HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	過共晶Al-Si合金の初晶けい素微細化に及ぼす複合鋳込みと溶湯攪拌の影響
Author(s)	大参, 達也; 工藤, 昌行; 井口, 学
Citation	鋳造工学, 77(8), 542-546 https://doi.org/10.11279/jfes.77.542
Issue Date	2005-08-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/74712
Type	journal article
File Information	Chuzo.77.542.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

研究論文 特集「半溶融・半凝固加工」

過共晶Al-Si合金の初晶けい素微細化に及ぼす複合鋳込みと溶湯攪拌の影響

大参達也* 工藤昌行* 井口 学*

Research Article
J. JFS, Vol. 77, No. 8 (2005) pp. 542～546
Special Issue on Semi-solid Processing

Influence of Duplex Casting and Agitation on Refinement of Primary Silicon Crystals in Hypereutectic Al-Si Alloy

Tatsuya Ohmi*, Masayuki Kudoh* and Manabu Iguchi*

The influence of Duplex Casting and agitation on the refinement of primary silicon crystals in a hypereutectic Al-Si alloy was investigated. The molten alloys were cast in the space between concentric cylinders composed of a graphite mold and cylindrical alumina stirrer. Conventional single casting without agitation produced coarse primary silicon crystals, and the primary silicon size decreased monotonously as the rotation speed of the stirrer increased. On the other hand, agitation by the stirrer inhibited the proper refinement mechanism of Duplex Casting.

Keywords : semi-solid processing, hypereutectic aluminum-silicon alloy, Duplex Casting, agitation, primary silicon, mixing

1. 緒 言

金属の半凝固加工プロセスでは，粒状の固相と液相とが混在した半凝固金属を製造し，これを直接加工して成形体を得る．その基幹技術となる半凝固金属製造法の原理は，固液共存状態の合金を攪拌することにより初晶デンドライトを破砕し粒状化することにある．したがって，固相粒子の粒径を制御するプロセス変数として，攪拌の剪断歪み速度と冷却速度とが重要である[1]．前者は攪拌強度の指標であり，後者はデンドライトアームおよびその断片の粗大化速度に関係する．これらの知見をもたらした研究の多くは，デンドライト凝固様式を示すアルミニウム合金を対象としている．

一方，過共晶Al-Si合金のように硬質のファセット状初晶粒子を晶出する合金系では，攪拌の破砕効果のみにより初晶を実用レベルまで微細化することは困難であり，急冷凝固により初晶の核生成数そのものを増加させる方策が必要であることが指摘されている[2, 3]．

過共晶Al-Si合金は，鋳造用Al合金の中で最も優れた耐摩耗性と低い熱膨張率とを有する．この特性は，共晶組織中に分散した初晶Si粒子によって担われており，この初晶粒子のサイズの制御が実用上不可欠となっている．例えば，エンジンのシリンダボア部の初晶Si粒径は，30～50 μmが適当とされている[4]．

著者らは，組成の異なる2種類の溶湯を液相線温度の低い順に鋳型に時間差鋳造する「複合鋳込み法」を過共晶Al-Si合金に適用することにより，通常の凝固条件では粗大に成長する初晶Si粒子が顕著に微細化することを見いだした[5]．この実験では，最初に鋳込まれる溶湯（1次溶湯）として共晶組成に近い亜共晶合金であるAl-12 mass%Si合金，後から鋳込まれる溶湯（2次溶湯）として高温・高液相線温度の過共晶Al-Si合金溶湯を用いた．複合鋳込み法による初晶微細化機構は以下のように要約される[6]．

(1) 2次溶湯は低温の1次溶湯と接触することにより，高Si濃度を保ったまま急冷される（これを混合急冷効果と呼ぶ[7]）．これにより，2次溶湯内部で大きな過冷却が生じ，初晶の多発的核生成が起こる．すなわち，溶湯の混合過程において1次溶湯は冷却媒体として機能し，また，2次溶湯は初晶Si粒子の供給源となる．

(2) 部分的に凝固した1次溶湯内の固相が，高温の2次溶湯との混合により再溶解する際に溶融潜熱を吸収し，2次溶湯の冷却を促進する．これを潜熱吸収効果と呼ぶ[7]．

