

放射光 X 線 CT 技術を駆使した 高信頼性材料設計のためのマルチスケール解析

大熊 学

放射光 X 線マルチスケールトモグラフィは、マイクロ CT とナノ CT を組み合わせ、広視野かつ高分解能の三次元観察を可能にする。本研究では、本手法を用いて粉体プロセス、焼結、微小破壊における微構造進化を多階層で追跡し、欠陥形成や靱性発現における不均質構造の役割を明らかにする。

はじめに

材料科学では、材料の特性の成り立ちを理解するため、「プロセス」「微細構造」「特性」の関係を明らかにすることが重要である。特に、材料の三次元構造の観察は、加工方法と材料特性の関係を理解する上で不可欠である。粉末から金属やセラミックスを作る場合、焼結プロセスを通じて複雑な形状の部材やデバイスを製造することが可能である¹⁾。一見すると焼結材料は均一に見えるが、実際には原子から粒子、ミクロ、メゾ、マクロスケールまでの多段階で小さな欠陥や不均質な領域が分布している。製品部材の性能や信頼性、寿命はこうした欠陥や不均質性の影響を受ける。欠陥や不均質性は粉体プロセスで生じ、焼結中に完全に取り除くことは困難である²⁾。しかし、微細構造の不均一性を適切に調整することで、高い性能を持つ階層構造を設計することができる。例えば、積層セラミックコンデンサ (MLCC) は、薄い誘電体層と電極層を同時に焼成して製造される³⁾。同様に、薄膜や燃料電池の電極層の製造でも、焼結プロセス中の微細構造の制御が重要である。

焼結中には、粒子間の収縮速度の違いや基板・強化材の拘束によって内部応力が生じる⁴⁾。この応力の存在により、成形体中の微細な欠陥や気孔を完全に除去することは困難である。一方、粉体の加工方法を工夫することで、欠陥や不均一性を

制御することが可能である。乾式・湿式プロセスや積層造形、3D プリントでは、材料を積み重ねて複雑な形状を作りながら不均一性を調整する^{5)~7)}。さらに、フラッシュ焼結や超高速高温焼結、外場制御焼結などの技術では、焼結中の微細構造をより精密に制御できる。こうした微細構造や欠陥を観察するために、X 線 CT は強力な手段である⁸⁾⁹⁾。粒子スケールでの三次元観察により、粒子の形や接触状態 (ネックの形成、粒子の配向や回転など) を詳細に把握できる。また、気孔のネットワーク構造やオイラー標数などの新しい概念を用いることで、気孔形状の変化も記述可能である¹⁰⁾。現実の気孔ネットワークは、従来の理論¹¹⁾で想定される単純な構造とは異なり非常に複雑である。初期焼結では粒子間の接触数が増えるにつれて、さまざまな形状とサイズの気孔チャネルが形成され、中期焼結では気孔の連続的な裂断が進行する。閉気孔が消え、粒成長が進む終期焼結では、平均粒径は初期粒子径の数倍になる¹²⁾。

マクロスケールで見ると焼結体は均一に見えるが、粒子スケールでは不均一である¹³⁾。この微細構造の情報を反映させる概念として、代表体積要素 (RVE) があり、微視的な情報を含む小さな体積で材料特性を評価する¹⁴⁾¹⁵⁾。RVE のサイズは、局所的な密度のゆらぎなどから推定できる¹⁶⁾。

