

# レーザーを利用したセラミックス材料の亀裂に 対する局所自己修復技術の開発

釧路工業高等専門学校 創造工学科  
准教授 グェンタンソン

(2020年度 奨励研究助成 (若手研究者枠) AF-2020237-C2)

キーワード：セラミックス，表面亀裂，自己修復

## 1. 研究の目的と背景

セラミックス材料は広範に使用されているが、靱性が低い  
ため使用中に亀裂がよく発生することがある。そのため  
自己治癒能力をもつセラミックス材料を研究されている  
が、従来使われてきた治癒方法は電気炉などで加熱する  
ことである。この方法の弱点は二つあり、a) 試料の全体を加熱  
するため、一度に全治癒剤が反応してしまうことから自己  
治癒が1回のみ限られる;b) 多くのエネルギーと時間（半  
日以上）を費やす。以上の2つの問題を解決する方法とし  
て、レーザーで自己治癒する方法が提案されている。これは  
レーザービームを用いて亀裂に集中照射し、高速度で自己  
治癒する方法である。慶應義塾大学の研究者はレーザーでガ  
ラスの亀裂を自己治療できた<sup>1)</sup>が、セラミックス材料を対象  
とした研究報告は見当たらない。レーザー加工機は入力デ  
ータに基づき、所定の位置にレーザービームを照射できる  
機能を持つ。この機能を用いて、亀裂位置にレーザーを正  
確に照射することで、自己治癒効果は向上する。顕微鏡の  
画像を観察し、亀裂の位置と長さを明らかにするが、レ  
ーザ加工機はその画像情報を直接読み込めないため、顕  
微鏡の画像情報から亀裂の位置情報を抽出し、レーザー  
加工機が解読できる入力データに変換するソフトウェアが  
必要となる。

本研究は、次の2つの目的に注目している。

1. 本校所有のレーザー加工機を用いて、 $Al_2O_3$  基セラミ  
ックス複合材料の局所亀裂治癒を可能にするシステム技  
術開発を目標とする。更に、この自己治癒の効果を発  
揮させるため、治癒の挙動とメカニズム解明も同時  
に進行させる。
2. 顕微鏡の組織観察画像から、レーザー照射位置  
情報抽出のためのレーザー加工機入力データに変換  
するソフトウェアを構築する。

## 2. 実験方法

### 2.1 セラミックス材料の準備：

$Al_2O_3$  粉末に SiC (炭化ケイ素) 又は TiC (炭化チタン) 粉  
末を体積比で 10% となるようにそれぞれ混合し、その  
粉末とアルミナ球、エタノールを混合材料と同じ量  
プラスチック容器に入れ、小型ポットミル回転台で  
混合した。その後、ロータリーエバポレーターを用  
いてエタノールを蒸発させ、乳鉢と乳棒を用いてす  
りつぶし、細かくした。その後、 $Al_2O_3/SiC$  又は  
 $Al_2O_3/TiC$  粉末を金属製ホルダに入れ

20MPa、5分間両面圧縮し、卓上 CIP で 150MPa の  
圧力、5分間で圧縮した。その後、高温電気炉  
チャンバー型 (OKS 481TV602) に  $1550^{\circ}C$ 、5時間、 $N_2$   
の雰囲気中で焼結した。その後、リファインカッタ  
ーを用いて焼結体から試験片を加工した。

### 2.2 レーザによる亀裂の自己修復

図 1 に示すようにレーザー自己治癒システムが設  
置される。まず、試験片 ( $Al_2O_3-SiC$  又は  $Al_2O_3-TiC$   
の複合材料) を加工した後、ビッカース硬さ試験機  
で亀裂を導入する。治癒材 (分散材) に関して、  
より低い温度で自己修復反応を起こしやすくする  
ために、従来よく使われてきた炭化ケイ素 (SiC)  
<sup>2-4)</sup> の代替として、炭化チタン (TiC)  
<sup>5,6)</sup> を提案する。

