

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 3 月 31 日現在

機関番号：34315

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2009 ~ 2011

課題番号：21360056

研究課題名（和文）

高圧水素環境下各種金属材料の超長寿命疲労特性に及ぼす応力比の影響に関する研究

研究課題名（英文）

Stress ratio effects on very high-cycle fatigue properties of several type of metallic materials under high-pressure H₂ gas environment

研究代表者

上野 明 (UENO AKIRA)

立命館大学・理工学部・教授

研究者番号：30160188

研究成果の概要（和文）：

固体高分子型燃料電池を搭載した燃料電池自動車の普及のためには、最高 70MPa の高圧水素ガスに曝される各種金属材料の安全性を保証する必要がある。簡便かつ安全に高圧水素環境下での材料強度を測定できる「内圧式高圧水素ガス法」を用いて引張試験と最高 10⁹ サイクルまでの疲労試験を行い、得られた結果は、高圧水素ガス容器中で行う従来法と同じ傾向であることを確認することで、「内圧式高圧水素ガス法」の有効性を実証した。

研究成果の概要（英文）：

A fuel-cell systems without carbon dioxide emissions are a one of the promising technique for prohibiting a global warming. In case of a fuel-cell vehicle (FCV), high-pressure H₂ gas, up to 70 MPa, is indispensable for a long running range. Although there are lot of paper for studying a hydrogen embrittlement (HE), there are few paper referred to the effect of high-pressure H₂ on the HE phenomenon.

In this study, an effect of high-pressure H₂ gas on fatigue properties of several types of structural metallic materials were investigated by means of internal high-pressure H₂ gas technique. And a validity of this technique was confirmed.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	10,200,000	3,060,000	13,260,000
2010 年度	2,900,000	870,000	3,770,000
2011 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
年度			
年度			
総計	15,200,000	4,560,000	19,760,000

研究分野：材料強度学

科研費の分科・細目：機械工学、機械材料・材料力学

キーワード：水素ぜい性、高圧水素ガス、疲労強度、疲労き裂進展特性

1. 研究開始当初の背景

燃料電池をはじめとする水素エネルギーは、地球環境保全のために極めて有効な次世代クリーンエネルギーとして期待されているが、その実用化のためには、まだ克服すべき課題が数多く存在しているのも事実である。特に、水素が各種材料に及ぼす影響の把

握や、そのメカニズムを解明することは避けずには通れない重要研究課題である。しかし、高圧水素環境下での実験が可能な研究施設は未だ少ないため、上記の研究課題は十分に解明されていないのが現状である。

2. 研究の目的

本研究では、高圧ガス保安法に抵触しない

独創的な実験方法を用いて、常圧を含めた各種圧力の水素ガス中で、水素ガスを利用する各種機器用金属材料の強度特性（特に、超長寿命域疲労特性）を調べ、これらの機器を長期間の間、安心して安全に利用するために必要な基礎研究を行ない、水素エネルギー利用社会早期実現に貢献することを目指す。

3. 研究の方法

本研究では内圧式高圧水素法を用いた。この方法は、研究分担者である緒形によって提唱された方法であり、試験片を高圧容器内に入れて実験を行うのではなく、図1に示すように、試験片の中央に空けた細穴の内部に高圧水素ガスを入れ、引張試験や疲労試験を行う方法である。この方法を用いると、実験設備に対する防爆対策が必要なく、使用する水素もごく少量であるため、低コストで安全に実験ができる。本研究では図2のように、試験片の両端のボルト穴をボルトと真空封止剤で封止し、試験片側面の穴にガス注入用アダプター、バルブ、配管、圧力計を取付け、細穴内を一旦真空にした後、水素ポンプから約15 MPa (= 約150気圧)水素ガスを注入した。その後、バルブを閉じて試験片を配管系から切り離して水素圧が低下しないのを確認しながら実験を行った。なお、研究代表者(上野)は、高圧水素タンク用ライナー候補材であるアルミニウム合金 A7075 と高圧水素用配管候補材であるオーステナイト系ステンレス鋼 SUS316 を用いて引張試験と疲労試験を行った。研究分担者(緒形)は、高圧水素機器用高強度鋼 SCM440 を用い、内圧式高圧水素法が超音波疲労試験に適用できるかを検証するための実験を行った。

