研究論文

反応焼結した TiAl 金属間化合物のミクロ組織と破壊特性

新家 光雄*・中野 真**
長谷川 孝***・渋江 和久****

Microstructure and fracture characteristics in reactive
sintering TiAl intermetallic compound

Mitsuo NIINOMI*, Shin NAKANO**
Takashi HASEGAWA*** and Kazuhisa SHIBUE****

Microstructure and fracture characteristics of TiAl intermetallic compound fabricated by reactive sintering process was investigated by microstructural observations, tensile tests and fracture toughness tests. The greater volume fraction of equiaxed γ grain gives greater elongation, and smaller 0.2% proof stress and tensile strength while the effect of the volume fraction of equiaxed γ grain on the fracture toughness is significantly small in duplex structural materials. The greater lamellar grain size gives smaller 0.2% proof stress, tensile strength and elongation while that gives greater fracture toughness in fully lamellar structural materials. The balance of strength and fracture toughness in this reactive sintering TiAl is the best in coarser fully lamellar structure, and is superior to that of the cast TiAl at a greater strength level.

Keywords: reactive sintering TiAl, mechanical properties, fracture toughness, lamellar structure, duplex structure
(Received January 31, 1997)

1. 緒 言

高温構造材料として、チタン基金属間化合物の実用化が期待されており、その中でもより高温での強度が期待できる TiAl 系金属間化合物が注目を浴びている。このようなことから、TiAl 系金属間化合物の開発や基本特性に関する多くの研究がなされてきている¹⁾。特に、TiAl 系金属間化合物の実用化のための最も大きな課題の一つは、常温における金属間化合物特有の脆さの克服である。このため、本系金属間化合物の常温延性の改善に大きな努力が払われてきており、これらの改善の方策として合金設計および組織設計の両者による研究が行われている²⁾。しかし、いまだに常温延性は充分とは言えず、特に破壊に対する抵抗、すなわち破壊靱性は極めて不十分な状態にある。このため、破壊靱性をミクロ組織との関連からさらに検討する必要がある。

一方、最近では、金属間化合物部材を製造するため、精密鋳造、高温鍛造あるいは高温圧延等により複雑

形状への成形や板材の成形が検討されている。しかし、このためには、金属間化合物の成形用の特殊な加工装置が必要とされ、加工条件が限定されている³⁾。その一方でこのような難加工材の低コストな形状付与技術として、反応焼結法が注目され、TiAl 系金属間化合物の製造にも適用されるようになってきている⁴⁾。したがって、反応焼結法によって製造された TiAl 系金属間化合物の破壊靱性の評価も重要であるが、その例に乏しい。

そこで本研究では、 γ -TiAl を基本とした二相 (α_2 -Ti₃Al/ γ -TiAl) 組成合金の反応焼結材について、ミクロ組織および破壊靱性を主とする破壊特性との関係を明らかにすることを目的とし、一連の研究を行った。すなわち、組成およびミクロ組織の異なる二相組成の TiAl 反応焼結材について、引張試験および破壊靱性試験による力学的特性の調査を行い、ミクロ組織と破壊機構との関係について検討した。さらに、著者らの一部がすでに報告^{5),6)}している二相組成 TiAl 鋳造材の同試験結果との比較検討も行った。

* 豊橋技術科学大学生産システム工学系 (豊橋市)。Department of Production Systems Engineering, Toyohashi University of Technology (Toyohashi-shi, Aichi)。

** 豊橋技術科学大学学生 (豊橋市) [現在: ニチアス(株) (袋井市)]。Undergraduate School of Toyohashi University of Technology (Toyohashi-shi, Aichi) [Present: Nichiasu Co., (Fukuroi-shi, Shizuoka)]。

