

氏名(本籍)	宮内 創 (香川県)
専攻	材料創造工学専攻
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第181号
学位授与の要件	学位規則第5条第1項該当者
学位授与の年月日	令和5年9月30日
学位論文題目	「レーザ粉末床溶融結合法による新規な複合化制御に関する研究」
論文審査委員	(主査) 松本 洋明 (副査) 田中 康弘 (副査) 楠瀬 尚史

## 論文内容の要旨

レーザ粉末床溶融結合法 (Laser powder bed fusion: L-PBF) は、金属の積層造形 (Additive Manufacturing: AM) 技術の一つであり、既存工法では製造困難な複雑形状品や難成形材料などを直接的に造形できる。さらに、特有の繰り返し溶融・急冷凝固プロセスに起因した、特異な金属組織や物性が発現される特徴を有し、これを利用した新たな材料高機能化手法が期待されている。本研究では、L-PBF プロセス条件 (レーザ出力、走査速度、走査パターン) により溶融凝固・冷却挙動が変化することを利用した、造形体の局部的組織制御 (サブ mm 領域での異質な金属組織および機械的性質の機能傾斜的複合化) ならびに、金属基複合材料の L-PBF 造形におけるインプロセスでの生地組織と強化相の反応を利用した、特異な複合組織の創成 ( $\mu\text{m}$  領域での構成相の複合化) に注目し、造形体に優れた力学特性 (強度、硬度および傾斜性) を発現させる設計原理を構築することを目的として、微視組織形成過程と各種力学特性発現機構の解明に取り組んだ。

第1章では、本研究の背景である金属積層造形技術の現状と課題を示した上で、本研究の目的について述べた。

第2章では、L-PBF プロセスの制御を利用した熱間金型鋼材の新規な局部的硬化手法を提案し、その方法論に基づく組織制御が可能であることを実証するとともに、硬度差の発現メカニズムを明らかにした。金型鋼などの鉄鋼材料を L-PBF 造形した場合、材料はレーザ照射直後の急冷により著しく焼入れ硬化し、その後の積層の熱影響を受けて焼戻し軟化することが知られているが、本研究にて独自に提案した組織制御手法は、L-PBF プロセス途中にレーザ照射条件を変動させて深い硬化層を形成し、その後の軟化を避けて局部的硬化層として最終的に残留させようとするものである。熱間金型鋼 (SKD61 相当材) に対してこの方法論の適用を図り、まずビーム走査直後の表層部に形成される焼入れ硬化層の深さが、エネルギー密度が大きいほど増大することを示し、造形条件との関係を定量化した。続いて、

積層途中で深い焼入硬化層を形成させるための大エネルギーの造形条件と、既造形層に及ぼす熱影響を抑えるための小エネルギーの造形条件の組み合わせを最適化した結果、局部的に高硬度化された領域が意図した位置に中間層として存在する緻密な造形体が作製され、前述の原理に基づく機能傾斜的複合化が可能であることを実証した。造形されたままの状態でも局部的な硬度差を生じる要因は、高転位密度の焼入れマルテンサイト組織への熱影響による回復の度合いに加え、残留オーステナイトの生成による軟化も影響を及ぼしていることを示した。さらに、組織制御された造形体に、熱間加工用途として使用するための高温焼戻し処理を施すと、熱処理前の硬度差を保ったまま全体の硬度が上昇することを見出した。熱処理後の到達硬度が選択的に高くなる領域は、L-PBF プロセスの熱履歴に起因して最終的なオーステナイト化温度が高く、より多くの炭化物形成元素を固溶されるため、焼戻しによる二次硬化現象が強く現れることを明らかにした。

