二次元粒界液化モデルによる粒界液化現象の解析*

—Ni 基耐熱超合金のレーザ溶接性に関する研究 (第4報)—

羅 湘 軍**, 篠崎 賢二***, 吉原 聡**, 黒木 英憲***, 白井 誠****

Analysis on Grain Boundary Liquation Phenomenon using Two Dimensional Grain Boundary Liquation Model*

—A Study on Laser Weldability of Ni-base Superalloys (Report 4)—

by Xiangjun LUO**, Kenji SHINOZAKI***, Satoshi YOSHIHARA**, Hidenori KUROKI***
and Makoto SHIRAI****

In this study, grain boundary liquation phenomenon using two-dimensional model was calculated in order to estimate infiltration length of liquid phase around precipitate NbC on grain boundary as a function of the temperature. The high temperature ductility test was carried out as a verification of the numerical calculation, and the numerical calculation result was compared with the experimental result.

Grain boundary liquation start temperature calculated by the numerical analysis was well correspondent to the temperature measured by the experiment. In addition, the effect of heating and cooling speed, grain size and particle size of NbC on the liquid phase infiltration length to grain boundary in the laser welding was examined by the two-dimensional grain boundary liquation analysis. In Inconel 718, grain boundary liquation started in the heating process at 1434 K. The length of the liquid phase which infiltrates along grain boundary on the heating rate within 5000 K/s was not affected by heating rate. In addition, it was suggested that the liquation crack sensitivity be improved by decreasing grain size and doing the particle size of NbC under 1.0 μm .

Key Words: Ni-base superalloys, Grain boundary liquation, Infiltration, Laser beam welding, Numerical calculation, Inconel 718, NbC

1. 緒 言

前報¹⁾において、Inconel 718 合金のレーザ溶接熱影響部に発生する液化割れの発生原因の一つとして母材中の生成相である NbC の局部溶融による粒界液化現象に注目し、この現象を理論的に明らかにするため、二次元粒界液化モデルを提案した。このモデルでは、昇温にともない、組織的液化機構により、液相が NbC とマトリックスとの界面に形成され、さらに、粒界へ浸入することが明らかとなった。

そこで、本報告では、二次元粒界液化解析モデルを検証

するため、高温急速引張実験により、粒界液化現象を把握し、計算結果と実験結果との比較を行った。さらに、本モデルを用い、液化割れの防止のための指針を得るため、粒界液化現象に及ぼす結晶粒径、生成相の粒子径および加熱、冷却速度などの影響を解析した。

2. 使用材料および実験方法

2.1 使用材料

使用材料として、前報¹⁾と同様な Inconel 718-4 (板厚: 5 mm¹⁾) 合金を用いた。Table 1 に母材の化学組成を示す。高温延性に及ぼす結晶粒径の影響を調査するため、Table 2 に示すような温度および時間で熱処理を行った。結晶粒径を変化させた母材を Inconel 718-4A, 4C および 4D と区別した。これらの母材の平均結晶粒径は Table 2 に示すように 14, 49 および 111 μm であった。

2.2 高温急速引張試験

高温急速引張時の延性ならびに破断形態から粒界液化現象を把握するために、高温急速引張試験を行った。Fig. 1 に

*原稿受付 平成11年3月25日 平成10年8月第153回溶接冶金研究委員会で発表、平成9年度秋季全国大会で発表

**学 生 員 広島大学工学部大学院 Student Member, Graduate School of Engineering, Faculty of Engineering, Hiroshima University

***正 員 広島大学工学部 Member, Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering, Hiroshima University

**** 宇宙開発事業団 National Space Development Agency of Japan

Table 1 Chemical composition of Inconel 718 alloy used (mass%).

Materials	Chemical composition (mass%)														
	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Co	Mo	Nb+Ta	Ti	Al	B	Cu	Fe
Inconel 718-4	0.021	0.07	0.07	0.006	0.0007	Bal.	18.60	0.22	2.95	4.87	0.97	0.53	0.002	0.06	19.22

Fig. 1 Specimen used for the hot ductility test.

Table 2 Heat treatment conditions and grain size of Inconel 718 alloys.

