

機関番号：12608

研究種目：基盤研究 (B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20360065

研究課題名(和文) レーザ光の背面照射による透明材料の高アスペクト比クラックフリー加工

研究課題名(英文) High-aspect-ratio crack-free processing of transparent materials by laser-backside irradiation

研究代表者

戸倉 和 (Tokura Hitoshi)

東京工業大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号：10016628

研究成果の概要(和文)：

申請者らが見出した透明材料の内部変質現象を応用し、加工の可能性を追求する。金属箔／膜をガラス表面に載せ／成膜し、反対側の面よりガラスを透過してレーザ照射する。金属箔が加熱され接している部分のガラスも温度上昇する。その結果ガラス自身の光吸収率が上昇し、ガラス自体が光吸収し、内部に変質層を導入できる。この変質層とエッチングなどを組みあわせることでクラックフリー加工法の可能性を検討した。

研究成果の概要(英文)：

We report on a permanent change in the physical properties inside glasses using a continuous-wave laser beam. The method is explained as follows: the absorption of the glass was enhanced by laser heating, and the heated spot moved as a result of thermal radiation and conduction. To trigger heating, an absorbent material was placed on the backside of a glass plate and irradiated through the glass. Etching of the modified zone formed cone shaped structures. The modified zone was bended and curved by changing the direction of the laser beam.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	8,000,000	2,400,000	10,400,000
2009年度	3,200,000	960,000	4,160,000
2010年度	2,800,000	840,000	3,640,000
年度			
年度			
総計	14,000,000	4,200,000	18,200,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・生産工学・加工学

キーワード：レーザ、透明材料、変質

1. 研究開始当初の背景

ガラスをはじめとした透明材料は、その透明性、化学的安定性などを利用し、光通信デバイス、micro TAS (Lab on a chip) など様々に利用されている。このような応用から微細加工へのニーズも多く、レーザによる加工も多く研究されている。しかしその多くは、エネルギー密度の高いパルスレーザ光を照射して微細な亀裂を発生させ、それらを進展させつつ除去する方法である。

これに対して、研究代表者の戸倉はガラス板の背面側に金属を接触させ、ガラスのもう一方の側からガラスに吸収されない連続発振のレーザ光を入射させたところ、金属側に発光が起こり、やがてこの発光点がレーザ光入射側へ移動する現象を見いだした。この発光点の軌跡には直径 30 μm の棒状の穴が空いているように観察された。ガラスが変質して光学的性質が変わったことによりこのように観察されたことが分かった。これは高いパワーのレーザを光ファイバに通したときに、

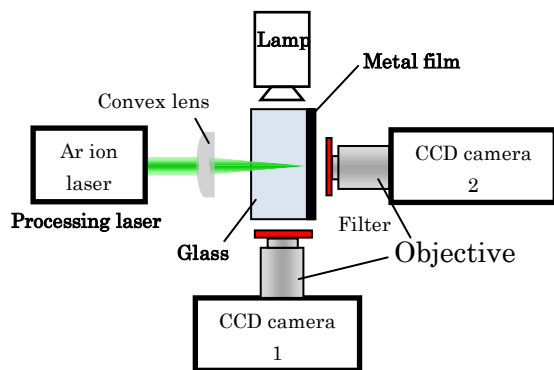


Fig. 1 Illustration of experimental

ファイバ自体の光吸収によって、ファイバが損傷するファイバーヒューズと呼ばれる現象と同様のもの、ガラス自身が高温になると光吸収することで起きる。

2. 研究の目的

本研究ではこの変質層を使った、クラックフリーの加工の可能性を追求する。具体的には、前述したガラスの光吸収を使ったものと、上記実験中に見出した吸収材を内部に導入することで変質層を作製する方法を用いて、ガラスに変質層を導入し、変質層を使ったクラックフリー加工法の可能性を検討した。

