



## 상향식 연속주조법으로 제조한 Al-Cu 공정 복합재료의 응고조직 및 기계적 성질

權奇鈞\*, 鮮于國賢\*\*, 李啓完\*\*\*

### Microstructure and Mechanical Properties of Al-Cu Eutectic Composite by Upward Continuous Casting

Kee-Kyun Kwon\*, Kuk Hyun-Sun Woo\*\*, Kye-Wan Lee\*\*\*

#### Abstract

Continuous casting of the Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite was carried out by the upward continuous casting process. The morphology of the eutectic growth and the stability of solid-liquid interface were investigated under various growth conditions. It was possible to get the planar solid-liquid interface at the condition of  $G_L/R = 3.6 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{Csec/mm}^2$ . And the colony structures were formed at the conditions of  $G_L/R < 0.33 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{C sec/mm}^2$ . The inter-lamellar spacing of Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite was decreased with the increase of pulling speed. The reduction of inter-lamellar spacing & value of  $G_L/R$  caused the increase of ultimate tensile strength and Rockwell hardness in Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite.

#### 1. 서론

2원공정계합금의 미세조직은 제2상의 용융엔트로피를 기준으로, coupled zone에서 공정점에 대하여 대칭인 정상구조와 비대칭인 비정상구조로 나뉘어진다. 제2상의 용융엔트로피가  $23 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$  이하인 정상구조는 다시 제2상의 체적분률에 따라 rod조직 및 lamellar조직으로 분류된다. 그리고 비정상구조는 다시 제2상의 체적분률에 따라 anormalous broken lamellar, anormalous irregular flake, anomalous complex regular, anomalous quasi-regular, anomalous fibrous 등으로 분류된다.<sup>1)</sup>

이들 공정합금은 응고제어, 즉 일방향응고를 통하여 합금계와 응고조건을 적당히 선택함으로써,

제2상의 형태가 다른 복합재료인 층상이나 봉상의 복합재료를 얻을 수가 있다. 이때 일방향 응고를 통하여 공정복합재료를 얻으려면 성분금속의 순도, 온도구배, 응고속도 등을 적절히 조절하여 planar한 고-액계면에서 각 상이 동시에 연속적으로 성장(coupled growth) 하도록 하여야 한다.<sup>2)</sup> 그런데 정상 공정합금은 쉽게 coupled growth를 하지만 비정상 공정합금은 과냉도를 크게 하여도 불규칙적인 성장을 하기 쉽다. 따라서 일방향응고한 공정합금으로서 관심을 갖는 것은 통상 정상 공정합금으로 한정된다.<sup>3)</sup>

일방향응고의 방법으로는 지금까지 주로 사용되어온 Bridgman법과 발열체를 내장한 주형을 사용하는 연속주조장치인 OCC프로세스가 있다.

본 연구에서는 내화물주형을 용탕에 잠가게 하

\* 한양대학교 대학원 (Graduate school, Hang Yang Univ)

\*\* 연세대학교 금속공학과 (Department of Metallurgical Engr., Yonsei Univ)

\*\*\* 한양대학교 금속공학과 (Department of Metallurgical Engr., Hang Yang Univ)

여 주형온도가 항상 용융금속의 용점이상으로 유지되도록 하는 상향식 연속주조장치<sup>46)</sup>를 사용하여 정상공정합금 중 Al-Ni과는 달리 성장양상이 층상형(lamellar structure)으로 되는 Al-Cu의 일방향응고를 행하였다. 그리고 그때의  $G_L/R$  값의 변화에 따른 고-액계면의 형태 및 안정성을 관찰하였다. 또 응고조건에 따라서는 미세조직 및 기계적 성질의 변화를 조사하였다.

## 2. 실험방법

### 2-1. 실험장치

상향식 연속주조장치는 크게 용해로, 내화물주형, 냉각장치, 인발가이드와 구동장치로 된 결정인발장치, PID온도조절기 등으로 구성되어 있다. 내화물주형은 인발가이드와 일체형으로 된 볼트에 고정하여 용해도가니 중심에 위치시켜서 용탕에 잠기도록 하였다. 그리고 주조 중에 액상의 온도구배( $G_L$ )를 연속적으로 측정하기 위하여 열전대를 응고계면 아래 1cm의 위치에 설치하였다.

### 2-2. Al-CuAl<sub>2</sub> 공정복합재료의 연속제조 및 조직관찰

Al-Cu공정합금의 원재료는 순Al(99.8wt%)과 전기동을 사용하였으며, 고순도 흑연도가니에서 Al을 완전히 용해한 후에 전기동을 용탕속에 침적시켜 Ar가스분위기에서 용해하였다. 그리고 풀링로드의 끝단이 주형구 내의 용탕에 잠기게

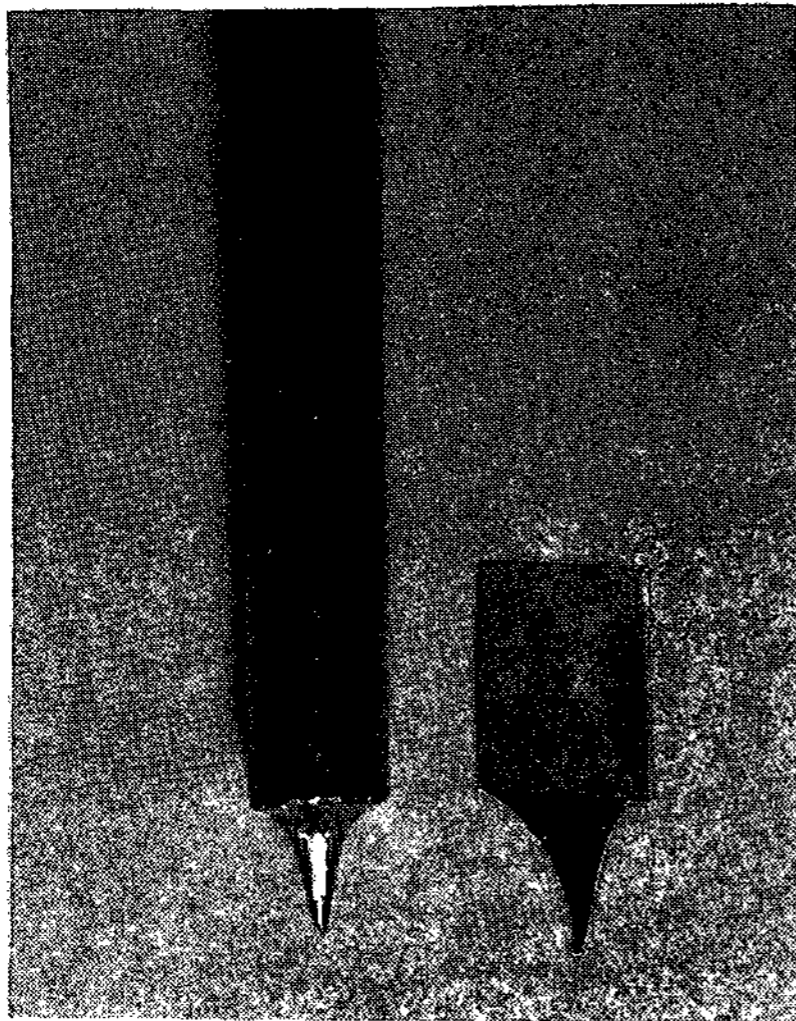


Fig. 1 Decanted specimens of Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite.

한 후, 주조속도와 주조 온도를 변화시켜가며 결정을 연속 인발하였다. 이때, 온도구배( $G_L$ )를 측정하였으며, 이상의 각 조건에서 주조한 시편들의 횡단면 및 종단면에 대하여 조직관찰을 행하였다. 미세조직 관찰은 Keller시약(증류수 93ml + HNO<sub>3</sub> 5ml + HF 2ml)으로 부식시켜 광학현미경으로 관찰하였으며 deep etching에 의한 공정복합조직의 SEM 관찰도 행하였다.

