

一方向凝固させたアルミニウム-銅合金薄板の 結晶方位について

On the Crystal Orientation of the Unidirectionally Solidified
Thin Plate of the Aluminium-Copper Alloy

片岡 邦 郎*・一色 貞 文*・高 正 植*
Kunio KATAOKA, Sadabumi ISSHIKI, Joung Shik KO,
山 沢 富 雄*・平 林 美 子*
Tomio YAMAZAWA and Yoshiko HIRABAYASHI

1. ま え が き

前報¹⁾で、アルミニウム銅合金薄板を一方向凝固させたときの凝固マイクロ組織について報告した。それによると、一方向凝固組織は凝固速度と組成によって程度の差はあるが、ほぼ共通して凝固の進行にともなって次のように変化して行く。

未熔融の微細等軸晶部→熔融等軸大粒→柱状晶成長開始→柱状晶(柱状セル)→同(デンドライト-樹枝状-セル)→同(扇形状デンドライトセル)。

また並列して凝固進行する多数の柱状晶間に競合排除が行なわれ、最終的には若干の少数の結晶粒のみが残って成長を続けることがわかった。

このような結晶粒の消長は、凝固固液界面での熱流方向と結晶粒の方位との関係に支配されることが溶接凝固組織の場合などに報告されているが²⁾、われわれの実験試料のように、凝固部分が 10 cm 以上と長い場合に、これらの関係がどのように現われるか、また凝固途中で、溶質の濃縮による組成的過冷却の結果、新しい結晶粒の発生がないかなどの疑問があり、それらの解明は鋳物や溶接などへの利用ばかりでなく、最近一方向凝固の利用により方向性と複合組織をもつ高張力合金の開発研究が盛んになってきている状況³⁾からみて特に有意義と考えられる。そこで前報に引続き、一方向凝固させたアルミニウム銅合金薄板の柱状晶の方位と成長、消滅の関係および結晶粒核生成の問題について検討してみた。

2. 実験方法

一方向凝固試料の製作方法は、前報で述べたので省略する。凝固させた試料(2×10×165 mm)を、3~4片に切断し、表面(黒鉛鑄型ふた側)および必要に応じて裏面(鑄型底側)を機械研磨したのち、苛性ソーダ水溶液で腐食後、硝酸水溶液で洗滌し、マクロ組織を現わした。試片の表面に見られる各柱状晶について、その成長開始後 1~2 cm のところで、適当な箇所をえらび、X線反射ラウエ写真を撮影した。撮影条件は、M₀ 対陰極、

管電圧 30 kV, 管電流 15 mA, スリット径 0.5 mmφ, フィルム試片表面間隔は 30 mm, フジ 200 またはさくら N フィルムで、約 30 分露出した。撮影フィルムのラウエ斑点について、30 mm 用のグレニングァー・チャートで、斑点に対応する結晶面の法線の水平方向の傾角 θ と垂直方向の傾角 γ を測定し、これを 1° 目盛のウルフネット(直径 25.5 mm)上にプロットし、斑点の極(複数)ののっている晶帯をきめ、これから X線ビームの当たった箇所の柱状晶の方位を決定した。

3. 実験結果と考察

一般に金属を鑄造したときは、そのデンドライトは、凝固界面での熱流方向とは無関係に、その結晶構造に固有の優先成長方向に成長し、F. C. C. および B. C. C. では $\langle 100 \rangle$ がその方向であるといわれている⁴⁾。金属の凝固固体液体界面は融点の等温度曲線と一致するが、一方、等温度曲線は温度勾配の最大の方向(これを熱流逆方向と呼ぶことにする)に垂直であって、凝固界面はつねにその方向に前進する。したがって結晶粒とその中のセル(サブ・グレイン)も熱流逆方向にできるだけ沿って成長しようとするはずである。溶接の溶着金属のように、楕円形の溶融池が溶接進行方向に移動して行く場合には、柱状晶がはじめ母材と溶融金属の境界線に垂直に成長するが、固液界面がビード内部に移行するにともない、熱流方向が溶接進行方向に垂直から平行に変化するので、柱状晶もその方向に急激に湾曲し、ビードの中央付近ではほとんど平行になるといわれる²⁾。

