

溶接プロセスを用いたオーステナイト系ステンレス鋼の 凝固形態および組織形成機構の解明

Clarification of Solidification Behaviors in Austenitic Stainless Steels by Using Welding Process

井上 裕 滋^{* (1)}
Hiroshige INOUE

小 関 敏 彦^{* (2)}
Toshihiko KOSEKI

抄 録

初晶フェライト(FAモード)で凝固するオーステナイト系ステンレス鋼の二相凝固挙動および形態の異なるフェライトの形成機構を結晶学的検討から明らかにした。FAモードは、フェライトの生成段階においてのみオーステナイトとの間に特定な結晶方位関係が成立するが、フェライトが初晶として先行成長した後に樹間で追従するオーステナイトの成長は常にエピタキシャル成長であって、その成長においては先行凝固したフェライトから結晶学的に何ら拘束を受けず、それぞれ独立して成長する二相凝固形態“Independent Two Phase Growth”となる。この知見は、結晶成長方向が変化する溶接プロセスの凝固条件での検討によって初めて明らかとなったものである。また、フェライトの形態の違いは、フェライトが核生成する時のオーステナイトとの結晶方位関係および二相それぞれの優先成長方向と熱流方向の関係によって決定される。

Abstract

Solidification morphologies and the formation mechanism of vermicular and lacy ferrite observed in the austenitic stainless steels solidified with primary ferrite (FA mode) were clarified in terms of crystallography. The austenite in the interdendritic regions is not crystallographically restricted by the primary ferrite during the growth. The growth manner of the primary ferrite and secondary austenite is named as “independent two phase growth”. The ferrite morphology is decided by both the crystallographic orientation relationship between ferrite and austenite established at the stage of ferrite nucleation and the relationship between the welding heat source direction and the preferential growth directions of ferrite and austenite.

1. 緒 言

SUS 304に代表されるオーステナイト系ステンレス鋼の多くは、凝固割れ抑制の観点から、初晶フェライト(以下、 δ と記す)で凝固し、 δ +オーステナイト(以下、 γ と記す)の二相で凝固が完了するFAモード凝固¹⁾³⁾の成分系である。この場合の凝固のまま組織は、図1に示すように、 γ の凝固セルの中央に δ が残留した二相組織となり、さらに多くの場合、形態の異なる二種類の δ (バミキュラー δ およびレーシー δ)が観察される。また、凝固のまま使用されることが多い溶接金属の諸特性は、その組織の特徴に大きく影響を受け、 γ 系ステンレス鋼の溶接金属では、 δ の形態の差異が溶接金属の低温靱性⁴⁾⁵⁾や耐食性³⁾⁶⁾に影響を与えることが報告されている。しかしながら、形態の異なる二種類の δ の形成機構については未だ不明な点が多い。

一方、鉄鋼材料をはじめとして工業的に有益な合金の多くは二相凝固する。この場合の凝固形態としては、共晶、包晶、偏晶の三つの形態が知られており、古くからそれらの形成機構が検討されてきた。ところが、FAモードで凝固する γ 系ステンレス鋼の二相凝固に

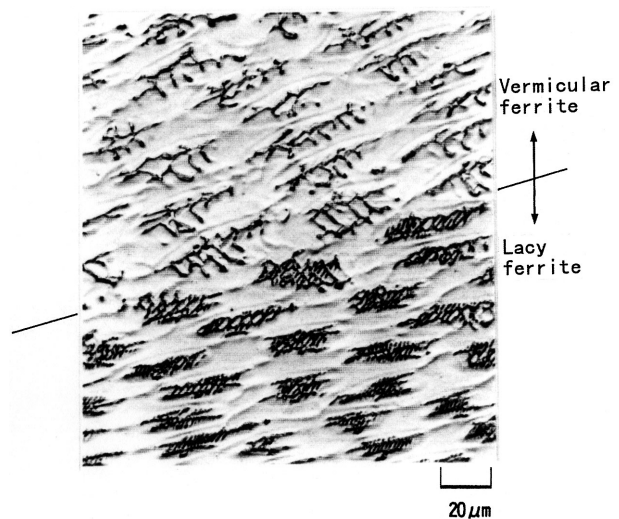


図1 FAモードで凝固するオーステナイト系ステンレス鋼の凝固のまま組織

Typical microstructure as solidified metal of austenitic stainless steel which solidified in FA mode

* (1) 鉄鋼研究所 接合研究センター 主幹研究員 工博
千葉県富津市新富20-1 〒293-8511 TEL:(0439)80-3132

* (2) 東京大学大学院教授 Sc.D
(元 鉄鋼研究所 鋼材第二研究部 主幹研究員)

関する検討は δ と γ の相安定性や相選択等に限られ⁷⁻¹²⁾、各相がどのように関連しながら凝固しているかについての検討はほとんどなされてない。

そこで、著者らは、FAモードで凝固する γ 系ステンレス鋼の二相凝固挙動に関し、主として結晶学的な観点から検討を行い、新たな二相凝固形態を提案^{13,14)}するとともに、それを基に、形態の異なる二種類の δ の形成機構^{5,15)}を明らかにしてきた。本報ではその概要について説明する。

2. FAモードの凝固組織

本研究では、凝固挙動の検討に主として溶接プロセスを用いている。これは、熱源移動に伴う結晶成長方向の変化により、晶出する各相の結晶方位および相間の方位関係がどのような挙動を示すかを確認しやすいためである。さらに、溶接金属では、溶け残った母材から凝固が開始するため、凝固初期段階の情報が得やすい利点がある。供試材料は19Cr-11Ni系ステンレス鋼で、TIGメルトラン溶接のシングルビードを電流150A、電圧12V、速度1.67mm/sの条件でしている。また、凝固組織の現出は、溶接途中にトーチ後方、直上より約600Kで溶融したSnを溶接金属上に冷媒として素早く流し込み、凝固中および冷却中の溶接金属を急冷凍結する液体Sn急冷法¹⁶⁾を用いている。

図2にTIG溶接途中に急冷凍結して得られた凝固先端部の組織を示す。凝固先端から約50 μ mの領域では δ 単相の明瞭なデンドライトが観察され、デンドライト境界では、残留融液から連続して γ が晶出しているのが認められる。このことから、本供試鋼は、初晶 δ で凝固し、凝固途中から γ も晶出して二相で凝固が完了するFAモードであることが確認される。

