

ガラスの屈折率標準の確立に向けた取り組み

堀 泰明・平井亜紀子・美濃島 薫

Establishment of the Refractive Index Standard for Optical Glasses

Yasuaki HORI, Akiko HIRAI and Kaoru MINOSHIMA

We have developed a prism-pair interferometer which can measure the refractive index of a prism and established the refractive index standard for optical glasses which is important for optical industries. The prism-pair interferometer is based on the principle of variable-path interferometry: it is easy to establish traceability to the SI unit. The measurement standard uncertainty of 1.4×10^{-6} at 633 nm is attained. Through the interlaboratory comparison, we confirmed that our measurement value is consistent with those of other laboratories by minimum-deviation method within our claimed uncertainty.

Key words: refractive index, optical glass, interferometry, national standard

屈折率は光学材料の基礎特性値として、材料の研究開発やガラスメーカーでの品質管理のために古くから用いられており、測定手法の研究開発も盛んに行われてきた。近年の光学機器の性能向上に伴い、光学ガラスの高精度屈折率測定への需要が高まっている。要求される精度が高くなると、測定値に対する信頼性を保証することが必然的に重要となる。このような背景のもと、われわれは2008年4月に固体屈折率標準の供給を開始し、引き続き高精度化を進めてきた。本稿では、屈折率校正装置として新規手法に基づいて開発したプリズムペア干渉計を中心とし、固体屈折率標準について概説する。

屈折率の測定法は大きく分けると、屈折に関連する角度(屈折角等)の測定に基づく手法と、干渉計による光波の位相遅れの測定、つまり長さ測定に基づく手法とがある。屈折角等の測定に基づく手法では角度測定が測定結果の不確かさに大きな影響を及ぼし、干渉計による手法では光源波長が長さ測定に大きく影響し、測定結果の不確かさにも影響を及ぼす要因となる。これらの不確かさ要因については、トレーサビリティに基づく測定の信頼性を確保する必要がある。

光学産業界における高精度屈折率測定には、主として最小偏角法¹⁻⁷⁾が用いられている。最小偏角法はプリズム試

料の頂角および透過光の屈折角測定に基づいており、不確かさ 10^{-6} オーダーでの測定が報告されている²⁾。最小偏角法は研究開発の歴史が長く、また測定値の蓄積も豊富である³⁻⁵⁾。海外標準研究所に目を向けると、アメリカ標準研究所(NIST)では1960年代から最小偏角法に関する研究が報告されており⁶⁾、現在では屈折率標準物質の販売という形で標準供給が行われている。ドイツ標準研究所(PTB)でも最小偏角法による校正サービスが行われ、イタリア標準研究所(INRiM)では最小偏角法を改良した独自の手法が開発された⁷⁾。

日本における計量法に基づく校正事業者登録制度(Japan Calibration Service System; JCSS)に沿った屈折率のトレーサビリティ体系図を図1に示す。事業者が最小偏角法に基づく装置(分光計)を使用する場合は角度のトレーサビリティが求められ、干渉法に基づく校正装置を使用する場合は、測長用の光源波長のトレーサビリティが求められる。その他、屈折率の不確かさに応じて温度(試料温度、気温)、気圧、湿度、屈折率分散を介して影響を及ぼす光源波長のトレーサビリティを確保する必要がある。

