

© 1988 ISIJ

 寄書
 ////////////////
 寄書
 ////////////////

レオキャストリングにおける初晶粒子径の冷却速度依存性

鈴木俊夫*・宮田保教*²

Cooling Rate Dependence of Primary Particle Size in Rheocasting

Toshio SUZUKI and Yasunori MIYATA

Synopsis:

The primary solid particle size in rheocasting is theoretically derived. The growth rate of primary solid particles is assumed to be the same one as a function of radius in the growth of dendrites. Considering the heat balance in a unit volume under a given cooling condition, the linear relation between the number of particles and cooling rate is predicted. Finally it is shown that primary particle spacing decreases with the $-1/3$ powers of cooling rate. When the primary particles grow nearly to the half distance of their spacings, the calculated particle sizes are in good agreement with experimental data.

Key words : rheocasting ; primary particle size ; cooling rate dependence.

1. はじめに

組織微細化や偏析低減あるいは非混合材料の複合化などを目的とした各種半溶融加工法が検討されている。これらは混合固体粒子を加熱し半溶融状態で加工する方法と、液相を冷却し固液共存状態で加工を行う方法に大別できる。前者は高温の粉末焼結や加工と類似点が多く、さまざまな解析や組織予測も考えられる。これに対し、後者の半凝固溶湯鍛造やレオキャストリングでは、その組織あるいは初晶粒子径は加工・攪はん時の冷却速度に依存し、凝固現象固有の問題が生じてくる。

ここでは、半溶融凝固加工のレオキャストリングにおいて報告されている初晶粒子径の冷却速度依存性を dendrite 成長理論の簡単な概念により導出し、半溶融加工の組織形成を考察する。

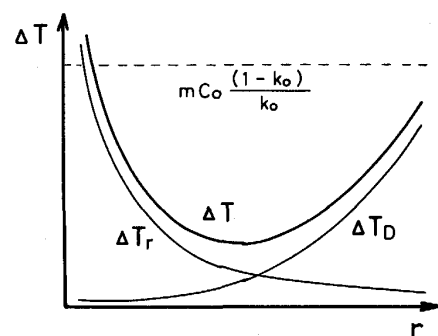
2. 粒子半径と成長速度

合金の拘束 dendrite 成長理論では先端曲率半径 ρ が成長速度 v の関数として決まり、この関係は一般に $\rho = A \cdot v^{-1/2}$ (1) で表される^{1)~4)}。ここで定数 A は合金の物性値とその合金の溶質濃度により決まる。

これらの理論の導出過程を検討すると、上記の関係は定性的に次のような概念から説明できるだろう。すなわち、成長に伴う熱あるいは溶質の涌きだし量は曲率半径

の減少につれて減少する。この結果、成長に必要な拡散量は減少することになり成長が促進される。これに対し、成長の駆動力(過冷度あるいは過飽和度)を考えると、Fig. 1 に模式的に示すように曲率半径の減少により曲率効果(Gibbs-Thomson 効果)に費される比率が増加する。このため、成長に費される駆動力が減少し、成長が抑制されることになる。これらの相反する効果の均衡状態として(1)式で示された成長速度と曲率半径の関係が成立する。したがって、dendrite 成長のみならず(1)式の関係は曲率半径の小さな固液界面の成長で一般に成立することが予想される。

レオキャストリングでは固液共存温度領域での液相攪



ΔT_r is the undercooling by capillary effect, and ΔT_D is the undercooling for solute diffusion

Fig. 1. Interfacial undercooling as the driving force for growth vs. tip radius of a dendrite.

昭和 63 年 1 月 22 日受付 (Received Jan. 22, 1988)

* 長岡技術科学大学 (現: 東京大学工学部) 工博 (The Technological University of Nagaoka, Now Faculty of Engineering, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo Bunkyo-ku, Tokyo 113)

*² 長岡技術科学大学 工博 (The Technological University of Nagaoka)

はんにより微小な固相粒子が形成される。この粒子は温度の低下につれ成長するが、この間に攪はんが続けられるなら、粒子近傍の温度はほぼ一定と見なせる。したがって、粒子成長は主として再分配された溶質の拡散により支配される。粒子径が小さく、粒子間隔が十分大きければ、溶質拡散条件と局所平衡条件により決まるデンドライト成長の場合と同様に、成長粒子の曲率半径は成長速度の関数として与えられるだろう。ここで、攪はんの影響は実効的な拡散係数の変化として取り扱うことができるだろう。粒子の成長速度が定常と仮定すると、粒子半径 r と成長速度 dr/dt の関係は(1)式より、

$$r = A \cdot (dr/dt)^{-1/2} \dots\dots\dots (2)$$

となる。

3. 粒子間隔と冷却速度

等軸晶成長の場合と同様に、レオキャストリングの初晶粒子径は固相粒子数に依存する。したがって、初晶粒子数あるいは初晶粒子間隔が最終的な初晶粒子径を決定すると考えられる。

