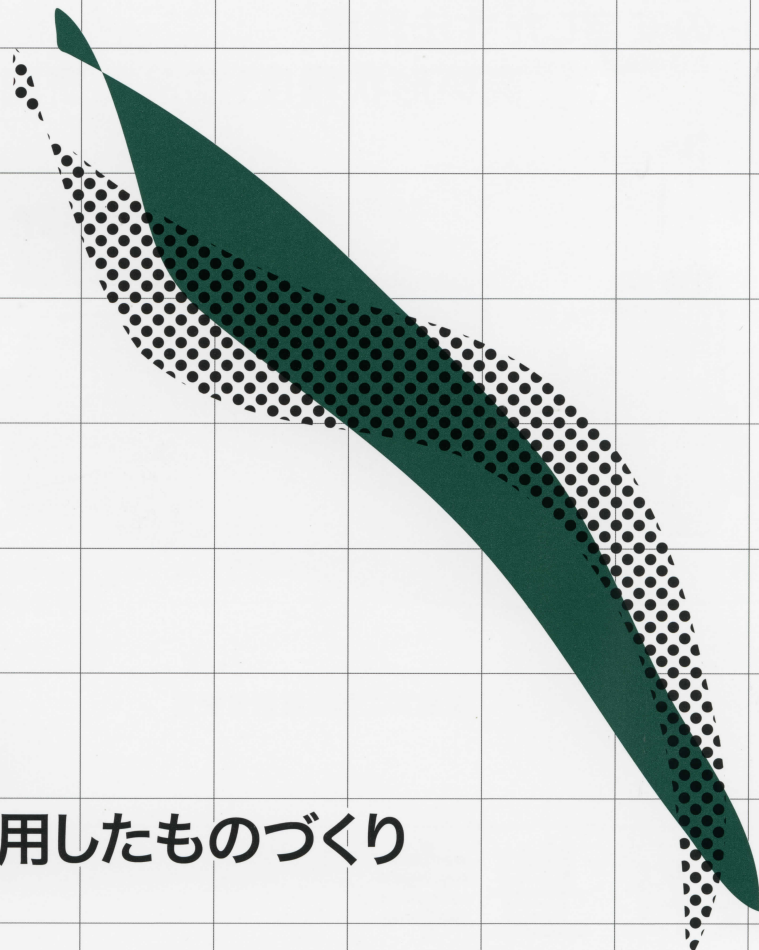


7 2019
JULY
Vol.63 No.7
Pages 340-393

砥粒加工学会誌

Abrasive Technology



特集

ここまで来た!

金属 AM を活用したものづくり

<http://www.jsat.or.jp/>

◇ 特集 ここまで来た！金属 AM を活用したものづくり ◇

金属 AM における形状ならびに組織制御による異方性機能化

Anisotropic functionalization through the control of shape and microstructure via metal additive manufacturing (AM)

石本卓也*, 中野貴由*

Takuya ISHIMOTO and Takayoshi NAKANO

Key words: shape, microstructure, anisotropy, atomic arrangement, mechanical function, biomimetic

1. 緒言

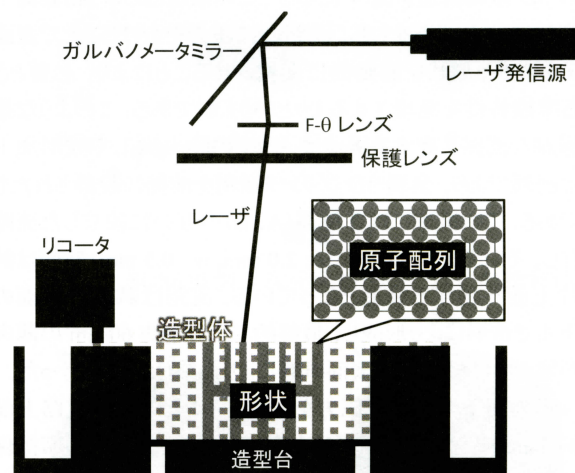
「異方性」の付与は、近年の高機能部材の創製において重要な方向性の 1 つとなっている¹⁾²⁾。Additive Manufacturing (AM) は Computer-Aided Design (CAD) 上での設計図に基づき非常に高い形状自由度にて部材を作製することが可能であり、形状や内部構造の制御による部材の機能化を得意とするテクノロジーである³⁾。一方で近年、AM による金属組織の制御、とりわけ結晶集合組織や結晶粒形状制御に基づく異方性機能発現が注目されている^{4)~8)}。金属 AM は、レーザービームや電子線といった熱源の走査による数 100 μm 程度の微小な熔融池の形成と、熔融池内での凝固挙動に基づき、金属組織制御を実現している。

