論文および報告

熔接継手の気孔に関する研究 (第1報)*

—アルミニウム合金材料の熔接条件とガス分析結果の関連について—

安藤良夫** 藤村理人*** 生田目真**

Studies on the Porosity in Welding Joints (Report 1)*

—Relation between Welding Procedure and Results of Gas
Analysis in Aluminium Alloy—

By Y. Ando**, T. Fujimura*** and M. Namatame**

Abstract

Recently, in order to satisfy the increasing demands in atomic power industry, aluminium alloys are used in many parts of the reactor, e.g., the canning material of the fuel element, deuterium vessel, reactor vessel, pipe-lines and so on.

In those cases high quality is required of their welding performance, porosity being one of the most important defects among those found in welded joints.

Porosity in welds not only decreases the mechanical properties and corrosion resistance of welded joints, but seems to cause the activation of gases included in welds under the irradiation.

The experimental results are as follows:

- 1) As the time after cleaning passed, the gas contents increased remarkably.
- 2) As heat input increased, the gas contents decreased in all plate thicknesses (6, 12 and 20mm).
- 3) The gas contents of preheated welds were than those of untreated welds.

Above results agreed with the results of the X-ray measurement of porosity.

1. ま え が き

アルミニウムおよびその合金材料は、近年、著しく需要を拡大し、各部門に多量使用されるようになってきた。それと同時にアルミニウムおよびその合金の熔接も戦後イナート・ガス・シールド熔接法の発達にともない熔接法はほぼ確立され、現在ではアルミニウムおよびその合金の成型加工上多大の貢献をなしている。しかしながら、最近、実験用原子炉の燃料被覆、重水容器などの原子炉容器、その他パイプ・ラインなどにアルミニウムおよびその合金材料が使用されるようになり、これらの材料の板厚は1~70mmにわたり、厚板と薄板との熔接、合金成分の異なる材料の熔接、タンクとパイプとの熔接など、加工法が複雑化した

上、燃料または重水の漏洩を許されないきわめて高品質の熔接が要求されるので、熔接施工上、種々、再検討すべき問題が提起された。その一つが今まで看過されてきた気孔により生ずる欠陥の問題である。

熔接部の気孔は、熔接という加工法が高温において熱力学的非平衡状態でしかも大気との接触において行なわれることから、熔接部に気孔ができるのを避けることはきわめて困難である。熔接技術の向上によって、鉄鋼関係ではX線検査基準がJISなどでも設けられ、ほぼ品質管理の目的を達しているが、アルミニウムおよびその合金では欠陥検査基準が確立されておらず、また、気孔のない完全な熔接部をうるまで熔接技術は向上されていない。しかし、最近、アルミニウムおよびその合金の熔接部の気孔に関する問題は前述のごとく、高品位の熔接部の要求から注目を集め、これに関する研究論文が2, 3海外の文献に散見されるようになった。熔接部の気孔は、熔接する母材および心線の含有するガス量にも関係することであり、材料自体のガス含有量を下げることとも当面の大きな問題である。

熔接部に気孔が存在するとき、機械的性質が低下するば

* 原稿受付、昭和34年7月22日 (昭和34年度熔接学会秋季学術講演会において発表)

**正員、東京大学生産技術研究所 Member, Institute of Industrial Science, Tokyo University.

***正員、日本原子力研究所東海研究所 Member, Tokai Laboratory, Japan Atomic Energy Research Institute.

かりでなく、耐食性の劣化を生じ、さらに原子炉構造においては放射線損傷により、気孔中のガスの活性化がおこり、きわめて有害となることが考えられる。

著者等はこれら熔接部の気孔の発生状態、生成要因を検討するため、一連の研究を進めている。

第 1 報では著者等の試作した熔接部含有ガス分析装置について概述し、原子炉用材料として使用されるアルミニウム合金熔接部の熔接条件とガス分析結果について実験した結果を報告する。

2. 試作含有ガス分析装置の概要

金属および合金に吸着するガス量は極めて微量であるため、その定量は技術的に種々の困難を有している。現在のところ金属のガス含有量の測定に最もひろく用いられているのが、真空熔融法であり、質量分析法、分光分析法も最近注目されている。真空熔融法は 1) 1 気圧程度で分析する方法—マイクロオルザット法等—と、2) 減圧下 (1mm Hg 以下) で分析する方法の 2 種にわけられる。前者は採取

