急冷攪拌凝固法による Al-Si 合金鑄塊の 鑄造組織の微細化

荒金吾郎 高森 晋
大澤嘉昭 佐藤 彰

金属材料技術研究所組織制御研究部

J. Japan Inst. Metals, Vol. 59, No. 5 (1995), pp. 559-563

Refinement of Cast Structures of Al-Si Alloy Ingots by Rheocasting

Goro Arakane, Susumu Takamori,
Yoshiaki Ohsawa and Akira Sato

Advanced Materials Processing Division, National Research Institute for Metals, Tsukuba

The purpose of the present study was to develop a new process named "Rapid solidification with vigorous agitation", by which large ingots having fine-grained and homogeneous structure can be produced. The molten Al-Si alloys containing 5, 12.6 and 20 mass%Si were rapidly solidified with water-cooled copper molds 30, 50, 75 and 100 mm in length and 50 mm in inner diameter, and at the same time were stirred vigorously at rotation speeds of 8, 17, 33, 67, 83, 100, 133 and 167 s⁻¹ by graphite rods 35, 40 and 45 mm in diameter during falling down of the melt through a gap between the mold and the stirring rods. The molten alloys with superheats of 20 to 100 K were poured into the gap at a speed of 50 g/s between the mold and the stirring rods. Ingots were made by collecting slurries in containers kept at determined temperatures. The results are as follows. The mean grain size of solid particles in slurry become smaller with increasing the intensity of cooling and the rotation speed of stirring rod. That is, the grain size become smaller with decreasing the clearance between water-cooled copper mold and stirring rod, increasing the length of water-cooled copper mold and the rotation speed of stirring rod. The grain size of ingots increases with increasing the temperature of containers. The fluidity of slurry is the most important factor to make good ingots having fine grained structures. The temperature of container of slurry is also important to prevent grain from coarsening. Primary and eutectic grains of Si in hypereutectic or eutectic alloys are not only small but also globular when the agitation is strong enough. The average size of primary Si in hypereutectic alloys is strongly affected by the rotation speed of stirring rod below 50 s⁻¹, and decreases from about 90 μm to about 40 μm.

(Received August 30, 1994)

Keywords: rheocasting, rapid solidification, stirring, aluminum-silicon alloy, structure

I. 緒 言

金属材料の機械的性質は、その材料のミクロ組織によって大きく影響される。そして、材料のミクロ組織の形成には、その鑄塊の凝固過程が大きな影響を及ぼすことが知られている。これまでの造塊法および連続鑄造法によって得られる鑄塊の凝固組織は、鑄塊の表面からチル等軸晶、柱状晶および中心等軸晶からなる混合組織である。凝固組織の制御においては、上記の混合組織、デンドライト形態およびミクロ組織の均質化が重要であり、様々な凝固プロセスが研究されている。本法においては、溶融合金を急冷すると同時に機械的な攪拌を行い、鑄塊の結晶粒を微細化・均質化しようとするものである。合金の固液共存状態で機械的攪拌を加える代表的な方法として、Flemings らのレオキャスト法が知られている⁽¹⁾。また、市川らは、レオキャスト法を発展させ、高速回転攪拌凝固方式お

よび攪拌合成法による結晶粒の微細化・均質化を試みている⁽²⁾⁻⁽⁵⁾。これらの方法によって得られた半凝固/半溶融合金スラリーは、直接的あるいは間接的に次工程の鑄造、押出し、鍛造、圧延などの各種の加工工程を経て製品/素形材にされる。半凝固/半溶融合金の加工では、鑄造においては潜熱の発生が少なく金型の寿命が向上し、鑄込み温度が低いので凝固収縮が小さく最終製品に近い寸法精度の高い鑄物が得られる長所がある。塑性加工においては、加工力が小さくてすむので加工設備などの小型化が可能であるなどの利点があり、盛んに研究されている⁽⁶⁾⁻⁽¹²⁾。また、上記の研究において、鑄塊の凝固組織を微細にするためには、攪拌強度を大きくすることも大切であるが、冷却速度を大きくすることがより重要であることが記載されている。他方、一度に多量の溶融合金を急速に冷却することは困難であり、溶融合金を分割して冷却する必要がある。