形状・組織制御による異方性機能化を可能とする金属 AM には主に、出発原料の金属粉末を敷き詰め熔融・凝固させるパウダーベッド方式(レーザーを熱源とする Selective Laser Melting (SLM) (図 1) と電子線を熱源とする Electron Beam Melting (EBM)), 熔融池に金属材料を投入するメタルデポジション方式(レーザー熱源と粉末を用いる Laser Metal Deposition (LMD), レーザ熱源と金属ワイヤを用いる Laser Metal Wire Deposition (LMWD), 金属ワイヤのアーク放電を用いる Wire Arc Additive Manufacturing (WAAM)) などがある。熱源種に依存して投入される熱エネルギーが大きく異なることから、方式によって熱源走査速度をはじめとする照射条件は異なり、それにともない熔融池のサイズや形状が変化することから、結果として形成される金属組織は方式に大きく依存すると考えられる。

本稿では、主にパウダーベッド方式の金属 AM を用いた、形状および組織制御による異方性機能化について、実際の研究データを交えつつ紹介する。

2. 異方的機能付与のための形状パラメータ制御

形状パラメータによる異方性化は、世界的に多数の研究が行われている。その主な目的の 1 つが、骨インプラント材料としての応用である¹⁾²⁾。骨インプラントは、失われた、もしくは著しく低下した骨の荷重支持機能を代替するための生体用構造材料として不可欠なデバイスである一方で、金属製イン



造形物の形状と原子配列(結晶集合組織)に代表される組織の異方性化を達成可能である。

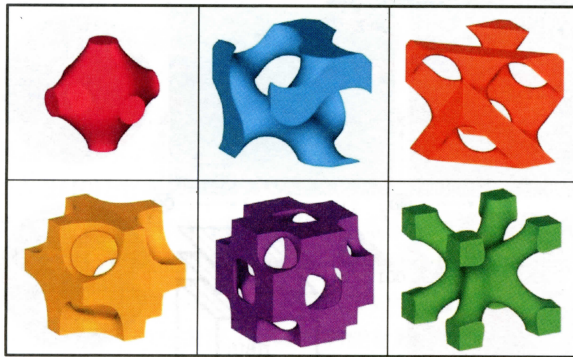
図1 レーザを熱源として用いた選択的レーザー熔融法の模式図

プラントの、骨と比較して著しく高いヤング率に起因する骨への応力遮蔽は、骨吸収や骨質劣化⁹⁾、最終的には骨折リスクの増大を招く重大な有害事象となっている。

この克服のため、多孔体構造(lattice 構造や cell 構造)の導入による、見かけのヤング率の低減が図られている。さらに、骨組織は主応力の大きさと方向に依存した骨基質の優先配向化構造¹⁰⁾¹¹⁾とその結果としての力学機能の異方性^{12)~15)}を発現することから、骨機能に適合した異方的な力学機能特性を設計するというコンセプトにてインプラントのための異方性多孔体形状が提案され始めている¹⁶⁾。例えば、図 2 のような単位構造を有する三次元構造体¹⁷⁾は、種々の力学特性の異方性、すなわち強度分布の対称性や最大値/最小値の比を示し、要素の太さを制御することで強度の絶対値や異方性の度合いを連続的に変化させることが可能である。こうした多孔体構造の形成は、従来の金属加工法では実現できないため、金属材料の形状パラメータ制御に基づく異方性機能化は、金属 AM の活用によって初めて実現可能となる。

さらに、異方性形状パラメータ制御の効能は力学特性の異方性化にとどまらない。上述のように、骨組織をはじめとする生体組織のほとんどが異方的な微細構造を有しており、異方性多孔体構造はこうした生体組織の健全な異方性構造の誘

