高温加熱による工業用純アルミニウムの溶接凝固組織の変化*

迎 静雄** 加藤 光昭** 林田 行生**

Change of Weld Solidification Structure of Commercially Pure Aluminum after Annealing at High Temperature*

by Shizuo Mukae**, Mitsuaki Katoh** and Yukio Hayashida**

Abstract

Inside of columnar crystals which are developed in the weld metal of commercially pure aluminum subgrains are generally observed. Besides, Al-Fe compound is developed along boundaries of the subgrains. These subgrains would affect the mechanical properties and corrosion resistivity of the weld metal. In this report the investigation was made on the change of weld solidification structure when the weld metal was annealed at high temperature which had been as-welded, tensile strained or cold rolled.

Macrostructures after annealing were grouped into following three classes: (i) macrostructure similar to that as-welded, (ii) base metal recrystallises and in the weld metal recrystallisation occurs partially only near the fusion boundary, (iii) recrystallisation occurs all over the weld metal. On the other hand, no considerable change was observed in features of the subgrains in the weld metal. That is, it would be concluded that the subgrains are considerably stable thermally. In the columnar crystal zone of aluminum weld metal fiber texture is developed whose fiber axis is [100]. This fiber texture was also observed after the annealing in the area where the columnar crystals were observed in the weld metal, but disappeared in the area where recrystallization occurred.

Then, the intensity distributions of FeK α radiation in the weld metal were measured with electron probe microanalyser. Each maximum in the intensity distribution curves corresponded to the part which was observed black in the microstructure. Electron micrographs showed that in the weld metal which was annealed at high temperature there existed both compounds and dislocations along the boundaries of the subgrains. This phenomenon is similar to that which was observed in the as-welded metal. When the weld metals which had been tensile strained or cold rolled were annealed the boundaries of the subgrains became discrete and rod- or granular-shaped compounds were also observed inside of the subgrains. These compounds found to be Al₃Fe by selected area diffraction.

1. 緒 言

工業用純アルミニウムを低速度で溶接を行なうと、溶融境界部においてエピタキシャル成長¹⁾をした柱状晶が溶接方向にほぼ垂直に形成され、この柱状晶は選択成長をうける。溶接金属内部にかなり入ると、エピタキシャル成長をした柱状晶の成長は低速度で溶接を行なった場合には困難になり、ストレイクリスタルが形成される。このストレイクリスタルは最大温度勾配の方向にほぼ平行に成長し、溶接金属中央部においては溶接方向にほぼ平行に成長する²⁾。高速度で溶接を行なった場合にはストレイクリスタルはほとんど形成されず、溶接方向にほぼ垂直な方向に柱状晶が形成される²⁾。そして、溶接金

属中央部付近においては等軸晶が形成される³⁾。また、柱状晶あるいは等軸晶の内部にはサブグレインが形成され、このサブグレインの境界には Al-Fe 化合物が晶出している⁴⁾。溶接金属中に存在するサブグレインは、溶接金属の機械的性質あるいは耐食性等に影響を及ぼすと考えられる。

そこで、本研究においては工業用純アルミニウムの溶接金属および溶接金属に加工を施した試料を高温において焼なましを行ない、このさいの凝固組織の変化について検討を行なった。まず、マクロおよびミクロ組織の変化を観察するとともに、X線回折法を用いて集合組織の変化を検討した。また、X線マイクロアナライザを用いて晶出物の分布状態を検討した。さらに、透過電子顕微鏡を用いて焼なまし後の凝固組織の変化および晶出物の形態の変化について検討を行なった。

* 原稿受付 昭和48年8月27日(47年度秋季全国大会に発表)

** 正 員 九州工業大学 Member, Kyushu Institute of Technology

2. 使用材料および実験方法

本研究に使用した材料は工業用純アルミニウムの1050および1100であり、板厚はいずれも1mmである。1050アルミニウムは圧延加工用に、そして1100アルミニウムは引張加工用に用いた。各々の化学成分を Table 1 に示す。

Table 1 Chemical compositions of materials used (wt%)

Material	Cu	Si	Fe	Al
1050 aluminum	0.01	0.10	0.30	Bal.
1100 aluminum	0.02	0.16	0.60	Bal.