さらに、大きな欠陥や粗大気孔は材料の破壊に大きく影響するため、粉体成形や焼結中にこれらの欠陥がどのように変化するかを理解することが

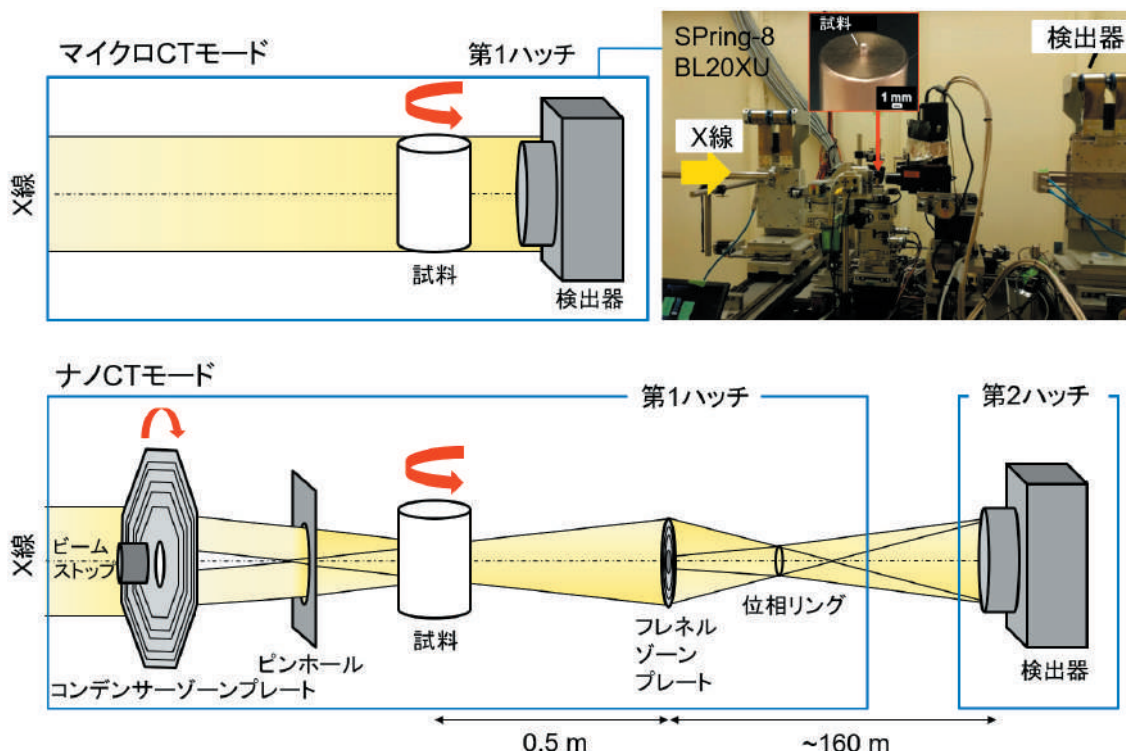


図1 大型放射光施設 SPring-8 (BL20XU) のマルチスケール X 線 CT の模式図とセットアップの写真²³⁾

重要である。例えば、乾式プレスで作られる成形体は、粉末中の凝集体により不均一である¹⁷⁾¹⁸⁾。噴霧乾燥により粒子の大きさを揃えることで、成形体の流動性を改善し、階層構造を持たせることが可能である。成形体内部では、型壁との摩擦によって圧力勾配が生じ、焼結後には大きな欠陥や気孔が残る。X 線 CT は、こうした顆粒圧縮中の形態変化¹⁹⁾、大きな気孔²⁰⁾²¹⁾、凝集体構造²²⁾、亀裂状欠陥²³⁾ など、メソスケールでの不均一構造を可視化する手段として有効である。MLCC²⁴⁾ や燃料電池²⁵⁾ の品質管理や、共焼結プロセス中の微細構造の不安定性理解にも応用されている。

最近では、広視野で低解像度のマイクロ CT と、狭視野で高解像度の位相差ナノ CT を組み合わせたマルチスケール X 線 CT が SPring-8 で開発された²⁶⁾(図 1)。このシステムにより、亀裂開口が非常に小さい欠陥も観察でき、試料全体の欠陥分布と、特定欠陥の詳細な形状の両方を非破壊で評価可能である。

本稿では、セラミックスやセラミック実用材料における不均一な微細構造、欠陥、および微小破壊の可視化事例を紹介する。

常圧焼結における不均質な気孔分布

微細原料粉末中の凝集体²²⁾

サブミクロンやナノサイズの粉末を使った焼結は、小型電子デバイスや光学・機械部品の高信頼化・長寿命化に注目されている。こうした超微細粉末は、常圧焼結や二段階焼結で細かい結晶粒を持つ緻密な材料を作るために利用される。完全に緻密化した透光性セラミックスを得るには、熱間等方圧加圧 (HIP)、ホットプレス (HP)、放電プラズマ焼結 (SPS) などの加圧焼結法が用いられる。しかし、サブミクロンやナノ粉末は非常に細かいため、粒子同士の Van der Waals 力や静電力によって凝集体 (Aggregates, Agglomerates) ができやすい。成形体に凝集体が残ると、焼結中の緻密化や粒成

長に影響し、焼結収縮のばらつきや局所的な内部応力が生じ、その結果、微小欠陥ができることがある。凝集体が周囲のマトリックスよりも収縮速度が遅いと、境界部分に欠陥が生じやすい。気孔の大きさ分布は二峰性を示し、小さな粒子内のできる多数の微小気孔と、凝集体に由来する比較的大きな気孔が共存する。大きな気孔は数は少ないが、常圧焼結では消えにくい。その理由は、熱力学的な駆動力が小さいため大きな気孔が収縮しにくいことと、速度差焼結による内部応力が作用するためである。したがって、粉末成形体における粒子充填の不均質性を評価し、制御することが、所望の微細構造を得るために重要である。

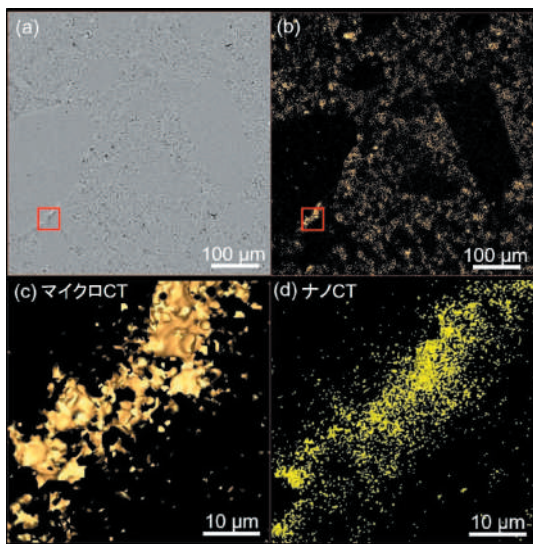


図2 終期焼結におけるアルミナのX-ray CT像。(a) 2次元単層断面図、(b) 3次元気孔分布(奥行き5 μm)、(c) (b)内赤枠の拡大図、(d) (c)のナノCT像²²⁾。

放射光X線CTを用いれば、粉末成形時にできた不均質な気孔分布が、焼結の進行に伴ってどのように変化するかを調べることができる。ここでは、アルミナサブミクロン粉末(大明化学 TM-DAR)を常圧焼結した試料の内部構造を観察した。図2に、終期焼結(常圧焼結 1300℃, 2時間保持, 相対密度 98.1%)後のX線CT像を示す。2次元断面像(a)では、X線吸収係数の違いから密度の不均一が明瞭に見える。大きな領域は、暗い境界を持つ多くの小さな領域に囲まれている。グレースケールの違いは気孔の数密度と対応している。図2(b)は気孔の3次元分布を示し(奥行き5 μm)、大きな領域内では気孔率がわずかに0.1%程度で、ごく小さな気孔しかない。一方、領域の外側では小さな欠陥が多数存在する。このように、マイクロCTはSEM像では検出できない広域での気孔分布を調べるのに有効である。図2(c)、(d)は(b)の赤枠部分の拡大像で、それぞれマイクロCT像とナノCT像である。両者を比較すると、マイクロCTでは欠陥が誇張されて見え、個々の気孔の正確な形状は表していないことがわかる。それでも、常圧焼結によって大きな凝集体内部はほぼ完全に緻密化し、無欠陥に近い構造が得られていた。

