

傾斜微粒子島状金属薄膜の 偏光フィルムへの応用

柿 沼 悠*・馬 場 一 隆

Application of Oblique Metal Island Films to Optical Polarizing Films

KAKINUMA Yu* and BABA Kazutaka

Synopsis

An ultra-thin optical polarizing film using a periodic multiplayer consisting of oblique metal island (OMI) layers and glasslayers was investigated theoretically. The OMI films are composed of prolate metal nanoclusters (i.e. islands) inclined to one side. The OMI films are fabricated using a conventional vacuum evaporation system in which a substrate is inclined at 70-80 degrees. The OMI films exhibit resonance-type absorption in the visible and near-infrared region and large optical anisotropy because resonance wavelengths for the polarization along the shorter and longer axes of the prolate metal nanoclusters are different from each other. Therefore, the multilayer using the OMI films were used as optical polarizing films at the resonance wavelengths. However, the optical anisotropy of fabricated OMI films was not so large because the shape and size of nanoclusters in the films is not homogeneous. In this work, we calculate the theoretical characteristics of the polarizing films composed of ideal and homogeneous silver OMI layers. The polarizing film for 700 nm with the extinction ratio of 30 dB and the insertion loss of 0.03 dB was designed. When aluminum OMI layers are used, polarizing films for the shorter wavelength can be designed. Once techniques to fabricate ideal and homogeneous OMI films are developed, polarizing films with high extinction ratio will be available.

Keywords : Metal island film, Optical data storage, Polarization multiplex optical disk

1. はじめに

偏光子は、特定の方向の直線偏光のみを取り出す光素子であり、光通信、光記録、光センシング等、様々な分野で重要な素子の1つである。現在用いられている偏光子には様々な原理・材料のものがあるが、形状で分類すると、バルク型、導波路型、薄膜型の3種に大別される。この中で、薄膜型の偏光子（偏光フィルム）は、光路長が数十～数百ミクロンと短いことから用途が広く、現在用いられている偏光子の大部分は、このタイプのものである。偏光フィルムとして代表的なものは、針状のヨウ化物結晶等を含む有機樹脂を用いたポーラロイド板があげられる[1]。消光比があまり高くなく、耐熱性が悪い、吸収損失がやや大きい等の欠点があるが、安価であり、大面積のものが容易に得

られるので、液晶ディスプレイや立体映画用偏光メガネ等に多く用いられている。また、同方向にそろった偏長な銀微粒子を析出させた分相ガラスを用いたポーラコア[2]等は、高消光比である上、化学的にも安定で耐熱性もあることから、特に光通信の分野で光アイソレータ用の偏光子などとして良く利用されている。しかし、高価である上、大面積のものの作製が困難、分相ガラスのため金属材料が銀や銅などに限られるので可視から紫外に近い短い波長域用のものの実現が困難などの制約もある。

一方、金属微粒子を形成する方法として、ガラスの分相を用いる以外に、真空蒸着法等により形成される島状金属薄膜を用いる方法もある[3]。金属や基板に材料的な制約が無いことや、金属微粒子を高密度で分散できる等の利点がある。この中で、図1に概念を示すような斜め蒸着法に

* 本校専攻科情報システム工学専攻1年

より得られる傾斜微粒子島状金属薄膜は、製法が簡単で、比較的大面積の異方性薄膜が容易に得られることから、偏光フィルムへの応用が検討されてきた[4]。しかし、実際に真空蒸着装置やスパッタリング装置を用いて得られる傾斜微粒子島状金属薄膜は、粒子間の形状や大きさのばらつきが大きく、図2にその試作・測定例を示すが、偏光特性は見られるものの透過してほしい偏光である垂直偏光($E_{\perp}$)でも透過率が低い(つまり挿入損失が大きい)薄膜しか得られていないことが分かる[5]。本稿では、均一な金属粒子からなる理想的な構造の傾斜微粒子島状金属薄膜について考え、理論的にどの程度の特性の偏光フィルムが可能なのか検討を行った結果について述べる。また、従来の分相ガラスでは実現困難だったアルミニウムを用いた偏光フィルムについても設計例を示し、ポーラコアより短波長側の400nm帯でも高消光比が実現可能であることを示す。

