Ni 基超合金の組織因子を用いたクリープ構成式の温度-応力条件に対する適応性

伊津野仁史 横川 忠 晴 原田 広 史

物質・材料研究機構材料研究所超耐熱材料グループ

J. Japan Inst. Metals, Vol. 69, No. 8 (2005), pp. 735-738
© 2005 The Japan Institute of Metals

Applicability of a Creep Constitutive Equation for Ni-Base Superalloys Using Structural Parameters at Different Temperature-Stress Conditions

Hitoshi Izuno, Tadaharu Yokokawa and Hiroshi Harada

National Institute for Materials Science, Materials Engineering Laboratory, High Temperature Materials Group, Tsukuba 305-0005

A new creep constitutive equation for Ni-base superalloys with good reproducibility of high temperature-low stress condition (1100°C/137 MPa) has been proposed. In this paper, an application of the creep constitutive equation for creep curves of lower temperature-high stress condition (900°C/392 MPa) is discussed. Under the condition, it seems evidently that creep curves have no logarithmic elongation at early secondary creep stage, thus a parameter of the creep constitutive equation contained in the logarithmic part decreases to zero. Multi-regression analysis for each parameter of the creep constitutive equation with gamma-prime composition, structural parameters as explanatory variables have been carried out in order to obtain a comparison of the result of multi-regression analysis of high-temperature low-stress condition. Predictions of creep curves at different temperature-stress conditions by interpolation is also discussed.

(Received April 22, 2005; Accepted July 11, 2005)

Keywords: nickel-base superalloy, creep curve prediction, creep constitutive equation, structural parameter, multi regression analysis

1. 緒 言

γ' 析出強化型 Ni 基超合金(以下, Ni 基超合金と略)のすぐれた高温クリープ強度は, 析出相である γ' 相が試験条件下で異方的粗大化(ラフト化)することが主要因といわれている^{1,2)}. このラフト化を反映して, Ni 基超合金は一次クリープ域でのクリープ曲線が S 字状となる特異な形状を示す特有のクリープ変形挙動を持つ. 従来知られているクリープ構成式である θ 法^{3,4)}, Ω 法⁵⁾などはこの部分をうまく表現できなかった. このため, Ni 基超合金のクリープ変形挙動を精密に記述する目的から, 一次クリープ域の特徴をよく再現できる新しいクリープ構成式が必要である.

また, このクリープ変形挙動は異なる温度-応力条件での異なるラフト化の過程を反映して変化する. Ni 基超合金のクリープ変形挙動を統一的に取り扱うためには, Ni 基超合金のための新しいクリープ構成式はこの温度-応力変化をよく反映できるものであることが望ましい.

我々はさきに, Ni 基単結晶超合金のクリープ曲線をよく表現できるクリープ構成式を提案した⁶⁾.

$$\varepsilon = I \times (A_1 + S_2 + S_3) \quad (1)$$

ただし

$$I = \exp(-\exp((t-\mu)/c_1)) \quad (2)$$

および

$$S_i = A_i \exp((t-\lambda)/c_i) \quad (i=2, 3) \quad (3)$$

ここで ε はクリープひずみ, t は時間変数である. A_i , c_i ($i=1, 2, 3$), μ , λ はパラメータであり, 以下にその説明を行う.

I は一次クリープの S 字状伸び, A_1 は一次クリープにおける全伸び, S_2 と S_3 が二次および三次クリープに対応している. 一次クリープ領域の形状決定にはパラメータ A_1 , c_1 , μ が, 二次および三次クリープ領域に対してはそれぞれ A_2 , c_2 , A_3 , c_3 , 二次および三次クリープ両方に対して λ が関与している. 式(2)は $\dot{y} = y \exp(-bt)$ という微分方程式を満たすもので, Gompertz 曲線と呼ばれる成長-飽和曲線の一種である.

