

令和元年6月10日現在

機関番号：22604

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06799

研究課題名（和文）金属3Dプリンタを用いた高強度ニッケル基超合金の積層造形

研究課題名（英文）Additive manufacturing of the high-strength nickel base superalloys using the metal 3D printer

研究代表者

梶 幸次（Takehi, Koji）

首都大学東京・システムデザイン研究科・教授

研究者番号：70185726

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,700,000円

研究成果の概要（和文）：レーザー積層造形法で作製したNi基超合金において、凝固偏析により高温強度特性劣化と凝固割れが生じる。また、プロセス中に導入される高密度の転位により熱処理中またはクリープ変形中に再結晶が形成されクリープ強度が低下する。EBMでは、凝固偏析が緩和され、転位密度も低下しているため、EBMの造形環境は、レーザー造形プロセス条件開発において、課題解決の方向性を示唆していると考えられる。また仮焼結を必要としない真空中でのレーザー造形において、EBM材と同等のクリープ特性が得られることから、中空構造材の積層造形という利点からその研究開発が必要と考えられる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

選択的レーザー溶融法で作製した積層造形Ni基超合金において、プロセス過程の急熱急冷の繰り返しに起因するデンドライト凝固偏析により高温強度特性劣化が生じ、そのメカニズムを明らかにし、その課題解決の方向性を示した。

研究成果の概要（英文）：The effects of build direction and heat treatment on the creep properties of an Ni-base superalloy fabricated by additive manufacturing were examined at 650 °C. The creep rupture lives and ductilities of materials produced by additive manufacturing were lower than those of conventionally wrought material. The horizontal-direction specimen exhibited inferior creep life and worse ductility than the vertical-direction specimen because of the orientation of the interdendritic  $\gamma'$ -phase precipitates, which were arrayed vertical to the stress axis in the former specimen. The morphology and the presence of a row of interdendritic  $\gamma'$ -phase precipitates with incoherent interfaces were found to affect the materials' creep life and ductility.

研究分野：ニッケル基超合金の積層造形

キーワード：ニッケル基超合金 積層造形 選択的レーザー溶融法 電子ビーム溶融法 高温強度 デンドライト組織 凝固偏析

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

### 1.1 積層造形多結晶材の高温強度の劣化

IN718のような $\gamma'$ 相析出強化型合金では、 $\gamma'$ 相の析出速度が非常に遅いことから時効処理中ゆっくりと析出するため、母相が硬化する前に残留応力を除去することができ、積層造形に用いられている。しかし、研究代表者は、IN718のレーザビーム積層造形材の強度は、室温において溶解鍛造材を上回ることが明らかになっている。しかし、図1に示すように、既存の溶解鍛造材に比べ、時

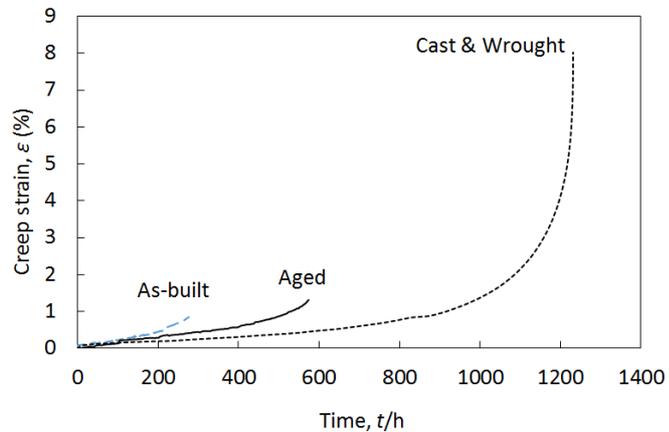


図1 積層材と溶解鍛造材のクリープ曲線

効した積層材のクリープ寿命は1/2、クリープ延性で約1/6と格段に劣ることも明らかにした。レーザ積層材は、MPB(Molten pool boundaries)が積み重なる組織を示す。MPB底部では、デンドライトがエピタキシャル成長により柱状化し粗大粒となるのに対し、MPB重畳部では、再溶解により結晶粒が微細化し、全体として混粒組織となる。劣化要因の中でも、結晶粒の混粒組織が強度劣化の主要因であると考えられる。

