

# サクシノニトリルを用いた溶湯流動による 等軸晶生成モデル実験

江坂 久雄\*・田村 学\*

Model Experiment Using Succinonitrile on the Formation of Equiaxed Grains caused by Forced Convection

Hisao ESAKA and Manabu TAMURA

**Synopsis :** In order to understand the formation mechanism of equiaxed grains due to forced convection, in-situ observation using succinonitrile, which is a transparent organic material, has been carried out. A new experimental technique, using a fiber scope, has been developed in this study to observe in a 3-D mold. Molten succinonitrile was poured into the mold and was unidirectionally solidified from a chill plate. During this experiment, molten succinonitrile was stirred by a rotor at various rotation rate. Phenomena in the mold were monitored by a fiber scope and recorded by video tape. Thermal field was also measured by some thermocouples.

Equiaxed grains formed in the presence of forced convection caused by the rotor, on the other hand, no equiaxed grain formed without forced convection, which agree with the industrial data. The number of equiaxed grain ( $N_e$ ) as well as the diameter of equiaxed grain ( $D_e$ ) increased with time ( $t$ ).  $N_e$  and  $D_e$  are approximately proportional to  $t^{2.5}$  and  $t^{0.3}$  respectively. The rate of increase of  $N_e$  increases and the diameter of equiaxed grain decrease with increasing rotation rate. Furthermore, the temperature gradient in the liquid was found to decrease with increasing rotation rate. Therefore, it can conclude that finer and more equiaxed grains form and they may continue to grow in the bulk liquid with higher rotation rate.

**Key words:** equiaxed grain; equiaxed dendrite; in-situ observation; model experiment; continuous casting; solidification; electromagnetic stirring.

## 1. 緒言

鋼の連続鋳造において、ストランド内あるいは鋳型内に電磁攪拌を適用することにより、鋳片品質を向上させる技術が広く適用されている<sup>1)</sup>。鋳型内の電磁攪拌は、鋳片形状によってその設置目的は異なる。スラブにおいては清浄鋼製造のための介在物対策が主目的であるのに対し<sup>1,2)</sup>、ブルーム/ピレットでは介在物対策も一部あるものの、主たる目的は内部組織制御である。

電磁攪拌を利用したブルーム/ピレットの内部組織制御技術に関しては、従来から多くの研究がある<sup>3-6)</sup>。二次冷却帯以降での電磁攪拌と比較して、鋳型内電磁攪拌は等軸晶率が高く、微細な組織が得られる傾向があるため、偏析対策上広く採用されている<sup>3)</sup>。

しかし、ブルーム/ピレットの組織制御のための最適攪拌時期、最適攪拌流速は明確にされているとは言えない。それは、鋳型内攪拌による等軸晶化のメカニズムが十分に理解されていないことによる。現場的には鋳型内の溶湯流速が過大になればコーナー部が盛り上がり、パウダー流入不良などの操業阻害を引き起こすために、攪拌流速の上限が定められているにすぎない。

そこで本研究では、溶湯流動下における等軸晶生成メカ

ニズムを理解する一助とするために、透明有機物を用いたモデル実験を行うことにした。

ところで、モデル物質を用いた凝固の「その場観察」は古くから多くの研究者によりなされてきた<sup>7-15)</sup>。当初は直接観察の不可能な金属の凝固現象の定性的理解が主な目的であったが、過冷度とデンドライト成長速度、デンドライト先端曲率半径とに関する Glicksman らの精緻な実験<sup>7)</sup>によりその質が高められた。それ以来、種々の実験技法が開発され、合金の過冷融液中の成長<sup>8)</sup>、合金の一方向凝固<sup>9,10)</sup>、流動によるデンドライトの偏向<sup>11-13)</sup>、異物の固液界面での挙動<sup>14,15)</sup>などが明確にされてきた。

溶湯流動による等軸晶化については、固液界面形態の観察を容易にするために試料を極めて薄くした二次元容器の場合には、十分な流動が得られず、液相内の温度場変化も不十分であるため、実験的に再現することが困難である。したがって、試料厚みを十分にとった三次元容器内での検討が必須となるが、観察が容易でないことから今まで行われてこなかった。そこで本研究では、融体の内部から観察する手法を新たに開発し、三次元容器内での現象の直接観察を試みた。

## 2. 実験方法

モデル実験に使う物質として、サクシノニトリルを選定した。これは、凝固様式が金属に近いだけでなく優先成長方向が<001>であり多くの金属と同じであるため、また、融点が約58°Cで取り扱いが容易であるためである。なお、本研究では公称純度98 mass%超の市販品を用いた。

