

# し はじめに

積層造形 (Additive Manufacturing, AM) は、CAD ソフト ウェア上で設計された三次元形状データに基づいて原材料 を積層し、任意形状の部材を造る技術である。金属AM技術 の一つであるレーザ粉末床溶融結合法 (Laser Powder Bed Fusion, L-PBF) では、プラットフォーム上に敷いた金属粉 末層にレーザを照射し、設計データの断面形状に溶融凝固さ せる。粉末の積層とレーザ照射を交互に繰り返すことで設 計した形状の部材が完成する。L-PBFは寸法精度に優れてお り、ほぼ完成品に近い形状を造形できるため、複雑な形状部 材の一体成形により従来の製法に比べて部品点数の削減が 期待できる。また、造形プロセスでレーザ照射されなかった 原料粉末は再利用されるため歩留まりが良く、チタン合金や ニッケル合金などの難加工材を原料粉末として造形すること で加工プロセスの省くことができる。このような利点を活か して、例えば航空宇宙分野では、エンジン部材の製造法とし てL-PBFの応用が見込まれている<sup>1)</sup>。

一方で、LPBFの実用化には、造形プロセスと金属組織、 材料特性との相関関係の理解が必要不可欠である。LPBFプ ロセスの特徴は、レーザ照射よる局所的な急冷凝固、レーザ 走査と積層プロセスによる熱サイクルであり、鋳造などの 従来の製造法における熱履歴とは大きく異なる。レーザ照 射による溶融金属(溶融池)の固液界面では、エピタキシャ ル成長によって固相の結晶方位を引き継いで結晶粒が成長 し、結果として造形方向に沿った柱状組織が形成される傾 向がある。また、断面形状のレーザ走査パターン (Scanning strategy) も凝固プロセスに作用し、微細組織に影響し得る。 さらに、上に敷かれる次の粉末層以降へのレーザ照射によっ ても再加熱と冷却を繰り返すため、材料は複雑な熱履歴を経 る。このような冷却過程で、凝固組織では相変態や二次相の 析出が生じ得る。急冷凝固と熱サイクルによって形成された 微細組織は、材料特性に大きな影響を及ぼす。

このような微細組織と力学特性との複雑な関係性を理解す るため、機械学習を利用して予測モデルの構築が試みられて いる。Hall-Petchの関係式は、結晶粒径と引張強度との関係 を示す最も基本的な式であり、積層造形で製造された材料に おいてもしばしば適用される<sup>25)</sup>。しかし、鍛造材や鋳造材と 同様に、実際の引張特性には、結晶粒径以外にもより多くのパ ラメータが複雑に寄与する。例えば、B.J. Hayes らは、遺伝的 アルゴリズム (Genetic algorithms, GA)を用いた人工ニュー ラルネットワーク (Artifitial Neural Network, ANN)を用いて 鍛造 Ti-6Al-4V合金鍛造材の降伏強度を予測するモデルを開 発し<sup>67)</sup>、それを電子ビームを熱源とするワイヤ指向性エネル ギー堆積法による Ti-6Al-4V合金造形材に応用した<sup>8)</sup>。この予 測モデルは結晶粒径だけでなく、合金組成や転位密度の特徴 量に基づいており、これにより降伏強度を実験値の5%以内 で予測可能とした。

そこで本稿では、LPBFの造形条件と微細組織、力学特性 との相関関係を理解するために著者らがTi-6Al-4V合金をモ デル材料として実施した、機械学習による力学特性予測モデ ルの構築に関する研究を紹介する<sup>9,10)</sup>。2章では、まずLPBF 装置と造形条件について概説し、Ti-6Al-4V合金サンプルの 走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope, SEM) に よる観察結果を示す。3章では、結晶粒の大きさや相の比率 などの特徴量を、SEM像から定量化する画像解析手法につ いて解説する。4章では、このような微細組織の特徴量から 引張特性を予測するモデルを、機械学習を用いて構築した結 果について述べる。

