

インクリメンタル・マイクロフォーミングを活用した 機能性セラミックスの微細薄膜構造の三次元造形

東京大学 生産技術研究所
教授 帯川利之
(平成 22 年度一般研究開発助成 AF-2010013)

キーワード：インクリメンタルフォーミング，機能性セラミックス，薄膜，マイクロ加工，コーティング，エッチング

1. 研究の背景と目的

ミクロな機能性構造体は、センサーやフィルターとして、また生体用のマイクロテスト等としての利用が期待されており、そのための形状や機能の創成技術の開発が求められている。最終的に要求される大きさは十ミクロンからサブミリサイズであるが、セラミックスが主体の機能性材料では、比較的単純な形状のものが多い。また、機能の柔軟性を重視する場合、形状と表面の加工制御性にすぐれた高能率加工技術のマイクロ化が要求されている。

マイクロスケールの加工に対するこうした要求を満たすため、レーザや集束イオンビームなどによるマイクロビーム加工の他、マイクロ放電加工、マイクロ切削加工、インクリメンタル・マイクロフォーミング等、微細な金型を必要としない種々の微細加工技術が鋭意研究されている。

本研究では、機能性セラミックスの微細な膜状立体構造のマイクロ加工技術を実現するため、インクリメンタル・マイクロフォーミングにコーティングとエッチングとを組み合わせた、フレキシビリティの高い加工技術の開発を検討することとした。

2. 実験方法

本研究で考案したセラミック薄膜の三次元マイクロ・メゾ構造体の成形法¹⁾²⁾の概略を図 1 に示す。ここでは、セラミック薄膜の微細な四角錐台の成形を想定し、アルミ箔を黒で、セラミックスを白で表示した。最初に、インクリメンタル・マイクロフォーミングによりアルミ箔上に微細な四角錐台を成形する。次に特定のセラミックによりアルミ箔をコーティングし、その後、アルミとセラミックが積層したピラミッドからアルミ箔を選択的にエッチングし、除去する。これらのプロセスにより、ピラミッド部はセラミックス、それ以外の平坦部はアルミ箔で補強されたセラミック複合膜を完成させる。

本研究で使用したインクリメンタル・マイクロフォーミングの加工機³⁾ならびに加工状態を図 2, 3 に示す。本機は X-Y テーブル、Z ステージ、 θ_x - θ_y ゴニオステ

