

計算状態図を基にした

耐熱アルミニウム鍛造合金の設計と組織制御

高田尚記^{*}, 鈴木飛鳥^{*}, 小橋 眞^{*},

1. はじめに

現状,アルミニウム(Al)合金の高温部材への適応は限ら れているが,耐熱性Al合金に分類される2218合金(Al-4Cu-2Ni-1.5Mg(mass%))や2618合金(Al-2.3Cu-1.2Mg-1.1Fe-1.0Ni(mass%))または354鋳造合金(Al-9Si-1.8Cu-0.5Mg(mass%))が自動車用エンジンのターボチャージャに おける圧縮機内部のインペラ等に使用されている⁽¹⁾.例え ば,今世紀に入り環境規制の厳格化によって普及した燃費の 良いディーゼルエンジンは、トルク・出力の向上,排気ガス クリーン化を目的としてターボチャージャが搭載されてい る.更なるエンジン高効率化には、圧縮機内部の高温・高圧 化による圧縮比向上が効果的であり、インペラ部材の高温強 度の向上が要求される.

現状主に使用されている合金(2618)の適応限界温度は 200℃以下であり、Alの融点 T_m の半分以下に相当する.図 1に、既存のアルミニウム合金の温度に伴う強度の変化⁽²⁾を 示す.これらの合金は規格化されている熱処理温度(T6人 工時効処理温度:160℃~200℃)以上の温度で著しい強度低 下を示す.これは時効処理により析出した強化相の高温(使 用温度)における粗大化に起因する.既存の熱力学データベ ースを用いて2618合金の構成相の温度に伴う変化を解析す ると⁽³⁾、本合金は時効処理により析出する S-Al₂CuMg 相⁽⁴⁾ (体積率:約5%)によって強化されると考えられ、実際 200℃の時効処理においては準安定相である S'相が析出す る⁽⁵⁾.したがって200℃以上の使用温度において、準安定相 は安定相(S 相)に相変態し、それに伴って析出物が著しく粗 大化し、顕著な弱化を招く.したがって、(1)限られた強化



図1 既存の Al-Cu 系合金(2618合金および2218合金)の温度 に伴う引張強度の変化.

相の体積率,(2)強化相の不安定性(準安定相の使用)が既存のAl合金の高温強度の問題点として挙げられる.

一方,融点の6割の温度域(0.6T_m)以上で使用されるニッ ケル(Ni)基超合金は鍛造合金,鋳造合金ともに多く存在 し,優れた高温強度を示す⁽⁶⁾.Ni基合金はAl合金同様,熱 処理を用いて組織制御される.溶体化処理(y-Ni(fcc)単相 化)後,強化相である金属間化合物相(主にL1₂構造を有す る y'相)を微細均一に析出させる.多くのNi基合金におい て強化相の体積率は非常に高い(一般の鍛造Ni基合金におい て強化相の体積率は非常に高い(一般の鍛造Ni基合金の体 積率は10~20%,鋳造合金は50%~70%⁽⁶⁾).熱力学的に安 定な平衡相(y母相と平衡する y'相)による強化は,高温の安 定な組織形態を維持し,優れた高温強度を実現する.本研究 は,同じfcc母相を有するAl合金に耐熱材料(特にNi基合 金)の組織形態を再現できれば,高温強度の飛躍的向上が可

* 名古屋大学 大学院工学研究科 物質プロセス工学専攻;1)准教授 2)助教 3)教授 (〒464-8603 名古屋市千種区不老町1 工学部5号館605号室)

Design and Microstructural Control of Heat-Resistant Aluminum Wrought Alloys Based on Calculated Phase Diagrams; Naoki Takata, Asuka Suzuki and Makoto Kobashi(Department of Materials Process Engineering, Nagoya University, Nagoya) Keywords: *alloy design, aluminum alloy, high-temperature material, microstructure, thermodynamic calculation, precipitation, intermetallics* 2021年12月17日受理[doi:10.2320/materia.61.195] 能ではないか? という着想に基づくものである.本着想に 基づき,著者らは計算状態図を活用し,全く新たな耐熱 Al 合金を設計した⁽⁷⁾.本稿では,実際に製造した設計合金の組 織形態や高温強度,また更なる高強度化・高温クリープ長寿 命化に向けた合金の改良設計の取り組みを紹介する.

