

論 文

UDC 669.14.018.252.3 : 621.746.628

高速度工具鋼の凝固組織*

郡 司 好 喜** · 日 下 邦 男***

石 川 英 次 郎**** · 須 藤 興 一****

Solidification Structure of High Speed Tool Steel

Koki GUNJI, Kunio KUSAKA, Eijiro ISHIKAWA, and Koichi SUDÔ

Synopsis:

Solidification structures of the AISI M2 type high speed tool steel were studied under various solidification conditions by metallographic and thermal analysis. Small laboratory melts were unidirectionally solidified to simplify the freezing process. Also cooling curves were obtained on 300 kg ingots to investigate the differences in the solidification structure and freezing process between the unidirectionally frozen ingots and practical ingots.

The results obtained were as follows:

- 1) The secondary dendrite arm spacing, $S_{II}(\mu)$, in columnar crystals of unidirectionally frozen ingots, was influenced only by the average cooling rate, $R(^{\circ}\text{C}/\text{min})$, during solidification, exhibiting relationship, $S_{II}=100 R^{-0.28}$, for the M2 steel.
- 2) The progression of liquidus isotherm in 300kg ingot varied linearly with square root of time, but that of solidus isotherm did not.
- 3) In 300 kg ingots, grain diameter of equiaxed crystals, $l(\mu)$, varied with average cooling rate, R , as did the dendrite arm spacing, showing relationship, $l=220 R^{-0.29}$. These results indicate that the mechanism of the growth of globular grain is similar to that of the secondary dendrite arm.
- 4) The morphology of the dendrites changed from equiaxed to cellular type with decreasing liquidus isotherm drift rate, $V(\text{cm}/\text{min})$, and with increasing temperature gradient, $G(^{\circ}\text{C}/\text{cm})$, across solidified layer.

(Received Nov. 9, 1972)

1. 結 言

高速度工具鋼の炭化物は、鋼材の特性を大きく左右するものであり、とくにその分布や粒度は重要な因子の1つである。炭化物はできるだけ均一に、しかも微細に分布していることがのぞましいが、これは鋼塊の凝固組織と密接な関係があるものと思われる。

本報告は、炭化物と凝固組織の基本的関係を明らかにする手がかりとして、凝固条件を変えた一方向凝固法によつて小鋼塊を溶製し、凝固条件と凝固組織の関係を求め、さらに実用 300 kg 鋼塊を下注により造塊し、熱分析を行なつて、凝固組織を観察し、一方向凝固法による場合の凝固組織と凝固条件の關係の実用鋼塊への適用性を検討したものである。

2. 実 験 方 法

2.1 一方向凝固法による実験

Table 1 に示す JIS-SKH 9 鋼をアルゴン気流中で

再溶解し、下記のように鑄造した。

鑄型は Fig. 1 のごとくで、水冷銅管に内径 50 mm のアルミナ管をはめこみ、縦型加熱炉にて 1000°C, 1050°C, 1100°C, 1200°C, 1250°C の 5 段階に加熱した。高周波炉で再溶解した溶鋼を、1520°C, 1570°C, 1620°C (過熱がおのおの 100°C, 150°C, 200°C) の各温度で注入し、1.8 kg 鋼塊を作製した。熱分析のための熱電対は、外径 4 mm の石英管により測温点が鑄型の中心軸に沿うように配置した。注入に際しては、条件をそろえるためロウトを使用し、また上部よりの冷却をおさえるため注入後は直ちに発熱剤 (金属アルミニウム 23%, 鉄酸化物 15%, Al₂O₃ 30%, SiO₂ 10%, 発熱量 2050 cal/g) を鑄型中に投入した。鑄造後鋼塊は低温焼鈍して

* 昭和46年10月、47年4月本会講演大会にて発表
昭和47年11月9日受付

** 金属材料技術研究所 工博

*** 特殊製鋼(株) 工博

**** 特殊製鋼(株)研究所

Table 1. Chemical composition of the steel tested (wt%).

Steel	C	Si	Mn	Ni	Cr	Mo	W	V	Co
SKH-9	0.88	0.29	0.30	0.12	4.21	5.38	6.37	1.96	0.21

Table 2. Chemical composition of the steels and position of thermocouples.

Pouring temperature (°C)	Weight of ingot (kg)	Chemical composition (wt%)									Position of thermocouples (mm)			
		C	Si	Mn	Ni	Cr	Mo	W	V	Co	a	b	c	d
1510	320	0.89	0.28	0.31	0.09	4.27	4.98	6.18	1.82	0.27	15.5	48.4	76.6	91.2
1560	320	0.88	0.26	0.30	0.13	4.23	4.98	6.32	1.90	0.38	18.4	51.5	75.7	101.8

Steel : SKH 9

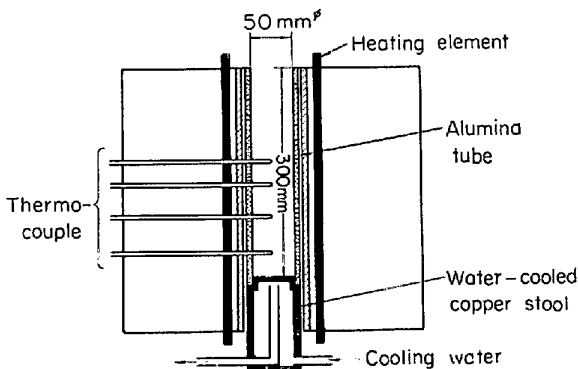


Fig. 1. Mold used for casting.

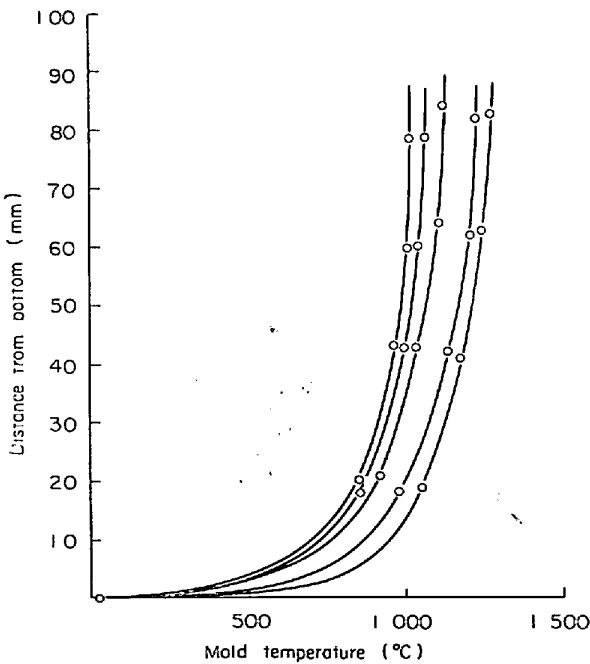
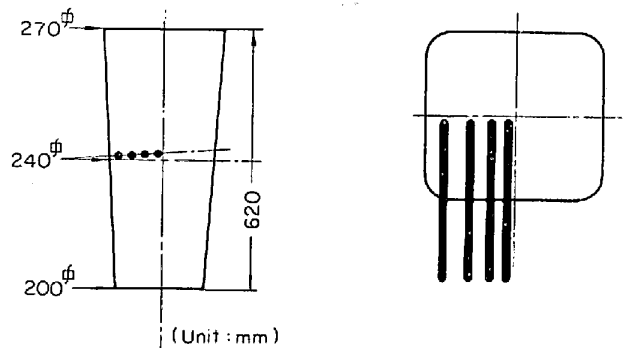


Fig. 2. Temperature distribution in the mold before pouring molten steel.

縦に2分し、熱電対位置を確認した後一方をマクロ組織、他方をミクロ組織の検鏡に供した。

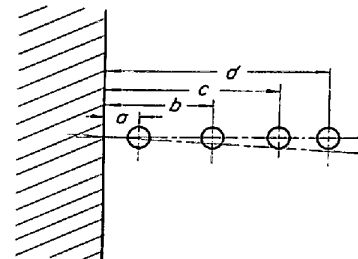


Fig. 3. Size of the ingot and position of thermocouples.

Fig. 2 は注入直前の鑄型内温度分布を示したもので、前述の5段階の加熱温度は、底部より約80mmにおける最上部の熱電対の温度で決めた。

2.2 実用300kg鋼塊による実験

一方向凝固の場合と同じSKH9鋼を、注入温度1510°Cならびに1560°Cにて下注し、角型300kg鋼塊を造塊した。鋼塊の形状、寸法はFig. 3に示した。熱分析は鋼塊中央部において、鑄型壁から直角に中心に向かって適当な位置に配置した4本の熱電対によつて行なつた。また酸化防止、保温のため上昇しつつある温面には溶剤(CaO/SiO₂=0.06)を投入した。鑄造後、鋼塊は低温焼鈍し、縦に2分してマクロ組織ならびにミクロ組織の検鏡に供し、熱電対位置を確認して鑄型壁からの距

