



Title	Al-Si合金の固-液共存層における液相の流動性の定量的評価
Author(s)	工藤, 昌行; Kudoh, Masayuki; 高橋, 忠義 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 110, 69-79
Issue Date	1982-09-20
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41753
Type	departmental bulletin paper
File Information	110_69-80.pdf



Al-Si合金の固-液共存層における液相の 流動性の定量的評価

工藤昌行 高橋忠義
(昭和57年6月15日受理)

Estimation of the Fluidity of the Liquid in the Solid-Liquid Coexisting Zone of an Al-Si Alloy

Masayuki KUDOH and Tadayoshi TAKAHASHI

(Received June 15, 1982)

Abstract

The fluidity of the liquid in the solid-liquid coexisting zone of an Al-2.4 mass% Si alloy was measured by the seepage of interdendritic liquid through a cylindrical hole formed in the zone. The effective permeability coefficient K_e which is an index of the fluidity of the interdendritic liquid was estimated in relation to the fraction of solid f_s and cooling rate R at the initiation of solidification. The specific permeability k depending on the geometrical pattern of dendrites was also deduced from the effective permeability coefficient. As a result, the following relations were obtained.

$$\log K_e = \log 0.079 R^{0.44} + 15.3 R^{0.17} \log (1-f_s) - 2 \quad (4)$$

$$\log k = \log 2.1 \times 10^{-6} R^{0.54} + 16.6 R^{0.18} \log (1-f_s) - 4 \quad (6)$$

The fraction of the solid at which dendrites begin to form networks is about 0.30. Then the effective permeability coefficient is 7.9×10^{-6} m/s and the specific permeability is 1.3×10^{-12} m². On the other hand, the fraction of the solid above which the liquid cannot flow through the dendrites decrease from 0.70 to 0.60 as the cooling rate increases from 0.0083 K/s to 0.083 K/s. The effective permeability coefficient and specific permeability become constant values of 2.8×10^{-8} m/s and 3.7×10^{-15} m², respectively, although the fraction of solid is changed by the cooling rate. It was shown that the effective permeability coefficient is mainly controlled by the specific permeability.

1. 緒 言

合金の凝固終了までにデンドライト状態に発達する結晶と、その結晶の発達にともなって溶質が濃化する液相とが共存する過程を経なければならない。その過程における液相の流動性は偏析や気孔の生成に大きな影響を与える。⁽¹⁾⁽²⁾それゆえ液相の流動性を凝固要因と関係づけて定量的に

評価することは健全な鋳塊を製造する観点から重要なこととなる。

固-液共存層内液相の流動性は基本的には成長 dendrait の幾何学的形態とその分布および共存層内の固相割合を考慮して検討することが必要である。結晶の発生とその後の dendrait への発達 は凝固開始時の冷却速度に左右される⁽³⁾⁽⁴⁾ ことから、 dendrait の発達形態とその分布を冷却速度の関数として表わすことが可能である。著者ら⁽⁵⁾ はこれまで炭素鋼を用い、種々の冷却速度で形成した固-液共存層の一定固相率段階で人工的な円筒状の空孔を形成し、その空孔内に固-液共存層内液相を浸出させることによって液相の流動性を冷却速度と固相率とに関係づけた有効透過係数で評価した。また固-液共存層内液相の密度および粘性係数を決定することにより、有効透過係数から dendrait の幾何的分布形態に依存する透過率も導出した。有効透過係数を評価した方法を“円形空孔浸出法”と呼称している⁽⁵⁾ この方法は種々の結晶形態、たとえば肥大晶や等軸晶と共存する液相の流動性をも評価することが可能である。

本研究は Al-2.4 mass%Si 合金を試料とし、冷却速度を種々変化させて形成した固-液共存層における液相の流動性を円形空孔浸出法によって評価し、有効透過係数と固相率および冷却速度との関係を求めた。さらに有効透過係数より透過率を決定し、透過率と固相率および冷却速度との関係も求めた。また本研究で得た透過率と炭素鋼における透過率⁽⁵⁾ との比較、さらには他の報告値⁽⁶⁾⁽⁷⁾ との比較検討も行った。

2. 実験方法

用いた実験装置の概略を Fig. 1 に示す。内径 60 mm、高さ 120 mm の黒鉛ルツボを電気抵抗炉内の均熱帯に設定した。固-液共存層に空孔を形成するため、あらかじめルツボ底部の中心に固定してある直径 13 mm、高さ 10 mm の黒鉛製台座上に外径 13 mm の両端を開放してある不透明石英管を密着して直立させた。また石英管内には空孔内に浸出した液相の高さを測定するための探知針を高さを違って設定した。探知針はアルメル熱電対線を用い、外径 1 mm、内径 0.4 mm の絶縁管で被覆し、その先端を 2 mm ほど絶縁管より突出させ、さらにそのうちの 1 mm を直角方向に曲げて浸出液相との接触を良好にするようにした。温度の制御はルツボ底部から 30 mm 高さで、ルツボ壁面から 15 mm の位置に設定したアルメルクロメル熱電対で行なった。

実験手順としては、電気抵抗炉内にルツボ、空孔形成用の石英管、探知針および熱電対を設定後、電気炉の温度を 973 K まで上昇させてその温度で保持し、別の電気抵抗炉で溶解してある Al-2.4 mass%

