

## 技術資料

## Technical Data

Alloy718 の  $\gamma''$  相析出処理がその後の  $\delta$  相析出挙動におよぼす影響大竹拓至\*<sup>1</sup>, 岡島琢磨\*<sup>2</sup>Influence of Initial Precipitated  $\gamma''$ -Phase Microstructure on  $\delta$ -Phase Precipitation Behavior in Alloy 718

Takuji OTAKE and Takuma OKAJIMA

## Synopsis

Alloy 718 is one of the most useful heat-resistant alloys for important device components that require high-temperature properties. In order to obtain excellent mechanical properties, it is necessary to form fine grains, for which the pinning effect of the  $\delta$  phase can be used in some cases. To precipitate a sufficient amount for the pinning effect, time-consuming isothermal heat treatments are required. Thus, a metallurgical method with a shortened holding time would improve production efficiency considerably. Our goal is to optimize the forging process to control grain size by utilizing the  $\delta$  phase, and the purpose of this study was to investigate the influence of the initial microstructure of the precipitated  $\gamma''$  phase on  $\delta$ -phase precipitation behavior in Alloy 718. As a solute treatment, Alloy 718 was heated at 1050 °C for 4 h, followed by heating of some samples at 870 °C for 10 h to precipitate the  $\gamma''$  phase. When comparing results of heating at 915 °C, the specimen with precipitated  $\gamma''$  phase showed more precipitated  $\delta$  phase than that under the solute condition. This suggested that utilizing the  $\gamma''$  phase promoted  $\delta$ -phase precipitation, and it is thus expected to shorten the heat treatment time for  $\delta$ -phase precipitation.

## 1. 緒言

エネルギーの世界的需要は近年ますます増加しており、CO<sub>2</sub> 排出の抑制をはじめとした環境対応も含めて高効率な火力発電技術の開発も進んでいる。このうち、発電用ガスタービンの高効率化には燃焼温度の上昇に伴い、構成部品のひとつであるガスタービンディスクの耐熱要求温度の上昇や大型化も進んでいる。Fe-Ni 基合金 Alloy718<sup>1)</sup> はガスタービンディスクに使われる主要な耐熱合金の一つであり、高温強度や疲労寿命などで優れた特性を有する。一般的に、機械的特性は合金成分の他に製造プロセスによっても大きく変化し、特に結晶粒径

のコントロールは特性を決定する大きな要因の一つである。Alloy718 において、高い疲労強度を要求される用途においては微細結晶粒径を製造することが必要となる。Alloy718 の大型ディスクを製造する場合、微細結晶粒径を得るための一つの手法として、主に型鍛造で用いられるような、粒成長を抑制できる低温域かつ、十分に再結晶が進行する高ひずみ域で鍛造熱処理を実施する方法がある。しかしながら、製品サイズの大型化に伴い、上記手法を適用するためには大容量のプレスが必要となり、設備コストが大きくなる。微細組織を得るためのもう一つの方法として、主に自由鍛造で用いられるような、析出物の一つである  $\delta$  相のピン止め効果を利用

2019年9月24日 受付

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

する手法 ( $\delta$  プロセス) がある<sup>2), 3)</sup>. この手法では, 大容量のプレスを用いなくとも鍛造とリヒートを繰り返しながら, 大型製品を製造できる利点がある. この手法を用いる場合は,  $\delta$  相析出のために鍛造途中に長時間の熱処理を実施する必要がある. もし, 冶金学的に短時間で  $\delta$  相を析出する方法が見つければ, 製造効率を大きく向上させることができる.

