

2015A1950

BL19B2

## AI ラミネートフィルムの変形・疲労損傷の X 線評価 X-ray Evaluation of Damage of Emboss-formed Al Laminates

阿部 一博<sup>c</sup>, 田中 啓介<sup>a</sup>, 清水 憲一<sup>a</sup>, 菖蒲 敬久<sup>b</sup>, 長谷 光司<sup>a</sup>, 小林 大純<sup>a</sup>  
Kazuhiro Abe<sup>c</sup>, Keisuke Tanaka<sup>a</sup>, Kenichi Shimizu<sup>a</sup>, Takahisa Shobu<sup>b</sup>, Koji Nagaya<sup>a</sup>, Hirozumi Kobayashi<sup>a</sup>

<sup>a</sup>名城大学, <sup>b</sup>(独)日本原子力研究開発機構, <sup>c</sup>(株)村田製作所

<sup>a</sup>MEIJO UNIVERSITY, <sup>b</sup>JAEA, <sup>c</sup>Murata Manufacturing Co., Ltd.

これまで、ラミネートフィルムの AI 層がエンボス加工や環境変化等から受ける負荷の評価は、主として与えた負荷と対応する試料の外観状態からメカニズムを推測するに留まっていた。これはひとえに実験室 X 線回折装置の照射スポットが広いため試料の損傷状態を細かくマッピングすることができなかつたためである。そのため代用として有限要素法を用いた部材変形のシミュレーションで評価を行ってきたが、実際の AI 層の損傷状態を評価する術がなかつたため、両者の整合性を評価できていなかった。今回 SPring-8 の放射光を利用する機会を得て、実際にエンボス成形及びヒートショック試験を実施したラミネートフィルムの AI 層の応力状態を評価することができ、外観観察では捉えられない AI 層の損傷状態を評価することができた。また、シミュレーション結果とも良好な相関が認められ、シミュレーションが評価ツールとして有効であることもわかつた。

**キーワード：** AI、ラミネート、 $\sin^2\psi$ 、マッピング、残留応力

### 背景と研究目的：

電池の外装部材として使用されている AI ラミネートフィルムは、製造時のエンボス成形や使用中の負荷（特に温度変化による部材の膨張収縮）により AI 層が損傷を受けていることが予想される。まず、実験室 X 線回折装置（島津製作所製 XD-D1）で Cr-K $\alpha$  線による 311 回折を使用して  $\sin^2\psi$  法<sup>[1]</sup>による応力状態の評価と 422 回折線を利用した残留応力<sup>[1]</sup>の評価を行った。この装置で評価に必要な強度を得るためには  $\phi 5$  mm 程度の照射領域が必要であり、エンボス成形体の形状変化が乏しい部位（平面部）の測定はできるものの、形状が変化する部位（エッジ近傍など）はその部位の大きさ自体が  $\phi 5$  mm 程度であり、応力状態の分布を取ることが困難であることがわかつた。よって現実には AI 層の応力状態の変化は有限要素法を用いた部材変形のシミュレーションで行うにとどまり、ほとんどは実際に負荷をかけて破壊した状態の外観観察を元にした推測に頼っていた。

今回、放射光実験により、X 線の照射領域を絞って応力状態を緻密にマッピングすることが可能となり、非破壊的な応力状態の評価を行う機会を得た。今回の評価結果を元に、製造時の加工や使用環境と損傷レベルの関連付けを行い、加工条件の適正化、寿命を推定する指標の確立を目指したい。また、シミュレーション結果と測定した実際の AI 層の応力状態との相関を比較し、シミュレーションの評価ツールとしての有効性検証も実施する。

実験項目は以下の 2 項である。

- ① エンボス成形でラミネートフィルム中の AI 層が受けたダメージを  $\sin^2\psi$  法による残留応力及び回折線半価幅の変化から評価し、エンボス成形条件と AI 層が受けた損傷の程度を対比する。また、シミュレーション結果との比較も行う。
- ② ヒートショックによりエンボス成形済ラミネートフィルムの AI 層が受けたダメージを  $\sin^2\psi$  法による残留応力及び回折線半価幅の変化から評価し、ヒートショック回数と AI 層が受けた損傷の程度を対比する。また、シミュレーション結果と比較する。

