電子ビーム溶融法によって作製されたチタンアルミ合金の機械的特性に及ぼす組織配向の影響

井上 佳奈* 筧 幸次

東京都立大学大学院システムデザイン研究科

J. Japan Inst. Met. Mater. Vol. 85, No. 5 (2021), pp. 190-197
© 2021 The Japan Institute of Metals and Materials

The Effect of the Oriented Structure on Mechanical Properties of Titanium Aluminide Fabricated by Electron Beam Melting

Kana Inoue* and Koji Kakehi

Department of Mechanical Systems of Engineering, Graduate School of Systems Design, Tokyo Metropolitan University, Hachioji 192-0397

This study was conducted to reveal the relationship between the oriented microstructure and mechanical properties of Ti-48Al-2Cr-2Nb fabricated by electron beam melting (EBM). The microstructure observation in EBM sample showed that duplex structure/ γ band layers fabricated by EBM process.

Tensile and creep tests were conducted for two kinds of samples fabricated by EBM. One was a sample in which loading direction was parallel to the building direction (vertical sample) and another was sample in which the loading direction was normal (horizontal sample). The tensile test showed anisotropic tensile properties at room temperature, 650°C and 750°C. The tensile strengths of the vertical samples were inferior to the horizontal samples due to the oriented duplex structure with γ band layers. The creep lives were 206 h tested at 650°C/450 MPa and 298 h tested at 750°C/200 MPa in the vertical sample, whereas they were 332 h tested at 650°C/450 MPa and 326 h tested at 750°C/200 MPa in the horizontal sample; i.e., the creep test also showed the anisotropy of creep rupture life due to the oriented microstructure.

[doi:10.2320/jinstmet.J2020059]

(Received December 16, 2020; Accepted February 1, 2021; Published March 12, 2021)

Keywords: electron beam melting, titanium aluminide, tensile properties, creep properties, duplex structure

1. 緒 言

チタンアルミ合金(以下, TiAl 合金)は低比重で優れた耐熱性・高温強度特性を兼ね備える軽量耐熱合金であり, ガスタービン・航空機用エンジン材料として使用されている¹⁻⁵⁾. 航空機エンジン部品には高い寸法精度が求められるため, 材料には強度, 靱性及び優れたクリープ抵抗も必要とされる. 元来, TiAl 合金は冷却速度に起因した多様な組織形態を持つ⁵⁾. その中でもフルメラ組織は優れたクリープ抵抗を示し⁶⁾注目されてきたが, 延性が極めて乏しく実用材としては用いられていない. 現在, TiAl 製航空機部品は鍛造材の切削によって製造されているが, 難加工性で部品表面性状が悪いこと, 鋳型との反応性が強いこと, 材料ロス率が 90% 以上と高いこと等多様な問題がある. そこで代替製造法として金属積層造形法が注目されている. 金属積層造形法は, 粉末を選択的に溶融・凝固させた層を繰り返し積層させる付加造形である^{7,8)}ため, 部品の軽量化・高性能化, 表面欠陥の低減, 及び材料歩留まりの改善が期待できる. さらに, 電子ビーム溶融法(electron beam melting; EBM)の利用では酸素の混入を

低減させることが見込める. 今日まで造形パラメータと組織の関係^{9,10)}, 様々な金属積層造形法の製造への適応性¹¹⁾, 金属積層造形法で作製された試料の圧縮特性¹²⁾, EBM 特有の不均質な組織の引張・疲労異方性を調査する研究¹³⁻¹⁵⁾が行われている. 実用化に向けては, EBM で製造した TiAl 合金部品の評価が進められている¹⁶⁾. しかし, 不均質な組織に対する引張クリープ異方性, 引張試験及び引張クリープ試験における破壊メカニズムについて不明な点が多い. 本研究は EBM で作製された異なる積層方向試料の引張特性, 引張クリープ特性を調べることによって, その破壊メカニズム及び不均質組織の配向の影響を明らかにすることを目的とする. さらに, EBM で作製された試料を実用に供する上での問題点についても明らかにする.

