HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	二重鋳込み法による複合層の溶着性について
Author(s)	高橋, 忠義; 大笹, 憲一; 石川, 稔 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 99, 1-9
Issue Date	1980-08-11
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41625
Type	departmental bulletin paper
File Information	99_1-10.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

北海道大学工学部研究報告
第99号 (昭和55年)

Bulletin of the Faculty of Engineering,
Hokkaido University, No. 99 (1980)

二重鋳込み法による複合層の溶着性について

高橋忠義* 大笹憲一*
石川 稔** 今井 章***

(昭和55年3月31日受理)

Weldability of the Composite Layer by a Double Casting Method

Tadayoshi TAKAHASHI Ken-ichi OHSASA
Minoru ISHIKAWA Akira IMAI

(Received March 31, 1980)

Abstract

We have tried a new casting method to produce an ingot composed of two layers with various compositions. We replaced the unsolidified core of the ingot with another molten alloy in the process of the ingot solidification. The weldability of the composite layer was investigated.

The change in temperature distribution in the solidification process was obtained by the finite difference method and the thermal condition on the weldability was examined in relation to the casting temperature and the composition of the composite layer.

To obtain a good weldability, it was found that the interface between the shell and the core of the ingot should be held over 5 seconds under the such conditions that fraction of solid is less than 30%.

1. 緒 言

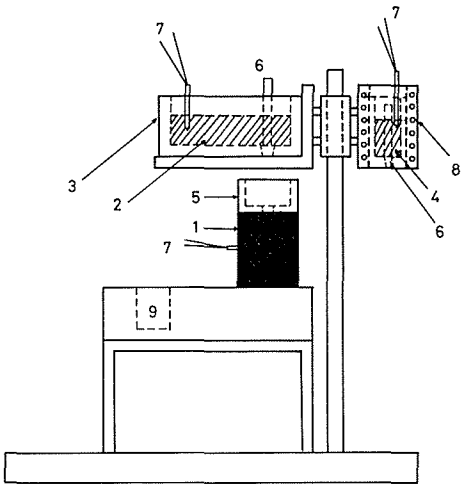
近年ますます多様化する金属材料の使用条件に対処するために単一材料では得られない材質特性をもつ複合材料の製造および研究がなされている。凝固現象を複合材料の製造に応用した代表的な例としては鋳包み法がある。しかしこの方法においては，芯材と鋳包み材とにはその組合せおよび大きさに限界があり，またその溶着性におよぼす因子についてもこれまで必ずしも明確にはされていない。

そこで本研究では幅広い材料の組合せを可能とし，かつすぐれた溶着性を持つ複合材料の製造を目的として，鋳塊の凝固過程で芯部の未凝固部分を同種組成および異種組成の合金溶湯と置換するという新たな手法による鋳造法を試み，その溶着性におよぼす因子について検討を行った。試料として純Al，およびAl-Cu系合金を対象とした。また溶着性におよぼす熱的条件を把握するために，差分法により凝固過程の温度分布変化の計算を行い，溶着層の熱的再溶解について検討を行った。

* 金属工学科 第三講座
** (株) 住友金属
*** (株) 椎田金属

2. 実験装置および実験方法

実験装置を Fig. 1 に示す。第一次鋳込み用としてイソライト製湯だまり，第二次鋳込み用湯だまりとして電気抵抗炉内に黒鉛ルツボを設置し，それらを鋳型上部の回転可能なアームに取り付けた。それぞれの湯だまりには約 1.3 kg の合金溶湯(以後一次溶湯と呼称する)および約 0.6 kg の合金溶湯（以後二次溶湯と呼称する）が保持されている。鋳型は内径 80 mm，外径 100 mm，高さ 120 mm の黒鉛製で底部にはイソライト製の底板が取り付けられ，底部からの凝固の進行がおさえられるようになっている。また底板には鋳塊芯部の未凝固溶湯排出のための 25 mm 径の穴があけられている。鋳型には温度測定のため鋳型底部より 60 mm の位置に CA 熱電対を 4 本，応答性を良くするために熱接点を裸にして，鋳型側壁を貫通させて設置した。鋳型上部には底部に穴のあいた溶湯置換用のイソライト製湯だまりが設置してある。



1. Graphite crucible
2. Primary melt
3. Tundish for primary melt
4. Secondary melt
5. Tundish for secondary melt
6. Stopper
7. Thermocouple
8. Furnace
9. Hole for discharged melt

Fig. 1. Experimental apparatus.