2. Al-Mg-Zn 3 元系耐熱合金の設計

先ず,高温鍛造成型可能な耐熱 Al 合金を見据え,熱処理 プロセスを用いて体積率10%以上の金属間化合物相(平衡 相)により強化される新たな Al 合金の成分系を考えた.図 2 に,種々の Al-X 2 元系状態図⁽⁸⁾に基づくα-Al(fcc)相と 平衡する金属間化合物相の種類と結晶構造(化合物相を生成 しない系は括弧書きにて平衡相を示す)と平衡状態における α-Al 相中の X 元素の最大固溶濃度(固溶限)を周期律表に基 づいて整理したものを示す.これまで,Sc などの元素を微 量添加し,母相との整合性の高い Al₃Sc 相(L1₂構造)を用い た析出強化は,高温でも比較的微細な形態を維持するため高 温強度の向上にも作用することが知られている.近年では, Zr や Er を添加し Al₃Sc 相の安定性を高めた耐熱合金の開発 がなされている⁽⁹⁾.しかしながら,これらの元素の α-Al 母相の固溶限は 1%以下(図 2(b))であり,強化相である金属間化合物相の体積率が低い.そのため,限られた析出強化能しか持たない.また1980年代,Fe などの遷移金属元素を用いて微細な金属間化合物相により強化される耐熱 Al 合金の研究⁽¹⁰⁾が盛んに行われた.過飽和に合金元素を含む急冷凝固粉末を用いた成型体(焼結体や押出材)は微細な金属間化合物相により強化され,優れた高温強度を示す⁽¹⁰⁾.しかし,急冷凝固粉末成型体は二次加工性に乏しく,製造プロセスの観点からほとんど実用化に至っていない.

鍛造合金(展伸材)の開発を念頭に置き,熱処理を利用し高 い体積率の強化相の組織に制御するためには,Al合金系に おいて高温(溶体化処理時)のα-Al母相の小さい固溶限(図2 (b))が本質的な問題である.そこで図2(b)を基に,α-Alの 固溶限を拡大させる汎用元素(固溶限の大きい合金元素)とし てMgとZnを選択した.(他にもLiやAg等の合金元素が 可能性として挙げられる)これは,従来の7000系に分類され る合金系と一致する.Al-Mg-Zn3元系合金の製造プロセス 条件は確立しており,実機部材製造の障壁も小さいと考え, 既報の熱力学データベース⁽¹¹⁾⁽¹²⁾を基にした計算状態図を用



図2 Al-X2元系における(a) α-Al(fcc)相と平衡する金属間化合物相の種類と結晶構造(化合物相を生成しない系は括弧書きにて 平衡相を示す)および(b)平衡状態における α-Al 相中の X 元素の最大固溶濃度(固溶限) いて Al-Zn-Mg 3 元系合金の設計を行った.

本研究は、Al-Zn-Mg 3 元系状態図に存在する T-Al₆Mg₁₁ Zn₁₁相⁽¹³⁾(立方晶cI162, (Al, Zn)₄₉Mg₃₂相⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾とも呼ばれ る)に着目した.その結晶構造を、図3(a)に示す.本3元 系において大きな相領域を有するT相は α -Al相と平衡し, 広いT相/ α -Al2相領域を示す.これは、T相/ α -Al二相組 織制御の大きな可能性を示す⁽¹⁶⁾.本着想に基づき,計算状 態図を活用してT相/ α -Al二相組織を有するAl-5Mg-3.5Zn(at%)の合金を設計した.図3に、Al-Zn-Mg 3元系 状態図における480℃,300℃および200℃の等温断面図を示 す.また,設計合金組成であるAl-5Mg-3.5Zn(at%)の平衡 状態における構成相の相分率の温度に伴う変化を併せて示す. Al-Mg-Zn 3 元系計算状態図は,高温で広い α-Al単相域(図 3(b))を示し,温度低下に伴って縮小することを示す(図 3 (c),d)).したがって,設計合金は高温の溶体化処理 (480℃)により α-Al単相化し,低温の時効処理により高い 体積率のT相が析出する.Al-5Mg-3.5Zn合金の平衡状態 におけるT相の体積率(熱力学計算で求められる相分率はモ



