

© 1986 ISIJ

Ni 基超耐熱合金 Mod. IN-100 粉末の焼結・ 圧延材の超塑性挙動

論文

鳥阪 泰憲*・中沢 克紀*・宮川 松男**

Superplastic Behaviour of Powder-Consolidated and Rolled Mod.IN-100 Sheet

Yasunori TORISAKA, Yoshinori NAKAZAWA and Matsuo MIYAGAWA

Synopsis :

The powder of nickel-base superalloy Mod. IN-100 has been consolidated by hot isostatic pressing and recrystallized by rolling up to 80% at 1 123 K and subsequent annealing at 1 423 K. The superplastic behaviour of alloy sheets prepared by above processing has been investigated in the temperature range of 1 223–1 423 K and over a range of strain rates from 2.5×10^{-4} to $2.5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$.

The $\ln\sigma$ vs. $\ln\dot{\epsilon}$ curves were obtained and it was shown that the conditions obtaining the maximum strain-rate sensitivity index m changed from the constant strain rate at temperatures above 1 323 K to the constant flow stress below 1 323 K, so that the $\ln\sigma$ vs. $\ln\dot{\epsilon}$ curves were possible to divide into six regions according to the deformation behaviour.

1. 緒 言

Ni 基超耐熱合金 IN-100 粉末焼結材の押出材から製造される丸棒試験片に関する超塑性試験の報告は米国で数多く見られるが¹⁾、圧延材から製造される平板試験片に関する超塑性試験の報告は国内外を問わず皆無である。それは一般の Ni 基超耐熱合金に比し、IN-100 が第2相である γ' を約 60 vol% 含むため、再結晶温度が非常に高く（条件によって異なるが、一般には 1 423 K で、この温度は γ' 固溶温度でもある）なつたことと、 γ' 生成元素を添加したことにより融点が低下（IN-100 溶製材では 1 556 K）したことの二つの理由で、熱間加工の可能な領域がほとんどなくなつたため圧延加工がむずかしいからである。

しかしながら、著者らは前報²⁾で、IN-100 特有の“Hump”現象を生じる直上温度付近、すなわち 1 123~1 223 K の領域で温間圧延が可能なことを示した。そこ

で本研究では、1 123 K 温間圧延による平板に再結晶を施した後、これらを種々の温度およびひずみ速度で引張り、そのときの全伸び量および m 値を求め、超塑性変形挙動を検討した。

2. 試料および実験方法

試料は前報²⁾と全く同様であるため、本報ではその詳細は省いて概略だけを述べる。

Table 1 に示す米国 Homogeneous Metals Inc. 製の –325 mesh Mod. IN-100 粉末に、1 373 K × 91.2 MPa × 3 600 s の条件で HIP (高温静水圧 プレス) 処理を行い、この HIP 材を放電加工により長さ 70 mm × 幅 15 mm × 厚さ 5 mm に仕上げた。ついで、1 123 K 温間圧延（圧延機の最大容量は 20 t）を約 40 パスで行い、板厚を 1 mm (圧下率 80%) にしたのち、1 423 K × 3 600 s の焼なましを施すことによつて、結晶粒を Photo. 1 に示すように 3.9 μm に調整し、Fig. 1 に示す引張試験

Table 1. Chemical composition of Mod. IN-100 atomized powder (wt%).

Material	C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mo	Co	Ti	Al
Mod. IN-100 P/M	0.063	<0.05	<0.008	<0.005	<0.003	<0.002	Bal.	12.43	3.40	18.36	4.27	4.84

Material	Nb	Hf	Zr	B	W	Fe	V	Cd+Ta	Pb	Bi	O	N
Mod. IN-100 P/M	—	—	0.053	0.023	0.03	0.088	0.650	<0.02	<0.1 (ppm)	<0.2 (ppm)	103 (ppm)	23 (ppm)

昭和 60 年 7 月 22 日受付 (Received July 22, 1985)

* 工業技術院機械技術研究所 工博 (The Mechanical Engineering Laboratory, Agency of Industrial Science and Technology, 1-2 Namiki Sakura-mura Niihari-gun Ibaraki pref. 305)

** 長岡技術科学大学 工博 (The Technological University of Nagaoka)



Photo. 1. Optical microstructure of Mod. IN-100 sheet after recrystallization.

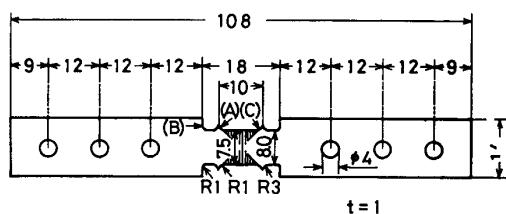


Fig. 1. Size of specimen for superplastic test.

