

水素エネルギー社会実現に向けた高圧水素ガス 中材料試験装置の開発と材料評価方法の国際比較

— 国際標準化への貢献を目指した取り組み —

飯島 高志^{1*}、阿部 孝行¹、井藤賀 久岳²

安全性と経済性を両立させた水素エネルギー社会の実現に向けて、燃料電池自動車および水素ステーションの普及を進めるためには、高圧水素ガス関連機器に使用される材料の使用基準について国際調和を図ることが重要である。そのため、高圧水素ガス中で使用される金属材料に与える水素の影響を正確に評価できる手法の確立と、その手法を用いた高圧水素ガス関連機器に使用可能な鋼種の見極めが求められている。我々は、120 MPaまでの高圧水素ガス中で引張試験、破壊靱性試験、遅れ破壊試験等が可能な材料試験装置群を開発し、その運用ノウハウを蓄積するとともに、汎用金属材料についての材料試験データを収集している。特に、サンディア国立研究所と協力して、Cr-Mo系低合金鋼の日米の規格材について破壊靱性試験方法の国際比較を実施し、変位増加法で求めた破壊靱性値は高圧水素ガス中での金属材料の評価に有効なことを見いだした。

キーワード: 水素脆化、破壊靱性、材料試験、燃料電池自動車、水素ステーション

Development of material testing facilities in high pressure gaseous hydrogen and international collaborative work of a testing method for a hydrogen society

– Toward contribution to international standardization –

Takashi IJIMA^{1*}, Takayuki ABE¹ and Hisatake ITOGA²

To commercialize fuel cell vehicles and hydrogen filling stations, and to achieve a reliable and economical “hydrogen society”, international accordance of the material usage standard for high pressure gaseous hydrogen equipment is regarded as an important issue. Therefore, a precise method to evaluate the effect of gaseous hydrogen on structural metallic materials is required to qualify the materials compatibility for high pressure gaseous hydrogen equipment. For this purpose, our research group developed testing facilities such as slow strain rate tensile test, fracture toughness test, and delayed fracture test up to 120 MPa of gaseous hydrogen. We acquired operation expertise of the facilities and testing data of commercialized metallic materials. In particular, fracture testing methods of Cr-Mo standard steel in Japan and USA were compared in an international collaborative study between Sandia National Laboratories, Livermore and our research group. We concluded that estimating fracture toughness with a rising displacement is essential for testing method in a high pressure gaseous hydrogen environment.

Keywords: hydrogen embrittlement, fracture toughness, material testing, fuel cell vehicle, hydrogen filling station

1 はじめに

2025年度までに70 MPaの高圧水素ガスを使用する燃料電池自動車の200万台程度の普及と、約1000カ所の水素ステーション設置を目標に、2015年度までには燃料電池自動車を商用化することが予定されている^[1]。既に、2014年6月にはトヨタ自動車が市販予定の燃料電池自動車を公開している^[2]。この目標を実現させるためには、燃料電池自動車の価格、および水素ステーションの建設コストの低下が重要で、水素エネルギー社会の実現に向けて「水

素・燃料電池戦略ロードマップ」が公表されている^[3]。70 MPa燃料電池自動車および水素ステーションに使用される高圧水素ガス関連機器の部材において、最もコストを要するものは高圧水素容器である。燃料電池自動車では車載容器と呼ばれ、水素ガスの圧力は70 MPaを想定しており、水素ステーションでは蓄圧器と呼ばれ、水素ガスの圧力は82 MPaを想定している^[4]。そのため、配管、バルブ類等も含む高圧水素ガス関連機器に使用されるさまざまな材料について、100 MPaを超える高圧水素ガス中で水素が材

1 産業技術総合研究所 エネルギー技術研究部門 〒305-8569 つくば市小野川16-1 つくば西、2 九州大学 水素材料先端科学研究センター 〒819-0395 福岡市西区元岡744

1. Energy Technology Research Institute, AIST Tsukuba West, 16-1 Onogawa, Tsukuba 305-8569, Japan * E-mail: iijima-t@aist.go.jp, 2. Research Center for Hydrogen Industrial Use and Storage, Kyushu University 744 Motoooka, Nishi-ku, Fukuoka 819-0395, Japan

Original manuscript received August 29, 2014, Revisions received December 2, 2014, Accepted December 4, 2014

料特性に与える影響、特に金属材料の水素脆化についての評価技術を確立させ、材料データベースを蓄積することは、安全で経済的な水素エネルギー社会を実現するための重要な課題である。また、高圧水素ガス関連機器に用いられる材料に関する国内基準と海外基準の調和を図ることは、低コストの機器・部材の開発を促進し、自動車関連産業やインフラ関連産業の国際競争力強化にも繋がるものと期待されている。

このような背景から、我々は 100 MPa を超える水素ガス中で材料試験が可能な実験装置の開発、それを用いた水素脆化をより正確に評価可能な材料試験方法の確立と材料試験データの蓄積、および材料試験データの関連産業分野への周知と共有化が、高圧水素ガス中で使用される材料の評価方法並びに使用基準の国際標準化に大きく貢献するものと考えている。そこでこの論文では、まず高圧水素ガス関連機器に使用される金属材料に求められる特性について、国内、国外の状況も含めて概観する。次いで、産総研における高圧水素ガス中材料試験装置の状況と、それを用いた材料試験方法の検討、および材料試験方法の国際比較について述べることで、材料試験方法に関する国際標準化への貢献の可能性について考察する。

