

令和元年5月23日現在

機関番号：37111

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K17985

研究課題名（和文）黒鉛の特異な水素吸蔵能力を利用したき裂進展特性の解明と耐水素用最適鑄鉄組織の確立

研究課題名（英文）Investigation of crack growth property utilizing remarkable capability for hydrogen storage of graphite and establishment of optimal microstructure of ductile cast iron resistant to hydrogen

研究代表者

松尾 尚 (Matsuo, Takashi)

福岡大学・工学部・助教

研究者番号：40736542

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）：球状黒鉛鑄鉄の水素吸蔵特性および引張破壊における水素脆化特性と黒鉛寸法の関係を明らかにした。黒鉛寸法が大きくなると、直径およそ13 μ mを境にして急激に水素吸蔵量が大きくなり、水素脆化特性もこれに伴い顕著になった。5Hzから0.0002Hzまで周波数を変化させながら、一定の応力拡大係数範囲でき裂進展速度を比較したところ、5Hzと0.5Hzではほとんどき裂進展速度に差は生じなかった。一方で、0.001Hzまで周波数を低下させるときき裂進展速度は明らかに加速し、0.0002Hzではき裂進展の加速はさらに顕著になった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

地球温暖化など地球規模の資源・環境問題が深刻化する中で、水素エネルギーに注目が集まっている。現状では水素機器を安全に使用するために、水素脆化の起こりにくい比較的高価な材料のみが水素機器での使用を許可されている。本研究では安価で汎用性の高い球状黒鉛鑄鉄に注目し、球状黒鉛鑄鉄の組織因子と水素脆化特性の関係について系統的研究を行った結果、耐水素性に優れた球状黒鉛鑄鉄の組織制御指針について一定の成果を得た。この成果に基づき、水素用鑄鉄が実用化できれば、水素機器用材料の製造方法に鑄造という新たな選択肢を与えることになり、水素機器の低コスト化にも大きく貢献できると考えられる。

研究成果の概要（英文）：It was found that the amount of hydrogen stored in ductile cast iron (DCI) was dependent on the graphite size. As the graphite diameter increased, the hydrogen content sharply increased at a certain graphite diameter, and then it became nearly constant irrespective of increase in graphite diameter. In other words, there was the critical graphite diameter that significantly changed the hydrogen absorption capability. The ductility was decreased by hydrogen, and the hydrogen-induced ductility loss was dependent on the hydrogen content. Therefore, the hydrogen embrittlement of DCI became remarkable when the graphite size was larger than the critical value.

The fatigue crack growth properties of hydrogen-charged DCI were investigated at the frequency of 0.0002 - 5 Hz. The crack growth acceleration ratio due to hydrogen was almost constant at the frequencies of 5 and 0.5 Hz, and it became pronounced with decrease in the test frequency.

研究分野：材料力学、破壊力学、水素脆化

キーワード：球状黒鉛鑄鉄 水素脆化 黒鉛 組織因子 引張破壊 疲労破壊

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

地球温暖化やエネルギー資源の枯渇といった地球規模の問題が深刻化する中で、新たなエネルギーキャリアとして水素が注目されている。水素を安全に利用するためには、水素脆化（金属材料中に侵入した水素によって強度特性が低下してしまう現象）を解決することが必要不可欠である。

現在、水素燃料電池自動車や水素ステーションといった水素利用機器に使用される金属材料は、水素脆化が起こりにくい一部の比較的高価な材料に限定されているが、今後本格的に水素社会を確立するためには、より安価で汎用性のある材料も水素環境下で安全に使用できる必要がある。

2. 研究の目的

本研究では、汎用性の高い材料として球状黒鉛鑄鉄に注目した。球状黒鉛鑄鉄は、材質制御の自由度が高く、組織因子を適切に制御することで耐水素性に優れた球状黒鉛鑄鉄を開発できる可能性がある。そこで、黒鉛寸法や黒鉛率、基地組織の異なる球状黒鉛鑄鉄の水素脆化特性を系統的に調査し、耐水素性に優れた鑄鉄の組織制御指針を得ることを目的とする。また、球状黒鉛鑄鉄中の黒鉛が極めて大量に水素を吸蔵する特性に着目し、低周波数における疲労き裂進展特性に及ぼす水素の影響についても調べる。

3. 研究の方法

(1) 球状黒鉛鑄鉄の組織因子と水素脆化特性の関係の調査

黒鉛寸法や黒鉛率、基地組織の異なる様々な球状黒鉛鑄鉄を準備し、これらに水素チャージを施した後に引張試験を行った。水素脆化特性の指標として絞りを採用し、これを比較することで水素脆化度合いの大小を判断した。また、破断した試験片の破面や縦断面を観察することで、水素チャージした球状黒鉛鑄鉄の破壊挙動についても調べた。水素チャージには浸漬法および高圧ガス曝露法を採用した。