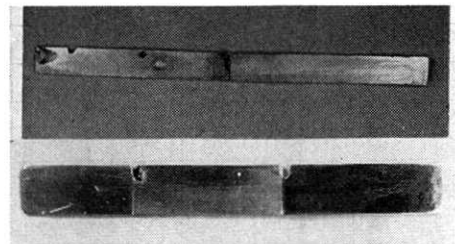


図 1 一方向凝固させた Al-0.94 w % Cu 合金試片
上: 凝固速度 0.6 mm/min
下: 同 35

* 東京大学生産技術研究所 第 1 部

一方凝固を利用して、試料中の結晶粒や晶出相が一方方向に揃った試料を作るには、このような熱流と結晶方位、結晶粒、セルの成長方向との関係が詳細に把握されていることが望ましい。前報で述べたように、試片の凝固部分の大半は並列成長した柱状晶から成っており、これは、組成や凝固速度によって変わらない。そこで例として、Al-0.94 w% Cu の試料を、遅、中、急の3種類の凝固速度で一方凝固させ、その成長、方位、熱流の関係について検討した結果を述べる。

(a) 遅い凝固速度 (0.6 mm/mn) のとき

凝固速度が遅いと、図2 aの写真に見られるように、柱状晶の中に幅広い柱状セルがほぼ平行に並列している

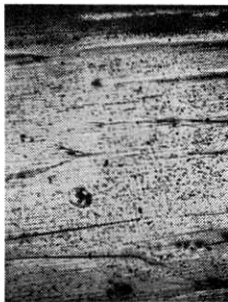
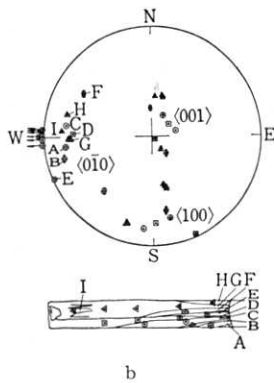


図 2 a

一方凝固させた Al-0.94 w% Cu 合金薄板の柱状晶組織、試片表面凝固速度: 0.4 mm/mn



上: 極点図、左の試片の柱状晶成長開始期における優先成長方向〈100〉とセル成長方向
下: 試片表面での柱状晶マクロ組織スケッチとラウエ写真撮影箇所

る。これらの柱状晶の結晶方位を知るため、試片表面で各粒のピンホール反射ラウエ写真を撮影した。撮影位置を、図2 bの下のマクロ組織スケッチに見られるように、各粒ごとに異なったマークで示した。前節で述べた方法で、これらのラウエ写真から各柱状晶の優先成長方向である〈100〉方向を求め、その方位を極点図にマークで示すと、図2 b上のようなになる。マークの形は、それぞれ下のスケッチの各粒のマークと対応させてある。極点図の面は、試片表面と一致させ、また凝固進行方向(試片長さ方向)は、極点図のWE方向と一致させている。F.C.C. では、〈100〉は6箇あるが、図上では、W極に近い〔010〕とそれに垂直な〔001〕、〔100〕の極のみを示し、さらに試片表面に対し、上向きの方を白マーク、下向きの方を黒い太い輪郭をつけたマークとした。

図2 bにおいて、方位を測定した8箇の柱状晶A~Hのうち、A, B, C および H は凝固進行に伴って、それぞれ試片の左右両辺に到達して消滅し、E, F は隣接の粒に

