真空蒸着誘電体薄膜のフォトン走査型 トンネル顕微鏡による観察*

小風 豊**・高木 祥示**・後藤 哲二**

(受理1996年11月29日, 掲載決定1997年3月1日)

Observation of Evaporated Dielectric Film with Photon Scanning Tunneling Microscope

Yutaka KOKAZE, Shoji TAKAGI and Tetsuji GOTOH

(Department of Physics, University of Toho, 2-2-1, Miyama, Funabashi-shi, 274)

(Received November 29, 1996, Accepted March 1, 1997)

1. はじめに

従来種の光学顕微鏡の分解能はレイリーの回折限界により光の波長程度に制限される。しかし光と物質の相互作用によりその物質近傍に局在した光(エバネッセント光)を利用することにより回折限界を超えた分解能が得られるということが知られている¹⁾。

走査型トンネル顕微鏡(STM: Scanning Tunneling Microscope)の技術を基礎としたフォトン走査型トンネル顕微鏡(PSTM: Photon Scanning Tunneling Microscope)は光ファイバーによりエバネッセント光をピックアップし、試料の形状を観察する。そのため空間分解能はファイバー先端の曲率半径及び試料と光ファイバーの距離により決定する。得られたPSTM像には試料の表面形状だけでなく、試料の光学的性質に関する情報も含んでいる。つまり不均質試料の形状と屈折率分布の同時測定の可能性を意味している。このこととは裏腹にPSTM像の解釈は難しく、得られたPSTM像と実際の表面との関係を解明するために、実験的、理論的に研究が盛んに行われている^{2,3)}。

薄膜の屈折率や膜厚を測定する手段として、反射率の測定や、偏光を利用した偏光解析法等が用いられていた。特に偏光解析法は精度よく屈折率を測定できるが、空間分解能は波長程度に制限されるので、微小領域での

屈折率の変化を測定することはできない。そこで今回我々はサブミクロン以下の分解能を持ったPSTMによる薄膜の光学的測定の可能性を調べるため、ガラスプリズム上の誘電体薄膜を観察し、得られたPSTM像の評価を行なった。

2. 原 理

フォトン走査型トンネル顕微鏡は表面に局在したエバネッセント光を利用する。プリズム等により光を全反射させた場合、全反射面外側には伝搬光は存在しないが表面からの距離に対して指数関数的に減衰するエバネッセント光が存在する。このエバネッセント光の波数ベクトルの実成分は表面と平行な方向を向いており、光の波数 k 、プリズムの屈折率 n 、入射角 θ としたとき、表面からの距離 z の位置での強度は

$$I = I_0 \exp(-z/d) \quad (1)$$

$$1/d = 2k(n^2 \sin^2 \theta - 1)^{1/2} \quad (2)$$

と表される¹⁾。先鋭化した光ファイバーをエバネッセント光の中に挿入すると、ファイバーの先端で伝搬光に変換され、ファイバー内へ光が流れ込む。この光の測定からエバネッセント光の強度分布を測定する。

Fig. 1に示すように表面に試料をのせた場合エバネッセント光の強度分布は試料の形状を反映した強度分布となる。このとき試料の屈折率がプリズムと異なる場合、エバネッセント光の強度分布はこの屈折率の差により試料の形状を忠実に反映しないということが考えられる。

* 平成8年10月30日 第37回真空に関する連合講演会で講演

** 東邦大学理学部 (〒274 船橋市三山2-2-1)

Fig. 1 Schematic of the PSTM principle. The optical fiber collects the sample-modulated evanescent light produced by an internally reflected light beam.

Fig. 2 Experimental setup of the PSTM.

3. 実験方法

PSTM 像の試料の屈折率に対する影響を調べるために、プリズムにこれと屈折率の異なる誘電体薄膜を直接蒸着した。蒸着時にマスクを用いて、薄膜のある部分とない部分の境界を作成し、その境界部分を PSTM により観察を行った。

今回の研究には自作した PSTM を用いた。PSTM 本体は直径 203 mm のフランジに組み上げ、超高真空中でも動作可能とした。今回は第一段階として大気圧中で観察を行った。以前の研究でガラスプリズム上の直径 102 nm のラテックス粒子を観察した結果、横方向の空間分解能は 100 nm 以下であった⁴⁾。Fig. 2 に光学配置を示す。光源には 10 mW の無偏光 He-Ne レーザー ($\lambda = 633$ nm) を使い、プリズムには BK7 ($n_1 = 1.515$) を用いた。レーザー光は全反射面に入射角 50° で、薄膜のない方から入射させた。光ファイバーはシングルモードファイバーを用い、沸酸による化学エッチングのみにより先端曲率半径 100 nm の tip を作成した。ファイバーの tip 側がプリズムへ向くようにピエゾスキャナーに張り付け、もう一端を光電子増倍管へ向けた。薄膜は、プリズムよりも屈折率の大きい ZnS ($n_2 = 2.35$) を用意した。真空蒸着は 10^{-4} Pa 以下の真空中で抵抗加熱蒸着法により行った。このときプリズムへの蒸着と同時に別のガラス基板へ蒸着し、繰り返し反射干渉法 (MBI: Multiple Beam Interferometry) により膜厚を測定した。MBI と PSTM により測定した膜厚を比較することによ

Fig. 3 PSTM image and cross sectional data of ZnS on prism. The scanning range is about $7 \times 7 \mu\text{m}^2$. Refractive index of ZnS is 2.35. Optical fiber without Ag coat.