### 1.2 $\gamma'$ 相析出強化型合金におけるひずみ時効割れ

$\gamma'$ 相体積率の高い析出強化型合金の場合、積層造形後の残留応力を解放する熱処理のとき、析出速度の速い $\gamma'$ 相は残留応力が解放される前に析出し、母相が硬化するために割れが生じるひずみ時効割れを起こしやすい。そのため、 $\gamma'$ 相体積率の高いニッケル基超合金について積層造形を行った事例はほとんど見当たらない。

## 2. 研究の目的

タービン翼には $\gamma'$ 相体積率が高い柱状晶/単結晶鋳造合金、航空機用タービンディスクには $\gamma'$ 相を強化相とする多結晶鍛造合金 IN718(インコネル718)が用いられている。IN718のレーザ積層材は、従来の溶解鍛造材に比べ高温強度特性が劣る。特性劣化の要因を調べ、対応策を講じる。また、ひずみ時効割れを起こすため積層造形が困難なタービン翼用合金 CM247LC に対して、再結晶を抑制しながら残留応力除去と溶体化を同時に行う「未再結晶溶体化処理」を適用することにより、積層超合金の柱状晶/単結晶造形を試みる。ガスタービンにおいて代表的な2種類の超合金について、高温パーツとして使用可能な積層造形プロセスを確立させるための知見を得る。

## 3. 研究の方法

平成28年度

### 1. IN718の積層造形

IN718の積層造形の研究手順を図2に示す。

#### 1.1 金属積層造形

積層造形には、多種の金属材料に適用可能で国際的に広く使用されているレーザビーム積層造形法および、プロセスマップを基に均一微細粒を有する積層材を作製する。また、比較プロセスとして残留酸素および残留応力を低減できる電子ビーム造形法を用いる。

## 1.2 残留応力除去熱処理

溶融固化過程を経る積層造形は、溶接同様に残留応力が発生する。溶接においては、全体の温度をクリープの生じる温度域まで上げて応力緩和（クリープ変形）を生じさせる溶接後熱処理（PWHT; Post Weld Heat Treatment）が最も一般的である。応力緩和の温度と時間を調べて、有効な残留応力除去条件を明らかにする。

1.3  $\delta$  プロセス  $D0_a$  構造を有する斜方晶金属間化合物  $\delta$  相を粒界上に析出させ、ピン留め効果により再結晶粒の粒成長を抑制して、結晶粒の微細化を図るプロセス。鍛造プロセスでは既に実用化されて微細化に貢献している。積層造形中に発生する残留ひずみを、再結晶粒生成・成長の駆動力として  $\delta$  プロセスを試行して、均一微細結晶粒組織を得るための温度および保持時間を明らかにする。

平成29年以降

## 2. CM247LC の積層造形

CM247LC 積層造形の研究手順を図3に示す。

2.1 金属積層造形 単結晶化には、航空機用/産業用タービン翼材として幅広く使用されているCM247LC と同等の組成を有するLPW247LC を供試粉末として造形する。電子ビーム造形法では、容易に柱状晶組織が得られることから電子ビーム法が優位である。しかし電子ビーム法では予熱プロセスで金属粉末が仮焼結するため、内部の孔などから金属粉末の中抜けが難しく、空冷流路を有するタービン翼には、レーザービーム法が優位と考えられる。そこで、レーザービーム法を主たる造形法とするが、比較法として電子ビーム法も用いる。一層分の単位体積あたりに投入されるエネルギー密度  $E$  は  $E=P/(vst)$  で表すことができる。ここで、レーザー出力  $P$ 、走査速度  $v$ 、積層厚さ  $t$ 、走

