鋼のデンドライトの形態および アームの間隔について*

鈴木 章** 長岡 豊**

Akira Suzuki and Yutaka Nagaoka : Dendrite Morphology and Arm Spacing of Steels. An experimental study has been carried out to investigate the effect of growth variables on dendrite morphology and dendrite arm spacing in 25Cr-20Ni stainless steel and 1Cr-0.25Mo steel, solidified vertically under semi-steady state conditions.

The condition for cell formation and the cell to dendrite transition has been determined quantitatively for stainless steel. Dendrite morphology changes from a simple one to complicated cruciform with the increase of growth rate V and the decrease of temperature gradient G . It is shown that there exists the critical values of G/V , below which secondary or tertiary dendrite arms are formed. It follows that the formation of dendrite arms in higher order is governed by the same parameter as in case of the cell to dendrite transition.

Primary dendrite arm spacing is proportional to $1/G^{0.4} V^{0.2}$, while the size of cellular substructure is proportional to $1/GV$. Both secondary arm spacing and tertiary one depend upon the cooling rate.

(Received November 22, 1968)

I. 緒 言

デンドライト組織を定量的に表現する方法として、デンドライトアームの間隔が測定されている。測定されているのは、主として1次アーム(主軸)および2次アーム(側枝)の間隔である。

2次アームの間隔は、柱状晶、等軸晶に関係なく測定できる利点があり、ある与えられた組成の合金では、2次アームの間隔が局部的な凝固時間によって決まると提案されている⁽¹⁾。鋼の場合も同様で、著者らは2次のデンドライトアームの間隔が、凝固温度範囲の平均冷却速度に依存することを報告した⁽²⁾⁽³⁾。

一方、1次アームの間隔と成長条件との関係については報告が少なく^{(4)~(6)}、デンドライトの形態と成長条件との関係もまだ定量的に明らかにされていない。したがって、明確な成長条件の下で柱状デンドライトを成長させ、成長条件と1次および2次アームの間隔、ならびにデンドライトの形態との関連を明らかにする目的で本研究を行なった。

II. 実験方法

温度勾配と成長速度がデンドライトアームの間隔および形態に、それぞれどのような効果を与えるかを決定するために、両因子を独立してコントロールし、同一試料内ではこれらの因子があまり変化しないようにした。また熱による対流(thermal convection)の影響をなるべく小さくするために、下方より上方へ垂直に一方向凝固させることを考えた。このような目的のために、DEGUSSA-島津真空タンマン炉を用い、黒鉛発熱体の肉厚を適宜に変化させることにより、試料中にある温度勾配を与え、炉内のある一定の位置の温度をPID制御により、あらかじめ設定した速度で降下させ、成長速度をコントロールした。したがって数種類の形状の発熱体を用いれば、それに対応した温度勾配が得られ、これとは別個に数種の冷却速度すなわち成長速度をうることができる。Fig.1に装置の概略を示す。

供試材にはTable 1に示す化学組成のCr-Mo鋼と25Cr-20Niステンレス鋼を用いた。Cr-Mo鋼は内径30mm、ステンレス鋼は内径20mmのアルミナるつぼで、それぞれ約500gおよび約200gをアルゴン雰囲気中で溶解した。過熱は最も温度の低い試料底部の温度が、Cr-Mo鋼の場合液相線温度より40°C、ステンレス鋼では60°C高くなるようにし、その温度に20min保持後冷却凝固させた。

冷却凝固過程における試料各部の温度は、るつぼの底まで浸漬した内径2mm、外径4mmのアルミナ保護管中を上または下に10mmずつ、PtRh(40%)-PtRh(20%)熱電対を移動させ温度を記録した。10mmおきの測温結果を記録用紙上で結ぶと、各測温点の冷却曲線が得られる。その一例をFig.2に示す。これらの冷却曲線から試料内各位置の温度勾配、成長速度および冷却速度を求めることが

** 株式会社神戸製鋼所中央研究所(Central Research Laboratory, Kobe Steel, Ltd., Kobe)

* 1968年4月本会東京大会および9月本会仙台大会に発表

- (1) T.Z.Kattamis, J.C.Coughlin and M.C.Flemings : Trans. AIME, **239**(1967), 1504.
- (2) 鈴木, 鈴木, 長岡, 岩田 : 本誌, **32**(1968), 1301.
- (3) 鈴木, 鈴木, 長岡, 岩田, 高橋 : 鉄と鋼, **53**(1967), 1207.
- (4) J.A.E.Bell and W.C.Winegard : J.Inst. Metals, **92**(1964), 357.
- (5) P.K.Rohatgi and C.M. Adams, Jr. : Trans. Met. Soc. AIME, **239**(1967), 1737.
- (6) 茨木, 岡本, 岸武 : 本誌, **30**(1966), 1068.

