単調負荷および繰返し負荷により生じる 単結晶 Ni 基超合金の γ/γ' 組織形態変化[†]

阪 口 基 己* 高 島 秀 明*
林 弘 明* 岡 崎 正 和**

γ/γ' Microstructural Changes Induced by Monotonic and Cyclic Loadings in a Single Crystal Ni-Base Superalloy

by

Motoki SAKAGUCHI*, Hideaki TAKASHIMA*, Hiroaki HAYASHI* and Masakazu OKAZAKI**

This paper focused on microstructural changes in a single crystal Ni-base superalloy, CMSX-4, induced by external loadings. It was shown by a series of experiments that an application of the monotonic straining at R.T. and the subsequent heat treatment at high temperature resulted in a directional coarsening of γ/γ' microstructure, similar to “rafted structure” by creep. A critical strain was found to be needed to build up the microstructural change. The coarsening directions were significantly depending on the histories of straining. Not only monotonic but also cyclic loadings at R.T. and elevated temperatures could induce the similar changes in microstructure. These series of experimental works provide us a new method for failure and damage analysis of superalloy components.

Key words: Single crystal Ni-base superalloy, γ/γ' microstructures, Rafting, Monotonic loading, Cyclic loading, Intercept method, Damage detection

1 緒 言

単結晶 Ni 基超合金は、 $\text{Ni}_3(\text{Al}, \text{Ti})$ を基本とする立方体状の γ' 相を γ 母相中に均一、且つ、微細に整合析出させることによって強化した析出強化型合金であり、高温領域において非常に優れたクリープ・疲労特性を発揮することから、先進ガスタービンの動静翼材として実用化がすすめられている。しかし、その一方で、使用条件如何によってはこの均一な組織が変化し、これによって材料の強度特性も大きく変化するという問題点を持つ。¹⁾

単結晶 Ni 基超合金における γ/γ' 組織変化としては、クリープ過程でのラフティング現象がよく知られている。^{2)~7)} ラフティングとは、材料に加わる負荷応力や γ/γ' 間の格子ミスフィットの影響で、負荷軸と垂直な方向、あるいは、平行な方向に組織が一樣に粗大化する現象である。^{2)~5)} その組織形態により材料のクリープ強度が大きく変化することが興味を引き、従来から活発な議論が行われてきた。^{2)~7)} 一般に、 γ/γ' 間格子ミスフィットが負の超合金の場合 (γ' 相の格子定数が γ 相のそれより小さい場合)、引張クリープによって負荷軸と垂直な方向に、圧縮クリープによって負荷軸と平行な方向に粗大化が生じると認識されており、これは多くの解析によっても説明がなされている。^{2)~7)} 一方、単結晶 Ni 基超合金は、ガスタービン高温部材として使用される場合、遠心力によるクリープに加え、機械的振動による高サイクル疲労、それが冷却孔などの応力集中部で起きることによる低サイクル疲労、

さらには熱応力と外力との重畳によって生じる熱機械疲労など各種の高温疲労環境下におかれる。⁸⁾ 部材の信頼性確保のためには、これらの力学的環境が γ/γ' 組織に及ぼす影響を定量的に評価することが工業的にも重要となっている。しかし、既存の研究の多くは、クリープ条件下でのラフティング現象を対象としており、一般の力学場や負荷履歴が与える影響^{9)~11)} さらには、高温環境下での疲労負荷が与える影響¹²⁾ などについて系統的に検討している研究は数少ない。

本研究では、大きく区分して三つの負荷、すなわち、(i) 室温、および、高温にて種々のレベル・方向・履歴を持つ塑性ひずみを導入した場合、(ii) 高温での応力制御の疲労負荷を与えた場合、(iii) 高温でのひずみ制御の疲労負荷を加えた場合の超合金微細組織に注目し、負荷とその履歴、および、温度環境が γ/γ' 微細組織の変化に与える影響を検討した。

2 実験方法

本研究では、単結晶 Ni 基超合金の γ/γ' 微細組織変化に焦点を当て、(i) 室温、900℃における単調負荷、および、その履歴が及ぼす影響、(ii) 1000℃での応力制御の疲労負荷ならびにクリープ疲労負荷が与える影響、(iii) 900℃でのひずみ制御の疲労負荷が与える影響を検討した。本研究で行った試験条件を総括して Table 1 に示す。以下にこの実験プログラムの詳細と手法を記述する。

[†] 原稿受理 平成 18 年 5 月 11 日 Received May 11, 2006 ©2007 The Society of Materials Science, Japan

* 学生会員 長岡技術科学大学大学院 〒940-2188 長岡市上富岡町, Graduate Student, Nagaoka Univ. of Tech., Tomioka-cho, Nagaoka, 940-2188

** 正 会 員 長岡技術科学大学工学部機械系 〒940-2188 長岡市上富岡町, Dept. of Mech. Eng., Nagaoka Univ. of Tech., Tomioka, Nagaoka-cho, 940-2188

Table 1 Summary of loading conditions.