2 高圧水素ガス関連機器に使用される金属材料に求められる特性

2.1 水素脆化とは

金属材料は水素雰囲気中にさらされると、水素原子が金属の格子中に拡散し、金属材料の材料特性が低下することが知られており、水素脆化と呼ばれている。具体的には、金属材料の引張試験を高圧水素ガス中で実施した場合、もしくは水素雰囲気中で曝露することにより水素をチャージした金属材料の引張試験を大気中(不活性ガス中)で実施した場合、降伏応力や引張強さ等の強度特性、または破断伸びや絞り等の延性が低下する現象である。「脆化」の言葉から、「水素脆化」は金属材料が伸びを示さず弾性域で破断してしまう印象を持たれる場合がある。もちろん、水素雰囲気中において弾性域で破断する材料も一部存在するが、多くの材料は塑性変形を示す。そのため村上らは、水素脆化を「ミクロな塑性変形を伴う延性破壊」と表現している^[5]。

今日までに、さまざまな材料に関する強度や延性に与える水素の影響について、データが蓄積されてきている。その結果、水素脆化を全く示さない金属材料は存在しないが、①弾性域で破断するなど、水素脆化の影響が大きくて使えない材料、②水素脆化の影響により伸び、絞り等の延性が低下するものの、或る一定条件の下では使用の可能性

を有する材料、③限定された使用条件範囲において水素脆化の影響が少ない材料、に大きく分類できることが明らかになってきた。③に分類される材料として、Ni含有量の高いオーステナイト系ステンレス鋼、アルミニウム合金等が知られている。また、②に分類される材料の一つが低合金鋼である。低合金鋼は、化学プラントをはじめとしたさまざまな分野で構造用材料として幅広く使用されている鉄鋼材料で、オーステナイト系ステンレス鋼よりも材料強度が高く、安価であるなどの特徴を有している。

2.2 高圧水素ガス関連機器に使用される材料の使用基準

燃料電池自動車用車載容器と水素ステーション用蓄圧器については、現在世界中で基準の策定、見直し作業が進められている。特徴的なのは、世界中に流通する燃料電池自動車と比べて、水素ステーションはそれぞれの国に設置されるため、国内事情がより強く反映されることである。

車載容器に関しては、日本は高圧ガス保安法の容器保安規則で定める技術上の基準である「容器検査等に係る例示基準」(2013)により、圧縮水素燃料電池車用車載容器の最高充填圧力は 70 MPa、使用可能な材料は所定の化学成分(ニッケル当量)を有するオーステナイト系ステンレス鋼(SUS316L)、およびアルミニウム合金(6061-T6)と規定されている^[6]。米国ではSAE(Society of Automotive Engineers:自動車技術者協会)J2579(2009)のANNEXにおいて、70 MPa圧縮水素燃料電池自動車用の車載容器に用いられる材料として6061アルミニウム合金と高ニッケルSUS316を例示し、それ以外の材料を使用する場合には、材料試験方法として①水素中もしくは水素チャージした材料の低歪み速度引張試験、②水素ガス中での疲労試験、③水素ガス中でのき裂進展試験、を指定している^[7]。また、欧州における70 MPa車載容器の基準はISO/TS 15869(2009):Gaseous Hydrogen Blends & Hydrogen Fuels: Land Vehicle Fuel Tanksに準じていたが、後述するように国連による世界統一基準の検討が開始されたため、2013年よりISOの専門委員会(TC197/WG18)において見直しが始まっている^[8]。その国際連合欧州経済委員会(UN/ECE)自動車基準世界調和フォーラム(WP29)では、安全で環境性能の優れた自動車を普及させるために、国際的に調和した世界統一基準を作成し国際的な相互認証を推進する必要性から、「水素及び燃料電池自動車に関する世界技術規則(HFCV gtr: global technical regulations)」の作成が2007年より開始され、gtr Phase 1が2013年に採択された。それに伴い、日本においても2014年6月に容器保安規則の細目が改正される方向となった^[9]。しかし車載容器の材料使用基準等

については gtr Phase 2 として検討が継続されている。

蓄圧器に関しては、日本は高圧ガス保安法の一般高圧ガス保安規則関係例示基準（2014）において、圧縮水素蓄圧器および圧縮水素が通る配管に使用される材料として、ステンレス鋼（SUS316, SUS316L）を例示し、常用の圧力（82 MPa）と常用の温度（-40 ~ 250 °C）における化学成分（ニッケル当量）を規定している。また、常用圧力 40 MPa 以下の蓄圧器については機械構造用合金鋼材（SCM435）の使用も認めている^[10]。また米国では、ASME（米国機械学会）の Article KD-10 in Division 3: Special Requirement for Vessels in Hydrogen Service（2010）において、103 MPa までの高圧水素ガス中で使用できる材料として、SA-372, SA-723 などの合金鋼、SA-336, Gr. F316 などのステンレス鋼、6061-T6 などのアルミニウム合金を例示している。さらに使用に際しては、①大気中での荷重増加または変位増加による平面歪み破壊靱性値： K_{IC} （ASTM E 399 または E 1820 に準拠したき裂進展開始試験）、②水素ガス中での定荷重または定変位による破壊靱性値： K_{IH} （ASTM E1681 に準拠したき裂進展停止試験）、③水素ガス中でのき裂進展速度： da/dN 、について評価することを求めている^{[11][15]}。欧州においては、日本の高圧ガス保安法に相当する PED 97/23/EU（1997, Pressure Equipment Directive：圧力容器指令）のもと、欧州統一規格 EN13445（1999, Unfired Pressure Vessels: 火なし圧力容器）で高圧ガス容器が規定されているが、材料の水素脆化評価については ISO 11114-4 に準拠している^{[16][17]}。ISO-11114-4（2005）では、常用圧力 30 MPa 以下の水素ガス圧力容器用材料として、引張強さが 950 MPa までの Cr-Mo 系合金鋼を使用する場合、水素脆化評価試験方法として、①円板試料の片側に印可した水素ガスの圧力を増加させ、き裂を貫通させる破裂試験、② 15 MPa の水素ガス中でステップ荷重を増加させる、き裂進展開始試験、③ 15 MPa の水素ガス中での定変位または定荷重による、き裂進展停止試験、を求めている。しかし、常用圧力が 82 MPa である水素ステーション用蓄圧器の材料評価方法としては、水素ガス中での試験圧力が十分ではないため、ISO の専門委員会（TC197/WG15）において水素ステーション用蓄圧器の基準について検討が継続されている。