Alloy718 の析出相としては, 熱力学的に安定な  $\delta$ -Ni<sub>3</sub>Nb (D0<sub>a</sub>) 相の他に熱力学的に準安定な  $\gamma'$ -Ni<sub>3</sub>Nb (D0<sub>22</sub>) 相が知られている.  $\delta$  相の析出挙動は熱処理温度により異なり, 高温側ではウイドマンステッテン状に連続析出するのに対し, 低温側では不連続析出する傾向があることが報告されており, 析出反応が変化する境界温度は概ね  $\gamma'$  相の析出開始温度と一致し,  $\delta$  相の不連続析出には先立つ  $\gamma'$  相の析出が大きな影響をおよぼしていることが示唆されている<sup>4)</sup>. 不連続析出は溶質元素の過飽和度やひずみエネルギーを駆動力として, 粒界の移動を伴いながら母相/析出相からラメラ状のセル組織を形成する反応である<sup>5)</sup>. 他にも Alloy718 の  $\delta$  相析出挙動については数多く報告されており<sup>6) ~ 8)</sup>, TTP 図から見て,  $\delta$  相析出ノーズ温度の前後で析出形態が変化するとした報告もある<sup>9)</sup>. いずれにしても,  $\delta$  相析出形態は析出処理温度により変化し,  $\delta$  相析出前の  $\gamma'$  相析出の影響を受けているとされている. 本研究では,  $\delta$  相析出処理前に  $\gamma'$  相を析出させてから, 高温で  $\delta$  相を析出させる 2 段熱処理を実施し, 析出形態の変化がどのように発生するか調査した. 仮に, 析出形態の変化により  $\delta$  相析出が促進される様な傾向が見つければ,  $\delta$  プロセスにおける熱処理時間を短縮し, 製造効率を向上させる可能性がある.

## 2. 実験方法

供試合金として Alloy718 を用いた. 成分を Table 1 に示す. 合金を真空アーク再溶解法にて溶製した後, 微

Table 1. Chemical composition of Alloy 718 (wt%).

Ni	Fe	Cr	Nb	Mo	Ti	Al	C	B	Mg
53.6	Bal.	18.18	5.48	2.92	0.98	0.41	0.02	0.0007	0.0006

Table 2. Experimental heat treatment procedures.

Specimen	Heat treatment for $\gamma'$ -phase precipitation	Heat treatment for $\delta$ -phase precipitation	
		Temperature (°C)	Time
Condition 1	None	900, 915, 950, 1000	1, 5, 10, 15, 30 min,
Condition 2	870 °C × 10 h		1, 3, 10, 20, 36, 100 h

細組織となるまで十分に鍛錬を加えた. その後, 1050 °C において 4 h の溶体化処理を施したあと, 一部の試験片において 870 °C × 10 h の  $\gamma'$  相析出処理を施したのち, 900 ~ 1000 °C において 1 min. ~ 100 h の  $\delta$  相析出処理を施した. 熱処理パターンを Table 2 に示す. 以降, 溶体化処理後すぐに  $\delta$  相析出処理を実施したものを Condition 1, 870 °C × 10 h 保持したのち  $\delta$  相析出処理を実施したものを Condition 2 と表記する. 組織観察のために熱処理後の試験片を鏡面研磨し, 10 % シュウ酸を用いて電解腐食を実施した.

組織観察には光学顕微鏡 (OM) および走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いた. また, SEM 写真を用いて  $\delta$  相面積率の定量化を実施した. 組織定量化には画像解析ソフト WinROOF2013 を用いた.

## 3. 結果および考察

### 3. 1 $\delta$ 相析出処理前の初期組織

Condition 1, Condition 2 の  $\delta$  相析出処理前の組織を Fig. 1 に示す. Condition 1 では析出相が無く, 結晶粒度 #2 程度に整粒化されていることを確認した. Condition 2

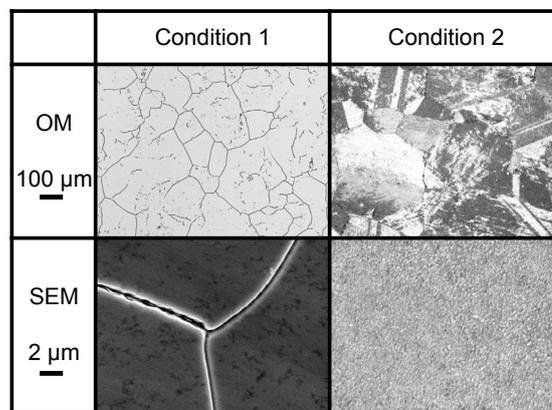


Fig. 1. Microstructures before heat treatment for  $\delta$ -phase precipitation.

