

# 放射光を利用した金属合金における 固液共存体のせん断変形とその場観察

柳 楽 知 也<sup>1)</sup> 安 田 秀 幸<sup>2)</sup> C. M. Gourlay<sup>\*\*</sup> 杉 山 明<sup>\*\*\*</sup>  
吉 矢 真 人<sup>3)</sup> 上 杉 健 太 朗<sup>1)\*\*\*\*</sup> 梅 谷 啓 二<sup>2)\*\*\*\*</sup>

## 1. はじめに

凝固プロセスにおいて発生する組成の不均一なマクロ偏析は、機械的特性の低下を招くため、その低減や予測が課題となっている。マクロ偏析の主な要因として、固液共存領域での溶質が濃化した液相の流動<sup>(1)</sup>と、固液共存体(固相と液相が共存したマクロな連続体)の変形による固相と液相領域の分離が挙げられる。両者ともに温度差、濃度差による自然対流、熱収縮、凝固収縮、鋳造プロセスで発生する外力などが変形や流動の駆動力となる。前者の固液共存領域における濃化液相の流動に関しては、理論・実験両面での詳細な研究があるのに対して、後者の固液共存体の変形に関しては、固液共存体のみかけの粘性と固相率の関係や、マクロな力学特性の評価が大半であり、偏析形成の機構を主眼とした研究が少ないのが現状である<sup>(2)-(8)</sup>。例えば、大きな力が作用する遠心鋳造法や高圧鋳造法の場合、固液共存体の変形が要因とされるバンド偏析と呼ばれるマクロ偏析が発生する<sup>(9)(10)</sup>。定性的には偏析形成を理解できるが、固相粒子スケールでの固液共存体の変形機構は解明されていない。

図1は固液共存体のせん断変形によって形成されるせん断帯の模式図である。固相粒子同士の衝突が起こる固相率を有する固液共存体に対してせん断力を印加すると、不均一変形が起こり、固相率が低下したせん断帯が形成されることがあ

る。凝固後にはバンド状の偏析帯となり、ポロシティ欠陥を含むこともある<sup>(11)(12)</sup>。せん断変形過程では、液相と固相粒子の相互作用、固相粒子同士の衝突の相互作用によって液相の流動、固相粒子の変形・移動など起こり、これらの運動に伴って凝固組織の変化が起きる。そのため従来の凝固後の組織観察では、固相と液相の独立した運動によって起こる変形

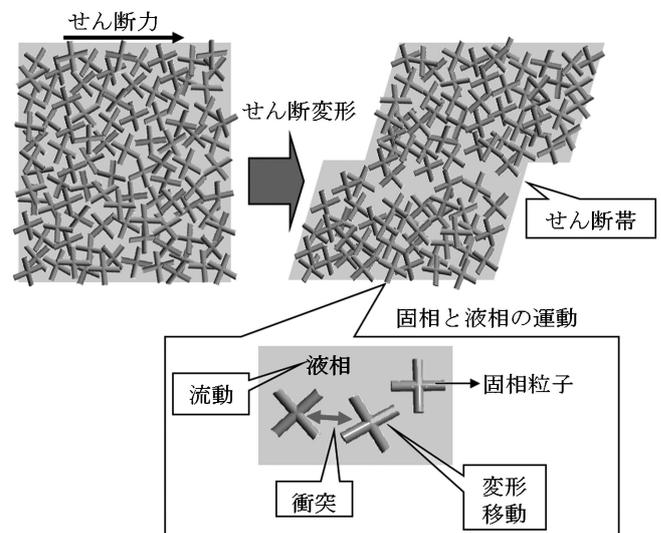


図1 固液共存体のせん断変形によるせん断帯形成の模式図。

\* 大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻; 1)助教 2)教授 3)准教授(〒565-0871 吹田市山田丘 2-1)

\*\* インペリアルカレッジロンドン, 材料学科; Royal Academy of Engineering Research フェロー

\*\*\* 大阪産業大学工学部教授; 交通機械工学科

\*\*\*\* 高輝度光科学研究センター利用促進部門; 1)研究員 2)主幹研究員

Direct Observation of Shear Deformation in Semi-solid Alloys Using X-ray Imaging; Tomoya Nagira\*, Hideyuki Yasuda\*, C. M. Gourlay\*\*, Akira Sugiyama\*\*\*, Masato Yoshiya\*, Kentarou Uesugi\*\*\*\*, Keiji Umetani\*\*\*\* (\*Department of Adaptive Machine Systems, Osaka University, Suita. \*\*Department of Materials, Imperial College London, London. \*\*\*Department of Engineering, Osaka Sangyo University, Daitou. \*\*\*\*Japan Synchrotron Radiation Research Institute, Sayou)

Keywords: shear deformation, semi-solid, X-ray imaging, shear band, segregation

2012年9月12日受理

過程を正確に知ることは困難である。また、固相粒子と液相の運動は一致していないため、固液共存体を一つの連続した粘性体として取り扱えば、本質的な変形の理解には繋がらない。これまでに固液共存体の変形現象として、固相粒子の非凝集化・凝集化<sup>(5)</sup>、固相粒子の変形<sup>(7)</sup>、みかけの体積膨張による偏析帯の形成<sup>(11)(12)</sup>などが報告されている。さらに固液共存体の変形現象は固相率、固相粒子の大きさ・形状、液相の粘性、せん断速度など多数の因子の影響を受け、変形過程での組織が変化する。これらの因子の影響を個々に理解し、変形過程を明らかにするために最も有効な手段は、固相粒子スケールでの変形過程のその場観察である。