実験装置の構成を模式的にFig. 1に示す。用いるサクシノニトリルは0.5lであり、外部から抵抗加熱が可能なピーカーにて溶解し、鑄型に注入する方式とした。鑄型内にはあらかじめ攪拌用ローターと $\phi 1.2 \cdot 10^{-2} \text{m}$ の側視タイプの内視鏡を設置した。内視鏡は $4 \cdot 10^{-2} \text{m}$ 離れた熱電対先端部に焦点を合わせ、その観察結果は通常のVTRにより記録した。ローターの外径は $3.6 \cdot 10^{-2} \text{m}$ であり、ローター周速を $0 \sim 4.7 \cdot 10^{-1} \text{m/s}$ の範囲とした。実験条件と共に、ローターの外径を代表長さとして求めたレイノルズ数(Re)をTable1に示す。No. 2は層流, No. 3, 4では乱流となる条件である。ここで、サクシノニトリルの密度<sup>16)</sup>、粘度<sup>17)</sup>は、それぞれ $0.988 \cdot 10^3 \text{kg/m}^3$ ,  $2.65 \cdot 10^{-3} \text{Pa}\cdot\text{s}$ とした。なお、ローター周速0m/sの実験についても、ローターは鑄型内に設置し、熱的条件を一定にした。

鑄型の内寸は $8 \cdot 10^{-2} \times 8 \cdot 10^{-2} \times 1.2 \cdot 10^{-1} \text{m}$ であり、底面および側面の3面は透明アクリル板とした。側面の1面の

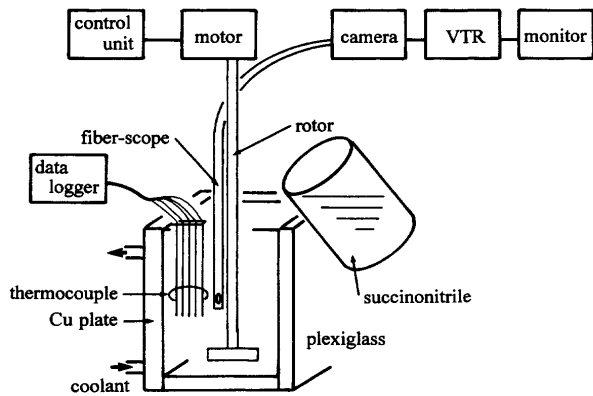


Fig. 1. A schematic drawing of experimental apparatus.

みを水冷銅板で構成し、一定温度の冷却水（今回の実験では35°C）を循環させると共に、サクシノニトリル注入前にはアクリル板、ローター、内視鏡等を約50°Cに予熱することにより、水冷銅板から一方向凝固が進行するようにした。また、注入中の等軸晶生成を避けるために、サクシノニトリルの注入温度は十分高くとり、 $70 \pm 1^\circ\text{C}$ とした。ローターは注入前から一定速度で回転させておき、観察が終了するまで一定回転とした。鑄型内温度の計測のために、底面から $3.5 \cdot 10^{-2} \text{m}$ の高さで、銅板表面から $3 \cdot 10^{-3}$ ,  $8 \cdot 10^{-3}$ ,  $13 \cdot 10^{-3}$ ,  $18 \cdot 10^{-3}$ ,  $23 \cdot 10^{-3}$ ,  $28 \cdot 10^{-3} \text{m}$ の計6箇所に $\phi 1 \cdot 10^{-4} \text{m}$ のKタイプの熱電対を設置した。以降、#1~#6の熱電対と略記する。

実験データは溶融サクシノニトリルの流速で整理すべきと考えられるが、今回は流速を計測できなかったため、ローター周速ですべてのデータを整理した。

## 3. 実験結果

### 3.1 内視鏡による等軸晶の観察

#### 3.1.1 等軸晶の画像

内視鏡による観察結果をFig. 2に示す。これらは、VTRで記録した映像をビデオプリンターにより出力したものである。

Fig. 2-1)に示すのはNo. 1の結果であるが、水冷銅板から成長してきた柱状晶が観察され、等軸晶は全く見られない。Fig. 2-2)はNo. 2の結果であり、矢印で示すように、比較的

Table 1. Experimental conditions.

Experimental Number	Tangential Velocity of Rotor $V_r$ ( m/s )	Reynolds Number Re
No.1	0	0
No.2	$1.1 \cdot 10^{-1}$	$1.5 \cdot 10^3$
No.3	$2.3 \cdot 10^{-1}$	$3.1 \cdot 10^3$
No.4	$4.7 \cdot 10^{-1}$	$6.3 \cdot 10^3$