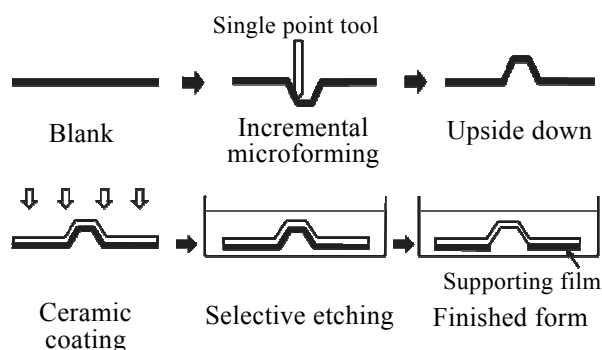


図 1 機能性セラミックスの微細な膜状立体構造の造形法

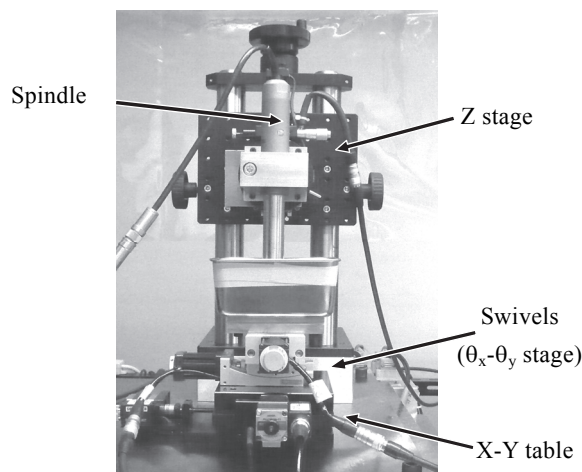


図 2 インクリメンタル・マイクロフォーミング装置

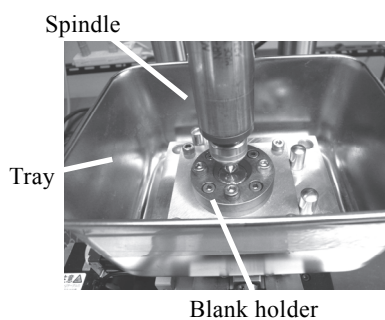


図 3 加工状態

ージ、スピンドル、成形工具およびブランクホルダーより構成される。X-Y テーブルの分解能は $0.01 \mu\text{m}$ 、その最小の送り速度は 0.0001 mm/s 、Z ステージの分解能は $0.01 \mu\text{m}$ 、ゴニオステージの分解能は 0.001° である。ゴニオステージは薄膜の水平補正に用いられる。またスピンドルの最高回転数は 25000 min^{-1} である。成形用の工具には、**図 4** に示す先端半径 $10 \mu\text{m}$ の超微粒子超硬を使用した。先端半径 $10 \mu\text{m}$ の工具は破損しやすいので、同図のようにテーパを付け、できる限り強度を高めた。

加工用薄膜（以下、ブランク）には厚さ $12 \mu\text{m}$ の業務用アルミ箔 A8021H-O (97.95%Al, 0.15%Si, 1.2-1.7%Fe, 0.05%Cu) を使用した。同材は特殊な熱処理により結晶の微細化を図り、ピンホールの低減と伸びの増大（一般の家庭用のアルミ箔の約 2 倍）を実現したものである。技術資料⁴⁾によれば、厚さ $12 \mu\text{m}$ の A8021H-O の引張試験での伸びは約 4% であるが、インクリメンタル・マイクロフォーミングで成形する場合、80-100%の伸びが実現される⁵⁾。

アルミ箔を保持するためのブランクホルダーの展開図を**図 5** に示す。アルミ箔に過大な張力を加えると成形限界が低下し、一方、張力を加えないと箔がたわみ精度が低下する。そこで、先行研究³⁾⁵⁾ではテンショナーと呼ぶ突起と O リングによりアルミ箔に適度な張力を与えるためのホルダーを考案した。しかし本実験では、アルミ箔の成形後にセラミックのコーティングを行うため、アルミ箔を一定の温度まで加熱する。そのため、O リングを使用せずに、適度な張力を箔に与えるための単純な機構のホルダーを使用した。

一般に、インクリメンタルフォーミングでは、バックギングプレートと呼ばれる支持板を使用する⁶⁾。しかし、加工寸法が微細になるとバックギングプレートの加工自体が難しくなり、微細加工の障害となるので、これを使用することのない加工を実現する必要がある。既報⁷⁾では、主軸を高速で回転させ、水中で加工を行うと加工力が低下するとともに、アルミ箔の変形が工具接触部に集中することが明らかになった。そこで本研究でも同様に還元水を加工液として使用し、バックギングプレートを使用せずにアルミ箔の微細成形を行った。

シングルポイント工具によるインクリメンタル・マイクロフォーミングの一例として、底辺の長さ L 、高さ h 、対向する二等辺三角形のなす角 2θ （以下では、 θ を半頂角と呼ぶ）のピラミッドの逐次成形プロセスを**図 6** に示す。ブランクの厚さは t 、工具の回転速度は ω 、工具が一回の加工で押し出す高さは dz である。したがって工具が Z 方向に dz だけ移動する毎に、正方形をなす工具軌跡の一边は $2dx = 2dy = 2dz \tan\theta$ だけ縮小する。**表 1** に上面の辺の長さが $14\mu\text{m}$ の四角錐台をアルミ箔上に成形するための条件を示す。ピラミッドの底面の辺の長さによってテーブルの速度が変わることを除けば、成形条件は一定である。なお、 $\theta = 35.3^\circ$ であることから、四角錐台

