

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：14303

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02027

研究課題名（和文）三次元プリンタ製チタン合金の先進的急速高温加熱処理に基づく高性能化

研究課題名（英文）Improvement in performance of titanium alloy produced by 3D printer using advanced rapid high-temperature heat treatment

研究代表者

森田 辰郎（Morita, Tatsuro）

京都工芸繊維大学・機械工学系・教授

研究者番号：90239658

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、新たに考案した先進的急速高温加熱処理により短時間（60 s）に三次元プリンタ製チタン合金の疲労強度を顕著に改善することに成功した（改善率550%）。また、同熱処理を微粒子衝突処理と複合化することで、その疲労強度は展伸材と同水準にまで向上した。大気中での上記熱処理により生じる急速酸化は厚さ100 μmの硬化層を形成させた。その結果、摩擦係数は0.17まで大幅に低下すると同時に摩擦量が顕著に減少した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得られた成果は、直接的には三次元プリンタ製チタン合金から造形される医療用インプラントや各種製品の高性能化を達成するために活用可能である。特に疲労強度の改善効果は、この材料の主たる問題点を後処理により解決可能であることを意味しており、応用範囲は広い。また、本研究で得られた摩擦摩耗特性の改善に関する知見は、ステンレス鋼やアルミ合金等にも応用可能と考えられ、さらなる活用が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, the fatigue strength of titanium alloy produced by a 3D printer was remarkably improved in short time (60 s) by a newly developed advanced rapid high-temperature heat treatment (improvement rate: 550%). The fatigue strength of the alloy was further improved to the same level as that of the wrought material by combining the heat treatment with fine-particle bombardment. Rapid oxynitridation caused by the above heat treatment in air resulted in the formation of a hardened layer (thickness: 100 μm). As a result, the friction coefficient was significantly reduced to 0.17 and the wear resistance was markedly improved.

研究分野：材料力学および機械材料関連

キーワード：三次元プリンタ LPBF チタン合金 高周波誘導加熱 高速酸化 疲労強度 摩擦摩耗特性

1. 研究開始当初の背景

積層造形技術を基本原理とする金属用三次元プリンタを用いれば、従来の加工法では実現困難であった複雑な外形状や、微細水路あるいはオープンセルなどの内部構造を有する高機能少量製品を、チタン合金等の難加工材から直接、CADデータに基づいて作製可能である。この革新的技術については既に多数の研究が実施されており¹⁾、近年には医療用カスタマイズドインプラントの実用化²⁾や、航空宇宙関連部品の高性能化および軽量化を目指して、積極的に応用が進められている。しかし、三次元プリンタにより造形した金属材料には未だ解決すべき種々の問題があり、それらが同技術の広範に渡る工業製品への応用を阻んでいる。例えば、本研究で対象とする三次元プリンタ製チタン合金の場合、実用に向けて疲労強度、摩擦摩耗特性および延性の改善が強く望まれている。

2. 研究の目的

以上の背景から、本研究では申請者が新たに考案した先進的急速高温加熱処理により、三次元プリンタ製チタン合金の疲労強度、摩擦摩耗特性および延性を改善しようと試みた。具体的には、①LPBF法により造形したチタン合金を大出力高周波誘導加熱装置を用いて高温(1323 K)まで急速加熱し、これにより大気構成元素(酸素、窒素)を高速拡散させて硬化層を短時間(60 s)に形成させ、摩擦摩耗特性を改善する、②加熱後、水冷により高い圧縮残留応力を付与すると同時に歪誘起変態を容易化し、表面の凹凸や造形欠陥の無害化を通じて疲労強度の顕著な改善を実現する、③上記熱処理により材料内部の微視組織を制御して延性の向上を達成する、の3項目を目的とした。

