

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 30 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23510096

研究課題名(和文) 環境対応型無鉛電線フューズ開発のための熱・電気特性制御と組成・形状の最適化

研究課題名(英文) Control of thermal or electrical properties and optimization of composition or shape for development of lead free electric fuses as environmentally friendly materials

研究代表者

松木 一弘 (Matsugi, Kazuhiro)

広島大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30253115

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,300,000円、(間接経費) 1,290,000円

研究成果の概要(和文)：交流低圧配線の無鉛フューズエレメントを開発した。Sn-Zn合金で組織の量や形態を制御し目的電気・熱特性を得るべく温度と組成の関数で特性を測定した。材料因子の物性値を一般的に取り扱い電気・熱シミュレーションシステムを構築しフューズ形状の設計を行った。Sn-50Znに8vol%Al₂O₃添加複合材料を用い、銅導線と安定接合達成にパルス通電接合法を適用した。フューズと銅界面には各構成層と同組成粉末を用いた組成傾斜層を設けた。粉末のみを使用したフューズ・銅接合体の一括製造を可能とした。本法ではフューズと銅界面での反応が抑制できた。成形体の電気・熱特性を測定しシミュレーションを行うと要求性能を満足した。

研究成果の概要(英文)：The interaction between microstructures and thermal or electric properties was investigated in Sn-Zn alloys. The addition of 8 vol.% Al₂O₃ in Zn-50mass%Sn, was carried out for the control of electrical and thermal properties, for Pb-free fuse elements used in electric power line. Homogeneous and heterogeneous Al₂O₃-distributions were achieved in microstructure consisting of primary Zn and eutectic. The temperature dependence of specific resistivity, thermal conductivity and specific heat measured for electrical and thermal calculations. The values on their properties were determined depending on Al₂O₃ distributed states. Both the melt and un-melt down performance for AC-low voltage fuse elements could be satisfied on both Zn-50Sn alloys with different distribution of Al₂O₃. Cu/Al₂O₃-Zn-50Sn fuse elements including of partially compositional gradient layers were prepared successfully by spark sintering. Their junction elements showed excellent melt and un-melt down performance.

研究分野：金属材質制御，複合新領域

科研費の分科・細目：環境学 環境技術・環境材料

キーワード：環境対応型フューズ合金 無鉛代替材料 電位・熱シミュレーション 電気・熱特性 低圧配電線 酸化物分散複合材料

1. 研究開始当初の背景

産業廃棄物処理場における特殊管理廃棄物の混入と増加が深刻化し、電気製品に使用されている鉛などの有害重金属のリ・クが懸念されている。アメリカにおいては、1997年から国立産業科学研究所主導による鉛フリー・はんだプロジェクト研究が行われた。わが国においては1999年よりNEDOの委託事業「産業廃棄物・リサイクル関連技術開発」の一環として「鉛フリー・はんだの規格化のための研究開発」が推進された。以上のように、電子・電気業界において主に、はんだ合金の鉛フリー化にその開発の主眼がおかれてきた。ヨーロッパにおいては、2006年7月から鉛使用規制法案(WEEE)の施行が叫ばれ、鉛不使用技術は、はんだに限らず広く一般材料技術における重要課題になっている。我が国の電力業界において、交流低圧配電線の一般家庭用引込み線に使用されている、現用フューズには約40%の鉛が含有されている。本電線フューズは、一般の鉛はんだ合金をそのまま使用してきた経緯がある。したがって、最も早急に解決を迫られる問題として、交流低圧配電線の現用設備や規格を変更することなく、無鉛合金よりなるフューズ・エレメントを開発することが挙げられる。

