

高輝度 X 線 (接合研~ SPring-8) を利用した溶接・接合研究



特集
接合科学研究所
産学連携シンポジウム

大阪大学接合科学研究所 接合界面機構学分野 准教授 柳 楽 知 也 氏
大阪大学接合科学研究所 接合界面機構学分野 教授 藤 井 英 俊 氏

1. はじめに

材料研究において、起きている現象をありのままに観察するその場観察は、実証的な知見を直接与えてくれる極めて有効な手法である。しかしながら、高温の現象である金属凝固や固相変態などは、その場観察が困難であるため、モデル実験、シミュレーション、凝固・変態後の組織観察などから組織形成過程の解明が従来行われてきた。

この10年の間に金属凝固の研究においては、ハイスピードカメラやレーザー顕微鏡を利用したその場観察だけでなく、大型放射光施設 (SPring-8) において放射光 X 線を利用した X 線イメージングによるその場観察が世界中で盛んに行われてきた^[1-3]。放射光 X 線を利用すれば、透過像を高い時間分解能、空間分解能で撮影できるため、動的な凝固現象の観察にとって極めて有効である。ただし、アーク溶接中の凝固現象の場合、通常の铸造プロセスと比べて温度勾配や凝固速度が極めて高く、強烈なアーク光は、有害な紫外線を含む過酷な実験環境であるため、その場観察例が極めて少ないのが現状である^[4]。これまでにステンレス鋼や炭素鋼を対象として放射光を利用した時間分解 X 線回折によるその場観察が行われ、TIG 溶接時の熔融・凝固過程、固相変態の観察に成功している^[5]。近年、筆者らのグループにおいて、X 線イメージングと X 線回折を組み合わせたその場観察手法も開発されている^[6-8]。

熔融凝固を伴わない接合研究においては、摩擦熱と材料流動を利用した固相接合法の一種である摩擦攪拌接合において、X 線イメージングを利用した材料流動のその場観察が行われている^[9]。

本稿では、X 線イメージングの原理やアーク溶接で発生する凝固割れを対象としたその場観察の実施例を中心に紹介する^[6-8]。

2. X 線イメージングによるその場観察の原理

X 線の吸収イメージングによる透過像の観察原理

について述べる。透過 X 線の強度 I は、入射 X 線強度 I_0 、線吸収係数 μ 、試料の厚さ t を用いて次式で表される。

$$I = I_0 \exp(-\mu t) \quad (1)$$

また、線吸収係数は、構成元素 i の質量吸収係数 $(\mu/\rho)_i$ と質量密度 ρ_i 、平均密度 $\bar{\rho}$ 、質量分率 ω_i を用いて、次式となる。

$$\mu = \sum_i \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_i \rho_i = \bar{\rho} \sum_i \left(\frac{\mu}{\rho} \right)_i \omega_i \quad (2)$$

試料中の構成元素の質量吸収係数の差が大きいほど、線吸収係数の濃度依存性が大きくなり、明瞭な吸収コントラストを得ることができる。ただし、構成元素の組み合わせに注意する必要がある。Al-Cu 合金の場合、Al と Cu の質量吸収係数の差は、10 ~ 30 keV の範囲内で Cu は Al よりも質量吸収係数が 10 倍近く高い^[10]。さらに、 α -Al 結晶の成長中に液相へ溶質の Cu が排出され濃化が起こるため、凝固界面を比較的容易に吸収コントラストで検出できる。透過像から固相率、溶質分布、ひずみ分布などの定量データを高い精度で評価できる最適なモデル材料である。一方、炭素鋼の場合、炭素の X 線吸収係数は鉄に比べて極めて小さいため、濃度変化に応じたコントラストの画像を得ることができず、動的な観察は極めて困難である。近年、液相と固相の約 4% の密度差によって吸収コントラストを観察する手法の開発が行われ、炭素鋼であってもその場観察は実現可能となっている^[11-12]。

3. 放射光 X 線の特徴

先に述べたように、放射光 X 線を利用すれば、ラポでの X 線と比較して、極めて高い時間・空間分解能でその場観察が可能である。日本の SPring-8 は、

電子ビームの加速エネルギーが5 GeV以上の大型放射施設である。放射光は、光速に加速された電子が磁場により軌道方向を変えられた時、接線方向に発生する電磁波である。主な特徴として、硬X線から軟X線までの広い波長範囲を有している。X線の輝度は、ラボのX線発生装置と同程度のエネルギーにもかかわらず、約10億倍高い。X線の平行度が極めて高いなどが挙げられる。そのため、一般的な鋳造プロセスの条件であればミクロスケールでデンドライト成長などの動的な凝固現象の観察が可能である。20B2のビームラインでは、ピクセルサイズが約 $5\ \mu\text{m}/\text{pixel}$ 、観察視野が約5 mm角において、最大250 fps（露光時間4 ms）の観察が可能である。輝度の高い光源を利用したビームラインである20XUでは、ピクセルサイズが $0.5\text{--}1\ \mu\text{m}/\text{pixel}$ 、フレームレートが約10 fps（露光時間0.1 s）の高空間分解能の観察が可能である。

