

積層造形技術と材料設計からみた 次世代半導体製造技術の展望

日本鑄造株式会社 大山 伸幸、蓮見 侑士
Nobuyuki OYAMA, Yuji HASUMI

Key Words: アトマイズ金属粉末、Additive Manufacturing、低熱膨張材料、半導体製造装置用部品

1. はじめに

近年、AI・自動運転技術の急速な発展により、高速通信・高速演算処理が必要となり、半導体分野において高精度化要求が高まっており、それらの装置の構成部材には熱変形を抑える目的で低熱膨張合金を採用するケースが増えている¹⁾。さらに、最近では、世界的なCO₂排出量の削減ニーズの高まりに応じて、低熱膨張性だけでなく、さらに、軽量化・制振性・熱伝導性を有する高機能材料が強く求められている。

積層造形技術²⁾(Laser 式 Powder Bed Fusion、以下に PBF と称す)は、切削加工や機械加工に続く第3の加工法と称され、プロセスのデジタル化の進展に伴い、複雑形状を有する製品が容易に製造できるようになった。しかし、積層造形技術を適用した材料として、これまでにはステンレス鋼やアルミ・チタンを用いた幾つか報告例³⁾があるが、低熱膨張合金の積層造形技術に関する報告例は数少ない。そこで、筆者らは、当社で開発した極めて小さい熱膨張率を実現した低熱膨張材料 LEX-ZERO^{®4)}の粉末を製造し、金属積層造形技術を適用し、その熱膨張特性や機械的性質などに関する基礎検討を行った。さらに、積層造形を活用した構造設計技術により、低熱膨張性に加えて、軽量化・制振性・高熱伝導性の機能を付与した高機能製品の開発事例を報告する。

2. 実験方法

2-1 実験試料および造形装置

表-1に本研究に用いた低熱膨張合金粉末(LEX[®]と称する)の化学組成を示す。実験には、表-2に示す条件で製造したガスアトマイズ粉末(10~45 μm)を用いた。図-1に今回実験で検討した LEX[®]粉末の外観写真を、図-2に Ar によるガスアトマイズ法⁵⁾で製造した LEX[®]粉末の粒子径分布およびその円形度を示す。ここで、円形度は、下記の(1)式で定義した。

表-1 低熱膨張合金の試料の化学成分 (Mass %)

C	Si	Mn	Ni	Co
≤0.05	≤0.4	≤0.5	32.5~36.0	0.0~4.5

表-2 ガスアトマイズ粉の製造条件

ノズル径 (mm)	2.0
溶解温度 (℃)	1,750
ガス雰囲気	Ar
ガス噴射圧 (MPa)	6.0

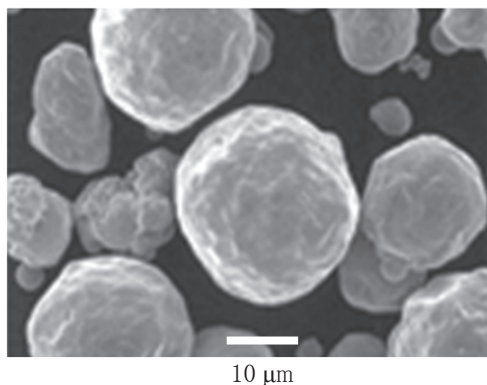


図-1 ガスアトマイズ粉末の外観写真

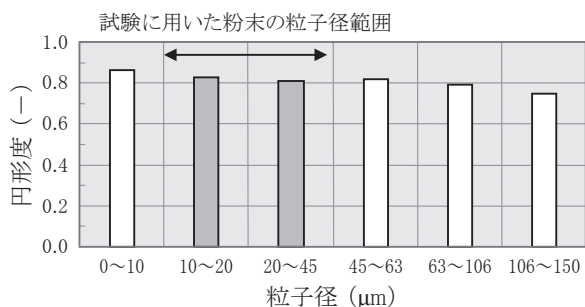


図-2 試験に用いたガスアトマイズ粉の粒子径毎の円形度

$$C = 4\pi S/L^2 \quad (1)$$

C：円形度（－）

S：粒子の断面積（ m^2 ）

L：粒子の周囲長さ（m）

図-1と図-2に示すように、その円形度は粒子径によって多少異なるものの、約0.8とほぼ球形であった。また、使用した粉末粒子径は、本研究で用いたPBF方式の金属積層造形装置に適した10～45 μm 粉末を用いた。