できる。本実験では温度勾配として液相線温度における温度勾配をとり、成長速度は液相線温度等温面の移動速度

Fig.1 Schematic diagram of the experimental apparatus

察されるデンドライトについてその間隔を測り、少なくとも 20 個以上のデンドライトについて得た値を平均してある条件に対する 2 次アームの間隔とした。デンドライトの形態は試料の横断面で観察したが、1 次アームの間隔 S_I も同じ断面で測定した。ある条件に対する S_I の値は、**Photo.2** の S_I^1 , S_I^2 をそれぞれ 30 個以上測定し、これを平均して求めた。なお腐食は Stead 氏液 (Cr-Mo 鋼) および 10% しゅう酸水溶液電解 (ステンレス鋼) によった。

III. 実験結果および考察

1. デンドライトの形態

25Cr-20Ni ステンレス鋼について、柱状デンドライトの形態と成長条件との関係をしらべた。実験範囲は温度勾配 G が $5^\circ \sim 55^\circ \text{C/cm}$ 、成長速度 V が $0.0065 \sim 0.67 \text{ cm/min}$ である。結果の代表例を Photo.3, 5, 6 に示す。**Photo.3(a)** は 3 次のアームがよく発達し、複雑な形状を呈しているが、**Photo.3(b), (c)** は単純で、それぞれ十字形および菱形に近い形態を示す。十字形と菱形とを試料横断面における形態からはつきり区別することは困難であるが、縦断面では **Photo.4** から明らかなように、側枝が認められるも

Table 1 Chemical composition of specimens

Steels	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo
Cr-Mo steel	0.41	0.30	0.71	0.022	0.028	—	1.06	0.23
Stainless steel	0.063	0.38	1.72	0.021	0.020	21.24	26.13	—

Fig.2 An example of temperature recording in freezing specimen

を、冷却速度は液相線温度と固相線温度の間の平均冷却速度をとった。液相線温度および固相線温度としては、Cr-Mo 鋼は 1490°C と 1430°C 、ステンレス鋼は 1400°C と 1330°C を用いた。

試料縦断面のマクロ組織の一例を **Photo.1** に示す。このようなものがすべてではなく、縦断面で 3~6 個の結晶の認められることが多かった。2 次アームの間隔 S_{II} は、縦断面でデンドライトの主軸と 4 枝以上の 2 次アームが観

Photo.1 Typical macro structure in longitudinal section of Cr-Mo steel specimen

Photo.2 Transverse section of stainless steel specimen showing measurement of primary dendrite arm spacing ($\times 50 \times 4/5$)

このような形態の変化を、成長条件 G, V と関係づけて示したのが **Fig.3** である。 V の値の小さい範囲をより明確にみるため、 G, V 軸を対数目盛りとした。それぞれの形態を生ずる範囲は、平行な直線で区分することができる。この結果は、セルからデンドライトへの遷移と同様にデンドライトの形態の変化、すなわち側枝(2次アーム)、3次アームの生成もある一定の G/V の値でおこることを示している。各形態間の遷移条件を **Table 2** に示す。

鋼のセル状組織を観察したという報告はきわめて少なく、しかもその定量的な生成条件は不明確であつた⁽⁷⁾⁽⁸⁾が、本実験では、これを明らかにすることができた。鋼の場合セルの生成およびデンドライトへの遷移に対する G/V の臨界値は相当大きく、組成的過冷がきわめておこりやす

Photo.3 Photomicrographs of stainless steel specimens showing change of dendrite morphology ($\times 20$)
(a) $G=5^\circ\text{C}/\text{cm}$, $V=0.33 \text{ cm}/\text{min}$, (b) $G=48^\circ\text{C}/\text{cm}$, $V=0.12 \text{ cm}/\text{min}$,
(c) $G=44^\circ\text{C}/\text{cm}$, $V=0.084 \text{ cm}/\text{min}$