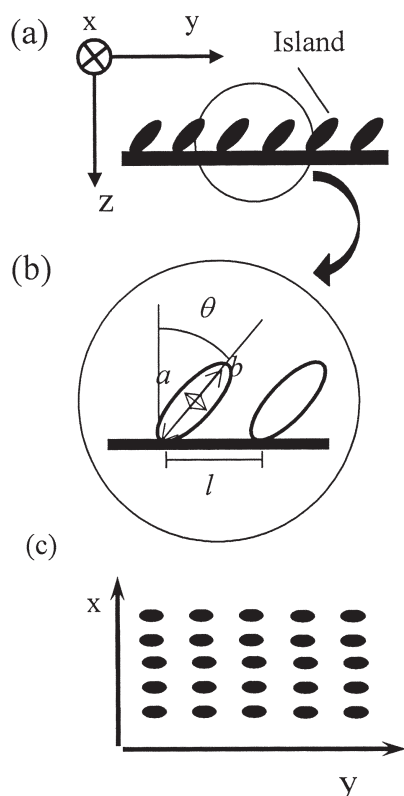


図1 傾斜微粒子島状金属薄膜の概念図

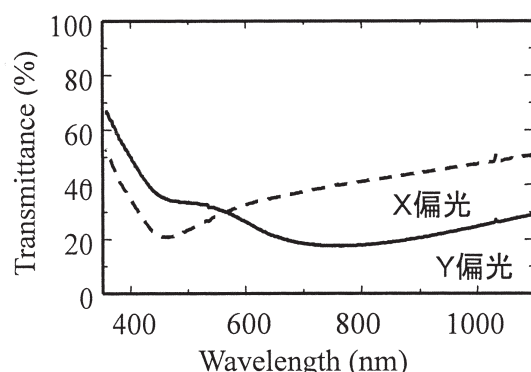


図2 試作された傾斜微粒子島状銀薄膜の分光透過特性の測定例[5]

2. 傾斜微粒子島状金属薄膜

島状金属薄膜は、ガラス等の誘電体基板上に真空蒸着法等により薄膜を形成する際、その初期段階でしばしば見られる薄膜で、ナノメートルサイズの微細な金属粒子の2次元集合体からなる。このような薄膜においては、金属内の自由電子の運動が、金属微粒子内に制限されるため、バルクの状態の金属とは大きく異なった特異な光学特性を示すようになる。すなわち、自由電子の運動が調和振動的となり、可視領域付近の特定の波長帯で共鳴吸収特性を示すことが知られている。共鳴波長の近傍では、質量膜厚(薄膜が平坦で連続な構造を持つと仮定した時の膜厚)数nmのごく薄い薄膜でも、数十%の高い反射率と大きな吸収率を持つが、それ以外の波長帯では、反射率、吸収率ともに小さく、光学的には存在しないのと同じである。共鳴波長は、金属材料の種類のみならず、粒子間の距離や粒子の形状等、薄膜の構造に大きく依存する。例えば、金属粒子の形状が偏長の回転楕円体である場合、共鳴波長は入射光の偏光にも依存し、粒子の長軸方向の偏光では長波長側に、短軸方向の偏光では短波長側に共鳴波長が存在するため、光学特性が偏光方向により大きく異なる。すなわち長軸方向に光学軸を持つ光学的異方性が存在することになる[3]。

本研究で用いる傾斜微粒子島状金属薄膜は、このような島状金属薄膜の中でも特殊な構造を有している。すなわち、図1(a)で概略を示したように、偏長の回転楕円体状の金属微粒子が、特定の方向(図ではy軸方向)に傾斜した構造をしている。このような薄膜においては、薄膜を上方から見ると、図1(c)のように、粒子の形状はy軸方向に偏長となり、通常の島状金属薄膜とは異なり、薄膜面内(x-y面内)に光学異方性を持つようになる。この場合、x軸は粒子の短軸と方向が一致しているので、x偏光の光に対しては、共鳴波長は短波長側に1つだけ存在するはずである。一方、y軸は、ベクトル的に粒子の短軸と長軸の成分を含んでいるため、共鳴波長は、x偏光の共鳴波長と同じ波長に1つと、粒子の長軸に対応して、それよりは長波長側にもう1つの、合わせて2つ存在するはずである。

