研究論文

真空雰囲気中 SLM で積層造形したニッケル基超合金の組織

佐藤 直子^{1*}, 中野 禪¹, 長張 俊希², 名古屋 大義², 寛 幸次²

¹ 産業技術総合研究所製造技術研究部門, 〒305-8564 つくば市並木 1-2-1.

² 首都大学東京, 〒192-0397 東京都八王子市南大沢 1-1.

Microstructure of Nickel-Based Superalloy Fabricated by Selective Laser Melting in Vacuum

Naoko SATO^{1*}, Shizuka NAKANO¹, Toshiki NAGAHARI², Taigi NAGOYA² and Koji KAKEHI²

¹ Advanced Manufacturing Research Institute, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, 1-2-1 Namiki, Tsukuba 305-8564.

² Dept. Mechanical Engineering, Tokyo Metropolitan University, 1-1 Minami-osawa, Hachioji 192-0397, Japan.

Received September 3, 2019; Revised November 11, 2019; Accepted December 10, 2019

ABSTRACT

Ni-based superalloy samples fabricated by selective laser melting (SLM) in inert gas are known to have lower creep ductility than cast and wrought one. The cause is thought to be due to oxide contamination from the powder surface and the SLM-specific microstructure. In this study, we evaluated the structure of the alloy 718 fabricated by SLM in a vacuum atmosphere that can be expected to suppress oxygen contamination and control the crystal orientation by decreasing the cooling rate. As a result, the microstructure of the samples fabricated by SLM in vacuum exhibits a layered structure, which is composed of a dendrite layer parallel to the building direction and the boundary, and the total thickness corresponds to the stacking thickness. On the other hand, the thickness of the top layer was more than double the additive layer thickness. From these results, the layered structure was formed by a heat-affected layer immediately below the melted part and a dendrite layer formed by melting.

KEY WORDS

selective laser melting, nickel-based superalloy, process atmosphere, microstructure

1 緒 言

発電用タービンや航空機のエンジン部材の材料に用いられるニッケル基超合金を積層造形することは、部材の設計を最適化することによる機能性向上、開発のリードタイム短縮、従来の製造技術では複数からなる部材を積層造形で一体成形することによる部材の信頼性向上などが期待されている。ニッケル基超合金は、塑性加工や切削などの加工性がよくないため、とくに積層造形により精密複雑形状の加工を実現することへの期待が大きい。

ニッケル基超合金の積層造形材、とくにレーザを熱源に用いる選択的レーザ溶融法 (SLM: Selective laser melting) による部材 (以下, SLM 材) は、鍛造材に比べて高温クリープ延性が低くなり、脆化することが報告されている¹⁾。その原因は、積層造形の原料である粉末粒子の表面被膜に由来する酸化物や窒化物 (PPB: Prior particle boundary) や酸素・窒素

の固溶の影響の可能性がある。Ni 基合金の粉末粒子の表面被膜は、Al や Ti を含有する Ni 基合金に既存の粉末製造技術を適用すると、粒子表面で酸化や窒化が生じて形成する。PPB は、原料粉末を熱間で加圧して成型する HIP (Hot Isostatic Pressing) 焼結部材において残存し、部材の強度や靱性を著しく低下させることが知られるが、原料粉末を溶融凝固する積層造形材にも PPB が残存するという報告がある²⁾。そこで本研究開発では、酸素および窒素に対してロバストな積層造形ニッケル基超合金の創成を目的とした。本報では、積層造形プロセスの開発を中心に議論する³⁾。材料開発、および市販の造形材の組織と高温特性に関しては、文献 1, 4-6 に詳細に述べられており、そちらを参照されたい。

積層造形プロセスの開発では、原料粉末の吸着水分などの除去および組織制御を目的とし、SLM において真空雰囲気の利用を検討している。ここでは組織制御に関して議論する。一般的な不活性ガス雰囲気を用いた SLM で作製したニッケル基超合金 IN718 部材は、デンドライト粒界に δ 相や