では同様に結晶粒度 #2 程度となるが、粒内に  $\gamma'$  /  $\gamma''$  相と推測される析出物が多量に析出する様子を確認した。

### 3. 2 $\gamma''$ 相がない場合の $\delta$ 相析出挙動

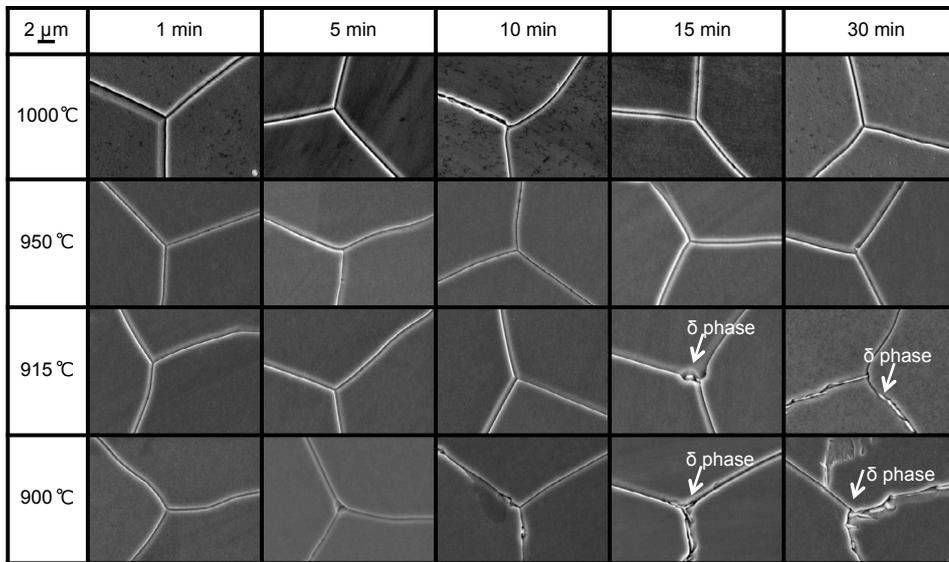
Condition 1 における、短時間側の粒界付近の SEM 写真および、長時間側の光学顕微鏡写真を Fig. 2 に示す。粒界から  $\delta$  相が析出し、長時間保持により粒内に  $\delta$  相が成長する様子を確認した。試験条件の中では 915 °C において  $\delta$  相析出速度が最も早く、36 h で粒内全域まで  $\delta$  相が析出される様子を確認した。