我々は式(1)を用いて, 非線形フィットにより NIMS 開発の数種類の Ni 基超合金の 1100°C/137 MPa におけるクリープ曲線をよく再現できることを報告した⁶⁾. また同合金の γ' 組成および組織因子から式(1)中の 8 つのパラメータを重回帰分析し, 材料組成および組織因子からクリープ曲線を直接予測することが可能であることを報告した⁷⁾.

他方, 式(1)の問題点として, 二次クリープ初期の近似性の悪さがある. 数学的に検討すると式(2)が飽和点に達する $t=2\mu$ 以降, 式(1)の微分値は最小を示し, その後ゆるやかな増加に転じる. 他方, 実際に観察されるクリープ速度においては, 最小クリープ速度はむしろクリープ伸びが指数的増加に転じる直前であることが知られている. 式(1)の

この特徴は最小クリープ速度を予測する際に問題を生じる．このため一次クリープから二次クリープ初期にかけての再現性を高める目的で，一次クリープ領域 I に対数関数を乗じ， S_2 と S_3 を加算する改良を行った⁸⁾．改良された一次クリープ域および全体の式は以下の通りである．

$$I' = \exp(-\exp(-(t-\mu)/c_1)) \times \log(\beta t + e) \quad (4)$$

$$\varepsilon = A_1 \times I' + \sum_{i=2,3} A_i \exp((t-\lambda)/c_i) \quad (5)$$

A_i , c_i , μ , λ はそれぞれ式(2), (3)と同様の意味を持つパラメータ， β が新たに加えられた項にふくまれるパラメータ，また e は指数関数の底である． β が大きければ二次クリープ領域前半でのクリープ速度が大きくなる．また $t=0$ の時点で $\log(\beta t + e) = 1$ となることに注意されたい．この式に対して式(1)と同様に非線形フィッティングおよび γ' 組成と組織因子による重回帰分析を行い，高い再現性を得ることができた．また式(4)はクリープ速度の評価において式(1)に比べてよい推定を可能なものとしている．

我々は今回，式(1), (4)のクリープ構成式を 900°C/392 MPa というより低温-高応力条件における Ni 基超合金のクリープ曲線に適応し，このクリープ構成式の適応性を拡張することを試みた．

2. クリープ構成式の適応

我々はまず NIMS 開発の Ni 基超合金約 20 種類の 900°C/392 MPa 条件下でのクリープ試験結果を式(1), (4)のそれぞれに対して非線形フィットを行い，再現性を比較した．この条件においては，対数部分を乗じない改良前の式(1)の方が再現性が高かった．これは低温-高応力条件でのクリープ試験においては一次クリープ歪が高温-低応力の場合に比べて小さくなく，そのために以前報告した⁸⁾二次クリープ初期における対数的伸びが顕著でないことによるものと思われる．この結果を踏まえ，本研究で取り扱う構成式としては式(1)を用いることとした．これは改良後の式(4)において $\beta=0$ とおいた，非対数的クリープ曲線であると説明できる．式(1)は $t \geq 2\mu$ であれば $I \approx 1$ であり， $I \times (A_1 + S_2 + S_3) \approx A_1 + S_2 + S_3$ となって加法的に取り扱うことができる

ことに注意されたい．

以後，高温-低応力の場合と同様に，構成式中の各パラメータについて合金の 900°C における γ' 組成および組織因子を説明変数として重回帰分析を行い，外挿性を増す目的から変数増減法によって変数選択を行った．この重回帰結果を用いて 900°C/392 MPa 条件におけるクリープ曲線の予測を行った．ついで，各パラメータの説明変数の係数を高温-低応力における対応する係数と比較し，合金組成および組織因子がクリープ変形挙動に与える影響の温度-応力依存性について考察を行った．

3. 結 果

Fig. 1 に例としてパラメータ λ および c_1 のフィッティングの値と計算値との比較を示す．横軸がフィッティングから得られた値，縦軸が重回帰式から求めた値である．すべてのパラメータについて，得られた重回帰式の重回帰係数は 0.9 以上であった．Fig. 2 はこの重回帰結果を用いた TMS75 の 900°C/392 MPa におけるクリープ曲線のパラメータ内挿によって計算したクリープ近似曲線である．この合金は二次クリープ初期において多少対数的クリープの傾向が見られたものの，一次クリープ前期および二次，三次クリープ全体にわたってよい近似を得ることができた．

