光学ガラスのポリシング機構

原田正一・泉谷徹郎

(株式会社 保谷硝子)

Polishing Mechanism of Optical Glass

By

Shoichi HARADA and Tetsuro IZUMITANI

(Hoya Glass Works Ltd. Tokyo)

The purpose of this work is to show the polishing mechanism of the cerium oxide and water slurry polishing process, most commonly used.

We observed :

Using the polishing of 18 different kinds of optical glasses, the relationship between microvickers hardness, softening point and chemical durability of the glass, and the rate of polishing; and the relationship between the change of surface roughness and that of the weight before and after polishing. The glass surface was observed with an electron microscope. In order to compare the water polishing with the oil polishing or the dry polishing, each type of glass was polished three ways : with cerium oxide and water slurry, with cerium oxide and kerosene slurry, and with cerium oxide alone.

Our observations follows :

1) There is no relationship between the rate of polishing glass and microvickers hardness and softening point.

2) The rate of polishing for each type of glass is dependent upon the chemical durability of the glass. In other words, the rate of polishing using cerium oxide and water slurry is mainly dependent upon the rate at which hydrated layers formed as a result of the chemical reaction between the polishing solution and the glass surface. The rate of polishing also depends upon the hardness of the hydrated layers.

3) Many scratches are observed on the polished surface. The progressive polishing is accompanied by a nearly proportional weight loss through the polishing process. These observations are conclusive evidence that the cerium oxide granules in the polisher physically remove outside layer of glass.

4) Using the cerium oxide and water slurry the polishing rate is much faster than either the cerium oxide and kerosene slurry or the dry cerium oxide. Because the polishing is accelerated by hydration, which makes the surface of the glass softer than the bulk glass.

Our observations conclude that optical glass polishing is both chemical and physical processes, i.e. chemical, in that hydration is a chemical reaction to the cerium oxide and water slurry, and mechanical, in that the cerium oxide granules physically remove the rough surface from the glass layers softened by hydration. The heat generated in the process of polishing does no more than accelerated hydration in the cerium oxide and water slurry polishing process.

[Received Feb. 18, 1970]

1. 緒 言

ガラスのポリシングは、面の平滑化を主な目的とし、粘弾性材料であるポリシャと微細な砥粒を用いて行なわれる。ポリシングの歴史は古く、したがってその平滑化の機構に関しても多くの報文が発表されている。しかし、現在のところ定説は無く、今中¹⁾、Holland²⁾によ

って分類されているように微小除去説、流動説、化学作用説と大きく3つに分類される学説が存在し、そのほかに前記の3つの作用が適宜組合さって面の平滑化が進行するという説もある。

微小除去説は Rayleigh^{1), 2)} によって提唱されたもので、砂かけ工程で形成された破砕面から、ガラスが分子

のオーダーで機械的に除去されることによって、面の平滑化が進行するという説で、この説は Thomson^{1),2)}, Koehler³⁾ によって支持されている。

流動説は Beilby^{1),2)} によって提唱されたもので、ガラスの表面が砥粒またはポリシャの作用を受けて局部的、瞬間的に高圧、高温の状態になり、その結果塑性流動または粘性流動が生じ、面が平滑になるという説で、この説は French^{1),2)}, Macaulay^{1),2)}, Bowden と Hughes¹⁾, Rawstron⁴⁾, Remmer⁵⁾, Hair⁶⁾ らによって支持されている。また Smekal, Klemm と Loss¹⁾, Brüche と Schimmel⁷⁾, Bowden と Scott¹⁾ らによって示されたガラス表面を鋭い引っかき子を用い、小荷重で引っかくと表面に流動が見られるという事実は流動説をさらに促進させた。しかし、いずれにせよポリシングにおける流動の役割の大きさは面の平滑化の進行とみがかれるガラス材料の質量減の関係から調べられるのが妥当であろう。

