

TiAl 系金属間化合物板材の超塑性成形に関する研究

Superplastic Forming of TiAl Sheet Material

名古屋航空宇宙システム製作所 都 筑 隆 之*¹ 佐 藤 広 明*¹
山 田 毅*¹

次世代の軽量・耐熱材料として期待される TiAl 系金属間化合物は宇宙往還機やスペースプレーン等の耐熱性を要する航空宇宙機器用の構造材料として有望であるが、本材料の適用範囲は鋳造、鍛造等によるブロック状部品に限られている。本研究では TiAl の適用範囲を薄板材にまで拡大することを目的に、超塑性成形可能な板材とその超塑性成形技術を開発し、本材料の板材としての利用に道を開いた。材料組成と製造プロセスの最適化により開発された Ti-46Al-3Cr 板材はチタン合金にも匹敵する優れた超塑性特性を有し、ひずみ量 200% までの成形ではキャビティ生成もないことが確認された。また超塑性成形品の強度特性バランスを改善するための新たな組織と熱処理プロセスも明らかとなった。

The superplastic properties of binary and ternary TiAl alloys have been investigated with thermomechanically grain refined materials in order to develop superplastic TiAl sheet, which makes it possible to use TiAl in sheet form for high temperature structures in aerospace components. Ti-46Al-3Cr superplastic sheet was developed through extensive studies on the influences of chemical composition, alloying element and process parameters on microstructure and its plastic flow properties. Successful superplastic forming tests of hemispherical models demonstrated that Ti-46Al-3Cr sheet had adequate superplastic formability and cavitation resistance comparable to superplastic Ti alloy sheets. In addition, partial lamellar microstructures were shown to be obtained by two-step heat treatment and these displayed a favorable balance of high temperature strength and room-temperature ductility.

1. ま え が き

TiAl 系金属化合物は、次世代の軽量・耐熱材料として期待され、材料特性改善のための材料・プロセス開発が国内外で活発に行われている⁽¹⁾。またこの TiAl 系材料は代表的な難加工材であることから、鋳造、鍛造等の加工プロセス開発も精力的に行われており、タービンブレード、エンジンバルブ等への適用を目指した部品試作も既に実施されている⁽²⁾。しかし、これらのプロセス開発はいずれもブロック状部品が対象であり、本材料をスペースプレーン、航空エンジン等の耐熱薄板構造に適用するためには、TiAl 薄板素材とその成形技術の開発が必要である⁽³⁾。筆者らは TiAl の板金成形には、超塑性成形法の適用が不可欠と考え、(株)神戸製鋼所と共同で通産省の産業科学技術研究開発にて TiAl 超塑性薄板材及びその超塑性成形技術の開発に取組み、世界に先駆けて TiAl 板材の超塑性成形に成功して、TiAl 系材料を板材として利用することの可能性を示した。本報では TiAl 系金属間化合物を超塑性化するための材料組成、超塑性板材を製造するための加工熱処理プロセス、及び超塑性成形材の高温強度改善のための熱処理条件に関するこれまでの研究成果を総括する。

2. 超塑性 TiAl の適正材料組成

2.1 組織及び変形特性の Al 濃度依存性

TiAl に超塑性特性を付与するための基本は微細で安定な等軸粒組織とすることである。そこで始めに α_2 (Ti₃Al) + γ (TiAl) 二相組織となる Ti-45~49 at % Al (以後材料組成はすべて at %) 二元合金を対象に、加工熱処理による組織の微細粒化挙動と微細粒組織の安定性について検討した。

熱間押し出し (1200°C, 押し出し比 4) と再結晶熱処理 (1100 ~ 1250°C × 1~6 h) によって微細等軸粒化した TiAl のマイクロ組織の例を図 1 に示す。加工熱処理後の組織は粒径 5~6 μ m の α_2 粒

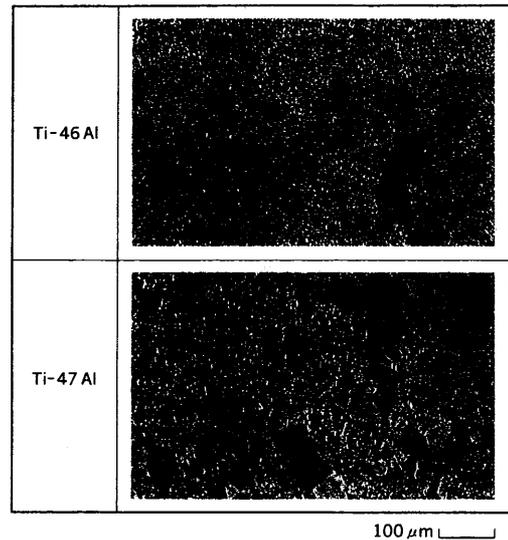


図 1 加工熱処理により微細等軸粒化した二元系 TiAl のマイクロ組織 微細二相粒組織と γ 粒組織との混合組織となる。
Microstructures of TiAl binary alloys grain refined by thermo-mechanical treatment