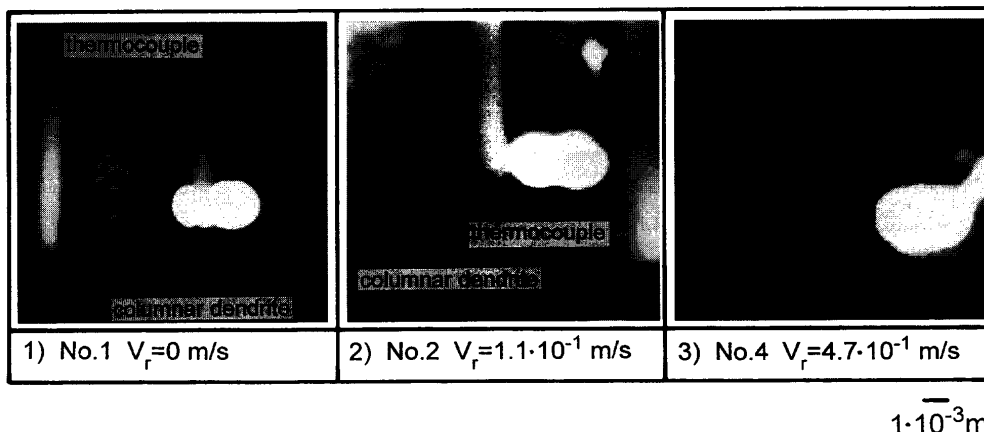


Fig. 2. Results of in-situ observation. Arrows indicate equiaxed grains. White large circles are reflected incident light.

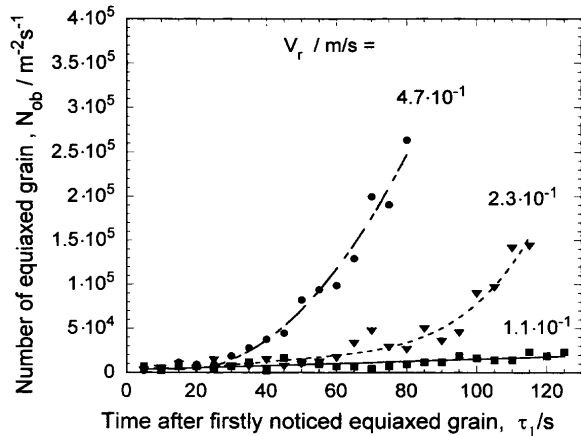


Fig. 3. Change in number of equiaxed grains with time ( $\tau_1$ ).

大きな等軸晶がローターの回転による対流に乗ってゆっくりと浮遊するのが見られた。等軸晶はほぼ十字型に見え、優先成長方向である、 $\langle 001 \rangle$ に成長したデンドライトであることがうかがわれる。No. 4の結果をFig. 2-3)に示す。反射した内視鏡光源の周囲に比較的小さな等軸晶が3個確認できる。この場合にはローターの回転による流速が大きいいため、等軸晶の像がわずかに歪んでいるが、等軸晶の個数および直径を測定することは可能である。

3.1.2 等軸晶数の変化

Fig. 2に示したように、ローターによる流動がある場合には、反射した内視鏡光源の周囲で等軸晶が観察できる。この観察可能な領域の面積は約 $8.5 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2$ である。等軸晶を内視鏡により初めて確認した後の経過時間による視野内の等軸晶数の変化を調査した。ここで、5s間に相当する150コマの画像から、等軸晶の総数を求めた。その後、測定視野面積、測定時間で除すことにより、単位観察視野あたり、単位時間あたりに観測された等軸晶数( $N_{ob}$ )を求めた。 $N_{ob}$ を経過時間の関数として示したものがFig. 3である。

いずれのローター周速においても経過時間と共に等軸晶数は増加する。ただし、ローター周速の小さい場合には等軸晶の増加は非常にゆっくりであるのに対し、ローター周速が大きい場合には急速である。

3.1.3 等軸晶の平均直径の変化

本研究では、デンドライト状に観察される場合はデンドライト先端から他方の先端まで、粒状に観察される場合は画面内の最大径を等軸晶径とした。

等軸晶を視認後、5s間ごとの等軸晶径の平均値の推移をFig. 4に示す。 $V_r=2.3 \cdot 10^{-1} \text{ m/s}$ および $4.7 \cdot 10^{-1} \text{ m/s}$ の場合には等軸晶径は時間の経過と共に大きくなる傾向が認められる。一方、 $V_r$ の小さい $1.1 \cdot 10^{-1} \text{ m/s}$ の場合に等軸晶径が大きくばらついていて、これは $3 \cdot 10^{-3} \text{ m} \sim 4 \cdot 10^{-3} \text{ m}$ の大きな等軸晶が生じたこと(Fig. 5)によるものである。これらを除くとこの攪拌条件でも等軸晶径は経過時間と共に大きく