このことを、以前筆者らの研究グループで試作した薄膜の測定例[5]である図2で確認してみる。この薄膜は、金属として銀を用い、ガラス基板上に質量膜厚2.5nmの島状薄膜を形成後、75°の蒸着角で質量膜厚20nm相当量の斜め蒸着を行った試料である。X偏光に対しては、波長450nm付近に共鳴波長が観察される。一方、Y偏光に対しては、波長450nm付近と750nm付近に2つの共鳴波長が認められ、光学異方性が得られていることが分かる。しかし、図2からは、例えば波長750nmでx偏光の透過率は40%、y偏光は20%と、偏光フィルムとして利用するには、特にX偏光の透過率が低すぎることも分かる。この原因は、図2で測定された共鳴吸収特性がブロードである

ことから、粒子の形状や大きさのばらつきが大きいことにあるものと推測された。本稿の目的の1つは、粒子の形状がそろった均一な構造の理想的な傾斜微粒子島状金属薄膜が得られたなら、どの程度の特徴が期待できるか、理論的に明らかにすることである。

3. 傾斜微粒子島状金属薄膜の理論的光学特性

通常の島状金属薄膜の実効比誘電率は、自由電子の運動方程式より、実験的に得られる光学特性を良く説明できる理論式が導かれている。本章では、傾斜微粒子島状金属薄膜の光学的な特性の計算を行うために用いた仮定や理論[6]について簡単に整理する。

3.1 短軸・長軸偏光に対する実効複素屈折率

まず、本研究で解析する傾斜微粒子島状金属薄膜の構造について述べる。基本的な構造は、先に示した図1(c)のようなものである。すなわち、島の短軸方向の直径を a 、長軸方向の直径を b 、光の入射方向（つまり基板に対して垂直方向）に対しての島の傾斜角を θ 、島の間隔を l と置く。これら傾斜微粒子島状金属薄膜の構造パラメータが全ての粒子について同一である理想的な薄膜を仮定して解析を進める。次に粒子の光学軸は長軸方向にあり、その方向の偏光に対する島状金属薄膜の実効複素屈折率を n_L 、それに垂直な短軸方向の偏光に対する実効複素屈折率を n_S と置く。ここで、 n_L 、 n_S は通常の島状金属薄膜の複素屈折率と同じであると仮定すると、以下のように計算される[3]。

$$n_{L,S} = \sqrt{A_{L,S} \epsilon_s + \frac{\frac{d_w}{b} B_{L,S} \omega_p^2}{\omega_{L,S}^2 - \omega^2 + j \frac{\omega}{\tau}}} \quad (1)$$

ここで、

$$A_{L,S} = 1 + \frac{d_w}{b} \cdot \frac{\epsilon_L - \epsilon_s}{\epsilon_s + H_{L,S}(\epsilon_L - \epsilon_s)} \quad (2)$$

$$B_{L,S} = \frac{\epsilon_s^2}{[\epsilon_s + H_{L,S}(\epsilon_L - \epsilon_s)]^2} \quad (3)$$

$$\omega_{L,S}^2 = \frac{H_{L,S}}{\epsilon_s + H_{L,S}(\epsilon_L - \epsilon_s)} \omega_p^2 \quad (4)$$

$$H_{L,S} = L_{L,S} - \frac{d_w}{l} F_{L,S} \quad (5)$$

であり、 ω_p 、 τ 、 ϵ_L は金属の種類に依存する材料パラメータで、各々プラズマ角周波数、自由電子の緩和時間、金属原子の格子振動等による比誘電率成分である。表1に、本研究で用いる銀 (Ag) とアルミニウム (Al) のこれら材料パラメータの値を示す。また、 ϵ_s は粒子の周辺媒質の

