

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 20 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2022

課題番号：19K14866

研究課題名（和文）プラズマ援用指向性エネルギー堆積(DED)型レーザー積層造形技術に関する研究

研究課題名（英文）Study on plasma assisted directed energy deposition of additive manufacturing

研究代表者

板垣 宏知 (Itagaki, Hirotomo)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・研究員

研究者番号：00793184

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：プラズマによる新たな積層造形手法開拓のため、高周波放電および直流放電を利用したプラズマ造形ノズルの開発を実施し、プラズマ生成試験によりそのプラズマ生成能を検証した。加えて、チタン合金(Ti6Al4V)のガスアトマイズ粉末と超硬合金(WC-Co)の造粒粉末を材料として積層造形試験を実施、チタン合金の造形試験では造形層の有意な窒素濃度増加、超硬合金の造形試験ではプラズマ中で造粒粉末自体の空隙を低減し造形物の内部ポロシティ欠陥低減に成功した。これらの結果により、プラズマの利用により窒化層形成等の局所表面機能付与技術としての応用可能性、オンプロセス粉体加工による超硬積層造形への応用可能性が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

プラズマの熱源利用のみならず窒化等表面機能の付与手法として、その最適条件探索や機構解明、および粉体のオンプロセス加工など造形自体高機能化に学術的意義がある。金属積層造形は現在、複雑構造や形状による機能付与等、形状に注目した研究開発がすすめられるが、産業で利用されている部素材や工具等は表面機能を有するものが多く、今後必要な箇所に必要な表面機能を付与する技術が必要になる他、利用可能な材料種が限られるといった課題がある。これに対し、プラズマの活性種生成能力を活用した局所表面機能付与手法や材料粉体のオンプロセス改良手法が開発されることで、積層造形の更なる産業応用につながるという社会的意義がある。

研究成果の概要（英文）：We developed plasma nozzles with high-frequency discharge and direct current discharge to develop a newly method of additive manufacturing process using a plasma. We verified its plasma generation capability through a plasma generation test. As a result, it was found that plasma could be generated at both nozzles. Furthermore, we conducted a test of multi-layered beads formation using gas atomized powder of titanium alloy and granulated powder of cemented carbide as materials. As a result, the nitrogen concentration in formed multi-layer bead increased significantly. Besides in the test of a cemented carbide, the porosity of the powder itself was reduced in the plasma and the formed multi-layer bead without internal porosity defects was successfully formed. These results demonstrate the applicability of plasma as a technique for imparting surface functionality, such as localized nitrided layer formation, and the applicability of on-process powder processing for AM of cemented carbide.

研究分野：プラズマ理工学

キーワード：プラズマ 積層造形 窒化 粉体加工 超硬金属

1. 研究開始当初の背景

金属積層造形法(AM: Additive manufacturing)は、金属粉や金属線材を溶融・凝固させながら構造物を造形する付加製造プロセスであるため、他の除去加工等の従来加工技術では製造が困難な複雑構造部品製造や、多数の部品で構成される構造物の一体製造を可能とする。そのため、近年では航空機産業や自動車産業をはじめ、船舶産業など様々な産業での応用が期待されるが、積層造形プロセスには課題も多く存在する。例えば、積層造形プロセスに適した材料粉体の材種が従来工法と比較して未だ少ないことや、マルチマテリアル造形や傾斜造形などの機能材料の創生技術が未確立なこと、熱処理や表面処理などのポストプロセスの効率化等が課題として存在する。

