

論 文

UDC 621.746 : 669.14-412 : 536.421.4 : 549.5

柱状晶-等軸晶遷移に及ぼす流動の影響*

鈴木俊夫**・佐々木 康***

梅田高照****・木村康夫****

Effect of Fluid Flow on Columnar-Equiaxed Transition in Solidification

Toshio SUZUKI, Yasushi SASAKI, Takateru UMEDA, and Yasuo KIMURA

Synopsis :

The effects of fluid flow and solidification conditions on the columnar-equiaxed transition are investigated. The ratio, R , of heat flux at dendrite tip to that at dendrite stem is introduced as a parameter which characterizes the columnar-equiaxed transition (For $R > 1$, columnar grains grow, whereas for $R < 1$, equiaxed grains grow). This heat flux ratio, R , is calculated for Fe-0.5%C alloy under varying condition by using the finite element method. The heat flux ratio thus calculated indicates, in good agreement with previously reported observation, that the columnar-equiaxed transition occurs when the temperature gradient decreases to about $5^\circ\text{C}/\text{cm}$ under natural convective flow faster than $0.3\text{ cm}/\text{sec}$, and columnar grains come to grow again as the temperature gradient further decreases to less than $1^\circ\text{C}/\text{cm}$. For flow slower than $0.3\text{ cm}/\text{sec}$, only columnar grains are shown to grow.

1. 緒 言

鋳塊の凝固組織は、マクロ偏析などの諸性質に著しい影響を及ぼすため、多くの研究が古くからなされ、等軸晶生成法についても理解が深められてきた。そして現在では、等軸晶帯については、等軸晶の生成と柱状晶-等軸晶遷移の問題に分離して考えられている¹⁾²⁾。特に後者は組織制御の面からも重要となるが、BURDEN and HUNTによるデンドライト先端温度の測定³⁾⁴⁾によりはじめて、定量的理解の糸口が与えられた。つまり、柱状晶デンドライト先端温度が液相線温度より過冷していることにより、デンドライト前方での等軸晶の成長が可能となる。彼らは、その実験事実に基づき柱状晶-等軸晶遷移の問題を論じたが⁵⁾、最も重要となる流動の影響を考慮していない。そこで本報告では、柱状晶-等軸晶遷移に及ぼす流動や凝固条件の影響を明らかにするため、簡単なモデルを用いてこの問題を検討する。

2. 柱状晶-等軸晶遷移の定性的理解

等軸晶帯の生成に必要な諸条件は、過去の多くの研究

の中に述べられてきた。しかし、これらの多くは等軸晶の生成と成長の問題を合せ含んだもので、柱状晶-等軸晶遷移の条件は必ずしも明確ではない。しかし、十分な等軸晶の“核”が存在すれば、1) 成長速度、温度勾配の減少⁶⁾、2) 流動の存在^{7)~10)}、3) 界面の十分な凹凸の存在¹¹⁾、などの条件の下で、柱状晶-等軸晶遷移が起ると考えられる。

液相中に存在する等軸晶の“核”が成長し続けるためには、液相の温度が過冷されていることが必要となる。このようなデンドライト先端での過冷の存在は、上述のBURDEN and HUNT⁴⁾により定量的に解析されている。しかし、過冷の存在自体は、等軸晶の成長を可能にしても柱状晶の成長を抑制するものではない。つまり、等軸晶の“核”が成長を抑制しても柱状晶の成長が続けば、等軸晶は柱状晶の中に埋め込まれてしまう¹²⁾。従つて、柱状晶-等軸晶遷移が生じるには、等軸晶の成長が柱状晶の成長を阻止しなければならない。

ここで、柱状晶-等軸晶遷移の生じる際の潜熱の流れを考えてみよう。等軸晶の成長に伴つて発生する潜熱は、まわりの液相を通つて柱状晶デンドライトの固相の

* 昭和 52 年 10 月本会講演大会にて発表 昭和 53 年 5 月 8 日受付 (Received May 8, 1978)

