



Title	時効Al-Mg-Li合金の照射損傷組織
Author(s)	木下, 博嗣; Kinoshita, Hiroshi; 末永, 誠一 他
Citation	北海道大學工学部研究報告, 131, 43-48
Issue Date	1986-05-30
Doc URL	<a href="https://hdl.handle.net/2115/41989">https://hdl.handle.net/2115/41989</a>
Type	departmental bulletin paper
File Information	131_43-48.pdf



## 時効 Al-Mg-Li 合金の照射損傷組織

木下 博嗣 末永 誠一 高橋平七郎

(昭和60年12月27日受理)

### Irradiation damage structures of aged Al-Mg-Li alloy

Hiroshi KINOSHITA, Seiichi SUENAGA and Heishichro TAKAHASHI

(Received December 27, 1985)

#### Abstract

Aging structures and electron irradiation behavior of Al-4.1 wt % Mg-1.7 wt % Li alloy were investigated. After the specimens were annealed at 723 K for 2 hours, they were aged at 423 K for 2-500 hours and 453 K for 2-1000 hours.

An age-hardening occurred with precipitation  $\delta'$  particles. With increasing the aging time,  $\delta'$  grew and/or T phases precipitated, and then the hardness of the specimen decreased. These precipitate structures were analyzed by using 200 KeV TEM and EDS.

Furthermore electron irradiations were performed at 373 K and 403 K up to 20 dpa. Void formation was recognized at about 5 dpa. The voids were distributed around the precipitation particles in all specimens.

When the irradiation temperature was high and the aging time was longer, the mean size of the voids became larger but the number density of the voids became lower.

During irradiation, the void number density did not vary greatly and the precipitations were stable even in higher doses

Thus it was clarified that the pre-existing precipitates acted as preferential void nucleation sites.

#### I . 緒 言

D(重水素)-T(トリチウム)反応を行わせる核融合実験装置及び核融合炉においては、4 MeV の中性子照射による装置本体及び周辺機器の放射化は避けられない問題となっている。この放射化の問題を解決する一つの方法として、装置・周辺機器等を低誘導放射化材料で構成する事が望まれている。一般にアルミニウムは、高温強度が低く、(n,  $\alpha$ ), (n, p)反応によるヘリウムや水素の生成率が大きく、また冷却材として用いる液体金属との両立性が悪いなどの欠点もあるが、核融合炉環境下で放射化しにくい材料であるという特性は、他の鉄鋼材料等に比較して有利な点である。また、磁場閉じ込め型の装置では真空容器に流れる渦電流を抑えるために、電気抵抗の高い材料が必要である。こうした特性を改良する目的から、アルミニウムに添加する合金元素として、低放射化という観点をも考慮し、Li, Be, Mg, Si, V, Bi等が有望である。このような種々期待される合金の中でも、Al-Mg-Li合金は、高比強度・高比弾性率を有し、高比低抗特性を示し、低放射化候補材の一つとして注目されている。このような合金系の一つとして、Al-4.1 wt % Mg-1.7 wt % Li合金を作成し、また、結晶粒微細化のためにジルコニウムを微量添加した。この合金

の析出過程は、過飽和固溶体→中間相  $\delta'$  ( $\text{Al}_3\text{Li}$ )→安定相 T相 ( $\text{Al}_2\text{MgLi}$ )であり、時効硬化は  $\delta'$  相の析出により生ずることが知られている<sup>2)</sup>。上記の照射環境を模擬した実験を行い、強度を得るために予め時効析出した合金の析出相と照射欠陥の相互作用を解明する事は、合金材料の照射下特性を知る上で重要である。

このような観点から、本研究では Al-Mg-Li 合金の時効に伴う機械的強度（硬度）変化と、電子線照射による照射損傷過程、および析出物と電子線照射による点欠陥集合体形成との関係を明確にすることを目的とした。

