

令和元年6月8日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04238

研究課題名(和文) 超高压水素ガス環境におけるbcc/fcc金属のき裂進展抵抗の決定メカニズム

研究課題名(英文) Determination mechanism of crack-growth resistance of bcc/fcc metals in very high-pressure hydrogen gas environment

研究代表者

松永 久生 (Matsunaga, Hisao)

九州大学・工学研究院・教授

研究者番号：80346816

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：純鉄(BCC)、準安定オーステナイト系ステンレス鋼(FCC)およびアルミ合金(FCC)の疲労き裂進展試験と破壊靱性試験を大気中と水素ガス中で実施した。各条件において水素により加速されるき裂の進展形態、き裂先端部のすべり挙動と転位組織の精緻な観察を行い、特異な破壊形態とともにき裂進展加速が生じるメカニズムおよびその影響因子の解明を試みた。その結果、各材料における水素の影響下でのき裂進展の加速は、水素脆化の主要な基本メカニズムとして提案されているHELP、HESIV、HEDEの3つが複雑に相互作用した結果、それぞれ異なるメカニズムで生じることが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水素ステーションや燃料電池自動車の価格を抑えて広く普及させていくためには、「耐水素性に優れるFCC材」に加えて、「水素の影響を受けるが安価なBCC材」の水素ガス中の強度特性を的確に把握し、適材適所で使用していくことが不可欠である。これを実現するためには、広範な金属材料中の強度特性に及ぼす水素の影響を網羅的に把握し、その微視的機構を学術的観点から理解することが必要である。本研究成果をもとに、水素の影響の素過程を解明して影響メカニズムを系統的に分類し、それらの相互作用を考慮して現象を包括的に理解していくことにより、耐水素材料の開発指針の確立や合理的な強度設計指針が可能になる。

研究成果の概要(英文)：Fatigue crack-growth and fracture toughness tests of pure iron (bcc), meta-stable austenitic stainless steels (fcc) and aluminum alloy (fcc) were performed in air and hydrogen gas. The crack morphologies in addition to the slip behavior and dislocation structure in the vicinity of crack tip were observed in each material tested in various conditions, and the crack acceleration mechanisms were explored. As a result, it was found that the hydrogen-induced crack acceleration in each material is caused by a complicated interaction between three fundamental mechanisms; HELP, HESIV and HEDE, leading to different mechanisms depending on the material types.

研究分野：水素脆化，金属疲労

キーワード：水素脆化 高圧水素ガス環境 金属材料 疲労き裂進展特性 破壊靱性

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

水素ステーションや燃料電池自動車において70～100MPaの高圧水素ガスに曝される部材（配管、弁、蓄圧器など）には、材料中に侵入した水素による強度や延性の低下、いわゆる「水素脆化」を考慮した材料選択と強度設計が必要である。例えば日本国内の基準では、一部の安定オーステナイト系鋼やアルミ合金といったFCC材料は、「水素の影響が小さい」材料として高圧水素ガス部材に使用できる。一方、炭素鋼や低合金鋼といったBCC材料は、高圧水素ガス中で引張特性や疲労特性の低下を示すことから使用が制限されている。水素ステーションや燃料電池自動車の価格を抑えて広く普及させるべくためには、「耐水素性に優れるFCC材」に加えて、「水素の影響を受けるが安価なBCC材」の水素ガス中の強度特性を的確に把握し、適材適所で使用していくことが不可欠である。これを実現するためには、広範な金属材料中の強度特性に及ぼす水素の影響を網羅的に把握し、その微視的機構を学術的観点から理解することが必要である。

2. 研究の目的

主として下記を明らかにすることを目的として、工業用純鉄（BCC）、準安定オーステナイト系ステンレス鋼（FCC）およびアルミ合金（FCC）の疲労寿命試験と破壊靱性試験を大気中と水素ガス中において実施した。

- (1) 各材料・条件において水素により加速されるき裂の進展形態、き裂先端部のすべり挙動と転位組織
- (2) 水素により特異な破壊形態とともにき裂進展加速が生じるメカニズムおよびその影響因子

3. 研究の方法

CT試験片を用いて、疲労き裂進展試験および破壊靱性試験を0.7～95MPaの種々の圧力の水素ガス環境中で実施した。試験後の試験片について、電子線後方散乱回折（EBSD）法および電子チャネリングコントラスト（ECCI）法を組み合わせた走査型電子顕微鏡観察に加え、透過型電子顕微鏡観察により、き裂先端部における変形組織や相変態の挙動の精緻な観察を実施した。