と γ 粒から成る微細二相粒組織と粒径 20 μ m 程度の γ 粒組織との混合組織であり、これらの割合が Al 濃度に依存して変化している。Al 濃度が低いほど α_2 相の増加により微細二相粒組織の割合が増えるが、Ti-45Al ではラメラ組織が残留しやすくなるため、最も均一で微細な等軸粒組織となるのは Ti-46Al である⁽⁴⁾。

これらの材料を超塑性発現域となる高温・低ひずみ速度条件で変形すると、 γ 粒組織 (粒径 20 μ m) は動的再結晶により粗大化するのに対し、 α_2 粒と γ 粒とから成る微細二相粒組織 (粒径 5~6 μ m) の結晶粒径はほとんど変化しない⁽⁴⁾。このことから微細二相粒組織の多い Ti-46Al は組織安定性の点でも優れており、

*1 研究部材料研究課

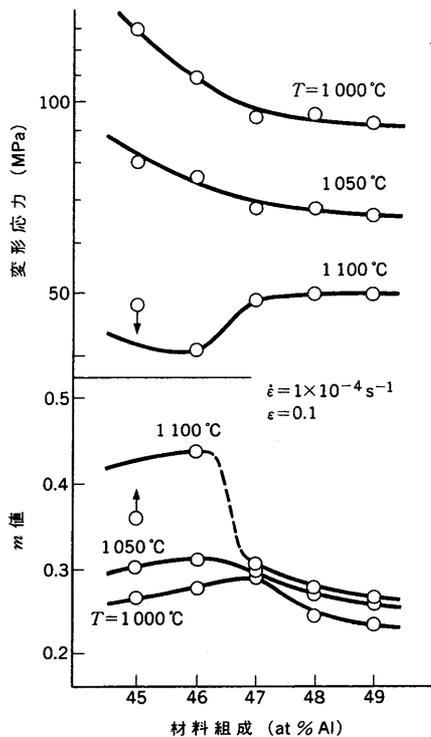


図2 微細等軸粒組織を有する二元系TiAlの変形応力及び m 値のAl濃度依存性 TiAl加工熱処理材を高温変形したときの变形応力と m 値の変化を示す。Ti-46Alに優れた超塑性流動が認められる。 Dependence of flow stress and m -value on chemical composition at temperature range of 1000°C to 1100°C at strain rate of $1 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$

二元合金の超塑性材料として最も有望であると言える。

加工熱処理により微細な等軸粒組織とした材料を1000～1100°C、 $1 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ の条件で圧縮変形したときの变形応力とひずみ速度感受性指数(m 値)を図2に示す。Ti-46Alは1100°Cにおいて顕著な变形応力の低下と m 値の増大を生じ、超塑性流動を示している。この变形応力と m 値の急変は変形メカニズムの変化を示唆しており、Ti-46Alだけが本条件で粒界すべりにより変形していると考えられる。また、ひずみ速度を変えて測定した変形特性もTi-46Alが最も優れており⁽⁴⁾、実際の塑性流動特性の点でも超塑性材料としてTi-46Alが最適であることが確認された。

2.2 超塑性特性向上に対するCr添加の効果

微細で安定な等軸粒組織を有するTi-46Alの超塑性特性の向上には、粒界すべりの調整機構となる粒界近傍での転位運動や原子拡散を促進することが有効である。そこで結晶粒界に沿って軟質な β 相を生成する効果のあるCr⁽⁵⁾を添加元素として選定し、Ti-46Al-Cr (0.5～4 at % Cr)を用いて、組織及び超塑性特性の観点からCr添加の効果と適正な添加量を検討した。

加工熱処理後のミクロ組織はCr添加により粗大な γ 粒組織が減少して均一となり、結晶粒界に β 相が確認できるようになる2%以上のCr添加材では微細二相粒組織がさらに微細化する⁽⁶⁾。ここでTi-46Al-Crの α_2 相と γ 相の比率はCr濃度によらず一定であることから⁽⁷⁾、Cr添加によるこれらの組織変化は β 相の生成による三相合金化によるものと考えられる。

