

超低熱膨張ガラスセラミック材の光学式圧力計への応用と その熱膨張係数・経時変化量・ヘリウム透過による 変化量の精密測定

産業技術総合研究所 武井良憲

Application of Ultra-Low Thermal Expansion Glass-Ceramic Material to Optical Pressure Standards and Precise Measurement of Its Length Change Due to Thermal Expansion, Aging, and Helium Permeation

Yoshinori Takei

National Institute of Advanced Industrial Science Technology

気体の圧力は屈折率と温度から求められる。屈折率はファブリ・ペロ共振器を用いてレーザの周波数から高い分解能で測定できる。1 Pa や 100 Pa などの低真空圧力を高精度に計測するためには、ファブリ・ペロ共振器のミラー間の長さが熱膨張変化・経年変化・ヘリウム透過による変化しづらいことが重要である。本研究では、超低熱膨張ガラスセラミック材のファブリ・ペロ共振器を作製し、その熱膨張変化・経年変化・ヘリウム透過による変化を測定した。その中でも最大の課題が熱膨張である。熱膨張係数がゼロとなる温度はみつけれられていないが、ミラー材質も超低熱膨張ガラスセラミック材としたことやファブリ・ペロ共振器の設置の仕方を改善したことにより、熱膨張係数は許容可能なレベルにまで小さくなった。

Gas pressure can be evaluated from refractive index and temperature. The refractive index can be measured with high resolution from optical frequencies using a Fabry-Perot cavity. To measure low vacuum pressures such as 1 Pa or 100 Pa with high accuracy, it is important that the length between the mirrors of the Fabry-Perot cavity does not change due to thermal expansion, aging, and helium permeation. In this study, we prepared a Fabry-Perot resonator made of ultra-low thermal expansion glass ceramic material and measured its changes due to thermal expansion, aging, and helium permeation. The biggest challenge is thermal expansion. Although the temperature at which the thermal expansion coefficient becomes zero has not been found, the thermal expansion coefficient has been reduced to an acceptable level by adopting ultra-low thermal expansion glass ceramic material for the mirror material and improving the installation method of the Fabry-Perot resonator.

1. はじめに

製造業・航空宇宙・基礎物理などの様々な分野で、真空の圧力が計測されている。その現場で用いられる真空計は、国家圧力標準にトレーサブルに校正されている。図1に示す

ように、圧力範囲ごとに圧力標準が弊所で整備されており、現在の圧力標準の根幹は水銀マノメータである。水銀マノメータは、圧力を水銀密度・重力加速度・液柱差から求めている。これに対して、本研究で開発している光学式圧力計は、気体の状態方程式および分子密度と屈折率の関係式より、圧力を屈折率と温度と分極率から求める¹⁻⁶⁾。光学式圧力計を開発することで、人体や環境に有害な水銀を利用することなく圧力の絶対値を求められる。また、光学式圧力計は、真空の圧力計測に適しており、従来よりも高精度に1Pa～100kPaの圧力を計測できる。特に、半導体産業で最も利用される100Pa付近の計測精度は従来よりも約50倍向上できる。さらに、光学式圧力計は、逆に圧力から熱力学温度や分極率などを求めることもでき、広範な科学計測に係る領域の発展に寄与する。

これまでに、屈折率・温度・圧力の要素技術を統合して、図2に示すように、広い圧力範囲を1台で計測可能な光学式圧力計の基盤を立ち上げた。光学式圧力計では、ファブリ・ペロ共振器の向かう合うミラー間の長さの変化から気体の屈折率を計測する。ミラー間の長さ約50mmは、レーザーの制御技術を用いて、0.1pmという非常に高い分解能で測定できる。ここで、ミラー間の長さが屈折率以外の要因で変化しないことが重要である。開発した光学式圧力計を校正された校正済圧力計/真空計と、図3に示すように、10Pa～100kPaの範囲で比較した⁶⁾。赤点線が光学式圧力計の現状の不確かさ、青色のエラーバー

