

鉄鋼材料における局所応力及び局所水素量の  
連続体モデルによる数値的評価

海老原 健一

日本原子力研究開発機構  
システム計算科学センター

# 鉄鋼材料における局所応力及び局所水素量の連続体モデルによる数値的評価

海老原 健一

日本原子力研究開発機構・システム計算科学センター  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4  
[ebihara.kenichi@jaea.go.jp](mailto:ebihara.kenichi@jaea.go.jp)

近年、高層ビルや橋梁などの巨大建築や、船舶、鉄道車両、自動車の製造などに関する様々な分野において軽量化のため高強度鋼（高張力鋼）が用いられている。しかし鋼材の強度が高くなるほど、ある時間経過後に脆性的な割れが起こる遅れ破壊の発生が顕著となる。遅れ破壊の原因は、鋼材内部に侵入した水素が引き起こす材料強度の変化による脆化（水素脆化）と考えられている。また水素脆化は溶接部の低温割れの原因とも考えられている。水素脆化は、応力腐食割れと同様、材料因子、環境因子、応力因子の相乗効果によって起こるとされており、これまでさまざまなモデルが提案されているが、その機構はいまだ明確にはなっていない。それらのモデルの中で、応力集中部に集積した水素が粒界に偏析し、その粒界の強度を低下させると考える粒界凝集エネルギー低下モデルは、高強度鋼の引張り試験の結果や原子レベルの数値計算による粒界凝集エネルギーの評価から確からしいモデルの 1 つと考えられている。

ここでは、平成 19 年度～23 年度に実施された独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）のプロジェクト「鉄鋼材料の革新的高強度・高機能化基盤研究開発」[1]において、水素脆化グループが粒界凝集エネルギー低下モデルに基づいて行った研究開発の中から、特に、引張り試験における高強度鋼試料の応力集中部の局所応力及び局所水素量を連続体モデルに基づきそれぞれ有限要素法及び有限体積法によって評価した結果について紹介する。まず、引張り試験における最大引張り応力と含有水素量との関係を局所応力・局所水素量によって整理することによって試料形状によらない関係が得られることについて触れる。さらに、ランダムポロノイ分割によって生成したポロノイセルを粒と見なし結晶異方性を考慮した多結晶体モデルの粒界における応力・水素量を、引張り試験の条件下で評価した結果について紹介する。また、その結果と原子レベルの計算によって評価した引張強度との比較により、結晶異方性による粒界でのき裂の発生の可能性について考察する[1,2]。

## 参考文献

- [1] NEDO 報告書「平成 19 年度～平成 23 年度成果報告書 鉄鋼材料の革新的高強度・高機能化基盤研究開発」
- [2] K.Ebihara, M. Itakura, M. Yamaguchi, H. Kaburaki, and T. Suzudo, Progress in NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY, Vol. 2, pp.38-43 (2011)

# 鉄鋼材料における局所応力及び局所水素量の連続体モデルによる数値的評価

日本原子力研究開発機構  
システム計算科学センター  
海老原健一

本内容は、NEDO報告書「平成19年度～平成23年度成果報告書 鉄鋼材料の革新的高強度・高機能化基盤研究開発」及び、「K.Ebihara, et al., Prog. in NUCL. SCI. and TECH., Vol. 2, pp.38-43 (2011)」に基づく。

## 概要

### 背景

- 構造物(高層ビル、橋梁、自動車など)の軽量化のため、近年、構造材料として高強度鋼(高張力鋼)が多く用いられる。
- 高強度鋼において遅れ破壊や溶接部低温割れなどが問題

**遅れ破壊**: 静的な負荷応力を受けた状態で、ある時間を経過したとき、突然脆性的に破壊する現象(外見上ほとんど塑性変形が見られない)

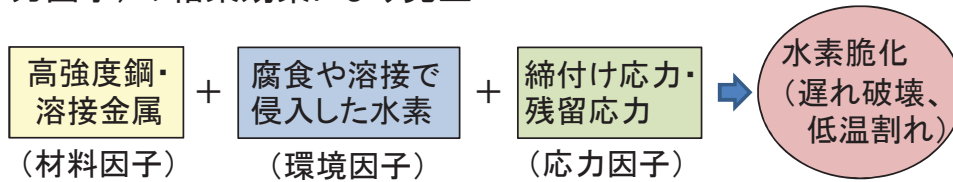
**溶接部低温割れ**: 200°C～300°C以下の温度で溶接部が割れる現象。割れは脆性的。

内部に侵入した水素による脆化(水素脆化)が原因

# 概要

## 水素脆化

- 材料に侵入した水素によって、その強度(延性や靱性)が低下する現象
- 材料の性質(材料因子)、侵入水素量(環境因子)、負荷応力(応力因子)の相乗効果により発生



