Al-CuAl₂ 層状共晶と繊維状共晶とを組合わせた 3 元共晶合金の一方方向凝固組織*

三 浦 維 四** 浜 中 人 士**

Ishi Miura and Hitoshi Hamanaka : Microstructures of Unidirectionally Solidified Ternary Eutectic Composites Consisting of Al-CuAl₂ Lamellar Eutectics and Fibrous Eutectics.

Ternary eutectic alloys, Al-CuAl₂-NiCu₃Al₆, Al-CuAl₂-FeCu₂Al₇ and Al-CuAl₂-Si, consisting of Al-CuAl₂ lamellar eutectics and Al-Al₃Ni, Al-Al₃Fe or Al-Si fibrous eutectics, were solidified unidirectionally over a wide range of rates. These microstructures are compared with those of concomitant binary eutectics and are discussed with reference to the term of entropy of fusion of each phases. In Al-CuAl₂-Si ternary eutectics, Si grows with preferred <100> fiber texture as in Al-Si binary eutectics, though Al-CuAl₂ lamellar are degenerated thoroughly. This is considered to come from the difference of entropy of fusion between Si and CuAl₂, because the entropy of fusion of Si is higher than that of CuAl₂. On the other hand, in Al-CuAl₂-NiCu₃Al₆ ternary eutectics, Al-CuAl₂ lamellae are maintained because the difference in the entropy of fusion between NiCu₃Al₆ and CuAl₂ is smaller than that of Si and CuAl₂. It may be concluded that with increasing entropy of fusion of the third phase, the influence of Al-CuAl₂ on the Al-CuAl₂ lamellae becomes greater.

(Received August 4, 1972)

I. 緒 言

共晶合金を一方方向熱流下で凝固制御すると、共晶組織を一方方向に整列した共晶複合金が得られることが知られている⁽¹⁾。このようにして得られる複合金は、強化相とマトリックスの結合度が理想的であること、および熱的安定性に優れているなどの点から、複合金の作成方法として他の方法では得られないようないくつもの利点を持っている⁽²⁾⁽³⁾。このようなことから共晶合金の一方方向凝固制御は複合金の作成方法として注目され、多くの合金系について研究が行われてきたが、これまでは主に 2 元系共晶に注意が払われ、2 元共晶についてはすでにかんりのことが知られてきた⁽⁴⁾。しかし 2 元共晶においては、合金系によって強化相の体積比および形状が本質的に決まってしまう、複合強化の目的からこれらを都合のよいように変えることができないばかりでなく、2 元共晶としては数に限度があるなどの欠点がある。

これに対して第 3 元素を加え、3 元系合金とすることが考えられるが、これには、少量の添加元素による共晶組織の“Modification”⁽¹⁾⁽⁵⁾、擬 2 元共晶⁽⁶⁾、Monovariant 共晶⁽⁷⁾⁽⁸⁾、および 3 元共晶合金の一方方向凝固が考えられる。少量の元素の添加、および Monovariant 共晶においては、

共晶のセルラー組織を生じないようにするためには、温度勾配 G と凝固速度 R の比すなわち G/R を大きくする必要があり、 G/R を大きくすると組織のマクロ的偏析を起し易いという問題がある⁽⁹⁾。3 元共晶の場合共晶組成で凝固が進むためマクロ的偏析を起さずに組織の Modification が行われ、しかも応用範囲も比較的広いと考えられる。

著者らは先に Al-Si 共晶系と Al-Al₃Ni 共晶系の組合せである Al-Si-Al₃Ni 3 元共晶合金の一方方向凝固組織と機械的性質について報告したが⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾、組織においてもまた機械的性質についても 2 種類の強化相が互いに影響し合うことを見出した。この報告においては、層状共晶として知られている Al-CuAl₂ 系を中心として繊維状共晶の Al-Al₃Ni, Al-Al₃Fe あるいは特殊な断面形状をもつ Al-Si 系とを組合わせた Al-CuAl₂-NiCu₃Al₆, Al-CuAl₂-FeCu₂Al₇ および Al-CuAl₂-Si 3 元共晶合金の一方方向凝固組織について検討してみることにした。また続報においてこれらの 3 元共晶複合金の機械的性質について述べることにした。

