



# HOKKAIDO UNIVERSITY

|                  |                                                                                                          |
|------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Title            | 過共晶Al-Si合金溶湯と異種合金溶湯との混合過程における過冷却現象と初晶凝固                                                                  |
| Author(s)        | 大参, 達也; 松浦, 清隆; 工藤, 昌行 他                                                                                 |
| Citation         | 軽金属, 48(1), 42-47<br><a href="https://doi.org/10.2464/jilm.48.42">https://doi.org/10.2464/jilm.48.42</a> |
| Issue Date       | 1998-01                                                                                                  |
| Doc URL          | <a href="https://hdl.handle.net/2115/74626">https://hdl.handle.net/2115/74626</a>                        |
| Type             | journal article                                                                                          |
| File Information | J. Jpn. Inst. Light Met. 48(1)_ 42-47 (1998).pdf                                                         |



# 過共晶 Al-Si 合金溶湯と異種合金溶湯との 混合過程における過冷却現象と初晶凝固

大参 達也\*・松浦 清隆\*  
工藤 昌行\*・伊藤 洋一\*

Journal of Japan Institute of Light Metals, Vol. 48, No. 1 (1998), pp. 42-47

## Undercooling and primary solidification behavior in mixture of hypereutectic and another Al-Si alloy melts

Tatsuya OHMI\*, Kiyotaka MATSUURA\*  
Masayuki KUDOH\* and Youichi ITOH\*

A simplified numerical model is presented to investigate the undercooling and solidification behavior of a hypereutectic Al-Si alloy during the mixing process of two kinds of molten alloys with different temperature and composition. This model involves a single slab of the second melt (Al-32 mass%Si alloy) stretching in the infinite bulk of the first melt (Al-12 mass%Si alloy). The second melt and, in some cases, a part of the first melt near the second melt are undercooled and solidified in the course of the mixing. The number of primary crystals is maximized at a certain strain rate of the stretching slab, depending on the initial thickness of the slab, while the maximum undercooling of the second melt increases as the strain rate increases. These results suggest that excessive agitation during the mixing may depress the refinement of the primary crystals.

(Received June 5, 1997)

**Keywords:** numerical simulation, hypereutectic Al-Si alloy, solidification, undercooling, mixing, agitation

### 1. 緒 言

著者らは以前、組成の異なる二種類の合金溶湯を鋳型に時間差鋳造する手法により、過共晶 Al-Si 合金の初晶シリコンが顕著に微細化されることを報告した<sup>1)</sup>。この手法は複合鋳込み法と称されている。本手法における初晶微細化の要件は、低シリコン濃度（低液相線温度）の1次溶湯を先に鋳造して部分的に凝固し始める程度まで冷却し、これに高シリコン濃度（高液相線温度）の2次溶湯を混合することである。また、その初晶微細化機構は以下のように整理される<sup>2)</sup>。

(1) 異種合金溶湯の乱流混合過程において、2次溶湯がその高い液相線温度を維持したまま急冷される。これを混合急冷効果<sup>3)</sup>と呼ぶことにする。この効果により2次溶湯の流体塊内に大過冷却が生じて、初晶の多発的核生成が起こる。

(2) 溶湯混合以前に1次溶湯内に生成した固相が、溶湯混合過程で再溶解する際に溶融潜熱を吸収し、2次溶湯の冷却を著しく促進する。これを潜熱吸収効果<sup>3)</sup>と呼ぶことにする。

初晶微細化に対する潜熱吸収効果の寄与の程度は、熱量バランスの計算に基づいて整理することが可能である<sup>2)~4)</sup>。これに対し、混合急冷効果による過冷却凝固現象に関しては不明

な点が多い。とりわけ、混合時の攪拌強度は、温度場や濃度場の変化に直接関係する重要なプロセス条件の一つであると考えられるが、その初晶微細化に及ぼす影響に関しては基本的な考え方すら確立されていない。

混合急冷効果による過冷却凝固現象を理解するためには、攪拌流動の下での移動現象と結晶生成過程とを同時に考慮した解析が必要である。そこで本研究では、化学工学分野で提案されたマイクロ混合モデルの計算手法を著者らのファセット初晶凝固モデル<sup>5)</sup>に組込んだ混合凝固モデルを考案した。そして、このモデルによるシミュレーションの結果に基づいて、混合急冷効果による過冷却度の推移と結晶生成挙動との関係に関する基礎的な検討を行った。

### 2. 計算方法

#### 2.1 混合モデルの背景

均相系の乱流混合は、循環流や乱流渦の運動によって流体塊が分散・変形してスケールを減少させる流体力学的な過程（対流混合<sup>6)</sup>）とこれに並行して進行する分子拡散（拡散混合<sup>6)</sup>）との複合過程である。

混合急冷効果は、液体金属における熱伝導の速度が溶質の分子拡散速度より著しく大きいために生じる<sup>2)</sup>。したがって

\* 北海道大学大学院工学研究科（〒060 札幌市北区北13条西8丁目）。Graduate School of Engineering, Hokkaido University (Kita 13, Nishi 8, Kita-ku, Sapporo-shi, Hokkaido 060).