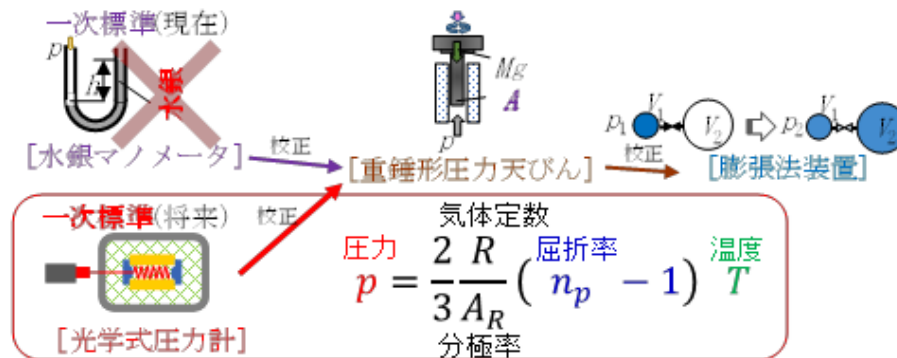


図1. 日本の圧力真空標準の一部



図2. 光学式圧力計の外観

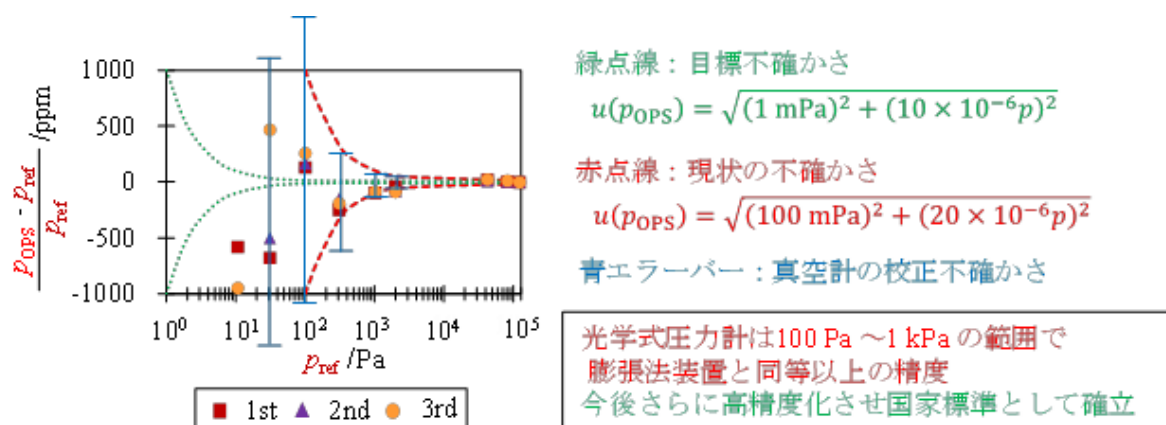


図3. 光学式圧力計と他の圧力標準との比較結果および光学式圧力計の目標不確かさ

が圧力計 / 真空計の校正不確かさである。光学式圧力計は 100 Pa～100 kPa の範囲で、膨張法装置や重錘形圧力天びんと同等以上の精度を既に有している。しかしながら、目標不確かさ(緑点線)はまだ達成できていない。光学式圧力計が緑点線の不確かさを達成するための課題は、Ⅰ ファブリ・ペロ共振器の熱膨張係数、の他に、Ⅱ 材料の経年変化、Ⅲ 材料内部へのヘリウムの浸透による長さ変化、がある。

2. ファブリ・ペロ共振器の熱膨張係数

光学式圧力計の温度調整系を図4に示す。ファブリ・ペロ共振器は、均熱のためのアルミ治具に囲まれた状態で、真空チャンバ内に設置される。真空チャンバは、恒温水を用いて 23℃ に温調される。チャンバ外の真空配管から熱を遮るためにチャンバの配管にはガラスフランジを採用した。また、室温の影響を軽減するために断熱材で囲い、さらにチャンバ周囲の温度を別の恒温水で 23℃ に温調した。

これまでのファブリ・ペロ共振器の材質に関して、25℃ 付近で熱膨張係数がゼロであると期待して、スペーサは超低熱膨張ガラスセラミック材で作製した。当初、ミラー間の長さにミラー基板の材質は影響しないと考えて、また、波長 633 nm のレーザの透過率の高さから、ミラーは一般的な熔融石英で作製した。しかしながら、スペーサとミラーはオプティカルコンタクト接合されているため、実際には、スペーサとミラーの熱膨張量の違いからミラーが変形し長さが変化してしまい、また、それが真空の圧力を計測する際の主要

