

析出強化型アルミニウム合金の高強度継手を実現する 短パルスレーザー誘起圧力波支援高速レーザー溶接法の開発

大阪大学 大学院工学研究科 マテリアル生産科学専攻
教授 佐野 智一
(2019年度 重点研究開発助成 課題研究 AF-2019201-A3)

キーワード：レーザー溶接，アルミニウム合金，レーザー誘起応力波，凝固割れ

1. 研究の目的と背景

アルミニウム合金は、比強度、耐食性、加工性などに優れ、航空機や自動車などの製品に広く使用されている[1-3]。製造面では、生産時間、納期、コストの短縮のために、高速かつ高品質なレーザー溶接が求められている。アルミニウムは線膨張係数が大きいため、アルミニウム合金をレーザー溶接すると、凝固割れにより低融点の凝固相が発生する[4,5]。結晶粒の微細化は、凝固割れを低減し[6]、延性や強度などの機械特性を改善することから、材料強化法として用いられてきた[7,8]。一般に、合金を溶接して凝固させると、溶接粒の粗大化や低融点合金相の偏析が起こり、機械的特性の劣化や耐食性などの化学的特性の劣化を招く[6]。凝固金属の結晶粒を微細化出来れば、低融点合金相を分散させて歪の集中を解除し、耐凝固割れ性を大幅に改善出来る。

耐凝固割れ性を向上させるために、フィラーとともに微細化材を添加する方法[9,10]、溶接電極と平行に外部磁場をかける方法[11]、母材表面に超音波振動を与える方法[12]、挿入したタングステンプローブで溶融池に直接超音波振動を与える方法[13]、アーク発振法[14]などが検討されている。これらの処理により、初晶デンドライトの破碎・溶融[15]、誘導圧力による部分過冷却領域の形成[16]、不純物の濡れ性改善[17]が起こる。これらの研究において、等軸晶の形成が促進されるため、凝固割れ感受性が低下することが報告されている[9-17]。しかし、現在の結晶粒微細化法には、超音波振動の寸法制限、高温溶融池に接した状態での高速レーザー溶接の追従困難、フィラー投入による接種剤添加などの欠点がある。

レーザー溶接に追従する非接触の高強度応力波の発生は、高強度パルスレーザーを照射することで、アブレーションプラズマ膨張の反動力を発生させ、固体・液体内部に圧力波を伝播させることで実現出来る。レーザー駆動衝撃波の発生に関する研究は1980年代から数多く行われている[18-21]。例えば、波長1064 nm、パルス幅3 nsのNd:YAGレーザーを真空中のアルミニウムに照射すると10 GPaの衝撃圧力が発生する。ここでは、連続波(CW)レーザー溶接時に溶接プール周辺に高強度の短パルスレーザーを照射して粒状化する新しい溶接法である「短パルスレーザー誘起結晶化法」を提案する。短パルスレーザーを用いることで、現行法の欠点を回避しつつ、固液界面に応力波を印加して結晶粒を微

細化することが出来る。

短パルスレーザー照射による結晶粒微細化法をアルミニウム合金に適用することで、アルミニウムの凝固割れのない高速・高品質な溶接を実現出来る可能性がある。しかしながら、CWレーザー溶接時の短パルスレーザー照射がアルミニウム合金溶接金属の結晶粒微細化に及ぼす影響については、これまで報告されていない。そこで本研究では、レーザー溶接時に短パルスレーザーを照射し、短パルスレーザー照射位置が溶接金属の組織に及ぼす影響を調べることを目的とした。

2. 実験方法

厚さ3.175 mmの2024-T3アルミニウム合金を使用した。この合金の化学組成を表1に示す。レーザー溶接の前にアセトンで油分と水分を除去した。ビードオンプレートのレーザー溶接は、圧延方向と直交する方向で行った。レーザー溶接の実験装置の概略をFig.1に示す。溶接実験は、波長1070 nm、出力1000 Wのシングルモードファイバーレーザー(古河電工製、FEC1000S)を用い、溶接速度16.6 mm/sで実施した。

