316L 系オーステナイト鋼の拡散接合に及ぼす

接合条件および含有窒素量の影響

—超電導発電機用低温ダンパの拡散接合—

森 誉延[†], 佐藤 宏

Influence of Bonding Conditions and Nitrogen Content on Diffusion Bonding of 316L-type Austenitic Steels

Diffusion Bonding for Low-temperature Dampers of Superconducting Generators

Takanobu MORI[†] and Hiroshi SATO

Synopsis: Keeping HIP treatment in mind, diffusion bonding conditions of 316L-type austenitic steels for a low-temperature damper were investigated. It was found that diffusion bonding of 316L with high-content nitrogen onto 316L with high-content nitrogen was difficult. It was tentatively concluded that the martensite formation near the bonding surface induced during the cooling process was most likely responsible for reducing the bonding strength at -196°C . Complete diffusion bonding properties at -196°C were attained by adopting a combination of 316L with high-content nitrogen and 316L with low-content nitrogen under the following bonding conditions: nitrogen content less than 0.017% in 316L with low-content nitrogen, bonding temperature above 1039°C , surface roughness below $0.07\ \mu\text{m}$, pressure above 130 MPa and pressing time above 4 h.

Keywords: diffusion bonding, hot-isostatic-pressing bonding, 316L-type austenitic steel, low-temperature bonding strength

1. はじめに

経産省/NEDO/Super-GM による国家プロジェクト「超電導電力応用技術開発」で計画された 70MW 級低速応型超電導発電機(A)¹⁾の低温ダンパは外形 730 mm, 内径 690 mm, 長さ 2984 mm の寸法を有する中空円筒で, 回転子の一部をなす部品である。低温ダンパは, 常温ダンパと, 液体ヘリウムで冷却される超電導界磁巻線との中間に配置されており, 低温(約 -180°C)で使用される。低温ダンパの機能は, 常温ダンパから浸入してくる輻射熱の遮蔽, 短絡事故時に電機子から浸入してくる数 Hz 以上の低周波変動磁束の遮蔽, 回転数の変動の減衰などである。したがって, 低温ダンパには熱伝導と電気伝導が良好な材料を用いる必要がある。その一方で, 低温ダンパには遠心力や短絡事故に対する機械強度

も要求される。これらの要求を満たすため, 低温ダンパは Fig.1 に示すような三層構造を採用した。

三層構造の低温ダンパを製作するためには, 機械強度を有するダンパサポート材(オーステナイト鋼)と熱伝導と電気伝導が良好なダンパ材(無酸素銅)との拡散接合およびダンパサポート材(オーステナイト鋼)と中間サポート材(オーステナイト鋼)との拡散接合が必要となる。

Fig. 1 Structure of a three-layer-type low-temperature damper.

Received December 6, 2007

(株)日立製作所 材料研究所

〒319-1292 日立市大みか町 7-1-1 (MD#840)

Material Research Laboratory, Hitachi, Ltd. 3-1-1

Saiwai-cho, Hitachi-shi 317-8511, Japan

[†] E-mail: takanobu.mori.bd@hitachi.com

このうち、ダンパサポート材（オーステナイト鋼）とダンパ材（無酸素鋼）との拡散接合は容易であるが、ダンパサポート材（オーステナイト鋼）と中間サポート材（オーステナイト鋼）との拡散接合は困難であり技術的課題と考えられる。

また低温ダンパにおけるダンパサポート材（オーステナイト鋼）、ダンパ材（無酸素鋼）、中間サポート材（オーステナイト鋼）などの各部材は中空円筒形状をなしているため、各部材間の拡散接合は熱間等方圧加圧法（Hot Isostatic Pressing, 以下 HIP と略称する）の設備を用いて実施する必要がある。

本報では、ダンパサポート材（オーステナイト鋼）と中間サポート材（オーステナイト鋼）を HIP で拡散接合可能とするために、両材料の拡散接合強度に及ぼす、加圧圧力、表面粗さ、接合温度、中間サポート材（オーステナイト鋼）の窒素含有量の影響などについて検討した結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 供試材

