

アルミニウム合金の電磁攪拌凝固過程のその場観察

志賀 敬次

Shiga Keiji

1. はじめに

電磁場を利用したアルミニウム合金中の鉄分離プロセスを設計するためには、電磁場下での鉄を含む金属間化合物の組織形成過程を理解する必要がある。電磁場下でアルミニウム合金を凝固させると、溶解したアルミニウム合金（溶湯）と結晶の導電率の差に応じた電磁分離力が晶出した金属間化合物に作用する。その結果、金属間化合物が溶湯中を移動し、試料の外周部に偏在してマクロ偏析が発生すると考えられている。しかし、電磁攪拌による溶湯の温度場や濃度場の変化は金属間化合物の成長に影響を与えるため、電磁場下での金属間化合物の組織形成過程は複雑であり、その詳細は十分に解明されていなかった。本稿では、筆者らが開発した電磁攪拌下での金属凝固をX線イメージング可能な装置を用いて、Al-10Si-2Fe-2Mn合金中の金属間化合物 α -Al(FeMn)Siの結晶成長過程を可視化した研究結果を報告する。

2. 研究背景

近年、カーボンニュートラルやサーキュラーエコノミーの実現に向けた研究として、アルミニウムのリサイクル技術が注目されている。アルミニウム合金は用途に応じて圧延用合金と鋳造用合金に分類され、圧延用合金は一次合金を基に、鋳造用合金はス

クラップを溶解凝固して製造される二次合金を基に作られている。一次合金の製造では大量の二酸化炭素を排出する電解精錬プロセスが用いられ、環境負荷が大きい。一方、二次合金の製造では温室効果ガスの排出量が一次合金の5%以下と低く、環境負荷軽減に有効である。しかし、スクラップは合金元素濃度が高く、純度を上げて圧延用合金相当の材料に再生することが困難であるため、現在は元素を意図的に添加して鋳造材に利用するカスケードリサイクルが行われている。筆者の所属する(国研)産業技術総合研究所（産総研）は、溶湯中で結晶化した高純度アルミニウムを分離・回収する分別結晶法によるアップグレードリサイクル技術の開発に取り組んでいる¹⁾。電磁攪拌を付与することで高純度アルミニウムの回収率が向上する^{2,3)}ことを見出し、新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の助成事業「アルミニウム素材高度資源循環システム構築事業」において、実証プラント試験を進めている。

アルミニウムのアップグレードリサイクルにおいて、鉄量の低減は重要な課題の1つである。アルミニウム中の鉄は硬く脆い粗大な金属間化合物を形成し、伸びを低減させ、機械的特性を著しく低下させる。したがって、合金中の鉄量が増加すると圧延用途には適さなくなる。鉄を除去する方法として、電磁力による分離は有効な手法の1つである。アルミニウム合金の溶湯に電磁場を付与すると、金属間化合物と溶湯の電気伝導率の差に応じた電磁アルキメ

デス力¹が晶出した金属間化合物に作用し、分離が促進され则认为られている。しかし、電磁場の付与により溶湯に流動が生じ、温度場と濃度場が変化するため、金属間化合物の成長にも著しい影響を与える。このため、従来の電磁分離理論ではその挙動を完全に説明することが難しい。これまで放射光 X 線を用いたアルミニウム合金の凝固過程に関する研究は数多く行われてきたが、電磁場下での観察例は少なく、観察範囲が数十 mm² 程度に限られていたため、アルミニウム合金溶湯中の金属間化合物のマクロな分離挙動を可視化するには不十分であった。より広い視野で溶湯が流動しながら凝固する過程を観察する技術の開発が求められていた。