短パルスレーザー照射位置が凝固組織に及ぼす影響を評価するため、溶接レーザー照射位置と短パルスレーザー照射位置の相対位置を変化させた。短パルスレーザーの照射位置は、溶融池の前方、後方、境界、側方と変更した。この実験では、パルス幅10 ns、波長1064 nm、パルスエネルギー430 mJ、周波数10 HzのNd:YAGレーザー(Spectra-Physics社、Quanta-Ray)を使用した。レーザーパルスは、焦点距離2 mの平凸レンズを用いてスポットサイズ2.1 mmに集光し、 1.3×10^9 W/cm²の強度に相当する。短パルスレーザーの照射位置をFig.2に示す。本稿では、照射位置を(x,y)座標で表現し、例えば(x,y)=(1.5,0)とする。Fig.2に示すように、溶接方向を正のx軸で記述し、垂直方向をy軸で記述した。溶融池の形状やスポット径は、高速度カメラで測定した。

高速度カメラ(nac Image Technology社製、MEMRECAM HX-3)によるその場観察を行い、短パルスレーザー照射が溶融池の流れに及ぼす影響を観察した。この観察では、10,000 フレーム/秒を使用し、照明には、カメラ前方に中心波長940±10 nmのバンドパスフィルターと組み合わせた波長938±5 nmのレーザー(JENOPTIK Optical Systems GmbH, JOLD-45-CPXF-IL)を追加して使用した。

接合開始端から 15 mm 離れた位置から組織観察用の試料を取り出した。この試料をバフ研磨で鏡面研磨し、パーカー試薬を用いて電圧 20 V で 3 分間陽極電解エッチングを行った後、エッチング後の試料を偏光顕微鏡で分析した。

各照射条件の試験片について、Jeffries 法により平均粒径の測定を行い、短パルスレーザーが粒径に及ぼす影響を評価した。Jeffries 法では、対象面積 A 内の結晶粒数 N_a を測定することで粒径を算出する。対象領域の境界線上に位置する結晶粒の数を $1/2$ とカウントする。平均粒径 $d = \sqrt{A/N_a}$ は A と N_a から求めた。短パルスレーザーの影響領域を評価するために、各試験片の Fig.3 に示す領域で測定を行った。

最も結晶粒が微細化した $(x,y) = (-1,0)$ の短パルスレーザーを照射した試料についてビッカース硬さ試験を行い、結晶粒の微細化が硬さに及ぼす影響を測定した。硬さ試験は、ビード中心に沿った領域で、荷重 1.96 N、保持時間 10 s、

Table 1. Chemical composition of 2024-T3 (thickness: 3.175 mm) (mass %).

Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	Al
0.05	0.16	4.6	0.64	1.5	0.00	0.09	0.03	Bal.

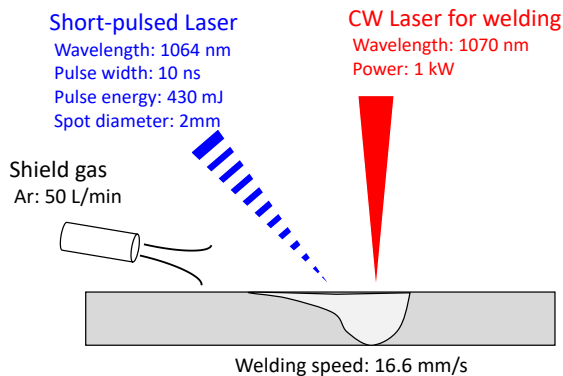
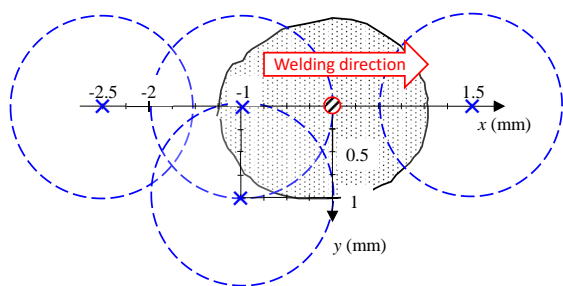


Fig. 1. Experimental setup for laser welding.



- ⊙ Position of CW laser irradiation
- ⊙ Shape of molten pool of A2024-T3 welded at 16.6 mm/s
- ⊙ Area of short-pulsed laser irradiation
- × Spot center of short-pulsed laser

Coordinate (x,y) of spot center of short-pulsed laser (unit: mm)	Position	Comment
(1.5,0)	Front	Partially inside
(-2.5,0)	Rear	Completely outside
(-1,1)	Side	Partially inside
(-1,0)	Boundary	Mostly inside

Fig. 2. Positions of laser irradiation.

