

金属の固液共存状態におけるせん断変形による偏析形成のその場観察

柳楽知也

大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

安田秀幸

大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

C. M. Gourlay

Imperial college, Department of Materials, Prince Consort Road, London SW7 2AZ

杉山 明

大阪産業大学工学部交通機械工学科 〒574-8530 大阪府大東市中垣内 3-1-1

吉矢真人

大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

上杉健太郎

公益財団法人高輝度光科学研究センター (JASRI) 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1 丁目 1-1

梅谷啓二

公益財団法人高輝度光科学研究センター (JASRI) 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1 丁目 1-1

要旨

鑄造プロセスにおいて発生する偏析や割れなどの鑄造欠陥の要因の一つとして、固液共存状態におけるせん断変形による固相と液相の領域の分離が挙げられる。変形過程では固相同士の間での衝突や液相の流動などが起こるため、固相と液相の運動は必ずしも一致しない。そのため凝固後の組織からでは、変形過程や偏析形成の機構を正確に理解できない。そこで X 線イメージングを利用して鉄鋼材料、Al 系材料を対象に固液共存状態でのせん断変形を固相粒子スケールで時間分解その場観察を行った。本稿では、開発した固液共存状態でのせん断変形その場観察手法およびせん断変形によって起こる組織変化や偏析形成機構について紹介する。

1. はじめに

金属合金では融液（液相）を冷却すると、完全に固相へと凝固する前にある温度範囲の間、固相と液相が共存した状態が存在し、温度によって固相の割合（固相率）が変化する。この固相と液相が共存した状態（以下、固液共存状態と呼ぶ）において、組成の不均一である偏析と呼ばれる鑄造欠陥が生じることが知られている。特に一つの固相粒子以上離れた場所での組成の不均一はマクロ偏析と呼ばれ、機械的特性の低下を招くとして問題となっている。固液共存状態においてマクロ偏析が生じる主な要因として、濃化液相（溶質濃度が平均濃度よりも高い液相）が固相間を越えて流動する、もしくは固液共存状態の変形によって固相と液相の領域が分離することが挙げられる。両者とも温度差および濃度差による自然対流、熱収縮、凝固収縮、種々の鑄造プロセスによって与えられる外力などが駆動力となる。前者においては、実験、理論両面から詳細な研究

が行われ、偏析を再現・予測する多くのシミュレーション技術が開発されてきた¹⁾。一方、後者においても、固相率の変化によって完全な液相や固相では観察されない様々な特性（流動特性、力学特性）を示すとして、固液共存状態での鑄造法の提案など古くから研究がなされてきた^{2,3)}。ただし、固液共存状態での変形による組織変化や変形機構のそのものを対象とした研究が少ないのが現状である²⁻⁸⁾。

鑄型を高速回転させて遠心力を利用して高圧鑄造を行う遠心鑄造法⁹⁾や高圧・高速で溶湯を金型に射出して凝固させる高圧鑄造法¹⁰⁾などにおいて、固液共存状態での変形が要因とされるバンド偏析と呼ばれる鑄造欠陥が発生する。Fig. 1 は、Al 合金を遠心鑄造法によって作製した鑄物の断面写真⁹⁾である。同心円状に形成したバンド偏析（ラミネーション偏析とも呼ぶ）が観察される。

Fig. 2 に示すように固相同士が衝突可能なある固相率の固液共存状態の組織に対して、せん断応力を印加すると、せん断領域において固相同士の間での衝突などによって固体間の

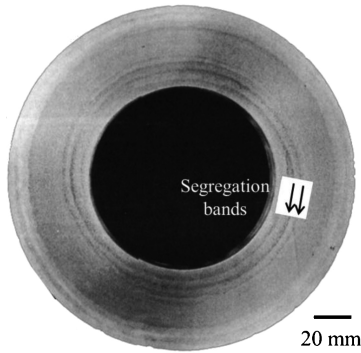


Fig. 1 Segregation bands in centrifugal casting (after Prof. I. Ohnaka)⁹⁾.

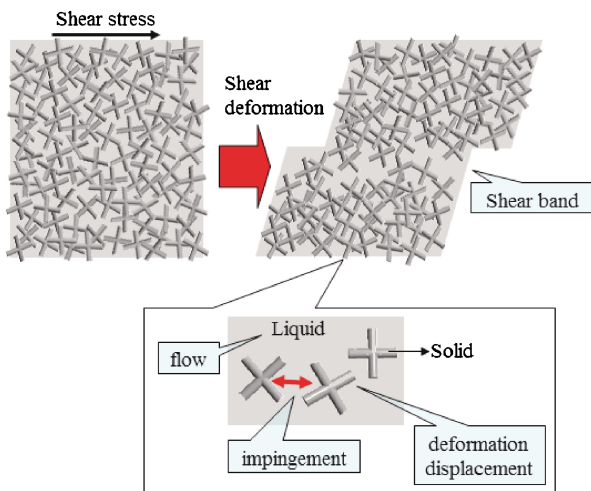


Fig. 2 (Color online) Schematic of shear deformation.