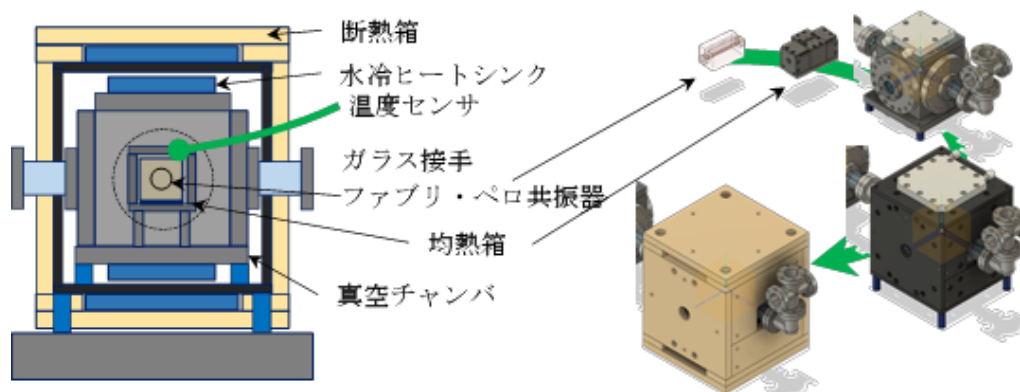


図4. 光学式圧力計の温度調整系

な課題であることが、最近の実験結果およびシミュレーション結果から明らかになった。そこで、本研究開発期間内に、図5に示すようにファブリ・ペロ共振器(スペーサとミラーの両方)を超低熱膨張ガラスセラミック材で作製した。

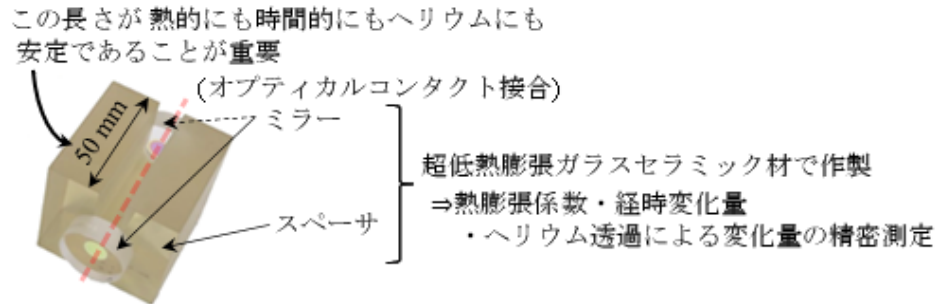


図5. スペーサとミラーの両方が超低熱膨張ガラスセラミック材のファブリ・ペロ共振器

また、ファブリ・ペロ共振器の設置の仕方に問題があり、設置台からの熱応力により見かけ上の熱変形が生じる。今回、図6に示すように、熱応力シミュレーションを用いた考察を行い、超低熱膨張ガラスセラミック材(クリアセラム-Z(EX))本来の熱膨張係数を実現するために、共振器の設置の仕方を改善した。しかし、まだ本研究の目標達成に十分に小さな熱膨張係数は得られていない。今後、さらに実験を進める。また、たとえ熱膨張係数がゼロでなくても温度制御の方をさらに改善して、光学式圧力計の目標不確かさを達成する。

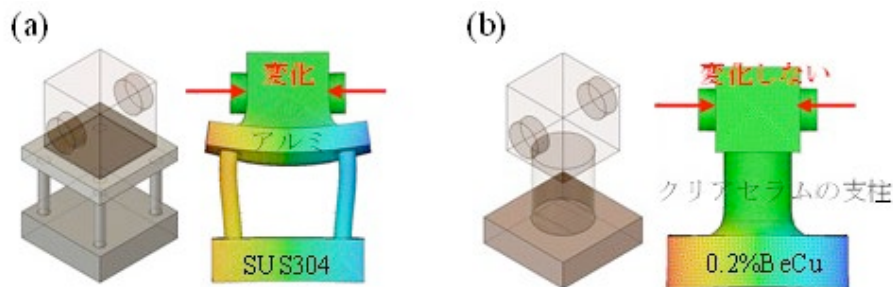


図6. 熱応力シミュレーション(a)従来の設置方法(b)新たな設置方法

3. 材料の経年変化

真空中のキャビティ長 L の経年変化を、図7に示すように、キャビティの共振周波数から断続的に測定した。経年変化率は、50mmに対して-12.7pm/日(120.7kHz/日)である。

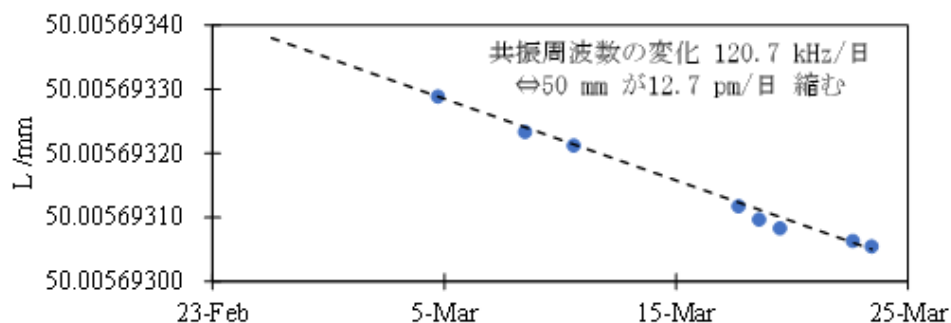


図7. ファブリ・ペロ共振器のミラー間の長さの経年変化

った。共振周波数の変化 120.7kHz/日 は、窒素ガスの圧力換算でおおよそ 80mPa/日 である。経年変化量が小さいことで知られる NEXCERA® と比べると⁷⁾、この経年変化量は大きい。この経年変化は、必ずしも材料そのものの経年変化ではなく、ミラー表面の高反射多層膜内の水分子の分離であるという見解もある。今後、 100°C で真空ベーキングし、その変化量が軽減するかを確認する。その後、経年変化の影響を線形補正して、 1Pa を 1mPa の不確かさで測定できるかを評価する。