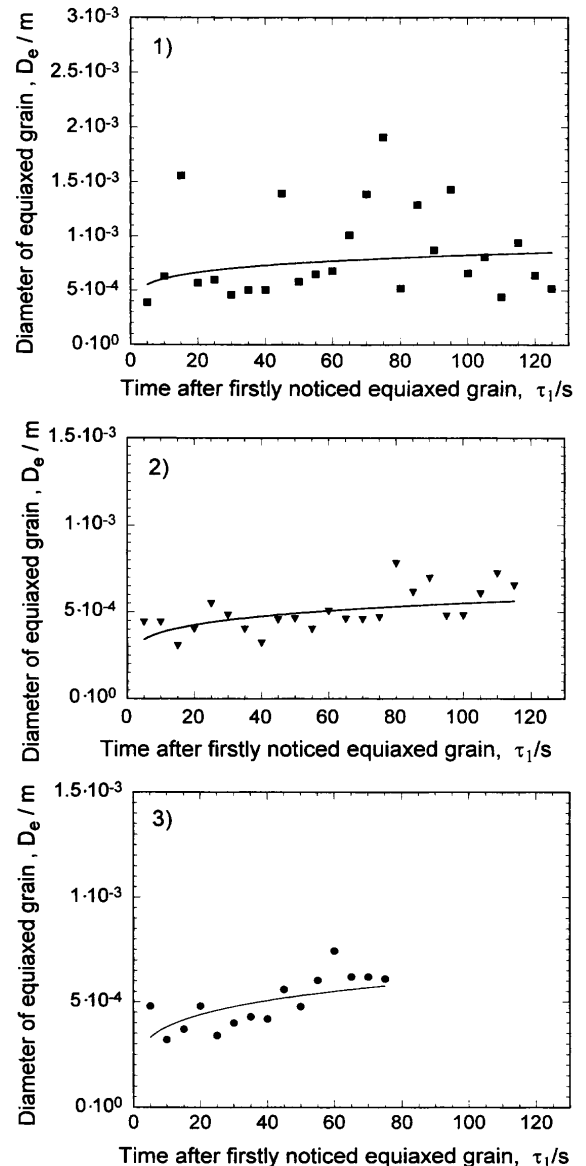


Fig. 4. Change in equiaxed diameter with time ( $\tau_1$ ). 1)  $V_r=1.1 \cdot 10^{-1} \text{ m/s}$ , 2)  $V_r=2.3 \cdot 10^{-1} \text{ m/s}$ , 3)  $V_r=4.7 \cdot 10^{-1} \text{ m/s}$

なる。

3.1.4 等軸晶径のローター周速依存性

等軸晶が内視鏡観察により認められてから、100個の等軸晶を便宜的に初期の等軸晶として、その平均直径と最小径、最大径をローター周速の関数としてFig. 5に示す。ローター周速の増加と共に等軸晶径の平均値が小さくなると共に、最大値が小さくなっていることが明瞭である。一方、最小値はローター周速には依存せず、ほぼ一定である。

3.1.5 内視鏡による観察可能時間

等軸晶が増加し、固相率が高くなると、等軸晶の分別が不可能になり、ついには全く観察ができなくなる。それは、内視鏡の焦点の手前にある等軸晶により視野がさえぎられると共に、焦点の合う領域内でも等軸晶が重なるためである。ここで、観察可能時間( $\tau_o$ )を、「内視鏡により等軸晶を

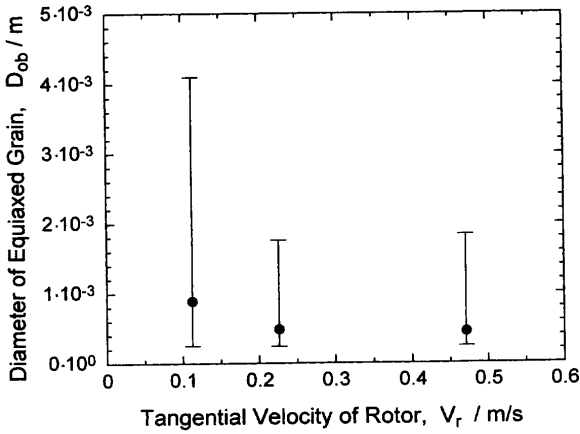


Fig. 5. Diameter of equiaxed grains in initial stage of solidification as a function of tangential velocity of rotor.

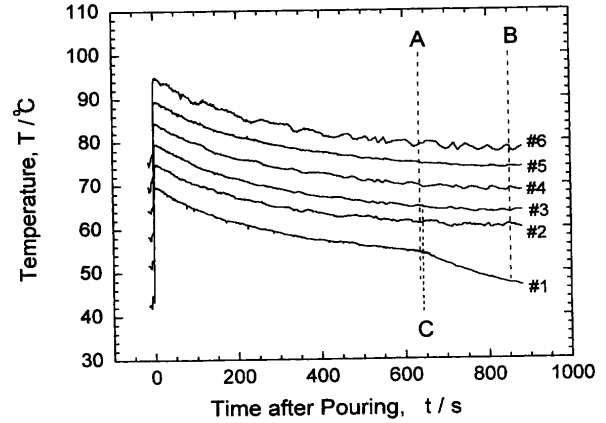


Fig. 7. Thermal histories measured by 6 thermocouples. A indicates time when equiaxed grain was first realized by fiber scope. It was possible to clearly observe equiaxed grains till time B. C indicates liquidus temperature detected by #1 thermocouple.