片を切り出した。

図中、A, B, Cは熱電対位置で、温度制御はA位置で行つた。また、標点間距離はAC両側の突起間、すなわち10 mmとした。なお、斜線域については後述する。ついで、Fig. 2に示す真空チャンバーを取りつけた高周波加熱による高温用サーボパルサーを用いて1 223 Kから1 423 Kまで50 K間隔の温度で、また $2.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, 10^{-3} s^{-1} , $2.5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, 10^{-2} s^{-1} および $2.5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ の5種類の一定ひずみ速度で引張試験を行つた。

3. 実験結果

Photo. 2は破断後の代表的な試験片を示している。これらの結果を、x軸に試験温度、y軸にひずみ速度、z軸に全伸びをとつてプロットしたのがFig. 3である。これより、超塑性はひずみ速度が小さくなるほど、また試験温度が高くなるほど顕著になり、かつ全伸びも増大するという訳ではなく、全伸びは最適なひずみ速度および試験温度で最大値を有することがわかる。

なお、Fig. 4は1 373 K, $2.5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で引張ったときの温度分布を試験片の軸方向および時間に対し、示

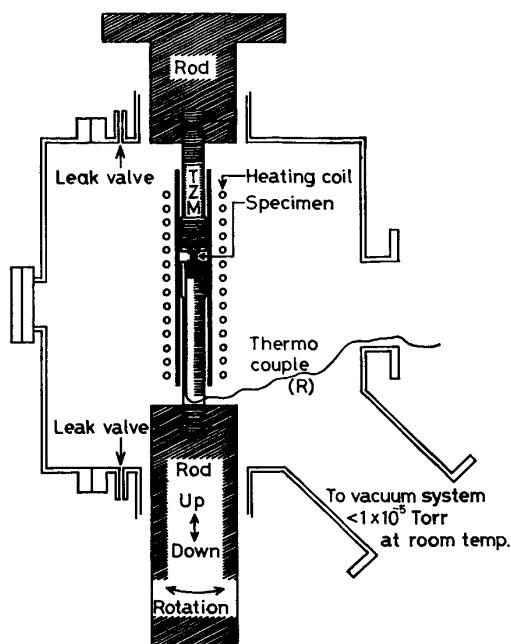


Fig. 2. Superplastic testing machine.

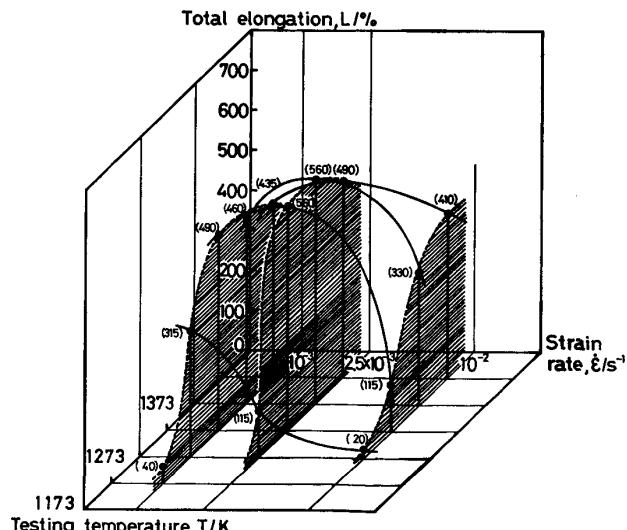


Fig. 3. Effect of testing temperature and strain rate on the total elongation in Mod. IN-100 sheet.

したもので、図中の(A), (B), (C)はFig. 1の(A), (B), (C)に対応する。また、図中の(B)は引張試験の途中で熱電対が断線したものである。これより標点間距離内の温度の変動は、およそ20 K以内であることがわかる。

Fig. 5は破断時の絞り(板幅減少率で、板厚の変化は無視した)を、Photo. 2で示したひずみ速度について種々の温度に対しプロットしたものである。図中、カッコ内の数字は絞り(%)を、矢印はFig. 3から各ひずみ速度に対し、全伸びの最大値が得られた点を示したものであるが、この図およびFig. 3から、絞りが増すに

