



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Ni ₃ Al-Ni ₃ Nb層状共晶合金の電子線照射
Author(s)	久, 正明; Hisa, Masaaki; 福地, 正明 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 133, 1-8
Issue Date	1986-10-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/42015
Type	departmental bulletin paper
File Information	133_1-8.pdf



Ni₃Al-Ni₃Nb 層状共晶合金の電子線照射

久 正 明 福 地 正 明 * 渡 辺 勝 也
(昭和61年 6 月30日受理)

Electron Irradiation of A Directionally Solidified Ni₃Al-Ni₃Nb Eutectic Alloy

Masaaki HISA, Masaaki FUKUCHI and Katsuya WATANABE
(Received June 30, 1986)

Abstract

A directionally solidified Ni₃Al(γ')-Ni₃Nb(δ) eutectic alloy was irradiated in a temperature range from 300 K to 773 K in a 650 kV HVEM.

For the γ' phase which has a L1₂ superlattice structure, two kinds of extrinsic loops were observed after irradiation above 573 K. One loop was a Frank type lying on {111} with Burgers vector $b=1/3 \langle 111 \rangle$, while the other was an edge type lying on {011} with Burgers vector $b=1/2 \langle 011 \rangle$.

For the δ phase, which structure is β -Cu₃Ti type, a numerous number of faulted loops was found on {010} above 673 K. The nature of the loops, however, is not fully understood yet. These loops might induce {211} twin deformation during the growth and part of the loops were altered into unfaulted ones.

In both phases, small defect clusters were produced below the temperature specified as above but at 673 K no void was formed up to $10^{27} \text{e}^-/\text{m}^2$ dosage. It was found that part of the defects in the γ' phase moved toward the γ' - δ interface.

1. 緒 言

金属材料が強い放射線照射を受ける環境下では、材料内部にボイドが形成されると共に、材料が膨張するボイドスエリングと呼ばれる現象が生じる。このボイドスエリングは原子炉材料の寿命に影響を及ぼす重要な因子の一つであるが、金属間化合物は異種原子間の結合が強く、また点欠陥の拡散が一般に合金中よりも遅いので、耐ボイドスエリング特性の優れた材料になる可能性を有している¹⁾。

金属間化合物の照射損傷については、これまでに Zr₃Al, Ni₃Al, NiAl, Cu₃Au, CuAu, FeAl などの材料を電子線、中性子あるいは重イオンにより照射、観察した例が報告されている²⁾。これらの例ではいずれも単相の試料が用いられているが、本研究では Ni₃Al-Ni₃Nb 層状共晶合金中の Ni₃Al (L1₂型規則格子；以後 γ' と呼ぶ) および Ni₃Nb (β -Cu₃Ti 型の規則化斜方晶；以後

金属工学科金属工学第四講座

* 現在北海道職業訓練短期大学校

δ と呼ぶ)の電子線照射挙動を観察すると共に、共晶界面近傍の両相の照射挙動の違いについても調べてみた。現用の金属材料には、母相の固溶体中に金属間化合物が第二相として分散しているものが多く、いわゆる超合金と呼ばれている耐熱合金では γ' 相の体積分率が50%を越えるものも珍しくないが、このような場合には母相と第二相との間に界面が存在することから、界面が照射挙動にどのような効果を与えるかということも興味のある問題の一つであろう。

2. 実験方法

2.1 試料作製

図1は γ' - δ 擬二元系平衡状態図³⁾である。 γ' - δ 共晶合金中の γ' は約8at%のNbをAlと置換して固溶している。

共晶組成(63.8 mol% δ)の合金を99.9 wt% Ni, 99.9wt%および99.99wt% Alを用いて秤量、混合した後、アルミナるつぼによりAr雰囲気下で高周波溶解、鑄造した。得られた合金を高純度アルミナ管に装入し、ブリッジマン法により一方向凝固させて直径5mmの丸棒とした。このときの炉内の温度勾配は凝固温度(1,553K³⁾)付近で7,000 Km⁻¹、試料の降下速度は2.5 μ ms⁻¹である。またラウエ法で求めた結晶の成長方向は γ' が<011>、 δ が<100>であった。こうして得た丸棒から成長方向に対する横断面薄膜(厚さ約0.2 mm)を切出し、5% HClO₄-C₂H₅OH、さらに10% H₂SO₄-CH₃OHを研磨液に用いた二段階の電解研磨によって照射および透過電子顕微鏡(以後TEMと略記する)観察用の試料とした。この試料の組織は γ'/δ 界面が試料表面に対して垂直に入った層状共晶組織になっており、照射による微細組織の変化が観察しやすくなっている。

