

航空機ジェットエンジン用TiAl合金の電子ビーム積層造形

Electron Beam Melting of TiAl Alloys for Aircraft Jet Engine Application

大阪大学大学院工学研究科
マテリアル生産科学専攻
教授

安田弘行
Hiroyuki Y. Yasuda

東京工業大学
物質理工学院
助教

中島広豊
Hirotoyo Nakashima

大阪大学大学院工学研究科
マテリアル生産科学専攻
准教授

趙 研
Ken Cho

東京工業大学
物質理工学院
教授

竹山雅夫
Masao Takeyama

新居浜工業高等専門学校
環境材料工学科
准教授

當代光陽
Mitsuharu Todai

大阪大学大学院工学研究科
マテリアル生産科学専攻
教授

中野貴由
Takayoshi Nakano

1 はじめに

TiAlは比重の軽いチタンとアルミニウムからなる金属間化合物であり、高比強度で、高温強度ならびに耐酸化性にも優れることから次世代の耐熱材料として期待され、1990年代に国内外で精力的に研究が行われてきた^{1,5)}。その甲斐あって、現在では、鋳造材がBoeing 787のGENx、鍛造材がAirbus A320neoのPW1100G-JM、切削材がBoeing 737MAXのLEAPの低圧タービン翼として実用化され、エンジンの高効率化に貢献している⁶⁾。近年の新型コロナウイルスの感染拡大により水を差された形になっているが、今後もジェット旅客機の需要は増加し、TiAl合金の利用も拡大することが期待されている。そんな中、日本では、内閣府主導の戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)の中で、航空機材料の研究開発に特化した「革新的構造材料」プロジェクトが2014年9月からスタートし、その主要な研究開発対象として、TiAl合金が取り上げられている。その中で、鋳造、鍛造に加え、TiAl合金の新たな製造技術として注目したのが電子ビーム積層造形法(Electron Beam Melting: EBM)、正確に言えば、電子ビーム粉末床溶融結合法(Electron Beam Powder Bed Fusion: EB-PBF)である。さらに、2018年からは第2期SIP「統合型材料開発システムによるマテリアル革命」がスタートし、その中でもEB-PBF法によるTiAl合金の製造技術の開発が行われている。著者らは、第1期、第2期ともに、EB-PBFによるTiAl合金の製造技術開発に取り組んできた。

積層造形法は、これまでのものづくりが製品を切削・加工

することで完成させる引き算のものづくりであるのに対し、物質を積み上げて作りこむ足し算のものづくりである。したがって、付加製造(Additive Manufacturing: AM)とも呼ばれている^{7,8)}。AMにはさまざまな手法があるが、そのうちのひとつが、先に述べたEB-PBF法である。同手法では、粉末の積層、溶融、凝固を繰り返して行うことで、任意形状の三次元構造物を容易に造形することが可能となる(図1)。一般に、TiAlは非常に活性であるため、鋳造時にはるつぼとの反応によるコンタミ、酸化による表面汚染が問題となる。しかしながら、EB-PBF法では、るつぼを用いないのでコンタミの心配はなく、さらにチャンバー内は真空なので、酸化も抑えられる。さらに、選択領域を溶融する前に、予熱によって粉末床を1000℃程度に加熱するため、熱衝撃による割れも生じない。このため、TiAl合金の革新的な製造技術として注目されるようになった^{9,18)}。EB-PBFによるTiAl合金の造形技術については、イタリアのAvio Aeroが先行して開発してきたが、近年、GEがAvio Aeroのみならず、EB-PBF装置メーカーのArcam、粉末メーカーのAP&Cを傘下に収めていることから、この技術の注目度が伺える。なお、EB-PBFにより造形したTiAl合金の低圧タービン翼は、Boeing 777XのGE9Xに搭載予定である。

著者らはEB-PBFを単なる形状制御のツールとしてではなく、組織制御のツールとしても考えている。図2にTi-Al二元系状態図を示す。工業的に利用されているTiAl合金では、主相となるTiAl(γ)相に加え、少量のTi₃Al(α_2)相を含む場合が多い。TiAl合金の組織は熱処理温度に強く依存し、高

