

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年6月11日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2010～2011

課題番号：22760560

研究課題名（和文）溶接ヒューム生成機構の解明及び形状制御技術の開発

研究課題名（英文）Investigation on fume formation mechanism and development of technique for controlling fume shape

研究代表者

田代 真一（TASHIRO SHINICHI）

大阪大学・接合科学研究所・助教

研究者番号：70432424

研究成果の概要（和文）：

溶接ヒュームとは、アーク溶接中の熔融池や溶接ワイヤー等から蒸発する金属蒸気から発生する、ナノ～マイクロメートルサイズの微粒子である。本課題では、実験と数値シミュレーションの両面から、蒸気圧、蒸気成分、シールドガスの反応性、並びに冷却速度等の影響因子が溶接ヒュームの生成機構に及ぼす影響を解明すると共に、吸入時に人体への危険度が特に高い微小粒子の含有率を低下させ、更に防じんマスクでの捕集率も向上させるための、粒子径・粒子形状の基礎的な制御技術の開発を行った。

研究成果の概要（英文）：

Welding fume is very small particles with size of nanometer or micrometer nucleated of metal vapor from welding wire and weld pool in arc welding. This study clarified influence of metal vapor pressure, metal vapor composition, shielding gas reactivity, cooling rate on welding fume formation process through experiment and numerical simulation in order to develop technique for controlling welding fume shape.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,200,000	660,000	2,860,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・材料加工・処理

キーワード：溶接ヒューム、ナノ粒子、アーク溶接、数値シミュレーション

## 1. 研究開始当初の背景

アーク溶接においては、熔融した溶接ワイヤー先端部、溶滴および母材の熔融池表面より、高温の蒸気が多量に発生する。これが周囲空間へと放出される過程において、酸化を伴い急激に冷却固化され、粒径数 nm～100nm 程度の極めて微細な 1 次粒子が形成される。更にその一部は凝集し、粒径が最大

で数  $\mu\text{m}$  程度となる 2 次粒子が作られ、これらはアーク溶接部から煙状となって放出される。

これらは溶接ヒュームと呼ばれ、溶接作業者が吸入し続けた場合、じん肺等の深刻な健康被害を生じる事が従来より指摘されてきた。特に、粒径が概ね 50nm 以下の、一般にナノ粒子と呼ばれる微細な粒子は、吸入する

と肺組織やリンパ節に沈着し易く、更に一部は肺を通り抜け心臓、脳、生殖器等に達し全身に影響を及ぼすと言われている。近年では、母材及びその接合部の靱性確保の為に添加されるマンガン成分の溶接ヒュームによる、パーキンソン病の発症が報告されている。

これらの対策として、溶接ヒューム吸引装置や防じんマスク等が用いられている。しかしながら、溶接ヒューム吸引装置はアーク気流を擾乱し製品品質を劣化させる上、装置も高価かつ大型である為、使用される環境は限定されており、一方で防じんマスクは安価で広く用いられているものの、微細なナノ粒子については完全な捕集が極めて困難であるのが実情である。

この様に、一刻も早い溶接ヒュームの無害化対策が求められているが、その実現には単に溶接ヒュームの生成量を低減化させるだけで無く、吸入時に人体への危険度が特に高い微小ナノ粒子の含有率を低下させ、更に防じんマスクでの捕集率も向上させる為の粒子径・粒子形状の制御技術も不可欠となる。

## 2. 研究の目的

アーク溶接に関しては、古くから多くの研究が成されているが、その大部分は製品の品質や生産性の向上に主眼が置かれたものであり、作業者の安全性向上に関する研究は重要なが未だ十分とは言えないのが実情である。特に溶接ヒュームについては、国内での研究報告は極めて少ない。一方、国外では近年徐々に研究報告が増えつつあるが、その多くは溶接ヒュームの生成量や粒径及び成分等と、アークの運転条件や溶接ワイヤー成分との関係を実験的に示すに留まっている。これはよく知られているように、アーク溶接では溶接ワイヤーから母材への溶滴移行のサイクルに依存し、金属蒸気濃度や温度分布等の条件が時間的に著しく変化するため、詳細な理論的検討が難しい事に起因する。

