

電子ビーム積層造形法により作製した TiAl 合金の  
熱間等方圧加圧法による高温疲労特性改善

Improvement of High Temperature Fatigue Properties of TiAl Alloys Fabricated by  
Electron Beam Melting Through Hot Isostatic Pressing Process

趙 研・安田弘行・當代光陽・上田 実・竹山雅夫・中野貴由  
Ken CHO, Hiroyuki YASUDA, Mitsuharu TODAI, Minoru UEDA, Masao TAKEYAMA and Takayoshi NAKANO

電子ビーム積層造形法により作製した TiAl 合金の  
熱間等方圧加圧法による高温疲労特性改善

Improvement of High Temperature Fatigue Properties of TiAl Alloys Fabricated by  
Electron Beam Melting Through Hot Isostatic Pressing Process

趙 研\*・安田弘行\*・當代光陽\*\*・上田 実\*\*\*・竹山雅夫\*\*\*\*・中野貴由\*  
Ken CHO, Hiroyuki YASUDA, Mitsuharu TODAI, Minoru UEDA, Masao TAKEYAMA and Takayoshi NAKANO

(Received May 12, 2020)

TiAl rods were fabricated by electron beam melting followed by hot isostatic pressing (HIP) and the microstructure and high temperature fatigue properties were examined focusing on HIP temperature. Unique layered microstructure consisting of a duplex-like region and equiaxed  $\gamma$  grain layers ( $\gamma$  bands) is formed in as built samples. The layered microstructure is completely replaced by fully lamellar microstructure by HIP treatment at 1633 K, while it can be maintained at 1523 K or 1463 K. In addition, the volume fraction of the  $\alpha_2$  phase in the  $\gamma$  bands can be controlled by selecting HIP temperature, according to the phase diagram of the alloy. The rods subjected to the HIP treatment at 1523 K or 1463 K exhibit higher fatigue strength at 1023 K than as built rods and HIP-treated cast alloys. It was found that the high fatigue strength of the rods at low cycle fatigue life region is caused by inhibition of the crack initiation due to the high ductility. On the other hand, the strength at high cycle fatigue life region is possible to be improved by the suppression of pores and precipitation of the  $\alpha_2$  phase in the  $\gamma$  bands though the HIP treatment under appropriate conditions.

**Key Words:** Electron Beam Melting, Titanium Aluminide, Hot Isostatic Pressing, Fatigue Property

1. 緒言

TiAl 合金は、優れた高温強度と耐酸化性を有する軽量構造材料であることから、航空機用ジェットエンジンの低圧タービン翼などに実用化されており、その燃費向上に貢献している<sup>1,4)</sup>。現在、本合金製部品は、主に精密鑄造や大型インゴットからの削り出し加工によって作製されている<sup>5), 6)</sup>。しかし、これら既存プロセスでは、本合金の高い反応性と低い室温延性による難加工性に起因し、不純物の混入や材料ロスが問題となる。そのため、これらの問題を解決する新しいプロセスの開発が期待されている。

そこで、TiAl 合金製部品の次世代造形法として、Additive Manufacturing 技術の一つである電子ビーム積層造形 (Electron Beam Melting; EBM) 法が注目されている。EBM 法は、三次元 CAD (Computer-Aided Design) データを基に電子ビームを用いて金属粉末を選択的に熔融・凝固し、それを繰り返すことで任意形状の構造体を直接造形する技術であり、チタン合金<sup>7-9)</sup>、ニッケル合金<sup>10-12)</sup>、ステンレス鋼<sup>13), 14)</sup> など様々な構

造材料への適用が研究されている。本法は、真空中で鑄型を用いることなく複雑形状を有する構造体の造形を行うことが可能であるため、TiAl 合金にとっても最適な造形法の一つであると言える。また、近年では、熔融池での凝固現象やそこからの熱影響を最適化することで、外形状の制御にとどまらず、内形状や微細組織の制御も可能であることが報告されており、これまでの鑄造製部材より優れた特性を示す EBM 製部材が実現されている<sup>15), 16)</sup>。

