



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	過共晶Al-Si合金の複合鋳込み鋳塊の初晶微細化に及ぼす鋳造条件の影響
Author(s)	大参, 達也; 工藤, 昌行; 大笹, 憲一
Citation	日本金属学会誌, 56(9), 1064-1071 https://doi.org/10.2320/jinstmet1952.56.9_1064
Issue Date	1992-09
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/74674
Type	journal article
File Information	1-14.pdf



過共晶 Al-Si 合金の複合鋳込み鋳塊の初晶微細化に 及ぼす鋳造条件の影響

大参達也* 工藤昌行* 大笹憲一*

J. Japan Inst. Metals, Vol. 56, No. 9 (1992), pp. 1064-1071

Effect of Casting Condition on Refinement of Primary Crystals in Hypereutectic Al-Si Alloy
Ingots Produced by Duplex Casting Process

Tatsuya Ohmi, Masayuki Kudoh and Ken-ichi Ohsasa

Department of Metallurgical Engineering, Faculty of Engineering, Hokkaido University, Sapporo

The primary silicon crystals of hypereutectic Al-Si alloy are refined by the Duplex Casting process. In this process, two kinds of alloy melts, i.e. "the first alloy" with a relatively low liquidus temperature and "the second alloy" with a relatively high liquidus temperature, are cast in a mold in sequence at a given time interval. Concerning the refining mechanism, the authors have explained that the second alloy melt is rapidly cooled during mixing with the first alloy which acts as a coolant.

In this study, the influences of alloy composition and mold properties on the refinement of the primary silicon crystals in the Duplex Casting process were examined. As a result, it was shown that the grain size of primary silicon varied intricately depending on these conditions. The decantation technique showed that a considerable amount of solidified shell had formed in the first alloy before the pouring of the second alloy melt. Several comparative experiments were carried out in order to examine the effect of heat extraction by the solidified shell, which is to be remelted during the mixing with the second alloy melt, on the refinement of primary silicon crystals. In those experiments, the second alloy melt was mixed with the first alloy which was in the liquid or solid state. As a result, it was proved that the solidified shell contributes greatly to the refinement of the primary silicon crystals through the remarkable enhancement of the cooling capacity of the first alloy. Considering this effect, the influences of alloy composition and mold properties on the primary silicon size can be explained.

(Received March 21, 1992)

Keywords: casting process, hypereutectic aluminum-silicon alloy, primary silicon, refinement, solidification

I. 緒 言

JIS AC9A, AC9B に代表される過共晶 Al-Si 系合金の凝固過程では初晶 Si が粗大に成長しやすいため、P の添加による初晶の微細化処理が工業的に用いられている。しかし、P 添加処理の効果を十分に引き出すためには比較的高い鋳造温度と大きな冷却速度を必要とすること、また共晶改良処理の併用が困難であることなど、鋳造プロセス上種々の制約がある⁽¹⁾。

一方、著者らはこれまで、組成の異なる2種類の合金溶湯を鋳型に時間差注湯する「複合鋳込み法」を本系合金に適用し、無処理合金における初晶 Si 微細化の可能性をみいだした。また、初晶微細化に必要な合金組成の選択条件として、最初に鋳込む溶湯(1次溶湯)の液相線温度より

後に鋳込む溶湯(2次溶湯)の液相線温度を高くする必要があることを確認するとともに、初晶粒径に及ぼす各溶湯の鋳込み温度や2段階の鋳込み操作間の時間間隔(Δt)の影響を調査した⁽²⁾。さらに、1次溶湯に Al-Cu 系、Al-Ge 系などの Si を含まない合金を用いた複合鋳込み実験から微細な初晶の生成起源を検討し、2次溶湯が1次溶湯中へ混合する過程において2次溶湯内で晶出した初晶が微細初晶の主体となることを示し、熱と溶質の分子拡散速度の差によって2次溶湯内に生じる過冷却により初晶の多発核生成がもたらされるとする初晶微細化機構モデルを提案した⁽³⁾。本モデルに立脚すると、1次溶湯と2次溶湯の組成の組合せや質量比などの溶湯条件により初晶粒径に影響を受けることが推測される。そこで、本研究では、まず初晶微細化に及ぼす溶湯組成の組合せの影響について実験的に検討した。さらに、溶湯混合時の2次溶湯の冷却に及ぼ

* 北海道大学工学部金属工学科

す1次凝固殻(2次溶湯の鋳込みの前に1次溶湯内で生成する凝固殻)⁽³⁾の抜熱効果を鋳型の抜熱効果から分離して検討することにより、これまで明らかでなかった各々の寄与の割合を明確にすることを試みた。そして、これらの知見を基に複合鋳込み法における初晶微細化機構を解明し、最適鋳造条件を見いだす指針を得ることを目的とした。

II. 実験方法

1. 複合鋳込み実験

実験装置を Fig. 1 に示す。鋳型上部に設置されたレール上を1次溶湯用タンディッシュと2次溶湯用タンディッシュを内蔵した電気炉とが独立して移動でき、2段階の注湯操作を迅速に行えるようになっている。この基本構造は前報⁽³⁾と同じだが、後述するデカンテーション実験用に鋳型