図3には気孔および欠陥の寸法分布を示す。SEM像(a)から得た気孔数と気孔径の関係は、赤い点線のように逆冪乗則で近似できた。ナノCT像(b)でも0.4~0.9 μmの範囲でSEM結果とよく一致した。ただし、1 μmを超える欠陥数はSEMより多く見積もられた。これはナノCTの分解能がSEMより低いためである。マイクロCT像(c)では、欠陥寸法分布が逆冪乗則(赤破線)と指数則

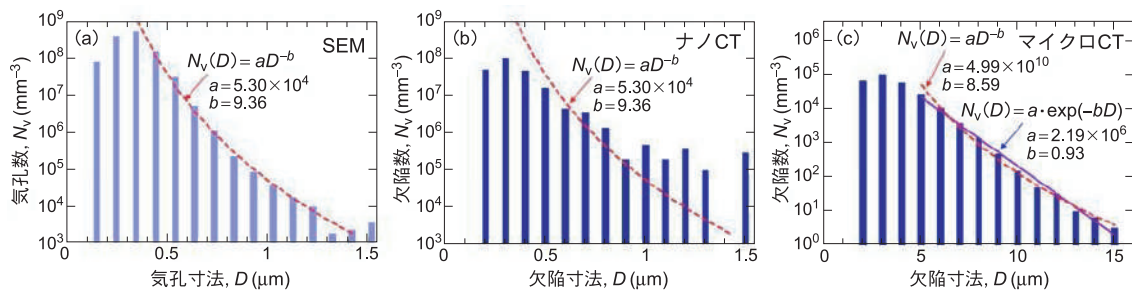


図3 気孔寸法分布。(a) SEM、(b) ナノCT、(c) マイクロCT²²⁾。

(青鎖線)の両方で近似できた。最大で $15\text{ }\mu\text{m}$ の欠陥が検出され、最大気孔 ($1.5\text{ }\mu\text{m}$) の 10 倍に達した。ただし、これは実際の単一欠陥ではなく、微細な気孔が集まったものである。SEM と放射光 X 線 CT を組み合わせることで、気孔の空間分布と寸法分布を明らかにすることができた。

図 4 にマイクロ CT で観察された最大欠陥を示す。これは凝集体境界に沿った亀裂のように見えるが、実際には微細な気孔が並んでできた亀裂状の分布であり、破壊の起点になる可能性がある。

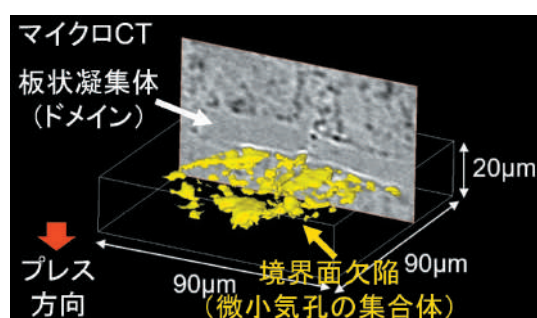


図 4 マイクロ CT で観察された凝集体と境界面欠²²⁾。

このような欠陥は、凝集体と周囲の密度差に由来する速度差焼結で形成される。また、TM-DAR 粉末に含まれる厚さ約 $10\text{ }\mu\text{m}$ の板状凝集体は、容器壁や装置表面に付着した微粉末から生成したと考えられる。

顆粒由来の欠陥構造²³⁾

図 5 に、アルミナ顆粒 (大明化学 DS31) の焼結体 (相対密度 98%) 内部の欠陥構造を示す。SEM 像 (a) ~ (e)²⁷⁾、放射光 X 線マイクロ CT 像 (f)²³⁾、および模式図 (g)²⁷⁾ である。SEM 像 (a) ~ (c) には、分岐亀裂状欠陥 (Type II)、半円形亀裂状欠陥 (Type III)、球状欠陥 (Type I) が示されている。これらの欠陥はマイクロ CT 像 (f) でも確認できる。球状欠陥 (Type I) は不規則に分布する。Type II と III は顆粒間の境界や顆粒内部の中空から形成され、破壊強度に影響を与える主要な欠陥である。亀裂開口変位は $0.6\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。一方、SEM 像 (c) で見られる球状欠陥は非常に小さく、強度にはほとんど影響しない。さらに、小さな局所的多孔領域

