The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Ni基多成分系合金における溶質元素の固液間平衡分配係数
Author(s)	田中, 敏宏; 今井, 規雄; 森田, 善一郎
Citation	鉄と鋼. 1989, 75(3), p. 432-438
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/26372
rights	©日本鉄鋼協会
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

© 1989 ISIJ

論文

Ni基多成分系合金における溶質元素の固液間平衡分配係数

田中 敏宏*・今井 規雄*2・森田善一郎*

Equilibrium Distribution Coefficients of Solute Elements between Solid and Liquid Phases in Ni-base Multi-component Alloys

Toshihiro TANAKA, *Norio* IMAI and *Zen-ichiro* MORITA

Synopsis:

The equilibrium distribution coefficients, k_o^X, between solid and liquid phases in Ni-base multi-component alloys have been determined by means of the experiment and also the thermodynamic calculation.

The experimental results show that k_o^X's of Ni, Cr, Fe, and Co are almost unchanged for the compositions of alloys, but that k_o^X's of Nb and Ta decrease with increasing Fe and Co contents in both Ni-Cr-Fe-Mo and Ni-Cr-Co-Mo base multi-component alloys. The composition dependence of k_o^X was also obtained by the thermodynamic calculation in which the solute-interations were taken into account.

Key words: equilibrium distribution coefficients; nickel-base multi-component alloy; superalloy; solid-liquid equilibria.

1. 緒言

近年，耐熱合金として用いられているNi基合金における溶質の固液間平衡分配および液相面ならびに固相面温度に関する情報は，これらの合金の凝固時の諸現象のみならず高温における諸特性にも直接関係し，きわめて重要である．特に，Ni基多成分系合金における溶質元素の平衡分配係数は，TAHA and KURZ[1] および PRINZ and RUDOLPH[2] によつて2～3種類の実用耐熱合金について報告されているだけであり，合金成分の平衡分配係数に及ぼす合金組成の影響については明らかにされていない．

そこで本研究では，耐熱合金の機械的性質を大きく左右するNb, Taなどを1～2 mass% 程度添加したNi-Cr-Fe-Mo系およびNi-Cr-Co-Mo系合金について，Fe, CoおよびMo濃度を広範囲にわたつて変化させ，各合金成分の固液間平衡分配係数を測定した．さらに，平衡分配係数の組成および温度依存性を明らかにすることを目的として，同合金系における平衡分配係数を熱力学計算により求め，計算結果と実験結果の比較検討を行つた．

2. 実験方法

2・1 試料

本実験で用いたNi基合金は，電解Ni，電解Cr，電解Co，電解Fe，スポンジTi，Nbペレット，Ta板，電解Alなどを原材料とし，高周波誘導炉によりアルミナるつぼを用いてアルゴン・水素混合ガス雰囲気下で溶解後，シリカチューブに吸引採取し水中に急冷凝固させ作成した．これらを液相線温度測定および平衡保持実験用試料とした．

Table 1に本実験で用いた試料の組成を示す．試料の組成は，液相と平衡する固相がγ(FCC)相であると考えられる組成を選んだ．試料は，Ni-Cr-Fe-Mo系およびNi-Cr-Co-Mo系の多成分系合金に大きく分けることができる．いずれの試料もCr濃度を15%～20%程度とし，Fe, Co, Moの濃度を変化させ，さらに，Nb, Taなどを1%程度添加した．なお，実用耐熱合金に近い組成の試料については，参考のためにそれらに対応する実用合金名もTable 1に合わせて示した．

2・2 液相線温度の測定

各合金試料の液相線温度を測定するために熱分析実験を行つた．本実験で用いた試料は過冷度が大きく復熱時

昭和62年10月本会講演大会にて発表 昭和63年5月18日受付 (Received May. 18, 1988)

* 大阪大学工学部 工博 (Faculty of Engineering, Osaka University)
*2 大阪大学大学院 (Graduate School, Osaka University, 2-1 Yamadaoka Suita 565)

Table 1. Chemical composition of the specimens (mass%).

