



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	複合鋳込み法による過共晶Al-Si合金の初晶Siの微細化
Author(s)	大参, 達也; 工藤, 昌行
Citation	日本金属学会誌, 54(6), 700-705 https://doi.org/10.2320/jinstmet1952.54.6_700
Issue Date	1990-06
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/74678
Type	journal article
File Information	1-16.pdf



複合鋳込み法による過共晶 Al-Si 合金の初晶 Si の微細化

大 参 達 也* 工 藤 昌 行*

J. Japan Inst. Metals, Vol. 54, No. 6 (1990), pp. 700-705

Refinement of Primary Silicon Crystals in Hypereutectic Al-Si Alloys by the Duplex Casting Process

Tatsuya Ohmi* and Masayuki Kudoh*

The Duplex Casting process, in which two kinds of molten alloys with different compositions are cast in mold in sequence at a given interval, was applied to hypereutectic Al-Si alloys as the refinement process for the primary silicon crystals which grow to a considerable size under the conventional castings.

In this study, three combinations of alloy compositions were used to make Al-22 mass%Si ingots: (1) Al-12 mass%Si as the first molten alloy and Al-32 mass%Si as the second molten alloy; (2) Al-32 mass%Si and Al-12 mass%Si; and (3) Al-22 mass%Si and Al-22 mass%Si.

When the liquidus temperature of the second molten alloy was higher than the first one, the primary silicon crystals were drastically refined. Furthermore, they were finer when the temperature of each molten alloy at the time of mixing was lower. Under the most effective condition for refinement, the mean size of primary silicon crystals was reduced to about 40 μm , while it was 70-90 μm in the ingots produced by the conventional casting.

It was also observed that the macroscopic segregation of the primary silicon was alleviated as the primary silicon crystals were refined by the Duplex Casting process.

(Received September 13, 1989)

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

I. 緒 言

鋳造材には、一方向凝固材や単結晶成長材などの特殊な例を除けば、材料強度特性の見地から微細な凝固組織を持つことを要求される場合が多い。凝固組織の微細化法としては、低温鋳造、機械力や電磁気力による攪拌・振動、微細化剤の添加、急速凝固法の利用などがあるが、これら既存の方法では、要求される微細化の程度やコスト等の問題で適切に対処できない場合もある。

以前著者らは、柱状晶の成長過程にある亜共晶 Al-Si 合金の残溶湯中に別の溶湯を追加注入する手法により、柱状晶から等軸晶への遷移が促進されるとともに生成する等軸晶が微細化されること、また追加溶湯として、初めに鋳込んだ溶湯より平衡凝固温度の高い純 Al を用いることによって等軸晶の微細化が特に顕著になることを見いだした⁽¹⁾。この手法を著者らは「複合鋳込み法 (Duplex Casting Process)」と名付けている。本法はその特徴として、初晶の微細化法であり、また一方では凝固組織あるいは組成の異なる 2 層から成る複合鋳塊の製造が可能な鋳造法でもある。

本研究は、耐熱耐摩耗合金の基本系である過共晶 Al-Si 2 元合金に複合鋳込み法を適用して、通常の凝固条件下では粗大に晶出し、機械的性質などに悪影響を及ぼすとされる初晶 Si を微細化することを試みた。その結果、2 種類の溶湯の Si 組成の組合せ、鋳込み温度、鋳込みの時間間隔などの条件を適切に選ぶことによって、初晶 Si 粒を顕著に微細化し、同時に初晶 Si 粒子のマクロ的分布を均一化できることを明らかにした。

II. 実 験 方 法

使用した合金の組成と重量は、鋳塊試料の総重量が 1.1 kg、混合後の目標平均組成が Al-22 mass%Si (JIS AC9A 材相当の Si 組成) となるように設定し、2 つの溶湯として主に共晶組成に近い Al-12 mass%Si 合金 0.55 kg と過共晶組成の Al-32 mass%Si 合金 0.55 kg を用いた。ここで以下に第 1 の鋳込みを 1 次鋳込み、追加注湯を 2 次鋳込み、各々に用いる溶湯を 1 次溶湯、2 次溶湯と記す。溶湯組成の組合せとして、(a) 1 次溶湯よりも 2 次溶湯の液相線温度の高い組合せ (1 次溶湯が Al-12 mass%Si 合金、2 次溶湯が Al-32 mass%Si 合金。以下 [12-32] の様に略

