

(論文)

チタン合金VAR鑄塊におけるマクロ偏析予測技術

Simulation of Macro-segregation in Titanium Alloy VAR Ingots



横山 弘*
Hiroshi Yokoyama



三井貴之*
Noriyuki Mitsui



石田 斉**
Hitoshi Ishida



仲山公規*** (工博)
Dr. Kiminori Nakayama



草道龍彦****
Tatsuhiko Kusamichi

Since macro-segregation in titanium alloy ingots influences mechanical properties, the control alloyed element segregation is very important. In this report, heat conduction and solidification analyses, including the unsteady part of the VAR operation, were conducted. The results were used to calculate the alloy element distributions throughout the ingot. Using this simulation method it is possible to continuously simulate the macro-segregation conditions on 1st-melt and 2nd-melt ingots. Simulation results were shown to be closely consistent with actual results.

まえがき = チタン材料は軽量性、高強度性、高耐食性などに優れた特性を有することから、航空宇宙、化学工業、原子力発電、スポーツなどの様々な分野で使用されている。

工業用純チタンやチタン合金材料の溶解工程には、真空アーク溶解 (Vacuum Arc Remelting : VAR) 法が多用されている。VAR 法では、水冷銅のつぼ内で、溶解材の組成に調整された棒状の消耗電極と溶湯プール表面との間に直流アークを発生させて、その熱により消耗電極が溶融し、溶湯プールが形成される。溶湯プールは下方から冷却されて凝固し、消耗電極の溶解とともに鑄塊が逐次上方に成長する一方向凝固と似た溶解鑄造方式となるのが特徴である。VAR 法では、溶解材全量を一括して溶解して成分調整を行うことができないため、溶解を2回あるいは3回と繰返すことにより、成分の均一化が図られている。最初の溶解を1次溶解と称し、スポンジチタンや合金原料をプレス成形し、これらを溶接して製作した消耗電極を用いる。そして、1次溶解で製作した鑄塊を反転させ、これを消耗電極として2次溶解が行われる。航空機用の合金材では、さらに3次溶解が行われることもある。このようにして、工業的には1~10トン規模の鑄塊が製造されている。しかし、VAR 法では溶湯プールの体積が大きく、かつ溶解の初期から末期にかけて溶湯プール体積が変化するため、合金成分のマクロ偏析が問題となる。

これまでに、VAR 鑄塊中の合金成分のマクロ偏析挙動については、幾つかの検討が行われている^{1)~3)}。凝固鑄塊の最終凝固部の偏析予測については、鋼の大型鑄塊のマクロ偏析予測モデルを適用して実現されている⁴⁾ものの、凝固界面の移動速度が非定常的であるVAR 鑄塊トップ側および最終凝固部の濃度変化までは予測できていなかった。

本報告のVAR 鑄塊偏析予測モデルでは、VAR 鑄塊の非定常部の濃度変化を予測することで、鑄塊全体にわたる成分分布を予測することが可能となった。これにより、VAR の1次溶解、2次溶解などの全溶解工程を通しての鑄塊のマクロ偏析が予測できるようになった。本報告では、今回開発したモデルを説明し、実際のVAR 鑄塊への適用例を紹介する。

1. マクロ偏析予測モデル

本報告におけるマクロ偏析予測のフローチャートを図1に示す。本報告でのマクロ偏析予測モデルは、(1)熱力学計算、(2)伝熱・凝固計算、(3)溶質再分配による物質収支計算から構成される。以下に、それぞれの計算手法について述べる。

(1) 熱力学計算

熱力学データベース「Thermo-Calc」⁵⁾のチタン合金データベースを用いて平衡分配係数 k_0 を算出する。平衡分配係数 k_0 は、式(1)に示されるように液相濃度 C_1 と固

