

高温におけるその場観察のための直視型 高温変形挙動観察装置の試作

© 1991 ISIJ
/////////
技術報告
/////////

鳥 阪 泰 憲*・原 口 修 一*2

An Experimental Tester for *in situ* Observation of the Heated and Reduced Microstructures of Alloys

Yasunori TORISAKA and Shuichi HARAGUCHI

Synopsis :

Recently, it is strongly demanded to develop a tester which makes possible to *in situ* observe the microstructures deformed in the wide temperature range from room temperature to high temperatures. Both Mechanical Engineering Laboratory, Agency of Industrial Science and Technology and Shimadzu Co. have produced such a tester, where a hydraulic machine with a vacuum chamber and a heater is equipped with a scanning electron microscopy.

Mod. IN-100, a slightly modified version of IN-100 which has specific points (i.e. transformation and recrystallization temperatures etc.) at high temperatures has been prepared, and *in situ* observed in the temperature range from room temperature to 1323 K using an upper type furnace in installation of trapping the thermal electron.

Good scanning electron microstructures have been observed up to 1306 K in both scanning and television mode. Beyond 1306 K, however, it is difficult to bring its target into focus, because an amount of the detected second electron decreases in using the furnace mentioned above. In television mode, especially, the microstructures are slightly seen.

Key words : *in situ* observation ; hydraulic machine ; heater ; scanning electron microscopy ; Mod. IN-100 ; superplasticity.

1. 緒 言

金属材料には種々の特異点がある。例えば、これらを現象論からみれば、高速度工具鋼における2次硬化やNi基超耐熱合金でみられるKear-Wilsdorfの機構¹⁾などの異常硬化、超塑性などの異常延性、高減衰能および形状記憶効果などがある。

機構論からみれば、すべりや双晶などを生じる格子・粒界転位および凝弾性を生じる主原因となる体・粒界拡散などがある。

物性論からみれば、パイエルス・ポテンシャルおよび積層欠陥エネルギーなどがある。

組織論からみれば、静的・動的ひずみ時効、固溶・析出なども含む拡散変態、マルテンサイト変態などの無拡散変態、静的・動的再結晶(集合組織を含む)、粒界移動お

よび粒界すべりなどがある。

特に、最後の組織論は顕微鏡やX線回折などで直接観察できるということで、重要な位置を占めている。しかし、これらの観察は高温で生じた組織変化を常温に凍結した後、行われるのがほとんどである。この場合、必ずしも凍結組織＝高温組織と限らない場合が多い。

また、破壊の分野でも、新素材、特に傾斜機能材料を代表とする複合材料や金属間化合物およびセラミックスなどの開発と平行して、信頼性の問題から、疲労き裂の進展挙動を高温で把握することが急務となっている。

以上のような背景から、最近、高温での組織変化あるいはき裂の進展挙動などを高温の状態での場観察できるように装置の開発が強く望まれている。

平成2年10月11日受付 (Received Oct. 11, 1990)

* 工業技術院機械技術研究所 工博 (Mechanical Engineering Laboratory, Agency of Industrial Science and Technology, 1-2 Namiki Tsukuba 305)

*2 (株)鳥津製作所計測事業本部 (Scientific Equipment Division, Shimadzu Co.)

2. 直視型高温変形挙動観察装置 (Isothermal tester: Tester for *in situ* observation of the heated and reduced microstructures of alloys)

高温変形挙動のその場観察を目的として、工業技術院機械技術研究所は株式会社島津製作所と共同で、走査型電子顕微鏡（以下、SEM）に油圧式高温用引張試験機を取り付けた直視型高温変形挙動観察装置（以下、Isothermal tester）を世界に先駆けて試作した。本装置は、①SEM 観察、②ランプジェネレーターを使用した

引張り・圧縮試験およびファンクションジェネレーターを使用した疲労試験、③熱処理、など単機能としても使用でき、またこれらの機能の複合化としても使用できる。本稿では、この試作装置の内容を中心に述べる。

