半熔融状態におけるAl-Cu合金のみかけの 粘性挙動と組織

市川 理衛* 三輪 謙治*

Riei Ichikawa and Kenji Miwa: Apparent Viscosity and Structure in Partially Solidified Al-Cu Alloys. The apparent viscosity was measured as the value of torque by stirring continuously by a rotor from the molten state to the desired temperatures partial solidified at constant cooling rate in Al-Cu alloys.

By the stirring, primary α solid particles or dendrites were broken to a mushy state and the structure was observed by water quenching from the stirring temperature.

The results obtained were as follows.

(1) With increasing Cu concentration, the increase in the value of torque shifted to lower temperatures below the liquidus line and became retarded.

(2) With increasing Cu concentration, the value of torque showed increase at a small volume fraction of the solid phase.

(3) As the solid particles became finer with increase in Cu concentration, the value of torque showed a marked increase against the volume fraction solid.

(4) Regardless of the Cu concentration, solid particles became finer and spherical with the progress of stirring.

(5) Solid particles in the mushy state were not only crushed but also aggregated by mechanical stirring.

(Received December 9, 1977)

I. 緒 言

合金の半熔融状態での挙動が金属材料あるいは casting 材料としての諸性質に大きな影響をおよぼすことは、 casting 問題での関心事となっている。これに関しては現在のところ Pb-Sn 合金^{(1)~(3)}, その他二, 三の合金^{(4)~(5)}の粘性挙動の測定結果や Flemings らによる casting 性に関する報告が^{(6)~(12)}あるだけで多くは見あたらない。

本研究では合金の半熔融状態の諸性質が casting・凝固の挙動にどの様に影響するかの研究の一環として、液相線と固相線の温度間隔の広い Al-Cu 合金を選び、合金の組成に範囲をもたせて、一定の冷却速度で連続的に冷却しながら強制的に機械的攪拌をおこなって、初晶を破碎・分散させた状態でのみかけの粘性を測定した。また、みかけの粘性挙動が合金組成や攪拌回転数の変化によってどの様に変化するのか、および、この粘性挙動が分散初晶粒子の粒度分布とどの様に関係しているのかを検討した。

II. 実験方法

Fig.1 に本研究に用いた実験装置の概略を示す。半熔融状態にある試料中に位置するステンレス鋼製回転子を、他励直流モーターと制御装置とを組み合わせた無段変速モーター

ターにより回転攪拌すると、その時の初晶の存在の下における粘性に応じた抵抗力、および、初晶の破碎等に対する抵抗力により回転子にトルクを生ずる。それを回転トルクメーター ($0 \sim 1.0 \times 10^{-2}$ kg-m) で測定しみかけの粘性とした。この時用いた回転子は従来の方法^{(1)~(5)}と異って初晶

Fig.1 Schematic representation of apparatus.

* 名古屋工業大学金属工学科 (Department of Metallurgical Engineering, Nagoya Institute of Technology, Nagoya)

の破砕効果を大きくするため、Fig.1中に示すように四角柱状の棒に数本のつがが突き出たものである。試料は工業用純 Al(99.7%以上)と Al-35%Cu 母合金とを用いて Al-3, 6, 10, 15 および 20%Cu に溶製し供試合金とした。それぞれの合金の溶湯約 100 cm³ を液相線上約 50°C の温度に保った加熱炉中のステンレス鋼製坩堝に注湯し、以後約 2°C/min の速度で冷却した。また、注湯と同時に回転子により 50, 250 および 750 rpm の 3 種の回転数で連続的に回転攪拌をおこない、トルクを測定しつつ任意の半溶融温度まで冷却した試料は、炉の直下にある水槽中に落下させることによりその時の組織を得た。この試料を切り出し、光学顕微鏡により組織観察をおこなった。さらにこの試料を用いて、半溶融状態で液体中に分散していた初晶 (α) 粒子の大きさと分布割合を測定した。初晶粒子の大きさは粒子を球と仮定し、正確を期するために 400 個の格子点をもつ接眼レンズを用いて、1 個の固相粒子上にのる格子点の数を測定することにより求めた。初晶粒子の大きさは Table 1 に示すランクをつけてその粒度を分類した。分布割合は 1 個の試料について 100 個以上の初晶粒子の大きさを測定し、測定全粒子数に対する Table 1 に示した各ランクの大きさをもつ粒子の数の割合で表わした。

Table 1 Size of primary solid particles and its ranking.