Materials	Temperature (K)	Time (ks)	Grain size (μm)
Inconel 718-4A	1213	1.8	14
Inconel 718-4C	1293	1.8	49
Inconel 718-4D	1373	1.8	111

用いた試験片の形状を示す。高周波誘導加熱装置を用いて、破面の酸化を防止するため、アルゴン雰囲気中で急速引張試験を行った。加熱速度は10, 100および580 K/sの3段階に変化させ、冷却速度は40 K/s一定とした。なお、加熱速度を可能な限り実際のレーザ溶接の場合の加熱速度に近づけるため予備実験を行った結果、高周波誘導加熱装置で再現性良く得られる最大の加熱速度が580 K/sであったため、本実験ではこの値を採用した。引張は、加熱および冷却過程における1400~1523 Kの温度範囲で任意の温度で行った。引張速度は、16.7 mm/sとした。

3. 高温急速引張試験結果

3.1 高温延性曲線

結晶粒径111 μm、加熱速度580 K/sの場合の加熱および冷却過程における高温急速引張試験でのピーク温度と絞り値の関係を Fig. 2 に示す。加熱過程においては1415 K 付近から急激な延性の低下が始まり、1427 K では絞り値は 0 % になっている。冷却過程では1400 K 付近から延性の回復が認められる。本実験においては、加熱過程で絞り値が 0 % になった時の温度を NDT (Nil-Ductility Temperature) とみなした。

R.G. Thompson²⁾, D.S. Duvall³⁾ および E.G. Thomp-

Fig. 2 Relationship between reduction of area and peak temperature during heating and cooling of Inconel 718-4 alloy.

son⁴⁾ らによる高温急速引張試験においても、NDT は同様に1430 K 付近と報告されている。彼らの実験では、加熱速度は140~200 K/s であったが、本研究では、これよりさらに速い加熱速度である580 K/s での実験結果が得られたが、NDT に大きな差は認められない。

3.2 NDT に及ぼす加熱速度および結晶粒径の影響

NDT に及ぼす加熱速度の影響を Fig. 3 に示す。結晶粒径111 μm の場合10~580 K/s の加熱速度の範囲では NDT はほぼ一定である。Fig. 4 は加熱速度580 K/s の場合について、結晶粒径14~111 μm の範囲で NDT に及ぼす

Fig. 3 Effect of heating rate on nil-ductility temperature.

Fig. 4 Effect of grain size on nil-ductility temperature.

結晶粒径の影響を調べた結果である。結晶粒径の変化にかかわらず NDT はほぼ一定となっている。これらの結果より、本実験範囲においては、加熱速度および結晶粒径は NDT に影響を及ぼさず、NDT の平均値は約 1434 K であった。

3.3 破面形態

Fig. 5 は加熱速度 580 K/s の場合の 1431 K における破断面の SEM 写真を示す。破断面全域に渡って、Fig. 5 に示すような明瞭な粒界破面であり、また粒界表面および生成相

Fig. 5 SEM microphotograph of hot ductility test specimen at 1431 K during heating. (G.S.: 111 μm, H.R.: 580 K/s)

周辺でわずかの波状の部分が見られる。このような破面は、粒界上に存在している生成相 NbC とマトリックスとの界面で局部溶融が起こり、形成された液相がさらに粒界に浸入することにより形成されたと推測される。これより、NDT において NbC による局部溶融にともなう粒界液化が開始すると考えられる。

3.3.1' 加熱速度の影響

結晶粒径 111 μm の試料について、加熱速度 10 および 580 K/s における、NDT 以上の各温度での高温引張破面を観察した結果を Fig. 6 に示す。絞り値はいずれの温度においても 0 % であり、温度による差は認められなかったものの、破面形態は、いずれの加熱速度においても、温度の増加とともに、粒界表面の起伏が著しくなり、特に 1474~1478 K 以上では、顕著である。これより、1474 K 付近までは粒界液化が比較的ゆっくり進み、1474 K を超えると粒界液化の程度が急に激しくなると推察される。また、加熱速度が異なる場合の破面形態を比較すると、同一温度においては、両者に大きな違いは見られない。これより、加熱速度 10~580 K/s の範囲では、粒界液化に及ぼす加熱速度の影響は小さいと考えられる。

3.3.2 結晶粒径の影響

結晶粒径 49 μm、加熱速度 580 K/s の場合の 1433 および 1473 K での引張破面を Fig. 7 に示す。ほぼ同一温度である Fig. 7(b) と Fig. 6(c) の破面を比べると、明らかに結晶粒径が大きい Fig. 6(c) の破面の方が粒界破面上の起伏が激しく、粒界液化が著しいことが推測される。

Fig. 6 SEM microphotograph of hot ductility test specimen of 111 μm grain size at heating rate of 580 and 10 K/s.

Fig. 7 SEM microphotograph of hot ductility test specimen of 49 μm grain size at heating rate of 580 K/s.

4. 粒界液化解析結果

Table 3 Data used in calculation.

