不均質反射防止膜の製作* UDC 681.4-787

沢 木 司** 正会員 久保田 廣**

ON THE PRACTICAL METHODE OF COATING THE INHOMOGENEOUS REFLECTION-REDUCING LAYERS.

T. Sawaki and H. Kubota.

Department of Applied Physics, 2nd Faculty of Engineering, Tokyo University, Chiba, Japan.

Previously, one of the authors has studied the possibility of using the inhomogeneous layers in order to reduce the reflection from glass surface⁽¹⁾, and showed that they are superior in many respects as compared with the homogeneous layer. In this paper, the practical methode of coating such layers on glass surface is described, which is believed to be the best one, after many trials. When only the single film of inhomogeneous layer satisfying the amplitude and phase condition at a certain wave-length, is used, there remains much residual reflectivity for the light of the other wave-lengths. Therefore, we have studied the double film of inhomogeneous layers and have succeeded to give a satisfactory flat spectral reflectivity curve.

1. 緒 言

先に屈折率の不均一な干渉薄膜即ち不均質膜を用いた反射防止膜の可能性を理論的に考察したが⁽¹⁾, その結果は均質膜を用いるよりも優れた点の多いことがわかった。そこでこの様な膜を実際に製作する方法に就いて研究を進め、真空中に並置した二つの蒸発源に別々に入れた二つの物質の蒸発速度の組合せによつて混合膜を作る方法が最も容易で且つ実用的であることを確め、更に分光反射率を改良して残留反射をより少なくする為に二重膜の製作を試みた結果極めて平坦な反射防止膜が得られたので之等を併せて報告する。

2. 理論的考察

不均質膜の理論的な取扱いは、屈折率の厚さの方向に連続的に変化して光は膜に直垂に入射するとして、

第1図
不均質単層膜

零近似で考へると境界に於ける反射係数のみを考えるとよいことになるから⁽¹⁾ 均質膜の場合と同様に取扱える。

a. 不均質単層膜 この場合には一枚の膜の両側の境界に於ける反射係数を B, C とすると (第1図参照) 反射率

R_2 はよく知られているように

$$R^2 = \frac{B^2 + C^2 + 2BC \cos x}{1 + B^2 C^2 + 2BC \cos x}$$

で與えられる。但し $x = \frac{4\pi}{\lambda} \int_0^d n(z) dz$. R^2 の極値は

$$(B \pm C)^2 / (1 \pm BC)^2 \dots \dots \dots (1)$$

であるが之が最大値か最小値かは B と C の符号で決まる。完全反射防止即ちある波長において反射率が零になる条件は

$$B = C, \cos x = -1$$

$$B = -C, \cos x = 1$$

の二つの場合があつて之を屈折率で表すと

$$n_I n_{II} = n_1 n_2, \int_0^d n(z) dz = (m + \frac{1}{2}) \frac{\lambda}{2} \dots (2)$$

$$\frac{n_{II}}{n_I} = \frac{n_2}{n_1}, \int_0^d n(z) dz = (m+1) \frac{\lambda}{2} \dots \dots \dots (3)$$

但し $m = 0, 1, 2, \dots \dots \dots$

今空気で ($n_I = 1$) にガラス (屈折率 n_{II}) がある場合について考えると、 $n_1 > 1$ だから (2) の場合は $n_2 < n_{II}$ となり、(3) の場合には $n_2 > n_{II}$ となる。後の場合については先に詳細に議論したが⁽¹⁾ 屈折率の値の大きな固い膜を用いて反射防止が可能であるという利点の反面にそうすると残留反射が大きくなるという不利が伴うので実際には特に固い膜を作るという目的は断念しなければならない。(2) の条件を満足する物質は実際にはないので + 単層膜でこの種の反射防止膜は製作出来ないが、ガラスの屈折率からある屈折率 n_{II}' を連続的に屈折率の増大した膜の上に (2) で n_{II} を n_{II}' に置き

* 物理学会應用物理学会連合会 昭 25—10 月講演
** (東京大学第二工学部)

(1) 小瀬輝次、久保田広：照学誌 34 (昭 25) 47

*** 膜が厚いと残留反射が大きいから実際製作には $m=0$ のみをとる。

+ n_1, n_2 が最も大きくて $\sqrt{n_{II}}$ であることが必要で之は $n_{II} = 1.52$ とすると 1.23 となつてこのような膜は実用的には得られない。