4. TIG 溶接現象のその場観察装置



図1 SPring-8の20XUハッチ内に設置されたその場観察用のTIG溶接装置^[6-8]

図1にSPring-8のX線ハッチ内（20XU）に設置したTIG溶接中の凝固現象のその場観察装置の外観を示す^[6-8]。X線の上流側からX線の経路上に沿って熱画像カメラ、試料ステージ、TIG溶接用のトーチ、X線フラットパネルセンサー、X線検出器が配置されている。熱画像カメラは、溶接過程をリアルタイムで二色法により試料の温度計測を行うことが可能である。試料ステージは、上下に駆動するZ軸ステージと連結している。トーチは固定されており、Z軸ステージを任意の速度と移動量で制御することにより、立向き下進でTIG溶接を行うことが

可能である。X線検出器は、CMOS型のカメラを用いた可視光変化型のビームモニタである。電極先端の直上の試料を透過したX線は、X線検出器に到達し透過像が撮影される。また、回折したX線は、X線フラットパネルセンサーに到達し、ラウエ回折パターンが撮影される。すなわち、本装置により、透過像の撮影、X線回折、温度計測をすべて同期させて実験することが可能である。

5. TIG 溶接現象のその場観察例

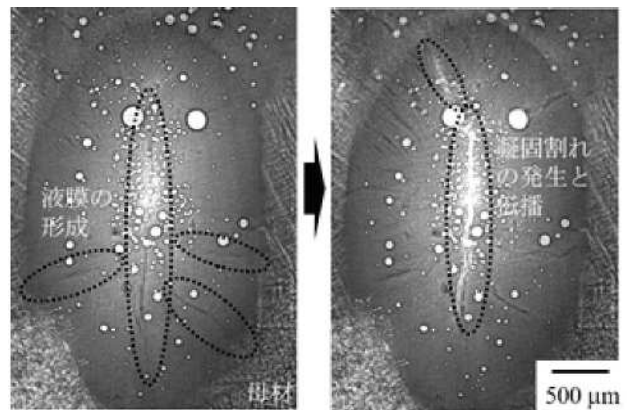


図2 Al-Cu合金におけるクレーター部の凝固割れのX線透過像^[7]

これまでに筆者らのグループでSPring-8にて行ったAl-Cu合金とステンレス鋼（SUS316L）のその場観察例を紹介する。図2にAl-10mass%Cu合金におけるクレーター部において発生した凝固割れの観察例を示す^[7]。輝度の高い灰色の領域が固相、輝度の低い黒色の領域が液相である。X線が完全に吸収されず透過した領域は白くなるため、気泡や開口した割れは容易に観察することができる。凝固過程で H_2 の気泡が融液から生成される過程も明瞭に観察されており、一部の気泡は凝固組織にトラップされて残留しているのが分かる。アーク消灯直後にほぼ楕円状の熔融池が形成され、周囲から中央部に向かって、 $\alpha\text{-Al}$ の柱状晶のデンドライトが成長する。図中の丸印に示しているように、デンドライト同士が対峙する熔融池の中央部やデンドライトアーム間において直線状に液膜が形成される。液膜部の輝度は、凝固前の完全液相の輝度よりも低くなっており、Cu濃度が増加したことを示している。凝固がさらに進行するにつれて、凝固収縮に伴う引張応力によって、液膜の間隔が広がり、周囲から液相が補給さ

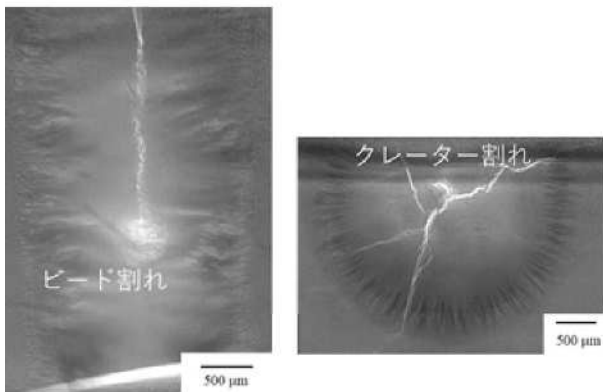


図3 SUS316Lにおけるビード部とクレーター部の凝固割れのX線透過像 [8]