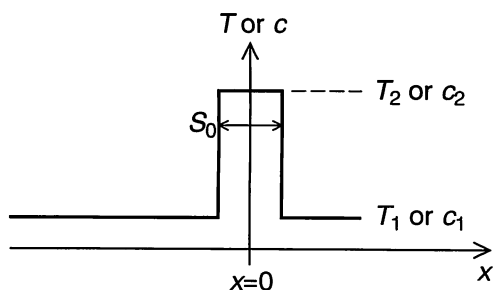


Fig. 1 Single slab configuration showing initial distribution of temperature,  $T$ , or concentration,  $c$ . The  $S_0$  is initial thickness of the slab. The subscripts 1 and 2 refer to the initial conditions of the first and the second melt, respectively.

この効果による過冷却現象を把握するためには、個々の流体塊の温度的・濃度の履歴を追跡する Lagrange 的なミクロ混合解析が必要である。

従来、化学工学の分野では、反応乱流を扱う現象論的なミクロ混合モデルが種々提案されてきた<sup>7)~9)</sup>。本研究では、拡散混合の進行する微小領域内の構造を単純な形状パターンに還元して拡散方程式を直接計算する一群の手法<sup>8)</sup>に着目し、その中の有力な手法の一つであるラメラ混合モデル<sup>10),11)</sup>の計算方法を取入れた。ラメラ混合モデルは、一様な流れ場により伸張変形する墨流し模様状のラメラ構造を考え、対流項を持つ非定常拡散方程式を解くことにより、各層間で進行する分子拡散過程を追跡するものである。

## 2.2 混合凝固モデルの計算方法

前報<sup>5)</sup>で示した初晶凝固モデルは、系外への抜熱による温度降下を計算する冷却モデルと結晶生成モデルとから構成されている。本研究の混合凝固モデルは、この冷却モデルの部分に混合モデルを組み込むことにより、温度場および濃度場の計算と結晶生成計算とを結合したものである。

計算で用いた溶湯の初期配列形状を Fig. 1 に示す。本研究では、最も単純な例として、単一の平板状 2 次溶湯が無限 1 次溶湯中に配置された場合を考える。

混合モデルでは、Fig. 1 に示す温度と濃度の初期分布が時刻  $t=0$  s において瞬間的に形成され、その後の時間経過に伴って、系全体が  $x$  方向に均一に収縮すると同時に熱と溶質の拡散が起こるものとする。ここで、 $c_1$  と  $c_2$  はそれぞれ 1 次溶湯および 2 次溶湯の初期濃度、また  $T_1$  と  $T_2$  は各溶湯の初期温度である。本計算では Al-Si 系を対象とし、1 次溶湯に関しては、 $c_1=12$  mass%,  $T_1=853$  K (液相線温度直上)、2 次溶湯に関しては、 $c_2=32$  mass%,  $T_2=1160$  K (過熱度 50 K) に固定した。また、溶質の拡散係数  $D$  や熱拡散率  $\alpha$  などの物性値 (Table 1 参照) は温度 ( $T$ ) や濃度 ( $c$ ) に依存しないものとした。

次に計算方法を述べる。

流れとともに移動し変形する平板状の液相の上に座標を固定した Lagrange 式記述に基づく溶質の移動方程式は次式のように表される<sup>10)</sup>。

Table 1 Constants used in the calculations

|                                          |                                                        |       |
|------------------------------------------|--------------------------------------------------------|-------|
| Diffusion coefficient, $D$               | $(10^{-9} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$            | 5.0   |
| Thermal diffusivity (alloy), $\alpha$    | $(10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$            | 3.9   |
| Specific heat (alloy)*, $C_p$            | $(\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$ | 1.090 |
| Latent heat of fusion (primary Si)*, $H$ | $(\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1})$                     | 1497  |
| Density (Si crystal)*, $\rho$            | $(\text{Mg} \cdot \text{m}^{-3})$                      | 2.31  |
| Solid-liquid interface energy*, $\sigma$ | $(\text{J} \cdot \text{m}^{-2})$                       | 1.1   |
| Nucleation rate constant*, $K_n$         |                                                        | 1000  |
| Nucleation order*, $N_n$                 |                                                        | 3     |
| Growth rate constant*, $K_g$             |                                                        | 0.08  |
| Growth order*, $N_g$                     |                                                        | 0.2   |

