溶接凝固機構とその組織の特性 (第6報)*

—高純度アルミニウムの溶接部における凝固組織の特性—

仙田 富男** 松田 福久**
加藤 光昭*** 中川 博二***Mechanism of Weld Solidification and Behavior of
its Structure (Report 6)*—Characteristics of Solidification Structure in High Purity
Aluminum Weld Metal—

by Tomio Senda**, F. Matsuda**, M. Kato and H. Nakagawa***

Abstract

The growth direction of cellular subgrains and the preferred orientation in columnar zone in TIG-arc weld metal have been investigated for aluminum 1 mm thick sheets of 99.96% purity. Conclusions obtained are as follows:

(1) The growth direction of cellular subgrains in the weld metal of such a high purity aluminum agrees with the direction of the maximum temperature gradient at the solid-liquid interface, and is independent of $\langle 100 \rangle$ direction. Therefore, when the direction of the maximum temperature gradient gradually changes as growth proceeds, the growth direction follows its change.

(2) A competitive growth among the columnar crystals proceeds near the weld center. As a result, the columnar zone near the weld center has $[100]$ fiber texture.

1. 緒 言

著者らはすでに5報にわたりアルミニウム板の溶接凝固組織についての基礎的な検討結果を報告してきたが、第2報¹⁾において純度99.93%という比較的高純度のアルミニウム板の溶接部に形成するセル状サブグレインの成長形態について報告を行なった。その結果によればそれらのセルの成長方向はほとんど $\langle 100 \rangle$ 方向に一致しているが、固液界面の最大温度勾配の方向によっては多少(10数度まで) $\langle 100 \rangle$ 方向よりずらされる。

このように最大温度勾配の方向によりその成長方向が $\langle 100 \rangle$ 方向よりずらされるという現象はさらに高純度の材料ではどのようなことになるかという問題、およびこのような材料では柱状晶域は方位配列を形成するのかという問題は、高純度材料の溶接凝固現象に関する基礎的な問題として興味あることがらである。

そこで公称純度99.99%の高純度アルミニウム板を入手したのを機会に、これを使用してビード溶接を行ない、セルの成長方向および柱状晶域の方位配列について

金相顕微鏡ならびにX線回折法により検討を行なった。本報告ではこれらの結果をとりまとめて報告する。

1. 使用材料および実験方法

使用した高純度アルミニウム板($\frac{1}{2}$ H材)の化学組成をTable 1に示す。公称純度は99.99%であるが、実際の分析結果では純度は99.96%であって少量のSi, FeおよびCuを含んでいた。なお板厚は1mmである。実験はつぎの方法によった。

Table 1 Chemical composition of aluminum used (wt%)

Cu	Si	Fe	Al
0.004	0.014	0.020	99.96

(a) セルの成長方向の検討方法 セルの成長方向を検討するには、組織観察およびX線回折を容易にするためにできるだけ大きな結晶粒を用いるのが望ましい。そこで入手した素材に対し融点直下(約650°C)において約20時間の焼きなましを行ない、直径約2~3cmの結晶粒からなる板を作製した。

溶接はTIGアークによりビード溶接を行なった。溶接速度は0(アークスポット溶接にあたる), および

* 原稿受付 昭和46年3月22日(46年度春季全国大会にて発表)

** 正 員 大阪大学工学部 Member, Faculty of Engineering, Osaka University.

*** 学生員 大阪大学工学部 Student Member, Faculty of Engineering, Osaka University

250 mm/min を選んだ。また溶接電流は板の表裏のビード幅がほとんど等しくなるような条件に選んだ。このため、熱流は 2 次元的であると考えられる。溶接条件を Table 2 に示す。

Table 2 Welding conditions (D.C.R.P.)