** 東京大学工学部 工博 (現 長岡技術科学大学) (Faculty of Engineering, The University of Tokyo)

*** 東京大学工学部 工博 (現 Pennsylvania 大学) (Faculty of Engineering, The University of Tokyo)

**** 東京大学工学部 工博 (Faculty of Engineering, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo Bunkyo-ku Tokyo 113)

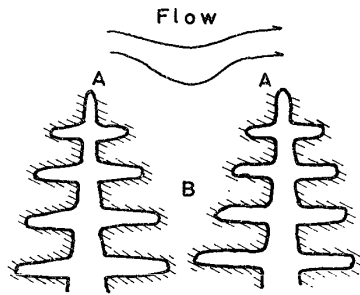


Fig. 1. Schematic drawing of columnar dendrite.

部分に流れていく。しかし、通常は固相の熱伝導率が大きいので、その潜熱は柱状晶デンドライトの先端を通過して多く流れていくであろう。このような場合、等軸晶の成長による潜熱がデンドライト先端に移動するよりも、柱状晶デンドライトの先端自身が成長し、潜熱を発生するほうが、より自然となる。従つて、この場合には柱状晶の成長が阻止されることはないだろう。これに対し、流動などの影響で液相のみかけの熱伝導率が増加し、デンドライトの側面 (Fig. 1 の斜線部) にも潜熱の多くが流れるならば、先端の特異性が失われる。このような状態になれば柱状晶の成長は阻止され、等軸晶が成長し続けるだろう。従つて、柱状晶—等軸晶遷移は、液相から固相への熱の流れに対するデンドライト先端の特異性が失われた場合に生じると考えることができる。

このようなデンドライト先端と液相での熱の流れの状態を表わすために、柱状晶デンドライト先端における熱流とデンドライト基部における熱流の比 (以下、熱流比と呼ぶ) を“パラメータとして用いることができる。実際、この熱流比は、デンドライト先端に流入する熱流の相対的大きさを示している。この比が大きければ、デンドライト先端への熱の流入が大きく先端がより成長しやすい。この比が小さくなれば、液相からの熱流はデンドライト側面全体 (Fig. 1 の斜線部) に流入し、先端の成長は抑制されることになる。

以下、この熱流比を数値計算により求め、その挙動から柱状晶—等軸晶遷移を論じてゆく。

3. 計算方法

前述の熱流比を求めるために、具体的例に即して数値計算を行うが、いくつかの単純化を行った。その第一は溶質移動を陽には取り扱わないことである。そして、溶質の影響は、BURDEN and HUNT の理論に示された柱状晶デンドライト先端の過冷度で代表する点である。これは、溶質場の流れによる影響を無視しているという意味

でありよい方法ではないが、計算が著しく簡素になる。

第二は、熱と流れの相互作用で、温度差に起因する流れを無視するという点である。これは、流れが鑄塊全体での駆動力により生じ、デンドライト先端近傍での温度差にはあまり影響されないと考える事に対応する。

このような単純化の他に、以下に述べるような個々の単純化を行った。

i) 流れの方程式

上述のように流れは対流項を無視した結果、熱の方程式と独立に解く事ができる。そして、今問題にしている流れ u は自然対流程度 ($< 10 \text{ mm/sec}$) の遅いものである。流れの特性長さ d にデンドライト主軸間隔をとるとレイノルズ数 ($Re = du\rho/\mu$) は 1 程度となり、流体力学でよく知られているように Creeping Flow として扱える。 (ρ 密度, μ 粘性係数) 従つて流れの方程式は、2次元問題では、

$$\nabla^4 \varphi = 0 \quad ; \varphi \text{ は流れ関数}$$

となる。

ii) 熱の方程式

定常凝固の場合には、熱移動の方程式は界面に固定した座標系を用いて、拡散項と移動項の和として表わされる。そして、凝固速度 (V) が小さな場合 ($Pe \equiv \alpha d_p/V \ll 1$, d_p : 1次デンドライトアーム間隔, α : 熱拡散率) には、移動項を無視してもよい。従つて、解くべき熱移動の方程式は、流れによる熱輸送を含んだ次式となる。