### CTi-6AI-4V合金L-PBF材における 熱処理後の微細組織と引張特性

L-PBF装置 (Mlab cusing R、Concept laser 社製) を用いて、 図1 (b) に示す円柱サンプル (直径7 mm × 高さ65 mm) を造 形した。原材料のTi-6Al-4V合金粉末 (CL 41Ti LI、Concept laser 社製) のSEM像を図1 (a) に示す。プロセス中にチタン 合金が酸化するのを防ぐため、チャンバー内の雰囲気をAr ガ スに置換して造形を実施した。装置のYb:YAGレーザの出 力、走査速度、走査間隔 (ハッチングスペース) をそれぞれ95 W、900 mm/s、100 µmに設定し、1層ごとに走査方向を90度 回転させた。この条件で造形されたTi-6Al-4V合金サンプルで は、内部の空隙の体積率が0.025%以下と高密度であった<sup>11)</sup>。

LPBF装置で造形したままのTi-6Al-4V合金円柱サンプル 切断面のSEM観察像を図2に示す。なお、以降のSEM像は すべて、造形方向に垂直の断面を観察したものである。図2 (a)の破線で示したように、断面に格子状のパターンが観察 され、その幅は約100 µmであった。これはジグザグ状のレー ザ走査パターンを1層ごとに90度回転して造形することで 形成されたものであり、格子パターンの幅は走査間隔に一致



図1 (a) Ti-6Al-4V 合金粉末、(b) 円柱サンプルと切削加 工後の引張試験片 (Online version in color.)

する。 図2 (b) のように高倍率で観察すると、幅1 μm以下の 微細な針状組織が認められで、急冷によるマルテンサイト変 態が生じたことがわかる。

このような非常に微細なマルテンサイト組織を有するTi-6Al-4V合金サンプルは、4章で示すように、引張強度が非常 に高いものの延性に劣る。そのため、一般的には、造形後に 熱処理を施してマルテンサイト組織を分解し、結晶粒を粗大 化してTi-6Al-4V合金部材の延性を改善する。Ti-6Al-4V合金 のLPBF造形後に実施される熱処理は、保持温度によって以 下に大きく4つに分類される。

- (1) 550~600℃:造形中に生じた残留応力を緩和するため実施する
- (2) 800℃以下:マルテンサイト組織が分解され、板状 α粒を形成し、粒界にβ相が析出する。延性の改善 が期待される<sup>12,13)</sup>
- (3) β変態点未満: β粒界に囲まれた粗大なα粒を形成し、強度と延性の良好なバランスを実現する。また、保持温度からの空冷により形成された旧β粒が力学特性に寄与する<sup>9,10)</sup>
- (4) β変態点以上:図2のようなLPBF特有の微細組織 (柱状の結晶粒や走査パターンを反映した組織)が 完全に消えて粗大なβ粒となり、熱処理後の冷却速 度によってラメラ構造やWidmanstätten構造が観察 される<sup>14</sup>



図2 L-PBF造形したままのTi-6AI-4V合金円柱サンプル
 断面SEM像<sup>10</sup>; (a) 低倍率、(b) 高倍率。白の破線
 で示すように、レーザ走査パターンに応じた格子状の組織が観察される (Online version in color.)

なお、Ti-6Al-4V合金のβ変態点は、975~995℃である<sup>15)</sup>。本 研究では、(3)の溶体化熱処理を保持温度と時間、冷却速度 を変えてTi-6Al-4V合金サンプルに施し、その後で時効処理 (700℃で2時間保持した後に炉冷)をおこなった。