熱間押し出し(1200°C、押し出し比4)と再結晶熱処理(900～1250°C×0.5～6h)によって微細等軸粒組織としたTi-46Al-Cr

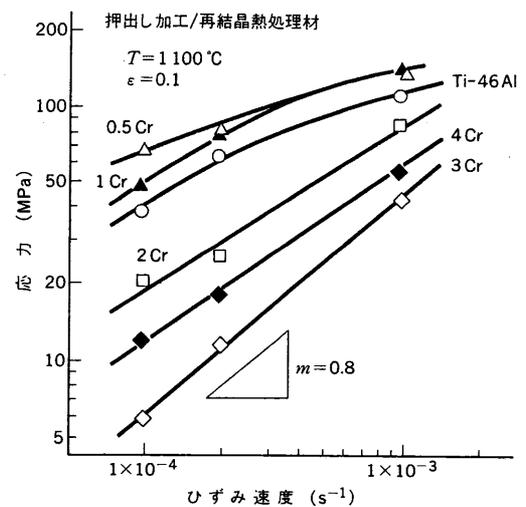


図3 Ti-46Alの超塑性変形特性に及ぼすCr添加量の影響 加工熱処理により組織制御したTi-46Al-Crの超塑性変形特性を示す。3%Cr材の m 値は0.8に達する。 Effect of Cr addition superplastic flow property of fine grain Ti-46Al alloy

の1100°Cにおける超塑性変形特性を図3に示す。1%までのCr添加材では二元合金に対する特性向上は認められないが、 β 相の生成と組織の微細化が認められる2%以上のCr添加材では变形応力の低下と m 値の増大が明らかである。そして3%Cr材の最大 m 値は超塑性チタン合金を上回る0.8に達している。これによりTi-46Alの超塑性特性の向上には2%以上のCr添加が必要であり、3%Cr材が最も優れた超塑性特性を示すことが明らかになった。

3. TiAl板材の超塑性特性

3.1 板材組織の再結晶温度依存性

TiAl超塑性板材の製造は恒温圧延とその後の再結晶熱処理により行われ、ひずみ速度を段階的に制御して効率的に組織を微細等軸粒化する多段恒温圧延プロセスが(株)神戸製鋼所にて開発された⁽⁸⁾。しかし、恒温圧延では1パス当たりの導入ひずみ量が少ないため、前項で用いた熱間押し出しに比べてラメラ組織が残留しやすく組織の均一化が難しくなる。これにより再結晶熱処理は熱間押し出し材では組織が最も微細化する条件で行えば良かったのに対し、恒温圧延材では結晶粒径と組織均一性の両面を考慮して条件を適正化することが必要である⁽⁹⁾。

900～1250°Cの各種の温度で再結晶処理したTi-46Al-3Cr恒温圧延材の結晶粒径、 β 相面積率、残留ラメラ組織面積率を図4に示す。熱処理時間は各温度で再結晶が完了する時間として設定し、900°Cでは6h、1250°Cでは30minとした。結晶粒径は900°Cの再結晶熱処理で最も微細となるが、この場合にはラメラ組織が10%以上も残留し、非常に不均一な組織となる。このラメラ組織は熱処理温度を上げると減少するが、同時に結晶粒径が粗大化するという問題が生じる。ところが1150°C以上では β 相の析出が活発となり、それに伴い1200°C以上で結晶粒径は再び微細化する。これらの組織から判断すると、超塑性特性では組織が最も微細な900°C熱処理材が、また超塑性特性と変形特性均一性のバランスでは結晶粒径が比較的微細で β 相が多くかつラメラ組織を含まない1250°C熱処理材が優れていると考えられる。

これらの材料を1100°C、 $1 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ の条件で引張り試験した