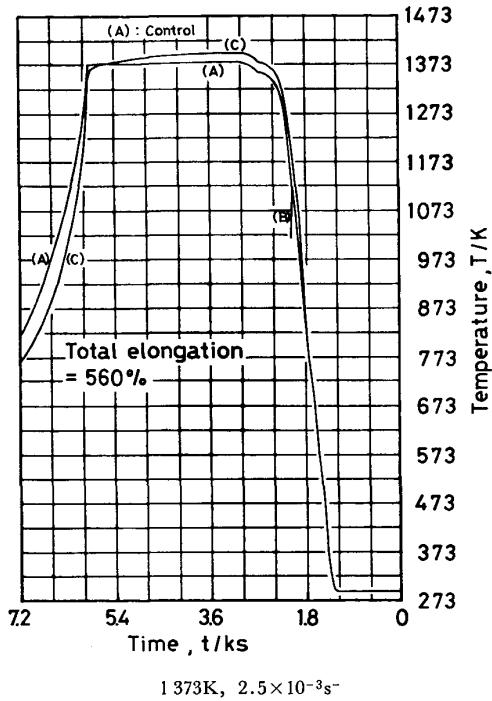
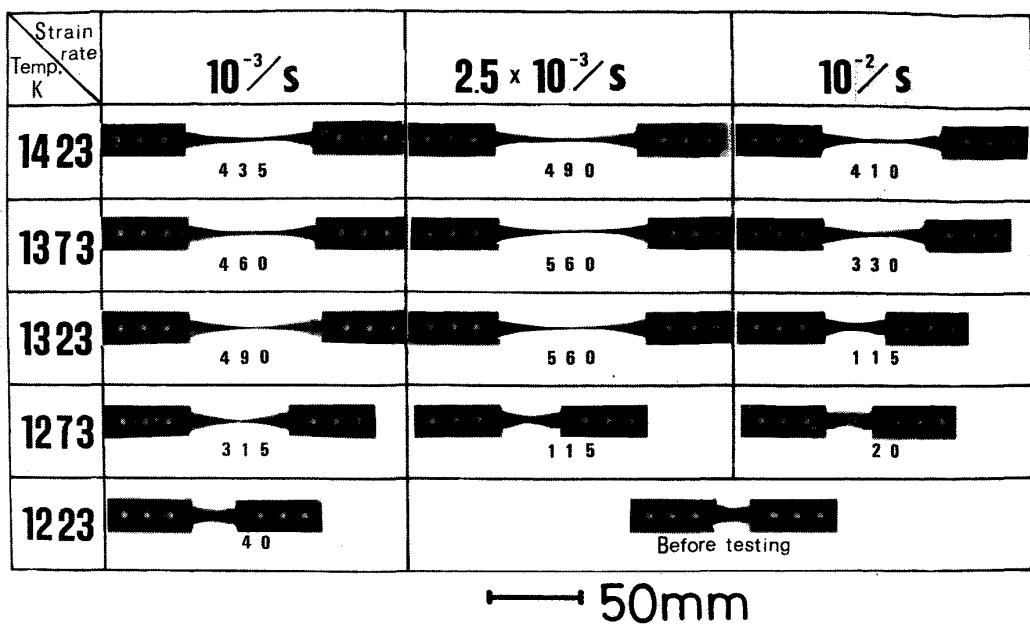


Fig. 4. A example of temperature distribution of specimen during superplastic test.

つれて、全伸びも増加していることがわかる。この傾向をくわしく図示したのが Fig. 6 である。一般に引張試験時の変形が破断に至るまで各所で一様であると仮定すると、全伸び $L(\%)$ と絞り $RA(\%)$ との間には次の関係が満足されねばならない。

$$L(\%) = \frac{100 \times RA(\%)}{100 - RA(\%)}$$

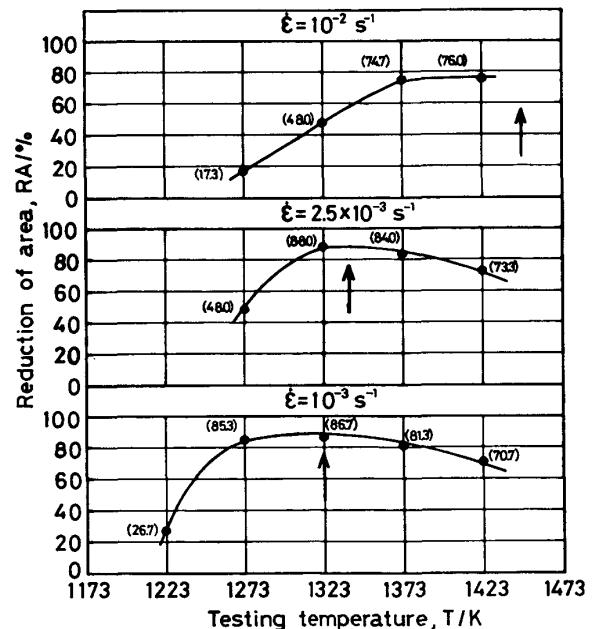


Fig. 5. Effect of testing temperature and strain rate on the reduction of area in Mod. IN-100 sheet.

