粉末床溶融結合法用β型 Ti-15Mo-5Zr-3Al 合金粉末の評価と流動特性

Analysis and Fowability of β Type Ti-15Mo-5Zr-3Al Alloy Powders for Laser and Electron Beam Powder Bed Fusion Methods

小 笹 良 輔・Park Sung-Hyun・Gokcekaya Ozkan・Gupta Mridul・山 岡 祐 介 松 坂 匡 晃・森 田 尚 昂・松 垣 あいら・石 本 卓 也・中 野 貴 由

〔スマートプロセス学会誌, Vol. 11, No. 4 (2022) 別刷〕



粉末床溶融結合法用β型 Ti-15Mo-5Zr-3Al 合金粉末の評価と流動特性

Analysis and Fowability of β Type Ti-15Mo-5Zr-3Al Alloy Powders for Laser and Electron Beam Powder Bed Fusion Methods

小 笹 良 輔*・Park Sung-Hyun*・Gokcekaya Ozkan*・Gupta Mridul*・山 岡 祐 介* 松 坂 匡 晃*・森 田 尚 昂*・松 垣 あいら*・石 本 卓 也**・中 野 貴 由* Ryosuke OZASA, Sung-Hyun PARK, Ozkan GOKCEKAYA, Mridul GUPTA, Yusuke YAMAOKA, Tadaaki MATSUZAKA, Naotaka MORITA, Aira MATSUGAKI, Takuya ISHIMOTO and Takayoshi NAKANO

(Received 24 December 2021, Accepted 27 December 2021)

Although gas atomization technique for additive manufacturing is highly developed, differences of metallic powder properties between for laser powder bed fusion (L-PBF) and for electron beam powder bed fusion (EB-PBF) yet to be addressed systematically. This study aimed to analyze the properties and functions of atomized powders for L-PBF and EB-PBF and compare them. Gas atomized powders showed spherical shape regardless of their size, indicating no relation of cooling rate to powder shape. Relatively large size of EB-PBF powders ($D_{50} = 83.3 \,\mu\text{m}$) with sharp size distribution ($D_{90}/D_{10} = 1.90$) showed high flowability compared with L-PBF powders ($D_{50} = 31.4 \,\mu\text{m}$) with broad size distribution ($D_{90}/D_{10} = 3.02$), whereas the difference in laser absorption was not shown. These findings obtained here demonstrated that the powder flowability, which determines the quality of powder bed, can be tightly related with powder properties in gas-atomized metallic powders.

Key Words: Laser-Powder Bed Fusion (L-PBF), Electron Beam-Powder Bed Fusion (EB-PBF), Gas Atomized Powder, Powder Size, Flowability

1. 緒言

金属 Additive Manufacturing (AM) の1種である粉末床 溶融結合 (Powder Bed Fusion: PBF) 法は、Computer Aided Design (CAD) データに基づき、熱源を照射・走査するこ とで、原料金属粉末を選択的に溶融/凝固させることによ り所望の立体造形物を作製可能な技術であり、最先端ス マートプロセス手法の一つとして注目されている。最近で は、造形に用いる熱源種やその照射条件、各層ごとのビー ム走査パターンに基づき PBF 法特有の温度場を創出する ことで、金属粉末の溶融/凝固挙動の制御により、結晶集 合組織や結晶配向、凝固組織形態や結晶相などの材質制 御¹⁻¹³⁾が実現されている。PBF 法は熱源種に応じて、レー ザを熱源とするレーザ粉末床溶融結合 (Laser-Powder Bed Fusion: L-PBF) と電子ビームを熱源とする電子ビーム粉末 床溶融結合 (Electron Beam-Powder Bed Fusion: EB-PBF) に 大別される。熱源の違いに起因して、L-PBF と EB-PBF で は造形に関わる各種最適造形パラメータがそれぞれ異なる (Table 1)_o

その結果として、同組成(Ti-15Mo-5Zr-3Al (in mass%))

の材料に対して同様のビーム走査パターンを適用する場合 であっても、熱源種に応じて入熱・抜熱挙動が変化するこ とにより、異なる結晶方位をもつ造形物の創製が可能とな る¹⁶⁾。このように、L-PBF と EB-PBF における熱源の特徴 ならびに創製される造形物の材質や機能については理解が 進んでいるものの、溶融対象である粉末の特性や機能につ いての理解は十分になされていない。

金属粉末製造プロセスに目を向けると、ガスアトマイズ 法は、広く普及している PBF 用粉末製造法の一つである。

Table 1 Differences of building parameters in L-PBF and EB-PBF.