測定間隔 200 μm で行った。測定位置を Fig.4 に示す。

3. 結果

短パルスレーザー照射時の溶接池表面の高速度カメラ画像を Fig.5 に示す。表面でアブレーションプラズマが確認された時刻を $T = 0$ とし、パルス幅が 10 ns であり、プラズマの発光時間が 2 フレーム (0.2 ms) 以上観測されていないことから、 $T = 0$ の定義の時間誤差は 0.1 ms 以内と判断した。レーザー溶接のみを行った場合、レーザーが直接照射された場所のみ酸化膜が熔融し、溶融池の表面には膜状に残っていることが確認された。これは、酸化アルミニウムの融点 (2072 $^{\circ}\text{C}$) が純アルミニウムの融点 (660 $^{\circ}\text{C}$) より高いために起こる現象である [1]。

溶融池内部に短パルスレーザーを直接照射した場合 $(x,y) = (-1,0)$ 、溶融池全体がアブレーション圧で大きく変形した。溶融池内部に部分的に照射した場合 $(x,y) = (-1,1)$ は、溶接線から 1 mm 離れた溶融池側面から波面が伝播することが確認された。いずれの条件でも、短パルスレーザーは溶融アルミニウムではなく、表面の酸化皮膜に照射された。

偏光顕微鏡による溶接金属の表面および垂直部の顕微鏡写真を Fig.6-8 に示す。なお、各画像における溶接方向は、画像の左から右に向かっている。Fig.6 に示すように、溶接速度 16.6 mm/s でレーザー溶接のみを行った場合の結晶粒構造を解析すると、溶接金属の組織は、母材からエピタキシャル成長した柱状結晶とストレイ結晶が主であり、等軸結晶はほとんど形成されていないことがわかる。

Fig.7(a)の顕微鏡写真は、溶融池 $(x,y) = (-1,0)$ 内で短パルスレーザーを主に照射した試料の結晶粒構造を示す。ビード面により、結晶粒微細化領域が半円状に周期的に形成され

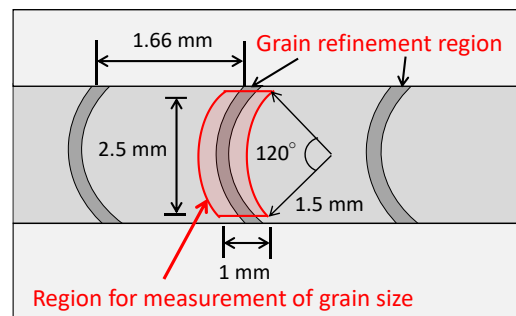


Fig. 3. Grain size measurement region.

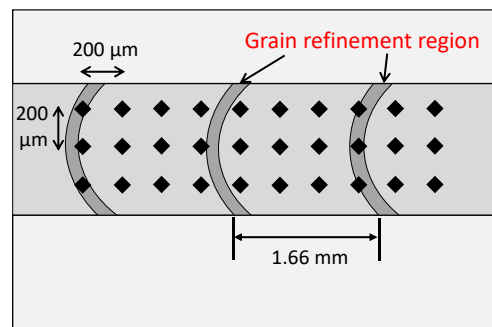


Fig. 4. Schematic of measured positions for the hardness test.