Initial temperature (K)	580
Peak temperature (K)	1540
Volume of element (μm)	18~100
Diameter of NbC (μm)	0.5~5.0
Diffusion coefficient (m^2/s)	Nb in Matrix: $0.3\exp(-35800/T)$ Nb in Liquid: 10^{-9} Nb at G.B.: 10^{-9}
Heating and cooling rate (K/s)	10~10000
Grain boundary energy (J/m^2)	0.424
Liquid-solid interfacial energy (J/m^2)	0.424
Grid size in x direction (μm)	0.1
Grid size in y direction (μm)	0.1
Molar volume of Nb (m^3/mol)	1.106×10^{-5}

Fig. 8 Effect of peak temperature on length of liquid both on grain boundary and in grain.

Table 3 に示すような定数を用い、前報¹⁾で提案した二次元粒界液化モデルにより、粒界液化に及ぼすピーク温度、加熱・冷却速度、結晶粒径および NbC 粒子径の影響を明らかにすることにした。

4.1 粒界液化に及ぼすピーク温度の影響

Fig. 8 に、NbC の粒子半径を 2 μm 、加熱速度を 100 K/s、結晶粒径を 100 μm とした場合の、粒界へ浸入した液相の長さ、L (以後、粒界液相長さと呼ぶ) および NbC 周辺のマトリックスへ広がった液相の幅、W に及ぼすピーク温度の影響について計算した結果を示す。L、W ともに、1439 K よりピーク温度の増加とともに増加し、1470 K 以上では、L が W に比して大きくなることより、液相の粒界への浸入速度が速くなり、液相の粒界浸入が顕著になることがわかる。

Fig. 9 Effect of heating rate on length of liquid on grain boundary.

Fig. 11 Effect of grain size on ratio of liquefied grain boundary.

Fig. 10 Effect of cooling rate on moving distance of liquid-solid interface.

Fig. 12 Effect of radius of NbC on maximum infiltration length of liquid phase on grain boundary.

4.2 粒界液化に及ぼす加熱速度および冷却速度の影響

粒界液相長さに及ぼす加熱速度の影響を Fig. 9 に示す。これより、加熱速度 5000 K/s までの範囲においては、粒界液化に及ぼす加熱速度の影響は小さいことがわかる。冷却にともない、粒界に形成された液相は共晶組成になるまで凝固するが、冷却速度の違いにより、残留する液相量が異なる可能性がある。そこで、凝固過程において、残留液相濃度が共晶組成になるまでの固液界面の移動距離と冷却速度の関係を図 10 に示す。冷却速度 1000 K/s までは界面の移動距離（凝固幅）は一定であるが、 1000 K/s より速くなると、冷却速度の増加にともない凝固幅は減少する。す

なわち、残留液相量が増加することになる。

4.3 粒界液化に及ぼす結晶粒径の影響

粒界液化率を全粒界長さ当りの液化した粒界長さの比で定義し、単位体積あたりの NbC の量を一定とした場合について、粒界液化率に及ぼす結晶粒径の影響について計算した結果を図 11 に示す。なお、NbC は、粒界および粒内に均一に分布し、粒内に分布する NbC は、粒界液化に影響をおよぼさないとし、結晶粒径が減少しても、粒界に存在する NbC の割合は変化しないと仮定している。結晶粒の形状を図中に示したように正六角形とみなし、結晶粒径を対角線長で表わしている。これより、結晶粒径の減少に

に伴い、粒界液化率は減少することがわかる。

4.4 粒界液化に及ぼす NbC 粒子径の影響

ピーク温度1540 Kにおける最大粒界液相長さと NbC の粒子径の関係を Fig. 12 に示す。これより、本計算条件では NbC の粒子径が $0.05 \mu\text{m}$ 以下であれば、加熱途中で NbC は完全に固溶し、液相が形成されない。さらに、粒子径が $1 \mu\text{m}$ までは、粒子径の増加にともない、急激に最大粒界液相長さは増加し、それ以上の粒子径では、最大粒界液相長さの増加傾向が緩くなることがわかる。

5. 考 察

5.1 高温急速引張試験結果と粒界液化解析結果との対応

前報¹⁾で提案した NbC の二次元粒界液化解析モデルを用いて粒界液化現象に及ぼすピーク温度、加熱および冷却速度、結晶粒径、NbC の粒子径の影響を定量的に評価する事ができた。そこで、これらの計算結果と高温急速引張試験結果を比較することにより本解析モデルの検証を行った。

