

耐熱鋳鋼の拡散接合部の高温特性

論文

和田 洋二*・西尾 一政*²・加藤 光昭*²
迎 静雄*²・大坪 幸彦*

High Temperature Characteristics of Diffusion Bonds of Heat Resisting Steel Castings

Yoji WADA, Kazumasa NISHIO, Mitsuaki KATO,
Shizuo MUKAE and Yukihiro OHTSUBO

Synopsis:

In order to apply diffusion bonding to a radiant tube made of heat resisting steel castings, the relation between bonding strength of joints and Ni content in insert metals has been investigated. Then the bonding strength was evaluated by tensile tests at 1273 K as well as creep rupture tests of 1273 K-9.8 MPa.

Quantity of voids caused with kirkendall effect at the bonded zones heated at 1273 K either for 1800 ks or 1224 ks in N₂ gas has been investigated.

The results obtained are summarized as follows:

(1) The joints were bonded with the insert metal of Ni foil or Fe-Ni alloy varied from 10% to 45% of Ni contents in order to improve the bondability. Their tensile strength as bonded was hardly affected with Ni contents. On the contrary, quantity of voids gradually increased in proportion to the difference between Ni contents in the base metal and the insert metals after heating of 1273 K×1800 ks.

(2) The joint bonded without an insert metal was as excellent as the base metal in the creep strength and the tensile strength.

(3) The joint bonded with the insert metal of similar composition to the base metal was as almost strong as the base metal in the high temperature properties.

(4) Concerning with bonding atmosphere, the joint bonded in N₂ gas was as almost strong as that bonded in vacuum in the high temperature properties.

Key words: casting; creep; diffusion bonding; insert metal; high temperature properties; kirkendall effect.

1. 緒 言

製鉄設備の中で、自動車用鋼板等の薄板の熱処理を行う連続焼鈍設備に設置されているラジアントチューブ (Radiant tube) は、およそ 1273 K の高温の窒素ガス雰囲気中で使用されるため高C-高Cr-高Ni 耐熱鋳鋼が使用されることが多い。さらに苛酷な条件下で使用される Ni 基超合金は、Al および Ti を多く含有するために、鋳造によって造られているものが多い¹⁾。これらの材料を溶融溶接することは凝固割れなどの問題から困難なため²⁾、急冷凝固合金をインサート材に用いて拡散接合する方法などが提案されている³⁾。しかし、拡散接合部が

高温中に長時間さらされた場合の接合部のクリープ特性の変化について検討された報告はほとんど見当たらない。また被接合材の組合せによっては、接合部においてカーケンドールボイド⁴⁾⁵⁾が生じることがあるが、このカーケンドールボイドの量と接合部のクリープ特性の関係についての報告も少ないようである。

一方、通常ラジアントチューブの接合には、母材と合金の溶加材を用いたティグ溶接が適用されているが、この場合しばしばクレター割れ⁶⁾が発生するので、現状ではこれの手直しのために多くの労力を費やしている。また、ティグ溶接を行う際には、ラジアントチューブの寸法精度を確保するために、組立時に大掛かりな拘束を

平成元年 4 月本会講演大会にて発表 平成 2 年 5 月 11 日受付 (Received May 11, 1990)

* 山九(株)技術開発部 (Technical Development Dept., SANKYU INC., 16-1 Tsukijimachi Yahatanishi-ku Kitakyushu 806)

*² 九州工業大学工学部 工博 (Faculty of Engineering, Kyushu Institute of Technology)

加えたり、溶接順序に配慮しなければならない。

拡散接合法は母材を溶融しないで接合する方法であるために、高温割れが発生しやすい材料の接合に有効であり、精密接合が可能であることが知られている⁷⁾。そこで著者らは、ラジアントチューブに使用される耐熱鋳鋼 SCH22 の接合に対して拡散接合法を適用することによって、溶接割れの防止及び変形防止ができると考え、本法の適用を検討した。ここでは、実用的な拡散接合条件の把握を行うとともに、接合部に生成されるカーケンドールボイドおよび高温クリープ特性とインサート金属の関係について検討した。

2. 供試材料および実験方法

2.1 供試材料

被接合材は JIS G5122 SCH22 (金型遠心铸造管) $\phi 194 \times t 10$ から直径 8 mm, 長さ 40 mm の丸棒試験片を採取して使用した。その化学組成および引張強さを Table 1 に示す。インサート金属としては、純 Ni 箔 (厚さ 10 μm), Fe-45%Ni 箔 (厚さ 100 μm), Fe-31%Ni 箔 (厚さ 100 μm), SUS304 箔 (厚さ 100 μm) および SUS310S 箔 (厚さ 250 μm) の市販のものを使用した。その化学組成を Table 2 に示す。

