

令和 3 年 6 月 23 日現在

機関番号：32706

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03850

研究課題名(和文)疲労条件下の水素脆化メカニズムに及ぼす過大荷重履歴の影響

研究課題名(英文)The effect of the overload history on hydrogen embrittlement mechanism under fatigue conditions

研究代表者

大見 敏仁 (Ohmi, Toshihito)

湘南工科大学・工学部・准教授

研究者番号：90586489

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、疲労条件下での応力集中部における水素凝集メカニズムに及ぼす過大荷重履歴の影響を数値解析により明らかにし、実験的にも検証・考察を行い以下の知見を得た。

- 1) 水素濃度に関する「過大荷重履歴」の影響について数値解析を行った。この結果、過大荷重により水素凝集が促進される条件があることが示された。また、応力多軸度により水素凝集能力を評価し、水素濃度予測式を提案した。
- 2) 水素チャージ材に対する過大荷重のある疲労試験の実施環境を整備し、試験を実施した。き裂成長速度の加速は観察できなかったが、き裂成長経路の変化が見られた。これにより、過大荷重に依存して水素脆化敏感性が変化する可能性を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水素エネルギー社会の実現に向けて、水素ガスの貯蔵設備には安価で安全な構造設計が必要とされる。一方で、比較的安価で高強度である鋼は水素脆化するが、材料中の水素濃度が上昇する条件を明らかにして水素脆化を未然に防ぐことは非常に重要である。他方、大気中の疲労では過大荷重が悪影響を与えないと考えられているが、水素雰囲気の場合については研究されていない。本研究の成果は、単純な疲労条件の水素脆化研究をさらに進めた独創的な研究であり、水素凝集に対する過大荷重の効果を示した重要な知見を得た。社会的には、地震や衝撃など想定外の荷重が加わった後の水素脆化を予測して安全性を確保するために必要な基礎的な知見と言える。

研究成果の概要(英文)：In this study, the effect of the overload history on hydrogen embrittlement mechanism under fatigue conditions was clarified by numerical analyses and fatigue tests of hydrogen charged specimen. The following results were obtained.

- 1) The numerical analysis for the effect of the overload history on hydrogen diffusion and concentration behavior under cyclic loading condition was conducted. From this analysis, it was indicated that there are some conditions that hydrogen concentration is promoted by overloading. The hydrogen concentration capability was estimated by the triaxial factor, and the hydrogen concentration estimation formula was proposed.
- 2) The fatigue test method with overload to hydrogen charged specimen was established and tested. Acceleration of crack growth rate couldn't be observed, but a crack growth path changed. From these results it was suggested that sensitivity to hydrogen embrittlement under fatigue conditions depended on overload.

研究分野：材料強度学

キーワード：水素脆化 過大荷重 数値解析 疲労強度 水素濃度予測

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、水素エネルギー利用の実現が期待されているが、水素は材料中に侵入し水素脆化現象を誘起させる。しかし、この水素脆化メカニズムは完全には解明されていない。これは、材料中の水素の挙動が非定常であり、水素の実験的な観察が困難であるためである。

一方で、水素脆化が水素濃度の増加によって誘起されることは確かであり、極微量の水素によって引き起こされる。従って、水素脆化の要因である水素濃度の増加メカニズムを解明し、これを制御することが可能となれば水素脆化を防止することも可能であり、工学的に意義がある。

2. 研究の目的

水素は、静水圧応力(3軸応力)の勾配による拡散駆動力を受け、拡散凝集することが実験的に知られている。この静水圧応力最大部は弾塑性境界部に存在する。我々は FEM-FDM 連成解析による水素拡散凝集挙動解析を行い、疲労条件下では、初期降伏域の弾塑性境界と除荷による再降伏域の弾塑性境界の 2 箇所に水素が凝集し、負荷条件によって凝集位置が異なることを解析的に明らかにした。これは単純な繰返し荷重の場合であるが、より実荷重に近い過大荷重の履歴がある場合、加工硬化の特性によっては再降伏域自体が非常に小規模になる場合も考えられる。

一般に、負荷荷重が小さければ疲労設計としては安全だが、水素凝集の場合は弾塑性境界すなわち荷重履歴が重要であり、過大荷重が加わった後の小規模な再降伏域はむしろ水素凝集を加速する可能性がある。過大荷重による切欠き周りの応力状態と水素凝集挙動との間にどのような関係があるのか。また、それらの影響を制御することは可能なのか。これらを明らかにすることが本研究の目的である。

