

令和 5 年 6 月 26 日現在

機関番号：14301

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K15071

研究課題名（和文）四次元その場観察による凝固組織をベースとした固液共存体の力学挙動の解明

研究課題名（英文）Modeling the mechanical behavior of semisolid alloy supported by solidification microstructure through four-dimensional in-situ observation

研究代表者

鳴海 大翔（Narumi, Taka）

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：20827448

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）：金属材料の casting プロセスにおいて固液共存体となった金属合金が変形すると、マクロ偏析や casting 割れの原因となる。固相と液相の混合体である固液共存体の力学は、連続体力学や流体力学ではカバーできず、力学挙動が内部組織と密接に関係していることは認識されているものの、変形モデルが確立されていない。本課題ではX線イメージング技術を用いて、内部組織を制御した固液共存体の変形過程を直接観察し定量解析する。定量データに基づいて固液共存体が不均一変形する際の固液共存体の組織の特徴を評価することで、固液共存体の変形機構を実証的に明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

大型放射光施設のSPring-8の放射光の特長を活かしたX線イメージング技術を用いて、金属材料の生産性や特性の限界に影響を及ぼす casting 欠陥の形成過程の三次元・時間分解その場観察を実現した。観察データを用いた変形している固液共存組織の定量評価により、固液共存体の変形挙動が明らかになった。定量データは今後モデル構築に活用されるだけでなく、組織形成シミュレーションや物性値の妥当性評価にも用いることができ、その知見は金属材料の生産プロセスの発展に貢献する。

研究成果の概要（英文）：Semisolid deformation of metallic alloys during casting processes often cause macrosegregation, cracking and hot tear. The mechanics of semisolid alloys, which are mixtures of the solid and the liquid phase, cannot be covered by solid or liquid mechanics. In addition, although it is well known that the mechanical behavior of semisolid alloys is closely related to the internal microstructure, no deformation model is built. In this project, X-ray imaging techniques are used for in-situ observation and quantification of deformation behavior of semisolid alloys with controlled internal microstructure. The deformation mechanism of semisolid alloys was demonstrated using quantitative data for deformation microstructure in semisolid alloys during non-uniform deformation.

研究分野：金属・資源生産工学

キーワード：凝固 鋳造 固液共存体 マクロ偏析 鋳造割れ 放射光 時間分解トモグラフィ/4D-CT 三次元X線回折/3DXRD

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

金属材料の casting プロセスにおいて固液共存体状態となった金属合金は、凝固収縮や熱収縮などの内因要因および重力や電磁気力など外力による外的要因により変形する。変形するとマクロスケールの溶質濃度の不均一（マクロ偏析）や casting 割れといった casting 欠陥が形成し、材料の特性や生産性に影響を及ぼす。

金属合金の高温の固相と液相はそれぞれ力学挙動が既知の連続体である粘弾性体およびニュートン流体として振る舞うが、固相と液相の混合体は粘弾性体やニュートン流体とは異なる特徴的な力学挙動を示す。そのため、固相と液相の混合体を固液共存体と呼ぶ。固液共存体の特徴的な力学挙動の一つにレオロジーの分野で **Reynolds dilatancy** と呼ばれるみかけの体積膨張がある。図 1 は連続体および固液共存体にせん断応力が作用した際の粒子スケールの変形組織の模式図である。連続体である固体がせん断変形すると均一に変形する。一方、固液共存体はせん断に対して不安定であり、せん断応力が作用するとせん断変形が局在化し不均一変形する。固相粒子スケールでは、せん断応力が固液共存体に作用すると固相粒子自体はほとんど変形せずに並進運動や回転運動して応答することで固液共存体がマクロな外形が変わる。この固相粒子の運動を再配列と呼ぶ。再配列の際に固相粒子同士が物理的に接触して粒子間相互作用(斥力や摩擦力)を起し、せん断面の法線方向にも応力が作用する。この法線方向の応力に起因して固相粒子同士が逆方向に移動するため、局所的に固相粒子間の距離が拡大してみかけ体積が膨張し局所的に固相率が低下する。固相率が低下した領域では局所的にみかけ粘性が低下して変形し易くなり、さらにせん断変形の局在化と局所的な固相率の低下が進み、せん断帯(不均一変形帯)が形成する。**Reynolds dilatancy** がせん断帯の形成を通じて casting 欠陥の形成に寄与することが指摘されている。液相中に固相粒子が分散した組織が力の伝搬に影響を及ぼして発現する **Reynolds dilatancy** やせん断変形の局在化を記述できる物理モデルが確立されると、連続体力学だけでは説明できない casting 欠陥の形成機構に適用できるようになり、その意義は大きい。固液共存体の変形機構を検証するには変形過程の固相粒子の再配列を評価する必要があるが、凝固後の組織から把握することは困難である。これが本研究課題で時間分解 X 線イメージングを用いて固液共存体の変形を固相粒子スケールでその場観察する動機である。