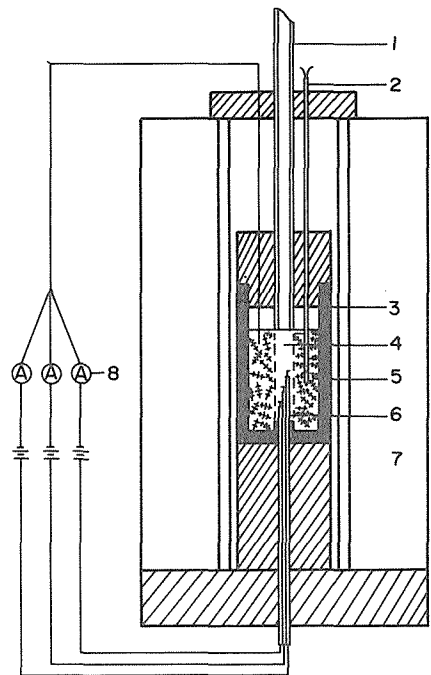


Fig. 1 Experimental apparatus to estimate the fluidity of the liquid in the solid-liquid coexisting zone.

- 1: Quartz pipe
- 2: Thermocouples
- 3: Graphite crucible
- 4: Cylindrical hole
- 5: Solid-liquid coexisting zone
- 6: Probe
- 7: Electric furnace
- 8: Indicatinb lamp

Si 合金の溶湯を 85 mm の高さまでルツボ内に注入した。その後 973 K で 600 秒間保持後、所定の冷却速度で冷却させて固-液共存層を形成させ、所定の固相率に対応する温度で 300 秒保持後、空孔形成用の石英管を 75 mm の高さまで静かに引き上げた。空孔内に浸出した液相は探知針に接触するとランプが点灯し、それによって空孔内に浸出した液相の高さと、その高さに達するまでの経過時間を測定した。冷却速度は 0.0083 K/s, 0.038 K/s, 0.058 K/s, 0.083 K/s の 4 段階で変化させ、また空孔形成時の固相率は 0.33 から 0.65 までの範囲で行なった。試料は最上部に設定してある探知針が感知した後に、あるいは保持温度で 1500 秒経過した後に炉冷した。

炉冷後の試料は円形空孔の縦中心面を通るように切断し、エメリー紙で研磨後、10%苛性ソーダ水溶液で 40 秒間腐蝕し、デンドライト組織の観察を行なった。保持温度と固相率との関係は Appendix に示す方法で求めた。

3. 実験結果

3.1 固相率による液相の流動性

Photo. 1 に凝固開始時の冷却速度が 0.0083 K/s で、空孔形成時の固相率が (a) 0.46 および (b) 0.55 の凝固組織を示す。空孔の痕跡は腐蝕による空孔内外の色の濃淡差と、空孔内のデンドライトが空孔外のデンドライト組織よりも微細であることから明瞭に区別できる。また空孔内のデンドライトは空孔形成時の固相率の高い方がより微細化している。このことは浸出液相の溶質濃化によるデンドライトの微細化に加えて、浸出した液相は結晶生成に先立って過冷し、その過冷度は固相率の増加とともに増加することによるためと考えられる。⁽⁸⁾

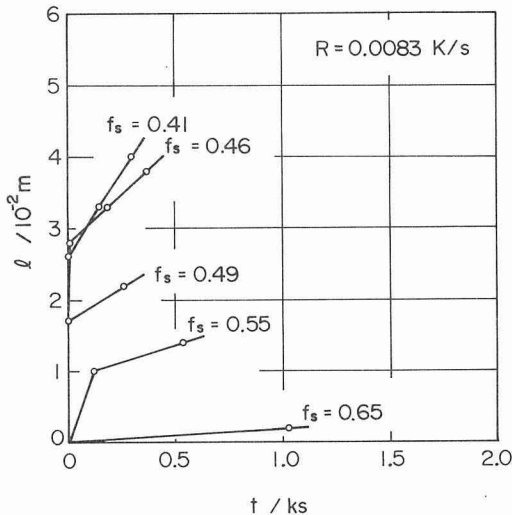


Fig. 2 Relation between the height, l , from the bottom of the liquid flowing into a hole and the time, t , after the formation of the hole at different fractions of solid, f_s . Cooling rate is 0.0083 K/s.

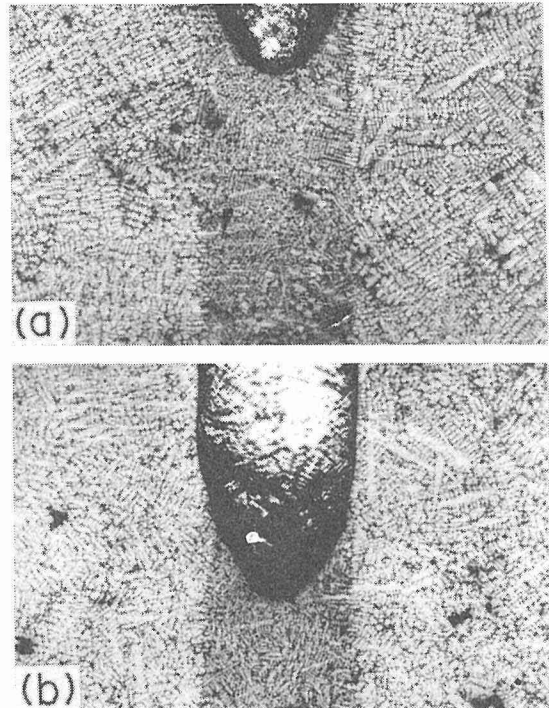


photo. 1 Dendrite structure of an Al-Si alloy after the holes were formed at the fractions of solid of (a) 0.46 and (b) 0.55. Cooling rate is 0.0083 K/s. (X1.8)