No.	Loading history			Loading Temp.	Loading mode
	Step 1	Step 2	Step 3		
1	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = -1\%$	—	—	R.T.	Monotonic
2	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = -3\%$	—	—		
3	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = -6\%$	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = +3\%$	—		
4	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = +3\%$	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = -6\%$	—		
5	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = -3\%$	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = +3\%$	—		
6	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = -3\%$	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = +3\%$	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = -3\%$		
7	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = -1\%$	—	—	900°C	
8	$\varepsilon_{\theta}(\mathbf{a}) = -3\%$	—	—		

No.	Stress or strain range	Stress or strain ratio	Frequency (Hz)	Hold time	Temp.	Loading mode
9	$\Delta \sigma = 200$ (MPa)	$R_{\sigma} = 0$	1/630	600(sec) on tensile side	1000°C	Stress Controlled cyclic loading
10	$\Delta \sigma = 400$ (MPa)	$R_{\sigma} = -1$	1/1260	600(sec) on tensile & 600(sec) on compression side		
11	$\Delta \sigma = 200$ (MPa)	$R_{\sigma} = 0$	1/30	—		
12	$\Delta \sigma = 400$ (MPa)	$R_{\sigma} = -1$	1/60	—		
13	$\Delta \varepsilon = 1.2\%$	$R_{\varepsilon} = 0$	1/600	—	900°C	Strain controlled cyclic loading

2・1 単調負荷あるいは準単調負荷

2・1・1 試験体 供試材は前報⁷⁾で用いたものと同様の単結晶 Ni 基超合金 CMSX-4 である。この材料は、溶体化、時効処理を施すと γ 母相中に立方体形状の γ' 相が $\langle 001 \rangle$ 方向に規則的に整合析出した構造となる (Fig. 1)。この段階で材料中に含まれる γ' 析出物の大きさは約 0.55 μm 、体積率は約 65% であり、 γ/γ' 相の間には格子定数の差に起因した負のミスフィットが存在するとされている。¹⁾

この CMSX-4 の丸棒形状素材から外径 14mm、内径 8mm、厚さ 5mm の円管状試験体を切り出した。これら試験体は、厚さ方向が素材の $[001]$ 方位に対して ± 5 度以内となるように切り出している。なお、形状を円管状にすることにより、

- 一つの試験体で引張・圧縮の分布を持ったひずみを同時に加えることができる。(2・1・2 項参照)
 - 形状が軸対称であるためひずみの評価が容易である。
 - 繰返しひずみを導入することが比較的容易である。
 - 4 点曲げ試験と比較して、高周波加熱装置を用いた均一な加熱が容易である。
- といった利点が生じる。

2・1・2 ひずみの導入 前項で作成した円管状試験

体に対して、室温、および、900°C において 2 つの方向から圧縮負荷を加え、塑性ひずみを導入した。それぞれの負荷方向を Fig. 2 (a) (b) に模式的に示す。ここで、負荷方向 X、および、Y は、それぞれ $[100]$ 、 $[010]$ 方位に対して ± 5 度以内になるようにしている。方向 Y (Fig. 2 (a)) から圧縮負荷を加えた場合、円管状試験体の外周部 (Fig. 2 (a) 中領域 a) には圧縮、内周部 (領域 c) には引張の最大主ひずみが生じることになる。方向 X (Fig. 2 (b)) から負荷を加えた場合はその主ひずみ方向が反転する。本稿では、円管の最外周部である領域 a に生じる最大塑性フープひずみ ($\varepsilon_{\theta}(a)$) を目安として負荷を加えた。ここで $\varepsilon_{\theta}(a)$ はその定義に従って次式により簡便評価した。

$$\varepsilon_{\theta}(a) \approx \frac{u}{d_0} \quad (1)$$

式 (1) 中の u は負荷方向の非弾性変形量、 d_0 は変形前の試験体直径である。ひずみ導入時のひずみ速度は $\dot{\varepsilon}_{\theta}(a) \approx 2.0 \times 10^{-4}$ (1/s) とした。

(1) 単調負荷試験

導入する塑性ひずみの大きさと方向が γ/γ' 微細組織に与える影響を検討するため、以下の試験を行った (Table 1 参照)。

Fig. 1 Original γ/γ' microstructure of CMSX-4.

Fig. 2 Schematic illustration for strain fields induced by compressive loading from two directions, (a) Direction X and (b) Direction Y.

Fig. 3 Schematic illustration for strain histories applied to the Specimen 2 ~ 6.

<試験片 1> Y 方向負荷により $\varepsilon_{\theta}(a) = -1\%$ のひずみを導入,

<試験片 2> 試験片 1 とは異なる大きさのひずみ $\varepsilon_{\theta}(a) = -3\%$ を導入.