比誘電率で、通常は基板の比誘電率を用いる。 d_w は質量膜厚（島状金属薄膜の島を押しつぶして平坦な薄膜としたときの膜厚で、

$$d_w = \frac{\pi}{6} a^2 b \frac{1}{l^2} \quad (6)$$

により計算される。 ω は光の角周波数で、光の波長 λ との間には光速 c を用いて

$$\omega = \frac{2\pi c}{\lambda} \quad (7)$$

の関係がある。 $L_{L,S}$ は反分極因子であり、粒子が偏長な回転楕円体である場合、短軸方向の偏光に対しては、

$$L_S = \frac{p}{2(1-p^2)} \left[\frac{1}{p} - \frac{p}{2\sqrt{1-p^2}} \ln \left(\frac{1+\sqrt{1-p^2}}{1-\sqrt{1-p^2}} \right) \right] \quad (8)$$

長軸方向の偏光に対しては、

$$L_L = 1 - 2L_S \quad (9)$$

と求められる[7]。なお、ここで p は粒子のアスペクト比であり、

$$p = a/b \quad (10)$$

である。また、 $F_{L,S}$ は分布状態因子であり、通常の島状金属薄膜では、

$$F_S = \frac{\sqrt{2}}{\pi} \quad (11)$$

$$F_L = -\frac{2\sqrt{2}}{\pi} \quad (12)$$

と与えられる[3]が、本稿では、傾斜微粒子島状金属薄膜においても同様に表されるものと仮定した。

なお、 ω_L と ω_S は各々長軸方向、短軸方向の共振角周波数を表している。式(4)、(7)より、長軸・短軸方向偏光に対する共振波長の式を示すと

$$\lambda_{L,S} = \frac{2\pi c}{\omega_p} \sqrt{\frac{\epsilon_s}{L_{L,S} - \frac{d_w}{l} F_{L,S}} + (\epsilon_L - \epsilon_s)} \quad (13)$$

と求められる。長軸方向の偏光に対する共振波長が短軸方向の偏光より長波長側に出るのは、 $L_L < L_S$ の関係が成り立っているためである。(8)、(9)式より、アスペクト比が大きくなるほど L_L の値は小さくなるので、より偏長な粒子からなる薄膜ほど共振波長は長くなることも分かる。さらに、この式より、プラズマ角周波数 ω_p が大きな金属を用いるほど、共振波長が短くなることも分かる。

表1 銀とアルミニウムの材料パラメータ[8]

金属	ω_p [rad/s]	τ [s]	ϵ_L
Ag	1.33E16	8.3E-15	4
Al	1.89E16	1.0E-14	1.03

3.2 X 偏光・Y 偏光に対する実効複素屈折率

前節で求めた長軸・短軸偏光に対する実効複素屈折率, n_L , n_S より, 屈折率楕円体の考え方をを用いて, 薄膜に垂直な方向から光が入射したとき, 傾斜島状金属薄膜中において光が感じる屈折率を求める。図1(a)に示したように基板に垂直に入射する光の偏光のうち, 粒子の傾斜方向の偏光を Y 偏光, それに垂直な偏光を X 偏光と呼び, 各偏光が感じる屈折率を各々 n_Y , n_X とおく。

先にも述べた通り, X 偏光の場合, 薄膜において光の電界は粒子の短軸方向成分のみである。よって薄膜中における光が感じる屈折率は

$$n_X = n_S \quad (14)$$

となる。一方, Y 偏光の場合, 光の電界は, ベクトルの的に粒子の長軸方向の成分とそれに垂直な短軸方向の成分に分解できるので, 薄膜中における光が感じる屈折率は屈折率楕円体の考え方をを用いると

$$n_Y = \sqrt{\frac{n_S^2 n_L^2}{n_S^2 \sin^2 \theta + n_L^2 \cos^2 \theta}} \quad (15)$$

と表される。ただし, 先にも述べたように θ は島の傾斜角である。

3.3 傾斜微粒子島状金属薄膜の分光特性の計算例

以上により求められた n_Y , n_X を用いると, 通常金属薄膜の透過率, 反射率を求める時と同様の手法で, 薄膜の透過率や反射率を計算することができる。ここでは先ず, 金属材料として, 共鳴吸収特性が比較的鋭く, また可視領域にバンド間遷移による吸収を持たない銀を選択した。プラズマ角周波数等の構造パラメータの値は, 表1に示したとおりである。薄膜の構造としては, 粒子の短軸直径 a を20 (nm), 長軸直径 b を100 (nm), 粒子間距離 l を100 (nm), 島の傾き角 θ を 30° とした。粒子のアスペクト比 p は0.2と求められる。基板の屈折率は1.5のガラスを考え, さらに簡単のため, 薄膜は基板と同じ屈折率の媒質に埋め込まれているものと仮定した。