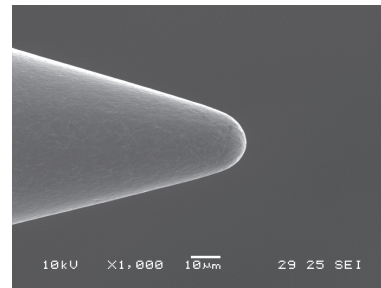


図 4 マイクロ工具（先端半径 $10 \mu\text{m}$ ）

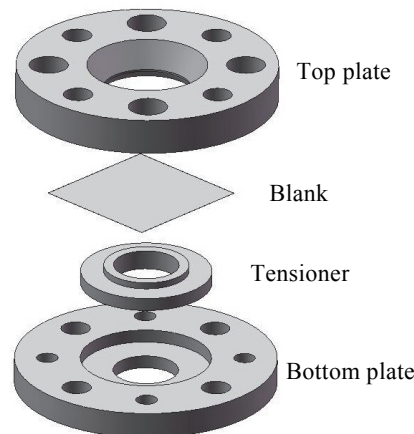


図 5 ブランクホルダー

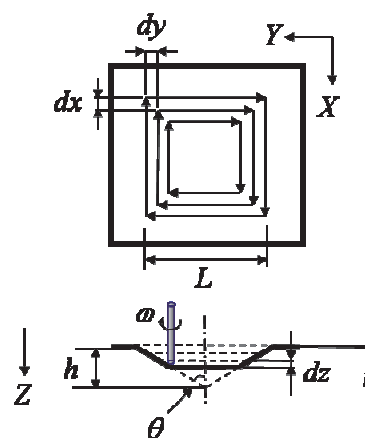


図 6 シングルポイント工具による逐次成形プロセス

表 1 上面の辺の長さ $14\mu\text{m}$ の四角錐台の成形条件
(底面の辺の長さ L , $40 - 350 \mu\text{m}$)

Al foil thickness t	$12 \mu\text{m}$
Table speed V	$30 - 200 \mu\text{m/s}$
Tool tip radius	$10 \mu\text{m}$
Rotational speed ω	2000 min^{-1}
Axial feed dz	$1.0 \mu\text{m}$
Side length of upper base	$14 \mu\text{m}$
Half apex angle θ	35.3 deg
Lubricant	Pure water

の側面におけるアルミ箔の伸びは、 $100(1/\sin\theta-1) = 73\%$ と非常に大きい。

次に、上記の方法でピラミッドを成形したアルミ箔に高周波マグネトロンスパッタによりセラミックのコーティングを行った。コーティングしたセラミックはTiNとHfO₂である。TiNのコーティングでは、スパッタしたTiを窒素と反応させ、一方、HfO₂のコーティングではHfO₂のターゲットを使用した。表2にTiNのコーティング条件を示す。セラミックのコーティングであるため、基材となるアルミ箔を加熱する必要がある。セラミックのPVDコーティングでは、一般に基材を600°C程度まで加熱することが多いが、600°Cはアルミニウムの融点よりわずか60°C低くだけであり、合金元素にもよるがアルミ合金の固相線近傍の温度に相当する。したがって、アルミ箔の加熱温度は成形した形状の熱変形を防止するため、できる限り低い温度に設定することにした。表2の基材の温度450°Cは、研究室所有のスパッタ装置においてコーティングしたセラミックの性状が悪化しないための最低温度である。

最後の工程は、セラミックをコーティングすることによってアルミとセラミックが積層したピラミッドの部分から、アルミ箔を選択的にエッチングし、除去するプロセスである。エッチングには、調温器により一定温度に保持された1.94%KOH水溶液を使用した。アルミ箔のエッチング速度とエッチング液の温度との関係を図7に示す。なお、図に示したエッチング速度は、アルミ箔片面での値である。この結果より、以下の実験ではエッチング液の温度を35°Cとし、エッチング速度を0.5 μm/minに設定した。本条件では、厚さ12 μmの未変形のアルミ箔と73%伸びた四角錐台の側面のアルミ箔をエッチングで完全に溶かすために必要な時間は、エッチング速度が塑性変形の影響を受けないと仮定した場合、それぞれ24分と13.9分である。

3. 結果と考察

表1の条件で成形された上面の辺の長さが14 μm、底面の辺の長さが350 μmと140 μmの四角錐台の顕微鏡写真を、それぞれ図8(a)と(b)に示す。いずれの成形形状も良好であるが、底面の長さが140 μmになると、相対的に、上面の平坦部と成形工具の先端半径10 μmに起因する稜線の丸みが明確に見られるようになる。

