W-Re 合金の高温破壊じん性[†]

武 藤 睦 治* 市 川 国 弘** 永 田 晃 則***

Fracture Toughness at High Temperature of Tungsten-Rhenium Alloys

by

Yoshiharu MUTOH*, Kunihiro ICHIKAWA** and Kohsoku NAGATA***

Fracture toughness tests of tungsten and tungsten-rhenium alloy were carried out at elevated temperatures. The effect of rhenium content on fracture toughness and the temperature dependence of fracture toughness were investigated. Fracture surface were observed in detail. Although the fracture toughnesses of three kinds of materials with rhenium of 0, 5 and 10 wt% were almost identical at room temperature, the materials with higher rhenium content had the higher fracture toughness at elevated temperatures. The brittle-ductile transition similar to that of steels and the ductile-brittle transition at which recrystallization occurred, were observed for all three kinds of materials. With an increase of rhenium content, the brittle-ductile transition temperature decreased and the ductile-brittle transition temperature increased. A significant grain growth in the temperature range higher than the recrystallizing temperature, which was observed in the tungsten material without rhenium, was not found in the tungsten-rhenium alloy materials.

Key words: Fracture, Fracture toughness, Fractography, High temperature, Tungsten alloy

1 緒 言

タングステンは他の金属に比べ融点が非常に高く(約 3683K)、高温特性に優れており、航空宇宙や原子力などの広い分野の耐熱構造材料として利用されつつある。タングステンは低温においては降伏応力が高く、伸び、絞り小さい低じん性材として知られている。また、高温においても再結晶により粒成長を生じ、ぜい化することが知られている。したがってタングステンを構造材として使用するには、その延性およびじん性の改善が重要な問題となる。タングステンの延性を改善する方法として結晶粒微細化や粒界不純物の除去などに効果を示す Re, Tc などの VIIa 族元素, Ru, Os などの VIII 族元素, 他に Ti, Co などの固溶元素の少量添加が挙げられる^{1), 2)}。なかでも Re を添加した W-Re 合金は、延性-ぜい性遷移温度が低下し、延性が著しく改善され、例えば W-25% Re 合金の延性は約 2270K で 260% にも達することが Garfinkle らにより報告されている。しかし、このようなタングステンおよびタングステン合金の強度や破壊じん性の高温における温度依存性や破壊機構などの基本的特性は、ほとんど検討されていないのが現状である。

著者は前報⁴⁾において、タングステンの高温破壊じん性試験を行い、破壊じん性値および破壊機構の温度

依存性について調べ、基本的な破壊特性を明らかにした。本研究では、引き続き Re 含有量の異なる 2 種類のタングステン合金を製作し、室温から 1873K までの温度範囲でじん性試験を行い、延性改善のため Re を添加した場合の Re 含有量の破壊特性に及ぼす影響を調べた。

2 実 験 方 法

供試材は Re 含有量の異なる 90.0W-10.0Re (以下 W-10Re 材)、95.0W-5.0Re (W-5Re 材) および Re を含まずタングステンの焼結助剤である微量の Fe を添加した 99.9W-0.04Fe (W 材) の 3 種類の合金である。じん性試験片は、Fig. 1(a) および (b) に示すような側溝なしの標準試験片と側溝付試験片の 2 種類を用いた。試験片には、Bridge Compression 法 (BC 法)^{4), 5)} による予き裂導入の際の起点用として、深さが 0.25 mm の切欠きを放電加工 (EDM) により導入した。導入した EDM 切欠きの形状を Fig. 1(c) に示す。なお、側溝は BC 法で予き裂を導入した後、厚さ 0.8 mm の精密切断砥石を用い $(B-B_0)/B=0.25$ (B : 公称板厚, B_0 : 正味板厚) となるように加工した。導入した側溝の形状を Fig. 1(d) に示す。