* 北海道大学工学部金属工学科 (Department of Metallurgical Engineering, Faculty of Engineering, Hokkaido University, Sapporo)

記), (b) 1 次溶湯と 2 次溶湯の組成を(a)の逆にした組合せ ([32-12]), および(c) Al-22 mass%Si 合金 (0.55 kg) どちらの組合せ ([22-22]) の 3 種類について検討した. さらに初晶 Si の微細化に最も効果のあった組合せでの各溶湯の鋳込み温度および 1 次鋳込みから 2 次鋳込みまでの時間間隔 (以下, Δt とする) の影響を調べた.

また比較のために, 種々の鋳込み温度での Al-22 mass%Si 合金 (1.1 kg) の通常鋳込み実験および Al-12 mass%Si 合金と Al-32 mass%Si 合金の単一鋳込み実験を行った.

実験に使用した Al-Si 合金は, Al (99.99%) と Al-25 mass%Si 母合金, 又は金属 Si (99%) と Al-25 mass%Si 母合金とから各々溶製した.

実験装置を Fig. 1 に示す. 鋳型は内径 80 mm, 外径 120 mm, 高さ 130 mm の黒鉛製円筒と厚さ 20 mm の着脱可能な断熱レンガ製の底盤からなる. 测温は, 鋳型底部または鋳型側部から挿入した 3 本の K 熱電対を用い, データアキュイジションコントローラとパーソナルコンピュータのシステムを介して温度の計測・記録を行った. 测温位置は, 底部からの高さが 40 mm, 鋳壁からの距離が各々 5 mm, 20 mm, 40 mm (軸心) とした. 注湯法は, 1 次鋳込みおよび 2 次鋳込みのいずれの場合も上注ぎを採用し, 2 段階の注湯操作を迅速に行うため, 鋳型上の回転アームの両側に 2 つのタンディッシュを設置できるようにした. 1 次鋳込み用のタンディッシュは断熱レンガ製で, 実験開始時には鋳型軸心直上に設置されている. 複合鋳込みの実験手順は以下の通りである. まず 1 次溶湯用合金と 2 次溶湯用合金を各々電気炉中で大気中溶解し, Al-12 mass%Si 合金は 1073 K, Al-22 mass%Si 合金は 1123 K, Al-32

mass%Si 合金は 1173 K で各々 1800 s 温度保持した. この後, 1 次溶湯を鋳込み温度より 50 K 高い温度で 1 次鋳込み用タンディッシュ内に移して冷却し, 鋳込み温度になった時点で溶湯を鋳型内に鋳込んだ. この間, 2 次溶湯はるつぽをかねた黒鉛製タンディッシュ中で 2 次鋳込み温度に保持されている. 2 次鋳込み直前にこのタンディッシュを回転アームのもう一方の側にセットし, アームを回転させて鋳型軸心直上に移動した後に 2 次溶湯を鋳込んだ.

Al-22 mass%Si 合金の通常鋳込み実験の場合, 温度保持を 1123 K で 1800 s 行った後, 複合鋳込み実験の 1 次鋳込みと同様の手順で鋳込んだ.

得られた鋳塊の寸法は, いずれも, 直径 80 mm, 高さ約 85 mm である. 鋳塊は縦に 2 分割し, 一方の縦断面をマクロ組織観察に供し, 他方を熱電対先端の高さで水平に切断して横断面をミクロ組織観察および初晶 Si 粒径測定に供した. マクロ組織の顕出には, $\text{HNO}_3 : \text{HF} : \text{C}_3\text{H}_8\text{O}_3 = 10 : 60 : 30$ の混液を用いた. また, 初晶 Si 粒径の測定は, バフ研磨した鋳塊試料面の外周より 4 mm の位置から 38 mm まで 2 mm 間隔に採った計 18 視野の光学顕微鏡像を画像処理し, 全視野の結果を総計して統計処理を行い, 初晶 Si 粒子の粒径分布を得た. 一画像の視野面積は, $0.49 \text{ mm}^2 (700 \mu\text{m} \times 700 \mu\text{m})$ を標準とし, 特に初晶 Si 粒子の粗大な場合には $1.62 \text{ mm}^2 (1273 \mu\text{m} \times 1273 \mu\text{m})$ とした. 顕微鏡試料への照明には 2 方向からの斜光を用いた. また画像処理の際には共晶 Si 相の影響を排除するため面積値が $50 \mu\text{m}^2$ 以下の粒子を除外した. 粒径は絶対最大長とした. どの試料も粒径分布は対数正規分布に近い分布を示し, [32-12] 複合鋳込み鋳塊と通常鋳込み鋳塊の一部を除くと, 幾何標準偏差が幾何平均の増加にともなってほぼ直線的に増加する関係がみられたので, 粒径の比較には主に幾何平均値を用いることにした. なお幾何平均値は粒径の対数の算術平均値から求め, メジアン径 (累積頻度 50% の粒径) にほぼ一致することを確認した.

