

ベイズ最適化によるき裂生成を抑制した レーザー積層造形傾斜組成超硬合金層の組成導出

山下 順 広*, 舟田 義 則**, 宇畑 勲 駿***, 國 峯 崇 裕***,
佐藤 雄 二****, 塚本 雅 裕****

*石川工業高等専門学校 (〒 929-0392 石川県河北郡津幡町北中条タ 1)

**石川県工業試験場 (〒 920-8203 石川県金沢市鞍月 2-1)

***金沢大学 (〒 920-1192 石川県金沢市角間町)

****大阪大学接合科学研究所 (〒 567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘 11-1)

y.yamashita@ishikawa-nct.ac.jp

Derivation of Compositions in Compositionally Graded Cemented Carbide Layers Processed by Laser Additive Manufacturing for Suppressing Crack Generation by Bayesian Optimization

YAMASHITA Yorihiro, FUNADA Yoshinori, UBATA Hirotooshi, KUNIMINE Takahiro,
SATO Yuji and TSUKAMOTO Masahiro

(Received August 2, 2023)

The laser metal deposition (LMD) is attracting attention as one of the methods to manufacture products that achieve the required performance at a low cost and enable the formation of partially added metallic layers. When cemented carbide layers are formed directly on an Fe-based material for reinforcing a partial part, cracks are often generated in the formed layers. In this study, the compositions of the cemented carbide layers were graded to realize crack-free layers. WC ratios of respective layers without cracks were investigated. AE sensors were used to evaluate the number of cracks. The compositionally graded layers were formed on C45 carbon steel substrates. In order to form the four-layer graded compositions, the WC ratios of 10 mass%, 30 mass%, 50 mass%, 70 mass%, and 88 mass% were chosen for respective layers. The results showed that cracks were not detected in the five compositional patterns with the WC ratio of 10 mass% in the third layer. The Bayesian optimization package COMBO was used to derive a compositional pattern without cracks. The results showed that the compositional patterns without cracks could be derived more efficiently than in the case of a random experiment.

Key words : laser metal deposition (LMD), bayesian optimization, acoustic emission (AE), cemented carbide, functionally graded materials (FGMs), crack

1. 緒 言

高硬度で耐摩耗性の優れた超硬合金は、工具や金型などに利用されている。しかし、鉄系材料に比べ製造コストが高いという課題がある。鉄系材料の表面に耐摩耗性が必要な箇所だけに超硬合金層を形成できれば、安価で性能要求を満たした製品が実現できると考えられる。部分的に金属を付加する方法としては、レーザー積層造形技術の一つであるレーザー粉体肉盛法(LMD)がある^{1,2)}。しかし、同方法で形成した超硬合金層には、肉盛部にき裂や空孔などの発生が課題となっている^{3,4)}。空隙の要因は、超硬合金粉末が造粒粉であるためその内部には多くの気孔が存在しそれが肉盛内部に残留することや、シールドガスや粉末供給ガスの巻き込み、さらにWCが高温化することで炭素が脱離し周辺の酸素と反応して炭酸ガスが発生するなど⁵⁾が考えられる。これらの対策として、造粒粉内の気孔を低減するため原料粉末にプラズマ処理を行う方法⁶⁾や、肉盛部をアルゴンガスで覆い酸素濃度を低減した雰囲気制御を施し空隙を抑制する方法など⁷⁾が検討されている。また、き裂の

生成要因は、肉盛部の溶融温度の上昇によって脆性な金属組織(W_2C , W_3Co_3C)が形成すること⁸⁾や、基材が鉄系材料の場合、超硬合金と熱膨張係数が異なることで熱応力が発生することなどが要因としてあげられる。超硬合金を鉄系基材に形成する際の材料特性の違いによるき裂の抑制には、急激な組成変化を緩和した傾斜機能材料の概念が有用と考えられる⁹⁾。