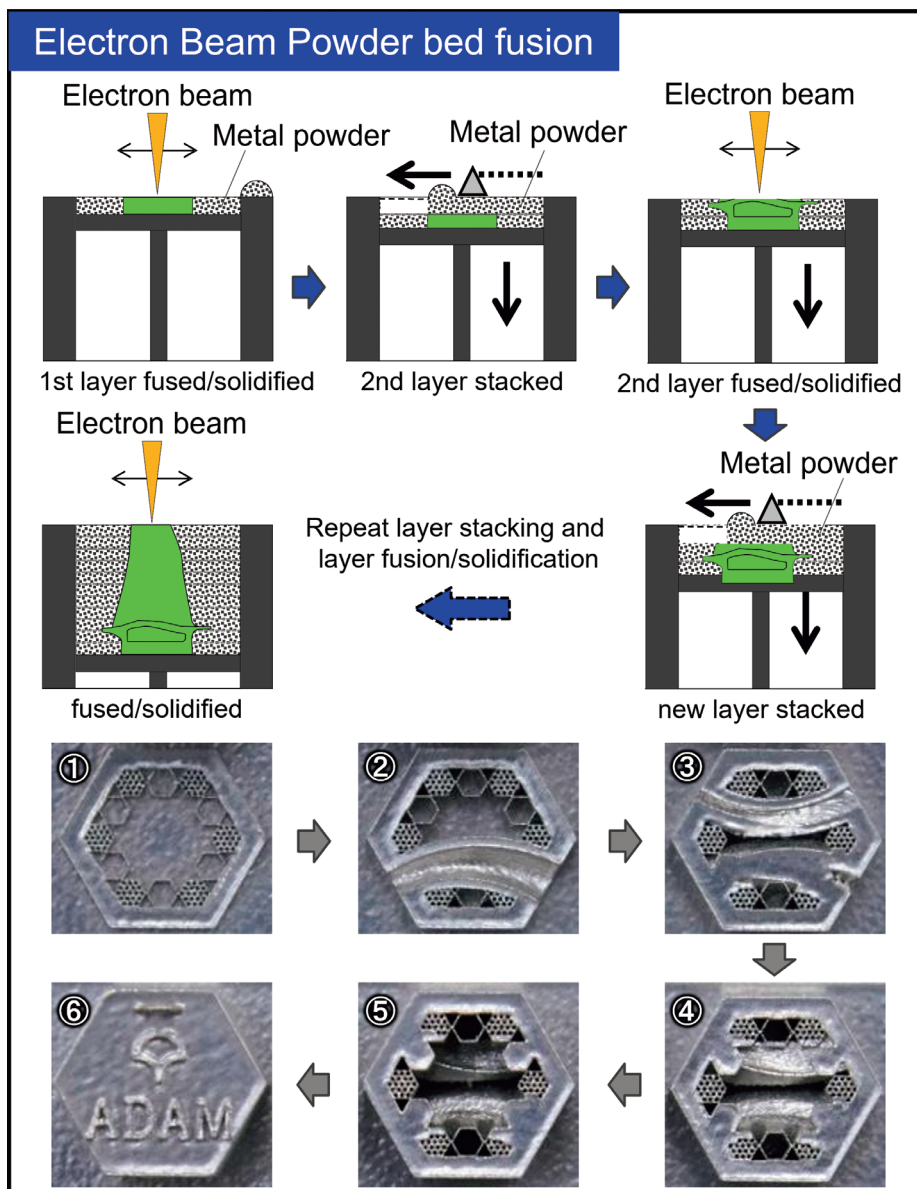


図1 電子ビーム粉末床溶融結合法 (EB-PBF) による造形 (Online version in color.)

温側から順に、(i) γ 相と α_2 相とがBlackburnの方位関係を満たしつつ層状に配列し、粗大なラメラ粒となる「fully lamellar組織」、(ii) ラメラ粒のまわりに微細な γ 相が形成される「near lamellar組織」、(iii) ラメラ粒と γ 粒とが微細複合組織を形成する「duplex組織」、(iv) 等軸 γ 相が主体で、少量の α_2 粒を含む「near γ 組織」、が形成される¹⁾。EB-PBFでは、プロセス条件に依存して、微細組織が大きく変化する。EB-PBFにおける熱源の入熱量は、以下のエネルギー密度 E で表される。