単位体積当たりの熱の収支を考えよう。この要素が体積当たりの熱抽出量 Q_{ex} (>0) により冷却速度 V_a (>0) で冷却されているとすると、

$$Q_{ex} = c_p^L \rho^L (1 - f_s) V_a + c_p^S \rho^S f_s V_a + \Delta H \cdot df_s/dt \dots\dots\dots (3)$$

となる。ただし、 c_p^L 、 c_p^S および ρ^L 、 ρ^S はそれぞれ液相、固相の重量当たりの比熱、密度、 f_s は固相率、 ΔH は単位体積当たりの潜熱である。近似として、 $c_p^L \rho^L \cong c_p^S \rho^S = c_p \rho$ とすると(3)式は、

$$Q_{ex} = c_p \rho V_a + \Delta H \cdot df_s/dt \dots\dots\dots (4)$$

となる。ここで簡単のために熱抽出量 Q_{ex} と冷却速度 V_a の比例関係 $Q_{ex} = C V_a$ を仮定する。定数 C は厳密には温度あるいは固相率の関数であるが、ここでは定数と仮定する。これより(4)式を整理すると、

$$C' V_a = \Delta H \cdot df_s/dt$$

$$(C' = C - c_p \rho) \dots\dots\dots (4')$$

が得られる。

次に粒子成長に伴う固相率の増加速度 df_s/dt を求める。粒子半径を r 、粒子の成長速度を dr/dt とすると粒子の体積成長速度 dV/dt は

$$dV/dt = 4\pi r^2 dr/dt \dots\dots\dots (5)$$

となる。単位体積当たりの粒子の分布関数を $f(r)$ 、粒子数を N とした場合の固相率増加速度は

$$df_s/dt = \int N f(r) (dV/dt) dr$$

$$= \int 4\pi N r^2 f(r) dr/dt dr \dots\dots\dots (6)$$

となる。粒子半径と粒子成長速度の関係は前述のように(2)式で与えられるので、

$$dr/dt = A^2 r^{-2} \dots\dots\dots (7)$$

が成立し、(7)式を(6)式に代入することにより、

$$df_s/dt = \int 4\pi A^2 N f(r) dr = 4\pi A^2 N \dots\dots\dots (8)$$

が得られる。この結果は、固相率増加速度は粒子径に依存せず、単位体積中の粒子数にのみ依存することを示している。また、(4)'式と(8)式より

$$C' V_a = 4\pi A^2 \Delta H N \dots\dots\dots (9)$$

が得られ、粒子数は冷却速度に比例することが分かる。また、初晶粒子間隔 λ が粒子数の立方根に反比例することに留意すれば、

$$\lambda = (4\pi A^2 \Delta H / C')^{1/3} \cdot V_a^{-1/3} \dots\dots\dots (10)$$

となり、粒子間隔は平均冷却速度の $-1/3$ 乗に比例して減少する関係が導かれる。初晶粒子径は粒子間隔に比例するので、初晶粒子径と冷却速度の関係も同様になる。

4. 実験との比較

前節の議論より初晶粒子間隔あるいは粒子径と冷却速度の関係が得られた。この関係を実験結果と定量的に比較するには、対象となる体積要素および全系の熱収支を計算しなければならない。このようにデンドライト成長理論で得られた局所的な成長条件とマクロ的な熱解析を結合する取扱いの例として、等軸晶組織の形成に関する HUNT⁵⁾ や RAPPAZ & THEVOZ など^{6)~8)} の解析が挙げられよう。しかし、これらの解析には核生成条件を仮定した複雑な数値計算が必要となる。本稿の目的はレオキャストリングにおける組織形成をデンドライト成長理論の立場から定性的に理解することである。したがって、ここでは(10)式の関係を実験に近い近似によりオーダー評価するに留める。

前述のように体積要素の熱収支を考える時に熱抽出量 Q_{ex} が冷却速度 V_a に比例することを仮定した。その意味からすれば、定数 C として凝固の進行している体積要素での平均比熱と考えるのが妥当であろう。凝固計算でしばしば用いられるように固液共存域の平均比熱として

$$C = c_p \rho + \Delta H / \Delta T_0 \dots\dots\dots (11)$$

(ただし ΔT_0 は固液共存温度幅)