ところで、金属積層造形の手法には粉末床溶融結合法(PBF)と指向性エネルギー堆積法(DED)と呼ばれる2つの造形方式があり、高い精度や走査性が求められるため、その多くはレーザーや電子ビームが熱源として用いられる。他方、WAAM(Wired Arc Additive Manufacturing)と呼ばれるプラズマを熱源としたDED型の造形手法も存在する。これら手法に共通するのは、造形時に溶融池と呼ばれる高温に熱せられた金属融液が存在する点である。提案者はこの局所的に高温となる箇所(溶融池や粉体)に活性種(窒素系ラジカルや炭素系ラジカル等)や電子等を含むプラズマを作用させることで、従来、後処理として実施される窒化や炭化などの表面改質処理を積層造形プロセス中に同時並行して行うことが可能になるのではないかと考えた。一般的に窒化や炭化などの表面処理は高温ガス炉や真空炉中でバッチ処理的に実施されるため、表面改質処理する箇所等の位置制御性は悪く、処理層の厚みも雰囲気中の粒子の金属表面からの拡散によるため、従来、~数百 μm である。他方、積層造形プロセス中にオンプロセスで表面処理が実施できれば、ポストプロセスの短縮を可能とすることに加え、必要な箇所に表面処理層を形成することを可能とするなど、高付加価値製品製造に資する技術となる。また、レーザーDED積層造形では欠陥の発生が多く困難であった超硬合金造形(工具等に用いられ高硬度のため微細造形が困難)に対しても、プラズマ中に材料を投入し粉体を加熱させながら溶融池へ供給することで、造粒粉末の粒子間空隙を低減した粉末で造形ができ、欠陥の少ない造形物の形成が可能になると考えられ、超硬合金積層造形への応用可能性を有する。従って、本手法を実現することでより付加価値の高い、造形と同時に表面改質処理が可能な積層造形プロセスを世界に先駆けて実現できる。しかしながら、プラズマにより形成される活性種雰囲気中での積層造形において、プラズマが造形物(積層ビード)に与える影響は理解されておらず、本提案手法の実現にはプラズマによる活性種雰囲気が金属組成など造形物物性に与える影響を評価し、その機構を理解する必要がある。

2. 研究の目的

前述の課題を解決するために、本研究の目的を次に設定した。

プラズマ雰囲気制御や副熱源として援用が可能な積層造形プロセスの実現を目指し、試作機開発、およびプラズマ雰囲気中での造形試験を実施し、実験的にプラズマ雰囲気が積層造形物物性に与える影響を評価し、その造形機構を理解することを目的とした。

以上により、本研究は今後、機能性材料創生に資する積層造形プロセスに関する研究への展開が期待される。

3. 研究の方法

2. 記載の研究目的を達成するための具体的な研究方法を以下に示す。

まず、レーザーとの併用が可能なプラズマ造形ヘッドの開発を実施する。高周波放電および直流放電のどちらの放電形態も利用可能であるが、レーザー光と干渉しないプラズマ生成機構にする必要がある。そのため高周波放電用ノズルおよび直流放電用ノズルの開発を実施した。本研究では高周波プラズマノズルは産総研自作のレーザー加工装置に設置し、プラズマ生成試験を実施し、造形試験には直流プラズマノズルを利用した。

次に直流プラズマノズルを用いた造形試験を実施した。造形試験では直流プラズマを熱源として数層のビードを形成した。この際、プラズマ生成ガスには窒素系ラジカル種生成のためにアルゴンと窒素の混合ガスを利用した。また、造形面の酸化を防ぐためのシールドガスにはアルゴンガスを利用した。造形試験では窒化の効果を検証するために、航空宇宙産業やインフラ分野、自動車産業、医療分野で利用されているチタン系合金 Ti6Al4V を対象とし、ガスアトマイズ法で製造された球状金属粉末を利用した。また、超硬金属の積層造形に係る効果の検証にはスプレードライ法で製造された超硬工具等に用いられる超硬合金 WC-12mass%Co の球状造粒粉末を利用した。

本研究では直流プラズマの出力制御は電極間に流れる電流値で制御可能であり、20-150[A]で設定可能である。プラズマ中ラジカル種の計測には分光計測を実施し、プラズマ出力変化時の活性種の発光スペクトル強度やスペクトル位置からプラズマ中の活性種の出力による変化を観測し、得られた造形物中の窒素濃度と比較し、そのプラズマ中窒素系ラジカルと造形物関係を評価した。造形物断面はビードの切断後に鏡面研磨を施したのちに電子顕微鏡観察(SEM: Scanning Electron Microscopy)と、EDX(Energy dispersive X-ray Spectroscopy)による元素組成分析を実施した。ビード中の窒素濃度等はEDXにより分析したものをを用いて評価した。

4. 研究成果

(1) 高周波プラズマノズル、直流プラズマノズルの開発

図1に開発した高周波ノズル用造形機構の概要図および、高周波ノズルにより生成されたプラズマの写真を示す。高周波ノズルはRFコイルによるプラズマ生成部、予備電離部、プラズマ生成部により構成され、真空グローブボックス内に設置し、プラズマ生成試験を実施した。プラズマ生成時のRF電力は250W(反射電力1W)で低反射電力でのプラズマ生成に成功した。

