

サファイア開発の種

都丸隆行
高エネルギー加速器研究機構

2001 年 6 月 1 日 金曜日

LCGT 計画の特徴は、低温でのサファイアの長所を有効に利用して感度の向上を図る点にある。しかし、サファイアを重力波検出器の鏡や懸架ファイバーとして利用するためには、まだまだ乗り越えなければならないハードルがある。特に重要な問題点を列挙すると、基材では、大きなサファイア結晶を得るのが難しい点、光吸収が大きく発熱が深刻である点であり、ファイバーでは防振性能を損なわないように冷却する必要があるため、接触抵抗を減らし、熱伝導率を向上させなければならない点である。材料開発には長い開発期間とノウハウを要するので、早い段階から開発を始めるなければならない。この review ではサファイア鏡およびサファイアファイバーに対する要請、現在の問題点やトピックを紹介する。

目 次

1	サファイアの用途	3
2	サファイア鏡基材	3
2.1	鏡基材候補	3
2.2	サファイアのメーカー・製造法・サイズ	3
2.3	Rayleigh 散乱	5
2.4	光吸収	5
2.5	コーティングでの光吸収	6
2.6	屈折率一様性	7
2.7	複屈折	7
2.8	研磨	7
3	サファイアファイバー	9
3.1	サファイアファイバーのメーカー・製法・サイズ	9
3.2	熱伝導率	9

1 サファイアの用途

干渉計型重力波検出器において、サファイアには主に2つの用途が考えられ、それぞれ次のような要請が課される。

- 鏡基材
 - $1\mu\text{m}$ の光を透過 (FP の場合)
 - High Q
 - 低光損失
 - 高精度の研磨・コーティング
 - 高い屈折率一様性
 - 大きなサイズ
 - 大きな熱伝導率
 - 小さな熱膨張率
- 懸架ファイバー
 - High Q
 - 大きな熱伝導率
 - 十分なサイズ

どちらの用途に対しても、結晶のクオリティーが高く (光損失および熱伝導率に寄与する)、大きなサイズ (大きなバルク、太く長いファイバー) が必要とされ、これを達成することが課題である。

2 サファイア鏡基材

2.1 鏡基材候補

干渉計型重力波検出器の鏡基材として、現在までに話題に上っている材料を表1にまとめる。

どの材料にも一長一短がある。サファイアの場合、低温領域で Q 値および熱伝導率が増大する事が分かっているので、「鏡を冷却して熱雑音の大幅改善を図る」という LCGT のコンセプトに沿う限り、サファイアが better であると思われる。もちろんここで取り上げられていない材料の可能性も否定できない。

2.2 サファイアのメーカー・製造法・サイズ

サファイアバルクのメーカーは多く存在するが、大きなサイズを製作できるメーカは少ない。LCGT で必要とされる鏡の大きさは、直径で 25 cm 以上であるが、ラディエーションプレッシャーノイズを抑えるためにも、より大きな結晶が必要である。厚さに関しては、光吸収による発熱を抑えるために薄い方が望ましい。鏡の低温化による熱雑音低減の効果で、鏡を薄くすることが可能かどうかは検討に値する¹。

表 1: 重力波検出器の鏡基材候補 (300 K)。

-	熔融石英	サファイア	YAG (Non-Dope)	フッ化カルシウム	ダイヤモンド
熱膨張率 10^{-6} K^{-1}	0.51	5.0	8	20	3
熱伝導率 $\text{W/m} \cdot \text{K}$	1.4	46	13	10	1000
光吸収率 ppm/cm	2 - 20	90	50	2?	?
複屈折	なし	あり	あり	なし	なし
Q	2×10^7	2×10^8	2×10^7	7×10^7	?
現在製造可能な サイズ cm	40	33	10	30	0.5
研磨精度 nm rms.	≤ 0.1	0.1	?	0.1	5