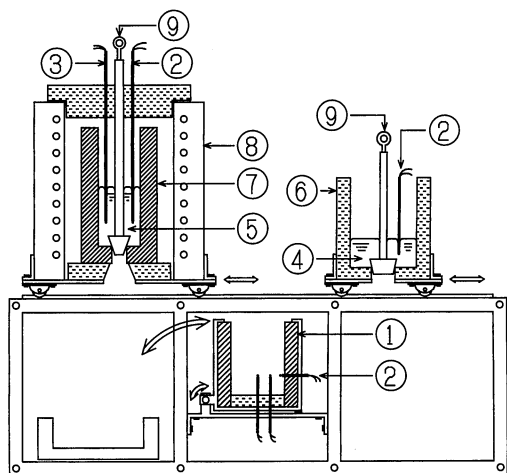


Fig. 1 Experimental apparatus. ① graphite mold, ② thermocouples for measurement, ③ thermocouples for temperature control of second alloy melt, ④ first alloy melt, ⑤ second alloy melt, ⑥ tundish for first alloy melt, ⑦ tundish for second alloy melt, ⑧ electric furnace, ⑨ stopper.

を傾斜できるように改良を加えてある。実験操作の詳細⁽²⁾⁽³⁾は既に報告しているので省略する。初晶 Si 粒径の測定においては、鋳塊試料の約1/2高さにおける横断面について半径方向に採った計18視野の光学顕微鏡像を画像処理して各粒子の絶対最大長を測定し、全視野の結果を総計して得られた粒径分布から幾何平均値を計算して初晶 Si 粒径とした⁽³⁾。なお、幾何平均値の区間推定による信頼度95%範囲の幅(y)は、幾何平均値(d)が大きくなるのに伴って増加し、ほぼ $y=0.001875 d^2$, ($d=30\sim90\mu\text{m}$) なる回帰式に従った。すなわち $d=40\mu\text{m}$ では $y=3\mu\text{m}$ 程度、 $d=80\mu\text{m}$ では $y=12\mu\text{m}$ 程度となる。

本実験で用いた合金組成の組合せを Table 1 に示す。実験はまず Al-Si 2 元系で、(1) 2 次溶湯の組成を固定し、1 次溶湯の組成を変化させた場合、および(2) 1 次溶湯の組成を固定し、2 次溶湯の組成を変化させた場合、の 2 系列を検討した。このとき、混合組成が Al-22%Si[†]、混合重量が 1.1 kg となるように 1 次溶湯質量 (W_1) と 2 次溶湯質量 (W_2) を設定した。また、第二の系列との比較を目的として、(3) 1 次溶湯に Al-33%Cu 合金を用い、2 次溶湯組成を変化させた場合についても検討した。Al-33%Cu の 1 次凝固殻は初晶 Si の核生成サイトの供給源にならないと考えられる⁽³⁾ため、初晶の微細化を 2 次溶湯内での多発核生成の観点からのみ考察できる。上記の 3 系列の実験ではいずれも、1 次鋳込みから 2 次鋳込みまでの時間間隔 (Δt) を 7 s とし、また各溶湯の鋳込み温度は、液相線温度より 50 K 高い温度とした。

また、鋳型性状による影響を調べるために、Table 1 の各溶湯条件について、2 種類の鋳型を用いた。一つは黒鉛製円筒(内径 80 mm, 外径 120 mm, 高さ 130 mm)に断熱レンガ製の底盤(厚さ 20 mm)を装着した鋳型⁽²⁾⁽³⁾(以下、I 鋳型と呼ぶ)、もう一つは黒鉛製の底盤を装着した鋳型

[†] 本報では、濃度はすべて質量%とする。また、合金が必ずしも液体状態ではない場合には、1 次溶湯および 2 次溶湯に対して各々「1 次合金」、「2 次合金」という呼称を用いることにする。

Table 1 Combinations of the first and the second alloy.

Combination	First alloy		Second alloy	
	Composition	mass/kg	Composition	mass/kg
[(AlSi7) ₂ -(AlSi32) ₃]	Al-7 mass%Si	0.440	Al-32 mass%Si	0.660
[(AlSi12) ₁ -(AlSi32) ₁] ⁽²⁾	Al-12 mass%Si	0.550	Al-32 mass%Si	0.550
[(AlSi17) ₂ -(AlSi32) ₁]	Al-17 mass%Si	0.733	Al-32 mass%Si	0.367
[(AlSi12) ₁ -(AlSi24.5) ₄]	Al-12 mass%Si	0.220	Al-24.5 mass%Si	0.880
[(AlSi12) ₁ -(AlSi27) ₂]	Al-12 mass%Si	0.367	Al-27 mass%Si	0.733
[(AlSi12) ₁ -(AlSi32) ₁] ⁽²⁾	Al-12 mass%Si	0.550	Al-32 mass%Si	0.550
[(AlSi12) ₃ -(AlSi37) ₂]	Al-12 mass%Si	0.660	Al-37 mass%Si	0.440
[(AlSi12) ₂ -(AlSi42) ₁]	Al-12 mass%Si	0.733	Al-42 mass%Si	0.367
[(AlCu33) ₁ -(AlSi24.5) ₄]	Al-33 mass%Cu	0.220	Al-24.5 mass%Si	0.880
[(AlCu33) ₁ -(AlSi27) ₂]	Al-33 mass%Cu	0.367	Al-27 mass%Si	0.733
[(AlCu33) ₁ -(AlSi32) ₁] ⁽³⁾	Al-33 mass%Cu	0.550	Al-32 mass%Si	0.550
[(AlCu33) ₃ -(AlSi37) ₂]	Al-33 mass%Cu	0.660	Al-37 mass%Si	0.440