계면형상의 관찰은 decant법의 원리를 이용하여 주조중에 주괴를 상방향으로 급격히 인출하여 Fig.1과 같은 시편을 얻고, 그 시편을 응고방향에 평행하게 절단하여 응고계면을 관찰하였다.

### 2-3. 기계적 성질 측정

ASTM E8-79a에 따라 시료를 평행부 직경 4mm, 표점거리 15mm의 인장시편을 결정성장 방향에 평행하게 가공하였다. 인장시험은 상온에서 인장시험기(Shimadzu Universal Tester Model DCS-25T)로 2mm/min의 인장속도에서 실시하였다. 또 경도는 Rockwell 경도계의 B scale로 응고방향에 수직인 단면에 대해서 100Kg의 하중으로 측정하였다.

## 3. 실험결과 및 고찰

### 3-1 $G_L/R$ 값과 응고조직

Table. 1은 본 실험에서 행한 결정인발 시의 각각의 응고조건이다. 온도구배( $G_L$ )는 응고계면 직하 1cm의 위치에 열전대를 삽입하여 측정하였으며, 본 실험장치에서는 주조속도가 곧 계면의 이동속도를 나타내므로 이것을 응고속도( $R$ )로 취하여  $G_L/R$  값을 구하였다.

이때 일정 온도에서 응고속도  $R$ 만을 변화시켜 주조한 2, 5, 6번 실험의 경우, 5번, 6번의 주괴

Table 1. Growth conditions in upward continuous casting process.

	$R$ (mm/min)	$G_L$ (°C/cm)	$G_L/R$ (°C·sec/mm)
1	0.25	151	$3.62 \times 10^3$
2	0.3	136	$2.72 \times 10^3$
3	1.1	144	$0.79 \times 10^3$
4	1.4	144	$0.62 \times 10^3$
5	2.0	136	$0.41 \times 10^3$
6	2.5	136	$0.33 \times 10^3$
7	3.0	111	$0.19 \times 10^3$

직경은 2번 시편보다 약간 감소하여 6mm이하의 주괴가 얻어졌다. 이 현상은 고-액계면에서의 열평형식을 활용하여 다음과 같이 해석할 수 있다. 즉

$$K_s G_s - K_l G_L = \rho_s H_f R$$

여기서, R : 결정성장속도 (cm / sec)

H<sub>f</sub> : 용해열 (cal / g)

K<sub>s</sub> : 고상금속의 열전도도 (cal / cm<sup>2</sup> °C sec)

K<sub>l</sub> : 액상금속의 열전도도 (cal / cm<sup>2</sup> °C sec)

G<sub>s</sub> : 고-액계면에서의 고상의 온도구배 (°C / cm)

G<sub>L</sub> : 고-액계면에서의 액상의 온도구배 (°C / cm)

의 관계식에서 K<sub>s</sub>, K<sub>l</sub>, ρ<sub>s</sub>, H<sub>f</sub>는 금속에 따라 정해지는 상수이므로, 응고속도 R은 K<sub>s</sub>G<sub>s</sub> - K<sub>l</sub>G<sub>L</sub>에 비례한다. 따라서 G<sub>L</sub> 값을 일정하게 하였을 때, 응고속도 R이 커지기 위해서는 G<sub>s</sub>가 커져야하므로, 과열조건에서 결정직경이 감소하여 복사열 방출을 증가시킴으로써 G<sub>s</sub> 값을 크게 하는 것으로 사료된다.<sup>4</sup>

Fig. 2는 0.25mm / min의 속도로 주조한 Al-Cu 공정합금의 횡단 및 종단조직이다. 여기서 밝은 상은 α상(Al)이고 검은 상은 θ상(CuAl<sub>2</sub>)이다.

이때의 온도구배 (G<sub>L</sub>)는 151°C / cm로서 G<sub>L</sub> / R 값은 3.62x10<sup>3</sup>°C sec / mm<sup>2</sup>이며 잘 정렬된 lamellar 조직이 성장하여 있는 것을 볼 수 있다.

대류가 없다고 할 때의 조성적 과냉기준 즉, lamellar 형성조건을 식으로 나타내면 다음과 같다.

