

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 21 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630167

研究課題名(和文)光周波数標準用無歪光キャビティの開発

研究課題名(英文)Development of an optical cavity with residual strain free for optical frequency standards

研究代表者

櫛引 淳一(KUSHIBIKI, Jun-ichi)

東北大学・工学(系)研究科(研究院)・名誉教授

研究者番号：50108578

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文):光周波数標準用の超狭線幅レーザーを実現するために、超高安定・超高フィネス光キャビティの開発が進められている。キャビティ用材料にはTiO₂-SiO₂超低膨張ガラスが主に用いられる。キャビティスペーサーの作製過程には、穴あけ、研削、研磨などの機械加工があり、その際に導入され残留した加工歪が緩和することにより、スペーサーの長さが変化し共振周波数が経時変化(クリープ)するという解決すべき重要課題がある。本研究では、材料の加工プロセスと熱処理条件に関する検討を行い、残留加工歪を極限的に低減させる作製加工プロセス条件を明らかにした。

研究成果の概要(英文): Ultra-highly-stabilized and ultra-high-finesse optical cavities have been developed to realize ultra-narrow-linewidth lasers for optical frequency standards. TiO₂-SiO₂ glass is mainly used for the material of cavities. The fabrication process of cavity spacers includes machining processes such as drilling, grinding and lapping. Relaxation of the residual strain introduced by the machining gives rise to long-term length changes of cavities, resulting in long-term frequency changes, viz., creep. It is an important development issue to be resolved for obtaining an ultrastable optical cavity. In this study, we investigated the fabrication process conditions and the heat-treatment conditions to minimize the residual strain, and developed a proper procedure of fabricating a cavity spacer.

研究分野：工学

キーワード：光キャビティ 超低膨張材料 超精密超音波計測 加工プロセス 熱処理プロセス 残留歪み

1. 研究開始当初の背景

10^{-18} 台の精度を狙った周波数標準として、光周波数標準の開発が進められている。その要素技術として超狭線幅レーザーが必要である。そのキーデバイスが超高安定・超高フィネス光キャビティである。光キャビティでは、スペーサーの両端に超高反射率ミラーが形成される。スペーサーやミラー用の材料として、室温近傍で、線膨脹係数(CTE)がゼロとなる超低膨脹材が要求されている。従来、 $\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$ 超低膨脹ガラスが用いられてきた。

この超低膨脹材には、(1) キャビティの温度制御が容易となる $25\text{-}30^\circ\text{C}$ において CTE が 0 となること、(2) 構造の緩和が極小であること、(3) 熱雑音に起因する周波数変動が極小であることが要求される。作製されるキャビティの動作特性においては、その共振周波数の経時変化(クリープ)が最重要課題の一つであり、キャビティの超安定性と関係する。クリープの要因として、(1)材料自体の構造緩和と、(2)材料加工プロセス後に残留する応力歪の緩和(加工歪緩和)が考えられるが、後者の要因が格段に大きいものとする。本研究は、残留加工歪の極限的低減に関する。

JST の先端計測分析技術・機器開発事業(H20-H22)において、均質かつゼロ CTE 温度(CTE がゼロとなる温度, $T(\text{zero-CTE})$)を 25°C 近傍に制御した $\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$ 超低膨脹ガラスを開発するとともに、光キャビティを作製した。その結果、フィネスは 100 万を超えた。また、キャビティの作製加工プロセスにおいてできるだけ加工層を取り除くようにした結果、市販の光キャビティ(米国 ATF 社: 独占市販)に対する測定結果と比較して、初めてのデータとしてクリープが約 $1/40$ (1.3 pm/day) と格段に小さい結果を得た。この実験事実と研究代表者らのガラスの仮想温度(構造凍結温度)の制御と熱処理経験から、究極的に残留加工歪の無い作製加工プロセス条件を定量的に探索するという考えに至った。

2. 研究の目的

スペーサーの加工(穴あけ、研削、研磨、エッチング)プロセスを検討し、加工歪の評価用試料を作製する。その試料での残留加工歪の影響を、光干渉法により評価する。最適な加工・熱処理条件を探索する。