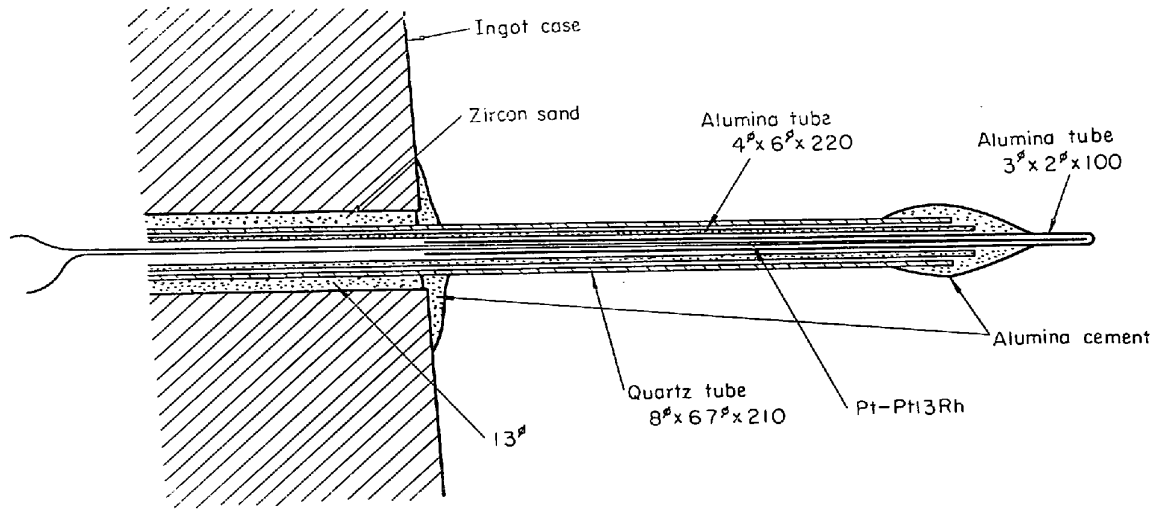


Fig. 4. Installation of thermocouple.

離 (a, b, c, d) を決定した. Table 2 にその距離ならびに供試材の化学成分を示した.

Fig. 4 は, 実用鋼塊の熱分析に使用した熱電対の断面である. 熱電対の保護管には外径 3 mm, 肉厚 0.5 mm のアルミナ管を内側に, その外側を外径 6 mm, 肉厚 1 mm のアルミナ管, 更に外径 8 mm の石英管で保護してある 3 重管を用いた. また測温感度を上げるため, 外径 3 mm のアルミナ管は先端部が約 20 mm ほど露出している. 実用鋼塊の熱分析を行なう場合, 凝固に伴う収縮や, 保護管の高温における強度などが問題となり, 測温がむずかしい²⁾. 本実験では, 比較的小鋼塊のためもあり, Fig. 4 の方法で十分であった.

3. 実験結果と考察

3.1 一方向凝固法による実験結果と考察

3.1.1 マクロ組織

前述の方法で溶製した 15 条件の鋼塊のマクロ組織を, Photo. 1 に示した. 腐食液は塩化銅と塩化アンモンの混合水溶液を用いた.

(1) 鑄型温度 1000°C の場合

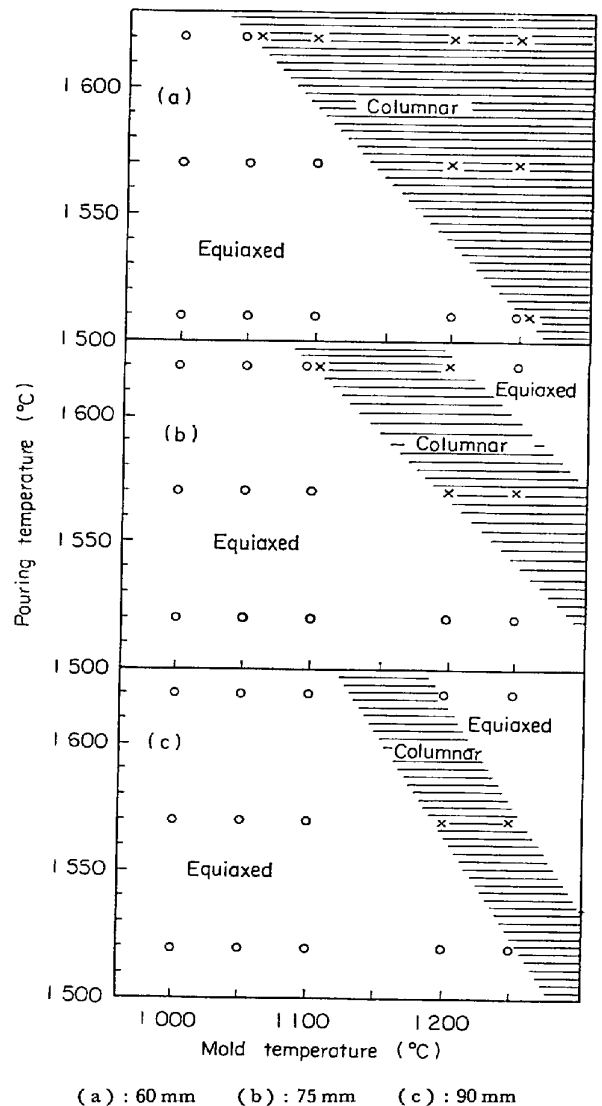
どの注入温度の場合も柱状晶は認められず, ほとんど等軸晶から成っている.

(2) 鑄型温度 1050°C の場合

注入温度 1620°C のもののみチル部より約 60 mm の柱状晶が認められ, その上部約 50 mm は等軸晶となっている.

(3) 鑄型温度 1100°C の場合

注入温度 1620°C では底部より 75 mm まで柱状晶領域を増すが, 1570°C 注入では底部にわずかに認められる程度である.



(a) : 60 mm (b) : 75 mm (c) : 90 mm
Fig. 5. Change of macrostructure with pouring and mold temperature at each position above bottom.

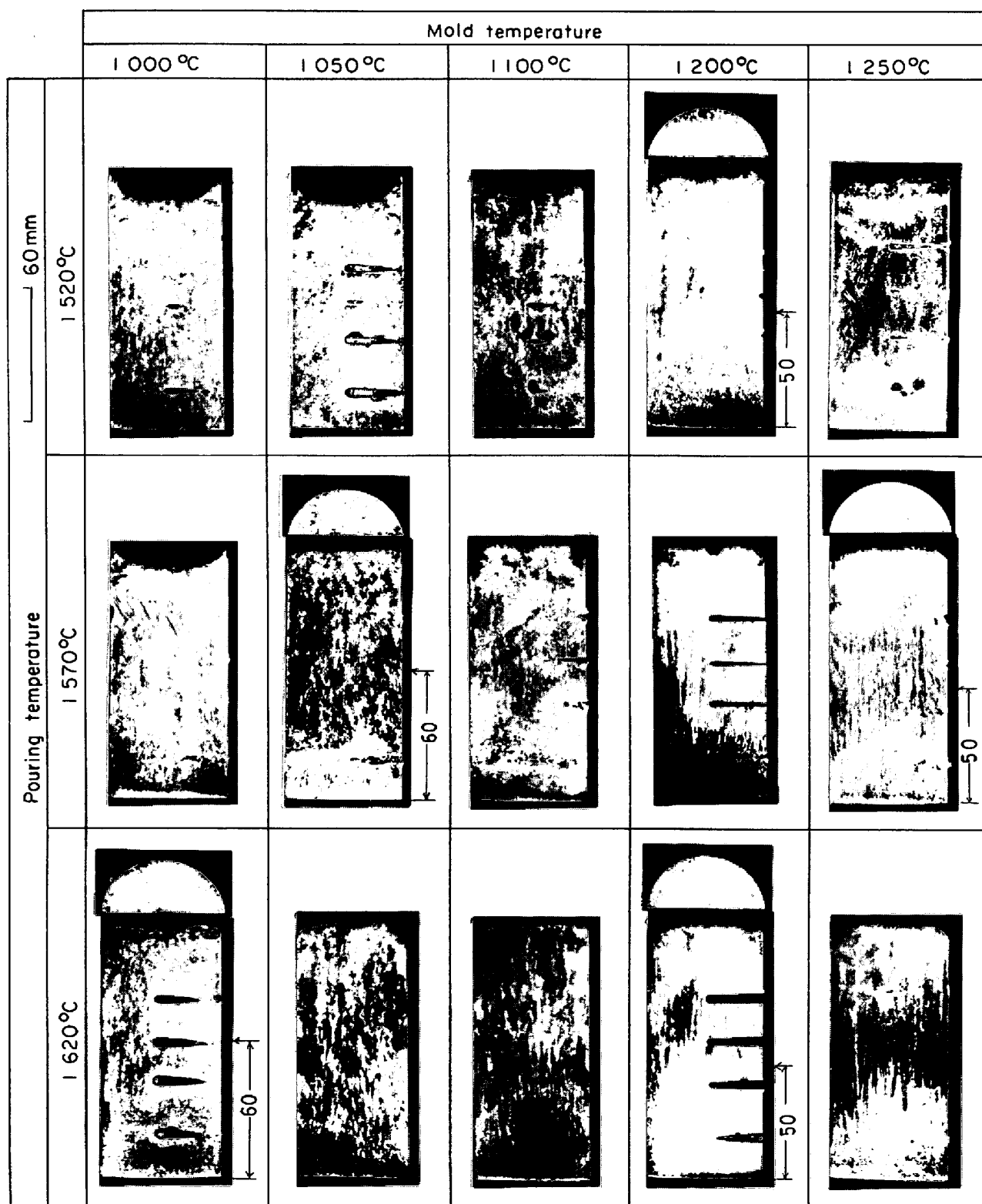


Photo. 1. Macrostructure of unidirectionally frozen ingots.

