博士（工学）　大　参　達　也

学 位 論 文 題 名

複合鋳込み法による過共晶 Al - Si 合金の凝固組織制御に関する研究

学位論文内容の要旨

JIS 規格 AC 9 A 合金および AC 9 B 合金に代表される過共晶 Al - Si 合金は，Al - Si 共晶中に硬質の初晶 Si 粒子の分散した組織を有し，軽量で耐熱・耐摩耗性に優れることから，エンジン部材や各種の機械の摺動部品等を主な用途とする鋳造用合金であるが，機械的強度，耐摩耗性，および加工性等の材質を確保する上で初晶 Si 粒径を制御することが不可欠である。一般に本系合金の凝固過程では初晶 Si が粗大に成長し易いため，現在，工業的には合金溶湯へのＰの添加による初晶改良（微細化）処理が用いられているが，鋳造の際に高い鋳造温度と比較的大きな冷却速度を必要とし，また，Na 等の添加による共晶改良処理を併用することが困難であるなど，鋳造プロセス上種々の制約がある。しかし，現行法に代わり得る有効な手法は未だ確立されていない。

本研究は，異種合金溶湯を時間差鋳造する「複合鋳込み法」の適用を過共晶 Al - Si 合金に対して試みた結果，顕著な初晶微細化効果を見いだしたことを契機として，その初晶微細化機構を解明し，さらに，その過程で得られた知見をもとに，新たな過共晶 Al - Si 合金の凝固組織制御法を考案して，その適用性を検討したものであり，本論文は全10章から構成されている。

第１章では，過共晶 Al - Si 合金の材質と凝固組織との関係，および凝固組織制御法に関する既往の研究を概括して，問題点を明らかにし，本研究の位置と目的を示した。

第２章では，JIS 規格 AC 9 A 合金相当の Si 量を含有する Al-22 mass % Si 合金を対象として複合鋳込み法の適用を試み，初晶 Si の顕著な微細化が生じることを見いだすとともに，初晶微細化に必要な鋳造条件を明らかにした。その第一の条件は，最初に鋳込む溶湯（１次溶湯）の液相線温度より，後に鋳込む溶湯（２次溶湯）の液相線温度の方が高くなるような溶湯組成の組み合わせを選択することである。第二の条件として，溶湯混合直前の１次溶湯の温度が低くなるように，１次溶湯の鋳込み温度と二段階の鋳込み操作間の時間間隔とを設定することが必要である。第三に，２次溶湯の鋳込み過熱度が低いほど，初晶 Si 粒径が小さくなる傾向がある。

第3章から第7章までは，複合鋳込み法における初晶微細化機構の解明を目的とした一連の研究過程を述べている。

第3章では，複合鋳込み鋳塊における微細な初晶Siの生成起源を検討した。第2章において初晶の微細化が可能であったAl-12mass% Si合金（1次溶湯）とAl-32mass% Si合金（2次溶湯）の組み合わせを用いた複合鋳込み過程の考察から，初晶核の起源として，①1次凝固殻（2次溶湯の鋳込み以前に1次溶湯中で生成した凝固殻）の非平衡的再溶解過程で生成する遊離共晶Si，②1次溶湯と2次溶湯とが完全混合する以前の混合段階において2次溶湯内で生成する初晶核，および③完全混合後の溶湯内で生成する初晶核，の三種類が考えられ，各々に対する検証実験の結果に基づいて，②の起源，すなわち，2次溶湯内で生成した初晶が微細初晶の主体となることを明らかにした。

第4章では，異種合金溶湯の乱流混合過程の移動速度論的検討に基づいて，2次溶湯の流体塊内に熱と溶質の分子拡散速度の差に起因する過冷却(二重拡散過冷却)が生じる可能性を指摘し，この過冷却によって初晶の多発的核生成がもたらされるとする初晶微細化機構の仮説モデルを提出した。

第5章では，各種の冷却法による凝固実験と古典的核生成理論とに基づいて，過共晶Al - Si合金（Al-22mass% Si合金とAl-32mass% Si合金）における初晶Si粒径，過冷度および冷却速度の三者間の定量的関係を調査し，初晶微細化に要する冷却条件を求めた。

