Al-Mg 合金の凝固条件による羽毛状晶の生成*

穴田 博**・舟木 克之***・中島 安治****
沢武 尚直*****・多々 静夫**

Formation of feathery crystals depending on the
solidifying conditions in Al-Mg alloys*

Hiroshi ANADA**, Katuyuki FUNAKI***, Yasuharu NAKASHIMA****
Hisanao SAWABU***** and Shizuo TADA**

The solidifying conditions for formation of feathery crystal in Al-Mg alloys were investigated by using unidirectional solidification and the new solidifying method "Graphite-Mold Submerging (GMS) process". This was able to control solidifying rate R and temperature gradient G respectively and its prominent feature was to submerge melt-filled mold heated at casting temperature into water bath directly. In the R - G diagram, the formation zone of feathery crystal in each composition of Al-Mg alloys was enclosed with suitable R and G respectively and its zone was shown as triangles between columnar and granular crystal zone. In view of relationship between G/R and R on the formation zone of each crystal structure, the feathery crystal zone overlapped columnar's and decreased continuously with increasing R . Therefore it is considered that feathery crystal is the peculiar structure belonging to columnar crystal.

Keywords: unidirectional solidification, graphite-mold submerging process, feathery crystal, G/R (constitutional under cooling), Al-Mg alloy

(Received January 30, 1986)

1. 緒 言

Al とその合金鑄塊中には羽毛状晶または、成長双晶と呼ばれる特異なマクロ組織が見られることがある。この組織は半連続鑄造による鑄塊中にしばしば観察される^{1)~7)}。我々は、羽毛状晶組織からなる半連続鑄造鑄塊が、良好な押出し特性を有することをすでに報告⁸⁾した。しかし、羽毛状晶生成のための鑄造、凝固条件に関しては、不明な点が多く、鑄造速度や温度による影響についても従来の研究結果は一致していない。すなわち、一般的現場鑄造については、横型連続鑄造による 1S 薄板の製造で、鑄造速度が遅い程羽毛状晶は出やすいとするもの⁹⁾のほか、DC 半連続鑄造による 6063 鑄塊の全羽毛状晶化の鑄造条件として、鑄造速度が大きく、鑄造温

度が高い程有利¹⁰⁾とする報告もある。

他方、実験室的には羽毛状晶の生成条件や発生機構の研究に一方向凝固が使われた^{11)~17)}。中谷ら¹⁴⁾は、生成条件の整理として、温度勾配 G と凝固速度 R の相対比 G/R すなわち組成的過冷項により検討し、 G/R 値が大きい程羽毛状晶は出やすいとしている。また本間ら¹⁶⁾は底面冷却速度 ($R \cdot G$) が大きい程、チル面上の結晶粒度が細かくなり、羽毛状晶が発生しやすいとしている。しかし一方向凝固法では R や、 G を独立に制御することは難しく、従って、いずれも羽毛状晶の生成条件としての R および G の個々の効果について詳細には触れられていない。

以上のように羽毛状晶の発生条件については、現場的にも、実験室的にもいまだ十分な理解が成されていない

* 本論文は軽金属学会第62回 (57-5) 及び第64回 (58-5) 春期大会に発表したものを中心にまとめた。

** 富山大学工学部 (富山市)。Faculty of Engineering, Toyama University (Toyama)。

*** 富山大学大学院 (富山市)。現石川県工業試験場 (金沢市)。Graduate School, Toyama University (Toyama), Presently at Ishikawa Prefectural Industrial Laboratory (Kanazawa)。

**** 富山大学工学部学生 (富山市)。現・ワシアルミ(株) (高岡市)。Student, Toyama University (Toyama), Presently at Washi Aluminum Co. (Takaoka)。

***** 富山大学工学部学生 (富山市)。現・吉田工業(株) (黒部市)。Student, Toyama University (Toyama), Presently at Yoshida Industry Co. (Kurobe)。

Fig. 1 Schematic representation of apparatus (a) unidirectional solidification and (b) Graphite-Mold Submerging process (GMS process).