化学作用説は Preston¹⁾ によって提唱されたものであるが、これを具体的に提示したのは Grebenschtschikow^{1),2),9)} である。彼によれば水的作用によってガラス面に珪酸ゲル層が生成し、この層が砥粒によって除去されることによって面は平滑になるという。Kaller^{1),2),9)} はさらに化学作用説を推し進め、砥粒、ポリシャ材料、ポリシング液とガラスとの化学作用が面の平滑化に重要な役割を果たしているとしている。Brüche と Poppa¹⁰⁾ はポリシ面の電子顕微鏡観察を主体にした一連の実験を行ない、面の平滑化は主として材料除去によって行なわれるとしながらも、流動や化学作用もポリシングの進行状況に応じて面の平滑化に役立つとしている。また、Götz¹¹⁾ は遊離砥粒による低圧ポリシングにおいては面の平滑化は主として材料除去によるが、固定砥粒による高圧ポリシングにおいては流動の役割が大きいのとしている。また、砥粒は削り取りと化学作用の2つの役割を果たすとしている。

これらの研究は、そのほとんどがある特定のガラスに対するポリシング状況を主体にしたものであり、逆に加工物であるガラス材料の立場からの研究は、ほとんど行なわれておらず、わずかに Kaller^{1),2)} の研究の一部にその例を見るだけである。とくに最近は旧来から使用されている珪酸を主成分とする光学ガラスのほかに、硼酸と稀土類元素を主成分とするいわゆる新種光学ガラスが開発されており、これらのガラスの中には石英ガラスよりも硬いという特異の性質をもつものも含まれているが、これらのガラスのポリシングに関する研究は存在していない。

ガラスのポリシングのポリシング液としては通常水が使用されており、前に述べたポリシング機構に関する論文も、すべて水を用いたポリシングに関するものである。

しかし、ポリシング液として水を用いず油を用いるポリシング、またはポリシング液を用いない砥粒のみによる乾式のポリシングによってもかなり良質の面が得られることも事実である。

以上のようにガラスのポリシング機構については種々の説が錯綜しているが、著者らは水と砥粒を用いる一般に広く実施されているポリシング機構をガラス材料の立場から明らかにするために、性質の異なる18種類の光学ガラスを用いて、ガラスの性質がポリシング速度に与える影響を調べた。またポリシングにおける材料除去の有無を調べるためにポリシング中の表面粗さと重量減少の変化の関係を検討し、ポリシ面の電子顕微鏡観察を行なった。さらに、ポリシング液として水を用いたポリシングの機構を明確にするために、油を用いるポリシングおよび乾式のポリシングとの比較を行なった。

2. 実験方法

実験に用いたガラスの種類とその性質を表-1に示す。ガラスの選定に際しては、硬さ、軟化点、化学耐久性が広範囲に変化し、かつ組成的に特徴のあるものを含むように配慮した。

ガラスのマイクロビッカース硬さの測定は微小硬さ計により、荷重 25 g、負荷時間 15 秒で行なった。

ガラスの軟化点は自動熱膨脹計の屈伏点であらわした。

化学耐久性は粉末重量減法によって求め、耐酸性は pH 2.0 の硝酸溶液、耐水性は蒸留水中にガラスを浸漬した場合の重量減少割合(%)で示した。

実験に用いた研磨機の原理図およびポリシング条件を図-1に示す。図-1(a), (b), (c) はそれぞれ、3.1 ガラス特性とポリシング速度、3.2 ポリシング機構、3.4

Table 1. Physical and chemical properties of glasses.

Type of glass	Softening point (°C)	Microvickers* hardness (kg/mm ²)	Acid resistance (%)	Water resistance (%)
BK7	615	707	0.08	0.13
KF2	490	627	0.07	0.07
SK2	700	707	0.70	0.05
SK16	680	689	3.3	0.58
SF6	470	413	1.3	0.03
FK1	475	666	1.9	—
SF13	480	437	0.34	0.02
KF3	500	627	0.04	0.05
BaF4	580	613	0.11	0.04
BaK4	620	657	0.43	—
F3	480	548	—	—
LaLF2	675	803	1.3	0.25
LaK12	670	743	1.7	0.35
LaLK3	650	762	1.9	0.70
CdF1	650	824	1.00	0.01
TaF2	685	847	0.74	0.01
LaK10	670	803	1.2	0.02
CdSF3	650	803	0.76	0.01

* Load : 25 g

Fig. 1. Polishing method and polishing condition.

