研究論文

289. U-Fe 系合金の相変態と熱処理, (II)

添 野 浩*

Phase Change and Heat Treatment of U-Fe Alloys, (II)

By Kō SOENO

The kinetics of isothermal transformation were studied with uranium alloys varying in iron content 0.5~1.0 %. Two modes of β -to- α transformation, nucleation-and-growth and martensitic transformations, are observed and M_s temperature is determined as a function of iron content. The M_s temperature increases with decreasing iron content, so the martensitic transformation, which produces coarse α -uranium grains, prevails in such alloys of lower content of iron. Nucleation and growth mode is found to be applicable to grain-refinement. And suitable grain-refinement is generally attained by isothermal transformation in the temperature region from 450°C to M_s temperature.

緒 言

前報⁽¹⁾では β 相および γ 相内の各種温度から水冷された U-0.5, 0.75, 1.0 % Fe 合金について研究し, これらの合金では $\beta \rightarrow \alpha$ 変態は急冷によって比較的容易に阻止されるが, $\gamma \rightarrow \beta$ は阻止できず, γ 相から急冷しても室温に過冷されるのは β 相であることを明らかにした。また, $\beta \rightarrow \alpha$ 変態の阻止される傾向は β -U に対する Fe の固溶量の増加にともなう増加するが, Fe の固溶量は試料の加熱温度にいちじるしく影響される。すなわち, 加熱温度が β 相領域にとどまる場合 Fe は高々 0.5 % 程度しか固溶されないが, γ 相領域にまで加熱後水冷すると, 冷却中に進行する $\gamma \rightarrow \beta$ の際に合金元素の拡散が行なわれないため, 室温に過冷された β 相中には添加量に等しい Fe が固溶されていると推定されることなども明らかにされた。本報では, 前報⁽¹⁾で得られた結果をもとにして, Fe の固溶量を異にする過冷 β 相が Nucleation and growth型(以下 N. G. 型と略記)の機構で α 相に変態する場合の恒温変態曲線(以下 TTT 曲線と略記)および組織と恒温変態温度との関係などを明らかにするとともにマルテンサイト型(以下 M 型と略記) $\beta \rightarrow \alpha$ 変態を開始する最高温度, すなわち M_s 点なども明らかにして, U-Fe 系合金の相変態および組織の微細化法について全般的検討を試みた。

I. 実験方法

主として Fe の添加量 0.25, 0.5, 0.65, 0.75 および 1.0 % の 4 種の U-Fe 系合金について研究したが, これらは不純物の混入をできるだけ少なくするため, 非消耗電極型アーク溶解炉を用い, Ar 雰囲気中で溶製された。溶製方法の詳細あるいは合金の溶製に用いた U および電解鉄の純度などについては, 前報⁽¹⁾に述べられたとおりであるから省略する。

TTT 曲線の測定方法についてもすでに報告済みであるから⁽²⁾, ここでは簡単に要点だけを述べておく。まず, 用いた装置の 1 つは Fig. 1 に示したように, $\beta \rightarrow \alpha$ 変態の進行にともなう試料の寸法変化を差動トランスに伝え, これを連続的に記録する方式である。試料がセットされている石英管の部分を外側から局部的に加熱し, β 相あるいは γ 相内の加熱温度に所定時間保持した後あらかじめ恒温変態温度に保たれた metal bath 中に石英管を dip する。しかし, この方法では冷却速度を充分大きくできないため⁽³⁾, U-Fe 系の場合この方法だけでは不充分である。このためつぎのような方法も用いた。すなわち, 1.5 D. $\times$ 17~18 mmL くらいの小試片を用い, 所定温度に加熱した後

* (株)日立製作所 日立研究所 (Hitachi Res. Lab., Hitachi Ltd.)

恒温変態温度に保持された metal bath 中に急冷して、ある時間保持後水冷する。もし、恒温変態において $\beta \rightarrow \alpha$ が完了していないなら、恒温変態後の水冷によって未変態の β 相が室温に過冷されるから、その有無を調べることによって変態が完了しているかどうかを知ることができる。過冷 β 相の有無は水冷試料をただちに熱膨脹計(倍率 1,600)にとりつけて

Apparatus for the determination of TTT diagram
Fig. 1

適当な速度で加熱し、熱膨脹-温度の関係曲線(以下 Dilatation curve とよぶ)を測定すればわかる*。すなわち、もし過冷 β 相があれば、これが temper されて α 相に変態するときに収縮がおこること、また約 8°C/min の加熱速度で Dilatation curve を測定するとすれば、Fe の添加量 1% 以下の合金に関する限り室温~約 400°C までの測定によって充分過冷 β 相の有無を検知し得ることなどは、水冷試料の Dilatation curve から容易に推定し得る。