* 大阪大学大学院: 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1
(学会受付日: 2019年 5月11日)



これらを基本ユニットとして要素の太さやユニットのアスペクト比などを変化することで、機能(この場合は主に力学的機能)値やその等方-異方性が制御可能(文献17)(CC BY 4.0)より改変引用)。

図2 3Dプリンタで達成可能な形状による機能制御の例

導に極めて有効であることを我々は見出している。図3(a)は椎体内部の海綿骨のマイクロCT画像を示すが、海綿骨の骨梁は特定方向(頭尾軸)に沿って一軸的に配列化している。これに対し、SLMにて作製した一方向に貫通孔を設けたインプラント(図3(b))を、貫通孔方向と骨梁配列方向を一致させて埋入することで、正常な骨梁に類似した骨が孔内部に誘導されることが示された(図3(c))¹⁸⁾¹⁹⁾。これにより、インプラント内外が健全な骨組織で連続的に連結され、力学的に一体化した骨-インプラント系が構築される。こうした孔内部への異方性骨の誘導は、孔表面での骨芽細胞遊走・配列化に基づくことが明らかになっている²⁰⁾²¹⁾。

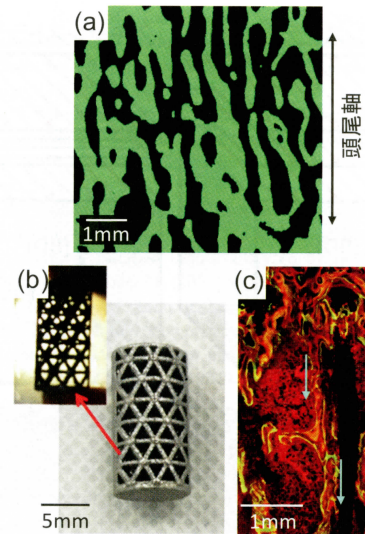
他にも、熱伝導特性の異方性化にもつながり、形状パラメータの異方性の導入は工業用途での適用も大いに期待されている。

3. 異方的機能付与のための組織パラメータ制御

組織パラメータ制御は金属AMにおける近年の最も注目すべきトピックの一つである。とりわけ、結晶集合組織や結晶粒形状(結晶粒界の配置)の異方性は、ヤング率や降伏応力、高温でのクリープ耐性をはじめとする力学特性の方位依存性の発現につながる。

金属AMによる結晶集合組織形成は、種々の金属材料にて、それぞれ特定の造型条件において報告されてきた^{22)~24)}。ただし、異方性機能発現をターゲットとした集合組織の積極的な制御^{4)~8)}は、ごく最近になってその試みが始まったばかりといえる。

Ti-15Mo-5Zr-3Al (in wt.%)合金はbcc構造を有するβ型チタン合金である。本合金は、生体材料としてのISO認可(ISO 5832-14²⁵⁾)を受けた唯一のβ型チタン合金であり、生体用金属材料のなかでは低い85 GPaというヤング率を示す。さらに、対称性の高い立方晶合金であるにもかかわらず、本合金の単結晶は大きなヤング率の異方性を発揮し、<001>にて44.4 GPaという極低ヤング率を示す²⁶⁾。これは、骨のヤング率(～



(a) 正常な椎体海綿骨の骨梁構造
(b) SLM法を用いて作製した、一方向性の貫通孔を有する椎体用インプラント
(c) 骨梁の優先配列化方向に対して貫通孔が平行になるように埋入した場合の、インプラント内部への骨形成挙動