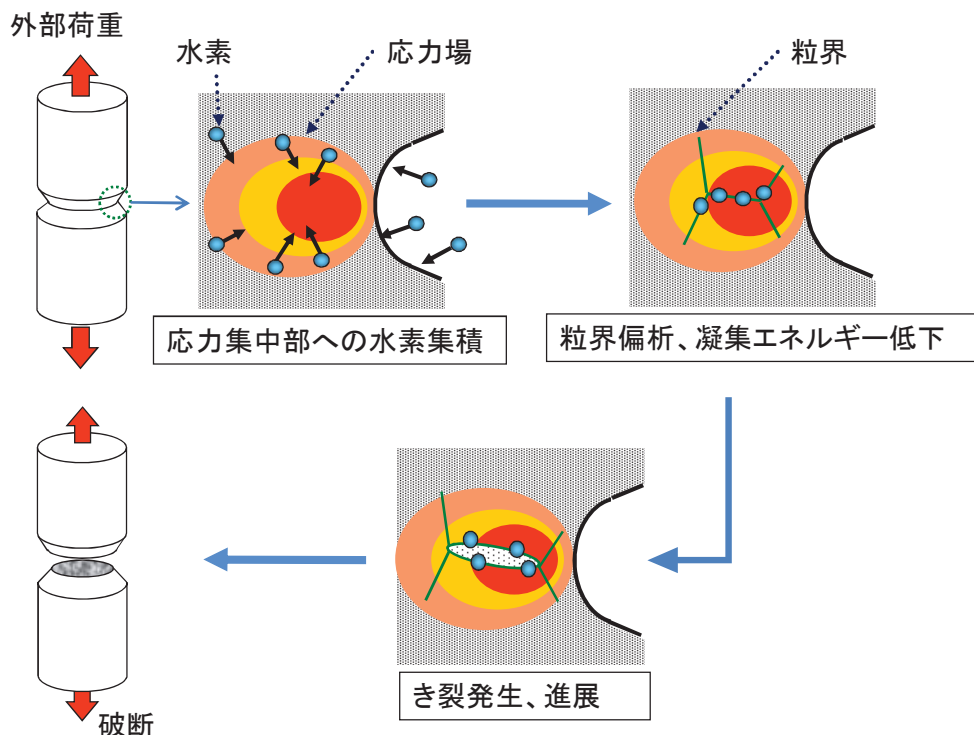
- 水素脆化機構に関するさまざまなモデルが提案されている

内圧モデル、水素助長局所塑性変形モデル(HELP)、水素誘起凝集エネルギー低下モデル、水素助長歪み誘起空孔モデル(HESISIV)など。

高強度鋼の脆性破壊においては、水素偏析による粒界凝集エネルギー低下モデルが有望なモデルの1つ。

# 概要

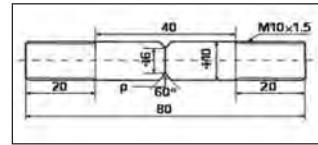
## 水素偏析による粒界凝集エネルギー低下モデル



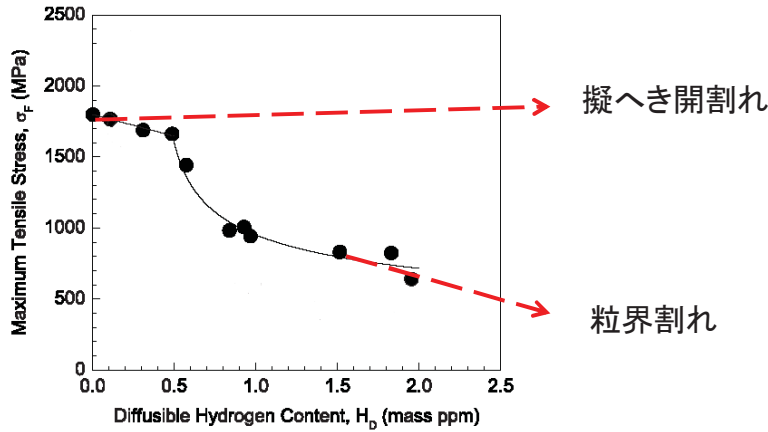
# 概要

## 粒界凝集エネルギー低下モデルの実験的根拠

水素を添加した高強度鋼試料(ボロン添加焼き戻しマルテンサイト鋼、1050MPa)の低歪速度引張試験(SSRT、 $4 \times 10^{-4}/s$ )において拡散性水素量と最大引張応力の測定、および破面の観察



[Wang et al. Scripta Mater.52(2005)]



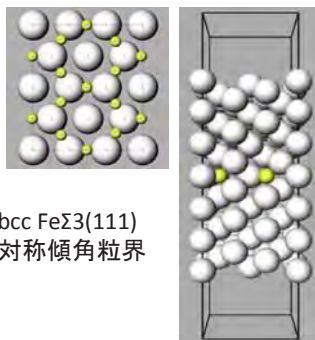
水素量が増加すると、強度が急激に低下し、粒界割れ破面が増加  
→ 粒界での凝集エネルギーの低下を示唆

# 概要

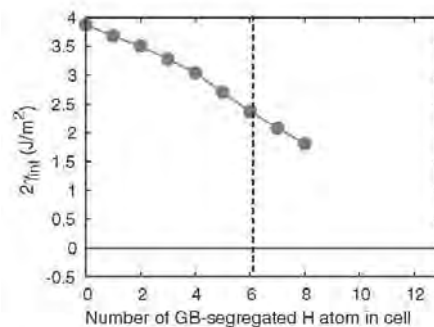
## 粒界凝集エネルギー低下モデルの計算的根拠

計算機内に生成した粒界に水素を配置し、粒界の凝集エネルギーの変化を第一原理計算で計算 [Yamaguchi, et al. Metall.Mater.Trans.A42(2011)]

計算体系



粒界水素偏析量に対する  
凝集エネルギーの変化



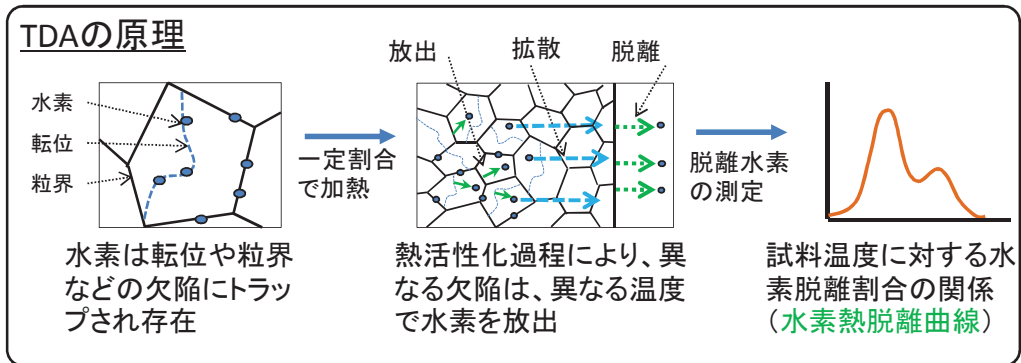
粒界への水素偏析量が増えるとともに粒界凝集エネルギーが低下  
→ 粒界凝集エネルギー低下モデルの示唆

粒界凝集エネルギー低下モデルに関する検討には、材料内部、特に粒界における水素量と応力の適切な評価が必要。

# 概要

## 鋼材内部の水素量の実験的評価の可能性

鋼材内での水素の位置や量(水素存在状態)の評価は、主に昇温脱離解析(TDA)が用いられる。



近年、TDA技術の進歩により、種々の欠陥の種類に対応するピーク分離が可能  
→ 各々の欠陥の水素量の見積もりが可能

実際的な鋼種やサイズの試料での評価は困難

# 概要

## 鋼材内部の応力の実験に基づく直接的評価

- 引張り試験における負荷応力からの換算(公称応力→真応力)
- 放射線(X線や中性子線)によるひずみ測定からの算出(残留応力)

粒界など局所領域における応力の実験による直接評価は困難



粒界における水素量や応力の数値計算による評価が必要

# 内容

## 計算コードの整備

弾塑性解析コード、水素拡散解析コード

## 局所応力・局所水素量の計算

引張試験のデータの局所応力・局所水素量での整理

## 粒界における応力・水素量の計算

多結晶体を模擬した計算モデルを用いて計算

## 考察

## まとめ

# 計算コードの整備

## 弾塑性解析コード

設計用大規模計算力学システム開発プロジェクト(ADVENTUREプロジェクト)で開発された弾塑性解析コード「Adventure Solid」を改良

設計用大規模計算力学システム開発プロジェクト:

