解　説

OCC Processによる新素材の開発

大野　篤美*

Development of advanced materials by the OCC Process

Atsumi OHNO*

1. まえがき

鋳塊の等軸晶の生成機構を研究してきた著者が，常にいだいてきた疑問の一つは，なぜ等軸晶を作らなければならないのだろうということであった。等軸晶を作るかぎり，結晶と結晶の間には粒界ができ，そこには不純物が偏析し，また微視的な巣ができる。

不純物の偏析した凝固粒界が金属の腐食の起点となりやすいことは周知の事実であり，また，凝固粒界や巣が機械的に弱いことも知られているのに，不純物を添加してまでそのような凝固粒界をわざわざ作る必要があるのだろうか？という疑問であった。

とくに1974年，Zn-Al系共晶合金の機械的性質を研究していた友人のP. Niessen[1]から「共晶粒の内部組織をいかに変えても，機械的に弱い共晶粒界が存在するかぎり，材料の破壊は粒界から起こる」ということを聞いて以来，ますます金属材料における凝固粒界は弱いもの，これは除かなければならないものと思うようになった。

著者は，今まで研究してきた等軸晶の生成に関する研究を応用して，このような化学的にも機械的にも弱い凝固粒界のない材料を容易に作ることのできる，加熱鋳型を用いる連続鋳造法，OCC (Ohno Continuous Casting) Process[2)~4)]を開発した。従来の工業用金属材料のほとんどは等軸晶を含む多結晶体であっただけに，凝固粒界のない金属材料に関する情報がきわめて少なく，単に大きい結晶からなる材料は軟らかくて弱いというのが一般的であったように考えられる。著者らはOCC Processで得られたアルミニウムやアルミニウム合金の単結晶や一方向凝固組織からなる材料に，特殊な冷間加工を施すことによって加工硬化させ，疲労に強い金属材料を作ることができることを見出した[5]。

このことは，OCC Processを用いて，従来から用いられてきた多くの金属および合金を，単に凝固法を変えることによって凝固粒界を除き，耐食性や耐疲労性に優れたまったく新しい材料に変えることのできる可能性と，材料開発の研究にとって開拓をまつ大きな新分野の存在を示唆するものと考えられる。

2. なぜ鋳型を加熱するのか

溶湯を鋳型に注湯すると，鋳型によって熱を奪われ，鋳型面上に結晶が生成し，安定凝固殻の形成に先立って遊離すると等軸晶となり，鋳壁上に安定な凝固殻を作った結晶は，図1のように鋳塊表層に柱状晶帯を形成する。

鋳塊の内部には巣ができやすく，また凝固時発生するガスは気泡を形成する。不純物がマクロ的に偏析する。これらの鋳造欠陥の他に忘れてならないのは凝固時に形成する結晶と結晶の粒界，すなわち凝固粒界の存在であ

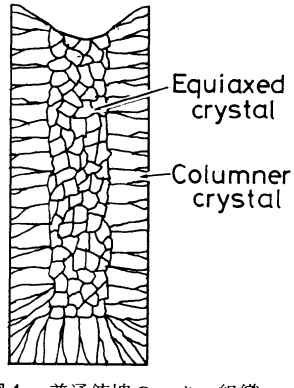


図1　普通鋳塊のマクロ組織

* 千葉工業大学金属工学科（習志野市）。Department of Metallurgical Engineering, Chiba Institute of Technology (Narashino-shi, Chiba).
受理日：平成元年7月24日

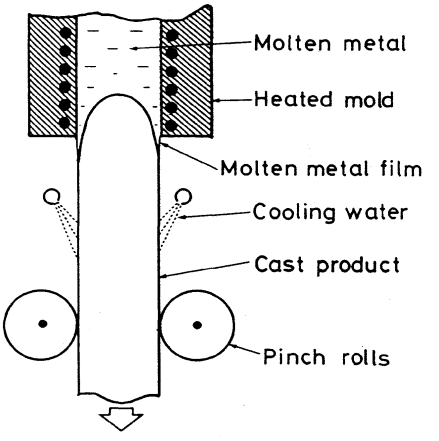


図2　OCC Process の原理

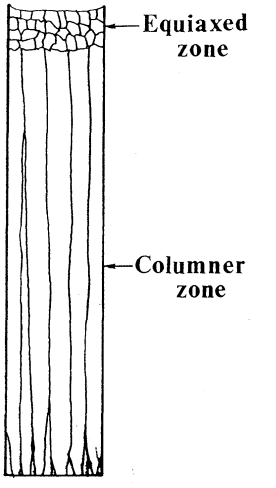


図3　柱状晶帯→等軸晶帯遷移

る。凝固粒界には不純物が集まりやすく機械的に弱く，鋳塊をそのまま冷間で加工するときには表面の粒界からき裂を生ずることが知られている。またそのような粒界が金属材料の腐食の起源になりやすいことが知られている。このような巣や気泡やマクロ偏析や凝固粒界のような鋳造欠陥の発生は，溶湯を鋳型に注湯して，鋳型によって抜熱を行って凝固させるかぎりさけがたいことである。

