ティグ溶接中の電極における添加物の動的挙動シミュレーション*

小西 恭平**, 田中 学***, 茂田 正哉***, 石田 和也***, 黒川 顕稔**,
瀧田 朋広****, 中林 誠治****, 辻 あゆ里*****

Numerical Analysis of Dynamic Behavior of Additives in Electrode During TIG Welding Process*

by KONISHI Kyohei**, TANAKA Manabu***, SHIGETA Masaya***, ISHIDA Kazuya***, KUROKAWA Akitoshi**,
TAKIDA Tomohiro****, NAKABAYASHI Seiji**** and TSUJI Ayuri*****

Consumption of tungsten electrode during TIG welding process is one of unavoidable problems and many studies have been progressed to improve the consumption resistance. In general, some kinds of oxides (ThO_2 , La_2O_3 , Ce_2O_3) are added to the tungsten electrode in order to make the thermionic emission easy and control the electrode temperature below the melting point of tungsten. However, the lifetime of electrode is still limited within a few hours because the additives evaporate and a lack of additives is caused on the electrode surface. In this study, numerical simulations which focus on the evaporation and diffusion phenomena of additives in the electrode were performed in order to clarify a consumption mechanism and identify effective factors for the lifetime of electrode.

As time passed, the mass concentration of additive decreased due to an evaporation phenomenon whereas the additive was supplied from inside to outside of electrode by a diffusion phenomenon. When the degree of coverage of additive decreased, the electrode temperature quickly increased and it reached the melting point of tungsten. The lifetime of electrode was strongly depended on the physical properties of additives such as diffusion constant and melting point of their oxides.

Key Words: Numerical analysis, TIG welding process, Oxide, Lifetime of electrode, Evaporation and diffusion phenomena, Consumption mechanism, Physical properties of additive

1. 緒 言

ティグ (Tungsten Inert Gas: TIG) 溶接は、アークプラズマを利用した非消耗電極式の溶接プロセスであり、溶接入熱と溶加材の供給量を独立して制御でき全姿勢での溶接が容易であることから、ものづくり分野において重要な溶接技術となっている。このティグ溶接では一般的に陰極となるタングステン電極に数 wt.% の酸化物が添加されている。これは電極にタングステンに比べて仕事関数の低い酸化物を添加することで電極からの電子放出を容易にし、電極の動作温度を低下させることで電極の溶融を防ぐためである。しかしながら、長時間のアーク放電やアーク点弧・消弧の繰り返しにより電極が消耗することは避けられず、この課題を解決するためアークスタートの安定性や耐消耗性に優れたより良い電極の研究が進められている。

Sadek ら¹⁾はタングステン電極の消耗に着目し、ティグ溶接試験後の電極先端のマクロ観察を行い、トリア (酸化ト

リウム) やランタナ (酸化ランタン) 等の酸化物の融点および仕事関数が電極の消耗に大きく影響を与えていることを明らかにしている。

田中ら²⁾は高電流条件における電極の消耗試験および試験後の電極表面や断面の観察を行い、長時間アークプラズマを点弧し続けると電極内に空孔形成や酸化物の消失が見られ、それに伴って急激に電極の消耗が進むことを明らかにしている。

さらに近年では数値計算技術の進歩が目覚しく、数値シミュレーションによってアーク溶接プロセスの解析が進められており、ティグ溶接の電極に関する研究も数多く報告されている。

山本ら³⁾は電極、アークプラズマならびに母材を一体化した二次元軸対称モデルを用いて純タングステン電極とトリア入り電極について点弧から5分後の電極の先端形状を模擬した計算を行い、電極の先端形状がアークプラズマ特性に与える影響について考察している。結果として、アーク点弧後すぐに電極の先端が溶融し半球状になる純タングステン電極は、先端が溶融せず尖った形状を維持できるトリア入り電極に比べてアーク圧力およびアークプラズマ中心部の温度が大きく低下した。一方で、電極の最高温度は純タングステン電極で4079 K、トリア入り電極で3776 Kであった。これは Haidar らの実験結果⁴⁾ともよく一致している。つ

*受付日 平成29年1月17日 受理日 平成29年3月11日

**学生員 大阪大学接合科学研究所 Student Member, Joining and Welding Research Institute, Osaka University

***正員 大阪大学接合科学研究所 Member, Joining and Welding Research Institute, Osaka University

**** 株式会社アライドマテリアル A.L.M.T. Corp.

*****正員 株式会社アライドマテリアル Member, A.L.M.T. Corp.

まり、純タングステン電極はトリア入り電極に比べてアークプラズマの温度は低いが電極先端の温度は高く、電極の消耗が激しくなることが示唆された。これはタングステンの仕事関数 4.5 eV がトリウムの仕事関数 2.8 eV に比べて大きいことに起因している。

田中ら⁵⁾はトリア、ランタナおよびセリア（酸化セリウム）入り電極について酸化物の融点を考慮した数値解析モデルを構築し、アークプラズマ特性に関して酸化物の仕事関数だけではなく酸化物の融点も重要であることを示している。

また、溶接施工現場での電極のメンテナンス回数を減らし生産性および経済性を向上させることにおいて電極の長寿命化が課題となっており、上述の研究に加えティグ溶接におけるタングステン電極の寿命評価の研究も進められている。

Casado ら⁶⁾は高電流条件においてジュール発熱がトリア入り電極の寿命に与える影響を電極軸上における添加物の一次元拡散モデルを解くことで評価している。ここでは、電極からのトリウムの蒸発量を計算する上で電極表面におけるトリウムの濃度が重要であることから⁷⁾、表面におけるトリウムの保存式を解きトリウムの蒸発量を表面の温度とトリウムの濃度から求めている。