近年、SPring-8(日本)、ESRF(EU)、APS(米国)に代表される第三世代大型放射光施設において、硬 X 線単色光の X 線イメージングを利用した金属合金の凝固過程の時間分解その場観察が実施されている<sup>(13)-(17)</sup>。これまでに Sn 合金、Al 合金、Zn 合金を対象にデンドライト成長、デンドライトアームの溶断などの組織形成過程のその場観察が報告されている<sup>(18)(19)</sup>。著者らは、高融点である鉄鋼材料のその場観察技術を構築し、純鉄から铸铁に至るまで、幅広い組成でのその場観察に成功している<sup>(20)-(22)</sup>。これらの技術を利用して、Fe-C 系合金、Al-Cu 系合金の固液共存体のせん断変形過程を、固相粒子スケールでその場観察可能な手法を開発した<sup>(23)-(27)</sup>。本稿では、Fe-C 系合金、Al-Cu 系合金の固液共存体のせん断変形その場観察例を紹介し、せん断帯の形成機構およびせん断変形組織の特徴について概説する。

## 2. X 線イメージングを利用した固液共存体のせん断変形その場観察手法の開発

その場観察は、SPring-8 のイメージングのビームラインである BL20B2 にて行った。実験ハッチ内のその場観察装置の配置を図 2(a)<sup>(20)</sup>に示す。X 線ビームの経路上上流側から X 線用のスリット、イオンチャンバー、その場観察用装置の真空チャンバー、X 線検出器が設置されている。真空チャンバー内にグラファイトヒータが設置されており、その内部にその場観察用のセルが配置してある。固液共存状態でせん断変形を与えるための試料セルの構造を、図 2(b)<sup>(27)</sup>に示す。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 板からなる鋳型を作製し、鋳型内に試料(10 mm 角、厚さ 150-200 μm)を配置している。鋳型を Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 板および BN 板で挟んで固定している。セルの下部には、試料に対してせん断力を印加するための Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 板を配置している。下部の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 板は Z ステージと接続されており、一定の速度で上昇させることが可能である。本稿において Fe-C 系合金、Al-Cu 系合金の場合、それぞれ 50 μm/s、30 μm/s の速度である。チャンバー内を 10 Pa 以下に減圧し、一定の温度(Fe-C 系合金：1200-1400 °C、Al-Cu 系合金：500-600 °C)に保持し、所望の固相率となった時、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 板を挿入して試料に対してせん断力を印加し、変形過程を時間分解でその場観察を行った。X 線直接変換型撮像管の SATICON<sup>(28)</sup>を用いて透過像を撮影した。透過像のコント

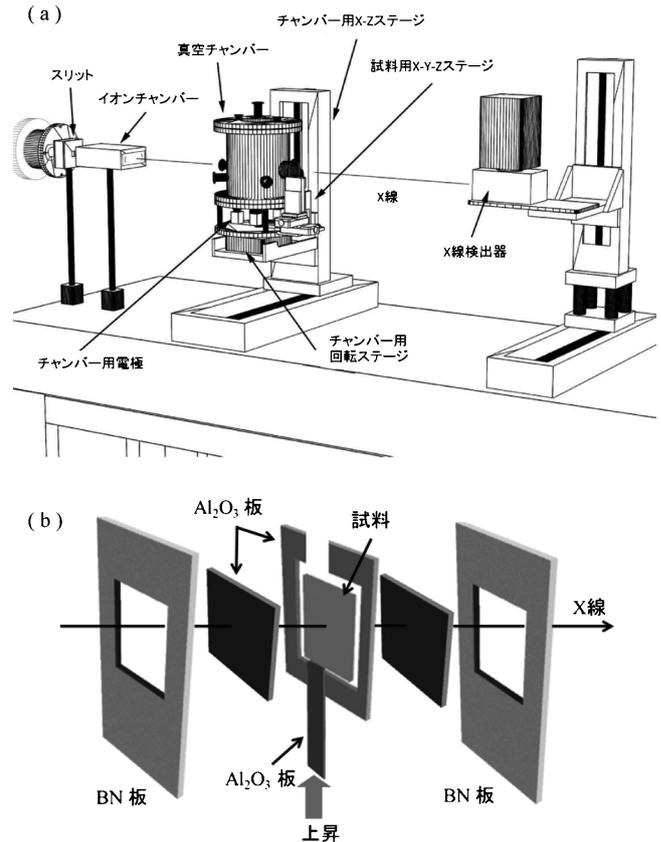


図 2 (a) 固液共存体のせん断変形その場観察装置の配置<sup>(20)</sup>と (b) 試料セルの模式図<sup>(26)</sup>。

ラストが最良となるように X 線エネルギーを Fe-C 系合金、Al-Cu 系合金でそれぞれ 20 keV、15 keV と設定した。S/N 比を向上させるために透過像を積算した。観察視野がおおよそ 5 mm 角であり、ピクセルサイズは 5.1 μm である。露光時間はおよそ 1 s である。

## 3. Fe-C 系合金における固液共存体のせん断変形その場観察<sup>(23)</sup>

### (1) 固液共存体のせん断変形前の組織

その場観察で用いた Fe-C 系合金の組成は、Fe-2.08C-0.87Mn-0.45Si (mass%) である。この組成は、固液共存領域の温度範囲が広く固相率の制御が容易であるため、鉄鋼材料のせん断変形試験にとって最適な組成であるが、半熔融加工法にも適用可能な候補でもある。半熔融状態で鋳造を行う半熔融加工法は加工力の低減、金型の寿命の向上といった優れた特徴を有しており、Al 系、Mg 系合金だけでなく、近年、鉄鋼材料にも応用する研究が進んでいる<sup>(8)(29)-(32)</sup>。

固相粒子の形態および粒径が異なる 2 種類の固液共存状態の組織を作製した。図 3 は、せん断変形前の平均粒子径 (a) 310 μm、(b) 120 μm の固相粒子が分散した組織の X 線透過像である。液相よりも固相の密度が高いため、輝度の低い黒色の領域が固相、輝度の高い灰色の領域が液相である。図