混合急冷効果における2次溶湯の冷却は，2種類の溶湯の乱流混合により促進される．したがって，溶湯混合時の流動現象が初晶Si粒子の微細化に影響することが推測されるが，通常の重力鋳造では，溶湯攪拌はもっぱら2次溶湯の位置エネルギーに依存するため，攪拌強度を広範に制御する事は困難である．そこで，本研究では，内筒の回転している回転二重円筒間に溶湯を複合鋳込みする手法を用い，内筒の回転速度を変えることにより初晶Si粒子の微細化に及ぼす攪拌強度の影響を定量的に検討した．

平成17年3月1日 原稿受理
* 北海道大学大学院工学研究科 Graduate School of Engineering, Hokkaido University

2．実験方法

実験に使用した攪拌凝固装置を **Fig. 1** に示す．本装置では，内径 80 mm，外径 120 mm の円筒形黒鉛鋳型と円柱形のアルミナ製攪拌子（直径 40 mm）とにより回転二重円筒系を構成する．本研究において攪拌子形状を円柱形とし，異形断面としなかったのは，攪拌子との衝突によって初晶 Si 粒子が破砕し，初晶 Si サイズに影響を及ぼす可能性を極力除くことを意図したためである．**Fig. 2** は，鋳型部の詳細を示している．鋳型内の溶湯の温度変化を測定するために，鋳型側面から 6 本の K 熱電対 a～f を挿入した．また，鋳型底部からの冷却を抑制するために，断熱れんが製の底板を配置した．なお，本実験では，鋳型と攪拌子とは完全な同軸ではなく，攪拌子のシャフト軸と円筒形攪拌子の軸とは 1 mm 偏心していた．したがって，本実験での二重円筒間の流れは同軸二重円筒の場合より乱流化しやすい．

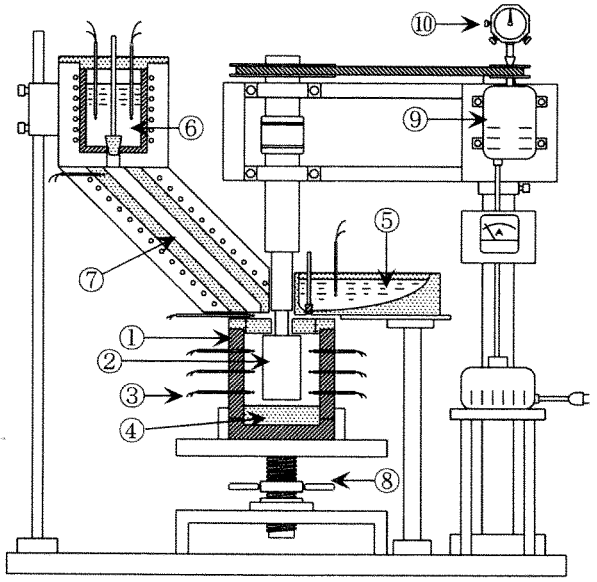

Fig. 1　Experimental apparatus. ① Graphite mold. ② Stirrer. ③ Thermocouple. ④ Heat-insulating mold base. ⑤ First melt. ⑥ Second melt. ⑦ Heated launder. ⑧ Elevating apparatus. ⑨ Variable motor. ⑩ Tachometer.

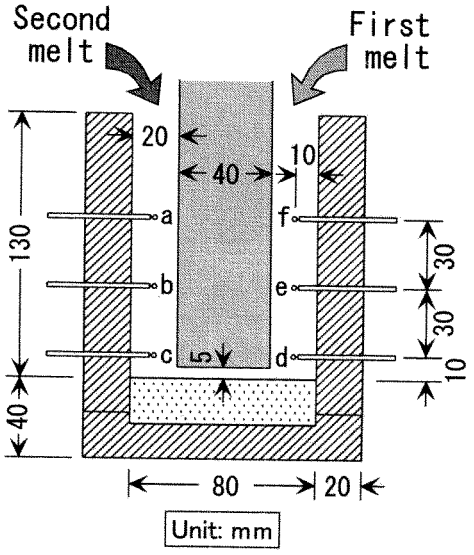

Fig. 2　Setup of mold, stirrer and thermocouples.