## 2. 実験方法

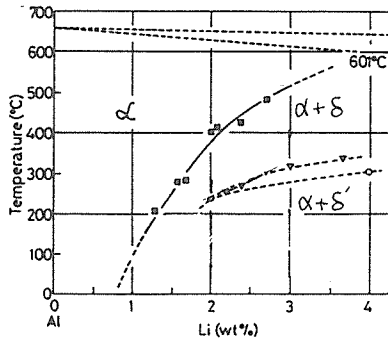


図1 Solid solubility of Li in Al

試料 Al-4.1wt%Mg-1.7wt%Li  
 1.0mm 厚 □ 4mm (硬度測定用)  
 0.2mm 厚 φ3mm (照射実験用)

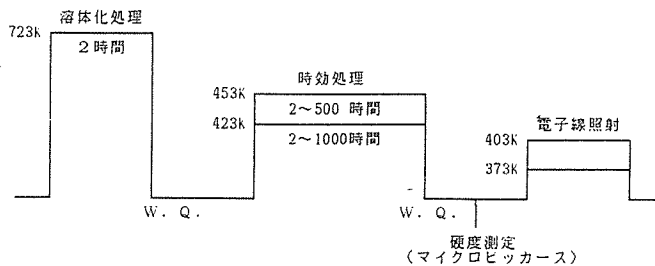


図3

図である<sup>3)</sup>。これによると、本実験試料においては、時効によって生ずる安定析出相は、 $\alpha + \text{AlLi}$  ( $\delta$ 相) +  $\text{Al}_2\text{MgLi}$  (T相)であることが予想される。以上のような相状態図を考慮し、熱処理を図3に図示した如く、723 Kで2時間溶体化処理後、水焼入れを行った。その後、温度423 Kでは、2~1000時間、453 Kでは、2~500時間までソルトバス中で時効し、直ちに水焼入れした。硬度測定は、マイクロビッカース硬度計を用いて行った。照射用試料は、時効初期の析出物の少ない物は、テヌポール研磨装置(研磨液  $\text{HClO}_4 : \text{CH}_3\text{COOH} = 1 : 19$ )を用い前研磨し、更に仕上研磨(研磨液  $\text{HClO}_4 : \text{C}_2\text{H}_5\text{OH} = 1 : 9$ )によって薄膜を作成した。時効が進み析出物の多い試料については、上記研磨液では良好な薄膜を得ることができないため、研磨液組成を  $\text{HNO}_3 : \text{H}_2\text{O} = 3 : 7$ として、研磨温度を $-15^\circ\text{C}$ まで冷却して、テヌポールのみを用いて薄膜を作成した。

試料の電子線照射は、HU-1300 超高压電子顕微鏡を用い、加速電圧 1000 KV で、時効温度以下

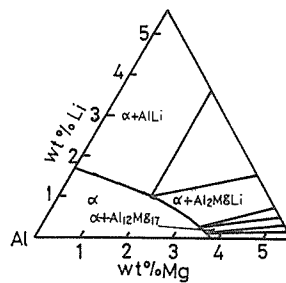


図2 Al-Li-Mg 3元合金の473 K等温断面状態図

試料として Al-4.1 wt % Mg-1.7 wt % Li に、微量の Zr を添加した合金を用いた。硬度測定用の試料は、1 mm 厚まで圧延後、約 4 mm 角の試片を切り出した。また、照射試料は、同様の試料をさらに 0.2 mm 厚まで圧延し、3 mm 径のディスク状に打ち抜いた。なお、これらの試料作成では、圧延による加工硬化が著しいため、中間焼鈍を Ar ガス雰囲気中で 623 K、24 時間行った。

図1に、Al-Li 2元系の  $\delta$  相および  $\delta'$  相の析出温度を示す<sup>3)</sup>。これによれば、1.7 wt % Li で、 $\delta$  相は約 600 K で、 $\delta'$  相は約 500 K 以下で析出すると思われる。また、図2は、473 K における Al-Mg-Li 3元系の Al 隅の等温断面状態

