

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：10106

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K04765

研究課題名(和文) 電圧プリントと選択堆積を用いた汎用ガラスへの光機能創成

研究課題名(英文) Formation of optical functions to general purpose glass using electrical print and selective deposition

研究代表者

酒井 大輔 (Sakai, Daisuke)

北見工業大学・工学部・准教授

研究者番号：10534232

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、身近なところで見かける透明なガラスに光に対する機能を加えることを目的とした研究を行いました。目に見えない程微細で周期的な構造をガラスに形成すると、その構造に応じて、光の向きや反射のしやすさ等を制御することができるようになります。しかし、ガラスは硬くて安定した材料であるため、微細な構造を形成することが難しいという問題がありました。そこで、本研究では、独自の「電圧プリント法」という技術確立し、ガラスへ微細な構造を形成することに成功しました。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ガラスへ微細な構造を形成するための方法としては、多くの場合、とても高い温度に加熱しながら高い圧力でプレスする方法や、ガラスを溶かす危険なガスを用いる方法等が必要でした。しかし、本研究で確立した「電圧プリント法」で必要なのは、一般的なレーザー装置と電圧をかける装置となります。シンプルな手法の組み合わせで、ガラスに微細な構造を形成することが可能となるため、安価に身近なガラス製品へと光機能を付与することが可能となることが期待できます。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is formation of optical functions to general purpose glass. It is well known that periodic fine structures can control light, such as, diffraction, anti-reflection, and so on. However, glass is a hard and stable material. Therefore, it is difficult to process fine structures to the glass. In this study, we established a unique technology called "Electrical print method" and succeeded in forming fine structures onto glass.

研究分野：材料光学

キーワード：ガラス 光記録 電界処理 周期構造

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

光エネルギーの有効活用や、ヘッドマウントディスプレイ等の先端ディスプレイの発展に向け、透明材料を用いた光の精密・効率的な制御の需要が高まっていた。特に、透明材料へ光の波長～サブ波長周期の屈折構造を形成することで、光の反射を低減したり、位相を制御したりすることが可能となるため、様々な研究が行われていた。多くの場合、微細な周期構造を形成するための基板となる透明材料には、100℃程度で軟化する加工性に優れたポリマーが用いられてきた。その一方で、一般的なポリマー材料は紫外線や熱などに弱く、長期間の利用や室外での利用等において課題があった。

2. 研究の目的

身近で優れた物理・化学特性を有する透明材料であるガラスは、その安定性故に微細な構造を形成することが難しかった。例えば、最も身近なガラスの一つであるソーダライムガラスを熱成型するためには600℃以上の高温加熱と高いプレス圧力を要する。また、高い透過性を有するため、一般的な光加工も困難である。ガラスに微細な構造を形成するための研究も行われており、腐食性のガスを用いたドライエッチングや、フェムト秒レーザーを用いた微細加工法などが報告されている。しかし、これらの方法では、高価な装置が必要で処理面積も限られていた。本研究では、世界的に最も普及しているソーダライムガラスを対象に、高価な装置を必要としない微細構造形成技術の確立を目的とした研究を行った。

3. 研究の方法

(1) ガラスへの屈折・回折構造転写方法「電圧プリント法」の確立

本研究では、4年間での研究遂行に向け、

- ・電圧プリント法の確立
- ・選択堆積法の発展
- ・微細屈折構造の光学機能計算・実装・評価

の3点に着目した研究を行った。特に、ガラスへ微細な屈折・回折構造を転写するための新たな方法として「電圧プリント法」の確立に注力した。

これまでに研究代表者は「コロナ放電法」や「電圧印加ナノインプリント法」を用いたガラスへの構造転写方法について研究してきた[①, ②]。本研究で確立した「電圧プリント法」は、これら2つの電界処理方法から着想を得た手法となっている。

