純AlおよびAl-0.2%Cu合金鑄塊における 等軸晶の生成について

鈴木 章** 中村実人** 坂本敏正**

Akira Suzuki, Jitsuhito Nakamura and Toshimasa Sakamoto : Formation of the Equiaxed Grains in Pure Aluminum and Al-0.2% Cu Alloy Ingots. The origin of the equiaxed zone has been investigated in 99.99% purity Al and Al-0.2% Cu alloy ingots in which columnar grains grow in a cellular or cellular dendritic manner. Experiments on the conventional ingots and bottom chilled, unidirectionally solidified ingots show that there is a critical pouring temperature for the formation of equiaxed zone, above which no equiaxed zone forms. In the absence of pouring turbulence, however, no equiaxed zone forms even though the ingot is quenched from the temperature below the critical one. These results indicate that the pouring turbulence is an essential element in the formation of the equiaxed zone. It is also found that the chill grains in the very surface layer of the ingots have dendritic morphology.

So it is concluded that the equiaxed zone in pure Al and Al-0.2% Cu alloy ingots is caused by the multiplication of dendritic chill crystals induced by pouring turbulence.

(Received April 24, 1970)

I. 緒 言

低い注入温度、すなわち小さい過熱で注入した鑄塊には、非常に微細な結晶粒から成る広範囲の等軸晶帯が生成することが観察されている⁽¹⁾⁽²⁾。そしてその生成機構としては“free” chill crystal mechanism⁽³⁾が妥当であるとされている。しかしこれについては、水溶液の低温注入過程の観察⁽¹⁾と2~3の実験があるだけで、十分な検討がなされていないように思われる。

またAl鑄塊のTiによる結晶粒微細化が注入温度の影響を強くうける⁽⁴⁾ことからその機構を検討⁽⁵⁾するうえでもこの種の等軸晶の生成は重要であると考えられる。

そこで先ず本報告では、純AlおよびAl-0.2%Cu鑄塊

における微細な等軸晶の起源について、現在提案されている等軸晶の生成機構によって検討した。

II. 実験方法

供試材は99.99%AlおよびAl-50%Cu母合金で成分調整を行なったAl-0.2%Cuを用いた。溶解はエレマ炉でアルミナるつぼ内で行なった。一溶解3.5kgとし溶け落ち後ただちに低温用フラックスで脱ガスし、さらに850°Cに昇温後高温用フラックスで脱ガスした。

Fig. 1 Schematic representation of molds A, B and C

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

* 1969年10月本会広島大会に発表

(1) K.A. Jackson, J.D. Hunt, D. R. Uhlmann and T. P. Seward, III : Trans. Met. Soc. AIME, **236** (1966), 149.

(2) D. R. Uhlmann, T. P. Seward, III and B. Chalmers : Trans. Met. Soc. AIME, **236** (1966), 527.

(3) B. Chalmers : J. Aust. Inst. Met., **8** (1963), 255.

(4) D. Eborall : J. Inst. Metals, **76** (1949), 295.

(5) 鈴木, 中村, 坂本 : 金属学会誌, **34** (1970), 808.

鋳型は Fig.1 に示す 3 種類のものを用いたが、鋳塊上表面デンドライト層からの “showering” に起因する等軸晶⁽⁶⁾⁽⁷⁾を除くため、必要に応じ 40 mesh のステンレス鋼製の網を鋳型に挿入した。

注入温度の影響をみるためには、Fig.1 の炭素鋼製の鋳型 A を用い、内面に黒鉛塗型を施し、注入時の鋳型温度を 150°C とした。

thermal convection を阻止するためには、Fig.1 の鋳型 B を用い、下方より一方向凝固を行なわせた。この鋳型はイソライトレンガの側壁と、水冷銅定盤から成るが、側壁からの凝固および “showering” の影響を防ぐためステンレス鋼製の網でつくった注入用ドアのついたかごを挿入し、かごの中の組織について検討した。

さらに、注入による溶湯の流動がない状態で凝固させるためには、850°C に加熱した Fig.1 のステンレス鋼製の鋳型 C に 850°C の溶湯を注入し、所定の温度まで放冷後、底部より水冷し、一方向凝固を行なわせた。

