

学位論文題名

Al-Cu、Al-Si 合金の鑄造一方向凝固組織に関する研究

学位論文内容の要旨

大量生産材としての金属材料は、原料から融体として精製後、凝固過程をへて鑄塊とし、これを圧延加工して最終製品に仕上げられる。このとき、鑄塊の凝固組織は圧延加工後も残存し、製品の強度、加工性、表面性状などを左右する。鑄型造塊、連続鑄造いずれの鑄塊も凝固は鑄型壁から始まって一方向的に進行し、かつ、主要部分はデンドライト組織となる。したがって、デンドライトの形態が実用鑄塊の凝固組織を決定することになり、その制御は工学上きわめて重要である。

デンドライトは特定の成長面と成長方向を有する初晶結晶で、幹（一次アーム）とそれに対し直交して成長する枝（二次アーム、三次アーム、など）をもつ樹枝状晶であり、一次アーム間隔および二次アーム間隔がその組織を特徴づける。アーム間隔は、冷却速度、凝固時間、凝固速度、固液共存相中の温度勾配など種々の凝固変数によって変化するとされているが、現在まで統一的な関係は見いだされていない。本論文は、実用Al合金の基本系であるAl-CuとAl-Si合金の鑄造一方向凝固デンドライト組織について、上記凝固変数と柱状デンドライト組織アーム間隔の関係、およびそれとは成因がことなると考えられる羽毛状デンドライト組織について述べたものである。

第1章は緒論であり、デンドライト凝固組織の定量化に果たすアーム間隔の意義や羽毛状晶の重要性など、本研究の背景および目的について述べた。

第2章では、本研究で用いた鑄型一端冷却鑄造一方向凝固法について、数学モデルで伝熱解析した結果について述べた。

実験によって凝固層厚さと時間との関係を測定した。凝固層厚さは凝固区

間のない純Alが最も厚く、凝固区間最大の Al-6mass%Cu合金で最も薄くなりほぼ凝固区間の大小で整理可能なことがわかった。この結果に適合するよう数値解析でもとめた鑄型水冷部の熱伝達係数は、 $0.10\sim 0.13\text{cal/cm}^2\text{sK}$ となり、冷却速度が大きい凝固条件にあることがわかった。なお、熱伝達係数の差はマイクロ組織の変化に対応していると考えられた。

第3章では、Al-Cu、Al-Si二元合金、Al-Cu-Si三元合金、Al-Cu-Si-Zn四元合金について、アーム間隔におよぼす溶質元素ならびにその濃度の影響について検討した。

三元以上の多元系合金では三次アームが発達して一次アームは不鮮明となる。また、二元合金でも溶質濃度が増えるほど三次アームがよく発達し、たとえば Al-Cu合金では10mass%、Al-Si合金では4mass%以上で一次アームの測定が困難となった。一次アーム間隔は冷却の速い凝固初期で狭く（デンドライトのセルサイズが小さい）、逆に凝固後期ほどその間隔は広い。また溶質濃度が高いほど一次アーム間隔は狭くなる。一次アーム間隔は冷却曲線からもとめた凝固時間 θ の n 乗の形で整理できた。デンドライト樹枝間に排出される溶質元素の濃縮と拡散の釣り合いで一次アーム間隔が決定されるとしたとき、指数 n は $-1/2$ となる。これに対し、実験でもとめられた n の値はこれより小さい。さらに、二次アーム間隔について、凝固開始直後の冷却速度、固液共存域の平均冷却速度などとの関係をもとめたところ、溶質元素濃度が高いほど指数 n の値は大きくなった。

第4章では一次アーム間隔に与える各種凝固変数の影響を実験的に検討した結果について述べた。

実際の凝固では、冷却速度の範囲も広く、また、冷却速度が刻々変動するような複雑な冷却曲線をもつ場合が多い。より実際の系に近いと思われる一端冷却一方向凝固法を用いて実験したところ、従来、定説とされている平均冷却速度では実測の一次アーム間隔を説明できないことが判明した。とくに変動冷却場では、冷却速度の速いときと遅いときに従来理論との差が大きくなることが示された。そこで、平均冷却速度以外に、凝固速度、凝固前面における融液中の温度勾配、固液共存域における温度勾配、およびこれらの複合因子と一次アーム間隔との関係について検討した。結論として、一次アーム間隔は凝固速度(R)と固液共存域の温度勾配(G_s)との積($R\cdot G_s$)の $-1/2$ 乗に比例して変化するとしたとき最も精度よく実験結果を記述できた。デンドラ