	L-PBF	EB-PBF	
Heat source	Laser (low energy absorption that can be controllable by the laser wavelength, temperature, materials, gas atmosphere, and surface morphology) ¹⁴⁾	Electrons (high energy absorption but easily disturbed by the magnetic field) $^{\rm 15)}$	
Beam size	Relatively small (high processing accuracy) ¹⁶⁾	Relatively large (shallow and wide melt pool) ¹⁶⁾	
Build speed	-	Higher speed in EB-PBF than in L-PBF because of higher scanning speed ¹⁷⁾ and larger layer thickness ¹⁵⁾	
Atmosphere	Ar or N_2 gas with an O_2 content less than $0.1 \mbox{ vol}\%^{15)}$	Lower partial pressure (0.2 Pa) of He gas, preventing oxidation of the powder ¹⁵)	
Preheating	Optional	Mandatory to slightly sinter powders ¹⁶⁾	

*大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻(〒 565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1)

Division of Materials and Manufacturing Science, Graduate School of Engineering, Osaka University (2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan) **富山大学先進アルミニウム国際研究センター (〒930-8555 富山県富山市五福 3190)

Aluminium Research Center, University of Toyama (3190 Gofuku, Toyama, Toyama 930-8555, Japan)

当該手法は、溶解金属に対して不活性噴霧ガスを衝突させ ることで出湯流を分裂させ、表面張力により比較的球形の 粒子を作製できる手法である。各 PBF プロセスでの適正な 粒子径範囲は、熱源のエネルギー吸収効率に基づき異なっ ており、低吸収効率のレーザを熱源とする L-PBF では 10-45 µm、高吸収効率の電子ビームを熱源とする EB-PBF では 45-105 µm の粒子径が推奨されている¹⁸⁾。一方で、当該手 法により作製された原料金属粉末は、粒子径や形状に応じ て粉末形成時の凝固速度が異なる¹⁹⁾。したがって、両 PBF プロセスで用いる原料粉末は、粒子径のみならず、組成や 粉末形状、それらに由来して粉末特性が変化することが期 待される。しかしながら、L-PBF 用粉末と EB-PBF 用粉末 の特性の違いやその影響についての研究は少ない。

本研究では、粒子径の異なる2種類の原料粉末とし て、設計組成をβ型チタン合金のTi-15Mo-5Zr-3Alとした L-PBF 用粉末およびEB-PBF 用粉末に注目し、各種粉末の 性状および特性を解析することにより、粒子径が粉末特性 に及ぼす影響について解明することを目的とした。本研究 では、粉末の粒度分布や粉末形状に加え、粉末特性として、 AM での造形時の粉末床形成挙動に深く関わる粉末流動性 ならびにレーザ熱源によるエネルギー投入の鍵となるレー ザ吸収率の測定を行った。

2. 実験方法

ガスアトマイズ法により作製した同ロットの L-PBF 用 ならびに EB-PBF 用 Ti-15Mo-5Zr-3Al 合金粉末(Osaka Titanium Technologies, Japan)を供試材として使用した。各 粉末をアクリル樹脂(KM-CO, PRESI, France)に包埋後、鏡 面研磨を行い、電子後方散乱回折(NordlysMax3, Oxford Instruments, UK)により結晶相分布解析を行い、エネルギー 分散型 X 線分析(Astec 3.1, Oxford Instruments, UK)により 組成分析を行った。