第6章では，複合鋳込み法における初期溶湯混合過程，すなわち，2次溶湯がタンディシュノズルから流出・落下し，鋳型内の1次溶湯に混入し始める初期の段階を対象として，水モデルによる流動パターンの観察と複合鋳込み実験における温度変化測定データの解析とから2次溶湯の冷却速度を見積り，二重拡散過冷却による多発的核生成をもたらす冷却条件が存在することを確認した。

第7章では，複合鋳込み鋳塊の初晶Si粒径に及ぼす溶湯組成と鋳型性状の影響を調査するとともに，1次凝固殻と鋳型による抜熱効果の寄与を明らかにし，前章までの結果を総合して複合鋳込み法の初晶微細化機構を解明した。すなわち，低温の1次溶湯と高液相線温度（高Si濃度）の2次溶湯との乱流混合過程で，2次溶湯が高Si濃度を保ったまま急冷され，その内部に大きな二重拡散過冷却を生じることによって初晶Siの多発的核生成が起こるが、このとき，1次凝固殻は溶湯混合に伴う温度上昇により溶解する際に潜熱を奪い，また溶解により生成した低温の液相が溶湯混合に加わることにより2次溶湯の冷却を促進して，初晶Siの微細化に重要な役割を果たす。この機構により，複合鋳込み法における種々の鋳造条件（溶湯組成，鋳型性状，鋳込

み温度，二段階の鋳込み操作間の時間間隔）の初晶 Si 粒径に及ぼす影響を説明することが可能となった。

第 8 章では，Na と P の添加を併用した複合鋳込み法を試み，初晶・共晶同時改良処理の可能性を明らかにした。また，複合鋳込み法の初晶微細化効果と P 添加による初晶改良効果との相乗作用による著しい初晶の微細化を見いだした。複合鋳込み法の初晶微細化機構に立脚すると，Na 添加した 1 次溶湯と P 添加した 2 次溶湯を用いて複合鋳込みを行うことにより，2 次溶湯内での初晶 Si の晶出過程では，Na の影響を受けることなく P と急冷の相乗効果により初晶 Si を多発的に核生成させることができると考えられる。さらに，その後の溶湯混合の進行により 1 次溶湯中の Na が溶湯全体に行き渡り，共晶凝固段階で Na の改良効果が発揮されるならば，初晶と共晶の同時改良が可能となる。

第 9 章では，第 7 章と第 8 章で得られた知見に基づいて，攪拌凝固により生成した亜共晶合金スラリーに高 Si 濃度の P 添加過共晶合金溶湯を攪拌混合することにより，微細初晶 Si を含有する過共晶合金スラリーを製造する「スラリー・溶湯混合法」を新たに考案し，その適用性を検討した。本法によれば，初晶 Si を実用レベルまで微細化することができ，また，得られた過共晶 Al - Si 合金スラリーに Na を添加することにより，初晶・共晶同時改良が可能となった。さらに，本法によるスラリー製造過程における見掛け粘度の測定と型鍛造成形材の試作とに基づく成形特性評価を行い，スラリー成形加工時の変形抵抗が極めて小さいこと，また，スラリーの含有する初晶が微細であるため均一な組織を有する成形体が得られること，等の良好な特性を確認した。スラリー・溶湯混合法は，成形加工温度を Al - Si 共晶温度近傍の比較的低い温度に設定することができる，また，スラリー製造階段で初晶 Si 粒径が決まるため成形加工時における冷却条件の制約もほとんどなく，現行法の問題点を基本的に解決し得る方法である。

第10章は総括であり，本研究で得られた結果をまとめている。

学位論文審査の要旨

主　査　　教　授　　石　川　達　雄
副　査　　教　授　　永　井　忠　雄
副　査　　教　授　　石　井　邦　宜
副　査　　教　授　　野　口　　徹
副　査　　助教授　　工　藤　昌　行

本論文は，耐熱・耐摩耗性軽合金である過共晶 Al - Si 合金の新しい凝固組織制御技術の開発を目的として，異種合金溶湯を時間差鋳造する「複合鋳込み法」を本系合金に適用することにより，顕著な初晶微細化効果を見いだすとともに，その初晶微細化機構の解明により得られた知見をもとに，新たな凝固組織制御法を考案し，その有用性を検証したものである。