すべき試料の量が多量 (10g 以上) であるのと誤差が混入しやすく分析精度が比較的低い。現在では後者が主として用いられているが、吸収剤等のガス吸着が誤差の原因となり、水素の定量は完全であるとはいえない。C.E. Ransley は 1947 年にこれらの方法を改良して新しい方法を発表した。

これは化学反応を利用して成分ガスを分析することをさけ、主として物理的処理のみによって各成分ガスを分析する方法

である。熔接部の水素の定量については P.D. Blake がこれらの方法を応用している。著者等はこれらの研究を勘案して、独自のガス分析装置を作成した。

Fig. 1 は著者等の試作したガス分析装置の写真である。また Fig. 2 はその配置図、なお分析性能を Table 1 に示す。

分析試料は適当な前処理をし

Fig. 1 Equipment of gas analysis

Fig. 2 Schematic diagram of gas analysis equipment

Table 1 Ability of Analysis

Kind of gases	H ₂ , O ₂ , H ₂ O, N ₂ , CO, CmHn, SO ₂ , A
Analytical accuracy	0.001ml, H ₂ 10 ⁻⁷ g
Weight of sample	0.5~2g
Heating source	High frequency induction heating or electrical resistant heating

たのち、試料装入装置により、ガス抽出炉に運びこまれる。分析装置は油拡散ポンプで排気され 5×10^{-5} mmHg 程度の真空状態として、白試験の結果が 5×10^{-3} mmHg/day の程度であることを確認した後、るつぼ(純アルミナ質)を 1000°C 以上で空焼きする。るつぼのガス放出のないことを確認した後、試料は真空をこわさずガス抽出炉内に運びこまれる。熔融または拡散抽出ガスは水銀拡散ポンプによ

Table 2 Welding Condition of Test Panel Welding Condition

Factor	Plate		Filler		Specimen Joint		Condition					
	Kind	Thick-ness (mm)	Kind	Dia-meter (mm)	Num-ber	Type	Arc voltage (V)	Current (A)	Welding speed (in/min)	Condition		Groove design
										Factor		
Exposure time after cleaning	52S	6	54S	1.6	1-1	Butt	22	220	24.3	Exposure time after cleaning (days)	0
	"	"	"	"	1-2	"	"	"	"		7	
	"	"	"	"	1-3	"	"	"	"		14	
	"	"	"	"	2-9	"	23	220	33.1		9200	
	"	"	"	"	2-10	"	"	"	28.0		10800	
	"	"	"	"	2-11	"	25	260	36.0		10800	
Heat in-put	"	"	"	"	2-13	"	23	220	24.3	Heat in-put (joule/in)	12500	Tig welding method for backing welding
	"	"	"	"	2-15	"	"	"	21.4		14200	
	"	"	"	"	2-15-1	"	21	180	21.0		10800	
	"	12	"	2.4	3-9	"	25/23	300/260	23.8/18.0		19000	
	"	"	"	"	3-10	"	25/23	300/260	20.4/18.0		22000	
	"	"	"	"	3-11	"	27/23	340/260	25.0/18.0		22000	
	"	"	"	"	3-12	"	24/23	260/260	15.0/18.0		25000	
	"	"	"	"	3-13	"	25/23	300/260	18.0/18.0		25000	
	"	"	"	"	3-14	"	27/23	340/250	22.0/18.0		25000	
	"	"	"	"	3-15	"	25/23	300/260	16.0/18.0		28000	
	"	"	"	"	3-16	Fillet	25	300	28.1		16000	
	"	"	"	"	3-17	"	"	"	23.7		19000	
	"	20	"	"	4-9	Butt	27/25	350/280	25.8/25.0	Heat in-put (joule/in)	22000
	"	"	"	"	4-11	"	27/25	350/280	21.6/25.0		26100	
	"	"	"	"	4-13	"	27/25	350/280	17.2/25.0		33000	
	"	"	"	"	4-15	"	27/25	350/280	12.8/25.0		44300	
	"	"	"	"	4-18	Fillet	27	350	10.4		55000	
	"	"	"	"	4-19	"	"	"	8.8		65000	
Pre-heat	"	6	"	1.6	6-1	Butt	23	220	24.3	Pre-heat temp. (°C)	80	Flat position
	"	"	"	"	6-2	"	"	"	"		150	
	"	"	"	"	6-3	"	"	"	"		80	
	"	"	"	"	6-4	"	"	"	"		150	Over head position
	"	"	"	"	6-5	Fillet	"	"	"		80	
	"	"	"	"	6-6	"	"	"	"		150	
2S	2S	6	2S	1.6	8-1	Butt	23	220	24.3			
	"	"	"	"	8-2	Fillet	"	"	"			