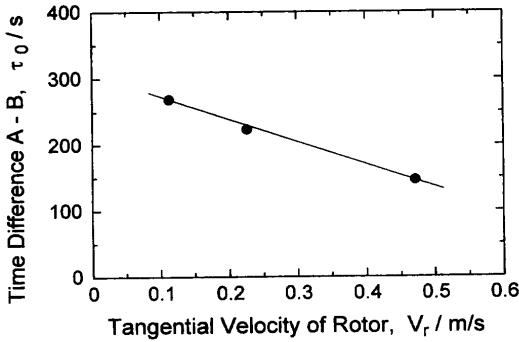


Fig. 6. Change in observable time for equiaxed grains (time difference A-B) with tangential velocity of rotor.

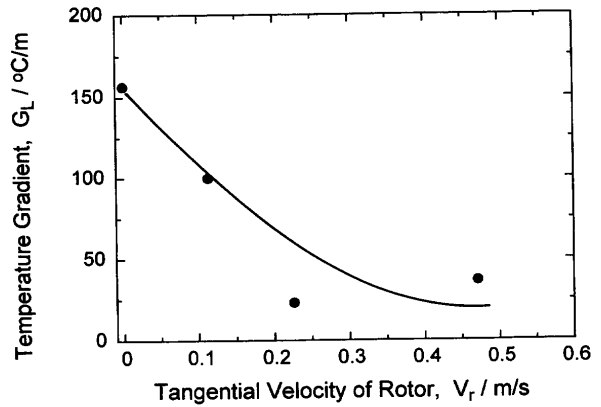


Fig. 8. Temperature gradient in the liquid at solid liquid interface as a function of tangential velocity of rotor.

確認してから、 $4 \cdot 10^{-2}$  m先の熱電対保護管が視認できなくなるまでの時間」として定義する。

$\tau_0$ とローター周速との関係をFig. 6に示す。右下がりの傾向が明瞭に認められ、ローター周速が増加すれば短時間の間に等軸晶の量が増加することがわかる。

### 3・2 等軸晶生成時の熱電対による温度測定結果

#### 3・2・1 熱電対による計測結果

鑄型内に設置した熱電対によって計測した温度データをFig. 7に示す。ここには一例として、No. 3の実験で得られた結果を示し、溶融サクシノニトリルの注入直前から#1熱電対が50°Cまでの時間内の変化を表示した。#2~#6の熱電対温度はそれぞれ5Kずつ高温側へずらせて表示した。

#1熱電対では変曲点が明瞭にとらえられている。これは熱電対位置に水冷銅板から成長した柱状 dendrait 先端が到達したことを示す点（ここではC点と定義）と考えられ、ほぼ液相線温度とみなせる。

No. 3の実験において、内視鏡により初めて等軸晶を認めた時点と $4 \cdot 10^{-2}$  m前方の保護管が見えなくなる時点をそれぞれA点、B点としてFig. 7中に破線で表示した。

#### 3・2・2 液相内温度勾配のローター周速依存性

鑄型内の温度場を定量化するために、液相内の温度勾配

を求めた。ここでは、C点での固液界面における液相内温度勾配( $G_L$ )を#1と#3~#5の熱電対を比較することにより算出した。その結果をローター周速に対して求めたものをFig. 8に示す。ローター回転が無い場合には大きな値を示すが、周速の増加と共に温度勾配が急激に減少する。

#### 3・2・3 観察可能時間と温度履歴

A点とC点の時間差を $\tau_e$ として、 $\tau_e$ とローター周速との関係を表したものをFig. 9に示す。 $\tau_e$ が負ということは#1の熱電対位置に柱状晶が達する前に等軸晶が晶出開始しているということの意味する。ローター周速が大きくなるほど等軸晶が発生するまでに成長する柱状晶が短くなる。

## 4. 考察

### 4・1 モデル物質としてのサクシノニトリルの評価

等軸晶生成のモデル実験にしばしば用いられてきた、 $H_2O-NH_4Cl$ 系合金では自然対流程度の流動でも容易に等軸晶化する現象が認められていた<sup>18)</sup>。つまり、通常の鑄造

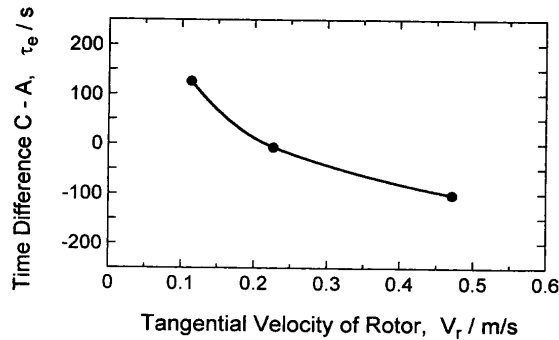


Fig. 9. Change in time difference C-A with tangential velocity of rotor.