II. 実 験 方 法

この研究に用いた材料はいずれも高純度のものである

- ** 東京医科歯科大学医用器材研究所(Institute for Medical and Dental Engineering, Tokyo Medical and Dental University, Tokyo)
- * 1969 年 10 月金属学会広島大会に発表；金属組織と機械的性質の関係について(第 18 報)
- (1) G.A.Chadwick : Prog.Mater. Sci., **12**(1963), 97.
 - (2) R.W.Hertzberg : *Fiber Composite Materials*, ASM, (1965), 77.
 - (3) M.Salkind et al. : SAMPE, **10**(1966), F-35.

- (4) L.M.Hogan et al. : *Advances in Materials Research*, John Wiley & Sons, **5**(1971), 38.
- (5) D.Jaffrey and G.A.Chadwick : J.Inst.Metals, **97**(1969), 118.
- (6) E.R.Thompson and F.D.Lemkey : SEA paper (690689) (1969).
- (7) H.E.Bates et al. : J.Mat.Sci., **4**(1969), 25.
- (8) E.R.Thopson and F.D.Lemkey : Met. Trans., **1**(1970), 2799.
- (9) A.Hellawell : Metals and Mat., **1**(1967), 361.
- (10) 三浦, 浜中 : 金属学会誌, **33**(1969), 1036.
- (11) 三浦, 浜中 : 金属学会誌, **33**(1969), 1244.

が、その純度はつぎのようなものである。Al 99.999% (Cu 1~2, Fe 1~2, Si 0.5~1, Mn < 0.05 ppm), 半導体用高純度 Si (nine nine 以上の純度), Ni 99.99% (Fe 3, Mn 3, Cu 2, Al < 1 ppm) および Fe 99.99% (Si 20, Mg 3, Cu 2, Al < 1 ppm, C 0.01% 以下), Cu 99.998% (Ag 6, Pb 1, Fe 1, Ni 1, Zn 1 ppm). これらの材料をそれぞれの共晶組成すなわち Al-26.7% Cu-5.25% Si⁽¹²⁾, Al-32.5% Cu-0.9% Ni⁽¹³⁾, Al-32.5% Cu-0.3% Fe⁽¹²⁾ で溶解した。

溶解および一方向凝固は、原子炉用超高純度黒鉛を加工した内径 10 mmφ, 長さ 180 mm の円筒型のルツボを使用し、雰囲気は 10⁻⁵ mmHg 程度の真空とした。一方向凝固炉の詳細についてはすでに報告した⁽¹⁴⁾ のでここでは省略する。

得られた試料は直径 10 mm, 長さ約 100 mm のものであるが、1 cm 間隔で切断し、成長方向に平行な断面および垂直な断面の組織の観察を行なった。顕微鏡観察用の試料はいずれも 5% NaOH 溶液を用いてエッチングした。

これらの 3 元共晶合金の体積比を求めるためには、自動微小寸法測定顕微鏡により、直線上での各相の比率を求める方法をとったが垂直断面上で、50 μ 間隔で長さ 1 mm の直線について 20 回繰返しその平均をとった。その結果各合金系の体積比は Al(α)-CuAl₂(θ)-Si 共晶系については $V_{\alpha}=0.572$, $V_{\theta}=0.353$, $V_{Si}=0.075$, Al(α)-CuAl₂(θ)-NiCu₃Al₆(T) 共晶系については $V_{\alpha}=0.524$, $V_{\theta}=0.419$, $V_T=0.057$, Al(α)-CuAl₂(θ)-FeCu₂Al₇(N) 共晶系については, $V_{\alpha}=0.545$, $V_{\theta}=0.439$, $V_N=0.016$ である。