西山ら⁸⁾はジュール発熱だけでなくプラズマからの熱伝導を考慮したアークプラズマの熱流動解析を行い、電極の形状や電流値の違いが電極の寿命に与える影響を評価している。

これらの電極の長寿命化に関する研究は時間変化に伴う添加物の挙動を定量的に評価し、電極先端における添加物の消失による仕事関数の増大に伴い電極の温度が上昇する現象を捉えている。しかしながら、電極先端において電極表面からの添加物の蒸発速度は内部からの拡散によって供給される速度よりも大きいため、電極軸上での添加物の濃度が電極側面での濃度と一致しないという点は考慮に含まれていない。そのため、これらの研究では電極の寿命を実際よりも長く評価している可能性があり、正確な電極の寿命評価ができていないと言え難い。

本研究では、耐消耗性に優れたより良い電極の開発に向けて、ティグ溶接中の電極における添加物の蒸発および拡散現象について二次元空間での数値シミュレーションを行い、電極表面だけでなく電極内部の添加物の挙動を可視化した。また電極の長寿命化にも着目し、添加物の物性値を変化させることで時間経過に伴う電極の消耗に影響を与える因子を特定し、それらの役割について調査した。

2. 数値解析モデル

2.1 モデルの概要

本研究で構築した数値解析モデルは、電極における添加物の蒸発および拡散現象を取り扱う蒸発・拡散モデルとティグ溶接中におけるアークプラズマ現象を取り扱うティグ溶接モデルを組み合わせた一体化モデルである。Fig. 1 に一体化

モデルで用いた数値計算アルゴリズムのフローチャートを示す。ティグ溶接モデルでは定常状態のアークプラズマ現象を計算し、全ての格子点におけるエンタルピー、流速、圧力および電位について1ステップ前の計算結果との変化が0.1%以下となった場合、計算は収束したと見なし電極の温度分布が出力される。一方、収束条件が満たされない場合、圧力を補正し各支配方程式を解く動作を繰り返し行う。蒸発・拡散モデルは非定常計算であり、まずティグ溶接モデルで計算された電極の温度分布が入力された後、時間を Δt 進め、各計算格子における拡散係数ならびに電極表面となる計算格子における蒸発速度が計算される。ただし、蒸発・拡散モデルの1タイムステップ Δt 内において電極の温度分布は変化しないものと仮定している。本研究において Δt は10秒とした。次に拡散方程式を解くことで各計算格子における添加物の数密度を得る。蒸発・拡散モデルの収束判定はティグ溶接モデルと同様に全ての格子点における添加物の数密度について、1ステップ前の計算結果との変化が0.1%以下かどうかによって行う。この操作を6タイムステップ行った後、収束条件が満たされた場合、各計算格子の添加物の表面占有率から電極の仕事関数が計算され、ティグ溶接モデルへの入力データとして出力される。この一連の計算は蒸発・拡散モデルでの時刻が計算終了時刻になるまで繰り返し行われる。また、本研究で取り扱う2つのモデルは計算格子のサイズおよび数が異なるため、モデル間における温度分布および電極の仕事関数データの輸送にはバイリニア補間を用いた。

Fig. 1 Flowchart of calculation for the unified model

2.2 蒸発・拡散モデル

蒸発・拡散モデルの計算対象は直径3.2mm、電極先端角度60°、先端に直径0.4mmの面取りを施したタングステン電極である。ただし、3.1節では2.0wt.% トリア入りタングステン電極を、3.2節では2.0wt.% トリア入りタングステン電極に加え2.0wt.% ランタナ入りタングステン電極および2.0wt.% セリア入りタングステン電極を想定している。Fig.2に蒸発・拡散モデルの計算領域を示す。蒸発・拡散モデルは二次元円筒座標系の軸対称を仮定しており、軸方向の領域寸法は面取りを施した電極先端から5.0mmとした。Fig.2においてABが面取りを施した範囲である。なお、本稿では以下ABCEで囲まれる範囲を円錐部、OECDで囲まれる範囲を円柱部と呼称する。

電極における添加物の拡散は酸化物ではなく添加元素の原子が拡散するものと仮定し、蒸発速度および拡散係数の計算に必要な物性値は全て添加元素の原子が有する物性値を用いた^{9,10)}。例えば2.0wt.% トリア入り電極の場合、酸化物であるトリウムではなくトリウム原子の物性値を用いた。これは、ティグ溶接中において電極先端部では酸化物がタングステンによって還元され、添加元素の原子になると考えられるからである⁹⁾。

以下に蒸発・拡散モデルで用いる支配方程式を示す。電極での添加物の拡散方程式：

$$\frac{\partial n}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r D(T) \frac{\partial n}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D(T) \frac{\partial n}{\partial z} \right) \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 r は半径方向距離、 z は軸方向距離、 t は時間、 n

は添加元素の原子の数密度、 T は温度である。 $D(T)$ は温度によって決定される拡散係数であり、拡散定数 D_0 、活性化エネルギー Q 、気体定数 R を用いて次式のように定義される。拡散係数に関するアレニウスの式：

$$D(T) = D_0 \exp \left(\frac{-Q}{RT} \right) \quad \dots\dots\dots (2)$$

電極表面において添加物は電子放出に関して大きな役割を担っており、添加物の表面占有率は電極とアークプラズマの境界における電気伝導率を左右する重要な因子である。半径方向および軸方向の添加物の表面占有率は拡散速度や蒸発速度の影響を考慮した以下の式で求められる。ただし、初期状態および酸化物の融点以下においては酸化物の質量濃度から酸化物の体積率を求め電極表面における表面占有率とした。2.3節の電気伝導率の考え方において詳しく記述するが、本研究で想定している2.0wt.%の酸化物入り電極では初期状態の表面占有率は $\varphi = 0.05$ である。