水によるポリシングと油または乾式ポリシングの実験に用いられたものである。ポリシングは鋳鉄のラップ皿と平均粒径 13μ の酸化アルミニウムを用いて一定条件でラッピングされた面に対して、ポリシャとしてポリウレタン、砥粒として酸化セリウムを用いて行なわれた。ポリシング液としては、水によるポリシングにおいては水と酸化セリウム、油によるポリシングにおいてはクロシンと酸化セリウムの 10% の懸濁液を用い、乾式ポリシングにおいては酸化セリウムのみを用いた。水または油によるポリシングにおけるポリシング液は、ピペットにより 1 分間隔で 5 cc づつ供給し、乾式ポリシングにおいては毎分 1 g の粉体を散布した。

ポリシング速度は触針式表面粗さ計により、縦倍率 10,000、横倍率 100、Cut off 0.075 mm で測定し、同時にポリシされる 3 個の試料の同一個所について 1~2 分間隔でプロフィールを測定し、このプロフィール曲線から求めた平均最大粗さ (P.V.A.) を時間に対しプロットし、これらの点の漸近線を最小乗法によって求め、その直線の勾配の絶対値で示した。ポリシング速度として直線の勾配を用いたのは、同一条件でラッピングを行なっても、ガラスの種類によってその表面粗さが異なり、ポリシングの開始条件に差異が生じるので、これがポリシング速度に与える影響を防ぐためである。

Fig. 2. Change of P.V.A. with polishing time in the polishing process.

図-2 に SK 16 についての結果の一例を示す。同図に示された場合のポリシング速度を危険率 50% で求めると $(0.37 \pm 0.02)\mu/\text{min}$ となる。また、同一条件のポリシング実験から得られた 4 回のポリシング速度の平均は $0.37\mu/\text{min}$ であり、その変動係数は 3.7% である。

3. 実験結果と考察

3.1 ガラスの性質とポリシング速度

ガラスがみがかれる際のガラスのポリシング速度とガラスの性質の関係を、先に述べたポリシング機構に関する学説と対応させて考えてみた。各説にもっとも密接な関係を期待されるガラス特性として、微小除去説には硬さ、流動説には軟化点、化学作用説には化学耐久性が挙げられる。そこで各ガラスについてポリシング速度と性質の関係を調べた。

図-3 にガラスのマイクロビッカース硬さとポリシング速度の関係を示す。面の平滑化が単なる材料の機械的除去によって進行するとすれば、軟らかいガラスほどみがかれ易いという傾向が期待される。実際には、両者の間にほとんど相関関係は存在しない。この結果は面の平滑化が単なる機械的除去によって進行しないことを示している。

図-4 にガラスの軟化点とポリシング速度の関係を示す。面の平滑化が流動によって進行するとすれば、軟化点の低いガラスほどみがかれ易いことが期待される。実際には両者の間にほとんど相関関係が存在しない。この

Fig. 3. Relationship between microvickers hardness and polishing rate for various types of glasses.

Fig. 4. Relationship between softening point and polishing rate for various types of glasses.

Fig. 5. Relationship between polishing rate and weight loss of glasses after soaked in N/100 nitric acid solution.

Fig. 6. Relationship between polishing rate and weight loss of glasses after soaked in water.

結果はポリシングにおいてガラス表面の流動は大きな役割を果たしていないことを示している。

図-5 にガラスの耐酸重量減と pH 1.0 の酸性ポリシング液によるポリシング速度の関係を示す。両者の間にはほぼ直線関係が存在し、耐酸性の悪いガラスほどみがかれ易いことを示している。また珪酸を主成分とするガラスと硼酸ランタンを主成分とするガラスは異なる直線に載り、同じ耐酸性のガラスでは一般に硼酸ランタンを主成分とするガラスの方がポリシング速度が小さい。

図-6 にガラスの耐水重量減と pH 中性のポリシング液によるポリシング速度の関係を示す。この場合にも耐水性の悪いガラスほどみがかれ易いという傾向が存在する。これらの結果から、ガラスのポリシング速度はガラスの化学耐久性に依存し、したがって面の平滑化の進行に対してガラス表面における化学反応が大きな役割を果たしているということが結論される。