III. 実験結果

1. Al-CuAl₂-Si 3 元共晶複合金の組織

Photo. 1 は Al-Si-CuAl₂ 3 元共晶合金を一方向凝固した組織であるが、α(Al) マトリックス中に Si 相および CuAl₂ 相を規則的に整列させることができる。Si 相の断面形状は八方へ枝分れたものである。Al-Si 2 元共晶の直角を主とする組合わせによる卍形状の断面と比較すると⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾, 枝分れが多くなり複雑に見えるが、これらの一つ一つを観察するといずれも直角の十字形を基礎としており、これらのどちらかの軸に対して約 53° の方向に他の枝が伸びているか、あるいは Photo. 2 のように直交する軸を 53° 回転して重ね合わせたようなものである。これらは双晶の関係にあり、融液からの Si 相の成長に際して Cu 原子の存在により Al-Si 2 元共晶の場合よりも双晶が起りやすくなったものと考えられる。これに対して CuAl₂ 相は Si 相の間に成長方向に伸びているが、CuAl₂ 相の形状は棒状に近い

Photo.1 Microstructures of unidirectionally solidified Al-CuAl₂-Si eutectic composites. Solidification rate 1 mm/hr.
(a) Transverse section
(b) Longitudinal section. Si-dark, Cu-Al₂-gray, Matrix-α(Al)

Photo.2 Partially enlarged transverse section showing the cross shaped Si rotated 53° with respect to each other about the vertical axis due to growth twin

ものもあり、部分的に層状を思わせるものもありその形状は一定していない。

これらの組織は凝固速度および温度勾配の二つの凝固条件により変化すると考えられるが、ここではまず温度勾配を約 30°C/cm とほぼ一定にして凝固速度を変化した場合についてみていくことにする。Photo. 3 は凝固速度 5 mm/hr で一方向凝固したときの組織であるが、垂直断面(a)に

(12) H. W. L. Phillips : Inst. Met. Mon. Rep. Series No. 25.

(13) W. Köster et al. : Z. Metallk., **39**(1948), 225.

(14) 三浦, 浜中 : 金属学会誌, **32**(1968), 784.

(15) M. G. Day and A. Hellawell : Proc. Roy. Soc. A, **305**(1968), 473.

Photo.3 Microstructures of Al-CuAl₂-Si eutectic composites. Solidification rate 5 mm/hr
(a) Transverse section
(b) Longitudinal section

おいて Si 相の断面の枝は細く長く伸びると同時に枝の部分から小さな枝を生じる。凝固方向に平行な断面(b)においては、この小さな枝は鋸の刃状にあらわれ、これに伴って CuAl₂ の凹凸が増加する。凝固速度が 7 mm/hr 以上になると、Si 相の断面の小さな枝もなくなり、十字形の断面となる。さらに、凝固速度の増加にしたがって相間隔が減少するとともに Si 相の断面の十字形の枝もしだいに短くなり、15 mm/hr では Photo.4 (a) のように Si 相の断面の十字形も部分的に保たれなくなる。Si 相の十字形断面が保たれるのはせいぜい 20 mm/hr までであり、それ以後は Photo.4 (b) に示すように Si 相の断面形状は板状あるいは 70° の角度を持つ放射状となる。この段階においても Si 相の多くは凝固方向に並んでいるが、CuAl₂ 相は Si 相におよそ直角にくずれた層状になっている。

このような組織の変化に対して、凝固速度 R に対する Si 相の間隔 λ は Fig.1 のような関係にある。これは Si 相の中心から中心までの距離を λ としてその平均を取ったものであるが、比較のために、先に報告した Al-Si 2 元共晶合金⁽¹⁴⁾ および Al-Si-Al₃Ni 3 元共晶合金の場合⁽¹⁰⁾ の Si 相の間隔についてものせてみた。 $R^{-1/2}$ が 0 から 0.5 までの範囲すなわち凝固速度が 4 mm/hr 以上ではほぼ原点を通る直線上すなわち $\lambda = AR^{-1/2}$ の関係にある。4 mm/hr 以下の凝固速度、すなわち $R^{-1/2} > 0.5$ では、ほとんど変化がないが、1 mm/hr ではかえって λ はいくぶん減少し、

Photo.4 Variation of transverse section of Al-CuAl₂-Si eutectic composites with solidification rate.
(a) 15 mm/hr, (b) 25 mm/hr

Fig.1 Relationship between inter-phase spacing of Si and growth rate for Al-CuAl₂-Si, Al-Si-Al₃Ni and Al-Si eutectics