$$G_L / R > -m_l (C_e - C_o) / D_l$$

여기서 G<sub>L</sub>: 고액계면에서 액상내의 온도구배

R: 응고계면의 이동속도

m<sub>l</sub>: 액상선의 기울기

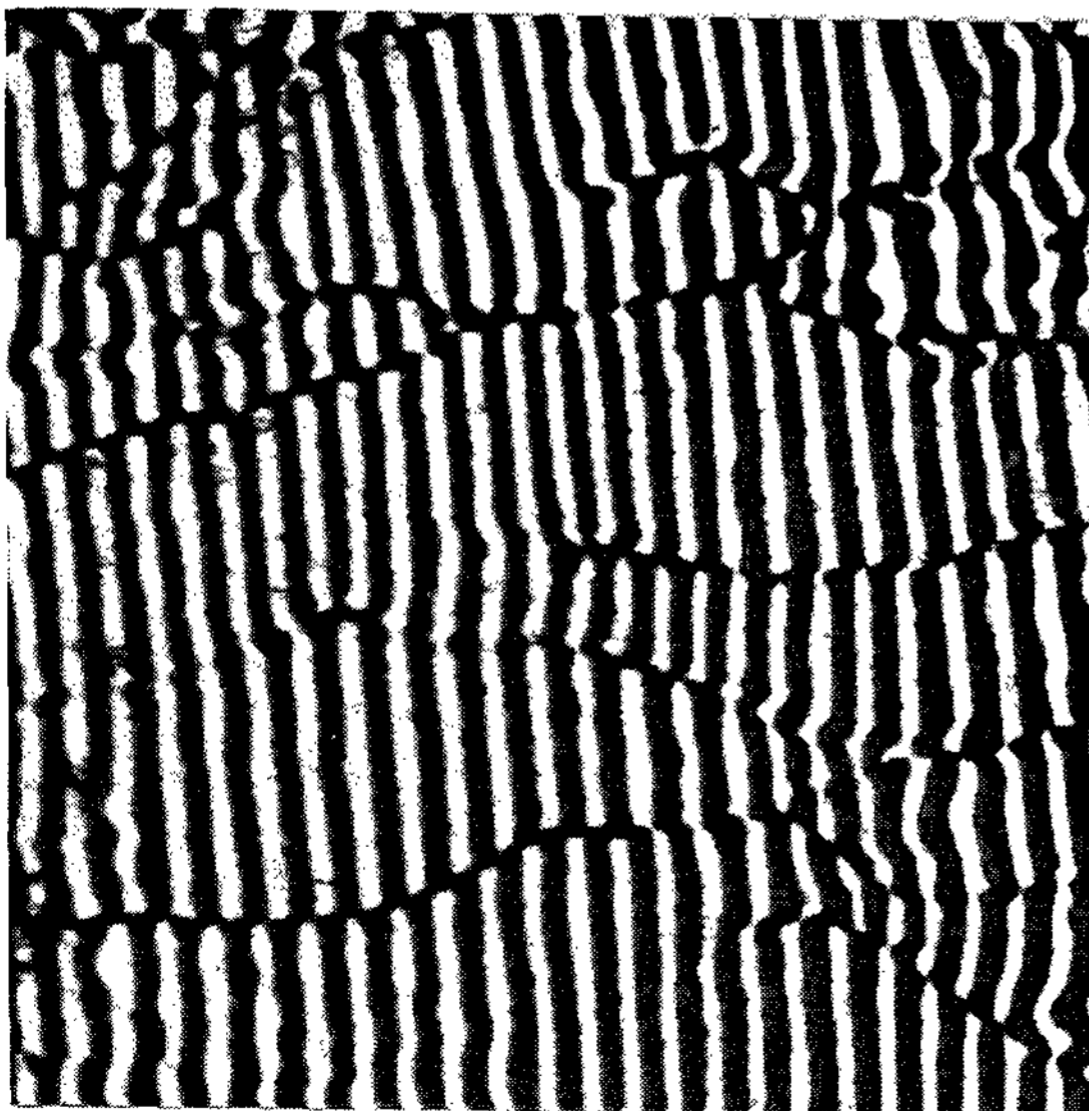
C<sub>e</sub>: 평형공정 조성

C<sub>o</sub>: 합금의 조성

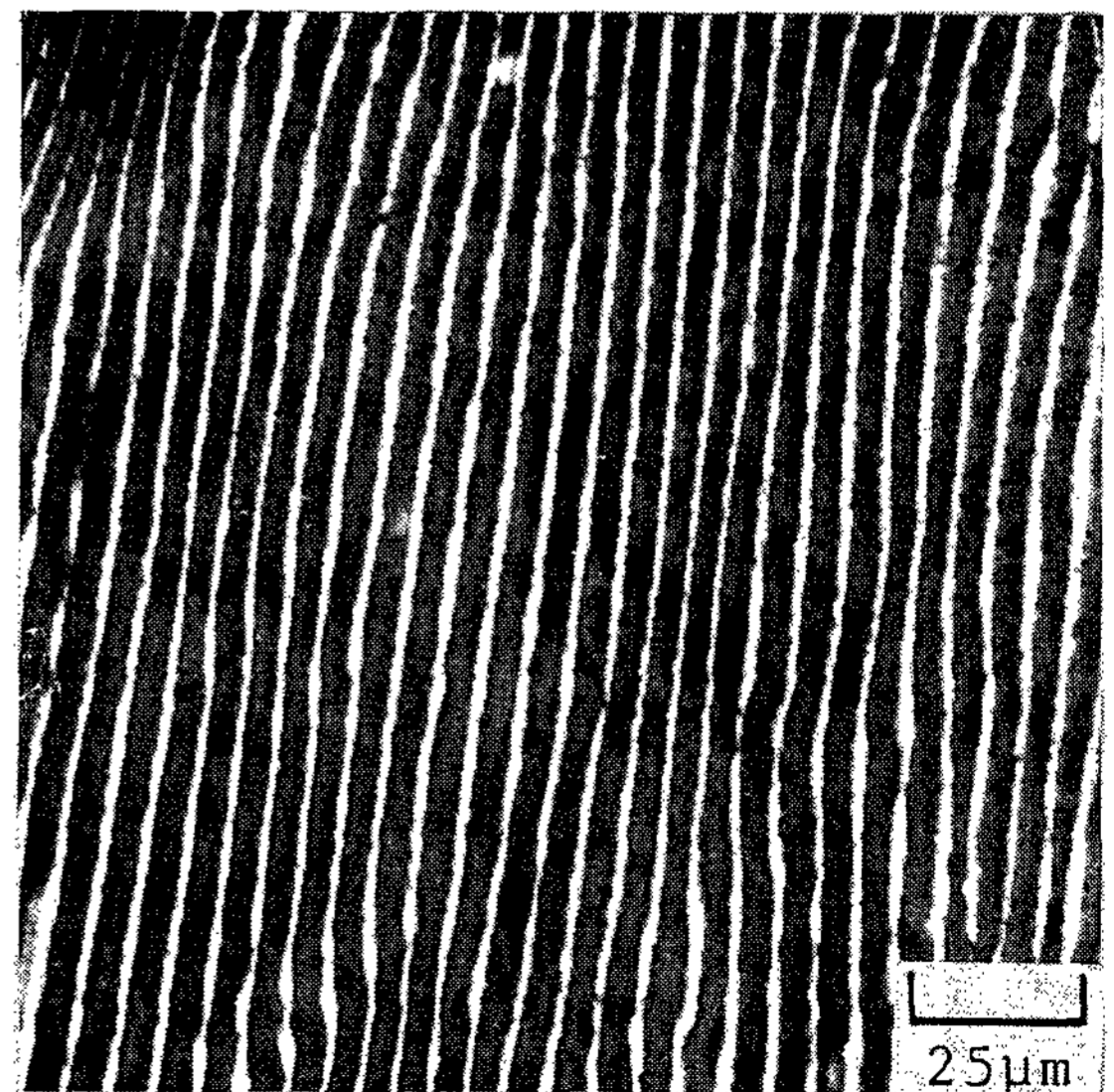
D<sub>l</sub>: 액상내에서의 용질 확산 계수

Fig. 2(a)의 횡단면 조직에서는 약간의 mismatch 조직이 존재함을 볼 수 있다. T. Carlberg<sup>7</sup>는 이것이 용탕내의 미세한 열진동에 기인한다고 보고 실제로 Al-CuAl<sub>2</sub>공정의 일방향응고시에 용탕내의 미세한 열진동을 제거함으로써 mismatch 조직이 현저히 감소하였다고 보고하였다. 또, F.D. Lemkey<sup>8</sup> 등은 이 mismatch 조직이 일종의 조직결함으로서 Al-Cu 공정복합재료의 파단과정에서 중요한 역할을 한다고 보고한 바 있다.

Fig. 3은 Al-Cu 공정합금을 R=2.5mm / min의 속도로 상향식 연속주조한 조직의 횡단 및 종단 조직이다. 이때의 G<sub>L</sub> / R 값은 0.33x10<sup>3</sup>°C sec / mm<sup>2</sup>이며 cell과 cell사이의 경계구역에 조대한 정출



