繰返し熱衝撃による TiN セラミックス皮膜の損傷評価*

(第1報, ウェーブレット変換と AE の特徴量の適用)

宅間 正則^{*1}, 新家 昇^{*1}, 宮島 弘光^{*2}, 河合成 樹^{*3}Evaluation on Thermal Shock Damage of TiN Ceramics Film
by Repeated Laser Irradiation

(1st Report, Application of Wavelet Transform and AE Features)

Masanori TAKUMA, Noboru SHINKE, Hiromitsu MIYAJIMA and Seiki KAWAI

Structural ceramics are attracting attention in the development of space ships, aircraft and nuclear fusion reactors because they have excellent heat-resistant characteristics. Therefore, various structural ceramics have been developed as heat-resistant materials. Especially, ceramics coating materials are widely used because the materials have the characteristics of both the base materials and the coating materials. However, the ceramics are damaged easily by the thermal stress result from the thermal shock. Therefore, it is necessary to understand their thermal shock properties and to investigate their thermal shock characteristics. In this report, it is discussed to evaluate the cyclic fatigue damage (i. e. crack initiation, crack growth and fracture) for TiN ceramic film during the repeated thermal shock tests. Concurrently with the repeated shocks that irradiated the coating surface with YAG laser, acoustic emission (AE) monitoring was carried out to detect the onset of the thermal shock damage, and the surface appearance was assessed by optical microscope observations. Wavelet Transform (WT) was applied for distinguishing the signals on damage of TiN from a signal on thermal shock in the first 5 msec of the detected signals. After this processing, the features of the AE signals on the damage of TiN film were analyzed. As the results, it was found that the fatigue damage during the thermal shock tests were evaluated by monitoring the 3-D data which represented the relationship between the slope of amplitude distribution of AE signal, AE events and the number of the repeated thermal shock.

Key Words: Acoustic Emission, Ceramics, Thermal Shock, Damage, Fracture, Film, Laser, Wavelet Transform

1. 緒 言

セラミックスなどの耐熱・耐熱衝撃材の研究・開発が、宇宙輸送機や核融合炉などの分野を中心に進められている⁽¹⁾。しかし、セラミックスのみで耐熱性と他の多くの要求機能を満たすのは、非常に困難である。一方、耐熱材を被覆したコーティング材料は、皮膜材と母材の双方の特性を併せ持つことができるので、各種プラントの構造部材として広く用いられている。しかし、急激な温度変化による熱応力によって皮膜が破壊しやすいために⁽²⁾、熱衝撃による皮膜の損傷状態を詳細かつ迅速に把握できる評価法の確立が重要な課題となっている⁽¹⁾⁽³⁾。このようなことから、セラミックスの微視的破壊挙動を把握するための手段として、AE(Acoustic Emission)法が用いられ、その有効性に関する報告が多数なされている⁽⁴⁾⁽⁵⁾。

そこで本研究では、PVD法で生成されたTiN皮膜に対して、YAGレーザによる熱衝撃疲労試験を行った。そして、このときに検出されたAE信号のウェーブレット変換の結果とAE信号の特徴量を用いて、皮

膜の損傷状態を把握・評価することについて検討した結果を報告する。

2. ウェーブレット及びウェーブレット変換

細波状の関数を基本パターンとするウェーブレット変換(Wavelet Transform: WT)は、周波数スペクトルの時間依存性を持たないフーリエ変換(FT)と異なり、時間と周波数を同時に扱うことができる⁽⁶⁾⁽⁷⁾。本研究では、この基本パターン(以下、Mother wavelet)として、時刻0で周波数 ω_0 の関数となる次式の Gabor wavelet を用いることにした。

$$\Psi(x) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\frac{\omega_0}{\gamma}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\omega_0 t}{\gamma}\right)^2\right] \exp(i\omega_0 t) \quad (1)$$

ここで、 γ と ω_0 は任意定数である。

図1はWTの基本概念を示したもので、Mother waveletを時間方向に b 移動すれば、時間 b 近傍で周波数 ω_0 となるWaveletが作成され、時間方向に a 倍に拡大すれば、時刻0で周波数 ω_0/a となるWaveletができる。よって、 b と a を変化させれば、時刻 b で周波数 ω_0/a の任意のWaveletを作成でき、作成した種々のWaveletを重ね合わせれば、任意の関数表現が可能となる。よって、任意の関数はMother waveletを移動・伸縮させたWaveletの成分に分解できる。