このように、燃料電池自動車用車載容器、水素ステーション用蓄圧器等の高圧水素ガス関連機器の材料使用基準は、世界的に整備途上である。また、SUS 316L ステンレス鋼や A 6061 系アルミニウム合金は高価であるため、燃料電池自動車および水素ステーションを普及させるためのコストダウンの実現には、高圧水素ガス関連機器の容器や配

管等に使用できる材料の選択肢を増やす必要がある。そのため、水素脆化の影響は受けるものの、或る一定条件下で使用の可能性を有する低合金鋼等を対象として、有限寿命設計の視点から高圧水素ガス中での疲労特性や破壊靱性等の材料評価技術を検討し、高圧水素ガス中での材料挙動をより正確に評価可能な手法の確立が求められている。我々は、100 MPa 以上の高圧水素ガス中での材料試験装置の開発、それを用いた材料試験データの取得および水素脆化現象の正確な評価と脆化メカニズムの理解による試験方法の有効性検証、さらに材料評価結果のデータベース化による産業界への情報提供と周知、および標準策定にかかわる関係機関への働きかけを通して、高圧水素ガス関連機器に使用される材料に関する試験方法の国際標準化に貢献することを目指している（図 1）。

3 高圧水素ガス中材料試験装置の開発

100 MPa を超える水素ガス圧力中での材料試験装置を有する研究機関は、世界的に見てもあまり多くない。2014 年 10 月時点において、日本では九州大学（120 MPa）と産総研エネルギー技術研究部門（120 MPa）、および数社の民間企業が 100 ~ 120 MPa の材料試験装置を保有している。米国ではサンディア国立研究所（140 MPa）、欧州ではイギリスの TWI（The Welding Institute: 100 MPa）、アジアでは中国と韓国がそれぞれ 120 MPa の材料試験装置を有している。

我々の研究グループでは、使用する水素ガスの圧力を 1 MPa から 40 MPa、70 MPa、120 MPa と徐々に高圧化させ、運用ノウハウを蓄積させてきた。それらを基に、2011 年に高圧水素ガス供給系統の一元化によるシステムの簡素化と、PC を用いた遠隔操作、監視カメラ、緊急遮断装置

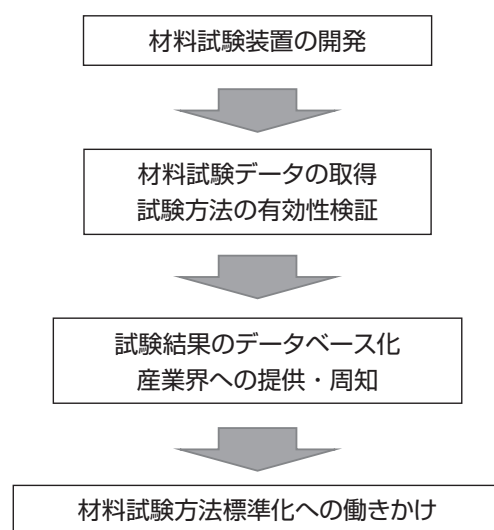


図 1 国際標準化への貢献を目指した取り組み

の導入、および防護壁を用いた各試験装置の相互隔離による試験区域の無人化を図り、高圧水素ガスを使用した実験のさらなる安全性の向上を達成した。120 MPaの圧縮機に、疲労試験機、低歪み速度引張 (SSRT) 試験機、曝露容器等が並列に接続されており、圧縮機と各バルブの操作は、図2に示すように制御室からPCを用いたマウスによる遠隔操作で行い、それぞれの装置に対して、同時に水素ガスを供給することができないシステムとなっている。また図3に示すように、各試験装置を隔離するために、防火壁に囲まれた防爆エリアの中に防護壁が設置されている。さらに、高圧水素ガスは試験容器内だけに密閉されており、試験容器内に水素ガスを導入後、配管および圧縮機内の水素ガスは排出され、大気圧まで減圧される。したがって、もし材料試験中に試験容器から水素ガスが漏洩したとしても、実験室空間の水素濃度は爆発限界よりも遙かに低い値となるように設計されている。

主要な試験装置の諸元を図4に示す。図4 (a) の疲労

試験機は、水素中でも動作が安定な歪みゲージを用いた内部ロードセルおよび信号取り出し口を有し、常用圧力 115 MPa、室温の水素ガス雰囲気中で、荷重サイクル 1 Hz における疲労試験、き裂進展試験、変位増加法等による破壊靱性試験が可能である。図4 (b) の低歪み速度引張試験機は、常用圧力 70 MPa、室温の水素ガス雰囲気中で、 $1 \times 10^{-5} \text{ S}^{-1}$ 以上の速度での引張試験が可能である。図4 (c) の曝露容器は信号取り出し口を有しており、常用圧力 115 MPa、室温～350 °C までの水素ガス雰囲気中で材料への水素チャージ、および定変位法等による破壊靱性試験 (遅れ破壊試験) が可能である。