次にTiNでコーティングされた個々のピラミッドの状態を図9に示す。いずれも上面の辺の長さが14 μmの四角錐台、三角錐台、五角錐台であるが、底面の辺の長さは異なる。三角錐台と五角錐台はコーティング時の加熱による膨張とおそらく組織変化により、またコーティング後の収縮により大きく歪んでいるが、四角錐台では歪みが比較的小さい。そこで、以下では、セラミックスの微細薄膜構造の形状を四角錐台に限定し、その作製状態を検討することとした。

表2 TiNのコーティング条件

Target	Ti (purity 99.99%)
Target DC power	140 W
Coil power	30 W
Ar flow rate	3.0 sccm
N flow rate	0.7 sccm
Pressure	0.16 Pa
Bias	-40 V
Substrate temperature	723 K (450°C)
Time	3 h

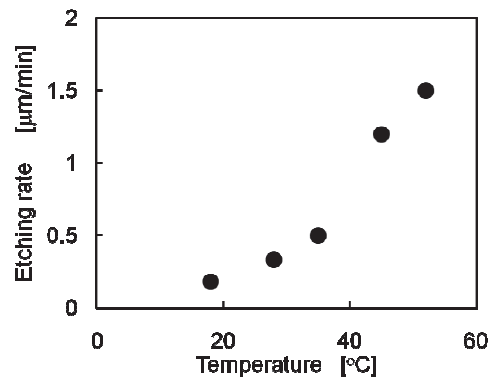
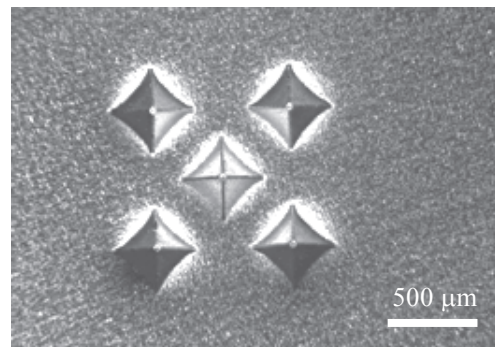
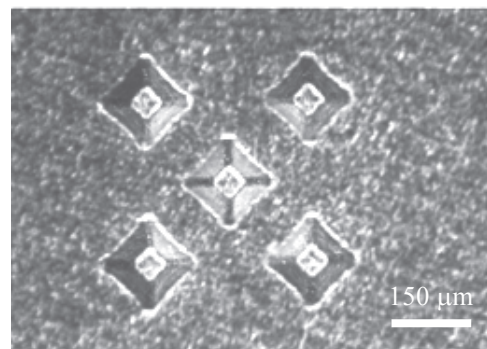


図7 アルミ箔のエッチング速度と温度との関係

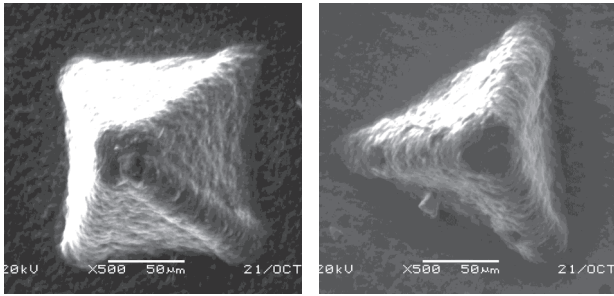


(a) 底辺の長さ 350 μm



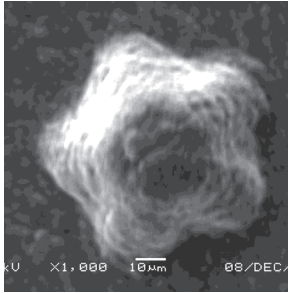
(b) 底辺の長さ 140 μm

図8 アルミ箔上に成形された上面の辺の長さが14 μmの5個の四角錐台
(真上からの顕微鏡観察)



(a) 四角錐台

(b) 三角錐台



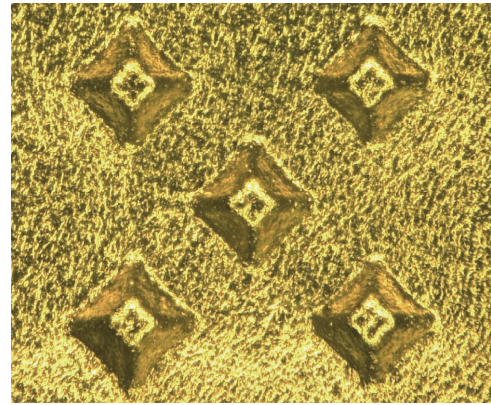
(c) 五角錐台

図9 TiNでコーティングされた微細錐台
(上面の辺の長さ14 μm)