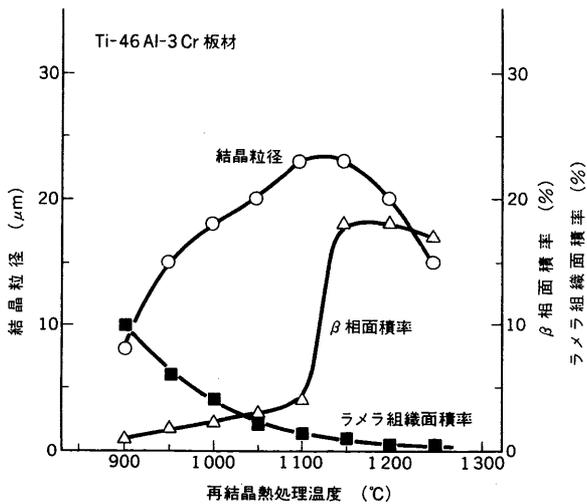


図4 Ti-46Al-3Cr 恒温圧延板材の結晶粒径, β相面積率, ラメラ組織面積率に及ぼす再結晶熱処理温度の影響
恒温圧延板材組織の再結晶熱処理条件依存性を示す。1250°C 熱処理材で最も均一な超塑性特性が期待できる。
Variation of grain size, lamellar and β phase rates with recrystallization heat-treatment temperature observed in Ti-46Al-3Cr sheet

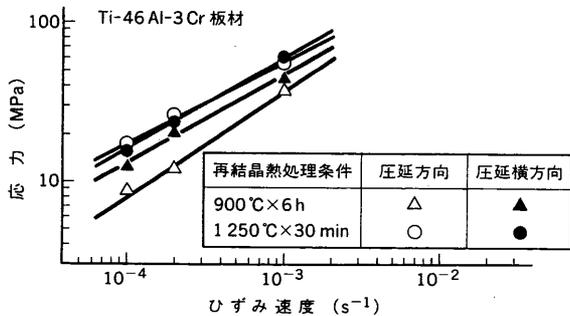


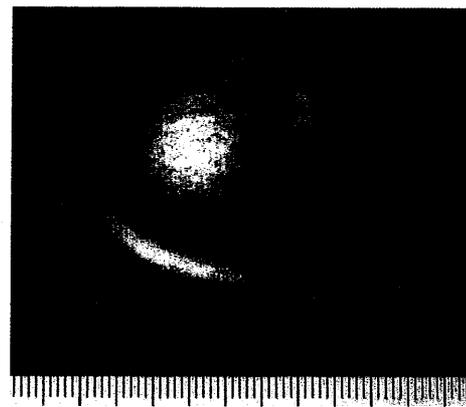
図5 900°C及び1250°Cで再結晶熱処理したTi-46Al-3Cr 板材の1100°Cにおける超塑性変形特性 再結晶熱処理温度による超塑性変形特性の変化を示す。1250°C熱処理材は変形特性均一性に優れる。
Variation of plastic flow property at 1100°C with tensile direction of Ti-46Al-3Cr sheets recrystallized at 900°C and 1250°C

ときの破断伸びは、900°C熱処理材が380%、1250°C熱処理材が360%であるのに対し、中間温度域で熱処理した材料では250%程度であり、超塑性伸びの観点からも900°Cあるいは1250°Cが適度な熱処理条件であることが確認された⁽⁹⁾。この超塑性伸びの違いはキャビティ生成挙動の違いによるものであり、900°C及び1250°C熱処理材にはキャビティ生成が全く認められないのに対し、その他の材料ではキャビティ生成が顕著であった。

900°C及び1250°Cで再結晶熱処理したTi-46Al-3Cr 板材について圧延方向及び圧延横方向で測定した超塑性変形特性を図5に示す。900°C熱処理材は低応力、高 m 値の優れた超塑性特性を示しているが、方向による特性の違いが顕著である。これに対して1250°C熱処理材は $m \geq 0.5$ の良好な超塑性特性を示すとともに、超塑性特性の異方性はほとんど認められない。

3.2 TiAl 板材の超塑性成形適用性

900°C×6h及び1250°C×30minの条件で再結晶熱処理した厚さ1.2mmのTi-46Al-3Cr 板材を用い、1100°C、 $2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ の条件で超塑性成形した半球の外観を図6に示す。どちらの材料でも半球は完全成形されているが、900°C熱処理材では半球の表面



(a) 900°C×6h 熱処理材



(b) 1250°C×30min 熱処理材

図6 900°C及び1250°Cで再結晶熱処理したTi-46Al-3Cr 板材による超塑性成形半球モデルの外観 1100°C、 $2 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ の条件で超塑性成形した半球モデルの外観を示す。900°C熱処理材では表面にしま状の凹凸が認められる。
Appearance of superplastic formed hemisphere models made out of Ti-46Al-3Cr sheets recrystallized at 900°C and 1250°C