Table 1 は実験に用いた窒素量が 0.16%, 0.18% および 0.19% の高窒素 316L と、窒素量が 0.003%, 0.017%, 0.043%, 0.095% および 0.136% の低窒素 316L の化学成分を示す。各材料は市販の圧延材を用いた。

2.2 加熱圧縮装置による拡散接合実験の方法

室温接合部引張特性に及ぼす拡散接合条件の影響の検討には真空中モリブデン加熱圧縮装置（加圧力容量 50 kN）を用いた。加熱圧縮装置を高温高真空とし、高窒素 316L の試験片同士を Fig.2 に示すように、上下方向から加圧して接合した。接合時の真空度は 10^{-3} Pa とした。接合試験片の寸法は直径 8 mm、長さ 12 mm とした。

接合試験片の接合面の表面粗さ（中心線平均粗さ Ra）は耐水エメリーペーパー（＃80～＃800）を用いて研磨し、0.06～0.17 μm の範囲とした。接合温度は 985～1050℃、加圧圧力は 50～150 MPa、加圧時間は 3 h とした接合試験片。表面を研磨後、拡散接合するまでの大気中放置時間は 48 h とした。

2.3 HIP による拡散接合実験の方法

Fig.3 は拡散接合条件の適否を検証するために用いた HIP 接合試験体の組図を示す。HIP 接合試験体は、直径 90 mm の円形の板を炭素鋼のカプセル内に入れ、加熱脱気（400℃で 8 h）および封止処理をした後に HIP 処理を与えた。HIP 装置は、炉内有効寸法が直径 200 mm × 高さ 300 mm で、炉内最高温度が 2000℃、炉内最高圧力が 200 MPa のものを使用した。接合面の表面粗さは耐水エメリーペーパー研磨により 0.06～0.08 μm の範囲とした。接合温度は 1028～1039℃、加圧圧力は 130 MPa、加圧時間は 4 h とした。HIP 炉内の温度差は炉内の上部と下部で測定して $\pm 1^\circ\text{C}$ 以内である。HIP 温度の精度は $\pm 1^\circ\text{C}$ 以内である。

2.4 接合部の引張試験方法

Fig.4 は加熱圧縮装置または HIP 装置を用いて拡散接合した後、接合部付近から採取した板状引張試験片の寸法を示す。試験片は接合面が中央平行部の中心となるように採取した。引張試験でのひずみ速度は 20 %/min とし、引張強さおよび標点距離 4 mm の破断伸びを測定した。試験温度は約 20℃の室温および -196℃の低温とした。

引張試験による接合部の接合性能の良否を表す指標と

Fig. 2 Method of making the diffusion bonding specimen.

Table 1 Chemical composition of the tested materials.

Materials	Mark	C	Si	Mn	Cr	Ni	Mo	N
316L with low- content nitrogen	A	0.005	0.08	0.25	16.93	14.76	2.28	0.003
	B	0.014	0.40	1.76	17.36	12.18	2.68	0.017
	C	0.020	0.54	1.56	17.60	10.51	2.80	0.136
316L with high-content nitrogen	D	0.015	0.75	1.53	17.30	12.93	2.70	0.16
	E	0.020	0.80	0.83	18.33	12.16	2.89	0.18
	F	0.023	0.50	0.83	17.99	10.86	2.88	0.19

して、接合率を用いた。接合率とは母材で破断した引張試験片の割合であり、(1)式によって求めた。

$$\text{接合率(\%)} = \left(\frac{A}{B} \right) \times 100 \quad (1)$$

A : 母材で破断した引張試験片の数

B : 引張試験片の総数

(a) HIP specimen of 316L with high-content nitrogen.

(b) HIP specimen of 316L with high-content nitrogen and low-content nitrogen.

Fig. 3 Structure of the HIP specimen.

Fig. 4 Size of the tensile specimen.