* Corresponding author, E-mail: n.sato@aist.go.jp

ラーベス相が形成する¹⁾。この部材のクリープ特性は、デンドライト間の金属間化合物析出物が原因となり、既存の溶解鍛造材よりも低いことが報告されている¹⁾。また、急速な冷却により、高転位密度になり、高温延性が低下する¹⁾。凝固組織は、温度勾配と凝固速度により決定されるため、雰囲気は熱伝導率の低い真空とし、冷却速度を低下させることで、組織を変化させ、クリープ特性を改善することが期待できる。そこで本研究では、真空雰囲気におけるSLMで積層造形したニッケル基超合金の微視組織を評価し、その特徴を明らかにすることを目的とする。

2 実験方法

供試材は、63 μm 以下に分級された平均粒径 54.6 μm のニッケル基超合金のガスアトマイズ粉（山陽特殊鋼社製）を用いた。供試材の化学組成は、Table 1 に示す。

積層造形装置は、真空チャンバにPBF（Powder Bed Fusion）システムを導入した試作装置を用いた⁷⁾。この装置は、500 W のファイバーレーザを搭載したSLM装置である。レーザの波長は 1070 nm、チャンバ内の真空度は 1×10^{-3} Pa、造形中の真空度は 1×10^{-2} Pa オーダーである。

造形試料は、形状を 10 mm $\times$ 10 mm $\times$ 10 mm とし、造形条件を出力 80~240 W、走査速度 30~1000 mm/s、走査幅 0.08~

0.12 mm、積層厚さ 0.1~0.3 mm として作製した。レーザの描画パターンは Fig. 1 に示す。比較材として不活性ガス雰囲気中 SLM による試料を作製した。不活性ガス雰囲気中 SLM による試料は、造形条件を出力 220~260 W、走査速度 800 mm/s、走査幅 0.07~0.12 mm として作製した。

造形試料の密度は、アルキメデス法で測定した。測定溶媒は純水とした。また、樹脂埋め後に鏡面研磨を施し、70% リン酸水溶液で電解エッチングし、光学顕微鏡および SEM で組織観察、EBSD で配向性を解析した。真空雰囲気中 SLM で作製した試料は、以後、真空中 SLM 材と呼称し、不活性ガス雰囲気中 SLM で作製した試料はガス中 SLM 材と呼称する。

3 実験結果および考察

3.1 雰囲気の違いによる造形条件の違い

Fig. 2 (a) に造形条件を変化させて造形した真空中 SLM およびガス中 SLM の試料の平均投入エネルギー密度に対する造形物の相対密度の関係を示す。平均投入エネルギー密度 E (J/mm^2) は、 P を出力 (W)、 v を走査速度 (mm)、 h を走査幅 (mm) として、(1) 式で表される。

$$E = P/(v \cdot h) \quad (1)$$

真空中 SLM 材は、平均エネルギー密度を増加するほど相対密度が増加する傾向が見られた。Fig. 2 (b-f) は、異なる条件で造形した真空中 SLM 材の断面光学顕微鏡像である。白いコントラストの部分は造形物、暗い灰色のコントラストの部分は樹脂、黒いコントラストの部分は空隙である。平均投入エネルギー密度 $2 \text{ J}/\text{mm}^2$ の造形物 (Fig. 2 (b)) は、粒子状に凝固した塊が集合した状態であった。その粒子径は、大きいもので 0.5 mm 程度ある。これは、熱的に不安定な溶融状態で生じるポーリング現象により粒子状に凝固した塊であり、それが集合したため、空隙は開口しており、空隙部には樹脂が侵入している様子が見られた。平均投入エネルギー密度 $13 \text{ J}/\text{mm}^2$ の造形物 (Fig. 2 (c)) は、空隙が閉口し、さらに平均投入エネルギー密度を大きくすると (Fig. 2 (d, e))、空隙が小さくなった。平均投入エネルギー密度 $40 \text{ J}/\text{mm}^2$ では空隙がほぼなくなり、相対密度 98.4% と今回調査した条件範囲では最も高くなった。一方で、ガス中 SLM 材は、平均投入エネルギーが $2 \text{ J}/\text{mm}^2$ でも相対密度 99.4% の造形物が得られており、真空中 SLM 材を緻密化するためには、ガス中 SLM 材よりも約 10 倍高いエネルギー密度が必要であった。真空雰囲気は、熱伝導率がガス雰囲気よりも低いため、同じエネルギー密度が与えられたときの熱の広がりがガス雰囲気よりも狭くなると考えられる。真空雰囲気では熱が広がらない分、蒸発が多くなり、その結果としてレーザの走査線間や層間を十分に接合させるのに必要な範囲を溶融させるために、より高いエネルギー密度が必要となったと推測する。