そしてこのような鋳造時にできた欠陥は，熱処理や塑性加工によっても除くことができず，鋳塊を加工して得られた最終製品の中に履歴として残ってしまい，材料の疲労破壊の原因となってしまう。鋳造欠陥は，単にインゴット鋳造の場合にかぎらず，鋳塊の連続鋳造の際にも発生する。

このような鋳造欠陥を除いて，疲労破壊や腐食に強い金属材料を製造するためには，鋳塊の凝固の方式を根本的に変えることが必要である。

いかにすればこのような鋳造欠陥のない鋳塊を作ることができるであろうか。答は簡単である。鋳型を加熱することである。鋳型を加熱して，鋳壁上に結晶を核生成させないことである。

3. OCC Process の原理

OCC Process の原理はきわめて簡単で，鋳塊連続鋳造用の鋳型を加熱し，溶湯の接する鋳型壁面の温度が常に溶湯の凝固温度以上になるよう保持することによって，鋳型面での結晶の核生成を阻止し，鋳塊の先端でのみ凝固が進行するように，鋳塊を鋳型の外で冷却する方法である。

すなわち**図2**のように，従来の連続鋳造に用いられてきた中空の冷却鋳型の代わりに，加熱鋳型を用い，鋳壁面での結晶の核生成を完全に阻止し，鋳型内における溶湯の凝固は鋳壁をさけて鋳塊の凝固先端でのみ進行させる。いいかえれば，鋳塊表層は液膜に覆われたままの状態で鋳型を出，鋳型直外でその液膜の凝固を完了させるものである。

4. OCC Process の発想と開発の動機

このような加熱鋳型を用いる連続鋳造法の発想は，表面状態のよい鏡面の鋳塊を得ようとして，「そのためには，鋳型面での凝固を防ぐ必要がある」と考えたのがはじまりで，1978年のことであった。当初は鋳型出口端から溶湯が吹き出し，とても工業化は困難であろうと考えていた。1982年に日本学術振興会の凝固部会で，著者が永年主張してきた等軸晶の生成に関する結晶遊離説「鋳塊の等軸晶の生成は，凝固初期の安定凝固殻の形成に先立つ鋳型からの結晶の生成遊離に起因する」という説[6]は明らかに間違いであるという論文[7]が発表された。

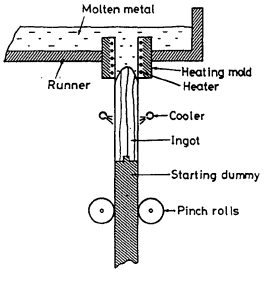
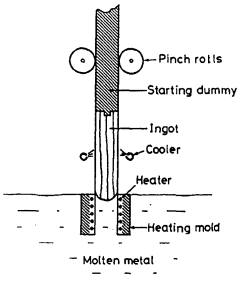
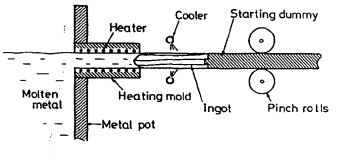
それは，「鋳型に入れたアルミニウム溶湯を下から冷却して一方向凝固させたら，柱状晶帯の上に等軸晶が晶出した。大野らのいうように，等軸晶の生成は鋳型からの結晶の生成遊離に起因するのであれば，鋳型内溶湯を下端からのみ冷却した場合，重い結晶が上方に浮上することができないはずだから，等軸晶は凝固先端の過冷液中で核生成したものである」という主張であった。この論文の発表によって，著者はそれまで工業化が困難と考え，あまり熱の入らなかった OCC Process の研究に専念する機会を与えられた。「結晶遊離説が正しいことを証明しなければならない。そのためには**図3**のような柱状晶帯→等軸晶帯遷移がまったくない，無限に長い柱状晶のみからなる鋳塊を作ってみせる必要がある」と考えた。