*** 豊橋技術科学大学大学院 (豊橋市)。Graduate school of Toyohashi University (Toyohashi-shi, Aichi)。

**** 住友軽金属(株)研究開発センター (名古屋市)。Sumitomo Light Metal Industries Co., Research and Development Center (Nagoya-shi, Aichi)。

2. 実験方法

2.1 供試材

本研究に供した材料は、Ti 粉末および Al-Mn 合金粉末に TiB_2 粒子を加え、混合、缶封入、脱気、熱間押出しおよび鍛造を行い、最後に HIP (Hot Isostatic Pressing) 処理を施した直径 $(16\sim 18)\times 10^{-3}\text{ m}$ 、長さ $(55\sim 65)\times 10^{-3}\text{ m}$ の寸法の γ -TiAl 基反応焼結材である。その場合、1573 K にて 10.8 ks の HIP 処理を施すことにより、二相混合 (Duplex: 等軸 γ 粒 + ラメラ粒) 組織を、また、1663 K にて 5.4 ks の HIP 処理を施すことにより、全ラメラ粒 (Fully lamellar) 組織を得た。本供試材の組成、マイクロ組織の分類、等軸 γ 粒の体積率および平均ラメラ粒直径を Table 1 に示す。Ti-Al 二元系平衡状態図^{7),8)}からもわかるように、本供試材は、 γ (TiAl) および α_2 (Ti_3Al) の二相組成合金である。

2.2 引張試験

引張試験片は、供試材より、評点間直径 $6\times 10^{-3}\text{ m}$ 、平行部 $20\times 10^{-3}\text{ m}$ 、長さ $55\times 10^{-3}\text{ mm}$ の寸法に機械加工し、平行部内に直径方向の傷がなくなるように、 $0.1\times 10^{-6}\text{ m}$ のアルミナを用いてバフ研磨を行った。

引張試験は、インストロン型試験機 (容量 9.8 kN) にてクロスヘッド速度 $0.8\times 10^{-6}\text{ m/s}$ で室温にて行った。荷重はロードセルにより、変位は直接試験片に取付けたクリップゲージにより計測した。また、歪は、直接試験片に貼付した歪ゲージにより計測した。0.2% 耐力、引張強さおよび破断伸びは、JIS Z2241⁹⁾ に準拠し算出した。

2.3 静的 3 点曲げ破壊靱性試験

静的 3 点曲げ破壊靱性試験片は、供試材より $(10\times 10\times 55)\times 10^{-3}\text{ m}$ の寸法に機械加工し、最終的に表面を $0.1\times 10^{-6}\text{ m}$ のアルミナにてバフ研磨仕上げした。

静的 3 点曲げ破壊靱性試験は、ASTM E399¹⁰⁾ および E813¹¹⁾ に準拠して、 a_0/W (a_0 : 初期き裂長さ、 W : 試験片幅) が 0.53 となるように疲労予き裂を導入した後、容量 9.8 kN のインストロン型試験機を用いて行った。その際のクロスヘッド速度は $5.0\times 10^{-6}\text{ m/s}$ 、試験温度は室温であった。荷重および変位は、各々ロードセルお

よび治具に取付けたクリップゲージにより計測した。き裂の発生点の検出には、交流電位差法⁶⁾を用い、電位差の急変点をき裂発生点と見なした。

破壊靱性値としては、き裂発生点での応力拡大係数である K_{Ic} ¹²⁾ を評価した。なお、 K_{Ic} はき裂発生点での応力拡大係数であり、ASTM E399¹⁰⁾ における 2% き裂進展量における応力拡大係数から判定される K_{Ic} とは異なる。また、本供試材が極めて脆性であることから、き裂発生点での破壊靱性値を応力拡大係数、すなわち K_{Ic} により評価した。

2.4 ミクロ組織および破面観察

ミクロ組織は、各試料をエメリー研磨紙による湿式研磨およびバフ研磨による鏡面仕上げ後、0.5% ふっ酸水溶液にて腐食し、光学顕微鏡を用いて観察した。

引張試験片破面では引張軸に平行に、破壊靱性試験片破面ではき裂進展方向に平行に精密切断機により破面を切断し、上記ミクロ組織試料の場合と同様な試料調整後、光学顕微鏡にてき裂の進展挙動とミクロ組織との関連を観察した。

各試料の破面観察は、走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて行った。

3. 実験結果および考察

3.1 ミクロ組織

Fig. 1 に Al 含有量の異なる RR および SB 供試材の軸方向 (L 方向: Longitudinal direction) および軸に垂直な方向 (LT 方向: Long transverse direction) の光学顕微鏡によるミクロ組織を示す。これらの組織は、等軸 γ 粒および α_2 (Ti_3Al)/ γ (TiAl) の層状構造を呈するラメラ粒からなる二相混合組織を呈している。また、RR 材と SB 材とでは、等軸 γ 粒およびラメラ粒の体積率が異なっていることが確認できる。RR 材および SB 材の等軸 γ 粒の体積率は、Table 1 に示したように、各々 30% および 19% であった。両二相混合組織材の HIP 処理温度は 1573 K であり、Ti-Al 二元系平衡状態図^{7),8)} より、Al 含有量 45 at% の RR 材では、Al 含有量 43.4 at% の SB 材に比べ、多くの等軸 γ 粒が生成することが支持される。また、平均ラメラ粒直径は、Table 1 に示したよ