3. 研究の方法

(1) 水素拡散凝集挙動解析の高精度化と物性依存性の調査

応力誘起拡散現象に対しては、より詳細なき裂先端近傍における応力状態を把握し水素の拡散解析に適用する必要がある。水素凝集挙動解析は、物質輸送論の一般式表される相互干渉係数を用いることにより、差分法 (FDM) を用いて行われている。この相互干渉係数は現象に即すように定めてきたが、その物理的意味を水素拡散駆動ポテンシャルの相違からくる拡散係数の比ととらえてきた。拡散は熱活性化過程であるため温度の影響を考慮した解析を行うことが望ましい。塑性履歴を考慮した局所応力状態下の解析手法が構築されれば、水素凝集シミュレータの開発と発展に大きく寄与することができる。これには弾塑性 FEM を用いることにより詳細な応力解析が可能となっている。

本研究では、水素凝集に及ぼす過大荷重履歴の定性的傾向を得るため、ヤング率・加工硬化係数・疲労荷重および過大荷重に的を絞って複数の物性・条件下での解析を行い、水素凝集挙動(凝集位置や水素濃度分布)に及ぼす過大荷重履歴の効果を系統的に比較する。

(2) 小型試験片を用いた水素脆化疲労試験

実験に関しては、鉄鋼材料を用いた大気中水素脆化試験法の適用実績を踏まえ、複数の鉄鋼材料に対する水素脆化試験を行う。本試験方法では、水素チャージ時に応力集中状態を維持することで水素を固定している。試験片の応力状態は、FEM による解析と試験片のひずみ計測結果から定性的な一致を確認している。様々な材料に本試験法を効率的に適用するため、解析により定量的に最適な試験条件を明らかにする。

この試験法を用いて、複数の鉄鋼材料に対する水素脆化試験を行う。比較項目としては、過大荷重の絶対値・過大荷重を付加するタイミングと材料物性であり、き裂成長速度特性を得ることを目的とする。

4. 研究成果

(1) 水素拡散凝集挙動解析の高精度化と物性依存性の調査

①これまでの解析プログラムでは過大荷重の負荷を与えることができなかつたため、任意のサイクル数で任意の過大荷重を負荷可能なようにプログラムの改良を行った。

9 サイクルの繰返し負荷において、過大荷重が 1 サイクル目と 5 サイクル目にある場合では、水素の拡散凝集挙動に顕著な差は見られなかつた。このことから、過大荷重履歴は過大荷重のひびき直後に水素濃度分布に大きな影響を与え、その後の繰返しサイクルにおける影響はあまりないものと考えられる。

②過大荷重により、材料内で凝集した最大水素濃度が増加する可能性があることを解析的に示した。数値解析の結果を図 1 に示す。図は切欠き延長方向の水素濃度分布であり、図中の 0L は負荷荷重の何倍の過大荷重を加えたかを示している。最大 1.5 倍の過大荷重を加える解析を行ったが、図 1 の解析条件では過大荷重が大きければ大きいほど水素凝集が促進されて最大水素濃

