

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 24 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K14154

研究課題名(和文)3Dプリンタで形状だけでなく結晶方位も制御する基礎研究：単結晶セル格子多孔体創製

研究課題名(英文)Basic Study for Simultaneous Controlling of Shape and Crystal Orientation by Additive Manufacturing：Creation of Single Crystalline Cellular Lattice

研究代表者

小泉 雄一郎(KOIZUMI, Yuichiro)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：10322174

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：金属用3Dプリンタである電子ビーム(EB)積層造形を、形状だけでなく結晶方位も制御する手法として発展させるための基礎研究を行った。広く積層造形が適用されているNi基超合金ならびに生体用Co合金を対象として、EBの走査方向と造形物の方向と結晶方位の関係や、造形の基礎過程である微小溶融池の移動に伴う凝固結晶成長挙動とEB照射条件との関係を調べた。さらに凝固時の固液界面での温度勾配ならびに凝固速度を評価し、造形中の組織形成を予測するための基礎を構築した。加えて、結晶配向制御と格子多孔体の構造最適化の組み合わせにより、生体用Co合金の力学的生体親和性向上が期待される低ヤング率化が可能であることを示した。

研究成果の概要(英文)：Fundamentals have been studied for developing electron beam melting, a metal 3D printer, as a new method for controlling microstructure. The effects of scanning directions of energy beam and orientation of built object on the crystal orientation were examined for Ni-based superalloys and biomedical Co-based alloys by way of examples. Also, the relationship between energy beam condition and the solidification behavior accompanying the motion of sub-millimeter sized molten pool were investigated. Moreover, the fundamental method for predicting microstructure formation during fabrication has been established on the basis of the evaluation of temperature gradient and migration speed of solidification interface. With the aim to improve mechanical biocompatibility of Co-based alloys, it was also demonstrated that the combination of high strengths and low Young's moduli is possible through the combination of crystal orientation control by EBM and the lattice design by shape optimization.

研究分野：材料組織、材料プロセス、材料強度

キーワード：凝固・結晶成長 3Dプリンター 積層造形 力学特性 多孔体 構造最適化 組織制御 格子構造

1. 研究開始当初の背景

3Dプリンタと呼ばれる一連の積層造形技術が、革命的部材製造プロセスとして注目されている。最近では、レーザーや電子ビーム(EB)で粉末を選択的に熔融凝固させる手法が進歩し、金属でも完全な緻密体が得られるようになったため、材料組織制御による特性制御への関心が高まっている。申請者らは、EB 積層造形で造形した Ni 基超合金や生体用 Co-Cr-Mo(CCM)合金において、積層方向と EB 走査方向に $\langle 100 \rangle$ 方位が強く配向した単結晶状の組織を有することを示した[Acta Mater. 2014;64:154]。一方、セル格子多孔体や Ni 基超合金では結晶方位が不揃いであったが、予備加熱温度を上げることでより単結晶に近い結晶が得られることを見出した。この原因を追及し、さらに単結晶基板上で造形して基板からエピタキシャル成長させれば、より結晶方位と形状の高い自由度での制御が可能となり、例えば高強度方向に配向した複雑形状タービン翼やセル格子多孔体等、EB 積層造形法の3Dプリント能力と結晶組織制御方法としての能力を融合した材料創製による高性能な金属材料の開発に繋がると考え、本研究を着想した。

2. 研究の目的

金属用3Dプリンタである電子ビーム(EB)積層造形で見出した強い結晶配向性とエピタキシャル成長に注目し、同造形法を形状だけでなく結晶方位も制御する新しい材料創製法として発展させるための基礎研究を行う。具体的には、金属粉末の EB 熔融凝固における結晶成長挙動の、EBの走査方向・走査速度・エネルギー及び基板材料の結晶方位の影響を実験的に調べるとともに、柱状晶や等軸晶が成長する条件を、積層造形での高速熔融凝固条件に凝固結晶成長理論を拡張して科学的に理解・予測する。また、EB 積層造形法の有する3Dプリンタとしての能力と新しい結晶成長方法としての能力を融合して、新規高性能方向制御タービンブレードや高機能セル格子多孔体を設計・製造するための学理構築の基礎とする。