高温現象であり可視光不透である金属合金の固液共存体内部の変形過程を直接捉えるために、大型放射光施設の高輝度の硬 X 線領域の放射光を用いて固液共存体の変形過程のその場観察が近年行われている。Al 合金や Fe 合金の固液共存体の変形を透過観察した結果、固相粒子同士が物理的に接触による再配列により、 casting 欠陥の形成につながる不均一変形帯(せん断帯)の形成が実証されている。また、時間分解 X 線 CT(4D-CT)を用いて、引張・圧縮試験の際の固相粒子の再配列の三次元定量解析が進められている。これらの研究は、粒状の固相粒子を対象としており、固相粒子の形態が固液共存体の不均一変形に及ぼす影響を明らかにできれば、 casting 欠陥の抑制の観点から凝固組織を制御する基礎指針が構築できる可能性がある。

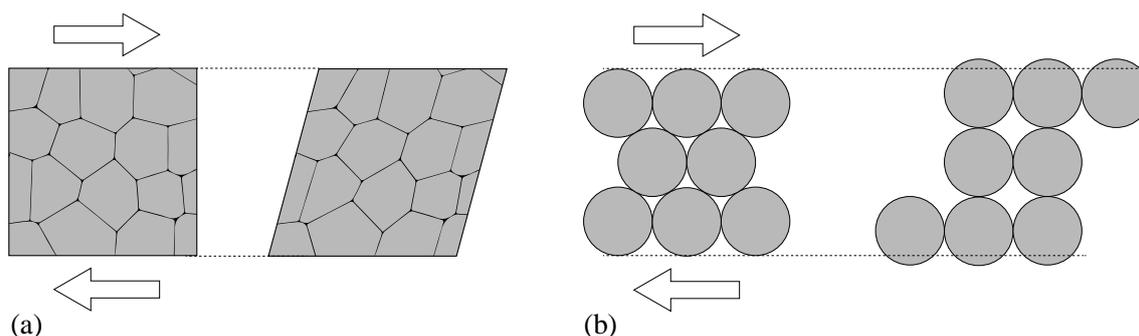


図 1 (a)連続体のせん断変形, (b)固液共存体のせん断変形; 固液共存体は粒子間相互作用が働き、せん断面の法線方向に応力が作用することで、破線で示したように外形が拡大(みかけ体積が膨張)している。

2. 研究の目的

本課題は、放射光の特長を活かして 4D-CT と三次元 X 線回折(3DXRD)を組み合わせた時間分解 X 線イメージング技術を用いて、固液共存体内部の変形組織をその場観察し、粒子スケールの組織変化からマクロな不均一変形に結びつけるための定量データの獲得を目的とした。X 線イメージングと同時計測した力学特性に基づいて固液共存体が不均一変形する際の固液共存体の組織の特徴を調査することで、凝固組織の情報を包含した固液共存体の力学の基礎モデルの構築を目指した。