り分析筒に抽出され、全ガス量が圧力変化により測定される。水素はパラジウム水素抽出管を通して抽出される。酸素は銀酸素抽出管を通して抽出する。 CO_2 、 H_2O 、 SO_2 はガスを水銀拡散ポンプで回転し、凝縮トラップで液体窒素により凝縮する。なお、 H_2 、 O_2 の分析は酸素導入管または水素導入管よりガスを導入して燃焼法による分析も可能である。 CmHn と CO は燃焼法によって分析する。なお残りは普通 N_2 とするが、A を含有するときは、 N_2 をスポンジチタンによって固定してAの分析を行なう。

なお本装置の特色は次のごとくである。

1) 試料装入装置は独自に設計した水銀リフト方式によるもので真空をこわすことなく非磁性金属および合金を自由に装入することができる。

2) 分析過程はすべて物理的に処理されるので誤差の介入する余地が少い。

3) 水素の分析は従来の装置では極めて困難で正確を期し難いが本装置では簡便でかつ正確に分析ができる。

4) 測定器としてマクレオドケージの他特殊設計のピラニ・ゲージを並用して極めて精度の高い結果と再現性が得られる。

5) 微量より相当多量までガス量を幅広く分析できるよう設計されている。

6) 白試験値がよく、水銀蒸気の影響を充分防いでいる。

3. 試験板の熔接

試験に用いた試験板はアルミニウム合金 52S 材を 54S の心線で熔接したものである。板は厚さ 6, 12 および 20mm の 3 種を用い、心線は径 1.6, 2.4mm の 2 種を使用した。

2S についても若干の試験を行なったが、2S の板は 6 および 12mm の 2 種について、心線は 2S の径 1.6 および 2.4 mm の材料を用いた。熔接施工はすべて Mig 法により行なった。また厚さ 6mm の板について裏あてをした熔接施工は Tig 法により行なった。これらの熔接条件を Table 2 に示す。

ガス分析試

料は Fig. 3

に示すごと

く、熔着部の

中央より、 ϕ

$\times 50\text{mm}$ の丸

棒の試料を、油、手あか等で汚染しないように注意し、できるだけ温度上昇をさけながら、迅速に機械加工で採取した。採取した試料は常にデシケーター中に大気と遮断して保管した。また機械加工後できるだけ速かにガス分析を行なうこととした。

Fig. 3 Location of specimen

4. ガス分析の結果

前述の試作したガス分析装置を用いてガス分析を行なったが、分析に供した試料は次に示すような前処理をした。すなわち、試料は 0.5~2g 採取したのち、ベンゼンで洗滌後 5% H_2CrO_4 +5% H_3PO_4 の水溶液に10分間浸漬して表面のアルミナ被膜を除去し、アルコールで脱水後、乾燥炉にて約 70°C に加熱して、湿分を除去し、自然冷却後直ちに分析を行なった。なお、この前処理の条件は種々の処理を検討したところ、最良と思われるものである。

