

技術資料

Technical Data

サブソルバス鍛造プロセスにおける Ni 基超合金の再結晶挙動

西本孝志*¹, 岡島琢磨*²

Recrystallization Behavior of Ni-Based Superalloy under Sub-Solvus Forging Process

Takashi NISHIMOTO and Takuma OKAJIMA

Synopsis

Generally, common alloys in lower-temperature usage require fine grains to enhance almost all mechanical properties. Creating fine grains is also important for superalloys because they permit deformability in manufacturing by forging or rolling. One method used to obtain fine grains relies on the pinning effect of coarse γ' domains. In this study, the recrystallization behavior of a Ni-based superalloy with coarse γ' at sub-solvus temperatures was investigated experimentally. In over-ageing conditions, coarse γ' remained after low-temperature forging and static recrystallization was promoted after heat treatment. This phenomenon was formulated by applying Avrami-type equations and the Sellars equation. As the result of analysis of KAM value using EBSD, low crystallographic orientation distribution remained in old austenite grain without recovery. It was indicated that the phenomenon had a relationship to promotion of static re-crystallization.

1. 緒言

Ni 基超合金は、優れた高温強度を持つ合金である。近年では、更なる高温強度向上を目的として Ni₃ (Ti, Al, Nb, Ta) で構成される γ' 相や Ni₃Nb で構成される γ'' 相などの金属間化合物の析出量が非常に多い合金の開発が行われている。同時に、要求特性に最適な析出相や結晶粒径の制御技術も重要である。一般的に室温程度で使用されるような構造用鋼などは 0.2 % 耐力に代表される機械的特性を向上させるために結晶粒組織への組織制御を求められる。その一方で、高温で使用される超合金では一般的に非常に微細な結晶組織はクリープ特性を低下させる。しかし、近年開発が進んでいる γ' 相の析出量が非常に多い Ni 基合金は加工性に乏しいため¹⁾、熱間鍛造や圧延で製造する場合、加工性改善の解決策と

して結晶粒の微細化制御が挙げられる。特に Ni 基超合金はオーステナイト単相材料であり、相変態による微細化は望めないため再結晶を用いた微細化が唯一の方法である。したがって、熱間加工による鍛造、圧延や熱処理工程中の組織制御技術は非常に重要である。結晶粒微細化の組織制御技術として、完全固溶のスーパーソルバス温度域で動的再結晶を促進する鍛造方法、あるいは γ'/γ'' 析出強化型の Alloy718 では δ 相による粒成長ピンニング効果を利用した逐次鍛造での組織制御方法が挙げられる²⁾。また、最近では γ' 固溶温度以下のサブソルバス温度域中で粗大化した γ' 相によるピンニング効果を利用した鍛造方法も報告されている^{3)~6)}。しかしながら、このような粗大 γ' が分散した状態の再結晶挙動のメカニズムに関する報告は少ないため、実際の鍛造時の組織制御へ適用することが困難なのが現状である。

2018年4月10日 受付

* 1 大同特殊鋼(株)技術開発研究所 (Corporate Research & Development Center, Daido Steel Co., Ltd.)

* 2 大同特殊鋼(株)技術開発研究所, 工博 (Dr. Eng., Corporate Research & Development Center, Daido Steel Co., Ltd.)

そこで、本研究では γ' 強化型 Ni 基合金における粗大 γ' 析出相下の再結晶挙動を実験的に調査し、その特徴を明らかにした。

2. 実験方法

2. 1 供試材

本研究ではサブソルバス温度域の再結晶を調査するために γ' 析出強化型 Ni 基超合金である Alloy A を使用した。Table 1 に化学組成を示す。Alloy A の正確な γ' ソルバス温度を調査するために示唆熱解析による測定を実施し 1087 °C であることを確認した。Alloy A は VIM-ESR-VAR のトリプルメルトで溶解を行い、溶解後スーパーソルバス温度域で鍛造したものを使用した。粗大 γ' 相を析出させるために鍛造実施後の供試材に Fig. 1 に示す過時効処理を行った。

Table 1. Chemical composition (mass %).