2.2 実験方法

被接合材の接合端面をエメリー紙 1000 番で研磨し、アセトン洗浄後、直接接合またはインサート金属を用いて、端面を突き合わせて、真空中 (5.3×10^2 Pa) または窒素ガス雰囲気中で高周波誘導加熱を行って接合した。真空中で接合を行う場合の接合温度および接合時間は、それぞれ 1123 K から 1273 K, および 0.3 ks から 1.8 ks とした。また窒素ガス中で接合を行う場合の接合温度および時間は、それぞれ 1373 K および 1.8 ks

Table 1. Chemical compositions and high temperature tensile strength of material used.

Chemical compositions (wt%)							
C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo
0.39	0.78	1.30	0.026	0.020	19.59	24.95	0.12
Tensile strength at 1273K (MPa)						100	

Table 2. Chemical compositions of insert metals used (wt%).

Insert metals	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Co
Ni*	—	—	—	—	—	99.5	—	—
SUS304	0.049	0.53	1.20	0.024	0.006	8.52	18.00	—
SUS310S	0.079	0.64	1.66	0.011	0.002	19.14	24.80	—
Fe-31Ni	0.016	—	0.07	—	—	32.67	—	5.60
Fe-45Ni	0.009	—	0.80	—	—	45.95	—	0.23

* Catalog data

とした。接合圧力は、接合材の両端を拘束することにより、加熱したときに生じる熱応力を利用した。接合状態は、光学顕微鏡によって観察すると共に、EPMA によってインサート金属中の溶質元素の拡散状況を調査した。さらに、接合体が高温中に長時間さらされた場合の接合部の挙動を調べる目的で、実機の使用環境の 1273 K で窒素ガス雰囲気中において 112 ks から 1800 ks の間加熱した。接合部に生成されたボイドの面積率は、Fig. 1 に示すようにボイドの最も多い場所において、観察領域 $50 \times 200 \mu\text{m}$ を 400 倍で 20 視野について、画像解析によって求めた。接合条件と接合強度との関係は、Fig. 2 (a) に示す形状の試験片を用いて、1273 K で大気中に

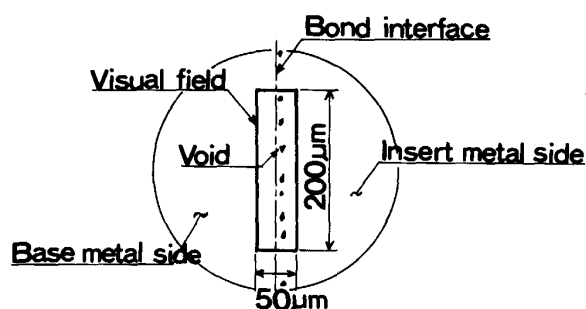
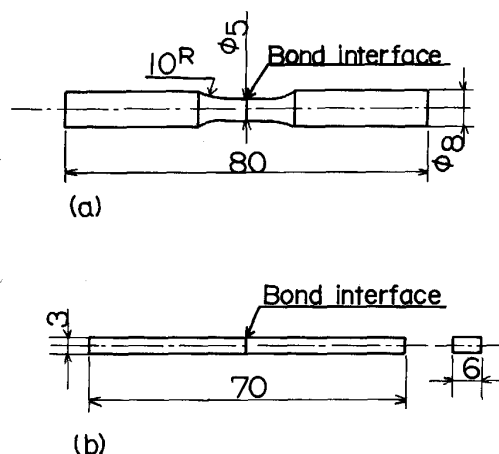


Fig. 1. Schematic illustration of the way observing voids.



(a) Tensile test and creep rupture test specimen
(b) 4-point bend test specimen

Fig. 2. Shape of mechanical testing specimens.

における高温引張試験および 1273 K-9.8 MPa におけるクリープラプチャテストによって評価した。また、実機には主として曲げ応力が作用していることを考慮して、直接接合材および SUS310S 箔をインサート金属に用いた接合材から Fig. 2(b) に示す形状の試験片を採取し、1273 K の窒素ガス雰囲気中で、4 点曲げ試験を行った。曲げ応力は、実機にかかる応力 2.9 MPa を上回る 3.6 MPa とし、1800 ks 間負荷した後のたわみ量 (δ mm) を、Fig. 3 に示す位置において測定した。