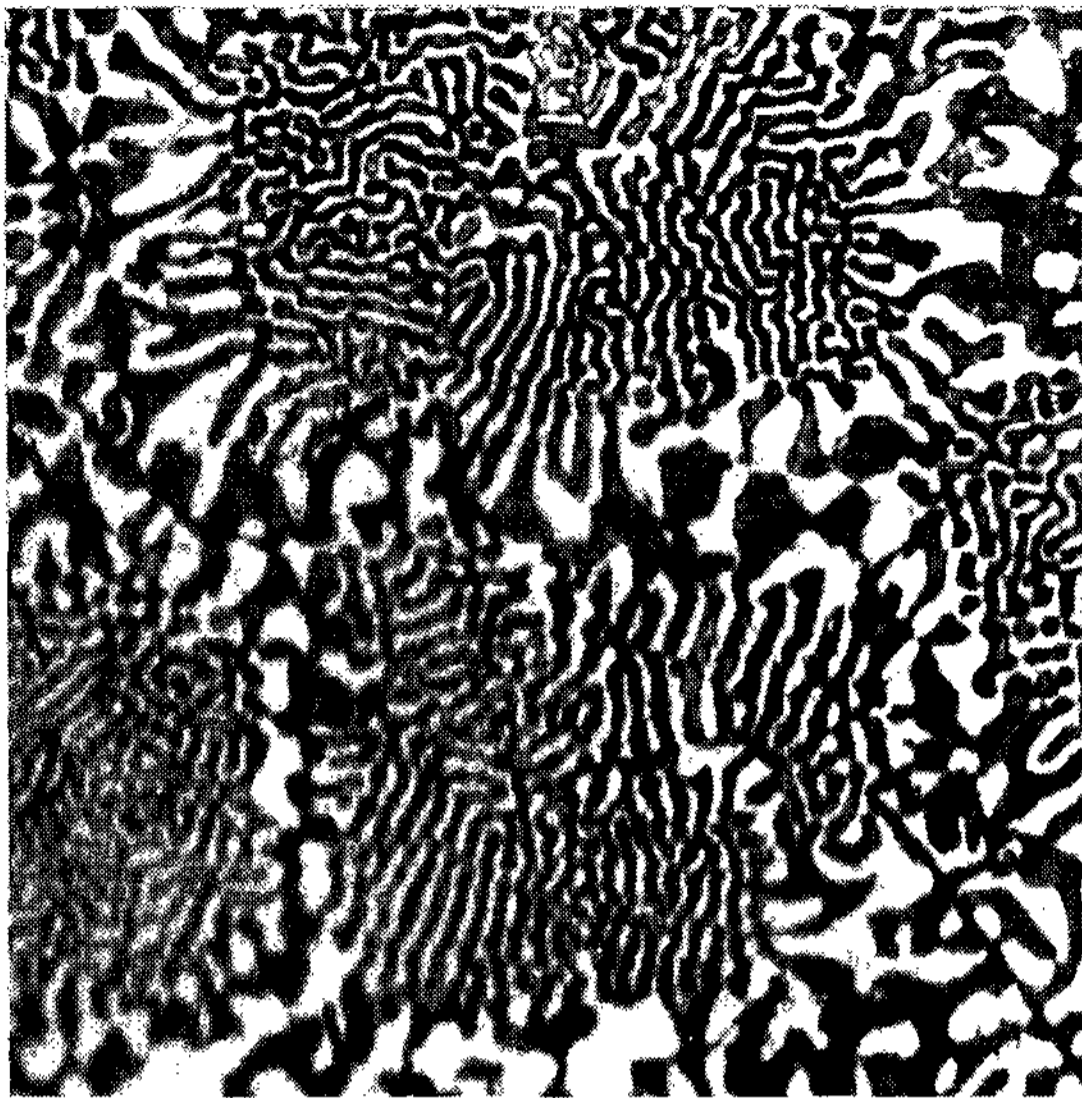
(a) transverse section



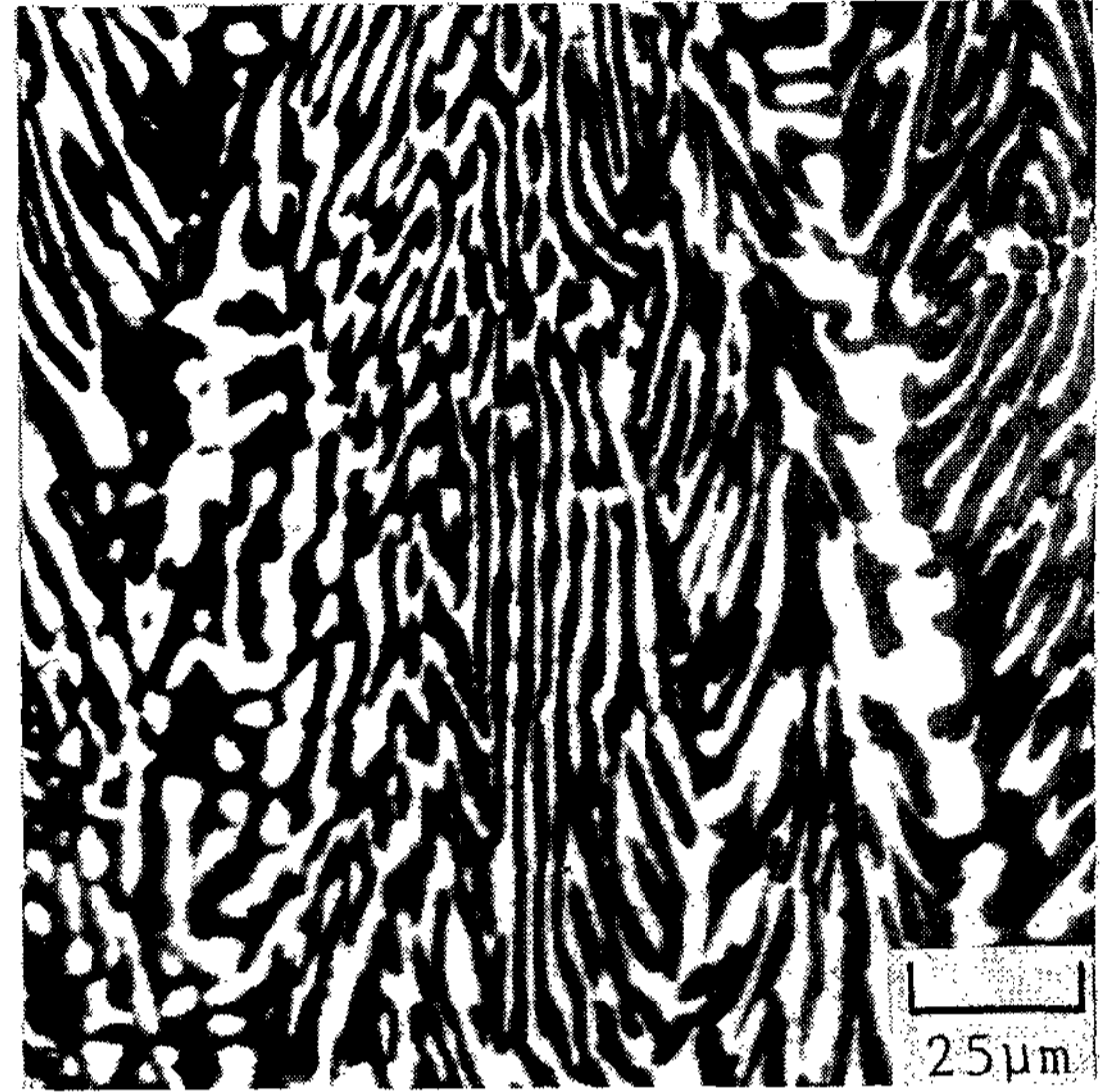
(b) longitudinal section

Fig. 2 Microstructure of Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite. G<sub>L</sub> / R=3.62x10<sup>3</sup>°C sec / mm<sup>2</sup> (R=0.25mm / min)





(a) transverse section



(b) longitudinal section

Fig. 3 Microstructure of Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite.  $G_L / R = 0.33 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{Csec} / \text{mm}^2$   
( $R = 2.5 \text{mm} / \text{min}$ )

상으로 된 colony조직이 형성된 것을 알 수 있다.

이 colony조직의 형성에 관하여 Davis<sup>9</sup>는 R이 클 때 즉,  $G_L / R$  값이 충분히 작아지면 미세한 cell을 형성하는 colony조직으로 된다고 보고하였다. 이것은 다시 말하면 응고속도가 빠를 때에는 용질원자의 확산 속도가 정출상의 성장속도에 비해 느려서 충분히 확산되지 못하고 새로운 핵으로 되기때문에 colony 조직으로 된다고 생각된다.<sup>10)</sup>

### 3-2. 상간격과 응고속도와의 관계

Fig. 4에 응고속도에 따른 Al-CuAl<sub>2</sub> 공정복합조직의 상간격의 변화를 나타내었다. 상간격  $\lambda$ 와  $R^{-1/2}$  사이에는 직선적 관계가 성립하는 것을 알 수 있다. Tiller와 Jackson에 의하면<sup>11)</sup>  $d\Delta T / d\lambda = 0$  이므로  $\lambda^2 R = \text{const}$ 가 된다고 하였는데 본 실험에서  $\lambda^2 R$  값은  $13.5 \times 10 \text{cm}^3 / \text{sec}$ 이었다. 이는 Clark와 Elliott<sup>12</sup>가 동일 공정조성에서 구한  $\lambda^2 R = 11.0 \times 10^{-11} \text{cm}^3 / \text{sec}$ 의 값이나 Tassa와 Hunt<sup>13</sup>가 구한  $10 \times 10^{-11} \text{cm}^3 / \text{sec}$ 와 거의 근접하는 값이다.

일반적으로 순수한 공정성분을 갖는 합금의 일방향응고에 있어서 상간격  $\lambda$ 는 주로 응고속도 R에만 영향을 받는다. 그러나  $\lambda^2 R = \text{const}$ 의 이론식과 실험치간에 약간의 오차가 생기는 것에 대해서는 위의 관계식을 유도할 때에 동적과냉도를 무시했다는 점이나 층상의 성장방향과 응고방향

이 어긋났을 경우의 측정오차 등으로 설명하기도 한다<sup>14)</sup>. 또 Kraft<sup>15</sup> 등은 합금이 일방향응고 하는 동안 고-액계면이 일정한위치에 유지되지 못하기때문에, 성장속도가 순간적으로 비정상 상태가 되어 나타나는 banding 현상을 들어 banding 전과 banding 후의 층상간격의 차이로 설명하기도 한다. 한편 Kurz<sup>16)</sup> 17) 등은 불순원소가 존재할 경우 액상내의 온도구배도 상간격에 영향을 미친다고 주장하였다.

