

解説

研究会成果報告-7

ミクロ・マクロ偏析制御研究会の 活動と成果の概要

Activity and Results of Research Group for Control of
Micro- and Macro- segregation

江阪久雄

Hisao Esaka

防衛大学校
機能材料工学科
教授

1 はじめに

昔から鑄造工程の三大欠陥は割れ、偏析、介在物でした。これらの欠陥を撲滅させるべく、多くの研究開発がなされてきました。平成12年以降の講演大会の発表件数を調べてみると、割れや介在物のテーマは継続して多いものの、「偏析」に関するテーマは姿を消していました。しかし、凝固・組織形成フォーラム活動等を通して、困っている課題としてマクロ偏析がある、ということを知っていました。すなわち、発表がなかったのは鑄片の偏析問題が解決された訳ではなく、水面下で、黙々と改善に向けた活動が行われていた、ということでした。加えて、鑄鍛造品工学フォーラム活動を通して知己のロール製造の技術者からも偏析問題で困っている、という話がありました。共通項の有無は未知数ながら、マクロ偏析について一緒に研究会活動をしようという機運になりました。

そこで、ミクロ偏析モデルを見直し、連続鑄造と遠心鑄造に発生するマクロ偏析の生成メカニズムを検討し、偏析の低減策を提示することを目標に、平成21年度から活動を開始しました。実働研究期間3年、まとめの期間1年の計4年間の活動でした。研究会は合計10回開催し、講演大会では平成22年9月と平成24年9月の2回シンポジウムを開催しました。報告書を作成するとともに、鉄と鋼の平成25年2月号に「凝固時の偏析の生成および制御」と題する特集号を発刊しました¹⁾。

2 全体構成

図1に示すように4つのグループに分け、学側委員がそれぞれ責任を持って進める方針にしました。産側委員には偏析問題の開示をお願いすることはせず、全体の議論にいつも参加し、研究内容が産業界のニーズに合致するようステアリン

グしてもらう、という重要な役割をお願いしました。ただし、既発表の内容については研究会に担当者に来てもらって発表していただくこともありました。

3 主な研究成果

3.1 凝固組織の評価

凝固組織の定量的評価というと、柱状デンドライトの一次枝間隔 (λ_1)、二次枝間隔 (λ_2) だけと言っても過言ではありません。後述のように、マクロ偏析は凝固組織が微細で複雑であれば抑制できる可能性があると考えられます。「微細さ」は λ_1 、 λ_2 で表現は可能ですが、「複雑さ」はこれらでは表現できません。感覚的な「複雑さ」を表す指標としてフラクタル次元を研究会では試用しました^{2,4)}。初晶の形を抽出した後、適切な画像処理を行い、等軸晶や柱状晶に応用し、複雑さの指標として使えそうであるとの確認が得られました。同時に初晶の外周長さを同じ面積の円周で除した「無次元周囲長」も複雑さの指標となりえることがわかりました⁴⁾。またこれ

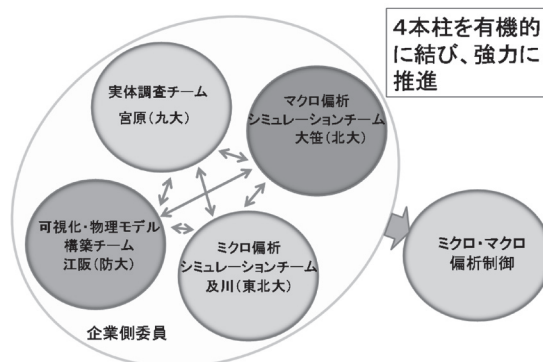


図1 研究会の体制

を用いて実際の鋳片の組織調査から、偏析部のフラクタル次元は正常部よりも高いという傾向が明らかになりました²⁾。

3.2 ミクロ偏析の評価

研究会では超合金のHastelloy G-2のミクロ偏析挙動を解析しました。鋳造したサンプルをEPMAで樹間の偏析および生成した晶出物を詳細に調べました。いくつかのミクロ偏析モデルと比較したところ、Multi-Phase-Field法が凝固組織形態のシミュレーションもできかつミクロ偏析の予測にも適用できることが明らかになりました⁵⁾。