4 破壊靱性試験方法の国際比較

4.1 有限寿命設計のための破壊靱性評価方法の検討

水素ガスの充填-放出のサイクルにより繰り返し応力が印可される蓄圧器や配管において、破壊限界き裂長さの想定や破裂前漏洩 (LBB: Leak Before Brake) の考え方



図2 制御室に設置されたPC制御システム

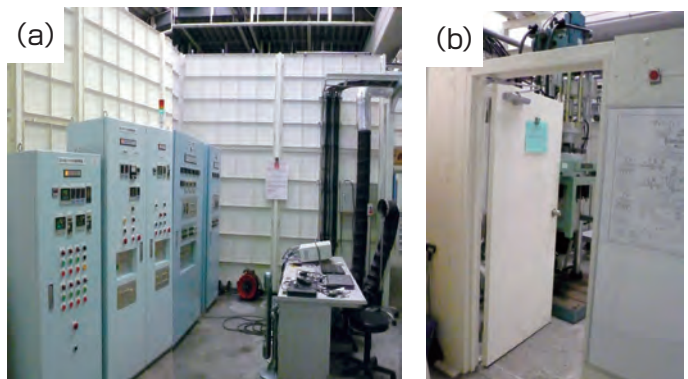


図3 (a) 防火壁と非防爆エリアに設置された制御盤、(b) 各試験機を隔離する防護壁

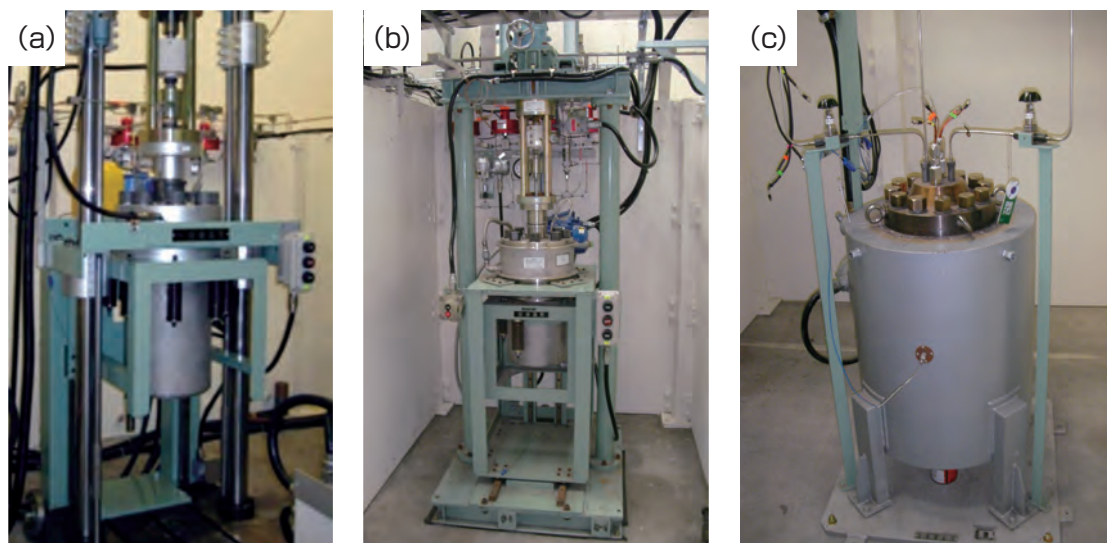


図4 (a) 疲労試験機：常用圧力 115 MPa、室温、(b) 低歪み速度引張試験機：常用圧力 70 MPa、室温、(c) 曝露試験機：常用圧力 115 MPa、室温～350 °C

表1 SCM 435 と SA-372 Grade J の材料特性および組成

	Yield stress	Tensile strength (MPa)	C	Cr	Mo	Mn	Si	P	S	Fe (mass%)
SCM 435	700	828	0.38	1.1	0.23	0.79	0.22	0.006	0.004	Bal
SA-372 Grade J	762	889	0.49	0.99	0.18	0.93	0.28	0.008	0.004	Bal

を基にした有限寿命設計を試みるためには、高圧水素ガス環境下での材料の破壊靱性値を求めることが重要である。前述のように、高圧水素ガス容器用材料の評価基準の一つである ASME Article KD-10 in Division 3 では、水素ガス中で定荷重法もしくは定変位法による破壊靱性試験の実施を求めている^[11]。

ところが、最近のサンディア国立研究所の研究により、高圧水素ガス関連機器への使用が期待できる引張強度 950 MPa 以下の比較的強度で高靱性のフェライト鋼に関して、103 MPa の高圧水素ガス雰囲気中で定変位法により求めた破壊靱性値 (K_{THa}) と変位増加法により求めた破壊靱性値 (K_{JH}) を比較した結果、 K_{JH} 値は K_{THa} 値よりも低く、破壊抵抗として控えめな値になることが指摘された^{[18][19]}。定変位法とは、あらかじめ予き裂を形成したボルト負荷コンパクト試験片 (Bolt-Load Compact Specimen: 図 5 (a)) を用いて、ボルトの締め込によりき裂開口変位を一定に保ったまま、き裂先端に荷重を印可し、特定の環境下でき裂が成長し停止するまで保持する ASTM E1681 に準拠した試験方法で^[15]、遅れ破壊試験とも呼ばれている。サンディア国立研究所では、不活性ガス中でボルトを締め込み、高圧水素ガス中で最長 3800 時間程度まで試験片を保持し、最終的に停止したき裂の長さから破壊靱性値を求めている。き裂の進展が停止する破壊靱性値を求めることから、き裂進展停止試験と見なすこともできる。また変位増加法は、予き裂を形成したコンパクト試験片 (Compact Specimen: 図 5 (b)) に高圧水素ガス雰囲気中でき裂開口変位が増加するように荷重を負荷する材料試験で、ASTM E1820 に