電極表面における添加物の保存式：

(半径方向)

$$N_0 \frac{\partial \varphi_r}{\partial t} = -\gamma_{\text{eff}}(T, \varphi_r) - D(T) \frac{\partial n}{\partial r} \Big|_{r=r^*} \quad \dots\dots\dots (3)$$

(軸方向)

$$N_0 \frac{\partial \varphi_z}{\partial t} = -\gamma_{\text{eff}}(T, \varphi_z) - D(T) \frac{\partial n}{\partial z} \Big|_{z=z^*} \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで、 φ_r および φ_z は半径方向および軸方向の添加物の表面占有率、 N_0 は電極表面における添加元素の原子の単位表面積あたりの初期数密度、 γ_{eff} は添加物の正味の蒸発率、 r^* および z^* は半径方向および軸方向の終端の座標である。本研究では初期数密度は $N_0 = 4.2 \times 10^{18} \text{ m}^{-2}$ とした¹¹⁾。

添加物の蒸発率：

$$\gamma_{\text{eff}}(T, \varphi) = \varphi \varepsilon \gamma_0(T) \exp \left(-\frac{eH(\varphi)}{k_B T} \right) \quad \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 ε は吸着を考慮した蒸発に用いる定数、 $H(\varphi)$ は吸着熱、 e は電子素量、 k_B はボルツマン定数である。ただし、蒸発率の算出に用いる電極温度の最大値はタングステンの融点である3653Kとし、添加物の表面占有率 φ は添加物が完全に電極表面を覆った状態で最大の1.0であり、1.0より大きくならないものとした。真空中での添加物の蒸発率を表す $\gamma_0(T)$ はプランク定数 h_{plank} を用いて次式のように定義される¹²⁾。

$$\gamma_0(T) = \left(\frac{k_B T}{h_{\text{plank}}} \right) N_0 \quad \dots\dots\dots (6)$$

ティグ溶接モデルの計算において必要とされるタングステン電極表面の仕事関数 Φ_w はGyftopoulosらの実験結果¹³⁾により表面占有率を用いて次式のように表される。

Fig.2 Schematic illustration of computational domain of the evaporation and diffusion model

電極表面の仕事関数：

$$\phi_w = \phi_{\min} + (\phi_{\max} - \phi_{\min})(1 - \phi)^2 \quad \dots\dots\dots(7)$$

ここで、 $\phi_{\min}$ は仕事関数の最小値、 $\phi_{\max}$ は仕事関数の最大値であり、 $\phi_{\min}$ には添加物の仕事関数を、 $\phi_{\max}$ にはタングステンの仕事関数を用いた⁵⁾。

蒸発・拡散モデルにおける境界条件を以下に示す。

計算範囲左端 (OA) および計算範囲右端 (CD)：

$$\frac{\partial n}{\partial r} = 0$$

計算範囲上端 (OD)：

$$\frac{\partial n}{\partial z} = 0, \quad n = n_0$$

計算範囲下端 (AB)：

$$\frac{\partial n}{\partial z} = 0$$

計算範囲右下端 (BC)：

$$\frac{\partial n}{\partial z} = 0, \quad \frac{\partial n}{\partial r} = 0$$

ここで、 n_0 は添加元素の原子の初期数密度である。

蒸発・拡散モデルにおける計算領域は Patankar の有限体積法による離散化手法¹⁴⁾に従って Fig.3 に示すように半径方向に 162 ならびに軸方向に 579 の均一型コントロールボリュームに分割され、離散化された拡散方程式は 3 重対角行列解法 (Tri-Diagonal Matrix Algorithm: TDMA) を用いた陰解法¹⁵⁾によって解かれる。計算格子のサイズは半径方向 1.00×10^{-2} mm、軸方向 8.66×10^{-3} mm である。添加物の蒸発は計算領域の境界面である右端 (CD)、右下端 (BC) および下端 (AB) の計算格子において計算される。また、添加物は電極表面となる計算格子から半径方向および軸方向へそれぞれ蒸発するものとした。

Fig.3 Computational meshes of the evaporation and diffusion model

2.3 ティグ溶接モデル

ティグ溶接モデルは陰極領域 (タングステン電極)、アークプラズマ領域および陽極領域 (水冷銅) を計算対象としており、蒸発・拡散モデルと同様に二次元円筒座標系の軸対称を仮定している。Fig.4 にティグ溶接モデルの計算領域を示す。中心軸上の陽極表面 B から中心軸に沿って 10.0 mm 上方に原点をとり r 軸および z 軸を設定した。計算領域の寸法は半径方向 25 mm (陰極：1.6 mm、陽極：25 mm)、軸方向 45 mm (陰極：30 mm、アーク長：5 mm、陽極：10 mm) である。タングステン電極は蒸発・拡散モデルと同様の寸法とした。シールドガスは純アルゴンとし、流量は 15 L/min とした。上記の計算領域は蒸発・拡散モデルとは異なり半径方向に 70 および軸方向に 95 の不均一型コントロールボリュームに分割された後、離散化された各支配方程式は SIMPLEC (Semi Implicit Method for Pressure Linked Equation-Consistent) 法¹⁶⁾を用いて数値的に解かれる。ティグ溶接モデルにおける最小の計算格子サイズは電極先端において半径方向 2.68×10^{-3} mm、軸方向 1.00×10^{-2} mm である。

ティグ溶接モデルでは下記の仮定の下、数値計算が行われる。(i) アークプラズマは電子温度と重粒子温度が同じである局所熱平衡状態 (Local Thermodynamic Equilibrium: LTE) にある。(ii) 流れは全て定常・層流である。(iii) アークプラズマからの放射に関して自己吸収は考慮しない。

数値計算に用いられるエンタルピー、比熱、密度、粘性、熱伝導度および電気伝導率といったアークプラズマの物性には Murphy らの平衡組成計算¹⁷⁾によって得られたデータを用いた。ティグ溶接モデルは陰極、アークプラズマおよび陽極を一つの計算領域として扱うことができるため、それぞれの領域に関して個別の保存式を解く必要はなく、統一された保存式が定義される。数値計算では以下に示す質量、

Fig.4 Schematic illustration of computational domain of the TIG welding model

運動量, エネルギーおよび電流に関する保存式を解くことで計算領域全体の温度, 流速および電位の二次元場が得られる.