図3 (a) ~ (c) は、溶体化熱処理の温度をそれぞれ850°C、 950℃, 1050℃に変えて2時間保持した後に空冷した場合 の微細組織である。これらのSEM像において灰色の濃淡が それぞれ α 相と β 相に相当する。 図3 (a) に示す850℃の場 合、造形したままのサンプルと同様に針状組織が観察される が、それらの間に細かなβ相(白色の粒子)が析出した。一 方、950℃で熱処理をすると、図3 (b) のように α 粒は板状に 粗大化し、球状に近いα粒も観察された。また、β変態点よ りも高い1050℃でサンプルを保持すると、図3 (c) のように L-PBF造形で形成された構造は完全に消え、β相からの空冷 によって粗大な旧β粒内にWidmanstätten構造が観察され た。さらに、基礎的な知見を得るため、950℃で十分に長い時 間 (100時間) 保持した後に空冷すると、図3 (e) のように α 粒が顕著に粗大化し、それらの間に大きな旧β粒が観察され た。このような旧 β 粒は、非常に微細だが図3 (b) の950℃、 2時間、空冷のサンプルでも確認された。950℃で2時間保持 後に電気炉内でゆっくりと冷却すると、図3(d)のように、 明確な旧β粒部分は観察されず、α粒とβ粒界が確認され た。また、これらのβ変態点以下で熱処理された組織を低倍 率で観察すると、図2(a)で観察されたパターンと同様に、 図3(f)のような格子状の構造が認められる。

#### **3** 画像解析による微細組織特徴量の 定量化

このように造形後の溶体化熱処理熱によって、Ti-6Al-4V 合金のマルテンサイト組織は分解され、α粒とβ粒界、旧β 粒から成る組織に変化した。そして、α粒と旧β粒の比率や 大きさ、アスペクト比などは、熱処理条件に大きく依存する ことがわかった。このような微細組織と引張特性との相関関 係を理解するためには、微細組織を定量的に表す必要があ る。そこで、我々は画像解析のソフトウェアFijiを用いて、図 4に示す手順で、Ti-6Al-4V合金のSEM像から微細組織の特 徴量を定量化する方法手順を確立した。

まずFijiのプラグインであるTrainable Weka Segmentation<sup>16</sup> を用いて、微細組織を  $\alpha$  相と( $\beta$  粒界を含む)旧 $\beta$  相に分類 する。この手法は、教師あり学習のランダムフォレストアル ゴリズム<sup>17)</sup>による機械学習を用いており、ユーザが画像の一 部を特定のクラス(ここでは  $\alpha$  相もしくは旧 $\beta$  相)に分類し た教師データに基づいて、画像全体をクラスに分類すること ができる(図4上段中央)。例として、950°Cの熱処理組織を 分類した画像を図5の中央に示す。これらの画像から  $\alpha$  相と 旧 $\beta$  相の面分立が得られた。次に、プラグインのDisconnect particles<sup>18)</sup>を用いて、分類した画像の  $\alpha$  相に相当する領域を 結晶粒の1つ1つに分割した(図4上段右、図5右列)。また、 旧 $\beta$  相の領域には $\beta$  粒界も含まれているため、ソフトウェア のErosion/Dilationの機能を用いて粒界に相当する線状の部



図3 L-PBF造形後に熱処理したTi-6AI-4V合金円柱サンプルの断面SEM像<sup>10</sup>(a) 850℃、(b) 950℃、(c) 1050℃で2時間保持 後に空冷(Air cooling, AC)、(c) 950℃で2時間保持した後に炉冷(Furnace cooling, FC)、(e) 950℃で長時間(100時間) 保持した後に空冷、および(f)低倍率による観察像。板状および球状のα粒、旧β粒の例として、白、黄、黒の矢印でぞ れぞれ示した。図(f)中にて白の破線で示すように、熱処理後においても格子状の組織は観察された(Online version in color.)



図4 L-PBFによるTi-6AI-4V 合金 SEM 像の画像解析手順<sup>10)</sup>。元の SEM 像(上段左)からα相と旧β相(β粒界を 含む)を分類し(上段中央)、その後α粒と旧β粒ごとにそれぞれ分割した(上段右、下段)(Online version in color.)



事例(α粒の分割)<sup>ነ0</sup>。元の SEM 像(左列)から α 相と(β粒界を含む)旧β相に分類し(中央列)、α 粒ごと分割した(右列)(Online version in color.)