したがって、ガラスの性質との関連においてガラスのポリシングを見ると、面は単なる機械的な除去作用や流動によって平滑にされるのではなく、ガラス表面における化学反応が平滑化に大きな役割を果たしているといえる。

3.2 ポリシング機構

ラッピング後のガラス破砕面の凹凸がどんな過程を経

て平滑にされるかを調べるために、ガラス面に対する砥粒の挙動とポリシング中のガラスの減少の有無を検討した。

まずポリシング砥粒の作用を調べるために、ポリシ面を電子顕微鏡で観察した。図-7 の (a) は酸化セリウムと水によるポリシ面を示している。面にはきずは認められない。図-7 の (b) は同じ面を稀硝酸で腐蝕した結果を示す。腐蝕によって表面に引っかき痕が表われてくる。図-7 の (c) は 5 μ の酸化アルミニウムと水によるポリシ面を示している。表面は引っかき痕で覆われている。これらの結果からポリシング中にガラス面はポリシに埋めこまれた砥粒によって引っかかれているといえる。

次にポリシング中における表面粗さの減少とガラスの重量減少の関係を調べた。図-8-a はポリシングの進行

(a) Polished surface using CeO₂ and water slurry (SF 6).

(b) Etches surface by nitric acid solution after polishing with CeO₂ and water slurry (SF 6).

(c) Polished surface using 5 μ Al₂O₃ and water slurry.

Fig. 7. Electron micrograph of polishes surface (SF 6).

Fig. 8-a. Change of surface roughness (P.V.A.) and weight loss of glass with polishing time.

Fig. 8-b. Relationship between surface roughness measured and calculated from weight loss.

に伴う平均最大粗さ (P.V.A.) と重量減少の変化を示す。表面粗さ、重量減少ともにポリシング時間に対してほぼ直線的に変化する。図-8-b は実測された P.V.A. と重量減少から計算によって求めたガラスの厚さの減少の関係を示している。曲線 *a* はガラスの表面層が平滑な面から除去されると仮定した場合の関係であり、曲線 *b* は表面の突起が角錐であると仮定した場合の関係を示す。また、図中の破線は実測値 P.V.A. と重量減少からの計算値が完全に一致する場合の関係を示す。図からわかるように曲線 *a* は破線にほぼ一致して変化し、一方曲線 *b* は破線より小さい勾配で変化する。これらの結果は表面粗さの変化がガラスの重量減少の変化とほぼ比例関係にあることを示している。

したがってガラス表面の凹凸は表面層の材料が除去されることによって平滑にされたと結論することができよう。

3.3 ポリシング速度と水和層

ポリシングにおける面の平滑化が、ガラス表面層の除去によって進行するという事実と、先に述べたポリシング速度がガラスの化学耐久性に依存するという事実がどのように関係しているかを検討した。そこでガラスの表面層の硬さが、ガラスのポリシングの過程において、ガラスの化学耐久性とどんな関係にあるかを調べた。

図-9 に TaF2, SK2 および 1/10 N 塩酸で 60 分表面を腐蝕した SK2 について、硬さの荷重依存性を示す。酸処理を受けないガラスの硬さは荷重が増加するに

Fig. 9. Effect of load on microvickers hardness.

Fig. 10. Change of microvickers hardness of glasses with time length in which leached in N/10 HCl solution.

つれて小さくなる傾向を示すのに対し、酸処理を受けたガラスの硬さは荷重の増加とともに大きくなる側向がある。これは酸処理によってガラス表面に軟化層が形成されており、荷重が増加し、圧子の押し込みが深くなるにつれて、圧子はその軟化層を貫通し、その下層にあるガラス生地（硬さ）が押し込みに対して影響してくることを示していると解釈される。図-10 に 1/10 N 塩酸中に浸漬した場合のガラス表面の硬さの変化を示す。表面層の硬さは一般に腐蝕時間の増加につれて減少し、減少の割合はガラスの化学耐久性に依存する。

図-11 にガラスのポリシング速度と 1/10 N 塩酸中に 60 分間浸漬した後のガラスの表面層の硬さの関係を示す。ポリシング速度は表面層の硬さに依存し、表面層の軟いガラスほど大きなポリシング速度を示す。また、珪酸を主成分とするガラスと硼酸、ランタンを主成分とするガラスは異なる直線に載る。

ガラスを水溶液中に浸漬すると水素イオンと修飾イオンの交換反応によってガラス表面に珪酸分に富む水和層

Fig. 11. Relationship between polishing rate and microvickers hardness for various types of glasses after leaching for 60 min. in N/10 HCl solution.