表 2: サファイアメーカーと製法、最大サイズ

メーカー	製法	最大サイズ
Crystal Systems	HEM 法	$\phi 330 \times 200 \text{ mm}$ (65 kg)
京セラ	EFG 法	$\phi 30 \times 18 \text{ mm}$
ユニオンマテリアル	ブリッジマン法 or VGF 法	R&D 中

現在サンプルを購入したり、問い合わせたりしたこのとあるメーカーは表 2 の 3 社である。EFG 法は引き上げ法とも呼ばれ、熔融させたサファイアに種結晶を漬けてゆっくりと引き上げながら、結晶成長させる方法である。ブリッジマン法と VGF 法は類似の方法で、先端の尖った容器の先端部分に種結晶を置き、種結晶部分から徐々に冷やしながら結晶を成長させる方法である。HEM 法は熔融炉に熱交換ガスを送り込み冷却中の炉内の温度分布をコントロールする方法である。

ここでは Crystal Systems 社のサファイアについてももう少し詳しく述べる。原材料はベルヌーイ法で製作された時計窓の材料で、純度は 99.996% である。後述する光吸収率から推定される光学的不純物量は 15 ppm 程度であり²、材料純度と同オーダーである。原材料の高純度化でクオリティーの向上がみられるかもしれない。原材料を炉に入れて熔融させ³、種結晶を素にゆっくりと冷却して結晶成長させる点は他の方法と同様であるが、HEM 法の特徴は He ガスを炉に流し温度勾配が小さくなるように温度コントロールする点にある。また、一旦固化を行った後 1600°C まで温度を上昇させアニールを行っている。結晶クオリティーを高めるためには温度コントロール・アニールのさらなる研究が必要となる可能性がある。

Crystal Systems 社では一度に大きな結晶を製作し、これを切り分けて小さな結晶を量産しているようである。屈折率一様性および散乱光量により 5 ランクに品質分けがなされている。高品質の順に、Hemex, Hemlux, Hemlite, Hemcor, Hemverneui となっている。鏡基材候補として話題にのぼる CSI White は Hemex のグレードで特に不純物の少ない物ということになっているが、原材料純度は変わらないようである。

Crystal Systems 社は軍需産業に参加しているので、レスポンスが悪い。国産メーカーでサファ

¹高精度の研磨を達成するためには、10:3 程度のアスペクト比が必要である。

²不純物をすべて Ti^{3+} とした場合の結果である。

³サファイアは高融点物質であり、融点は 2040°C である。

イア開発ができれば best である。

2.3 Rayleigh 散乱

UWA のグループにより CSI White の Rayleigh 散乱⁴は 13 ppm/cm という結果が得られている。原理的な Rayleigh 散乱の下限は 0.2 ppm/cm である。散乱中心は格子欠陥や不純物と思われる。これらについては次節の吸収で述べる。

彼らは基材からの散乱光がダクトに当たって伝搬し、感度を低下させる効果について見積もっているが、 $h \leq 10^{-25}$ と小さいようである⁵。

2.4 光吸収

通常、鏡基材における光吸収は、熱レンズ効果の原因となるので重要視されるが、低温サファイア鏡の場合は低温での熱伝導率の増大と屈折率温度係数の減少で熱レンズ効果は問題とならない。しかし、低温では熱輻射がほとんど生じないため、光吸収による発熱を熱伝導で逃がす必要がある。鏡への振動の流入や Q 値の低下防止の観点から、懸架ファイバーによる冷却能力には限界がある。このため、基材の光吸収・発熱量を減らし、冷却系への負担を軽くする必要がある。具体的には 10 ppm/cm 以下が必要である。

表 3: サファイアの光吸収率測定結果の一覧。他のグループの測定温度は室温であり、本グループでの測定温度は 5 K である。また、他グループの測定法は photothermal technique であり、本グループの測定法はレーザーカロリメトリーである。単位は ppm/cm。a : CSI white、b : Hemlite、c : Union Carbide、d : Melles-Griot、e : RISC, China、f : CSI Hemex Ultra。