そこで、本研究では組成の傾斜化を検討し、基材から徐々にWC割合を変化させ積層造形する方法を検討した。また、傾斜組成の組成パターンを考えるとき、その組合せは、層数が増えるほど指数関数的に増加しすべての候補から最適なものを見つけ出すのは膨大な時間とコストを要する。そこで、少ない実験回数で目的の値を導出できる機械学習の一つで逐次最適化手法であるベイズ最適化を用いて、組成の導出を効率的に行えるか検討した。

2. 実験方法

2.1 傾斜組成超硬合金層の形成

超硬合金層の形成は、Fig. 1に示すように複数のレーザー

光を1点に集光し、その部分を通過するように噴射した金属粉末を溶融・凝固して基材表面に肉盛するマルチビーム式レーザ粉体肉盛装置¹⁰⁾を用いた。同装置は、二つの粉末供給機を有し、各粉末供給機から異なる種類の粉末を供給して、その粉末を混合し吐出する。原料粉末には、平均粒径 30 μm の Co-88 mass%WC 粉末と Ni-based Self Fluxing Alloy (SFA) (Ni-2.4Si-1.4B-0.4Fe-0.03C) 粉末の2種類の粉末を用い、粉末供給機1に Co-88 mass%WC 粉末を、粉末供給機2に Co-88 mass%WC 粉末と Ni-based SFA 粉末を混合し、その WC 割合が 10 mass% となるように調合した粉末を入れ、層形成を行った。形成には、基材に S45C を用い、長さ 10 mm のビードの層を各供給機の吐出量を制御することにより粉末に含まれる WC の割合を変えながら4層積層し、傾斜組成超硬合金層を形成した。レーザには、波長 975 nm の近赤外半導体レーザを6本使用し、レーザビームの集光径は 0.28 mm とした。レーザ照射条件は、レーザ光出力 120 W、送り速度 10 mm/s とし、粉末供給量は 45 mg/s、積層ピッチは 0.1 mm とした (Table 1)。1~3層の WC 割合は、10 mass%、30 mass%、50 mass%、70 mass% および 88 mass% の5種類、4層目の最上層は 88 mass% とし、すべての組合せを考え 125 種類の傾斜組成層を形成した。各実験番号に

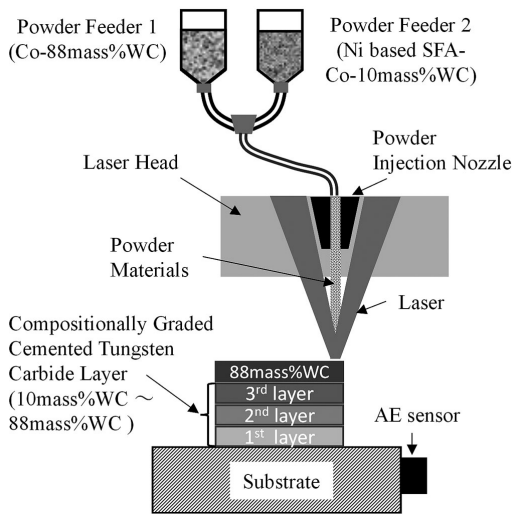


Fig. 1 Schematic illustration showing a multi-beam laser type LMD system.

おける各層の WC 割合を Table 2 に示す。

2.2 AE センサによるき裂情報の評価

層形成時に発生するき裂を AE (Acoustic Emission) センサを用いて評価した。き裂生成時には、AE 信号として突発型 AE 波形が得られることが知られている¹¹⁾。そこで、この突発型波形の数をき裂数として評価した。また、突発型波形の最大振幅値から次式で代替的 AE 信号エネルギーを算出し、き裂の生成規模として評価した¹²⁾。

$$E_{AE} = \sum_{t=s}^e (a_p(t))^2 \tag{1}$$

ここで、 E_{AE} は代替的 AE 信号エネルギー、 a_p は突発型 AE 波形における最大振幅値、 t は層形成時間、 s は層形成開始、 e は層形成終了の時間である。

