

令和 6 年 6 月 15 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03801

研究課題名(和文) AI合金の電子ビーム積層造形とその相変態カインेटクス

研究課題名(英文) PPBF-EB process of Al alloys and its phase transformation kinetics

研究代表者

青柳 健大 (Aoyagi, Kenta)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：90636044

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：AI合金のPBF-EB造形プロセス実現に向けて、AI合金粉末のスモーク挙動の解析、AI合金造形条件の最適化による欠陥レス造形材の作製、ならびに欠陥レス造形材における材料組織の造形条件依存性評価、凝固後の組織変化挙動の解析を行った。冷却速度を増加させた場合、微細晶出物が集合した領域が積層方向に垂直な層状に形成されることを明らかにし、流速が小さいメルトプール底面近傍の固液共存領域において溶質濃化領域が形成され、そこを核生成サイトとして、過冷却が生じて微細晶出物が形成したと考察した。また、造形ログデータから温度履歴を推定し、凝固後の組織変化挙動をその温度履歴で説明できることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究成果は、金属用3Dプリンタを用いてAI合金を造形する際に、形状だけでなく材料内部の組織を制御するための科学として重要性を持つ。例えば、急速凝固により、従来製法よりも過飽和にAIが固溶した晶出物が形成し、その後の時効で晶出物内部にAIが析出することを明らかにした。また、これまで実例のほぼない電子ビームを熱源に用いた金属用3Dプリンタで種々のAI合金を造形でき、レーザを熱源に用いた金属用3Dプリンタとは異なった組織を有し、造形時の温度履歴からその組織を推定できることを見出した。電子ビーム3DプリンタによるAI合金部材の製造のための基礎的知見として、実用及び社会的にもその意義は大きい。

研究成果の概要(英文)：In order to realize the PBF-EB process for Al alloys, we conducted the analysis of smoke behavior for Al alloy powder, process optimization and fabrication of defect-less Al alloy by PBF-EB, investigation of the dependence of microstructure on the building conditions, the analysis of microstructural change behavior after solidified. It was revealed that when the cooling rate was increased, a region, where fine precipitates aggregated, was formed in a layered form perpendicular to the building direction. It was considered that a solute-concentrated region formed in the solid-liquid coexistence region near the bottom of the melt pool with small flow velocity, and at this region as a nucleation site, fine precipitates were formed. In addition, the temperature history could be estimated from the building log data and microstructure change behavior after solidified could be explained by this estimated temperature history.

研究分野：材料加工、組織制御

キーワード：Additive Manufacturing AI合金

様式 C-19、F-19-1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

一般には金属用 3D プリントとして知られている金属付加製造(以下、金属 AM)プロセスは、3D-CAD で設計した形状通りに金属部材をニアネットシェイプ製造可能であるだけでなく、金型を用いないため金型との反応性の高い金属でも製造可能であり、かつ、金属部材内部の局所領域を選択した凝固組織制御も実現可能であるため、金属部材製造プロセスとしてだけではなく、新材料開発手法としても大きなポテンシャルを有している技術である。金属 AM による新材料開発を実施する上では、金属 AM に特有の熔融・凝固現象や固相間相変態、機械特性といった冶金学に関わる基礎研究を積み重ねて学理を構築し、金属 AM による新材料開発の指導原理を得ることが重要である。金属 AM の冶金学的学理に関する理解は、学術的に重要なだけでなく、材料特性を要求に応じて制御した金属部品の開発に繋がる可能性があり、産業の発展に寄与すると期待される。

2. 研究の目的

本研究の目的は、金属 AM プロセスに特有の熔融・凝固現象と相変態カインेटクスを解明することである。具体的には、核生成サイトとなりうる未熔融欠陥といった造形欠陥を含まない条件で造形材を作製し、金属 AM の条件によって制御できる冷却速度や温度勾配といった凝固条件による凝固組織の形成挙動を明らかにし、また、凝固後の造形温度に保持されている間の組織変化を明らかにし、金属 AM による Al 合金の材料特性制御の指針を得ることを目的とする。

3. 研究の方法

Al 合金の造形は電子ビームを熱源に用いた粉末床熔融結合法 (PBF-EB) を用いて行う。PBF-EB による造形では、電子ビームの照射により粉末床が飛散するスモーク現象が問題となるため、Al 合金粉末の電気抵抗測定や、意図的にスモークを発生させ、スモークの発生しない条件を求めるスモーク試験を行う。また、ビーム出力、ビーム走査速度、ビーム径などのビーム条件の最適化は機械学習を用いて行う。得られた造形材の組織を走査電子顕微鏡と透過電子顕微鏡を用いて行い、力学特性をビッカース硬さ測定、および引張試験によって評価する。