同じ凝固条件で一方向凝固した Al-Si 2 元共晶の場合よりもやや小さくなっている。またこの図には Al-Si-Al₃Ni 3 元共晶の場合、 $R^{-1/2} = 0.5$ 以上はのせていないが、これは Si 相の断面形状が十字状でなくなり、板状かあるいは 70 度の角度の放射状に変化するためである。これらの Si 相の形状と相間隔については続報において詳しく述べることにする。

2. Al-CuAl₂-NiCu₃Al₆ 3 元共晶合金の一方方向凝固組織

Photo. 5 は Al-CuAl₂-NiCu₃Al₆ 3 元合金を一方方向凝固した代表的な組織であるが、Al-CuAl₂ の層状組織の間に繊維状の NiCu₃Al₆ 相が組合わさっている。NiCu₃Al₆ 相の断面は三角形であるが、その各頂点は CuAl₂ 相につながっている。NiCu₃Al₆ は立方晶系で CsCl 型に基づく結晶構造といわれるが⁽¹⁶⁾、成長方向は 3 回対称軸の $\langle 111 \rangle$ 方向であると考えられ、また三角形の頂点は $\langle 211 \rangle$ の各方向であると考えられる。

Photo. 5 Typical microstructures of unidirectionally solidified Al-CuAl₂-NiCu₃Al₆ eutectic composites. Solidification rate 3 mm/hr. (a) Longitudinal section, (b) Transverse section. NiCu₃Al₆-gray CuAl₂-white, Matrix- α (Al)

凝固速度の変化に対する Al-CuAl₂ 層状部分についての層間隔を取ってみると、**Fig. 2** に示すようになる。この図において比較のために Al-CuAl₂ 2 元共晶の場合⁽¹⁾についても示したが、同一直線の上に乗る、Al-CuAl₂-NiCu₃Al₆ 3 元共晶の場合の Al-CuAl₂ 層状部分と、Al-CuAl₂ 2 元共晶の凝固速度 - 層間隔の関係はほとんど同じであると考えられる。

しかし Al-CuAl₂ 2 元共晶の場合、かなり凝固速度まで

Fig. 2 Relationship between interlamellar spacing of Al-CuAl₂ and growth rate, for Al-CuAl₂ binary eutectics⁽¹⁾ and Al-CuAl₂-NiCu₃Al₆ ternary eutectics

層状組織を整列化できるのに対して、Al-CuAl₂-NiCu₃Al₆ 3 元共晶の場合、100 mm/hr 以上の凝固速度になると、共晶組織は一様なものが得られなくなる。これは一部では **Photo. 5** と同様に 3 相の均一な組織となるが、他の一部では、**Photo. 6** に示すように部分的に NiCu₃Al₆ 相が粗大化した結晶を作り、そのまわりの Al-CuAl₂ の層状の部分には NiCu₃Al₆ 相がまったくないという現象があらわれる。凝固速度の小さい範囲においても温度勾配の低い場合、これと同様なことが起るが、界面の安定性を左右する温度勾配 G と凝固速度 R の比 G/R によって影響を受けるものと思われる。粗大化した NiCu₃Al₆ 相は 3 元共晶においての共晶組成からのずれによる普通の初晶の場合とは異なり、本来は 3 元共晶として Al-CuAl₂ の層状に均一に組込まれるべきところを、 G/R の減少により界面が不安定と

Photo. 6 Anomalous microstructure of Al-CuAl₂-NiCu₃Al₆ eutectic composites. Showing the separation of NiCu₃Al₆ from Al-CuAl₂ lamellae. Transverse section. Solidification rate 100 mm/hr

(16) M.G. Bown : Acta Cryst., 9(1956), 70.