我々の研究グループでは、EBM 法を用いた外形状と微細組織の同時制御による高性能 TiAl 合金製低圧タービン翼の研究開発を行ってきた。これまでに実用合金である Ti-48Al-2Cr-2Nb (at%) 合金の複雑形状造形体について、造形欠陥がなく健全に造形する技術を開発した<sup>17)</sup>。これに加え、プロセス条件を最適化することで、duplex 組織と  $\gamma$  バンドと呼ばれる等軸  $\gamma$  粒組織からなる特異なバンド状組織が造形方向に対して垂直に形成することを見出した<sup>18)</sup>。このバンド状組織は、熔融池からの温度分布に応じた組織変化が熔融、積層の度に繰り返されることで形成する<sup>18), 19)</sup>。荷重

\* 大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻 (〒 565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1)

Division of Materials and Manufacturing Science, Graduate School of Engineering, Osaka University (2-1, Yamada-Oka, Suita, Osaka 565-0871, Japan)

\*\* 新居浜工業高等専門学校環境材料工学科 (〒 792-8580 愛媛県新居浜市八雲町 7-1)

Department of Environmental Materials Engineering, Institute of Niihama National College of Technology (7-1, Yagumo-cho Niihama, Ehime 792-8580, Japan)

\*\*\* 金属技研株式会社 (〒 164-8721 東京都中野区本町 1-32-2 ハーモニータワー 27 階)

Metal Technology Co. Ltd. (Harmony Tower 27F, 1-32-2 Honcho, Nakano-Ku, Tokyo 164-8721, Japan)

\*\*\*\* 東京工業大学物質理工学院 材料系 (〒 152-8552 東京都目黒区大岡山 2-12-1)

Department of Materials Science and Engineering, School of Materials and Chemical Technology, Tokyo Institute of Technology (2-12-1, Ookayama, Meguro-ku, Tokyo 152-8552, Japan)

方向に対してバンド状組織を45°に配向させた45°材は、室温で2.5%以上の伸びを示し、鑄造材の欠点である低室温延性を克服している<sup>18), 20)</sup>。また、一般的にEBM法で造形した金属造形体では、原料粉末中のガスに起因する気孔が不可避であり、疲労特性に影響を及ぼすことが懸念される。これに対して、バンド状組織を有する45°材は、それを低減するための熱間等方圧加圧(Hot Isostatic Pressing; HIP)処理を施さずに、鑄造材と同程度の高い室温疲労強度を達成できる<sup>21), 22)</sup>。これは、優れた室温延性により疲労き裂発生寿命が延長されるためである。しかし、高温(1023 K)では、気孔を起点とした疲労き裂の発生が無視できず、高サイクル疲労強度が低下する<sup>19)</sup>。そのため、EBM製TiAl合金部材のさらなる高温疲労特性向上には、HIP処理による気孔の低減が必須となる。

本研究では、EBM法で造形した45°材に対して、気孔低減と微細組織制御のためのHIP処理を施し、その高温疲労特性改善を目指した。Fig. 1に示すTi-Al二元系状態図<sup>23)</sup>からわかるように、本合金は、熱処理温度に応じて微細組織が変化する。そこで、45°材の微細組織に及ぼすHIP処理温度の影響と様々な微細組織を有するHIP処理材の高温疲労特性について調査した。

2. 実験方法

平均粒径約100 μmのTi-48Al-2Cr-2Nb合金粉末(Arcam EBM, Sweden)を原料粉末として使用し、EBM法(A2X, Arcam EBM, Sweden)により直径10 mmφ、長さ90 mmの丸棒試料を造形した。その際、Fig. 2(a)に示すように造形方向と試料の長手方向のなす角(θ)を45°とした。ビーム電圧は60 kV、積層厚さは90 μmとした。造形した丸棒材(as built材)に対して様々な温度で3時間のHIP処理を施

