

一方向凝固させたアルミニウム-銅合金薄板の凝固組織

On the Structure of the Unidirectionally Solidified Aluminium-Copper Thin Plate

片岡邦郎*・一色貞文*・高 正植*・山沢富雄*

Kunio KATAOKA, Sadabumi ISSHIKI, Joung Shik KO and Tomio YAMAZAWA

1. ま え が き

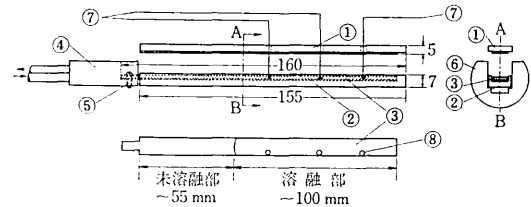
最近共晶合金、繊維合金など複合組織を持つ金属材料の有力な製造手段として、一方向凝固を利用する方法が開発され、実用の段階に入ったものもある¹⁾。また共晶組成ばかりでなく、固溶体範囲の組成でも、一方向凝固合金を熱処理して、第2相を配列的に析出させ、複合組織にして、高温で安定強力な合金を得たとの報告も見られ²⁾、広い組成範囲で一方向凝固合金の性質と用途を研究する必要が認められている。

われわれは、固溶体範囲の二元合金における、一方向凝固の進行過程を鏡検および X 線によって、連続的に追跡し、また凝固材料の機械的、物理的性質を研究する目的で、低濃度の Al-Cu 合金の棒状試料によって、凝固条件と凝固組織の検討を行なった³⁾。これらの目的には、棒状試料より板状試料の方が、凝固に伴う変化過程の追跡が容易で、また各種の検査にも便利であると考えられる。そこで、Al-0.4~1.4 wt% Cu 合金の薄板を一方向凝固させ、その凝固組織を鏡検して、凝固過程を追跡し、また長隙ラウエ写真、ピンホールラウエ写真等を撮って、铸造繊維組織と結晶方位の関係を検討し、一方向凝固合金製作のための多少の知見を得た。

2. 実験方法

凝固試料の製作方法は前に述べた³⁾ので、その要約と前と異なる点を述べる。

3種類の組成のアルミニウム-銅合金を、アルゴン雰囲気中で溶解後、铸造して棒状試料とした。これを圧延切削して、10×160×2 mm の短冊形の薄板試片とした。その銅含有量は、化学分析によると、0.4, 0.92, 1.40 wt% Cu であった。この試片を、同寸法内径のふた付きの横型黒鉛ボート状鑄型に装入したのち、試片の一端を水冷銅鑄型にねじ止めして、冷却した。図1にその寸法配置を示す。試片の一定位置3カ所に、C. A. 熱電対を挿入、アルミナセメントで固定したのち、鑄型全体を横型移動式電気炉の炉心管に装入した。真空中で脱ガスしつつ、試料を加熱溶融したのち、アルゴン雰囲気中に切替え、電気炉を一定速度 (0.4 mm, 2.7 mm, 13~26 mm/min) で移動させ一方向凝固させた。凝固試料はそのままで、透過および反射の長隙ラウエ写真を撮った。試片を各熱電対挿入箇所で切断し、4片に分け、その表



中央上: 鑄型側面図 右: 炉心管内の鑄型断面図 中央下: 一方向凝固薄板試料

①: 黒鉛中鑄型ふた ②: 中鑄型底部 ③: 薄板試料 ④: 銅製水冷冷し金 ⑤: 止めねじ ⑥: 黒鉛外鑄型 ⑦: C. A. 熱電対 ⑧: 熱電対挿入孔

図1 一方向凝固させた薄板試料製作のための鑄型と試料配置図

面、裏面 (鑄型底側) および必要によっては、縦断面を機械研磨、電解研磨したのち、ケラー氏液で腐食し、凝固マイクロ組織を顕出させた。さらに Al-0.92, 1.40 wt% Cu 試料の各部について、多数のピンホールラウエ写真を撮り、その場所における結晶方位を測定した。

