

令和 2 年 6 月 7 日現在

機関番号：32601

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K13660

研究課題名(和文) マルチスケール実験解析に基づく応力腐食割れ機構の解明

研究課題名(英文) Investigation of the mechanism of stress corrosion cracking based on multi-scale experiments and simulations

研究代表者

蓮沼 将太 (Hasunuma, Shota)

青山学院大学・理工学部・助教

研究者番号：50709764

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、湿潤環境中におけるアルミニウム合金の応力腐食割れき裂進展および疲労き裂進展メカニズムを解明することを目的とする。応力腐食割れ試験を途中で中断し、切断面を観察することで、湿潤環境中における応力腐食割れき裂進展機構を検討した。水素拡散-転位動力学解析では、転位間相互作用力に及ぼす水素の影響について様々な条件下で検討した。最後に、実際の高圧水素容器使用環境を考慮し、湿潤環境下かつ圧縮平均応力下での疲労き裂進展試験を行い、圧縮平均応力下におけるき裂進展下限界特性を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、高圧水素を用いた燃料電池自動車などが実用化されている。しかし、高圧水素容器に用いられるアルミニウム合金に発生する応力腐食割れ(SCC)は、高圧水素容器の口金破壊というリスクの高い破壊事故の原因となることが明らかになってきた。このき裂進展メカニズムはディンプル破壊であり、大気中の水分から生成された水素の寄与が指摘されているが、メカニズムは明らかになっていない。また、アルミニウム合金の疲労き裂進展にも湿度の影響があることが指摘されている。湿潤環境中におけるアルミニウム合金のSCCき裂進展および疲労き裂進展メカニズムを解明することで高圧水素容器の安全性向上に貢献する。

研究成果の概要(英文)：In this study, the mechanisms of stress corrosion cracking and fatigue crack growth of aluminum in humid air were investigated. Cross section of specimen was observed after test was stopped without fracture. Then, the mechanism of stress corrosion cracking was studied. In hydrogen diffusion-dislocation dynamics simulation, the effect of hydrogen on interaction stress between dislocations under various conditions was investigated. Finally, fatigue crack growth tests were performed under compressive mean stress in humid air in order to assume actual pressure vessel. Fatigue crack growth threshold under compressive mean stress was revealed.

研究分野：材料強度学

キーワード：アルミニウム合金 応力腐食割れ 疲労き裂進展 湿度

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

水素社会実現の一環として、燃料電池電気自動車 FCEV が市場に投入され、普及が進められている。また、バスや鉄道などの公共交通機関でも FCEV の普及を目指した開発が進んでいる。これらの開発における普及上の主要問題は、高圧水素を貯蔵する容器の安全性と経済性の両立である。高圧水素容器の構造としては、アルミニウム合金または高分子材料のライナーを炭素繊維複合材料で補強したものとなっている。しかし、口金部は炭素繊維複合材料で補強する構造とできず、アルミニウム合金単体で内圧に耐える必要がある。アルミニウム合金は水素適合性の高い材料であることが知られており、内部の高圧水素による劣化および損傷は生じない。しかし、水素充填時の温度変化によって口金に施された二重のシール内で湿潤環境に曝される。また、高圧水素自体の湿度もかなり上昇することが懸念されている。湿潤環境下では、アルミニウム合金に応力腐食割れ (SCC) が発生することが知られているので、口金材料としての使用の可否を判定するための破壊力学的な SCC 試験が行われてきた。その結果、マクロなき裂進展特性については多くの知見が得られたが、アルミニウム合金の湿潤環境中での SCC き裂進展メカニズムは未だに明らかになっていない。

空気中の水分とアルミニウムが反応することによって水素が発生するので、水素脆化型 SCC メカニズムが考えられてきた。しかし、SCC 破面には、静的破壊に見られるディンプルに加えて微小なディンプルが観察される。したがって、水素脆化ではなく局部軟化が原因だと推測される。このメカニズムを検討するためには、(1)材料中のディンプルを観察し、局所軟化との関連を明らかにする、(2)局所軟化の原因である水素による転位の易動度の増加を詳細に検討する、ことが重要だと考えられる。

また、近年、疲労き裂進展特性に及ぼす湿度の影響についても検討が行われている (引用文献①)。この結果、繰返し速度 f が 20k Hz の場合、湿潤環境中のき裂進展特性は、乾燥環境に比べて高速度側になることが明らかになっている。このことから、湿潤環境中のき裂進展特性について、詳細に検討する必要がある。特に、実際の高圧水素容器は自緊処理により圧縮平均応力下で使用される。そのため、圧縮平均応力下のき裂進展特性に及ぼす湿度の影響を明らかにすることが求められている。