第2図 不均質二層膜

3つの境界に於ける反射係数を A, B, C とすれば (第2図参照) 透過率 T^2 は次のように表される:

$$\left. \begin{aligned} T^2 &= k / (a + b \cos x + c \cos 2x) \\ k &= 1 + A^2(B^2 - 1) + B^2(C^2 - 1) + C^2(A^2 - 1) - A^2B^2C^2 \\ a &= 1 + A^2C^2 + B^2(A + C)^2 \\ b &= 2B(A + C)(1 + AC) \\ c &= 2AC, \quad x = \frac{4\pi}{\lambda} \int_0^d n(z) dz \end{aligned} \right\} \quad (4)$$

$dT^2(x)/dx = 0$ において $T^2(x)$ の極値を生ずる x を求め夫々の極値に於て反射が零即 $T^2(x) = 1$ ならしめる条件を求めると

$$\left. \begin{aligned} x = 2p\pi \text{ に於ては} \\ A(1 + BC) = -(B + C) \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

$$\left. \begin{aligned} x = (2p + 1)\pi \text{ に於ては} \\ B(1 + AC) = A + C \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

$$\cos x = -\frac{B(A + C)(1 + AC)}{4AC} \quad (7)$$

なる x においては

$$A = C \quad (8)$$

又は

$$B^2(1 + AC)^2 = 4AC \quad (9)$$

但し $p = 0, 1, 2, \dots$

となる。之等の条件が満足される場合を分光反射率の上から考えると、膜厚の薄い方が分光反射率が平坦になるから、

(5) は反射防止の目的から取り上げないことにして(6)*の満足されるときの分光反射率は第3図で曲線①のようになり、(7)*と(8)が満足されるときは曲線②のようになる。(9)の成立つ時(7)の與える x は一般に虚になるが特に(9)が(6)或は(8)と共に成立つ場合に限つて $x = \pi$ となりそのときの分光反射率は(6)と(8)が同時に満足されたもの即ち曲線①と②が合致

第3図 二層膜の分光反射率

①⑥の満足されているもの
②⑦と⑧が満足されているもの
③⑥と⑨が満足されているもの

替えた関係を満足するような膜を重ねることによつて実現が可能になる。

b. 不均質二層膜
各膜のOptical thickness が等しい場合三

して中央の三つの極値が $x = \pi$ で一致したものと同一で③で表す曲線の様になる**。従つて Amplitude Condition が(9)のみであるような種類の反射防止膜では一般に理論的に完全な反射防止は出来ないわけであるが、(9)を満足する A, B, C の組合せのうち(7)の右边が最も -1 に近いものを選び*** $x = \pi$ なる厚さとして分光反射率を計算すると反射が殆ど無くて極めて平坦なものが得られる。(6)及び(8)を屈折率の関係で表すと

$$n_1 n_3 n_4 = n_{II} n_1 n_2, \quad \int_0^d n(z) dz = \lambda/4 \quad (6')$$

$$n_I n_{II} = n_1 n_4 \quad (8')$$

となつて+(8')は(2)の場合に説明したような理由から普通のガラスの反射防止にはこの種の二層膜は実際に製作出来ないことを示しているが、ガラスの屈折率から n_{II}' まで屈折率が連続的に増大している不均質膜を初めに着けてその上に更に(8)で n_{II} を n_{II}' で置き替えた関係を満足するような二層膜を重ねた三層膜でこの種の反射防止膜の実現が可能になる。

3. 実験

a. 基礎的実験 (1) 実際の不均質膜は真空蒸着によつて製作したのであるが、先づ膜の屈折率が連続的に変化してゐることが必要で、この条件は異なる物質を別々に入れた二つの蒸発源を並置してその蒸発速度を漸次相対的に変えることによつて満足せしめることが予想される。之を確める為め MgF_2 と ZnS を用い、二つの蒸発源の加熱電流をスライダックで相対的に変化せしめて両境界が夫々之等の物質そのもので中間がその混合比が連続的に変つた不均質膜を作りその分光反射率を測定した+。その結果を示したものが第4図で、之から(1)を用いて計算した境界に於ける屈折率が同図の n_1, n_2 で、この結果から同じ条件で蒸着させた MgF_2 ($n = 1.35$), ZnS ($n = 2.25$) の夫々の均質膜の屈折率の値と実験誤

* (6) で $p = 0$ なるもののみ、(7) では A, B, C が同符号なるもののうち最も薄いもののみを取り上げることにする。

** 荒、應物 19 65 (昭25) に回路理論を用いて同じような図を説明してある。

*** (7) の右邊の絶対値は一般に1より大きくなり前述の特殊な場合のみ -1 となる。

+ 波長 $450 \sim 650 m\mu$ で $0.6 \sim 2.1 m\mu$ の巾の単色光を測定面に約 4° で当てたときの反射光による光電流を直流増巾 (UX-54 使用) して測定した。蒸着しない部分のガラス板の両面の反射光を反射率の標準にとり BK では之を 8.17% (屈折率 1.52 とした。精度は $500 \sim 600 m\mu$ の範囲内で反射率にして 2% であった。