分を取り除き、旧 $\beta$ 相の領域のみとした(図4下段中央)。その後、Watershedの機能を用いて、結晶粒を分割した(図4下段、図6)。

このように $\alpha$  粒および旧 $\beta$  粒それぞれを分割し、最大・最 小Feret径とアスペクト比を計測した。図7に、熱処理温度に 対する微細組織の特徴量の変化を示す。ここで、 $f_{\alpha}$ ,  $f_{prior-\beta}$ はそ れぞれ $\alpha$ 相と旧 $\beta$ 相の面積分率であり、 $MaxFD_{\alpha}$ ,  $MinFD_{\alpha}$ ,



らβ粒界を除き旧β相のみにし (中央列)、旧β粒ご と分割した (右列)。

 $MaxFD_{prior-\beta}$ ,  $MinFD_{prior-\beta}$ ,  $r_a$ ,  $r_{prior-\beta}$  はそれぞれ a 粒と旧 $\beta$ 粒の最大・最小Feret径とアスペクト比である。図7 (a) (b) のように、空冷条件 (図中の白と黒のプロット) では、温度が 高いほど a 相の面積分率が下がり、反対に旧 $\beta$  相の面積分率 が上がった。一方、灰色のプロットで示すように、炉冷の場 合には温度による大きな変化は認められない。また、図7 (c) ~ (f) より溶体化処理温度が高いほど、そして保持時間が長 いほど a 粒と旧 $\beta$  粒が粗大化することが、定量的に明らかで ある。一方、アスペクト比については、どの熱処理条件でも 同程度の値であった (図7 (g) (h))。これらの定量的な結果 は、2章で得られた定性的な観察結果とも一致する。





#### 4 機械学習による 引張特性予測モデルの構築

造形したまま、および熱処理後のTi-6Al-4V合金円柱サン プルを図1 (b) のように試験片形状に加工し、常温引張試 験を実施した。造形したままのTi-6Al-4V合金材の引張試験 をおこなうと、図8 (a) の"As-fabricated"ように、破断強度 が著しく高く約1400 MPaに達するが、破断伸びは0.5 %に も満たない。一方、熱処理を施したTi-6Al-4V合金試験片で は、強度が下がるものの破断伸びが10%以上に改善された。 ASTMのGrade 5に相当する鍛造材(図8(a)中"Forged") と比較すると、950℃で熱処理をおこなった造形サンプルは、 強度と延性のバランスに優れていることがわかる。

2章で観察された熱処理後の微細組織が、このような引張



図8 L-PBF 造形したTi-6AI-4V 合金の応力ひずみ線図<sup>10</sup>。(a) 950℃で2時間空冷と炉冷、長時間 (100時間)保持後に空冷した場合と造形したまま("As-fabricated")と鍛造材("Forged")の 比較。(b) 2時間空冷、(c) 2時間炉冷、(c) 100時間空冷した場合の、各保持温度の比較

特性にどのように影響するかを調べるため、多変量線形回 帰分析をおこなった。説明変数として用いた微細組織の特徴 量は、まず3章の画像解析で計測された $f_a$ ,  $f_{prior,\beta}$ ,  $MaxFD_a$ ,  $MinFD_a$ ,  $MaxFD_{prior,\beta}$ ,  $MinFD_{prior,\beta}$ ,  $r_a$ ,  $r_{prior,\beta}$ の8つである。 また、Hall-Petchの関係式を考慮し、 $\alpha$  粒と旧 $\beta$  粒の最小 Feret径の-1/2乗 (1 $\sqrt{MinFD}_a$ ,  $1\sqrt{MinFD}_{prior,\beta}$  も加えた。 さらに、X線CTで計測した空隙の体積分率と空隙の最大体 積 ( $f_{pore}$ ,  $vol_{Maxpore}$ )の2つも含めて、計12個の特徴量を説明 変数とした。熱処理条件を変えた48個のTi-6Al-4V合金サン プルについて、これらの特徴量と引張試験の結果 (降伏強度  $\sigma_{YS}$ 、破断強度 $\sigma_{UTS}$ 、弾性率E、破断伸び $\varepsilon$ )をまとめてデー タセットを作成した。

