

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

Crystallographic Texture Formation of Beta-type Ti-15Mo-5Zr-3Al
Alloy Through Selective Laser Melting

石本卓也・安富淳平・杉本昌太・中野貴由
Takuya ISHIMOTO, Junpei YASUTOMI, Shota SUGIMOTO and Takayoshi NAKANO

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

Crystallographic Texture Formation of Beta-type Ti-15Mo-5Zr-3Al Alloy Through Selective Laser Melting

石本卓也*・安富淳平*・杉本昌太*・中野貴由*

Takuya ISHIMOTO, Junpei YASUTOMI, Shota SUGIMOTO and Takayoshi NAKANO

(Received August 1, 2018)

Selective laser melting (SLM), a kind of additive manufacturing (AM) technologies, enables to fabricate highly complicated 3-dimensional structures from a powdered metallic materials. Recent investigations demonstrated the ability of SLM to form crystallographically texturized parts. Highly texturized materials exhibit anisotropic functions; therefore, control of texture via AM is becoming attractive strategy for developing functionalized materials. In the present study, we tried to find laser conditions for formation of randomly and highly texturized parts in SLM of T-15Mo-5Zr-3Al biomedical alloy. We successfully achieved randomly and highly texturized parts under the conditions of (low laser power and low scan speed) and (high laser power and high scan speed), respectively. The highly texturized part showed anisotropy in Young's modulus in which the value in $\langle 001 \rangle$ oriented direction was significantly lower than that in $\langle 011 \rangle$ oriented direction, the similar trend to those reported in single crystal of this alloy. The evolution of crystallographic texture was thought to be related with melt-pool shape, which needs further investigations.

Key Words: Selective Laser Melting, Crystallographic Texture, Anisotropy, Young's Modulus, Laser Condition

1. 緒言

3D プリンタは、自由自在に形状設計されたパーツの作製を可能とする新たなモノづくりテクノロジーとして注目されている。3D プリンタの高精度かつ自由度の高い形状選択性を活かし、患者の骨形状に沿うカスタム形状インプラントや骨置換用のポーラス材の作製に関する研究開発が国内外で盛んに行われ、一部は患者への適用も実現されている¹⁾⁻³⁾。

一方で近年、金属結晶集合組織の形成・制御が金属 3D プリンタ研究における重要なトピックの一つとなっている⁴⁾⁻⁸⁾。結晶集合組織の形成は原子配列に基づく機能異方性の発現を可能とし、集合組織強度(ランダムから単結晶まで)の制御により異方性の度合を変え、種々の機能特性を取り出すことが可能になる。金属 3D プリンタは、レーザビームや電子線といった熱源の走査による数 100 μm 程度の溶融池を単位として溶融凝固し(Fig. 1)、三次元構造物を作製することから、溶融池内部での凝固挙動を均一に制御することで構造物内部にて均一な結晶配向を形成可能であると期待される。

本研究で着目した Ti-15Mo-5Zr-3Al (in wt.%) 合金は、bcc 構造を有する β 型チタン合金であり、多結晶にて 85 GPa という比較的低いヤング率を示す⁹⁾ (SUS316L のヤング率: 約 160 GPa、2 種チタンおよび Ti-6Al-4V 合金のヤング率: 約 110 GPa) ことから、応力遮蔽を抑制し得る金属インプラ

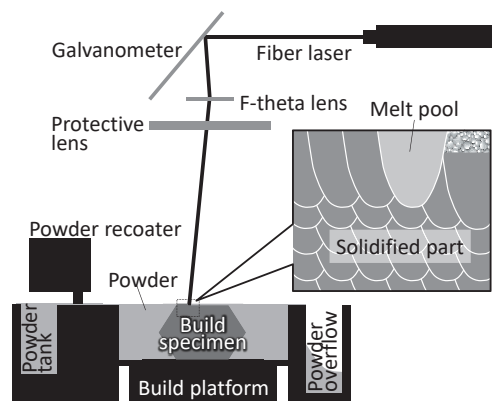


Fig. 1 Schematic illustration of selective laser melting (SLM).

