

アルミ合金における音響学的相平衡状態図創成の試み

: 合金相変化の音速マッピング

Acoustic study on phase diagram of aluminum alloy: Sound velocity map on phase change

富山高等専門学校 商船学科 准教授 経田僚昭

Department of Maritime Technology, National Institute of Technology, Toyama College,
Tomoaki Kyoden

要旨

音響学的視点に基づく合金設計に役立つ相平衡状態図の提案が本研究の目的である。本報告での合金設計とは合金の成分と凝固過程での温度操作並びに超音波印加によるアクティブな組織論的立場の設計と、定められた合金材料に対して寸法決定に至るプロセスを対象とする。合金の相変化過程を含む液相と固相の濃度—温度状態図からさらに音速情報を加えた音速—濃度—温度状態図を提案した。温度制御下で送受信振動子を有する合金金型装置を実際に構築し、温度制御下における音速計測を行なった。完全非侵襲音速結果で作成された状態図は固相と液相での温度依存性を含むこと、凝固過程の情報を三次元座標内に形成された面で示すという観点に優位性がある。また、アルミ合金（ジュラルミン）の固相における音速の温度依存性を別に示し、その知見に基づく音響ホーンの寸法決定に至る設計指針を示した。以上、一年間の取り組みの研究成果をここにまとめて報告する。

1. はじめに

材料製造過程に超音波技術を適用する取り組みは多々あり、なかでも(1)材料の高品質化[1-4]、(2)材料凝固過程の把握（計測）[5-8]に分類される。計測分野では非侵襲計測に位置付けられる超音波は、例えば、超音波顕微鏡のように材料の組織そのものを超音波によって観察する手法が提案されている[6-8]。材料を破壊することなく内部組織を把握するには超音波が一つの有効な手段となり、組織深部の観察においては X 線のような電磁波を用いるよりも超音波の方が有利である。音波伝播に影響する合金のパラメータとして音速、密度、体積弾性率が挙げられる。これら物性値は合金の分子構造、組織、組成を包括するパラメータであり、それら物性値の非侵襲かつリアルタイム計測によって合金の性質を把握できる。さらに、音速、密度、体積弾性率はその合金を用いたシステム設計で用いられる音波伝搬の様相を決定するパラメータである。すなわち、明らかにされた物性値はそのままシ

ステムの寸法設計に役立つ情報となる。

合金観察系統にて超音波が用いられていることを鑑みれば先述した音速・密度・弾性率は固相・液相においては温度に依存し、液相から固相への相変化過程においては温度不変の条件下で相変化割合に左右される。すなわち、合金の物性値を固相・液相・固液共存相（マッシュ域）の三つのフェーズを統合した合金状態マップを創生することが音響学、材料学、伝熱学に貢献する学際的なツールになると考えた。

本研究では、まず、液相から固相にまたがる複雑な相変化現象において超音波によるリアルタイム音速計測方法を確立し、固相・液相・固液共存相（マッシュ域）を網羅した合金状態図を提案し、その優位性を述べる。次いで、本報告で提案する手法にてアルミ合金（ジュラルミン）の音速・密度の温度依存性を示し、得られた知見に基づき、金型に封入された試料融液に超音波を直接入力することを想定した音響ホーンの設計指針を示す。以上、一年間の取り組みの成果をここ

にまとめる。

2. 音速—濃度—温度で観る相平衡状態図の提案

従来の濃度と温度を座標とするいわゆる状態図はある割合で構成された合金の温度における相の状態を判定する際に用いられる。緻密な温度管理によって材料の高度最適化の分野においては状態図が材料組成を把握するために用いられるがより詳細な状態を把握するには、先述したように超音波など外部からのアクティブな入力信号に対する応答を得る必要がある。そこで、従来型相平衡状態図（濃度—温度）に対して音波伝播の重要な因子である音速情報を取り入れた新たな音速—濃度—温度状態図（Y-K-H diagram）を提案する。そのための装置と、Bi-Sn 合金を一例とする計測結果を示す。

