

# 構造用金属間化合物の恒温加工

服部 重夫\*・森田 章靖\*<sup>2</sup>

Shigeo HATTORI and Akiyasu MORITA

Isothermal Hot Working of Intermetallics for Structural Use

## 1 はじめに

金属間化合物は、従来の実用金属材料には見られない特徴的な結合様式、結晶構造を持つため、未来の機能材料、構造材料として多くの期待を集めてきた。しかし、その脆さ、変形能の乏しさのため、まずは超伝導材料や磁性材料などの機能材料として実用化が進められた。

構造材料としては、特に優れた耐熱構造材料として注目され、主に材料の延性改善を目的とした多くの研究が行われてきた<sup>1)</sup>。耐熱構造材料としては、TiAl系とNiAl系金属間化合物が最近の主な研究対象となっており<sup>2)</sup>、ジェットエンジンや発電用のガスタービン部品、自動車エンジン部品、あるいは極超音速航空機の機体等への適用を目指した研究が進められている<sup>3)</sup>。わが国では1989年より「次世代産業基盤技術研究開発制度」のもとで「超耐環境性先進材料の研究開発」がスタートし、高比強度金属間化合物としてTiAl金属間化合物が取り上げられている<sup>4)</sup>。

難加工性材料に所定の形状を付与するための製造技術については、精密鋳造法や粉末冶金法などが盛んに研究開発されているが、製品の信頼性の観点からは通常の金属材料と同様に、鋳塊一塑性加工あるいは粉末成形一塑性加工が優れていると予測される。ただし、金属間化合物のような難加工性材料に対し通常の塑性加工法を適用することは、変形能がよほど改善されない限り一般には困難であり、恒温加工が有効な手段となる。恒温加工は、従来の熱間加工では実現できない高温域での低歪速度加工を可能にし、難加工性材料の形状を付与するとともに、恒温下での塑性変形により結晶粒の微細化等組織制御を可能とする特徴を有している。

本解説では著者らも参加している「超耐環境性先進材料の研究開発」の中のTiAl金属間化合物を中心に、恒温加工

の現状と構造材料用金属間化合物への適用について概説する。

## 2 構造材料用金属間化合物の高温変形能

金属間化合物の延性の改善は、Ni<sub>3</sub>Alの多結晶材へのボロン添加に関する研究<sup>5)</sup>を手はじめに脆性の原因解明や延性化の概念が急速に進められてきた。この経緯は和泉による講演資料<sup>1)</sup>に詳述されている。本報の主題である溶解一鋳造や粉末一焼結で作られた素形材に所望の形状を付与する観点からは、高温での超塑性的挙動を利用することが有効である。この現象を詳細に検討されたのがセンダスト合金でありFig. 1に示すように、変形温度一歪速度関係図で延性領域

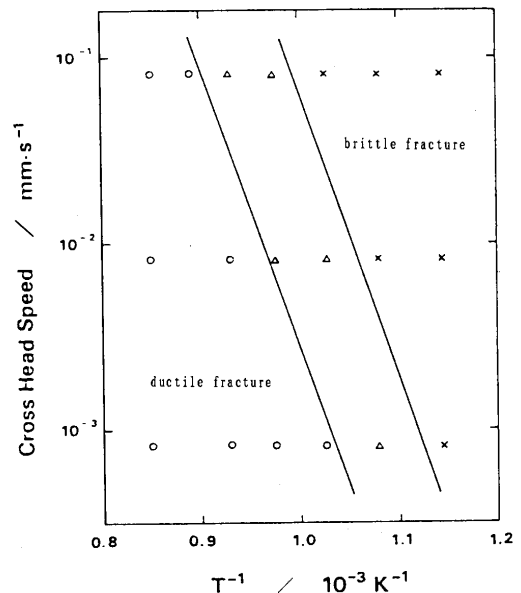


Fig.1. Deformation condition where ductile or brittle fracture takes place in bending test of Sendust<sup>6)</sup>.

平成6年11月8日受付 平成7年1月13日受理 (Received on Nov. 8, 1994; Accepted on Jan. 13, 1995) (依頼解説)

\* (株)神戸製鋼所プロセス技術研究所室長 (Process Technology Research Laboratory, Kobe Steel, Ltd., 1-5-5 Takatsukadai Nishi-ku Kobe 651-22)

\* 2 (株)神戸製鋼所プロセス技術研究所研究員 (Process Technology Research Laboratory, Kobe Steel, Ltd.)

Key words: intermetallics; TiAl; Ni<sub>3</sub>Al; isothermal forging; isothermal rolling.