イト結晶先端の液相側の温度勾配ではなく、後方の固液共存域の温度勾配が支配要因の一つである理由は以下のように説明される。多数あるデンドライト一次アームの成長速度には差があり、成長の速い一次アームの先端は初期融液と接しているため液相側の温度勾配によって間隔がきまる。しかし、大部分の一次アームはこれにやや遅れて成長するため固液共存場で成長することになり、そこでの温度勾配に影響されると考えられる。

第5章では、二次アーム間隔の支配凝固要因について検討した。

前章と同様に、複雑な冷却曲線をもつ実際の凝固場にも適合しうる関係をもとめるため、種々の凝固変数について検討を行った。二次アーム間隔は、一次アーム側面における濃度揺らぎによって多数生ずる二次アームの芽のうち、大きなものが小さいものをオストワルド成長的に吸収して定まるとして考えた。この場合、二次アーム間隔は凝固時間の $1/3$ 乗に比例して変化することになる。凝固時間は冷却曲線上における液相線から固相線までの平均経過時間である。しかしながら、これによる二次アーム間隔の整理は、たとえば水冷方法により差を生じ、必ずしも満足すべき結果を与えない。実際の冷却場では、冷却能力の変動により、冷却曲線上の凝固区間で膨れやへこみが生じ真の凝固時間は明確には定まらない。そこで、新しい考え方として修正凝固時間の導入を試みた。修正凝固時間は、冷却曲線上で液相線温度(T_l)と固相線温度(T_s)に囲まれた面積、すなわち積分凝固時間(S)を $(T_l - T_s)$ で除して2倍した値として定義した。この修正凝固時間を使用したとき、冷却速度を極端に変化させた場合や変動冷却の場合にも、二次アーム間隔は凝固時間(修正凝固時間)のほぼ $1/3$ 乗に比例して変化することが明確となった。

第6章は、鑄込み温度が高い場合に現れる羽毛状晶について、羽毛状デンドライトとしての観点からその形態を明らかにしたものである。

羽毛状晶は、発生初期のV字形から、成長中期ではY字形に変化する。熱流方向に湾曲する場合もあるが、中心線と側枝のなす角度は $45 \sim 55^\circ$ で変化しない。羽毛状デンドライトの優先成長方向について、デンドライトアーム上にエッチピットを生じさせて調べた。{110}面の観察では、主軸: $\langle 110 \rangle$ 、側枝: $\langle 110 \rangle$ と $\langle 100 \rangle$ 、{100}面では、主軸: $\langle 110 \rangle$ 、側枝: $\langle 100 \rangle$ 、{111}面では、主軸、側枝とも $\langle 110 \rangle$ 方向であった。いずれの場合も軸を中心に双晶成長していることがわかった。

第7章は本論文の総括である。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 石 井 邦 宜
副 査 教 授 鈴 木 朝 夫
副 査 教 授 高 橋 平 七 郎
副 査 助 教 授 工 藤 昌 行

学 位 論 文 名

Al-Cu、Al-Si合金の鑄造一方向凝固組織に関する研究

鑄塊の凝固組織は圧延加工後も残存し、製品の強度、加工性、表面性状などを左右する。鑄塊の凝固はミクロに見れば鑄型壁から始まり一方向的に進行する。このとき、実用合金では柱状晶、等軸晶いずれも主要部分はデンドライト組織となる。したがって、その制御は工学上きわめて重要である。

デンドライトは特定の成長面と成長方向を有する初晶結晶で、幹（一次アーム）とそれに対し直交して成長する枝（二次アーム、三次アーム、など）からなる樹枝状晶であり、一次アーム間隔および二次アーム間隔がその組織を特徴づけられる。本論文は、実用Al合金の基本系であるAl-Cu合金とAl-Si合金の鑄造一方向凝固デンドライト組織について、冷却速度、凝固時間、凝固速度、固液共存相中の温度勾配など種々の凝固変数と柱状晶デンドライトアーム間隔の関係、および、これとは成因が異なる羽毛状デンドライト組織との関係について述べたものである。