(G 鋳型)である。

2. 1次凝固殻と鋳型の寄与を分離するための対比実験

初晶微細化に対する鋳型と1次凝固殻の役割を分離して検討するため、溶湯混合の瞬間における1次合金の状態(完全液相または完全固相)および混合容器の抜熱能力を変えた3種類の対比実験を行った。

(1) 断熱容器内の液-液混合実験: 鋳型と同じ内径の断熱レンが製容器内でAl-12%Si合金の1次溶湯を液相線温度(853 K)まで冷却し、これに過熱度 50 K の2次溶湯を混合して、3 s 間攪拌した後、I 鋳型に鋳込んだ。用いた合金の組合せは Table 1 の[(AlSi12)₁-(AlSi24.5)₄], [(AlSi12)₁-(AlSi32)₁] および[(AlSi12)₂-(AlSi42)₁] の3種類とした。

(2) 断熱容器内の固-液混合実験: 1次合金には、Al-12%Si合金溶湯(0.550 kg)をI 鋳型に鋳込んだ後、デカンテーションを行うことにより得られた0.220 kgの円筒状の凝固殻を用いた。これを断熱レンが製容器内でAl-Si共晶温度以下の843 Kに予熱し、これにAl-24.5%Si合金の2次溶湯(0.880 kg)を過熱度 50 K で加え、3 s 攪拌後、得られた混合合金をただちにI 鋳型に鋳込んだ。1次合金としてAl-33%Cu合金を用いた場合についても同様の実験を行った。このとき凝固殻の予熱温度は813 Kとした。

(3) I 鋳型内の固-液混合実験: Al-12%Si合金の1次溶湯(0.550 kg)を過熱度 50 K でI 鋳型に鋳込んだ後、デカンテーションにより1次凝固殻を残して未凝固溶湯を排出し、ただちにAl-24.5%Si合金の2次溶湯(0.880 kg)を過熱度 50 K で追加鋳込みした。1次溶湯としてAl-33%Cu合金を用いた実験も行った。デカンテーションのタイミングは、鋳型内に残留する1次凝固殻の質量がほぼ0.22 kgとなるように設定した。

なお上記の固-液混合実験(2)および(3)において1次合金の形状を円筒状にしたのは、2次溶湯との接触面積を大きくして溶解を促進し、未溶解のまま残存する量を少なくすることを意図したものである。

III. 結果および考察

1. 初晶 Si の粒径に及ぼす溶湯組成と鋳型性状の影響

2次溶湯組成をAl-32%Siに固定し、1次溶湯組成を変化させた複合鋳込み実験における1次溶湯組成と初晶Si粒径の関係をFig. 2に示す。ここで1次溶湯組成がAl-22%Siの場合の結果は、Al-22%Si合金の通常の単一鋳込み実験に相当するが、これを1次溶湯組成を増加させていった極限として比較している。I 鋳型を用いた場合、1次溶湯組成がAl-Si共晶組成近傍で初晶Si粒径が最小となる。またG 鋳型の場合では、最小粒径となる1次溶湯組成は過共晶側に若干シフトしている。また総じてG 鋳型の方が初晶はより微細である。

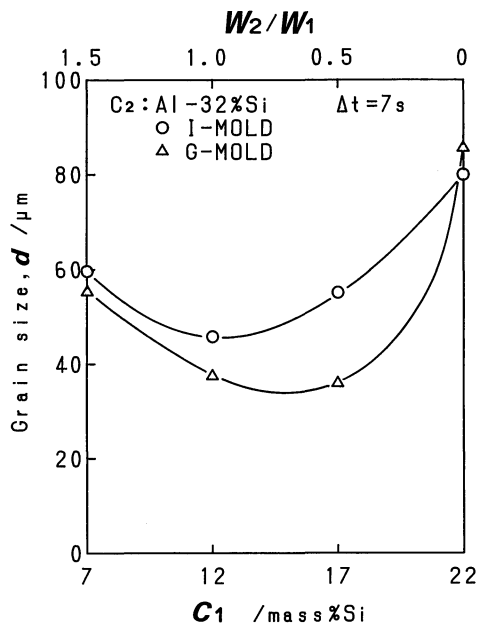


Fig. 2 Relationship between the first alloy composition, C_1 and the grain size of primary silicon, d in the Al-22 mass%Si alloy ingots produced by the Duplex Casting process.

I-mold: graphite mold with heat-insulating bottom plate.

G-mold: graphite mold with graphite bottom plate.

Fig. 3は、1次溶湯組成をAl-12%Siに固定し、2次溶湯組成を変化させた複合鋳込み実験の結果である。ここで2次溶湯組成がAl-22%Siの場合の結果は通常鋳込み実験に相当する。断熱容器内の液-液混合実験の結果を併せて示すが、これについてはⅢ.3節で考察する。Fig. 3によれば、I 鋳型を用いた複合鋳込みでは、2次溶湯組成を増加させると初晶Siはより微細になるが、Al-37%Si以上では粒径はほぼ一定となる。一方、G 鋳型を用いた場合、初晶SiはAl-24.5%Siにおいて既に40 μm以下まで微細化し、高Si組成側ではほぼ一定の粒径値となる。また鋳型の影響は、通常鋳込み材に対してはほぼ無視できる程度であるのに対し、複合鋳込み材では組成の組合せによって大きく異なっている。すなわち2次溶湯がAl-24.5%Siでは鋳型の影響は顕著であるが、Al-37%Si以上では影響は小さい。