本装置の本体およびチャンバー部の写真を Photo. 1 および Photo. 2 に、またチャンバー部の構成の概略図を Fig. 1 に示す。

Isothermal tester の特徴は次の 5 点から成る。

(1) 本装置の負荷部は片側固定のため、引張り開始とともに SEM 像の観察視野が移動する。したがって、同

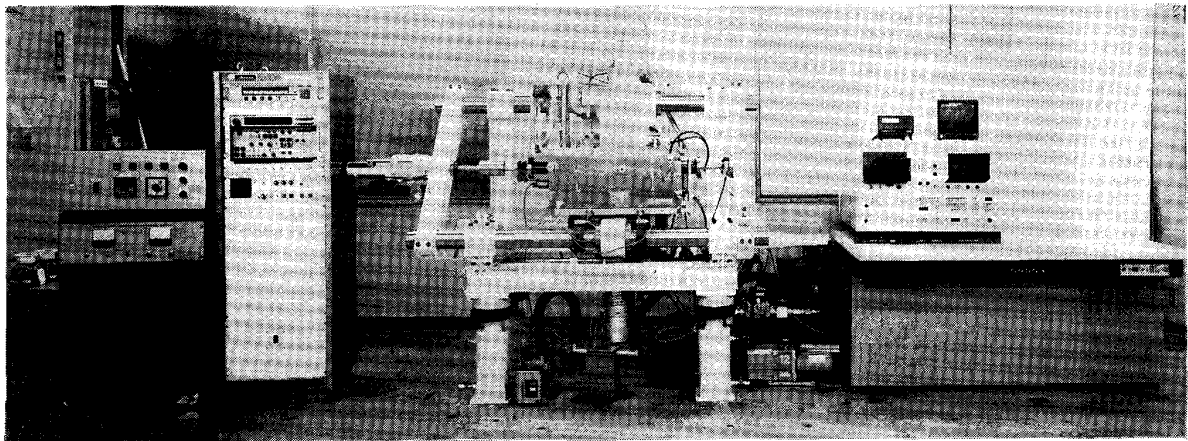


Photo. 1. A tester for *in situ* observation of the heated and reduced microstructures of alloys (Below; Isothermal tester).

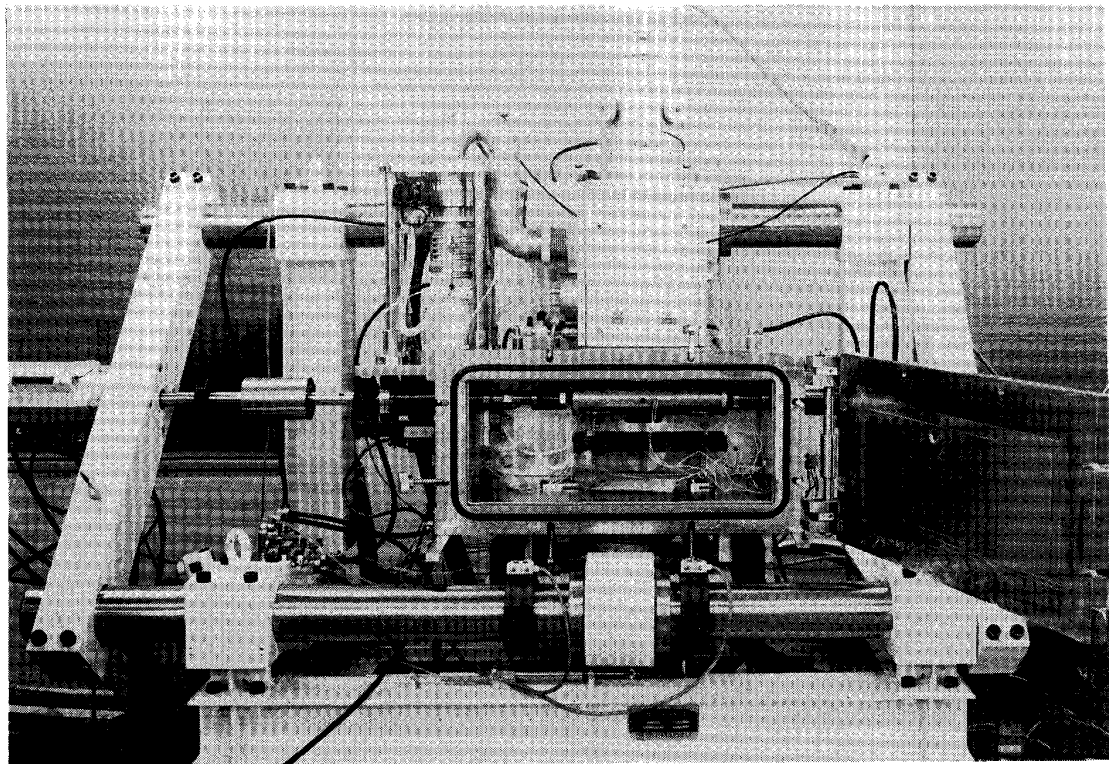


Photo. 2. A part of chamber in Isothermal tester.