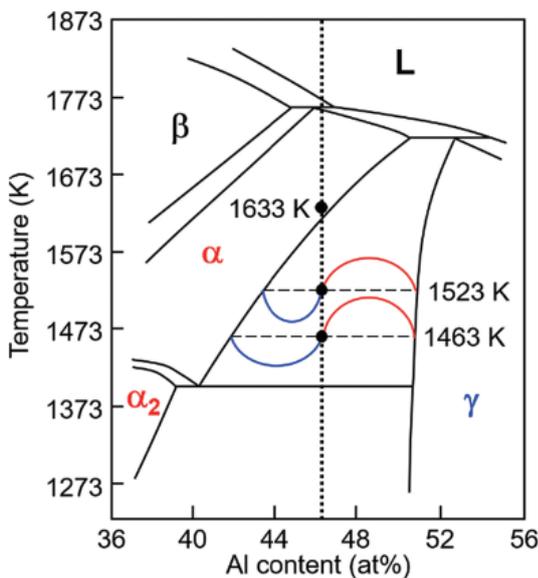


Fig. 1 Ti-Al binary phase diagram. The dotted line indicates actual Al content of the studied alloys.

した。HIP処理温度は、Fig. 1に示す状態図を基に決定した。つまり、Fig. 1中の点線(as built材のAl組成)において、α単相域である1633 K、α+γ二相域のうちテコの原理からα相の割合が比較的多い1523 K、その割合が比較的小さい1463 Kとした。以降、HIP処理材は、処理温度に応じて1633HIP材のように呼称する。

HIP処理前後の各試料について、鏡面研磨した縦断面の微細組織を走査型電子顕微鏡法(SEM)により観察した。また、各丸棒材から長手方向を荷重軸方向としてFig. 2(b), (c)にそれぞれ示す引張試験片および疲労試験片を切り出し、1023 K、真空下で高温引張試験および高温疲労試験を行った。引張試験は、ひずみ速度を $1.67 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ として実施した。また、疲労試験では、周波数を10 Hz、疲労比を-1として引張-圧縮変形を負荷した。破断した疲労試験片の破面は、SEMを用いて観察した。

3. 実験結果と考察

3.1 微細組織のHIP処理温度依存性

Fig. 3にas built材と各HIP処理材の微細組織を示す。as built材には、ガスポアに由来する円形の気孔が約0.13%存

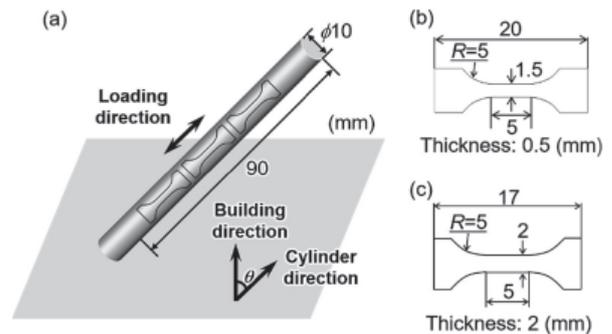


Fig. 2 Schematic drawings of cylindrical bars fabricated by EBM process at θ=45° (a) and dimension of the specimens for tensile (b) and fatigue (c) tests.

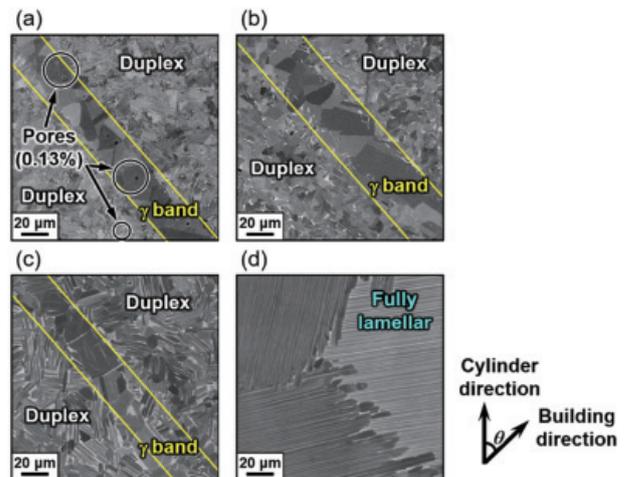


Fig. 3 Typical SEM images of as built (a), 1523HIP (b), 1523HIP (c), and 1633HIP (d) specimens.