次に、このデータセットを用いて多変量線形回帰分析のモ デル選択をおこなった。ここでモデルとは説明変数の組み合 わせであり、本研究の場合は2<sup>12</sup>通りが考えられる。引張特 性予測にほとんど寄与しない変数は予測誤差の原因となり 汎化性能を下げるため、モデルから除外すべきである。そこ で各モデルについて、データセットから1個を除いて残りを 全て学習データとして予測モデルを構築し、除いたデータで モデルの精度を求め、これを全データが1回ずつ評価データ となるように繰り返して得られた全データについての精度 の平均値をそのモデルの予測精度とした(1つ抜き交差検証, Leave-One-Out Cross Validation<sup>19)</sup>)。図9は、予測精度の高い (ランクの高い)モデルの20個について各説明変数の係数に ついてのヒートマップであり、すなわち暖色と寒色はそれ ぞれ引張特性との正と負の相関の強さを示している。例え ば、図9(a)に示す降伏強度の場合、ホールペッチの関係に あるように $1/\sqrt{MinFD_a}$ )との正の相関があり、さらに $f_a や$ *MinFD*<sub>prior,β</sub>も降伏強度に寄与することがわかる。このモデル 選択より、引張特性予測に最適な微細組織量の組み合わせが 明らかとなり、それに基づいて以下の多変量線形回帰式が得 られた。

$$\begin{split} \sigma_{\rm YS} &= 201 + 2.33 f_{\alpha} + 37.8 MinFD_{\alpha} + 977 / \sqrt{MinFD_{\alpha}} \\ &+ 63.3 MaxFD_{{\rm prior}-\beta} - 101 MinFD_{{\rm prior}-\beta} + 744 r_{{\rm prior}-\beta} \\ &- 1010 / \sqrt{MinFD_{{\rm prior}-\beta}} \end{split}$$

$$\sigma_{\rm UTS} = 309 + 2.12 f_{\alpha} + 20.6 Max FD_{\alpha} + 883 / \sqrt{MinFD_{\alpha}} + 45.0 Max FD_{\rm prior-\beta} - 69.8 MinFD_{\rm prior-\beta} + 555 r_{\rm prior-\beta} - 774 / \sqrt{MinFD_{\rm prior-\beta}}$$
(2)

... (1)



 図9 LOOCVを用いたモデル選択による特徴量のヒートマップ<sup>10</sup>; (a) 降伏強度、(b) 破断強度、(c) 弾性率 (d) 破断伸び。暖色と寒色はそれぞれ引張特性との正と負の相関の強さを示す (Online version in color.)



図10 引張試験で評価した力学特性に対する多変量線形回帰分析による予測値<sup>10)</sup>; (a)降伏強度、(b)破断強度、(c)弾性率(d)破断伸び

 $\varepsilon = 53.1 - 1.35 MaxFD_{a} - 56.9 / \sqrt{MinFD_{a}}$  .....(4)

図10は、これらの回帰式による予測値を引張試験による計 測値に対してプロットしたものである。図10 (a)、(b)のよ うに、降伏強度と破断強度についてはすべての予測値が±5% の破線内にあり、高い精度で予測可能であることを示してい る。一方、弾性率や延びの予測値は、計測値から外れており、 十分な予測精度のモデルとは言えない。この原因は、破断伸 びや弾性率に寄与する微細組織の特徴量が不十分であるため と考えられ、例えば1章で述べたようにB.J.Hayes らは合金 組成や転位密度などもモデルに含んでいる<sup>68</sup>。また、微細組 織特徴量と力学特性との非線形な関係をモデル化するのに適 した回帰分析手法を利用することで予測精度の向上が期待さ れる。

