共有結合性セラミックスのレーザ加工 に関する研究（第1報）*

— 蒸気圧とプラズマの生成挙動 —

森田 昇*** 荘 志剛** 渡部武弘*** 吉田嘉太郎***

Study on the Laser Processing of the Covalent Bond-Ceramics (1st Report)
— The Dynamic Behavior of Laser-produced Vapor and Plasma —

Noboru MORITA, Zhi Gang ZHUANG, Takehiro WATANABE and Yoshitaro YOSHIDA

This paper describes the dynamic behavior of the vapor pressure and plasma potential to investigate the metallic phase formation mechanism in laser-processing of the covalent bond-ceramics. The vapor pressure was measured with a high sensitivity acceleration sensor. The plasma potential was detected with electrical probes, which have been newly developed. The vapor pressure increases linearly with the peak power to about 39.2 MPa. The plasma propagation speed is higher than the velocity of sound nearby the target.

Key words: laser processing, vapor pressure, plasma, ceramics

1. 緒 言

共有結合性セラミックスは、その結合様式に由来して一般に、高い硬度と低い熱膨張率を持つ。また、常圧下での加熱では融解が起こらず、ある温度以上で直接分子状の気体を発生して分解する昇華性の物質でもある。レーザ光を用いた急峻な熱分解を行うと、加熱部に金属相が生成される¹⁾。これは、共有結合性セラミックスのレーザ加工において極めて特徴的な点である。この現象を利用して配線の直接描画ができる²⁾が、一方で半導体基板としての絶縁性能を劣化させるという問題も生じる³⁾。

本研究の目的は、共有結合性セラミックスのレーザ加工における金属相の生成挙動を明らかにし、それを制御する方策を見いだすことである。その第1段階として、金属相生成の原因が急峻な昇華分解に伴う高温・高圧の金属蒸気の発生にあるとの観点から、蒸気圧や蒸気速度等の基本的因子の挙動を把握するための実験を行った。蒸気圧の測定には小型加速度センサを振子状に用いる手法を、蒸気速度と蒸気密度分布の測

定には微小電位プローブを使用する方法を開発した。

2. 実験方法

2.1 加速度センサを用いた加工圧力の測定方法

実験装置の構成を図1に示す。レーザ発振器はパルス励起のYAGレーザで、使用したレーザ波形は矩形に近いものである。振子状に釣り下げられた加速度センサ（重さ2.02 g）に厚さ5 mmのセラミックス試料（重さ2.33~2.53 g）を固定する。その表面に集束レーザ光を水平方向から1パルス照射すると、急激な蒸発現象に伴い試料に推力 F が生じる。この時、加速度センサより出力される過渡信号は、試料表面に垂直な推力 F により生じる加速度 a の変化を示す。したがって、加工部に生じる圧力（以下加工圧力と呼

Fig. 1 Measuring apparatus for the dynamic driving force during laser processing

* 原稿受付 平成2年10月31日。1990年度精密工学会春季大会学術講演会（平成2年3月29日）および1990年度精密工学会秋季大会学術講演会（平成2年9月28日）にて発表

** 学生会員 千葉大学大学院（千葉市弥生町1-33）

*** 正会員 千葉大学工学部

Table 1 Characteristics of the acceleration sensor

Charge sensitivity	0.295 pc/ms ⁻²
Weight	2 gf
Undamped natural frequency	120 kHz

Table 2 Properties of Si₃N₄ and AlN ceramics

Material	Si ₃ N ₄	AlN
Density 10 ³ kg/m ³	3.26	3.25
Thermal conductivity W/m·K	29.3	260
Thermal expansion coefficient 10 ⁻⁶ /K	3.2	4.4
Bending strength MPa	980	343

ぶ) P は, $P = F/S = ma/S$ となる. ここで, S は加工部の表面積, m は系の質量である.

試料に働く推力 F は, 噴出する蒸気と飛散する粒子 (以下スプラッシュと呼ぶ) による動的な反力及び加工部に生じる蒸気圧による静的な反力からなると考えられる. ここでは, 三者をそれぞれ蒸発反力, スプラッシュ反力及び蒸気圧力と定義する.