ント材料として期待されている。さらに、本合金を単結晶化することで、対称性の高い立方晶合金であるにも関わらず大きなヤング率の異方性を発揮し、 $\langle 001 \rangle$ にて約 44 GPa という極低ヤング率を示す¹⁰⁾。これは、骨のヤング率 (~30 GPa) に匹敵する低いヤング率値である。

本研究では、金属 3D プリンタの一種であるレーザ積層造形 (Selective laser melting: SLM) 法を用いて Ti-15Mo-5Zr-3Al 合金の結晶集合組織と結果としてのヤング率異方性を制御するためのレーザ条件を見出し、条件に依存した集合組織形成の可否について考察することを目的とした。

*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)

2. 実験方法

インゴットよりガスアトマイズ法により作製した Ti-15Mo-5Zr-3Al 合金粉末を用い、レーザー積層造形装置 (EOS M290, EOS, Germany) によって 5 mm × 5 mm × 10 mm の直方体状試料を造形した (Fig. 2)。レーザーの走査軌道は一方方向の往復とし、代表的なレーザー照射条件 (レーザー出力 P 、レーザー走査速度 v 、走査ピッチ d 、積層厚 t) を、 d および t をそれぞれ 0.1 mm および 0.06 mm に固定し、エネルギー密度 E ($E = P/(vdt)$) が一定となるように、Table 1 の条件 1 ~ 3 ように設定した。レーザー走査方向を x 軸、造形方向を z 軸、それらに垂直な方向を y 軸と定義した。

造形体に対し、上面を Field emission scanning electron microscope (FE-SEM) (JSM-6500, JEOL, Japan) 観察するとともに、断面を鏡面研磨、腐食後、光学顕微鏡ならびに Electron backscatter diffraction (EBSD) により凝固組織や結晶方位分布を解析した。結晶集合組織解析のため、基準軸 (x, y, z 軸) に対する特定の結晶面 $\{hkl\}$ の配向度 p を、

$$p = \langle \cos^2 \phi \rangle$$

によって求めた。ここで ϕ は、多重度因子を考慮し、基準軸と $\{hkl\}$ 面法線のなす角の最小値とした。

造形体の中央部から 5 mm × 5 mm × 5 mm の立方体状試料を作製し、圧縮試験 (AG-X, Shimadzu, Japan) によってヤング率ならびにその異方性を解析した。ひずみの解析にはひずみゲージ (KFG-1N-120-C1, Kyowa Electronic Instruments, Japan) を用いた。ヤング率異方性の有意性は、2 方向で取得した数値データに対して Student の t 検定を実施し、 $P <$

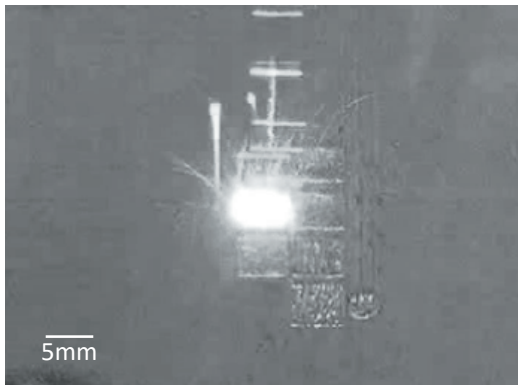


Fig. 2 Captured image during SLM fabrication.

Table 1 Laser conditions used in this study.

	P (W)	v (mm/s)	d (mm)	t (mm)	E (J/mm ³)
Condition 1	75	250	0.1	0.06	50
Condition 2	225	750	0.1	0.06	50
Condition 3	360	1200	0.1	0.06	50

0.05 にて統計学的に判定した。

3. 実験結果と考察

3.1 集合組織のレーザー条件依存性

各条件にて作製した造形体の y - z 面 (走査方向に垂直な断面) にて取得した Inverse pole figure (IPF) マップならびに Pole figure (PF) を Fig. 3 ならびに Fig. 4 に示す。レーザー出力・走査速度が小さい場合、結晶配向性に異方性はほとんど認められないのに対し、レーザー出力・走査速度が大きな