図3 (a)T相の結晶構造,(b),(c),(d)Al-Zn-Mg3元系状態図における480℃,300℃および200℃等温断面図と(e)設計合金組成 である Al-5Mg-3.5Zn(at%)の平衡状態における構成相の相分率の温度に伴う変化(参考文献7から引用改編).



図 4 480℃溶体化処理を施した設計合金(Al-5Mg-3.5Zn(at%))における時効処理に伴う T 相の析出形態を示す(a), (c), (d), (f) SEM 像と(b), (e) TEM 像: (a), (b) 300℃/1 h, (c) 300℃/100 h, (d), (e) 200℃/1 h, (f) 200℃/100 h.

ル分率であるが,結晶構造から見積もられる T 相と α-Al 相 の1原子当たりの体積は数%程度の差であるため,ここで はモル分率を体積率と等価とみなす)は,実機使用想定温度 に相当する200℃において約10%と予測される(図3(e)).こ れらの熱力学計算結果は,480℃溶体化処理による α-Al 相 単相化後,200℃時効処理を施すことによって,設計合金を 約10%の体積率を有する T 相を用いた析出強化が可能であ ることを予測する.

設計合金を480℃において溶体化処理を施すと α-Al 相単 相組織を呈する⁽⁷⁾.これは計算状態図(図3(b))の結果と良 く一致し、本設計合金は計算状態図を基に熱処理温度を選定 可能であることを示す. 溶体化処理を施した設計合金に 300℃および200℃の時効後の組織を,図4に示す. T相は α-Al 母相の粒界に優先的に析出し、粒内から析出するT相 は微細均一な形態を示す(図4(a), (b)). より低温である 200℃時効後,析出相は粒界・粒界とも微細な形態(図4(d), (e))を呈するが,結晶粒界に沿った明瞭な無析出帯(粒界に 沿ったコントラストの暗い領域)が観察される(図4(d), (f)). また,設計合金の硬さは200℃の温度保持に伴って大 きく低下し,析出相の熱的安定性(準安定 T'相の生成と推察 される)に課題が残ることも見出された.これらの組織の結 晶学的特徴や本合金の TTP (Time-Temperature-Precipitation)図などの析出の速度論の詳細については、別報⁽⁷⁾で述 べられている.

200℃,1hの人工時効を施した本設計合金の温度に伴う 0.2%耐力の変化(引張試験によって測定された値)を,既存 の耐熱性合金である2618合金と同じ合金系である7075合金 と比較したものを,図5に示す.Al-5Mg-3.5Zn合金は 150℃以上の高温域において既存のAl合金より優れた降伏 強度(図5)だけでなく引張強度⁽¹⁷⁾を示す.また,本合金は 比較的良好な室温延性⁽¹⁷⁾や高温の良好な押出成形性を示 し,既存合金に代替可能な新たなインペラ部材としての大き



図5 200°C,1hの人工時効を施したAl-5Mg-3.5Zn合金の温度に伴う0.2%耐力の変化と既存の耐熱性合金である 2618合金と同じ合金系である7075合金の比較(参考文献 7から引用改編).

な可能性を示す. なお, T 相の強化相としての有効性は, T 相の体積率を50%以上に高めた Al 鋳造合金⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾において も検証されている.