表 1 は加速度センサの特性である. この加速度センサは, 優れた感度と 40 kHz 近傍までフラットな周波数特性を有している. 本実験で採用した振子法ではセンサ自身が拘束されないため, 試料表面に垂直な推力の変化が正しく計測できる. 表 2 は, 使用した AlN セラミックスと Si₃N₄ セラミックス試料の特性である. これらは溶解せずに分解する昇華性の物質である.

2.2 電位プローブを用いたプラズマ成長速度の測定方法

ここでは, 蒸気の電離現象に着目し, 試作した電位プローブを用いて電離蒸気 (以下プラズマと呼ぶ) 内に生じる起電力を測定し, プラズマの成長速度 V_0 と空間分布を推定する方法を示す. この成長速度から蒸発反力が推定できる.

実験装置の構成を図 2 に示す. 試料は, 表 2 に示す AlN セラミックスと Si₃N₄ セラミックスの表面に, 電極として厚さ 200 Å 程度の金を蒸着したものである. 加工部の上方には, プラズマによる起電力を検出するための電極板 (50×50×0.8 mm) を試料表面と平行に設置する. レーザ光を照射するとプラズマが発生し, それが電極板に到達する時, 回路に電流が生じる. 図 3 は, レーザ光と同時にモニタしたプラズマ起電力の代表例である. 試料-電極板間の距離は 4 mm である. プラズマはレーザ照射後数十 μ s 遅れて電極板に到達する. レーザプラズマが電極板に到達するまでの時間と試料-電極板間の距離から, プラズマの成

Fig. 2 Detecting method for the plasma potential **Fig. 3** Typical plasma potential signal with laser output signal (upper one) **Fig. 4** Measuring method for the plasma potential distribution and plasma propagation speed using the pin-type probe

長速度が求まる.

次に, プラズマの分布状況を把握するために, 図 4 に示すようなピン型の小型電位プローブ (直径 0.1 mm の銅線に絶縁被覆したもの) を試作し, プラズマ内の各位置における電位差を測定した. ビーム中心からの電位は, 各位置における電位差を中心から積算して求めた. また, プラズマの密度分布状況は, 起電力

(a) Laser output power

(b) Acceleration signal

$D=54.7 \text{ kW/mm}^2$ $t=1.7 \text{ ms}$ AlN ceramics

Fig. 5 Laser output signal (a), acceleration signal (b)

の変化率と方向から定性的に求めた。

3. 実験結果及び考察

3.1 加工圧力

金属相の生成機構を究明するためには、加工部に生じる蒸気圧を知ることが必須となる。ここでは、小型加速度センサを用いて加工圧力を測定することにより、スプラッシュ反力と蒸発反力や蒸気圧とを分離・計測できることを示す。

図5は、レーザ光（上段）と同時にモニタされた加速度波形（下段）を示している。加速度は、レーザ照射開始直後に生じ、レーザ光の照射中はその強度に対応して連続的に発生している。観察される加速度波形は、矩形状のレーザ波形と近似な波形（低周波成分）にスパイク状の波形（高周波成分）が重畳したものとなっている。このことは、推力の駆動力となる加工反力が蒸発とスプラッシュという異なる現象に起因していることを示唆している。すなわち、低周波の加速度波形は蒸発に起因し、高周波の加速度波形はスプラッシュに起因しているものと考えられる。

これを検証するため、図6に示すように、AEセンサを密着した透明ガラス板を加工部の上方または横側に設置し、これにスプラッシュを衝突させた。図7は、ガラス板と試料表面との位置を変えた場合のAE波形（上段）とその周波数特性（下段）を示している。ガラス板が試料に近い場合（a）、強いAE波と高周波側にピークが認められる。そのピークの周波数は加速度センサで測定されたものと一致した。一方、ガラス板が試料から遠い場合（b）あるいは横側にある場合（c）、AE波は検出されたが、高周波領域の

Fig. 6 Apparatus for the detections of splashing and vaporizing phenomena using a glass plate fixed on AE sensor

Fig. 7 AE signals (upper ones) and their power spectra (lower ones) with various positions of the glass plate; (a) $L=10 \text{ mm}$, (b) $L=20 \text{ mm}$, (c) nearby the target

ピークは認められなかった。この時ガラス板へのスプラッシュの付着も観察されなかった。これらのことから、スパイク状の加速度波形はスプラッシュによる反力に起因したものであると断定できる。

