

機関番号：33924

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20360344

研究課題名(和文) 超音波キャビテーションに基づく超高压ソノ凝固プロセスの開発

研究課題名(英文) Development of Sono-solidification Process with Hyperpressure Based on Acoustic Cavitation

研究代表者

恒川 好樹 (Tsunekawa Yoshiki)

豊田工業大学・工学部・教授

研究者番号：50148350

研究成果の概要(和文)：

過共晶 Al-Si 合金溶湯に超音波を照射しながら凝固させる「ソノ凝固」では、音響キャビテーション自身が異質核となって初晶 Si が微細化し、音響キャビテーションの崩壊に伴う超高压場が非平衡 α -Al の晶出核となるため、硬質の微細粒状初晶 Si と粒状の非平衡 α -Al 相からなる特異なマイクロ組織が形成される。過共晶 Al-Si 合金のソノ凝固プロセスとして、半熔融鑄造および連続鑄造の可能性を検討した結果、再加熱によって非平衡 α -Al の一部は消滅するものの、残部 α -Al は初晶 Si とともに粗大化せず、形状付与後の構成相となる。

研究成果の概要(英文)：

The present study is focused on sono-solidification with acoustic cavitation in hypereutectic Al-Si alloy. During the sono-solidification of hypereutectic Al-Si alloy, non-equilibrium α -Al grains crystallize before reaching the eutectic temperature, in addition to the refined primary silicon grains. Non-equilibrium α -Al nuclei are crystallized at collapsed cavitation bubble sites and they are dispersed throughout the billet due to acoustic streaming. Acoustic cavitation also leads to the generation of inhomogeneous nuclei, that is, cavitation bubbles, so that a large number of inhomogeneous nuclei of cavitation bubbles causes the grain refinement of primary silicon even above the liquidus temperature.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|---------|------------|-----------|------------|
| 2008 年度 | 7,400,000 | 2,220,000 | 9,620,000 |
| 2009 年度 | 4,400,000 | 1,320,000 | 5,720,000 |
| 2010 年度 | 2,600,000 | 780,000 | 3,380,000 |
| 総計 | 14,400,000 | 4,320,000 | 18,720,000 |

研究分野：材料工学

科研費の分科・細目：金属生産工学

キーワード：ソノ凝固，音響キャビテーション，半熔融鑄造

1. 研究開始当初の背景

金属溶湯への超音波照射とその効果に関する先駆的研究が、1960 年以降、ロシアの Abramov, Eskin らによって断片的に報告されてきた。ソノキャピラリ (Sono-Capillary) 現

象は、固液間の濡れ性を改善することから、ろう付け、液相複合化などへの適用を中心に実用レベルにある。申請者らは超音波振動端への液体付着現象を発見し、当該現象を新たな材料プロセスに展開している。ソノ凝固現

象は、冷却過程にある金属溶湯に生じた超音波キャビテーションによる、凝固核生成の促進あるいは初晶デンドライトの破断のため、凝固組織が微細化する現象に代表される。しかしながら、結晶粒微細化のメカニズムに関する定説はなく、脱ガス、初晶の粒状化など未解明なままの事象もある。ソノ凝固現象を液相プロセスに広く展開するためには、本現象への理解をさらに深める必要がある。

2. 研究の目的

ソノ凝固による特異マイクロ組織発生メカニズムを解明することは、凝固分野における新たな学術的意義を創出することに繋がる。ソノ凝固による結晶粒微細化(核発生)に対して、以下の2説が提案されている：

- ・音響キャビテーションが、凝固核発生に重要な「過冷却」を抑制する結果、凝固核の発生が高温(平衡温度)から始まる
- ・音響キャビテーション気泡の崩壊によって局所的な微小超高压場が生じ、そこでは、溶湯の凝固温度が上昇する

①過共晶 Al-Si 合金の一方方向性ソノ凝固実験から、液相および固液共存域におけるキャビテーション気泡の役割を明らかにし、ソノ凝固による過共晶 Al-Si 合金マイクロ組織中の初晶 Si と α -Al の同時発生メカニズムを解明する。

②代表的な液相形状付与プロセスである連続鋳造、半溶融鋳造にソノ凝固現象を適用し、従来にない Al-Si 合金のマイクロ組織、すなわち、特徴的な機械的性質を有する合金の形状付与プロセスを開発する。