$$E = \frac{VI}{vpd}$$

ここで、 V , I はそれぞれ電子ビームの電圧、電流、 v はビーム

の走査速度、 p は走査ピッチ、 d は粉末層厚さである。 E の増加はそのまま到達温度の上昇につながるため、 E に応じて組織が制御可能となる。また、EB-PBFでは、熱源となる電子ビーム照射部を起点として傾斜温度場での熱処理が行われていることになるため、場所によって形成される組織が異なる。このため、均一な温度場では形成されない、EB-PBF特有の微細組織を作りこむことが可能となる。さらに、第2期SIPでは、強化相となる β -Ti相を含有したTiAl合金のEB-PBFに取り組んでいるが、その際に発見したのが、電子ビーム照射後の急冷プロセスに由来するマッシュ変態の存在である¹⁶⁾。マッシュ変態は、化学組成の変動を伴わない、界面易動度に律速される相変態であり、生成相が塊状の形態を示すのが特徴である。TiAl合金では、 β 相 \rightarrow α 相または α 相 \rightarrow γ 相のマッ

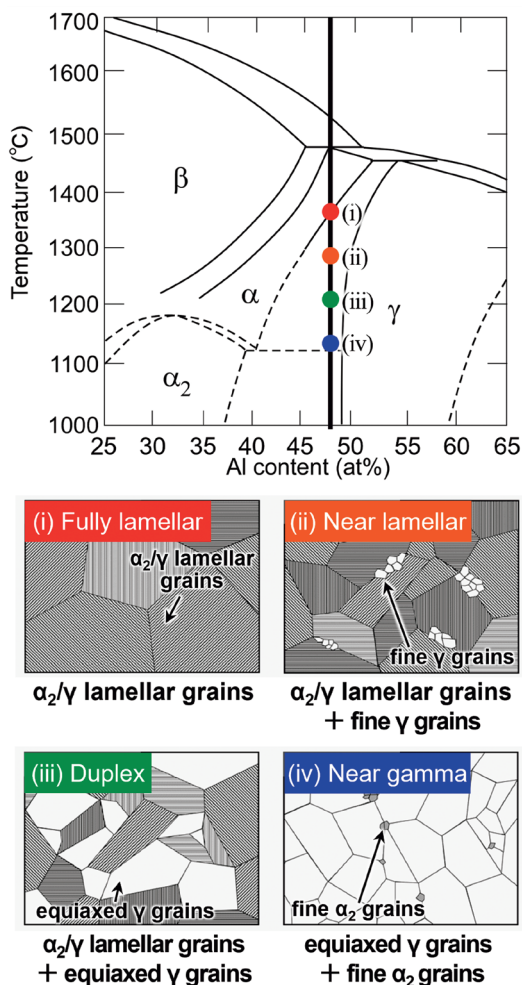


図2 Ti-Al二元系状態図と代表的な微細組織の模式図、(i) fully lamellar、(ii) near lamellar、(iii) duplex、(iv) near γ (Online version in color.)

シブ変態が知られているが、著者らは、EB-PBF中の $\beta \rightarrow \alpha$ マッシュ変態に由来する特異組織も見出している。本稿では、SIPの第1期、第2期でそれぞれ取り上げたTi-48Al-2Cr-2Nb (at.%)合金(48-2-2合金)、 β 相含有TiAl合金について、EB-PBFにより形成される特異組織とその力学特性との関係について述べる。

2 48-2-2合金のEB-PBF

48-2-2合金は、GENxおよびGE9Xエンジンの低圧タービン翼として使用されている。著者らは、第1期SIPにて、同合金粉末を用いてEB-PBFによる製造技術開発に取り組んだ。48-2-2合金のEB-PBF後の微細組織は、エネルギー密度に強く依存する¹³⁾。例えば、高ビーム電流、低走査速度といった高エネルギー密度条件ではfully lamellarまたはduplex組織が、低ビーム電流、高走査速度といった低エネルギー密度条件ではnear γ 組織が形成される。その原因は、EB-PBF時の

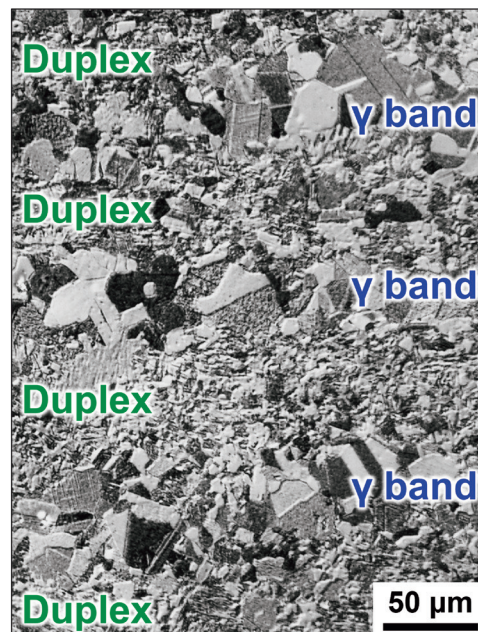


図3 EB-PBFで造形した48-2-2合金に形成される特異なバンド状組織 (Online version in color.)