準拠した方法である^[13]。サンディア国立研究所では、開口変位は差動変圧器 (LVDT) を用いて、き裂の長さは電位差法を用いて測定し、荷重、開口変位、き裂長さから、き裂が進み始める破壊靱性値を求めている。そのため、き裂進展開始試験と見なすこともできる。

4.2 除荷コンプライアンス法を用いた破壊靱性評価

我々の研究グループでは、ASTM E1820 に準拠したもう一つのき裂長さ測定法である除荷コンプライアンス法を用いて変位増加試験を行い、サンディア国立研究所で得られた測定データとの直接比較を試みている^[20]。除荷コンプライアンス法を用いた変位増加試験とは、予き裂を導入したコンパクト試験片 (図 5 (b)) のき裂開口変位を一定速度で増加させるとともに、任意のき裂開口変位ごとに荷重の一部を除荷し、その時の開口変位と荷重の関係からき裂長さを計算し、き裂が進展し始める破壊靱性値を求める手法である。実験には、今後高圧水素ガス関連機器を低コスト化するための材料として期待されている Cr-Mo 系低合金鋼の日本、米国両方の規格材である、SCM435(日本規格)、SA-372 Grade J (米国規格: サンディア国立研究所より支給) を使用している。表 1 に SCM435 と SA372 grade J の材料特性および組成を示す。また、除荷コンプライアンス法による試験条件の概要は、参考文献 [20] に示した。

4.3 破壊靱性評価データの日米直接比較

図 6 に、SCM435 について 115 MPa 水素ガス中で除

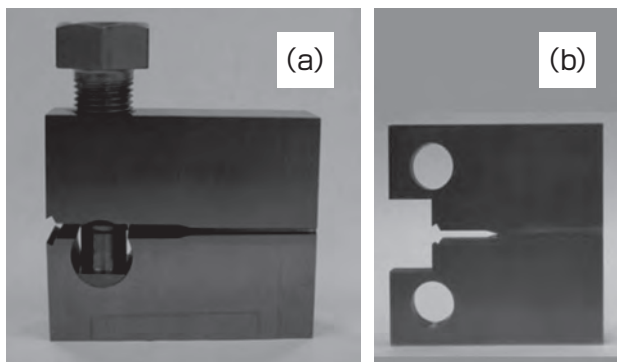


図5 (a) ボルト負荷コンパクト試験片、(b) コンパクト試験片

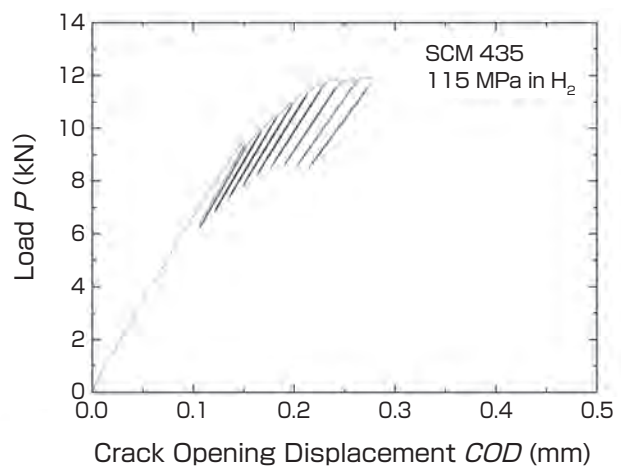


図6 除荷コンプライアンス法による SCM 435 の P-COD 曲線

表2 SCM 435 と SA-372 Grade J^[20] の破壊靱性

	Yield stress σ_{ys} (MPa)	115 MPa in H ₂ $K_{JIC,H}$ (MPa m ^{1/2})
SCM 435	700	63
SA-372 Grade J	762	66 (K_{QH})

荷コンプライアンス法を用いて求めた荷重-開口変位 (P - COD) 曲線を示す。図から、 J 積分値とき裂進展長さの関係 (R 曲線) を求め、き裂が進展し始める破壊靱性値 (J_{IC}) を導出し、下記に示す ASTM E1820 に記載されている J と K の関係式より、き裂の進展が開始する下限界の応力拡大係数 ($K_{JIC,H}$) を導出した。但し、ヤング率 $E = 206$ GPa、ポアソン比 $\nu = 0.3$ とした。

$$K_F = \sqrt{\frac{EJ_F}{1-\nu^2}}$$

実験により得られた SCM435 の破壊靱性値は、115 MPa の水素中では $K_{JIC,H} = 63$ MPa m^{1/2} であった。また、SA-372 Grade J の破壊靱性値は 115 MPa 水素ガス中で $K_{QH} = 66$ MPa m^{1/2} であった^[20]。SCM 435、SA-372 Grade J の 115 MPa 水素ガス中での破壊靱性値を表 2 に示す。