そこで、本研究では、流下している溶融合金を急冷すると同時に強攪拌する急冷攪拌凝固法で鑄塊の凝固組織を微細化・均

質化させる方法を検討した。

II. 低速回転による攪拌凝固

1. 装 置

Fig. 1 は本法の原理および最初に試作した装置の概要を示す。熔融合金は耐火レンガ製の漏斗により、黒鉛攪拌棒と鋳型との間隙に流し込まれ、水冷銅鋳型(以後鋳型と呼ぶ)によって急冷される。このとき鋳型内に設置されている黒鉛製の攪拌棒により攪拌を行う。黒鉛攪拌棒の形状は円柱状で溶湯を押し下げる方向にらせん状の溝を付けた。3種類の直径の攪拌棒を使用して鋳型と攪拌棒とのクリアランスの違い、および攪拌棒の回転速度が凝固組織に及ぼす影響を検討した。

装置は大別して攪拌棒回転機構、黒鉛攪拌棒、水冷銅鋳型、および半凝固合金を収容して鋳塊を作製するつぼとそれを加熱する炉からなる。モーターからの動力伝達には、Vベルトを使用しているため攪拌棒の回転速度は最高 83 s^{-1} (5000 rpm) が限界であった。黒鉛攪拌棒は、モーターと回転機構とともに上下動が可能であり、実験時には定位置に設置されている鋳型内まで下げて使用される。

2. 供試材料および実験方法

試料は Al-Si 合金の亜共晶 (Al-5 mass%Si) (以後 mass% を用いる)、共晶 (Al-12.6%Si)、過共晶合金 (Al-20%Si) である。試料 100 g を電気抵抗炉で過熱度 150 K で溶解し、Ar ガスを 300 s バブリングして脱ガス処理を行った後、過熱度 20~100 K で耐火レンガ製漏斗に約 50 g/s の速度で流し込んだ。水冷銅鋳型の寸法は、内径 50 mm、長さ 100 mm である。黒鉛攪拌棒の直径は、35, 40, 45 mm の3種類である。回転速度は 8, 17, 33, 67 s^{-1} の4段階である。鋳型から流れ落ちてきた半凝固合金スラリーは、室温から 700 K まで数段階に保持温度を変化させた容器(以降のつぼと呼ぶ)に集積し鋳塊作製実験を行

Fig. 1 Schematic diagram of the experimental apparatus for rapid solidification with vigorous agitation.

った。るつぼは、黒鉛製容器では、内径 50 mm、深さ 100 mm、アルミナ製容器では、内径 30 mm、深さ 100 mm、耐火断熱レンガ製容器では、内径 30 mm、深さ 100 mm である。一方、鋳型通過直後の半凝固合金スラリー中のマイクロ組織を観察するために半凝固合金スラリーを水冷銅板上で急冷した。実験は、大気中で行った。

3. 実験結果および考察

(1) ミクロ組織

Fig. 2 は Al-20%Si 合金を冷却速度約 1 K/s で作製したときの凝固組織を示す。(a)は無攪拌の場合で初晶 Si の形状が角張った形状をしているのに対して、(b)は 5 s^{-1} の速度で攪拌を加えた場合で、攪拌の効果により初晶 Si は、角が丸みを帯びた形状になったが、大きく成長していることが示されている。このことから結晶粒を微細化するには、攪拌をするだけでは不十分で、冷却速度が重要であることが分かる。

Fig. 3 は、攪拌棒の直径が 40 mm のときの水冷銅板上に

Fig. 2 Microstructures of Al-20 mass%Si alloy ingots solidified at a cooling rate of 1 K/s. Rotation speed of stirrer: (a) 0 s^{-1} , (b) 5 s^{-1} .

Fig. 3 Microstructures of Al-5, 12.6 and 20 mass%Si alloy slurries made by rapid solidification with vigorous agitation. Stirrer diameter: 40 mm. Superheat: 100 K. Rotation speed of stirrer: 17 s^{-1} and 67 s^{-1} .