実験手順として，まず一次溶湯を鋳込み温度 780°C で鋳型に鋳込み，鋳型壁面より外周凝固殻を発達させる。一定厚みの外周殻（一次層と呼称する）が生成した後に，鋳型を Fig. 1 の凹部で示されている排出孔の上に移動させ，鋳型底部より未凝固溶湯を排出させる。その際，二次溶湯と未凝固溶湯を置換する（置換した凝固層を二次層と呼称する）のに次の二種類の方法を用いた。一つは連続的に置換するもので，未凝固溶湯排出直前に鋳型上部の湯だまりに二次溶湯を所定の温度でうわのせし，ただちに未凝固溶湯を排出する。この時鋳型上部の二次溶湯は鋳型内に流入し，未凝固溶湯といれかわることになる。次の方法は間欠的に置換するもので，未凝固溶湯を底部より排出した後，種々の時間間隔をおいて，排出界面の温度を降下させた後に二次溶湯を鋳込むものである。連続置換実験における一次溶湯と二次溶湯の組成とその組合せ，および鋳造条件を Table 1 に，間欠置換実験の場合を Table 2 に示した。凝固終了後，試料中央縦断面および横断面を金属組織学的に調査し，溶着状況の検討を行った。

3. 実験結果

本実験において，外周殻を形成する一次溶湯と，鋳塊芯部を構成する二次溶湯の組成の組合せには基本的に三種類がある。一つは同組成の組合せであり，他の二つは一次溶湯組成を基準にして，二次溶湯の Cu 濃度の低い組合せの場合と，Cu 濃度の高い組合せの場合とである。連続置換実験におけるその後者の二種類の鋳塊の縦断面マクロ組織の例を Photo. 1 (a), (b) に示す。異種組成の組合せの試料においては，排出界面の形状が組織形態と腐食の濃淡により区別でき，その界面の溶着性は両者とも良好である。芯部の組織形態は，一次溶湯が Al-4 wt% Cu，二次溶湯が純 Al である Photo. 1 (a) では微細な等軸晶組織となっており，その逆の組合せの組成であ

Table 1. Chemical composition of primary and secondary melts and the casting temperature in the continuous replacement method

Ingot No.	Primary melt		Secondary melt	
	Composition	Casting temp. (°C)	Composition	Casting temp. (°C)
Combination of same composition, ($T_{E1}=T_{E2}$)*				
1	Pure Al	780	Pure Al	710
2	Al-2 wt% Cu	780	Al-2 wt% Cu	710
3	Al-4 wt% Cu	780	Al-4 wt% Cu	710
4	Al-6 wt% Cu	780	Al-6 wt% Cu	710
Combination of different composition I, ($T_{E1}<T_{E2}$)*				
5	Al-2 wt% Cu	780	Pure Al	710
6	Al-4 wt% Cu	780	Pure Al	710
7	Al-4 wt% Cu	780	Al-2 wt% Cu	710
8	Al-6 wt% Cu	780	Pure Al	710
9	Al-8 wt% Cu	780	Pure Al	710
10	Al-8 wt% Cu	780	Al-4 wt% Cu	710
Combination of different composition II, ($T_{E1}>T_{E2}$)*				
11	Pure Al	780	Al-4 wt% Cu	710
12	Al-0.5 wt% Cu	780	Al-4 wt% Cu	710
13	Al-1.5 wt% Cu	780	Al-4 wt% Cu	710
14	Al-2 wt% Cu	780	Al-4 wt% Cu	710

* T_{E1} and T_{E2} are equilibrium liquidus temperature of primary and secondary melts, respectively.