実験においても等軸晶が生成し、流動の影響を評価することが困難であった。それに対し、サクシノニトリルを用いた三次元容器内での実験では、ローターによる攪拌を実施しないと等軸晶は生成せず、攪拌すると等軸晶が生成する。これは鋼の連続铸造における、鋳型内電磁攪拌のoff/onに伴う等軸晶生成量に対応する。またローター周速が大きいと等軸晶の発生時期が早いこと(Fig. 9), また等軸晶の発生速度が速いこと(Fig. 3), 微細な等軸晶となっていること(Fig. 5)から、溶鋼の鋳型内での攪拌強度を上げることによってマクロ的な指標である等軸晶率が上昇することに対応していると考えられる。

以上のことより、サクシノニトリルは溶湯流動による等軸晶生成メカニズムを検討するモデル実験に適した物質であると判断できる。

また、溶湯流動という因子を加え、実際の凝固に極めて近い現象を、内視鏡を用いることにより「その場観察」を可能にする実験手法を確立できた。

#### 4.2 等軸晶密度の推定

Fig. 3では単位面積あたり、単位時間あたりに観測できる等軸晶数( $N_{ob}$ )を示した。ここでは、より普遍的に等軸晶生成を記述できる、単位体積あたりの等軸晶数 (= 等軸晶密度,  $N_e$ ) を求める。

鋳型内の均一性を仮定すると、観察された等軸晶は内視鏡の焦点の合っている領域内に存在した等軸晶であると考えられる。1s間の記録は30コマであるので、観察視野を $S$ , 焦点深度を $L$ とすると、単位時間に調査した体積( $V_o$ )は次式で求められる。

$$V_o = 30SL \dots\dots\dots (1)$$

これより等軸晶密度( $N_e$ )と $N_{ob}$ との関係は次のようになる。

$$N_e = N_{ob}/30L \dots\dots\dots (2)$$

今回用いた内視鏡の溶融サクシノニトリル中における焦点深度は熱電対保護管の観察から約 $3 \cdot 10^{-3} \text{ m}$ と求められたので、(2)式を用いて等軸晶密度が求められる。

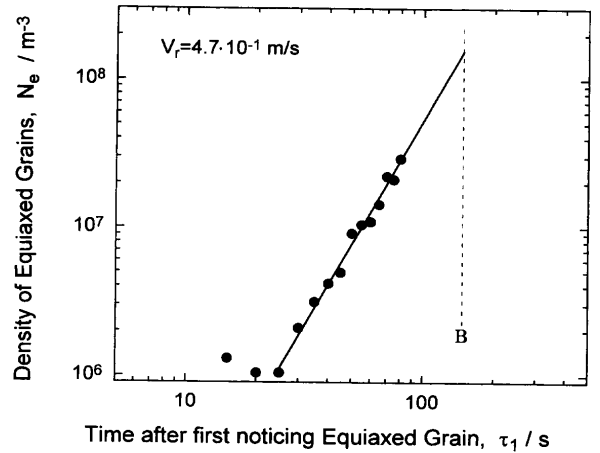


Fig. 10. Change in density of equiaxed grains with time ( $\tau_1$ ) obtained in No. 4 experiment. B indicates the limit of observation.

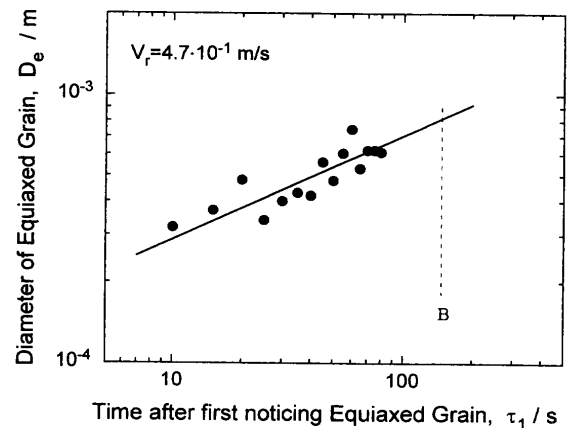


Fig. 11. Change in diameter of equiaxed grains with time ( $\tau_1$ ) obtained in No. 4 experiment. B indicates the limit of observation.