### 3. 3 $\gamma''$ 相がある場合の $\delta$ 相析出挙動

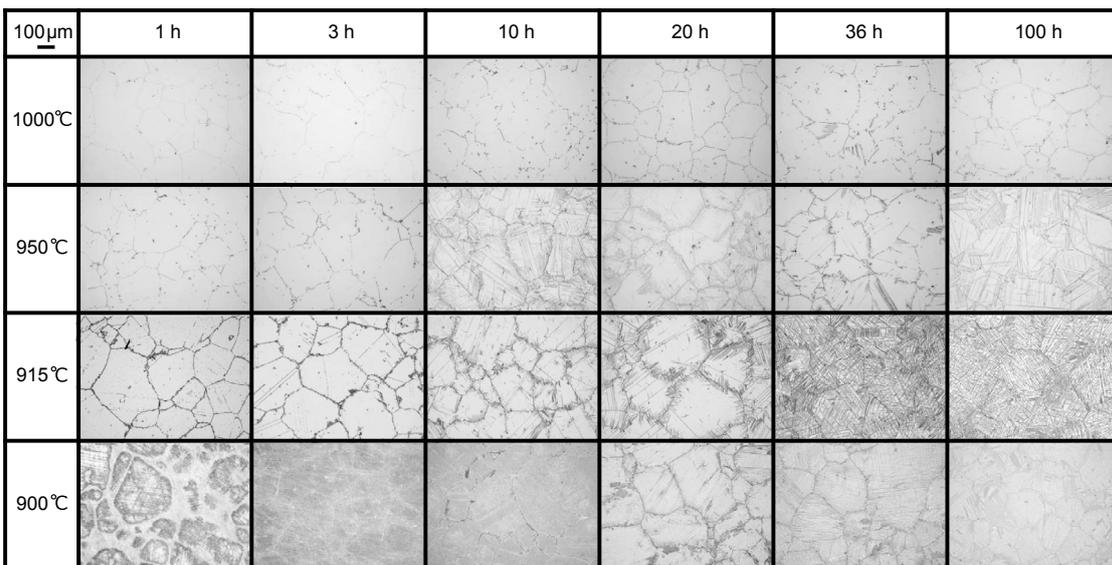
Condition 2 における、短時間側の粒界付近の SEM 写

真および、長時間側の光学顕微鏡写真を Fig. 3 に示す。析出初期において  $\delta$  相は  $\gamma$  母相と層状を成すセル状に析出し、不連続析出していると推測される。

また、Condition 1 と比べて短時間で  $\delta$  相が析出し始める様子を確認した。試験条件の中では 915 °C において  $\delta$  相析出速度が最も早く、10 h で粒内全域まで  $\delta$  相が析出される様子を確認した。 $\gamma''$  相析出処理時間 (870 °C × 10 h) を考慮しても、粒内全域まで  $\delta$  相が析出されるための析出処理時間短縮に 2 段熱処理が有効であることが考えられる。915 °C × 3 h においては粒界だけでなく、粒内からも活発に板状析出物が析出する様子が確認された。この析出物は、SEM-EDX および EBSD より  $\delta$  相であることを確認している。

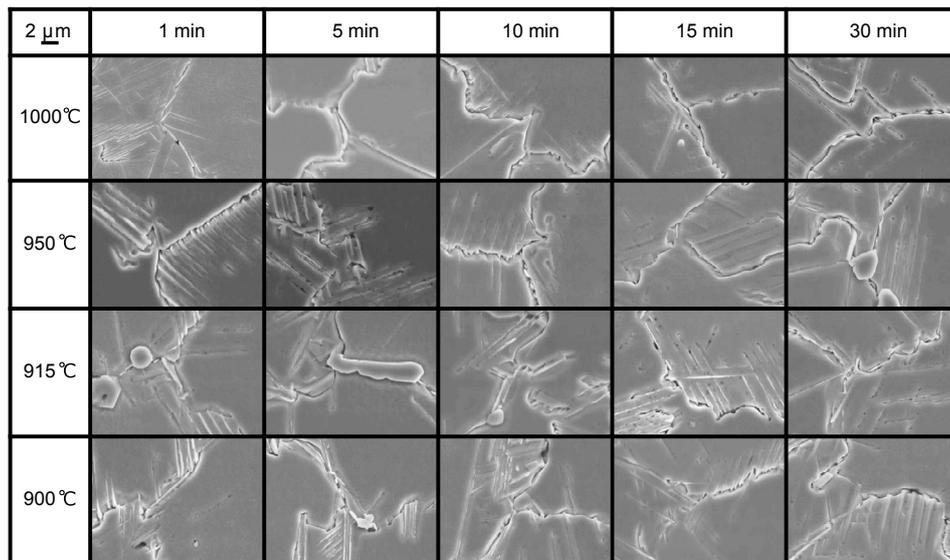


(a) Short heat treatment times (SEM)

