

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02033

研究課題名(和文) 骨の設計思想から着想する革新的自己治癒セラミックスの開発と評価

研究課題名(英文) Development and evaluation of innovative self-healing ceramics inspired by bone design concept

研究代表者

長田 俊郎 (OSADA, Toshio)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・構造材料研究拠点・主幹研究員

研究者番号：50596343

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、自己治癒性を格段に高度化する「治癒活性相」を配向性やアスペクト比を制御した結晶粒の粒界/界面に配置しき裂を誘導することで、強度-靱性-自己治癒を兼ねそろえた革新的セラミックス基複合材料を創生することを目的とした。新たに開発した自己治癒セラミックスは、高密度・高配向性を有する新規自己治癒セラミックスであり、曲げ強度及び破壊靱性(き裂発生)は、ベンチマーク材を凌駕する世界最高の特性を有することを確認した。更に、AE+DIC+き裂進展試験+有限要素法を組み合わせた新規靱性評価手法を提案し、靱性値が低いセラミックスであっても、破壊靱性値及びR挙動を高精度に評価可能であることを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

自己治癒性を格段に高度化する「治癒活性相」を配向性やアスペクト比を制御した結晶粒の粒界/界面に配置することで、強度-靱性に優れた新規セラミックス基複合材料を創生できたことが本研究の成果であり、学術的意義は高い。また、自己治癒速度論の提案や、セラミックスの破壊(ばらつき)及びき裂進展現象に関する予測モデルを提案できたことは、今後、自己治癒セラミックスを社会実装していく上で、極めて大きな社会的意義を持つと考えている。

研究成果の概要(英文)：In this study, a novel ceramic with strength-toughness-self-healing properties was developed by arranging a "healing activator" that significantly enhances self-healing properties at the grain boundaries / interfaces of grains with controlled orientation and aspect ratio. It was confirmed that the newly developed self-healing ceramics includes high density and high orientation, and have the world's highest bending strength and fracture toughness (crack generation) that surpasses the benchmark material. Furthermore, we proposed a new toughness evaluation method that combines AE + DIC + crack growth test + finite element method, and confirmed that the fracture toughness value and R behavior can be evaluated with high accuracy even for ceramics with low toughness values.

研究分野：耐熱材料

キーワード：自己治癒材料 セラミックス 界面 破壊靱性 き裂進展 強度 予測モデリング

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

長繊維強化セラミックス基複合材 (CMC) は Ni 基超合金の代替材として、次世代航空機タービン翼への適用が進んでいる。米国 GE Aviation では炭化ケイ素/炭化ケイ素 (SiC/SiC) 型 CMC を静止部品に適用したエンジンのテスト飛行が実施される等、セラミックスは脆く使えないという常識は覆りつつある。しかしながら、長繊維強化によりマクロに高靱化したとしても、セラミックス母相の破壊靱性値は本質的に低く、異物衝突損傷 (FOD) が依然問題となることから、回転体である動翼への CMC の適用は極めて困難な状況にある。複数の離着陸サイクルにより、繰返し異物衝突が起きた場合、微細な表面き裂が進展し致命的な破壊を導くことが懸念される。この様な課題に対し、申請者は人の骨の持つ機能を複合材に模倣し、「フライト中の異物衝突損傷を高速で完治し着陸に備える自己治癒セラミックス」の実現がセラミックス動翼開発の鍵となると確信している。このような軽量・超高信頼性動翼の開発は航空機燃費改善効果が極めて高く、国際社会への大きな波及効果が期待できる。

本研究では、自己治癒性を格段に高度化する「治癒活性相」を配向性やアスペクト比を制御した結晶粒の粒界/界面に配置しき裂を誘導することで、強度-靱性-自己治癒を兼ねそろえた革新的セラミックス基複合材料を創生する。特に、複数回の異物衝突に対応するために、繰返し治癒を可能とするき裂誘導-治癒-き裂再誘導機能を新規着眼点とし、特性評価・予測手法の開発を同時に実施することで、セラミックス動翼の寿命を決定していた異物衝突損傷により破断しない次世代セラミックス動翼の設計指導原理の提案を実現する。