Size rank	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Diameter (mm)	0.50	0.51 0.75	0.76 1.00	1.01 1.25	1.26 1.50	1.51 1.75	1.76 2.00	2.01 2.25	2.26 2.50	2.51 2.75	2.76 3.00	3.01 3.25

III. 実験結果および考察

1. みかけの粘性挙動

Al-3~20%Cu合金について、上記の試験条件で液相線以下温度降下につれてトルクを測定した結果を Fig.2 に示す。組成による比重や回転数による液体のトルクの影響を除くために、図は液相線でのトルク値が 0 kg-m とな

Fig.2 Torque value at various revolution speeds in partial solidified Al-Cu alloys.

るように規格化してある。また、Fig.2 に示した合金のうち二、三について、液相線からの温度降下による固相率の変化を Fig.3 に示した。これは各回転数により攪拌したものを選んでプロットした。Fig.3を用いて Fig.2を固相率の変化に対してプロットしなおしたものが Fig.4である。Fig.2 ではほとんどの回転数で攪拌した場合でも、Cu 組成の増加に伴いトルク値の増加傾向は低温側に

Fig.3 Relations between temperature below liquidus line and volume fraction solid in Al-Cu alloys with stirring.

ずれ、かつ緩慢である。また、低回転(50 rpm)より高回転(250, 750 rpm)の攪拌をするほど、トルク値の増加傾向は低温側にずれる⁽¹⁾⁽³⁾⁽¹²⁾ことを示している。Fig.4 では固相率の増加によるトルク値変化は組成が多いほど、トルク値の立ち上がりがやや急激であることを示している。また、回転数による差異としては 50 rpm では約 20%以上の固相率で、250 および 750 rpm では約 30~40%以上の固相

率でトルク値は急に増加した。Fig.2 および Fig.4 におけるこの様なトルク値変化の理由として、固相率⁽¹⁾、分散初晶粒子の大きさと分布割合および残液の比重が考えられる。これらの条件は単一組成の合金の場合⁽¹⁾⁽³⁾にも考えられるが、この研究では Cu 組成の変化によるトルクへの影響が著しい。Cu 組成の変化お

Fig.4 Relations between volume fraction solid and torque at various revolution speeds in Al-Cu alloys.

Photo.1 Macrophotographs of partial solidified Al-6%Cu alloys at 250rpm with (a) and without pre-stirring (b).

よび温度低下による固相率の変化は、Fig.2 に示した様に同じ温度降下量に対して固相の増加割合が低組成の場合の方が大きいことにもとづくトルク値の変化と考えられる。

次に分散初晶粒子の粒度分布は次項で述べるが、その一実験としてトルク値におよぼす初晶粒子の大きさの影響を **Photo.1** および **Fig.5** に示した。Photo.1 に示す様に Al-6% Cu 合金で液相線から 4°C 下の温度まであらかじめ強撹拌 (750 rpm) により分散初晶粒子を細かくしておくと、Fig.5 に示す様にそれをおこなわない場合に較べて同じ回転数 (250 rpm) でトルク値の増加率はやや大きくなった。すなわち、前者は撹拌により粒子が破碎されて細くなり、粒子の全表面積の増加にもとづく粒子と液体との接触面積の増加によりトルク値が増したと考えられる。この

傾向は、Fig.4 における Cu 組成が多くなるほど同じ固相率でトルク値の増加の立ち上がりが著しい理由として、Cu 組成が多くなるほど初晶が細かく破碎されるであろうことと一致する。残液の比重の影響については注湯時から液相線直上までの液体状態におけるトルク値の変化を測定したが、この変化の値は Fig.2 の変化に較べて 1 ケタ小さかったので、比重の影響は無視してもよい。

Fig.5 Torque value in partial solidified Al-6%Cu alloy at 250 rpm with (a) and without pre-stirring (b).