2. 研究の目的

本研究では、湿潤環境中におけるアルミニウム合金の応力腐食割れき裂進展および疲労き裂進展メカニズムを解明することを目的とする。それにより、高圧水素容器の安全性向上に貢献する。

3. 研究の方法

本研究では、以下の3点について検討を行った。

- (1)SCC 試験および断面観察による SCC き裂進展機構の解明
- (2)転位の運動に及ぼす水素の影響に関する水素拡散-転位動力学解析
- (3)圧縮平均応力下の疲労試験および疲労き裂進展試験

(1)では、SCC 試験を途中で中断し、試験片を切断することで、き裂先端のボイド分布を調べ、SCC き裂進展機構を検討した。(2)では、転位に及ぼす水素の影響について、水素拡散-転位動力学解析を行った。それにより、転位間相互作用力に及ぼす水素の影響や繰返し荷重下の転位運動に及ぼす水素の影響を検討した。(3)では、実際の高圧水素容器使用環境を考慮し、圧縮平均応力下での疲労試験および疲労き裂進展試験を行った。

4. 研究成果

- (1)SCC 試験および断面観察による SCC き裂進展機構の解明

SCC 試験によって得られた破面には、静的破壊に見られるディンプルに加えて微小なディンプルが観察される。したがって、湿潤環境中における SCC き裂進展のメカニズムは水素脆化ではなく局部軟化が原因だと推測される。このメカニズムを明らかにするためには、き裂先端近傍のボイドの分布を観察することが重要だと考えられる。また、近年、電子線後方散乱回折法 (EBSD)を用いた塑性ひずみ評価が行われている (引用文献②)。EBSD を用いることで、塑性変形の局所化を明らかにできる可能性がある。そこで、湿潤環境中の SCC 試験を途中止めし、試験片を切断することで、き裂前方のボイド分布を明らかにした。また、EBSD 観察を行うことで、塑性ひずみ分布を調査した。以上の結果を基に、湿潤環境中の SCC き裂進展メカニズムを検討した (学会発表①)。

湿潤環境(相対湿度 $RH > 90\%$)におけるアルミニウム合金 A6082 の破面および切断面を図 1 に示す。片側切り欠き試験片を用い、応力拡大係数 $K = 28 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 一定の条件で実験を行った。1000 ks 経過後に試験片を厚さ方向に対して 2 等分に切断した。切断した試験片の 1 つは切断面を鏡面に仕上げ、観察を行った。もう一つは繰返し荷重により破断させ、破面を観察した。図 1 に示すように、き裂前方にはボイドが形成されており、ボイドが繋がって進展していた。これらの割れは、破面におけるディンプルの大きさとはほぼ等しく、SCC によって形成されたボイドであることが考えられる。

図 2 に A6082 の切断面に EBSD 観察をした結果を示す。試験条件は $K = 18.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ 一定であり、湿潤環境(相対湿度 $RH > 90 \%$)である。本研究では、局所方位差パラメータの一つであり、塑性ひずみと相関がある GROD を用いて塑性ひずみを評価した。青で示す領域は GROD が小さい領域、黄緑で示す領域は GROD が大きい領域である。き裂先端近傍に塑性ひずみが大きい部分があり、き裂先端近傍では塑性ひずみが生じていることがわかる。結果は省略するが、乾燥環境中における塑性ひずみは、湿潤環境中と比べ、小さかった。

以上のことから、湿潤環境では水素助長局所塑性変形機構によって塑性変形が助長され、それによりボイドの結合が促進され、き裂進展が生じている可能性が示された。

(2) 転位の運動に及ぼす水素の影響に関する水素拡散-転位動力学解析

水素が金属材料の内部に侵入すると転位同士の相互作用応力が減少し、局所的に塑性変形が助長される。これを水素助長局所塑性変形という。水素によって転位同士の相互作用応力が減少する量は材料に依存する。そのため、アルミニウム合金における減少量を定量的に評価する必要がある。一方で、疲労のような繰返し荷重下では、引きずり応力が生じ、転位の運動を阻害する。このような引きずり応力によって、湿潤環境におけるき裂進展速度の変化が生じている可能性がある。本研究では、転位が静止している状態と運動している状態の水素拡散解析を行い、転位周辺の水素分布を調べた。解析結果を用いて、水素が転位に及ぼす応力を求めた。それにより、水素環境中の転位運動を明らかにした。