なお、当初の計画では、ラミネートフィルムの成形性を評価するバックデータとしてバージン材の歪と AI 層中の応力状態を評価する予定であったが、上記①②の測定に想定以上の時間を要したため、本計画の実施は見送った。

**実験条件 :**

実施ビームライン : BL19B2

X線エネルギー : 12 keV

入射 X 線形状 : スリット 0.3 mm×0.3 mm

**多軸回折装置**

受光側コリメーション : ダブルスリット 0.3 mm×12 mm

検出器 : シンチレーションカウンタ

- 残留応力及び回折線半価幅分布の測定には Al の 422 回折を用いた。回折角は 77.36°である。半価幅は、擬フォークト関数を用いてプロファイルフィッティングを行い、半価幅を求めた。
- 応力測定には 422 回折を使用して、反射法・側傾法の光学系で  $\sin^2\psi$  法を用いて残留応力を決定した。このときの応力定数は、Al 単結晶の弾性定数からクリーナーモデルによる計算で求められるヤング率 71.0 GPa、ポアソン比 0.344 を用いて計算した。値は -575 MPa/deg である。
- 断面観察の結果より Al ラミネートフィルムの Al の結晶粒径は 10  $\mu\text{m}$  から 30  $\mu\text{m}$  である。

**実験① : エンボス成形の影響**

有限要素法によるシミュレーションによると、エンボス成形によってコーナー部を頂点として扇形に広がる領域の歪が増加する傾向にある (Fig. 1)。

Fig. 2 に示すように、今回の X 線評価も同様の領域に対して実施した。測定サンプルはエンボス成形深さが 3 mm (EM3) と、同 6 mm (EM6) である。

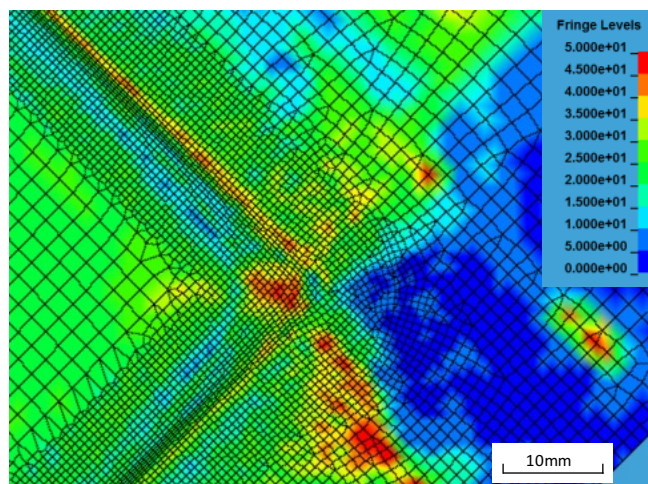


Fig. 1 ラミネートフィルムをエンボス成形した際のミーゼス応力分布 (有限要素法によるシミュレーション結果)