粒度分布はレーザ回折式粒度分布測定装置(Mastersizer 3000E, Marvern Panalytical, UK)を用いて解析した。各種 粉末の観察には、電界放出型走査電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: FE-SEM; JEM-6500F, JEOL, Japan) を 用い、ダイナミック粒子画像解析システム (iSpect DIA-10, Shimadzu, Japan) により粒子形状の定量的解析を行った。 円形度は面積相当径を周囲長相当径で除することにより算 出した。タップ密度試験機 (JV100i, Copley Scientific, UK) を用いて、タップストロークは3mm、タップ回数は300 回/分、10分間のタッピングを行うことにより、かさ密 度とタップ密度を測定した。かさ密度をタップ密度で除す ることでハウスナー比を算出した。安息角と崩壊角、表面 フラクタルの測定には、回転ドラム式粉末流動性測定装置 (Revolution Powder analyzer, Mercury Scientific, US)を用いた。 紫外可視近赤外分光光度計(V-770, Jasco, Japan)を用いて、 レーザ発振波長域 400-1300 nm における粉末のレーザ吸収 率を測定した。

3. 実験結果と考察

3.1 金属粉末の粒度分布比較

Fig. 1には、レーザ回折法により測定した各粉末の粒度 分布を示す。なお、ここで得られる粒子径は体積相当径に 対応する。 D_{50} は L-PBF 用粉末にて 31.4 μ m、EB-PBF 用 粉末にて 83.3 μ m とそれぞれ異なる値を示し、粒子径は 各 AM 造形法での適性値の範囲内であることが確認された (**Table 2**)。 D_{90}/D_{10} は EB-PBF 用粉末にて L-PBF 用粉末よ りも低値を示すことから、EB-PBF 用粉末は狭い粒度分布 幅を有することが確認された。

3.2 粒子径と粉末形状の関係性

Fig. 2には粉末形状の解析結果を示す。**Fig. 1**および **Table 2**における粒子径、ならびに粒度分布の傾向と一致 して、FE-SEM により L-PBF 用粉末の大部分は 45 µm 未満 の粒子径 (**Fig. 2** (a)) であるのに対して、EB-PBF 用粉末の 多くは 45 µm 以上であることが確認された (**Fig. 2** (b))。

粉末形状に注目すると、いずれの粉末においても比較的 球形に近い粒子が観察される (Fig. 2 (a), (b))。粉末形状 を定量的に評価するために、L-PBF 用粉末に対する 2 次元 投影像を取得 (Fig. 2 (c))し、取得画像に対する画像解析 を実施した (Table 3)。その結果、L-PBF 用粉末は高い真 球度 (0.92±0.6)を示すことが理解された。さらに、粒子 画像解析により得られた面積相当径 (Fig. 2 (d))は、その 大部分が 45 μ m 以下の粒子から構成されており、これは レーザ回折法により得られた体積相当径分布の結果 (Fig. 1, Table 2)をよく再現する。



Fig. 1 Size distributions of powders for L-PBF and EB-PBF. Black and gray bars represent the data for L-PBF powder and EB-PBF powder, respectively.

 Table 2
 Characteristics of powder size distribution.

Measured characteristics	L-PBF	EB-PBF
D ₁₀ [μm]	16.6	60.4
D ₅₀ [µm]	31.4	83.3
D ₉₀ [µm]	50.2	115
D ₉₀ /D ₁₀	3.02	1.90

Fig. 2 (e) には、粒子面積相当径と真球度の関係性を整理している。いずれの粒子径においても高い真球度の粒子が大部分を占めており、粒子径と真球度との間には相関性 ($R^2 = 4.7 \times 10^3$, p < 0.05) は認められない。以上のことから、ガスアトマイズ法により作製した合金粉末は、粒子径にかかわらず比較的球形に近い粒子形状を有することが示された。

3.3 粉末流動性の評価

PBF プロセスにおいて、粉末充填率の高い均質な粉末床 の形成は緻密な造形物を得るために重要であると考えられ ている。良好な粉末床が得られない場合には、粉末床の凝 固収縮による欠陥の発生、造形物表面における凹凸の顕在 化による造形性の低下、などが懸念される。本研究では、 粉末充填と掃引性の観点から粉末の流動性に注目して各種 の測定を行った(Table 4)。

かさ密度とタップ密度は L-PBF 用粉末にて高値を示す



 Fig. 2 Powder shape analysis. FE-SEM images of powders for (a) L-PBF and (b)EB-PBF. (c)Two-dimensional projection images of L-PBF powders, (d) particle size distribution based on area equivalent diameter analyzed by the obtained image analysis, and (e) the relation between area equivalent diameter and circularity.