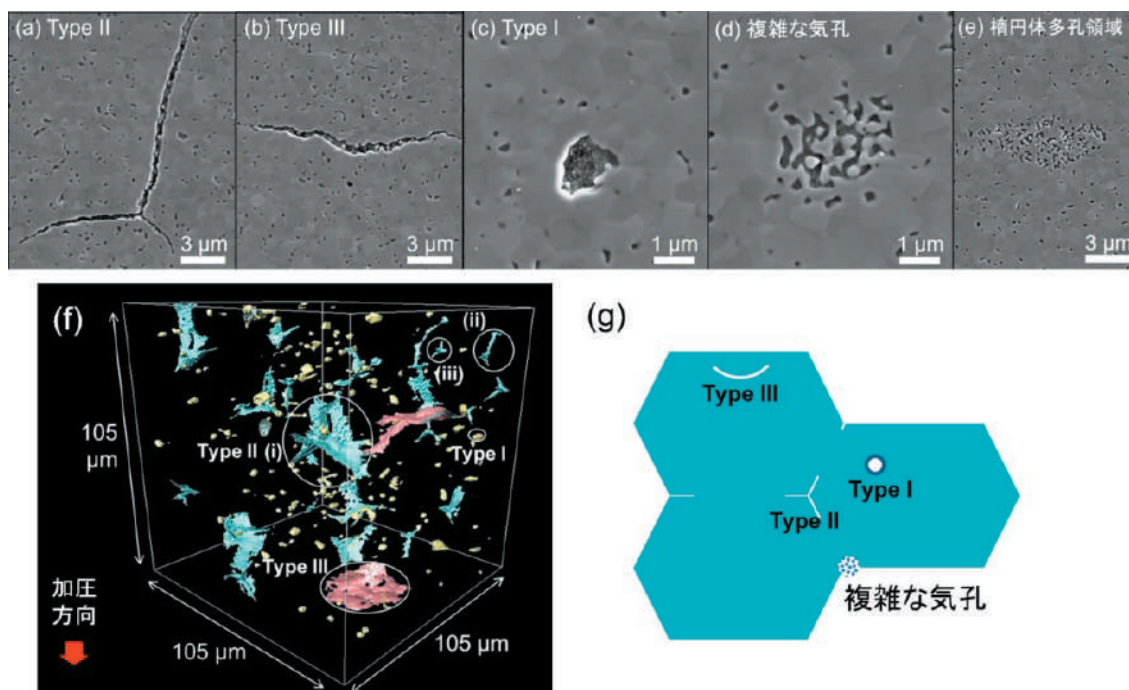


図 5 アルミナ顆粒の常圧焼結後の欠陥構造。 (a) ~ (e) SEM 像³⁰⁾、 (f) 放射光 X 線マイクロ CT 像²³⁾、 (g) 模式図²⁷⁾。

として、複雑な気孔 (d) や楕円体状の多孔領域 (e) も観察された。これらは連結した気孔群や小さな気孔の凝集体であり、複雑な気孔 (d) は粉末凝集体や顆粒充填によって生じ、楕円体状多孔領域 (e) は大きな楕円体の気孔である。マイクロ CT では分解能が十分でないため、これらは球状欠陥として検出されるが、実際には Type I のような単純な球状欠陥は少ない。これら Type I~III 欠陥および複雑な気孔の起源を模式的にまとめたのが図 (g) である。

加圧焼結中の欠陥構造の消失過程の観察

理論的には、小さな空隙や欠陥は焼結の過程で収縮するが、成形段階で生じた大きな欠陥を常圧焼結で除去することは困難である。一方、ホットプレス (HP) や放電プラズマ焼結 (SPS) といった加圧焼結では、比較的低温で緻密かつ微細な組織をもつ高強度・高信頼性のセラミックスを得ることができる。さらに、内部欠陥を取り除くことで透明セラミックスの作製も可能となる。ただし、加圧焼結では高い圧力が必要であり、製造できる部材は比較的小型かつ単純形状に限られるという制約がある。そのため、加圧焼結においては、大型

部材の製造を目指して、より低圧でも欠陥を効果的に除去できる仕組みを理解することが重要である。

本項では、前項で用いたアルミナ顆粒 (大明化学 DS31) を対象に、SPS 中に気孔や欠陥がどのように変化・消失するかを観察した。成形段階で冷間等方圧加圧 (CIP, ~ 200 MPa) を行うと顆粒は完全に潰れて変形する (図 5 (g))。一方、SPS 前はカーボン型に粉末を入れ、低荷重で一軸加圧するだけなので、顆粒充填構造には三重線に沿った三角形の隙間が残る (図 6 (a))。SPS を 30 MPa で行くと、常圧焼結で観察された亀裂状欠陥 (Type II, Type III) は完全に消失したが、代わりにロッド状の欠陥が出現した (図 6 (b))。SEM による断面観察では、このロッド状欠陥は円形ではなく三角形状であった。さらに圧力を 50 MPa に高めると、ロッド状欠陥は裂断し消滅した。ただし、マイクロ CT では依然として球状欠陥として検出される複雑な欠陥や楕円体多孔領域が残った。これらの形態はナノ CT により詳細な三次元構造を確認することができた (図 6 (c), (d))。一部の楕円体多孔領域は周囲から隙間で囲まれていた (図 6 (d))。このような多孔領域は、加圧方向に対して垂直な面内に位置

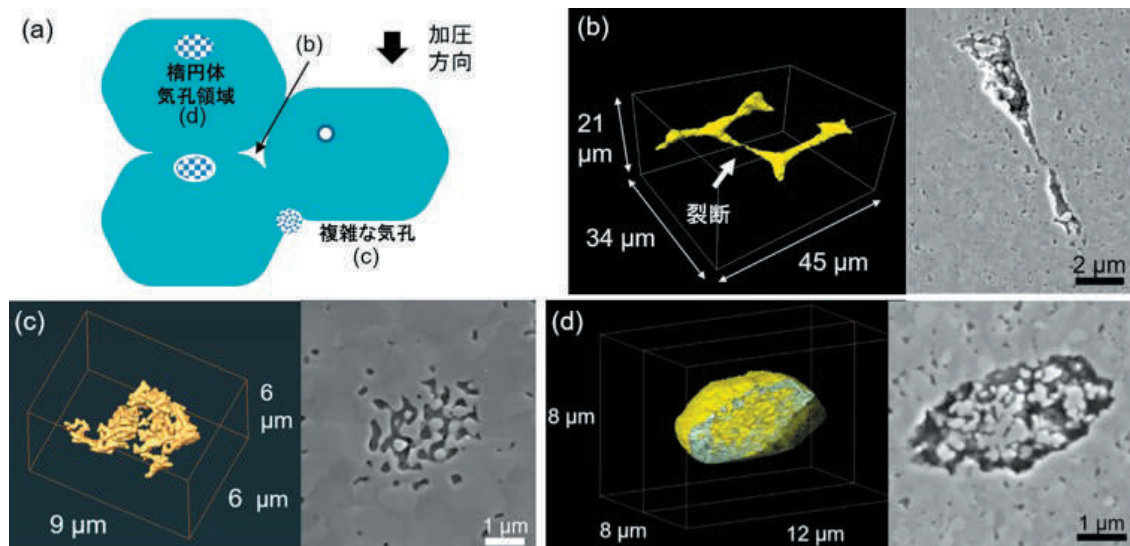


図6 (a) 低加圧 30 MPa 負荷後の顆粒の充填構造の模式図。SPS 30 MPa 後の (b) ロッド状欠陥のマイクロ CT と SEM 像、SPS 50 MPa 後の (c) 複雑な気孔と (d) 楕円体多孔領域のナノ CT と SEM 像²⁷⁾。