(2) 逆負荷試験

ひずみの履歴, および, ひずみの総和が微細組織に与える影響を検討するため, 一方向から負荷を加えた後に, 逆負荷を加える以下の試験を行った. それぞれ,

<試験片 3> Y 方向負荷により $\varepsilon_{\theta}(a) = -6\%$ のひずみを導入後, X 方向負荷により $\varepsilon_{\theta}(a) = +3\%$ のひずみを導入,

<試験片 4> $\varepsilon_{\theta}(a) = +3\%$ のひずみを導入後, $\varepsilon_{\theta}(a) = -6\%$ のひずみを導入,

<試験片 5> $\varepsilon_{\theta}(a) = -3\%$ のひずみを導入後, $\varepsilon_{\theta}(a) = +3\%$ のひずみを導入,

<試験片 6> $\varepsilon_{\theta}(a) = -3\%$ のひずみを導入後, $\varepsilon_{\theta}(a) = +3\%$ のひずみを導入し, さらに $\varepsilon_{\theta}(a) = -3\%$ のひずみを導入

となっている. 理解のため, 試験片 2 ~ 6 に対するひずみ導入過程を Fig. 3 に模式的に示す.

(3) 高温単調負荷試験

ひずみを導入する際の温度を 900°C とした以下の試験を行った. それぞれ,

<試験片 7> 試験片 1 と同じひずみ ($\varepsilon_{\theta}(a) = -1\%$) を 900°C において導入,

<試験片 8> 試験片 2 と同じひずみ ($\varepsilon_{\theta}(a) = -3\%$) を 900°C において導入.

となっている.

2・1・3 組織観察 以上の負荷により塑性ひずみを加えた試験体に, $1080^{\circ}\text{C} \times 20\text{h}$ の後熱処理を施し, これら一連の工程によって生じる γ/γ' 組織の変化を電子顕微鏡 (SEM) を用いて観察した. 観察領域は Fig. 2 に示した領域 a, b, c とした. 各領域は, それぞれ, 試験片の最外周部, 肉厚中心部, 最内周部に対応している.

2・2 応力制御下での疲労負荷

2・2・1 試験片 供試材は 2・1 節と同様に単結晶 Ni 基超合金 CMSX-4 である. この CMSX-4 から, 試験片軸方向が $\langle 001 \rangle$ 方向に対して ± 5 度以内となるよう平滑丸棒試験片を機械加工し疲労試験片とした. 評点部は直径 4mm, 長さ 10mm である.

2・2・2 応力制御下の疲労負荷 加える単軸疲労負荷の応力範囲, 応力比, および, 引張・圧縮保持が超合金組織に与える影響を検討するため, 1000°C において, 以下の単軸応力制御の疲労負荷を加えた (Table 1).

<試験片 9> 応力範囲 $\Delta\sigma = 200$ (MPa), 最大引張時に 10(min) の保持を持たせた台形波状片振り引張型 ($R_{\sigma} = 0$) のクリープ疲労負荷,

<試験片 10> 応力範囲 $\Delta\sigma = 400$ (MPa), 最大引張時, および, 最大圧縮時に 10 (min) ずつの保持を持たせた完全両振り型 ($R_{\sigma} = -1$) クリープ疲労負荷,

<試験片 11> 応力範囲 $\Delta\sigma = 200$ (MPa), 片振り引張型 ($R_{\sigma} = 0$) の疲労負荷,

<試験片 12> 応力範囲 $\Delta\sigma = 400$ (MPa), 完全両振り型 ($R_{\sigma} = -1$) の疲労負荷.

これらの疲労負荷は, いずれも, 全負荷時間にして 150h 経過するまで繰返した. この時間は後述するひずみ制御型疲労試験における破損までの試験時間 (約 170h) に対応させたものである. 負荷終了後, 負荷方向と平行な面が観察できるように切り出し, 研磨・腐食後に SEM を用いて組織を観察した. 組織観察は, 疲労負荷を加えた直後の試験片と, その後 $1080^{\circ}\text{C} \times 20\text{h}$ の後熱処理を施したものに対して行った.

2・3 ひずみ制御下の疲労負荷

2・3・1 試験片 2・2 節と同様, 試験片軸方向が $\langle 001 \rangle$ 方向に対して ± 5 度以内となるよう CMSX-4 製の平滑丸棒試験片を機械加工し疲労試験片とした. 評点部は直径 6.5mm, 長さ 20mm である.¹³⁾

2・3・2 ひずみ制御下の疲労負荷の導入 応力制御の繰返し負荷を受けた場合の微細組織変化と, ひずみ制御の繰返し負荷を受けた場合の違いを検討するため, 900°C において以下のひずみ制御の疲労負荷を与えた (Table 1).