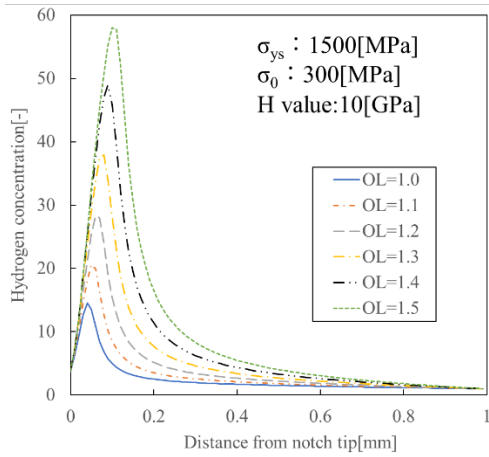


図1 過大荷重効果により水素凝集が促進される場合の水素濃度分布

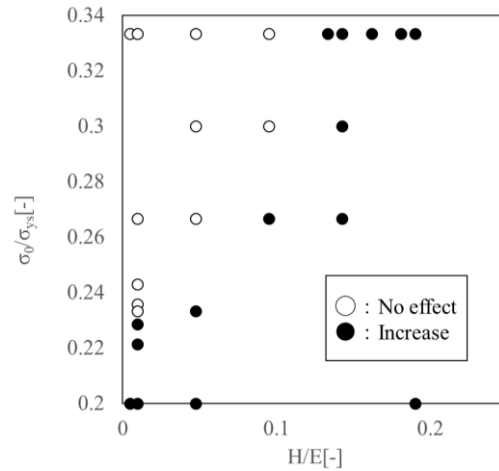


図2 過大荷重効果発現条件のマッピング

度が増加する解析結果が得られた。この過大荷重履歴の発現メカニズムは非常に複雑で、単純な物性や使用条件などのパラメータから規則性を見出すことは困難であった。そこで、横軸にヤング率 E と加工硬化係数 H の比、縦軸に降伏応力と負荷応力の比を取り、過大荷重効果の発現の有無をマッピングした。結果を図2に示す。白抜きのプロット点では過大荷重履歴による水素凝集が生じなかった条件、塗りつぶしのプロット点は過大荷重により最大水素濃度の増加が認められた点である。縦軸の低い領域、すなわち静的強度の安全率が高くなる条件において、水素濃度が増加する傾向が見られ、水素脆化が生じやすい可能性があることが分かる。また、横軸が大きいほど過大荷重効果が表れることも分かる。横軸は材料毎の物性値であり、材料選定や熱処理などに有用なパラメータと言える。

これらの過大荷重効果を解析的に示したことが非常に珍しく、学術的に価値のある結果と言える。

③ 応力多軸性と水素脆化特性の定量的な評価を試みた。本来、水素拡散シミュレータにより予測されるべき水素分布ではあるが、破壊起点での最大水素濃度を如何に予測するかが、設計時の要点となる。本研究では拡散に関わる静水圧応力と塑性領域に関わる相当応力を含む多軸度をパラメータとして用いた。解析は一定応力条件での水素拡散解析を行った。

数値解析の結果を用いて、多軸度 (TF: Triaxial Factor) と降伏応力から最大水素濃度を簡易的に導く予測式を提案した。予測式を式(1)に示す。また、解析値を予測線の比較を図3に示す。

$$C_{max}(TF, \sigma_{ys}) = A(\sigma_{ys}) \cdot TF + B(\sigma_{ys}) \quad (1)$$

$$A(\sigma_{ys}) = 2.5732e^{0.0031\sigma_{ys}}$$

$$B(\sigma_{ys}) = -3.6755e^{0.0032\sigma_{ys}}$$

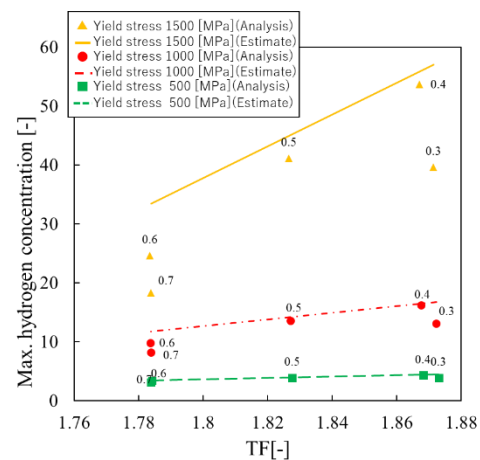


図3 TF 値による最大水素濃度の予測

図3に示すように、降伏応力が高いほど予測精度は低下しているが、水素凝集量の傾向は実験で報告されてきた水素脆化敏感性と一致する。本来は負荷条件や荷重履歴などによって複雑に水素拡散挙動が変化するためこの様な単純な予測は難しいが、今後基準となる水素濃度や水素凝集量で無次元化することで、水素濃度そのものではなく水素凝集能を示すパラメータとして発展させることができると期待できる。

(2) 小型試験片を用いた水素脆化疲労試験

① 所有の疲労試験機では、任意の疲労回数で任意の過大荷重を負荷することができなかったため、試験機の改良を行った。これにより、通常の疲労荷重に過大荷重を混ぜて疲労試験を行うことが可能となった。

②期間内で実施できた実験条件で、顕著なき裂成長速度の増加は確認することができなかった。この実験結果と負荷荷重が低いほど水素凝集が促進される解析結果と比較すると、水素濃度が上昇してき裂が成長する速度よりも試験中に水素が散逸する速度の方が早いためと考え得られる。