	WELDING SPEED (mm/min)	WELDING CURRENT (A)	ARC VOLTAGE (V)
COARSE-GRANED SHEET	0	45	19
	250	45	19
COMMERCIAL SHEET	250	50	21
	1250	120	23

溶接後、凝固組織を観察するとともに各結晶粒の結晶方位を背面反射 Laue 法によって求めた。その回折条件を Table 3 に示す。スリット径は 1 mm を使用した。そしてセルの成長方向と、結晶方位および溶接リップルの垂直方向から求めた固液界面の最大温度勾配の方向との関係を検討した。

Table 3 Conditions for X-ray irradiation

TARGET	uC
TUBE VOLTAGE	30 (kVp)
TUBE CURRENT	20 (mA)
DIAMETER OF SLIT	0.1, 1 (mm)
DISTANCE BETWEEN FILM AND SPECIMEN	10, 30 (mm)
EXPOSURE TIME	7, 0.5 (h)

(b) 柱状晶域の方位配列の検討方法 柱状晶域の方位配列の検討には入手したままの素材を用いた。溶接速度は溶接池形状が Elliptical Shape の例として、250 mm/min、および Tear-Drop Shape の例として 1250 mm/min を選んだ。溶接条件を Table 2 に示す。なお溶接方向は圧延方向に一致させた。

溶接後、溶接速度 250 mm/min の試料については $y^* = 0, 50$ および 80 (%), 1250 mm/min の試料については $y = 0, 50$ および 90 (%) の位置における任意の 15 個の柱状晶の結晶方位を背面反射 Laue 法によって求めた。その回折条件を Table 3 に示す。このときのスリット径は 0.1 mm を使用した。そしてこれらの結果は (200) 極図形として表わした。

また同時に、これらの位置における固液界面の最大温度勾配の方向を溶接リップルの傾きから測定した。

さらに X 線回折法によって求めた方位配列を 溶接方向に平行な単位長さ当たりの柱状晶数と比較した。これ

は、方位配列の形成する原因となる選択成長が起これば、柱状晶数の減少することが期待されるためであって、 casting における一方向凝固では成長方向に垂直な単位面積当たりの柱状晶数の減少と方位配列の発達との間には明確な関連性が認められている²⁾。しかし溶接部では、成長方向に垂直に測定した単位面積あるいは単位長さ当たりの柱状晶数は、つぎに述べる理由により方位配列の発達との対応がつかない。それは今、選択成長の起こっていない場合を考えると、すべての柱状晶は Fig. 1

Fig. 1 Schematic illustration of direction of maximum temperature gradient at solid-liquid interface during welding

に示す固液界面の最大温度勾配の方向に成長していくと考えられるが、このとき成長方向に垂直に測定した柱状晶径は、最大温度勾配の方向を表わす曲線の間隔からわかるようにしだいに小さくなっていくためである。したがってこのように測定すると単位面積あるいは単位長さ当たりの柱状晶数は溶接部中央に進むにつれ増加することになって不都合である。これに対して溶接方向に平行に測定した柱状晶径は溶融境界から溶接部中央まで一定であって、選択成長の起こっていないことによく対応する。そこで本論文では溶接方向に平行な 20 mm の間にある柱状晶の数を測定し、それを 20 等分することによって、溶接方向に平行な単位長さ (mm) 当たりの柱状晶数を求めた。

3. 実験結果および考察

3-1. セルの成長方向

アークスポット溶接を行なった単結晶の結晶方位を Fig. 2 にステレオ投影図で示す。投影面は試料面に平行である。黒丸は試料の表側を向いている $\langle 100 \rangle$ 方向をあらわし、白丸は裏側を向いている $\langle 100 \rangle$ 方向をあらわしている。この図より試料面はほとんど (001) 面に平行であり、したがって 4 つの $\langle 100 \rangle$ 方向 (Fig. 2 の $[100]$, $[\bar{1}00]$, $[010]$ および $[0\bar{1}0]$ 方向) がほとんど試料面内に存在していることがわかる。

したがってもしこのアルミニウムにおいてははっきりとした $\langle 100 \rangle$ 方向の容易成長方向が存在するならば、ナ

* y はビード内部の位置の無次元表示で、 $y=0$ (%) は溶融境界、 $y=100$ (%) は溶接部中央をあらわす²⁾。

Fig. 2 Stereographic projection of $\langle 100 \rangle$ directions of a single crystal which was welded with TIG-arc spot welding