が<sup>3</sup>発見された<sup>6)</sup>。この超塑性的挙動には動的回復、再結晶が主要な役割を果たしていると考えられている。

TiAlについても類似の研究が進められており<sup>7,8)</sup>、大型溶製材の圧縮試験によりFig. 2に示す変形速度-温度関係図が得られている。ここで注意すべき点は、TiAl二元系の化合物であっても、Fig. 3<sup>9)</sup>の状態図から予測されるごとく特にアルミニウムが42から52at%の範囲で、アルミニウム含有量のわずかな違いで特性が非常に複雑に変化する。Fig. 4は、アルミニウムの含有量46から51at%までの鑄造まま、および均質化熱処理後の組織を<sup>10)</sup>、また、Fig. 5は二相組織( $\alpha_2 + \gamma$ )の比率とアルミニウム含有量の関係<sup>11)</sup>を示す。この結果

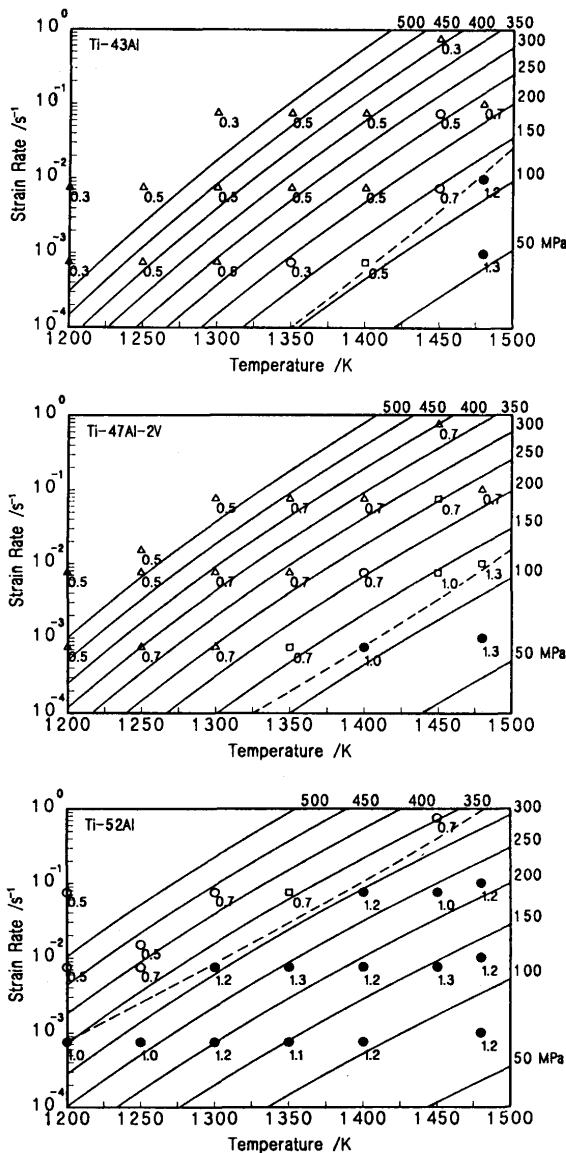


Fig.2. Flow stress and deformability maps for TiAl alloys. Solid lines represent the flow stress indicated by the numerical value (MPa) at the end of each line. The numerical values attached to the symbols denote the true strains given for the specimens. The specimens shown by ○, ● were sound at the given strain and those by □, △ had cracks. Below the dotted line, the specimens can be deformed more than 1.0 of true strain.<sup>8)</sup>

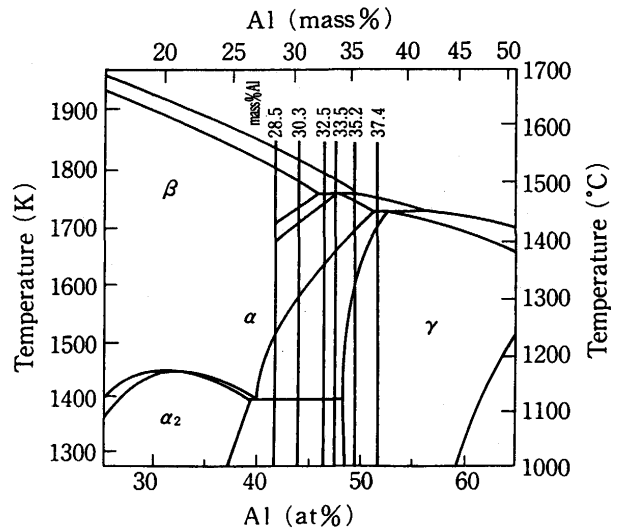


Fig.3. Ti-Al binary phase diagram<sup>9)</sup>.

より、Ti-47at%Alを境として、低アルミニウム側では $\alpha_2 + \gamma$ の二相域であるが高アルミニウム側では $\gamma$ 単相となり、Fig. 6に示す圧縮試験で求めた応力-歪線図も変形初期に見られるピーク応力に大きな差が認められる<sup>10)</sup>。そのため48at%以上のアルミニウムを含有する材料のほうが素材材の加工は容易となり望ましい。一方、鑄塊に塑性加工を加えてたとえば板材とした後、さらに成形を加えて所定の形状をうる場合、板材にも高い成形能が望まれる。一般に金属間化合物のような脆性材料の成形は通常の方法では困難で超塑性成形が必要となるが、この場合の成形能は一軸引張の変形応力に対する歪速度依存性指数 $m$ 値と高い相関を示すことが知られている。Fig. 7は、降伏応力と歪速度依存性指数 $m$ 値におよぼすアルミニウム含有量の影響を示す結果で<sup>11)</sup>、高い $m$ 値および降伏点を得るためには46at%以下が望ましいことを示す。すなわち、材料の特性としては、鑄塊に形状を付与するために必要な高温変形能と、製品として必要な高温強度および2次加工を考慮した超塑性成形能の両立が重要な課題である。

