金属材料のトランススケール複合・機能化に関する基礎研究と社会実装

Fundamental Research on Multi-functional Materials by Atomic to Micron Trans-scale Design and Their Applications

梅田 純子*
Junko UMEDA

(Received 26 August 2020, Accepted 18 September)

Key Words: Powder Metallurgy, Additive Manufacturing, Direct Bonding, Composites, Rice Husk

1. はじめに

複合化機構学分野は、接合科学研究所の接合機構部門に属し、また、工学部応用理工学科機械工学科目および工学研究科機械工学専攻の協力講座であることから、同科目・専攻に在籍する学生が配属される。本分野の体制は2020年7月現在、専任教員3名、特任助教1名、特任研究員3名、学生9名（博士後期課程2名、博士前期課程4名、学部4年生2名、特別研究学生1名）が在籍している。そのうち3名が外国籍で、出身国はイラン、タイ、ガーナと国際性に富んでいる。2008年以降、アメリカ、エジプト、オーストラリア、タイ、台湾、中国、パキスタン、マレーシアから40名以上の外国籍の教職員や留学生が在籍した。また、大阪大学国際共同研究促進プログラムや広域アジアものづくり技術・人材高度化拠点形成事業の支援により、国際協働研究活動をアメリカ、エジプト、オーストラリア、サウジアラビア、シンガポール、タイ、中国の大学や研究機関と実施しており、研究力の向上のみならず国際社会で即戦力となり先導できる人材を育むべく連携の強化を行っている。他方、本研究所にしては珍しく、2020年7月現在の女性比率が31%（教員1名・研究員1名・大学院生3名）と、本学工学研究科における女子大学院生や女性教員の比率（16.5%、9%）と比較しても非常に高く、男女協働を積極的に推進している。このように、小規模な研究室においてもダイバーシティ・インクルージョンの取り組みは不可欠となっている。本分野の環境下では、国籍、性差、世代などの違いによって日常の常識や価値観が異なることを日々体感し、多様な知見から自然と互いを尊重することを実践していく中で、個々の可能性を引き出せる研究環境を無意識のうちに作り出している。このように、多様性からイノベーションを生み出し、材料科学の常識を覆した研究から材料革命を引き起こすことを目指して日々奮闘している。

2. 研究紹介

本分野では、材料の表界面制御および組織構造制御と多機能化に着目し、材料・加工プロセスの高度化によるエネルギーの効率的利活用と環境低負荷エネルギーの創出（省・創エネルギー）と低炭素化を主題に、材料・加工プロセスの観点から原子～ナノ～ミクロンでの階層的トランススケール微細構造設計による材料の複合化と高機能化に関する基礎学理の構築および応用研究を遂行している。具体的には、主に9つの研究課題に取り組んでいる。

1. 固溶強化原子を利用したチタン焼結材の高強度・高延性の促進
 2. 金属積層造形法（金属3Dプリンティング）によるチタン材の高次機能化－固溶強化を利用した高強度・高延性の両立
 3. 単層カーボンナノチューブの真の機能発現に向けた複合化材料設計
 4. 計算科学による原子スケールでの構造最適化と強度予測
 5. 異種材料における直接接合機構の解明
 6. 非食部バイオマスの高度再資源化：もみ殻由来多孔質アモルファス・シリカの生成
 7. ケルビンプローブフォース顕微鏡を用いた接合界面での表面電位差計測とガルバニック腐食機構の解明
 8. 粉体プロセスによる完全鉛フリー・快削性高強度黄銅合金の創製
 9. 複合材料における摩擦摩耗の向上と生体適合性評価
- 本稿では、紙面の関係で下記の4研究課題を紹介する。
- ・炭素ナノ粒子の単分散法による金属材料の高強度・高延性化と表面機能改質
 - ・原子・ナノ組織構造制御チタン合金の力学機能向上
 - ・有機－無機および異種金属の直接接合機構の解明
 - ・もみ殻由来の非晶質ナノ多孔質構造シリカの多機能性評価

*大阪大学接合科学研究所（〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘11-1）
Joining and Welding Research Institute, Osaka University（11-1, Mihogaoka, Ibaraki, Osaka 567-0047, Japan）

