

超音波 casting における溶質移動の影響*

蓬田 翔平**, 宮野 学***, 久保 貴司****

Influence of Solute Advection on Ultrasonic Solidification*

Shohei Yomogida**, Gaku Miyano*** and Takashi Kubo****

1. はじめに

熔融金属の casting 時に超音波を照射することで微細な結晶粒組織を有する casting 材が得られることが知られている。このような超音波照射による結晶粒の微細化効果を利用した超音波 casting は、結晶粒微細化剤の添加量低減や、製品品質の向上等の面で注目を浴びている。超音波照射による結晶粒微細化を実現するためには、超音波を照射する際の溶湯温度が重要であり、液相線温度近傍で超音波を照射することで高い結晶粒の微細化効果が得られる。しかしながら、松田らによる Al-4mass%Si 合金に対する超音波 casting の検討においては、液相線温度近傍のみの超音波照射では casting 材全域における結晶粒微細化は確認されず、 casting 材底部にのみ微細結晶粒が確認された¹⁾。したがって、超音波 casting によって微細かつ均一な結晶粒組織を有する casting 材を得るためには、さらなる検討の余地がある。

本研究では、坩堝を用いたアルミニウム合金の超音波 casting 実験において、坩堝の下部でのみ微細な結晶粒組織が形成される原因について調査を行った。坩堝内の全域で結晶粒の微細化効果が得られなかった原因としては、初晶の沈降、坩堝内溶湯の温度差が大きいこと、超音波の照射時間不足、溶質元素のマクロ偏析の影響等が考えられる。初晶の沈降については、坩堝や溶湯の表面で発生した初晶の密度が液相の密度よりも大きいため、凝固完了までに沈降が起こることが知られている²⁾。したがって、初晶の沈降によって坩堝下部の結晶粒が微細化することは起こり得ることである。しかしながら、初晶が沈降したとしても坩堝上部で超音

波照射による結晶粒の微細化効果が得られない理由にはならず、他の要因が存在している可能性が高い。そこで、本研究では坩堝内溶湯の温度差や超音波の照射時間、溶質元素のマクロ偏析の影響について調査し、超音波照射下における坩堝内溶湯の凝固過程について考察した。

2. 実験方法

2.1 坩堝内溶湯の温度差

超音波照射実験を行う前に、坩堝内溶湯の温度差の影響を明らかにするため、Fig. 1 に示す装置を用いて坩堝の上部及び下部溶湯の冷却曲線の測定を行った。供試材は Al-2.5mass%Cu (液相線温度: $T_L=655^\circ\text{C}$) とし、 800°C まで加熱した後に Fig. 1 に示す断熱箱の中に設置して冷却曲線を取得した。このとき、上部熱電対は湯面から 20 mm、下部熱電対は坩堝底部から 20 mm の位

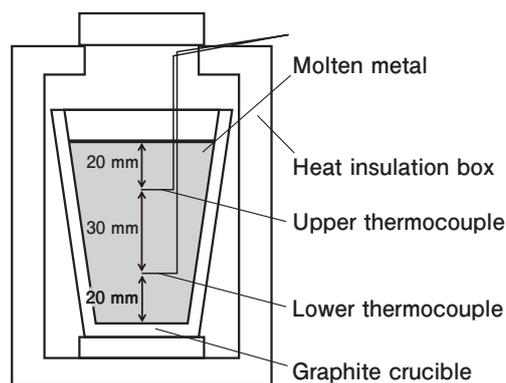


Fig. 1 Schematic diagram of experimental equipment for temperature measurement.

* 本稿は、超音波テクノ, 12 (2020), 35-39 に掲載。

This paper has been published in the Ultrasonic Technology, 12 (2020), 35-39.

** (株)UACJ R&Dセンター 第二研究部

Research Department II, Research & Development Division, UACJ Corporation

*** (株)UACJ 鑄鍛 鑄鍛工場 開発技術部

Research & Engineering Department, Foundry and Forging Works, UACJ Foundry & Forging Corporation

**** (株)UACJ R&Dセンター 第二研究部, 博士(工学)

Research Department II, Research & Development Division, UACJ Corporation, Ph. D. (Eng.)