また、図3は、図2で第二相として晶出した γ の先端を拡大したものであり、初晶として先行凝固した δ の樹間において、固液前面に曲率を持って張り出した γ がセル状に晶出している。本供試鋼は状態図的には共晶組成範囲に入るが、FAモードの共晶組成であっても、一般的な溶接プロセスの凝固速度では、Coupled Zoneから外れ、その組成で安定な δ が共晶より早く過冷されることで初晶としてデンドライト成長し、残留融液が共晶組成に達するまで成長を続ける。その後、残留融液の凝固は通常の共晶機構に移り、デンドライト境界では共晶を形成する。しかしながら、図3に見られるように、 δ 樹間の組織は δ と γ のラメラもしくはロッド共晶ではなく、塊状の γ 単一相である。この形態から、 γ の生成は分離共晶¹⁷⁾的なものであり、 δ/γ 界面形成による界面エネルギーの増大が抑えられた結果と考えられる。

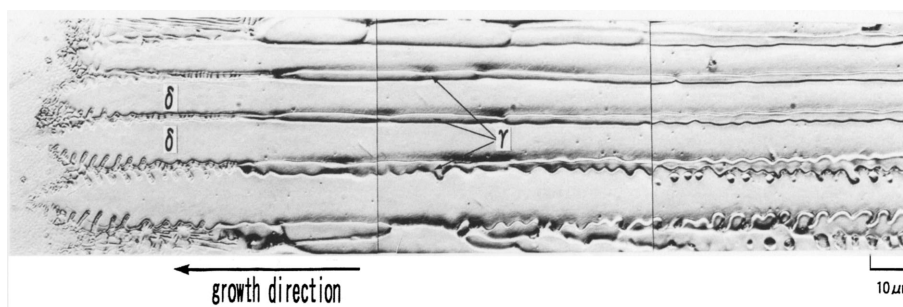


図2 溶接途中に急冷凍結して得られた凝固先端部組織
Microstructural change during solidification in the weld metal obtained by liquid tin quenching method

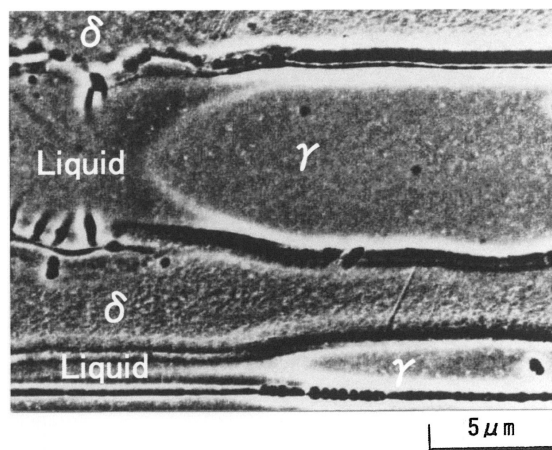


図3 フェライト樹間に晶出したオーステナイト凝固先端部
Growth front of the interdendritic austenite during primary ferrite solidification

3. 凝固時における δ/γ 間の結晶方位関係

図2に示した凝固先端部における δ と γ の結晶方位を解析した結果、デンドライト樹芯の初晶 δ とデンドライト樹間の γ はともに、その優先成長方向である $\langle 100 \rangle$ 方向が凝固方向と一致しており、ほぼ平行な関係が成立している。しかしながら、 δ/γ 間には複数の結晶方位関係が確認され、凝固先端部の δ と γ はそれぞれの $\langle 100 \rangle$ 方向に平行関係が成立するだけで、二相の界面には特定な平行関係が存在していないことが判明した。ところで、図3の凝固組織からこの場合の二相凝固は、初晶 δ 凝固の後、 γ が分離共晶的に晶出したと考えられたが、分離共晶は、凝固末期に共晶温度以下に過冷された準安定の初晶相からもう一つの相が核生成して形成され¹⁷⁾、初晶相と樹間の晶出相の間には特定な結晶方位関係があると言われている¹⁸⁾。しかしながら、本研究で得られた凝固先端部の δ と γ の二相界面では特定な結晶方位関係は存在していない。

溶接プロセスでは素材が溶融された後、溶け残った母材の熱影響部から凝固を開始することによって溶接金属は形成される。そこで、急冷凍結で得られた溶接金属の溶融境界近傍の結晶方位を解析した結果、母材の γ と溶接金属の γ は、すべて同一結晶方位を有しており、溶接金属の γ は母材の γ から平滑的にエピタキシャル成長していることが確認される。一方、溶接金属中の δ は、母材の γ 粒からエピタキシャル成長した平滑 γ 上で生成しているが、各々の δ からは異なる結晶方位が得られ、さらに、凝固先端部で確認された

δ と γ の $\langle 100 \rangle$ 方向に平行関係はほとんど成立していない。しかしながら、この時の δ と γ の間には、異なるバリエーションでKurdjumov-Sachs(K-S)関係¹⁹⁾もしくは最密面のみが平行な関係²⁰⁾が成立している。すなわち、同組成の一つの溶接金属内にあっても δ と γ 間の結晶方位関係は一通りには決まらず、溶融境界部近傍と凝固先端部では異なることが判明した。加えて、 δ/γ 間にK-S関係もしくは最密面のみが平行な関係が成立している事実は、母材から平滑成長した γ 上で δ が良好な整合性を持って核生成したと考えられ、 δ の生成には γ との間に結晶学的な関連を必要とすることが示唆される。一方、第二相として δ 樹間に晶出する γ の成長は、母材が γ 単相であるためにエピタキシャル成長となり、先行凝固する初晶 δ から結晶学的に何ら拘束を受けていないことが示唆される。

溶接金属の形成段階では、溶接熱源の移動に伴い、結晶成長方向が順次変化する。そこで、 δ の成長方向が変化した箇所での結晶方位を測定した結果、 δ からは成長方向に対応した二通りの結晶方位パターンが得られるが、これらの δ は、同一結晶方位を有する一つの γ 粒内に存在していることが確認された。すなわち、 δ の結晶方位が変わっても γ の結晶方位に変化が見られない。第二相としてデンドライト樹間に晶出する γ が分離共晶的に生成するならば、初晶 δ との間に特定な結晶方位関係が成立し、新たな δ が核生成・成長する段階で γ の結晶方位もそれに伴って変化しなければならないはずであるが、 γ の結晶方位に変化は見られない。また、結晶成長方向が変化した他の箇所の結晶方位測定結果では、同一結晶方位を有する δ が、異なる結晶方位を有する二つの γ 粒にまたがって成長していることも確認された。すなわち、初晶 δ の成長に関係なく、優先成長方向と熱流方向のずれが大きくなった γ 粒が、優先成長方向がより熱流方向に近い他の γ 粒に淘汰されて置き換わる現象が発生している。