本研究の特色は、金属蒸気から溶接ヒュームへの生成機構を解明するために、複雑なアーク溶接現象から当該現象のみ抽出し検討できる点にある。具体的には、チューブ状陰極を備えたプラズマトーチを加熱源として利用し、アーク溶接で主に用いられる反応性の高いアルゴン・二酸化炭素混合シールドガス中において、溶接ワイヤー及び母材の成分と成りうる様々な粉体を原料として注入する事により、模擬的に溶接ヒュームを生成させる。これにより、従来検討が難しいとされてきた、溶接ヒュームの粒子径・粒子形状や成分等に及ぼす蒸気圧、蒸気成分、シールドガスの反応性、並びに冷却速度等の影響因子を個別に調査できる。本研究では、上述の実験に加えて数値シミュレーションも併用することにより、現象の理論的な解明を試みる。

本課題では、実験と数値シミュレーションの両面から、蒸気圧、蒸気成分、シールドガスの反応性、並びに冷却速度等の影響因子が溶接ヒュームの生成機構に及ぼす影響を解明すると共に、吸入時に人体への危険度が特に高い微小粒子の含有率を低下させ、更に防じんマスクでの捕集率も向上させる為の粒子径・粒子形状の制御技術の開発を試みる。本成果は、近年健康被害に対する影響が指摘されている溶接ヒュームの無害化にむけた足がかりとなるものと期待できる。

## 3. 研究の方法

### (1) 実験観察方法

溶接ヒューム発生計測装置は、直流電源、ガスボンベ(アルゴン及び二酸化炭素)、粉体微量供給器、陰極部、陽極部、温度測定用プローブ(熱電対)、ガス流速測定用圧力プローブ、溶接ヒューム捕集用フィルタから構成される。図1にチューブ状陰極を用いた本装置の概略図及び陰極部の詳細を示す。陰極部はチューブ状タングステン陰極と、それを取り巻く2重のセラミックスチューブから構成され、3重のシールドガス導入口を持つ。導入口(a)からは二酸化炭素ガスを、導入口(b)からはタングステン陰極の酸化防止を目的としてアルゴンガスを導入し、導入口(c)からは粉体を混合させたアルゴンガスを導入する。アルゴンガスと二酸化炭素ガスはアークプラズマ中にて十分に混合される。

導入された粉体はアークプラズマ中で加熱、蒸気化され、陰極ジェットにより陽極部側へと輸送される。陽極部は水冷銅とし、中心に穴を設け、下部に蒸気を流出させる。その過程において蒸気は急激に冷却固化され、溶接ヒュームが生成される。陽極部下流に流出した溶接ヒュームはフィルタにより捕集される。この溶接ヒュームを、X線回折パターン分析装置により成分分析し、透過型電子顕微鏡によりその粒子径・粒子形状を計測する。また、温度測定用プローブにより、ヒューム生成領域付近での温度分布を求めることができ、圧力プローブにより測定されたガス圧力より算出されるガス流速と併せて冷却速度を算出できる。空間中の金属蒸気圧は粉体供給量とガス流速の関係から求められる。

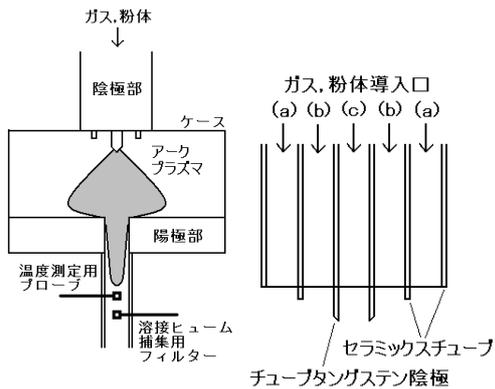


図 1 溶接ヒューム発生計測装置概略図(左)及び陰極部の詳細(右)

## (2) 数値シミュレーション方法

数値シミュレーションモデルは、溶接ヒュームの核生成、凝縮、凝集及び化学反応モデルから構成される。実験条件として定めたシールドガス成分や測定した冷却速度ならびに金属蒸気圧を上記モデルへの計算条件として与え、化学反応による蒸気の成分変化を考慮しつつ、冷却過程における溶接ヒューム生成の機構を調査するとともに、冷却後の溶接ヒュームの特性を算出し、実験結果との比較検討を行う。以下に各モデルについて簡単に説明する。