3. 実験結果および考察

3.1 直接接合材および Ni 箔をインサート金属に用いた接合材の強度

(1) 室温における引張強度

直接接合ならびに鉄鋼材料の接合においてインサート金属としてよく使用される Ni 箔を用いて、真空中で接合した場合の接合材の室温における引張試験の結果を Fig. 4 に示す。接合温度が 1273 K、接合時間が 1.8 ks の条件で接合した接合材の接合強度は直接接合の場合が 624 MPa、Ni 箔を用いた場合が 575 MPa とその引張強さに若干変動がみられるが、いずれの場合も引張破断は母材内で生じた。この場合の接合部の As bonded の状態のミクロ組織を Photo. 1a) および b) に示す。直接

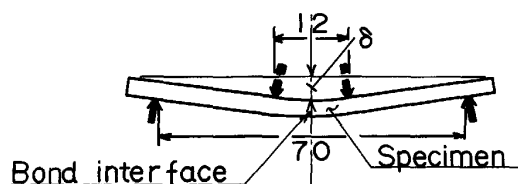


Fig. 3. Schematic illustration of measuring the displacement of 4-point bend test specimens.

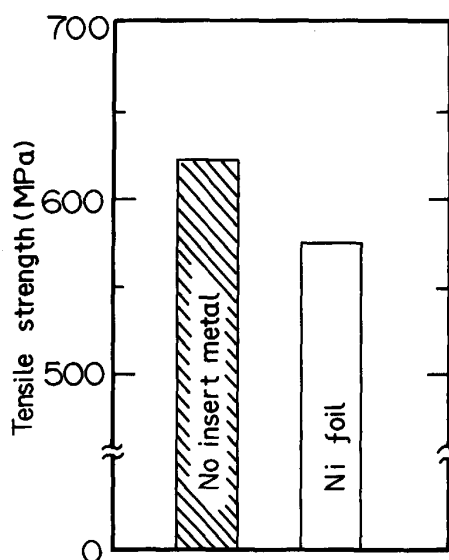
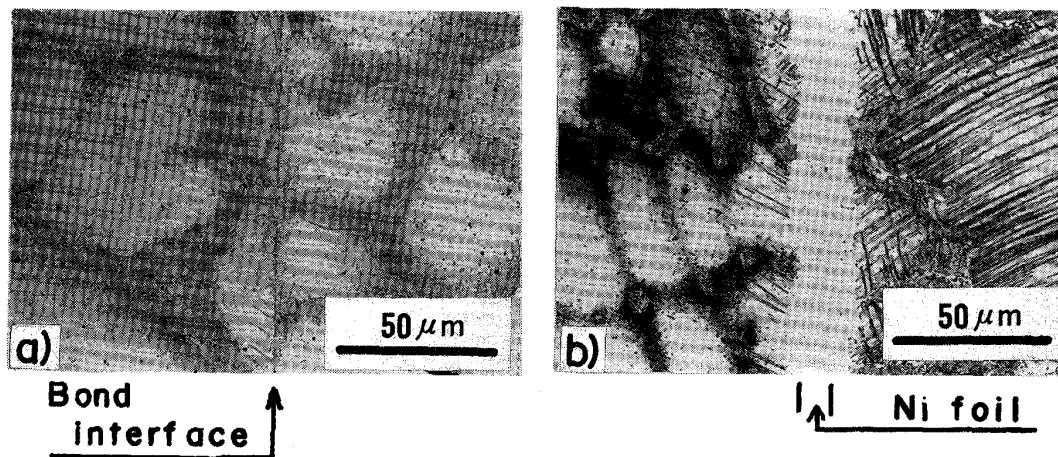


Fig. 4. Room temperature tensile strength of joints bonded directly and with the insert metal of Ni at 1273 K for 1.8 ks in vacuum.



a) Bonded directly b) Bonded with Ni

Photo. 1. Microstructures of bonded zones as bonded.

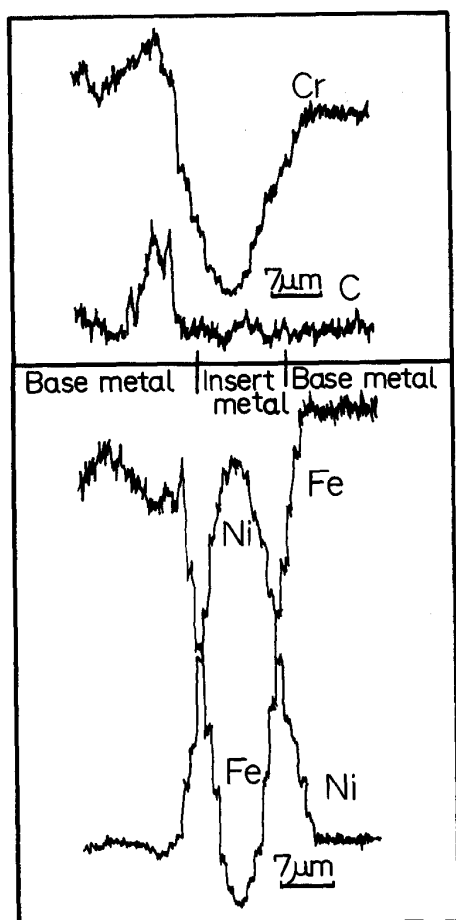


Fig. 5. EPMA analyses of joints with the insert metal of Ni as bonded.