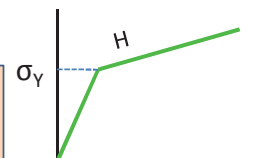
<http://adventure.sys.t.u-tokyo.ac.jp/jp/>

- 1997年～2002年:日本学術振興会 未来開拓学術研究推進事業「計算科学」分野の1プロジェクト
- 自然や人工物の振る舞いを定量的に予測する計算機シミュレーションの精度と速度の飛躍的向上が目標
- 多様な並列分散計算機環境のもとで固体の変形や熱・流体の流れ等の力学解析から可視化、設計最適化までを行える汎用並列計算力学システムADVENTUREの研究開発

(ADVENTURE: **AD**vanced **EN**gineering analysis **T**ool for **U**ltra large **RE**al world)

Adventure Solid:

- 3次元固体静解析のための有限要素法解析ソルバ
- 並列計算機環境に対応し大規模な解析を可能
- 弾塑性解析では、二直線型の応力ひずみ関係のみに対応( $\sigma_y$ :初期降伏応力、H:加工効果係数)
- 結晶異方性には非対応(ヤング率とポアソン比)



# 計算コードの整備

## ADVENTURE Solidの改良

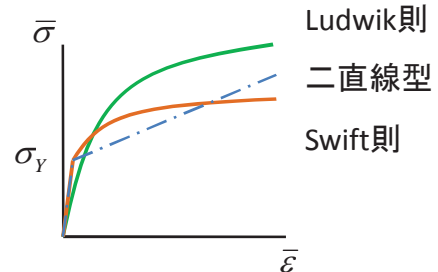
- 実験データを利用可能とするため、応力-ひずみ関係の対応範囲の拡張

$$\text{二直線型: } \begin{cases} \bar{\sigma} = E\bar{\varepsilon} & (\sigma \leq \sigma_Y) \\ \bar{\sigma} = \sigma_Y + H\bar{\varepsilon}_p & (\sigma > \sigma_Y) \end{cases}$$

$$\text{Ludwik則: } \bar{\sigma} = A\bar{\varepsilon}^n + B$$

$$\text{Swift則: } \begin{cases} \bar{\sigma} = E\bar{\varepsilon} & (\bar{\sigma} \leq \sigma_Y) \\ \bar{\sigma} = C(\bar{\varepsilon}_p + \bar{\varepsilon}_{p0})^n & (\bar{\sigma} > \sigma_Y) \end{cases}$$

$$\text{折れ線型: } \begin{cases} \bar{\sigma} = E\bar{\varepsilon} & (\bar{\sigma} \leq \sigma_Y) \\ (\bar{\varepsilon}_p, \bar{\sigma})^n & (\bar{\sigma} > \sigma_Y) \end{cases}$$



$\sigma_Y$  : 初期降伏応力     $E$  : ヤング率

$\bar{\sigma}$  : 相当応力     $\bar{\varepsilon}$  : 相当ひずみ     $\bar{\varepsilon}_p = \bar{\varepsilon} - \bar{\sigma} / E$  : 相当塑性ひずみ

$H$  : 加工硬化係数     $n$  : 硬化指数     $A, B, C, \bar{\varepsilon}_{p0}$  : パラメータ

# 計算コードの整備

## ADVENTURE Solidの改良

- 結晶粒界の計算を考慮し、結晶異方性への対応

鉄鋼材料の結晶の物性値は直交異方性の範囲で与えられるため、以下の応力ひずみ関係を主軸方向に回転し計算するように改良

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_x \\ \varepsilon_y \\ \varepsilon_z \\ \gamma_{xy} \\ \gamma_{yz} \\ \gamma_{zx} \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 1/E & -\nu/E & -\nu/E & 0 & 0 & 0 \\ -\nu/E & 1/E & -\nu/E & 0 & 0 & 0 \\ -\nu/E & -\nu/E & 1/E & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1/G & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1/G & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1/G \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \sigma_z \\ \tau_{xy} \\ \tau_{yz} \\ \tau_{zx} \end{pmatrix}$$

$\sigma_i$   $\varepsilon_i$  : 各軸方向の引張り応力及び引張りひずみ

$\tau_{ij}$   $\gamma_{ij}$  : せん断応力及びせん断ひずみ

$E$  : ヤング率     $\nu$  : ポアソン比     $G$  : せん断弾性係数

# 計算コードの整備

## 水素拡散解析コード

- 以下の応力場中での水素拡散を記述する式を、有限体積法で計算する3次元並列コード

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_H \nabla^2 C - \frac{D_H V_H \nabla(C \nabla \sigma_h)}{RT}, \quad \sigma_h = \frac{1}{3}(\sigma_{xx} + \sigma_{yy} + \sigma_{zz})$$

$C$  : 水素濃度、 $\sigma_h$  [Pa]: 静水圧応力、 $D_H$  [m<sup>2</sup>/s]: 水素拡散係数  
 $V_H$  [m<sup>3</sup>/mol]: 部分モル体積、 $R$  [J/mol·K]: 気体定数、 $T$  [K]: 温度

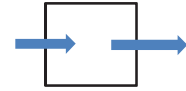
$$J = -D_H \nabla C + \frac{D_H V_H}{RT} C \nabla \sigma_h$$

→ 静水圧応力の勾配による力で、水素は静水圧応力のより大きい方へ移動  
 → 応力集中部へ移動

- 応力場は弾塑性解析コードの結果を利用

### 有限体積法

- 物理量の保存則に基づいて定式化された解法
- 非構造格子への適用が容易
- 差分法的なコード化が可能

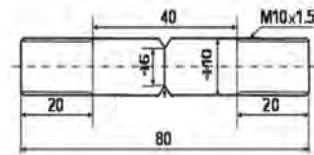


コントロールボリュームにおける保存量の時間発展を計算

## 局所応力・局所水素量の計算

### 水素添加鋼材試料の引張り試験

1. 引張試験片に水素を添加
2. 引張試験片をコーティング
3. 低歪速度引張試験(SSRT)で破断応力を測定
4. 破断後、コーティングをはがし、昇温脱離解析(TDA)で、水素量を測定