\* used in the crystallization model proposed by the present authors<sup>5)</sup>

$$(\partial c / \partial t) + e_x (\partial c / \partial x) = D (\partial^2 c / \partial x^2) \quad (1)$$

ここで、 $e_x$  は板厚方向 ( $x$  方向) のひずみ速度であり、平板が平面伸張する場合、次式のように書ける。

$$e_x = (1/S) (dS/dt) = d(\ln S)/dt \quad (2)$$

ここで  $S$  は平板の厚さであり、 $e_x$  の値が負のとき  $S$  は減少する (以後、 $e = -e_x$  とする)。なお、 $x$  軸に直交する 2 軸 ( $y$  軸,  $z$  軸) に対応するひずみ速度はそれぞれ  $e_y = -e_x$ , および  $e_z = 0$  である。

(1) 式は、

$$\chi = x/S \quad (3a)$$

および

$$\tau = \int_0^t S^{-2} dt' \quad (3b)$$

のように変数変換することにより、式(4)に帰着する。

$$(\partial c / \partial \tau) = D (\partial^2 c / \partial \chi^2) \quad (4)$$

これらの変数変換は、ラメラ混合モデル<sup>10),11)</sup>の手法を簡略化したものである。

同様に熱の移動について次式が得られる。

$$(\partial T / \partial \tau) = \alpha (\partial^2 T / \partial \chi^2) \quad (5)$$

ここで、 $e$  が一定の場合を考えると、式(2)より、

$$S = S_0 \exp(-et) \quad (6)$$

ここで、 $S_0$  は平板の初期厚さである。

また、式(3b)と式(6)から以下の関係が得られる。

$$\tau = (1/2eS_0^2) \{ \exp(2et) - 1 \}, (e \neq 0) \quad (7a)$$

$$\tau = S_0^{-2} t, (e = 0) \quad (7b)$$

計算では、差分要素幅を  $S/10$  として  $x$  方向に等分割し、Crank-Nicolson 法を用いて式(4)および(5)を解いた。さらに濃度場に関しては、後述する固相率 ( $f_s$ ) の影響を考慮した補正を行った。そして、各時間ステップごとに、温度場と濃度場との計算結果から過冷却分布を求めて各要素内の結晶生成計算を行った。

結晶生成モデルに関しては前報<sup>5)</sup>で詳しく述べたので、以下では概略のみを述べる。本モデルでは、①生成する結晶はすべて幾何学的に相似であり、また、②系内 (本計算では各要素内) の温度と液相濃度は各々均一であると仮定する。そ

して、結晶の核生成と成長との速度式を各々過冷度のべき関数で表現し、時間ステップごとに結晶の成長量と核生成数とを逐次計算する。

結晶生成モデルでは、単位質量の液相中における結晶核生成頻度  $I_n$ 、および結晶の単位表面積当たりの質量成長速度  $R_g$  をそれぞれ次のように表す。

$$I_n = K_n \Delta T_L^{N_n} \quad (8a)$$

$$R_g = K_g \Delta T_L^{N_g} \quad (8b)$$

ここで、 $\Delta T_L$  は液相の過冷度である。また、パラメータ  $K_n$ 、 $N_n$ 、 $K_g$  および  $N_g$  の値 (Table 1 参照) は、前報<sup>3)</sup>において初晶凝固モデルが Al-32 mass%Si 合金の過冷凝固挙動を模擬するように試行錯誤的に調節することにより得られたものである。