受けた半凝固合金スラリーのマイクロ組織の一例を示す。溶湯の過熱度は 100 K である。Al-5%Si 亜共晶合金では、初晶 Al 粒および共晶 Si 粒の粒径に及ぼす回転速度の影響は不明確であった。これに対して、Al-12.6%Si 共晶合金では、共晶 Si 粒の粒径に及ぼす回転速度の影響は顕著であり、回転速度が大きいほど共晶 Si 粒の粒径は小さくなると同時に球状化した。また、Al-20%Si 過共晶合金では、回転速度の増大によって初晶 Si および共晶 Si 粒共に粒径が著しく小さくなった。また、回転速度の増大により、初晶 Si および共晶 Si 粒の粒径が小さくなると同時に、球状化することが観察される。このことは、Si 粒の切り欠き効果が減少して、材料の靱性が増大することを意味している。

鋳型と攪拌棒とのクリアランスによる違いは、クリアランスが 7.5, 5, 2.5 mm と小さくなるに従って、結晶粒径は小さくなることが認められた。しかし、用いた水冷銅鋳型の長さが 100 mm の実験においては、攪拌棒の直径が 45 mm の場合、溶湯が鋳型と攪拌棒の間隙で凝固してしまい回転速度 33 s^{-1} 以上での実験は不可能であった。また、ガス巻き込みによるポロシティについて画像処理装置による測定を行い 83 s^{-1} の回転速度の試料のポロシティ面積が無回転試料のものより約 12% 増加することを確認した。

(2) 鋳塊の作製

Fig. 4 は耐火断熱レンが製容器をつぼとして作製した Al-5%Si 合金鋳塊の (a) マクロ組織および (b) ミクロ組織を示す。攪拌棒の直径は 40 mm、溶湯の過熱度は 50 K、回転速度 17 s^{-1} 、るつぼ温度は室温の条件である。鋳塊のマクロ組織は微細で、鋳塊全体にわたって均質である。ミクロ組織の共晶 Si 粒は Fig. 3 における半凝固合金スラリーの組織において観察されるものとはほぼ同一であることが分かる。

Fig. 5 はアルミナるつぼで作製した Al-5%Si 合金鋳塊の (a) マクロ組織および (b) ミクロ組織を示す。鋳塊の作製条件は攪拌棒の直径 40 mm、過熱度 50 K、回転速度 17 s^{-1} 、るつぼの加熱保持温度は 948 K である。マクロ組織は微細で、鋳塊全体にわたって一様であるが、ポイドが観察されることが分かる。また、ミクロ組織では結晶粒の粗大化が起こったことが認められる。したがって、結晶粒が粗大化しないで、かつ、健全な鋳塊が得られる条件を確認することが重要であると考えられた。

Fig. 4 Macrostructure (a) and Microstructure (b) of Al-5 mass%Si alloy ingot solidified in a crucible made of heat insulating brick. Stirrer diameter: 40 mm. Superheat: 50 K. Rotation speed of stirrer: 17 s^{-1} .

Fig. 5 Macrostructure (a) and Microstructure (b) of Al-5 mass%Si alloy ingot solidified in an alumina crucible kept at 948 K. Stirrer diameter: 40 mm. Superheat: 50 K. Rotation speed of stirrer: 17 s^{-1} .

Fig. 6 Macrostructure (a) and Microstructure (b) of Al-20 mass%Si alloy ingot solidified in a graphite crucible kept at 573 K. Stirrer diameter: 40 mm. Superheat: 100 K. Rotation speed of stirrer: 17 s^{-1} .

Fig. 6 は黒鉛るつぼで作製した Al-20%Si 合金鋳塊の (a) マクロ組織および (b) ミクロ組織を示す。攪拌棒直径 40 mm、過熱度 100 K、回転速度 17 s^{-1} の条件で製造された半凝固合金スラリーを、573 K に加熱保持した黒鉛るつぼに受けて鋳塊を作製した。Al-5%Si 合金鋳塊の作製実験と同様な傾向が認められるが、るつぼの保持温度が高くなるに従って、初晶 Si が大きくなる傾向が確認された。

鋳塊の結晶粒径は、るつぼの材質にはあまり影響されないが、るつぼの加熱保持温度を、健全な鋳塊ができる最低温度を用い、鋳塊のミクロ組織の粗大化を最小にすることが重要である。

