

加工熱処理により組織制御された $\gamma + \alpha_2$ 型Ti-Al系金属間化合物の高温特性

細見 政功*・前田 尚志*

High Temperature Properties of Thermo-mechanically Treated $\gamma + \alpha_2$ Type Titanium Aluminides
Masanori HOSOMI and Takashi MAEDA

Synopsis : The effects of microstructure morphology and the rolls of α_2 (Ti₃Al) secondary phase on high temperature tensile property and creep rupture strength was investigated in structure controlled titanium aluminides. Three types of microstructure such as equi-axed, duplex and nearly lamellar were obtained by thermo-mechanical treatments performed in the $\alpha + \gamma$ phase field. As the volume fraction of α_2 phase increased from Ti-50.8at%Al to Ti-48.5at%Al, with decreasing Al content tensile strength at high temperature was improved by the strength of the α_2 phase itself and the stabilized lamellar structure which severely obstructed deformation. On the other hand, specimens with the stabilized lamellar structure in Ti-48.5at%Al showed little tensile elongation as little as 5% even at 1173K. The stabilized lamellar structure by α_2 phase also interferes with recrystallization during deformation, leading to a significant increase in creep rupture strength.

Key words : intermetallic compounds ; titanium aluminides ; TiAl ; Ti₃Al ; thermo-mechanical treatment ; microstructure control ; high temperature tensile properties ; creep rupture strength.

1. 緒言

γ (TiAl) + α_2 (Ti₃Al)型Ti-Al系金属間化合物は、常温延性に乏しい欠点を有するものの、比重が約3.9g/cm³と小さく、1073Kに至るまで強度低下が小さいことから、比強度に優れた新しい耐熱材料として注目されている。これまでに、急凝固法で作製したAl量の異なる試料について引張強度の温度依存性を調べた結果¹⁾をはじめとして、その他、種々の合金元素を添加したTiAl基合金について、高温強度が調べられている^{2,3)}。各組織形態を有する試料の高温引張強度をまとめた結果もある⁴⁾。ラメラ組織を有する場合、高温強度は優れるが、結晶粒が粗大であるため常温延性はほとんど得られない。逆に等軸粒組織あるいはduplex組織を有する場合、結晶粒が微細であれば常温延性は得られるが、高温強度がラメラ組織に比べて低いことが報告されている。また、 γ 単相材のクリープ変形を詳しく調べた報告⁵⁾もある。ところが⁶⁾、Ti-Al系において、 α_2 相の体積率および形態が高温強度に及ぼす影響については十分理解されているとはいえない。本研究の目的は、 $\gamma + \alpha_2$ 型Ti-Al系金属間化合物において加工熱処理により制御した組織と高温特性との関係をAl量の異なる合金について求め、 α_2 相の影響について検討を加えることである。

2. 実験方法

2・1 試料の作製

消耗電極式真空アーク2重(VAR)溶解により、直径140mm、長さ約220mmの鑄塊を溶製した。化学分析の結果、鑄塊の組成はTi-48.5at%Al(Ti-34.7wt%Al)、Ti-49.9at%Al(Ti-35.9wt%Al)およびTi-50.8at%Al(Ti-36.8wt%Al)、酸素濃度はそれぞれ580、560および510ppmであった。鑄塊より50×50×50mmのブロックを切り出し、1673K、152MPa、アルゴン雰囲気中で14.4ksのHIP処理を施した。その後、加工温度1523K、圧下率80%の圧縮加工を加えた。歪速度は1×10⁻¹/sで、加工後の冷却は空冷とした。加工後の試料に組織調整のため、Ti-48.5at%Alには1543K、1613K、1633Kで、Ti-49.9at%Alには1633K、1663K、1673Kで、Ti-50.8at%Alには1663K、1693Kで7.2ksの熱処理を施し、空冷した。各試料の熱処理温度とTi-Al系状態図との関係をFig. 1に示す。

2・2 試料のマイクロ組織

Ti-48.5at%Alにおいて、前述の加工熱処理条件により、Fig. 2に示す等軸粒組織(EQ)、duplex組織(DP)、nearly-ラメラ組織(NL)の3種類の組織を得た⁶⁾。Ti-49.9at%Al材についても同じくFig. 2に示すEQ、DP、NLの3種類の組