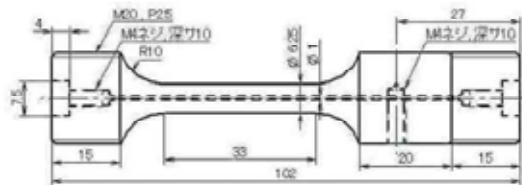


図1 内圧式高圧水素法用試験片形状寸法（疲労試験片の例）



図2 試験片及び配管系

4. 研究成果

- (1)アルミニウム合金 A7075 を用いた結果：
S-N特性
水素あり (= 水素圧 15 MPa 封入) と水素

なし材で求めた S-N特性を図3に示す。実験は、電磁式疲労試験機を用いて、常温下、応力比 $R = -1$ 、試験周波数 $f = 200$ Hzで行った。アルミニウム合金の場合、一般に、疲労限度は現れないが、高圧水素の場合も同様である。しかし、 10^7 サイクルおよび 10^8 サイクルにおける時間強度を比較すると、水素なし材に比べ水素あり材の方が疲労強度が低下しており、破断繰返し数 N_f の増加とともに、その差は増大することがわかる。

破面観察結果

走査型電子顕微鏡(SEM)を用いて、疲労試験で破断した破面を詳細に観察した。疲労破壊した場合に破面に形成されるストライエ

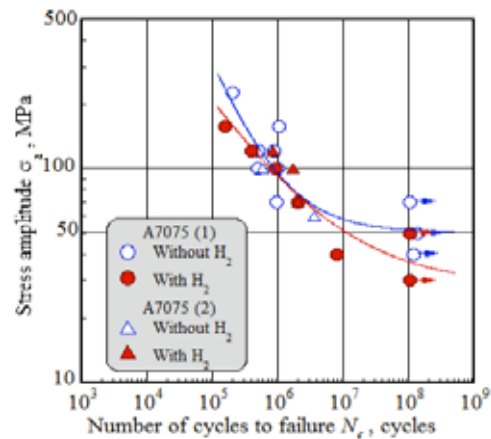


図3 アルミニウム合金 A7075 の S-N特性

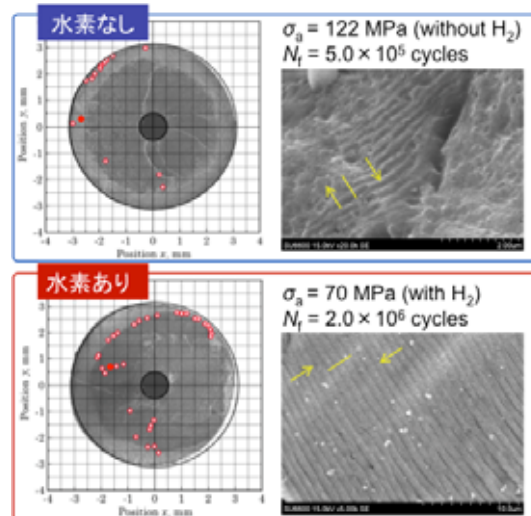


図4 アルミニウム合金 A7075 の破面観察例（上段：水素あり材，下段：水素なし材）

ションを探し、ストライエーション模様が見つかった場合は、破面上の位置を用いて細穴表面から発生し同心円的に疲労き裂が成長したとの仮定のもとで疲労き裂長さを求め、内圧を考慮した応力拡大係数範囲 ΔK を算出した、併せて、ストライエーション模様から縞模様の平均間隔 s を測ることで、疲労き裂成長速度とみなした。