2.1 炭素ナノ粒子の単分散法による金属材料の高強度・高延性化と表面機能改質

粉末冶金法を基調とした固相焼結技術を用いて、炭素系ナノ材料である多層カーボンナノチューブ (Carbon Nanotube, CNT) とグラフェンが持つ高剛性・高強度、低摩擦係数などの特異な性能を金属材料に転写・付与できる複合化プロセスの研究を遂行している。炭素系ナノ材料は、優れた多機能性を有する素材と注目されているが、ファンデルワールス引力によるナノ粒子の強固な凝集体を形成し、炭素系ナノ材料本来の機能が発現せず、特に金属との複合化では凝集体が材料欠陥となり特性が低下という課題がある¹⁾。そこで、両性イオン界面活性剤を用いて炭素表面への $+/-$ 電荷付与による電気反発力を利用して凝集現象を解消し、CNT やグラフェンの単分散化することでバルク体や粉末の表面への均質被覆製法を確立した。本手法を用いて、チタン (Ti) やアルミニウム (Al) の高強度・高延性化を目的に、粉末表面に CNT やグラフェンを均一に被覆した状態で粉末冶金法 (固相製法) により固化して得られる炭素/金属基ナノコンポジット材料において、炭素粒子と金属素地の異相界面にナノスケールの超微細針状炭化物 (ナノロッド) を形成し、界面での応力伝達効率向上による高強度化に成功した。一例として、CNT 分散による純 Al 材料の高強度・高延性化について説明する。上述した CNT の単分散化手法に加え、ボールミル装置を用いた強塑性加工 (高歪み加工) 製法の適用により、CNT の完全単分散化と同時に、純 Al 粉末内に CNT を均質に分散・分布できるプロセスを構築した。純 Al 粉末と CNT の混合処理過程において、機械的エネルギーによる Al/CNT 複合粉末に塑性変形を付与することで Al 粉末を構成する α -Al 結晶粒界に CNT を均一分散することで pinning 効果により、 α -Al 結晶粒の微細化 ($2.2\ \mu\text{m} \rightarrow 0.63\ \mu\text{m}$) に寄与し、CNT の分断によるアスペクト比 ($55 \rightarrow 6.5$) の制御を可能とした。また、混合処理過程での自然酸化現象に由来する酸素を活用し、固相焼結過程において酸素原子の固溶反応により生成する Al_2O_3 ナノ粒子の合成と添加した CNT が均一単分散したハイブリッドナノコンポジットの作製に成功した。本材料の引張試験の結果、引張強さ 540 MPa、破断伸び 10 ~ 12% を維持した。これは、純 Al 材に対して約 3 倍の高強度化を達成すると同時に、工業用金属素材として十分に利用可能な高延性を有することを確認した。このような特異な力学特性を解明すべく、SEM 内引張試験その場観察と高分解能 TEM 観察により、その強化機構を定量的に考察した。その解析結果を Fig. 1 に示す。本 Al/CNT 複合材料は複雑な強化因子を有し、 α -Al 結晶粒の微細化効果、その粒成長抑制のための CNT の粒界 pinning 効果および Al 素地との完全反応によりその場合成された γ - Al_2O_3 ナノ粒子 pinning 効果、アスペクト比が異なる CNT 分散強化、界面での γ - Al_2O_3 ナノ粒子による Load-transfer 効果により高強度と高延性を同時に発現した。次に、Al/CNT 複合材の引張強さと伸びの相

関を Fig. 2 に示す。本製法を適用した材料 (★) は、従来の機械的混合法により作製した材料やセラミックス粒子添加材料と比較して、両特性は大きく向上した。従来材では CNT 凝集体が残存するために強度改善効果が十分に発現しないが、本製法によって CNT を単分散化することで高強度・高延性バランスを達成した²⁻⁷⁾。

次に、CNT の優れたベアリング効果に着目した純チタンの摩擦摺動特性向上に関して述べる。既往研究において、耐腐食性に劣る軽金属素材表面に CNT を直接被膜し、その摩擦摺動特性を評価した報告例は少ない。一方、摺動部材への CNT 被覆技術に関しては、CNT 表面処理剤塗布や CNT 膜生成が開発されているが、工程が多岐に渡る上に、耐熱性や熱伝導性に劣り、焼きつきを防ぐために充填剤や固体潤滑剤が必要になるなどの問題点がある。そこで、簡便な塗布プロセスとして、チタンの酸化防止の観点から非水系溶媒とした単分散 CNT 分散溶液に Ti 基材を浸漬し、基材表面に CNT を完全に分散したネットワーク状の被膜を

Fig. 1 Strengthening factors contribution to UTS increment of Al-CNTs materials with different CNTs content compared to experimental data.

