

氏名	吉田博行 よし だ ひろ ゆき
学位の種類	工学博士
学位記番号	論工博第519号
学位授与の日付	昭和47年5月23日
学位授与の要件	学位規則第5条第2項該当
学位論文題目	EFFECTS OF NEUTRON IRRADIATION ON PROPERTIES AND PHASE TRANSFORMATION OF ALLOYS (合金の性質C相変態におよぼす中性子照射の影響)
論文調査委員	(主査) 教授 村上陽太郎 教授 高村仁一 教授 足立正雄

論文内容の要旨

この論文は合金の諸性質と相変態、とくに過飽和固溶体からの析出過程におよぼす中性子照射の影響を明らかにするために行った基礎的研究の結果をまとめたもので、7章からなっている。

第1章は緒論で、金属結晶に対する中性子照射効果に関する従来の研究結果を総括するとともに、本研究に使用した京都大学原子炉の照射設備について説明している。

第2章では著者らが設計した低温照射装置を用い、約 10°K で約 $4 \times 10^{16} \text{ nvt}$ の速中性子照射量で行なった各種の合金についての照射損傷の実験結果を述べたもので、照射中の電気抵抗測定実験により直線的電気抵抗増加が観察され、その欠陥生成率は Al 合金では純 Al よりもやや大きいこと、 α 放射体である ^{10}B を含む Fe 合金では純 Fe よりも一桁以上大きいこと、また Cu_3Au 合金では規則度の高いほど増加率が高いことなどを述べ、さらに Nb および Fe 合金において内部摩擦測定による緩和ピークとその焼鈍による消失を観察している。

第3章は時効性 Al-2.8 at%Zn-1.4 at%Mg 合金を用い、その析出過程におよぼす中性子照射（照射量 $\sim 4 \times 10^{17} \text{ nvt}$ ）の効果を述べたもので、電気抵抗測定、引張試験、微小硬さ測定、X線小角散乱法による析出粒子の寸法および容積率の測定および電子顕微鏡直接観察を行っている。予め状態を異にした試料を照射すると電気抵抗増加率が異りまた強度の増加や低下がみられることを明らかにし、それらがそれぞれ照射による G. P. ゾーンの形成あるいは変位スパイクによる G. P. ゾーンの微細化の寄与として説明できること、過飽和固溶体の試料を照射すると照射中に G. P. ゾーン形成や中間相析出が促進されること、予め G. P. ゾーンや中間相を析出させた試料を照射すると照射による析出粒子の微細化が生じ、その後の時効が遅れることなどを見出している。

第4章は時効性 Cu-Be 2元合金とこれに最密六方構造の第3元素 Co, Zn, Mg および Fe をそれぞれ単独に添加した合金の時効析出過程における G. P. ゾーンおよび中間相の形成におよぼす中性子照射の影響を検討した研究結果である。全照射量は $10^{17} \sim 10^{19} \text{ nvt}$ で電気抵抗測定、引張試験、微小硬さ試験、

電子顕微鏡直接観察および電子線回折によって時効析出過程の追求をしている。照射中に G. P. ゾーンが形成されていること、また照射後試料を 250°C 付近で時効させると時効初期に照射中に形成された G. P. ゾーンの部分的復元が起り、その後中間相の析出が著しく促進されることを見出している。この復元の活性化エネルギーが空孔移動の活性化エネルギーにほぼ等しいことと中間相析出の促進効果などを考え合わせ、照射中に空孔を多く含んだ不安定な溶質原子クラスターや G. P. ゾーンと、より成長した安定な G. P. ゾーンが形成されるが、中間温度で照射後時効を行うと不安定な G. P. ゾーンは溶解復元し、安定な G. P. ゾーンは中間相の核として成長するために中間相の析出が促進されるとその機構を説明している。つぎに第3添加元素の効果として、マトリックス中に存在する Co, Fe 原子が照射により導入される空孔を捕促し Be 原子拡散のための有効空孔濃度を減少させて G. P. ゾーンの形成と成長を遅らせ、したがって中間相の核として役立つ安定な G. P. ゾーンも少なくなるので中間相析出も遅滞すること、これに対して Zn 原子は寸法効果により、Mg 原子は寸法効果と化学的親和力により Be 原子の集合に有効に寄与して G. P. ゾーンの形成と成長を促進し、また中間相析出をも加速することが考えられると述べている。

第5章は Cu-Be 合金を用い、 $1.5 \times 10^{11} \text{n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$ の速中性子束密度で、照射下時効を 100~160°C で行ない、G. P. ゾーンおよび中間相の形成過程を研究した結果を述べたものである。過飽和固溶体試料の電気抵抗変化は初期に急速な上昇がみられ極大値に達した後に緩やかに低下し、照射により G. P. ゾーンと中間相の形成が著しく促進されていること、極大に到達する時間と時効温度との関係から求めた活性化エネルギーが空孔移動の活性化エネルギーよりも小さい値(約 0.45eV)であること、またこの値は時効が進むとともに大きくなること、中間相の析出は非照射時効の場合よりも低温で起ることなどを見出し、このような G. P. ゾーン形成促進機構としては中性子照射下の動的衝突過程で形成される空孔対が Be 原子の拡散の促進に寄与することと衝突過程で Cu 原子よりも軽く原子半径の小さい Be 原子が格子間原子位置にきて Be 原子クラスター形成を助ける可能性が考えられることなどを述べている。