AE 信号の取得は、最上層の4層目のビード形成時において行い、その時の AE 信号を評価した。AE センサには、広帯域 AE センサ (AE-900S-WB, NF Electronic Instruments) を用い、Fig. 1 に示したように、基材側面に設置し信号を取得した。センサから得られた信号は、アンプおよびディスタクリミネータ (AE9922, NF Electronic Instruments) を用いて利得 50 dB で増幅し、ハイパスフィルタ 50 kHz で信号処理した後、放電時定数 0.1 ms の包絡線検波としてサンプリングレート 10 kHz で取得した。

2.3 ベイズ最適化によるき裂数ゼロとなる組成層の組合せの探索

各層に含まれる WC 割合を変えながら傾斜組成超硬合金層を形成する際に、き裂の生成がゼロとなる各層の組成割合の導出をベイズ最適化によって行った。ベイズ最

Table 1 Experimental conditions.

Characteristic	Value
Laser wavelength	975 nm
Beam diameter	280 μm
Energy density	1.95×10^5 W/cm ²
Laser power	120 W
Scanning speed	10 mm/s
Powder feed rate	45 mg/s
Stacking Pitch	0.1 mm

Table 2 WC ratios of respective layers in each experimental number.

	WC ratio (mass%)				
	10	30	50	70	88
1st layer (bottom)	1~25	26~50	51~75	76~100	101~125
2nd layer	(1~5) + 25n	(6~10) + 25n	(11~15) + 25n	(16~20) + 25n	(21~25) + 25n
			(n = 0~4)		
3rd layer	1 + 5n	2 + 5n	3 + 5n	4 + 5n	5 + 5n
			(n = 0~24)		
4th layer (top)					all

適化の計算には、COMBO と呼ばれる Python パッケージを用いた¹³⁾。入出力データは、説明変数には各層の組成パターンを、目的変数はき裂数および代替的 AE 信号エネルギーとした。獲得関数には、最大改善確率 (PI: Probability of Improvement), 最大期待改善率 (EI: Expected Improvement), トンプソンサンプリング (TS: Thompson Sampling), 信頼区間の下端 (LCB: Lower Confidence Bound) の 4 種類の関数を用いて評価し^{14,15)}、その有用性を検証した。

ベイズ最適化によるき裂数がゼロな組成パターン導出のフローチャートを Fig. 2 に示す。導出には、まず、ランダムに五つの組成パターンを決定する。次に、これらの組成パターンにおける実験により得られた目的変数 (き裂数または代替的 AE 信号エネルギー) を用いて、組成パターンと目的変数との関係をベイズ最適化処理に用いる初期の学習データとする。同学習データを基にベイズ最適化処理により目的変数が最小となる組成パターンを計算する。計算により求められた組成パターンの目的変数がゼロであれば導出終了とし、ゼロではない場合は、目的変数が最小として導出された組成パターンの積層造形実験を行い目的変数の特定を行う。学習データにこの組成パターンと目的変数の数値を追加し、再度ベイズ最適化処理により目的変数が最小となる組成パターンの導出を行い、目的変数がゼロとなるまで繰り返し行う。

3. 実験結果および考察

3.1 各傾斜組成超硬合金層におけるき裂数

各傾斜組成超硬合金層におけるき裂数を Fig. 3 に示す。

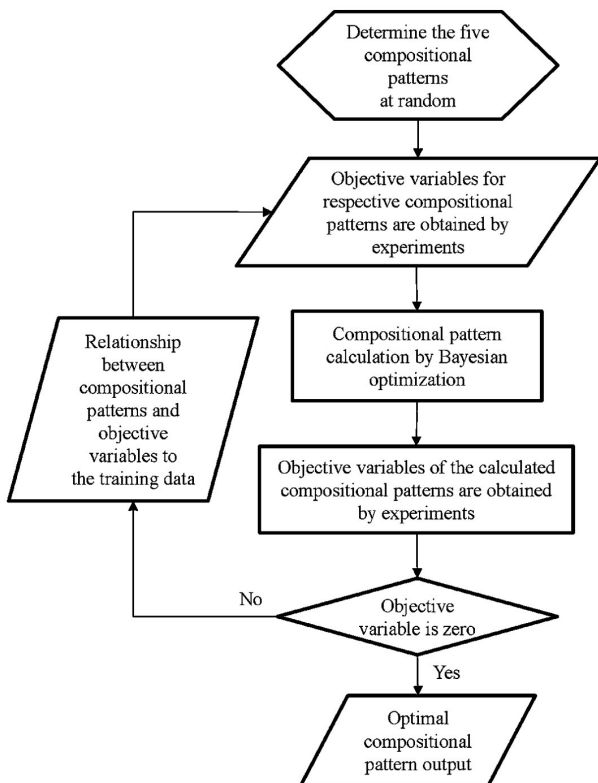


Fig. 2 Workflow of Bayesian optimization.