(4) 鑄型温度 1 200°C の場合

注入温度 1 620°C では、85 mm まで柱状晶が長くなる。1 570°C ではさらに長く 95 mm と柱状晶がよく発達しているが、それでも上部約 20 mm は等軸晶域として

残っている。1 520°C では底部より 15 mm とわずかに柱状晶が見られた。

(5) 鑄型温度 1 250°C の場合

注入温度 1 620°C では、柱状晶は 70 mm でわずかに

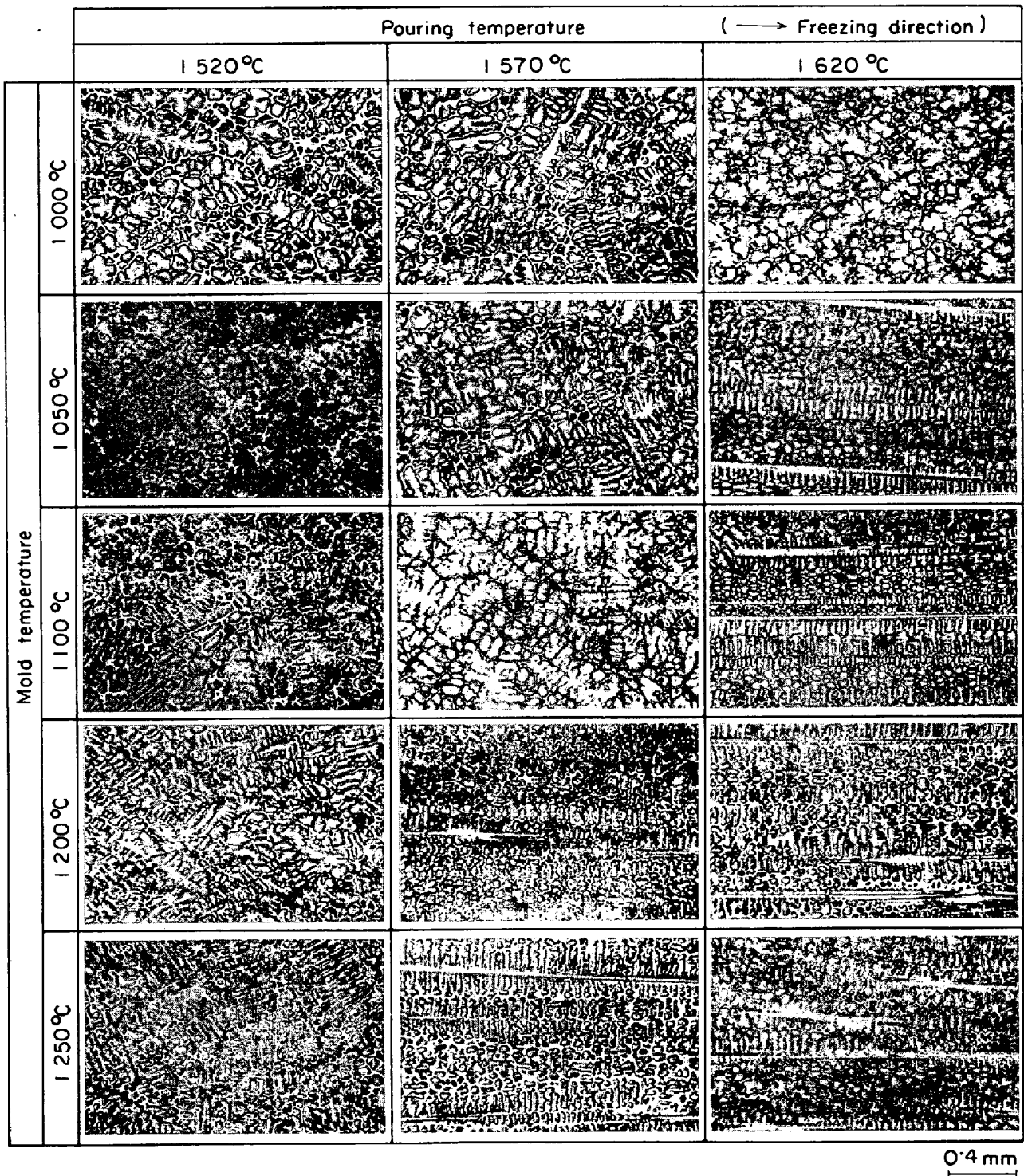


Photo. 2. Microstructure on longitudinal section at 40 mm above the bottom of ingots.

短くなる。1 570°C では、鋼塊縦断面内外層の部位によつて柱状晶がほとんど上部まで伸びている部分もあり、75 mm 程度の部分もあつて、柱状晶と等軸晶の境界が一樣の高さでない。なお熱電対位置では約 95 mm までが柱状晶域である。1 520°C ではほぼ凝固方向に長く伸びた dendrite が多く認められるようになるが、まだそ

の方向は一定しておらず完全な柱状晶とは認めがたい。しかし 85 mm までは柱状晶にかなり近く、等軸晶より柱状晶への過渡的組織と思われた。ただし底部より 15 mm ほどまでは完全な柱状晶が確認された。

以上の結果を定性的に Fig. 5 (a)~(c) に示した。本来、鑄型温度、注入温度、柱状晶長さの 3 元による立

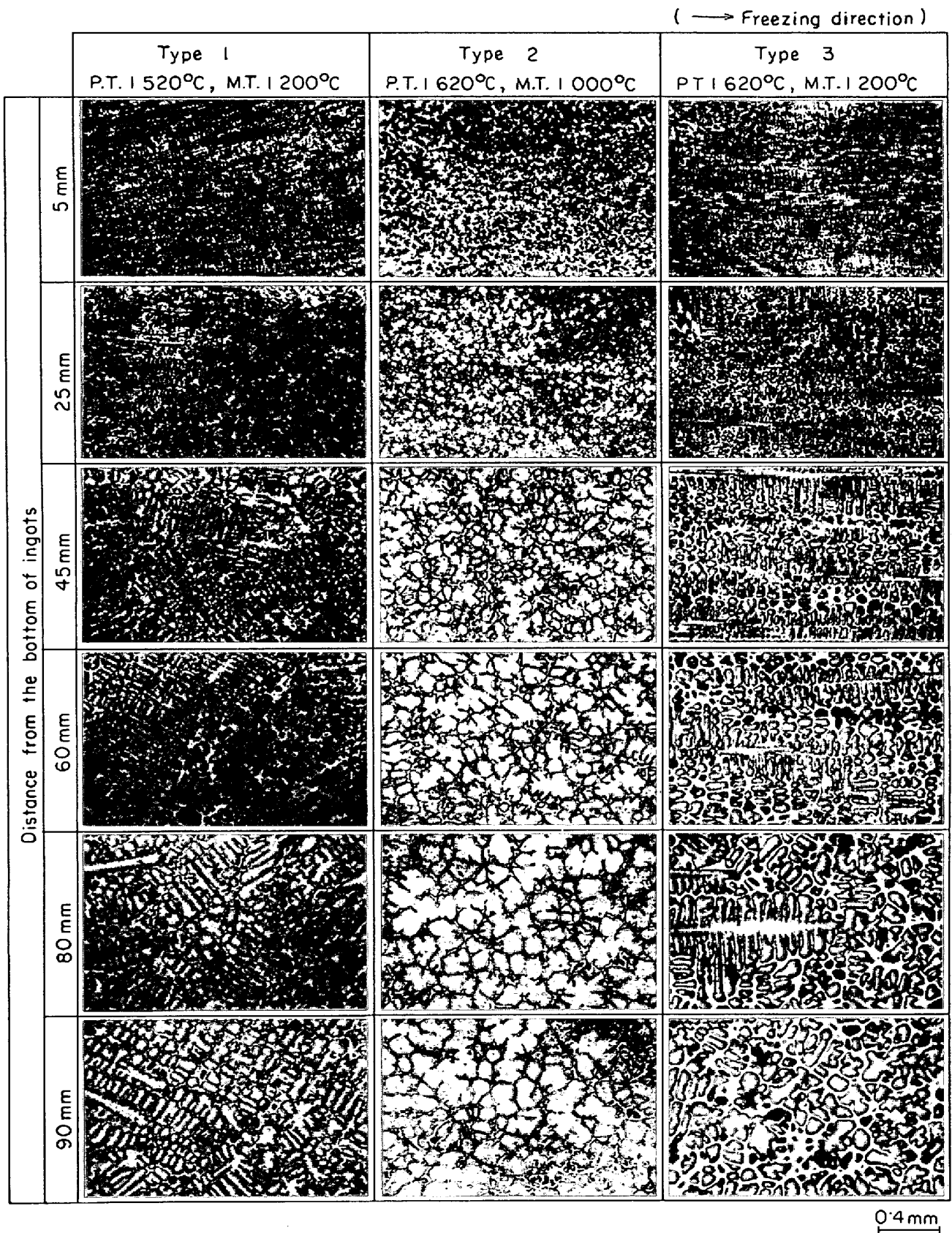


Photo. 3. Microstructure of 3 types on longitudinal section at each distance from the bottom of ingots.