このようにして得られた ΔK - s 関係の一例を図5に示す。図中の○は水素あり材、●は水素なし材の結果である。図中の実線は、別途求めたA7075の疲労き裂進展特性であり、水素なし材で得られた進展特性と概ね一致している。水素あり材のき裂は、水素なし材に比べ、小さな ΔK でも高速で進展することがわかる。 ΔK が5~6 MPa \sqrt{m} 程度で進展速度がほぼ一定になるが、この現象は、金属材料の応力腐食割れき裂進展における挙動と似ている。 ΔK が7 MPa \sqrt{m} 程度以上でき裂進展速度は減速し、水素なし材の進展挙動へ漸近する傾向が見られるが、この挙動は、き裂が大きく成長し一部が試験片表面に到

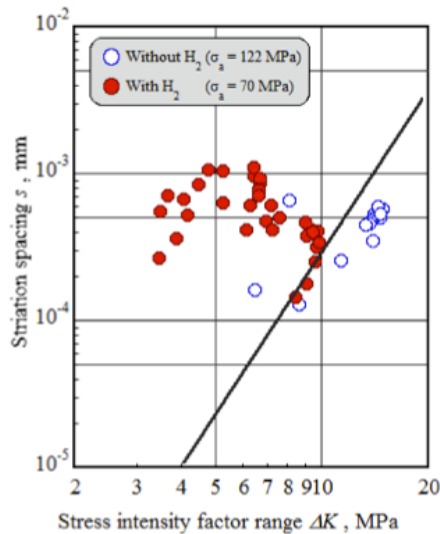


図5 アルミニウム合金 A7075 の疲労き裂進展特性の例

達し、高圧水素ガスがリークし水素の影響が低減したことに起因すると考えられる。

(1) ステンレス鋼 SUS316 を用いた結果：

S - N 特性

水素あり (= 水素圧 15 MPa 封入) と水素なし材で求めた S - N 特性を図6に示す。実験は、電磁式疲労試験機を用いて、常温下、応力比 $R = -1$ 、試験周波数は試験片の発熱を避けるために $f = 20$ Hz で行った。ステンレス鋼の場合、一般に、明確な疲労限度が現れるが、高圧水素の場合も同様である。水素あり材の疲労試験結果のばらつきが大きいため実験結果をさらに蓄積する必要があるが、時間強度域、疲労限度ともに SUS316 の場合は、高圧水素ガスによる影響は少ないことがわかる。

破面観察結果

前述の A7075 の場合と同様に、図7に示すように SEM を用いて破面を詳細に観察し、ストライエーションが見つかった場合は、その位置における ΔK とストライエーション間隔 s から疲労き裂進展特性を調べた。結果の一例を図8に示す。

