

鉄ウイスキーの照射効果

Irradiation Effects in Iron Whisker

稲垣 淳一**・寺沢 優一**・中田 栄一**・大蔵 明光*

Jyunichi INAGAKI, Yuichi TERASAWA, Eiichi NAKATA and Akimitsu OKURA

1. はじめに

ウイスキーの降伏強度は同じ物質のバルク結晶のそれと比較して非常に高いことで知られており、鉄ウイスキーについても理論強度にほぼ匹敵する値が報告されている¹⁾。このような性質は細いウイスキーに見うけられ、構造的・化学的な結晶完全性から説明されている。

一方、純金属の照射損傷に関する研究は BCC 金属中の格子間不純物原子の制御が困難なことからこれまで主に FCC 金属に対して行なわれており、特に純鉄に関するものは少ない。

そこで本研究では極低温で鉄ウイスキーに中性子を照射し、電気抵抗測定により照射中の格子欠陥生成について、また照射後試料を焼なましし、引張試験を行なうことにより格子欠陥の回復について検討を行なった。

2. 実験方法

2.1 試料の作製および中性子照射

鉄ウイスキーは市販特級塩化第一鉄試薬を約 700℃で水素還元することにより作製した。鉄ウイスキーの成長方位は多くの場合 $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, あるいは $\langle 111 \rangle$ のいずれかである。本実験では電気抵抗測定用試料として $\langle 100 \rangle$ および $\langle 110 \rangle$ のもの、引張試験用試料として $\langle 100 \rangle$ のものを使用した。前者は取扱い中の変形を防ぐために樹脂で固定し、後者は石英管中に真空封入後、表 1 に示す条件で低温中性子照射を行なった。

表 1 低温中性子照射条件

照射条件※	I	II	III
原子炉出力	5	M	W
中性子エネルギー	$E_n >$	1.28	MeV
照射温度	$19 \pm 1^\circ\text{K}$	$30 \pm 1^\circ\text{K}$	$19 \pm 1^\circ\text{K}$
照射時間	77 hr	72 hr	49 hr
線束	$1.2 \times 10^{14} \text{ nvt}$	$2.1 \times 10^{14} \text{ nvt}$	$1.1 \times 10^{14} \text{ nvt}$
総照射量	$3.3 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$	$5.4 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$	$1.8 \times 10^{16} \text{ n/cm}^2$

※ 条件 I 及び II は電気抵抗測定用試料、条件 III は引張試験用試料である

* 東京大学生産技術研究所 第 4 部
** 早稲田大学理工学部

照射実験は京都大学原子炉実験所(KUR)低温照射装置を使用した。照射の際ウイスキーの成長軸を炉心、すなわち中性子源へ向けることにより、照射方向を成長方向と一致させた。

2.2 電気抵抗測定および引張試験

照射条件 I と II の試料について、照射中および照射前後に電気抵抗の測定を行なった。測定は標準四端子ポテンショメーター法により、また測定電流は 10 mA とした。

照射条件 III の試料は照射後表 2 に示す条件で焼なまし、引張試験を行なった。試験はインストロン型引張試験機を使用し、歪速度： $3 \times 10^{-3} \text{ sec}^{-1}$ 、試験温度： 77°K とした。

表 2 焼なまし条件

条件	焼なまし温度	焼なまし時間
A	室温	1 hr
B	200 °C	2 hr
C	330 °C	2 hr
D	400 °C	2 hr
E	500 °C	2 hr

3. 実験結果と考察

3.1 照射による電気抵抗の変化

図 1 に本実験で得られた照射量 ϕ_t と電気抵抗の増加 $\Delta\rho$ との関係を示す。この図で条件 II により照射した試料のプロットは条件 I のそれと比較してバラツキが大きいが、これは照射中の温度変化によるものと推定される。照射以前に測定した抵抗の温度依存性を図 2 に示すが、この図から 30°K 付近の曲線の勾配、すなわち $(\Delta R/\Delta T)_{30^\circ\text{K}}$ の方が $(\Delta R/\Delta T)_{19^\circ\text{K}}$ よりも大きく、温度変化の影響を受けやすいことが認められる。図 2 に試料 $\langle 110 \rangle_2$ に関するものであるが他の試料も同様な傾向がみられた。したがってこのような照射中の温度変化の影響を除くために温度-抵抗曲線からバラツキの大きい試料 $\langle 100 \rangle_3$ および $\langle 110 \rangle_2$ の各プロットを補正したものが図 3 である。

