MAおよびHIP法によるTiAl-TiB₂複合材料製造 における処理温度の影響*

佐藤 忠夫¹ 金 沢 肇² 嶋 影 和 宜³

[UDC 669.715:669.2955]

Effect of the Treatment Temperature on the Preparation of TiAl-TiB₂ Composite Materials by MA and HIP Methods

by Tadao SATO¹, Hajime KANAZAWA¹ and Kazuyoshi SHIMAKAGE¹

1. Materials Science and Engineering, Muroran Institute of Technology, Mizumoto-cho, Muroran 050

After TiAl and TiB₂ compounds were synthesized using the fine powders of titanium, aluminium and boron by the mechanical alloying method, the sintered TiAl-TiB₂ composite materials were prepared at the temperature of 1573 to 1773K under the pressing conditions of 202.7 MPa by HIP method. It was found from X-ray diffraction analysis and an electron microscopic observation that the homogenous sintered composite materials consisting of TiAl, TiAl₃ and TiB₂ compounds could be produced by these both methods. Micro-vickers hardness of the composite materials decreased with increasing the temperature of HIP treatment.

1. 緒 言

Ti-Al系金属間化合物は次世代の軽量耐熱材料として実用化が期待されている¹⁾。その中でも特にTiAl金属間化合物は高温強度に優れており、常温から高温に至るまで高い比強度を有している。しかしながら、近年のエンジン部品等の過酷な使用条件に対応するには単体では対処しきれず、セラミックスとの複合化が考えられている²⁾。本研究では、高温強度、硬度、靱性に優れたセラミックスであるTiB₂³⁾⁴⁾を微細分散させたTiAl-TiB₂系複合材料をメカニカルアロイング(MA)法で作成し⁵⁾、その微細混合粉末をHIP処理することにより複合焼結体を製造する際の処理温度の影響について検討した。なお、この系の製造に関する研究は極めて少ない。

2. 実験方法

2・1 試料

本研究では、市販のAl, Ti, B粉末を使用した。Al粉末は純度99%, Ti粉末は純度99%, B粉末は純度99%でいずれの粉末も微細粉碎装置で325 mesh以下に粉碎してから使用した。

2・2 実験装置：微粉碎装置およびHIP装置

- * 1991年5月17日受付 8月12日受理
1. 工博 室蘭工業大学助教授 材料物性工学科
2. 室蘭工業大学大学院 材料物性工学科
3. 正会員 工博 室蘭工業大学教授 材料物性工学科

本研究で用いた粉碎装置は、遊星型ボールミル(FRITSCH社製P-5)である。粉碎容器は内径が 6.7×10^{-2} m、容量は 8.0×10^{-5} m³、ボールは直径 2×10^{-2} m、質量が 7×10^{-2} kg/個である。HIP装置は、神戸製鋼製O₂-Dr. HIP装置を用いた。圧力媒体である不活性ガスを加圧する圧縮機と加熱装置、および被処理体を収納する圧力容器とからなっており、加熱装置は自動制御により温度制御が可能である。

2・3 実験手順

Ti, AlおよびBの各素粉末を用いてMA処理を行い、Ti-Al⁶⁾⁷⁾およびTi-B⁸⁾のMA粉末を合成し、これらを所定の割合で混合後HIP処理することにより複合焼結体を成形させた。これらの焼結体に対し、X線回折による生成物の同定、光学顕微鏡および走査型電子顕微鏡による組織観察および硬度の測定を行った。

3. 実験結果および考察

3・1 MA処理による生成物のX線回折結果

図1にモル比Ti:Al=1:1となるようにTi粉末とAl粉末を混合してMA処理を行った場合の各処理時間における生成物のX線回折図形を示す。MA処理を1時間行ったものにはTiとAlに対応する明瞭な回折ピークが認められ、TiとAlが均一に混合された状態であると推測される。その後、MA処理の進行に伴いピーク強度が低下し、ピーク幅は拡がり、そして30時間後にAlの回折ピークが消滅し、50時間後にはTiの