Fig. 2 に 0.0083 K/s の冷却速度で冷却したときの空孔内へ浸出した液相高さ l と空孔形成からの経過時間 t および空孔形成時の固相率 f_s との関係を示す。空孔の形成初期において液相は急速に浸出し、時間経過とともに液相の浸出は緩やかとなり一定の上昇速度を示す。また上昇速度は空孔形成時の固相率が増すほど低下する。空孔形成初期における液相の急速な浸出は石英管を引き上げることによって空孔壁付近での圧力均衡がくずれたためと考えられ、その後は溶湯静圧のみによって液相が定常的に浸出したものとみなされる。

3. 2 冷却速度による液相の流動性

Fig. 3 は本実験で最大の冷却速度 0.083 K/s で冷却したときの液相の浸出高さ l と経過時間 t および空孔形成時の固相率 f_s との関係を示したものである。液相が空孔へ浸出するときの挙動は Fig. 2 と類似しており、空孔形成初期において液相は急速に浸出し、その後ははだいに緩やかとなっている。また固相率の増加とともに空孔内に浸出した液相の上昇速度は減少している。さらに凝固開始時の冷却速度が小さい Fig. 2 の結果と Fig. 3 の結果を近似した固相率で比較すると、冷却速度の増加は液相の空孔への浸出速度を低下させていることが認められる。

Photo. 2 は 0.083 K/s の速度で冷却し、0.53 の固相率で空孔を形成した試料の凝固組織である。空孔外のデンドライトは Photo. 1 で観察される空孔外のデンドライトよりも微細であり、冷却速度の増加が初晶デンドライトを微細化したことが示される。固-液共存状態での液相の流動性を凝固後の組織より判断することは必ずしも正しくないが、同一成分試料の本実験結果では流動性の良否と凝固組織の微細化とが対応することより、冷却速度の増加による結晶生成数の増加がその後の凝固過程でデンドライトの密な分布状態をもたらし、デンドライト間液相の流動性を阻害するものと考えられる。

Fig. 2 および Fig. 3 において液相の浸出が定常状態となった領域で、液相の空孔内での上昇速度を求め、固相率との関係で示したのが Fig. 4 である。また同図には 0.038 K/s、および 0.058 K/s の冷却速度で冷却し、Fig. 2, Fig. 3 と同様に各固相率における空孔内に浸出した液相高さ と浸出時間との関係を求め、その関係より決定した液相の上

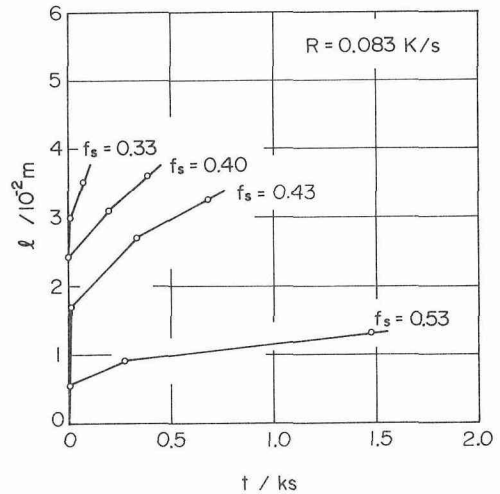


Fig. 3 Relation between the height, l , from the bottom of the liquid flowing into a hole and the time, t , after the formation of the hole at different fractions of solid, f_s . Cooling rate is 0.083 K/s.

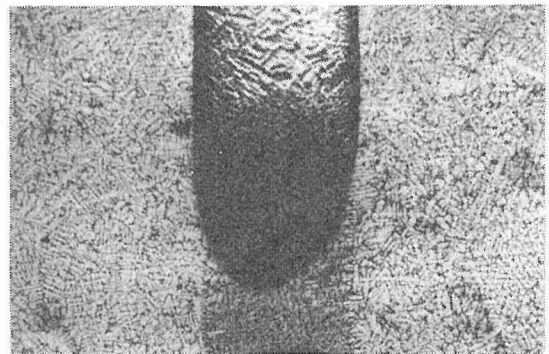


photo. 2 Dendrite structure of an Al-Si alloy obtained at the cooling rate of 0.083K/s. The hole was formed at the fraction of solid of 0.53. (X1.8)