ゲットに形成するセルはこれらの4つの $\langle 100 \rangle$ 方向に平行に成長するはずである。

実際のナゲットのマクロ組織を Photo. 1 に示す。試料を腐食しているためにセルの成長方向が薄く観察されるが、この成長方向はほとんど逆放射状であって、第2報¹⁾の Fig. 7 といちじるしい対照をなしている。このマイクロ組織の一例を Photo. 2 に示す。溶接リップが縦方向に薄く認められ、したがって固液界面の最大温度勾配の方向は右方向すなわち Fig. 2 の方向 E に一致している。この方向は $[0\bar{1}0]$ 方向から約 30° 離れているにもかかわらず、セルは最大温度勾配の方向に一致して成長していることがはっきりと認められる。

溶接速度 250 mm/min でビード溶接を行なった単結晶の結晶方位を Fig. 3 に、そしてそのマイクロ組織を Photo. 3 に示す。Photo. 3 (a) は溶融境界付近(セルの成長方向は左上方)、(b) は溶融境界と溶接部中央の

Photo. 1 Macrostructure of the weld nugget of the single crystal whose orientation is shown in Fig. 2 (etched with 24% $\text{HNO}_3 + 72\% \text{HCl} + 4\% \text{HF}$)

Photo. 2 An example of the microstructure showing the growth direction of the cellular subgrains in the weld nugget (as welded)

Fig. 3 Stereographic projection of $\langle 100 \rangle$ directions of a single crystal which was welded at welding speed of 250 mm/min

中間位置、および(c)は溶接部中央付近を示している。これからわかるように溶接リップの垂直方向で表わされる固液界面の最大温度勾配の方向は溶融境界から溶接部中央までしだいに変化していくが、セルの成長方向もこの方向にはほとんど一致して変化していくことがわかる。

このときの最大温度勾配の方向は、柱状晶が内部に成長するにつれ Fig. 3 では基円上を N から W に向かって変化していく。しかし溶接部中央を除いては、この最大温度勾配の方向の付近には $\langle 100 \rangle$ 方向は存在しないことがわかる。このことからセルの成長方向はもっぱら固液界面の最大温度勾配の方向に従うことがわかる。

従来の一方向凝固の研究においても、材料の純度が良くなればセルの成長方向はしだいに最大温度勾配の方向

Photo. 3 Microstructures showing the growth direction of the cellular subgrains in the weld metal of the single crystal whose orientation is shown in Fig. 3 (as welded)

(a) near the fusion boundary (b) in the intermediate location between the fusion boundary and the weld center (c) near the weld center

に一致してくることが知られているが⁴⁾、本研究によってさらに最大温度勾配の方向が連続的に変化する場合にセルの成長方向もまた連続的に変化することがわかった。

れた。

さらに、Photo. 1 および Photo. 3 からわかるように、最大温度勾配の方向と $\langle 100 \rangle$ 方向が大きくずれている位置においても Stray Crystal^{2,5)} はまったく発生しなかった。したがって材料の純度が良くなると Stray Crystal は発生し難くなるということ⁵⁾ が本研究によってもはっきりとわかった。

第2報¹⁾において純度99.93%のアルミニウムの溶接金属に形成するセルはほぼ $\langle 100 \rangle$ 方向に成長することとを報告した。本研究に用いた材料の純度は99.96%である。このことは、材料が高純度になると少量の不純物がセルの成長方向に大きく影響することを示しているものと考えられる。

3-2 柱状晶域の方位配列

溶接速度 250 mm/min でビード溶接を行なった高純度アルミニウムのマクロ組織を Photo. 4 に示す。柱状晶の成長方向は写真で薄く認められる溶接リップルの垂直方向にほとんど一致していて、その結果、柱状晶の粒界はしだいに溶接方向に曲がっていくことがわかる。

Photo. 4 では溶接方向は圧延方向に平行であるが、他の方向に溶接を行なった場合にも同様のマクロ組織が得ら

WELDING DIRECTION

Photo. 4 Macrostructure of the weld metal at welding speed of 250 mm/min (etched with 24% $\text{NH}_4\text{OH} + 72\% \text{HCl} + 4\% \text{HF}$)