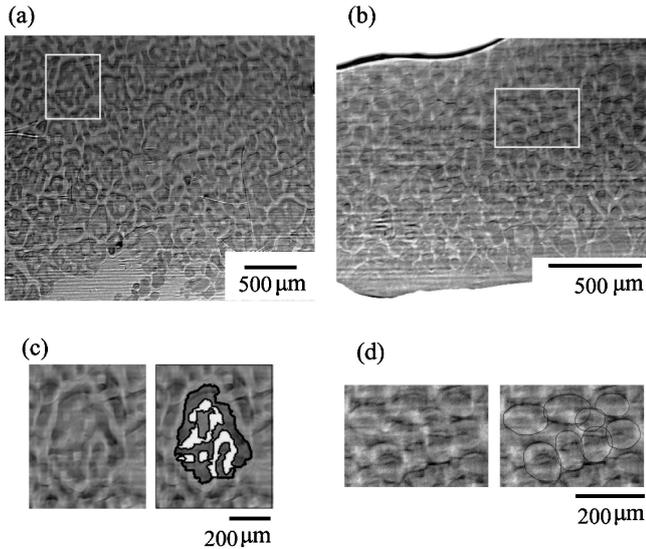


図3 固液共存状態 Fe-C 合金の X 線透過像<sup>(23)</sup>. (a), (c) 液相を内包した Cloudy-like 形状の固相粒子 (粒径 310 μm) が分散した組織. (b), (d) ほぼ球状の固相粒子 (粒径 120 μm) が分散した組織. (c), (d) 図(a), (b)の固相粒子の拡大図. 固相の輪郭を黒, 図(c)中の固相内の液相を白で表す.

3(c), (d)は図3(a), (b)中の白枠内の固相粒子を拡大した X 線透過像である. 図3(c)の中で固相粒子内に内包した液相を白色で示す. また図3(c), (d)中で固相粒子の輪郭を黒色で示す. 図3(c)の粒径 310 μm の固相粒子が分散した試料において, 固相粒子は液相を内包しており, 球形から大きくずれた形状である. この組織に類似した固相粒子は, 他の Fe-C 系合金においても報告されており, “Cloudy-like”<sup>(29)</sup> と呼ばれている典型的な固液共存状態の組織の一つである. 主に柱状デンドライト組織を再溶解し, 固液共存状態を保持した時に形成する. 一方, 図3(d)の粒径 120 μm の固相粒子が分散した試料では, 固相粒子はほぼ球状に近く, 内部に液相は含まれていない. 等軸晶から成る組織を再溶解すると形成する.

二種類の組織の固相粒子の形態を評価するために以下で表される形状因子 (Shape factor :  $F$ ) を用いた.

$$F = 4\pi \frac{A}{U^2} \quad (1)$$

ここで  $A$  は粒子の面積,  $U$  は粒子の周囲長で球の場合 (X 線透過像では円)  $F$  は 1 となる. 粒径 310 μm, 120 μm の固相粒子が分散した試料においてそれぞれ 0.64, 0.94 であり, 前者の固相粒子が後者に比べて球形から大きく外れた形状であることが分かる.

## (2) 透過 X 線強度を利用した固相率の算出

せん断変形前の初期固相率は, 透過 X 線強度を利用した三次元空間での評価を行った<sup>(24)</sup>. 試料厚さは変化しないと仮定し, 固相のみの透過 X 線強度  $I_S$ , 液相のみの強度  $I_L$ , 固液共存状態の強度  $I_{SL}$  を算出する.

$$I_S = I_0 e^{-(\mu_{\text{cell}} t_{\text{cell}})} e^{-(\mu_S t_{\text{specimen}})} \quad (2)$$

$$I_L = I_0 e^{-(\mu_{\text{cell}} t_{\text{cell}})} e^{-(\mu_L t_{\text{specimen}})} \quad (3)$$

$$I_{SL} = I_0 e^{-(\mu_{\text{cell}} t_{\text{cell}})} e^{-(\mu_L (t_{\text{specimen}} - t_S))} e^{-(\mu_S t_S)} \quad (4)$$

$I_0$  は入射 X 線強度,  $\mu_{\text{cell}}$ ,  $\mu_L$ ,  $\mu_S$  は, それぞれアルミナセル, 液相, 固相の線吸収係数である.  $t_{\text{cell}}$ ,  $t_{\text{specimen}}$ ,  $t_S$  はそれぞれアルミナセル, 試料, 固相の厚さである. 式(2)から式(4)より, 固相の X 線ビーム方向での長さの比は

$$\frac{t_S}{t_{\text{specimen}}} = \frac{\ln I_{SL} - \ln I_L}{\ln I_S - \ln I_L} \quad (5)$$

ある固液共存体の領域  $D$  における固相率  $[g_S]_D$  は次式で表される.

$$[g_S]_D = \frac{\ln I_{SL} - \ln I_L}{\ln I_S - \ln I_L} \quad (6)$$

式(6)より算出した固相率 ( $g_S$ ) は, 粒径 310 μm の固相粒子が分散した試料 (図3(a)) において約 40% である. ただし, 固相粒子に内包されている液相の割合 ( $g_{\text{int}}^{\text{L}}$ ) は約 25% であり, 内包された液相を含めると, 固相同士が相互作用を及ぼす有効固相率  $g_{\text{env}} (= g_{\text{int}}^{\text{L}} + g_S)$  は, 約 65% である. 一方, 粒径 120 μm の固相が分散した試料 (図3(b)) の固相率は約 55% である.