第 1 章では，過共晶 Al - Si 合金の材質と凝固組織との関係，および凝固組織制御法に関する既往の研究を概括して，凝固組織制御の到達目標を明確にするとともに，現行法である初晶改良剤の添加による初晶微細化処理の問題点について整理している。

第 2 章では，過共晶 Al - Si 合金の初晶粒子が複合鋳込み法により顕著に微細化される効果を見いだすとともに，初晶微細化に必要な鋳造条件を調べている。その結果，初晶微細化のためには，最初に鋳込む溶湯（1 次溶湯）の液相線温度より，後に鋳込む溶湯（2 次溶湯）の液相線温度の方が高くなるような溶湯組成を選択し，且つ，溶湯混合時の両溶湯の温度を低くすべきことを明らかにしている。

第 3 章から第 7 章までは，複合鋳込み法における初晶微細化機構の解明を目的とした一連の研究過程を述べている。

第 3 章では，複合鋳込み鋳塊における微細な初晶粒子の生成起源を実験的に検討し，1 次溶湯と 2 次溶湯とが完全混合する以前の混合段階において 2 次溶湯内で生成する初晶が微細初晶の主体となることを解明している。

第 4 章では，異種合金溶湯の乱流混合過程の移動速度論的検討に基づいて，2 次溶湯の流体塊内に熱と溶質の分子拡散速度の差に起因する過冷却が生じる可能性を指摘し，この過冷却によって初晶の多発的核生成がもたらされるとする初晶微細化機構のモデルを議論している。

第 5 章では，各種の冷却法による凝固実験と古典的核生成理論とに基づいて，過共晶 Al - Si 合金における初晶粒径，過冷度および冷却速度の三者間の定量的関係を調査し，初晶微細化に要

する冷却条件を求めている。

第6章では，複合鋳込み法における溶湯混合過程を対象として，水モデルによる流動パターンの観察と複合鋳込み実験における温度変化測定データの解析とから2次溶湯の冷却速度を見積もり，2次溶湯内に初晶の多発的核生成をもたらすのに十分な大きさの過冷度が生じ得ることを確認している。

第7章では，複合鋳込み鋳塊の初晶粒径に及ぼす鋳造条件の影響を調査するとともに，一部凝固した1次溶湯が2次溶湯の混合により再溶解する際の溶解潜熱の吸収が初晶微細化を促進する事実を見いだし，前章までの結果を総合して複合鋳込み法の初晶微細化機構を確立している。

第8章では，初晶微細化機構の応用として，共晶改良剤を添加した1次溶湯と初晶改良剤を添加した2次溶湯を用いて複合鋳込みを行う手法を試み，従来困難であった初晶・共晶同時改良処理を実現している。また，複合鋳込み法の初晶微細化効果と初晶改良剤の効果との相乗作用により初晶が著しく微細化することを見いだしている。

第9章では，前章までに得られた知見に基づき，攪拌凝固により生成した亜共晶合金スラリーに初晶改良処理を施した高Si濃度の過共晶合金溶湯を攪拌混合することにより，微細初晶を含有する過共晶合金スラリーを製造する「スラリー・溶湯混合法」を新たに考案して，その適用性を検討している。その結果，本法により実用レベルまで初晶を微細化することができ，また，得られた過共晶合金スラリーへの共晶改良剤の添加により，初晶・共晶同時改良が可能となることを明らかにしている。さらに，スラリーの見掛け粘度測定と型鍛造成形材の試作とに基づく成形性評価から，スラリー成形加工時の変形抵抗が極めて小さいこと，また，スラリーの含有する初晶が微細であるため均一な組織を有する成形体が得られること，等の良好な加工性を確認している。スラリー・溶湯混合法では，成形加工温度を低く設定でき，また，成形加工時における冷却条件の制約もほとんどないことから，現行法の問題点を基本的に解決し得ると結論している。

第10章は総括であり，本研究で得られた結果をまとめている。

これを要するに，著者は，実用合金を対象とした凝固組織制御技術の新しい概念を確立するとともに，その具体的手法を開発したもので，金属材料工学に対して貢献するところ大なるものがある。

よって著者は，博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。