ことから、ここではまず一方凝固でのチル面近くの冷却速度に注目して、羽毛状晶発生の凝固条件の整理を行い、これらの結果に基づいて、RとGを独立に制御可能な黒鉛鋳型沈下法を考案し実験した。その結果、凝固速度と温度勾配に基づく特定の羽毛状晶生成領域のあることがわかったので報告する。

2. 実験方法

実験には、一方凝固法と黒鉛鋳型沈下法とを用いた。Fig. 1(a)は、一方凝固装置で銅製チルプレートを紹介してシャワーで冷却させる。鋳型（外径70φmm、内径25φmm、高さ140mm）には断熱材を用いた。底面からの高さを変えて挿入した熱電対で冷却曲線を求め、これから冷却速度V_Lと凝固速度Rを計算し、 $V_L = G \cdot R$ の関係からGを求めた。

供試料としては、Alに対し固溶量が多く、また従来されている研究報告^{13)~17)}と対比し易いことから、Al-Mg合金を選んだ。鋳造に際し、溶湯温度、鋳型温度をそれぞれ、750°C、600°C一定としたが、チルプレート温度は予備加熱することで変化させた。加熱方法はプレート側面に埋め込んだニクロム線ヒーターを用いた。また鋳型への注湯後、一定時間の後、シャワー冷却を開始した。この時間を溶湯保持時間(H・T)と呼ぶことに

する。

Fig. 1(b)に示す黒鉛鋳型沈下法は、溶湯を入れた黒鉛製鋳型を直接水中に沈めて凝固させるものである。鋳型の降下速度は一定とし、鋳造温度と降下速度の組合せでV_L, R, Gをそれぞれ制御した。鋳型壁には上部から4~6本のシース型K熱電対(1.6φmm)を入れて冷却曲線を得た。鋳型サイズは外径50φmm、内径25φmm、長さ250mm、深さ235mmとした。鋳型の黒鉛には比重1.77、熱膨張係数 $10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 、熱伝導率100 kcal/m·hr·°Cのものを用いた。

(a)、(b)双方の方法とも冷却速度の算出は、各熱電対の冷却曲線上で、溶湯温度が液相線温度に達するまでの2秒間の平均速さで表示している。Rの算出については(a)の場合、各熱電対間を凝固界面が通過する時間を求め、距離—時間の相関図から、各位置の接線勾配を算出して求めた。(b)の場合、冷却速度から算出した凝固界面の高さが降下中変化しないことから、鋳型降下速度=凝固速度と考えた。

Table 1は試料分析値を示す。(a)の実験では高純度Al(99.99%以上)地金を用い、(b)では組織変化が明瞭に現出しやすいFe, Si, Tiなどを比較的多く含む地金を用いた。Mgは双方とも99.9%純度のものを用いた。

Table 1 Chemical analysis of billets (wt%)

	Mg	Fe	Si	Ti	Cu	Mn	others	
Al-1%Mg	1.14	0.01	0.010	0.001	0.002	0.001	tr	solidified by US process
1.5 "	1.53	0.002	0.002	0.001	0.002	0.006	tr	
3 "	3.09	0.004	0.001	0.001	0.004	0.010	tr	
5 "	5.07	0.002	0.009	0.001	0.003	0.024	tr	
7 "	7.05	0.006	0.012	0.001	0.001	0.003	tr	
3%Mg	2.94	0.283	0.107	0.023	0.025	0.006	tr	solidified by GMS process
5 "	4.73	0.258	0.105	0.016	0.023	0.005	tr	
7 "	7.05	0.285	0.115	0.020	0.027	0.007	tr	