昇速度と固相率との関係も示してある。上昇速度は固相率が約 0.45 付近までに急速に減少し、それ以上の固相率になると上昇速度の減少は緩やかとなる。このことは 0.45 の固相率までは単一のデンドライトの主軸および側枝がよく成長する過程であって、試料全体としてはデンドライトによる部分的ネットワークを形成する段階までであるため、結晶成長形態の急速な変化が流動性の急速な変化につながっている。0.45 以上の固相率では側枝の肥大化にともなってデンドライトのネットワークを完成する過程に対応するため、結晶形態の変化に対応して流動性の減少は緩慢となるが、非常に液相の流動を困難なものとする。また冷却速度が増すと同一固相率であっても液相の上昇速度は減少し、冷却速度の増加にともなうデンドライトの密な分布状態が流動性を低下させることが認められる。また空孔へ液相の浸出が困難となる固相率は 0.0083 K/s の冷却速度で 0.70、0.038 K/s で 0.64、0.058 K/s で 0.61、0.083 K/s で 0.60 となり、冷却速度の増加にともなって減少する。著者の 1 人は固-液共存層の凝固過程における動的移行を凝固遷移層と呼称し、その層を液相と固相の共存状態より q 層と p 層に分類し、低固相率側の q 層をさらに q₂ 層と q₁ 層に細分している⁽⁹⁾。完全液体領域と q₁ 層との間にある q₂ 層はいわゆるベースティゾーンであり、自由デンドライトは液体とともに流動することができる。q₁ 層は q₂ 層と p 層との間にあり、デンドライトがネットワークを形成し、液体のみの流動が可能となる。さらに高固相率側の p 層は q₁ 層と完全固体領域との間にあり、液相の流動が困難となる領域である。したがって円形空孔への液相の浸出ができなくなる時の固相率は凝固遷移層内のデンドライトのネットワークの完成段階に対応する p-q₁ 層の境界固相率に対応するものとみられる。一方、液相の上昇速度は冷却速度によらずほぼ 0.30 の固相率で一定値を示すようにみられる。このことは凝固初期において液相内に懸垂した未発達自由デンドライトが流動できる q₂ 層から、凝固の進行とともにデンドライトが部分的にネットワークを形成し、液相のみの流動を可能にする q₁ 層へ遷移する境界の固相率に対応するものと考えられる。

4. 有効透過係数の評価

4.1 計算方法

本実験方法による有効透過係数の解析には、土壌内のホールへの水の浸出に関する流体物理学的理論を応用した⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾いま固-液共存層内の空孔に浸出する液相が l_1 から l_2 まで上昇するのに t_1 から t_2 時間経過したとするとつぎの関係式が得られる。

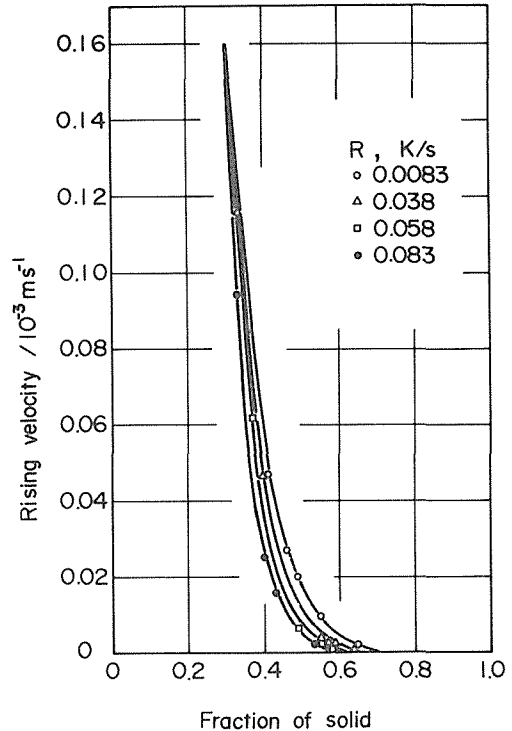


Fig. 4 Relation between the rising velocity of the liquid flowing into a hole and the fraction of solid at different cooling rates, R.

$$(t_2 - t_1) = \pi a Q / 8 K_e \quad (1)$$

ここで

$$K_e = \rho g k / \mu \quad (2)$$

$$Q = T \ln \frac{\tan \pi (1 + l_2/h)/4}{\tan \pi (1 + l_1/h)/4} + U (\sin \pi l_2/2h - \sin \pi l_1/2h) + W (\sin^3 \pi l_2/2h - \sin^3 \pi l_1/2h) \quad (3)$$

a (m) は空孔の半径, K_e (m/s) は有効透過係数, ρ (kg/m³) は液体の密度, μ (Pa·s) は液体の粘性係数, g は重力加速度, k (m²) は透過率, h (m) は空孔の高さである。また T , U , W は空孔および鋳塊の大きさで定まる定数であり, つぎのように表わされる。

$$B(n) = \frac{-K_1(n\pi d/2h) \cdot I_1(n\pi a/2h) / I_1(n\pi d/2h) + K_1(n\pi a/2h)}{K_1(n\pi d/2h) \cdot I_0(n\pi a/2h) / I_1(n\pi d/2h) + K_0(n\pi a/2h)}$$

$$n = 1, 3, 5$$

$$T = [B(1) - B(3)/3 - B(5)/5] / [B(1)]^2$$

$$U = 4 [B(3)/3^2 + B(5)/5^2] / [B(1)]^2$$

$$W = 16 B(5)/75 [B(1)]^2$$

ここで I_0 , K_0 はそれぞれ 0 次の第一種および第二種の変形ベッセル関数であり, d (m) は鋳塊の半径である。また $n=7$ 以上の項は無視した。Fig. 2, Fig. 3 で示した各固相率における空孔内の浸出液相高さ l と経過時間 t との関係を定常的な浸出領域内で求め, それを(1), (3)式に代入することによって有効透過係数 K_e を決定することができる。

