

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：32503

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05184

研究課題名（和文）アルミニウム合金で観察された新奇な電磁分離現象の発現条件とその理解

研究課題名（英文）Conditions for the Occurrence of Novel Electromagnetic Separation Phenomena Observed in Aluminum Alloys and their Understanding

研究代表者

田村 洋介（Tamura, Yosuke）

千葉工業大学・工学部・教授

研究者番号：40316807

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：電磁力を印加しながら凝固したAl-10Fe合金およびAl-25Si合金における初晶の電磁分離現象を調べた。各合金とも所定の条件下において、初晶は電磁力により試料表層部全域に偏析した。しかし電磁力は、溶湯中に晶出している初晶に作用しないことが明らかとなった。初晶が試料表層部に偏析すると、それを含まない試料中央部は過冷凝固組織の様相を呈し、樹枝状の初晶Alを含む微細共晶組織となった。Al-Si合金では、溶湯に電流を流すだけで以上と同様の効果が得られた。新奇な電磁分離現象は、電気・磁気的な作用が結晶の核生成および成長に影響を及ぼすために生じたと考えられる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電磁分離現象に係る当該分野においては、様々な近似・仮定に基づいたコンピュータシミュレーションが進んでいる。一方、その成果を技術として活用するには、実験事実に基づいた知見の蓄積が不可欠である。この点において、実験に基づく当該研究成果は貴重と言える。また従来報告されていない現象も発見されており、新たな学術分野の構築に繋がる可能性もある。新奇な電磁分離現象に関する理解を深めることは、リサイクルの効率化や新しい材料創製プロセスを開発することと同義である。以上より、本研究成果は学術的・社会的に有意義と言える。

研究成果の概要（英文）：Electromagnetic separation phenomena of primary crystals observed in Al-10Fe and Al-25Si alloys, which were solidified while applying electromagnetic force, were investigated. Under predetermined conditions, primary crystals were segregated to the entire surface layer of the specimens by the electromagnetic force in both alloys. However, it was revealed that the electromagnetic force did not act on primary crystals that had already crystallized in the molten metal. When primary crystals segregated to the surface layer of the specimen, the central part of the specimen without them exhibited a supercooled structure with a fine eutectic structure including dendritic primary Al crystals. Additionally, a similar effect was observed in the Al-Si alloy by simply passing current through the molten metal. It appears that this novel electromagnetic separation phenomenon is triggered by the influence of electric and magnetic effects on the nucleation and growth of crystals.

研究分野：材料工学

キーワード：電磁分離 アルミニウム合金 過共晶 リサイクル 省エネルギー 材料創製

1. 研究開始当初の背景

(1) CO₂ 排出量削減の観点から、自動車等へのアルミニウム合金の使用量は増加傾向にある。同時に回収されるスクラップ量も増え、その種類も多様化している。そのため溶湯品質の向上は重要な課題となっている。

(2) 著者は、Al-10Fe 合金溶湯に直流電流と静磁場を印加し、その状態で凝固させると、初晶 Al₁₃Fe₄ が鑄塊表層に分離する現象を発見した(以下、新奇な電磁分離現象と記す)。当該現象を利用すれば、品質の低下したアルミニウム合金を精製でき、さらに表層に分布した固相粒子の積極的利用を考えれば、新たな複合材料および傾斜機能材料の開発にも繋がる。

2. 研究の目的

(1) 熔融金属と固相粒子の電気伝導率に差がある場合、理論的には電磁力によって固相粒子を分離可能である。電磁力を用いた液相からの固相分離プロセスは、大がかりな装置を使用することなく微細な粒子を比較的短時間に分離可能と考えられている。しかし実用金属を用いてその効果を実証した例は少なく、技術導入に際して参照できるデータも乏しい。