なお、接合部の引張試験で破断した試験片の外観観察のみでは、母材破断なのか接合面破断なのか判断することが困難な場合があった。この場合には、引張試験片の接合面近傍での変形の程度から便宜的に判断した。すなわち引張試験片の破断伸びが大きくて、接合面近傍が絞られて破断した場合は母材破断とし、引張試験片の破断伸びが小さくて、接合面近傍が絞られずに破断した場合は接合面破断とした。

3. 実験結果および考察

3.1 高窒素 316L 同士の室温接合部引張特性に及ぼす拡散接合条件の影響

ダンパ材(無酸素銅)の融点が 1083℃であることから、温度マージンを 30 度として、高窒素 316L 同士の拡散接合の接合温度は 1053℃以下の温度とすることを目標とした。この接合温度条件を前提として、室温での接合部引張特性に及ぼす接合条件、すなわち加圧圧力、表面粗さ、接合温度などの影響を加熱圧縮装置による拡散接合実験によって検討した。

3.1.1 加圧圧力の影響

Fig.5 は N 量が 0.16%の高窒素 316L 同士の拡散接合体について、室温接合部引張特性に及ぼす加圧圧力の影響を示す。接合条件は、表面粗さ 0.18 μm 以下、接合温度 1050℃、加圧時間 3 h である。加圧圧力 50~150 MPa の範囲において、接合部の引張強さは母材の引張強さとはほぼ同等の値を示しているが、加圧圧力 50 MPa では接合面で破断しており、破断伸びが小さい。一方、加圧圧力が 100 MPa 以上では母材で破断している。以

(a) Bonding strength

(b) Elongation

Fig. 5 Influence of pressure on the bonding tensile properties at room temperature.

上の結果から、高窒素 316L 同士の室温接合部引張特性には加圧圧力が大きく影響することが明らかである。

Fig.6 は Fig.5 の引張試験片の破面の状況を示す。Fig.6(a)に示すように、接合面で破断した加圧圧力 50 MPa の試験片では、破面に小さなディンプルの領域が見られる。

Fig.7 は接合面で破断した加圧圧力 50 MPa の試験片について、小さなディンプルの領域の酸素濃度分布を SEM-EDX で測定した結果を示す。小さなディンプルの

Fig. 6 Fracture surface of the tensile specimens in Fig.5.

Fig. 7 Distribution of oxygen on the fracture surface in the case of a pressure of 50 MPa.

領域では酸素濃度が高い。これは、加圧圧力が小さいと、接合面の凹凸の変形が不十分なために、接合面の中に酸化物が残った領域が存在する²⁾ためと考えられる。一方、母材で破断した加圧圧力 150 MPa の試験片の破面は Fig.6(b)に示すように、大きなディンプルを示していることから、加圧圧力を高めると、接合面が密着し、接合中に酸化物が消失する¹⁾と考えられる。

3.1.2 接合温度の影響

Fig.8 は N 量が 0.16%の高窒素 316L 同士の拡散接合体について、室温接合部引張特性に及ぼす接合温度の影響を示す。接合条件は、表面粗さ 0.06 μm 、加圧圧力 100 MPa、加圧時間 3 h である。接合温度 985~1050 $^{\circ}\text{C}$ の範囲で、接合温度が高くなるにつれて、接合部の引張強さが若干低下している。これは、接合温度が高いほど、材料の結晶粒が大きくなるためであろう。試験片の破断位置は、接合温度 1015 $^{\circ}\text{C}$ 以下では接合面であるが、接合温度 1030 $^{\circ}\text{C}$ 以上では母材である。したがって、表面粗さが 0.06 μm 程度の高窒素 316L 同士の拡散接合において、良好な室温接合部引張特性を得るには接合温度を 1030 $^{\circ}\text{C}$ 以上とする必要がある。

Fig.9 は Fig.8 の引張試験片の破面の状況を示す。接合面で破断した接合温度 1000 $^{\circ}\text{C}$ の試験片の破面は全面に小さなディンプルが見られるが、一方、母材で破断した接合温度 1050 $^{\circ}\text{C}$ の試験片の破面には大きなディンプルが見られる。接合温度 1030 $^{\circ}\text{C}$ では大きなディンプルと小さなディンプルが混在している。これは、接合温度 1030 $^{\circ}\text{C}$ では、接合面にまだ微細な酸化物が残存している

Fig. 8 Influence of bonding temperature on bonding tensile properties at room temperature for high-content nitrogen 316L.