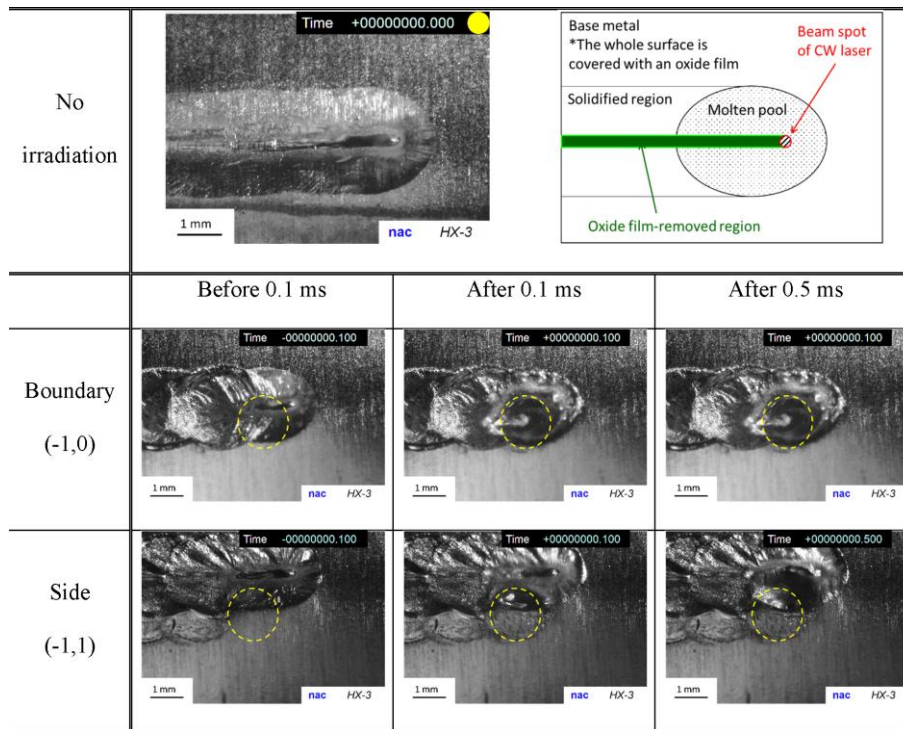


Fig. 5. High-speed photographs of 2024-T3 aluminum alloy irradiated at various positions. Yellow dashed circles indicate short-pulsed laser irradiation area.

ていることがわかる。Fig.7(b)は垂直断面図、Fig.7(c)はFig.7(b)で示した領域 A を拡大した図である。Fig.7(c)に見られるように、粒状に微細化された領域は、深さ約 1 mm で一列に存在した。

Fig.8 は、溶融池内で部分的に照射した試験片の観察結果(x,y) = (-1,1)である。粒状微細化領域も半円状に周期的に形成されていた。Fig.7 および Fig.8 に示すように、結晶粒微細化領域の間隔は 1.66 mm であった。溶接速度が 16.6 mm/s、短パルスレーザーの繰り返し周波数が 10 Hz であることから、パルスの空間間隔は 1.66 mm/パルスとなり、これが結晶粒微細化領域の間隔に相当する。したがって、これらの結晶粒微細化領域は、パルスレーザーの照射によるものである。また、短パルスレーザーは溶融池の一部に照射されたが、結晶粒の微細化領域は半円形であった。これは、短パルスレーザーが直接照射されない固液界面でも短パル

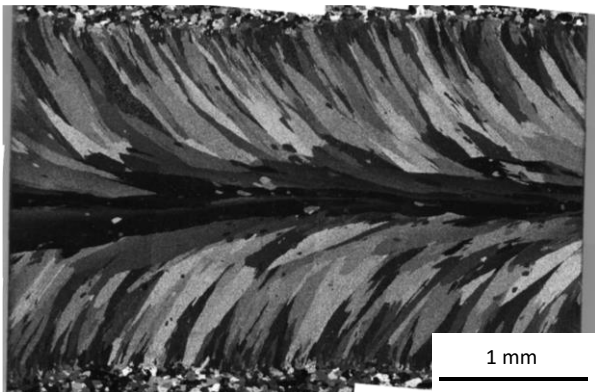


Fig. 6. Polarized optical microscope image of 2024-T3 aluminum alloy without short-pulsed laser irradiation.

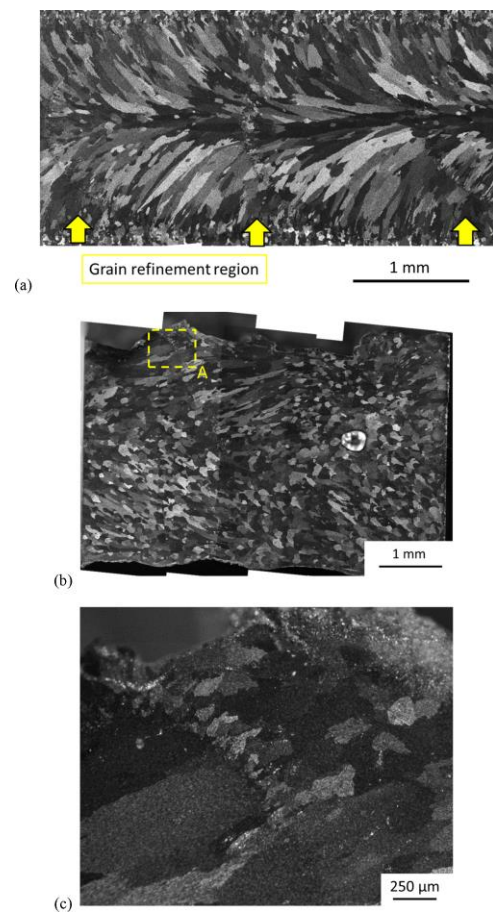


Fig. 7. Polarized optical microscope image of 2024-T3 irradiated by short-pulsed laser at boundary (x,y)=(-1,0). Micrographs show the (a) front surface, (b) vertical cross-section, and (c) magnified image of Region A in (b).

