

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04088

研究課題名(和文)バックキャスト型材料設計を志向した自己治癒セラミックスのバーチャルテスト

研究課題名(英文)Virtual testing of self-healing ceramics toward backcasting-material design

研究代表者

尾崎 伸吾(Ozaki, Shingo)

横浜国立大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：20408727

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、自己治癒セラミックスの社会実装を達成するために、構造部材としての要求性能と材料の微視組織条件との関連付けを行うことのできるバックキャスト型材料設計スキームの確立を目指すものである。そのため、基盤となる仮想数値実験の方法論を構築した。具体的には、申請者らがフレームワークを提案している“損傷 自己治癒構成モデル”および“破壊統計の数値解析手法”について、反応速度論に基づく各種発展則や欠陥分布の確率密度関数などの具体形を規定することで一般化を達成した。これより、『破壊のシミュレーションと連動したき裂修復過程の高精度シミュレーション』が可能となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

国内外の研究機関において、自己治癒性を有するセラミックス、ポリマーおよびコンクリートなどの開発が取り組まれている。次世代のスマート材料の本命とされるこれらの材料は、損傷発生時に、化学反応を積極的に活用することで微小き裂を再結合し、健全な状態へと自律的に回復できる。中でも、酸化物系自己治癒セラミックス基複合材は比強度、耐熱性および耐腐食性に優れているため、各種高温部材への適用が期待されている。今後、提案した材料設計スキームが活用されることで、産業界は新材料実用化のリスクやコストを低減でき、さらに学術界との連携より、実用化・標準化までの期間を大幅に短縮し得る可能性がある。

研究成果の概要(英文)：To achieve social implementation of self-healing ceramics, this study aims to establish a backcasting material design scheme that can relate the microstructural conditions to the required performance as structural members. To this end, a methodology for virtual numerical experiments has been developed as a basis for the backcasting scheme. Specifically, the "damage and self-healing constitutive model" and the "numerical analysis method of fracture statistics" for which the frameworks have been proposed by the authors, were precisely examined. Then, the generalization was achieved by specifying concrete forms such as various evolution laws based on reaction kinetics and probability density functions of defect distribution. The obtained results enables "highly accurate simulation of the crack repair process in conjunction with stochastic fracture simulation".

研究分野：機械材料・材料力学

キーワード：自己治癒セラミックス 破壊強度 破壊力学 有限要素法 損傷モデル 反応速度論 構成式 ワイブル分布

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。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

国内外の研究機関において、自己治癒性を有するセラミックス^[1]、ポリマーおよびコンクリートなどの開発が取り組まれている。次世代のスマート材料の本命とされるこれらの材料は、損傷発生時に、化学反応を積極的に活用することで微小き裂を再結合し、健全な状態へと自律的に回復できる。中でも、酸化物系自己治癒セラミックス複合材は比強度、耐熱性および耐腐食性に優れているため、次世代航空機エンジンタービン翼をはじめとした各種高温部材への適用が期待されている。しかしながら、自己治癒材料イノベーションは、これまでの技術体系の延長線上には存在しないため、最終製品の要求性能を明確にしたバックカスティング型の材料設計スキームが不可欠となる。

近年、イノベーションを継続的に創出するための新たな統合型材料開発システムとして、Materials Informatics や Materials Integration が注目されており、バックカスティング型の取り組みが活発になっている^[2]。これを可能にしているのは、実験観察技術やデータマイニング技術の高度化に加え、各種スケールでの数値解析、いわゆる“バーチャルテスト”の存在である^[3]。バーチャルテストにおいて、有限要素解析モデルは、“構造部材としての要求性能”とそれを満足し得る“材料の微視組織条件”を関連付けるためのツールとして不可欠である。