2. 研究の目的

本研究では、以下の3つの目的を達成する。

- (1) 強度-靱性-自己治癒が共生する新規自己治癒セラミックスの提案：粒界に配置する治癒活性相、結晶粒配向性および緻密性を制御することにより、強度-靱性-自己治癒を兼ねそろえた理想構造を持つ自己治癒セラミックス開発を最終目的とする。
- (2) 損傷-治癒挙動の評価手法確立：き裂誘導-治癒-き裂再誘導機能の決定因子を明らかにするために、画像相関法 (DIC) + アコースティックエミッション (AE) を併用したき裂進展挙動解析手法を開発する。これにより、同一試験片で複数回の繰返し損傷-治癒サイクル後の治癒部の機械的特性評価手法を確立する。
- (3) 有限要素解析による評価・予測システムの構築：逆解析により治癒部の機械的特性を推定する。更に、開発済みの自己治癒予測手法を進展させ、機械的特性に及ぼすミクロ組織、き裂治癒温度、及び時間の影響を推定することで、材料組織設計の支援を目指す。

3. 研究の方法

供試材は、アルミナ粉末に炭化ケイ素粒子および MnO 粒子を複合した $Al_2O_3/SiC/MnO$ 複合材を用いた。また、力学特性の評価は比較材として、市販のアルミナ焼結体 (AS999) を用いた。焼結体から試験片を切り出し、AE-DIC-き裂進展評価を組み合わせた新規装置により、亀裂進展挙動の評価を実施した。セラミックスの強度評価の手法として、一般的に三点曲げ及び四点曲げ試験が用いられるが、通常の曲げ試験ではセラミックスは不安定破壊を呈する。そこで本研究では、亀裂入りの試験片を安定破壊させて R 曲線を測定するために、特殊な Chevron notch を試験片に導入した。本試験片の形状は、光学顕微鏡によるき裂進展挙動のその場観察が可能であり、最終形状は ASTM の Chevron notch 規格を参考に、有限要素法を用いた予備計算により決定した。新規評価装置を図 1 に示す。試験機上部の荷重計により、上治具が試験片から受ける反

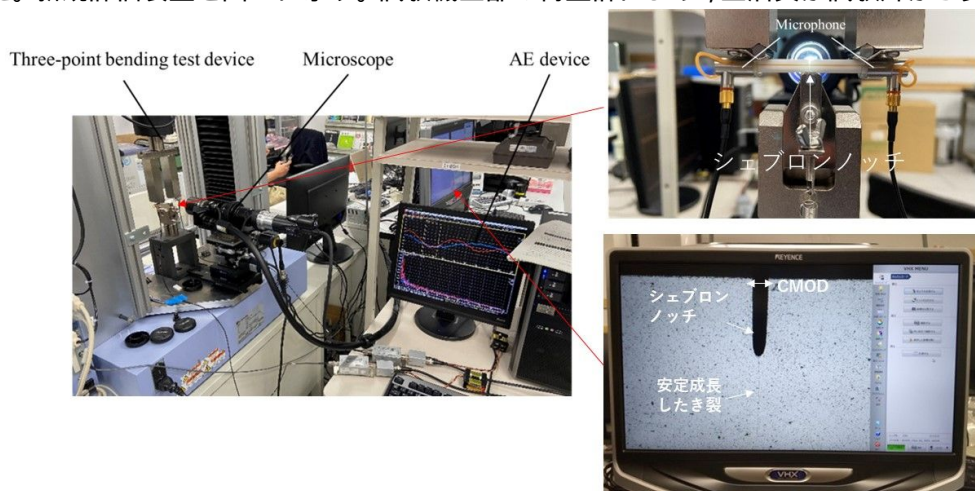


図1 特殊シェブロンノッチを有する試験片におけるAE+き裂進展その場観察の様子

力を測定した。また、亀裂発生から進展までの様子を観察するために、デジタルマイクロスコープ VHX-6000 (株式会社キーエンス) を用いて Chevron notch 上面を 15 秒毎で撮影した。さらに、試験片にマイクロフォンを取り付け、アコースティックエミッション (AE) を検出することで亀裂発生や亀裂進展の特定を行った。試験後、VHX-6000 で撮影したデータおよび画像解析ソフト VIC-2D (株式会社レーザー計測) を用いて亀裂進展長さおよび亀裂開口変位 (CMOD) をそれぞれ測定した。得られた実験結果を有限要素解析結果 (図 2) と比較することで、物性値 (強度・破壊靱性) を逆解析により推定した。