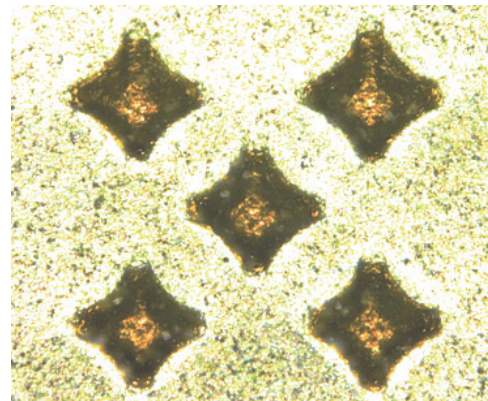
5個の微細四角錐台を成形したアルミ箔の上方からTiNと HfO_2 のコーティングを行い、さらに8分間、エッチングをした後の顕微鏡写真を、それぞれ図10と図11に示す。なお、両図の(a)と(b)はそれぞれピラミッド上部と下部から撮影した写真である。図10と11の(a)の写真からコーティング材による色の違い分かる。光のあたり方にもよるがTiNは褐色を帯びた金色、 HfO_2 は多少緑がかかった白色であるが、セラミック膜の状態に関してはエッチング前後での違いは見られなかった。

一方、ピラミッド下方からの観察では、ピラミッドの下部だけ色が変わっていることを確認できる。窪んでいるため多少暗くなっているが、ピラミッドの裏側の色は図10(a)では褐色、図11(b)では暗緑色であり、8分間でアルミ箔がほぼ完全にエッチングされたことが分かる。図7の結果より、成形された四角錐台の側面のアルミ箔をエッチングで完全に溶かすために必要な時間は、エッチング速度が塑性変形の影響を受けないと仮定した場合13.9分と算出されたが、実際には8分でエッチングが完了している。このことからインクリメンタル・フォーミングにより成形されたピラミッドでは転位等の欠陥が増え、エッチング速度が約75%増大したと推測される。また厚さ12 μmの未変形部分のアルミ箔では、8分間に約4 μmだけエッチングされ、まだ8 μmの厚さが残っているものと推定される。

以上の結果に基づいて、図12の形状と配列を有する多数の微細ピラミッド群を、先ず、アルミ箔に成形し、次いで、成形したアルミ箔に HfO_2 のコーティングを施し、最後に微細ピラミッドの部分のアルミ箔だけをKOH水溶液でエッチングすることにより、セラミックの微

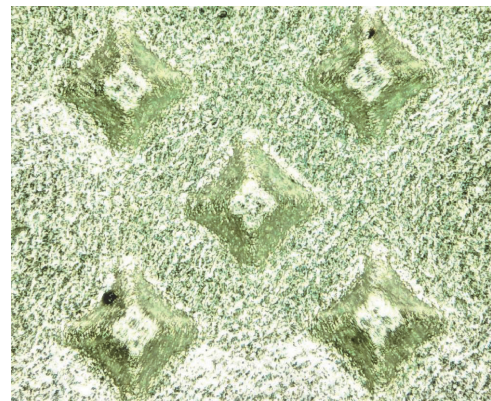


(a) ピラミッド上部からの観察

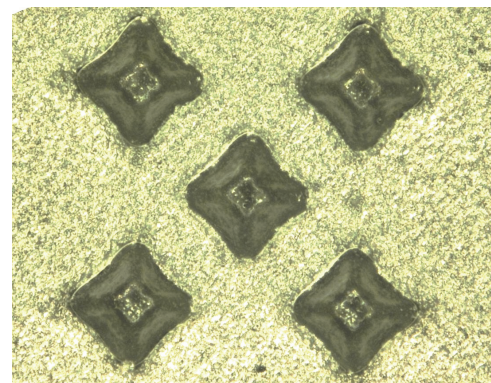


(b) ピラミッド下部からの観察

図10 8分間のエッチング後の顕微鏡写真 (TiN)



(a) ピラミッド上部からの観察



(b) ピラミッド下部からの観察

図11 8分間のエッチング後の顕微鏡写真 (HfO_2)