3. 研究の方法

(1) 試料の作製

加工材料として、直接合成法により作製された合成石英ガラス(東ソー・エスジーエム社製; ES)を取り上げた。OH 濃度は約 1250 wtppm である。1 つのガラスインゴットから断面が $55\text{ mm}\times 55\text{ mm}$ の正方形で厚さが 50 mm の直方体を 3 個、直径 52 mm の円で厚さが 50 mm の円柱ブロックを 3 個用意した。ブロックの厚さ方向に直径 10 mm の穴を加工した。また、残留歪みの評価のために、ブロックの両端面を光学研磨した。

作製した試料の加工工程を表 1 に示す。ガラスの穴あけ加工は、通常ダイヤモンドドリルを用いて行われる。試料 1 および試料 3~試料 6 に対してはダイヤモンドドリル(DD)で加工を行った。一方、試料 2 に対しては、超音波ドリル(US)を用いて加工を行った。ダイヤモンドドリルによる穴あけ加工の後、研磨加工 1 として、試料 3 に対してはラップ研磨(L)を、試料 4-6 に対してはラップ研磨の後、さらにポリッシュ研磨(P)を行った。ラップ研磨の際には、直径 d の異なる 3 種類の砥粒 L1 ($d = 105\text{-}125\text{ }\mu\text{m}$)、L2 ($d = 25\text{-}35\text{ }\mu\text{m}$)、L3 ($d = 14\text{-}22\text{ }\mu\text{m}$)を用いた。試料 5、試料 6 のポリッシュ研磨量(P2 および P3)は、試料 4 のそれ(P1)に比べ、それぞれ 2 倍、3 倍である。試料 3-5 に対しては、外側面に対しても同様の研磨加工を行った。試料 6 に対しては、ラップ研磨、ポリッシュ研磨の後、30%のフッ酸溶液を用いて 6 分間エッチング(HF)を行い、もう一度、ラップ研磨、ポリッシュ研磨を行った。

上述の手順で作製した試料の残留歪みを評価した後、水晶粉を入れた石英ビーカーの中に試料を埋め、電気炉を用い大気中で熱処理を行った。用いた合成石英ガラスの歪点は 970°C 、徐冷点は 1080°C であり、石英ガラスの構造緩和時間の文献値を参考に、熱処理条件を次のように決めた。熱処理条件 A は、室温から 1150°C まで 5 h で昇温し、 1150°C で 5 h 保持し、 970°C まで -6°C/h で降温した後、 970°C で 48 h 保持し、炉内で放冷した。熱処理条件 B は、室温から 800°C まで 5 h で昇温し、 800°C で 48 h 保持し、炉内で放冷した。熱処理条件 A は、残留歪みの除去とともに $T(\text{zero-CTE})$ を変化させるための仮想温度の制御も目的とし、熱処理条件 B は $T(\text{zero-CTE})$ を変えずに残留歪みのみを除去することを目的とする。

熱処理 A 後の試料 5 に対して光学評価後、さらに研磨加工 2 として、表 1 に示すような

表1 試料の作製条件

試料	穴あけ	研磨加工	評価	熱処理	評価	研磨加工	評価
1	DD	-	○	A	○	-	-
2	US	-	○	B	○	-	-
3	DD	L1	○	A	○	-	-
4	DD	L1, L2, P1	○	B	○	-	-
5	DD	L1, L2, L3, P2	○	A	○	L2, L3, P3	○
6	DD	L1, L2, L3, P2, HF, L2, L3, P3	○	-	-	-	-

A:970°C熱処理 ; B:800°C熱処理

ラップ研磨ならびにポリッシュ研磨を行った。

(2) 評価方法

ドリル加工による残留歪みによって、屈折率の異方性が生じる。複屈折率計 (ABR-10A, ユニオプト社製) により複屈折量を測定することにより、残留歪みを定量的に測定した。この装置は光弾性効果を利用しており、光ヘテロダイナ法により屈折率の異方性により生じる光路差を計測することにより複屈折量が求められる。

4. 研究成果

(1) 加工歪みの評価

表1に示す試料に対して、複屈折率計により測定した複屈折量の測定結果を図1に示す。+x方向から15°ずつ角度を変えながら、試料中心から径方向に1mmおきに測定を行った結果を図1(a)に、そしてその図中でy=0mmのところを+x方向に0.25mmおきに測定した結果を図1(b)に示す。いずれの試料に対しても、穴の近傍で複屈折量が最も大きくなり、そこから離れるに従い小さくなった。このため、穴の近傍で残留歪みが最も大きいことが分かる。