質量保存式:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \rho v_r) + \frac{\partial}{\partial z} (\rho v_z) = 0 \quad \dots\dots\dots (8)$$

運動量保存式:

(半径方向)

$$\begin{aligned} & \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \rho v_r^2) + \frac{\partial}{\partial z} (\rho v_z v_r) \\ &= -\frac{\partial p}{\partial r} - j_z B_\theta + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(2r\eta \frac{\partial v_r}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\eta \frac{\partial v_r}{\partial z} + \eta \frac{\partial v_z}{\partial r} \right) - 2\eta \frac{v_r}{r^2} \end{aligned} \quad \dots\dots\dots (9)$$

(軸方向)

$$\begin{aligned} & \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \rho v_r v_z) + \frac{\partial}{\partial z} (\rho v_z^2) \\ &= -\frac{\partial p}{\partial z} + j_r B_\theta + \frac{\partial}{\partial z} \left(2\eta \frac{\partial v_z}{\partial z} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r\eta \frac{\partial v_r}{\partial z} + r\eta \frac{\partial v_z}{\partial r} \right) + \rho g \end{aligned} \quad \dots\dots\dots (10)$$

エネルギー保存式:

$$\begin{aligned} & \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \rho v_r h) + \frac{\partial}{\partial z} (\rho v_z h) \\ &= \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{r\kappa}{c_p} \frac{\partial h}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\kappa}{c_p} \frac{\partial h}{\partial z} \right) + \frac{j_r^2 + j_z^2}{\sigma} - U \end{aligned} \quad \dots\dots\dots (11)$$

電流保存式:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \sigma \frac{\partial V}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\sigma \frac{\partial V}{\partial z} \right) = 0 \quad \dots\dots\dots (12)$$

ここで, r は半径方向距離, z は軸方向距離, ρ は密度, v_r, v_z はそれぞれ速度の半径方向成分と軸方向成分, p は圧力, η は粘性係数, j_r, j_z はそれぞれ電流密度の半径方向成分と軸方向成分, B_θ は周方向の磁束密度, g は重力加速度, h はエンタルピー, κ は熱伝導度, c_p は定圧比熱, σ は電気伝導率, U は放射損失, V は電位である.

電流密度 j_r, j_z はオームの法則によって導かれる. また, 運動量保存式に含まれる周方向の磁束密度 B_θ は真空の透磁率 μ_0 を用いてアンペールの法則によって定義される.

オームの法則:

$$j_r = -\sigma \frac{\partial V}{\partial r} \quad j_z = -\sigma \frac{\partial V}{\partial z} \quad \dots\dots\dots (13)$$

アンペールの法則:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r B_\theta) = \mu_0 j_z \quad \dots\dots\dots (14)$$

ティグ溶接モデルにおける境界条件を以下に示す.

計算範囲右端 (FD):

$$T = 300\text{K}, \quad v_r = 0, \quad v_z = 0$$

計算領域左端 (AC):

$$\frac{\partial T}{\partial r} = 0, \quad \frac{\partial V}{\partial r} = 0, \quad \frac{\partial v_z}{\partial r} = 0, \quad v_r = 0$$

計算範囲上端 (AF):

$$T = 300\text{K}, \quad v_r = 0$$

計算範囲下端 (DC):

$$T = 300\text{K}, \quad V = 0, \quad v_r = 0, \quad v_z = 0$$

電極および母材において流れの速度はゼロとする. また, 電極とガスノズル間の上部境界において 15 L/min のシールドガス流量に相当する流速が与えられる. 電極の上端境界では設定電流値を電極断面積で除して得られる電流密度 j_z が均一に与えられている. また, この境界上端における電位は $\partial V / \partial z = -j_z / \sigma$ で定義されている. 計算領域下端における電位はゼロとした.

陰極であるタンゲステン電極の表面境界では式(11)で示されているエネルギー輸送現象に加え, 熱電子放出による冷却やイオンの再結合による加熱および熱放射による冷却を考慮する必要がある. 加えられるエネルギー流束 F_e は次式で表される.

$$F_e = -\varepsilon_e \alpha T^4 - |j_e| \Phi_w + |j_i| V_i \quad \dots\dots\dots (15)$$

ここで, ε_e は電極の放射率, α はステファン・ボルツマン定数, j_e は電子電流密度, Φ_w は電極の仕事関数, j_i はイオン電流密度, V_i はシールドガスの電離電圧である. 電子電流密度 $|j_e|$ は次のリチャードソン・ダッシュマンの式に基づいて決定される. また, イオン電流密度 j_i は $|j_i| = |j_e|$ によって計算される.

リチャードソン・ダッシュマンの式:

$$|j_e| = A T^2 \exp \left(-\frac{e \Phi_w}{k_B T} \right) \quad \dots\dots\dots (16)$$

A はリチャードソン定数である.