4. 研究成果

(1) Al 合金粉末のスモーク特性

AlSi10Mg 合金と Scalmalloy[®] のスモーク試験を行った。この 2 種の合金はそれぞれ、事前調査において、Al 合金の中でも造形が容易な合金とスモークが発生しやすく造形が困難な合金であることを明らかにしていた合金である。スモーク試験は下記の手順で行った。SUS304 プレートに深さ 200 μm の円形溝を形成し、その溝に粉末を充填し、溝周囲のバルク部を電子ビーム走査で加熱し、所定の温度まで昇温した後、粉末充填部を含むプレートの広い範囲を電子ビームで走査し、スモーク発生の有無を調査した。試験温度は、25、200、400 $^{\circ}\text{C}$ とした。結果は表 1 のようになった。AlSi10Mg は 200 $^{\circ}\text{C}$ でスモークを抑制できたので、それよりも高温の 400 $^{\circ}\text{C}$ での試験は行っていない。この結果から Scalmalloy[®] において確かにスモークが発生しやすく、高温での造形が必要なことが分かった。スモークの発生しやすさは、粉末表面の酸化皮膜の電気特性で決まるため、2 種類の合金に加えて、Scalmalloy[®] から Mg 組成を振った合金粉末を用意し、その電気特性を評価し、時定数を求めた。その結果を図 1 に示す。スモーク試験結果と合わせると、Al 合金の場合、時定数が 10^{-7}sec 以下でスモークが抑えられることが分かった。

表 1 スモーク試験結果 (石岡功己, 修士学位論文, 東北大学 (2023))

Base plate preheating temperature [$^{\circ}\text{C}$]	25	200	400
Scalmalloy	×	×	○
AlSi10Mg	×	○	-

× : スモーク発生、○ : スモーク抑制

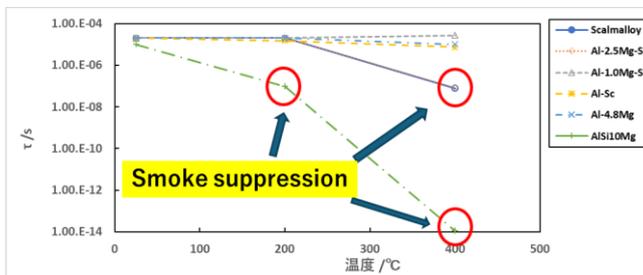


図 1 Al 合金粉末の交流電気抵抗測定から求めた時定数 (石岡功己, 修士学位論文, 東北大学 (2023))

(2) AlSi10Mg 合金

AlSi10Mg 合金をスモークが発生しないように 300 $^{\circ}\text{C}$ 以上の造形温度で造形を行い、造形材の評価を行った。透過電子顕微鏡で造形まま材の組織を観察したところ、Si 晶出物内部に Al の析

出が確認できた。Al-Si 系の状態図から分かるように平衡状態では Si に Al はほとんど固溶しないため、この結果は PBF-EB プロセスにおける急速凝固により Al を過飽和に固溶した Si 晶出物が形成され、PBF-EB プロセスの造形温度での時効により Si 内に Al が析出したことを示唆している。

(3) AlFe 合金

機械学習を用い条件を最適化し、最適化した条件付近で走査速度を振って凝固条件を変えた造形材を用意し、その力学特性と組織を評価した。ビーム出力を一定で走査速度を 3068~9068 mm/s で振り、走査速度が 8000mm/s を超えると未熔融欠陥が形成される条件となったため、走査速度 7068 mm/s までの造形材で力学特性と組織の変化を調査したところ、硬さは走査速度増加に伴い大きくなった。組織は、走査速度の増加に伴い、微細な $Al_{13}Fe_4$ 化合物が形成するようになっており (図 3)、この微細化合物が力学特性の向上に寄与したと考えられる。微細化合物が形成された領域が積層面に平行な層状になっており、メルトプール底部領域だと考えられる。走査速度 3068、7068mm/s の両試料とも同一ロットでの造形材であり、凝固後の保持温度・時間は同じであるため、これら 7068mm/s の試料のみで見られる微細化合物は凝固後の等温保持で析出したものではなく、凝固条件の違いによるものと考えられる。メルトプール底部は電子ビーム照射によって固液共存領域が形成される領域であり、溶質元素が濃化している領域である。また、走査速度を大きくすると冷却速度が大きくなり、過冷度が大きくなる。よって、溶質濃化領域において、過冷度が大きくなり微細な晶出物が形成されたと考えられる。

