Al-4%Cu および Al-Ti 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 Al-4% Cu and Al-Ti Alloy Ingots. It has previously been reported that the equiaxed zone originates from dendrite fragments of chill crystals in the ingot in which columnar grains grow in a morphology without side branches.

The present work attempts to determine the origin of the equiaxed zone formed in the Al-4% Cu ingot with dendritic columnar grains. The results show that in the ingot cast below a critical temperature for the alloy, the above-mentioned "free" chill crystal mechanism operates, and that when the pouring temperature is higher than the critical temperature, the equiaxed grains originate in remelting of the columnar dendrite.

The grain refinement of the Al ingot by titanium addition is also discussed in terms of the formation mechanism of the equiaxed zone. It is concluded that the grain refinement by titanium addition is caused by the formation of the equiaxed zone due to the "free" chill crystal mechanism, and not by the direct nucleation on the nucleating particles in the melts.

(Received April 24, 1970)

I. 緒 言

柱状晶が側枝をもたないセルおよびセルラードンドライト状組織を示す鑄塊においては、等軸晶は鑄塊上表面デンドライト層およびデンドライト状のチル層よりデンドライト断片が供給されることによって生成する⁽¹⁾⁽²⁾。しかし柱状晶が一般にデンドライト状の合金鑄塊の場合には、等軸晶の起源としては上記のほかにデンドライト側枝の melt off⁽³⁾ または break off⁽⁴⁾ も当然考慮しなければならない。したがって実際の鑄塊においては、凝固条件によって生成機構の異なる等軸晶が生成するもの⁽⁵⁾と予想されるので、Al-4% Cu 合金を用い等軸晶の生成機構と鑄造条件について検討した。

また微量 Ti 添加による Al 鑄塊の結晶粒微細化機構は種々提案されているが^{(6)~(10)}現象としては前報⁽²⁾で示した等軸晶帯の生成と類似の現象と考えられるので、鑄塊の鑄造条件と等軸晶生成機構の関係からこれを検討した。

II. 実験方法

実験方法はほぼ前報⁽²⁾と同様であるが、99.99% Al 溶湯を 850°C に加熱し、Al-4% Cu 合金は Al-50% Cu 合金を添加し、Al-Ti 合金は Al-5% Ti 合金を添加し、0.05, 0.1,

0.2% Ti の 3 種の合金とした。鑄型も前報⁽²⁾の Fig.1 に示した鑄型 A, B, C を用いたが、鑄塊表面の組織を観察するために、内面を磨いた内径 44 mm, 高さ 65 mm の真ちゅう製の側壁と銅定盤よりなる鑄型も用いた。

III. 実験結果

1. Al-4% Cu 合金鑄塊について

鑄塊のマクロ組織におよぼす注入温度の影響を **Photo. 1** に示した。705°C 注入で結晶粒のあらい等軸晶が生成し注入温度が低いほど等軸晶帯が広がり、低温の 665°C 注入では非常に結晶粒の微細な等軸晶帯が広範囲に生成する。**Photo. 2** に等軸晶のミクロ組織を示す。705°C 注入の場合、等軸晶はデンドライト状であるが低温の 665°C 注入では球状の形態になっている。

これらの等軸晶が "showering" ⁽¹⁾⁽¹¹⁾ によるものかどうか確めるため、鑄型 A⁽²⁾ にステンレス鋼製金網を挿入し同様の実験を行なった。結果は **Photo. 3** に示すように、いずれの注入温度でも、金網の上にも下にもほぼ同程度に等軸晶が観察されたので、これらの等軸晶の大部分は "showering" によるものではないといえることができる。

Al-4% Cu 鑄塊の柱状晶は、デンドライト状 (**Photo. 4**)

(5) G.S.Cole and G.F.Bolling : Trans. Met. Soc. AIME, **239** (1967), 1824.

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

(7) A.Cibula : J. Inst. Metals, **76** (1949), 321.

(8) F. A. Grossley and L. F. Mondolfo : J. Metals, **12** (1951), 1143.