3. 開発した X 線イメージング装置について

筆者らは、産総研の領域融合プロジェクト「資源循環利用技術研究ラボ」において、X 線源、電磁攪拌装置、X 線検出器を鉛直方向に配置し、電磁攪拌下で流動する溶融金属の X 線透過像を大面積かつ高解像度で撮影する方法を開発した⁴⁾。本装置は、従来の放射光 X 線イメージング技術に比べて 100 倍以上広い視野で電磁攪拌凝固の過程を可視化することが可能である。図 1 に装置の外観写真と模式図を示す。装置は主に X 線源、電磁攪拌装置、X 線検出器で構成され、鉛直方向に配置されている。X 線は試料溶湯の湯面に対して垂直に照射され、透過した X 線はるつぽ下方に配置した X 線検出器で検出される。X 線源はコンピュータ制御により加速電圧 110 kV、管電流 272 μ A で使用した。電磁攪拌装置は出力 2.2 kW、ボア径 100 mm の三相四極モーターを採用した。インバータで電流周波数を 120 Hz に設定し、回転磁場の回転速度を 60 rps とした。この条件における回転磁場の強度は約 25 mT であり、湯面の流速は 15~20 cm/s であった。回転磁場は反転時間 1 s で正逆反転回転させる条件とした。一方向回転では湯面が上昇し透過コントラストに差が生じるが、反転回転により湯面の上昇を抑制することができるため、金属間化合物の形成と成長

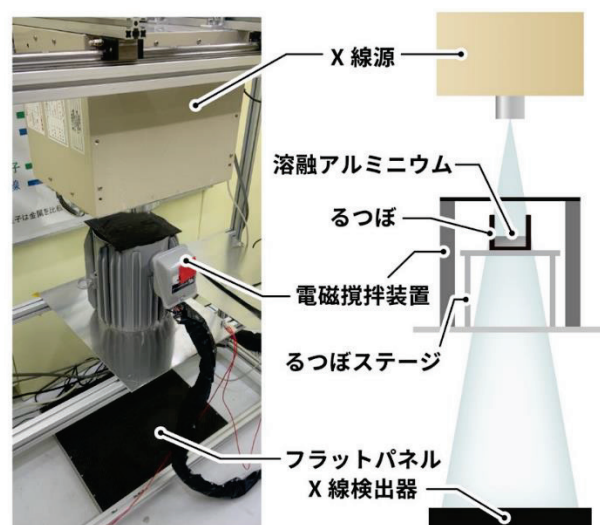


図 1 開発した X 線イメージングの外観写真と模式図

を高コントラストで観察可能である。X 線検出器は、蛍光体、フォトダイオード、薄膜トランジスタで構成され、X 線の強度を電気信号に変換することにより、透過 X 線像を撮影する。撮影像の実効分解能は、X 線源と試料の距離 (FOD)、X 線源と X 線検出器の距離 (FID) 及び X 線検出器の素子分解能により決定される。本実験では、FID を 800 mm、FOD を 140 mm、検出器分解能を 83 μ m とし、実効分解能 15 μ m で撮影した。透過 X 線写真は 3840 × 3072 のピクセル数を持つため、視野範囲は 55.7 × 44.5 mm² であり、内径 50 mm のるつぽ全体の透過 X 線写真が撮影可能である。透過 X 線の積分時間は 1 s (1 枚 / s) に設定した。検出器から PC へのデジタル写真データの転送時間は約 0.93 s であったため、透過 X 線画像の取得する間隔を約 2 s と見なした。

試料には Al-10mass%Si-2mass%Fe-2mass%Mn (Al-10Si-2Fe-2Mn) を使用した。50 g の試料を内径 50 mm の黒鉛るつぽに入れ、850 °C で溶解後、電磁攪拌装置に設置した。K 熱電対をるつぽの上方から溶湯に挿入し、冷却時の溶湯温度を測定した。電磁攪拌は 750 °C で開始し、固相率が 100 % となる 550 °C まで継続した。放冷により溶湯を冷却凝固させた結果、るつぽ外周部と中心部で温度差が生じ、外周部の温度が中心部より低かった。この温度差は、電磁攪拌なしでは 3~4 °C、電磁攪拌ありでは 1~2 °C であった。電磁攪拌が Al-10Si-2Fe-2Mn の結晶成長に及ぼす影響を評価するため、後方散乱電子回折 (EBSD) 法により逆極点図を測定し、鉄とマン

1 電磁場内の溶融金属中に非導電性の物体があると、溶融金属には電磁場が作用するのに対し物体には作用しないため、電磁力の作用方向とは逆向きに物体に働く力と言う。

ガンを含む金属間化合物 (α -Al(FeMn)Si) の結晶方位を解析した。

4. 観察結果⁵⁾

Al-10Si-2Fe-2Mn の鉛直断面における凝固組織の光学顕微鏡像と反射電子像を図2に示す。反射電子像の視野範囲は、光学顕微鏡像中に赤い点線で示した領域に対応している。光学顕微鏡像において、最も輝度が低い部分は、溶存水素によるガスポロシティや凝固収縮に伴い発生した鑄巣である。反射電子像では、高輝度の多角形状の組織が α -Al(FeMn)Siに該当する。電磁攪拌を付与せずに凝固した試