また、AE 信号の振幅値から算出した代替的 AE 信号エネルギーとの関係を Fig. 4 に示す。No.103 以上の 1 層目における WC 割合が 88 mass% においてき裂数が 10 以上となり、き裂数が多い組成パターンが多くなる傾向が見られた。き裂数では同数となる組成パターンでも代替的 AE エネルギーとして評価した場合は、各組成パターンの差異が大きくなっていることがわかる。

今回の 125 通りの傾斜組成パターンの内、Table 3 に示す組成パターンにおいて、き裂数がゼロとなった。また、No.101 と No.102 については、基材からの剥離が確認

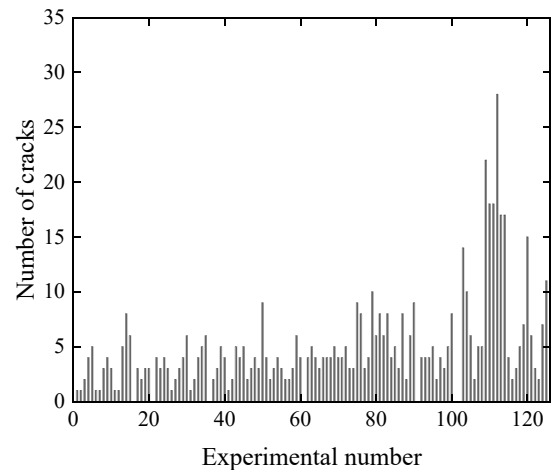


Fig. 3 The number of cracks in forming the 4th layer for each experimental number.

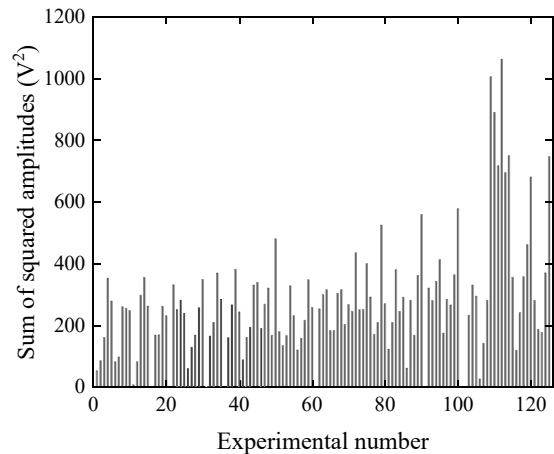


Fig. 4 Sum of squared amplitudes in forming the 4th layer for each experimental number.

Table 3 Compositional patterns without cracks.

Experimental number	1st layer (bottom)	2nd layer	3rd layer	4th layer (top)
No.16	10	70	10	88
No.21	10	88	10	88
No.36	30	50	10	88
No.61	50	50	10	88
No.91	70	70	10	88

された。基材から表層にかけて WC 割合が徐々に増加する組成パターンではき裂数がゼロとならず、3 層目における WC 割合が 10 mass% の時にき裂数がゼロとなる組成パターンが複数得られる結果となった。徐々に WC 割合が増加する実験番号 No.8 と、き裂数のカウントがゼロとなった No.36 の傾斜組成超硬合金層の断面全体の SEM 画像および基材表面から傾斜組成超硬合金層の表層まで 100 μm ほどの SEM 画像を Fig. 5 に、EDX による成分分析を分析領域 25 μm×25 μm における平均値として示した結果を Fig. 6 に示す。