Specimens	Ni	Cr	Co	Fe	Mo	Ti	Nb	Ta	Al	W	Mn
A (Inconel X750)	Bal.	15.6	—	7.3	—	2.4	0.2	0.7	0.7	—	—
B (Inconel 617)	Bal.	20.8	12.3	1.6	11.8	0.5	—	—	0.7	—	—
C (Hastelloy XR)	Bal.	20.7	—	17.9	11.3	—	—	—	—	1.4	0.9
D (Inconel 706)	Bal.	19.0	0.8	38.0	1.0	0.6	1.3	1.1	—	—	—
E (Inconel 700)	Bal.	13.2	27.4	—	3.8	1.5	1.8	1.4	3.0	—	—
F	Bal.	18.0	—	2.7	17.0	0.1	1.9	2.4	—	—	—
G	Bal.	19.4	17.8	—	5.9	0.4	1.2	1.2	—	—	—
H	Bal.	19.8	—	18.2	5.8	0.4	1.4	1.5	—	—	—
I	Bal.	16.7	16.0	—	15.1	0.9	1.8	1.1	—	—	—
J	Bal.	16.7	—	16.0	15.8	0.6	1.5	2.0	—	—	—
K (Inconel 625)	Bal.	20.6	—	2.5	12.1	0.9	2.1	1.2	—	—	—
L	Bal.	18.0	—	28.9	11.2	—	1.3	0.9	—	—	—
M	Bal.	15.1	25.3	—	15.9	—	1.5	0.8	—	—	—
N	Bal.	17.6	6.7	—	15.1	—	1.8	0.7	—	—	—
O	Bal.	18.7	7.9	—	8.0	—	1.3	0.8	—	—	—

Table 2. Liquidus temperature of the specimens.

Specimens	Liquidus temperature (K)
A (Inconel X 750)	1 672
B (Inconel 617)	—
C (Hastelloy XR)	—
D (Inconel 706)	1 673
E (Inconel 700)	1 665
F	1 630
G	1 683
H	1 653
I	1 647
J	1 630
K (Inconel 625)	1 640
L	1 661
M	1 670
N	1 672
O	1 681
B. PRINZ and *G.* RUDOLPH	
(Alloy 718)*1	1 613
(Alloy 625)*2	1 629

Chemical composition (mass%)
*1 Ni-18Cr-3.0Mo-5.0Nb-18Fe-0.9Ti-0.6Al
*2 Ni-22Cr-9.0Mo-3.5Nb-2.0Fe-0.2Ti-0.1Al

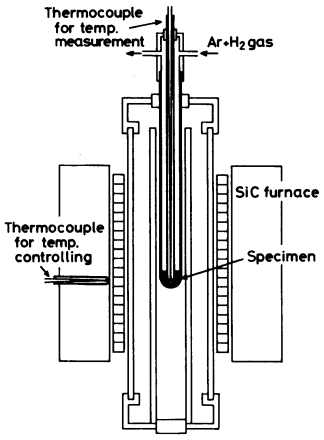


Fig. 1. Apparatus for quenching specimens.

の温度が安定しなかつたため，昇温過程において液相線温度の測定を行つた．その結果を，Table 2 に示す．同表には，PRINZ and RUDOLPH[2] による実用超合金についての測定結果を合わせて示した．

2·3 固液平衡保持実験

本実験では，固液間平衡分配係数を求めるために，試料を液相線温度直下の所定温度で一定時間保持したのちに急冷し，試料の組成を EPMA により測定する方法を採用した．

実験に使用した装置を Fig. 1 に示す．アルミナ保護管内に試料を挿入したのちに，真空ポンプにより管内を排気しアルゴン・水素混合ガスを導入するという作業を繰り返し，保護管内をアルゴン・水素混合ガスで十分に置換する．試料を加熱し完全に融解させたのち，徐冷し，熱分析により求めた液相線温度直下の固相と液相の共存する温度に保持する．所定時間保持したのち，アルミナ保護管ごと水中に落下急冷し，急冷試料を作成した．保持時間については，PRINZ and RUDOLPH[2] の論文を参考として 20 h 程度とした．