Table 3	Characteristics	of powder	shape.
---------	-----------------	-----------	--------

Measured characteristics	L-PBF	
Powder area [µm²]	446.3 ± 462.1	
Powder perimeter [µm]	71.9 ± 39.7	
Maximum Feret diameter [µm]	23.5 ± 13.2	
Minimum Feret diameter [µm]	18.8 ± 10.6	
Area equivalent diameter [µm]	21.0 ± 11.3	
Circularity	0.92 ± 0.6	

が、これは L-PBF 用粉末が EB-PBF 用粉末よりも広い粒度 分布を有することに由来するものと考えられる。一方で、 流動性指標の一つであるハウスナー比は EB-PBF 用粉末に て低値を示した。この際、Carr による分類²⁰⁾に基づくと、 いずれの粉末も同様に良好な流動性を有すると判定され る。一方で、崩壊角と安息角、表面フラクタルは EB-PBF 用粉末にていずれも顕著に低下し、これは EB-PBF 用粉末 が L-PBF 用粉末よりも高い流動性をもつことを示唆してい る。ここで、EB-PBF 用粉末が高い流動性を有する要因と しては、粉末の粒子径による影響が考えられる。Fig. 3には、 粉末粒径と粒子間相互作用力との関係性²¹⁾を示す。この関 係に基づくと、粉末の粒子径が増加するほど粉末の比表面 積が低下し、重力(または外力)が粒子間相互作用力に対し て優位となることで、粉末の流動性が向上するものと考察 される。

ハウスナー比と安息角はともに広く利用される流動性指標であり、本研究では同様の傾向を示す結果が得られた (Table 4)。一方で、粉末の流動性は測定方法によって異なる結果が得られる場合があることから、複数の試験法により総合的に流動性を評価する方法が提案されている^{22),23)}。加えて、離散要素法 (Discrete Element Method: DEM) など

Table 4 (Characteristics	of powder	flowability.
-----------	-----------------	-----------	--------------

Measured characteristics	L-PBF	EB-PBF
Bulk density [g/ml]	2.82	2.76
Tapped density [g/ml]	3.34	3.09
Hausner ratio [%]	1.18	1.12
Avalanche angle [degree]	59.7	49.5
Rest angle [degree]	50.7	34.8
Surface fractal	3.42	2.77



Fig. 3 Relation between particle diameter and inter-particle adhesive force. This figure reprinted from Ref. 21 with modifications.

の計算技術の高精度化が進んでおり、今後、実験データの みならず計算データを駆使することにより、粒子径に応じ て粉末流動挙動が変化する機構について、さらなる理解が 進むものと期待される。

3.4 粉末粒子に対するレーザ吸収挙動

金属粉末は、電子ビームに対しては 100% に近いエネル ギー吸収効率を示すものの、一般に普及している L-PBF 装 置に搭載される Yb ファイバーレーザ (波長 1064 nm) に対し ては、エネルギー吸収効率が低いことが知られている¹⁶⁾。中 でも、銅などのレーザ吸収率の低い金属種の場合には、レー ザによるエネルギー投入効率(約 22%)が極端に低く、粉 末の溶融不良が課題となっている¹²⁾。したがって、L-PBF による組織制御を行うための大前提となる緻密体を形成す るには、原料粉末におけるレーザ吸収挙動の理解とその制 御が不可欠となる。Fig. 4 には、各種粉末におけるレーザ 吸収率のレーザ発振波長依存性を示す。波長 1064 nm にお いて、両粉末ともに同程度の値となる。この際、いずれの 粉末もおおよそ同組成(Table 5)かつ同様の粉末形状(Fig. 2) であることを考慮すると、粒子径はレーザ吸収率にほと んど影響しないことが示唆された。

粉末床でのレーザ吸収挙動については、レイトレーシン グ法をはじめとする計算法により、その理解が進んでき た^{24),25)}。これらの文献^{24),25)}を参考にすると、レーザ吸収 率は粉末床表面からの深さ依存的な変化を示す。とりわ け、球状粉末を利用する場合には、粉末床の表面ではレー ザ反射が生じやすい角度で入射されるため、やや低いレー



Fig. 4 Laser wavelength dependence of laser absorption ratio of the powders for L-PBF and EB-PBF.