4. 2 有効透過係数

Al-2.4 mass%Si 合金の冷却速度 0.017 K/s における有効透過係数と固相率との関係はすでに

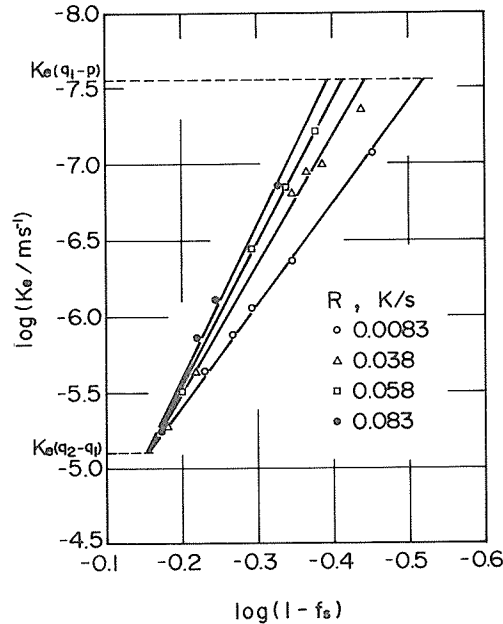


Fig. 5 Relation between the effective permeability coefficient, K_e , and the fraction of solid, f_s , at different cooling rates, R .

報告している。⁽¹¹⁾ここでは冷却速度のコントロールを注意深く行ない、さらに冷却速度を 0.0083 K/s から 0.083 K/s までの間で変化させた。凝固開始時の冷却速度 R (K/s) と空孔形成時の固相率 f_s と有効透過係数 K_e (m/s) との関係を Fig. 5 に示す。有効透過係数は固相率の増加で減少し、同一固相率では冷却速度の増加によって減少する。これら三者の関係はつぎのように表わされる。

$$\log K_e = \log 0.079 R^{0.44} + 15.3 R^{0.17} \log(1-f_s) - 2 \quad (4)$$

(4)式において固相が液相とともに流動する q_2 層から固相が発達して部分的なネットワークを形成し、液相のみが流動する q_1 層へ遷移する境界の固相率 0.30 での有効透過係数値 $K_{e(q_2-q_1)}$ は 7.9×10^{-6} m/s である。また液相の浸出が困難となる境界 (q_1 層と p 層の境界)の固相率は冷却速度が 0.0083 K/s から 0.083 K/s へと増加するにつれて 0.70 から 0.60 へと減少したが、有効透過係数値 $K_{e(q_1-p)}$ はほぼ 2.8×10^{-8} m/s の一定値となる。

5. 透過率の決定

5.1 液相の密度と粘性係数

有効透過係数は(2)式で示されるように液体の密度、粘性係数とデンドライトの幾何形態に対応する透過率で構成される。したがって固-液共存層内液相の密度、粘性係数が決定できれば透過率を算出することができる。

Al-Si 合金における液相の密度は高瀬の実験結果⁽¹²⁾をもととしてつぎの式で表わされる。

$$V_L = 0.3668 + 7.869 \times 10^{-5}(T_m - 273) + 0.078 \times 10^{-3} C_L^{0.34} \quad (5)$$

ここで V_L (10^{-3} m³/kg) は液相の比容積, C_L (mass%) は液相溶質濃度, T_m (K) は C_L に平衡な凝固開始温度である。固-液共存層内液相の密度は凝固過程における各固相率での液相溶質濃度と、その濃度に平衡な凝固開始温度を Appendix の (8), (9) 式によって求め、(5) 式で計算した。

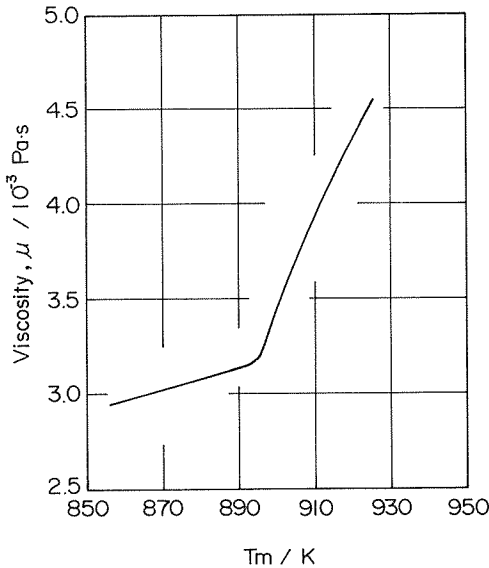


Fig. 6 Change in viscosity, μ , of the liquid at the equilibrium liquidus temperature, T_m , for an Al-Si alloy.

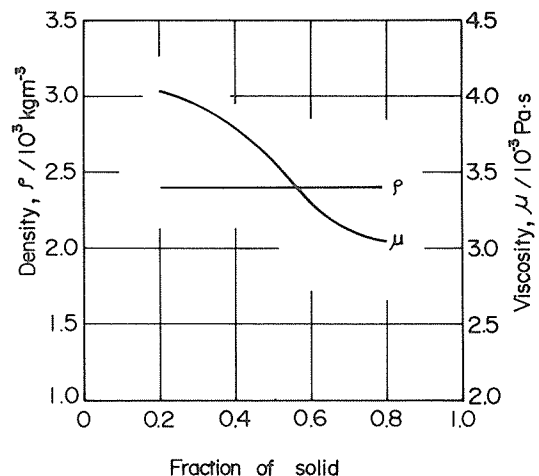


Fig. 7 Relation among the density, ρ , and viscosity, μ , of the liquid in the solid-liquid coexisting zone and the fraction of solid.

