薄膜干渉を繰り返し用いて多層膜反射スペクトルを計算する方法

阪大・生命機能　吉岡伸也

1.薄膜干渉スペクトルの計算式

下図のように領域を三つに分け、そのうち第２領域が薄膜になっている場合の反射スペクトルを計算する。三つの領域の屈折率を n_1、n_2、n_3、入射角度を θ_1、膜中の屈折角を θ_2 とあらわす。θ_2 はスネルの法則、$n_1 \sin\theta_1 = n_2 \sin\theta_2$ より計算できる。

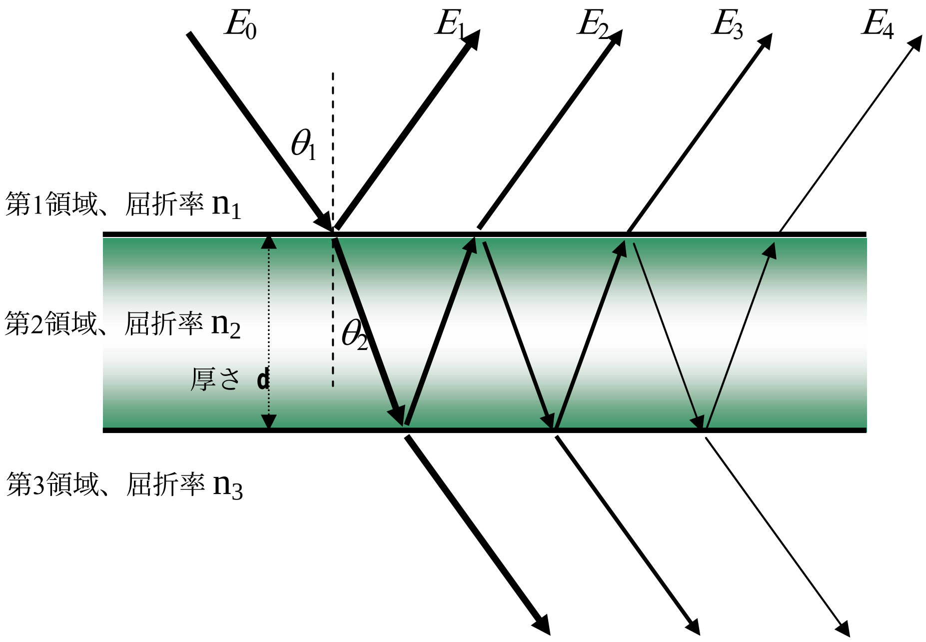


図１薄膜干渉の模式図

反射した光の電場 E は、多重反射を考慮して次式のように無限級数で書き表すことができる。ここで E_0 は入射光の電場を表す。

$$
\begin{aligned}
E &= E_1 + E_2 + E_3 + E_4 \cdots \\
&= E_0 \left(r_{12} + t_{12} t_{21} r_{23} e^{i\Delta} + t_{12} t_{21} r_{23}{}^2 r_{21} e^{2i\Delta} + t_{12} t_{21} r_{23}{}^3 r_{21}{}^2 e^{3i\Delta} + \cdots \right) \\
&= E_0 \left(r_{12} + t_{12} t_{21} r_{23} e^{i\Delta} \left(1 + r_{23} r_{21} e^{i\Delta} + r_{23}{}^2 r_{21}{}^2 e^{2i\Delta} + \cdots \right) \right) \\
&= E_0 \left(r_{12} + t_{12} t_{21} r_{23} e^{i\Delta} \frac{1}{1 - r_{23} r_{21} e^{i\Delta}} \right)
\end{aligned}
$$

ここで Δ は、第二領域の薄膜を V 字型に往復したときの位相差で、光の波長 λ を用いて次式で与えられる。

$$
\Delta = \frac{4\pi n_2 d \cos\theta_2}{\lambda}
$$

振幅反射率 r_{12} や r_{21}、振幅透過率 t_{12} などは、次に示すフレネルの公式によって計算される。二つ添え字は、二つの媒質のどちら側から入射するかを表し、r_{12}、r_{21} のように両者を区別していることに注意。フレネルの公式は電磁場に境界条件をかすことによって得られるが、光の偏光（偏光面と反射面が垂直か並行かで S 波、P 波と区別する）に依存して、屈折率と屈折角を用いて次のように書くことができる。