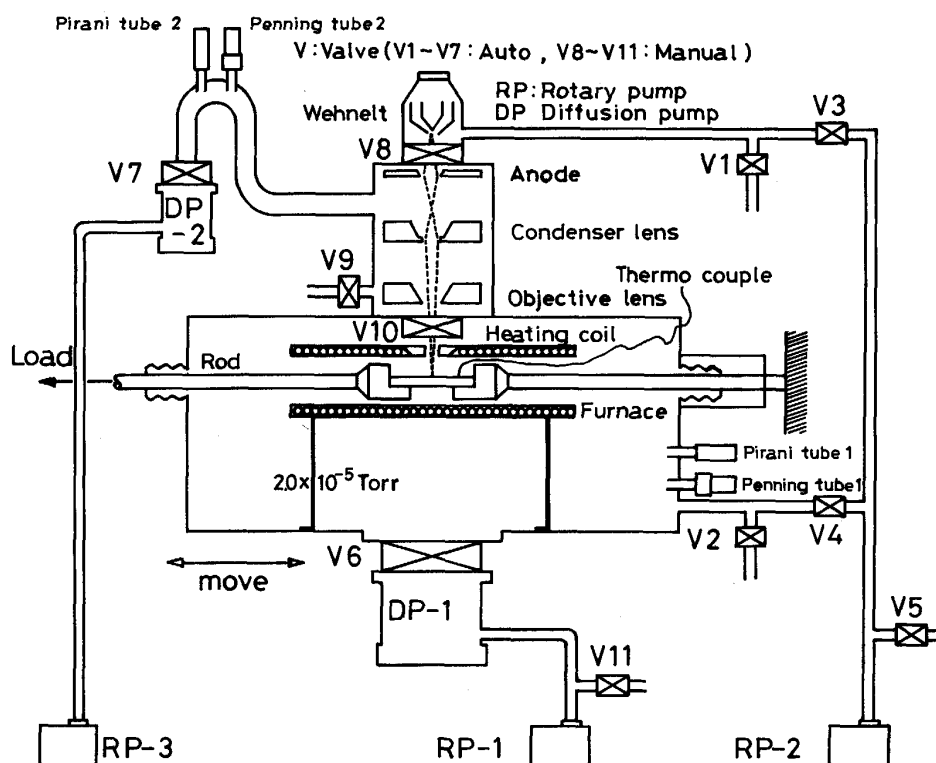
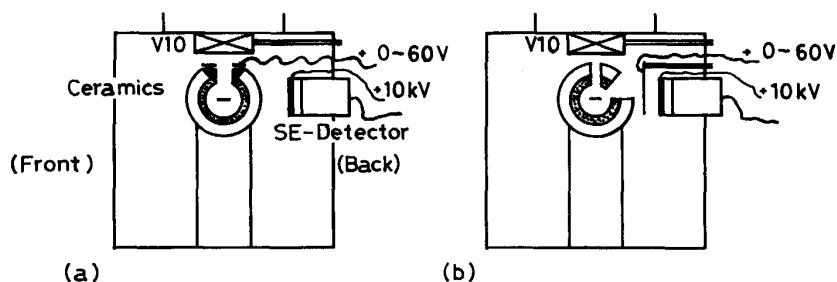


Fig. 1. A part of chamber in Isothermal tester.



(a) An upper type in installation of trapping the thermal electron
 (b) An rear type in installation of trapping the thermal electron

Fig. 2. Two types of furnace prepared in this experiments.

じ視野を連続して観察することはできない。そのため、本装置では、Photo. 2 に示した鏡筒およびチャンパー部が自動あるいは手動により、負荷部と独立に移動できるように設計し、引張り中、絶えず同じ視野をとらえることができるようにした。

(2) 超塑性挙動も考慮して、炉体長さを 300 mm (加熱コイルの領域長さは 250 mm) と非常に大きくした。このため、チャンパー自体を水冷する必要が生じた。

(3) 通常の SEM では試料に電子線を照射し、そのとき発生する反射電子あるいは 2 次電子 (以下、SE) をとらえて観察する。しかし、本装置では高温で観察するため、試料から熱電子が発生し、この影響のため、明瞭な SE 像が得られない。また、炉体からの熱放射による 2 次電子検出器 (以下、SE-Det) や対物レンズなどの損傷および対物鏡に汚染をきたす恐れがある。これらの問題を解決するため、

① SE-Det の周囲を Cu 製のパイプを用い、水冷する。

② Fig. 2 (a) に示すように、炉の中心部上方に直径 18 mm 程度の穴を設け、その上にセラミックス板を介して金属製の受け皿を置き、この受け皿に正のバイアス、すなわち 0 ~ +60 V (可変) を印加し、強制的に熱電子を集める。したがって、反射電子をとらえることは期待できない (以下、熱電子トラップ上方設置型)。

③ Fig. 2 (b) に示すように、炉の中心部後方に直径 10 mm 程度の穴を設け、シンチレーターの手前に金属製の遮蔽板を置き、この遮蔽板に 0 ~ +60 V (可変) を印加し、強制的に SE を集める。そのため、SE のみならず反射電子もとらえることが期待できる (以下、熱電子トラップ後方設置型)。

④ 通常の SEM では Working distance は数 mm であるが、本装置では炉が挿入されるのと、炉体からの熱放射の問題のため、36 mm と大きくした。したがって、

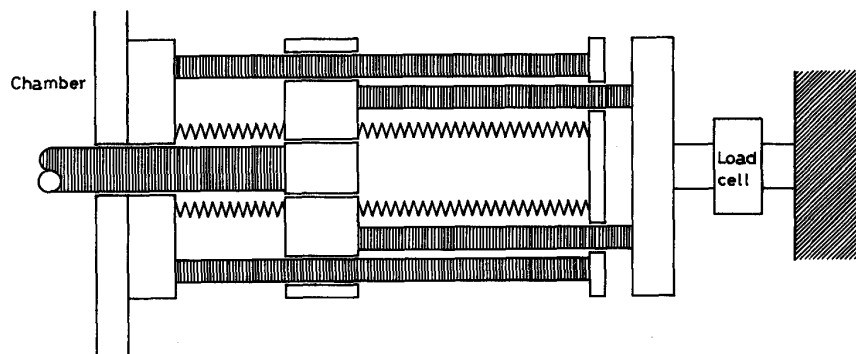


Fig. 3. An apparatus which makes possible to cancel the vacuum force in the chamber.