溶接はTIGアーク(直流逆極性)によるビード溶接を行なった。溶接を行なう前に試料を350°Cにて1時間ひずみとり焼なましを行なった。溶接速度は250 mm/min(低速度)および750 mm/min(高速度)の二種類とした。溶接にさいしては、熱ひずみでそらない程度に試料を拘束し、板表面と裏面の溶接金属の幅がほぼ等しくなるように溶接条件を選定した。また、試料の下には石綿を敷いた。

溶接のままの試料は高温において焼なましを行なっても溶接凝固組織はほとんど変化しなかったため、溶接を行なった試料に2, 5, 10および15%の引張ひずみを与えたもののほかに、10, 30, 50および70%の圧延率で冷間圧延を行なった試料についても検討を行なった。なお、引張加工および圧延は溶接方向に行なった。焼なましは特にことわらないかぎり640°Cにて1時間行ない、その後炉冷を行なった。

マクロ組織の観察を行なうさいには、王水：フッ化水素酸=95：5の腐食液で腐食を行なった。ミクロ組織を観察するさいには、エメリー紙で研磨した後エチルアルコール：過塩素酸=9：1の電解液を用いて電解腐食を行なった。集合組織の変化はX線回折法を用いて検討した。このさい、透過ピンホール写真法を採用した。また、試料の厚さは化学研磨により0.2 mm以下とした。透過電子顕微鏡観察を行なうさいの薄膜はジェットポリッシング法と窓枠法を併用して作成した。また、加速電圧は200 kVpとした。

3. 実験結果とその考察

3. 1 マクロ組織の変化

Photo. 1 (a), (b), (c) に250 mm/minの速度でビード溶接を行なったのち、640°Cにてそれぞれ4, 10および28時間の焼なましを行なった場合のマクロ組織を示す。焼なまし時間が4時間の場合には母材の結晶粒は粗大化し

Photo. 1. Macrostructures of weld metals after annealing at 640°C which were bead-on-plate welded in a speed of 250 mm/min

- (a) Annealing time of 4 hours
- (b) Annealing time of 10 hours
- (c) Annealing time of 28 hours

ているが溶接凝固組織は溶接のままの組織とほとんど差違は認められなかった。焼なまし時間を10時間とすると母材の結晶粒は粗大化し、溶接凝固組織は溶融境界部近傍のみが一部再結晶している。これは母材から溶接金属部に結晶が成長してきていることに帰因している。この場合も、溶接金属内部のマクロ組織にはほとんど変化は認められなかった。さらに、焼なまし時間を28時間とすると、溶接金属内部において再結晶する領域は10時間の場合に比べて増大している。しかしながら、溶接金属中央部付近の組織は溶接のままの状態とあまり変化は認められなかった。

250および750 mm/minの溶接速度で溶接を行なった

Photo. 2. Macrostructures of weld metals after annealing at 640°C for one hour which were tensile strained (welding speed of 250 mm/min)

- (a) Tensile strain of 0%
- (b) Tensile strain of 5%
- (c) Tensile strain of 15%

後0, 5および15%の引張ひずみを与え, そののち焼なましを行なった試料のマクロ組織を, それぞれPhoto. 2およびPhoto. 3に示す. 引張ひずみが0%の場合には母材および溶接金属ともに全く変化は認められず, 溶接したままの状態と同様であった. 引張ひずみが5%の場合には母材の結晶粒は粗大化し, 溶接金属は溶融境界部近傍のみが再結晶しはじめている. また, 引張ひずみが15%の場合には溶接金属全体にわたって再結晶しているが, このマクロ組織の形態は溶接のままの形態と類似している. この変化の傾向は溶接速度が変化しても全く同様であった.