体図を作図することができるが、ここでは底部より 60 mm, 75 mm, 90 mm における柱状晶の有無を注入条件によつて区分し図に表わした。すなわち、全面等軸晶であつたものが、ある鑄型温度、注入温度以上で柱状晶が生成するようになる。しかしいずれの条件のものでも柱状晶の上部にはさらに等軸晶が存在している。前者の等軸晶と後者のそれとは、その生成機構が異なるもので、これについてはマイクロ組織の観察結果とあわせて後で考察する。

3.1.2 ミクロ組織

まず、各凝固条件によるマイクロ組織の相違を鋼塊の底部より 40 mm の組織によつて比較した。腐食液はナイトールを用いた。Photo. 2 に 15 条件の組織を一括して示した。

1 520°C 注入における鑄型温度の影響を観察すると、温度が高くなるにつれて、デンドライトの形状が明りようになり、長さも長くなる。鑄型温度が 1 050°C 以下ではデンドライトはくずれた形状をしており、粒状晶に近い組織のものが多い。

1 570°C 注入の場合では、鑄型温度が 1 200°C 以上になると非常に明りようなセルラーデンドライトが観察される。1 100°C 以下のものは方向の一定でないデンドライトからなる等軸晶を形成する。

1 620°C 注入の場合では、鑄型温度 1 050°C ですでにセルラーデンドライトが観察され、柱状晶を形成している。しかし 1 000°C ではほとんどの結晶が粒状に近い形態を示している。

以上のように、凝固条件の変化に伴つていろいろの凝固組織を示すので、それらのうち代表的な 3 つのタイプの組織について冷却端よりそれぞれの位置における写真の例を Photo. 3 に示す。

(1) 第 1 のタイプは、1 520°C 注入、1 200°C 鑄型温度のものである。これは底部にわずか (15 mm) 柱状晶を形成するセルラーデンドライトが認められるが、ほとんどが方向の定まらないデンドライトの多く見られる等軸晶域の組織を示している。……………(a)

(2) 第 2 のタイプは、1 620°C 注入、1 000°C 鑄型温度のものである。底部より頭部に至るまで粒状晶に近い組織を示し、完全な形状のデンドライトはほとんど認められない等軸晶組織である。……………(b)

(3) 第 3 のタイプは、1 620°C 注入、1 200°C 鑄型温度のもので、底部より 80% ほど柱状晶を形成するセルラーデンドライトから成っている。80 mm のところでセルラーデンドライトの成長が止まり、その上部は方向の定まらないデンドライト結晶、さらに粒状に近い結

Table 3. Microstructure of the ingots tested.

Mold temp. Pouring temp.	1 000	1 050	1 100	1 200	1 250
	(°C)	(°C)	(°C)	(°C)	(°C)
1 520°C	(b)	(b)	(a)	(a)	(a) or (c)
1 570°C	(a)	(a)	(a)	(c)	(c)
1 620°C	(b)	(c)	(c)	(c)	(c)

(a) : Dendritic (in equiaxed crystals)
 (b) : Globular (in equiaxed crystals)
 (c) : Cellular dendritic (in columnar crystals)

晶となつて等軸晶域を形成している。……………(c) それぞれの条件により得られた鋼塊のマイクロ組織が、Photo. 3 の 3 つのタイプのどれに所属するかを Table 3 にまとめた。注入温度、鑄型温度が高くなるにつれて、粒状晶から方向の定まらないデンドライト、さらにセルラーデンドライトへと変化するのが一般的な傾向である。

3.1.3 各組織の生成機構についての考察

Photo. 1~3 に各鋼塊のマクロ組織ならびに代表的マイクロ組織を示したが、これらの組織の生成機構は次のように考えられる。

(1) ロート、チル部、鑄型壁などで生成したデンドライト結晶片が注入流により運ばれて、均一に鑄型内に分布する。

(2) 鑄型温度、注入温度が高く十分な熱量があれば、デンドライト小片が再溶解するので、新たにチル部より発達したセルラーデンドライトが柱状晶を形成する。

(3) これと異なり、デンドライト小片が再溶解できないときは、均一に分布した結晶片がそのまま成長し、デンドライト状あるいは粒状に凝固し、等軸晶を形成する⁵⁾。

(4) またよく発達した柱状晶の上部にできる等軸晶の生成機構については次の 2 点を考えた。

(イ) 機械的に柱状晶の発達止められた場合

すなわち、柱状晶の先端に結晶片が降下して成長が止められた場合を意味し、一方向凝固が最後まで完全に行なわれなかつたことに原因するものである。確かに、いかに鑄型を加熱したとしても最高 1 250°C であり、液相線温度を 170°C も下まわるため、凝固末期において底部より柱状晶が到達する以前に鑄型壁で核形成が起こる可能性は否定できない。また発熱剤を使用しているといえども、上部よりの冷却によつて湯面でデンドライトが形成されないとも言いきれない。したがつてデンドライトの溶断分離⁴⁾、あるいはシャワーリング⁶⁾によつて微

細結晶片が柱状晶の先端に沈降し、その成長を阻止することも考えられる。

(ロ) 柱状晶の先端でその成長条件が消失した場合

すなわち、温度勾配とその凝固速度の比が柱状晶の成長できない条件になり、セルラーデンドライトの前方で核生成がおこり、等軸晶を形成するというものである⁷⁾⁸⁾。この一方向凝固における柱状晶から等軸晶への遷移の機構について、岡本⁹⁾はいわゆる組成的過冷にもとづく考察を行なっている。したがって一方向凝固が完全に行なわれたとすれば、この生成機構は十分考えられるものである。

3.1.4 冷却曲線、ならびに液相線、固相線温度の決定

実験に供した Mo 系高速度工具鋼 SKH 9 は、凝固に際して大略次の4段階の過程をたどるといわれている¹⁰⁾¹¹⁾¹²⁾¹³⁾。

- ① $M \rightleftharpoons \delta$
- ② $M + \delta \rightleftharpoons \gamma$ (1 330°C¹²⁾¹³⁾
- ③ $M + \delta \rightleftharpoons \gamma + M_6C$
- ④ $(M \rightleftharpoons \gamma + MC)$ (1 260°C¹³⁾
 $M \rightleftharpoons \gamma + M_6C$ (1 235°C¹²⁾, (1 240°C¹³⁾

M; 融液

δ ; フェライト

γ ; オーステナイト

M_6C ; $Fe_4(Mo, W)_2C$

$Fe_3(Mo, W)_3C$

MC; VC

すなわち①の反応でフェライトデンドライト (Fe, W, V, Cr 含有) が晶出する。しかし C は非常に低いので、C の高い液相ができて②の反応のオーステナイトがフェライトデンドライトを取りまくバンドとして析出するいわゆる包晶反応が起こる。次に③の包共晶反応で $M + \delta \rightleftharpoons \gamma + M_6C$ により M_6C を析出し、 δ 相が消失する。この反応は通常の凝固の場合には十分に進行しないで④'の反応として $\delta \rightleftharpoons M_6C + \gamma$ なるいわゆる δ -Eutectoid が起こるといわれる¹¹⁾¹⁴⁾。④の反応として残った融液は

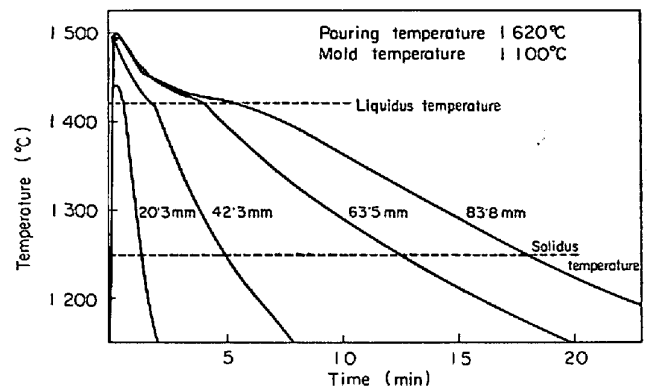


Fig. 6. Typical cooling curves at several positions.

共晶反応でレデブライトを析出する。このレデブライトが網目状炭化物組織を造る。

Fig. 6 は鋼塊の各点における冷却曲線の1例を示すものである。①の反応の液相線温度は比較的明確に得られるが、④の共晶温度はほとんど観測できない場合が多い。したがって別に正確な熱分析を行ない、①の液相線温度を 1420°C、④の固相線温度を 1250°C と決定した。その凝固温度範囲は 170°C とかなり広いものである。

3.1.5 凝固速度

冷却端よりの距離 x (mm) と液相線等温面の到達時間 t (min) の間には、 $x = k\sqrt{t} - C$ (k, C は定数) なる関係がある^{15) 18)}。またこの関係式から各位置における凝固速度 V (mm/min) は $V = k^2/2(x+C)$ であらわされる。Table 4 に15条件のおおのの k ならびに C を示した。これより、 k は高温注入、高温鑄型になるほど小さくなり、凝固速度は全般に遅くなる。また C も小さくなって次第に原点を通る関係に近くなり、ごく初期の凝固の“遅れ”が少なくなる。また同様に固相線等温面の進行も \sqrt{t} に対し直線関係があることがわかった。その結果を同じく Table 4 に示した。ただし注入温度 1620°C、鑄型温度 1250°C の場合のみは、鋼塊頭部にいたると凝固速度の大きい方に直線よりずれる傾向が見られた。

Table 4. Progression of liquidus and solidus isotherm. x (mm) = $k\sqrt{t$ (min.) - C

Mold temp.		1 000°C		1 050°C		1 100°C		1 200°C		1 250°C	
		<i>k</i>	<i>C</i>	<i>k</i>	<i>C</i>	<i>k</i>	<i>C</i>	<i>k</i>	<i>C</i>	<i>k</i>	<i>C</i>
Liquidus	1 520°C	47.9	18.9	46.7	11.2	46.3	16.5	40.9	10.7	35.9	8.3
	1 570°C	47.6	9.1	46.5	14.6	42.2	11.4	30.5	0.8	28.8	-0.5
	1 620°C	43.7	14.6	40.6	13.6	39.4	10.6	30.0	5.0	26.4	-1.1
Solidus	1 520°C	24.7	13.0	23.5	5.1	21.0	4.5	21.7	6.0	15.5	1.1
	1 570°C	26.1	9.5	23.9	8.0	22.1	6.5	16.2	-1.5	16.8	-1.3
	1 620°C	24.2	7.5	23.1	10.6	19.0	0.7	16.4	1.1	12.1	-6.8