Table 5	Composition	of powders	for L-I	PBF and	EB-PBF
---------	-------------	------------	---------	---------	--------

	Ti	AI	Nb	Cr
L-PBF	75.3	16.2	4.4	2.9
EB-PBF	75.4	16.7	3.9	2.7

ザ吸収率を示す。レーザ吸収率は粉末床内部にて最大値と なり、深さとともに減少する。本研究で用いた粉末はおお むね球形状であることから、文献^{24),25)}の計算結果と良い一 致を示した深さ方向に依存したレーザ吸収率分布を生じる ものと期待される。今後は、異形状粉末を導入することに より、粉末床表面付近でのレーザ吸収率を改善することで、 粉末床全体としてのレーザ吸収率が向上することが期待さ れる。加えて、粉末の表面修飾により、耐酸化性向上や高 レーザ吸収率化など、各種 PBF 法や金属種ごとに要求され る特性を付与可能な、金属粉末機能化のための新たな技術 の研究・開発が期待される。

4. 結論

本研究では、L-PBF 用粉末および EB-PBF 用粉末の粉末 性状と特性の解明を目指し、各種の解析を実施することに より、以下の知見を得た。

- ガスアトマイズ法により作製された金属粉末は、粒子 径によらず真球度の高い粒子形状を示す。
- 2) EB-PBF 用粉末は LB-PBF 用粉末よりも高い粉末流動性 を示すことから、ガスアトマイズ粉末の流動性は粒子 径に依存して変化することが示唆される。
- EB-PBF 用粉末と LB-PBF 用粉末は同様のレーザ吸収率 を示す。

謝 辞

本研究は、JST-CREST「革新的力学機能材料の創出に向 けたナノスケール動的挙動と力学特性機能の解明(ナノ力 学)(研究統括:伊藤耕三)」(JPMJCR2194)の支援によって 実施された。ここに謝意を示します。

参考文献

- T. Ishimoto, K. Hagihara, K. Hisamoto, S.-H. Sun and 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 Materialia,132 (2017), 34-38.
- S.-H. Sun, K. Hagihara and T. Nakano: "Effect of scanning strategy on texture formation in Ni-25 at.%Mo alloys fabricated by selective laser melting", Materials & Design, 140 (2017), 307-316.
- 3) K. Hagihara, T. Nakano, M. Suzuki, T. Ishimoto, Su yalatu and S.-H. Sun: "Successful additive manufacturing of MoSi₂ including crystallographic texture and shape control", Journal of Alloys and Compounds, 696 (2017), 67-72.
- 4) T. Ishimoto, J. Yasutomi, S. Sugimoto and T. Nakano: "Crystallographic texture formation of beta-type Ti-15Mo-5Zr-3Al alloy through selective laser melting, Smart Processing Society for Materials, Environment & Energy, 97 (2018), 229-232. (in Japanese)
- 5) S.-H. Sun, T. Ishimoto, K. Hagihara, Y. Tsutsumi, T. Hanawa, and T. Nakano: "Excellent mechanical and corrosion properties of austenitic stainless steel with a unique crystallographic lamellar microstructure

