レーザー局所加熱法による材料組織制御

柴柳 敏哉, 塚本 雅裕, 阿部 信行

大阪大学 接合科学研究所 (〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘11-1)

Microstructure Control by Laser Spot Heating

Toshiya SHIBAYANAGI, Masahiro TSUKAMOTO, and Nobuyuki ABE

Joining and Welding Research Institute, Osaka University, 11-1 Mihogaoka, Ibaragi, Osaka 567-0047

(Received July 24, 2007)

The newly developed laser spot heating system is explained regarding a concept of heterogeneity in polycrystalline microstructure. The present heating system enables a collimated laser beam focus on specimen surface with a diameter less than 10 μm . Effectiveness of the present spot heating method is verified as follows. The spot heating yielded a cluster composed of recrystallized grains in the deformed matrix. Size of the cluster is around 160 μm and this artificial microstructure has never been reported so far. The spot heating system can lock-on any target areas to be shot, and five-spot heating was performed to show five clusters having grains with different orientations. Texture control is also expected to be realized by the present heating system. These new findings strongly suggest that the spot heating method with a heating area comparative to the size of microstructure parameters such as grains, second phase, particles and even dense dislocation walls will enable us to fabricate peculiar microstructures that we design.

Key Words: Fiber-laser, Spot heating, Pure aluminum sheet, Recrystallization, Orientation distribution

1. はじめに

材料組織とは固体(材料)空間の分割様式の総称である。金属材料を例に挙げると、結晶界面で区切られた領域内に析出物、介在物、転位や点欠陥などが分散している¹⁾。材料学における組織制御とはこれら空間分割要素(組織の構成要素)の存在状態を最適化することを意味する。

組織制御に用いられるエネルギーには力学エネルギー、熱エネルギー、電気エネルギーなどがあり、それぞれ絶妙の制御プロセス技術が駆使されている。これらのエネルギーは多くの材料創成プロセスにおいて素材の広い範囲に均一に投入されるが、近年、組織の構成要素の一つである結晶粒の大きさと同程度の領域に熱エネルギーを集中させることができるレーザーシステムが登場し、局所空間の組織制御という新しい概念の創出をもたらした²⁾。

本稿では、筆者の研究グループにて最近開発されたレーザー局所加熱システムによる組織制御について、工業用純アルミニウムを用いた実験結果を紹介しながら、その意義と可能性について解説する。

2. 材料組織の構成要素と空間的分布状態の多様性

金属材料やセラミックス材料の多くは多結晶組織を有

する。多結晶組織の構成要素としては、相の種類、結晶粒の形と大きさ、結晶粒の結晶学的方位ならびに結晶界面などがあり、それぞれ材料特性に重要な影響を及ぼすことが知られている。例えば結晶粒の大きさや第2相粒子の存在状態は降伏応力などの力学特性に支配的な影響を及ぼし、結晶方位は塑性変形挙動や加工性に直接的に関与する組織要素である。

これら組織要素の存在状態を記述する方法には統計的分布と空間的分布の二つの表現法がある。前者の場合は結晶粒の大きさを「平均結晶粒径」のようにあるスカラー量で対象とする組織要素の状態を代表したり、あるいは「結晶粒度分布」のようにヒストグラム表示で分布状態を表現したりする。

これに対して空間的分布状態の場合は、各組織要素の状態を材料内の位置の関数として表現する。この概念は結晶粒方位分布や集合組織³⁾を議論する場合に有用で、Fig. 1にAl-Mg合金再結晶材(773 K-1 ks.)の組織解析に空間的方位分布の概念を適用した例を示す⁴⁾。Fig. 1(a)は全体の結晶方位分布を各結晶粒に配された色は標準三角形で示される結晶方位に対応させて表示している。例えば赤、青、緑の各色はそれぞれ板面方位が[100], [110]および[111]であることを示しており、その他の方位はこれら基準色の混色で表現されている。このような組織状態の表現法を結晶方位マップと呼ぶ。図より、特定の方位への方位集積は認めら

Fig. 1 Orientation maps of Al-4 mass%Mg alloy sheet recrystallized at 773 K for 1 ks. (a) Orientation map of whole measured area. (b) (111)-pole figure of whole measured area. (c) Highlighting of cube oriented grains. (d) (111)-pole figure highlighting cube orientation.