このような状況の下、申請者らはバックカスティング型材料設計を志向して、自己治癒セラミックスの有限要素モデリング技術を提案し^{[4],[5]}、バーチャルテストを実施するための準備を整えてきた。他方、現在、GE Aviation がジェットエンジン部材に対してセラミックス複合材(SiC/SiC)の適用を進めているが、耐酸化性により優れる自己治癒セラミックスの社会的ニーズは、低炭素社会の実現に向けて一層高まることが予想される。したがって、同材料を対象としたバーチャルテストの方法論の構築は、今こそ着手すべき挑戦的な課題であり、また今後の発展の基礎となる基盤的課題として位置付けられる。

2. 研究の目的

本研究は、『自己治癒材料のバーチャルテストの方法論を構築し、将来の実用化の障壁に対するブレークスルーを図る』ことを最終目標とする。そのために、下記の研究項目に取り組む。

損傷 - 自己治癒構成モデルの一般化：対象材料の拡充と各種発展則の規定

セラミックスの破壊統計に関する有限要素解析技術の確立と繰返し治癒性の検討

最終的に、『と』を実験観察技術やデータベースと統合することで、『構造部材としての要求性能と微視組織条件(相対密度、内部欠陥分布、粒径分布、自己治癒エージェン特)との関連付けを行えることを実証する。』ことまでを本課題内での目的とする。

3. 研究の方法

本課題における具体的な実施内容は、損傷 - 自己治癒構成モデルの一般化と破壊統計の有限要素解析から構成される。各項目の研究方法について以下にまとめる。

(1) 損傷 - 自己治癒構成モデルの一般化

これまでに対象としてきた Al_2O_3/SiC 複合材以外にも、世界的に注目され始めているMAX相(Ti_2AlC)を自己治癒エージェン特とした他のセラミックスにも適用できるようにする。なお、MAX相セラミックスは靱性が高く塑性変形を生じるため、非古典弾塑性論(下負荷面の概念)を導入することで弾塑性 - 損傷 - 自己治癒モデルへと拡張する。

自己治癒セラミックスでは、炎症・修復・改変期を通し、酸化生成物によるき裂充填機能と治癒部の高強度化を達成している。本現象を状態変数の発展則として組み込むにあたり、アレニウス式やワグナー則に従った酸化反応速度論を採用する。これより、変動する温度・酸素分圧環境下での強度回復挙動の高精度シミュレーションが可能となる。

種々の試験片を構造部材と見立てて有限要素解析を実施する。ここに、曲げ変形を対象とし、エンジン内を想定した雰囲気環境での治癒挙動をシミュレートする。得られた結果を基に、“サイズ依存性を加味した破壊統計”、“強度回復の時間依存性”ならびに“繰返し治癒性”の観点から部材としての要求性能を評価する。

(2) セラミックスの破壊統計の有限要素解析

焼結条件を制御した Al_2O_3/SiC 複合材の強度試験と組織観察を実施する。特に、有効体積の異なる試験法でワイブル分布を取得し、破壊強度および治癒に関する現有データベースの拡充を図る。有限要素解析に基づく破壊統計の予測精度の検証を繰返し、不備な点については確率密度関数の見直しを図ることで是正する。ここで、微視組織情報(粒径や空孔分布)の整理には、極値統計を活用する。

データベースとの比較を行うことで、構造部材としての要求性能と微視組織条件との関連付けを行えていることを実証する。

4. 研究成果

(1) 損傷-自己治癒過程の数値解析

まず、損傷-自己治癒構成モデルについて、これまでに対象としてきた $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiC}$ 複合材以外にも、世界的に注目され始めている MAX 相セラミックスにも適用できるように拡張した。ここに、MAX 相セラミックスは韌性が高く塑性変形を生じるため、非古典弾塑性論(下負荷面の概念)を導入することで対応した。また、MAX 相セラミックスの wedge splitting test の数値シミュレーションに提案構成モデルを適用し、治癒後の破壊応力や破壊靱性の逆解析に成功している(Scientific Reports, 2020)。なお、関連する成果として、シェブロンノッチを有する試験片を用いた強度試験、アコースティックエミッションおよび数値シミュレーションを組み合わせた自己治癒セラミックスの物性値の逆解析手法を確立した。