以上、FAモードで凝固する γ 系ステンレス鋼の溶接凝固時の結晶学的特徴をまとめると、

- 凝固先端部において、 δ と γ の $\langle 100 \rangle$ 方向は多くの場合、凝固成長方向に対して平行であるが、二相間の界面には特定な平行関係はない。
- 溶融境界部では、溶接金属の γ は母材の γ からエピタキシャル成長する。
- 溶融境界部では、 δ と γ の $\langle 100 \rangle$ 方向に平行関係は少ないが、K-S関係もしくは最密面のみが平行な関係が成立している。
- 一つの γ 粒内に異なる結晶方位を有する δ が形成する。
- 同一結晶方位を有する δ が、異なる結晶方位を有する γ 粒にまたがって成長する。

緒言でも述べたように、合金の二相凝固形態としては、共晶、包晶などがあり、これらの反応では、二相間に特定な結晶方位関係が存在することが知られている^{21,22)}。すなわち、凝固時の二相は、組成だけでなく結晶方位も相互に関連させながら成長するものと理解される。また、本研究に供したステンレス鋼は、その凝固組織から見かけ上、分離共晶的に γ が生成していると考えられた。しかしながら、上述したa~eの結晶学的特徴は、従来から言われているような、二相間の界面エネルギーを低くするような特定な結晶方位関係を持ちつつ二相が相互に関連しながら成長するという機構では説明できず、結晶学的には別の形成機構が予想される。

4. FAモードの二相凝固形態

以上の結果から、FAモードで凝固する γ 系ステンレス鋼溶接金属における δ と γ の二相凝固形態は次のように考えられる。なお、図4は、溶接金属における δ と γ の形成機構を模式的に示したものである。

母材が γ 単相の溶融境界部においては、 δ の核生成と γ の成長が競合した結果、 γ の核生成障壁がないために、 γ の成長が優先し、母材の γ から、まず γ が平滑的にエピタキシャル成長する。この時、固液界面前方の液相中ではCrが濃化し、 δ の安定性が相対的に増すため、平滑成長した γ 上では δ が γ との界面で良好な整合性を有する結晶方位関係を満足して核生成する。しかしながら、通常の溶接プロセスの凝固条件では、そのまま共晶へは移行せず、 δ は初晶としてデンドライト/セル凝固し、先行成長する。そして、これら δ の中で優先成長方向が熱流方向に近いものだけが成長を続ける。優先成長方向が熱流方向から大きくずれた δ の成長は止まるが、次々と新しい δ が核生成し、あるいは、他の δ の二次枝、三次枝の中で優先成長方向が熱流方向に近いものだけが成長を続ける。

一方、 δ の凝固末期の樹間では、残留融液中に δ から吐き出されたNiが濃化して、 γ の安定性が増すため、塊状の γ が単一相として生成する。しかしながら、この場合の γ は、 δ 上もしくは液相中で核生成するよりも既に凝固している γ から成長した方が容易なため、樹間の γ は常にエピタキシャル成長となる。そのため、これら樹間 γ は δ との間に良好な整合性を保つ必然性がなくなり、先行凝固した δ から結晶学的に束縛されずに単独で成長を続ける。したがって、 δ の成長方向の変化に関係なく、 γ もまたその優先成長方向が熱流方向に近いものだけが柱状晶を形成して成長する。優先成長方向と熱流方向のずれが大きくなった場合は、その γ 粒に隣接する γ 粒の中で優先成長方向がより熱流方向に近い γ に置き換わる。

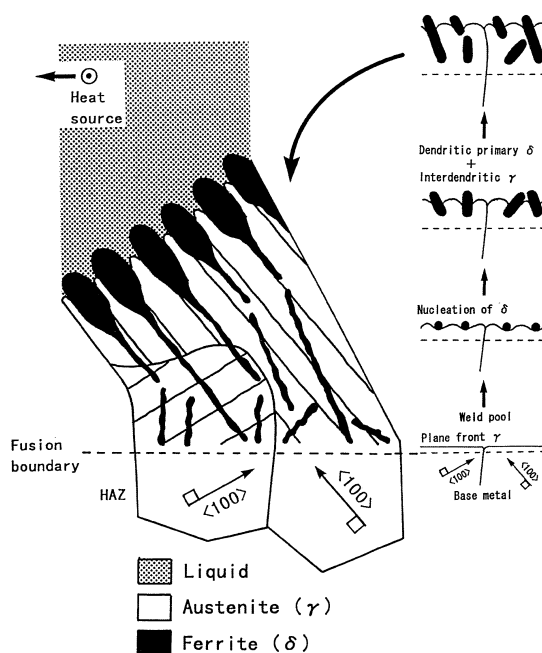


図4 FAモードで凝固する溶接金属のフェライトとオーステナイトの形成機構模式図

Schematic illustration on the formation and the growth of ferrite and austenite near the fusion boundary of weld metal solidified in FA mode

このように、 δ と γ がそれぞれ単独に選択成長を繰り返す結果、最終的には多くの場合、 δ の $\langle 100 \rangle$ 方向と γ の $\langle 100 \rangle$ 方向は熱流方向に対して平行となり、二相界面では特定の結晶方位関係が存在しなくなるものと考えられる。

すなわち、FAモードで凝固する γ 系ステンレス鋼溶接金属で確認された種々の結晶学的特徴は、新たな δ の生成には核生成を必要とするため、その段階においてのみ γ との間には特定の結晶方位関係が成立するが、 δ が初晶として先行成長した後には樹間で追従する γ の成長は常にエピタキシャル成長であって、その成長においては先行凝固した δ から結晶学的に何ら拘束を受けず、 δ と γ はそれぞれ独立して成長するという凝固形態によって説明可能となる。なお、この二相凝固形態を著者らは“Independent Two Phase Growth”¹³⁾と名付けている。