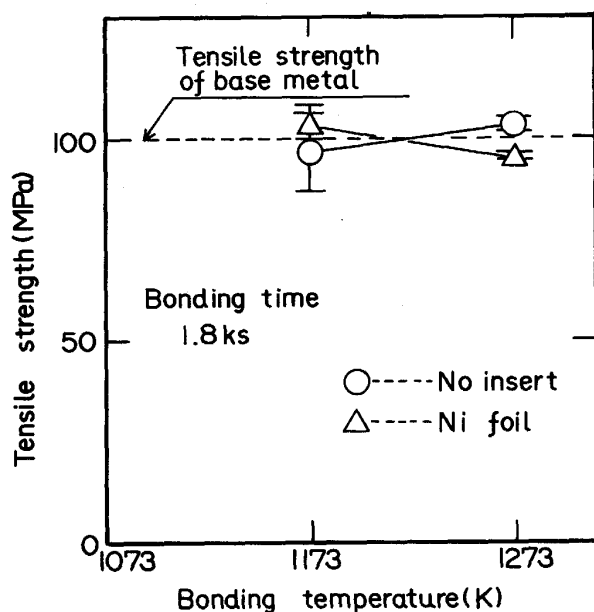


Fig. 6. Tensile strength of joints bonded directly and with the insert metal of Ni at 1273 K.

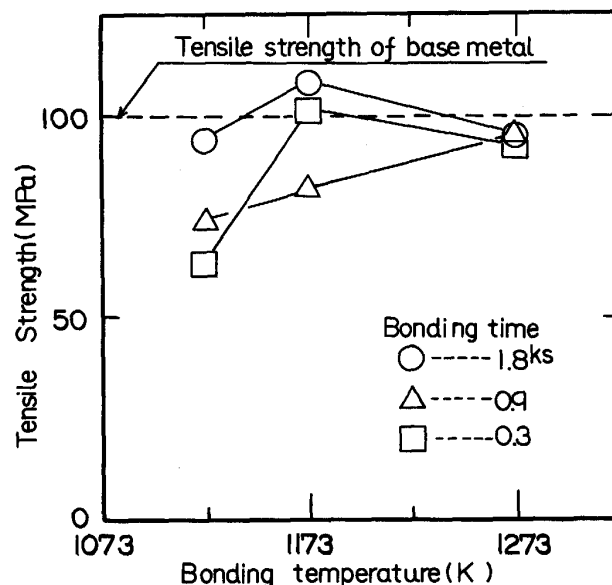


Fig. 7. Relation between bonding conditions and tensile strength of joints bonded with the insert metal of Ni at 1273 K.