### 3 恒温加工法と金属間加工物への適用

恒温加工は、前出のFig. 1やFig. 2に示した変形速度-温度関係図を参考に、被加工材を塑性変形を与えるに十分な一定温度に維持して所定の歪速度で変形を加える加工法である。難加工材の恒温加工では一般に適正な歪速度範囲が小さいため、加工中に被加工材を一定温度に保つためには工具(鍛造の場合には金型、圧延の場合にはロール)も被加工材と等しい温度に加熱維持される。

恒温加工法の代表例は恒温鍛造で、1970年代初期にジェットエンジン部品に使用されるニッケル基超合金やチタン合金をニヤネットシェイプに鍛造する方法として米国で開発され、以後種々の実用化が進められている<sup>12)~16)</sup>。ついで、

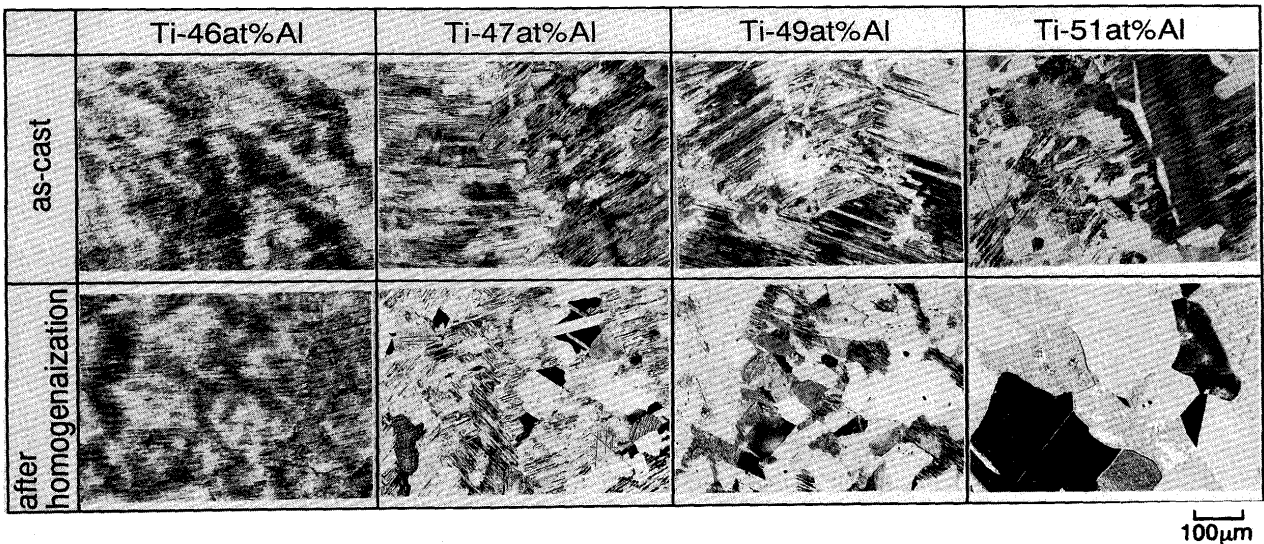


Fig.4. Microstructures of Ti-Al alloys<sup>10</sup>.

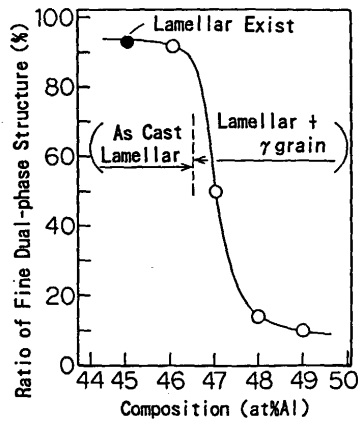


Fig.5. The ratio of fine dual-phase structures as a function of aluminum content in the thermomechanically treated Ti-Al alloys<sup>11</sup>.

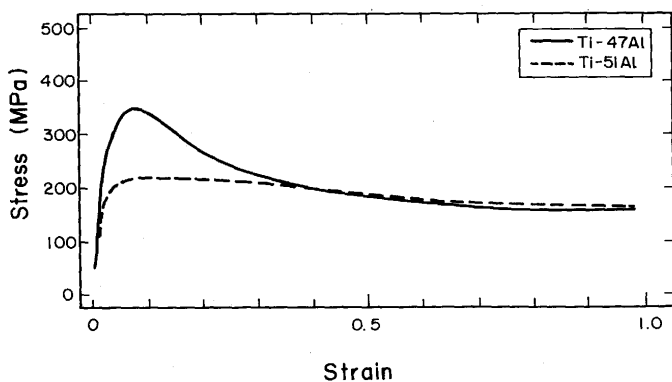


Fig.6. Typical compressive stress-strain curves for Ti-Al alloys<sup>10</sup>. ( $T=1373K$ ,  $\dot{\epsilon}=1 \times 10^{-2} s^{-1}$ )

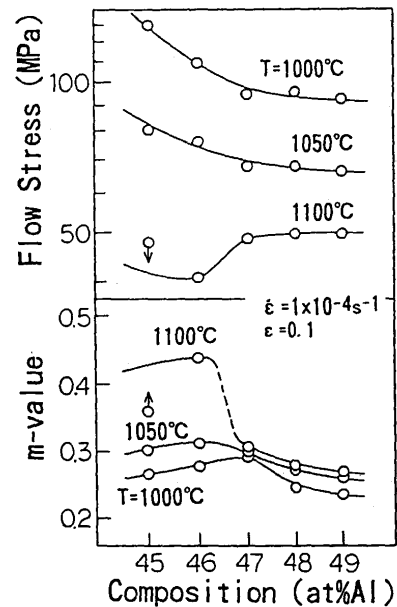


Fig.7. Dependence of yield stress and maximum m-value upon chemical composition in equiaxial grained Ti-Al alloys<sup>11</sup>.