次に、混合モデルにおける濃度場計算の補正法について述べる。式(4)の物質収支は、対象とする系全体が完全液相であることを前提としており、固相が含まれる場合には対応していない。そこで、次のような修正を行った。まず、式(4)の  $D$  を見掛けの拡散係数  $D^*(=\bar{f}_L D)$  に置換えて差分計算を行った。ここで  $\bar{f}_L$  は、着目している要素とその隣接要素との液相率の平均値である。さらに、濃度場の差分計算の結果に対して次式による補正を行った。なお、現ステップを第  $j$  ステップとする。

$$q_j = q_{j-1} + (q_j^* - q_{j-1}) / (1 - f_s) \quad (9)$$

ここで、 $q_{j-1}$  は前ステップで求められた濃度であり、 $q_j^*$  は現ステップにおける差分計算直後の濃度値である。したがって、式(9)の右辺の  $(q_j^* - q_{j-1})$  は、拡散による溶質量の増加分を要素全体の質量で割ることにより得られた仮想的な濃度増分を表している。なお、 $f_s$  と  $\bar{f}_L$  との値は、前ステップの結晶生成計算から求められたものである。また、濃度場と温度場の計算においては、合金の密度および熱拡散率は、固相率に依存しないものとして取扱った。

一般に固相粒子と流れ場との間には複雑な相互関係が存在する。しかし、混合凝固過程における結晶の流体力学的な挙動については、ほとんど明らかになっていない。そこで、本シミュレーションでは計算の簡略化のために、すべての結晶は常にそれが核生成した要素の内部に留まるものとして取扱った。実際の計算過程では、差分要素幅が減少する一方で結晶が成長する結果、結晶粒径が要素幅を上回る場合があったが、結晶生成モデルの制約から結晶粒径については実測値を完全には再現できないこと<sup>5)</sup>も考慮し、その影響については特に配慮しなかった。

なお、上述の取扱いは、複数の要素にまたがる結晶成長を考慮したモデルにおいては、要素外に出た結晶の部分と別の要素から入ってきた結晶の部分とが、質量と表面積に関して互いに相殺されると仮定することに相当する。

以上のように、本シミュレーションの混合モデルは、実際の複雑な混合現象を直接定量的に表現するものではないが、対流混合過程を一定のひずみ速度  $e$  による伸張変形の形に集約することで、諸因子の関連の解析を容易にする利点がある。本研究では主に  $e$  を対流混合速度の指標と見なし、過冷度と生成結晶数とに及ぼす影響を調査した。

### 3. 結果および考察

#### 3.1 熱と溶質との複合移動過程による過冷却

最初に、結晶生成計算を行わずに、熱と溶質との移動のみを計算した結果について検討する。

Fig. 2 に、2 次溶湯の中心 ( $\chi=0$ ) および 2 次溶湯に隣接した 1 次溶湯部分 ( $\chi=0.55$ ) における温度  $T$  と液相線温度  $T_L$  の経時変化を示す。ここでは、2 次溶湯平板の初期厚さ  $S_0=1$  mm、ひずみ速度  $e=10$  s<sup>-1</sup> の条件による計算結果を示しているが、時間軸を  $\tau$  に変換すれば任意の混合条件、すなわち  $S_0$  および  $e$  の任意の組合せに対応する。なお、 $\chi=\infty$  においては常に  $T=T_L=853$  K である。

Fig. 2 によると、2 次溶湯中心は  $t=0$  s においては過熱状態にあるが、初期に温度が急速降下することにより過冷状態になる。そして、温度場の均一化がほぼ完了した段階 ( $t=0.25$  s) で  $T_L$  が低下を始め、 $t=0.6$  s において再び過熱状態となる。ここでは過冷度の増加過程は熱の拡散に対応し、また過冷度の消失過程は溶質の拡散に対応している。一方、2 次溶湯に隣接した 1 次溶湯では、2 次溶湯からの溶質の流入により、 $t=0.1\sim0.6$  s の間で一時的に過冷状態となった後、さらなる濃度場の均一化に伴って再び過熱状態になる。そして、最終的な完全混合状態では、系全体が 1 次溶湯の初期条件と同じ過冷度 0 の均一分布に落ち着くことになる。

次に、最大過冷度  $\Delta T_{LM}$  の  $x$  方向における分布を Fig. 3 に示す。2 次溶湯中心における最大過冷度は、2 次溶湯の初期液相線温度と 1 次溶湯の初期温度との差にほぼ等しい。また、1 次溶湯領域 ( $|\chi|>1/2$ ) においても広範囲にわたって過冷却が生じている。なお、Fig. 3 に示された最大過冷度は結晶生成過程で生じる動的過冷度の上限を与える。

以上のように、最終的には過冷度 0 となる条件であっても、過渡的な混合段階において過冷却が生じる場合があることが示された。これらの過冷却の特徴は、温度と濃度に関する二種類の拡散場の相互関係によって規定される点にある。ここで、2 次溶湯および 1 次溶湯に生じた過冷却をそれぞれ