以下 Fig. 1 に示した方法を A とよび、後に述べた方法を B とよぶことにすると、A の方法は変態の進行を連続的に知り得るが、この点 B の方法は無理でもっぱら変態の完了線を決定するのに用いた。

II. 実験結果および検討

1. TTT 曲線および M_s 点 ($\beta \rightarrow \alpha$) の測定

前報⁽¹⁾で指摘したように、試料の加熱温度を β 相の範囲にとるなら Fe は高々 0.5% しか固溶されない。したがって、この場合 U-0.25% Fe および U-0.5% Fe 合金の TTT 曲線を明らかにすれば他の成分の場合も推定される。このためまず、以上の 2 合金を 755° ± 5°C-30min** 加熱した場合の TTT 曲線を求めた。A の方法で比較的高温領域の TTT 曲線を測定した結果を Fig. 2 (a) に示す。純 U に比較して $\beta \rightarrow \alpha$ 変態温度が低くなり、またその進行速度も若干減少するが、nose 付近の変態速度が大きくてさらに低温領域での測定が困難である。このため加熱温度から恒温変

In figure(a), beginning and end curves of transformation are indicated, while in figure(b), solid circles or crosses represent respectively the end or no end of transformation and only the end curve is indicated.

Fig. 2 TTT diagrams of U-0.25% Fe and U-0.5% Fe alloys

態温度までの冷却速度をさらに大きくし得る B の方法を用い、U-0.5% Fe 合金の変態完了線を測定してみると Fig. 2 (b) のようになる。U-0.25% Fe 合金は変態速度が大きいため、TTT 曲線が明確に測定されない。U-0.5% Fe 合金を 350°~175°C 間で 30 sec 恒温変態後水冷した試料の Dilatation curve を Fig. 3 に示した。未変態 β 相は 300°C-30 sec(恒温変態)→水冷試料で最も多いが、Fig. 2 (b) の変態完了線はこの点を考慮して定められたものである。一たん減少した変態速度は 300°C 付近から再び増加するが、これは変態機構が N.G. 型から M 型に変化するためである。

Fe の添加量をさらに多くしても、加熱温度が β 相領域内にとどまる場合 Fe は高々 0.5% しか固溶されないから、U-0.65~1.0% Fe 合金の場合にはこれらを γ 相内に加熱し、 α 相内の恒温変態温度まで急冷して TTT 曲線を測定する方法をとった。この場合、変

* 組織的に β 相の有無を調べる方法も考えられるが、 β 相の量を精度よく測定するのが困難であり、またとくに変態完了に近い試料ではわずかな β 相の有無を調べにくい欠点がある。

** Fe の固溶量をできるだけ多くするためこのような加熱温度をとった。

態は $\gamma \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ の順序で進行すると推定されるが、これは $\gamma \rightarrow \beta$ 変態に対する前報⁽¹⁾の結果から妥当なものと考えられる。得られた結果を Figs. 4, 5 にまとめたが、U-0.5% Fe 合金に比較して変態完了線がかなり長時間側にずれている。

前報⁽¹⁾に U-1.0% Fe 合金を 900°C から水冷し($\gamma \rightarrow \beta$ は冷却中に進行してしまうので、室温には 1% の Fe を固溶していると推定される β 相が過冷される)、これを急熱して 280° ~ 320°C 間の各種温度で保持し、過冷 β 相が N.G. 型の機構で α 相に変態する場合の結果を明らかにしたが、この際得られた変態完了線は

Fig. 5 に示された U-1.0% Fe 合金の変態完了線に完全に一致する。これは前報⁽¹⁾で明らかにした $\gamma \rightarrow \beta$ 変

Max. heating temp.: 755°C-30 min
Size of a specimens: 1.5(D) × 17.5 mm (L)
Magnification of a dilatometer: 1,600
Heating rate of a water-quenched specimen: 8°C/min

Dilatation Curves of water-quenched U-0.5% alloys after isothermal transformation at various temperatures for 30 sec

Fig. 3

Solid circles or crosses represent respectively the end or no end of transformation and the end curve is indicated.