料では、 α -Al(FeMn)Si は主に試料高さの半分以下の位置で形成され、径方向では均等に分散した(図2(a))。一方、電磁攪拌を付与して凝固した試料では、試料の外周部及び底面から約4 mm の範囲内に α -Al(FeMn)Si が高密度に存在する領域が形成した(図2(b))。

Al-10Si-2Fe-2Mn の無攪拌凝固時に撮影した透過X線写真を図3に示す。X線イメージングの際、合金溶湯に熱電対を入れたまま撮影しているため、透過X線写真には熱電対の一部が映り込んでいる。700℃は初晶 α -Al(FeMn)Siの晶出開始温度より高いため、透過X線写真の溶湯部分は均一なコントラストを示した。一方、622℃では溶湯中に輝度の高い環状の領域の形成が認められた。光学顕微鏡像(図2(a))から、透過X線写真中の輝度の高い環状領域はガスポロシティに対応すると考えられる。また、透過X線写真中には α -Al(FeMn)Siに対応する低輝度の領域が複数の場所で形成したことも確認された。二値化による画像解析の結果、温度の低下に伴い、 α -Al(FeMn)Siが占める面積が増加したことが分かった。また赤い点線で示した領域において、590℃～584℃までの冷却中に α -Al(FeMn)Siの結晶粒が約1 mm移動したことが確認された。590℃が α -Alの晶出開始温度であることを考慮すると、 α -Al(FeMn)Si結晶粒の移動は、 α -Alデンドライトの形成と関連している可能性がある。

Al-10Si-2Fe-2Mn の電磁攪拌凝固時に撮影した透過X線写真を図4に示す。701℃では溶湯が完全に液相であり、透過X線写真中の溶湯領域の輝度は

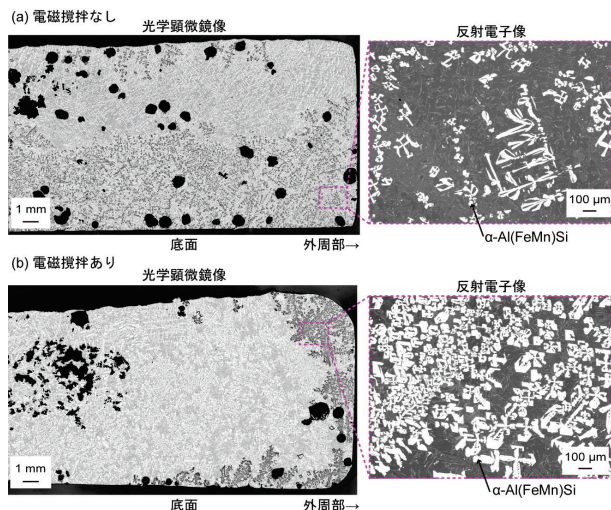


図2 Al-10Si-2Fe-2Mn の鉛直断面の組織写真：(a) 電磁攪拌なし、(b) 電磁攪拌あり

文献5)より、一部改変

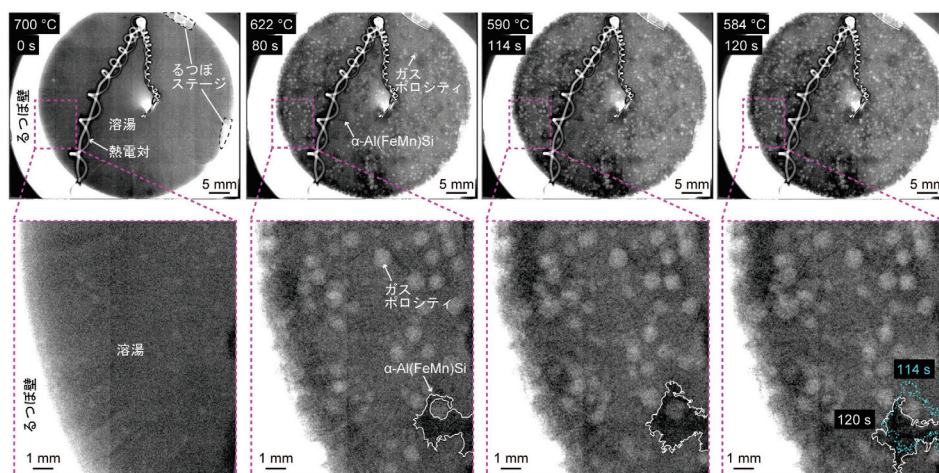


図3 開発したX線イメージング装置を用いて撮影した透過X線画像(電磁攪拌なし)