近年市販されている分光計は、測定の自動化を図るために、高分解ロータリーエンコーダーを内蔵した装置が多く

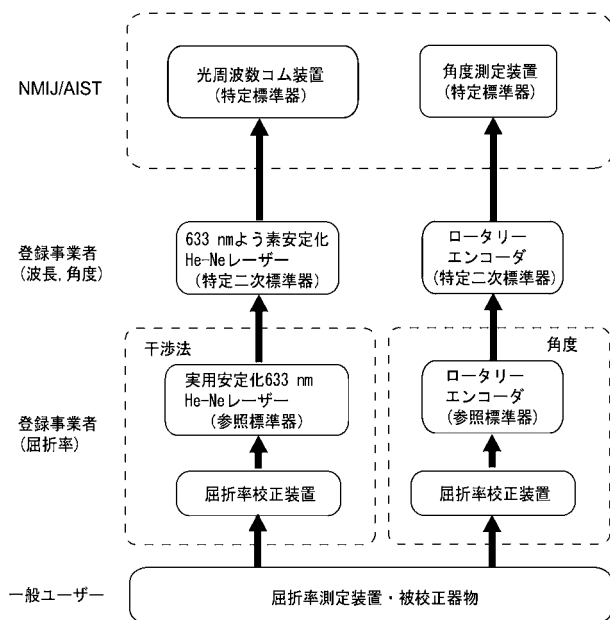


図1 トレーサビリティ体系図。

なっている。角度のトレーサビリティを確保するためには、分光計内蔵のロータリーエンコーダーを校正する必要があるが、校正のために装置から取り出したロータリーエンコーダーを再度取り付けの際に必ず取り付け誤差が発生し、それによる不確かさが無視できない。取り付け誤差を補正するために自己校正型ロータリーエンコーダー⁸⁾が開発されたが、市販の分光計には取り付けられていない。

そこでわれわれは、トレーサビリティの確保が容易な測定法として干渉法に基づく屈折率測定手法を研究開発し、それに基づく固体屈折率標準の校正装置を用いて標準供給を開始した。干渉法の場合は測長用の光源波長のトレーサビリティを確保する必要があるが、角度のトレーサビリティ確保に比べて安価で簡便である。一方で、JCSSでは産業技術総合研究所と登録事業者とで同一試料を用いて技能試験を行う必要があるため、産業界で分光計が基準装置として使用されることが多い現状を踏まえ、プリズム形状の測定試料に対応できる干渉法を新規に開発した。

干渉法による屈折率測定の研究はこれまでに数多く報告されており⁹⁻¹³⁾、大きく分類すると、フィクストパス (fixed-path) 干渉法とバリエブルパス (variable-path) 干渉法に分かれる。フィクストパス干渉法は被測定試料の厚さ L と光学的距離 nL を測定し、それらの比から被測定試料の屈折率 n を得る手法であり、バリエブルパス干渉法は測定試料の厚さの変化量 ΔL と光学的距離の変化量 $n\Delta L$ の比から屈折率 n を求める手法である。いずれの場合も、 L または ΔL を大きくすれば相対的に不確かさを向上できる

ため、容易に高精度化を図れることが干渉法の特徴である。単色光源を用いたフィクストパス干渉法⁹⁾では不確かさ 10^{-6} オーダーで屈折率が得られるが、干渉縞次数の不確かさがあるため、屈折率値があらかじめ 10^{-5} オーダーまでわかっている必要があり、実用性に乏しい。フィクストパス干渉法に基づく低コヒーレンス干渉を用いた群屈折率¹⁰⁾、屈折率 (位相屈折率)¹¹⁾ の測定に関する報告もある。この場合には、屈折率予備測定の必要はないが、干渉信号から位相情報を得るために行うフリッジのフィッティング誤差が要因となって、現在報告されている不確かさは 10^{-5} 程度である。一方、バリエブルパス干渉法は厚さの絶対値ではなく変化量を測定すればよいため、予備測定が不要である。バリエブルパス干渉法はすでに気体^{12,13)} や液体の屈折率測定法として報告されており、例えば空気屈折率が不確かさ 10^{-9} で測定されている¹²⁾。固体屈折率でも高精度測定の可能性をもつが、固体試料の厚さ L を変化させることが困難であり、これまで固体試料を測定対象としたバリエブルパス干渉法の報告はなかった。また、プリズム形状の試料を測定対象とした干渉法も報告されていなかった。われわれは、プリズム対を用いたバリエブルパス機構を用いることで、固体試料の厚さ L を容易に変化させ、かつプリズム形状の試料を測定対象とした測定方法 (プリズムペア干渉法) を実現し、この原理に基づく屈折率校正装置 (プリズムペア干渉計) を開発した。