## (3) 固液共存体のせん断変形によるせん断帯形成のその場観察

液相を内包した Cloudy-like 状の固相粒子 (粒径 310 μm) が分散した試料のせん断変形のその場観察例を図4に示す. 図4(a), (b) 中において, せん断力を印加するための  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板が右下に配置してある. 図4(a)の組織に対して,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板を  $2d$  分 (固相粒子の平均粒子径  $d$  で  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板の挿入距離を規格化した.  $2d$  は, 固相粒子 2 個分挿入したことを意味する) 挿入した後の組織が図4(b)である. また, 図4(c)-(f) は図4(a)の白枠内における約  $0.7d$  間隔の拡大図である. 図4(g)-(j) は図4(c)-(f) と同一領域であり, 液相領域を白色, 固相粒子の輪郭を黒で示している. 図4(a), (b) 中の黒いバンド状のラインは, 入射 X 線が試料を挟んでいる  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板の一部において, プラグの反射条件を満たして回折し, 試料後方に配置している X 線検出器にほとんど透過 X 線が到達しなかったことに起因し, 試料の変化とは無関係である.

せん断力を印加する  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板の前方では, 主に固相粒子は上方向に並進運動している. 一方, 図4(a)の白枠領域のせん断領域では, 固相粒子同士の衝突および衝突による固相粒子の並進・回転運動が頻繁に起きている. 図4(c)-(f), (g)-(j) の連続画像から明らかのように, せん断力の印加に伴い, 主にせん断領域において固相率が低下しており, 低固相率の領域が, せん断方向に対して平行方向にバンド状に形成されている. ここで低固相率の形成にとって重要な役割を果たしている 5 個の固相粒子 (A)-(E) に着目した. 図4(k)-(n) 中にそれらの固相粒子を示す.  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板が上昇するにつれて, 固相粒子 A から B, B から C へと固相粒子同士の衝突によって応力が伝播し, 固相粒子 C が並進・回転運動す

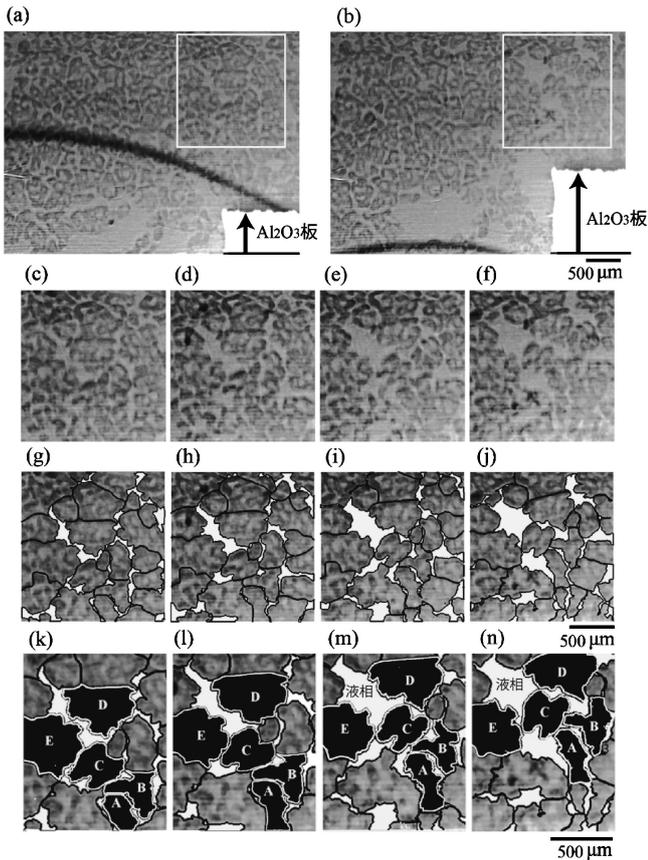


図4 液相を内包した Cloudy-like 形状の固相粒子 (粒径  $310\ \mu\text{m}$ ) が分散した Fe-C 合金のせん断変形の場合の観察例<sup>(23)</sup>. (a), (b)  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板を  $2d$  挿入した前後の X 線透過像. (c)-(f) 図(a)の白枠内における約  $0.7d$  間隔の X 線透過像 (図(c), (f) はそれぞれ図(a), (b)の白枠内の領域). (g)-(j) 図(c)-(f)と同一の領域. 固相粒子の輪郭を黒, 液相を白で示す. (k)-(n) 図(g)-(j)内と同一の領域. A-E は固相率低下に主に寄与する5つの固相粒子.

ることによって, C が E をせん断方向に対して垂直方向に近い左方向, D を上方向にそれぞれ押し出し, ED の間隙が広がる. 固相粒子の間隙が広がると同時に, 周囲から液相がその間隙に流れ込むことによって, 固相率の低い領域が形成される. ここで固相粒子の運動として重要な点は, 単純に個々の固相粒子はせん断方向のみに移動するのではなく, せん断方向に対して垂直方向に近い方向に移動することである.

せん断領域では, 固相粒子同士の並進・回転運動(固相粒子の再配列)が頻繁におこり, 固相粒子の間隙が広がることによって, 固相率の低いせん断帯が形成することが, 固相粒子スケールで明らかになった. 本実験条件では, せん断速度は約  $10^{-3}\ \text{s}^{-1}$  であり非常に遅く, また有効固相率は65%であり, 液相中での固相粒子の移動は比較的容易である. この変形速度が遅い条件下では, 液相の流動性は比較的高く, 固相粒子の間隙が広がると同時に液相が流れ込み, 固相率の低い領域が形成されていた.

