

令和元年6月3日現在

機関番号：11501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2018

課題番号：16K12805

研究課題名（和文）顕微偏光解析による高精度屈折率計測法の開発とそのテフロクロノロジーへの応用

研究課題名（英文）Development of micro-ellipsometer for precise measurement of refractive index, and its application to tephrochronology

研究代表者

津留 俊英 (Tsuru, Toshihide)

山形大学・地域教育文化学部・教授

研究者番号：30306526

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,700,000円

研究成果の概要（和文）：火山の爆発的噴火で火山ガスとともに噴出される粒径が数mm程度のテフラに含まれる数100  $\mu\text{m}$ の大きさの斑晶鉱物や火山ガラスの屈折率を光学的に直接計測するために反射対物ミラーと消光型エリプソメーターを組み合わせた顕微偏光解析装置を作製した。作製した顕微鏡部は実用的な作動距離で観察に十分な空間分解能を持つこと、また、顕微偏光解析部は複数の試料の計測によって消光状態は良好で精度良く消光方位角が決定できることを確認した。また、光学定数既知の2つの参照試料を用いて装置の偏光特性を評価する手法を新規に考案した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

フォトニック結晶や液晶素子を始めとして偏光を利用した機能性素子の新規開発が進んでおり、微小領域の精密偏光計測の要求は高いが、いまだ偏光顕微鏡の域を出ないのが現状である。顕微鏡と偏光解析を融合した革新的なハイブリッド顕微鏡によって、顕鏡者の能力差などヒューマンエラー、水和や温度ムラの影響を排除した屈折率の直接計測が実現する。また、テフラの計測に限らず生体応用、表面・界面、固・液界面の計測など、従来法では計測困難な研究分野にも応用でき、学術研究に留まらない広範囲な産業分野への応用が期待できる。

研究成果の概要（英文）：In order to optically directly measure the refractive index of a tephra sample with a size of several hundred  $\mu\text{m}$ , a microscopic ellipsometer combining a Schwarzschild objective and a null ellipsometer was successfully fabricated. It was confirmed that the objective has a long working distance and a sufficient spatial resolution in observation. The good extinction condition in 4-zone measurements was achieved, and the null setting could be accurately determined. By using two reference samples of known optical constants, new analysis method for evaluating the polarization characteristics of the optical path in the apparatus was devised.

研究分野：応用光学

キーワード：偏光解析 屈折率計測 テフラ

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

火山ガラスや斑晶鉱物の屈折率は、これらの化学組成や結晶構造を反映した物理的な性質の1つであり、テフラの特徴を良く示すものであるため、日本内外を問わず地層対比のためにデータベース化が進められている。テフラの同定によって、給源火山、噴出年代、噴火様式、噴火分布などが明らかとなる。

屈折率の測定には、液体中に微小試料を浸し、位相差顕微鏡を用いて試料の像が消失する液体を探す方法が用いられる。屈折率が既知の液体を予め複数用意しておく「浸液法」と、液体の屈折率が温度によって変化することを利用した「温度変化法」に大別される。これらの方法で1/1000の精度で屈折率が決定できるが、

- ・ 多くの液体を準備する必要がある
- ・ 精密な温度管理が要求される

など測定は決して容易ではない。これらの方法は像の消失という「見た目」で判断するため、顕微鏡者の個人差が反映されることや、温度分布の影響が懸念される。また、水和の影響で新しいテフラの測定は困難である。

他の学術領域に目を向けると、物理学・光学分野では屈折率計測に反射率計測法や透過率計測法、最小偏角法、偏光解析法(エリプソメトリー)が用いられる。斑晶鉱物や火山ガラスは屈折率1.5前後の微小な透明物質で、プリズム作製は困難で、また、屈折率の1/1000の変化が反射率や透過率に与える影響は小さい。また、最も普及している測光法に基づく回転検光子型エリプソメトリーでも反射楕円の変化が小さいため、浸液法の測定精度を達成することは極めて困難である。

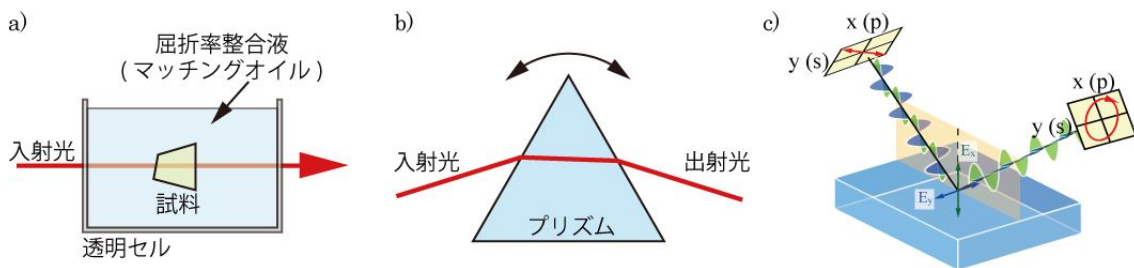


図1. 一般的な屈折率計測法。a) 浸液法、b) 最小偏角法、c) 偏光解析法。

そこでこれらの課題を解決するために、拡大像を得るための反射型対物ミラーで微小試料に、膜厚感度1ピコメートルを達成した消光エリプソメトリーで1/1000の屈折率精度に、それぞれ対応する「顕微偏光解析法」を考案した。消光法は消光角度を計測するだけで良いため、光源の安定性や検出器のリニアリティに精度が影響される測光法と比べて測定精度が2桁程度高い。理論計算によって、消光法による偏光解析で屈折率の1/1000の差を識別することが可能であることが分かった。

