研究論文

羽毛状晶における双晶境界の増殖*

穴田 博**・橋本 行史***

多々 静夫**・堀 茂徳****

Multiplication process of twin boundaries in feathery crystal*

Hiroshi ANADA**, Takashi HASHIMOTO***

Shizuo TADA** and Shigenori HORI****

Feathery crystals formed in Al-5 mass%Mg alloys unidirectionally solidified were microscopically observed at intervals of about ten micrometers for examining multiplication of twin boundaries. Two types of site for multiplication of feathery crystals are found. Type I is that a new twin boundary originates at a site separating from preexisting twin boundaries. And type II is that a new twin crystal originates at a site on the subgrain boundary generated in either individual of a preexisting twin crystal. These types of twin multiplication have particular features of the variations of length and spacing of twin boundaries.

Keywords: feathery crystals, growth twin crystals, twin boundaries, multiplication of twin boundaries, Al-Mg alloys, unidirectional solidification

(Received April 19, 1988)

1. 緒 言

羽毛状晶鑄塊の組織の特徴は鑄塊縦断面によく表れ、そこでは双晶境界が凝固方向に向かって次第にその数を増しながら放射状に拡がっていくことを示すマクロ組織が観察される。第一番目の双晶境界の発生については、今迄は結晶粒内における転位あるいは積層欠陥などを媒体とする双晶の二次元核の形成によるものとする本間らの説¹⁾が有力と見なされていた。しかし発生起点を詳細にミクロ組織観察したところ、互いに(111)面を共有できる関係にある結晶が隣り合って成長するとき、その間の粒界が次第に双晶境界に変化していくことがわかった²⁾。その後なお問題点として残された双晶境界の増殖機構を明らかにするため、さらに羽毛状晶鑄塊の横断面での連続的なミクロ組織観察を行った。その結果、増殖パターンを、(1)既存の双晶境界そのものが増殖の起点となるも

の、(2)既存双晶の片側結晶内に生じた亜粒界上に起点をもち双晶が形成されるものに分類でき、それぞれの特徴ある増殖機構についても検討できたので報告する。

2. 実験方法

前報²⁾と同様の凝固条件の下で一方向凝固して得たAl-5%Mg合金鑄塊のうちで、双晶境界が比較的鑄塊軸方向に対して左右バランスよく成長しているものを選び、この発生起点付近を切り出し樹脂埋めして、上部から発生起点に向けて横断面のミクロ組織観察を繰り返した。試料の研磨、腐蝕等の方法は前報²⁾と同様なので省略する。双晶境界数が十数本程度になるまでは粗研磨し、以後数～十数 μm ごとにノルスキー型微分干渉顕微鏡で組織写真を撮り、組織変化、双晶境界長さおよび間隔等について整理した。

* 軽金属学会第70回春期大会(昭和61年5月)で一部発表。

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

*** 富山大学大学院(富山市)[現在:高岡工芸高校(高岡市)]。Graduate School, Toyama University (Toyama-shi, Toyama) [Present: Takaoka Technological High School (Takaoka-shi, Toyama)]。

**** 大阪大学工学部(吹田市)。Faculty of Engineering, Osaka University (Suita-shi, Osaka)。

3. 実験結果

3.1 双晶境界の連続的観察

一本の試料の中で、羽毛状晶がどのように増殖、成長するかを調べた。観察は19本にまで双晶境界が増殖した段階から発生起点に向けて進めた。この観察結果に基づき、第一本目の双晶境界を基準（縦軸）として、成長方向についての双晶境界の相互の関係を Fig. 1 に示している。番号は発生順序を表す。

Fig. 2 は⑩の双晶境界の生成過程の観察結果である。実際の観察は(d)から(a)の順序で行い、観察している双晶境界が消滅したときを基準とし、これを $h=0\mu\text{m}$ で表示する。(a)では本来直線のはずの⑩の双晶境界の一部に微小な湾曲が生じ、次に(b)では、この湾曲部が⑩の双晶境界と平行な直線となり、またさらにこの直線の両端には図のように亜粒界が見られるようになり、新たな双晶として独立し始める。そして成長につれ(c)のように、双晶境界長さおよび元の双晶境界との間隔を拡張、ついには(d)のようにもとの双晶境界からは完全に独立する。なお(d)における結晶Cの生成については後で言及する。

Fig. 3 は⑪の観察結果で、(a)には関連する結晶の相互関係を示しており、既存の②の双晶境界の片側をA、これと隣接する結晶を順に1、2およびCとする。(a)～(e)の一連の変化にみられるように、⑪は(b)に見られるA'結晶の粒界に起点を持ち、ここから双晶境界が形成されたことを示す。このA'結晶は、はじめ輪郭がき

Fig. 1 Mutual relation of twin boundaries near the origin of feathery crystal in Al-5%Mg alloy unidirectionally solidified.