積層造形装置は、出力400 WのYb系ファイバーレーザー（ビームスポット径：約0.1 mm）を搭載したものである。

表-3にレーザー照射条件の範囲を示す。レーザーの走査方向は、図-3に示すように1層ごとに67°ずつ回転させて造形した。

表-3 レーザーの照射条件

レーザーの照射径（mm）	0.02～0.08
レーザー出力（W）	100～400
レーザーの走査速度（mm/s）	400～1600
レーザー間の走査間隔（mm）	0.08～0.16

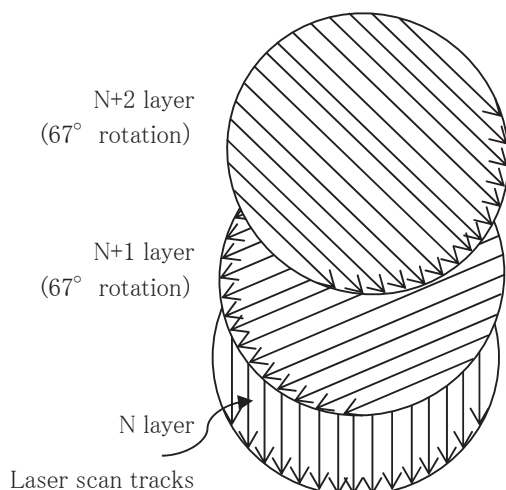


図-3 レーザー走査方向の模式図

2-2 測定方法

造形物の密度は50 mm 角の立方体の重量と見掛け体積から算出した。熱膨張率は、JIS Z 2285に従い、熱膨張計（NETZSCH 株製 DIL 402シリーズ）により8 mm 径×50 mm 長の試験片を用いてその変位を測定し、10～40 $^{\circ}C$ における傾きから定義した。また、熱伝導率は10 mm 径×2 mm 厚の試験片を用いてレーザーフラッシュ法（アルバック理工製 TC-9000）で測定した。引張強度などの機械的性質は JIS Z-2241に従い、ヤング率は60 mm 長×10 mm 幅×2 mm 厚の試験片を用いて JIS Z 2280（曲げ共振法）により測定した。

各種物性の異方性については、積層造形方向と同方向（X 軸）と直角方向（Y 軸）および垂直方向（Z 軸）で試験片を採取し測定に供した。

金属組織は、積層面に対して水平面を鏡面研磨し、3 %硝酸アルコール液を用いて組織を現出させ、実体顕微鏡、光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡に供した。また、X 線回折装置を用いて得られたラインプロファイルから CMWP 法⁶⁾により転位密度を算出した。

2-3 積層造形技術を活用した低熱膨張材料への機能付与事例

前述の通り、近年、低熱膨張材料の需要の高まりを受けて、材料に低熱膨張性だけでなく、軽量化・制振性・高熱伝導性を有した高機能材料が求められている。

軽量化に関しては、低熱膨張材料は比重が8.15と大きく、半導体製造装置の分野だけでなく、光学製品である光学衛星分野においても軽量化が要求されている。そこで、今回、軽量化の適用事例として、半導体の露光装置と類似の宇宙光学衛星部品の支持構造を想定したトラス構造部材を対象とし、JAXA⁷⁾との共同で、従来の機械加工品に対して、積層造形プロセスを活用した構造設計による軽量化製品を製造した。

また、低熱膨張性に制振性の機能を付与する手法として、増谷らの手法⁸⁾を参考にして、粒状体ダンパを活用した低熱膨張性と制振性の両立を目指した製品を試作した。さらに、今回、低熱膨張性と高熱伝導性を両立することを目的に、低熱膨

張材料として、写真-1に示す低熱膨張材料の格子体を製造し空隙中に Cu を含浸させたサンプルを製造した。ここで、低熱膨張材料と高熱伝導材料 (Cu) の体積比は55：45に設定した。