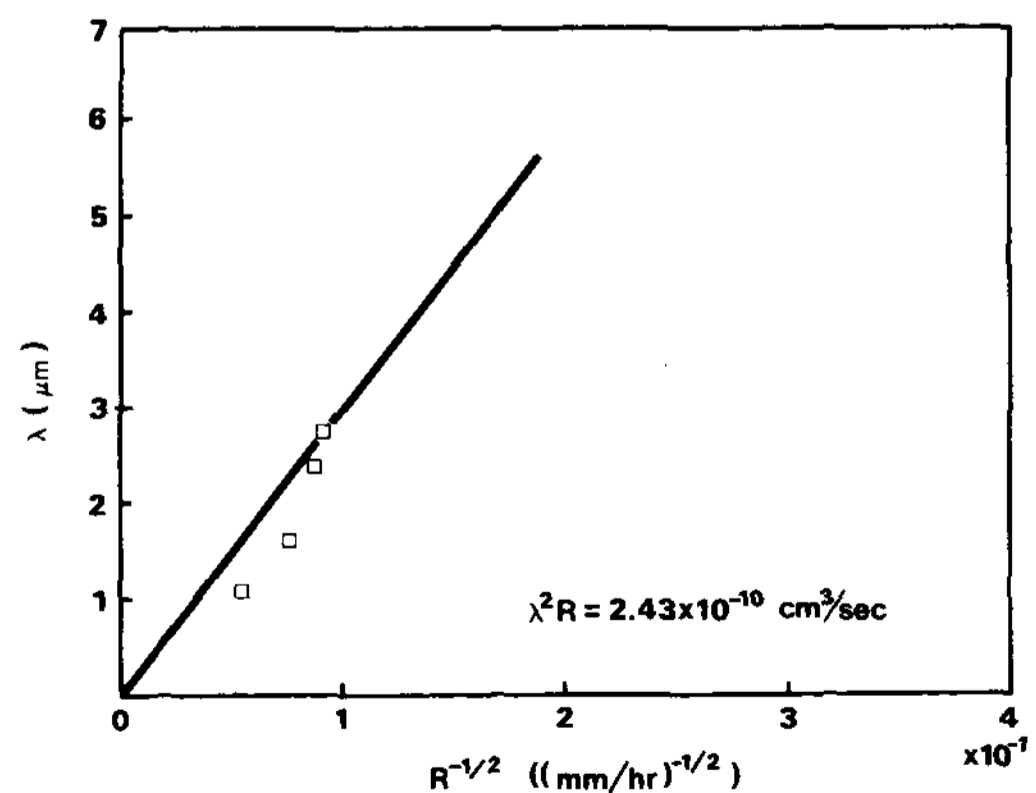


Fig. 4 Inter-lamellar spacing of Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite as a function of pulling speed.

3-3. 고-액계면 형태의 관찰

Fig. 5는 Al-Cu 공정합금의 응고시, 각 응고조건에서의 고-액계면을 나타낸 것이다. (a) (b) (c)로 가면서  $G_L/R$  값이 작아질수록 평면계면이 파괴되어 cell계면으로 변화하는 것을 볼 수 있다.

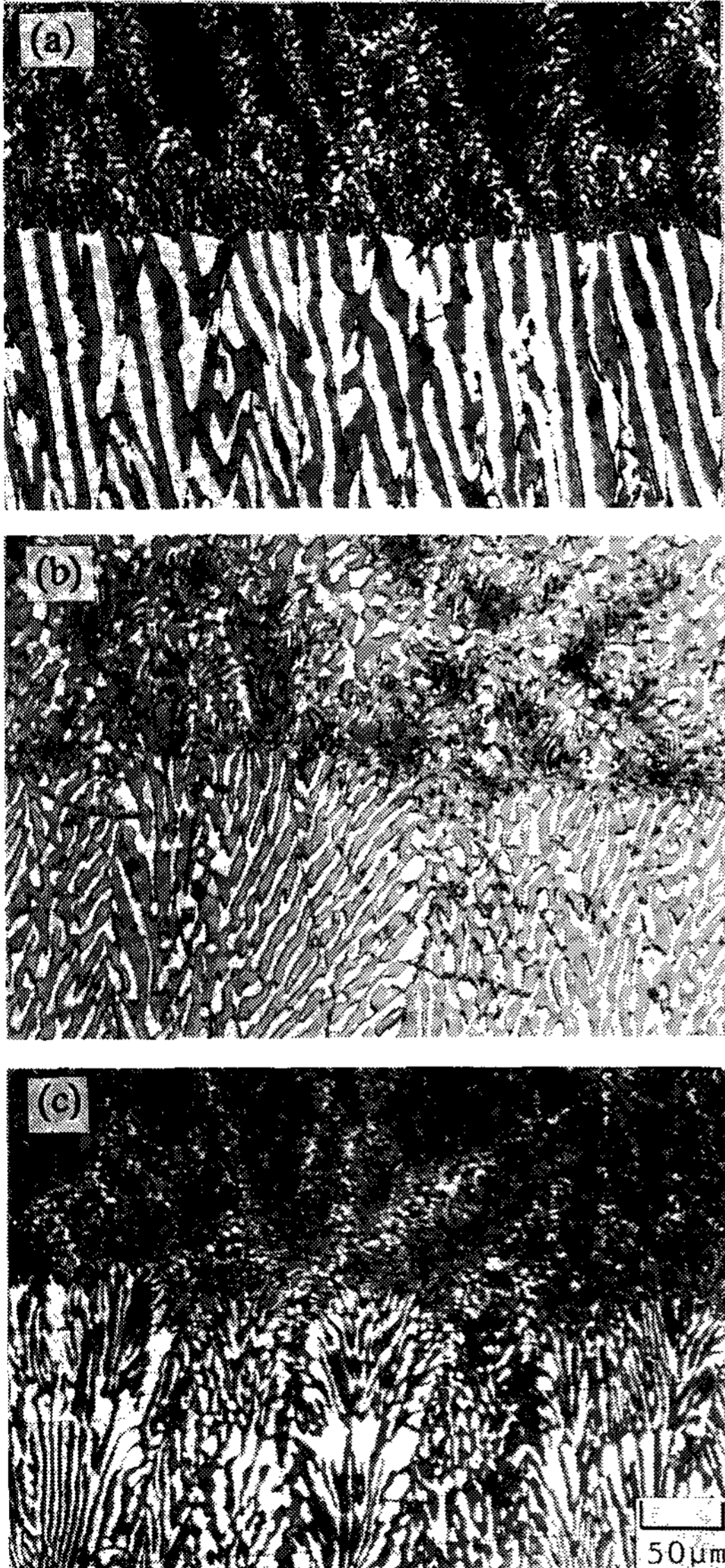


Fig. 5 Decanted S/ L interface of Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite.