3. 研究方法

本研究では、ソノ凝固における結晶粒微細化のメカニズムを解明することが最大の研究目的である。各モデル溶液温度における音響キャビテーションと凝固核の発生を可視化し、また、過共晶 Al-Si 合金の一方方向性ソノ凝固を行うことによって、特異なマイクロ組織が形成されるメカニズムを調べる：

(1)モデル溶液ソノ凝固核の可視化

(1)モデル溶液ソノ凝固核の可視化

モデル溶液として融点 58°C のサクシノニトリルを用い、撮影コマ数と倍率、撮影光源を決めた上で、音響キャビテーションの発生を可視化する。凝固核の発生位置とキャビテーション気泡の関係を VTR 画像から調べる。

(2)一方方向性ソノ凝固実験システムの設計製作と凝固マイクロ組織の調査

一方方向性凝固を実現し、凝固界面上昇速度計測を行う。ホーン上昇速度と凝固界面の相対位置を把握しながら、ホーン先端と凝固界面の距離がマイクロ組織に及ぼす影響を調べる。また、超音波照射域の固相率と初晶 Si 粒度や α -Al 粒度の関係、共晶域の Si 寸法と形状を調べる。非平衡 α -Al 中の Si 濃度など、ソノ凝固材料の特性を調べる。

(3)超音波溶湯処理

超音波溶湯処理として脱ガスを取扱う。各温度と時間における Al-Si 合金溶湯への超音波照射が凝固時のガス含有量に及ぼす影響を調べる。従来、超音波照射は脱ガス効果を有すると言われているが、その詳細は不明であり、大きな波及効果を期待できる。

(4)ホットトップ式ソノ凝固連続鋳造

ホットトップ式連続鋳造法では、超音波振動子をタンディッシュ内の溶湯上部から直接挿入できる。超音波照射下における一方方向性ソノ凝固実験は、連続鋳造実験に直結しており、水冷ジャケット、鋳型などの技術的ノウハウを保有している。

亜共晶 Al-Si 合金の半溶融ビレットの作製に超音波照射を利用する。予備実験の結果から、ソノ凝固効果によって初晶 α -Al の粒状微細化が期待できる。ソノ凝固ビレット作製装置を設計製作し、超音波による脱ガス、介在物除去を行った半溶融鋳造用ビレットを準備し、既設の高周波誘導加熱装置および簡易プレスを用いてビレットを創形する。また、

過共晶 Al-Si 合金ビレットの半熔融鑄造は例がなく、その材料特性は期待できる。

(5) 本研究の総括

本研究の総括として、ソノ凝固マイクロ組織の生成メカニズムと、得られたマイクロ組織に基づく材料機能をまとめ、さらに、ソノ凝固を代表的な液相プロセスに適用した際に得られる材料特性(特に、過共晶 Al-Si 合金)を把握し、ソノ凝固プロセスを実用化につなげる。

4. 研究成果

過共晶組成の Al-18mass%Si 合金を中心に、超音波加振しながら凝固させるソノ凝固実験を行い、以下の結論を得た：

(1) 過共晶 Al-Si 合金をソノ凝固させることによって、初晶 Si が微細化するだけでなく、粒状の非平衡 β -Al 相が多数晶出する(図 1 参照)。粒状 β -Al 相を晶出することから、Si/ β -Al からなる共晶領域が著しく減少する。

(2) ソノ凝固させる容器底面近傍では、著しいキャビテーションの発生が認められた。キャビテーション気泡の崩壊によって発生する局部超高圧場は、 β -Al 相の液相線温度を上昇させ、 β -Al 相中の Si 固溶限を高くする。この局所高圧場の発生によって、共晶温度(577°C)以上でも非平衡 β -Al 相を晶出することが可能になる。

(3) 高圧下の状態図から予想されるように、ソノ凝固によって晶出した非平衡 α -Al 相中の Si 濃度は、通常凝固させた亜共晶 Al-Si 合金の初晶 α -Al 相の値よりも高くなる。以上のように、過共晶 Al-Si 合金のソノ凝固の場合、共晶温度以上で、高い Si 濃度の非平衡 α -Al 相を晶出することから、超音波キャビテーション気泡の崩壊による局部高圧場が、支配的な役割を果たしていると考えられる。

