

傾斜微粒子島状金属薄膜を用いた偏光フィルムの 広帯域化の理論的検討

柿沼 悠*・馬場 一隆

Theoretical Analysis of Wideband Optical Polarizing Films
Using Oblique Metal Island Films

KAKINUMA Yu, and BABA Kazutaka

Synopsis

Oblique metal island (OMI) films exhibit large optical anisotropy. Therefore, using multilayers of the OMI films, optical polarizing films with a high extinction ratio and low insertion loss can be realized. The OMI films can be formed using a conventional vacuum evaporation system. In this work, we designed wide-band polarizing films for 350–560 nm with the extinction ratio of ≥ 20 dB and the insertion loss of ≤ 0.5 dB by changing the shape of metal islands layer by layer.

Keywords: Polarizing films, Metal island film, Optical anisotropy

1. はじめに

偏光子は、光通信や液晶ディスプレイ等、様々な分野において重要な素子の一つであり、広く使われている。偏光子は、原理や材料により様々なものがあるが、形状で分類すると、バルク状、導波路型、薄膜型の3種類に大別される。この中でも、薄膜型（偏光フィルム）は数十～数百ミクロンと光路長が短いため用途が広い。このため、現在では、実用上この形状のものが最も多く使われている。偏光フィルムの代表例としては、針状のヨウ化物結晶等を用いたポーラロイド板[1]があげられる。液晶ディスプレイや立体映画用偏光メガネなどに使われているのはこのタイプの偏光フィルムである。これらは、安価であり大面積なものの作製が容易であるという利点を持っているが、消光比があまり高くなく、耐熱性が悪い、吸収損失が大きいといった欠点がある。他には、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]等があげられる。このタイプの偏光フィルムは、高消光比であり、化学的にも安定で、耐熱性が良い。しかし、高価であり、大面積なものの作製が困難である。また、分相ガラスであるため金属材料が銀や銅に限られ、このため利用できる波長帯が可視から赤外に近い長い波長帯に限定される上、波長帯域が狭い。このためポーラコアは光通信等に用いられる光アイソレータ用の偏光子として良く利用されている。

ところで、金属微粒子を含む光媒質の形成方法として、真空蒸着法により薄膜を作製するとき、その初期段階で形成される島状金属薄膜を利用する方法がある。島状金属薄膜を用いる方法の利点は、金属粒子や基板の材料に制約がなく、金属粒子を高密度で分散できる点である。この方法を応用して、薄膜を形成させる基板を蒸着源に対して傾斜させることにより傾斜微粒子島状薄膜を得ることができる[3]。概念図を図1に示すように、傾斜微粒子島状薄膜は、一方向に傾斜した金属微粒子からなる薄膜である。

この傾斜微粒子島状薄膜は、大面積なものを比較的簡単に作製することができると期待される。しかし、実際に真空蒸着法等により得られた薄膜の光学特性を図2に示すが、金属粒子の形状のばらつき等のため損失が大きな膜しか得られていないのが現状である[3]。筆者らでは昨年までこの傾斜微粒子島状薄膜に対して、粒子の形状、大きさ、傾斜方向がそろった理想的な構造が得られた場合の特性を理論的に解析してきた[4]。これによって、理想的な構造の傾斜微粒子島状薄膜なら高消光比で低挿入損失な良好な特性を得られることが明らかになった。

本論文では、この結果を基に、例えば液晶プロジェクタにも用いられるような広帯域な偏光フィルムの設計を考える。島状薄膜を用いることの利点は、各層ごとに薄膜の構造を変化させることができるという点にある。このような広帯域な素子は、分相ガラスを用いるポーラコア等では実現が困難である。以下数層ごとに粒子の形状にばらつきを持たせた場合について、金属材料として銀とアルミニウムそれぞれを検討した結果を示す。