3. 研究の方法

(1) バルク材の造形条件と組織の関係

粒子径 45~150 μm (平均粒子径 74 μm) の Ni 基超合金ガスアトマイズ粉末を原料として、EBM 積層造形装置(Arcam 社製 EBM A2X)により、種々の方向に傾斜した、直径 15 mm、高さ 85 mm の円柱ロッド(Fig. 1)を、予備加熱温度、電子線の走査速度、出力を調整して、高エネルギー密度の条件と低エネルギー密度の条件で造形した。高エネルギー密度の条件では、予備加熱温度が高く、積層間隔も小さい。熔融用電子ビームの走査間隔も小さく、面積当たりエネルギー投入量(エネルギー面密度)が近くなるよう電流も小さくした。

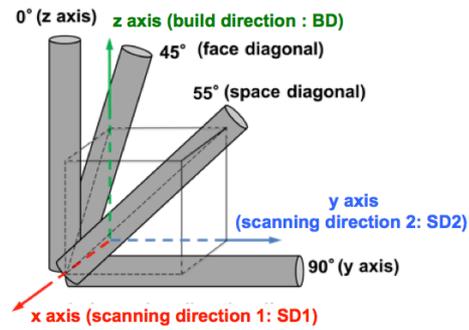


Fig. 1. Schematic drawing of cylindrical rod samples fabricated by electron beam melting (EBM) in various orientations [after S.H. Sun et al. (submitted)]

(2) シングルビード内の凝固組織評価

造形の素過程である微小熔融池移動に伴う凝固組織の形成に及ぼすビームの条件(強度、走査速度)の影響を調べるため、Arcam 社製の EBM“Arcam A2X”を使用し、Ni 基超合金製のバルク母材に、様々な条件(ビーム出力、走査速度)で、シングルビード実験(多結晶プレート上に粉末を積層せずにビームを走査)、シングルビードマルチレイヤー実験(多結晶プレート上への粉末の積層とビーム走査を繰り返してシングルビードを積み上げることによる高さ数 mm 程度の造形)を行った。シングルビード実験は、予備加熱有りの場合と無しの場合の2通り行った。数値熱流体力学シミュレーションにより固液界面における G と R を評価し、凝固マップを作成した。尚、粉末層モデルは、レイキングによる粉末層の形成過程を個別要素法 (DEM) によりシミュレーションして作成した。

(3) 格子多孔体の造形

3Dプリンタの登場によりはじめて製造可能となった形状への造形における結晶配向として、特に、人工関節として用いられており、骨との力学的な親和性が低いとされる Co-Cr-Mo 合金を対象として、格子多孔体造形における結晶配向性を調べるとともに、格子多孔体の単位構造の制御による力学特性制御を試みた。具体的には、体心立方構造の剛体球モデルの空隙と中実部分との反転させた構造(以下 inverse body centered cubic: ibcc 構造)を基本構造として、単気孔率を一定にしなが、単位胞の構造を、構造最適化計算により、局所的な応力の最大値を下げながら全体のヤング率を減少させる構造を設計し、実際に造形してその特性を圧縮試験により評価した。

4. 研究成果

(1) バルク材の造形条件と組織の関係

造形方法を揃えて、ビームの電流および走査速度の範囲、積層厚さを変化させて造形した場合、低エネルギー密度では柱状晶と等軸晶が混在した組織となつたのに対し、高エネルギーの条件では、等軸晶がなく全体が $\langle 100 \rangle$ 方向に強く配向した柱状晶組織となつた。このような組織の違いが現れた原因とし

て、(i) 投入エネルギー量の違いによる未熔融結晶の有無、(ii) 凝固時の温度勾配や冷却速度の違いによる結晶成長における組成的過冷や柱状/等軸遷移発現の有無が考えられる。形状だけでなく材料組織も制御するためには、ビームの条件と得られる凝固結晶の関係を解明する必要があることが示された。