一方、液相の粘性係数は W. R. D. Jones らの実験結果⁽¹³⁾ より各組成の融点における粘性係数を外挿して求めた。融点 T_m (K) における Al-Si 合金の粘性係数変化を Fig. 6 に示す。固-液共存層内液相の粘性係数も密度を決定したときと同様に、各固相率における液相溶質濃度を (8) 式、その濃度より得られる平衡凝固開始温度を (9) 式で求め、Fig. 6 より読みとることによって決定した。求められた密度と粘性係数の結果を Fig. 7 に示す。密度は固相率が増加しても 2.40 Mg/m^3 とほぼ一定であり、粘性係数は固相率の増加によって減少する傾向を示す。これらの値をもととして (2) 式より透過率を計算した。

5. 2 透過率

Fig. 8 に透過率 k (m^2) と固相率 f_s および冷却速度 R (K/s) との関係を示す。有効透過係数と固相率、冷却速度との関係と同様に透過率は固相率および冷却速度の増加で減少する。 k , f_s , R の三者の関係は次式で示される。

$$\log k = \log 2.1 \times 10^{-6} R^{0.54} + 16.6 R^{0.18} \log(1-f_s) - 4 \quad (6)$$

上式の傾きと、有効透過係数と固相率および冷却速度との関係を示した (4) 式の傾きを比較すると、冷却速度が 0.0083 K/s で (4) 式は 6.8 , (6) 式で 7.0 であり、 0.083 K/s の冷却速度

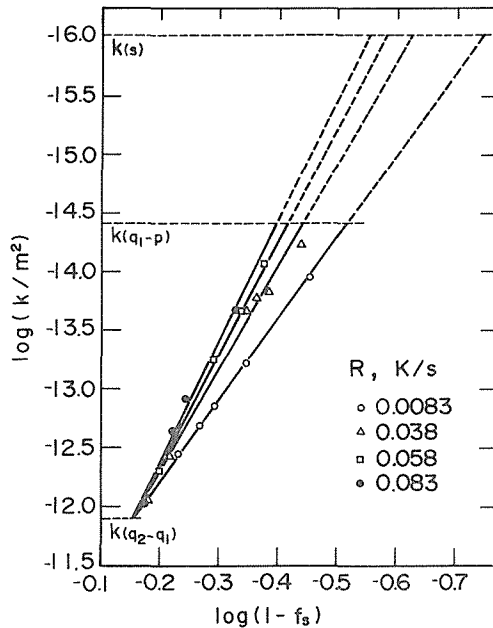


Fig. 8 Relation between specific permeability, k , and the fraction of solid, f_s , at different cooling rates, R . The broken lines show the specific permeability change under solidification contraction.

$K_{(q_2-q_1)}$: Specific permeability at the boundary between the q_2 and q_1 zones.

$K_{(q_1-p)}$: Specific permeability at the boundary between the q_1 and p zones.

$K_{(s)}$: Specific permeability at the limit of liquid flow due to solidification contraction.

では(4)式が10.0, (6)式で10.6となり, いずれの冷却速度においても粘性係数の変化が透過率の傾きをいくぶん大きくするが, その効果は小さく, 主体的には有効透過係数は透過率に支配されているとみなせる。

また低固相率側の q_2 層と q_1 層との境界固相率での透過率値 $k_{(q_2-q_1)}$ は $1.3 \times 10^{-12} \text{ m}^2$ であり, 液相の浸出が認められなくなる高固相率側の q_1 層と p 層との境界固相率における透過率値 $k_{(q_1-p)}$ は冷却速度によらずほぼ $3.7 \times 10^{-15} \text{ m}^2$ の一定値を示した。

一方, 鋳塊の健全性を規定する立場からは, 凝固過程における固-液共存層内液相の凝固収縮を駆動力とする給湯性を明らかにする必要がある。凝固収縮によってデンドライト間を液相が流動するとき, 本研究での溶湯静圧下での流動限界固相率よりも負圧の増加分に応じて大きな固相率まで流動することが予想され, このことは固-液共存層を加圧すると流動限界固相率はしだいに大きくなることを示した S. Engler らの実験⁽¹⁴⁾ からも理解される。いま凝固収縮による液相の流動限界固相率を求めた実験⁽¹⁵⁾ によると, 凝固開始時の冷却速度が 0.083 K/s で流動限界固相率は 0.71 であり, 透過率値 $k_{(s)}$ は $9.6 \times 10^{-17} \text{ m}^2$ となり, 本実験で得た同一冷却速度での流動限界固相率 0.60 より 11% ほど増加する結果を得た。したがって凝固収縮による負圧によってデンドライト形態が変形しなければ, デンドライトの幾何形態を表わす透過率と固相率および冷却速度の静圧下における関係は凝固収縮負圧によって静圧下よりいくぶん高めの高固相率において流動する液相の挙動にも適用されるものと考えられるので, その関係を Fig. 8 の破線で延長して示し, さらに一つの冷却速度 0.083 K/s における流動限界固相率 0.71 での透過率値 $k_{(s)} 9.6 \times 10^{-17} \text{ m}^2$ は, 他の冷却条件の場合にも静圧下における場合と同様に同一であると考えて Fig. 8 に併記した。このように評価した透過率 $k_{(s)}$ を用いると, 一方向凝固における凝固収縮負圧と試料の密度変化はよく対応し, 鋳塊の健全性を定量的に論じる上で非常に役立つことが明らかとなった⁽¹⁶⁾。