ためと考えられる。

以上に述べたように、高窒素 316L 同士の拡散接合実験では、表面粗さを $0.06 \mu\text{m}$ 、接合温度を 1030°C 以上、加圧圧力を 100 MPa 、加圧時間を 3 h とした場合に、良好な室温接合部引張特性が得られたため、次のステップとして Fig.3(a)に示すように N 量 0.180% の高窒素 316L 同士の HIP 接合試験体を作製し、約 20°C の室温および -196°C の低温における接合部の引張特性を検討することにした。

3.2 高窒素 316L 同士の HIP 接合試験体における接合部引張特性

HIP 接合試験体の接合条件は、N 量 0.18% の高窒素 316L 同士の拡散接合体について、表面粗さ $0.06\sim 0.08 \mu\text{m}$ 、接合温度 1028°C 、加圧圧力 131 MPa 、加圧時間 4.7 h とした。

Fig.10 はこの HIP 接合試験体における接合部引張特性と試験温度との関係を示す。接合部の引張強さは低温で増大しているが、破断伸びおよび接合率は低温で減少している。接合率は室温では 100% と良好であるが、 77K では 50% に低下し、接合面で破断する試験片が半数ある。これは、HIP 接合試験体が 1028°C の接合温度から室温まで遅い速度で冷却されたために、その冷却の過程で、接合面近傍でクロム窒化物の析出およびクロムと窒素の濃度の減少が生じ、この結果、接合面近傍の

Fig. 9 Fracture surface of the tensile specimens in Fig.8.

オーステナイトが不安定となり、 -196°C の低温でマルテンサイト変態を生じ、このマルテンサイトの生成によって延性の低下が起きたと推定される³⁾⁴⁾。

以上に述べたように、高窒素 316L 同士の HIP 接合では、低温で接合面破断が起き易く、良好な接合部引張特性は得られなかった。したがって HIP 接合体の材質の組み合わせを見直す必要がある。ダンパサポート材は低温強度の点から高窒素 316L を採用する必要があるが、中間サポート材は低温強度をさほど要求されないので、低窒素 316L を採用できる。HIP 接合体を高窒素 316L (ダンパサポート用) と低窒素 316L (中間サポート用) の組み合わせとすれば低温における接合面での破断を防止できる可能性があるため、次にこの組み合わせの HIP 接合体について検討することにした。

3.3 高窒素 316L と低窒素 316L の低温接合部引張特性

高窒素 316L と低窒素 316L の拡散接合体について、低温接合部引張特性に及ぼす低窒素 316L の窒素含有量の影響および接合温度の影響を検討するため、Fig.3(b)に示す HIP 接合試験体を作製した。HIP の接合条件は、表面粗さ $0.07 \mu\text{m}$ 、加圧圧力 130 MPa 、加圧時間 4 h 、接合温度 $1030\sim 1040^\circ\text{C}$ とした。HIP 接合試験体から採取する引張試験片の数は各接合部から 11 本とした。

Fig. 10 Influence of testing temperature on bonding tensile properties for high-content nitrogen 316L.

3.3.1 低窒素 316L の窒素含有量の影響

Fig.11 は N 量 0.19%の高窒素 316L と低窒素 316L の拡散接合体について、低温での接合部引張特性に及ぼす低窒素 316L の窒素含有量の影響を示す。試験片の表面粗さは $0.06 \sim 0.08 \mu\text{m}$ 、加圧圧力は 130 MPa、加圧時間は 4 h で、試験温度は -196°C である。接合部引張強さは低窒素 316L の窒素含有量が増えるにつれて増大する。一方、接合率は低窒素 316L の窒素含有量が増えるにつれて低下する。接合温度が 1030°C の場合、N 量 0.19%の高窒素 316L と窒素含有量が $0.003 \sim 0.19\%$ の 316L 同士の拡散接合では接合率が 100%に達せず、良好な接合部引張特性が得られていない。しかし接合温度 1039°C で、

(a) Bonding strength

(b) Bonding ratio

(c) Bonding strength

(d) Bonding ratio

Fig. 11 Influence of nitrogen content on bonding tensile properties at -196°C .