(κ : 熱伝導度, C_p : 比熱)

$$\kappa \nabla^2 T - C_p \rho u \nabla T = 0$$

上記の熱及び流れの方程式は、有限要素法を用い、Fe-0.5% C 合金について、数値計算を行った。プログラムは、東京大学大型計算機センターライブラリープログラムとそれを修正したものを用いた。その具体的計算方法は文献にゆずり¹³⁾、計算時の境界条件等を簡単に述べる。

まずデンドライトは、Fig. 2 に示すような2次元形状とし、その間隔は 1000μ とした。流れの方程式に対する境界条件は、遠方で $u_x = u_\infty$, $u_y = 0$ ($u_\infty = 1 \sim 20 \text{ mm/sec}$)、デンドライト主軸を含む面で $u_y = 0$ 、固液共存域を囲む面で $u_x = u_y = 0$ とした。熱の方程式に対する境界条件は、遠方で $T = T_L$ 、デンドライト先端 (Fig. 2 のA点) では $T = T_L - \nabla T$ 、固相側の面 (Fig. 2 の下辺) で $T = T_L - \Delta T - GL$ とした。ここで G は温度勾配 ($G = 2 \sim 10^\circ \text{C/cm}$)、 ΔT は先端での過冷度、 L は先端からの距離である。また、先端過冷度 ΔT は、BURDEN and HUNT の式 (文献 (4) 中の (32) 式) を用い温度勾配 G と

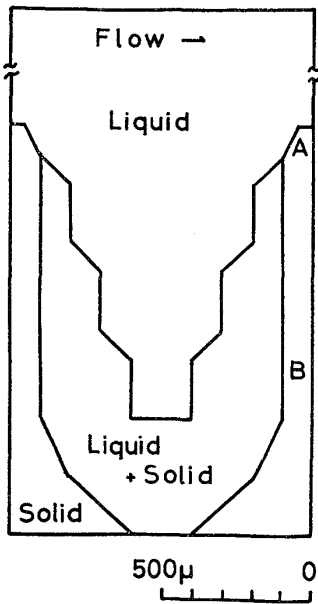


Fig. 2. Dendrite model for numerical calculation.

成長速度 V に線形関係 ($1/2 V \Delta H = \kappa_s G_s$) にあるという条件を入れ, 求めた. この先端過冷度と温度勾配の関係を Fig. 3 に示す.

なお, 計算に用いた Fe-C 合金の物性値は Table 1 に示す. また計算時の要素分割数は, 流れに関しては節点 158, 要素 264, 熱に関しては節点 246, 要素 435 である.

以上の計算により求めた温度分布から熱流比を定めた. まず, デンドライト主軸を含む境界面上で先端位置の節点と次の節点から熱流束 J_1 を求め, つぎにデンドライト基部の2つの節点温度から熱流束 J_2 を求める. そしてこの比 $R = J_1/J_2$ を熱流比とした.

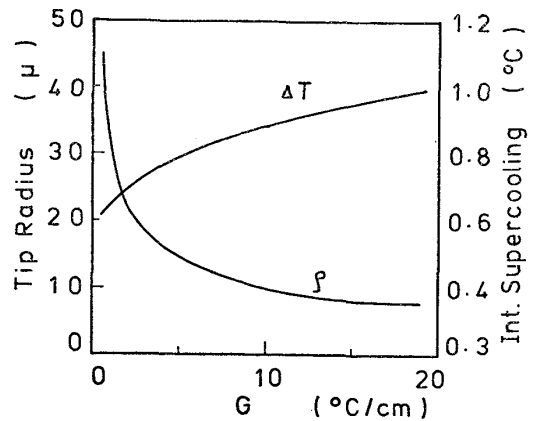


Fig. 3. Supercooling at dendrite tip vs. temperature gradient. The relation was reduced using the theory by BURDEN and HUNT⁴⁾.

従つて, この熱流比は, 固液共存域内の温度分布などに直接関係するものではなく, デンドライト先端に流入する熱がデンドライト基部に至るまでに横方向に流れるか, あるいは横方向から熱が流れ込むかを判断するめやすとなるものである. つまり, 熱流比の大小により, デンドライト先端の特異性を表わす指標になる.