造形空間に対して種々の方向に傾斜させて造形した Ni 基超合金の円柱状試料の結晶方位は、CCM 合金の研究で見出されたのと同様に、いずれの場合も基本的には、造形方向 (z 方向)、EB の走査方向 (x 方法、y 方向) のそれぞれに $\langle 100 \rangle$ 方向が配向したものとなった。その結果、Fig. 2 に示すように、EB 走査方向の一方と造形方向の中間の方向 (45° 方向) に平行に造形した円柱試料の軸方向は $\langle 110 \rangle$ 方向に配向する傾向が強く、x 方向、y 方向、z 方向の中間の方向、即ち辺が各方向に平行な立方体の立体対角方向に平行に造形した円柱試料の軸方向は $\langle 111 \rangle$ 方向が配向する傾向が強く表れた。そして、EB 走査方向に平行な中心軸をもつ円柱試料は、 $\langle 100 \rangle$ 方向に配向する傾向を示したが、その配向性は z 方向に平行に造形したものよりも低かった。

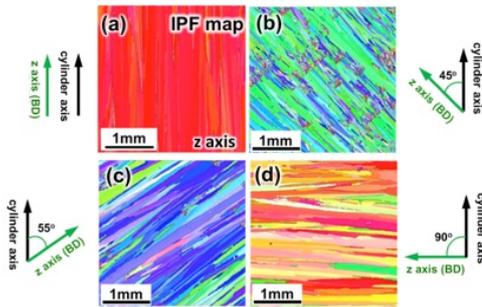


Fig. 2. EBSD-IPF orientation maps on vertical cross-section of EBM-built IN718 alloy rods with various orientations: (a) $\theta = 0^\circ$, (b) $\theta = 45^\circ$, (c) $\theta = 55^\circ$, and (d) $\theta = 90^\circ$. [after S.H. Sun et al. (submitted)]

(2) シングルビード内の凝固組織

シングルビードの凝固組織には、ビード上部中央に向かう柱状晶の成長や母材の結晶方位を引き継いだエピタキシャルな柱状晶、ビードの外周部分からの等軸微細粒の生成が観察された。エピタキシャル成長は予備加熱無しの条件で、等軸微細粒の発生は予備加熱有りの条件で生じやすく、予備加熱の有無によって凝固組織に大きな差異が生じた (Fig. 3)。シミュレーションにより、予備加熱 (950°C) を施すことで G が一桁程度減少して G/R の値が小さくなることが示され、予備加熱有りの条件では等軸微細粒が生じやすくなったと考えられる。また、 G と R をシミュレーションにより計算し、その位置に該当する凝固組織とを関連付ける独自の手法によって、今まで

存在しなかった Ni 基超合金の凝固マップの作成方法を確立した。さらに、DEM シミュレーションにより形成された粉末層モデル上を電子ビームが走査したときの熔融凝固過程を数値熱流体力学計算でシミュレーションすることで粉末の存在による熔融凝固挙動への影響を調べることも可能となった。

さらに、シングルビードを積層して幅 1mm 以下の薄壁を造形する実験を、種々の電子ビーム出力 (P) と走査速度 (V) の組み合わせにて行った。その結果、例えば、Fig. 4 にその一例を示す様に、単位距離当りのエネルギーが同じでも、 P と V の組み合わせにより、配向性の低い等軸的な組織から、 $\langle 100 \rangle$ 方向へ

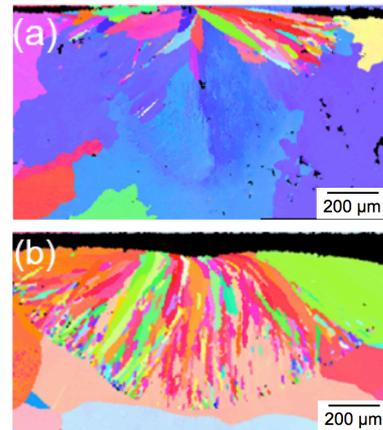


Fig. 3. EBSD-IPF orientation maps of the cross-section of single-track bead produced by electron beam scanned on plates of Ni-based superalloy at beam power of 1000 W and scanning speed of 100 mm/s under different conditions: (a) without preheating, (b) with preheating at 950°C .