Fig. 2 Tensile properties of Al materials reinforced by various ceramic particles/Al (open symbols), by previous CNTs/Al study (closed symbols), and the present CNTs/Al study (★).

直接密着形成させた。CNTとTi基材の密着性を向上すべく、Tiへの炭素原子の固溶限を考慮した真空熱処理を適用することで、CNT由来炭素原子がTi結晶格子内に侵入固溶・拡散した際、固溶限を超えた炭素分とTiの反応により生成する炭化チタニウム (TiC) 層を介してCNTとTi基材の冶金結合性を確認し、直接固相接合法を確立した。また、大気環境下で摩擦摩耗試験によるCNT被覆の密着力とCNTのベアリング効果を評価した結果 (Fig. 3)、CNT-net 形成による摩擦係数の低位安定化と耐摩耗性の顕著な改善向上を実現した⁸⁾。さらに、本研究所の共同利用・共同研究員制度を活用して北海道大学歯学部および同大学歯学部病院と連携し、CNT被覆Ti基材を用いて骨芽細胞の形成・成長過程に及ぼすCNT被膜最表面での幾何学的形状因子の影響について、in-vitro 試験を実施して骨芽細胞の繁殖状態の解析およびラットの頭蓋部への埋め込み試験 (in-vivo) による性能検証を行った。その結果、CNTの全長や直径の影響に比べて、CNT被膜内に形成されるCNT間距離 (粗密度合い) が数 μm を超える状態では細胞同士間での伝達・連結・成長が困難となり、細胞が死滅に至ることも観察し、空間長さが骨芽細胞の成長に対してより顕著に影響することを確認した^{9), 10)}。

このように炭素ナノ粒子の完全なる均一単分散化プロセスと、それを活用した各種金属材料の高次多機能化の実証などを通じて、炭素ナノ粒子と金属のハイブリッド化による新規機能発現を可能とした。

2.2 原子・ナノ組織構造制御チタン合金の力学機能向上

汎用チタン合金におけるレアメタル元素添加依存から脱却すべく、資源的に豊富で極めて廉価な軽元素に着目し、粉末冶金プロセスによるチタン材の高強度・高延性化に関する基礎的研究および実用化研究を推進している。航空機部材や医療デバイスなどの高付加価値製品へ適用されるチタン材は、雰囲気中の空気由来する酸素や窒素が活性なTi粉末と反応し、チタンの延性低下を誘発するといった課題が存在する。古くから、酸素・窒素・水素は金属材料の脆化を招く負の材料因子と位置付けられており、工業用純チタンにおいても米国のASTM規格やJIS規格では各元素の含有量の上限を、酸素量：0.4 mass%、窒素量：0.05 mass%、水素量：0.015 mass%と規定している^{11), 12)}。この上

Fig. 3 Friction coefficient changes of (a) as-received Ti plate and (b) with CNTs film after annealing at 1123 K by employing a SUS304 stainless steel ball as counter material in ball-on-disk wear test under dry condition.

限値を超える高濃度の成分を含む場合、強度や硬度は増加する一方で材料の伸び値が著しく激減し、実用素材料としての利用は困難であると認識されている。また、酸素や窒素を含む化合物相は、熱力学的に安定なために熱処理による還元分解は難しく、既往研究においては熱分解の適用は不可能とされてきた。本分野では、酸素・窒素・水素を第2添加元素として、非常識とも言える各々高濃度含有する組成のTi粉末を用いた固相焼結法および金属積層造形法において、延性低下を伴うことなく、高強度・高延性の同時発現を可能とする新たな合金創製技術の開発を目指している。