に不均一変形によるしま状の凹凸が生じている。これに対して1250°C熱処理材では表面の凹凸はほとんどなく、板厚分布は $m=0.5$ の等方性材料を仮定した解析結果とも良く一致しており、900°C熱処理材に比較して変形特性均一性の点で大幅に優れている。またいずれの成形品とも組織は等軸微細粒が維持されており、キャビティ生成もないことが確認された⁽⁹⁾。半球成形のひずみ量は頂点部で約200%であり、一般の超塑性成形部品の最大ひずみはほとんどの場合にそれ以下である⁽¹⁰⁾ことから、1250°Cで再結晶熱処理したTi-46Al-3Cr 恒温圧延板材は各種部品の成形に対応し得る十分な超塑性成形適用性を有していると言える。

4. 超塑性成形材の組織制御

4.1 PL (Partial Lamellar) 組織

超塑性材料の微細等軸粒組織は高温強度特性の点で好ましくないことから、ここでは熱処理による組織と強度特性の変化を調べ、超塑性成形部品の強度特性向上のための熱処理条件を検討した。

超塑性材料を熱処理して得られる4種類の代表的なマイクロ組織をTi-46Al二元系合金を例に図7に示す。ここで ($\alpha_2 + \gamma$) 二相域での熱処理で得られる Duplex 組織は常温延性に優れる組織として、また α 単相域で得られる FL (Full Lamellar) 組織は高温強度と韌性に優れる組織として知られている⁽¹¹⁾。PL (Partial

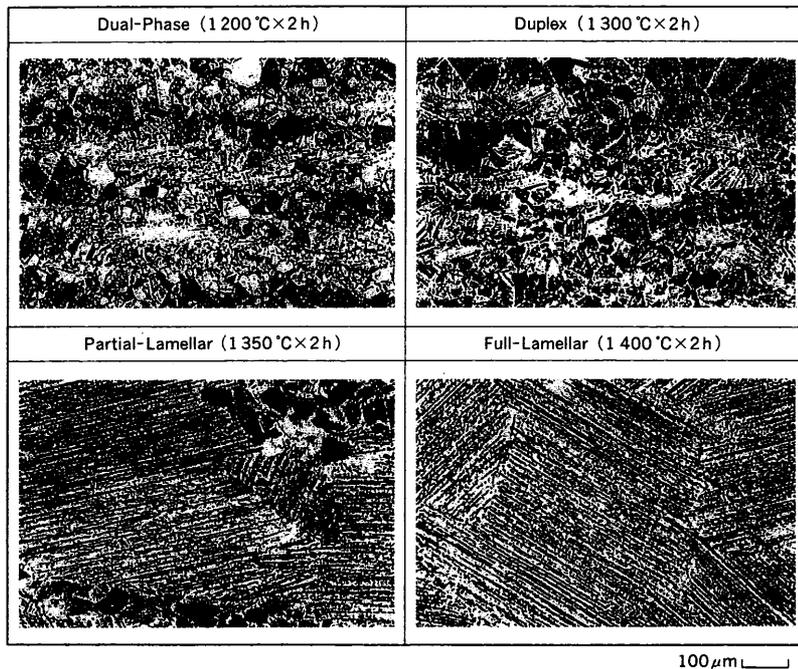


図7 Ti-46Al 超塑性材の熱処理により得られる4種類の代表的なマイクロ組織
超塑性材の熱処理により得られる4種類のマイクロ組織を示す。PL組織は本研究で新たに
見いだされた。
Four types of microstructure of Ti-46Al obtained by heat treatment

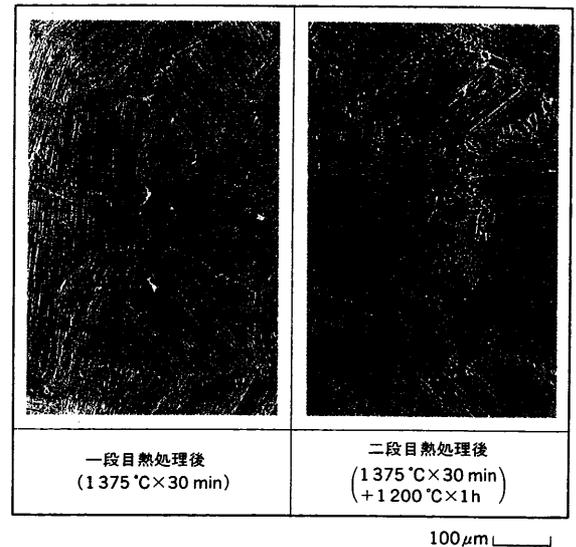


図8 Ti-46Al-3Cr の二段階熱処理による PL 組織
一段目熱処理後の FL 組織と二段目熱処理後の PL 組織
を示す。強度特性支配因子のラメラ粒径と γ 粒面積率を
個別に制御できる。
Partial lamellar microstructures of Ti-46Al-3Cr alloy
obtained by two-step heat treatments