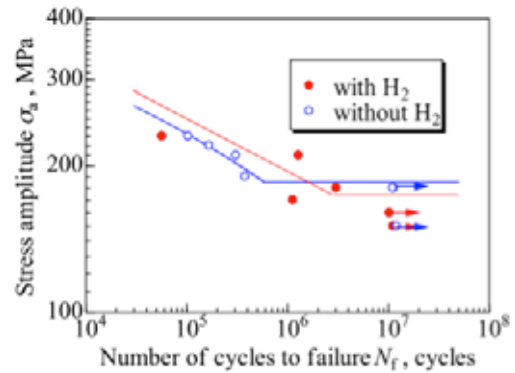


図6 ステンレス鋼 SUS316 の S - N 特性

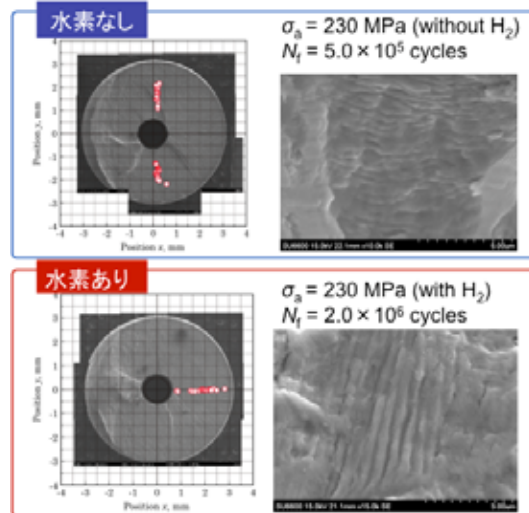


図7 ステンレス鋼 SUS316 の破面観察例 (上段：水素あり材，下段：水素なし材)

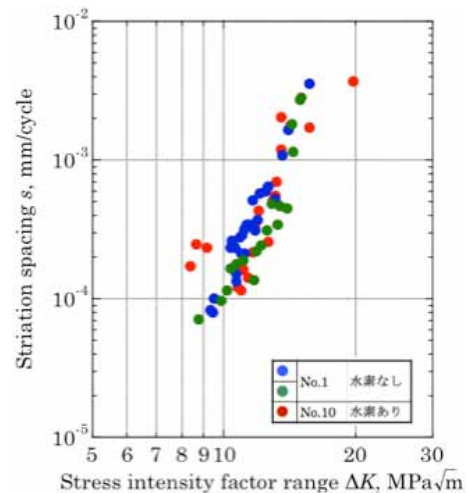


図8 ステンレス鋼 SUS316 の疲労き裂進展特性の例

試験片の破断を検知してから試験機が停止するまでに若干のタイムラグがあり、その間に破面同士が接触する。前述の A7075 に比べ SUS316 では、試験周波数が遅く、材質的に硬いため、破面上の至る所に図7に示すような明瞭なストライエーション模様が観察

できる。ストライエーションの形態等に対する水素あり・なしの影響は認められない。図8のと は水素なし材による結果、 は水素あり材による結果を示すが、SUS316の場合は、水素あり・なしの違いによる疲労き裂進展速度の差異は認められない。前述の S-N特性も含め、SUS316の場合は、室温における疲労特性においては、高圧水素ガスの影響は殆どないといえる。

(3)高強度鋼 SCM440 を用いた結果：

燃料電池システム用金属材料としては、ステンレス鋼より安価な鋼を使用するのが望ましい。また、より長期間の耐高圧水素ガス安全性を保证するために、通常の 10^7 サイクルまでの疲労試験だけではなく、 10^9 サイクル程度までの超高サイクル疲労特性を把握する必要がある。超高サイクル疲労域までの実験を行うためには、通常の疲労試験機を用いた実験では1年程度の長時間を要するため、20 kHz という高周波数で実験可能な超音波疲労試験機を用いた実験が望ましい。

そこで、図9に示す超音波疲労試験を用いて、高強度鋼であるクロムモリブデン鋼 SCM440 の超高サイクル疲労特性に及ぼす高圧水素ガスの影響を調べた。

図10は得られた S-N特性の一例である。図中の (高圧水素ガス注入用細穴なし)と (細穴に空気注入)はほぼ同じ S-N特性を示すことから、細穴付き試験片でも超音波疲労試験が可能ながわかる。また、 と (細穴に高圧水素ガス注入)の比較から、SCM440の場合、室温でも高圧水素ガスによって疲労強度が低下する恐れのあることがわかる。



図9 超音波疲労試験システム概観

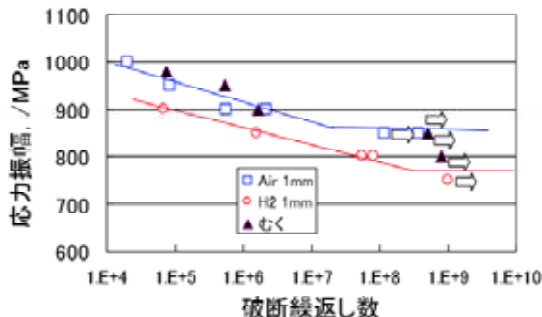


図10 高強度鋼 SCM440 の S-N特性

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4件)