3. 研究の方法

実験装置を図1に示す。ガラスに対して透過率の高い波長 514.5nm の光を発振するアルゴンイオンレーザー (TSM-20, Coherent 社製) を焦点距離 169.7mm の平凸レンズを用いて集光した。焦点は金属膜表面に合わせた。照射時の様子を観察するため、2つの CCD カメラを用い、レーザーの光軸に対して直交する方向 (カメラ 1) と光軸に平行に白金膜の反対側 (カメラ 2) から同時に観察を行った。どちらのカメラの前にも散乱したレーザー光や放射光を除くために青～赤外カットフィルタ (カットオフ波長 390nm) を設置した。CCD カメラ 1 は試料の反対側より照明を行い、透過光像を観察し、CCD カメラ 2 は同軸落射照明することで、反射光を観察している。

本報で使用した金属を代表的な物性値の一覧と共に表1に示す。本手法は連続発振レーザーを使用し、金属箔を加熱し、ガラスの温度を上昇させガラス自体の光吸収を起したり、金属を熔融させ、微粒子としてガラス内部に導入させたりしているため、金属の性質の中でも熱伝導率、融点の違いが導入に大きな影響をおよぼすと推測される。そこで、白金を基準に、融点、熱伝導率の異なる金属を選択した。白金、タンタル、スズ、銀については、スパッタリングにより成膜した。白金については純金属ではなく、パラジウム 10%含む合金を使用している。いずれの金属

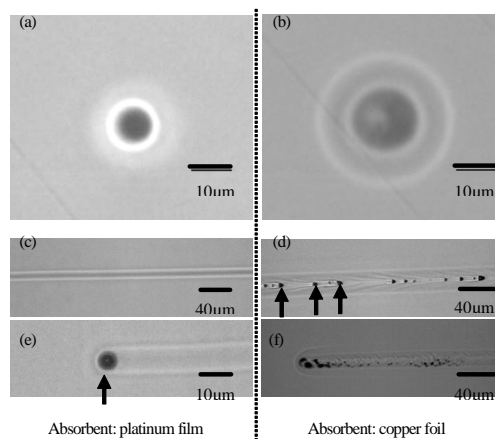


Fig. 2 Micrographs of the doped platinum particle and modified glass. (a), (c), (e): platinum film was deposited on the glass and platinum particle implanted into glass, laser power: 4.2 W. (b), (d), (f): copper foil was placed on the glass, laser power: 11 W. Cross section of the modified zone at 1 mm from the platinum film (a) and copper foil (b), transverse section of the modified zone in the middle (c), (d) and at the tip (e), (f).

Table 1 Properties of absorbers

	ρ g/cm ³	C J/g·K	K W/m·K	T_m K	T_b K	R %
Copper	8.96	0.38	395	1358	2844	59
Nickel	8.90	0.44	83	1728	3163	43
Platinum	21.45	0.13	72	2041	4100	65
Silver	10.50	0.232	422	962	2162	91
SUS304	7.93	0.502	16.5	1670- 1730	-	49
Tantalum	16.65	0.14	58	3268	5783	47
Tin	7.31	0.228	63	504	2876	96

Note: ρ , C, K, T_m , and T_b , R are density, specific heat, thermal conductivity, melting Point, boiling point and reflectivity, respectively. The values of specific heat C is at 373K and other values are at room temperature.

も厚さは 1 μm 程度とした。膜厚の影響を評価するため、白金についてのみ膜厚 0.1 μm , 1 μm , 5 μm の試料を準備した。ニッケル、銅、SUS304 については、成膜ではなく厚さ 10 μm の箔をガラス裏面にのせ、さらにその後ろから別のガラスで挟んで使用した。本報告書では、代表的な結果として銅と白金を使用した結果について述べる。