れていないことがわかる。このことは(b)に示した正極点図からも理解できる。なお、正極点図は統計的方位分布の代表的な表示法である。

Fig. 1 (c)は(a)の中から立方体方位(圧延方向が[001]で、板面方向が[100])からの偏差角度が15度以内の方位成分を持つ結晶粒のみを抽出して着色表示した結果である。図より、孤立して存在する場合や、いくつかの同一方位結晶粒が隣接しあってクラスターを形成している場合が見て取れる。この解析結果は、結晶方位分布は空間的分布という観点で眺めると決して均一ではなく、材料内のそれぞれの場所によって異なる様相を呈することを示している。

このように材料組織は統計的には均一に見えても局所的に見ると不均一な分布状態にある。すなわち、同じ製造ロットの素材であっても完全に同じ空間的分布状態であることはほとんどない。この材料組織の多様性が次節で述べる局所組織制御技術開拓の出発点となっている。

3. 局所組織制御の必要性

材料組織を制御する目的は、それぞれの素材に対して要求される特性を満足することにある。この目的のために我々は力学エネルギーや熱エネルギーなどを素材に投入して内部状態を最適化する。これを一般的に加工・熱処理などと呼び、今日我々が利用している素材の全てが加工・熱処理技術の恩恵を受けているといっても過言で

はない。熱処理プロセスの多くは厳密に制御された均一な温度場にて行われることが多い。これは、不均一な空間的分布状態にある組織要素から成る材料組織に対して均一な温度場を与えることを意味している。ここで懸念されることは、設計された組織状態を現出する過程において、不必要な組織要素までも組織変化に関与させてしまい、その結果として目的とする組織状態を完全に実現できないことである。

例えば、結晶粒成長現象では局所的な組織状態が全体の組織変化に重要な影響を及ぼす^{5,6)}。この現象では結晶粒界の移動が基調となるが、粒界移動はその粒界の周囲にある結晶粒の相対的な大きさの違いや結晶粒界の構造に起因する移動度などの極めて局所的な組織状態を反映して移動方向と速度が決まる。したがって、空間的に不均一な粒径分布、方位分布や粒界構造分布を持つ組織に対して素材内全ての領域を等しく加熱するということは、成長させたい方位を持つ結晶粒の選択的成長を必ずしも実現できない。隣の領域でたまたま成長してきた結晶粒の干渉を受けるからである。

Fig. 2に結晶粒成長の計算機シミュレーションの一例を示す⁷⁾。ここでは予め特定の結晶粒のみを優先成長させた状態を初期状態として均一温度場での組織変化を計算した。計算には純アルミニウムのパラメータを採用し、3種類の温度で計算した。図より、いずれの温度においても、予め周囲の結晶粒よりも大きくしておけばその後の均一温度場において消滅することなく成長を続けることができることが示されている。

このように、材料組織で特定の位置にある結晶粒を選択的に成長させておくことは組織設計において有効である。あたかも囲碁における定石のように、全体の組織変化に対してポイントになる引き金を引くような領域の組織だけを優先的に発達させておくことで我々は望みの組織状態を創り出せる可能性がある。また、空間的な組織要素の配置状態がそれぞれの局所領域において必然的な組織変化を進行させて全体の組織が変化していく様は生物が親から受け継いだ遺伝情報を基にして成長することにも例えることができる。

すなわち、局所組織制御とは一連の製造プロセスを反映して造り込まれた材料組織情報の中で目的とする位置の組織状態だけを選択的かつ意図的に変化させることで全体の組織変化を制御する技術を言い、材料組織の遺伝子治療とも言える。

4. レーザー援用局所加熱システムの設計

局所加熱の対象となる材料組織の大きさは、結晶粒を制御対象とする場合は、数ミクロンから数十ミクロン程度までの範囲である。他の組織要素である析出物やさらに小さな格子欠陥などをターゲットにする場合にはさらに小さな領域のみに熱エネルギーを集中させる必要がある。

本解説では加工組織の中に再結晶粒を創り出すことを題材とする。再結晶とは加工によって導入されたひずみ

Fig. 2 Monte Carlo simulation of grain growth process starting from a heterogeneous grain size distribution. The hatched grains had larger grain size in the initial structure of the simulation. (a)800 K, (b)850 K, (c) 900 K.

を解消するために金属材料が自らの内部状態を変化させることによって生ずる材料組織学的現象である⁸⁾。

再結晶現象を局所的に進行させるにあたって局所加熱領域の大きさは厳格に規定されるものではないが、再結晶粒をできるだけ小さくすること、さらに特定の再結晶粒のみを現出させることを最終的な目標としているため、ここでは直径数ミクロン程度の領域にレーザー光を集光するシステムを設計した。システムが具備すべき必要条件としては、シンプルな機構であること、エネルギーロスを極力抑えて効率よく試料にエネルギー輸送できることとしたが、この目的に合致するレーザー発振器としてファイバレーザーを採用した。