2·4 EPMA による濃度測定

急冷試料を切断し，研磨・腐食することにより，固相・液相部を確認した．急冷試料の光学顕微鏡組織は Photo. 1 に示すように，2 種類に大別することができる．Photo. 1(a) は，急冷試料中に固相が分散している試料の組織であり，球状の部分が急冷前の固相部，残りが液相部である．また Photo. 1(b) は，急冷試料下部に固相が形成されている試料の組織であり，左側の部分が固相を，右側の部分が液相を示している．

EPMA による濃度測定は，固液界面近傍の固相部および液相部について面分析により行つた．なお，Ni, Cr, Co, Fe, Mo などの高濃度の元素についてはエネルギー分散型X線分析による濃度測定を，また，Ti, Nb, Ta などの低濃度の元素については波長分散型X線分析によるX線強度測定を行つた．各成分の固液間平衡分配係数は，固相と液相における濃度比およびバックグランドを差し引いたX線強度比により決定した．

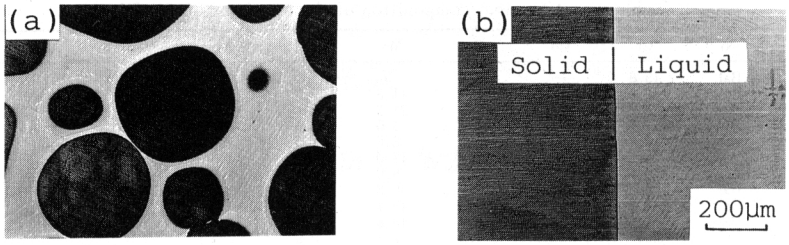
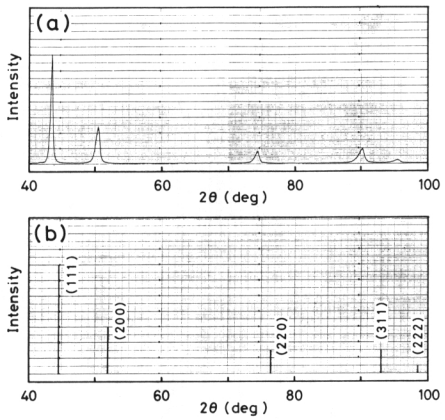


Photo. 1. Microstructures of quenched specimens.



(a) Specimen No. C
(b) Reference pattern from pure Ni (FCC)

Fig. 2. X-ray diffraction patterns (Cu-K_α).

2·5 X線回折による相の同定

固液平衡保持実験後の急冷試料をX線回折により分析し，形成されている固相がFCC相であることを確認した．分析に際して，固相が試料下部に形成されている試料（Photo. 1(b)）はその固相部を，液相中に固相が分散している試料（Photo. 1(a)）はその全体を分析した．そのX線回折結果の一例をFig. 2(a)に示す．また，母相となるNiのFCC相のピーク位置をFig. 2(b)に示す．同図より，急冷試料の固相はFCC相であることが確認できる．また，試料のピーク位置はNiのピーク位置より小さい角度の側に偏倚しているが，これは，試料に多量の合金元素が含まれており，合金の格子定数がNiのそれに比べて大きくなつているためであると考えられる．

3. 結果および考察

3·1 固液間平衡分配係数

3·1·1 固液間平衡分配係数の測定結果

平衡保持実験により得られた固液間平衡分配係数の値をTable 3に示した．同表より，濃度の高いNi，CoおよびFeの平衡分配係数は合金の組成に対してほとんど変化していないことがわかる．Crの平衡分配係数もほぼ一定値を示しているが，その値が1以上と1以下の値をとる合金に分けることができる．また，Nb，Taなどの微量添加元素，およびMoの平衡分配係数は，合金の種類により大きく変化していることがわかる．なお，参考までにNi基2元希薄合金におけるNbおよびTaの平衡分配係数の測定値[3]を，同表に合わせて示した．

Table 3. Experimental results of equilibrium distribution coefficent, $k_\circ^X$.

