

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25420784

研究課題名(和文)従来不可能だった凝固後期での流動誘起

研究課題名(英文)Excitation of fluid motion in the latter stage of solidification

研究代表者

岩井 一彦 (Iwai, Kazuhiko)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：80252261

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：見かけ粘性係数の大きな凝固後期の合金に電磁気力を印加して小さなスケールの流れを励起し、それを用いて合金の濃度分布を制御するための基礎研究として、電磁気力印加が流動、及び合金の溶質分布に与える影響を調査した。可視化実験からは、電磁気力の有無により液相の流動形態が異なるので、濃度分布に差が生じる可能性が示唆された。また、固体と液体の境界が対象形状であっても電磁気力は非対称となるので、電磁気力印加時の流動は対称とならずに複雑であった。凝固実験では、見かけ粘性の高い凝固後期に電磁気力を印加することで合金成分の濃度分布が変化した。

研究成果の概要(英文)：As a fundamental research on control of solute concentration distribution in an alloy using a small scale flow induced by the imposition of an electromagnetic force in the latter stage of solidification having a large apparent viscosity, effects of the electromagnetic force on the flow and on the solute concentration distribution have been investigated. The visualization experiment suggests that solute concentration distribution might depend on whether the electromagnetic force was imposed or not. Flow pattern of a liquid under the imposition of the electromagnetic force in a model vessel with a symmetrical solid-liquid interface shape was not symmetrical and was complicated, because the force distribution was not symmetrical. The solute concentration distribution in the model alloy was changed by imposing the electromagnetic force during the latter stage of the solidification.

研究分野：材料工学

キーワード：電磁振動 境界層 凝固

## 1. 研究開始当初の背景

通常の合金凝固プロセスでは局所平衡が成立するので、固液界面の濃度比は分配係数に従う。従って、凝固時期によって析出する固相の濃度は異なることとなるので、偏析は不可避である。その軽減方法として、凝固後の熱処理や凝固中の攪拌などが挙げられる。しかしながら前者は工程の増加のみならず、エネルギー消費の増加をも伴う。一方、凝固中の合金のみかけ粘性係数は固相率の増加と共に著しく増加する。例えば、固相率が 0.5 のときの Sn-15%Pb 合金の見かけ粘性係数は液相の粘性係数の数千倍である

(A.Shibuya, K.Arihara and Y.Nakamura: Tetsu-to-Hagané, 66(1980))。故に、攪拌が可能な時期は凝固の初期段階のみであり、凝固後期における偏析を防ぐ良い手段はなかった。この高固相率での急激な見かけ粘性増加は固体粒子間の相互作用によるもので、液相そのものの粘性は変化しない(実際には温度依存性があるのでわずかに変化する)。従って、液相のみの領域を対象とすれば、適切に外力を与えることで凝固後期(高固相率)であっても流動誘起は可能である。流動誘起は外力の絶対値ではなく、外力と直交する方向への変化量が駆動力であり、あるスケールで不均一外力を与えることで、それに見合ったスケールの流動が誘起される。例えば、合金組織でよく見られるデンドライト凝固する合金の樹間に流動を誘起させるためには、その間隔以下で不均一外力を与える必要がある。通常のデンドライト間隔はマイクロ(ミリ)スケールなので、その距離で不均一外力を与えれば流動誘起が可能である。しかしながら、高温である液体金属に対して、流動を誘起可能な強度の不均一外力をマイクロ(ミリ)スケールで与える適切な手法はなかった。一方、申請者は静磁場と交流電流の重畳印加により励起させた電磁振動を各種金属の凝固時に印加することで組織を制御する方法を提案し、それが凝固組織微細化や粒径均一化等の工業的に有益な機能を有することを明らかにしてきた。最近、申請者らは電磁振動によりマイクロ偏析が抑制されることを見いだしたが、これは高固相率(凝固後期)にもかかわらず、電磁振動が流動を誘起したことを強く示唆している。

## 2. 研究の目的

合金の製品品質を低下させる偏析の低減には攪拌が有効であるものの、液相の粘性係数に対して凝固後期の見かけ粘性係数は数千倍以上となるので、凝固後期の攪拌は不可能である。しかしながら、凝固後期であっても液相自体の粘性は変化しないので、マイクロ(ミリ)スケールで存在する液相のみの領域に適切な外力を印加することで流動誘起は可能となる。そこで本研究では、固液共存状態の合金への電磁振動印加でマイクロ(ミリ)スケール流動を誘起せしめると共に、偏析低