Fig. 2 Micrographs of multiplication process of twin boundary ⑩ in Fig. 1.

Fig. 3 Micrographs of multiplication process of twin boundary ⑪ in Fig. 1.

Fig. 4 Micrographs of twin boundaries showing multiplication process of Type I.

わめて不鮮明な状態でA結晶内に生じ、成長につれ次第にはっきりとした粒界を形成しだすことより亜結晶と見なされる。すなわちFig. 3ではまず亜結晶が生成の後、この結晶に関与する双晶が生じて増殖する。なお結晶Cは、結晶1, 2および結晶Aとの粒界三重点に生じ、(a)(b)におけるA-C境界、あるいは(c)におけるC-A'境界にはいずれも直線部分がみられ、また双晶境界とは平行であることから、前報²⁾でその生成の可能性を考察した焼鈍双晶と見られる。A'の成長に伴いやがてCは消滅する。

このほかの16の観察例いずれについても結果はFig. 2又はFig. 3いずれかのパターンに酷似していることより、増殖のパターンを次の二つに分類した。

- (1) 既存双晶境界の一部分が起点となり新しい双晶境界が形成される……タイプI
- (2) 既存双晶の個体内に亜結晶が生じ、この粒界上に起点を持つ双晶の発生により双晶境界が形成される。……タイプII

3.2 双晶境界の長さおよび間隔の変化と増殖タイプとの関係

Fig. 4は、別の铸塊におけるタイプIについての典型

Fig. 5 Micrographs of twin boundaries showing multiplication process of Type II.

的な組織変化を示す。 $h=18\mu\text{m}$ 辺りで双晶境界にわずかなずれが見られ、このまわりに亜粒界と見られる不鮮明な境界線も生じている。(b)(c)と成長につれ段差、すなわちもとの双晶境界との間隔は次第に大きくなり、粒界も明瞭になる。そして独立した双晶となる。Fig. 5は、Fig. 4と同一铸塊にみられたタイプIIによる典型的な増殖過程の組織を示す。増殖双晶の起点と思われる位置を $h=0\mu\text{m}$ として、これよりさらに下面をマイナス記号で表示した。亜結晶をまず生じ次にこの粒界上に新たな双晶が生じる。以上のFig. 4およびFig. 5について、双晶境界の長さ、既存双晶境界との間隔を次に整理した。

Fig. 6は、铸塊底面からの高さに対して(a)双晶境界長さ、(b)双晶間隔の変化を示す。双晶境界の長さについては、共に二段の変化がみられるもののタイプIでははじめその成長は遅く、タイプIIでははじめに速いという異なった傾向を示す。タイプIの変化については、Fig. 7のように元の双晶境界から分離独立すると成長が速くなることより、増殖した双晶に対しては、何等かの形でもとの双晶境界の拘束力が働いていることが強く示唆される。一方、IIのタイプについてはA'の全幅にまで双晶境界が広がるまでがその成長が速くて、以後は遅くなる。

双晶間隔についてはI, II共に組織上の変化に対応するような変化は見られず、高さに比例して大きくなる。しかし(b)によれば起点付近においてIとIIには大きな相違がみられる。すなわち、タイプIでは間隔0からグラフがスタートするが、タイプIIでは既存の双晶境界とははじめからある間隔を持っている。双晶境界長さについては一般にタイプIIでは0からスタートする。

Fig. 6 Relation between (a) length of twin boundary and (b) spacing of twin boundaries and distance from chill plate of feathery billets unidirectionally solidified. I and II correspond to measuring of new twin boundary in Fig. 4 and Fig. 5 respectively.

Fig. 7 Relation between length of twin boundary and crystal shape in multiplication process in Fig. 4.

Fig. 8 に前出の Fig. 1 の②～⑨について双晶間隔の変化をまとめて示している。組織観察結果から判断した I, II のタイプ分けと上記の特徴はよく一致している。またこれより間隔の変化はどれも直線的で、隣接の双晶境界との成す角度については I と II との区別はなく、3～14度の範囲で変化しており、平均すると7度前後といえる。また I と II の比率はほぼ1対1といえる。

同じく双晶境界長さについて、Fig. 9 にまとめて示す。I, II の特徴は増殖の初期段階に比較的良好に見られるが、次第にどれもよく似た勾配を示すようになり、後記では同じように成長し、発生の様式による差異がな

Fig. 8 Variation of twin boundaries spacing to distance from chill plate on each twin boundary in Fig. 1.

Fig. 9 Variation of twin boundary length to distance from chill plate on each twin boundary in Fig. 1.