置で固定した。これらの熱電対の位置は、従来研究において粗大な結晶粒組織と微細な結晶粒組織が観察された位置に対応する。これらの位置で測定された冷却曲線を比較することで、坩堝内溶湯の温度差による結晶粒の微細化効果への影響を評価した。

2.2 超音波 casting 実験

装置の模式図を Fig. 2 に、超音波照射条件を Table 1 に示す。前項の実験と同様に供試材を 800℃ まで加熱した後に断熱箱に設置し、熱電対及び窒化ケイ素製超音波ホーンを溶湯内に挿入した。この時、超音波ホーンの表面における核生成を抑制するために、超音波ホーンは液相線温度以上に予熱して挿入した。上部熱電対位置における溶湯温度を基準として、狙いの溶湯温度に達した時点で超音波を所定時間にわたり照射した。超音波照射後はホーンを溶湯から抜き、断熱箱上部に断熱材で蓋をして凝固完了まで静置した。超音波を照射するタイミングは、結晶粒の微細化効果が高いと知られている過冷却域における復熱時 (654℃) とした。

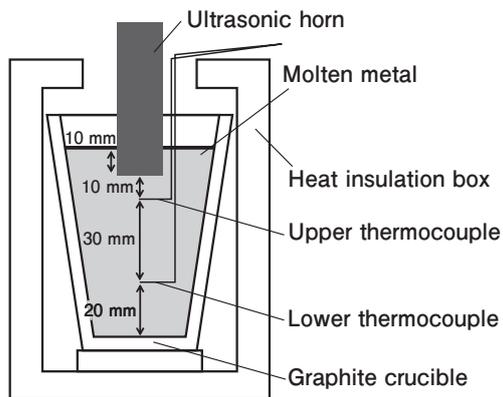


Fig. 2 Schematic diagram of experimental equipment for ultrasonic application.

Table 1 Ultrasonic application conditions.

Alloy	Al-2.5mass%Cu ($T_L=655^\circ\text{C}$)
Start temperature	800℃
Ultrasonic horn	Silicon nitride - $\phi 20$ mm
Ultrasonic frequency	19 kHz
Application timing	
Application time	0s, 1s, 3s, 10s
Preheating method of ultrasonic horn	Preheat in a 900℃ heater

得られたサンプルは鉛直方向の中心断面を切断、研磨後にバーカーエッチング処理を行い、偏光観察によりサンプル内の結晶粒分布を調査した。さらに、サンプル内の成分偏析を確認するために、Fig. 2 の上下の熱電対位置近傍から分析サンプルを採取し、誘導結合プラズマ (ICP) 発光分光分析により溶質元素である Cu 成分の濃度を測定した。

3. 結果と考察

3.1 坩堝内溶湯の温度差

上部熱電対、下部熱電対により取得した冷却曲線を Fig. 3 に示す。上部、下部ともに 653℃ 程度までの過冷却進行とほぼ同タイミングにおける復熱の開始が確認された。また、復熱後、再度冷却が進行する際には、若干ではあるが坩堝下部の温度が坩堝上部に比べて低い傾向が認められた。本実験で超音波を照射するタイミングは上部熱電対位置が復熱中の 654℃ に達した時点であり、照射時間は最長でも 10 秒間である。Fig. 3 より、超音波を照射するタイミングにおいて下部熱電対位置は上部熱電対位置と同様に復熱中であり、その温度差は 1℃ 未満であることが確認された。すなわち、本実験において超音波照射のタイミングでは坩堝上部と坩堝下部における溶湯の温度差は非常に小さいと言える。したがって、坩堝内の一部領域でのみ結晶粒微

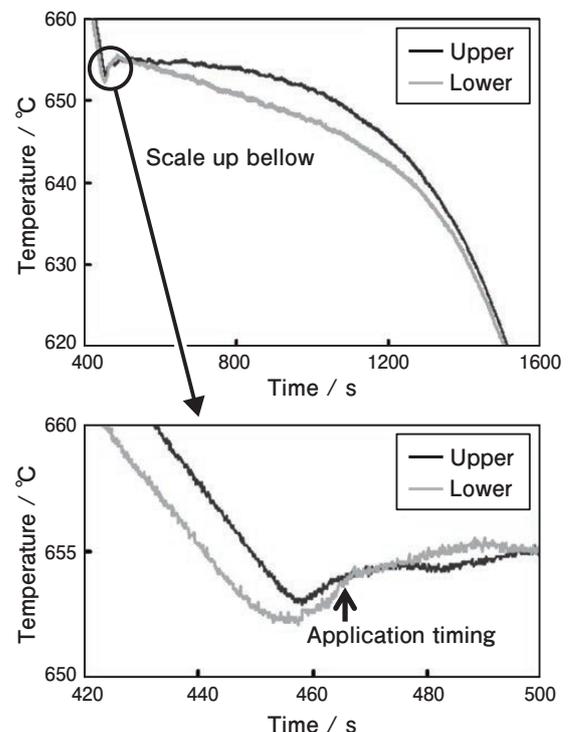


Fig. 3 Cooling curve obtained from upper and lower thermocouple.