(4) 超音波照射による初晶 Si の微細粒状化は、液相線温度以上での超音波照射でも確かめられた。また、ソノ凝固における初晶 Si は粒

状のまま成長する。

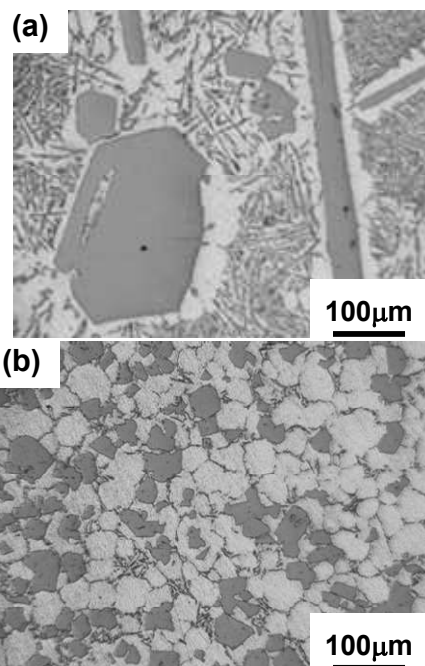


図1 Al-18mass%Si合金の代表的マイクロ組織、(a) 通常凝固、(b) ソノ凝固

(5) 溶湯中の気泡表面上での初晶 Si の接触角計算及び多くの初晶 Si 粒内に認められる円形の共晶組織領域から、超音波照射による初晶 Si の微細化機構として、音響キャビテーション自身が異質核として作用することによる、異質核生成が寄与していると考えられる。初晶 Si の粒状化は、結晶核数の増加と音響流による攪拌によって生じると考えられる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 12 件)

①佐々木悠、恒川好樹、奥宮正洋、清水和紀、超音波照射による連続鑄造マグネシウム合金ビレットの結晶粒微細化、日本鑄造工学会誌、査読あり、第 83 巻、第 2 号、(2011)、pp. 93-98

②W. Khalifa, Y. Tsunekawa, M. Okumiya, Effect of Ultrasonic Melt-Treatment on the Eutectic Silicon and Iron Intermetallic Phases in Al-Si Cast Alloys, Materials Science Forum, 査読あり, Vol. 638-642, (2010), pp. 431-436

③W. Khalifa, Y. Tsunekawa, M. Okumiya, Ultrasonic Grain Refining Effects in A356 Al-Si Cast Alloy, Transactions of the

American Foundry Society, 査読あり, Vol. 118, (2010), pp. 91-98

④福井雄太、恒川好樹、奥宮正洋、超音波照射による過共晶 Al-Si 合金の初晶けい素微細化、日本鑄造工学会誌、査読あり、第 82 巻、第 10 号、(2010)、pp. 618-624

⑤W. Khalifa, Y. Tsunekawa, M. Okumiya, Effect of Ultrasonic Melt-Treatment on the Eutectic Silicon and Iron Intermetallic Phases in Al-Si Cast Alloys Materials Science Forum, 査読あり, Vol. 638-642, (2010), pp. 431-436

⑥Y. Tsunekawa, K. Taga, Y. Fukui, M. Okumiya, Appearance of Non-Equilibrium α -Aluminum Grains in Hypereutectic Al-Si Alloy through Sono-Solidification, Materials Science Forum, 査読あり, Vols. 638-642, (2010), pp. 362-367

⑦Y. Fukui, Y. Tsunekawa, M. Okumiya, Nucleation with Collapse of Acoustic Cavitation in Molten Al-Si Alloys, Advanced Materials Research, 査読あり, Vols. 89-91, (2010) pp. 190-195

⑧田賀佳奈子、福井雄太、恒川好樹、奥宮正洋、超音波キャビテーションによる Al-18mass%Si 合金での非平衡 α -Al 固溶体の晶出、日本鑄造工学会誌、査読あり、第 81 巻、第 10 号、(2009)、pp. 469-474

⑨S. Tamura, Y. Tsunekawa, M. Okumiya, M. Hatakeyama, Ultrasonic Cavitation Treatment for Soldering on Zr-based Bulk Metallic Glass, Journal of Materials Processing Technology, (Elsevier), 査読あり, Vol. 206, (2008), pp. 322-327

⑩W. Khalifa, Y. Tsunekawa, M. Okumiya, Effect of ultrasonic melt treatment on microstructure of A356 aluminium cast alloys, International Journal Cast Metal Research, 査読あり, Vol. 21, No. 1-4, (2008), pp. 129-134

⑪W. Khalifa, Y. Tsunekawa, M. Okumiya, Effect of Reheating to the Semisolid State on the Microstructure of the A356 Aluminum Alloy Produced by Ultrasonic Melt-Treatment, Solid State Phenomena, 査読あり, Vol. 141-143, (2008), pp. 499-504