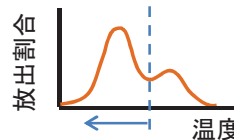


- 測定破断応力

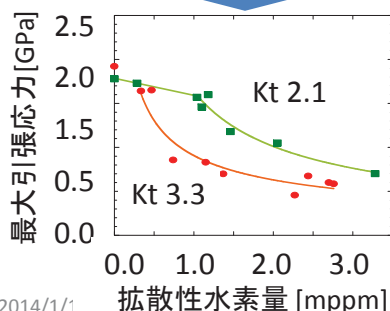
→ ノッチ面の応力を算出

- TDAの熱脱離曲線

→ 拡散性水素量を算出



ある温度以下で放出された水素  
 → 拡散性水素



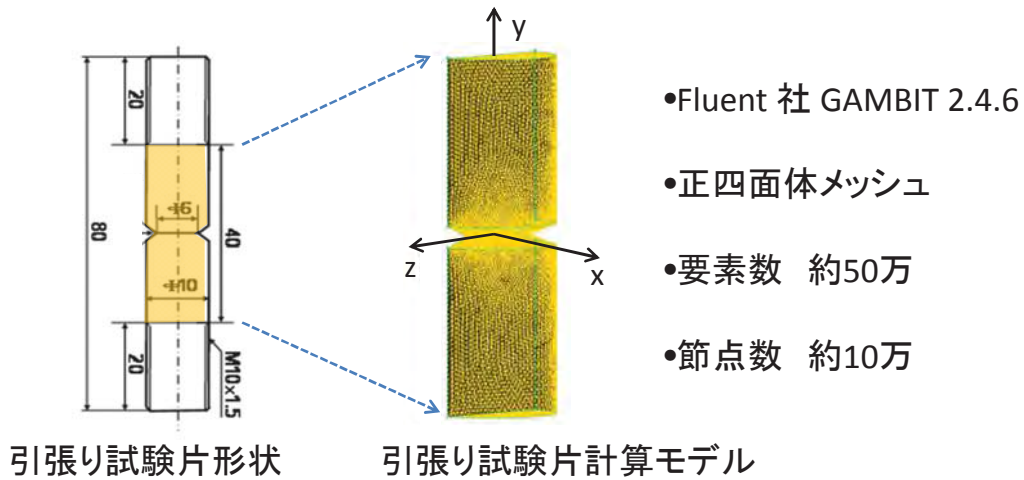
拡散性水素量とは最大引張り応力との関係は、応力集中係数(Kt)の値で異なる。

普遍的な関係を得るため、応力集中部の局所量による整理

# 局所応力・局所水素量の計算

引張り試験で得られた負荷応力と拡散性水素量から応力集中部の応力と水素量(局所応力・局所水素量)を計算し、それらの関係を考察

## 計算メッシュ

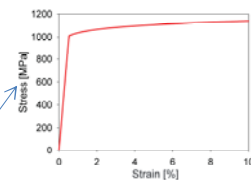


# 局所応力・局所水素量の計算

## 弾塑性解析の計算条件

### 計算パラメータ

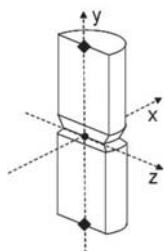
ヤング率, E	190.3GPa
ポアソン比, ν	0.3
降伏応力, $\sigma_Y$	1010MPa
応力-歪関係	$\sigma=1251.7\epsilon^{0.041}+0.23471$



ノッチ底半径: 0.25mm (Kt=3.3)、0.8mm (Kt=2.1)



### 境界条件



- 背面(yz面) : x方向変位0
- (原点) : x、y、z方向変位0
- ◆(y=±20mm) : x、z方向変位0
- 上面(y=20mm) : +y方向荷重 N
- 下面(y=-20mm) : -y方向荷重 N

### 初期状態

無変形状態

# 局所応力・局所水素量の計算

## 水素拡散解析の計算条件

### 計算パラメータ

拡散係数, $D_H$	$4.0 \times 10^{-11} \text{m}^2/\text{s}$
部分モル体積, $V_H$	$2.1 \times 10^{-6} \text{m}^3/\text{mol}$
温度, $T$	293K