凝固後の鋳塊試料の目標組成を Al-22 mass%Si とし，1 次溶湯に Al-12 mass%Si 合金 0.4 kg，2 次溶湯に Al-32mass%Si 合金 0.4 kg を用いた．このとき，静置状態の 1 次溶湯の湯面高さは 42 mm，混合後の湯面高さは 85 mm となる．

実験手順は以下の通りである．予め攪拌子を所定の速度（N=0～25 s^{-1}）で回転させておき，タンディシュ内で 1 053 K（過熱度 200 K）に温度調節した 1 次溶湯を鋳型と攪拌子との間隙に鋳込み，その 10 s 後に温度保持炉内の 2 次溶湯を，加熱樋を通して鋳込んだ．2 次溶湯の鋳込み温度は 1 160 K（過熱度 50 K）とした．鋳型内の溶湯の温度は鋳型側面から挿入した6本の K 熱電対により測定した．溶湯混合後，熱電対 e の位置の温度が平衡状態図上で固相率 0.05 となる温度（925 K）まで冷却した時点で攪拌子を止め，鋳型支持台を降下させて攪拌子を引き抜き，試料を自然冷却状態で凝固させた．攪拌停止時の固相率は最終的に晶出する初晶 Si の約 1/2 に相当する．

比較実験として，Al-22 mass%Si 合金 0.8kg の単一鋳込みによる攪拌凝固実験を上記の 1 次溶湯の鋳込みと同じ操作で行った．このときの鋳込み温度は 1 081 K（過熱度 100 K）とした．

得られた鋳塊は，熱電対の配列に沿って縦に 2 分割し，一方の縦断面をマクロ組織観察に供し，他方を高さ 42 mm（1 次溶湯の初期湯面位置）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 粒径の測定に供した．マクロ組織の顕出には，HNO_3 : HF : $C_3H_8O_3$=10 : 60 : 30 の混液を用いた．また，初晶 Si 粒径の測定では，鋳塊外周から約 2 mm 間隔に採った計 10 視野の光学顕微鏡写真（総面積 16 mm^2）を画像解析し，全視野の結果を総計して統計処理を行った．初晶 Si 粒径は，絶対最大長の幾何平均値によって評価した．なお，初晶 Si 粒径の測定ラインは熱電対挿入方向に対して垂直になるようにした．

3．結果および考察

3.1　凝固組織に及ぼす攪拌の影響

単一鋳込み実験および複合鋳込み実験による鋳塊試料のマクロ組織とミクロ組織の例を **Fig. 3** 及び **Fig. 4** に示す．いずれも回転速度 N=0 s^{-1} 及び 25 s^{-1} の場合を比較している．Fig. 4 によると，単一鋳込み材の初晶 Si は，攪拌子静止（N=0 s^{-1}）の条件では粗大で複雑に分岐した形状を呈しているのに対し，強攪拌下（N=25 s^{-1}）では初晶 Si は微細粒状化し，凝集する傾向が見られる．一方，複合鋳込み材では，強攪拌条件では単一鋳込み材と同様の組織となっているが，攪拌子静止条件では強攪拌の場合と同程度のサイズまで初晶 Si が微細化しており，この点が単一鋳込み材と大きく異なっている．

また，Fig. 3のマクロ組織では，単一鋳込み材及び複合鋳込み材のいずれの場合も，強攪拌条件では数100 μm～数mmの気泡を多く巻き込んでいる様子が観察される．この気泡径は微細初晶Si粒子の凝集体のサイズとほぼ同程度である．

次に，初晶Si粒径の測定結果を**Fig. 5**に示す．図中の各プロットに付したエラー・バーは，平均粒径（絶対最大長の幾何平均値）dを信頼度95%で区間推定した範囲を示している．Fig. 5の結果によると，単一鋳込み材の初晶Si粒径は，攪拌子静止の条件では72 μmと粗大であり，攪拌子の回転速度Nの増加に伴って単調に減少する．

一方，複合鋳込み材では，攪拌子静止の条件でも初晶Siは微細化する．しかし，複合鋳込み材の初晶Si粒径は回転速度に対して複雑な依存傾向を示している．すなわち，$N=4\ s^{-1}$では$N=0\ s^{-1}$の場合と比較して粗大になり，さらに高回転になると回転速度の増加に伴って単調に減少し，$N=25\ s^{-1}$において$N=0\ s^{-1}$の場合と同程度の粒径になる．そして，同時に$N=25\ s^{-1}$では単一鋳込み材と複合鋳込み材との間の初晶Si粒径の差がなくなる．以上のように，単一鋳込み材と複合鋳込み材とでは，初晶Si粒径