第6章は Zr-Nb-Mo 系合金の相変態と平衡状態熱的な研究に中性子照射効果に関連させて論じたものである。まず Nb および Mo 40 wt% までの Zr 側の3元系の組成範囲について、融点測定、各温度の恒温焼鈍試料の光学顕微鏡組織観察、X線粉末法による成分相の同定などによって平衡関係を究明し、Zr-Mo₂ 元系の $L + \text{Mo} \rightleftharpoons \text{Zr Mo}_2$ 包晶反応線が Nb 含有量増加とともに温度が低下し、 $L \rightleftharpoons (\beta \text{ 固溶体}) + \text{Zr Mo}_2$ の共晶反応と一致すると、3元共析反応 $(\beta \text{ 固溶体}) \rightleftharpoons (\alpha \text{ 固溶体}) + (\text{Nb に富む } \beta \text{ 固溶体}) + \text{Zr Mo}_2$ が約 535°C に存在し、この3元共析点は Nb 13%-Mo 8%-Zr 79% 近傍に存在することなどを明らかにし、つぎに Zr, Nb, Zr-5% Nb, Zr-15% Nb 合金の焼鈍材および冷間加工材を照射した後の回復過程を等時焼鈍による電気抵抗変化によって究明して照射した Nb では 160° と 270°C に、Zr では 160° と 410°C にそれぞれ回復ステージが見られること、また2種類の合金では同様な回復ステージの外に焼鈍後照射した Zr-5%Nb 合金で 300°C 近傍に大きな電気抵抗減少が見られ、硬さの急激な増加と対応していることから、 β 相から α 相析出に先立って生じる ω 相によると考えられ、照射による ω 相形成の促進と解釈できると説明している。

第7章は β 黄銅の強度の温度依存性と転位配列との関係を究明し、照射実験の結果と関連させて論じ

たものである。 β 黄銅単結晶試料を用いて種々の温度で引張試験と透過電子顕微鏡観察を行ない、低温で高い加工硬化性を示し、臨界剪断応力が低温で急激に上昇することを見出し、低温ほどすべり線が微細で、転位配列には転位対の交切、ループ転位、逆位相境界リボンが観察され、堆積転位やセル組織が見られないことを示し、変形が進むと転位対の間隔が拡がり遂には単一すべり運動することを明らかにしている。また臨界剪断応力が中間温度で極大になるが、この温度近傍で転位密度は小さく転位対の幅が広がっているか、または単一で存在する転位が観察され、さらに高温になると臨界剪断応力は急減し安定な配列の転位のみが観察されることを見出している。また照射実験において β 黄銅は照射中にさらに規則化が進行することから、通常の熱処理で得られる β 黄銅の規則度は不完全であることを示し、上記の諸現象を包括的に説明している。

論文審査の結果の要旨

この論文は原子炉用金属材料の開発に重要な問題となる中性子照射効果に関して基礎的知見を得るため、各種の合金の性質と相変態におよぼす中性子照射の影響を研究したものである。

時効性 Al-Zn-Mg 合金の原子炉照射実験 (温度約 80°C) においては、導入される格子欠陥によって G. P. ゾーンの形成が促進され、凍結空孔の寄与と同様な傾向があるほか、この温度では通常起こらない中間相の析出が見られ、かつその速度が著しく増大する。また予め通常の時効処理によって G. P. ゾーンあるいは中間相を形成させた試料を照射すると、変位スパイクによってそれらの粒子は破碎されて細くなり、その後的高温時効が停滞する。一方時効性 Cu-Be 合金の場合も同様な照射による G. P. ゾーン形成促進効果が見られるとともに、照射後試料を 250°C 付近の中間温度で時効すると、そのごく初期に G. P. ゾーンの部分的復元が生じてその後中間相の析出が著しく加速される。この中間相析出の促進機構として、G. P. ゾーンのこの復元の活性化エネルギーや微量に添加した Co, Fe, Zn および Mg の寄与の度合などを検討し、不安定な G. P. ゾーンの復元溶解によって放出される多量の空孔によって安定な G. P. ゾーンの間相への成長が促進されるものと考察している。さらにこの合金を照射下で 100°~160°C の温度において時効させると著しく速い G. P. ゾーンと中間相の形成が行なわれる。その G. P. ゾーン形成の活性化エネルギーは小さいが、その理由として照射下の動的衝突過程で形成される空孔は空孔対を作りやすく、この空孔対の寄与と衝突過程で Cu 原子よりも著しく軽くかつ原子半径の小さい Be 原子は格子間位置に入りやすく Be 原子クラスター形成の可能性の大きいことを述べている。つぎに規則合金として β 黄銅をえらび、その強度は著しい加工硬化性を示し、臨界剪断応力が低温ほど高く、また中間温度で極大を生じることを確かめ、これらと関連させて行なった転位構造の透過電子顕微鏡観察により、規則度の低下とともに逆位相境界面積を増大する結果が得られることを明らかにし、一方照射実験を行なって通常の熱処理で得られる β 黄銅の規則度が不完全であることを示し、上記の諸現象を包括的に説明することに成功している。さらに原子炉用 Zr 基合金の基礎となる Zr-Nb-Mo 系の Zr 側の平衡状態図を確定するとともに、Zr-Nb 合金の $\beta \rightarrow \alpha$ 変態の中間状態として生じる ω 相の形成が中性子照射によって起こることを示し、原子炉材料としては安定な熱処理状態で使用すべきことを強調している。

これを要するにこの論文は合金の諸性質と相変態とくに時効性合金の析出過程におよぼす中性子照射の影響に関して種々重要な問題点を解明し、多数の新しい知見を加えたもので、学術上にも工業上にも寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。