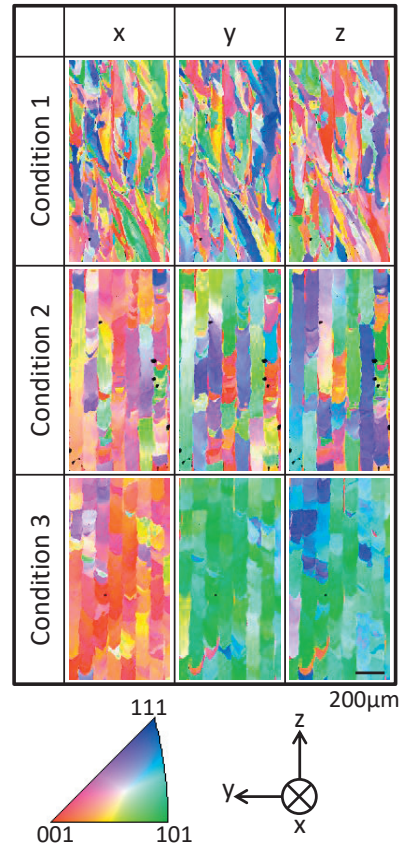


Fig. 3 IPF maps representing crystallographic orientations along x -, y -, z -axes. EBSD analyses were performed in y - z plane.

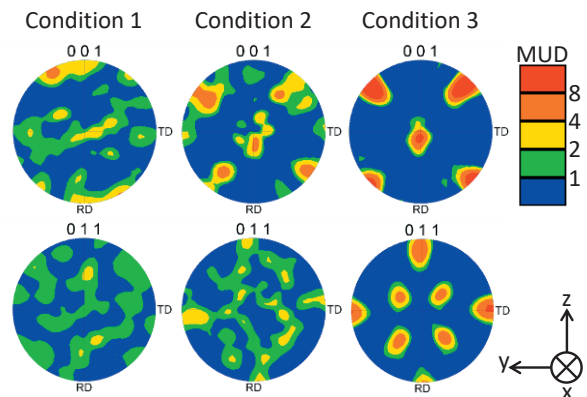


Fig. 4 PFs generated based on IPF maps shown in Fig. 3.

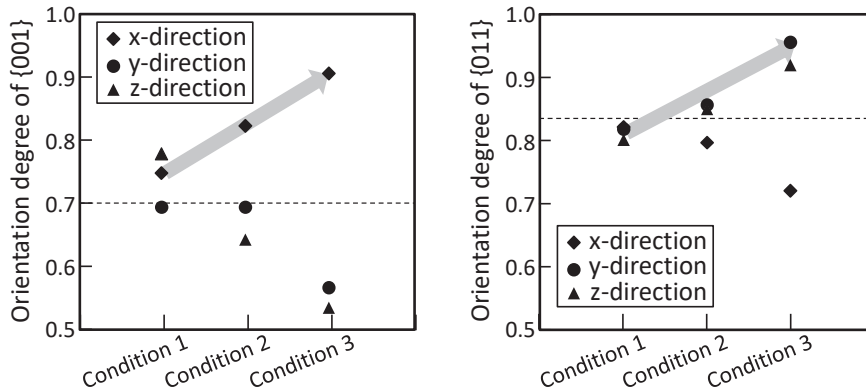


Fig. 5 Variations of crystallographic orientation degree of {001} and {011} depending on the condition. Broken lines indicate the values for random orientation.

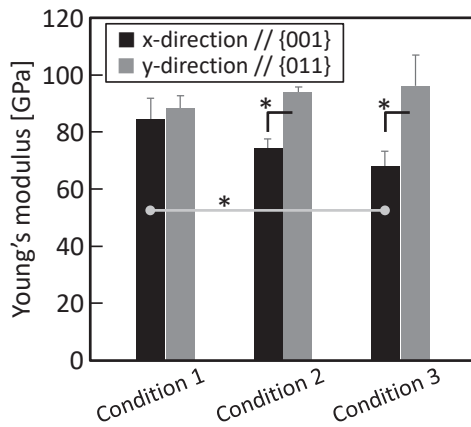


Fig. 6 Variations in Young's modulus measured in x- and y-directions. *: $P < 0.05$.

条件となるほど、方向に依存した結晶配向が顕著になった。条件3においては、走査(x)方向に{001}、y方向と造形(z)方向に{011}が強く配向化した単結晶様の組織が認められた。これは、各方向に対する{001}、{011}の配向度の変化(Fig. 5)からも明らかである。

さらに、IPFマップより、いずれの条件においても造形(z)方向に伸長した結晶粒が認められ、その長さは積層厚の0.06 mmよりも長く複数の溶融池にわたっている。このことから、エピタキシャル成長が生じていることが明らかである。ただし、エピタキシャル成長の安定性は明らかに、条件1より条件3の方が高く、結晶方位が維持されやすい。

