

# 高強度短パルス X 線を用いたレーザーピーニング のその場観測法と動的粒径制御法の開発

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所  
特任准教授 一柳 光平  
(平成 26 年度一般研究開発助成 AF-2014209)

キーワード：レーザーピーニング、微細化、時間分解 X 線測定

## 1. 研究の目的と背景

材料損傷における主な原因は、材料表面からの応力腐食割れや材料自身の疲労によるところが大きい。そのため材料のバルクとしての強度だけでなく、表面からの破壊を防ぐために表面を硬くする表面処理を施す必要がある。

加工硬化を目的とした表面処理法の一つとして、レーザーピーニングがある。パルスレーザーによるレーザーピーニング法は、高強度パルスレーザーを材料表面に照射することによって表面の残留応力の形成や、粒径の微細化により材料表面を加工硬化させることが出来る<sup>1,2)</sup>。この表面加工硬化技術は、原子炉内、化学プラントやタービンの羽根などの極限環境下で使用される材料に広く利用されている。このレーザーピーニングにはナノ秒以下のパルス幅をもつ高強度レーザー( $>10^{11}\sim 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>)を用いることで、表面加工硬化はナノ秒の時間域で形成される。レーザーピーニングは、実際にレーザー照射後に材料表面がレーザー吸収によりプラズマ化し、その反作用で衝撃波が発生し、衝撃波による塑性変形によって材料の粒径が微細化する動的プロセスである。そのため、パルスレーザーによる加工硬化のプロセスは、複雑かつ高速現象であるためレーザー照射後の加工硬化した試験片を観測する他なかった。レーザーピーニングの動的プロセス解明と高効率化には、塑性破壊に関わる衝撃波内の構造変化を観測する必要がある。本申請研究では、衝撃波の印加時間に対する降伏現象のパラメーターを理解するためにハイパワーレーザー照射時における金属粒径の微細化過程を放射光の硬 X 線パルスを用いたピコ秒時間分解 X 線回折測定により行った。

本論文では、パルス X 線と高強度パルスレーザーを組み合わせた時間分解 X 線回折測定による直接観測法の開発過程と、レーザー誘起衝撃波による多結晶金属のナノ微細化について述べている。

## 2. 実験方法

### 2・1 ピコ秒時間分解 X 線回折測定装置の概要

ピコ秒時間分解 X 線回折測定は、高エネルギー加速器研究機構にある蓄積型放射光施設の Photon Factory Advanced Ring (PF-AR、6.5 GeV) の時間分解 X 線測定専用ビームラインの AR-NW14A で行った<sup>3)</sup>。レーザー誘起の衝撃波発生には波長 1064 nm、パルス幅 8 ns、1 J/pulse の Nd:YAG レーザー (DLS 8000、Continuum 社) を用いた。

プローブには 15.4 keV、エネルギー幅  $\Delta E/E = 1.46\%$ 、パルス幅 100 ps の硬 X 線パルスを用いた。衝撃波駆動のための高強度パルスレーザーとパルス X 線をベースとしたポンプ・プローブ法により、表面加工硬化過程の瞬間を X 線 1 パルスで測定するスナップショット型時間分解粉末 X 線回折法を開発した。