Lamellar) 組織は α 変態点付近での熱処理により新たに見いだされた組織であり、粗大なラメラ粒と微細な γ 粒との混合組織である。PL 組織は形態的には Duplex 組織と FL 組織の中間的なものであるが、強度特性的には Duplex 組織と同等の常温延性と FL 組織に匹敵する高温強度を合わせ持っており、最も強度特性バランスに優れた組織であることが明らかにされている⁽⁴⁾⁽¹²⁾。

4.2 二段階 PL 熱処理プロセス

PL 組織の強度特性はラメラ粒径及び γ 粒面積率に強く依存することから⁽⁹⁾、強度特性バランスの最適化にはこれらの因子の制御が必要である。ところが α 変態点近傍での一段階の PL 熱処理では組織の厳密な制御は難しく、さらに Cr を添加した超塑性材料においては PL 組織の再現性が乏しくなる。そこで PL 組織形態の制御と再現性の向上を可能にする熱処理法として、一段目の熱処理で FL 組織とした後に二段目の熱処理でラメラ粒界に γ 粒を析出させる二段階の PL 熱処理プロセスを検討した。

Ti-46Al-3Cr 超塑性材料の二段階熱処理における一段目熱処理後の FL 組織と二段目熱処理後の PL 組織を図 8 に示す。二段階熱処理による PL 組織では γ 粒がラメラ粒の周りに均一に分布するため、 γ 粒が偏在する一段階熱処理の PL 組織に比較して少量の γ 粒で効率的に常温延性を向上できる特徴がある。また Cr を添加した超塑性材料では一段目の熱処理を ($\alpha+\beta$) 二相域で行うことによりラメラ粒径の制御が可能となり、二段目の熱処理で γ 粒面積率を制御することにより、常温延性と高温強度のバランスを最適制御できるとともに、この熱処理法では組織制御の再現性が非常に優れていることが明らかになった⁽⁹⁾。

5. あ と が き

TiAl 系金属間化合物の適用範囲を薄板構造部品にまで拡大することをねらいに TiAl 超塑性薄板材とその超塑性成形技術の開発を行い、材料組成と加工熱処理プロセスを最適化して TiAl 超塑性薄板材を試作し、世界に先駆けて TiAl 板材の超塑性成形に

成功するとともに、超塑性成形部品の高強度特性を向上するための熱処理プロセスを開発した。

本研究により TiAl 系金属間化合物を薄板材として利用することに技術的な見通しが得られたが、常温延性、高温強度、破壊靱性等の材料特性を改善した多くの新合金が国内外で開発されており、本研究で得られた TiAl-Cr 合金に対する技術をベースにこれらの合金に対しても板材成形技術の開発を進めていく予定である。

本研究開発は通産省の産業科学技術研究開発の一環として、三菱重工業(株)が(財)次世代金属・複合材料研究開発協会を通じて、新エネルギー・産業技術総合開発機構の委託を受けて実施したものであることを付記し、謝意を表す。

参 考 文 献

- (1) Kim, Y. W., JOM, Vol.47 No.7 (1994) p.30
- (2) Austin, C. M. et al., Structural Intermetallics, TMS (1993) p.143
- (3) Clemens, H. et al., Structural Intermetallics, TMS (1993) p.205
- (4) Tsuzuku, T. et al., Journal de Physique 4 (1993) p.389
- (5) Masahashi, N. et al., ISIJ International, Vol.31 (1991) p.728
- (6) 佐藤広明ほか, 第 5 回超耐環境性先進材料シンポジウム講演集 (1994) p.77
- (7) 橋本敬三ほか, 第 5 回超耐環境性先進材料シンポジウム講演集 (1994) p.57
- (8) 宮本淳之ほか, 第 5 回超耐環境性先進材料シンポジウム講演集 (1994) p.67
- (9) 都筑隆之ほか, 第 6 回超耐環境性先進材料シンポジウム講演集 (1995) p.87
- (10) Tsuzuku, T. et al., Superplasticity in Advanced Materials, The Japan Society for Research on Superplasticity (1991) p.611
- (11) Kim, Y. W., JOM, Vol.44 No.8 (1991) p.45
- (12) Tsuzuku, T. et al., Fatigue & Fracture of Ordered Intermetallic Materials 1, TMS (1994) p.239