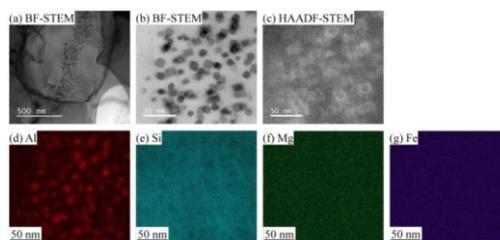


図 2 AlSi10Mg 造形材における Si 晶出物内部の Al 析出 (K. Ishigami et al. Additive Manufacturing Letters 10 (2024) 100213)

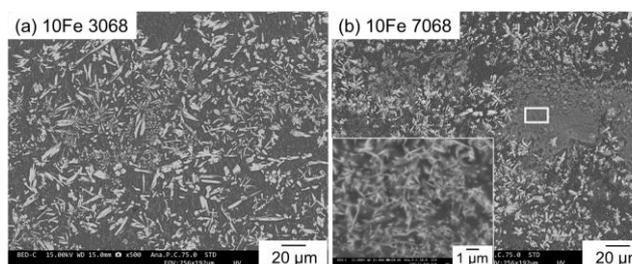


図 3 Al-10Fe 造形材の組織 (a) 3068mm/s 造形材、(b)7068mm/s 造形材 (島田啓太, 修士学位論文, 東北大学 (2023))

(4) Scalmalloy[®]合金

Scalmalloy[®]合金を造形温度 450°C で造形を行い、造形材の組織の造形高さ依存性の評価を行った。組織は Al 固溶体母相と $Al_3(Sc,Zr)$ 化合物の 2 相で構成される組織であり、造形材表面から底部に行くにつれて $Al_3(Sc,Zr)$ のサイズが粗大化していた。この粗大化は凝固後の造形温度での等温保持によるものであり、造形のログデータから各高さ位置の保持時間を計算し、凝固後の粗大化挙動を解析した。その結果が図 4 である。等温保持時間が 25000 秒を超えたあたりから、粗大化が顕著になり、半径の 3 乗が保持時間に対してほぼ比例関係にあることから、体拡散によるオストワルド成長で粗大化したものと考えられる。

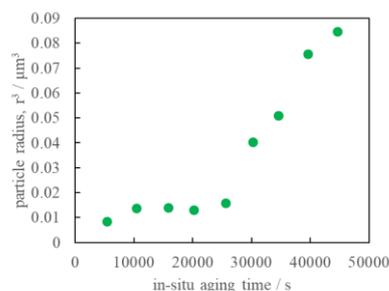


図 4 Scalmalloy[®]造形材の粗大化の解析 (添田和優, 修士学位論文, 東北大学 (2021))

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yunwei Gui, Huakang Bian, Kenta Aoyagi, Akihiko Chiba	4. 巻 328
2. 論文標題 Microstructure evolution and hardness of S30C carbon steel produced by powder bed fusion using an electron beam and subsequent heat treatments	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Materials Letters	6. 最初と最後の頁 133096
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.matlet.2022.133096	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gui Yunwei, Aoyagi Kenta, Bian Huakang, Chiba Akihiko	4. 巻 54
2. 論文標題 Detection, classification and prediction of internal defects from surface morphology data of metal parts fabricated by powder bed fusion type additive manufacturing using an electron beam	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Additive Manufacturing	6. 最初と最後の頁 102736 ~ 102736
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.addma.2022.102736	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ishigami Kenta, Yamanaka Kenta, Aoyagi Kenta, Bian Huakang, Hashizume Yoshiki, Tanaka Akiei, Chiba Akihiko	4. 巻 10
2. 論文標題 Nanoscale Al precipitation in the Si phase in AlSi10Mg alloy during electron beam powder bed fusion	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Additive Manufacturing Letters	6. 最初と最後の頁 100213 ~ 100213
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.addlet.2024.100213	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件／うち国際学会 1件）

1. 発表者名 石岡 功己、青柳 健大、石神 健太、千葉 晶彦
2. 発表標題 電子ビーム積層造形におけるAl系合金粉末のスモーク現象に関する研究
3. 学会等名 日本金属学会2023年春季（第172回）講演大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yunwei Gui, Kenta Aoyagi, Akihiko Chiba
2. 発表標題 Accelerate the fabrication of Ti-6Al-4V alloys by PBF-EB without internal defects via machine learning
3. 学会等名 日本金属学会2021年秋期講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yunwei Gui, Kenta Aoyagi, Akihiko Chiba
2. 発表標題 An ensemble machine-learning approach for predicting and understanding the characteristics of ball milled powders for EB-PBF process
3. 学会等名 粉体粉末冶金協会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yunwei Gui, Kenta Aoyagi, Akihiko Chiba
2. 発表標題 Development of Ti6Al4V alloys with superior plasticity fabricated by powder bed fusion type additive manufacturing using an electron beam
3. 学会等名 SMS2022 (国際学会)
4. 発表年 2022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
---------	---------