第3章では、Al-10wt%Si-0.35wt%Mg合金 (AlSi10Mg) 粉末と SiC 粒子の混合粉末を用いたアルミニウム合金基セラミック (SiC) 粒子複合材の L-PBF 造形において、プロセス条件や出発材料の混合比および粒径が造形体の構成相、金属組織、力学特性に及ぼす影響を体系的に検討し、その支配因子を解明した。まず、AlSi10Mg 粉末に同等粒径の SiC を 10vol% 混合した材料を基準として L-PBF プロセス条件を体系的に検討し、造形条件を最適化することで相対密度 98% 以上の高密度造形体が得られることを見出した。造形体の金属組織は SiC が分解して生成した Al<sub>4</sub>SiC<sub>4</sub> 相を含む複合 (多相) 組織であり、SiC 分解反応は L-PBF プロセス中の高温状態にて SiC 粒子と生地組織との界面にて生じ、大エネルギーの造形条件であるほど促進されることを示した。造形体の力学特性に及ぼす構成相と金属組織の影響を階層的に解析して整理し、SiC の分解に起因する Al<sub>4</sub>SiC<sub>4</sub> 相および Si 相増加が生地組織の強化に寄与していることを明らかにした。さらに、L-PBF プロセス因子を造形時のレーザー走査方式および SiC 粒子の粒径に展開し、同一層への繰り返しレーザー走査によって SiC の分解を抑制しながら造形体を緻密化可能であることや、出発 SiC 粒子径が小さいほど同一 L-PBF 条件下での分解反応が促進されることを示し、その力学特性への影響を解明した。

第4章では、本研究で得られた知見を総括し、L-PBF 造形体における特異的・高機能な金属組織の創製と力学特性の高度化のための設計指針を明らかにした。

## 審査結果の要旨

本研究では、レーザー粉末床溶融結合法 (Laser powder bed fusion: L-PBF) の特徴である繰り返し溶融・急冷凝固プロセスに起因した、特異な金属組織や物性が発現される組織形成の可能性に着眼した研究開発を実施した。ここでは2つの新規な複合化制御を試みた。1つ目は L-PBF プロセス条件により溶融凝固・冷却挙動が変化することを利用した、造形体の局部的組織制御 (サブ mm 領域での周期的構造変化) であり、2つ目は金属基複合材料の L-PBF 造形におけるインプロセスでの生地組織と強化相の反応を利用した、特異な複合組織の創成 ( $\mu\text{m}$  領域での構成相の複合化) に挑戦している。この新規な複合化の概念では、鋼

材およびアルミニウム基セラミックス複合体をモデル材料として取り扱って、研究を展開している。

学位論文の構成から、審査結果を順にまとめる。

(1) SKD61 鋼の局部的組織制御 (サブ mm 領域での周期的構造変化) : L-PBF プロセスの制御を利用した熱間金型鋼材の新規な周期的な局部的硬化手法を提案し、局所的な硬化機構を解明している。金型鋼などを L-PBF 造形した場合、材料はレーザ照射直後の急冷により著しく焼入れ硬化(マルテンサイト変態)し、その後の積層の熱影響を受けて焼戻し軟化することが知られているが、この独自に提案した組織制御手法は、L-PBF プロセス途中でレーザ照射条件を変動させて深い硬化層を形成し、その後の軟化を避けて局部的硬化層として最終的に残留させようとするものである。熱間金型鋼 (SKD61 相当材) に対してビーム走査直後の表層部に形成される焼入れ硬化層の深さが、エネルギー密度が大きいほど増大することを示し、造形条件との関係性を定量化した。その後、積層途中で深い焼入れ硬化層を形成させるための大エネルギーの造形条件と、既造形層に及ぼす熱影響を抑えるための小エネルギーの造形条件の組み合わせを最適化した結果、局部的に高硬度化された領域が意図した位置に中間層として存在する緻密な造形体が作製され、周期的に相構成を制御した複合化が可能であることを明らかとした。

また、これらの周期的な硬化機構を組織解析で明らかとしている。ここで硬化要因として、高転位密度の焼入れマルテンサイト組織での回復(転位密度の低下)の影響に加え、残留オーステナイト相の生成による軟化も影響して硬さが変化している事を明らかとしている。さらに、これらの造形体に対して、高温焼戻し処理を施すと、熱処理前の硬度差を保ったまま全体の硬度が増加することを見出した(周期性が維持されて硬化)。熱処理後の硬化機構について、L-PBF の熱履歴に起因して最終的なオーステナイト化温度が高く、より多くの炭化物形成元素を固溶されるため、焼戻しによる二次硬化現象が強く現れることを明らかにした(粒界での炭化物形成とナノオーダーでの炭化物析出)。このように、熱間金型鋼 (SKD61) を対象に L-PBF 条件を制御したサブmmオーダーでの硬度傾斜型での複合材を世界初で創製する事に成功するとともに、基礎的にもこの硬化機構について明らかにしている点で非常に意義深い。