Fig. 3 に前回⁷⁾得られた 1100°C/137 MPa と今回の 900°C/392 MPa における非線形フィットで得られた A_1 の値の比較を示す．900°C/392 MPa 側では A_1 の値は明らかに小さく，いくつかの合金において A_1 が 0 となるものも見られた．この場合，クリープ変形挙動において一次クリープ伸びは明確ではなく，クリープ曲線は単に S_2 と S_3 の和として表現される．Ni 基超合金の特異な一次クリープ形状がラフト化と密接な関連を持つものと考ええると，このような合金においては低温-高応力条件においてはラフト化が進行しないか，あるいはラフト化の進行がクリープ強度に寄与する以前に破断寿命を迎えている可能性が示唆される．ただし， A_1 が 0 ではなく非常に小さい値を持つ合金に関しては，一次クリープ域に関与する他のパラメータである c_1 および μ が予想される値の範囲から著しくかけ離れてはいなかった．つまり一次ク

Fig. 1 Comparison of parameters of the creep constitutive equation.

リープ伸びが非常に小さい場合でも、Ni 基超合金の特異な一次クリープ形状はある程度保たれていると考えられる。この形状がラフト化の進行とどの程度関連しているかについては、一次クリープ中のラフト化の温度-応力依存性に関しての詳細な報告を待たなければならないと思われる。

Table 1 に本研究で求めた重回帰式中の説明変数である γ' 組成および組織因子の係数を 1100°C/137 MPa における同様の係数と比較した表を示す。イタリックで示した数値は 1100°C/137 MPa 条件下と 900°C/392 MPa 条件下で係数の符号が逆転しているものである。係数の増減および符号の変動をみることで、温度-応力条件による添加元素および組織因子のクリープ変形挙動への影響の変化を知ることができる。例えば Mo は主に固溶強化および格子ミスフィット値の負への増加を目的として添加されている。一次クリープ速度に関するパラメータ c_1 の Mo の係数は高温では負、低温側では正と逆転している。 c_1 が大きくなれば一次クリープ速度は低下するが、これは 900°C/392 MPa 側では Mo の固溶

強化が大きくはたらいだために一次クリープ速度が低下し、一方、1100°C/137 MPa 側での Mo のクリープ変形挙動への影響はむしろ格子ミスフィットに着目して議論すべきであることを示唆している。

また、一次クリープの継続時間に関するパラメータ μ に着目すると、W の 1100°C/137 MPa 条件下と 900°C/392 MPa 条件下での μ への影響が全く異なっている。 μ が大きくなれば一次クリープの持続時間は長くなるが、1100°C/137 MPa 条件下では W の係数が負、900°C/392 MPa 条件下では正である。900°C/392 MPa においては W の拡散係数の小ささが一次クリープの持続時間を長くしていることが示唆される。さらに、最近注目されている第四世代 Ni 基超合金の添加元素である Ru は組織安定性を目的に添加されたものである⁹⁾。Ru に関するパラメータ c_1 , c_2 , c_3 , λ , μ の係数の符号は逆転し、かつ係数の変動に一定の傾向は見られない。1100°C/137 MPa 条件下と 900°C/392 MPa 条件下のいずれにおいても、Ru のクリープ変形挙動への影響は明確ではないと考えられる。

4. 直接内挿によるクリープ曲線予測

次に、温度条件 1000°C でのクリープ曲線予測を、今研究の結果を使用した直接内挿によって試みた。先の 1100°C/137 MPa, 900°C/392 MPa での各添加元素および組織因子の係数の平均値を用いた重回帰式を作成し、TMS75 合金の 1000°C における γ' 組成および格子ミスフィット、 γ' 相量によって求められたパラメータによって計算したクリープ曲線予測を Fig. 4 に示す。黒線で示した実測値は TMS75 の 1000°C/245 MPa におけるクリープ曲線である。予測曲線は本研究におけるクリープ構成式を使用して、全く独自に得られたものであることに注意したい。

ただし今回の内挿結果は完全に温度のみに着目し、応力条件を無視して行ったものであり、両者がともに考慮された内挿の可能性については今後十分に検討する必要がある。

Fig. 2 Comparison of the creep curve of TMS-75 with calculated one.