<試験片 13> ひずみ範囲 $\Delta\varepsilon = 1.2\%$, 片振り引張型 ($R_{\varepsilon} = 0$) の疲労負荷.

なお, ひずみ速度は $\dot{\varepsilon} = 3.3 \times 10^{-5} (1/\text{s})$ とした. 負荷は破損寿命に至るまで行い, 破損後の試験片評点部を, 負荷方向と平行な面が観察できるように切り出し, 組織を観察した. 詳細は 2・2・2 項と同様である.

3 実験結果

3・1 単調負荷による組織変化 試験片 1 ~ 8 において観察された微細組織を総括して Fig. 4 に示す.

3・1・1 組織変化に及ぼすひずみの方向と大きさの影響 試験片 1 ($\varepsilon_{\theta}(a) = -1\%$ のひずみを導入したもの), および, 試験片 2 ($\varepsilon_{\theta}(a) = -3\%$ のひずみを導入したもの)

	Loading Histories	Region a	Region b	Region c
Specimen 1	$\varepsilon_{\theta}(a)=-1\%$	(a)	(b)	(c)
Specimen 2	$\varepsilon_{\theta}(a)=-3\%$	(d)	(e)	(f)
Specimen 3	$\varepsilon_{\theta}(a)=-6\%$ ↓ $\varepsilon_{\theta}(a)=+3\%$	(g)	(h)	(i)
Specimen 4	$\varepsilon_{\theta}(a)=+3\%$ ↓ $\varepsilon_{\theta}(a)=-6\%$	(j)	(k)	(l)
Specimen 5	$\varepsilon_{\theta}(a)=-3\%$ ↓ $\varepsilon_{\theta}(a)=+3\%$	(m)	(n)	(o)
Specimen 6	$\varepsilon_{\theta}(a)=-3\%$ ↓ $\varepsilon_{\theta}(a)=+3\%$ ↓ $\varepsilon_{\theta}(a)=-3\%$	(p)	(q)	(r)
Specimen 7	$\varepsilon_{\theta}(a)=-1\%$ at 900C°	(s)	(t)	(u)
Specimen 8	$\varepsilon_{\theta}(a)=-3\%$ at 900C°	(v)	(w)	(x)

Fig. 4 Microstructure of Specimen 1 ~ 8 after heat treatment at 1080°C. Arrows in figures represent the principle strain directions.

においては、Y 方向から負荷を加えたため、領域 a, b, c には、Fig. 2 に模擬的に示すような方向に最大主塑性ひずみが生じることになる。室温において塑性ひずみを加えた後に後熱処理を施すことによって生じる γ/γ' 組織変化が、クリープひずみによって発現するラフティングと同じ傾向を持つと仮定すると、本研究で用いている

CMSX-4 は負のミスフィットを持つ超合金であるため、¹⁾ 圧縮塑性ひずみ状態となる領域 a では圧縮方向に平行なラフト、ニュートラルな領域 b では変化無し、引張塑性ひずみ状態となる領域 c では引張方向に垂直なラフト組織が発現すると予測できる。^{3)~7)}

実際に、後熱処理を加えた後に観察された組織を Fig. 4

に示す。Fig. 4 (a)～(f)より、試験片 1, 2 とともに、上述の予測に従った方向へのラフト組織が形成されていることがわかる。これは、塑性ひずみの符号がラフト組織の方向を決定するというを示している。また、この結果は、単軸負荷によるラフト組織の発現を扱った文献の結果^{9)～11)}とも一致している。

一方、 $\epsilon_\theta(a) = -3\%$ のひずみが導入された試験片 2 においては顕著なラフト組織が形成されているが (Fig. 4 (d), (f)), $\epsilon_\theta(a) = -1\%$ のひずみが導入された試験片 1 の場合においては、十分発達したラフティングが観察されない (Fig. 4 (a), (c))。このことは、組織変化の発現に対して塑性ひずみの大きさが重要な役割を果たしており、十分なラフト組織の形成には最低約 1% 以上の大きさの塑性変形が必要であることを示唆している。これら塑性ひずみの大きさとラフト組織の完成度の間の関係は、単軸の引張塑性ひずみによりラフト組織を形成させた Henderson らの結果¹¹⁾とよく一致している。これより、本研究で用いた寸法の円管試験体を用いることにより、単軸引張・圧縮試験とほぼ等価な結果が得られると考えられる。一方、クリープ環境下においては、0.1% 程度のクリープひずみによって十分なラフト組織が形成されることを鑑みると^{3)～5)}室温にて加える塑性ひずみとクリープ環境下において生じるクリープひずみでは、ラフト組織の形成への寄与に相違があることが考えられる。