実験手順としては4段階のプロセスとなっている。まず初めに、ソーダライムガラス上に感光性を有する材料をコートする。本研究では、照射光の強度分布に応じて直接表面形状を変調させることのできるアゾポリマーを用いた。次に、感光性材料へ向けてレーザー光による2光束干渉露光を行い、微細な周期構造を記録した。その後、図1に示すようにサンプルへの電界処理を行った。電圧プリント法では、サンプルをグラウンドに接続した平板電極上に設置し、その上には金属加工した鉄製の電極を乗せた状態でサンプルを加熱しながら、直流電圧を印加した。その後、最後にサンプル上からアゾポリマーを除去するため、アセトンを用いた超音波洗浄により、ガラス基板上からポリマーを除去した。ガラスに転写した微細な屈折・回折構造は、原子間力顕微鏡(AFM)を用いた表面形状の計測と、共焦点レーザー顕微鏡(CLSM)を用いた表面反射像の計測、暗視野での回折光の観察により、評価を行った。

(2) 選択堆積法の発展

ガラスへと転写した微細な構造を表面構造化するための後処理として、コロナ放電選択成績法[③]の応用を試みた。

(3) 微細屈折構造の光学機能計算

ガラス表面に形成する微細な構造により光はどのようなふるまいをするかについて光学シミュレーションを行った。計算には厳密結合波解析(RCWA)を用いた。

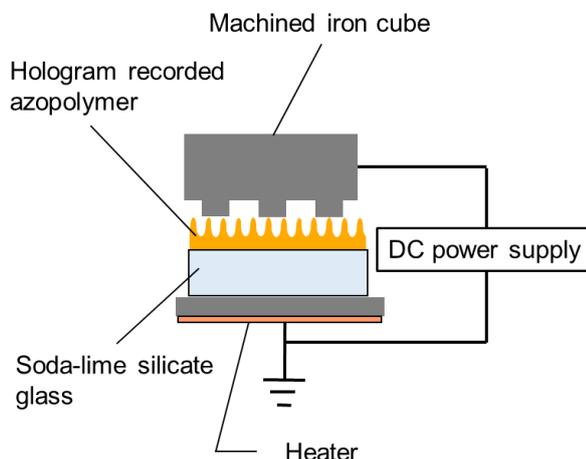
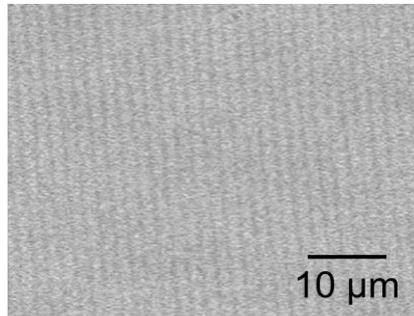


図1. 提案する電圧プリント法

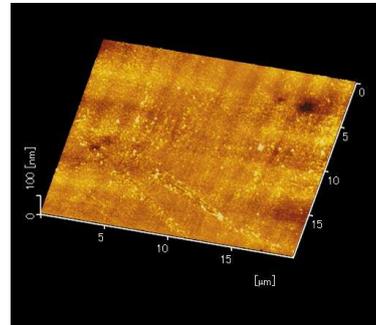
4. 研究成果

(1) 電圧プリント法によるガラスへの構造転写

電圧プリント法を用いた実験の結果、用いる電極の形状に応じてガラスへ構造転写を行うことができた。この時ガラスへ転写される構造は、感光性材料へと記録した微細構造の周期に依存する。電圧プリント法を行ったガラス表面を CLSM により観察した反射像を図 2(a)に示す。ガラス表面では、反射率の分布として微細な周期構造が形成されていることが分かった。電圧プリント法を実施したガラスの表面を AFM により観察した結果、その表面には非常にわずかな形状変化が生じていることが分かった(図 2(b))。



(a) CLSM による表面反射像



(b) AFM による表面形状像

図 2. 電圧プリント法を行ったガラスの表面

以上の実験結果から、電圧プリント法によりガラスへと転写される微細構造は、ガラスの反射率を周期的に変調させていることが分かった。本結果は、ガラス内の屈折率が周期的に変調していることを示唆する。したがって、本方法では、用いる電極の形状に応じて任意の形状に、光の周期に近い周期の屈折率変調構造をガラス内に形成形成することが可能である。

また、電圧プリント法によりガラスへ転写した周期的な屈折率変調構造は、従来研究代表者が研究していたコロナ放電を用いたガラスへの構造転写と比較すると、従来、コロナ放電による電界強度ムラにより生じていた感光性材料への局所的なダメージが、電圧プリント法では生じないことが分かった。