2. 実験方法

造形機 Arcam A2X と Arcam Ti-48Al-2Cr-2Nb powder (45-150 μm) を使用して 45 mm $\times$ 45 mm $\times$ 45 mm のブロック材を造形した. 供試粉末の化学組成を Table 1, 造形条件を Table 2 に示す. ブロック材からワイヤカット放電加工機を用いて積層方向に平行な板試験片を切り出し, その板試験片から強度試験片を切り出した. Fig. 1 に板試験片の積層方向と強度試験片切り出し方向の関係を示す. 応力負荷方向が

* 東京都立大学大学院生 (Graduate Student, Tokyo Metropolitan University)

ベースプレートに対して垂直な Fig. 1(a)を鉛直試験片, 平行な Fig. 1(b)を水平試験片と呼称する. 組織観察用試料もワイヤカット放電加工機を用いて切り出し, その観察面と積層方向の関係を Fig. 2(a)に示す. 強度試験として, 引張試験(650℃, 750℃)とクリープ試験(650℃/450 MPa, 750℃/

200 MPa)を行った. 破断後の試験片については, 2方向から組織観察をした(Fig. 2(b)).

3. 結 果

3.1 組織観察

Fig. 3に強度試験前の組織を示す. γ 単相粒とデュプレックス組織が各々水平に広がり, 鉛直方向に層をなしていた(Fig. 3(a)). γ 単相粒は試料の積層方向に対して垂直かつ断続的に分布し(以下, γ バンド^{13,14)}), 粒径は約15 μm であった(Fig. 3(b)). 一方, デュプレックス組織は γ バンド間に分布し, α_2/γ ラメラ粒及び γ 単相粒に加えて微量の α_2 粒で構

Table 1 Chemical composition of Arcam Ti-48Al-2Cr-2Nb powder.

Element	Al	Cr	Nb	Fe	C	O	N	Ti
mass%	34.5	2.6	4.7	0.03	0.01	0.11	0.01	Bal.

Table 2 Process parameters used for fabrication of EBM samples during melt.

Preheating temperature (°C)	Layer thickness (μm)	Beam speed for inner contour (mm/s)	Beam current for inner contour/hatch (mA)	Hatch spacing (mm)
1060	90	600	25/8	0.2

Fig. 1 Schematic illustration of (a) vertical and (b) horizontal EBM samples.

Fig. 2 Schematic illustration of the observed plane area (a) in the as-built and (b) after tensile and creep samples.

Fig. 3 SEM images of the microstructure: (a) lower magnification, (b) γ band and (c) lamellar structure in duplex structure area.

成されていた。これらは γ バンドをなす γ 単相粒より小さく、約 $8\mu\text{m}$ であった(Fig. 3(c))。このような層状組織はTodaiら¹³⁾、Choら¹⁴⁾の研究においても観察されたが、本研究の観察では、粒径が小さく、 γ バンドは短くより断続的であった。

3.2 引張特性

Fig. 4に引張特性を示す。室温での引張強度はほぼ延性を示さず同程度であったが、 650°C 及び 750°C では鉛直試験片に比べ水平試験片の方が高かった(Fig. 4(a))。延性も、室温では同程度であった一方、 650°C 及び 750°C では水平試験片の方が10倍高かった(Fig. 4(b))。すなわち、積層ままEBM試験片の積層方向に対する強度及び延性異方性が明らかになった。引張試験後の破面をFig. 5に示す。両試験片とも室温では一面にリバーパターンが観察され、粒内破壊であった(Fig. 5(a), Fig. 5(b))。加えて水平試験片では、ラメラ界面が垂直に破断したファセット⁴⁾が確認された(Fig. 5(b))。 650°C の鉛直試験片では、ファセット及びリバーパターンが観察され粒内破壊を示した(Fig. 5(c))一方、 650°C の水平試験片は粒界破壊を示し、 γ バンドを進展するき裂が観察された(Fig. 5(d))。 750°C の鉛直試験片では造形によって生成されたボア及び粗大 γ 粒を起点としたき裂が確認され、破面一

Fig. 4 Tensile properties of vertical and horizontal samples: (a) 0.2% proof stress ($\sigma_{0.2}$) and ultimate tensile strength (UTS) and (b) elongation.

