2 方向レーザー照射によるガラス内部での金属球の分裂*

今関太一** 西岡宣泰** 比田井洋史*** 松坂壮太*** 千葉 明*** 森田 昇***

Metal Sphere Separation in Glass by the Two Laser Beam Illumination

Taichi IMAZEKI, Nobuyasu NISHIOKA, Hirofumi HIDAI, Souta MATSUSAKA, Akira CHIBA and Noboru MORITA

The authors have reported the laser-induced metal sphere migration in the glass. The metal sphere migrated toward the light source along the optical axis. In this paper, we describe the metal sphere separation by two laser beam illumination from the opposite direction. A stainless-steel sphere in borosilicate glass was heated by two continuous-wave green laser illumination. The laser beam diameter influenced the separation result. One metal sphere was separated to two spheres, when the beam diameter was 60 and 80 μm . When the beam diameter was 100 μm , the one metal sphere was not separated and maintained the shape and migrated toward one direction. When the beam diameter was 20 and 40 μm , laser illumination separate two small sphere from the metal sphere and one metal sphere was left. Hence the one metal sphere separated to three metal spheres. In-situ observation with a high-speed camera and numeral temperature calculation clarified the separation process. Finally, the size control of the metal sphere was demonstrated by changing the beam diameter.

Key words: laser, stainless steel particle, separation, dope, glass modification

1. はじめに

ガラスは物理的, 化学的に安定しており, 高い光透過性を有し, 組成を変えることで屈折率を変化できる. このためレンズや光ファイバなど光学的に幅広く用いられている. ガラスの高い透過性を生かし超短パルスレーザーを内部で集光することで, 焦点近傍の屈折率を変化させることができ, 光導波路への応用へ向けて研究がなされている²⁾.

著者らは連続発振(CW)レーザーを用いたガラスの内部微細加工法として CW レーザ背面照射法(CW-LBI: CW laser backside irradiation)を提案している³⁾. ガラスに密着した金属箔に CW レーザを集光照射することで, 金属箔の一部を熔融し, 直径 10~100 μm 程度の金属球としてガラス内部に導入できる. 金属球はレーザー照射によりガラス内部をレーザー光源方向へ移動する. 金属球が移動するための駆動力は, ガラスから受ける界面張力である. レーザが照射された金属球の前面と後面で温度差が生じる. ガラスから受ける界面張力は高温ほど小さくなるため, 界面張力の不均一により金属球は光源方向へと移動する⁴⁻⁶⁾. また, 軌跡部分は急熱急冷による屈折率変化や金属成分の拡散が生じるため, 局所的に光学特性を付与できる^{7,8)}.

しかし, 金属球の移動はレーザー光源方向への 1 次元的な移動に限られる. 将来的に導波路等への応用を試みるためには, 変質線の分岐が不可欠だと考えられる.

本論文では金属球を分裂させ, 軌跡を分岐する方法を検討した. 金属球に対して対向する 2 方向よりレーザーを照射することで, ガラス内部で金属球が 2 球に分裂する現象を見出した. 金属球分裂時の *in-situ* 観察, 分裂後の金属球と軌跡の顕微鏡観察を行った. さらに, 金属球と周辺ガラスの熱伝導解析から金属球分裂現象のメカニズムについて検討した. これらの結果から, 照射

条件によって分裂後の金属球の大きさの比率が変化することが予想された. そこで, 金属球に照射するビーム直径を変化させ, 大きさの比率の制御を試みた.

2. 実験方法

試料のガラスは, 耐熱性に優れるホウ珪酸ガラス(20×20×5 mm, TEMPAX Float, ショット日本(株))を使用した. 断熱材には石英ガラス, 金属は SUS304 箔(20×20×0.01 mm, #753173, (株)ニラコ)を用いた.

金属球をガラス内部に導入し, 2 方向よりレーザー照射を行う実験装置を図 1 に示す. レーザには Nd:YAG レーザの第 2 高調波(波長 532 nm, AONano 532-8-CW, Advanced Optowave Corp.)を用いた. 半波長板(HWP), 偏光ビームスプリッター(PBS)によって 2 本のレーザー光に分割し, 試料に対して 2 方向から照射する. ここで, 左右のビームはいずれも直線偏光で偏光方向が 90° 異なっている. これまでの金属球の移動の研究においては, 偏光によって, 特に違いは認められなかった. このため, 偏光による影響については, 考慮せず 90° 異なったままで実験を行った. また, シャッター 2 を閉じることで 1 方向照射が可能である. 集光レンズには焦点距離 30 mm の平凸レンズを用いた.