Fig. 4 TTT diagram of U-0.65% Fe alloy

The end curves of two alloys are indicated. Solid circles or crosses represent respectively the end or no end of transformation in only U-0.75 a/o Fe alloy

Fig. 5 TTT diagrams of U-0.75% and U-1.0% alloys

態の性質からみて、 $\gamma \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ の順序で進行する変態において、おそらく $\gamma \rightarrow \beta$ に要する時間は $\beta \rightarrow \alpha$ に比較して無視し得る程度であること、また、本実験のような試料の冷却方法においても β -U中には1%のFeを固溶させ得ることなどを示すとみられる。同様なことはU-0.65~0.75% Fe 合金においても成り立つと考えられるから、Figs. 4, 5 の結果は、添加した Fe を全部固溶した β -Uが α -Uに変態する場合の Kinetics に相当すると考えられる。

Fig. 6 は U-0.65% Fe 合金を 300° ~ 150°C 間の各温度で 20 min 恒温変態後水冷した試料を熱膨脹計にとりつけて加熱した場合の Dilatation curve である。U-0.75% Fe 合金に対する同様な結果を Fig. 7 に示したが、いずれも 100° ~ 200° および 300°C 付近に認められる収縮は室温に過冷された β 相がそれぞれ M 型および N.G. 型の機構で α 相に変態するためのものである⁽¹⁾⁽⁴⁾。Figs. 4, 5 に示された変態完了線は、N.G. 型の機構で、 β -U が α -U に変態する場合に相当することは以上の Dilatation curve によっても容易に理解される。また、室温に過冷された β 相の量は恒温変態温度の低下にともなって減少することも知られるが、これは恒温変態温度に保持している間に過冷 β 相の一部が M 型の機構で α 相に変態したことによると考えないと理解しにくい。各恒温変態温度に保持している時間を一定とした場合、M 型 $\beta \rightarrow \alpha$ の進行量は温度の低下にともなって増加すること、また例えば U-0.75% Fe 合金などの場合 M_s 点直下における変態の進行がかなり不活発であろうことなどは前報⁽¹⁾で述べた M 型変態の Kinetics の研究から容易に想像される。Fig. 2 (b)

Max. heating temp.: 900°C-20 min
 Size of a specimens: 1.5(D) × 17.5 mm(L)
 Magnification of a dilatometer: 1,600
 Heating rate of a water-quenched specimen: 8°C/min

Fig. 6 Dilatation curves of water-quenched U-0.65% Fe alloys after isothermal transformation at various temperatures for 20 min

Max. heating temp.: 900°C-20 min
 Size of a specimens: 1.5(D) × 17.5 mm(L)
 Magnification of a dilatometer: 1,600
 Heating rate of a water-quenched specimen: 8°C/min

Fig. 7 Dilatation curves of water-quenched U-0.75% Fe alloys after isothermal transformation at various temperatures for 1 hr

によれば、U-0.5% Fe 合金の M_s 点が約300°C付近に相当するとみられるので、U-0.65~1.0% Fe 合金に

Table 1 Details of heat-treatment to determine M_s temperature

U-0.5% Fe			U-0.65% Fe		U-0.75% Fe		U-0.9% Fe	
Max. heating temp.	755°C	900°C	Max. heating temp.	900°C	Max. heating temp.	900°C	Max. heating temp.	900°C
Conditions of isothermal transformation	-30 min	-20 min	Conditions of isothermal transformation	-20 min	Conditions of isothermal transformation	-20 min	Conditions of isothermal transformation	-20 min
300°C-5 min	●E.	●E.	300°C-1 hr	●E.	300°C-1 hr	●E.	240°C-2 hr	×
285°C-5 min	○E.	○E.	285°C-1 hr	○E.	285°C-1 hr	●E.	235°C-2 hr	○tr N.E.
275°C-5 min	○E.	○E.	275°C-1 hr	○N.E.	275°C-1 hr	●N.E.	225°C-2 hr	○tr N.E.
					265°C-1 hr	○N.E.	215°C-2 hr	○N. E.
					255°C-1 hr	○N.E.	200°C-2 hr	○N. E.

Size of heat-treated specimens: 1.5(D) × 5 mm(L)

Cooling medium: metal bath

- : Fine α -uranium grains produced in nucleation and growth mechanism
- : Coarse α -uranium grains produced in martsensitic mechanism
- ⊙: Mixed grains produced in two mechanisms (coarse and fine α -uranium grains)
- ×: β -uranium only
- tr Little amount of martsensitic α -uranium observed in β -uranium matrix

Mark E or N. E. denotes respectively the end or no end of transformation, so that the specimens marked by N. E. is composed of two phases, α and β .