が形成され、その生成速度がガラスの化学耐久性に依存することはよく知られている。

したがって、ガラスのポリシング速度、すなわち、ガラス材料の除去速度は水和層の生成速度と水和層の硬さに依存すると考えることができる。また、この考え方によって図-5 に示されたような珪酸を主成分とするガラスと硼酸、ランタンを主成分とするガラスのポリシング特性の差が解釈される。すなわち、水和層の生成速度が同一のガラスにおいては、硼酸、ランタン系ガラスの方が図-11 に示されるように水和層の硬さが大きいためにポリシング速度が小さいということができる。

こうしてガラスのポリシング速度がガラスの化学耐久性に依存するという事実と、面の平滑化がガラス材料の除去によって進行するという事実とは、水和層の生成速度と水和層の硬さの関連を考えることによって解釈することができる。

3.4 水みがきと油みがき、乾式みがき

酸化セリウムと水の懸濁液を用いる水みがきの機構を明確にするために、酸化セリウムとクロシンの懸濁液を用いる油みがき、酸化セリウムのみを用いる乾式みがきとの比較を行なった。水みがきはポリシング中に発生する摩擦に対する冷却作用とガラスに対する化学作用をもつ点に特徴がある。油みがきは冷却作用のみで化学作用をもたない点に特徴がある。乾式みがきは摩擦熱を発生し易い点に特徴がある。

図-12 の (a), (b) にそれぞれのポリシングにおけるポリシング時間の進行にともなう表面粗さと重量減少の変化を示す。水みがきにおいては、油みがき、乾式みがきに比較し、単位時間当りの表面粗さおよび重量の減少は著しく大きい。図-13 にそれぞれのポリシング方法のポリシング速度と重量減少速度の関係を示す。油みがき、乾式みがき、水みがきを結ぶ点がほぼ直線に載ることは、この3つのポリシング方法において面の凹凸は同じ機構で平滑にされることを示していると解釈される。したがって油みがき、乾式みがきにおいても、ガラス面は水みがきと同じく材料が除去されることによって平滑にされ

(a) Changes of surface roughness with the progress of time.

(b) Change of weight loss of glass with the progress of time.

Fig. 12. Changes of surface roughness and weight loss of glass with the progress of time in the polishing using CeO_2 and water (water polishing), CeO_2 and kerosene (oil polishing), CeO_2 alone (dry polishing).

Fig. 13. Relationship between polishing rate and weight loss per unit time in three types of polishing.

Fig. 14. Relationship between microvickers hardness and polishing rate for various types of glasses in oil polishing.

Fig. 15. Relationship between microvickers hardness and polishing rate for various types of glasses in dry polishing.

ということができよう。摩擦熱が発生し易い乾式みがきにおいてさえも、面の平滑化が材料除去によって進行するという事は興味深い。

図-14 に油みがきにおけるガラスの硬さとポリシング速度の関係を示し、また、図-15 に乾式みがきにおけるガラスの硬さとポリシング速度の関係を示す。油みがき、乾式みがきにおいては、水みがきの場合と異なり、ポリシング速度はガラスの硬さに依存し、軟かいガラスほど大きなポリシング速度を示す。これらの結果は油みがき、乾式みがきにおいても面は材料除去によって平滑にされるという事実とよく一致する。

次に水みがきと油みがき、乾式みがきの機構の特徴をさらに明確にするために、乾式みがきと油みがきおよび水みがきと油みがきのポリシング速度の差とガラスの性質の関連を調べた。

油みがき、乾式みがき、水みがきにおけるガラスのポリシング速度をそれぞれ S_0 , S_d , S_w とする。

図-16 に油みがきに対する乾式みがきのポリシング速度の増加率 $(S_d - S_0)/S_0$ とガラスの軟化点の関係を示す。増加率の大きさはガラスの軟化点に依存し、軟化点の低いガラスほど大きな増加率を示す。この結果は乾式みがきにおいては、ポリシング中に発生する摩擦熱によって、軟化点の低いガラスでは表面の硬さが低下し、そ

Fig. 16. Relationship between softening point of glasses and the ratio of the rate of polishing using only CeO_2 to that using CeO_2 and kerosene.