この図から次のことがわかる。

1) 照射中の温度変化を補正すると ϕ_t と $\Delta\rho$ との間に

研究速報

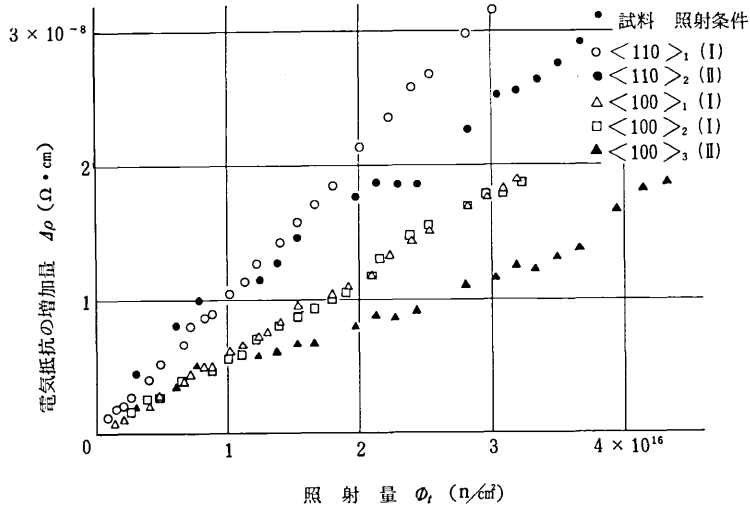


図1 照射中の電気抵抗変化

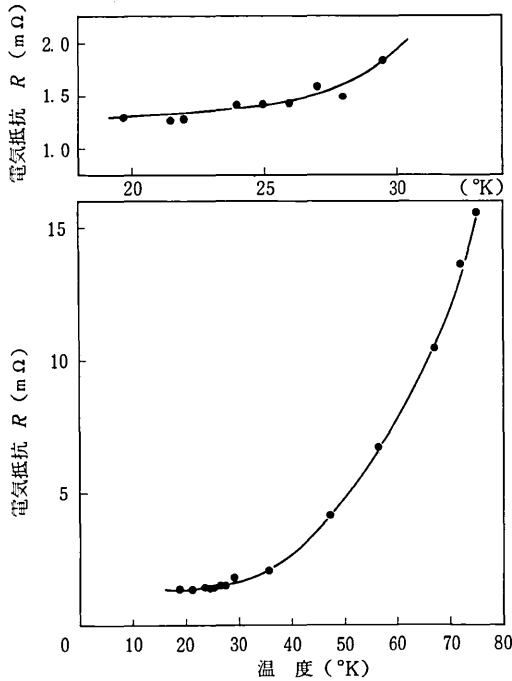


図2 電気抵抗の温度依存性
(照射以前に<110>₂の試料について測定したもの)

はほぼ直線関係がある。

照射により生成されるフレンケル欠陥 1at %あたりの抵抗増加量を ρ_F とすると、欠陥濃度 C_F と抵抗の増加 $\Delta\rho$ との間には次の関係がある。

$$\Delta\rho = \rho_F \cdot C_F \quad (1)$$

一般に金属の ρ_F は欠陥濃度や結晶方位に依存しないこと^{2),3)}から、図3の直線の勾配すなわち $d\Delta\rho/d\Phi_t$ は欠陥の生成速度を表すことになる。したがって本実験の照

射量範囲では、欠陥の生成速度が各試料についてほぼ一定であり、照射による焼なまし効果が起こっていないことがわかる。純鉄における $d\Delta\rho/d\Phi_t$ の直線からのずれは、 $\Phi_t \approx 10^{17}$ のオーダーで現われはじめることが中川等により報告されている。⁴⁾