(9) 寺井 : 金属学会誌, **19** (1954), 249.

(10) I.G.Davies, J. M. Dennis and A. Hellawell : Met. Trans., **1** (1970), 275.

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

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

* 1970 年 4 月本会東京大会に発表

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

(2) 鈴木, 中村, 坂本 : 金属学会誌, **34** (1970), 802

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

(4) J.L.Frawley and W.J.Childs : Trans. Met. Soc. AIME, **245** (1969), 2399.

Photo.1 Macrostructures of Al-4% Cu alloy ingots solidified in the mold A⁽²⁾. Poured at (a) 705°C, (b) 685°C and (c) 665°C ($\times 1 \times \frac{3}{8}$)

Photo.2 Photomicrographs of equiaxed grains; (a) corresponding to Photo.1 (a) : and (b) to Photo.1 (c), respectively ($\times 20 \times \frac{2}{3}$)

Photo.3 Macrostructures of Al-4% Cu alloy ingots solidified with a gauze barrier inserted in the mold A⁽²⁾: (a) poured at 705°C and (b) 670°C ($\times 1 \times \frac{3}{8}$)

であるから、溶湯の流動による側枝の melt off⁽³⁾ または break off⁽⁴⁾ に起因する等軸晶の生成が当然考えられる。そこでまず、注入による流動がおさまった後は thermal convection が起こらないように鋳型 B⁽²⁾ に種々の温度で注入し一方向凝固を行なった。結果は **Photo.5** に示すよう

に、カゴの中の組織に注目すると、前述の鋳塊であらう等軸晶の生成した 705°C 注入では等軸晶が生成しないが、665°C 注入では微細な等軸晶が生成した。

次に鋳型 C⁽²⁾ を用いて、注入流および thermal convection が無視できるような状態で凝固させると、**Photo.6** に示すように 665°C から水冷を開始しても等軸晶は全く生成しない。

いっぽう 725°C で鋳型 A⁽²⁾ に注入 10 sec 後 10 sec 毎の回転-停止振動を与えると **Photo.7** (a) のようにあらう等軸晶が広範囲に生成した。(b) は鋳型を静止したまま凝固させた場合で比較のために示した。

2. Ti 添加鋳塊について

0.05, 0.1 および 0.2% Ti 添加鋳塊について注入温度のマクロ組織におよぼす影響を **Photo.8** に示す(鋳型 A⁽²⁾ を用いた)。注入温度は 670°~800°C としたが、ここではその一部を示した。Ti 添加量がまずと共に同じ注入温度では等軸晶帯が広がること、また高温注入でも広範囲の等軸晶帯が生成することが示されている。これらの等軸晶の生成機構を検討するため Al-4% Cu 合金と同様の実験を行なった。

Photo.9 は 0.1% Ti の場合で注入温度が 720°C および 680°C の鋳塊のミクロ組織を示す。高温の 720°C 注入ではデンドライト状であるが、低温の 680°C 注入では結晶粒がこまかく、球状の粒子から成っている。このような傾向は 0.05 および 0.2% Ti 添加の場合も同様であった。

Photo.4 Photomicrograph of columnar grains, corresponding to Photo.1 (a) ($\times 50 \times 4\%$)

Photo.5 Macrostructures of Al-4% Cu alloy ingots solidified unidirectionally in the mold B⁽²⁾: (a) poured at 705°C and (b) 665°C ($\times 1 \times 3\%$)

Photo.6 Macrostructure of Al-4% Cu alloy ingot solidified unidirectionally in the mold C⁽²⁾: quenched from 665°C ($\times 1 \times 3\%$)

Photo.7 Macrostructures of Al-4% Cu alloy ingots poured at 720°C: (a) rotation started 10 sec after pouring and stopped for 10 sec every 10 sec; (b) stationally ($\times 1 \times 3\%$)