3・1・2 組織変化に及ぼすひずみ履歴の影響 試験片 3 は、 $\epsilon_\theta(a) = -6\%$ のひずみを加えた後に、 $\epsilon_\theta(a) = +3\%$ のひずみを与えたもの、試験片 4 は、 $\epsilon_\theta(a) = +3\%$ のひずみを加えた後に、 $\epsilon_\theta(a) = -6\%$ のひずみを与えたものである。2 回の負荷により加えられる塑性ひずみの総和は両者で等しいため、その比較により、塑性ひずみの履歴が組織変化に与える影響を検討することが可能となる。

試験片 3 における組織を Fig. 4 (g)～(i)に、試験片 4 の組織を Fig. 4 (j)～(l)に示す。領域 a (Fig. 4 (g), (j))、および、領域 c (Fig. 4 (i), (l))の微細組織を比較すると、ともに十分に発達したラフト組織が見られるが、その伸張方向は反対である。この方向は、試験片 3, 4 とともに最終過程で導入したひずみ (試験片 3 の場合、 $\epsilon_\theta(a) = +3\%$ 。試験片 4 の場合、 $\epsilon_\theta(a) = -6\%$) のみによって形成されるものと同じ方向である。興味深いのは、試験片 3 において、2 番目に導入したひずみの方が最初に導入したひずみよりも小さいにも関わらず、発現したラフトの方向が 2 番目に導入したひずみの影響を強く受けている点である。換言すると、これらの結果は、塑性ひずみの履歴、特に最終履歴がラフト組織の方向に対して重要であり、初期状態を原点としたひずみの絶対値は微細組織に対しては大きな影響を及ぼさないということを示している。ただし、試験片 4 においては顕著なラフト組織が形成されているのに対して、試験片 3 においてはやや崩れかかった不均一に粗大化したラフト組織が形成されている。このことは、ラフト化はひずみの最終履歴に強く影響を受けるが、その一方で、ラフト組織の完成度に対してはそれ以前の履歴の影響も無視することができないというこ

とを示している。

試験片 5、および、6 は同一の大きさの塑性ひずみを異なる回数繰返し導入した試験片である。この 2 つの試験片の微細組織を Fig. 4 (m)～(r)に示す。前述の試験片 3, 4 の結果と同様に、その微細組織はひずみの最終履歴に強く影響を受けた様相を呈している。また、2 つの試験片とも、規則性の高いラフト構造を示しており、ラフト発現の程度に大きな違いは無い。このことは、同程度のひずみを数回加えた程度では、ラフト構造の形成に対して大きな影響がないことを示している。

3・1・3 組織変化におよぼす温度の影響 試験片 7, 8 は、900℃において、それぞれ、 $\epsilon_\theta(a) = -1\%$ 、 $\epsilon_\theta(a) = -3\%$ の塑性ひずみを加えたものである。これら試験片 7, 8 と前述の試験片 1, 2 を比較することにより、ひずみを導入する際の温度が組織変化に及ぼす影響を検討することが可能となる。

試験片 7, 8 の領域 a～c において観察された組織を Fig. 4 (s)～(x)に示す。試験片 7 (Fig. 4 (s)～(u)) においては、常温において $\epsilon_\theta(a) = -1\%$ の塑性ひずみを加えた場合 (：試験片 1；Fig. 4 (a) (c)) と同方向への若干のラフト化が見られる。試験片 8 の領域 a, c においては (Fig. 4 (v), (x))、明確なラフト組織が形成されており、この場合も、その方向は室温にて同様の塑性ひずみを加えたもの (：試験片 2；Fig. 4 (d) (f)) と同じである。単結晶超合金の場合、その塑性変形挙動が温度に強く依存するため¹⁾組織変化もひずみを与える温度に大きく依存する可能性が考えられたが、ひずみ速度が $\dot{\epsilon} = 2.0 \times 10^{-4}$ (1/s) と比較的大きい今回の試験条件においては、 γ/γ' 組織変化に相違をもたらすほどの影響はなかったと言える。

3・2 応力制御型疲労負荷による組織変化

応力制御型の疲労負荷を加えた試験片 9～12、および、ひずみ制御型の疲労負荷を加えた試験片 13 において、150 時間の繰返し負荷を与えた後の組織、および、その後さらに 1080℃ × 20h の熱処理を加えた後の組織を総括して Fig. 5 に示す。

Fig. 5 (a)～(d)は、それぞれ試験片 9、および、10 の組織である。試験片 9 は最大引張荷重時に 10 (min) の保持を持たせた片振り引張型 ($R_\sigma = 0$)、試験片 10 は最大引張荷重時、および、最大圧縮荷重時にそれぞれ 10 (min) の保持を持たせた完全両振り型 ($R_\sigma = -1$) のクリープ疲労負荷を加えたものである。試験直後の段階で、試験片 9 においては、負荷軸と垂直な方向に伸張した顕著なラフト組織が形成されており (Fig. 5 (a))、試験片 10 においては、負荷軸に対して垂直、および、平行な方向にランダムな粗大化が生じている (Fig. 5 (c))。これは、試験片 9 では保持中のクリープ変形が引張側でのみ生じたのに対し、試験片 10 では引張側、圧縮側両方にてクリープ変形が進行したことに起因していると考えられる。なお、これらの組織は 1080℃ × 20h の後熱処理を加えた後にもほとんど変化は見られない (Fig. 5 (b), (d))。このことは、150 時間のクリープ疲労負荷の間に拡散を伴う組織変化の素過程がほぼ完了し、熱力学的に安定な状態になっている

Fig. 5 Microstructures of Specimens 9 ~ 13. Arrows denote the uni-axial loading directions.