また、試料1~試料5に対して、熱処理A

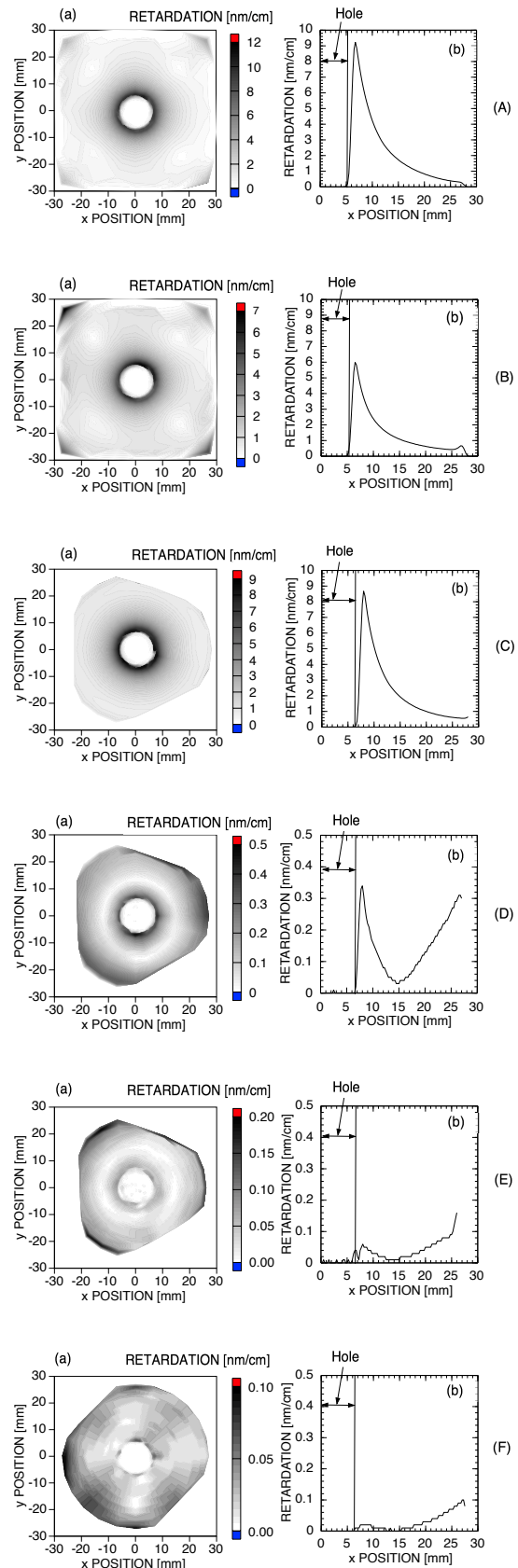
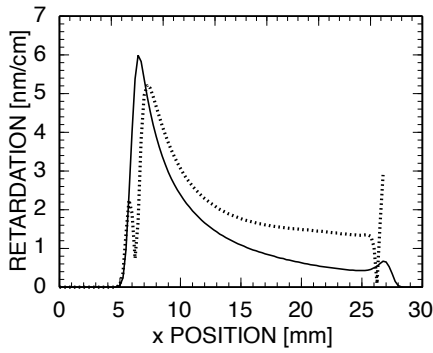
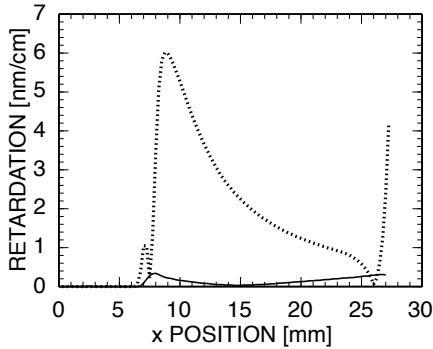


図1 複屈折の測定結果 (A) 試料1、(B) 試料2、(C) 試料3、(D) 試料4、(E) 試料5、(F) 試料6、(a) 二次元分布、(b) y=0 mm上の分布



(A) 試料 2



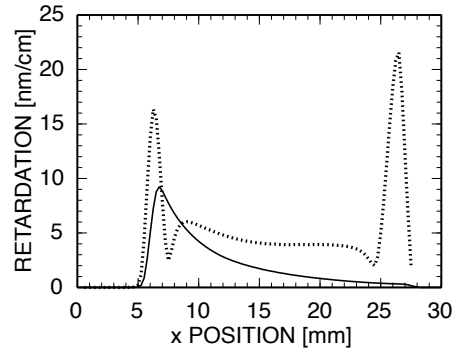
(B) 試料 4

図2 800°Cの熱処理前後の複屈折の測定結果 (実線:熱処理前、点線:熱処理後)