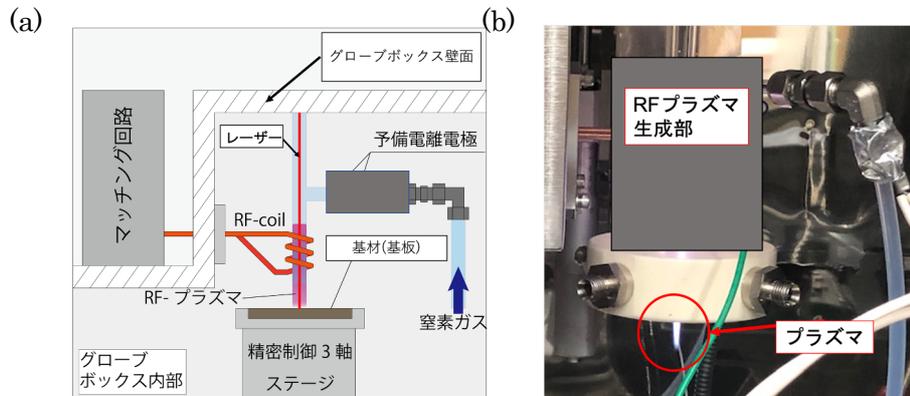


図1.(a)高周波ノズル用造形機構概要、および(b)高周波ノズルによるプラズマ生成試験実施時の写真。

加えて、図2に直流プラズマノズルにより構成された造形試験装置外観、および造形試験時の写真を示す。本試験装置は直流プラズマ源、三軸精密制御ステージ、プラズマ電源、プラズマ制御盤、粉体供給機構で構成されており、分光観測をする際にはステージとプラズマ源底部の間が焦点となるように光学レンズを組み、観測を実施した。本試験時は直流電流100A、



図2.(a) 直流プラズマ造形試験装置外観、および (b) 直流プラズマ造形試験時の写真

Ti6Al4V 粉末を用いて造形した際の写真である。造形物が形成されており本装置を用いた積層造形に成功した。本写真では、加熱により造形物が赤熱している様子が観測されており、金属粉末および造形物を十分に加熱可能であることがわかった。

(2) 直流プラズマ造形試験機によるチタン系合金の窒化物造形

直流プラズマ造形試験機を用いてチタン系合金 Ti6Al4V の造形試験を実施した。プラズマ生成には、窒化に必要な窒素系ラジカルの発生を期待し、マスフローコントローラを用いてアルゴンガスに窒素ガスを添加した混合ガスを利用した。まず、プラズマ中で生成される窒素系ラジカルやイオン等の同定のため、分光観測を実施した。本装置では、放電電流によりプラズマ出力を制御可能であることから、放電電流を増加させた際にプラズマ中で観測される発光線スペクトル強度および線スペクトル波長を観測し、発光種を同定すると共に、その放電電流依存性を調査した。その結果、窒素原子由来の線スペクトルの同定には至らなかった。他方、アルゴン原子、窒素分子、および窒素分子ラジカルの線スペクトルは観測され、放電電流の増加に従い、その線スペクトル強度は増加することがわかった。

図3に本試験で得られた典型的な Ti6Al4V のビードの EDX 観測結果を示す。このときの造形

条件は、プラズマ電流 100 A、ステージ速度（走査速度）10 mm/s、プラズマガス流速 1.2 SLM、窒素ガス流速 5 SLM で造形を実施した。また、本試験ではビードを形成する際の基材に SUS316 を採用しており、熱膨張率の違い、残留応力等の影響により基材と造形物の境界でクラックが発生している。他方、基材からの元素の混入は境界の極近傍のみであり、積層上部への影響は無視できることがわかっている。また、窒素原子の存在もこの EDX 分析により明らかとなっており、本分析結果ではその値は中心部で 7.3mass%であった。これより窒化層の形成が可能であることを示すことに成功した。また、この造形物内部の窒素濃度に関して、放電電流依存性を分光観測同様に調査した。その結果、わずかに増加傾向を示し、線スペクトル発光量の増加傾向とは異なる傾向であることがわかった。これは、一般的に窒化速度は窒化源の濃度と金属中への窒素原子の拡散速度に影響することがわかっており、今回の試験では開放空間での試験を