従来、電線フューズに鉛はんだ合金、あるいはこれに類似する合金が利用されたのは、次の2つの理由によるものと考えられる。

(1)鉛はんだ合金の電気抵抗、熱伝導率および融点(約451K)が、使用するフューズ・エレメントを用いてフューズ・ユニットとして設計が可能な範囲内にあること。

(2)銅導線との接合をはんだ付けによるため、はんだ合金によるフューズが好都合であること。

申請者らは、鉛フリー・フューズ合金として鉛フリー・はんだ合金(Sn-Ag基、Sn-In基、Sn-Bi基、Sn-Sb基合金)の物性値を調査し、これらの合金の電線フューズとしての利用が可能であると判断した。しかし、これらの合金には希少元素(クラック数: Ag; 8×10^{-5} , In; 1×10^{-5} , Bi; 1×10^{-5} , Sb; 5×10^{-5} など)が含まれるため、希少金属戦略の上から普通金属からなるSn-Zn基合金(クラック数: Sn; 4×10^{-3} , Zn; 4×10^{-3})について検討してきた。

2. 研究の目的

新規にSn-Zn基電線フューズ合金を開発するに当たり、まず、Sn-Zn系の一組成であるSn-9Zn共晶組成のものを作製し、フューズ合金の重要特性である融点、室温での熱伝導率、比熱、密度、電気抵抗を実測し、現用の鉛含有合金のそれらと比較し、本Sn-Zn系合金が有望である事を実証してきた。なお、鉛フリー・フューズ開発に際し、留意すべき次の2点が挙げられる。

(1)室温から融点までの温度範囲で電線フューズの性能を満足させる設計が可能な、電気

比抵抗と熱伝導率を有する材料であること。この場合、現用のフューズ・ユニットへの取り付けを前提として、具体的に設計が可能でなければならない。

(2)銅導線との接合方法として、はんだ付け以外の方法を開発すること。

鉛フリー・フューズ合金に関する研究は、世界的にみて先行事例の報告がほとんどないので、松木一弘らを発明者として、「フューズ用錫合金及びこれを用いた電線フューズ」特許(4244035)を取得した。さらに、効率よく最適なフューズ・エレメントの組成・形状設計を行うために電気熱連成問題の計算を行う。本計算は、我々のグループがこれまでに行ってきた電気利用の放電焼結における電気熱連成計算をモディファイすることで達成される。

科学研究費の交付を希望する期間内に、以下の3点を明らかにする。(1)Sn-Zn合金系はSn相(最大約1 mass%までZnを固溶)とZn相からなる2相材料である。Zn量の違う合金数種を作製して、Sn-Zn系2相材料の電気抵抗、熱伝導率、比熱、密度を温度の関数として測定し、Zn相の体積率、形状および分布状態との関係を明らかにする。さらに、これら物性値の理論的取り扱いと一般化を目標に、電気熱物性値と温度および組成の関係を定式化する。また、本Sn-Zn合金系の電気抵抗、熱伝導率、比熱などを制御するためにセラミックス材料を添加して、電気熱物性値制御型のSn-Zn系金属基複合材料の開発も範疇とする(これまでの複合材料作製、電気抵抗と組織の関係、第2相の空間分布の研究成果を活用)。(2)得られた物性値を用いて、電気熱シミュレーションを行い(これまでの研究成果を活用)フューズ・エレメント形状の設計を行い、合金組成と形状の最適化を計る。(3)Sn-Zn合金と銅リド線の接合に、パルス通電接合を適用し、はんだ付けを用いない接合方法を確立する(これまでの放電焼結利用の接合技術についての研究成果を活用)パルス通電接合の適用により、省力化を行うと共に製品間の接触抵抗差を解消する。さらに、Sn-Zn合金と銅リド線の接合界面における冶金学的な長時間安定性も検討する。

3. 研究の方法

候補としてのSn-Zn合金基本系はSnとZn相からなり、これら二相組織の量および形態を制御して目的の電気熱特性を得るべく、電気抵抗、熱伝導率、比熱、密度を温度および合金組成の関数として測定し、Zn相の体積率、形状および分布状態との関係を明らかにする。さらに材料因子としての物性値の理論的取り扱いと一般化を目標に、これら物性値と温度および組成の関係を定式化し、電気熱シミュレーションシステムを構築し、フューズ・エレメント形状の設計を行い、合金組成と形状の最適化を図る。さらに、銅導線/ヒューズ・エレメント接合体の接合法を開発