Fig. 4に、1次溶湯組成をAl-33%Cuに固定し、2次溶湯組成を変化させた複合鋳込みの結果を示す。また、各々の組成の組合せに対応する混合組成の溶湯の通常鋳込み材(鋳込み過熱度 50 K, I 鋳型)の粒径も併せて示す。各混合組成の通常鋳込み材の初晶粒径は75~85 μmの範囲にあり、組成の変化による顕著な影響はみられない。一方、複合鋳込みの結果は、鋳型の影響および組成の影響ともFig. 3のAl-Si2元系の場合と全く同様の傾向がみられる。

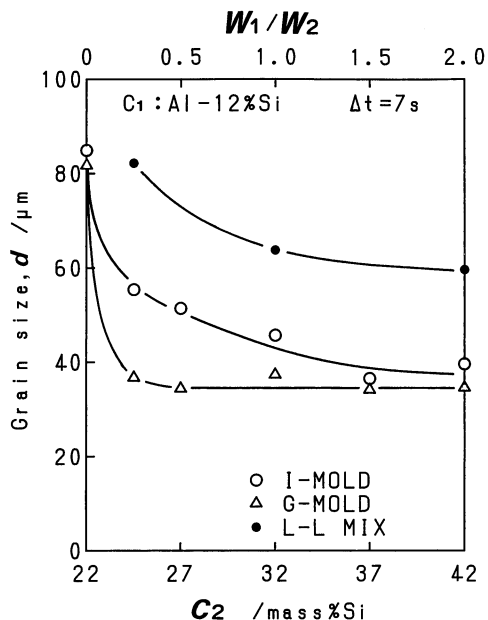


Fig. 3 Relationship between the second alloy composition, C_2 and the grain size of primary silicon in the Al-22 mass%Si alloy ingots produced by the Duplex Casting Process or by "liquid-liquid mixing" experiments in which the second alloy melt is mixed with the first alloy melt in the heat-insulating vessel, and then the mixed alloy is poured in the I-mold.

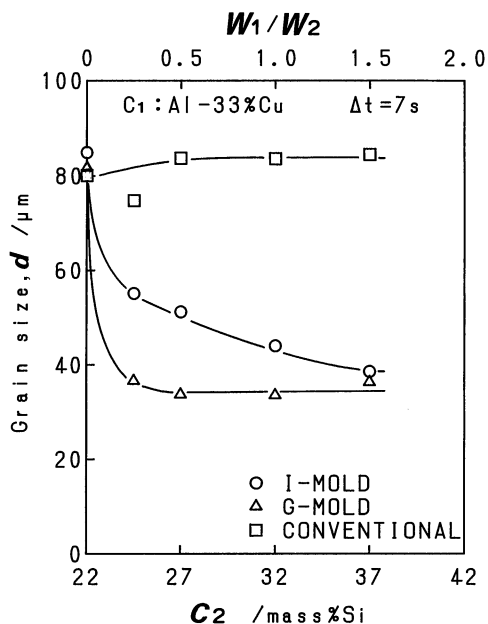


Fig. 4 Relationship between the second alloy composition and the grain size of primary silicon in the Al-Si-Cu alloy ingots produced by the Duplex Casting process. For comparison, the results for the conventionally cast ingots of mixed alloy composition are also shown.

2. 微細初晶 Si の集团的分布形態

既報⁽²⁾のように、初晶の微細化した複合鋳込み材では、通常鋳込み材に比べてマクロな偏析が軽減される一方、ミクロ組織では微細な初晶 Si が島状の集団となって分布する傾向がみられる。この島状集団の起源は、1 次溶湯との乱流混合過程で過冷却状態となり初晶の多発核生成を生じた 2 次溶湯の流塊であると推測された⁽³⁾。2 次溶湯組成の異なる複合鋳込み鋳塊中に観察された島状集団の例を Fig. 5(a)(b) に示す。Fig. 5(a) は G 鋳型を用いた $[(\text{AlSi12})_2-(\text{AlSi42})_1]$ 複合鋳込み材に見られた島状集団で、極めて微細な初晶 Si が密集しており、また集団内外の境界は明瞭である。このような集団は、2 次溶湯の Si 組成が低い場合には観察されなかったが、Al-42%Si では鋳型の種類にかかわらず鋳塊全域に数多く観察された。一方、Fig. 5(b) は、G 鋳型を用いた $[(\text{AlSi12})_1-(\text{AlSi24.5})_4]$ 複合鋳込み材の初晶 Si 集団である。Fig. 5(a) と比較して初晶 Si の分布は疎らで、空洞状の隙間の見られる部分もある。

Fig. 6 は、Al-Si 2 元系の複合鋳込み鋳塊での島状集団の Si 質量分率 f_{Si} と 2 次溶湯の初期組成との関係を示している。 f_{Si} の測定は、鋳塊底部から 40 mm の高さにおける

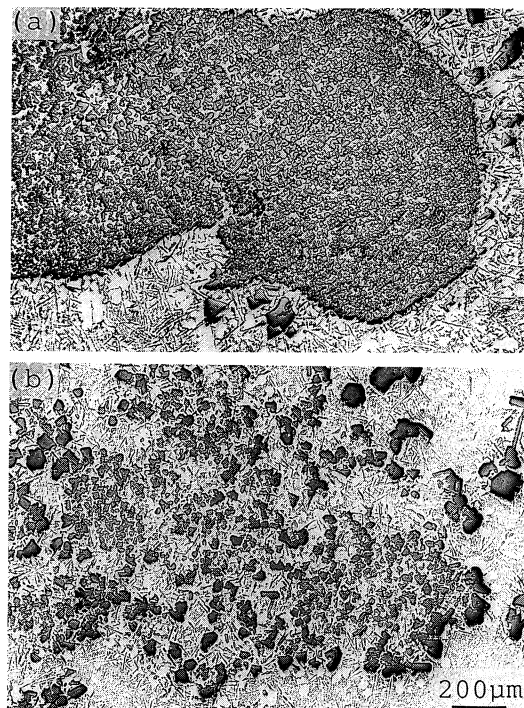


Fig. 5 Clusters of the primary silicon crystals observed in the microstructures of Al-22 mass%Si alloy ingots produced by the Duplex Casting process with the combinations of (a) Al-12 mass%Si and Al-42 mass%Si, and of (b) Al-12 mass%Si and Al-24.5 mass%Si.