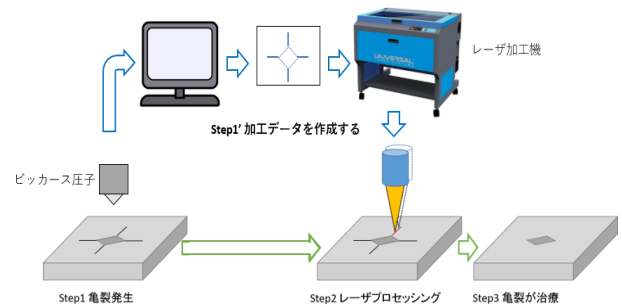


図 1. レーザによる表面亀裂の自己治療の実験方法

次に、顕微鏡で観察し、自作のソフトウェアでレーザー  
照射データを作成する。それから、レーザー加工機で  
自己治癒 (照射) を行う。亀裂治癒した後、電子顕  
微鏡 (SEM, JSM 7100FA, JEOL) による観察、又は  
機械特性の測定で治癒効果を分析する。上記の流れ  
を繰り返し、ベストのレーザー熱処理条件を検討す  
る。自作のソフトウェアは、顕微鏡で観察した画像  
(図 2, 左図) を読み込むと、亀裂の位置とサイズ  
(右図, 緑) を自動判別し、位置情報としてデータ  
出力できる。その後、照射の効果を上げるために、  
図 3 に示すように亀裂を囲む渦巻き状のレーザー  
経路データを作成する。作成したデータは SolidWorks  
用 dxf ファイルで保存した。このデータをレーザー  
加工機に入力し、レーザービームで亀裂位置を正  
確に照射し、自己修復させることになる。

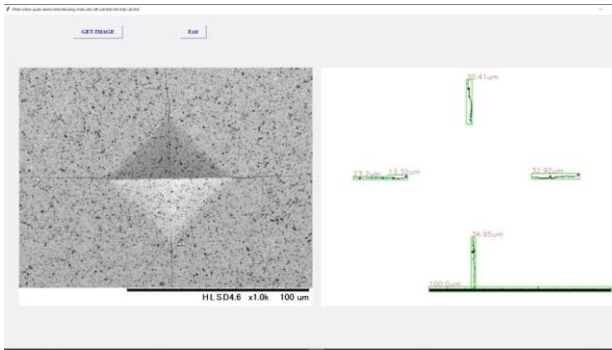


図2. 顕微鏡で観察した画像から亀裂の位置のデータを出力すること（ソフトウェアの画面）

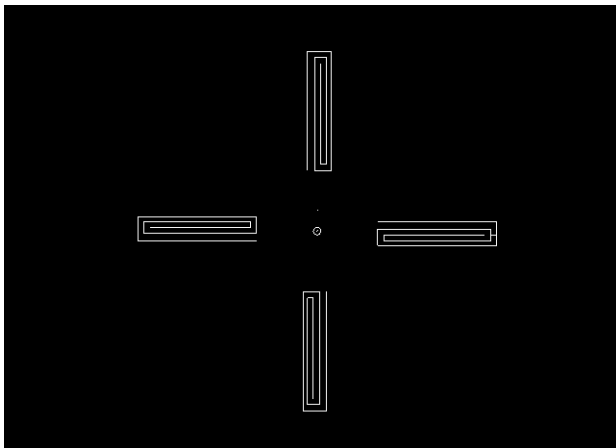


図3. レーザー経路データ（SolidWorks用 dxf）

レーザー照射は、Universal Laser System の PLS6.150D レーザー加工機を利用する。このレーザー加工機の仕様を表1に示す。フォーカスレンズは標準2.0インチのものを用いた。

表1. レーザー加工機の仕様

レーザーの発信機	RF 励起封じ切り炭酸ガスレーザー（発信波長 10.6 $\mu$ m）
冷却方式	空冷方式（発信機内蔵）
レーザー出力	レーザー発信機2本で最大 150W
スピード	最大 2540mm/sec
フォーカスレンズ	標準 2.0 インチ（127 $\mu$ ）、15 インチ（76 $\mu$ ）、2.5 インチ（178 $\mu$ ）、40 インチ（330 $\mu$ ）、HPDFO、2.0 インチ（25 $\mu$ ）
駆動パルスレート	1~1000PPI

### 3. 研究結果

#### 3.1 初実験のレーザー照射結果

初実験のレーザー照射後の圧痕の状態を図4に示す。図4よりレーザー照射部が大きな傷が生じていることがわかる。これは、レーザーの出力が大きすぎたと Speed が遅すぎたためだと思われる。よってこの結果から、レーザー出力（Power）及び Speed の調整を行った。