(2) 当初想定しなかった現象

電圧プリント法を実施する時には、上述したように、まず感光性材料上に光記録を行ってから、直流電圧印加によりその構造をガラスへと転写する。この電圧印加処理により、感光性材料上に記録された周期的な凹凸形状の構造高さが増強されることが分かった。本現象は、当初から想定していた現象ではなく、実験中に偶然判明したものである。これにより、二光束干渉露光により単純なホログラフィックグレーティングを全面的に光記録したサンプルに対し、任意の形状の電極を用いた電圧プリント法を行うことで、任意の形状のホログラムを形成することが可能である。例として、雪の結晶型の電極を用いた電圧プリント法により増強したアゾポリマー上のホログラムを図 3 に示す。

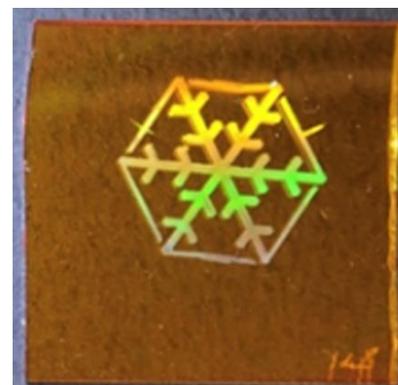


図 3. 雪の結晶の形に増強したホログラム

(3) 選択堆積法の応用

電圧プリント法によりガラス内に転写記録した周期的な屈折率分布は、そのままでもわずかな回折光を生じる。この回折光をより増強するための後処理方法として、コロナ放電選択堆積法の適用について実験した。結果として、 SiO_2 をガラス上に選択的に堆積することに成功し、周期的な凹凸構造をガラス基板上に形成することができた。ドット上に形成した周期的な SiO_2 構造から得られる回折光の様子を図 4 に示す。

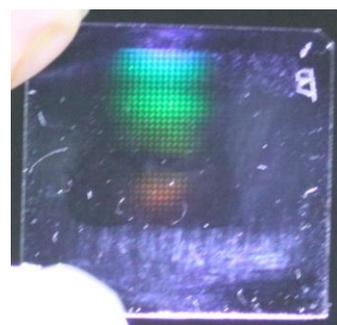


図 4. 選択堆積法により表面を微細構造化したガラス

(4) 特許出願

以上のように、本研究で確立したガラスへの構造転写技術「電圧プリント法」は、一般的な連続発振のレーザーにより形成される周期構造を、直流電圧印加を組み合わせることで身近なソーダライムガラスへと転写することが可能な技術である。このような特徴は、今後工業用途へも応用できる可能性があるため、特許の出願を行った。

(5) 展示会での研究成果公開

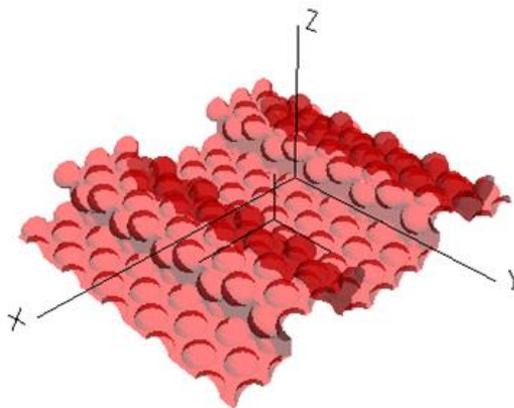
JST が主催する大学見本市として知られる産学マッチングイベントである「イノベーションジャパン」に参加し、本研究で得られた成果を公開した。会場では、目で見えてわかりやすいよう、回折構造としてホログラムを転写記録したガラスを持参し、実際に手に取って見ていただくことで、多くの企業の方々にご意見をいただくことができた。その後、JST により開催される新技術説明会での本技術の発表も決定していたが、新型コロナウイルスの感染拡大を受けて、当該説明会は中止となってしまった。