ガラスには、耐熱性に優れる石英ガラスと石英ガラスに比べ軟化点の低いホウ珪酸ガラスを使用した。

4. 研究成果

(1) 2種類の加工の様子

吸収材に白金膜 ($t = 1 \mu\text{m}$) を使用し、出力 4.2 W でレーザー照射した場合、発光点が観察された。この発光点は白金膜側から光路にそって光源側に移動し、発光点の軌跡には変質層が確認された。しかし、その発光点の移動速度は銅箔を使用し、ガラス自体の吸収を起した場合には数 10 mm/s 以上だったのに対して、白金膜を使用した場合には 1 mm/s 以下と大幅に遅かった。この原因としてメカニズムが異なると推察されたため、形成された変質層の直径と内部構造を光学顕微鏡により詳しく観察した。

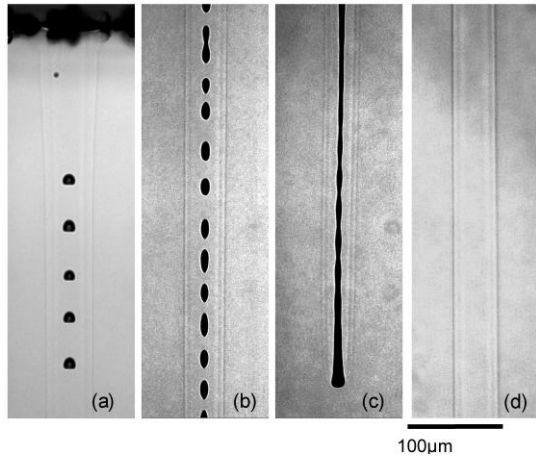


Fig. 3 Optical micrographs of transverse section of modifications in glass, (a) in the neighborhood of copper foil, (b) around the middle of the modified area, (c) at the tip of the laser source side, and (d) at the part without voids. (a)-(c) Laser power: 11 W, (d) laser power: 20 W, ~9 mm from the surface in contact with copper foil.

図 2 にその結果を示す。同図(a), (c), (e) は吸収材に白金膜を使用した変質層, 同図(b), (d), (f) はと同様に吸収材に銅箔を使用した変質層である。同図(a), (b)は金属膜/箔に接していた面からガラスを厚さ 1mm 程度除去し, 鏡面研磨した変質層断面図, 同図(c), (d)は変質層の側面図, 同図(e), (f)は形成された変質層の先端部の側面図である。同図(a)と(b)の比較より, 白金膜を使用して形成される変質層の直径は 10 μm 程度であり, 銅箔を使用した場合の変質層の直径 50 μm 程度と比べ小さい。銅箔を使用した場合, 同心円 2 層構造を確認できるが, 白金膜を使用した場合の外側の層はうすく, 境界部がはっきりしていない。また同図(c), (d)の変質層の側面図を比較すると, 銅箔を使用して形成する変質層内部には矢印で示す部分に気泡が断続的に内包される場合があるが, 白金膜を使用して形成する変質層内部には気泡の混入は確認できない。同図(e), (f)の変質層の先端部を比較すると, 白金膜を使用した場合には, 先端に矢印で示す直径 5 μm 程度の黒い球体が存在しているが, 銅箔の場合には確認できない。

(2) ガラス自体の吸収による変質層

ガラス自体の光吸収によって形成した変質の 1 例を図 3 に示す。二層の同心円状の形状をしている。同図(a)の銅箔に接していた部分, 同図(b)の銅箔から 3mm 付近では, 点状のボイドが観察される。一方, 先端付近(銅箔から 5.5mm 程度)では長いボイドが観察される。11W では全ての場所でボイドが観察されたものの, 20W では同図(d)に示すように, ボイドの観察されない領域があった。