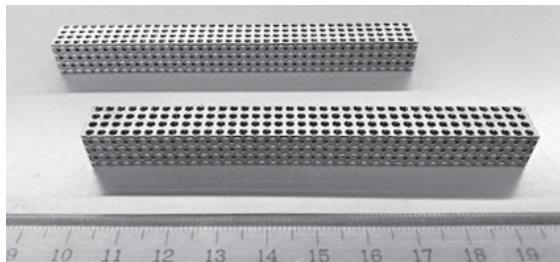


写真-1 低熱膨張性と高熱伝導性を両立した LEX-ZERO® の積層造形体

また、いずれの製品に関しても、各部位の寸法は、(株)ミットヨ製の CNC 三次元測定機 (精度：長さ200 mm に対し±2.3 μm) を用いて行った。

3. 実験結果および考察

3-1 低熱膨張合金の casting 品と鍛造品と積層造形品の比較

各製品の物性を測定する前に PBF 法における造形条件の適正化を実施した。図-4にエネルギー密度と積層造形物の見掛け密度の関係を示す。ここで、溶解される粉末の単位体積あたりに投入されるレーザー照射のエネルギー密度 E は (2) 式で表される。

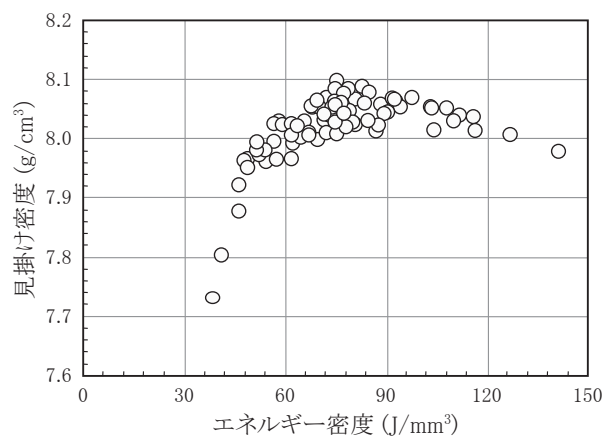


図-4 レーザーの照射エネルギー密度と造形物密度の関係

$$E = P / (v \cdot s \cdot t) \quad (2)$$

E : レーザー照射のエネルギー密度 (J/mm^3)

P : レーザー出力 (W)

v : レーザー走査速度 (mm/s)

s : レーザー走査ピッチ (mm)

t : 粉末積層厚 (mm)

図-4より、今回の合金の造形エネルギー量を適正に選択すれば、造形密度は99.9 %以上で内部欠陥なく製造可能であることが確認された。

図-5に casting 品、鍛造品、PBF 品の各製造プロセスの違いによる低熱膨張合金の物性比較を示す。これより、積層造形品は、引張強度やヤング率 (図には示していないが0.2 %耐力) は casting 品より優れ鍛造品とほぼ同等であり、伸びと絞りは casting 品