3.2 集合組織に依存したヤング率の異方性

Fig. 6には、{001}配向したx方向ならびに{011}配向したy方向におけるヤング率を示す。等方的な配向性を示した条件1の試料ではいずれの方向においても同程度の数値を示したが、集合組織が顕在化した条件2、3では{001}配向したx方向で{011}配向したy方向に比べて有意に低いヤング率を示した。その結果、ヤング率の異方性は最も結晶配向性の高い条件3にて最大となった。ただし、今回

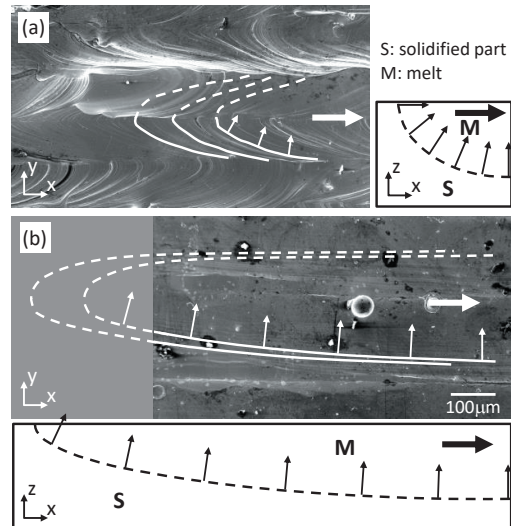


Fig. 7 SEM images on the upper surface of the products and schematic illustrations of estimated melt pool shapes for (a) condition 1 and (b) condition 3. Broken line indicates estimated melt pool border. Thick and thin arrows indicate beam scanning direction and normal line of melt pool border, respectively.

得られたヤング率は、本合金単結晶における理想値(約44 GPa // <001>、約85 GPa // <011>)と比較して高い。その要因として、インゴットよりガスアトマイズ法にて粉末化、さらにはSLM法にて溶融した際に軽元素であるAlが蒸発したことが挙げられる⁴⁾。Alはβ相の不安定化元素であり¹¹⁾、Al濃度の低下によりβ相不安定性が低下したことがヤング率上昇をもたらしたと考えられる。さらに、ヤング率の選択性を拡大するためには、さらなる結晶集合組織の顕著化が不可欠と言える。

3.3 溶融池の形状の推定と集合組織形成への寄与の考察

Fig. 7に造形体上表面のSEM写真を示す。条件1では、うろこ状のrippleパターンがレーザー走査方向に沿って連続的に形成されている一方で、条件5では、スキャン方向に平行な直線状の模様が認められた(ただし、片側の約半分

は次のレーザーによって再構築されている)。この ripple パターンは溶融池の形状を反映し^{12),13)}、走査速度が大きいほど、溶融池の走査方向に沿った長さは増大する¹³⁾。

これより、溶融池の形状を造形体上面 (x-y 面) さらにはレーザー走査方向に平行な断面 (x-z 面) にて推測したものを Fig. 7 中に模式的に示す。溶融池の境界面 (固液界面) を楕円弧と仮定すると、条件 3 のようにレーザー走査速度が大きければ溶融池は長くなり、それにとまって溶融池の法線方向 (Fig. 7 中の小矢印)、すなわち固液界面の移動方向 (かつ熱流方向) は、x-y 面、x-z 面ともにレーザー走査方向 (x 方向) と垂直に近い関係を示す。一方で、走査速度の小さな条件 1 では、溶融池法線方向の x 方向への傾斜が大きくなる。

その結果として、レーザー走査速度が十分大きな場合は溶融池内での固液界面の移動が溶融池の横断面 (y-z 面) 内で二次元的に生じるとみなすことが可能となる。Fig. 8 には、溶融池の縦断面ならびに横断面での光学顕微鏡写真を示す。微分干渉フィルタを用いたため、腐食時に生じた溶融池エッジ部での凹凸が亀裂のように見えるが、実際には亀裂は生じてはいない。セル凝固組織が認められ、縦断面にてほぼ鉛直上向きにセルが伸長している。すなわち、溶融池横断面での二次元的な凝固の進行を意味する。溶融池横断面内では、溶融池の左右半分ずつの領域にて、造形方向から $\pm 45^\circ$ 傾斜した方向へとセル成長し、これが複数の溶融池をまたいでエピタキシャル成長した。セル伸長方向は、立方晶系における優先成長方位である $\langle 001 \rangle$ に一致し、その結果、造形体内にて造形方向に $\{011\}$ を優先配向させた単結晶様の集合組織が形成されたことが理解された⁴⁾。