文献5)より、一部改変

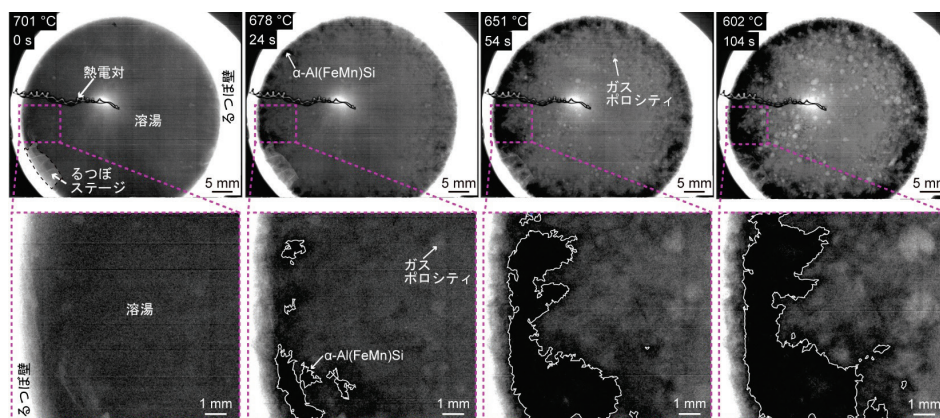


図4 開発したX線イメージング装置を用いて撮影した透過X線画像（電磁攪拌あり）

文献5)より、一部改変

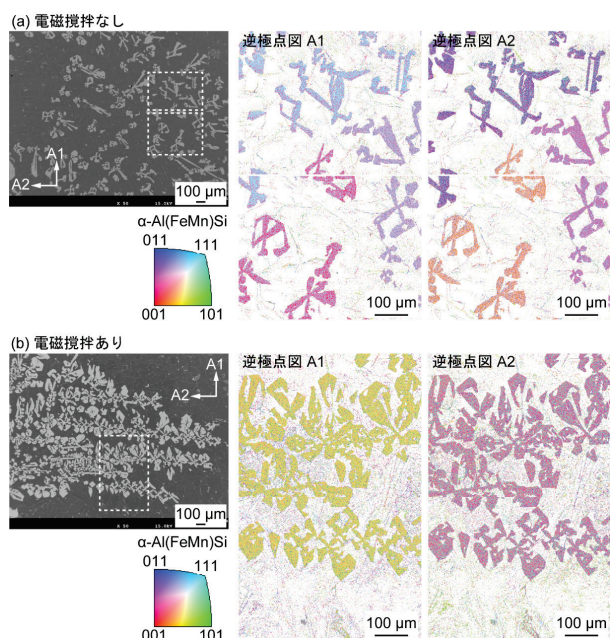


図5 試料外周部に形成した α -Al(FeMn)Si相の結晶方位関係の解析結果：(a)電磁攪拌なし、(b)電磁攪拌あり

文献5)より、一部改変

一定であったが、684 °Cではるつぽ壁近くで低輝度の領域が形成された。 α -Al(FeMn)Siの晶出温度は690 °Cであり、低輝度の領域は α -Al(FeMn)Siに対応している。外周部の α -Al(FeMn)Siは、温度の低下に伴い、中心部に向かって固液界面（ α -Al(FeMn)Siと溶湯の界面）の形状を維持しながら成長する様子が観察された。651 °Cにおいては、溶湯中にガスボロシティに対応する高輝度の領域が形成し、その領域の面積と輝度は温度の低下に伴い増加した。