他方、自己治癒セラミックスでは、炎症・修復・改変期を通し、酸化生成物によるき裂充填機能と治癒部の高強度化を達成している。本現象を構成モデルの状態変数の発展則として組み込むにあたり、アレニウス式およびワグナー則に従った酸化反応速度論を採用した。これより、変動する温度・酸素分圧環境下での強度回復挙動の高精度シミュレーションを可能とした。これらの内容については検証を重ねたうえで国際会議にて発表するとともに、国際誌(Science and Technology of Advanced Materials, 2020; Open Ceramics, 2021)に掲載されるに至っている。

図 1 に提案した損傷-自己治癒構成モデルを用いた数値解析例を示す。3 水準の自己治癒エージェン트複合率のセラミックスの実験結果を対象に提案数値解析手法の妥当性の検証を行った。解析モデルは比較対象の実験と同じ 3 点曲げとし、下面にビッカース圧痕を模したき裂部を導入している。この損傷部に対して酸化反応速度論に基づく構成モデルを適用している。本有限要素解析モデルを所定の温度および酸素分圧条件で治癒し、その後曲げ強度の評価を行った。時間に依存して損傷部が健全な状態に治癒され、曲げ強度も無欠陥材と同様の水準まで回復している様子が確認できる。シミュレーション結果は実験結果と極めて良い一致を示し、本解析手法により、異なる治癒温度、酸素分圧条件下、並びに治癒エージェン트의複合率条件下での強度回復特性を予測し得ることを示した。