### ① 化学反応モデル

ここでは、反応速度定数に基づいて、気相における化学反応による蒸気の成分変化を考慮する。

### ② 均一核生成モデル

本研究では、全ての核が液相で生成されると仮定する Friendlander のリキッドドロップモデルを採用する。均一核生成は過飽和度が 1 を超えた時点から発生し始め、臨界粒子径を持つ球状の核が生成されるものと仮定する。ここで、臨界粒子径とは核が安定して存在し得る最小の径である。

### ③ 不均一凝縮モデル

粒子の成長が不均一凝縮により支配される時、単位時間あたりの粒子径の成長速度を表す不均一凝縮速度は粒子表面における物質の蒸発と凝縮とのバランスにより決定される。

### ④ 凝集モデル

本凝集モデルでは、発生した粒子を凝集モデルの計算領域内に配置し、その運動や衝突を追跡することにより凝集過程を検討する。この領域サイズは、一次粒子の計算によって得られた粒子数密度から決定される。領域内

に配置する最大粒子数を 1,000 個とし、これらが存在する領域サイズを逆算した。ここで、一次粒子モデルの計算による粒子数密度は三次元の値として求められるが、それでは計算時間が長時間にわたるために、三次元粒子数密度を  $2/3$  乗することにより、簡易的に二次元へと次元を変換し計算することとした。

計算の流れは次のようになる。まず、一次粒子モデルの計算により核生成が生じた時、粒子は領域内に配置され、初速度、運動方向が与えられる。位置と運動方向はランダムに与えられる。粒子の運動速度はブラウン力や静電気力の影響を受け変化する。粒子同士の衝突の前後では運動量が保存される。凝集の際の化学反応はないものと仮定し、粒子間での衝突が起きたときには必ず合体するとした(付着係数を 1 とした)。ただし、衝突し合体する際には、粒子の融点よりも高い温度の場合液状のため体積を保存した一つの球体になり、融点以下の場合、固体のためそのままの形を保持して合体することとした。また、領域境界から逸脱した粒子については、対向境界から、逸脱時と同じ速度ベクトルで再び入射させることとした。

また、凝集過程における粒子温度はプラズマと粒子間の伝熱により求められる。粒子の温度はプラズマ中の粒子の衝突による熱輸送と放射によるエネルギー損失のエネルギーバランスを解くことによって得られる。

### (3) 実験条件及び計算条件

蒸気成分は溶接ワイヤーや母材に含まれる主成分である鉄を中心とし、添加物となる他成分についても検討する。アルゴン-二酸化炭素混合ガスについては、酸化の影響が無視できる純アルゴンガスから、酸化の影響が大きくなる純二酸化炭素ガスに近い条件まで、段階的に混合比を変化させ、反応性が溶接ヒューム特性に及ぼす影響を調査する。金属蒸気圧及び冷却速度は粉体供給量、入力電流及び導入ガス流量等により制御し、その影響についても検討する。

## 4. 研究成果

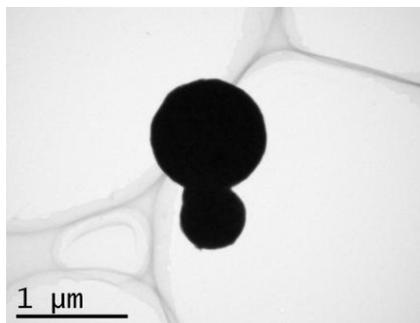
本報告書では本課題における研究成果の一部として、鉄を蒸気成分とした場合の、金属蒸気圧ならびにシールドガスの反応性がヒュームの粒子径及び形状に及ぼす影響について検討した結果について報告する。

### (1) 金属蒸気圧の影響

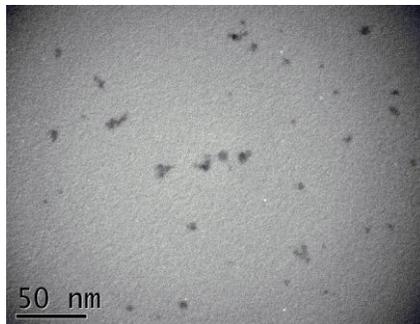
図 1 に示した陰極部の導入口(b)からアルゴンガスを 5l/min で導入した。また、導入口(c)からは流量 1l/min のキャリアガスとともに、蒸気原料となる粒子径約  $5\mu\text{m}$  の純鉄の粉体を供給した。電流値は直流 140A とした。