4. 研究成果

- (1) 水素により顕著な疲労き裂進展加速を示すBCC鋼を代表するモデル材として純鉄を用い、その疲労き裂進展特性および破壊靱性を0.2～90 MPaの水素ガス中で評価した。走査型電子顕微鏡（SEM）および透過型電子顕微鏡（TEM）を用いた破面およびき裂断面部の観察から、水素がき裂先端における転位組織発達の助長および抑制という、相反する現象を引き起こすことを明らかにし、これら2つの現象が応力拡大係数や水素ガスの圧力に依存して変化することを示した。また、従来から提唱されてきたき裂先端部への塑性変形の局所化（HELP機構）に対し、水素による転位運動の抑制とそれに伴うミクロな脆性破壊（へき開破壊）が、BCC結晶中における疲労き裂進展加速の主要因であることを明らかにした。
- (2) 塑性変形によりFCC結晶（オーステナイト相）からBCC結晶（マルテンサイト相）への相変態を生じる材料の代表として準安定オーステナイト系ステンレス鋼SUS304とSUS316Lを用い、その疲労き裂進展試験を水素ガス中（外部水素）および水素チャージ下（内部水素）において実施した。外部水素および内部水素に関わらず、同材料中ではき裂先端部でのマルテンサイト変態が水素による疲労き裂進展加速の決定因子であり、FCC相安定性が高いほど耐水素性が向上することを示した。一方、外環境からの水素侵入とき裂進展が同時並行で生じる外部水素に対し、予め多量の水素を含

有させた内部水素の場合では、高い水素量に反して疲労き裂進展の加速量が低下するという特異な結果を得た。この特異性の発現機構を明らかにするために、電子チャネリングコントラスト(ECCI)法による変形下部組織の分析を実施した。その結果、オーステナイト相中に存在する水素が変形中のマルテンサイト変態を抑制し、外部水素の場合には生じないポジティブな効果をもたらしてき裂進展加速が低減されることを明らかにした。

- (3) 安定なFCC構造を有し、時効処理により析出強化を施した7075-T6アルミ合金の疲労き裂進展特性および破壊靱性を0.7~90 MPaの水素ガス中で評価した。その結果、いずれの特性も水素ガス環境中で低下を示さないことが明らかとなった。
- (4) 一連の研究において、水素環境下でのき裂進展の加速は、水素脆化の主要な基本メカニズムとして提案されているHELP, HESIV, HEDEがマルチスケールで複雑に相互作用した結果として生じることが明らかとなった。逆に言えば、強度特性に負の影響をもたらすそれらのメカニズムが発現しない場合には、水素による特性低下は起こらない。今後、一連の結果を耐水素材料の開発指針の確立に繋げていくためには、水素の影響の素過程を解明して影響メカニズムを系統的に分類し、それらの相互作用を考慮して現象を包括的に理解していくことが必要である。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計5件)

- (1) Domas Birenis, Yuhei Ogawa, Hisao Matsunaga, Osamu Takakuwa, Junichiro Yamabe, Øystein Prytz, Annett Thøgersen, Hydrogen-assisted crack propagation in α -iron during elasto-plastic fracture toughness tests, *Materials Science and Engineering A*, 756, 396-404 (2019).
- (2) Yuhei Ogawa, Saburo Okazaki, Osamu Takakuwa, Hisao Matsunaga, The roles of internal and external hydrogen in the deformation and fracture processes at the fatigue crack tip zone of metastable austenitic stainless steels, *Scripta Materialia*, 157, 95-99 (2018).
- (3) Domas Birenis, Yuhei Ogawa, Hisao Matsunaga, Osamu Takakuwa, Junichiro Yamabe, Øystein Prytz, Annett Thøgersen, Interpretation of hydrogen-assisted fatigue crack propagation in BCC iron based on dislocation structure evolution around the crack wake, *Acta Materialia*, 156, 245-253, 2018.06.
- (4) Yuhei Ogawa, Domas Birenis, Hisao Matsunaga, Osamu Takakuwa, Junichiro Yamabe, Øystein Prytz, Annett Thøgersen, The role of intergranular fracture on hydrogen-assisted fatigue crack propagation in pure iron at a low stress intensity range, *Materials Science and Engineering: A*, 733, 316-328, 2018.07.
- (5) Yuhei Ogawa, Domas Birenis, Hisao Matsunaga, Annett Thøgersen, Øystein Prytz, Osamu Takakuwa, Junichiro Yamabe, Multi-scale observation of hydrogen-induced, localized plastic deformation in fatigue-crack propagation in a pure iron, *Scripta Materialia*, 140, 13-17 (2017).