3. 研究の方法

(1) 供試材および処理方法 本研究では、LPBF法を用いて図1(a)および(d)に示す形状のTi-6Al-4V合金を造形した。以後、この造形まま材をA材と呼ぶ。A材を大気中で1323 K、60 sの条件で加熱した後、水冷した(A-IQ材)。A材およびA-IQ材に、表面の平滑化および圧縮残留応力の付与を目的として、SiC粒子、SKH51粒子およびSiO₂粒子による3段階のFPB処理を施した。これらをA-F材およびA-IQF材と呼ぶ。各FPB処理の処理時間は10 sとした。図1(a)に示す形状は、各種の分析および摩擦摩耗試験のために図1(b)および(c)の形状に機械加工した。なお、比較材として展伸材(1023 K、3.6 ks、空冷)を別途準備した(W材)。

(2) 実験方法 各材の表面様相は、SEMにより観察した。表面の最

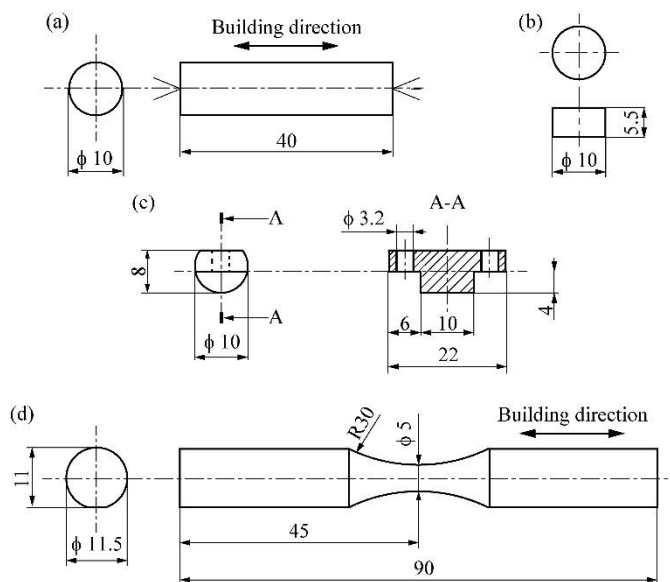


図1 試験片形状 (mm) : (a)元材, (b)ボタン型試験片, (c)摩擦摩耗試験片, (d)引張・疲労試験片

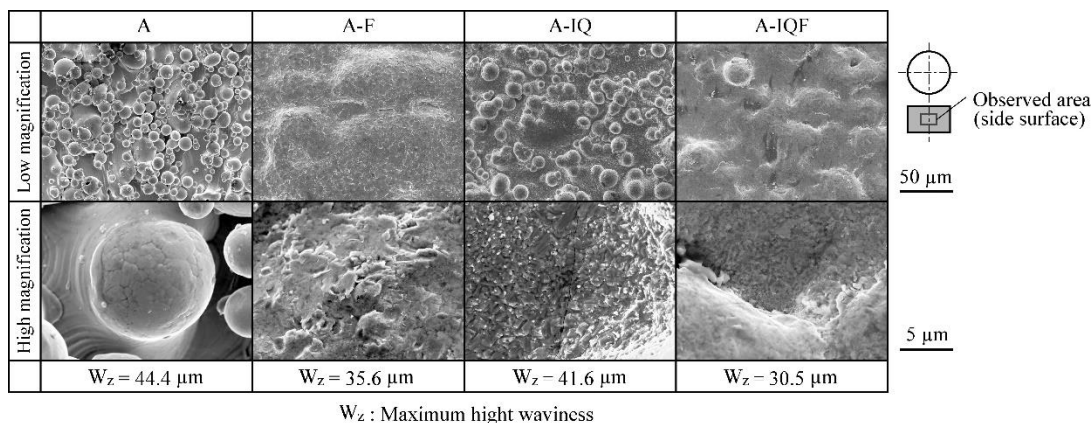


図2 各材の表面様相

大うねりは、レーザ顕微鏡を用いて測定した。表面近傍の組織を調べるため、EBSD 分析により IPF マップおよび Phase マップを取得した。加熱処理に伴い表面に形成される化合物の同定は、X 線回折により行った。硬さ分布は、断面上でダイナミック超微小硬度計（三角錐圧子）を用いて、試験力 45 mN の下で調べた。