次章より、プリズムペア干渉法の原理を説明した後、われわれが開発したプリズムペア干渉計について詳しく述べ、最後に最小偏角法との比較測定結果を示す。

1. プリズムペア干渉法の原理

屈折率を測定したい被測定プリズムと、別のプリズム (入射プリズムとよぶ) を用いる。図2に示すように、それらを対向させて配置し、その隙間を屈折率マッチング液で満たす。干渉計1の測定光は入射プリズム側から入射し、被測定プリズムの面 α で垂直反射するようにアライメントされている。干渉計2の測定光は空気側から入射し、面 α で垂直反射する。被測定プリズムは移動ステージ上に設置されており、面 β に対して平行に移動する。被測定プリズム面 α の光軸方向の移動距離を ΔX とすると、干渉計1, 2で検出される光学的距離変化量 Δx_i ($i=1, 2$) はそれぞれ $\Delta x_1=2n_s\Delta X$, $\Delta x_2=2n_a\Delta X$ となる。ここで n_s は被測定プリズムの屈折率、 n_a は空気屈折率である。 n_s は次式により得られる。

$$n_s = \frac{\Delta x_1}{\Delta x_2} \times n_a \quad (1)$$

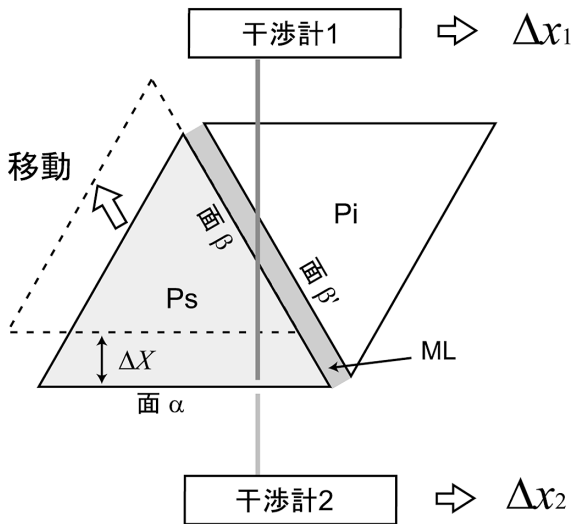


図2 プリズムペア干渉法測定原理。Ps: 被測定プリズム, Pi: 入射プリズム, ML: 屈折率マッチング液。

空気屈折率 n_a は、環境パラメーター値 (気温, 気圧, 湿度, 二酸化炭素濃度) と経験式を用いて 10^{-8} オーダーの不確かさで値を得ることができる¹⁴⁾。入射プリズムの屈折率が n_s と異なっても、移動量に寄与しないので測定結果には影響しない。また、それぞれの干渉計の測定光が面 α に垂直にアラインメントできる限りにおいて、被測定プリズムと入射プリズムの頂角は任意である。屈折率マッチング液の屈折率が n_s と異なると、面 β と面 β' の間隔の変動を介して屈折率測定の不確かさに影響するが、実際には入射プリズムと n_s との中間程度の値となるように調節している。その理由は、被測定プリズムの面 β が移動方向と平行となるように面 β と面 β' での反射光を利用するアラインメント用干渉計を用いてアラインメントしているが、屈折率マッチング液の屈折率が n_s と等しいと面 β での反射光が得られなくなるからである。

プリズムペア干渉法は、干渉計測を用いた精密変位測定に基づいた手法である。干渉計測を用いた変位測定では一般に、移動ステージのピッチング・ヨーイングに伴うアッペエラーや光源波長が不確かさ要因となりうるが、本方法においては、アッペエラーは干渉計1と2の測定光を同軸にアラインメントすることで、また本稿では詳述しないが、光源波長不確かさは干渉計1と2の光源を共通することでキャンセルできる。このように、測定配置の工夫により不確かさを低減化し、高精度な屈折率測定が可能となる。