たことを示唆している。

保持を持たない疲労負荷を加えた試験片 11, および, 12 の組織を Fig. 5 (e)~(h) にそれぞれ示す。試験片 11 は応力範囲 $\Delta\sigma = 200$ (MPa) の片振り引張型 ($R_\sigma = 0$)、試験片 12 は応力範囲 $\Delta\sigma = 400$ (MPa) の完全両振り型 ($R_\sigma = -1$) のものである。疲労負荷後の段階で、双方の試験片ともにある程度の粗大化が生じている。試験片 11 では、負荷軸に対して垂直な方向への粗大化が主体であるのに対して (Fig. 5 (e)), 試験片 12 では、負荷軸に垂直、および、平行な方向への粗大化が混合した様相を呈している (Fig. 5 (g))。これらの粗大化方向は保持を持たせた試験片 9, 10 のものと一致しているが、その粗大化の程度は小さい。この相違は、試験中の引張保持、あるいは、圧縮保持の有無によるものであると言える。換言すると、負荷される応力レベルや高温環境にさらされる総時間が同じであっても、その期間中に生じるクリープ変形の度合いによって組織変化の進展に大きな差が生じると言える。一方、これら試験片 11, 12 に対して後熱処理を加えると、試験片 11 においては負荷軸と垂直な粗大化が (Fig. 5 (f)), 試験片 12 においては 2 方向への粗大化がより顕著になり (Fig. 5 (h)), それぞれ、試験片 9, 10 の組織と類似したものに变化した。これより、疲労が支配的な環境下での組織変化は、後熱処理を施すことによって初めて安定な状態になると言えるであろう。

3・3 ひずみ制御型疲労負荷による組織変化

試験片 13 は、900℃、ひずみ制御下において、ひずみ範囲 $\Delta\epsilon = 1.2\%$ 、片振り引張型 ($R_\epsilon = 0$) の疲労負荷を与えたものである。負荷サイクル中は片振り引張のひずみが加えられるが、応力状態は定常サイクル時においてほぼ両振り状態であった。¹³⁾なお、この試験片は 1060 サイクル (全負荷時間約 170h) で破損寿命に至った。¹³⁾

破損に至った後の試験片 13 の負荷軸と平行な断面に見られる組織を Fig. 5 (i), (j) に示す。試験後の組織においては、負荷軸に対して垂直、および、平行な方向への γ' 相の粗大化が生じている (Fig. 5 (i))。わずかなラフト化が生じているのは、ひずみ速度が 3.3×10^{-5} (1/s) と小さいために疲労負荷中にある程度のクリープ変形が起きたことに、そしてまた、二つの方向に粗大化が生じているのは、引張・圧縮の両振り負荷を受けたことに起因していると考えられる。一方、疲労負荷後に後熱処理を加えた組織は、熱処理前に生じていた 2 方向への組織の粗大化がより進行した様相を呈している (Fig. 5 (j))。これより、ひずみ速度が 3.3×10^{-5} (1/s) と比較的小さい場合においても、繰返し負荷中に組織が安定な状態になることはなく、後熱処理を加えて初めて安定な組織に到達することがわかる。

4 考 察

第 3 章においては、 γ/γ' 組織の形態変化を議論するにあたり、ラフト化や粗大化の程度を視覚的な印象を用いて定性的に比較した。このような視覚的な判断によっても、例えば、「Fig. 4 (f) の組織は Fig. 4 (c) に比べてラフト化が顕著である」、あるいは、「Fig. 4 (g) のラフト組織は Fig. 3 (f) のそれより粗大である」といった議論は可能である。しかし、そのラフト化の顕著さや粗大化の程度に対して負荷様式や後熱処理が与える影響を系統的に抽出するためには、なんらかの数的指標を用いた定量的な評価が望まれる。本節では、 γ/γ' 組織の形態変化に対し、結晶粒度測定法と同様の方法を適用し、その異方性にも注目しながら第 3 章で示したいくつかの組織に対する定量評価を試みた。