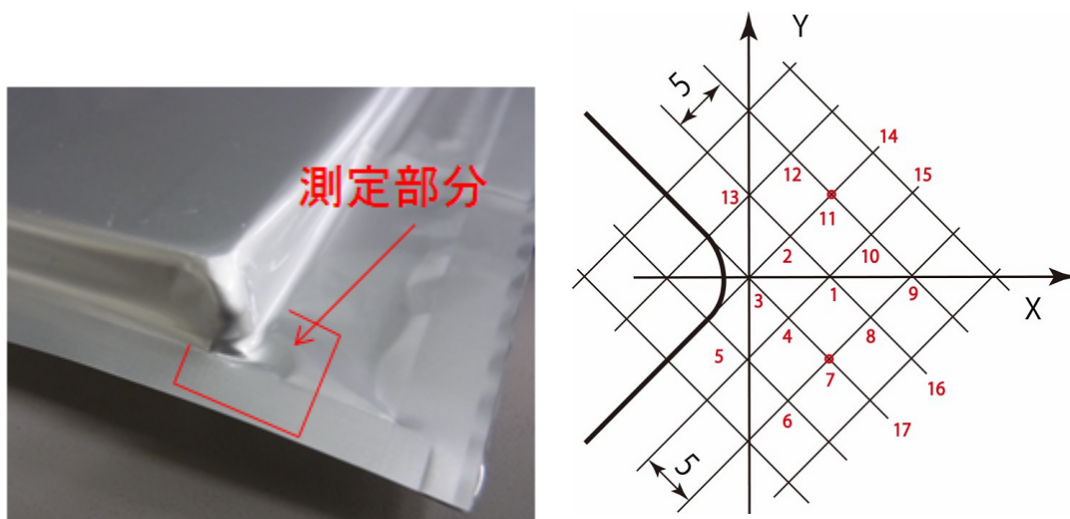
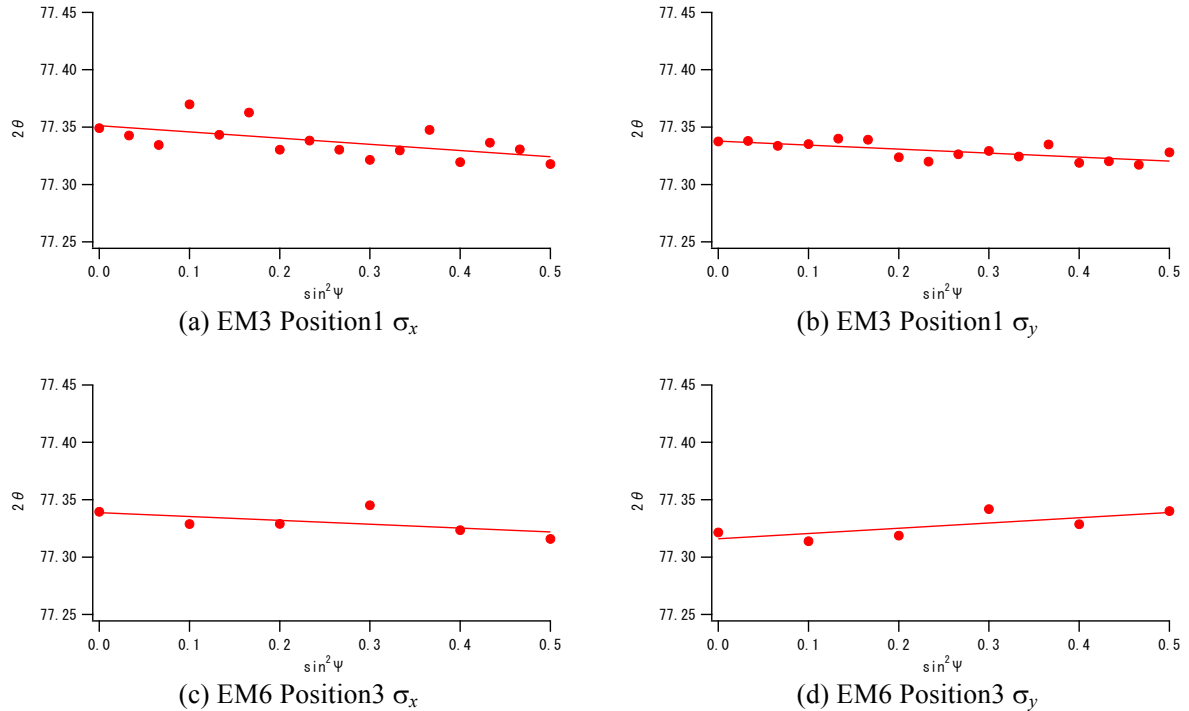


Fig. 2 マップ化したラミネートフィルムの測定部分 (およそ 15 mm×15 mm の領域)

## 実験①の結果および考察：

今回の実験のように X 線の照射領域を絞ると、照射領域中に十分な数の結晶が含まれないため回折に預かる結晶粒の数が少なく、個々の結晶粒の違いが大きく現れてデータのバラつきが大きくなることがわかった。今回はこのことを考慮して EM3 では 16 点測定したが、それでもバラつきが大きく解析が不能な Position が多発し、一部の Position でのみデータ評価が可能であった。

測定結果の一例として、Fig. 3 に EM3 の Position1 及び EM6 の Position3 で得られた X 方向( $\sigma_x$ ) 及び Y 方向( $\sigma_y$ )の  $2\theta$ - $\sin^2\psi$  線図<sup>[1]</sup>を示す。EM6 の Position3 は解析が不能だった例である。Position3 周辺の測定点はいずれも引張応力状態であったにも関わらず、この部分の、しかも Y 方向応力のみが圧縮応力であったため、特異点として評価対象から除外した。