織に調整した。Ti-50.8at%Al材については、大気中でNL材が得られる温度(1713K)の熱処理を施すと、試料の成分変化が生じるので、本実験ではFig. 3に示すEQ, DPの2種類の組織について試験を行った。Ti-48.5at%Al材およびTi-49.9at%Al材に含まれる α_2 相の体積率はそれぞれ15-20%、約5%であり⁶⁾、Ti-50.8at%Al材には α_2 相は含まれない。また、Ti-49.9at%AlよりもAl-rich側では α 域で保持されても冷却中に γ 相が析出し、完全ラメラ組織は得られないので、本研究では、Ti-48.5at%Al材についても完全ラメラ組織を有する試料を試験に供していない。

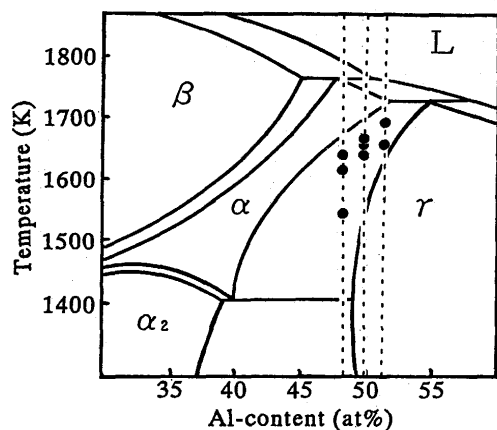


Fig. 1. Al-content of the ingots and the heat treatment temperatures projected on the Ti-Al binary phase diagram.

試料に含まれるAl量が多いTi-49.9at%AlやTi-50.8at%Alの場合、熱処理後冷却中に α_2/γ 各相の体積率を調整するために γ 粒が粒成長するので⁶⁾、DP組織については、Ti-48.5at%Alでは γ 等軸粒とラメラ粒の体積率が等しくなるのに対して、Ti-49.9at%Al材の場合、 γ 等軸粒の体積率がラメラ粒より多くなり、Ti-50.8at%Al材の場合、ほとんど γ 等軸粒のみで構成される。

2・3 評価試験

高温特性評価試験として、引張試験およびクリープ破断試験を行った。

引張試験はインストロン型試験機を用いて、873, 973, 1073, 1173Kの4温度において、大気中で、歪速度 $8.3 \times 10^{-5}/s$ の条件で実施した。試験には、直径4mm, 平行部長さ20mmのネジ式丸棒試験片を用いた。

クリープ破断試験は温度973Kで荷重294MPa, 温度1073Kで荷重98MPa, 147MPa, および温度1173Kで荷重49MPaの条件で、大気中で行った。試験には直径4mm, 平行部長さ20mmのネジ式丸棒試験片を用いた。なお、試験片の個数により、各試料について全条件の試験は実施できておらず、重要と考えられる条件から優先的に試験を行った。

変形による組織変化を観察するため、引張試験およびクリープ破断試験後の試験片横断面の組織を光学顕微鏡により観察した。また、引張試験後の破面をSEMにより観察した。

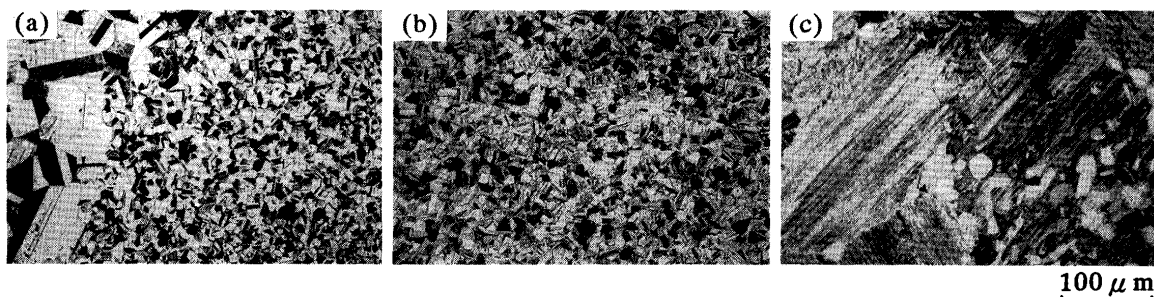


Fig. 2. Optical micrographs of thermo-mechanically treated specimens in Ti-48.5at%Al. (a) equi-axed structure, (b) duplex structure and (c) nearly lamellar structure