まず、固相焼結法による微量酸素添加Ti焼結材について説明する。純Ti粉末と酸素供給源となる TiO_2 粒子の混合粉末を固相焼結した際、 TiO_2 の熱分解挙動と解離した酸素原子の α -Ti結晶 (hcp構造) 内への侵入固溶によるc軸方向に α -Ti結晶格子の伸長に伴う歪み場形成していることが明らかとなった。その結果、純Ti材と比較して3倍以上の引張強さとTi64合金の特性を超える高疲労強度を発現した (Fig. 4)。強化機構が酸素原子の固溶強化に起因することを実証すべく、古典強化理論に基づくLabusch modelを用いて酸素固溶量と耐力増加量の関係を整理した結果、引張試験による実験値と理論値の定量的な一致を示した。他方、破断伸びは、酸素量が約0.8 mass%であっても25～28%の高い伸びを有しており、それを超える酸素量においても20%を超える延性を有した。結晶粒界近傍に酸化物 (TiO_2/TiO) は生成せず、酸素が原子状態で α -Ti結晶内に均一固溶することにより延性低下を抑制しつつ、固溶強化による高強度特性を維持できる特異な力学特性を有することを明らかにした^{13), 14)}。なお、窒素を含むTi焼結材においても窒素原子の固溶現象を促すことによって、窒素0.52 mass%を含むTi焼結材では耐力値947 MPaに達しており、窒素固溶強化によって純Ti粉末焼結材の耐力値412 MPaを2倍以上の増加を示した。加えて、破断伸び値は30%以上を呈して、十分な延性を保持している。JISで規定されている純Ti材

Fig. 4 Tensile properties of SPSed Ti-O, Ti-6Al-4V and pure Ti materials.

の窒素含有量 (<0.05 mass%) の 10 倍以上含有するにも関わらず、延性低下を誘発しない特異な力学特性を発現することを実証した¹⁵⁻¹⁷⁾。続いて、中間素材である廉価な水素化チタン (TiH_2) 粉末を直接原料とした純チタン材創製に関して説明する。チタンにおいても水素は脆化を誘発する成分である一方で、 β 相安定化元素であることに着目し、高濃度の水素含有 Ti 焼結材に対して熱間塑性加工を施した。押出加工の冷却過程での $\beta \rightarrow \alpha$ 相変態において、Burger's の結晶方位関係に基づいて高剛性を示す $\langle 0001 \rangle \alpha$ 集合組織の形成を試みた結果、水素成分を 0.33 mass% 含有することで押出方向と平行に繊維状に配列した B/T-texture、六方晶格子の c 軸が押出方向と平行に配列した $\langle 0001 \rangle$ 集合組織を有し、微細な結晶粒組織を呈し、122 GPa の高剛性を達成した。同時に、伸び値の低下を伴わずに耐力値の向上を実現した。また、SEM 内その場観察を行った結果、Ti 結晶粒を分断するように析出した微細な TiH_2 化合物相の分散が変形双晶の局所的に発生し、その進展と粗大化を抑制したことで、試料全体に大きな均一変形が生じるという事実を見出した (Fig. 5)。このような特異な集合組織の形成は、熱間押出加工時に水素が β 相安定化因子として作用することで、Ti の β 変態温度が低下して β 単相域もしくは $\alpha + \beta$ 共存域からの加工が安定化することに起因することを明らかにした^{18), 19)}。

続いて、固相焼結法の研究成果に基づき金属積層造形法の一つである選択的レーザ溶融法 (Selective Laser Melting, SLM) へ展開し、積層造形過程での軽元素の振舞いと強化機構に係る研究を進めている。本稿では窒素を対象に行った成果を述べる。JIS 規格上限値 0.05 mass% を遥かに上回る高濃度窒素含有純チタン粉末として、窒素ガス雰囲気中で純 Ti 球状粉末を熱処理による JIS 規格の上限値 10 倍以上となるコアシエル構造の窒素 0.3 ~ 0.7 mass% 含有 Ti 粉末を作製した。これを出発原料として SLM 法により Ti 積層造形体を作製した結果、積層造形過程で窒化被膜は分解し、解離した窒素成分は α -Ti 結晶粒内に固溶することで主に c 軸方向への結晶格子が拡張した。その引張特性を評価した結果 (Fig. 6)、0.32 mass% 窒素含有積層造形体の引張強さ 976 MPa (純 Ti 造形材の UTS; 398 MPa)、破断伸び値は 21.7% (同伸び値; 18.9%) となり、相反関係にある強度と延性を高い水準で両立できる特異な力学挙動を実現した。組織観察の結果、窒素成分の粒界偏析や濃化は見られず、SLM 過程でのレーザ照射により溶融した Ti 粉末が急速な凝固現象 (冷却速度 $10^4 \sim 10^7$ K/秒) を活用した窒素原子均一固溶に関する合金設計の有効性を実証した。他方、窒素量が 0.7 mass% に増大した場合、マルテンサイト相の粒界近傍に窒素原子が濃化するため、引張試験では弾性域での破断により破断伸び値は 0% を呈した^{20), 21)}。