2.1 実験装置と方法

合金の音速計測には、ファンクションジェネレーター（FG）と超音波振動子で生成した超音波を、音速計測対象となる試料を通過させて音波通過時間と距離で音速を求めた。

FGで1.0MHz波形を生成し、アンプを通過させて圧電セラミクスを振動させた。FGから振動子の系統と並列にオシロスコープが接続され、送信波形を観測する。同時に、対面の振動子からアンプを介して受信波形を得て、オシロスコープに取り込み、送受信波形の時間差をリアルタイムで観測した。被験物には直径1.0mmのシース熱電対を設置し、温度情報もモニタリングした。試料をヒーターで覆い、その外周を断熱材で囲み、試料を均一な温度分布とした。

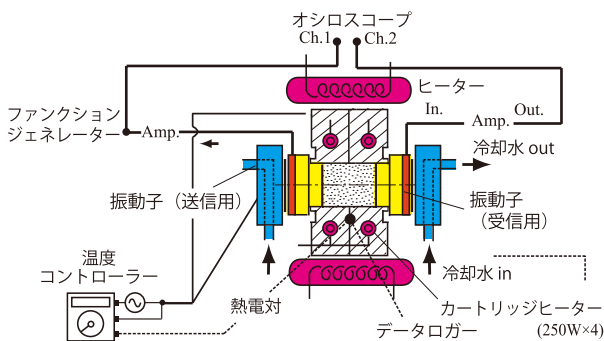


図1 温度制御機構を有する音速計測装置

まず、被験物を任意の温度とし、アンプに電源を投入してFGからの信号を、アンプを介して振動子に送る。送信波形と受信波形によって観測された時間差を得る。

2.2 三次元相平衡状態図

Bi-Sn 合金を音速計測対象とし音速—濃度—温度状態図を作成し、図2に示す。

いわゆる従来型相平衡状態図は濃度と温度のみで相の情報を線上に得るが、独立した物性値である音速の導入によって面上をたどる固相、液相、固液共存相の経路が明らかにできる。

以上、固相・液相における音速情報の温度依存性を明らかにしながら、温度不変の相変化過程における相変化量までも一意的に定める状態図が提案された。

3. 音速の温度依存性適用例

試料の一例として選んだBi-Sn合金において音速情報を含む相平衡状態図を作成し、その有効性を述べるに至った。ついで、本研究の優位性を実際の音響学的設計の観点で示す。対象はアルミ合金として、ジュラルミンを選び、濃度一定のもと、2章と同様の装置にて音速の温度依存性を明らかにする。本章のまとめとして明らかにされた音速情報に基づき、実際の超音波ホーン的设计指針を示すことにする。

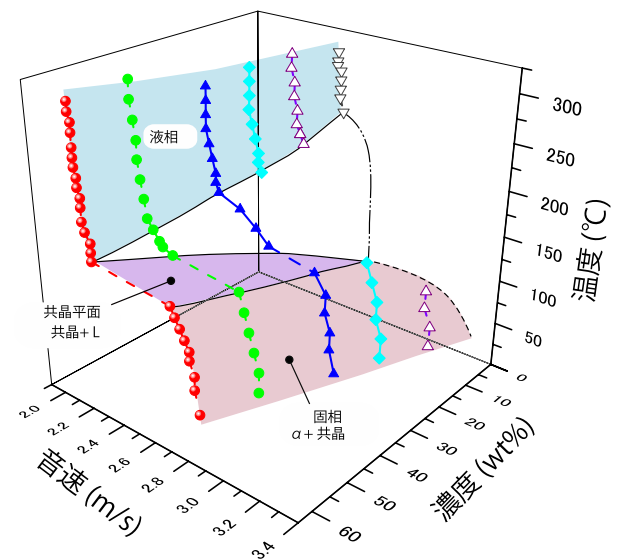


図2 音速—濃度—温度状態図 (Bi-Sn)