III. 高速回転による攪拌凝固

1. 装置

Fig. 1 に示した装置は、モーターからの動力伝達に V ベルトを使用しているために 83 s^{-1} の回転速度が限界であった。そこで、 83 s^{-1} 以上の高速回転が凝固組織に与える影響を調べるために装置の改良を行った。

Fig. 7 に改良した装置の概要を示す。高速回転を可能にするためにモーターと攪拌棒を直結し、高速回転による振動をできるだけ小さくするために固定型とした。鋳型とるつぼをエアシリンダーにより上下動させる方式を採用し、攪拌棒の最高回転速度は 167 s^{-1} (10000 rpm) まで可能であることを確認した。鋳型は内径が 50 mm で、長さが 30, 50, 75 mm の 3 種類であり、鋳型長さが半凝固合金スラリーのミクロ組織に及ぼす影響

Fig. 7 Schematic diagram of the reformed apparatus of rapid solidification with vigorous agitation.

を調べた。黒鉛攪拌棒の形状は、攪拌の効果をより大きくするために半径方向を研削して長方形に近い形状とした。すなわち、直径が 35 mm および 40 mm の黒鉛棒の半径方向を、厚さ 20 mm になるように、長さ方向に 200 mm 研削して使用した。

2. 供試材料および実験方法

試料は攪拌の効果がわかりやすい過共晶の Al-20%Si 合金を用い、過熱度 100 K で急冷攪拌凝固装置に注湯した。脱ガス処理および注湯速度は低速回転の実験と同じである。回転速度は 0, 8, 17, 33, 67, 83, 100, 133, 167 s^{-1} の 9 種類である。本実験においては、凝固組織を観察するために半凝固合金スラリーを水冷銅チル上に受けた。また、半凝固合金スラリーの温度測定は、鋳型直下に耐火断熱製の容器を設置し、容器底部から 20 mm の位置に設置した熱電対により測定した。得られた試料のマイクロ組織観察および初晶 Si の平均粒径(等価円直径: 一つの初晶 Si の面積と同じ面積の円の直径)を測定した。実験は、大気中で行った。

3. 実験結果および考察

Fig. 8 は得られた半凝固合金スラリーのマイクロ組織の一例を示す。各鋳型長さにおいて回転速度が速くなるほど初晶 Si の粒径は小さくなった。また、板状あるいは棒状の初晶 Si が攪拌によって破壊され細かな粒状に近い形状になっていることがわかる。初晶 Si 粒が球状化することは、切り欠き効果を減少させ、材料の靱性を向上させるものと期待される。鋳型長さが 75 mm、回転速度 167 s^{-1} で行った実験で得られたスラリー中の初晶 Si の平均粒径の大きさは 23 μm であった。

Fig. 9 および Fig. 10 に画像処理装置を用いて測定した初晶 Si の平均粒径(等価円直径)の結果を示す。Fig. 9 は直径 35 mm の攪拌棒を使用した場合、Fig. 10 は直径 40 mm の攪拌棒を使用した場合である。両図とも同様な傾向が見られ、鋳型長

Fig. 8 Microstructures of Al-20 mass%Si alloy slurries made using the reformed apparatus.

Fig. 9 Relation between the size of primary Si and the rotation speed of stirrer. Stirrer diameter: 35 mm.

Fig. 10 Relation between the size of primary Si and the rotation speed of stirrer. Stirrer diameter: 40 mm.

さが長くなるほど初晶 Si の平均粒径は小さくなった。また、鑄型長さが 30 mm および 50 mm のときは、回転速度が 50 s^{-1} 程度まで、初晶 Si の平均粒径は急激に小さくなっているが、それ以上の回転速度では大きな変化はない。しかし、鑄型長さが 75 mm のときは、回転速度が速くなるにつれてゆるやかではあるが初晶 Si の平均粒径は小さくなる傾向にある。また、攪拌棒直径が 35 mm と 40 mm を使用した場合を比較してみると、40 mm の場合の方が全体的に初晶 Si の平均粒径は小さい。