Fig. 5 The tensile-fracture surfaces: (a) vertical and (b) horizontal samples tested at room temperature, (c) vertical and (d) horizontal samples tested at 650°C , (e) vertical and (f) horizontal samples tested at 750°C .

面が粒界破壊を示した (Fig. 5(e)). 750℃ の水平試験片では粗大な粒でのファセットが確認されたが, 広域でディンプルを呈し延性破壊を示した (Fig. 5(f)).

3.3 クリープ特性

Fig. 6 にクリープ曲線を示す. 650℃ では, 水平試験片のクリープ延性及び寿命 (9.29%, 332h) は鉛直試験片のそれら (3.73%, 206h) を上回った (Fig. 6(a)). クリープ試験片破面を Fig. 7 に示す. 鉛直試験片では一面に微細なファセットが確認され (Fig. 7(a)), デュプレックス組織が脆性破壊したと考えられる. 一方, 水平試験片では断面減少及び一面のディンプルが確認され, 延性破壊を示した (Fig. 7(b)). 750℃ においては, 鉛直試験片で 9.44%, 298h, 水平試験片で 15.4%, 326h となり, いずれも水平試験片の方が大きかった (Fig. 6(b)).

Fig. 6 Creep curves of vertical and horizontal samples tested at (a) 650℃/450 MPa and (b) 750℃/200 MPa.

4. 考 察

4.1 引張異方性に対する組織の配向と温度の影響

引張特性において異方性が見られた (Fig. 4). このような異方性は Todai ら¹³⁾, Lin ら¹⁵⁾によって既に報告されている. Todai ら¹³⁾の研究では, 積層方向と応力負荷方向との角度差 (θ) 45° の試験片が室温で最も優れた引張延性を示した. これは, 最大せん断応力方向 45° に延性成分として作用する γ バンドが配向し, その優先的なせん断変形が生じるためであると報告された. $\theta = 0^\circ, 90^\circ$ は本研究における鉛直試験片及び水平試験片に一致する. それらの高温での破壊メカニズムはき裂進展で, 90° では相界面に沿ったき裂伝播が直接の破壊に至らなかったことを述べたが, 組織観察及び詳細な議論は示されなかった. 本研究の鉛直試験片の側面 (Fig. 8(a)-Fig. 8(c)) では, 試験温度によらずデュプレックス組織層/ γ バンド界面におけるき裂の進展及び破断が確認された. これは, EBM で生じた未溶融部及び層状組織に起因すると考えられる. 層状組織の厚さは先行研究^{13,14)}と同様に約 90 μm であり (Fig. 3(a)), 破面から直近の γ バンドまでの間隔は約 90 μm であった (Fig. 8(b)). 650℃ の鉛直試験片側面では, 層領域境界において EBM で生成した未溶融部が確認された (Fig. 8(d)). よって, 650℃ の鉛直試験片の破壊は未溶融部 (Fig. 8(e)) がき裂の起点となり, 層境界で生じたと考えられる. $L1_0$ 構造でその軸比が $c/a = 1.02$ と 1 に近い γ 相は, $D0_{19}$ 構造の α_2 相よりも延性に富む^{2,7,11)}. ラメラ粒はラメラ界面の存在によって高靱性で, γ 単相粒とラメラ粒が混在した複合組織内ではき裂はラメラ粒を避けて進展する⁴⁾. なお, ラメラ方向とき裂侵入方向の関係でラメラ界面に沿った相間剥離を生じることもある⁴⁾が, 本研究においては確認されなかった. γ バンドをなす γ 単相粒はデュプレックス組織層の粒より約 1.8 倍大きく, 粒径差がある. したがって, 各層は変形能, 靱性及び粒径に差があるため, その境界では応力が集中し, き裂やボイドの生成及び進展が生じやすくなると考えられる. 特に領域境界と応力負荷方向が垂直である鉛直試験片の場合, 境界での応力集中はより生じやすく, 破壊への影響が大きくなると考えられる. 実際に, 750℃ の鉛直試験片側面では γ バンド及び層境界を進展するき裂が確認された (Fig. 8(c)). よって, 鉛直試験片は未溶融部によるき裂の生成・進展だけでなく, 各層の変形能及び粒径の差により応力

Fig. 7 SEM fractographs of the creep-ruptured (a) vertical and (b) horizontal samples tested at 650℃/450 MPa.