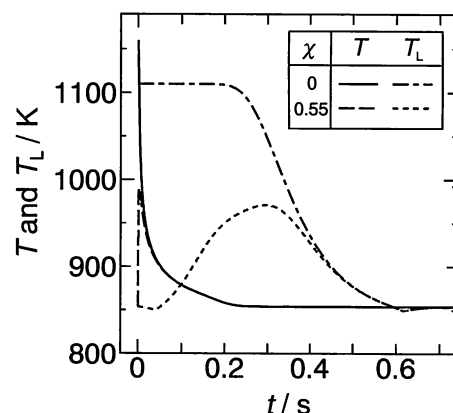


Fig. 2 Changes in temperature,  $T$ , and liquidus temperature,  $T_L$ , in the center of the second melt ( $\chi=0$ ) and in the first melt in contact with the second melt ( $\chi=0.55$ ). Crystallization is not considered. The initial slab thickness,  $S_0$ , is 1 mm and the strain rate,  $e$ , is 10 s<sup>-1</sup>.

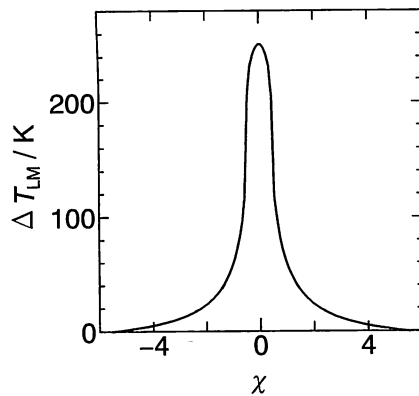


Fig. 3 Distribution of the maximum undercooling,  $\Delta T_{LM}$ . Crystallization is not considered.

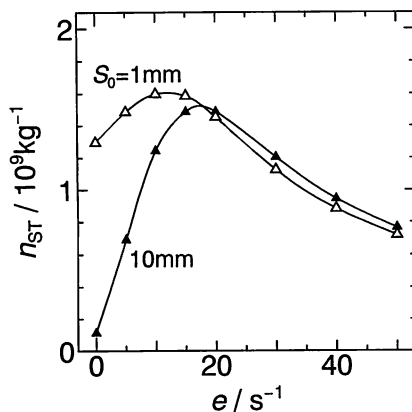


Fig. 4 Relationship between strain rate,  $e$ , and the ultimate total number of primary crystals per unit mass of the second melt,  $n_{ST}$ .

仮に、熱拡散型および溶質拡散型の二重拡散過冷却と呼ぶことにする。

### 3.2 生成結晶数に及ぼすひずみ速度の影響

Fig. 4に、混合凝固モデルにより計算された総結晶数に及ぼす $S_0$ と $e$ の影響を示す。図の縦軸に示した $n_{ST}$ は、2次溶湯単位質量当たりに換算した系全体の総結晶数の最終値である。また、 $S_0$ は10 mmと1 mmとの二水準とした。Fig. 4によると、 $n_{ST}$ は、 $e$ 値の低い範囲では $e$ の増加とともに増加するが、 $e=10\sim20\text{ s}^{-1}$ の範囲で最大値に達した後に減少する。この傾向は、 $S_0$ が異なっても基本的には同じである。一方、 $S_0$ の影響は $e$ 値の低い側において顕著に見られ、 $S_0$ の小さい方が $n_{ST}$ は大きくなる。これに対し、 $e$ の値が $20\text{ s}^{-1}$ 以上の場合では、 $S_0$ の大きい方がわずかに上回っている。

一般に2次溶湯のサイズを減少させることにより、すなわち $S_0$ を小さく、あるいは $e$ を大きくすることにより、2次溶湯の冷却速度は増加する。したがって、Fig. 4において生成結晶数に極大点が生じる現象は、混合凝固プロセスによる初晶の微細化が単なる急冷凝固現象としては理解できないことを示している。

次に、 $S_0=1\text{ mm}$ の場合を例にとり、最大過冷却 $\Delta T_{LM}$ と生成結晶数 $n_s$ の分布に及ぼすひずみ速度 $e$ の影響を検討する。ここで、 $n_s$ は各要素における単位質量当たりの生成結