No.8 の 1 層目 (10 mass%WC) に相当する 100 μm 付近と No.36 の 3 層目 (10 mass%WC) に相当する 300 μm 付近の組織画像を比較すると WC 粒子の分布割合に大きな差がある。WC と Ni の密度は、それぞれ 15.8 g/cm³ と 8.9 g/cm³ であ

り^{16,17)}、質量比で 10 mass%WC と 90 mass%Ni とした場合の体積比は 6 : 94 であることを考慮すると、No.8 の方が妥当な WC 粒子分布であるといえる。一方、No.36 は WC 粒子がかなり多く分布した状態である。しかし、No.36 は、100 μm から 200 μm にかけて WC 粒子が減少するが、それより上層になると、WC 粒子分布が徐々に増加し傾斜した分布状態である。また、No.8 の WC 粒子分布割合は、下層から上層にかけて徐々に増加していることが見受けられる。

成分分析結果では、No.8 および No.36 は、基材から上層に向けて W の質量比が徐々に増加する傾向となっており傾斜組成化していることがわかる。また、No.8 に比べ No.36 は、W 成分の増加の傾斜度合いが緩やかであり、より急激な特性変化となっていないといえる。

No.36 が実験条件通りの WC 粒子分布割合および成分分析結果とならなかった要因については、層形成時における下層への溶込み量が多く形成層が大きく希釈された状態になったことが影響したと考えられる。

レーザで熱加工した際、円形で一様な分布を有する熱源が半無限体の材料表面に発現したときの熱源中心における

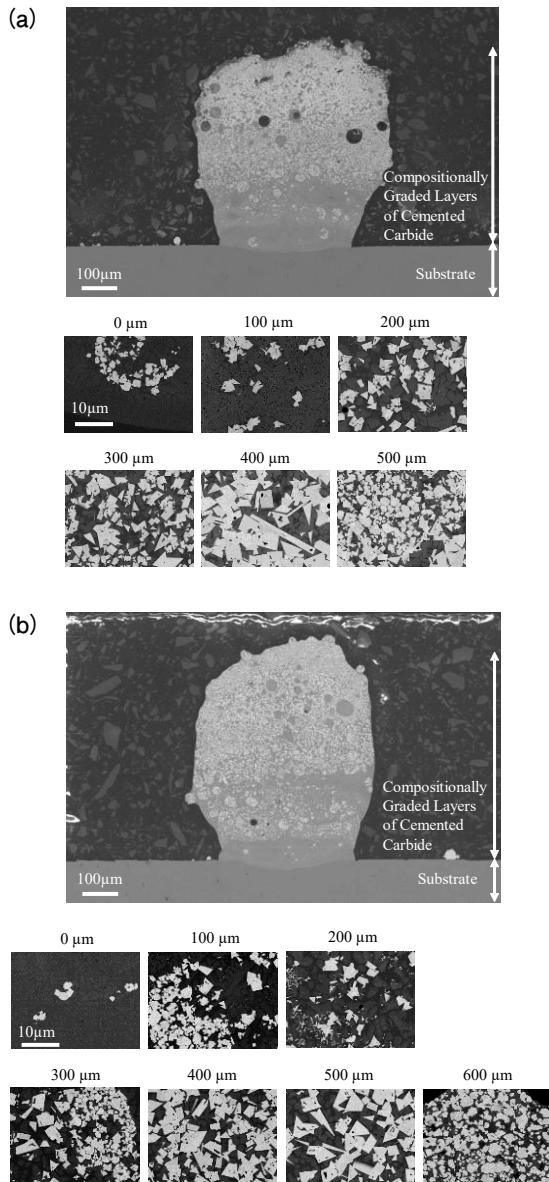


Fig. 5 Cross-sectional SEM images of compositionally graded layers of cemented carbides, and magnified images taken at several distances from the interface between the first layer and substrate in the samples of the experimental numbers of (a) 8 and (b) 36.