供給された粉体はアークプラズマ中で加熱、蒸気化され、陰極ジェットにより陽極部側へと輸送される。陽極部の中心穴より下部に流出した蒸気は、その過程において急激に冷却固化されて溶接ヒュームとなり、下流域に配置されたフィルタにより捕集された。その後、透過型電子顕微鏡により溶接ヒュームの粒子径・粒子形状を計測した。また、温度測定用プローブによりヒューム生成領域付近での温度分布を求め、圧力プローブにより測定されたガス圧より算出されるガス流速と併せて冷却速度を算出した結果、約  $10^5 \text{K/s}$  の冷却速度が得られた。また、空間中の金属蒸気圧は粉体供給量とガス流速の関係から求められた。ここでは、金属蒸気圧がヒュームの粒子径及び形状に及ぼす影響を検討するため、金属蒸気圧が約 20,000Pa 及び約 100Pa となる 2 条件について実験を行った。

図 2 に透過型電子顕微鏡により得られた溶接ヒュームの粒子径・粒子形状を示す。金属蒸気圧が約 20,000Pa と高い場合、粒子は主として球状となり、その大きさはマイクロメートルのオーダーとなることがわかる。一方で金属蒸気圧が約 100Pa と低い値である場合は、凝集後の二次粒子の径状は、数ナノメートル程度の一次粒子が鎖状に凝集したものとなり、全体の大きさは数十ナノメートルとなることが明らかとなった。



(a) 20,000Pa



(b) 100Pa

図 2 透過型電子顕微鏡により得られた溶接ヒュームの粒子径・粒子形状

この様に、粒子の形状や大きさに差異が生じる原因について数値シミュレーションにより検討を行った。図 3 に数値シミュレーションにより得られた、金属蒸気圧 20,000Pa とした場合の、急冷過程における粒子形状の変化を示す。冷却速度は実験観察により得られた値を使用した。

約 2,450K にて核生成が生じ、数ナノメートルの極めて微細な粒子が生成されることがわかる。2,400K では主に不均一凝縮により平均粒子径は約 40nm まで増加する。その後、凝縮及び粒子間での凝集により、二次粒子は数百ナノメートルにまで成長した。これら凝集過程は粒子の融点よりも高温で生じるため、二次粒子は球状を維持したまま成長することがわかる。また、融点以下である 1,600K において、大きな二次粒子同士が鎖状に凝集することにより、1 μメートルを超える二次粒子が形成されることが明らかとなった。

図 4 に金属蒸気圧による粒子径状の変化を示す。これらの結果は 300K まで冷却完了した後の形状を比較したものである。20,000Pa の結果は前述の通りであるが、100Pa では数ナノメートル程度の一次粒子が鎖状に凝集し、全体の大きさは数十ナノメートルとなり、実験結果と良く一致する結果が得られた。

結果として、金属蒸気圧が高い場合、粒子が液相となる高温下で核生成から凝縮に至るプロセスが進行するため、二次粒子は粒子径の大きい球状のものとなることが明らかとなった。

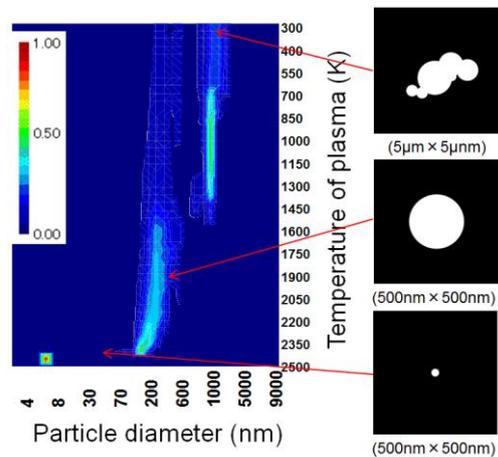


図 3 急冷過程における粒子形状の変化 (20,000Pa)