以上のように、高い信頼性のもとで廉価な軽元素を高濃度含有 Ti 粉末材から、固相焼結法および金属積層造形法において、汎用チタン合金の特性を凌駕する高強度・高延性

Fig. 5 Stress-strain curve and in-situ SEM microstructures of extruded TiH_2 powder materials during tensile testing. The arrows indicate deformation twins.

Fig. 6 Stress-strain curve in tensile test at room temperature and inverse pole figure maps of SLMed Ti-N materials with different nitrogen solution contents.

化を可能とする新規プロセスを示し、引き続き従来の合金・プロセス設計の限界を超える革新的製法の構築を目指していく。

2.3 有機・無機および異種金属の直接接合機構の解明

構造用素材として比剛性・比強度に優れた軽量素材である炭素繊維強化樹脂 (Carbon Fiber Reinforced Plastics, CFRP) と工業用金属材料による複合材料の実用化が急速に進んでいる。CFRP の素地となる樹脂は熱硬化性から熱可塑性に替わり、その結果、高速スタンピング成形による CFRP 製複雑形状部品の創製が可能となり、また素材のリサイクル向上 (= コスト削減) にも寄与できることが明らかとなっている²²⁾。他方、接合・接着などの 2 次加工性が CFRP 素材に対して要求される。接着性能や強度は CFRP 素材の表面性状や物性に依存する他、使用環境によっては

接着剤の性能劣化に起因して接合強度や部材寿命がCFRP製構造物の性能低下を誘発するといっても過言ではない。そこで本分野では、性能劣化が懸念される接着剤を一切使用せずに、母材と同等以上の力学特性および機能を有するCFRP接合部材の創製に資する高信頼性接合技術の基礎研究を進めている。具体的には、CFRPを構成する熱可塑性樹脂がC=O二重結合を含むカルボニル基を有することに着目し、汎用性の高い温間プレス成形法を用い、加熱・加圧条件下での樹脂と純Ti材との反応に基づく、Ti側への酸素原子固溶によるC=Oの還元離脱と有機金属化合物の生成による完全接合を試みている。樹脂にはC=O結合を有するポリアミド66 (PA66, $\{CO-(CH_2)_4-CO-NH(CH_2)_6-NH\}_n$) と、C=O結合を有しないポリスチレン (PS, $\{CH_2-CH-(C_6H_5)\}_n$) を選択してTi板材との接合体を作製した。加熱温度と接合強度(引張剪断力)の相関について調査した結果をFig. 7に示す。両樹脂材の融点近傍において界面強度は急激に増大し、PA66のみが高い接合強度を呈した。TEMによる組織観察の結果、Ti試料側の接合界面に酸素が30～50 nmの濃化領域が存在していること観察された。純チタンの酸素固溶限は34 at.%と大きいことから、PA66に含まれるC=O二重結合が分解して酸素原子が乖離し、Ti表層に化学的に安定した状態で接合したと考えられる。このようにC=O結合が樹脂と金属の直接接合機構に不可欠であることが示差された²³⁾。

次に、純TiとMg合金(Mg-Al系)の異種金属を対象に、直接固相加圧接合プロセスを検証した。加熱・加圧下での固相接合過程における界面反応機構を解析した結果、接合温度をMg合金の共晶点未満の温度域とした試料において、Mg合金中のAl含有量の増加および接合時間の増大に伴い界面の接合強度が増加した。また、Mg合金側の破断面にはriver patternを伴う良好な接合状態を示す変形領域を確認した。接合界面のTEM観察を行った結果、各試料表面に自然形成された酸化膜(MgOとTiO₂)は接合界面にも観察

Fig. 7 Shear bonding strength of dissimilar materials between pure Ti plate and PA66 and PS plastic materials prepared by changing bonding temperature.