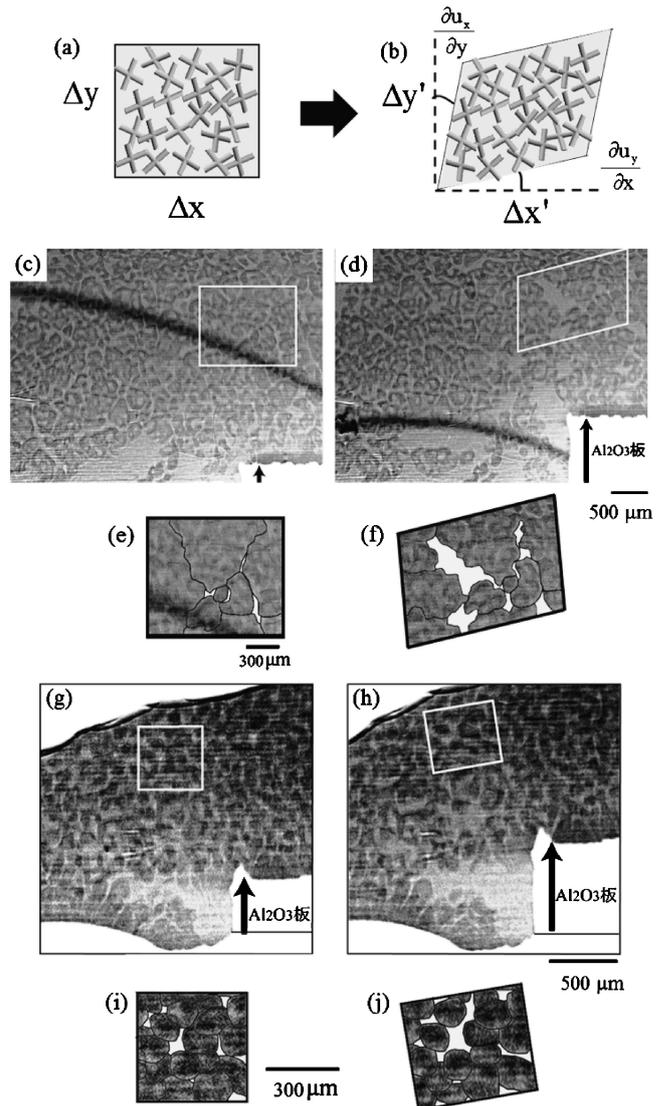


図5 (a), (b) 固液共存体のせん断変形モデルの模式図<sup>(23)(27)</sup>. (c), (d) 液相を内包した Cloudy-like 形状の固相粒子 (粒径  $310\ \mu\text{m}$ ) が分散した組織における  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板を  $2d$  挿入した前後の X 線透過像. (e), (f) 図(c), (d)の白枠領域の拡大図. (g), (h) ほぼ球状の固相粒子 (粒径  $120\ \mu\text{m}$ ) が分散した組織における  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板を  $2.2d$  挿入した前後の X 線透過像. (i), (j) 図(g), (h)の白枠領域の拡大図.

#### (4) 固液共存体のせん断変形によるみかけの体積膨張と固相形態の影響

固液共存体のせん断変形によって固相率が低下する領域に着目し, 図3(a), (b)で示した2種類の形態が異なる固相粒子が分散した固液共存状態の試料において, せん断変形による体積ひずみの変化を調べた. 図5(a), (b)に示すように, ある固相率の固液共存体の領域  $\Delta x \Delta y$  の領域が, 固体力学における固体の変形と同様に  $\frac{\partial u_x}{\partial x}, \frac{\partial u_x}{\partial y}$  の線素の方向の変化により,  $\Delta x' \Delta y'$ へと変形するせん断変形モデルを考えた. 図5(c), (d)は, Cloudy-like 状の固相粒子 (粒径  $310$

$\mu\text{m}$ )が分散した固液共存状態の試料に対して  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板を  $2d$  挿入する前後の X 線透過像である。図 5(c)の白枠領域の図 5(e)の領域を対象とした。せん断変形過程において、領域内の固相粒子の位置を追跡することによって、図 5(d)の白枠領域の図 5(f)へと変形していることが分かった。二次元平面での画像解析により液相率は、約 1%から約 10%へと増加している。また、試料厚さがせん断変形前後で変化しないと仮定すると、体積ひずみが約 15%増加している。つまりせん断変形による固体間隙の拡大によって固相率が低下し、固液共存体の領域のみかけの体積が膨張している。

金属合金の固液共存体のせん断変形によるみかけの体積変化は、Gourlay 氏らによって起こることが指摘されている<sup>(11)(12)</sup>。彼らは、土質工学の基礎現象であるダイラタンシー(Dilatancy)<sup>(33)</sup>という現象に着目した。ダイラタンシーとは飽和砂など土質材料と液相を含んだ試料に対して、排水条件下でせん断力を印加すると、体積変化を起こす現象である。例えば、海水を含んだ砂浜を足で踏み込んだ時、乾いた砂が足場の周囲に盛り上がる現象が挙げられる。砂内部のせん断領域において、砂の間隙が変化することによって体積が変化する。特に密な砂の場合、体積膨張を起こし、これを正のダイラタンシーと呼ぶ。この体積膨張が、同じ固液共存状態である金属合金においても起こると考え、Al 合金の固液共存状態の試料に対してせん断力を印加すると、試料全体のみかけの体積が膨張することを示した。ただし試料全体の体積変化であり、固相粒子スケールでの変化は不明であった。本研究の固相粒子スケールでのその場観察から、せん断変形によってせん断領域における固相粒子の間隙が拡大することで固相率が低下し、みかけの体積が増加することが分かった。この結果から、飽和砂で観察される砂の間隙の変化によって起こる正のダイラタンシー(体積膨張)と類似する現象であることが示された。