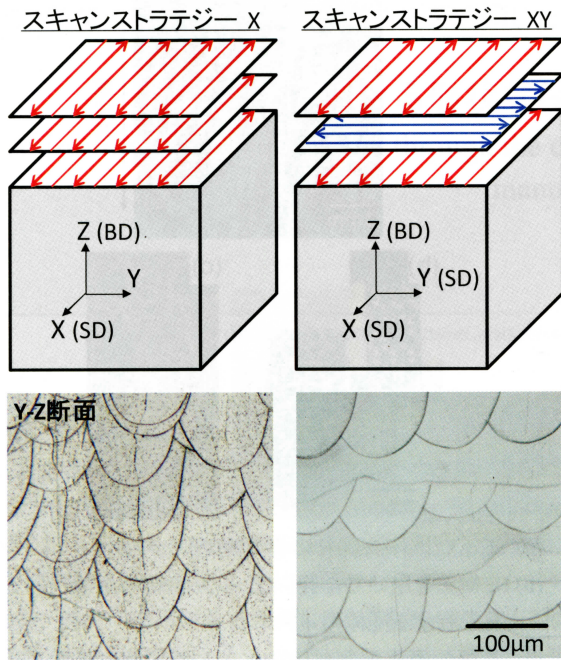
(文献18)より改変引用)。

図3 海綿骨骨梁の異方性構造とそれに適合化させた貫通孔導入インプラント

30 GPa)に匹敵する低いヤング率値である。したがって、組織パラメータ制御は、前項で述べた多孔体構造の導入とともに、応力遮蔽を抑制するための低ヤング率インプラントの実現に向けた重要な戦略である。

金属AMによる結晶集合組織制御には、造型時の熱エネルギー投入条件が深く関与する。SLM法の場合、とりわけ、レーザー走査速度が集合組織形成の可否を²⁷⁾、スキャンストラテジー(積層ごとのレーザー走査パターンの組み合わせ)が造型体中での結晶方位を⁴⁾、それぞれ強く支配する。ガスアトマイズしたTi-15Mo-5Zr-3Al合金球状粉末を出発材料とし、集合組織形成可能条件として見出した特定のレーザー走査速度にて、図4に示す2種のスキャンストラテジーXならびにXYにて直方体状試料の造型を実施した。試料断面において、それぞれのスキャンストラテジーに特有の鱗状のパターンが認められる。これは溶融池の最外部をトレースしたものに一致する。すなわち、こうしたサイズスケールの微小な溶融部を単位として三次元の部材が形成されている。溶融池は、レーザー走査方向に尾を引くように形成されることが図4より理解される。

図5には、試料中央部付近にて解析した3断面でのInverse Pole Figure(IPF)マップ、ならびに{001}、{011}の極点図を示す。造形体中の結晶集合組織はスキャンストラテジーに依存して全く異なり、スキャンストラテジーXでは造形(Z)方向に<110>、走査(X)方向に<001>が、スキャンストラテジーXYではX、Y、Zの全方向に<001>が優先結晶配向した単結晶様の結晶集合組織が発達することを見出した(図6)⁴⁾。積層厚さ(60 μm)を超えて結晶粒が造形(Z)方向に連続していることから、溶融池での凝固時に直下の層からのエピタキシャル成



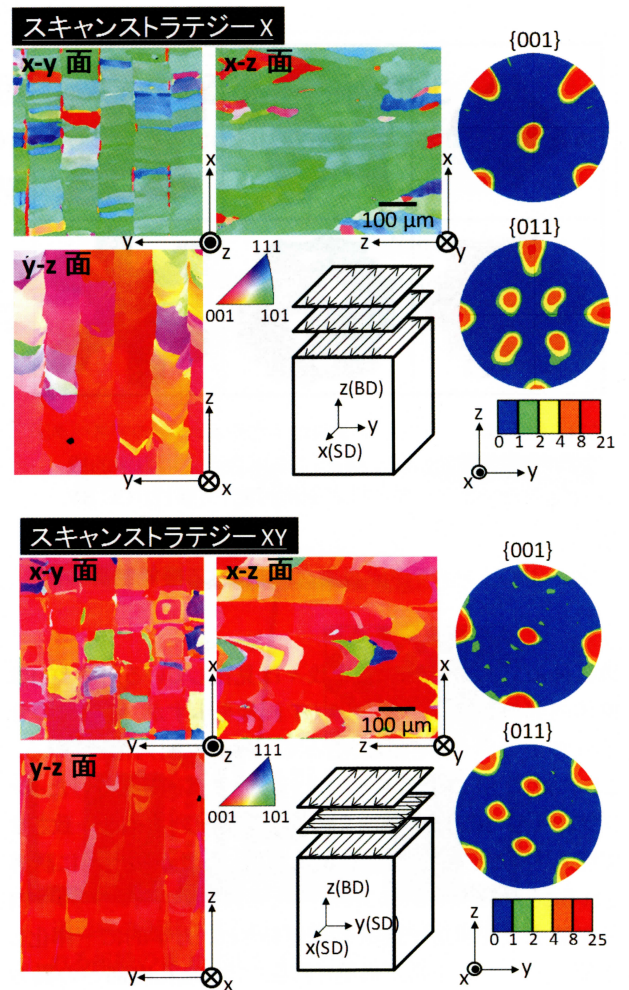
BD: 造型方向
SD: 走査方向 (文献4)(CC BY 4.0)より改変引用)