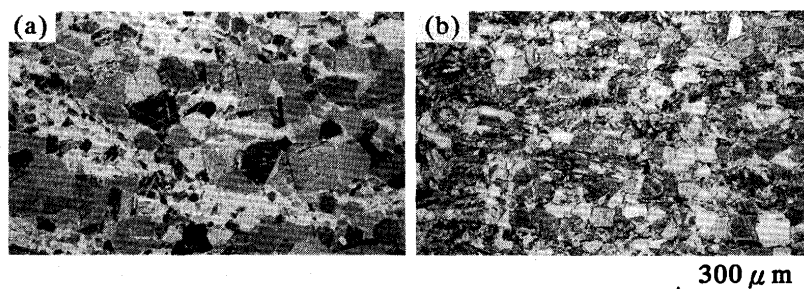


Fig. 3. Optical micrographs of thermo-mechanically treated specimens in Ti-50.8at%Al. (a) equi-axed structure and (b) duplex structure

3. 実験結果

3.1 ミクロ組織およびAl量による高温引張性質の変化

3.1.1 引張強度

873Kから1173Kの温度範囲での引張試験により得られた各試料の0.2%耐力の値をFig. 4に示す。Fig. 4より973Kおよび1073KにおいてはAl量の少ない試料の0.2%耐力が高い。しかし、1173KになるとTi-48.5at%AINL材を除いて、全体に0.2%耐力は大きく低下し、Al含有量の影響は消滅する。また、組織による強度の差も認められなくなる。Ti-48.5at%AINL材のみは、Al含有量減少による強度上昇以外に組織形態による強化メカニズムが働いていると考えられる。ところが、同じ組織形態を有するTi-49.9at%AINL材の0.2%耐力はTi-48.5at%AINL材のように高くはない。

Ti-48.5at%AlおよびTi-49.9at%AlのNL材の1073Kでの引張試験後の横断面組織をFig. 5に示す。Ti-48.5at%AINL材のラメラ組織は変形後も安定に存在しているの

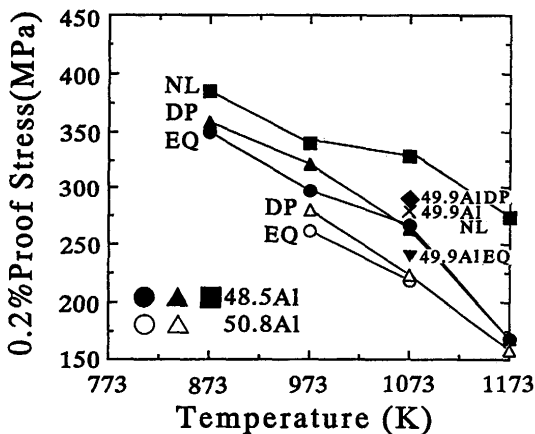


Fig. 4. Temperature dependence of 0.2% proof stress in tensile test on Al-content and microstructure in thermo-mechanically treated specimens.

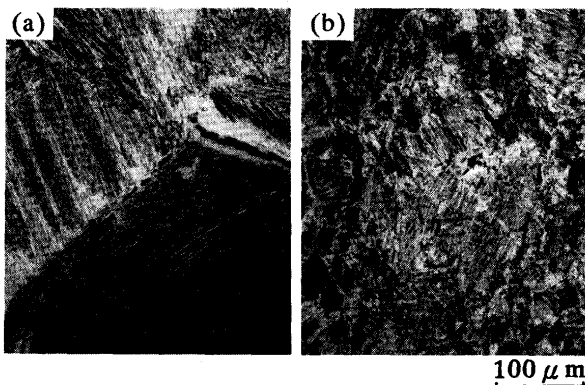


Fig. 5. Optical micrographs of specimens in cross section after tensile test at 1073K.
(a) Ti-48.5at%Al, nearly-lamellar structure
(b) Ti-49.9at%Al, nearly-lamellar structure

し、Ti-49.9at%AINL材では変形中に動的再結晶により、ラメラ組織の崩壊が進行している。このことから高温強度はラメラ組織の安定性に依存しており、Al含有量の少ない試料のラメラ組織が安定となり、高温強度が高くなる。