Table 2. Chemical composition of primary and secondary melts and the casting temperature in the intermittent replacement method

Ingot No.	Primary melt		Secondary melt		ΔT (°C)*
	Composition	Casting temp. (°C)	Composition	Casting temp. (°C)	
Combination of same composition, ($T_{E1}=T_{E2}$)					
15	Al-4 wt% Cu	780	Al-4 wt% Cu	710	0
16	Al-4 wt% Cu	780	Al-4 wt% Cu	780	0
17	Al-4 wt% Cu	780	Al-4 wt% Cu	710	10
18	Al-4 wt% Cu	780	Al-4 wt% Cu	710	22
19	Al-4 wt% Cu	780	Al-4 wt% Cu	710	28
Combination of different composition I, ($T_{E1}<T_{E2}$)					
20	Al-4 wt% Cu	780	Pure Al	710	0
21	Al-4 wt% Cu	780	Pure Al	710	10
22	Al-4 wt% Cu	780	Pure Al	710	28
23	Al-4 wt% Cu	780	Al-1 wt% Cu	710	0
24	Al-4 wt% Cu	780	Al-2 wt% Cu	710	0
25	Al-4 wt% Cu	780	Al-3 wt% Cu	710	0
Combination of different composition II, ($T_{E1}>T_{E2}$)					
26	Al-4 wt% Cu	780	Al-7 wt% Cu	710	0
27	Al-4 wt% Cu	780	Al-7 wt% Cu	710	30

* ΔT is the difference between the temperature at the inner surface of primary layer when the unsolidified core of the ingot is discharged and that when the secondary melt is teemed into the core of the ingot.

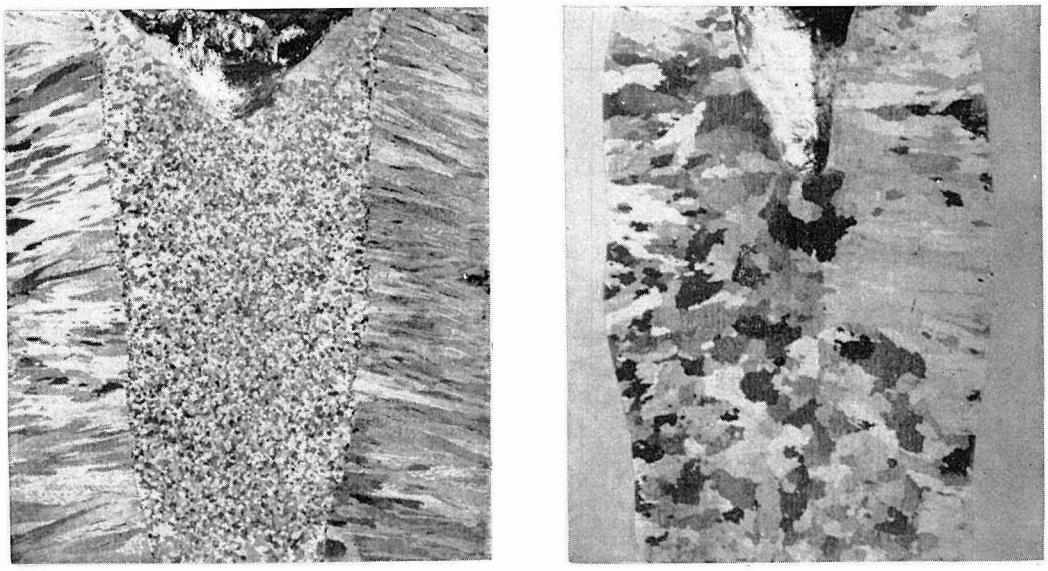


Photo. 1　Macrostructure in the longitudinal cross section of ingots obtained by the continuous replacement method. (×0.8)
(a) Primary melt: Al-4 wt% Cu, Secondary melt: Pure Al
(b) Primary melt: Pure Al, Secondary melt: Al-4 wt% Cu

る Photo. 1 (b) では一次層から連続して成長した柱状晶と粗大な等軸晶とからなっており，複合層の組成を入れかえることによってマクロ組織形態が大きく変化する。また Photo. 1 には示していないが同組成の組合せによる鋳塊のマクロ組織は，単一に鋳込んだ試料と比較して等軸晶領域は拡大し，かつ等軸晶は微細となり，その溶着性も良好であった。