3. 研究の方法

研究を進める上での以下の項目を設定し、研究課題を遂行した。

(i) 固相粒子の形状・形態の制御手法の検討

申請者のこれまでの研究で、合金の主要な構成元素よりも(ア)添加元素の酸素および硫黄との親和性が高い場合、(イ)添加元素の原子半径が大きい場合、に熔融金属中の固相粒子の形態が変化する傾向があることが分かっていた。本研究では、Na、Mg、Biなどの添加元素によって初晶Siの形態を大きく変化させることが可能なSi-Al合金、およびAlなど添加元素によってSiCの形態を変化させることができるSiC粒子がSi系合金に分散した複合材を供試材として予定していた。後者のSiC粒子がSi系合金に分散した複合材に関しては目標の組織に制御することは可能ではあったが、X線イメージングに供するに適した試料を作製することは困難であった。

(ii) 4D-CT、3DXRD、力学特性の同時計測による固液共存体の変形過程の定量解析

Al-Cu合金をモデル試料とし、粒状および樹枝状の固相粒子が含まれるように試料を調整した。組織が調整された試料を円筒状のアルミナセル内で加熱して固相率0.4-0.95の固液共存体とし、上部から試料と同じ直径の円柱状のアルミナ棒により圧下して圧縮を行った。時間分解X線イメージングその場観察はSPRING-8で行った。回転する試料からのX線透過像をビームモニターで連続的に撮影して4D-CT測定を行った。半周分の透過像を用いて再構成を行い、固液共存体の三次元組織の時間変化を取得した。縦方向に50-100 μmにスリットを切ったX線を回転する試料の上部から下部に向解像像結晶方位像を撮影し3DXRD測定を行った。圧縮過程の試料の応力-歪関係を上部のアルミナ棒と接続しているロードセルによって測定した。以上の三種類の計測に基づいて、固相率および固相粒子の形態・形状と再配列の関係を定量的に解析した。図2がセットアップの模式図である。

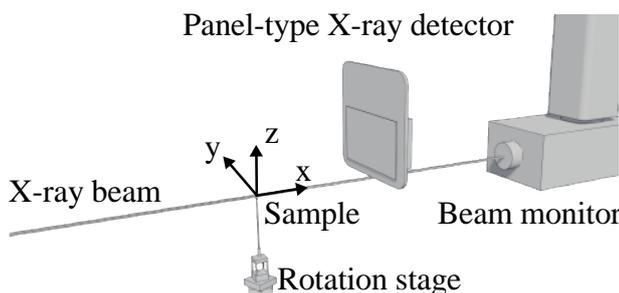


図2 4D-CTおよび3DXRDのセットアップ模式図. [1]

4. 研究成果

図3は、粒状の固相粒子をもつAl-Cu合金の固液共存体の再構成像から固相粒子のみを抜き出した三次元像である。個別の固相粒子をグレースケールで示している。観察視野には平均球相当径220 μmの212個の固相粒子が存在していた。圧縮前の固相率は0.8であり、マクロ偏析はなく固相粒子は均一に分布していた。また、固相粒子間には液相が存在しており、個別の固相粒子は力学的に独立していた。圧縮は計3回行い、合計で4%圧縮した。

図4は、再構成像の水平スライスと垂直スライスである。明るい領域と暗い領域はそれぞれ液相および固相であり、試料内の黒い領域はポロシティである。4%圧縮するまでに固相粒子の形状の変化はなく、固相粒子の再配列により試料が変形していることがわかる。再配列によって固相粒子間の距離が拡大し、その領域に液相が流入することで局所的に固相率が低下している。また、液相の流動によりポロシティが拡大している。3DXRDによる解析の結果、固相粒子の距離が拡大した領域の固相粒子は拡大した領域を挟んで逆方向に回転し、回転軸方向は並進移動方向と垂直になる傾向にあった。この観察結果から固相率0.8で平均球相当径220 μmの固相粒子が分散した固液共存体において、圧縮の初期段階である1%圧縮の時点で、固相粒子間

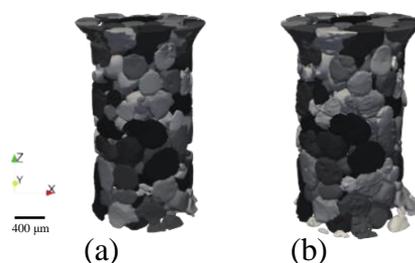


図3 固液共存体の三次元像; (a) 圧縮前, (b) 4%圧縮後; 圧縮はz方向である. [1]