じん性試験片の予き裂は前述のように、Fig. 2 にその概略を示す BC 法^{4), 5)}により導入した。予き裂導入に

† 原稿受理 平成 2 年 8 月 27 日 Received Aug. 27, 1990

* 正 会 員 長岡技術科学大学 長岡市上富岡町, Nagaoka University of Technology, Kamitomioka-cho, Nagaoka

** 学生会員 長岡技術科学大学大学院 長岡市上富岡町, Graduate Student, Nagaoka University of Technology, Kamitomioka-cho, Nagaoka

*** 正 会 員 (株)東芝電機技術研究所 横浜市鶴見区末広町, Toshiba Corp., Suehiro-cho, Tsurumi-ku, Yokohama

Fig. 1. Fracture toughness specimens.

は容量 245 kN のインストロン型万能試験機を用い、負荷速度 0.5mm/min、支持ブロック切欠き部スパン長さ 7 mm の条件で行った。ぜい性予き裂は圧縮荷重約 120 kN 程度になったとき発生し、予き裂長さは 4 ~ 6 mm、すなわちき裂長さ a と試験片幅 W の比で $a/W = 0.4 \sim 0.6$ 程度であった。導入した予き裂は別報に示したように鋭く、直線的であった。なお、予き裂長さは板厚方向に 4 等分した 3 点の平均値をとり、破断後に計測した。

三点曲げによる破壊じん性試験を室温から 1873K の温度範囲で行った。試験にはインストロン型万能試験機を用いスパン長さ 40 mm、クロスヘッド速度 0.5 mm/min の条件で ASTM E399 の基準に準じて行った。高温での試験には、試験機に取り付けた真空電気炉を使用し、炉内が所定の試験温度に達してから 15 分保持した後負荷を加えた。なお試験中は、試験温度

Fig. 2. Precracking by the BC method.

を $\pm 3K$ 以内に制御し、そのときの真空雰囲気は $(2 \sim 5) \times 10^{-6}$ Torr. 程度であった。

タングステンは低じん性材であり、低温においては K_{Ic} 評価が可能であるため、Fig. 1 (a) に示す標準試験片を用い、ASTM 規格中の次式⁶⁾を用いて K_{Ic} 値を求めた。

$$K_{Ic} = \sigma_f \cdot \sqrt{\pi a} \cdot f(\xi) \quad (1)$$

$$\sigma_f = 3P_f S / 2W^2 B$$

$$f(\xi) = [1.99 - \xi(1 - \xi)(2.15 - 3.93\xi + 2.7\xi^2)] / [\sqrt{\pi}(1 + 2\xi)(1 - \xi)^{3/2}]$$

ここで、 $\xi = a/W$ 、 B : 板厚、 S : スパン長さ、 P_f : 破断荷重である。また、高温になると K_Q 値が ASTM E399 の要件を満足しなくなり、 K_{Ic} 値による評価ができなくなるので、そのような領域では簡便 J_{Ic} 試験法により J_{Ic} 値を求めた。簡便 J_{Ic} 試験法は、適当な長さの予き裂と適当な深さの側溝を導入することにより、き裂発生点を最大荷重点に一致させ、最大荷重点から J_{Ic} 値を求めるという手法である。すなわち、Fig. 1 (b) に示す側溝付試験片を用い、最大荷重点までの荷重-変位曲線下の面積 A を求め次式により J_{Ic} 値を求める。

$$J_{Ic} = 2A / Be b \quad (2)$$

ここで、 b : リガメント長さ、 Be : 側溝付試験片の有効板厚 ($= \sqrt{B \cdot B_w}$)⁹⁾である。なお、荷重点変位の高温真空炉中での直接計測はできなかったため、予め試験片を除く試験装置の剛性を測定し、これを用いて炉外で測定した変位を引き直して荷重点変位とした。