4. 計算結果

4.1 流れ

計算により求めた流線を Fig. 4 に示す. 図中の数字は各流線における相対流速 (u/u_∞) を示す. 図からも明らかのように, 流れのデンドライト樹間部への侵入は大きくない. そして, デンドライト先端近傍での流れも小さく, 遠方の流速の高々数%以内である. また, 図には省略されているが, デンドライト樹間部内部には循環する流れがわずかに存在している. しかし, この

Table 1.

Slope of the liquidus	m_L	°C/wt%	-82.3
Heat of fusion	ΔH	cal/g	64
Equilibrium distribution coefficient	k_0	—	0.196
Interfacial energy	σ	erg/cm ²	204
Diffusion coefficient of carbon in liquid iron	D	cm ² /sec	5×10^{-6}
Melting point	T_M	°C	1 536
Density (liquid)	ρ_L	g/cm ³	7.2
Density (solid)	ρ_S	g/cm ³	7.5
Specific heat (liquid)	C_L	cal/g·°C	0.176
Specific heat (solid)	C_S	cal/g·°C	0.184
Thermal conductivity (liquid)	κ_L	cal/cm·sec·°C	0.03
Thermal conductivity (solid)	κ_S	cal/cm·sec·°C	0.06
Viscosity	η	cp	6.7

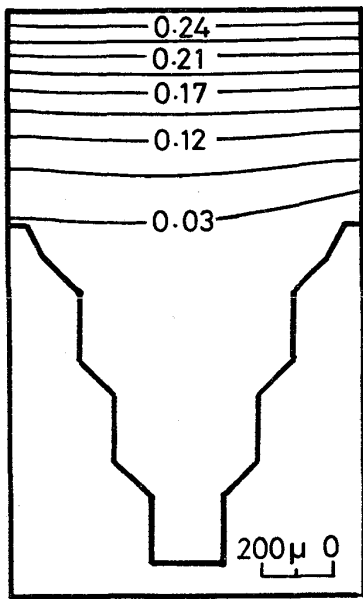


Fig. 4. Stream line near dendrite tips. Values show the relative velocity (u/u_{∞}).

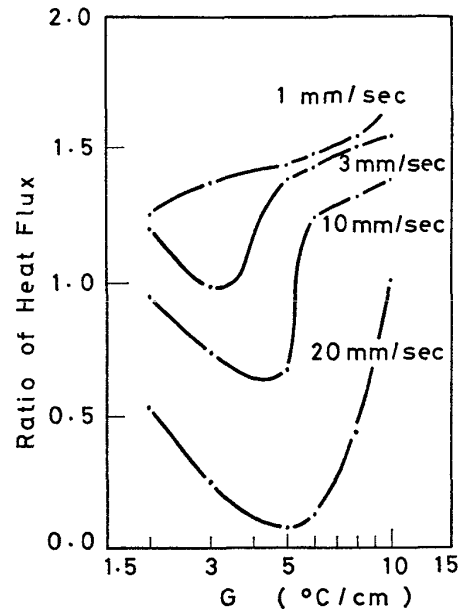


Fig. 6. The relation between heat flux ratio and temperature gradient for each flow velocity.

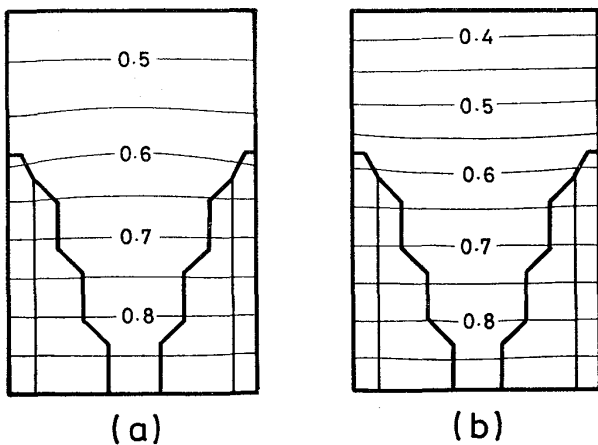


Fig. 5. Isothermal contour. Values show the supercooling ($\Delta T = T_L - T$).
 a) $G=3^{\circ}\text{C}/\text{cm}$, $u_{\infty}=1\text{ mm/sec}$
 b) $G=3^{\circ}\text{C}/\text{cm}$, $u_{\infty}=10\text{ mm/sec}$