溶融池付近の到達温度がエネルギー密度の増加に伴い上昇するためである。一方、欠陥率が小さく、寸法誤差も小さい最適なエネルギー密度条件では、図3に示すとおり、造形方向に対して垂直となる特異なバンド状組織が形成される¹³⁾。このバンド状組織は、ラメラ粒と γ 粒の微細混合組織であるduplex組織からなるバンドと、等軸 γ 粒からなるバンド(以下、 γ バンド)から構成される。duplex組織の厚さと γ バンドの厚さを合計すると、粉末の積層厚さである90 μm とほぼ一致することから、EB-PBF特有の積層プロセスがその形成に関与していることは間違いない。そこで、造形最上部の微細組織を観察したところ、上から順に、「fully lamellar組織」、「near lamellar組織」、「duplex組織」、「near γ 組織」となり、組織がグラデーション状に変化していることが確認される(図4)。この時のnear γ 組織が γ バンドに対応する。このようなグラデーション組織の成因は、伝熱解析の結果からもわかるとおり、最上部から下部に向けて最高到達温度が減少するためである。以上から、バンド状組織の形成過程は、次のように結論付けることができる。まず、電子ビームが粉末床表面に照射されると、溶融後に発達する温度分布に由来して、先述のグラデーション組織が発達し、最下部にduplex領域と γ バンドからなるペアが形成される。次に、試料ステージが下降し、新しい粉末層が供給され、再び溶融されると、グラデーション組織が再形成されるが、最下部はduplex- γ バンド-duplex- γ バンド、といったバンド状組織が形成される。これを繰り返せば、最上部を除いて、duplex組織と γ バンドからなるバンド状組織が形成されるわけである。こう

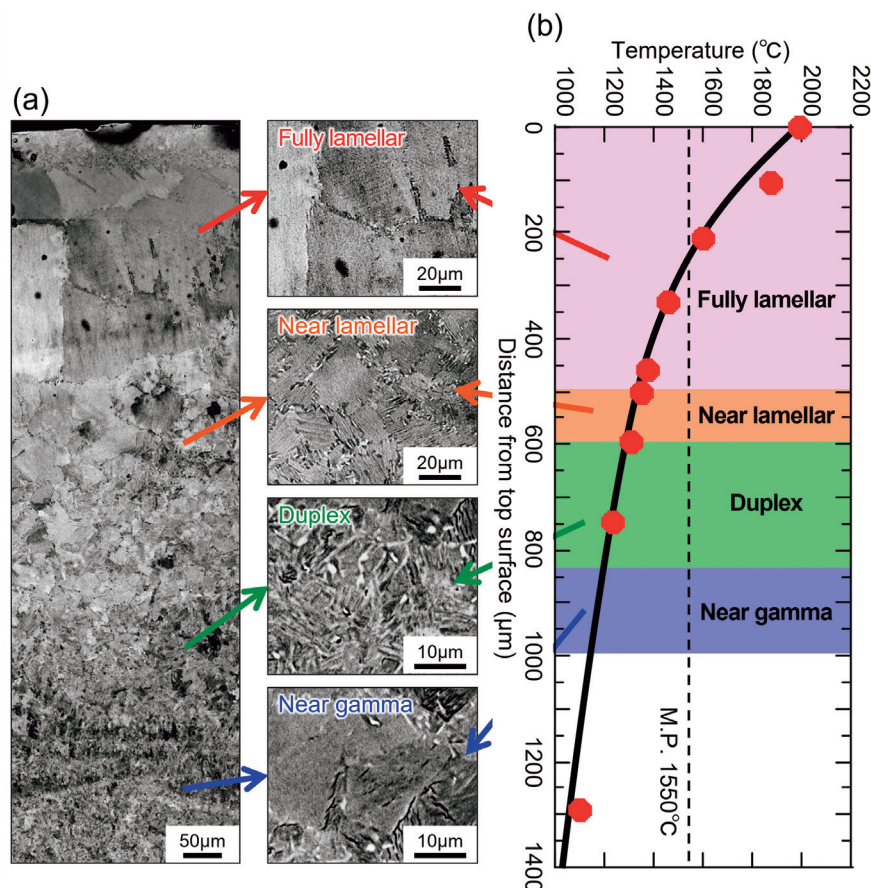


図4 造形最上部の微細組織とバンド状組織の成因、(a) 微細組織、(b) 温度分布 (Online version in color.)