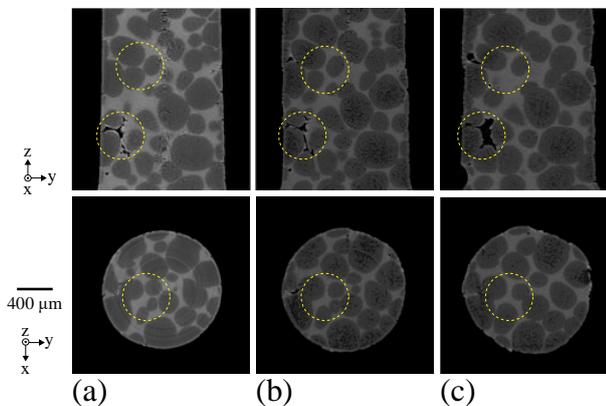


図4 三次元像の垂直断面および水平断面; (a) 圧縮前, (b) 1%圧縮後, (c) 4%圧縮後; 破線で囲んだ領域で固相粒子間の距離の拡大とポロシティの拡大が見られる. [1]

に相互作用が働いて局所的なみかけの体積膨張が生じ、不均一変形が開始した。すなわち、固液共存体の変形がバンド状の偏析帯の形成だけではなく、ポロシティ・割れの形成にも寄与することを実証した。

樹枝状の固相粒子を持つ Al-10mass%Cu 合金の固液共存体の試料を作製するため、試料をセル内で一度融解させたのち、一定速度で冷却させた。その過程を 4D-CT で観察すると核生成した等軸晶は浮上・沈降したのちにスタックした。等軸晶のスタックを確認した時点で冷却を停止し、温度保持した。その際の固相率は 0.3 程度であった。固相の体積から計算した平均球相当径は 160 μm であり、観察領域には 694 個の固相粒子が存在していた。また、ポロシティも存在していた。試料を圧縮すると、固相同士が物理的に接触していたため、固相粒子の再配列が生じて局所的なみかけの体積膨張が生じていた。固相率が比較的低く液相透過率が小さいため、固相の再配列による圧力変化を液相が補償しており、ポロシティの拡大は起きなかった。

以上のように、固液共存体の変形過程の三次元・時間分解観察が可能となり、変形組織の定量評価ができるようになった。この X 線イメージング技術を駆使して、金属材料の鑄造欠陥の形成に寄与している固液共存ダイナミクスの理解と学術基礎の構築を目指す。

参考文献

[1] Narumi et al. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, **1274**(2023) 012053.
<https://doi.org/10.1088/1757-899X/1274/1/012053>

