

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 12 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760070

研究課題名(和文) レーザピーニングによる薄膜金属材料の局所改質

研究課題名(英文) Local modification of thin film metal by laser peening

研究代表者

青野 祐子 (Aono, Yuko)

東京工業大学・理工学研究科・助教

研究者番号：20610033

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：レーザピーニング(LP)は機械特性向上のための表面処理機能である。従来、バルク材に適用されてきたLPを、薄膜金属材料の特性向上の新しい手法として適用することを本研究の目的とする。従来のLPはプラズマの拡散を閉じ込める媒質として水が用いられてきたが、薄膜材料を水中に設置することはデメリットが多い。そこで、まず固体媒質を用いたドライLPの検討を行い、ガラスを媒質とすることで従来法と同等の効果を達成した。次に、固体媒質で問題となる媒質の試料形状への追従性についても0.1mm以下の媒質-試料間ギャップでLPの効果を確認した。最後に、本手法を銅薄膜へ適用し、硬さの向上を確認した。

研究成果の概要(英文)：Laser peening (LP) is a surface treatment method for improving mechanical properties. Conventionally, LP has been applied to bulk material and the treatment is conducted under water medium to prevent expansion of plasma.

In this research, to apply this treatment to thin film metals is objective. The LP has possibility to be a novel treatment method of thin film metal, however the conventional wet-condition treatment is not suitable for thin films. Therefore, LP under dry condition is proposed.

Dry LP uses transparent solid material instead of water for medium. Glass is chosen for the solid medium of dry LP because it shows higher improvement of hardness than that of conventional wet LP. In addition, air gap between specimen and solid medium is considered. As results, the peening effect is confirmed less than 0.1mm of the gap thickness. Finally, the proposed dry LP is applied to thin copper film deposited by sputtering and hardness of the film is improved.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・機械材料・材料力学

キーワード：レーザピーニング 薄膜金属材料

1. 研究開始当初の背景

申請者は、これまで、合金の組成を変化させることでその特性を向上させることを目的とし、薄膜金属材料の評価を中心に研究を行ってきた。そのひとつとして、薄膜形状記憶合金の変態温度評価を行った。しかし、実際に薄膜形状記憶合金をアクチュエータ駆動材料等に利用する場合、変態温度のみではなく、機械強度や変形特性も重要となる。これらの特性は、塑性加工や熱処理などの方法で改質が可能であるが、バルク材料と比べ制約の多い薄膜金属材料では、その自由度は低い。例えば、バルクの形状記憶合金では、冷間加工による転位導入や、時効処理による組織制御を行い、高機能化を実現できる。しかし、膜厚が数 $\mu\text{m}$ 以下の薄膜金属材料に、このような冷間加工を施すことは難しい。

そこで、申請者は、薄膜金属材料に局所的に冷間加工に匹敵する効果を付与することを狙い、レーザーピーニング(以下、LP)を適用するという着想へと至った。LPとは以下に述べる原理による表面処理方法である。水中に固定したワーク表面に、レーザを照射し、アブレーションを発生させる。水中では発生したプルームは膨張できず、ワークに強い圧縮応力を与え、局所的な表面改質が発生する。バルク材料でのLPの研究報告は多く、多様な効果が報告されているが、薄膜材料での研究例は少ない。

2. 研究の目的

本研究は、薄膜金属材料へのLPの適用とその局所改質効果の多面的な検討を目的としている。

(1) 薄膜金属材料へのLPの適用

薄膜金属材料へのLPの適用を実現するために、レーザの各種パラメータ、薄膜金属材料の表面保護方法、基板材料の影響について検討する。

(2) 薄膜金属材料のLPので得られる効果

LPにより、薄膜金属材料に付与できる効果を検証する。期待される効果について評価を行い、LPの実施条件との関係について明らかにする。

(3) LPを活用した薄膜デバイス性能向上

LPにより改質を行った薄膜金属材料を、実際のデバイスへと適用する。

3. 研究の方法

(1) ドライレーザーピーニングの検討

薄膜金属材料への適用を考える上で、従来の水中での処理(図1)は問題が多い。マイクロマシンの製作は、真空プロセスや高精度・微細加工を伴うために、洗浄、汚染の問題や、乾燥時のスティッキング、レジスト材料の吸湿といった問題を引き起こしやすい。また、プロセス中の真空環境で適用する場合には、水を利用できない。その一方、従来のLPの適用先と異なり、薄膜金属材料の多くは平面基板上への積層プロセスが中心である