Fig. 3 X 方向( $\sigma_x$ )及び Y 方向( $\sigma_y$ )の  $2\theta$ - $\sin^2\psi$  線図

$\sin^2\psi$  法による残留応力評価が可能だった点の評価結果を Table 1 に示す。評価が可能だったのはわずかな点のみであるが、コーナー近傍はいずれも引張残留応力となっており、これらはエンボス成形時の圧縮変形によって導入されたものと考えられる。

Table 1 コーナー近傍の残留応力評価結果

Specimen	Position	Residual stress	
		$\sigma_x$ , MPa	$\sigma_y$ , MPa
EM3	1	31.1	20.1
	9	9.3	14.0
EM6	1	2.4	17.7
	3	19.4	—

次いでエンボス成形深さを変えたサンプル EM3 及び EM6 に対し、Fig. 2 に示した各点での半価幅の値を Table 2 に、同様に半価幅データを等高線図状に示したものを Fig. 4 に示す。コーナー部から両翼方向に広がる領域の歪が高くなっているなど、シミュレーションと実試料とに良好な相関が認められ（特に成形量の大きな EM6 で明確）、シミュレーションが評価ツールとして有効であることがわかった。

Table 2 エンボス成形深さとコーナー近傍の半価幅の変化

Position	1	2	3	4	5	6
EM3	0.03865	0.03939	0.05299	0.04351	—	—
EM6	0.05348	0.04997	0.05004	0.04804	0.09093	0.06169
Position	7	8	9	10	11	12
EM3	0.04053	0.03590	0.03803	0.03473	0.05730	—
EM6	0.04858	0.04993	0.05016	0.03981	0.07529	—
Position	13	14	15	16	17	—
EM3	—	0.02984	0.03744	0.03220	0.04269	—
EM6	0.03621	—	—	—	—	—

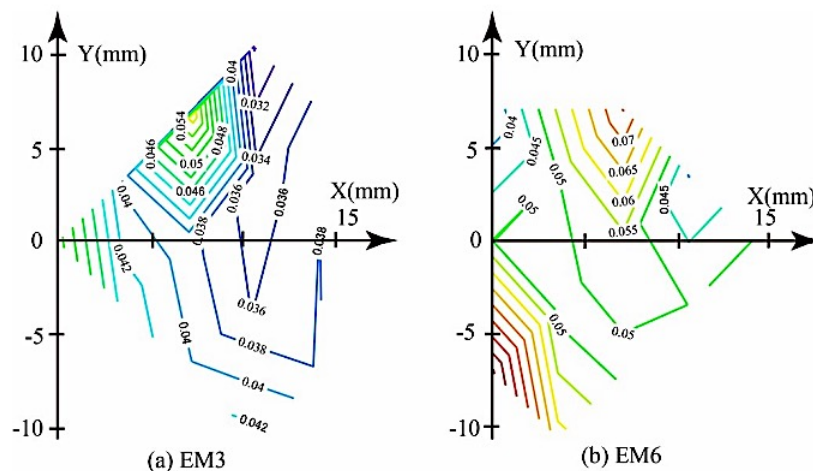


Fig. 4 EM3 及び EM6 のコーナー近傍の半価幅の等高線図

### 実験②：ヒートショックの影響

有限要素法によるシミュレーションによると、ヒートショック ( $-65^{\circ}\text{C} \leftrightarrow +65^{\circ}\text{C}$ ) によってコーナーの一部に応力が集中する部位が生じる (Fig. 5) ことがわかった。この状態を多数回繰り返すといずれは AI 層が疲労破壊して破断することが想定される。