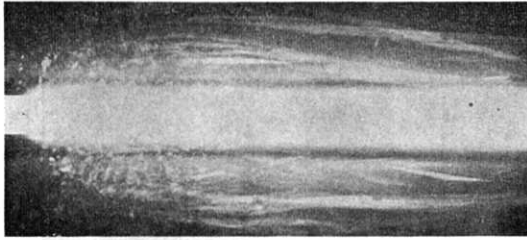
3. 実験結果

a. 長隙ラウエ写真

各凝固試料について、未切断のまま、試料表面 (鑄型ふた側)、裏面 (底側) に垂直に、試料長さ方向に平行な長隙スリットでしばった X 線 (銅対陰極, フィルターなし) を入射させて、長隙ラウエ写真を撮った。長隙ラウエ写真の理論および回折像の解釈については、別に報告する予定なので、説明は略すが、その回折像は、試料各部分の結晶粒の状態を連続的に反映していると考えられる。

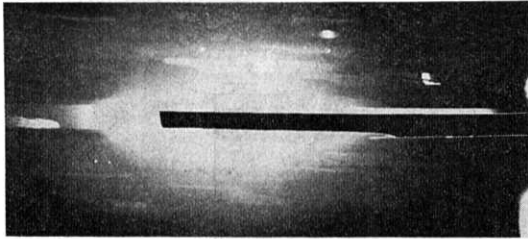
透過および反射の長隙ラウエ写真を見ると、凝固速度によって、多少の違いはあるが、各試料に共通して、凝固進行方向 (試料の長さ方向) に沿って、回折像に同様な変化が認められた。それによると、まず最初に、非溶融または溶融部の等軸多結晶からの反射と見られる無数のラウエ斑点が、幅広いデバイ環状に分布しており、斑点のうち幾つかは、凝固進行方向にひも状に伸び始めているが、その多くは成長のごく初期に、途中で短かく切れて終わっている。二、三の特に長く成長した結晶からの反射と見られる長い回折像は、幅が成長につれだんだん帯状に幅広くなっている。透過では、図2の写真 (a) のようにこの幅が狭く、像の長さも比較的短かく、たくさん重って見え、凝固速度の速い試料では、像の中に多

* 東京大学生産技術研究所 第1部



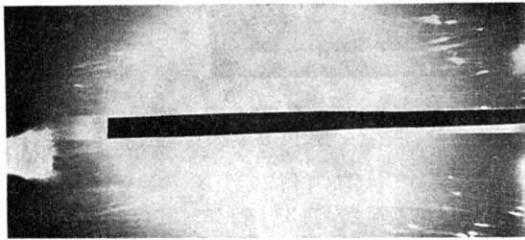
(a) 凝固進行方向→

Al-0.94 w % Cu 透過 試料表面側に対陰極 電気炉移動速度 2.7 mm/min



(b) →

Al-0.40 w % Cu 反射 試料表面側 2.7 mm/min 斑点中の大きい円は C. A. 熱電対の孔



(c) →

Al-0.94 w % Cu 反射 試料表面側 26 mm/min
図2 長隙ラウエ写真 (銅対陰極, フィルターなし, 30 kV)

くの条が末広がり走っているように見える。反射では、若干の幅広いベルト状に長く伸びた像(凝固速度が遅い, 0.4 mm, 2.7 mm/min 図2 (b))または数本のひも状に長く並列して伸びた像(凝固速度が速い, 13~26 mm/min 図2 (c))が見られた。また固々の带状、ひも状の回折像は、1本の一様に連続した像ではなく、带状像では、多数のサブグレインの反射と見られる等方的斑点がモザイク状にその中に配列しており、ひも状像でも、多数の細かく短い斑点が長さ方向に連続的に並んでいた。

これらの像は、後述するように、凝固進行に伴う鋳造組織の変化を反映していると考えられ、凝固組織の全体像を把握するのに役立つ。

b. 鏡検観察

各試方の表面、裏面を鏡検すると、凝固速度により多少相違はあるが、凝固進行方向(試料長さ方向)に沿って、長隙ラウエ写真の観察と同様な、次のような共通し

た変化過程をたどっているのがみられた。図3 (a)~(h)