Table 1. Specifications in details of Isothermal tester.

Composition	Item	Capacity
SEM	Resolution Aperture	Refer Photo. 3, 4 Condenser lens : 400 μm Objective lens : 300 μm
Hydraulic machine	Max. load Max. stroke Rod	1 000 kgf ± 50 mm (Total 100 mm) TZM (Mo-base alloy with Ti, Zr and C)
Heater	Max. temperature Heating length	1 473 K 250 mm
Vacuum	Chamber	2×10^{-5} torr at room temperature $\sim 1\,323$ K

SEM 像の若干の劣化はまぬがれない。

などの対策を施した。

(4) 負荷系からのわずかな振動が SE 像に影響を及ぼすため、極力この振動は取り除かれねばならない。そのため、Photo. 1 で示したように、本装置の本体はすべてゴムダンパーの上に乗せるという構造を採用した。

また、サーボ弁の振動も SE 像に影響を与えるため、サーボ弁をアクチュエーターから切り離された専用のマニホールドに設置し、サーボ弁マニホールドとアクチュエーター間はゴムホースにより接続した。更に、真空ポンプは最新の分子ターボではなく、振動の問題から従来の油拡散ポンプを用いた。

(5) 大気とチャンバー内の気圧差のため、昇温とともに強度が低下しつつある試験片が、ある温度で突然座屈を生じる恐れがある。そのため、Fig. 3 に示すように、真空力キャンセル装置を取り付けた。

なお、Isothermal tester の詳細な仕様を Table 1 に示す。

3. 実験試料

本実験の試料には、高温における超塑性材料として代表的な Ni 基超耐熱合金 Mod. IN-100 を用いた。そして、圧延および再結晶により、結晶粒径を $3.9\,\mu\text{m}$ に調整した²⁾ 後、機械加工により Fig. 4 に示す試験片形状に切

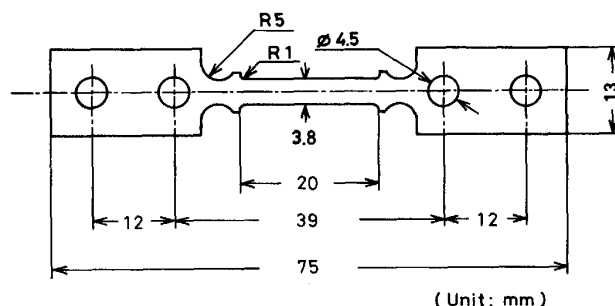


Fig. 4. A size of specimens in superplastic tests.

り出した。組織観察のためのエッチングには、マーブル液 ($\text{CuSO}_4 : 4\text{ g}$, $\text{HCl} : 20\text{ ml}$, $\text{H}_2\text{O} : 50\text{ ml}$) を用いた。そして、試験片中央部に、マイクロビッカース硬度計により、負荷方向と直角の方向で、試料表面に $35\,\mu\text{m}$ ($300\text{ gf} \times 10\text{ s}$) 程度の圧痕を $50\,\mu\text{m}$ 間隔で数十個打ち、この圧痕およびその周囲を高温でその場観察した。

4. 実験結果

4.1 トラブルとその対策

高温下で負荷されるため、治具には TZM (Ti, Zr, C を含む Mo 基合金) を使用したことは Table 1 で示したとおりである。更に、炉体内部の加熱コイルの外周には 7 層の Mo 製の反射板を設けた。これらの TZM および Mo は、たとえチャンバー内の高真空にもかかわらず、およそ 573 K から酸化を始め、約 $1\,073\text{ K}$ を超えると、この酸化物が気化し、温度の低い SE-Det 内部 (シンチレーターおよびフォトマル) や種々の絶縁ガイシなどに蒸着した。そのため、特に SE を収集するハイテンション部分の絶縁破壊が生じ、SE-Det に印加されている 10 kV が放電し、SEM が完全に機能しなくなった。したがって、従来のものより絶縁性を高めた特型シンチレーターを取り付け、またシンチレーターからフォトマルへのケーブルを従来の単線からより線にし、太いガイシで完全に絶縁すると同時に、