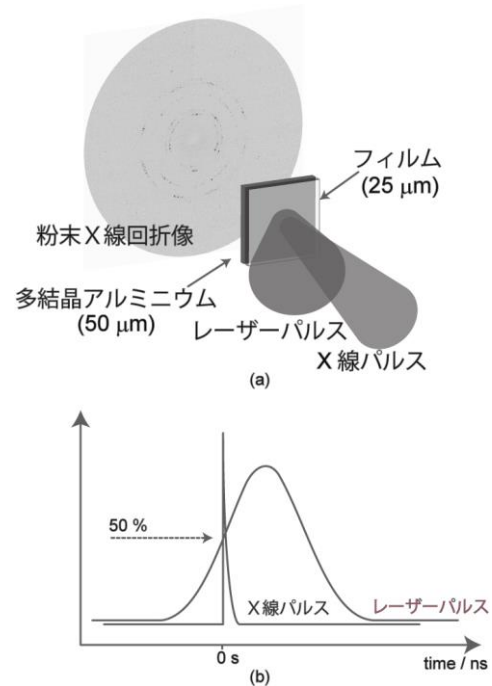


図 1 (a)ピコ秒時間分解粉末 X 線回折の概略図、(b)パルス硬 X 線とレーザーパルスのタイミング

図 1 に、ピコ秒時間分解 X 線回折測定の概略と、パルス硬 X 線とレーザーパルスのタイミングを示す。パルス硬 X 線は、PF-AR から 794 kHz で出力され、RF 加速空洞の高周波信号をマスタートラックとして、X 線パルスセレクターにより 946 Hz (794 kHz/840) まで分周し、高速ソレノイドシャッターにより 1 パルス取り出す<sup>4,5)</sup>。またレーザーは X 線パルスセレクターと同様にさらに 1/100 分周した 9.46 Hz の電気信号で同期させた後に、X 線の 1 パル

ス切り出しに対応させてレーザーも同様に1パルスのみ切りだす。レーザーパルスとパルス硬X線の遅延時間は、パルス遅延時間発生装置により $\pm 1$  nsの精度で制御している。1遅延時間毎のX線回折パターンはX線2次元検出器(MarCCD165, Rayonix社)により取得している。レーザー照射毎に試料はダメージが入るためレーザーショット毎に試料を交換して測定した。

## 2・2 レーザー誘起衝撃波と試料構成

本研究には試料として10 mm × 10 mmの厚さ0.05 mmの平板の多結晶アルミ箔にアブレーターである0.025 mmの厚さのPETフィルムを貼り付けたものを用意した。パルスレーザーは、アルミニウム表面に集光照射し、アルミニウムのレーザーアブレーションで発生する粒子放出(プラズマおよび中性子放出)の反作用として、衝撃波圧縮を誘起する。短時間の圧縮によって発生する衝撃波は試料内部を伝搬し、衝撃波による歪みから塑性破壊によって金属の粒子が微細化及び不均一歪みが増大する。比較的低出力のレーザー照射の場合には、本研究で用いたプラズマ閉じ込め型ターゲットとよばれるターゲット構成が用いられる<sup>6)</sup>。これは、レーザーアブレーターのアルミニウム箔上を透過材料で覆うもので、噴出したプラズマを試料と透明材料の間に閉じ込めることで、発生する応力の大きさと持続時間を増加させることができる。この方法は、透明材料のブレイクダウン閾値( $\sim 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>)以下で有効な方法である。レーザーピーニングでも同様に表面に水などを用いて行う手法である<sup>7)</sup>。

## 3. 結果と考察

### 3・1 衝撃圧縮下におけるアルミニウムの時間分解X線回折

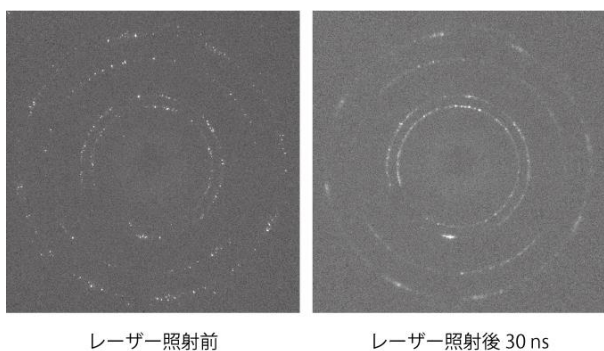


図2 レーザー照射前(左)とレーザー照射後30nsの多結晶アルミニウムの時間分解粉末X線回折パターン

図2にレーザー照射前とレーザー照射後30 nsのX線1パルスによるスナップショットの粉末線回折像を示す。レーザー照射前は、数ミクロン以上の金属粒子からのスポットの回折が多数観測出来たが、レーザー照射後衝撃波が伝搬し脱圧した時にはスポット状な回折像から同心円に