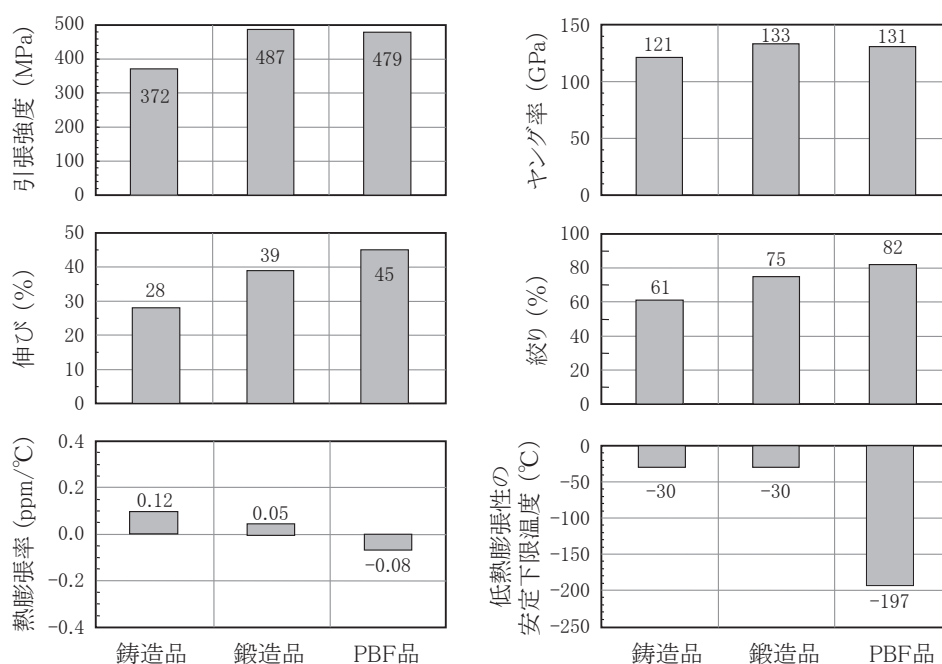


図-5 各プロセスによる低熱膨張合金の物性比較

や鍛造品より優れていた。また、積層造形品の熱膨張率は、 casting 品や鍛造品と比較して熱膨張率が低いだけでなく負の値を示した。さらに、液体窒素の沸点である -196°C 近くまではほぼ $0.0\text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ に近いごく低温まで低熱膨張性を保持することが可能であることが確認された。これは、 -100°C 程度の宇宙空間では、この材料が使用可能であることを示す世界初の画期的な重要な発明であることを示している。 $0.0\text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ に近いごく低い熱膨張率の材料が、ごく低温の宇宙空間で使用可能であることを示す世界初の画期的な重要な発明⁹⁾であり、本特許は、欧米はもとより、中国・韓国においても成立しており、我が国が世界に誇れる製品のひとつであると考えられる。

図-6に casting 品と PBF 品における Co 含有率と造形直後の平均熱膨張率との関係を示す。また、図-7に室温以下の低温時における鍛造品と PBF 品の熱膨張変位の比較を示す。これらより、 casting 品と PBF 品の何れも Co 含有率の増加に伴い熱膨張率は低下するものの、PBF 品ではその影響が小さく、Co 含有率 0% においても平均熱膨張率が $0.0\text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ であることが確認された。Co を 1% 以上含有した場合は発がん性や肺機能異常を引き起こすことなどが指摘され特定化学物質として規制されている。また、Co は Au・Ta・W・Sn とともに高リスク鉱物として取り上げられている。図-6に示す、Co 含有率を大きく削減しても低熱膨張性に影響を及ぼさない本知見は、将来の日本における製造業の持続可能社会の実現に関して、有益なものであると言える。