次に未凝固溶湯を排出後直ちに二次溶湯を鋳込む間欠置換実験においては，連続置換による結果とほぼ同様のマクロ組織形態が得られ，その溶着性は良好である。界面温度を約 28°C～30°C 降下させた後の二次溶湯の鋳込みにおける間欠置換実験においても，Photo. 2 (a), (b) の鋳塊縦断面および横断面組織で見られるように，(a) 一次溶湯：Al-4 wt% Cu，二次溶湯：純 Al，および (b) 一次溶湯：Al-4 wt% Cu，二次溶湯：Al-7 wt% Cu の異種組成の組合せであれば良好な溶着性が得られる。しかしながら，Photo. 3 に示すように，一次溶湯：Al-4 wt% Cu，二次溶湯：Al-4 wt% Cu の同組成の組合せの場合では接着不良の部分が観察された。

このように二次溶湯を鋳込むまでの時間間隔と一次と二次の組成の組合せとが，溶着性に影響をおよぼすことが明らかとなった。

4.　一次層と二次層の溶着性

一般に鋳包みの溶着を決める重要な条件は，芯金を鋳包む溶湯金属が芯金の表面と接触すると接触層が一旦凝固し，それが外層の高温域からの復熱によって再び溶解できるかどうかにかかっている[1]。本手法は鋳塊の凝固過程で未凝固溶湯を排出するのであるから，一次鋳込みの排出界面は完全固相ではなく，二次鋳込みの時間づれによって程度は異なるが，固-液共存層となっており，鋳包みより本来良い溶着性が期待できることになる。しかし，間欠置換実験に見られる

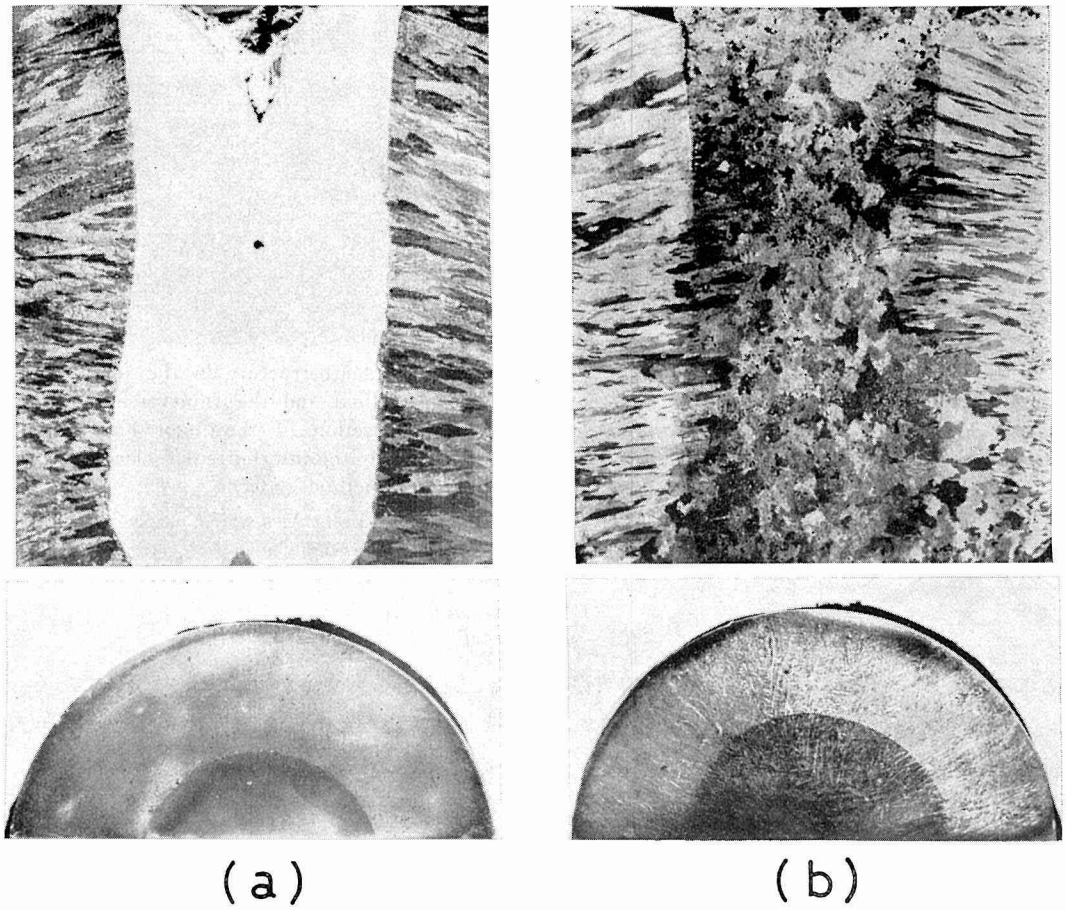


Photo. 2 Macrostructure in the longitudinal and the transverse cross section of ingots obtained by the intermittent replacement method. (×0.8)