### 境界条件

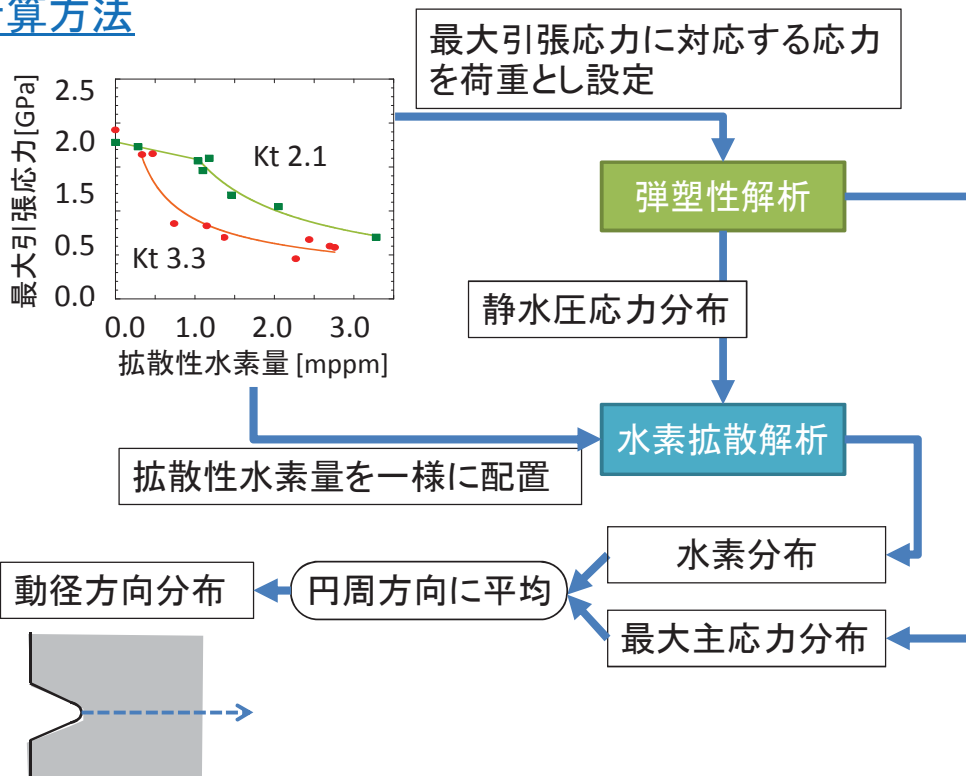
すべての面における流束=0

### 初期状態

- 水素一様分布状態
- 水素濃度は初期水素濃度で無次元化

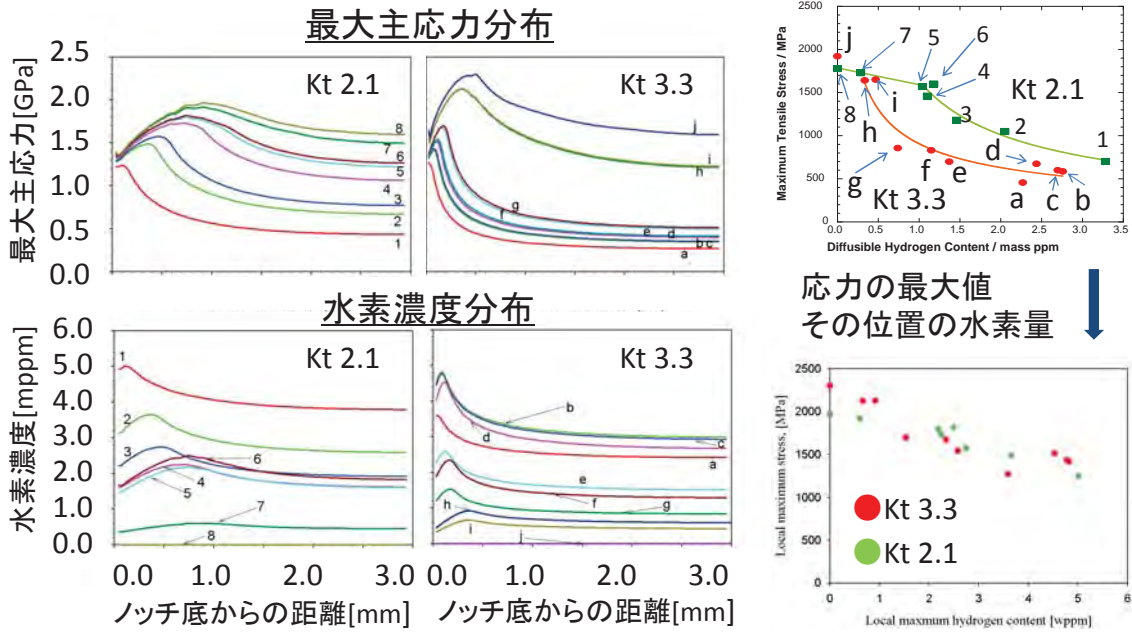
# 局所応力・局所水素量の計算

## 計算方法



# 局所応力・局所水素量の計算

## 計算結果

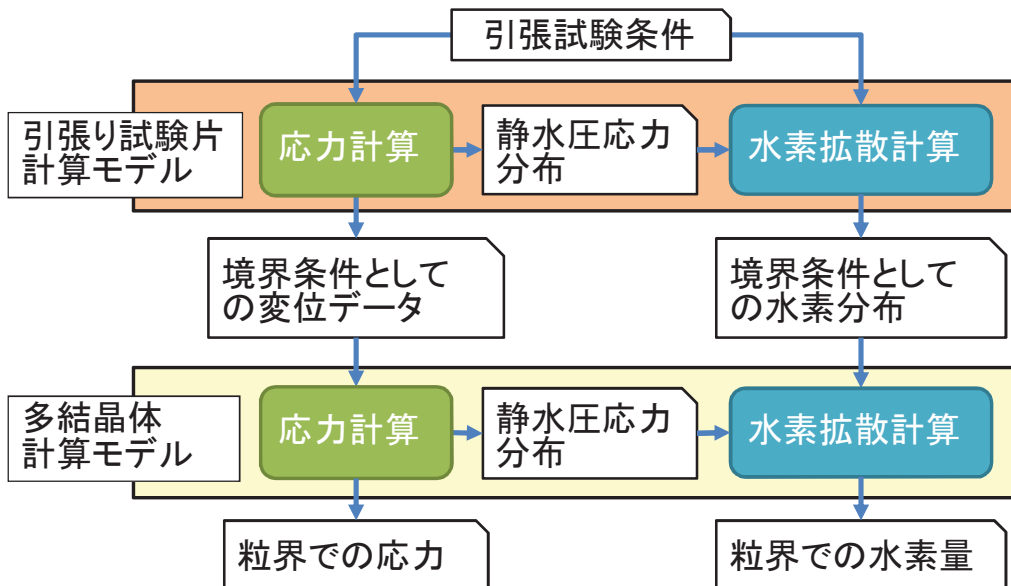


応力集中係数によらず、ほぼ直線上に整理された。  
 → 形状によらず、応力集中部での応力と水素量が破断を支配

# 粒界における応力・水素量の計算

多結晶体の計算モデルの粒界における応力及び水素量を引張り試験条件のもとで評価、考察する。

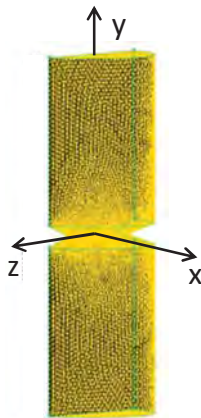
## 計算方法



# 粒界における応力・水素量の計算

## 引張試験片計算モデル

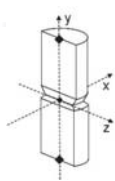
### 計算メッシュ



### 計算パラメータ

ノッチ底半径	0.8mm (Kt=2.1)
ヤング率, E	190.3GPa
ポアソン比, ν	0.3
降伏応力, σ <sub>y</sub>	1010MPa
応力-歪関係	σ=1251.7ε <sup>0.041</sup> +0.23471
拡散係数, D <sub>H</sub>	4.0x10 <sup>-11</sup> m <sup>2</sup> /s
部分モル体積, V <sub>H</sub>	2.1x10 <sup>-6</sup> m <sup>3</sup> /mol
温度, T	293K

### 境界条件

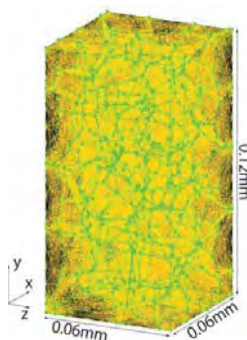


- 背面(yz面) : x方向変位0
  - (原点) : x、y、z方向変位0
  - ◆(y=±20mm) : x、z方向変位0
  - 上面(y=20mm) : +y方向荷重 N
  - 下面(y=-20mm) : -y方向荷重 N
- すべての面:  
水素流束=0

# 粒界における応力・水素量の計算

## 多結晶体計算モデル

### 計算メッシュ



- 0.06mm × 0.12mm × 0.06mmの領域をランダムボロノイ分割し作成
- 結晶方位をランダムに与えたボロノイセルを結晶粒とみなし、それらの間の界面を粒界とする。
- 結晶粒数(ボロノイセル数) : 100
- Fluent 社 GAMBIT 2.4.6 を用い四面体で分割
- 要素数: 約100万、節点数: 約19万