在する。一方、同様の気孔は、HIP 処理材では観察されない(気孔率 0%)。これは、1463 K ~ 1633 K での HIP 処理が気孔の低減に有効であることを示している。

また、as built 材では、duplex 領域と  $\gamma$  バンドからなるバンド状組織が造形方向に対して垂直に形成されているが、HIP 処理材では、処理温度に依存して微細組織が大きく変化している。1633HIP 材では、バンド状組織が完全に消失し、粗大な fully lamellar 組織となっている。これは、 $\alpha$  単相域での HIP 処理中に粗大な等軸  $\alpha$  粒が形成し、冷却中に  $\gamma$  板が析出したためである。一方、1523 K および 1463 K で HIP 処理した場合、as built 材に見られるバンド状組織は維持されている。しかし、Fig. 4 に示すように、1523HIP 材と 1463HIP 材の  $\gamma$  バンドには、as built 材のそれには見られないウィッドマンシュテッテン状  $\alpha_2$  相が析出している。この  $\gamma$  バンド内  $\alpha_2$  相の体積率 ( $f_{\alpha_2GB}$ ) は、1463HIP 材 ( $f_{\alpha_2GB} = 7\%$ ) に比べて 1523HIP 材 ( $f_{\alpha_2GB} = 14\%$ ) の方が大きい。これは、Fig. 1 に示した状態図におけるテコの原理からわかるように、1523 K で HIP 処理した方が 1463 K で処理した場合より  $\alpha_2$  相の割合が増加するためである。

### 3.2 HIP 処理材の高温疲労特性

Fig. 5 に as built 材と各 HIP 処理材の 1023 K での応力振幅 - 破断サイクル数 ( $S-N_f$ ) 曲線を HIP 処理を行った鑄造材のデータと共に示す。as built 材は、 $10^4$  サイクル付近までは HIP 処理を行った鑄造材よりも高い疲労強度を示すものの、 $10^4$  サイクル以降は急激な疲労強度の低下が生じる。これは、高サイクル疲労寿命領域では気孔での疲労き裂発生が無視できないためである。これに対して、1633HIP 材は、HIP 処理によって気孔を低減したにも関わらず、as built 材に比べて大幅に疲労強度が低下し、鑄造材より特性が悪化した。

一方、1523HIP 材および 1463HIP 材では、as built 材に対する顕著な疲労強度の低下は見られず、 $10^4$  サイクル以上ではむしろ疲労強度が向上している。このことから、高温疲労特性は、HIP 処理によって一義的に改善あるいは低下するのではなく、処理温度によって決定される微細組織や引張特性の影響を強く受けると考えられる。そこで、 $S-N_f$  曲線の屈曲点を境として、 $10^4$  サイクル以下を低サイクル疲労寿命領域、それ以上を高サイクル疲労寿命領域と定義し、両領域での高温疲労挙動を各試料の微細組織や引張特性に着目して考察した。

### 3.3 低サイクル疲労寿命領域における高温疲労挙動

低サイクル疲労寿命領域における各試料の疲労特性を比較すると、as built 材  $\approx$  1523HIP 材  $>$  1463HIP 材  $>$  (鑄造材)  $>$  1633HIP 材の順で疲労強度が変化している。本領域での疲労強度は、引張特性に強く依存することから、各試料の 1023 K での最大引張強さ (Ultimate Tensile Strength; UTS) と  $10^3$  サイクルでの疲労強度を鑄造材の値と共に Table 1 に示す。as built 材および 1523HIP 材、1463HIP 材の UTS は同程

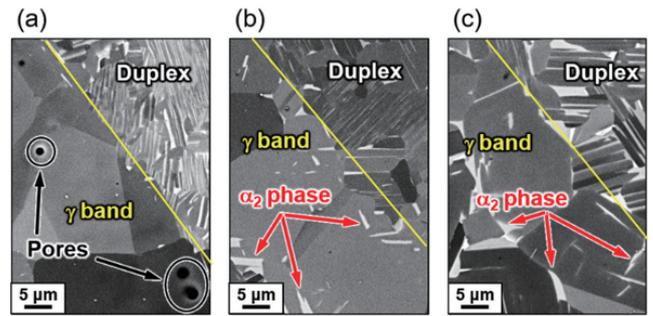


Fig. 4 Typical SEM images of  $\gamma$  band in as built (a), 1463HIP (b), and 1523HIP (c) specimens.