- (a)  $G / R=3.62 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{Csec/ mm}^2$   
( $R=1.25\text{mm/ min}$ )
- (b)  $G_L / R=2.72 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{Csec/ mm}^2$   
( $R=3\text{mm/ min}$ )
- (c)  $G_L / R=0.33 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{Csec/ mm}^2$   
( $R=2.5\text{mm/ min}$ )

여기서 (a)는  $G_L/R=3.62 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{Csec/ mm}^2$ 일 때의 고-액계면으로서 평면계면을 유지하고 있으며, 이 때의 종단 및 횡단조직은 Fig. 2에서 확인한 바와 같이 잘 정렬된 lamellar조직이었다. 한편 Al-Cu 공정합금의 공정반응  $[L] \rightarrow \alpha + \theta$ 에서 평면계면 성장이 가능하다는 사실은  $\alpha(\text{Al})/[L]$ , 또는  $\theta(\text{CuAl}_2)/[L]$ 의 계면에너지 보다  $\alpha/\theta$ , 즉 Al/CuAl<sub>2</sub>의 계면에너지가 더 낮다는 것을 의미한다. 이렇게 낮은 계면 에너지를 갖는 이유는,  $\alpha$ 상과  $\theta$ 상이 계면 에너지를 낮추기 위하여 상호선택적 방위관계를 유지하기 때문인 것으로 생각된다. Kraft는 현미경 관찰과 X-ray 회절법으로 Al-CuAl<sub>2</sub>의 계면에는 (111)Al면과 (211)CuAl<sub>2</sub>면이 서로 평행상태로 있고,  $[101]_{\text{Al}} \parallel [120]_{\text{CuAl}_2}$ 의 독특한 방위 관계가 있는 것을 발견하였다. 이러한 면들은 면간거리가 크고, 원자밀도가 비슷하여 misfit가 감소되고 따라서 계면 에너지가 저하될 것으로 쉽게 추정된다.

(b)는  $G_L/R=2.72 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{C sec/ mm}^2$ 의 조건에서 평면계면이 cell계면으로 천이를 시작하는 단계이다. (c)는 colony가 형성된  $G_L/R=0.33 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{C sec/ mm}^2$ 인 조건에서의 cell계면을 보여준다.

Fig. 6은  $G_L/R=3.62 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{C sec/ mm}^2$ 인 조건에서 주조한 시편의 수직단면을 deep etching시킨 SEM 사진이다. lamellar조직이 잘 정렬되어 있으나 extra lamellar의 도입으로 인하여 성장결함이 존재하는 것을 볼 수 있다.<sup>14)</sup>

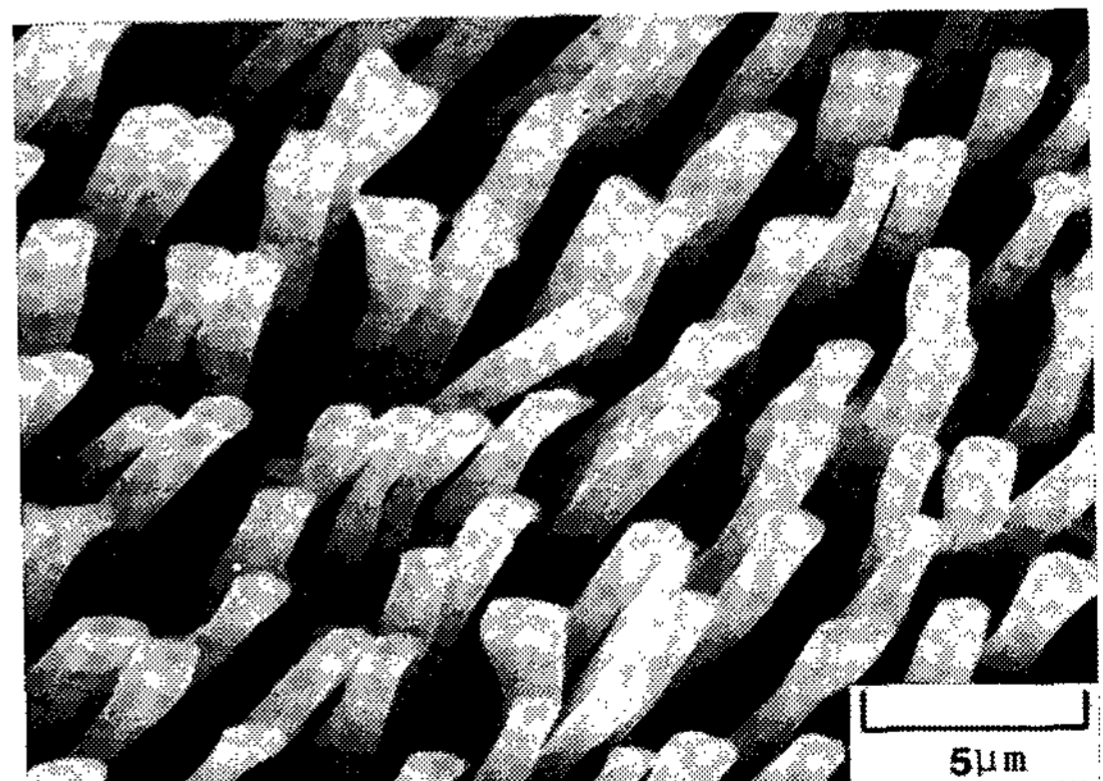


Fig. 6 Scanning electron micrograph of Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite.  
 $G / R=3.62 \times 10^3 \text{ }^\circ\text{Csec/ mm}^2$   
( $R=0.25\text{mm/ min}$ )

3-4. 기계적 성질

Fig. 7은 Al-CuAl<sub>2</sub> 공정복합재료의 상간격 λ와 상온에서의 인장강도와 관계를 나타낸 것이다. 상간격 λ가 작을수록 인장강도가 증가하고 있다. 이는 상간격 λ가 작은 재료일수록 성장결함이 적고, θ상에 의한 구속효과가 크기 때문인 것으로 사료된다.

18)

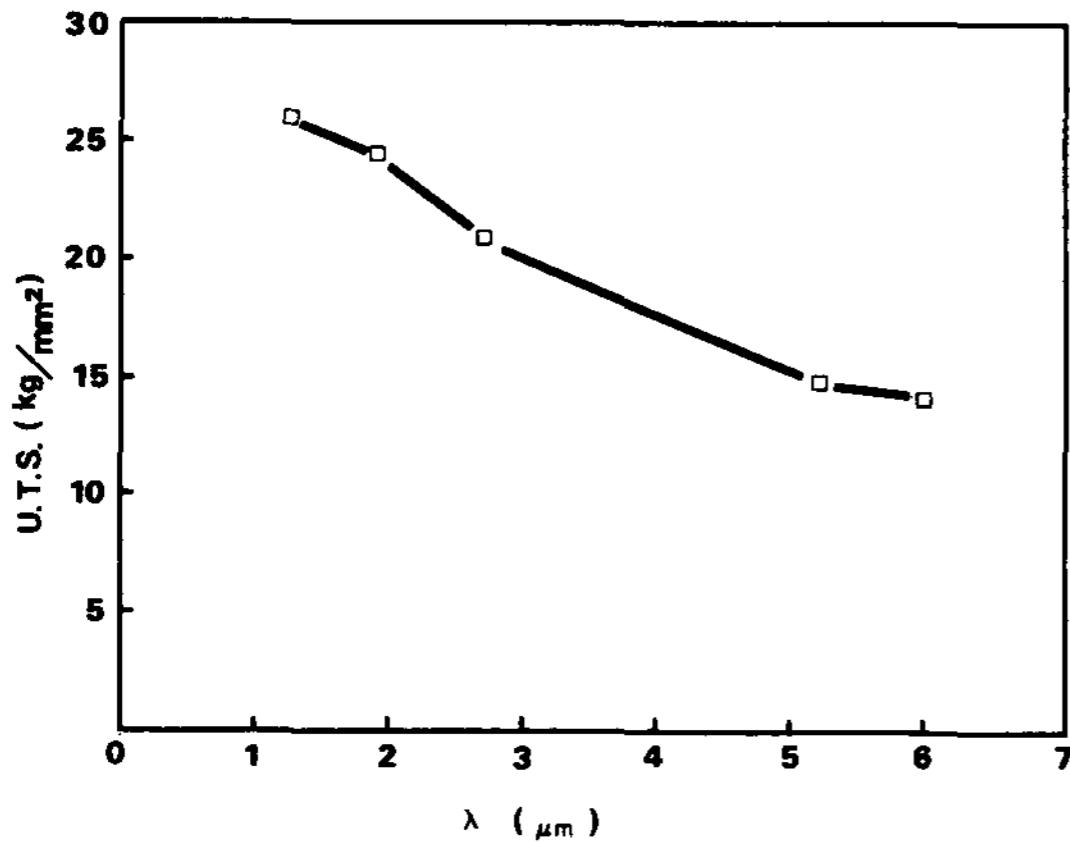


Fig. 7 Relationship between ultimate tensile strength and inter-lamellar spacing in Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite.