じん性試験後、走査電子顕微鏡を用いて破面の詳細な観察を行った。

さらに、受入ままの試料および高温において 15 min 保持した後それを室温まで炉冷した試料の組織観察ならびに硬さ測定を行い、それらとじん性値および破壊形態との関連性を検討した。なお、硬さ測定にはビッカース硬度計を使用し、押付け荷重は 98N とした。

3 実験結果および考察

3.1 破壊じん性値の温度依存性

試験温度を室温から 1873K まで変化させたときの荷重-変位曲線の変化を W、W-5Re および W-10Re 材についてそれぞれ Fig. 3、4 および 5 に示す。いずれの場合とも荷重-変位曲線は低い温度領域では 5% 減セカント線の範囲内で不安定破壊を生じた。試験温度の増加とともに非線形挙動を示すようになり、荷重-変位曲線の形態の点からは、Fig. 1 (a) に示す標準試験片を用いて K_{Ic} 試験を適用できる温度範囲は各試料とも室温から 900K 程度までであった。1000K 以上では弾塑性破壊じん性の扱いが必要となるため、Fig. 1 (b) に示す側溝付試験片を用いて簡便 J_{Ic} 試験法を適用

Fig. 3. Load-displacement curves for W specimens.

した。

以上のような破壊じん性試験結果より得られた K_{Ic} 値の温度依存性を Fig. 6 に示す。室温における K_{Ic} 値は W-5Re 材が約 $12 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ となり、W 材および W-10Re 材の約 $14 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ に比べやや低い値を示したが、各供試材ともほぼ同程度の値を示し、Re 含有量による差はあまり認められなかった。しかし、Re を添加した W-5Re 材および W-10Re 材の温度にともなう K_{Ic} 値の増加は Re を含まない W 材に比べ大きく、温度の増加にともない W 材との K_{Ic} 値の差は顕著になった。また、W-5Re 材と W-10Re 材は同様の温度依存性を示すが、全体的に W-10Re 材のほうが高い値を示しており、Re 含有量が多いほど高い K_{Ic} 値を示すと考えてよいようである。なお、室温で W 材の方が W-5Re 材より K_{Ic} 値が高かったのは、明確ではないが供試材製作時の鍛造比等の相違に基づく

ものと推察される。

J_{Ic} 値の温度依存性を Fig. 7 に示す。室温から 500K の温度領域においては、W-5Re 材および W-10Re 材の J_{Ic} 値は W 材に比べて低いが、これは Fig. 3, 4 および 5 の比較からわかるように、破断荷重はほぼ等しいのに対し、Re 添加によりヤング率が大幅に高くなり、供試材の剛性を増大させているためと考えられる。試験温度が 700K を越えると W-5Re および W-10Re 材の J_{Ic} 値は急激な増大を示し、W 材より高い値を示すようになる。しかし、W 材においても

*1 著者らのグループでは最近、高速度鋼について、BC 法予き裂材から求めた K_{Ic} 値は、それをスタートとして低 K_{Ic} で疲労予き裂を導入した試験片より求めた K_{Ic} 値に比べ低い値を示し、それが BC 法予き裂導入の際に予き裂前方に形成される微小き裂等によることを明らかにしている¹⁰⁾。本試験材のタングステン合金については、前報¹⁾の結果との比較もあり、疲労予き裂は導入しておらず、確認はできていないが、本実験で求めた K_{Ic} 値は若干低めの値を与えている可能性がある。

Fig. 4. Load-displacement curves for W-5Re specimens.