前処理した試料は装置に入れ、純アルミナするつば中で 300°C で予備抽出を行ない、表面の附着したガスを除去し

Table 3 Results of Gas Analysis

Specimen	Total gas content (ml/100g)	H_2 content (ml/100g)	H_2 volume composition (%)
1- 1	9.5	9.3	96.9
1- 2	30.0	28.5	95.0
1- 3	36.8	35.1	94.4
2- 9	15.5	13.6	87.7
2-10	12.8	11.7	91.4
2-11	11.5	10.7	93.0
2-13	9.0	8.5	96.1
2-15	12.9	11.7	90.6
2-15-1	9.9	8.9	90.3
2-16	34.0	32.2	94.7
2-17	17.2	16.1	93.6
2-18	17.2	16.1	93.3
3- 9	9.1	8.5	93.3
3-10	7.5	7.0	94.4
3-11	9.0	8.1	90.3
3-12	21.5	20.5	95.3
3-13	17.0	16.3	95.9
3-14	9.5	7.9	82.4
3-15	8.1	7.8	96.7
3-16	21.1	18.7	88.6
3-17	11.9	11.2	94.1
4- 9	11.9	10.7	89.9
4-11	12.9	12.3	95.4
4-13	12.6	11.5	91.3
4-15	4.2	3.9	94.0
4-18	10.6	9.8	92.7
4-19	9.1	8.4	92.2
6- 1	9.8	9.1	93.2
6- 2	7.7	6.5	84.0
6- 3	61.8	60.5	97.9
6- 4	21.5	19.3	89.8
6- 5	8.1	7.2	89.4
6- 6	8.7	8.2	94.6
8- 1	8.1	7.3	90.0
8- 2	4.6	4.2	91.9
Plate 2S(6mm)	9.8	5.9	90.6
eS(12mm)	7.6	8.9	77.1
52S(6mm)	10.0	9.4	94.6
52S(12mm)	13.1	12.7	96.2
52S(20mm)	7.5	5.9	77.5
Filler 2S	9.4	9.3	99.3
54S(5mm)	9.4	8.8	94.0
54S(6mm)	9.9	9.1	92.2

た。その後 700°C で熔融抽出を行なった。Table 3 は各試料のガス分析の結果を示す。熔接部に含有するガスの 80 % 以上は水素である。

熔接条件とガス分析結果を次に示すような 9 項目について検討した。

52S 熔接部 (心線 54S) については

1) クリーニング後放置時間の影響 (厚さ 6mm 板について)

- 2) 厚さ 6mm 板の突合せ熔接の入熱の影響
- 3) 厚さ 6mm 板の隅肉熔接の入熱の影響
- 4) 厚さ 12mm 板の突合せ熔接の入熱の影響
- 5) 厚さ 12mm 板の隅肉熔接の入熱の影響
- 6) 厚さ 20mm 板の突合せ熔接の入熱の影響
- 7) 厚さ 20mm 板の隅肉熔接の入熱の影響
- 8) 予熱の影響
- 9) 熔接姿勢の影響

2S 熔接部については

- 1) 6mm 板の突合せ熔接と隅肉熔接の比較
- 2) 12mm 板の突合せ熔接と隅肉熔接の比較

5. 熔接条件とガス分析結果の比較

(1) クリーニング後の放置時間について (Fig. 4)

クリーニング後

7 日を経過した心線で熔接部は極めて多くのガスを含有する。クリーニング後 14 日を経過した心線による熔接部は前者に比べてそれ程増加して

いない。これらの結果は Fig. 5 に示す X 線によるマクロ気孔数ときわめてよく一致した。これによりクリーニング後、速かに熔接することは気孔を少くするためきわめて重要であることがわかった。

(2) 熔接部の含有ガス

と入熱について (Fig. 6)

板厚 6, 12 および 20mm の 52S 材の突合せおよび隅肉熔接部の含有ガスは入熱が多い程含有量は減少している。また入熱一定のとき、熔接速度の影響はほとんどみられない。Fig. 7 は X 線によるマクロ気孔数と入熱との関係で

Fig. 4 Influence of exposed time after cleaning

Fig. 5 Relation between time after cleaning and X-ray porosity

Fig. 6 Influence of heat input

あるが、ガス分析の結果とはほぼ一致している。

なお隅肉熔接部は一般に突合せ熔接部よりも含有ガス量は大きい。また板厚は減少する程ガス量が大きくなっている。板厚 20mm の熔接部では入熱の影響は小さい。

(3) 予熱温度について (Fig. 8)