4. 材料内部へのヘリウムの浸透による長さ変化

光学式圧力計は他国でも積極的に研究開発されている。高精度な光学式圧力計には、ULE® (Corning 社)、ZERODUR® (SCHOTT 社) やクリアセラム™-Z (株式会社オハラ) の、超低熱膨張ガラスセラミック材が利用されている。低熱膨張金属スーパーインバーを利用することもある。熱膨張係数が小さいことが特に重要であるが、ヘリウムの透過による長さ変化が小さいことも重要である。ZERODUR® やクリアセラム™-Z は ULE® に比べてヘリウムの透過量が 2 桁小さいと言われている。国内でも透過量の定量測定は可能であるが、ちょうどドイツの研究グループから各材料のヘリウム透過量の定量測定の提案があったため、図 8 のように超低熱膨張ガラスセラミック材：クリアセラム™-Z の測定サンプルを準備して測定依頼をした。測定に時間がかかっておりまだ詳細は未報告だが、クリアセラム™-Z のヘリウム透過量は ZERODUR® と同様に小さい測定結果だと聞いている。また、実際に光学式圧力計でヘリウムを用いた実験をしたところ、ミラー間の長さは変化するものの、その変化量は他のグループの ULE® のファブリ・ペロ共振器に比べてかなり小さいことを確認した。

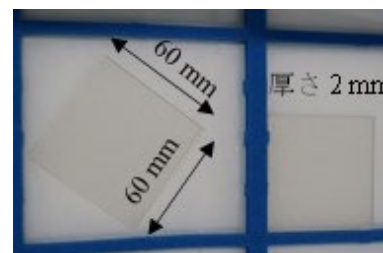


図 8. ドイツの計量研究所 PTB に送付したヘリウム透過量測定サンプル

5. おわりに

本研究では、超低熱膨張ガラスセラミック材のファブリ・ペロ共振器を作製し、その熱膨張変化・経年変化・ヘリウム透過による変化を測定した。その中でも最大の課題である熱膨張に関して、まだゼロは達成していないが、ミラー材質を変えたことや設置の仕方を変えたことによりゼロに近づけられた。今後、さらに工夫するとともに、温度調整系の方を改良し、目標とする圧力計測精度を達成する。また、経年変化量やヘリウム透過量の定量測定を継続して行う。

6. 謝辞

本研究の一部は令和 4 年度日本板硝子材料工学助成会の研究助成を受けて行ったものである。本研究を助成くださいました日本板硝子材料工学助成会にお礼申し上げます。

7. 参考文献

- [1] Jay H. Hendricks, “Quantum for pressure”, Nat. Phys., 14 (1), p. 100, (2018).
- [2] Patrick F. Egan et al., “Performance of a dual Fabry–Perot cavity refractometer”, Opt. Lett., 40 (17), pp. 3945-3948, (2015).

- [3] Karl Jousten et al., “Perspectives for a new realization of the Pascal by optical methods”, *Metrologia*, 54 (6), pp. S146-S161, (2017).
- [4] Yoshinori Takei, Souichi Telada, Hajime Yoshida, Kenta Arai, Youichi Bitou, and Tokihiko Kobata, “Development of an optical pressure measurement system using an external cavity diode laser with a wide tunable frequency range”, *Measurement*, Volume 151, 107090, (2020).
- [5] Yoshinori Takei, Souichi Telada, Hajime Yoshida, Youichi Bitou, and Tokihiko Kobata, “In-situ measurement of mirror deformation using dual Fabry–Pérot cavities for optical pressure standard”, *Measurement*, Volume 173, 108496, (2021).
- [6] Yoshinori Takei, Souichi Telada, Hajime Yoshida, Youichi Bitou, and Tokihiko Kobata, “Towards medium vacuum measurements using an optical pressure standard”, *Measurement: Sensors*, Volume 18, 100339, (2021).
- [7] Akiko Hirai, Youichi Bitou, and Yoshiyuki Oike, “Evaluation of long-term stability of low thermal expansion coefficient materials using gauge block interferometers”, *Measurement Science and Technology*, Volume 29, Issue 6, article id. 064014 (2018).