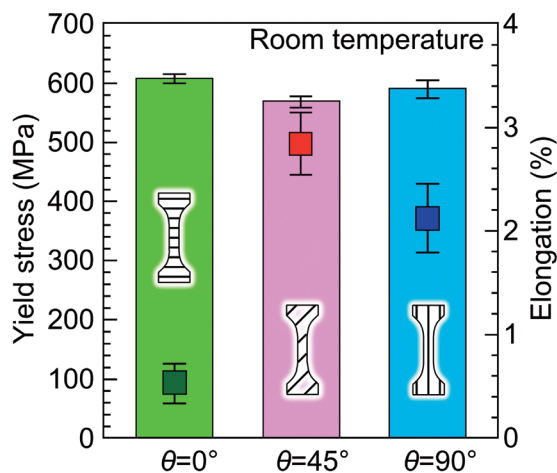


図5 EB-PBFで造形した48-2-2合金の室温における降伏応力と伸びの θ 依存性 (Online version in color.)

した形成機構は、著者らのグループで、世界で初めて解明された。なお、こうしたバンド状組織の成因が、電子ビーム照射時のアルミニウムの蒸発に起因するというモデルもあるが¹¹⁾、その反証は別の機会に行いたい。

以上のように、48-2-2合金では、溶融池付近の温度分布に由来して特殊なバンド状組織が形成されるが、この組織は力

学特性にも強い影響を及ぼす。例えば、丸棒試料をEB-PBFで造形する際、造形方向とその長手方向とのなす角 θ が0°、45°、90°となるよう造形すると、丸棒試料の長手方向に対して、 γ バンドが90°、45°、0°となる。こうした丸棒試料から、長手方向を引張軸とする引張試験片を切り出し、室温で引張試験を実施すると、その力学特性は、 θ に強く依存する¹³⁻¹⁵⁾(図5)。とりわけ、 $\theta=45^\circ$ では、室温であるにもかかわらず、2.5%以上の伸びを示す。その原因は、延性相である γ 相のバンドが最大せん断応力面と平行となり、変形が容易になったためと考えられる。TiAl合金にとって室温延性の欠如は実用化に向けてのボトルネックとなっていたことから、本発見は極めて重要と考え、すでに特許を取得している。なお、一般に、TiAl合金では、EB-PBF後に、欠陥除去のため、熱間静水圧プレス (Hot Isostatic Pressing : HIP) を施す場合が多い。TiAl合金のHIP処理は1000°C以上の高温で実施するため、EB-PBFによりせっかく形成されたバンド状組織が消滅する可能性がある。しかしながら、適切な温度、圧力を選択すると、HIP処理を施しても、バンド状組織を破壊することなく欠陥の除去が可能である¹⁸⁾。

SIPの最終目標は社会実装であるので、プロジェクトの最

後に、48-2-2合金の低圧タービン翼の試作を行っている。まずは、全長10 cm程度のミニチュア翼を造形したところ、その内部組織は場所に依存して変化した。例えば、厚肉部ではバンド状組織が形成されても、薄肉部では、高温で形成されやすいlamellar組織が形成された。その原因は、薄肉部と厚肉部で、入熱、抜熱等に違いが生じたためである。そこで、場所ごとに造形条件を変更して造形を行ったところ、翼全体にバンド状組織を形成させることに成功した。最終的には、得られた知見を総動員して、30 cm長の低圧タービン翼の試作に成功している (図6)。