図4 結晶集合組織制御のための2種のスキャンストラテジーと、その結果造型体内部に形成された溶融池跡(光学顕微鏡写真)

長によって集合組織が発達したことがわかる。溶融池内での局所的な結晶方位と凝固組織の解析より、こうした集合組織の発達には、凝固時の固液界面の移動が溶融池横断面内にてほぼ二次元的に制御されている特定の条件下でのみ実現することが明らかとなった。スキャンストラテジーXでは、造形方向に対して $\pm 45^\circ$ 方向に、スキャンストラテジーXYでは 0° 、 90° 方向に、bccの優先成長方向である $\langle 001 \rangle$ が、固液界面の移動とともに配向し、その結果、レーザ走査方向(溶融池の長手方向)にもう1つの $\langle 001 \rangle$ が固定化され、単結晶様の結晶集合組織形成が実現した⁴⁾。レーザ走査速度が単結晶化の可否を決める重要な因子であった理由はこうした機序によるものである。例えば走査速度が小さい場合は、溶融池の尾部が大きな勾配を持ち、固液界面の移動方向が溶融池横断面内限定されず三次元的になることで、幾何学的に単結晶状態が実現されない。

こうした結晶集合組織形成の結果、 $\langle 001 \rangle$ が優先結晶配向した方位においては、約 69 GPaの低ヤング率を示した。一方、 $\langle 110 \rangle$ 優先結晶配向方向でのヤング率は約 100 GPaを示すことが確認され、金属 AM による材質制御と異方性機能化を達成した。さらなる結晶配向性の顕在化と軽元素の蒸発を考慮した最適組成制御により、単結晶の理想値に近いさらなる低ヤング率が達成されるものと期待される。

我々の取り組みにより、結晶集合組織制御の観点から、スキャンストラテジーX が非常に重要な造形条件であることが明らかになった。SUS316L においては、スキャンストラテジーX



BD: 造型方向
SD: 走査方向 (文献4)(CC BY 4.0)より改変引用)

図5 レーザ積層造形法にて2種のスキャンストラテジー(X, XY)にて作製した造型体の結晶集合組織を表すIPF方位マップと極点図

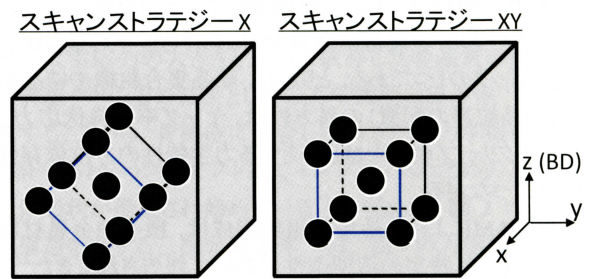


図6 造型体の方位と内部での結晶配向方位の対応

の適用により、fcc 単相であるにも関わらず造形方向に $\langle 001 \rangle$ と $\langle 110 \rangle$ が配向した2つの層が 100 μm という微細な周期で配列したラメラ構造を得ている⁷⁾。ラメラ構造を有する造型体では、有しないものと比較して、相界面(結晶粒界)における転位の伝達抵抗の増大により降伏応力が有意に向上した。このような微細周期の構造は人工的に作製することは不可能であり、微小な溶融池単位での凝固が集合組織を支配する金属 AM ならではの異方性組織制御といえる。