3.1.2 引張伸び

873Kから1173Kの温度範囲での引張伸びの値をFig. 6に示す。873Kおよび973Kではいずれの試料もほとんど伸びを示さないのに対して、1073Kでは、Ti-48.5at%AINL材を除いて20%以上の伸びを示し、1173Kになると、100%以上の高い伸びを示す。

Ti-48.5at%AIDP材を873K、973Kおよび1073Kで引張試験した後に得られた破面をFig. 7に示す。873Kおよび973Kでの引張試験後の破面は脆性破面を示し、1073Kで試験をした後の破面はディンプルを有する延性破面を呈している。したがって、1073K以上では γ 相および α_2 相の両相の変形が容易となる。Ti-48.5at%AINL材を除く他の試料についても上記と同様の結果が認められた。また、横断面の組織を観察し、試験温度が1173Kで高い伸びが得られた試験材においては動的再結晶が進行していることが確認された。

優れた高温強度を保っていたTi-48.5at%AINL材は、

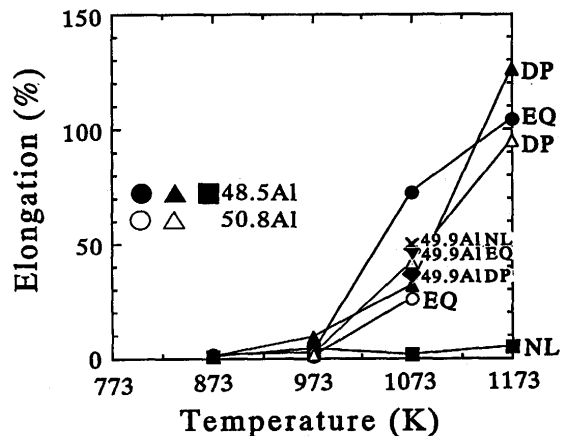


Fig. 6. Temperature dependence of tensile elongation on Al-content and microstructure in thermo-mechanically treated specimens.

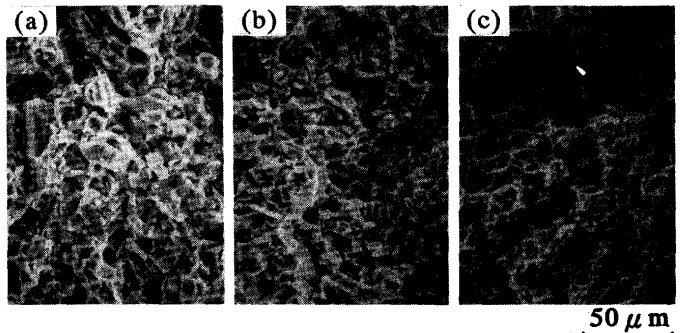


Fig. 7. Fracture surface of Ti-48.5at%Al with duplex structure after tensile test at (a) 873K, (b) 973K and (c) 1073K.

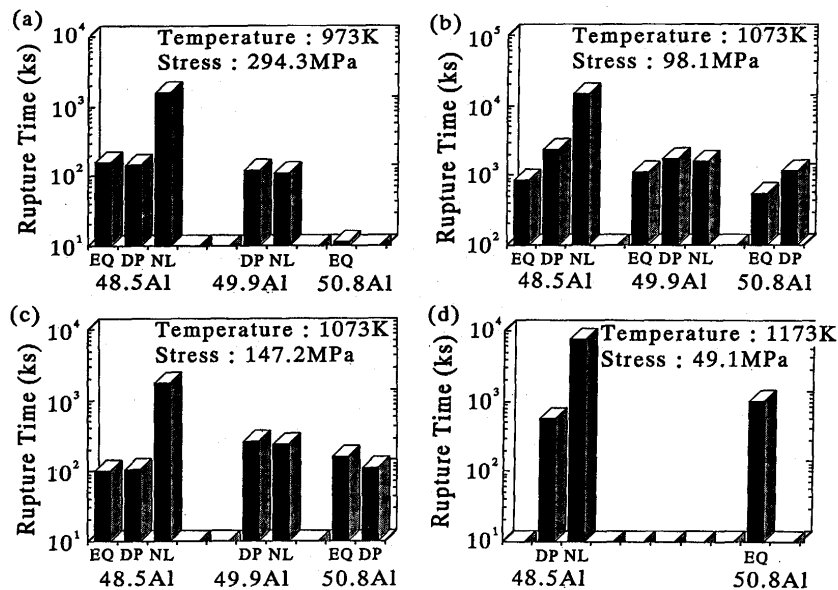


Fig. 8. Rupture time of specimens on creep rupture test at (a) 973K, 294MPa, (b) 1073K, 98MPa, (c) 1073K, 147MPa and (d) 1173K, 49MPa.