Material	Ni	Cr	Co	Mo	W	Al
Alloy A	Bal.	16.0	20.0	3.0	2.5	4.0
	Ti	Nb	Ta			
	1.5	1.5	0.9			

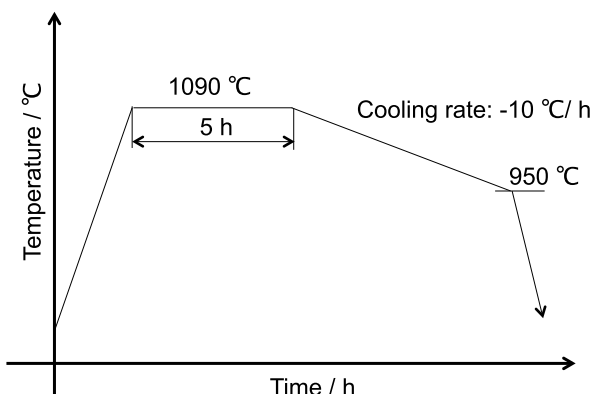


Fig. 1. Heat pattern of over aging condition.

2. 2 試験方法

再結晶挙動と再結晶粒成長の調査のために、均一圧縮試験（ラスティガエフ法）を行った。Fig. 2 に均一圧縮試験で用いた試験片形状と、圧縮試験後の試験片形状を示す。Fig. 3 に圧縮試験の実験条件を Table 2 に示す。動的再結晶の影響を調査するため鍛造を行い、静的再結晶の影響を調査するため鍛造後の試験片に鍛造時と同じ温度で再加熱処理を行った。粗大 γ' 析出状態での再結晶挙動を調査するために試験温度は γ' ソルバス温度である 1087 °C より低温で検証を行った。加工および再加熱試験後は、マイクロ組織を凍結させるためすべての試験片を加工直後および再加熱試験直後に水冷を行った。

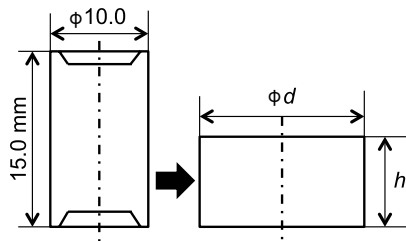


Fig. 2. Schematic of Rastegaev compression test.

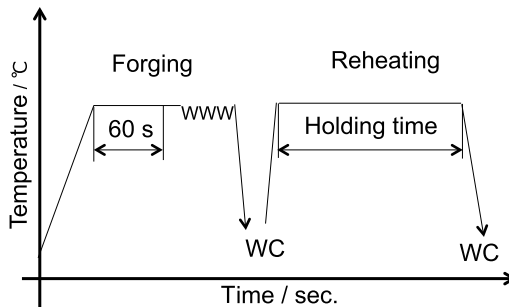


Fig. 3. Experimental procedure of compression and reheating test.

Table 2. Experimental conditions of compression test.

Strain	0.4, 1.0
Strain rate	0.5 s ⁻¹ .
Forging and reheating temperature	1020, 1040, 1060, 1080 °C
Holding time	10800 ~ 72000 sec.

2. 3 観察方法

再結晶面積率、再結晶粒径および γ' の定量化を行うためにマイクロ組織観察と γ' の観察を行った。

水冷後の試験片の中心部を通る縦断面に湿式エメリーソーで切断を行った後、エメリー紙による研削とダイヤモンドアルミナによる鏡面研磨を施した。鏡面研磨後の試験片に塩化銅（Ⅱ）コーリング液を用いて化学腐食を行いマイクロ組織の観察を行った。観察位置は試験片の中心高さで径方向に4分の1の計2箇所とし、光学顕微鏡により撮影した。同様に、 γ' の観察を行うために鏡面研磨を行った後の試験片に酒石酸 1 g、硫酸アンモニウム 1 g、水 100 cc の水溶液を用いて電流 0.2 mA で通電時間 2 分間の電界腐食を実施した。マイクロ組織を観察した同様の位置で γ' の観察を走査型電子顕微鏡（Scanning Electron Microscope : SEM）を用いて実施した。 γ' の析出量を測定するために撮影した SEM 像を三谷商事(株)ビジュアルシステム部の画像解析ソフト WinROOF2013 を用いて γ' の面積率の測定を実施した。

