低合金鋼の下限界近傍の微小疲労き裂進展に及ぼす
水素侵入と水素雰囲気の影響*植田 祐太^{*1}, 久保田 祐信^{*2}, 近藤 良之^{*3}Effect of Absorbed and Environmental Hydrogen on
Short Fatigue Crack Propagation near Threshold in Low Alloy SteelYuta UEDA, Masanobu KUBOTA and Yoshiyuki KONDO^{*4}^{*4} Department of Mechanical Engineering, Kyushu University,
744 Moto-oka, Nishi-ku, Fukuoka-shi, Fukuoka, 819-0395 Japan

The effects of hydrogen on fatigue crack propagation behavior of short fatigue crack and crack closure behavior were studied using low alloy steel SCM440H. Fatigue crack propagation test using specimen with a 50 μm deep pre-crack was carried out at a frequency of 28.4 Hz in air, vacuum and hydrogen gas. Hydrogen pre-charge was done by cathodic polarization method. The concentration of absorbed hydrogen was 0.83 ppm in hydrogen charged specimen and 0.06 ppm in uncharged specimen. The fatigue crack propagation rate of uncharged material was dependent on environment. The acceleration of fatigue crack propagation rate by absorbed hydrogen was about 2 to 5 times irrespective of environment. As a result, the fatigue crack propagation rate of hydrogen pre-charged material tested in air was the highest. The crack opening stress was higher in hydrogen gas and in vacuum compared with that in air. Fatigue crack propagation rate was summarized in two independent bands when plotted against effective stress intensity factor. This means that the effects of environment (vacuum, air and hydrogen) and stress ratio ($R = -1, 0, 0.6$) could be explained by crack closure phenomenon. However, the acceleration of crack propagation by absorbed hydrogen could not be explained only by crack closure phenomenon.

Key Words: Hydrogen, Fatigue, Fatigue Crack Propagation, Crack Closure, Low Alloy Steel

1. 緒 言

低合金鋼の微小き裂の下限界近傍における疲労き裂進展挙動に及ぼす水素の影響について調べた結果によると、材料に侵入した水素は微小疲労き裂の進展速度 da/dN を加速させるとともに、疲労き裂進展下限界値 ΔK_{th} を低下させる作用のあることが明らかになっている^{(1),(2)}。このような微小き裂の進展挙動に影響を与える水素の役割を検討する上で、き裂開閉口挙動^{(3),(4)}は当然注目すべき重要な因子と考えられる。そこで、き裂開閉口挙動を実測して、水素がき裂進展挙動に及ぼす影響について、き裂開閉口挙動によって説明される部分とできない部分を明確にすることを目的として検討を行った。き裂進展に影響を及ぼす水素としては、材料内に侵入した水素と周囲環境として存在する水素ガスの2種類が考えられる。本研究では予め試験片に水素を侵入させて水素濃度を増加させた水素チャージ材

と、水素侵入操作を行わない未チャージ材を用いて、水素ガス中、大気中および真空中で微小き裂材の疲労き裂進展試験を行い、材料内水素と周囲雰囲気の影響について検討した。

2. 実験方法

2-1 供試材および試験片 低合金鋼 SCM440H 焼入れ (1143K, 9ks 保持後油冷), 焼戻し (843K, 18ks 保持後空冷) 材を用いた。化学成分を表1に示す。金属組織は図1に示すように焼戻しマルテンサイト組織である。試験片形状を図2に示す。疲労き裂進展試験には深さ 50 μm の疲労予き裂を有する試験片を用いた。予き裂試験片は以下のようにして作製した。板厚全体にわたり深さ 100 μm の切欠きを有する試験片を用いて、疲労試験により切欠き底から深さ 30 μm の二次元形状の疲労き裂を導入した。予き裂導入後、試験片に約 -750MPa の圧縮応力を負荷して、き裂開口応力がゼロの理想き裂状態となるようにした。図3に一例を示すように、予き裂導入後に上昇していたき裂開口点 K_{op} は圧縮応力負荷により 0 $\text{Pam}^{1/2}$ になっていることを確

* 原稿受付 2009年11月16日。

^{*1} 学生員, 九州大学大学院工学府 (〒819-0395 福岡市西区元岡744)。^{*2} 正員, 九州大学大学院工学研究院, (独)産業技術総合研究所 (〒819-0395 福岡市西区元岡744)。^{*3} 正員, フェロー, 九州大学大学院工学研究院。