近い粉末X線回折像になった。これは衝撃波伝搬により塑性破壊が進み粒子が微細化されたことを意味する。

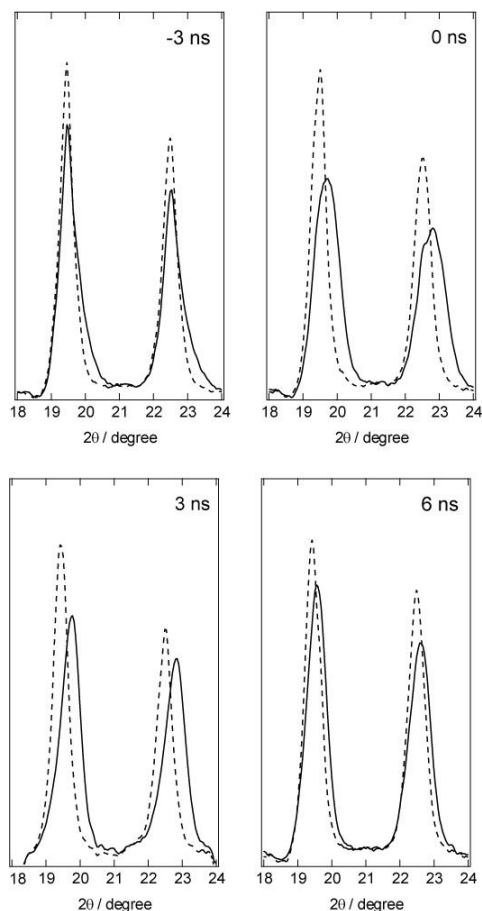


図3 多結晶アルミニウムの111と200の回折ピークのシフト。レーザー照射前(点線)とレーザー照射後(実線)の回折プロファイルの比較

平均圧力値を見積もるために各遅延時間で測定した2次元検出器で観測した粉末回折像を同心円状に積分し比較した。図3に遅延時間 $\Delta t = -3, 0, 3$ と6 nsにおけるアルミニウムの111と200の回折プロファイルの時間変化を示す。ブラックの条件式から各遅延時間で高角側にシフトしていることから衝撃波により圧縮されている。 $\Delta t = 3$  nsで最も高角側にしていることから衝撃波が試料の裏面に到達したと考えられる。 $\Delta t = 3$  nsの111のピーク位置とアルミニウムの状態方程式から平均衝撃圧力( $P_H$ )を算出した。111のピークシフトによる格子定数から試料の圧縮率 $\eta$ を導くことが出来る。

$$\eta = 1 - \frac{V}{V_0} = 1 - \left(\frac{d}{d_0}\right)^3 \quad (1)$$

$V$ と $V_0$ は衝撃圧縮中の体積と初期体積、 $d$ と $d_0$ は衝撃圧縮下と初期の格子定数である。111 から平均衝撃圧力を Hugoniot の状態方程式により次式により見積もった<sup>8)</sup>。

$$P_H = \frac{\rho_0 C_0^2 \eta}{(1 - s\eta)^2} \quad (2)$$

$\rho_0$ は初期密度、 $C_0$ は縦波音速、 $s$ は衝撃パラメーターであり、弾性域を越えた塑性域では衝撃波速度( $U_s$ )と粒子速度( $u_p$ )の間には $U_s = C_0 + s u_p$ が成り立つ。Michell で報告されている $C_0 = 5.389$  km/sと $s = 1.336$ を用いて見積もったところ $\Delta t = 3$  nsでの平均衝撃圧力は5.43 GPaと算出された。

### 3・2 衝撃圧縮下における金属粒微細化の評価

図4に2次元検出器で観測された同心円状の粉末X線回折パターンで測定されたスポット状の回折点の評価をするためにアジマス角に対する反射角のプロットに変換し、衝撃圧縮中の回折パターンから衝撃圧縮前のパターンを差分した。