5. OCC Process の開発の過程

OCC Process の原理の応用は，下引き式連続鋳造装置による10 mm の錫の棒状鋳塊の鋳造に始まり，やがて管の鋳造へと進んだ。そして，加熱鋳型を用いた下引き式の連続鋳造法を実用に供するには，鋳型出口端からの溶湯のブレークアウトを阻止できる，高度の制御技術を必要とすることが明らかとなったので，やがてこのようなブレークアウトなしに鋳造できる上引き式連続鋳造法を採用し，径30 mm のアルミニウム鋳塊の連続鋳造や，銅および Cu–Sn 合金の棒や板の連続鋳造を試みた。その結果上引き式は，ブレークアウトなしに鏡面鋳塊をうることができるが，凝固時に凝固界面に発生するガスが鋳塊中に捕捉されやすいことが明らかとなった。引続き細い線や板なら溶湯圧を小さくすることによって，水平式でも容易に鋳造できることを見出し，銅，アルミニウム，マグネシウム，錫，亜鉛などの鋳造を行った。そしてこれらの鋳造は企業によって実用化され，製品はオーディオ，ビデオその他の機能用材料として広く用いられるようになった[8),9)]。

下引き式装置の開発を担当した三井造船は，銅の複雑断面管や銅線の多本引きに成功した[10)]。**図 4** は銅線の連続鋳造装置を示す。OCC Process によるステンレス鋼やステライトやパーマロイのような高融点合金の連続鋳造も，尼崎にある OCC リサーチ・センターで熱心に行われている。

表 1 OCC Process の 3 方式

方　　式	特　　徴
 下引き式 OCC Process	長　所 1. 鋳塊にガス，不純物を噛み込むことがない 2. 均一な冷却が可能 3. 鋳造物の寸法制限がない 短　所 1. 装置設計が難しい
 上引き式 OCC Process	長　所 1. 鋳造物の寸法制限がない 2. Break out の危険性がない 3. 鋳造の温度制御が容易 短　所 1. 鋳塊にガス，不純物を噛み込み易い 2. 冷却水が溶湯内，鋳型上に落下する危険性がある
 水平式 OCC Process	長　所 1. 装置設計が容易 2. 鋳型の温度制御が容易 短　所 1. 鋳造物の寸法制限がある 2. 鋳塊にガス，不純物を噛み込み易い 3. 冷却が不均一（上下方向）になる

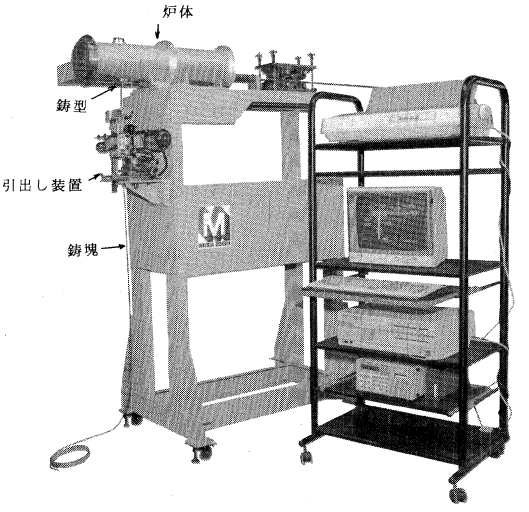


図4 銅線の下引き式連続鋳造装置

OCC Process の研究は日本の多くの企業で行われているが，同時にカナダのオンタリオ州政府の新素材開発研究センター（OCMR）の主要な研究テーマの一つとして取り上げられ，トロント大学に新設された OCC 研究室においてもアルミニウムを用いた研究が行われており，近く高融点合金を用いた実験も開始されることになった。

6. OCC Process の 3 方式

上記の 3 方式の特徴をまとめると**表 1** のごとくである。

7. OCC Process で得られた製品の特徴

(1) 鏡面の鋳塊が得られる。

鋳型内壁面が凝固温度以上に保たれているために，鋳塊の凝固は鋳壁面をさけて鋳型内へ鋳塊先端が突出する形で進行する。そのために，鋳型からでる鋳塊の表面は薄い液膜で覆われた状態で，その液膜は鋳型の直外で凝固することができる。したがって，鋳塊の表面は**図 5** の例のように鏡面を呈する。

(2) 最終断面形状またはそれに近い鋳塊をうることができる。

鋳型内壁面との摩擦がないために，鋳型内で溶湯が供給時に流動しうるかぎり，0.5 mm のような小径や薄肉の鏡面鋳塊を作ることができる。**図 6** は表面および内面が鏡面からなる径 8 mm の銅の複雑断面形状管を示すものである。OCC Process は Net Shape Casting Process[11] であり，この方法によれば従来，塑性加工で成形が不可能であったような硬くて脆い合金や化合物などの線や，板や，複雑断面形状の管の製造が可能になると考えられる。