Fig. 8 SEM microstructure near the tensile-fracture surface of vertical samples tested at (a) room temperature, (b), (d) 650°C and (c) 750°C. (e) is the tensile-fracture surface of vertical sample tested at 650°C. Broken lines represent the boundary between γ band and duplex structure in (a) and (b). White arrows indicate the defects in (d).

集中が生じ、その境界で破壊に至ったと考えられる。室温の鉛直試験片側面ではポアを起点としたき裂が γ バンドの粒内を進展していたことより (Fig. 8(a))、この破壊メカニズムは特に高温において作用すると推測される。Fig. 9(a)の矢印が示すように、650°Cの水平試験片側面においても未溶融部が確認されたが、領域境界と応力方向が平行関係にあるため未溶融部及び層境界に起因するき裂の生成・進展は生じにくいと考えられる。750°Cのゲージ部の側面では変形によるボイドが多く生じ (Fig. 9(b))、き裂はそれらを通過していた (Fig. 9(c))。つまり、水平試験片は領域境界が応力方向と平行に存在することにより応力集中及びき裂の生成が抑制され、変形によって生じたボイドを進展するき裂により破壊に至ったと考えられる。すなわち、応力負荷方向と層境界の関係により、強度及び延性異方性が生じたと考えられる。

試験温度増大に伴って両方位の試験片の延性はともに8.5倍増大したが、750°Cにおいて各試験片は全く異なる破壊形態を示した。元来、TiAl合金は760°C以上で脆性-延性遷移を遂げる^{3,11,17)}ことが知られており、EBM材の脆性-延性遷移温度は700-800°Cであることが報告されている^{8,13)}。よって、

両方位の試験片とも延性的な破壊を示すと推測されたが、鉛直試験片は脆性破壊した。これは組織配向及び造形に起因する欠陥の影響であると考えられる。鉛直試験片の破面では、造形中に生成されたポアが複数確認されており (Fig. 9(d))、これらを起点とするき裂が生じた。なお、Todai¹³⁾らの研究では、未溶融部やポアは生じず造形パラメータが最適であったことが報告され、延性は本研究の値より高い。応力負荷方向と層境界の関係により、水平試験片ではき裂の進展が抑制され期待通りの延性を示した一方、鉛直試験片では、応力集中及びき裂の生成を誘発し、ポアからのき裂の進展も促進され750°Cでの延性が低下したと考えられる。なお、前述の通り、本研究では造形機メーカー指定の造形条件を用いたにも関わらず、未溶融部及びポアが確認された。よって、積層パラメータの改善及びHIP等の後熱処理が不可欠であると考えられる。

4.2 クリープ特性に対する組織の影響

クリープ速度線図を Fig. 10 に示す。最小クリープ速度は、650°C/450 MPa で $3.06 \times 10^{-8} \text{ s}^{-1}$ (鉛直試験片)、 2.51×10^{-8}

Fig. 9 SEM microstructure near the tensile-fracture surface of horizontal samples tested at (a) 650°C and (b) 750°C. Broken lines represent the boundary between γ band and duplex structure area in (a). White arrows indicate the defects in (a) and (b). (c) is higher magnified images of (b). (d) is the tensile-fracture surface of vertical sample tested at 750°C and black arrows indicate the pores.