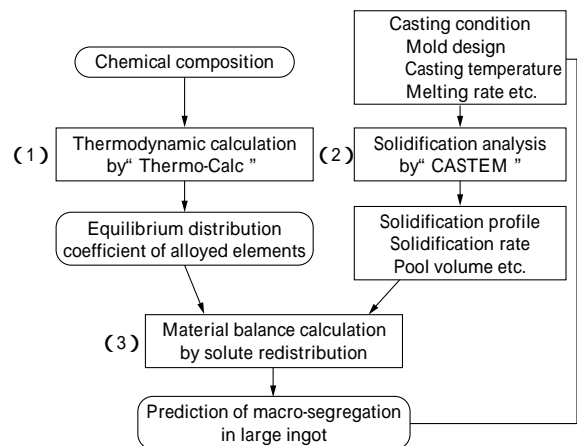


図1 偏析予測方法のフローチャート
Fig. 1 Calculation scheme of macro-segregation

*鉄鋼部門 チタン本部 チタン技術部 **技術開発本部 材料研究所 ***鋼コベルコ科研 エンジニアリングメカニクス事業部 ****鋼コベルコ科研 材料技術部

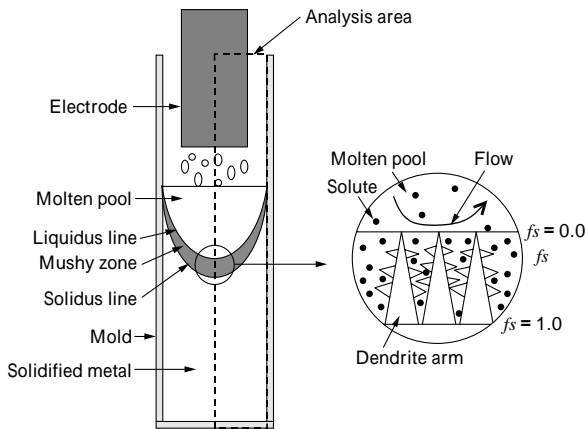


図2 偏析予測モデルの概要図

Fig. 2 Schematic representation of models for macro-segregation

相濃度 C_s の比で表される。

$$k_0 = \frac{C_s}{C_l} \dots\dots\dots(1)$$

また、合金系の液相線温度 T_l および固相線温度 T_s を求め、凝固計算時の入力データとして用いた。

(2) 伝熱・凝固計算

伝熱・凝固計算には、有限要素法解析コードである「CASTEM⁶⁾」を用いた。伝熱・凝固計算では、VARの操業条件(溶解速度、鑄型径)、合金の物性値、境界条件などを入力し、時々刻々変化する温度場を計算し、凝固速度や溶湯プール形状、体積の経時変化などを求める。

(3) 溶質再分配による物質収支計算

マクロ偏析の生成については、高橋らの凝固遷移層の概念⁷⁾を適用した。鑄塊中のある時刻の固液共存領域を模式的に図2に示す。デンドライト間に濃化する合金元素の分配は、Burtonの式(2)を用い、バルク溶湯中に混合、集積する濃化溶湯はある洗浄限界固相率(f_s)以下の低固相領域のみが寄与するモデルとした。次に、この f_s をパラメータにして式(3)から、伝熱凝固解析の各要素ごとに合金元素の物質収支を計算した。

$$k_e = \frac{k_0}{\{k_0 + (1 - k_0) \exp(-Rd/D)\}} \dots\dots\dots(2)$$

$$C_s = (1 - f_s)C_l + f_s \cdot k_e \cdot C_l \dots\dots\dots(3)$$

ここで、 k_e : 実効分配係数、 k_0 : 平衡分配係数、 R : 界面の移動速度(m/sec)、 d : 溶質拡散層の厚さ(m)、 D : 拡散係数(m²/sec)、 C_s : 凝固部分の合金元素の濃度、 C_l : バルク溶湯中の合金元素の濃度である。

2. VAR 鑄塊の実測による予測モデルの検証

検証の対象とする鑄塊材質と合金成分は、鑄塊中のマクロ偏析が大きいTi-10V-2Fe-3Al合金のFe成分と、チタン合金の中で最も幅広く利用されているTi-6Al-4V合金中の不純物成分Feを対象とした。

VARの1次電極は図3に示されるように、コンパクトと呼ばれる円柱状の塊により構成される。Feのような合金成分は目的組成となるように、あらかじめこのコンパクト中に混合させる。本モデルでは簡素化のため、コンパクトの成分濃度を一定として計算を行った。