サンディア国立研究所において定変位法 (K_{THa})、変位増加法 (K_{JH}) で得られた高圧水素ガス中 (103 MPa) での破壊靱性値^[18] と、今回我々が除荷コンプライアンス法を用いた変位増加試験で求めた高圧水素ガス中 (115 MPa) での破壊靱性値 ($K_{JIC,H}$) について、材料強度との関係を図 7 に示す。変位増加法の一つである除荷コンプライアンス法で得られた破壊靱性値 $K_{JIC,H}$ は、サンディア国立研究所において変位増加法で得られた K_{JH} とほぼ同等の値を示し、定変位法で得られた K_{THa} よりも低いことが分かる。

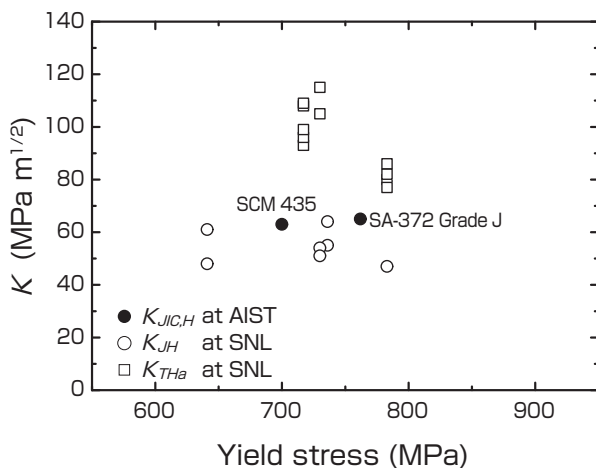


図7 Cr-Mo 系低合金鋼の降伏応力と破壊靱性の関係^{[18][20]}

このことは、変位速度、負荷-除荷過程、水素純度、予き裂の形成等の詳細な測定条件や、試験装置の形状や水素置換手順等の測定ノウハウが異なっても、変位増加法による破壊靱性の評価結果は大きく変わらず、評価方法としての普遍性を有することを示唆している。さらに、変位増加法で求めた K_{JH} 、 $K_{JIC,H}$ は定変位法で求めた K_{THa} よりも低いことから、変位増加法による破壊靱性値は控えめな (conservative) 値であり、高圧水素ガス中での金属材料の挙動を定量的に評価するための有効な手法と考えることができる。

5 まとめ

高圧水素ガス中で使用される金属材料に与える水素の影響を、より正確に評価可能な手法を確立させるために、我々の研究グループでは常用 115 MPa までの高圧水素ガス中で引張試験、破壊靱性試験、遅れ破壊試験等が可能な材料試験装置群を開発している。また、これらの試験装置群を用いて、高圧水素ガス関連機器の容器や配管等に使用可能な材料の選択肢を増やすために、汎用金属材料について高圧水素ガス中での材料試験データの収集を行っている。中でも、高圧水素ガス関連機器の低コスト化に貢献すると期待されている Cr-Mo 系低合金鋼の日米の規格材について、サンディア国立研究所と協力して、破壊靱性試験方法の国際比較を試みている。その結果、高圧水素ガス中での変位増加法を用いた破壊靱性試験が、汎用金属材料の水素脆化を定量的に評価可能な材料試験方法として有効であることが明らかになってきた。今後は、さらにさまざまな試験条件、特に水素ガス圧力や変位速度の影響についてのデータを蓄積することで、高圧水素ガス中での変位増加法による破壊靱性試験方法の有効性を検証するとともに、サンディア国立研究所を含む関連する研究機関との連携の下、高圧ガス関連機器に使用される材料の試験方法として国際標準に貢献できるか、その可能性について検討していく予定である。

謝辞

この研究の一部は、経済産業省日米クリーン・エネルギー技術協力事業により行われた。また、研究を推進するに当たり、実験の実施やデータ解析に協力していただいた、エネルギー技術部門水素材料先端科学グループの安 白氏、孫 正明氏、中道修平氏に感謝申し上げます。また、高圧水素ガス関連機器を取り巻く状況や、材料強度特性に与える水素の影響について幅広くご助言を賜りました、九州大学の松岡三郎教授、栗山信宏教授に心より感謝申し上げます。

参考文献

[1] 燃料電池実用化推進協議会(2010年3月): FCVと水素ステーションの普及に向けたシナリオ2010, http://fccj.jp/pdf/22_csj.pdf, 2014-07-09.

[2] トヨタ自動車株式会社(2014年6月25日): トヨタ自動車, セダンタイプの燃料電池自動車を, 日本で2014年度内に700万円程度の価格^{＊1}で販売開始, ニュースリリース, <http://newsroom.toyota.co.jp/jp/detail/3274916/>, 2014-07-09.

[3] 経済産業省(2014年6月24日): 水素、燃料電池戦略ロードマップ, ニュースリリース, <http://www.meti.go.jp/press/2014/06/20140624004/20140624004.html>, 2014-07-06.

[4] 経済産業省: 一般高圧ガス保安規則第7条の3及びコンビナート等保安規則第7条の3

[5] 村上敬宜, 松岡三郎, 近藤良之, 西村 伸: 水素脆化メカニズムと水素機器強度設計の考え方, 養賢堂, 東京 (2012).

[6] 高圧ガス保安協会: 「容器保安規則の性能基準の運用について」および「70MPa圧縮水素自動車燃料装置用容器の技術基準KHK S0128 (2010)」, 容器保安規則関係例示基準集 改訂版, 高圧ガス保安協会 (2013).