図中、2点鎖線が上式に相当するもので、実験値も大体この線上に乗つてることから、超塑性変形はおよそくびれを伴わない一様変形であるといえる。しかしながら、Photo. 2 を見る限りでは一様変形であると断定するには問題があるかも知れない。

Fig. 1 の斜線部と白地の境界は、1023 K, 10^{-3} s^{-1} で引張り、若干の塑性変形を与えた後、除荷したときの

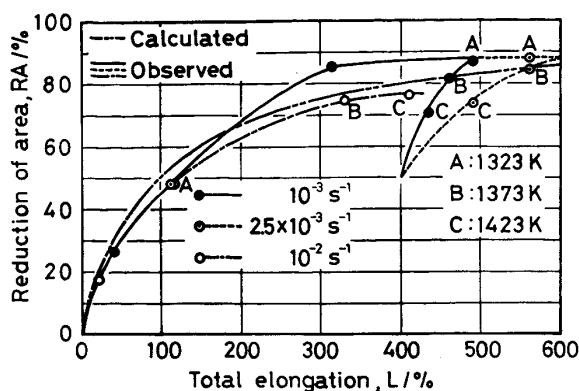


Fig. 6. The relationship between total elongation and reduction of area obtained by superplastic test and calculation.

すべり模様をスケッチしたものである。図中、斜線部が変形域、その他の領域が未変形域、すなわち拘束域で、これらの境界は引張り軸に対して約45°傾いた方向をしており、この拘束域の標点間距離に占める割合は非常に大きいことがわかる。Photo. 2に示したような破断形状が得られたのは、この理由によるもので、おそらく標点間距離が板幅に対し、更に大きかつたなら、完全な一様変形を示していたであろう。

次に、Fig. 6 中で、ひずみ速度が 10^{-3} s^{-1} および $2.5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ の場合、試験温度が 1423 K では、実験点が 2 点鎖線から大きくずれる傾向を示しているが、これは試験温度の上昇とともに、変形荷重が極端に減少した結果、標点間距離内とそれ以外での流動応力にほとんど差がなくなつたため、拘束域が Fig. 1 で示す(B)点に変化したためである。このことは Fig. 6 中、C で示した●印および○印の全伸びを標点間距離 18 mm として再度求めれば、大体 2 点鎖線上に乗ることから明らかである。

Fig. 7 は引張試験時のピーク流動応力を応力-ひずみ曲線から求め、ひずみ速度に対してプロットしたもので、Fig. 8 は Fig. 7 から求めたひずみ速度感受性指数、 m 値をひずみ速度に対して示したものである。これらおよび Fig. 3 から、試験温度が一定ならば、最大 m 値が得られるひずみ速度で、全伸びが最大に達することがわかる。しかしながら、試験温度が異なれば m 値だけでは最大伸びは評価できない。

なお、Fig. 7 中◆印は一本の試験片を用い、ある温度で流動応力がピークに達した後、除荷し、更に昇温を行つて、同じひずみ速度で再負荷を行うということを繰り返し、 $2.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度の場合は 5 点を、 $2.5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度の場合は 3 点を求めた結果である。

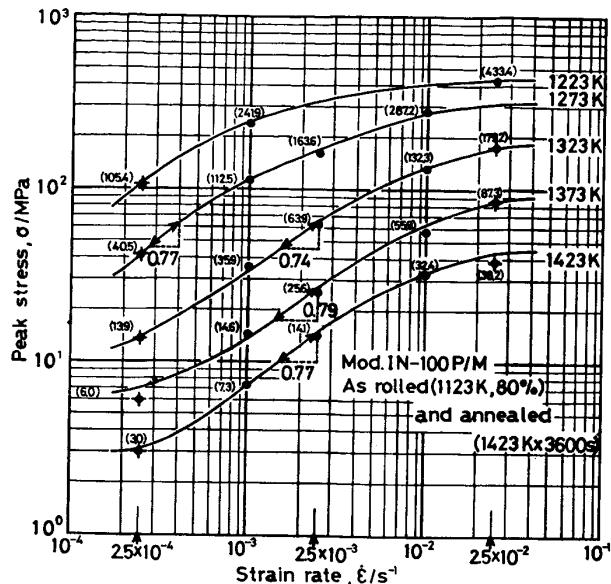


Fig. 7. The $\ln \sigma$ vs. $\ln \dot{\epsilon}$ curves obtained by superplastic tests performed at temperatures indicated.

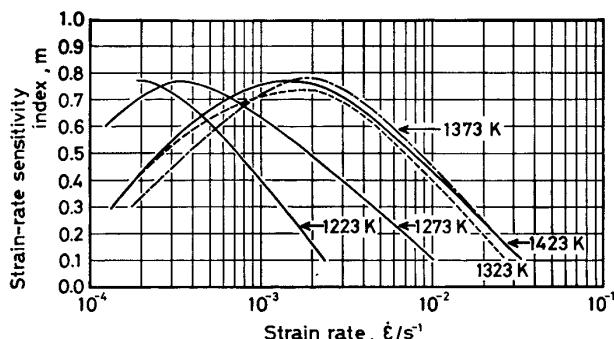


Fig. 8. Variation in m obtained from Fig. 7 with strain rate.