まず, 金属球を内包したホウ珪酸ガラスを作製した. 金属箔をホウ珪酸ガラス, 石英ガラスで挟み, 治具で固定し XYZ ステージ上に設置した. シャッター 2 を閉じ, ホウ珪酸ガラスの 20 mm × 20 mm の面からレーザー照射した. 金属球をホウ珪酸ガラス内部に複数導入した後, 直径 $d=90\pm5\mu\text{m}$ の金属球を選定し, 光軸に沿って光源方向に 2~3 mm 移動させることで, 金属球を内包したホウ珪酸ガラス試料を作製した. 詳細な実験条件を表 1 に示す.

その後, ホウ珪酸ガラス試料を治具から外し, 向きを 90° 変え, 金属球導入方向と直交する方向, すなわち 20 mm × 5 mm の面から 2 方向照射を行った. 金属球へ照射実験は 2 種類の試料設置方法で実施した. 第一の方法は図 1 Separation1 に示されているように金属球導入時の軌跡が照明光, レーザ光いずれと

* 原稿受付 令和 2 年 12 月 6 日

* 掲載決定 令和 3 年 2 月 26 日

** 学生会員 千葉大学大学院 (千葉市稲毛区弥生町 1-33)

*** 正 会 員 千葉大学大学院

Table 1 Irradiation conditions

Laser	Nd:YAG laser
Wavelength λ	532 nm
Power P	4.2 W, 3.8 W
Beam mode	TEM ₀₀
Beam diameter W	2.3 mm
Polarization	Liner
Workpiece	TEMPAX
Refractive index n	1.47
Size	20×20×5 mm
Absorbent	SUS304
Size	20×20×0.05 mm
Focal length f	30 mm

も直交する方向に試料を設置してレーザー照射した。この方法では実験に使える領域は試料の端面近傍であり、試料の無駄が多い。しかし、照明光と導入時の軌跡が直交しており、明瞭に観察できるため、高速度カメラ観察にはこの方法を適用した。第二の方法は図 1 Separation2 に示されているように金属球導入時の軌跡と照明光の光軸が一致する設置方法である。この方法では導入時に屈折率が変化した球の軌跡と照明光の光軸が一致するので金属球分裂の様子が不明瞭になる。しかし、試料の中央部も使えるので試料の無駄を少なくできる。断面観察等にはこの設置方法を実験に適用した。2 種類の設置方法の違いは導入時の軌跡の方向が異なるだけであり、金属球の分裂現象に違いはない。レーザーパワーは試料照射部で等しくなるように半波長板で分割量を調整した。

CCD カメラもしくは高速度カメラ(Phantom V7.3, Vision Research Inc.)によってレーザー光軸と垂直方向から照射時の様子を観察、撮影した。カメラに対して試料の反対側に照明を設置し、透過光像を観察した。また、レーザー照射に伴う散乱光や金属球の熱輻射光などの発光を除去する必要がある。そこで、中心透過波長 440 nm のバンドパスフィルタ(10BPF10-440, Newport corp.)を試料とカメラの間に設置した。

金属球に照射されるビーム半径は計算によって求めた。ビームウエスト ω_0 、ビーム半径 ω は式(1)(2)によって与えられる。

$$\omega_0 = \frac{2f\lambda}{\pi W} \tag{1}$$

$$\omega = \omega_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{n\pi\omega_0^2}\right)^2} \tag{2}$$

ここで、 f : 焦点距離、 λ : レーザ波長、 n : ガラスの屈折率、 W : レンズ入射前のビーム径、 z : 焦点位置からの距離である。金属球に 0.1W 程度のレーザー光を照射し、透過光を観察し、ビームに比べて金属球の影が最も大きくなる位置を焦点とした。透過光を観察し、ビームに比べて金属球の影が最も大きくなる位置すなわち焦点位置を割り出した。その後、ステージ操作によってデフォーカス量 z を調節することで照射するビーム直径 D を決定した。図 1 に示すレンズ 1 のレーザー光軸方向への移動と試料の位置調整と組み合わせることで、金属球に照射される 2 つのビーム径を自由に変更できる。

また、試料内部の組成を評価するために、エネルギー分散型 X 線分析 (EDS) を行った。分析は EDS 検出器を装備した、走査型電子顕微鏡 (SEM, JSM-6510A, 日本電子(株)) によって行っ

Fig.1 Illustration of experimental set up for implanting metal sphere into the glass and sphere separation