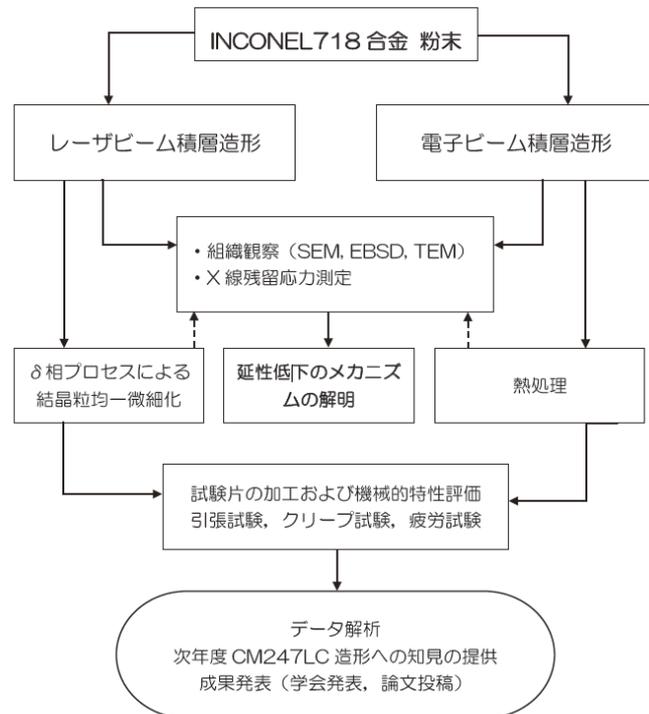


図2 IN718 積層造形の研究手順

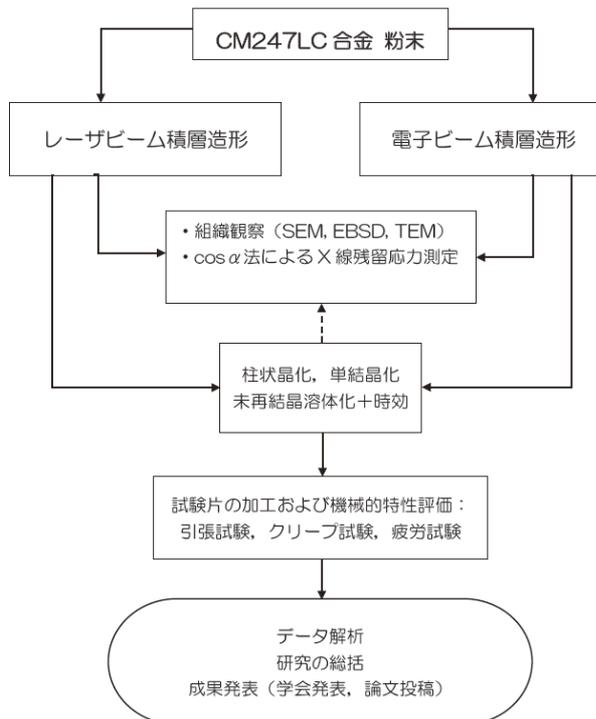


図3 CM247LC 積層造形の研究手順

査ピッチ  $s$  である。

**2.2 熱処理** 溶体化中に、造形中に導入されたひずみにより再結晶により等軸化する可能性が高い。そこで、共晶  $\gamma$ - $\gamma'$  粒子および粒界上  $\gamma'$  相による結晶粒成長抑制効果を利用して、熱処理割れの原因となる母相中の微細析出相再固溶と残留応力除去とを同時に行う未再結晶溶体化条件を見いだす。処理後規定された 760 /16h の時効熱処理を施す。

### 3 . IN718 および CM247LC 造形材の組織解析および強度試験

**3.1 SEM-EBSP による組織解析** 積層造形に特徴的な方向性凝組織について EBSP を用いて結晶学的組織解析を行う。特に、単結晶化プロセスにおいては結晶粒の配向、また、均一微細プロセスに関しては結晶粒径および微視的方位変化、局所方位差 (KAM マップ) について観察・分析を行う。