[7] SAE International (2013-03-28): SAE J2579, Standard for Fuel Systems in Fuel Cell and Other Hydrogen Vehicles, http://standards.sae.org/j2579_201303/, 2014-10-14.

[8] 高圧ガス保安協会: 平成22年度経済産業省委託燃料電池システム普及用技術基準調査報告書, 高圧ガス保安協会 (2011).

[9] 経済産業省: 燃料電池自動車の普及促進策! 国際圧縮水素自動車燃料装置用容器を技術基準化します, プレスリリース, <http://www.meti.go.jp/press/2014/05/20140530002/20140530002.html>, 2014-06-17.

[10] 高圧ガス保安協会 (平成26年5月): 高圧ガス保安法令関係例示基準資料集 第6次改訂版 (平成25年3月22日発行) 新旧対照表, https://www.khk.or.jp/publications_library/publications/dl/kouatsu_reiji_sinkyuu.pdf, 2014-10-16.

[11] 2010 ASME BPVC Section VIII - Division 3, Article KD-10, Special Requirements for Vessels in High-Pressure Gaseous Hydrogen Transport and Storage Service, ASME, New York, (2010).

[12] ASTM E 399-09, Standard Test Method for Linear-Elastic Plane-Strain Fracture Toughness K_{IC} of Metallic Material, ASTM International, West Conshohocken, PA (2009).

[13] ASTM E 1820-09, Standard Test method for Measurement of Fracture Toughness, ASTM International, West Conshohocken, PA (2009).

[14] M. D. Rana, G. B. Rawls, J. R. Sims and E. Uptis: Technical basis and application of new rules on fracture control of high pressure hydrogen vessel in ASME Section VIII, Division 3 code, *Proc. ASME 2007 PVP Conference*, PVP2007-26023 (2008).

[15] ASTM E 1681-03, Standard Test Method for Determining Threshold Stress Intensity Factor for Environment-Assisted Cracking of Metallic Materials, ASTM International, West Conshohocken, PA (2013).

[16] 高圧ガス保安協会: 平成23年度経済産業省委託石油精製業保安対策事業(海外における技術基準に関する調査(高圧ガス設備の関する欧米の設計基準及び維持基準の調査))報告書, 高圧ガス保安協会 (2012).

[17] ISO 11114-4, Transportable gas cylinders - Compatibility of cylinder and valve materials with gas contents - Part 4: Test methods for selecting metallic materials resistant to hydrogen embrittlement, (2005).

[18] K. A. Nibur, B. P. Somerday, C. San Marchi, J. W. Foulk, III, M. Dadfarnia, P. Sofronis and G. A. Hayden: Measurement and interpretation of threshold stress intensity factors for steels in high-pressure hydrogen gas, *Sandia Report*, SAND2010-4633, Sandia National Laboratories, Livermore,

CA. (2010).

[19] K. A. Nibur, B. P. Somerday, C. San Marchi, J. W. Foulk, III, M. Dadfarnia and P. Sofronis: The relationship between crack-tip strain and subcritical cracking threshold for steels in high-pressure hydrogen gas, *Metall. Mat. Trans., A*, 44A, 248-269 (2013).

[20] T. Iijima, H. Itoga, B. An, C. San Marchi and B. P. Somerday: Measurement of fracture properties for ferritic steel in high-pressure hydrogen gas, *Proc. ASME 2014 PVP Conference*, PVP2014-28815 (2014).

執筆者略歴

飯島 高志 (いじま たかし)

1988年東北大学大学院工学研究科博士課程後期材料物性学専攻修了、工学博士。1993年工業技術院東北工業技術研究所入所。1997-1998年マックス・プランク金属研究所客員研究員。2001年産業技術総合研究所に改組後、スマートストラクチャー研究センター、計測フロンティア研究部門、水素材料先端科学研究センターを経て2013年よりエネルギー技術研究部門水素材料先端科学グループ長。東京理科大学客員教授（連携大学院）。九州大学客員教授。この論文では、データの取りまとめと執筆を担当。



阿部 孝行 (あべ たかゆき)

1970年～2009年、金属材料技術研究所：NRIM（現 物質・材料研究機構：NIMS）に在職し金属疲労破壊の研究に携わる。2004年、芝浦工業大学に於いて工学博士を取得。2011年、産業技術総合研究所水素材料先端科学研究センター、2013年よりエネルギー技術研究部門水素材料先端科学グループにて高圧水素ガス環境中に於ける破壊靱性試験に従事。この論文では、破壊靱性試験条件の検討ならびに試験の実施を担当。



井藤賀 久岳 (いとうが ひさたけ)

2005年岐阜大学大学院工学研究科博士後期課程生産開発システム工学専攻修了、工学博士。1995～2007年中日本自動車短期大学教員。2007～2013年産業技術総合研究所水素材料先端科学研究センター特別研究員。2013年より九州大学水素材料先端科学研究センター准教授。金属材料の強度特性に関する研究に従事するとともに、特に2007年以降は材料強度特性に及ぼす水素の影響についての研究を行っている。この論文では、破壊靱性試験結果の解析を担当。



査読者との議論

議論1 全般

質問・コメント (中村 守: 産業技術総合研究所)

燃料電池自動車の実用化のための水素貯蔵・供給システムの構築のためには、高水素圧力下で使用できる金属材料の信頼性を保証する材料評価手法の確立と、その国際標準を定めることが、必要不可欠です。この論文では、特性の内、破壊靱性の評価手法について、米国国立研究所との共同研究を実施した成果等が記述されており、興味深い内容です。