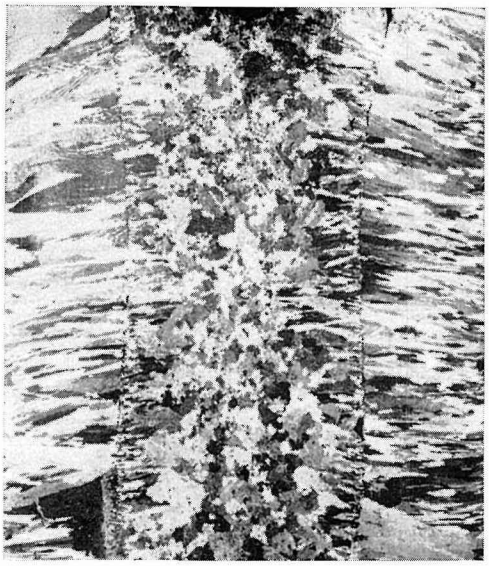
(a) Primary melt: Al-4 wt% Cu, Secondary melt: Pure Al
(b) Primary melt: Al-4 wt% Cu, Secondary melt: Al-7 wt% Cu

ように，二次鋳込みの時間間隔は同じであっても，一次と二次の組成の組合せによって溶着に良否が見られるので，その理由を明らかにする必要がある。

本実験では一次層および二次層となる溶湯金属の組成の組合せによって次のように分けられる。一次層の組成を基準にすると二次層は，1) Cu 濃度が低く，凝固温度の高い場合，2) Cu 濃度が同じで，凝固温度が等しい場合，3) Cu 濃度が高く，凝固温度が低い場合である。

これらの条件に注目して，前進差分法[2]を用いて，一次元円筒座標系での二次鋳込み法の凝固過程における，温度分布変化の計算を行い，実験結果の検討に用いた。計算にあたり次の仮定をおいた。1) 溶湯中に対流はない。2) 金属の諸物性値は純 Al の値を用い，一定値とする。3) 一次層と二次溶湯は完全接触しており，接触熱抵抗はない。4) 一次層と二次層の間には物質移動はない。また凝固潜熱は固相率変化に応じて比熱に換算した[3]。

合金凝固における凝固区間内温度 T での固相率 f_s は，平衡状態図に従うとすると次式が成立する。



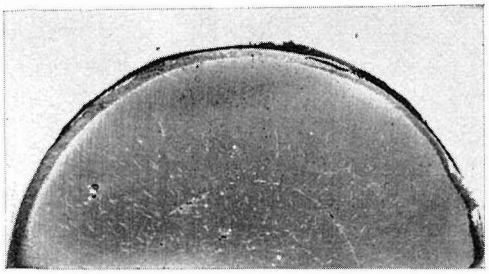


Photo. 3 Macrostructure in the longitudinal and the transverse cross section of the ingot obtained by the intermittent replacement method. (×0.8)

Primary melt : Al-4 wt% Cu, Secondary melt : Al-4 wt% Cu.

$$f_s = \frac{1}{1-K_0}\left(1-\frac{m\,C_0}{T_0-T}\right) \qquad (1)$$

ここで，K_0: 平衡分配係数，C_0: 初期溶質濃度，T_0: 純金属の融点，m: 液相線の傾きである。

一方固相内拡散が無視でき，液相濃度が均一だと仮定した時の非平衡凝固における固相率 f_s は次式で表わされる[4]。

$$f_s = 1-\left(\frac{m\,C_0}{T_0-T}\right)^{\frac{1}{1-K_0}} \qquad (2)$$

また見かけの比熱 C' は次式で表わされる。

$$C' = C-L\frac{df_s}{dT} \qquad (3)$$

ただし，C: 純 Al の比熱，L: 凝固潜熱。

純 Al の平衡凝固温度は 660°C であるが，微量の不純物があるので，その温度区間を 0.1°C とし，その範囲において比熱を変化させた。この時見かけの比熱 C' は (4) 式で表わされる。

$$C' = C+\frac{L}{0.1} \qquad (4)$$

二次鋳込みの計算を行う前に単一鋳込みにおける温度分布変化の計算を行い，実測値と比較することにより黒鉛鋳型の物性値を決定した。この時 (2) 式を用いた方が実測値と近似するので，(2) 式を用いた。鋳型-鋳物間の熱伝達係数は，椙山らの値[5] を用いた。