(2) 球状黒鉛鑄鉄の疲労き裂進展特性に及ぼす水素の影響の調査

一般的なフェライト基地球状黒鉛鑄鉄（FCD400）を用いて、水素チャージした後に疲労き裂進展試験を行った。破壊起点として人工微小穴を導入し、荷重振幅一定でき裂をある程度進展させた後、応力拡大係数一定の下で試験周波数を変えながら疲労試験を行った。

4. 研究成果

(1) 黒鉛寸法と水素脆化特性の関係

黒鉛寸法の異なる3種類のフェライト基地鑄造ブロックを用いて、さらに同一ブロック内の黒鉛寸法の変化にも注意しながら、黒鉛寸法と水素吸蔵特性の関係を詳細に調査した結果、黒鉛寸法がある閾寸法を超えると急激に水素吸蔵量が増加することを明らかにした（図1）。水素吸蔵量が急増する閾黒鉛寸法は約13 μmである。これに伴い、引張試験における相対絞り（同一条件の材料における未チャージ材に対する水素チャージ材の絞りの比）も黒鉛寸法がある閾寸法を超えたところで急激に低下した（図2）。

また、未チャージの球状黒鉛鑄鉄の引張破壊挙動は、黒鉛を起点としたボイド成長・連結であったが、水素チャージ材では黒鉛を起点として擬へき開破壊が発生しており、これが水素による延性低下の原因だと考えられる。

(2) 黒鉛面積率と水素脆化特性の関係

黒鉛面積率が減少すると、球状黒鉛鑄鉄の水素吸蔵量は減少したが、水素チャージした鑄鉄の絞りは、黒鉛面積率にかかわらず一定であった。黒鉛面積率が減少するということは（黒鉛寸法はほぼ一定なので）黒鉛の数が減少することを意味し、試験片全体としての水素吸蔵量の減少は、黒鉛の数が減ったことによるものである。すなわち、個々の黒鉛が有する水素量は、黒鉛面積率が変わったとしても（水素チャージ条件が同じで

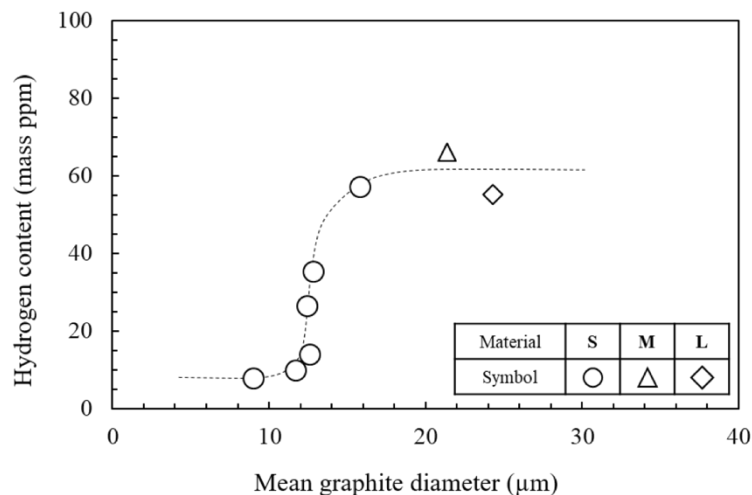


図1 平均黒鉛寸法と水素吸蔵量の関係

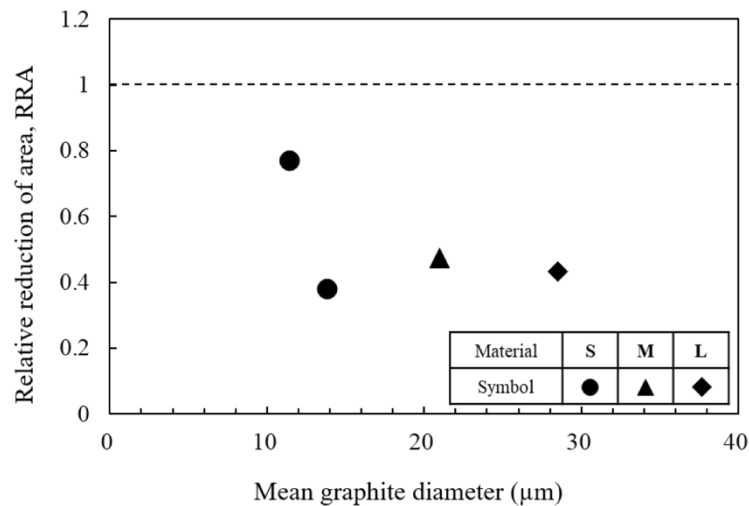


図2 平均黒鉛寸法と相対絞りの関係

あれば) 変化しないと考えるのが自然である。上述したような水素チャージ材における黒鉛起点の擬へき開破壊は、試験片全体の水素量よりも個々の黒鉛が有する水素量に影響を受けると考えられるので、黒鉛面積率の減少に伴い試験片全体の水素量が減少したとしても、水素脆化の指標である絞りはほとんど変化がなかったものと思われる。