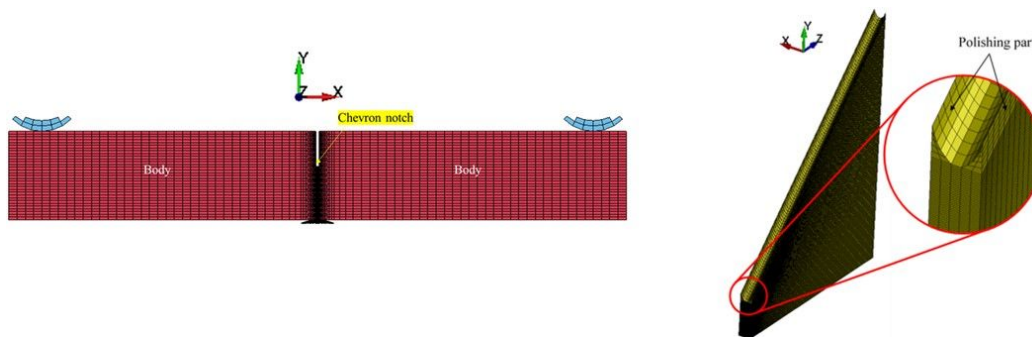


図2 三点曲げ試験片及び特殊シェブロンノッチの有限要素モデル

4. 研究成果

図 3 (a) はアルミナにおける荷重 - CMOD 曲線および亀裂進展長さ - CMOD 曲線を示す。尚、画像相関法 (DIC) により得られる CMOD 値の妥当性は、有限要素解析の荷重 - CMOD 曲線と比較した際の弾性域の傾きの整合性によって判断した。図 3 (a) に示す様に、負荷時の荷重 - CMOD 曲線は、弾性域において直線的に増加後、亀裂発生後も緩やかに増加した。その間、亀裂は図 1 に示した光学顕微鏡の倍率において確認が可能な、長さ約 1.2mm まで安定的に成長した、更に、荷重がピーク値に達した後も緩やかに成長し、最終的に 4mm 程度までの安定き裂成長を再現できた。したがって、本研究で形状決定したシェブロンノッチ試験片は、破壊靱性が低いアルミナであっても、き裂の安定成長を再現できることを確認した。また、光学顕微鏡では確認することが困難な、亀裂発生荷重は、図 3 (b) の様に、荷重と、AE 観測により同定可能である。AE 波には、亀裂発生・進展に関連する AE 波と試験片の接触や装置自体のノイズも含まれる。本研究では、試験片中央の予き裂部から左右同じ距離に 2 つのマイクを取り付けた。これにより、二つのマイクで計測する AE 波の観測時刻のずれから、亀裂発生・進展に関連する AE 波を抽出した。