第4元素添加による改良合金設計

3元系設計合金の更なる高強度化および高温クリープ長寿 命化を実現する手法のひとつとして、第4元素の添加が考 えられる.例えば、7000系合金の時効に伴う析出(時効硬 化)に及ぼす Cu添加の影響は古くから研究されており、Cu 添加は時効処理に伴う析出を促進し、高強度化に有効である ことは周知の事実である.特に、Al-Mg-Cu3元系平衡状態 図⁽²⁰⁾においても T-(Al, Cu)₄₉Mg₃₂相が存在するため、Cu は T 相に分配し、熱力学的に安定化させると推察される. また、Al 合金の耐熱性を向上させる合金元素のひとつとし て Ni が知られている.Ni は、既存の耐熱性合金である 2618合金にも添加されている.Al 合金の Ni 添加は Al₃Ni 相 (斜方晶 *o*P16)⁽²¹⁾の生成を促進し、高温における高強度化と クリープ抵抗向上に寄与すると考えられている⁽²²⁾.本設計 合金への Ni 添加は T 相と異なる安定な金属間化合物相を生 成させ、高温強度の向上が期待される.

図6に、Al-Mg-Zn-Cu4元系とAl-Mg-Zn-Ni4元系計 算状態図の断面図⁽²³⁾とそれらに生成する化合物の結晶構 造,および期待される材料組織の模式図を示す.両断面図に おける横軸の原点は3元系設計合金組成のAl-5Mg-3.5Zn (at%)である. Al-5Mg-3.5Zn 合金へ Cu 元素の添加は, 200℃以上の温度域において α-Al/T の 2 相域を α-Al/η-Zn₂ Mgの2相域に遷移させる(図6(a)). この相領域の変化 は、添加された Cu元素が T相よりむしろ η相に分配する ことを示し, η相の析出を促進すると推察される. なお, 時 効温度に対応する300℃以下の温度域においてCu元素の分 配係数 k2n^a は600以上と計算された.これらの計算結果は, Cu 添加が粒内析出相(η相)の安定化と体積率向上に寄与す ることを示唆する. また Ni 元素の添加は α-Al 相, T 相お よび Al₃Ni 相の広い 3 相域を出現させ, その相領域は200~ 400℃の温度域においてNi濃度に依らず変化しない(図6 (b)). また,時効温度に対応する300℃以下の温度域にて α-Al 相および T 相における Ni 元素の固溶限は0.1 at%以下と 計算された. これらの計算結果は、Ni 元素は強化相である T相に分配せず, α -Al 母相内において Al₃Ni 相を独立して 生成させることを示す. また, 溶製過程において液相から Al₃Ni相は晶出すると予測されるため、α-Al母相の粒界に 存在すると予測される. Al₃Ni相は α-Al 母相の粒界を被覆 し, 高温におけるクリープ抵抗(粒界析出強化⁽²⁴⁾⁽²⁵⁾)として 期待される.以上の4元系計算状態図を基に、本研究では3 元系合金に Cu と Ni を 1 at%添加した合金を設計した.

これらの4元系改良合金(Al-5Mg-3.5Zn-1Cu 合金および Al-5Mg-3.5Zn-1Ni 合金)を溶製し,3元系合金同様,480℃ 溶体化処理後,300℃の時効処理に伴う析出過程を調査し た.その代表的な結果として,300℃/1h時効を施したCu 添加合金(Al-5Mg-3.5Zn-1Cu)およびNi添加合金(Al-5Mg-3.5Zn-1Ni)の析出形態を示すSTEM-HAADF像と EDS分析による元素分布図⁽²³⁾を,図7に示す.Cu添加合 金のSTEM像(図7(a))において,図中矢印に示すようにコ ントラストの異なる析出相が観察された.HAADF像のコ ントラストは元素の原子番号に依存し,重い元素ほど明度は 高くなるため,明るいコントラストを持つ析出相は原子番号 の大きいZn元素を高濃度に含む.これはEDS元素分析に よって検証され(図7(a)),Zn元素が濃化した析出相におい てAl濃度が低いことが確認された⁽²³⁾.これらの結果は,明 るいコントラストを持つ析出相がη-Zn₂Mg相であり,やや 暗いコントラストを持つ析出相がT-Al₆Mg₁₁Zn₁₁相である ことを示す.なお,両相の存在は X 線回折測定によって確認された⁽²³⁾.また,添加された Cu 元素は α -Al 母相の粒内析出相である η 相と T 相の双方に分配し,相安定性の向上に寄与していると考えられる.この結果は、Al-Mg-Zn-Cu 4 元系の計算状態図(Cu 添加合金の組成は300℃において α -Al 相 $\ell \eta$ 相の 2 相領域に位置 する) とやや異なる(図 6 (a)).これは、熱力学計算に用いた Al 多元系データベース(PanAluminum⁽²⁶⁾)における T 相の相安定性が過小評価されていることを示し、300℃以下の低温における T 相の熱力学データベースの修正が必要であると考えられる.一方,Ni 添加合金において Ni 元素が濃化した比較的粗大な化合物相が粒界に観察され、Mg と Zn が濃化した微細な析出相は