されるが、高い接合強度を有する試料では、Mg合金に含まれるAl成分に由来する厚さ30～40 nmのAl拡散層の存在を確認した(Fig. 8)。さらに、ネットワーク状のβ相(Mg₁₇Al₁₂)が分散しており、その分散面積率の増加により接合領域が増大した結果、接合強度の増加傾向が生じたと推察される^{24), 25)}。

以上のように、異種材料における接合界面の構造や物性の理解を通じて接合体の特性や機能を把握し、優れた耐久性や信頼性を有する新たな直接接合プロセスを確立して異材接合強度の向上を目指す。

2.4 もみ殻由来の非晶質ナノ多孔質構造シリカの多機能性評価

日本を含めて世界中で量・質ともに安定して発生する農業廃棄物のもみ殻を活用し、3次元ナノ空孔を有するもみ殻由来非晶質シリカ(Fig. 9)を、安全かつ経済性に優れた機能性素材として再生する実用化研究を実施している。既往研究では、もみ殻に含まれる炭水化物を熱源に利用するバイオマスプロセスの開発が主流であったが、本研究にお

Fig. 8 TEM observation at bonding interface of pure Ti/AZ91 bonded at 748 K for 1 h with 10 MPa applied pressure.

Fig. 9 Appearances of (a) rice husk as raw material and (b) high purity amorphous silica from rice husks. SEM images of (c-1) cross section view of rice husk ash and (c-2) high magnification of (c-1).

いては、植物由来の3次元の骨格構造を有する非晶質シリカ成分に着目し、これを非晶質の状態を高純度なナノ多孔質構造体シリカとして抽出・生成するプロセス研究である。もみ殻は、焼成過程においてシリカの結晶化が進行して発癌性物質である結晶性シリカに変化することが既往研究により報告されている。本分野では、もみ殻に含まれる土壌由来の微量アルカリ金属成分 (Mg、K、Ca など) とシリカの共晶反応により、低温で局所的に溶解することでシリカの結晶化が進行する現象を解明した。本結果に基づき、上記の微量アルカリ金属成分を完全除去すべく、有機酸水溶液を用いたキレート反応に基づくアルカリ金属錯体形成と系外排出に関する新たな手法を確立した結果、純度 99.5% 以上の非晶質ナノ多孔質構造シリカの生成に成功した²⁶⁾。また本製法は、塩酸や硫酸などの強酸溶液を使用しない点においても環境負荷が少ない。そこで、ナノ構造体シリカの高い反応活性を活用し、高機能性素材としての実用化研究を実施している。一例として、セメントに添加することで短時間での緻密化を可能とするコンクリート素材の高強度化と長寿命化 (高耐久性) を実現した²⁷⁾。さらに、高レベル放射性廃棄物処分施設では多層バリア処理した廃棄物を埋設する際のコンクリート壁からの強アルカリ水が多層バリア層を破壊する問題に対して、フィールド試験に開発素材を投入し、亀裂部への素材の注入性や国際原子力機関 (IAEA) が要求する弱アルカリ性 ($\text{pH} < 11$) の達成による耐バリア性能を検証した。その結果、現行のセメント材料を使用した供試材は、試験開始後約 1,200 日で pH 値が 11 付近に低下するが、もみ殻由来シリカ微粒子を添加した供試材は、試験開始 14 日以内に pH10.5 まで低減し、世界最高水準の特性を最短期間で発現した (Fig. 10)。これは、もみ殻由来の多孔質構造と非晶質構造に基づく高い反応活性が、セメント中の Ca 成分ともみ殻由来シリカのポズラン反応過程における Ca イオンの吸着性向上と水和物生成による緻密化が促進した結果、未反応のアルカリ成分が減少することによりコンクリート内の pH 値の急速な低減と強

度向上に寄与した²⁸⁾。

このように、もみ殻由来の非晶質ナノ多孔質構造シリカの多機能性を活用して新たな複合化プロセスの基礎を確立しつつあり、世界中で要望されている高レベル放射性廃棄物の地層処分施設の建設に資する革新的な高強度・弱アルカリ性セメント素材の創製に向けて、産学官連携による研究を継続している。