**3.2 TEM 観察** 強度に大きな影響を及ぼす粒内析出物の形態と転位構造について観察する。

**3.3 引張試験およびクリープ試験** IN718 は 650 以上で析出強化相である  $\gamma''$  相が  $\delta$  相に変化する。そこで、試験温度は使用上限温度である 650 で、引張試験およびクリープ試験を行う。 $\gamma'$  相析出強化合金である CM247LC に関しては 750 で試験を行う。

## 4 . 研究成果

- 1) IN718 では、凝固偏析に起因する  $\delta$  相生成が主要因であることを明らかにした。き裂の起点においてデンドライトに沿った破面が観察された。すなわち、デンドライトに沿ってき裂が発生進展したと考えられる。デンドライトは主として、積層方向に対して平行に成長している。水平方向(horizontal direction)の試験片においては、デンドライト方向は応力方向に対して垂直になる。一般にデンドライト間は合金元素偏析や  $\delta$  相の析出等により結合力が低下する。そのため、き裂がデンドライト間で容易に発生して進展したと考えられる。
- 2) Al 量, Ti+Ta 量の高い CM247LC の SLM 材では、割れが、デンドライト組織と粒界に沿って生じていた。また、き裂にそって Zr, Hf が同定された。Zr, Hf が割れにおいて検出されたことから、この割れは凝固割れが原因であると考えられる。Zr, Hf の偏析により、固相線温度は 700-800 まで低下する。レーザー積層造形機では、熔融時に発生した金属蒸気および凝集して微細な粒子となったヒュームが、レーザーの入射を妨害するとともに、レンズに付着し曇りの原因となる。レーザー積層造形機では、ヒュームを除去するために、積層面に沿って不活性ガスを流す。このガス流は、凝固過程で熔融金属を急冷する。結果として、急速な冷却は凝固時の元素の均質化を阻止し、高濃度の Zr, Hf を含む低融点の液膜(liquid film)を粒界のデンドライトに沿って形成させる。この液膜は凝固収縮を吸収することができないため、粒界に沿った割れが生じる。実用化のためには、造形プロセスの冷却速度の緩和等の凝固割れ対策が必要とされる。

## 5 . 主な発表論文等

### 〔雑誌論文〕(計 19 件)

- 1) H. Yu, S. Hayashi, K. Kakehi, Y-L Kuo, Metals 2019, 9(1), 19; 査読有 <https://doi.org/10.3390/met9010019>.
- 2) K. Akino, K. Kakehi, Strengths and Microstructure of SUS316L Fabricated by Selective Laser Melting, Mater. Trans, 59 (2018), pp. 482-487, doi.org/10.2320/matertrans.M2017163, 査読有
- 3) Y.L. Kuo, A. Kamigaichi, K. Kakehi, Characterization of Ni-Based Superalloy Built by Selective Laser Melting and Electron Beam Melting, Metall. Mater. Trans.A, 49(2018), pp 3831-3837, 査読有
- 4) Y.L. Kuo, T. Nagahari, K. Kakehi, The Effect of Post-Processes on the Microstructure and Creep Properties of Alloy718 Built Up by Selective Laser Melting, Materials 2018, 11, 996; 査読有
- 5) 筧 幸次, 郭妍伶, 秋野一輝, 金属粉末積層造形法により作製した耐熱合金における高温