第 4 図

二つの蒸発源を用いて作った不均質膜の分光反射率 (n_1, n_2 の記号は第 1 図参照)

差内でよく一致しているので不均質膜の理論が実験的にも正しく又上述の方法で作った膜の屈折率が連続的に変化しているものと考えられる。

b. 基礎的実験 (2) 次に、所望の屈折率分布を持った膜を作るには必要な Amplitude Condition を充すような屈折率を有する物質が得られれば前項に述べた混合膜を作る方法を用いて必要な Phase Condition を充すことが出来る。然し実際に用い得る物質は極めて限られているわけだから、初めに蒸着の際の真空度の変化によつて必要な屈折率が得られることを予想して ZnS 及

対してどのようになるかを分光反射率の測定によつて調べた^{**}。尚蒸着は加熱電流が定常値を示すようになってからシャッターをマグネットで開いて之を行つた。その結果を示したものが第 6 図で二本の曲線は夫々一方の加熱電流を一定にした場合の他方の加熱電流と屈折率の関係を表す。但し、屈折率は反射率の最大及び最小値から (1) を用いて計算したので、最大と最小値を示した波長間隔 (各測定値を通じて大体 530~570 $m\mu$) に於ける平均の屈折率を與えるものと考えられる。真空度は $8 \times 10^{-5} \sim 3 \times 10^{-4}$ mmHg であつた。

第 6 図 加熱電流と屈折率の関係

c. 反射防止膜の製作 實際製作にあつては第 6 図を基礎にして所望の屈折率分布を持った膜を作る為めの電流の時間的配分を検討しその実際に熟練することが肝要である。Optical thickness は色によつて調節出来る。我々は第 5 図のガラス g の上に置いたプリズム p を e の位置からのぞいて電燈 l からの光による色を観察することによつて之をなした。

先ず單層膜に就いては、 $n_{II}=1.52$, $n_1=1.35$ とすると + (3) から $n_2=2.05$ となり Phase Condition を 545 $m\mu$ で充さしめると⁺⁺分光反射率の計算値は第 7 図 b のようになり、之から色を計算すると C-光源に対しては purple, A-光源に対しては red purple になる。実際に製作したものに就いての測定結果は同図の × 印に

第 5 図 不均質膜の蒸着装置

び MgF_2 の均質な蒸着膜に就いてこのことを調べたが、膜の強度上から実用的な真空度の範囲内では屈折率の変化は殆どないことがわかつたので* 混合膜を用いることによつて必要な Amplitude Condition をも満足せしめることにした。この為め第 5 図 a に示すように、蒸発源 f_1, f_2 (同図 b 参照) を隔板 i を隔てて並べ之に一定量の ZnS (約 0.6 gr), MgF_2 (約 0.5 gr) を別々に入れてこの両者の加熱電流を或一定値に保つて蒸発させたとき蒸着する混合膜の屈折率の値が加熱電流の組合せに

* 屈折率は Twymann 干渉計による方法、分光反射率測定による方法で決定した。

** 混合膜の製作には他の工夫も考えられる、例えば L. Harris, Jr. App. Phys. 19 (1948) 739. 尚、今の方法では二つの蒸発源からの蒸発速度が非常に異つた場合には厚い膜を蒸着するとかなり不均質な膜になる。

+ n_1 の値は小さい程残留反射は小さい。尚分散はすべて考えないことにする。

++ 後述のものもすべて 545 $m\mu$ で Phase condition を充さしめるものとする。

第7図 不均質単層反射防止膜

示してある。この場合の残留反射はかなり大きいがその為め色は MgF_2 の均質膜による反射防止の場合よりも遙に鮮明であり、而も白色光に対する反射防止効果は n_2 を混合膜によつて得る面倒を省いて ZnS そのもの ($n=2.25$) を用いることにしても均質膜より勝れている⁽¹⁾といふ特徴がある。

次に(2)で説明したようにガラスから n_{II}' 迄屈折率が連続的に変化した膜の上に $n_1^2 (=n_2^2)=n_{II}'$ なる関係を満足するような均質膜を重ねた二層膜(第8図a)を製作した。 n_1 の値は小さい程残留反射が小さいから $n_1=1.35$ としたので $n_{II}'=1.82$ となりそのときの分光反射率の計算値は同じ第8図のb図に示すようになる。初めに蒸着する膜はガラスとの境界に於ける反射光が無いから光の干渉は起らない為め色は着かない。この膜厚は或る程度以上大きければ任意でよく*之に重ねて均質膜はA—光源で red—purple になる迄蒸着すればよい。実際製作に際しては加熱電流の調節の如何によつては初めの膜に僅に着色することがあるので、このときは之を red—purple に止め次の均質膜を次に red—purple