### 計算パラメータ

ヤング率, E <sub>poly</sub>	ポアソン比, ν <sub>poly</sub>	せん断弾性係数, G <sub>poly</sub>
131.8GPa	0.373	116.0GPa

[長嶋、集合組織、p. 262 (1984)]

- 多結晶体計算モデルは弾性体を仮定

# 粒界における応力・水素量の計算

## 多結晶体計算モデル

### 粒数の決定

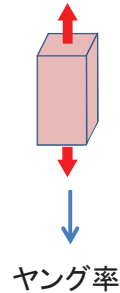
多結晶体計算モデルでは、各ポロノイセルに結晶方位をランダムに与えるため、粒の数が計算モデル全体の特性に影響を与える。



モデルの引張り特性に対する粒数の影響を調べる。

### [方法]

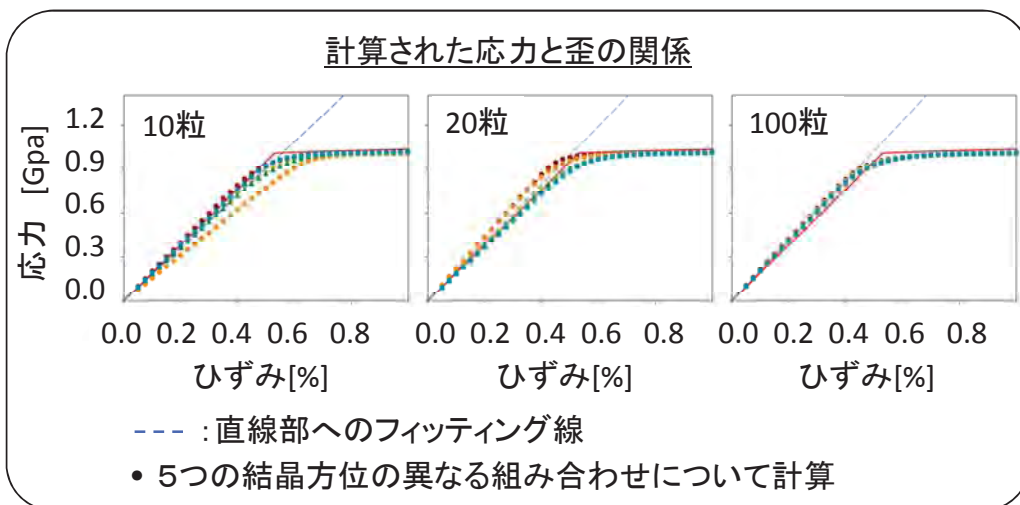
- 一軸引張試験のシミュレーションによって、多結晶体計算モデルのヤング率を測定
- 粒数と結晶方位を変化させてシミュレーションを実施
- ヤング率と粒数の関係から粒数を決定



# 粒界における応力・水素量の計算

## 多結晶体計算モデル

### 粒数の決定

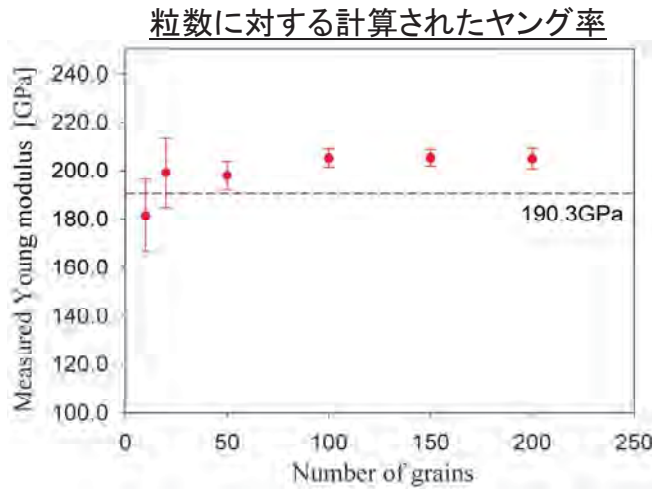


フィッティング線の傾きと分散を計算

# 粒界における応力・水素量の計算

## 多結晶体計算モデル

### 粒数の決定



エラーバーは、各々の粒数に対して5通りの異なる結晶方位の配置に対する統計誤差

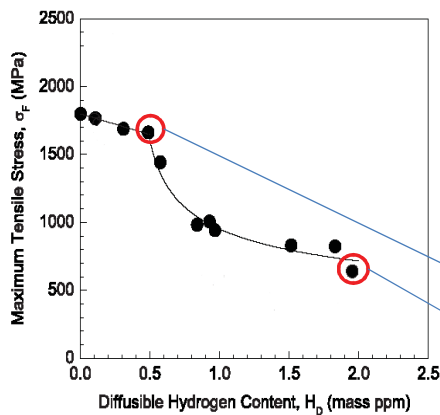
粒数が100以上になると、ヤング率はほぼ一定となり、粒数の影響がほぼなくなる。

➡ 100粒の多結晶体計算モデルを用いる。

# 粒界における応力・水素量の計算

## 引張試験片計算モデルによる計算

文献 [Wang et al. Scripta Mater. 52(2005)]の実験データを、引張荷重および内部水素量として用いる。

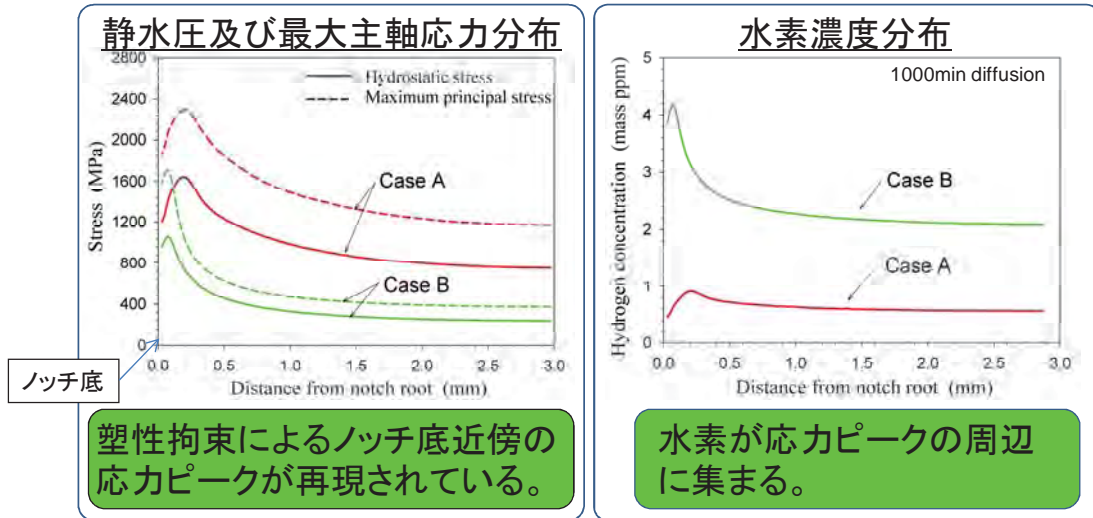


	水素量	最大引張り応力	荷重応力
Case A	0.5mppm	1650MPa	594MPa
Case B	1.95mppm	650Ma	234MPa

# 粒界における応力・水素量の計算

## 引張試験片計算モデルによる計算

### 計算結果

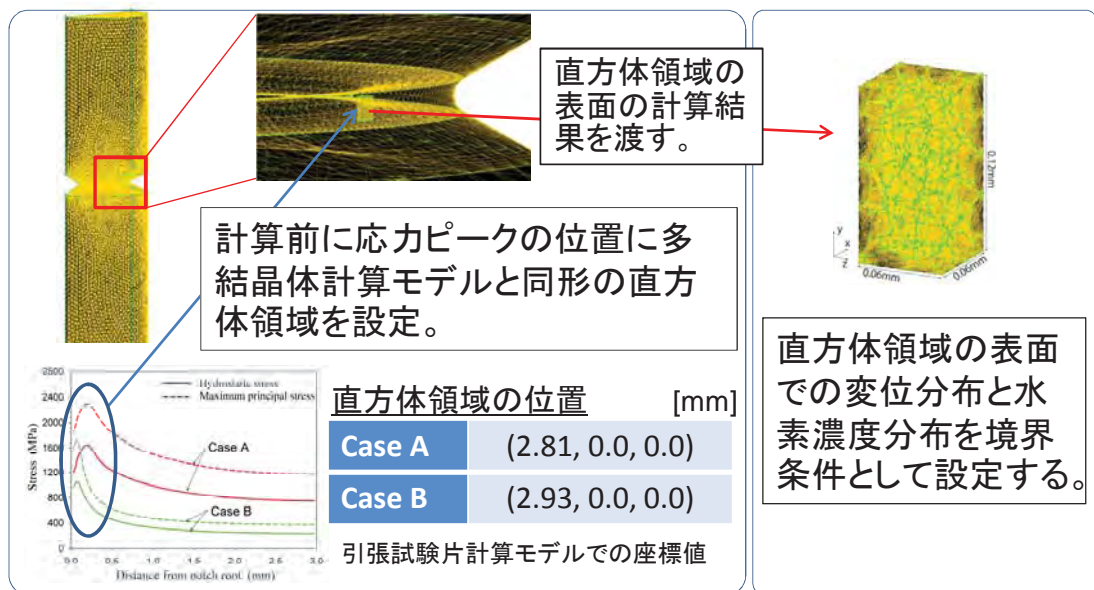


実験では水素脆化によるクラックがノッチ底から少し内部に入った部分で観察されていることから、応力ピークの位置の変位と水素濃度を多結晶計算モデルの境界条件として用いる。

# 粒界における応力・水素量の計算

## 多結晶計算モデルによる計算

### 境界条件

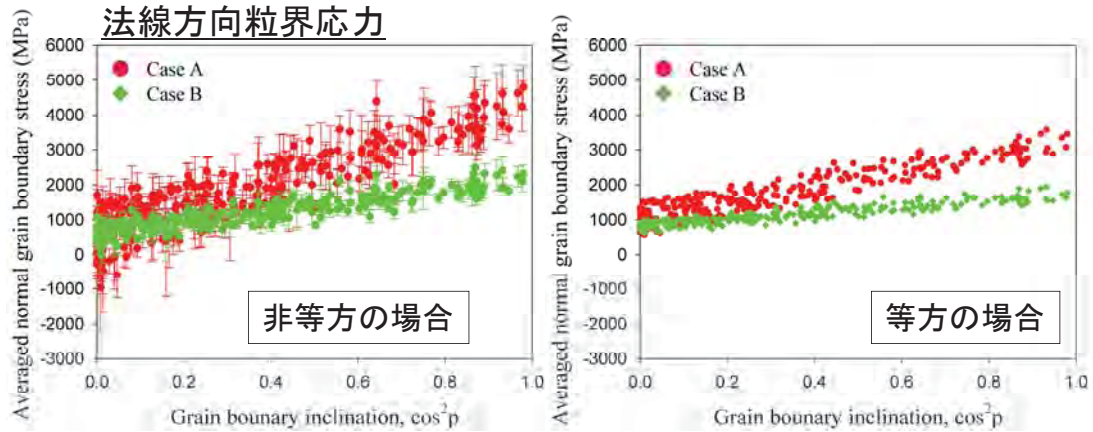
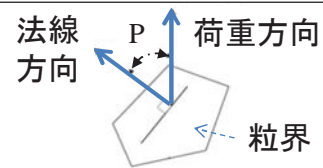