3 β相含有TiAl合金のEB-PBF

鍛造用TiAl合金に対してβ-Ti相を利用するアイディアは、1990年代前半に竹山らによって提案された^{19,21)}。その後、Clemensらのグループによって基礎研究が進み、最終的には、ドイツのエンジンメーカーMTUの手により、いわゆるTNM合金がAirbus320neoのエンジンPW1100G-JMに実用化されている²²⁾。鍛造材では、β相は高速鍛造を可能とするが、800°C程度までは材料の強化に寄与する。近年、β相含有TiAl合金のEB-PBFについても、欧州を中心に注目が高まっているが、著者らのグループは、世界に先駆けてその研究に取り組んできた。本稿では、基礎検討用に活用してきたTi-44Al-4Cr (at.%) 合金 (以下、44-4合金) の結果を中心に報告

する^{16,17)}。

緒言でも述べたように、44-4合金でも、EB-PBF後の微細組織はエネルギー密度に強く依存する。エネルギー密度が33 J/mm³以上であれば、ほぼ全面がα₂/β/γ3相の微細混合組織となる (図7 (a))。その原因は、まず、β相から棒状のα相がBurgersの方位関係にしたがって析出し、その後、β、α両相からγ相がそれぞれ Kurdjumov-Sachs, Blackburnの方位関係を持って析出することで形成される。一方、エネルギー密度が33 J/mm³を下回ると、上述の3相混合組織の割



図6 EB-PBFで造形した48-2-2合金の低圧タービン翼

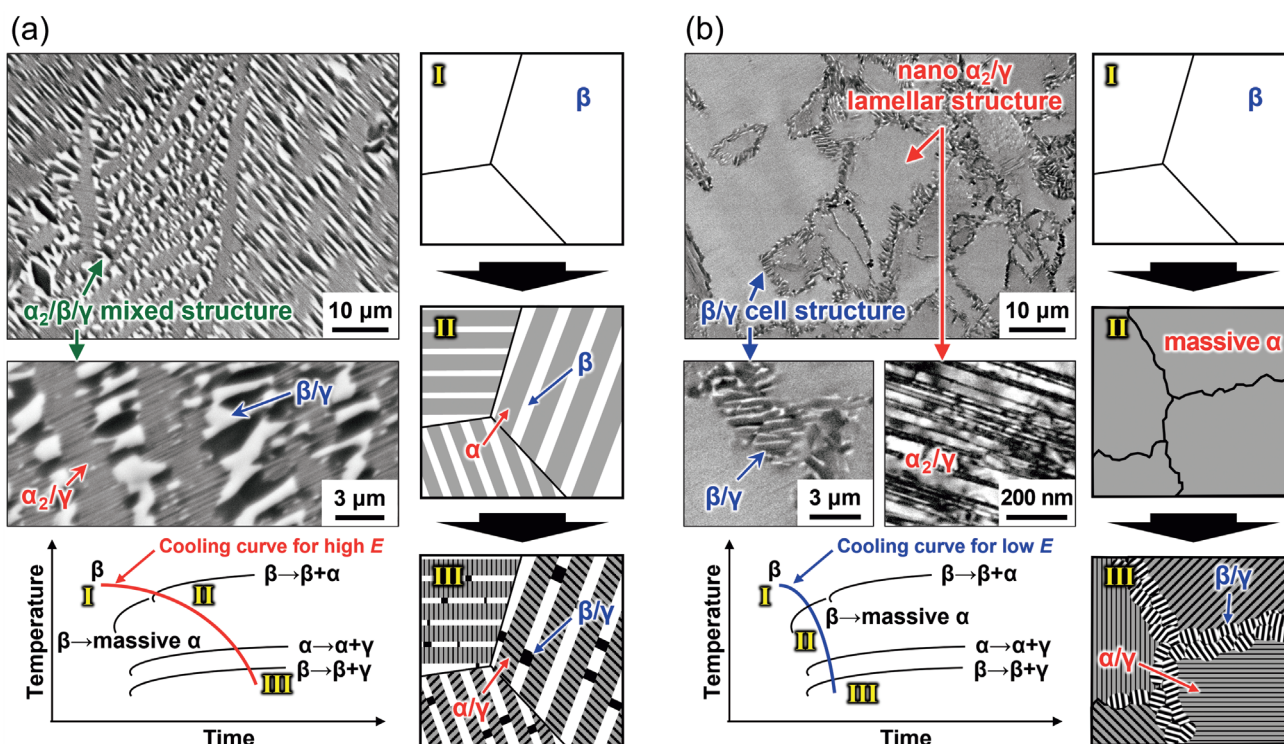


図7 EB-PBFで造形した44-4合金の微細組織とその形成機構、(a) 高エネルギー密度条件、(b) 低エネルギー密度条件 (Online version in color.)