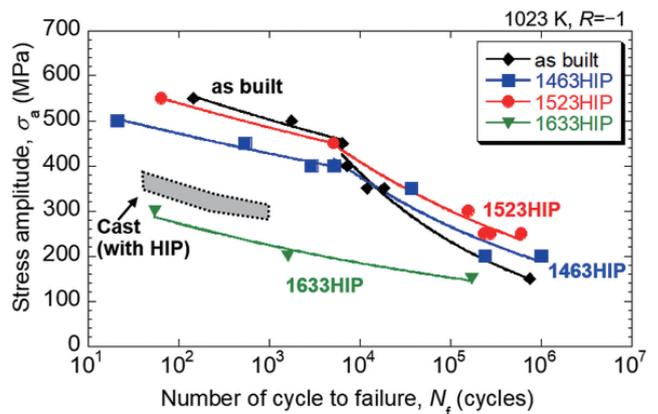


Fig. 5  $S-N_f$  curves of as built, 1463HIP, 1523HIP, and 1633HIP specimens cyclically deformed at 1023 K, along with that of the cast alloys with HIP treatment.

Table 1 UTS and fatigue strength at  $10^3$  cycles for as built, 1463HIP, 1523HIP, and 1633HIP specimens at 1023 K, along with those of the cast alloys with HIP treatment.

	UTS (MPa)	Fatigue strength at $10^3$ cycles (MPa)
as built	589	503
1463HIP	589	428
1523HIP	580	483
1633HIP	500	225
cast+HIP	375~500	280~320

度であり、これらの疲労強度の差異を説明することができない。また、1633HIP 材は、鑄造材と同等以上の UTS を示すが、これも 1633HIP 材の方が鑄造材より疲労強度が低いことと矛盾している。これらのことから、低サイクル疲労寿命領域における各試料の疲労強度は、それぞれの UTS に依存していないと言える。次に、各試料の 1023 K での伸びと  $10^3$  サイクルでの疲労強度の関係を Fig. 6 に示す。UTS とは異なり、各試料の伸びと疲労強度は、正の相関があることがわかる。このことは UTS が十分に高い場合、より高延性であるほうが破壊靱性は大きくなり、疲労き裂発生ま

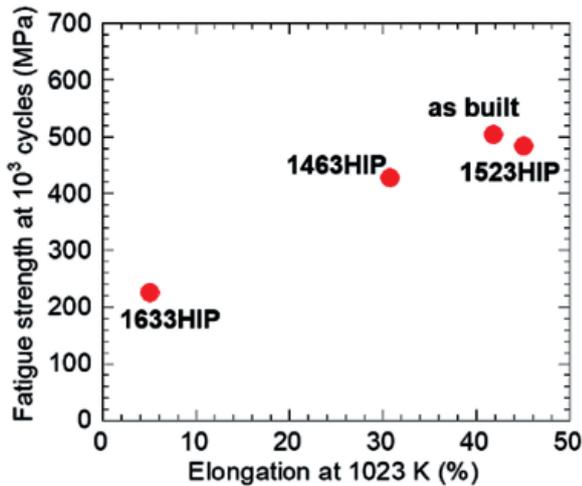


Fig. 6 Relationship between elongation and fatigue strength at  $10^3$  cycles for as built, 1463HIP, 1523HIP, and 1633HIP specimens at 1023 K.