上述した計算手順・手法を用い、1次溶解でのFeのマ

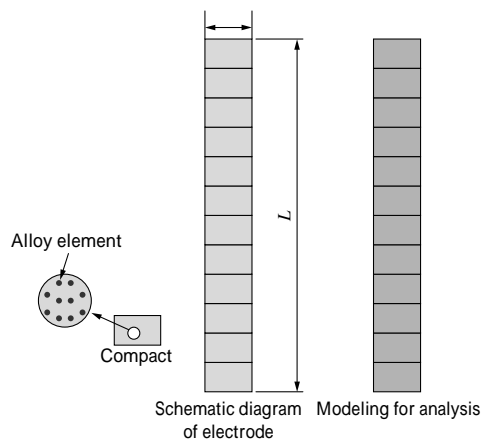


図3 消耗電極のモデル図

Fig. 3 Model for electrode

クロ偏析を予測し、それによる濃度分布を2次電極として、2次溶解鑄塊のマクロ偏析の予測を行った。

これら解析は、図2に示すように、VAR鑄塊の軸対称2次元で実施した。

2.1 Ti-10V-2Fe-3Al合金鑄塊のマクロ偏析予測

2.1.1 実験

本報告におけるマクロ偏析予測技術を検証する対象材料として、通常の電極製法により2.5トンの消耗電極をつくり、VARにて2回溶解を行って700×1320mmのTi-10V-2Fe-3Al合金鑄塊を製作した。本実験では、2次溶解において通常よりも大きな溶解速度での操業を行った結果、凝固界面位置(プール形状)の変化の状況が比較的明瞭に観察できた。製作した鑄塊の長手方向16箇所、半径方向3箇所の分析を行い、鑄塊中のFe濃度分布を調査した。

2.1.2 実験結果

本実験で製作したVAR鑄塊断面のマクロ組織を写真1に示す。写真1よりプール形状の経時的な変化を確認することができる。また、組織的には鑄塊の底部や側面部から柱状晶が成長し、中央部に等軸晶状の領域が認められる。チタン合金VAR鑄塊の凝固挙動も基本的には鋼の大型鑄塊と同様と考えられる。ただし、鋼の大型鑄塊では非常に短い時間で溶湯が注入されるのに対して、VAR法では溶湯プール表面の位置が消耗電極の溶解とともに逐次上昇する点が大きく異なる。一方、凝固は鑄塊の底や側面からの冷却に対応して逐次進行するため、

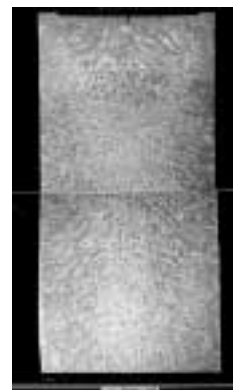


写真1 VAR鑄塊のマクロ組織
Photo 1 Macrostructure of VAR ingot

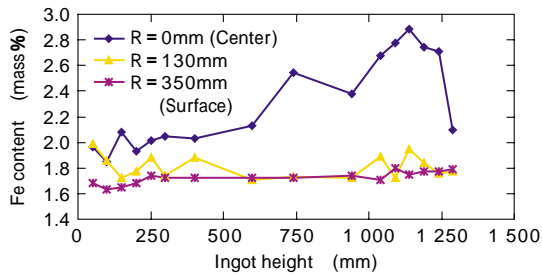


図4 VAR 鋳塊における Fe 濃度分布
Fig. 4 Experimental results of Fe content in VAR ingot

凝固界面の上昇速度より溶解速度が大きくなる場合は、特に鋳塊の中央部において深い溶湯プールが形成される。

鋳塊中の分析値結果を図4に示す。本分析値より、Fe濃度分布は鋳塊中心軸上で変動が大きく、外周に近づくに従い長手方向の変動は小さくなっていることがわかる。

2.1.3 伝熱・凝固計算

まず、熱力学計算により Ti-10V-2Fe-3Al 合金の液相線温度、固相線温度、Feの平衡分配係数 k_0 を算出した。本合金における Fe の平衡分配係数 k_0 は 0.370、液相線温度 T_l は 1655、固相線温度 T_s は 1607 である。Ti-Fe2 元系状態図より読取れる k_0 値は 0.45 程度であり、データベース計算結果はより Fe 偏析が起こりやすくなることを示している。1次鋳塊寸法は A x Bmm、2次鋳塊寸法は 700 x 1320mm である。