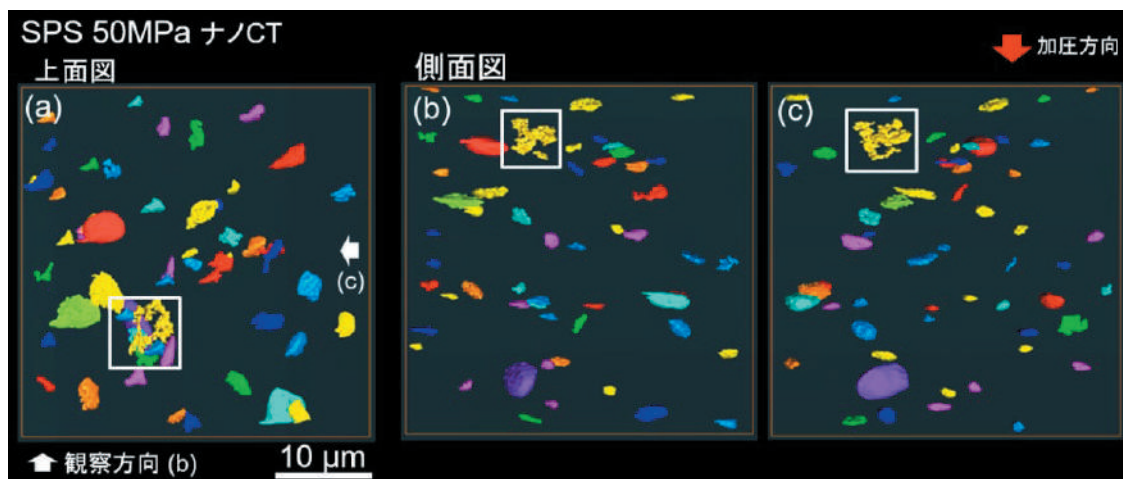


図7 SPS 50 MPa 後の欠陥のナノCT像。(a) 上面図, (b), (c) 側面図 (a) 中の矢印は観察方向²⁷⁾。

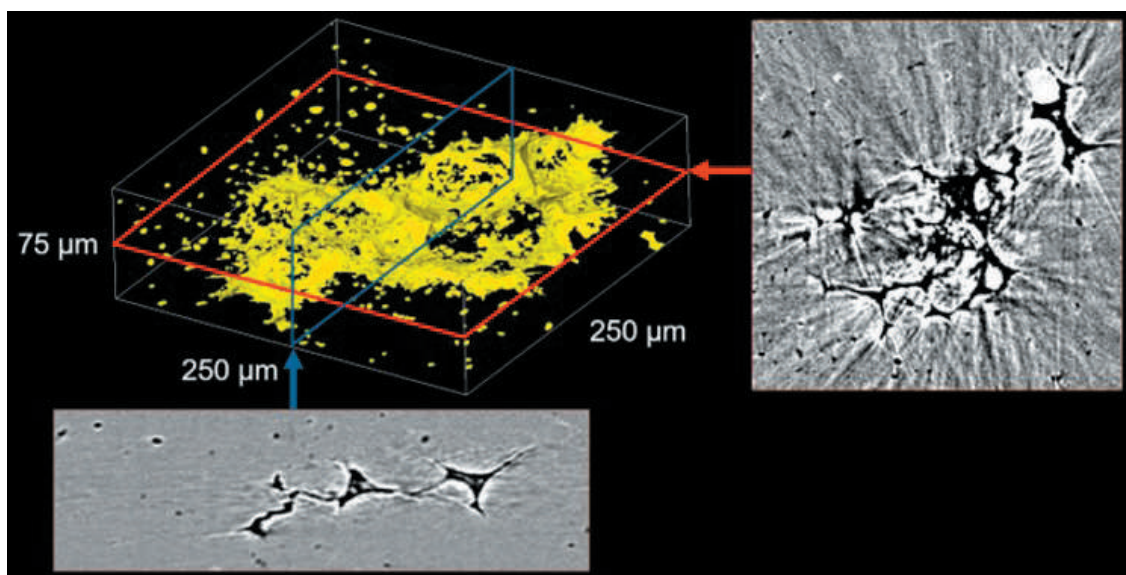


図8 SPS 50 MPa 後に見られた超粗大欠陥²⁷⁾。

し、圧縮された顆粒の窪みから形成されたと考えられる(図6(a))。また、原料粉末中の凝集体が起源である可能性もある。こうした多孔領域はSPSの緻密化過程で異方的に変形する。複雑な気孔の連結構造も図7の白枠部分で確認された。SPS 50 MPa後も複雑な気孔や楕円体多孔領域は残留したが、それらは非常に小さいため破壊に直結する欠陥になる可能性は低い。

破壊強度を予測するためには、試料全体の中で

最大の欠陥を検出することが重要であり、マイクロCTはそのために有効な手法である。実際、SPS 50 MPa後の試料から100 μm を超える粗大欠陥が確認された(図8)。単層断面像では、顆粒間の隙間が互いにつながった構造として観察され、50 MPa 負荷後でもその形状が残っていた。このような粗大欠陥は極めて稀であり、SPS 30 MPa 後の試料では確認されなかった。このことから、粗大欠陥は初期の緩い顆粒充填によって形成されると

