

氏名（本籍）	澤谷 拓馬（千葉県）
学位の種類	博士（工学）
学位記番号	甲第 233 号
学位授与の日付	令和 2 年 3 月 22 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
学位論文題目	アルミニウム合金 OCC 線材の凝固組織の形成機構と機械的特性
論文審査委員	(主査) 教授 本保元次郎 (副査) 教授 田村 洋介 教授 小澤 俊平 准教授 寺田 大将 日本大学 教授 久保田正広

## 学位論文の要旨

### アルミニウム合金 OCC 線材の凝固組織の形成機構と機械的特性

加熱鋳型式連続鋳造法 OCC(Ohno Continuous Casting)プロセスは、等軸晶生成機構の一説である結晶遊離説に基づいて発明され、現在に至るまで様々な研究がなされてきた。これらは、マクロ的な鋳造欠陥のない単結晶組織または一方向凝固組織を作製する研究を始めとした基礎的研究や形状記憶合金を作製する研究等のアプリケーションを狙ったものである。一方、本法における凝固組織の形成機構に関して基本的には述べられているものの、詳細な調査は行われていない。また、製品への応用も不十分で、工業化に向けた更なる研究が必要であると考えられる。そこで本研究では、近年輸送機器の軽量化のために需要が高まるアルミニウムを取り上げ、本法による凝固組織の形成機構解明や工業化に向けた組織制御について検討した。

本論文は、全 5 章から構成されており、各章の内容は以下のとおりである。

第 1 章は、OCC プロセスの原理と特徴、アルミニウム及びその合金、従来までに行われてきた OCC プロセスに関する研究について説明し、本研究の目的について述べた。

第 2 章では、純アルミニウム OCC 線材が鋳造開始端からどのように一方向凝固組織が形成されているのか、凝固組織に及ぼす鋳造速度の影響について明らかにすることを目的とした。凝固開始端では、様々な結晶方位を持つ結晶が形成されていたが、鋳造の進行とともに結晶の数が減少し、鋳造方向に<001>に配向することを明らかにした。また、鋳造速度の減少は、鋳造方向のみならず鋳造方向と垂直な結晶方位も単一の方向に配向させ、結晶粒界の角度差も減少させることから、単結晶組織に近付ける効果があることを見出した。一方、Al-Ti 合金の場合、結晶の成長方位が<101>

に変化することを明らかにした。また、結晶粒界解析を行ったところ、 $\Sigma 3$  対応粒界の形成が認められた。成長するデンドライトに規則的な境界である  $\Sigma 3$  対応粒界が含まれることで原子配列が変化し、成長方位が  $\langle 101 \rangle$  に変化したと推測される。また、Al-0.14%Ti 合金の場合、母合金添加からの溶湯保持時間が増加すると、一方向凝固組織中に含まれる等軸晶の数が減少し、60min の保持により等軸晶が消失した。これは、母合金が完全に溶解する前に铸造した場合、母合金に含まれる  $\text{TiAl}_3$  等が  $\alpha$  アルミニウム晶出の包晶核または異質核として働いたためと考えられる。一方、加熱鋳型の温度が合金の液相線温度以下の場合では、溶湯保持時間が長い場合においても等軸晶が形成されることを発見した。これらの結果から、液相線温度以上に加熱した鋳型を用いることによって結晶遊離による等軸晶生成を阻止し、铸造方向と平行に一方向凝固組織が形成されることを解明した。

第 3 章では、粗大な金属間化合物の晶出が問題となる非熱処理型アルミニウム合金である Al-Fe 合金及び Al-Mn 合金を用いた実験では、凝固組織形成機構の解明や铸造速度の影響について明らかにすることを目的とした。Al-Fe 合金及び Al-Mn 合金 OCC 線材は  $\alpha$  アルミニウムデンドライトと共晶組織で構成される一方向凝固組織が形成されることを明確にした。Al-Fe 合金の場合、Fe 含有量の増大によって共晶組織の占める割合が増加したが、Al-3.0%Fe 過共晶合金においても過共晶組成の初晶である  $\text{Al}_3\text{Fe}$  が晶出しない。また、铸造速度が増大することにより、亜共晶組成の初晶である  $\alpha$  アルミニウムデンドライトの晶出割合が増加し、さらにデンドライト一次アーム間隔(以下、DAS と表記)が細くなることを明らかにした。このような非平衡組織が形成されるのは、铸造速度の増大によって溶質が  $\alpha$  アルミニウムデンドライト中に過飽和に固溶されたことや、平衡共晶濃度より高い Fe 濃度の液相が共晶反応を起こしたためと考えられる。一方で、連続铸造中の熱履歴を測定した結果では、凝固開始や共晶反応による温度停滞が検出されなかった。また、DAS が細くなることに関しても、铸造速度すなわち凝固速度が増大することにより凝固時間が減少し、 $\alpha$  アルミニウムデンドライトの二次成長が抑制されたためと考えられる。Al-Mn 合金の場合においても、Mn 含有量の増大によって共晶組織の占める割合が増加するが、Al-4.0%Mn 過共晶合金においても初晶  $\text{Al}_6\text{Mn}$  が晶出しないことを発見した。