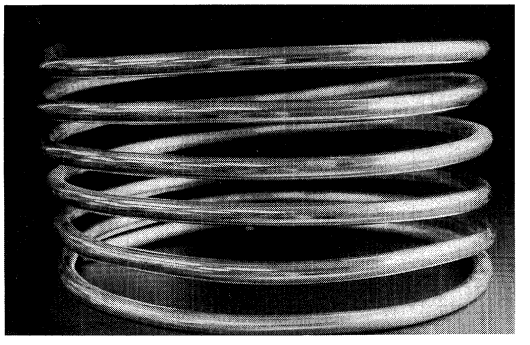


図 5 OCC Process で得られた径15 mm のアルミニウム線

図 6 純銅の複雑断面形状管

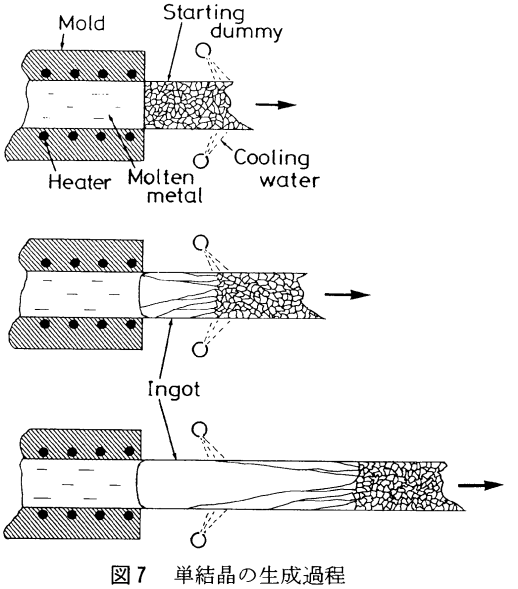


図 7 単結晶の生成過程

(3) 単結晶が容易に得られる。

鋳塊ダミーの先端に生成した結晶は，**図 7** に示すように，鋳造の進行に伴って漸次その数を減じ，ついには単

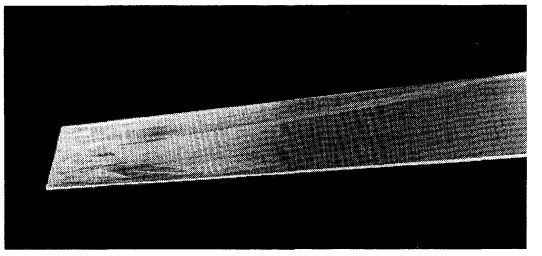


図8　OCC Processで得られた純マグネシウムの板状鋳塊

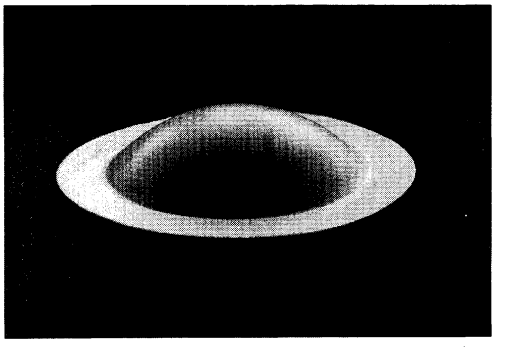


図9　純マグネシウム製のドーム型振動板

結晶になってしまう。鋳造中に新たな結晶の生成の機会が与えられないために無限に伸びた単結晶鋳塊をうることができる。

図8は，幅50 mm，厚さ5 mmのマグネシウムの板状鋳塊のマクロ組織を示すものである。左端が凝固開始端である。鋳塊ダミー上に核生成した結晶は成長につれて，優先成長方位が鋳造方向に近いものを残して次第に消滅し，ついには単結晶になる過程をみることができる。このようなOCC Processによる鋳造においては，結晶の生成の起源となるべき鋳壁が凝固温度以上に加熱されるために，凝固進行中に新たな結晶の核生成する機会が与えられないから，結晶は成長競争によって自然に単結晶にならざるを得ない。このようにして作られたアルミニウムや銅の単結晶線は，信号電送線として優れているとしてすでにオーディオ用材料に広く用いられており，OCC Processによって作られたアルミニウムなどの単結晶板はスパッタリングターゲット材として注目されている。

(4)　性質の改良ができる。

OCC Processの最も大きな特徴は，従来からあるありふれた金属や合金に対して単に凝固方法を変えるだけで，新しい性質を付与することができることである。まず塑性加工性や耐食性を著しく改善することができる。