2. 初晶粒子の粒度分布

250 rpm で撹拌しながら連続的に冷却した時、撹拌時期をトルク値の変化によって初期 (トルク値 $0 \sim 0.1 \times 10^{-2} \text{ kg-m}$)・中期 (同 $0.1 \sim 0.7 \times 10^{-2} \text{ kg-m}$)・後期 (同 $0.7 \sim 1.00 \times 10^{-2} \text{ kg-m}$) に分類した。Cu 組成の変化による初晶粒子の粒度の分布変化を **Fig.6** に示す。Fig.6 より Cu 組成が増すほど、デンドライトアームが細くなるため破碎されて撹拌初期・中期では大きな初晶粒子の量が減る傾向にある。また、Cu 組成にかかわらず、撹拌初期から中期・後期へと移るに従って初晶粒子の粒度分布状態は微細化し、かつ、微細粒子数も増す。従って、撹拌中・後期では前述の固相量の増加および固相粒子の微細化により Fig.2 の各曲線で見られた様なトルク値の増加がおこる。

Al-6%Cu 合金について 50, 250 および 750 rpm と回転数を変化した時の初晶の粒度分布の状態を **Fig.7** に示す。Fig.7 より 50 rpm では著しい破碎効果はみられず、凝固進行につれて固相量が増えても初期に存在していた粒

Fig.6 Size and fraction changes of solid particles in Al-6, 15 and 20%Cu alloys at 250 rpm. (V_f =Volume fraction solid)

Fig.7 Size and fraction changes of solid particles at various revolution speeds in Al-6%Cu.

子と同程度の大きさの初晶粒子は後期にもみられ、粒度分布の状態は凝固進行につれてほとんど変化しない。250 rpm の場合には攪拌初期での初晶粒子の粒度分布は大小粒子が混在した状態になっている。しかし、攪拌後期になると固相量の増加により破碎効果が出てくるために、大きな粒子は破碎されて小さくなり初晶粒子の粒度分布の状態も小粒子側に集まる。750 rpm の場合は強攪拌のために、攪拌初期からすでにかなり初晶粒子は破碎されており、凝固進行につれて固相量が増えても初晶粒子の粒度分布の状態は攪拌初期における分布とほぼ同じである。すなわち、粒度は Cu 組成が多いほど、また、回転数が多いほど平均して微細であり、上記 Fig.4, Fig.5 に示すトルク値変化へおよぼす粒度の影響もこの項記載の内容によって理解できる。

3. 組織

初晶の粒度分布は Fig.6, Fig.7 などに示したが、攪拌時期と組成の影響による初晶の形状を示すマクロ組織を **Photo.2** に示した。これらは初期の終末(トルク値 $\approx 0.1 \times 10^{-2}$ kg-m, 固相率 $\approx 0.39 \sim 0.48$)・中期の終末(約 0.7×10^{-2} kg-m, 0.46 $\sim$ 0.58)・後期の終末(約 1.0×10^{-2} kg-m, 0.48 $\sim$ 0.60)の試料についてであるが、いずれの組成においても攪拌初期の初晶の形状は外形が不均等でおうつががあり、Cu の低組成のものほど大きな粒子の存在が目立つ。

また、攪拌中期では粒子の形状はかなり丸味を帯びてきている。攪拌後期では初晶粒子はかなり微細であり同時にその形状もさらに丸味を帯び、個々の粒子はほぼ楕円体か球形に近い形になっている。攪拌後期では初晶粒子の量も多くなるが、攪拌時間も長くなるので攪拌による破碎効果が著しくなると考えられる。また、これらの粒子は必ずしも1個の初晶粒子のみでなく、数個の粒子が集まって⁽³⁾見掛上1個の粒子の状態を呈しているものもある。これをここでは合体粒子と呼ぶが、合体粒子の判別法として、1個の粒子においてその内部にマクロ腐食による反射光線の著しいコントラストの差とデンドライトアームの成長方向の著し

い違いをもった部分がある場合とした。一例として **Photo.3** に合体している初晶粒子のマクロ組織とその時の合体の様子を模式的に示した。これより1個の固相粒子が A・B・C や D・E の様な小粒子からできていることがわかる。従って、回転攪拌によって単に初晶粒子は破碎されるだけでなく、数個の粒子が合体して見掛上1個の粒子になることもあることがわかる。一例として Al-15%Cu 合金について合体粒子の粒度分布を調べた結果を **Fig.8** に示す。Fig.8 は攪拌後期における初晶粒子の粒度分布とその時の合体粒子の粒度分布とそれらの比率を表わしている。この図に表わされた粒度分布では、合体粒子の存在する比率は粗大粒子ほど大きいことが認められた。従って、これらの合体粒子はトルク値の大きさにある程度の影響を与えるものと考えて差し支えない。

Photo.4 (a)~(c)に回転攪拌した時の半溶融状態のミ

Photo.2 Macrophotographs of partial solidified Al-6, 15 and 20%Cu alloys with stirring at 250 rpm.