れなくなると、開口した割れが形成する。また、中央部の割れが、周囲のデンドライトアーム間などの液膜部へと伝播する過程も観察されている。

図3にSUS316Lのビード部とクレーター部において発生した凝固割れの観察例を示す [8]。割れの発生時の液相の消失により、輝度が大きく変化するため、X線の輝度の計時変化を測定することにより、割れの起点を特定することができる。ビード部ではオーステナイトのデンドライトの成長方向がほぼ、溶接方向に対して垂直であるため、デンドライト同士が対峙したビードの中央部で割れが直線的に進展する。一方、クレーター部では、母材の周囲から中心部に向かってデンドライトが成長するが、デンドライト同士の競合により三重点となる領域が多い。そのためAl-Cu合金のように、周囲に割れが伝播しやすくなり、割れの形態が複雑になる。また、温度計測を併用することにより、凝固割れの進展領域の温度範囲を特定することができる。

6. 摩擦攪拌接合の材料流動のその場観察例

放射光X線は、輝度が高いという特長を有しているが、X線エネルギーが一般的なラボのX線と同程度であるため、X線が透過できる試料厚さに限界がある。20XUのビームラインのX線の最大エネルギーは37.7 keVであり、Fe系の試料では0.2 mm程度まで試料を薄くする必要がある。一方、阪大接合研に設置されたX線透過型4次元可視化システムでは、マイクロフォーカスX線発生装置（最大電圧230 kV、解像度70 μm、最大撮影速度1000 frame/s）とミニフォーカスX線発生装置（最大電圧225 kV、解像度0.4 mm、最大撮影速度1000 frame/s）が対とな

っており、異なる角度から撮影することにより、三次元でのX線イメージングが可能である。ステンレス鋼であっても高いX線エネルギーのため、最大5 mm程度までX線を透過させることができる。材料中に挿入した超硬合金球（300 μm）のトレーサーをその場観察することにより、摩擦攪拌接合中の材料流動の挙動が明らかとなり、その材料流動は欠陥形成と密接に関係していることが示されている [9]。供試材が純アルミニウムおよび炭素鋼において材料流動のその場観察に成功している。比較的厚い試料においても、その場観察の対象がX線をほとんど透過しない金属や逆にX線を完全に透過する割れや気泡であれば、明瞭なコントラストが得られる。薄い試料でしか観察できない放射光X線と比較して、より実際に近い実験環境において接合および溶接現象のその場観察が可能であり適用範囲は広い。

7. 最後に

本稿では放射光X線を利用したX線イメージングを中心に基本原理から実施例について述べた。放射光X線を利用すれば、アーク溶接現象における固液界面、液膜、凝固割れ、気泡を対象にその場観察ができるようになってきた。今後、試料の組成、試料セル、溶接条件などの最適化により、これまで困難であったデンドライト成長などのミクロンスケールの組織形成の観察が可能となれば、さらなる溶接研究の発展に繋がると期待される。

参考文献

- 1) 柳楽知也、安田秀幸、C.M. Goullary, 杉山明、吉矢真人、上杉健太郎、梅谷啓二、放射光、25(2012)275-284.
- 2) N. Mangelinck-Noel, H. Nguyen-Thi, G. Reinhart, T. Schenk, V. Cristiglio, M.D. Dupouy, J. Gastaldi, B. Billia and J. Hartwig, J. Physics D, **38**(2005)A28-A32.
- 3) R.H. Mathiesen, L. Arnberg, F. Mo, T. Weitkamp, A. Snigirev, Phy. Rev. Lett., **83** (1999)5062-5065.
- 4) L. Aucott, D. Huang, B. Dong, S. W. Wen, J.A. Marsden, A. Rack, A.C.F. Cocks, Sci. Rep. **7**(2017)40255.

- 5) 小溝裕一、寺崎秀紀、鉄と鋼、94(2008)1-5.
- 6) 柳楽知也、藤井英俊、溶接学会誌、88(2019) 1-4.
- 7) 山下大輔、柳楽知也、釜井正善、青木祥宏、劉恢弘、藤井英俊、溶接学会全国大会講演概要 第102集 (2018)166-167.
- 8) D. Yamashita, T. Nagira, M. Kamai, Y. Aoki, H. Liu, H. Fujii, Proceedings of 4th international conference on welding and failure analysis of engineering materials, (2018) W3-1-5.
- 9) 森貞好昭、藤井英俊、溶接学会誌、88(2019) 18-21.
- 10) http://henke.lbl.gov/optical_constants/
- 11) H. Yasuda, T. Nagira, M. Yoshiya, N. Nakatsuka, A. Sugiyama, K. Uesugi, K. Umetani, ISIJ Int. 51(2011)402-408.
- 12) K. Nogita, H. Yasuda, A. Prasad, S.D. McDonald, T. Nagira, N. Nakatsuka, K. Uesugi, D.H. StJohn, Mater. Char. 85(2013)134-140.