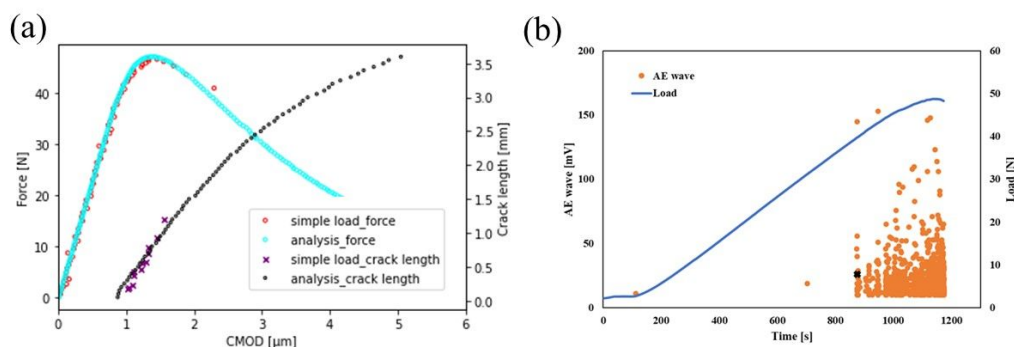


図3 アルミナにおける(a)荷重-変位曲線とき裂長さ、及び(b)アコースティックエミッションの観察結果

得られた、実験データを活用し、主に破壊応力と破壊靱性等のパラメータの逆推定を実施した。ここで、逆推定には Levenberg-Marquart 法を用いた。試験片の破壊応力は、実験における亀裂発生時の荷重と、解析における Chevron notch 先端の一要素における損傷変数が 0.05 を超えた際の荷重を比較することで逆推定した。図 3 (a) より、亀裂発生時時の荷重を 39.85 [N] として、破壊応力を逆推定したところ 337 [MPa] と決定された。破壊靱性は、実験値の亀裂長さ - 荷重のデータの組み合わせを 3 点選択し、それぞれの点において破壊靱性の逆推定を実施した。3 点の組み合わせは、0.326 [mm] - 43.43 [N], 0.725 [mm] - 46.88 [N], 1.094 [mm] - 47.12 [N] とした。それぞれの点での破壊靱性逆推定値は、2.12 [MPa√m], 2.10 [MPa√m], 2.11 [MPa√m] となり、3 点で概ね一致した。この結果から、本試験片の破壊靱性は 2.11 [MPa√m] と決定した。

図3(a)には、得られた破壊応力 337 [MPa]および破壊靱性値 2.11 [MPa√m]を入力値として実施した解析結果も合わせて記載する。実験により得られた曲線と比較すると、荷重 - CMOD 曲線、亀裂進展長さ - CMOD 曲線ともによく一致していることが確認できた。

以上の様に、一般的な自己治癒セラミックスと同様の破壊靱性値を有するアルミナ単体において、安定き裂成長を実現可能なシステムの開発に成功した。更に、荷重(き裂長さ)-CMOD 曲線より、強度・破壊靱性値の同定に成功した。今後は新たに開発したセラミックス基複合材料における強度-靱性-自己治癒能力及び繰り返し治癒能力の評価結果と合わせて、特許出願を目指す予定である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Osada Toshio, Hara Toru, Mitome Masanori, Ozaki Shingo, Abe Taichi, Kamoda Kiichi, Ohmura Takahito	4. 巻 21
2. 論文標題 Self-healing by design: universal kinetic model of strength recovery in self-healing ceramics	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 593 ~ 608
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/14686996.2020.1796468	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Ozaki Shingo, Nakamura Marika, Osada Toshio	4. 巻 21
2. 論文標題 Finite element analysis of the fracture statistics of self-healing ceramics	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 609 ~ 625
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/14686996.2020.1800368	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Nakao Wataru, Osada Toshio, Nishiwaki Tomoya, Otsuka Hideyuki	4. 巻 22
2. 論文標題 Focus on self-healing materials: recent challenges and innovations	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 234 ~ 234
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/14686996.2021.1888528	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 長田俊郎	4. 巻 123
2. 論文標題 自己治癒セラミックスに魅了されて.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 日本機械学会誌	6. 最初と最後の頁 46-46
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 長田俊郎	4. 巻 69
2. 論文標題 骨から学ぶ自己治癒セラミックスの設計	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 高分子	6. 最初と最後の頁 156-157
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Naoki Kanda, Aiko Watabe, OSADA, Toshio, Shingo Ozaki.
2. 発表標題 Finite element analysis of self-healing ceramics -Analysis of wedge splitting test-
3. 学会等名 The 3rd International Conference on COMPSAFE2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hayato Ono, Kanda Naoki, OSADA, Toshio, Shingo Ozaki.
2. 発表標題 Finite element analysis of MAX phase ceramics by the elastoplastic-damage model.
3. 学会等名 The 3rd International Conference on COMPSAFE2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Shingo Ozaki, Yuya Aoki, Kyohei Takeo, OSADA, Toshio.
2. 発表標題 Finite element analysis of fracture statistics of ceramics.
3. 学会等名 The 3rd International Conference on COMPSAFE2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

までりある's eye 「亀裂を自分で修復するセラミックス」
<https://www.youtube.com/watch?v=Errqll9gFsJk>
NIMS研究者総覧SAMURAI
https://samurai.nims.go.jp/profiles/osada_toshio

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
研究分担者	尾崎 伸吾 (OZAKI Shingo) (20408727)	横浜国立大学・大学院工学研究院・准教授 (12701)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------