(2) 新奇な電磁分離現象は凝固過程で発現すると考えられるが、現状、その条件に関しては不明な点が多い。当該現象を明らかにするには、電磁力の印加条件、合金種および凝固条件に着目する必要がある。本研究では、申請者の発見した新奇な電磁分離現象に関する理解を深め、学術的な「問い」に対する知見を蓄積することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 新奇な電磁分離現象においては、既存の電磁分離理論から予想される一方向への固相粒子の偏析が確認されない。そのため当該現象の再現性及び一般性を確認する必要がある。そこで Al-10Fe 合金に加え、Al-25Si 合金を研究に用いることとした。Al-Si 系を選んだ理由は、幅広い組成域で実用合金が規格化されており、結果によっては新たな技術開発に繋がるためである。

(2) Al-10Fe 合金および Al-25Si 合金に関し、「合金種」、「印加電磁力の大きさ」及び「電磁力を印加するタイミング」が凝固組織にどのような影響を及ぼすかを調べた。電磁力は、試料に直流電流を流すと共に永久磁石(Nd-Fe-B)の磁極間にそれを静置することで印加した。なお磁場の大きさは一定(約 0.54 T)とした。「電磁力を印加するタイミング」は、電磁力を印加する温度に着目した。

(3) 試料を所定の温度(以下、試験温度と記す)に昇温後、炉外に取り出し、直ちに以下の条件で自然凝固させた。

- ① 「そのまま」冷却
- ② 「電流 100 A」と「磁場」を印加
- ③ 「電流 130 A」と「磁場」を印加

試験温度は、Al-10Fe 合金が 750℃、850℃、950℃ および 1050℃、Al-Si 合金が 650℃、750℃、850℃ および 950℃とした。図 1 に各合金の平衡状態図と試験温度の関係を示す。試験温度において、試料は完全に液相、あるいは固液二相状態である。固液二相状態とは、初晶 Al₁₃Fe₄ あるいは初晶 Si が未溶解のまま液相(L)中に遊離した状態を意味する。実験後、ムライト管から試料を取り出し、マクロ組織観察、光学顕微鏡組織観察および X 線計算機トモグラフィ (X-ray computed tomography X 線 CT) による観察に供した。以下、各試料は Al-10Fe 合金を「F」、Al-25Si 合金を「S」とし、それに試験温度と実験条件を付した記号で表すこととする。例えば Al-10Fe 合金を用い、試験温度 950℃、試験条件①により得られた試料を「F_{950-①}」のように表記する。

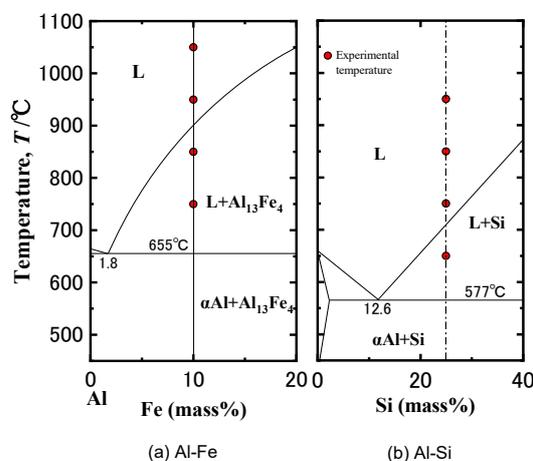


図 1 各合金の平衡状態図と試験温度の関係

4. 研究成果

(1) X 線 CT を用いて初晶 Al₁₃Fe₄ の分布と形態を調べた。図 2 は試料 F_{950-①} の X 線 CT 像である。スキャン方向は図に示す X、Y および Z 方向である。また図は、各方向の最大面積となる断

面画像となっている。マクロ組織観察では、初晶 $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ がそれぞれ遊離した針状結晶のように見えた。しかし各方向からのスキャン映像より、初晶 $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ はムライト管および黒鉛電極の内壁と接する面(以下、試料表面と記す)から試料中心に向かって成長していることが明らかとなった。また試料を横断するような粗大な結晶も多数認められた。また立体観察においては、その形態が板状をしていることも確認された。図 3 および図 4 は、それぞれ $\text{F}_{950-②}$ および $\text{F}_{950-③}$ の X 線 CT 像である。各試料とも初晶 $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ は、試料表面から中心に向かって成長していた。しかし $\text{F}_{950-①}$ に比べるとその数は多く、結晶の幅および長さが減少し、形態も板状から剣刃状へと変化していた。その傾向は、特に $\text{F}_{950-③}$ において顕著であった。以上の結果は、電磁力が初晶 $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ の核生成や成長に影響を及ぼすことを示唆している。物理的な刺激が核生成を助長することは一般に知られている。また結晶幅の変化を鑑みると、試料表面に核生成した初晶 $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ は電磁力によって面内成長し難くなるような作用を受けたと推測される。しかし、いずれにしても本実験条件の場合、理論上、電磁力が働くのは一方向である。その影響が試料表面全体に亘って観察された原因については、引き続き検討が必要である。