間隙が広がり、周囲から液相が流入することによって固相率が低下した領域がバンド状に形成される。低固相率の領域は、周囲からの液相の流入によって溶質濃度が高くなるため、この領域が凝固後にバンド偏析を形成することが指摘されている^{11,12)}。固液共存状態のせん断変形過程では、固相の移動・変形、液相の移動だけでなく、固相同士の衝突などによる相互作用が起るため、固相と液相の運動が必ずしも一致しておらず、二相の運動は非常に複雑である。そのため凝固後の組織観察からでは、固相と液相の混合体がどのように変形し、固相がどのように移動してバンド偏析を形成しているのかを正確に知ることは困難である。これまでに、金属合金の固液共存状態の変形現象として固相粒子同士の結合が破壊される非凝集化、固相粒子同士が結合する凝集化³⁾、固相粒子の変形⁵⁾、みかけの体積膨張（土質工学におけるダイラタンシーと呼ばれる体積変化に類似した現象）による固相率の低下^{11,12)}などが報告されている。また、これらの変形挙動は、固液共存状態における固相率、固相の粒径、形態、液相の粘性、せん断速度に影響されると考えられ、これらの因子を変化させた系統的な研究が必要である。せん断変形によって生じる組織変

化を正しく理解し、固液共存状態での変形および偏析形成メカニズムの解明を行うためには、固相粒子スケールでのその場観察が有効である。

近年、SPring-8（日本）、APS（米国）、ESRF（EU）など第3世代の大型放射光施設において硬X線単色光の吸収イメージングを利用した研究が盛んである。硬X線は、金属材料を透過できるため、金属合金の非破壊での内部観察や凝固・変形過程のその場観察が行われている¹³⁻¹⁷⁾。筆者らのグループはSn合金、Al合金、Zn合金の凝固その場観察を行っており、さらにはここ数年の技術的課題の克服により、高融点の鉄鋼材料のその場観察技術の構築にも成功している^{14,18-22)}。これらの技術を利用して鉄鋼材料やAl合金を対象として固液共存状態におけるせん断変形の挙動を固相粒子レベルでその場観察できる技術を開発した。固液共存状態での個々の固相粒子の運動のその場観察からせん断変形過程を理解し、バンド偏析などせん断変形によって発生する铸造欠陥の形成メカニズムの解明に取り組んできた²³⁻²⁶⁾。

本稿では、SPring-8のBL20B2およびBL20XUにおいて数回実施してきたX線イメージングを利用した固液共存状態における変形過程の時間分解その場観察の結果について開発したその場観察技術も交えて紹介する。

2. 固液共存状態におけるせん断変形のその場観察装置の開発

鉄鋼材料およびAl合金を対象に固液共存状態においてせん断変形のその場観察を行うために開発した実験装置の外観をFig. 3(a), (b)²¹⁾に示す。Fig. 3(a)は、BL20B2の実験ハッチ内のセットアップである。真空チャンバー、真空チャンバー用のX-Zステージ、試料用のX-Y-Zステージ、吸収板が配置してある。真空チャンバーには、X線を透過させるための窓がX線の上流側、下流側に設けてあり、窓にはX線が減衰しないようにカプトン膜を使用している。吸収板には、試料セルを構成しているアルミナを設置している。これにより試料のX線透過像を試料のないセルのみのX線透過像によって補正し、ノイズを除去することができる。画像処理の詳細²¹⁾については本稿では割愛する。Fig. 3(b)は、真空チャンバー内の炉の外観である。炉は、グラファイトヒータをBN板で挟み、内部に試料セルを配置するための空間を設けた構造である。試料の温度を測定するための熱電対が炉の側面から挿入されている。グラファイトヒータおよびBN板には、X線経路上に試料の大きさ（10 mm 角）に相当する開口部がある。

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Fig. 3(c)に示す。厚さ150–200 μmのAl₂O₃板からなる鑄型を作成し、鑄型内に試料（10 mm 角、厚さ100–200 μm）を配置している。鑄型を厚さ150 μm Al₂O₃板および試料の大きさに相当する開口部のあるBN板で挟み、

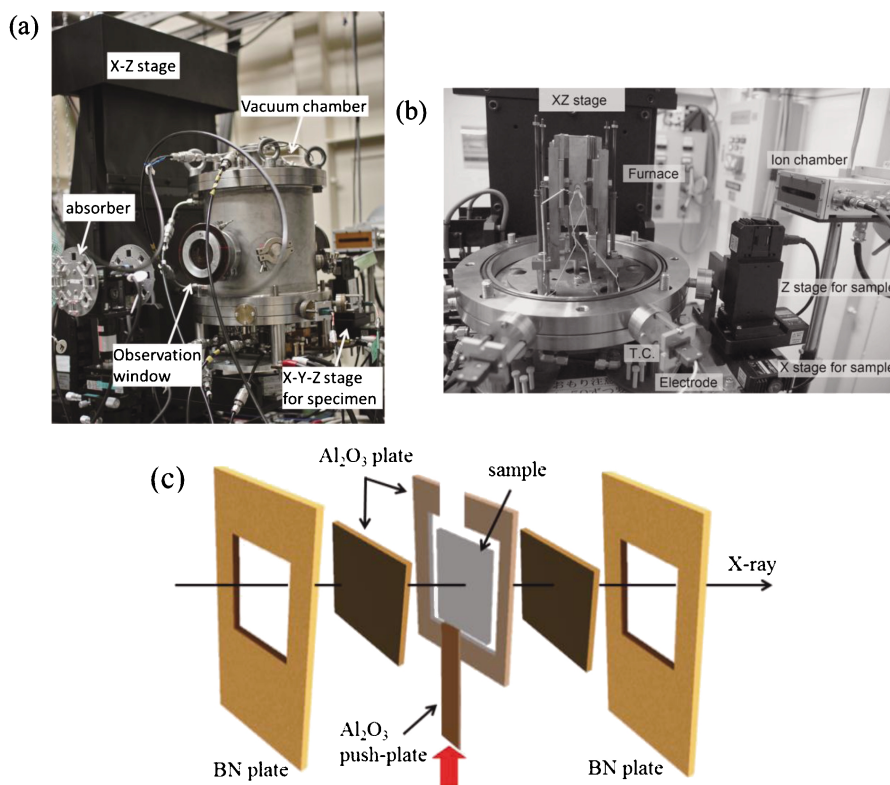


Fig. 3 (Color online) Setup of in-situ observation of deformation in semi-solid alloys. (a) Vacuum chamber and stages (b) furnace²¹⁾ (c) configuration of direct shear cell.