상온에서 Al-CuAl<sub>2</sub>의 인장강도는 상간격 λ가 작을수록 증가하므로 Hall-Petch의 식  $\sigma = \sigma_0 + K\lambda^{-1/2}$  (여기서 σ: 인장강도, σ<sub>0</sub>: 마찰응력, K: 상수, λ: 상간격)을 적용할 수 있다. 또한 Chadwick의<sup>19)</sup> 보고에 따르면 Al-CuAl<sub>2</sub> 공정복합재료의 인장성질은 150℃에서도 Hall-Petch의 식이 적용 가능하다. 그러나 그 이상의 온도에서는 더 이상 Hall-Petch의 식이 맞지 않으며, 층상간격이 큰 재료가 오히려 강도가 약간 높다는 보고가 나와 있다.<sup>20)</sup>

Fig. 8은 Al-CuAl<sub>2</sub>의 GL/R 값에 따른 인장강도의 변화를 나타낸 것이다. GL/R 값이 작을수록 인장강도가 증가하고 있는데, 이는 GL/R 값이 작을수록 조직이 미세해지기 때문인 것으로 사료된다.

한편 A. Ohno<sup>20)</sup>는 OCC프로세스에 의한 Al-1~50wt% Cu 합금의 연구보고에서 OCC주괴가 보통주괴 보다 총체적으로 인장강도, 경도 및 bending 강도가 높다고 보고하면서 그 이유를 micro조직이 미세하고, 인장방향이 일방향응고 조직에 대하여 평행하기 때문이라고 설명하였다. 즉 Al-Cu합금의 인장성질은 인장방향에 대한 조직의 방향성과 응고속도에 따른 조직의 미세화 정도에 영향을 받는다. 그러나 본 실험의 결과, 조직의 정렬화 정도 즉 방향성은 GL/R

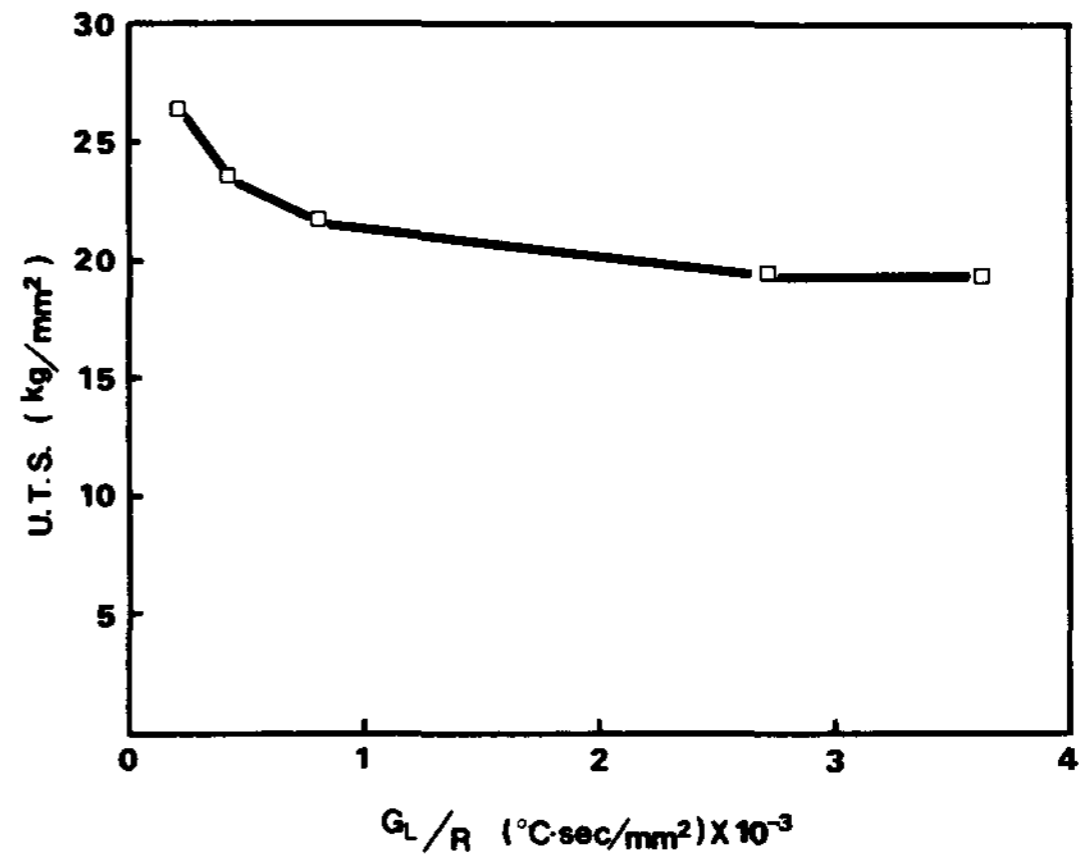


Fig. 8 Effect of GL/R on the ultimate tensile strength of Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite.

값이 클수록 좋고, 조직은 R 값이 클수록 즉 GL/R 값이 작을수록 미세하였는데, 인장강도는 GL/R 값이 작을수록 증가하였다. 따라서 Al-Cu 공정합금의 상온 인장강도는 조직의 방향성 보다는 응고속도의 증가에 따른 조직의 미세화 정도에 더 영향을 받는 것으로 생각된다.

Fig. 9는 Al-CuAl<sub>2</sub>의 상간격 λ와 Rockwell 경도와 관계를 나타낸 것이다. 상간격 λ가 작을수록 경도가 직선적으로 증가하는 것을 알 수 있다.

Fig. 10은 Al-CuAl<sub>2</sub>의 GL/R 값의 변화에 따른 경도의 변화를 나타낸 것이다. 이것 역시 GL/R 값이 작을수록 조직이 미세하기 때문인 것으로 생각된다.

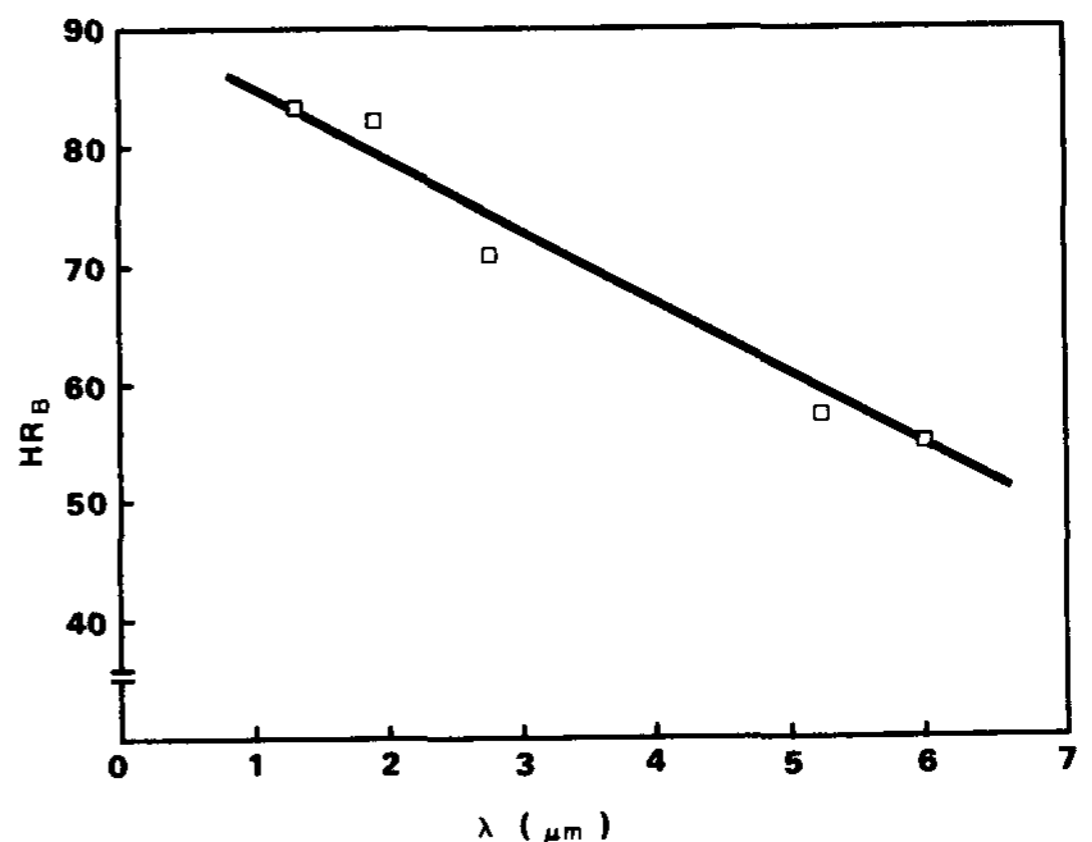


Fig. 9 Relationship between Rockwell hardness and inter-lamellar spacing in Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite.