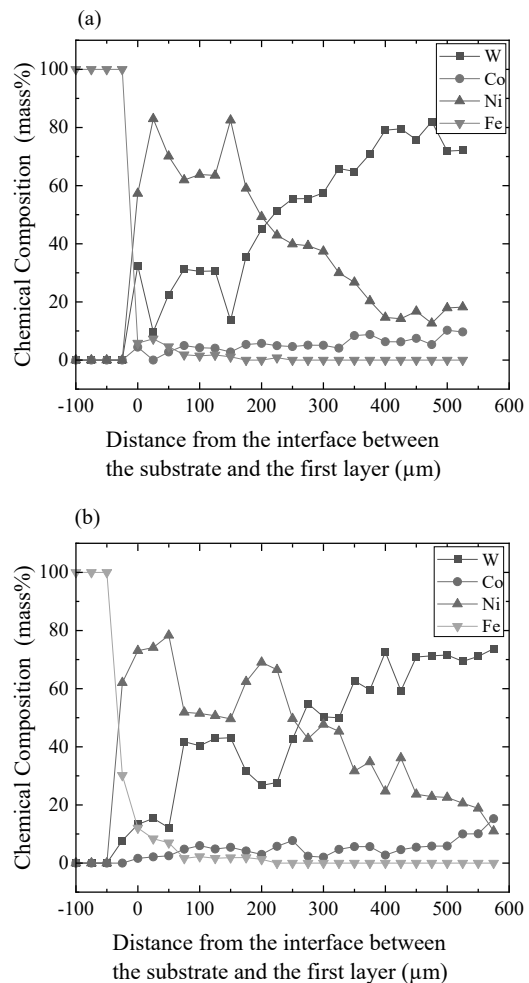


Fig. 6 EDX analysis results showing variations of elements in the compositionally graded cemented carbides from the substrate to the surface layer in the case of experimental numbers of (a) 8 and (b) 36.

材料表面から溶込み深さ方向の温度上昇は次式にて与えられる¹⁸⁾。

$$T(z, t) = \frac{4AP}{\pi KD^2} \sqrt{4\alpha t} \left(\operatorname{ierfc} \sqrt{\frac{z^2}{4\alpha t}} - \operatorname{ierfc} \sqrt{\frac{z^2 + \left(\frac{D}{2}\right)^2}{4\alpha t}} \right) \quad (2)$$

ここで、 A は材料表面での吸収率、 P はレーザー光出力、 K は熱伝導率、 D は熱源のスポット直径、 α は熱拡散率、 z は材料表面から内部への距離、 t は時間である。よって、温度上昇により溶込み深さが変化すると考えると、その量は吸収率に比例し、熱伝導率に反比例することがわかる。

レーザー波長 $1 \mu\text{m}$ におけるレーザー吸収率は WC が 82% ¹⁹⁾、Ni が 28% ²⁰⁾ であり、熱伝導率は、WC が $29.3 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ¹⁶⁾、Ni が $90.5 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ ¹⁷⁾ であることから、3 層目形成における下層 (2 層目) では、WC 割合が高いためレーザー中心部での温度上昇が大きくなり溶込み量に影響を及ぼしたと考えられる。また、温度上昇度合いが高い箇所に、WC よりも低融点な Ni を多量に含む $10 \text{ mass}\% \text{ WC}$ 粉末を供給し層形成することにより層厚さへも影響を与え今回の傾斜組成合金層の組織および成分になったと推察される。

以上より、LMD は層形成において下層への溶込みによる希釈が生じるため、粉末供給で指定した WC 割合の組織及び成分の層形成とならず、高 WC 割合な層に低 WC 割合な $10 \text{ mass}\% \text{ WC}$ を積層した場合は、WC 粒子分布割合の変化および成分の緩やかな傾斜度合いとなり、No.36 のような組成パターンにおいては、き裂の抑制に適した傾斜組成層になったと推察される。