3. 一方向凝固法による羽毛状晶の生成条件の検討

中谷ら^{13),14)}, 本間ら^{15),16),17)}は, 共にチルプレートに近接したチル晶あるいは柱状晶間に, 羽毛状晶の発生起点があることを示している。双方ともそれぞれに底面冷却効果が大きい程羽毛状晶の発生が容易になるとも述べている。この理由を中谷らは, 冷却効果を大きくすると組成的過冷が大きくなり, 羽毛状晶生成のための臨界 G/R 値に達するためだとし, また本間らは, 結晶微細化効果が大きくなることと結びつけた。しかし, 両者とも底面冷却が効果的であるとする定性的な扱いで, 発生条件として冷却速度 V_l や, R や G などについて詳しい検討を行っていないわけではない。ここでは底面冷却板近傍の条件を定量的に扱い, 羽毛状晶発生条件を整理しようと試みた。Fig. 2 は Al-5%Mg 試料について, チルプレート予備加熱温度と組織の関係を示す。冷却板が, 特定の温度範囲にあるときに羽毛状晶が発生するのがわかる。これは Mg 濃度を変えた場合にもみられた。

Fig. 2 では 300°C のチルプレート温度 (C·P·T) のとき, 底面から約 2 mm の柱状晶の間から発生して扇形に成長した。この時の試料について凝固条件の変化を Fig. 3 に示す。Fig. 3 は, G , R および G/R をチルプレートからの距離 d に対して示した。図のように一方向凝固では, チル面からの距離の増大と共に, それぞれが急激に減少するにもかかわらず, 組織的にみるといつたん発生した羽毛状晶は, 条件によらず安定成長しているようである。ここで, 羽毛状晶が底面近くで出やすいことから, この条件を調整すれば羽毛状晶の発生を制御することは可能であると考えられる。そこで次の実験を行った。

Fig. 4 は, C·P·T と鑄塊各部での V_l の関係を示す。 d が一定の時, C·P·T を増加させると, V_l は直線的に減少するので, C·P·T を変化させ V_l を制御できることがわかる。従来, 底面冷却の効果を変えるためには, チル

Fig. 2 Macrostructure of Al-5%Mg alloys solidified unidirectionally at various temperatures of chill plate.

プレート形状を波形にしたり¹³⁾, 冷却水量を変えたり¹⁷⁾されているが, ここではチルプレート温度を変え, また, Al-Mg 合金について溶質濃度および冷却速度を変えて羽毛状晶の発生を調べた。鑄塊によりそれぞれ若干異なるものの, 発生起点はおおよそ $d \leq 2 \sim 3$ mm 程度であった。Fig. 5 では, それぞれの Mg 濃度について, $d=5$ mm で求めた冷却速度と羽毛状晶の発生領域の関係を示す。Mg 量とともに羽毛状晶の発生域が広がり, また濃度によらず一定の下限値を示す傾向が知られる。

従来, 底面での冷却効果が大きい程, 羽毛状晶が発生しやすいと考えられていた。たとえば, 本間ら¹⁶⁾は, 底面でのチル晶を微細にすると羽毛状晶の成長方位に好都合な結晶の数が多くなるためとしている。Fig. 6 は, 本実験で $d=5$ mm で測定した結晶粒径 (柱状晶) と V_l

Fig. 3 Variation of solidifying conditions due to difference of distance from chill plate of unidirectional solidification billet.

Fig. 4 The influence of chill plate temperature on cooling rate in Al-5%Mg alloys solidified unidirectionally.

の関係を示す。VIが増大すると結晶は細くなっている。この傾向はMg濃度が低い程顕著となる。黒塗り印は羽毛状晶が認められた試料で、これより3~5%MgのようにVIが大きく、従って微細結晶となつても羽毛

Fig. 5 Relation between cooling rate at $d=5\text{mm}$ and Mg content for formation zone of feathery crystal in Al-Mg alloys solidified unidirectionally.