Fig. 2 Schematic drawing of the simulation model

た。試料は切断研磨後、導電性を付与するために金を蒸着した。

3. 熱伝導解析方法

対向する 2 方向から光軸が金属球の中心を通るようにレーザーを照射した際の温度上昇の様子を数値計算によって求めた。座標系は 2 次元球座標系 (r, θ) を採用した。金属球の中心を原点とし、金属球の直径を 90 μm 、計算領域は金属球外縁から 90 μm 離れた範囲までとした。模式図を図 2 に、計算に用いた変数と値を表 2 に示す。分裂を始める前までの温度変化を算出するため、溶融した金属や軟化したガラスの流動については無視し、熱伝導のみを考える。このような球座標系 (r, θ) において、時刻 t における温度 $T[\text{K}]$ は式(3)で表される。

$$c(T)\rho \frac{\partial}{\partial t} T(t, r, \theta) = \frac{k(T)}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left\{ r^2 \frac{\partial}{\partial r} T(t, r, \theta) \right\} + \frac{k(T)}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left\{ \sin \theta \frac{\partial}{\partial \theta} T(t, r, \theta) \right\} + Q_{in}(r, \theta) - Q_{out}(T, r, \theta) \tag{3}$$

ここで、 c : 比熱 $[\text{J}/(\text{kg} \cdot \text{K})]$ 、 ρ : 密度 $[\text{kg}/\text{m}^3]$ 、 k : 熱伝導率 $[\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})]$ 、 Q_{in} : レーザによる熱流束、 Q_{out} : 熱放射である。レーザー光はガウシアンビームであると仮定し、金属球の表面でレーザー光の吸収、熱放射が生じるとした。レーザーによる入熱と熱放射は式(4)~(6)により与えられる。

$$Q_{in}(r, \theta) = \begin{cases} \frac{\partial}{\partial r} I(1-R) \cos \theta & (r = 45 \mu\text{m}, 0 \leq \theta \leq \frac{\pi}{2}) \\ \frac{\partial}{\partial r} I(1-R) \cos(-\theta) & (r = 45 \mu\text{m}, \frac{\pi}{2} \leq \theta \leq \pi) \\ 0 & (r \neq 45 \mu\text{m}) \end{cases} \tag{4}$$

$$I(r, \theta) = \frac{2P}{\pi\omega^2} \exp\left(-\frac{2r^2 \sin^2 \theta}{\omega^2}\right) \tag{5}$$

Fig.3 Snapshots of metal sphere separation. Laser power: 3.8W. Frame rate of the high-speed camera: 3000fps, Exposure time of the high speed camera: 330μs

Table 2 Properties of workpieces

Δr	1.5 μm
$\Delta \theta$	$\pi/80$ rad
Δt	1.0×10^{-10} s
Metel sphere ($r \leq 45$ μm)	SUS304
Density ρ	7.93 g/cm ³
Reflectance R	0.6
Emissivity ε	0.4
Melting point	1723 K
Latent heat of fusion H	247 J/g
Glass (45 μm $<r \leq 135$ μm)	TEMPAX
Density ρ	2.2 g/cm ³
Stephan-Boltzmann constant σ	5.67×10^{-8} W/(m ² K ⁴)

$$Q_{out}(T, r, \theta) = \begin{cases} \frac{\partial}{\partial r} \sigma \varepsilon (T^4 - T_0^4) & (r = 45 \text{ μm}) \\ 0 & (r \neq 45 \text{ μm}) \end{cases} \quad (6)$$

ここで、 I : レーザ光のパワー密度、 R : 反射率、 P : レーザパワー、 ω : ビーム半径、 σ : シュテファンボルツマン定数、 ε : 放射率である。室温から SUS304 の融点を超える範囲において温度計算をするため、比熱、熱伝導率を温度 T に関する変数とした。文献値⁹⁾¹⁰⁾より SUS304 については 1 次式、ホウ珪酸ガラスについては対数式によって近似した。それぞれ式(7)~(10)に示す。

$$c_{glass}(T) = 403.7 \ln T - 1534 \quad (7)$$

$$k_{glass}(T) = 0.772 \ln T - 3.355 \quad (8)$$

$$c_{SUS304}(T) = \begin{cases} 0.1605T + 444.84 & (T \leq 1723) \\ 800 & (1723 < T) \end{cases} \quad (9)$$

$$k_{SUS304}(T) = \begin{cases} 0.014T + 10.865 & (T \leq 1723) \\ 0.0114T + 8.35 & (1723 < T) \end{cases} \quad (10)$$

金属球の体積、密度については、金属のガラス中への拡散や温度変化による膨張収縮により、変化する可能性が考えられる。しかし体積変化を考慮した計算は難易度が高まる。実験では加熱領域に比べガラスが大きく、固体のガラス内部で拘束されていることに加え、これまでに金属球が移動を開始する前後で大きさの変化は認められなかった⁴⁾⁵⁾。上記の理由から金属球の体積、

Fig.4 Optical micrographs of metal sphere. (a,c,e): transmission image, (b,d,f): reflection images, (a,b): before laser illumination, (c,d): 14ms laser illumination, 15s interval, then 14ms laser illumination again, (e,f): 20 ms laser illumination, Laser power: 4.2 W