5. 3 炭素鋼の透過率および他の報告値との比較

著者らは円形空孔浸出法によって 0.75 mass\% C 鋼の固-液共存層内液相の流動性を有効透過係数および透過率で評価した⁽⁵⁾。その結果透過率 k (m^2) は固相率 f_s と冷却速度 R (K/s) の関数として次式で表わされた。

$$\log k = 1.5 \times 10^{-6} R + 20.3 R^{0.35} \log(1-f_s) - 4 \quad (7)$$

Al-Si 合金の透過率と固相率および冷却速度との関係を示した(6)式と炭素鋼の(7)式を比較すると, 冷却速度の遅い 0.0083 K/s の場合には Al-Si 合金の方が固相率の増加にともなって透過率の減少は大きくなり, 液相の流動は低下する傾向を示す。またこのことは Al-Si 合金の方が炭素鋼よりも給湯性が悪く, 鋳造欠陥を生じやすいことを示唆している。冷却速度が 0.083 K/s になると, 透過率と固相率との関係は両者とも近似した傾向を示し, 炭素鋼および Al-Si 合金のデンドライト形態は類似し, 液相の流動性に対する溶質元素の影響が小さくなることを示している。炭素鋼における q_2 層と q_1 層との境界固相率は $0.29 \sim 0.30$ であり, 本実験での境界固相率 0.30 とよい一致を示す。また炭素鋼の $k_{(q_2-q_1)}$ 値は $6.0 \times 10^{-13} \text{ m}^2$ であり, Al-Si 合金の $k_{(q_2-q_1)}$ 値 $1.3 \times 10^{-12} \text{ m}^2$ より小さな値となる。一方, 炭素鋼の q_1 層と p 層の境界固相率も冷却速度が減少すると増加するが, $k_{(q_1-p)}$ 値は $2.1 \times 10^{-15} \text{ m}^2$ の一定値を示し, Al-Si 合金の $3.7 \times 10^{-15} \text{ m}^2$ と近似した値となっている。

T. S. Piwonka ら⁽⁶⁾ は Al-4.5 mass% Cu 合金を用い, ほぼ完全液相状態から固相率 0.90 までの透過率を求めた。また D. Apelian ら⁽⁷⁾ は約 0.66 から 0.94 までの固相率範囲で Al-4 mass% Si 合金の透過率を求めている。これらの実験における冷却速度と透過率との関係は不明であるが,

同一固相率で本実験結果と比較すると、いずれの透過率も本実験より大きな値となっている。また流動限界固相率も Al-4.5 mass% Cu 合金で 0.90, Al-4 mass% Si 合金で 0.94 と本実験結果と大きく異なっている。このような相違の生じる要因について考察する。Piwonka らの実験によると固-液共存層内の液相を熔融鉛の強制流動または窒素ガスの吹き込みによって流動させ、Darcy の法則より透過率を評価している。この方法によると液相を流動させるためのこのような駆動力は、流動の容易な特定の流路を形成しやすく、ときにはデンドライトの比較的弱い部分を破壊することが考えられる。したがって高固相率まで液相は流動できるとともに、本実験よりも高い流動性を示したものとみなせる。一方、Apelian らは減圧によってデンドライト間液相を除去してポラス層を作製し、蒸留水の流動によって透過率を評価している。このような試料の作製方法でも上述と同じことが考えられ、デンドライト間液相の強制除去は液体流動の容易な優先流路を形成させやすいことになる。このような優先流路の形成は凝固中のデンドライトの不均一発達分布に起因するものである。本実験では液相の流動は鋳塊高さのみの液相の静圧によるため、デンドライトは強い流動抗力を受けることが少なく、また鋳塊の高さや直径が有効透過係数を変化させない大きさを選定し、デンドライトの不均一発達分布の影響を小さくしている。しかしいずれにしても流動限界における透過率は Al-4.5 mass% Cu 合金で $4.0 \times 10^{-15} \text{ m}^2$ ⁽¹⁷⁾, Al-4 mass% Si 合金では $3.5 \times 10^{-15} \text{ m}^2$ であり、本実験での流動限界透過率 $3.7 \times 10^{-15} \text{ m}^2$ と良い一致を示す。

6. 結 言

固-液共存層内液相の流動性が把握できる円形空孔浸出法を用い、Al-Si 合金の有効透過係数をデンドライトの発達状態を規制する冷却速度と固相率との関連において明確にした。また有効透過係数に含まれる液相の密度および粘性係数を評価することによって、デンドライトの分布形態に依存する透過率を決定し、炭素鋼の透過率および他の研究者の値との比較検討を行なった。

その結果を要約するとつぎのようになる。

(1) Al-Si 合金のデンドライト間液相の流動性は空孔形成時の固相率が大きくなるほど低下し、また同一固相率では凝固開始時の冷却速度が大きくなるほど液相は流動し難くなる。

(2) 有効透過係数 K_e (m/s) と固相率 f_s および冷却速度 R (K/s) との関係はつぎのように表わされる。

$$\log K_e = \log 0.079 R^{0.44} + 15.3 R^{0.17} \log(1-f_s) - 2 \quad (4)$$

上式はデンドライトがネットワークを形成し始めて液相のみが流動できる境界の固相率 $f_{q_2-q_1}$ から、固相の増加によって液相も流動し難くなる境界の固相率 f_{q_1-p} までの間で成り立つ。ここで Al-Si 合金の $f_{q_2-q_1}$ 値は 0.30 であり、 f_{q_1-p} 値は冷却速度が 0.0083 K/s から 0.083 K/s へと増加すると 0.70 から 0.60 へと減少する。また $f_{q_2-q_1}$ の固相率における有効透過係数値 $K_{e(q_2-q_1)}$ は $7.9 \times 10^{-6} \text{ m/s}$ であり、 f_{q_1-p} の固相率における有効透過係数値 $K_{e(q_1-p)}$ は冷却速度によらずほぼ $2.8 \times 10^{-8} \text{ m/s}$ の一定値を示した。