状晶が生成しないこともあり、結晶微細化は羽毛状晶生成の十分条件ではないと考えられる。

中谷ら¹⁴⁾は、一方向凝固ではGとRの制御は困難であるとした上で、羽毛状晶の生成条件として組成的過冷項G/Rの検討を行つた。その結果、羽毛状晶の生成のためには臨界G/R値を越える凝固条件が必要としている。この臨界G/R値は、溶質濃度が大きい程小さく、また一方向凝固では、冷却効果が大きい程大きいG/R値が得られやすいとしている。しかし本実験結果では、G/Rについても、適性範囲があることが示された。Fig. 7はAl-5%Mg合金試料について、 $d=5\text{mm}$ におけるVIと、その構成要素であるRとGを対比させたものである。同時にG/Rをも計算し示した。●印は、 $d=5\text{mm}$ で羽毛状晶が認められたものである。

C・P・Tだけを变化させる方法によると、冷却速度は主として凝固速度により変化して温度勾配にはあまり依存しない。従つてVIが大きくなればG/R値を小さくすることになり、中谷らの見解とは異なる。また羽毛状晶試料は、G/R値が $700\sim 400^{\circ}\text{C}/\text{cm}^2\cdot\text{sec}$ の範囲にあつて、羽毛状晶の生成には適性条件のあることが示唆され

Fig. 6 Influence of cooling rate on grain size substituted by width of columnar crystals at $d=5$ mm of Al-1.5~7%Mg alloys solidified unidirectionally.

Fig. 7 Relation between R , G , G/R and Cooling Rate due to controlling of chill plate temperature in unidirectional solidification for Al-5%Mg alloys.

る。Fig. 7によれば、 G が $100^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ の場合、 R が $0.15\sim 0.25\text{ cm/sec}$ で羽毛状晶が生ずるともいえる。しかし、 G が変れば R および G/R の範囲も変化するはずであり、 G や R を個々に制御できる方法として次の実験を行った。

4. 黒鉛鑄型沈下法による凝固条件の検討

4.1 黒鉛鑄型沈下法

凝固速度を任意に調節するには、 $D\cdot C$ 半連続鑄造法が適する。しかし、装置が大きくなること、側面冷却に頼るので凝固界面形状が一方凝固のように平坦ではないこと、鑄塊凝固時の冷却曲線を得るのに多くの制約があることなどから Fig. 1 に示した黒鉛鑄型沈下法を考えた。この種の凝固方法としては、超合金におけるタービンブレードの溶製のための LMC 法¹⁸⁾がある。本法では、水槽上部の環状炉内で溶湯を鑄型に注入して、その後、所定温度になってから一定降下速度で水中に沈める。この時鑄型内に挿入した熱電対で冷却曲線を記録してこれを解析した。

鑄型に黒鉛を用いたのは熱伝導が良く、熱衝撃にも強く、また加工性が良いことなどによる。反面、約 800°C 以上の温度では、燃焼消耗が激しくなる。そのため気密性がそこなわれ繰返して使用すると鑄型内に水蒸気の影響が出ることがあるのでこの点に注意した。Fig. 8 は降下速度 ($D\cdot S$) 100 mm/min の時の鑄型壁および溶湯中双方で同時測定した冷却曲線を示している。曲線形状には液相線近くで差がみられ、冷却速度は鑄型壁で求めたものがわずかに大きい傾向がある。しかし、液相線温度までの到達時間のずれはほとんど見られず、凝固界面位置の算出に対して鑄型壁の中での測定でも影響が無いものと考えた。しかし $D\cdot S$ が 60 mm/min 以下になると底からの距離と共にずれが大きくなった。

Fig. 9 は $D\cdot S$ が $90, 120\text{ mm/min}$ で、鑄造温度を 730°C と 770°C を目標とする 3 種類の試料について、鑄造温度、冷却速度、凝固界面位置等の変化を鑄塊長さ方向について調べたものである。温度制御され、全長にわたり VI もほぼ一定している。凝固界面位置は水面を基準とした高さで示した。鑄造中の界面高さが変化しないことより、降下速度 = 凝固速度といえる。凝固界面は $D\cdot S$ が大きく鑄造温度が高い程水面に近づき、ついには水面下でバランスする。

本法では降下速度を変えることで R の設定は容易である。また鑄造温度を変えることで VI も変えられることが Fig. 10 からわかる。図では鑄造温度と VI の関係をそれぞれの降下速度について示している。以上のように本法では降下速度と鑄造温度を制御することにより凝固鑄塊中の R および VI 、従って温度勾配 G をも設定で

Fig. 8 Comparison of cooling curves both in graphite mold and in melt of Al-5%Mg alloy solidified by GMS process.