3.2 真空中 SLM 材の組織

緻密な真空 SLM 材の最上部 (top surface) 付近の積層方向 (BD: building direction) に平行な断面の組織を Fig. 3 に示す。サブミリオーダーの組織の特徴は、積層方向に垂直な層状組

Table 1 Chemical composition of Alloy718 powder used in SLM materials (mass%).

Composition	Cr	Nb	Mo	Ti	Al	Co	Cu	C
Content (mass%)	18.92	5.21	3.02	0.90	0.62	0.02	0.04	0.057
Composition	Si	Mn	P	S	B	Fe	Ni	Si
Content (mass%)	0.19	0.20	0.002	0.001	0.0004	Bal.	52.73	0.19

Fig. 1 Scanning strategy used in this study.

Fig. 2 Variation of densification rate of samples fabricated by SLM at different energy density (a), and cross-sectional images showing densification behaviors of the samples fabricated by SLM in vacuum with different energy density: (b) 2 Jmm⁻², (c) 13 Jmm⁻², (d) 27 Jmm⁻², (e) 33 Jmm⁻², (f) 40 Jmm⁻².

Fig. 3 Cross-sectional images of the dense IN718 sample fabricated by SLM in vacuum, (a) is optical micrograph at the top of the sample, (b, c) are magnified SEM images of a center of layer A and around a microstructural layer boundary, respectively.

組織を呈していた (Fig. 3 (a)). 層状組織は、おもに Fig. 3 (b) に示す BD に平行なデンドライトを呈し、層境界は Fig. 3 (c) に示す方向性のない組織を呈していた。層境界の組織も厚さを持った層状となっているため、これ以降、それぞれの層を layer A と layer B と呼称する。層状組織の構成は、最表面から ABAB の順に現れており、layer A の厚さは最表面のみ厚く、それ以下はおおよそ同じ程度に見える。Fig. 4 は、各層の厚さを光学顕微鏡像から定量的に評価し、最表面からの層番号 n に対して示した結果である。最表面の layer A ($n=1$) は、0.712 mm と他の layer A に比べて 4 倍以降厚くなっている。

Fig. 4 Layer thickness as a function of the number of the layers from the top surface.

Fig. 5 Schematic illustrations of microstructural layer formation at the top of the sample.

た。それ以下の層では、layer A も B もばらつきは大きい、layer A と B とを足すとおおよそ積層厚さとした 0.2 mm となる。レーザーが照射される層が最表面の層 ($n=1$) と同程度に厚く溶解すると仮定すると、層状組織の形成は Fig. 5 のような過程で生じたと考えられる。Fig. 5 では最後の 3 層分 ($n=1, 2, 3$) の層状組織の形成を模式図で示した。工程の順に見ると、まず 3 層目 ($n=3$) が形成し、次の粉末層が積層厚さの分だけ敷かれる。この時点での 3 層目の組織は、熱流方向となる BD に沿ってデンドライトが形成したと考えられる。次の工程で粉末層にレーザーを照射すると、粉末層と 3 層目の上部を含めた 2 層目 ($n=2$) が形成する。この時、溶解しなかった下部の 3 層目は粉末層分の厚さとなり、溶解部直下は熱影響を受け、layer B を形成したと考えられる。その後、最終層分の粉末が敷かれ、レーザーが照射されると、粉末層と 2 層目の上部を含めた 1 層目 ($n=1$) が形成し、溶解しなかった下部の 2 層目はおおよそ積層厚さ分が残存し、その上部は熱影響部、下部は熱影響を受けなかったデンドライト部で構成されたと考えられる。