温下で板成形を行う超塑性成形法<sup>21)</sup>が恒温加工として知られている。

### 3・1 恒温鍛造

ジェットエンジン用タービンディスクを対象としたニッケル基超合金の恒温鍛造技術はすでに開発段階は終了しているが、金属間化合物などの難加工性材料の塑性加工法として重要な位置を占めている。

恒温鍛造を行うためには、歪速度が低く、かつ、変形の進行に応じて歪速度を自由に制御できるプレス設備、および金型を被加工材と同じ温度に加熱保持できる加熱設備がまず必要となる。Fig. 8は恒温鍛造を目的として製作された加工設備の外観を、Fig. 9はその設備の概念図を示す<sup>13)</sup>。主な特徴は鍛造中にラム速度をプログラム制御により自由に

チタン合金やニッケル基合金を対象とした恒温圧延の研究も始められているが<sup>17)~19)</sup>、公表されている資料は少ない。

ほかに、恒温に近い状態で、かつ静水圧を付加した状態で押出す側圧付加押し法<sup>20)</sup>や、素形材の加工ではないが恒

調整できること、被加工材および金型の加熱はインダクションヒーターで行われ、最高1423Kまで加熱保持できることがあげられる。金型材料はモリブデン合金TZMで、窒素ガスあるいはアルゴンガス雰囲気中で加熱、鍛造が行われる。

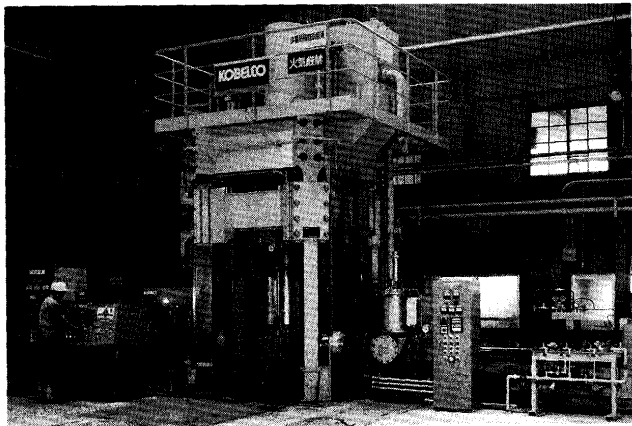
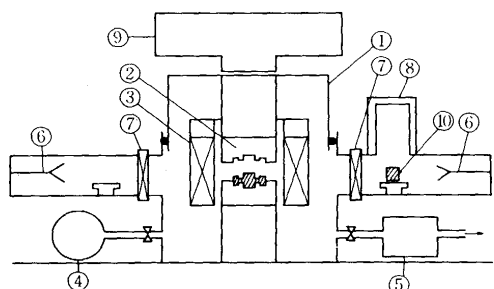
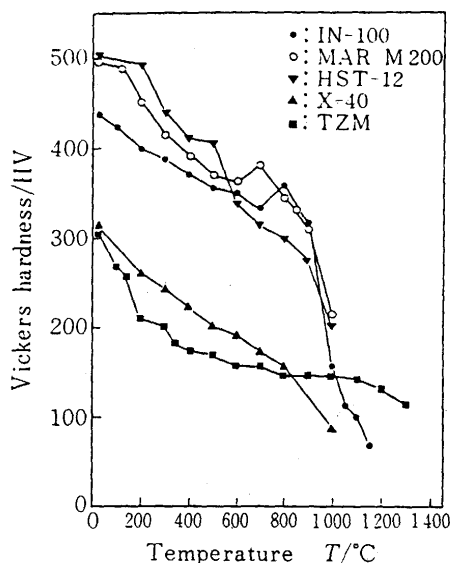


Fig.8. Superplastic forging press<sup>13)</sup>.



- ① : Chamber, ② : Dies, ③ : Die heater,
- ④ : Inert gas supply system, ⑤ : Vacuum system, ⑥ : Manipulator, ⑦ : Shut-off valve, ⑧ : Preheat furnace, ⑨ : Press ram, ⑩ : Forging billet

Fig.9. Schematic drawing of superplastic forging apparatus(see Fig.8)<sup>13)</sup>.