今後、最適な水素脆化試験条件のために試験方法の見直しをするか、荷重条件を見直す必要があると考えられる。

一方で、通常の疲労試験では見られないような特徴的なき裂成長経路も観察された。実験後の C(T) 試験片のき裂成長経路を図 4 に示す。通常、C(T) 試験片は切欠き延長方向にき裂が成長する。これは切欠き周りの応力集中状態から最も応力が集中している方向にき裂が成長するためと考えられる。しかしながら本実験では、およそ斜め 45° の方向にき裂が成長した。これは応力集中方向以外に、材料中の欠陥などの破壊起点の生成や連結によって引き起こされたと考えられる。単純な疲労や過大荷重を含む大気中の疲労では観察されず、水素添加した過大荷重を含む疲労条件で観察されたこの現象は、水素脆化に対する過大荷重の影響が水素凝集のみならず、水素脆化メカニズムにも影響する可能性があることを示唆している。



図 4 過大荷重疲労試験での C(T) 試験片のき裂成長経路

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 A. Toshimitsu Yokobori, Jr. Go Ozeki Toshihito Ohmi Tadashi Kasuya Nobuyuki Ishikawa Satoshi Minamoto Manabu Enoki	4. 巻 60
2. 論文標題 Dominating Driven Factors of Hydrogen Diffusion and Concentration for the Weld Joint - Coupled Analysis of Heat Transfer Induced Thermal Stress Driven Hydrogen Diffusion -	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 222-229
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/matertrans.ME201716	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Go Ozeki A. Toshimitsu Yokobori Toshihito Ohmi Tadashi Kasuya Nobuyuki Ishikawa Satoshi Minamoto Manabu Enoki	4. 巻 9
2. 論文標題 Hydrogen concentration behavior of γ - grooved weld joint based on a coupled analysis of heat transfer - thermal stress - hydrogen diffusion	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Advanced Materials Letters	6. 最初と最後の頁 677-683
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.5185/amlett.2018.2160	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 大見敏仁, 藤澤示哉, 寺垣孔生, 横堀壽光
2. 発表標題 局所多軸応力を用いた水素濃度予測
3. 学会等名 材料強度学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Toshihito Ohmi, A.Toshimitsu Yokobori,Jr., Norihiro Yamaji, Seiji Sugawara, Takashi Ebata and Tatsuya Naruse
2. 発表標題 Estimation of Hydrogen Embrittlement Sensitivity for Electromagnetic Stainless Steel Under Fatigue Condition Based on the Proposed Test Method Using a Small Scale Specimen
3. 学会等名 World Hydrogen Technologies Convention (WHTC) 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大見 敏仁, 中原 陸弥, 横堀 壽光
2. 発表標題 水素凝集挙動と局所多軸応力との関係
3. 学会等名 日本機械学会2019年度年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大見敏仁, 藤澤示哉, 津村祥輝, 横堀壽光
2. 発表標題 疲労下の過大荷重が鋼中の水素拡散挙動に及ぼす影響
3. 学会等名 第16回強度設計, 安全性評価シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大見敏仁, 新河征也, 横堀壽光
2. 発表標題 高強度鋼の環境中疲労特性
3. 学会等名 材料強度学会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Toshihito OHMI, A. Toshimitsu YOKOBORI, Jr., Go OZEKI, Tadashi KASUYA, Nobuyuki ISHIKAWA, Satoshi MINAMOTO, Manabu ENOKI
2. 発表標題 HYDROGEN DIFFUSION CONCENTRATION BEHAVIORS FOR SQUARE GROOVE WELD JOINT
3. 学会等名 ASME PVP2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大見敏仁, 横堀壽光, 尾関郷, 糟谷正, 石川信行, 源聡, 榎学
2. 発表標題 I型突合せ溶接継ぎ手の冷却時における水素拡散凝集挙動解析
3. 学会等名 日本材料強度学会・日本学術振興会第129委員会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大見 敏仁, 横堀壽光, 山路教弘, 菅原誠司, 江幡孝司, 成瀬達也
2. 発表標題 小型試験片を用いた水素脆化試験法による電磁ステンレス鋼の耐水素脆化性に有効な添加元素の特定
3. 学会等名 第4回材料WEEK・第34回疲労シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 藤澤示哉, 津村祥輝, 大見敏仁, 横堀壽光
2. 発表標題 疲労中の過大荷重による水素凝集効果
3. 学会等名 材料強度学会学術講演会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------