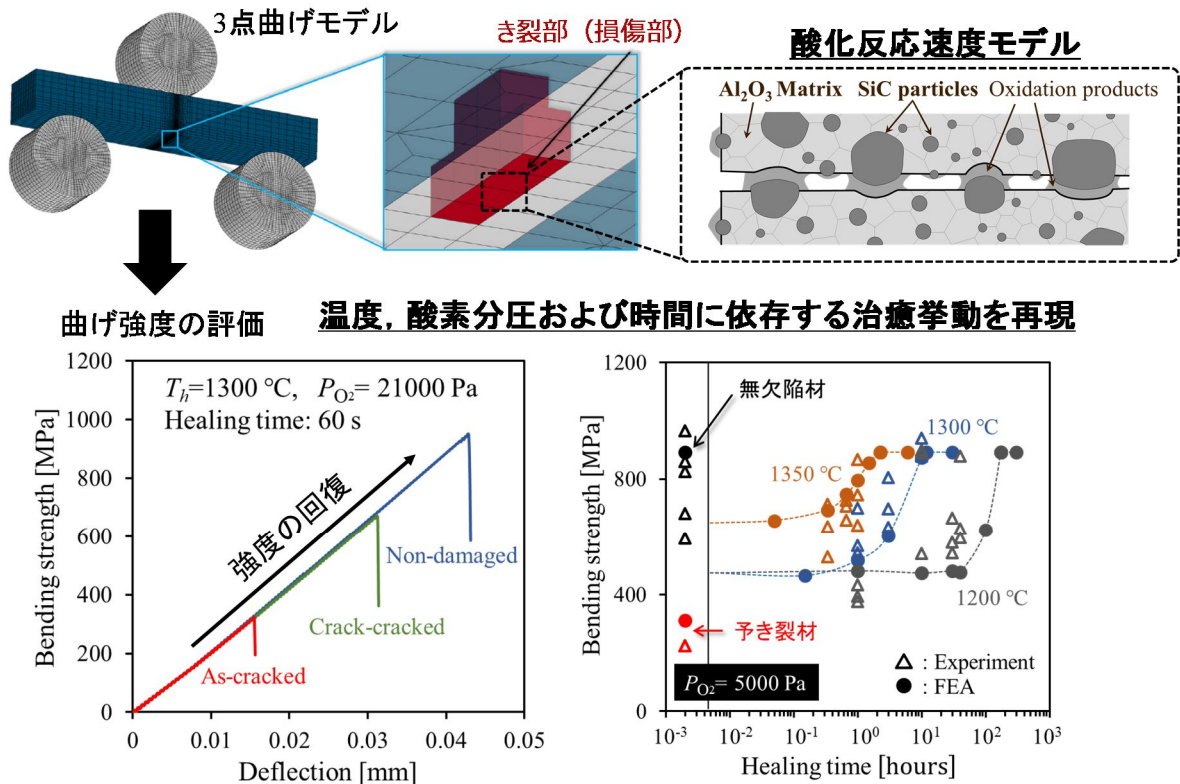


図 1 損傷-治癒過程の有限要素解析例

(2) セラミックスの破壊統計の数値解析

他方、自己治癒シミュレーションと並行して、焼結条件を制御したアルミナの強度試験と組織観察を実施した。また、3 水準の焼結温度条件下および 3 種類の試験片サイズでのワイブル分布を取得し、破壊強度に関する現有データベースの拡充を図った。また、極値統計の考え方を導入し、X 線 CT および走査電子顕微鏡により得られた組織観察データ(欠陥のサイズとアスペクト比、粒径、相対密度)を効率のかつ高精度に確率密度関数で近似するための方法論を構築した。最終的に、有限要素解析に基

づく破壊統計の予測精度の検証を繰り返し、破壊統計の数値解析手法に用いる確率密度関数を規定した。具体的には、粒径分布、空孔サイズおよび空孔のアスペクト比に対して、それぞれ対数正規分布、べき乗分布（または一般化パレート分布）および正規分布が適用できる。

図2にセラミックスの曲げ強度のばらつきの予測結果の一例を示す。比較に用いた実験と同様に3点曲げ試験を対象としている。破壊統計の数値解析手法では、各種確率密度関数で表される微視組織データを活用し、破壊力学モデルを介して損傷モデルで必要となる破壊応力 σ_F を自動的に評価する。この際、乱数を用いているため、試験片内の欠陥分布を反映した破壊応力がランダムに設定される。本モデルを用いて損傷解析を実施した場合、最も弱い個所から損傷（赤い要素：き裂）が発生・進呈する、いわゆる最弱リンク説を合理的に再現できる。焼結温度の異なるセラミックス試験片を対象に曲げ強度をワイブル分布で整理すると、実験結果との良い一致が確認できた (Journal of the American Ceramic Society, 2021)。なお、本数値解析手法は、破壊強度のサイズ依存性の検討にも適用可能である (Materials, 2019)。