Fig. 10 Creep rate-time curves of as-built and heat-treated at 1350°C samples tested at (a) 650°C/450 MPa and (b) 750°C/200 MPa.

s^{-1} (水平試験片) (Fig. 10(a)), 750°C/200 MPa では $3.18 \times 10^{-8} s^{-1}$ (鉛直試験片), $3.62 \times 10^{-8} s^{-1}$ (水平試験片) となった (Fig. 10(b)). すなわち, 試験条件によらず同程度となり, クリープ速度に対する異方性は見られなかった. これは, クリープ速度の律速機構が熱的に活性化された転位の上昇運動であることによると考えられる. 試験環境が 100-300 MPa,

700-900°C のクリープでは, 転位の上昇運動によってクリープ速度が支配される⁵⁾. すなわち, 原子拡散によってクリープが進行する. 層領域境界は拡散速度が比較的大きい粒界であり, その有無が転位の上昇運動へ及ぼす影響は大きい. しかし, その配向が転位の上昇運動へ及ぼす影響は小さいと考えられる. なお, EBM 試験片の最小クリープ速度は, 本研究の条件よりも厳しい環境で試験されたデュプレックス組織を呈した Ti-48Al-2Nb-2Cr 铸造材¹⁾ (760°C/200 MPa, 粒径 $\approx 150 \mu m$) の約 $2.0 \times 10^{-8} s^{-1}$ 及びフルメラ組織の Ti-48.1Al HIP 焼結材⁶⁾ (760°C/240 MPa, 粒径 $\approx 400 \mu m$) の $1.64 \times 10^{-8} s^{-1}$ よりも高かった. また, EBM 試験片におけるクリープ速度へのラメラ組織の影響を調べるため, Ti-48Al-2Cr-2Nb EBM 試験片に 1350°C/0.5h/AC の熱処理を施した鉛直試験片もクリープ試験 (750°C/200 MPa, 粒径 $\approx 360 \mu m$) に供した. この試験片の組織はフルメラ組織であり, 積層方向に対する配向は見られなかった (Fig. 11). また, 最小クリープ速度は $1.49 \times 10^{-8} s^{-1}$ であり, 積層ままの EBM 試験片の方が高かった (Fig. 10(b)). 本研究の結晶粒径は, γ バンドで約 15 μm , デュプレックス組織領域で約 8 μm であり, 先行研究及びフルメラ組織鉛直試験片のものより微細であったため, 転位の上昇に加えて粒界すべりが生じ, 最小クリープ速度が増大したと考えられる. また, ラメラ粒はその相界面によって転位のすべり運動及び上昇を阻害するため, 等軸粒よりもクリープ抵抗が高い⁵⁾. 本研究の EBM 試験片中のラメラ粒は前述のフルメラ組織のものより体積率及び粒径の点で鮮少であったため, 転位の運動が活発になったと考えられる.

水平試験片のクリープ延性及び寿命は鉛直試験片を上回り, 特に 3 次クリープ延性に異方性が見られた (Fig. 6). こ

のクリープ特性の違いは層状組織に起因すると考えられる。650℃の鉛直試験片において、破面から直近の γ バンドまでの距離は約90 μm であり2種の層境界で破断した(Fig. 12(a))。これは、4.1節と同様のメカニズムによると考えられる。一方、水平試験片では破断部の粒界に変形によるボイドが多く観察され(Fig. 12(b))、そのボイドの合体によるき裂の進展が確認された(Fig. 12(c))。水平試験片では領域境界と応力方向が平行関係にあり、領域境界に起因する応力集中とき裂の生成は生じにくいと考えられる。その結果、 γ 単相粒と α_2/γ ラメラ粒の粒変形に伴って、2種の層がそれぞれ伸長すると推測され、実際に、650℃における水平試験片では結晶粒や各層の伸長が観察された(Fig. 12(d))。つまり、水平試験片では2種の層の伸長が進行するとともに、粒界すべりに起因するボイドの成長・合体が進行して破断した。それゆえ、650℃における水平試験片のクリープ破面では延性的な破壊を示し(Fig. 7(b))、クリープ延性及び寿命が鉛直試験

片よりも大きくなった。クリープ延性及び寿命においては、層状組織の配向が巨視的なクリープ変形と破断延性に影響を及ぼすことが明らかになった。この組織配向によるクリープ特性異方性は750℃においても確認され、試験条件によらず生じることがわかった(Fig. 6(b))。EBMによって作製された部品を実機適用するためには、造形プロセス及びHIPを含む後処理を用いた鉛直方向の延性改善、または異方性の低減が必要であると考えられる。