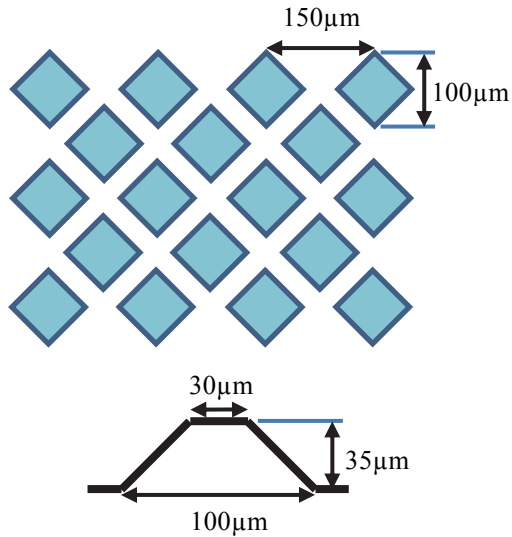


図 12 セラミックスの微細薄膜構造アレイとそれを構成する四角錐台の対角断面の寸法

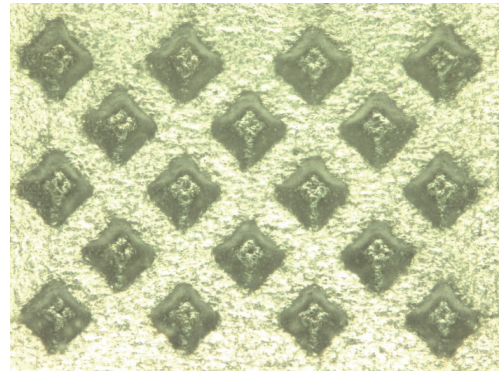
細薄膜構造アレイを作製した。なお、本モデルにおいても表 1 と同様に半頂角は $\theta = 35.3^\circ$ である。図 13 に作製した微細薄膜構造アレイの光学顕微鏡写真を示す。HfO₂ の膜厚は平坦部で 3 μm である。同図 (a) と (b) はいずれもピラミッド上部からの顕微鏡写真であるが、(a) は上方から投影された光による観察、(b) は透過光による観察である。HfO₂ は透明ではないが、3 μm の厚さであれば十分に光を通すので、透過光での観察結果から、アルミ箔がほぼ完全にエッチングされていることを確認できる。

図 13 の微細薄膜構造アレイを SEM で観察した結果を図 14 に示す。同図 (a) は微細薄膜構造アレイの顕微鏡写真、(b) は四角錐の寸法計測の結果である。真上から観察した図 13 (a) と異なり、図 14 (a) では、コーティング時の特に加熱による歪みが大きいことが分かる。図 10, 11 のようにピラミッドの数が少なく狭い範囲であれば問題はないが、多数の立体形状からなる広い範囲の微細薄膜構造アレイを作製する場合には、熱変形への対策、例えば、より低温でのセラミックコーティング技術の開発等が必要になるものと思われる。

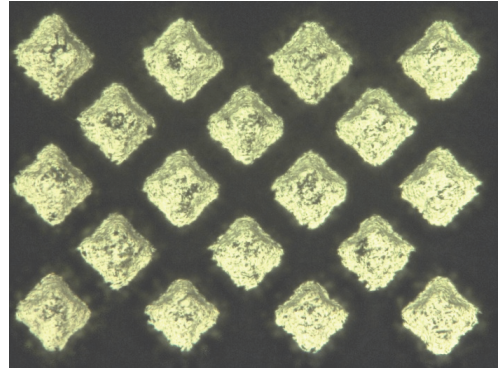
図 14 (b) で計測された微細薄膜構造アレイのひとつの四角錐台の寸法は、底面の辺の長さが 65 μm、高さが 32 μm である。図 12 の形状では底面の対角線長さが 100 μm であるので、辺の長さは 70 μm となる。したがって所定の寸法より少し小さめの四角錐台が出来上がったが、熱変形等による歪みの影響が大きいと考えられる。

4. 結論

本研究ではアルミ箔のマイクロ塑性加工技術とコーティング、エッチングとを組み合わせ、セラミックスの微細薄膜構造アレイを作製する技術を開発した。先ずインクリメンタル・マイクロフォーミングによる微細ピラ