4. 考察

大きな全伸びおよび m 値が得られる試験条件の代表例として 1373 K, $2.5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ で引張ったときの荷重-変位曲線と、これから真応力-真ひずみ曲線を求めた結果を、前者を実線で後者を破線で Fig. 9 に示す。なお、図中●印および○印はそれぞれ対応した点である。これより超塑性現象は加工軟化を伴う異常延性の結果であることがわかる。もし、このような現象が転位クリープの作動の結果生じたものであるとすれば、転位の運動がセルやタングルなどを形成し、外部から加えた変形エネルギーを蓄積することになり、当然加工硬化を伴うことになる。したがつて、超塑性現象は拡散律速のクリープ現象であると考えざるを得ない。問題はこの拡散の生じる場所である。M. F. ASHBY と R. A. VERRALL³⁾ は超塑性が COBLE⁴⁾ および NABARRO や HERRING^{5), 6)} が述べているような低ひずみ速度で得られる $m=1$ の領域

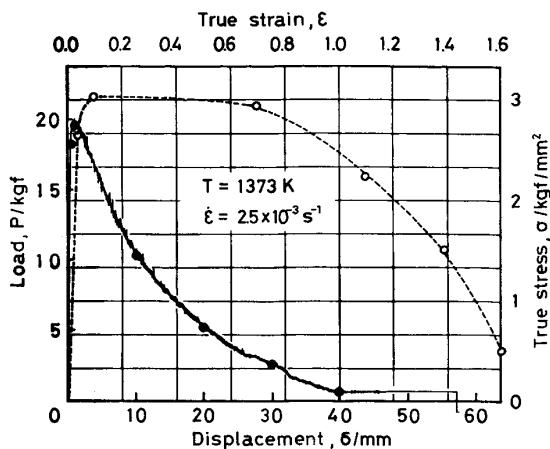


Fig. 9. Load-displacement and true stress-true strain curves in superplastic test.

における拡散クリープと同様であるとするならば、結晶粒の引張方向への伸長を伴わなければならないが、超塑性ではこのような伸長が全く観察されないことから、超塑性現象は拡散を伴う粒界すべり (diffusion-accommodated grain boundary sliding) による等軸結晶粒のスイッチング現象の結果 (grain switching model) であるとし、後で述べる“しきい応力”を導入している。

そこで、この現象を巨視的にみることにした。この現象は変形中生じようとするネッキング、すなわち不均一変形が、均一変形との境界部に必然的に生じることが予想される変形の速度勾配、すなわち応力勾配を減少させようとする“力”によってキャンセルされるため、連続した時間に対して均一変形が持続された結果である。したがつて、上記応力勾配を減少させようとする“力”は、ちようどこの応力勾配に等しくなければならず、結果として材料はこのとき最大 m 値を現出し、微視的には先に述べたような等軸結晶粒のスイッチング現象が現れることがある。このような理由から超塑性には M. F. Ashby らの導入したスイッチング現象を生じる応力、すなわち変形に必要なしきい応力³⁾、 σ_0 ($= \beta \Gamma / d$, β : 結晶粒の形状変化に対する因子, Γ : 結晶粒界エネルギー, d : 結晶粒径) のほかに、スイッチング現象が最大 m 値を現出させるのに必要な最適の“力”， σ_m が存在するものと思われる。

Fig. 7 は先に述べたように種々の試験温度におけるピーク流動応力-ひずみ速度曲線図であるが、これよりある温度を境にして m 値が最大になるひずみ速度が大きく変化していることがわかる。すなわち、試験温度が 1323 K 以下では約 56 MPa (5.7 kgf/mm²) のピーク流動応力が生じる点で最大 m 値が得られるのに対し、1323 K 以上では約 $2.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度で最大 m 値が

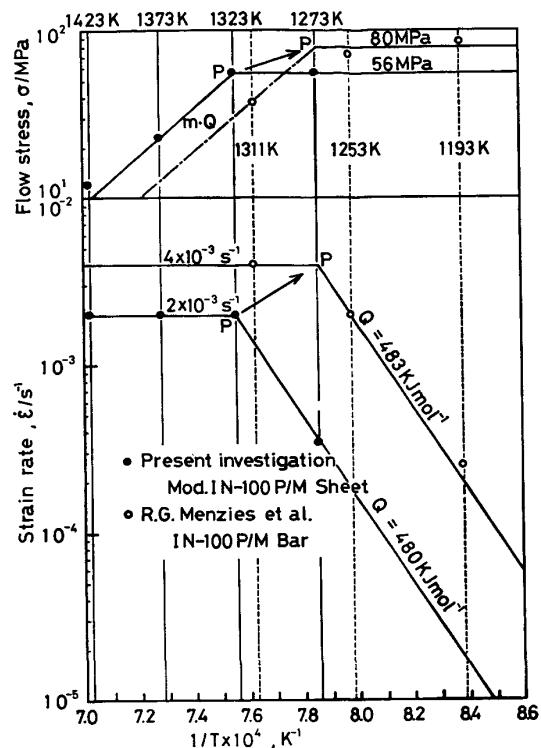


Fig. 10. Transition point (P) reported for superplastic IN-100 bar by R. G. MENZIES et al.¹⁾ and obtained from present investigation for superplastic Mod. IN-100 sheet.