5. 結 言

金属積層造形法の1つであるEBMで作製されたTi-48Al-2Cr-2Nb 試料に関して、引張及びクリープ試験での破壊メカニズム及び組織の配向の影響について以下の知見を得た。

(1) 650℃及び750℃の引張特性、クリープ特性において異方性が見られた。領域境界の存在及び積層に起因する欠陥により750℃での引張及びクリープ延性異方性は顕著になった。

(2) 650℃/450 MPa及び750℃/200 MPaのクリープ試験において、最小クリープ速度に対する異方性は見られなかった。

(3) クリープ試験で、鉛直試験片では層境界でき裂が進展した一方、水平試験片ではマイクロボイド合体型の延性破壊が生じ、3次クリープひずみ量と寿命が鉛直試験片に比べ増大した。

本研究は、中小企業経営支援等対策費補助金「戦略的基盤技術高度化支援事業(サポイン事業)」、軽金属奨学会の助成を受けたものです。

Fig. 11 SEM image of the microstructure of EBM sample heat-treated at 1350℃.

Fig. 12 SEM images of the microstructure near the creep-ruptured surface in (a) vertical and (b), (c), (d) horizontal samples tested at 650℃/450 MPa. (c) and (d) are higher magnified images of (b).

文 献

- 1) D.A. Wheeler, B. London and D.E. Larsen Jr.: *Scr. Metall. Mater.* **26** (1992) 939-944.
- 2) Y.-W. Kim: *JOM* **46** (1994) 30-39.
- 3) J. Beddoes, L. Zhao, P. Au and W. Wallace: *Mater. Sci. Eng. A* **192-193** (1995) 324-332.
- 4) S. Yokoshima and M. Yamaguchi: *Materia Japan* **35** (1996) 542-550.
- 5) F. Appel, J.D.H. Paul and M. Oehring: *Gamma Titanium Aluminide Alloys*, (WILEY-VCH, Weinheim, 2011) pp. 1-70, pp. 313-356.
- 6) W.R. Chen, J. Triantafillou, J. Beddoes and L. Zhao: *Intermetallics* **7** (1999) 171-178.
- 7) L.E. Murr, S.M. Gaytan, A. Ceylan, E. Martinez, J.L. Martinez, D.H. Hernandez, B.I. Machado, D.A. Ramirez, F. Medina, S. Collins and R.B. Wicker: *Acta Mater.* **58** (2010) 1887-1894.
- 8) S. Biamino, A. Penna, U. Ackelid, S. Sabbadini, O. Tassa, P. Fino, M. Pavese, P. Gennaro and C. Badini: *Intermetallics* **19** (2011) 776-781.
- 9) W. Ge, C. Guo and F. Lin: *Procedia Eng.* **81** (2014) 1192-1197.
- 10) J. Schwerdtfeger and C. Körner: *Intermetallics* **49** (2014) 29-35.
- 11) B.P. Bewlay, S. Nag, A. Suzuki and M.J. Weimer: *Mater. at High Temp.* **33** (2016) 549-559.
- 12) M. Seifi, A.A. Salem, D.P. Satko, U. Ackelid, S.L. Semiatin and J.J. Lewandowski: *J. Alloy. Compd.* **729** (2017) 1118-1135.
- 13) M. Todai, T. Nakano, T. Liu, H.Y. Yasuda, K. Hagihara, K. Cho, M. Ueda and M. Takeyama: *Addit. Manuf.* **13** (2017) 61-70.
- 14) K. Cho, R. Kobayashi, J.Y. Oh, H.Y. Yasuda, M. Todai, T. Nakano, A. Ikeda, M. Ueda and M. Takeyama: *Intermetallics* **95** (2018) 1-10.
- 15) B. Lin, W. Chen, Y. Yang, F. Wu and Z. Li: *J. Alloy. Compd.* **830** (2020) 154684.
- 16) Y. Koyanagi: *Denki Seiko* **88** (2017) 77-84.
- 17) Q. Wang, R. Chen, D. Chen, Y. Su, H. Ding, J. Guo and H. Fu: *Mater. Sci. Eng. A* **767** (2019) 138393.