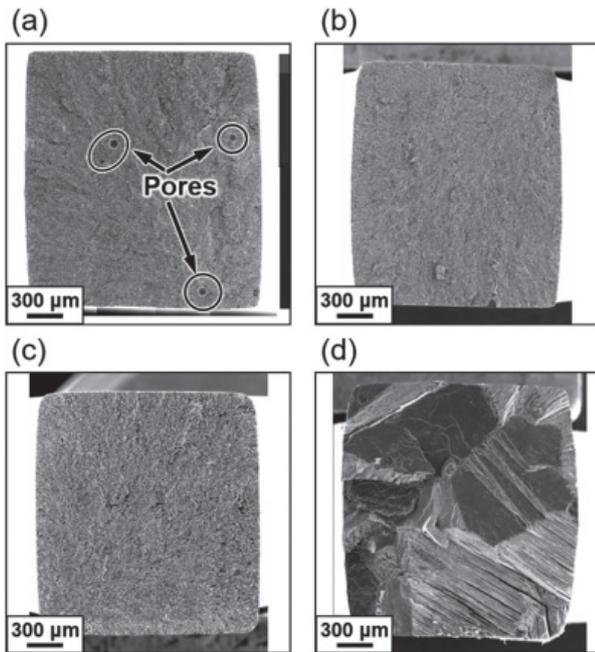


Fig. 7 Typical SEM fractographs of the specimens fractured at high cycle fatigue life region. (a) as built, (b) 1463HIP, (c) 1523HIP, and (d) 1633HIP specimens.

での寿命が長くなることを示している。つまり、高温における低サイクル疲労強度の改善には、高強度化だけではなく、高延性化にも着目し、バンド状組織を活かした微細組織制御が不可欠であると言える。

### 3.4 高サイクル疲労寿命領域における高温疲労挙動

高サイクル疲労寿命領域で破断した各試験片の破面を Fig. 7 に示す。バンド状組織を有する as built 材および 1523HIP 材、1463HIP 材は、マクロには同様の破面形態を示しているのに対して、粗大な fully lamellar 組織を有する 1633HIP 材は、広

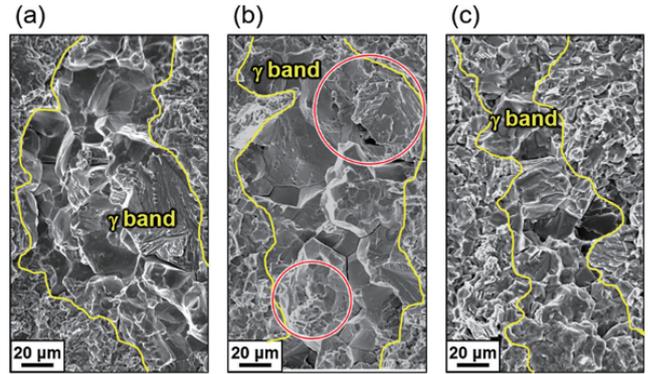


Fig. 8 Typical SEM images of  $\gamma$  band on the fracture surface of specimens fractured at high cycle fatigue life region. (a) as built, (b) 1463HIP, and (c) 1523HIP specimens.

いファセット状の領域が見られる特徴的な破面形態を示している。このファセット状の領域は、ラメラ粒中の  $\alpha_2$  相と  $\gamma$  相の界面で疲労破壊が生じたことを示している。1633HIP 材の疲労特性が他の試料に比べて低いのは、この極めて脆的なラメラ界面での破壊によるものである。

バンド状組織を有する各試料の破面に着目すると、as built 材の破面にのみ気孔が見られる。この気孔は、ファセットで覆われていることから、疲労き裂の発生点であったことがわかる。一方、1523HIP 材および 1463HIP 材の破面に気孔は見られない。これは、HIP 処理によって気孔が低減され、気孔での疲労き裂発生が抑制されていることを示している。そのため、これらの HIP 材は as built 材より優れた高サイクル疲労強度を示す。また、Fig. 8 に as built 材および 1523HIP 材、1463HIP 材の  $\gamma$  バンドの破面を示す。as built 材の  $\gamma$  バンドは、脆的な粒界破壊を生じており、これも高サイクル疲労寿命領域での疲労強度低下の原因となっている。これに対して、1523HIP 材の  $\gamma$  バンドは、一部が粒内破壊 (図中丸部) を含む混合破壊 (粒界 + 粒内破壊) となっており、1463HIP 材のものは、完全に粒内破壊へと変化している。この  $\gamma$  バンドにおける粒界破壊の抑制は、 $\gamma$  バンド内の  $\alpha_2$  相の増加による  $\gamma$ - $\gamma$  粒界での応力集中の緩和に起因するものであり、高サイクル疲労強度の改善に寄与する。以上のことから、高温における高サイクル疲労強度の改善には、HIP 処理による気孔の低減に合わせて、 $\gamma$  バンド内に適切な量の  $\alpha_2$  相を析出させることが重要であることが明らかとなった。