本研究の実施にあたって重要なのはスプラッシュ反力ではなく、蒸発に起因した反力である。以下の実験では、ローパスフィルタを用いて 3 kHz 以上の高周波成分を分離することにより、スプラッシュ反力に起因したスパイク状の加速度波形を排除した。

図8は、レーザ光のパルス幅を変化させた場合の加速度波形（下部）を示している。加速度の大きさはパルス幅に依存しないが、その変化はレーザ波形に似ている。この加速度波形の最大値より、スプラッシュ反力を除いた加工圧力を求めた。図9と図10は、それぞれ AlN と Si_3N_4 セラミックスを用い、パルス幅をパラメータとした場合のピーク出力と加工圧力の関係である。本実験条件においては、加工圧力はパルス幅

Fig. 8 The dependency of acceleration on the laser pulse duration

Fig. 9 The dependency of vapor pressure on the laser peak power with variation of the laser pulse duration using AlN target

に依存せず、ピーク出力と比例関係にあることがわかる。すなわち、レーザ光のパワー密度が高く単位時間・単位面積当たりの蒸発量が多いほど、高い加工圧力が発生するといえる。本実験で得られた加工圧力は、AlN と Si₃N₄ の場合共に 0.8~4 kgf/mm² である。

3.2 プラズマの成長速度

図 11 は、レーザ光のパワー密度をパラメータとして電極板と試料間の距離を変化させた場合のレーザ光と起電力の発生時間差を示している。パワー密度の増

Fig. 10 The dependency of vapor pressure on the laser peak power with variation of the laser pulse duration using Si₃N₄ target

Fig. 11 The relationship between the distance from a target and the plasma reaching time

加と共に起電力発生までの時間も短くなっていく。図 12 は、図 11 の結果から求めたプラズマの成長速度である。プラズマの成長速度は、レーザ光のパワー密度に依って大きくなる。また、成長速度は加工部近傍（試料表面から 2 mm 以下）では音速より大きく、試料表面から離れるに従って急激に小さくなる。試料表面から約 12 mm 以上離れた領域では、プラズマの成長速度は零に近づき、プラズマの成長限界となる。高パワー密度のレーザ光を用いるとき、加工部近傍では、蒸気の急熱膨張により 1000 m/s 程度でプラズマが発生すると予想される。

Fig. 12 The relationship between the distance from target and the plasma propagation speed

Fig. 13 Sources of thrust; the vaporization reaction force and the vapor pressure force

3.3 蒸気圧の推定

加速度センサを用いた加工反力 F の測定において、スプラッシュに起因した反力と蒸気に起因した反力 F' とを分離・測定することができた。後者は、厳密には図13に示すように更に、動的な蒸発反力 ($= W \cdot V \cdot S$) と静的な蒸気圧による反力 ($= (P_v - P_a)S$) の和として考える必要がある。すなわち、 $F' = W \cdot V \cdot S + (P_v - P_a)S$ となる。ここで W は単位時間・単位面積当たりの蒸発量 ($\text{kg/s} \cdot \text{mm}^2$)、 V は噴出する蒸気速度 (m/s)、 P_v はAlの蒸気圧 (kgf/mm^2)、 P_a は大気圧、 S は加工部の表面積 (mm^2) である。従って、蒸気に起因した圧力 P は、 $P = F'/S = W \cdot V + (P_v - P_a)$ となる。そして、実験的に求めた W 、 V 及び P の値を代入すると、金属の蒸気圧 P_v が求まる。前節までに、蒸気に起因する圧力 P (kgf/mm^2) と噴出する蒸気速度 V (m/s) が求められている。ここでは簡単な穴加工実験により求めた、単位時間・単位面積当たりの蒸発量 W ($\text{kg/s} \cdot \text{mm}^2$) から蒸気圧 P_v (kgf/mm^2) を推定する。

図14は、パルス幅をパラメータとした場合のレーザ光のピーク出力と蒸発量の関係を示している。蒸発量は穴断面形状を周積分して求めた。蒸発量はパルス幅やピーク出力と共に増加する。図15は、パルス幅