以上述べたマクロ組織の変化は次の3種類に大別する

Photo. 3. Macrostructures of weld metals after annealing at 640°C for one hour which were tensile strained (welding speed of 750 mm/min)

- (a) Tensile strain of 0%
- (b) Tensile strain of 5%
- (c) Tensile strain of 15%

ことができる;

- (i) 溶接のままとほとんど同一の組織
- (ii) 母材が再結晶をし, 溶接金属においては溶融境界部近傍のみ一部再結晶している組織
- (iii) 溶接金属全体が再結晶している組織.

250および750 mm/minの溶接速度で溶接を行なった試料を10, 30, 50および70%の圧延率で圧延を行ない, その後, 焼なましを行なったさいのマクロ組織を, それぞれPhoto. 4およびPhoto. 5に示す. Photo. 4およびPhoto. 5から明らかなように, 圧延率が10%の場合にも溶接金属全体が再結晶をしている. また, 圧延率が増大するにしたがって再結晶後の結晶粒は次第に小さく

Photo. 4. Macrostructures of weld metals after annealing at 640°C for one hour which were cold rolled (welding speed of 250 mm/min)

- (a) Reduction ratio of 10%
- (b) Reduction ratio of 30%
- (c) Reduction ratio of 50%
- (d) Reduction ratio of 70%

なっているのが認められる。

溶接金属が再結晶をはじめるのは、Photo. 2 (b) および Photo. 3 (b) から明らかなように溶融境界部からである。すなわち、溶融境界部付近においては母材から成長してきた結晶が溶接金属内部まで成長をしていくのである。この現象は次のように考えられる。焼なまし温度および時間が一定の場合、初期の結晶粒径が小さいほど、また、試料中に存在するひずみ量が大きいほど再結晶は起こりやすい³⁾。今の場合、母材のひずみ量は溶接金属のひずみ量とほぼ等しいと考えられる。しかるに、溶接金属の結晶は母材の結晶に比べてかなり大きい。したがって、溶融境界部付近において母材から成長してきた結晶が溶接金属内部まで成長をするのは、母材の結晶

の方が小さいために再結晶しやすいためであると考えられる。また、引張りひずみ量が増大すると溶接金属内部においても再結晶が起こるが、再結晶後も結晶粒の形態は溶接のままの形態と類似していることから、再結晶核が新たに発生するのではなく、主として粒界移動により再結晶粒が成長したものと考えられる。しかしながら、圧延をした場合には圧延率が大きくなると再結晶粒はかなり小さくなり、溶接のままの形態とは異なってくる。したがって、この場合には再結晶核が発生し成長したものと考えられる。すなわち、加工ひずみが小さい場合には主として粒界移動により再結晶が起こり、加工ひずみが大きくなると新たに再結晶核が発生し、再結晶が起こるのである。この現象は従来母材に対して得られている

Photo. 5. Macrostructures of weld metals after annealing at 640°C for one hour which were cold rolled (welding speed of 750 mm/min)

- (a) Reduction ratio of 10%
- (b) Reduction ratio of 30%
- (c) Reduction ratio of 50%
- (d) Reduction ratio of 70%

果と同様である⁵⁾。

3.2 ミクロ組織の変化

Photo. 6 (a) および (b) にそれぞれ溶接のままおよび溶接金属を焼なましを行なったさいのミクロ組織を示す。焼なましを行なうと溶接のままの組織に比べてサブグレインは部分的には分断されはじめているが、いぜんとして互いにはほぼ平行に成長しているサブグレインが認められる。Photo. 7 に溶接金属を 640°C にて28時間焼なましを行なったさいのミクロ組織を示す。Photo. 7 においてパラメータ γ は $\gamma=0\%$ が溶融境界部を、そして $\gamma=100\%$ が溶接金属中央部をあらわす。Photo. 1 (c) から明らかなように、28時間の焼なましを行なうと溶融境界部付近は再結晶する。しかしながら、Photo. 7 (a) に