2. プリズムペア干渉計

プリズムペア干渉法は前章で説明したとおり、干渉計1

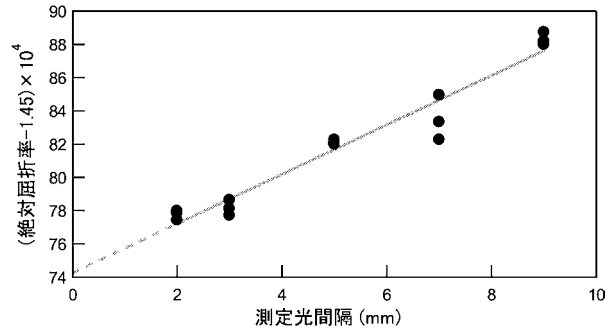


図3 測定光間隔と屈折率測定値の関係。干渉計1と2の測定光間隔を水平方向に変化させながら屈折率測定を行うと、アッペエラーの影響で間隔と屈折率値に相関がみられる。被測定プリズム移動にPZTステージ (ストローク: $100 \mu\text{m}$, ピッチング: $1.2 \times 10^{-5} \text{ rad}$, ヨーイング: $2.3 \times 10^{-5} \text{ rad}$) を使用。被測定プリズム材質は石英。

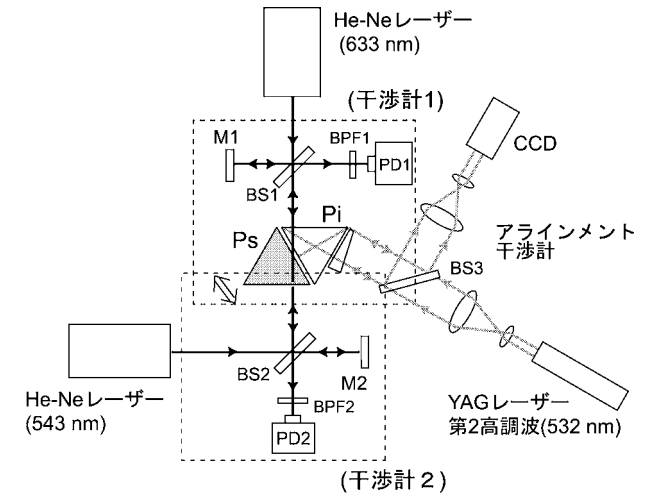


図4 プリズムペア干渉計。Ps: 被測定プリズム, Pi: 入射プリズム, BS: ビームスプリッター, BPF: 波長フィルター, PD: 検出器, M: ミラー。

と2の測定光を同軸にし、かつ測長結果の比をとることでアッペエラーをキャンセルできるという特徴がある。PZTステージ (ピッチング: $1.2 \times 10^{-5} \text{ rad}$, ヨーイング: $2.3 \times 10^{-5} \text{ rad}$) を用いたプリズムペア干渉計を構築し、干渉計1と2の測定光間隔を水平方向に順次変化していったときの屈折率測定結果の変化を図3に示す。これより、間隔と屈折率測定値に相関があり、測定光の同軸からのずれが測定結果に影響のあることがわかった。しかし、同軸にアラインメントすると、干渉計1と2の光源波長が同一である場合は面 α の透過光が他方の干渉信号に混入する (クロストーク) という問題が発生する。そこで、図4に示すような干渉計1と2の光源波長が異なる光学系を構築した。各干渉計の検出器前に波長フィルターを設置することで面 α の透過光を遮断し、クロストークを防いでいる¹⁵⁾。屈折率