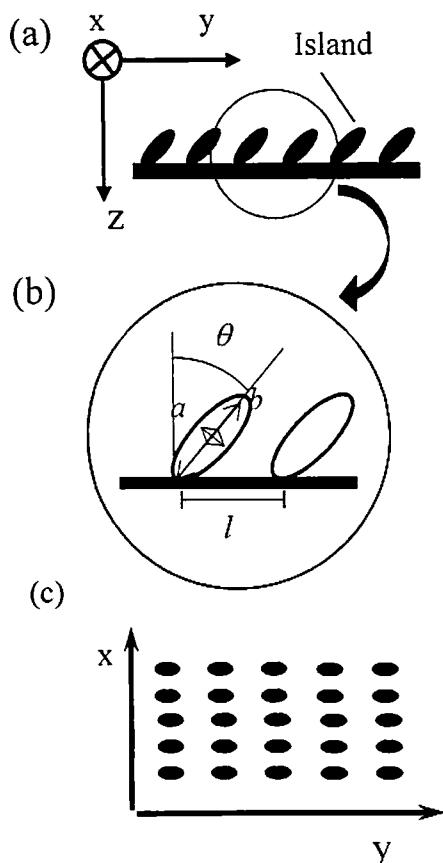


図1 傾斜微粒子島状金属薄膜の概念図

2. 傾斜微粒子島状金属薄膜

島状金属薄膜は、基板上に真空蒸着法等により薄膜を形成する際の初期段階にしばしば見られる、ナノメータ

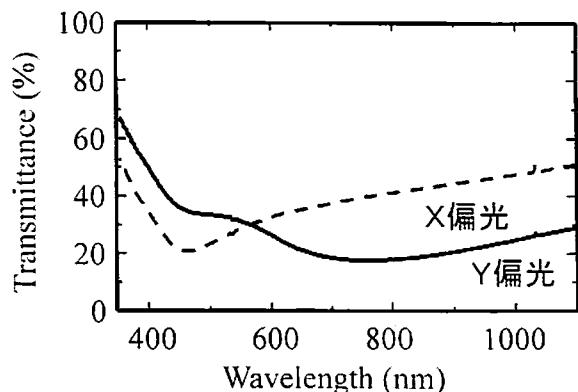


図2 試作された傾斜微粒子島状銀薄膜の分光透過特性の測定例[3]

サイズの微細な金属粒子が2次元的に分布した構造の薄膜である。島状金属薄膜は、不連続な構造であり、金属粒子内の自由電子の運動が個々の粒子内に制限されるため、粒子内部で調和振動することにより、バルク状の金属とは異なって、可視から近赤外領域の光に対して共鳴吸収特性を有することが知られている。また、共鳴波長近傍では、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）が数nmとごく薄い薄膜でも、数十%と高い値の反射率と大きい吸収率を示す。しかし、その他の波長帯では反射率、吸収率ともに小さく光学的に存在しないとの等価であるという非常に特異な特徴を持っている。また、この薄膜の共鳴波長は、構成する金属材料、粒子間の距離、粒子の形状、入射する光の偏光方向などによって異なる。例えば、粒子の形状を偏長な回転楕円体とすると、短軸方向の偏光では短波長側に共鳴波長が存在し、長軸方向の偏光は長波長に存在する。このように、偏光によって共鳴波長が異なるため島状金属薄膜は、光学異方性を有する。

本研究で使用する傾斜微粒子島状薄膜は、図1に示したように島状金属薄膜の中でも特殊な構造をもつ薄膜である。図1(a)のように、粒子は特定の方向（この図ではy方向）に傾斜しており、上から見ると図1(c)のようにy方向に偏長な粒子がそろって並んでいる構造となっている。このため薄膜面内(x-y面内)において共鳴波長が異なり光学異方性を有する。

3. 傾斜微粒子島状金属薄膜の理論的光学特性

本章では、傾斜微粒子金属薄膜の光学特性の計算のための仮定や理論について簡単に述べる。

3. 1 短軸・長軸偏光に対する実効複素屈折率

本研究で解析する傾斜微粒子島状薄膜の基本的な構造は図1に示した通りである。図1(b)に示したように粒子

の短軸直径を a , 長軸直径を b , 粒子の傾斜角を基板に垂直方向から θ , 各々の粒子の間隔を l と仮定し, これらのパラメータが薄膜内で一様であるとして解析を行う。そして, 粒子の光学軸方向の偏光に対する実効複素屈折率を n_L , それに垂直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式で表現できると仮定すると, 以下のように計算される。