密度 ρ は温度によらず一定とした。また、SUS304 の融点は 1723 K であるとして融解潜熱 H を考慮し、計算した¹¹⁾。式(3)を差分法により離散化し、陽解法により計算した。初期条件として、温度は 293 K とし、境界条件として $r=135$ μm における温度は時間 t によらず 293 K とした。対流の影響については考慮できていない。レーザ加熱により金属球と周囲のガラスは固体の内部で加熱され圧力が上昇している。同時にガラスが軟化するため、ガラスと金属は十分に接触していると考え、接触熱抵抗は無視して計算した。つまり、ガラスと SUS304 の境界温度が等しく、かつ熱伝導による熱流束の連続性を適用している。

4. 実験結果および考察

4.1 高速度カメラによる *in-situ* 観察

金属球の分裂の様子を観察するために、金属球の位置におけるビーム直径 D を 80 μm とし照射した様子を、高速度カメラを用いて *in-situ* 観察した。

高速度カメラで撮影した様子を図 3 に示す。本節のみ図 1 Separation 1 で示す設置方法を採用し、同 3(a)で示すように金属球の下側に軌跡が観察できる。金属球に対して左右からレーザ照射している。レーザ照射前(同図(a))の金属球がレーザ照射後、金属球が発光しながら楕円に変形した(同図(b))。金属球端部から光源方向へとさらに発光が移動(同図(c))し、2 球に分裂し(同図(d))、左右の球がそれぞれの左右の光源方向に向かって移動した(同図(e))。この発光の移動は 1 方向から高いパワー密度のレーザ光を照射した場合の挙動と類似している。ここで同図(b)から(d)の間での左側の球の先端の移動距離は 72 μm でその移動速度は 7.2 mm/s と算出される。

金属球に 1 方向からレーザを照射した場合、照射するレーザのパワー密度 I によって異なる現象を示す。低パワー密度($44 \text{ kW/cm}^2 \leq I \leq 71 \text{ kW/cm}^2$)のレーザを照射した場合、金属球は低速($v < 600 \text{ μm/s}$)で光源方向に移動し、フィルタを介して撮影するとカメラ上で発光を確認することはできない。高パワー密度($53 \text{ kW/cm}^2 \leq I \leq 150 \text{ kW/cm}^2$)のレーザを照射した場合、金属球は低パワー密度の時と同様に光源方向に移動する。しかし、同時に発光を伴うこと、移動速度が低速移動から非連続的に増加し高速($3 \text{ mm/s} \leq v \leq 88 \text{ mm/s}$)で移動する。発光スペクトル測定によって、高速移動時の温度は 2900 K 程度であり、金属球前面のガラスがプラズマ化し、高速で移動したと考えられる¹²⁾。移動メカニズムを含め、詳細については、後述する。

本実験では、片方のレーザ照射パワー密度は $I=75.6 \text{ kW/cm}^2$ であり、照射時に発光が確認されたため、高速移動と同様の現象が生じていると考えられる。

Fig.5 Cross-sectional SEM micrographs and EDS spectrum of the samples of fig.4

4.2 シャッタによるレーザー照射時間制御

高速度カメラによる撮影では、金属球の強い発光により分裂する瞬間を観察することができなかった。そこで、シャッタによってレーザー照射時間を制御することで、分裂の過程を途中で止め、観察した。ビーム径は $D=80\ \mu\text{m}$ とした。シャッタ 1 の開口時間を 10 ms~20 ms の間で 2 ms 刻みで変化させ照射した。以後の実験では図 1 Separation 2 で示す設置方法を採用した。

光学顕微鏡での観察結果を図 4 に示す。同 4(a)(c)(e) で示すように照射前に金属球があった位置の周囲に同心円状に軌跡が観察できる。

レーザー照射前 (同図(a)) の金属球が照射時間 10, 12 ms では金属球に変化は見られなかった。照射時間 14, 16, 18 ms では金属球は分裂せず、楕円形に変形した。照射時間 20 ms では金属球は分裂し、100 μm 程度移動した位置で停止した (図 4(e,f))。図 4(e) では金属球のレーザー照射前の位置にも金属球が存在するように黒く観察される。しかし図 4(f) では照射前の位置の部分には光沢がなく、後述する断面観察の結果より、金属球ではなく金属とガラスの混合物である。

18ms と 20ms との間の楕円形から 2 つに分裂する瞬間の観察を試みた。この間の球の形状変化が速く、シャッタでは十分な時間分解能が得られなかった。そこで、徐々に金属球を分離させるためにレーザー照射を 2 回に分けた。1 回目のレーザー照射 (14ms) で金属球が楕円形になった。15 秒後の 2 回目のレーザー照射 (14ms) で金属球は発光しながらその端部が膨らんで 2 つに分裂した (図 4(c,d))。このことから、レーザー照射により金属球は楕円に変形し、その後、端部が膨らみ、2 つに分裂する。

