

## 研究部会紹介

# アルミニウムの凝固・微細化・清浄化研究部会

## Sectional meeting on solidification, refinement and purification of aluminum and its alloy

嶋崎 真一\*

Shin-ichi SHIMASAKI\*

### 1. 研究部会設立の背景

#### 1.1 本研究部会の前身

本研究部会は、軽金属学会でこれまでに活動していた鋳造・凝固部会の流れをくむものである。近年では「アルミニウム溶湯と耐火物の反応研究部会」(平成10年度～平成14年度)、「アルミニウム溶湯と不定形耐火物の反応研究部会」(平成15年度～平成18年度)、「アルミニウム溶湯による耐火物侵食機構研究部会」(平成19年度～平成22年度)、「アルミニウム溶解炉における複合酸化物の異常生成研究部会」(平成23年度～平成26年度)など、主にアルミニウム溶解炉中における溶湯と耐火物の反応について、16年間にわたる精力的な研究が行われてきた。アルミニウム溶湯への耐火物起因の汚染挙動や溶解炉内における複合酸化物の生成挙動などについての詳細が明らかにされ、それらの成果は各部会の研究報告書などにまとめられている<sup>1)~5)</sup>。

平成26年度に本研究部会の前身である「アルミニウム溶解炉における複合酸化物の異常生成研究部会」の活動が終了した際に、次の研究部会においては凝固・微細化・清浄化の3つをターゲットとして活動を継続することが確認され、本研究部会が平成27年度に設置された。通称は凝固研究部会である。

#### 1.2 微細化剤による凝固プロセス

現代のアルミニウム鋳造業においては、ダイカスト・鋳物・圧延材を問わず、多くの品種において強度向上や欠陥防止効果を狙って微細化剤が用いられている。凝固組織の結晶粒微細化・等軸晶化によって、アルミニウム製品の鋳造割れ防止、機械的特性や表面処理の外観の改善などの効果が得られる。工業的にはTiB<sub>2</sub>粒子などを含有したAl-Ti-B系の微細化剤が主に用いられている。

微細化剤粒子が凝固核サイトとなることで結晶粒数が増え、結果として凝固組織が等軸晶化・微細化されると考えられている。Turnbull and Vonnegut<sup>6)</sup>やBramfit<sup>7)</sup>らの古典的理論以来、異質核を起点とした不均質核生成についての研究が数多く行われてきた。ある異質核が凝固核サイトとして有効に作用するかどうかは、(1)結晶の核生成に必要な界面エネルギーを低下させる能力、(2)異質核と凝固相の結晶間の整合性、の2点によって整理されると考えられている。

一方で、微細化剤による凝固組織の等軸晶化・微細化はいまだ不明な点が数多く残されている。実操業においては、投

入した微細化剤粒子のわずかな割合(数パーセント程度)のみが凝固核サイトとして有効に作用し、残りの大半は有害な微細化剤起因の介在物粒子となってしまうことが知られている。微細化剤添加による効果はある一定のところ(典型的には200 $\mu$ m前後)で頭打ちになってしまい、それ以上は微細化剤の添加量を増やしてもほとんど効果が得られない。また、微細化剤の効果はあまり安定しておらず、甚だしくは、同じ微細化剤を用いてもロットによって効果が異なる場合があるとも言われている。

もう一つの実践的な問題として、微細化剤による微細化能の評価手法が統一されていないために、ある試験によって得られた結果を、別の試験で再現することが難しいという点も指摘されている。微細化能には、合金種・微量成分・溶湯温度・溶湯の量・使用したるつば・冷却条件・サンプリング方法・微細化剤の形態・添加量・添加後の攪拌方法などの多くの条件が関与していると考えられており、普遍的な定式化が難しいのが現状である。

#### 1.3 溶湯の清浄化

前述したように、投入された微細化剤粒子の大半は、凝固核サイトとして使われることなく、微細化剤由来の介在物粒子となって溶湯中に残存する。TiB<sub>2</sub>粒子は凝集しやすい性質を有しており<sup>8)</sup>、凝集・肥大化した凝集体が製品に残存すると製品品質に悪影響を与えてしまうため、後の工程で何らかの手段で除去しなければならない。微細化剤の効果が安定していないゆえに、確実に期して過剰に微細化剤を添加する操業が常態化していることも、微細化剤由来の介在物問題を大きくしている。

溶湯の清浄化を目的として、溶湯保持炉において精錬用フラックス添加による溶湯処理が行われている。フラックスは溶湯からのアルカリ金属、介在物や水素ガスなどの除去などの多くの機能を担っており、これまでフラックスとして塩化物やフッ化物、各種の塩などを組み合わせたものが用いられてきた。近年の環境規制の強化により、塩素ガス吹込みや塩化物・フッ化物の使用が制限されてきており、新規のフラックスの設計・開発への機運が高まっている<sup>9)</sup>。

### 2. 委員構成

平成29年4月現在の本研究部会の委員構成を表1に示す。設置以来、若干のメンバーの変更があったが、平成29年4月現在、学側からは6名、産側からは8名、合計14名がメンバー

\* 国立高等専門学校機構 香川高等専門学校 機械電子工学科 (〒761-8058 香川県高松市勅使町355) Department of Electro-Mechanical Systems Engineering, National Institute of Technology, Kagawa College (355 Chokushi-cho, Takamatsu-shi, Kagawa 761-8058)

受付日:平成29年4月21日

表1 アルミニウムの凝固・微細化・清浄化研究部会の構成委員 (平成29年4月現在, 順不同)