図-8に casting 品、鍛造品、PBF 品のマクロ組織の顕微鏡による観察結果、図-9に二次電子顕微鏡

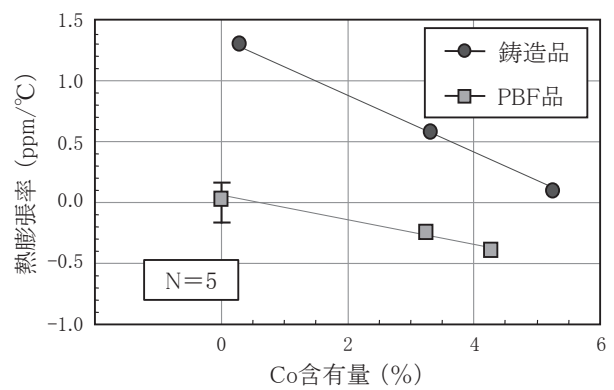


図-6 熱膨張率に及ぼす低熱膨張合金中 Co 濃度の影響

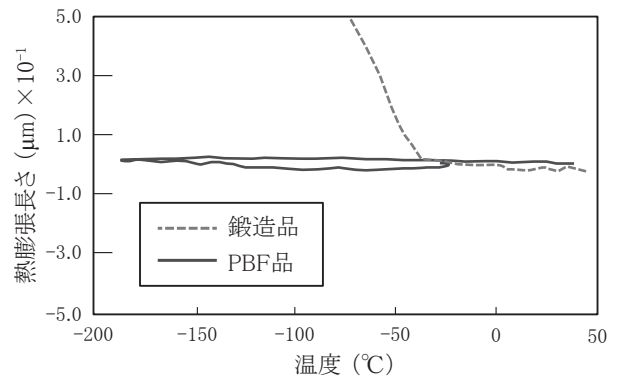


図-7 各温度における熱膨張長さの変化

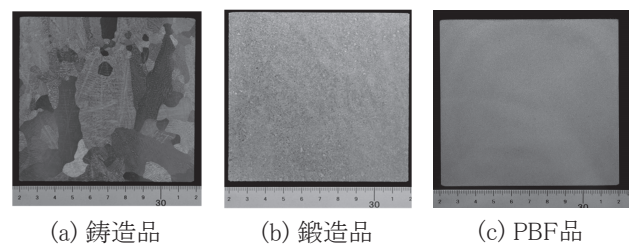


図-8 铸造品と鍛造品と PBF 品のマクロ金属組織の比較

鏡による観察結果を示す。図-8と図-9の観察結果を基に、図-10に測定した二次デンドライトアーム間隔とその冷却速度の実測値および計算値の関係を示す。図-10より、PBF 法では、均一に粉末床に堆積された粉末がわずか 0.01 秒の間で約 $3,000^{\circ}\text{C}$ 超の昇温・冷却を繰り返すため、凝固反

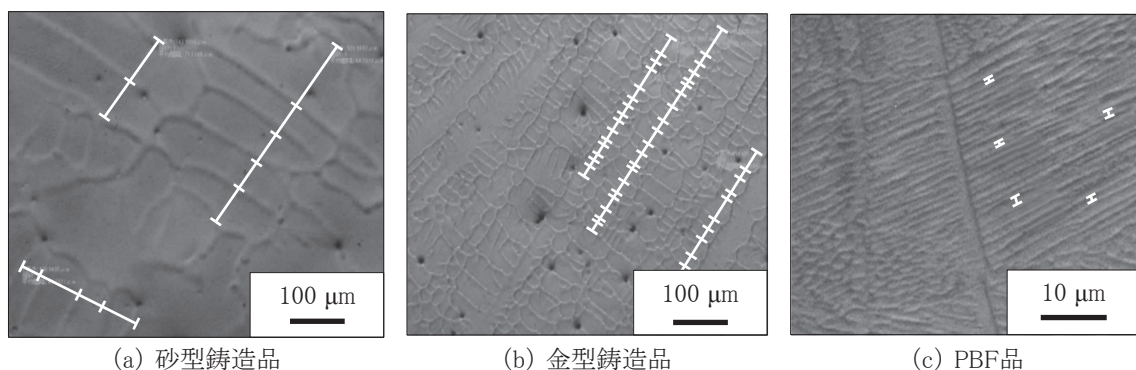


図-9 二次電子顕微鏡を用いた casting 品と積層造形品の金属組織の観察結果

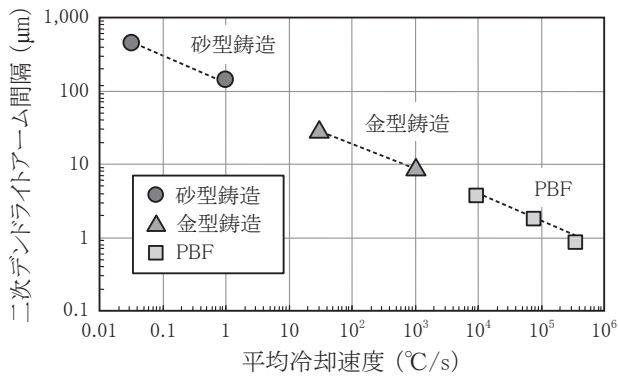


図-10 二次デンドライトアーム間隔に及ぼす各プロセスの冷却速度の影響

応が $10^2 \sim 10^6$ °C/s 程度の冷却速度で進行¹⁰⁾し、図-8と図-9に示すような安定した均一な微細組織を形成する。これにより極低温まで低熱膨張性が維持されるとともに、Co 元素を使用しなくても低熱膨張性を示したものと推察される。さらに、表-4に casting 品と PBF 品に関して転位密度を比較した結果を示す。これより、PBF 品は casting 品と比較して転位密度が1桁大きく格子欠陥が多いことが確認された。

表-4 casting 品と PBF 品の転位密度 (1/m²)

試料	転位密度
casting 品	6.4×10^{13}
PBF 品	1.9×10^{14}

表-4と図-10より、積層造形品が casting 品と比べて機械的性質に優れている原因は、結晶粒の微細化¹¹⁾および転位強化に起因¹²⁾するものと予想されるが、これらの影響の定量的な解析は今後の課題である。また、転位密度の増加に伴い材料の保持力が増加するなど転位密度が磁気特性に影響することが指摘されている¹³⁾。これが、低熱膨張合金を積層造形した時に負の熱膨張率を示す現象や