Al₂O₃製のビスとナットで固定している。セルの下部には、試料に対してせん断応力を印加するための厚さ150 μm、幅4-5 mmのAl₂O₃板を配置している。下部のAl₂O₃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。X線ビームの経路に上流側から真空チャンバー、X線検出器が設置されている。X線直接変換型撮像管のSATICON²⁷⁾を用いて透過像を撮影した。

チャンバー内を10⁻¹ Torrに減圧し、試料を所望の固相率の固液共存状態となるように一定の温度（鉄鋼材料：1200-1500°C、Al合金材料：500-600°C）に保持する。この時、試料の下部からAl₂O₃板をステッピングモータにより一定速度（30-50 μm/s）で挿入し、固液共存状態の試料に対してせん断応力を印加し、そのせん断変形過程の透過像を撮影した。透過像のコントラストが最良となるようにX線エネルギーを鉄鋼材料、Al合金材料でそれぞれ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。露光時間はおおよそ1 sである。

3. 固液共存状態の試料の作製と透過X線強度を利用した固相率の算出

その場観察の実験で用いた鉄鋼材料の組成は、Fe-2.08C-0.87Mn-0.45Si (mass%)である。この組成は、固体と液体が共存する温度範囲が広いこと、固相率を制御しやすい。金型の寿命の向上など新しい鋳造法として着目されている半熔融加工法（固液共存状態で鋳造を行う手法）があり、近年、鉄鋼材料にも応用する研究が進んでいる^{8,28,29)}。本組成は、固相率制御の容易さから半熔融加工法に適用可能な候補でもある。仕込み組成の粉末をアーク溶解装置によって完全に溶解し、その後急冷することにより母合金を作製した。その母合金を所定の大きさに切断、加工した試料をセル内に設置し、固液共存状態の温度範囲まで昇温し、ある温度で一定に保持することによって固液共存状態の試料を作製した。

3.1 固液共存状態のX線透過像

固相の形態および粒径が異なる二種類の固液共存状態の組織を作製した²³⁾。Fig. 4は、せん断変形前の平均粒子径(a) 310 μm、(b) 120 μmの固相が分散した組織の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。Fig. 4(c)、(d)はFig. 4(a)、(b)中の白枠内の固相粒子を拡大

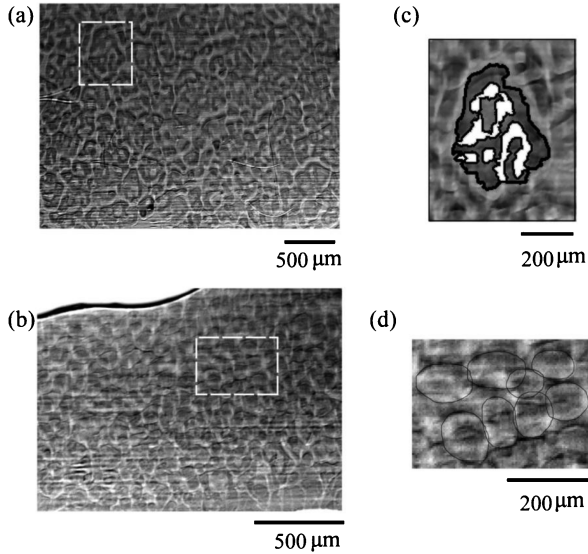


Fig. 4 Microstructures prior to shear of (a) the 310 μm sample and (b) the 120 μm sample. (c and d) Magnified views of the box surrounded by the white dashed line in (a) and (b). The outer solid-liquid interface is traced in black and the entrapped liquid is highlighted white²³⁾.

した X 線透過像である。**Fig. 4 (c)**の中で固相内に内包した液相を白色で示す。また **Fig. 4 (c), (d)**中で固相の輪郭を黒色で示す。粒径310 μm の固相が分散した試料において、固相は内部に液相を内包しており、形態は歪である。この組織に類似した固液共存状態における固相は他の鉄鋼材料においても報告されており、“Cloudy-like”と呼ばれている²⁸⁾。主にデンドライトと呼ばれる樹枝状の組織を再溶解した時に得ることが出来る。一方、粒径120 μm の固相が分散した試料では、固相はほぼ球状に近く、内部に液相は含まれていない。等軸晶と呼ばれるすべての方向の寸法がほぼ等しい固相粒子から成る組織を再溶解すると得ることが出来る。

二種類の組織の固相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。

$$F = 4\pi \frac{A}{U^2} \quad (3.1)$$

ここで A は粒子の面積、 U は粒子の周囲長で球の場合 F は 1 となる。粒径310 μm 、120 μm の固相が分散した試料においてそれぞれ0.64、0.94であり、前者の固相が後者に比べて球から大きく外れた形状であることが分かる。

3.2 透過 X 線強度を利用した固相率の算出

固液共存状態における固相率は、X 線透過強度を利用して算出した²⁴⁾。100%固相 I_S 、100%液相 I_L および固液共存状態 I_{SL} の領域を透過した透過 X 線強度は以下のように表される。

$$I_S = I_0 e^{-(\mu_{\text{cell}} L_{\text{cell}})} e^{-(\mu_S L_{\text{alloy}})} \quad (3.2)$$

$$I_L = I_0 e^{-(\mu_{\text{cell}} L_{\text{cell}})} e^{-(\mu_L L_{\text{alloy}})} \quad (3.3)$$

$$I_{SL} = I_0 e^{-(\mu_{\text{cell}} L_{\text{cell}})} e^{-(\mu_L (L_{\text{alloy}} - L_S))} e^{-(\mu_S L_S)} \quad (3.4)$$

I_0 は入射 X 線強度、 μ_{cell} 、 μ_L 、 μ_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。 L_{cell} 、 L_{alloy} 、 L_S は、それぞれアルミナセル、試料、固相の厚さである。

(3.2)式から(3.4)式より、固相の X 線ビーム方向での長さの比は

$$\frac{L_S}{L_{\text{alloy}}} = \frac{\ln I_{SL} - \ln I_L}{\ln I_S - \ln I_L} \quad (3.5)$$