また、注入時にはげしい turbulence を与えたり、柱状晶の成長界面を洗うような流動を与えるためには Fig.1 の鋳

型 A をターンテーブルにとりつけ、必要な時期に 100 rpm の回転を与えた。

III. 実験結果

1. 注入温度の影響

99.99% Al および Al-0.2% Cu 鋳塊のマクロ組織におよぼす注入温度の影響を Photo.1, 2 に示す。いずれの場合も注入温度が高いときは、全面柱状晶であるが、99.99% Al では 665°C, Al-0.2% Cu では 670°C の注入ではじめて等軸晶帯が観察される。また全面柱状晶の場合は、注入温度が低いほど柱状粒の幅がせまくなっている。Photo.3 に等軸晶帯のミクロ組織を示す。いずれも球状の部分がみられ、球状粒子が密でないところは、これを頭としセル状またはセルラードエンドライト状の尾をもつ comet 型⁽⁶⁾の等軸晶となっている。

このような低い注入温度のときみられる等軸粒が、“showering” によるものかどうかを確かめるために、金網を挿入した鋳型で同様な実験を行なった。結果は Photo.4 に

Photo.1 Macrostructures of 99.99% Al ingots solidified in the mold A. Poured at (a) 720°C, (b) 680°C and (c) 665°C ($\times 1 \times \frac{1}{2}$)

Photo.2 Macrostructures of Al-0.2% Cu alloy ingots solidified in the mold A. Poured at (a) 720°C, (b) 680°C and (c) 670°C ($\times 1 \times \frac{1}{2}$)

(6) R. T. Southin : Trans. Met. Soc. AIME, **239** (1967), 220.

(7) 鈴木, 中村, 坂本 : 金属学会誌, **33** (1969), 834.

Photo.3 Photomicrographs of equiaxed grains: (a) corresponding to Photo.1 (c); and (b) to Photo.2 (c), respectively ($\times 10 \times \frac{2}{3}$)

Photo.4 Macrostructures of ingots solidified with a gauze barrier inserted in the mold A: (a) 99.99% Al, poured at 665°C; (b) Al-0.2% Cu, at 670°C ($\times 1 \times \frac{3}{5}$)

示すように、前と同じく 99.99% Al では 665°C、Al-0.2% Cu では 670°C の注入温度で等軸粒が生成し、金網の下にも同様の微細な等軸粒が認められた。

2. 溶湯の流動の影響

等軸粒の起源として、柱状 dendライトの側枝の melt off が考えられ、そのためには対流が重要な役割りを果すことが示されている⁽¹⁾。したがって柱状晶の成長界面に対して作用する対流を阻止するため、Fig.1 の鋳型 B を用いて下方より一方向凝固を行なわせた。結果は Photo.5 に示すように、この場合も、99.99% Al では 665°C、Al-0.2% Cu では 670°C で注入したとき等軸晶が観察され、これより高い注入温度では全面柱状晶であった。

つぎに注入流の影響をなくすために、Fig.1 の鋳型 C を用いて、いろいろな温度から底部を水冷して一方向凝固を行なわせた。Photo.6 に鋳塊のマクロ組織を示すが、水冷開始温度が前述の実験では等軸晶の生成する温度になっても、等軸晶は生成せず比較的幅の広い柱状晶から成っている。この結果は、等軸晶の生成には注入流が不可欠であることを示している。

以上の実験とは反対に、溶湯の流動を増大させるために、回転中の鋳型に注入し、凝固初期の溶湯の流動を大きくして注入温度の影響を調べた。100 rpm で回転している鋳型に注入したが、この場合も Photo.1, 2 と同じ注入温度ではじめて等軸晶が生成した (Photo.7 に Al-0.2% Cu について示した)。

また 99.99% Al および Al-0.2% Cu 鋳塊の柱状晶のサブ組織は Photo.8 に示すように側枝のないセル状またはセルラ-

デンドライト状である。したがって溶湯の流動による柱状晶の melt off または break off は考えにくい、この点を確認するために注入 10 sec 後から回転停止を 10 sec ごとに繰り返し、成長している柱状晶界面に溶湯の流動を与えた。結果は Photo.9 に示すように、マクロ組織では等軸晶は認められなかった。これらの鋳塊の水平断面を同時に示したが、鋳型の回転-停止による溶湯の流動方向の変化に対応して、柱状晶の成長方向がジグザグになっている^{(8)~(10)}。Photo.10 はそれらのミクロ写真で、

99.99% Al の場合はそのサブ組織は変化しないが、Al-0.2% Cu では柱状晶の成長方

向が変化した直後からわずかの間、明らかに側枝の生成がみられ、凝固層と未凝固溶湯の相対流動が少なくなるにつれて、また側枝のない単純な組織になっている。さらに側枝の認められたところで新しい comet 型の等軸晶の生成が認められた (Photo.10 (c) 矢印)。

以上の結果は柱状晶が側枝のないセル状の 99.99% Al では溶湯の流動によっても新しい結晶は生成しないが、Al-0.2% Cu では回転により柱状晶が側枝のある dendライト状になるため、melt off または break off により新しい結晶が生成したことを示している。

したがって柱状晶が側枝のない場合には“multiplication”をおこさないことが明らかである。

IV. 考 察

以上の実験結果は、微細な等軸晶の生成には、注入温度が低く、かつ注入流などの溶湯の流動が凝固初期に必要で

(8) W. Roth and M. Schippen: Z. Metallk., **47** (1956), 78.