(a)未溶融の微細樹枝状晶の等軸晶→(b)溶融大粒化した等軸晶→(c)凝固方向にやや伸びた等軸大粒からの柱状セルの成長開始→(d)各柱状セル相互の境界にCuに富んだNodeが点在し始める→(e)セル境界でのNodeの数の増加→(f)柱状セルの樹枝状晶セルへの変化に伴う樹枝状晶セル主幹の顕在化とセル側面での2次枝の生成→(g)樹枝状晶セルの肥大化に伴う2次枝の発達→(h)樹枝状晶セルの扇形状の展開。なお写真はAl-0.94 w % Cuの2.7 mm/min凝固速度の試料で、これよりCu組成の少ない試料では、巨大晶、柱状セルの部分が多く、多い試料では、樹枝状晶セルが早くから形成されたが、傾向は同じである。この過程を図に画くと、図4のようである。このようなセル形態の変化については、仙田、松田等⁴⁾が溶接凝固組織で観察して、Tillerの組成的過冷却の理論で説明しているが、この場合にも同様に定性的にはTiller理論で説明できると考えられる。それによると、試片の一端が水冷され、他端は強く過熱されているため、試料長さ方向に沿って温度勾配ができており、電気炉の移動による凝固進行に伴って、組成的過冷にある区域の幅 $x \approx \Delta T / G$ (ΔT はその濃度での平衡凝固温度よりの過冷度、 G は、固液界面での液体中の温度勾配)が増大する結果、凝固形態は、平坦面凝固→セル界面凝固→セルラードライト界面凝固と変化するためと考えられる。しかし実際には、試料長さ方向に沿って、 G は余り変化しないので、濃度 C_0 の項を含む ΔT が溶質濃縮に伴って増加するため、 x が増大すると考えるべきであろう。これについてはさらに詳細に検討する予定である。このように一方向凝固組織は、等軸晶から出発して、凝固進行方向に長く並列して伸びた多数の柱状セル、樹枝状晶セルから構成されているわけであるが、これをマクロ的に見ると、等軸晶が凝固進行方向に成長して行く過程で隣接する結晶粒間で、競合排除が行なわれ、最終的には、試片面は、二、三個の巨大晶で占められるようになる。この巨大晶の内部が、さらに前述した柱状セル、樹枝状晶セルから構成されているが、1個のセルが成長始端から末端まで連続して伸びているわけではなく、多数のセルが凝固進行方向に直列に連続して並んでおり、個々のセルは凝固方向に非常に長く引伸ばされた紡錘形であって、その幅は凝固進行に伴って、図5 (a)(b)に見られるように徐々に増大する。図5は柱状セルの成長開始線から、試料の長さ方向への距離を横軸に、試料長さ方向に平行なセルのセル幅、 dendriteセル幅を縦軸にとったもので、数cmの長い距離にわたって、セルの形態と幅が徐々に変化し