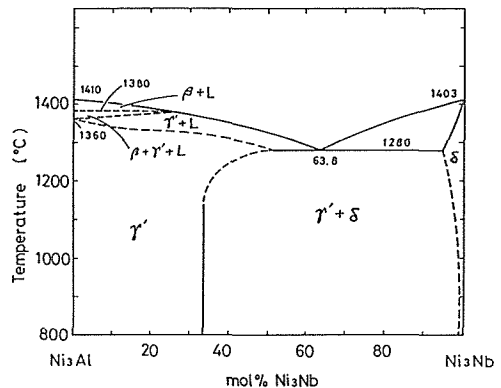


図1 Ni₃Al (γ')-Ni₃Nb (δ)
擬二元系平衡状態図³⁾

2.2 電子線照射と照射組織観察

電子線照射は日立 HU-650B 超高压電子顕微鏡により行った。加速電圧は650kV、照射温度は300, 573, 673および773K、電子線強度は 1.1×10^{23} em⁻²s⁻¹で、照射方位は試料結晶の成長方向であるから γ' が<011>、 δ が<100>である。照射による組織変化は照射時の“その場”観察に加えて、照射後に日立 H-700TEMを用いて加速電圧200kVで詳細に観察した。

3. 実験結果

3.1 温度による照射組織の変化

図2は温度を変えて照射したときに観察される組織である。照射は電子ビームの中心が共晶界面と一致するようにして行った。300K照射では γ' 、 δ 共に非常に微細な欠陥クラスターが生成した(図2 a)。 γ' では573K以上、 δ では673K以上で照射による転位ループの形成が観察された(図2 b), c), d)。本研究では673Kで 1.6×10^{27} em⁻²まで照射したが、 γ' 、 δ 共にボイドの生成は見られなかった。

3.2 γ' の照射組織

図3は673Kで照射(照射量 $2.6 \times 10^{26} \text{e/m}^2$)したときの γ' の組織である。照射によって生成した転位ループには内部に積層欠陥を持つものと積層欠陥を持たないものの二種類あることがわかった。200kV TEMを用いた解析の結果、前者は $1/3 \langle 111 \rangle \{111\}$ のフランクループ、後者は $1/2 \langle 011 \rangle \{011\}$ のエッジループであり、いずれも格子間原子型であった。また共晶界面から $0.5 \mu\text{m}$ 程度離れた部分にループの密度が周囲よりも低い領域が存在しているのが観察された。温度を573Kに変えて照射した場合に生成する転位ループは673K照射の場合に見られるループに比べてそのサイズは小さくなっていたが、分布状態には照射温度による差はなかった。