4.3 断面観察

シャッタによって照射時間を制御したことで分裂過程の途中を観察できた。しかし、内部の形状、内部組成など不明な点が多い。そこで、図 4 に示す金属球を研磨によって露出、鏡面仕上げし、SEM での顕微観察、EDS による成分分析を行った。SEM

Fig. 6 Optical micrographs of metal sphere separation with different beam diameters D . Laser power: 4.2W

での観察結果を図 5 に示す。図 4(c,d) 試料の金属球は楕円形に変形していた (図 5(A))。図 4(e,f) 試料の断面を図 5(B) に示す。図の左右にある丸い部分が金属球のあった場所であり、研磨中に金属球は脱落してしまっている。図 5(B) の赤色の四角で囲った部分を拡大した結果を同図(C) に、同様に同図(C) の四角で囲った部分の拡大図を同図(D) に示す。同図(D) はレーザー照射前の金属球の位置で、光学顕微鏡で観察すると黒色に観察される。この位置には直径 1 μm 以下の微粒子が拡散していた。

この微粒子の位置 (α) と微粒子を含まない位置 (β) を EDS により点分析した (同図(E))。その結果、微粒子のある位置では金属球の成分である鉄やニッケルのピークがシリコンや酸素のピークよりも大きく観察された。シリコンや酸素の小さなピークは EDS の空間分解能が 1 ミクロン程度であるため、周辺のガラスを検出したと考えられる。微粒子がない位置ではガラスの主成分であるシリコンや酸素のピークが相対的に大きく、鉄やニッケルのピークが小さい。したがって、ガラスには直径 1 μm 以下の金属微粒子が分散している状態であると考えられる。ここで検出される金は SEM 観察する際に導電性を付与した結果である。

4.4 照射するビーム径の影響

$D=80\ \mu\text{m}$ で照射した場合、2 球に金属球が分裂した。照射条件を変化させることで分裂形態の変化が予想される。分裂形態の観察、分裂が起きる照射条件をあきらかにするためビーム径 D を $D=20, 40, 60, 80, 100\ \mu\text{m}$ の 5 種類の条件で変化させた。

図 6 に結果を示す。 $D=60, 80\ \mu\text{m}$ では 2 球に分裂した (同図(c)(d))。 $D=100\ \mu\text{m}$ では分裂せず一方向へと移動した (図 6(e))。 $D=40\ \mu\text{m}$ では小さな金属球が左右方向にそれぞれ分裂し、中央に残った金属球が遅れて片方に移動し、合計で 3 球に分裂した (図 6(b))。 $D=20\ \mu\text{m}$ では照射部から黒色の変質線が進展した (図 6(a))。図の左側は先端に直径 10 μm 程度の金属球が確認できたが、右側には金属球は確認できなかった。分裂直後は金属球として存在していたが、光源方向へ移動しながら金属成分を拡散したと考えられる¹³⁾。そのため、黒色の線を形成し、先端に金属球が存在しない、またはごく小さな金属球が残ったと推察される。以上からビーム径 D が小さいほど分裂する金属球が小さくなると考えられる。

4.5 熱伝導解析

金属球分裂時はガラスがプラズマ化する温度域まで上昇していると推測される。金属球内部の温度上昇の様子、熔融状態を把握することで金属球分裂のメカニズムの解明につながると考え

Fig.7 Temperature distributions and melting areas when the maximum temperature is 2900 K (a), (b), (c), (d-3), and (e). Temperature distributions during heat up when $D=80\ \mu\text{m}$ (d-1) and (d-2). The temperature at the metal sphere surface

た。そこで、 $D=20, 40, 60, 80, 100\ \mu\text{m}$ の条件で金属球と周辺のガラスの温度場を解析によって求めた。

石英ガラスは 2300 K に達するとレーザ光を吸収し始める¹⁴⁾。また、ホウ珪酸ガラス中でガラスがプラズマ化し、金属球が高速移動する際 2900 K に達する¹²⁾ことから、2900 K 程度の温度において分裂したと考えられる。そこで、各条件において金属球の最高温度が 2900 K に達したときの温度分布と金属球の固液の状態を出力した。結果を図 7(a)~(c), (d-3), (e) に示す。 $D=20\ \mu\text{m}$ では金属球はほぼ溶融せず、 $D=40\ \mu\text{m}$ 以上では 2900 K において金属球内部まで溶融していると確認された。

$D=80\ \mu\text{m}$ の場合、2.8ms 照射後(d-3)までの温度変化を同図(d-1), (d-2)に示す。レーザ照射部から順次温度上昇している様子が確認される。

金属球とガラス界面の温度を同図(f)にプロットした。図 2 のオレンジ色の線で示すように片方のレーザの照射部中心を 0 とし、反対側のレーザの照射部中心 (π radian) に向かって角度で示している。レーザ照射部中心 (0, π) で温度が高く、その間 ($\pi/2$) で温度が低くなっている。ビーム径 D が大きくなるのに従って温度差が小さくなっている。