摩擦摩耗特性は、ピンオンディスク型摩擦摩耗試験機により調べた。この試験では、相手材を直径 50 mm、厚さ 3 mm のアルミナ板とし、図 1(c) に示す形状の試験片を摺動させた。その際、試験力 2.94 N、回転直径 8 mm、摺動速度 40 mm/s、試験温度 293 K、大気中、無潤滑とした。試験は 100 m で終了し、摺動部の様相をレーザ顕微鏡により調べた。

機械的性質は、精密万能試験機を用いて室温、大気中で調べた。疲労試験には平面曲げ疲労試験機を用い、試験条件は応力比 $R = -1$ 、繰返し速度 25 Hz、室温、大気中とした。引張破面および疲労破面は SEM で観察し、破壊形態を詳細に調べた。また、疲労強度に及ぼす残留応力の影響を調べるため、X 線残留応力測定を行った。測定は $\cos \alpha$ 法を用いて、X 線 $\text{CuK}\alpha$ 線、回折面 (213)、回折角 $2\theta = 139.581^\circ$ 、X 線入射角 $\phi = 25^\circ$ 、応力定数 $K = -166.517 \text{ MPa}/^\circ$ の条件で行った。

4. 研究成果

(1) 表面様相、組織および硬さ分布

図 2 に各材の表面様相を最大うねり高さ (R_z) と合わせて示す。同図に示すように、A 材の表面には造形粒子に由来する凸部が多数認められた。A-IQ 材では、熱処理に伴い凸部表面の粗さが大となったが、最大うねり高さは A 材と同程度であった。FPB 処理を施した A-F 材および A-IQF 材では、粒子状の凸部が均されて表面は比較的滑らかになり、最大うねり高さは低下した。

図 3 に各材の表面近傍で取得した EBSD 分析結果をまとめて示す。この図から理解されるように、A 材の組織は造形時に熔融温度から一層ごとに冷却されて針状の α' マルテンサイト相と残留 β 相（黒色部）となった。FPB 処理により A-F 材の表面は均され、また最表面には組織の微細化により EBSD 分析結果が得られない領域（黒色）が存在した。A-IQ 材の母材部は、加熱時に全領域が β 相へ変態した後、急冷に伴い針状の α' 相および残留 β 相（黒色部）となった。A-IQ 材の組織形態は A 材と同様であったが、 α' 相はより緻密に形成された。処理温度は 1323 K と Ti-6Al-4V 合金の β 変態点以上であるため、加熱時には組織が β 単相となる。処理温度が高温で、かつ組織が単相となるため、大気中の酸素および窒素が表面の凸部周囲から内部へ急速に拡散し、最表面には化合物層 (TiO , TiO_2 , Ti_2N) が、またその下部には酸素等の拡散により安定化した α 相が認められた。A-IQF 材では A-F 材と同様に表面近傍が均された様子が認められたが、凸部の α 相が一部除去されたため、 α 相の存在領域は狭くなった。