一方、未チャージ材では黒鉛面積率の減少に伴い絞りが上昇した。これは、黒鉛の数が減少することで幾何学的にポイド同士の連結が難しくなった(大きな変形が必要になった)ことが原因だと考えられる。

(3) 基地組織と水素脆化特性の関係

上述した結果はフェライト基地の鋳鉄を用いた実験によるものであったが、フェライト・パーライト比率の異なる鋳鉄を利用して、鋳鉄の水素脆化に及ぼすパーライトの影響を調査した。フェライト基地鋳鉄(FCD400)では、水素脆化度合い(相対絞り)は引張速度の影響を受けずにほぼ一定の水準であった。一方、パーライトを多く含む鋳鉄(FCD700)では、引張速度が速いとき(50 mm/min)はFCD400とほぼ同水準の相対絞りを示したが、引張速度が遅くなると(0.02 mm/min)相対絞りが大幅に低下した。このような基地組織による違いは、破壊起点の違いを考慮することで説明できる。FCD400では、破壊はほとんど黒鉛を起点として発生する。水素チャージしたFCD400では、黒鉛と基地が剥離するとただちに黒鉛にトラップされていた水素がき裂先端へと供給されるため、あまり引張速度の影響を受けないものと考えられる。一方、FCD700では黒鉛起点の破壊だけではなく、パーライトを起点とした破壊(いわゆるパーライト割れ)も同時に発生する。水素チャージしたFCD700のパーライト割れに対しては、黒鉛から水素が供給されるのではなく、基地組織から水素が供給され破壊に影響を及ぼすと考えられる。基地中の水素拡散には時間を要するため、パーライト比率が大きくなり、パーライト割れの割合が増加するほど、水素脆化特性は時間依存型となり、引張速度が遅いほど水素の影響が顕著になったと考えられる。

(4) 疲労き裂進展特性に及ぼす水素の影響

フェライト基地球状黒鉛鋳鉄の丸棒試験片を用いて、疲労き裂進展特性に及ぼす水素と試験周波数の影響を調査した。すべての周波数において、未チャージ材と比較して水素チャージ材の疲労き裂進展速度は大きかった。5Hzと0.5Hzではほとんどき裂進展速度に差は生じなかった。一方で、0.001Hzまで周波数を低下させるとき裂進展速度は明らかに加速し、0.0002Hzではき裂進展の加速はさらに顕著になった。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計1件)

- ① Takashi Matsuo, The effect of pearlite on the hydrogen-induced ductility loss in ductile cast irons, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, Vol. 843, 2017
DOI: 10.1088/1742-6596/843/1/012012

[学会発表] (計8件)

- ① 松尾尚、小川泰司、池田朋弘、遠藤正浩、フェライト基地球状黒鉛鋳鉄の水素脆化感受性に及ぼす黒鉛の影響、日本機械学会 M&M2016 材料力学カンファレンス、2016
- ② Bernd M. Schonbauer and Takashi Matsuo, Fatigue crack growth properties of hydrogen-charged ductile cast iron, MATERIAL SCIENCE ENGINEERING, 2016
- ③ Takashi Matsuo, The effect of pearlite on the hydrogen-induced ductility loss in ductile cast irons, 6th International conference on Fracture Fatigue and Wear (FFW2017), 2017
- ④ Takuya Yoshimoto and Takashi Matsuo, The effect of graphite size on the fatigue crack growth properties of hydrogen-charged ferritic ductile cast iron, International Hydrogen Energy

Development Forum 2018, 2018

- ⑤ Takuya Yoshimoto, Takashi Matsuo and Bernd M. Schonbauer, Effects of hydrogen on the fatigue crack growth properties of ferritic ductile cast iron, 2018 International Conference on Material Strength and Applied Mechanics, 2018
- ⑥ Takuya Yoshimoto, Takashi Matsuo and Tomohiro Ikeda, The effect of graphite size on tensile properties and hydrogen storage capability of ferritic ductile cast iron, Second International Conference on Structural Integrity and Exhibition, 2018
- ⑦ Takuya Yoshimoto, Takashi Matsuo and Tomohiro Ikeda, Graphite size dependency of hydrogen storage capability and its effect on the tensile properties of ferritic ductile cast iron, 13th International Symposium in Advanced Science and Technology in Experimental Mechanics, 2018
- ⑧ Takuya Yoshimoto, Takashi Matsuo and Tomohiro Ikeda, Investigation of graphite size dependency of hydrogen storage capability and tensile properties of ferritic ductile cast iron, The 5th Asia-Pacific Conference on Engineering and Applied Sciences, 2018

〔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：
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：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号（8 桁）：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

※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。