単結晶超合金における組織の形態変化を表す指標の一つとして、 γ' 析出物のアスペクト比がよく用いられる。

一般に、アスペクト比 (α) は、Fig. 4 や Fig. 5 のような断面組織写真を用い、任意選択領域内の γ' の最大主ひずみ方向の長さ (c) とそれと垂直な方向の長さ (a) の比率 ($\alpha = c/a$) の平均をもって表される。この手法により、ラフト化の有無やその伸張方向に対するある程度の評価が可能となる。しかし、伸張方向は同じであるがラフト組織の緻密さに違いがあるものの比較 (例えば Fig. 4 (f) と (g) との比較) や、二方向に組織が伸張したもの (Fig. 5 (d) や (i)) に対する評価が困難であり、本研究で観察された組織の指標としては適さない。

本研究では、インターセプト法に則り、Fig. 4, 5 に示した断面組織写真を用い、その中に含まれる最大主ひずみ方向に対して垂直な γ 母相と平行な γ 母相の数、および、その比率をもって組織変化の評価を行った。具体的手順としては、Fig. 6 に示すような $15\mu\text{m} \times 15\mu\text{m}$ の組織写真に対し、主ひずみ方向に対して垂直および平行に $0.5\mu\text{m}$ 間隔で 30 本の直線を引き、それぞれの直線が γ 相と交わる回数を数えた。それらの合計値をそれぞれ H , V とする。

これら手順に従い、第 3 章で示した試験片 1~4, 9~11 の組織を数値化した結果を Table 2 に示す。ここで、各試験片における V , H の値は、初期組織 (Fig. 1) における実測値 (V_0 , H_0) により標準化している。これら V/V_0 , H/H_0 の値、および、その相対比 ($R = \log \{(V/V_0)/(H/H_0)\}$) により、 γ/γ' 組織の形態変化における以下の特徴が表現可能となる。

(i) ラフト化の方向とその程度について

初期組織 (Fig. 1) においては $R = 0$ となるのに対して、主ひずみ方向に対して垂直な方向に伸張した組織の場合は $R < 0$ 、平行な方向に伸張した組織の場合は $R > 0$ となっている。また、そのラフト化の程度に注目すると、例えば Fig. 4 (a) と (d), Fig. 4 (c) と (f), Fig. 5 (e) と (f) のようにラフト化の方向は同じであるが、その程度に視覚的な

相違が見られる場合、ラフト化が視覚的に顕著なものほど R の絶対値が大きい。すなわち、 R の符号と絶対値によりラフト組織の伸張方向とその程度が評価可能となる。

(ii) 粗大化の程度について

試験片 3 で観察された組織 (Fig. 4 (g), (i)) においては不均一な粗大化が生じており、他の組織と比較して γ 相、 γ' 相の平均サイズが大きい。Fig. 4 (g), (i) と同程度の R 値を持つ組織の中で V/V_0 , H/H_0 の値を比較すると、Fig. 4 (g), (i) のそれは他のものより明らかに小さい。すなわち、 V/V_0 , H/H_0 の値の大小を比較することにより、その組織における不均一な粗大化の程度について定量評価が可能になると言える。

以上の検討から、インターセプト法を適用することにより、 γ/γ' 組織のラフト化の方向とその程度、ならびに、不均一な粗大化の程度についての定量評価が可能となる。しかし、Fig. 5 (c) や (d) のように 2 方向にラフト化した組織においては $R \approx 0$ となるため、初期組織 (Fig. 1) と区別が付きにくく、アスペクト比を用いた場合と同様評価が困難となる。このため、現在、新しい評価手法を検討中である。

5 結 言

本研究では、単結晶 Ni 基超合金 CMSX-4 の γ/γ' 微細組織変化に焦点を当て、常温、および、高温環境下における単調負荷、ならびに、高温疲労負荷が γ/γ' 組織変化に及ぼす影響を金属組織的観点から考察するとともに、組織形態を数的に表す一つの指標を検討した。その結果、以下のことが明らかとなった。

- (1) 単結晶 Ni 基超合金に、常温にて単調負荷により塑性ひずみを加え、後熱処理を施すと、クリープ環境下で形成されるラフト組織と同様の組織変化が生じる。その組織の伸張方向は加えられた最大主ひずみの方向、大きさに強く依存する。
- (2) 高温疲労環境下においては、保持を持たせたク

Fig. 6 Schematic illustration showing how to analyze the γ/γ' microstructural morphology.