[学会発表] (計15件)

- (1) 小川祐平, 木村由比子, 松永久生, 高桑脩, 山辺純一郎, BCC鉄中の水素誘起疲労き裂進展の微視的機構とき裂進展加速挙動に及ぼす固溶炭素の影響, 日本鉄鋼協会第177回春季講演大会, 東京電機大学東京千住キャンパス, 2019.03.
- (2) Domas Birenis, Yuhei Ogawa, Hisao Matsunaga, Osamu Takakuwa, Junichiro Yamabe, Øystein Prytz and Annett Thøgersen, ASME 2018 Pressure Vessels and Piping Conference (PVP2018),

2018.07.

- (3) Domas Birenis, Yuhei Ogawa, Hisao Matsunaga, Osamu Takakuwa, Junichiro Yamabe, Øystein Prytz, Annett Thøgersen, Hydrogen-assisted fatigue crack propagation in a pure BCC iron. Part II: Accelerated regime manifested by quasi-cleavage fracture at relatively high stress intensity range values, 12th International Fatigue Congress (FATIGUE 2018), 2018.05.
- (4) Yuhei Ogawa, Domas Birenis, Hisao Matsunaga, Osamu Takakuwa, Junichiro Yamabe, Øystein Prytz, Annett Thøgersen, Hydrogen-assisted fatigue crack propagation in a pure BCC iron. Part I: Intergranular crack propagation at relatively low stress intensities, 12th International Fatigue Congress (FATIGUE 2018), 2018.05.
- (5) 小川祐平, Domas Birenis, 松永久生, 高桑脩, 山辺純一郎, 水素ガス環境中疲労き裂進展過程におけるBCC鉄中の粒界破壊メカニズム, 日本鉄鋼協会第176回秋季講演大会, 2018.09.
- (6) 小川祐平, Domas Birenis, 松永久生, 高桑脩, 山辺純一郎, 水素ガス環境中における純鉄の疲労き裂進展特性とその微視的メカニズム, 溶接学会平成30年度秋季全国大会, 2018.09.
- (7) 小川祐平, Domas Birenis, 高桑脩, 山辺純一郎, 松永久生, 高圧水素ガス中におけるBCC鋼の疲労き裂進展加速メカニズム, 日本鉄鋼協会材料の組織と特性部会「水素脆化の基本要因と特性評価」研究会最終報告会, 2018.09.
- (8) 小川祐平, ビレニスドマス, 松永久生, 高桑脩, 山辺純一郎, 水素ガス環境中における純鉄の疲労き裂進展特性とその微視的メカニズム, 溶接学会平成30年度秋季全国大会, 2018.09.
- (9) Yuhei Ogawa, Hisao Matsunaga, Saburo Matsuoka, Dain Kim, Evaluation of the Compatibility of High-Strength Aluminum Alloy 7075-T6 to High-Pressure Gaseous Hydrogen Environment, 2018 Pressure Vessels & Piping Conference, 2018.07.
- (10) 小川祐平, 岡崎三郎, 高桑脩, 松永久生, 準安定オーステナイト系ステンレス鋼中の疲労き裂進展加速に対する内部水素と外部水素の役割, 日本鉄鋼協会第175回春季講演大会, 2018.03.
- (11) 小川祐平, Domas Birenis, 松永久生, 高桑脩, 山辺純一郎, き裂先端の変形組織に基づいた純鉄中の水素助長疲労き裂進展加速機構に関する検討, 日本機械学会九州支部第71期講演会, 2018.03.
- (12) Yuhei Ogawa, Saburo Okazaki, Osamu Takakuwa, Hisao Matsunaga, Micro-scale observation of fatigue crack wake in metastable austenitic stainless steels with internal and external hydrogen, HYDROGENIUS, I2CNER & HYDROMATE Joint Research Symposium, 2018.02.
- (13) 小川祐平, Domas Birenis, 松永久生, 高桑脩, 山辺純一郎, 水素ガス中における純鉄の疲労き裂進展加速機構に関する微視的検討, 日本材料学会九州支部第4回学術講演会, 2017.11.
- (14) 小川祐平, Domas Birenis, 松永久生, 高桑脩, 山辺純一郎, マルチスケール観察手法を用いた純鉄の水素助長疲労き裂進展機構に関する検討, 日本鉄鋼協会第174回秋季講演大会, 2017.09.
- (15) 小川祐平, 金多仁, 松永久生, 松岡三郎, 高強度アルミニウム合金7075 の高圧水素ガス環境適合性, 日本鉄鋼協会第173回春季講演大会, 2017.03.

〔図書〕

なし

〔産業財産権〕

なし

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名:山辺純一郎

ローマ字氏名:Junichiro Yamabe

所属研究機関名:福岡大学

部局名:工学部

職名:教授

研究者番号(8桁):20532336

研究分担者氏名:津崎兼彰

ローマ字氏名:Kaneaki Tsuzaki

所属研究機関名:九州大学

部局名:大学院工学研究院

職名:教授

研究者番号(8桁):40179990

(2)研究協力者

なし

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。