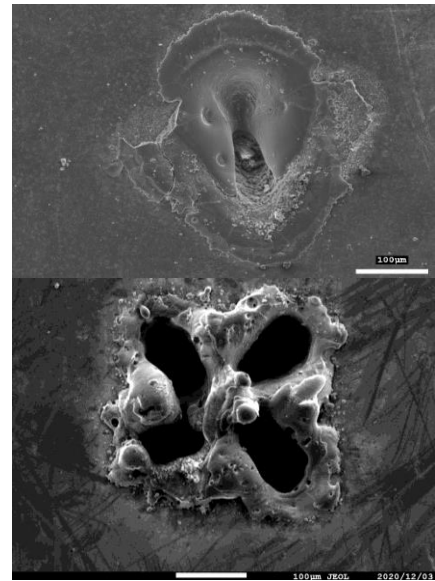


図4. レーザー照射後の圧痕状況（SEM）  
（上：出力 100%，speed 0.1%；下：出力 0.1%，speed 0.1%）

#### 3.2 レーザー出力の調整

Power を表2の各条件に変更しレーザー照射した。Speed は試料内部まで熱を伝えるために 0.1%とし、PPI は試料表面に傷をつけずかつ試料内部まで熱を伝えることを考慮した結果 500 となった。

表2. レーザー出力の調整

No.	1	2	3	4	5	6
Power[%]	20	10	5	1	0.5	0.1

照射後の顕微鏡で表面（圧痕無し）の観察した結果を図5に示す。最も低い 0.1%のパワーですら深い傷が残ってしまっている。10%と20%は試料が溶けて消えてしまった。

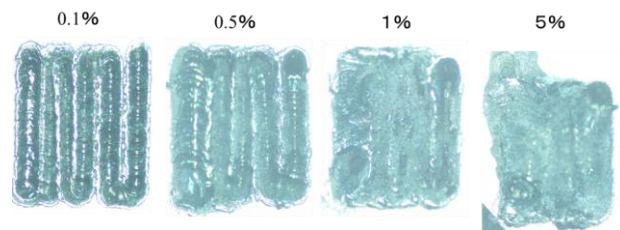


図5. Power の調整によって表面の観察結果

#### 3.3 Speed の調整

Speed 条件を表3の各条件に変更し、レーザー照射し。power は 0.1%，PPI は 500 とした。

表3 レーザーSpeed の調整

No.	1	2	3
Speed[%]	1	1.5	10

照射後の結果を図 6 に示す。1%と 1.5%では表面に傷が生じているが、10%では表面に傷がついていなかった。この結果から、照射の Speed は 1.5%~10%に提案する。

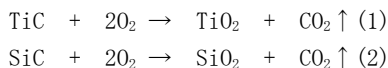
### 3.4 出力調整後のレーザー照射実験

レーザー加工機で精密なレーザー照射が困難だったため、ビッカース硬さ試験機の負荷条件を 50 kgf と変更し、より亀裂の大きな圧痕を作成した。また、レーザー経路を、亀裂周辺のみから圧痕全体をくまなく照射する経路に変更した。変更後のレーザー経路を図 7 に示す。その後、表 4 の条件でレーザー照射した。Power は 0.1%, PPI は 500 とした。

図 8 にレーザー照射結果を示す。図 8 の画像の 1.5%, 2%, 3%, 4%はそれぞれ表 4 の No1~4 である。1.5%, 2%は圧痕と亀裂が観察できなかったため、完全に消えたと考えられる。また 2%の割れは照射後に入ったものでレーザーとは無関係であり、自己修復状態にも影響はない。

1.5, 2%は圧痕が完全に消えているが、3, 4%は亀裂の一部が治れると観察できた。これらの結果から、試料の表面に多くの細かい傷がついており、傷がついていない状態での自己修復が望ましい。しかし、現在のレーザーの出力 (0.1%) 条件を下げることは困難であるから、レーザーの発信機やフォーカスレンズの変更の検討が必要であると考えられる。

図 9 に、4%の場合の照射前と照射後のエネルギー分散型 X 線分析 (EDS) 元素分析した結果を示す。照射後で炭素 C が 1%以下となることで測定不能となっており、酸素 O のモル%が非常に高くなっている。このことから、酸化反応により酸素の割合が高く炭素の割合が低くなることで、自己修復反応が起きたと考えられる。そのため、圧痕がレーザーによって削られたため亀裂が修復されたことの観察は難しいが、図 9 の結果から以下の(1)か(2)の自己修復反応によって、亀裂が修復されたことと考えられる。



## 4. 結論

(1)本研究では試料を固定する際に、台紙を試料形状に切り抜き、切り抜いた穴に試料本体をあてはめ固定していたが、試料形状が不ぞろいなため、固定する際にずれが生じてしまっていた。そのため、レーザーを精密に照射することが困難なため、広範囲にレーザーを照射し亀裂にレーザーが当たりやすくしていたが、より低コストでの自己修復反応を起こすことが望ましい。そこで、より精度の高いレーザー照射を行うと、高い効果の亀裂自己修復ができると考えられる。