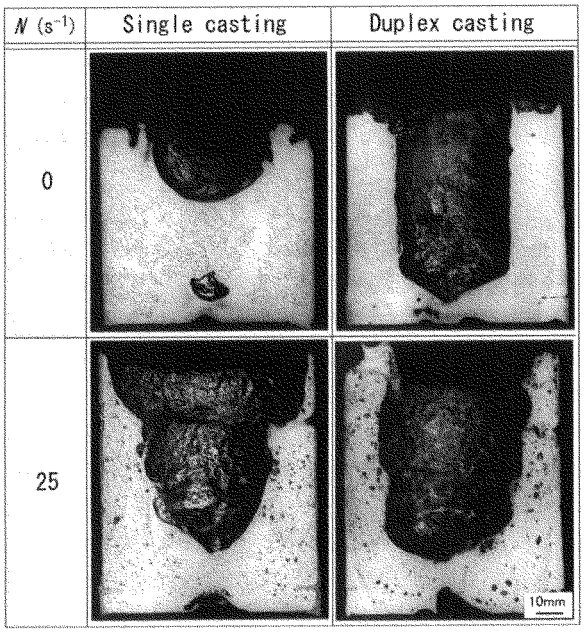

Fig. 3　Macrostructures of the specimens. N : Rotation speed of the stirrer.

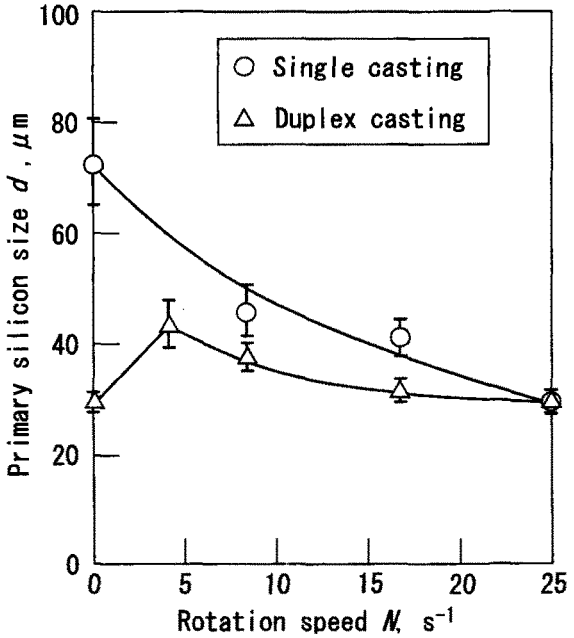

Fig. 5　Effect of the rotation speed of the stirrer on the primary silicon size.

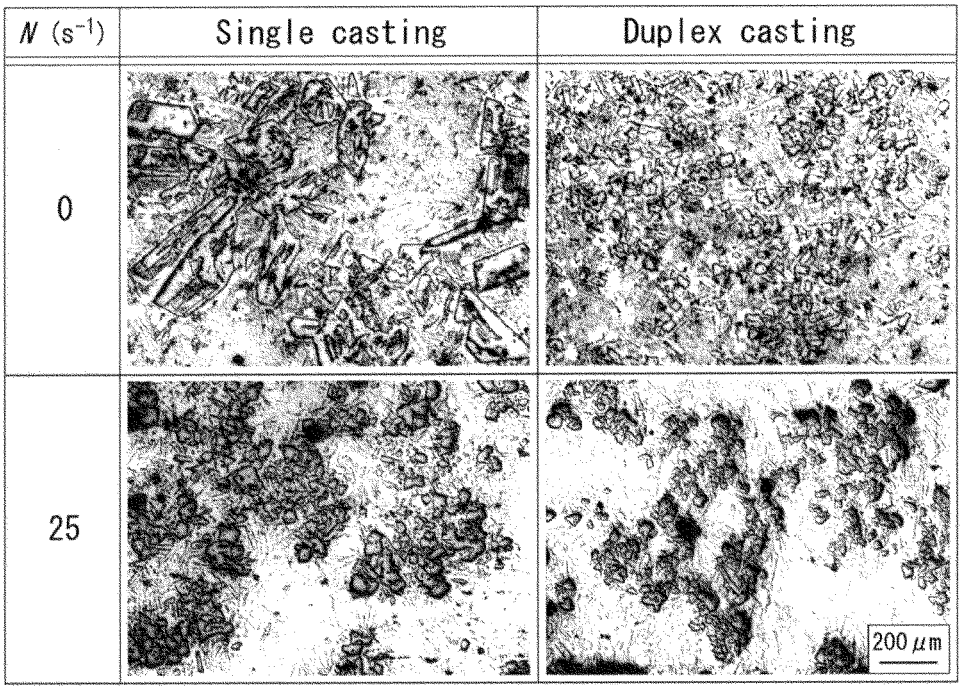

Fig. 4　Microstructures of the specimens.