る。そして、その引張破断は接合部であった。

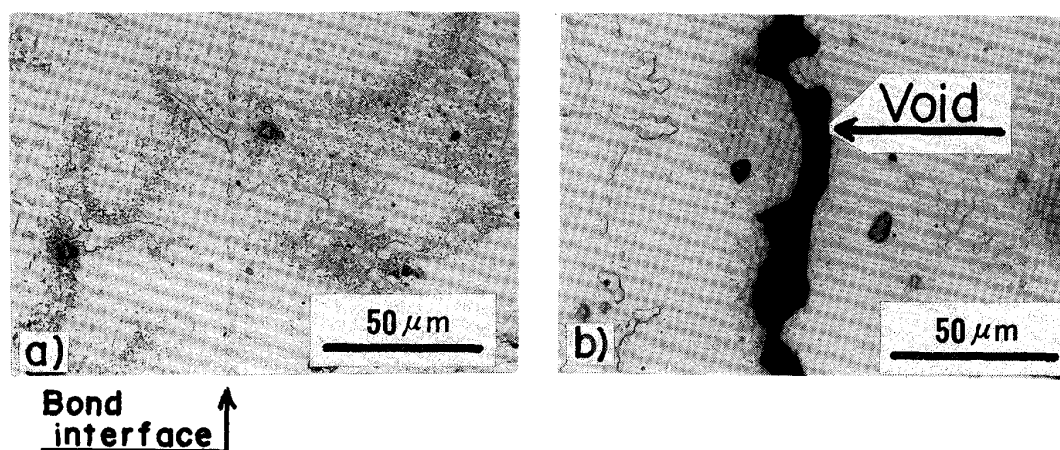
(3) 接合条件と接合強度の関係

真空中における接合において、接合条件と接合強度の関係を調べるために、Ni 箔をインサート金属に用いて、接合温度と接合時間を変化させて接合を行った。その接合強度を、実機の使用温度の 1273 K における高温引張試験によって評価した結果を Fig. 7 に示す。接合時間が 1.8 ks と長い場合の接合強度は、接合温度の影響が小さく、母材強度と同等の高い値が得られる。これに対して、接合時間が 0.9 ks 以下の場合の接合強度は、接合温度が 1123 K の場合には、母材よりも 35 MPa 程度低くなっているが、1273 K まで接合温度を上げると、いずれも母材強度と同等の値が得られる。

3.2 高温長時間加熱後の接合界面の状態変化

(1) Ni 箔をインサート金属に使用した場合

次に、実機の稼動条件を考慮して、実際の使用環境に類似した条件で加熱した後の接合部の状況を調べた。真空中において、直接接合および厚さ 10 μm の Ni 箔を用いて、1273 K で 1.8 ks の条件で接合を行った接合材に対して、窒素ガス雰囲気中において、1273 K で 1224 ks または 1800 ks の加熱を行った接合部のミクロ組織を Photo. 2a) および b) に示す。直接接合の場合は接合部にカーケンドールボイドは全く観察されないが、Ni 箔をインサート金属に用いて接合したものは、接合界面のインサート金属側に多量のカーケンドールボイドが観察される。従って、Ni 箔をインサート金属に用いた場合は、良好な高温クリープ特性は得られないものと



a) Bonded directly b) Bonded with the insert metal of Ni

Photo. 2. Microstructures of bonded zones after heated at 1 273 K either for 1 224 ks or 1 800 ks.

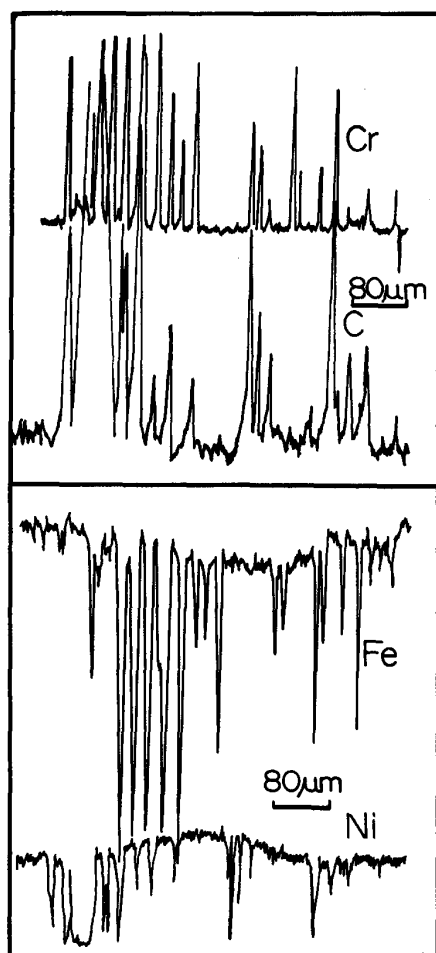


Fig. 8. EPMA analyses of bonded zone bonded with the insert metal of Ni after heated at 1 273 K for 1 800 ks.

考えられる。この接合部を EPMA によって線分析した結果を Fig. 8 に示す。高温加熱を行った接合部では、

Fig. 5 に示した As bonded の結果と比較すると、Ni, Cr および Fe が広く拡散している。Cr 濃度は Ni 箔内および母材中においてほぼ均一化しているが、Ni 濃度と Fe 濃度は均一化していない。インサート金属の中心部における Ni 濃度は約 24%、Cr 濃度は約 25% であり、Ni 濃度の均一化に伴う拡散は、少なくとも 1 800 ks 後も継続していることが分かる。また Fe 中の Ni の拡散係数は、Ni 中の Fe の拡散係数より大きいこと⁸⁾などから Photo. 2b) に示したように、Ni 箔を用いて接合した場合には、カーケンドールボイドが生成した。

(2) Fe-Ni 系合金箔をインサート金属に使用した場合

インサート金属中の Ni 含有量とカーケンドールボイドの生成量との関係を調べるために、Ni 含有量を 10% から 45% まで変化させた Fe-Ni 系合金箔をインサート金属に用いて接合を行った。接合は真空中で、1 273 K の温度で 1.8 ks 行った。