対象とする固液共存状態のある領域 D における固相率 $[g_s]_D$ は次式で表される。

$$[g_s]_D = \frac{\ln I_{SL} - \ln I_L}{\ln I_S - \ln I_L} \quad (3.6)$$

(3.6)式より算出した固相率 (g_s) は、粒径310 μm の固相が分散した試料において約40%である。ただし、固相内に含まれている液相の割合 (g_L^{int}) が画像解析により約25%である。つまり内包された液相を含めると、粒径310 μm の固相が分散した試料において、固相同士が相互作用を及ぼす有効固相率 $g_{\text{env}} (= g_L^{\text{int}} + g_s)$ は、約65%である。一方、粒径120 μm の固相が分散した試料の固相率は約55%である。

4. 固液共存状態のせん断変形その場観察

4.1 粒径310 μm の液相が内包した Cloudy-like 形状の固相が分散した試料

粒径310 μm の固相が分散した試料のせん断変形その場観察の結果²³⁾を **Fig. 5**に示す。**Fig. 5 (a)**は、右下から平均粒子径(d)で1.9分 (以下1.9d と表す) Al_2O_3 板を挿入したせん断変形後の組織である。尚、 Al_2O_3 板は40 $\mu\text{m}/\text{s}$ の一定の速度で上昇している。ここで、**Fig. 5 (a)**中の黒いバンド状の部分は、試料を挟んでいる Al_2O_3 板の一部において、入射した X 線がブラッグの反射条件を満たして屈折し、試料後方に配置している X 線検出器にほとんど X 線が到達しなかったことに起因する。そのため組織の変化とは無関係である。**Fig. 5 (b)**は約2d分さらに Al_2O_3 板を挿入した後の組織である。特に点線で囲まれたせん断領域近傍において固相率が低下しているのが分かる。また、せん断方向に沿ってほぼバンド状に低固相率の領域が広がっている。**Fig. 5 (a)**から約0.7d 間隔の X 線透過像を **Fig. 5 (c-f)**に示す (**Fig. 5 (a)**の点線で囲まれた領域の拡大図)。固相粒子スケールで固相の運動を明瞭にその場観察すること

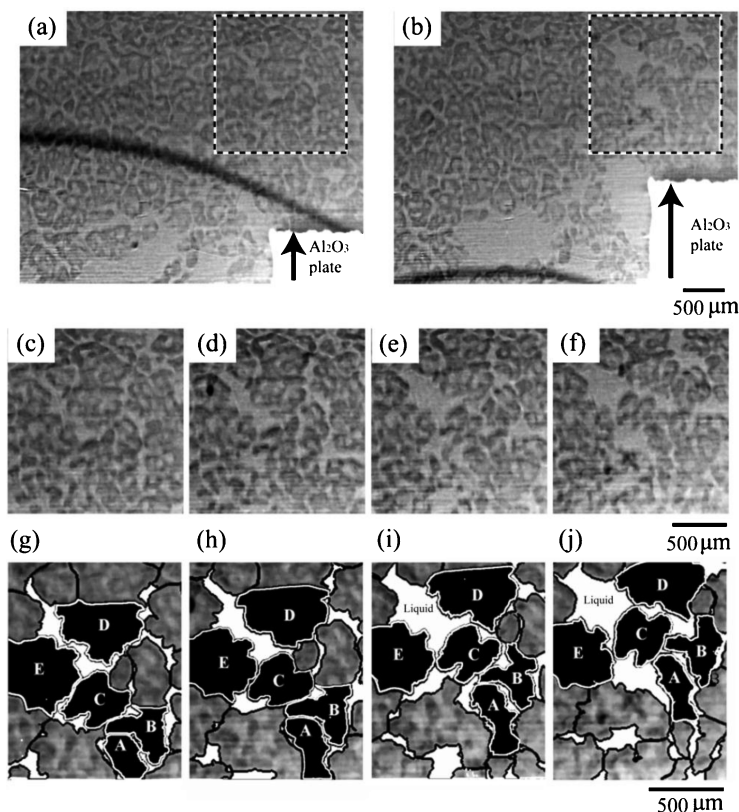


Fig. 5 Microstructures (a) before and (b) after a 2d increment of Al_2O_3 push-plate motion. (c–f) Four frames from the box surrounded by dashed black lines in (a) and (b). (g–j) The dilation of the globule assembly, highlighting five globules, labeled A–E, which is involved with the dilation event. Liquid regions between globules are defined as white and globules boundaries are traced black²³⁾.

に成功している。せん断応力の印加につれて徐々に固体間の間隙が広がり、固相率が低下していく過程が確認できる。ここで、固相率低下に寄与している5つの固相の動きに着目した。**Fig. 5 (g–j)**に**Fig. 5 (c–f)**にそれぞれ対応するX線透過像を示す。図中において液相を白い領域で示し、固相の輪郭を黒で示している。また固相率低下に主に寄与している5つの固相をAからEとした。下方から Al_2O_3 板が上昇するにつれて、AからB、BからCへと固相同士が衝突することによって応力が伝播する。続いてCが押し上げられることにより、C–E間、C–D間の界面が移動(h)から(j)し、Eを左方向、Dを上方へと押し上げる。D–E間の固相の間隙が広がる際、周囲から液相が流れ込むことによって固相率が低い領域が形成される。固相粒子レベルでのその場観察の結果から、せん断応力の印加によって起こる固相同士の衝突による応力の伝播によって、固相の回転、移動を伴う固相の再配列が起こり、固体間の間隙が広がった結果、局所的に液相率が増加することが分かった。本実験において、有効固相率は約65%であり、せん断速度は約 10^{-3} s^{-1} と非常に遅いため、液相の流動は比較的容易であると考えられる。固体間の間隙が広がってもすぐに周囲から液相が流れ込むことによって固相率の低い領域が形成される。この低固相率が形成される機