Table 2 Summary of the values of V/V_0 , H/H_0 and their relative ratios (R) in some microstructures in Fig. 4

Specimen number	Figure Number	Post heat treatment	V/V_0	H/H_0	$R = \log \left(\frac{V/V_0}{H/H_0} \right)$
Virgin	Fig.1	Done	1	1	0
Specimen 1	Fig.4(a)	Done	1.03	0.615	0.225
	Fig.4(c)	Done	0.558	1.23	-0.345
Specimen 2	Fig.4(d)	Done	0.906	0.315	0.459
	Fig.4(f)	Done	0.371	0.929	-0.399
Specimen 3	Fig.4(g)	Done	0.181	0.475	-0.417
	Fig.4(i)	Done	0.582	0.349	0.222
Specimen 4	Fig.4(j)	Done	1.07	0.456	0.37
	Fig.4(l)	Done	0.44	1.14	-0.415
Specimen 9	Fig.5(a)	No	0.321	1.23	-0.585
	Fig.5(b)	Done	0.297	1.21	-0.61
Specimen 10	Fig.5(c)	No	0.684	0.711	-1.66×10^{-2}
	Fig.5(d)	Done	0.644	0.651	-4.69×10^{-3}
Specimen 11	Fig.5(e)	No	0.561	1.11	-0.298
	Fig.5(f)	Done	0.345	1.06	-0.488

リープ疲労負荷の場合は負荷中に組織変化が生じるのに対して、保持を持たない疲労負荷の場合は負荷中に顕著な組織変化は生じない。しかし、後者の場合でも、負荷後に後熱処理を施すことにより前者の場合と同様の組織変化が生じる。

(3) 従来までの粒度測定用インターセプト法を適用することにより、1), 2)で示した γ/γ' 組織変化とその程度をある程度定量評価することができる。

以上の結果をさらに定量化し、また、工学的観点から逆に応用すると、 γ/γ' 組織の形態を解析することにより、単結晶 Ni 基超合金が受けた損傷、あるいは、おかれた温度や力学場がある程度予測可能になると期待される。¹⁴⁾ 今後はこのような観点から検討を進めたい。

本研究の遂行にあたり平成 17 年度科学研究費補助金(特別研究員奨励費 #1705454)、ならびに、平成 15 年度科学研究費(#15360046)の援助を受けた。関連各位に謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) H. Harada and M. Okazaki, "High temperature strength of Ni-based superalloys and coatings for advanced gas turbines", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.51, No.7, pp.836-842 (2002).
- 2) M. Doi and T. Miyazaki, "Shape bifurcations in the coarsening of precipitates in elastically constrained systems", *Bulletin of the Japan Institute of Metals*, Vol.28, No.6, pp.467-474 (1989).
- 3) H. Feng, H. Biermann and H. Mughrabi, "Computer simulation of the initial rafting process of a Nickel-base single crystal superalloy", *Metallurgical and Materials Transactions A*, Vol.31A, pp.585-597 (2000).
- 4) F. R. N Nabbaro, "Rafting in superalloy", *Metallurgical and Materials Transactions A*, Vol.27A, pp.513-530 (1996).
- 5) T. M. Pollock and A. S. Argon, "Directional coarsening in nickel-base single crystals with high volume fractions of coherent precipitates", *Acta Metallurgica et Materialia*, Vol.42, No.6, pp.1859-1874 (1994).
- 6) S. Socrate and D. M. Parks, "Numerical determination of the elastic driving force for directional coarsening in Ni-superalloy", *Acta Metallurgica et Materialia*, Vol.41, No.7, pp.2185-2209 (1993).
- 7) M. Sakaguchi and M. Okazaki, "Micromechanics approach to the morphology of cellular microstructure in single crystal Ni-based superalloy", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.54, No.2, pp.122-129 (2005).
- 8) H. L. Bernstein, T. S. Grant, R. C. McClung and J. M. Allen, "Prediction of thermal-mechanical fatigue life for gas turbine blades in electric power generations", *ASTM STP*, pp.212-238 (1993).
- 9) M. Fahrman, E. Fahrman, O. Paris, P. Tratzl and T. M. Pollock, "An experimental study of the role of plasticity in the rafting kinetics of a single crystal Ni-base superalloy", *Superalloy 1996*, pp.191-210 (1996).
- 10) M. Veron and P. Bastie, "Strain induced directional coarsening in Ni-based superalloys ; Investigation on kinetics using the small angle neutron scattering technique", *Acta Materialia*, Vol.45, No.8, pp.3277-3282 (1997).
- 11) P. Henderson, L. Berglin and C. Jansson, "On rafting in a single crystal Ni-base superalloy after high and low cycle temperature creep", *Scripta Materialia*, Vol.40, No.2, pp.229-234 (1999).
- 12) V. Brien and B. Decamps, "Low cycle fatigue of a nickel based superalloy at high temperature", *Material Science and Engineering A*, Vol.316, pp.18-31 (2001).
- 13) M. Sakaguchi and M. Okazaki, "High temperature fatigue life analysis of single crystal Ni-base superalloys considering γ/γ' microstructure", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.55, No.3, pp.309-316 (2006).
- 14) Y. Yoshioka, N. Okabe, D. Saito, K. Fujiyama and T. Okamura, "Service temperature estimation for gas turbine buckets based on microstructure change", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.45, No.6, pp.699-704 (1996).