そのミクロ組織を Photo. 5 に示す。これより柱状晶の粒界の方向と内部のセルの成長方向とはよく一致していることがわかる。第3報²⁾において、工業用純アルミニウムの低速度溶接ビードでは柱状晶の粒界はほぼ直線的であると述べた。そしてその場合のサブグレイン(溶融境界付近を除いてはセル樹枝状)はほとんど $\langle 100 \rangle$ 方向に成長していると考えられた。これらのことより柱状晶

の粒界の形状はその内部のサブグレインの成長方向と密接な関係にあることがわかる。

Photo. 6 に溶接速度 1250 mm/min でビード溶接を行なった試料のマクロ組織を示す。このような高速度溶接では溶融池形状は Tear-Drop-Shape であるために、柱状晶は溶接部中央まで直線的に成長する。そのため溶接部中央では両側から成長してきた柱状晶がぶつかり合

Photo. 5 Microstructure of the weld metal at welding speed of 250 mm/min (as welded)

Photo. 6 Macrostructure of the weld metal at welding speed of 1250 mm/min (etched with 24% HNO₃ + 72% HCl + 4% HF)

Fig. 4 (200) pole figures of the columnar zone in the weld metal at welding speed of 250 mm/min

っていて、この場合には工業用純アルミニウムにおける高速度溶接ビードと類似している。ただ溶接部中央にきわめて近い位置ではセルの成長方向はPhoto. 7に示すように、最大温度勾配の方向の急激な変化に対応して、急激かつ連続的に変化していることがわかる。

つぎにこれらの柱状晶域の方位配列について示す。Fig. 4は溶接速度 250 mm/min でビード溶接を行なった溶接部のそれぞれ (a) $y=0$, (b) $y=50$ および (c) $y=80$ (%) における柱状晶域の (200) 極図形を示したものである。投影面は試料面に平行である。また破線の方向 n_θ はそれぞれの位置における固液界面の最大温度

勾配の方向であって、この図では基円上の NW の間にある。たとえば溶融境界 ($y=0$ (%)) においては n_θ は溶接方向に垂直であって Fig. 4 の方向 N に一致しているが、内部に成長するにつれしだいに溶接方向に傾いていき、溶接部中央 ($y=100$ (%)) では溶接方向に平行な方向 W に一致するようになる。

この図よりまず $y=0$ (%) すなわち溶融境界における柱状晶あるいは母材結晶粒の (200) 面の極の分布は無秩序ではないが*, むしろ $y=50$ (%) における分布の方が無秩序になっていることがわかる。したがって $y=50$ (%) までの柱状晶域では選択成長はまだ行なわれていないものと考えられる。しかし $y=80$ (%) における分布は、図の F.A. を繊維軸の方向とする [100] 繊維組織を示している。繊維軸の方向 F.A. はこの回転対称な分布の対称軸の方向として求めた。したがって $y=80$ (%) における柱状晶域は [100] 繊維組織を形成していて、その繊維軸の方向は最大温度勾配の方向にほぼ一致していることがわかる。あるいは言い換えれば、 $y=80$ (%) においては選択成長はすでに進行していたと言える。

Fig. 5 に溶接速度 1250 mm/min でビード溶接を行なった試料のそれぞれ (a) $y=0$, (b) $y=50$ および (c) $y=80$ (%) における柱状晶域の (200) 極図形を示す。この場合にも $y=0$ (%) における (200) 面の極の分布は無秩序ではないが、また $y=50$ (%) における分布も $y=0$ (%) の場合にほぼ類似していることがわかる ($y=0$ (%) における分布が Fig. 4 (a) と Fig. 5 (a) で異なっているのは熱履歴の速度が異なるためであろう)。このことからみるとやはり $y=50$ (%) までの柱状晶域

Photo. 7 Microstructure near the weld center in the weld metal at welding speed of 1250 mm/min (as welded)

Fig. 5 (200) pole figures of the columnar zone in the weld metal at welding speed of 1250 mm/min

* 溶融境界では母材の延組織が溶接による融点直下に至る熱履歴を受けたために、複雑な方位配列を示していると思われる。Fig. 4 (a) の分布は方向 N を繊維軸の方向とする [100] 繊維組織の分布と類似している。