得られている。このことは、1323 K を境に最大 m 値の得られる条件が流動応力一定からひずみ速度一定に変化したこと（以下、この温度を遷移温度と呼ぶ）、いいかえれば先に述べた σ_m (約 56 MPa) が 1323 K を境に温度非依存性から温度依存性に変化したことを示すものである。そして先の σ_0 が温度に依存しないことから、1323 K 以下の σ_m も σ_0 と同様の要素から構成されるのであろう。

一般に超塑性では、ピーク流動応力の対数 $\ln \sigma$ のひずみ速度の対数 $\ln \dot{\epsilon}$ に対する変化曲線は S 字形を呈することから、その曲線の勾配、すなわち m 値からこの S 字形曲線を三つの領域に分割し、 m 値最大の領域、すなわち超塑性発現域を領域 II とすることが多い。Fig. 10 は試験温度に対し m 値最大の条件をひずみ速度および流動応力で示したものである。図中●印は著者らの結果、○印は R. G. MENZIES らの結果¹⁾であり、前者では先に述べたように、1323 K を境に低温から高温に試験温度が移行するにつれて、 m 値最大の条件が約 56 MPa (5.7 kgf/mm²) の流動応力一定から約 $2 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度一定に変化しているのに対し、後者では 1273 K を境に約 80 MPa (8.2 kgf/mm²) の流動応力一定から約 $4 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度一定に変化していることがわ

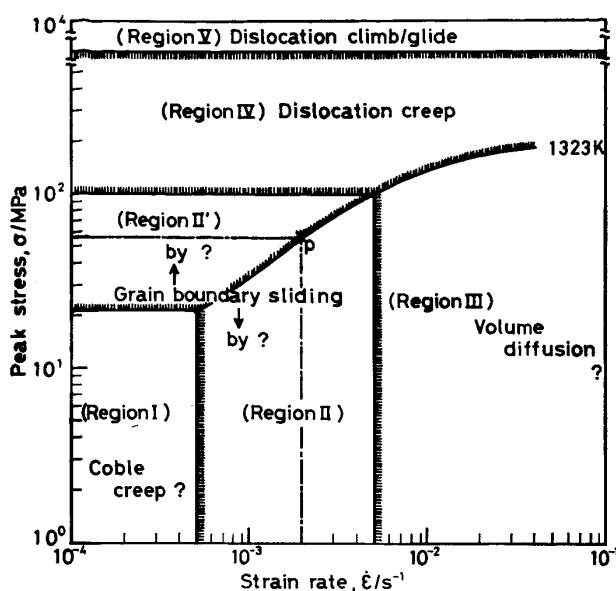


Fig. 11. A schematic diagram summarizing the important features of the mechanical properties of superplastic Mod. IN-100 sheet.

かる(以下、図中P点を遷移点と呼ぶ)。そこで著者らは先に述べたような1本のS字曲線を領域I, II, IIIに分割するのではなく、種々の温度における曲線群を、領域IIがその変形挙動から更に二つに分割可能であることを前提としてFig. 11に示す六つの領域に分割した。ここで領域IIの境界が問題になるが、本論文ではFig. 8からm値が0.6以上になる上限と下限のひずみ速度を領域IIの境界とした。Fig. 11には領域I, II, II'およびIII以外にIVとVをもうけているが、これは低温度域における一般的な変形が転位運動(転位すべりまたは転位の上昇運動)による通常の塑性変形によるものであるため、ある温度を境にこれより下を領域Vとし、この領域と変形の拡散律速域、すなわち領域II'および領域IIIとの中間域を転位クリープタイプの領域IVとしたものである。

次に、以上の領域を活性化エネルギーの立場から検討することにした。

一般に超塑性変形の熱活性化過程におけるひずみ速度 $\dot{\epsilon}$ は

$$\dot{\epsilon} = A \cdot f(\sigma) \cdot \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (1)$$

で与えられる。また、 $f(\sigma)$ は一般に次のように与えられる。

$$f(\sigma) = \left(\frac{\sigma}{K}\right)^{1/m} \quad (2)$$

したがつて、(2)式を(1)式に代入すれば、

$$\ln \dot{\epsilon} = \ln A - \left(\frac{1}{m}\right) \ln K + \left(\frac{1}{m}\right) \ln \sigma - \frac{Q}{RT} \quad (3)$$