via selective laser melting", Scripta Materialia, 159 $\,(2019),\,89\text{-}93.$

- T. Ishimoto, S. Wu, Y. Ito, S.-H. Sun, H. Amano and T. Nakano: "Crystallographic orientation control of 316L austenitic stainless steel via selective laser melting", ISIJ International, 60 (2020), 1758-1764.
- 7) O. Gokcekaya, T. Ishimoto, T. Todo, R. Suganuma, R. Fukushima, T. Narushima and T. Nakano: "Effect of scan length on densification and crystallographic texture formation of pure chromium fabricated by laser powder bed fusion, Crystals, **11** (2020), 9.
- O. Gokcekaya, N. Hayashi, T. Ishimoto, K. Ueda, T. Narushima and T. Nakano: "Crystallographic orientation control of pure chromium via laser powder-bed fusion and improved high temperature oxidation resistance", Additive Manufacturing, 36 (2020), 101624.
- 9) T. Ishimoto, R. Ozasa, K. Nakano, M. Weinmann, C. Schnitter, M. Stenzel, A. Matsugaki, T. Nagase, T. Matsuzaka, M. Todai, H. S. Kim and T. Nakano: "Development of TiNbTaZrMo bio-high entropy alloy (BioHEA) super-solid solution by selective laser melting, and its improved mechanical property and biocompatibility", Scripta Materialia, **194** (2021), 113658.
- 10) K. Hagihara, T. Ishimoto, M. Suzuki, R. Ozasa, A. Matsugaki, P. Wang and T. Nakano: "Factor which governs the feature of texture developed during additive manufacturing; clarified from the study on hexagonal C₄₀-NbSi₂", Scripta Materialia, **203** (2021), 114111.
- 11) H. Amano, T. Ishimoto, R. Suganuma, K. Aiba, S.-H. Sun, R. Ozasa and T. Nakano: "Effect of a helium gas atmosphere on the mechanical properties of Ti-6Al-4V alloy built with laser powder bed fusion: a comparative study with argon gas", Additive Manufacturing, 48 (2021), 102444.
- 12) R. Ozasa, M. Gupta, T. Ishimoto, A. Matsugaki, T. Kuse, A. Yanagitani, M. Ueda, N. Ikeo and T. Nakano: "Fabrication of copper alloys as conductive materials via laser beam powder bed fusion", Smart Processing Society for Materials, Environment & Energy, 10 (2020), 265-269. (in Japanese)
- O. Gokcekaya, T. Ishimoto, T. Todo, P. Wang and T. Nakano:
 "Influence of powder characteristics on densification via crystallographic texture formation: Pure tungsten prepared by laser powder bed fusion", Additive Manufacturing Letters, 1 (2021), 100016.
- F. Dausinger and J. Shen: "Energy coupling efficiency in laser surface treatment", ISIJ International, 33 (1993), 925-933.

- 15) D. Herzog, V. Seyda, E. Wycisk and C. Emmelmann: "Additive manufacturing of metals", Acta Materialia, **117** (2016), 371-392.
- 16) S.-H Sun, K. Hariharan, T. Ishimoto, R. Suganuma, Y.-F. Xue and T. Nakano: "Comparison of microstructure, crystallographic texture, and mechanical properties in Ti-15Mo-5Zr-3Al alloys fabricated via electron and laser beam powder bed fusion technologies", Additive Manufacturing, 47 (2021), 102329.
- 17) J. Beuth, J. Fox, J. Gockel, C. Montgomery, R. Yang, H.P. Qiao, E. Soylemez, P. Reeseewatt, A. Anvari, S. Narra and N. Klingbeil: "Process mapping for qualification across multiple direct metal additive manufacturing processes", Proceedings of the Solid Freeform Fabrication Symposium, (2013), 655-665.
- 18) Q. B. Nguyen, M. L. S. Nai, Z. Zhu, C.-N. Sun, J. Wei and W. Zhou: "Characteristics of inconel powders for powder-bed additive manufacturing", Engineering, 3 (2015), 695-700.
- 19) J. Lehtonen, Y. Ge, N. Ciftci, O. Heczko, V. Uhlenwinkel and S.-P. Hannula: "Phase structures of gas atomized equiatomic CrFeNiMn high entropy alloy powder", Journal of Alloys and Compounds, 827 (2020), 154142.
- 20) R.L. Carr: "Evaluating flow properties of solids", Chemical Engineering, 72 (1965), 163-168.
- The Society of Powder Technology: Huntaikougakusousho Vol. 3 kisouchunoryushibunsan, bunkyu, bunrisousa, The Nikkan Kogyo Shimbun, 2006. (in Japanese)
- R.L. Carr: "Classifying flow properties of solids", Chemical Engineering, 72 (1965), 69-72.
- 23) K. Ogata: "A review: recent progress on evaluation of flowability and floodability of powder", KONA Powder and Particle Journal, 36 (2019), 33-49.
- 24) E. Kharanzhevskiy and S. Kostenkov: "Modeling of laser radiation transport in powder beds with high-dispersive metal particles", Journal of Alloys and Compounds, 586 (2014), S246-S249.
- 25) J. Zhou, Y. Zhang and J.K. Chen: "Numerical simulation of laser irradiation to a randomly packed bimodal powder bed", International Journal of Heat and Mass Transfer, **52** (2009), 3137-3146.

代表者メールアドレス

中野貴由 nakano@mat.eng.osaka-u.ac.jp