サンプル	LCGT (5 K)	UWA (300 K)	Stanford (300 K)	VIRGO (300 K)
サンプル A ^a	88 - 93	-	-	-
サンプル B ^b	90 - 99	-	-	-
サンプル 1 ^c	-	16 - 22	-	-
サンプル 2 ^d	-	11 - 16	-	-
サンプル 3 ^e	-	200 ± 20	-	-
サンプル 4 ^f	-	55 ± 4	140	-
サンプル 5 ^a	-	3.1 - 3.5	120	-
サンプル 6 ^a	-	-	41	-
サンプル 7 ^a	-	-	68	142 ± 15
サンプル 8 ^a	-	-	58	90 ± 10
サンプル 9 ^a	-	-	41	-
サンプル 10 ^a	-	-	25	-

⁴Rayleigh 散乱は波長より十分小さな散乱中心により生じる、強度が波長の 4 乗に反比例するような弾性散乱として定義されるが、彼らの測定では散乱光の波長選択は行っておらず、正確な意味では Rayleigh 散乱ではない。単に 1 μm の光を入射し、検出器で検出できた散乱光量と言う意味のようである。しかし、633 nm と 1064 nm での散乱光量はほぼ波長の 4 乗に反比例している結果が得られている。

⁵この計算ではバッフルの使用を前提としている。

サファイア基材における光吸収は立場の違いこそあれ重要な問題であるので、各国のグループで測定が行われている。表 3 以外でも、Stanford グループではたくさんのサンプルの光吸収率を測定している。特に近年の光吸収率低減の進展（2000 年：41 ppm/cm、2001 年：25ppm/cm）は注目すべき結果ではあるが、注意を要するので少し詳しく説明を付け加えておく。

まず、我々のサンプルは $\phi 10 \times 150$ mm (CSI White)、 $\phi 100 \times 60$ mm (Hemlite) と大きなサンプルであるのに対し、それ以外のサンプルはすべて 1 cm 程度の小さなサンプルである。Crystal Systems 社の製法はまず大きな結晶を作り、クオリティーの高そうな部分を探して切り出すので、サンプルが大きくなればなるほど、様々なグレードがミックスされた状態になる。現に我々の測定では CSI White と Hemlite の光吸収率はほとんど同じである。したがって、大きな結晶でもこのような低光吸収を達成するためには、温度コントロールなどのさらなる技術的進展が必要である。

次に Stanford グループではアニール法に関しても検討しており、 H_2 アニールでは吸収率に変化が生じないが、 O_2 または Air アニールでは大きな変化が生じることが分かっている。アニール温度は約 1600°C。 O_2 および Air アニールは結晶内部の光吸収率は低減させるものの、表面近傍の吸収率は増大させることが分かっている。41 ppm/cm および 25ppm/cm の値は、 O_2 または Air アニールしたサンプルの結晶内部での吸収率の平均値であり、表面近傍の劣化の影響は入っていない。低光吸収のサファイア鏡を得るために、アニールが不可欠かどうかは検討する必要がある。アニール温度が高いためコーティング後にはアニールできないと思われるので、衝撃による劣化や自然劣化が生じた場合には低光損失を再現できない可能性もある。また、製膜過程で基材表面が劣化し、表面での光吸収が大きくなることも考えられる。

以上述べたように Stanford の結果は「原理的にどこまで光吸収率を低減できそうか」を調べているもので、すぐに干渉計用鏡基材に適用できるわけではないことに留意しておくべきであろう⁶。