が得られる。

ここで、 σ を一定とすれば(3)式は

$$\ln \dot{\epsilon} = \text{const} - \frac{Q}{RT} \quad (4)$$

となり、 $\dot{\epsilon}$ を一定とすれば(3)式は

$$\ln \sigma = \text{const} + \frac{m \cdot Q}{RT} \quad (5)$$

となる。

いま、Fig. 7から(4)式を使って $\ln \dot{\epsilon} - 1/T$ の関係を図示すればFig. 12が得られ、その直線の勾配からQの値が求められる。また同様に、Fig. 7から(5)式を使って $\ln \sigma - 1/T$ の関係を図示すればFig. 13が得られ、その直線の勾配から $m \cdot Q$ の値が、したがつてmの値が求められることになる。Table 2は領域IIにおけるこれらの値を示したものである。

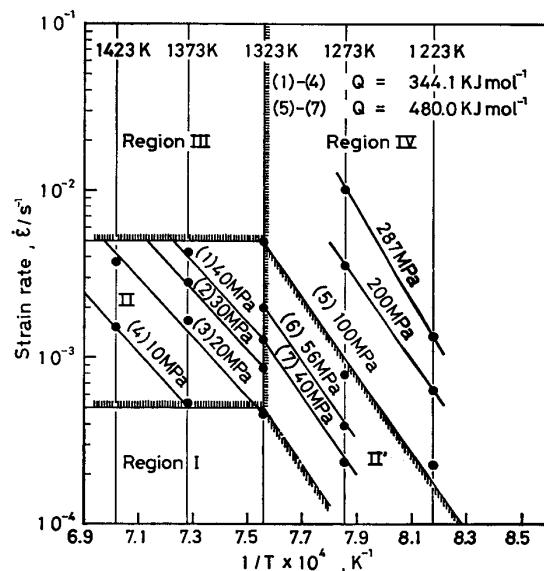


Fig. 12. The relationship between $\ln \dot{\epsilon}$ and $1/T$ at constant stress.

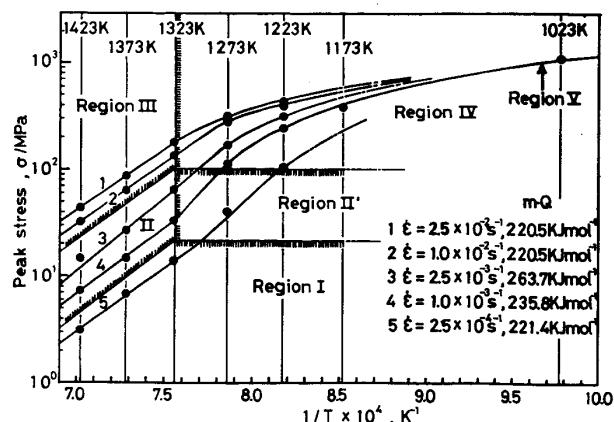


Fig. 13. The relationship between $\ln \sigma$ and $1/T$ at constant strain rate.

Table 2. Activation energies for superelastic deformation of Mod. IN-100 sheet.

Stress (MPa)	Q (kJmol ⁻¹)	Strain rate (s ⁻¹)	$m \cdot Q$ (kJmol ⁻¹)	m
10 20 30 40	344.1	2.5×10^{-2}	220.5	0.64
		1.0×10^{-2}	220.5	0.64
		2.5×10^{-3}	263.7	0.77
		1.0×10^{-3}	235.8	0.69
		2.5×10^{-4}	221.4	0.64

$Q = 399 \pm 19$ by REICHMAN and SMYTHE
 $= 412$ by MOSKOWITZ et al.
 $= 350 \pm 80$ by KOBAYASHI
 $= 480$ by R. G. MENZIES et al.

ここで、 Q について他の報告³⁾⁴⁾⁵⁾と比較すれば、R. G. MENZIES¹⁾ らの結果を除いては大体一致している。

まず領域Ⅱ'、Ⅱについてであるが、Fig. 12 から領域Ⅱ' と領域Ⅱにおける Q の値は大きく異なっているのがわかる。これは領域Ⅱ' と領域Ⅱの変形機構が明らかに異なることを示しているもので、 σ_m が前者では温度に依存しないのに対し、後者では温度依存性を有していることから、前者では先に述べた M. F. ASHBY らの拡散を伴う粒界すべりが、後者ではこれとは異なる機構、例えば R. C. GIFFINS¹⁰⁾ のコアーマントル理論 (Core-Mantle model) などが考えられるが、本実験の範囲内では定かでない。次に、領域Ⅳ、Ⅴであるが、Fig. 12 から領域Ⅳでは Q 値が著しく増大する傾向を示すことがわかる。また、Fig. 13 からこの領域では $m \cdot Q$ 値が減少、すなわち m 値が 0 に近付いていることがわかる。これらのこととは試験温度が低下するにつれて変形が拡散依存型から転位運動依存型に変化していくため、流動応力がしだいにひずみ速度に依存しなくなつて、 Q 値あるいは $m \cdot Q$ 値を得るのに使用した拡散律速タイプの(1)式が適用できなくなつたことを示している。そして、更に試験温度が下がると完全に転位運動依存型になる。これが領域Ⅴである。この領域Ⅴに入る温度は Fig. 13 からは定かではないが、673 K で as HIP 材を 10^{-3} s^{-1} および 10^{-4} s^{-1} のひずみ速度で引張った結果、いずれの場合にも引張強さが 1347.5 MPa と、全く同じであつたことから 673 K 以上であることは確かであると思われる。