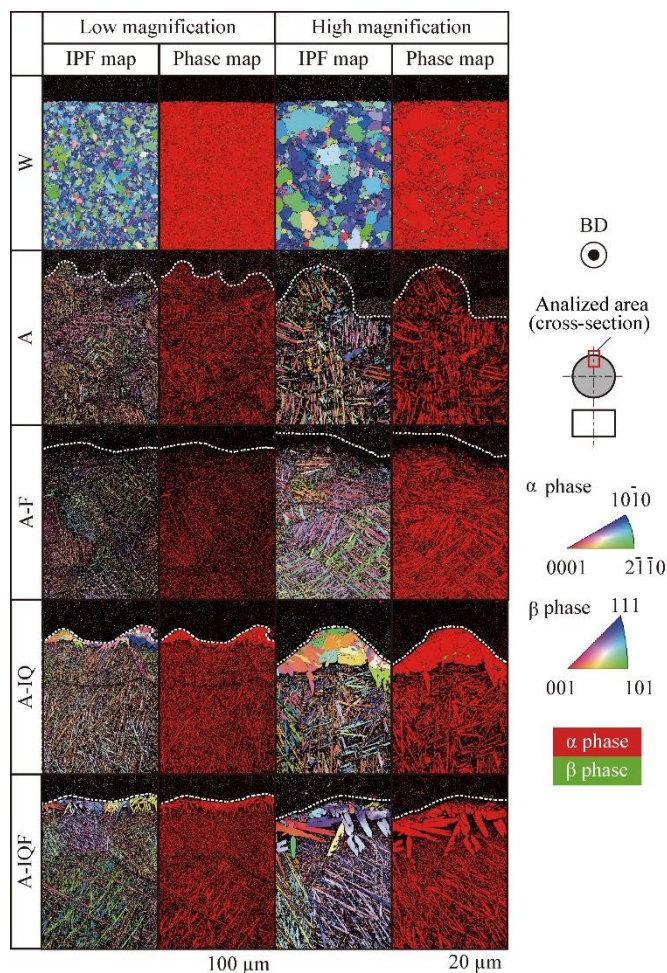


図 3 EBSD 分析結果

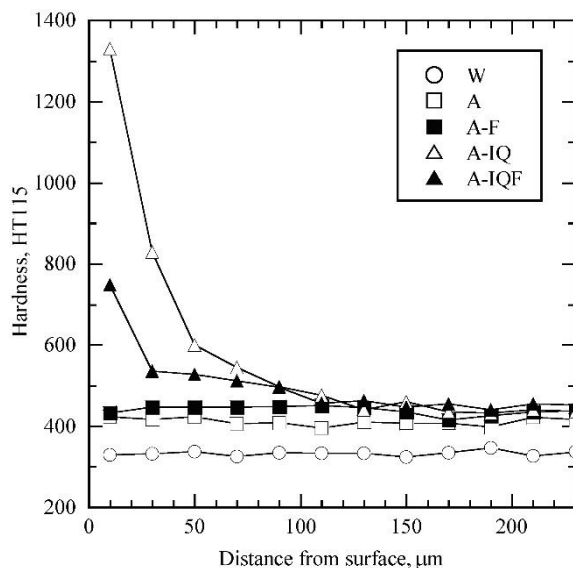


図 4 断面上で測定した各材の硬さ分布

図 4 に各材の硬さ分布をまとめて示す。A 材の組織は針状 α' 相を含むことから、硬さは W 材よりも高い値を示した。FPB 処理を施した A-F 材では処理の影響が深さ 10 μm 程度であったため、硬さ分布に A 材との差異は認められなかった。A-IQ 材の母材部組織は A 材と同様で硬さも同程度であったが、処理時間が 60 s でも表面からの酸素や窒素が急速に拡散したため、深さ 100 μm まで硬さの上昇が認められた。A-IQF 材では、A-IQ 材と内部組織は同じであったが、FPB 処理により化合物層やその下部の硬化層が除去された結果、表面近傍の硬さは相対的に低くなった。

(2) 摩擦摩耗特性 図 5 に摺動距離と摩擦係数の関係を、図 6 に試験後の摺動部の様相をそれぞれまとめて示す。図 5 から理解されるように、W 材の摺動部には線状の摩耗痕が認められる一方、A 材では粒子状の凸部のみが相手材に接触して摩耗した様子が観察された。A-IQ 材では、A 材と同様に凸部のみに摩耗が生じたが、硬化層の形成に伴い摩耗部の大きさは A 材よりも小となった。一般に、接触部でのせん断抵抗が同じであれば、接触面積の減少が摩擦係数の低下をもたらすことから、点接触となった A 材では W 材よりも摩擦係数が低くなった。しかし、摺動距離が長くなるにつれて接触面積が徐々に増加し、それに伴って摩擦係数は漸増した。硬化層が形成された A-IQ 材では、点接触のまま接触面積に変化が生じず、摩擦係数は安定して一定値を推移した。FPB 処理により表面が均された A-F 材および A-IQF 材では、接触面積が増加した結果、A 材および A-IQ 材よりも大幅に摩擦係数が上昇した。結果的に、表面の粒子がテキスチャの役割を果たし、その構造が硬化層により維持される A-IQ 材が摩擦摩耗特性を改善する上で最も優れた効果を示した。