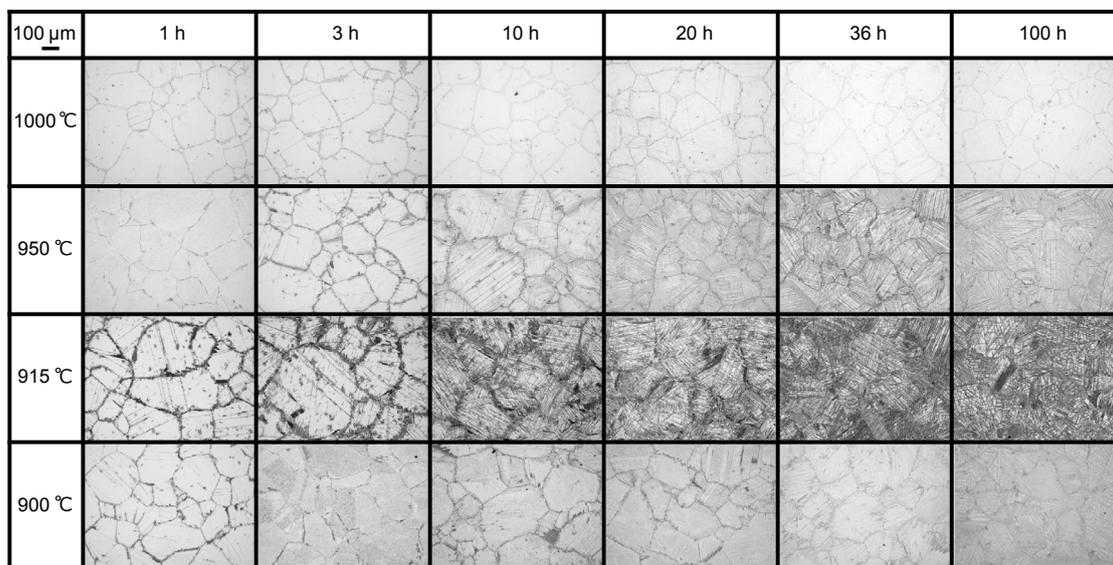


(b) Long heat treatment times (OM)

Fig. 2. Precipitation behavior under condition 1.



(a) Short heat treatment times (SEM)



(b) Long heat treatment times (OM)

Fig. 3. Precipitation behavior under condition 2.

### 3. 4 両条件における $\delta$ 相析出挙動の違い

両条件の915  $^{\circ}\text{C}$ における $\delta$ 相面積率の推移をFig. 4に示す。 $\delta$ 相面積率は化学腐食面に対して撮影したSEM写真より、画像解析ソフトを用いて定量化しているが、化学腐食面では導入される表面凹凸が大きすぎるために、腐食層の析出物と母地の凹凸が重なり、析出物の分布を明瞭に捉えることが容易ではないことが知られている<sup>10)</sup>。そのため、本結果は $\delta$ 相析出量の定性比較値として扱う。なお、熱力学計算ソフトThermo-Calcで算出すると、Alloy718の900  $^{\circ}\text{C}$ ～1000  $^{\circ}\text{C}$ における $\delta$ 相モル分率は2～10%程度となるが、 $\delta$ 相面積率を測定すると2～30%の値を示す事例は先行研究にも存在する<sup>11)</sup>。

$\delta$ 相の析出は粒界析出と粒内析出の2段階に分かれており、粒内析出段階で析出速度が向上する傾向を確認した。Condition 1では1 h以降から粒界に $\delta$ 相が析出していき、20 h以降から粒内に $\delta$ 相が析出する傾向を確認した。Condition 2では、析出初期から粒界に $\delta$ 相が析出しており、粒内析出の開始が1 h以降と、Condition 1に比べて早い傾向を確認した。また長時間保持時の $\delta$ 相析出量は同等であった。両条件における $\delta$ 相のTTP図をFig. 5に示す。Condition 2ではCondition 1に比べて900～1000  $^{\circ}\text{C}$ での $\delta$ 相析出が早く、短時間で粒内全体に $\delta$ 相が析出する傾向を確認した。