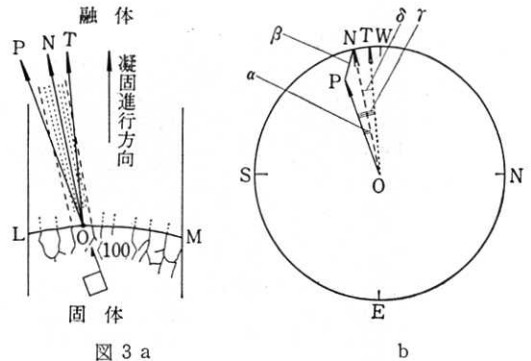


図 3 a

凝固固液界面のモデル、
OT: 熱流逆方向
ON: 柱状セル進行方向
OP: 柱状晶の優先成長方向〈100〉

b

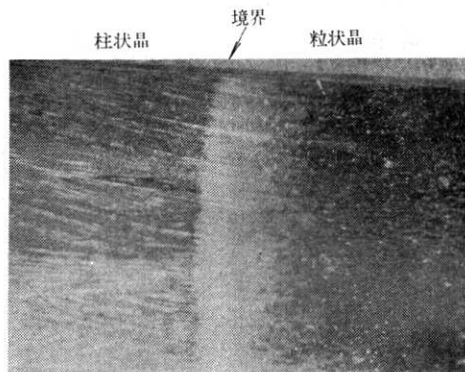
左のモデルの3方向を示す極点図

はさまれて成長できず、D, G 2の箇のみが生き残って成長巨大化している。これらの粒の方位を見ると、図2 b上のように、多くの粒の〔010〕方向がW極のまわりに集中している。とくに粒 D, G の〔010〕極は、これらの粒の中でも最もW極に近く、〔010〕極と中心Oを結ぶ線は、ほとんどWEに平行である。これは〈100〉軸の一つが、試片中の熱流方向に最も近い向きにある粒がよく伸びて生き残り、巨大化したことを示すと考えられる。

このような熱流方向と結晶方位の関係をさらに詳しく見るため、図3 aのような凝固界面のモデルを考える。試片表面における界面LM上に存在する結晶粒Oについて、熱流逆方向をOTそれに最も近い〈100〉方向をOP、界面の進行にともなってできるセルまたはデンドライトセルの成長方向をONとすると、(この場合結晶粒はほぼ直線的に伸びているので、その成長方向はセルのそれとほとんど同じである)。それぞれの方向は図3 bの極点図では矢印のついた点線、実線および鎖線で表わされる。極点図面と試片表面、ならびに試片長さ方向とWEとは前と同様に一致させている。

いま極点図上でOPとONのなす傾角をα、試片内で極Pと極Nのなす角をβ、OPとOTの間の角をγ、ONとOTの間の角をδとし、これらを柱状晶の成長開始時の凝固界面における結晶粒A~Hについて測定し、表1の上欄のような結果を得た。この場合、熱流逆方向は図4のマクロエッチ写真に見られるように、大きい粒状晶群とそれから成長した柱状晶との境界線が、凝固進行方向に扇形に突出した輪郭線として認められるので、これを成長開始時における固液界面の等温線と考え、この線上の各点の法線方向を熱流逆方向とし、これを各結晶粒について求めた。またセルの成長方向は、各粒子中のセルまたはデンドライトセルの主幹方向を顕微

研 究 速 報



← 凝固進行方向

図 4 柱状晶の成長開始期のマクロ組織矢印の境界が、粒状晶から柱状晶が伸び始めたときの、凝固固液界面を示すと考えられる。

表 1

凝固速度	柱状晶	α	β	γ	δ
0.6 mm/mn	A	2.0°	12.5°	5.0°	2.0°
	B	—	—	—	—
	C	8.5	15.5	9.0	0.5
	D	1.0	18.0	3.5	2.5
	E	23.5	23.8	23.5	0.5
	F	28.5	32.5	30.0	2.8
	G	3.5	16.0	3.5	0
	H	11.8	16.5	10.0	1.8
	平均	11.3	19.3	12.1	1.4
3.1 mm/mn	A	6.2	6.8	5.0	3.0
	B	2.0	20.0	4.2	6.5
	C	2.8	7.0	1.8	1.0
	D	37.8	42.0	43.5	0
	E	8.8	9.5	10.0	1.0
	F	9.8	21.8	18.0	11.8
	G	16.5	20.0	25.5	11.0
	H	14.8	20.0	16.8	2.0
	(I)	5.5	6.0	7.8	3.5
	(J)	1.0	11.0	1.0	2.0
	平均 I, J を除く	14.4	19.4	16.8	3.3
35 mm/mn	A	3.2	8.0	4.7	1.5
	B	0.5	9.0	7.8	8.0
	C	4.5	24.5	0	4.5
	D	2.2	13.5	21.0	18.8
	E	3.8	10.0	17.0	0.5
	F	—	—	—	—
	G	0.5	9.5	17.2	16.4
	平均	2.5	12.4	11.3	8.3