結晶方位は、Fig. 6 (a) に示す複数層を跨ぐ領域で解析した。その結果、層状組織で分断されることなく BD および走査方向 (SD: scanning direction) に対して $\langle 001 \rangle$ 方向が配向した一方向凝固組織を呈した (Fig. 6 (b, c)). 一方で、ガス中 SLM 材の組織は、溶解池におけるレーザー照射点に向かってデンドライトが成長することが報告されている⁸⁾。一般的に FCC 金属では、優先成長方向の $\langle 001 \rangle$ 方位が熱流に沿う

Fig. 6 Electron backscatter diffraction (EBSD) (a) image quality map, (b) inverse pole figure map captured in the Y-Z plane, and (c) pole figure of the SLM_vacuum. BD and SD denote a building and scanning direction, respectively.

ことが知られる。真空は、ガス雰囲気よりも熱伝導率が小さいため、SLMプロセスにおける凝固速度は低下し、かつ溶融池が大きくなると推測される。溶融池が大きいと凝固界面がレーザー照射点から離れ、その結果として熱流が気液界面に向き、BDに平行なデンドライト組織を形成したと考えられる。

4 結 論

本研究では、真空雰囲気におけるSLMによる組織制御の可能性を検討するため、真空中SLM材の組織を評価した。その結果、真空中SLM材の組織は、粗大なデンドライトで構成される層状組織を呈し、その層状組織は積層方向に平行なデンドライト層とその層間組織で構成され、その合計が積層厚さに対応することがわかった。一方で、最表面層の厚さは、積層厚さの倍以上の厚さを呈した。また、積層方向および走査方向に<001>が配向した単結晶様組織であった。以上のことから、真空中SLM材の組織は、粉末層とひとつ前の層の上部を含めて一方向凝固のデンドライト層を形成し、溶融しなかったひとつ前の層の下部は積層厚さ分だけ残存し、その上側は熱影響を受けた組織 (layer B)、下部は熱影響を受けずにデンドライトのまま (layer A) で構成されたと考えられる。

真空中SLMは、ガス中SLM材と比較してデンドライトが粗大であることから、クリープ特性を低下させる δ 相やLaves相などの比率は低いと思われる。また、粒界の少ない単結晶様組織であることから、真空雰囲気におけるSLMではガス中SLMよりもクリープ特性の改善が期待される。

謝 辞

本研究はJST 戦略的創造研究推進事業 先端的低炭素化技術開発 (JST-ALCA JPMJAL1605) の一環として行ったものである。ここに謝意を表す。

文 献

- 1) Y. L. Kuo, A. Kamigaichi, K. Kakehi: Metall. Mater. Trans. A, **49** (2018) 3831-3837.
- 2) R. C. Benn, R. P. Salva, Superalloy 718 and Derivatives (2010) 455-469.
- 3) N. Sato, S. Nakano, T. Nagahari, S. Deguchi, T. Nagoya, K. Kakehi: Abstracts of Autumn Meeting JSPM, 2018
- 4) H. Yu, S. Hayashi, K. Kakehi, Y. L. Kuo: Metals, **9** (2019) 19-34.
- 5) Y. L. Kuo, T. Nagahari, K. Kakehi: Materials, **11** (2018) 996-1008.
- 6) K. Kakehi, S. Hayashi, Y. L. Kuo, N. Sato, M. Onoi: Report of the 123rd Committee on Heat-resisting Metals and Alloys, Japan Society for the Promotion of Science, **59** (2018) 359-372.
- 7) S. Nakano et al.: Proc. of the 7th International Conference on Leading Edge Manufacturing in 21st Century, (2013), 419-422.
- 8) Y. L. Kuo, S. Horikawa, K. Kakehi, Scripta Materialia, **129** (2017) 74-78.