この変質層に直交する方向で切断研磨し, 断面のラマン分光分析を行った結果を図 4 に示す。

非照射部分, 内側の変質層, 外側の変質層でピークの強度と位置が異なっている。これ

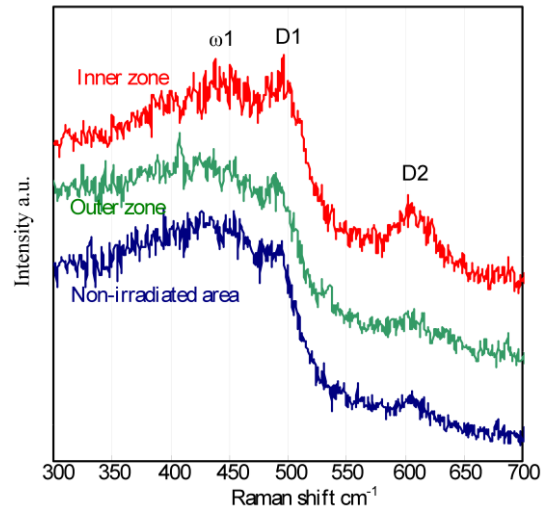


Fig.4 Raman spectra of silica glass and modified silica glass; laser power: 11 W, ~3 mm from the top surface

らの結果により, 内側は仮想温度が変化していること, 外側は引張応力が加わっていることが明らかになった。

さらにフッ酸を用いてエッチングした結果を図 5 に示す。変質部のエッチレートが上昇しており, 穴あけなどに利用できる可能性がある。

(3) 金属を導入することでの変質層

図 2(e)で観察される黒色の球体は不透明でガラスとは異なる材質だと考えられる。そこで FE-SEM と EDS を用いて先端の球体を分析した。分析を行うために, 吸収材の接していた面から先端の黒い球体まで荒研磨を施し, 最終的には粒径 1 μm 以下のダイヤモンド砥粒により黒い球体が露出した状態で鏡面仕上げした。この試料にカーボン蒸着を施し観察を行った。

図 6(a)は黒い球体の二次電子像である。表面を鏡面仕上げしてあるにも関わらず, 黒い球体の部分が白く観察され, 黒い球体部分は周囲より重い元素から構成されていると考えられる。EDS 分析により元素分析を行った。図 5(b)に黒い球体部分とガラス部分の結果を示す。ガラス部分は, ガラスの成分に含まれるシリコンと酸素の大きなピークと, ナトリウム, アルミニウムのピークが観察された。これに対して, 黒い球体部分ではガラスの成分はほとんど観察されず, 白金とパラジウムのピークのみが顕著に検出された。この結果より先端部に存在する黒い球体は, 吸収材である白金膜が球状となって導入されたと考えられる。

シリコンと白金の元素マッピングの結果を図 6(c), (d)に示す。シリコンと白金はお互いにほとんど混入することなく, 明確な境界を持っている。この結果からも黒い球体はガラスをほとんど含まない高純度の白金であるといえる。

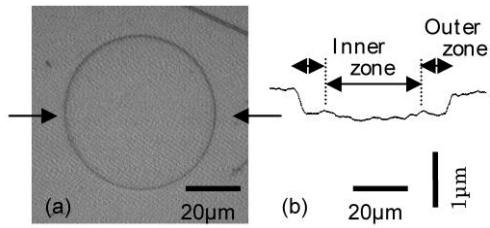
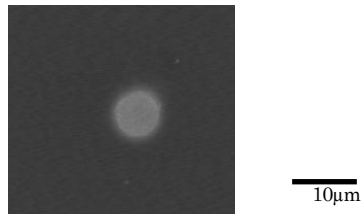
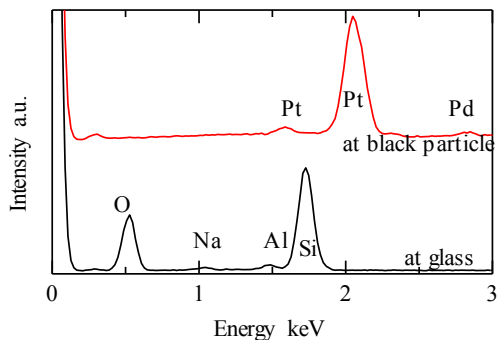


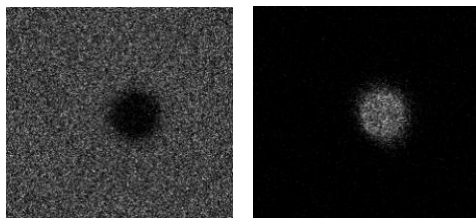
Fig. 5 Cross-sectional micrograph of modified zone (a) and surface profile between the arrows (b) after etching for 30 min in 5% aqueous solution of HF. Laser power was 11 W.