なり、部分的に NiCu_3Al_6 相と Al-CuAl_2 の層状とに分離したものと思われる。

3. $\text{Al-CuAl}_2\text{-FeCu}_2\text{Al}_7$ 3 元共晶合金の一方向凝固組織

Photo. 7 は代表的な一方向凝固組織であるが、垂直断面 (a) に見られるように板状の FeCu_2Al_7 相に CuAl_2 相が直角に層状に組合わさった組織となる。また **Photo. 8** は途

Photo. 7 Typical microstructures of unidirectionally solidified $\text{Al-CuAl}_2\text{-FeCu}_2\text{Al}_7$ eutectic composites. Solidification rate 3 mm/hr. (a) Transverse section, (b) Longitudinal section FeCu_2Al_7 -dark, CuAl_2 -gray, Matrix- α (Al)

Photo. 8 Quenched interface of $\text{Al-CuAl}_2\text{-FeCu}_2\text{Al}_7$ eutectic composites

中で急冷した固液界面の組織である。 FeCu_2Al_7 相がかなり突き出しているが、大部分は急冷後に伸びたものと考えられる。この部分は FeCu_2Al_7 相の伸びに伴って CuAl_2 の層状組織が晶出する様子がよく示されている。この 3 元共晶系においては FeCu_2Al_7 相の成長が不規則なため、それに伴って組織全体が不規則なものとなる。

IV. 考 察

Al-CuAl_2 共晶系にもう一つの合金元素を加えた 3 元共晶の一方向凝固組織について検討してきたが、成長特性の異なる他の相が加わることによって Al-CuAl_2 の層状組織はかなり影響を受けることがわかったが、影響の受け方は第 3 相の成長特性に左右され则认为られる。

まず $\text{Al-CuAl}_2\text{-Si}$ 3 元共晶の場合、 CuAl_2 相は Si 相よりも体積比が高いにもかかわらず Si 相に分断された状態となり、 Al-CuAl_2 の層状組織は部分的にあらわれるのみで CuAl_2 相は棒状ないしは不定形となってしまう。 Al-CuAl_2 2 元共晶の場合、10 mm/hr 以下の比較的遅い凝固速度では層状の degenerate 組織が現われることがあるが⁽¹⁾⁽⁷⁾、 $\text{Al-CuAl}_2\text{-Si}$ 3 元共晶においては組織は、凝固速度が遅いため degenerate 組織の間に Si 相が成長したというのではなく、むしろ Si 相の成長により CuAl_2 の層状組織が degenerate したとされる。これは Al-CuAl_2 2 元共晶において degenerate 組織のあらわれることの少ない 10 mm/hr 以上の凝固速度においても、 CuAl_2 の degenerate 組織になっていることから裏付けられる。

Si 相の成長特性については、3 元共晶の場合も $\langle 100 \rangle$ 方向への成長が保たれ十字形を基とした断面形状が示すように、 Al-Si 2 元共晶の場合とほとんど変わっていない。これに対して CuAl_2 相の方は、一定の結晶方位関係がなく、形状も不定であり、かなり degenerate している。

これらのことから $\text{Al-CuAl}_2\text{-Si}$ 3 元共晶の凝固においては、Si 相が先行相となり、他の相はそれに従って晶出していることが考えられる。このことは **Photo. 9** の一方向凝固の途中で急冷した固液界面の様子からもあきらかになる。この写真において Si 相が最も先行し CuAl_2 相はいくぶん遅れて成長しており、また界面直前の液相中においては各相から溶質原子の排出によって形成された拡散層が観察される。また Si 相の先端部分は平らな面をあらわしており、Si 相の成長が facet による成長であることを示している。凝固速度の増加、あるいは G/R の減少に伴って固液界面での Si 相の先行はさらに著しくなる。そのため Si 相間の固液界面は凹みを増すことになり、 CuAl_2 相は凝固方向に平行に成長するよりも Si 相に対して直角に晶出するようになり、Si 相を中心にした CuAl_2 相が層状に並んだ組織となる。

つぎに $\text{Al-CuAl}_2\text{-NiCu}_3\text{Al}_6$ 3 元共晶の場合、一方向凝固

(17) H. E. Cline : G. E. Report, No. 67-C-310 (1967).