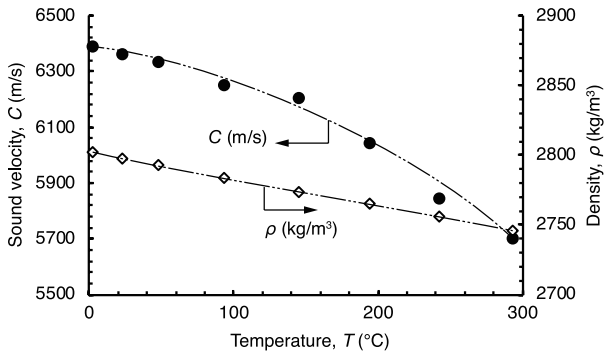


図3 ジュラルミンの音速と密度の温度依存性

3.1 アルミ合金（ジュラルミン）の温度依存性

音速計測を図1に示す装置で行いながら、ついで密度 ρ についても線膨張係数を考慮した式(1)で求めた。

$$\rho = \frac{\rho_R}{(1 + \int_T^{T_R} a dt)^3} \quad (1)$$

ここで、添字 R は室温環境下での状態を示し、 a は線膨張係数であり次式となる。

$$a = 23.2 \times 10^{-6} \quad (T = 27^\circ\text{C}) \quad (2)$$

さらに、密度から外周方向への膨張はないものとして試料長さ L を得た。以上の操作によって任意の温度 T におけるジュラルミンの音響に関わる物性値を得ることができる。送受信システムと温度制御システムを併せ持つ一連の装置を構築することで音速と密度の温度依存性を明らかにするため図3に計測結果を示す。温度 T に対する音速 C の依存性は多項式近似によって以下を得た。

$$C = \alpha T^2 + \beta T + \gamma \quad (3)$$

$\alpha = -6.1 \times 10^{-3}, \beta = -0.60, \gamma = 6.4 \times 10^4$ である。

3.2 ジュラルミン材料による音響ホーン的设计

アルミ合金の音速と温度依存性に基づく音響ホーン的设计指針を述べる。固体材料での音速の温度依存性（三次元相平衡状態図の固相の領域）で明示される情報は、高温環境で用いられるステップ型アルミ音響ホーン的设计にて役立つ。試料に超音波を入力するために振動子と試料の間に接続された超音波ホーンは音響エネルギーの損失を極力小さくして対象物に振動を伝

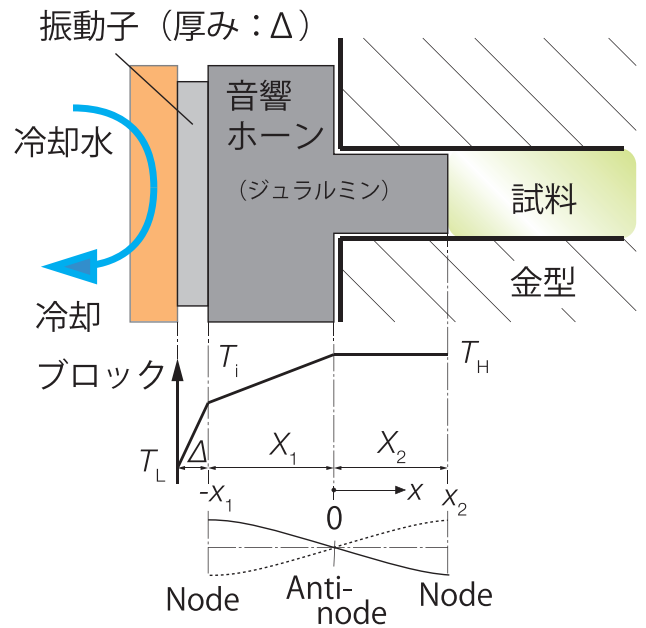


図4 音響ホーン设计モデル

える役割を担う。超音波の通過面積を小さくすることで音響パワー密度を増大させるはたらかもある。とくに、ステップ型ホーンは変位振幅が最小となる定在波の節の位置を断面積変化部とする。定在波の節・腹の位置は音速 C と振動周波数 f の比で求まる波長 $\lambda (= C/f)$ で決まる。音響ホーンの振動子側端は境界条件として変異振幅の節が与えられ、波長の $n/4, n=1, 2, 3, \dots$ 、倍長さの位置が節となる。

超音波を付与する対象物が高温であっても振動子はキュリー点 T_c 以下すなわち、低温を維持しなければならない。対象物側が高温となり、振動子側が低温を維持するような温度勾配が形成されるステップ型超音波ホーンに対して、温度勾配のある場合、合金の成分割合と関連づけた音速の温度依存性は無視できない。

まず、高温端と低温端に挟まれた振動子のある音響ホーンモデルを図4に示す。ここで音響ホーンは二段のステップ型ホーンとし、小径部長さ X_2 、大径部長さ X_1 、振動子厚みを Δ とする。大径部端に振動子、小径部端に高温試料が存在する。また、大径部と小径部のつなぎ目を位置方向の原点とし、試料に向かう側（音波伝搬方向）を正方向とする。音響ホーンに形成される温度