Specimens	Ni	Cr	Co	Fe	Mo	Ti	Nb	Ta	Al	W	Mn
A (Inconel X750)	1.02	0.99	—	1.09	—	0.54	0.36	0.59	1.18	—	—
B (Inconel 617)	1.05	0.99	1.06	1.06	0.79	—	—	—	1.36	—	—
C (Hastelloy XR)	1.07	0.97	—	1.10	0.71	—	—	—	—	1.06	0.56
D (Inconel 706)	1.00	0.99	1.04	1.10	0.70	—	0.24	0.49	—	—	—
E (Inconel 700)	1.01	1.05	1.08	—	0.90	0.51	0.34	0.60	0.96	—	—
F	1.11	1.05	—	1.12	0.81	—	0.40	0.75	—	—	—
G	1.03	0.99	1.10	—	0.79	—	0.30	0.68	—	—	—
H	1.04	0.99	—	1.11	0.85	—	0.31	0.60	—	—	—
I	1.07	1.02	1.09	—	0.83	—	0.37	0.66	—	—	—
J	1.08	1.01	—	1.13	0.77	—	0.34	0.68	—	—	—
K (Inconel 625)	1.07	1.01	—	1.15	0.84	—	0.40	0.78	—	—	—
L	1.07	1.00	—	1.12	0.72	—	0.28	0.63	—	—	—
M	1.08	1.02	1.09	—	0.80	—	0.33	0.66	—	—	—
N	1.08	1.01	1.08	—	0.83	—	0.39	0.80	—	—	—
O	1.04	1.00	1.07	—	0.88	—	0.39	0.72	—	—	—
Ni-1.4 mass%Nb alloy							0.39				
Ni-3.3 mass%Ta alloy								0.54			

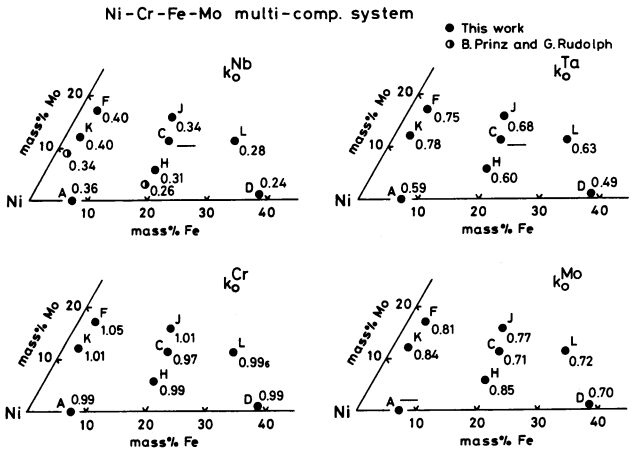


Fig. 3. Experimental results of equilibrium distribution coefficient, k_o^X, in Ni-Cr-Fe-Mo multi-component system.

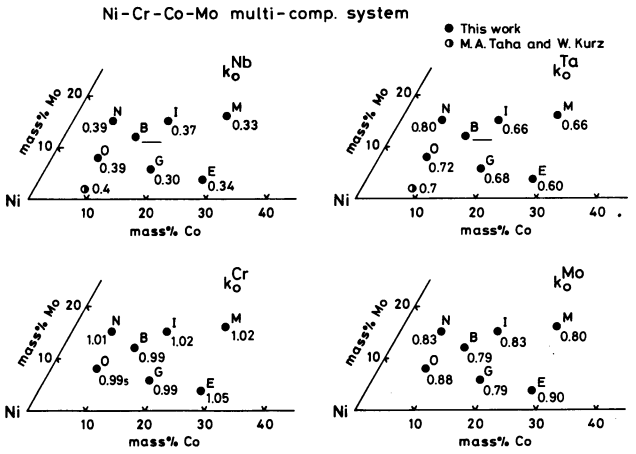


Fig. 4. Experimental results of equilibrium distribution coefficient, k_o^X, in Ni-Cr-Co-Mo multi-component system.