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

ただし,

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

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

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

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

ここで, ω_p , τ , ϵ_L は金属の種類に依存する材料パラメータであり, それぞれプラズマ角周波数, 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。 d_w は $l \times l$ の範囲の粒子を押しつぶし平坦な薄膜とした場合の膜厚で質量膜厚といい

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

となる。本研究で用いる銀(Ag)とアルミニウム(Al)のこれらの材料パラメータの値を表1に示す。

表1 銀とアルミニウムの材料パラメータ[4]

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

ここでは, 屈折率楕円体の考え方を用いて, 傾斜微粒子島状薄膜中で光が感じる屈折率を求める。図1(a)で示したように, 粒子の傾斜方向の偏光をY偏光, それに垂直な方向の偏光をX偏光と呼び, 各偏光が薄膜中において感じる屈折率を n_Y , n_X と置く。

まず, X偏光の屈折率 n_X は, 薄膜において光の電界が粒子の短軸方向成分のみなので, 屈折率は

$$n_X = n_S \quad (7)$$

となる。次にY偏光の場合は, ベクトル的に粒子の短軸の成分と長軸の成分を含んでいるため, 薄膜中における

光が感じる屈折率は

$$n_Y = \sqrt{\frac{n_S^2 n_L^2}{n_S^2 \sin^2 \theta + n_L^2 \cos^2 \theta}} \quad (8)$$

となる。ここで, θ は先ほども述べたように粒子の傾斜角である。

4. 偏光フィルムの設計例

前節で求めた n_Y , n_X を用いることで, 通常の金属薄膜の透過率または反射率を求める方法で, 薄膜の透過率, 反射率を求めることができる。

図3に金属材料をアルミニウムとした傾斜微粒子島状金属薄膜とガラス層を交互に重ねた10周期の交互多層膜の計算例を示す。アルミニウムの材料パラメータは, 表1に示したとおりである。薄膜の構造として, 粒子の短軸直径 a を 20nm, 長軸直径 b を 200nm, 粒子間距離 l を 100nm, 島の傾き角 θ を 30° とした。粒子のアスペクト比 p ($=a/b$) は 0.1 となる。基板には, ガラスを考え, 屈折率は 1.5 とし, さらに簡単のため, 薄膜は基板と同じ屈折率で膜厚が 40nm のガラス媒質に埋め込まれているものとする。

X偏光については, このグラフでは確認することはできないが波長 200nm 以下に共鳴波長があると思われる。一方, Y偏光については, 波長 530nm に共鳴吸収特性が見られ, またもう一つの共鳴波長は X偏光と同じ波長にあると考えられる。この結果より, 波長 530nm 附近において両偏光で損失が大きく異なり, 高い偏光選択性が得られることが分かる。消光比(Y偏光の損失)は約 150dB, 挿入損失(X偏光の損失)は約 0.02dB と推定される。

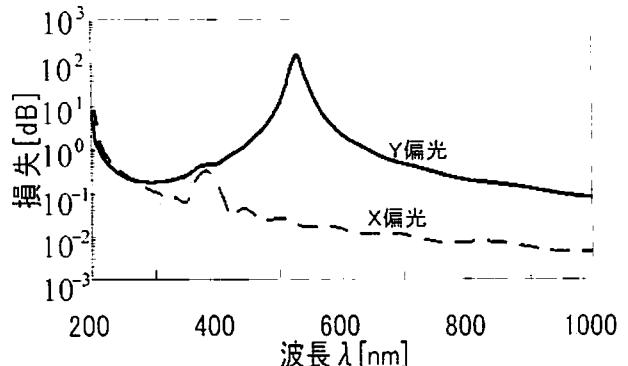


図3 傾斜微粒子島状アルミニウム薄膜の損失の計算例
($p=0.1$, $l=100\text{nm}$, $a=20\text{nm}$, $\theta=30^\circ$)

交互多層膜の光学特性を計算するには, それぞれのアスペクト比を用いたX偏光, Y偏光に対する島状金属薄膜とガラスの光学アドミタンス $Y_{X,Y}$ 及び Y_g と位相成分 $\delta_{X,Y}$ 及び δ_g より求められる4端子行列 $M_{X,Y}$ 及び M_g を用い