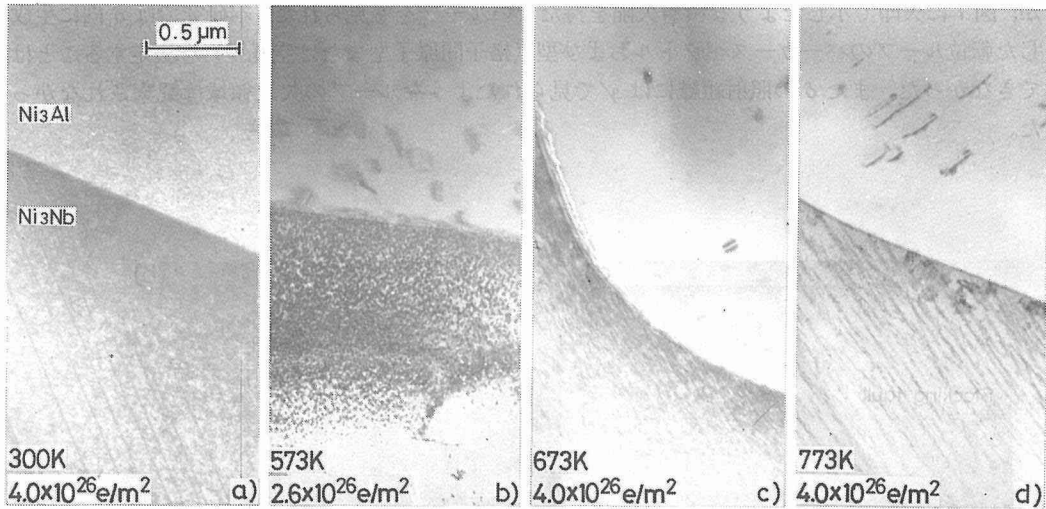


図2 温度による照射組織の変化

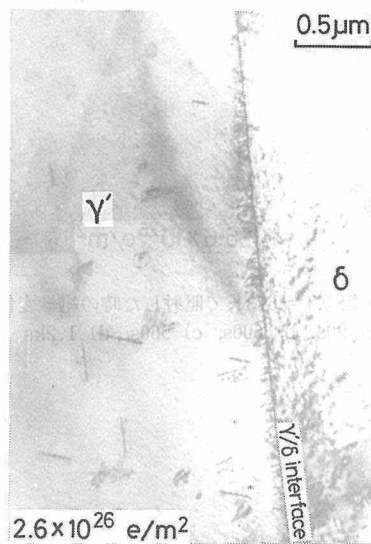


図3 γ' の照射組織 (673 K照射)

3.3 δ の照射組織

図4に673Kで δ を照射したときの組織変化を示した。照射は電子ビームの中心が δ の中央部にくるようにして行った。照射初期に生成する転位ループは結晶成長時に生じた $\{010\}$ 上の積層欠陥と平行になっているが(図4 a)中の矢印)、さらに照射を続けると $\{010\}$ 積層欠陥のトレースに対して傾いたトレースを持つ転位ループが見られるようになり(図4 b)中に矢印で示した)、その数は照射量と共に増加した(図4 c)およびd))。図5に示すようにループのトレースには複数の方向があるが、暗視野法により観察した結果、これらのループの晶癖面は $\{010\}$ であった。図6は673Kで照射量が $2.6 \times 10^{26} \text{e/m}^2$ の試料をTEM内で傾斜させて観察した組織である。この図からわかるように照射により生成した転位ループはほとんどが内部に積層欠陥を持っているが、図7に矢印で示したような積層欠陥を持たないループをも見られた。本研究では δ 内に生成した転位ループのバーガスベクトルおよび型(格子間原子型または空孔型)を決定することはできなかった。また δ の照射組織には γ' で見られたようなループの欠乏領域は観察されなかった。