に及ぼす攪拌の影響は大きく異なる．この要因を明らかにするために，各鋳込み手法ごとに攪拌と初晶 Si 粒径との関係を考察する．

3.2　単一鋳込みの攪拌凝固における初晶微細化機構

まず，単一鋳込み実験の結果を他の研究例と比較する．攪拌凝固を伴う過共晶 Al-Si 合金の初晶微細化プロセスの研究例としては，市川らの「攪拌合成法」[2]と荒金らの「急冷攪拌凝固法」[2]が注目される．

市川らが考案した攪拌合成法では，円筒容器内で水平軸の周りに高速回転する多角形状の回転子上に，溶融合金を流下させて飛散させ，粒滴化による急冷効果と回転子による破砕作用とを利用して初晶を微細化させる．

荒金らの急冷攪拌凝固法では，溶融合金は，高速回転する黒鉛製回転子と水冷銅鋳型との間隙を流下する過程で攪拌・急冷され，半凝固状態で鋳型内に集積する．

これらの手法の特徴は，主として回転子や容器（または鋳型）のような固体壁との接触により溶融合金を冷却する点にある．また，両者とも溶融合金と冷却体との間の熱移動を迅速に行わせるために，回転子を高速攪拌する手段を採っている．その結果，Al-17 mass%Si 合金を用いた攪拌合成法では 16 μm，また，Al-20 mass%Si 合金を用いた急冷攪拌凝固法では 23 μm まで初晶を微細化することが可能になった．

Fig. 6 は，本研究の単一鋳込み実験における鋳込み直後の冷却曲線を攪拌子静止（$N=0\ s^{-1}$）及び強攪拌（$N=25\ s^{-1}$）の場合について比較している．温度計測位置は 1 次溶湯の初期湯面近傍の熱電対 b 及び e の位置である（Fig. 2 参照）．攪拌子静止と強攪拌の場合とでは鋳込まれた溶湯の流動パターンが異なるため各位置の冷却曲線は必ずしも一致しないが，溶湯全体の冷却速度という点からは，両者の間に大きな差は見られない．一般に，溶湯攪拌は冷却体表面近傍の溶湯を常に更新する．この効果により，冷却体表面近傍における初晶 Si の核生成を継続的に行わせることが可能となる．また，溶湯攪拌は，溶湯温度を均一化させ，溶湯全体の冷却を促進する効果があると考えられる．しかし，少なくとも Fig. 6 の結果を見る限りでは，本実験における強攪拌下での初晶 Si 微細化が溶湯全体の冷却の促進によるものとは考えにくく，前者の機構が主体となっているものと推測される．

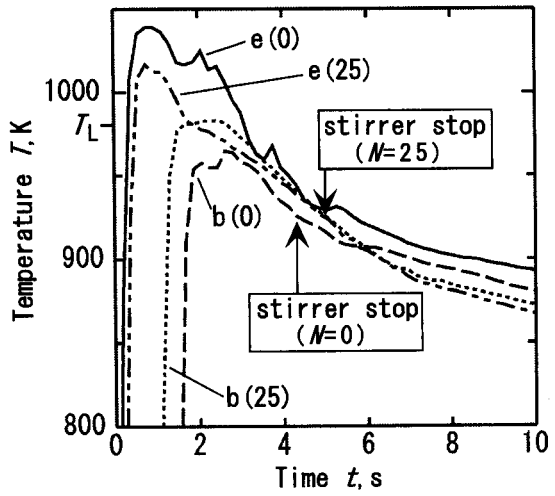

Fig. 6　Cooling curves measured during the single-casting experiments with the stirring conditions of $N=0\ s^{-1}$ and $N=25\ s^{-1}$. In the figure, "b" and "e" denote the measuring points shown in Fig. 2.