Plate 1 Typical examples of microstructures (×56)

についても 300°C 以下の恒温変態組織を調べ、 M_s 点を明らかにしようとした。ただ U-1.0% Fe 合金の場合、M型変態がいちじるしくおこりにくいことはすでに明らかになっているので⁽¹⁾、これよりわずかに Fe を少なくした U-0.9% Fe 合金を用い、Table 1 に示す熱処理を行なった試料の組織を調べた。すなわち U-0.5% Fe 合金では、恒温変態条件として変態が完了するような時間がえられたが、U-0.65~0.9% Fe 合金の場合必ずしもそのような条件が満足されていない。これは後者においては、未変態 β 相は恒温変態後の水冷によって容易に変態を阻止できると推定したからである⁽¹⁾。すなわち、ある温度で進行する変態機構を知るためには必ずしも変態が完了している必要はなく、変態が部分的にでも進行していればよい。Table 1 の恒温変態条件はこのような考えにもとづいて選定されたが、なお、このような方法による M_s 点の測定法の詳細についてはすでに報告した⁽³⁾。Plate 1(a)~(c) に組

織の代表的なものを示したが、変態機構の差は組織的にも充分区別できる。

Table 1 の結果をまとめ、 M_s 点と合金元素量との関係を示すと Fig. 8 のようになる。U-0.5% Fe 合金は β , γ いずれの温度から急冷恒温変態させても変態温度と組織との関係が一致する。これは $\gamma \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ の順序で変態が進行し、 $\beta \rightarrow \alpha$ 変態機構の差が組織変化に現われたことを示すものである。また、前述したとおり、U-0.65~0.9% Fe 合金の場合、 $\gamma \rightarrow \beta$ 変態は恒温変態温度まで冷却される間に急速に進行してしまうと考えられ、その際 Fe を過飽和に固溶した β 相に変態し、その M_s 点が測定されたものと推定される。したがって、おそらく添加した Fe を全部固溶した過冷 β 相の M_s 点に相当するものと考えられる。

2. β -処理あるいは γ -処理による組織の微細化法

Plate 1 によっても容易に推定されるように、N.G. 型の機構で変態を進行させれば組織がかなり微細化されるが、M型の機構で変態した場合その組織はいちじるしく粗大である。したがって、組織を微細化するには N.G. 型の変態を行なわせなければならないが、どのような温度範囲で行なわせるべきかは恒温変態温度と組織との関係を研究すれば明らかになる。

組織検鏡用の試料として、アーク炉で溶解されたボタンから 5.5(W) × 11.0(L) × 3.5 mm(T) の試料を切りとり、 β 相 (745°C ± 5°C-30 min) あるいは γ 相 (900°C ± 5°C-20 min) 内に加熱保持後 α 相の温度に急冷して恒温変態を行なわせてその組織を調べた。

一般に、恒温変態組織は Plate 1 (a) にその代表例を示したように均一な組織で、また、 β -処理と γ -処理とでその組織的特色は変わらない。個々の結晶粒の平均寸法と恒温変態温度との関係をさきに報告⁽²⁾した U-Cr 系あるいは U の場合と比較して示すと Figs. 9, 10 のようになる。これらの結果によると、組織の大小は

Indicated marks are identical with ones in Table 1.
Fig. 8 M_s temperature vs. iron content

Fig. 9 Grain size vs. isothermal transformation temperature

Fig. 10 Grain size vs. isothermal transformation temperature

ほとんど合金元素量によらず、また U-Cr 系の場合と同様 β -処理に比較して γ -処理の方が明らかに粗大組織である。

組織の微細化に合金元素量がほとんど影響しないことが明らかになったので、どの程度まで添加量を減少できるかを検討した。すなわち、U-0.2% Fe 合金をアーク炉で溶製し、これを母合金として Fe の添加量 0.1, 0.05 および 0.01 % の試料を作り、745 $\pm$ 5°C-30 min 加熱後 350° および 450°C に保持された metal bath 中に急冷恒温変態させてその組織を調べた(熱処理試料の寸法は前記のとおり)。Fig. 11 がその結果で、約 0.1 % までは効果が認められるが、さらに添加量を少なくすると効果が激減する。

Fig. 11 の結果を詳しく検討するためには、Fe 量の少ない合金についても M_s 点がどの程度になるかを明らかにしておく必要がある。このため、まず U-0.25, 0.35 % Fe 合金をとりあげ、恒温変態組織の観察によって M_s 点を明らかにしようとした。すなわち、