の 373 K と 403 K の温度で照射した。照射領域は直径約 2 ミクロンであり、中心部の約 1 ミクロン径の領域における平均照射損傷速度  $D$  は、次の関係から  $D=3.3 \times 10^{-3}$  dpa/sec であった。

$$D(\text{dpa/sec}) = \phi (\text{e/cm}^2\text{sec}) \times \sigma (\text{cm}^2)$$

$$\phi (\text{ビームフラックス}) = F \times 10^{-9} \times (1.602 \times 10^{-19} \times A)^{-1} (\text{e/cm}^2 \cdot \text{sec})$$

$$F (\text{ビーム電流}) = 90 \text{ m}\mu\text{A}$$

$$A = (\text{ビームの断面積}) = 7.9 \times 10^{-9}$$

はじき出しのしきい値を 20 eV と仮定すると

$$\sigma (\text{一次のはじき出し断面積}) = 46 \times 10^{-24} (\text{cm}^2)$$

$$\text{したがって } D = 3.3 \times 10^{-3} (\text{dpa/sec})$$

全照射量は、約 20 dpa (120 分) まで行った。照射で生じたボイドを球形と仮定し、一定体積 ( $V$ ) 内のボイド数 ( $N_v$ )、および、ボイド平均直径 ( $R_v$ ) を測定し、それらの値より、ボイド数密度 ( $N_v/V$ )、および、ボイドスエリング (%) を、下記の式により計算した。

$$\frac{\Delta V}{V} = \frac{4}{3} \pi \cdot \sum_{i=1}^{N_v} (R_{vi})^3 / V \quad (\%)$$

試料の膜厚測定は、200 KV 電顕 (TEM) を用い、試料両表面に形成させた微少のコンタミネーション (炭素系付着物) を用い、試料の傾斜による相対位置の変化から求め、その値として約 950 nm を得た。さらに、時効後の組織観察は、200 KV TEM を用いて行い、析出物の時効による変化を調べた。また、同装置に付設したエネルギー分散型 X 線アナライザー (EDS) を使って、未照射領域および照射後の照射領域における析出物の同定を試みた。

### 3. 実験結果及び考察

#### 1) 析出挙動と硬度変化について

写真 1 は、423 K で時効したときの時効時間にもなう析出組織変化を示す。焼入れ状態でも、僅かな球状析出物が存在するが、時効とともに析出物の形成、成長が認められた。70 時間までは球状を呈し、長時間では粗大化した塊状、又は棒状析出に変化していることが認められる。70 時

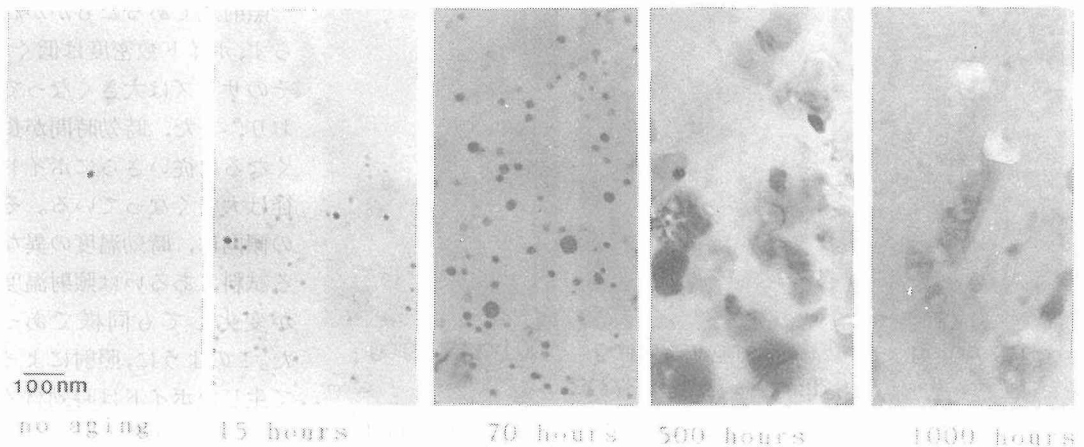


写真 1 Microstructure of Al-4.1 wt % Mg-1.7 wt % Li aged at 423 K.