ることで解析を行うことができる。4端子行列

$M_i (i=X, Y, g)$

$$M_i = \begin{bmatrix} \cos(\delta_i) & j \frac{\sin(\delta_i)}{Y_i} \\ j Y_i \sin(\delta_i) & \cos(\delta_i) \end{bmatrix} \quad (9)$$

ただし、傾斜微粒子島状金属薄膜については X, Y 各層に対し

$$Y_{X,Y} = n_{X,Y} \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \quad (10)$$

$$\delta_{X,Y} = k_0 d_{X,Y} \quad (11)$$

ガラス層については

$$Y_g = n_g \sqrt{\frac{\epsilon_0}{\mu_0}} \quad (12)$$

$$\delta_g = k_0 n_g d_g \quad (13)$$

となる。ここで、 ϵ_0 , μ_0 , k_0 はそれぞれ真空中の誘電率、透磁率、波数で、 n_g , d_g はそれぞれガラス層での屈折率、膜厚である。本研究では n_g を 1.5 として解析を行っている。(9)より

$$\begin{pmatrix} B_{X,Y} \\ C_{X,Y} \end{pmatrix} = \left\{ [M_{X,Y}] [M_g] \right\}^{N-1} [M_{X,Y}] \begin{pmatrix} 1 \\ Y_g \end{pmatrix} \quad (14)$$

を用いると、透過率 $T_{s,p}$ 及び反射率 $R_{s,p}$ は

$$T_{X,Y} = \frac{4 Y_g Y_g^*}{(Y_g B_{X,Y} + C_{X,Y})(Y_g B_{X,Y} + C_{X,Y})^*} \quad (15)$$

$$R_{X,Y} = \frac{(Y_g B_{X,Y} - C_{X,Y})(Y_g B_{X,Y} - C_{X,Y})^*}{(Y_g B_{X,Y} + C_{X,Y})(Y_g B_{X,Y} + C_{X,Y})^*} \quad (16)$$

となる[5,6]。ここで、* は複素共役を表す。

5. 構造の異なる薄膜の組み合せによる広帯域化の検討

図 3 より、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とき、急峻な共鳴吸収特性が得られ、共鳴波長近傍で高性能な偏光フィルムの実現ができることが分かった。しかし、使用できる波長が狭いため、例えば液晶ディスプレイやプロジェクタ等への利用は不可能である。そこで、本研究では、薄膜のアスペクト比を層ごとに変化させた傾斜微粒子島状金属薄膜とスペーサ層からなる多層膜により、高消光比で広帯域の偏光フィルムを実現する可能性について検討を行う。

5. 1 アルミニウムを用いた交差多層膜の光学特性

図 4 に概略を示すように各層ごとにアスペクト比が異なる薄膜を重ねた多層膜の計算例を考える。金属材料

としては、前節と同様にアルミニウムを選択した。(a) の範囲はアスペクト比 0.1, 0.19 の薄膜を各 1 層、(b) の範囲はアスペクト比 0.23, 0.27, 0.31 の薄膜を各 1 層、そして(c) の範囲はアスペクト比 0.35, 0.38 の薄膜を各 1 層ずつ重ねた交差多層膜である。また、それぞれのアスペクト比以外の構造パラメータは前節で示した薄膜と同じである。