窒素含有量が 0.017%以下の場合、接合率は 100%であり、良好な接合部引張特性が得られている。

3.3.2 接合温度の影響

Fig.12 は N 量 0.19%の高窒素 316L と N 量 0.003%の低窒素 316L の拡散接合体について、低温での接合部引張特性に及ぼす接合温度の影響を示す。試験片の表面粗さは $0.06 \sim 0.08 \mu\text{m}$ 、加圧圧力は 130 MPa、加圧時間は 4 h で、試験温度は -196°C である。接合温度 $1030 \sim 1039^\circ\text{C}$ の範囲で、接合部引張強さはほぼ一定であるが、一方、破断伸びおよび接合率は接合温度が高くなるにつれて増大している。接合率は接合温度 1039°C 以上で 100%となる。

以上の結果から、三層構造の低温ダンパにおいて、ダンパサポート材（高窒素 SUS316L）と中間サポート材（低窒素 SUS316L）の HIP 拡散接合を 1039°C の接合温度で可能とするためには、中間サポート材に窒素含有量が 0.017%以下の低窒素 SUS316L を採用し、その他の接合条件として、表面粗さ $0.07 \mu\text{m}$ 以下、加圧圧力 130 MPa 以上、加圧時間 4 h 以上を採用する必要がある。

(a) Bonding strength

(b) Elongation

(c) Bonding ratio

Fig. 12 Influence of bonding temperature on bonding tensile properties at -196°C .

3.3.3 三層構造低温ダンパの HIP 拡散接合

三層構造低温ダンパの HIP 拡散接合は真空容器を形成した後、加熱脱気（400℃で 8 h）および封止処理を実施した。

その後、次のような条件で HIP 拡散接合を実施した。ダンパサポート材には窒素含有量が 0.19%の高窒素 SUS316L を、中間サポート材には窒素含有量が 0.003%の低窒素 SUS316L を、ダンパ材には無酸素銅を用い、表面粗さ Ra 約 $0.07\ \mu\text{m}$ 、接合温度 1053℃、加圧圧力 134 MPa、加圧時間 4h で実施した。Fig.13 に HIP 拡散接合が完了した三層構造低温ダンパの外観を示す。

HIP 拡散接合後に目視検査で脱気管のパイプが完全に潰れていることから HIP 中に加圧圧力が正常に作用していたことが確認された。またダンパサポート材（高窒素 SUS316L）と中間サポート材（低窒素 SUS316L）との間およびダンパサポート材（高窒素 SUS316L）とダンパ材（無酸素銅）との間を超音波探傷検査した結果、未接合部は認められなかった。さらに、三層構造低温ダンパが 70MW 級超電導発電機に組み込まれて、超電導発電機としての短絡実証試験を経験⁵⁾した後に、三層構造低温ダンパを解体し、ダンパサポート材（高窒素 SUS316L）と中間サポート材（低窒素 SUS316L）の接合部分から引張試験片を採取して、22℃の室温と-196℃の低温で接合部引張試験を各 4 本実施した。その結果、全ての接合部引張試験片は母材破断を示した。接合部引張強さは 22℃の室温で 463~476MPa、-196℃の低温で 980~998MPa であった。

Fig. 13 Appearance of the three-layer-type low-temperature damper after HIP diffusion bonding.