(3) 透過率 k (m^2) と冷却速度 (K/s) および固相率 f_s との関係はつぎのように示される。

$$\log k = \log 2.1 \times 10^{-6} R^{0.54} + 16.6 R^{0.18} \log(1-f_s) - 4 \quad (6)$$

$f_{q_2-q_1}$ および f_{q_1-p} における透過率 $k_{(q_2-q_1)}$, $k_{(q_1-p)}$ はそれぞれ $1.3 \times 10^{-12} \text{ m}^2$, $3.7 \times 10^{-15} \text{ m}^2$ であり、後者の値は炭素鋼および非鉄合金に関する報告値と良い一致を示す。また凝固収縮をとまなう場合の流動限界固相率は、溶湯静圧による流動限界固相率よりも約 11%ほど高くなり、その固相率における透過率値は $9.6 \times 10^{-17} \text{ m}^2$ となる。

(4) 炭素鋼における透過率と固相率および冷却速度との関係を Al-Si 合金の透過率と固相率、冷却速度との関係を比較すると、冷却速度が遅くなると Al-Si 合金のデンドライト間液相は流動し難くなる。

Appendix

固-液共存層内液相の溶質濃度、固相率および平衡凝固開始温度の決定

凝固過程での固相内溶質拡散を考慮すると、液相溶質濃度 C_L (mass%) はつぎのように表わされる⁽¹⁸⁾

$$C_L = C_0 \{ 1 - (1 - 2\alpha k_0) f_s \}^{k_0 - 1 / (1 - 2\alpha k_0)} \quad (8)$$

ここで C_0 (mass%) は初期液相溶質濃度、 k_0 は平衡分配係数である。また α は $D_s \tau / L^2$ で表わされる凝固パラメータである。 D_s (m^2/s) は固相内の溶質拡散係数、 τ (s) は部分凝固時間、 L (m) はデンドライト側枝間隔の 1/2 の長さである。

液相溶質濃度 C_L と平衡する凝固開始温度 T_m (K) との関係はつぎのように示される。

$$T_m = T_0 - m C_L \quad (9)$$

ここで T_0 (K) は純金属の凝固温度、 m (K/mass%) は液相線の傾きである。したがって空孔形成時の温度が与えられることより、(9)式から液相溶質濃度 C_L が決定でき、(8)式より固相率を求めることができる。計算に用いた k_0 、 D_s 、 T_0 、 m はそれぞれ 0.13、⁽¹⁹⁾ $2 \times 10^{-12} m^2/s$ 、⁽²⁰⁾ 933 K、7.1 K/mass%⁽¹⁹⁾ であり、 L と τ は $110 \times 10^{-6} m \sim 155 \times 10^{-6} m$ および $1210 s \sim 4140 s$ の範囲にある。

文 献

- (1) T. Fujii, D. R. Poirier and M. C. Flemings: Met. Trans. B, **10B**, 331 (1979)
- (2) 大中逸雄, 森康尋, 長坂悦敬, 福迫達一: 鋳物, **53**, 673 (1981)
- (3) 高橋忠義, 工藤昌行, 土田裕: 学振 19 委-9277 (1970. 5)
- (4) 高橋忠義, 工藤昌行, 芳野文人: 学振 19 委-9400 (1971. 5)
- (5) 高橋忠義, 工藤昌行, 永井慎一: 鉄と鋼, **68**, 623 (1982)
- (6) T. S. Piwonka and M. C. Flemings: Trans. Met. Soc. AIME, **236**, 1157 (1966)
- (7) D. Apelian, M. C. Flemings and R. Mehrabian: Met. Trans., **5**, 2533 (1974)
- (8) 高橋忠義, 工藤昌行, 吉年慶一: 北海道大学工学部研究報告, No. 90, 37 (1978)
- (9) 高橋忠義, 萩原巖: 日本金属学会誌, **29**, 1152 (1965)
- (10) Don Kirkham and C. H. M. Von Bavel: Soil Science Soc. Ame., **13**, 75 (1948)
- (11) 高橋忠義, 工藤昌行, 吉年慶一: 日本金属学会誌, **43**, 1086 (1979)
- (12) 高瀬孝夫: 金属の研究, **3**, 53 (1926)
- (13) W. R. D. Jones and W. L. Bartlett: J. Inst. Metals, **81**, 145 (1952-53)
- (14) S. Engler and L. Henrichs: Giess-Forsch., **25**, 1 (1973)
- (15) 高橋忠義, 大笹憲一, 望月亮輔: 北海道大学工学部研究報告, No. 110, 80 (1982)
- (16) 高橋忠義: 未発表
- (17) R. H. Tien: J. Appl. Mech., **39**, 65 (1972)
- (18) H. D. Brody and M. C. Flemings: Trans. Met. Soc. AIME, **236**, 615 (1966)
- (19) M. Hansen: Constitution of Binary Alloys, McGraw-Hill Book Co. Inc., New York, 133 (1958)
- (20) 金属データブック, 日本金属学会編, 丸善, 25 (1974)