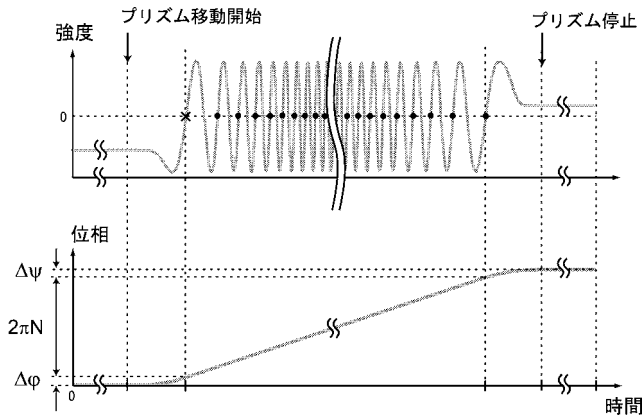


図5 位相変化量計算。プリズム移動に伴って発生する干渉信号(上図)とその位相変化(下図)を示している。プリズム移動前から1つ目のゼロクロス(上図×)までの位相変化を $\Delta\phi$ 、ゼロクロス(上図●)の数を N 、最後のゼロクロスからプリズム停止までの位相変化を $\Delta\psi$ とすると、この干渉信号から得られる光学的距離変化量は $\Delta x = \lambda \{N + (\Delta\phi + \Delta\psi) / 2\pi\}$ で求められる(λ は光源の真空中波長)。これを干渉計1と2で同時に行い、式(1)より n_s を求める。

測定波長である干渉計1の光源を633 nm He-Ne レーザー、干渉計2の光源を543 nm He-Ne レーザーとした。さらに、被測定プリズムの移動にはエアスライダ(ピッチング: 6.3×10^{-6} rad, ヨーイング: 4.9×10^{-7} rad)を使用し、移動距離は9.5 mm, 移動速度は0.1 mm/s, 被測定プリズムと入射プリズムとの間隔は350 μm とした。干渉信号は被測定プリズム移動前に約20秒間、移動中に発生するフリンジを約110秒間、停止後に20秒間の合わせて約150秒間記録した。その後、移動前と停止後の位相およびフリンジの整数次を計算機で計算させ、位相の変化量を求める(図5)。それに光源波長を掛け算して Δx_1 , Δx_2 を得る。フリンジ整数次のカウントは干渉信号に大きな乱れがなければ可能なので、被測定プリズム移動中の等速性や

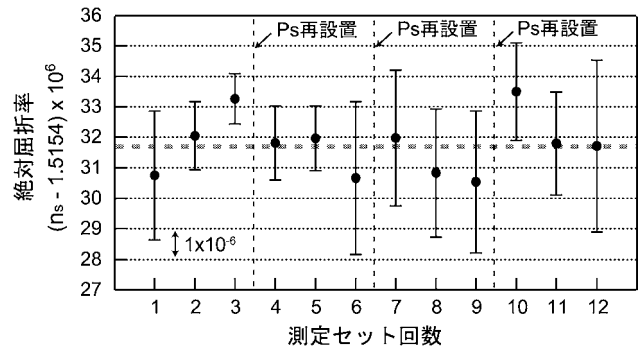


図6 屈折率測定結果。被測定プリズム材質: BSL7Y ((株)オハラ), 測定温度: 23°C, プロット: 10回測定平均値, エラーバー: 10回測定標準偏差, 点線: 平均値。

ピッチング・ヨーイングは測定結果に影響しない。図6に屈折率測定結果例を示す。使用した被測定プリズムの材質はBSL7Y ((株)オハラ), プリズムの各辺および高さは40 mm, 頂角は60°である。入射プリズムは石英のものを使用した。図6に示す測定では、10回の繰り返し測定を1セットとして12セット行い、3セットごとに被測定プリズムの再設置, 再アラインメントを行った。

表1に、プリズムペア干渉計の不確かさバジェット表を示す。合成標準不確かさは 1.4×10^{-6} (拡張不確かさ($k=2$): 2.8×10^{-6})である。大きな要因を占めているのは、アップエラー, 繰り返し性および543 nm He-Ne レーザー光源波長校正の不確かさである。アップエラーは上述した工夫により抑えられているが、同軸アラインメントの限界により不確かさが残存している。繰り返し性は10回測定のばらつきを示しており、その最も大きな要因は位相測定不確かさである。543 nm He-Ne レーザーの光源波長は、値が既知のブロックゲージを測定して校正したが、それに伴う不確かさが大きく占めている。