図3に X, Y 各偏光に対する分光透過特性の計算例を示す。X 偏光については, 波長350nm 付近に, 短軸方向の共鳴波長に対応する鋭い共鳴吸収特性が見られるが, 他の波長帯では, 透過率はほぼ100%である。一方, Y 偏光については, 350nm と720nm の2つの波長帯に共鳴吸収特性が見られる。特に, 波長720nm の共鳴吸収特性は, Y 偏光にのみ見られるものであり, この波長付近におい

て両偏光で透過率が大きく異なり, 高い偏光選択性が得られることになる。また, これらの理論的共鳴吸収特性は, 図2に示した実験結果に比べてはるかに鋭く, 理想的な薄膜が得られるなら, 高消光比で低挿入損失の偏光フィルムが期待できることが分かる。

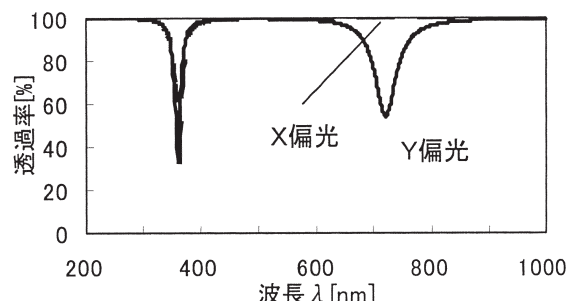


図3 傾斜微粒子島状銀薄膜の分光透過特性の計算例 ($p=0.2$, $l=100\text{nm}$, $a=20\text{nm}$, $\theta=30^\circ$)

4. 銀を用いた偏光フィルムの光学特性

図3より明らかに, 粒子の形状や大きさがそろった理想的な構造の傾斜微粒子島状金属薄膜を用いたなら, 急峻な共鳴吸収特性が得られ, 高性能な偏光フィルムの実現が期待できる。しかし, この薄膜1層では, 透過率はせいぜい50%程度であり, 消光比は3 dB程度にしかならない。そこで, 本章では, このような傾斜微粒子島状金属薄膜とガラス薄膜の交互多層膜により高消光比の偏光フィルムを実現する可能性について検討を行う。

傾斜微粒子島状金属薄膜として, 3.3節で示した構造のものを用い, 島状金属層を隔てるスペーサ層として, 厚さ100nmで屈折率1.5のガラス層を考える。図4に, 傾斜微粒子島状金属層を10層積層した交互多層膜の光学損失の波長依存性の計算例を示す。波長720nm 付近において, Y 偏光に対する損失(近似的に消光比に対応する)は30 dB, X 偏光に対する損失は0.03dB と, 偏光フィルムとしては, 大変良好な特性が期待できることが分かる。また, 図5に同じ多層膜の分光反射特性の計算例を示す。波長720nm 付近における反射率は3%程度である。偏光フィルムとしては十分低い値と考えられる。