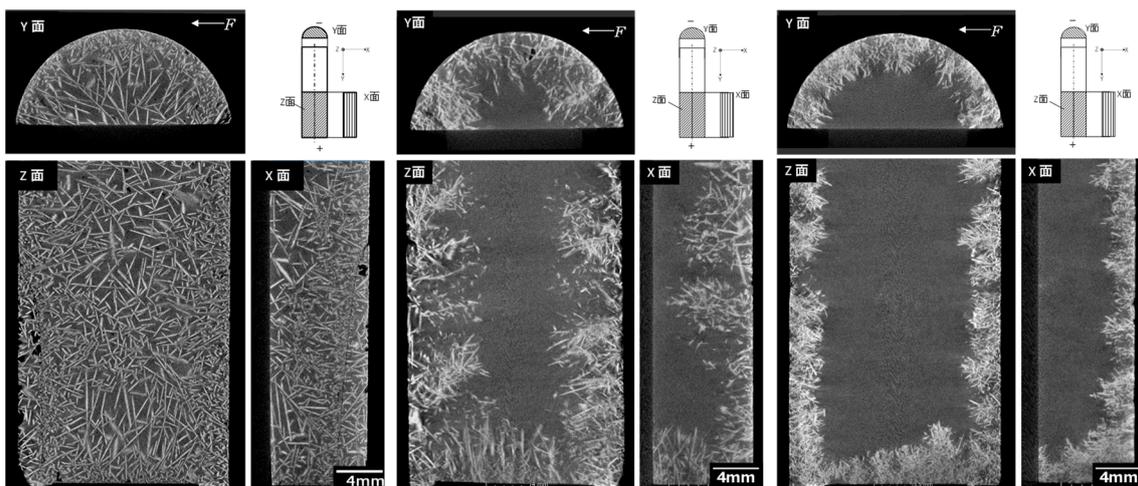


図 2 $\text{F}_{950-①}$ の X 線 CT 像

図 3 $\text{F}_{950-②}$ の X 線 CT 像

図 4 $\text{F}_{950-③}$ の X 線 CT 像

(2) 図 5 に $\text{S}_{950-①}$, $\text{S}_{950-②}$, $\text{S}_{950-③}$ の長手方向断面および任意の横断面におけるマクロ組織を示す。初晶 Si は、 $\text{S}_{950-①}$ の各断面で不規則に分散しているが、 $\text{S}_{950-②}$ および $\text{S}_{950-③}$ では明らかに断面の縁に偏析していた。図 6 に初晶 Si の分布と試験温度の関係を示す。写真は $\text{S}_{650-②}$, $\text{S}_{750-②}$ および $\text{S}_{850-②}$ の長手方向断面と任意の横断面マクロ組織である。 $\text{S}_{650-②}$ は固液二相共存状態から、それ以外は液相状態からの電磁力印加となる。それぞれの組織を比較すると、結果的に初晶 Si の偏析は $\text{S}_{650-②}$ 以外、すなわち液相状態から電磁力を印加した場合にのみ観察されることが明らかとなった。 Al-25Si 合金は X 線 CT による観察が困難なため、初晶 Si の形態を詳細に把握することはできなかった。しかし以上に述べた結果から、初晶 $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ の場合と同様、電磁力は遊離している初晶 Si には作用せず、その核生成や結晶成長に影響を及ぼすと推測される。