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 Narumi T, Ohta K, Ohta M, Numata T, Asahi K, Katsube R, Yasuda H	4. 巻 1274
2. 論文標題 Observation of grain motion during semisolid deformation by using 4D-CT and 3DXRD	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 IOP Conference Series: Materials Science and Engineering	6. 最初と最後の頁 012053 ~ 012053
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1757-899x/1274/1/012053	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18件（うち招待講演 3件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 鳴海大翔
2. 発表標題 －金属合金の凝固プロセスを視て、測る－X線イメージングを利用した金属合金における凝固現象の実証的理解と組織制御への応用
3. 学会等名 名古屋大学グリーン構造材料インフォマティクス研究部門(GiSM)第二回ワークショップ（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 鳴海大翔, 太田誠, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 デンドライトアームの変形により誘起される分断現象の時間分解透過X線イメージング観察
3. 学会等名 日本鉄鋼協会春季第185回講演大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 沼田泰佑, 鳴海大翔, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 Al-Cu合金の固液共存体の圧縮試験におけるせん断帯の形成過程の解析
3. 学会等名 日本金属学会2023年春季第172回講演大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 太田誠, 鳴海大翔, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 鑄造組織の微細化を目指した, 時間分解X線イメージングを用いた変形による Al-Cuデンドライトの分断過程の解析
3. 学会等名 日本鑄造工学会関西支部令和4年度 秋季支部講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hideyuki Yasuda, Taka Narumi, Ryoji Katsube
2. 発表標題 Fragmentation of Dendrite Arms and Grain Refining: In-Situ Observation Using Synchrotron Radiation X-Rays
3. 学会等名 International workshop on Electromagnetic Metallurgy and Materials Science with High Magnetic Field (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 太田誠, 鳴海大翔, 沼田泰介, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 デンドライトアームの変形により誘起される分断現象
3. 学会等名 日本鉄鋼協会秋季第184回講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 沼田泰佑, 太田誠, 鳴海大翔, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 変形によるAl-Cuデンドライトの多結晶化の4D-CT/XRDを用いたその場観察
3. 学会等名 日本金属学会2022年秋季第171回講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Taka Narumi, Koki Ohta, Makoto Ohta, Taisuke Numata, Kentaro Asahi, Ryoji Katsube, Hideyuki Yasuda
2. 発表標題 Observation of grain motion during semisolid deformation by using 4D-CT and 3DXRD
3. 学会等名 6th International Conference of Advances in Solidification Process (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鳴海大翔, 大田滉貴, 太田誠, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 4D-CTを用いたAl-Cu合金の固液共存体の圧縮変形におけるポロシティ形成のその場観察
3. 学会等名 軽金属学会第142回春期大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鳴海大翔, 大田滉貴, 太田誠, 沼田泰祐, 朝日健太郎, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 放射光を用いたAl-Cu合金固液共存体の変形の時間分解・三次元その場観察
3. 学会等名 日本鑄造工学会第179回全国講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鳴海大翔, 大田滉貴, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 4D-CTによるAl-Cu合金の固液共存体の圧縮過程の定量解析
3. 学会等名 日本金属学会2022年春季第170回講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鳴海大翔, 安田秀幸
2. 発表標題 固液共存体の変形過程における固相粒子の再配列のその場観察
3. 学会等名 日本鉄鋼協会春季第183回講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鳴海大翔, 大田滉貴, 太田誠, 勝部涼司, 安田秀幸, 杉山明
2. 発表標題 Al-Cu合金の固液共存体の変形によるポロシティ・割れの形成過程の時間分解・三次元その場観察
3. 学会等名 日本鑄造工学会関西支部第33回関西鑄造懇話会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鳴海大翔, 大田滉貴, 太田誠, 勝部涼司, 安田秀幸, 杉山明
2. 発表標題 Al-Cu合金の固液共存体の変形による鑄造欠陥の形成過程の三次元・時間分解その場観察
3. 学会等名 日本鑄造工学会関西支部令和3年度 秋季支部講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鳴海大翔, 大田滉貴, 太田誠, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 4D-CTと3DXRDを用いたAl-Cu合金等軸晶の固液共存体の変形のその場観察
3. 学会等名 軽金属学会第141回秋期大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 太田誠, 鳴海大翔, 大田滉貴, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 時間分解トモグラフィと結晶方位解析によるAl-Cu合金デンドライトの変形と溶断のその場観察
3. 学会等名 軽金属学会第141回秋期大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鳴海大翔, 大田滉貴, 太田誠, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 4D-CTと3DXRDによる高固相率のAl-Cu合金等軸晶の固液共存体の変形過程のその場観察
3. 学会等名 日本金属学会2021年秋季第169回講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大田滉貴, 鳴海大翔, 勝部涼司, 安田秀幸
2. 発表標題 4D-CT/3DXRDによるAl-Cu合金の固液共存体の圧縮過程の定量解析
3. 学会等名 日本金属学会2021年秋季第169回講演大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

Cover Photo 著者: 鳴海大翔, 太田誠, 勝部涼司, 安田秀幸 題目: 三次元・時間分解X線イメージングによる固液共存領域の変形機構の実証的理解 雑誌: 日本鑄造工学会関西支部通信第10号

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
---------	---------