また、再結晶挙動の特徴を解析するため圧下直後の 1080 °C、1040 °C、1020 °C の条件の試験片に電子線後方散乱解析（Electron Back Scattering Diffraction : EBSD）を行った。撮影箇所は、マイクロ組織および γ' の観察箇所と同様の箇所撮影および解析を行った。

3. 結果および考察

3. 1 試験後の組織観察結果

Fig. 4 にひずみを 1.0 付与した条件での光学顕微鏡によるマイクロ組織観察結果を示す。鍛造直後のマイクロ組織は、全ての温度条件で旧オーステナイトの未再結晶粒と再結晶粒が混材する組織となっていた。再加熱試験後の組織は試験温度が 1080 °C の場合、全加熱保持条件で未再結晶粒が残存していることが確認できた。また、試験温度の低下に従い未再結晶粒が減少する傾向を示した。特に試験温度が 1020 °C の場合、最長時間保持条件である 20 h のマイクロ組織では未再結晶粒が残留しておらず再結晶が完了していることを確認した。この結果より粗大 γ' 相析出下の再結晶挙動の特徴として低温ほど再結晶が進行するという一般的な再結晶の温度依存性とは異なった挙動を示した。

過時効実施後の SEM 観察結果を Fig. 5 に示す。花卉状で平均 2 μm 程度の γ' 相が析出していることを確認した。

Fig. 6 に試験後の SEM による観察結果を示す。 γ' 相の析出状態について、全ての試験条件で γ' が残存していることを確認した。また、低温ほど粗大な γ' が多く残存していることが確認された。

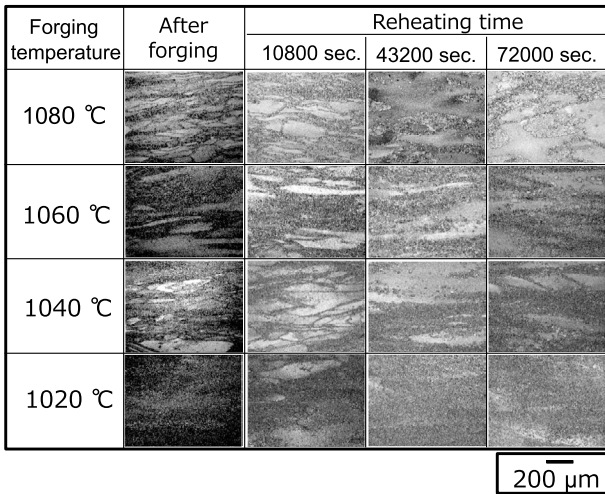


Fig. 4. Optical photograph after the experiment.

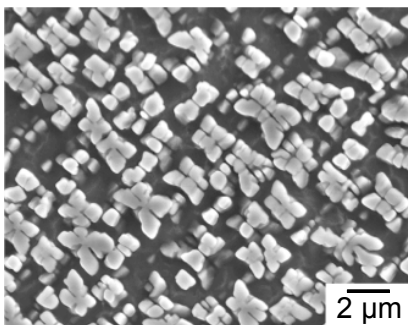


Fig. 5. SEM image after over aging.

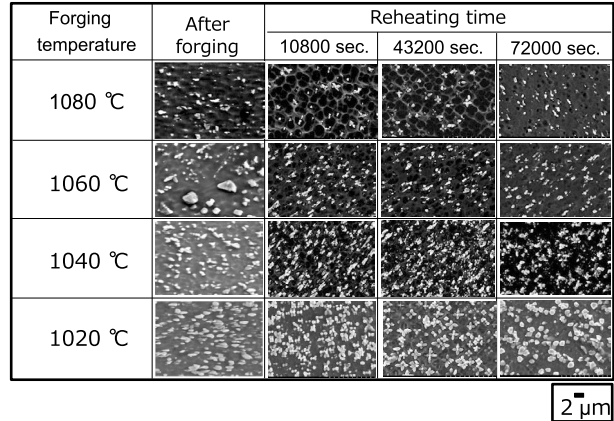


Fig. 6. SEM image after the experiment.