予熱すれば含有ガスは明らかに減少する結果が得られた。これは Fig. 9 の X 線のマクロ気孔数と一致している。上向き熔接では含有ガス

Fig. 7 Relation between heat input and X-ray porosity

Fig. 8 Influence of preheat temperature

量がきわめて大きい。

(4) 2S 熔接部は 52S 熔接部より概してガス含有量は少ない。

(5) 母材および心線には相当ガスを含有していることがわかった。

Fig. 9 Relation between preheat temperature and X-ray porosity

6. 総 括

熔接部にあらわれる気孔の位置は熔接方法および熔接条件により異なるが、過冷却部に多い。これは鑄造の場合のいわゆる“mushy zone”にあたる部分が大体熔接部の過冷却部に相当すると考えられる。すなわち、ガスは熔融状態で雰囲気から固溶し、冷却過程において、温度降下による溶解度の減少によって表面から放出されるべきであるが、急冷によって妨げられて気孔となりやすい。過冷却部ではこの過飽和ガスの析出に加えて、含有ガスは温度差のあることから材料より熱拡散するが、“mushy zone”によって妨げられここに凝集し、気孔をつくると考えられる。

次に熔接において気孔を生ずる要因については種々考えられるが、その主なものは次のごとく思われる。

1) シールド・ガスの不完全によるもの、すなわち、熔接が大気中に行なわれる場合、当然大気中の湿気として H_2O が分解して水素が熔接部に混入する。著者等の実験においてみられるごとく、マグネシウムがアルミニウムの合金成分として存在するときは、マグネシウムは熔接に際して表面に拡散する傾向があり、マグネシウムが酸素と親和力の大きいことにより、 H_2O の分解は促進され、水素はより一層、熔接部に入りやすくなる。これがアルミニウム-マグネシウム合金で気孔の多い理由と考えられ

る。また、シールド・ガスの不純物なども気孔の要因である。

2) 心線および母材自体より入るもの。母材および心線は相当ガスを含有しており、これが気孔の要因となることが考えられる。例えば、試験板の製作において完全なシールドを行なってもなお気孔が相当みられるのは、母材および心線それ自体が相当量ガスを含有するためであることを明らかに示しているものと思われる。

3) 表面の汚染によるもの。材料の表面、とくに心線の脱脂が不完全なとき、気孔は著しく増加する。また心線のよごれのうち、水酸化物によって表面が覆われているとき、結晶水を含むことによってその影響はとくに顕著であって、気孔生成の大きな要因となっている。とくに、最近では心線に 1mm 程度の細線が使用されるようになってから、表面の水酸化物腐食の影響はきわめて顕著である。

4) 熔接条件によるもの。気孔の発生は熔接条件に左右される。熔接条件の影響の因子については著者等の実験でも明らかであるが、さらに熔接速度およびアーク電圧の影響も相当大きいようである。そのため Tig 法と Mig 法では、気孔の発生状態が異なる。またバックিং・バーを使用した場合としない場合、さらにバックিং・ガスを流した場合、その流量等、熔接条件の気孔生成に及ぼす影響を無視できないであろう。

金属にガスが含有される機構はきわめて複雑である。金属および合金の種類によってもその機構は異なり、また含有ガスの種類によっても異なるものである。

アルミニウムおよびその合金のガス吸収について考えるときは、その含有されるガスの80%以上が水素であることから、水素がアルミニウムおよびその合金に吸着される場合のみを考えればよいと思われる。

水素が一般に金属中に入る入り方には2通りある。すなわち、

1) 固溶度が小さく、物理的に入る。この場合、金属の原子1000に対して水素原子1程度の割合で、格子内で侵入型として存在する。この種の金属として、クロム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅などがそれである。

2) 固溶度が大きく、化学的に入る。この場合、金属原子100以下に水素原子1の割合で置換型で存在する。この種の金属はジルコニウム、チタニウム、パラジウムなどである。

Fig. 10 Solubility of hydrogen

アルミニウムおよびその合金は前述の2つの型のいずれに属して水素を含有するかは未だ充分研究されていない。Fig. 10は Ransley など(1848年)によって決定されたアルミニウム中に水素が固溶する場合の固溶度曲線であるが、これからみればアルミニウムは第1の型の金属に属することになる。しかし著者等の実験によれば、気孔の発生状態とガス分析値などを考慮するとき、アルミニウム中のガス含有量は相当大きくてよいと考えている。著者らはこれについて、種々の角度からさらに深く検討したいと思っている。