一方, 陽極の表面境界では電子吸収による加熱および熱放射による冷却をエネルギー流束 F_A として加える. ただし, Lowke ら¹⁸⁾と同様に母材表面におけるイオン電流はゼロでありイオン加熱は存在しないとした.

$$F_A = -\varepsilon_A \alpha T^4 + |j_e| \Phi_A \quad \dots\dots\dots (17)$$

ε_A は陽極の放射率, Φ_A は陽極の仕事関数である.

アーク放電時に陰極であるタンゲステン電極の表面において生じる熱電子放出現象は電極の表面状態および添加物の表面占有率によって大きく変化するため, 本研究では電

Fig. 5 Schematic illustration of distribution of additive on the electrode surface

極表面に接するアークプラズマの電気伝導率 σ_s を Fig. 5 に示すコンセプトに基づき以下の式で計算する.

(i) 電極の表面温度が酸化物の融点以下の場合：

$$\sigma_s = 5.0\% \sigma_a \quad \dots\dots\dots (18)$$

(ii) 電極の表面温度が酸化物の融点以上の場合：

$$\sigma_s = (\varphi + (1 - \varphi) R_w) \sigma_a \quad \dots\dots\dots (19)$$

ここで、 σ_a は Murphy らの平衡組成計算¹⁷⁾によって得られた電気伝導率、 φ は蒸発・拡散モデルで得られる添加物の表面占有率、 R_w は式(20)で示すようにタングステンからの熱電子放出密度を添加物からの熱電子放出密度で除した値であり、電気伝導率に対するタングステンからの熱電子放出の影響の大きさ（以下、電気伝導率に対するタングステンの影響度）を表している.

$$R_w = \frac{|j_e(W)|}{|j_e(Th)|} \quad \dots\dots\dots (20)$$

Fig. 6 に各電極表面温度における電気伝導率に対するタングステンの影響度の変化を示す. 酸化物はトリウムでありトリウムの融点（3323 K）以下の温度域における電気伝導率に対するタングステンの影響度は破線で描かれている. 電極の表面温度が酸化物の融点以下の場合、電気伝導率に対するタングステンの影響度は小さいため、タングステンに比べて仕事関数の低い酸化物が電極表面からの電子放出を全て担うと考え、Fig. 7 に示すように電極表面に接するアークプラズマの電気伝導率を通常の5%の値とした. これは酸化物の融点以下では電極表面において島状（約 $5\mu\text{m}$ ）の固体の酸化物が分散して存在しており¹⁾、酸化物の含有率を体積%に変換すると5%になるからであり、電極表面積を S として電流は $\vec{I} = -S\sigma\nabla V$ で表されるので、5%表面積率を5%電気伝導率に置き換えられるからである. 一方、電極の表面温度が酸化物の融点以上の温度範囲では液体となった添加物が電極表面を覆うように存在し^{19, 20)}、添加物とタングステンの両方から電子放出が行われるとした. この場合、電極表面に接するアークプラズマの電気伝導率は添加物の

Fig. 6 Relationship between the ratio of thermionic emission of tungsten and electrode temperature

		Electrode		Arc plasma	
$T < T_m$		σ_w	σ_w	5% σ_a	σ_a
		σ_w	σ_w	5% σ_a	σ_a
$T > T_m$		σ_w	σ_w	$(\varphi + (1 - \varphi) R_w(T)) \sigma_a$	σ_a
		σ_w	σ_w		σ_a

Fig. 7 Concept of the electrical conductivity on the electrode surface boundary

表面占有率および電気伝導率に対するタングステンの影響度から決定される.

3. 計算結果および考察

3.1 時間経過に伴う添加物の動的挙動

まず、トリウム入り電極を対象に溶接電流 200 A の条件における数値シミュレーションを行った. アーク点弧から300秒後のティグ溶接モデルで得られた温度分布の計算結果を Fig. 8 に、電極領域の詳細な温度分布と蒸発・拡散モデルで得られたトリウムの濃度分布の計算結果を Fig. 9 に示す. アークプラズマは中心部において最高温度が 22460 K となっており、電極先端部は 10000 K を超える高温下にさらされていることがわかる. 一方、電極の温度は電極先端から上方 0.4 mm までの範囲においてトリウムの融点である 3323 K を超えているが、先端の極一部を除く広い範囲ではタングステンの融点である 3653 K 以下に抑えられている. また、軸方向に比べ半径方向の温度勾配は小さいことがわかる. トリウムの濃度はトリウムの融点を超えた領域の電極表面を中心に低下がみられた. これは電極表面においてトリウムが外

Fig. 8 Calculation result of the temperature distribution

(i) Temperature

(ii) Mass concentration

Fig. 9 Calculation results of (i) temperature distribution and (ii) mass concentration distribution of additive

Fig. 10 Calculation results of temperature distributions (left side) and mass concentration distributions of additive (right side) at the time of 300 s, 600 s, 1800 s and 3600 s

部へ蒸発していること、またそれに伴い電極内部のトリウムが表面へ拡散によって供給されていることを意味している。特に面取りした角の部分 (Fig. 2 の B) では、電流密度が高くジュール発熱が大きいためトリウムの蒸発が盛んに行われ、その結果最もトリウムの濃度が低下している。以上のことから、トリア入り電極ではトリアの融点を超える領域においてトリウムの蒸発速度が拡散による供給速度を

上回り、電極表面ならびに電極内部のトリウムの濃度が低下することが明らかとなった。

Fig. 10 にアーク点弧から 300, 600, 1800 ならびに 3600 秒後の電極の温度分布およびトリウムの濃度分布の計算結果を示す。トリウムが電極表面から蒸発するため時間経過とともに電極先端部のトリウムの濃度は減少しており、1800 秒後に 0.5 wt.%, 3600 秒後には 0.1 wt.% 以下となっている。