またロール材に用いられる多合金鋳鉄の凝固過程を熱分析と晶出する共晶炭化物の晶出時期および晶出量を調べました。M₂C系の炭化物の晶出量は図2に示すように冷却速度の増加により減少することがわかりました⁶⁾。これは熱力学計算を援用した凝固計算からは予測できない事項で、分配係数などが冷却速度や組成の影響により変化することを示しています。熱力学計算に必要なデータベースを整備する必要がありますことが明らかになりました。

3.3 マクロ偏析の評価

(1) 透過率の統一的記述

マクロ偏析は凝固末期に樹間に残った液相が何らかの力のために流動し、どこか特定の場所に集積するために起こります^{7,8)}。流動の駆動力は凝固変態および熱収縮、パルジング等の機械的変形、溶質を濃縮した液相の密度差などが考えられます。ここで液相の流動部の抵抗が大きければ、液相はそれほど流れないため、マクロ偏析を抑えられます。流動の難易度は透過率 (permeability) という因子で評価されます。実際には三次元での現象ですので、研究会では計算による評価を試みました⁹⁾。図3のようにフェーズフィールド計算により二次元の柱状デンドライトを形成し、これから3D-CADにより3

次元の柱状デンドライトを構築しました。その後、領域内の成長方向に対して平行と垂直の2方向について流動計算を行い、透過率を求めました。その結果は従来報告されている実験結果¹⁰⁻¹²⁾と良い一致を示し、本研究で求めた改良型Kozeny-Carmanモデルにより統一的に透過率を記述できることが明らかになりました。なお、この研究成果は前述の「鉄と鋼」の特集号に掲載され、平成26年度の依論文賞を受賞しました。

凝固組織形態の複雑さがマクロ偏析の抑制につながると考えられることから、炭素鋼に対する添加元素の影響を明らかにするためにFe-C-X系でのフェーズフィールド計算によるデンドライト形態の比較を行いました⁴⁾。その結果を図4に示します。Mnを添加すると単純な形態ですが、Pを添加すると非常に複雑になります。因子分析の結果、溶質の分配係数、液相内の溶質の拡散係数などが総合的に作用したために組織形態が複雑化したと考えられました。