回折ピークも消滅する。この時点でTiとAlの粉末は結晶性を消失し、見かけ上非晶質化したように見受けられる。

図2に、モル比Ti:B=1:2となるようにTi粉末とB粉末を混合しMA処理を行ったものの各処理時間におけるX線回折図形を示す。1時間のMA処理におけるX線回折図形中にはTiに対応する回折ピークが認められるが、Bの回折ピークは認められない。これは、Bの回折ピーク強度がTiの回折ピークに対し相対的に強度が低く、バックグラウンドの中に隠れてしまっているものと考えられる。MA処理の進行とともにTiの回折ピーク強度は低下し、(010)および(002), (011)面に対応する回折ピークが高角度側に移動し、MA処理20時間までの間にTiBの回折ピーク位置まで移動する。さらに処理時間が増大するとこれらの回折ピーク強度は低下し、50時間の処理までにTiBの回折ピーク強度の低下とともにTiB₂の回折ピークが認められるようになる。その後処理時間90時間まではTiB₂の回折ピーク強度の上昇が認められるが、それ以後は150時間までMA処理を続けても大きな変化は認められなかった。以上の結果から、Ti-B系のMA処理においてはTi-Al系のMA処理とは異なり非晶質化は進行しにくく、粉末組織の微細化に伴い合金化が進行するものと推測される。

3・2 HIP処理による生成物の変化

HIP処理用原料として使用したTi-Al系粉末とTi-B系粉末は、X線回折の結果からMA処理を50時間行った合成粉末を使

図1 各MA処理時間におけるX線回折図形 (Ti:Al=1:1)

用した。MA処理50時間のTi-Al, Ti-B系粉末をTiAl-5mol%TiB₂, TiAl-25mol%TiB₂, TiAl-50mol%TiB₂となるように配合した粉末を原料粉末とし、2段階のHIP処理を行い複合焼結体の製造を試みた。

第1段階のHIP処理を1,373K, 101.3MPa, 保持時間1時間で行った。第2段階

図3 各処理温度における組織観察写真 (TiAl-25mol%TiB₂)

図2 各MA処理時間におけるX線回折図形 (Ti:B=1:2)

HIP処理によって作成したTiAl-TiB₂複合焼結体のX線回折による同定結果をHIP処理条件とともに表1に示す。X線回折による結果から、全ての複合焼結体における生成物としてTiAl, TiAl₃, TiB₂が認められ、他にTiC, TiB等の生成も認められた。第2段階HIP処理において処理温度を変化させたが、生成物にはほとんど変化はみられなかった。しかし、これらの生成物の生成量はX線回折ピークの相対強度比から判断すると、Ti-B系MA粉末の増加とともにTiAl, TiAl₃の生成量は減

少し、TiB₂, TiBの生成量は増加するものと推測される。

3.3 処理温度による複合焼結体の組織変化

各混合組成の処理温度の変化による複合焼結体の光学顕微鏡による組織観察を行った。その結果TiAl-5mol%TiB₂試料の場合、1,573Kおよび1,673Kで第2段階HIP処理を行った複合焼結体の組織は非常に微細であるが、その中に10~50μm程度の島状組織が観察された。また、1,573KでHIP処理したものよりも1,673KでHIP処理したもののほうが島状組織が全体的に粗大化していることが観察され、これに対し1,773KでHIP処理を行った試料においては微細組織および島状組織が消滅し、針状組織が観察された。

またTiAl-25mol%TiB₂複合焼結体では、図3に示すように各HIP処理温度の組織にそれぞれ島状組織が観察された。1,573K HIP処理の焼結体にみとめられたこの島状組織のSEM写真とEPMAによる分析結果を図4に示す。Ti複合焼結体全体にわたって均一に分布しており、島状組織にはBの方がAlよりも多く分布し、周辺組織にはBよりもAlの方が多く分布していることが確認される。この島状組織はHIP処理温度の上昇には影響されず、1,773KでHIP処理した試料においても観察された。

さらに、TiAl-50mol%TiB₂複合焼結体でも島状組織が観察され、そのEPMAの分析結果によればTiの分布は組織により多少の濃淡が観察され、組織にはTiが少なくAlの量が多く現れていることが観察された。

図4 島状組織のSEM写真とEPMAによる分析結果 (TiAl-25mol%TiB₂, 1,573K)