また、トリウムの濃度が低下している領域は時間経過に伴い電極表面から電極内部へと拡大している。一方、電極の温度はアーク点弧から 1800 秒後までの間、トリウムの濃度変化に影響されずほぼ一定の値となっていることがわかる。これは電極表面が融点を超えて液体となったトリウムによって完全に覆われた状態、つまりトリウムの表面占有率が $\phi=1.0$ を満たしており、安定した電子放出が持続されているからである。しかし、アーク点弧から 3600 秒後ではタングステンの融点を超える領域が大きく増加している。このように電極先端の広い領域がタングステンの融点を超えると、電極先端は溶融によって球状に大きく変形しアークプラズマが不安定となるため、電極の研磨や交換といったメンテナンスが必要となる。本研究ではこの時間経過に伴う電極の温度変化に着目し、中心軸上の電極先端から 0.1mm 上方における電極温度がタングステンの融点を超えた時点を電極の寿命と定義した。タングステン電極の電極寿命に関しては 3.2 節で考察する。

次に電極先端の温度変化が大きい 1800 秒後から 3600 秒後までの蒸発および拡散現象を詳しく議論する。Fig. 11 にアーク点弧から 1800, 2400, 3000 ならびに 3600 秒後の電極先端から上方 0.4mm の範囲におけるトリウムの表面占有率および濃度分布の計算結果を示す。この範囲の電極表面温度はアーク点弧直後からトリアの融点を超えているため電極表面は液体のトリウムに覆われ表面占有率は 1 となっている^{19, 20)}。アーク点弧から 1800 秒後では電極の面取りした角の部分においてトリウムの濃度は最も低く 0.3 wt.% と

なっているが、トリウムの表面占有率は低下しておらずトリウムが表面を完全に覆っている状態である。しかし、2400 秒後では面取りした角の部分においてトリウムの濃度は 0.1 wt.% 以下となり、トリウムの表面占有率は 0.75 となった。3000 秒後では面取りした先端部全域においてトリウムの濃度が 0.1 wt.% 以下となり、トリウムの表面占有率は 1.0 を下回っている。3600 秒後の結果ではトリウムの濃度が 0.1 wt.% 以下となる範囲は、先端から 0.2mm 上方まで拡がりトリウムの表面占有率も同様の範囲で低下している。これらの結果からトリウムの濃度が 0.1 wt.% 以下になると電極表面への拡散によるトリウムの供給速度が低下し、蒸発による減少と拡散による供給のバランスが崩れることでトリウムの表面占有率が低下し始めると考えられる。また、表面占有率の低下は面取りした角の部分から面取り部および円錐部へと拡がっていくことが明らかとなった。

Fig. 12 にアーク点弧から 1800, 2400, 3000 ならびに 3600 秒後における電極先端の温度分布の計算結果を示す。いずれの場合においても電極の円柱部の温度は 2500K 以下となっている。また、トリアの融点を超える範囲は 1800 秒後では電極先端から 0.40mm 上方まで、3600 秒後では電極先端から 0.46mm 上方までとなっており、時間経過による変化はそれほど大きくないことがわかる。一方で、電極寿命の評価位置とした電極先端から 0.1mm 上方の点においては、電極温度が 1800 秒後で 3575K であるのに対し、2400 秒後では 3726K、3000 秒後では 4191K と変化しており、時間経過に伴い温度上昇が進んでいることがわかる。3600 秒後で

Fig. 11 Calculation results of degree of coverage (left side) and mass concentration distributions of additive (right side) at the time of 1800s, 2400s, 3000s and 3600s

は電極温度は4271 Kに達しており、1800秒後に比べて約700 Kの温度上昇が確認できる。

以上の計算結果から、電極の温度上昇は電極先端の狭い範囲に限られており、その範囲はトリウムの表面占有率が低下している範囲と一致していることがわかる。このように、トリウムの表面占有率が低下した範囲で電極温度が上昇した理由は以下のように考えられる。前述のようにタングステン電極には電子放出を容易にするためにタングステンに比べて仕事関数の低いトリウムを添加しており、このトリ

ウムが電極表面を完全に覆っている場合、電極は電子放出によって冷却され溶融することなく安定したアーク放電を維持できる。しかし、トリウムの表面占有率が低下すると電極の仕事関数が増加し電子放出が生じにくくなるため、電極の冷却作用が小さくなり高温のアークプラズマにさらされた電極は温度上昇を引き起こす。

電極表面における添加物の分布形態の変化をまとめた模式図を Fig. 13 に示す。アーク点弧前においてまんべんなく存在している添加物はアーク点弧すると同時に溶融し、電極先端部の表面を完全に覆うように分布する。このとき電極表面では拡散による添加物の供給および蒸発による添加物の損失が同時に生じている。一方、アーク点弧から時間が経過すると添加物の供給速度が低下し、電極先端部において添加物の損失が顕著になる。添加物が欠乏した電極先端部は仕事関数が増加するため温度が上昇し、タングステンの融点を超えると形状変化を伴いながら急速に消耗していく。

3.2 タングステン電極の寿命評価

Fig. 14 にトリウムの表面占有率と電極寿命の評価位置における温度の時間変化を示す。ただし、トリウムの表面占

Fig. 12 Calculation results of temperature distributions at the time of 1800s, 2400s, 3000s and 3600s

Fig. 14 Changes of the electrode temperature and the degree of coverage with the time progress