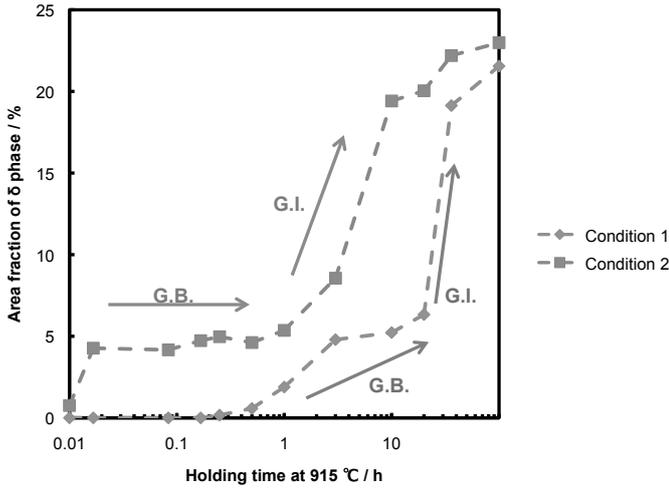
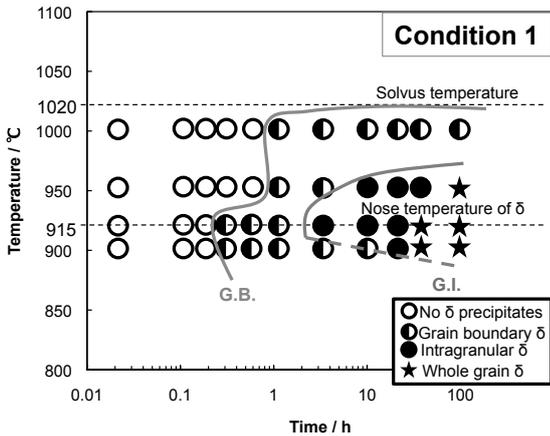
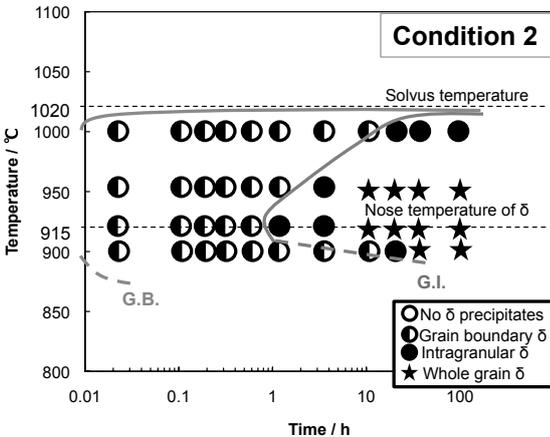


Fig. 4. Area fractions of  $\delta$  phase  
(G.B. : grain boundary, G.I. : intragranular).



(a) Condition 1



(b) Condition 2

Fig. 5. TTP diagrams of  $\delta$  phase.