氏名	所属	備考
及川 勝成	東北大学	部会長
嶋崎 真一	香川高等専門学校	
平木 岳人	東北大学	
安田 秀幸	京都大学	
渡辺 義見	名古屋工業大学	
新井 宏忠	八戸工業高等専門学校	
久保 貴司	(株)UACJ	副部会長
皆川 晃広	(株)UACJ	
森下 誠	(株)神戸製鋼所	
加藤 智史	昭和電工(株)	
勝亦 秀明	三菱アルミニウム(株)	
石渡 保生	日本軽金属(株)	
林 雅章	日本軽金属(株)	
正留 省吾	KMアルミニウム(株)	

として活動中である。

### 3. 活動内容

本研究部会では、以下に示すような活動を行っている。なお、各活動には主に担当する学側委員が決まっているが、産側委員も含めて担当の枠を超えてお互いの活動に積極的に関与している。年間に4回程度研究部会を開催し、研究の進捗状況の報告やそれに対する議論、意見交換や、微細化能試験見学を実施している。

#### 3.1 微細化剤の微細化能試験

本研究部会においては、信頼性・再現性の高い微細化能試験を確立・提言することを目指して、産学協同で試験を行っている。具体的には、米国アルミニウム協会が策定した微細化能試験AA-TP1, 2012<sup>10)</sup> (以後TP1試験と呼称) に準拠し、国内の軽金属メーカーが実際に使用している微細化剤を用いて、合金種類・温度・添加量・添加時間などをパラメータとして網羅的に試験を行う。得られた結果に基づいて、微細化能に及ぼす各種要因を整理することを通じて、微細化剤の微細化機構を明らかにする。主に嶋崎が担当している。

TP1試験はアルミニウム溶湯10kgを用いる大掛かりな試験であり、大学等の学術機関で手軽に実施するのが難しい。そこでTP1試験と並行して小型の装置を用いた微細化能試験を行い、その信頼性や再現性を確認したうえで、新しい微細化能試験の策定・提言を試みる。小型試験は主に渡辺委員が担当している。

各社が実際に用いている微細化剤を収集し、部会において共同で使用する微細化剤の選定・準備を終え、現在、微細化能試験の予備試験を行っている段階である。

#### 3.2 微細化剤粒子の凝集・肥大化現象

微細化剤中に含まれている微細化粒子があらかじめ凝集している場合、微細化能に対して悪影響を及ぼしている可能性がある。微細化剤粒子の凝集状態を観察し、微細化能に対する影響を検討する。

また、微細化剤粒子の凝集挙動の理論的な解析を行い、添

加された粒子の凝集や輸送される様子を予測する。微細化剤を最も効率よく使用できる操業条件を提言することを目標としている。主に嶋崎・新井委員が担当している。

#### 3.3 新規微細化剤の開発

時間とともに分解・消滅する粒子を異質核サイトとして利用することができれば、微細化剤由来の介在物を生じない新しいタイプの微細化剤となる可能性がある。渡辺委員が担当している。

#### 3.4 凝固のその場観察

近年、放射光を応用した観察技術が急速に発展しつつあり、従来では不可能であった熔融金属の凝固プロセスのその場観察が現実のものとなってきている。研究部会で準備した共通試料を用いて微細化剤による等軸晶化・微細化を観察することによって、微細化剤による凝固プロセスの解明を目指す。安田委員が担当している。

#### 3.5 フラックス

溶湯処理に用いられるフラックス設計に必要となる計算状態図をつくるための熱力学データベースを構築する。さらに粘性予測のためのモデルを構築する。及川委員が担当している。

### 4. 最後 に

本研究部会においては、アルミニウムの凝固・溶湯処理プロセスにおける様々な現象を実証的に検証し、その挙動を学術的に明らかにしていくことを目的として活動を行っている。特に微細化剤については、古くから研究が盛んに行われているにもかかわらず、不明な点が多く残されているのが現状である。本研究部会の活動を通じて、微細化能試験の基準を確立し、今後の微細化研究の発展に寄与することができれば、望外の喜びである。研究委員会をはじめ会員各位からのご指導ならびにご助言をお願いします。

なお本研究部会では、随時参加企業を募集しております。微細化剤・介在物粒子・フラックスなどに興味がある方は是非ご連絡ください。

### 参 考 文 献

- 1) 研究部会報告書No. 29「アルミニウム中の介在物の生成挙動と欠陥事例集」, 鋳造凝固部会編, 軽金属学会, (1995).
- 2) 研究部会報告書No. 42「耐火物によるアルミニウム溶湯の汚染挙動と評価法」, アルミニウム溶湯と耐火物の反応研究部会編, 軽金属学会, (2003).
- 3) 研究部会報告書No. 48「アルミニウム溶湯の汚染挙動に及ぼす不定形耐火物組成の影響」, アルミニウム溶湯と不定形耐火物の反応研究部会編, 軽金属学会, (2006).
- 4) 研究部会報告書No. 53「Al-Mg合金溶湯と硫酸バリウム添加耐火物の濡れ性および反応性」, アルミニウム溶湯による耐火物浸食機構研究部会編, 軽金属学会, (2010).
- 5) 研究部会報告書No. 63「アルミニウム溶解炉における複合酸化物の異常生成—調査および再現試験—」, アルミニウム溶解炉における複合酸化物の異常生成研究部会編, 軽金属学会, (2015).
- 6) D. Turnbull and B. Vonnegut: Ind. Eng. Chem., **44** (1952), 1292–1298.
- 7) B. L. Bramfitt: Metall. Trans., **1** (1970), 1987–1995.
- 8) 李 涛, 嶋崎真一, 谷口尚司, 上杉健太朗, 成田駿介: 鉄と銅, **101** (2015), 148–157.
- 9) 常川雅功: 軽金属, **54** (2004), 75–81.
- 10) The Aluminum Association: Standard Test Procedure for Aluminum Alloy Grain Refiners, (2012).