表1 第2段階HIP処理条件と主な生成物

試料	組成 (TiAl-mol%TiB ₂)	処理温度 (K)	処理圧力 (MPa)	処理時間 (H)	生成物	硬度(HmV) (kgf/cm ²)
1	5	1573	202.7	2	TiAl, TiAl ₃ , TiB ₂ , TiC	760
2	5	1673	202.7	2	TiAl, TiAl ₃ , TiB ₂ , TiC	730
3	5	1773	202.7	2	TiAl, TiAl ₃ , TiB ₂ , TiC	490
4	25	1573	202.7	2	TiAl, TiAl ₃ , TiB ₂ , TiC	1240
5	25	1673	202.7	2	TiAl, TiAl ₃ , TiB ₂ , TiC	1050
6	25	1773	202.7	2	TiAl, TiAl ₃ , TiB ₂ , TiC	830
7	50	1573	202.7	2	TiAl, TiAl ₃ , TiB ₂ , TiC	1000
8	50	1673	202.7	2	TiAl, TiAl ₃ , TiB ₂ , TiC	970
9	50	1773	202.7	2	TiAl, TiAl ₃ , TiB ₂ , TiC	860

このことからこの組織にはTiAl相よりもTiAl₃相が、その周辺部にはTi₃Al相が僅かに多く存在しているものと推測される。

3・4 処理温度による複合焼結体の硬度変化

HIP処理後の複合焼結体についての硬度測定結果を表1に示すがすべての組成においてHIP処理温度が上昇するに従い硬度が低下する傾向を示した。これはHIP処理の焼鈍効果によるものと推測される。特にTiAl-5mol%TiB₂複合焼結体の場合、1773KでのHIPでのHIP処理によってTiAl相の溶解が起こり、溶解焼造組織に類似した組織を生成するために著しく軟化したものと考えられる。

4. 結 言

本研究ではTiAl-TiB₂系複合材料を製

造するため、まずその原料にあたるTi-AlおよびTi-B系微細混合粉末をメカニカルアロイング法によって作成し、これらを所定の割合で処理後2段階HIP処理することにより複合焼結体を製造した。混合比Ti:Al=1:1の粉末を50時間以上MA処理することにより混合比Ti:Al=1:1の微細混合粉末が得られ、Ti:B=1:2の粉末をMA処理することにより、TiB₂が生成することが分かった。また、MA粉末を混合比TiAl-5mol%TiB₂、TiAl-25mol%TiB₂、TiAl-50mol%TiB₂になるように混合後、2段階にわたりHIP処理を行った結果、主にTiAl, TiAl₃, TiB₂からなる複合焼結体を創製することが可能であることが判明した。複合焼結体の硬度はHIP処理温度の増加とともに減少した。

参 考 文 献

- 1) 日野春樹, 西山幸夫: 金属, 60 [7], 70~74 (1990)
- 2) 信木 稔・橋本健記・辻本得蔵: 日本金属学会会報, 30 [1], 49~53 (1991)
- 3) 沖 猛雄: 表面技術学会誌, 41 [5], 462~470 (1990)
- 4) 鳥塚史郎・原田 淳・西尾浩明: 日本金属学会会報, 29 [6], 484~486 (1990)
- 5) メカニカルアロイングの最近の研究動向: 日本金属学会会報, 27 [10], 802~828 (1988)
- 6) 杉本春彦・鮎山 恵・稲葉輝彦・時実正治: 日本金属学会誌, 53 [6], 628~634 (1989)
- 7) 阿部俊一・佐治重興・堀 茂徳: 日本金属学会誌, 54 [8], 895~902 (1990)
- 8) A. Calka and A. P. Radlinski: J. Less-Common Metals, 161, L23~L26 (1990)

— 外 国 図 書 —

(8-22-91)

○ THE MINING DIRECTORY 1991-1992
Six Edition (4000 companies, 650 pages)
Mines and Mining Equipment Companies
Worldwide
Published by Don Nelson Publication Ltd.
Price: US\$118 (Surface mail), US\$138 (Air mail) Fax: 081-368-7010 (England)

○ SPECTROSCOPY INTERNATIONAL
(A Monthly Journal)
Modern Spectroscopic methods, including
UV/Vis, Infrared, ICP/DCP, AA, X-Ray, Mass
Spectrometry, Laser, Fluorescence, Surface
Analysis, Hybrid Techniques, NMR
Published by Aster Publishing Corporation
Eugene, OR 97440, USA, FAX: 503-343-3641

○ HANDBOOK ON THE ESTIMATION OF METALLURGICAL PROCESS COST-Second Edition
By W.T. Ruhmer (Special Publication No.14)
Published by MINTEK, South Africa
Price: US\$150 (Until Sept. 30, 1991)
Fax: 27-11-793-2413

〈購入方法: 直接各申込先または書店へ〉