- 強度特性劣化, 日本ガスタービン学会誌, 46(2018),p.197. 査読有
- 6) 筧幸次, 林 重成, 郭 妍伶, 佐藤 直子, 尾ノ井 正裕, 不純物元素に対しロバストな積層造形ニッケル基超合金の創成, 日本学術振興会耐熱金属材料第 123 委員会研究報告, Vol.59, 3(2018)p.359-372, 査読無
  - 7) 磯部諒也, 筧幸次, SLM 積層造形法を用いて作製した固溶強化型 Ni 基超合金 IN625 のクリープ特性と組織, 日本学術振興会耐熱金属材料第 123 委員会, Vol.59, 3(2018)p.455-470, 査読無
  - 8) 櫻井 勇也, 筧 幸次, Ti-6Al-4V レーザー積層材の組織と機械的特性, 日本金属学会誌, Vol. 81 (2017) No. 3 p. 120-126, 査読有
  - 9) Y.L. Kuo, S. Horikawa, K. Kakehi, Effects of build direction and heat treatment on creep properties of Ni-base superalloy built up by additive manufacturing, Scripta Materialia, 129 (2017) 74-78. 査読有
  - 10) Y.L. Kuo, S. Horikawa, K. Kakehi, The effect of interdendritic  $\delta$  phase on the mechanical properties of Alloy 718 built up by additive manufacturing, Materials and Design, 116 (2017), 411-418. 査読有
  - 11) Y.L. Kuo, K. Kakehi, Effect of the Prior Particle Boundary on the Microstructure and Mechanical Properties of Hot-Isostatic-Pressed IN718 Alloy, Materials Transactions, Vol.58, No.7, pp.1042-1048, 2017. 査読有
  - 12) Y.L. Kuo, K. Kakehi, Comparison of microstructures and properties for a Ni-base superalloy (Alloy718) fabricated by solid-state sintering and fully-melting process, Metals, 2017, 7, 367; doi:10.3390/met7090367. 査読有
  - 13) Y.L. Kuo, S. Horikawa, K. Kakehi, The Effect of Interdendritic  $\delta$  Phase on the Mechanical Properties of Alloy 718 Built up by Additive Manufacturing, 日本学術振興会耐熱金属材料第 1 2 3 委員会研究報告, 2017 年 3 月, pp.67-74, 査読無
  - 14) 堀川将大, 郭妍伶, 筧幸次, レーザー走査方法が積層造形 Alloy 718 の組織と機械特性に及ぼす影響, 日本学術振興会耐熱金属材料第 1 2 3 委員会研究報告, 2017 年 3 月 pp.55-66, 査読無
  - 15) 秋野 一輝, 筧 幸次, SUS316L ステンレス鋼積層造形材の強度と組織, 日本金属学会誌, 80(2016), 772-777 査読有
  - 16) 筧幸次, ニッケル基単結晶超合金のクリープ強度におよぼす 2 次結晶方位の影響, 日本機械学会論文集, Vol.82, No.838, 2016, p.15-00673, 査読有
  - 17) 筧幸次, 横森玲, 西牧智大, プラズマ回転電極法を用いて作製した粉末焼結ニッケル超合金の組織と強度, 日本金属学会誌 80(2016), pp.508-514. 査読有
  - 18) Te-Kang Tsao, An-Chou Yeh, Jien-Wei Yeh, Mau-Sheng Chiou, Chen-Ming Kuo, Hideyuki Murakami, Kakehi Koji, High Temperature Properties of Advanced Directionally-Solidified High Entropy Superalloys, Superalloys2016, 査読有
  - 19) 筧幸次, 金属 3D プリンタのスーパーアロイへの適用の可能性をさぐる, 2016 年 7 月 機械技術, 日刊工業新聞社, No.7 (2016), p.12, 査読無