3.1.6 デンドライトの2次アームスペーシング

次に FLEMINGS¹⁹⁾ や KATTAMIS²⁰⁾ ら、あるいは岡本²¹⁾ ~²³⁾、鈴木²⁴⁾ ~²⁶⁾ らが測定した、デンドライトの2次アームスペーシングと固液共存温度範囲における平均冷却速度との関係を求めた。

(1) 鋼塊の各位置における凝固温度範囲の平均冷却速度

凝固温度範囲 170°C における平均冷却速度とマイクロ組織の観察によつて得られるデンドライト2次アームスペーシングとの関係を知るため、おのおのの鋼塊の4点で測定した冷却曲線から平均冷却速度を算出し、冷却速度 R (°C/min) と底部からの距離 x (mm) との関係を求めた。 R と x の間には $\log R = a \log x + b$ (a, b は定数) なる関係が成立し²⁴⁾、その1例を Fig. 7 に示した。

このように得られた 15 条件の関係式をもとに、おのおのの鋼塊につき底部より 5 mm 間隔で冷却速度を算出し、その位置におけるマイクロ組織と対応して2次アームスペーシングを測定した。

(2) 柱状晶域におけるデンドライトの2次アームスペーシングと平均冷却速度の関係

以上の要領で得られた柱状晶帯の底部より 5 mm 間隔の各位置における R と、その位置における7枝以上の2次アームを有する6~10個のデンドライトの平均2次アームスペーシング S_I (μ) との間には Fig. 8 の関係があつた。すなわち、一般に S_I と R 間には $\log S_I =$

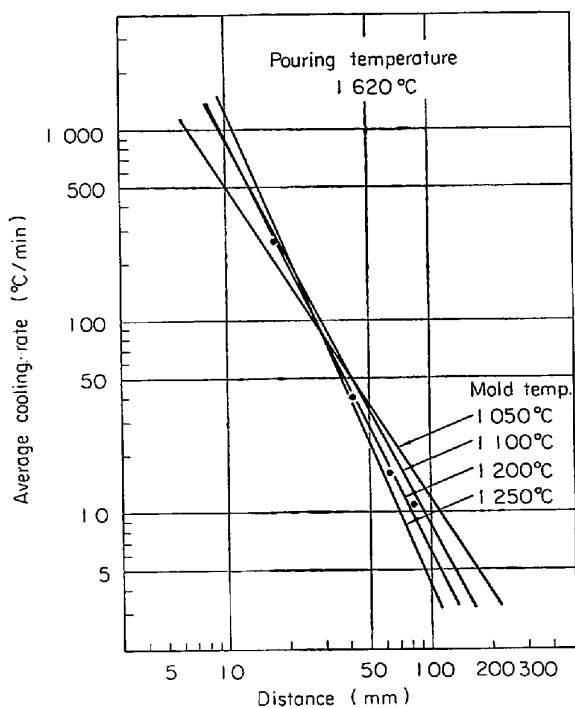


Fig. 7. Relationship between cooling rate and distance from the bottom of ingots.

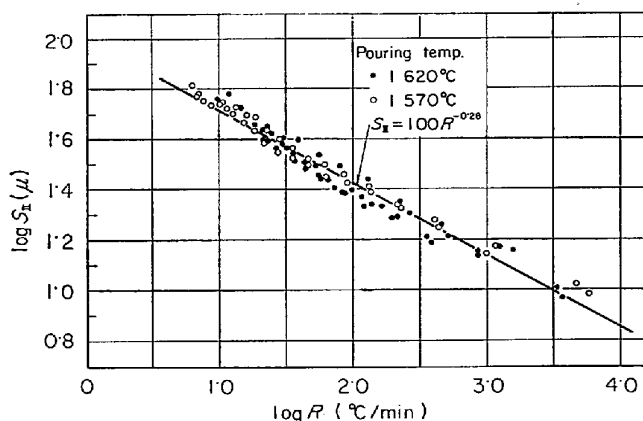


Fig. 8. Relationship between average cooling rate, R , during solidification and secondary dendrite arm spacing, S_I , in columnar crystals.

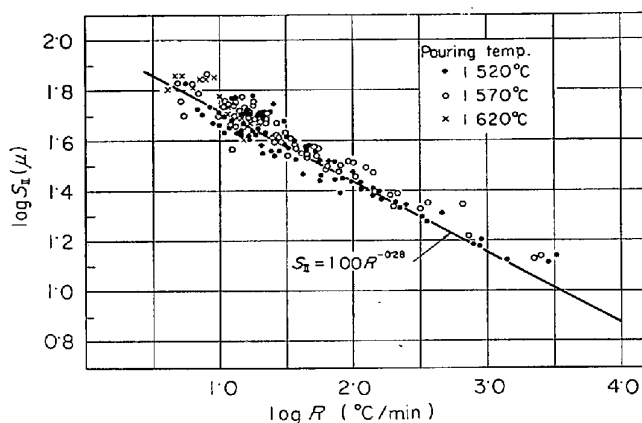


Fig. 9. Relationship between average cooling rate, R , during solidification and secondary dendrite arm spacing, S_I , in epiaxial crystals.

$a \log R + b$ (a, b は定数) が成立つものである^{19)~26)}。1620°C 注入のものと、1570°C 注入の両者を合せた場合の相関関係は図の直線となり、 $S_I = 100 R^{0.28}$ が得られた。

このように、 S_I を R のみで整理すれば、柱状晶帯においては凝固条件が変化しても同一に取扱えるという従来の定説を、高速度工具鋼の場合においても確認することができた。

なおこの値は、鈴木らの測定した炭素鋼²⁴⁾ の $S_I = 709R^{-0.386}$ 、Cr-Mo 鋼 (SCM 4)²⁵⁾ の $S_I = 610R^{-0.36}$ 、ステンレス鋼 (25 Cr-20 Ni)²⁶⁾ の $S_I = 208 \cdot 2R^{-0.38}$ などの鋼に比べ組織が微細で、しかも冷却速度の影響も小さいことを示している。

(3) 等軸晶域におけるデンドライトの2次アームスペーシングと平均冷却速度の関係

Fig. 9 は、柱状晶域での S_I - R の関係を実線で示し、そのグラフ上に等軸晶域におけるデンドライトの2次ア

ームスペーシングを R に対応してプロットしたものである。

S_1 と R の関係は柱状晶域の場合に近いが、測定値の偏差はやや大きい。鈴木ら²⁷⁾も等軸晶域における偏差の大きいことを実用鋼塊で認めている。これは、等軸晶域のデンドライトの凝固条件が柱状晶域のそれと異なるためと考えられる。たとえば、増殖された結晶片が直ちに固体に接して成長すれば、柱状晶と同程度の2次アームスペーシングになると推定されるが、結晶片が遊離して融液中にある場合は、局部凝固時間が長くなり2次アームスペーシングは増大するだろう。したがって、等軸晶の2次アームスペーシングとみかけの冷却速度の関係の偏差が大きくなるものと考えられる。

3.2 実用 300 kg 鋼塊による実験結果と考察

3.2.1 冷却曲線

Fig. 10 は、注入温度 1510°C の場合に得られた4点の冷却曲線である。このデータから凝固速度、冷却速度、ならびに温度勾配などを測定した。図からわかるように鋼塊中心部の位置に近い2点で共晶点はかなり明りように観測されたのが一方凝固の場合と異なる点である。液相線温度 1420°C、固相線温度 (共晶点) 1250°C は、3.1.4 の結果と同様である。

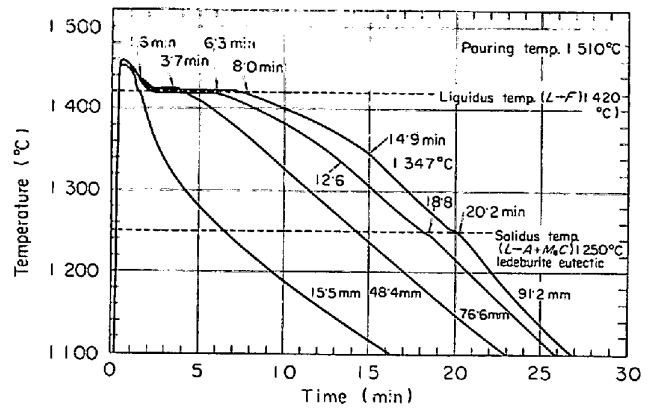


Fig. 10. Typical cooling curves at several positions in 300 kg ingot.