- (1) Toshio Ogata, Influence of high pressure hydrogen environment on tensile properties of stainless steels at low temperatures, Advances in Cryogenic Engineering Materials, Vol.58 (2012) (印刷中), 査読有
- (2) 緒形俊夫, 構造材料の極限環境での特性評価及び国際標準化, ふえらむ, Vol.15, pp.436-440(2010), 査読有.
- (3) 緒形俊夫, 社会を支える金属材料の機械的特性試験, 標準化と品質管理, Vol.63, pp.5-7 (2010).
- (4) Toshio Ogata, Hydrogen embrittlement evaluation in fatigue properties of stainless steel SUS304L at cryogenic temperatures, Advances in Cryogenic Engineering Materials, Vol.56, pp.25-32 (2010), 査読有.

[学会発表](計8件)

- (1) 上野 明, 内圧式高圧水素法を用いた金属材料の疲労特性に及ぼす高圧水素ガスの影響評価, 日本材料学会第103回フラクトグラフィ部門委員会, 2012年3月15日, 大阪科学技術センター(大阪府).
- (2) Akira UENO, Effect of high-pressure H₂ gas on fatigue properties by means of internal high-pressure H₂ gas technique, 5th International Symposium on Nanostructures, 2012年3月5日, Wenden, Germany.
- (3) 上野 明, 燃料電池システム用金属材料の疲労強度に及ぼす高圧水素ガスの影響, FC EXPO 2012, 2012年3月1日, 東京ビッグサイト(東京都).
- (4) Akira UENO, Effect of high-pressure H₂ gas on fatigue properties by means of internal high-pressure H₂ gas technique, 北航・立命館大学第3回新材料検討会, 2011年12月10日, 北京航空航天大学(中国).
- (5) 上野 明, 川島亮太, 西岡 瑛, 内圧式高圧水素法を用いたアルミニウム合金の疲労破壊じん性値に及ぼす高圧水素ガスの影響, 日本材料学会第15回破壊力学シンポジウム, 2011年11月25日, 石垣市民会館(沖縄県).
- (6) 上野 明, 西岡 瑛, 内圧式高圧水素法を用いた金属の強度特性に及ぼす高圧水素ガスの影響評価, 日本材料学会第60期総会・学術講演会, 2011年5月24日, 大阪大学コンベンションセンター(大阪府).
- (7) 上野 明, 川島亮太, 内圧式高圧水素法を用いた金属の疲労特性に及ぼす高圧水

素ガスの影響評価，日本材料学会第 60 期
総会・学術講演会，2011 年 5 月 24 日，大
阪大学コンベンションセンター(大阪府)。
(8)緒形俊夫，横川清志，Materials safety for
high-pressure hydrogen storage for
fuel cell vehicles, 韓国機械学会，2010
年 11 月，済州島（韓国）。

〔図書〕(計 1 件)

・境田彰芳，上野 明他 3 名著，材料強度学，
コロナ社(2011),p.76 ~ p.106.

〔その他〕

ホームページ等

[http://www.ritsumei.ac.jp/~kiku-sho/
uenolab_index.html](http://www.ritsumei.ac.jp/~kiku-sho/uenolab_index.html)

6 . 研究組織

(1)研究代表者

上野 明 (UENO AKIRA)

立命館大学・理工学部・教授

研究者番号：30160188

(2)研究分担者

緒形 俊夫 (OGATA TOSHIO)

(独)物質材料研究機構・材料信頼性センター・
センター長

研究者番号：20354243

飯野 豊 (IINO YUTAKA)

豊田工業大学・工学部・教授

研究者番号：20005367【H21 年度のみ】