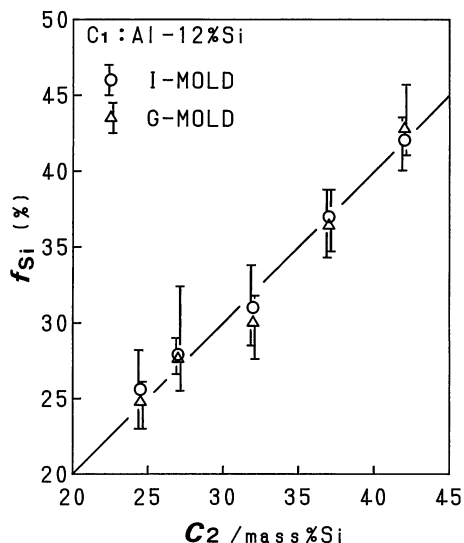


Fig. 6 Relationship between the second alloy composition and the mass fraction of silicon (f_{Si}) in the primary silicon clusters in the Al-22 mass%Si alloy ingots produced by the Duplex Casting process.

横断面上に設定した長方形領域(35 mm×20 mm)内から、肉眼で確認できる程度に大きくかつ明瞭な微細初晶集団を各4集団ずつ選び、これらの集団の中心部の正方形領域(0.4 mm×0.4 mm)について測定したSi相の面積率から、 α 固溶体およびSiの常温における密度値⁽⁴⁾を用いてSiの質量分率に換算した。なお、 α 相のSi濃度として共晶温度における α 相中のSiの平衡固溶限(1.56%Si⁽⁶⁾)を仮定した。初晶集団中央部のSiの質量分率は、用いた鋳型の

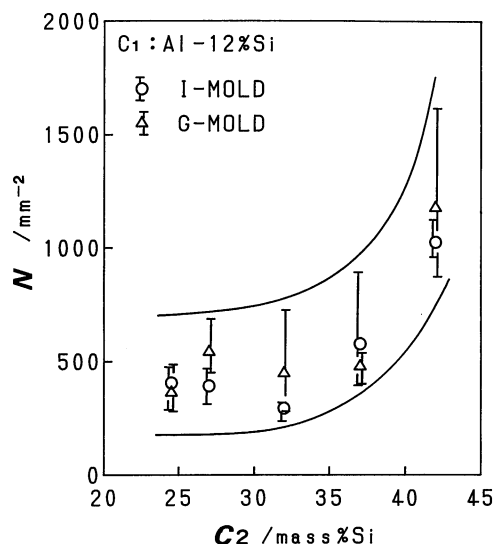


Fig. 7 Relationship between the second alloy composition and the number of primary silicon crystals per unit area, N in the primary silicon clusters.

種類にかかわらず2次溶湯の初期組成とよく対応している。この結果は2次溶湯の流塊の中心部が初期組成をほぼ保ったまま最終凝固に至ったものと考えられ、良く説明できる。

次に、島状集団内の各正方形領域内に存在する初晶粒子数と2次溶湯組成との関係をFig. 7に示す。ここでは粒子数を単位面積当りに換算して示しているが、これは一般に結晶生成密度に対応し、したがってその島状集団の起源である2次溶湯の流塊に生じた過冷度あるいは流塊の冷却速度に関係付けられると考えられる。Fig. 7では、ややばらつきがみられるが、全体的な傾向としては、2次溶湯の初期組成の増加とともに粒子数密度が増加している。また特に注目されるのは、Fig. 3に示した平均粒径の測定結果では2次溶湯が低Si濃度の場合に鋳型の種類の影響が顕著に見られるのに対し、Fig. 7の島状集団の粒子数密度には鋳型種類による系統的な影響が見られないことである。この相違点についてはⅢ.4節で改めて考察する。

3. 初晶微細化に対する1次凝固殻と鋳型の寄与

Fig. 3に示した断熱容器内の液-液混合実験では、2次溶湯のSi組成の高いほど初晶が微細になる傾向が見られる。特に2次溶湯がAl-42%Siの場合では、試料組織中にFig. 5(a)と同様の島状集団が観察された。しかし、これらの粒径値をFig. 3の複合鋳込みの結果と比較すると、かなり大きく、特に2次溶湯がAl-24.5%Siの場合では通常鋳込み材の粒径値と同程度である。このことは、1次溶湯と2次溶湯の混合時に1次凝固殻あるいは放熱能力のある鋳型の存在することが、複合鋳込みにおける初晶の微細化に大きく寄与していることを示している。