4.6 分裂メカニズムの考察

まず、ガラス中のプラズマについて説明する。一般的にプラズマには気体が電離した状態を指し、放射光を分光測定すると、明瞭なピークが見られる。

光ファイバに高強度の光を入射した場合に、ファイバ内部で

Fig.8 Mechanism of metal sphere separation

光吸収が起き光ファイバを破壊する。この現象はファイバヒューズと呼ばれる。光ファイバの端面の汚染などにより光吸収が起き、温度が上昇する。熱伝導により汚染部周囲のファイバの温度が上昇する。ガラスは高温になると光吸収するため、ガラス自体がレーザを吸収する。さらに、この吸収部分周囲のガラスが熱伝導により高温となる。この結果、高温部の光源側で光吸収をはじめ、この光吸収部の移動が繰り返されることで、高温部分が光源側に移動していく現象である。この高温部分は発光するため、発光部分が光源側に移動していくように観察される。¹⁴⁾¹⁵⁾

ファイバヒューズの高温部分はガラス内部に閉じ込められているため、密度はガラスと同程度であり、気体に比べ高密度である。このファイバヒューズの放射光を分光測定すると、黒体放射と同様なスペクトルが報告されており、プランクの式と比較することで、その温度は 4700K~10500K であったとの報告がある。この際、気体のプラズマで観察される輝線のようなシャープなピークは確認されていないが、プラズマと呼称されている¹⁵⁾。これは、プラズマ化する程度に高温であるためだと考えられる。

金属球移動時周囲のガラスについても、発光を伴いながら高速で移動する場合は、プラズマ化していると考えている。以下に論拠を述べる。著者らは、ガラス中の金属球へのレーザ照射で、パワー密度を上げていくのに従って、金属球の移動速度が上昇することを報告している¹²⁾。この際、低速 (0.1mm/s 以下) から高速 (1mm/s 以上) に非連続的に速度が変化し、0.1mm/s から 1mm/s の間の速度となることは、ほとんどなかった。さらに低速移動と高速移動とで発光や金属のガラス中への拡散状態が異なることを示した。

さらにレーザパワー密度を高めるとファイバヒューズと同様にガラスによるレーザ吸収が起き、この場合では金属球は移動せず、発光のみが移動する。このファイバヒューズと同様なレーザ吸収と金属球の高速移動では、高速度カメラの観察において類似の発光が認められたこと、分光測定の結果、波長 500nm 近傍にブロードなピークが観察されたことから、高速移動では、ファイバヒューズと同様に金属球近傍のガラス自体が光吸収していると結論づけている。金属球のレーザ照射側が高温となり、周囲のガラスも温度上昇し、ガラスがレーザを吸収する。このガラス自体のレーザ吸収により、ガラスはさらに高温となり、ガラスの粘度が低下、粘性抵抗が小さくなった結果、移動速度が速くなったと考察している。

ファイバヒューズでは、十分に高温となったガラスが光吸収し、その高温部分が移動する。上述したように、この高温部分をプラズマと一般的に呼称しているため、金属球の高速移動時に、ガラスが光吸収する部分をプラズマと表現している¹²⁾。

本報においては、金属球の分裂の際のレーザパワー密度が高速移動の条件を満たした。高速度カメラの観察でファイバヒューズと同様な発光が観察された。さらに分裂時の球の先端部分

Fig.9 Optical micrographs metal sphere after separation at each position. Laser power: 4.2W

の移動速度が 7.2mm/s 程度と高速移動 (1mm/s 以上)に該当する。そのため、ファイバヒューズと同様にガラスが光吸収していると判断し、プラズマと呼称している。

金属球が分裂するメカニズムについて考察する。模式図を図 8 に示す。金属球はレーザーが照射された端部から昇温していく。同時に熱伝導により周囲のガラスも高温となり軟化する。界面張力は温度上昇につれて小さくなる。界面張力は軟化したガラスと溶融した金属球の界面を小さくしようとする力である。曲率を持つ界面では、界面張力により同図の矢印で示すような圧力が金属球に加わる。この界面張力と圧力との関係は、ラプラスの式であらわされる⁴⁵⁾。図に示す様な圧力を受けて金属球は楕円形に変形する。金属球端部が一定の温度に達するとガラスがプラズマ化し、金属球との界面が消失する。同時に、プラズマ化した部分では、ガラス自体がレーザー光を吸収するため、さらに高温となり粘度が低下する。今回の計算においては、この高温のガラスの吸収については、考慮できていない。そのため、金属球近傍のガラスの温度は、実際には図 7 に比べて高くなっていると推定される。プラズマ化した部分から金属球は光源方向へと移動する。