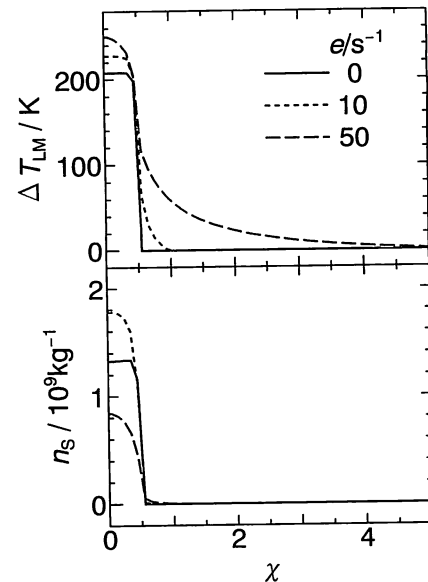


Fig. 5 Distributions of the maximum undercooling,  $\Delta T_{LM}$ , and the ultimate number of primary crystals per unit mass,  $n_s$ .  $S_0=1\text{ mm}$ .

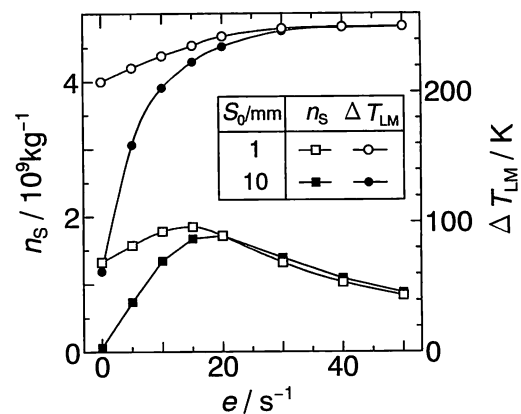


Fig. 6 Effects of  $e$  on  $\Delta T_{LM}$  and  $n_s$  in the center of the second melt.

晶数の最終値である。Fig. 5は、 $e=0, 10, 50\text{ s}^{-1}$ の各場合における $\Delta T_{LM}$ と $n_s$ の分布を比較したものである。まず、 $\Delta T_{LM}$ の分布に注目すると、 $e$ の増加に伴って過冷却領域が拡大するとともに $\Delta T_{LM}$ の水準が高くなっている。例えば、 $e=0\text{ s}^{-1}$ では過冷却領域は2次溶湯領域内に限られるが、 $e=50\text{ s}^{-1}$ では上限値の分布 (Fig. 3) にほぼ一致するようになる。

一方、2次溶湯内における $n_s$ の分布は $e=10\text{ s}^{-1}$ の場合に最も高い水準となっている。これに対し、1次溶湯内に生成する結晶数は $e$ が大きいほど多くなる傾向がある。しかし、その水準は2次溶湯内の結晶数に比較すると無視できる程度に低く、初晶の微細化という観点からは、2次溶湯内での結晶生成の方がより重要である。

Fig. 6は、2次溶湯の中心における $\Delta T_{LM}$ と $n_s$ とに及ぼす $e$ の影響を示している。これによると、 $\Delta T_{LM}$ は $e$ の増加とともに単調に増加し、過冷却の上限値に漸近していく。この傾向は $e$ の増加に伴う2次溶湯の冷却速度の増加に対応している。これに対し、 $n_s$ はある $e$ 値を境界にして増加傾向か