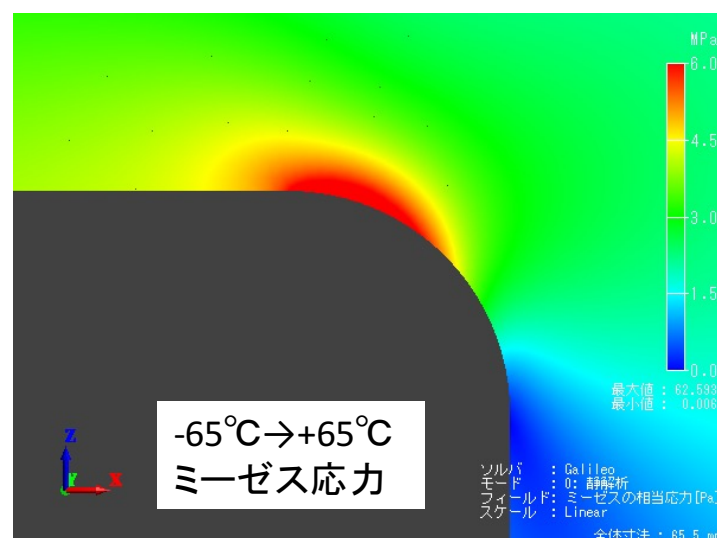


Fig. 5 有限要素法によるヒートショック影響シミュレーション

今回はヒートショックを実施していない電池(V cell)と、1200 回のヒートショックを実施した電池(F cell)に対し、Fig. 6 に示すサンプルのコーナー近傍の Al 層の半価幅を測定した。

※本来ならば  $2\theta\text{-sin}^2\psi$  法による残留応力を測定する予定であったが、エンボス成形の項で述べたようにバラつきが大きく評価が不能な点が頻出したため、今回は時間の関係上割愛した。

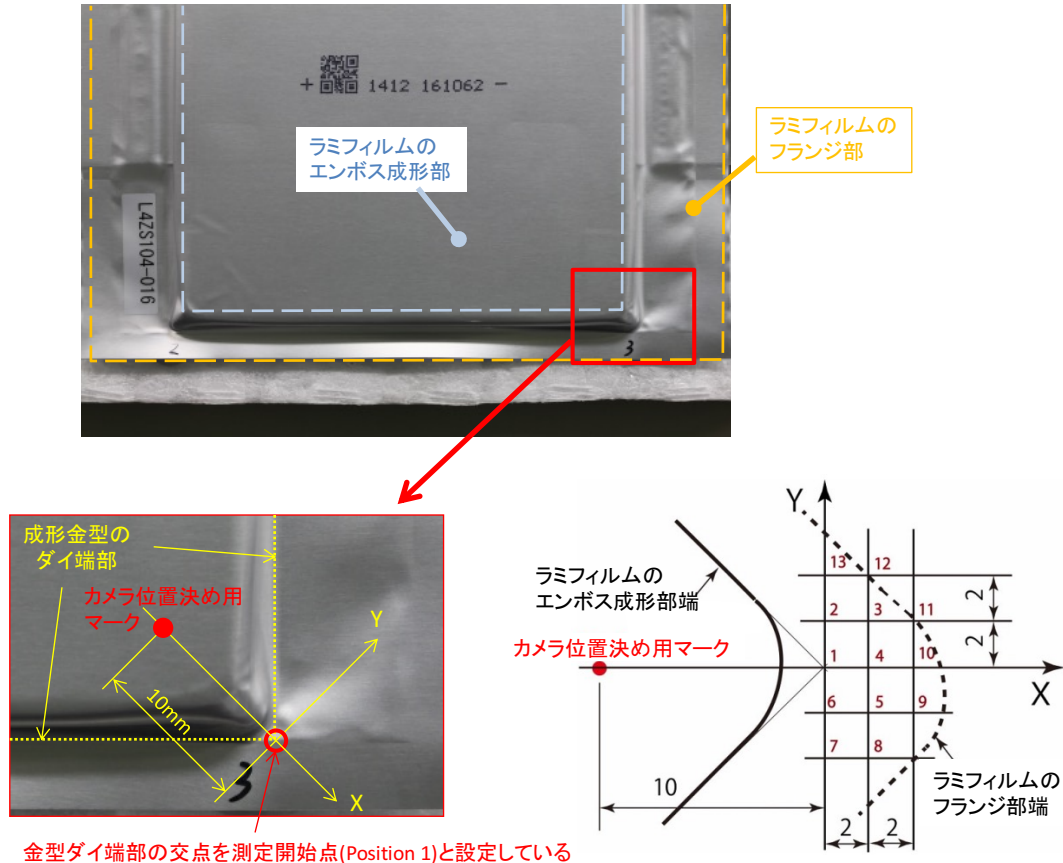


Fig. 6 ラミネートフィルムの測定部分 (およそ 4 mm×8 mm の領域)

測定点の位置決めはビデオカメラで観察しながら XY ステージを移動させて行うが、実際の測定点にマジック等で印をつけると部材が変形するため測定結果に影響があることが懸念される。よって実測定点から既定距離離れた位置に「カメラ位置決め用のマーク」を設け、この点を基準に XY ステージを移動させた。カメラ位置決め用のマークと測定点の関係を Fig. 6 に示す。