3. おわりに

以上のように、本分野の研究活動の一部を紹介した。研究室の HP (<http://www.jwri.osaka-u.ac.jp/~dpt6/>) を開設しており、研究活動のみならず、日常の様子も紹介している。今後も、科学技術の発展を担う学生らと共に、産業界が直面する接合科学に係る課題に対して、材料科学の観点から組織構造制御を利用した新奇な高次機能性材料創製の基礎研究と産学共創による実用化開発研究に、研究室一丸となって取り組んでいく所存である。

謝 辞

本研究の一部は、国立研究開発法人科学技術振興機構 (JST) 未来社会創造事業・探索加速型「地球規模課題である低炭素社会の実現」、内閣府総合科学技術・イノベーション会議の戦略的イノベーション創造プログラム (SIP)「統合型材料開発システムによるマテリアル革命」(管理法人: JST)、科学研究費補助金 (16H02408、20K05155)、公益財団法人天田財団、国立研究開発法人農業・食品産業技術研究総合機構生物系特定産業技術研究支援センター「革新的技術創造促進事業 (異分野融合共同研究)」、大阪大学国際共同研究促進プログラム、広域アジアものづくり技術・人材高度化拠点形成事業の支援により行われた。また、複合化機構学分野の教職員、学生および卒業生に深く感謝の意を表します。

参考文献

- 1) S.R. Bakshi, D. Lahiri and A. Agarwal: "Carbon nanotube reinforced metal matrix composites - a review", *Journal of International Materials Reviews* 55 (2010), 41-64.
- 2) B. Chen, X.Y. Zhou, B. Zhang, K. Kondoh, J.S. Li and M. Qian: "Microstructure, tensile properties and deformation behaviors of aluminium metal matrix composites co-reinforced by ex-situ carbon nanotubes and in-situ alumina nanoparticles", *Materials Science and Engineering A* 795 (2020), 139930.
- 3) B. Chen, K. Kondoh, J. Umeda, S. Li, L. Jia and J. Li: "Interfacial in-situ Al_2O_3 nanoparticles enhance load transfer in carbon nanotube (CNT)-reinforced aluminum matrix composites", *Journal of Alloys and Compounds* 789 (2019), 25-29.
- 4) B. Chen, K. Kondoh, J.S. Li and M. Qian: "Extraordinary reinforcing effect of carbon nanotubes in aluminium matrix composites assisted by in-situ alumina nanoparticles", *Composites Part B* 183 (2020), 107691.

Fig. 10 pH value evaluation of cement materials using rice husk ash compared to the current cement material. (a) total period and (b) initial period of (a).