3.3　複合鋳込みの初晶微細化機構に及ぼす攪拌の影響

複合鋳込み実験の場合においても，単一鋳込み実験と同様の初晶微細化機構が働くことが考えられる．しかし，Fig. 5 に見られるように，複合鋳込みによる微細化効果と溶湯攪拌による微細化効果とが相乗することはなく，攪拌子の回転速度の増加に伴って単一鋳込みとの差は減少している．

ここで，複合鋳込みにおける混合急冷効果と潜熱吸収効果とに及ぼす攪拌の影響について検討する．

まず，潜熱吸収効果に関しては，強攪拌は，溶湯混合前では 1 次溶湯からの抜熱を促進し，1次溶湯の冷却能を向上させる．また，溶湯混合後は，1 次溶湯の凝固部分の再溶融によって生じた低温液相が攪拌によって速やかに溶湯全域に分散される．したがって，攪拌は潜熱吸収効果の発現に有効である．

一方，混合急冷効果と攪拌との関係は複雑である．混合急冷効果は，液体金属における熱伝導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（Schmidt 数 $Sc \gg 1$ 及び Prandtl 数 $Pr \ll 1$）．乱流混合は，容器と同程度のスケールの循環流による輸送，乱流渦の運動による輸送（乱流拡散）及び分子拡散の複合過程と見ることができる[8]．すなわち，容器内に導入された流体は，循環流に乗って移動するとともに乱流運動により変形・分散されて流体塊となり，次第にスケールを減少させていく．しかし，液相系では乱流渦の最小長さスケール（Kolmogoroff スケール η_K）は，分子運動の平均自由行程と比較すると遙かに大きいため，濃度場における最終的な分子レベルの混合は分子拡散により達成される．

分子拡散が混合の支配機構となるのは，Batchelor の与えた濃度場に関するミクロスケール $\eta_B=\eta_K Sc^{-1/2}$ より小さなスケールにおいてである[9]．一方，温度場における混合では，Kolmogoroff スケールよりも遙かに大きなスケールで熱伝導による均一化が進行する（熱伝導が支配的になるのは Corrsin の与えた温度場のミクロスケール $\eta_C=\eta_K Pr^{-3/4}$ より小さなスケールである[9]）．ここで，**Table 1** に示した液体 Al-Si 合金の物性値をもとに各ミクロスケールを比較すると，η_C は η_K の約 20 倍，また，η_B のおよそ 250 倍となる．したがって，2 次溶湯の流体塊が急冷される段階では，濃度的には実質的に完全分離状態にあると考えることができる．実際に，上注ぎ式の複合鋳込み法による過共晶 Al-Si 合金鋳塊のメニスカスコーナ部近傍では，初期組成を維持したまま最終凝固に至った 2 次溶湯流体塊と考えられる微細初晶集団が観察されている[20]．

Table 1 Physical properties of liquid Al-Si alloy (Al-22mass%Si).

Thermal conductivity	0.10 ($kJ \cdot m^{-1} \cdot s^{-1} \cdot K^{-1}$)	: The value of Al at 973K[10]
Specific heat capacity	1.09 ($kJ \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$)	: The value of Al at 973K[10]
Density	2.43 ($10^3 kJ \cdot m^{-3}$)	: Measured at liquidus temp.[11]
Viscosity	1.85 ($10^{-3} Pa \cdot s$)	: Calculated for liquidus temp.*
Diffusion coefficient	5 ($10^{-9} m^2 \cdot s^{-1}$)	: 3-9.73[13)-19)]

*Calculated by Hirai's equiation [12]

著者らが実験的に得た過冷度と初晶Si粒径との関係式を用いて，これらの微細初晶集団の初晶Si粒径から初晶核生成時の過冷度を推定したところ，最も微細な初晶Siから成る集団では243 Kとなった[20]．この過冷度に対応する温度は867 K，すなわち1次溶湯の液相線温度より14 K高い温度である．なお，過冷度推定に用いた関係式は，3種類の凝固実験（①溶湯を入れた小径の黒鉛るつぼの空中放冷または金属浴への浸漬による冷却，②銅製のくさび形鋳型への鋳造，③鉛浴中への溶湯の直接噴出）に基づいて得たものである[20]．

複合鋳込み法における2次溶湯の冷却の限界は混合時の1次溶湯の温度であり，溶湯混合時の攪拌強度としては，その温度まで2次溶湯を過冷させる冷却速度が実現できる程度で十分である．結晶生成における動的過冷却を考慮した混合凝固シミュレーション[7, 21]によると，それ以上の過度の攪拌は，溶質拡散の進行を速めて過冷却の継続時間を減少させ，十分な数の核が生成する前に過冷度を消失させてしまう．Fig. 6において攪拌子の回転速度の増加とともに複合鋳込みと単一鋳込みとの差が減少することは，混合急冷効果の発現には，2次溶湯の注入流による溶湯攪拌で十分であり，攪拌子による強制攪拌は不要であったことを示唆している．