し、実際の性能試験を行うと共に、これらの接合界面の長時間安定性を冶金学的に検討する。

4. 研究成果

Sn-0, 1, 9, 20, 50, 80, 100mass%Zn合金の7種を原材料より溶製し、銅導線3.2mm(64A用)低圧配線用のヒューズ合金として、電気・熱特性を温度と組成、さらに組織形態の関数として表現した。その結果、最適組成をSn-9ZnおよびSn-50Znとした。特にSn-50Znについてはアルミナ粒子を8vol%添加して、相反するヒューズの溶断・通電性能を満足することを意図した。本金属基複合材料はSn-50Zn母材とアルミナの比重差による組織不均一を解消させる為、固液共存温度領域(603K程度)で溶湯攪拌により、初晶デンドラートアームにアルミナをトラップさせて、均質組織の複合材料を得た。アルミナを添加することで、288 - 460Kの温度領域で、電気比抵抗と比熱はそれぞれ13.8-23.1 μ cm⁰.329-0.363J/(gK)に上昇し、熱伝導率と密度はそれぞれ84.6-76.4W/(mK)と6.81-6.77g/ccへと減少した。これらの電気・熱物性値はMaxwell提唱の複合側で近似が可能であった。以上より、ヒューズの溶断・通電性能を左右する電気抵抗と温度拡散率は、アルミナの体積率と母相の組織形態で制御可能であることが判った。さらに、これらの電気・熱物性値を温度と組成の関数として定式化し、電気・熱連成解析プログラムに組み込んだ。その結果、Sn-50Znに8vol%アルミナを添加した開発複合材料は、ヒューズ性能の溶断・通電特性の双方を満足していると推定できた。

64A用3.2mm直径の銅導線使用した低圧配線におけるフューズエレメントとして、溶断(99A)・通電(210A)特性を満足するため、固液共存領域の有るSn-50Znを取り上げ無鉛化を図った。本合金に酸化物を8vol%添加し熱・電気特性制御を行った。合金と酸化物は密度と融点に大差が有り酸化物均一分布を得る事が難しく、安定したフューズ性能を発揮できない。複合材料作製時、固液共存下で温度と攪拌時間の最適化を図り初晶内と初晶粒相互間に酸化物を均一に存在させた。300~460Kで温度上昇と共に比抵抗は上昇した。均一、不均一存在Al203型、Al203無添加合金の順で比抵抗値が上昇した。熱伝導率は、同温度では温度上昇とともに低下した。均一、不均一存在Al203型、さらにAl203無添加合金の順で熱伝導率が低下した。Al203添加量が同一でも、その存在位置を制御することにより電気・熱伝導率の調整ができた。温度上昇と共に比熱は上昇した。Al203無添加よりも添加合金の比熱は増加した。温度上昇と共に密度は低下しAl203無添加よりも添加合金の密度は低下した。これらはAl203添加量のみ依存して決定された。自作三次元電気・熱連成計算に基づきシミュレーションを行った。Al203無添加合金は溶断性能条件下で温度上昇が飽和し、溶

断性能は悪いものであった。しかし不均一存在Al203型合金は525sで溶断し、かろうじて所定時間(600s)を満たしたが、3s以上の通電性能は満足できた。また、均一存在Al203型合金は275sの溶断時間が示され、250sもの溶断時間短縮化が発揮でき、Sn-39Pbの性能に比肩した。また3s間の通電性能も達成され、両性能が満足された。同一組成の金属基複合材料でさえ、作製プロセス最適化し酸化物の存在状態を制御したことで、熱・電気特性を大幅に向上させることができた。