ために、固体を水に代わる媒質として用いる場合に弊害である形状追従性については克服できる可能性がある。そこで、薄膜金属材料へのLP適用のための、透明固体媒質を用いたドライLP法を提案、検討する。透明固体媒質の検討のため、銅板をピーニング対象として使い、媒質を変えてレーザーピーニングを実施し、銅板の硬さの変化によりその効果を評価、比較する。

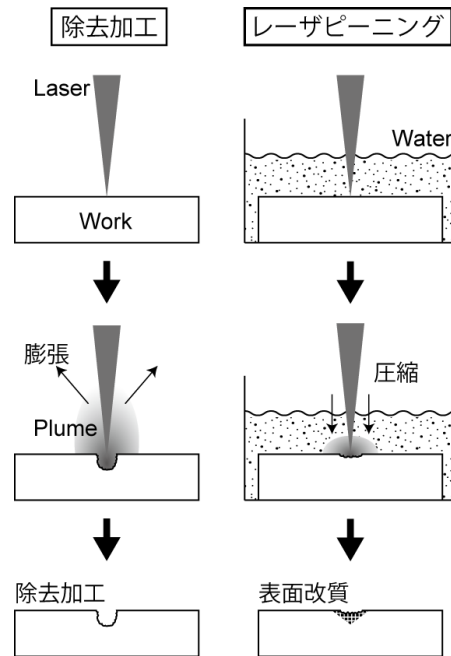


図1 レーザピーニングの原理

(2) 媒質 - 試料間ギャップの検討

ドライLPで固体媒質を用いる上で問題となる、媒質の試料形状追従性について考察する。固体媒質と試料間の空気層のギャップを変更してドライレーザーピーニングを行い、ピーニングの効果を得られるギャップの厚さについて検討を行う。

(3) 薄膜金属への適用

ドライLPを利用し、薄膜金属材料へのピーニング処理を行う。その効果について、ナノインデンテーション硬さ試験により評価を行う。

4. 研究成果

(1) 実験条件

レーザ光源は、短パルス Nd:YAG レーザ (Precision II 9100, Continuum) を波長変換し、第二高調波 (波長 532nm) を用いた。レーザの詳細を表1に示す。試料はX-Zステージ上に固定されており、図2(a)に示す光学系によりレーザ光を試料表面に垂直に照射する。処理中、試料X-Z方向に一定速度・一定間隔で走査することで、面状にレーザーピーニング実施する。X,Z方向のショット間隔は一定になるようステージを制御し、本研究ではショット密度 44.5pulse/mm<sup>2</sup>、ショット間隔 0.15mm とした。

Table 2 Conditions of laser irradiation

Laser source	Nd:YAG
Wavelength	532nm
Pulse width	9ns
Repetition frequency	10Hz
Spot diameter	12.8 $\mu$ m
Beam mode	TEM <sub>00</sub>
Pulse energy	0 - 183.5mJ

試料は、銅板と銅薄膜を用いた。銅板は、20mm角、厚さ3mmである。銅板の冷間圧延時に発生する残留応力や加工硬化を除去し、試料の初期状態を均質化する目的で、アルゴン置換した赤外線加熱炉中で400℃、1時間の焼鈍処理を行った。炉冷後、表面に形成された酸化層を除去するために、硝酸で洗浄を行った。洗浄後の試料の硬さを微小硬さ試験機(HM-124S, AKASHI)で測定したところ、34.4HVとなった。

銅薄膜は、10mm×10mm、厚さ200 $\mu$ mの単結晶シリコン上にスパッタリング(SVC-700RF サンヨー電子製)にて膜厚1.5 $\mu$ mで成膜した。またレーザー照射による表面の加工を防ぐため、保護膜として厚さ10 $\mu$ mの銅箔でサンプルを覆いLP処理を行った。

工を防ぐため、保護膜として厚さ10 $\mu$ mの銅箔でサンプルを覆いLP処理を行った。

(2) ドライレーザーピーニング

各透明固体媒質(ガラス, サファイア, PET), 比較のための水媒質, 大気媒質のそれぞれで、同処理条件の下でレーザーピーニングを実施した。固体媒質では、図3に示す治具を利用し、試料と媒質を密着させ固定した。レーザーピーニングを行った試料表面には、レーザー照射痕が発生するため、表面を40 $\mu$ m除去した後硬さを測定した。表面の除去は、除去加工時の熱や応力による影響を抑えるため、硝酸によるエッチング処理を採用した。硬さ測定の結果を図4に示す。