2) $d\Delta\rho/d\Phi_t$ が照射温度により異なる。すなわち 30°K で照射した試料の勾配は 19°K で照射した試料の勾配より小さい。

純鉄における照射欠陥の回復に関する研究はいくつか報告されているが、それによると 25°K 付近に近接フレンケル対の消滅に起因する最初の回復ステージ (I_{A0}) が存在する⁵⁾。したがって 30°K で照射を行なった<110>₂ および<100>₃の試料は照射中に回復を起こしており、それ故に直線の勾配すなわち欠陥生成速度が小さくなったものと推定される。また照射温度による勾配の変化が<110>・<100>方位の試料についてはほぼ等しいことから、このステージで回復する欠陥の量が照射方位に依存しないことがわかる。

3) $d\Delta\rho/d\Phi_t$ が照射方位により異なり、<110>方位のものが<100>方位に比較して大きい。

E_p なるエネルギーを持つ1個の一次ノックオン原子が作るフレンケル欠陥の総数 $\nu(E_p)$ は E_p が十分大きい時、 $\nu(E_p) = k(E_p - E_{in})/2E_d$ ($E_p \gg E_d$) (2) と表される⁶⁾。ここで k ははじき出しの確率、 E_{in} は非弾性散乱によるエネルギー損失であり、 E_d ははじき出しのしきいエネルギーである。 k および E_{in} はほとんど結晶方位に依存しないことから、 $\nu(E_p)$ の方向依存性は E_d によるものと考えることができる。

BCC金属における E_d の結晶方位依存性の研究は Jung³⁾等が T_d に関して行っており、次のような値を得てい

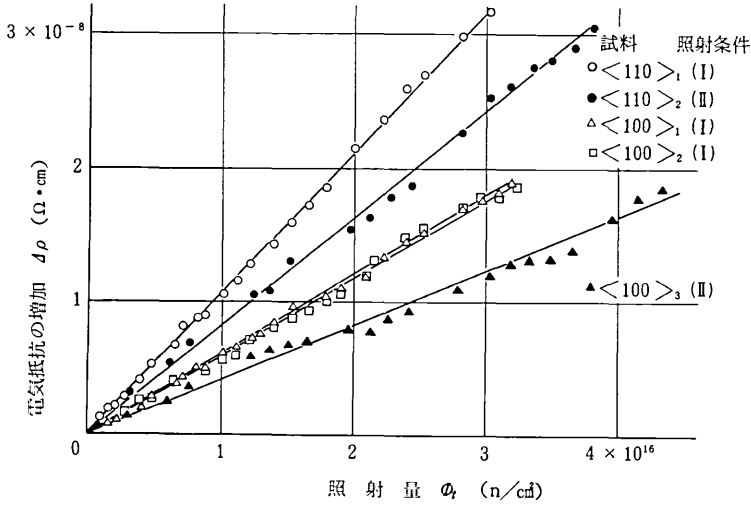


図3 照射中の電気抵抗変化
(図1の<110>₂, <100>₃に対して補正を行なった)

る。

$$\begin{aligned} E_d <100> &\approx 56 \text{ (eV)} \\ E_d <110> &\approx 34 \text{ (eV)} \\ E_d <110> &\approx 35 \text{ (eV)} \end{aligned} \quad (3)$$

このような E_d の方位依存性はBCC金属の結晶構造特有なものとして説明されている。したがって彼等の結果を受け入れるならば F_e についても $E_d <110> < E_d <100>$ すなわち $\nu(E_p)_{<110>} > \nu(E_p)_{<100>}$ が成立するはずであり、本実験における欠陥生成速度の方位依存性を説明することができる。

表3 照射による抵抗の増加とその変化率

試料	<110>₁	<100>₁	<100>₂
$\Delta\rho (\times 10^{-8} \Omega \cdot \text{cm})$	3.28	1.88	1.87
$\frac{d\Delta\rho}{d\Phi} (\times 10^{-24} \Omega \cdot \text{cm})$	1.04	0.60	0.59

本実験で得られた $(d\Delta\rho/d\Phi)_{19^\circ\text{K}}$ の値を表3に示す。この表から

$$(d\Delta\rho/d\Phi)_{<110>} / (d\Delta\rho/d\Phi)_{<100>} \approx 1.75 \quad (4)$$