#### 4.3 等軸晶の生成速度, 成長速度

No. 4の実験結果について、等軸晶密度( $N_e$ )と経過時間( $t$ )を両対数プロットしたものをFig.10に示す。両者には直線関係が認められ、次のような関係が得られる ( $k_1$ は比例定数)。

$$N_e = k_1 t^n \quad n \sim 2.5 \dots\dots\dots (3)$$

等軸晶の平均直径についても Fig. 4-3)に示した、No. 4の実験結果を経過時間に対して両対数にプロットすると(Fig.11), 経過時間のほぼ0.3乗に比例して増加することがわかる。

合金の過冷却融液中の dendrite 成長は、LKTモデル<sup>19)</sup>等で解析されているが、成長速度は過冷却と対応付けられている。すなわち、十分大きな過冷却融液内を成長する孤立 dendrite は過冷却が一定であれば一定速度で成長する。つまり、dendrite 状に成長する等軸晶径を一方に成長する dendrite 先端からその逆方向に成長する dendrite 先端までの距離とした場合、経過時間に比例して増加する。これは過冷却を制御した融液中をほぼ一定速

度で落下する単一結晶の成長速度を調べた例でも確認されている<sup>20)</sup>。それに対して今回の実験結果は経過時間の0.3乗に比例しており、指数は1より小さい。

Fig. 4に示したように、等軸晶径の最小値は経過時間に関係なくほぼ一定であった。等軸晶の数は増加していることから、これは新しく生成した等軸晶が観察可能な大きさに成長したものであると推定される。したがって、実験の範囲内では微細な等軸晶が発生し続けていたものと考えられる。以上から、等軸晶径が経過時間の0.3乗に比例して増加したのは、微細な等軸晶が発生し続けたことが要因として挙げられる他、等軸晶の成長が流れの非定常性の影響、鋳型内の温度分布の影響、等軸晶同士の温度場・溶質濃度場の干渉、等軸晶の粗大化などの影響を受けたためと考えられる。

等軸晶の生成速度( $dN_e/dt$ )は(3)式を微分して、次式のよう表される( $k_2$ は比例定数)。

$$\frac{dN_e}{dt} = k_2 t^{n'} \quad n' \sim 1.5 \quad \dots \dots \dots (4)$$

この指数の値は、等軸晶の生成メカニズムに直接関係する重要な問題であり、今後の検討課題である。

Fig. 6に示した観察可能時間( $\tau_o$ )は等軸晶の量がある限界値に達するまでに要する時間を表している。ここで、等軸晶の密度と大きさを分離して考えると、Fig.10, 11に示したように、密度の増加、すなわち等軸晶発生数の寄与が圧倒的に大きいことがわかる。

ローター周速が小さい場合には、Fig. 4-1)あるいはFig. 5に示したように、 $3 \sim 4 \cdot 10^{-3} \text{ m}$ にも達する大きな等軸晶が見られた。これは攪拌が弱いと、等軸晶数は余り増加しない(Fig. 3)のに対し、冷却は進むために固液界面近傍の等軸晶が成長するためと考えられる。ただし、液相中の温度勾配が大きいため(Fig. 8)、微細な等軸晶は浮遊中に再溶解し、大きな等軸晶がさらに粗大化したものと推定される。

#### 4.4 観察限界固相率の検討

等軸晶の密度および直径が観察限界時間まで同じ実験式に従うと仮定すれば、内視鏡観察における観察限界固相率を推定できる。

No. 4の実験結果を例として、観察限界時間での密度と直径をグラフ上で求める(それぞれFig.10, Fig.11のグラフ上の破線の値)と、等軸晶密度は約 $1.6 \cdot 10^7 \text{ m}^{-3}$ 、等軸晶径は約 $8 \cdot 10^{-4} \text{ m}$ となる。等軸晶を球と仮定すると、等軸晶の体積分率は約0.4%と求められる。

本実験に用いた観察法の原理により、観察可能な固相率範囲は約0.4%までと凝固の極初期に限られるが、内視鏡を用いると融液内部から三次元的な観察が可能である。

#### 4.5 今回の実験における等軸晶の起源

今回の実験ではスーパーヒートを $12^\circ\text{C}$ 以上とり、水冷銅板を除く鋳型、ローターなどを約 $50^\circ\text{C}$ に予熱した。鋳型内に設置した熱電対の注入直後の指示温度は約 $68^\circ\text{C}$ で

あり、等軸晶が発生するまで、注入後400s以上を要している。これより、注入中に冷たい鋳型壁などに接触して核生成、遊離して等軸晶の核になるメカニズム<sup>21)</sup>は作用しないと考えられる。また、#1~#6の熱電対で測定する限り、鋳型内の溶融サクシノニトリルが液相線温度以下に過冷している現象は認められなかったため、バルク全体が過冷し、そこで核生成するメカニズムも考えられない。ただし、柱状晶前方の組成的過冷領域で核生成する可能性はあるため、組成的過冷説<sup>22)</sup>は否定されない。

したがって、今回の実験における等軸晶生成は、デンドライト溶断<sup>18)</sup>、上面からのシャワリング<sup>23)</sup>、組成的過冷領域における核生成等が有力なメカニズムと考えられる。しかし、これらのどれが作用したのか、あるいはどのメカニズムの寄与が大きいのかについては、今回得られた実験データからは特定することはできない。