(3) 機械的性質 表 1 に、各材の機械的性質を材料表面で測定した残留応力（試験片軸方向）と共にまとめて示す。A 材では α' 相が塑性変形を抑制した結果、降伏強度および引張強度は W 材の値を大きく上回り、逆に断面収縮率は W 材よりも低い値を示した。A-IQ 材では、残留 β 相に比較的低い応力水準から歪誘起変態が生じたため、降伏強度および引張強度が低下したが、それでも W 材よりも高い値を示した。また、材料内部には破面にディンプルが認められ、延性的な様相を呈していた。しかし、硬化層の割れが引張時の断面収縮を阻害した結果、A-IQ 材の断面収縮率は A 材よりも大幅に低い値となった。FPB 処理は表面のみに影響を及ぼすことから、A-F 材および A-IQF 材の機械的性質はそれぞれの元材（A 材、A-IQ 材）とほぼ同じであった。なお、この実験の実施後にさらに高温（1423 K、1523 K）で処理を施して延性への影響を調査したが、結局、硬化層の割れが原因となって延性の改善には至らなかった。

(4) 疲労強度 図 6 に各材の S-N 曲線を、図 7 にそれらの疲労破面上で観察したき裂発生部の様相をそれぞれまとめて示す。図 6 から理解されるように、A 材では表面の凹凸による応力集中と引張残留応力に起因して（表 1）、疲労強度は著しく低い値となった（80 MPa）。一方、A-IQ 材の疲労強度は 440 MPa であり、A 材の疲労強度の 550%まで改善しており、本研究で実施した処理には疲労強度の改善に顕著な効果が認められた。このような改善は、次に説明するように硬化層下の残留 β 相の存在と圧縮残留応力の導入によると考えられる。図 7 から理解されるように、A-IQ 材の疲労き裂は A 材と同様に材料表面の凹部から発生した。その後、き裂先端は残留 β 相

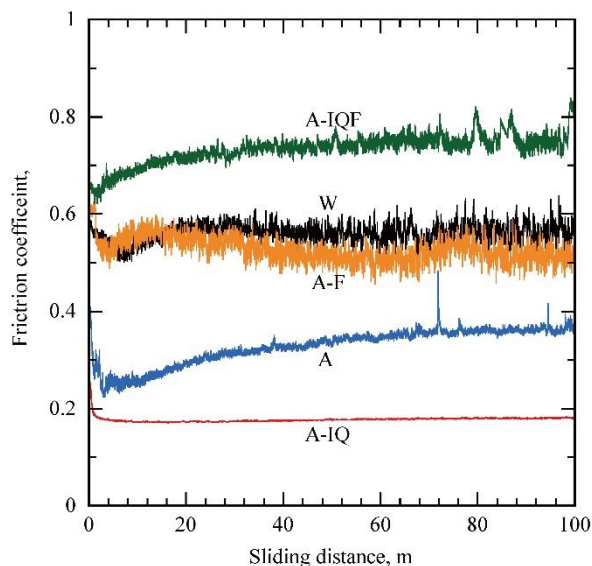


図 5 摺動距離と摩擦係数の関係

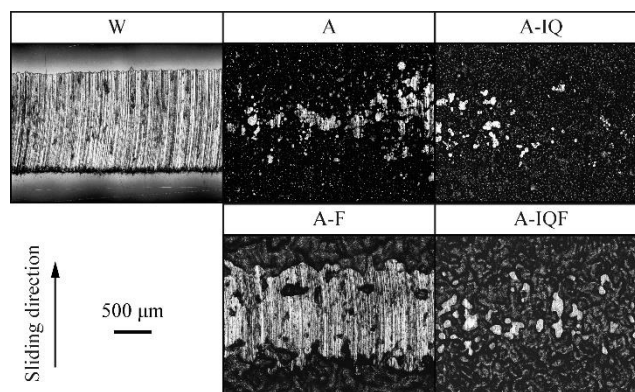


図 6 摺動部の様相

表 1 機械的性質と残留応力値

	Young's modulus (GPa)	Yield strength (MPa)	Tensile strength (MPa)	Reduction of area (%)	Residual stress (MPa)
W	105	981	1032	47	29±24
A	110	1111	1358	19	278±57
A-F	105	1107	1364	24	-318±78
A-IQ	112	980	1227	6.6	-94±15
A-IQF	105	1012	1234	5.1	-435±28