計算手順として，連続置換の実験に対しては，まず単一鋳込みにおける温度計算を行い，排出時間に達した時に鋳塊芯部の未凝固溶湯部分の熱的性質を二次溶湯のそれにおきかえて計算を進め，間欠置換の場合には，排出後の芯部の空気の温度は排出界面と等しく，熱は鋳塊の半径方向にのみ移動すると仮定し，界面温度が 30°C 降下した時に二次溶湯が鋳込まれるとして計算を行った。計算における組合せは一次溶湯を Al-4 wt% Cu と一定にし，二次溶湯を 0～7 wt% Cu まで 1 wt% Cu 毎に変化させた。以上の計算には北海道大学大型計算機センターの FACOM 230-75 を使用した。

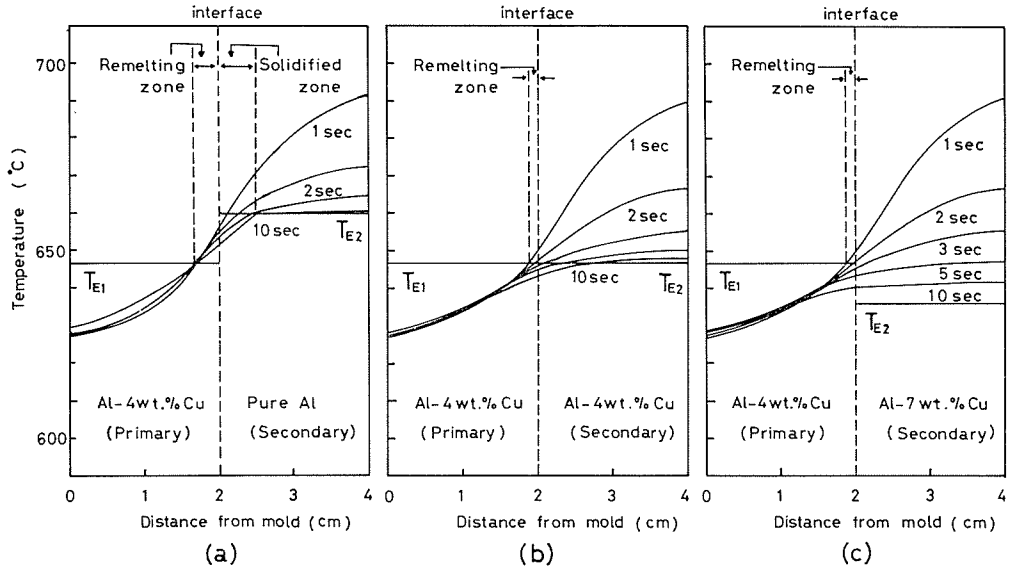


Fig. 2. Change in temperature distribution after continuous replacement of the secondary melt. The T_{E1} and T_{E2} are equilibrium liquidus temperature of primary and secondary melts, respectively.
(a) $T_{E1}<T_{E2}$, (b) $T_{E1}=T_{E2}$, (c) $T_{E1}>T_{E2}$.