Fig. 17. Relationship between acid resistance of glasses and the ratio of the rate of polishing using CeO_2 and water to that using CeO_2 and kerosene.

のためにガラス表面の除去が促進されると解釈することができる。しかし軟化点 685°C のガラスでは増加率は 0 で、摩擦熱の影響は受けない。

図-17 に油みがきに対する酸性ポリシング液(pH 2.0)を用いた水みがきのポリシング速度の増加率 $(S_w - S_0)/S_0$ とガラスの耐酸重量減の関係を示す。増加率は耐酸性に依存し、耐酸性の悪いガラスほど大きな値を示す。ことに BK 7 と SK 16 を結ぶ直線に載るような生地の硬さの高いガラスにおいてこの傾向は著しい。この結果は耐酸性の悪いガラスでは水和層の生成速度が大きく、ガラスの表面層が軟化し易いために材料の除去が促進されると解釈される。

また、乾式みがきにおける増加率がすべてのガラスについて 40% 以下であるのに対し、水みがきにおける増加率が 40~160% に達することから、ポリシング液の化学作用の方が摩擦熱的作用よりも、面の平滑化に対して大きく寄与しているということができよう。

4. 総 括

以上の実験結果を次のように要約するとすることができる。

- 1) ガラスのポリシ面には多くの引っかき痕が観察される。
- 2) 面の平滑化は主としてガラス材料の除去により進行する。
- 3) ガラスのポリシング速度は、ガラスの表面層の硬さに依存する。水を用いるポリシングでは水和層の硬さに依存し、乾式のポリシングでは摩擦によって軟化された表面層の硬さに依存する。

5. 結 論

以上の実験から水と砥粒の懸濁液を用いる通常のガラスポリシングに関して次の結論が得られた。

- 1) 各種のガラスのポリシング速度はガラスの化学耐久性に依存し、ガラスの硬さや軟化点とは無関係である。

2) ガラスのポリシングはポリシング液の化学作用によって表面に生成した水和層を、ポリシャに埋めこまれた砥粒が削り取るという機構で進行する。

文 献

- 1) 今中 治, 機械の研究 **20** [1] 60-64 (1968); 今中 治, *ibid.* **20** [2] 357-62 (1968).
- 2) L. Holland, The Properties of Glass Surface. Chapman & Hall (1964).
- 3) W.F. Koehler, *J. Opt. Soc. Amer.* **43** [9], 743-47 (1953); W.F. Koehler and W.C. White, *ibid.* **45** [12] 1015-20 (1955).
- 4) G.O. Rawstron, *J. Soc. Glass Tech.* **42** 253 T-60 T (1958).
- 5) K. Remmer, *Glastechn. Ber.* **25** [12] 422 (1952).
- 6) M.L. Hair and Inci Altug, *J. Amer. Ceram. Soc.* **52** [2] 65-68 (1969).
- 7) E. Brüche and G. Schimmel, *Glastech. Ber.* **27** [7] 239-47 (1954).
- 8) F.W. Preston, *J. Soc. Glass Tech.* **12**, 3 (1928); F.W. Preston, *ibid.* **14**, 127 (1930).
- 9) A. Kaller, *Silikattechnik* **7** [10] 380-90 (1956).
- 10) E. Brüche and H. Poppa, *Glastech. Ber.* **28** [6] 232-42 (1955); *ibid.* **29** [5] 183-92 (1956); *ibid.* **30** [5] 163-75 (1957); *ibid.* **30** [9] 387-93 (1957); E. Brüche, K. Peter and H. Poppa, *Glastech. Ber.* **31** [9] 341-48 (1958); E. Brüche and K. Peter, *Glastech. Ber.* **33** [2] 37-45 (1960).
- 11) J. Götz, *Glastech. Ber.* **40** [1] 4-17 (1967); *ibid.* **40** [2] 52-62 (1967).

(2/18/1970 受付)