Photo.9 Quenched interface of Al-CuAl₂-Si eutectic composites. Showing smooth planes of Si phases due to facet growth and diffusion layer in the liquid

によって Al-CuAl₂ の層状と NiCu₃Al₆ の繊維状が整列する。この合金系においても第 3 相の NiCu₃Al₆ 相が最先行相となると考えられるが、3 元共晶となっても Al-CuAl₂ の層状組織が保たれるのは NiCu₃Al₆ 相の先行が Si 相ほど大きくないことによるものと思われる。またそればかりか Al-CuAl₂ 2 元共晶の場合は 10 mm/hr 以下の凝固速度では層状組織は degenerate が起ることが知られているが⁽¹¹⁾⁽¹⁷⁾、3 元共晶となり NiCu₃Al₆ 相が加わるにより凝固速度 1 mm/hr でも層状組織の degenerate は起らない。Al-CuAl₂ 2 元共晶の場合層状組織が degenerate するのは、層間隔が広がることによって固液界面の安定性を失うためとされているが⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾、3 元共晶においては NiCu₃Al₆ 相の存在により界面エネルギーが増大し層間隔が大きくなっても界面の安定性を保つに十分であると考えられる。

つぎに Al-CuAl₂-FeCu₂Al₇ 3 元共晶の場合、板状の FeCu₂Al₇ 相が先行し、それに直角になるように CuAl₂ 相が晶出するが、FeCu₂Al₇ 相の成長が不規則なために組織は不規則なものになる。第 3 相としての FeCu₂Al₇ 相の体積比は 1.6% であり、Al-CuAl₂-NiCu₃Al₆ 3 元共晶の場合の NiCu₃Al₆ 相の体積比 5.7% と比較するとかなり低いにもかかわらず、CuAl₂ の層状組織をかなり degenerate させてしまう。しかし部分的にしる CuAl₂ の層状組織が保たれることは、Al-CuAl₂-Si 3 元共晶の場合の Si 相のように CuAl₂ 相の形状を大きく変えてしまうことと比較すると Si 相ほどの影響力はないものと考えられる。

このように Al-CuAl₂ を中心とした 3 種類の 3 元共晶合金の一方凝固組織を比較した場合、いずれの共晶系においても Al, CuAl₂ 以外の第 3 相が先行相となるが、その先行の度合いは Si 相の場合が最も大きく、ついで FeCu₂Al₇, NiCu₃Al₆ 相の順となっている。またこの 3 種類のいずれの共晶系においても、CuAl₂ 相は先行相を成長の核とし

て、そこから伸びているように考えられる。

3 元共晶合金の凝固界面においての各相の成長の関わりと、それぞれの相の溶解エントロピーを比較してみると興味のある結果が得られる。

Jackson は単相の材料の成長特性は溶解エントロピー ΔS_F による項 $\alpha = \xi \Delta S_F / R$ によって特徴づけられるとしているが⁽¹⁹⁾、さらに 2 元共晶の組織はそれぞれの相の成長特性によって規則共晶か不規則共晶に分類されることを示している⁽²⁰⁾。Rumball ら⁽²¹⁾ は規則共晶と不規則共晶を分類する目安として、2 相の溶解エントロピーの比 $\epsilon = \Delta S_\alpha / \Delta S_\beta$ からさらに、

$$\epsilon' = \frac{L_\alpha / T_E}{L_\beta / T_E} = \frac{L_\alpha}{L_\beta}$$

によってあらわしている。ここで L_α , L_β はそれぞれ α 相および β 相の溶解の潜熱である。

この研究で用いた 3 元共晶系においてはいずれも α (Al) をマトリックスとしているが、Al に対する ϵ' をとってみると、

$$\text{CuAl}_2 \text{ 相については } \epsilon'(\text{CuAl}_2/\text{Al}) = 1.19,$$

$\epsilon'(\text{Al}_3\text{Ni}/\text{Al}) = 1.66$, $\epsilon'(\text{Al}_3\text{Fe}/\text{Al}) = 2.10$, $\epsilon'(\text{Si}/\text{Al}) = 4.24$ となる。ここで NiCu₃Al₆ 相および FeCu₂Al₇ 相については不明なため、それぞれもととなる 2 元共晶すなわち Al-Al₃Ni および Al-Al₃Fe のそれで代用して考えていくことにする。いずれの相も Al に対する比 ϵ' は 1 以上であるが、CuAl₂ のそれが最も低く、以下 Al₃Ni, Al₃Fe の順となり Si が最も高い。この研究における Al-CuAl₂ を基とした 3 元共晶について考えると、3 種類のいずれの 3 元共晶系においても、第 3 相の ϵ' が最も高く、第 3 相の成長が先行することが十分考えられ、実験結果とも一致する。また 3 種類の 3 元共晶のうちでも Al-CuAl₂-Si 共晶における Si 相が Al-CuAl₂ の層状組織に及ぼす影響が最も大きく、以下 FeCu₂Al₇ 相, NiCu₃Al₆ 相の順になっているが、これらは前述の ϵ' の大きさの順である。