Co を添加しなくても低熱膨張性を示すことの一因と推定されるが、本実験結果のメカニズムの解明にはさらなる研究が必要である。

3-2 積層造形技術を活用した低熱膨張合金に機能の付与事例

図-11に、光学衛星用のトラス構造部材の軽量品の事例を示す。図-11に示すように、構造部材の使用者との共同開発を通して、パイプ部を中空の格子構造に設計した¹⁴⁾。その結果、低熱膨張率を維持した状態で機械的性質を担保できる範囲内で、光学用トラス構造部材の重量を3.2kgに対し0.85kgと75 %の軽量化を達成することに成功した。

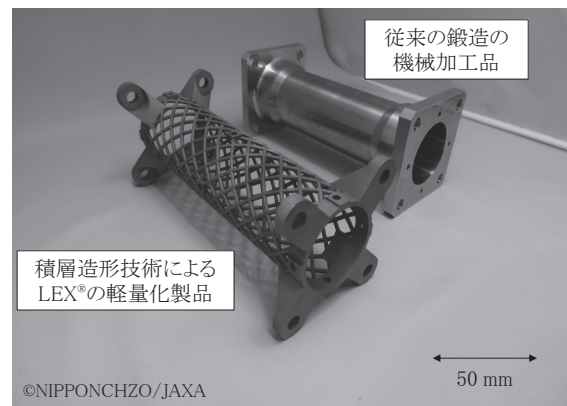


図-11 観測衛星用光学部品の軽量化事例

図-12に、粒状体ダンパ（振り子）を内蔵した低熱膨張材の積層造形品の事例を示す。今回、制振性を評価する目的で、30 mm 縦×250 mm 横×20 mm 厚の板の内部に低熱膨張合金の粉末を一部残留させた振り子を内蔵した製品を製造した。図-13に、従来の中実の低熱膨張材料の鍛造品と今回、新たに設計した積層造形品（PBF 品）の周波数ごとの振幅（制振性）を比較した結果を示す。これより、本材料の共振周波数である400 Hz およ