Table 1 Chemical composition, microstructure, volume fraction of γ grain (%) and grain size of lamellar grain (μm) of reactive sintering TiAl

Material	Compositions	Microstructure	Volume fractions of γ grain (%)	Grain sizes of lamellar grain (μm)
RR	Ti-45 at%Al-1.6 at%Mn	Duplex	30	74.7
SB	Ti-43.4 at%Al-1.6 at%Mn	Duplex	19	82.5
SD	Ti-43.4 at%Al-1.6 at%Mn+2 mass% TiB_2	Fully lamellar	—	51.9
SC	Ti-43.4 at%Al-1.6 at%Mn+0.5 mass% TiB_2	Fully lamellar	—	99.2

Fig. 1 Microstructures of reactive sintering TiAl showing duplex microstructures with different Al contents.

Fig. 2 Microstructures of reactive sintering TiAl showing fully lamellar structures with different TiB₂ volume fractions.

うに、RR 材および SB 材で各々 74.7×10^{-6} m および 82.5×10^{-6} m であり、等軸 γ 粒の平均粒直径は、やはり Table 1 に示したように、RR 材では 21.9×10^{-6} m であり、SB 材では 14.9×10^{-6} m であった。なお、ラメラ粒および等軸 γ 粒の大きさは軸方向およびそれに垂直な方向で大きなばらつきはなかった。RR 材および SB 材ともに、軸方向から観察したミクロ組織では各ラメラ粒間に等軸 γ 粒が不規則に配置しているが、軸と垂直な方向からのミクロ組織では軸に平行してラメラ粒と γ 粒とが規則的に配置する傾向がみられる。

Fig. 2 に TiB₂ の添加量を変化させた SC 材および SD 材の軸方向およびそれに垂直な方向につき光学顕微鏡により観察したミクロ組織を示す。SC 材および SD 材のラメラ粒径が異なっていることがわかる。両材のラ

メラ粒の平均直径は、軸方向とそれに垂直な方向とで大きく、Table 1 に示したように、SC 材では 99.2×10^{-6} m であり、SD 材では 51.9×10^{-6} m であった。したがって、TiB₂ の添加は、ラメラ粒の微細化に有効で、添加量を増加させるほどラメラ粒がより微細化されると言える。

3.2 機械的性質

Fig. 3 に各材料の 0.2% 耐力、引張強さおよび破断伸びを示す。なお、データは範囲で示してある。二相混合組織を呈する RR 材および SB 材での結果を比較すると、0.2% 耐力および引張強さについては、等軸 γ 粒の体積率の小さい SB 材において、より大きい値が得られている。この組成の TiAl 金属間化合物では、等軸 γ 粒の破壊よりもラメラ粒の粒内破壊および粒界破壊が支配

Fig. 3 0.2% proof stress, tensile strength and elongation of reactive sintering TiAl and cast TiAl with various microstructures.

的であり、これは γ 粒に比べ、ラメラ粒の方の硬さがより大きいことから支持されることが、金ら¹²⁾により報告されている。したがって、 γ 粒はラメラ粒に比べ、塑性変形しやすい状態にあると考えられる。このため、ラメラ粒体積率がより大きいSB材では0.2%耐力および引張強さにおいてより高い値を示し、等軸 γ 粒の体積率のより大きいRR材では破断伸びにおいてより高い値を示したと考えられる。ラメラ粒内および粒界での破壊が支配的であることは、Fig. 4に示す引張試験後の試験片破面の横断面の光学顕微鏡によるミクロ組織からも判断できる。

一方、全ラメラ (Fully lamellar) 組織を呈するSC材およびSD材の引張試験結果を比較すると、ラメラ粒が微細なSD材において、より大きい引張強さおよび破断伸びが得られている。この傾向は、従来の金属材料で見られる現象と同様である¹³⁾。SC材およびSD材については、 TiB_2 粒子による分散強化の影響についても考慮が必要であると考えられるが、現在のところ、明確でなく今後の検討課題である。

既報^{3),6)}の casting 材、すなわち as-cast 材 (全ラメラ組織) および cast-HIP 材 (铸造後 HIP 処理、二相混合組織) での結果で良好な場合と比較してみると、本反応焼結材の方が概してより大きな0.2%耐力および引張強さを示すが、より小さな破断伸びを示す傾向にある。ただし、铸造材では、ラメラ粒の層方向がほぼ一定で、応力軸と

Fig. 4 Light micrographs of cross sections of tensile fracture surfaces in (a) RR and (b) SB, respectively.