Fig. 10 Relation between casting temperature and cooling rate for each descending speed (=solidifying rate R) of GMS process in Al-5%Mg alloy.

Fig. 9 Change of conditions in progress of solidifying in Al-5%Mg by using GMS process.

きる。

Fig. 11は Al-5%Mg の D・S=90 mm/min の時の鋳造温度を変えて得た、柱、羽毛状晶、粒状晶のそれぞれの組織を示す。Al 地金中には、Fe、Si、Ti などがあり、比較的粒状晶鑄塊が得やすい組成としているので、次の項

Fig. 11 Macrostructure of billets in Al-5%Mg alloy solidified by GMS process;
solidifying conditions

	casting temp. (°C)	R (mm/min)	cooling rate (°C/sec)	G (°C/cm)	S.P* (mm)
(a)	810	60	12	120	10
(b)	760	90	13	87	12
(c)	800	90	17	113	5
(d)	810	90	22	147	2

*S.P: solidification position on the basis of water surface

Fig. 12 Relation between cooling rate and solidifying rate on the formation zone of each crystal in Al-3% and 7%Mg alloy.

Fig. 13 The formation zone of feathery crystal shown by relation between G and R in Al-7%Mg alloy.

で述べるように柱状晶，羽毛状晶，粒状晶それぞれの生成条件が明瞭に区別できた。本法では，鋳塊中の羽毛状晶の発生起点が底面に特に近いということではなく，大部分は，底から20～40 mmのところから生ずることが多く，凝固条件の整理には $d=40$ mmでの測定値を用いることにした。羽毛状晶発生時のまわりの組織は，粒状晶であることが多かった。

4.2 Al-Mg合金の羽毛状晶の生成条件

3, 5, 7%Mg合金試料を用いて鋳造温度と黒鉛鋳型の降下速度を変えながら鋳塊組織を変化させた。その結果をそれぞれの溶質濃度毎に R と VI の関係に整理して Fig. 12にまとめた。Fig. 12によれば羽毛状晶生成域は，

柱状晶と粒状晶領域にはさまれて存在する。一定の冷却速度域で羽毛状晶が生成するこの傾向はすでに Fig. 5でもみられたが，ここでは溶質濃度との関係のほかに， R が大きい程この領域は狭くなることがわかる。このうちの7%Mg合金を例として， $VI=R \cdot G$ の関係から G を求め，Fig. 13および Fig. 14のように，羽毛状晶の生成条件としての G と R および組成的過冷項 G/R と R による関係で示される。Fig. 13では，それぞれの組織の境界が直線的に現れた。Fig. 14で示される羽毛状晶生成領域は， R が大きくなるとともに狭くなり，かつその G/R 値は全体的に低下する。凝固速度が一定値を越えると羽毛状晶は発生しない。

3および5%Mg合金についても同様の傾向が見られた。これをまとめて溶質濃度と G/R の関係として示すと，Fig. 15となる。これに示された三角領域は羽毛状晶生成域を示し，上限は羽毛状晶と柱状晶の，下限は羽毛状晶と粒状晶の境界を表す。この領域は，濃度の増大に伴い広がる。また凝固速度が小さいほど領域は広がるが，羽毛状晶と粒状晶の境界線（●印）の傾きは，凝固速度が変わってもあまり大きな変化をしないが，羽毛状晶と柱状晶との境界線（○印）の傾きは，速度により大きく変化していく。