恒温鍛造は一般に1273K以上の温度で、かつ、高強度な材料を鍛造するため、特に金型材料と、潤滑剤の選定が重要な課題となる。Fig.10は金型用材料として考えられる金属材料およびセラミックスの高温硬さを示す<sup>12)</sup>。金属材料では1273K程度までは被加工材と同じニッケル基超合金IN100の硬度が高く、適当な金型材料が見つからない。しかし、1273Kを越えるとIN100の硬度が急激に低下するのに対し、モリブデン合金TZMの硬度はほぼ同じ値を維持するため逆転し、この温度域であればTZMが金型材料として使用可能となる。セラミックについてはすべて高い硬度を示しているが、大型あるいは複雑な形状の金型に適用するにはまだ信頼性の点で確認すべき課題が多い。

潤滑剤に関しては、恒温鍛造が恒温・低歪速度の加工であることから、被加工材と金型材料間の拡散接合が起きやすいためこの拡散接合を防止するとともに摩擦力を低減する潤滑剤の選定が重要となる。Fig.11にリング圧縮試験で求められた圧下率と内径減少率の関係を、Table 1にその時の潤滑条件を示す<sup>12)</sup>。なおFig.11中のmはここでは、摩擦せん断係数を示す。この結果によれば、ガラス系の潤滑剤が優れており、また、溶媒としては水を使用するものが有機溶剤+レジンのものより幾分低い摩擦係数を与えている。

また、恒温鍛造されたディスク内部の歪分布を把握するためFEM解析も行われており、組織均一化のための最適素材形状の検討や<sup>14)</sup>、粉末超合金複合ディスクの最適製造法の検討が行われている<sup>22)</sup>。

TiAlに関しては、前述のFig. 6 に示したごとく、特に低アルミニウム側では加工の初期に高いピーク応力が確認されており、金型材料としてTZMを使用する限り初期段階の鍛造荷重をいかに低減するかが重要な課題となる。Fig.12は前出のFig. 8 の設備を用いて、Ti-47at%Al-1at%V鍛造材から恒温鍛造により試作したボス付きディスクの外観を示

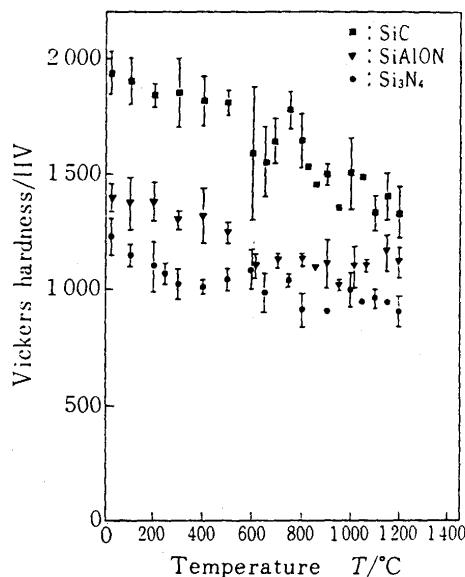


Fig.10. Vickers hardness of several die materials at elevated temperature<sup>12)</sup>.

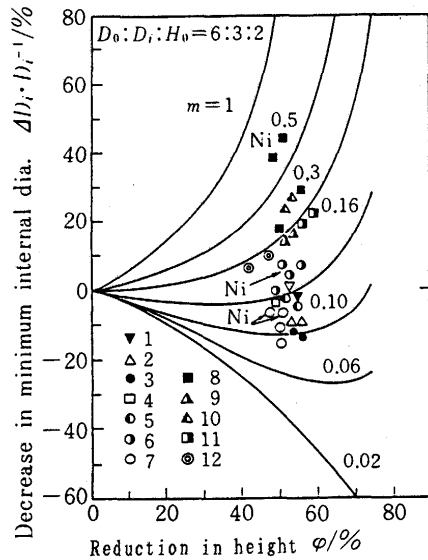


Fig.11. Friction shear factors obtained by isothermal ring compression test. Lubricant marks shown by numbers in figure corresponds to those in Table 1<sup>12)</sup>.

Table 1. Lubricants used for isothermal forging<sup>12)</sup>.

Glass		Graphite	BN
1 Deltaglaze 19 (w)	5 Deltaglaze 27 (re+xy)	8 Deltaforge 21 (w)	12 TK-12497(w)
2 Deltaglaze 69 (w)	6 Deltaglaze 349 M (re+iso)	9 Deltaforge 31 (w)	
3 TK-12759 (w)	7 Deltaglaze 29 (w)	10 Deltaforge 144 (w)	
4 Deltaglaze 347 M (iso)		11 Deltaforge 182 (w)	

The symbols in paranthesis indicate carrier and binder; w: water, iso: isopropanol, xy: xylene, and re: resin.

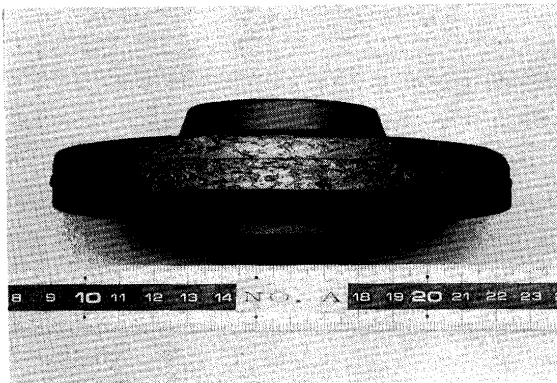


Fig.12. TiAl disk with boss forged at 1423K isothermally and at initial strain rate of  $5 \times 10^{-4}/s$ <sup>23)</sup>.