このように、構造部材としての要求性能と材料の微視組織条件との関連付けを行うことのできるバックキャスト型材料設計の基盤を整理することができた。

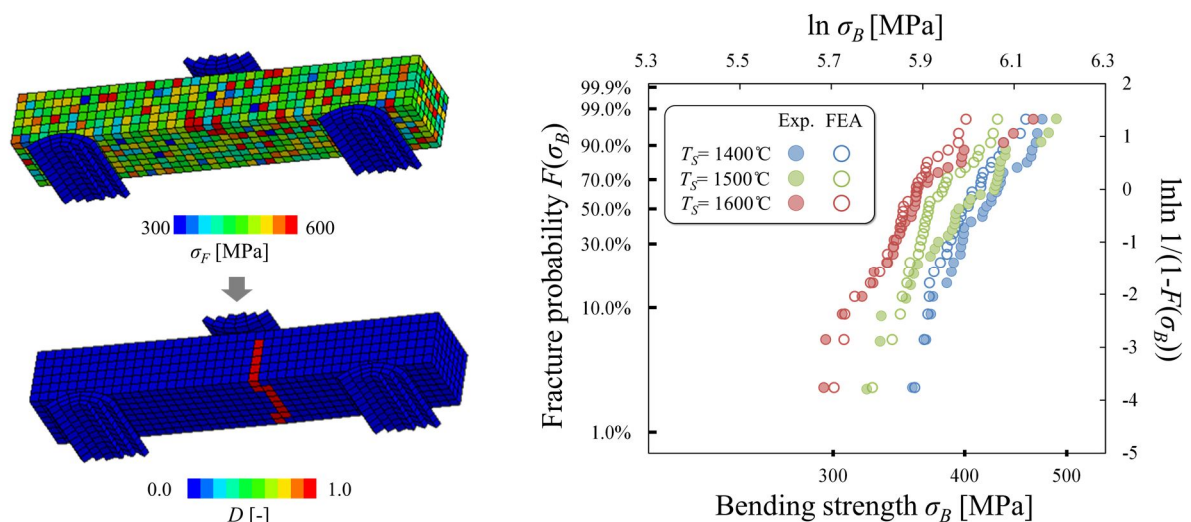


図2 セラミックスの強度ばらつきの有限要素解析例

< 引用文献 >

- [1] W. Sloof, S. Zwaag, et al., “Repeated crack healing in MAX-phase ceramics revealed by 4D in situ synchrotron X-ray tomographic microscopy”, *Scientific Reports*, 6, 23040-1 (2016).
- [2] 例えば, JST 戦略的イノベーション創造プログラム (SIP) 革新的構造材料, <http://www.jst.go.jp/sip/k03/sm4i/project/project-d.html>
- [3] J. Llorca, et al., “Multiscale modeling of composite materials: a roadmap towards virtual testing”. *Adv. Mater.*, 23, 5130-5147 (2011).
- [4] S. Ozaki, T. Osada, W. Nakao, “Finite element analysis of the damage and healing behavior in self-healing ceramic materials”, *Int. J. Solids Struct.*, 100, 307-318 (2016).
- [5] S. Ozaki, et al., “Finite element analysis of fracture statistics of ceramics: Effects of grain size and pore size distribution”, *J. Am. Ceram. Soc.*, 101, 3191-3204, (2018).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Shingo Ozaki, Kazuki Yamagata, Chihiro Ito, Takuma Kohata, Toshio Osada	4. 巻 105
2. 論文標題 Finite element analysis of fracture behavior in ceramics: Prediction of strength distribution using microstructural features	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the American Ceramic Society	6. 最初と最後の頁 2182-2195
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1111/jace.18201	査読の有無 有
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 Shingo Ozaki, Joji Yamamoto, Naoki Kanda, Toshio Osada	4. 巻 6
2. 論文標題 Kinetics-based constitutive model for self-healing ceramics and its application to finite element analysis of Alumina/Sic composites	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Open Ceramics	6. 最初と最後の頁 1-11
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.oceram.2021.100135	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 Osada, T., Watabe, A., Yamamoto, J. Brouwer, J.C., Brouwer, C., Ozaki, S., Sybrand, Z., Sloof, W.G.	4. 巻 20
2. 論文標題 Full strength and toughness recovery after repeated cracking and healing in bone-like high temperature ceramics	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 1-12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-020-75552-1	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 該当する
1. 著者名 Ozaki, S., Nakamura, M., Osada, T.	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 Osada, T., Hara, T., Mitome, M., Ozaki, S., Abe, T., Kamoda, K., Ohmura, T.	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 Takeo, K., Aoki, Y., Osada, T., Nakao, W., Ozaki, S.	4. 巻 12
2. 論文標題 Finite element analysis of the size effect on ceramic strength	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Materials	6. 最初と最後の頁 1-13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/ma12182885	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, W., Hayakawa, T., Yanaseko, T., Ozaki, S.	4. 巻 810
2. 論文標題 Advanced fiber reinforced self-healing ceramics for middle range temperature	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Key Engineering Materials	6. 最初と最後の頁 119-124
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4028/www.scientific.net/KEM.810.119	査読の有無 有
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 尾崎伸吾	4. 巻 71
2. 論文標題 特別解説 有限要素法によるセラミックス強度のばらつきの評価	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 耐火物技術協会	6. 最初と最後の頁 502-508
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17件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 9件）