Al-Mg合金について，柱状晶から粒状晶へ遷移する凝固条件を整理したものに Winegardら¹⁹⁾の報告がある。彼らは，Al-1～10%Mg合金を黒鉛鋳型内で凝固させ，1本の鋳塊中で G と R をいろいろ変化させるようにし，各濃度の合金について，組織変化に対応する遷移条件を $G/R^{1/2}$ で整理した。Fig. 15を $G/R^{1/2}$ で整理したのが Fig. 16である。Winegardらは，超高純度AlおよびMgを用いており，双方の合金組成が違うので， $G/$

Fig. 14 The formation zone of feathery crystal shown by relation between G/R and R in Al-7%Mg alloy.

Fig. 15 Relation between G/R , R and Mg contents on the formation zone of feathery crystal in Al-Mg alloys.

$R^{1/2}$ の絶対値の比較は困難である。彼らは Al-5%Mg 試料の遷移条件として、 $G=2.09^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ 、 $R=0.029\text{ cm/sec}$ を示している。Fig. 16の本実験のものでは、羽毛状晶と粒状晶の境界は、 R の変化によらず固定しており、また一定値以上の R においては、これはそのまま柱状晶と粒状晶の境界を意味するものと考えられる。そこでこの境界を基線として柱状晶生成領域内に羽毛状晶領域が広がると思われる。

以上、凝固条件から見て、羽毛状晶は、柱状晶生成領域内に表れる特異な組織と性格付けできよう。マクロ組織的に見た羽毛状晶が、粒状晶より柱状晶に近いのは明らかであるが、成長形態を決めるとされる組成的過冷項からの検討からもこのことが裏づけされたことは、極め

Fig. 16 Schematic formation zone of each crystal arranged by $G/R^{1/2}$ term in Al-Mg alloy; (a) present study; (b) by Winegard; solid line showing borderline between columnar and granular crystal and broken line showing between columnar and feathery crystal.

て重要と思われる。

5. 現場鑄造での羽毛状晶鑄塊発生に関する考察

従来、現場鑄造における羽毛状晶鑄塊の発生について、主に鑄造速度の影響について論議されてきたが、本研究結果からは鑄造温度も大きな要因として考慮せねばならないのがわかった。また鑄塊を羽毛状晶化しようとする場合、もとの組織によってその方策が異なるであろう。しかし合金系をちがえても柱、羽毛、粒状晶のそれぞれの生成条件についての R と G で示す一般的傾向は本実験結果と同じと予想されるので、柱状晶→羽毛状晶の場合は、温度を下げるか鑄造速度を大きくし、また、粒状晶→羽毛状晶には、温度を上げるか鑄造速度を小さくするのが効果的と考えられる。実際の例として、薄板の横型連続鑄造のように比較的鑄造温度が低い状態で鑄造する場合、粒状晶が出やすく、これを羽毛状晶化するには、速度は遅いほうが有利であろう。反面、6063鑄塊のD・C半連続鑄造のように、生産性の点から比較的鑄造速度の大きい鑄造では、鑄塊を羽毛状晶とするには、鑄造温度を高くするのが有利といえよう。要は現場操業条件が、それぞれの合金の羽毛状晶生成領域に対してどのように位置するかで方策は異なり、温度規制か、鑄造速度を規制するかが決まる。6063鑄塊について羽毛状晶化条件を鑄造温度と鑄造速度で示した先の我々の報告¹⁰⁾は、本研究結果とは矛盾しない。

6. ま と め

Alとその合金に特有な鑄塊マクロ組織である羽毛状晶生成の凝固条件についての検討は、従来、一方向凝固法を用いてなされたため、凝固速度 R および温度勾配 G の個々の影響について詳細な検討がなされたことが

なかった。また現場鑄造においても羽毛状品の発生についての一致した見解がみられなかった。我々は、Al-Mg 合金を試料として、独自に考案した黒鉛鑄型沈下法で、R と G をそれぞれ制御した条件下で羽毛状品の生成条件を詳細に検討することができた。特に柱状品、粒状品との相互関係における羽毛状品の位置づけができた。