3. 2 再結晶挙動の定式化結果

静的再結晶速度と静的再結晶粒成長速度を評価するために再加熱試験条件のマイクロ組織写真から再結晶面積率および再結晶粒径の測定を実施した。Fig. 7 に再結晶面積率と試験温度、保持時間との関係を、Fig. 8 に再結晶粒径と試験温度、保持時間との関係を示す。再結晶面積率と試験温度、保持時間との結果について、Avrami 型の式 (1), (2) で定式化した温度毎の再結晶挙動の時間変化を Fig. 7 にプロットした⁷⁾。式 (1), (2) について

$$X_{rex} = 1 - \exp\left\{0.693\left(\frac{t}{t_{0.5}}\right)^n\right\} \quad (1)$$

$$t_{0.5} = C_1 \varepsilon C_2 \exp\left(-\frac{Q_s}{RT}\right) \quad (2)$$

である。ここで、 X_{rex} は再結晶面積率、 t は保持時間、 $t_{0.5}$ は再結晶が 50 % 進行した時間、 ε はひずみ、 Q_s は再結晶進行の活性化エネルギー、 R は気体定数、 T は温度、そして C_1, C_2, n は係数である。

再結晶粒成長について、Sellers らが示した式 (3) を使用して定式化し Fig. 8 にプロットした⁷⁾。式 (3) について、

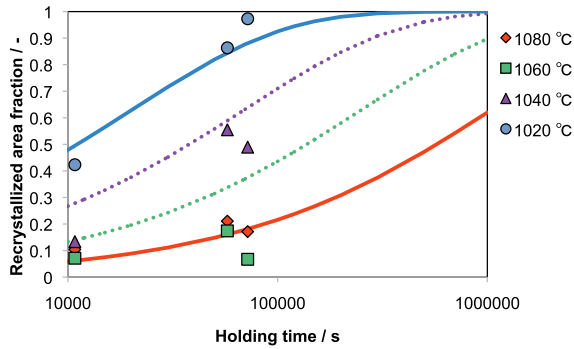
$$d_{yrex}^m = d_{yrex0}^m + C_4 t \exp\left(\frac{Q_{grow}}{RT}\right) \quad (3)$$

である。ここで、 d_{yrex} は再結晶粒径、 d_{yrex0} は初期再結晶粒径、 Q_{grow} は粒成長の活性化エネルギー、そして C_4, m は係数である。

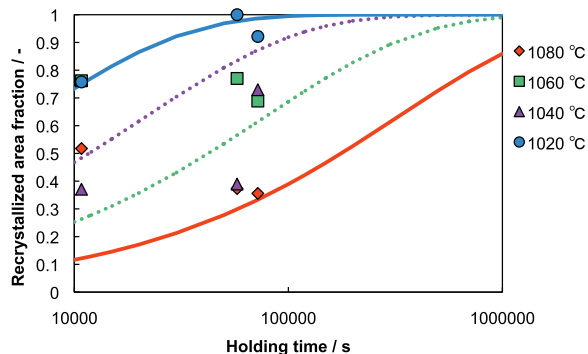
再結晶面積率について、温度と再結晶速度の相関性は従来の Ni 基超合金の再結晶挙動と異なり低温ほど再結晶が促進される傾向である。一方で、ひずみ、加熱時間と再結晶速度の相関性は従来の Ni 基超合金の再結晶と

同じく高ひずみ、長時間保持により再結晶が進行する結果となった。

再結晶粒成長は全加熱温度条件で、結晶粒が約 20 μm 以下まで成長が抑制することを確認した。この挙動は粗大 γ' によるピンニング効果による影響と推定される。



(a)



(b)

Fig. 7. Recrystallized area fraction of Alloy A with coarse γ'(a)strain:0.4 (b) strain:1.0.

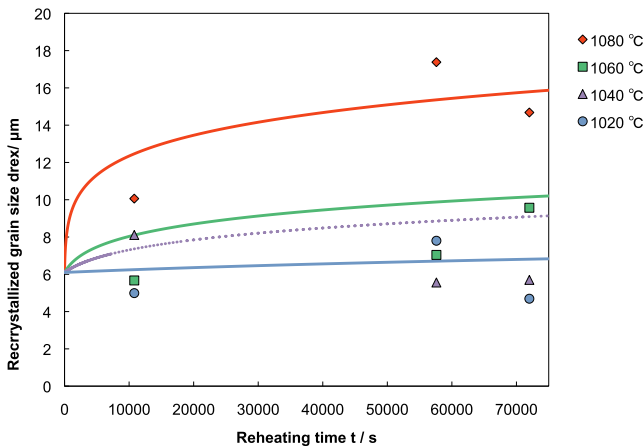


Fig. 8. Recrystallized grain growth of Alloy A with coarse γ'.