III. 結果および考察

1. 通常鋳込み鋳塊のミクロ組織と初晶 Si 粒径

Fig. 2 に, Al-12, 22, 32 mass%Si 合金のミクロ組織写真を示す. Fig. 2(a) および (c) は複合鋳込みに用いた Al-12 mass%Si 合金 0.55 kg と Al-32 mass%Si 合金 0.55 kg を各々単独で鋳込んだ鋳塊であり, 鋳込み温度はいずれも各組成の液相線温度より 50 K 高い温度である. また Fig. 2(b) は Al-22 mass%Si の通常鋳込み鋳塊で, 鋳込み温度は 1023 K (過熱度 42 K) である. (a) の Al-12 mass%Si の場合, 共晶組成が 12.6 mass%Si⁽²⁾ であることから明瞭な α -Al デンドライトが観察される. 一方, (b) の Al-22 mass%Si および (c) の Al-32 mass%Si では粗大な初晶 Si がみられ, なかには長辺が数百 μm から 1 mm におよぶ塊状ないし板状に成長した粗大な粒子も観察される.

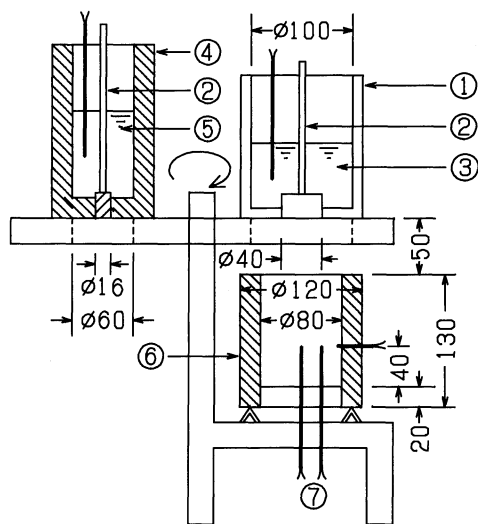


Fig. 1 Experimental apparatus.

- ① tundish for first melt, ② stopper, ③ first melt,
- ④ tundish for second melt, ⑤ second melt, ⑥ mold,
- ⑦ thermocouples.

