

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 28 日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17930

研究課題名(和文)歪評価に立脚した局所的な水素凝集マッピング法の構築

研究課題名(英文) Evaluation of hydrogen distribution at vicinity of a crack employing a local strain measurement

研究代表者

高桑 脩 (Takakuwa, Osamu)

九州大学・水素材料先端科学研究センター・特任准教授

研究者番号：60633518

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究テーマではき裂先端などへの応力集中部への水素凝集挙動を明らかにするために微小部エックス線ひずみ測定を用いて水素固溶に誘起された局所ひずみ(水素誘起ひずみ)を評価した。その結果、水素誘起ひずみと水素量の間には強い相関関係があり、水素誘起ひずみはき裂先端からの距離に対して極大値を持ち、その値、および位置は応力拡大係数により変化することを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Hydrogen concentrating around a crack tip significantly accelerates crack propagation, i.e., hydrogen embrittlement. In order to clarify the mechanism leading to this, the local hydrogen concentration behavior, i.e., at a crack tip, was evaluated by numerical analysis and experimental measurements. Although thermal desorption analysis can be used to evaluate the total hydrogen content in metals, it cannot be applied to local areas. Microprint methods, which use chemical reactions between hydrogen and coated elements cannot quantitatively evaluate the hydrogen content. The present study takes account of hydrogen-induced strain, and X-ray diffraction in a confined area was employed to detect variations in lattice spacing before and after hydrogen charging. Using X-ray diffraction applied to a small area, it was demonstrated that the hydrogen concentrates in the vicinity of the crack, i.e., at the elastic-plastic boundary.

研究分野：材料力学

キーワード：水素脆化

(1) 研究開始当初の背景

環境負荷低減のために水素をエネルギーに利用する水素社会の構築が進められているが、その解決すべき課題の一つに水素脆化がある。水素はき裂先端に応力勾配を駆動力の一つとして凝集し、き裂進展を顕著に加速させる。水素脆化の機構解明、材料の水素脆化敏感性評価にはき裂先端への水素凝集挙動の把握が重要である。き裂先端への水素凝集に関する数多くの研究がそれぞれの理論に基づいた数値解析を用いて実施されてきた。それらにより、水素の材料内でのふるまいが明らかにされてきたが、実験的実証は行われていない。一方、水素が侵入すると格子ひずみが発生する。本研究では水素誘起ひずみと定義し、X線回折を用いた微小部ひずみ測定により水素誘起ひずみを測定した。また、水素誘起ひずみと水素濃度の相関関係を調べ、応力負荷されたき裂先端での水素凝集挙動を明らかにした。

(2) 研究の目的

本研究では、微小部ひずみ測定によりき裂先端への水素凝集挙動を実験的に明らかにすることを目的とする。

(3) 研究の方法

① 試験片

供試材にはオーステナイト系ステンレス鋼 SUS316L を用いた。試験片形状を図1に示す。平面曲げ疲労試験片に切り欠きを作製し、長さ $2a = 7, 9, 11$ mm の疲労き裂を導入した。疲労き裂導入後に曲率半径 $\rho = 1200, 2000, 3500$ mm の曲げ治具に固定し、応力を負荷した。上記き裂長さと負荷応力を組み合わせて様々な応力拡大係数を実現した。

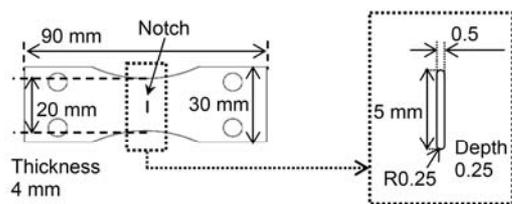


図1 試験片形状および寸法

② 水素チャージ

試験片への水素チャージは、試験片を陰極、白金線を陽極とし電気分解により水素を発生させる電解チャージ法により行った。治具を用いて試験片中央部直径 20 mm の円部でのみ試験片が電解液と接触するようにし、試験片に印加する電流密度を一定とする定電流法により水素チャージを行った。電解液には H_2SO_4 水溶液 0.5 mol/L を用い、液温度 $50^\circ C$ 、チャージ電流密度 i_c を 0.01, 0.1, 0.5, 1.0 mA/mm^2 とし、試験片への導入水素濃度を変化させた。水素濃度と水素誘起ひずみの相関

を調べるため、水素チャージ時間を 4, 8, 24, 48 h と変化させた。水素濃度はガスクロマトグラフィーを用いた昇温脱離装置により測定した。X線侵入深さが $10\ \mu m$ ほどであるため、水素侵入深さと X線侵入深さで水素濃度を図2のように補正した。