スレーザが有効であったことを示す。

各レーザ照射条件における結晶粒の数を測定し、Fig.9に示す平均結晶粒径を算出した。このグラフから、パルスレーザを照射すると平均結晶粒径が減少し、溶接用レーザの後方1mmを境界としてパルスレーザを照射すると、平均結晶粒径が著しく減少することがわかる。しかし、溶接レーザの前後で短パルスレーザを照射した場合は、結晶粒の微細化効果は小さかった。結晶粒数の測定領域には、結晶粒が微細化されていない領域も含まれるため、結晶粒微細化領域の厳密な平均結晶粒径は小さくなった。例えば、Fig.7(a)では、微細な結晶粒の粒径は約30 μm であった。

レーザ溶接時に境界(x,y) = (-1,0)で短パルスレーザを照

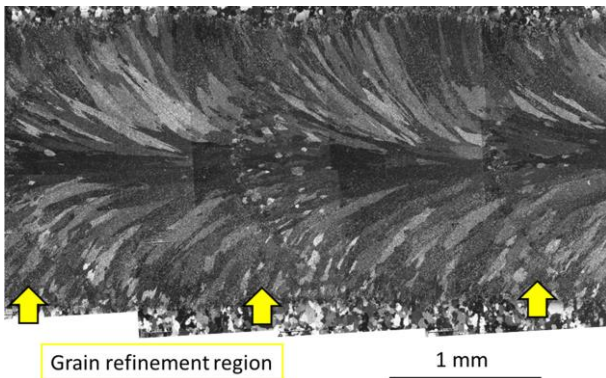


Fig. 8. Polarized optical microscope image of 2024-T3 aluminum alloy irradiated by short-pulsed laser at side (x,y) = (-1,1).

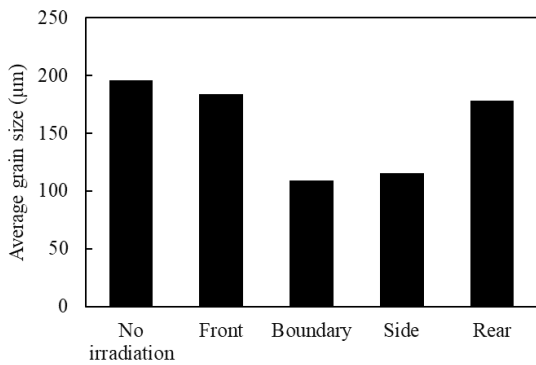


Fig. 9. The average grain size for each irradiation position.

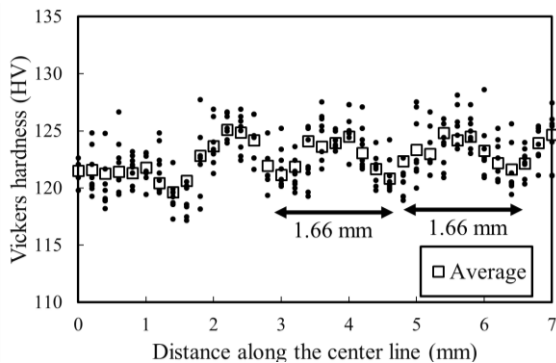


Fig. 10. Hardness distribution of longitudinal direction on surface irradiated at boundary (x,y)=(-1,0).

射した試験片の溶接金属のビッカース硬さ試験結果をFig.10に示す。母材の平均硬度は120 HVであった。このグラフから、溶接線に沿って硬度が周期的に上昇・下降していることがわかる。この周期は約1.66 mm 間隔であることから、硬度の上昇は短パルスレーザ照射による結晶粒微細化によるものであることがわかる。この結果から、パルスレーザの照射による結晶粒の微細化によって、ビッカース硬度を約5 HV 上昇させることが出来ることが分かった。

溶接凝固割れが発生する溶接条件下で、溶接池(x,y) = (-1,0)に短パルスレーザを照射した試験片の顕微鏡写真をFig.11に示す。これらの画像から、結晶粒の微細化領域では凝固割れの進行が抑制されていることがわかる。これは、結晶粒の微細化により低融点合金相が分散し、応力集中が緩和されたためである。この結果から、短パルスレーザ誘起結晶粒微細化法は、高速レーザ溶接において、結晶粒微細化剤を添加することなく凝固割れを抑制出来ることがわかった。