合が低下し、層間隔が極めて細かい α_2/γ ナノラメラ組織と、そのラメラコロニーを取り囲むようにセル状析出する β/γ セルからなる組織が形成される (図7 (b))。その原因について、低エネルギー密度条件では、ビーム照射後の冷却速度が増加した結果、 β 相から α 相へのマッソ変態が生じていると考えられる。マッソ変態が生じる際の冷却速度は 10^4 K/s程度と考えられるが、EB-PBFでも実現が十分可能な冷却速度と考えている。さらに、ラメラコロニー境界では、Crの過飽和度に依存して、 β/γ セルが粒界反応析出する。セル内の β 相は強化相、 γ 相は延性相として、それぞれ44-4合金の高強度化、高延性化に寄与する。こうしたラメラコロニーと β/γ セルが共存する組織は、通常の熱処理でも制御可能であるが、EB-PBFで得られるラメラコロニー中の層間隔は30 nm程度となり、他の製造法で得られるそれと比べ、極めて細かい。こうした微細組織の違いは、当然力学特性にも反映される。例えば、44-4合金では、エネルギー密度の増加に伴う β 相の体積率の増加が、実用温度に近い750°Cでの引張強さの増加に繋がっている。しかしながら、他の β 相含有TiAl合金では、ナノラメラ粒の強化能が極めて高く、48-2-2合金ならびに44-4合金の高温強度をはるかに凌ぐTiAl合金も誕生している。

なお、積層造形法で健全なTiAl合金造形体を作製するためには、プロセス条件の最適化が不可欠である。現時点で、最適条件の探索は、大量の角柱を異なる条件で造形するスクリーニング造形を初めとして、トライアンドエラーで行われている。しかしながら、著者らのグループでは、ニューラルネットワークを活用したプロセス条件探索の効率化を行っている。具体的には、合金組成-プロセス条件-微細組織-力学特性を繋ぐデータベースを構築するとともに、得られたデータベースをニューラルネットワークにより学習させることで、所望の特性を得るためのプロセス条件を提案可能な逆問題MIシステムを構築している。今後もデータを拡充することで、同システムの精度がさらに高まることが期待される。

4 おわりに

TiAl合金において、積層造形は単に形状を制御可能だけでなく、組織制御が可能であることを示すと同時に、その組織制御により、他の製造法では得られない、力学特性の飛躍的改善が期待できることを紹介した。これはTiAl合金だけでなく、他の合金でも言えることであり、例えばNi基超合金や β チタン合金ではレーザーを熱源とした積層造形法で、単結晶化ならびにその方位制御が可能となっている²³⁻²⁵⁾。こうした点に注目し、大阪大学では2014年に異方性カスタム設計・AM研究開発センターを設立し、積層造形を利用した

材料の組織制御に取り組んできた。その成果はさまざまな解説ですでに取り上げられているので、是非一度参照されたい^{26,27)}。さらに最近では、同センター所属の小泉雄一郎教授が領域代表者を務める研究課題「超温度場材料創成学 巨大ポテンシャル勾配による原子配列制御が拓くネオ3Dプリント」が科研費・学術変革領域研究(A)に採択され、積層造形特有の局所加熱で発生する超温度場における結晶成長について、実験と計算の両面からメカニズムの解明に取り組んでいる。

さらに、本稿でもう一点強調したいのが、TiAl合金の研究開発における状態図の重要性である。TiAl合金では多様な相変態が存在し、さらに添加元素が加わると相構成は極めて複雑となる。例えば、44-4合金のEB-PBFに伴う組織形成過程の理解は、正確な状態図の存在なくしては不可能だったと考えている。現在、共著者である東京工業大学・竹山雅夫教授のグループがTiAl合金の状態図に関するデータベースを構築中であるため、今後の展開に期待したい。

最後に、本研究開発は、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)の支援により遂行された。さらに、第1期では金属技研(株)、物質・材料研究機構、第2期では、東京工業大学、三菱重工航空エンジン(株)、(株)神戸製鋼所、大阪冶金興業(株)との産官学連携でプロジェクトを推進してきた。さらに、プロジェクト推進のため、多くの大阪大学大学院生、学部生の皆様に協力を頂いた。ここに記して、関係者の皆様に感謝申し上げる。