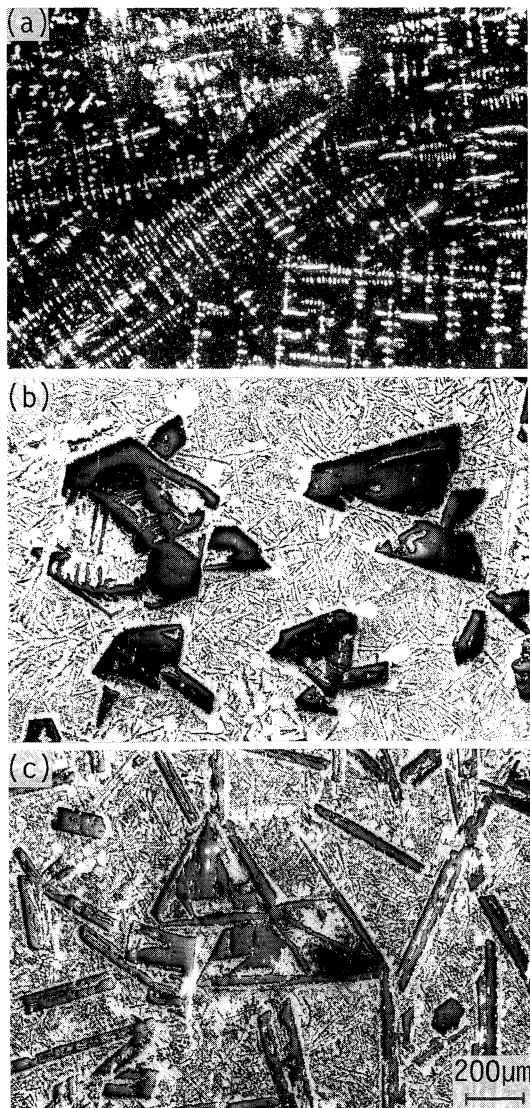


Fig. 2 Microstructures of Al-Si alloy ingots obtained by the conventional casting.
(a) Al-12 mass%Si, (b) Al-22 mass%Si,
(c) Al-32 mass%Si.

亜共晶の Al-Si 合金では、一般に casting 温度を低くすることによって微細な等軸晶組織が得られる⁽³⁾。そこで、Al-22 mass%Si 合金の初晶 Si 粒径と casting 温度の関係を調べた。その結果を Fig. 3 に示す。各プロットに附した垂線は初晶 Si 粒径を信頼度 95% で区間推定した範囲を示している。本実験ではこの区間が広く、必ずしも明確な傾向は得られていないが、初晶 Si 粒径は約 70 μm から 90 μm までの範囲にあり、casting 温度を低くしても初晶 Si の顕著な微細化は見られない。これは亜共晶 Al-Si 合金と大きく異なる点である。

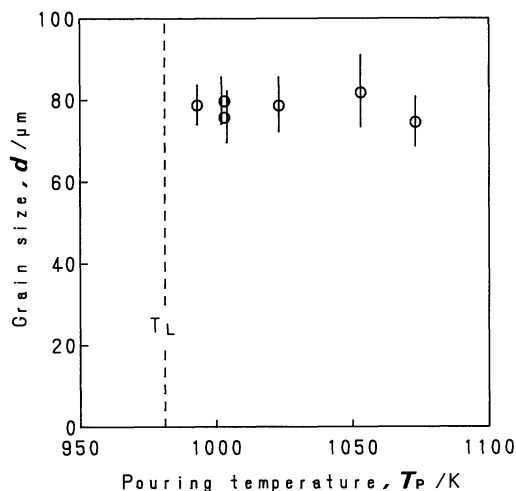


Fig. 3 Relationship between the mean grain size of primary Si and pouring temperature for conventional cast Al-22 mass%Si alloy ingots.

2. 初晶 Si の微細化におよぼす複合 casting の効果

(1) 溶湯組成の組合せ

Fig. 4 に溶湯組成の組合せを変えた複合 casting 鋳塊の代表的なマイクロ組織写真を示す。Fig. 4(a) は [12-32] の組合せ、Fig. 4(b) は [32-12] 鋳塊、Fig. 4(c) は [22-22] 鋳塊の場合で、三者はいずれも溶湯の casting 温度条件 (液相線温度以上 50 K) と Δt (7 s) を等しくしてある。Fig. 2(b) の通常 casting 鋳塊の結果と比較すると Fig. 4(a) の複合 casting 鋳塊の初晶 Si 粒は微細である。これに対し、Fig. 4(b) (c) ではいずれも Fig. 4(a) に見られるような初晶 Si の顕著な微細化はみられない。この結果と、亜共晶 Al-Si 合金で純 Al の追加注入により等軸晶の顕著な微細化が得られた事実⁽¹⁾ とを併せて考えると、複合 casting 法により初晶を微細化するための溶湯組成の組合せとして、2 次溶湯を 1 次溶湯より平衡凝固温度の高い組成にすることが必要であることがわかる。

Fig. 5 は Fig. 4 の試料について初晶 Si 粒径分布の測定結果を対数正規確立紙上にプロットしたものである。比較のために Fig. 2(b) の通常 casting 鋳塊の結果も併せて示している。各プロットに沿った直線は累積頻度 90% までのデータの回帰直線である。図中 ● で示した [32-12] 複合 casting 鋳塊のように初晶 Si の粗大な試料については一部大粒径側で直線からの逸脱がみられるが、全体にプロットの直線性は良好であり、対数正規分布に近い粒径分布を示している。幾何平均値は、[12-32] 複合 casting 材、[22-22] 複合 casting 材、通常 casting 材、[32-12] 複合 casting 材の順に、各々 45.8, 68.2, 78.7, 97.8 μm と大きくなり、Fig. 4 のマイクロ組織の観察結果を定量的に評価することができる。