- 5) B. Chen, J. Shen, X. Ye, H. Imai, J. Umeda, M. Takahashi and K. Kondoh: "Solid-state interfacial reaction and load transfer efficiency in carbon nanotubes (CNTs)-reinforced aluminum matrix composites", *Carbon* 114 (2017), 198-208.
- 6) B. Chen and K. Kondoh: "Sintering Behaviors of Carbon Nanotubes—Aluminum Composite Powders", *Metals* 6-9 (2016), 213.
- 7) B. Chen, S. Li, H. Imai, L. Jia, J. Umeda, M. Takahashi and K. Kondoh: "Load transfer strengthening in carbon nanotubes reinforced metal matrix composites via in-situ tensile tests", *Composites Science and Technology* 113 (2015), 1-8.
- 8) J. Umeda, B. Fugetsu, E. Nishida, H. Miyaji and K. Kondoh: "Friction behavior of network-structured CNT coating on pure titanium plate", *Applied Surface Science* 357 (2015), 721-727.
- 9) H. Miyaji, S. Murakami, E. Nishida, T. Akasaka, B. Fugetsu, J. Umeda, K. Kondoh, T. Iizuka and T. Sugaya: "Evaluation of Tissue Behavior on Three-dimensional Collagen Scaffold Coated with Carbon Nanotubes and β -tricalcium Phosphate Nanoparticles", *Journal of Oral Tissue Engineering* 15-3 (2018), 123-130.
- 10) E. Nishida, H. Miyaji, J. Umeda, K. Kondoh, H. Takita, I. Kanayama, S. Tanaka, A. Kato, B. Fugetsu, T. Akasaka and M. Kawanami: "Biological Response to Nanostructure of Carbon Nanotube/titanium Composite Surfaces", *Nano Biomedicine* 7-1 (2015), 11-20.
- 11) ASTM B348 / B348M:2019, Standard Specification for Titanium and Titanium Alloy Bars and Billets.
- 12) JIS H 4600:2012, Titanium and titanium alloys - Sheets, plates and strips.
- 13) S. Kariya, M. Fukuo, J. Umeda and K. Kondoh: "Quantitative analysis on light elements solution strengthening in pure titanium sintered materials by Labusch model using experimental data", *Materials Transactions* 60-2 (2019), 263-268.
- 14) 刈屋翔太, 梅田純子, Ma Qian, 近藤勝義: 急冷処理による酸素過剰添加チタン材の延性向上とその機構解明, *金属学会誌* 82-10 (2018), 390-395.
- 15) J. Umeda, H. Ishizaka, S. Li, A. Alhazaa, and K. Kondoh: "Comparison study on mechanical properties of powder metallurgy titanium materials with nitrogen solutes and TiN dispersoids", *Journal of Alloys and Compounds* 846 (2020), 156455.
- 16) A. Issariyapat, P. Visuttipitukul, T. Song, J. Umeda, Q. Ma and K. Kondoh: "Strength-ductility improvement of extruded Ti-(N) materials using pure Ti powder with high nitrogen solution", *Materials Science and Engineering A* 779 (2020), 139136.
- 17) Y. Yamabe, J. Umeda, H. Imai and K. Kondoh: "Tribological Property of α -Pure Titanium Strengthened by Nitrogen Solid-Solution", *Materials Transactions*, 59-1 (2018), 61-65.
- 18) J. Umeda, T. Mimoto, H. Imai and K. Kondoh: "Powder Forming Process from Machined Titanium Chips via Heat Treatment in Hydrogen Atmosphere", *Materials Transactions* 58-12 (2017), 1702-1707.
- 19) T. Mimoto, J. Umeda and K. Kondoh: "Strengthening behaviour and mechanisms of extruded powder metallurgy pure Ti materials reinforced with ubiquitous light elements", *Powder Metallurgy* 59-3 (2016), 223-228.
- 20) K. Kondoh, A. Issariyapat, J. Umeda and P. Visuttipitukul: "Selective laser-melted titanium materials with nitrogen solid solutions for balanced strength and ductility", *Materials Science & Engineering A* 790 (2020), 139641.
- 21) A. Issariyapat, 近藤勝義, P. Visuttipitukul, T. Song, M. Qian, 梅田純子: "窒素含有チタン粉末の特性と積層造形体における力学特性", *スマートプロセス学会誌* 8-3 (2019), 95-101.
- 22) K.K. Chawla, *Composite Materials, Science and Engineering*, Springer, New York, 1998.
- 23) K. Kondoh and J. Umeda: "C-O bond enhancing direct bonding strength between plastic and pure titanium", *Materials Letters* 211 (2018), 331-334.
- 24) P. Pripanapong, J. Umeda, H. Imai, M. Takahashi and K. Kondoh: "Bonding mechanism of Ti/AZ80 dissimilar materials fabricated by spark plasma sintering", *Journal of Multidisciplinary Engineering Science Studies* 2-10 (2016), 1009-1013.
- 25) J. Umeda, N. Nakanishi, K. Kondoh and H. Imai: "Surface potential analysis on initial galvanic corrosion of Ti/Mg-Al dissimilar material", *Materials Chemistry and Physics* 179 (2016), 5-9.
- 26) J. Umeda and K. Kondoh: "High-purification of amorphous silica originated from rice husks by combination of polysaccharide hydrolysis and metallic impurities removal", *Industrial Crops and Products* 32 (2010), 539-544.
- 27) 梅田純子, 高田龍一, 道浦吉貞, 近藤勝義: "農作物非食部バイオマスから高純度非晶質シリカの抽出プロセスとコンクリート用混和材としての利活用", *スマートプロセス学会誌* 3-5 (2014), 317-321.
- 28) 梅田純子, 藤井寛子, 近藤勝義: "焼成粉殻中の脆性炭化物を利用した非晶質シリカ微粒子の生成プロセス", *スマートプロセス学会誌* 5-6 (2016), 365-372.

代表者メールアドレス

梅田純子 umedaj@jwri.osaka-u.ac.jp