Fig. 3に筆者のグループで設計したレーザー局所加熱システムの概略図を示す。光源は最大出力100 Wのファイバレーザー (IPG製, YLR-100SM)で、ミラーとレンズの組み合わせにより試料表面において焦点を結ぶように光学系が設計されている。焦点位置での理論的な最小ビーム径は5ミクロン程度であるが、実測値は9.1 μm であった。加えて、本システムでは可視光による試料表面状態のリアルタイム観察ができる。レーザー照射は室温大気中で行っている。筆者のグループではこのレーザー加熱システムのことをファイバレーザー援用局所加熱システム (Fiber Laser Aided Spot Heating: FLASH)と呼んでいる。

5. 純アルミニウムへの局所加熱の適用例⁹⁾

Fig. 4に工業用純アルミニウム板 (板厚1 mm) にレーザー

Fig. 3 Schematic illustration of the present laser heating system.

照射を施した時の表面状態の変化の走査電子顕微鏡観察例を示した。レーザー光のエネルギー密度は $6.3 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ である。(a)から(c)は照射時間がそれぞれ10秒、13秒および15秒の場合の試料表面の二次電子像である。照射時間が10秒の場合には(a)に見られるように表面状態の変化は全く認められないが、13秒になると(b)に示したように僅かなコントラストの変化が生じる。さらに照射時間を長くして15秒とした場合には(c)に示したように明瞭な凹みが出現している。これは、レーザー加熱により試料表面近傍の温度が局所的に融点を超えて液相のアルミニウムが周囲に飛散した結果によると考えている。以後、この凹みを溶融痕と呼ぶ。溶融痕の大きさは約10 μm であり、この結果はFLASH法では実際にこの程度の領域に熱エネルギーを集中させることに成功したことを意味する。なお、溶融痕が出現し始めるレーザー照射条件は試料表面状態の影響を非常に強く受けて変化するので、

Fig. 4 Changes of surface morphology of pure Al plate under the laser spot heating with a power density of $6.3 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$. (a) 10 s, (b) 13 s, and (c) 15 s.

組織制御のための照射条件の精密化のためには良く制御された表面状態を作る技術の確立が必要になる。

次に、溶融痕が生じた条件で照射した時の試料表面を化学研磨で取り除いてSEM-EBSP法¹⁰⁾にて組織解析を行った。照射条件は $6.3 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ で20秒である。結果をFig. 5に示す。図中の色は前述の結晶方位に対応している。試料は冷間圧延加工を施されているためにFig. 1に示したような明瞭な結晶粒組織を示していない。これに対して、図の中央部に花びら状に加工組織よりも大きな結晶粒群が存在しているのがわかる。これらは明らかに再結晶粒であり、局所加熱により創出されたものである。花びら状再結晶粒群の中心部は溶融痕が残存した状態であるために解析不能となり明瞭な組織を呈していない。再結晶粒群の大きさは直径にして約 $160 \mu\text{m}$ であり、照射領域が $9 \mu\text{m}$ 程度であることから、溶融と熱伝導により照射領域の18倍程度まで熱影響領域が拡大したことを示唆している。このような局所再結晶領域の大きさは照射条件で制御可能であり、対象となる材料の熱伝導度を考慮して、照射位置の温度制御を精密に計測することができれば試料表面に溶融領域を作ることなく照射領域とほぼ同等の大きさの再結晶粒を作り出せるであろう。

Fig. 6はマルチスポット照射の一例である。この例では照射位置を5カ所選んで同一照射条件($7.0 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ で14秒)で局所加熱処理を施している。図より、照射位置それぞれで異なる再結晶粒群が出現していることがわかる

Fig. 5 Cluster of locally recrystallized grains in cold rolled pure aluminum plate. ($6.3 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ - 20 s).

Fig. 6 Five clusters of locally recrystallized grains produced by multi-spot heating on cold rolled pure aluminum plate. ($7.0 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$ - 14 s for each heating.)

が、この結果は、局所加熱では同じ再結晶粒組織を作り出すことはなく、照射領域固有の局所組織状態を反映した組織が現れることを意味している。すなわち、照射位置の選定に当たっては加工組織の状態評価をまず行い、組織設計に合致した領域を狙う必要がある。このための組織評価技術の確立もFLASH法開拓のための必要条件となる。

Fig. 7は局所再結晶粒の方位解析の一例を示している。照射条件は $1.1 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 、20秒である。Fig. 7 (a)は解析対象とした領域の結晶方位マップである。図中破線で囲んだ矩形領域の方位分布を(b)に正極点図法で等高線表示した。この図ではアルミニウムの冷間圧延特有の集合組織成分が現れているのがわかる。一方、局所加熱により出現した再結晶粒とそのごく近傍領域のみに対応する正極点図が(c)である。これより、加工組織の持つ方位成分の一部を受け継いだ再結晶粒が得られたことがわかる。