勾配 dT/dx は x 方向の伝熱量 Q を用いると、

$$\frac{dT}{dx} = \begin{cases} \frac{Q}{A_a \lambda_a}, & \{-(\Delta + x_1) \leq x < -x_1\} \\ \frac{Q}{A_b \lambda_b}, & (-x_1 \leq x \leq 0) \\ 0, & (0 \leq x \leq x_2) \end{cases} \quad (5)$$

となり、位置方向積分で温度分布を得る。

$$T(x) = \begin{cases} \frac{Q}{A_a \lambda_a} (x + \Delta + X_1) + T_L, & \{-(\Delta + x_1) \leq x < -x_1\} \\ \frac{Q}{A_b \lambda_b} x + T_H, & (-x_1 \leq x \leq 0) \\ T_H, & (0 \leq x \leq x_2) \end{cases} \quad (6)$$

音速の温度依存性 [式(3)] を代入し、音速 C は、

$$C = \alpha \left(\frac{Q}{A_a \lambda_a} \right)^2 x^2 + \frac{(2\alpha T_H + \beta)}{A_b \lambda_b} x + \alpha T_H^2 + \beta T_H + \gamma \quad (7)$$

ここで、 $\alpha = -6.1 \times 10^{-3}$, $\beta = -0.60$, $\gamma = 6.4 \times 10^4$ である。これにより、温度勾配を考慮した音速を得た。

次に、大径部・小径部のそれぞれの位置 $-x_1, x_2$ について述べる。まず、小径部先端位置 x_2 は温度 T_H であり、式(3)と周期 $t_p = 1/f$ を用いれば、

$$x_2 = (\alpha T^2 + \beta + \gamma) \frac{t_p}{4} (2n + 1), \quad n = 0, 1, 2 \dots \quad (8)$$

である。また、波面位置 ε とすると、音速は ε の時間微分であるので、

$$C|_{x=\varepsilon} = \frac{d\varepsilon}{dt} \quad (9)$$

となり、大径部端位置 $-x_1$ は式(9)の解と $t = t_p(2m + 1)/4$, $m = 0, 1, 2 \dots$ を用いて、

$$x_1 = -\int d\varepsilon = -E|_{t=\frac{t_p}{4}(2m+1)} \quad (10)$$

となる。式(7)の x に波面位置 ε を代入し、 $t_p/4$ の奇数倍の位置がホーン大径部の長さを決める。

最後に、温度からみたホーンの要請される条件を記す。振動子にはキュリー温度 T_C があり、その温度以下で動作させなければならない。振動

子とホーンの接触面温度を T_i とすると、冷却面温度 T_L 、振動子厚さ Δ のもとでは、

$$T_i = \frac{Q}{A_a \lambda_a} \Delta + T_L \quad (11)$$

である。また高音側から見ると、

$$T_i = -\frac{Q}{A_b \lambda_b} x_1 + T_H \quad (12)$$

の関係を得る。 Q を消去すれば、

$$T_i = \frac{x_1 A_a \lambda_a T_L + \Delta A_b \lambda_b T_H}{x_1 A_a \lambda_a + \Delta A_b \lambda_b} \quad (13)$$

を得る。 $T_i < T_C$ とすべきであり、式(13)から、

$$x_1 \geq \frac{A_b \lambda_b (T_H - T_C)}{A_a \lambda_a (T_C - T_L)} \quad (14)$$

が x_1 に要請される条件となる。これら振動子の温度による使用条件を満足しながら音響ホーンの温度依存性を考慮した音速 C によって温度条件をパラメーターとしたステップ型音響ホーンの長さ X_1, X_2 (座標 x_1, x_2 の絶対値に相当する値) を図5に示す。横軸を高温側温度 T_H と低温側温度 T_L の差 ΔT をパラメーターとし、使用温度条件下で要求されるホーン長さが音速の温度依存性のもとで明らかにされた。