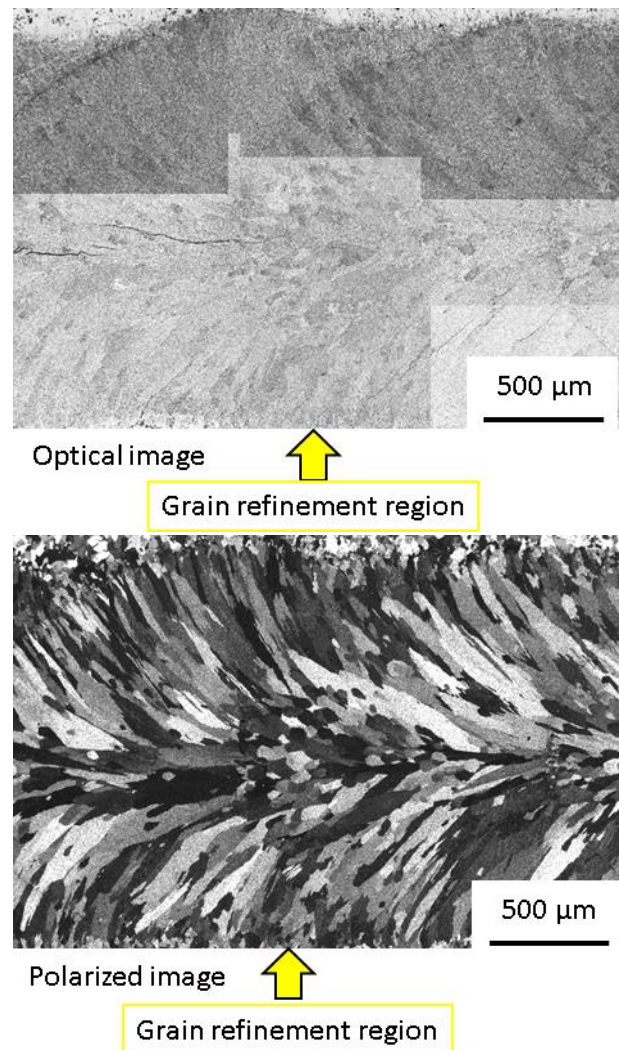


Fig. 11. Observation of crack end irradiated at boundary (x,y) = (-1,0).

4. 考察

Fig.7より、深さ 1 mm、幅 300 μm の固液界面に結晶粒微細化領域が生成されていることがわかる。実験結果から、この結晶粒微細化は、デンドライトの断片化と動的核生成の 2 つのメカニズムによって引き起こされることを提案した。

Fig.12 に示す通り、デンドライトの断片化に影響を及ぼす要因は、固液界面に影響を与える応力波の伝搬と強制対流であった。これらの要因は、表面で発生したアブレーションプラズマの反力によるものである。熔融金属の対流が物質と熱を伝播して固液界面に影響を与えるのに対し、応力波は圧力のみを伝播する。

超高压状態を発生させることができるため、1980 年代以降、短パルスレーザーによる物質伝播圧力波の基礎研究が盛んに行われている[18-21]。ここでは、プラズマ閉じ込め媒体を用いずにアルミニウムで行った実験で用いられている Phipps モデルを用いた。内部気泡、反射ストレス波、熔融プール内の温度勾配については、ここでは扱わない。表面には固体の酸化皮膜があったため、レーザーの吸収率は固体のアルミニウムと同様であったと考えられる。

Phipps らは、真空中でレーザー強度 (I , W/cm^2)、波長 (λ , μm)、パルス幅 (τ , ns) を広範囲に変化させた短パルスレーザー照射実験を行っている。アブレーション圧力の経験的傾向は、以下の式で表される[18,21]。

$$P_a/I = b(I\lambda\sqrt{\tau})^n, \quad (1)$$

ここで、 P_a はアブレーション圧力 (Mbar)、定数 b は材料に依存する (アルミニウムでは $b = 5.6$, $n = -0.3 \pm 0.03$)。この経験式は、レーザー強度が 3~70 TW/cm^2 、パルス幅が 1.5 ms~500 ps、波長が 10.6 μm ~248 nm の範囲で成立した。