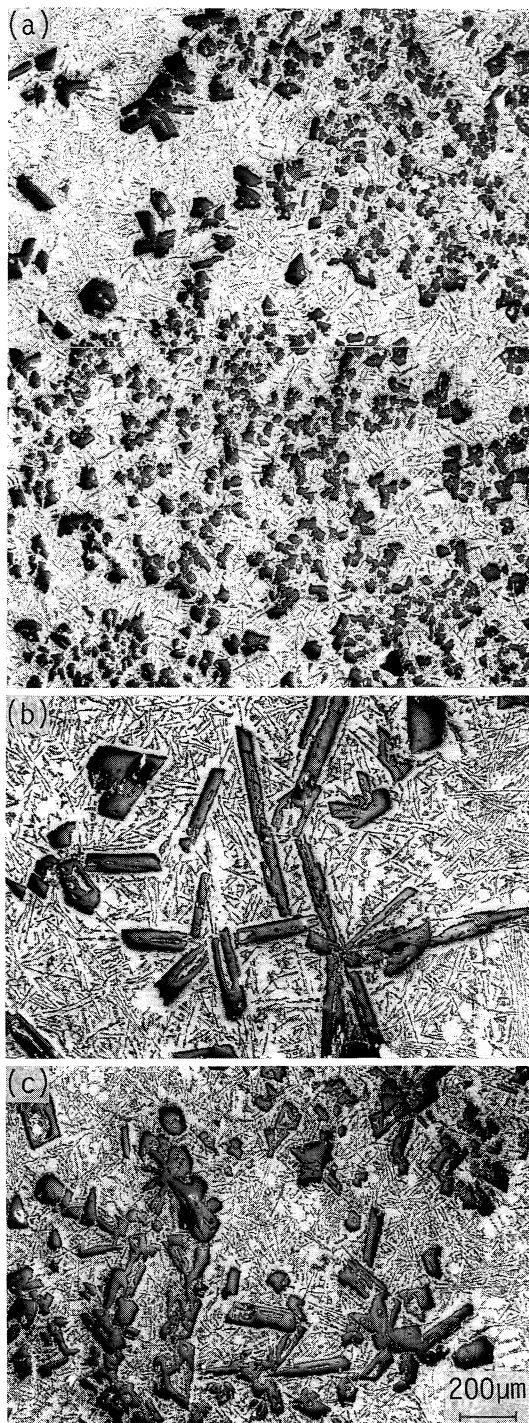


Fig.4 Microstructures obtained by the Duplex Casting process, showing the effect of difference in alloy composition between first and second melts.

(a) [12-32], (b) [32-12], (c) [22-22].

(2) 1次溶湯の鋳込み温度および鋳込みの時間間隔 Δt

Fig. 6 は [12-32] 複合鋳込み鋳塊の初晶 Si 粒径におよ

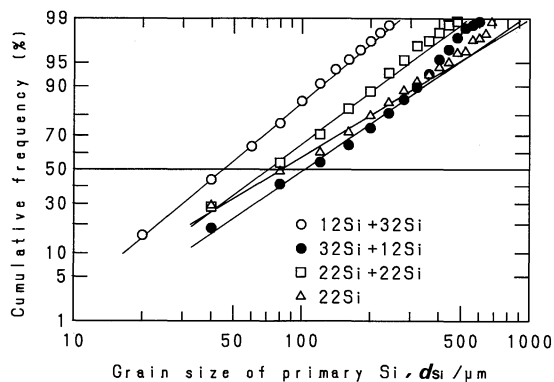


Fig. 5 Grain size distributions of primary Si obtained by the Duplex Casting process. Superheat of each molten alloy was 50 K, and Δt was 7 s.

For comparison, the result for the conventional cast ingot is also shown. Pouring temperature was 1023 K.