## 5 おわりに

本稿では、L-PBF造形後に熱処理したTi-6Al-4V合金サン プルについて、熱処理条件(温度、時間、冷却速度)による微 細組織の特徴量を画像解析技術により定量化した。これらの 特徴量に基づいて多変量線形回帰分析によって引張特性を予 測するモデルを構築し、降伏強度や破断強度を高精度に予測 した。この予測モデルは、 $\alpha$  粒径とのHall-Petchの関係にさ らに複数の微細組織特徴量を加えたものであり、強度に複数 のパラメータが寄与することを示唆している。一方、弾性率 や破断伸びについては、十分な予測精度を得られず改善の余 地がある。例えば、合金組成や転位密度の特徴量をモデルに 追加したり、ANNなどのより高度な回帰分析手法などを検 討すべきである。これらの画像解析による組織特徴量の定量 化および機械学習を用いた予測モデル構築は、チタン合金や L-PBF造形サンプルに限らず、他の材料や製造方法において も応用可能であり、各分野におけるプロセス-組織-材料特 性を理解する手助けになれば幸いである。

#### 参考文献

- B.Blakey-Milner, P.Gradl, G.Snedden, M.Brooks, J.Pitot, E.Lopez, M.Leary, F.Berto and A.du Plessis : Materials and Design, 209 (2021), 110008.
- 2) W.Xu, E.W.Lui, A.Pateras, M.Qian and M.Brandt : Acta Mater., 125 (2017), 390.
- 3) S.Q.Wu, Y.J.Lu, Y.L.Gan, T.T.Huang, C.Q.Zhao, J.J.Lin, S.Guo and J.X.Lin : J. Alloys Compd., 672

(2016), 643.

- 4) H. Galarraga, R.J. Warren, D.A. Lados, R.R. Dehoff, M.M. Kirka and P. Nandwana : Mater. Sci. Eng. A, 685 (2017), 417.
- 5) M. Kusano and M. Watanabe : Materials & Design, 222 (2022), 111016
- 6) I.Ghamarian, B.Hayes, P.Samimi, B.A.Welk,
  H.L.Fraser and P.C.Collins : Mater. Sci. Eng. A, 660 (2016), 172.
- 7) P.C.Collins, C.V.Haden, I.Ghamarian, B.J.Hayes, T.Ales, G.Penso, V.Dixit and G.Harlow : JOM, 66 (2014), 1299.
- 8) B.J.Hayes, B.W.Martin, B.Welk, S.J.Kuhr, T.K.Ales, D.A.Brice, I.Ghamarian, A.H.Baker, C.V.Haden, D.G.Harlow, H.L.Fraser and P.C.Collins : Acta Mater., 133 (2017), 120.
- 9) S. Miyazaki, M. Kusano, D. S. Bulgarevich, S. Kishimoto,
  A. Yumoto and M. Watanabe: Mater. Trans., 60 (2019) 4, 561.
- M.Kusano, S.Miyazaki, M.Watanabe, S.Kishimoto, D.S.Bulgarevich, Y.Ono and A.Yumoto : Mater. Sci. Eng. A, 787 (2020), 139549.
- 11) 草野正大, 岸本哲, 渡邊誠:チタン, 69 (2021) 2, 30.
- B. Vrancken, L. Thijs, J. Kruth, J. Van Humbeeck and J. Van Humbeeck : J. Alloys Compd., 541 (2012), 177.
- 13) T.Vilaro, C.Colin and J.D.Bartout : Metall. Mater. Trans. A Phys. Metall. Mater. Sci., 42 (2011), 3190.
- 14) J. Tiley, T. Searles, E. Lee, S. Kar, R. Banerjee, J.C. Russ and H.L. Fraser : Mater. Sci. Eng. A, 372 (2004), 191.
- G. Lütjering and J.C. Williams : Titanium, second ed., Springer, New York, (2007).
- I. Arganda-Carreras, V. Kaynig, C. Rueden, K.W. Eliceiri, J. Schindelin, A. Cardona and H.S. Seung : Bioinformatics, 33 (2017), 2424.
- 17) L. Breiman : Mach. Learn., 45 (2001), 5.
- 18) B. Münch, P.Gasser, L. Holzer and R. Flatt : J. Am. Ceram. Soc., 89 (2006), 2586.
- A.Agrawal, P.D.Deshpande, A.Cecen, G.P.Basavarsu, A.N.Choudhary and S.R.Kalidindi : Integr. Mater. Manuf. Innov., 3 (2014), 90.

(2022年8月31日受付)

87