の歪誘起変態と圧縮残留応力の作用により閉口して停留し、高い応力水準まで無害化された³⁾。つまり、き裂の進展抵抗の上昇により表面の割れや凹凸の影響が低減された結果、A-IQ材の疲労強度は著しく改善した。

A-F材およびA-IQF材については、表1に示すようにA材およびA-IQ材よりも高い圧縮残留応力が導入された結果、材料表面でのき裂発生・進展抵抗が上昇した。また、先述のようにFPB処理により表面うねりが低減されたことで応力集中が緩和された。以上の結果、A-FおよびA-IQF材の疲労強度は、A材およびA-IQ材を上回る値を示した。
 (5) まとめ 以上で説明したように、本報告者が独自開発した先進的急速高温加熱処理により、処理時間60sという短時間に、形成された硬化層が摩擦係数を大幅に低下させ、同時に耐摩耗性も顕著に改善した。主たる改善目的であった疲労強度についても、同時に大幅な改善に成功した。残念ながら本研究の範囲では延性の改善に至らなかったため、今後、この点について引続き研究を推進する予定である。

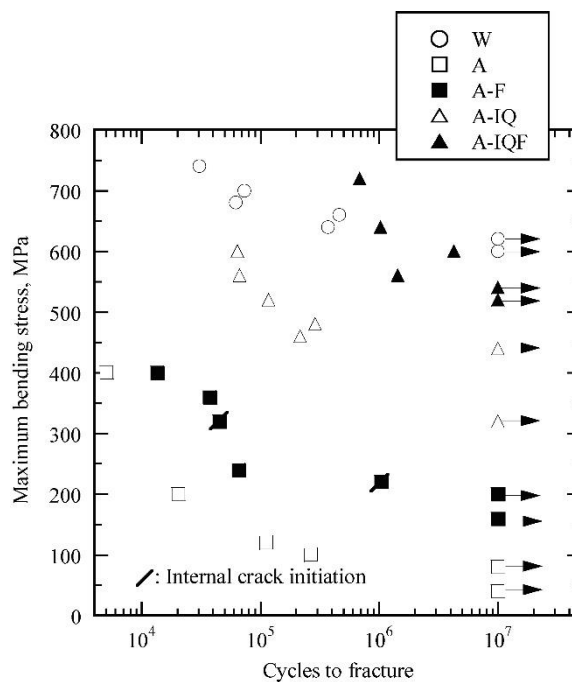


図6 各材のS-N曲線

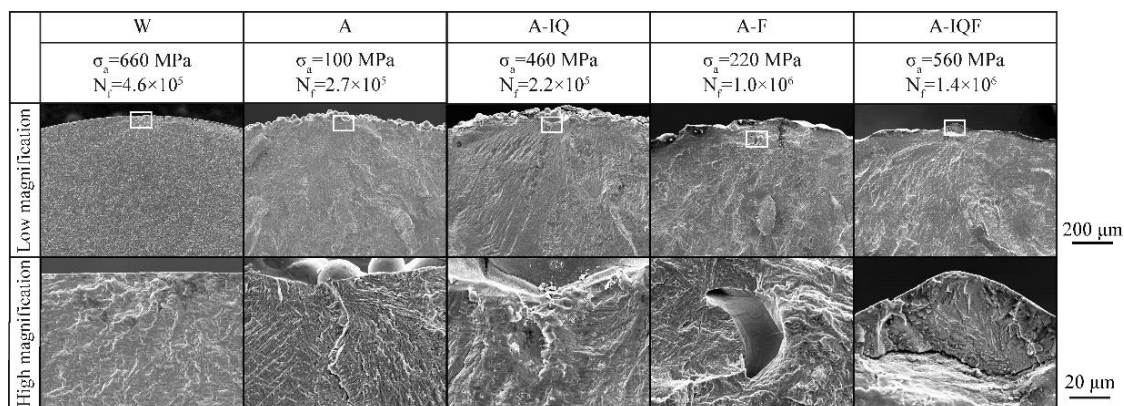


図7 疲労破面上で観察したき裂発生部の様相

<引用文献>

- 1) 例えば, N. Guo, M. C. Leu, Additive manufacturing: technology, applications and research needs, Front. Mech. Eng., 8 (2013) 215-243.
- 2) 吉川秀樹, 中野貴由, 松岡厚子, 中島義雄, 未来型人工関節を目指して, 日本医学館 (2013).
- 3) T. Morita, STanaka, S. Ninomiya, Improvement in fatigue strength of notched Ti-6Al-4V alloy by short-time heat treatment, Mater. Sci. Eng. A, 669 (2016) 127-133.