減の指針を得る。本研究の特長は、不可能であった凝固後期の流動を電磁振動によって可能ならしめる点にある。また、偏析を増幅させることで非平衡相の析出も可能となる。更には析出した固相挙動を制御することで、複合材料や傾斜材料の製造にも繋がる。そこで、電磁振動を印加したときの固液界面近傍の流体運動、及び凝固中の合金に対する電磁振動印加が溶質分布に及ぼす影響、の兩者について調査した。

## 3. 研究の方法

電磁振動を印加したときの固液界面近傍の流体運動と濃度境界層、及び凝固中の合金に対する電磁振動印加が溶質分布に及ぼす影響、の兩者について調査した。それぞれの手法について以下に述べる。

## (1) 電磁振動を印加したときの固液界面近傍の流体運動と濃度境界層

液体金属ではなく導電性水溶液を用いて直接観察実験を行った。サイズが 20 mm×4 mm のアクリル製セル内に pH が約 2.1 である  $0.3 \times 10^3 \text{ mol/m}^3 \text{ CuSO}_4 + 0.1 \times 10^3 \text{ mol/m}^3 \text{ H}_2\text{SO}_4$  水溶液を高さ 10 mm まで注いだ。通電用の電極は材質を銅として、上下に配置した。上側電極は平型形状、下側は凹凸形状(20 mm×4 mm×6 mm の平板に 1 辺 5 mm の正三角形が 4 つ付け加わった形状)である。凹凸形状である下側電極がアノード、平型形状である上側電極がカソードとなるように電圧を印加した。電圧は、 $\cdot 0.4 \text{ V}$  の直流電圧印加(以降、DC 印加とする)、あるいは  $\cdot 0.4 \text{ V}$  の直流電圧と 0.5 Hz, 2.0 V<sub>p-p</sub> の交流電圧の重畳印加(以降、AC+DC 印加とする)の 2 条件とした。いずれの条件においても、静磁場 0.2 T を通電方向に対して垂直な水平方向に印加し、水溶液内に電磁気力を励起させた。また、流動を観察するために直径 80  $\mu\text{m}$ 、密度 1055  $\text{kg/m}^3$  のポリスチレン粒子をトレーサーとして水溶液中に加えた。水溶液の密度は 1039  $\text{kg/m}^3$  であり、粒子との密度差 16  $\text{kg/m}^3$  は水溶液の密度の 1.5% と小さいので、トレーサー粒子の動きは流動を示すと考えられる。ビデオカメラによりアノード中央の凹部付近における流動を観察した。また、この凹部の左右にある斜面の固液界面近傍における明度から濃度境界層を評価した。

## (2) 凝固中の合金に対する電磁振動印加が溶質分布に及ぼす影響

実験方法を以下に述べる。モデル合金として選定した Sn-Pb 系合金を溶解した後、冷却速度 0.06 K/s となるように、下部から圧縮空気の流量を調整しつつ吹き付けることで、試料を冷却・凝固させた。なお、試料内の温度勾配を推定したところ、対流がなければ 1.0 K/mm であった。試料が所定の温度まで冷却された時点で、銅棒電極を通して上下方向へ 60A, 1 kHz の交流電流通電、および水平方向

へ0.3 Tの静磁場印加を開始し、それらの相互作用として試料内に電磁振動が生じるようにした。凝固完了後に試料を室温まで急冷した。この手順で、電磁振動を凝固前期と後期の2回印加した試料、凝固前期のみに印加した試料、電磁振動無印加試料の三つの試料を作製した。その後、切断、研磨工程を経て、組織観察、成分分析を行った。

#### 4. 研究成果

(1) 電磁振動を印加したときの固液界面近傍の流体運動と濃度境界層

##### ① DC 印加時の流体運動

DC 印加すると、アノードの固液界面に沿って濃度境界層が発達し、印加開始からおよそ25s で定常状態に達した。濃度境界層の発達により、固液界面近傍における液相明度は低下したが、アノード中央凹部を基準とした左斜面の明度低下は、右斜面に較べて大きかった。電極間距離の短いアノード凸部近傍では電流が集中するので、 $\text{Cu}^{2+}$ イオンが多く溶出する。よって、アノード凸部近傍の液相密度は凹部近傍の液相密度に較べて大きくなり、アノード斜面に沿った下降流が生じた。液相は非圧縮性と見なせるので、この下降流は、右斜面でも左斜面でも斜面の途中で上昇流に転じた。その反転位置は左右対称ではなく、左斜面のほうが右斜面よりも上部であった。これは以下の通り説明できる。装置全体にわたって、磁場の向きは同一であるものの、電流の向きは右斜面と左斜面とで左右対称となり、従って、流体に作用する電磁気力は、左斜面において下降流を抑制する向きに、右斜面では下降流を促進する向きに作用するため、左斜面の下降流反転位置は右斜面の下降流反転位置よりも上部になった、と解釈される。