Photo. 6. Microstructures of weld metals ($\times 150$)
 (a) As welded
 (b) After annealing at 640°C for one hour

Photo. 7. Microstructures of weld metal after annealing at 640°C for 28 hours ($\times 150$)

- (a) $y=0\%$
- (b) $y=50\%$
- (c) $y=100\%$

示したように部分的にはサブグレインの境界が黒く認められる。すなわち、再結晶した後なお部分的にはサブグレインの境界が残存しているのが明らかである。 $y=50\%$ および 100% の領域においては断続的であるが、サブグレインの境界が明瞭に認められる。Photo. 8 (a), (b)は 15% の引張ひずみを与えた後焼なましを行なったさいの柱状晶および等軸晶域のマイクロ組織である。いずれの場合もサブグレインの境界は部分的に分断されて断続的な組織が認められる。

Photo. 9およびPhoto. 10は 250 mm/min の溶接速度でビード溶接を行なった溶接金属を 30% および 70% の圧延率で圧延した後、焼なましをしたさいのマイクロ組織である。Photo. 6 (a)に示したように、溶接のままの状態

Photo. 8. Microstructures of weld metal after annealing at 640°C for one hour which was tensile strained up to 15% ($\times 150$)

- (a) Columnar crystal zone
- (b) Equiaxed dendrite zone

ではサブグレインはほぼ直線的に成長しているが、圧延率が増大するにしたがってサブグレインは不規則な形態を示すようになる。また、サブグレインの幅は圧延率が増大するとともに増大する傾向を有するが、これは圧延をすることにより変化したものである。さらに、溶接金属中央部付近においては粒状の組織が認められるが、これらはサブグレインの境界に沿っている。溶接速度が 750 mm/min の場合のマイクロ組織の変化は、以上述べた溶接速度が 250 mm/min の場合のマイクロ組織の変化とほとんど同様であった。

以上述べたことから、マクロ的にみて溶接金属が再結晶していても、サブグレインの境界は部分的に分断されるのみで、依然として存在することが明らかになった。すなわち、工業用純アルミニウムの溶接金属中に存在するサブグレインは熱的にかなり安定であるといえる。これはAl中のFeの最大固溶限が $0.052\text{ wt}\%$ と小さく⁶⁾、また、Al中のFeの拡散係数が非常に小さい⁷⁾ことに起因している。

3.3 集合組織の変化

アルミニウム溶接金属の柱状晶域には $[100]$ 軸を繊維軸とする繊維組織が形成されている²⁾。これは溶融境界部近傍において選択成長が起こるためである²⁾。3.1

Photo. 9. Microstructures of weld metal after annealing at 640°C for one hour which was cold rolled to the thickness of 0.7 mm ($\times 150$)

- (a) $y=0\%$
- (b) $y=50\%$
- (c) $y=100\%$

において述べたように、溶接金属のマクロ組織は加工状態を変えて焼なましを行なうと種々変化する。ここでは、溶接金属を焼なました場合に上述の繊維組織がどのように変化するかについて検討を行なった。

Photo. 11 (a), (b) および (c) は溶接金属にそれぞれ 2, 5 および 15% の引張ひずみを与えた後、焼なましを行なった試料から得られた X 線回折写真である。Photo. 11 (a) および (b) から明らかなように、引張ひずみが 2 および 5% の場合には [100] 軸を繊維軸とする繊維組織が形成されている。これは Photo. 3 に示したマクロ組織から明らかなように、引張ひずみが 5% の場合には溶接金属はほとんど再結晶していないことに帰因してい

Photo. 10. Microstructures of weld metal after annealing at 640°C for one hour which was cold rolled to the thickness of 0.3 mm ($\times 150$)