(2) Al 基セラミックス(SiC)複合体の創製と組織・機械的特性 : Al-10wt%Si-0.35wt%Mg 合金 (AlSi10Mg) 粉末と SiC 粒子の混合粉末を用いたアルミニウム合金基セラミック (SiC) 粒子複合体の L-PBF 造形において、プロセス条件や出発材料の混合比および粒径が造形体の構成相、金属組織、力学特性に及ぼす影響を体系的に検討し、その支配因子を明らかとしている。

まず、AlSi10Mg-10vol%SiC 複合体において造形条件を最適化することで相対密度が 100% に近い高密度造形体が得られることを見出し、造形体の金属組織は SiC が分解して生成した Al<sub>4</sub>SiC<sub>4</sub> 相を含む複合(多相)組織であり、SiC 分解反応は L-PBF プロセス中の高温状態にて SiC 粒子と生地組織との界面にて生じ、大エネルギーの造形条件であるほど促進され

ることを明らかとした。造形体の力学特性に及ぼす構成相と金属組織の影響を階層的に解析して整理し、SiCの分解に起因するAl<sub>4</sub>SiC<sub>4</sub>相およびSi相増加がAlマトリックスにおいて析出強化が有効に作用していることを明らかにした。さらに、同一層への繰り返しレーザー走査(ダブルスキャン)によってSiCの分解を抑制しながら造形体を緻密化が達成できる点、また出発粉体でのSiC粒子径が微細なほど同一L-PBF条件下でのSiC粒子からの界面反応が促進されることを示し、それらの機械的特性に及ぼす影響を明らかとした。このように、AlSi10Mg-SiC複合体を対象として、L-PBFによる製造条件の最適化、組織形成における基礎原理の解明、更にそれらの機械的特性に及ぼす影響を基礎的にも明らかとしている点で本研究の成果は極めて意義深い。

以上の研究成果では、基礎的も多くの新たな知見が得られており、L-PBFを軸とした新規な複合化の概念が創出されており非常に意義深く、学位論文について博士(工学)の学位授与に十分に値するものであると判定した。

## 最終試験結果の要旨

令和5年8月7日に公聴会ならびに最終試験を実施した。公聴会では申請者が論文内容に関する発表を60分間実施した。引き続き審査委員ならびに公聴会参加者より質疑応答が約50分行われた。終了後では、審査委員による質疑応答での状況・回答の確認が行われた。最終試験では、発表内容も充実しており、質疑応答では適切に回答されていた事が判定された。以下に代表的な質問内容を記す。

(1) SKD61鋼とはどのようなものか、3Dプリントするメリットについて、(2) 3D積層方向間での強度(メルトプール間での強度は)について、(3) Al合金の結晶配向性について、反応相でのAl<sub>4</sub>SiC<sub>4</sub>相の形態について、引張試験をしない理由、(4) LPBFでの昇温速度・李客速度について、Al<sub>4</sub>SiC<sub>4</sub>相の分散状況と機械的特性への影響について、今後の課題について、(5) L-PBFで製造されたAl複合体のTEM組織から、Siの分散状態について、またその整合性と析出強化の影響について、(6) Al複合体においてレーザー吸収率が違い場合での温度分布について、硬さと圧縮強度の相関性について、セラミックス粒子とAlマトリックス間における残留応力の影響について、(7) SKD61鋼の製造にて窒素雰囲気でのL-PBF過程における素材への窒素含有の影響について、Al複合体の製造に際してSiC粉体の微粒化の影響について、(8) SKD61鋼以外の材料での本プロセス(周期的にエネルギーを調整)の有用性について、などが質問され、宮内氏はこれらの質問に対して適切・的確に回答された。

上記の最終試験の結果を踏まえ、本審査委員会では、提出された学位論文が博士(工学)の学位に値するものであり、また申請者は専門領域に関する十分な学識と研究能力を有するものと判断した。以上より、本最終試験の評価を合格とする。