4. おわりに

金属AMは、形状精度向上や欠陥形成の抑制をターゲットとして開発・高度化してきた背景から、本来金属材料の機能を支配する組織学的パラメータがこれまであまり注目されてこなかった。実際、市販されている金属AMの装置では、形状保証のために、組織に影響する造型パラメータが自在に設定できないことも多い。最近になって、組織制御の重要性が認識され始め、ユーザー側で選択できる造型パラメータの自由度は拡大する傾向にあることから、今後は金属AMを用いた異方性組織制御がさらに高度化していくことは疑う余地はない。形状付与の自由度と組織制御能を兼ね備えることで、高機能な金属製品を創出するための新たなモノづくりテクノロジーとして金属AMは発展していくと期待され、その中で異方性が付加価値を生む重要なキーワードとなるであろう。

謝辞

本稿で紹介した研究の一部は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究(S)「骨異方性誘導のための「異方性の材料科学」の構築(研究代表者:中野貴由, 課題番号:18H05254)」(平成30年度-35年度), ならびに, SIP(戦略的イノベーション創造プログラム)第1期「革新的設計生産技術」-「三次元異方性カスタマイズ化設計・付加製造拠点の構築と地域実証」(管理法人:NEDO), 同第2期「統合型材料開発システムによるマテリアル革命」-「Ni基合金の3D積層造形プロセスの開発」(管理法人:JST)の支援によって実施された。