Fig. 11 Grain size vs. iron content

β 相内の加熱温度から 300°C に保たれた metal bath 中に急冷恒温変態させ(熱処理試料の寸法は Table 1 の場合と同様 1.5 D $\times$ 5 mm L), その組織を調べてみると Plate 1 (a) に類似した組織となり、Plate 1 (b) のようにはならない。Fig. 8 によれば、これらの合金の M_s 点が 300°C 以下にあるとは考えられない。TTT 曲線の測定結果で明らかにされたように、U-Fe 系の N.G. 型変態は U-Cr 系などに比較していちじるしく速やかであるから、恒温変態温度まで冷却してくる間に N.G. 型変態がかなり進行し、したがって、いちじるしい組織の粗大化がおこらなかったものと思われ、この考え方は Fig. 11 に対しても適用できる。すなわち、U-0.01~0.25 % Fe 合金の場合、350° あるいは 450°C の metal bath 中に急冷して得られる組織はその温度における真の恒温変態組織とみるよりは、むしろその温度まで冷却される間に生成した N.G. 型微細組織がかなり混在し、したがって、例えば U-0.5% Fe 合金のように M_s 点付近で不連続的に組織が粗大化する現象が認められないものと解釈すべきであろう。したがって、このような合金ではかりに M_s 点以下の metal bath 中に急冷しても組織がいちじるしく粗大化する傾向が妨げられると考えられる。しかし Fig. 8 により、Fe の添加量が減少するほど M_s 点が高温になるから、M 型変態を行なう温度領域が優勢になり、これが恒温変態温度まで冷却される間に進行する組織中に M 型変態生成物の量を多くする原因となり、粗大化傾向が顕著になるものと思う。

組織に対する Fe の影響を調べた従来の結果⁽⁵⁾⁽⁶⁾には、相変態機構との関連が研究されていないため熱処理の基本的な考え方が不明確であったが、この点本報によって明白にされたものと考えられる。

Ⅱ. 総 括

本報において得られた主な結果を要約すれば、つぎのとおりである。

- (1) 試料の加熱温度を β 相内にとった場合、Feの固溶量を高々0.5%程度にしかできないが、 γ 相から α 相の温度に急冷すればさらに多量のFeを固溶した β 相が得られることを利用して、U-0.5~1.0% Fe合金のN.G.型変態機構に対応するTTT曲線を明らかにした。
- (2) M_s 点($\beta \rightarrow \alpha$)とFeの添加量との関係を明らかにした。
- (3) 組織を微細化するにはN.G.型変態を比較的低温度で行なわせればよいが、熱処理条件と組織との関係を明らかにし(Figs. 9, 10 参照)、組織の粗密は主として変態温度に支配され合金元素量にはよらないこと、 γ -処理は β -処理に比較して組織を粗大化しやすいこと、また組織の微細化にいち

じるしい効果を期待できる最小添加量は約0.1%と考えられる点などを明らかにした。

この研究を遂行するに当たり、ご懇切なご指導を賜った東京大学教授橋口隆吉先生に深甚なる謝意を表するとともに、ご指導ご鞭撻を賜った日立研究所小野健二博士ならびに小川浩三氏に感謝する。

(1962年 10月 3日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) 添野 浩: 本誌, 5, No.3, 204~210 (1962).
- (2) 同 上: 同 上, 4, No.11, 789~796 (1962).
- (3) 同 上: 同 上, 5, No.2, 127~133 (1962).
- (4) T. GEIGER, *et al.*: *Sulzer Tech. Rev.*, 23 (3/1958).
- (5) M. D. JEPSON, *et al.*: *A/Conf.*, 15/P/ 127 (1958).
- (6) E. E. HAYES: *Fuel Element Conf. at Paris*, (Nov. 18~23, 1957), *TID-7546*, (1958).

研究論文

290. MHD 直接発電の最大効率条件

小 沢 保 知*, 成 田 正 邦*

Maximum Efficiency Conditions of Magnetohydrodynamic Power Generation

By Yasutomo OZAWA and Masakuni NARITA

Maximum efficiency condition of MHD power generation have been derived as follows:

- (1) Spatially homogeneous distribution both of induced electro-motive-force and of the ratio of the applied magnetic induction to the density of a working fluid are required for irrespective of compressible or incompressible plasmas.
- (2) In case of incompressible plasmas, a homogeneous distribution of the magnetic induction is requested.
- (3) The magnitude of the required external loading at optimum and maximum efficiency power conversion is determined and it is proved that the optimum value of loading exists in a light load region.

I. ま え が き

分裂型原子炉の発達と将来の核融合型原子炉の成功

* 北海道大学 工学部応用原子核物理学研究室
(Lab. Appl. Nucl. Phys., School of Engng.,
Hokkaido Univ.)