### 3. 5 $\delta$ 相の析出形態

以上の結果から、両条件における  $\delta$  相の析出過程をまとめた。組織写真を Fig. 6、析出形態のイメージ図を Fig. 7 に示す。  $\delta$  相が析出する前の Step 1 においては、Condition 1 では析出物がなく、Condition 2 では組織全体に  $\gamma''/\gamma'$  相が析出している。  $\delta$  相が析出し始める Step 2 においては、Condition 1 では粒界に  $\delta$  相が連続析出し、Condition 2 では  $\delta$  相が粒界に不連続析出し、粒界が被覆されたような組織となる。これは、参考文献<sup>4)</sup>で示されたように  $\gamma''/\gamma'$  界面近傍において蓄えられた整合ひずみエネルギーを駆動力として不連続析出が生じたと考えられる。また、この時点で母相中の  $\gamma''/\gamma'$  相は固溶しており、母相中の Nb 濃度は両条件で変化がないことを FE-EPMA により確認している。  $\delta$  相が成長し始める Step 3 においては、Condition 1 では  $\delta$  相は粒界から粒内に成長する。Condition 2 では、不連続析出で覆われた粒界からは  $\delta$  相が成長しにくくなり、代わりに双晶界面および粒内からの  $\delta$  相析出が活発となったような組織が観察された。これは、  $\gamma''$  相が固溶したことで母相中の整合ひずみエネルギーが低下し、不連続析出の成長がしにくくなったためと考えられる。  $\delta$  相が結晶粒全体に析出する Step 4 においては、Condition 1 では全体が連続析出した均一な組織、Condition 2 では粒界は不連続析出、粒内は連続析出した不均一な組織となる。Condition 2 では粒界からだけでなく、双晶界面や粒内からも  $\delta$  相が析出・成長していくため、  $\delta$  相が結晶粒全体に析出するまでの時間が Condition 1 と比べて短時間化したと考えられる。Condition 2 は不均一な析出ではあるが、  $\delta$  相が結晶粒全体に析出しているため、析出の後に鍛造と再加熱を繰り返すことでピン止め粒子として作用することが予想される。

## 4. 結 言

本研究では Alloy718 において  $\delta$  相析出処理前に  $\gamma''$  相を析出させるための低温熱処理 (870 °C × 10 h) を実施してから、高温 (900 ~ 1000 °C) で  $\delta$  相を析出させる 2 段熱処理を実施し、低温熱処理の有無による  $\delta$  相の析出挙動の変化を調べ、以下の知見を得た。

- 1) 低温熱処理の有無により  $\delta$  相析出処理の析出形態が変化する。結晶粒全体に  $\delta$  相を析出させる場合、2 段熱処理を実施することで  $\delta$  相析出にかかる総熱処理時間を 16 h 短縮させる効果が期待できる。
- 2) 2 段熱処理を実施する場合、粒界だけでなく、粒内からも  $\delta$  相が析出しやすくなる傾向がある。
- 3) 2 段熱処理を実施する場合、  $\delta$  相析出初期形態が変化

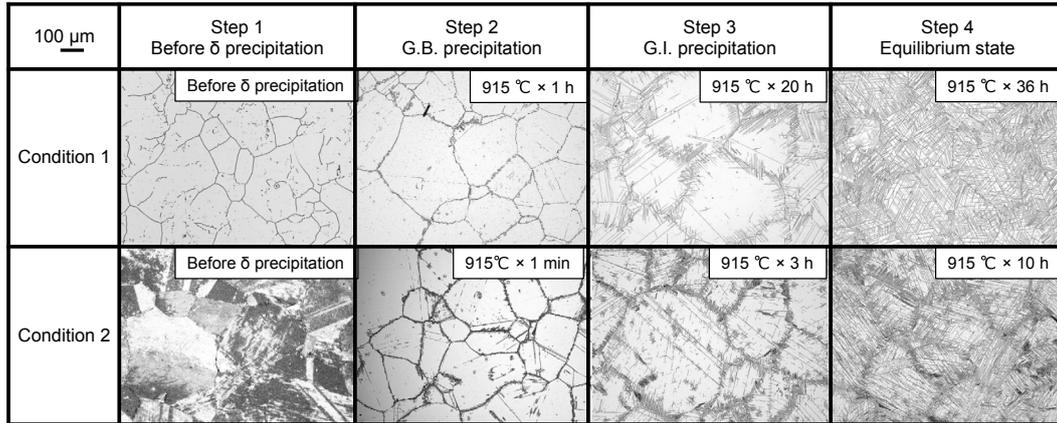


Fig. 6. Form of  $\delta$ -phase precipitation.