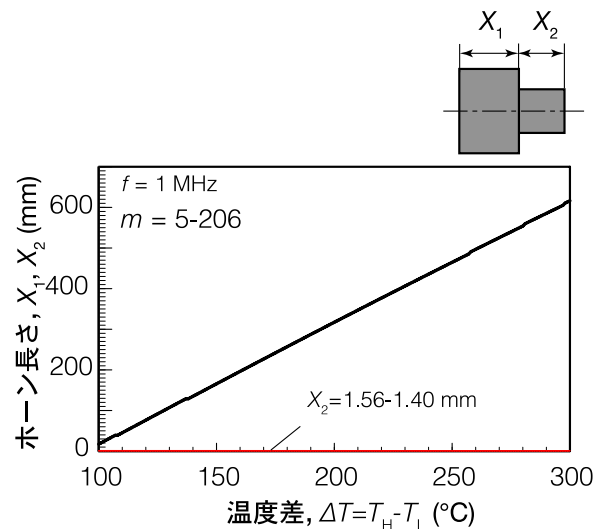


図5 ステップ型音響ホーン長さ

4. まとめ

合金の音速値に着目した濃度—温度—音速の相平衡状態図創成を目的に、温度制御下における音速計測結果に基づく相平衡状態図を作成した。合金の音響状態図を示し、従来の濃度—温度状態図では液相線、固相線など“線”で現れる現象は音速情報を追加することで液相面、固相面となる“面”で出現する現象となる。本申請課題にて、独自の濃度と相変化を関連づけた 3 次元相平衡状態図を示すに至った。

3 次元状態図で示される学術的知見は合金音速の温度と濃度依存性の情報を示すことにある。そこで、同様の実験装置にてアルミ合金の音速の温度依存性を明らかにし、かつ高温環境下での使用を想定した音響ホーンの寸法設計指針を音速情報に基づいて示した。提案した三次元状態図に関連づければ、音響ホーン的设计には固相域の情報に意義がある。ジュラルミン合金の密度と音速の温度依存性を本報告にて示し、試料に超音波を入力する場合を想定した実用的な観点での音素情報が役立つ場合を示した。合金試料に超音波を意図的に入力する場合は多々あるが、共通して(1) 試料融液は比較的高温となること、(2) 超音波振動板は低温度を維持すべきであること、が挙げられる。そこで、振動面を低温側、資料を高温側とするジュラルミン製段付きステップ型超音波ホーンの温度依存性を考慮した寸法設計指針を本報告にて示した。

試料に超音波を入力する場合に不可欠なホーン的设计指針を示すことで、例えば超音波による試料融液が液相から固相に至るまでの凝固組織観察、凝固過程での材料高品質化を超音波が担う場合の音響ホーンの材質、温度を考慮した設計ができる。そして試料を合金とする場合においても 3 次元状態図で示した音速の温度—濃度依存性は固相／液相の区別はもとより、固液共存相の情報もまた示すに至れば、温度不変の相変化過程において超音波音速の計測値がそのまま凝固進行度合いを決定する情報になることに本報告でのアイデアが意義のあるツールになると期待している。

謝辞

本研究を援助頂いた公益財団法人京都技術科学センターに感謝致します。

参考文献

- [1] R.K. Chinnama, C. Fauteux, J. Neuenschwander, J. Janczak-Rusch, *Acta Mater.* 59, 1474, (2011).
- [2] W. Zhai, Z.Y. Hong, X.L. Wen, D.L. Geng, B. Wei, *Mater Des*, 72, 43, (2015).
- [3] W. Zhai, Z.Y. Hong, C.X. Mei, W. Wang, B. B. Wei, *Sci. China. Ser. G-Phys. Mech. Astron.*, 56, 462, (2013).
- [4] R. Jiang, X. Li, P. Chen, R. Li, and X. Zhang, *AIP Adv.*, 4, 077125, (2014).
- [5] H. Ogi, J. Tian, T. Tada, and M. Hirao, *Appl. Phys. Lett.*, 83, 464, (2003).
- [6] M. K. Phani, A. Kumar, W. Arnold, and K. Samwer, *J. Alloy. Compd.* 676, 397, (2016).
- [7] K. Yamanaka, H. Ogi, and O. Kolosov, *Appl. Phys. Lett.* 64, 178, (1994).
- [8] O. Wright and N. Nishiguchi, *Appl. Phys. Lett.* 71, 626 (1997).

研究成果発表

- [1] 堀純也, 経田僚昭, 加藤享, 義岡秀晃, *設計工学*, 56(1), 35-46, (2021).