##### ② 濃度境界層に与える電磁振動の効果

まず、中央凹部から左斜面を2mm凸部へ向かった位置で明度を評価した結果について述べる。DC 印加の場合、電磁振動印加後15s から明度の低下が顕著であったが、AC+DC 印加の場合における明度の低下は緩やかであった。いずれの場合も印加後25s では定常に達した。すなわち、AC+DC 印加の場合、DC 印加の場合に対して明度の低下が抑制された。これは、DC 印加によって凹部から2mmよりやや下部まで発達した $\text{Cu}^{2+}$ イオンが濃化している濃度境界層と、 $\text{Cu}^{2+}$ イオンが濃化していない領域との液相が、AC成分の重畳により生じた振動により攪拌され、ひいては濃度境界層の低減を招いたものと理解できる。一方、中央凹部から右斜面を2mm凸部へ向かった位置における明度についてであるが、DC 印加の場合に対してAC+DC 印加の場合における明度低下の抑制はみられず、左斜面とは逆に明度が低下した。これは、 $\text{Cu}^{2+}$ が激しく溶出する時期と電磁気力が強くなる時期がAC+DC 印加では一致するため、 $\text{Cu}^{2+}$ が濃化した

液相が他の位置へ大量に輸送されたためである。

##### ③ まとめ

・ DC 印加すると固液界面近傍では密度差による下降流が生じるものの、アノードの中央凹部を基準とした右斜面と左斜面では電磁気力の向きが異なるので、下降流の反転位置が異なった。すなわち、固液界面形状は対称であっても電磁気力は非対称となる場合があり、濃度境界層の形成過程に差が生じる可能性が示唆された。

・ AC+DC 印加することで、濃度境界層内の明度を低下させる位置と、抑制させる位置とがあった。前者は振動による溶質の攪拌によるものであり、後者は $\text{Cu}^{2+}$ が濃化した液相が他の位置へ大量に輸送されたためである。

(2) 凝固中の合金に対する電磁振動印加が溶質分布に及ぼす影響

電磁振動を印加しなかった試料は試料全体が柱状組織であったが、凝固前期に電磁振動を印加した試料、及び凝固前期と後期に電磁振動を印加した試料は、初期凝固部である試料下部で等軸組織が観察された。凝固が開始する試料底部から8mm程度までの領域に注目すると、電磁振動を印加しなかった試料の共晶領域割合は電磁振動を印加した二つの試料と較べて多かった。これは、液相のPb濃化による重力偏析が電磁振動無印加試料では顕在化したものの、電磁振動印加試料では流動が誘起されたため、重力偏析が顕在化しなかったものと解釈される。試料下部から20mm程度の位置において、電磁振動を凝固前期のみに印加した試料の共晶割合は、電磁振動を前期と後期の2回印加した試料の共晶割合に較べて高くなっていたが、これも、凝固前期のみに電磁振動を印加した試料では印加終了後に重力偏析が起きたものと理解される。

電磁振動を凝固前期と後期の2回印加した試料の共晶割合のばらつきは他の二つの試料に較べて小さかった。この試料の凝固後期に電磁振動を印加開始したときの固相率から推察すると、今回の実験条件における溶質移動可能な限界固相率は約0.7であると推察された。

以上をまとめると以下の通りとなる。

・ 凝固前期における電磁振動の印加により、凝固組織は柱状晶が等軸晶に変化した。

・ 今回の実験条件では、電磁振動印加は重力偏析を低減させた。

・ 後期電磁振動印加開始時における固相率から推察すると、今回の実験条件における溶質移動誘起可能な限界固相率はおよそ0.7であると推定された。

以上より電磁振動は凝固後期においても溶質分布に影響を及ぼす可能性が示唆された。

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① 横田智之、丸山明日香、山田隆志、岩井一彦、振動電磁気力を印加したときにアノード近傍で形成される濃度境界層の直接観察、鉄と鋼、査読あり、Vol. 102(2016)No. 3, 119-126  
DOI:http://dx.doi.org/10.2355/tetsutohagane. TETSU-2015-095
- ② 村上史展、丸山明日香、岩井一彦、電磁振動が合金の偏析に及ぼす影響、鉄と鋼、査読あり、Vol. 102(2016)No. 3, 164-169  
DOI:http://dx.doi.org/10.2355/tetsutohagane. TETSU-2015-057

[学会発表] (計 16 件)