Fig. 14 The dependency of vaporized volume on the laser peak power

Fig. 15 The dependence of vaporized mass on the laser peak power

をパラメータとした場合の、ピーク出力と単位時間・単位面積当たりの蒸発量 W の関係を示している。本実験条件において単位時間・単位面積当たりの蒸発量は、最高で $3.5 \times 10^{-3} \text{ kg/s} \cdot \text{mm}^2$ 程度である。そこで $V = 0.5 \times 10^6 \text{ mm/s}$ 、 $W = 3.5 \times 10^{-3} \text{ kg/s} \cdot \text{mm}^2$ とすると、 $W \cdot V = 0.175 \text{ kgf/mm}^2$ となり、蒸発反力による圧力は測定された加工圧力 P と比較して、1/20 以下と非常に小さいことがわかる。また、 P_a も無視できるほど小さい値 (0.01 kgf/mm^2) であるため、加工圧力 P は蒸気圧 P_v とほぼ等しい値と考えてよい。したがって、AlN や Si_3N_4 セラミックスのレーザ加工時の加工部近傍の圧力は、 $0.8 \sim 4 \text{ kgf/mm}^2$ と算定された。

3.4 プラズマの分布状態

図16(a)は、ビーム中心からの電位を測定した結果である。光軸から半径方向に離れるに従って起電力は大きくなる。図16(b)は、起電力の変化率と方向からプラズマの密度分布状態を定性的に示したもので

Fig. 16 The plasma potential (a) and the plasma distribution (b) with distance from laser beam axis

ある。プラズマの密度はビーム中心では大きく、半径方向又は高さ方向に離れる程小さくなっていく。すなわち、加工部近傍は高パワー密度のレーザー光により、高温状態になり、蒸気の電離が激しく行われていると推測される。AlNのレーザー加工では、昇華分解したAlが電離し、そのAlのイオンが加工部に高密度に存在していることが推定できる。この高密度Alプラズマが、発光や高圧、高温の起源であり、Al金属生成の基本因子であると考えられる。

4. 結 言

共有結合性セラミックスのレーザー熱分解による金属層の形成機構を解明することを目的として、金属蒸気の圧力や速度等の基本的因子を把握するための実験を行い、次の結論を得た。

- (1) 小型加速度センサを振子状に用いる加工反力の測定手法を開発した。加工反力は蒸発とスプラッシュに起因した成分に分離・測定できる。
- (2) 小型プラズマ電位プローブを使用する蒸気速度の測定方法を開発した。蒸気速度は加工部近傍

では音速より大きく、試料表面から離れるに従って急激に小さくなる。蒸気速度から加工部に生じる蒸発に伴う反力を求めることができた。

- (3) 小型加速度センサで測定された加工反力は蒸発反力と蒸気圧に分離できるが、蒸発反力の値は加工反力の1/20以下であるので、測定された加工反力は蒸気圧と見なすことができる。

- (4) 蒸気圧はレーザー光のピーク出力と比例関係にあり、レーザー光の熱流束密度が高く単位時間・単位面積当たりの蒸発量が大きいほど、高い蒸気圧が発生する。本実験条件下における蒸気圧は、AlN, Si₃N₄共に最高で4 kgf/mm²程度である。

以上の結果より、共有結合性セラミックスのレーザー加工では昇華分解した金属元素が電離し加工部に高密度に存在しており、これが金属層生成の基本因子となっていると考えられる。金属層生成はこの金属蒸気が飽和蒸気圧に達し、その液相を形成することに起因すると考えられる。今後は、この推定を検証するために、金属蒸気の圧力のほかに温度を求め、熱力学的に考察する。

謝 辞

本研究を進めるにあたり、ご助言をいただきました職業訓練大学校武藤一夫講師に厚く御礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) R. J. Wallace and S. M. Copley: Laser Machining of Silicon Nitride: Energetics, Advanced Ceramic Mat., 1, 3, (1986) 277.
- 2) 森田 昇, 渡部武弘, 吉田嘉太郎: セラミックスのレーザー熱分解による導体膜の直接選択形成に関する研究, 日本機械学会論文集, 55, 515-C (1989) 1796.
- 3) 荘 志剛, 森田 昇, 渡部武弘, 吉田嘉太郎: 窒化アルミニウムセラミックスのレーザー加工 (第1報), 1990年度精密工学会春季大会学術講演会講演論文集 (1990) 583.