⑫Y. Tsunekawa, S. Tamura, M. Okumiya, N. Ishihara, Hot-Dip Coating of Lead-free Aluminum on Steel Substrates with Ultrasonic Vibration, J. Mater. Sci. Technol., 査読あり, Vol. 24, No. 1, (2008), pp. 41-44

[学会発表] (計 14 件)

①宮本侑典、恒川好樹、奥宮正洋、超音波処理した Al-18wt%Si 合金ビレットの半熔融遠心鑄造、日本鑄造工学会第 157 回全国講演大会、2010 年 10 月 3 日、北海道大学

②田賀佳奈子、福井雄太、恒川好樹、奥宮正洋、超音波キャビテーションによる Al-18mass%合金での非平衡 α -Al 固溶体の晶出、日本鑄造工学会第 156 回全国講演大会、2010 年 5 月 23 日、近畿大学

③Y. Tsunekawa, K. Taga, Y. Fukui, M. Okumiya, Crystallization of Non-equilibrium α -Aluminum and Primary Silicon with Acoustic Cavitation in Hypereutectic Al-Si Alloy, The 69th World Foundry Congress, 2010 年 10 月 18 日、浙江省人民大会堂, Hangzhou, China

④Y. Tsunekawa, M. Okumiya, Y. Furukawa, Improvement in Weldability by Ultrasound and Its Application to Cast Joining, CIMTEC2010, 2010 年 6 月 11 日, Montecatini Terme, Italy

⑤恒川好樹、アルミニウム合金のサステナブル鑄造プロセス—超音波溶融処理 Al-Si-Fe ビレットの半熔融鑄造—、日本鑄造工学会ダイカスト研究部会、2010 年 9 月 2 日、名古屋国際会議場

⑥Y. Tsunekawa, Sono-Solidification in Hypereutectic Al-Si Alloy, ICAA12, 2010 年 9 月 7 日, パシフィコ横浜

⑦Y. Tsunekawa, Thixocasting with Ultrasonically Treated Al-Si Alloy Billets Containing Iron as Impurity—Sono-solidification in Al-Si Alloys—, KFS Annual Autumn Meeting, 2010 年 11 月 11 日, Incheon University, Korea

⑧Y. Tsunekawa, Appearance of Non-Equilibrium α -Aluminum Grains in Hypereutectic Al-Si Alloy through Sono-Solidification, THERMEC' 2009, 2009 年 8 月, Technical University Berlin, Germany

⑨K. Iwata, Graphite Structure in Plasma Sprayed Coatings with Iron Powder and Suspension, The 3rd Asian Thermal Spray Conference, 2008 年 11 月, Shingapore

⑩本村隆寛、超音波による半熔融鑄造用 Al-Si-Fe ビレットのマイクロ組織の改良、日本鑄造工学会第 153 回全国講演大会、2008 年 10 月、金沢市

⑪W. Khalifa, Effect of Reheating to the Semisolid State on the Microstructure of the A356 Aluminum Alloy Produced by Ultrasonic

Melt-Treatment, The 10th International Conference on Semi-Solid Processing of Alloys and Composites, 2008年9月, Aachen, Germany
⑫Y. Tsunekawa, Increase in Graphite Carbon in Plasma-sprayed Cast Iron Coatings Based on Flying Droplet Diagnostic, International Thermal Spray Conference, 2008年6月, Maastricht, The Netherlands

⑬W. Khalifa, Effect of Ultrasonic Melt Treatment on the Microstructure of A356 Aluminum Cast Alloys, 10th Asian Foundry Congress, 2008年5月, ポートメッセなごや

⑭福井雄太、Al-Si 合金の一方向凝固組織に及ぼす超音波の影響、日本鑄造工学会第152回全国講演大会、2008年5月, ポートメッセなごや

6. 研究組織

(1) 研究代表者

恒川 好樹 (Tsunekawa Yoshiki)
豊田工業大学・工学部・教授
研究者番号：50148350

(2) 研究分担者

①奥宮 正洋 (Okumiya Masahiro)
豊田工業大学・工学部・准教授
研究者番号：20177182

②ワリード・カリファ (Waleed Khalifa)
豊田工業大学・工学部・PD 研究員
研究者番号：30460611

(H21 年度末で PD 研究員契約期間終了)

③セバスチャン・グナポフスキー
(Sebastian Gunapowski)
豊田工業大学・工学部・PD 研究員

研究者番号：20583280

(H22 年度より PD 研究員として着任)