弗化マグネシウム蒸着膜の屈折率について

科学研究所 森田信義

On the Refractive Indices of Evaporated Magnesium Fluoride Films

By Nobuyoshi MORITA
Scientific Research Institute, Ltd.

Thin films of magnesium fluoride were prepared by vacuum deposition on glass plates. Optical transmission, reflection and absorption of films were measured for the wavelength between $330\text{m}\mu$ and $540\text{m}\mu$. Refractive index was obtained from the observed value of wavelength which gives the extremum of reflection, and film-thickness measured by the multiple-beam interferometry technique. The refractive indices of evaporated films were found to be the same as that of bulk material. The extremum values of reflection, however, were not equal to the values suggested by interference theory.

1. 序 言

弗化マグネシウムの蒸着膜は、可視部の光に対して透明で屈折率が小さいので、反射防止膜や干渉フィルターにひろく利用されている。その屈折率や密度は、bulk のものより小さくなることが予想され、¹⁾ Rood の測定によれば、可視部に於ける屈折率は bulk のものよ

り3%小さく、1.85であつた。²⁾しかし Schultz の測定では、両者の屈折率の差は認められなかつた。³⁾一般に蒸着の条件によつて、膜の性質が異なり、その屈折率や密度が異つた値になることが考えられる。この実験では、硝子の下地に MgF_2 を蒸着して、各波長の光に対する透過率と反射率及び吸収を測定した。又膜の厚さを Tolansky の方法によつて求め、この値と反射率に極値を与える波長とから、その波長に於ける膜の屈折率を求めてみた。更に反射率の測定値と、薄膜の干渉にもとづいて計算した値とを比較して、蒸着膜の表面について考察を行つた。

2. 実験結果

タングステン線を円錐状に巻いて作つた蒸発源から 80 cm の距離をへだてた上方に硝子板 (BK7) を水平におき、この下地の中央部の $3\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ の部分にだけ MgF_2 を蒸着した。下地の硝子板は、蒸着前に真空中で加熱して、充分ガス出しを行い、しかる後下地の温度を室温または 350°C に保つて蒸着を行つた。蒸着中の真空度は 10^{-5} mm Hg であつた。蒸着した硝子板を空気中にとり出し、水晶分光器からの単色光の平行光束を垂直に入射させて蒸着膜のついている部分と、ついていない部分との透過率の比を測定した。反射率についても同様な測定を行つた。之には才1図に示す様に、膜のついた硝子板の前に、光線と 45° の傾

きをなす様に半透明鏡をおき、硝子板を光線と直角の方向に移動させ、膜のついた部分とつかない部分に光が交互に当る様にした。透過率の測定には Photomultiplier tube 931A を硝子板の背後において光を受け、光が膜を通つた時と、硝子板のみを通つた時との光電流の比を測定した。反射率の測定には、半透明鏡により反射された光を Photomultiplier tube で受けて光電流の比を測定した。

今硝子板の膜のついている部分と、膜のついていない硝子板だけの部分の透過率の比を T_R とし、同じく反射率の比を R_R とすれば、硝子板の中での多重反射を考慮して、膜の表面に於ける透過率 T 、反射率 R は、次の式から求めることが出来る。⁴⁾ 即ち

$$\left. \begin{aligned} R &= \frac{R_R \left(\frac{2}{1+r} \right) - \left(\frac{T_R}{1+r} \right)^2}{1 - \left(\frac{T_R r}{1+r} \right)^2} \quad r \\ T &= T_R \frac{1 - R r}{1 + r} \end{aligned} \right\} \dots\dots (1)$$

但し r は硝子表面の反射率である。 T_R と R_R の測定値と、硝子の屈折率から求めた r の値を (1) に代入して、 R と T の値を各波長について計算した。又吸収率 A を

$$A = 1 - T - R$$

から求めた。各波長に対する之等の値を才 2 図に示す。 R 及び T は、波長の変化にしたがい、極大極小を交互にくりかえす。又同じ波長で R と T は極値をとつている事が分る。この図から R と T に極値を与える波長 λ_m を求めた。膜の厚さは、Tolansky の方法を用い、干渉縞のずれから求めた。⁵⁾ 即ち 3mm 間隔の膜の両端に於ける厚さを測定し、それらの平均値をとつて、光が当つた部分に於ける膜の厚さとした。膜の厚さの測定値 t と、 λ_m から、この波長に対する膜の屈折率 n を

$$n t = m \frac{\lambda_m}{4} \dots\dots\dots (2)$$

から求めた。但し m は干渉の次数で正の整数である。この方法によつて、膜の厚さが $300\text{m}\mu$ 乃至 $500\text{m}\mu$ の試料について、膜の屈折率を求めた結果を才 3 図に示す。

Fig 2. Transmission, reflection and absorption percentage vs. wavelength for a MgF_2 film, $468\text{ m}\mu$ thick.