3·1·2　平衡分配係数の組成依存性

合金組成により平衡分配係数の値が大きく変化する Nb, Ta, Mo, ならびに合金の種類により平衡分配係数が1以上と1以下の値を示す Cr について，それらの平衡分配係数の組成依存性の検討を行つた．

Fig. 3 は，Ni-Cr-Fe-Mo 系合金について，上述の元素の平衡分配係数のFe および Mo 濃度依存性を示したものである．同図より，Nb および Ta の平衡分配係数の値は，Fe 濃度が高く Mo 濃度が低くなるほど減少する傾向にあることが認められる．Prinz and Rudolph[2] は本実験と同様の方法により実用超合金の各合金元素の平衡分配係数を測定しているが，Nb についての結果を比較のために同図に示した．Prinz らの値は，本実験結果に比べわずかに小さくなつている．Cr の平衡分配係数については，その値が1以上と1以下の値となる組成領域が存在することがわかる．なお，Mo の平衡分配係数については，組成との間に明瞭な相関は認められない．

また，Ni-Cr-Co-Mo 系合金についての結果を Fig. 4 に示す．Nb および Ta の平衡分配係数の値は，Co 濃度が高くなるほど小さくなる傾向にあることが認められる．Taha and Kurz[1] は，Zone melting 法を用いて実用 Ni 基耐熱合金の各合金成分の平衡分配係数を求めている．同図に示した Nb および Ta についての Taha らの測定結果は，本実験結果と良く一致している．Cr の平衡分配係数の値は，1以上および1以下の値となる組成領域の区別は明瞭ではなく，Mo の平衡分配係数についても組成依存性は認められない．

以上のように，Nb および Ta の平衡分配係数には，顕著な組成依存性のあることが明らかとなり，特に，Ni-Cr-Fe-Mo 系合金においてその依存性が大きいこと

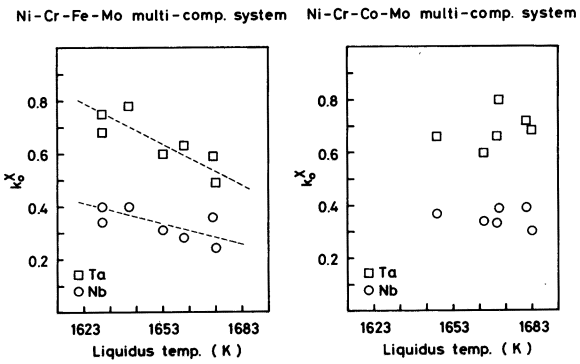


Fig. 5. Relationship between liquidus temperature and equilibrium distribution coefficient, k_o^X, of Nb and Ta.

がわかつた.

3·1·3 平衡分配係数と液相線温度との関係

Nb および Ta の平衡分配係数と液相線温度との関係を Fig. 5 に示す. Ni-Cr-Fe-Mo 系合金においては, 液相線温度が高くなるにつれて Ta および Nb の平衡分配係数 は小さくなる傾向にあることが認められる. 一方, Ni-Cr-Co-Mo 系合金においては, Ta および Nb ともに, その平衡分配係数と液相線温度との間には相関が見られない.

3·2 平衡分配係数の熱力学計算

上述のように Nb および Ta の平衡分配係数には組成依存性のあることが明らかとなつた. しかしながら, このような平衡分配係数に及ぼす溶質間相互作用の影響を検討するためには, 固液間平衡分配係数の測定を詳細に行うとともに, 溶質間相互作用を考慮に入れた熱力学計算を行うことも有効であると思われる. そこで, Ni 基多成分系合金における固液間平衡分配係数の計算を試み, 実験結果との比較検討を行つた.