E-mail: ykondo@mech.kyushu-u.ac.jp

認した。その後、研磨により切欠きを $80\mu\text{m}$ 除去し、残留する $20\mu\text{m}$ の切欠きと $30\mu\text{m}$ の予き裂を合わせて初期

Table 1 Chemical composition of SCM440H (mass%)

C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	Cu
0.42	0.22	0.80	0.017	0.02	0.03	1.04	0.16	0.02

Table 2 Mechanical properties of SCM440H after residual stress relief anneal at 873K

$\sigma_{0.2}$ (MPa)	σ_B (MPa)	δ (%)	ϕ (%)
789	913	26	69

Fig. 1 Microstructure of test material $20\mu\text{m}$

Fig. 2 Configuration of test specimen and front face gage for crack closure measurement

Fig. 3 Preparation of ideal pre-crack by compressive loading

き裂長さが $50\mu\text{m}$ となるようにした。試験片にはき裂進展試験を行う前に真空中で応力除去焼鈍(873K, 3.6ks)を行った。応力除去焼鈍前後のビッカース硬さ HV は、それぞれ 334 と 290 であった。表 2 は、応力除去焼鈍後の機械的性質である。

2・2 疲労き裂進展試験 微小予き裂試験片を用いた疲労き裂進展試験は一定公称応力振幅下の面内曲げで行った。図 2 に示すように試験片の厚肉部とき裂上にそれぞれひずみゲージを貼付し、除荷弾性コンプライアンス法⁽⁵⁾によりき裂長さを連続的に測定した。き裂長さは初期き裂である $50\mu\text{m}$ から測定開始し、き裂上に貼付けたひずみゲージの損傷限界直前である $250\mu\text{m}$ に達した時点で試験終了とした。応力繰返し速度は 28.4 Hz とした。

き裂開閉挙動は応力比に影響されるので、応力比は $R = -1, 0, 0.6, 0.8$ について検討した。 $R = -1$ の場合の応力拡大係数範囲 ΔK は圧縮側も含む値で定義した。

水素チャージはカソードチャージ法により実施した。カソードチャージは試験片を陰極、白金板を陽極として、ガルバノスタットを用いて一定電流を与えて希硫酸中で試験片を陰分極させることで行った。希硫酸濃度は 0.005 mol/l 、pH は 2.0、電流密度は 26.1 A/m^2 、チャージ時間は 173ks (48h) とした。水素チャージにより試験片内部に侵入した水素量を、昇温脱離分析装置により測定したところ、本実験の試験領域に対応する表面から深さ $250\mu\text{m}$ までの平均水素濃度は未チャージ材で 0.06 ppm 、水素チャージ材で 0.83 ppm であった。低合金鋼 SCM440H は BCC 系金属材料であり、水素の拡散係数が大きいので試験中に水素濃度の低下が生じる。本研究の場合、最長試験時間である 25ks (7h) 後においても水素濃度は 0.48 ppm に保たれており、侵入水素の影響下での試験が実施出来ていることを確認した。

周囲環境は水素ガス、大気、真空とした。大気中に含まれる酸素や水蒸気がき裂新生面に酸化膜を形成させ、き裂進展やき裂閉口に影響を及ぼすこと^{(6)~(8)}を考慮して、本研究では大気中成分による影響を排除した真空中試験も行ったものである。水素ガス中試験のガス圧力は 0.02 MPa (ゲージ圧)、水素ガス純度は 99.99% 以上とした。水素ガスを高純度に保つために、チャンバー内の真空引きと窒素パージを 2 回繰返した後、再び真空とし、水素ガスをチャンバー内に封入した。大気中試験は実験室雰囲気で行った。真空中試験は油拡散ポンプを用いて十分に真空排気を行った後に開始し、試験中も真空排気を続けることで真空度 $= 2.0 \times 10^{-3}\text{ Pa}$ 未満を維持した。

3. 実験結果および考察

3.1 $R=-1$ での侵入水素と周囲環境の影響

図4に応力比 $R = -1$ でのき裂進展特性を示す。白抜き印で示す未チャージ材のき裂進展速度は周囲環境に依存しており、真空中および水素ガス中の結果は大気中より低速側に位置している。大気中の結果がやや高速側であるのは、酸素および水蒸気等の大気中成分の影響と考えられる^{(6),(9)}。