Al-12%Si合金溶湯の鋳込み後の経過時間7sにおける凝固殻の発達状況をデカンテーション法を用いて調査した結果をFig. 8に示す。鋳込み時の溶湯過熱度は50 Kであり、溶湯質量は0.220 kg, 0.550 kg, 0.733 kgの3種類を用いた。Fig. 8によると、凝固殻の質量は溶湯質量と鋳型の放熱能力に依存する。また、固相割合は溶湯質量が少ない場合ほど大きく、また放熱能力の優れたG鋳型の場合の方が大きい。

Fig. 9(a)は、Al-Si二元系による断熱容器内およびI鋳型内の固-液混合実験の初晶粒径値を[(AlSi12)₁-(AlSi24.5)₄]の組合せによる断熱容器内液-液混合実験および複合鋳込み実験の結果と比較して示したものである。断熱容器内での混合において1次合金が完全液体の場合には初晶の微細化がほとんどみられないのに対して、1次合金がすべて凝固殻となった場合に相当する断熱容器内固-液混合では、I鋳型を用いた複合鋳込み材よりも初晶が微細になり、さらにこれにI鋳型の寄与が加わるI鋳型内固-液混合により、G鋳型を用いた複合鋳込み材にはほぼ匹敵する微細な初晶Siが得られることになる。またFig. 9(b)には1次合金にAl-33%Cuを用いた場合について示して

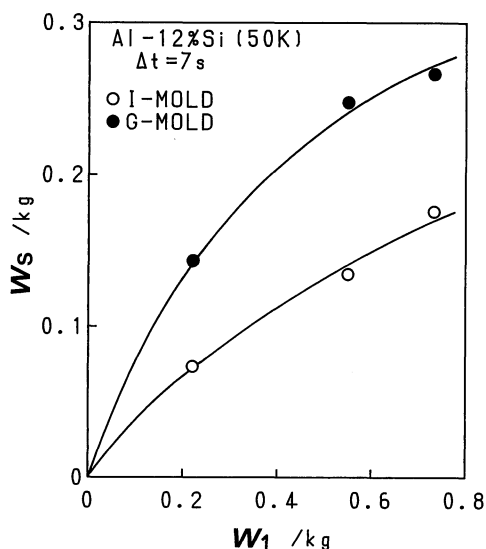


Fig. 8 Relationship between the mass of the solidified shell, W_s and the mass of the first alloy melt, W_1 . Al-12 mass%Si alloy was used as the first alloy, and superheat was 50 K. The elapsed time after pouring, Δt was 7 s.

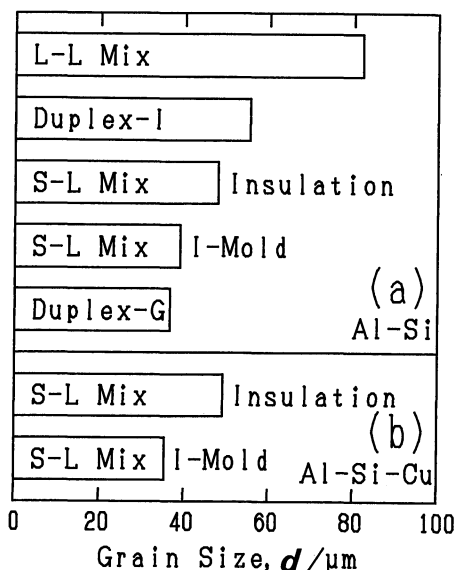


Fig. 9 The grain size of primary silicon in the ingots obtained by various methods using the combinations of (a) Al-12 mass%Si and Al-24.5 mass%Si and of (b) Al-33 mass%Cu and Al-24.5 mass%Si. "L-L Mix": liquid-liquid mixing in the heat-insulating vessel. "S-L Mix (Insulation)": solid-liquid mixing in the heat-insulating vessel. "S-L Mix (I-mold)": solid-liquid mixing in the I-mold. "Duplex-I": the Duplex Casting process in the I-mold. "Duplex-G": the Duplex Casting process in the G-mold.

いるが、Al-12%Si の場合と同様の結果が得られている。Al-33%Cu の凝固殻は初晶 Si の核生成サイトの供給源とはならないと考えられることから、1 次凝固殻の寄与を主として 2 次溶湯からの抜熱の促進によるものとするのが妥当と思われる。

I 鋳型を用いた $[(\text{AlSi12})_1-(\text{AlSi24.5})_4]$ 複合鋳込みでは、2 次鋳込みの時点で、1 次溶湯の約 1/3 が凝固殻となっていることが Fig. 8 からわかるが、断熱容器内の固-液混合の場合をこれに比較すると、1 次溶湯の約 2/3 に相当する質量の 1 次凝固殻が I 鋳型以上の寄与をしていることになる。ここで、1 次溶湯 (質量 0.220 kg, 比熱 $1.0 \text{ kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$) の熱容量は I 鋳型の黒鉛部分 (質量 1.360 kg, 比熱 $1.1 \text{ kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$) の熱容量の約 1/6 程度であることを考慮すると、1 次凝固殻の冷却効率が極めて優れていることがわかる。この理由としては、溶解潜熱⁽⁴⁾と比熱 C_p との比が $L/C_p \approx 400 (\text{K})$ と大きいこと、凝固殻と溶湯との接触状態としてはほぼ完全接触が可能であること、凝固殻の溶解により生成する相対的に低温の液相が 2 次溶湯との乱流混合により 2 次溶湯から急速に熱を奪うことなどが考えられる。