質問・コメント（羽鳥 浩章：産業技術総合研究所）

燃料電池自動車の実用化において不可欠な、高圧水素貯蔵容器の材料評価手法を開発した経緯は、構成学的に興味深く、社会との関係も明確な技術開発分野です。現在進行中の国際標準化戦略については、燃料電池自動車のさらなる普及に向けて鍵となることから、将来への取り組みも視野に入れた構成学的考察をすることには大きな意義があると思います。

議論2 内外の標準化に関わる研究の現状と国際標準化戦略の記述の整理

質問・コメント（中村 守）

水素圧力下で使用できる金属材料の破壊靱性の評価手法の国際標準化については、まだ、3つの手法の比較を行っている段階で、標準化に向けた方向性や戦略は示されていません。最初に、水素圧力下での特性評価の内外の全体像と現状について概略を述べ、その後で、ここで検討する破壊靱性の位置付けを説明し、国際共同研究の成果について記述するというように整理された方が分かりやすいと思います。

具体的には、「2.2 高圧水素ガス関連機器に使用される材料の使用基準」「4.1 有限寿命設計のための破壊靱性評価方法の検討」に記載されているいくつかのASMEの規格と、我が国の規格（準備段階?）、および国際標準との関係の現状がよく分かりません。整理して記述していただいた方が良いと思います。

回答（飯島 高志：産業技術総合研究所）

2章で日米欧の標準化の状況につきまして、燃料電池自動車用車載容器と水素ステーション用蓄圧器に関して現状を整理し、それを基に材料試験方法の国際標準化への貢献に向けた戦略を記述しました。さらに、3章において世界における高圧水素ガス中試験装置の状況を概観し、我々の装置開発の取り組みを述べることにしました。また、破壊靱性値については2章で述べたように、さまざまな評価手法が提案、模索されている状況です。そこで、4章において、定変位法と変位増加法による破壊靱性評価方法に関する、サンディア国立研究所との国際共同研究の成果を記述しました。

質問・コメント（羽鳥 浩章）

コメント1:

3章については、開発に成功した材料評価手法について、研究目標を実現するための道筋（シナリオ・仮説）、そのための要素技術の選択とその統合という、構成学的考察を強化する必要があるかと思っています。4章における、今後の国際標準化への取り組みも含めて、研究開発のシナリオ・戦略を研究開発モデルとしてまとめた図を追加すると読者に分かりやすいと思います。これに伴い、4章における技術の詳細部分は、説明を簡略化し、ある部分は引用文献の提示にとどめて、シナリオ・戦略を中心とした議論を加えると良いかと思っています。

コメント2:

国際標準化についてですが、この論文では米国との技術比較が明確に示されている一方で、欧州の状況が述べられていません。本分

野の国際標準化において欧州の動向は今後影響しないのでしょうか？この技術分野への社会的な要求という観点も含め、日米欧を比較して考察することで、国際標準化戦略がより明確になるのではないかと思います。

回答（飯島 高志）

コメント2でご指摘いただきました通り、ISOを含む欧州の動向についての記述がありませんでした。そこで2章に、車載容器、蓄圧器それぞれに対する日米欧の標準化に関する動向を記述し、それを基に国際標準化への取り組みを目指した研究開発のシナリオについて考察し、開発モデルの概念図（図1）を追加しました。その際、我々が直接標準化を推進する立場ではないことから、材料試験方法に関する国際標準化への働きかけ、もしくは貢献との表現を用いました。また、日米欧における取り組みを補足する意味で、世界的に見た高圧水素ガス中試験装置の現状を3章に加えしました。

また、コメント1に従い、4章における技術の詳細についての記述を簡略化し、SA-372 Grade Jのデータについては2014年7月に発表した論文からの引用とさせていただきます。

議論3 異なる手法で評価された水素ガス中での破壊靱性値の比較

質問・コメント（中村 守）

論文中の「破壊靱性評価データの日米直接比較」では、SA-372 Grade JとSCM435の水素ガス中での亀裂の進展挙動がかなり違うので、SA-372 Grade Jについては、別の評価方法を採用したことが記述されていますが、得られた破壊靱性値はほとんど同じになっています。亀裂進展挙動が大きく異なる以上、破壊靱性値がほぼ同じという結果は、やや不自然に感じました。これは、評価方法によって破壊靱性の評価値はかなり異なるが、この場合は「偶然」、異なる手法で測ったと同じ値になったのではないかとも思われますが、如何でしょうか。

回答（飯島 高志）

実験データから分かりますように、115 MPaの水素ガス中ではSA-372 Grade JとSCM435の破壊靱性値はかなり低下しており、現在までの所その詳細なメカニズムは不明ですが、線形弾性的破壊と弾塑性的破壊の中間的な挙動となっていると想定されます。この点につきましては、今後さらに詳細な実験が必要と考えております。ASTM E1820ではunstable crack extensionおよびstable crack extensionを示す試料の破壊靱性を評価する手法として、除荷コンプライアンス法などにより求めたJ-Rカーブを用いた破壊靱性値の導出について記載しております。それと同時に、unstable crack extensionが主な場合には、除荷を行わないP-COD曲線から破壊靱性値を求める方法についてもASTM E1820 Annex A5で併記しております。従いまして、SA-372 Grade JとSCM435の破壊靱性値は「偶然」同等の値を示したのではなく、ASTM E1820に基づいて得られた材料試験結果のため、比較可能な値であると判断しております。SA-372 Grade Jの破壊靱性値の評価の詳細につきましては参考文献[20]に記載しております。