

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	機能性素子の開発に向けたレーザー照射による分相ホウケイ酸塩ガラスおよびシリカガラスのナノ-マイクロ構造制御
Title(English)	Nano-micrometer size structural modification through laser absorption in borosilicate and silica glasses for functional device fabrication
著者(和文)	富田夏奈
Author(English)	Kana Tomita
出典(和文)	学位:博士(学術), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第12472号, 授与年月日:2023年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:矢野 哲司,松下 伸広,須佐 匡裕,林 幸,岸 哲生,比田井 洋史
Citation(English)	Degree:Doctor (Academic), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12472号, Conferred date:2023/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

## 論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	富田 夏奈		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	矢野 哲司	教授	審査員	岸 哲生	准教授
	審査員	松下 伸広	教授		比田井 洋史	千葉大学 教授
		須佐 匡裕	教授			
		林 幸	教授			

## 論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は「Nano-micrometer size structural modification through laser absorption in borosilicate and silica glasses for functional device fabrication (機能性素子の開発に向けたレーザー照射による分相ホウケイ酸塩ガラスおよびシリカガラスのナノマイクロ構造制御)」と題し、8章で構成される。

第1章「Introduction (緒言)」では、研究背景および研究目的を述べている。ガラス材料の中でシリカガラスおよび分相ガラスについて科学的工学的見地から概観し、レーザー照射による材料の加工の特徴や種類による分類とガラス材料への利用について現状を述べている。特に短パルスレーザーおよびCWレーザーによるガラス材料の加工の現状に関し、材料科学の視点からみた未開拓領域について指摘している。すなわち、レーザー照射の及ぼすガラス構造への影響に関して、振動デバイスなどの先進材料素子の作製やナノマイクロレベルでのガラス組織の変換に関して詳細な取り組みがなく、機能性ガラスの開発に関しさらに多くに知見が必要なことについて説明し、本研究の必要性和意義について述べている。

第2章「Space selective porous/non-porous design on silicate glass substrate by CW laser (CWレーザー照射によるシリケートガラス基板の多孔質/非多孔質領域の空間分布制御)」では、ソーダホウケイ酸塩ガラス(以下NBSガラス)の示す分相現象に関し、CWレーザー照射による分相組織の局所的均質化処理について調査している。1.06 $\mu$ mのCWレーザー光源に対し、この波長の光を吸収するNi<sup>2+</sup>、Cu<sup>2+</sup>イオンを含有しているNBSガラスを作製・熱処理してスピノーダル分相を生じさせた基板を用意し、種々の条件でレーザー光を走査照射し変化を観察している。その結果、レーザー照射部が加温され分相組織が消失して均質な領域へ変化するとともに、均質部と分相領域部とがナノメートルレベルの明瞭な境界を形成して隣接・内包されているガラス基板を作製できる条件があることを見出し、分相部を化学エッチングしてシリカ多孔質ガラスとし、均質部を多孔質部を区切る仕切りとする大面積リアクター用多孔質ガラス流路基板として利用できることを提案している。

第3章「Evaluation on phase miscibility in borosilicate glass probed by Ni<sup>2+</sup> ion (Ni<sup>2+</sup>の配位構造をプローブとした分相ガラスの均質相形成に関する評価)」では、第2章で見出されたNBS分相ガラスのレーザー照射による均質化に関し、レーザー光吸収のために添加したNi<sup>2+</sup>イオンの配位構造の変化に起因した着色の多様性に着目し、レーザー照射による加温によって生じるガラスの変化をNi<sup>2+</sup>の局所構造変化をプローブとして詳細に調査している。局所構造には、紫外可視光吸収スペクトル分光法に加えてX線吸収分光法(以下XAFS)により行っているが、このうちXAFS測定は室温から熔融温度までの高温測定を可能にする測定システムを構築し適用している。Ni<sup>2+</sup>の局所構造は、急冷ガラスについてはガラスの熱履歴やガラス組成により、高温融液についてはその温度により明瞭な変化を示した。これは分相/均質化の温度による変化を反映し、周囲を取り囲むガラス構造単位との相関関係を明確に示すことを明らかにしている。