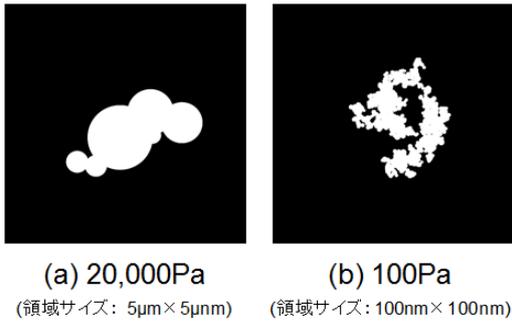


図4 金属蒸気圧による粒子径状の変化

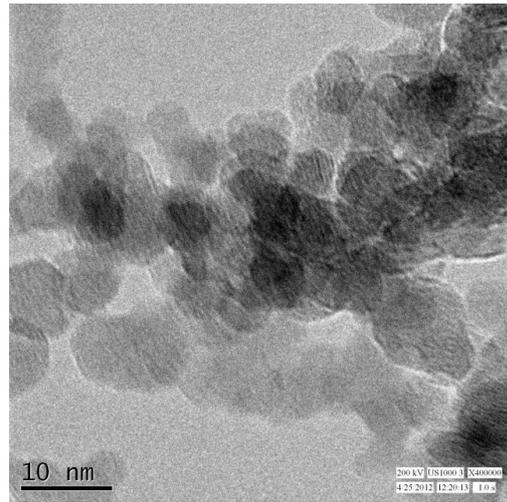
(2) シールドガスの反応性の影響

続いて、シールドガスの反応性がヒュームの粒子径及び形状に及ぼす影響について検討した結果について報告する。ここでは、前述の検討と同じ手順にて実験を行った。ただし、シールドガスについては、純アルゴン及びこれに2%または4%の二酸化炭素を添加したガスを用いた。

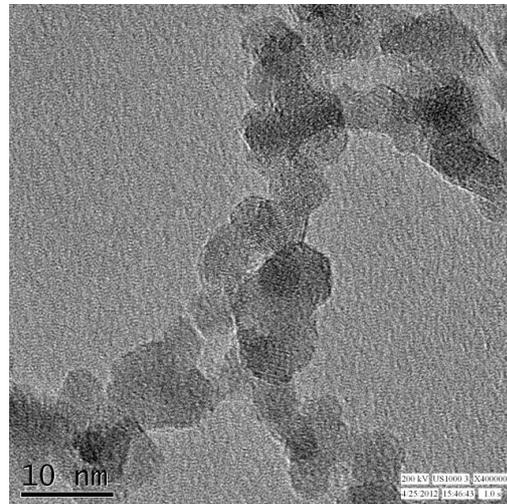
温度測定用プローブによりヒューム生成領域付近での温度分布を求め、圧力プローブにより測定されたガス圧力より算出されるガス流速と併せて冷却速度を算出した結果、約 $10^5$  K/sの冷却速度が得られた。また、空間中の金属蒸気圧は粉体供給量とガス流速の関係から求められ、約300Paとなった。

図5に透過型電子顕微鏡により得られた溶接ヒュームの粒子径・粒子形状を示す。いずれの条件においても、二次粒子は鎖状となっていることがわかる。これは、前述の結果で得られた知見に基づいて検討すると、金属蒸気圧が低いことから、核生成から凝縮に至るプロセスが粒子が固相となる比較的低温にて進行していることを示唆している。純アルゴンでは粒子径は最も一次粒子径が大きく、平均粒子径は約7.5nmであった。これに対して、Ar+2%CO<sub>2</sub>では5.2nm、Ar+4%CO<sub>2</sub>では3.0nmと、二酸化炭素の混合率の増加に伴い粒子径が小さくなる傾向が見られた。

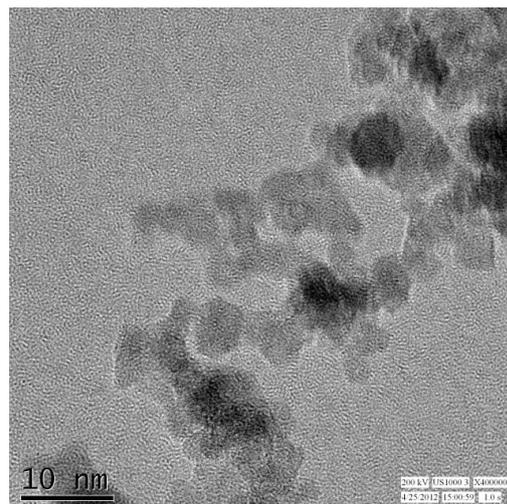
上述の様に、粒子の大きさに影響を及ぼす要因について数値シミュレーションにより検討を行った。図6に数値シミュレーションにより得られた、シールドガスの反応性の影響による粒子径の変化を示す。冷却速度は実験観察により得られた値を使用した。計算結果は実験観察により得られた傾向と一致した。二酸化炭素混合率が増加するほど、気相での鉄蒸気の酸化が進みFeO等の酸化物が生成され易くなり、これに伴い液相時の表面張力が大幅に低下するため、より過飽和度が大きくなる高温域で核生成することが明らかとなった。そして、核の空間数密度が増加する分、一つの核に凝縮できる蒸気量が減少するため、一次粒子径は低下することが示された。