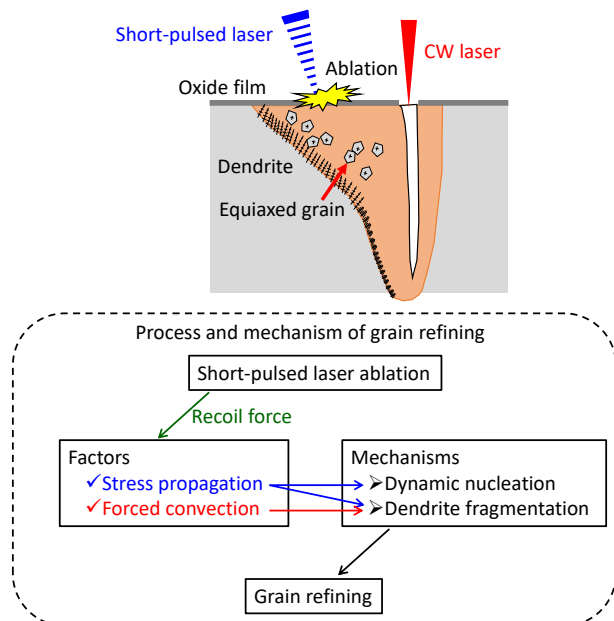


Fig. 12. Schematic of the process and mechanism of grain refining.

付与されたパルス力積 ζ は次式で表される。

$$\zeta = P_a \tau (\text{Mbar} \cdot \text{ns}) = 3.39 \times 10^{-3} \times I^{0.7} \times \lambda^{-0.3} \times \tau^{0.85}. \quad (2)$$

この式に短パルスレーザーの照射条件を代入し、最大アブレーション圧力を求めると、次のようになる：

$$P_a = 3.93 \times 10^{-1} \times I^{0.7} \times \lambda^{-0.3} \times \tau^{-0.75} = 0.328 \text{ GPa}. \quad (3)$$

従って、Phipps モデルにおけるアブレーション圧力は 328 MPa と推定された。

流体中に置かれた 1 本の棒が流れによって破断するモデルを用いて、高温におけるデンドライトの強度を評価した[22]。Frost and Ashbyによれば[23]、融点付近の温度で凝固した金属の降伏応力は、以下の式で表される。

$$\sigma_y = 10^{-3} \cdot E(T), \quad (4)$$

$$E(T) = E_{300} \left[1 + B \left(\frac{T - 300}{T_m} \right) \right], \quad (5)$$

ここで、 σ (MPa) は降伏応力、 $E(T)$ (GPa) は絶対温度 T でのヤング率、 E_{300} は 300K でのヤング率 (70 GPa)、 T_m は融点 (933K)、 $B = -1.33$ (アルミニウムの場合) [24]。融点での降伏応力は 6.8 MPa と推定され、Phipps モデルで推定した応力波 328 MPa より小さく、デンドライトが変形・破壊したことがわかる。

結晶粒の微細化領域は表面から 1 mm の深さであったため、デンドライトの破断は溶湯の対流によるものと考えられる。熔融池に流れ込んだ破砕されたデンドライトが核となり、微細な等軸結晶を形成したと考えられる。

一般に、鋳造や溶接の工程では、熔融金属中に酸化物、炭化物、窒化物、硼化物などの不純物粒子が混入している。圧力によって熔融池中の不純物の濡れ性が向上し、不純物粒子が不均一な核として機能するようになったという仮説がある[10]。

あるいは、圧力の上昇により一時的な凝固温度変化 dT/dp が発生し、融点上昇に伴う過冷却度の増加により不均一核生成が発生する[25]。これはクラペイロン式で示され、

$$\frac{dT}{dp} = T_E \frac{(V_L - V_S)}{L}, \quad (6)$$

ここで、 V_L と V_S はそれぞれ平衡凝固温度 T_E における液体と固体の体積であり、 L は凝固潜熱である。凝固に伴う体積変化は、 $(V_L - V_S)$ の項によって含まれる。クラペイロンの式は、体積収縮する金属の凝固時の凝固温度が、圧力の上昇に伴って上昇することを示す。核生成温度付近まで冷却された液体に高压をかけると、凝固温度が上昇して急速に過冷却状態になり、不純物などの不均一な核が有効に働き、結晶粒構造が微細化される[17]。

粒子が微細化した領域が固液界面に集中するという実験結果は、凝固温度付近で過冷却度が増加するという説明と一致する。短パルスレーザーアブレーションで発生する圧力波は、不純物の濡れ性を向上させ、不均一な核生成を促進するため、微細化メカニズムのひとつと考えられる。