たとえば，純マグネシウムは従来加工性が悪く，板とか線材には実用上Zn, Al, Mnのような元素が添加されてきた。マグネシウムは化学的に活性であり，また合金添加元素の種類によって，あるいはごく微量のFe, Ni, Cuなどの不純物の存在によって耐食性が低下し，マグネシウムは腐食しやすい金属という印象を一般的に与えているようである。しかしながら，OCC Processによって鋳造した単結晶板は，このような腐食を促進するような元素の添加なしに高純度のままで加工して，薄い箔に加工でき，深絞り加工を施すことさえ可能になってきた。**図9**はこのようにして作られた厚さ0.05 mmの純マグネシウム製のスピーカー用ドーム型振動板である。

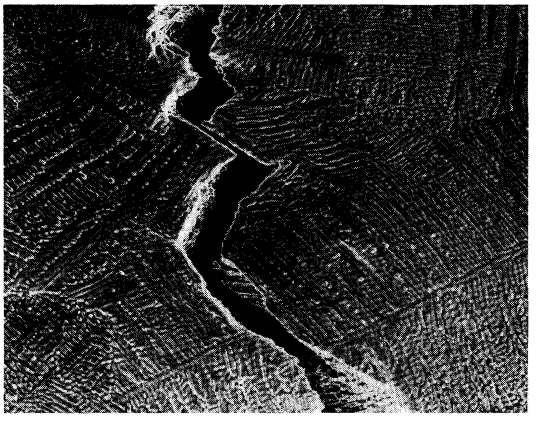


図10　90°曲げ後のAl-4%Cu-0.5%Mg合金鋳造線の表面組織とき裂

8.　新しい構造材開発への夢

OCC Processによれば，単結晶や一方向凝固鋳塊が容易に得られる。一般に粗大な結晶は軟らかくて構造用材料としては適当でないと考えられてきた。はたしてそうであろうか？

1985年の夏の日航機の墜落事故は，疲労に強い材料の出現の必要なことを示した。このような疲労に強い材料をうるためには，まず機械的に弱い凝固粒界のない鋳塊の鋳造からスタートする必要がある。

図10は，Al-4%Cu-0.5%Mg合金の径6 mmの鋳造線を曲げたときに現れた表面のき裂の発生状態を示すものである。き裂は明らかに凝固粒界から起こっている。そしてそれぞれの結晶粒内の組織は，鋳造時のままの樹枝状晶からなっておるのがみられ，樹枝状晶の変形が認められない。このことは，結晶の内部組織の変形に先立って，機械的に弱い凝固粒界からき裂が発生したことを物語っている。

著者は，このような弱い凝固粒界のない材料を冷間で加工し転位を互いにからみ合わせ強化させることによって，疲労や腐食に対して強く，信用性の大きな材料が得られるものと考える。

著者らは，99.9%の純アルミニウムにわずかに2回/cmのねじり加工を与えただけで，強さが4 kgf/mm²から14 kgf/mm²に強化されることを知った。このことは，疲労破壊の起点となりやすい化合物のような第2相の晶出しない組成範囲の，固溶体合金の単結晶または一方向凝固鋳塊を作り，それにねじり，または繰り返し曲げのような冷間加工を与えることによって，疲労や腐食に強い材料が得られることを示すものと考える。

著者は最後に，OCC Processを応用することによって，従来からある多くの合金材料から凝固粒界をなくし，それに加工硬化処理を施すことによって，従来のありふれた合金材料から，新素材と呼ばれる多くの材料が生まれることを希望する。

参考文献

1) P. Niessen: University of Waterloo, Canada, Private Communication (1974).
2) 大野篤美：特許第1049146号.
3) 大野篤美：日本金属学会報，**23** (1984), 9, 778.
4) A. Ohno: *Journal of Metals*, **36** (1986), 1, 14.
5) A. Ohno: Metallurgical Process for Year 2000 and Beyond, TMS, (1988), 155.
6) A. Ohno, T. Motegi and H. Soda: *Tran. ISIJ*, **11** (1971), 18.
7) T. Sato and Y. Sato: *Trans. Japan Inst. of Metals*, **23** (1982), 7, 388.
8) 篠原正秀，中野耕作，山崎明，柴田光義：古河電工時報，**79** (1986), 105.
9) 住友電気工業㈱：*Newsletter*, **119** (1987).
10) 尾角敏宣，佐々木正彦，大野篤美：日本金属学会講演概要，(1989), 4, 272.
11) A. Ohno: Casting of Near Net Shape Products, TMS, (1988), 177.