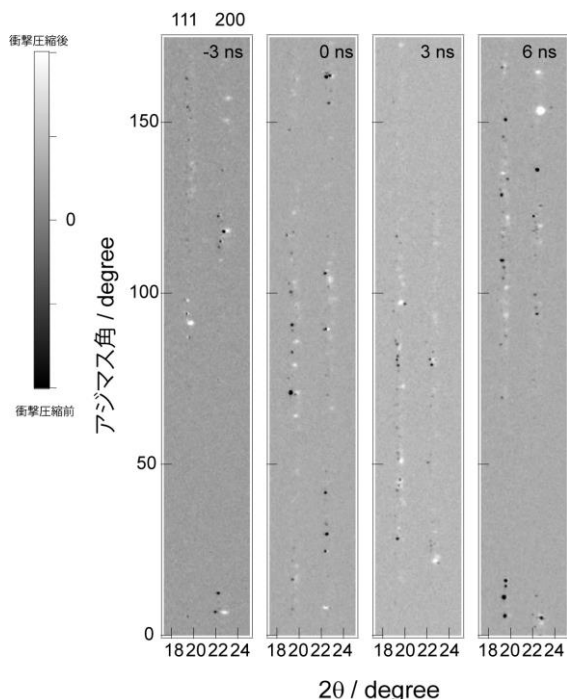


図4 遅延時間 $\Delta t = -3, 0, 3, 6$  nsの多結晶アルミニウムの111と200のアジマス角プロット。衝撃圧縮中の画像から衝撃圧縮前の画像を遅延時間毎に差分した。

スポット状の回折点は、 $\Delta t = -3$  nsでは衝撃波が十分進展していないため元のピークからシフトしたものと、数点の

新しい回折点が観測されるだけである。時間が進展するに従い、高角側にシフトした新しい回折点が観測され、 $\Delta t = 3$  nsと6 nsでは新しく出現した回折ピークが徐々に線上になることが観測された。これは、衝撃波進展下の衝撃波内の金属粒子が、衝撃波誘起による塑性破壊によって微細化し、粒同士の摩擦や局所的な応力によって微細化した粒が回転した結果、逆格子ベクトルが Ewald 球内にある微細化したアルミの粒子の回折ピークであると言える。また新たに出現したピークは、ブロードニングしていることから衝撃波により微細化し、また粒内の不均一歪みも増大していると考えられる。

衝撃圧縮後の回折ピークの幅の平均値から Williamson-Hall プロットを用いて粒子サイズと不均一歪みを算出した。回折のピーク幅の分布を得るために各遅延時間の回折像を25枚取得し、111、200、220、311と222の回折点の回折幅を Gaussian fittingにより求め統計を取った。各回折ピークの回折点は約2000点以上から回折幅の分布を取得した。図5に111の回折幅の分布を示す。衝撃圧縮後に回折幅は、塑性破壊によりブロード化していることが分かる。

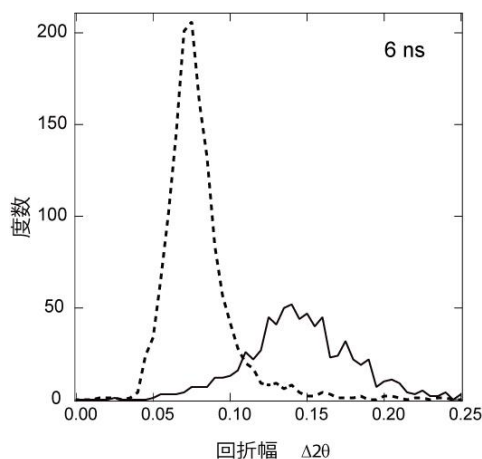


図5 衝撃圧縮前(点線)と衝撃圧縮後(実線)のアルミニウムの111の回折幅の分布

$\Delta t = 6$  nsでは観測された回折ピークは衝撃波により微細化されて約2倍の回折幅になった。他の回折線でもどのようにプロットし、分布幅( $\beta_{hkl}$ )のピーク位置に対して Williamson-Hall プロットを行い以下の式より衝撃圧縮下における多結晶アルミニウムの結晶子サイズと格子歪みを求めた<sup>11)</sup>。

$$\beta_{hkl} \frac{\cos\theta}{\lambda} = \left(\frac{k}{D}\right) + 4\varepsilon \frac{\sin\theta}{\lambda} \quad (3)$$

ここで、 $\lambda$ と $D$ はX線の波長と結晶サイズを示し、 $\epsilon$ は格子歪みを示す。図6に衝撃圧縮前と衝撃圧縮後 $\Delta t = 6$  nsにおける多結晶アルミニウムのWilliamson-Hallプロットを示す。