黒印で示すそれぞれの環境中での水素チャージ材の結果は、試験を行った全ての K 値範囲において未チャージ材と比べて加速することが確認された。各環境における水素チャージ材のき裂進展速度をそれぞれの環境中での未チャージ材のき裂進展速度で無次元化して、材料内水素による加速倍率を求めたものを図5に示す。いずれの環境においても水素チャージにより2~5倍程度の加速が認められる。図4では水素チャージ材の場合にも大気中の試験結果(●)が最も加速側に位置する結果となっている。これは未チャージ材の中で大気

中の結果が最も高いき裂進展速度を示すとともに、侵入水素による加速倍率が周囲環境によらずほぼ一定であることの帰結として、水素チャージ材の大気中試験結果が最も高いき裂進展速度となったものである。

次に、各条件でのき裂開閉挙動について検討した。水素チャージ材について、大気中と水素ガス中における引き算後の応力-変位ヒステリシスの一例を図6に示す。き裂開口応力は、大気中よりも水素ガス中のほうが高くなっており、周囲環境に依存してき裂開閉挙動に差が認められた。図7は試験を行った全領域についてき裂開口時の応力拡大係数 K_{op} を示したものである。き裂進展試験は理想き裂状態から開始したので、初期の $\Delta K = 9.5 \text{ MPa m}^{1/2}$ 付近では $K_{op} = 0 \text{ MPa m}^{1/2}$ である。 K_{op} は理想き裂状態からき裂進展開始した直後にき裂開口形成によって急激に上昇する過程を経た後、 ΔK の増加とともに徐々に上昇した。2本のデータバンドで示すようにき裂開閉挙動は2つのグループに分かれた。 K_{op} の低いグループは大気中の結果であり、高いグループは真空中および水素ガス中の結果である。注

Fig. 4 Effect of environment and absorbed hydrogen on fatigue crack propagation behavior

Fig. 5 Acceleration caused by absorbed hydrogen

Fig. 6 Effect of environment on subtracted stress-displacement curve ($R = -1$, $\Delta K = 13.2 \text{ MPa m}^{1/2}$)

Fig. 7 Effect of absorbed hydrogen and environment on the crack closure behavior

目すべきは、き裂開閉口挙動は主として周囲環境が支配的要因であり、水素チャージによる材料内水素はき裂開閉口挙動にほとんど影響を与えないことである。大気中と真空中のき裂開閉口挙動の違いについてはいくつか報告されており、大気中に含まれる酸素や水蒸気が、き裂開閉口挙動に影響を与える原因であると説明されている^{(6), (10)}。本研究における水素ガス中の場合も酸素や水蒸気を含まないため、同様の効果により水素ガス中と真空中試験で同等のき裂開閉口挙動を示したものと考えられる。

図 8 にき裂閉口を考慮して有効応力拡大係数 ΔK_{eff} で整理した結果を示す。 ΔK_{eff} で整理すると、き裂進展特性は二つのグループにまとめられた。すなわち、未チャージ材(◇, ○, □)と水素チャージ材(◆, ●, ■)の二つのデータバンドである。いずれの材料でもき裂進展に及ぼす周囲環境の影響はき裂閉口を考慮することで整理することができるが、侵入水素による加速はき裂閉口のみでは説明できないことが示された。

図 9 に各条件の破面の SEM 写真を示す。真空中および水素ガス中の破面には、相手破面と繰返し接触したと推定される写真上黒く見える平坦な模様が観察された。駒井らの報告によれば、高張力鋼 HT55 の真空中試験においても本研究と同様の破面が観察されており、この原因として真空中試験ではき裂新生面に酸化膜が形成されず、き裂先端における塑性流動と再溶着を繰返した結果できたものと説明している⁽⁶⁾。このような破面は、本研究における真空中や水素ガス中においても、酸化膜が形成されないために同様の破面が現れたものと考えられる。黒く平坦な破面模様が観察された条件は、上記の K_{op} が高い条件と一致している。図 9 の SEM 写真からも伺えるように、破面の粗さが大気中よりも真空中や水素ガス中の方が大きい傾向がみられること