表1 不確かさバジェット。

不確かさ要因 x_i	要因の不確かさ $u(x_i)$	測定への影響 ($\partial f / \partial x_i$)	不確かさ u_i
光源波長 (633 nm)	$3.8 \times 10^{-9} \mu\text{m}$	$2.39 \mu\text{m}^{-1}$	9.1×10^{-9}
光源波長 (543 nm)	$3.1 \times 10^{-7} \mu\text{m}$	$2.79 \mu\text{m}^{-1}$	8.6×10^{-7}
干渉計1アラインメント	$2.3 \times 10^{-4} \text{rad}$	$0.253 \times u(x_i) \text{rad}^{-1}$	1.3×10^{-8}
干渉計2アラインメント	$4.3 \times 10^{-4} \text{rad}$	$0.253 \times u(x_i) \text{rad}^{-1}$	4.7×10^{-8}
被測定プリズムと移動軸のアラインメント	0.038 μm	$6.4 \times 10^{-6} \mu\text{m}^{-1}$	2.5×10^{-7}
アップエラー (ヨー・ピッチ)	$6.3 \times 10^{-6} \text{rad}$	0.087rad^{-1}	5.5×10^{-7}
経時変化	4.3×10^{-7}	1	4.3×10^{-7}
繰り返し性	7.0×10^{-7}	1	7.0×10^{-7}
入射プリズム安定性	$1.9 \times 10^{-3} \mu\text{m}$	$1.2 \times 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$	2.2×10^{-7}
空気屈折率	3.4×10^{-8}	1	3.4×10^{-8}
プリズム試料 (平面度)	3.9×10^{-7}	1	3.9×10^{-7}
合成標準不確かさ			1.4×10^{-6}
拡張不確かさ ($k=2$)			2.8×10^{-6}

3. 試験所間比較

われわれが開発したプリズムペア干渉計の測定結果の妥当性を検証するために、 10^{-6} オーダーの屈折率測定不確かさを表明している(株)オハラとイタリア標準研究所(INRiM)との比較を行った。屈折率分布が 10^{-6} 以下である1つのガラスブロックから3つのプリズムを切り出し、おのおの1つのプリズムを測定し、その結果を比較するという方法で行った。材質はBSL7Y((株)オハラ製)である。(株)オハラは最小偏角法に基づく分光計³⁾で測定を行い、INRiMは分光計を改良した測定装置⁷⁾により測定を行った。われわれ産業技術総合研究所は、開発したプリズムペア干渉計を用いて比較に参加した。報告された拡張不確かさ($k=2$)は、おのおの、 0.93×10^{-6} ((株)オハラ)、 2.8×10^{-6} (INRiM)であり、それぞれの測定値が不確かさ内で一致していることが確かめられた。

本稿では、われわれが開発したプリズムペア干渉計の研究開発を中心に、2008年4月に供給を開始した固体屈折率標準について紹介した。

その後の研究開発により合成標準不確かさ 1.1×10^{-6} を達成し、産業界から求められている 1×10^{-6} をほぼ実現している¹⁶⁾。具体的には、干渉計1と2の光源を共通にすることで光源波長の不確かさを低減し、位相検出に直角位相検出法を導入することで位相測定不確かさ(繰り返し性に含まれる)を低減している。

本稿で紹介した屈折率測定波長は633 nmのみであるが、産業界では長い歴史の中で使われてきたランプの輝線スペクトルが広く用いられており、ISO 7944やJIS B7090でも屈折率測定に使用する波長として、いくつかのランプ輝線波長が制定されている。しかし現状では、ランプ光源の波長のトレーサビリティが確保されていないという問題があり、これらを克服する屈折率測定技術の開発が必要である。われわれは、ランプ光源を用いたプリズムペア干渉計の開発も行っており、すでに基礎評価を終了している¹⁷⁾。プリズムペア干渉法は、その他半導体リソグラフィ光源波長の真空紫外域や、天体観測設備、安全保障関連で重要度を増している赤外域での屈折率測定にも対応可能な技術と考えている。