Photo.4 Longitudinal sections corresponding to Photo.3(b) and (c), respectively ($\times 50 \times 4/5$)
(a) Dendrite with side branches, (b) Dendrite without branch

の(a)と認められないもの(b)とに分けることができる。側枝の認められないものは十字形または菱形断面の柱状のものとして成長したことを示し、セルからデンドライトへの遷移条件に近い条件で成長したものと考えられる。**Photo.5**(a), (b)はセル状組織を示すが、(a)は六角形セルに近く、(b)の右方の結晶粒のサブ組織は elongated cell に近いものと思われる。また **Photo.6** ではセル壁への偏析が非常に少なくなり、平滑界面で成長したと推測される結晶粒が観察される。

いことを示している。また、2次アーム、3次アームの生成も G/V のある臨界値でおこることは、デンドライトの形態の変化も組成的過冷によつて説明しうることを示す。

Photo.5(a)で結晶粒界が偏析部から一部外れているのが観察されるが、これは凝固後に粒界が移動したものであると思

(7) F.A.C.Calvo, K.P.Bentley and R.G.Baker: Acta Met., **8**(1960), 898.

(8) Ya.N.Malinochka: Russian Metallurgy and Mining, July-Aug. (1963), 65.

Photo.5 Cellular structure in stainless steel ($\times 20 \times 4\frac{1}{2}$)
(a) $G=45^\circ\text{C}/\text{cm}$, $V=0.022\text{ cm/min}$, (b) $G=49^\circ\text{C}/\text{cm}$, $V=0.011\text{ cm/min}$

Photo.6 Photomicrograph showing grains without substructure ($\times 20 \times 4\frac{1}{2}$)
 $G=26^\circ\text{C}/\text{cm}$, $V=0.0065\text{ cm/min}$

Photo.7 Second phase at cell boundaries.
Transverse section ($\times 50 \times 4\frac{1}{2}$)

Table 2 Critical values of G/V for change of substructure in stainless steel

Change of substructure	$G/V (^\circ\text{C min}/\text{cm}^2)$
Formation of cell	3500
Cell to dendrite transition	2000
Formation of side branches	500
Formation of tertiary arms	50

- ☆ Dendrite with tertiary arms
- Dendrite without side branch
- Elongated cell
- Dendrite with side branches
- Hexagonal cell
- No substructure

Fig.3 Effect of growth variables on the substructure in stainless steel

われる⁽⁹⁾。また、セル境界 (Photo.7) やデンドライト間 (Photo.3) にみられる第2相について、EPMAにより定性分析を行なった結果、供試材の組成に対し平衡状態では存在しないと考えられる δ フェライトと判定された。

2. 1次のデンドライトアームの間隔

Fig.4にCr-Mo鋼およびステンレス鋼の成長条件 G, V による1次アームの間隔 S_1 の変化を示す。これらの結果は V も G も大きくなれば、 S_1 が小さくなることを示し、定性的にはセルの大きさと V, G の関係^{(10)~(12)}に類似して

- (9) H. Biloni and G. F. Bolling : Trans. AIME, **227** (1963), 1351.
- (10) W.A.Tiller and J.W.Rutter : Can. J.Phys., **34** (1956), 96.
- (11) M.Boček, P.Kratochvil and M.Valouch : Czech. J.Phys., **8**(1958), 557.
- (12) J.O.Coulthard and R.Elliot : J.Inst. Metals, **95** (1967), 21.

いる。1次アームの間隔はFig.5に示すように $1/G^{0.4} V^{0.2}$ とほぼ直線関係にあるように思われる。

また、ステンレス鋼で得られたセルの大きさの測定結果

Fig.4 Effect of growth conditions upon primary dendrite arm spacing " S_I "

Fig.5 Primary dendrite arm spacing versus $G^{-0.4} V^{-0.2}$

Fig.6 Effect of growth conditions upon cell size in stainless steel

は、Fig.4(b)から明らかなように、デンドライトの1次アームの間隔と G, V の関係とはことなる傾向を示す。それで従来の研究⁽¹⁰⁾⁽¹²⁾にならない、セルの大きさを $1/GV$ に対してプロットしたら、ほぼ直線関係が得られた (Fig.6)。