Fig. 5 Fracture toughness, K_{Ic} , of reactive sintering and cast TiAl with various microstructures.

ほぼ一致しており、より高い伸びを示すラメラ層方向で引張試験がなされている。また、铸造材のラメラ粒寸法は約 $760\mu\text{m}$ で本反応焼結材の場合に比べ、大きく、铸造-HIP材の γ 粒の体積率は14.2%であった。

3.3 破壊靱性

Fig. 5に各材料の破壊靱性値 K_{Ic} を示す。なお、データは範囲で示してある。二相混合組織を呈するRR材およびSR材の破壊靱性値 K_{Ic} は、SB材でやや大きい。しかし、前項で示した両材の延性値 (伸び) の差に比較すると、両材の破壊靱性値の差は極めて小さい。ここで、両材の破面のSEM写真および破面横断面の光学顕微鏡によるミクロ組織を各々Fig. 6およびFig. 7に示す。両図からわかるように、両材とも、引張試験での結果と同様、等軸 γ 粒の破壊よりもラメラ粒内および粒界破壊が多く観察される。したがって、二相混合組織の破壊では、ラメラ粒の破壊が支配的であると考えられる。しかし、組成の異なるRR材およびSB材の破壊靱性値 K_{Ic} はほぼ同値を示した。このことの理由は次のように考えることができる。すなわち、等軸 γ 粒の体積率がより大きいRR材ではSB材に比べて等軸 γ 粒の塑性変形の割合がより大きく、き裂先端の塑性鈍化 (靱化の内生的要因¹⁴⁾) がより大きいと考えられる。一方、SB材では、RR材に比べ、ラメラ粒径がより大きく、後述するラメラ粒におけるマイクロクラックの形成による応力緩和とマイクロクラックを連結するシェアリガメントの形

Fig. 6 SEM fractographs of fracture toughness tested materials, (a) RR and (b) SB, respectively.

Fig. 7 Light micrographs of cross sections of fracture surfaces in fracture toughness tested materials, (a) RR and (b) SB, respectively.

成ならびにそれらに起因するき裂の偏向傾向がより大きくなり、これらの外生的要因¹⁴⁾による靱性の向上がより大きいと考えられる。このことは、すでに示した破面組織から定性的にわかるが、両材破面の一定区間で実際にき裂が進展した距離、すなわち有効き裂長さ (a_{eff})¹⁵⁾を測定することで、定量的に考察することができる。そこで、両材破面で、 5×10^{-3} m の破面長さ当たりの a_{eff} を測定したところ、RR 材および SB 材で各々 6.33×10^{-3} m および 6.63×10^{-3} m であった。SB 材でより大きな a_{eff} が得られている。以上より、最終的に SB 材での外生的靱化効果が、SC 材の内生的靱化効果をやや上回る結果となったと考えられる。

全ラメラ組織を呈する SC 材および SD 材では、SD 材の破壊靱性値 K_{Ic} の方がばらつきが比較的大きいが、SC 材に比べ、より小さい値を示している。ここで、両

材の破面の SEM 写真および破面横断面の光学顕微鏡によるミクロ組織を各々 Fig. 8 および Fig. 9 に示す。これらの図から、ラメラ粒内および粒界でのマイクロクラックが観察され、き裂の偏向が認められる。したがって、ラメラ組織での主き裂の進展は、粒界および粒内で不規則に発生したマイクロクラック同士あるいはマイクロクラックと主き裂とが連結することによって生じると言える。このマイクロクラックの形成による応力緩和とマイクロクラック間がせん断で連結するために要する仕事、すなわちシェアリガメントタフニングとが破壊靱性の大きさに関係し、これらが靱化に寄与する効果が大きいほど破面粗さが増大する^{14), 15)}。すでに示した Fig. 8 および Fig. 9 からわかるように、より破壊靱性値の高い SC 材で破面の粗さがより大きく、き裂の偏向が大きい。したがって、SD 材に比べ、上述の靱化メカニズムの寄与が SC 材でより大きいことが推察される。さらに、上述した a_{eff} を両材破面で測定したところ、SC 材および SD 材で各々 7.31×10^{-3} m および 5.95×10^{-3} であった。SC 材で a_{eff} がより大きく、上述の破面粗さの傾向が定量的に支持される。なお、 TiB_2 が破壊の起点として作用することが考えられるが、本研究の範囲では認められなかった。

さて、本焼結材および鋳造材の破壊靱性値の比較も Fig. 5 に示した。鋳造材 (as-cast) の破壊靱性値がより優れていることがわかる。しかし、強度では本焼結材の方でより優れる結果が得られており、破壊靱性値のみで

Fig. 8 SEM fractographs of fracture toughness tested materials, (a) SC and (b) SD, respectively.