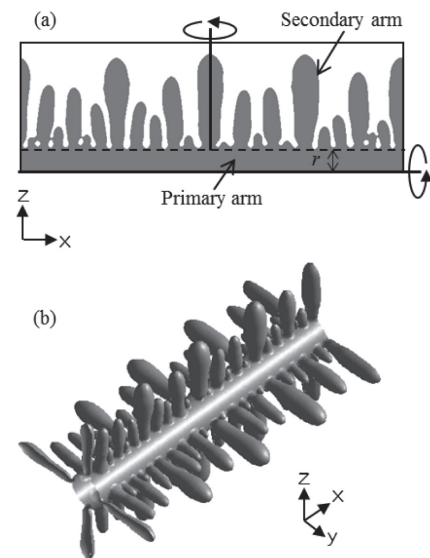


図3 透過率を計算する三次元デンドライト形態の一例
(a) フェーズフィールド計算による2次元デンドライト
(b) CADで作成した3次元デンドライト

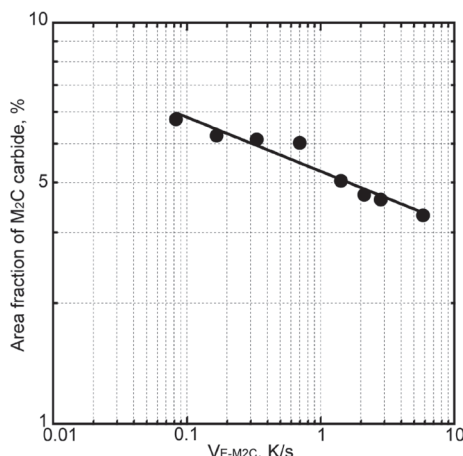


図2 M₂C炭化物面積率 (S_{M_2C}) と冷却速度 (V_{E-M_2C}) の関係

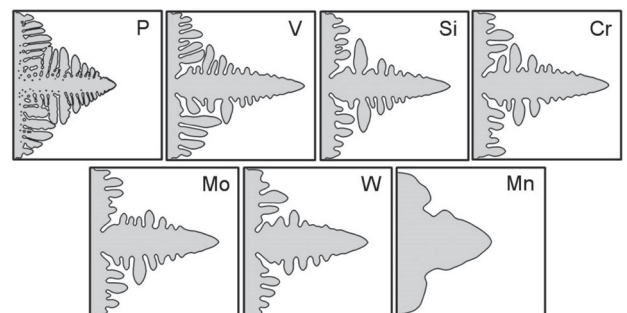


図4 フェーズフィールドシミュレーションにより得られた Fe-0.35mass%C- 0.40mass%X (X = Cr, Mn, Mo, P, Si, V, W) 三元系合金のデンドライト形態

(2) フレックセル生成モデルの発展

マクロ偏析の代表例の一つとして、研究会ではチャンネル型偏析を取り上げました。すでにいくつかのシミュレーションモデルは提案されていましたが^{13,14)}、本研究会では平衡状態図の計算とマクロ偏析モデルとを組み合わせた二次元モデルを新たに三次元に拡張し、チャンネル偏析が筋状なのか板状なのかを検証しました¹⁵⁾。図5に示すような実際の偏析との比較結果が得られ、以下の重要な結論が導かれました。(1) 偏析は筋状であり、実験結果とよく一致する。(2) ある程度大きな凝固遅れがまず発生し、これが徐々に小さくなることにより、筋状になる。(3) 筋状偏析部には負偏析部が凝固進行側に必ず存在し、偏析周辺に発生する流動により生成する。

また、同様の考え方で中心偏析のモデル化を試みました¹⁶⁾。連続鋳造の中心偏析生成には伝熱・冷却のむら、ストランド内の溶鋼流動など連続鋳造特有の現象が原因の凝固不均一が関係している可能性が示唆されました。

(3) ラボ実験によるマクロ偏析の評価

凝固組織制御によるマクロ偏析制御の可能性を実験的に探るため、ラボサイズでのマクロ偏析再現を試みました。微細化剤により容易に等軸晶化できること、共晶面積率を測定することによりマクロ偏析を定量化できることから、Al-Cu合金をモデル合金として用いました。ブルーム連鋳でのマクロ偏析生成をイメージして、鋳型の高さ方向のほぼ中央にチル板を設けることにより、ブリッジングを起こしました。これにより、図6に示すようなメカニズムで凝固末期の融液がサククションにより凝固最終部に流入し、収縮孔生成とともにマクロ偏析が生成することを確認しました^{3,17)}。