くなるのがわかる。以上、タイプ I および II の判別は、詳細な観察を何回か繰り返しながらその増殖起点に迫ることで初めて明らかになるものと言える。

4. 考察

従来から羽毛状晶の生成に関しては、多くの報告がな

されているが、増殖の機構にまで言及しているのは、本間ら¹⁾、J. A. Eady ら³⁾の外には見当たらない。ただ鉱物にみられる Lamellar 双晶についての発生起源として変形双晶を述べた例がある⁴⁾が、これは直接羽毛状晶について述べておらず、また変形双晶を Lamellar 双晶の起源とする根拠およびそのメカニズムについては触れていない。このうち本間ら¹⁾は、新たな双晶は、既存の双晶の片一方の側の粒内での双晶核の発生にもとづくとし、元の結晶はそのまま新しい双晶の片側を共有するものとしている。しかしこの機構によるとすると、新たに生じる双晶境界面は元の双晶境界面と縦断面においては常に平行で、さらにまた平均双晶間隔は増殖につれて小さくなるはずであり、互いの双晶境界が次第に拡がる観察結果と矛盾する。以下においては本実験で明らかになった2つの増殖タイプのそれぞれの増殖機構について考察する。

4.1 タイプ I における双晶境界の増殖

Fig. 10は観察結果をもとにしたタイプ I の増殖のモデル図を示す。(a)では縦断面から見たときの双晶境界、粒界および(100)面トレースを示し、(b)はそれぞれ矢示した位置での横断面組織で、Fig. 2 や Fig. 4 等の横断面観察結果を集約して表している。 X_1-Y_1 は既存の双晶境界の一部分が乱れ、そこが増殖の起点となり新しい双晶境界が形成され、 X_2-Y_2 、 X_3-Y_3 と進むにつれて分離し、またこのまわりの粒界が次第に鮮明となる組織の特徴を

Fig. 10 Schematic illustration of multiplication of twin boundary by Type I in featory crystal growing to $\langle 112 \rangle$ direction.

図示した。一方(a)の縦断面モデル図では、既存双晶境界の一部が次第にずれて新しい双晶境界が生じるとした。タイプ I の誘因について次のように考えた。

縦断面における既存の双晶境界の向きは必ずしも熱流方向に平行とは限らない。一方これを介して対峙する双方の結晶ではデンドライト枝の成長方位 $\langle 100 \rangle$ が熱流方向に指向するように成長しようとしているため、既存の双晶境界面には常に不均衡力が介在していると考えられ、限界以上の応力のもとで局部的に左右のバランスが崩れたところを起点として増殖が始まり、これを繰り返しながら双晶境界の傾きは次第に変化し、やがて安定になると考えられる。なお双晶境界とデンドライト枝方向との関係は別に報告する⁶⁾。

4.2 タイプ II における双晶境界の増殖

タイプ II においては、いずれも既存双晶の片側結晶にまず亜結晶を生成するのが共通した特徴である。Fig. 3 および Fig. 5 等で A' を亜結晶とするのは、光顕組織観察によれば不鮮明ながら粒界が観察されるものの、エッチピット形状による判断はほとんど不可能な為である。Fig. 5 についてのエッチピット観察の例を **Fig. 11** に示す。(a)は $h = -11 \mu\text{m}$ での観察のもので、破線は A' の粒界を示す。(b)は同じく $h = 49 \mu\text{m}$ のもので、増殖した双晶境界もみられる。(a) (b)共に A と A' とのエッチピットの判別は困難であり、双方の結晶方位がきわめて近い関係にあるといえよう。**Fig. 12**は以上をまとめた

Fig. 11 Optical micrographs of etch pits before and after forming new twin boundary in Fig. 5.

Fig. 12 Schematic illustration of multiplication of twin boundary by Type II in feathery crystal growing to $\langle 112 \rangle$ direction.

タイプIIの増殖のモデル図である。

前報²⁾では発生起点付近のTEM観察の結果、双晶結晶内においては、転位網目状組織が見られることを述べた。また一方向凝固チル面近くでは焼鈍双晶生成の可能性が強いことを示唆したが、タイプIIにみられるA'結晶もまた焼鈍により形成されたサブグレインと考えた。またB'はA'結晶の焼鈍双晶として生じたものではないかと考えられる。さらにFig. 2およびFig. 3でCと表示の結晶に関しては、これらがいずれもA結晶粒界上に発生し成長していること、発生直後においては既存双晶粒界と平行な直線の粒界をもつことより、焼鈍双晶として生じた可能性が大きく、A-C粒界も双晶境界と考えられる。しかし羽毛状晶においては双晶境界と波状粒界とが交互に存在することからわかるように、A-C粒界は双晶境界として成長できず、次第に直線性を失う。その理由についてはH. Freikssonは、双晶面が交互に存在するとしても、 $[1\bar{1}2]$ 方向への成長が $[\bar{1}\bar{1}2]$ 方向に比べて凸型に先行成長するため、双晶粒界と波状粒界が生じる⁹⁾としている。また、次報⁶⁾で詳しく述べるように、種付けによる羽毛状晶の育成実験では、粒界を挟むデンドライト枝の成す角度の違いより、双晶境界と粒界とが区別されるようである。いずれにしても双晶関係をもつ結晶が交互に隣り合う場合、双晶境界と粒界もまた交互に隣り合うことになる。