このプラズマ化した領域はプラズマ化していない領域に比べて高温であり、短波長の放射光がより強くなる。高速度カメラで観察した際に、放射光を除くために設置したバンドパスフィルタ (透過波長 440nm) でフィルタできずに、白く観察される。このため、図 3(b)-(d)の白く観察される範囲がプラズマと考えられ、その領域は金属球周囲の数 10μm 程度、持続時間は 10ms 程度である。

金属球の中でも温度の低い中央部分が最も界面張力が大きい。最も界面張力の大きい中央部分から絞られるようにくびれる。ここで、断面で考えると中央部分の界面張力が大きくても図 8 の右のように、ピーナツ状の形状にはならない。しかし、実際には 3 次元であり、表面の各部位が小さくなるように力が加わっている。中央部分のくびれている部分の界面張力が最も大きいため、 $D=60, 80 \mu\text{m}$ の場合では上下方向の界面張力により絞られるように、2 球に分離すると考えられる。この界面張力と金属球の詳細な挙動の解明は今後の課題である。

金属球の移動では、レーザーを片側から照射した結果、低温の非照射側の界面張力が大きくなり光源側に移動した⁴⁴⁻⁶⁾。さらに、レーザーパワー密度を上昇させると、ガラスのプラズマ化が起こり、移動速度が非連続的に上昇する¹²⁾。今回は 2 方向からの

Fig.10 Relation between volume ratio and beam diameters

Table 3 Beam diameters

	Left μm	Right μm
(I)	77.0	83.0
(II)	80.0	80.0
(III)	83.0	77.0
(IV)	86.1	73.9
(V)	89.1	70.9
(VI)	92.2	67.8

照射で球の中央部分が最も界面張力が小さくなり、この部分から分裂した。

$D=20, 40\mu\text{m}$ の場合ではビーム径が小さいためプラズマ化する範囲が小さい。また、温度が低いと周囲のガラスの粘度が高く、移動しにくくなる。このため、流動できる程度的高温かつ十分に界面張力差が生じた部分、すなわち中央部分ではなく、よりビーム中心に近い箇所でも分裂したと考えられる。分裂する金属球が小さくなり、3 球に分裂($D=40 \mu\text{m}$)、または分裂した球が小さいため、拡散により移動中に消失した($D=20 \mu\text{m}$)と考えられる。

$D=40 \mu\text{m}$ では中央に残った金属球が移動したが、 $D=20 \mu\text{m}$ では移動しなかった。レーザー光は図の左右方向から照射されているため、分裂した金属球に吸収される。 $D=20 \mu\text{m}$ ではビーム径が小さいため、レーザー光は分裂した金属球や黒色の変質線に大部分が吸収されたため、中央に残った金属球は昇温せず移動しなかった。一方 $D=40 \mu\text{m}$ ではビーム径が分裂した金属球に比べ大きかったため、分裂した金属球に遮られなかったレーザー光が中央の金属球に照射された。さらに、分離した左側の金属球が右側よりも小さかったため、中央の金属球に照射されるレーザー光の強度が左側の方が強く、左側に向かって移動したと考えられる。

$D=100 \mu\text{m}$ のビーム径が大きい場合ではプラズマ化する範囲が大きく、高温部と低温部の温度差が分裂した $D=60, 80 \mu\text{m}$ の場合よりも小さく分裂に必要な界面張力差が得られなかったため分裂しなかったと推定される。

4.7 分裂比の制御

前節までに、照射するビーム径が小さいほど分裂する金属球が小さくなると明らかになった。そこで、左右のビーム径を変えることで分裂後の金属球体積比を変えられると考えた。

左右のビーム径 $D=80 \mu\text{m}$ を基準位置 $z=0 \mu\text{m}$ とし、試料が固定されているステージを $z=-40, 0, 40, 80, 120, 160 \mu\text{m}$ の位置 (条件(a)-(f))で照射した。それぞれの位置における左右のビーム直径を表 3 に示す。照射時間は 1s として、照射前後の金属球直径を測定し、体積割合を計算した。照射後の金属球は楕円形となっていたため、短径と長径を測定し、体積を算出した。

照射後の試料画像を図 9 に示す。また、照射ビーム径と体積割合の関係を図 10 に示す。照射するビーム径と金属球の体積に相関がみられ、照射するビーム径が大きいほど分裂する金属球の体積は増加した。図より左右に分離した金属球の体積の和は 70~80%程度であり、分離前の金属球に比べて、20~30%程度減少している。この減少分が分離前の金属球が位置に残留し、黒色の軌跡が残ったと考えられる。