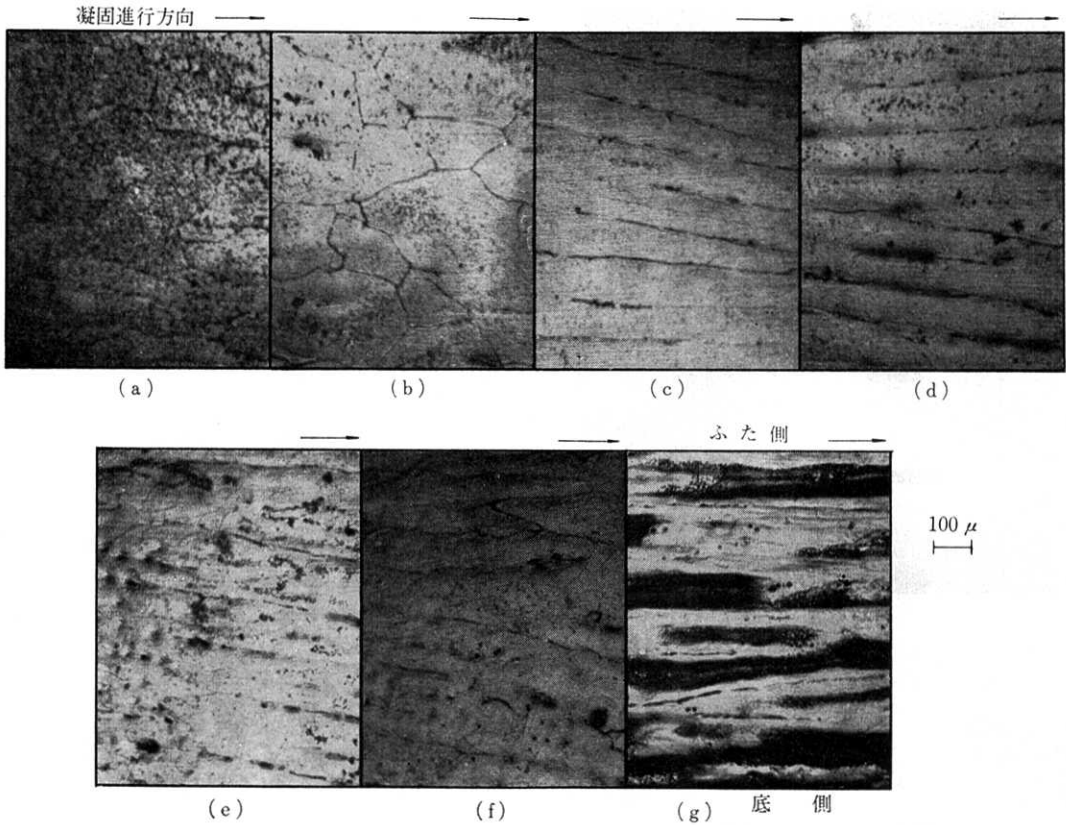


図3

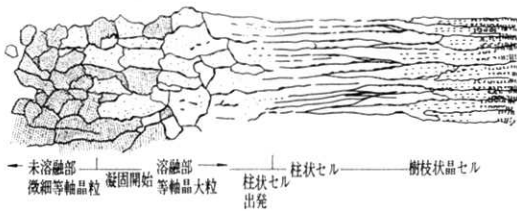


図4 一方向凝固組織における凝固進行にともなう組織の変化
 ていることがわかる。このような柱状セル、デンドライトセルの肥大化は、Flemings⁵⁾、鈴木等によって指摘されているが、数個の並列したセルのうち、一、二のセルの幅が狭く先細りになると、その両側のセルが消えて行くセルの領域を侵して、肥大化し、結果的に横断面でのセル個数が徐々に減少するという形で行なわれる。また柱状セルは際限なく肥大化するわけではなく、ある限度以上になると再び二、三のセルに分岐するか（低凝固速度）、またはセル中央にデンドライト主幹がだんだんはっきり現われ、また2次枝も主幹側面に出て、デンドライトセル（中、高凝固速度）になることが認められた。なお、図5（a）は、Al-0.92w% Cu、図5（b）はAl-1.40w% Cuで、セル幅は、凝固速度あるいは冷却速度（これらは電気炉移動速度に比例すると見なされる）

の増大に伴ってほぼ反比例して小さくなっている⁶⁾。また試片のたて断面では図3（g）に示すように試片表面（ふた側）から裏面（鋳型底面側）へ、非常にゆるやかな傾斜をもっているが、ほぼ試料長さ方向に平行になるように伸びている。これは温度勾配が試片中央から、鋳型内壁面（両側面および底面）へ向って高くなっており、結晶、セルの成長も同じ方向に向って進行していることを示している。したがって、セルの成長過程は試片表面の中央から始まって、両側の側壁の方向へ扇形に開きながら、やや下向きに凝固成長し、鋳型側壁または底面にぶつかって終るとい過程をたどると考えられる。このことは、通常の鋳物に見られる鋳型側壁からの heterogeneous nucleation はありえないだろうと考えられ、凝固進行に伴って、結晶粒の数が減少し、single crystal-like になることを予想させる。これは、マクロエッチおよびピンホールラウエ写真の結果でも確認されたが、これについては別稿で詳しく検討することにしたい。

(1971年8月16日受理)