5. 新しい二相凝固形態の検証

新たに提案した“Independent Two Phase Growth”の妥当性について、次のような検証を試みた¹⁴⁾。

Bramfit²³⁾による δ との格子整合性の観点から、 δ の核接種剤としてはTiNが最も有効であり、フェライト系ステンレス鋼において等軸晶の生成を促進させることが良く知られている²⁴⁻²⁶⁾。一方、本供試鋼は γ 系ステンレス鋼であるが、FAモードで凝固するため、初晶凝固相は δ である。したがって、 γ 系ステンレス鋼と言えども、TiNにより初晶 δ 相を等軸晶凝固させることが期待される。そこで、等軸晶生成に効果的な成分バランス²⁴⁾のTiとNを本供試鋼組成に添加して鋳造を行った。

図5に、TiとNを添加および無添加の場合のインゴット断面組織を示す。無添加の場合、 δ はバミキュラーおよびレーシー形状のネットワークを形成しているのに対し、添加した場合は δ が微細分散している。また、微細 δ の中央にはTiNが観察される。すなわち、TiNにより初晶 δ 相が等軸晶凝固しているのが確認された。しかしながら、同じインゴットをマクロに観察すると、TiNの添加有

無に関係なく、粗大な結晶粒、すなわち、 γ の柱状晶が観察できる。この結果から、等軸晶生成に適正な量のTiとNを添加しても、初晶凝固相の δ は等軸晶凝固するが、第二相として凝固する γ は柱状晶凝固(デンドライト/セル凝固)のままであることが確認された。なお、同様の現象は、type 321ステンレス鋼の溶接金属でも指摘されている²⁷⁾。

ところで、第二相として凝固する γ が、初晶凝固する δ と結晶方位を相互に関連させながら生成するものと仮定すると、初晶 δ が等軸晶凝固すれば、それぞれの等軸 δ 晶を囲むように第二相の γ 相が晶出し、 γ の柱状晶は形成しないはずである。しかしながら、図5に示すような δ の等軸晶凝固と γ の柱状晶凝固が同時に起こる事実は、 δ と γ がそれぞれ結晶学的に独立して生成していることを示唆しており、本研究で提案した“Independent Two Phase Growth”の凝固形態によって初めて説明が可能となる。したがって、新たな二相凝固形態の提案の妥当性は検証できたものと考えられる。

6. Independent Two Phase Growthの現出範囲

福元ら、岡根ら^{11,12,28)}は、本供試鋼とほぼ同一組成の γ 系ステンレス鋼の一方向凝固実験において、 10^{-6} m/sオーダーの低凝固速度で共晶を確認し、また、共晶二相間ではK-S関係が成立していることを確認している。したがって、共晶のように二相が同時に成長する場合は、従来から言われているように、二相間に良好な整合性を保つ必要があり、特定の結晶方位関係が成立すると考えられる。一方、本研究での凝固速度は、約 1×10^{-4} m/s $\sim 1 \times 10^{-3}$ m/s程度と推定される。凝固速度が大きくなると、共晶組成でも δ が初晶としてセル/デンドライト成長に移行することは福元ら¹¹⁾、岡根ら¹²⁾の実験結果と一致している。この場合の凝固初期トランジェント過程では、単相平滑界面成長が起こった後の他相の核生成が必要であるため、二相間には特定の結晶方位関係が成立すると考えられる。その後の成長段階においては定常状態となるため、界面応答関数から界面温度の最も高い相が初晶として成長する。しかしながら、それに追従する第二相の生成、成長には核生成の必要がなく、また、独自の優先成長方位を持っているため、単独の熱的条件および溶質分配に依存し、結晶学的には初晶相から制約を受けずに成長すると考えられる。

すなわち、同じ成分系でも凝固条件によっては、通常の共晶反応が起こる。しかしながら、初晶相がセル/デンドライト成長することが予想される凝固条件(凝固速度、温度勾配)²⁹⁾、言い換えると、溶接、連続鋳造、ストリップキャスティングなど工業的に実用的な凝固プロセスでは、本研究で提案した凝固形態(Independent Two Phase Growth)が起こっているものと考えられる。

ところで、従来から凝固挙動の基礎的研究には、主として一方向凝固実験が採用されてきた。一方向凝固実験では、熱流方向に変化がないため、初期に成立した核生成段階の結晶方位関係を維持したまま成長を続ける。したがって、二相間にはあたかも特定の結晶方位関係を成立しているように見られる。言い換えると、一方向凝固実験や溶接の溶融境界部で得られる結晶方位関係は、核生成段階で成立した方位関係であり、必ずしも成長段階で形成される方位関係を表していないと考えられる。一方、本研究で得られた結果は、二相が凝固成長する時の本来の結晶方位関係であり、この関係は、結晶成長方向(熱流方向)が変化する凝固プロセスによる検討によって初めて明らかになったものである。加えて、実用的な凝固プロセス

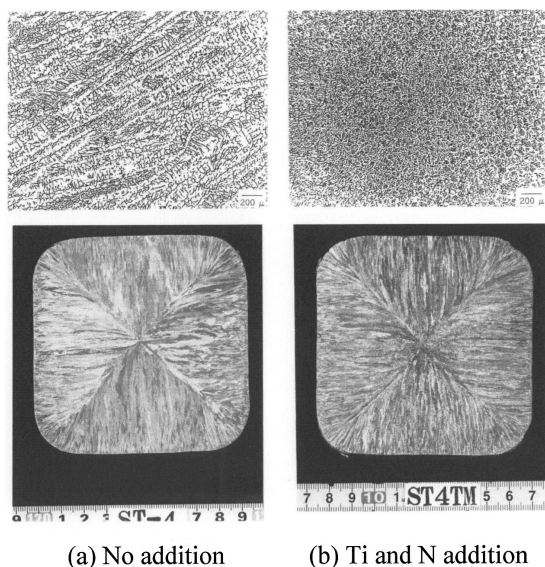


図5 TiとNを添加しない場合(a)と添加した場合(b)のインゴット断面組織
Microstructures and macrostructures of austenitic stainless steel ingots, (a) no addition, (b) Ti and N addition

の多くは、結晶成長方向(熱流方向)が変化するため、本研究で得られた知見は材料工学的に重要である。

7. 形態の異なるδフェライトの形成機構

7.1 形態の異なるδとγ間の結晶方位関係

FAモードで凝固するγ系ステンレス鋼の凝固のまま組織は、図1に示すように、γマトリックス中にバミキュラーδとレーシーδの形態の異なる二種類のδが残存する二相組織となる。そこで、上記で提案した二相凝固形態“Independent Two Phase Growth”を用い、形態の異なる二種類のδの形成機構について検討した結果¹⁵⁾を以下に述べる。