このようなことから、一般に共晶凝固の界面においては、溶解エントロピーあるいは溶解潜熱の大きい相ほど優先して成長するものと考えられる。また、他の相を加えた多元共晶とする場合、溶解エントロピーの高い相を組合わせるほどその組織に及ぼす影響は大きいと考えられる。これらのことについてはさらに続報において、Al 中の Si の成長に及ぼす第 3 相の影響について詳述することにする。

V. 結 論

層状共晶として知られている Al-CuAl₂ 系を中心として、これに繊維状共晶の Al-Al₃Ni, Al-Al₃Fe および Al-Si

(18) K.A. Jackson and J.D. Hunt : Trans. Met. Soc. AIME, **236** (1966), 1129.

(19) K.A. Jackson : *Liquid Metals and Solidification*, ASM, Cleveland Ohio, (1958), 174.

(20) J.D. Hunt and K.A. Jackson : Trans. Met. Soc. AIME, **236** (1966), 843.

(21) W.M. Rumball and V. Kondic : *The Solidification of Metals*, ISI P 110, London, (1967), 149.

系を組合わせた $\text{Al-CuAl}_2\text{-NiCu}_3\text{Ni}_6$, $\text{Al-CuAl}_2\text{-FeCu}_2\text{Al}_7$, $\text{Al-CuAl}_2\text{-Si}$ 3 元共晶合金の一方凝固を行ない, その組織について検討したが, この研究で得られた主な結果はおおよそつぎのとおりである.

(1) $\text{Al-CuAl}_2\text{-Si}$ 3 元共晶においては, 一方凝固によって Al マトリックス中に Si 相および CuAl_2 相を整列させることができる. この場合 Si 相は八方へ枝分れした断面形状となるが, これは Al-Si 2 元共晶の場合と同様 $\langle 100 \rangle$ 優先方位への成長による十字形を基とし, これに双晶による 53° の枝の組合わさったものであり, Si 相の成長特性には大きな変化がなく, ただ双晶による枝分れが多くなっただけである. これに対して CuAl_2 相はすっかり degenerate し, 棒状ないしは不定形で Si 相の間に凝固方向に向って並ぶ.

(2) $\text{Al-CuAl}_2\text{-NiCu}_3\text{Al}_6$ 3 元共晶においては, 三角形の断面形状の NiCu_3Al_6 相と Al-CuAl_2 の層状が組合わさった組織となる. Al-CuAl_2 部分の層間隔と凝固速度の関係

は, Al-CuAl_2 2 元共晶の場合とほとんど同じである.

(3) $\text{Al-CuAl}_2\text{-FeCu}_2\text{Al}_7$ 3 元共晶の場合, 板状の FeCu_2Al_7 相が凝固方向に伸び, これに対して CuAl_2 相の層状に直角に組合わさった組織となる.

(4) これらの 3 種類の 3 元共晶のうちで, Al-CuAl_2 層状組織に及ぼす影響は, $\text{Al-CuAl}_2\text{-Si}$ 3 元共晶においての Si 相の場合が最も大きく, ついで FeCu_2Al_7 相, NiCu_3Al_6 相の順となる. これはそれぞれの相の溶融エントロピーの大きさの順に相当する. 多元共晶においては溶融エントロピーの高い相ほど凝固組織に及ぼす影響は大きいと考えられる.

終りに, この研究を進めるにあたって有益な御助言をいただいた東京大学 相山正孝教授に厚く感謝致します. また高純度 Si を提供くださった小松電子金属株式会社 倉富龍郎社長に, また本研究に終始協力していただいた高橋和子さんに謝意を表します.