(6) 科学研究費助成事業(研究成果公開促進費)への採択

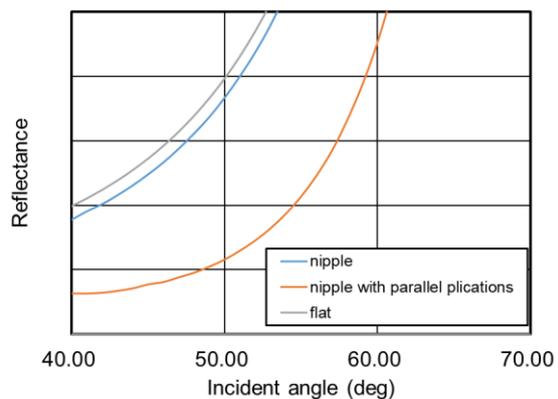
本研究で確立した電圧プリント法は、シンプルなプロセスの組合せで目に見えてわかりやすい結果が得られるという特徴を有することから、JSPS の科学研究費助成事業 科学研究費補助金 研究成果公開促進費 研究成果公開発表(B) (ひらめき☆ときめきサイエンス～ようこそ大学の研究室へ～KAKENHI)へ申請した結果、採択いただくことが出来た。「光とナノのサイエンス ～ホログラムが見えた!～」というプログラム名で実施した本事業では、12名の近隣の小～中学生を大学の研究室へ招き、1日かけて科研費の重要性や、光の基礎からホログラフィ、そして、高電圧処理などをレクチャーした上で、実際に本研究で確立した「電圧プリント法」を体験してもらった。多くの参加者に見える形で最新の研究成果を公開することができ、また、地域の子供達に科学の楽しさを伝えることができた。本研究成果公開の取り組みは、文教速報にも掲載された。

(7) 当初予期していなかった新たな知見

本研究では透明材料に形成した微細な構造による光のふるまいについて、光学シミュレーションを行ってきた。この中で、計算に用いるモデルとして、異分野の研究者と共同研究を実施している透明な海洋生物表面の微細構造を計算する機会があった。モモイロサルパ (pinkish-brown salp *Pegea confoederata*) と呼ばれる透明なプランクトンの体表にはサブ波長周期の微細なニップルアレイ構造が存在し、この構造が光反射を低減することが判明した。また、ホヤ (*Clavelina cyclus* and *C. obesa*) の表面について調べた研究では、その一部の表面に光の波長程度の褶曲構造が存在しており、更にその構造に重畳するように数 10 nm 程度の微細なニップルアレイが形成されていることが分かった。このような構造により、光の反射を抑制するのみならず、汚れの付着を抑える機能も有することが新たな知見として得られた。本成果は国際的な論文誌の表紙に採擧された。以上のように、透明な生物が生存戦略として適応進化してきた機能性構造を光計算する機会が得られたことは、本研究においても非常に有意義な知見となった。



(a) 光学計算したモデルの一例



(b) 光学計算結果の一例

図 5. 透明な微細構造の光学シミュレーション

(8) 今後の展望

研究計画書の当初の予定では、本研究は4年間での遂行を計画していたが、3年目の段階で「電圧プリント法」が技術としてほぼ確立出来ており、その特徴を把握することが出来ていた。そのため、本技術を用いた研究をより加速させるため、科学研究費補助金 研究計画最終年度前年度応募へ申請した結果、採択していただくことができた。したがって、当初の研究計画では、4年目に実験条件の最適化を目的とした研究を計画していたが、新たに光情報表示への応用に向けて本技術を発展させるための研究を開始する。