## 4. 結論

本研究では、EBM 法により造形した TiAl 合金丸棒材について、微細組織に及ぼす HIP 処理温度の影響と HIP 処理材の高温疲労特性を調査し、以下の知見が得られた。

- 1) 1463 K ~ 1633 K での HIP 処理により原料粉末中のガスに起因する気孔を低減することができる。
- 2) 1633 K での HIP 処理によりバンド状組織は消失し、

fully lamellar 組織が形成される。一方、1523 K および 1463 K での HIP 処理ではバンド状組織を維持しつつ、 $\gamma$  バンド内の  $\alpha_2$  相の体積率を制御することができる。

- 3) 低サイクル疲労寿命領域の高温疲労強度を改善するためには、高温延性の改善による疲労き裂発生の抑制が有効である。
- 4) 高サイクル疲労寿命領域の高温疲労強度を改善するためには、気孔の低減による疲労き裂発生の抑制と  $\gamma$  バンド内  $\alpha_2$  相の適切な析出による  $\gamma$ - $\gamma$  粒界の脆性的な粒界破壊の抑制が重要である。

### 謝辞

本研究の一部は、内閣府総合科学技術・イノベーション会議の戦略的イノベーション創造プログラム (SIP) (管理法人: JST) によって実施された。

### 参考文献

- 1) Y.-W. Kim: "Ordered intermetallic alloys, part III: Gamma titanium aluminides", *JOM*, **46** (1994), 30-39.
- 2) X. Wu: "Review of alloy and process development of TiAl alloys", *Intermetallics*, **14** (2006), 1114-1122.
- 3) B.P. Bewlay, S. Nag, A. Suzuki and M.J. Weimer: "TiAl alloys in commercial aircraft engines", *Mater. High Temp.*, **3409** (2016), 1-11.
- 4) 小柳禎彦: "軽量耐熱材料チタンアルミ合金の実用化に向けた技術発展", *電気製鋼*, **88** (2017), 77-84.
- 5) J. Aguilar, A. Schievenbusch and O. Kärtlitz: "Investment casting technology for production of TiAl low pressure turbine blades – Process engineering and parameter analysis", *Intermetallics*, **19** (2011), 757-761.
- 6) Y. Dong, D. Zhang, K. Bu, Y. Dou and W. Wang: "Geometric parameter-based optimization of the die profile for the investment casting of aerofoil-shaped turbine blades", *Int. J. Adv. Manuf. Technol.*, **57** (2011), 1245-1258.
- 7) N. Harbe and T. Quinn: "Effects of processing on microstructure and mechanical properties of a titanium alloy (Ti-6Al-4V) fabricated using electron beam melting (EBM), part I: Distance from build plate and part size", *Mater. Sci. Eng. A*, **573** (2013), 264-270.
- 8) H. Galarraga, D.A. Lados, R.R. Dehoff, M.M. Kirka and P. Nandwana: "Effects of the microstructure and porosity on properties of Ti-6Al-4V ELI alloy fabricated by electron beam melting (EBM)", *Addit. Manuf.*, **10** (2016), 47-57.
- 9) N. Ikeo, T. Ishimoto, A. Serizawa and T. Nakano: "Control of mechanical properties of three-dimensional Ti-6Al-4V products fabricated by electron beam melting with unidirectional elongated pores", *Metall. Mater. Trans. A*, **45** (2014), 4293-4301.
- 10) A. Strondl, M. Palm, J. Gnauk and G. Frommeyer: "Microstructure and mechanical properties of nickel based superalloy IN718 produced by rapid prototyping with electron beam melting (EBM)", *Mater. Sci. Technol.*, **27** (2011), 876-883.
- 11) L.E. Murr, E. Martinez, S.M. Gaytan, D.A. Ramirez, B.I. Machado, P.W. Shindo, J.L. Martinez, F. Medina, J. Wooten, D. Ciscel, U. Ackelid and R.B. Wicker: "Microstructural architecture,

microstructures, and mechanical properties for a nickel-base superalloy fabricated by electron beam melting", *Metall. Mater. Trans. A*, **42** (2011), 3491-3508.