す<sup>23)</sup>。鍛造温度は同設備の上限である1423Kとし、初期段階のピーク応力を低減するため、鍛造初期の歪速度は  $5 \times 10^{-4}/s$  とした。これらの条件は金型にとってもかなり厳しい条件ではあるが、充満状態など満足できる結果を与えている。また、Ti-33.5wt%Al-2wt%MoのHIP処理したインゴットを用いて、ジェットエンジンの静翼形状を試作した例が報告されている<sup>16)</sup>。この例では温度1223K、歪速度  $5 \times 10^{-4}/s$  で行われており、温度が比較的低いため金型はIN100

で大気中で鍛造が行われている。同時に、平鍛造を行って鍛造後の機械的性質を調査し、鍛造比5までは鍛造比とともに引張強さも伸びも大幅に向上すること、また疲労強度も鑄塊-HIP材に比べて約1.7倍に向上することなどが確認されている。

Ni<sub>3</sub>Alについては、Zr, Cr, Bを添加して高温変形能を向上させた材料を用いて、1373Kで恒温鍛造しボス付きディスクを製造した例が報告されており<sup>24)</sup>、Ni基超合金の延長としてもっとも実用に近い材料と考えられている。

### 3・2 恒温圧延

難加工材の恒温圧延の試みは二、三報告されているが<sup>5)17)~19)</sup>、恒温鍛造に比べればその応用例は少ない。設備面ではロールが高温、かつ、低速で回転する必要があるため、恒温鍛造に比べてロール支持構造や加熱方法が複雑となる。報告されている例では、ロールを赤外線ヒータで輻射加熱する方法<sup>17)</sup>とロールに直接通電加熱する方法<sup>18)</sup>が試みられている。前者のロールはニッケル基超合金製スリーブと工具鋼製アーバーの2層構造とし、その間に特殊な断熱層を設けるとともにアーバーの軸芯部を水冷する構造としている。これにより、スリーブの表面温度が1000Kまで上昇してもアーバー表面温度は688Kに抑えられ、回転摺動部の軸受材料に対しても特に問題にならないとしている。一方、通電加熱方式で用いるロールはモリブデン製で、電気抵抗による発熱を利用してロールと被加工材の接触部を同時に加熱する。前者の加工例はニッケル基合金のハステロイXの例があるが、ロール温度は1073K程度までしか報告されていない。後者では型圧延によるチタン合金製の航空機部品の製作例が報告されている。

これらに対し、筆者らは「次世代産業基盤技術研究開発制度」の中で、TiAl金属間化合物の薄板圧延を狙いとして1373Kまでの温度下で恒温圧延が可能となる設備を設計・製作した<sup>25)26)</sup>。恒温圧延機の外観をFig.13に概念図をFig.14に、また、主仕様をTable 2に示す。主な特徴は、ロールを6段構造とし、ロールの支持方法は従来の圧延機のようなロール端部で支持する構造ではなくロール胴部全体を上下各1つのロールチョックで支持する構造とした。ロール胴部全体を支持することにより、ロールに作用する曲げ応力は大幅に軽減され、延性に乏しい材料もロール材料として採用することが可能となる。ロールとロールチョック間の摺動部にはグラファイト製の薄板成形体をすべり軸受けとして用いた。

広幅の薄板圧延では圧延材の平坦度の観点から幅方向(ロールの軸方向)の温度分布が重要となる。そのため加熱方法は、ロールを支持するロールチョック内部とバックアップロールの中心部にモリブデン製抵抗加熱ヒータを挿入し、間接的にワークロールを加熱する方式とした。

ワークロールを直径60mmと小径にしたことにより、ロール材料はセラミックの一種であるSIALONの適用が可能と

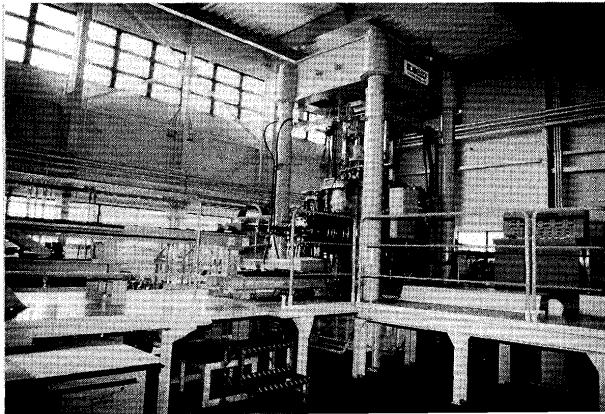


Fig.13. Isothermal rolling mill<sup>26)</sup>.

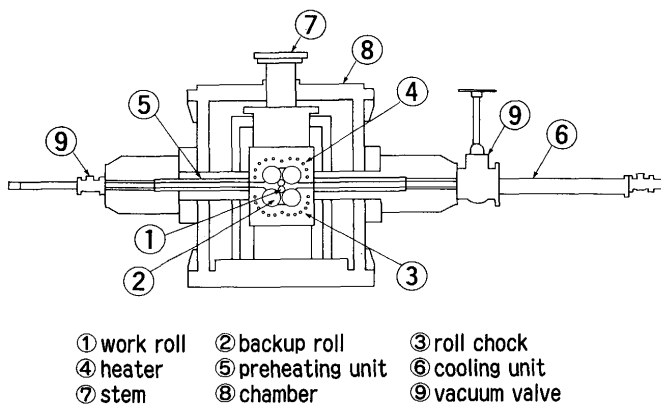


Fig.14. Schematic diagram of isothermal rolling mill<sup>26)</sup>.