3.4 可視化・物理モデルによる偏析評価

(1) セン断変形による偏析生成

遠心鋳造法やダイキャスト法などの高圧鋳造法などではバ

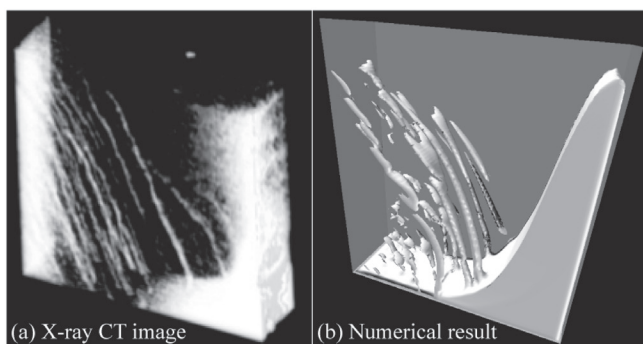


図5 横型一方向凝固したSn-Bi合金のフレックセル偏析の解析 (a) X線CTイメージによる実態調査結果、(b) 本モデルによる計算結果

ンド状偏析が発生することがありますが、これは凝固の末期に作用する大きな力による固液共存体の変形が要因と考えられています¹⁸⁻²⁰⁾。しかし、凝固後の鋳片の実態調査からは変形の様子は理解できません。そこで、変形中の固液共存体の様子を直接観察することは偏析生成のメカニズムを理解するうえで非常に重要です。本研究会では図7に示すような薄片試料中にアルミナ板を押し込むことができる実験装置を作成し、Al-15wt%Cu合金の固液共存域に保持した状態でせん断変形を与えました。固相の動き、バンド状偏析の生成過程をSPRING-8により直接観察し、固相の並進運動、回転運動を解析しました²¹⁾。せん断歪速度はせん断領域近傍にバンド状に局在化しており、結果としてその部分に低固相率の領域が発生しました。この低固相率の領域が偏析部に発展すると考えられます。

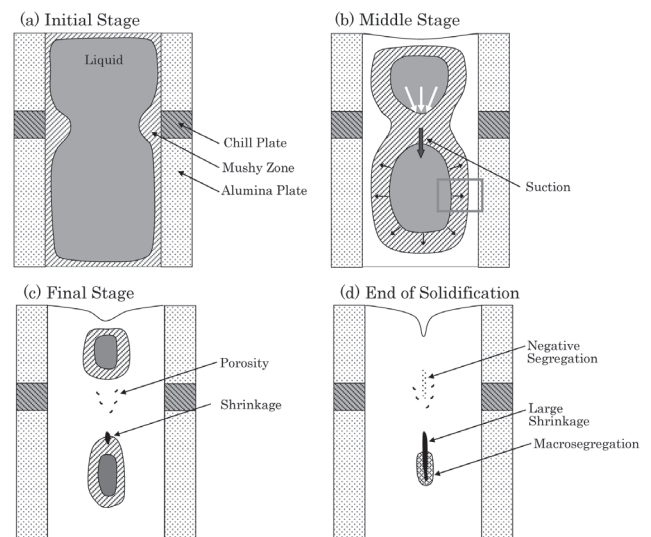


図6 偏析再現鋳型での凝固様式と偏析生成メカニズムの模式図による説明 (a) 凝固初期、(b) 凝固中期、(c) 凝固末期、(d) 完全凝固後

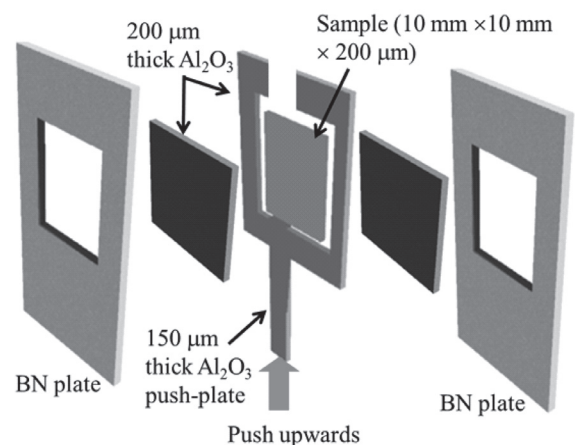


図7 固液共存体 Al-Cu 合金のせん断変形試験用のセルの模式図

(2) 遠心 casting プロセスの解析 —可視化実験—

横型の遠心 casting プロセスで製造される熱間圧延用ロールにはラミネーション偏析と呼ばれるマクロ偏析の問題があります^{20,22,23)}。これは初晶の γ 相が多く比較的やわらかい部分と共晶炭化物が多く硬い部分が同心円状に分布する、というもので、ひどい場合には圧延中の衝撃によりロール表面の一部が脱落することもあります。本研究会では遠心力を受けながら凝固するというプロセスそのものがよく理解できていなかったため取り組みました。ここでは組織形成に及ぼす横型と縦型の違いについて紹介します²⁴⁾。図8に示すように、横型遠心 casting では自由表面の波立ちのために激しい流動が起こり、柱状デンドライトの分断のために等軸晶化します。一方、縦型遠心 casting では自由表面は安定し、液相内にも全く流動が生じないために、等軸晶が生成しませんでした。縦型ではラミネーション偏析は生成しないことが知られていますので、等軸晶生成およびその挙動がマクロ偏析生成には重要であることがわかりました。