構は、Al–Cu合金の固液共存状態でのせん断変形のその場観察の結果と同様である^{24,25)}。

4.2 粒径 $120 \mu\text{m}$ のほぼ球形の固相が分散した試料

粒径が $120 \mu\text{m}$ で形態がほぼ球状の固相が分散した組織に対しても4.1節と同様の実験を行った²³⁾。**Fig. 6 (a)**は、右下から3.8d分 Al_2O_3 板を挿入したせん断変形後の組織である。 Al_2O_3 板は4.1節と同様に $40 \mu\text{m/s}$ の一定の速度で上昇している。約2.2d分さらに Al_2O_3 板を挿入し、せん断変形を行うと、粒径 $310 \mu\text{m}$ の固相が分散した試料と同様にせん断領域近傍において固相率の低下が観察された(**Fig. 6 (b)**)。また低固相率の領域は、せん断方向に沿ってほぼバンド状に広がっている。ここで固相率が低下したある領域において固相と液相が共存した領域がせん断変形によってどのように変形したのかを調べた。**Fig. 7**に示すように固液共存状態のある領域 $\Delta x \Delta y$ (**Fig. 7 (a)**)がせん断変形により固体力学における完全固体の変形と同様に $\Delta x' \Delta y'$ (**Fig. 7 (b)**)へと変形すると考えた。 $\partial u_y / \partial x$, $\partial u_x / \partial y$ はそれぞれx, y線素の方向の変化を示す。せん断変形過程における固相の位置を追跡することによって**Fig. 6 (a)**中の点線で示した**Fig. 6 (c)**の領域が、**Fig. 6 (b)**中の点線で示した**Fig. 6 (d)**へと変形していることが分かった。図

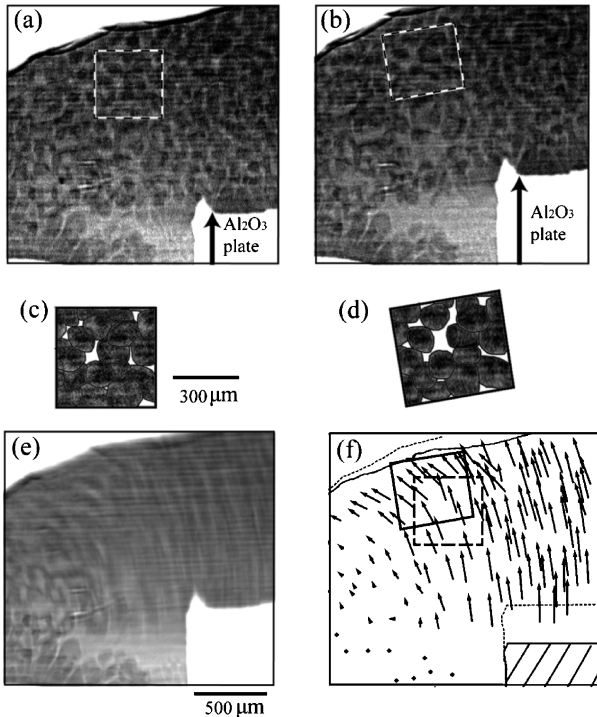


Fig. 6 Microstructures (a) before and (b) after a 2.2d increment of Al_2O_3 push-plate motion. (c and d) Magnified views of the box surrounded by the white dashed lines in (a) and (b), where liquid regions are filled white and solid-liquid interfaces are traced in black. (e) The average transmitted image of 30 frames during the 2.2d increment of deformation. (f) The crystal displacement between (a) and (b)²³⁾.

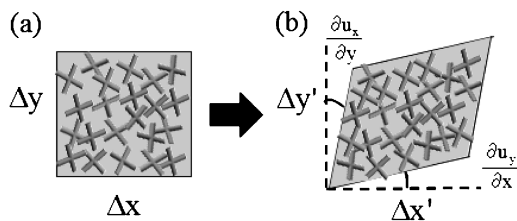


Fig. 7 Schematic of shear deformation model in semi-solid state.

中において液相を白い領域で示し、固相の輪郭を黒で示している。二次元平面で考えると液相の割合が3.6%から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こと分かる。また、厚さがせん断変形前後で変化しないと考えると、体積ひずみが約8%増加しており、固相率の低下によってみかけの体積が増加している。

せん断変形によるみかけの体積変化は、Gourlay氏らによってAl合金の固液共存状態でのせん断試験において起こることが指摘されてきた¹¹⁻¹²⁾。固液共存状態でのせん断変形によって起こる一般的な現象として、土質工学の基礎現象であるダイラタンシー³⁰⁾がある。これは、飽和砂など固相と液相が共存する状態においてせん断応力を印加する（排水条件下）と体積変化が起こる現象である。特に

体積膨張を正のダイラタンシーと呼んでいる。その場観察実験において全体の固液共存状態の試料の体積変化は不明であるので、必ずしも同一に扱えないが、局所的な領域におけるせん断変形によるみかけの体積増加は、ダイラタンシーと類似した現象²⁴⁾であると言える。

2.2d分のせん断変形の間、各固相の移動の軌跡を調べた。**Fig. 6(e)**は、2.2d分のせん断変形の間、撮影した30フレームのX線透過像を平均化した画像である。また**Fig. 6(f)**は、**Fig. 6(a)**と**Fig. 6(b)**のX線透過像を比較し、すべての固相の移動方向を矢印で示した。 Al_2O_3 板前方では各固相はほぼ上方に並進移動しているが分かる。せん断領域に近づくにつれてせん断方向に対して垂直方向の速度成分が大きくなり左上方向に移動している。また、せん断領域よりも左側領域において、ある程度距離が離れると固相の移動はほぼなくなり、固相の流れは上下方向でループを形成していない。せん断方向に対して垂直方向の速度成分が発生するのは、固相同士の衝突などの相互作用が発生しているためであり、固液共存状態特有の運動である。また、せん断領域近傍において移動方向が隣接する周囲の固相と比べて逸脱した固相があり、矢印間の角度差が大きい領域が見られる。ここで、**Fig. 6(c-d)**に示すように固相率が低下した領域を**Fig. 6(f)**中に重ね合わせた。点線が**Fig. 6(c)**、実線が**Fig. 6(d)**の領域である。この領域内において隣り合う矢印間の角度差大きい固相が観察されており、固相の再配列によって固体間の間隙が広がり、固相率が低下したことを示している。