Fig. 8 ΔK_{eff} - da/dN relation for $R = -1$

から、真空中や水素ガス中の方が早期の破面間接触を引起し、マクロ的にはき裂開口点の上昇として現れたものと考えられる。

3・2 環境切替試験におけるき裂進展挙動 大気中と水素ガス中ではき裂開閉口や破面様相が大きく異なったので、その相違についてさらに検討を加えるため、き裂進展試験の途中で大気中から水素ガス中へ、また逆に水素ガス中から大気中へと周囲環境を変化させる試験を実施した。用いた試験片は未チャージ材である。き裂進展速度を図 10 に示す。環境一定の大気中試験結果を点線で、水素ガス中試験結果を実線であわせて示した。図 10(a)に示す大気中から水素ガス中へ環境を変化させた場合は、ほとんど遷移期間のないまま水素ガス中の速度に一致するように変化した。一方、図 10(b)に示す水素ガス中から大気中へ環境を変化させた場合は、若干の遷移期間の後大気中の速度に漸近した。き裂開口時の応力拡大係数 K_{op} を図 11 に示す。図 11(a)の大気中から水素ガス中へ切替えた場合は、 K_{op} は急速に上昇して水素ガス中の結果に一致した。このこ

Fig. 9 Fracture surface of SCM440H at $R = -1$ ($\Delta K = 12.1 \text{ MPa m}^{1/2}$)

(a) In-air to in-H₂ test (b) In-H₂ to in-air test

Fig. 10 Crack propagation rate in two step environment changing test

とから水素ガス環境による K_{op} の上昇は、き裂先端の比較的近傍の変化に支配された事象と推察される。一方、図 11(b) に示す水素ガス中から大気中へ切替えた場合は、遷移挙動を示して徐々に大気中試験結果に漸近した。これは前段階の水素ガス中でいったん上昇した K_{op} が、過去の履歴を解消して低下するためにはいくらかのき裂進展量が必要で、履歴効果を有することを示している。疲労破面を図 12 に示す。周囲環境を切替えると、き裂開閉口挙動と同様に破面も一定環境試験と同じ様相に遷移することから、大気中、水素ガス中および真空中のき裂開閉口挙動の変化は破面の変化と強い相関を有することが示された。

水素ガス中で観察された黒く平坦な模様が相手破面との接触により生じたものであることについて確証を得るために、 $R = -1$ に加えて平均応力成分を増大させた

(a) In-air to in-H₂ test (b) In-H₂ to in-air test

Fig. 11 Crack closure behavior of two-step environment changing test

(a) In air of air to H₂ gas test(b) In H₂ gas of air to H₂ gas test (c) In H₂ gas of H₂ gas to air test(d) In air of H₂ gas to air testFig. 12 Fracture surface of two-step environment changing tests ($R = -1$)

Fig. 13 Effect of stress ratio on fracture surfaces in charged specimen tested in hydrogen gas

$R = 0, 0.6, 0.8$ でき裂進展試験を行い、き裂開閉挙動と破面の関係について検討した。各応力比における水素チャージ材の水素ガス中試験の破面を図 13 に示す。ヒステリシスカーブは省略するが、 $R = -1, 0$ および 0.6 ではき裂開口が生じており、これらの条件では図 13(a) (b) (c) に示すように黒く平坦な模様が観察された。平坦な破面割合は応力比によらず、ほぼ全面にわたり確認された。一方、破面間の接触を解消する目的で応力比をさらに高く $R = 0.8$ とした条件ではき裂は完全に開口しており、破面は図 13(d) に示すように、黒く平坦な模様はみられなかった。このことから、水素ガス中における破面の黒く平坦な模様は相手破面との接触により生じたものと結論される。

3・3 応力比の影響 応力比がき裂進展およびき裂開閉挙動に及ぼす影響を調べるために、 $R = -1$ に加えて $R = 0, 0.6$ におけるき裂進展試験を実施した。各環境における $R = -1, 0$ および 0.6 のき裂進展速度を図 14(a)~(c) に示す。すべての周囲環境および応力比において侵入水素による加速効果がみられた。また、 $R = 0.6, 0, -1$ の順にき裂進展速度は高く、応力比の影響が顕著に現れた。図 15(a)~(c) にき裂開口比を示す。 $R = -1$ と同様に $R = 0$ および 0.6 においても、大気中では水素ガス中や真空中よりもき裂開口比は大きい。き裂開口比に及ぼす水素チャージの影響はいずれの応力比においても

Fig. 14 Effect of stress ratio on crack propagation rate in various environments

ほとんどみられず、周囲環境がき裂開口挙動の支配的要因となっている。また、応力比が高くなるに従ってき裂開口比 U も上昇する傾向を示した。図 16(a)~(c) に、周囲環境ごとの $da/dN-\Delta K_{\text{eff}}$ 関係を示す。いずれの環境においても、 ΔK_{eff} で整理すると応力比によるき裂進展速度の差はほとんどみられないが、水素チャージの有無によって 2 つのグループに明瞭に分かれた。