3·2·1 計算方法

多成分系合金におけるA相の 1 mol 当たりの Gibbs の自由エネルギー G_m^A は, 一般に(1)式のように表すことができる.

$$G_m^A = \sum N_i^A \mu_i^A + RT \sum N_i^A \ln N_i^A + {}^E G_m^A \quad \cdots\cdots (1)$$

ここで, N_i^A はA相中の i 成分の原子分率, μ_i^A は純粋な i 成分がA相の状態にあるときの Gibbs の自由エネルギー, R は気体定数, T は絶対温度を表す. また, ${}^E G_m^A$ はA相における過剰自由エネルギーである. 多成分系合金における過剰自由エネルギーを評価するために, 種々の近似式が提案されているが, ここでは, 2成分系の過剰自由エネルギーのみの組合せから多成分系における値を推算する方法の一つである Kohler の式[4] を用いる. Kohler の式は次式のように表される.

$${}^E G_m^A = \sum (N_i^A + N_j^A)^2 \times {}^E G_{ij}^A \left(\frac{N_i^A}{N_i^A + N_j^A}, \frac{N_j^A}{N_i^A + N_j^A} \right) \quad \cdots\cdots (2)$$

(2)式において, ${}^E G_{ij}^A (N_i^A, N_j^A)$ は i-j 二成分系合金における過剰自由エネルギーであり, 本研究においては, Kaufman[6] によつて提案された次式を用いた.

$${}^E G_{ij}^A (N_i^A, N_j^A) = N_i^A N_j^A (g_{ij}^A N_i^A + h_{ij}^A N_j^A) \quad \cdots\cdots (3)$$

ここで, g_{ij} および h_{ij} は, i-j 二成分系合金における相互作用パラメーターである. この(3)式を用いることにより, (2)式の過剰自由エネルギー ${}^E G_m^A$ は次式のように表すことができる.

$${}^E G_m^A = \sum \frac{N_i^A N_j^A}{N_i^A + N_j^A} (g_{ij}^A N_i^A + h_{ij}^A N_j^A) \quad \cdots\cdots (4)$$

液相と固相の平衡は, 各成分 i に対して(5)式のように表すことができる.

$$\mu_i^L = \mu_i^S \quad \cdots\cdots (5)$$

ここで, μ_i は i 成分の化学ポテンシャルであり, 添え字 L および S は, それぞれ液相および固相 (FCC 相) を意味する. 化学ポテンシャル μ_i は, 次の(6)式で与えられる.

$$\mu_i^A = \mu_i^{A\circ} + RT \ln N_i^A + {}^E \bar{G}_i^A \quad \cdots\cdots (6)$$

ここで, ${}^E \bar{G}_i^A$ は i 成分の部分モル過剰自由エネルギーを表し, (4)式より求めることができる.

固相および液相における各成分の濃度は, 平衡条件である(5)式の連立方程式を解くことにより計算できるが, 化学ポテンシャルは各成分の濃度の複雑な関数であるため, Gauss-Seidel 法による数値解析を行つた. 各成分の固液間平衡分配係数は, 固相と液相における濃度の比を計算することにより求められる. 計算に必要となる各成分の融解の自由エネルギー変化, および各 i-j 成分間の相互作用パラメーター g_{ij}, h_{ij} については, それらを引用した文献[5)~12)] の番号を Table 4 に示した.

3·2·2　計算結果

本実験で用いた試料の組成について平衡分配係数の計算を行つた結果を Table 5 に示す．また，これらの計算値と実験値を比較した結果を Fig. 6 に示す．同図より Ni-Cr-Fe-Mo 系合金においては計算結果は実験結果を良く再現していることがわかる．一方，Ni-Cr-Co-Mo 系合金においては良好な結果が得られなかつた．この原因の一つとして，本研究で用いた相互作用パラメーターは状態図および各種熱力学量を計算により再現するように実験値から回帰して得られたものであり，Co 基合金についてはそれらの実験値が不足しているためにそこから得られた相互作用パラメーターの精度も十分ではないことも考えられる．

先に述べたように，Ni-Cr-Fe-Mo 系合金においては平衡分配係数の計算値は実験値を良く再現している．そこで，Nb について，計算により平衡分配係数に及ぼす合金元素の影響を検討した．Fig. 7 は，Ni-Cr-Fe-Mo-Nb 5 元系合金に対して，Cr および Nb 濃度をそれぞれ 20 mass%，0.5 mass% に固定し，Fe および Mo 濃度を変化させたときの Nb の等平衡分配係数曲線を求めた結果を示したものである．同図より，Fe 濃度

Table 4.　References for thermodynamic data.