3.2.2 マクロ組織ならびにミクロ組織

Photo. 4 に実験によつて得た鋼塊の熱電対近傍におけるマクロ組織ならびにミクロ組織の1例を示した。これは 1560°C 注入の場合であるが、1510°C 注入においてもほとんど同じ組織が得られた。マクロ腐食は塩化銅ならびに塩化アンモンの混合水溶液を、ミクロ組織には硝酸アルコール溶液を用いたのは一方向凝固鋼塊の場合と同じである。

マクロ組織は外周より中心に向かつて約 2/3 程度まで

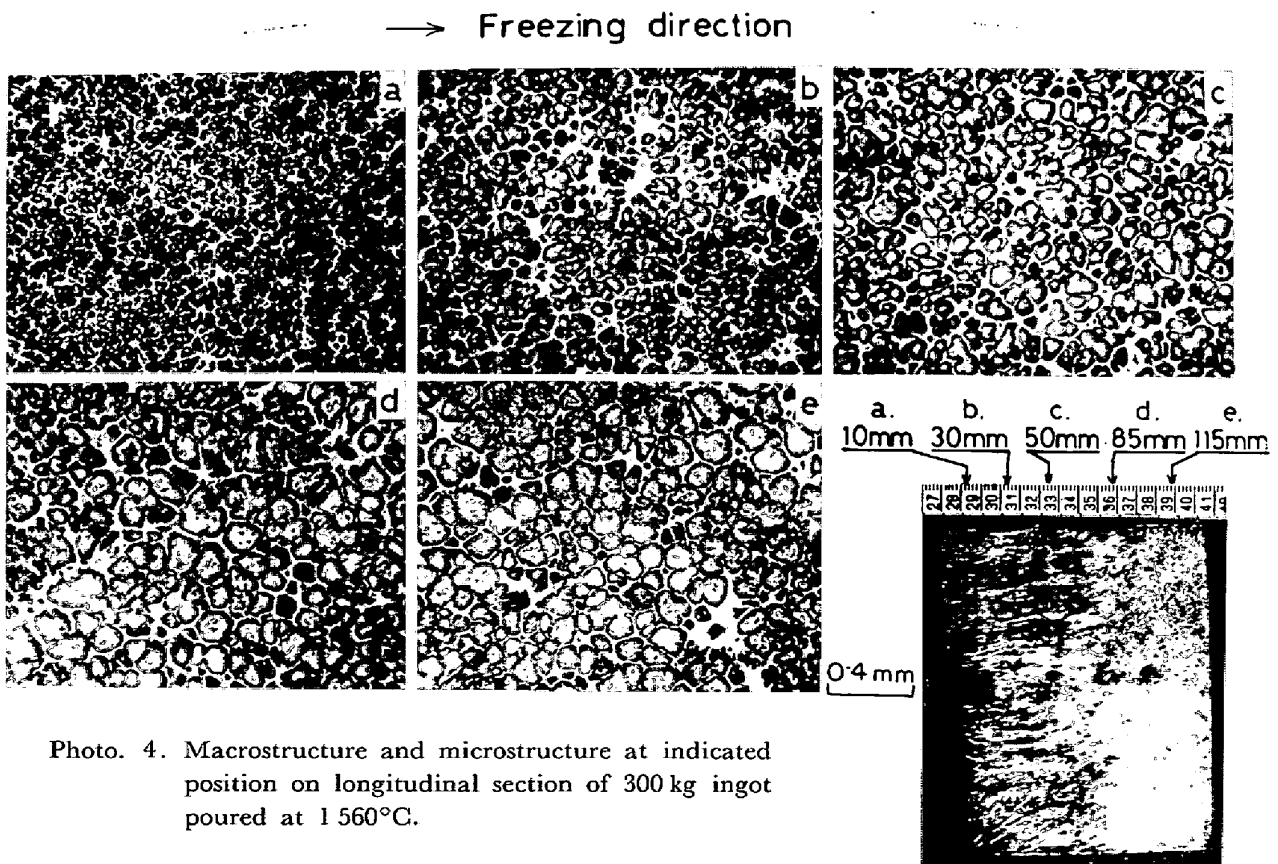


Photo. 4. Macrostructure and microstructure at indicated position on longitudinal section of 300 kg ingot poured at 1560°C.

柱状晶のような組織を示し、内部は等軸晶から成っている(注・マクロ写真中の黒い点は、熱電対の跡である.)。一方ミクロ組織は、熱電対位置における外周部から中心まで、a~eそれぞれの位置の組織を示した。マクロ組織と異なり、組織の大きさは次第にあらく変化するが、すべて同一形状の粒状晶から成っているのが特徴的である。

普通柱状晶は凝固方向に平行なセルラー・デンドライトから成っているのが一般的である。しかるにこの組織のように外周から中心まで方向性のない粒状晶から成っているということは、凝固直後柱状晶は存在せず、全面等軸晶であつたと推察される。したがってマクロ的に現出した組織は、凝固後の鋼塊外周部から中心に向かつておこる固相変態によつて生じた2次的な組織が観察されたものと思われる^{28)~32)}。このことは、変態の複雑な鋼においては、結晶粒を現出する腐食法によるマクロ組織のみで組織を検討することは十分注意する必要があることを示している。すなわちこのような場合は酸などの強腐食によりデンドライトなどのサブ組織を現出させ、マクロ組織として肉眼で観察しなければならない³³⁾。

3.2.3 凝固速度

鋳型壁から中心に向かつて、液相線ならびに固相線等温面の進行状況を示したものが Fig. 11 である。実用鋼

塊の液相線等温面の進行が、非常によい相関で時間の平方根に対し直線的に変化することは一方向凝固の場合と同じである。その関係はそれぞれの注入条件で次のように得られた。

注入温度 1510°C : $x_l = 48\sqrt{t_l} - 45$

注入温度 1560°C : $x_l = 49\sqrt{t_l} - 40$

ここで x_l は鋳型壁からの液相線等温面の距離 (mm)

t_l は時間 (min) を示す。

この $x_l = k\sqrt{t_l} - C$ (k, C は定数) で、 C の値が一方向凝固実験のそれに比べかなり大きくなつてゐることから、注入流やエアギャップの生成などにより、初期では凝固速度が小さく¹⁶⁾、ある時間後は比較的大きい速度で凝固したことがわかる。また固相線の進行は、一方向凝固では液相線の場合と同様に $\sqrt{t_l}$ に対し直線関係があるのに対し、実用鋼塊の場合は図に示したようにその関係が成立しない。これは熱の抽出過程が両者の場合異なるためと思われる。

3.2.4 鋼塊の冷却速度

Fig. 12 は、固液共存範囲 ($\Delta T = 170^\circ\text{C}$) における平均冷却速度 R ($^\circ\text{C}/\text{min}$) と鋼塊表面からの距離 x (mm) との関係を示したもので、Fig. 10 などの熱分析から得た結果である。すなわち R と x の間には、 $\log R = a \log x + b$ (a, b は定数) なる関係が一方向凝固の場合と同様、よい相関で存在した。

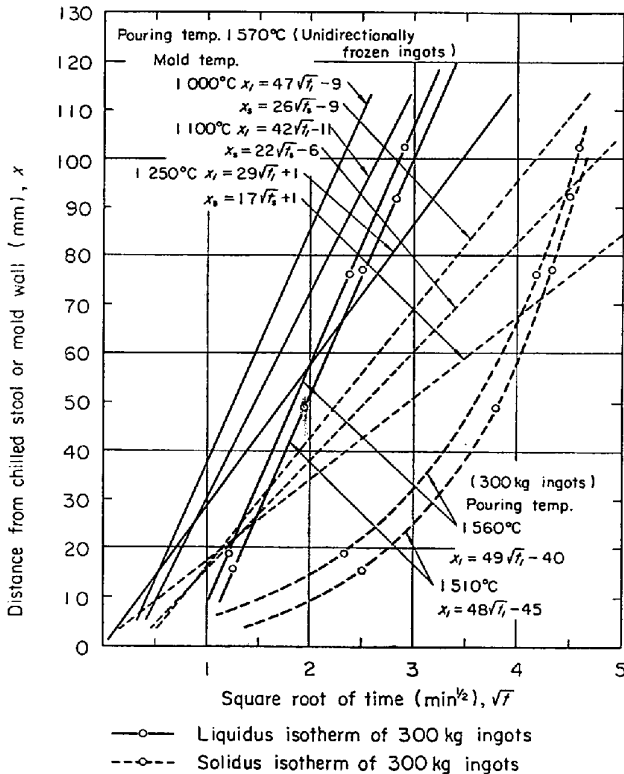


Fig. 11. Progression of liquidus and solidus isotherm.

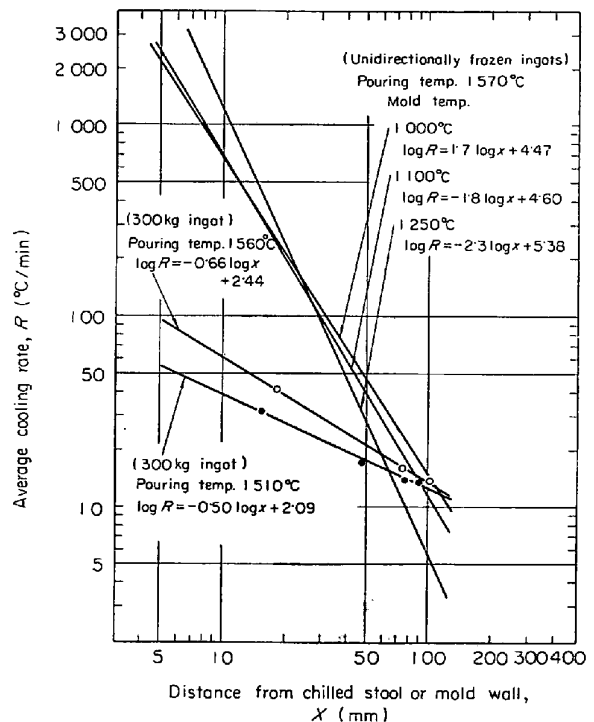


Fig. 12. Relationship between cooling rate and distance from chill.