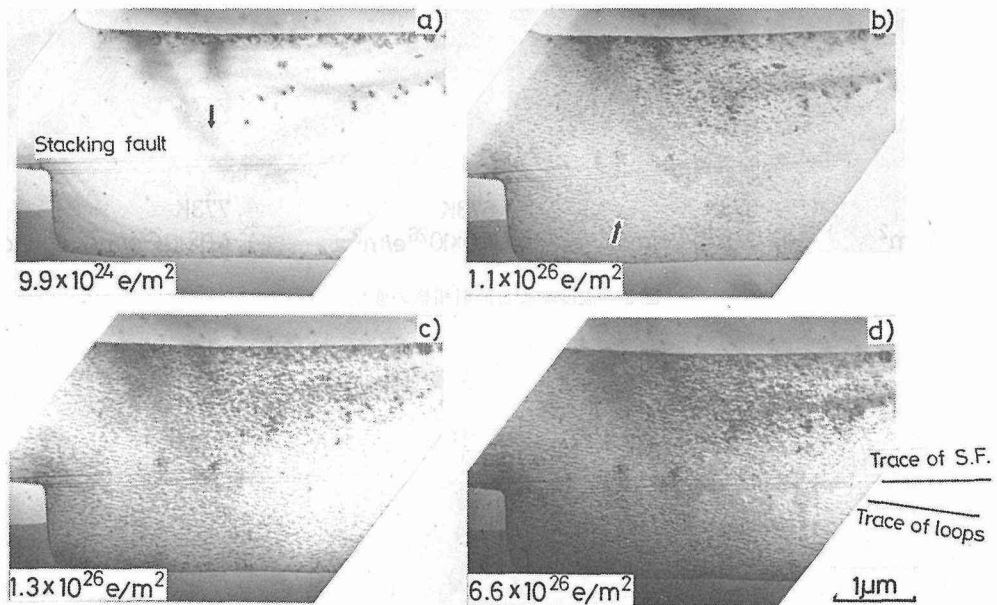


図4 δ 相を $T=673\text{K}$ で照射した時の組織変化
a) 90s, b) 600s, c) 960s, d) 1.2ks

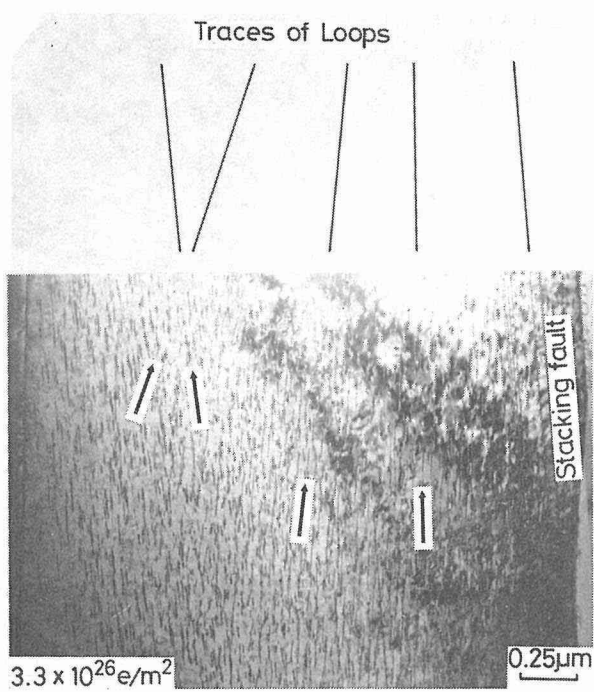


図5 673 K照射により δ 相内に生成したループ

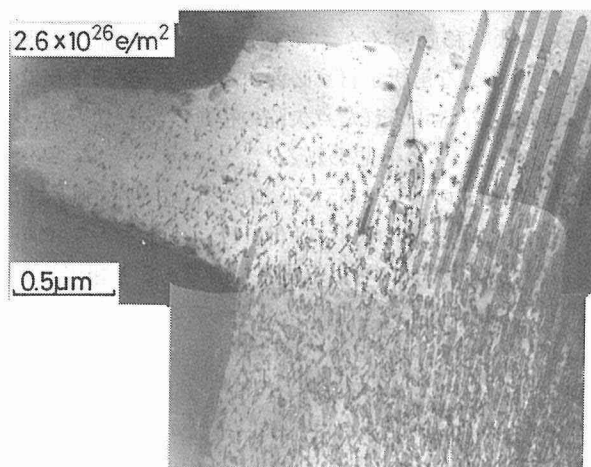


図6 照射によって生じた δ 相内の積層欠陥ループ (673 K照射)

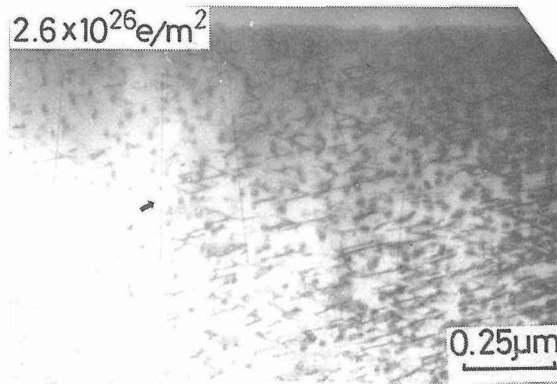


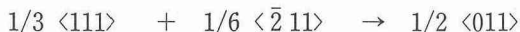
図7 積層欠陥を持たないループ

4. 考 察

電子線照射によって転位ループが生成する温度は図2に示したように γ' よりも δ の方が高いことから、照射により導入された点欠陥の移動度は γ' に比べて δ 内では低いことが推定される。Bokshteynら⁴⁾はトレーサー拡散法を用いて γ' および δ 中でのNiの自己拡散係数を測定した結果、その値は γ' よりも δ の方が小さいことを報告しており、熱力学的に δ の方が安定であると述べている。本研究に使用した γ' には図1に示したように約8at%のNbが固溶しているが、得られた結果はBokshteynらの結果と一致すると考えられる。

図3に示したように γ' の共晶界面近傍に転位ループの欠乏領域が存在する事実は、照射によって γ' 内に生成した点欠陥のうちの一部が共晶界面へ向かって移動していることを示唆する。しかし移動する点欠陥の種類および移動のメカニズムについての詳細な情報を得るには至っておらず、このことについてはより十分な解析を行う必要がある。また δ 内で転位ループの欠乏領域が観察されなかったのは、照射により導入された点欠陥の移動度が γ' よりも小さいために界面への点欠陥の移動量が少なかったことによると思われる。

Carpenterら⁵⁾、Liuら⁶⁾は単相の γ' を0.65~1 MeVの電子線で照射したときに生成する転位ループを解析しており、照射によって六角形の $1/3\langle 111 \rangle$ $\{111\}$ フランクループと $1/2\langle 011 \rangle$ $\{011\}$ エッジループが生成し、いずれのループも格子間原子型であると報告している。これらのループは照射によって最初に $\{111\}$ 上に生成したフランクループのうちの一部がショックレイ部分転位と次式