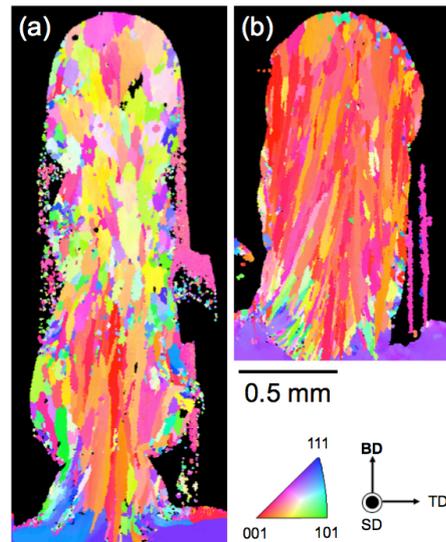


Fig. 4. EBSD-IPF orientation maps of the cross-section of walls of Ni-based superalloy produced by electron beam melting with different beam power (P) and scanning velocity (V) both with preheating at 950°C . (a) $P = 200\text{ W}$, $V = 200\text{ mm/s}$, (b) $P = 1000\text{ W}$, $V = 1000\text{ mm/s}$.

の配向性の強い柱状晶組織即ち単結晶状の組織を造り分けることができた。今後、この手法に基づき、凝固組織と凝固条件の対応関係のデータをより充実させるとともに予測技術を発展させ、組織を自在に制御する技術に発展させる基礎を構築することができた。

(3) 格子多孔体の造形

Fig. 5 に構造最適化計算によって、ヤング率を制御した格子多孔体の単位格子の例を示す。最適化前の構造 (Fig. 5a) と比較して、構造最適化計算により、局所応力の最大値を低減させながらヤング率を低減させられることが示された (Fig. 5 b)。Fig. 5c は比較のため、ヤング率を上げた場合であり、支柱が太くなっている。このように構造最適化計算により、局所的な応力の最大値を下げながら、即ち、最も降伏が生じやすい部分への負荷を抑えて、ヤング率を上げることと下げることが可能であることが示された。これらの計算で設計された格子多孔体を実施に EBM にて造形した CCM 合金製格子多孔体 (Fig. 6) は、円柱状試料を造形した場合と同様に、造形方向に $\langle 100 \rangle$ 配向する傾向を示した (Fig. 7)。 $\langle 100 \rangle$ 方向は低ヤング率を示すため、CCM 合金の骨との力学的親和性を向上させる上で荷重方向が造形方向となるように造形することが有効と期待される。そのように配向させた上で、さらに格子多孔体化によりヤング率を低減することで、10~25 GPa と骨と同等のヤング率を有する多孔体を得られた。この様に、今後、結晶方位の配向性をさらに高めるなど、造形中の組織制御をより高精度に制御する技術を開発させることで、構造最適化による格子多孔体の設計製造を新材料創製に発展させるための基礎を構築することができた。

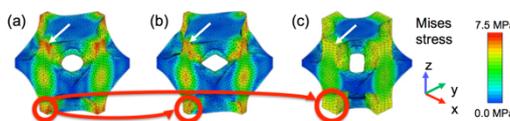


Fig. 5. Unit cell models of cellular lattice porous structures with (a) medium, (b) high, and (c) low Young's moduli. Colors indicate von Mises stress under compression to strain of 2×10^{-5} in z-direction [after Y. Koizumi et al. Add. Manu. 12 (2016) 305-313].

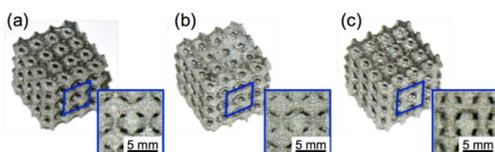


Fig. 6. Cellular porous lattices fabricated by EBM using various unit cell structures with (a) medium, (b) high, and (c) low Young's moduli. [after Y. Koizumi et al. Add. Manu. 12 (2016) 305-313]