第4章「Time resolved in-situ observation of dynamic transition behavior of phase miscibility during heat treatment (熱処理過程における動的な分相挙動の時分割高温 in-situ 観測)」では、ナノから数百ナノメートルまでのスケールでの組織変化を観測可能なX線小角散乱(以下SAXS)法を利用したNBSガラスにおける分相挙動について詳細な調査を行っている。SPring-8における強力なX線ソースと、独自に開発した小型高温電気炉を用い、室温から1200°Cまでの温度範囲で試料ガラスを加熱冷却し、分相の発達や消失の変化を時分割でin-situ測定することに成功している。その結果から、研究対象のNBSガラス組成におけるスピノーダル、バイノーダル分相への境界温度、分相組織消失温度を正確に把握するとともに、冷却過程の分相成長過程の冷却速度依存性を明らかにしている。

第5章「Computer simulation on spatial distribution of thermal history and phase separation in glass substrate by laser heating (レーザー照射がガラス内部に与える熱履歴と分相組織の空間分布に関する計算機シミュレーション)」では、第2章で実現したレーザー照射による均質部/多孔質部の明瞭な境界の形成機構について明らかにするため、有限要素法を用いてレーザーの走査によって生じるガラス基板内部の温度場のシミュレーションを行っている。熱伝導方程式において、遷移金属イオンによるレーザー光吸収、伝導伝熱および輻射伝熱を考慮に入れ、代表的なホウケイ酸塩ガラスの物性値を用いて計算を実施し、形成された温度分布と実際のガラス試料断面の組織変化を比較し一致することを示している。また、加熱・冷却はレーザーパワー、走査速度に強く相関していることから、分相生成温度領域における冷却速度を予測し、第4章での実験結果と整合していることを示している。また、レーザー光吸収係数の温度依存性が均質部/多孔質部の明瞭な境界とその形状を決める最も重要なパラメータであり、これらを正確に把握することでシミュレーション精度の向上が図られ、レーザー照射による温度場変化の予測が可能となることを明らかにしている。

第6章「3D micro-processing and microstructure control of silica glass by femtosecond laser irradiation (フェムト秒レーザーを用いた3次元マイクロ形状加工がシリカガラスに及ぼす影響)」では、フェムト秒レーザー照射によるシリカガラスの加工によって、アコースティックブラックホール現象を示すマイクロカンチレバー振動子の加工と評価を実施している。カンチレバー共振周波数が実測値と計算値とで大きく異なることに着目し、レーザー加工プロセスが及ぼす影響を調査したところ、エッチング後も残存している数十ナノメートルの照射痕ではヤング率等が変化し、共振周波数の動的挙動に影響を与えるなど、大きな物性変化が誘起されていることを明らかにし、振動素子などの機能を有するマイクロデバイス加工において無視することができない効果を有することを指摘している。

第7章「Nano-micrometer size structural control by laser irradiation on glass (レーザー照射によるガラスのナノマイクロ構造制御)」では、CW および超短パルスレーザーを用いてガラスの加工を行う上で、ガラスの状態を変化させることにより生まれる組織や構造の変化とその機構の解明について整理し、それらの加工プロセスの利用方法や機能発現に対する展望を述べている。

第8章「Summary (総括)」では、本論文を総括し、今後の課題について述べている。

以上を要するに、本論文は、レーザー照射を用いたガラスの組織制御に関し、CW レーザー照射、フェムト秒レーザー照射によるNBSおよびシリカガラスのガラス状態変化とその機構について調べ、レーザー照射加工によって特殊なガラス状態の生成が可能であり、レーザー特有のエネルギー吸収過程と密接に関係していることを明らかにしている。さらに、レーザー照射加工が可能にするガラスの構造・組織の利用や応用分野について提示しており、学術上貢献するところが大きい。よって本論文は、博士(学術)の学位論文として十分な価値を有するものと認められる。

注意:「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。