Fig. 11 は半凝固合金スラリーの温度測定結果より、直径 35 mm の攪拌棒を使用した場合に、溶融合金が水冷銅鑄型によって奪われた熱量を計算した結果を示す。計算方法は、溶湯が鑄込み時に持っている潜熱量を 100 とし、半凝固合金スラリーが持っている潜熱量を引き算して求めた。回転速度が 50 s^{-1} 程度までは、潜熱量が奪われる割合は回転速度の上昇に従って急激に増加する。また、鑄型長さが長くなるほど、鑄型によって奪われる熱量が増加していることがわかる。すなわち、鑄型と攪拌棒との間隙に流し込まれた溶融合金は、鑄型長さが長くなるほど、回転速度が高くなるほど急冷され、初晶 Si 粒径が小さくなると同時に攪拌により破碎されてさらに微細になるものと考えられる。このことは、初晶 Si の平均粒径の測定結果から確認できると言える。また、ガス巻き込みによるポロシティについて画像処理装置による測定を行い 167 s^{-1} の回転速度の試料のポロシティ面積が無回転試料のものより約 24% 増加することを確認した。

IV. 結 論

Al-Si 合金に急冷攪拌凝固法を適用して、微細結晶粒組織から成る鑄塊を作製する実験を行い、以下の結論を得た。

(1) 亜共晶、共晶、過共晶合金の半凝固合金スラリー中の結晶粒径は、鑄型による急冷によって、小さくなり、攪拌棒の回転速度が増すに従ってさらに小さくなることがわかった。また、攪拌棒と鑄型のクリアランスの減少および鑄型の長さが増すに従って小さくなる。

(2) 亜共晶、共晶、過共晶合金の半凝固合金スラリーを容器に集積することにより作製した鑄塊の結晶粒径は、容器の加熱保持温度が高くなるに従って、粗大化する。したがって、微細結晶粒組織からなる健全な鑄塊を作製するには、半凝固合金スラリーの流動性が十分で、かつ、結晶粒の粗大化が極力抑制される温度条件を的確に把握することが重要である。

(3) 共晶および過共晶合金の初晶 Si および共晶 Si は、回転

Fig. 11 Change of cooling efficiency of water-cooled copper mold with increasing rotation speed of stirrer.

速度が増加すると粒径が小さくなるだけでなく、球状化する。

(4) 過共晶合金の初晶 Si の平均粒径は、攪拌棒の回転速度が 50 s^{-1} まででは、回転速度の増加とともに約 $90 \mu\text{m}$ から約 $40 \mu\text{m}$ まで急激に小さくなるが、これ以上の回転速度では、回転速度は粒径に大きな影響を及ぼさない。回転速度が約 50 s^{-1} 以上では、鑄型の長さおよび鑄型と攪拌棒とのクリアランスによる影響の方が顕著になる。

文 献

- (1) M. C. Flemings: Met. Trans., **5**(1974), 2121.
- (2) 市川 洵, 木下好司, 島村昭治: 日本金属学会誌, **48**(1984), 626.
- (3) 市川 洵, 石塚 哲: 日本金属学会誌, **51**(1987), 1084.
- (4) 市川 洵, 石塚 哲: 日本金属学会誌, **52**(1988), 109.
- (5) 市川 洵, 岡崎義光, 木下好司, 石塚 哲: 日本金属学会誌, **55**(1991), 813.
- (6) 木内 学, 杉山澄雄: 材料とプロセス, **4**(1991), 691.
- (7) 吉田千里: 機能材料, **12**(1992), 7, 24.
- (8) 木内 学: 日本金属学会会報, **21**(1982), 687.
- (9) 三輪謙治, 市川理衛: 日本金属学会誌, **45**(1981), 853.
- (10) 新出 司, 廣中一聡, 内村光雄, 高橋広芳, 難波明彦: 日本金属学会秋期大会講演概要, (1993), 249.
- (11) 廣中一聡, 新出 司, 北村邦雄, 内村光雄, 高橋広芳, 難波明彦: 日本金属学会秋期大会講演概要, (1993), 249.
- (12) 北村邦雄, 安堂優一, 廣中一聡, 八幡誠朗, 吉田千里: 日本金属学会秋期大会講演概要, (1993), 249.