著者らは、凝固のまま組織におけるバミキュラーδとγとの間には、バミキュラーδの<100>方向とγの<100>方向にほぼ平行な関係が成立し、凝固成長方向と一致しているが、二相界面には特定の平行関係を持たない。一方、レーシーδとγとの間には、K-S関係が成立しており、かつ、レーシーδおよびγそれぞれの<100>方向も凝固成長方向に対し平行に近い関係があることを示した³⁰⁾。なお、これらの関係は既に粉川ら³¹⁾が報告している結果と同じである。また、3章で述べた溶接凝固時の結晶学的特徴の中で、凝固先端部における二相間の結晶方位関係は、バミキュラーδとγ間の方位関係に対応し、室温まで冷却されてレーシーδとなるδの凝固先端部においては、凝固のまま組織と同様に、δ/γ間にはK-S関係が成立し、かつ、各々の<100>方向は凝固成長方向に対し平行に近い関係にあることを確認している¹⁵⁾。すなわち、凝固後冷却中のδからγへの変態は、凝固時にδ樹間に晶出したγが、初晶凝固した樹芯δへエピタキシャル成長することで起こるため、変態後の室温組織におけるδ/γ間の結晶方位関係は凝固時に成立した結晶方位関係のままとなる^{15,30)}。そして、このような結晶方位関係の違い

が、δの形態を決定していることを報告している³⁰⁾。

ところで、“Independent Two Phase Growth”では、γの成長は常にエピタキシャル成長であって、その成長においては先行凝固したδから結晶学的な拘束を受けない。したがって、δ/γ間に特定の結晶方位関係が成立するのは、新たなδが核生成する段階においてのみであると規定している。すなわち、溶接金属においては、最初にδが晶出し、δ/γの異相界面が形成されるのは、溶融境界部であり、この溶融境界部においてδが最初に晶出した段階で、δ/γ間の結晶方位関係が決定されると考えられる。

そこで、溶融境界部近傍において、一つの母材γ粒からエピタキシャル成長した同一結晶方位を有する一つのγ粒内で生成しているバミキュラーδおよびレーシーδ結晶方位を解析した。バミキュラーδはγとは最密面のみが平行な関係が成立し、特定の方向平行関係はない。また、バミキュラーδの<100>方向のいずれもがγの<100>方向と平行関係から大きくずれている。この関係は、3章で述べた急冷凍結で得られた溶接金属の溶融境界近傍の結晶方位測定結果と一致するが、前述したバミキュラーδとγの方位関係とは異なっている。一方、レーシーδはγとはK-S関係を満足し、かつ、レーシーδの<100>方向はγの<100>方向とほぼ平行関係に近く、熱流方向ともほぼ一致している。この関係は、前述したレーシーδとγ間の結晶方位関係と一致しており、レーシーδとγ間の結晶方位関係は溶融境界部でも凝固先端部でも変化していないことがわかる。

7.2 バミキュラーδフェライトの形成機構

以上の結果および“Independent Two Phase Growth”より、FAモードで凝固するγ系ステンレス鋼溶接金属における形態の異なるδの形成機構は次のように考えられる。図6および図7に、それぞれのδの形成過程¹⁵⁾を示す。なお、図7中のA~Hは、図6のCase A~

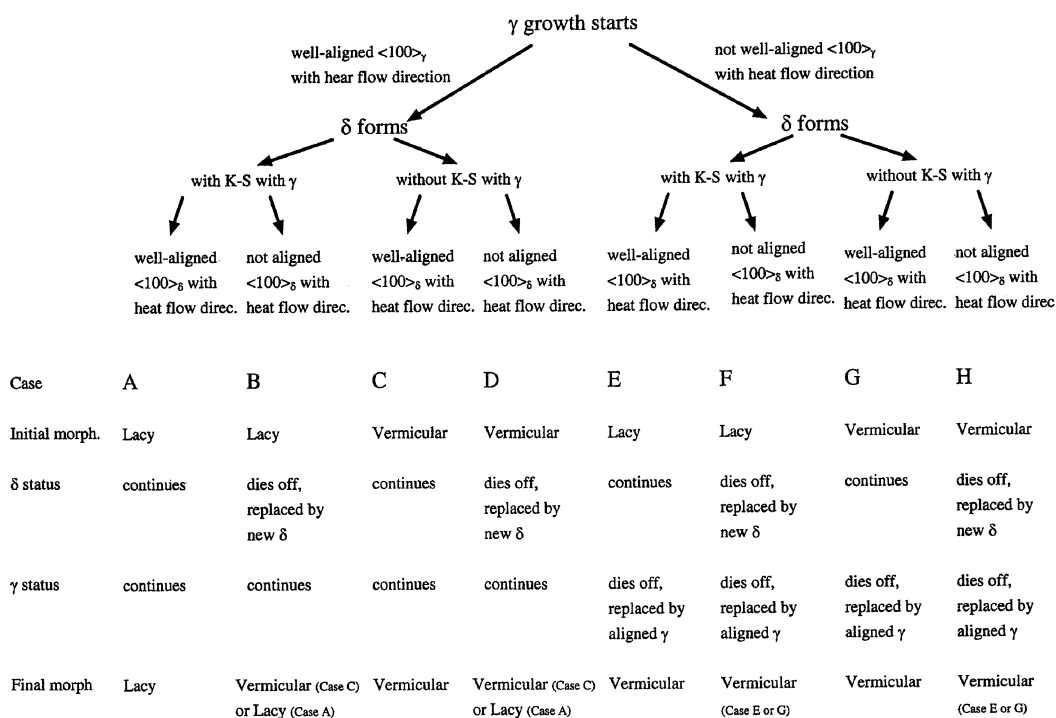


図6 FAモードで凝固する溶接金属における形態の異なるフェライトの形成機構
Proposed mechanisms for formation of different ferrite morphologies in weld metals solidified in FA mode