以上の考察を総合すると，混合急冷効果の発現には，必要以上の乱流強度を付与することなく，2次溶湯を効率よく1次溶湯中に分散させて短時間の内に接触面積を増大させるような流動パターンが有効である．したがって，本実験のような円筒形攪拌子より，高粘度液体の攪拌に用いられるマックスブレンド翼のような大型攪拌翼22)の使用が効果的であると推測される．

4．結　言

円柱状攪拌子（内筒）の回転している二重円筒間に溶湯を鋳込む手法を用いて，過共晶Al-Si合金の初晶Si粒径に及ぼす複合鋳込みと攪拌強度の影響を調査した．得られた結果を以下に要約する．

(1) Al-22 mass%Si合金の単一鋳込みでは，初晶Siは，攪拌子静止の条件では粗大だが，攪拌子の回転速度の増加に伴って初晶Si粒径は単調に減少する．

(2) Al-12 mass%Si合金とAl-32 mass%Si合金との組合せによる複合鋳込みでは，攪拌子静止の条件でも，初晶Siは微細化する．しかし，複合鋳込みによる微細化効果と溶湯攪拌による微細化効果とが相乗することはなく，攪拌子の回転速度の増加に伴って単一鋳込みとの粒径の差は減少する．

最後に，実験に御協力いただいた北海道大学工学部学生矢崎弘志氏（現在 北海道勤労者医療協会中央病院）に感謝いたします．また，本実験の一部は平成元年度科学研究費補助金（No. 01750675）による援助のもとで行われたものであることを記して，ここに謝意を表します．

文　献

1) 金属系材料研究開発センター半凝固加工調査部会編: 半凝固加工プロセスに関する調査報告集（日本機械工業連合会）(1988) 15
2) K. Ichikawa, Y. Okazaki, Y. Kinoshita and S. Ishizuka : J. Jpn. Inst. Met. **55** (1991) 813
3) G. Arakane, S. Takamori, Y. Ohsawa and A. Sato : J. Jpn. Inst. Met. **59** (1995) 559
4) N. Matsubara, C. Minai, Y. Hayashi, K. Kaida and R. Masuda : IMONO **63** (1991) 547
5) T. Ohmi and M. Kudoh : J. Jpn Inst. Met. **54** (1990) 700
6) T. Ohmi, M. Kudoh and K. Ohsasa : J. Jpn Inst. Met. **56** (1992) 1064
7) T. Ohmi, K. Matsuura, M. Kudoh and Y. Itoh : J. Jpn. Inst. Light Met. **48** (1998) 42
8) 国井大蔵：岩波講座 基礎工学 17 移動速度論II（岩波書店)(1968)243
9) H. Tennekes and J. L. Lumley : A First Course in Turbulence (MIT Press) (1972) 283
10) 大中逸雄:コンピュータ伝熱・凝固解析入門（丸善）(1985)326
11) T. Takase : J. Jpn. Inst. Light Met. **3** (1939) 536
12) M. Hirai : Tetsu-to-Hagane **78** (1992) 399
13) W. R. D. Jones and W. L. Bartlett : J. Inst. Metals **81** (1952-53) 145
14) D. J. Fisher and W. Kurz : Acta Metall. **28** (1980) 777
15) B. Toloui and A. Hellawell : Acta Metall. **24** (1976) 565
16) R. Grugel and W. Kurz : Metall. Trans. **18A** (1987) 1137
17) U. Honma : J. Jpn. Inst. Light Met. **19** (1969) 72
18) G. Ohira and T. Sato : J. Jpn. Inst. Light Met. **17** (1967) 276
19) M. Sugiyama, T. Umeda and H. Katoh : J. Jpn. Inst. Light Met. **24** (1974) 263
20) T. Ohmi, M. Kudoh, K. Ohsasa, Y. Itoh, K. Matsuura and K. Ishii : J. Jpn. Inst. Light Met. **44** (1994) 91
21) T. Ohmi, K. Matsuura, M. Kudoh and Y. Itoh : J. Jpn. Inst. Light Met. **48** (1998) 618
22) 高橋孝徳，川瀬義矩：新補版 混合及び攪拌（化学工業社）(2000) 398