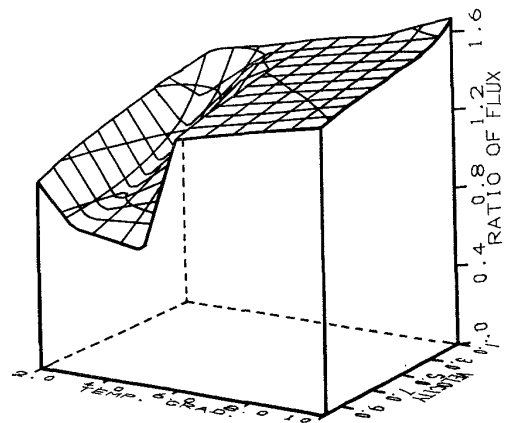


Fig. 7. The change of heat flux with varying temperature gradient and flow velocity.

流れは、遠方の流速の $10^{-4} \sim 10^{-5}$ 程度と極めて小さい。

4.2 流れによる温度分布と熱流比の変化

流れによる温度分布の変化の一例を Fig. 5 に示す。これは、a) が $G=3^{\circ}\text{C}/\text{cm}$, $u_{\infty}=1\text{ mm/sec}$ b) が $G=3^{\circ}\text{C}/\text{cm}$, $u_{\infty}=10\text{ mm/sec}$ の場合を示している。両図を比較すると、等温線(液相線温度からの過冷 $T_L - T$ を示す)が、流速の増加により固液共存域内におし下げられていく事を示す。この結果として、平均の温度勾配は約 20% 増加している。この例に見られるように、自然対流程度の流動によつても、 dendrite 先端近傍の

温度分布は大きく変化していく。

熱流比の温度勾配による変化を各流速について示したものが Fig. 6 である。この熱流比は、流速 1 mm/sec では単調に増加し、その値も 1 より大である。しかし、流速が増加するにつれ、曲線は温度勾配 $3 \sim 6^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ の所で極小値を持ち、その値も 1 を下まわるようになる。この熱流比の温度勾配、流速による変化を透視図として表わしたものが Fig. 7 である。この熱流比は、ある程度以上の温度勾配 ($>3^{\circ}\text{C}/\text{cm}$) では、流速の増加に伴い“深い谷”を作るが、温度勾配がさらに小さければ、“谷”を作らないという特異な振舞いをする。これは Fig. 8 の等熱流比線図に端的に示されている。

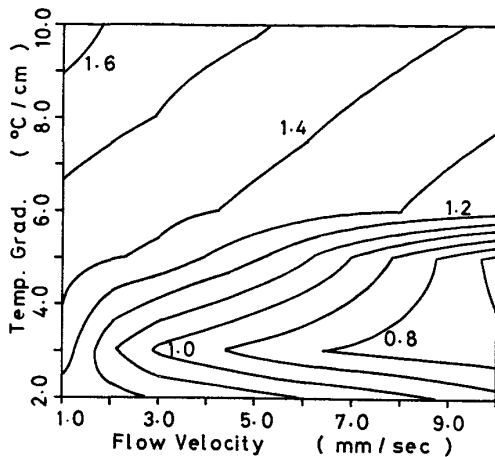


Fig. 8. Iso-heat-flux contour.