4. まとめ

70MW 級超電導発電機の低温ダンパにおける 316L 系オーステナイト鋼の拡散接合に及ぼす接合条件および含有窒素量の影響について検討し、以下の結論を得た。

(1) N 量が 0.16%の高窒素 316L 同士の拡散接合では、表面粗さ Ra を $0.18\ \mu\text{m}$ 以下、接合温度 1050℃、加圧時間 3 h の場合、加圧圧力 100 MPa 以上とすると、室温での接合部引張での破断位置が母材となる。

(2) 上記の拡散接合条件を満たさない場合には、室温での接合部引張での破断位置が接合面となる。その原因は、接合面の一部に酸化物が存在するためである。

(3) N 量が 0.18%の高窒素 316L 同士の拡散接合では、表面粗さ Ra 約 $0.07\ \mu\text{m}$ 、接合温度 1028℃、加圧圧力 131 MPa、加圧時間 4.7 h の場合、接合率は室温では 100%であるが、-196℃では 50%に低下する。-196℃では、接合面近傍でマルテンサイトの生成により延性が低下したと推定される。

(4) N 量が 0.19%の高窒素 316L と、N 量が 0.017%の低窒素 316L との組み合わせで、表面粗さ Ra $0.07\ \mu\text{m}$ 、加圧圧力 130 MPa、加圧時間 4 h の場合、接合率が -196℃で 100%となるのは接合温度 1039℃以上である。

(5) N 量 0.19%の高窒素 316L のダンパサポート材と、N 量 0.003%の低窒素 316L の中間サポート材との組み合わせで、表面粗さ Ra 約 $0.07\ \mu\text{m}$ 、接合温度 1053℃、加圧圧力 134 MPa、加圧時間 4h の HIP 処理により三層構造低温ダンパを製作できた。

なお、本研究は主に通商産業省（現経済産業省）工業技術院（現独立行政法人産業技術総合研究所）ニューサンシャイン計画「超電導電力応用技術開発」の一環として、新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）からの受託により実施したものである。

参 考 文 献

- 1) T. Kaiho, K. Ueda and M. Sunada: "Status of research and development for practical use of superconducting generator", Electrical Review (1989) 948-956 (in Japanese)
海保勝之, 植田清隆, 砂田正和: 「II 超電導発電機の実用化に向けた研究開発状況」, 電気評論, No.10 (1989) 948-956
- 2) O. Ohashi, K. Tanuma and T. Kimura: "Behavior of oxide film on intimate contact zone of diffusion-weld", Quarterly Journal of the Japan Welding Society 4 (1986) 53-59 (in Japanese)
大橋 修, 田沼欣司, 木村 隆: 「拡散溶接部の密着部での酸化被膜の挙動」, 溶接学会論文集 4 (1986) 53-59
- 3) S. Shimada, R. Ogawa and T. Horiuchi: "Effects of aging on cryogenic mechanical properties of low carbon austenitic stainless steels", TEION KOGAKU 22 (1987) 265-271 (in Japanese)

嶋田雅生，小川陸郎，堀内健文：「低炭素オーステナイト鋼の極低温での機械的性質に及ぼす時効の影響」，低温工学 **22** (1987) 265-271

- 4) E.P. Butler and M.G. Burke: “Chromium depletion and martensite formation at grain boundaries in sensitised austenitic stainless steel”, Act. Met. **34** (1986) 557
- 5) Engineering Research Association for Superconductive Generation Equipment and Materials: “Super-GM technologies for our future” (1999)
- 6) Engineering Research Association for Superconductive Generation Equipment and Materials: “Summary of Super-GM review” (1999) (in Japanese)
超電導発電関連機器・材料技術研究組合：「Super-GM Review 総括版」(1999)

森 誉 延 昭和 22 年 10 月 24 日生。昭和 46 年同志社大学工学部機械工学科卒業。昭和 48 年同大学院機械工学専攻修士課程修了。昭和 48 年(株)日立製作所日立研究所入社。超電導発電機およびタービン発電機の材料開発に従事。低温工学協会，日本金属学会会員。工学博士。

佐 藤 宏 昭和 26 年 5 月 31 日生。昭和 45 年秋田工業高等学校冶金科卒業。昭和 45 年(株)日立製作所日立研究所入社。超電導発電機およびタービン発電機の材料開発に従事。溶接学会会員。