(2)レーザー照射した際に試料表面に細かい傷が発生したが、スピード条件を変更し傷がつかないようにした場合、自己修復反応も低下してしまう。そのため、今後の予定はフォーカスレンズを 2.5 インチや 4.0 インチに変更し、

より大きいレンズ径を用いることで出力を下げた状態での、表面の傷や修復状態の確認が必要であると考えられる。

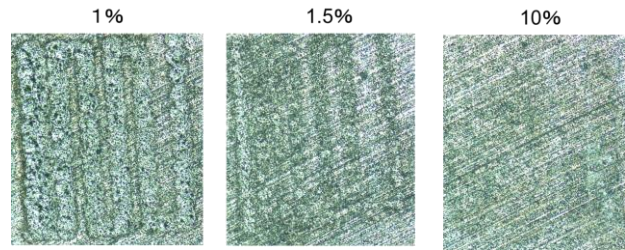
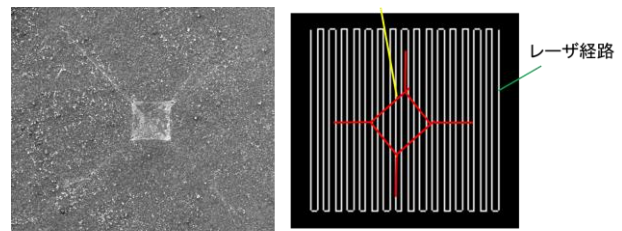


図 6. Speed の調整によって表面の観察結果



負荷50kgf、保持時間15s

図 7. 圧痕と新しいレーザー経路

表 4. レーザー Speed の調整

No.	1	2	3	4
Speed [%]	1.5	2	3	4

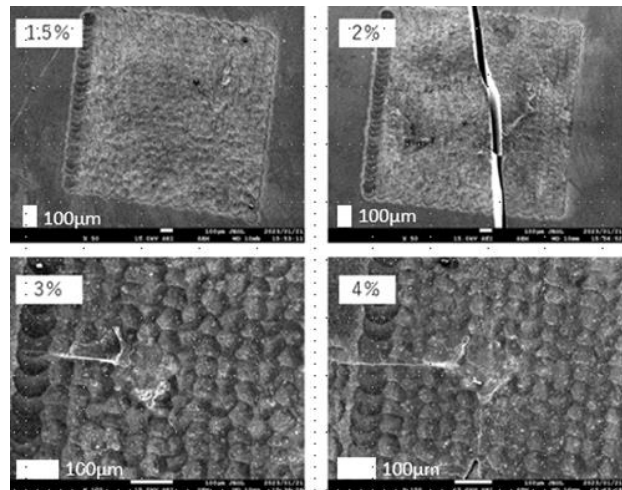


図 8. レーザ照射による自己修復の結果

照射前				4%照射後			
化学式	質量%	モル%	σ	化学式	質量%	モル%	σ
C	6.51	11.93	0.12	O	46.50	63.04	0.11
O	39.52	54.36	0.11	Al	41.37	33.26	0.06
Al	35.78	29.18	0.05	Ti	6.88	3.12	0.21
Ti	7.15	3.29	0.18	Pt	5.25	0.58	0.36
Pt	11.04	1.24	0.30	合計	100.00	100.00	
合計	100.00	100.00					

図 9. 照射前後の EDS の元素分析の結果

## 謝 辞

本研究は、公益財団法人天田財団の2020年度奨励研究助成（AF-2020237-C2）を受けて行われたことを付記するとともに、同財団に感謝いたします。

## 参考文献

- 1) Takayama, N.; Nishide, Y.; Yan, J. Proceedings of International Conference on Leading Edge Manufacturing in 21st century : LEM21, Nov. 13-17, **2017**.
- 2) 長田俊郎, 中尾航, 高橋宏治, 安藤柱, 齊藤慎二, J. Ceram. Soc. Japan, 115 卷 1340 号 p.278-284, **2007**.
- 3) Nguyen, S. T.; Nakayama, T.; Suematsu, H.; Suzuki, T.; He, L. F.; Cho, H.-B.; Niihara, K. *J. Am. Ceram. Soc.*, 100(7), p.3122-3131, **2017**.
- 4) Vu, D.H.; Nanko, M. *J. Asian Ceram. Soc.*, 8(2), p.298-308, **2020**.
- 5) Yoshioka, S.; Boatemaa, L.; van der Zwaag, S.; Nakao, W.; Sloof, W.G. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 36(16), p.4155-4162, **2016**.
- 6) Boatemaa, L.; Brouwer, J.C.; van der Zwaag, S.; Sloof, W.G. *J. Mater. Sci.* 53, p.5973-5986, **2018**.