ここで、窒素ガス雰囲気中において、接合温度が 1 373 K、接合時間が 1.8 ks の条件で直接接合した結果、真空中で接合した場合と同様の高温引張強度が得られたので、以下の実験では、窒素ガス雰囲気中においても接合を行った。

まず、真空中および窒素ガス雰囲気中で Fe-Ni 系インサート金属を用いて接合した場合の高温引張強さを調査した。そして、その結果を Fig. 9 に示す。As bonded の高温引張強さは、いずれの Ni 含有量においても 95 MPa から 100 MPa であり、純 Ni 箔の場合は 95 MPa と若干低いものの、Ni 含有量の有意性はほとんど認められない。

真空中で、インサート金属中の Ni 含有量を 10% か

ら 45% まで変化させて接合したときの, 1273 K で 1800 ks, 窒素ガス雰囲気中で加熱を行った後の接合部のミクロ組織を, Photo. 3 a), b), c) および d) に示す. 母材中の Ni 含有量は約 20% であるが, インサート金

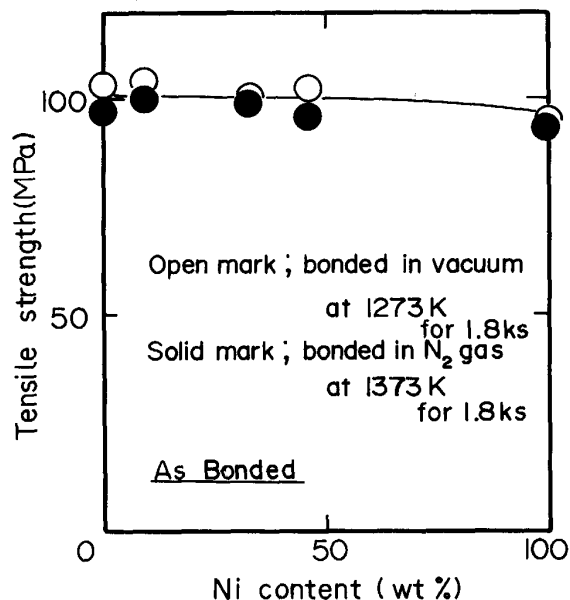
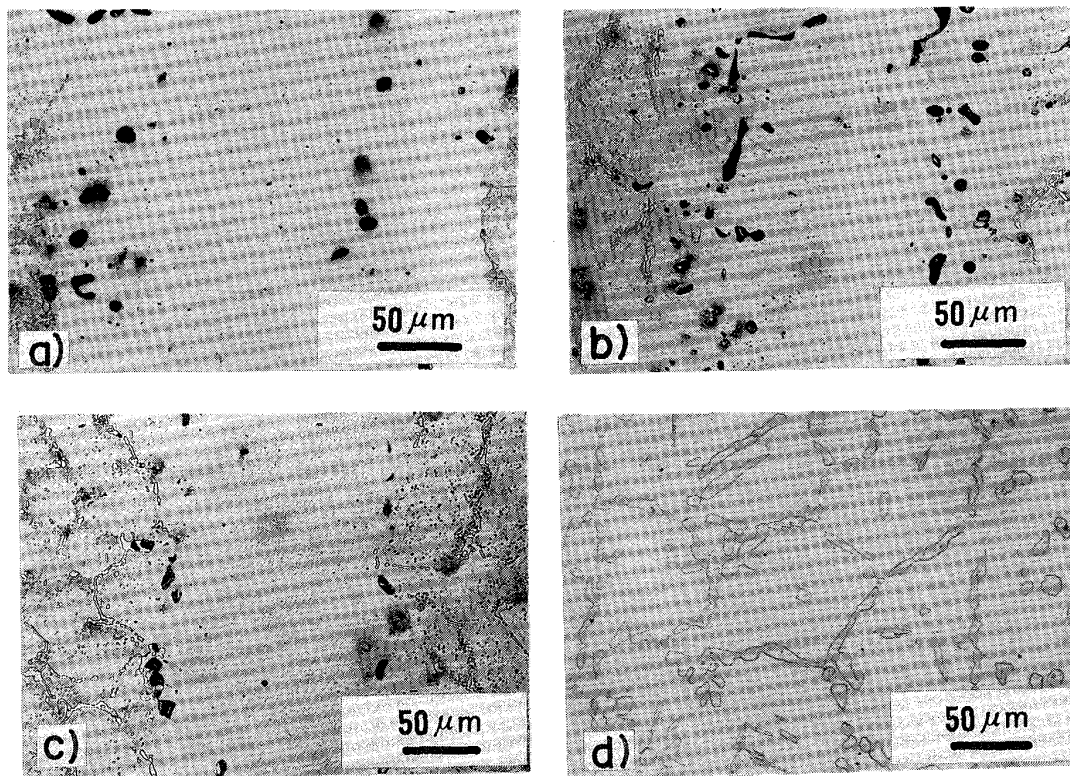


Fig. 9. Relation between Ni contents in the insert metal and tensile strength of joints at 1273 K.