5. 考 察

前節の計算結果により、熱流比の減少が柱状晶-等軸晶遷移に対応する事がほぼ明らかになった。すなわち、Fig. 8において、熱流比が1.0以下の領域を等軸晶成長の領域と考えれば、流速が5mm/sec程度の場合、温度勾配が4°C/cm位に減少すると柱状晶-等軸晶遷移が生ずる。しかし、温度勾配が2.5°C/cm以下になると再び柱状晶が成長することになる。この低温度勾配での柱状晶成長は、大型鋳塊の凝固末期に生ずるスーパーデンドライトを想起すれば、極めて自然なものと受取ることができる。また、Fig. 8によれば、流速が3mm/sec以下では、温度勾配によらず柱状晶が成長することが予想される。これは、UHLMANNら⁷⁾によつて行われた磁場中の凝固で、対流を減衰させた場合には等軸晶の生成が抑制されるという事実を明瞭に説明している。

このように、熱流比は柱状晶-等軸晶遷移を取り扱うパラメータとして極めて有効である事が示された。しかし、合金での熱のみの取り扱い、理論的にも不完全なものである事は否めない。例えば、固液共存域内のわずかな循環流も、溶質移動に対しては少からぬ影響を持つ。簡単な評価によつても、液相中の溶質拡散係数を見かけ上数倍に高める効果を持つ。また、この流れにより、デンドライトの上流と下流側での溶質濃度の不均一が生じる。これらの結果として、デンドライト先端での過冷の評価を変更する必要も生ずる可能性はある。しかしながら、本論文の取り扱い範囲では、流れの方向からしても計算結果に本質的な変更を要するとは思われない。従つて、Fig. 7, Fig. 8に示された熱流比の挙動は、定量的には若干の修正が必要かもしれないが、その定性的挙動については訂正を要しないだろう。そして、デンドライトの具体的形状や、熱と溶質と流動の厳密な

取り扱いは、今後の研究にゆだねられている。

6. ま と め

本研究では、デンドライト先端とデンドライト基部での熱流比というパラメータを用いて、柱状晶-等軸晶遷移の問題を取り扱った。その結果、数多くの単純化にもかかわらず、柱状晶-等軸晶遷移に対するいくつかの実験事実を、熱流比の挙動により説明し得た。つまり、自然対流程度の流動の下では、温度勾配の減少につれ柱状晶から等軸晶へ、等軸晶から柱状晶へという遷移が明確にされた。また、流れが小さければ等軸晶が成長しない事も、熱流比の挙動により明らかにされた。

終りにあたり、本研究に多大な御助力を賜りました東京大学工学部金属工学科の相馬胤和教授に心からの感謝の意を表します。また研究の一部には文部省科学研究費(昭和51年度)の補助を得た。記して謝意を表します。

Appendix

1. 流れの方程式

一般に熔融金属は非圧縮性流体として取り扱うことができる。この場合定常2次元流は連続の方程式と2つの運動方程式で記述できる。

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \quad \dots\dots\dots (A-1)$$

$$u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial x} + \nu \left[\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right] \quad \dots\dots\dots (A-2)$$

$$u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial y} + \nu \left[\frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \right] \quad \dots\dots\dots (A-3)$$

ここで、 u, v は流速ベクトルの x, y 成分、 ρ は密度、 p は圧力、 ν は動粘性係数である。流れが非常に遅い場合は慣性項(左辺)は粘性項(右辺第2項)に比べて小さく、これを無視することができる。従つて

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0 \quad \dots\dots\dots (A-1')$$

$$\frac{\partial p}{\partial x} = \mu \left[\frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right] \quad \dots\dots\dots (A-2')$$

$$\frac{\partial p}{\partial y} = \mu \left[\frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \right] \quad \dots\dots\dots (A-3')$$

2次元流の場合には、 u, v は流れ関数 ψ を用いて

$$u = \frac{\partial \psi}{\partial y}, \quad v = -\frac{\partial \psi}{\partial x} \quad \dots\dots\dots (A-4)$$

と表わされる。これを用いて(A-1')~(A-3')を整理すると、

$$\frac{\partial^4 \psi}{\partial x^4} + 2 \frac{\partial^2 u \partial^2 v}{\partial x^2 \partial y^2} + \frac{\partial^4 \psi}{\partial y^4} = 0 \quad \dots\dots\dots (A-5)$$