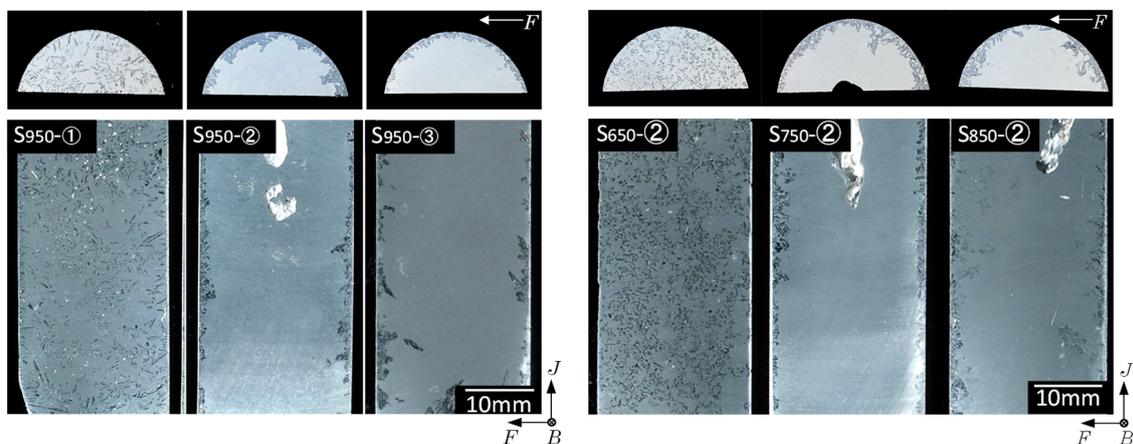


図 5 $\text{S}_{950-①}$, $\text{S}_{950-②}$, $\text{S}_{950-③}$ のマクロ組織

図 6 $\text{S}_{650-②}$, $\text{S}_{750-②}$ および $\text{S}_{850-②}$ のマクロ組織

(3) 図7は S_{950-①}, S_{950-②}および S_{950-③}の光学顕微鏡組織である。図7右上の挿図に示すように、観察領域は試料の長さ方向中央部断面の表層部 A, 中間部 B および中心部 C とした。S_{950-①}において、初晶 Si は, A, B, C の全領域で観察された。一方, S_{950-②}と S_{950-③}で初晶 Si が観察されたのは、微視的にも A のみであった。また試料表面には、初晶 Si が緻密に分布していた。S_{950-②}および S_{950-③}の表層以外には、微細な共晶が全体に亘って観察された。中心に近い領域の共晶は特に微細であり、その中には明らかに初晶 αAl と考えられる樹枝状晶も確認された。S_{950-①}が初晶 Si と共晶から成る典型的な過共晶組織であるのに対し, S_{950-②}および S_{950-③}では、広範な領域で共晶あるいは亜共晶組織となっていた。これらは急速凝固あるいはストロンチウム(Sr)添加により改良された組織とよく似ていた。