3. 3 粗大 γ' 面積率の定量化結果

画像処理ソフトを用いて γ' の面積率の算出を行った。ひずみを 0.4 付与した条件で算出した粗大な γ' 相の面積

率と保持時間、温度の関係を Fig. 9 に示す。試験温度が低温になるに従い γ' 相の面積率が増加することを確認した。また、保持時間が γ' 相の面積率へおよぼす影響は小さい結果となった。

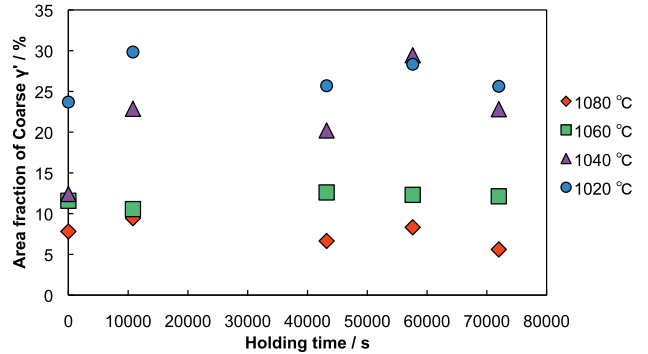


Fig. 9. Area fraction of coarse γ' of Alloy A in experimental condition.

3. 4 EBSD解析の結果

Fig. 10 に EBSD により得た KAM (Kernel Average Misorientation) の結果を示す。KAM は周囲の測定点との方位差を定量化しており局所的な方位変化を表す数値である。KAM の分布図より低温かつ高圧下での鍛造を実施するほど未再結晶粒内に局所的な方位差が大きくなる傾向を得た。KAM の局所的な方位差は転位密度と相関性があり、局所的な方位差が大きくなるほど転位密度が高くなるという研究が報告されている⁸⁾。このことから、低温でかつ強圧下の鍛造を実施した条件ほど転位が多く残留していることが考えられる。

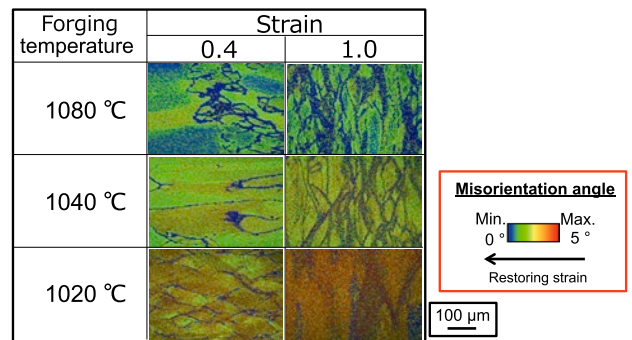


Fig. 10. KAM map of Alloy A after compression test.

3. 5 再結晶挙動の考察

サブソルバス温度域での再結晶挙動のメカニズムについて概略図を Fig. 11 に示す。KAM の分布図の結果より、低温かつ強圧下鍛造により未再結晶粒内により多くの転位が残留する傾向にある。以上から、高温鍛造を実施した場合には鍛造直後に動的再結晶が発生する。しか