(a)　Free energy of fusion, $\dot{\mu}_i^L - \dot{\mu}_i^S$

Ni	Cr	Co	Fe	Mo	Ti	Nb	Ta	Al	W
6)	6)	6)	6)	7)	6)	7)	5)	6)	7)

(b)　Interaction parameters, g_{ij} and h_{ij}

	Ni	Cr	Co	Fe	Mo	Ti	Nb	Ta	Al	W
Ni		6)	8)	6)	8)	8)	8)	12)	9)	8)
Cr			7)	6)	7)	7)	7)	12)	9)	7)
Co				7)	8)	8)	8)	12)	9)	—
Fe					7)	7)	7)	—	9)	10)
Mo						8)	11)	5)	9)	5)
Ti							8)	12)	9)	—
Nb								—	9)	—
Ta									—	—
Al										—
W										

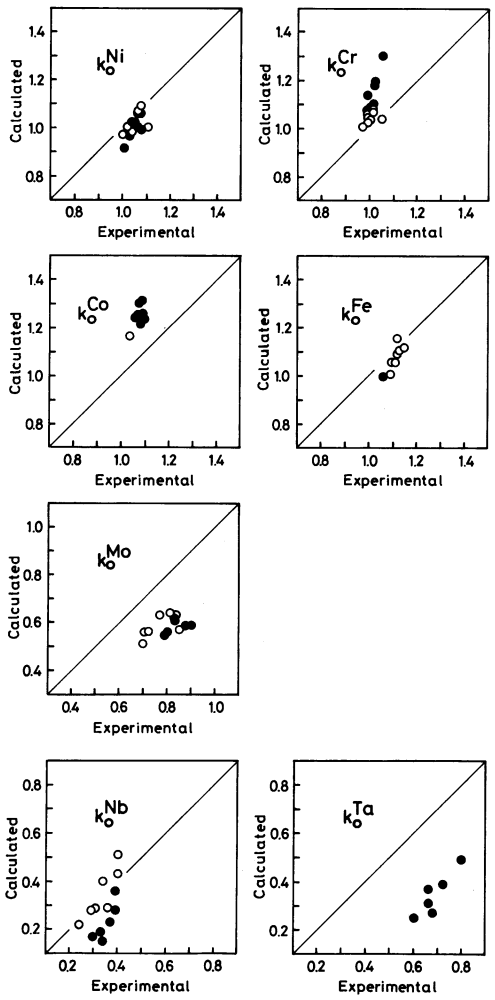
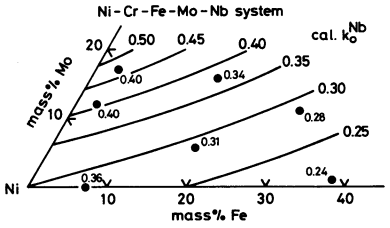


Fig. 6.　Comparison of calculated results of equilibrium distribution coefficient, k_o^X, with experimental ones.

Table 5.　Calculated results of equilibrium distribution coefficient, k_o^X.

Specimens	Ni	Cr	Co	Fe	Mo	Ti	Nb	Ta	Al	W	Mn
A (Inconel X750)	1.00	1.03	—	1.01	—	0.32	0.29	—	0.89	—	—
B (Inconel 617)	1.02	1.08	1.25	1.00	0.55	0.28	—	—	0.89	—	—
C (Hastelloy XR)	1.07	1.01	—	1.06	0.56	—	—	—	—	1.17	—
D (Inconel 706)	0.97	1.05	1.17	1.06	0.51	0.15	0.22	—	—	—	—
E (Inconel 700)	0.91	1.31	1.22	—	0.59	0.25	0.15	0.25	—	—	—
F	1.10	1.04	—	1.16	0.64	0.43	0.51	—	—	—	—
G	0.96	1.14	1.24	—	0.55	0.23	0.17	0.27	—	—	—
H	1.03	1.06	—	1.06	0.57	0.22	0.29	—	—	—	—
I	1.00	1.20	1.32	—	0.61	0.31	0.23	0.37	—	—	—
J	1.09	1.07	—	1.11	0.63	0.31	0.40	—	—	—	—
K (Inconel 625)	1.07	1.08	—	1.12	0.63	0.35	0.43	—	—	—	—
L	1.06	1.04	—	1.10	0.56	—	0.29	—	—	—	—
M	0.99	1.18	1.26	—	0.56	—	0.19	0.31	—	—	—
N	1.06	1.10	1.31	—	0.62	—	0.36	0.49	—	—	—
O	1.02	1.09	1.26	—	0.59	—	0.28	0.39	—	—	—