となり、この値はJung等の結果から得られた

$$\nu(E_p)_{<110>} / \nu(E_p)_{<100>} = E_d <100> / E_d <110> \approx 1.65 \quad (5)$$

とよい一致を示すことがわかる。

3.2 降伏応力の回復

引張試験により得られた上部降伏応力 σ_{uy} とウイスキー断面積の逆数 S^{-1} との関係を図4および図5に示す。

なお、図5の斜線部分が図4に相当している。

ウイスキーの降伏応力とその直径あるいは断面積の逆数との間に直線関係があることはこれまで多く報告され

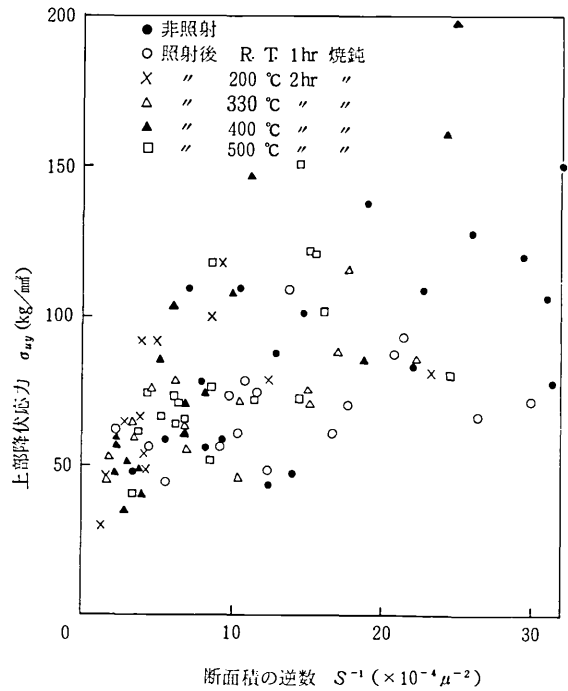


図4 上部降伏応力の寸法効果 (1)

ている。¹⁾ 本実験においても多少のバラツキはあるが各焼なまし条件に対して直線関係が認められた。そこで $\bar{\sigma}_{uy} = aS^{-1} + b$ とおき、定数 a と b の値を定めると下記のようなになる。

$$\begin{aligned} \text{非照射 } \bar{\sigma}_{uy} &= 2.46 \times 10^{-2} S^{-1} + 51.7 \\ A \quad \bar{\sigma}_{uy} &= 1.20 \times 10^{-2} S^{-1} + 54.0 \\ B \quad \bar{\sigma}_{uy} &= 1.20 \times 10^{-2} S^{-1} + 61.9 \\ C \quad \bar{\sigma}_{uy} &= 1.44 \times 10^{-2} S^{-1} + 51.0 \end{aligned} \quad (6)$$

研究速報

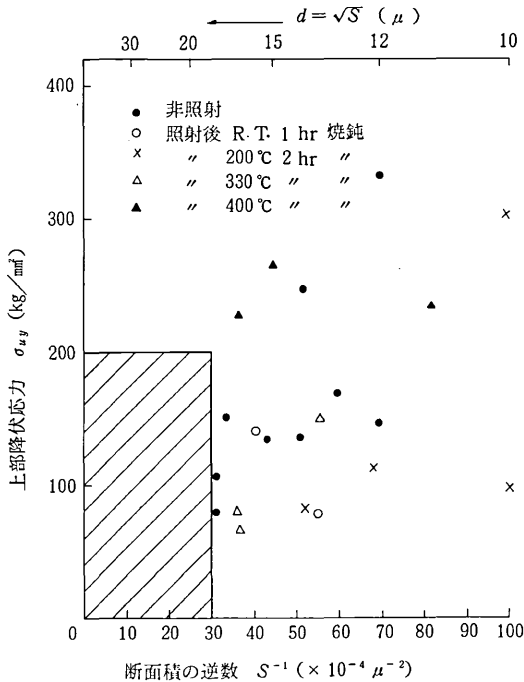


図5 上部降伏応力の寸法効果 (2) (斜線部分は図4の領域に相当する)

$$D \quad \bar{\sigma}_{uy} = 2.47 \times 10^{-2} S^{-1} + 56.4$$

$$E \quad \bar{\sigma}_{uy} = 2.12 \times 10^{-2} S^{-1} + 56.0$$

なお A ~ E は焼なまし条件、 $\bar{\sigma}_{uy}$, S の単位はそれぞれ (kg/cm²) および (cm²) である。(6)式からウイスキアの太さをパラメータにとり、焼なまし温度 T_a と $\bar{\sigma}_{uy}$ との関係を示したものが図6である。图中、非照射試料は照射欠陥が100%回復したものと考えると次のことがわかる。