鏡のクロスラインとステージの副尺を用いて測定した。参考のため、これらセルの成長方向を、図 2 b の極点図円の円周上に W 極をかこんで、矢印のついた結晶粒のマークで示した。セルの成長方向は WE に平行に近く、W 極を中心としてやや扇形に開いている。

表 1 を見ると、0.6 mm/mn の凝固速度では、試片表面でのセル成長方向と結晶方向との角 δ は平均 1.4° で、セルの成長方向と結晶の (010) 方向との角 α の平均 11.3 に比較して極めて小さく、このような遅い凝固速度では、セルの成長は優先成長方向よりも熱流方向により影響され、後者の方向に平行になるように成長していることがわかる。また β は平均 19.3° と大きい、これは図 2 b の極点図に見られるように、結晶粒の $\langle 100 \rangle$ 軸が試片表面に対して多少傾きをもっているため、前報に縦断面の写真で示したように、セルの成長も実際には鋳型試片間の熱流方向に対応してやや下向きに伸びているものと考えられる。また [010] 方向と熱流逆方向との間の角 γ は平均 12.1° で、 γ の小さい角が柱状晶として伸びやすいことを示しているが、中でも最後まで残って巨大化した粒 D および G はより γ が小さく、このことを裏付けている。

そこでこのように長く伸びて巨大化した柱状晶の方位をさらに追って測定してみると、同じ柱状晶であれば、粒 G のマークに例として示したように、ほとんど重っており、測定誤差の範囲内で変わらないといえよう。ただスケッチにも見られるように、粒 G の末端近くで新しい柱状晶 I が発生している。その方位を測定すると、図 2 b に見られるように、もとの $\langle 100 \rangle$ の各方位よりややずれた位置にある。このような現象は柱状晶の成長過程で往々見られることで、後述する例とあわせて検討する。

(b) やや速い凝固速度 (3.1 mm/mn) のとき

図 5 a の写真および b の極点図とマクロスケッチにやや速い凝固速度のときの結晶粒と方位を示す。結晶粒 A ~ J のうち、試片後半まで残った三つの粒 C, I, J は表 1 中段に見られるように、 γ がいづれも小さく成長しやすかったことを示している。ここで、I, J は、それぞれ D, E から発生したと考えられるが、もとの粒 D, E は表 1 でみられるように、 γ その他の値がかなり大きく、元来成長しにくいと考えられるが、柱状晶の出発点で試

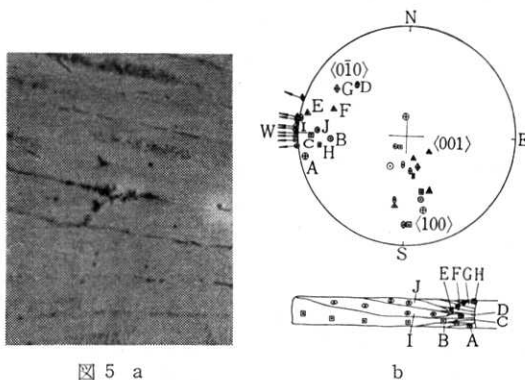


図 5 a

b

片の中央近にへ位置し、成長に有利であったため、若干伸びることができたのであろう。この例でも、 δ は I, J を除いた平均が、 3.3° であり、 α の平均 14.4° よりかなり小さく、セルは結晶の優先成長方向より熱流方向に、より沿うように成長しているといえる。

(c) かなり速い凝固速度 (35 mm/min) のとき

この場合は、図 6a, b および表 1 の下段に見られるようであって、柱状セルの部分はごく短かく、すぐ dendrite 状に成長している。前例と同様に、 $\langle 100 \rangle$ の一つが W 極のまわりに集中しているが、そのうち後まで残