図 5(g),(h)は、ほぼ球状の固相粒子(粒径  $120\ \mu\text{m}$ )が分散した固液共存状態の試料に対して  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板を  $2.2d$  挿入する前後の X 線透過像である。 $\text{Al}_2\text{O}_3$  板の挿入距離は、図 5(c),(d)の Cloudy-like 状の固相粒子が分散した試料とほぼ同一である。せん断領域の図 5(g)の白枠領域の図 5(i)の領域の変化について調べた。領域内の固相粒子を追跡することによって、図 5(h)の白枠領域の図 5(j)へとせん断変形していることが分かった。二次元平面で考えると、液相の割合が約 3.6%から約 7.8%へと増加しており、せん断変形によって固相率が低下しているのが分かる。また体積ひずみが約 8%増加している。図 5(e),(f)の Cloudy-like 状の固相粒子が分散した試料の場合(約 15%の体積ひずみの増加)と比べると、体積ひずみの増加の割合が小さいことが分かる。歪な Cloudy-like 状の固相粒子( $F=0.64$ )よりも、形状因子の高い球形に近い固相粒子( $F=0.94$ )の方がせん断変形によって形成される低固相率の領域が小さく、せん断帯の幅は狭くなる。固相形態の違いによって、低固相率の領域であるせん断帯の幅が変化する要因として、固相粒子が回転運動した時に及ぼす周辺の粒子への力学的作用の違いが挙げられる<sup>(26)</sup>。

球形から逸脱した固相粒子が回転する場合には、周辺の粒子と接触し、球形粒子に比べて長距離に力学的作用が生じ、より大きな固相率の低下を招くと考えられる。

#### 4. Al-Cu 系合金の X 線イメージングを利用した固液共存体のせん断変形とその場観察

##### (1) 固液共存体のせん断変形によるせん断帯形成のその場観察<sup>(24)</sup>

その場観察において用いた試料の組成は、Al-15Cu-0.5Ti-0.25B(mass%)である。Fe-C 系合金と同様に、固液共存状態において温度を保持し、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  板を試料下端から挿入することによってせん断力を印加し、組織の変化を時間分解でその場観察を行った。図 6(a)は、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  板を  $8d$  挿入した後の X 線透過像である。また、図 6(a)の組織に対してさらに  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板を  $2.2d$  挿入後の X 線透過像を図 6(b)に示す。Al-Cu 系合金の場合、Al と Cu の質量吸収係数の差が大きいため、吸収コントラストは大きくなる。Fe-C 系合金の固液共存状態の試料(図 3)と比べると Al-Cu 系合金の場合の方が固相と液相の界面が非常に明瞭である。また、固相より液相の密度が高いため、輝度の低い黒色の領域が液相、輝度の高い灰色の領域が固相である。Fe-C 系合金とは、固相と液相の輝度の関係が逆となる。試料厚さ  $200\ \mu\text{m}$  より固相粒子(平均粒子径:約  $96\ \mu\text{m}$ )は小さいため、固相粒子は厚さ方向に積層していると考えられる。式(6)から算出した三次元空間での固相率は約 48%である。式(1)で定義される形状因子は約 0.8であり、球形からやや外れた形状である。図 6(c),(d)に図 6(a),(b)中のせん断領域の白枠領域の拡大図を示す。Fe-C 系合金と同様に、せん断力の印加により固相粒子の間隙が広がることによって、固相率が低下しているのが分かる。固体間隙の拡大によって固相率が低下した領域は、主にせん断領域においてせん断方向に沿ってバンド状に観察された。 $\text{Al}_2\text{O}_3$  板前方では固相粒子が密集しており、固相率が増加している。固相粒子がやや球に近い固相粒子

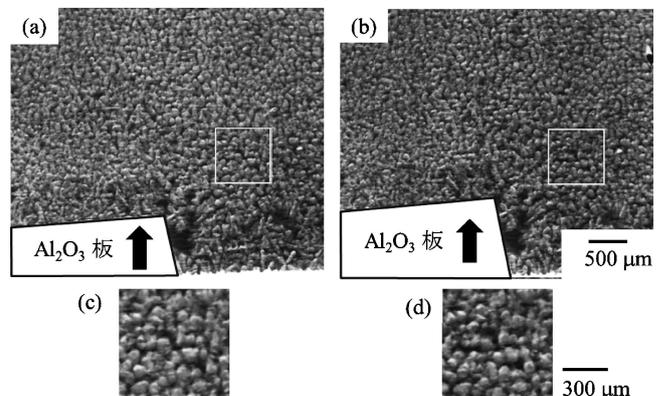


図 6 固液共存状態 Al-Cu 合金のせん断変形とその場観察例<sup>(24)</sup>。(a),(b)  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板を  $2.2d$  挿入してせん断変形を与えた前後の X 線透過像。(c),(d) 図(a),(b)の白枠領域の拡大図。

の変形を示す明瞭な結果は得られなかった。ただし、固相粒子が等軸デンドライトの場合、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  板前方の領域ではフラグメンテーションやデンドライトアームの曲げ変形が観察されている<sup>(24)</sup>。

## (2) 固相粒子の運動の定量解析によるせん断変形組織の特徴<sup>(26)</sup>

固液共存体のせん断変形による固相粒子の運動の定量的な解析を試みた。固相の粒子径が試料の厚みよりも小さい場合、固相粒子が積層しているため、個々の固相粒子を正確に追跡するのは困難である。そこで、平均粒径の1.2倍程度である  $120 \times 120 \mu\text{m}$  の領域での X 線透過像のパターンに注目し、フレーム間のパターンの移動より、その領域の固相粒子の平均移動速度とした。パターン認識方法の詳細については文献<sup>(26)</sup>を参照されたい。

領域毎に評価した固相粒子の平均の移動速度から、ひずみ速度  $\varepsilon_{11}$ ,  $\varepsilon_{22}$ ,  $\varepsilon_{12}$  を算出した。1, 2 はそれぞれ  $x$ ,  $y$  成分の正の方向であり、移動速度の  $x$  成分を  $u_x$ ,  $y$  成分を  $u_y$  としている。

$$\varepsilon_{11} = \frac{\partial u_x}{\partial x} \quad (7)$$

$$\varepsilon_{22} = \frac{\partial u_y}{\partial y} \quad (8)$$

$$\varepsilon_{12} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_x}{\partial y} + \frac{\partial u_y}{\partial x} \right) \quad (9)$$