Table 2. Specification of the isothermal rolling mill in Fig.13 or Fig.14<sup>26)</sup>.

Item		Specification	
Sheet	Maximum incoming thickness	(mm)	4.0
	Minimum outgoing thickness	(mm)	<1.0
	Maximum sheet width	(mm)	150
Roll	Work roll diameter	(mm)	60
	Work roll barrel length	(mm)	300
	Backup roll diameter	(mm)	150
	Backup roll barrel length	(mm)	300
Heat	Maximum temperature of roll	(K)	1373
	Maximum temperature of preheating unit	(K)	1473
Atmosphere		Ar	

なった。バックアップロールにはTZMを用いた。TiAlの圧延ではワークロールに作用する圧延圧力が高く、TZMでは表面に塑性変形を生じるため<sup>27)</sup>、現状ではセラミックロール以外適用できる材料は見あたらない。

潤滑剤は恒温鍛造ではガラス系潤滑剤が適用されるが、恒温圧延に使用すると摺動部に付着し、冷却した際にすべり軸受けを損傷する。そのためここでは取扱いが容易な水を溶媒とする黒鉛系潤滑剤を用いた。SIALONロールは幸いTZMよりも潤滑性に優れるため<sup>27)</sup>、焼き付き等の問題は

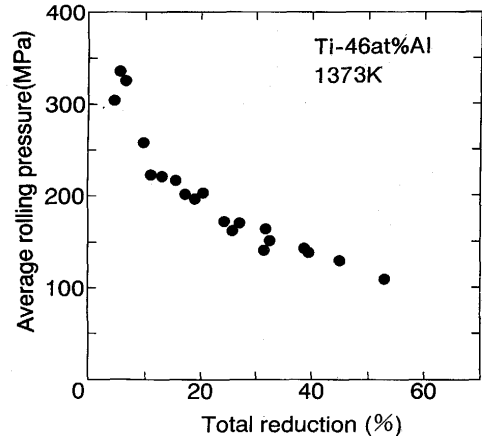


Fig.15. Relationship of average rolling pressure to total reduction for Ti-46at%Al alloy<sup>26)</sup>.

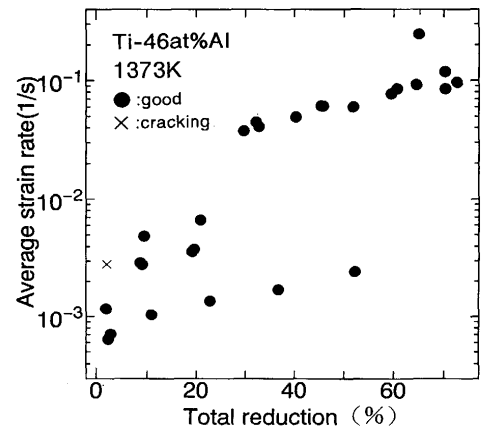


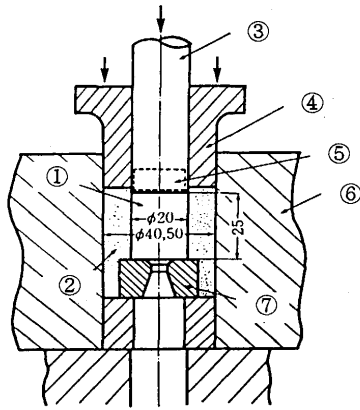
Fig.16. Formability of Ti-46at%Al alloy in isothermal rolling process<sup>26)</sup>.

生じていない。

Ti-46at%Alの鋳塊を1パス当り約10%の圧下率で多パス圧延した際の圧延圧力の推移をFig.15に示す<sup>26)28)</sup>。圧縮試験と同様全圧下率が低い段階では、高い圧延圧力を示すが、圧下率の増加に伴い大幅に減少し、全加工率50%では、圧延初期に比べて約70%も圧延圧力が減少することがわかる。Fig.16は恒温圧延を行った際の全圧下率と歪速度の関係を示すもので<sup>26)</sup>、初期の10%程度を低速で圧延すればそれ以降は速度を上昇させることが可能なことを示唆している。Ti-46at%Alは二相組織であり、 $\gamma$ 相は加工によって容易に動的再結晶する。その再結晶後の粒径は、低温、高速の加工条件ほど小さくなることが知られており<sup>28)</sup>、圧下率の増加に伴って圧延速度を上昇させることは結晶粒の微細化に非常に有効である<sup>26)</sup>。

### 3.3 その他の加工法

押出しは難加工性の棒材などを製造する有効な手段であるが、一般には押出し速度を大きくしないとコンテナとの接触による温度低下などにより恒温状態が維持しにくい。Fig.17は、側圧を付加してピレットに静水圧を加えらるととも



①billet,②intermediate material,③inner stem  
④outer stem,⑤dummy block,⑥container⑦die

Fig.17. Extrusion method with lateral additional pressure. Outer and inner stems can be pressed independently<sup>20)</sup>.