4. 結論

本研究により、SLM 法による β 型 Ti-15Mo-5Zr-3Al 合金の集合組織形成に関して以下の知見が得られた。

- 1) SLM 法による結晶集合組織形成は、レーザーエネルギー密度が同一であっても、レーザーエネルギー、走査速度に依存して変化した。
- 2) 走査速度が大きい条件で、単結晶様の強い集合組織が得られた。
- 3) 集合組織形成の可否は、溶融池の形状とそれに基づく固液界面移動方向、さらには、積層する際の $\langle 001 \rangle$ のエピタキシャル成長の可否に関連して決定される。
- 4) 集合組織の顕著化にとまない、ヤング率の異方性は拡大し、 $\{001\}$ 優先配向した方向のヤング率は低下した。

謝辞

本研究は、日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究 (S) (JP18H05254)、内閣府戦略的イノベーション創造プログラム (SIP) 革新的設計生産技術「三次元異方性カスタマイズ設計・付加製造拠点の構築と地域実証」、ならびに軽金属奨学会の支援を受けて実施された。

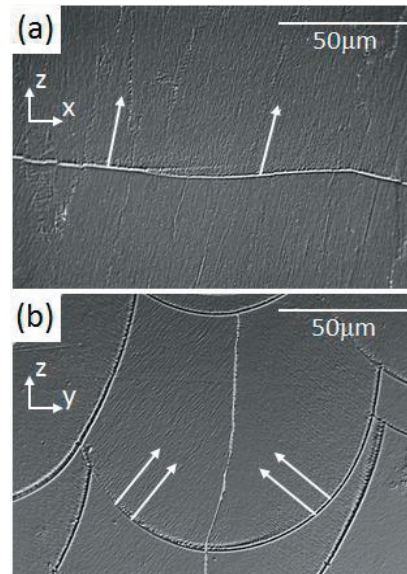


Fig. 8 Optical micrographs of (a) longitudinal section (x-z plane) and (b) cross section (y-z plane) of the specimen fabricated by condition 3 showing the cellular-type microstructure grown from the melt pool edge. (b) was reproduced from ⁴⁾.

参考文献

- 1) S.L. Sing, J. An, W.Y. Yeong and F.E. Wiria: J. Orthop. Res., **34** (2016) 369-385.
- 2) 中野貴由: スマートプロセス学会誌, **3** (2014) 167-174.
- 3) T. Nakano and T. Ishimoto: KONA Powder Particle J., **32** (2015) 75-84.
- 4) T. Ishimoto, K. Hagihara, K. Hisamoto, S.H. Sun and T. Nakano: Scr. Mater., **132** (2017) 34-38.
- 5) S.H. Sun, K. Hagihara and T. Nakano: Mater. Des., **140** (2018) 307-316.
- 6) K. Hagihara, T. Nakano, M. Suzuki, T. Ishimoto, Suyalatu and S.H. Sun: J. Alloys Compd., **696** (2017) 67-72.
- 7) L. Thijs, M.L.M. Sistiaga, R. Wauthle, Q. Xie, J.P. Kruth and J. Van Humbeeck: Acta Mater., **61** (2013) 4657-4668.
- 8) H. Helmer, A. Bauereiß, R.F. Singer and C. Körner: Mater. Sci. Eng. A, **668** (2016) 180-187.
- 9) M. Tane, K. Hagihara, M. Ueda, T. Nakano and Y. Okuda: Acta Mater., **102** (2016) 373-384.
- 10) S.H. Lee, M. Todai, M. Tane, K. Hagihara, H. Nakajima and T. Nakano: J. Mech. Behav. Biomed. Mater., **14** (2012) 48-54.
- 11) M. Tane, T. Nakano, S. Kuramoto, M. Hara, M. Niinomi, N. Takesue, T. Yano and H. Nakajima: Acta Mater., **59** (2011) 6975-6988.
- 12) W. Liu and J.N. DuPont: Acta Mater., **52** (2004) 4833-4847.
- 13) Y. Luo, X. Tang, S. Deng, F. Lu, Q. Chen and H. Cui: J. Mater. Proc. Technol., **229** (2016) 431-438.

代表者メールアドレス

中野貴由 nakano@mat.eng.osaka-u.ac.jp