4.3 凝固進行に伴う増殖機構の変化

前報²⁾では、一方向凝固法でチル板近くで焼鈍双晶が形成され易い状況にあり、これが羽毛状晶が発生の誘因ではないかと考察した。本実験で認められたタイプIIによる増殖も前項の通り、焼鈍効果によると思われるサブグレイン形成とその粒界上での焼鈍双晶の生成からスタートするものと考えた。したがってタイプIIの増殖は羽毛状晶が最初に発生する機構と基本的に変化がなく、実際にもFig. 1とFig. 8を総合して考えると、チル面近くや、また羽毛状晶と柱状晶とが競合成長しているような外側部等のひずみの生じ易いところにタイプIIは多い。しかしながら増殖機構としては、双晶境界上のどの位置でも増殖起点となり得る点でタイプIが単純であり、凝固進行と共にタイプIによる増殖が多くなる。一方向凝固^{1), 2), 7)~15)}や連続铸造^{3), 5), 16), 17)}、とくに鋳型、フロートを改良したDC半連続铸造^{18), 19)}で羽毛状晶が生じやすいのは、熱流が安定しているほど、このタイプIによる増殖が進行しやすいためであろうと考えられる。

5. 結 言

一方向凝固して得た羽毛状晶鑄塊について、その横断面における連続的な組織観察により、双晶境界の増殖過程を調べ、次のような結論を得た。

(1) 増殖のパターンは2つのタイプに分類できる。

タイプI…双晶境界上に新しい双晶の起点をもち次第に成長する。

タイプII…既存双晶の片側の結晶内に発生した亜粒界上に新たな双晶を生じる。

(2) 増殖により生じた双晶境界長さの成長速度は二段に変化し、タイプIでははじめ遅く既存双晶から独立すると速くなる。タイプIIでは双晶境界が亜粒界全幅に達するまでは速く、以後遅くなる。

(3) 増殖およびこれに続く成長過程において、双晶間隔は成長距離に比例して大きくなる。タイプIでは起点における間隔は0から始まり、タイプIIは起点においてすでにある間隔を持つ。

(4) タイプIの増殖起点となる既存双晶境界のずれは、デンドライトの成長方位 $\langle 100 \rangle$ が熱流方向を指向するためとする増殖モデルを提唱した。

(5) タイプIIは焼鈍による転位の再配列による亜結晶の生成を条件とし、チル面近くでよく観察されることから基本的には羽毛状晶発生機構に準ずるものと考えられる。

本研究遂行にあたり、文部省科学研究費および一部(財)軽金属奨学会のご援助を頂きましたことを記し、ここに深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 松石, 本間, 雄谷: 軽金属, **19** (1969), 287.
- 2) 穴田, 小島, 多々, 堀: 軽金属, **38** (1988), 773.
- 3) J. A. Eady and L. M. Hogan: *J. of Crystal Growth*, **23** (1974), 129.
- 4) R. W. Chan: *Advance in Phys.*, **3** (1954), 408.
- 5) H. Fredriksson and M. Hillert: *J. Material Soci.*, **6** (1971), 1350.
- 6) 穴田, 中根, 多々, 堀: 軽金属, 投稿中.
- 7) 中尾, 古沢: 軽金属, **12** (1962), 170.
- 8) Y. M. Vaynblat and O. S. Korovov: *Phys. Metals. Metallog.*, **19** (1965), 93.
- 9) L. R. Morris, J. R. Carrtheres, A. Piumtrec and W. C. Winegard: *Trans. Met. Soc. AIME*, **236** (1966), 1286.
- 10) 中谷, 清水, 福田, 橋本: 軽金属, **18** (1968), 165.
- 11) 中谷, 清水, 福田, 橋本: 軽金属, **18** (1968), 217.
- 12) 渡辺, 本間, 雄谷: 軽金属, **19** (1969), 279.
- 13) 宮沢, 本間, 雄谷: 軽金属, **19** (1972), 143.
- 14) 佐藤: 日本金属学会誌, **49** (1985), 369.
- 15) 穴田, 舟木, 中島, 沢武, 多々: 軽金属, **36** (1986), 562.
- 16) J. Herenguer: *Revue Met.*, **45** (1948), 139.
- 17) K. T. Aust, F. M. Krill and F. R. Morral: *Trans AIME*, **194** (1952), 78.
- 18) 室町, 瀬川, 穴田: 軽金属, **26** (1976), 183.
- 19) 室町, 穴田, 多々, 時沢: 軽金属, **30** (1980), 537.