4. 初晶微細化と鋳造条件

複合鋳込みでは、1 次溶湯の鋳込み温度と、1 次鋳込みから 2 次鋳込みまでの時間間隔 Δt は、いずれも初晶 Si 粒径に影響を及ぼす。これらの影響は、同一鋳型・1 次溶湯質量一定の条件では、2 次鋳込み直前における 1 次溶湯の平均温度 T_{m1} により整理できた⁽²⁾。 T_{m1} は、1 次鋳込みから Δt 経過後の時刻 t における 1 次溶湯の半径方向の温度分布 $T_i(r)$ をもとに、式 (1) により定義した⁽²⁾。

$$T_{m1} = (1/\pi R^2) \int_0^R 2\pi r T_i(r) dr \quad (1)$$

ここで R は鋳型の内半径である。前報⁽³⁾ではこの平均温度 T_{m1} を 1 次溶湯の冷却能の指標と見なして初晶微細化との関係を考察した。しかし、1 次凝固殻が存在する場合、より正確には 1 次凝固殻の溶解の際に吸収される潜熱を考慮する必要がある。そこで新たなパラメータとして、 T_{m1} から 1 次凝固殻の潜熱に相当する温度降下分を差し引いた温度 T_{m1}^* を考える。

$$T_{m1}^* = T_{m1} - f_s \cdot L/C_p \quad (2)$$

1 次合金の固相率 f_s は式 (3) で表されるものとした。

$$f_s = W_s/W_1 \quad (3)$$

ここで、 W_s は 1 次凝固殻の質量である。Fig. 10 に、Al-12%Si および Al-33%Cu 合金溶湯の鋳込み後の時間経過に伴う凝固殻の発達過程を調査した結果を示す。Fig. 11 は、1 次溶湯の鋳込み温度と Δt を各々変えて行った $[(\text{AlSi12})_1-(\text{AlSi32})_1]$ 複合鋳込み実験 (I 鋳型)⁽²⁾ の初晶 Si 粒径を T_{m1} により整理した結果である。 W_s の値は

† 323~573 K の温度-比熱曲線⁽⁶⁾から求めた平均値。

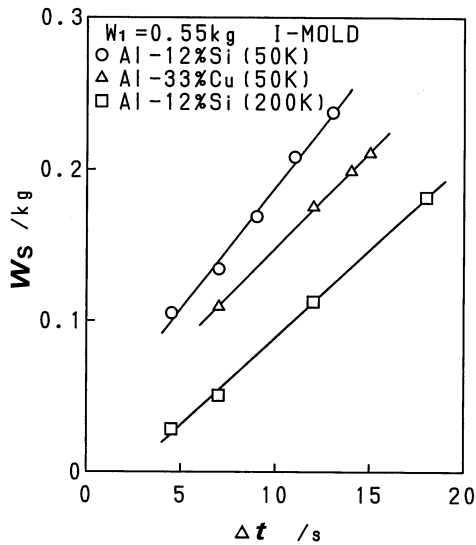


Fig. 10 Relationship between the mass of the solidified shell and the elapsed time after pouring, Δt . Superheat of Al-12 mass%Si alloy melt was 50 K or 200 K. That of Al-33 mass%Cu was 50 K.

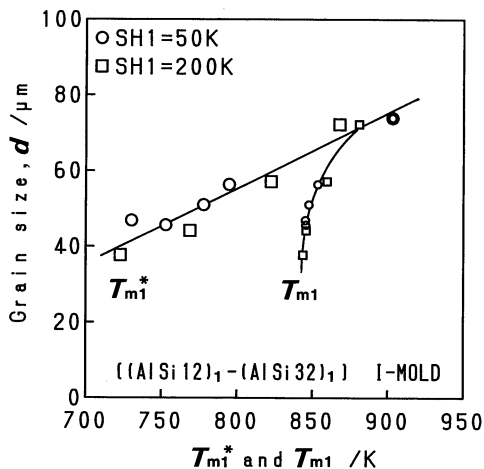


Fig. 11 Relationships between T_{m1}^* and d , and between T_{m1} and d . SH1: pouring superheat of the first alloy melt.

Fig. 10 によった。比較のために T_{m1} と初晶粒径の関係も示しているが、粒径の T_{m1} 依存性が低温側において大きく変化しているのに対し、 T_{m1}^* と粒径との相関はより良好である。

以上の結果から、初晶微細化機構において1次凝固殻の果たす役割を明確にすることができた。すなわち、溶湯混合過程で2次溶湯が高Si濃度を保ったまま急冷され、大きな過冷却を生じることにより初晶Siの多発核生成が起こる。このとき、1次凝固殻は溶解の際に潜熱を奪い、

また溶解により生成した低温の液相が溶湯混合に加わることで2次溶湯の冷却を促進すると考えられる。

上記の知見を基に、Fig. 3 および Fig. 4 に見られる溶湯組成と鑄型の影響について考察する。一般に鑄塊全体の初晶の平均粒径を小さくするためには、(a) 初晶生成領域の過冷却を大きくして初晶生成密度を増大させるとともに、(b) 初晶生成領域自体を大きくすればよい。初晶生成領域となる2次溶湯の急冷には、1次溶湯温度と2次溶湯の液相線温度との落差が大きいくほど、また W_1/W_2 が大きいほど有利であることから、(a) の条件には2次溶湯が高Si濃度の場合ほど有効である。しかしこの場合、(b) の条件からは不利となる。一方、 $[(AlSi12)_1-(AlSi24.5)_4]$ のように2次溶湯が低濃度の場合は2次溶湯量が多く、結晶生成領域を大きくできる可能性を持つが、1次溶湯の熱容量のみで2次溶湯の熱を奪うには不十分となり、初晶の微細化は1次凝固殻と鑄型の抜熱能力に大きく依存することになる。このようなことから、断熱容器内液-液混合実験のように、液体同士の熱のやり取りによってのみ2次溶湯の冷却が行われる場合には、(a) の条件の影響が明瞭に現われることになる。また複合鑄込みの場合、 Δt が一定の条件では、1次溶湯量が多いほど凝固殻量を多くできることから、高Si濃度の2次溶湯の場合には鑄型条件にかかわらず十分な冷却環境が得られ、初晶の微細化が可能となったものと考えられる。逆に2次溶湯が低Si濃度の場合、初晶の十分な微細化にはG鑄型により得られる程度の冷却環境を必要としたものと考えられる。