参考文献

- 1) Y.-W.Kim : JOM, 46 (1994), 30.
- 2) H.Clemens and H.Kestler : Adv. Eng. Mater., 2 (2000), 551.
- 3) X.Wu : Intermetallics, 14 (2006), 1114.
- 4) 錦織貞郎 : ふえらむ, 11 (2006), 514.
- 5) F.Appel, J.D.H.Paul and M.Oehring : Gamma Titanium Aluminide Alloys, Wiley-VCH, Singapore, (2011).
- 6) B.P.Bewlay, S.Nag, A.Suzuki and M.J.Weimer : Mater. High Temp., 3409 (2016), 1.
- 7) I.Gibson, D.Rosen and B.Stucker : Additive Manufacturing Technologies, Springer, New York, (2014).
- 8) 中野貴由, 桐原聡秀, 近藤勝義, 西川宏, 田中学編 : デジタル化時代のAdditive Manufacturingの基礎と応用, リプロ社, (2022).
- 9) L.E.Murr, S.M.Gaytan, A.Ceylan, E.Martinez, J.L.Martinez, D.H.Hernandez, B.I.Machado,

- D.A.Ramirez, F.Medina, S.Collins and R.B.Wicker : *Acta Mater.*, 58 (2010), 1887.
- 10) S.Biamino, A.Penna, U.Ackelid, S.Sabbadini, O.Tassa, P.Fino, M.Pavese, P.Gennaro and C.Badini : *Intermetallics*, 19 (2011), 776.
- 11) J.Schwerdtfeger and C.Körner : *Intermetallics*, 49 (2014), 29.
- 12) M.Seifi, A.A.Salem, D.P.Satko, U.Ackelid, S.L.Semiatiin and J.J.Lewandowski : *J. Alloys Compd.*, 72 (2017), 1118.
- 13) M.Todai, T.Nakano, T.Liu, H.Y.Yasuda, K.Hagihara, K.Cho, M.Ueda and M.Takeyama : *Addit. Manuf.*, 13 (2017), 61.
- 14) K.Cho, R.Kobayashi, J.Y.Oh, H.Y.Yasuda, M.Todai, T.Nakano, A.Ikeda, M.Ueda and M.Takeyama : *Intermetallics*, 95 (2018), 1.
- 15) 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 : *スマートプロセス学会誌*, 8 (2019), 78.
- 16) K.Cho, H.Kawabata, T.Hayashi, H.Y.Yasuda, H.Nakashima, M.Takeyama and T.Nakano : *Addit. Manuf.*, 46 (2021), 102091-1.
- 17) K.Cho, H.Odo, K.Okamoto, H.Y.Yasuda, H.Nakashima, M.Takeyama and T.Nakano : *Crystals*, 11 (2021), 809-1.
- 18) 趙研, 安田弘行, 當代光陽, 上田実, 竹山雅夫, 中野貴由 : *スマートプロセス学会誌*, 9 (2020), 180.
- 19) H.Nakamura, M.Takeyama, L.Weil, Y.Yamabe and M.Kikuchi : *Intermetallic Compounds for High-Temperature Structural Applications*, SAMPE, (1993), 1353.
- 20) M.Takeyama and S.Kobayashi : *Intermetallics*, 13 (2005), 993.
- 21) 竹山雅夫 : *ふえらむ*, 15 (2010), 678.
- 22) H.Clemens, W.Wallgram, S.Kremmer, V.Güther, A.Otto and A.Bartels : *Adv. Eng. Mater.*, 10 (2008), 707.
- 23) T.Ishimoto, K.Hagihara, K.Hisamoto, S-H.Sun and T.Nakano : *Scr. Mater.*, 132 (2017), 34.
- 24) S-H.Sun, K.Hagihara, T.Ishimoto, R.Suganuma, Y-F.Xue and T.Nakano : *Addit. Manuf.*, 47 (2021), 102329-1.
- 25) O.Gokcekaya, T.Ishimoto, S.Hibino, J.Yasutomi, T.Narushima and T.Nakano : *Acta Mater.*, 212 (2021) 116876-1.
- 26) 中野貴由 : *溶接学会誌*, 89 (2020), 27.
- 27) 小泉雄一郎, 奥川将行, 石本卓也, 趙研, 安田弘行, 中野貴由 : *日本ガスタービン学会誌*, 50 (2022), 84.

(2022年9月2日受付)