Photo.3 Macrograph (a) and its schematic representation (b) of aggregated particles in partial solidified Al-6%Cu at an intermediate stage with stirring at 250 rpm ($V_f=0.58$).

Fig.8 Size and fraction changes of solid particles in partial solidified Al-15%Cu at final stage with stirring at 250 rpm. ($V_f=0.59$)

クロ組織の二、三の例を示した。いずれも初晶の間あるいは初晶内のデンドライトアーム間に急冷による微細な共晶組織が支配的であるが、Cu 組成が 10% 以上の試料については初晶 α 粒子以外に板状の初晶化合物の晶出が認めら

Photo.4 Microphotographs of partial solidified Al-Cu alloys at a final stage with stirring at 250 rpm (a)~(c) and without stirring(d).
 (a) Al-6%Cu, $V_f=0.60$, (b), (d) Al-15%Cu, $V_f=0.59$, (c) Al-20%Cu, $V_f=0.48$.

れた。この化合物に対してX線マイクロアナライザーにより線分析をおこなった。その結果、これらの化合物は主にAl, Cu, Fe からなり微量のNi, Crを含むことがわかったが、同定まではおこなっていない。Photo.4(d)にAl-15%Cu合金を攪拌した場合と同じ条件で回転子を挿入せずに冷却し、所定の半溶融状態から水冷した時のマイクロ組織を示した。これはPhoto.4(b), (c)に見られた様な化合物の晶出は認められなかった。従って、Photo.4(b), (c)に認められる化合物は主として回転子から溶湯中に溶け込んだFe等と合金組成元素(Al, Cu)とで生成されたと考えられる。この化合物はトルク値の増加には直接著しい影響を与えないと思われるが、ある程度の影響は考えられる。また、比較のためAl-6%Cu合金の試料についての分析結果では使用素材Al(Fe 0.13%, Ni 0%), 回転後の試料(Fe 0.49~0.96, Ni < 0.01)であった。

IV. 結 論

半溶融状態にあるAl-3~20%Cu合金を回転子により機械的に攪拌(50~750 rpm)し、晶出する固相粒子を破碎しつつ連続的にみかけの粘性をトルク値で測定し、また、その時の固相粒子の粒度分布・組織を調べた結果、次のことが明らかとなった。

(1) 液相線以下温度低下によるトルク値の増加は、Cu組成の多い方が低温側にずれ、かつ、緩慢であった。

(2) 固相率の増加に伴うトルク値の増加は、Cu組成の多い方が少固相率で急激におきた。

(3) Cu組成の増加によって初晶粒子の細かく破碎された方が、トルク値の増加は固相率変化に対して急激であった。

終りに本研究の一部は文部省科学研究費補助金および軽金属学会奨学資金の援助を得たことを付記して謝意を表します。

文 献

- (1) D.B.Spencer, R.Mehrabian and M.C.Flemings : Met.Trans., **3**(1972), 1925.
- (2) 千々岩健児, 福岡新五郎 : 生産研究, **24**(1972), 61.
- (3) P.A.Joly and R.Mehrabian : J.Mat.Sci., **11**(1976), 1393.
- (4) 安江和夫, 小坂岑雄, 磯谷三男 : 鋳物, **46**(1974), 36.
- (5) 加山延太郎, 村井香一, 佐藤万企夫, 木口昭二 : 鋳物, **47**(1975), 485.
- (6) R.Mehrabian and M.C.Flemings : Trans. AFS, **80**(1972), 173.
- (7) M.C.Flemings and R.Mehrabian : Trans. AFS, **81**(1973), 81.
- (8) R.Mehrabian, D.R.Geiger and M.C.Flemings : Met.Trans., **5**(1974), 785.
- (9) R.Mehrabian, R.G.Riek and M.C.Flemings : Met.Trans., **5**(1974), 1899.
- (10) E.F.Fascetta, R.G.Riek, R.Mehrabian and M.C.Flemings : Trans.AFS, **82**(1974), 95.
- (11) R.G.Riek, A.Vrachnos, K.P.Young, N.Matsumoto and R.Mehrabian : Trans.AFS, **83**(1975), 25.
- (12) R.Mehrabian, Urbana Ill and M.C.Flemings : Aluminium, **51**(1975), 710.