* 原稿受付 1998年6月17日。

^{*1} 正員、関西大学工学部(☎564-8680 吹田市山手町3-3-35)。^{*2} 関西大学大学院。^{*3} (株)化繊ノズル(☎715-0006 井原市西江原町1749-1)。

Fig.1 Expansion, compression and shift of mother wavelet

Fig.2 Dimensions of specimen

関数 $f(x)$ の Mother wavelet $\Psi(x)$ による WT は、次のように定義される。

$$(W_{\Psi} f)(a, b) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{|a|}} \overline{\Psi\left(\frac{x-a}{a}\right)} f(x) dx \quad (2)$$

ここで、 $a > 0$ で、 $\overline{\Psi(t)}$ は $\Psi(t)$ の複素共役を表す。つまり、 $\Psi((x-b)/a)$ が解析する信号 $f(x)$ に似ていれば『波立ち』が生じ、その激しさが信号の振幅に対応する。一方、似ていなければ、上式の値が小さくなって『波立ち』は生じない⁽⁸⁾。また、関数 $\Psi((t-b)/a)$ は $1/a$ に比例して幅が狭くなるので、角速度 ω/a が高いほど時間の分解能が高くなる。このことは、信号中の急峻な変動を抽出するのに適している。

倪らは⁽⁹⁾、FRP の AE 信号中に包括されている 2 種類の破壊形態を WT で明確に判断できると報告している。このことから、熱衝撃疲労試験中の AE 信号に混在していると推察される熱衝撃と皮膜損傷に関する信号を区別するのに、WT は有効な手段であると考えられる。

3. 実験装置および実験方法

図 2 は、TiN を SUS304 基板上に PVD 法でコーティングした試験片形状を示したものである (N_2 分圧: 1×10^{-3} Torr = 0.133 Pa)。なお、一様な品質を得るために、蒸着前の基板表面はダイヤモンドラッピングで超鏡面仕上げされたのち、 Ar^+ イオン洗浄が施された。

熱衝撃を模擬する試験法として液中急冷法が行われてきたが、いくつかの問題点が指摘されるようになってきた⁽¹⁰⁾、レーザによる熱衝撃試験が行われるようになってきた⁽³⁾⁽¹¹⁾。このようなことから、Nd-YAG レーザ(日本電気(株):M802AH)による熱衝撃を表 1 に示

Fig.3 System construction

Table 1 Experimental conditions

Lamp voltage (Volt)	365	Beam diameter (mm)	2
Pulse width (msec)	1	Repetition rate (Pulse/sec)	1

す照射条件(レーザエネルギー:2.1J)で皮膜に繰返し与えた。そして、試験中の AE 信号を、広帯域型 AE センサ(NF 回路設計ブロック(株):AE-900-WB)、プリアンプ(PAC(株):1220A)、ディジタル化ボード(PAC(株):AEDSP-32/16)、計算機からなる図 3 の実験装置を用いて、サンプリング周波数 4 MHz で収集した。

4. 皮膜の損傷と AE 信号

図 4 は、照射回数 10 と 60 のときに検出された AE 信号と皮膜の損傷状態を示した一例である。なお、光学顕微鏡による 200 倍の写真は 50 倍の矢印の箇所を拡大したものである。同図(a)では 0 ~ 5msec (A 部) と 7.5msec 付近に、同図(b)では至る所で AE 信号が認められる。ここで、7.5msec 付近の信号は照射回数 10 まで検出されなかったが、A 部の信号は照射回数 1 から常に検出されていた。図 4 に示した AE 信号と皮膜の損傷状態より、

- (1) A 部の信号はレーザの照射と同時に検知され、5msec 以降の事象に比べて信号レベルが異なっている。よって、レーザによる熱衝撃波であると推察されるが、加熱直後の冷却過程での皮膜損傷に伴う情報も含まれている可能性がある。
- (2) 照射回数 10 では、皮膜の表面に『うねりとクラック』が確認された。これは、表面温度が TiN の融点にまで達して溶融し、その後の冷却過程での再凝固の際にうねりが生じ、これが繰り返されてクラックが生じたものと推察される。
- (3) 照射回数の増加とともに、レーザビーム径の中心から円形状に損傷領域が拡大し、周辺には同心円状と半径方向のクラックが多数確認された。これは、『加熱サイクルでの変形→冷却サイクルでの残留応力の発生→クラック発生→クラック進展→皮膜の脱落』という一連の過程⁽¹²⁾が繰り返されたためだと