Fig 3. Refractive index vs. wavelength for magnesium fluoride films

3. 考 察

才2図から分るように、 $M_g F_2$ 蒸着膜による光の吸収は、可視部に於ては非常に少ないから、透過率（反射率）に極値を与える波長 λ は(2)によつて充分正確に決定されると考えてよい。近紫外部に於ては、やゝ吸収が増加しており、屈折率の波長に対する変化も大きくなつてゐる。しかし之等の変化と比較して、透過率の波長に対する変化は、膜が厚い為極めて急激である。それ故透過率、反射率に極値を与える波長はやはり(2)によつて与えられ、吸収や分散の影響は無視することが出来る。

次に上に求めた膜の屈折率を用いて、膜の透過率と反射率を計算し、これらと測定値とを比較してみた。今屈折率 n_2 の下地の上に、極めて吸収の少ない膜があるとし、その屈折率を $n - ik$ とする。膜の厚さを t とし、光の波長を λ とすれば、膜の表面での反射率 R 、透過率 T は次の式で表わされる。⁶⁾

$$\left. \begin{aligned} R &= \frac{r_1^2 \{ e^x + (\rho_1/r_1) e^{-x} \}^2 - 4 (\rho_1/r_1) \sin^2 y}{r^2 \{ e^x + (\rho/r) e^{-x} \}^2 - 4 (\rho/r) \sin^2 y}, \\ T &= \frac{16 n_2 n^2}{r^2 \{ e^x + (\rho/r) e^{-x} \}^2 - 4 (\rho/r) \sin^2 y}, \\ x &= \frac{2\pi k T}{\lambda}, \quad y = \frac{2\pi n t}{\lambda}, \\ r &= (n+1)(n_2+n), \quad \rho = (n-1)(n_2-n) \\ r_1 &= (n-1)(n_2+n), \quad \rho_1 = (n+1)(n_2-n) \end{aligned} \right\} \dots (3)$$

但し $k < 0.01$, $n_2 > n$ の場合に限る。この式と上に求めた屈折率の値を用いて、才2図に示した厚さ $468 \text{ m}\mu$ の膜について、波長 $335 \text{ m}\mu$ に於ける透過率と反射率とを計算した。まづ $k=0$ として計算すると、透過率は測定値より 0.3% 大きくなり、反射率は 0.8% 大きくなる。透過率を測定値と合す為には $k=0.0002$ とすればよいが、反射率は k が大きくなつてもほとんど変化しない為、反射率の計算値は測定値よりも大きくて 0.8% の差がつねに残ることになる。従つて近紫外部に於ける見かけ上の光の吸収は、 $M_g F_2$ 内部

の固有吸収の tail によるものと考えるよりも、膜の表面での光の散乱による光の損失と考えた方がよいのではないかとと思われる。この場合には、膜を均質な平行平面として、薄膜の干渉にもとづいて計算した (8) の式が厳密には成立たなくなるとと思われる。 CaF_2 の蒸着膜に於て、反射率の測定値が、干渉の理論から求めた計算と一致しないという実験結果も最近報告されている。⁷⁾ 又、Frustrated Total Reflection Filter に於て、半値巾が原理的にはいくらでも小さく出来るが、実際にはそうはならない。之は MgF_2 の膜の蒸着表面の粗さによつて、多重反射が乱されるのではないかと考えられている。⁸⁾ 膜の表面での光の散乱による損失をたしかめる為に、更に厚い膜について測定を行い、 MgF_2 の固有吸収と、表面の散乱による光の損失とを判別する必要があると思われる。

透過率、反射率の波長に対する変化は、かなり急激であり、之等に極値を与える波長 λ_m は $10 \text{ \AA}$ 乃至 $20 \text{ \AA}$ の誤差で決定出来た。この誤差によつて生ずる屈折率の誤差は約 0.005 である。又膜の厚さの測定は $20 \text{ \AA}$ の誤差をともなつているので、之によつて起る屈折率の誤差は約 0.006 である。これらの両方からの誤差を考えて、膜の屈折率は 0.01 の誤差をもつものと考えられる、才 3 図に於いて示された膜の屈折率の測定値は、測定誤差の範囲内で、下地が室温の場合も、 350°C の場合も、ともに bulk の屈折率に等しいと考えることが出来る。従つて膜の密度も亦 bulk のものと等しいとみなすことが出来る。

4. 結 語

下地の表面が充分ガス出しされ清浄である場合、この上に蒸着した MgF_2 の膜は、bulk と同じ屈折率をもつ事が分つた。之に反して、下地の表面に吸着していた水蒸気やよごれがとりきれていない場合や、蒸着中の真空度が悪い時には、蒸着膜は多孔質となり、密度と屈折率は bulk のものより小さくなるのではないかとと思われる。又膜の反射率、透過率は、膜を平行平面として扱つた多重反射の干渉の理論から計算した値とは一致しないようである。膜の表面の結晶粒子の大きさが影響を及ぼしていると思われる。

終りに臨み、この実験に対して懇切な御指導を賜つた篠原健一博士に対し深く感謝する。

文 献

- 1) L. Holland and W. Steckelmacher, Vacuum, 2, 346 (1952)
- 2) J. L. Rood, J. Opt. Soc. Am., 39, 854 (1949)

- 3) L. G. Schultz J. Chem Phys., 17, 1158(1949)
- 4) G. Kuwabara and K. Ishiguro, J. Phys Soc Japan, 7,
72(1952)
- 5) S. Tolansky, Multiple-Beam Interferometry of Surfaces and Films, Oxford, Clarendon Press
- 6) W. H. Brattain and H. B. Briggs, Phys Rev., 75, 1705
(1945)
- 7) P. Bousquet, C.R. Acad Sci.[Paris], 238, 1485(1954)
- 8) C.N.R.S. 編, Les Propriétés Optiques de Lames Minees Solides (J. Phys. et Radium 11, 305(1950))