細化が生じたとしても、これは坩堝内溶湯の温度差による影響ではないと判断できる。

3.2 超音波照射実験

超音波を所定時間にわたり照射して得られた鋳造材の macros 組織を Fig. 4 に示す。それぞれの写真の左端は坩堝半径方向の中心部であり、鉛直方向の中心断面の 1/2 領域を示している。超音波を照射していないサンプルを含めた全てのサンプルにおいて、坩堝上部よりも坩堝下部の結晶粒が微細であった。これは超音波照射の有無に関わらず、初晶の沈降現象が起こったためであると考えられる。また、超音波を1秒間以上照射することで坩堝下部における結晶粒微細化が促進されることが確認され、これは従来研究と同様の結果であった。一方、超音波の照射時間を長くした場合でも結晶粒の微細化効果に大きな変化は見られず、坩堝上部まで結晶粒の微細化効果が発現する超音波の照射条件は本実験範囲内では存在しなかった。

超音波の照射時間の影響を詳細に評価するため、 macros 組織写真から結晶粒の微細化領域がサンプル全体に占める割合を算出した。超音波の照射時間と結晶粒微細領域割合の関係を Fig. 5 に示す。これより、1秒間の超音波照射によって結晶粒の微細領域割合は25%程度まで急激に増加するが、その後10秒間の超音波照射において微細領域割合は10%程度しか増加せず、超音波照射による結晶粒の微細化効果は短時間の照射時間で飽和することが明らかとなった。以上より、結晶粒の微細化領域の占有率に対する超音波の照射時間の影響は線形ではなく、他の要因が絡んだ複雑な現象であることが示唆された。

超音波を照射していないサンプルと超音波を10秒間照射したサンプルの macros 観察の結果を Fig. 6 に示す。坩堝上部は粗大結晶粒領域、坩堝下部は微細結晶粒領域を観察した結果である。これより、超音波を照射したサンプルの坩堝下部では結晶粒が粒状で均一であり、超音波による微細化効果が発現されていること

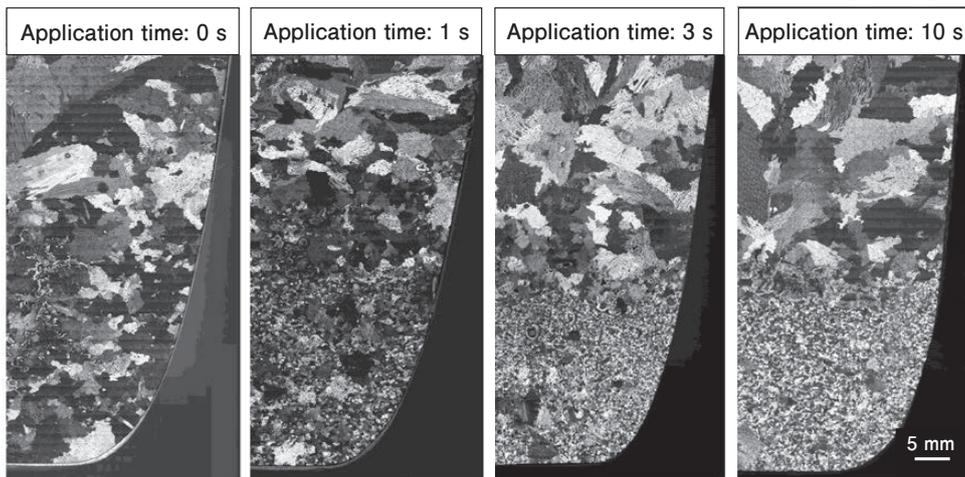


Fig. 4 Macrostructure of solidification samples on each application time.