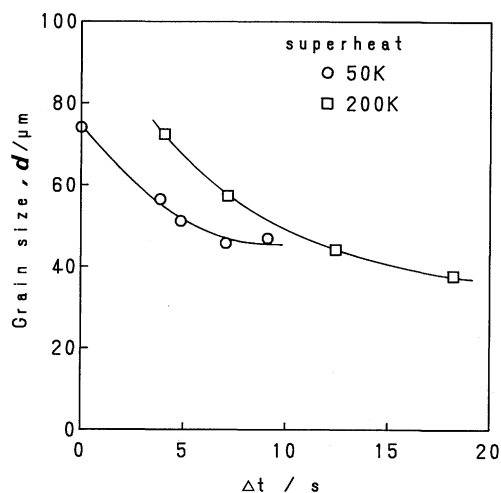


Fig. 6 Effects of time interval from first to second pouring Δt and pouring superheat of first melt on the mean grain size of primary Si. Al-12 mass%Si alloy and Al-32 mass%Si alloy were used as first and second melt respectively. Superheat of second melt was 50 K.

ぼす1次溶湯の鋳込み温度と Δt の影響を示している。1次溶湯の鋳込み温度は液相線温度以上 50 K および 200 K の2種類で各々 Δt を4~5段階に変えている。2次溶湯の鋳込み温度は液相線温度以上 50 K に統一した。ここで Δt が0sの場合は、1次溶湯と2次溶湯を同時にするつばから直接鋳込んだ実験の結果である。1次鋳込み温度が同じ条件では Δt を長くするにつれて初晶 Si は微細化するが、微細化の程度は次第に飽和する傾向にある。また、1次鋳込み温度が高いほど曲線は全体として長 Δt 側にシフトしており、同じ Δt では1次鋳込み温度の低い方が初晶 Si は微細である。

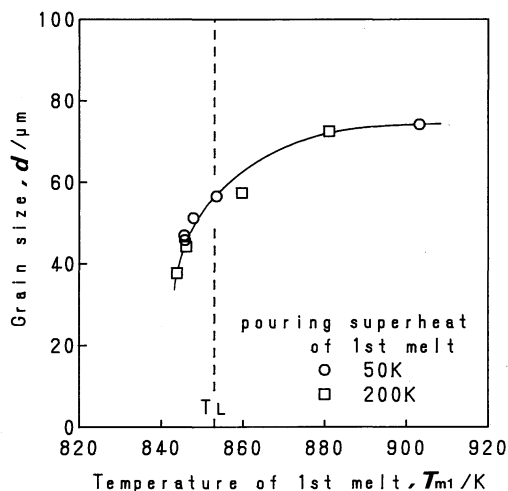


Fig. 7 Relationship between the mean grain size of primary Si and the averaged temperature of first melt immediately before the second pouring. Al-12 mass%Si alloy and Al-32 mass%Si alloy were used as first and second melt respectively. Superheat of second melt was 50 K.

Fig. 7 は初晶 Si 粒径を 2 次鋳込み直前での鋳型内 1 次溶湯の平均温度 T_{m1} によって整理した結果である。ここで T_{m1} は 1 次溶湯と熱的に等価で温度の均一な溶湯の温度であり、以下のようにして求めた。液相線温度以上 50 K および 200 K の鋳込み温度で 1 次溶湯のみの鋳込み実験を別々に行い、湯面高さのほぼ 1/2 の高さで半径方向に配列した 5 本の熱電対により各位値の冷却曲線を得た。次に Δt に対応する時刻 t における温度分布 $T_i(r)$ として、軸心での温度勾配が 0 となるような r の 2 次式を仮定する。ここで r は鋳型軸心からの半径方向の距離である。

$$T_i(r) = a_i r^2 + c_i \quad (1)$$

式(1)の右辺の係数 a_i と c_i は 5 本の冷却曲線からの時刻 t における温度データを回帰することにより得た。次に次式により時刻 t における溶湯の平均温度を求めた。

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

ここで R は鋳型の内半径である。以上の計算で温度が液相線温度以下になる場合については過冷却状態とみなした。Fig. 7 では、1 次鋳込み温度の異なる実験結果が 1 つの曲線上に乗っており、2 次鋳込み直前の 1 次溶湯の温度がより基本的な因子であることを示している。初晶 Si 粒はこの 1 次溶湯温度が低いほど微細であり、この温度が高くなると粒径は大きくなり液相線温度以上 50 K 程度で Fig. 2(b) の通常鋳込み鋳塊の初晶 Si 粒径とはほぼ同程度となる。