本実験の結果は次のように要約できる。

(1) 一方向凝固によっても、チルプレート加熱温度を変化させることで、チルプレート近辺の冷却速度を制御できた。従来、冷却速度が大きいかほど羽毛状品は発生しやすいと考えられていたが、適性な冷却速度域内でのみ羽毛状品の発生が見られることがわかった。この領域は、溶質濃度が大きくなると広がるが、下限値は濃度によって変化しない傾向を示した。

(2) 一方向凝固と、D・C 半連続鑄造の双方の結果を結びつける凝固法として、黒鉛鑄型沈下法を考案した。この方法では R と G を独立に制御できた。

(3) 羽毛状品の生成条件として、適性な R と G に囲われた三角領域が示される。この領域は、柱状品および粒状品領域の間に存在した。R が大きくなると共に、この領域は狭くなり、一定凝固速度を越えると羽毛状品は生成しない。

(4) 組成的過冷項 ($G/R^{1/2}$) と溶質濃度による凝固組織の整理から、本来は柱状品が生成すると考えられる領域内において、羽毛状品が生ずることがわかった。これより羽毛状品を、柱状品の性格をもつ特異な組織と位置づけられる。

(5) 羽毛状品鑄塊の現場鑄造条件は、合金組成、鑄造速度および鑄造温度等が同時に論議されねばならない。鑄塊の羽毛状品化の方策は、元の組織並びに鑄造法の特性によつて、温度規制とするか、速度を規制するかを選択する必要がある。

本研究に用いた Al 地金の調査に関して、住友アルミニウム製錬㈱の御厚意をいただきましたことを記し、深く感謝いたします。また本研究の実施に際し、一部軽金属学会の御援助を頂いたことを付記し、併せて感謝申し上げます。

参 考 文 献

- 1) J. Herenguel: *Revue Met*, **45** (1948), 139.
- 2) K. T. Aust, F. M. Krill and F. R. Morral: *Trans AIME*, **194** (1952), 78.
- 3) W. Roth and M. Schippers: *Z. Metal K*, **47** (1956), 78.
- 4) Hans Zeiger: *Z. Metal K*, **52** (1961), 632.
- 5) Y. M. Vaynblat: *Phys. Metals. Metallog*, **19**(3) (1965), 93.
- 6) D. Altenpohl and A. F. Steinger: *Memories Sci. Rev. Metallurgy*, **65** (1968), 579.
- 7) J. A. Eady and L. M. Hogan: *J. of Crystal Growth*, **23** (1974), 129.
- 8) 室町, 多々, 時沢, 穴田: 軽金属, **30** (1980), 545.
- 9) B. Radonjic: *Aluminum*, **58** (1981), 646.
- 10) 室町, 穴田, 多々, 時沢: 軽金属, **30** (1980), 537.
- 11) 中尾, 古沢: 軽金属, **27** (1957), 5.
- 12) L. R. Morris, J. R. Carruthers, A. Plumtree and W. C. Winegard: *Trans AIME*, **236** (1966), 128.
- 13) 中谷, 清水, 福田, 橋本: 軽金属, **18** (1968), 165.
- 14) 中谷, 清水, 福田, 橋本: 軽金属, **18** (1968), 217.
- 15) 渡辺, 本間, 雄谷, 橋本: 軽金属, **19** (1969), 279.
- 16) 松石, 本間, 雄谷, 橋本: 軽金属, **19** (1969), 287.
- 17) 宮沢, 本間, 雄谷, 橋本: 軽金属, **22** (1972), 143.
- 18) A. F. Giamei and J. G. Tschinkel: *Metall. Trans A*, **7A** (1976), 1427.
- 19) T. S. Plaskett and W. C. Winegard: *Trans. Amer. Soc. Metals*, **51** (1959) 222.