溶湯流動が増すと等軸晶の生成速度が増加するだけでなく、Fig. 8に示したように液相内の温度勾配が低下したことから、発生した等軸晶の再溶解が起こりにくくなる。このように、溶湯流動は、等軸晶の生成と成長のどちらも促進するといえる。

## 5. 結言

透明有機物のサクシノニトリルを用いて、三次元容器内での内視鏡による融液内から直接観察を行うことにより、溶湯流動による等軸晶生成のモデル実験を行った。その結果、以下の4点が明らかになった。

- (1) サクシノニトリルは流動による等軸晶化の解析に用いるモデル物質として適している。それは、攪拌を与えると等軸晶が生成するのに対し、攪拌を与えないと等軸晶化しないためである。すなわち、鋼の連続鋳造における鋳型内電磁攪拌による等軸晶化現象と対応するためである。
- (2) 内視鏡によるその場観察により、等軸晶の数と直径を定量化できる。ただし、観察できる限界固相率は約0.4%である。
- (3) 攪拌強度を増すほど、等軸晶の生成速度は上昇し、得られる等軸晶は微細化する。また、攪拌強度を増すほど、液相中の温度は均一化する。
- (4) 凝固初期における等軸晶密度は経過時間の約2.5乗、直径は約0.3乗に比例して増加する。

今回の研究を推進するに当たり、内視鏡をはじめ実験装置に便宜をはかっていただいた、新日本製鐵(株)に感謝いたします。

## 文 献

- 1) 王寺睦満: 第153・154回西山記念技術講座, 日本鉄鋼協会編, 東京, (1994), 30.
- 2) A.Kiyose, K.Miyazawa, J.Fukuda, Y.Ohtani and J.Nakashima: *CAMP-ISIJ*, 7 (1994), 1195.

- 3) Y.Onoe, T.Satoh, T.Kominami, S.Kawasaki and K.Ayata: *CAMP-ISIJ*, **1** (1988), 1219.
- 4) M.Nakatani, T.Adachi, Y.Sugitani, S.Kobayashi, M.Yoshihara and S.Ishimura: *Tetsu-to-Hagané*, **67** (1981), 1287.
- 5) M.Hasegawa, S.Maruhashi, Y.muranaka, F.Hoshi and M.Kinugasa: *Tetsu-to-Hagané*, **67** (1981), 1354.
- 6) H.Takeuchi, Y.Ikehara, T.Yanai and S.Matsumura: *Tetsu-to-Hagané*, **63** (1977), 1287.
- 7) M.E.Glicksman, R.J.Schaefer and J.D.Ayers: *Metall. Trans. A*, **7A** (1976), 1747.
- 8) M.A.Chopra, M.E.Glicksman and N.B.Singh: *Metall. Trans. A*, **19A** (1988), 3087.
- 9) H.Esaka and W.Kurz: *J. Cryst. Growth*, **72** (1985), 578.
- 10) K.Somboonsuk, J.T.Mason and R.Trivedi: *Metall. Trans. A*, **15A** (1984), 967.
- 11) T.Okamoto, K.Kishitake and I.Bessho: *J. Cryst. Growth*, **29** (1975), 131.
- 12) H.Esaka, T.Taenaka, H.Ohishi, S.Mizoguchi and H.Kajioka: *J. Jpn. Soc. Microgravity Appl.*, **6** (1989), 20.
- 13) M.E.Glicksman, E.Winsa, R.C.Hahn, T.A.Lograsso, S.H.Tirmizi and M.E.Selleck: *Metall. Trans. A*, **19A** (1988), 1945.
- 14) D.R.Uhlmann, B.Chalmers and K.A.Jackson: *J. Appl. Phys.*, **35** (1964), 2986.
- 15) O.P.Fedorov: *J. Cryst. Growth*, **102** (1990), 857.
- 16) E.R.Rubinstein and M.E.Glicksman: *J. Cryst. Growth*, **112** (1991), 84.
- 17) G.A.Alfintsev, G.P.Chemerinsky and O.P.Fedorov: *Kristall Tech.*, **15** (1980), 643.
- 18) K.A.Jackson, J.D.Hunt, D.R.Uhlmann and T.P.Seward, III: *Trans. Metall. Soc. AIME*, **236** (1966), 149.
- 19) J.Lipton, W.Kurz and R.Trivedi: *Acta Metall.*, **35** (1987), 957.
- 20) B.Appolaire, V.Albert, H.Combeau and G.Lesoult: *ISIJ Int.*, **39** (1999), 263.
- 21) A.Ohno, T.Motegi and H.Soda: *Trans. Iron Steel Inst. Jpn.*, **11** (1971), 18.
- 22) W.C.Winegard and B.Chalmers: *Trans. Am. Soc. Met.*, **46** (1954), 1214.
- 23) R.T.Southin: *Trans. Metall. Soc. AIME*, **239** (1967), 220.