- 12) D. Deng, R.L. Peng, H. Söderberg and J. Moverare: "On the formation of microstructural gradients in a nickel-base superalloy during electron beam melting", *Mater. Des.*, **160** (2018), 251-261.
- 13) A. Hinojos, J. Mireles, A. Reichardt, P. Frigola, P. Hosemann, L.E. Murr and R.B. Wicker: "Joining of Inconel 718 and 316 stainless steel using electron beam melting additive manufacturing technology", *Mater. Des.*, **94** (2016), 17-27.
- 14) Y. Zhong, L.E. Rännar, L. Liu, A. Koptuyug, S. Wikman, J. Olsen, D. Cui and Z. Shen: "Additive manufacturing of 316L stainless steel by electron beam melting for nuclear fusion applications", *J. Nuclear Mater.*, **486** (2017), 234-245.
- 15) T. Nakano, H. Fukuda and H. Takehashi: "Development of a new powder/solid composite for biomimic implant materials by electron-beam additive manufacturing", *Mater. Sci. Forum*, **879** (2018), 1361-1364.
- 16) T. Morita, C. Tsuda and T. Nakano: "Influences of scanning speed and short-time heat treatment on fundamental properties of Ti-6Al-4V alloy produced by EBM method", *Mater. Sci. Eng. A*, **704** (2017), 246-251.
- 17) 安田弘行, 趙研, 當代光陽, 上田実, 近藤大介, 唐土庄太郎, 池田垂矢子, 竹山雅夫, 中野貴由: "Additive Manufacturing プロセスによる TiAl 金属間化合物の組織制御と力学特性", *スマートプロセス学会誌*, **8-3** (2019), 78-83.
- 18) M. Todai, T. Nakano, T. Liu, H.Y. Yasuda, K. Hagihara, K. Cho, M. Ueda and M. Takeyama: "Effect of building direction on the microstructure and tensile properties of Ti-48Al-2Cr-2Nb alloy additively manufactured by electron beam melting", *Addit. Manuf.*, **13** (2017), 61-70.
- 19) 趙研, 安田弘行, 當代光陽, 上田実, 竹山雅夫, 中野貴由: "電子ビーム三次元積層造形プロセスにおける TiAl 合金部材の特異な微細組織と力学特性", *チタン*, **67** (2019), 290-296.
- 20) M. Sakata, J.Y. Oh, K. Cho, H.Y. Yasuda, M. Todai, T. Nakano, A. Ikeda, M. Ueda and M. Takeyama: "Effects of heat treatment on unique layered microstructure and tensile properties of TiAl fabricated by electron beam melting", *Mater. Sci. Forum*, **941** (2018), 1366-1371.
- 21) K. Cho, R. Kobayashi, J.Y. Oh, H.Y. Yasuda, M. Todai, T. Nakano, A. Ikeda, M. Ueda and Masao Takeyama: "Influence of unique layered microstructure on fatigue properties of Ti-48Al-2Cr-2Nb alloys fabricated by electron beam melting", *Intermetallics*, **95** (2018), 1-10.
- 22) K. Cho, R. Kobayashi, T. Fukuoka, J. Y. Oh, H. Y. Yasuda, M. Todai, T. Nakano, A. Ikeda, M. Ueda and M. Takeyama: "Microstructure and fatigue properties of TiAl with unique layered microstructure fabricated by electron beam melting", *Mater. Sci. Forum*, **941** (2018), 1597-1602.
- 23) K. Kothari, R. Radhakrishnan, N.M. Wereley and T.S. Sudarshan: "Microstructure and mechanical properties of consolidated gamma titanium aluminides", *Powder Metall.*, **50** (2007), 21-27.

### 代表者メールアドレス

安田弘行 hyasuda@mat.eng.osaka-u.ac.jp