1100K を越えると J_{IC} 値が急激に増加した。このような J_{IC} 値の急激な増大は、この温度近傍で破壊挙動が不安定破壊から安定破壊へと遷移するためであり、鋼等で認められるいわゆるぜい性-延性遷移と同様の挙動と考えられる。W-5Re および W-10Re 材はこの遷移温度が W 材より低く、Re を添加することによりぜい性-延性遷移温度を低下させることができることがわかる。また、Re を添加することによりぜい性-延性遷移が明確に現われなくなることも特徴の一つと言える。

さらに高温になり W-5Re 材および W-10Re 材では 1300K, W 材では 1500K を越えると J_{IC} 値は再び低下を始めるが、W-5Re 材および W-10Re 材は W 材に比べ J_{IC} 値の低下は緩やかで、このような低下が明確でなくなる 1600K よりも高温においては Re 含有量が多い試料ほど高い J_{IC} 値を示した。

W-5Re 材の J_{IC} 値はいずれの温度領域においても

W-10Re 材より低い値を示すが、さらに W 材と比べても全体的に J_{IC} 値のレベルは低くなっており、特に 1300K 近傍でそれが顕著である。これは、Fig. 3 から 5 に示した各供試材の荷重-変位曲線の比較からわかるように W-5Re 材および W-10Re 材は W 材に比べ線形部のコンプライアンスが低く、最大荷重点までの変位は全体に小さい。これに対し最大荷重は Re 含有量に比例して大きくなる。したがって、ある程度 Re を添加してやらないとその荷重-変位曲線下の面積より決定される J_{IC} 値は Re を含まない W 材に比べ低い値をとることになる。また、その遷移は Re 含有量 5~10% の間に存在するものと考えられる。

3・2 破面形態の温度依存性

試験温度が室温、1073K、1273K、1473K、1673K および 1873K の場合の予き裂近傍の急速破断部の破面観察例を Fig. 8 に示す。室温においては W、W-5Re および W-10Re 材のいずれも擬へき開破壊が

Fig. 5. Load-displacement curves for W-10Re specimens.

支配的であり、各試料ともぜい性的な破面様相を示している。1073KにおいてW-5ReおよびW-10Re材はディンプル破壊が支配的であり、すでにぜい性-延性遷移温度を越えていることがわかる。しかし、W材の破面は室温に比べ粒界ファセットが増加しているが、ディンプル破壊は観察されず、擬へき開破壊が支配的なぜい性的破面であり、ぜい性-延性遷移温度に至っていないことを示している。このような観察結果はFig. 7に示したように J_{IC} 値が急激に増加する温度がReを添加することにより低下するという結果と一致している。また、W材が1073Kにおいて側溝付試験片を用いれば、 K_{IC} 評価が可能であったこととも対応している。1073Kを越えると各試料ともディンプル破壊が支配的な延性的な破面様相を示した。さらに高温になると、W材は J_{IC} 値が急激に減少し、1673Kにおける破面は粒界破壊が支配的となっていた。この

場合の粒界ファセットは1073K以下の温度域で観察されたそれよりもはるかに大きく明瞭な粒界破壊となっており、このような再結晶による粒成長およびそれにもなう粒界のぜい化⁴⁾がじん性値を低下させているものと考えられる。これに対しW-5Re材およびW-10Re材の J_{IC} 値の低下は、W材の急激な低下に比べ緩和されており、1473Kにおいてもまだディンプル破壊が支配的であり、1673Kにおいても完全に粒界破壊には移行せず、ディンプル破壊との混合破面となっていた。1873KになるとW-5Re材は粒界破壊を示すが、W材のような顕著な粒成長はみられない。またW-5Re材は1873Kにおいても粒界破壊には移行せず、どちらかというディンプル破壊が支配的であった。

このようにReを添加することにより高温における再結晶による粒成長および粒界のぜい化を抑えること

Fig. 6. Temperature dependency of K_{IC} -value. Fig. 7. Temperature dependency of J_{IC} -value.

ができ、このため 1600K 以上の高温において、Re 含有量の多い試料ほど高い J_{IC} 値を示したものと考えられる。

3・3 硬さおよび組織の温度依存性

本来は高温における硬さ測定および組織観察が望ましいが、現状ではきわめて困難であるので、本研究で

Fig. 9. Relationship between hardness and holding temperature for the materials heated at various temperatures.