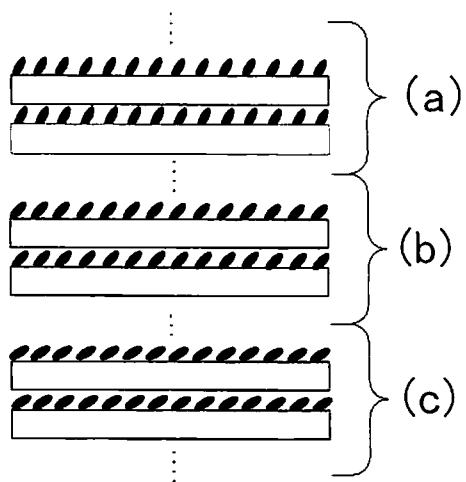


図 4 広帯域偏光フィルムの構成の概略図

図 5 と図 6 に交差多層膜の損失と反射率の計算例を示す。各図で太い実線は、Y 偏光、破線は X 偏光に対する光学特性であり、細い破線で区切られている部分はその偏光フィルムの使用される波長帯である。図 5 より、この交差多層膜の共鳴波長帯は波長 350~560nm 付近で、Y 偏光に対する損失（近似的に消光比に対応する）は 20~185dB、X 偏光に対する損失は 0.07~0.5dB となる。ここで、X 偏光の損失が 0.5dB と高い波長帯もあるが、全体として 0.1dB 以下の波長帯が多いため偏光フィルムとして利用は可能であると考えられる。この結果より、前節の薄膜と比べ、共鳴波長帯がほぼ 200nm と向上した。もう少し帯域を広げることにより液晶ディスプレイやプロジェクタの偏光板としての利用が期待できる。なお、波長 380nm 付近で X 偏光の損失の値が増加しているのは、薄膜間の干渉による影響のためだと考えられ、今後はその影響の低減化を検討していく予定である。

次に、図 6 より共鳴波長帯における反射率は 0.5~23% 程度である。偏光フィルムとしてはやや高い値と考えられるが、スペーサ層の膜厚の最適化により低減化できる可能性がある。

5. 2 銀を用いた交差多層膜の光学特性

最後に、アルミニウムより長波長帯に共鳴波長を持つ銀を用いた偏光フィルムの広帯域化の可能性について述べる。

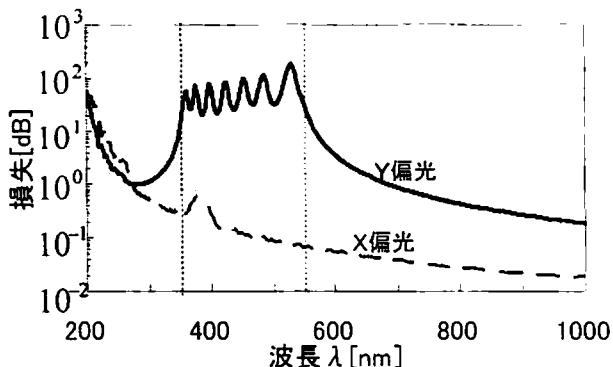


図5 交互多層膜を用いた偏光フィルムの特性の計算例

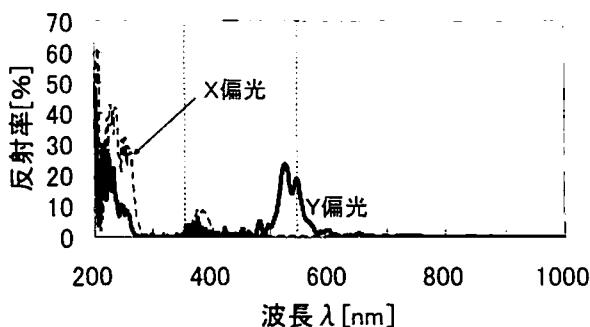


図6 交互多層膜の分光反射特性の計算例

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[4]。従って、表1で示したようにプラズマ角周波数の値が、アルミニウムの0.7倍と推定される銀を用いると、より長い波長帯用の偏光フィルムが実現できる。そこで、前章で用いた傾斜微粒子島状銀薄膜とほぼ同じ構造で、材料を銀からアルミニウムに変更した場合について、理論的な検討を行った。

図7に、アスペクト比を0.2, 0.23, …, 0.32と5層ごとに0.03刻みで変化させた傾斜微粒子島状銀薄膜を25層積層した場合の偏光フィルムの損失の計算例を示す。Y偏光について、波長603~733nm付近に共鳴吸収特性が存在することが分かり、波長603~733nm付近における損失は10~20dB、X偏光の損失は、0.03~0.07dBである。前節で示したアルミニウムを用いた特性より、長波長に共鳴波長が存在し、また良好な特性であることが分かる。ただし、可視領域全体はカバーできておらず、例えば液晶ディスプレイ用には使用困難であると思われる。