考えられる。Cottrino ら¹⁹⁾の報告によれば、緩い充填構造では顆粒径の数倍に及ぶ大きな隙間が生じうる。したがって、中程度の圧力でSPSを行うと、こうした大きな隙間は押し潰されて平たくはなるものの、依然として大きな欠陥として残ってしまうと考えられる。実際に、このような大欠陥をSPSで完全に除去するには、100 MPa以上の一軸加圧が必要であるとされている。

実用的な材料への放射光 X 線 CT の適用事例

積層セラミックスコンデンサの電極形成プロセス観察²⁴⁾

積層セラミックコンデンサ (MLCC) は、ニッケル (Ni) の電極層とチタン酸バリウム (BaTiO_3) の誘電体層が交互に積層された構造を有する。図9には、ナノCTで観察したNi電極上面の多孔構造を示す。Ni電極は、細い連結部から成るネットワーク構造 (紫色) を示し、背景の黒色部分は電極の不連続部に対応する。X線CTで求めた電極の不連続部の割合 (100%-被覆率) は、断面SEM像から得られた結果とよく一致した。不連続部や孤立した島状領域は、有効電極面積を減少させるため、理想的な平行平板電極と比較して静電容量の低下を引き起こす。さらに、図9からは焼結温度の上昇に伴い電極構造が粗大化の様子が確認される。電極構造の変化を定量化するため、以下の3つの特性長さを定義した。(1) SEM像から得ら

れる不連続部の平均長さ、(2) 平均切片長さ、(3) 比表面積 (S_V) の逆数 $1/S_V$ である。焼結温度が高くなると、(1) および (2) の値は増加し、不連続部の成長が構造の粗大化と関連していることが明らかになった。電極形状の変化は、表面拡散や電極/誘電体界面に沿った拡散によって進行し、表面および界面の面積を減少させる方向に進む²⁸⁾。この駆動力は表面張力と曲率勾配であり、細い棒状の連結部は表面拡散に起因するレイリー不安定性によって分断される。一方、内部応力も重要である。内部応力は高ひずみエネルギーを有する部分を優先的に成長・収縮させ、構造の再配列を引き起こすことで弾性エネルギーを低減させると考えられる²⁹⁾。

MLCCの共焼結過程では、電極層と誘電体層の収縮速度差によって内部応力が発生する。この応力勾配に沿って電極の薄い部分から厚い部分へと拡散が進行し、表面粗さや不連続部の増加を引き起こす。ナノポーラス金属では、表面拡散に起因する粗大化によって比表面積が減少し、 $1/S_V$ が増加することが知られている³⁰⁾。しかし、MLCC電極では $1/S_V$ の顕著な増加は観察されず、粗大化だけでなく内部応力の寄与が大きいことが示唆された。

電極層の厚みがサブミクロンオーダーに小さくなると、不連続部の形成が顕著となる。これは、Ni粒子の初期充填構造に不均一性が存在し、層厚さ/粒子径比が小さいほどその影響が強くなるためである。粒子スケールの不均質を連続体として

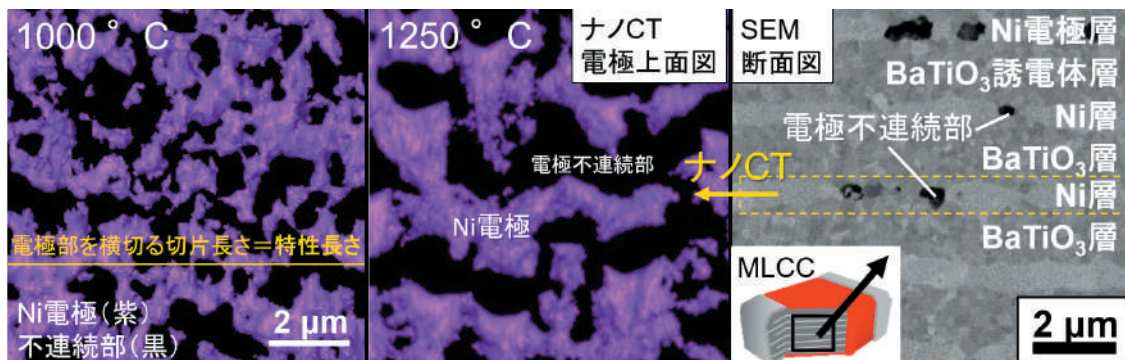


図9 SPS 50 MPa 後に見られた超粗大欠陥²⁴⁾。

扱うためには、対象領域のサイズが代表体積要素 (RVE) より十分に大きい必要がある。X 線 CT による球状粒子充填構造解析によれば、RVE の大きさは粒子径の 11~17 倍程度とされる¹⁶⁾。層厚さが RVE より小さい場合、構造のばらつきが著しく増大し、これが不連続部形成の主因になると考えられる。

ビッカースインデンテーション誘起のガラスセラミックス表面下亀裂形態の観察³¹⁾

X 線 CT を用いて、不均質な微細構造を有するガラスセラミックスの一種である結晶化ガラスのビッカース圧痕下に生じる亀裂の形態を詳細に調べた。結晶化ガラスは、ガラス中に結晶を析出させることで形成される複合材料であり、析出結晶の種類や組織によって力学的・熱的特性が決まる。そのため、通常のガラスでは得られない優れた性質を示し、特に耐熱性や機械的強度の向上が期待できる材料である。図 10 には、9.8 N の荷重で圧

痕を与えた試料の内部亀裂構造を示す。マイクロ CT 観察 (図 10 (a)) によって、圧痕直下に広がる複雑な亀裂網全体の様子が可視化された。

図 10 (b) は (a) の赤枠領域をナノ CT で拡大観察した結果である。結晶化ガラス特有の「ハウスカード構造」³²⁾に由来する粗い表面が確認され、ラジアルクラックが曲線的に進展する様子や、ラテラルクラックが結晶相とガラス母相を貫通しつつ偏向する様子が鮮明に捉えられた。また、表面直下に現れるメジアンクラックは扁平な形状をしていた。このような亀裂の偏向や曲がり、亀裂の種類、破壊モード、および局所応力場の影響を強く受けていると考えられる。