1 μ m の光吸収源については、まだ特定できていない。可視光領域での蛍光スペクトル分析により、 Ti^{3+} および Cr^{3+} が存在していることは分かっている。CSI White と Hemlite では Ti^{3+} の含有量が明らかに異なるが、吸収量に差がないので主要な役割は果たしていないと思われる⁷。 Cr^{3+} の吸収ピークは 695 nm で 1 μ m の吸収には寄与しないと思われるが、 Cr^{4+} の吸収ピークが 1.2 μ m にあり、これが寄与している可能性はある。このほかに Stanford の質量分析では Si、Ca、Fe⁷ の含有量が多い。また、F-Center が光吸収に重要な役割を果たしているとの報告もある。以上の問題を解決するためには、真空紫外から赤外線領域までの幅広いスペクトルが必要で、現在電通大で研究を進めている。

2.5 コーティングでの光吸収

サファイアとは直接関係ないが、コーティングでの光吸収も問題となりうる。例えば、厚さ 10 cm の基材で光吸収率 10 ppm/cm の場合と、コーティング光吸収率 1 ppm でフィネス 160 の場合の発熱量は同じである。したがって、RSE を採用する場合にはコーティングの光吸収に対する要請が非常に厳しいものとなる。

⁶良い結晶を作るためには、良い種結晶が必要であり、種結晶には有効であろう。

⁷ Ti^{3+} の吸収スペクトルは Blue から Green にわたるブロードなスペクトルであるので、Green レーザーを使用した場合は大きな吸収源となる。著者の実験でも 533 nm の光入射で赤い蛍光が生じることが確認されている。また、Stanford ではこの波長でのサファイアの光吸収率 600ppm/cm を報告している。

2.6 屈折率一様性

サファイアをニアミラーに使用する場合には、屈折率の不均一さによる波面歪みの影響も考慮する必要がある。屈折率一様性がどの程度必要かもきちんと検討しておかなければならない。合成石英の屈折率一様性は $\leq 5 \times 10^{-7}$ rms. 程度であり、10 cm の鏡を透過した光波面は $\lambda/15$ 程度の歪みを受けることになる。ここで λ は $1 \mu\text{m}$ とした。一方サファイアの屈折率一様性は、

- Hemex: 2×10^{-7} rms.
- Hemlite: 5×10^{-7} rms.

というデータが Crystal Systems により報告されている⁸。サンプルの大きさは $\phi 50 \times 10 \text{ mm}$ 程度である。屈折率一様性に関してもきちんと要請を定め、評価できるようにすることが必要であろう。

2.7 複屈折

サファイアのやっかいな点は、1 軸性結晶であるので複屈折を持っている点である。屈折率の大きさは、波長 589 nm の光に対し、

- a 軸: 1.760
- c 軸: 1.768

である。光軸と c 軸をどの程度まで合わせる必要があるか、複屈折が振動とカップリングしてどの程度のノイズ源となるかなどは検討しておく必要があるだろう。

また、一般の意味での複屈折とはやや異なるが、重力起源の光弾性効果による複屈折の影響も考えられる。これに関しては UWA のグループが複屈折マップを測定しており、溶融石英より 1 桁近く影響が小さいと報告している。

2.8 研磨

TAMA の鏡の開発で蓄積された合成石英の研磨技術は有用ではあるが、結晶であるサファイアにすぐに適用できるわけではなく、サファイアに適した研磨方法の開発が必要となる。研磨に対する要請は次の 3 つの項目に分類できる。

- 曲率半径の誤差
- 形状歪み (waviness)
- 微小な凹凸 (roughness)

まず 3 km の干渉計では、鏡の曲率半径は 10 km 前後となる。このオーダーでどの程度まで曲率半径を合わせ込む必要があるかを検討しておかなければならない。仮にニアミラーをフラットに設定するとリサイクリングミラーの曲率は 100 km を越えてしまうので、現実的に研磨が可能な曲率半径からビームのコンフィグレーションはある程度制限される。ニアミラーを凹面鏡にすると、ニアミラーがレンズになるのでリサイクリングミラーの曲率は小さくできる。一例として、ニア