属中の Ni 含有量と母材中のそれとの差が最も大きい Fe-45%Ni 箔を用いた接合材においては, Photo. 3 a) に示すように, 多量のカーケンドールボイドが観察される. Fe-31%Ni 箔および SUS304 箔 (Ni 含有量が約 9%) とその差が小さくなると, Photo. 3 b) および Photo. 3 c) に示すように, カーケンドールボイドの生成量が減少することが分かる. さらに, 母材とはほぼ共金の SUS310S 箔 (Ni 含有量が約 19%) を用いて接合した場合は, Photo. 3 d) に示すように, 接合界面にカーケンドールボイドの生成はほとんど認められない. 本研究では, 1800 ks 加熱後にカーケンドールボイドが発生しない場合は, その後もカーケンドールボイドが発生しないものとみなしたが, さらに長時間加熱した接合部についても検討する必要があると思われる.

Fig. 10 はインサート金属中の Ni 含有量とカーケンドールボイドの面積率の関係を, Larson-Miller のパラメーターを用いて整理したものである. ボイドの生成量はいずれの Ni 含有量においても, Larson-Miller のパラメーターで整理できることが分かる. なお, Photo. 3 で認められたカーケンドールボイドの生成量は, $P=22.5$ の目盛上で示されている. インサート金属中の Ni 含有量と母材中のそれとの差が大きくなると, ボイドの



a) Bonded with Fe-45%Ni b) Bonded with Fe-31%Ni c) Bonded with SUS304 d) Bonded with SUS310S

Photo. 3. Microstructures of bonded zones bonded with insert metals of Fe-Ni alloys after heated at 1273 K for 1800 ks.

面積率が增大する傾向が認められる。

3.3 高温クリープ特性

カーケンドールボイドと高温クリープ特性との相関を調べるために、接合温度が 1 373 K、接合時間が 1.8 ks の条件で窒素ガス雰囲気中で接合した直接接合材および SUS310S 箔を用いた接合材を準備した。さらに、接合温度が 1 273 K、接合時間が 1.8 ks の条件で真空中において、Ni 箔をインサート金属に用いて接合を行った。これらの接合材について、1 273 K-9.8 MPa の試験条件

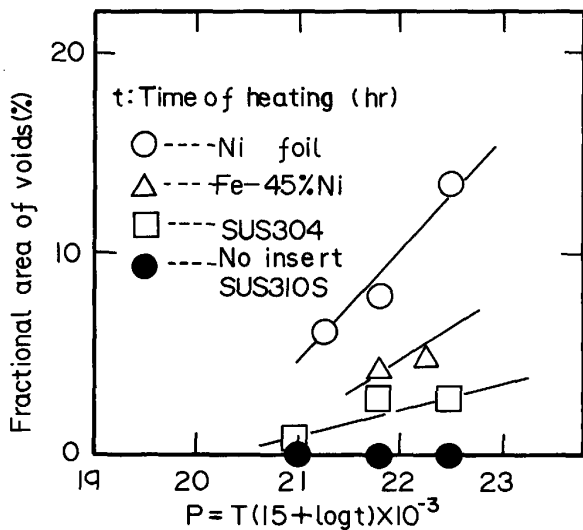


Fig. 10. Relation between Larson-Miller's parameter and fractional area of voids at the bonded zones.

Table 3. Creep rupture time of joints at 1 273 K-9.8 MPa.

Insert metal	Rupture time (ks)
SUS310S foil (No insert)	>1 800
Ni foil (Base metal)	>1 800