固液共存領域の有るSn-50Znを取り上げ8vol%のAl₂O₃を添加した複合材料を用いて、製造プロセス制御による組織・熱・電気特性制御を可能とした。フューズ合金としての諸特性が最適化された本複合材料を用い、銅導線との安定接合達成のため、簡便で自動化が可能な接合方法として、パルス通電接合法を適用した接合方法を確立した。なお大量生産化をも考慮した手順と付帯治具を提案した。特に本複合材フューズと銅導線界面には、これら素材より成る両粉末(Al203添加Zn-Sn, Cu)の混合比を変化させた組成傾斜層を設け、理想面積接合化と界面高強度化を達成した。場合によっては、鑄造法で作製したバルク体を使用せずAl203添加Zn-Sn粉末とCu粉末の両粉末を使用して、フューズ層と組成傾斜層さらに銅導線の焼結・接合を行い、銅導線と複合材フューズの接合を完了した。これは粉末のみによるフューズエレメントの一括製造技術確立であり、フューズのみを溶製で作製後、銅導線とパルス通電接合させる複合プロセスに比べて、省力・省エネルギー化が図られた。なお、パルス通電接合焼結法の特長である一定荷重時直接加熱・低温・短時間・局所加熱利用により、複合材フューズと銅導線界面での反応は抑制できた。得られた銅導線と接合完了のフューズエレメント成形体の電気抵抗や熱伝導率などを測定し、溶断・通電シミュレーションを行い要求性能が満足していることを示した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計3件)

- (1)Control of electrical and thermal properties by 8vol.% Al₂O₃ distribution states in Zn-50Sn for AC-low voltage fuses : Kazuhiro Matsugi, Hiromu Matsumoto, Yong-Bum Choi, Gen Sasaki, Ken-ichiro Suetsugu and Koji Fujii, Materials Transactions, 55, (2014) No3. pp.577-585[DOI10.2320/matertrans.MBW201303] (査読有)
- (2)Control of electrical and thermal properties on Sn-50Zn alloy by 8vol.%Al₂O₃ addition for Pb-free AC-low

voltage fuse elements: Kazuhiro Matsugi, Yoshihiro Saki, Yong-Bum Choi, Gen Sasaki, Ken-ichiro Suetsugu and Koji Fujii, Materials Transactions, 54, (2013) No2. pp.231-237. [DOI 10.2320/matertrans.M2012335] (査読有)

- (3)高温対応の鉛フリーはんだ用 Zn-Al-Sn 合金の設計・特性: 松木一弘, 寺田真圭吾, 古川章太, 崔龍範, 佐々木元, 末次憲一郎, 鑄造工学, 86, (2014), 3, pp.216-222. (査読有)

〔学会発表〕(計4件)

- (1) 低圧配電線用フューズの無鉛化と Zn-Sn-Al₂O₃ 合金の製造と特性, 松木一弘, 松本大夢, 崔龍範, 佐々木元, 末次憲一郎, 日本金属学会 2013 年秋期大会. 於金沢大学
- (2) 低圧配電線用無鉛 Sn-50Zn-Al₂O₃ ヒューズ合金の製造と特性, 松本大夢, 寄 義弘, 崔龍範, 松木一弘, 日本鉄鋼協会 2013 年支部大会. 於愛媛大学
- (3) 低圧配電線用無鉛 Sn-50Zn-Al₂O₃ 合金の製造と特性, 松木一弘, 松本大夢, 崔龍範, 佐々木元, 末次 憲一郎, 日本機械学会第 23 回環境工学シンポジウム 2013. 於東京海洋大学
- (4) 低圧配電線用フューズ合金の無鉛化と電気・熱特性, 松木一弘, 寄 義弘, 崔龍範, 佐々木元, 藤井 恒治, 日本金属学会 2012 年秋期大会. 於愛媛大学

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松木一弘 (Matsugi, Kazuhiro)
広島大学・工学研究院・教授
研究者番号: 30253115

(2) 研究分担者

佐々木元 (Sasaki, Gen)
広島大学・工学研究院・教授
研究者番号: 30192595

崔龍範 (Choi, Yongbum)
広島大学・工学研究院・助教
研究者番号: 00457269

(3) 連携研究者

()

研究者番号: