

高圧水素タンクの充填時検査技術の開発（第1報）

Development of Filling Inspection Technology for High-pressure Hydrogen Tanks (1th)

技術開発部 工業材料科 工藤弘行 佐藤浩樹 杉原輝俊

高圧水素タンクの安全性を高めるため、タンクに水素ガスを充填すると同時に、タンクの欠陥検査を行う「充填時検査」技術の開発を行った。空気中でのデジタル画像相関法(DIC)によるひずみ測定により、テストピースレベルで、肉厚の1/4長さの模擬き裂を検知できることを確認した。また、空気中での疲労試験機を用いて、破壊力学に基づく「疲労亀裂進展試験」を実施し、実タンクで生じる「疲労破壊」の進展を予測するための基礎データを得た。

Key words: 水素脆化、疲労破壊、破壊力学、デジタル画像相関法

1. 緒言

現在、脱炭素社会へ向けた社会変革が一段と加速しており、再生可能エネルギーの発電量変動の受け皿として水素エネルギー活用への注目と期待は高まるばかりである。現在の最大の課題は、水素エネルギーを利用するコストであり、あらゆる面で低コスト化の技術開発が必要とされる。

水素の運搬・貯蔵技術としては、液化水素、高圧ガスの2つが代表的であるが、液体水素は大規模利用・長期貯蔵向き、高圧ガスは小規模利用・短期貯蔵向きとの特徴がある。また、水素エネルギー活用を活発にするには、これまで燃料電池車(FCV)、FCバス、FCフォークリフトなどに限られていた水素ガス利用を定置利用などにも広げることが期待されている。2030年半ばには、燃料電池を駆動源とするFCドローンの総水素消費量がFCVを超えるとの試算¹⁾もあり、多種多様な水素タンクが身近に利用される可能性が急速に高まっている。

水素ガスの利用拡大に向けては、水素タンクからのガス漏洩に対する懸念があり、高い安全性や長期信頼性の確保が急務となっている。高圧水素タンクでは、製造時にタンク内面に生じた初期欠陥が疲労亀裂として進展し、最終破壊に至ることが知られており、この考えを前提にした疲労寿命設計がなされている²⁾。

現在、高圧水素タンクに使用される金属材料は、元素組成を規定した高価な材料に限定されているが、規制緩和により安価な材料を認める動きがある。候補となる低合金鋼SCM材、SNCM材では、材料中に水素が侵入することにより強度低下する「水素脆化」の影響により、大気環境に比べて最大で30倍の速度で疲労亀裂が進展すること³⁾が知られており、安価な材料であっても、十分な安全性を確保する技術が求められている。

以上より、本研究では高圧水素ガスを水素タンクに充填すると同時に欠陥の検査を実施する「充填時検査」によるタンク健全性診断技術の開発を行うこととした。

なお、本年度の実験は全て常圧大気(空気)中で実

施しているが、次年度以降は「水素脆化」の影響についても取り組む予定である。

2. 実験

2. 1. デジタル画像相関法(DIC)による亀裂検知

デジタル画像相関法(以下DIC)は、変位・ひずみを測定するための画像処理手法である。図1はDICの原理を説明したものである。図中、緑枠線は「サブセット」と呼ばれる画像処理のマーカであり、数十画素×数十画素の大きさである。DICでは、変形前の画像を基準とし、画像の相関性を頼りに、変形後の画像から同一の「サブセット」を追跡することで、変位測定が可能である。さらに、「サブセット」自体の変形から、ひずみを算出し、1/100画素レベルの測定精度を持っていることが特徴である。1カメラの測定で2次元の測定が可能であり、2カメラ測定ではステレオ法により3次元の測定が可能である。

当所では、過去の研究において、コンプライアンス法とDIC亀裂検知の2つの点検技術を提案している⁴⁾。図2は、その概要を示したものである。コンプライアンス法とは、亀裂成長に伴うコンプライアンス(剛性の逆数)の変化を亀裂検知に利用する手法であり、DIC亀裂検知とは、亀裂周辺の不均質なひずみ分布から直接亀裂の場所を特定する手法である。

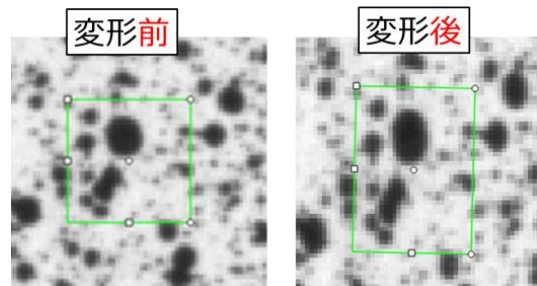


図1 DICの原理説明図
(左) 変形前 (右) 変形後

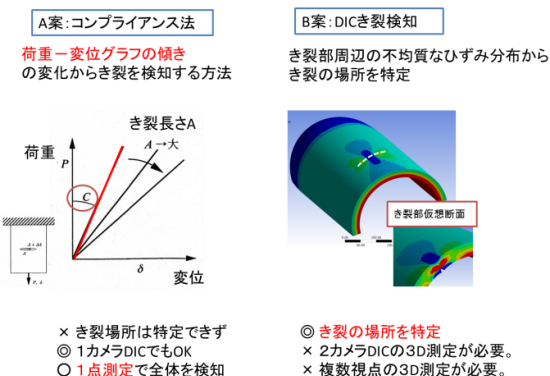


図2 当所が提案する2つの亀裂検知技術

2. 2. 円弧試験片の DIC 測定試験

DIC 測定による亀裂検知の実現性を確認するため、円弧試験片の DIC 測定試験を実施した。図3は、測定試験に用いた円弧試験片である。材質はアルミ合金 A5052 材で、円弧外径 130 [mm]、内径 100 [mm]、板厚 15 [mm] である。

円弧試験片に対し、刃厚約 1.5 [mm] の鋸刃で、試験片全幅に渡り、切欠きを加工することで、模擬亀裂とした。切欠き位置や切欠き長さを変えたサンプルを複数準備し試験を実施した。本報告では、亀裂が無いサンプル、円弧の板厚に対して 1/2 および 1/4 の亀裂長さを持つサンプルの3つの試験片の結果を記載する。以後は、それぞれ、「亀裂なしサンプル」、「亀裂 1/2 サンプル」、「亀裂 1/4 サンプル」と呼ぶ。

図4は、円弧試験片の DIC 測定面を示したもので、白黒のランダムパターンをスプレーにより塗布している。本試験では円筒面と側面の2面の測定を行った。円筒面は実際のタンク検査を行う観察面である。側面は、実際の点検時に観察することができない面であるが、亀裂先端付近の変形挙動が良く分かる測定面であり、点検技術の参考とするため測定した。

DIC 測定試験では、島津製作所製精密万能試験機 (AGX-20kN) を用いて3サイクルの荷重を与えた。サイクルの最小荷重は最大荷重の 1/10 とした。サイクル荷重の最大値は 500 [N] から 4000 [N] の範囲とし、徐々に荷重を増やして DIC 測定を行った。図5に試験風景を示すが、円筒面測定のため、2カメラ測定を行った。一度に測定できる DIC 観察面は、円筒面と側面いずれか限られるため、特徴的な挙動が見られた荷重にて、サンプルの取付方向を変更し、円筒面と側面の測定を行った。

DIC 解析は、コリレイテッド・ソリューションズ社製ソフトウェア VIC-3D を用いて実施した。無負荷の状態から、3サイクルの荷重サイクルが終了し、除荷するまでを、数百枚の画像として記録し、無負荷の状態を基準画像として、解析を行った。



図3 模擬亀裂を加工した円弧試験片

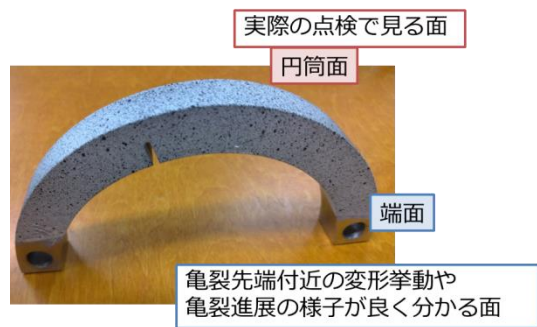


図4 円弧試験片の DIC 測定面

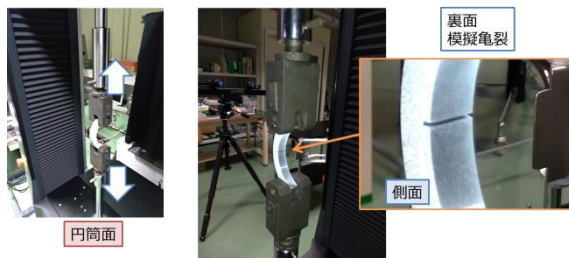


図5 DIC 測定試験風景

2. 3. 円弧試験片の疲労試験

実使用される水素タンクで実際に生じる破壊形態である疲労破壊を再現して、点検技術開発に必要な情報を得るため、円弧試験片を対象とした疲労試験を行った。本来は、実製品と同じように高压ガスを用いたタンクの疲労試験が望ましいが、ガスを用いた破壊試験は危険性が高く、費用も高額となる。円弧試験片は、タンクの一部を抜き出した形状に相当することから、本試験は水素タンクで生じる破壊現象を部分的に再現する狙いである。

使用した装置は、図6に示す島津製作所製サーボパルサ (EHF-LV005K2A) である。本装置は、油圧式の疲労試験機で、荷重容量は±5 [kN]、最大の繰り返し速度は 50 [Hz] である。円弧試験片を図7に示す。材質はアルミ合金 A5052 材で、円弧外径 150 [mm]、内径 100 [mm]、板厚 20 [mm] とした。内径部中央に、長さ約 3.1 [mm] の切欠きを刃厚約 1.5 [mm] の鋸刃により加工した。使用した治具はピン固定式であり、試験片には

ピンを通すための直径 10 [mm] の穴加工が必要である。
図 8 に円弧試験片の取付け状態を示す。



図 6 疲労試験機外観

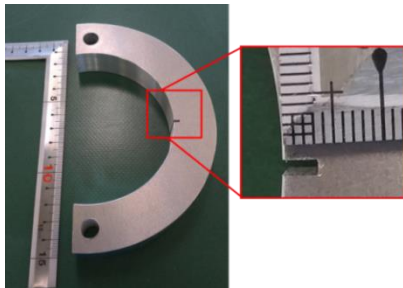


図 7 円弧試験片
(左) 全体図 (右) 切欠き部拡大図



図 8 円弧試験片の取付け状態

一般的な疲労試験片は丸棒や平板など、左右・前後・上下に対称であるのに対し、円弧試験片は円弧がある側と無い側で非対称となり、重心が荷重軸よりずれるため、安定して亀裂進展試験ができるかが課題となる。よって、本試験は円弧試験片を対象とした疲労試験において、安定的に亀裂進展を継続できるかどうかを調査することを目的とした。疲労試験の代表的な 2 つの制御方法である定荷重制御と定変位制御で試験を実施した。本報告では、定荷重制御としたサンプルの結果を報告する。最大荷重に対する最小荷重の比は 0.1 に固定した。試験速度は 10 [Hz] とした。

2. 4. CT (コンパクト・テンション) 試験片を対象とした亀裂進展試験

水素タンクのように亀裂を持つ構造体の強度信頼性を確保するには、破壊力学の適用が必要である。破壊力学で最も重要なパラメータは応力拡大係数 K であり、亀裂先端の応力状態の厳しさを表すものである。一般式は、 $K = F \cdot \sigma \cdot \sqrt{\pi a}$ で、単位は「 $\text{MPa} \cdot \sqrt{\text{m}}$ 」である。ここで、 F は形状関数、 σ は公称応力、 a は亀裂長さである。

材料試験においても、破壊力学に則った評価が必要となるため、本研究では、CT 試験片を対象とする亀裂進展特性試験を実施した。この試験は大小様々な荷重を亀裂に与えた時に、1 サイクルの荷重で亀裂がどの程度進展したかを「長さ/サイクル」の単位で「進展速度」として評価する試験である。

対象とする材料は、アルミ合金 A6061 材とした。A6061 材は、水素脆化の影響が少ないことから、水素プラントでの使用が認められた材種で、水素タンクのライナー材として使用実績が多い。

図 9 は試験に用いた CT 試験片であり、主要寸法は ASTM E399 に準拠し、板厚のみ 6 [mm] としている。クリップゲージは亀裂開口変位 (COD) を測定するための変位計であり、本試験ではゲージ長 5 [mm] の島津製作所製 GL-5 を使用した。

試験制御と特性評価のため、島津製作所製の破壊じん性試験ソフトウェア GLOUN4830 の亀裂進展特性評価機能を用いた。本ソフトウェアは、CT 試験片に関する破壊力学の演算式を保有しており、予め試験片寸法や初期亀裂長さなどを入力しておくことで、試験中に記録された荷重と亀裂開口変位 (COD) から、直ちに亀裂長さ a [mm] と応力拡大係数 K [$\text{MPa} \cdot \sqrt{\text{m}}$] を計算することができる。

疲労試験はサイクル荷重を与えることから、応力拡大係数も変動するため、その変動幅を応力拡大係数範囲 ΔK として整理し、 ΔK で試験範囲を指定する。本研究では、 ΔK を 10~30 [$\text{MPa} \cdot \sqrt{\text{m}}$] の範囲でスムーズに変化させ、亀裂を 10 [mm] 進展させる条件設定で試験した。試験速度は 10 [Hz] とした。

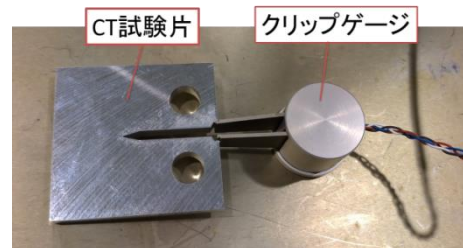


図 9 CT 試験片とクリップゲージ

3. 結果

3. 1. 円弧試験片のDIC測定試験結果

図10にDIC解析で使用する評価ツールの説明図を示す。「円カーソル」や「ボックスカーソル」は、形状内の結果を平均化して評価する基本的なツールである。

「仮想伸び計」は、二点間の距離の変化を測定するツールであり、距離の変化量 ΔL や、元の長さとの比 $\Delta L/L$ で評価する。「ラインカーソル」は、分布図の任意の位置に線を描き、線上の数百点の結果を読み取りグラフ表示するものである。本報告では、側面観察時には円筒面近くにラインカーソルを配置することで、円筒面測定結果との整合性を高める工夫をしている。

次に、亀裂が無いサンプルに最大荷重 3500[N]のサイクル荷重を与えた時の側面のDIC測定結果を図11、図12に示す。

図11は、仮想伸び計を図13に示すように円弧の上部と下部に配置し、円弧の変形量を距離変化として測定したグラフである。サイクル試験中の荷重変化に応じて、約 0.3 [mm] の変動を捉えることができている。以降のDIC評価では、共通して、3サイクル目の最大荷重点の結果を「極大荷重時」、3サイクル終了した最小荷重点の結果を「極小荷重時」と称して、評価する時点とする。

図12は、右側に最小主ひずみ分布図を、左側にラインカーソルのグラフを示したものである。グラフは縦軸にY座標、横軸に最小主ひずみとしたが、グラフのY座標と分布図のY座標を揃えて配置しており、分布図の円筒面近くのラインカーソルの任意の点から左に移動して、グラフの点を読み取れば同一のY座標のデータが読み取れる。亀裂が無いサンプルでは、極大荷重時と極小荷重時で 700[$\mu\epsilon$]程度グラフがシフトするが、ひずみのピークは見られない。

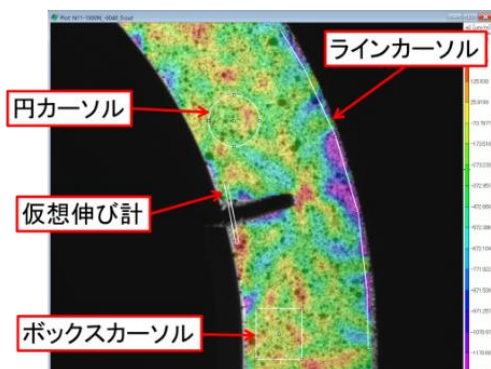


図10 DIC解析の評価ツールの説明図

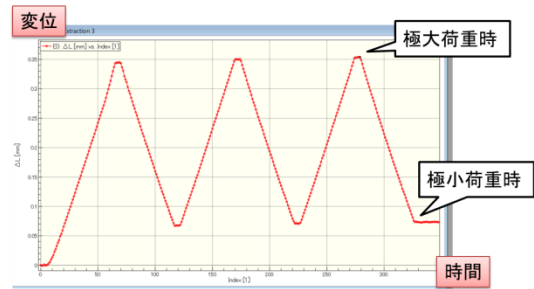


図11 サイクル荷重試験中の仮想変位計グラフ

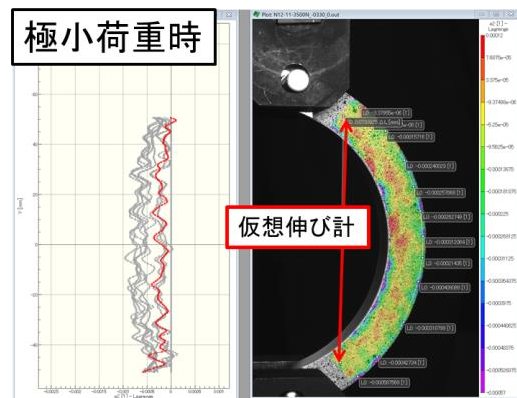
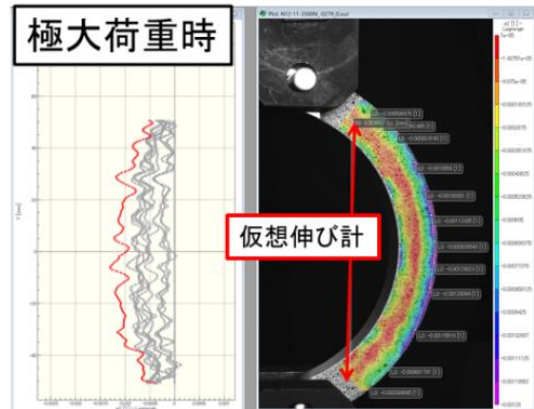


図12 亀裂無しサンプルのひずみ分布
(上) 極大荷重時 (下) 極小荷重時

次に、模擬亀裂1/2サンプルのDIC測定結果として、図13にy軸方向ひずみ分布図およびグラフを示す。サイクル荷重 1500[N]の条件で極大荷重時の結果を示した。模擬亀裂がある場合、亀裂先端に応力集中が生じ、亀裂の延長線上の円筒面に負方向すなわち圧縮ひずみが生じる領域が広がっている。図右には、同一荷重を付与した場合の円筒面観察結果も示しているが、亀裂の存在する位置のみ、負方向のひずみが突出する「マイナス・ピーク」が生じている。ひずみ最小値-9500[$\mu\epsilon$]程度である。このピークは亀裂無しサンプルには見られなかった分布であることから、「マイナス・

ピーク」を発見することで、亀裂検知が可能であると判断した。

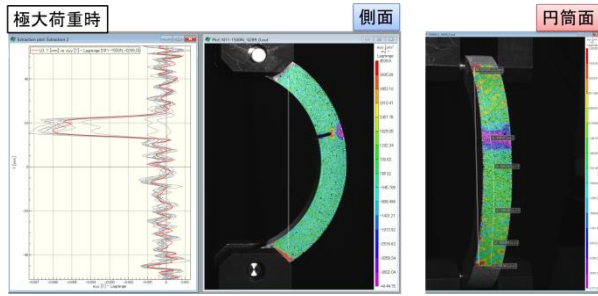


図 13 模擬亀裂 1/2 サンプルの DIC 測定結果
(左) 側面測定結果 (右) 円筒面測定結果

次に、模擬亀裂 1/4 サンプルの DIC 測定結果として、図 1 4 に最小主ひずみ分布図およびグラフを示す。サイクル荷重は 3750 [N] の条件で極大荷重時の分布を示した。Y 方向ひずみでなく、最小主ひずみとしたのは、円筒面の上部と下部では Y 軸との角度が大きくなるためである。円筒面を対象とする DIC 測定はノイズが少ない良好な測定が可能であり、亀裂位置に最小-1800 [$\mu \epsilon$] のピークが観察できた。荷重条件が同一でないもののピーク最小値は模擬亀裂 1/2 より明らかに小さく、応力集中が原因であることも踏まえるとピーク最小値の程度により、亀裂長さの推定が可能との仮説を立てており、現在、追加測定を実施している。

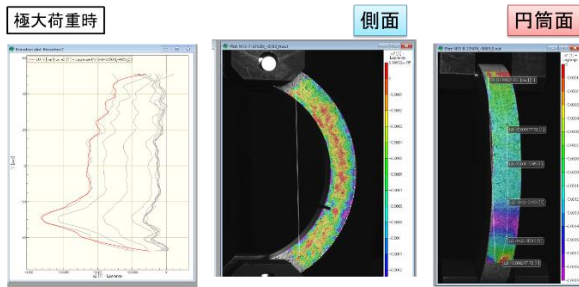


図 1 4 模擬亀裂 1/4 サンプルの DIC 測定結果
(左) 円筒面測定結果 (右) 側面測定結果

最後に、DIC 測定試験で実施した荷重試験と内圧による変形の相違を確認するため、荷重試験で用いたものと同じのサンプルに内圧と荷重試験による変形を与えた CAE 解析の結果を図 1 5 に示す。両者で、ひずみのレベルは異なるものの、亀裂付近で、負方向のピークが生じるなど分布の特徴は類似しており、荷重試験による点検技術の検討は妥当であり、本研究で実施した「マイナス・ピーク」による亀裂検知手法は、水素タンクにもそのまま適用できると考える。

現行の試験は、鋸刃により加工した切欠きを模擬亀裂としている点や、荷重試験で与える荷重設定の妥当性が課題であるが、今後は、次項に示す円弧試験片の疲労試験と DIC 測定試験を統合して、亀裂検知の妥当性を高める予定である。

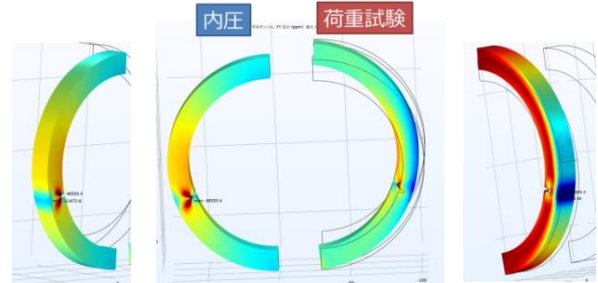


図 1 5 円筒面 DIC 測定結果

3. 2. 円弧試験片の疲労試験結果

定荷重制御による疲労試験の結果概要を表 1 に示す。ここでは、試験のうち、同一条件で負荷した試験の部分をステップと呼ぶこととする。

最大荷重を 2.0 [kN]、2.5 [kN] としたステップでは亀裂進展は確認できなかったが、最大荷重を 3.0 [kN] まで高め、トータル 30000 サイクル負荷した時点で目視でも亀裂進展が確認できた。一度、亀裂が進展すると、亀裂成長の寄与が大きくなるため、その分、最大荷重を 2 [kN]、1 [kN] と徐々に低下させ、最終的に板厚 25 [mm] に対して 8 割程度まで亀裂進展した時点で終了とした。図 1 6 は、亀裂進展の様子サンプル表面写真である。ステップのつなぎ目を除き、一般的に直線状に亀裂進展する疲労破壊の特徴が見られた。疲労試験終了後に、残存する部分に大荷重を与え延性破壊させた後、破断面観察を行った。

図 1 7 に、破面全体の写真を示す。平坦である疲労亀裂部と凹凸のある最終破断部の違いが目視で明瞭に確認できた。

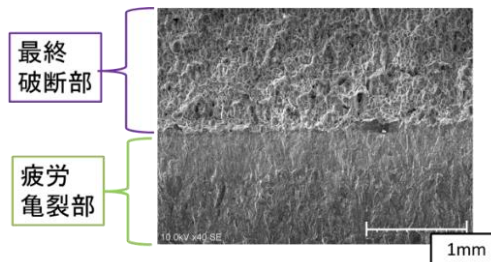
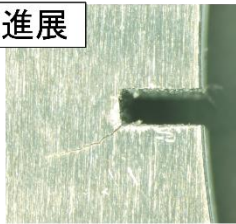
図 1 8 に、破断面の SEM 観察結果を示す。疲労亀裂と最終破断部の境界部を境に、疲労亀裂部ではストライエーション、最終破断部はディンプルと破壊現象を反映した破面形態が観察された。

表 1 円弧試験片の疲労試験結果

ステップ	サイクル	亀裂長さ mm	荷重 kN
1	10,000	-----	2.00
2	20,000	-----	2.50
3	30,000	3.7	3.00
4	40,000	7.5	2.00
5	50,000	15.5	1.00

ステップ3
終了時

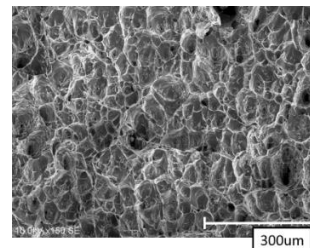
約3.7mm進展



(上) 境界部

ステップ4
終了時

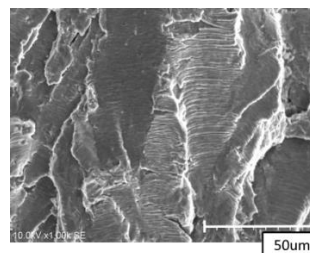
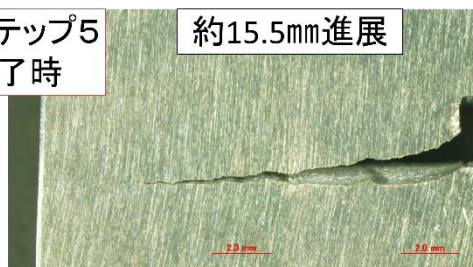
約9.5mm進展



(中) 最終破断部 (ディンプル)

ステップ5
終了時

約15.5mm進展



(下) 疲労亀裂部 (ストライエーション)

図 18 破面各所の SEM 観察結果

図 16 疲労試験中の亀裂進展の様子

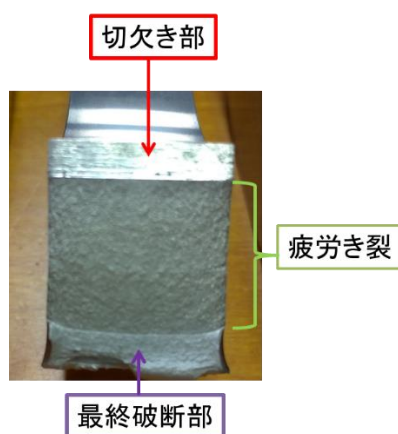


図 17 破面写真 (定荷重負荷サンプル)

3. 3. CT試験片を対象とした亀裂進展試験結果

CT 試験片を対象とした亀裂進展試験では、亀裂が 9[mm]程度進展した時点で破断が生じ試験を終了した。試験結果概要を表 2 に示す。試験設定として、 ΔK を徐々に増加するよう設定したが、そのとおり負荷されていることが確認できる。

図 19 は横軸にサイクル数、縦軸に亀裂長さを示したグラフである。 ΔK の増加に伴い、亀裂進展速度が上昇するため、徐々に傾きが増加することが分かる。

図 20 は横軸に応力拡大係数範囲 ΔK 、縦軸に亀裂進展速度を両対数グラフにプロットした疲労亀裂進展特性グラフである。このグラフの中央部では、傾きがほぼ一定となり、金属材料では係数 m が 2~4 となることが「パリズ則」として知られている。今回の試験では、 $m=2.9$ であり、一般的な数値の範囲であった。

図 21 は、CT 試験片の破面を SEM 観察したもので、初期亀裂から約 2[mm]進展した部分の拡大図である。亀裂は下から上に進展したものであるが、左右方向の線状模様がほぼ等間隔に描かれるストライエーションが観察される。ストライエーションは亀裂先端の塑性

変形により、1回の荷重サイクルで、1つの間隔が形成されることが知られている。図中矢印の範囲のストライエーション間隔は24区間あり、距離は約8.5[μm]であり、1間隔当たりの距離は0.35[μm]であった。疲労亀裂進展試験のソフトウェアで記録された同一箇所における亀裂進展速度は、0.32[$\mu\text{m}/\text{cycle}$]であり、ほぼ合致する。以上により、CT試験片を対象とした亀裂進展試験は妥当に実施できていると判断した。

今後の応用としては、例えば水素タンクを対象としたCAE破壊力学解析で計算した応力拡大係数範囲 ΔK を疲労試験機に与えることにより、水素タンクにおける疲労亀裂進展を試験機上で再現することなどが考えられる。

表2 CT試験片の亀裂進展試験結果

ステップ	サイクル	き裂長さ mm	ΔK	ステップ	サイクル	き裂長さ mm	ΔK
1	405	19.523	8.96	23	16.898	22.336	14.44
2	2,242	19.625	9.05	24	17,204	22.487	14.74
3	4,686	19.726	9.25	25	17,511	22.641	15.05
4	5,910	19.831	9.46	26	17,819	22.804	15.38
5	7,128	19.964	9.72	27	18,126	22.973	15.72
6	8,045	20.078	9.94	28	18,433	23.157	16.10
7	8,962	20.215	10.20	29	18,738	23.347	16.49
8	9,880	20.359	10.50	30	19,042	23.557	16.91
9	10,492	20.465	10.71	31	19,350	23.784	17.38
10	11,107	20.587	10.94	32	19,655	24.019	17.87
11	11,717	20.713	11.20	33	19,960	24.276	18.40
12	12,329	20.850	11.47	34	20,266	24.536	18.94
13	12,940	20.995	11.76	35	20,573	24.811	19.53
14	13,549	21.157	12.09	36	20,878	25.094	20.13
15	14,156	21.324	12.42	37	21,181	25.384	20.74
16	14,765	21.515	12.80	38	21,485	25.675	21.36
17	15,072	21.615	13.00	39	21,790	25.972	21.99
18	15,377	21.719	13.20	40	22,093	26.290	22.69
19	15,682	21.829	13.43	41	22,397	26.654	23.50
20	15,986	21.945	13.66	42	22,700	27.113	24.59
21	16,291	22.067	13.90	43	23,003	27.644	25.85
22	16,595	22.199	14.16	44	23,308	28.591	28.67

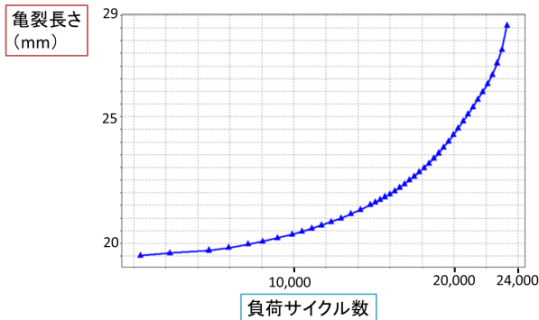


図19 亀裂長さ-サイクル数グラフ

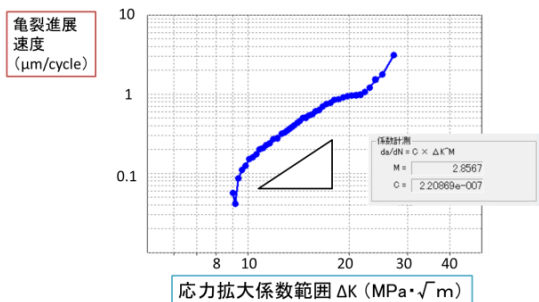


図20 亀裂進展特性グラフ

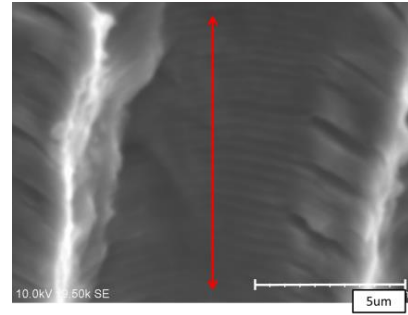


図21 CT試験片のSEM破面写真

4. 結言

高圧水素タンクの安全性を高めるため、タンクに水素ガスを充填すると同時に、タンクの欠陥検査を行う「充填時検査」技術の開発を行い、常圧大気中の実験で、以下の成果を得た。

- ① 円弧試験片を対象にしたDIC測定試験を行い、ひずみ分布の「マイナス・ピーク」により、亀裂検知できることを示した。
- ② 円弧試験片を対象にした疲労試験を行い、実タンクで生じる「疲労破壊」を再現した。
- ③ CT試験片を対象とする疲労亀裂進展試験を実施し、亀裂進展特性を得た。パリス則に基づく係数 $m=2.9$ であり、一般的な範囲であった。
- ④ CT試験片の破断面のSEM観察結果から、ストライエーション間隔を推定した結果、0.35[$\mu\text{m}/\text{cycle}$]であり、試験機制御ソフトウェア上の進展速度0.33[$\mu\text{m}/\text{cycle}$]とほぼ合致した。

以上の結果から、本手法が高圧水素雰囲気中でも有用と考えられる。

参考文献

- 1) 堀 美知郎. “日本における水素消費量の予測”. 水素の製造・輸送・貯蔵技術と材料開発 事例集. (株)技術情報協会, 2019, P22-23.
- 2) 荒島 裕信. “鋼製水素蓄圧器の開発と安全性評価”. 水素利用技術集成 Vol. 5. (株)エヌ・ティー・エス, 2018, P81-90.
- 3) 松岡三郎ら. 115MPa水素ガス中での低合金鋼SCM435とSNCM439の各種強度特性および設計指針の提案. 日本機械学会論文集. 2017, Vol. 83, no. 8 54, p. 17.
- 4) 工藤ら. 水素社会実現のためのプラント運転管理・点検技術の開発. 平成30年度福島県ハイテクプラザ試験研究報告, 2019, p. 90-96.