Fu と Evans³³⁾ は、不均質ガラスセラミックスの靱性向上の要因としてマイクロクラック形成を提案している。しかし、ナノ CT 観察の結果、メジアンクラック周辺には顕著なマイクロクラックは確認されなかった。したがって、本研究で対象とした結晶化ガラスの高靱性は、マイクロクラック

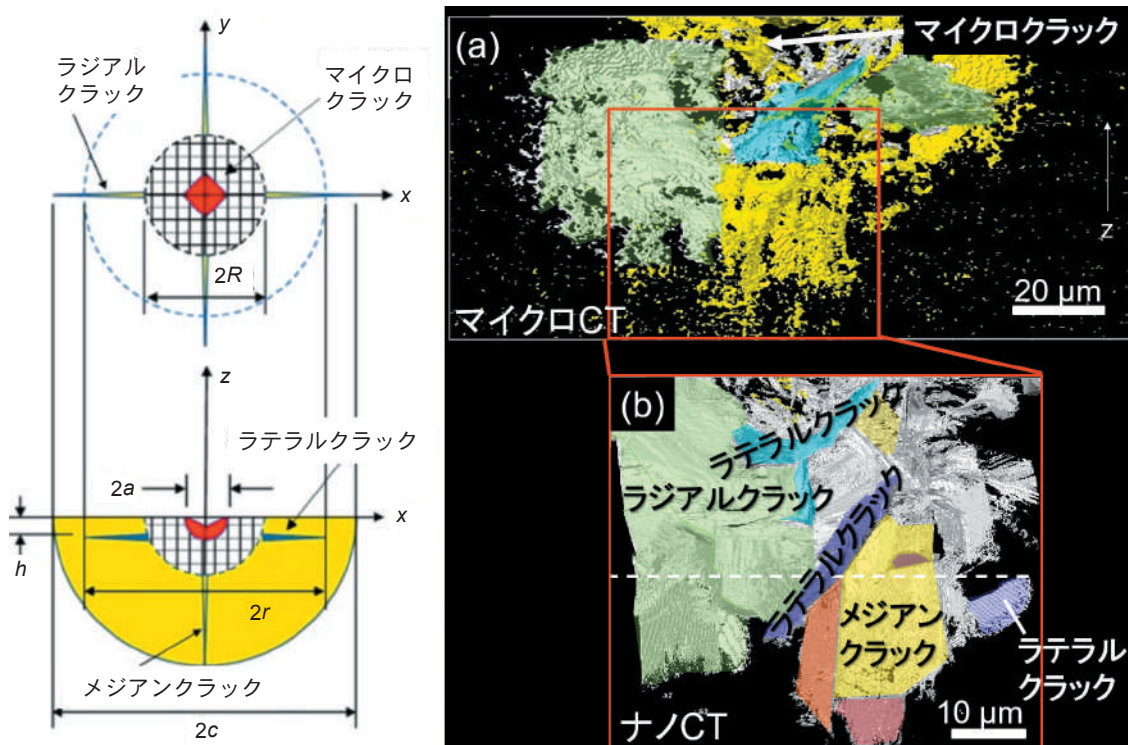


図 10 SPS 50 MPa 後に見られた超粗大欠陥³¹⁾。

強化によるものではなく、むしろ亀裂の偏向や曲がりによる進展抑制効果によって説明できると考えられる。

おわりに

本研究では、放射光 X 線 CT を用いて、アルミナサブミクロン粉末 (TM-DAR) および顆粒を常圧焼結した際に形成される残留気孔の分布を調べた。サブミクロン粉末成形体は、複数の凝集体 (ドメイン) からなり、その境界には低密度の領域が存在していた。焼結前の初期充填構造では、比較的均質な粉末の塊が壊れて不規則な形状の小さな凝集体が生じていた。焼結後には、大きな凝集体は緻密化していたが、境界部分には微細気孔を含む多孔質領域が残っていた。気孔の大きさは最大で $2\text{ }\mu\text{m}$ 程度であり、その分布は逆べき乗則に従っていた。また、マイクロ CT 観察では、板状凝集体の界面に沿って亀裂状欠陥が形成されていることが確認された。顆粒を用いた場合でも、顆粒間の隙間や内部のくぼみが原因で、大きな亀裂欠陥が焼結後に残っていた。このように、常圧焼結では成形時にできた粗大欠陥を除去することは困難である。

そこで、加圧焼結の一種である放電プラズマ焼結 (SPS) を利用して欠陥の変化を調べた。SPS を 30 MPa で行くと、常圧焼結後に残っていた亀裂欠陥は消失したが、代わりにロッド状の欠陥が現れた。さらに 50 MPa では、そのロッド状欠陥も消失したが、依然として小さな複雑な欠陥や楕円状の多孔質領域が残っていた。ただし、これらは非常に微小であり、破壊への影響はほとんどないと考えられる。一方で、 $100\text{ }\mu\text{m}$ を超える粗大欠陥がまれに検出され、これらは初期の顆粒充填時にできた大きな隙間が原因であった。その完全な除去には、 100 MPa 以上の高い加圧が必要であることが示唆された。

さらに、放射光 X 線マルチスケール CT の応用例として、積層セラミックコンデンサー (MLCC) の電極構造解析や、結晶化ガラスにおけるピッカーズ圧痕直下の亀裂観察を紹介した。MLCC は

多層構造を持つ複合材料であり、内部応力が生じやすいという特徴がある。また、ガラスセラミックスのような材料では、表面下の亀裂の形態は通常の表面観察だけでは把握できない。したがって、放射光 X 線マルチスケール CT は、ガラスセラミックスをはじめとする不均質な構造を有する強靱化材料の亀裂解析に有効である。