① 治具にアルミナ溶射を施す。

②炉体の反射板を Mo 製から W 製に交換する。
などの対策を施した。

以下、本装置の各部について詳しく述べる。

4.1.1 電頭部

①上記 SE-Det が放電したとき、平行しているスリーブケーブル（電気配線用蛇管内に SE 検出器用電線と一緒に配線）に高電圧のノイズが乗り、アンプが発振状態になって、安全回路が作動したため、本体スリーブが頻繁に停止した。そのため、チャンバー外部の 10 kV のケーブルを高シールドタイプと交換し、単独で配線した。

②熱電子トラップ上方設置型では、高温による熱膨張のため、受け皿と炉体とがショートし、熱電子トラップが働かなくなった。そのため、受け皿を乗せているセラミックス板に座グリを設け、その中に受け皿を設置する構造を採用した。

③シンチレーターの冷却パイプのわずかな水濡れのため、大きなチャージが生じ、EBS コンソールの CPU が暴走し、SEM が走査しなくなった。したがって、冷却パイプの水漏れには最大の注意を払う必要がある。

④ペニングのリップル（ペニングの放電電子がシンチレーターに入り込むこと）のため、SE 像に縦縞ノイズが生じた。そのため、ペニング真空計の検出部にカバー（キャップ）を取り付け、リップルが生じないようにした。

⑤炉心管にはセラミックスを用いた。そのため、チャージが生じ、SE 像の焦点が絞れず、また揮度補正が全く不能となった。そのため、炉内に W 製の筒を設け、チャージを抑えたが、高温で W 製の筒が脆化し、破損した。したがって、セラミックスの内側全面にカーボン製のドータイトを塗布した。

⑥ウエネルト（カソード）の径を大きくした（直径 2 mm → 直径 3 mm）。

4.1.2 負荷部

①バルブ流量が少ないため、制御の応答性が悪く、また定期的な振動が発生し、SEM 像の写真が撮れなかった。そのため、サーボ弁を現状の定格流量 3.8 l/min から定格流量 19 l/min に変更した。

②不定期に振動が発生し、SEM 像の写真が撮れなくなった。そのため、ストローク制御で、感度 (gain) を下げた (6.5 → 5.0)。その結果、振動はほとんどみられなくなった。したがって、感度の高い状態ではアクチュエーターがハンチングぎみであったと考えられる。更に、感度を下げ (5.0 → 3.5)、SEM 像を撮影した結果、油圧源停止の状態の写真と比較し、ほぼ同程度であった。

③可動部の真空シールとして溶接ベローズを用いてい

るため、このベローズのばね定数の相違により、無負荷でもストロークの移動とともにロードセル荷重が発生した。したがって、無負荷、ストローク制御およびチャンバー移動の条件で、荷重-変位曲線の関係を前もって記録しておき、実際の試験ではこれを補正する必要がある。

4.1.3 加熱部

①試験時、チャンバーの移動を考えて、炉体は固定側の加熱コイルの巻き数を多くしたことおよび炉体中心部のポート部には加熱コイルが巻かれていないため、試料固定側の温度が高くなった。したがって、SEM の解像度が落ちる恐れはあるが、固定側をアルミナテープあるいはカーボンシートなどでマスキングし、温度を下げる必要がある。

②加熱部の磁界が変化しないように、加熱電源には直流を採用し、試験中絶えず、電流値は一定とし、電圧を可変させることにより温度制御を行った。

4.2 高温観察結果

その場観察はすべて熱電子トラップ上方設置型の炉を使用して、常温から 1323 K の温度範囲で行った。なお、写真撮影には、すべてネガ付きのポラロイドフィルムを用いた。

Photo. 3 は常温、953, 973, 1073, 1173, 1303 および 1323 K でのピッカース圧痕を、Photo. 4 は 973, 1073 および 1173 K でのピッカース圧痕を、Photo. 3 の 2 倍の倍率でそれぞれ示したものである。写真中、黒い粒子は γ' 相 ($\text{Ni}_3(\text{Al}, \text{Ti})$) である。この γ' 相は母相に比し、非常に硬いため、ピッカース圧痕の中では鮮明な像となって現れる。写真から、常温では γ' 相は小さいが、953 K 付近から粗大化し、1173 K 付近を超えると形がくずれ始め、すなわち、固溶し始め、1303 K ではその大部分が完全に固溶していることがわかる。

Photo. 5 および 6 は Photo. 3 および 4 とは別の試験片を用い、加熱を行い、所定の温度に達した後、10 min 保持し、超塑性発現条件である 1321 K の温度および $2.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ のひずみ速度²⁾ で引張試験を行った結果を示したものである。電頭観察は 15, 92.5, 120 および 130% の全伸びを示した 4 種類の位置で行った。なお、最後の 130% は常温での観察結果である。1321 K の温度でピッカース圧痕の判別が難しくなり、15% 伸びでピッカース圧痕を見逃してしまった。そのため、Photo. 6 はピッカース圧痕の追跡をあきらめ、引張り中、電頭視野に入った組織を撮影したものとなっている。これより、超塑性変形では、変形後の表面が変形前に比し、結晶粒に対応した起伏に覆われるようになり、個々の結晶粒が明瞭になっていくことがわかる。