文 献

- 1) 作花済夫, 境野照雄, 高橋克明: ガラスハンドブック(朝倉書店, 1975) pp. 615-622.
- 2) 北村直之: “光学ガラス材料の精密屈折率測定”, 精密工学会誌, **70** (2004) 602-605.
- 3) M. Daimon and A. Masumura: “High-accuracy measurements of the refractive index and its temperature coefficient of calcium fluoride in a wide wavelength range from 138 to 2326 nm,” *Appl. Opt.*, **41** (2002) 5275-5281.
- 4) J. H. Burnett, R. Gupta and U. Griesmann: “Absolute refractive indices and thermal coefficients of CaF_2 , SrF_2 , BaF_2 , and LiF near 157 nm,” *Appl. Opt.*, **41** (2002) 2508-2513.
- 5) R. Gupta, J. H. Burnett, U. Griesmann and M. Walhout: “Absolute refractive indices and thermal coefficients of fused silica and calcium fluoride near 193 nm,” *Appl. Opt.*, **37** (1998) 5964-5968.
- 6) I. H. Malitson: “A redetermination of some optical properties of calcium fluoride,” *Appl. Opt.*, **2** (1963) 1103-1107.
- 7) M. Astrua and M. Pisani: “Prism refractive index measurement at INRiM,” *Meas. Sci. Technol.*, **20** (2009) 095305.
- 8) T. Watanabe, H. Fujimoto and T. Masuda: “Self-calibratable rotary encoder,” *7th International Symposium on Measurement Technology and Intelligent Instruments* (The International Committee on Measurements and Instrumentation, Huddersfield, 2005) pp. 240-245.
- 9) 清野昭一, 大門昌彦: “光学ガラスの屈折率の光波干渉測定”, 光学, **19** (1990) 249-251.
- 10) A. Hirai and H. Matsumoto: “Measurement of group refractive index wavelength dependence using a low-coherence tandem interferometer,” *Appl. Opt.*, **45** (2006) 5614-5620.
- 11) H. Delbarre, C. Przygodzki, M. Tassou and D. Boucher: “High-precision index measurement in anisotropic crystals using white-light spectral interferometry,” *Appl. Phys. B*, **70** (2000) 45-51.
- 12) K. Fujii, E. R. Williams, R. L. Steiner and D. B. Newell: “A new refractometer by combining a variable length vacuum cell and a double-pass Michelson interferometer,” *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **46** (1997) 191-195.
- 13) J. Zhang, Z. H. Lu and L. J. Wang: “Precision refractive index measurements of air, N_2 , O_2 , Ar, and CO_2 with a frequency comb,” *Appl. Opt.*, **47** (2008) 3143-3151.
- 14) P. E. Ciddor: “Refractive index of air: New equations for the visible and near infrared,” *Appl. Opt.*, **35** (1996) 1566-1573.
- 15) Y. Hori, A. Hirai and K. Minoshima: “High-accuracy interferometer with a prism pair for measurement of the absolute refractive index of glass,” *Appl. Opt.*, **48** (2009) 2045-2050.
- 16) Y. Hori, A. Hirai and K. Minoshima: “Quadrature detection and cancellation of absolute wavelength in a prism-pair interferometer for high-accuracy refractive index measurements of glasses,” *The Conference on Lasers and Electro-Optics 09* (Opt. Soc. America, 2009) JThE84.
- 17) 堀 泰明, 平井亜紀子, 美濃島薫: “固体屈折率・光源波長同時校正型プリズムペア干渉法の開発”, 第56回応用物理学関係連合講演会講演予稿集 No.3 (応用物理学会, 2009) p.1040.

(2009年11月10日受理)