S波

$$r_{12}=\frac{n_1\cos\theta_1-n_2\cos\theta_2}{n_1\cos\theta_1+n_2\cos\theta_2}$$

$$t_{12}=\frac{2n_1\cos\theta_1}{n_1\cos\theta_1+n_2\cos\theta_2}$$

P波

$$r_{12}=\frac{n_2\cos\theta_1-n_1\cos\theta_2}{n_2\cos\theta_1+n_1\cos\theta_2}$$

$$t_{12}=\frac{2n_1\cos\theta_1}{n_2\cos\theta_1+n_1\cos\theta_2}$$

フレネルの公式は座標系の取り方によって符号が異なる場合があるが、ここでは光学の分かりやすい教科書「ヘクト光学」（Eugene Hecht 著、尾崎義治・朝倉利光訳、丸善）に従っている。（このとり方では、入射角度がゼロのとき、S 波と P 波で反射係数の符号が逆になる。）以下の計算では特に偏光を示さないが、対応したフレネルの係数を用いるだけで、偏光依存性を計算できる。太陽光などの無偏光な光に対する反射率は、二つの偏光についての計算結果を平均すればよい。

後の計算の見通しをよくするため、さらに振幅反射率 r の計算を進めると、

$$\begin{aligned} r &\equiv \frac{E}{E_0} \\ &= r_{12}+t_{12}t_{21}r_{23}e^{i\Delta}\frac{1}{1-r_{23}r_{21}e^{i\Delta}} \\ &= \frac{r_{12}-r_{12}r_{23}r_{21}e^{i\Delta}+\left(1-r_{12}{}^{2}\right)r_{23}e^{i\Delta}}{1-r_{23}r_{21}e^{i\Delta}} \\ &= \frac{r_{12}+r_{23}e^{i\Delta}}{1+r_{23}r_{12}e^{i\Delta}}\cdots\cdots ① \end{aligned}$$

のように簡略化される。上の式変形中では、$r_{21}=-r_{12}$、$t_{21}t_{12}+r_{12}{}^2=1$ を用いた。最初の関係はフレネルの公式から明らかで、二つ目の関係式も下の計算からすぐにわかる。（S 波の場合のみ示した）

$$t_{21}t_{12}=\frac{2n_1\cos\theta_1}{n_1\cos\theta_1+n_2\cos\theta_2}\frac{2n_2\cos\theta_2}{n_1\cos\theta_1+n_2\cos\theta_2}$$
$$=\frac{4n_1n_2\cos\theta_1\cos\theta_2}{(n_1\cos\theta_1+n_2\cos\theta_2)^2}$$
$$r_{12}{}^2=\left(\frac{n_1\cos\theta_1-n_2\cos\theta_2}{n_1\cos\theta_1+n_2\cos\theta_2}\right)^2$$

より、$t_{21}t_{12}+r_{12}{}^2=1$

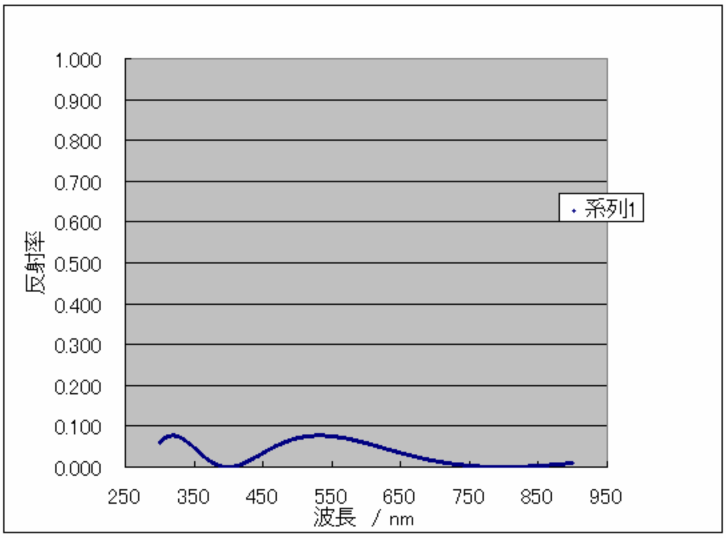
式を①のように書き直したポイントは、全体の反射率が上側と下側の二つの境界面での振幅反射率のみで表され、かつどちらの反射率も上の層から下の層へ光が入射する場合の係数になっていることである。エネルギー反射率 R は①式の絶対値二乗を取って、