まず、静止した 2 つの転位の解析を行った。水素によるせん断応力と転位間の角度の関係を図 3 に示す。また、角度 $\theta = 0^\circ$ 、転位間距離 $d = 5.726 \text{ nm}$ の水素分布を図 4 に示す。いずれの角度でも、転位同士の相互作用応力を減少させるようにせん断応力が生じていた。そして、 $d = 2.863 \text{ nm}$ では 100 MPa 程度の大きなせん断応力が生じていることが明らかになった。また、この転位間距離と角度とせん断応力の関係の近似線を作成することで、転位に及ぼす水素の影響をモデル化できる。

次に、運動する 1 つの転位の解析を行った。水素中で転位の速度を \sin 波状に変更し、引きずり応力(水素によるせん断応力)を調べた。引きずり応力と繰返し速度の関係を図 5 に示す。転位速度の振幅 v_a が同じでも、繰返し速度によって引きずり応力の最大値および最小値は変化していた。このように、同じ v_a 、すなわち、同じ負荷応力でも繰返し速度によって引きずり応力は変化する。このような、引きずり応力が繰返し速度によって変化することで、 20 kHz かつ湿潤環境において、き裂進展速度が加速している可能性が示唆された。

(3) 圧縮平均応力下の疲労き裂進展試験

実際の高圧水素容器は自緊処理により圧縮平均応力下で使用される。そのため、圧縮平均応力下の疲労強度および疲労き裂進展特性に及ぼす湿度の影響を明らかにすることが求められている。そこで、本研究では、実際の使用環境を考慮し、湿潤環境中での圧縮平均応力下での疲労試験および疲労き裂進展試験を行い、疲労強度および疲労き裂進展速度に及ぼす圧縮平均応力の影響を明らかにした。

応力範囲と破断繰返し数の関係を図 6 に示す。疲労強度は、アルミニウム合金 A6061 および

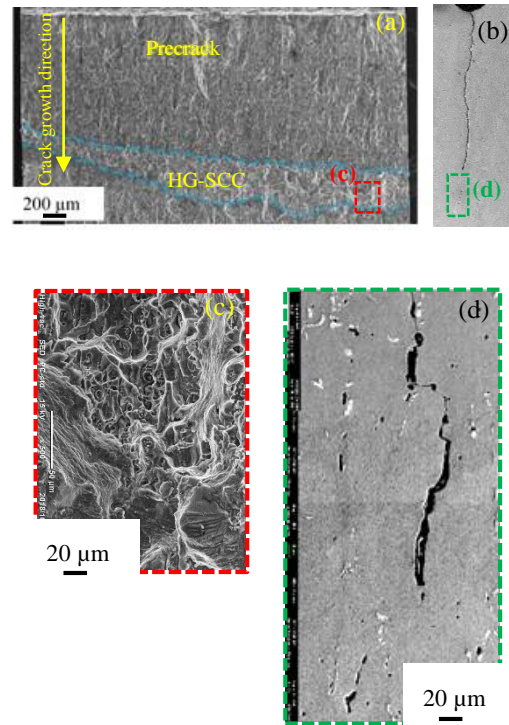


図 1 断面観察結果.

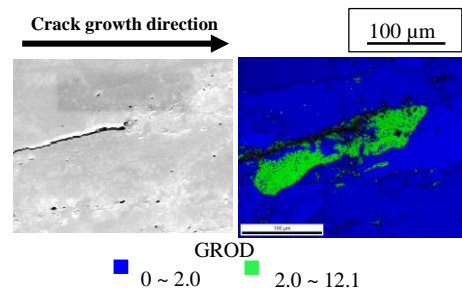


図 2 切断面の GROD 分布.

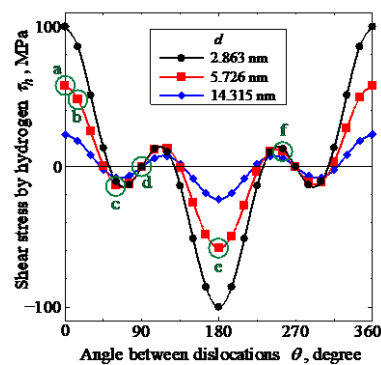


図 3 水素によるせん断応力と角度の関係.