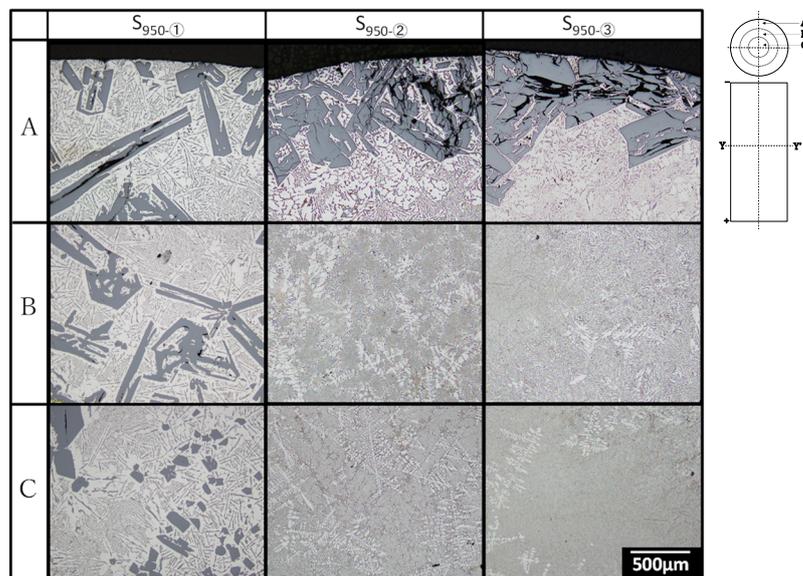


図7 S_{950-①}, S_{950-②}および S_{950-③}の光学顕微鏡組織

(4) Al-Si 系に関しては、図8に示すようなカップルド・ゾーンが示されている。S_{950-②}および S_{950-③}で観察された広範に亘る共晶および亜共晶組織は、カップルド・ゾーンを経た凝固組織(以下、過冷凝固組織と記す)と考えられる。過共晶 Al-Si 合金では、初晶 Si が共晶先行相となる。したがって溶湯中に初晶 Si が分散していれば、凝固時に核生成に必要な過冷を伴わず、共晶 Si は初晶 Si から成長する。一方、溶湯中に初晶 Si が存在しない領域が形成されていれば、その領域内の共晶凝固には過冷が必要となる。S_{950-②}および S_{950-③}において、初晶 Si は領域 A に偏析しており、領域 B と C に初晶 Si は観察されなかった。したがって領域 B と C は、過冷凝固組織になったと考えられる。

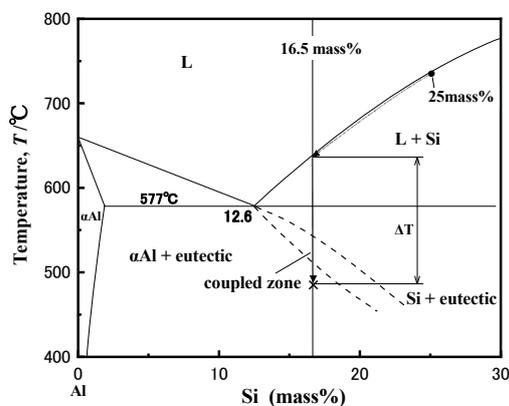


図8 Al-Si 系合金に見られるカップルド・ゾーン

(5) 各相の成長過程までを考察することは困難であるが、例えば S_{950-③}の場合、領域 B と C の溶湯組成が 16.5mass%Si に達した時点で、新たに核生成を伴う凝固が開始したと考えられる。試料はいずれもムライト管内で溶解、そのまま大気中で凝固させたものである。試料を炉外に取り出してから共晶温度に至るまでの冷却速度は約 1.0 °C/s である。それは金型铸造などに比べると非常に緩慢と言える。また実用合金を用いており、一定量の不純物も含まれている。したがって一般的に大きな過冷が起こるとは考えにくい。試料外周部に対し冷却速度の小さい試料中心部に微細共晶組織が形成される現象については報告例がない。初晶 Si の試料表層への偏析と併せ、共晶組織に及ぼす電磁力の効果についても今後の応用が期待できる。さらに Al-Si 系の場合、電流の印加だけでも以上と同等の効果が確認された。これは当該研究の中で見出された新しい現象である。国内外を問わず注目すべき発見であり、現在、引き続き検討中である。

<引用文献>

① 田村 洋介, 早田 博, Alexander McLean, 水野 健太郎, 高橋 謙三, 軽金属, 第 72 巻, 第 4 号, 2022, 115-121.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 田村洋介, 早田博, Alexander McLean, 水野健太郎, 高橋謙三	4. 巻 72
2. 論文標題 Al-10FeおよびAl-25Si合金における初晶の偏析現象と凝固組織に及ぼす電磁力の影響	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 軽金属	6. 最初と最後の頁 115-121
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2464/jilm.72.115	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 牛尾優太, 田村洋介
2. 発表標題 電磁場中で凝固したAl-10mass%Fe合金のX線CT観察
3. 学会等名 軽金属学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田中雄大, 杉山立樹, 植垣恵太, 牛尾優太, 田村洋介, 水野健太郎, 高橋謙三
2. 発表標題 Al-Si合金の凝固組織に及ぼす電磁力の影響
3. 学会等名 一般社団法人軽金属学会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 過共晶材料及びその製造方法	発明者 田村洋介	権利者 千葉工業大学
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2022/037717	出願年 2022年	国内・外国の別 外国

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------