$$R=|r|^2$$

で与えられる。R をΔ中に含まれるλの関数としてプロットすると反射スペクトルが得られる。

例： 空気中のシャボン玉の場合（垂直入射）

$n_1=n_3=1$、 $n_2=1.33$、 d=300 nm、$\theta_1=0$



2.　逐次的に多層膜干渉スペクトルを計算する方法

薄膜干渉スペクトルを与える式①を繰り返し用いることで、多層膜干渉のスペクトルを計算することができる。例として、下図のような 5 層の場合について考えよう。それぞれの層の屈折率を n_1, n_2, n_3, n_4, n_5、入射媒質と出射媒質の屈折率を n_{in}, n_{out} であらわす。屈折角は、次式のようにスネルの法則を連続的に用いることで得ることができる。

$$n_{in}\sin\theta_{in} = n_1\sin\theta_1 = n_2\sin\theta_2 = \cdots = n_5\sin\theta_5$$

すなわち、

$$\cos\theta_i = \sqrt{1-\left(\frac{n_{in}}{n_i}\sin\theta_{in}\right)^2}$$

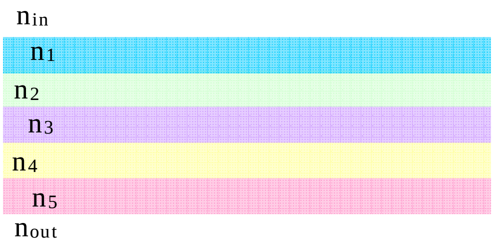
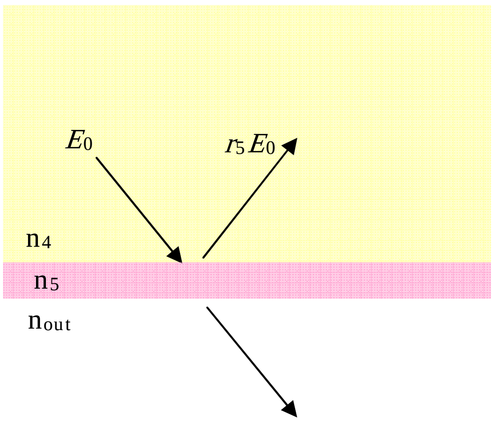


図２　５つの層からなる多層膜構造

反射スペクトルの計算は最下層の薄膜干渉を考えるところから出発する。すなわち下図ように、屈折率が n_4 の媒質中から第 5 層の薄膜に光が入射する場合を考える。これは、さきほど計算した薄膜干渉の式がそのまま使えて、振幅反射率（r_5 と書くことにする）は、①式中の第一層として屈折率 n_4 の媒体、第二層に n_5 の媒体、第三層に n_{out} をあてはめると計算できる。



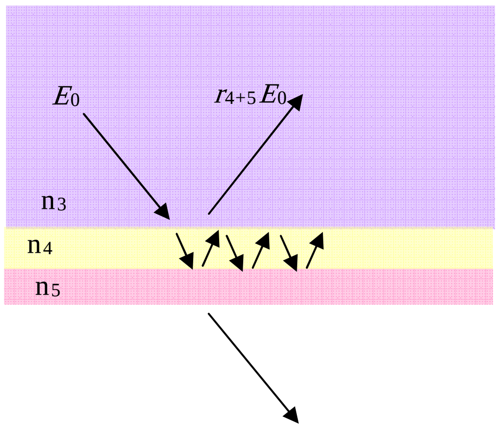
すなわち、

$$r_5 = \frac{r_{45} + r_{5out}e^{i\Delta_5}}{1 + r_{5out}r_{45}e^{i\Delta_5}}$$

ここで第 5 層の厚さ d_5 と屈折角 θ_5 から計算される位相差を$\Delta_5 (=4\pi\ n_5\ d_5 \cos\theta_5/\lambda)$と表記した。

次に、下図のように入射媒質が第 3 層と同じ屈折率を持ち、第 4 層と第 5 層で二層構造が形成されている場合を考える。このときの振幅反射率 r_{4+5} は、新しく加わった層 n_4 中で

の薄膜干渉を計算すればよい。このとき、4 層と 5 層の境界面での振幅反射率は上で計算した r_5 と等しいから、①式中の r_{23} は r_5 で置き換える。また領域１には n_3 の媒質、領域２には n_4 の媒質をあてはめると②式が得られる。



$$r_{4+5}=\frac{r_{34}+r_5e^{i\Delta_4}}{1+r_5r_{34}e^{i\Delta_4}}\cdots\cdots②$$

$$=\frac{r_{34}+\dfrac{r_{45}+r_{5out}e^{i\Delta_5}}{1+r_{5out}r_{45}e^{i\Delta_5}}e^{i\Delta_4}}{1+\dfrac{r_{45}+r_{5out}e^{i\Delta_5}}{1+r_{5out}r_{45}e^{i\Delta_5}}r_{34}e^{i\Delta_4}}$$