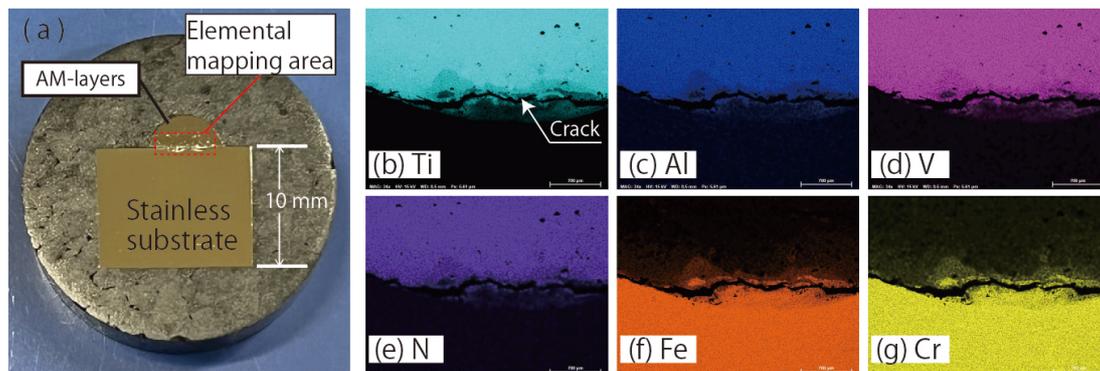


図 3. EDX による積層試験造形物の元素マッピング結果。

実施し発生したラジカル種の閉じ込めが十分ではなかったこと、加熱時間が十分ではなかったことが考えられる。そのため詳細な窒化層形成機構の解明には、今後、発生した窒素ラジカル種の拡散を防ぐために真空チャンバーを用いた試験やシールドガスにも窒素ガスを混ぜるなどの工夫が必要であると考えられる。

(3) プラズマ熱源による超硬合金積層造形

本試験では、スプレードライ法により製造された WC-12mass%Co の造粒粉末を利用した。図 4. (a) に SEM で観察された典型的な造粒粉末の表面外観を示す。図で示すように造粒粉末は微細な一次粒子が集合した凝集粉末となっており、その間には空隙が存在する。この空隙は造形物の主要な欠陥原因の 1 つとして考えられており、積層造形には空隙がない粉末を利用するのが好ましい。他方、図 4 (b) は造形試験時にプラズマ熱に曝された粉体の SEM 観察写真を示しており、空撃が低減されており、熔融池には欠陥の低減した粉末が供給されることを示している

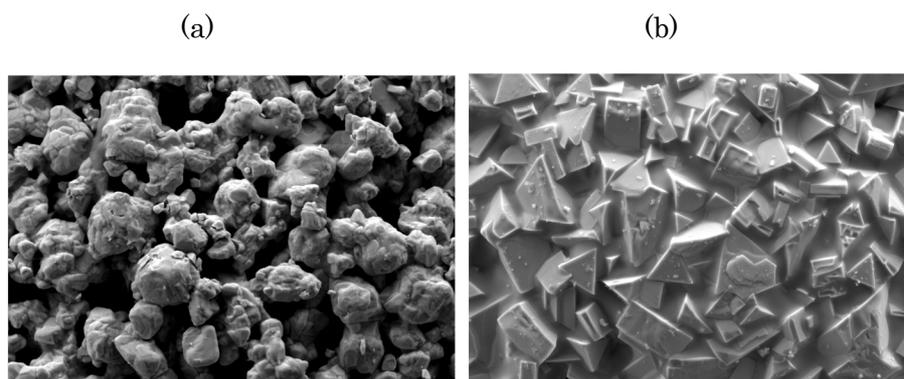


図 4. (a) プラズマ投入前の粉末表面外観と、(b) プラズマ投入後の粉体表面外観。

図 5 に 3 層造形時の SEM 写真と造形断面におけるビッカース硬度試験結果を示す。このときの造形条件は、プラズマ電流 140 A、ステージ速度（走査速度）70 cm/min、プラズマガスおよびシールドガスにはアルゴンを利用し、プラズマガス流速 1.2 SLM、シールドガス流速 5 SLM で造形を実施した。図に示すように 3 層造形試験ではポロシティ欠陥のない造形層の形成に成功した。