(a) Secondary Electron Image



(b) EDS spectra



(c) Si-Kα

(d) Pt-Mα

Fig. 6 SEM micrographs, EDS analysis results and X-ray maps of cross section of particle: (a) secondary electron micrograph, (b) EDS

さらに、レーザー光の光軸と平行に切断研磨し、黒い球体とその軌跡を表面に出して同様に FE-SEM, EDS で分析を行った。この結果、図 6 と同様に球状の白金が観察できた。しかし、白金球が通った軌跡の部分では白金は検出されなかった。このことから、軌跡部分には白金は残っていないと言える。このため、この変質部はガラス自体の吸収によりできた変質部と同様に、急熱急冷により仮想温度がかわり、屈折率が変化することで観察できたと考えられる。

白金がガラス中を移動する様子を in situ 観察した。レーザー出力 4.2 W, 吸収材に白金

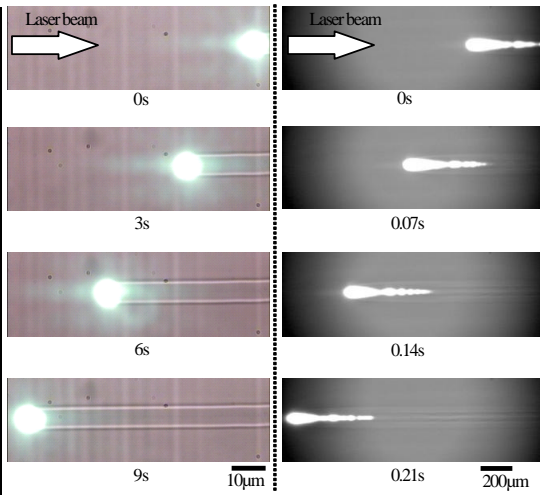


Fig. 7 Snapshots of the radiation from heated platinum particle/glass and modified glass. Left: platinum particle implanted, platinum film was deposited on the back surface of the glass, laser power: 4.2 W. Right: glass absorbs the laser beam, copper foil was placed on the back surface of the glass, laser power: 11W

膜 ($t = 1 \mu\text{m}$) を使用した場合の CCD カメラ 1 の観測結果を図 7 左側に示す。同図の右側は比較として同様に吸収材に銅箔 ($t = 10 \mu\text{m}$) を使用し、レーザー出力 11 W にて照射した際の、高速に移動する発光点の様子である。この発光点は高速に移動するため、カメラ 1 をハイスピードカメラ (Fastcam APX RS, Photron 社製, フレームレート: 500 fps) に差し替え記録した。

図の左側からレーザー照射し、図の更に右側には白金膜/銅箔が配置してある。白く見えるのが発光点で、レーザー光の光路にそって光源側に移動した。この発光点の形状は両者で全く異なっており、白金膜を使用した場合には、ほぼ円形であるのに対して、銅箔を用いた場合には、涙滴型をしており、変質層の中心部で長く尾を引いている。発光点の移動速度は著しく異なり、フレームごとの移動量から算出した速度は、銅箔を吸収材に使用した場合には、約 50 mm/s であったのに対し、白金膜を使用した場合は 0.2 mm/s 程度で、白金膜から 3mm 以上移動した。

レーザー照射を止めて確認したところ、この発光点は黒く観察され、図 5 で観察された白金微粒子と同様であった。従って、この発光はレーザー照射により高温になった白金微粒子からの放射光および散乱光と考えられる。

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 6 件)

① H. Hidai, M. Yoshioka, K. Hiromatsu and H. Tokura: Structural Changes in Silica Glass by Continuous-Wave Laser Backside Irradiation (CW-LBI), J. Am. Ceram. Soc,