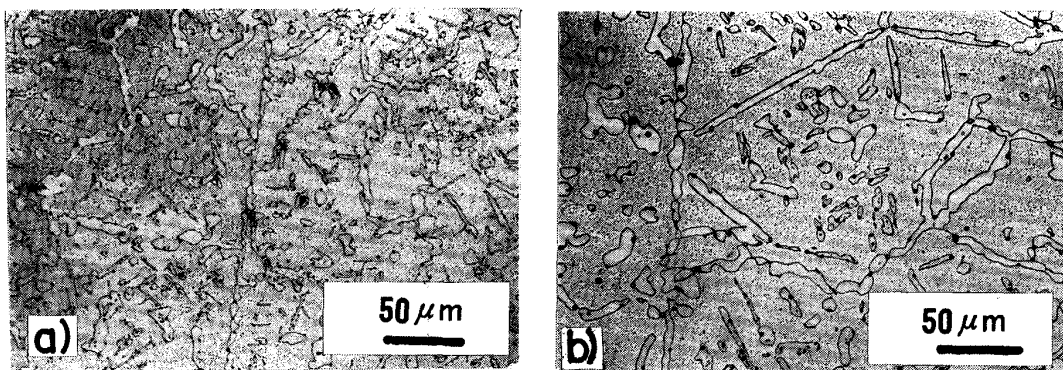
でクリープラプチャテストを行った結果を Table 3 に示す。Ni 箔を用いた接合材は、破断時間が 101 ks と非常に短時間であった。この破断部を光学顕微鏡によって観察したところ、クラックはインサート金属の内部ではなく、ボイドを縫うように走っていた。これに対して直接接合材および SUS310S 箔を用いた接合材は、1 800 ks 後も破断しなかった。これらのことから、高温長時間加熱をしても接合部においてカーケンドールボイドの生成しない直接接合材および SUS310S 箔を用いた接合材は、少なくとも 1 800 ks 経過後のクリープ破断特性が優れていることが明らかになった。

次に、クリープ破断特性が優れていた直接接合材ならびに SUS310S 箔をインサート金属に用いた接合材について、1 273 K の窒素ガス雰囲気中において、4 点曲げ試験を行った結果を以下に述べる。いずれの試験片の曲げ外周部においてもクラックなどの欠陥は観察されなかった。試験片のたわみ量 (δ mm) は、直接接合材が 2.6 mm、SUS310S 箔を用いた接合材が 5.5 mm であった。また Photo. 4 a) および b) に曲げ試験後の接合部のミクロ組織を示すが、いずれの接合部においてもカーケンドールボイドおよびクラックなどの欠陥は観察されない。

以上のように、直接接合材および SUS310S 箔を用いた接合材は、高温クリープ特性が優れていることが分かった。しかし、実機施工のことを考えると、ラジアンチューブの接合端面を、小型試験片のように平坦に仕上げることは困難であると思われる。このことから、直接接合よりも母材と共金系のインサート金属を用いて接合することの方が、有効であると考えられる。

4. 結 言

SCH22 拡散接合部の高温特性におよぼすインサート金属の影響について検討した結果、以下に述べるこ



a) Bonded directly b) Bonded with SUS310S

Photo. 4. Microstructures of bonded zones 4-point bend tested.

明らかになった。

(1) 接合性の改善を意図して、純 Ni 箔および Ni 含有量を 10% から 45% と変化させた Fe-Ni 系合金箔をインサート金属として接合した場合、As bonded の接合材の高温引張強度に対する Ni 含有量の有意性は、ほとんど認められなかった。これらの接合材に対して 1273 K で加熱を行うと、母材とインサート金属間の Ni 含有量の差違が大きいほど、カーケンドールボイドが多量に生成される傾向が認められた。

(2) 直接接合した場合の接合部には、1273 K での加熱後もカーケンドールボイドの生成は認められず、高温引張強度およびクリープ特性において母材とほぼ同等の良好な継手が得られた。

(3) 実用上の観点から、接合面の密着性を確実なものとするために、母材と共金系のインサート金属を用いて接合すると、その接合部は母材とほぼ同等の高温クリープ特性が得られた。

(4) 接合雰囲気については、窒素ガス雰囲気において接合しても、真空中で接合した場合と比較して、接合強度の低下はあまり認められなかった。

従って、拡散接合法をラジアントチューブに適用することが技術的に可能なことが分かった。

文 献

- 1) 鉄鋼材料便覧 (日本金属学会, 日本鉄鋼協会編) (1990), p. 664 [丸善]
- 2) 溶接便覧 (溶接学会編) (1988), p. 1106 [丸善]
- 3) 安田 健, 岡山 昭, 小林 満, 舟本孝雄, 児玉英世, 諏訪正輝: 溶接学会論文集, 7 (1989), p. 407
- 4) 恩沢忠男, 畠山耕太郎, 田村 博: 溶接学会誌, 45 (1976), p. 657
- 5) 益本広久, 芹野正行, 西尾一政, 浅田明弘, 迎 静雄: 溶接学会論文集, 6 (1988), p. 104
- 6) 溶接便覧 (溶接学会編) (1988), p. 982 [丸善]
- 7) 橋本達成, 岡本郁男: 固相接合・ろう付け (1979), p. 96 [産報]
- 8) 金属データブック (日本金属学会編) (1974), p. 25 [丸善]