また固相粒子速度の発散  $\text{div}(\vec{u})$  を評価し、それぞれの領域の固相率変化を調べた。

$$\text{div}(\vec{u}) = \frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} \quad (10)$$

ただし固相率を  $f_s$  とすると、次の質量保存則を満足する。

$$\frac{\partial f_s}{\partial t} + f_s \text{div}(\vec{u}) = 0 \quad (11)$$

図 7(a) は、左下から  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板を  $9.4 d$  分挿入した後の固液共存状態の組織である。図 7(a) の組織に対して  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板をさらに  $0.5 d$  分挿入してせん断変形を与えた時の固相粒子の運動を解析した。図 7(b) に、解析したセル領域の固相粒子の平均速度ベクトルを、矢印で示す。 $\text{Al}_2\text{O}_3$  板の前方では、ほぼ固相粒子は上方向に並進移動しており、固相粒子の移動速度も大きい。せん断領域に近づくにつれて、固相粒子の移動方向はせん断方向に対して、平行方向の上向きからせん断方向に対して垂直方向の右向きへと徐々に変化しているのが分かる。特に  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板の右上のせん断領域では、ほぼ完全に固相粒子の移動方向が右方向へと変化している。図 7(c), (d) に固相粒子の移動速度の  $X$  成分 ( $u_x$ ),  $Y$  成分 ( $u_y$ ) をそれぞれ示す。正が赤の領域である。図 7(c) の移動速度の  $X$  成分では、せん断領域で正(右方向)の速度が大きくなっており、図 7(d) の  $Y$  成分と比べると  $X$  成分が支配的である。図 7(b) のせん断領域を境に固相粒子の移動方向が右方向に変化する速度ベクトルと対応している。一方、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  板の前方の領域では、図 7(d) の移動速度の  $Y$  成分から  $X$  成分

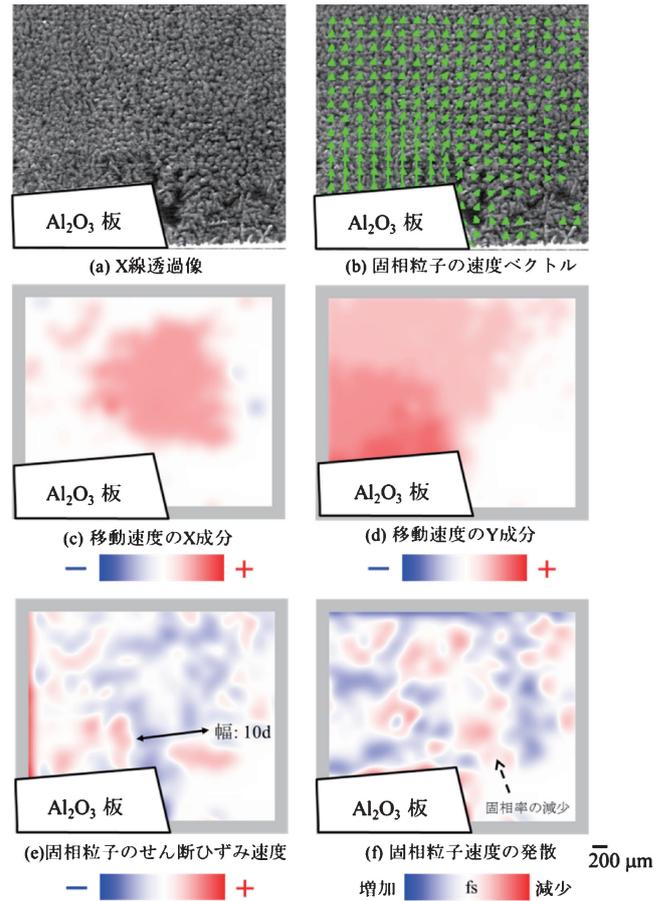


図 7 固液共存状態 Al-Cu 合金のせん断変形過程における固相粒子の定量解析<sup>(26)</sup>。  $\text{Al}_2\text{O}_3$  板の移動距離  $0.5 d$  後の (a) X 線透過像 (b) 固相粒子の速度ベクトル (c) 移動速度の  $X$  成分 (d) 移動速度の  $Y$  成分 (e) 固相粒子のせん断ひずみ速度 (f) 固相率の変化(固相粒子速度の発散)。

よりも、 $Y$  成分の速度が支配的であり、正(上方向)の速度成分が大きくなっている。また、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  板から離れるにつれて徐々に速度成分が小さくなっているのが分かる。また、せん断領域の右側では、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  板の右端から約  $16 d$  程度離れたと、固相粒子の移動はほとんど検出されなかった。

せん断領域において、せん断方向に対して垂直方向の右方向に固相粒子の速度が生じた原因は、固相粒子同士の衝突や再配列により、固相粒子間で力が作用し、固相粒子の運動量が拡散したためである。実際に 3(3)節での Fe-C 系合金のせん断変形の場合観察において、固相粒子の衝突、再配列することによってせん断方向に対して垂直方向に近い移動をする固相粒子が観察されている。ニュートン流体の層流領域の流れを考えると、本実験の条件であれば、せん断領域より右半分の領域に時計回り方向にループ状の流れが生じ、固液共存体のせん断変形で観察された右側への速度ベクトルは生じない。つまり、せん断領域において、せん断方向に対して垂直な方向に速度成分が生じるのは、固液共存状態特有の現象であると言える。

図 7(c), (d) の固相粒子の移動速度から算出したせん断ひ

ずみ速度(式(9))を図7(e)に示す。青色の領域はせん断ひずみ速度が比較的大きな負の値になっている領域であり、この領域でせん断変形が起こっている。せん断ひずみ速度の大きい青色の領域は、せん断領域においてほぼせん断方向に沿ってバンド状に広がっており、局在化しているのが分かる。この領域における平均のせん断ひずみ速度( $\epsilon_{12}$ )は $-2 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ であった。せん断領域でのせん断ひずみの局在化は、 $0.5d$ 毎のせん断力の印加で評価した場合、継続的に観察された。