(a) Ar



(b) Ar+2%CO<sub>2</sub>



(c) Ar+4%CO<sub>2</sub>

図5 透過型電子顕微鏡により得られた溶接ヒュームの粒子径・粒子形状

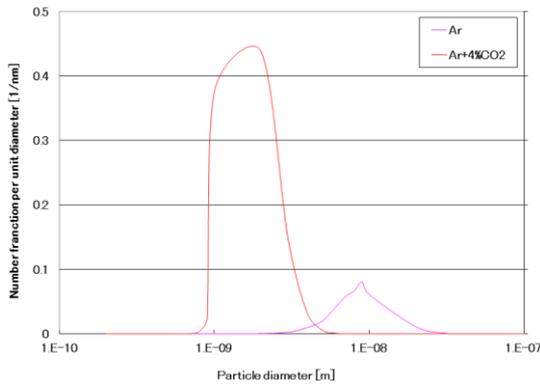


図 6 シールドガスの反応性の影響による粒子径の変化

本課題により、金属蒸気成分やシールドガスの反応性等が溶接ヒュームの生成機構に及ぼす影響等について基本的な知見を得ることができたが、最終的な目標としている粒子径・粒子形状の制御技術の開発には、未だ多くの課題が残されている。今後はこれらをさらに掘り下げていくとともに、溶滴及び溶融池からの金属蒸気の蒸発にはじまり、アーク中での金属蒸気の輸送及び化学反応、そしてヒュームの生成に至る一連の過程を扱うことが可能なシミュレーションモデルを開発し、これを用いてヒューム生成現象を総合的に解明することが必要である。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① Shinichi Tashiro、Tasuku Zeniya、Anthony B. Murphy、Manabu Tanaka、Visualization of Fume Formation Process in Arc Welding with Numerical Simulation、Surface and Coatings Technology、(印刷中)
- ② 田代 真一、銭谷 佑、山本 健太郎、田中 学、中田 一博、Anthony B MURPHY、山本 恵理、山崎 圭、鈴木 啓一、ティグ溶接におけるヒューム生成機構の総合数値解析、溶接学会論文集、査読有、28 巻、(2010)、369~375
- ③ Shinichi Tashiro、Tasuku Zeniya、Kentaro Yamamoto、Manabu Tanaka、Kazuhiro Nakata、Anthony B. Murphy、Eri Yamamoto、Kei Yamazaki and Keiichi Suzuki、Numerical analysis of fume formation mechanism in arc welding、J. Phys. D: Appl. Phys.、査読有、VOL43、(2010)、434012 (12pp)

[学会発表] (計 4 件)

- ① Shinichi Tashiro、Manabu Tanaka、Numerical analysis of fume formation mechanism in GMA welding、Technical Panel 14 "Arc Physics", Wollongong(招待講演)、2011.12.02、Australia
- ② Shinichi Tashiro、Tasuku Zeniya、Anthony B. Murphy、Manabu Tanaka、Visualization of Fume Formation Process in Arc Welding、International Symposium on Materials Science and Innovation for Sustainable Society (ECO-MATES 2011)、2011.11.29、Osaka
- ③ Shinichi Tashiro、Tasuku Zeniya、Anthony B. Murphy、Manabu Tanaka、Visualization of Fume Formation Process in Arc Welding with Numerical Simulation、The 8th Asian-European International Conference on Plasma Surface Engineering (AEPSE2011)、2011.09.20、China
- ④ Shinichi Tashiro、Visualization of Welding Fume Formation Process、The 18th Annual Meeting of Institute of Applied Plasma Science、2011.3.12、Victoria University、Australia

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

田代 真一 (TASHIRO SHINICHI)

大阪大学・接合科学研究所・助教

研究者番号：70432424