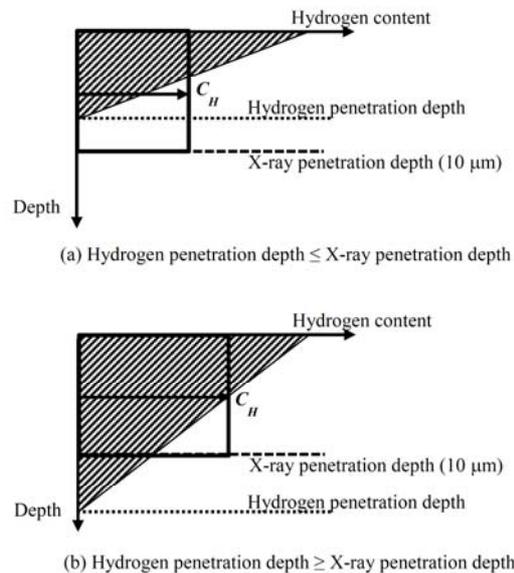


図2 X線侵入深さと水素侵入深さによる水素濃度の補正

(4) 研究成果

図3に水素チャージ前後のX線回折プロファイルと回折デバイリングを示す。水素チャージにより回折ピークがシフトしていることが分かる。このピークシフトは水素誘起ひずみを検出していることを意味する。

図4に電流密度に対する水素チャージ時間と水素誘起ひずみの変化を示す。チャージ時間が長く、電流密度が高いほど水素誘起ひずみが増大していることがわかる。そこで、図5には水素濃度と水素誘起ひずみの関係を示す。

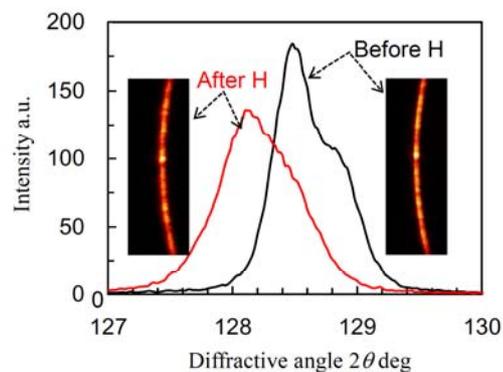


図3 水素チャージ前後における回折プロファイルの変化

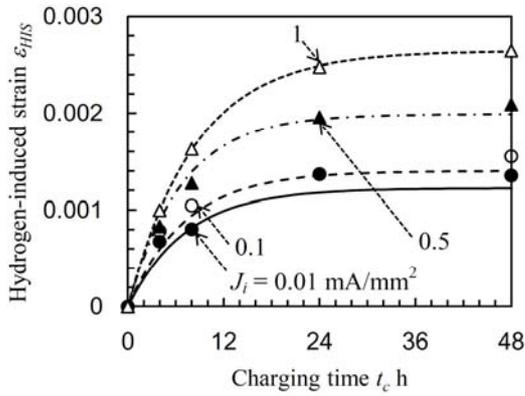


図4 電流密度，チャージ時間による水素誘起ひずみの変化

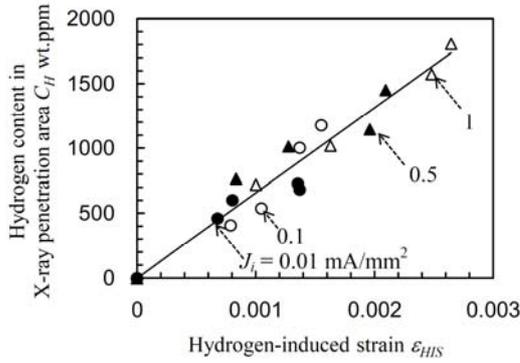


図5 水素誘起ひずみと水素濃度の関係

水素誘起ひずみと水素濃度の間には式(1)で表される強い相関関係があることがわかる。

$$C_H = k_1 \varepsilon_{HIS} \quad (1)$$

$k_1 = (6.57 \pm 0.21) \times 10^5$ である。この関係を用いて以下では水素誘起ひずみを水素濃度に変換する。

図6には代表として、応力拡大係数 $K = 10.70 \pm 1.51 \text{ MPa m}^{1/2}$ の際のき裂先端の応力分布と水素濃度分布を示す。図中の曲線は以下の式で表される。

$$\sigma_T = k_2 \ln(X+1) + c_1 \quad (X \leq X_{CH \max}) \quad (2)$$

$$\sigma_T = \left(\frac{c_2}{X} \right)^n + c_3 \quad (X \geq X_{CH \max}) \quad (3)$$

$$C_H = k_3 \ln(X+1) + c_4 \quad (X \leq X_{CH \max}) \quad (4)$$

$$C_H = \left(\frac{c_5}{X} \right)^n + c_6 \quad (X \geq X_{CH \max}) \quad (5)$$

k_2, k_3 および $c_1 \sim c_6, n$ は最小二乗法で得られる定数である。 $K = 10.70 \pm 1.51 \text{ MPa m}^{1/2}$ では、最大水素濃度がき裂進展からの距離 $X = 0.6 \text{ mm}$ で 2589 wt.ppm であった。この値は $X = 1 \text{ mm}$ における 1760 wt.ppm より 47% 高い。また、最大水素濃度は最大応力位置と一致した。すなわち、この結果は弾塑性境界に水素が凝集していることを示唆している。