Fig. 10 にマグネシウムにおける水素の溶解度も附加してある。これは Sauerwald らの研究によるものであるが、マグネシウムの水素の溶解度はアルミニウムより甚だしく大きい。このことはアルミニウム-マグネシウム合金の気孔が多いことに大きく影響するものと思われる。

熔接施工時に、ガス(アルミニウムおよびその合金ではほとんど水素)はいかにして熔接部に入るかその機構はきわめて複雑であって、一概に断定できないがその主な吸着機構は次のごとく考えられる。

すなわち雰囲気中の H_2O 、心線、板などに物理的吸着をしている H_2O は熔接に際して、高温でアーク放電により次の反応が促進される。

マグネシウム存在すれば

勿論、心線、板がオイルなどの有機物で汚れていれば、その分解した水素も考慮しなければならない。(1)と(2)の反応によって生じた水素原子は高温で容易に熔着部中に拡散する。その量は Ransley の溶解度曲線でもうかがわれる如く相当多い。熔着部は急激に冷却するが、そのとき相当量の水素原子はアルミニウム中に過飽和される。さら

に余剰の水素原子は水素分子となり、核生成により、集合して折出し、気孔を生成する。過飽和の水素原子は不安定であるために、常温で安定状態に列達するように動き、加工その他外力による変形応力とか、内部応力とか、内部応力の作用によって、亀裂などの欠陥を生ずる原因となるものである。なお、熔着部表面の酸化皮膜がガスの収着に大きな影響を与えることはいうまでもない。

7. あ と が き

アルミニウムおよびその合金の熔接部気孔について、熔接条件の影響を検討した。今後さらに気孔の発生要因について検討し、熔接部気孔による欠陥について研究を進めたいと思っている。

本研究は昭和32年度科学技術庁原子力平和利用委託研究費による日本熔接協会原子力研究委員会の研究の一環として行なわれたものである。また試験板の熔接施工およびX-線気孔の測定は大阪変圧器 KK において行なわれたものであることを附記して謝意を表する。

文 献

- 1) Ransley, C. E., "A Procedure for Gas Analysis at Low Pressures", Analyst, Vol. 72 (1947), 504
- 2) Christensen, N. and Rose, R., "Hydrogen in Mild-Steel Weld Deposits", B. W. J., Vol. 2 (1955), 550
- 3) Christensen, N. and Rose, R., "Hydrogen in Mild-Steel Weld Deposits", B. W. J., Vol. 5 (1958), 272
- 4) Collins, F. R., "Porosity in Aluminum-Alloy Welds", W. J., Vol. 37 (1958), 589
- 5) "Determination of Total Hydrogen Contents in Weld Metal", B. W. J., Vol. 6 (1959), 87

○

高温用継目無炭素鋼鋼管 ASTM A107-58T

級 別	化 学 組 成 (%)					機 械 的 性 質			
	C	Si	Mn	P	S	引張強さ (kg/mm ²)	降 伏 点 (kg/mm ²)	伸 び (% 長手方向	G.L.=2") 円周方向
Grade A	≤ 0.25	≥ 0.10	0.27~0.93	≤ 0.048	≤ 0.058	≥ 33.8	≥ 21.1	≥ 35 ^(b) ≥ 28 ^(c)	≥ 25 ^(b) ≥ 20 ^(c)
Grade B	≤ 0.30	≥ 0.10	0.29~1.06	≤ 0.048	≤ 0.058	≥ 42.2	≥ 24.6	≥ 30 ^(b) ≥ 20 ^(c)	≥ 16.5 ^(b) ≥ 12 ^(c)
Grade C ^(a)	≤ 0.35	≥ 0.10	0.29~1.06	≤ 0.048	≤ 0.058	≥ 49.2	≥ 32.7	≥ 30 ^(b) ≥ 20 ^(c)	≥ 16.5 ^(b) ≥ 12 ^(c)

(a) Grade C は製造者側と購入者側との協定により供給される特殊製品である。

(b) 肉厚 5/8" 以上の試験材は弧状試験片を用い小径管に対しては管のままにて試験する。

(c) 標準丸棒試験片を用いた時。