Fig.4 Examples of photomicrograph of surface appearance and detected signal

推察される。そして、これに対応するかのように多数の AE 信号が検出されている。

ということがわかる。よって、④部の信号には、皮膜の損傷に関する情報が含まれている可能性がある。そこで、熱衝撃と皮膜損傷に関する信号の区別を、時間-周波数解析が可能な WT で検討したのち、5msec 以降の信号も考慮した AE 信号の特徴量(事象数, エネルギー, 振幅分布など)を用いて、皮膜の損傷状態を把握・評価することについて検討した。

5. AE 信号の解析結果

5.1 WT の結果 図 5 は、図 4 の④部の信号に対する FFT と WT(3 次元と等高線図)の結果を示したものである。FFT 解析から、150 ~ 450kHz 付近にピークが認められ、照射回数の増加とともにパワースペクトルが小さくなっていることがわかる。しかし、混在していると推察される熱衝撃と皮膜損傷に関する信号を区別するのは困難である。一方、WT の結果から、

(1)変換後の最大値が 0 ~ 1msec 間に存在し、照射回数とともに減少する傾向がある。

(2)照射回数 60 では、レーザー照射終了直後(1msec)に 130 ~ 350kHz 付近の周波数成分を持つ Wavelet が認められる。

ということがわかる。なお、1msec までの信号に対する WT の結果が照射回数とともに減少するのは、皮膜の『うねりや欠損(図 4 の顕微鏡写真参照)』によっ

て、レーザーの吸収に違いが現れたものと推察される。また、照射終了直後に現れる Wavelet は照射回数 200 付近まで検出されたが、ビーム径内の皮膜がほぼ無くなる 210 回付近で検出されなくなった。

以上のことから、皮膜の損傷に関する AE 信号は、レーザー照射直後の冷却過程で生じているといえる。また、熱衝撃による Al_2O_3 の表面に生じるクラックは、溶融後の再凝固での凝固割れが主因であると報告されていることから⁽³⁾、1msec 以降の AE 信号は TiN が再凝固する際の凝固割れだと推察される。

5.2 AE 信号の特徴 前節で示した WT の結果に基づいて、熱衝撃信号を除去した AE 信号の特徴量と皮膜の損傷状態との関係を調べることにした。図 6 と図 7 は、レーザー照射回数に対する AE の事象数とエネルギーとの関係を示したものである。このような挙動を示す理由を、図 8 に示した皮膜の損傷状態から推察すると、次のようになる。

(a)事象数は、照射回数 160 付近まで増加して減少する。これは、160 回付近まではクラックの発生・成長と皮膜の脱落によって損傷領域が拡大するため、それ以降は AE の発生源である皮膜がレーザービーム径内に無くなってきたためだと推察される。

(b)照射回数 40 と 130 付近にエネルギーのピークが認められ、130 回以降は減少する。照射回数 40 付近のピークは、発生・成長したクラックの合体による小規模な皮膜の脱落による円形状の損傷領域の進展

Fig.5 FFT analysis and wavelet coefficient of AE signal

Fig.6 Relationship between AE events and number of repeated thermal shock

Fig.7 Relationship between AE energy and number of repeated thermal shock

と同心円状のクラックの発生に起因していると考えられる。一方、130回付近のピークは損傷領域の拡大に依存しており、主に損傷部周辺に発生した同心円状および半径方向のクラックの合体による大規模な皮膜の脱落によるものと推察される。

なお、最大振幅電圧と持続時間は、AEエネルギーと同

Fig.8 Examples of photomicrograph of damage by thermal shock

Fig.9 Examples of slope of amplitude distribution

様の挙動を示した。

以上の特徴量は、AE 事象の頻度や規模に関する情報を含んでいるが、測定環境に影響されやすい。そこで、しきい値電圧を超える波の計数から導かれる振幅分布の傾きの絶対値 m に着目した。この値は計測条件に影響されず、材料の変質や劣化に敏感に反応するので、破壊の進展と AE の発生要因の識別や現象の特性化が可能となる⁽¹³⁾。

図 9 は、振幅分布の傾きを示した一例である。このように、照射回数毎に検出された信号中の各事象に対する振幅分布の傾きの分布状態(Event 数)を調べ、これが皮膜の損傷状態を把握・評価する際の有効な情報となり得るかを検討することにした。