一般に、多層膜反射を正確に計算するには、複数ある境界面からの反射光を、無限回の多重反射パスについて、その全てを位相を考慮しながら足し合わせればよい。上に述べた方法では薄膜干渉の式が二度用いられることで、存在する三つの境界面（n_3-n_4 間、n_4-n_5 間、n_5-n_{out} 間）で生じる全ての多重反射経路をもれなく足し合わせている。

さらに、今度は n_3 の層を薄くして入射媒質が屈折率を n_2 とした薄膜干渉を考えると、第３，４，５層で計算される三層全体での反射率 r_{3+4+5} は r_{4+5} を用いて次のように書き表すことができる

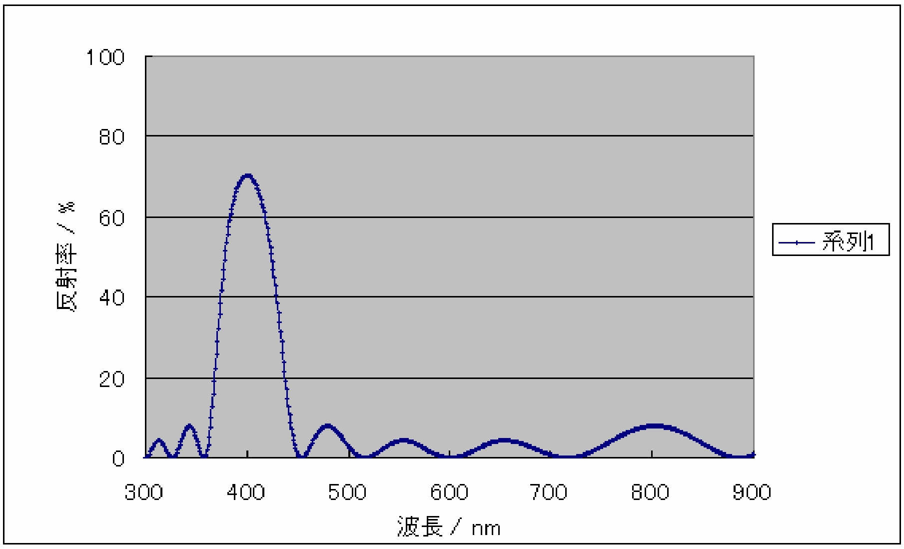
$$r_{3+4+5}=\frac{r_{23}+r_{4+5}e^{i\Delta_3}}{1+r_{4+5}r_{23}e^{i\Delta_3}}$$

この操作を第一層まで繰り返すと、結局 5 層全体での反射率 $r_{1+2+3+4+5}$ は次式として得られる。

$$r_{2+3+4+5}=\frac{r_{12}+r_{3+4+5}e^{i\Delta_2}}{1+r_{3+4+5}r_{12}e^{i\Delta_2}}$$

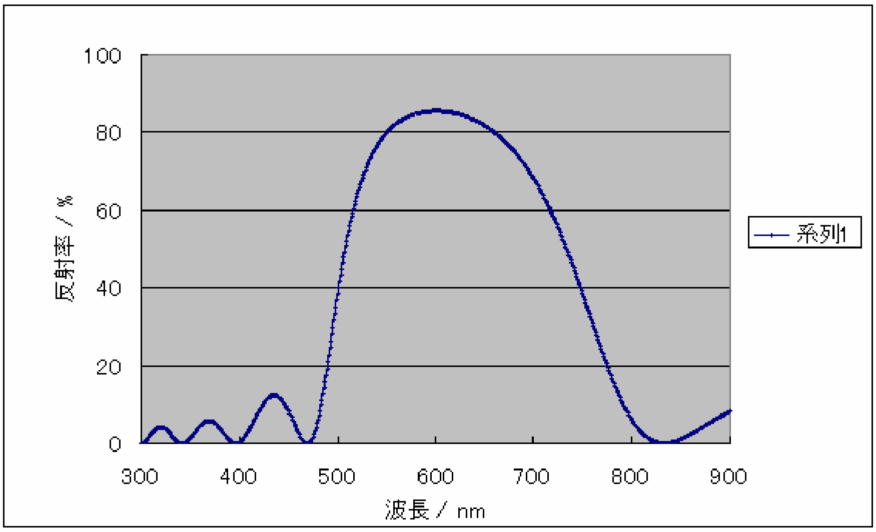
$$r_{1+2+3+4+5}=\frac{r_{in1}+r_{2+3+4+5}e^{i\Delta_1}}{1+r_{2+3+4+5}r_{in1}e^{i\Delta_1}}$$