A6066 の場合、湿度や圧縮平均応力に不敏感だった。一方、アルミニウム合金 A7075 の場合、湿潤環境中の疲労強度は、乾燥環境に比べて大きく低下した。き裂進展速度と応力拡大係数の関係を図 7 に示す。圧縮平均応力下では、引張側の応力拡大係数範囲である最大応力拡大係数が、高応力比の試験で得られる下限界有効応力拡大係数を超えるときき裂進展が急激に発生することが明らかとなった。また、圧縮平均応力下でのき裂進展特性に及ぼす湿度の影響は小さいことが明らかとなった。

<引用文献>

- ① Takeshi OGAWA, Shota HASUNUMA, Shunsuke KATO, Shunpei SUZUKI, Yuta NAKAMURA, Satomi MANO and Kazuo MIYAGAWA, Crack Growth Characteristics of Aluminum Alloys Dominated by the Mechanisms of Fatigue and Stress Corrosion Cracking, Materials Transactions, Vol.60, No.11 (2019-11), pp. 2346-2352.
- ② Shota Hasunuma, Shingo Oki, Kazuaki Motomatsu and Takeshi Ogawa, Fatigue Life Prediction of Carbon Steel with Machined Surface Layer under Low-Cycle Fatigue, International Journal of Fatigue, Vol.123 (2019-6), pp. 255-267.

<学会発表> (計 1 件)

- ① 白輪地峻輝, 蓮沼将太, 小川武史, 高圧水素容器用アルミニウム合金の湿潤ガス応力腐食割れ特性とき裂進展機構, 平成 30 年度秋季講演会概要集, 2018 年 11 月.

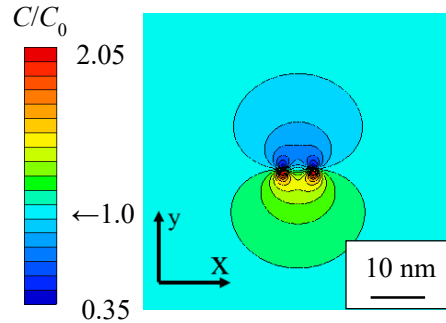


図 4 転位周りの水素分布($d = 5.726 \text{ nm}$).

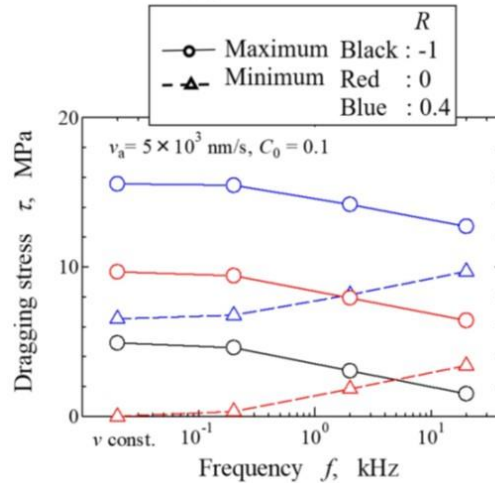


図 5 引きずり応力と繰返し速度の関係.

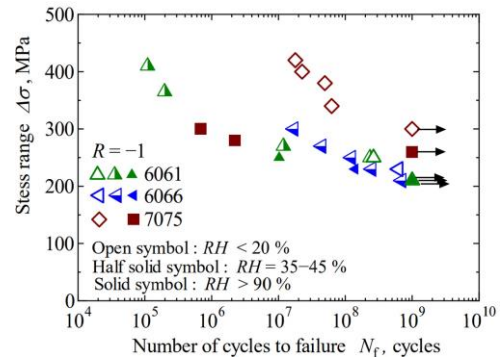


図 6 S-N 線図.

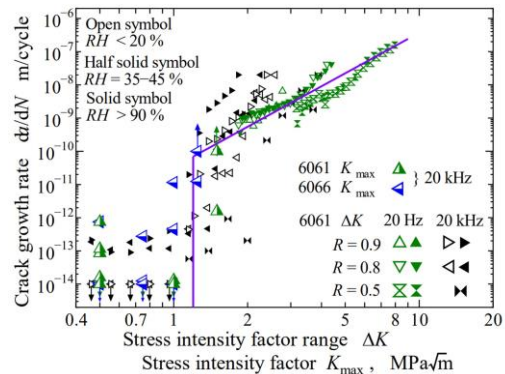


図 7 き裂進展特性.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 白輪地峻輝, 蓮沼将太, 小川武史
2. 発表標題 高圧水素容器用アルミニウム合金の湿潤ガス応力腐食割れ特性とき裂進展機構
3. 学会等名 日本高圧力技術協会 平成30年度秋季講演会
4. 発表年 2018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
--	---------------------------	-----------------------	----