1. 発表者名 前田太陽, 長田俊郎, 尾崎伸吾
2. 発表標題 自己治癒セラミックスの強度評価試験の有限要素解析
3. 学会等名 第29回機械材料・材料加工技術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 前田太陽, 長田俊郎, 尾崎伸吾
2. 発表標題 自己治癒セラミックスの有限要素解析: chevron notch付き三点曲げ試験の解析
3. 学会等名 日本機械学会 第34回計算力学講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小野隼士, 長田俊郎, 尾崎伸吾
2. 発表標題 Chevron notchを有するセラミックス三点曲げ試験片の有限要素解析
3. 学会等名 日本機械学会 第34回計算力学講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊藤千紘, 長田俊郎, 尾崎伸吾
2. 発表標題 小さな表面欠陥が存在するセラミックスの破壊強度に関する有限要素解析
3. 学会等名 日本機械学会 M&M2021 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本明穂, 竹之内 麻衣, 小幡卓眞, 長田俊郎, 尾崎伸吾
2. 発表標題 内部欠陥の分布情報に基づくセラミックス強度のサイズ依存性の推定
3. 学会等名 日本機械学会 M&M2021 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shingo Ozaki, Aoki Yuya, Kyohei Takeo, Toshio Osada
2. 発表標題 Finite element analysis of fracture statistics of ceramics
3. 学会等名 COMPSAFE2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

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

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

1. 発表者名 Naoki Kanda, Aiko Watabe, Toshio Osada, Shingo Ozaki
2. 発表標題 Finite Element Analysis of Damage and Healing Behaviour in Ceramics
3. 学会等名 APCFS2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kazuki Yamagata, Toshio Osada and Shingo Ozaki
2. 発表標題 Prediction of Scatter of Ceramic Strength using FEM: Effect of Sintering Temperature
3. 学会等名 APCFS2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 尾崎伸吾, 青木祐也, 長田俊郎
2. 発表標題 セラミックスの破壊統計に関する有限要素解析: 焼結条件の影響
3. 学会等名 計算工学講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shingo Ozaki, Marika Nakamura, Kyohei, Takeo, Osada Toshio
2. 発表標題 Finite element analysis on scatter of strength and self-healing behavior in alumina/SiC composites
3. 学会等名 7th International Conference on Self-Healing Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Aiko Watabe, Osada Toshio, Kyohei Takeo, Shingo Ozaki
2. 発表標題 Finite element analysis of the self-healing behavior in alumina/SiC composite: Effect of compound ratio of self-healing agent
3. 学会等名 7th International Conference on Self-Healing Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Naoki Kanda, Kyohei Takeo, Wataru Nakao, Shingo Ozaki
2. 発表標題 Numerical analysis of competitive behavior between healing and crack propagation in fiber-reinforced self-healing ceramics
3. 学会等名 7th International Conference on Self-Healing Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shingo Ozaki
2. 発表標題 Constitutive model for self-healing ceramics and its application to finite element analysis
3. 学会等名 5th German Japanese Workshop on Computational Mechanics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 渡部 愛子, 長田 俊郎, 尾崎 伸吾
2. 発表標題 自己治癒セラミックスの有限要素解析: wedge testの解析
3. 学会等名 日本機械学会 第32回計算力学講演会 (CMD2019)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山形 一輝, 長田 俊郎, 尾崎 伸吾
2. 発表標題 セラミックスの破壊統計に関する焼結温度の影響：有限要素法による強度ばらつき予測
3. 学会等名 日本機械学会 M&M2019 材料力学カンファレンス
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 尾崎伸吾	4. 発行年 2020年
2. 出版社 無機マテリアル	5. 総ページ数 5
3. 書名 セラミックスの破壊統計のためのバーチャルテスト技術	

1. 著者名 尾崎伸吾	4. 発行年 2020年
2. 出版社 セラミックス協会	5. 総ページ数 4
3. 書名 有限要素法を用いた自己治癒セラミックスの強度評価	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------

オランダ	デルフト工科大学			
------	----------	--	--	--