(a) $R = -1$

(b) $R = 0$

(c) $R = 0.6$

Fig. 15 Effect of environment and absorbed hydrogen on crack opening ratio

(a) In vacuum

(b) In air

(c) In H_2 gas

Fig. 16 Effect of stress ratio on relationship between da/dN and ΔK_{eff}

Fig. 17 Effect of absorbed hydrogen on crack propagation rate

図 17 に試験したすべての周囲環境 (3 種類), 応力比 (3 種類) と水素チャージ有無のデータをあわせてプロットしたものである。白印が未チャージ材で, 黒印が水素チャージ材の結果である。き裂進展速度は未チャージ材と水素チャージ材のデータバンドに明瞭に分かれ, 周囲環境および応力比によるき裂進展速度の変化はき裂開閉口挙動によって説明できることが明らかになった。しかし, 侵入水素によるき裂進展の加速はき裂開閉口挙動のみでは説明できないことが明らかである。ΔK_{eff} はき裂先端開口変位と関係しているパラメータであるので, き裂先端開口変位と 1 サイクルあたりのき裂進展量の関係が侵入水素によって変化することを意味していると考えられるが, その機構解明については次報で検討する。

4. 結 言

低合金鋼 SCM440H の深さ 50μm の 2 次元初期き裂を有する試験片を用いて, 応力繰返し速度 28.4Hz で疲労き裂進展試験を行い, 疲労き裂進展挙動およびき裂開閉口挙動に及ぼす水素チャージおよび周囲環境として真空, 大気, 水素ガスの影響について検討した。得られた結果は次の通りである。

(1) 未チャージ材のき裂進展速度は, 真空中や水素ガス中に比べ大気中が最も高かった。28.4Hz の繰返し速度では水素チャージによるき裂進展の加速は周囲環境に依存せず, 各環境中での未チャージ材に比べて 2~5 倍加速された。これらの結果として, 水素チャージ材の大気中試験結果が最もき裂進展速度が高かった。

(2) 水素ガス中と真空中のき裂開口点は, 大気中より高くなる傾向が認められた。き裂開閉口挙動に及ぼす侵入水素の影響はみられなかった。

(3) き裂開口点が高かった水素ガス中と真空中の破面には, 相手破面との接触によって生じた黒く平坦な模様が観察され, き裂開閉口挙動に影響を与えたものと考えられる。

(4) 周辺環境を 3 種類, 応力比を 3 種類 ($R = -1, 0, 0.6$), 水素チャージ有無の合計 18 条件のき裂進展速度を有効応力拡大係数 ΔK_{eff} で整理すると, き裂進展速度は未チャージ材と水素チャージ材のそれぞれのバンドに明瞭に区別され, 周囲環境および応力比によるき裂進展速度の変化はき裂開閉口挙動によって説明できること, ならびに侵入水素によるき裂進展の加速はき裂開閉口挙動のみでは説明できないことが示された。

文 献

- (1) Stewart, A. T., *Engineering Fracture Mechanics*, Vol.13 (1980), pp.463-478.
- (2) Kondo, Y., Kubota, M., Shishime K. and Yamaguchi, J., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers A*, Vol.74, No.746 (2008), pp. 1366-1372.
- (3) Elber, W., *ASTM STP 486* (1971), 230.
- (4) Jono, M., Song, J. and Itoh, H., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers A*, 51(1985), pp.2554-2559.
- (5) Kikukawa, M., Jono, M., Tanaka, K. and Takatani, M., *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, 25(1976), pp.899-903.
- (6) Komai, K., Matoba, H. and Kikuchi, J., *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, 33(1984), pp.566-571.
- (7) Henaff, G., Petit, J. and Bouchet, B., *International Journal of Fatigue*, Vol.14, No. 4 (1992), pp. 211-218.
- (8) ZHU, W., MINAKAWA, K. and McEVILY, A. J., *Engineering Fracture Mechanics*, Vol. 25, No. 3(1986), pp. 361-375.
- (9) Endo, K. and Komai, K., *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, 26(1977), pp.143-148.
- (10) Jono, M., Song, J. and Ohgaki, M., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers A*, Vol.51, No.463(1985), pp.806-813.