4.3 固相の形態がせん断変形に与える影響

4.2節では、ほぼ球状の固相の試料に対してせん断応力を印加すると、せん断領域の局所的なある領域においてみかけの体積が増加したことについて述べた(**Fig. 6**)。ここで固相の形態がせん断変形に与える影響を調べるために、4.1節でのCloudy-like形態の固相の試料のせん断変形の実験結果から局所的な領域でのせん断変形による体積ひずみの変化について調べた。**Fig. 8(a)**は、**Fig. 5(a)**中の点線の領域内の組織である。固相粒子の輪郭を黒線で示している。せん断変形させる Al_2O_3 板の挿入距離は、4.2節のほぼ球状の固相の試料のせん断変形と同じ約2.2dである。せん断変形過程において**Fig. 8(a)**内の固相の運動をトレースすることによって**Fig. 8(b)**へと変形していることが分かった。せん断変形により固相率が低下しており、また、厚さがせん断変形前後で変化しないと考えると、体積ひずみが約15%増加しており、固相率低下によってみかけの体積が増加している。ほぼ球状の固相の試料の場合（約8%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大きいことが分かる。従って、固相の形態が球に近い場合の方が、固相率の低下の割合が小さい。

固相そのものの形態だけでなく、固相が個々に運動しておらず、凝集して一つのクラスターを形成する場合におい

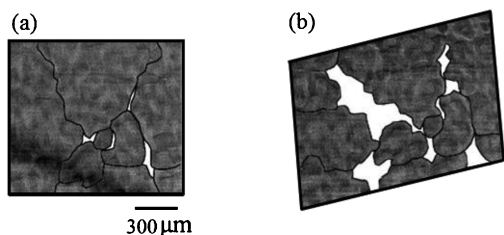


Fig. 8 Microstructures (a) before and (b) after a 2.2d increment of Al_2O_3 push-plate motion.

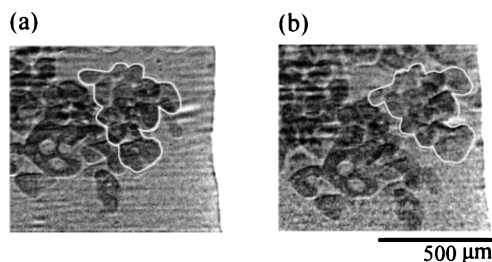


Fig. 9 Example of a cluster of globules, which is traced in white in (a) before and (b) after push-plate motion²³⁾.

ても固相全体の形態が変わるため、せん断変形による低固相率の領域の形成に影響を及ぼすと考えられる。固液共存状態における固相間の結合は、固相-固相間の粒界エネルギー (γ_{ss}) が固相-液相の界面エネルギー (γ_{sl}) の2倍よりも低い ($\gamma_{ss} < 2\gamma_{sl}$) 時に熱力学的に安定であると報告されている³¹⁻³²⁾。固相-固相間の粒界エネルギー (γ_{ss}) は、固相間の結晶方位差に依存しており、結晶方位差が小さいほど低くなる。結晶方位差が 15° になると粒界エネルギー γ_{ss} が界面エネルギー γ_{sl} の2倍に等しくなるので、固相間の結晶方位差が 15° より小さい時は、固体間に引力が働き、固相同士の凝集が起こる。逆に結晶方位差が 15° を超えると斥力が働き固相間に液相が入り、固相同士の凝集は起こらない。ただし、本実験での固相率は55-65%であるため、固液共存状態において固相の移動は容易であり、隣り合う固相同士の結晶方位差が 15° 以下になる確率は非常に小さいと考えられる。過去の研究³²⁾により、固液共存状態のAl合金において固相粒子間の結晶方位差が 15° 以下の条件を満足している割合は約7%であり、大半の固相粒子間には液相が存在すると考えられる。本実験においては一部の固相粒子において固相同士が凝集したクラスターが観察された²³⁾。Fig. 9(a)は、4.2節のほぼ球形の固相が分散した試料のせん断変形の実験において観察された固相のクラスターである。白枠で囲まれた固相のクラスターがせん断応力の印加によって Fig. 9(b)のように、クラスター内の固相間の界面の位置を変えることなく、一体として回転しているのが分かる。このクラスター内の固相は凝集していると考えられる。固相のクラスター化によって固相同士の相互作用を及ぼす固相の形態が球状から大きく

逸脱するため、せん断変形によって形成される低固相率の領域も大きくなる。従って、固相の形態だけでなく、固相同士の凝集によるクラスター形成も固液共存状態におけるせん断変形による低固相率領域の形成を考える上で重要な因子となる。