(3) 2 次溶湯の鋳込み温度

次に、[12-32]鋳塊の初晶 Si 粒径におよぼす 2 次溶湯鋳込み温度の影響を Fig. 8 に示す。1 次溶湯の鋳込み温度

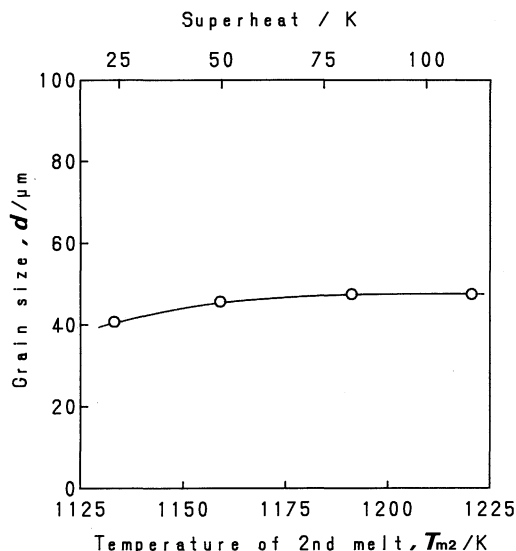


Fig. 8 Relationship between the mean grain size of primary Si and the pouring temperature of second melt. Al-12 mass%Si alloy and Al-32 mass%Si alloy were used as first and second melt respectively. The pouring superheat of first melt was 50 K, and Δt was 7 s.

は液相線温度以上 50 K に統一し、 Δt は 7 s に調節した。初晶 Si 粒径は 2 次溶湯温度が高くなるにつれていくぶん大きくなる傾向はみられるが、Fig. 7 の 1 次溶湯温度の影響に比べるとその変化は小さい。Fig. 7 および Fig. 8 の結果から、本実験で用いた溶湯の組合せでは、混合時の 1 次および 2 次溶湯の温度を低くすることによって、約 40 μm 程度まで初晶 Si の微細化が可能である。

3. 初晶 Si 粒の均一分布

実用材料では、過共晶 Al-Si 合金の初晶 Si は微細であるとともにその分布が均一であることが必要である。

Fig. 9 に鋳塊縦断面のマクロ組織写真の例を示す。初晶 Si は写真上では黒く点状に見られる。Fig. 9(a) は通常鋳込み鋳塊の例で、鋳込み温度 1023 K の場合である。初晶 Si の分布は不均一で、特に鋳塊下部において初晶 Si の存在しない大きな領域 (Primary Silicon Free Zone 略して PSFZ⁽⁴⁾ と呼ばれることがあるので、以後この呼称を用いる) がみられる。Fig. 9(b) は複合鋳込み鋳塊の例で、鋳込み温度は両溶湯とも液相線温度より 50 K 上で、 Δt が 4 s の条件である。Fig. 9(a) と比較して初晶 Si 粒のマクロ分布はより均一であり、PSFZ は鋳塊全域に微細分散化されている。これをより詳細に観察すると (Fig. 4(a) 参照)、PSFZ は、約 30 μm 程度に微細化された初晶 Si 粒の密集した島状の集団を取り囲むように存在している。また微細粒集団の外周や PSFZ 中に、比較的大きな初晶 Si 粒が孤立分散しているのが見られる。これらの特徴はいずれも、