Fig. 13 Schematic illustrations of consumption process of the electrode

有率は面取りした角の部分における値を示している。アーク点弧から2400秒後までは電極温度は一定の値であるが、2400秒後においてトリウム表面占有率が低下するのに伴い電極温度は急激に上昇し始め、1タイムステップ後である2460秒の時点でタングステンの融点を上回り3856Kに達している。つまり、この条件におけるトリウム入り電極の寿命は2460秒であると言える。また、Fig. 14から電極の消耗は一度始まると急激に進行していくことがわかるが、これは表面占有率の低下に伴う温度上昇により表面からの蒸発速度が上昇し、さらに表面占有率が低下するためである。

続いて、添加物の物性値が電極の寿命に与える影響を検討するため、トリウム入り電極に加えランタナおよびセリア入り電極について計算を行った。Table 1に計算に用いた各添加物の物性値を示す。ランタンの吸着熱 H はMiedemaら²¹⁾の研究に基づく値を用い、セリウムの活性化エネルギー Q と拡散定数 D_0 は文献値¹⁰⁾を用いた。Table 1の括弧付きの物性値に関しては、トリウムに比べてランタナおよびセリアに関する研究が少なくその物性値の入手が困難であったため、

Table 1 Physical properties of Th, La and Ce for the unified model

	T_{melt} (K)	Φ (eV)	Q (J/mol)	D_0 (m ² /s)	H (eV)	ε
Th	3323	2.8	3.93×10^5	1.13×10^{-4}	7.1	1.4×10^{-2}
La	2490	3.1	(3.93×10^5)	(1.13×10^{-4})	6.0	(1.0×10^{-3})
Ce	2873	3.2	4.26×10^5	2.88×10^{-6}	(6.0)	(1.0×10^{-3})

他の添加物の物性値を用いた。具体的には、ランタンの活性化エネルギー Q と拡散定数 D_0 にはトリウム入り電極と比較しやすいようにトリウムの物性値を用いた。セリウムの吸着熱 H には酸化物の融点が近く、アーク点弧直後の電極温度分布が似ているランタンの物性値を用いた。また、 ε は吸着を考慮した場合の蒸発の係数であり、Nemchinskyら¹¹⁾の研究において $\varepsilon = 10^{-2} - 10^{-3}$ としていることを参考にランタンおよびセリウムには $\varepsilon = 1.0 \times 10^{-3}$ を使用した。さらに、各酸化物の融点および仕事関数は田中ら⁵⁾の研究と同じ値を使用した。

Fig. 15にトリウム、ランタナならびにセリア入り電極の電

Fig. 15 Changes of the electrode temperature with the time progress

Fig. 16 Calculation results of degree of coverage (left side) and mass concentration distributions of additive (right side) at the life time of the electrodes

極寿命の評価位置における温度の時間変化を、Fig.16に各電極が寿命に達した時点における添加物の表面占有率および濃度分布を示す。ただし、それぞれの電極に関して酸化物の融点以下の電極表面では添加物が溶融していないものと考え、添加物の表面占有率を体積占有率と同じ0.05としている。アーク点弧直後の電極温度はトリウム入り電極で3551K、ランタナ入り電極で3128K、セリア入り電極で2977Kとなっており、トリウム入り電極の電極温度が最も高い。一方で、電極寿命はトリウム入り電極で2460秒、ランタナ入り電極で3180秒、セリア入り電極では60秒となっており、電極寿命に関して添加物の種類によって異なるアーク点弧直後の電極温度の影響は小さいことがわかる。

ここからはセリア入り電極ならびにランタナ入り電極における添加物の挙動をトリウム入り電極と比較することで電極寿命に大きな影響を与える因子を考察する。まず、セリア入り電極ではアーク点弧後わずか60秒にもかかわらずセリウムの濃度は電極表面の広い範囲で大きく低下しており、円錐部全体においてセリウムの表面占有率が1.0を下回っている。これはTable1に示すようにセリウムの拡散定数が小さいことに加え、アーク点弧時のセリア入り電極の電極温度が低いため、式(2)で計算されるセリウムの拡散係数がトリウムのそれに比べて極めて小さくなり、蒸発によって消失するセリウムに対して拡散によるセリウムの供給が追いつかなくなる結果、表面近傍においてセリウムが欠乏したためである。

次に、ランタナ入り電極はFig.15からわかるようにトリウム入り電極に比べて添加物の表面占有率が低下するまでの時間がやや短くなっている。これはランタンの吸着熱がトリウムに比べ低く、ランタンの蒸発速度がトリウムよりも大きくなるためである。しかし、ランタナ入り電極の電極温度は3500Kまで急激に上昇した後、温度上昇は緩やかになり結果としてトリウム入り電極よりも長い電極寿命を示した。このランタナ入り電極の緩やかな消耗現象はランタンの表面占有率から以下のように説明される。ランタナの融点はトリウムに比べて約800Kも低いためFig.16で示す表面占有率からわかるように電極表面は広い範囲において溶融したランタンによって覆われている。この場合、電子放出源が広く分布し電流経路は電極先端に集中するのではなく電極の円錐部にまんべんなく拡がることのできるため、電極先端においてランタンの表面占有率の低下が生じて電極寿命に至るまでの急激な温度上昇はなく、安定したアーク放電が保たれる。しかしながら、その後の表面占有率の更なる低下に伴い電極表面の仕事関数は緩やかに増加するため電極温度も緩やかに上昇を続け、やがて電極寿命をむかえる。

以上の結果より、添加物の拡散定数、吸着熱ならびに酸化物の融点によって電極の寿命が大きく変化することが明らかとなった。またこれらを踏まえ電極の長寿命化に必要な条件としては、添加物が拡散により電極先端へ供給され

やすいこと、酸化物の融点が低く電子の電子放出源が電極表面を広く覆うことで電流経路が電極先端に集中しにくいこと、添加物の拡散速度に対してその蒸発速度が比較的小さいことが挙げられる。