図6 (a) Al-Mg-Zn-Cu 4 元系および(b) Al-Mg-Zn-Ni 4 元系計算状態図の断面図(横軸の原点は3元系設計合金の組成に対応する)とそれらに生成する化合物の結晶構造,および期待される材料組織の模式図(参考文献23から引用改編).



図7 (a)Cu 添加合金(Al-5Mg-3.5Zn-1Cu)および(b)Ni 添加合金(Al-5Mg-3.5Zn-1Ni)の300℃/1h人工時効処理後の析出形態 を示す STEM-HAADF 像と EDS 分析による元素分布図(参考文献23から引用改編).

ま て り あ 第61巻 第4号(2022) Materia Japan 粒界および粒内に分布する(図7(b)). これらの相は Al₃Ni 相とT相に対応する. Al₃Ni 相は溶体化処理で残存したもの が粒界に偏在し,粒内にはT相のみ析出すると考えられる. T相内部にNi元素は検出されず,Ni元素は析出したT相 にほとんど分配しない.したがって,3元系基本合金の組織 形成に役割が異なると予測される第4元素(CuおよびNi)を 添加した結果は,計算状態図で予測された効果(図6)と良く 一致することが実験的に示された.すなわち,Cu添加は粒 内析出相である η 相およびT相に分配し,高温における安 定性を向上させ,Ni添加はAl₃Ni相の粒界上に生成に寄与 し,高温クリープ抵抗として作用することが期待される.

4. 更なる改良設計に向けた取り組み

これまで示した実験・計算結果に基づくと、Al-Mg-Zn3 元系基本合金へのCuおよびNiの複合添加(5元系合金への 改良設計)は、粒内に析出する T相(および η相)の安定性を 高めるとともに、粒界上に安定に存在する Al₃Ni 相による強 化を実現可能と期待される.しかし,実験に基づいた信頼性 の高いAl-Mg-Zn-Cu-Ni5元系の熱力学データベースは報 告されていないのが現状である. Al-Cu-Ni3元系平衡状態 図で認められる Al₃(Ni, Cu)2 相(その結晶構造を図8(a)に 示す⁽²¹⁾)は5元系合金においても生成すると予想されるが, Al₃(Ni, Cu)₂相を再現したデータベースは現状 Al-Cu-Ni 3 元系⁽²⁷⁾のみである.したがって,更なる合金の改良設計に 現状の計算状態図を用いることはできない. そこで、Al-Mg-Zn-Cu-Ni5元系改良合金設計に資する高温における相 平衡(特に α-Al 母相と平衡する金属間化合物相)の実験的同 定を試みた. Al-5Mg-3.5Zn 3 元系合金を基本組成として CuとNiの添加量を系統的に変化させた合金を溶製し, 480℃の溶体化処理(240h平衡化処理)を実施し、5元系合金 の α-Al 相に平衡する金属間化合物相を調査した.本研究で



図8 (a) Al-Cu-Ni3 元系に存在する Al₃(Ni, Cu)₂ 相の結晶構 造と(b)5 元系状態図の480℃等温断面図に示した本実験 で作製した合金組成と実験的に同定された相領域(断面 図原点は,3元系基本合金の組成である Al-5Mg-3.5Zn (at%)を示す)



図 9 (a), (d) Al-5Mg-3.5Zn-3Cu-1Ni, (b), (e) Al-5Mg-3.5Zn-2Cu-2Ni および(c), (f) Al-5Mg-3.5Zn-1Cu-3Ni (at%) 合金の(a)-(c) 溶製まま材と(d)-(f) 480°C/240 h 平衡化処理を施した組織の SEM 像.