Fig. 6 より、1173Kにおいても5%程度の伸びしか示さない。Ti-48.5at%AlNL材を1173Kで試験した後の横断面組織の観察を行ったところ、Fig. 5 に示した結果と同様にラメラ組織が崩壊して新たに再結晶が進行した形跡は認められなかった。したがって、1073Kあるいは1173Kでは γ 相および α_2 相は本質的には容易に変形できる温度域にあるが、安定なラメラ構造を有しているため試験中に動的再結晶が促進されず、伸びが得られない。一方、Ti-49.9at%AlNL材はFig. 5 に示したとおり、ラメラ構造は安定ではなく、変形中に容易に動的再結晶がおこるため、他の組織の場合と同様に高い伸びが得られる。

3・2 ミクロ組織およびAl量によるクリープ破断強度の変化

各条件でクリープ破断試験をした結果、得られた破断時間をFig. 8 に示す。1073Kにおいて、荷重が98MPaから147MPaに増加すると、クリープ破断時間は著しく減少する。材料の持つ高温強度が大きく変化する温度領域である。いずれの試験条件においてもTi-48.5at%Al材ではラメラ組織を多く含むNL材の破断時間が特に長い。これもラメラ組織が安定であるためと考えられる。しかし、EQ材およびDP材のクリープ破断強度は引張強度の場合とは異なり、Al含有量の影響は認められない。

Ti-49.9at%AlNL材は引張強度と同様に、NL組織であるにもかかわらず、EQ材やDP材と同程度のクリープ破断強度を示す。Fig. 9 にTi-48.5at%AlNL材およびTi-49.9at%AlNL材の1073K、147.2MPaでのクリープ破断試験後の試験片平行部の横断面組織を示す。Ti-48.5at%AlNL材の破断時間(1797.5ks)はTi-49.9at%AlNL材の破断時間(234.7ks)の約7.5倍であるにもかかわらず、ラメラ組織が

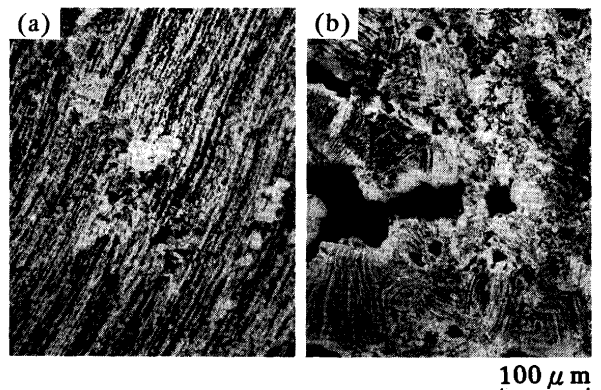


Fig. 9. Optical micrographs of specimens in cross section after creep rupture test at 1073K, loaded with 147.2MPa. (a) Ti-48.5at%Al, nearly-lamellar structure (b) Ti-49.9at%Al, nearly-lamellar structure

認められる。しかし、ラメラ内部では再結晶が進行し、一部では動的再結晶によりラメラ組織が破壊されている。一方、Ti-49.9at%AlNL材においては最初に存在したラメラ組織はほぼ完全に破壊され、微細な動的再結晶粒および多数のボイドが形成されている。この組織変化により変形がさらに加速され、破断時間の短縮につながったと考えられる。

クリープ破断伸びについて、1073Kおよび1173Kにおいては引張試験の場合と同様に、Ti-48.5at%AlNL材を除いて、高い破断伸びが得られたが、引張試験時にはほとんど伸びが得られなかった973KにおいてもTi-49.9at%AlDP材およびTi-48.5at%AlEQ材は50%以上の伸びを示した。クリープ破断後の試験片平行部の横断面組織を観察したところ、クリープ試験後にはいずれも動的再結晶粒の形成が進行し