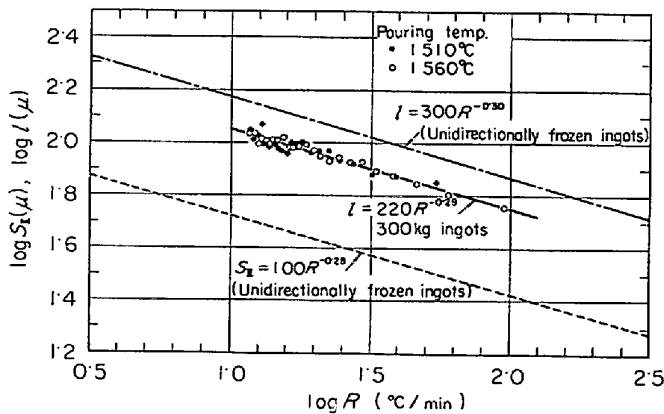


Fig. 13. Relationships of R vs. l and vs. S_I .

R : Average cooling rate during solidification

l : Globular grain spacing

S_I : Secondary dendrite arm spacing in the unidirectionally frozen ingots

実用鋼塊は水冷銅定盤と異なり鋳鉄鋳型で、しかもエアギャップの生成などにより、全般に冷却速度は小さく、内外層の差が一方凝固の場合と比べ非常に少ないことがわかる。また注入温度の高い方が距離 x に対する勾配が大きく、表面層における冷却速度が大で、微細な組織が得られる。

3.2.5 粒状晶の平均粒間距離と平均冷却速度との関係

熱電対近傍の鋼塊縦断面において、鋼塊表面より 5 mm 間隔で中心までマイクロ観察を行ない、粒状晶の平均粒間距離 l (μ) を線分法によつて測定した。前項(3.2.4)で求めた平均冷却速度 R と距離 x の関係から l と R の相関を求めたのが Fig. 13 である。すなわち $l = 220R^{-0.29}$ が得られた。この結果は図中にも示したように、先に求めた(3.1.6)デンドライトの 2 次アームスペーシング S_I と R の関係に対し、ほとんど平行であることがわかる。

したがつて粒状晶の成長過程は、デンドライトの 2 次アームのそれとほぼ同様の機構によつて説明されると思われる²⁰⁾³⁴⁾。すなわち KATTAMIS ら²⁰⁾は、2 次アームの間隔は凝固時間によつて決まることを示している。その 2 次アーム粗大化モデルによれば、凝固温度範囲のある温度 T 、凝固開始後の時間 t において半径 r の消失しつつあるアームと半径 a ($a > r$) のアームが存在し、そのときのアームの間隔を d とすると、等温保持することによる r の消失速度は固相率と無関係に次式であらわされる。

$$\frac{\partial r}{\partial t} = -\frac{\sigma DT}{HmC(1-k)d} \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{a} \right)$$

これから

$$dr = -\frac{\sigma DT}{HmC(1-k)d} \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{a} \right) dt$$

ここで

σ : 固液界面エネルギー D : 溶質の拡散係数

C : 溶質濃度 H : 融液の潜熱

m : 液相線の温度勾配 k : 溶質の分配係数

この関係を鈴木ら³⁵⁾は冷却速度ほぼ一定の連続冷却による凝固に適用し次式を得た。ここで T_l を液相線温度、 R を平均冷却速度とすれば $T = T_l - Rt$ であり、また $a = K_1d$, $r = K_2d$ ($K_1 > K_2$)、凝固終了時の時間 $t = t_{\text{end}}$ を $\Delta T/R$ (ΔT は凝固温度範囲) としそのとき $r = 0$ とした。

$$S_I = K_s \cdot \left[\frac{\sigma D(T_l - \Delta T/2)}{HmC(1-k)} \cdot \frac{\Delta T}{R} \right]^{1/3}$$

$$\text{ただし } \frac{1}{K_s^3} = - \left\{ K_1 K_2 + K_1 \ln \left(1 - \frac{K_2}{K_1} \right) \right\} \geq 0$$

ここで S_I : 凝固終了後の 2 次アームスペーシング

K_s, K_1, K_2 : 定数

これから溶質濃度一定ならば $S_I = K'R^{-1/3}$ が得られる。

さらに鈴木ら³⁴⁾は同様の粗大化機構を粒状晶の間隔にも適用し、粒状晶を球形と見なせば 2 次アームの円柱状のとき平面状界面のときの平衡凝固温度 T_E からのずれは $\sigma T_E/aH$ であるが球状に対しては $2\sigma T_E/aH$ となるとし、また粒状晶のため d のかわりに r として前式を次式のようにあらわした。ここで 2 次アームのときと同様に $a = h_1d$, $r = h_2d$ ($h_1 > h_2$) とすると、

$$l = K_l \left[\frac{2\sigma D(T_l - \Delta T/2)}{HmC(1-k)} \cdot \frac{\Delta T}{R} \right]^{1/3}$$

$$\text{ただし } \frac{1}{K_l^3} = - \left\{ \frac{h_1 h_2^2}{2} + h_1^2 h_2 + h_1^3 \ln \left(1 - \frac{h_2}{h_1} \right) \right\} \geq 0$$

ここで l : 粒状晶の間隔 K_l, h_1, h_2 : 定数

これより $l = 1.26K''R^{-1/3}$ となり粒状晶の粒間距離は 2 次アームスペーシングの $1.26(K''/K')$ 倍であることを示した。本研究では R の指数が l で -0.29 , S_I で -0.28 とほとんど同一で、両者の粗大化機構は同じであることを示している。

また、鈴木ら³⁴⁾は Cr-Mo 鋼で l/S_I が約 1.7 であることを報告している。ただし粒状晶の径の線分法による測定値に対して 1.5 倍³⁶⁾することにより粒状晶を完全な球形とした場合の真の直径となるので $1.5l/S_I$ は 2.55 となりこれから K''/K' は約 2.0 になることを示唆している。

本研究では粒状晶の線分法による測定で l/S_I が 2.2 となり、同様の補正を行なつて K''/K' は約 2.6 となつた。この値が妥当なものかどうかを前述の仮定から決めるのはむずかしいが、2 次アームの場合と粒状晶の場合

の比例定数 K_s , K_l の間にある関係を暗示しているように思える。

また Fig. 13 の一点鎖線は一方向凝固鋼塊に生成した粒状晶のもので、実用鋼塊の方が同一冷却速度でやや細かい組織であることがうかがえる。この原因は明らかではないが、融液の流動が凝固条件になんらかの影響をおよぼしているためと考えられる。

3.3 凝固組織と凝固速度ならびに温度勾配との関係

凝固速度と温度勾配からなる適当なパラメーターにより、凝固組織を区別できることが知られている⁸⁾²⁶⁾³⁷⁾²⁷⁾³⁸⁾。一方向凝固によつて得た組織にはその凝固条件によつて3つに分けられることは前述(3.1.2)した。すなわち Photo. 5 の type 1 の dendrite 状組織からなる等軸晶のもの、type 2 の全面粒状晶(等軸晶)のもの、type 3 のセルラー・デンドライトの発達した柱状晶のものである。これらの凝固条件すなわち凝固速度 V (cm/min) と温度勾配 G (°C/cm) と組織の関係をプロットしたのが Fig. 14 である。

凝固速度 V は距離の関数であらわされた液相線等温面の進行速度より求め、温度勾配 G は、液相線等温面が熱電対位置に到達した時点の温度ならびに 10 mm 前進した時点の温度を冷却曲線から求め、その温度差をもつて 1 cm あたりの固相側への温度勾配としたものである³⁹⁾。

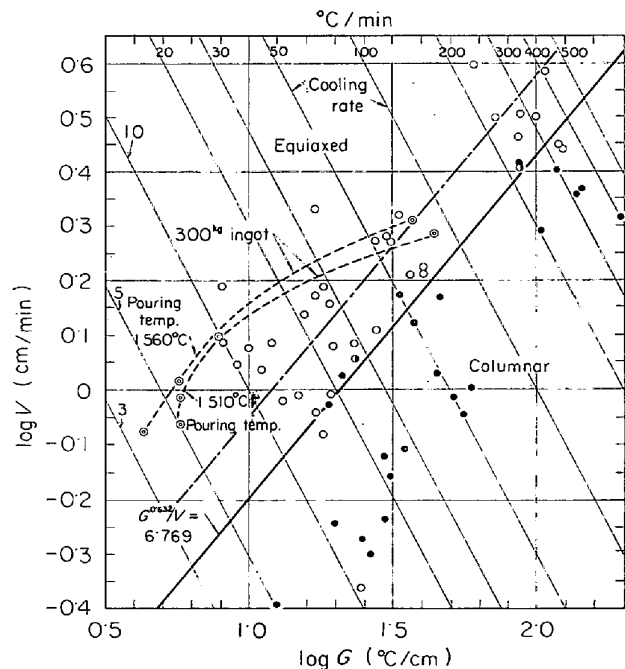


Fig. 14. Effect of growth variables on the structure. (V : Drift velocity of liquidus isotherm, G : Temperature gradient across solidified layer)

凝固面前方の液相中への温度勾配は測定が困難であつたため行なわれなかつた。

図から明らかなように、等軸晶と柱状晶は太い実線で示した $G^{0.63}/V=6.8$ なる関係を境界に分けることができる。しかも等軸晶の中で Photo. 5, type 1 に示すようなものは、図中の太い実線とおおむねそれと平行した細かい一点鎖線との間の領域に入るものである。すなわち、 G が増加し、 V が減少することによつて、粒状からデンドライト状、さらにセルラー・デンドライト状へとマイクロ組織が段階的に変化した。また実用鋼塊の組織も同じような凝固条件で説明できることが明らかである。