まず2次溶解の操作条件を基に伝熱・凝固解析を行い、実験から得られたプール形状と一致する伝熱係数を求めた。その境界条件を用いて1次溶解の伝熱・凝固計算を行った。溶質再分配による物質収支は、図3に示したように電極の濃度を一定として計算を行い、1次鋳塊の Fe 分布を計算した。引続き、2次溶解における物質収支計算には、1次鋳塊の Fe 濃度分布をある高さごとに平均し、それを2次溶解の物質収支計算の入力とし、2次鋳塊の Fe 分布の計算を行った。

2.1.4 計算結果と実験結果の比較および考察

図5に、本解析による Ti-10V-2Fe-3Al 合金のある時間におけるプール形状の結果を写真1に示した実験結果と比較して示し、観察された代表的なプール形状を写真中にトレースした。観察されたプール形状は、凝固開始から終了するまでの間、つまり液相線と固相線の間に現れると考えられる。写真中にトレースした実験プール形状は、計算における液相線と固相線間に収まっており、計算結果は実験結果をおおむね再現していると考えられる。しかしながら最外周付近のプール形状は曲率の変化が見られ、計算結果とはやや異なる。これは、解析では鋳塊最外周と水冷銅るつぼとの熱伝達係数を温度依存のない一定値と設定していること、さらには溶湯流動による伝熱効果が溶湯プール全体に均一に及ぶようなモデル化を行っていること、などが原因と考えられる。実際の VAR 鋳塊では、溶湯が冷却され、凝固収縮することによりギャップが生じ、接触熱伝達から放射伝熱の形態となる。また、電磁気力や浮力による溶湯攪拌効果は場所に

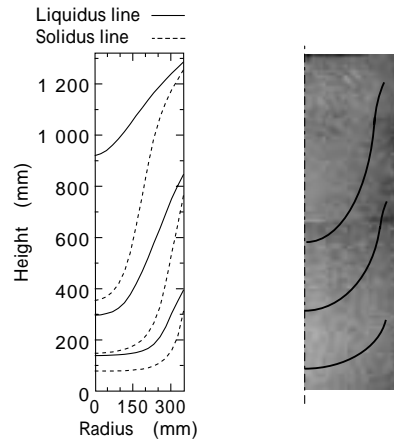


図5 溶湯プール形状の実験結果と計算結果の比較
Fig. 5 Comparison between experimental results and calculation results of pool shape

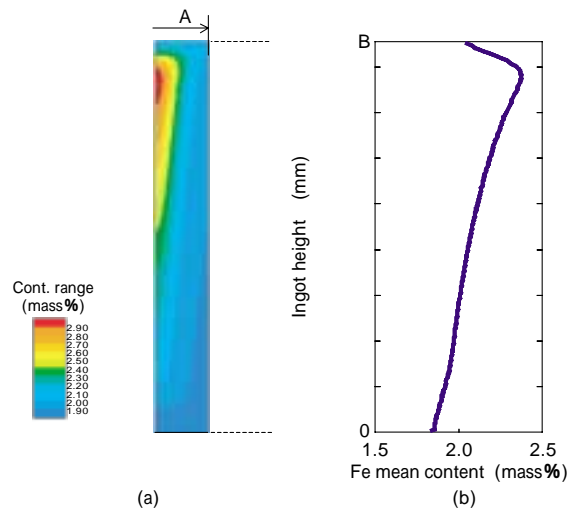


図6 1次鋳塊の Fe 濃度分布と平均濃度
Fig. 6 Calculation results of (a) Fe content distribution and (b) Fe mean content for 1st ingot