5. ま と め

本研究ではガラス内部の金属球分裂について報告し、そのメカニズムなどについて検討し、以下の結果を得た。

- (1) ガラス内部の金属球に同軸 2 方向からレーザを照射することで金属球を分離し、軌跡を分岐させることができた。
- (2) 照射するビーム径によって分裂形態が異なり、ビーム径が小さいほど分裂する金属球も小さくなった。
- (3) 金属球の分裂は温度差による界面張力差で分裂していると考えられる。その際、ガラスの光吸収、プラズマ化が起きていると推定される。
- (4) プラズマ化が起きている空間的、時間的領域は、金属球近傍数 10 μm 程度の範囲、10ms 程度の間と考えられる。
- (5) 照射するビーム径を左右で変えることで分裂比を制御できた。

謝 辞

本研究の一部は、科学研究費（基盤研究(B)、課題番号：19H02035、特別研究員奨励費、課題番号：18J22593）の助成を受けて行われたことを記し、ここに謝意を表明する。

参 考 文 献

- 1) T. Miya, Y. Terunuma, T. Hosaka and T. Miyashita: Ultimate Low-loss Single-mode Fibre at 1.55 μm , *Electron. Lett.* **15**, 4 (1979) 106.
- 2) R. R. Gattass and E. Mazur: Femtosecond Laser Micromachining in Transparent Materials, *Nature Photonics* **2**, 4 (2008) 219.
- 3) T. Yamazaki, H. Hidai and H. Tokura: Laser Induced Modification in Glasses by CW Laser Backside Irradiation (CW-LBI): Platinum Implantation into Glass, *J. Jpn. Soc. Precis. Eng.*, **76**, 5 (2010) 577 (in Japanese).
- 4) H. Hidai, J. Wada, T. Iwamoto, S. Matsusaka, A. Chiba, T. Kishi and N. Morita: Experimental and Theoretical Study on the Driving Force and Glass Flow by Laser-induced Metal Sphere Migration in Glass, *Sci. Rep.* **6**, 1 (2016) 38545.
- 5) H. Hidai, M. Matsushita, S. Matsusaka, A. Chiba and N. Morita: Moving Force of Metal Particle Migration Induced by Laser Irradiation in Borosilicate Glass, *Opt. Express* **21**, 16 (2013) 18955.
- 6) H. Hidai, M. Matsushita, S. Matsusaka, A. Chiba and N. Morita: Moving Force of Metal Particle Migration Induced by Laser Irradiation in Borosilicate Glass: Erratum, *Opt. Express* **22**, 21 (2014) 25194.
- 7) H. Hidai, M. Matsushita, S. Matsusaka, C. Akira and N. Morita: Laser-induced Nickel Sphere Migration and Nanoparticle Precipitation in Silica Glass, *Opt. Mater. Express* **5**, 5 (2015) 1006.
- 8) T. Kishi, T. Kokan, Y. Yoshida, T. Iwamoto, H. Hidai, F. Noritake, N. Matsushita and T. Yano: Compositional Redistribution in $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ Glass Induced by the Migration of a Steel Microsphere due to Continuous-wave Laser Irradiation, *Opt. Express* **26**, 10 (2018) 13020.
- 9) K. C. Mills ; Recommended Values of Thermophysical Properties for Selected Commercial Alloys, ASM International, OH, USA (2001).
- 10) C. G. S. Pillai and A. M. George: An Improved Comparative Thermal Conductivity Apparatus for Measurement at High Temperatures, *Int. J. Thermophysics* **12** (1991) 563.
- 11) H. G. Fan, H. L. Tsai and S. J. Na: Heat Transfer and Fluid Flow in a Partially or Fully Penetrated Weld Pool in Gas Tungsten Arc Welding, *Int. J. Heat Mass Transfer* **44**, 2 (2001) 417.
- 12) N. Nishioka, H. Hidai, S. Matsusaka, A. Chiba and N. Morita: Clarification of Fast Metal Sphere Movement in Glass, *Opt. Express* **27**, 13, (2019) 18988.
- 13) N. Nishioka, H. Hidai, S. Matsusaka, A. Chiba and N. Morita: Length Control of Metal Particles Containing Trajectories Generated by Metal Sphere Movement and Elucidation of the Relationship between Metal Sphere Speed and Metal Addition, *Opt. Mater. Express* **10**, 4 (2020) 1105.
- 14) Y. Shuto, S. Yanagi, S. Asakawa, M. Kobayashi and R. Nagase: Fiber Fuse Phenomenon in Step-index Singlemode Optical Fibers, *IEEE J. Quantum Electron.* **40**, 8 (2004) 1113.
- 15) E. M. Dianov, V. E. Fortov, I. A. Bufetov, V. P. Efremov, A. E. Rakitin, M. A. Melkumov, M. I. Kulish, A. A. Frolov, High-speed photography, spectra, and temperature of optical discharge in silica-based fibers. *Photon. Tech. Lett., IEEE*, **18**, 6 (2006) 752.