図7(f)は、式(10)で定義した固相率の変化を表す固相粒子の速度の発散である。赤色は発散が正の領域、青色は発散が負の領域である。式(11)より、この領域では固相率分布に顕著な差はないので、固相粒子における速度の正の発散は、固相率の低下を示している。図6のX線透過像で示したように、発散が赤の領域では、実際に固相率が低下している。図7(e)のせん断ひずみ速度と対応して考えると、固相率が減少する固相速度の発散が正の領域(赤の部分)とせん断ひずみ速度が局在化する領域が対応している。この領域において、3(3)節でのFe-C系合金のせん断変形の場合観察で示したように、固相粒子の衝突・再配列によって固相率が低下している。この領域の平均の固相粒子の速度の発散は $1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ であった。また、低固相率の領域にはほぼ対応するせん断ひずみ速度が局在化したバンド状のせん断帯の幅は、約10粒子分(10d)であった。

図7(f)から $\text{Al}_2\text{O}_3$ 板前方では固相速度の発散が青で示される負の領域で主に分布している。この領域は逆に固相率が増加していることを示している。 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 板前方では図7(b)で示したように、固相粒子がほぼ上方に並進移動している。図6、図7(a)のX線透過像から見ても固相粒子が他の領域に比べて密集しており、固相率が増加している。

これまでに、金属合金の固液共存体のせん断変形によって生じる低固相率のバンド状のせん断帯は、砂やガラス玉など、粒状の固相粒子のせん断変形において観察されているせん断帯と類似していることが指摘されている<sup>(11)(12)</sup>。粒子の種類や粒径によらずせん断帯の幅は6-20粒子分である。一方、バルク状の金属合金の固液共存体の変形によって生じるせん断帯の幅は、粒径によらず7-18粒子分であり、ほぼ同じ範囲である。本研究では、せん断ひずみ速度が局在化するせん断帯の幅が約10粒子分であることが観察されており、これは過去の金属合金の固液共存体の変形によって生じるせん断帯の幅の範囲内である。

## 5. おわりに

本稿では、Fe-C系合金、Al-Cu系合金を対象に固相率55-65%、せん断速度 $10^{-3}$ - $10^{-2} \text{ s}^{-1}$ の条件下でせん断変形の場合観察を行い、せん断帯の形成メカニズムや固相形態がせん断変形に及ぼす影響、さらには個々の固相の運動の定量解析から、固液共存体のせん断変形組織の特徴について述べた。本実験での固相率およびせん断速度では、せん断変形

によって固相同士の衝突・再配列によって固相間の間隙が拡大しても、液相の流動性は大きいため、すぐに液相が周囲から流れ込んで低固相率の領域を形成する。ただし、高固相率でかつ速いせん断速度になると、液相の割合も少なくなり、液相の流動性も低下するため、変形挙動は大きく変化すると予測される。近年、X線イメージングを利用したその場観察において、観察対象の材料や凝固・変形現象にも依るが、空間分解能 $5 \mu\text{m}/\text{pixel}$ で時間分解能が、従来の100msから2ms程度まで向上している<sup>(34)</sup>。これにより固相率約70%のAl-Cu系合金において、せん断速度 $10^{-1} \text{ s}^{-1}$ でせん断力を印加した場合、液相圧力の低下により、せん断変形によって広がった固相間隙へ液相が流入することなく、铸造プロセスの割れの原因と考えられる空隙が、せん断領域で形成される過程が明瞭に観察されている<sup>(35)</sup>。今後は、非破壊で2次元の断面写真を連続的に撮影して、3次元構造として再構成するコンピュータトモグラフィ(CT)の手法<sup>(36)(37)</sup>と組み合わせることができれば、3次元空間での変形過程の観察も可能となる。せん断帯の3次元構造や、固相の変形などのせん断変形によって起こる組織変化に関する詳細な知見が得られると期待される。また、せん断変形過程のその場観察によって、偏析形成機構の解明に繋がるだけでなく、その場観察の実証的な組織形成に関する知見を基に、铸造欠陥の予測・低減に向けたモデルの構築、さらにはモデルを基礎としたシミュレーション開発も期待される。筆者らは、その場観察から得られたせん断帯の形成にとって重要な因子である、固相粒子の衝突・再配列を再現する固液共存体のせん断変形における新たなマクロモデルの構築にも取り組んでいる<sup>(38)</sup>。

本稿で紹介した固液共存体のせん断変形の場合観察は、SPRING-8の長期利用課題(課題番号:2008A(B)0014, 2009A(B)0014)および一般研究課題(課題番号:2010A1420, 2011B1096)にて実施した。また、一般社団法人日本鉄鋼協会産発プロジェクト展開鉄鋼研究、日本鉄鋼協会鉄鋼研究振興助成、科学研究費補助金基盤研究(C)(課題番号:24560910)、基盤研究(A)(課題番号:24246124)、基盤研究(S)(課題番号:24226018)の成果を一部含んでいる。これらの助成に対して深く感謝の意を表す。

## 文 献

- (1) J. A. Dantzig and M. Rappaz: Solidification, EPFL Press, (2009), 567-607.
- (2) S. A. Metz and M. C. Flemings: AFS Trans., **78**(1970), 453-460.
- (3) M. C. Flemings: Metall. Trans., **22A**(1991), 957-976.
- (4) C. P. Chen and C.-Y. A. Tsao: Acta Mater., **45**(1997), 1955-1968.
- (5) E. Tzimas and A. Zavaliangos: Acta Mater., **47**(1999), 517-528.
- (6) E. Tzimas and A. Zavaliangos: Mater. Sci. Eng. A, **289**(2000), 228-240.
- (7) T. Sumitomo, D. H. StJohn and T. Steinberg: Mater. Sci. Eng.