り、PSTM 像の屈折率に対する影響を調べた。

4. 結果及び考察

Fig. 3 に膜厚 70 nm の ZnS 薄膜の PSTM 像を示す。走査範囲は約 $7 \times 7 \mu\text{m}^2$ である。像のステップの左側が ZnS 薄膜が蒸着された部分で、右側が蒸着時にマスクされプリズム表面を直接観察している部分である。この PSTM 像の横方向の断面図を像の下に示す。ステップ状の断面図の右側と左側の高さの差を取り、PSTM 像で測定した薄膜の膜厚と定義した。その結果約 100 nm

Fig. 4 PSTM image and cross sectional data of ZnS on prism. The scanning range is about $7 \times 7 \mu\text{m}^2$. Optical fiber with Ag coat.

Fig. 5 PSTM image and cross sectional data of MgF_2 on prism. The scanning range is about $7 \times 7 \mu\text{m}^2$. Refractive index of MgF_2 is 1.38. Optical fiber with Ag coat.

と見積もられ、MBIで測定した値よりも大きな値となった。

PSTM観察するとき、検出光の強度が一定となるように、光ファイバーを高さ方向にフィードバックをかけながら走査をする。従ってPSTM像は検出する光が一定となる曲面を描いている。試料表面が粗い場合、光ファイバーが検出する光はエバネッセント光だけでなく、表面で散乱した光も検出する。薄膜をプリズムに蒸着した場合、その蒸着膜はクラスター成長するのでプリズム表面と比べて薄膜の表面は粗いと思われる。そのため薄膜表面での散乱光が強くなり、検出する光のエバネッセント光成分が小さくなるため膜厚が大きく観察されたという可能性がある。この散乱光はエバネッセント光に比べて表面からの距離に対して減衰しにくいので、コアが露出した先端の側面からもファイバー内へ入射する。そこで先鋭化した光ファイバーに銀を斜め後ろから蒸着することにより先端に開口を作成した。光ファイバーのコアが露出した先端の一部を除き、ファイバー側面に金属膜を蒸着することにより、バックグラウンドを大幅に低減することができた。

銀を蒸着した光ファイバーを用いて、膜厚120 nmのZnS薄膜の観察を行った。そのPSTM像と断面図をFig. 4に示す。走査範囲は $7 \times 7 \mu\text{m}^2$ である。断面図より見積もった膜厚は約120 nmで、MBI測定による膜厚とほぼ同じ値が得られた。

次にプリズムより屈折率の小さい MgF_2 薄膜の観察を行った。屈折率は1.38、膜厚は120 nmである。このPSTM像とその断面図をFig. 5に示す。走査範囲は同じく約 $7 \times 7 \mu\text{m}^2$ である。断面図より見積もった膜厚はほぼ120 nmで、MBIにより測定した膜厚とほぼ同じ値

が得られた。PSTM像全体に高さ約10 nmに相当する縞模様が観察された。これは入射光がプリズムにより全反射し、プリズムから出射する際に出射面により一部反射する。この反射光と入射光がプリズム内で干渉し、これによりエバネッセント光の強度分布が変化し、そのため縞模様が現れたと考えられる。この干渉縞の間隔は入射角、屈折率、波長により計算でき、今回の実験条件では320 nmとなる。観察結果は310 nmと、ほぼ一致している。またプリズム・薄膜界面での反射によりエバネッセント光の強度が変化し、見かけ状膜厚が変化する。この界面での反射率は屈折率、入射角などに依存し、フレネル係数および、(1)より膜厚の変化量はZnSでは約5.8 nm、 MgF_2 では約0.8 nmと見積ることができる。しかしこの効果は値が小さいため本実験では確認することはできなかった。

2種類の薄膜において、光ファイバーの高さを変えて観察を行ってもPSTMにより測定した膜厚に変化は現れなかった。この結果はプリズムと屈折率の異なる薄膜上のエバネッセント光の減衰距離は、薄膜を蒸着しない場所と変わらないことを意味する。エバネッセント光の減衰距離は(2)により与えられ、薄膜の屈折率がプリズムより大きい場合、減衰距離は小さくなる。しかしプリズムと薄膜の界面で光が屈折し、薄膜表面への入射角が小さくなるため、最終的に薄膜上のエバネッセント光の減衰距離は薄膜がない場合と変わらない。

今回の研究では、プリズムと屈折率の異なる誘電体薄膜を直接蒸着し、PSTMにより観察を行った。膜厚を測定した結果、実際の膜厚と同じ値となりプリズムとの屈折率の違いによる見かけ上の膜厚の変化は観察されな

かった。膜厚はすべて等方，均一として扱ってきたが，実際の膜厚では膜厚方向で屈折率が変化したり，複屈折のように光の偏光状態により複数の屈折率をもつ場合がある。又薄膜表面が粗い場合には回折や干渉の効果も考慮しなければならない。さらに，薄膜が不連続でクラスターとして取り扱う場合，形状による光学定数の違いが現れる可能性がある。本実験では入射光に無偏光の光源を用いたので，偏光状態による PSTM 像の変化を考察することはできなかった。したがって分解能を向上し，偏光状態，入射角，光源波長を変化させることにより，クラスター 1 つ 1 つの光学定数を測定できるかもしれない。

〔文 献〕

- 1) R. C. Reddick, R. J. Warmack, D. W. Chilcott, S. L. Sharp and T. L. Ferrell: *Rev. Sci. Instrum.*, 61 (1990) 3669.
- 2) J. Cites, M. F. M. Sanghadasa, C. C. Sung, R. C. Reddick, R. J. Warmack and T. L. Ferrell: *J. Appl. Phys.*, 71 (1992) 7.
- 3) F. de Fornel, P. M. Adam, L. Salomon, J. P. Goudonnet and P. Guerin: *Opt. Lett.*, 19 (1994) 1082.
- 4) 小風 豊，後藤哲二，高木祥示：真空，38 (1995) 773.