- (a) $y=0\%$
- (b) $y=50\%$
- (c) $y=100\%$

る。引張ひずみが 15% の場合には溶接金属は再結晶をして粗粒化してくるために、繊維組織は消滅し、回折写真は断続的なデバイズ点より成っている。

Photo. 12 (a)~(d) はそれぞれ溶接金属に 10, 30, 50 および 70% の圧延率で圧延をした後、焼なましを行なった試料から得られた回折写真である。圧延を行なった場合には Photo. 4 に示したマクロ組織から明らかなように、いずれの場合にも溶接金属全体が再結晶をしている。このため、繊維組織は消滅している。また、圧延率が增大するとともに再結晶粒の大きさは次第に減少するために、回折斑点の大きさも次第に減少しているのが認められた。

Photo. 11. Examples of X-ray diffraction patterns which were obtained from weld metals after annealing at 640°C for one hour which were tensile strained

- (a) Tensile strain of 2%
- (b) Tensile strain of 5%
- (c) Tensile strain of 15%

3. 4 X線マイクロアナライザおよび透過電子顕微鏡による検討

マイクロ組織写真から明らかなように、焼なましを行なった後も溶接金属中にはサブグレインの境界が認められる。ここでは、X線マイクロアナライザを用いて晶出物の分布状態を検討するとともに、透過電子顕微鏡を用いて焼なまし後の凝固組織の変化について検討を行なった。

Fig. 1 は焼なましを行なった溶接金属中の $\text{FeK}\alpha$ 線の強度分布の変化である。周期的に $\text{FeK}\alpha$ 線の強度分布曲線にはピークが認められ、おのおののピークはサブグレインの境界に対応していた。この結果は溶接のままの結果とまったく同様であった。Fig. 2 は溶接金属に15%の引張りひずみを与えた後焼なましを行なった試料の

Fig. 1. Intensity distribution of $\text{FeK}\alpha$ radiation in weld metal after annealing at 640°C for one hour

Fig. 2. Intensity distribution of $\text{FeK}\alpha$ radiation in weld metal after annealing at 640°C for one hour which was tensile strained up to 15%

$\text{FeK}\alpha$ 線の強度分布の変化である。Fig. 2 におけるおのおののピークはマイクロ組織において黒く認められた粒状の組織に対応していた。

以上のことから、3.2において示したマイクロ組織において黒く認められるサブグレインの境界には Fe 化合物が存在することが考えられる。

次に透過電子顕微鏡を用いて、焼なましを行なった後の溶接金属の直接観察を行なった。Photo. 13 は溶接金属を焼なましをした後の透過電子顕微鏡写真（以後、電顕写真という）の一例である。ほぼ直線的に黒く認められるのはサブグレインの境界であり、転位と晶出物から構成されている。この組織は溶接のままの組織とほとんど同様であった。Photo. 14 は溶接金属に15%の引張りひずみを与えた後焼なましを行なった試料の電顕写真の一例である。黒く棒状に認められるのは晶出物である。これらの晶出物は、溶接時に形成されたサブグレインの境界が焼なましにより分断され、溶接金属中において再

Photo. 12. Examples of X-ray diffraction patterns which were obtained from weld metals after annealing at 640°C for one hour which were cold rolled

- (a) Reduction ratio of 10%
- (b) Reduction ratio of 30%
- (c) Reduction ratio of 50%
- (d) Reduction ratio of 70%

Photo. 13. An example of electron micrographs of weld metal after annealing at 640°C for one hour

Photo. 14. An example of electron micrographs of weld metal after annealing at 640°C for one hour which was tensile strained up to 15%

分岐したものであると考えられる。制限視野回折法により同定を行なった結果、これらの晶出物は Al_3Fe であると同定できた。すなわち、焼なましを行なったさいミクロ組織において黒く認められたのは、溶接時に形成されたサブグレインの境界に存在する晶出物⁹⁾と同一である。これは Al_3Fe が安定相^{8,9)}であることに帰因している。