ていた。これは、組織変化が認められなかった引張試験の場合と異なっている。しかし、破壊形態は、高い伸びが得られたにもかかわらず、引張試験結果と同様に依然として脆性的であった。

以上の結果より、クリープ試験中の動的再結晶は破断伸びの向上には寄与するものの、クリープ変形の加速、破断時間の短縮など、クリープ強度の低下につながっていることがわかる。

4. 考察

4・1 高温強度における α_2 相の役割

本実験結果ではAl含有量の減少に伴い、引張強度およびクリープ破断強度が向上することを示した。Al含有量と α_2 相の体積率は対応しており、前述の強度変化およびラメラ組織の安定性は第2相である α_2 相の体積率の変化と密接に関係している。

α_2 相の強度に関してはSastryとLipsitt⁷⁾により、Ti-25at%Al多結晶材において室温から973Kまでは強度が上昇する強度の逆温度依存性を示し、それ以上の温度では強度が著しく低下することが報告されている。その結果によると、Ti-25at%Alの1073Kにおける破断強度は約430MPaであり、本研究により得られた γ 単相材(Ti-50.8at%Al)の破断強度275MPaよりも高い。 γ 相と平衡する α_2 相(Ti-36.5at%Al)の多結晶体についての報告がないため、Ti-25at%Al材と比較したが、最近のTi-25at%AlおよびTi-36.5at%Alの単結晶体での研究結果^{8,9)}から、Ti-36.5at%Al材の方がいずれの結晶方位においても強度が高いことが明らかにされており、多結晶体でも同じ傾向を示すと考えると、 α_2 相が強化に寄与していることが容易に推測される。また、 α_2 相は973K以上では著しい強度低下を示すため、1173Kでは α_2 相による強度の差がなくなった(Fig. 4)と考えられる。

これまでの研究⁴⁾では、ラメラ組織が形成されていれば、高温強度に優れた特性が得られると報告されてきたが、本研究により、ラメラ組織を有していてもラメラ組織の安定性が確保されていなければ十分な高温強度が得られないことが判明した。また、本実験結果から高温強度、特にクリープ破断強度に大きな効果をもたらすラメラ組織の安定性

は α_2 相の体積率に依存していることが推測される。

その理由として、以下のメカニズムが考えられる。試料が外部からの力により変形を受けると、1173K以下では変形抵抗の低い γ 相が優先的に変形を担う。ラメラ組織を有する場合、変形の方向がラメラ界面と平行でないときには層状 α_2 相を横切って隣り合う γ 相に変形が伝播することが必要となる。第2相である α_2 相の体積率が増加すると、ラメラ組織を構成する層状 α_2 相の厚みが増し、 α_2 相を隔てて隣り合う γ 相への変形の伝播がより困難になり、変形によるラメラ組織の崩壊が抑制される。同時に高い強度が得られる。

さらに、 α_2 量が変化すると、ラメラ組織の安定性だけでなく、ラメラ粒界の形態も変化する¹⁰⁾。本実験結果から、NL組織の場合、Ti-48.5at%Al材は熱処理後の冷却中の等軸 γ 粒成長が他の試料に比べて小さいため⁶⁾、ラメラ粒界の凹凸が大きい。このような粒界の形態もクリープ強度に影響を及ぼしていると考えられる。

以上より、 α_2 相は α_2 相自身の強度と組織形成の両方の面から高温強度に影響を及ぼしていることが推測された。

4・2 ラメラ組織の変形と高温強度および延性への影響

安定なラメラ組織が形成されている場合には、組織を構成する γ 相や α_2 相が容易に変形し得る1073Kや1173Kにおいても引張試験時に5%程度の伸びしか得られなかった理由を解明するため、Ti-48.5at%AlNL材を1173Kで引張試験した後の破面を観察した。その破面をFig.10に示す。破面単位とその凹凸は非常に大きく、以前に報告した常温での引張試験により得られた破面¹¹⁾と同様にラメラ粒の部分では、ラメラ界面に沿った方向および横切る方向で破壊が進行している。各方向の破面を拡大した写真をFig.10(b), (c)に示す。ラメラ界面に沿った破面、すなわちラメラ界面が剥離した部分は、ディンプルが形成されており、延性的に破壊が進行していることを示しているが、ラメラ界面を横切る破面は脆性的である。ラメラ構造は異方性が強く、変形し得る方向が限られており、また、多結晶体であるため他の方向を向いた別の結晶粒からの拘束も受ける。このような3次元的な拘束のもとで組織が安定であるため、変形できずに破断応力に至ると考えられる。このような変形の拘束が原因となり、安定なラメラ組織が優勢に存在する組織においては伸びが得られないことになる。一方、 α_2 相の厚み