# 粒界における応力・水素量の計算

## 多結晶体計算モデルによる計算

### 計算結果

計算結果は、それぞれの粒界面上で平均化され、粒界面の方向( $\cos^2 p$ )の関数として表示

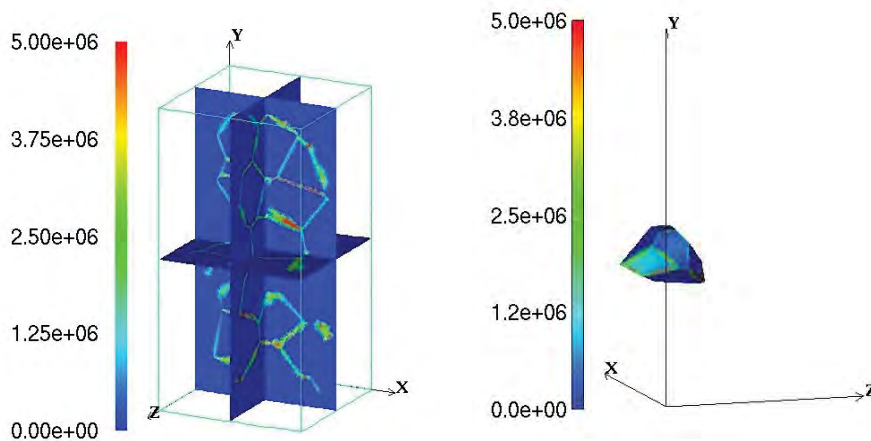


- 非等方の場合、等方の場合に比べ、粒界面上の応力は広く分布する。  
← 結晶方位の影響
- 等方の応力分布の幅は、ノッチによる応力集中部の多軸性の影響

# 粒界における応力・水素量の計算

## 多結晶体計算モデルによる計算

### 粒界面上での応力分布

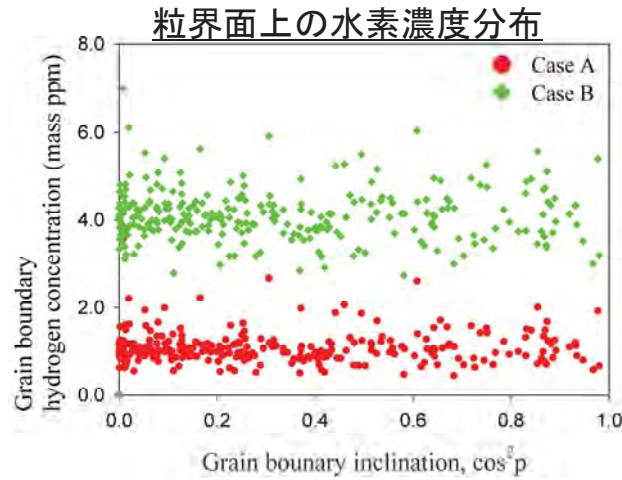


粒の面よりエッジや頂点での応力大きい。

# 粒界における応力・水素量の計算

## 多結晶計算モデルによる計算

### 計算結果

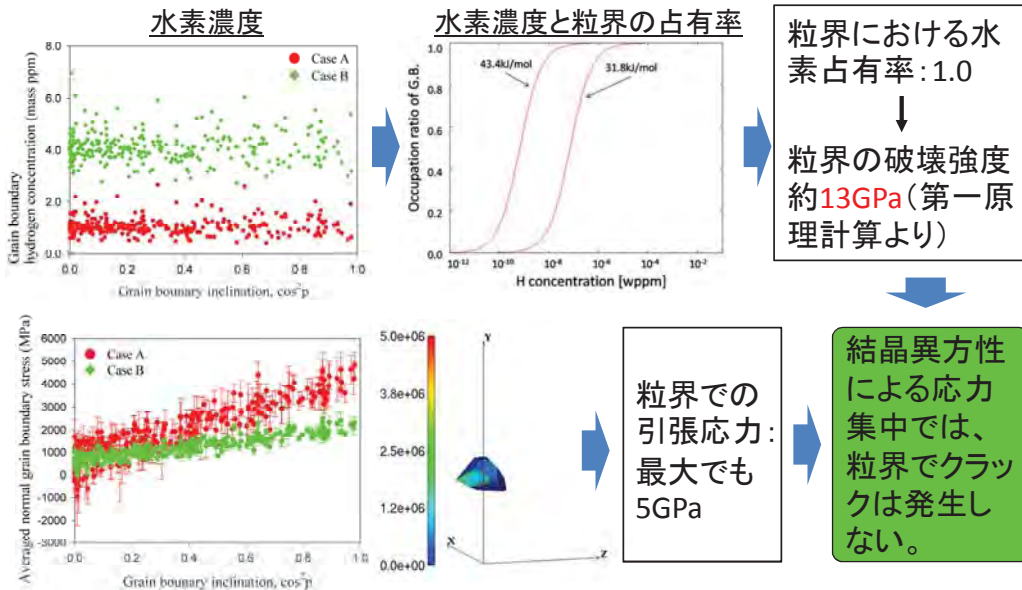


- 水素移動の駆動力は  $\nabla \sigma_h$  に比例するため、必ずしも応力が大きい粒界に水素は集まらない。
- 粒界面上の水素量は、最大でも、引張り試験片計算モデルにおけるピーク値の1.5~2倍程度 (初期水素濃度の約2~4倍程度)

## 考察

### クラック生成の可能性について

第一原理計算で見積もられた粒界強度との比較から、クラック生成の可能性を調べる。

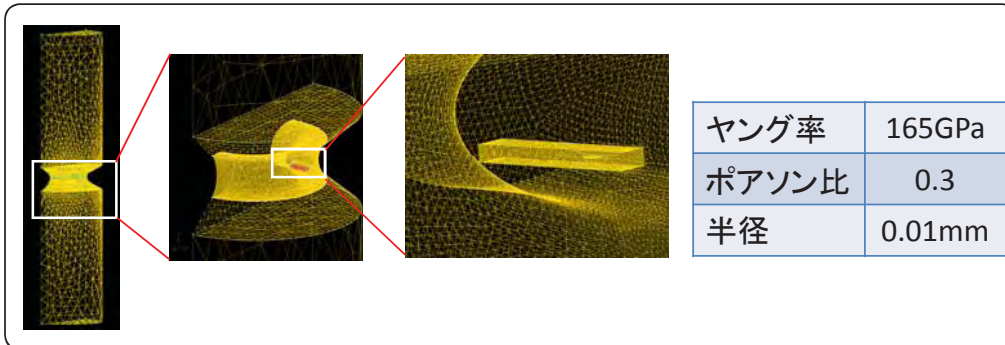


粒界におけるクラックの生成には他の機構が必要

# 考察

## 介在物による応力集中の検討

応力のピーク位置に設定したコイン上の弾性体周囲の応力を調査



$K_t=4.9, 3.3, 2.1$ に対する最大主応力の最大値は 6.2、2.7、2.2GPa  
→大きな応力集中は見られず、クラック生成の応力より小さい。

転位の運動を考慮した計算モデルが必要

# まとめ

NEDOプロジェクトの「平成19年度～平成23年度成果報告書 鉄鋼材料の革新的高強度・高機能化基盤研究開発」における水素脆化グループの研究内容から以下のことについて紹介した。

- 弾塑性解析コード及び水素拡散解析コードによる計算によって、引張り試験における最大引張り応力と拡散性水量量の関係を、局所応力・局所水素量で整理し、形状によらない関係が得られた。
- 局所的な領域(粒界)での破壊が水素脆化における破断の原因であることを示唆
- 結晶異方性を考慮した多結晶体モデルを用い、引張り試験条件での粒界での応力・水素量を評価し、原子レベルの計算で評価した破壊強度と比較したところ、粒界での強度は破壊強度に至らない結果が得られた。
- 結晶異方性は粒界でのき裂発生の原因とはならない。他の応力集中機構(転位の集積など)を考える必要があり、その評価には転位運動を考慮した計算モデル必要