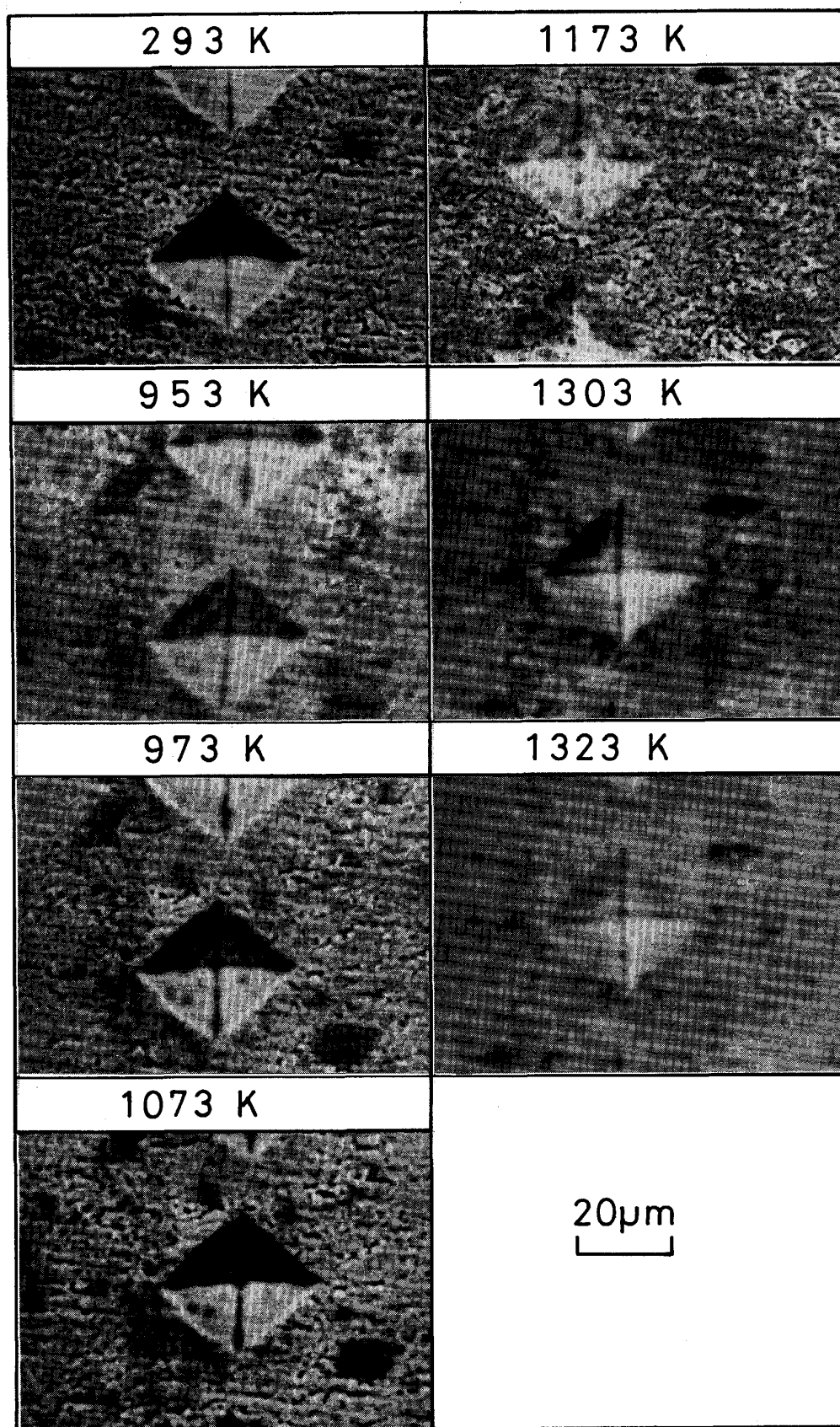


Photo. 3. The scanning electron microstructures observed in the wide temperature range from room temperature to 1 323 K.