5. 固液共存状態のせん断変形のその場観察の今後の展開

本稿では、固相率55-65%の固相の形態の異なる試料に対してせん断速度 10^{-3} - 10^{-2} s^{-1} でせん断応力を印加した時のせん断変形のその場観察を行い、固相の運動の観察から低固相率の領域がバンド状に形成される機構について解説した。本実験での固相率およびせん断歪速度では、せん断変形によって固相間に空隙が形成されても、液相の流動性は大きいので、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、変形過程や偏析形成は大きく変化すると予測される。近年、高速度カメラの導入により、X線イメージングを利用した凝固過程、変形過程の高速撮影が可能となりつつある³⁴⁾。BL20XUにおいて約 $100 \mu\text{m}$ 粒子の固相が分散した固液共存状態のAl合金の試料において $5 \mu\text{m}/\text{pixel}$ の空間分解能、約4msでの時間分解能で変形過程のその場観察に成功している。Al-Cu合金を対象にせん断速度 10^{-1} s^{-1} 、固相率70%の場合において、せん断変形によって広がった固相間隙への液相の流入が欠乏し、铸造プロセスの割れの原因となる空隙の形成過程が明瞭に観察されている。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)の手法と組み合わせることができれば、三次元空間での変形過程の観察も可能となり、三次元での固相間の位置関係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る偏析形成機構の解明だけではなく、その場観察から得られた実証的な組織形成に関する知見を基に铸造欠陥の予測・低減に向けた変形マクロモデルの構築³³⁾、さらにはマクロ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。

謝辞

本稿で紹介した研究はSPring-8のBL20B2, BL20XUにて実施した長期利用課題(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)の成果である。固液共存状態でのせん断変形のその場観察技術は、平成20-22年度日本鉄鋼協会産発プロジェクト展開鉄鋼研究において開発された。また、本成果の一部は科学研究費補助金(基盤研究C(課題番号:24560910)、基盤研究A(課題番号:

24246124) および基盤研究 S (課題番号 : 24226018) も含まれている。これらの助成に対して深く感謝いたします。

参考文献

- 1) J. A. Dantzig and M. Rappaz: Solidification, EPFL Press (2009), 567.
- 2) S. A. Metz and M. C. Flemings: AFS Trans. **78**, 453 (1970).
- 3) M. C. Flemings: Metall. Trans. **22A**, 957 (1991).
- 4) C. P. Chen and C.-Y. A. Tsao: Acta Mater. **45**, 1955 (1997).
- 5) E. Tzimas and A. Zavaliangos: Acta Mater. **47**, 517 (1999).
- 6) E. Tzimas and A. Zavaliangos: Mater. Sci. Eng. A **289**, 228 (2000).
- 7) T. Sumitomo, D. H. StJohn and T. Steinberg: Mater. Sci. Eng. A **289**, 18 (2000).
- 8) M. Kikuchi and R. Kopp: Ann. of the CIRP **51**, 653 (2002).
- 9) I. Kang and I. Ohnaka: Proc. of the 4th Decennial International Conference on Solidification Processing (7-10 July 1997), Univ. Sheffield, UK) 346 (1997).
- 10) S. Otarawanna, C. M. Gourlay, H. I. Laukli and A. K. Dahle: Mater. Charact. **60**, 1432 (2009).
- 11) C. M. Gourlay and A. K. Dahle: Nature **445**, 70 (2007).
- 12) C. M. Gourlay, B. Meylan and A. K. Dahle: Acta Mater. **56**, 3403 (2008).
- 13) R. H. Mathiesen, L. Arnberg, F. Mo, T. Weitkamp and A. Snigirev: Phys. Rev. Lett. **83**, 5062 (1999).
- 14) H. Yasuda, I. Ohnaka, K. Kawasaki, A. Sugiyama, T. Ohmichi, J. Iwane and K. Umetani: J. Cryst. Growth **262**, 645 (2004).
- 15) N. Manginck-Noel, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, T. Schenk, V. Cristiglio, M. D. Dupouy, J. Gastaldi, B. Billia and J. Hartwig: J. Physics D **38**, A28 (2005).
- 16) B. Li, H. D. Brody, D. R. Black, H. E. Burdette and C. Rau: J. Physics D **39**, 4450 (2006).
- 17) S. Terzi, L. Salvo, M. Suery, N. Limodin, J. Adrien, E. Maire, Y. Pannier, M. Bornert, D. Bernard, M. Felberbaum, M. Rappz and E. Boller: Scr. Mater. **61**, 449 (2009).
- 18) H. Yasuda, Y. Yamamoto, N. Nakatsuka, T. Nagira, M. Yoshiya, A. Sugiyama, I. Ohnaka, K. Umetani and K. Uesugi: Int. J. Cast Met. Res. **22**, 125 (2008).
- 19) H. Yasuda, Y. Yamamoto, N. Nakatsuka, M. Yoshiya, T. Nagira, A. Sugiyama, I. Ohnaka, K. Uesugi and K. Umetani: Int. J. Cast Met. Res. **22**, 15 (2009).
- 20) H. Yasuda, T. Nagira, A. Sugiyama, M. Yoshiya, N. Nakatsuka, K. Uesugi and K. Umetani: Bulletin of The Iron and Steel Institute of Japan (Ferrum) **15**, 9 (2010).
- 21) H. Yasuda, T. Nagira, M. Yoshiya, N. Nakatsuka, A. Sugiyama, K. Uesugi and K. Umetani: ISIJ Int. **51**, 402 (2011).
- 22) H. Yasuda, T. Nagira, M. Yoshiya, M. Uesugi, N. Nakatsuka, M. Kiire, A. Sugiyama, K. Uesugi and K. Umetani: IOP Conf. Ser. Mater. Sc. Eng. **27**, 012084 (2011).
- 23) T. Nagira, C. M. Gourlay, A. Sugiyama, M. Uesugi, Y. Kanazawa, M. Yoshiya, K. Uesugi, K. Umetani and H. Yasuda: Scripta Mater. **64**, 1129 (2011).
- 24) C. M. Gourlay, A. K. Dahle, T. Nagira, N. Nakatsuka, K. Nogita, K. Uesugi and H. Yasuda: Acta Mater. **59**, 4933, (2011).
- 25) C. M. Gourlay, T. Nagira, A. K. Dahle, N. Nakatsuka, K. Uesugi and H. Yasuda: IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng. **27**, 012086, (2011).
- 26) T. Nagira, H. Yokota, S. Morita, H. Yasuda, M. Yoshiya, C. M. Gourlay, A. Sugiyama, K. Uesugi and K. Umetani: Tet-su-to-Hagane, (2012) submitted for publication.
- 27) K. Umetani, K. Uesugi, M. Kobatake, A. Yamamoto, T. Yamashita and S. Imai: Nucl. Instr. Meth. A **609**, 38 (2009).
- 28) W. Püttgen, W. Bleck, G. Hirt and H. Shimahara: Adv. Eng. Mater. **9**, 231 (2007).
- 29) A. Rassili and H. V. Atkinson: Trans. Nonferrous Met. Soc. China **20**, s1048 (2010).
- 30) O. Reynolds: Philos. Mag. **20**, 469 (1885).
- 31) R. D. Doherty, H. Lee and E. A. Feest: Mater. Sci. Eng. **65**, 181 (1984).
- 32) E. Tzimas and A. Zavaliangos: Mater. Sci. Eng. A **289**, 228 (2000).
- 33) S. Morita, H. Yasuda, T. Nagira, C. M. Gourlay, M. Yoshiya and A. Sugiyama: IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng. **33**, 012053 (2012).
- 34) H. Yasuda, T. Nagira, M. Morita, A. Sugiyama, N. Nakatsuka, M. Kiire, M. Uesugi, K. Uesugi, K. Umetani and K. Kajiwara: IOP Conf. Ser.: Mater. Sci. Eng. **33**, 012036 (2012).