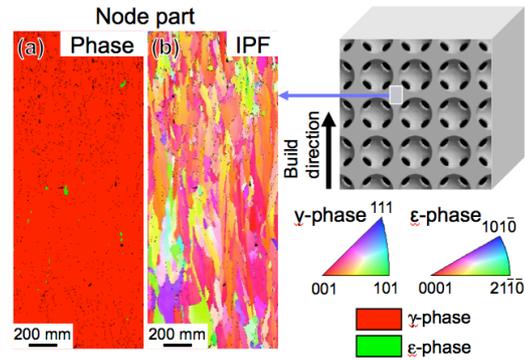


Fig. 7. (a) Phase map and (b) IPF orientation maps of the cross-section of Co-Cr-Mo cellular porous lattices fabricated by EBM low Young's moduli. [after Y. Koizumi et al. Add. Manu. 12 (2016) 305-313]

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 7 件)

- ① Yuichiro Koizumi, Arata Okazaki, Akihiko Chiba, Takahiko Kato, Akihiro Takezawa, Cellular lattices of biomedical Co-Cr-Mo-alloy fabricated by electron beam melting with the aid of shape optimization, Additive Manufacturing 12 (2016) 305-313. 査読有, DOI: 10.1016/j.addma.2016.06.001.
- ② Yufan Zhao, Yuichiro Koizumi, Kenta Aoyagi, Kenta Yamanaka, and Akihiko Chiba, Characterization of Powder Bed Generation in Electron Beam Additive Manufacturing by Discrete Element Method (DEM), Materials Today: Proceedings (in press) (2017) 査読有. <http://www.materialstoday.com/amorphous/events/rjcam-16/>
- ③ Yufan Zhao, Yuichiro Koizumi, Kenta Aoyagi, Kenta Yamanaka, and Akihiko Chiba, Modeling and Simulation of Electron Beam Additive Manufacturing for Biomedical Co-Cr-Mo Alloy, Proceedings of the Visual-JW2016 Vol. 3 (2016) pp. 48-49. 査読無.
- ④ Yuichiro Koizumi, Arata Okazaki, Akihiko Chiba, Takahiko Kato and Akihiro Takezawa, Cellular lattice of biomedical Co-Cr-Mo alloy fabricated by electron beam melting, Proceedings of the Visual-JW2016, Vol. 3 (2016) pp. 50-51. 査読無.
- ⑤ Yuichiro Koizumi, Shihai Sun, Xiao Ding and Akihiko Chiba, Microstructure and Creep Behavior of Alloy 718 fabricated by Electron-Beam Melting, Proceedings of the Visual-JW2016 (2016) Vol. 1 (2016) pp. 13-14. 査読無.
- ⑥ Xiao Ding, Yuichiro Koizumi, Akihiko Chiba, Effect of Process Parameters on Melt Pool Shape and Microstructure for Electron Beam Melting of IN718, Proceedings of the 13th International Symposium on Superalloys (SUPERALLOYS 2016) (2016) pp.367-373. 査読有

<http://www.tms.org/meetings/2016/superalloys2016/proceedings.aspx>

- ⑦ Yuichiro Koizumi, Shi-Hai Sun, Tsuyoshi Saito, Kenta Yamanaka, Yun-Ping Li, Yujie Cui, Ding Xiao, Akihiko Chiba, Alloy 718 Rods Additively Manufactured By Electron-Beam Melting (EBM), Proceedings of the Ninth Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM9) (2016) pp. 288-290. 査読有.

[学会発表](計 13 件)