のように反応してエッジループへと変化し、さらに、弾性エネルギーが最小となるように $\langle 0\bar{1}1 \rangle$ を軸として $\{011\}$ へと回転するというメカニズムにより生成するとしている⁶⁾。共晶合金中の γ' 内に生成した転位ループにも3-2節で述べたように $1/3\langle 111 \rangle$ $\{111\}$ と $1/2\langle 011 \rangle$ $\{011\}$ の二種類があり、単相の γ' を照射した時に得られる結果と一致している。

照射によって δ 内に生成する転位ループは次のようにして成長すると考えられる。まず照射によって導入された点欠陥が δ の稠密面である $\{010\}$ 上に集合して小さな転位ループを形成する。ところが δ は $\{211\}$ を双晶面とする双晶変形(せん断方向は $\sim\langle \bar{1}0\ 713 \rangle$)を起こすことが知られており^{7,8)}、転位ループが $\{211\}$ 双晶を活動させながら成長したとすると、その形状は図8 a)の

ようになる。このとき活動した双晶が微細であったとすると実際に観察される転位ループの像は図 8 b) の実線のように $\{010\}$ から傾いたものになると推定される。

また Giessen⁹⁾らは Ni₃Ta 構造を持つ金属間化合物の変形挙動を調べた結果から、 δ の積層欠陥エネルギーが比較的高いことを予想している。このため照射によって生成した積層欠陥ループはその成長過程で積層欠陥を解消すると考えられるが、解消の機構については不明である。

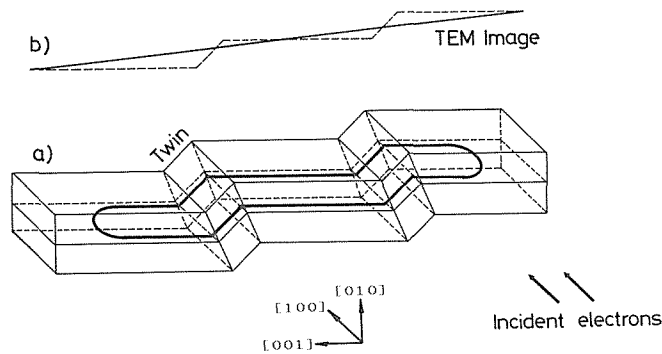


図 8 δ 相内の転位ループの模式図

5. 総 括

γ' と δ の電子線による照射挙動を研究し、合わせて共晶界面が両相の照射挙動に及ぼす影響を調べることを目的として、この二相からなる層状共晶合金を作製し、加速電圧 650kV、温度 300~773K の条件で電子線照射することによって次のような結果を得た。

- (1) γ' では 573K 以上、 δ では 673K 以上の温度での照射によって転位ループが生成し、それ以下の温度では微細な欠陥クラスターが生成する。
- (2) γ' 内に生成する転位ループは $1/3 \langle 111 \rangle \{111\}$ のフランクループと $1/2 \langle 011 \rangle \{011\}$ のエッジループで、いずれも格子間原子型である。
- (3) δ 内に生成する転位ループは内部に積層欠陥を持ち、晶癖面は $\{010\}$ である。このループは $\{211\}$ 双晶変形を誘発しながら成長すると考えられる。また一部のループは成長途中で積層欠陥を解消する。
- (4) 照射によって γ' 内に生成した点欠陥のうち一部は共晶界面へ向かって移動すると思われる。
- (5) 温度 673K で照射量が $\sim 10^{27} \text{em}^{-2}$ までの照射では、 γ' 、 δ 共にボイドの生成は見られなかった。

謝 辞

本研究の進行に際して電子顕微鏡の操作等に尽力いただいた超高压電子顕微鏡室のスタッフの方々に厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 辻本得藏：材料科学, 22 (1985), 82.
- 2) Schulson E. M.: J. Nucl. Mater., 83 (1979), 239.
- 3) Mint R. S. et al.: Russian J. Inorg. Chem., 7 (1962), 1236.
- 4) Bokshteyn S. Z. et al.: Fiz. Metal. Metalloved., 41 (1976), 1049.
- 5) Carpenter G. J. C. and Schulson E. M.: Scripta Metall., 15 (1981), 549.
- 6) Liu H. C. et al.: Phase Stability During Irradiation, Holland J. R. et al. ed., Metals Soc. A. I. M. E., (1980), 344.
- 7) Bhowal P. R. and Metzger M.: Met. Trans., 9A (1978), 1027.
- 8) Grossiord C. and Turpin M.: Met. Trans., 4 (1973), 1415.
- 9) Giessen B. G. and Grant N. J.: Acta Metall., 15 (1967), 871.