溶製した合金の組成を5元系状態図の480℃等温断面図上に プロットしたものと実験的に同定された相領域を図8(b)に 示す.この断面図の原点は、3元系基本合金の組成である Al-5Mg-3.5Zn(at%)である. また図9に、本研究で作製し た Al-5Mg-3.5Zn-3Cu-1Ni, Al-5Mg-3.5Zn-2Cu-2Ni およ び Al-5Mg-3.5Zn-1Cu-3Ni(at%)の合金の溶製まま材と 480℃/240hの溶体化処理を施した組織のSEM 像を示す. 480℃/240hの溶体化処理材の組織形態(図9(d)-(f))は,溶 製材の凝固組織形態(図9(a)-(c))とは大きく異なり、粗大 化していた.したがって、480℃における平衡状態の組織形 態であると判断し, XRD 測定および EDS 元素分析を用い て構成相を同定した. その結果, Cu 濃度の高い合金(図9 (d))において α-Al 母相中に T 相だけでなく S-Al₂CuMg 相 が検出された.Ni濃度の増加に伴って、S相は消失し、Ala $(Ni, Cu)_2$ 相が α -Al相と平衡することがわかった(図9 (e)). 更に Ni 濃度を増加させると Al₃Ni 相も平衡すること がわかった(図9(f)). この結果に基づいて Al-Mg-Zn-Cu-Ni5元系における相領域を大まかに同定した結果を、図8 (b)に示す.本実験結果を基に、 α-Al 母相, T相(粒内析出 相)および Al₃(Ni, Cu)₂相(粒界被覆相)の3相組織を制御し た5元系合金の設計に現在取り組んでいる.今後,時効処 理温度に対応する低温の相平衡も再現できる5元系熱力学 データベースの構築が,計算状態図に基づく5元系合金へ の改良設計には不可欠と考えられる.

5. 今後の展望

本稿では,自動車エンジン用ターボチャージャの圧縮機イ ンペラ部材に適用可能なAl 鍛造合金(展伸材)の開発を見据 え,熱処理を利用し高い体積率の強化相の組織制御を目指し た,計算状態図に基づく新たな耐熱Al 基合金の設計原理を 紹介した.実際に製造した設計合金の組織形態や高温強度, 更なる高強度化・高温クリープ長寿命化に向けた合金の改良 設計の取り組みを述べた.今後,Al-Mg-Zn-Cu-Ni5元系 の相平衡を再現可能な新たな熱力学データベースの構築が改 良合金設計には不可欠である.また実用化の観点から,晶出 物である金属間化合物相を含む改良合金の400℃以上におけ る熱間成形性の評価や実機使用想定温度である200℃におけ る設計合金の高温クリープ破断寿命の評価が必要である.計 算状態図に基づいた合金設計は,共晶反応を利用した Al 基 鋳造合金⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾にも適用され,その有用性が示されている. Al 合金に限らず種々の材料において実験を再現できる(信頼 性の高い)多元系の熱力学データベース構築は,将来の材料 開発だけでなく,近年技術革新の著しい金属積層造形技術な どの新たな材料創製プロセスによる組織形成の理解⁽²⁸⁾や新 たな熱処理プロセス⁽²⁹⁾の開発・最適化の基盤となる.

本稿で紹介した研究は,名古屋大学 大学院生の石原雅人 氏(現:㈱神戸製鋼所),高木力斗氏(現:ダイキン工業㈱), 中塚怜志氏,石井大貴氏,黎 若琪氏と共同で実施されまし た.また熱力学計算に関して,㈱材料設計技術研究所 橋本 清氏から有益なご助言を頂きました.本研究は,科学研究費 補助金(基盤 B 17H03411,20H02462)と軽金属奨学会 課題 研究の支援を受けて実現されました.ここに特記して感謝の 意を表します.