第1章は結論であり、デンドライト凝固組織の定量化に果たすアーム間隔の意義や羽毛状晶の重要性など、本研究の背景および目的について述べた。

第2章では、本研究の実験で用いた一端冷却鑄造一方向凝固法について、数学モデルで伝熱解析した結果について述べた。

まず、実験によって凝固層厚さと時間の関係をもとめた。凝固速度は凝固区間で整理でき、凝固区間のない純Alが最も速く、凝固区間最大のAl-6mas %Cu合金で最も遅い。実験に適合するよう数学モデルを構築し、数値解析で鑄型水冷部の熱伝達係数をもとめた。値は $0.10\sim 0.13\text{cal/cm}^2\text{sK}$ となり、実用上冷却壁近傍の凝固条件をシミュレートしていることが明らかとなった。

第3章では、Al-Cu、Al-Si二元合金、Al-Cu-Si三元合金、Al-Cu-Si-Zn四元合金のアーム間隔におよぼす溶質元素の効果について検討した。

一次アーム間隔は冷却が速い凝固初期で狭く、冷却の遅い凝固後期ほど広

くなる。また、溶質濃度が高いほど一次アーム間隔は狭くなった。

一次アーム間隔は冷却曲線からもとめた凝固時間 θ の冪乗の形で整理できた。デンドライト樹枝間に排出される溶質元素の濃縮と拡散の釣り合いで一次アーム間隔が決定されるとしたとき、冪の指数は $-1/2$ となる。実験値はこれより小さい。また、二次アーム間隔と凝固開始前後の冷却速度、固液共存域の平均冷却速度などとの関係をもとめたところ、いずれに対しても溶質元素濃度が高いほど指数値が大きくなることが明らかとなった。

第4章では一次アーム間隔と各種凝固変数の関係を実験的に検討した。

実測の一次アーム間隔はこれまで定説とされている平均冷却速度では説明できない。とくに変動冷却場では、冷却速度が速いときと遅いときに従来理論との差が大きくなることが示された。そこで、種々検討した結果、一次アーム間隔は凝固速度(R)と固液共存域の温度勾配(G_s)との積($R \cdot G_s$)の $-1/2$ 乗に比例するとしたとき最も精度よく実験結果を記述できることがわかった。デンドライト結晶先端の液相側の温度勾配ではなく、後方の固液共存域の温度勾配が支配要因の一つである理由は以下のように説明される。多数あるデンドライト一次アームの成長速度には差があり、成長の速い一次アームの先端は初期融液と接しているため液相側の温度勾配によって間隔がきまる。しかし、大部分の一次アームはこれにやや遅れて成長するため固液共存場で成長することになり、そこでの温度勾配に影響される。

第5章では、二次アーム間隔の支配凝固要因について検討した。

二次アーム間隔は、一次アーム側面における濃度揺らぎによって多数生ずる二次アームの芽のうち、大きなものが小さいものをオストワルド成長的に吸収して定まるとして考えた。この場合、二次アーム間隔は凝固時間の $1/$ 乗に比例して変化することになる。凝固時間は冷却曲線上における液相線から固相線までの平均経過時間である。しかしながら、実際の冷却場では、冷却能力の変動により、冷却曲線は凝固区間で蛇行し真の凝固時間は明確には定まらない。そこで、冷却曲線上の積分凝固時間(s)の温度平均値として凝固時間(修正凝固時間)を新しく定義し、二次アーム間隔を整理した。これにより、冷却速度が極端に変化する場合でも、二次アーム間隔は凝固時間(修正凝固時間)のほぼ $1/3$ 乗に比例して変化することが明確となった。

第6章は、鑄込み温度が高い場合に現れる羽毛状晶について、羽毛状デンドライトとしての観点からその形態を明らかにしたものである。

羽毛状デンドライトは、発生初期のV字形から、成長中期ではY字形に変化するが、主軸と側枝のなす角度は $45 \sim 55^\circ$ で変化しない。また、①羽毛状デンドライトは軸を中心に成長する双晶である、② $\{100\}$ 面の優先成長方向は主軸: $\langle 110 \rangle$ 、側枝: $\langle 100 \rangle$ である、などの事実がはじめて明らかになった。

第7章は本論文の総括である。

これを要するに、本論文は、Al合金鑄塊の主要組織であるデンドライトの組織形態と凝固要因との関係を明らかにしたものであり、鑄造工学の進歩に寄与するところ大である。よって、著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。