5. 参考文献

- 1) T. Nakano: Bone Tissue and Biomaterials Design Based on the Anisotropic Microstructure, *Advances in Metallic Biomaterials: Tissues, Materials and Biological Reactions* (edited by Mitsuo Niinomi, Takayuki Narushima, Masaki Nakai), Springer, Vol.3, (2015), pp.3.
- 2) T. Nakano and T. Ishimoto: Powder-based additive manufacturing for development of tailor-made implants for orthopedic applications, *KONA Powder and Particle Journal*, 32, (2015), 75.
- 3) C. Dapogny, R. Estevez, A. Faure, G. Michailidis: Shape and topology optimization considering anisotropic features induced by additive manufacturing processes, *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, Elsevier, (2019), 626.
- 4) T. Ishimoto, K. Hagihara, K. Hisamoto, S.-H. Sun, T. Nakano: Crystallographic texture control of beta-type Ti-15Mo-5Zr-3Al alloy by selective laser melting for the development of novel implants with a biocompatible low Young's modulus, *Scripta Mater.*, 132, (2017), 34.
- 5) K. Hagihara, T. Nakano, M. Suzuki, T. Ishimoto, Suyalatu, S.-H. Sun: Successful additive manufacturing of MoSi₂ including crystallographic texture and shape control, *J. Alloys Compd.*, 696, (2017), 67.
- 6) S.-H. Sun, K. Hagihara, T. Nakano: Effect of scanning strategy on texture formation in Ni-25 at.%Mo alloys fabricated by selective laser melting, *Mater. Design*, 140, (2018), 307.
- 7) S.-H. Sun, T. Ishimoto, K. Hagihara, Y. Tsutsumi, T. Hanawa, T. Nakano: Excellent mechanical and corrosion properties of austenitic stainless steel with a unique crystallographic lamellar microstructure via selective laser melting, *Scripta Mater.*, 159, (2018), 89.
- 8) T. Nagase, T. Hori, M. Todai, S.-H. Sun, T. Nakano: Additive manufacturing of dense components in beta-titanium alloys with crystallographic texture from a mixture of pure metallic element powders, *Mater. Design*, 173, (2019), 107771.
- 9) Y. Noyama, T. Miura, T. Ishimoto, T. Itaya, M. Niinomi, and T. Nakano: Bone loss and reduced bone quality of the human femur after total hip arthroplasty under stress-shielding effects by titanium-based implant, *Mater. Trans.*, 53, (2012), 565.
- 10) T. Nakano, K. Kaibara, Y. Tabata, N. Nagata, S. Enomoto, E. Marukawa, and Y. Umakoshi: Unique alignment and texture of biological apatite crystallites in typical calcified tissues analyzed by micro-beam X-ray diffractometer system, *Bone*, 31, (2002), 479.
- 11) T. Shinno, T. Ishimoto, M. Saito, R. Uemura, M. Arino, K. Marumo, T. Nakano and M. Hayashi: Comprehensive analyses of how tubule occlusion and advanced glycation end-products diminish strength of aged dentin, *Sci. Rep.*, (2016), srep19849.
- 12) T. Ishimoto, T. Nakano, Y. Umakoshi, M. Yamamoto and Y. Tabata: Degree of biological apatite c-axis orientation rather than bone mineral density controls mechanical function in bone regenerated using rBMP-2, *J. Bone Miner. Res.*, 28, (2013), 1170.
- 13) T. Ishimoto, T. Nakano, M. Yamamoto and Y. Tabata: Biomechanical evaluation of regenerating long bone by nanoindentation, *J. Mater. Sci. Mater. Med.*, 22, (2011), 969.
- 14) R. Ozasa, T. Ishimoto, S. Miyabe, J. Hashimoto, M. Hirao, H. Yoshikawa and T. Nakano: Osteoporosis changes collagen/apatite orientation and Young's modulus in vertebral cortical bone of rat, *Calcif. Tissue Int.*, 104, (2019), 449.
- 15) A. Sekita, A. Matsugaki, T. Ishimoto and T. Nakano: Synchronous disruption of anisotropic arrangement of the osteocyte network and collagen/apatite in melanoma bone metastasis, *J. Struct. Biol.*, 197, (2016), 260.
- 16) S. Xu, J. Shen, S. Zhou, X. Huang and Y.M. Xie: Design of lattice structures with controlled anisotropy, *Mater. Design*, 93, (2016), 443.
- 17) I. Maskery, A.O. Aremu, L. Parry, R.D. Wildman, C.J. Tuck, I.A. Ashcroft: Effective design and simulation of surface-based lattice structures featuring volume fraction and cell type grading, *Mater. Design*, 155, (2018), 220.
- 18) 高橋広幸, 石本卓也, 小林佳弥, 伊東学, 井上貴之, 中島義雄, 中野貴由: 配向化骨の早期形成を目指した新規脊椎ケージの設計・開発, *臨床バイオメカニクス*, 39, (2018), 199.
- 19) T. Ishimoto, K. Yamada, H. Takahashi, M. Takahata, M. Ito, T. Hanawa and T. Nakano: Trabecular health of vertebrae based on anisotropy in trabecular architecture and collagen/apatite micro-arrangement after implantation of intervertebral fusion cages in the sheep spine, *Bone*, 108 (2018), 25.
- 20) A. Matsugaki, G. Aramoto, T. Ninomiya, H. Sawada, S. Hata and T. Nakano: Abnormal arrangement of a collagen/apatite extracellular matrix orthogonal to osteoblast alignment is constructed by a nanoscale periodic surface structure, *Biomaterials*, 37 (2015), 134.
- 21) A. Matsugaki, G. Aramoto and T. Nakano: The alignment of MC3T3-E1 osteoblasts on steps of slip traces introduced by dislocation motion, *Biomaterials*, 33 (2012), 7327.
- 22) L. Thijs, M.L.M. Sistiaga, R. Wauthle, Q. Xie, J.P. Kruth and J. Van Humbeeck: Strong morphological and crystallographic texture and resulting yield strength anisotropy in selective laser melted tantalum, *Acta Mater.*, 61, (2013), 4657.
- 23) G.P. Dinda, A.K. Dasgupta and J. Mazumder: Texture control during laser deposition of nickel-based superalloy, *Scripta Mater.*, 67, (2012), 503.
- 24) L. Thijs, K. Kempen, J.P. Kruth and J. Van Humbeeck: Mechanical properties of AlSi10Mg produced by selective laser melting *Acta Mater.*, 61, (2013), 1809.
- 25) ISO 5832-14:2019, Implants for surgery -- Metallic materials -- Part 14: Wrought titanium 15-molybdenum 5-zirconium 3-aluminium alloy, (2019).
- 26) S.-H. Lee, M. Todai, M. Tane, K. Hagihara, H. Nakajima and T. Nakano: Biocompatible low Young's modulus achieved by strong crystallographic elastic anisotropy in Ti-15Mo-5Zr-3Al alloy single crystal, *J. Mech. Behav. Biomed. Mater.*, 14 (2012), 48.
- 27) 石本卓也, 安富淳平, 杉本昌太, 中野貴由: レーザ積層造形法によるβ型Ti-15Mo-5Zr-3Al合金の集合組織形成, *スマートプロセス学会誌*, 7, (2018), 229.