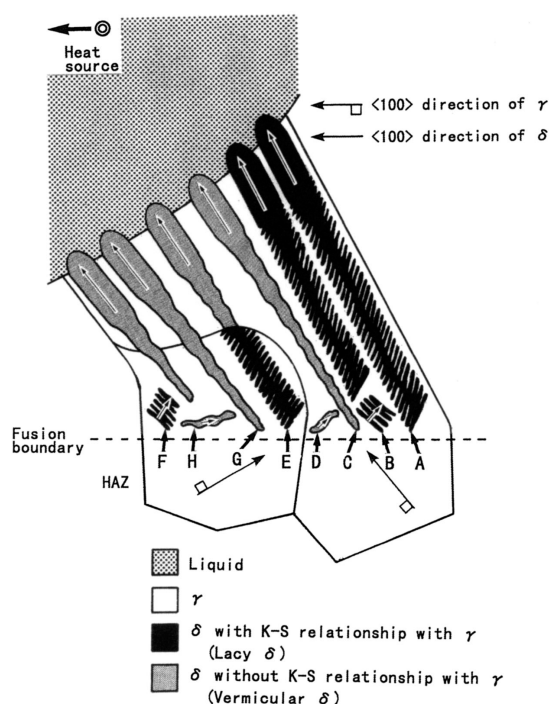


図7 FAモードで凝固する溶接金属における形態の異なるフェライトの形成機構模式図(図中のA~Hは、図6のA~Hに対応)

Schematic illustration of formation process and mechanism for different ferrite morphologies in weld metals solidified in FA mode. (A-H correspond to cases in Fig. 6)

Case Hに対応する。

母材 γ からは、まず γ が平滑的にエピタキシャル成長し、その平滑成長した γ 上で初晶となる δ が核生成して晶出を開始する。この時、初晶 δ と平滑 γ の間には、K-S関係もしくは最密面のみが平行な関係を持つ二通りの結晶方位関係が成立する。そして、この δ/γ 間に最密面のみが平行な関係を満たす場合(Case C, D, G, H)は、 δ/γ 間の整合性が良くないため、 δ/γ 間の界面エネルギーの増加、すなわち、界面面積の増加を抑えるべく、樹間 γ は樹芯 δ 中へバルク状に平滑的に成長し、その結果、 δ はバミキュラーを呈する。

次に、このように晶出したバミキュラー δ は、その優先成長方向である $\langle 100 \rangle$ 方向が熱流方向に一致したものが成長を続け(Case C, G)、一致しないものは成長が停止し(Case D, H)、新たな δ が核生成する。この新たに核生成した δ の優先成長方向が熱流方向にほぼ一致する場合は、Case CおよびCase Gのように成長を続けるが、一致しない場合は再度 δ の成長は止まる。一方、樹間に晶出する γ は柱状晶を形成しつつ、単独でその優先成長方向である $\langle 100 \rangle$ 方向が熱流方向に一致したものが成長を続ける(Case C)。Case Gのように γ の $\langle 100 \rangle$ 方向が熱流方向に一致しない場合は、 $\langle 100 \rangle$ 方向が熱流方向により近い γ に置き換わる。したがって、このように δ および γ がそれぞれの選択成長を繰り返した結果、最終的にバミキュラー δ と γ の間には、熱流方向に対してバミキュラー δ と γ の $\langle 100 \rangle$ 方向が平行となり、二相界面には特定な面平行関係が存在しないという定常凝固部で得られた結晶方位関係が成立するものと考えられる。当然、選択成長の途中では、特定な結晶方位関係を全く持たない δ/γ 界面も存在すると思われるが、いずれの場合においても、 δ/γ 間の整合性は良

くないため、 δ はバミキュラーになると考えられる。

7.3 レーシー δ フェライトの形成機構

母材 γ から平滑的にエピタキシャル成長した γ の上で、 δ が γ とK-S関係を満たして核生成した場合(Case A, B, E, F)、 δ/γ 間の整合性が良好なため、樹間 γ は容易に樹芯 δ 中へ δ の晶癖面に沿って板状にエピタキシャル成長し^{20,32,33)}、 δ はレーシーを呈する。このことは、 γ が平滑的に δ 中へ成長して非整合な δ/γ 界面を維持するよりは、 δ/γ 界面が整合界面となるように γ が板状に δ 中へ成長した方が、界面面積は増加するものの、系全体の界面エネルギーの増加が抑えられるためと考えられる。

ところで、溶融境界部において δ/γ 間に成立するK-S関係もしくは最密面のみが平行な関係の違いを支配する要因の解明は難しいが、一つの可能性として、 γ の優先成長方向と熱流方向との関係が考えられる。すなわち、両方向が一致しない場合(Case E, G, H, F)、平滑 γ の凝固遅れが起こる³⁴⁾。この場合、溶融境界近傍では温度勾配が大きいため、僅かの凝固遅れでも平滑界面先端の液相温度の低下は大きい。したがって、大きな核生成臨界過冷度を必要とする δ でも核生成が容易となり、最密面のみが平行な関係を満たして核生成する δ の頻度が大きくなると考えられる(δ/γ 間の結晶方位関係がK-S関係を有するより最密面平行関係を有する方が、 δ の核生成に必要な核生成臨界過冷度は大きい)。

一方、平滑 γ の $\langle 100 \rangle$ 方向が熱流方向と一致している場合(Case A, B, C, D)は、 γ の平滑界面先端の液相温度の低下が小さいため、大きな核生成臨界過冷度を必要とする δ の核生成は困難となる。したがって、この場合は、 δ/γ 間にK-S関係を満たして核生成する δ の頻度が大きくなると考えられる。

しかしながら、このように γ とK-S関係を満たして核生成した δ でも、その $\langle 100 \rangle$ 方向が熱流方向に一致しない場合(Case B, F)は、レーシー δ の成長は早期に止まり、新たな δ が核生成する。また、Case AおよびEのように、 δ がK-S関係を満たして核生成し、その δ の $\langle 100 \rangle$ 方向が熱流方向に一致して成長を続けても、 δ 核生成の下地となる γ の $\langle 100 \rangle$ 方向が熱流方向に一致しない場合(Case E)は、 $\langle 100 \rangle$ 方向がより熱流方向に近い γ に置き換わる。したがって、成長を続けたレーシー δ と新しく置き換わった γ の間には、もはやK-S関係は成立しなくなり、 δ はバミキュラーとなる。

以上のことから、Case Aのように δ の形態が連続したレーシーとなるためには、 δ の核生成段階で成立したK-S関係を維持したまま成長を続ける必要がある。すなわち、① δ 核生成の下地となる γ の $\langle 100 \rangle$ 方向が熱流方向とほぼ一致し、かつ、②その γ 上で δ がK-S関係を満足するとともに、③その δ の $\langle 100 \rangle$ 方向も熱流方向に向かってほぼ平行に近い関係で核生成することが必要であると考えられる。したがって、レーシー δ が形成されるには、これらの条件のすべてを満足する必要があり、その頻度はかなり低いと考えられる。また、このようにして形成されたレーシー δ と γ の間には、K-S関係が成立するとともに、かつ、レーシー δ および γ それぞれの $\langle 100 \rangle$ 方向も凝固成長方向に対し平行に近い関係があるという定常凝固部で得られた結晶方位関係が成立するものと考えられる。