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 T. Morita, Y. Oka, S. Tsutsumi, S. Takesue, N. Higuchi, H. Sakai	4. 巻 63
2. 論文標題 Short-Time Heat treatment for Ti-6Al-4V alloy produced by selective laser melting	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Materials Transactions	6. 最初と最後の頁 854-863
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/matertrans.MT-M2022018	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 K. Tamura, S. Takesue, T. Morita, E. Marin, J. Komotori, Y. Misaka, M. Kumagai	4. 巻 62
2. 論文標題 Rapid oxynitriding of Ti-6Al-4V alloy by induction heating in air	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials Transactions	6. 最初と最後の頁 111-117
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/matertrans.Z-M2020858	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 S. Takesue, S. Kikuchi, Y. Misaka, T. Morita, J. Komotori	4. 巻 399
2. 論文標題 Rapid nitriding mechanism of titanium alloy by gas blow induction heating	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Surface and Coatings Technology	6. 最初と最後の頁 126160
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.surfcoat.2020.126160	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5件（うち招待講演 0件／うち国際学会 0件）

1. 発表者名 松本孝輝，森田辰郎，武末翔吾，酒井仁史，樋口官男，三阪佳孝，小茂鳥潤，熊谷正夫
2. 発表標題 極短時間酸窒化処理によるTi-6Al-4V合金積層造形材の耐摩耗性と疲労強度の同時改善
3. 学会等名 日本材料学会第71期講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 奥野由雅, 森田辰郎, 武末翔吾, 酒井仁史, 樋口官男, 小茂鳥潤, 三阪佳孝, 熊谷正夫
2. 発表標題 高周波誘導加熱での高速酸窒化処理およびFPB処理によるTi-6Al-4V合金積層造形材の機能性向上
3. 学会等名 日本材料学会 第7回材料week若手学生研究発表会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田村和暉, 森田辰郎, 武末翔吾, 小茂鳥潤, 三阪佳孝, 熊谷正夫
2. 発表標題 大気中での高周波誘導加熱によるTi-6Al-4V合金の高速酸窒化処理
3. 学会等名 日本材料学会第5回材料WEEK若手学生研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 奥野由雅, 田村和暉, 森田辰郎, 武末翔吾, 小茂鳥潤
2. 発表標題 Ti-6Al-4V合金積層造形材の大気中での高周波誘導加熱による高速酸窒化処理 (優秀講演発表賞受賞)
3. 学会等名 日本材料学会関東支部理事会主催学生研究交流会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田村和暉, 森田辰郎, 武末翔吾, 酒井仁史, 樋口官男, 小茂鳥潤, 三阪佳孝, 熊谷正夫
2. 発表標題 大気中での高周波誘導加熱によるTi-6Al-4V合金積層造形材の高速酸窒化処理
3. 学会等名 日本金属学会2019年秋期 (第165回) 講演大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 チタン合金造形物	発明者 森田辰郎・他5名	権利者 京都工芸繊維大学、高周波熱錬、NTTデータ
産業財産権の種類、番号 特許、特願2021-181392	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

先端材料科学研究室ホームページ http://www.cis.kit.ac.jp/~morita/jp/index.html 京都工芸繊維大学ホームページ https://www.kit.ac.jp/chuumokukenkkyu/chuumokukenkkyu202204/

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
研究分担者	武末 翔吾 (Shogo Takesue) (00846058)	京都工芸繊維大学・機械工学系・助教 (14303)	
研究分担者	小茂鳥 潤 (Jun Komotori) (30225586)	慶應義塾大学・理工学部(矢上)・教授 (32612)	

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
---------	---------