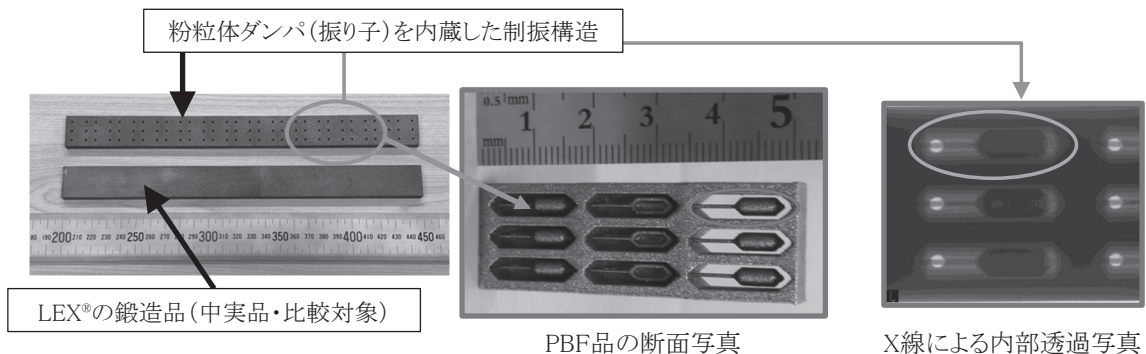


図-12 粉粒体ダンパ（振り子）を内蔵した低熱膨張材の PBF 品

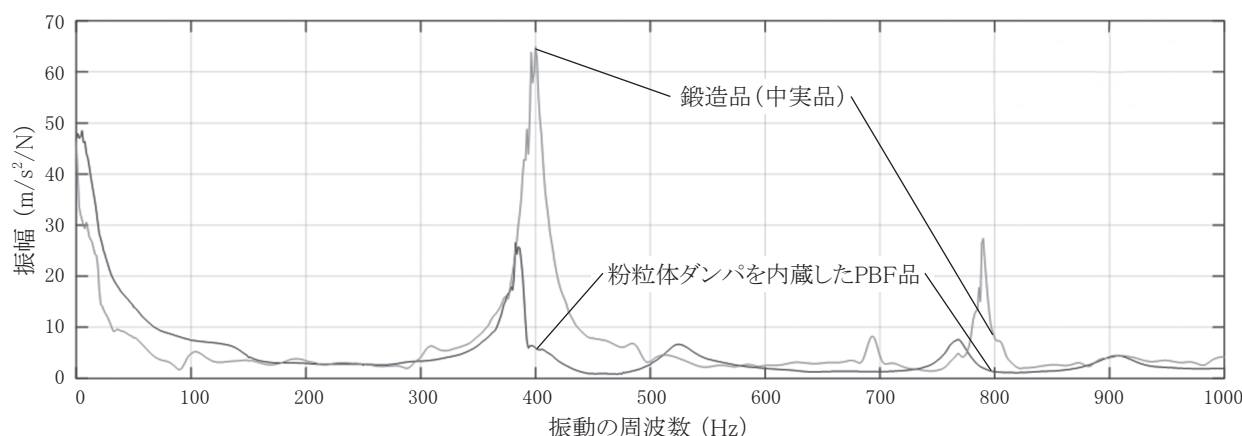


図-13 低熱膨張材の鍛造品と PBF 品における制振性比較

び800 Hz 周辺の振幅を50 % 以下に低減できることが実証された。本試作事例の実用化には、機械的性質の許容範囲の定量化などいくつかの課題を有する。

図-14に、写真-1に示す低熱膨張材料を積層造形した格子体に Cu を1,185 °C で含浸させた結果を他の元素の場合とともに示す。これより、今回、製造した材料は、地政学的に供給が不安定である高価な W や Mo とほぼ同等の低熱膨張率と熱伝導率を有していることが確認されたが、W-Cu のクラッド材と比較¹⁵⁾すると、まだ不十分である。今後は、低熱膨張材料 LEX[®]と高熱伝導材料 Cu の体積比や含浸させる温度を最適化することで、さらなる特性の向上を図る。

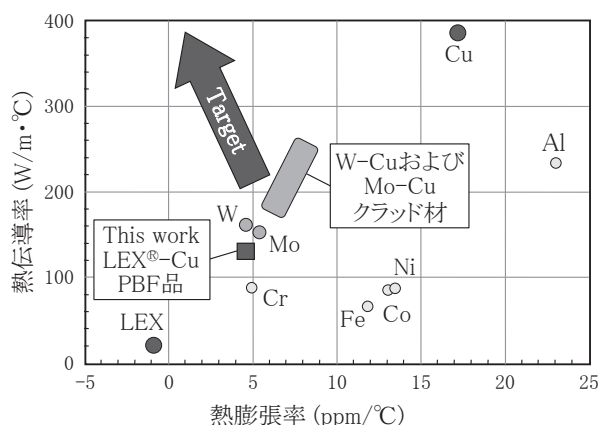


図-14 各種金属材料と PBF 品 (LEX[®]-Cu) の熱膨張率と熱伝導率の関係

図-15に、これまで製造した積層造形品の各部位の設計値と実測値を比較した結果を示す。これより、寸法精度は $\pm 200 \mu\text{m}$ 以下で PBF 品の製造が可能であると確認された。

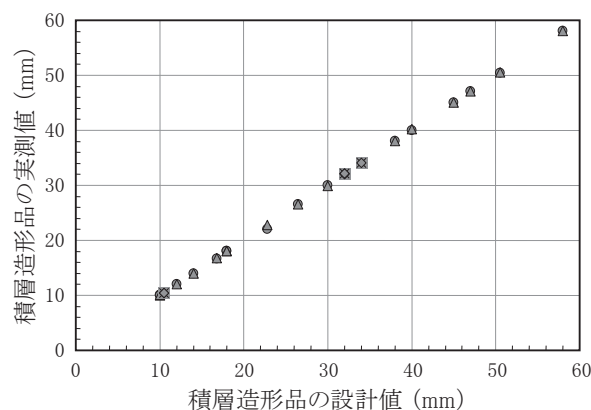


図-15 積層造形品における設計値と実測値の関係

4. おわりに

当社は、2018年9月より、レーザー粉末床溶融結合 (PBF 法) による金属3D プリンター製品の開発に取り組んできた。今回、当社の独自材料である低熱膨張材料を中心に PBF 品の基礎物性を測定し、その原理の解明とコスト低減技術を確立し、下記の結果を得た。