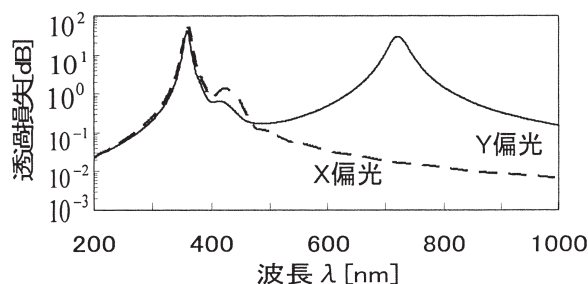


図4 傾斜微粒子島状銀薄膜を用いた偏光フィルムの特性の計算例

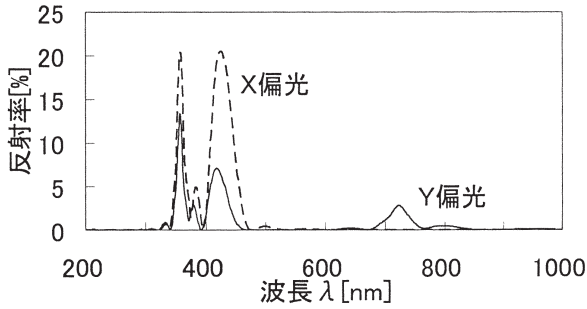


図5 偏光フィルムの分光反射特性の計算例

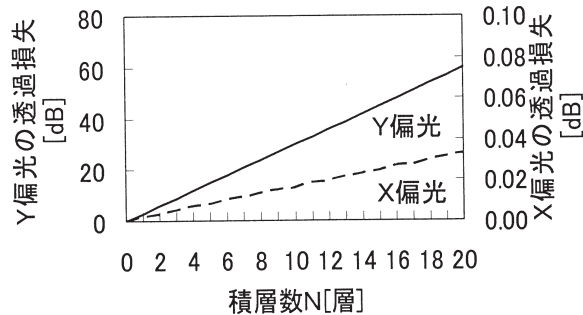


図6 波長720nmにおける偏光フィルムの損失と積層数の関係の計算例

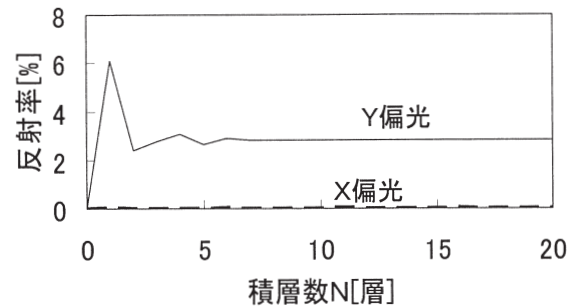


図7 波長720nmにおける偏光フィルムの反射率と積層数の関係の計算例

また、図6に波長720nmにおける各偏光に対する損失と傾斜微粒子島状銀薄膜の積層数の関係を示す。積層数が増加するにつれ、Y偏光の損失は線形的に増加しており、この偏光フィルムの損失の主たる要因が、金属微粒子による吸収損失であることが分かる。因みに、光通信デバイス用の偏光子に求められる消光比40dB以上を実現するには、14層程度の積層が必要であることも分かる。X偏光については、やはりY偏光と同様積層数に比例して増加している。さらに、図7に波長720nmにおける反射率と積層数の関係の計算例を示す。Y偏光については、傾斜微粒子島状銀薄膜1層では、反射率が6%程度あるが、2層以降では、大体3%程度であることが分かる。これは、スペーサ層が、干渉による反射率の減少をもたらすような厚さになっているためと考えられる。なお、X偏光については、この波長帯では傾斜微粒子島状銀薄膜事態の反射率が小さ

いため、ほとんど0%であるが、若干の変動がある。これも干渉の効果であるが、X偏光で反射率が高くなると損失も増加するので、設計に当たっては多少の注意が必要と考える。

5. アルミニウムを用いた偏光フィルムの光学特性

最後に、ポーラコア等の分相ガラスを用いた偏光子では実現不可能なアルミニウム粒子を用いた短波長用偏光フィルムの可能性について、簡単に述べる。

式(13)で示したように、共鳴波長は、金属材料のプラズマ角周波数の逆数に比例する。従って、表1で示したようにプラズマ角周波数の値が、銀の1.4倍と推定されるアルミニウムを用いると、より短い波長帯用の偏光フィルムの実現が期待できる。そこで、前章で用いた傾斜微粒子島状銀薄膜と全く同じ構造で、材料のみ銀からアルミニウムに偏光した場合について、理論的な検討を行った。

図8に、傾斜微粒子島状アルミニウム薄膜を10層積層した場合の偏光フィルムの損失の波長依存性の計算例を示す。Y偏光について、波長500nm付近に共鳴吸収特性が見られ、予想通り銀を用いた場合より、200nm短い波長帯用の偏光フィルムが期待される。共鳴波長は、粒子のアスペクト比によっても変化させることができるので、アスペクト比をより小さくすることにより、波長300nmから400nm帯用の偏光フィルムの実現が可能と思われる。なお、両偏光とも波長420nm付近に小さな損失のピークが見られるが、これは干渉の作用と考えられ、スペーサ層の最適化により改善できるものと考えられる。