<引用文献>

- ① D. Sakai, K. Harada, S. Kamemaru, and T. Fukuda, “Hologram Replication Technique in Glass Plates Using Corona Charging” *Applied Physics Letters* **90** 061102-1-3 (2007).
- ② N. Ikutame, K. Kawaguchi, H. Ikeda, D. Sakai, K. Harada, S. Funatsu, and J. Nishii, “Low-temperature Fabrication of Fine Structures on Glass Using Electrical Nanoimprint and Chemical Etching” *Journal of Applied Physics* **114** 083514-1-4 (2013).
- ③ D. Sakai, K. Harada, Y. Hara, H. Ikeda, S. Funatsu, K. Uraji, T. Suzuki, Y. Yamamoto, K. Yamamoto, N. Ikutame, K. Kawaguchi, H. Kaiju, J. Nishii, “Selective Deposition of SiO₂ on Ion Conductive Area of Soda-lime Glass Surface” *Scientific Reports* **6** 27767-1-7 (2016).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 4件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 酒井大輔	4. 巻 461
2. 論文標題 電界処理を用いたガラスへの光情報記録と表面構造化技術	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 OPTRONICS	6. 最初と最後の頁 144-148
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 酒井大輔	4. 巻 71
2. 論文標題 汎用ガラスへの光情報記録と表面構造化	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 化学工業	6. 最初と最後の頁 575-580
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 酒井 大輔	4. 巻 102
2. 論文標題 透明媒質表面の微細構造と光反射	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 電子情報通信学会誌	6. 最初と最後の頁 934-937
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Daisuke Sakai, Hiroshi Kakiuchida, Kenji Harada, Jun Nishikawa, Euichi Hirose	4. 巻 99
2. 論文標題 Parallel plications may enhance surface function: physical properties of transparent tunics in colonial ascidians Clavelina cyclus and C. obesa	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the Marine Biological Association of the United Kingdom	6. 最初と最後の頁 1831-1839
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1017/ S0025315419000833	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 D. Sakai, K. Harada, H. Shibata, K. Kawaguchi, and J. Nishii	4. 巻 14
2. 論文標題 Surface relief hologram formed by selective SiO ₂ deposition on soda-lime silicate glass	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 PLOS ONE	6. 最初と最後の頁 e0210340
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1371/journal.pone.0210340	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 D. Sakai, H. Kakiuchida, J. Nishikawa, and Euichi Hirose	4. 巻 4
2. 論文標題 Physical properties of the tunic in the pinkish-brown salp Pegea confoederata(Tunicata: Thaliacea)	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Zoological Letters	6. 最初と最後の頁 30-35
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1186/s40851-018-0091-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 K. Masuda, R. Shinozaki, Y. Kinezuka, J. Lee, S. Ohno, S. Hashiyada, H. Okamoto, D. Sakai, K. Harada, K. Miyamoto, and T. Omatsu	4. 巻 26
2. 論文標題 Nanoscale chiral surface relief of azo-polymers with nearfield OAM light	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 22197
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.26.022197	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 酒井大輔
2. 発表標題 透明なのにMIETA! ?
3. 学会等名 第4回 情報フォトニクス Zoom-in 研究会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 福井彩, 酒井大輔, 原田建治, 西井準治
2. 発表標題 選択堆積法によるソーダライムガラス上へのSiO ₂ ホログラム形成
3. 学会等名 第4回 HODIC研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高橋伊織, 酒井大輔, 原田建治, 柴田浩行
2. 発表標題 直流電圧印加によるアゾポリマーからガラス基板への構造転写とその過程
3. 学会等名 第55回応用物理学会北海道支部/第16回日本光学会北海道支部合同学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高橋伊織, 酒井大輔, 原田建治, 柴田浩行
2. 発表標題 直流電圧印加によるアゾポリマーからガラス基板への構造転写
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 酒井大輔
2. 発表標題 ガラスへの光機能転写記録
3. 学会等名 イノベーションジャパン2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 D. Sakai, T. Yamamoto, M. Kakimi, K. Harada, H. Shibata
2. 発表標題 Amplification of Surface Relief Hologram and Structural Transfer to Soda-lime Silicate Glass Substrate Using DC Voltage Application
3. 学会等名 Information Photonics 2019 (OPIC2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 桜井翔, 酒井大輔, 原田建治
2. 発表標題 ソーダライムガラスへのセキュアQRコードホログラムの記録
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 桜井翔, 酒井大輔, 原田建治
2. 発表標題 ソーダライムガラスへのセキュアなQRコードホログラムの記録
3. 学会等名 第54回 応用物理学会北海道支部/第15回 日本光学会北海道支部合同学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 酒井大輔, 山本拓実, 垣見美里, 原田建治, 柴田浩行
2. 発表標題 アゾポリマー上の表面レリーフホログラムへの直流電圧パターン印加
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 D. Sakai, T. Yamamoto, M. Kakimi, K. Harada, and H. Shibata
2. 発表標題 Amplification of Surface Relief Hologram and Structural Transfer to Soda-lime Silicate Glass Substrate Using DC Voltage Application
3. 学会等名 OPTICS & PHOTONICS International Congress 2019 (Information Photonics 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 ガラスの表面処理方法及び表面処理装置	発明者 酒井大輔	権利者 国立大学法人北見工業大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2019-030065	出願年 2019年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------