- ① Concentration Boundary Layer under Imposition of Electromagnetic Vibration, International Conference on Magneto-Science 2015, YOKOTA Tomoyuki, MARUYAMA Asuka, YAMADA Takashi and IWAI Kazuhiko October 27-31, 2015, Matsumoto, Japan
- ② Solute distribution control using electromagnetic vibration, International Conference on Magneto-Science 2015, IWAI Kazuhiko, MURAKAMI Fuminobu, and MARUYAMA Asuka October 27-31, 2015, Matsumoto, Japan
- ③ アノード近傍に形成された濃度境界層に及ぼす振動電磁気力の影響 日本鉄鋼協会第 170 回講演大会、福岡、2015 年 9 月 16-18 日 横田智之、丸山明日香、山田隆志、岩井一彦
- ④ Sn-Pb 合金の凝固中における振動電磁場の印加が溶質濃度分布に及ぼす影響 第 9 回日本磁気科学学会年会、高山、2014 年 11 月 13, 14 日 丸山明日香、中村公紀、村上史展、岩井一彦
- ⑤ 電磁場印加しつつ凝固した Fe-Cu 合金の溶質分布 第 9 回日本磁気科学学会年会、高山、2014 年 11 月 13, 14 日 岩井一彦、山本有香
- ⑥ Application of Electromagnetic Vibration to Alloy Modification, 7th CNRS-JSPS France-Japan Joint Seminar IWAI Kazuhiko, MARUYAMA Asuka, October 28-30 2014, Pornichet, France
- ⑦ 振動電磁場印加下で凝固した Sn-Pb 系合金内の溶質分布 日本鉄鋼協会第 168 回講演大会、名古屋、2014 年 9 月 24-26 日 丸山明日香、中村公紀、村上史展、岩井一彦
- ⑧ 振動電磁場印加下での濃度境界層厚み 日本鉄鋼協会第 168 回講演大会、名古屋、

2014 年 9 月 24-26 日 山本有香、上野裕士、熊谷剛彦、山田隆志、岩井一彦

- ⑨ 高マンガン鋼の Mn 濃度分布に与える電磁振動印加の効果 日本鉄鋼協会第 168 回講演大会、名古屋、2014 年 9 月 24-26 日 村上史展、岩井一彦
- ⑩ 振動電磁場が Sn-Pb 系合金の偏析に及ぼす影響 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、札幌、2014 年 9 月 17 日-20 日 丸山明日香、中村公紀、村上史展、岩井一彦
- ⑪ Sn-Pb 合金の偏析に及ぼす振動電磁場印加の影響 平成 26 年度 日本金属学会、日本鉄鋼協会両北海道支部合同サマーセッション、札幌、2014 年 7 月 28 日丸山明日香、中村公紀、村上史展、岩井一彦
- ⑫ 電磁振動が高マンガン鋼中の Mn 濃度に与える影響 平成 26 年度 日本金属学会、日本鉄鋼協会両北海道支部合同サマーセッション、札幌、2014 年 7 月 28 日 村上史展、岩井一彦
- ⑬ Structure control of metallic alloys using electromagnetic field, 6th International Workshop on Materials Analysis and Processing in Magnetic Fields, July 8-11, 2014, Okinawa, Japan, K. Iwai, K. Nakamura, F. Murakami, Y. Yamamoto, T. Nishimura July 8-11, 2014, Okinawa, Japan
- ⑭ 硫酸銅水溶液への振動電磁場印加により誘起される流動の直接観察 平成 25 年度日本金属学会、日本鉄鋼協会両北海道支部合同冬季講演大会、札幌、2014 年 1 月 23, 24 日 上野裕士、山角有貴、熊谷剛彦、岩井一彦
- ⑮ 振動電磁場の印加による合金凝固への影響 平成 25 年度日本金属学会、日本鉄鋼協会両北海道支部合同冬季講演大会、札幌、2014 年 1 月 23, 24 日 中村公紀、大参達也、岩井一彦
- ⑯ 振動電磁場がマイクロスケールの溶質濃度に及ぼす影響 第 8 回日本磁気科学学会年会、仙台、2013 年 11 月 20-22 日 中村公紀 岩井一彦

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

岩井 一彦 (IWAI, Kazuhiko)  
北海道大学・大学院工学研究院・教授  
研究者番号：8 0 2 5 2 2 6 1

### (2) 研究分担者

大参達也 (OHMI, Tatsuya)  
北海道大学・大学院工学研究院・准教授  
研究者番号：9 0 1 6 9 0 6 1

熊谷剛彦 (KUMAGAI, Takehiko)  
北海道大学・大学院工学研究院・助教  
研究者番号：2 0 2 5 0 4 7 5