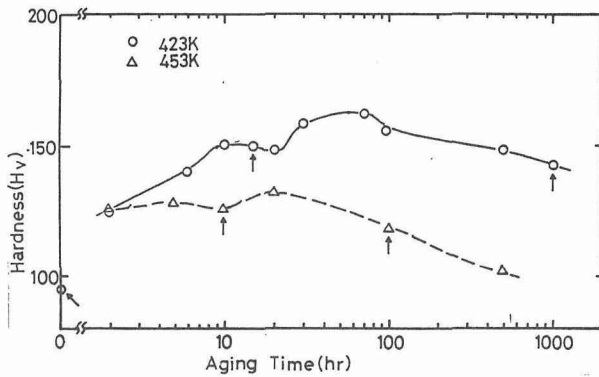


図 4

Mg が特に富化されていないことを確認している。 $\delta'$ 析出相の粒径の時効時間に対する変化は、ほぼ時効時間の $1/3$ 乗に比例して成長し、母相と粒子の界面エネルギーを駆動力としたオストワルド成長が起こることがすでに報告されている<sup>9)</sup>さらに時効時間が増えると、 $\delta'$ 相が粗大化して、球状から花弁状に変化（500 時間の試料）し、また、T 相の析出（1000 時間の試料中棒状の析出物）が認められた。以上の組織変化にともなう硬度変化を、図 4 に示す。硬化曲線と対比してみると、まず硬度の上昇（0～70 時間）がみられる時効時間帯は、組織的には  $\delta'$ 相の析出が進行している時効段階に相当していることは明瞭である。一方、さらに時効することによる軟化は、 $\delta'$ 相の粗大化と新たな T 相の析出段階に対応している。このような時間に対する硬度変化、ならびに組織変化は 453 K で時効した試料についても同様であるが、453 K 時効の硬度が 423 K の時効のときよりも低い値を示すのは、主に  $\delta'$ 相の析出密度の違いによると思われる。

## 2) 照射にともなう組織変化について

電子線照射は、図 4 中で矢印で示した時効温度と時間、すなわち、423 K では 20 時間、1000 時間、453 K では 10 時間、100 時間時効試料について行った。溶体化材および各時効試料において、照射によってポイドが形成された。写真 2 は、溶体化状態、453 K で 10 時間及び 100 時間時効した試料を 373 K で 9 dpa まで照射した時の代表的組織写真である。溶体化材では小さいポイドが

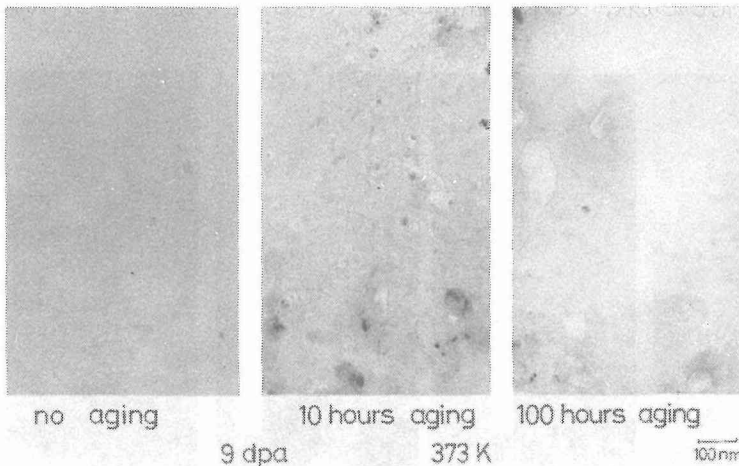


写真 2 Microstructures of Al-4.1 wt % Mg-1.7 wt % Li aged at 453 K and then electron-irradiated at 373 K.

均一に高密度で分布しているのに対し、時効材では同一照射量であるにもかかわらず、ポイド数密度は低く、そのサイズは大きくなっており、また、時効時間が長くなるに従いさらにポイド径は大きくなっている。その傾向は、時効温度の異なる試料、あるいは照射温度が変化しても同様であった。このように、照射によって生じたポイドは時効材では明瞭に析出物と関係しており、ほとんどのポイドは