また造形物断面のビッカース硬度は基材との境界部から造形物の上部境界に向けて増加していく様子が見られ、図 5 (a) の黒実線部で約 1500Hv_{0.1} で飽和した。また上部境界付近では局所的に 1800Hv_{0.1} で高い硬度となる。この理由として、まず黒実線部より下では基材であるステンレスに含まれる元素の混入による硬度の低下が考えられ、基材元素の混入がなくなることで硬度が飽和したと考えられる。また、上部境界で高硬度となる点ではプラズマによる熱履歴が内

部よりも時間的に少ないために結晶成長によるWC粒の肥大が生じていないと考えられ、微細WC粒子で構成されるため高い強度を示したのではないかと推察される。また図5(c)に本試験装置で得られた10層分の超硬積層造形物の写真を示す。造形時には表面に酸化物が形成されているが、粗研磨(手動)後には金属光沢面が形成されているため、参加の影響の少ない超硬金属が積層されていると考えられる。本結果は、プラズマを熱源として用いることで超硬合金積層造形の低欠陥化が可能であることを示唆しており、今後レーザーと共に用いることで、より効果的な超硬合金の微細積層造形への応用展開が可能となると考えられる。

以上(2)(3)で示したように、プラズマを熱源とした造形物に機能を付与する新たな積層造形手法の可能性は見出されたが、プラズマ中の窒素で如何に窒化層を形成するか等、造形層形成機構の解明には、プラズマで発生する窒素ラジカル種密度の定量化と造形物中への窒素拡散等の数値解析との比較研究が今後重要と考えられる。

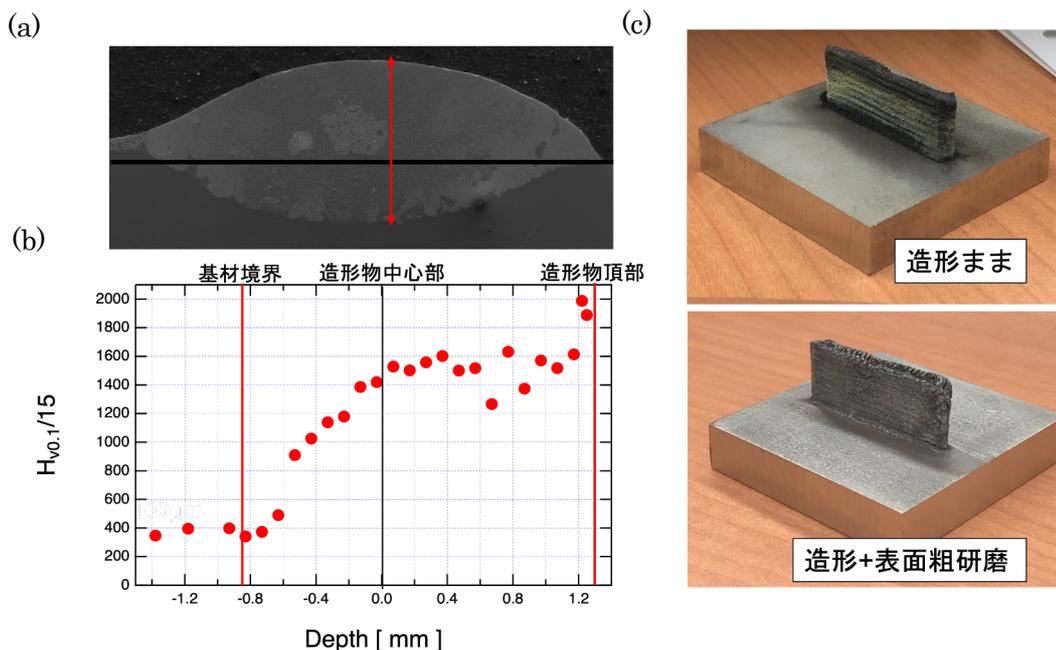


図5 (a)WC-12mass%Co の3層造形物と(b)断面内のビッカース硬度の位置依存性、(c)10層の薄壁造形物

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 板垣宏知
2. 発表標題 エネルギー堆積型プラズマ積層造形により形成された窒化物層の評価
3. 学会等名 2022年 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hirotomo Itagaki, Kotaro Hanada, Shingo Hirose
2. 発表標題 Nanoparticle modified spherical particle formed by DC arc spheroidization for water atomized stainless steel powder
3. 学会等名 Dry Process Symposium 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------