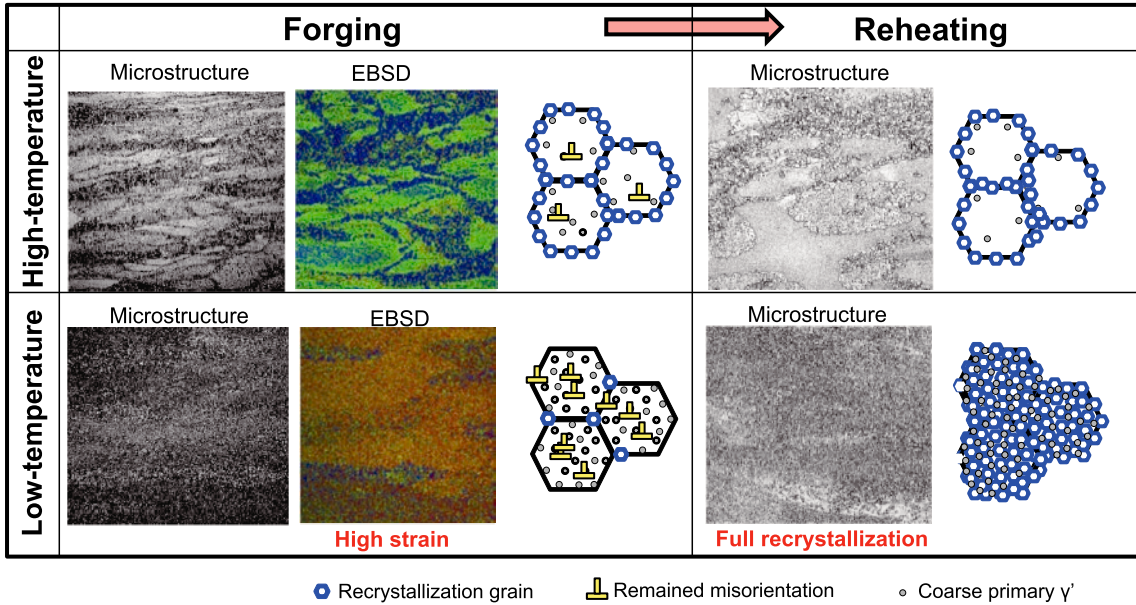


Fig. 11. Schematic of recrystallization mechanism in over-ageing conditions.

し、その後の加熱時に回復の影響により残留した転位が少なくなるため加熱による静的再結晶が促進されない。また、粗大な γ' によるピンニング効果により動的再結晶で発生した再結晶粒の粒成長も抑制されるため再結晶の進行が困難な結果となった。一方、低温鍛造を実施した場合には鍛造後の動的再結晶の発生とともに高温鍛造と比較し多くの転位が未再結晶粒内に残留する。この残留した転位が加熱により再結晶粒の核生成を促進し、静的再結晶が促進したことが示唆される。

4. 結 言

粗大 γ' 相を析出させたサブソルバス温度域での Ni 基超合金での再結晶挙動の特徴として以下の結果を得た。

- 1) 再結晶面積率について、再加熱による静的再結晶は低温条件および長時間加熱により再結晶が促進する一般的な再結晶と逆の温度依存性があることを確認した。
- 2) 再結晶粒成長について、粗大 γ' によるピンニング効果により粒成長を抑制することを確認し、微細結晶粒へ組織制御が可能であることを確認した。
- 3) 粗大 γ' 相の面積率について低温条件になるほど面積率が増加することを確認した。また、保持時間による γ' 相の面積率への影響は小さいことを確認した。
- 4) KAMの分布図の結果より、低温圧下、強ひずみの付与により局所的な方位差が大きくなることを確認した。また、この結果より低温鍛造ほど未再結晶粒

内に転位が残留する特徴が確認され、これが静的再結晶を促進させると推定される。

(文 献)

- 1) Z. Bi, X. Lv, and J. Zhang.: Eurosuperalloys 2014 proceeding, (2014).
- 2) H. Yoshida: IFM2006 proceeding, (2006).
- 3) J. Thebault, D. Solas, C. Rey, T. Baudin, O. Fandeur, and M. Clavel: Superalloys 2008 Proceeding, (2008), 985.
- 4) D. M. Collins, B. D. Conduit, H. J. Stone, M. C. Hardy, G. J. Conduit and R. J. Mitchell: Acta Mater, 61 (2013), 3378.
- 5) M. A. Charpagne, T. Billot, J. M. Franchet and N. Bozzolo: Superalloys 2016 proceeding, (2016), 417.
- 6) B. Lindsley and X. Pierron: Superalloys 2000 proceedings, (2000), 59.
- 7) C. M. Sellars: Mater. Sci. Technol, (1990), 1072.
- 8) 梅崎正太, 村田純教, 野村恭兵, 久布白圭司: 日本金属学会誌, 78 (2014), 218.



西本孝志



岡島琢磨