#### 【学会発表】(計 3 4 件)

- 1) T. Nagahari, Y.L. Kuo, K. Kakehi, Effect of Post Treatment on Creep Properties of Ni Based Superalloy ・ Inconel 718 Built up by selective laser melting, ISAM2019, Dresden Jan., 2019
- 2) 筧幸次, 耐熱合金の 3D 積層造形の現状と課題, 日本ガスタービン学会主催ガスタービンセミナー, 2019 年 1 月 24 日, 帝京大学板橋キャンパス (招待講演)
- 3) 筧幸次, 酸素・窒素に対しロバストな積層造形ニッケル基超耐熱合金開発, 粉体粉末冶金協会粉末積層 3D 技術員会, 大阪大学医学・工学研究科東京ランチ, 2019 年 3 月 7 日(招待講演)
- 4) K. Kakehi, CAMS 2018, Advancing Materials and Manufacturing, University of Wollongong, 28/11/2018 (招待講演)
- 5) 筧 幸次, 林 重成, 郭 妍伶, 佐藤 直子, 尾ノ井 正裕, 不純物元素に対しロバストな積層造形ニッケル基超合金の創成, 日本学術振興会耐熱金属材料第 123 委員会研究報告, 2018 年 11 月, (招待講演)
- 6) 磯部諒也, 筧幸次, SLM 積層造形法を用いて作製した固溶強化型 Ni 基超合金 IN625 のクリープ特性と組織, 日本学術振興会耐熱金属材料第 123 委員会 2018 年 11 月
- 7) 平井篤志, 郭妍伶, 筧幸次, SLM 法と HIP 法により作製した Ni 基超合金 CM247LC の組織と機械的特性第 46 回日本ガスタービン学会定期講演会, かがしま県民交流センター, 2018 年 10 月 10 日
- 8) 長張俊希, 郭妍伶, 筧幸次, 選択的レーザー溶融法を用いて造形した Ni 基超合金 Inconel718 の後熱処理がクリープ特性に及ぼす影響, 第 46 回日本ガスタービン学会定期講演会 B-16, かがしま県民交流センター, 2018 年 10 月 10 日
- 9) 近藤研志, 筧幸次, An-Chou Yeh, SLM 法におけるプロセスパラメータが Ni 基超合金 IN718 の欠陥および機械的特性に及ぼす影響, 第 46 回日本ガスタービン学会定期講演会 B-16, かがしま県民交流センター, 2018 年 10 月 11 日