後方散乱電子回折（EBSD）法により外周部の α -Al(FeMn)Siの結晶方位関係を解析した結果を

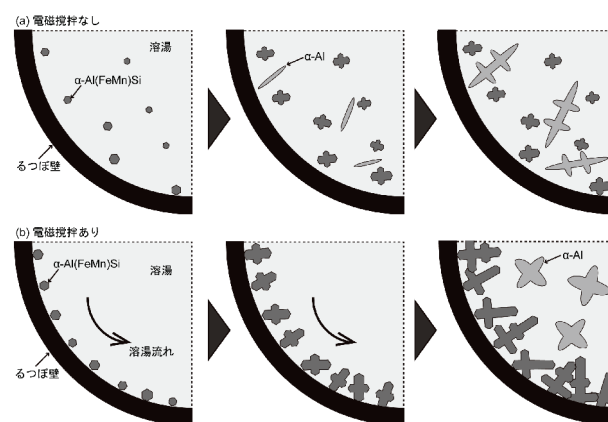


図6 Al-10Si-2Fe-2Mnの凝固過程の模式図：(a)電磁攪拌なし、(b)電磁攪拌あり

文献5)より、一部改変

図5に示す。逆極点図を用いた結晶方位マッピングの結果、攪拌を加えずに凝固した試料中に形成された α -Al(FeMn)Siは、3つの異なる結晶方位を持つ結晶粒で構成されることが分かった（図5(a)）。一方、攪拌を加えて凝固した試料では、 α -Al(FeMn)Siは単一の結晶方位を示した（図5(b)）。

電磁攪拌がAl-10Si-2Fe-2Mnの凝固過程に及ぼす影響を模式的に示した図を図6に示す。模式図の範囲は、るつぽ上面図の1/4に対応する。電磁攪拌を付与せずに凝固した場合、初晶 α -Al(FeMn)Siは溶湯中で径方向に均一に分散して晶出する。温度の低下に伴い、核形成した α -Al(FeMn)Si結晶粒は成長し、 α -Alの晶出開始温度に達すると、 α -Al(FeMn)Si結晶粒間から α -Alのデンドライトの成長が開始する（図6(a)）。一方、攪拌を付与して凝固した試料では、初晶 α -Al(FeMn)Siがらつぽ壁近くで顕著に形成する。溶湯の流動は、 α -Al(FeMn)Si結晶粒

の成長界面における拡散境界層の厚さを減少させ、凝固潜熱の拡散を促進する。流動による組成的過冷却の発生と潜熱の拡散の結果、壁面から中心部に向かって α -Al(FeMn)Siの成長が促進され、粗大化が生じたと考えられる(図6(b))。EBSDによる α -Al(FeMn)Siの結晶方位関係の解析結果も、電磁攪拌が α -Al(FeMn)Siの粗大化を引き起こすことを示している。これらの結果は、電磁攪拌によって顕在化するアルミニウム合金中の初晶金属間化合物のマクロ偏析が、金属間化合物に作用する電磁アルキメデス力によるものではなく、金属間化合物の粒成長挙動に起因する現象であることを示している。

5. 今後の研究展開について

本開発装置の電磁攪拌機構は、回転磁場を利用するため、アルミニウムに限らず、様々な導電性金属の溶湯に対してもX線イメージングが可能である。アルミニウムだけでなく、マグネシウム、鉄、銅、亜鉛、錫等を主成分とする合金の凝固過程のその場観察にも適用できるため、これら金属を主成分とするスクラップ合金溶湯の凝固イメージングにも応用

が期待される。また、本技術は、金属リサイクルプロセスの開発だけでなく、鑄造プロセスの可視化や高度化にも活用することを目指している。空間分解能や撮影速度の向上に向けた装置の改良を進めており、高い冷却速度で流動しながら凝固する合金中で発生するミクロ～マクロな欠陥の動的挙動の可視化に取り組んでいる。

参考文献

- 1) 村上雄一朗, 他, 軽金属, **73**, 481-486 (2023)
- 2) Y. Murakami, *et al.*, *Light Metals2021, The Minerals, Metals and Materials Series*, 818-821 (2021)
- 3) Y. Murakami, *et al.*, *Solid State Phenomena*, **327**, 250-254 (2022)
- 4) 産総研プレスリリース, 流動する溶融金属の凝固過程を広範囲で可視化する装置を開発, https://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2024/pr20240903/pr20240903.html (参照 2024/09/03)
- 5) K. Shiga, *et al.*, *Journal of Alloys and Compounds*, **1004**, 175866 (2024)

(産業技術総合研究所 マルチマテリアル研究部門 軽量金属プロセスグループ)