93, 6 (2010) 1597-1601. 査読有

② H. Hidai, T. Yamazaki, S. Itoh, K. Hiromatsu and H. Tokura: Metal Particle Manipulation by Laser Irradiation in Borosilicate Glass, *Opt. Exp.*, **18**, 19 (2010) 20313-20320. 査読有

③ 山崎貴斗, 比田井洋史, 戸倉和: CW レーザ背面照射法(CW-LBI)によるガラスの内部変質(第3報)ーガラス内部への白金微粒子の導入ー, *精密工学会誌*, **76**, 5 (2010) 577-581. 査読有

④ 山崎貴斗, 比田井洋史, 戸倉和: CW レーザ背面照射法(CW-LBI)によるガラスの内部変質(第4報)ー白金微粒子導入により作製した変質層の評価ー, *精密工学会誌*, **76**, 6 (2010) 668-672. 査読有

⑤ 比田井洋史, 山崎貴斗, 伊東翔, 廣松邦明, 戸倉和: CW レーザ背面照射法(CW-LBI)によるガラスの内部変質(第5報)ー様々な金属のガラス内部への導入ー, *精密工学会誌*, **76**, 8 (2010) 933-937. 査読有

⑥ H. Hidai, M. Yoshioka, K. Hiromatsu and H. Tokura: Glass Modification by Continuous-Wave Laser Backside Irradiation (CW-LBI), *Appl. Phys. A*, **96**, 4 (2009) 869-872. 査読有

[学会発表] (計9件)

① H. Hidai and H. Tokura: Metal Particle Implantation by Laser Irradiation in Borosilicate Glass, 29th International Congress on ICALCO 2010, 2010年9月28日, アメリカ, カリフォルニア, アナハイム

② 比田井洋史, 戸倉和: レーザ照射によるガラス内部への金属微粒子の導入, 2010年度砥粒加工学会学術講演会, 2010年9月28日, 岡山大学, 岡山県

③ 比田井洋史, 山崎貴斗, 戸倉和: レーザ照射によるガラス内部への金属微粒子の導入, 第71回応用物理学会学術講演会, 2010年9月15日, 長崎大学, 長崎県

④ H. Hidai and T. Watanabe: Continuous-Wave Laser Induced Modification in Glasses, Internat. Conf. FLAMN-10, Fundamentals of Laser Assisted, Micro- & Nanotechnologies, 2010年7月7日, ロシア, サンクトペテルブルグ

⑤ S. Itoh, H. Hidai and H. Tokura: Glass Modification by Continuous Wave Laser Backside Irradiation (CW-LBI) -Study on the mechanism-, Internat. Symp. Adv. Abrasive Technol. ISAAT 2009, 2009年9月28日, オーストラリア, ゴースト

⑥ 伊東翔, 比田井洋史, 戸倉和: CW レーザ背面照射法によるガラスの内部変質ーメカニズムの検討ー, 2008年度精密工学会秋期大会学術講演会, 2009年9月18日, 東北大学,

宮城県(2008) 999-1000.

⑦ 比田井洋史, 伊東翔, 戸倉和: 連続発振レーザーによるガラスの変質とその現象観察, レーザ協会2009年5月20日, 東京工業大学, 東京都

⑧ 山崎貴斗, 比田井洋史, 戸倉和: CW レーザ背面照射法(CW-LBI)によるガラスの内部変質ー光吸収材金属の影響ー, 2009年度精密工学会春期大会学術講演会, 2009年3月13日, 中央大学, 東京都

⑨ 伊東翔, 比田井洋史, 戸倉和: CW レーザ背面照射法によるガラス内部の in-situ 観察, 2008年度砥粒加工学会学術講演会, 2008年9月3日, 滋賀県立大学, 滋賀県

6. 研究組織

(1) 研究代表者

戸倉 和 (Tokura Hitoshi)

東京工業大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号: 10016628

(2) 研究分担者

比田井 洋史 (Hidai Hirofumi)

千葉大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号: 60313334