(3) 遠心 casting プロセスの解析 —計算によるアプローチ—

従来から casting シミュレーションに多く用いられている差分法や有限要素法などのオイラー系格子法に分類される手法

では移動現象や自由表面の記述が非常に複雑になります。それに対し、ラグランジュ系解析手法の一つで、多相・多領域問題の移動現象に適した手法として粒子法があり、これは大型インゴットの表面の引けやマクロ偏析の解析のほか遠心 casting プロセスの解析に期待できます。本研究会では主に遠心 casting プロセスの解析を進めました²⁵⁾。500rpmで回転する直径100mmの鋳型に溶鋼を casting した計算例を図9に示します。遠心力により注湯後1秒以内にパイプ状になる様子がシミュレーションできています。液相厚みは上面の方が厚くなることも示されています。また、個別の粒子に着目して追跡した結果は透明有機物を用いたシミュレーション実験での等軸晶の動きと一致しており、解析の妥当性を示しています。

また、遠心 casting 中の液相流動の数値計算も本研究会で試みました^{26,27)}。その結果、重心の位置が周期的に変化することや、表面波の伝播現象など興味深く重要な事項が明らかになりました。

4 まとめ

以上、多く得られた成果の中からエッセンスを紹介しました。詳しくは平成25年2月に発刊された「鉄と鋼」を参照していただけたら幸いです。

平成26年度からは本研究会の後継にあたる「固液共存体の挙動制御によるマクロ偏析制御研究会」(主査: 北海道大学 大野宗一准教授)が発足し、すでに活動を開始しています。こちらの研究成果についても、会員の皆様に講演大会あるいは論文誌等で紹介してゆくことになると思いますので、注目していただけたら幸いです。

研究会の成果の一つは今回紹介したような casting・凝固分野の学術的な内容です。もう一つの重要な成果は、長らく講演大会から姿を消していた偏析関係の発表が再び増え始めたこと、鉄鋼に比較して業界規模の小さい casting ロール業界の交流が活発になったことなど種々のレベルでの産学の議論ができる土壌が作れたことが挙げられると思います。この分野での