融液が流動している場合、組成的過冷が発生する条件は、

$$\frac{G}{VC_l} \leq - \frac{m(1-k)}{D_L \left[k + (1-k) \exp\left(-\frac{V}{D_L} \delta\right) \right]}$$

で求めることができる⁴⁰⁾。

- ここで C_l : 融液中の溶質の濃度
- D_L : 溶質の拡散係数
- k : 溶質の平衡分配係数
- δ : 境界層の厚さ
- m : 液相線の勾配

普通この関係に関連し、組成的過冷のパラメータとして G/V あるいは G/\sqrt{V} が用いられ、凝固組織の生成機構が説明されている。たとえば、茨木ら⁴¹⁾は 2, 3 の Al 合金について等軸晶域の生成が G/\sqrt{V} をパラメータとした組成的過冷の条件でよく説明できることを見出ししている。

Fig. 14 は組成的過冷が増すにつれて等軸晶が発生し易いことから組成的過冷によつて等軸晶が生成するのに見える。しかし、3.1.3 で検討したように、本研究の鑄込条件では流動による結晶の増殖を無視することはできない。だがもし結晶の増殖のみによつて等軸晶が生成するのであれば Fig. 14 のような関係は得られないように思える。むしろ Fig. 14 の関係が定量的には問題があるにしても、定性的には結晶の生成機構を反映していると考えられる。

増殖によつて融液中に分散している結晶片の成長は、熱の抽出方向に平行に成長する結晶の場合と異なるはずである。一方向から前進しつつある固-液界面の前方に多数の成長しつつある結晶片がある場合を考えると、この結晶の周りの液体の組成は固体との平衡組成に近く、組成的過冷は小さいだろう。したがつて、一方向から前進する固-液界面前方における見かけの組成的過冷にはあまり影響されず、組成的過冷の小さい状態で成長す

る。とくに結晶片が多いほどこの傾向は強くなるので、増殖した結晶片が再溶解せず残留しやすい低温注入、低温鋳型ではデンドライト状の凝固が起こりがたい。またこの場合には固体が液体の中に長時間存在することになり界面エネルギーによつて粒状になるだろう。しかし再溶解できなかつた結晶片が少ない場合には、結晶片の周りにある融液と結晶片の平衡は保たれにくくなり、組成的過冷が大きくなつてデンドライト状に凝固するだろう。

以上のように、Fig. 14 の結果は組成的過冷のみで説明されるものでなく、熱抽出方向に直角に前進する固-液界面とその前方にある結晶片との相互関係で説明される。したがつて $G^{0.63}/V=6.8$ という値は、核生成を前提とした組成的過冷のパラメーターではなく、等軸晶が生成するための凝固速度と温度勾配の関係を示すものである。

4. 結 言

；高速度工具鋼 SKH 9 を一方向凝固させて凝固条件と組織の関係を明らかにし、さらに 300 kg 鋼塊を下注により造塊し熱分析を行なつて、凝固条件と凝固組織を検討した結果次のことが判明した。

4.1 一方向凝固

(1) この鋳造法により柱状晶を生成するには、注入時に生成した微細なデンドライト結晶片を再溶解するに十分な高い鋳型加熱温度と、注入温度が必要であることが明らかとなつた。

(2) 柱状晶上部にできた等軸晶の生成機構についてはまだ不明の点が多く、今後さらに検討しなければならない。

(3) デンドライトの2次アームスペーシング S_I は、他の金属と同じく平均冷却速度 R と $S_I = 100 R^{-0.28}$ なる関係で表わされた。

4.2 実用 300 kg 鋼塊の凝固

(1) 鋼塊中心部に近い熱電対の冷却曲線から、一方向凝固と異なり液相線 (1 420°C) のほかにかなり明りような固相線 (共晶点 1 250°C) が観測された。

(2) 凝固初期においては、一方向凝固と異なり液相線等温面の進行は遅く、ある時間経過後比較的大きい速度で進行する。また固相線等温面の進行は、時間の平方根に対し直線関係が認められない。

(3) 凝固温度範囲における平均冷却速度は比較的小さく、しかも鋼塊内外層の差が少ない。

(4) ミクロ組織は全面粒状晶で、凝固時には等軸晶のみであつたと思われるが、マクロ組織では固相変態により生成した柱状晶のような2次の結晶組織が観察され

た。

(5) 粒状晶の平均粒間距離 l と平均冷却速度 R との間には、 $l = b'R^{a'}$ (a' , b' は定数) なる関係が得られた。しかも a' の値は、2次デンドライトアームスペーシング S_I と R の関係 $S_I = bR^a$ (a , b は定数) の a とほとんど同じであり、粒状晶の成長過程は2次デンドライトアームのそれと同様な機構によつて説明されることが解つた。

4.3 凝固条件と組織

凝固速度ならびに温度勾配により、柱状晶と等軸晶および粒状晶とデンドライト晶の生成条件を区別することができた。

文 献

- 1) F. A. KIRK: JISI, 209 (1971), p. 606
- 2) 鈴木, 鈴木, 長岡, 岩田, 戸田, 高橋: 学振製鋼第 19 委員会凝固現象協議会資料, 19 委 8693, (1968), 5 月
- 3) B. CHALMERS: J. Aus. Inst. Metals, 8 (1963), p. 255
- 4) A. PAPAPETROU: Z. Kristallog., 92 (1935), p. 89
- 5) K. A. JACKSON, J. D. HUNT, D. R. UHLMANN, and T. P. SEWARD: Trans. Met. Soc. AIME, 236 (1966), p. 149
- 6) R. T. SOUTHIN: Trans. Met. Soc. AIME, 239 (1967), p. 220
- 7) W. C. WINEGARD and B. CHALMERS: Trans. ASM, 46 (1954), p. 1214
- 8) T. S. PLASKETT and W. C. WINGARD: Trans. ASM, 51 (1959), p. 222
- 9) 岡本: 学振製鋼第 19 委員会凝固現象協議会資料, 19 委 9105, (1970), 5 月
- 10) K. KUO: Jernkont. Ann., 141 (1957), p. 146
- 11) K. KUO: JISI, 181 (1955), p. 128
- 12) G. HOYLE and E. INESON: JISI, 193 (1959), p. 254
- 13) R. H. BARKALOW, R. W. KRAFT, and J. I. GOLDSTEIN: Met. Trans., 3 (1972), p. 919
- 14) K. KUO: JISI, 174 (1953), p. 223
- 15) N. M. H. LIGHTFOOT: JISI, 119 (1929), p. 364
- 16) 浅野, 松永: 鉄と鋼, 56 (1970), p. 1916
- 17) J. W. SPRETNAK: Trans. ASM, 39 (1947), p. 569
- 18) H. F. BISHOP, F. A. BRANDT, and W. PELLINI: Trans. Met. Soc. AIME, 194 (1952), p. 44
- 19) T. F. BOWER, H. D. BRODY, and M. C. FLEMINGS: Trans. Met. Soc. AIME, 236 (1966), p. 624
- 20) T. Z. KATTAMIS, J. C. COUGHLIN, and M. C. FLEMINGS: Trans. Met. Soc. AIME, 239 (1967), p. 1504
- 21) 茨木, 岡本, 岸武: 金属学会誌, 30 (1966), p. 1068

- 22) 茨木, 岡本: 金属学会誌, 31 (1967), p. 450
- 23) 茨木, 岡本, 松本: 金属学会誌, 32 (1968), p. 396
- 24) 鈴木, 鈴木, 長岡, 岩田: 金属学会誌, 32 (1968), p. 1301
- 25) 鈴木, 長岡: 金属学会誌, 33 (1969), p. 658
- 26) 鈴木, 中村, 落田: 鑄物, 40 (1968), p. 206
- 27) 鈴木, 鈴木: 学振製鋼第 19 委員会凝固現象協議会資料, 19 委 8928, (1969), 5 月
- 28) 沖: 溶解鑄造・鑄物 (今井編), 金属工学講座 5, (1960), p. 192 [朝倉書店]
- 29) 前川, 福本, 宮本: 学振製鋼第 19 委員会凝固現象協議会資料, 19 委 8986, (1969), 9 月
- 30) 田代, 木村, 轟木: 学振製鋼第 19 委員会凝固現象協議会資料, 19 委 9165, (1970), 9 月
- 31) H. BILONI and G. F. BOLLING: Trans. Met. Soc. AIME, 227 (1963), p. 1351
- 32) S. O'HARA and W. A. TILLER: Trans. Met. Soc. AIME, 239 (1967), p. 497
- 33) H. WENTRUP and H. SCHRADER: Arch. Eisenhüttenw., 20 (1949), p. 165
- 34) 鈴木, 長岡: 学振製鋼第 19 委員会凝固現象協議会資料, 19 委 9325, (1971), 9 月
- 35) 鈴木, 長岡: 日本金属学会誌, 34 (1970), p. 925
- 36) R. L. FULLMAN: J. Metals, 5 (1953), p. 447
- 37) 鈴木: 鉄と鋼, 56 (1970), p. 1942
- 38) R. ELLIOTT: Brit. Foundryman, 57 (1964), p. 398
- 39) 鈴木, 中村, 坂本: 日本金属学会誌, 34 (1970), p. 797
- 40) G. A. CHADWICK: Fractional Solidification Part 1, Mercel Dekker Inc, (1967), p. 113
- 41) 茨木, 岡本, 岸武: 日本金属学会誌, 30 (1966), p. 1159