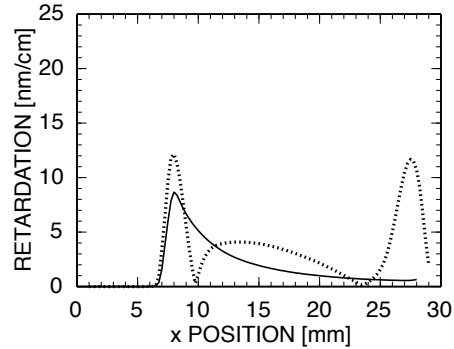
または熱処理 B を行った後に $y = 0$ mm のところを試料の中心から+x 方向に 0.25 mm おきに複屈折を測定した結果をそれぞれ図2、図3に示す。実線は熱処理前、点線は熱処理後の測定値である。図4は、試料5に対しての研磨加工2前後の評価結果である。

図1において、試料1と試料2の複屈折量の最大値を比較すると、ダイヤモンドドリルと超音波ドリルの加工により導入された残留歪みの差が評価できる。試料1で 10.4 nm/cm、試料2で 6.9 nm/cm となり、超音波ドリルを用いることにより残留歪みを小さくできることがわかった。

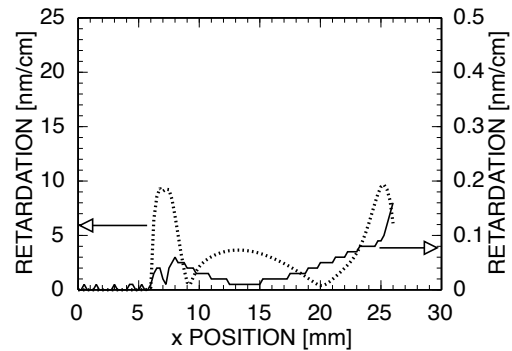
次に、ダイヤモンドドリルにより開けた穴に対して、表1に示すように異なる研磨プロセス(ラップ/ポリッシュ研磨)を行った試料3~試料6の複屈折量の測定結果を比較する。ラップ研磨のみを行った試料3の複屈折量の最大値は 8.6 nm/cm であり、試料1よりもわずかに小さくなった。一方、試料4、試料5、試料6のそれらは、それぞれ 0.46 nm/cm、0.08 nm/cm、0.06 nm/cm であり、複屈折量は劇的に小さくなった。この結果、ドリル加工により生じた加工変質層を研磨加工により低減できること、すなわち残留歪みを十分に



(A) 試料 1



(B) 試料 3



(C) 試料 5

図3 970°Cの熱処理前後の複屈折の測定結果 (実線:熱処理前、点線:熱処理後)

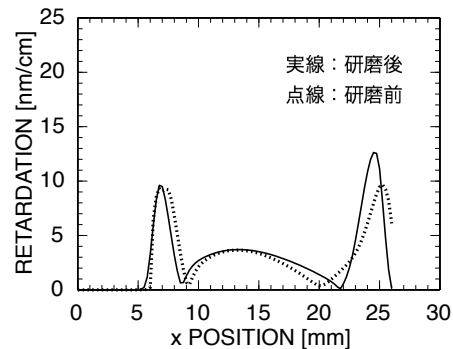


図4 970°C熱処理した試料5に対して研磨加工2前後の複屈折の測定結果

小さくできることがわかった。

(2) 熱処理効果

図2 (A)より、ダイヤモンドドリル加工により導入された大きな歪みは熱処理 B (800°C)により、わずかに低減された。しかしながら、図2 (B)の試料4 (研磨加工により残留歪みが十分に小さい) に対しては、熱処理をすることにより複屈折量は穴部及び外側面近傍で非常に増大した。また、図3に示されるように、熱処理 B (970°C) を行った場合も同様であるが、熱処理 A (800°C) を行った試料よりも複屈折量は大きくなった。

今回、熱処理にあたっては石英ガラス試料を水晶粉の中に埋めて行ったが、石英ガラスと水晶粉の熱伝導率が異なるために、放冷時に石英ガラス内に温度分布が生じ、新たな残留歪みが生じたものと考えられる。このため、より残留歪みを低減するための熱処理条件については、熱処理温度と時間、処理タイミング等さらなる検討が必要である。