Fig. 9 Light micrographs of cross sections of fracture surfaces in fracture toughness tested materials, (a) SC and (b) SD, respectively.

の評価でなく、強度および靱性バランスでの評価も重要である。そこで、Fig. 10に各材料の破壊靱性値と強度(0.2%耐力)との関係を示す。この場合もデータは、範囲で示してある。本反応焼結材では、SB材やSC材のように、鋳造材に比べて、より高強度側で破壊靱性値に優れる場合が認められる。SB材では、データのばらつきが大きく、この点を考慮すると、粗大全ラメラ組織を呈するSC材の強度および破壊靱性値のバランスが最も優れると判断される。

4. 結 言

反応焼結法により作製したTiAl金属間化合物のミクロ組織および破壊特性について、ミクロ組織観察、引張試験および破壊靱性試験により検討した。

(1) 二相混合組織(Duplex)では、等軸 γ 粒の体積率がより大きい方が、伸びが大きく、0.2%耐力および引張強さが小さくなる傾向にあり、破壊靱性値への等軸 γ 粒の体積率の及ぼす影響は極めて小さい。

(2) 全ラメラ(Fully lamellar)組織では、ラメラ粒径がより大きい方が、0.2%耐力、引張強さおよび伸びが小さくなる傾向にあるが、破壊靱性値は大きくなる傾向にある。

(3) 本反応焼結材の強度および破壊靱性値のバランスは、粗大全ラメラ組織で最も優れており、鋳造材に比べ、より高強度側で破壊靱性値に優れる。

最後に、本研究の一部は財団法人軽金属学会教育研究資金によったことを記し、深く感謝の意を表する。

参 考 文 献

- 1) 金属間化合物共同研究会：“金属間化合物-新高温構造材料としての可能性-”，(1995)。

Fig. 10 Balance of fracture toughness, K_{IC} , and 0.2% proof stress in reactive sintering and cast TiAl with various microstructures.

- 2) 例えば、前田尚志、細見政功：日本金属学会誌，56 (1992)，1118。
- 3) 文献1)，p. 272。
- 4) 渋谷和久、金 陸淳：住友軽金属技報，56 (1994)，99。
- 5) M. Niinomi, T. Kobayashi, M. Iwai, Y. Ito and T. Hirota: Proc. Strength of Materials, ed. H. Oikawa, The Japan Inst. of Metals, (1994)，p. 419。
- 6) 新家光雄，廣田友昭，長谷川孝，小林俊郎，野田俊治：日本金属学会誌，61 (1997)，171。
- 7) J. L. Murray: Phase Diagrams of Binary Titanium Alloys, ed. J. L. Murray, ASM International, (1987)，p. 12。
- 8) C. McCulloch, J. J. Vaicenica, C. G. Levil and R. Mehrabian: Acta Metall, 37 (1989)，1371。
- 9) JIS Z2241，“金属材料引張試験方法”(1993)。
- 10) ASTM E399-90，“Standard Test Method for Plane-Strain Fracture Toughness of Metallic Materials”，(1992)。
- 11) ASTM E813-89：“Standard Test Method for J_{IC} , A Measure of Fracture Toughness”，(1991)。
- 12) 金 陸淳：日本金属学会誌，58 (1994)，819。
- 13) 例えば、新家光雄：“結晶粒微細化は強靱化に万能か”，鉄鋼の高強度化の最前線，日本鉄鋼協会，(1995)，p. 117。
- 14) M. Niinomi and T. Kobayashi: Mater. Sci. Eng. A, 213 (1996)，p. 16。
- 15) 新家光雄，小林俊郎，岩井昌彦，廣田友昭，J. C. Williams, A. W. Thompson：日本金属学会誌，59 (1995)，708。
- 16) 榎 学，藤川真一，岸 輝雄：日本金属学会誌，58 (1994)，418。