著者紹介



柳楽知也

大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻 助教

E-mail: nagira@ams.eng.osaka-u.ac.jp

専門：金属，セラミックスの凝固・結晶成長

【略歴】

2004年大阪大学大学院マテリアル応用工学専攻博士課程修了，博士（工学）。大阪大学大学院工学研究科マテリアル科学専攻・特任教員，大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻・助手，インペリアルカレッジロンドン・客員研究員，2004年7月より現職。



杉山 明

大阪産業大学工学部交通機械工学科 教授

E-mail: sugiyama@tm.osaka-sandai.ac.jp

専門：鑄造シミュレーション

【略歴】

1996年大阪大学大学院工学研究科冶金工学専攻 博士課程修了，博士（工学）。通商産業省工業技術院名古屋工業技術研究所・研究員，大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻・助手，大阪産業大学大学院工学研究科アントレプレナー専攻・客員教授，大阪産業大学新学部設置準備室・教授，2011年より現職。



安田秀幸

大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻 教授

E-mail: yasuda@ams.eng.osaka-u.ac.jp

専門：金属・酸化物の凝固・結晶成長プロセスと組織制御

【略歴】

1991年京都大学大学院工学研究科金属加工工学専攻 博士課程修了，工学博士。大阪大学工学部材料開発工学科・助手，ノッティンガム大学・客員研究員，マサチューセッツ工科大学・客員研究員，大阪大学工学部材料開発工学科・助教授，大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻・助教授，2004年4月より現職。



吉矢真人

大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻 准教授

E-mail: yoshiya@ams.eng.osaka-u.ac.jp

専門：電子・原子レベル理論計算，シミュレーションによる材料物性予測

【略歴】

2000年京都大学工学研究科材料工学専攻博士課程修了，博士（工学）。日本学術振興会・特別研究員（PD），ローレンスバークレー国立研究所・客員研究員，財団法人ファインセラミックスセンター・副主任研究員，大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻・助教授，財団法人ファインセラミックスセンター・客員研究員，2005年9月より現職。



C. M. Gourlay

Imperial college London, Department of Materials, Royal Academy of Engineering Research Fellow

E-mail: c.gourlay@imperial.ac.uk

専門：Solidification Processing of alloys

【略歴】

University of Queensland PhD in Materials Engineering University of Queensland, Postdoctoral Research Fellow in Rheology of semi-solid alloys Imperial College London, Royal Academy of Engineering Research Fellow in 2008.



上杉健太郎

高輝度光科学研究センター利用促進部門 研究員

E-mail: ueken@spring8.or.jp

専門：マイクロトモグラフィーとその応用

【略歴】

2000年東京工業大学大学院理工学研究科博士課程中退，2000年4月より現職。



梅谷啓二

高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門 主幹研究員

E-mail: umetani@spring8.or.jp

専門：医用画像工学

【略歴】

1981年筑波大学大学院修士課程終了，同年日立製作所中央研究所入所，1998年より現職，医学博士。

In situ observation of shear deformation in semi-solid alloys

- Tomoya NAGIRA** Department of Adaptive Machine Systems, Osaka University, 2-1 Yamadaoka Suita, Osaka 565-0871, Japan
- Hideyuki YASUDA** Department of Adaptive Machine Systems, Osaka University, 2-1 Yamadaoka Suita, Osaka 565-0871, Japan
- C. M. GOURLAY** Department of Materials, Imperial College London, London SW7 2AZ, UK
- Akira SUGIYAMA** Department of engineering, Osaka Sangyo University, 3-1-1 Nakagaito Daitou, Osaka 574-8530, Japan
- Masato YOSHIYA** Department of Adaptive Machine Systems, Osaka University, 2-1 Yamadaoka Suita, Osaka 565-0871, Japan
- Kentarou UESUGI** Japan Synchrotron Radiation Research Institute, 1-1-1, Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5198, Japan
- Keiji UMETANI** Japan Synchrotron Radiation Research Institute, 1-1-1, Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5198, Japan
-

Abstract The shear deformation of partially solid microstructures due to the solidification shrinkage, and the external forces during the casting process is related to casting defects including macrosegregation and cracking. The direct approach for understanding the shear deformation is to observe deformation in situ at a grain scale. In-situ observation was carried out to study the dynamics of the globule motion using X-ray imaging technique. This paper reviews the in-situ observation technique for the shear deformation and the deformation mechanisms in semi-solid alloys. Direct evidence is presented for the shear deformation including shear-induced dilation in semi-solid carbon steel.