図4は、試料5に熱処理 A を施した試料に対して、さらにラップ/ポリッシュ研磨加工2を施し、その前後での複屈折量を測定した結果を示す。両測定量の分布には大差なく、その分布は本質的には熱処理 A によって新たに導入されたものと考えられる。

以上の結果より、光キャビティを加工する際には、最終的なキャビティの寸法よりも十分に大きなガラスインゴットを用意し、ゼロ CTE 温度調整のための熱処理を構造緩和時間よりも十分長い時間施行し、ドリル加工で導入される加工変質層を切削、エッチング、研磨加工により除去し、残留歪みを低減するのが適切である。

(3) 光キャビティスペーサーの評価

JSTの開発では、市販の $\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$ ガラスインゴットに対して均質化処理を行い、970°Cの熱処理により $T(\text{zero-CTE})$ を 30°C に調整した後、直径 50 mm、長さ 100 mm の円柱に加工し、光キャビティのスペーサーとするために、長さ方向にダイヤモンドドリルによる穴あけを行った後、105-125 μm の砥粒を用いたラッピング加工を行い、30%の HF 溶液を用いて6分間エッチングをおこなった。高反射率多層膜ミラーをオプティカルコンタクトにより取り付け、フィネス 420,000 の光キャビティを作製し、長期的な長さ変化を測定したところ、測定から 72 日後で 7.7 kHz/day という結果が得られた。また、周波数変化

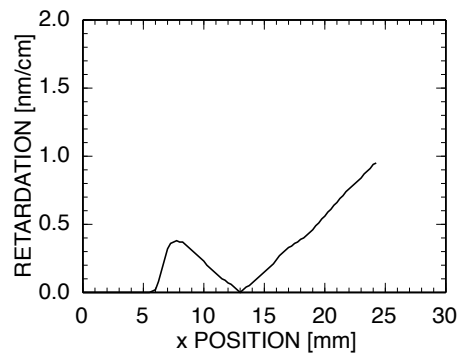


図5 光キャビティ用スペーサ($\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$ ガラス) に対する複屈折の測定結果

df/dt は、 $df/dt = 17.8 \text{ kHz exp}(-t/86.2 \text{ day})$ という関係があった。500 日後で 2 kHz/day となり、13 fm/day の長さ変化になると推定した。この光キャビティのミラーを取り外し、複屈折率計により複屈折を測定した結果を図5に示す。この結果、ポリッシュ研磨を行った試料4, 5, 6 と比べ、複屈折が大きかった。このことから、図1 (F) に示す試料6のようなプロセスで加工し、残留歪みを低減可能することにより、さらに長さ変化が小さい光キャビティが実現できる可能性がある。

(4) まとめ

本研究では、光周波数標準用光キャビティのスペーサーの加工プロセスについて定量的に検討を行った。異なる条件で、穴あけ加工、エッチング、ラップ研磨、ポリッシュ研磨、熱処理を行い、それぞれのプロセスにおける残留歪みを、複屈折率計による複屈折量から評価した。その結果、エッチング、ラップ研磨、ポリッシュ研磨により、ドリル加工により生じた残留歪みを十分に低減できることを明らかにした。また、高温での熱処理は冷却時に材料端部近傍に新たな残留歪みを生じさせることも明らかにした。さらに、長期的な長さの安定性が良かった光キャビティのミラーを取り外し、そのスペーサーの穴部に対して複屈折を測定した結果、本研究で得られた最良の加工条件のものよりも悪く、加工プロセスの改善により長期的な長さ変化をさらに小さくできることがわかった。

$\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$ 超低膨張ガラスに対して、均質化技術、 $T(\text{zero-CTE})$ コントロール、残留歪みがほとんどない加工を行うことにより、理想的な光キャビティが実現できるであろう。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計 0 件）

〔学会発表〕（計 0 件）

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

○取得状況（計 0 件）

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.ecei.tohoku.ac.jp/kushi/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

櫛引 淳一 (KUSHIBIKI, Jun-ichi)

東北大学・大学院工学研究科・名誉教授

研究者番号：50108578

(2) 研究分担者

荒川 元孝 (ARAKAWA, Mototaka)

東北大学・大学院医工学研究科・特任助教

研究者番号：00333865

大橋 雄二 (OHASHI, Yuji)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：50396462