- 10) Y. L. Kuo, A. Kamigaichi, and K. Kakehi, Characterization of Ni-based superalloy built by Selective Laser Melting and Electron Beam Melting, EUROSUPERALLOYS 2018, The 3rd European Symposium on Superalloys and their Applications, Oxford, Sep. 2018.
- 11) Koji Kakehi, BIT's 4<sup>th</sup> Annual World Congress of Smart Materials-2018, Microstructure and Mechanical Properties of Ni-base Superalloys Fabricated by Selective Laser Melting, Osaka, Mar. 6, 2018 (招待講演)
- 12) 笥幸次, 第 68 回塑性加工連合講演会, Ni 基超合金の積層造形, 2017 年 11 月 11 日, 福井フェニックスプラザ(招待講演)
- 13) K. Kakehi, Y.L. Kuo, IUMRS International Conference in Asia, The unexpected precipitation and recrystallization in Ni-base superalloys fabricated by selective laser melting, IUMRS International Conference in Asia, 2017 Nov. 9, Taipei.(招待講演)
- 14) Yen-Ling Kuo, A. Kamigaichi, S. Horikawa, K. Kakehi, Microstructure and mechanical properties of Alloy718 built up by additive manufacturing processes: a comparison between EBM and SLM, IUMRS International Conference in Asia, 2017 Nov. 9, Taipei.
- 15) Arcam/GE - HTL セミナー, 笥幸次, 電子ビーム溶融法および選択的レーザー溶融法積層造形したニッケル基超合金の組織と特性, 2017 年 11 月 1 日, 立川テクノビル(招待講演)
- 16) 笥幸次, 平塚 耀, 選択的レーザー溶融法により積層造形された $\gamma$ 析出型 Ni 基超合金 IN939 の高温強度と微視組織, 第 45 回 日本ガスタービン学会定期講演会, 2017 年 10 月 18 日, 松山
- 17) 上垣内梓, 郭妍伶, 笥幸次, 選択的レーザー溶融法および電子ビーム溶融法で積層造形した IN718 のクリープ特性, 日本ガスタービン学会定期講演会, 2017 年 10 月 18 日, 松山
- 18) 磯部諒也, 笥幸次, 選択的レーザー溶融法を用いて積層造形した固溶強化型 Ni 基超合金 IN625 の高温強度と組織, 日本ガスタービン学会定期講演会, 2017 年 10 月 18 日, 松山
- 19) 秋野一輝, 笥幸次, EBM・SLM 積層法により造形した SUS316L ステンレス鋼の強度特性および組織, 日本ガスタービン学会定期講演会, 2017 年 10 月 18 日, 松山
- 20) 秋野一輝, 笥幸次, EBM・SLM 積層法により造形した SUS316L ステンレス鋼の強度特性および組織, 日本金属学会第 161 回秋季講演大会, 2017 年 9 月 8 日
- 21) 平塚 耀, 笥幸次, 選択的レーザー溶融法により積層造形された $\gamma$ 析出型 Ni 基超合金 IN939 の高温強度と微視組織, 日本金属学会第 161 回秋季講演大会, 2017 年 9 月 8 日
- 22) Y.L. Kuo, A. Kamigaichi, K. Kakehi, Microstructure and mechanical properties of Alloy718 built up by additive manufacturing processes: a comparison between EBM and SLM, IUMRS-ICAM 2017, Aug. 31, Kyoto,
- 23) Y.L. Kuo, K. Kakehi, Microstructure and high-temperature strengths of IN718 built up by DMLS additive manufacturing, The 4th International Conference on Powder Metallurgy in Asia, Hsinchu City (Taiwan), No. G18-0146, April 2017.
- 24) 秋野一輝, 笥幸次, SLM 法により積層造形した高強度ステンレス鋼の強度と組織, 日本金属学会第 160 回春季講演大会, 2017 年 3 月 15 日
- 25) 上垣内梓, 堀川将大, 笥幸次, 電子ビーム積層造形 Inconel 718 のクリープ特性, 日本金属学会第 160 回春季講演大会, 2017 年 3 月 16 日
- 26) 堀川将大, 笥幸次, レーザー走査方法が積層造形 Ni 基超合金の組織と機械特性に及ぼす影響, 金属学会第 160 回春季講演大会, 2017 年 3 月 16 日
- 27) 堀川将大, 郭妍伶, 笥幸次, レーザービーム積層造形法により作製した IN718 の組織と強度特性, 第 44 回日本ガスタービン学会定期公演会, 2016 年 10 月 27 日
- 28) 大橋健史, 野村直輝, 笥幸次, 単結晶 Ni 基超合金のクリープ挙動に及ぼす Re の影響, 第 44 回ガスタービン学会定期公演会, 2016 年 10 月 27 日
- 29) 秋野一輝, 笥幸次, SUS316L ステンレス積層造形材の強度と組織, 第 44 回ガスタービン学会定期公演会, 2016 年 10 月 27 日
- 30) 櫻井勇也, 笥幸次, Ti-6Al-4V 積層造形材のクリープ特性と微視組織, 第 44 回ガスタービン学会定期公演会, 2016 年 10 月 27 日
- 31) Y.L. Kuo, K. Kakehi, Microstructure and mechanical properties of IN 718 built up by direct metal laser sintering, The 3rd International Congress on 3D Materials Science, Illinois, USA, July, 2016. (Poster)
- 32) 堀川将大, 郭妍伶, 笥幸次, レーザービーム積層造形法により作製した IN718 の組織と強度特性, 金属学会第 158 回春季講演大会, 2016 年 3 月 25 日
- 33) 櫻井勇也, 笥幸次, Ti-6Al-4V レーザー積層材の組織と機械的特性, 日本金属学会第 158 回春季講演大会, 2016 年 3 月 25 日
- 34) 秋野一輝, 堀川将大, 笥幸次, SUS316L 積層造形材の強度と組織, 日本金属学会第 158 回春季講演大会, 2016 年 3 月 25 日

〔図書〕(計 1 件)

笥幸次他, 産業用 3D プリンターの最新技術と材料開発, 技術情報協会, 10 章 7 節分筆, 2018 年 6 月 29 日発行