(9) F.C. Langenberg, G. Pestel and C. R. Honeycutt: Trans. Met. Soc. AIME, **221** (1961), 993.

(10) 阿部, 戸叶: 金属学会誌, **33** (1969), 970.

Photo.5 Macrostructures of ingots solidified unidirectionally in the mold B: 99.99% Al, poured at (a) 720°C and (b) 665°C; Al-0.2% Cu, at (c) 720°C and (d) 670°C ($\times 1 \times \frac{3}{5}$)

Photo.6 Macrostructures of ingots solidified unidirectionally in the mold C: (a) 99.99% Al, quenched from 665°C; (b) Al-0.2% Cu, from 670°C ($\times 1 \times \frac{3}{5}$)

あることを示している。これは Uhlmann⁽²⁾らが注入温度が低い場合、自然対流を小さくしても等軸晶が生成することを観察し、Spittleら⁽¹¹⁾がこれは注入流の影響によると指摘しているのに一致する。そしてこの説明には“free” chill crystal mechanism⁽³⁾が最も妥当であるとされているが、等軸晶の生成に対してこのほかに三つの提案があり、いずれも実験的にはおこりうることが示されているので、本実

(11) J. A. Spittle, G. W. Dellamore and R. W. Smith : *The Solidification of Metals*, ISI, Pub.110, (1968), 318.

験でみられた等軸晶の生成機構としていずれが最も妥当であるかを検討してみよう。

柱状晶のサブ組織は組成的過冷の大きさによってセル状からセルラードエンドライト状に変化し⁽¹²⁾⁽¹³⁾、さらに組成的過冷が大きくなるとはじめて界面前方の溶湯中で等軸晶の核

Photo.7 Macrostructure of Al-0.2% Cu alloy ingots poured at 665°C into the rotating mold A ($\times 1 \times \frac{3}{5}$)

Photo.8 Photomicrographs of columnar grains : (a) 99.99% Al, corresponding to Photo.1 (a); (b) Al-0.2% Cu, to Photo.2 (a) respectively ($\times 50$)

Photo. 9 Macrostructures of ingots poured at 720°C. Rotation started 10 sec after pouring and stopped for 10 sec every 10 sec
(a) 99.99% Al, (b) Al-0.2% Cu ($\times 1 \times \frac{3}{8}$)

Photo. 10 Photomicrographs of zigzagged columnar grains: (a), (b) corresponding to Photo. 9 (a); (c), (d) to Photo. 9 (b), respectively
(a), (c) ($\times 10 \times \frac{1}{2}$); (b), (d) ($\times 50 \times \frac{1}{2}$)

生成がおこるものとされている⁽¹⁴⁾。しかし本実験の場合 99.99% Al と Al-0.2% Cu 鋳塊の柱状晶のサブ組織はセル状またはセルラードエンドライト状であるから界面前方の溶湯中の組成的過冷の大きさが核生成をおこすほど大きくなっているとは考えられない。

つぎに柱状晶のデンドライトアームの melt off⁽¹⁾ または break off による等軸晶の生成も、柱状晶のサブ組織から遊離されるべき側枝がなく、側枝のないときにはこのような“multiplication”のおこらないことが回転凝固実験によって確認されたので、この機構もこのさい働いていないものと思われる。

また鋳塊上表面デンドライト層からの“showering”⁽⁶⁾も鋳塊に挿入した金網の下方にも等軸晶が観察されているので、本実験ではこの機構も考えなくてよい。

さて、“free” chill crystal mechanism は Chalmers⁽³⁾によって提案されたもので、鋳型壁で

過冷された溶湯中で“copious”な核生成がおこり、これが鋳塊内部に運ばれて成長し等軸晶になるとするもので、Walker⁽¹⁵⁾は catalytically にきれいな合金でも等軸晶が生成することは、この機構でうまく説明出来るとしている。そして Biloni and Chalmers⁽¹⁶⁾は鋳型表面で predendritic な凝固がおこりこれが等軸晶の起源になることを示唆している。