⁸PV はもう 1 桁大きい。

ミラー 14km、エンドミラー 9.5km、リサイクリングミラー 7.9km の組み合わせは、ビームの縦モードと横モードの分離が比較的良好。

次に鏡の直径は 25 cm を越える大きさなので、うねり状の形状歪みが生じやすい。凹凸の空間周波数成分ごとに歪みに対する要請を検討する必要がある。大まかにいって数 10 分の λ から 100 分の λ 程度の精度は必要となると思われる。waviness と roughness の区別は明瞭ではないが、ビーム直径より波長の長い歪みは低次のモードを励起し、短い波長の凹凸は高次の散乱光を生じる傾向がある。

roughness に対しても同様の検討が必要で、大まかな要請は数 1000 分の λ 程度ではないかと思われる。micro roughness に対しては、SuperPolish と呼ばれる⁹RMS で $\text{\AA}$ を切る研磨が可能となっている。SuperPolish は micro roughness に有効である一方、形状歪みを引き起こしやすい。どちらの研磨精度に重点を置くかの検討も必要である。TAMA の鏡では SuperPolish を採用し、roughness が小さい一方で形状歪みは若干大きくなっている。図 1 は TAMA のエンドミラー表面のパワースペクトラム密度（空間波長の長い成分のみ）である。TAMA の鏡に限って言えば、

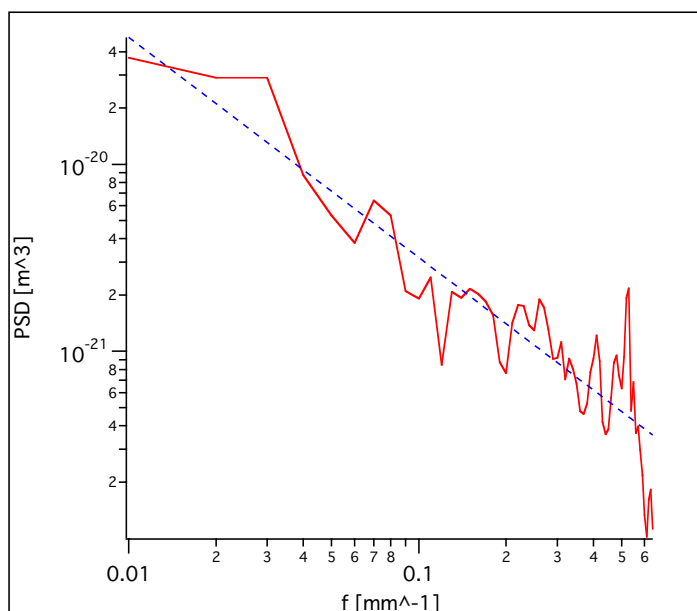


図 1: エンドミラー反射面の凹凸のパワースペクトラム密度。

光損失の大部分は高次の散乱光になるというシミュレーション結果が出ており、SuperPolish の選択は正しかったと言える。

以上の要請も LCGT で RSE を採用するかどうかで大きく異なると考えられる。

低温サファイア鏡で注意すべき点は、a 軸と c 軸で熱膨張率が異なる点である。大まかに言って、室温から 20 K まで冷却すると 20 % 程度収縮長が異なる。これは 30 % 以上の曲率半径の変化に対応し、あらかじめ熱収縮の影響を考慮した設計が必要となる。また、コーティング膜と基材との熱収縮率も異なるので、膜の破壊や膜と基材間にストレスが生じることも考えられ、コーティングした後の光学および機械的損失もテストする必要がある。

⁹SuperPolish は一般的な呼称ではないようである。

3 サファイアファイバー

3.1 サファイアファイバーのメーカー・製法・サイズ

現在サンプルを購入したことのあるサファイアファイバーのメーカーは Sapphikon 社と Micro Materials 社である。Micro Material 社のファイバーはまだテストしたことがない。Sapphikon 社のファイバーは最大で直径 $425\text{ }\mu\text{m}$ 、長さ 3m まで可能である。製法は EFG 法である。もし LCGT で使用するファイバーが 1mm 程度必要であれば、ファイバーの開発も考慮しなければならない。