Fig. 3 Variance of A_1 between 1100°C and 900°C.

Table 1 The differences of coefficients between 900°C and 1100°C.

		A_1	c_1	μ	A_2	c_2	A_3	c_3	λ
Re	1100	-3.4	-17.2	-20.1	10.3	41.4	-6.9	-7.5	—
	900	0.1	—	—	—	20.2	18.2	-4.8	144.2
Mo	1100	7.8	-2.3	-7.1	11.9	-2.2	3.1	2.3	-1.10
	900	2.7	10.0	2.2	-12.9	8.5	8.6	14.2	34.0
Ta	1100	-1.7	—	-7.7	—	23.5	-0.3	0.1	—
	900	2.1	—	-8.8	-10.1	—	7.4	9.3	46.2
W	1100	-0.5	-4.1	-7.1	3.1	—	-0.5	-0.7	—
	900	1.3	—	5.1	—	16.5	13.3	—	105.0
Ru	1100	2.9	2.4	4.2	—	-10.5	0.6	-0.7	-0.8
	900	0.2	-0.5	-0.5	—	2.8	1.1	1.5	2.4
Vf	1100	-11.1	—	—	—	85.7	—	—	5.9
	900	9.7	—	—	—	—	0.5	-7.0	—

Fig. 4 A creep curve prediction by a simple interpolation.

5. 結 言

Ni 基超合金の高温-低応力域でのクリープ特性をよく再現することができる新しいクリープ構成式を低温-高応力側へ適用し、よい適応結果が得られた。Ni 基超合金の温度-応力

の変化にともなう多様なクリープ変形挙動を統一的に記述し議論する上で本構成式は有用であるとの結論を得た。また、単なるクリープ変形挙動の説明にとどまらず、材料組成から直接クリープ曲線を予測することを可能にするものでもある。

文 献

- 1) J. X. Zhang, T. Murakumo, Y. Koizumi, T. Kobayashi, H. Harada and S. Masaki Jr.: *Metal. Mater. Trans.* **33A**(2002) 3741-3746.
- 2) T. Ichitsubo, D. Koumoto, M. Hirao, K. Tanaka, M. Osawa, T. Yokokawa and H. Harada: *Acta Mater.* **52**(2003) 4033-4044.
- 3) R. W. Evans, J. D. Parker and B. Wilshire: *Recent Advances in Creep and Fracture of Engineering Materials and Structures*, (Pineridge Press, Swansea, 1969) p. 135.
- 4) R. W. Evans, I. Beden and B. Wilshire: *Creep and Fracture of Engineering Materials and Structures*, (Pineridge Press, Swansea, 1984) p. 1277.
- 5) M. Prager: *ASME-PVP* **288**(1994) 401.
- 6) H. Izuno, T. Yokokawa, M. Osawa, S. Odaka and H. Harada: *Collected Abstracts of the 2003 Autumn Meeting of the Japan Inst. Metals* (2003) p. 443.
- 7) H. Izuno, T. Yokokawa, M. Osawa, S. Odaka and H. Harada: *J. Japan Inst. Metals* **68**(2004) 526-529.
- 8) H. Izuno, T. Yokokawa and H. Harada: *J. Japan Inst. Metals* **69**(2005) 229-232.
- 9) Y. Koizumi, H. Koguchi, T. Yokokawa, T. Kobayashi, M. Osawa, T. Kimura and H. Harada: *J. Japan Inst. Metals* **68**(2004) 54-57.