では選択成長は行なわれていないものと考えられる。しかし $y=90$ (%) では Fig. 4 (c) のときと同様に F.A. を繊維軸の方向とする [100] 繊維組織が形成していることがわかる。

つぎに溶接方向に平行な単位長さ当たりの柱状晶数とビード内部の位置の無次元表示 y (%) との関係を図 6 に示す。この図より柱状晶数はどちらの溶接速度においても $y=40$ (%) 付近までは一定であって、それ以後からしだいに減少し始めていることがわかる*。すなわち $y=40$ (%) 以後からは選択成長が行なわれていて、これは Fig. 4 および Fig. 5 から得られた結果とほぼ一致している。これはまた Photo. 4 および Photo. 6 のマクロ組織において $y=40\sim 50$ (%) 以後で消滅していく柱状晶がいくつか認められることからわかる。

Fig. 6 Change in number of columnar crystals in 1 mm length vs. y (%)

いっぽう、溶接時の組成的過冷の概念によれば、組成的過冷域は一般に溶融境界から溶接部中央に進むにつれて増大するものと考えられる^{6,7)}。したがってこのことを考慮に入れて本研究の結果を考えてみると、柱状晶の選択成長は相対的に小さな組成的過冷域におけるセル状凝固界面では進行しないが、相対的に大きな組成的過冷域におけるセル状凝固界面では進行するものと考えられる。

これに対し第3報²⁾において、工業用純アルミニウムの溶接部ではセル状凝固組織を示す溶融境界付近から選択成長がすでに進行していることを示した。これは、工業用純アルミニウムの純度は本研究で使用した材料に比

し悪いために、溶融境界付近ですでに相対的に大きな組成的過冷域をもっていて、このため溶融境界付近で形成したセル界面でも選択成長が起こったものと説明される。

4. 結 言

本研究では、公称純度99.99%のアルミニウムの溶接部に形成するセルの成長方向および柱状晶域の方位配列について検討を行なった。その結果をまとめるとつぎのようになる。

(①) 高純度アルミニウムの溶接金属ではセルの成長方向は〈100〉方向にはほとんど無関係であって、固液界面の最大温度勾配の方向にほとんど一致していた。したがって溶接時のように柱状晶が内部に成長するにつれ最大温度勾配の方向がしだいに変化していく場合には、セルの成長方向もその方向に一致して連続的に変化することがわかった。

(②) このようにアルミニウムの溶接金属に形成しているセルの成長方向が最大温度勾配の方向にいちじるしく依存するようになるのは純度がほぼ99.96%以上においてであることがわかった。

(③) このような高純度アルミニウムにおいても溶接部中央付近では選択成長が起こった。その結果、溶接部中央付近の柱状晶域は[100]繊維組織をもつことがわかった。これは、溶接部中央付近では組織的過冷域が相対的に大きくなるためであろうと思われる。

参 考 文 献

- 仙田, 松田, 加藤, 中川: "溶接凝固機構とその組織の特性 (第2報)", 溶接学会誌, Vol. 39 (1970), p. 644.
- 仙田, 松田, 加藤, 中川: "溶接凝固機構とその組織の特性 (第3報)", 溶接学会誌, Vol. 39 (1970), p. 1180.
- D. Walton and B. Chalmers: "The Origin of the Preferred Orientation in the Columnar Zone of Ingots", Trans. Met. Soc. AIME, Vol. 215 (1959), p. 447.
- H.A. Atwater and B. Chalmers: "THE INFLUENCE OF IMPURITIES ON THE MACROMOSAIC STRUCTURES OF TIN AND LEAD", Can. J. Phys., Vol. 35 (1957), p. 208.
- 仙田, 松田, 加藤, 中川: "溶接凝固機構とその組織の特性 (第5報)", 溶接学会誌, Vol. 40 (1971), p. 242.
- W.F. Savage, C.D. Lundin and A.H. Aronson: "Weld Metal Solidification Mechanics", W.J. Vol. 44 (1965), 175s.
- 橋本, 松田: "溶接金属の凝固過程と形成組織の検討", 金材技研報告, 11 (1968), p. 89.

* 溶融境界での柱状晶数が溶接速度によって異なるのは単位ビード長さ当たりの溶接入熱が異なるためである。