様々な応力場における最大水素濃度と最大水素濃度位置を検証した結果を図7にまとめて示す。応力拡大係数が増大するほど

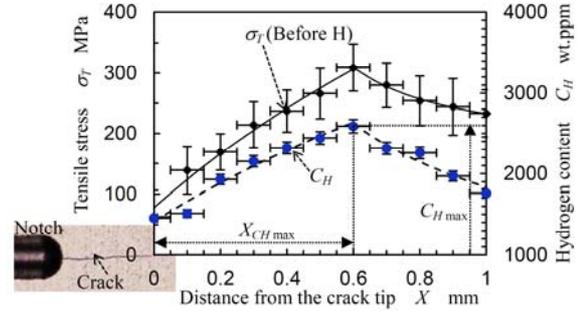


図6 き裂先端における水素濃度分布

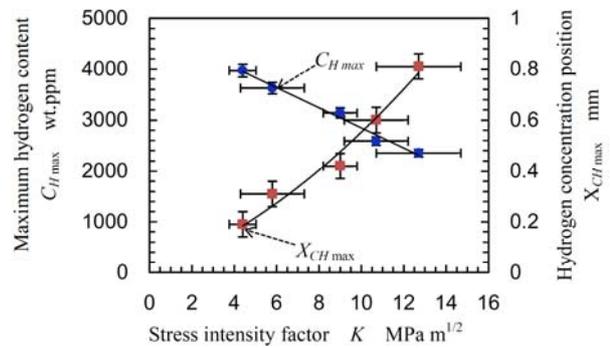


図7 応力拡大係数と最大水素濃度および最大水素濃度位置の関係

最大水素濃度位置はき裂先端から遠ざかり、最大水素濃度が減少している。これは応力拡大係数が增大するほど、塑性変形領域が拡大し、弾塑性境界が遠くなること、応力勾配が緩慢になることが理由として挙げられる。最大水素濃度位置 X_{CHmax} と応力拡大係数の関係は以下の式で記述できる。

$$X_{CHmax} = k_4 K^2 \quad (6)$$

$$X_p = k_5 K^2, \\ k_5 = \frac{\pi}{8} \left(\frac{1}{\sigma_Y} \right)^2 \quad (7)$$

$k_4 = (5.24 \pm 0.5) \times 10^3$ であり、 $k_5 = 4.74 \times 10^3$ ($\sigma_Y = 288$ MPa) である。すなわち、最大水素濃度位置は塑性変形領域に相当する。

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 2 件)

熊谷直輝, 高桑脩, 祖山均, キャビテーションピーニングによる高張力ボルトの遅れ破壊耐性の向上, 日本機械学会論文集, Vol. 82, 842 (2016), 16-00111.

Osamu Takakuwa, Takuya Fujisawa, Hitoshi Soyama, Experimental Verification of the Hydrogen Concentration Behavior around a Crack Tip Using a Spot X-ray Diffraction, International Journal of Hydrogen Energy, Vol. 41, 48 (2016), 23188-23195.

[学会発表] (計 4 件)

Osamu Takakuwa, Improvement of the resistance to delayed fracture in high-strength Cr-Mo steel by means of cavitation peening, Skukuza, Kruger National Park, South Africa, 6th November (2016).

Osamu Takakuwa, Prevention of hydrogen entry in stainless steel using a surface modification, M&M International Symposium for Young Researchers, Stony Brook University, USA, 15th August (2016).

高桑脩, 藤沢拓弥, 祖山均, 微小部ひずみ測定を用いたき裂先端部への水素凝集挙動の実験的評価, 日本鉄鋼協会第 170 回秋季講演大会, 福岡市, 9 月 17 日, (2015).

高桑脩, 藤沢拓弥, 祖山均, 微小部 X 線回折測定によるき裂先端への局所的水素凝集挙動の評価, 日本機械学会 2015 年度年次大会, 札幌市, 9 月 15 日, (2015).

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

○取得状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高桑 脩 (TAKAKUWA, OSAMU)

東北大学大学院工学研究科・助教
(~2016 年 9 月)

九州大学水素材料先端科学研究
センター・特任准教授

(2016 年 10 月~)

研究者番号: 60633518

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号:

(4) 研究協力者

()