラミックス論文誌、97、1239 - 44、(1989)。
- 9) Hsiu - Fung Cheng、J.Appl. Phys., 66、1382~87、(1989)。
- 10) 岡崎 清、電子セラミックスへの招待、森北出版株式会社、84 - 86、(1986)。