3.2 ベイズ最適化によるき裂ゼロな組成層の導出結果

各傾斜組成超硬合金層のき裂数がゼロではなかった 120 通りの組成パターンを最初のランダムに選ぶ初期データとして、き裂ゼロな組成パターンを何回で導出できるか計算した。基材から形成層が剥離した No.101 と No.102 は、他のデータとの差を大きくするためにその値は、き裂数 30、代替的 AE 信号エネルギー 2000 とした。各獲得関数におけるベイズ最適化の繰り返し計算数を Fig. 7 に示す。繰り返し数は、各獲得関数において 100 回の計算を行った平均値である。各棒グラフのバーは、標準偏差を示す。目的変数のき裂数と代替的 AE 信号エネルギーを比較すると獲得関数 TS 以外では代替的 AE 信号エネルギーの方が繰り返し数が少なく、代替的 AE 信号エネルギーを目的変数とした方が導出に有利であることがいえる。これは、Fig. 4 と Fig. 5 では代替的 AE 信号エネルギーの方が各組成パターンの目的変数の差異が大きく、より判別しやすくなったためと考えられる。

125 通りの組成パターンに対してき裂ゼロな組成パターンは 5 通りであり、無作為に実験した場合にき裂ゼロな組成パターンを得るには何回の実験が必要かランダムに組成パターンを選択し、き裂ゼロとなるまで計算した結果、平均 22 回 (100 回の平均、標準偏差 18) であった。このことから、ベイズ最適化による計算は、き裂数ゼロとなる組成パターンの導出を早期に達成できるといえる。特に、獲得関数では、LCB が最も有用であることがわかった。

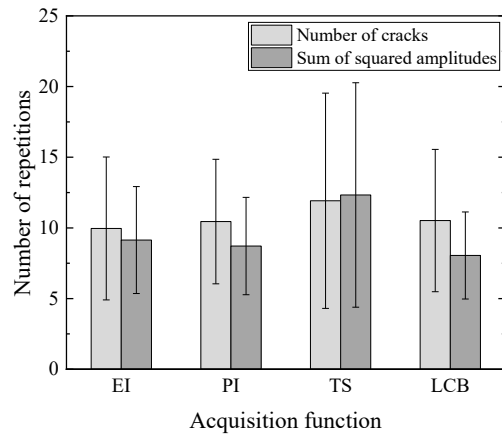


Fig. 7 Number of repetitions obtained by respective acquisition functions in Bayesian optimization calculations.

4. 結 言

レーザー粉体肉盛法を用いて、傾斜組成超硬合金層を形成し、き裂数がゼロとなる各層の WC 割合を調べた。き裂の評価には、AE センサを用いた。また、き裂がゼロとなる組成パターンの導出をベイズ最適化パッケージである COMBO を用いて行い、有用性を検討した。得られた結果を以下に示す。

- (1) 4 層の傾斜組成超硬合金層における各層の WC 割合を $10 \text{ mass}\%$ 、 $30 \text{ mass}\%$ 、 $50 \text{ mass}\%$ 、 $70 \text{ mass}\%$ および $88 \text{ mass}\%$ の中から選択し層形成を行った結果、3 層目における WC 割合が $10 \text{ mass}\%$ の 5 種類の組成パターンにおいて、き裂数がゼロとなった。
- (2) 本実験におけるレーザー積層造形条件においては、高 WC 割合な層に低 WC 割合な $10 \text{ mass}\% \text{ WC}$ を積層することで WC 粒子および成分の分布が緩やかな傾斜傾向となる結果が得られた。
- (3) ベイズ最適化を用いることにより、無作為に実験した場合に比べて効率的にき裂ゼロとなる組成パターンを導出できることを明らかにした。

謝 辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 JP22K03851 の助成を受けて行ったものである。

参 考 文 献

- 1) Benjamin, G., Stefan, A., Andrey, G. and Michael, R.: Design of experiments for laser metal deposition in maintenance, repair and overhaul applications, *Procedia CIRP*, **11**, (2013), 245-248.
- 2) Asano, K., Tsukamoto, M., Funada, Y., Sakon, Y., Morimoto, K., Sato, Y., Masuno, S., Hara, T. and Nishikawa, H.: Development of multiple laser beam irradiation method for precision laser cladding of metal, *Rev. Laser Eng.*, **46**, (2018), 604-613.
- 3) Jiandong, W., Liqun, L. and Wang, T.: Crack initiation and propagation behavior of WC particles reinforced Fe-based metal matrix composite produced by laser melting deposition, *Opt. Laser Technol.*, **82**, (1992), 170-182.
- 4) Yamashita, Y., Nakamura, M., Sakai, M., Kunimine, T., Sato,