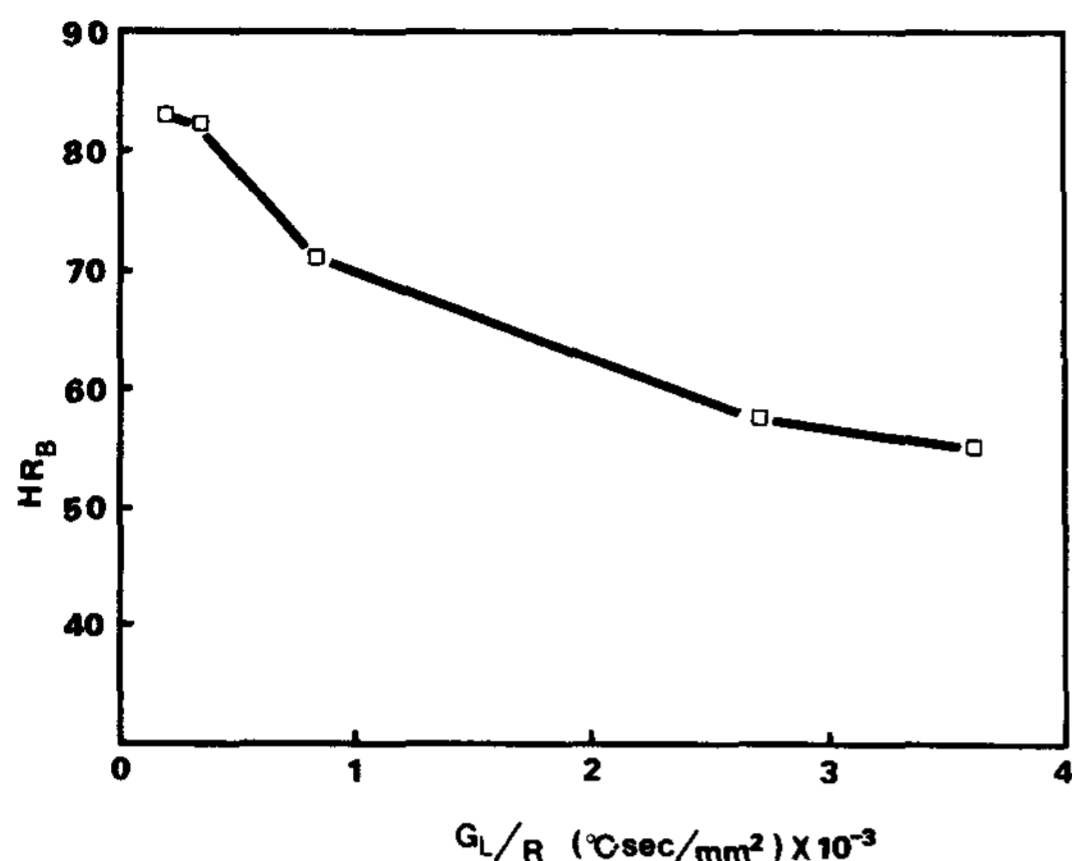


Fig. 10 Effect of GL/R on the hardness of Al-CuAl<sub>2</sub> eutectic composite.

#### 4. 결 론

상향식 연속주조법을 사용한 Al-CuAl<sub>2</sub> 공정복합재료의 응고조건에 따른 미세조직의 변화 및 고-액 계면의 형태와 안정성 그리고 기계적 성질에 관한 연구에서 다음과 같은 결론을 얻었다.

1) 본 공정에서는 GL/R 값이 3.6 × 10<sup>3</sup> °C sec / mm<sup>2</sup> 의 조건에서 평면계면을 유지하며 Al-CuAl<sub>2</sub> 공정복합조직을 연속제조 할 수 있었다.

2) GL/R 값이 0.33 × 10<sup>3</sup> °C sec / mm<sup>2</sup> 이하의 조건에서는 colony 조직이 형성되었다.

3) Al-CuAl<sub>2</sub>의 상간격 λ는 응고속도 R의 제곱근에 반비례하며, 이때의 λ<sup>2</sup>R = 13.5 × 10<sup>-11</sup> cm<sup>3</sup> / sec 였다.

4) Al-CuAl<sub>2</sub>의 인장강도는 상온에서 상간격 λ와 GL/R 값이 작을수록 증가하였으며 조직의 정렬화정도 보다는 조직의 미세화 정도에 더 크게 영향을 받는다.

5) Al-CuAl<sub>2</sub>의 경도도 역시 상간격 λ와 GL/R 값이 작을수록 증가하였다.

#### 참 고 문 헌

1) R. Elliot; "Eutectic Solidification Processing", Butter watch & Co. Ltd. (1983), ch. 3  
 2) W. Kurz, D.J. Fisher; International Metals Re-

views, 5 (1979), 177-202  
 3) R.W. Kraft, D.C. Albright, and J.A. Ford ;TMS-AIME 227(1963), 540  
 4) 鮮干國賢, 洪俊杓;大韓金屬學會誌, Vol. 27 No. 4 (1989), 374  
 5) 權奇鈞, 洪俊杓, 李啓完;상향식 연속주조법에 의한 Al-Ni 공정복합재료의 응고조직 및 기계적 성질  
 6) M.C. Flemings; Solidification Processing, McGraw-Hill, London, (1974) 1  
 7) T. Carlberg; J. Crystal Growth, 66(1984), 115-116  
 8) R.W. Hertzberg, F.D. Lemkey, and J.A. Ford ;TMS-AIME, Vol. 233, 2(1965) 342-354  
 9) V. Davis; J. Inst. Metals, Vol. 93 (1964), 10  
 10) 金永基;漢陽大學校 大學院 金屬工學科 碩士學位論文 (1986), 13  
 11) K.A. Jackson and J.D. Hunt;TMS-AIME, Vol. 227 (1963), 1127  
 12) J.N. Clark and R.Elliott;Met. Trans. 7A (1-976), 1197.  
 13) M. Tassa and J.D. Hunt;J. Cryst. Growth, 34 (1976), 38-48  
 14) 李炫珪, 金泳珠, 洪鍾徹;大韓金屬學會誌, Vol. 26, No. 7, (1988), 670-679  
 15) R.W. Kraft and D.L. Alberght;TMS-AIME, 221 (1961), 95  
 16) M. Mclean;The Metals Society, London, (1-983), ch, 3  
 17) W. Kurz and D. J. Fisher;Acta, Metall, 29 (1981), 1529  
 18) A. Pattnaik and A. Lawley;Met. Trans., Vol. 2 (1971), 1529  
 19) G. A. Chadwick;Acta Metall, Vol. 24 (1976), 1137  
 20) H.R. Bertorello and H. Biloni;Met. Trans., Vol. 3 (1972), 73  
 21) 本保元次郎, 大野篤美;輕金屬, Vol. 39, No. 1 (1989), 38-44