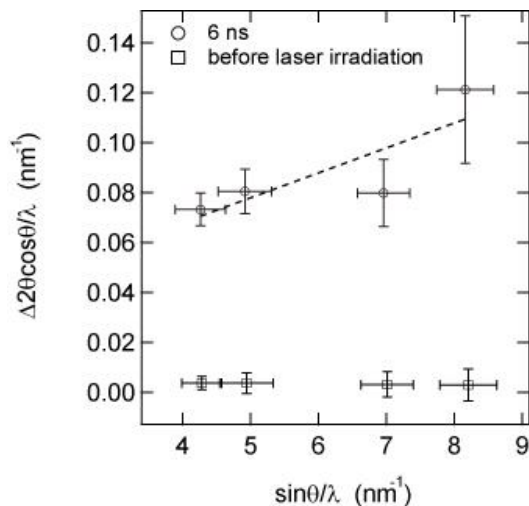


図6 衝撃圧縮前と衝撃圧縮後 $\Delta t = 6$  nsにおける多結晶アルミニウムのWilliamson-Hallプロット

衝撃圧縮後 $\Delta t = 6$  nsでは、結晶子のサイズに対応する切片と格子歪みに対応する傾きが大幅に増加していることから格子歪みは増大し、結晶子は小さくなった。式(3)を衝撃圧縮後 $\Delta t = 6$  nsのデータにフィッティングすることにより、粒径数ミクロンサイズ以上の粒径から、不均一な格子歪み1%、結晶子サイズは32 nmになっていることが分かった。以上の結果から、ピコ秒時間分解X線回折によりレーザー誘起の衝撃波通過後にナノ秒以下で微細化し、衝撃波内では結晶子が微細化と共に衝撃波内の摩擦などにより回転していることが明らかになった。

#### 4. 結び

本研究では、蓄積型放射光施設のX線パルスを用いた時

間分解X線回折法を用いて多結晶アルミニウムの微細化過程の直接観測を行った。衝撃波内の構造変化を直接観測することで衝撃圧縮中の結晶粒の微細化と摩擦などによる結晶粒の回転を観測することが出来るようになった。今後、本研究で開発した時間分解X線測定技術を用いて鉄鋼材料や合金のレーザーピング加工における動的プロセスの解明していくことにより、高硬度表面加工法の開発につながることに期待できる。

#### 謝辞

本研究は、公益財団法人天田財団による一般研究開発助成(AF-2014209)のもと行われました。ここに記して、厚く感謝いたします。

#### 参考文献

- 1) P. Peyre, R. Fabbro, P. Marrien and H. P. Lieurade, *Mat. Sci. and Eng. A* **210**, 102 (1996).
- 2) C.S. Montross, T. Wei, L. Ye, G. Clark, and Y.-W. Mai, *Int. J. Fatigue*. **24**, 1021 (2002).
- 3) S. Nozawa, S. Adachi, J. Takahashi, R. Tazaki, L. Guerin, M. Daimon, A. Tomita, T. Sato, M. Chollet, E. Collet, H. Cailleau, S. Yamamoto, K. Tsuchiya, T. Shioya, H. Sasaki, T. Mori, K. Ichiyanagi, H. Sawa, H. Kawata, and S. Koshihara, *J. Synch. Rad.* **14**, 313 (2007).
- 4) K. Ichiyanagi, S. Adachi, S. Nozawa, Y. Hironaka, K.G. Nakamura, T. Sato, A. Tomita, and S. Koshihara, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 231918 (2007).
- 5) K. Ichiyanagi and K.G. Nakamura, *Metals* **6**, 17 (2016).
- 6) D. Devaux, R. Fabbro, L. Tollier and E. Barticki, *J. Appl. Phys.* **74**, 2268 (1993).
- 7) K. Ichiyanagi, N. Kawai, S. Nozawa, T. Sato, A. Tomita, M. Hoshino, K.G. Nakamura, S. Adachi, and Y.C. Sasaki, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 181901 (2012).
- 8) Y. Sano, K. Masaki, T. Gushi, and T. Sano, *Materials & Design* **36**, 809 (2012).
- 10) A.C. Michell and W.J. Nelis, *J. Appl. Phys.* **52**, 3363 (1980).
- 11) G.K. Williamson, and R.E. Smallman, *Philos. Mag.* **1**, 34, (1956).