二次溶湯を純 Al, Al-4 wt% Cu, Al-7 wt% Cu と変化させた時の連続置換における計算結果を Fig. 2 に示す。三種類の組合せとも一次層側の排出界面は，二次溶湯鋳込み後液相線温度以上に温度が上昇し，一次層が再溶解されている。また二次溶湯が Al-4 wt% Cu，および Al-7 wt% Cu では再溶解の結果，二次溶湯と再溶解層がともに完全液相状態で接触する過程の生ずることを示している。二次溶湯が純 Al である Fig. 2 (a) では一次側に再溶解層ができるとともに，二次側の純 Al 層では凝固が進行することになる。しかし純 Al の凝固温度 (T_{E2}) が一次側の凝固温度 (T_{E1}) に比して高く，かつ潜熱の発生による温度停滞とにより，一次層と二次層の界面では比較的大きな温度勾配ができて，熱移動が大きく，その結果再溶解幅を広げており，かつ再溶解時間も長くなっている。このような場合にも良好な溶着性が得られると考えられる。

一次層を Al-4 wt% Cu と一定にし，二次溶湯の組成を純 Al から 7 wt% Cu まで変化させた時の一次層の界面からの再溶解距離の計算結果を Table 3 に示す。二次溶湯の凝固開始温度が一次溶湯より高い組合せでは，凝固潜熱の影響が大きいことを示している。Cu 濃度が 3 wt% Cu 以上で再溶解距離が等しくなっているのは，これらの組成の組合せでは再溶解におよぼす熱的条件は，ほとんど二次溶湯の過熱度によってのみ決まるためである。

次に間欠置換に関しての計算結果を Fig. 3 に示す。二次溶湯が純 Al, Al-4 wt% Cu, Al-7 wt% Cu の三種類の組合せとも，二次鋳込み後において一次層の排出後の界面となったところの温度は，最大温度上昇時においても液相線温度にまで達していない。

結晶が存在してもそれらが部分的なからみあいをもたないで，液相中にけんだくしている状態での最大固相率は約 30%[6] であると知られている。したがって結晶が存在してもこの固相率以下であれば，完全液相状態に近い接触が他層との間に行なわれると考えられる。いま固相率 30% に相当する温度を Fig. 3 に破線で示した。Fig. 3 (a) の二次溶湯が純 Al の場合には一次層界面は再溶解の結果，最大温度上昇時に固相率は 18% となり，固相率 30% 以下の状態に約 5 秒

Table 3 Thickness of primary solidified shell remelted by secondary melt

Composition of primary melt	Composition of secondary melt	Thickness of remelting zone
Al-4 wt% Cu	Pure Al	0.38 cm
Al-4 wt% Cu	Al-1 wt% Cu	0.31 cm
Al-4 wt% Cu	Al-2 wt% Cu	0.25 cm
Al-4 wt% Cu	Al-3 wt% Cu	0.12 cm
Al-4 wt% Cu	Al-4 wt% Cu	0.12 cm
Al-4 wt% Cu	Al-5 wt% Cu	0.12 cm
Al-4 wt% Cu	Al-6 wt% Cu	0.12 cm
Al-4 wt% Cu	Al-7 wt% Cu	0.12 cm

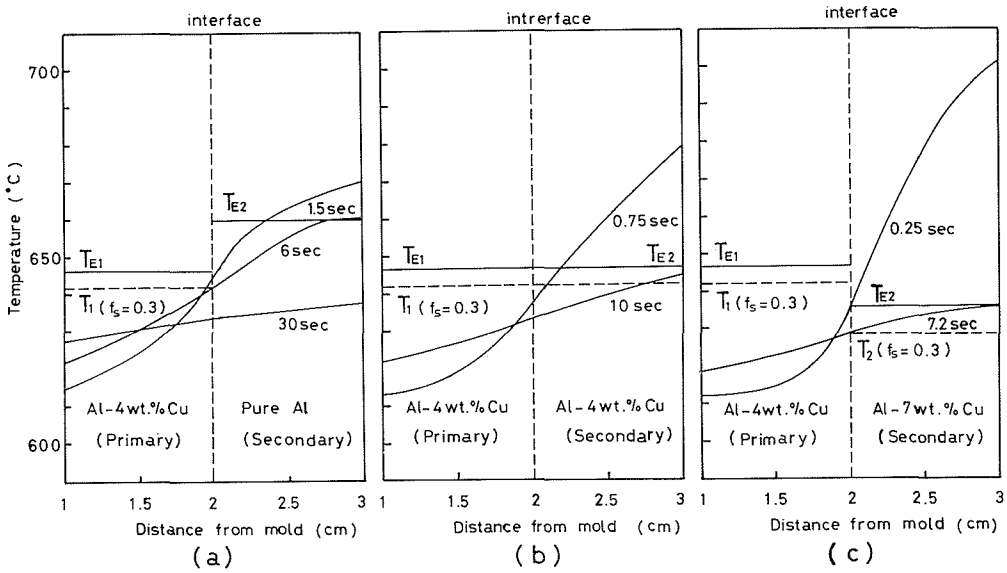


Fig. 3. Change in temperature distribution after intermittent replacement of the secondary melt. The T_{E1} and T_{E2} are equilibrium liquidus temperature of primary and secondary melts, respectively, and the T_1 and T_2 are temperature corresponding to fraction of solid of 0.3.