4. 結 言

本研究では耐消耗性に優れたより良い電極の開発に向けて、ティグ溶接中の電極における添加物の拡散、蒸発現象について二次元空間での数値シミュレーションを行った。また、電極の長寿命化にも着目し、電極の寿命に大きな影響を与える因子を調査した。以下に本研究により得られた主な知見を記す。

- (1) トリウム入り電極ではトリウムの融点を超える領域においてトリウムの蒸発速度が拡散による供給速度を上回り、電極表面ならびに電極内部のトリウムの濃度が低下する。
- (2) トリウムの濃度が0.1wt.%以下になると電極表面への拡散によるトリウムの供給速度が低下し、蒸発による減少と拡散による供給のバランスが崩れることでトリウムの表面占有率が低下し始める。また、表面占有率の低下は面取りした角の部分から面取り部および円錐部へと拡がる。
- (3) 電極の温度上昇は電極先端の狭い範囲に限られおり、その範囲はトリウムの表面占有率が低下している範囲と一致する。
- (4) 電極の消耗は一度始まると急激に進行していくが、これは表面占有率の低下に伴う温度上昇により表面からの蒸発速度が上昇し、さらに表面占有率が低下するためである。
- (5) 電極の寿命は添加物の拡散定数、吸着熱ならびに酸化物の融点等の物性値によって大きく変化する。電極の長寿命化に関して拡散定数は電極表面への添加物の供給が十分となる程度に大きいことが望ましい。一方で添加物の蒸発速度は小さい方が電極消耗が抑えられるため、吸着熱は大きいことが望ましい。また、酸化物の融点は添加物の表面占有率を高く保つ上では低い方がよい。

参 考 文 献

- 1) A. A. Sadek, M. Ushio and F. Matsuda: Effect of Rare Earth Metal Oxide Additions to Tungsten Electrodes, Metallurgical Transactions A, Vol. 21A (1990) 3221-3236.
- 2) K. Tanaka, F. Matsuda and M. Ushio: Effect of Additives in Tungsten Electrode -Consumption of Electrode Tip at Relative High Current-, Quarterly Journal of the Japan Welding Society, Vol. 13, No. 4 (1995) 524-531.
- 3) K. Yamamoto, M. Tanaka, S. Tashiro, K. Nakata, K. Suzuki and K. Yamazaki: Numerical Modeling of Welding Arc with Complex System between Arc Plasma and Molten Electrode, Materials Science Forum, Vol. 580 (2008) 311-314.
- 4) J. Haidar and A. J. D. Farmer: Surface temperature measurements for tungsten-based cathodes of high-current free-burning, Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 28 (1995) 2089-2094.

- 5) M. Tanaka, K. Yamamoto, S. Tashiro and J. J. Lowke: Predictions of current attachment at thermionic cathode for TIG arcs, *Materials Science Forum*, Vol. 580 (2008) 319-322.
- 6) E. Casado and V. Colomer: The numerical modelling of Joule heating effects in thoriated tungsten cathodes of high-current plasma arcs, *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 33 (2000) 1342-1347.
- 7) M. R. Andrews: The evaporation of thorium from tungsten, *Physical Review*, Vol. 33, No. 3 (1929) 454.
- 8) H. Nishiyama, T. Sato and K. Takamura: Performance Evaluation of Arc-Electrodes Systems for High Temperature Materials Processing by Computational Simulation, *ISIJ International*, Vol. 43, No. 6 (2003) 950-956.
- 9) 深川修吉: 真空管材料・超高真空技術, オーム社 (1956) 第4章.
- 10) 足立吟也: レアメタル便覧, 丸善 (2011) 第13章.
- 11) V. A. Nemchinsky: Life time of a refractory cathode doped with a work-function-lowering dopant, *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 29, No. 9 (1996) 2417.
- 12) L. E. Belousova: Effect of the temperature of a tungsten electrode on the activation depletion time, *Soviet Physics Technical Physics*, Vol. 25 (1980) 471-473.
- 13) E. P. Gyftopoulos and J. D. Levine: Work function variation of metals coated by metallic films, *Journal of Applied Physics*, Vol. 33, No. 1 (1962) 67-73.
- 14) S. V. Patankar: Numerical heat transfer and fluid flow, New York: McGraw-Hill (1980).
- 15) 荒川忠一: 数値流体工学, 東京大学出版会 (1994) 第2章.
- 16) J. P. Van Doormaal and G.D. Raithby: Enhancements of the simple method for predicting incompressible fluid flow, *Numerical Heat Transfer*, Vol. 7, No. 2 (1984) 147-163.
- 17) A. B. Murphy and C. J. Arundell: Transport Coefficients of Argon, Nitrogen, Oxygen, Argon-Nitrogen, and Argon-Oxygen Plasmas, *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, Vol. 14, No. 4 (1994) 451-490.
- 18) J. J. Lowke, R. Morrow and J. Haidar: A simplified unified theory of arcs and their electrodes, *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 30, No. 14 (1997) 2033-2042.
- 19) 田代真一, 田中 学: アーク溶接の電極および溶融池現象, *Journal of Plasma and Fusion Research*, Vol. 88, No. 7 (2012) 383-388.
- 20) M. Tanaka, M. Ushio, M. Ikeuchi and Y. Kagebayashi: *In situ* measurements of electrode work functions in free-burning arcs during operation at atmospheric pressure, *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol. 38, No. 1 (2005) 29-35.
- 21) A. R. Miedema and J. W. F. Dorleijn: Quantitative predictions of the heat of adsorption of metals on metallic substrates, *Surface Science*, Vol. 95, No. 2 (1980) 447-464.