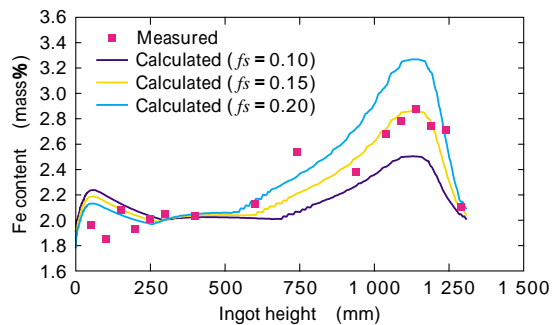


図7 実験結果と計算結果の Fe 濃度分布比較
Fig. 7 Comparison between experimental results and calculation results of Fe content

より異なり、鋳塊温度分布に影響を与えられられる。

1次鋳塊 (= 2次電極)の高さ方向の平均 Fe 濃度計算結果を図6に示す。また、2次鋳塊中心軸上における計算結果および分析値を、重ねて図7に示す。限界固相率 f_s をパラメータとして計算を行った結果、 $f_s = 0.15$ とした場合に実測値とよく一致した。しかし、計算結果ではボトム側で Fe 濃度が高くなる部分が見られる。これは、1次鋳塊濃度分布を反転させ、2次溶解の成分分布計算

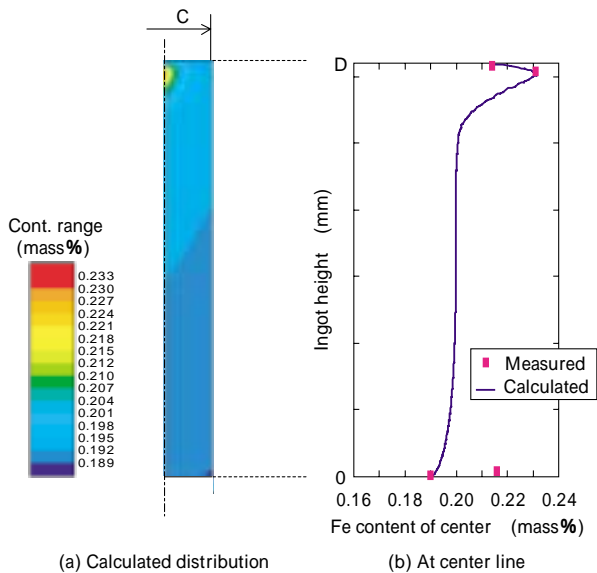


図8 1次鋳塊のFe濃度分布の実機結果と計算結果の比較
Fig. 8 Comparison between measured and calculated Fe content for 1st ingot

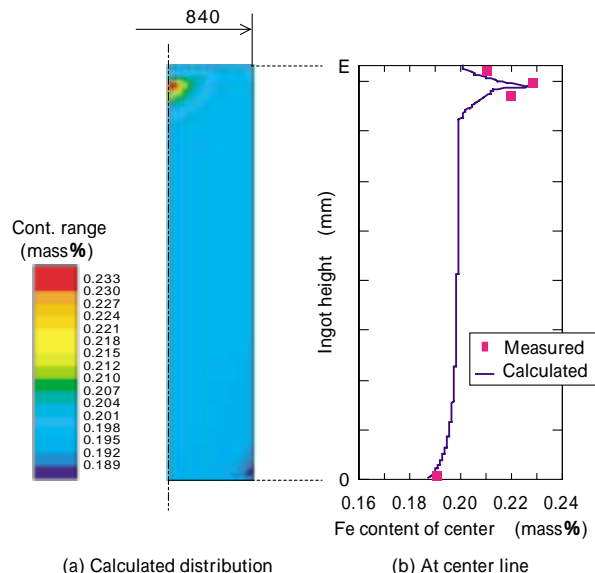


図9 2次鋳塊のFe濃度分布の実機結果と計算結果の比較
Fig. 9 Comparison between measured and calculated Fe content for 2nd ingot