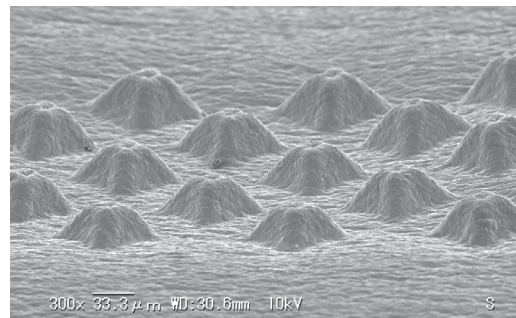


(a) ピラミッド上部からの観察 (反射光)

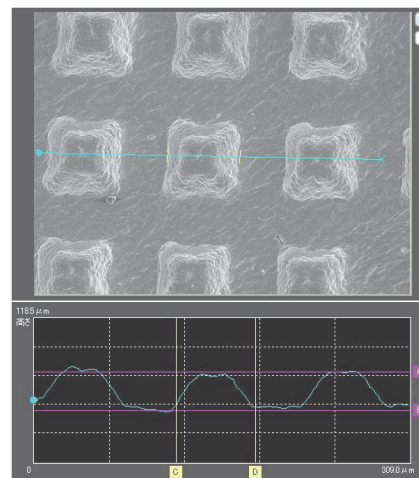


(b) ピラミッド上部からの観察 (透過光)

図 13 セラミックスの微細薄膜構造アレイの光学顕微鏡写真



(a) 微細薄膜構造アレイ



(b) 成形されたピラミッドの寸法計測

図 14 セラミックスの微細薄膜構造アレイの SEM 観察

ラミッドの成形に関しては、ピラミッドの高さを抑え、箔の伸びを73%としたので、良好な成形が可能であった。次にアルミ箔へのセラミックスのコーティングに関しては、おそらく世界で初めての試みであるため他に参考となる事例がないが、コーティング時の加熱によるアルミ箔の熱変形が無視できないことが確認された。範囲の狭い微細薄膜構造アレイであれば、大きな問題ではないが、多数の立体形状からなる広い範囲の微細薄膜構造アレイを作製する場合には、熱変形への対策が必要となる。例えば、より低温でのセラミックコーティング技術の開発等が必要になるものと思われる。

アルミ箔のエッチングに関しては、微細薄膜構造アレイ全体の強度を維持するため、未加工部分ではアルミ箔を残し、加工された立体構造の部分のアルミ箔だけを選択的にエッチングする必要がある。これについては、塑性変形によりアルミ箔のエッチング速度が増大することを利用するだけで、実質的に選択的なエッチングが可能となることを見出し、微細薄膜構造アレイの製作に適用した。その結果、マスキング等を全く使用する必要がなく、大変効率的なエッチングが実現できることが明らかとなった。

本研究で開発したセラミックスの微細薄膜構造アレイの製法は、前例のない加工法であるため、技術的に改善すべきことは多いと思われるが、加工技術の個々の要素は難しいものではない。そのため、薄膜のセラミックセンサー等のラピッドプロトタイピングの手法として利用できるものと思われる。

謝辞

本研究の一部は公益財団法人天田財団の平成22年度一般研究開発助成によるものである。記して深甚なる謝意を表す。

参考文献

- 1) 松本憲幸・帯川利之：2010年度精密工学会春季大会 学術講演会講演論文集，(2010)，1091-1092.
- 2) T. Obikawa・N. Matsumoto・S. Togo・T. Matsumura・J. Leopold：Proc. 9th Int. Conf. THE “A” Coat. Manuf. Eng., Thessaloniki, (2011), 57-64.
- 3) T. Sekine・T. Obikawa：J. Adv. Mech. Des. Sys. Manuf., 4 (2010), 543-557.
- 4) <http://www.saf.co.jp/A07-1sohaku.html>
- 5) T. Obikawa・T. Hakutani・T. Sekine・S. Nakajiri・T. Matsumura・M. Yoshino：J. Adv. Mech. Des. Sys. Manuf., 4 (2010), 1145-1156.
- 6) 井関日出男・加藤和典・坂本誠一郎：日本機械学会論文集(C編)，58-554 (1992)，3147-3155.
- 7) T. Obikawa・S. Satou・T. Hakutani：Int. J. Mach. Tools Manuf., 49-12 (2009), 906-915.