1. 積層造形品 (PBF 品) は、寸法精度 $\pm 200 \mu\text{m}$ で製品が製造可能であり、熱膨張特性は casting 品・鍛造品に比べて優れており、引張強度と 0.2 % 耐力やヤング率は鍛造品並みであった。また、伸び・絞りなどの延性に関しては、積層造形品は、鍛造品と鍛造品の何れよりも優れることが確認された。
2. 特に、熱膨張特性に関しては、PBF 法を適用することで、高価な Co を使用することなく、低熱膨張性を維持することが可能であり、さらに、 -197°C 程度の室温～極低温まで低熱膨張性を安定することが確認された。

3. 積層造形技術を活用することで複雑形状の設計が可能となり、低熱膨張製品に軽量化・制振性・高熱伝導性の機能を付与できることが確認できた。今後、さらに積層造形技術を進歩させることで、さまざまな高機能製品を生み出すことが可能であることが示唆された。

引用文献

- 1) 北本和也、長田泰一、内田秀樹、住田泰史、畠中龍太：“宇宙機への金属 Additive Manufacturing の適用・研究”、非破壊検査、**70**(4)、pp. 254-260 (2021)
- 2) 京極秀樹：“金属3D プリンターの最近の開発動向と将来展望”、ふえらむ、**24**(10)、pp. 697-703 (2019)
- 3) 荻原幸司、石本卓也、中野貴由：“金属積層造形における形状・組織制御による異方性付与”、まてりあ、**57**(3)、pp. 145-150 (2018)
- 4) 半田卓雄、来栖直敏：“精密装置用超低熱膨張铸造合金の開発”、素形材、**55**(8)、pp. 28-34 (2014)
- 5) 福田匡、中西睦夫、久保敏彦：“コンファインド型ガスアトマイズノズルにおける溶湯管周辺の圧力分布”、鉄と鋼、**82**(8)、pp. 665-670 (1996)
- 6) 友野陽、佐藤成男、ステファヌス ハルヨ：“中性子・X 線回折ラインプロファイル解析の最近の進歩”、鉄と鋼、**103**(2)、pp. 73-81 (2017)
- 7) 大山伸幸、朝比奈允暉、蓮見侑士、北本和也：“低熱膨張材料への金属積層造形技術の適用”、第64回宇宙科学技術連合講演会講演集、JSASS-2020-4105 (2020)
- 8) 増谷隆志、中野幸人、富田直、原昌司、佐藤晴輝：“選択的レーザー溶融法による粒状体ダンパを適用した多重動吸振器の製造および制振性能評価”、日本機械学会論文集、**87**(893)、p. 20-00351 (2021)
- 9) 日本铸造(株)：“低熱膨張合金部材およびその製造方法”、日本国特許第6754027号 (2020)
- 10) N. P. Calta, J. Wang, A. Kiss, P. Depond, M. J. Matthews: “An instrument for in situ time-resolved X-ray imaging and diffraction of laser powder bed fusion additive manufacturing processes”, *Review of Scientific Instruments*, **89**(5), p. 055101 (2018)
- 11) 辻伸泰：“鉄鋼材料の結晶粒超微細化”、鉄と鋼、**88**(11)、pp. 259-268 (2002)
- 12) 高木節雄：“鉄の強化機構と限界強度”、まてりあ、**36**(7)、pp. 675-682 (1997)
- 13) 八重樫光：“引張変形した実用鋼における磁気特性の転位密度依存性”、鉄と鋼、**91**(8)、pp. 655-661 (2005)
- 14) N. Oyama, K. Kitamoto, T. Handa, M. Asahina: “Fundamental characteristics of three-dimensional additive manufacturing products of zero thermal expansion metal”, *Proc. SPIE*, **11451**, p. 114511N (2020)
- 15) 勝谷洋、山形伸一、中村泉：“高熱伝導低熱膨張 W-Cu, Mo-Cu 複合材料”、SEI テクニカルレビュー、**188**、pp. 60-65 (2016)



おおやま のぶゆき
大山 伸幸
日本铸造(株)
3D プリンター活用推進チーム 部長

〒210-0857 川崎市川崎区白石町2番1号
TEL: 070-3269-9705
E-mail: n-ohyama@nipponchuzo.co.jp

はすみ ゆうじ
蓮見 侑士
日本铸造(株)
3D プリンター活用推進チーム