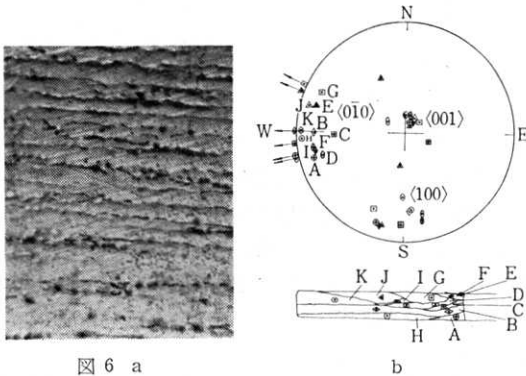


図 6 a

b

って行くのは粒 B だけであって、他はいずれも成長途中で新しい粒が発生して、それが引続いて成長している。表 1 は柱状晶が成長を開始した初期における各粒についての測定値であるが、前 2 例に反し、 α の平均は 2.5° で δ の平均 8.3° にくらべ、逆に小さくなっている。これは、凝固速度が速く、セルが dendrite 的に成長したため、セルが熱流方向より結晶の優先成長方向に、より沿うよう成長したことを示すと考えられる。もちろんこの場合でも、 $\langle 100 \rangle$ 軸が熱流方向と余り大きな角をなすような粒は成長していないことは変りない。

つぎにこれら凝固初期の柱状晶の成長過程で新たに発生し、もとの粒にとって代った粒 H, G, I, J, K および B など、試片の後半まで伸びている柱状晶の $\langle 100 \rangle$ 方位を見ると、図 6 の H~K のマークに見られるように、新しい粒の $[0\bar{1}0]$ 方向は、古い粒のそれよりさらに W 極のまわりに近く集中している。これは、前述したように、古い粒の多くの $[0\bar{1}0]$ 軸が、熱流逆方向に対し、 γ で $10\sim 20^\circ$ 前後の傾きをもっていたため、より成長しやすいように、 $[0\bar{1}0]$ が熱流逆方向に、一層平行に近い粒が発生したものと考えられる。したがって、古い粒とこれから発生したと考えられる新しい粒の間には、epitaxial な関係があり、前者のセルまたは dendrite セルの主幹から分岐して、後者が発生したものと推定される。ただラウエ写真と鏡検観察だけでは、具体的にどの粒とどの粒が epitaxial な継続関係にある

と断定することがむづかしかつたので、連続関係を図に示すことはしなかった。またこのような現象はもっと遅い凝固速度の場合でも（遅いほど数は少なくなる）が発生することは前 2 例でも述べた。これらの場合も成因は主幹が熱流方向に沿って成長するための epitaxial な枝分れてあると考えられ、前章でふれたような新しい結晶核発生ではないと考えられる。しかし、柱状晶の成長過程における新しい結晶粒の発生がつねにこのような epitaxial なものだけであるかについては検討の余地があり、また stray crystal の発生が報告されている例もあり²⁾³⁾、われわれも試片の一端を水冷しない場合には、末端で等軸晶が発生することを観察している。凝固中の核発生の問題は、結晶粒の方位だけでなく、組成、固液界面では温度勾配なども関連があると考えられるので、さらに総合的に検討する予定である。またここでは、試片表面の柱状晶についてのみ述べられたが、内部または裏面でも、試片が薄板のため、同一の結晶粒が成長していることが多く、傾向も同様であったので特にふれなかった。また鑄壁からの結晶粒の核発生と成長については、表面は自由表面であるため問題とならず、また試片の一端が水冷され、鑄壁の方がつねに高温であったから、鑄壁によるいわゆる不均一核発生はないと考えられ、また実際観察されなかった。

4. ま と め

アルミニウム銅二元合金の薄板を一方凝固させたときの柱状晶の生成、消滅過程を熱流方向、結晶方位との関係で検討した。要約すると

1) 柱状晶はその優先成長方向である $\langle 100 \rangle$ 軸のうち、試片長さ方向での熱流方向に最も平行に近い一つと熱流逆方向との傾角が小さい方が成長しやすく、そのより平行に近い粒が後まで残って巨大化している。

2) 1) の条件を満たす粒でも、柱状晶の成長開始期に試片の左右両縁に近い位置にあった粒は、成長途中で試片のふちに到達して消滅しやすく、中央付近にあった粒の方が生残りやすい。

3) 凝固速度が遅いと柱状晶およびその中のセルは優先成長方向より、熱流逆方向に沿うよう成長するが、速くなると優先成長の影響をより受け、その方向に沿うように成長する。