例１　5 層での計算例。屈折率は 1.5 と１の繰り返しで、厚さは 200 と 300nm の繰り返し。（$n_1=n_3=n_5=1.5$, $n_2=n_4=1$,$d_1=d_3=d_5=200$, $d_2=d_4=300$）（垂直入射）



この例は、層数が５層の場合であるが、層がいくつに増えても、最下層から順番に計算してくことで全体の反射率を計算できる。参考例として 7 層に増やした場合の計算例をエクセルファイルとともに示しておく。

例２　７層での計算例。屈折率は 1.5 と１の繰り返しで、厚さは 100 と 150nm の繰り返し（垂直入射）。



4　終わりに

一般に、複数の物体が存在する場合の光散乱現象を記述するには、系全体を一度に取り扱ってマクスウェルの方程式を解く多体問題的な取り扱いと、それぞれの影響を逐次的に足し合わせていく多重散乱的な取り扱いの二つがある。前者は波動方程式に境界条件を課すことで、方程式を一度に解いてしまう方法であり、後者は多重散乱を無限級数に書き下して計算を行う。多層膜干渉スペクトルの計算においても、両者に対応した二つの方法が知られており、前者に対応するのが転送行列（トランスファーマトリックス）を用いた方法、そして後者に対応するのがここで紹介した薄膜干渉の式を繰り返し用いて計算する方法である。もちろん、二つの方法は原理的にはどちらも同じ結果を与える。しかし、実際にエクセルで計算させることを考えると、後者の方法の方が融通がききそうである。

４．参考エクセルファイルに関する補足

最初に、複素数を扱う関数を使用するために、ツール→アドインから、分析ツールのチェックボックスをクリックする。参考ファイルの記述はあまり分かりやすいものではないが、その中でとくに複雑な部分を書き下しておく。計算のミソともいえる①式を用いる部分である。複素数を扱うための関数が複数使われている。

・IMDIV:　複素数の割り算
・IMSUM:　複素数の足し算
・IMPRODUCT:　複素数の積
・IMEXP:　複素数を指数にもつことができる指数関数

```
IMDIV(IMSUM(C$7,IMPRODUCT(B10,IMEXP(IMPRODUCT("i",4*PI()*C$3*C$4*C$6/$A10)))),IMSUM("1",IMPRODUCT(C$7,B10,IMEXP(IMPRODUCT("i",4*PI()*C$3*C$4*C$6/$A10)))))
```

これは以下のような式になっている。

$$\frac{\mathrm{C\$7} + \mathrm{B10} * e^{i\frac{4\pi\mathrm{C\$3*C\$4*C\$6}}{\mathrm{A10}}}}{1 + \mathrm{C\$7} * \mathrm{B10} * e^{i\frac{4\pi\mathrm{C\$3*C\$4*C\$6}}{\mathrm{A10}}}}$$

下の①式との対応が読み取れると思う。

$$\frac{r_{12} + r_{23}e^{i\Delta}}{1 + r_{23}r_{12}e^{i\Delta}} \cdots\cdots ①$$

C7 はフレネルの式から与えられる振幅反射率で、波長（A 列）によらず一定の値が入るので、７の前には$をつけてある。この式を右側の列にコピーをしたときには、C は D になるので、次の層のパラメータを D 列に入れることで、逐次的に計算をしていくことができる。

　計算時間は、筆者の使っているパソコン（2005 年購入、クロックは 3.4GHｚ）では、厚みなどのパラメータを変化させた後、およそ数秒でグラフの描写が終了する。

改善の可能性：このエクセルファイルでは屈折率を実数に限定しているので、吸収のある薄膜干渉スペクトルを計算することはできない。しかし、上述の理論は屈折率を複素数にしても成立するので、拡張するのはそれほど難しくはないだろう。

　また、屈折率を波長に対して定数としている（分散がない近似）。そのため、金属のように屈折率が波長よって大きく変化するような媒体での計算はできない。屈折率が変化すると、フレネルの振幅反射率と位相差Δが波長によって変化することになる。ちなみに金属の屈折率の波長依存性は JK Consulting のウェブページ中に掲載されている。

http://www.kruschwitz.com/metals.htm