参 考 文 献

1) 非常に多いがたとえば、Hertzberg, R. W., Lemkey,

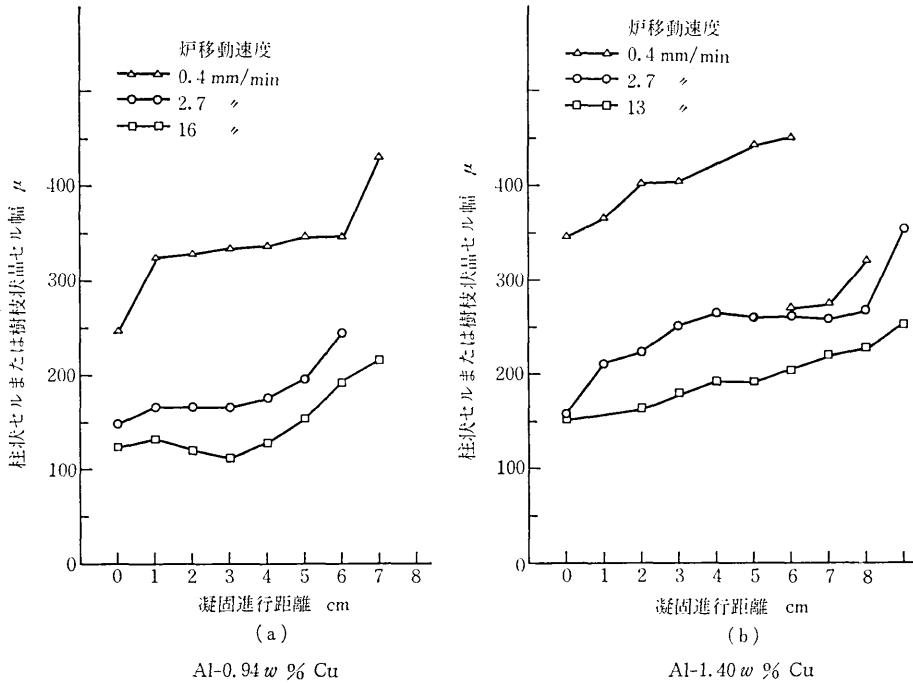


図5 凝固進行にともなうセル幅の変化

F. D.: Trans. Met. Soc. of AIME, Vol. 233, (1965), 342~354

2) Cahoon, J. R., Paxton, H. W.: Trans. Met. Soc. of AIME., Vol. 245, (1969), 1401~1409, 1411~1416

3) 片岡, 一色, 高, 山沢: 生産研究, Vol. 21, 11, (1969), 642~664

4) 仙田, 松田ほか: 溶接学会誌, Vol. 40, 1 (1971), 25~34

5) Brody, H. D., Flemings, M. C.: Trans. Met. Soc. of AIME Vol. 236, 5, (1966), 615~634

6) 茨本, 岡本, 岸武: 金属学会誌, 30, 11, (1966), 1068

正誤表 (9月号)

ページ	段	行	種別	正	誤
表2		5	目次	研究解説 活動等高線 (AC) についての基礎研究 (II)	研究速報 活動等高線 (AC) についての基礎研究 (II)
"		下5	"	Takashi AKUTSU	Takashi AKATSU
5	右	26	本文	表面積	表面積
"	"		表4	硫化カドミウム	硫化カドメニウム
7	"	下7	文献	A. C. Zettlemoyer	A. C. Zettlemoyer
17	左	13	本文	考える	考えるを考慮
"	"	23	"	$ \sin d/c(\pm \Delta\omega_0/2) \ll 1$	$1 \sin d/c(\pm \Delta\omega_0/2) \ll 1$
18	"	1	"	$1/F_m^2 = 1/F_D^2 + 1/F_0^2$	$1/F_m^2 = 1/F_C^2 + 1/F_0^2$
"	"	下2	"	Q曲線	曲線Q
"	右		図2	それぞれ依存する	それぞれ存する
"	"	5	本文	6328 Å	6228 Å
19	左	4	"	曲線	曲行
"	"	下1	"	図2の下図は上図の $d < 1\text{cm}$	図2の左図は右図の $d < \text{cm}$
27	"	下4	"	Vol. 23 No. 9 (1971)	Vol. 00 No. (1971)
42	"		Fig. 2(2)	droplets are seen to	droplets are seem to
"	"	9	訂正文	削除	(2) の seem を seen に訂正
45	"		脚注	Dept. of Mechanical	Eept. of Mechanical
52	左	3	ニュース	中川威雄助教授	中川威雄教授
"	"	2	筆者紹介	梶 和男 理博	梶 和男 工博