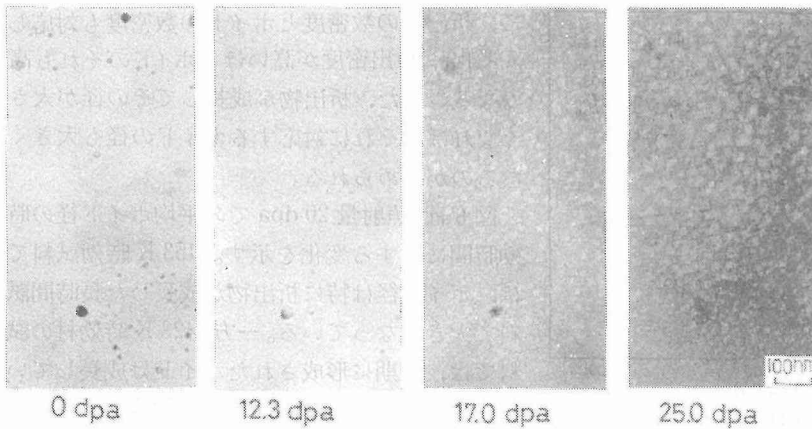


写真3 Miroucture of Al-4.1 wt % Mg-1.7 wt % Li aged at 423 k for 15 rours and then electron-Irradiated at 373 K.

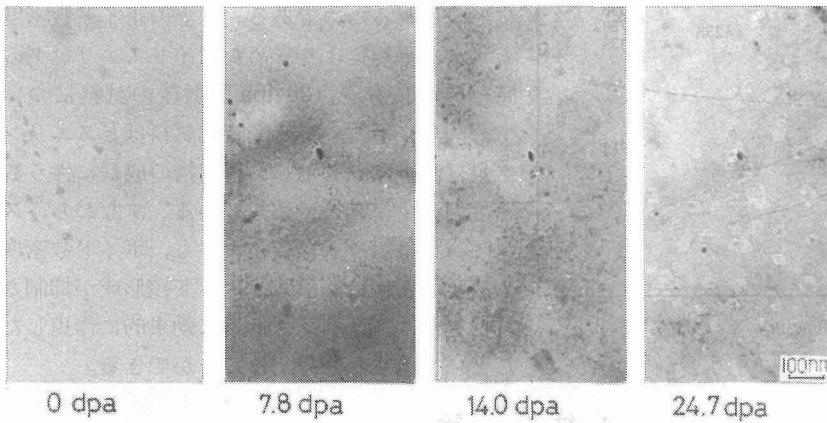


写真4 Microstructures of Al-4.1 wt % Mg-1.7 wt % Li agaed at 423 K for 15 hours and then electron-irradiated at 403 K.

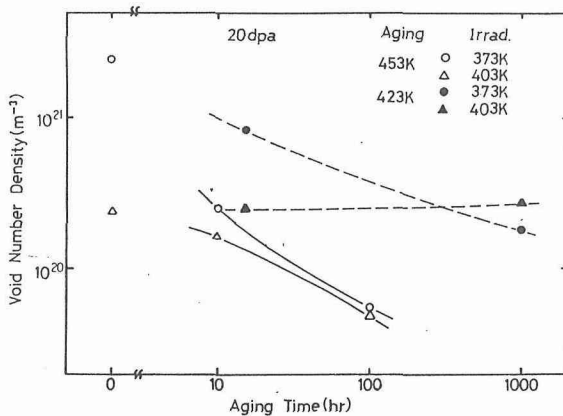


図5

しているのが分かる。図5は、20 dpa 照射したときのボイド数密度と時間との関係を示す。ボイド数密度は、時効温度の高い試料ほど低く、時効の進行につれ減少する傾向が認められる。従っ

析出物を核として形成されているのが観察された。時効材の場合、明らかに析出相とボイドが密接に形成されることが確認できるが、溶体化材の場合のボイドの核形成に関しては明らかでない。しかし、過飽和固溶体からのδ'相の析出が極めて早く、完全固溶状態を凍結することが困難な事を考慮すると、組織的に観察の困難な微細なδ'相が急冷過程で多数析出し、それを核としてボイドが形成されている可能性があるが、本研究では明らかにできなかった。析出物を核として

ボイドが形成される理由は明確ではないが、通常の析出過程でδ'相の核生成および成長の際に、その格子位置に多数の空孔を取り込むとされており、この空孔が照射で導入されたさらに過剰な空孔と作用する結果、析出物と同一位置において、空孔の再配列が生じ、それがボイド核となることが考えられる。写真3、写真4は423 Kで15時間時効した試料を373 K、403 Kで照射した時のボイド成長変化を示す。各照射条件においても、ボイドと析出物はほぼ一対一の対応をしており、析出物を核として形成