は所定温度に 15 分保持し、炉冷した試料の硬さ測定および組織観察を行い、再結晶温度等を推察することにした。Fig. 9 に硬さと加熱温度の関係を示す。図からわかるように W 材は 1500K 近傍を境に硬度が急激に変化し、低温側および高温側ともそれぞれの領域では硬度は温度によらず一定値を示した。このような硬度の顕著な変化を示す温度である 1500K はじん性試験において J_{IC} 値が急激に低下した温度とほぼ一致している。W-5Re 材および W-10Re 材についても同様の傾向が認められ、Re 含有量が多いほど硬度が急激に低下する温度が高くなっている。これはまた、破面観察において Re 含有量が多いほど粒内破壊から粒界破壊に移行する温度が高くなることと対応している。

Fig. 10 に高温加熱した各試料の組織観察例を示す。図からわかるように W 材は 1873K において顕著

Fig. 8. Fractographs of fracture toughness specimens.

Fig. 10. Microstructures for the materials heated at various temperatures.

な粒成長を示しているのに対し, W-5Re 材および W-10Re 材にはそのような顕著な粒成長は認められず, 前述のじん性試験, 硬さ試験および破面観察結果との対応が認められた。

なお, EPMA 装置を用いた面分析により Re 元素の分布形態を調べたところ, 粒界に偏析しているような様子はなく, W 粒内に均一に分布していた。

4 結 言

タングステンの高温じん性改善のため Re を添加した W-Re 合金試験片を製作し, 室温から 1873K の温度範囲でじん性試験を行い, 以下の結論を得た。

(1) W-Re 合金の破壊じん性値の温度依存性は以下の通りであった。W 材は 1200K, W-5Re 材および W-10Re 材は 900K 近傍にぜい性-延性遷移域があり, Re を添加することによりぜい性-延性遷移温度が低下した。各材料とも遷移温度より低温側ではぜい性不安定破壊を生じ, 不安定破壊は擬へき開破壊により生じていた。一方, 高温側ではディンプル破壊による延性安定破壊を生じていた。

(2) W 材は 1500K を越えると再結晶による結晶粒粗大化ならびに粒界ぜい化を生じ, 粒界破壊を生じてじん性値が急激に低下するが, W-5Re 材および W-10Re 材は W 材のような顕著な再結晶ぜい化は示さず, じん性値の急激な低下は緩和され, この領域で

は Re 含有量が多いほど高じん性を示した。W-5Re 材では 1873K に至って粒界破壊が支配的となるが, W-10Re 材は 1873K においても粒内-粒界破壊の遷移領域にあった。また, 1873K において W 材にみられたような再結晶による顕著な粒成長はみられなかった。

(平成 2 年 5 月 25 日 日本材料学会第 39 期学術講演会にて講演)

参 考 文 献

- 1) 深沢美治, 小倉伸一, 塑性と加工, **19**, 286 (1987).
- 2) G. V. Samsonov and R. A. Alfintseva, Poroshkovaya Metallurgiya, **110**, 19 (1972).
- 3) M. Garfinkle, W. R. Witzke and W. D. Klopp, Trans. AIME, **245**, 303 (1969).
- 4) 武藤睦治, 竹田 忍, 永田晃則, 材料, **39**, 1424 (1990).
- 5) T. Sadahiro and S. Takatu, Modern Develop. Powder Metall., **14**, 501 (1981).
- 6) ASTM 編, ASTM Standard E399 (1981) ASTM
- 7) 武藤睦治, 坂本 勲, 野村敬一, 綾 健次, 日本機械学会論文集, A-51, 2008 (1985).
- 8) 武藤睦治, 坂本 勲, 野村敬一, 日本機械学会論文集, A-52, 455 (1986).
- 9) 武藤睦治, 坂本 勲, 竹田 忍, 日本機械学会論文集, A-54, 1434 (1986).
- 10) 西田友久, 武藤睦治, 材料, **39**, 1556 (1990).