Photo.10 はこれらの等軸晶の大部分は “showering” によるものではないことを示した。

Photo.11 は注入後一方向凝固させた 0.1% Ti 添加鋳塊で thermal convection を阻止すると、700°C 以下の温度で注入したときには等軸晶が生成するが、それより高い注入温度のときには等軸晶が生成しなかった(カゴの中の組織に注目する)。

Photo.12 は鋳型 C⁽²⁾を用いて 680°C より水冷を開始した 0.1% Ti 添加鋳塊で、注入流および thermal convection の影響を受けなければ等軸晶が生成しないことが明らかである。

Photo.13 は 0.1% Ti 添加鋳塊 (Photo.8) の柱状晶はデンドライト状であることを示した。

Photo.14 はチル晶を観察するため小型の鋳型(内径 44 mm)に Al-Ti 合金を 680°C で注入した鋳塊の底部表面組織で Ti 添加量の多い方がデンドライトのアームが分断しているように見える。

IV. 考 察

以上の実験結果から微量の Ti 添加による Al 鋳塊の結晶粒微細化機構は Al-4% Cu 合金の等軸晶生成機構と全く同様に説明出来ることが示されている。

まず Al-4% Cu 合金について検討してみる。注入温度が低い程等軸晶帯が広がるが (Photo.1), これらの等軸晶の大部分は、どの注入温度でも、上表面デンドライト層よりのデンドライト断片の “showering” に起因するものでないことが確められた。また溶湯の流動をのぞけば、凝固条件が同等でも Photo.1 では等軸晶が生成し、Photo.6 では生成しないことから、組成的過冷による等軸

晶の生成は⁽¹²⁾この際非常に考えにくい。

いっぽう比較的高い注入温度、705°C で生成する等軸晶 (Photo.1 (a)) は thermal convection を阻止した注入一方向凝固 (Photo.5 (a)) では生成せず、低温の 665°C の注入温度で生成する等軸晶 (Photo.1 (c)) は注入流も阻止した一方向

(12) W.C. Winegard and B.Chalmers: Trans. ASM, 46 (1954), 1214.

Photo.8 Macrostructures of Al-Ti alloy ingots solidified in the mold A⁽²⁾: Al-0.05% Ti, poured at (a) 700°C, (b) 680°C and (c) 670°C; Al-0.1% Ti, (d) 720°C, (e) 700°C and (f) 680°C; Al-0.2% Ti, (g) 760°C, (h) 720°C and (i) 700°C ($\times 1 \times 3$)

凝固 (Photo.6) ではじめて生成しなくなる。この結果は注入温度が高いときは溶湯の流動を阻止すると等軸晶が生成しなくなるが、低いときは注入流の影響を受けて生成した等軸晶が観察されるという Uhlmann ら⁽¹³⁾ および Spittle ら⁽¹⁴⁾ の報告とよく一致する。

- (13) D.R.Uhlmann, T.P.Seward, III and B.Chalmers: Trans. Met. Soc. AIME, **236** (1966), 527.
- (14) J. A. Spittle, G. W. Dellamore and R. W. Smith: *The Solidification of Metals*, ISI, Pub. 110, 318.

注入温度がかなり低いとき、すなわち注入時の溶湯の過熱が小さいとき、注入流などの凝固初期の溶湯の流動によって生成する等軸晶は前報⁽²⁾において、デンドライト状のチル晶の “multiplication” によるものであることを明らかにした。いっぽう高い注入温度で生成する等軸晶は、柱状晶成長界面に対する溶湯の流動を強めると多量に生成すること (Photo.7), thermal convection を阻止すると全く生成しないこと (Photo.5 (a)), 柱状晶がデンドライト状 (Photo.