本実験で試みた全ての媒質、パルスエネルギーにおいて、処理後の硬さは初期硬さから上昇しており、ピーニングの効果が見られた。従来法である水媒質では、エネルギーの上昇に伴い、硬さは向上する。これは、発生する衝撃力の向上のためである。大気媒質でも水媒質と同様の傾向が見られるが、大気の粘性が液体である水に比べ小さく、プラズマを効果的に閉じ込めることができないために、その硬さ向上の効果は水と比較するとわずかであった。

提案する固体媒質を用いたドライレーザーピーニングについては、ガラスとサファイアに

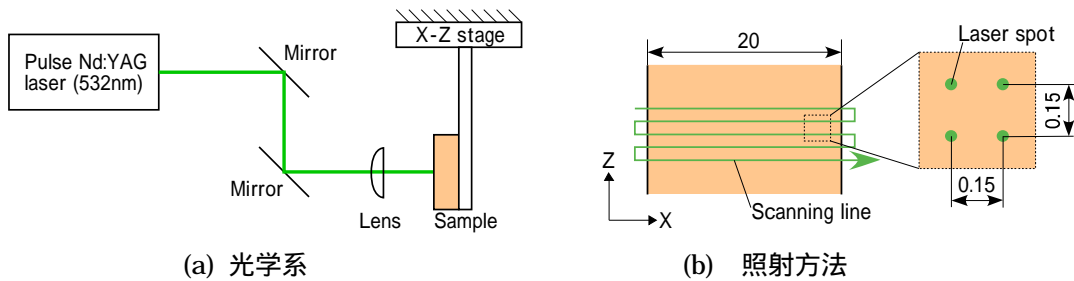


図2 レーザピーニング実験装置

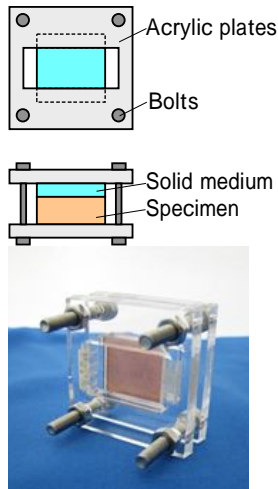


図3 ドライLP治具

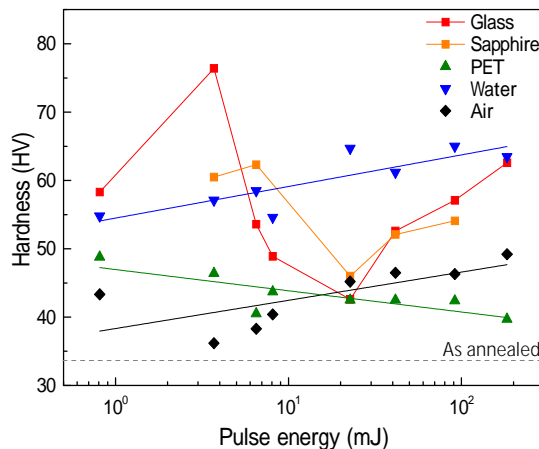


図4 LP条件によるピッカース硬さの変化

については5mJ程度までの低エネルギー領域において水中に匹敵またはそれ以上の効果が得られた。サファイアはガラスよりも硬い材料であるが、本実験では厚さが0.5mmと4mmと異なっているため、このエネルギー領域ではガラスの効果が高くなったと考えられる。これ以上の高エネルギー領域では、ガラス、サファイアのいずれも急激に硬さの低下が発生しており、従来法である水中が優位であった。

本研究で比較した三種類の固体媒質では、ガラス、サファイアで従来法に匹敵する効果が得られる可能性を示しているが、銅の付着やクラック、照射痕等により媒質の再利用が難しい点を考慮すると、効果、コストの両面でガラスの方が媒質として適している。そこで、本研究では、以下、ガラスを媒質としたドライレーザーピーニングの考察を行うものとする。

### (3) 媒質 - 試料間ギャップ

固体を媒質とした場合、従来の水媒質とは異なり、媒質の対象に対する形状追従性が低いという問題がある。本研究で提案したドライレーザーピーニングの主要な適用先として薄膜金属材料を挙げている。マイクロマシンの製作プロセスは、薄膜の成膜やエッチングといった平面的な加工が中心であり、その場合想定される対象と媒質の間に発生するギャップは数十 $\mu\text{m}$ 程度と想定される。この程度のギャップがピーニングの効果に及ぼす影響について検討を行う。