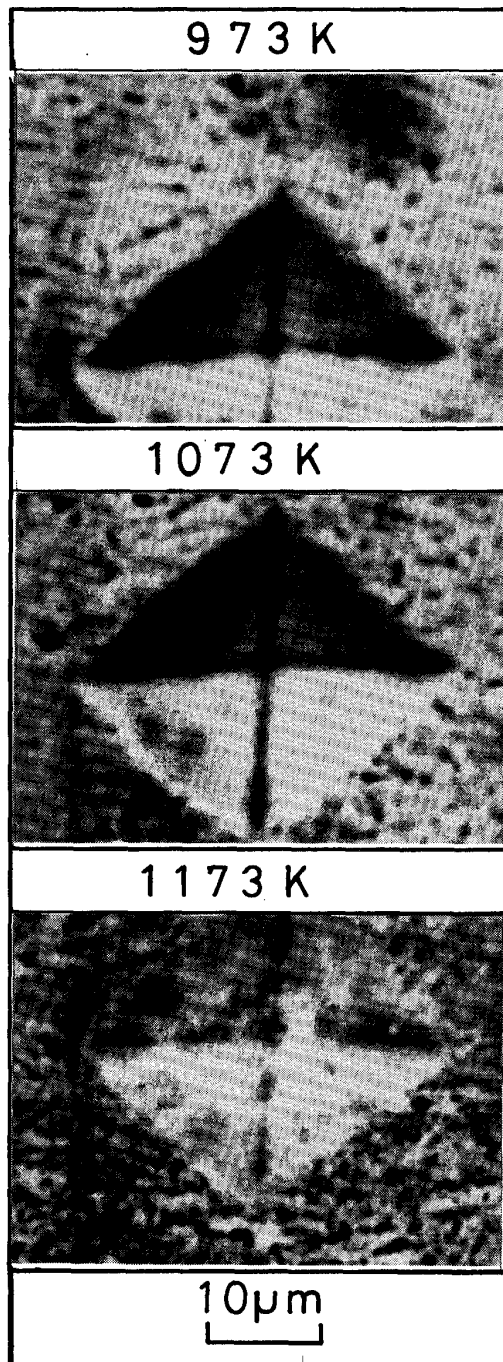


Photo. 4. The scanning electron microstructures observed at two magnifications of Photo. 3 in the temperature range from 973 K to 1173 K.

5. 考 察

約 1073 K までは、熱電子トラップへのバイアス印加は全く不要であったが、この温度以上になると、SE 像の焦点が全く絞り切れなくなった。そのため、若干のバイアス印加を行った。以後、昇温するにつれ、バイアス印加の量を増やした。1073 K 以上で鮮明な SE 像が得

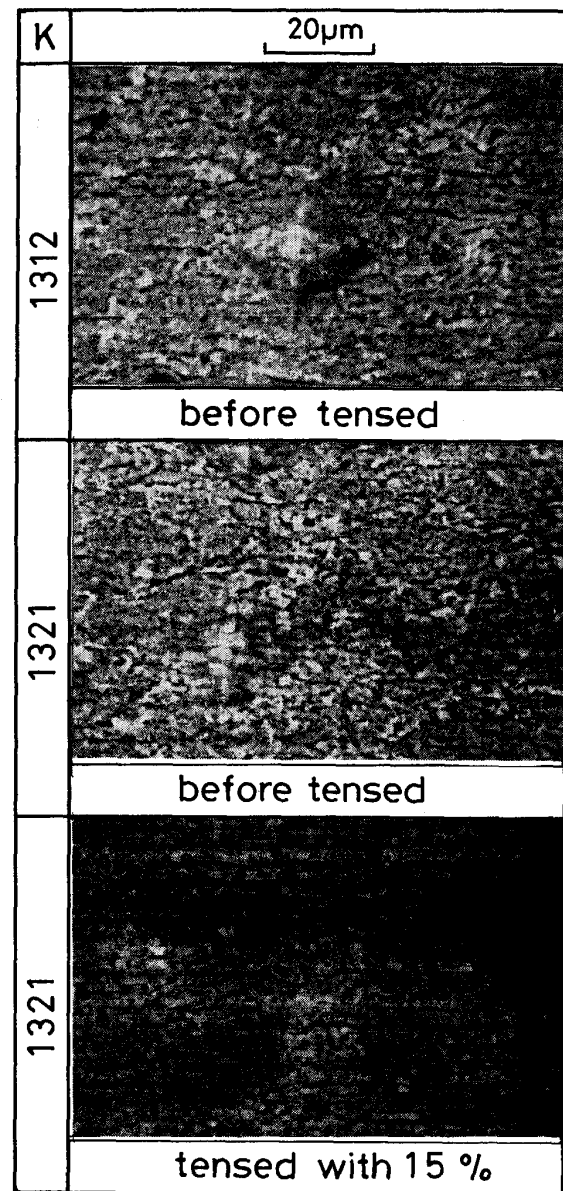


Photo. 5. The scanning electron microstructures observed during superplastic test at 1321 K.

られているのはこのためである。更に昇温し、1306 K になると突然、SE 像の感度が減少し、特にビデオ録画可能な TV モードでは、わずかに SE 像が確認できる程度であった。そして、この減少は Photo. 3 に示したように、1323 K まで続いた。この間、熱電子トラップへのバイアス印加を最大の 60 V に設定しても感度は全く向上しなかった。しかし、温度を下げ、1306 K に戻すと、ちょうどこの温度で再び感度が元に復帰した。しかし、材料に SUS304 を、炉体に熱電子トラップ後方設置型を使った予備実験では、約 1223 K までは熱電子トラップへのバイアス印加は全く不要であった。そして、この温度以上で初めて約 15 V のバイアス印加が必要と