再結晶現象は加工組織内の一部の比較的転位密度の低い領域が熱エネルギーの助けを得てその周囲を侵食しながら進行するものと最近では理解されている。Fig. 7に示した再結晶粒はレーザー照射領域内で最も成長のために有利な条件を有していたと推察される。したがって、特

Fig. 7 Orientation distribution of locally recrystallized region in cold rolled pure aluminum plate after the laser-spot heating. (1.1×10^8 W/cm² - 20 s.) (a) Orientation map of whole measured area. (b) 111-pole figure corresponding to the dashed rectangular area. (c) 111-pole figure from the solid rectangular area containing a locally recrystallized grain.

定の結晶方位のみを選択的に再結晶粒として出現させるには、加工組織の評価とターゲットになる領域へのピンポイントでの正確なエネルギー輸送が必要になる。これが実現すれば、我々は従来の材料プロセスでは得られなかった方位分布、集合組織を有する素材を創り出せることになる。

6. おわりに

本稿では筆者のグループが開発してきているレーザー局所加熱法の背景と意義を述べ、純アルミニウムへの適用例を紹介した。材料科学・工学の領域でレーザー光を熱源に用いる研究はすでに報告例があり¹¹⁾、最近では素材表面を非晶質化する表面改質技術への適用なども試みられている。しかしながら、材料組織の不均一性に着目し、特定の部位のみを局所的に加熱して特異な組織状態を創り出すという着想は他に類例がない。組織制御技術者は単位組織要素と同程度の大きさの領域にのみ選択的・意図的に光エネルギーを投入する技術を手に入れようとしているのである。

数ミクロンあるいはそれ以下の領域に集光する基礎技術は確立されつつあるが、それを実際のものづくりに適用するには多くの課題をクリアしていかなければならない。素材に応じて、さらに素材の何を制御するかという目的に応じて最適なエネルギーを選択するというスマートビームプロセスの概念を基軸として、材料組織制御の立

場に立ったユーザーフレンドリーでしかも経済的なレーザーシステムが我が国独自の技術として創出されることを望む。

局所領域のみを加熱する技術は再結晶組織の創成のみならず、他の組織制御にも応用が可能で、本技術のさらなる展開が期待される場所であるが、その実現のためにはレーザー科学・工学と材料学のそれぞれの研究者による緊密な連携研究が必要であろう。本稿がそのきっかけとなれば幸いである。

参考文献

- 1) 例えば、堂山 昌夫、山本 良一編：「材料の組織と機能」(東京大学出版会、1988)。
- 2) T. Shibayanagi, M. Tsukamoto, N. Abe, T. Matsumoto, and Y. Soga: *Materials Science Forum* **558-559** (2007) 329.
- 3) 長嶋 晋一編：集合組織(丸善、1984)。
- 4) T. Shibayanagi and M. Maeda: *Trans. JWRI* **32** (2003) 127.
- 5) K. Matsumoto, T. Shibayanagi and Y. Umakoshi: *Acta Mater.* **54** (1997) 431.
- 6) 柴柳 敏哉：高温学会誌 **261** (2000) 2835.
- 7) T. Shibayanagi, N. Matsuda, M. Tsukamoto, N. Abe, and M. Naka: N. Abe, and M. Tsukamoto ed, *High Temperature Society of Japan* **1** (2006) 143.
- 8) 古林 英一著：「再結晶と材料組織」(内田老鶴園、2000)。
- 9) T. Shibayanagi, M. Tsukamoto, N. Abe, Y. Soga, and T. Matsumoto: *Trans. JWRI* **35** (2006) 67.
- 10) 鈴木 清一：まてりあ **40-7** (2001) 612.
- 11) 関 史江、仲居 道弘、伊藤 邦夫：軽金属 **46** (1996) 231.

レーザーワード

EBSP法(electron back-scatter pattern)

Electron Back-Scatter Diffraction (EBSD) 法とも呼ばれる。電子線回折図形の一種で、透過電子顕微鏡(Transmission Electron Microscopy: TEM)法における菊池図形と同じ原理で発生する後方散乱図形(TEMの場合は前方散乱)を走査電子顕微鏡内に設置した蛍光スクリーンに映し出し、それを高感度CCDカメラ等でデジタル情報としてコンピュータに

取り込んで自動的に方位解析を行うものである。試料表面の任意の位置に電子線を照射してパターンを得るが、照射位置を走査して逐次方位解析を行うことで結晶粒組織と対応づけられる方位マップを得ることができる。空間分解能は最高レベルで50 nm径とされており、この場合、加工組織の解析にも適用可能である。(柴柳 敏哉)