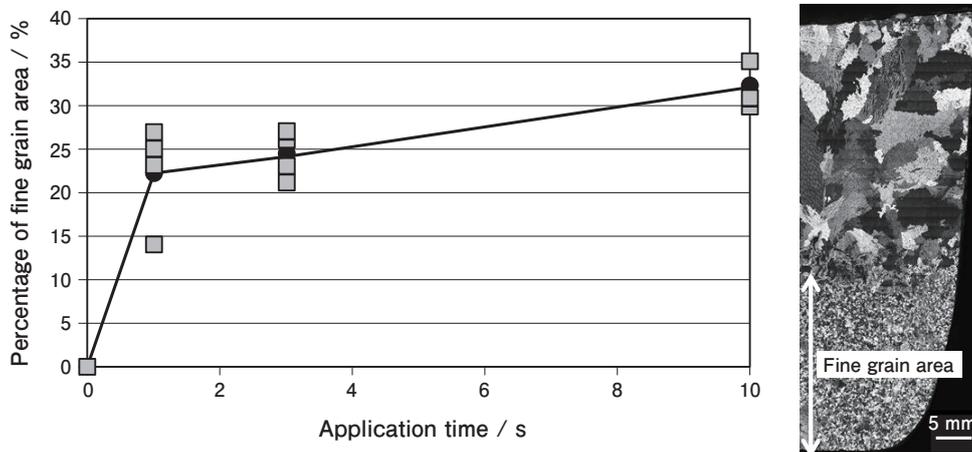


Fig. 5 Relationship between ultrasonic application time and percentage of fine grain area.

が確認された。一方で、超音波を照射していないサンプル及び超音波を照射したサンプルの坩堝上部ではデンドライトが発達した結晶粒であった。したがって、超音波を10秒間照射しても坩堝上部に対して結晶粒の微細化効果は発現されず、超音波照射は結晶粒組織に影響を与えていないものと判断できる。

超音波を照射していないサンプルと超音波を10秒間照射したサンプルに対し、坩堝上部と坩堝下部でCu濃度の測定を行った結果をFig. 7に示す。超音波照射の有無に関わらず坩堝上部ではCu濃度が高く、坩堝下部ではCu濃度が低い、マクロ的な成分偏析が生じていることがわかった。また、超音波の照射によって坩堝上部におけるCu濃化の程度が大きくなる傾向があり、最大で3.4mass%程度まで濃化することが確認された。坩

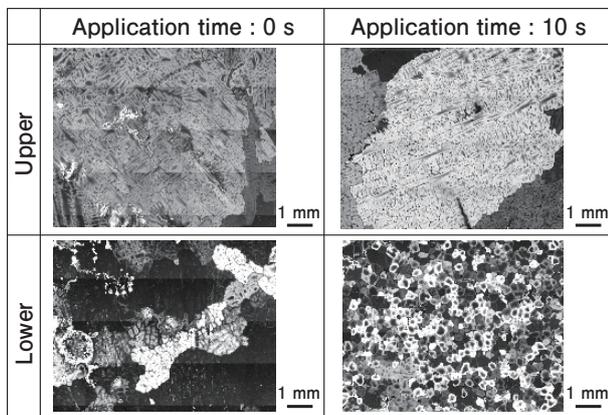


Fig. 6 Microstructure of solidification samples on both area.

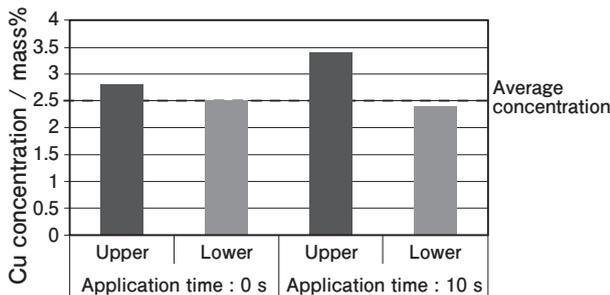


Fig. 7 Result of Cu concentration measurement.

堝下部は、超音波照射の有無に関わらず初晶が沈降していることが考えられるため、初期の溶湯成分から発生する初晶の組成であると考えられる。これに対し、坩堝上部は超音波の照射によって多量の初晶が発生し、これに伴い溶質元素が残存液相部に排出されるため、溶質元素のCu濃化が顕著であったと推察される。

以上の結果から、超音波の照射によって坩堝下部でのみ結晶粒が微細化した理由について考察を行う。坩堝内の超音波照射を伴う凝固過程の模式図をFig. 8に示す。Fig. 8 Aにおいて、所定の溶湯温度に対して超音波照射を行うことで、Fig. 8 Bの通り溶湯中に多量の初晶が生成することとなる。ここで、Al-2.5mass%Cuは共晶系合金、かつ亜共晶組成であるため、超音波照射に伴って生成する初晶は溶質濃度が低い α -Al相である。生成した初晶は溶湯よりも密度が大きいため坩堝下方に沈降することで、坩堝上部には相対的に溶質濃度が高い溶湯が存在することになる (Fig. 8 C)。この時に、坩堝下部では超音波照射で生じた多量の初晶が沈降しているため、結晶粒の微細化が生じるものと推察される (Fig. 8 D)。しかしながら、本考察では超音波の照射時間を長くしても坩堝上部で結晶粒が微細化しない現象を説明できない。そこで、溶質元素のマクロ的な偏析に伴う液相線温度の変化も考慮してさらに考察を行う。