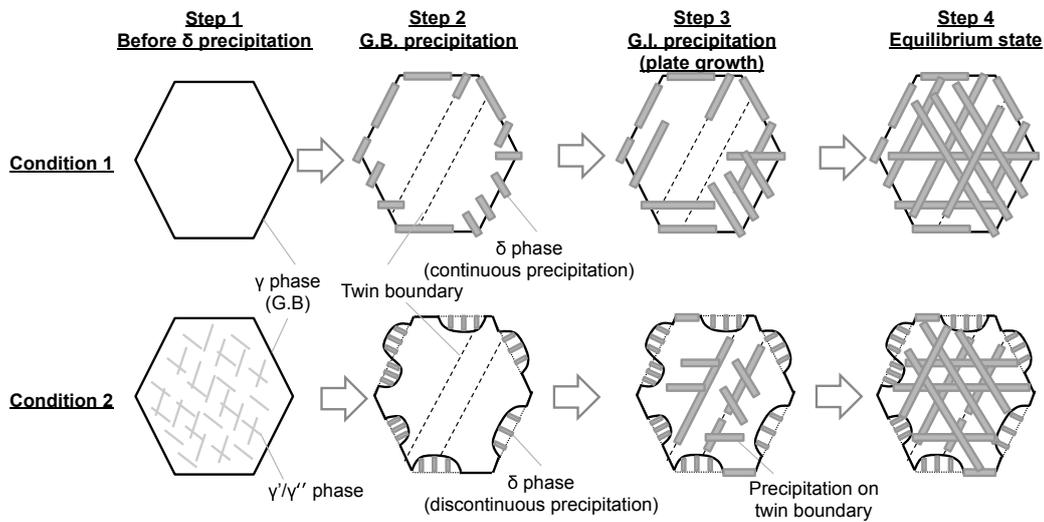
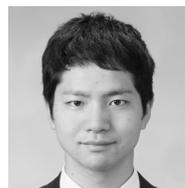


Fig. 7. Comparison schematics of  $\delta$ -phase precipitation behavior.

し、 $\gamma'/\gamma''$ 相は短時間で固溶する。また、固溶後の母相における Nb濃度において、低温熱処理の有無による変化は少ない。したがって、 $\delta$ 相析出初期の析出形態の変化が、後の  $\delta$ 相析出・成長にも大きな影響をおよぼしたことが示唆される。

(文献)

- 1) R. C. Hall: Journal of Basic Engineering, 89(1967), 511.
- 2) Y. Wang, W. Z. Shao, L. Zhen and B. Y. Zhang: Materials Science and Engineering: A, 528(2011), 3218.
- 3) Pedro Páramo-Kañetas, Utkudeniz Özturk, Jessica Calvo, José María Cabrera and Martha Guerrero-Mata: Journal of Materials Processing Technology, 255(2018), 204.
- 4) 大塚智樹, 小林覚, 竹山雅夫, 青木宙也, 上野友典: 耐熱金属材料 123委員会, 60(2019), 69.
- 5) D. B. Williams and E. P. Butler: International Metals Reviews, 3(1981), 153.
- 6) A. Oradei-Basile and J. F. Radavich: Superalloys 718, 625 and Various Derivatives, (1991), 325.
- 7) Xishan Xie, Chunmei Xu, Gailian Wang, Jianxin Dong, Wei-Di Cao and Richard Kennedy: Superalloys 718, 625, 706 and Derivatives, (2005), 193.
- 8) 井田駿太郎, 高田尚記, 寺田芳弘, 竹山雅夫: 材料とプロセス, 27(2014), 25.
- 9) 井田駿太郎, 小林覚, 竹山雅夫: 耐熱金属材料 123委員会, 56(2015), 69.
- 10) 木村恵, 早川正夫, 山口弘二, 小林一夫: 圧力技術, 45(2007), 80.
- 11) 西牧智大, 筧幸次, 河上祐介: 日本金属学会誌, 79(2015), 385.



大竹拓至



岡島琢磨