最近 Bower and Flemings⁽¹⁷⁾は“free” chill crystal の起源となるべきチル層に関する実験において、チル晶が微細化するの copious な核生成よりは溶湯の流動があるための“multiplication”によるとし、Biloni and Morando⁽¹⁸⁾は“copious”な核生成と溶湯の流動による“multiplication”の二つが考えられることを示している。

本実験の場合、以上の結果のみでは等軸粒がそれぞれ別個に核生成したものか、“multiplication”によるものかは断定できないが、注入流が必要なことから“multiplication”の可能性が大きいと考えられる。

しかし“multiplication”をおこすためにはデンドライトが必要であると考えられるので、99.99% Al の場合でも凝固の初期にデンドライトが生成しなければならないと思われる。

- (13) W. A. Tiller and J. W. Rutter : Can. J. Phys., **34** (1956), 96.
- (14) W. C. Winegard and B. Chalmers : Trans. ASM, **46** (1954), 1214.
- (15) J. L. Walker : Trans. 6th Vacuum, Met. Conf., (1963), 33.
- (16) H. Biloni and B. Chalmers : Trans. Met. Soc. AIME, **233** (1965), 373.
- (17) T. F. Bower and M. C. Flemings : Trans. Met. Soc. AIME, **239** (1967), 216.
- (18) H. Biloni and R. Morando : Trans. Met. Soc. AIME, **242** (1968), 1121.

(12) W. A. Rutter and B. Chalmers : Can. J. Phys., **31** (1953), 15.

そこで鋳塊の最外層領域のマイクロ組織を調査した。

Photo.11 (a), (b) は等軸晶が観察された 99.99% Al 鋳塊 **Photo.4** (a) の丸印内のマイクロ組織を示す。球状の部分と矢印で示す分裂途中で凝固が終了したと思われる等軸デンドライトが観察される。またこの断面では鋳塊表面層でデンドライトが存在するかどうかはわかりにくいので、鋳塊表面に対して斜めの断面で組織を観察したところ **Photo.11** (b) に示すようにデンドライトが生成していることが観察された。 **Photo.12** は回転中の鋳型に低温度で注入した **Photo.7** の鋳塊でみられたもので、チル層から遊離したデンドライトが早い時期に柱状晶にトラップされて球状にならなかったものと考えられる。

したがって低温注入のさいみられた微細な等軸晶の起源は、柱状晶がセル状である 99.99% Al のような高純度なものでも注入後きわめて早い時期に比較的大きい過冷の

Photo.11 Photomicrographs of chill crystals (left); (a) perpendicular section and (b) inclined section to the cylindrical surface. Photographed position is indicated in **Photo.4** (a)
(a) ($\times 10 \times \frac{2}{3}$), (b) ($\times 20 \times \frac{2}{3}$)

Photo.12 Dendrite fragments observed in the region near the chill zone: corresponding to **Photo.7** ($\times 20 \times \frac{2}{3}$)

とで、デンドライト状のチル晶が生成し、注入流の影響によって分裂して鋳型内部に運ばれたことによると結論出来る。

しかしこのデンドライトの“multiplication”が melt off⁽¹⁾⁽¹⁹⁾ によるものか break off⁽¹⁹⁾⁽²⁰⁾ によるものなのかはなお検討が必要である。

いっぽう等軸晶が生成しなかった高温注入の 99.99% Al 鋳塊 **Photo.1** (b) の丸印の位置でも **Photo.13** に示すように、鋳塊の最外層にデンドライト状のチル晶が観察されるが、この場合等軸晶が生成しなかったのは、溶湯の過熱が大きいため分裂して運ばれたデンドライトの断片が全部再溶解してしまったのか、注入温度が高いため注入流が静まってから最外層のデンドライトが生成したため“multiplication”をおこさなかったのかのどちらかであろう。

Photo.13 Photomicrograph of chill zone (left); inclined section to the cylindrical surface. Photographed position is indicated in **Photo.1** (b) ($\times 20 \times \frac{4}{5}$)

V. 結 論

99.99% Al および Al-0.2% Cu 鋳塊において、注入温度が比較的低いときに生成する等軸晶の起源について次の点を明らかにした。

(1) 用いた試料の柱状晶はセルおよび側枝のないセラデンドライトであるが、鋳塊の最外層には、デンドライト状のチル晶が生成する。

(2) 注入流のような比較強い溶湯の流動があると、このデンドライト状のチル晶が“multiplication”をおこし等軸晶の起源となる。

(19) F.A. Grossley, R. D. Fisher and A. G. Metcalfe: Trans. Met. Soc. AIME, **221** (1961), 419.

(20) S. O'Hara and W. A. Tiller: Trans. Met. Soc. AIME, **239** (1967), 497.