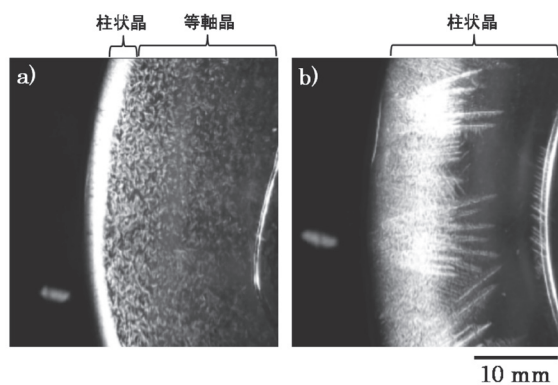


図8 重力加速度の方向を変更した遠心 casting の凝固組織
a) 横型遠心 casting、b) 縦型遠心 casting

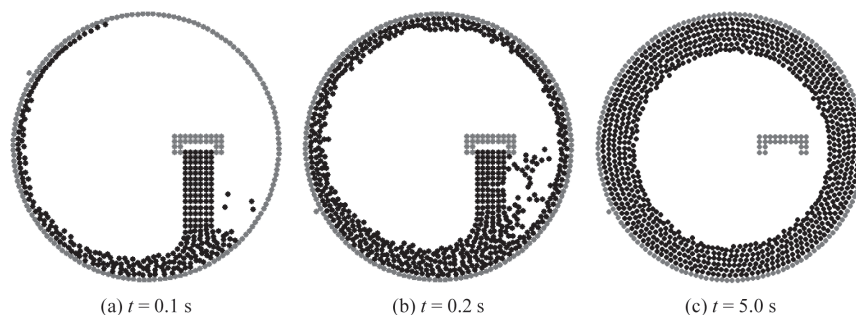


図9 粒子法を利用した横型遠心 casting のシミュレーション結果: 500rpm

オールジャパンでの取り組みがさらに発展することをご期待ください。

参考文献

- 1) 江阪久雄：鉄と鋼, 99 (2013), 71.
- 2) 山本昌宏, 成田一人, 宮原広郁：鉄と鋼, 99 (2013), 72.
- 3) 佐藤文人, 江阪久雄, 篠塚計：鉄と鋼, 99 (2013), 108.
- 4) 菅原諒介, 伊藤利久, 棗千修, 大笹憲一：鉄と鋼, 99 (2013), 126.
- 5) 及川勝成, 平木浩之, 安斎浩一：鉄と鋼, 99 (2013), 80.
- 6) 山本郁, 笹栗信也, 松原安宏：鉄と鋼, 99 (2013), 87.
- 7) M.C.Flemings : Solidification Processing, McGraw-Hill, New York, (1974), 214.
- 8) W.Kurz and D.J.Fisher : Fundamentals of Solidification, Trans.Tech.Publications, Aedermannsdorf, Switzerland, (1992), 117.
- 9) 棗千修, 高橋大喜, 河嶋佳純, 谷川英司, 大笹憲一：鉄と鋼, 99 (2013), 117.
- 10) K.Murakami, A.Shiraishi and T.Okamoto : Acta Metall., 31 (1983), 1417.
- 11) K.Murakami, A.Shiraishi and T.Okamoto : Acta Metall., 32 (1984), 1423.
- 12) C.Y.Liu, K.Murakami and T.Okamoto : Mater.Sci. Technol., 5 (1989), 1148.
- 13) M.C.Schneider, J.P.Gu, C.Beckermann, W.J.Boettinger and U.R.Kattner : Metall.Mater.Trans.A, 28A (1997), 1517.
- 14) S.D.Felicelli, D.R.Poirier and J.C.Heinrich : Metall. Mater.Trans.B, 29B (1998), 847.
- 15) 澤田朋樹, 及川勝成, 安斎浩一：鉄と鋼, 99 (2013), 135.
- 16) 村尾武政, 梶谷敏之, 山村英明, 安斎浩一, 及川勝成, 澤田朋樹：鉄と鋼, 99 (2013), 94.
- 17) 佐藤文人, 江阪久雄, 篠塚計：鉄と鋼, 99 (2013), 101.
- 18) C.M.Gourlay and A.K.Dahle : Nature, 445 (2007), 70.
- 19) C.M.Gourlay, B.Meylan and A.K.Dahle : Acta Mater., 56 (2008), 3403.
- 20) 姜一求, 大中逸雄：鑄造工学, 69 (1997), 119.
- 21) 柳楽知也, 横田大和, 森田周吾, 安田秀幸, 吉矢真人, C.M.Gourlay, 杉山明, 上杉健太郎, 梅谷啓二：鉄と鋼, 99 (2013), 141.
- 22) 姜一求, 大中逸雄：鑄造工学, 69 (1997), 240.
- 23) 姜一求, 大中逸雄：鑄造工学, 69 (1997), 815.
- 24) 江阪久雄, 徳差圭, 篠塚計：鉄と鋼, 99 (2013), 149.
- 25) 平田直哉, Y.M.Zulaida, 安斎浩一：鉄と鋼, 99 (2013), 167.
- 26) 鈴木悠, 岩井一彦：鉄と鋼, 99 (2013), 156.
- 27) 鈴木悠, 岩井一彦：鉄と鋼, 99 (2013), 161.

(2015年5月21日受付)