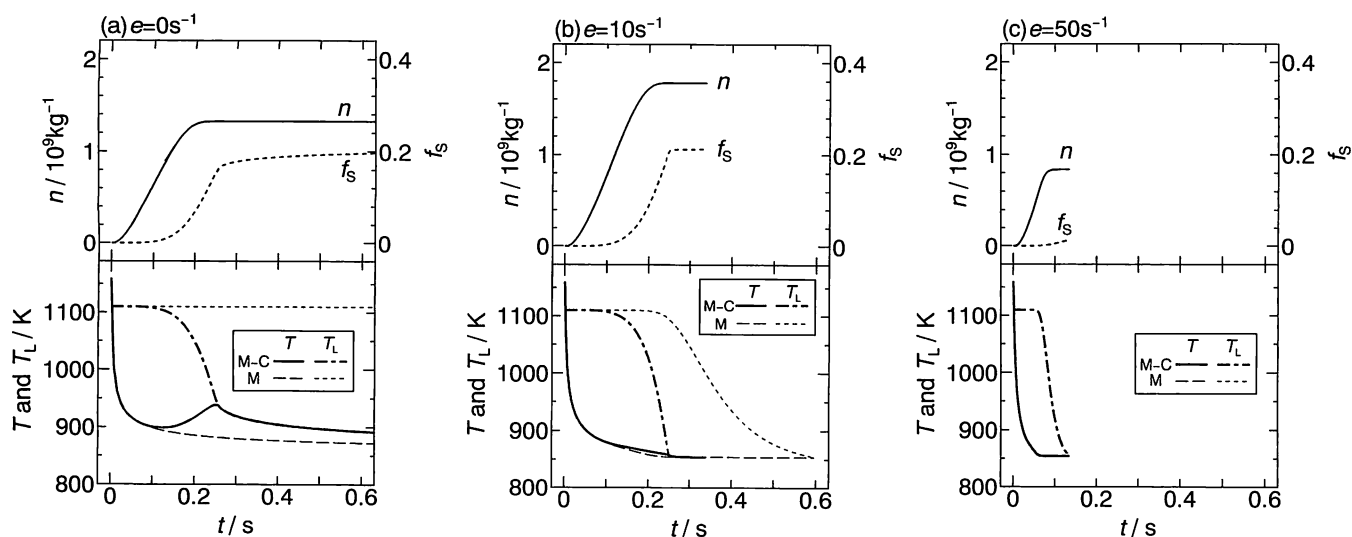


Fig. 7 Changes in temperature,  $T$ , liquidus temperature,  $T_L$ , the number of primary crystals per unit mass,  $n$ , and fraction of solid,  $f_s$ , in the center of the second melt. Symbols “M-C” and “M” indicate the results calculated with and without the crystallization model, respectively.  $S_0 = 1$  mm. (a)  $e = 0 \text{ s}^{-1}$ , (b)  $e = 10 \text{ s}^{-1}$ , (c)  $e = 50 \text{ s}^{-1}$ .

ら減少傾向へと変化している。

前報<sup>5)</sup>の計算のように、溶質量の保存される閉じた系に対して結晶生成モデルを適用した場合、 $n_s$ は $\Delta T_{LM}$ の増加とともに単調に増加する傾向を示す。これに対し、Fig. 5およびFig. 6の結果は、要素間で溶質拡散の起こる混合凝固モデルでは、両者の間に単純な正の相関関係が存在しない場合があり得ることを示している。

### 3.3 2次溶湯中心の凝固パス

次に、以上のような複雑な結晶生成挙動をもたらし要因について検討する。

Fig. 7(a)~(c)は、2次溶湯中心における温度、液相線温度、単位質量当たりの結晶数( $n$ )および固相率( $f_s$ )の経時変化を示している。ここでは、 $S_0 = 1$  mmとし、(a)~(c)の順に $e$ を大きくしている。比較のために、結晶生成のない場合の温度と液相線温度の変化も併せて示した。

Fig. 7(a)の場合( $e = 0 \text{ s}^{-1}$ )では、温度 $T$ が混合温度に達する以前の連続冷却過程でリカレンスが現れている。また、核生成も温度均一化の前に終了しており、その時点では溶質拡散に起因する液相線温度の低下はほとんどない。

また、Fig. 7(b)は、Fig. 4において総結晶数がほぼ最大になる条件( $e = 10 \text{ s}^{-1}$ )の結果である。この条件では、核生成の終了と温度の均一化とがほぼ同時期に起きている。

さらに、よりひずみ速度の高いFig. 7(c)の場合( $e = 50 \text{ s}^{-1}$ )においては、温度曲線・液相線温度曲線のいずれもが、結晶生成を考慮しない場合にほぼ一致するようになる。そして、溶質拡散による過冷度の減少に伴って結晶数の増加が抑制される傾向が見られる。また、固相率は、 $e$ の低い場合に比較すると著しく低い値で推移している。

なお、Fig. 7(a)~(c)における過冷凝固過程の平均冷却速度は、それぞれ、680, 1006, 1927(K/s)であった。

ここで二重拡散過冷却が過渡的な現象であること、また、核生成が速度過程であることに着目してFig. 7の三つの場

合を整理すると、次のようになる。

Fig. 7(a)：混合の進行が遅く、2次溶湯の冷却速度が核生成速度に比べて小さい場合。2次溶湯は濃度的にはほぼ完全分離の状態で冷却されるが、冷却速度が小さいため比較的低い過冷度で核生成を完了し、初晶の微細化程度は低くなる。

Fig. 7(c)：混合の進行が極めて速く、濃度の均一化速度が核生成速度に比べて大きい場合。瞬間的には最大可能な過冷度に達するが、過冷却の持続時間が短く、十分な数の核が生成する前に過冷度が消失するため初晶の微細化程度は低くなる。