試料とガラス媒質の間にギャップを設けるために、図5のようにギャップ用インサート箔を挿入した。このインサート箔には、銅箔を使用し、(a)のようにの中心部分に5mm角の穴を設けた。インサート箔の厚さは、2, 10, 50, 100 $\mu\text{m}$ の四種類を用意し、インサート箔の厚さをギャップの厚さとした。ピーニングの効果については、ビッカース硬さ試験

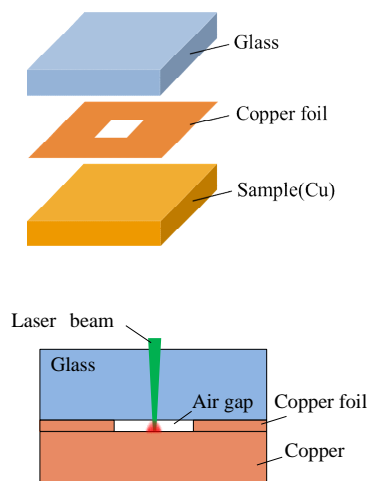


図5 空気層の挿入

により評価した。

ガラス媒質と試料間のギャップの厚さを変化させたときの、ドライレーザーピーニング後の硬さを図6に示す。図中の破線は、図4中の同じレーザー照射条件で実施した水中と大気中のレーザーピーニング後の硬さ試験の結果である。100 $\mu\text{m}$ までのギャップ厚さでは、いずれも処理前よりも硬さは向上しており、ピーニングの効果が見られた。ギャップの厚さが厚くなるに従い、その効果は低減するが、100 $\mu\text{m}$ まででは大気中でのレーザー照射以上の効果が確認できた。さらに、ギャップ厚さ20 $\mu\text{m}$ 程度以下では、従来の水媒質のレーザーピーニングと同等かそれ以上の効果が得られた。

この結果は、薄膜金属材料に本手法を適用した場合に、基板に数十 $\mu\text{m}$ 程度の凹凸があった場合でも、レーザーピーニング処理可能であり提案手法の有用性を示した。また、薄膜金属材料に限らず、レーザーピーニングにおいて水中設置や、ガラス等の媒質を直接接触させることが望ましくない対象物であっても、レーザーピーニングによる表面処理が可能であることを示唆している。

### (4) 薄膜金属材料への適用

スパッタ法にて成膜した銅薄膜に、保護膜(銅箔)と媒質としてガラスを介し、LPを実施した。パルスエネルギーは(2)で硬さ向上の効果が見られた0.81mJと3.66mJとした。処理前後の硬さをナノインデンテーションにより測定したところ、0.81mJでは、2.1GPaから2.7GPaまで硬さの向上の効果が見られた。一方で、3.66mJでは処理後に薄膜が剥離し、硬さの測定に至らなかった。これは、レーザーの衝撃力により発生したと推察される。今後、レーザー出力、照射密度等の処理条件をより適切なものに調整する必要がある。

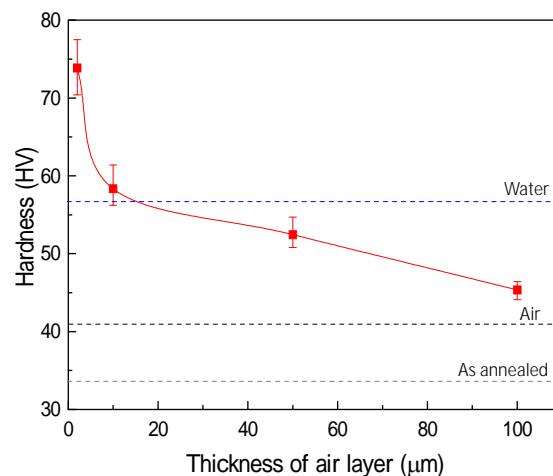


図6 空気層厚さによるLP効果の変化

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 3 件)

山本祐幸, 青野祐子, 平田敦, 戸倉和 “ 薄膜金属へのドライ環境レーザピーニングの適用 ” 2014年度精密工学会春季大会, 2014. 3. 18-20, 東京大学

青野祐子, 山本祐幸, 樋野悠人, 平田敦, 戸倉和 “ 薄膜金属材料適用に向けたドライレーザピーニングの検討 ” 日本機械学会第21回機械材料・材料加工技術講演会, 2013.11.8-10, 首都大学東京

山本祐幸, 青野祐子, 平田敦, 戸倉和, “ 高分子フィルムによるドライ環境レーザピーニング ” 2013年度精密工学会秋季大会, 2013. 9. 12-13, 関西大学

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://musashi.ctrl.titech.ac.jp/>

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

青野 祐子 (AONO, Yuko)

東京工業大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：20610033