● : Experimental results

Fig. 7. Calculated results of equilibrium distribution coefficient, k_o^X, of Nb in Ni-Cr-Fe-Mo-Nb system (20 mass%Cr, 0.5 mass%Nb).

が高く，Mo濃度が低くなるとNbの平衡分配係数は小さくなり，実験結果と良く対応していることがわかる．

以上のように熱力学計算により多成分系合金の平衡分配係数について考察を行つたが，多成分系に対する過剰自由エネルギーの式については，本計算方法のような2元系の値のみから多元系の値を推算する方法自身，必ずしも有効なものではなく，多成分系における熱力学計算については，今後さらに検討が必要である．

4. 結　　言

本研究では，従来ほとんど報告例のないNi基多成分系合金における溶質元素の固液間平衡分配係数を測定した．試料として，Nb，Taなどを微量添加したNi-Cr-Fe-Mo系およびNi-Cr-Co-Mo系多成分合金を選び，固液平衡保持実験を行つた．その結果，Ni，Cr，Co，Feの平衡分配係数の値は，合金組成の変化によらずほぼ一定の値を示した．一方，NbおよびTaの平衡分配係数の値は，両合金系においてFeおよびCo濃度がそれぞれ増加するにつれて，減少する傾向にあることが認められた．この傾向は，Ni-Cr-Fe-Mo系合金において特に顕著であつた．また，NbおよびTaの平衡分配係数と試料の液相線温度との間にも相関関係が認められ，液相線温度が高くなるにつれてこれらの元素の平衡分配係数は小さくなることがわかつた．

さらに，熱力学計算により実験に使用した試料と同様の組成に対して平衡分配係数を求めた．各成分の平衡分配係数の計算結果はNi-Cr-Fe-Mo系合金に対しては実験結果を良く再現した．しかしながら，多成分系に対する過剰自由エネルギーの近似方法がいまだ十分なものでなく，また，熱力学パラメーターも特に高融点合金において不足しており，多成分系合金における平衡分配係数の熱力学計算については今後さらに検討が必要である．

文　　献

1) *M. A.* TAHA and *W.* KURZ: Z. Metallkd., **72** (1981), p. 546
2) *B.* PRINZ and *G.* RUDOLPH: Mikrochimica Acta, **11** (1985), p. 275
3) 森田善一郎，田中敏宏，清瀬明人，今井規雄: 学振19委-No. 10795 (昭和62年5月)
4) *F.* KOHLER: Mh. Chem., **91** (1960), p. 738
5) *L.* KAUFMAN and *H.* BERNSTEIN: Computer Calculation of Phase Diagrams (1970) [Academic Press]
6) *L.* KAUFMAN: CALPHAD, **1** (1977), p. 7
7) *L.* KAUFMAN and *H.* NESOR: CALPHAD, **2** (1978), p. 55
8) *L.* KAUFMAN and *H.* NESOR: CALPHAD, **2** (1978), p. 81
9) *L.* KAUFMAN and *H.* NESOR: CALPHAD, **2** (1978), p. 325
10) *B.* UHRENIUS and *L.* KAUFMAN: CALPHAD, **3** (1979), p. 223
11) *L.* KAUFMAN and *H.* NESOR: Treatise on Solid State Chemistry, ed. by *N. B.* HANNAY, **5** (1975), p. 179 [Plenum Press]
12) *P. J.* SPENCER (私信)