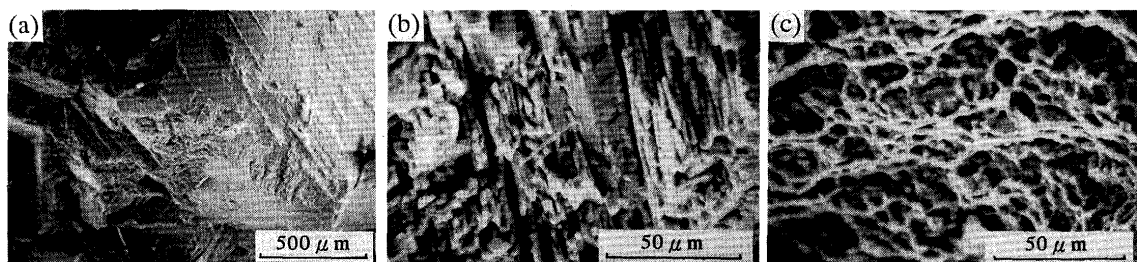


Fig. 10. Fracture surface (a) of Ti-48.5at%Al with nearly lamellar structure after tensile test at 1173K, and magnifying the fracture surface across lamellar boundaries (b) and along lamellar boundaries (c).

が薄い、不安定なラメラ組織の場合は動的再結晶を伴った変形が進行し、ラメラ構造が崩壊する。

5. 結論

加工熱処理により等軸粒組織, duplex組織, nearly-ラメラ組織の3種類に組織制御されたAl量の異なる $\gamma + \alpha_2$ 型Ti-Al系金属間化合物に対して, 高温引張強度およびクリープ破断強度を求め, 組織形態および α_2 相の高温強度に対する役割を調べた結果, 以下のことが判明した。

(1) ラメラ組織を含む場合, Ti-48.5at%AlからTi-50.8at%Alの範囲でAl量が減少すると, α_2 相の体積比率が増加し, α_2 相自身の強度と α_2 相がもたらすラメラ組織の安定化による変形の拘束のため, 高温引張強度が向上する。また, Ti-48.5at%Alでラメラ組織が安定化されると, γ 相および α_2 相が容易に変形できる1173Kにおいても5%程度の引張伸びしか得られない。

(2) α_2 相はラメラ組織を安定化し, 高温変形中の動的再

結晶を抑制することにより, クリープ破断強度を著しく向上させる。

文 献

- 1) S-C.Huang and P. S. Siemers: Metall. Trans. A, **20A** (1989), 1899.
- 2) M.Yamaguchi and Y.Umakoshi: Progress in Materials Science, **34** (1990), 1.
- 3) S-C.Huang and D.S.Shih: Microstructure/Property Relationships in Titanium Aluminides and Alloys, ed. by Y-W.Kim and R.R.Boyer, TMS, (1991), 105.
- 4) Y-W.Kim: J.O.M., (1991)8, 40.
- 5) H.Oikawa: Mater. Sci. and Eng., **A153** (1992), 427.
- 6) 細見政功, 前田尚志, 岡田 稔: 鉄と鋼, **80** (1994), 83.
- 7) S.M.L.Sastry and H.A.Lipsitt: Metall. Trans. A, **8** (1977), 299.
- 8) 岸田恭輔, 小林 修, 乾 晴行, 山口正治: 日本金属学会秋期大会講演概要, (1994), 302.
- 9) H.Inui, Y.Toda and M.Yamaguchi: Phil. Mag. A, **67** (1993), 1315.
- 10) S.Mitao, S.Tsuyama and K.Minakawa: Microstructure/Property Relationships in Titanium Aluminides and Alloys, ed. by Y-W.Kim and R.R.Boyer, TMS, (1991), 297.
- 11) 細見政功, 前田尚志, 岡田 稔: 鉄と鋼, **80** (1994), 424.