第 4 章では、硬さ試験及び引張試験による Al-Fe 合金及び Al-Mn 合金線材の機械的性質について検討した。Al-3.0%Fe 合金、铸造速度 500mm/min で得られた OCC 線材は、引張強さが約 190MPa となり金型線材の約 1.3 倍の強度、破断伸びは約 20% となり金型線材の約 1.4 倍の伸びを示すことを明らかにした。また、Al-4.0%Mn 合金、铸造速度 500mm/min で得られた OCC 線材は、引張強さが約 215MPa となり金型線材の約 1.7 倍の強度、破断伸びは約 19% となり金型線材の約 3 倍の伸びを示すことを見出した。

第 5 章では本実験の成果をまとめ、本論文を総括した。

これらの研究成果により、アルミニウム合金 OCC 線材の凝固組織形成機構に関する基礎的な知見を得ることができ、その特性を明確にできた。これにより、OCC プロセスを利用した新しい材料開発の指針となることが期待できる。また、従来法で作製された線材と比較し、OCC 線材は機械的性質にも優れていることから、工業製品に向けた応用開発にも期待できるものである。

## 審査結果の要旨

加熱鋳型式連続鋳造法 OCC(Ohno Continuous Casting)プロセスは等軸晶生成機構の一説である結晶遊離説に基づいて発明され、現在に至るまで様々な研究がなされてきた。これらは、マクロ的な鋳造欠陥のない単結晶組織または一方向凝固組織を作製する研究を始めとした基礎的研究と、形状記憶合金 AV ケーブルを開発する研究等のアプリケーションを狙ったものが多数行われてきた。しかし、OCC プロセスにおける凝固組織形成機構に関しては、報告例は少なくまだ十分な調査は行われていない。加えて、実際に製品となった OCC 材も数多くとはいえず、工業化に向けた更なる研究が必要であると考えられる。一方、近年では環境負荷低減のため、輸送機器の軽量化が重要視されているが、そのためには軽量かつ高強度を有する材料開発が必要である。その中でも軽量の金属元素であるアルミニウムは単体では強度が低いものの、組織制御や合金化によって強度を向上させているが、凝固形態や組織を制御することで更なる高強度化が可能と考えられる。そこで本論文は、OCC プロセスによるアルミニウム合金の凝固組織の形成機構解明や工業化に向けた組織制御について明らかにすることを目的とした。

第 1 章では、加熱鋳型式連続鋳造法 OCC プロセスの原理と特徴を説明し、一般的な冷却鋳型を用いた従来の鋳造法との相違点や、それらと比較した位置づけを示した。また、金属の凝固に関する種々の従来理論や結晶生成機構と OCC プロセスにおける凝固機構との関連についての説明と、アルミニウム合金を本研究試料として用いる工業的な価値と可能性を示した。さらに、過去に行われた OCC プロセスに関する研究内容と本論文との関連性および本論文の意義と目的について述べた。