第8図 不均質膜を含む二層反射防止膜

になる迄蒸着するとよい^{**}。実際に分光反射率を測定したものは均質膜を少し厚くし過ぎたので此の為め計算値からずれている。

最後に(9)の関係を満足する膜は $n_{II}=1.52$, $n_1=n_4=1.35^{***}$ とすると $n_4=1.46 n_2$ となつて製作の容易さの上から n_2 を MgF_2 , 又は n_3 を ZnS によつて與へればよい。我々は後者を選んで見たので $n_3=2.25$, $n_2=1.56$ でこの場合の分光反射率の計算値は第9図bの実線のようになる。同図の点線は初めの膜のみを蒸着したときの分光反射率で之から色を計算するとA—光源に対して主宰波長が red—purple 附近の色になるが飽和度が悪く殆ど光源色に等しい色となり、この膜は又屈折率の変化が大きいので製作にはかなりの熟練を要した。上述の実線から色を計算するとA—光源に対して red—purple (C—光源に対しては purple) となるので、第二の膜は初めの膜の上にこの色になる迄蒸着すればよい。実際に製作したものの測定結果は同じく第9図bに×印で示してある。

第9図 不均質二層反射防止膜

4. 各種反射防止膜の比較

以上に述べた不均質反射防止膜の分光反射率を相互に又均質膜に比較したものが第10図であつて同図の記号で

- 不均質単層膜 (3) を満足し第7図に示したもの
- 均質二層膜 よく知られている条件 $n_2^2 = n_1^2 n_0$ (但し n_0 はガラス, n_2 はガラスに接する膜, n_1

* 零近似の成立つ程度に厚いこと(文献(1)参照)

** このような二層膜は Strong が作つたものに似て

*** いる (J. Strong, J. O. S. A. 39 (1949) 1049 (L) n_1, n_4 は出来るだけ $\sqrt{n_{II}}$ に近くするとよい。

第 9 図 各種反射膜防止膜の比較

は空気に接する膜の屈折率)を満足するもので
 $n_1=1.35$, $n_2=1.66$

- c. 不均質膜を含む二層膜 第 8 図に示したもの
 d. 不均質膜を含む二層膜 (6) を満足し従つて第 3 図の曲線①に相当するもの, $n_1=n_2=n_4=1.35$, $n_3=2.05$
 e. 不均質二層膜 (9) を満足し第 9 図に示したもの
 f. 不均質二層膜 (6), (8) を同時に満足し従つて第 3 図の曲線③に相当するもので $n_1=n_4=\sqrt{1.52}$
 $n_2=0.658$ n_3

以上の場合すべてガラスの屈折率は 1.52 として計算し

である。之等の分光反射率曲線の平坦さを比較する為め Phase Condition を満足する点に於ける曲率を計算して見たがその結果は同図に数値で表示してある。この方法は今の様な場合には極めて簡単な計算で大體の特性をよく表わしていることがわかる。

5. 結 語

以上二つの蒸発源の蒸発速度の組合せによつて二つの物質の混合した膜の屈折率を測定し之を基礎にして單層、二層の不均質反射防止膜を製作してその分光反射率を測定した。このような不均質膜は均質膜の場合と異り相隣れる境界に於ける反射係数を互いに無関係に選べるので膜厚が薄くて極めて平坦な反射防止が出来るという利点がある。尙、(8') で説明したようにガラスから連続的に屈折率の変化した不均質膜の上に二層膜を重ねることによつて (8) の種類の反射防止膜の製作が可能になり、その分光反射率に就いては他に見られない特性があるが、之は三層膜となるので別の機会に改めて報告したい。

終りに測光装置に就いて絶大なる御援助をいただいた東大第二工学部江口助教授、並びに実験、計算に御助力下さつた東京工業大学学生堀尾公一君に厚く御礼申し上げます。

(25-12-16 受付)

螢光灯照明のプラクティス予約申込殺到!

予て当委員会にて編纂中の“螢光灯照明のプラクティス”は 12 月 20 日に発行出来る運びとなりました。

なおその予約を受付中のところ続々と申込が殺到し予定数を超過することも予想されますので、来る 12 月 25 日迄に代金を添え申込下さい。

螢光灯照明のプラクティス 内容

序.....	照明学会長	山 内 二 郎
序.....	照明普及委員長	伊 賀 秀 雄
1 螢 光 ラ ン プ		
2 螢光ランプ照明器具		
3 照 明 計 画		
4 照 明 設 計		
5 工 事 及 保 守	会員頒價	150 円 送料 20 円
6 照 明 施 設		
7 螢光灯照明の百問百答		
8 参 考 資 料		

照 明 普 及 委 員 会