図 10 は、振幅分布の傾きの分布状態を 3 次元図と等高線図で示したものである。同図から、照射回数 30 付近までは、振幅分布の傾きが 4～5 の範囲に分布していることがわかる。これは、熱衝撃による小規模な損傷形態(クラックの発生・成長)によるものと推察される。一方、レーザビーム径の中心付近から同心円状に損傷が進展する照射回数 40 付近からは、傾き 2～3 の事象が増え、照射回数の増加に伴って 2 付近に収斂していることがわかる。これは、クラックの合体による皮膜の脱落に関する事象がクラックの発生・成長に関する事象($m=4\sim5$)よりも多く発生するからである。そして、損傷領域がビーム径に近づく照射回数 160 付近以降からは、事象数が減少し始め、ビーム径内の皮膜がほぼ無くなる 200 回付近から激減していることがわかる。

Fig.10 Relationship between slope of amplitude distribution, AE events and number of repeated thermal shock

以上のことから、照射回数毎に検出される各 AE 事象の振幅分布の傾きの分布状態によって、皮膜の損傷状態を把握・評価できることがわかった。今後、レーザ照射中(1msec まで)の信号に皮膜の損傷に関する情報(AE 信号)が含まれているかを詳しく解析するとともに、損傷状態を AE 信号で定量的に評価するための方法を検討する予定である。

6. 結 言

PVD 法で生成された TiN 皮膜に対して、YAG レーザによる熱衝撃疲労試験を行い、試験中に検出された AE 信号の解析結果と皮膜の損傷状態から、以下のことが明らかとなった。

- (1) WT によって、レーザ照射直後の信号に含まれている熱衝撃と皮膜損傷に関する AE 信号を区別することができた。
- (2) クラックの発生・成長時は、振幅分布の傾きが 3～5 前後を示す事象が多く発生する。
- (3) 皮膜の脱落時は、振幅分布の傾きが 2～3 付近を示す事象が多く発生するようになり、最終的に 2 付近に収斂する。

(4) 照射回数毎に検出された各 AE 事象の振幅分布の傾きの分布状態によって、皮膜の損傷状態を把握・評価することができる。

最後に、データ収集と解析に携わった本学大学院生・松本雅次君〔現：大日本印刷㈱〕に感謝の意を表す。

参 考 文 献

- (1) 三好良夫, 小倉敬二, 木田勝之: TiC 被覆膜および TiN 被覆膜の転がり疲労損傷, 材料, **46**-1 (1997), 77.
- (2) 佐久間俊雄, 岩田宇一: セラミックスの熱衝撃疲労特性の評価法, 電力中央研究所報告, T93070 (1994), 1-22.
- (3) 森田 昇: セラミックスのレーザ熱衝撃による亀裂の生成・伝播挙動, Journal of the Ceramic Society of Japan, **101**-5 (1993), 522.
- (4) 例えば, 橋田俊彦, 若菜健司, 高橋秀明: プラズマ溶射耐熱コーティング材料のレーザ法による熱衝撃波破壊評価, 日本機械学会論文集, **56**-529, A (1990-9), 1952.
- (5) 例えば, 堂山昌男, 山本良一, 岸 輝男, 小間 篤, 小宮祥男, 大串秀世, 田上尚男, 大塚正久: 材料の評価システム, 東京大学出版会 (1987).
- (6) Hiroaki SUZUKI, Tetsuo KINJO, Yasuhisa HAYASHI, Mikio TAKEMOTO and Kanji ONO: Wavelet Transform of Acoustic Emission Signals, Journal of Acoustic Emission, **14**-2 (1996 April-June), 69.
- (7) 樽原 進: 数理学セミナー, ウェーブレットビギナーズガイド: 東京電機大学出版局 (1995).
- (8) 例えば, 井上祐嗣: ウェーブレットが拓く超音波材料評価の新境地, 材料, **45**-12 (1996), 1353.
- (9) 倪 慶清, 美佐田泰治, 倉鋪 憲, 岩本正治: ウェーブレット変換法による SFC モデル材の AE 信号解析, 第 11 回アコースティック・エミッション総合コンファレンス論文集 (日本非破壊検査協会 1997), 173.
- (10) 淡路英夫, 小川光恵, 佐藤千之助: セラミックスの新しい熱衝撃試験法, 日本機械学会論文集, **56**-568, A (1993-12), 2941.
- (11) 秋山 繁, 天田重庚, 島田道男, 吉井徳治: レーザ照射によるアルミナの熱衝撃強度の評価に関する研究, 日本機械学会論文集, **60**-573, A (1994-5), 1204.
- (12) Akira Kawasaki and Ryuzo Watanabe: Thermal Shock Fracture Mechanism of Metal/Ceramic Functionally Gradient Material, Thermal Shock and Thermal Fatigue Behavior of Advanced Ceramics, (1993), 509.
- (13) 例えば, 仲佐博祐: アコースティック・エミッションの理論と実際, 地人書館 (1994).