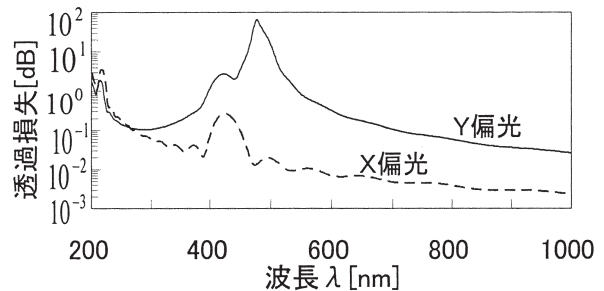


図8 傾斜微粒子島状アルミニウム薄膜を用いた偏光フィルムの特性の計算例

6. まとめ

粒子の形状や大きさが均一な理想的な構造の傾斜微粒子島状金属薄膜を積層した構造からなる偏光フィルムについて、理論的な検討を行った。薄膜が理想的な構造を持つなら、粒子の長軸方向の偏光に対応する共鳴波長において、高消光比で低挿入損失な良好な特性の偏光フィルムが実現できる可能性が示された。金属として銀を用いて、波長

720nm において消光比30 dB, 挿入損失0.03dB 程度の偏光フィルムの設計例を示した。この偏光フィルムの偏光子部分の膜厚は, せいぜい $2\ \mu\text{m}$ 程度と見込まれる。また, 干渉の効果を利用して, 反射率も3%程度に低減できることも示された。また, 金属としてプラズマ角周波数が高いアルミニウムを用いることにより短波長用の偏光フィルムの実現が期待できることも示された。

本研究は, あくまでも理論的なものであって, 理想的な構造の傾斜微粒子島状金属薄膜を形成する技術が実現したときの可能性を示し, もって, このような技術を開発するための研究の動機付けを強化することを第一の目的に据えている。通常の真空蒸着法により, 普通のガラス基板の上に斜め蒸着法で薄膜を形成するのでは, 図2に示したようにブロードな特性の薄膜しか得られないが, 例えば基板上に金属微結晶の種となるような窪みもしくは突起を周期的に形成する, あるいは, 金属材料と基板材料の組み合わせの最適化等により, より粒子形状がそろった薄膜を形成できる可能性もある。

なお, 今回の理論計算で示した偏光フィルムの特性は, 実用的観点からすると共鳴が鋭すぎ, 使用できる波長帯域が狭すぎるように思われる。ある程度の粒子形状や大きさのばらつきは実用的な偏光フィルムを実現するために, むしろ必要とも考えられる。今後はこれらの点も考慮して, どの程度の薄膜構造の不均一さが許されるか(あるいは必要か)等の検討を行っていく予定である。

本研究は, 文部科学省科学研究費補助金(16560318)を得て行われた。

参考文献

- [1] 例えば, 物理学辞典, 培風館(1984).
- [2] M. Taylor, G. Bucher, and K. Jones, "High contrast polarizers for the near infrared," Proc. Soc. Photo-Opt. Instrum. Eng., 1166, pp. 446-452 (1989).
- [3] 例えば, K. Baba and M. Miyagi, "Optical polarizer using anisotropic metallic island films with a large aperture and a high extinction ratio," Opt. Lett., 16, pp.964-966 (1991).
- [4] G. Mbise, G. B. Smith, G. A. Niklasson, and C. G. Granqvist, "Angular-selective optical properties of Cr films made by oblique-angle evaporation," Appl. Phys. Lett., 54, pp. 987-989 (1989).
- [5] 藤沼, 馬場, 宮城: 二段階斜め蒸着法による異方性島状銀薄膜研究, 平成10年度電気関係学会東北支部連合大会, 2C14 (1998).
- [6] 畠山, 馬場: 傾斜微粒子島状金属薄膜の光学特性の理論的検討, 仙台電波工業高等専門学校研究紀要, 34, pp.13-18 (2004).
- [7] J. A. Osborn, "Demagnetizing factor of the general ellipsoid," Phys. Rev., 67, pp.351-357, (1945).
- [8] K. Baba and M. Miyagi, "Anisotropic optical media from laminated island films: theory," J. Opt. Soc. Am A, 8, pp.619-624 (1991).

(平成17年 8月18日原稿受理)