今後は、本研究で示した手法をさらに発展させ、複合材料の信頼性評価に応用することで、超高信頼性セラミックスの開発につながるプロセス・組織・特性の予測システムの構築を目指す。

参考文献

- 1) R. K. Bordia, S.-J. L. Kang and E. A. Olevsky: J. Am. Ceram. Soc., **100** (2017), 2314-2352.
- 2) A. G. Evans: J. Am. Ceram. Soc., **65** (1982), 127-137.
- 3) H. Kishi, Y. Mizuno and H. Chazono: Jpn. J. Appl. Phys., **42** (2003), 1-15.
- 4) D. J. Green, O. Guillon and J. Rödel: J. Eur. Ceram. Soc., **28** (2008), 1451-1466.
- 5) F. F. Lange: J. Am. Ceram. Soc., **72** (1989), 3-15.
- 6) W. M. Sigmund, N. S. Bell and L. Bergström: J. Am. Ceram. Soc., **83** (2000), 1557-1574.
- 7) A. Krell, P. Blank, H. Ma, T. Hotzler and M. Nebelung: J. Am. Ceram. Soc., **86** (2003), 546-553.
- 8) H. Toda: X-ray CT-Hardware and Software Techniques, Springer, (2021).
- 9) P. J. Withers, C. Bouman, S. Carmignato, V. Cnudde, D. Grimaldi, C. K. Hagen, E. Maire, M. Manley, A. du Plessis and S. R. Stock: Nat. Rev. Methods Primers, **1** (2021), 18.
- 10) G. Okuma, D. Kadowaki, T. Hondo, S. Tanaka and F. Wakai: Sci. Rep., **7** (2017), 11106.
- 11) R. L. Coble: J. Appl. Phys., **32** (1961), 787-792.
- 12) J. Kanters, U. Eisele and J. Rödel: Acta Mater., **48** (2000), 1239-1246.
- 13) R. K. Bordia and G. W. Scherer: Acta Metall. Mater., **36** (1988), 2393-2397.
- 14) S. Bargmann, B. Klusemann, J. Markmann, J. E. Schnabel, K. Schneider, C. Soyarslan and J. Wilmers: Prog. Mater. Sci., **96** (2018), 322-384.
- 15) Z. Hashin: J. Appl. Mech., **50** (1983), 481-505.
- 16) G. Okuma, D. Kadowaki, Y. Shinoda, T. Akatsu, O. Guillon and F. Wakai: J. Ceram. Soc. Jpn., **124** (2016), 421-425.

- 17) W. H. Rhodes: J. Am. Ceram. Soc., **64** (1981), 19-22.
- 18) M. Kitayama and J. A. Pask: J. Am. Ceram. Soc., **79** (1996), 2003-2011.
- 19) S. Cottrino, Y. Jorand, E. Maire and J. Adrien: Mater. Charact., **81** (2013), 111-123.
- 20) T. Hondo, Z. Kato, K. Yasuda, F. Wakai and S. Tanaka: Adv. Powder Technol., **27** (2016), 1006-1012.
- 21) S. Ozaki, K. Yamagata, C. Ito, T. Kohata and T. Osada: J. Am. Ceram. Soc., **105** (2022), 2182-2195.
- 22) G. Okuma, T. Osada, H. Minagawa, Y. Arai, R. Inoue, H. Kakisawa, K. Shimoda, A. Takeuchi, M. Uesugi, S. Tanaka and F. Wakai: J. Eur. Ceram. Soc., **43** (2023), 486-492.
- 23) G. Okuma, S. Watanabe, K. Shinobe, N. Nishiyama, A. Takeuchi, K. Uesugi, S. Tanaka and F. Wakai: Sci. Rep., **9** (2019), 11595.
- 24) G. Okuma, N. Saito, K. Mizuno, Y. Iwazaki, H. Kishi, A. Takeuchi, M. Uesugi, K. Uesugi and F. Wakai: Acta Mater., **206** (2021), 116605.
- 25) M. Kodama, A. Ohashi, H. Adachi, T. Miyuki, A. Takeuchi, M. Yasutake, K. Uesugi, T. Kaburagi and S. Hirai: J. Power Sources Adv., **8** (2021), 100048.
- 26) A. Takeuchi, K. Uesugi, M. Uesugi and F. Yoshinaka: Microsc. Microanal., **24** (2018), 106-107.
- 27) G. Okuma, M. Endo, H. Minagawa, R. Inoue, H. Kakisawa, T. Kohata, T. Osada, T. Yamamoto, M. Azuma, A. Takeuchi, M. Uesugi, O. Guillon and F. Wakai: Adv. Eng. Mater., **25** (2023), 2201534.
- 28) N. Sridhar, J. M. Rickman and D. J. Srolovitz: Acta Mater., **45** (1997), 2715-2733.
- 29) A. V. Polotai, G.-Y. Yang, E. C. Dickey and C. A. Randall: J. Am. Ceram. Soc., **90** (2007), 3811-3817.
- 30) Y. K. Chen-Wiegart, S. Wang, Y. S. Chu, W. Liu, I. McNulty, P. W. Voorhees and D. C. Dunand: Acta Mater., **60** (2012), 4972-4981.
- 31) G. Okuma, K. Maeda, S. Yoshida, A. Takeuchi and F. Wakai: Sci. Rep., **12** (2022), 6994.
- 32) K. Maeda and A. Yasumori: Mater. Lett., **180** (2016), 231-234.
- 33) Y. Fu and A. G. Evans: Acta Metall., **30** (1982), 1619-1625.

おおくま・がく OKUMA Gaku

2018 東京工業大学物質理工学院材料系材料コース早期修了。博士(工学)。東京工業大学科学技術創成研究院フロンティア材料研究所特任助教を経て、物質・材料研究機構 構造材料研究センターセラミックス基複合材料グループ主任研究員、現在に至る。