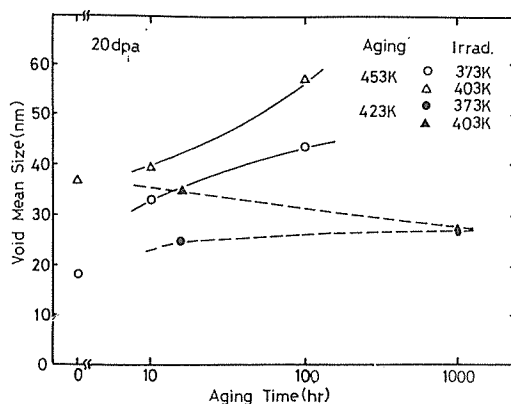


図 6

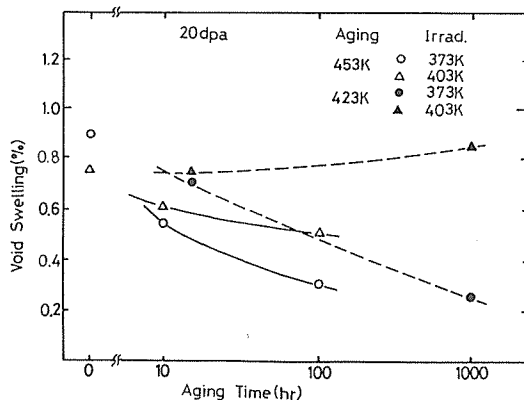


図 7

て、析出物の数密度とボイドの数密度も対応して変化し、析出密度が高いほどボイドのそれも高くなる。また、析出物が成長してその径が大きくなれば、それに対応するボイドの径も大きくなるのが認められる。

図 6 は、照射量 20 dpa での平均ボイド径の時効時間に対する変化を示す。453 K 時効試料では、ボイド径は特に析出物が成長した長時間試料で大きくなっている。一方、423 K 時効材の試料では、初期に形成されたボイドは成長していたにもかかわらず、1000 時間時効後でも平均ボイド径が大きくなっていない。これは、この試料においては、照射中に新たにボイドが素地中に形成されるためである。以上のボイド数密度とボイド平均径より求めたボイドスエリングの時効時間依存を、20 dpa 照射後の試料について、図 7 に示す。長時間時効試料ほどスエリング量は減少傾向を示し、析出物の成長に伴う数密度の減少挙動と一致している。すなわち、スエリングはボイド径変化よりも、ボイド数密度の変化と密接に関係し、ボイド核形成が抑制された方が、スエリング低下に効果的に作用したことに原因すると考えることができる。

#### 4. 結 論

溶体化処理後の時効処理による硬度の上昇は、時効温度の高い程低く、また、最高硬度は 423 K 時効で約 70 時間、453 K 時効で約 20 時間後に現われ、より短時間側に移行する。

時効による析出過程は、過飽和固溶体→微小  $\delta'$  相析出→ $\delta'$  相成長・合体→新たな T 相析出 ( $\delta'$  相と混材) の挙動に伴うこの析出分布の変化に対応して、硬度が変化した。

また、電子線照射によるボイドの形式は、析出物を核として優先的に形式され、析出物の密度に対応してボイド数密度も変化し、同時にボイドスエリング量も、ボイド数密度に依存することが判明した。

#### 参 考 文 献

- 1) 鎌田・浜田：日本原子力学会誌，24(1982)，P 506
- 2) G. E. Thompson and B. Noble：J. Inst. Metals, 101 (1973), P. 111
- 3) P. Nozato and G. Nakai：Trans JIM, 18, (1977), P. 679
- 4) 古川 稔・美浦 康宏・根本 実：日本金属学会会報，23, (1984)，P 172
- 5) T. Yoshiyama, H. Hasebe and M. Mannami：J. phys. Sco. Japan, 25, (1968), P 908
- 6) 田村 学・森 勉・中村 正久：日本金属学会誌，34, (1970)，P 919
- 7) J. M. Silcock：J. Inst. Metals, 88, (1959~60), P 357
- 8) D. B. Williams and J. W. Edington：Phil. Mag, 30, (1974), P 1147
- 9) 鈴木 寿・菅野 幹宏・林 信男：軽金属，31, (1981)，P 122