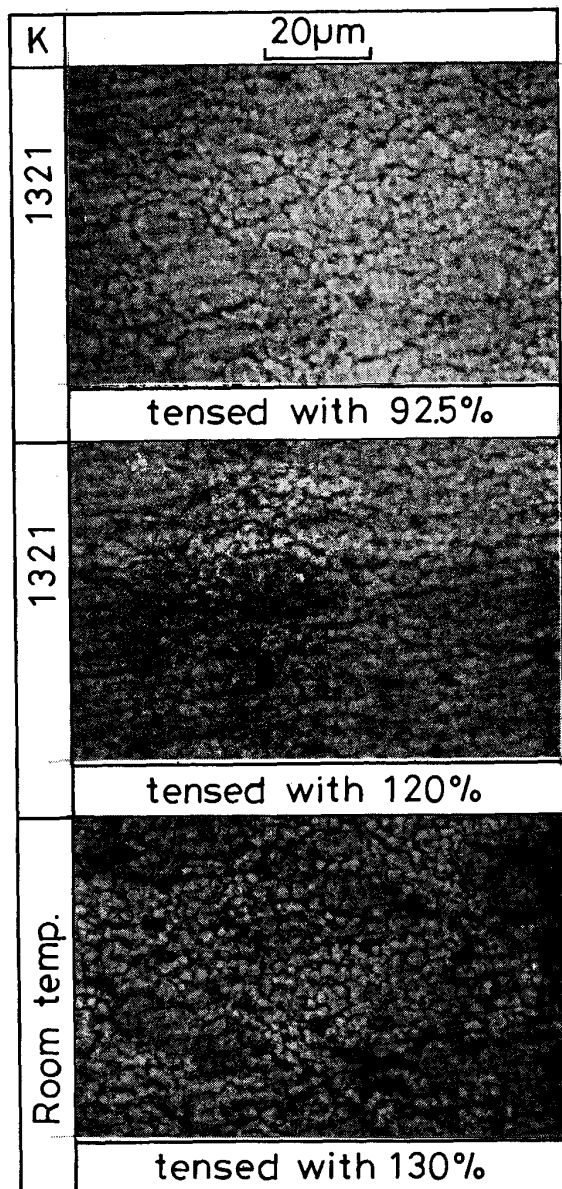


Photo. 6. The scanning electron microstructures observed during superplastic test at 1321 K.

なった。以後、1323 K までバイアス量を増すことなく良好な結果が得られ、前記述べたような 1306 K における SE 像感度の突然の減少は全くみられなかった。したがって、このような SE 像感度の突然の減少は熱電子のトラップ方式によって大きく左右されるものと考えられる。すなわち、熱電子トラップ上方設置型では、後

方設置型に比し、検出される 2 次電子量が本質的に少ない。このことが高温における SE 像の感度に決定的な影響を及ぼしたものと思われる。ただ、熱電子トラップ後方設置型では、その構造上、SE-Det, 特にシンチレーターの寿命を早めることになるので注意を要する。

熱電子トラップ上方設置型を使った 1306 K の限界温度および熱電子トラップ後方設置型を使った 1323 K の限界温度 (SE 像の感度が落ちたのではなく、炉体の加熱能力が限界付近に達したため) では、セラミックスやレアメタルなどの高融点金属材料に対する本装置の適用は無理であるが、鉄鋼や Ti 系合金などを含めた軽金属などの特異点はすべてカバーできるであろう。ただ、Ni 基などの超耐熱合金では観察困難な特異点も出てくるのではないだろうか。例えば、再結晶挙動 (1273~1423 K)³⁾ や超塑性挙動 (1323~1373 K)^{2,4)} などが該当するのではないかと思われる。しかし、疲労き裂の進展挙動などの場合には、材料が 1306 K 以上の超高温で使用されるようなケースがほとんどないため、およそすべての材料についてカバーできるであろう。

6. 結 言

高温変形挙動のその場観察を目的として、走査型電子顕微鏡に油圧式高温用引張試験機を取り付けた直視型高温変形挙動観察装置を試作した。そして、熱電子トラップ上方設置型の炉を用い、Ni 基超耐熱合金 Mod. IN-100 の組織を常温から 1323 K までの温度範囲でその場観察した。その結果、1306 K までは走査モードおよび TV モードともに良好な SE 像が得られた。しかし、熱電子トラップ上方設置型では検出される 2 次電子量が少ないため、1306 K 以上では、SE 像の感度が減少し、特に TV モードでは、わずかに SE 像が確認できる程度であった。

文 献

- 1) B. H. KEAR and H. G. F. WILSDORF: Trans. Metall. Soc. AIME, **224** (1962), p. 382
- 2) 鳥阪泰憲, 中沢克紀, 宮川松男: 鉄と鋼, **72** (1986), p. 1567
- 3) 鳥阪泰憲, 中沢克紀, 宮川松男: 鉄と鋼, **72** (1986), p. 815
- 4) 鳥阪泰憲, 宮川松男: 鉄と鋼, **74** (1988), p. 115