(a) $T_{E1}<T_{E2}$, (b) $T_{E1}=T_{E2}$, (c) $T_{E1}>T_{E2}$.

間おかれ二次側の純 Al の凝固層と接触していることになる。この組合せにおける実験では一次層と二次層は良い溶着状態にあった。このように，完全液相から固-液共存層をへて凝固する合金の場合には，完全液相状態まで再溶解されなくても固相がネットワークを組む以前の準液相状態ともいえる30% 以下の固相率まで再溶解することが，溶着条件を満たすことになることが理解された。一方，Fig. 3 (c) の二次溶湯が Al-7 wt% Cu では，一次層の凝固温度に比して低いため二次溶湯の過熱度によってのみ一次層の再溶解が可能となる。そのため，最大温度上昇時の一次層の排出界面の固相率は 52% までにしかならない。しかし二次溶湯の凝固開始温度が低く，また凝固区間幅も長いため，Fig. 3 (a) とは反対に二次溶湯自体が完全液相状態から一次層界面と接している二次層界面の固相率が 30% になるまでに約 7 秒間接触することになり，この組合せ

の実験結果も良好な溶着を示した。またこの時にはPhoto. 2 (b) に見られるように，一次層の柱状晶をもととして二次層への柱状晶の連続した成長がおこりうることになる。

これに対してFig. 3 (b) に示される二次溶湯がAl-4 wt% Cuの同組成の組合せでは，最大温度上昇時の一次層と二次層の界面における固相率はともに46%であり，両者の固相率は比較的高い状態にとどまり，このため溶着性は期待できないことが予測され，溶着不良なPhoto. 3の実験結果はこれを裏づけていることになる。このように熱的条件を基とした解析結果は，良く実験結果を説明することができた。

5. 結　　言

良い溶着性を持つ複合材料の製造のための基礎として，凝固過程で鋳塊芯部の未凝固溶湯を他の合金溶湯と置換するという，新たな手法による鋳造法を試み，またその溶着性におよぼす熱的因子を検討するために，温度分布変化の計算を行った。その結果以下のことが明らかとなった。

(1) 一次溶湯の未凝固部分を連続的あるいは間欠的に置換するという二つの方法においては全般的に良好な溶着性が得られた。しかし間欠置換において排出界面の温度を排出時の温度から約30°C降下させてから二次溶湯を鋳込む同組成の組合せ鋳塊では溶着不良の部分が生じた。

(2) 一次と二次溶湯の組成が異なる組合せにおける試料では，二次溶湯の液相線温度が一次に比して高い時にはその凝固潜熱による一次層の再溶解により，また二次溶湯の液相線温度が低い時には一次層に対して比較的長時間液相状態で二次溶湯が接触できることにより良好な溶着が得られる。

(3) 一次層，二次層のどちらかが，固相率30%以下の状態で他層と5秒以上接触すると良好な溶着が得られることを凝固過程の一次層と二次層の温度解析によって明確にした。

この手法は一次層および二次層の形成がともに鋳込みによるものであるから流動性が保持される鋳造条件であれば，かなり複雑な形状を有する複合層の製造にも適用できることになる。

引 用 文 献

1) 萩原，高橋： 鋳物，**32** (1960), 4, 233.
2) 藤川洋一 (訳)： 電算機による偏微方程式の解法． サイエンス社 (1970), 10.
3) W. G. Pfann： Trans. AIME, **194** (1952), 747.
4) 新山英輔： 鋳物，**43** (1971), 1, 28.
5) 椙山，梅田，竹内，加藤： 鋳物，**47** (1975), 3, 178.
6) 高橋，萩原： 日本金属学会誌，**29** (1965), 1152.