3.2 熱伝導率

低温では熱輻射が効かなくなるので、鏡を冷却するためにはファイバーの熱伝導に頼らざるえない。鏡の冷却には、ファイバーのサイズや数、接触抵抗などの問題があるが、ファイバー自身の熱伝導率の問題もある。サファイアの熱伝導率のピークは 20 K から 30 K 付近であり、データブックにおける最高値は $2 \times 10^2 \text{ W/cm}\cdot\text{K}$ である。しかし、低温ではフォノンの平均自由行程が長くなるために、サンプルのクオリティーやサイズにより熱伝導率が大きく異なるという現象が起こる。まず、結晶内に不純物や格子欠陥が多く存在すると、フォノンが Rayleigh 散乱を受け、フォノンの平均自由行程が短くなる。この結果、ピークが緩やかになり、熱伝導率の低下が生じる。光吸収率測定で使用した CSI White のサンプルではこのような緩やかなピーク形状が確認されており、欠陥または不純物が多いことが熱伝導率測定からも明らかになっている。熱伝導率の大きさはデータブックの最大値の約 1/4 であった (図 2)。一方サファイアファイバーの熱伝導率測定 (直径 $250\text{ }\mu\text{m}$) では、データブックの最大値の 1/6 程度しかなかった。したがって、大きな熱伝導率を得るためファイバーのクオリティーも高い必要がある。

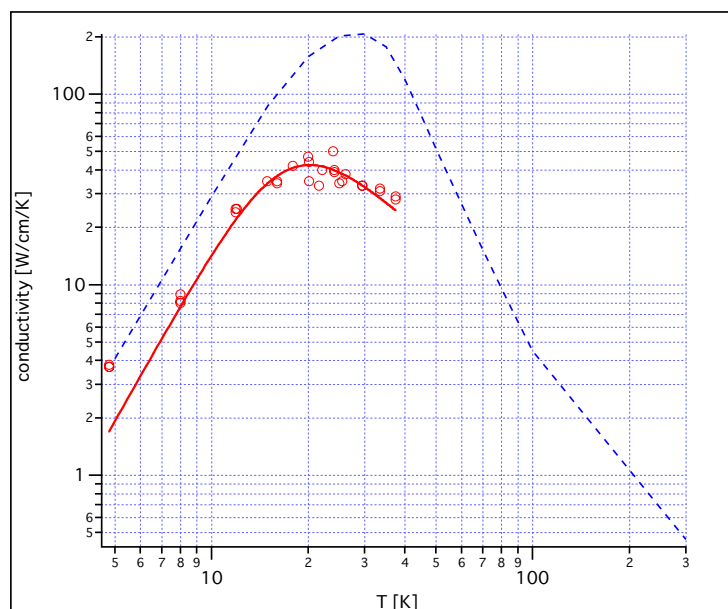


図 2: 低温におけるサファイアの熱伝導率。点線：データブックの最大値、丸点：CSI White ($\phi 10 \times 150\text{ mm}$) の熱伝導率測定値。

さらに、ファイバーのような細い材料ではサイズ効果による熱伝導率の制限も起こりうる。これは低温ではフォノンの平均自由行程が著しく長くなるため、サンプルのサイズによりフォノンの平均自由行程が制限されてしまう効果である。CSI White の熱伝導率測定から求めたフォノンの平均自由行程は、20 K 付近で 1 mm にも達し、懸架ファイバーでは問題になる可能性がある。前述のファイバーの熱伝導率もサイズ効果が効いている可能性があり、追試を行わなければならない。

また、サンプル側面の研磨精度が高ければフォノンの反射が起こり、フォノンの平均自由行程が 2~3 倍伸びる効果もあり、検討に値する。