Fig. 3 および 4 で示したように加熱速度 $10 \sim 580 \text{ K/s}$ 、結晶粒径 $14 \sim 111 \mu\text{m}$ の範囲では、NDT は加熱速度並びに結晶粒径に関わらず約 1434 K で一定であった。一方、本解析において NbC が局部溶融し始める温度は、Thermo-Calc による計算で求まる平衡温度で決定されるので加熱速度や結晶粒径に依存せず、 1439 K であった。これより、NDT と計算による液化開始温度は極めてよく一致することがわかった。

また、Fig. 6 で示した加熱過程での粒界破面形態の変化から約 1470 K 以上のピーク温度において粒界液化が激しくなった。Fig. 8 で得られた計算結果においても、約 1470 K 以上のピーク温度で液相が著しく粒界に浸入しやすくなっており、破面形態の変化と計算による粒界への液相浸入挙動もよく一致することがわかった。

Fig. 6 および Fig. 7 の比較において、明らかに結晶粒径が大きいほど粒界液化が激しいことがわかった。Fig. 11 の計算結果より結晶粒径が大きいほど粒界液化率が大きくなっており、この結果も実験結果とよく対応している。

以上、液化開始温度、粒界液化現象に及ぼすピーク温度並びに結晶粒径の影響の観点から、高温急速引張試験結果と粒界液化解析結果を比較し、よい対応関係が得られることがわかった。このことより、本粒界液化解析モデルで、粒界液化現象を解析することができると考えられる。

5.2 液化割れ感受性に及ぼす加熱・冷却速度、結晶粒径および NbC 粒子径の影響

5.1において、本粒界液化解析モデルの妥当性を明らかにした。そこで、本解析結果をレーザー溶接の場合に適用し、

Fig. 13 Heat source with Gauss distribution.

液化割れ感受性に及ぼす加熱・冷却速度、結晶粒径および NbC 粒子径の影響について考察を行った。

レーザー溶接における加熱および冷却速度の影響を調査するため、移動熱源による、半無限板での熱伝導計算を行い、HAZ での加熱および冷却速度を計算した。大村⁵⁾によれば、Fig. 13 のようなガウス形分布レーザー熱源の強度分布は式(1)により示されている。

$$\omega(x,y) = \frac{2W}{\pi r_0^2} \exp\left\{-\frac{2}{r_0}(x^2 + y^2)\right\} \quad (1)$$

W は出力パワー P のレーザービームを半無限体表面に照射したときの材料内部への全流入熱量であり、表面の熱吸収率を ϵ とするとき、

$$W = \epsilon P \quad (2)$$

で表されている。また、 r_0 は、レーザービームの強度がビーム中央の $1/e^2$ になる点を通る円の半径である。 $2r_0$ をビーム径と呼ぶ。熱吸収率は、表面状態、温度に依存する。本研究では熱吸収率を一定として取り扱った。

式(1)で表されるガウス形分布熱源が、x 軸上を一定速度で移動する場合について、半無限板モデルで準定常状態に達したときの温度分布の理論式は、式(3)で表される⁵⁾。なお、自然対流、輻射による試験片表面からの熱損失は無視し、表面と外界との熱伝達はないものとした。

$$T = T_0 + \frac{2a^{1/2}W}{\pi^{3/2}\lambda} \int_0^\infty \frac{1}{\sqrt{\tau}(8a\tau + r_0^2)^2} \exp\left\{-\frac{2(x+v\tau)^2 + 2y^2}{8a\tau + r_0^2} - \frac{z^2}{4a\tau}\right\} d\tau \quad (3)$$

このとき、加熱速度は式(4)のように表わされる。

$$\dot{T} = -v \frac{\partial T}{\partial x} = \frac{8a^{1/2}vW}{\pi^{3/2}\lambda} \int_0^\infty \frac{x+v\tau}{\sqrt{\tau}(8a\tau + r_0^2)^2} \exp\left\{-\frac{2(x+v\tau)^2 + 2y^2}{8a\tau + r_0^2} - \frac{z^2}{4a\tau}\right\} d\tau \quad (4)$$

a : 熱拡散率

λ : 熱伝導率

v : 溶接速度

T_0 : 初期温度 (293 K)

Table 4 Laser welding conditions and thermophysical data of Inconel 718 alloy.