7.4 δ フェライト形成機構の検証

連続したレーシー δ の形成には、上述した①②③の条件が必要と考えられるが、この中で意図的に操作が可能な条件は、①の母材 γ 粒の結晶方位である。そこで、中央に向かって γ の柱状晶が揃って成長しているSUS 304ステンレス鋼の鋳片を用い、図8に示すよう

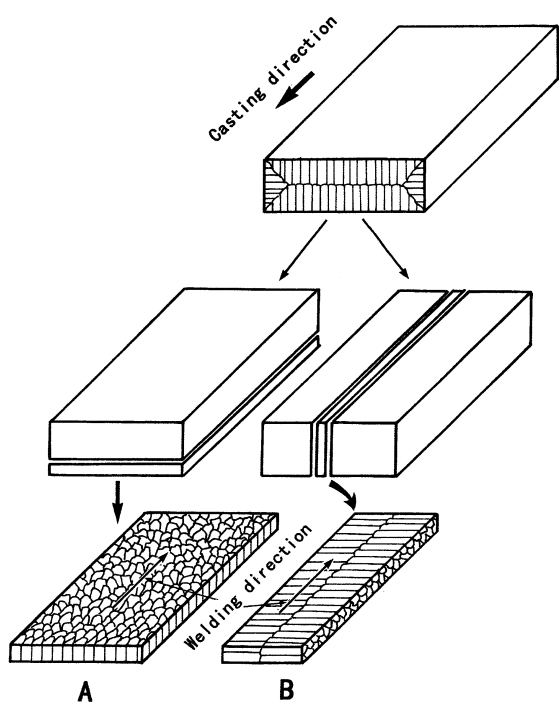


図8 インゴットからの鋼板作製方法

A: オーステナイト柱状晶を垂直に切断, B: オーステナイト柱状晶に平行に切断

Schematic illustration of plate preparation from ingot, cutting austenite columnar structure vertically (A) and cutting parallel to austenite columnar structure (B)

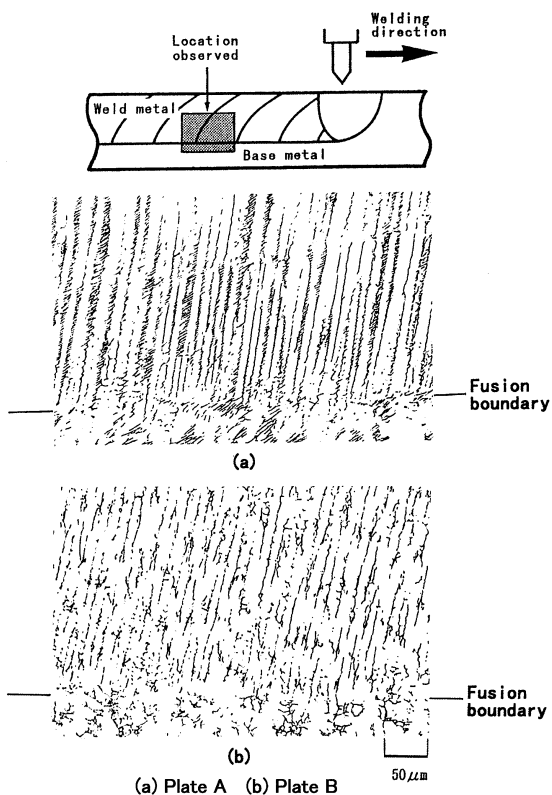


図9 図8で作製した鋼板Aおよび鋼板BをTIGメルトラン溶接した場合の溶融境界近傍のミクロ組織。(a) 鋼板A, (b) 鋼板B
Microstructures taken near bottom of weld center, parallel to welding direction, in autogenous TIG welds on (a) plate A and (b) plate B in Fig. 8

に切断方向を変えて母材 γ 粒の結晶方位が異なるように作製した板にメルトランのTIG溶接を行った。すなわち, Aに示すように, 鑄片表面に対し平行に(γ 柱状晶に対し垂直に)切断したものは, γ 柱状晶の優先成長方向である $\langle 100 \rangle$ 方向が板厚方向とほぼ一致している。一方, Bに示すように, 鑄片表面に対し垂直に(γ 柱状晶に対し平行に)切断したものは, 板厚方向の γ の結晶方位は個々の結晶粒で異なりランダムになる。

このようにして作製した板にTIGメルトラン溶接した時の溶接金属組織の一例を図9に示す。母材 γ 粒の $\langle 100 \rangle$ 方向が板厚方向にほぼ揃っている板を溶接した場合(図9(a)), レーシー δ が多く観察され, 全 δ 量に対し, 約30%強の比率でレーシー δ が存在している。一方, 板厚方向の母材 γ 粒の結晶方位がランダムな板を溶接した場合, 図9(b)に示すように, レーシー δ の生成は少なく, その存在比率は全 δ 量の約5%程度である。すなわち, 全く同じ鑄片であっても, その切断方向を変えて作製した板を溶接するだけで, 全 δ 量は変化せず, レーシー δ の生成比率だけに著しい差が認められた。このことから, パミキュラー δ およびレーシー δ の形成には成分的な影響はなく, δ が核生成する時の δ/γ 間の結晶方位関係および δ, γ それぞれの優先成長方向と熱流方向の関係によって決定されることが裏付けられる。

8. 結 言

FAモードで凝固する γ 系ステンレス鋼の凝固挙動を結晶学的な観点から検討し, 二相凝固形態および形態の異なる二種類の δ の形成機構を考察した。本研究で得られた結果を以下に要約する。