冷却曲線と初期溶湯のCu濃度 (2.5mass%) における液相線温度、Cu濃化部 (3.4mass%) における液相線温度の関係をFig. 9に示す。Fig. 8 Aの状況では溶湯が液相線温度以下の狙い温度に達したタイミングで超音波を照射したため、微細化効果が大きい。これに対し、多量の初晶が生成し、残存溶湯中にCuが濃化した際 (Fig. 8 C) には液相線温度が低下するため、溶湯温度が変化しない場合には結晶粒の微細化効果が小さくなることが考えられる。Cu濃化部の液相線温度は約652℃まで低下すると想定されるが、上部熱電対で測定した冷却曲線において652℃まで溶湯温度が低下するのは超音波照射から約700秒後であった。すなわち、最長で10秒間の超音波照射を行っても、Cuの濃化に伴い残

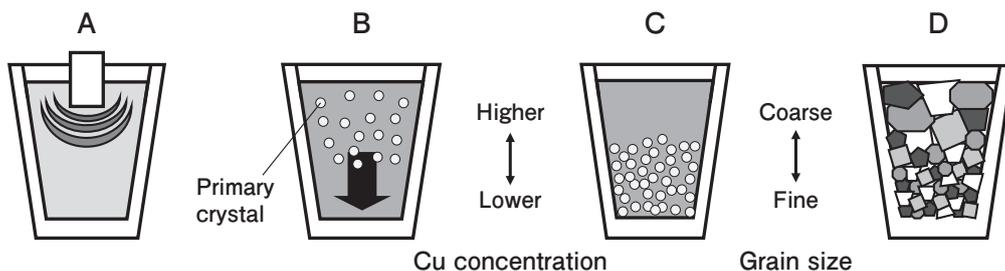


Fig. 8 Schematic diagram of solidification process under ultrasonic application.

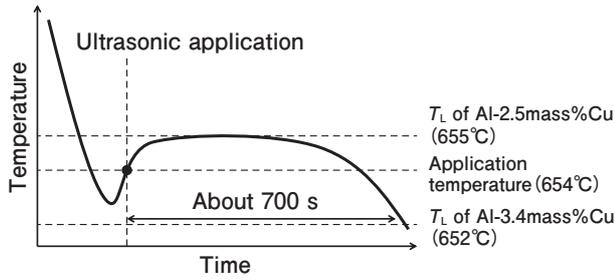


Fig. 9 Relationship between liquidus temperature and ultrasonic application temperature on the cooling curve.

存溶湯の液相線温度が低下するため、液相線温度以上で超音波を照射し続けることになり、結晶粒の微細化効果が小さくなったと推測される。以上より、鋳造材全体で超音波照射による結晶粒微細化を実現するためには、溶質元素のマクロ的な偏析現象に伴う液相線温度の変化を考慮して超音波の照射時間や照射タイミングを設定する必要があると言える。

4. 結論

凝固過程におけるマクロ的な成分偏析に伴う液相線温度の変化が超音波による結晶粒の微細化効果に大きな影響を及ぼすことを明らかにした。超音波照射による結晶粒の微細化効果は、液相線温度直下で照射することで最も大きくなる。凝固過程において溶湯中の溶質元素濃度が変化する場合には溶湯の液相線温度も変化するため、超音波を照射する時間や照射するタイミングを適宜、最適化する必要がある。

参考文献

- 1) K. Matsuda, T. Takehara, M. Yang, H. Uno, T. Kubo, G. Miyano and M. Yoshida: Metallurgical and Materials Transactions A, 47A (2016), 2509-2516.
- 2) 大野篤美：新訂金属凝固学，他人書館，(1977)，43-65.



蓬田 翔平 (Shohei Yomogida)
(株)UACJ R&Dセンター 第二研究部



宮野 学 (Gaku Miyano)
(株)UACJ 鋳鍛 鋳鍛工場 開発技術部



久保 貴司 (Takashi Kubo)
(株)UACJ R&Dセンター 第二研究部
博士(工学)