最後に、領域Ⅰ、Ⅲであるが、これらの領域について議論するには本実験の範囲内ではデータがあまりにも少ないため本論文では省くことにする。

ここで加工面からみた場合の超塑性材料の良否を検討する。すなわち、超塑性がより低温側で、またより高ひずみ速度側で発現すれば最も好ましいことはいうまでもない。これを Fig. 10 で考えれば、遷移温度がより右

方へ、また m 値最大のひずみ速度がより上方へ、すなわち遷移点が→方向に進むほどより望ましい超塑性材料ということになる。もしさうだとすれば、著者らの材料よりも R. G. MENZIES¹⁾ らの材料の方が超塑性加工にはより適していると考えられる。これは R. G. MENZIES らが超塑性材料を得るのにアトマイズ粉の canning → 1348～1388 K 押出しの工程によつているのに対し、著者らはアトマイズ粉の canning → 1373 K × 91.2 MPa × 3600 s の HIP → 1123 K 圧延 → 1423 K × 3600 s 焼なましの工程によつたためである。すなわち、著者らのこの一連の工程の中には γ' 再固溶温度である 1423 K の熱履歴が入つている。この両者での熱履歴の相違が、前者では結晶粒径が 2.1 μm 以下¹⁾ であるのに対し、後者では Photo. 1 に示したように 2.1 μm よりは大きく、3.9 μm という結果をもたらすことになり、この粒径の違いがまた上記のように遷移点を大きく左右する結果になつたものと思われる。

5. 結 言

Ni 基超耐熱合金 Mod. IN-100 粉末焼結材の圧延材 (1123 K, 80%) に再結晶処理 (1423 K × 3600 s) を施し、種々の温度およびひずみ速度で超塑性試験を行つた結果、以下の諸点を明らかにした。

(1) 1373 K および $2.5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度で最大 m 値 (0.79) および最大伸び (560%) が得られた。

(2) 試験温度が一定ならば、最大 m 値が得られるひずみ速度で最大伸びが得られる。しかしながら、試験温度が異なれば m 値だけで最大伸びは評価できない。

(3) 超塑性域における材料の変形に必要な活性化エネルギーは、 $Q = 344.1 \text{ kJmol}^{-1}$ であり、そのときの m 値は $m = 0.64 \sim 0.77$ となる。

(4) 種々の試験温度におけるピーク流動応力-ひずみ速度曲線において、最大 m 値の得られる条件が 1323 K を境に低温側では流動応力一定であつたのに対し、高温側ではひずみ速度一定に変化する。そしてこの変化点を遷移点とすれば、遷移点がより低温側に、またより高ひずみ速度側に移行するほど材料は加工面からみた場合より望ましい超塑性材料ということになる。

(5) 種々の試験温度におけるピーク流動応力-ひずみ速度曲線図は、それらの変形挙動から六つの領域に分類できる。

なお、本研究は「次世代産業基盤技術研究開発制度」のもとで進められたものである。

文 献

- 1) R. G. MENZIES, J. W. EDINGTON and G. J.

- DAVIES: Met. Sci. (1981-5), p. 210
- 2) 鳥阪泰憲, 中沢克紀, 宮川松男: 鉄と鋼, 72 (1986), p. 815
- 3) M. F. ASHBY and R. A. VERRALL: Acta Metall., 21 (1973), p. 149
- 4) R. L. COBLE: J. Appl. Phys., 34 (1963), p. 1679
- 5) F. R. N. NABARRO: Report on Conference on Strength of Solids, London, Physical Society (1948), p. 75
- 6) C. HERRING: J. Appl. Phys., 21 (1950), p. 437
- 7) S. H. REICHMAN and J. W. SMYTHE: Int. J. Powder Metall., 6 (1970), p. 65
- 8) L. M. MOSKOWITZ, R. M. PELLOUX and N. J. GRANT: Proc. Second Int. Conf. on "Super-alloy processing", 1972, Columbus, Ohio, Metals and Ceramics Information Centre.
- 9) Y. KOBAYASHI: MS thesis, 1974, MIT
- 10) R. C. GIFFINS: Metall. Trans., 7A (1976), p. 1225