に用いているため、図7に示すように1次鋳塊で最もFe濃度が高くなる最終凝固部に相当する部分が影響しているためであると考えられる。実測値と一致しないのは、溶解スタート時のアーク集中による炉底の損傷を防止するために、炉底上にスタブと呼ばれる同材質の円盤を設置しており、溶解スタート時にそれが溶け出すことで希釈されたためであると考えられる。より詳細なモデル化には、スタブ部における溶解凝固も考慮した解析を検討する必要がある。

2.2 Ti-6Al-4V合金鋳塊のマクロ偏析予測

前章で得られた解析手法を用い、Ti-6Al-4V合金でも同様の解析を行った。比較対象として、1次・2次鋳塊のトップ側・ボトム側のスライスより分析を行い、その値を参考として解析結果との比較対象とした。

2.2.1 伝熱・凝固計算

熱力学計算によりTi-6Al-4V合金の液相線温度、固相線温度、Feの平衡分配係数 k_0 を算出した。本合金におけるFeの平衡分配係数 k_0 は0.356、液相線温度 T_l は1704、固相線温度 T_s は1697である。1次鋳塊寸法はC×Dmm、2次鋳塊寸法は840×Emm、鋳塊重量は5トンである。計算手順はTi-10V-2Fe-3Al合金と同様である。

2.2.2 計算結果と実験結果の比較および考察

1次鋳塊のFe濃度分布計算結果を図8に、また2次鋳塊のFe濃度分布計算結果および中心軸上の分析値との比較結果を図9に示す。Fe濃度予測計算結果と実測値とがほぼ整合することが示された。なお、本解析では、限界固相率 f_s は0.1を使用した。

1次溶解結果において、ボトム側で実測値が大きい値を示している。これは溶解スタート時であることから、プールが浅いため、1次電極のコンパクト内に混合した純鉄が完全に溶けるまでの時間が無かったためであると考えられる。また、2次溶解結果においては、Ti-10V-2Fe-3Al合金のように2次鋳塊のボトム側でFe濃度が高くなるような結果とはなっていない。これは、最も濃度

が高くなる1次鋳塊の最終凝固部が、分析のために切断したスライス付近にあったためであると考えられる。本報告で示している2次鋳塊の分析結果は、このスライス切断後の1次鋳塊を2次電極として溶解した場合の分析値である。計算においても、そのスライスの領域に相当する部分を除外して2次鋳塊の濃度分布の計算を行ったためである。1次・2次鋳塊ともミドル部の分析は行わなかったが、Ti-10V-2Fe-3Alの実測値と計算結果の比較より、妥当な値を表していると考えられる。

むすび=VARによる溶解モデルを作成し、伝熱・凝固計算と溶質再分配の計算手法を用い、これを1次溶解から2次溶解に適用することで、合金成分の偏析をほぼ予測することが可能となった。VARにより製作される鋳塊の成分濃度は、溶解における操業条件や電極の濃度分布に依存することが知られている。今回のモデルを用い、最適な溶解電流や時間といった操業条件および人為的に操作できる1次電極における合金元素の濃度を検討し、成分偏析の無い健全な鋳塊の製造方法を予測することが可能となった。しかしながら、詳細にはまだ実測値とのずれが認められ、これは溶湯プール形状の予測が不十分であることが原因と考えられる。今後、溶湯プールの流動などの影響も考慮したより精密なモデル化が必要になるものと考えられる。

参考文献

- 1) 梅田洋一ほか：チタニウム・ジルコニウム，Vol.32, No.1 (1984) p.25.
- 2) 坂本浩一ほか：R&D 神戸製鋼技報，Vol.46, No.1(1996) p.46.
- 3) H. Hayakawa et al. : ISIJ International, Vol.31, No.8 (1991) p.775.
- 4) 坂本浩一ほか：R&D 神戸製鋼技報，Vol.47, No.1(1997) p.62.
- 5) B. Sundman et al. : Calphad, Vol.9 (1985) p.153.
- 6) 藪 忠司ほか：R&D 神戸製鋼技報，Vol.37, No.4(1987) p.99.
- 7) 高橋忠義ほか：鉄と鋼，Vol.76 (1990) p.728.