図8に同じ多層膜の分光反射特性の計算例を示す。波長603~733nm付近の反射率は0.04~2.0%程度で低い値と考えられる。

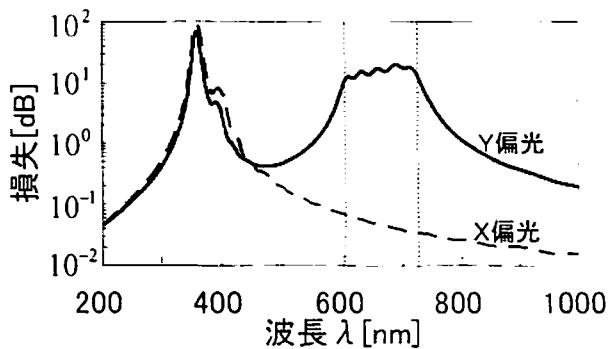


図7 0.03刻みの交互多層膜を用いた偏光フィルムの特性の計算例

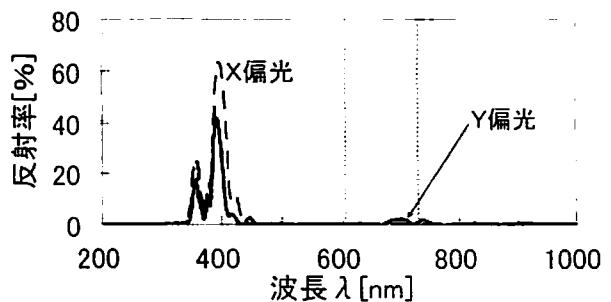


図8 0.03刻みの交互多層膜の分光反射特性の計算例

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各層ごとにアスペクト比を変化させて積層した交互多層膜構造を用いた偏光フィルムについて、理論的な検討を行った。アスペクト比が異なる薄膜を積層することにより、使用波長帯をより広帯域化できる可能性が示された。

本論文で設計例として示したのは金属材料としてアルミニウムを用いて、アスペクト比0.1, 0.19の薄膜、アスペクト比0.23, 0.27, 0.31の薄膜、そしてアスペクト比0.35, 0.38の薄膜をそれぞれ12層ずつ重ねた交互多層膜である。また、それぞれの薄膜のアスペクト比以外の構造パラメータはすべて同じである。この交互多層膜において波長350~560nm付近において消光比20dB以上、挿入損失0.5dB以下であることが分かった。挿入損失については、アスペクト比の変化の割合や積層数を変化させることによりさらに低減化することができると思われる。また、反射率0.5~23%程度の素子が実現可能であることも示された。

金属材料として銀を用いた場合では、アスペクト比を0.2, 0.23, …, 0.32と5層ごとに0.03刻みで変化させた傾斜微粒子島状銀薄膜を25層積層することによって、波長603~733nm付近において、消光比10~20dB、挿入損失0.03~0.07dB程度の素子が実現可能であることが示さ

れた。しかし、液晶ディスプレイ用の偏光板としての利用は困難であることも示された。

なお、アルミニウムや銀単体での広帯域化には限界があることが今回の理論結果からも推測される。金属材料に銀とアルミニウムの両方を用いることにより、より広帯域化できる可能性があるが、その場合、銀のX,Y両偏光の共鳴波長がアルミニウムのY偏光の共鳴波長に重なるという問題がある。今後はこれらの点も考慮して、どのようにすれば銀のX,Y両偏光の共鳴波長がアルミニウムのY偏光の共鳴波長が影響を及ぼさないかを検討する。また、実際に傾斜微粒子島状薄膜を形成するとアスペクト比や粒子間の距離が不均一になる。そこで、これらのパラメータにどのくらいの不均一さが許容できるかについても検討していく予定である。

参考文献

- [1] 例えば、物理学辞典、倍風館(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] 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)
- [4] 柿沼, 馬場:傾斜微粒子島状金属薄膜の偏光フィルムへの応用, 仙台電波工業高等専門研究紀要, 35, pp.10-11 (2005) .
- [5] 畠山:傾斜微粒子島状薄膜の偏光多重光記録媒質への応用, 仙台電波工業高等専門学校専攻研究論文 (2004)
- [6] 長谷川, 馬場, 宮城:島状銀多層膜の波長合・分波器への応用と理論的検討, 第 412 回伝送工学研究会資料 (1998)