5. 結論

レーザ溶接時に短パルスレーザアブレーションを行うことで、一般的に割れ感受性が高いとされている 2024 アルミニウム合金溶接金属の結晶粒を微細化し、凝固割れの進行を抑制することができた。ビッカース硬度試験の結果、結晶粒微細化の効果により硬度が上昇することが確認された。短パルスレーザで発生した圧力波が高温状態のデンドライト強度を超えたため、デンドライト破砕による等軸結晶形成サイトの増加が結晶粒微細化機構の一つであると考えられる。実験結果から、デンドライトの破砕と動的核生成という 2 つのメカニズムによって結晶粒の微細化が引き起こされると推測される。

本手法は、微粒化材を添加することなく、高速レーザ溶接における凝固割れを抑制できる可能性がある。本手法を用いてアルミニウム合金溶接部の凝固組織を改善することで、信頼性の高い高速レーザ溶接が可能となり、アルミニウム合金の応用範囲が広がる。

謝 辞

本研究を遂行するにあたりご支援頂きました公益財団法人天田財団に心より感謝申し上げます。

参考文献

- [1] George E. Totten and D. Scott Mackenzie, Handbook of Aluminum, CRC Press, (2003).
- [2] Tolga Dursun, Costas Soutis, Mater. Des. 56, 862 (2014).
- [3] G. S. Cole and A. M. Sherman, Mater. Charact. 35, 3 (1995).
- [4] J.C. Ion, Sci. Technol. Weld. Join. 5, 265 (2000).
- [5] Christian Hagenlocher, Daniel Weller, Rudolf Weber and Thomas Graf, Sci. Technol. Weld. Join. 24, 313 (2019).
- [6] G. J. Davies and J. G. Garland, Int. Met. Rev. 196, 83 (1975).
- [7] W. A. Petersen, Weld. Res. Suppl. 53, 74 (1973).
- [8] E. O. Hall, Proc. Phys. Soc. B, 64, 747 (1951).
- [9] P. S. Mohanty, and J.E. Gruzleski, Acta Metall. 43, 2001 (1995).
- [10] G. I. Eskin, and D. G. Eskin, Ultrasonic Treatment of Light Alloy Melts, CRC Press, (2014).
- [11] B. P. Pearce, and H. W. Kerr, Metall. Trans. B, 12B, 479 (1981).
- [12] Qi-Hao Chen, San-Bao Lin, Chun-Li Yang, Cheng-Lei Fan, and Hong-Liang Ge, Acta Metall. Sinica 29, 1081 (2016).
- [13] Yuan Tao, Kou Sindo, and Luo Zhen, Acta Mater. 116, 144 (2016).
- [14] Yuan Tao, Luo Zhen, and Kou Sindo, Acta Mater. 116, 166 (2016).
- [15] Wang, S., Kang, J., Guo, Z., Lee, T.L., Zhang, X., Wang, Q., Deng, and C. Mi, J., Acta Materialia 165, 388 (2019).
- [16] J. D. Hunt, and K. A. Jackson, J. Appl. Phys. 37, 254 (1966).
- [17] A. Ramirez, M. Qian, B. Davis, T. Wilks, and D. St John, Scripta Mater. 59, 19 (2008).
- [18] R. Fabbro, J. Fournier, P. Ballard, D. Devaux, and J. Virmont, J. Appl. Phys. 68, 775 (1990).
- [19] S. J. Davies, C. Edward, G. S. Taylor, and S. B. Palmer, J. Appl. Phys. 26, 329 (1993).
- [20] B. P. Fairand and A. H. Clauer, J. Appl. Phys. 50, 1497 (1979).
- [21] C. R. Phipps, T. P. Turner, R. F. Harrison, G. W. York, W. Z. Osborne, G. K. Anderson, X. F. Corlis, L. C. Haynes, H. S. Steele, and K. C. Spicochi, J. Appl. Phys. 64, 1083 (1988).
- [22] J. Pilling, and A. Hellawell, Metall. Mater. Trans. 27A, 229 (1996).
- [23] H. J. Frost and M. F. Ashby, *Deformation Mechanism Maps: The Plasticity and Creep of Metals and Ceramics*, Press Oxford, UK(1982).
- [24] J. Pilling and N. Ridley, Acta Metall. 34, 669 (1986).
- [25] J. D. Hunt and K. A. Jackson, J. Appl. Phys. 37, 254 (1966).