Fig. 3, Fig. 4 の結果は、複合鑄込み鑄塊における平均的な微細化挙動を示している。しかし、鑄塊内の個々の島状集団の微細化程度は、各々の集団のもとになった2次溶湯流塊の熱的履歴に依存する。Al-Si 2 元系の複合鑄込み実験の場合、溶湯混合過程における2次溶湯の冷却の限度はAl-Si 共晶温度程度であり、この条件は各実験とも大きくは変わらないので、2次溶湯組成が高い場合ほど最大可能な過冷却を大きくできることになる。Fig. 7 に示した島状集団内の初晶粒子密度に関して、特に最大値のデータに注目すると、2次溶湯組成の増加にともなって増加する傾向が明瞭にみられるが、これは上記の関係を反映したものと考えられる。

次に、Fig. 2 の1次溶湯組成を変化させた場合については、1次溶湯温度を低くできる点では、共晶組成に近いAl-12%Si の場合が有利であり、I鑄型・G鑄型共に比較的初晶が微細なのはこのことによる。また冷却媒体である1次溶湯量を多くできる点ではAl-17%Si の場合が有利であり、G鑄型では1次溶湯温度を十分下げることができたため初晶の微細化が可能になったが、一方、I鑄型では1次溶湯の冷却が十分でなかったため、結果として2次溶湯の急冷も不十分となったものと思われる。しかし1次溶湯が過共晶組成の場合、溶湯混合前に1次溶湯中で生成した初晶Siが残存して最終粒径に影響する可能性があ

り、より厳密には、この影響の考慮も必要と思われる。

IV. 結 言

複合鋳込み法により作製された過共晶 Al-Si 合金鋳塊の初晶粒径に及ぼす鋳造条件(溶湯組成、鋳型性状)の影響を調査した。また、1次凝固殻と鋳型の寄与を分離した対比実験により、初晶微細化に対する各々の寄与の割合を明らかにした。得られた結果を以下に要約する。

(1) 鋳込み時の溶湯過熱度および鋳込み時間間隔 Δt が一定の条件で行った複合鋳込みでは、初晶粒径は溶湯組成や鋳型性状により大きく変化した。一般に抜熱能力の大きい鋳型を用いた方が初晶はより微細となったが、鋳型種類の影響の割合は溶湯組成により異なった。

(2) 断熱容器内で完全液体状態の1次溶湯と2次溶湯を混合した実験では、2次溶湯のSi濃度が高く、1次/2次の質量比の大きな組合せの場合ほど初晶が微細化した。しかし、いずれの場合も複合鋳込み材の微細化程度には及ばず、1次凝固殻あるいは鋳型が初晶微細化に大きく寄与することが示された。

(3) $[(\text{AlSi}12)_1-(\text{AlSi}24.5)_4]$ の組合せに関する対比実験として、断熱容器内で1次溶湯量に等しい質量を持つ Al-12%Si 凝固殻と2次溶湯との混合を行った実験では、I 鋳型(断熱れんが底)を用いた複合鋳込みの場合以上に初晶が微細化した。また、デカンテーションによってI 鋳型内に凝固殻を残留させ、これに2次溶湯を混合した実験では、

G 鋳型(黒鉛底)を用いた複合鋳込み材に匹敵する初晶微細化がみられた。これらの結果から、1次凝固殻と鋳型のいずれも初晶微細化に寄与すること、また1次凝固殻の冷却能がきわめて優れていることが知られた。

(4) 2次鋳込み直前の1次溶湯の平均温度から1次凝固殻の融解潜熱量に相当する温度降下分を差し引いて得られる温度 T_{m1}^* を用いて、初晶粒径に対する1次溶湯の鋳込み温度と1次鋳込みから2次鋳込みまでの時間間隔 Δt の影響を整理した結果、 T_{m1}^* と初晶粒径の間に良好な相関関係が得られた。

(5) 冷却体としての1次凝固殻の役割を考慮した初晶微細化機構により、初晶粒径に及ぼす溶湯組成と鋳型の影響を説明することができた。

文 献

- (1) 安達 充：軽金属，**34**(1984)，430.
- (2) 大参達也，工藤昌行：日本金属学会誌，**54**(1990)，700.
- (3) 大参達也，田中康博，工藤昌行：日本金属学会誌，**56**(1992)，96.
- (4) 雄谷重夫，本間梅夫：軽合金鋳物便覧，日本総合鋳物センター編，丸善，(1965)，10.
- (5) J. L. Murray and A. J. McAlister: *Binary Alloy Phase Diagrams*, Ed. by T. B. Massalski, ASM, (1986), 164.
- (6) 化学工学便覧(改訂五版)，化学工学協会編，丸善，(1988)，35.