Photo. 15 および Photo. 16 はそれぞれ溶接金属に圧延率 10 および 50% で圧延を行ない、その後焼なましを行なった試料の電顕写真である。Photo. 15 (a) および Photo. 16 (a) においてそれぞれ黒く認められる組織(A-A および B-B) は溶接時にサブグレインの境界に晶出した晶出物である。この他に黒く認められるのは、焼なましによりサブグレインの境界が分断され、溶接金属中

Photo. 15. Electron micrographs of weld metal after annealing at 640°C for one hour which was cold rolled to the thickness of 0.9 mm

Photo. 16. Electron micrographs of weld metal after annealing at 640°C for one hour which was cold rolled to the thickness of 0.5 mm

において再分布したものである。Photo. 15 (b) および Photo. 16 (b) から明らかなように、溶接金属を圧延後焼なましを行なった場合にも棒状あるいは粒状の晶出

物が認められ、晶出物の形態は引張加工を施した場合 (Photo. 14) とほぼ同様であった。

4. 結 論

工業用純アルミニウムの溶接金属を、高温において焼なましを行なったさいの凝固組織の変化について検討を行なった。得られた結果をまとめると次のとおりである：

(1) 焼なまし後のマクロ組織は次の3種類に大別できた。(i) 溶接のままとはほとんど同一の組織、(ii) 母材が再結晶をし、溶接金属においては溶融境界部近傍のみ一部再結晶している組織、(iii) 溶接金属全体が再結晶している組織

(2) 溶接金属を焼なましをしても、溶接時に形成されたサブグレインの境界は部分的に分断されるのみで、依然として存在していた。すなわち、サブグレインは熱的にかなり安定であるといえる。

(3) マクロ組織において柱状晶が認められる場合には繊維組織が残存しているが、再結晶すると繊維組織は消滅した。

(4) FeK α 線の強度分布曲線のピークはミクロ組織において黒く認められる位置に対応していた。

(5) 溶接金属を焼なましした場合、サブグレインの境界に沿って晶出物および転位が存在していた。これは溶接のままの状態と同様であった。

(6) 溶接金属に加工を施した後焼なましを行なった場合、加工度が增大するとともにサブグレインの境界は分断され、サブグレイン内部にも棒状あるいは粒状の晶出物が認められるようになった。これらの晶出物は Al₃Fe と同定できた。

参 考 文 献

- 1) 仙田, 松田, 加藤, 中川: 溶接凝固機構とその組織の特性(第1報), 本誌, **38** (1969) 1379—1384
- 2) 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), 本誌, **39** (1970) 1180—1189
- 3) 仙田, 松田, 加藤, 中川: 溶接凝固機構とその組織の特性(第7報), 本誌, **41** (1972) 75—82
- 4) 迎, 加藤, 松本: アルミニウム溶接金属におけるミクロ偏析, 本誌, **42** (1973) No. 8 掲載予定
- 5) J. Gerald Byrne; "Recovery Recrystallization and Grain Growth", 邦訳 小原嗣朗訳; 回復および再結晶, 丸善(昭和43年)
- 6) M. Hansen; "Constitution of Binary Alloys", McGraw-Hill (1958)
- 7) K. Hirano, R.P. Agarwala, M. Cohen; Diffusion of Iron, Nickel and Cobalt in Aluminum, Acta Met., **10** (1962) 857—863
- 8) E.H. Hollingsworth, G.R. Frank, R.E. Willet; Identification of a New Al-Fe Constituent, FeAl₃, Trans. AIME, **224** (1962) 188—189
- 9) 小菅, 水上: 高温加熱時の Al-Fe-Si 合金中の 棒ノ 木組織の挙動, 軽金属, **22** (1972) 437—444