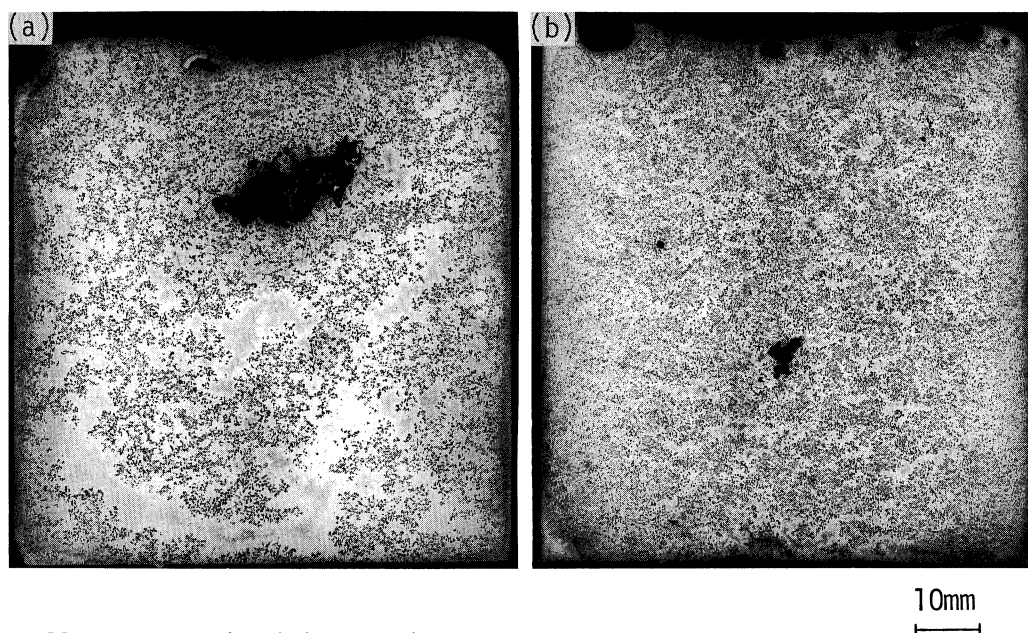


Fig. 9 Macrostructures of vertical cross section.

(a) conventional casting of Al-22 mass%Si alloy; pouring temperature was 1023 K.

(b) Duplex Casting process; $\Delta t=4$ s, and first melt: Al-12 mass%Si (superheat=50 K), second melt: Al-32 mass%Si (superheat=50 K).

初晶 Si が微細化した複合鋳込み鋳塊に共通してみられた。

また複合鋳込み鋳塊では多くの場合、冷却の最も強い鋳塊底部外周に僅かな亜共晶凝固殻が確認され、また 1 次鋳込みの過熱度が 200 K で Δt が最も長い 18.2 s の試料では、40 mm 高さの位置でも外周から 2~3 mm 程度の凝固殻がみられた。他の条件が同じならば、 Δt が長いほど凝固殻がより厚く発達することになるので、初晶 Si の微細化の程度と許容できる凝固殻の厚さとの兼ねあいから、最適な Δt が決まることになる。

IV. 結 言

過共晶 Al-Si 合金に複合鋳込み法を適用し、初晶 Si の微細化の可能性および初晶 Si 微細化のための必要条件について検討した。目的とする鋳塊組成を Al-22 mass%Si とした。得られた結果を要約して以下に示す。

(1) 1 次溶湯と 2 次溶湯の組成の組合せとして (a) Al-12 mass%Si と Al-32 mass%Si, (b) Al-32 mass%Si と Al-12 mass%Si, (c) Al-22 mass%Si と Al-22 mass%Si を用いた結果、初晶 Si の顕著な微細化が見られたのは (a) の組合せの場合のみであった。この結果から、複合鋳込み法では、初晶の微細化には、1 次溶湯の液相線温度より 2 次溶湯の液相線温度が高くなるような溶湯組成の組合せを選択することが必要である。

(2) 1 次溶湯に Al-12 mass%Si 合金、2 次溶湯に Al-32 mass%Si 合金を用い、初晶 Si 粒径に及ぼす溶湯の鋳

込み温度および鋳込みの時間間隔 Δt の影響を調査した結果、初晶 Si 粒径は、1 次鋳込み温度が一定の条件では Δt が大きいほど微細化し、また Δt が一定の場合は 1 次鋳込み温度が低いほど微細化した。この関係は、2 次鋳込み直前の 1 次溶湯温度により整理でき、この温度を低くするほど初晶 Si は微細化した。また初晶 Si 粒径は 2 次溶湯の過熱度の低下によっても若干減少した。混合時の溶湯温度を低くすることにより初晶 Si は約 40 μm 程度まで微細化できた。

(3) 通常鋳込み鋳塊では PSFZ が顕著であるのに対し、複合鋳込み鋳塊では初晶 Si が微細化されるに伴い PSFZ が微細分散化され、初晶 Si のマクロ的分布は均一化された。

最後に本研究の一部は文部省科学研究費補助金によることを記して謝意を表する。

文 献

- (1) 工藤昌行, 大参達也, 高橋忠義: 日本金属学会誌, **51**(1987), 948.
- (2) J. L. Murray and A. J. McAlister: *Binary Alloy Phase Diagrams*, Ed. by T. B. Massalski, American Society for Metals, (1986), 164.
- (3) 大笹憲一, 高橋忠義, 宮下英明: 鋳物, **61**(1989), 92.
- (4) 安達 充: 軽金属, **34**(1984), 430.