4) 熱流逆方向とそれに最も近い優先成長方向との間の角が比較的小さい ($5\sim 20^\circ$) 粒でも、成長の過程で新しい粒が発生することがあり、その優先成長方向は熱流逆方向により平行に近づいている。またその発生の頻度は、凝固速度が速くなるほど多くなる。前の粒と新しく発生した粒の間には epitaxial 関係があると考えられる。(1972年12月6日受理) p. 27 へつづく

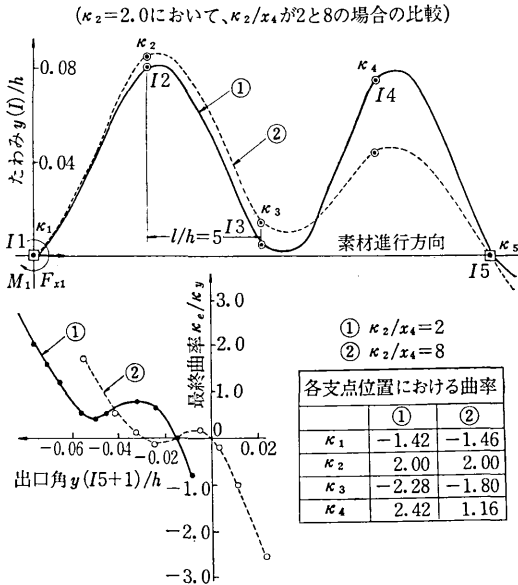


図 3 5 支点のモデル矯正機において矯正曲率配分 κ_2/x_4 が最終曲率—出口角曲線におよぼす影響

なわち出側で強く矯正した場合には、最終曲率をゼロとする出口角は唯一となることがわかる。

図 4 は、矯正機の支点数が最終曲率を真直にする出口角におよぼす影響を検討するために、横軸に支点数、縦軸に出口角をとり、最大矯正曲率配分の組合せ ($\kappa_2, \kappa_2/x_{n-1}$) をパラメータとして示したものである。

この結果より、 $\kappa_2, \kappa_2/x_{n-1}$ が大きく、かつ支点数が少ない場合ほど、出口角は下向き (κ_2 を得るために支

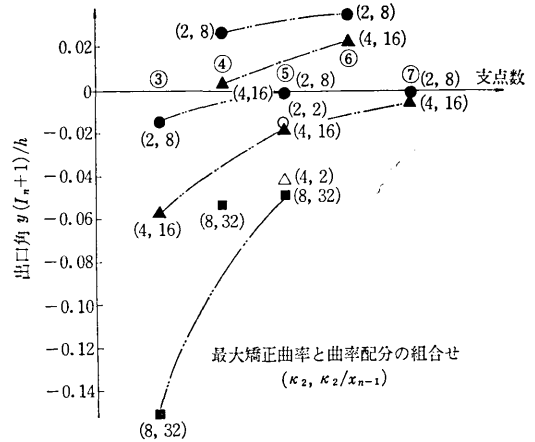


図 4 モデル矯正機の支点数が、最終曲率を真直にする出口角におよぼす影響

点を押込んだ向きと反対側) になり、また支点数が偶数個の場合には、奇数個の場合よりも出口角は上向きになる。

5. ま と め

前回、矯正作業における出口角を調整することにより、精密な矯正作業が可能なることを指摘したが、今回の矯正機の支点数・支点配置に対する検討により、さらに矯正技術の向上に必要な基礎資料が得られた。

最後に本研究は、東京大学鈴木弘教授の御指導を受けて行なったことを記し、深く感謝する。

(1972年12月13日受理)

参 考 文 献

- 1) 片岡, 一色, 高, 山沢: 生産研究 Vol. 23, 10 (1971), 34~37.
- 2) 仙田, 松田, 加藤, 中川: 溶接学会誌, Vol. 39, 7, (1970), 44~51, Vol. 40, 1, (1970), 25~34.
- 3) VerSnyder, F.L., Barrow, R.B., Pearcey, B.J.,

- Sink, L.W.: AFS Trans., Pearcey, B.J., Kear, B.H., Smashey, R.W., Trans. ASM., 60 (1967), 634~645.
- 4) Weinberg, F., Chalmer, B., Canad, J. Phys., Vol. 30 (1952) 488~502.