3. 2次のデンドライトアームの間隔

一端冷却鋳塊および通常の鋼塊において、2次アームの間隔は凝固温度範囲の平均冷却速度に依存することを報告した⁽²⁾⁽³⁾。この場合には冷却速度 R の大きいところで成長速度 V も大きい、同時に温度勾配 G も大きく、鋳塊内部の R の小さいところでは V も G も小さくなるものと考えられ、これら因子の2次アームの間隔 S_{II} におよぼす影響を明確にすることができなかった。本実験では V と G を別個に変化させてこれらを検討した結果、 S_{II} は V と G に対し明らかな依存性を示さず、Fig.7に示すように、 R に依存することが明らかとなった。 S_{II} が V と G ではなく、 R に依存することは、Fig.8の同一試料内で V を

Fig.7 Cooling rate dependency of secondary arm spacing " S_{II} "

Fig.8 Growth variables and secondary arm spacing versus distance from the bottom of the stainless steel specimen " X "

変化させたときに得られた結果からも確認することができる。Fig.7の結果は、2次アームの間隔 S_{II} が Cr-Mo 鋼では $R^{-0.34}$ に、ステンレス鋼では $R^{-0.40}$ に比例して変化することを示す。この Cr-Mo 鋼のデータを、以前のデータ⁽²⁾⁽³⁾とともに一括して Fig.9 に示すと、 R の広い範囲にわたり、 S_{II} と R の関係が得られた。

$$S_{II} = 610 R^{-0.36}$$

Fig.9 Secondary dendrite arm spacing versus local average cooling rate during solidification for Cr-Mo steel

また、ステンレス鋼で得られた結果も、さきに 0.4% C を含む 25 Cr-20 Ni 鋼の一方向凝固鑄塊について求めた同様の関係⁽¹³⁾の延長線によくのつている。本実験で用いたステンレス鋼は 0.06% C であるから、この鋼の場合もこの程度の炭素含有量は 2 次アームの間隔を変化させないことを示し、炭素鋼⁽²⁾について得たと同様の結果が得られた。

以上のように 2 次アームの間隔が凝固温度範囲の平均冷却速度に依存して変化することは、固液両相の共存している時間によって、最終的な 2 次アームの間隔が決まるという Kattamis and Flemings の提案⁽¹⁾と一致するものであると考える。

4. 3 次 の デ ン ド ラ イ ト ア ー ム の 間 隔

G/V の値が比較的小さい条件で成長した柱状デンドライトには、3 次アームの生成が観察されたので、ステンレス鋼の試料横断面においてその間隔を測定した。方法は 2 次アームの間隔の測定法に準じた。

(13) 鈴木, 中村, 落田: 鑄物, 40(1968), 206.

Fig.10 に R に対して 3 次アームの間隔 S_{III} をプロットした。この場合も両対数グラフで直線関係を示し、その大きさはやや小さいが傾斜は 2 次アームの場合と同じである。このことは 3 次アームの間隔も 2 次アームの間隔と同様の機構によって決定されることを暗示している。

Fig.10 Cooling rate dependency of tertiary arm spacing
G: ○ 17~13 ● 12~8 ○ 7~3 (°C/cm)

IV. 結 論

下方より上方への準定常状態成長によって生成した Cr-Mo 鋼および 25 Cr-20 Ni ステンレス鋼の柱状デンドライトの形態ならびにアームの間隔におよぼす成長条件の影響をしらべ以下の結論を得た。

(1) 25 Cr-20 Ni ステンレス鋼でセル状組織の生成条件を定量的に知ることができた。

(2) 平滑界面からセル状へ、セル状からデンドライト状へ遷移する条件はもちろんのこと、デンドライトの側枝 (2 次アーム) および 3 次アームの生成もそれぞれ一定の G/V の臨界値でおこることを示した。このことはセルの生成およびデンドライトへの遷移と同様に、デンドライトの形態の複雑化も組織的過冷によつて説明されることを示す。

(3) 柱状デンドライトの 1 次アームの間隔は $1/G^{0.4}V^{0.2}$ に比例して変化するが、セルの大きさは $1/GV$ に比例する。

(4) デンドライトの 2 次アームの間隔は、 G, V ではなく R によつて決まる。このことは 2 次アームの間隔が固液共存域にある時間によるという Flemings の提案を支持するものである。

(5) 3 次アームの間隔も、2 次アームと同様 R に依存して変化する。