第 2 章では、OCC プロセスによる純アルミニウム線材のマクロ的な凝固機構について検討するため、純アルミニウム及び Al-Ti 合金を用いてマクロ組織観察と EBSD 法による結晶方位測定を行った。純アルミニウム OCC 線材のダミーバーと接する鋳造開始端では、ダミーバーから生成した複数の結晶粒がランダムな方向に成長している。しかし、鋳造の進行に伴って結晶の競争成長により結晶粒の数が減少し、全ての結晶粒が鋳造方向にアルミニウムの優先成長方向である $\langle 001 \rangle$ に配向することを明らかにした。また、鋳造速度の増大に伴って結晶粒界の角度差が増大し小傾角粒界から大傾角粒界へと変化することを突き止め、それにより結晶の定義上結晶の数が増加すること明らかにした。Al-Ti 合金を用いた場合では、従来の方法では等軸晶主体となる組成においても、OCC 線材では全く等軸晶の無い一方向凝固組織となることを見出した。その Al-Ti 合金 OCC 線材の一方向凝固の結晶方位は、アルミニウムの優先成長方向 $\langle 001 \rangle$ から成長方位が成長双晶に起因すると考えられる $\langle 101 \rangle$ へと変化していた。さらに、Ti 添加量の増加すると OCC 線材でも一方向凝固組織中の等軸晶が晶出し始め、増加に伴い等軸晶数が増加することを示した。一方、溶湯保持時間の延長に伴って溶湯中の未溶解核生成物質  $\text{TiAl}_3$  が溶解するために等軸晶の数が減少することを明らかにした。そして、一方向凝固組織中の等軸晶は、未溶解核生成物質  $\text{TiAl}_3$  に起因するものか加熱鋳型温度低下による鋳型からの結晶遊離による生成したという結論を示した。

第 3 章では、粗大な脆い金属間化合物の晶出により機械的性質が低下することが問題となっていた非熱処理型アルミニウム合金の Al-Fe 系及び Al-Mn 系合金について、種々の条件により OCC 線材

を作製し、その凝固組織について形成機構や鑄造速度の影響を検討した。Al-Fe 合金の場合、鑄造速度が増大するに従って $\alpha$ アルミニウムデンドライトおよび共晶組織から形成される一方向凝固組織が細くなり、デンドライト中に Fe が過飽和固溶体や微細な共晶化合物となって均一に分散させることができた。また、デンドライト間隔は Fe 含有量及び鑄造速度に対し負の相関であった。特に、従来法であれば粗大な金属間化合物が晶出してしまふ Al-3.0%Fe 過共晶合金においても、OCC プロセスを適用することで初晶の粗大金属間化合物の晶出を完全に抑制することができた。これにより、機械的性質が著しく向上することを明らかにした。次に Al-Mn 合金の場合でも、共晶セルのみで構成された組織が鑄造速度の増大に伴って、共晶組織が減少していき共晶組織と $\alpha$ アルミニウムデンドライト組織、更には大半が $\alpha$ アルミニウムセルラーデンドライトで構成された組織へと変化することを突き止めた。また、Al-4%Mn 合金の場合、鑄造速度の増大に伴って $\alpha$ アルミニウム中の Mn 固容量が増加し、過飽和固溶体を作製することができた。Al-Fe 系及び Al-Mn 系合金は熱処理による材料強化が難しいが、OCC プロセスによって、熱処理による更なる材料強化の可能性を引き出せることを明らかにした。

第 4 章では、硬さ試験及び引張試験による Al-Fe 系及び Al-Mn 系合金 OCC 線材の機械的性質について検討した。Al-3.0%Fe 合金において速い鑄造速度で作製した細い $\alpha$ アルミニウムセルラーデンドライト一方向凝固組織からなる OCC 線材は、引張強さが金型線材の約 1.3 倍の強度、破断伸びは金型線材の約 1.4 倍の伸びを示すことを明確にした。さらに、Al-4.0%Mn 合金では、 $\alpha$ アルミニウムセルラーデンドライト一方向凝固組織 OCC 線材は、引張強さが約 215MPa となり金型線材の約 2 倍の強度、破断伸びは金型線材の約 3 倍の伸びを有する極めて優れた機械的性質を示すことを明らかにした。

以上のことから、アルミニウム合金 OCC 線材の凝固組織形成機構に関する基礎的な知見を得ることができ、その特性を明らかにするとともに従来法では得られない組織形態を有することを明らかにした。これにより、OCC プロセスを利用した新しい材料開発の指針を明確にしたものと判断した。また、従来法で作製された線材を比較し、OCC 線材は機械的性質にも優れていることから、工業製品に向けた応用開発にも期待できることを明らかにした。

本論文は、OCC プロセスにおける凝固組織形成機構の解明という学術的に重要な内容と、高品質製品への応用への可能性という工業的に価値の高い知見を含む研究成果の集積である。従って学位論文申請者の澤谷拓馬は、博士（工学）の学位を得る資格があると認められる。