を仮定すれば(10)式は

$$\lambda = (4\pi A^2 \Delta T_0)^{1/3} \cdot V_a^{-1/3} \dots\dots\dots (12)$$

となり、具体的な粒子間隔の値が求められる。

Fig. 2 は各種合金のレオキャストリングで報告されている初晶粒子径と冷却速度の関係を示す⁹⁾¹⁰⁾。また、図中の実線は(12)式より得た粒子間隔を示している。ただし計算では、Al-4.1 mass % Cu 合金の実験で得られた定数 A の値 ($9.5 \times 10^{-8} \text{ m}^{3/2} \text{ s}^{-1/2}$) と固液共存温度幅 (61.4 K) を用いている¹¹⁾。両者を比較すると、冷却速度依存性などを含め全体として計算値と実験値が良く一致することがわかる。

なお、定数 A と固液共存温度幅 ΔT_0 は合金系や溶質濃度に依存する。しかし、これらの定数は粒子間隔に対する依存性はいずれも $1/3$ 乗と小さく、これらの値を変化しても粒子間隔のオーダーが大きく変わることは

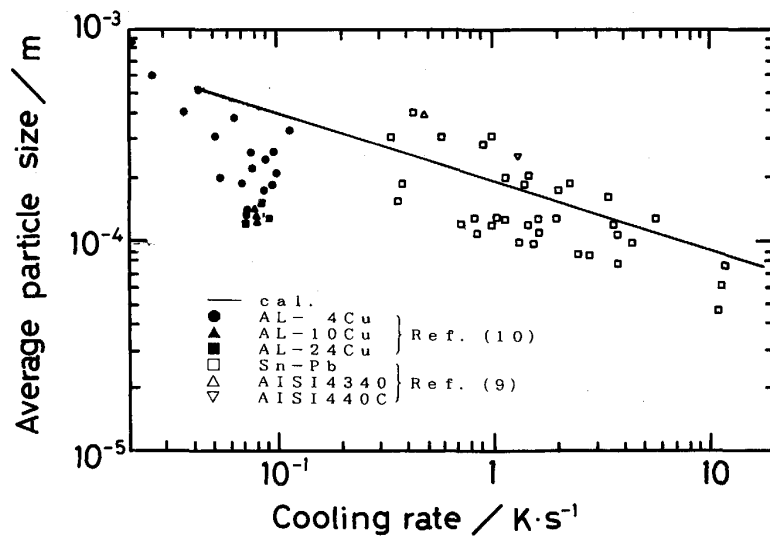


Fig. 2. Primary particle size vs. cooling rate. Symbols show the experimental data from ref. (9) and (10), and the line shows the theoretical prediction.

ない。ただ定数 A は拡散係数に対し約 $1/2$ 乗の依存性をもつので⁴⁾、同一合金でも攪はんにより初晶粒子径が異なる点に注意する必要がある。したがって、Fig. 2 に示したように、異なる合金系で求められた初晶粒子径がバンド状に分布する理由も(12)式から容易に説明できる。

5. おわりに

ここではデンドライト成長理論で得られる界面の曲率半径と成長速度の関係をレオキャストリングの組織形成に適用し、初晶粒子径の冷却速度依存性を導出した。数々の単純化にもかかわらず、その結果は実験との良い一致を示した。ただ、組織形成に対する正確な理解を得るには、ミクロ的な界面成長条件とマクロ的熱的条件を結合した問題を解析する必要がある。

文 献

- 1) M. H. BURDEN and J. D. HUNT: *J. Crystal Growth*, **22** (1974), p. 109
- 2) W. KURZ and D. J. FISHER: *Acta Metall.*, **29** (1981), p. 11
- 3) R. TRIVEDI: *J. Crystal Growth*, **49** (1980), p. 219
- 4) Y. MIYATA and T. SUZUKI: *Metall. Trans. A*, **16** (1985), p. 1807
- 5) J. D. HUNT: *Mater. Sci. Eng.*, **65** (1984), p. 75
- 6) M. RAPPAZ and Ph. THEVOZ: *Acta Metall.*, **35** (1987), p. 1487
- 7) M. RAPPAZ and Ph. THEVOZ: *Solidification Processing 1987*, Sheffield (1987), p. 135
- 8) Ph. THEVOZ, Z. JIE and M. RAPPAZ: *Solidification Processing 1987*, Sheffield (1987), p. 139
- 9) K. P. YOUNG, R. G. RIEK and M. C. FLEMINGS: *Solidification and Casting of Metals* (1979), p. 510 [The Metals Society, London]
- 10) 市川 洵, 木下好司, 島村昭治: *日本金属学会誌*, **48** (1984), p. 626
- 11) Y. MIYATA, T. SUZUKI and J. UNO: *Metall. Trans. A*, **16** (1985), p. 1799