Photo.9 Photomicrographs of equiaxed grains; (a) corresponding to Photo.8 (d) : and (b) to Photo.8 (f), respectively ($\times 50 \times \frac{3}{4}$)

Photo.10 Macrostructures of Al-0.1% Ti alloy ingots solidified with a gauze barrier inserted in the mold A⁽²⁾ : poured at (a) 720 °C and (b) 680 °C ($\times 1 \times \frac{3}{4}$)

Photo.11 Macrostructures of Al-0.1% Ti alloy ingots solidified unidirectionally in the mold B⁽²⁾ : poured at (a) 720 °C and (b) 680 °C ($\times 1 \times \frac{3}{4}$)

4)であることから、柱状デンドライトの melt off⁽³⁾によって説明することが最も妥当であろう。

Al-4% Cu 合金における以上の等軸晶生成機構は Ti 添加鋳塊にも同様に適用することができる。例えば 0.1% Ti

添加の場合について示すと、低温の 680 °C の注入温度で生成する等軸晶は (Photo.8 (f))、注入流を阻止すると生成しないこと (Photo.12) などから前報⁽²⁾の機構によってよく説明することができ、高温の 720 °C の注入温度で生成する等軸晶 (Photo.8 (d)) は thermal convection を阻止すると全く生成しない (Photo.11 (a)) ことなどから柱状デンドライト (Photo.13) の melt off⁽³⁾によって説明することができる。

Photo.12 Macrostructure of Al-0.1% Ti ingots solidified unidirectionally in the mold C⁽²⁾ : quenched from 680 °C ($\times 1 \times \frac{3}{4}$)

純 Al, Al-Cu 合金および Al-Ti 合金について、前報⁽²⁾の機構による等軸晶の生成する注入温度の上限と、それぞれの液相線温度およびそれらの温度差 ΔT を Table 1 に示した。この表から等軸晶生成に対する Ti 添加の効果は、Cu 添加にくらべて微量の添加によって ΔT が著しく大きくなることによって説明されることが明らかである。

このように微量の Ti 添加によって、チル晶の “multiplication” による等軸晶の生成する注入温度範囲が著しく広がることは、デンドライト状のチル晶が生成しやすくなることはもちろん、そのデンドライトが “multiplication” を非常に起こしやすくなることを示し (Photo.14)、多量のデンドライト断片が生成しやすいためと考えられるが、そ

の理由についてはさらに検討することが必要である。

また thermal convection および注入流を阻止した一方凝固鋳塊 (Photo.12) で等軸晶が生成しなかったことは、急冷開始温度以下の融液中に有効な核としてはたらくものが

Photo.13 Photomicrograph of columnar grains, corresponding to Photo.8(d) ($\times 50 \times \frac{4}{5}$)

Photo.14 Photomicrographs of bottom surface of specially cast ingots : (a) Al-0.05% Ti alloy and (b) Al-0.1% Ti alloy ($\times 100 \times \frac{4}{5}$)

Table 1 Superheat (ΔT) is the difference between the critical pouring temperature (P.T.) below which fine equiaxed grains originated in the multiplication of chill crystals form and the liquidus temperature (L.T.)

Alloy	P.T.	L.T.	ΔT
99.99% Al	665°C	660°C	5°C
Al-0.2% Cu	670	659	11
Al-4% Cu	685	649	36
Al-0.05% Ti	680	663	17
Al-0.1% Ti	700	665	35
Al-0.2% Ti	720	667	53

存在しなかったことを示しており、従来の Ti 添加による Al 鋳塊の結晶粒の微細化が溶湯中の TiC とか TiAl_3 などが微細な結晶の核としてはたらくという考え⁽⁷⁾⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾を否定するものである。しかし前述のように微量の Ti 添加によってチル晶が生成しやすくなることなども考えられるので、TiC や TiAl_3 などがチル晶の核生成を助長するかもしれない。

V. 結 論

Al-4% Cu 鋳塊および 99.99% Al に微量 Ti を添加した鋳塊の等軸晶の生成について次の結論を得た。

(1) ある温度以下の注入の場合生成する等軸晶帯はチル晶の“multiplication”によるものである。

(2) Ti 添加による Al 鋳塊の結晶粒微細化は、上述の機構による等軸晶の生成する注入温度範囲が著しく広がることによるものである。

(3) チル晶の“multiplication”による等軸晶の生成しないような高温の注入でも、柱状晶がデンドライト状であれば、デンドライトの melt off により等軸晶が生成する。