#### 実験②の結果および考察：

測定の結果から得られた V cell 及び F cell のコーナー近傍の回折線の半価幅の測定値と測定位置の関係を Table 3 に、同様に半価幅データを等高線図状に示したものを Fig. 7 に示す。V→F の間で半価幅の増大領域は広がっている、つまりヒートショックによって半価幅の増大領域が広がっていることがわかる。

また、シミュレーションで応力が集中すると想定した Position1,2 近傍でも半価幅の大きな増加が見られるなど、ヒートショックに関してもシミュレーションと実試料とに良好な相関が認められ (特に成形量の大きな EM6 で明確)、シミュレーションが評価ツールとして有効であることがわかった。



Table 3 ヒートショック前後での半価幅変化の比較

Position	1	2	3	4	5	6
V	0.04333	0.03573	0.04577	0.03208	0.03382	0.04430
F	0.05137	0.04520	0.04408	0.03965	0.03503	0.03562
Position	7	8	9	10	13	
V	0.03572	0.04044	0.02637	0.03962	0.03686	
F	0.06791	0.04379	0.03499	0.03837	0.06119	

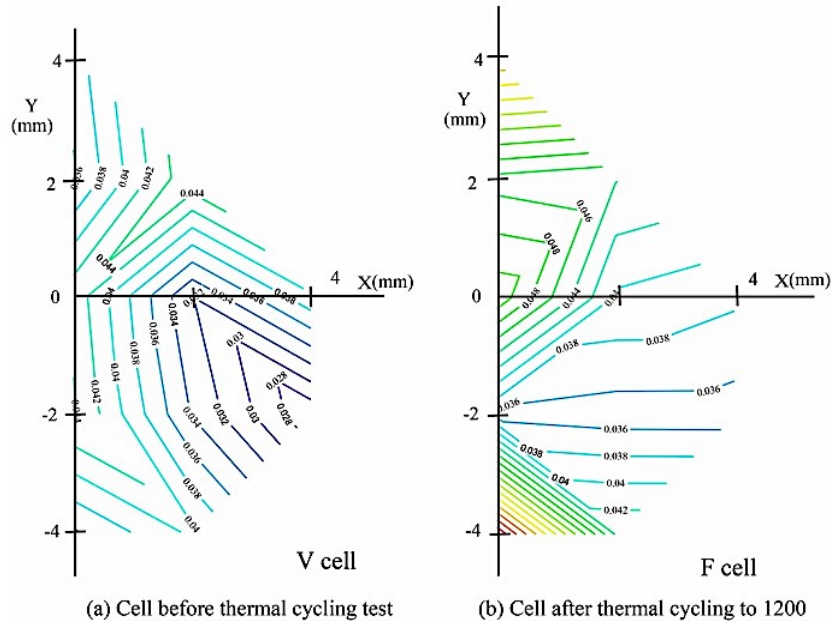


Fig. 7 V cell 及び F cell のコーナー近傍の半価幅変化の比較 (等高線図)

また二つの電池の対応する位置における半価幅は F cell の方が増大しており、疲労にともなう損傷の進行に対応するものと考えられる。半価幅の挙動をとらえることにより損傷の進行を評価できる可能性が確認された。

#### 今後の課題：

X 線回折法で求められる半価幅及び残留応力が、ラミネートフィルムの変形量及び疲労損傷の進行を表すパラメータとして有力であることは疑問の余地がない。しかし、その検出法には一層の工夫が望まれる。

今回の実験のように、結晶粒径が 10~30  $\mu\text{m}$  程度であるサンプルに対して X 線の照射領域を絞ると、照射域中に十分な数の結晶が含まれないために回折に与る結晶粒の数が少なくなり、個々の結晶粒の違いが大きく現れデータがばらつく。いわゆる粗大粒の問題が顕著であることがわかった。今後は揺動法などを併用しての評価が必要であると考えられる。

#### 参考文献：

[1] 田中啓介, 鈴木賢治, 秋庭義明, 菖蒲敬久 : 放射光による応力とひずみの評価, (2009), 養賢堂

©JASRI

(Received: October 16, 2015; Early edition: February 25, 2016;  
Accepted: June 24, 2016; Published: July 25, 2016)