Fig. 7(b)：(a)と(c)との中間の場合。大過冷却が持続する中で核生成が起こるため、初晶は最も微細化する。すなわち、混合急冷効果により初晶が微細化するのは、この場合であると考えられる。

### 3.4 初晶微細化と攪拌強度の関係

以上の結果において最も注目されることは、過度の攪拌混合が初晶の粗大化をもたらし可能性が示唆された点である。

従来、複合鋳込み法のような混合急冷効果を利用した凝固プロセスについて攪拌強度の影響を実験的に検討した例はほとんどない。わずかに、大参ら<sup>12)</sup>の機械的攪拌を伴う複合鋳込み実験と、S. Rogersら<sup>13)</sup>の噴流混合実験が報告されている程度である。

前者の実験では、内筒の回転している二重円筒間にAl-Si合金を複合鋳込みする手法を試み、得られた試料の初晶シリコン粒径を通常の攪拌凝固材と比較した。内筒静止の条件では、複合鋳込み材の初晶粒径は通常材より著しく小さい。しかし、内筒回転速度が大きくなるほど、両者の間の差が小さくなるという結果を得た。

また、後者の報告は、別の問題を主題とした論文であるため、使用した合金系や具体的な実験条件等は記述されていないが、異種アルミニウム合金を噴流混合する実験で得られた試料の組織写真を示している。それによると、ある最適な噴

流レイノルズ数において微細分散組織が得られるが、レイノルズ数を大きくしすぎると、初晶粒子が粗大化する。

以上のように、いずれの実験報告でも過度の攪拌が初晶微細化効果を抑制することが示唆されており、本研究の計算結果との共通性が見られる。

#### 4. 結 言

混合急冷効果による過冷却現象と結晶生成挙動とを解析するため、ミクロ混合モデルによる温度場・濃度場計算と結晶生成計算とを組合せた混合凝固シミュレーションを試みた。混合モデルにおける溶湯の配列形状として、Al-12 mass%Si合金のバルク溶湯中で伸張変形する単一平板状のAl-32 mass%Si合金溶湯を考えた。主な結果を以下に要約する。

(1) 完全混合状態において過冷度が0となる条件であっても、温度場と濃度場との関係によって過渡的な混合段階で過冷却が生じる。

(2) 最大過冷度は、対流混合速度の指標であるひずみ速度が大きくなるほど増加し、結晶生成のない条件で計算される上限過冷度に漸近する。

(3) 生成結晶数は、2次溶湯の初期サイズに応じた各ひずみ速度値において最大となり、さらにひずみ速度が高くなると、減少する傾向を示す。

(4) 高ひずみ速度において生成結晶数が減少するのは、溶質拡散の進行が速く、過冷却期間が短いため、十分な数の核が生成する前に過冷度が減少してしまうことによる。

#### 参 考 文 献

- 1) 大参達也, 工藤昌行: 日本金属学会誌, **54** (1990), 700.
- 2) 大参達也, 工藤昌行, 大笹憲一: 日本金属学会誌, **56** (1992), 1064.
- 3) 大参達也, 工藤昌行, 伊藤洋一, 松浦清隆: 日本学術振興会提出資料 (19委-11573, 凝固プロセス-48), (1995).
- 4) 大参達也, 蓑口光樹, 工藤昌行, 伊藤洋一, 松浦清隆: 日本金属学会誌, **58** (1994), 1311.
- 5) 大参達也, 松浦清隆, 工藤昌行, 伊藤洋一: 軽金属, **47** (1997), 71.
- 6) J. R. Bourne: *Mixing in the Process Industries*, Ed. by N. Harnby, M. F. Edwards and A. W. Nienow, Butterworths, (1985), 171.
- 7) J. Villiermaux: NATO ASI Ser E No. 110, (1986), 210.
- 8) N. S. Tavare: *AIChE J.*, **32** (1986), 705.
- 9) J. M. Tarbell and R. V. Mehta: *Physico Chemical Hydrodynamics*, **7** (1986), 17.
- 10) W. E. Ranz: *AIChE J.*, **25** (1979), 41.
- 11) L. M. Ottino: *Chem. Eng. Sci.*, **35** (1980), 1377.
- 12) 大参達也, 工藤昌行, 高橋忠義: 軽金属学会第77回秋期大会講演概要, (1989), 33.
- 13) R. Rogers, L. Katgerman, P. G. Enright and N. A. Darby: *Applied Scientific Research*, **44** (1987), 175.