Laser power P	4.5kW
Beam diameter r_0	4×10^{-3} m
Traveling velocity v	1.67×10^{-2} m/s
Initial temperature T_0	293K
Absorptance ϵ	0.7365
Thermal diffusivity a	5.0×10^{-6} m ² /s
Thermal conductivity λ	28.7W/(m·K) (1366K)

レーザ溶接ビード表面の幅に合うように Table 4 に示すように、熱吸収率を決定した。式(3)および(4)を用いて、温度分布を計算した。溶接ボンド部および粒界液化開始部(温度: 1434 K)の熱サイクルを計算した結果より、レーザ溶接の加熱速度は約3000 K/s、冷却速度は約550 K/sであることがわかった。Fig. 9によれば、加熱速度10~5000 K/sの範囲においては、粒界液相長さはほぼ一定であることより、本レーザ溶接でも粒界への液相浸入が起こり得ることがわかる。また、Fig. 10に示したように、冷却速度が1000 K/s以上では、冷却速度が速くなると液相の凝固界面の移動量が小さくなる。すなわち、液相が残留する割合が多くなる傾向が認められる。本レーザ溶接での冷却速度は550 K/sであり、Fig. 10の結果より、液相の残留量に及ぼす冷却速度の影響は小さいことがわかる。

前報⁶⁾で報告したように、液化割れ感受性は結晶粒径に強く依存しており、結晶粒径が大きいほど液化割れ感受性が高くなった。Fig. 11に示したように、結晶粒径の減少に伴い、粒界液化率は減少することがわかった。これは、結晶粒径の微細化により単位体積あたりの粒界面積が減少し、粒界に局部溶融を引き起こす生成相が少なくなるためと推測される⁷⁾。以上より液化割れ感受性を改善するには、粒界液化率を下げるのが重要であり、これには、結晶粒径の微細化が有効であると考えられる。また、Fig. 12に示したように、NbCの粒径を1 μ m以下にすることにより、粒界液相長さを減少させることができ、液化割れ感受性を改善できるものと考えられる。

6. 結 言

本研究では、鍛造 Inconel 718 合金を用いて、高温急速引張試験を行い、二次元粒界液化モデルによる計算結果との比較検討を行った。また、粒界液化モデルによる計算結果から液化割れ感受性に及ぼす結晶粒径、生成相および加熱、

冷却速度などの影響を検討した。

以下に得られた結果を要約する。

- 1) 加熱速度10~580 K/s、結晶粒径14~111 μ mの範囲で高温急速引張試験を行った結果、液化開始温度は、結晶粒径および加熱速度にかかわらず1434 Kであった。また、この温度を越えると、ピーク温度の増加とともに、液相が増えるが、約1470 Kを越えると液化の進行が急に速くなり、粒界全体が瞬時に液化することがわかった。
- 2) 液化開始温度、粒界液化現象に及ぼすピーク温度並びに結晶粒径の影響の観点から、高温急速引張試験結果と粒界液化解析結果を比較し、よい対応関係が得られることがわかった。
- 3) 本計算条件で加熱速度10~5000 K/sの範囲においては、粒界液相長さはほぼ一定であった。レーザ溶接のような速い加熱速度の場合、粒界液化現象が起こると考えられた。
- 4) 結晶粒径を小さくし、生成相のサイズを1 μ m以下にすることにより、粒界液相長さを減少させることができ、液化割れ感受性を改善できるものと考えられた。

謝 辞

本研究を遂行するに当たり実験に協力していただいた広島大学工学部学生、宮田洋志に感謝いたします。

参 考 文 献

- 1) 羅，篠崎，吉原，黒木，白井：Inconel 718 合金の HAZ における粒界液化現象の理論的検討，一Ni 基耐熱超合金のレーザ溶接性に関する研究（第3報）一，溶接学会論文集，18-1（2000）。
- 2) R.G. Thompson and S. Genculu: Microstructural Evolution in the HAZ of Inconel 718 and Correlation with the Hot Ductility Test, Welding Journal, 62-12 (1983), 337s-345s.
- 3) D.S. Duvall and W.A. Owczarski: Further Heat-Affected-Zone Studies in Heat-resistant Nickel Alloys, Welding Journal, 46-9 (1967), 423s-432s.
- 4) E.G. Thompson: Hot Cracking Studies of Alloy 718 Weld HAZ, Welding Journal, 48-2 (1969), 70s-79s.
- 5) 大村悦二，レーザ硬化処理における硬化層生成過程の解析，大阪大学博士論文，昭和58年11月。
- 6) 篠崎，羅，有吉，黒木，白井：拘束緩和式U型高温割れ試験による各種合金の高温割れ感受性の比較，一Ni 基耐熱超合金のレーザ溶接性に関する研究（第2報）一溶接学会論文集，17-2（1999），286-293。
- 7) R.G. Thompson, J.J. Cassimus, D.E. Mayo and J.R. Dobbs: The Relationship between Grain Size and Microfissuring in Alloy 718, Welding Journal, 64-4 (1985), 91s-96s.