- 1) ウイスキアの降伏応力は中性子照射後330°C以下の焼なましでは低下し、いわゆる照射軟化がみられる。
- 2) 照射により低下した降伏応力は400°C以上の焼なましによりほぼ100%回復する。

純鉄における回復の第Vステージは約 $0.35 T_m$ ($T_m = 1807^\circ K$) すなわち360°C付近にあり^{7), 8)} 本実験の結果はこれとよく一致している。したがってウイスキアにみられる照射軟化現象は第Vステージで回復を起こす希薄帯または点欠陥集合体(転位ループ)などがウイスキア内部に形成され、それらが転位源として働くために起こるものと推定される。

4. ま と め

以上の研究結果を要約すると次のようになる。

- 1) 本実験の照射量範囲 ($\Phi_t < 10^{17} \text{ n/cm}^2$) では Φ_t

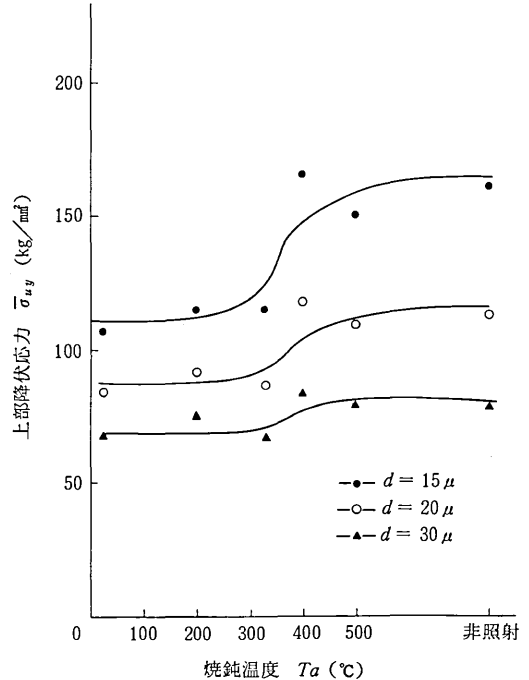


図6 上部降伏応力の回復

と $d\rho$ との間に直線関係が認められる。2) 欠陥生成速度が照射温度により異なり、 $(d\Delta\rho/d\Phi_t)_{19^\circ K} > (d\Delta\rho/d\Phi_t)_{30^\circ K}$ となるから、これは回復ステージ I_{A0} によるものと考えられる。3) 欠陥生成速度が照射方位により異なり、 $(d\Delta\rho/d\Phi_t)_{<110>} > (d\Delta\rho/d\Phi_t)_{<100>}$ となる。この方位依存性ははじき出しのしきいエネルギー E_d の方位依存性に起因するものと推定される。4) ウイスキアに照射軟化現象が認められた。5) 低下した降伏応力は400°C以上の焼鈍により照射前の値に回復することから、ウイスキアの照射軟化現象は、回復過程で生成された二次欠陥によるものと推定した。(1977年12月8日受理)

参 考 文 献

- 1) S. S. Brenner: J. Appl. Phys., 27 (1956), 1484
- 2) L. C. Alfred: Phys. Rev., 152 (1966), 693
- 3) P. Jung, W. Shilling: Phys. Rev., B 5 (1972), 2046
- 4) M. Nakagawa, K. Boning, P. Rosner, G. Vogl: Phys. Letters, 56 A (1976), 481
- 5) A. Sato, M. Meshii: Phys. stat. sol. (a) 22 (1974), 253
- 6) 石野榮: 日本金属学会会報, 12 (1973), 437
- 7) 奥田重雄: 金属便覧 (1972), 1083
- 8) B. L. Eyre: Phil. Mag. 12 (1965), 261