文 献

- (1) 茨木誠一:ふぇらむ,21(2016),106-112.
- (2) アルミニウムの組織と性質,軽金属学会,(1991),431-530.
- (3)高田尚記,石原雅人,岡野大幹,小橋 眞:軽金属学会 第 132回春期大会講演概要,(2017),203-204.
- (4) D. Petschke, F. Lotter and T. E. Staab: Materialia, 6(2019), 100341.
- (5) K. Yu, W. Li, S. Li and J. Zhao: Mater. Sci. Eng. A, **368**(2004), 88–93.
- (6) R. C. Reed: The Superalloys Fundamentals and Applications, Cambridge, (2006).
- (7) N. Takata, M. Ishihara, A. Suzuki and M. Kobashi: Mater. Sci. Eng. A, **739** (2019), 62–70.
- (8) H. Okamoto: Phase Diagrams for Binary Alloys, ASM International, (2000).
- (9) R. A. Michi, J. P. Toinin, A. R. Farkoosh, D. N. Seidman and D. C. Dunand: Acta Mater., 181(2019), 249–261.
- (10) 山内重徳,渋江和久,佐野秀男,伊藤清文,犬丸 晋:軽金 属,37(1987),704-709.
- (11) P. Liang, T. Tarfa, J. A. Robinson, S. Wagner, P. Ochin, M. G. Harmelin, H. J. Seiferta, H. L. Lukasa and F. Aldinger: Thermo. Acta, **314**(1998), 87–110.
- (12) 林 直宏,中島一喜,榎木勝徳,大谷 博:日本金属学会誌,

84(2020), 141–150.

- (13) P. Villars: Pearson's Handbook Desk Edition, Crystallographic Data for Intermetallic phases Vol. 1, ASM International, Materials Park, Ohio (1997), 423.
- (14) G. Bergman, J. L. T. Waugh and L. Pauling: Acta Crystal., 10 (1957), 254–259.
- (15) W. Sun, F. J. Lincoln, K. Sugiyama and K. Hiraga: Mater. Sci. Eng. A, **294–296** (2000), 327–330.
- (16) N. Takata, R. Takagi, R. Li, H. Ishii, A. Suzuki and M. Kobashi: Intermetallics, **139** (2021), 107364.
- (17) S. Nakatsuka, M. Ishihara, N. Takata, A. Suzuki and M. Kobashi: MRS advances, 4(2019), 1485–1490.
- (18) N. Takata, T. Okano, A. Suzuki and M. Kobashi: Intermetallics. 95 (2018), 48–58.
- (19) N. Takata, T. Okano, M. Aikawa, A. Suzuki, M. Kobashi and K. Hagihara: Intermetallics, 124 (2020), 106881.
- (20) 林 直宏, 中島一喜, 榎木勝徳, 大谷 博:日本金属学会誌, 83(2019), 378-387.
- (21) A. J. Bradleya and A. Taylor: Philos. Mag., 23(1937), 1049– 1067.
- (22) L. Zuo, B. Ye, J. Feng, H. Zhang, X. Kong and H. Jiang: Mater. Sci. Eng. A, 772 (2020), 138794.
- (23)石井大貴,髙木力斗,高田尚記,鈴木飛鳥,小橋 眞:軽金 属,71(2021),275-282.
- (24) I. Tarigan, K. Kurata, N. Takata, T. Matsuo and M. Takeyama: MRS Online Proceedings Library Archive, **1295** (2011), 317–322.
- (25)味噌作裕, I. Tarigan,木村尭弘,高田尚記,上田光敏,丸山 俊夫,竹山雅夫:鉄と鋼,100(2014),1158-1164.
- (26) CompuTherm LLC: PanAluminum, Thermodynamic database for multi-component Aluminum-rich casting and wrought alloys, https://computherm.com/?docs = pandat-databasemanual/database-overview, (2020).
- (27) W. Wang, H.-L. Chen, H. Larsson and H. Mao: Calphad, 65 (2019), 346–369.
- (28)高田尚記,鈴木飛鳥,小橋 眞:鋳造工学,91(2019),612-617.
- (29) R. Li, N. Takata, A. Suzuki, M. Kobashi, Y. Okada and Y. Furukawa: Materials, 14(2021), 7115.