- Y., Funada, Y. and Tsukamoto, M.: In Situ Evaluation of Crack Generation Using Acoustic Emission Technique during Laser Cladding of WC-Co Cemented Carbide via Multi-Beam Laser Metal Deposition, *Mater. Sci. Forum*, **1083**, (2023), 153-158.
- 5) Lee, C., Park, H., Yoo, J., Lee, C., Woo, W.C. and Park, S.: Residual stress and crack initiation in laser clad composite layer with Co-based alloy and WC + NiCr, *Appl. Surf. Sci.*, **345**, (2015), 286-294.
 - 6) Itagaki, H., Yachi, T., Ogiso, H., Sato, H., Yamashita, Y., Yasuoka, J. and Funada, Y.: DC Arc Plasma Treatment for Defect Reduction in WC-Co Granulated Powder, *Metals*, **10**-7, (2020), 975.
 - 7) Yamaguchi, T.: Development of Laser Metal Deposition Technology for WC-Co Cemented Carbide Using Atmosphere Control, The amada foundation summary report, **35**, (2022), 247. (in Japanese)
 - 8) Ibe, H., Kato, Y., Yamada, J., Kato, M., Suzuki, A., Takata, N. and Kobashi, M.: Formation Process of Microstructure in Laser Powder Bed Fusion with WC Cemented Carbide Powder, *J. Jpn. Soc. Powder Metall.*, **67**, (2020), 313-319. (in Japanese)
 - 9) Eso, O., Fang, Z. and Griffo, A.: Liquid phase sintering of functionally graded WC-Co composites, *Int. J. Refract. Met. Hard Mater.*, **23**, (2005), 233-241.
 - 10) Funada, Y., Yamashita, Y., Sakon, Y. and Tsukamoto, M.: Development and bead formation properties of multiple laser coating technology with centered powder feeding, *J. Smart Process.*, **8**-1, (2019), 19-24. (in Japanese)
 - 11) Matsuda, T. and Matsubara, H.: Thermal Shock Examination of Cermets by Repetitive Laser Irradiation, *J. Jpn. Soc. Powder Metall.*, **64**-11, (2017), 621-625. (in Japanese)
 - 12) Nagata, M., Shimamoto, Y., Suzuki, T. and Ishigami, A.: Evaluation of Frost Damage on Concrete using AE Energy Parameter, *J. Jpn. Soc. Irrig., Drain. Rural Eng.*, (2017), 526-527. (in Japanese)
 - 13) Ueno, T., Rhone, D.T., Hou, Z., Mizoguchi, T. and Tsuda, K.: COMBO: An efficient Bayesian optimization library for materials science, *Mater. Discovery*, **4**, (2016), 18-21.
 - 14) Tamura, R.: Development of Black-box Optimization Method for Metallic Materials, *J. Jpn. Therm. Spraying Soc.*, **59**-4, (2022), 217-223. (in Japanese)
 - 15) Neel, S.: A Framework For Bayesian Optimization of Probabilistic Robustness Metrics, Institute for Aerospace Studies University of Toronto, (2023).
 - 16) Samsonov, G.V. and Vinitkii, I.M.: Handbook of Refractory Compounds, IFI/Plenum Data Company, (1980).
 - 17) Nishio, S.: Heat Transfer 5th Edition, *Jpn. Soc. Mech. Eng.*, (2009). (in Japanese)
 - 18) Marcel, S.: LASER CLADDING WITH POWDER, University of TWENTE, (1998).
 - 19) Kruth, J. P., Wang, X., Laoui, T. and Froyen, L.: Lasers and materials in selective laser sintering, *Assem. Autom.*, **23**, (2003), 357-371.
 - 20) Marvin, J. W.: Handbook of Optical Materials, CRC Press, (2003).