- ① 大野 雄史, 小泉 雄一郎, X. Ding, 千葉 晶彦, 日野 武久, 高橋 雅士, 積層造形用電子ビーム走査による Rene80 Ni 基超合金の凝固組織解析, 日本金属学会春期講演大会, 東京理科大学, 2016-03-23 - 2016-03-25.
- ② 丁 笑, 小泉 雄一郎, 千葉 晶彦, Melt Pool Characterization and Modeling of Electron Beam Melting for IN718, 日本金属学会春期講演大会, 東京理科大学, 2016-03-23 - 2016-03-25.
- ③ X. Ding, Y. Koizumi, A. Chiba, Parameter Optimization for Electron Beam Melting of IN718 based on Melt Pool Characterization, 第 130 回金属材料研究所講演会, 東北大学金属材料研究所, 2015-11-25.
- ④ 小泉 雄一郎, 孫 世海, 山中 謙太, 千葉 晶彦, 電子ビーム積層造形で形成される材料組織の不均一性と傾斜機能化の可能性, 第 26 回新構造・機能制御と傾斜機能材料シンポジウム, 九州大学, 2015-09-29 - 2015-09-30.
- ⑤ 小泉 雄一郎, 孫 世海, 丁 笑, 山中 謙太, 齋藤 毅, 千葉 晶彦, 電子ビーム溶融 (EBM) 積層造形による材料組織制御, 日本鉄鋼協会第 170 回秋季講演大会, 九州大学, 2015-09-16 - 2015-09-18.
- ⑥ 千葉 晶彦, 小泉 雄一郎, 山中 謙太, 電子ビーム積層造形により得られる生体・構造用金属材料の組織と力学特性, 日本金属学会 2015 年秋期(第 157 回)講演大会, 九州大学, 2015-09-16 - 2015-09-18.
- ⑦ Y. Koizumi, A. Okazaki, A. Chiba, Microstructure and Shape Optimization of Porous Biomedical Co-Cr-Mo Alloy Fabricated by Electron Beam Melting, MS&T15: 13th U.S. National Congress on Computational Mechanics (USNCCM13), Sand Diego, California, USA, 2015-07-26 - 2015-07-30.
- ⑧ 小泉 雄一郎, 電子ビーム3Dプリンタが拓く新たなものづくり技術, ラドテック研究会 第 142 回講演会, 大阪市立工業研究所, 2015-06-15.
- ⑨ 高島 大洋, 小泉 雄一郎, 千葉 晶彦, 李云平, 山中 謙太, 齋藤 毅, 電子ビーム積層造形により作製された生体用 Co-Cr-Mo

合金の組織と力学挙動への熱処理の影響, 粉体粉末冶金協会平成 27 年度春季大会, 早稲田大, 2015-05-27.

- ⑩ X. Ding, Y. Koizumi, A. Chiba, Effect of Process Variables on Solidification Microstructures in Electron Beam Melting-based Fabrication Structures: a Finite Element Study, 粉体粉末冶金協会平成 27 年度春季大会, 早稲田大, 2015-05-26.
- ⑪ S.H. Sun, Y. Koizumi, S. Kurosu, T. Saito, Y. Li, K. Yamanaka, A. Chiba, In-situ Aging in Electron Beam Melting (EBM) Process of Inconel 718, 粉体粉末冶金協会平成 27 年度春季大会, 早稲田大, 2015-05-26.
- ⑫ 小泉 雄一郎, 孫 世海, 岡崎 新, 高島 大洋, 齋藤 毅, 山中 謙太, 李云平, 黒須 信吾, 千葉 晶彦, 電子ビーム積層造形された生体用 Co-Cr-Mo 合金の微細組織の不均一性, 粉体粉末冶金協会平成 27 年度春季大会, 早稲田大, 2015-05-26.
- ⑬ S.H. Sun, Y. Koizumi, S. Kurosu, T. Saito, Y. Li, K. Yamanaka, A. Chiba, Microstructure Variation in Co-Cr-Mo Alloy Fabricated by Electron Beam Melting, 粉体粉末冶金協会平成 27 年度春季大会, 早稲田大, 2015-05-26.

[その他]

ホームページ

<http://www.chibalab.imr.tohoku.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小泉 雄一郎 (KOIZUMI, YUICHIRO)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号: 10322174

(2) 研究分担者

千葉 晶彦 (CHIBA, AKIHIKO)
東北大学・金属材料研究所・教授
研究者番号: 00197617

(3) 連携研究者

竹澤 晃弘 (TAKEZAWA, AKIHIRO)
広島大学・工学研究科・准教授
研究者番号: 10452608

(4) 研究協力者

丁 笑 (DING, XIAO)

大野 雄史 (OHNO, YUSHI)

垣内 俊平 (KAKIUCHI, SHUNPEI)

富永 皓祐 (TOMINAGA, KOSUKE)

趙 宇凡 (ZHAO, YUFAN)