すなわち

$$\nabla^4 \psi = 0$$

が得られる。この方程式は平面ひずみ問題に対するもの

と等価であり、有限要素法により、容易に数値計算される。

2. 流れによる熱輸送を含んだ熱移動の方程式

流れによる熱輸送を含んだ2次元定常熱問題は、次式で表わされる。

$$\kappa \nabla^2 T - \rho C_p \mathbf{u} \cdot \nabla T = 0 \quad \dots\dots\dots (A-6)$$

この方程式は、ガラーキソ法による変換を用い有限要素法に定式化される¹³。従つて上の方程式は次の代数方程式を解く問題に帰着する。

$$[\mathbf{K}] \cdot \{\mathbf{T}\} - [\mathbf{K}_U] \cdot \{\mathbf{T}\} = 0 \quad \dots\dots\dots (A-7)$$

ここで、 $\{\mathbf{T}\}$ は節点温度ベクトル、 $[\mathbf{K}]$ 、 $[\mathbf{K}_U]$ はそれぞれ熱伝導、流れによる熱輸送に起因する係数行列である。この係数行列 $[\mathbf{K}]$ 、 $[\mathbf{K}_U]$ は次のように表わされる。

$$[\mathbf{K}] = \sum_m [\mathbf{K}_m], \quad [\mathbf{K}_U] = \sum_m [\mathbf{K}_{U,m}] \quad \dots\dots\dots (A-8)$$

$$\left. \begin{aligned} [\mathbf{K}_m] &= \int_{v_m} \kappa [\boldsymbol{\beta}_m]^T \cdot [\boldsymbol{\beta}_m] dv_m \\ [\mathbf{K}_{U,m}] &= \int_{v_m} \rho C_p \{\boldsymbol{\alpha}_m\} \cdot \{\mathbf{u}_m\} [\boldsymbol{\beta}_m] dv_m \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (A-9)$$

ただし、 $\{\boldsymbol{\alpha}_m\}$ は m 要素内の温度分布を定めるための係数ベクトル、 $[\boldsymbol{\beta}_m]$ は $\{\boldsymbol{\alpha}_m\}$ の空間微分である。

上述の熱伝導に起因する係数行列は、変分原理より求められたものに等しくなる。従つて (A-6) 式の数値解は、通常用いられている2次元定常熱伝導問題の有限要素法によるプログラムに、流れの熱輸送の係数行列を加え合わせるという修正により簡単に求めることができる。

文 献

- 1) 鈴木 章: 鉄鋼基礎共同研究会凝固部会シンポジウム“鉄鋼の凝固現象”昭和51年2月
- 2) 鈴木 章: 日本金属学会セミナー“凝固理論と連続鑄造”, 1975, 日本金属学会, p. 42
- 3) M. H. BURDEN and J. D. HUNT: J. Crystal Growth, 22 (1974), p. 99
- 4) M. H. BURDEN and J. D. HUNT: J. Crystal Growth, 22 (1974), p. 109
- 5) M. H. BURDEN and J. D. HUNT: Met. Trans., 6A (1975), p. 240
- 6) 茨木正雄, 岡本 平, 岸武勝彦: 日本金属学会誌 30 (1966), p. 1159
- 7) D. R. UHLMANN, T. P. SEWARD, and B. CHALMERS: Trans. Met. Soc. AIME, 236 (1966), p. 527
- 8) G. S. COLE and G. F. BOLLING: Trans. Met. Soc. AIME, 233 (1965), p. 1568
- 9) G. S. COLE and G. F. BOLLING: Trans. Met. Soc. AIME, 236 (1966), p. 1366
- 10) G. S. COLE and G. F. BOLLING: Trans. Met. Soc. AIME, 239 (1967), p. 1824
- 11) H. FREDRIKSSON and M. HILLERT: Met. Trans. 3 (1972), p. 565
- 12) R. T. SOUTHIN: Trans. Met. Soc. AIME, 239 (1967), p. 220
- 13) J. T. ODEN, O. C. ZIENKIEWICZ, R. H. GALLAGHER, and C. TAYLER ed. “Finite Element Methods in Flow Problems” (1974) UAH Press, Huntsville, Alabama