に中間材として断熱性のあるパイロセラミットを用いることでビレットの温度低下を防ぐ押し出し法の概念図を示す<sup>20)</sup>。この方法でセンダスト合金などの難加工性材料の加工が試みられた。

Ni<sub>3</sub>Alについては、加工法よりもむしろ材料の変形能を改善して熱間加工性および冷間加工性を向上し、管の押し出しも可能にした例が報告されている<sup>29)</sup>。

これまでは鋳塊あるいは粉末成形でえられた素材を所定の形状に加工する恒温加工について述べてきたが、このような方法でえられた薄板を恒温状態でさらに成形する超塑性成形も恒温加工の一種であり、TiAl, Ni<sub>3</sub>Al, Ti<sub>3</sub>Alを対象に成形の基礎となる超塑性挙動に関する研究が行われている<sup>11)30)31)</sup>。超塑性成形能を有する薄板が実用化されれば、超塑性成形された金属間化合物薄板の構造物も実現することになる。

## 4 おわりに

TiAl金属間化合物を中心に恒温加工について概説してきたが、まだまだ研究途上にあり、かつ筆者の勉強不足もあって十分な資料がなく、偏った解説になったことをご容赦いただきたい。恒温加工は脆い金属間化合物に所定の形状を付与する有効な塑性加工法であり、また、加工と同時に組織制御も行いうる魅力的な製造法である。ただし、現状では設備面や加工時間など製造コストが高くなるのが最大

の問題である。これを克服するためには加工技術者と材料技術者の連携が必須であり、より協力を強めて魅力ある金属間化合物を実用材料として世に出していきたいものである。

## 文 献

- 1) 和泉 修：日本金属学会会報, 28 (1989), p.371
- 2) 五十嵐正晃：鉄と鋼, 80 (1984), p.N542
- 3) 日野春樹, 宮下卓也, 南方俊一：軽金属, 43 (1993), p.545
- 4) Y.Nakazawa：第4回超耐環境性先進材料シンポジウム講演集, (1993), p.165
- 5) 青木 清, 和泉 修：日本金属学会誌, 43 (1979), p.1190
- 6) 花田修治, 渡辺貞夫, 佐藤 敬, 和泉 修：日本金属学会誌, 45 (1981), p.1293
- 7) 信木 稔, 橋本健紀, 辻本得蔵：日本金属学会会報, 30 (1991), p.49
- 8) 信木 稔, 高橋順次, 辻本得蔵：日本金属学会誌, 53 (1989), p.809
- 9) C.McCullough, J.J.Valencia, C.G.Levi and R.Mehrabian：Acta Metall., 37 (1989), p.1321
- 10) N.Fujitsuna, H.Ohyama, Y.Ashida：Proceeding of International Symposium on Intermetallic Compounds, JIMIS-6, (1991), p.997
- 11) H.Sato and T.Tuzuku：第4回超耐環境性先進材料シンポジウム講演集, (1993), p.224
- 12) 大内清行, 中沢克紀, 松野建一：塑性と加工, 31 (1990), p.73
- 13) 松下富春, 村井秀夫, 長谷川淳, 山口善弘, 西岡邦彦：塑性と加工, 27 (1986), p.429
- 14) 津田 統, 金丸信夫, 松下富春, 古田誠矢, 滝川 博：塑性と加工, 32 (1991), p.1154
- 15) A.Morita, S.Hattori, K.Tani, A.Takemura and Y.Ashida：ISIJ Int., 31 (1991), p.827
- 16) 前田尚志：金属, 10 (1992), p.54
- 17) H.L.Black and R.O.Kaufman：SME Tech. Pap.MF75-433 for meet, (1975)
- 18) W.T.Highberger, G.R.Chanani and G.V.Scarich：12th National SAMPE Tech. Conf., (1980), p.539
- 19) 堀端眞彦：機械の研究, 42 (1990), p.17
- 20) 太田口稔, 信木 稔, 海江田義也, 小口 醇：塑性と加工, 23 (1982), p.892
- 21) たとえば, 西野良夫, 木村敏郎：塑性と加工, 27 (1986), p.339
- 22) 金丸信夫, 津田 統, 松下富春, 古田誠矢, 岩井健治：塑性と加工, 32 (1991), p.1160
- 23) 服部重夫, 森田章靖：私信
- 24) C.T.Liu and V.K.Sikka：J.Metals, 38-5 (1986), p.19
- 25) A.Morita, N.Fujituna and S.Hattori：第4回超耐環境性先進材料シンポジウム講演集, (1993), p.215
- 26) 服部重夫, 森田章靖, 藤綱宣之, 宮本淳之, 芦田喜郎：軽金属, 44 (1994), p.652
- 27) A.Morita and S.Hattori：Proceeding of the 4th ICTP, (1993), p.776
- 28) N.Fujitsuna, Y.Miyamoto and Y.Ashida：Proceeding of international symposium on structural intermetallics, (1993), p.187, [TMS]
- 29) V.K.Sikka：Mat.Res.Symp.Proc., 133 (1989), p.487
- 30) N.Masahashi, Y.Mizuhara, M.Matsuo, T.Hanamura, M.Kimura and K.Hashimoto：ISIJ international, 31 (1991), p.728
- 31) H.S.Yang：Materials Science and Engineering, A153 (1992), p.457