- 1) 初晶凝固した δ のデンドライト樹間において, 塊状の γ が第二相として形成される。
- 2) 急冷凍結した溶接金属では, a~eに示す結晶学的特徴がある。
 - a. 凝固先端部において, δ と γ の $\langle 100 \rangle$ 方向は多くの場合, 凝固成長方向に対して平行であるが, 二相間の界面には特定の平行関係はない。
 - b. 溶融境界部では, 溶接金属の γ は母材の γ からエピタキシャル成長する。
 - c. 溶融境界部では, δ と γ の $\langle 100 \rangle$ 方向に平行関係は少ないが, K-S関係もしくは最密面のみが平行な関係が成立している。
 - d. 一つの γ 粒内に異なる結晶方位を有する δ が形成する。
 - e. 同一結晶方位を有する δ が, 異なる結晶方位を有する γ 粒をまたがって成長する。
- 3) FAモードで凝固する γ 系ステンレス鋼の凝固形態は, δ の生成には γ 上での核生成を必要とするため, その段階においてのみ γ との間に特定の結晶方位関係が成立するが, δ が初晶として先行成長した後に樹間で追従する γ の成長は常にエピタキシャル成長であって, その成長においては先行凝固した δ から結晶学的に何ら拘束を受けず, δ と γ はそれぞれ独立して成長する。この二相凝固形態を“Independent Two Phase Growth”と名付けた。
- 4) Ti, Nの添加により同時に現出する δ の等軸晶凝固と γ の柱状晶凝固は, 3)で示した“Independent Two Phase Growth”の二相凝固形態によってのみ説明が可能である。
- 5) 新たに提案した二相凝固形態 (Independent Two Phase Growth) は, 結晶成長方向(熱流方向)が変化する凝固条件での検討に

よって初めて明らかとなったものである。

- 6) 溶融境界部において、初晶 δ が γ と最密面のみが平行な関係を満たして核生成する場合、 δ/γ 間の整合性は良くないため、 γ は δ 中へバルク状に平滑的に成長し、最終的な δ の形態はバミキュラーとなる。また、その後、 δ および γ がそれぞれ熱流方向に向かって単独に選択成長を繰り返す結果、最終的には δ と γ の $\langle 100 \rangle$ 方向が平行となる。
- 7) 溶融境界部において、初晶 δ が γ との間にK-S関係を満たして核生成する場合、 δ/γ 間の整合性が良好なため、 γ は δ 中へ δ の晶癖面に沿って板状にエピタキシャル成長し、最終的な δ の形態はレーシーとなる。しかしながら、 δ の形態が連続したレーシーとなるためには、 δ 核生成の下地となる γ の $\langle 100 \rangle$ 方向が熱流方向とほぼ一致し、かつ、 δ が γ とK-S関係を満足するとともに、その δ の $\langle 100 \rangle$ 方向も熱流方向に向かってほぼ平行に近い関係で核生成することが必要である
- 8) FAモードで凝固する γ 系ステンレス鋼の凝固のまま組織で観察されるバミキュラー δ およびレーシー δ の形成には、成分的な影響はなく、 δ が核生成する時の δ/γ 間の結晶方位関係および δ 、 γ それぞれの優先成長方向と熱流方向の関係によって決定される。

参考文献

- 1) Suutala, N., Takalo, T., Moisio, T.: Metall. Trans. A. 11A, 718(1980)
- 2) Brooks, J.A., Williams, J.C., Thompson, A.W.: Metall. Trans. A. 14A, 1271 (1983)
- 3) David, S.A.: Weld. J. 60, 63s(1981)
- 4) 神谷, 熊谷, 菊地: 溶接学会論文集. 9, 525(1991)
- 5) 井上, 小関, 藤, 西本: 溶接学会論文集. 19, 100(2001)
- 6) Grekula, A.I., Kujanpaa, V.P., Karjalainen, L.P.: Corrosion. 40, 569(1984)
- 7) Bobadilla, M., Lesoult, G.: Mem. Sci. Rev. Met. 78, 345(1981)
- 8) Schubert, Th., Loser, W., Schinnerling, S., Bacher, I.: Mater. Sci. and Tech. 11, 181 (1995)
- 9) Mizukami, H., Suzuki, T., Umeda, T., Kurz, W.: Mater. Sci. Eng. A173, 361(1993)
- 10) Koseki, T., Flemings, M.C.: Metall. Trans. A. 27A, 3226(1996)
- 11) Fukumoto, S., Kurz, W.: ISIJ Int. 39, 1270(1999)
- 12) Okane, T., Umeda, T.: ISIJ Int. 38, 454(1998)
- 13) 井上, 小関: 鉄と鋼. 87, 692(2001)
- 14) Inoue, H., Koseki, T.: Proceedings of 7th International Conference on Trends in Welding Research. Georgia, 2005, ASM
- 15) Inoue, H., Koseki, T., Ohkita, S., Fuji, M.: Sci. and Tech. of Weld. and Join. 5, 385 (2000)
- 16) 井上, 小川: 溶接学会論文集. 9, 129(1991)
- 17) Chalmers, B.: Principles of Solidification. New York, John Wiley & Sons Inc. 1964, p.218
- 18) Wang, S., Akatsu, T., Tanabe, Y., Yasuda, E.: J. Mater. Sci. 35, 2757(2000)
- 19) Kurdjumov, G., Sachs, G.: Zeitschrift fur Physic. 64, 325(1930)
- 20) 鮎山, 牧, 田村: 日本金属学会誌. 50, 602(1986)
- 21) Hogan, L.M., Kraft, R.W., Lemkey, F.D.: Advances in Materials Research. Vol.5. New York, John Wiley & Sons Inc., 1971, p.83
- 22) Kraft, R.W.: Trans. Met. Soc. AIME. 224, 65(1962)
- 23) Bramfitt, B.L.: Metall. Trans. 1, 1987(1970)
- 24) 小関, 井上: 日本金属学会誌. 65, 644(2001)
- 25) Villafuerte, J.C., Pardo, E., Kerr, H.W.: Metall. Trans. A. 21A, 2009(1990)
- 26) Ostrowski, A., Langer, E.W.: J. Metall. 8, 153(1979)
- 27) Villafuerte, J.C., Kerr, H.W.: Metall. Trans. A. 21A, 979(1990)
- 28) Fukumoto, S., Okane, T., Umeda, T., Kurz, W.: ISIJ Int. 40, 677(2000)
- 29) 福元, 梅田: までりあ. 40, 150(2001)
- 30) 井上, 小関, 大北, 藤: 溶接学会論文集. 15, 88(1997)
- 31) Kokawa, H., Kuwana, T., Yamamoto, A.: Weld. J. 68, 92s(1989)
- 32) Townsend, R.D., Kirkaldy, J.S.: Trans. of the ASM. 61, 605(1968)
- 33) Ameyama, K., Weatherly, G.C., Aust, K.T.: Acta Metall. Mater. 40, 1835(1992)
- 34) Rappaz, M., David, S.A., Vitek, J.M., Boatner, L.A.: Metall. Trans. A. 20A, 1125(1989)