### 2. 研究の目的

本研究は、火山の爆発的噴火で火山ガスとともに噴出される「粒径が数mm程度の」テフラ」に含まれる数100 $\mu\text{m}$ の大きさの斑晶鉱物や火山ガラスの屈折率を、偏光解析法(エリプソメトリー)によって高精度で決定できる顕微偏光解析装置を開発することを目的とする。

「旧石器」が産出する地層の「層序年代」を「テフロクロノロジー」によって明らかにする時に、斑晶鉱物や火山ガラスの「屈折率」を従来の浸液法に変わって光学的に直接計測する手法を確立する。

### 3. 研究の方法

- 提案する「顕微偏光解析法」は、
- 屈折率の直接計測であり、屈折率既知の物質は不要
  - 様々な波長の屈折率の計測が可能
  - 試料内の屈折率分布の取得が可能

という利点がある。多くの利点がありながら、これまで装置の実現に至っていないのは、一般的な屈折型の対物レンズはレンズの残留歪による複屈折や屈折そのものの影響で偏光が乱れ、試料の反射偏光状態の精密計測が困難

最も普及する回転検光子型エリプソメーターは、系統誤差の影響で1/1000の精度の屈折率決定が困難

であるためである。

これらを打破するために、「反射型(シュバルツシルト)対物ミラー」と「消光型エリプソメーター」を組み合わせた方法を考案した。反射型対物ミラーは僅か2回の表面反射で拡大像が得られるため、反射による偏光変化の予測と計測が可能である。本研究では、試料への入射角と倍率を最適化した対物ミラーを設計し、凹・凸面基板と平面基板への同時成膜によってミラー

表面の屈折率を計測し、ミラー反射のジョーンズ行列を決定する。研究目的を達成するために以下の研究テーマを設定し、研究を推進する。

- (1) 顕微光学部の開発  
大きさが数 100  $\mu\text{m}$  の試料を十分解像する倍率で、試料への入射角が  $60^\circ \sim 80^\circ$  の範囲となるような開口数のシュバルツシルト型反射対物ミラーを設計する。凹凸面基板上に金厚膜を成膜して対物ミラーとする。
- (2) 偏光計測部の開発  
大きさが数 100  $\mu\text{m}$  の試料の屈折率を計測するために、対物ミラーを用いて入射ビーム径が数 10  $\mu\text{m}$  の消光型エリプソメーターを作製する
- (3) 顕微光学部と偏光計測部を統合した顕微消光エリプソメーターの開発  
屈折率の決定精度 1/1000 を目標とする。

#### 4. 研究成果

##### (1) 顕微光学部の開発

顕微鏡と偏光解析を融合した革新的なハイブリッド顕微鏡実現の要の一つが、反射型対物ミラーである。これは異なる曲率の凹面・凸面の 2 枚の鏡を同心に配置した構成で、2 回の表面反射で拡大像が得られる。3 次の球面収差、コマ収差、非点収差が補正され回折限界結像が得られることから、屈折型レンズが使用できない紫外線、軟 X 線領域で用いられる。反射型対物ミラーは僅か 2 回の表面反射で拡大像が得られるため、ガラスレンズを用いた透過型の対物レンズと比べて反射による偏光変化の予測と計測が比較的容易である。

対物ミラーの設計に先立ち、開口数(NA)による反射偏光の変化を計算した。SiO<sub>2</sub> が主成分の火山ガラスを試料とし、屈折率が 1.5 から 1.52 まで 0.001 刻みで変化した時の反射偏光変化を開口数毎(NA=0.1、0.2、0.3)に計算した結果を図 2 に示す。透明試料であるため、反射偏光の位相差角 $\Delta$ は全て  $180^\circ$  で変化しない。一方、振幅比角 $\Psi$ は屈折率の増加に伴い増加する。開口数が大きくなるにつれて屈折率変化  $dn=0.001$  に対する振幅比角の差も大きくなり、開口数 0.1、0.2、0.3 の時、それぞれ  $\delta\Psi \sim 0.0002^\circ$ 、 $\delta\Psi \sim 0.0010^\circ$ 、 $\delta\Psi \sim 0.0025^\circ$  となった。消光型エリプソメーターの消光感度を考慮すると、開口数 0.2 以上が必要であることが分かった。これらの結果から開口数 0.25、倍率 20 倍として対物ミラーに用いる凹面、凸面の曲率半径等を決定した。

次に、イオンビームスパッタリング成膜装置を用いて、凹面、凸面のガラス基板上に金を成膜した。両者の基板、エリプソメーター用の光源を対物ミラーへと導くための反射平面ミラー用基板の合計 3 つの基板を自転させながら同時に成膜を行った。反射による偏光変化の計測と解析を容易にするため、基板からの反射が無視できる十分な厚さの金膜を成膜した。反射型対物ミラーの凸面ミラーは空中に浮いた配置にする必要があるため、CNC フライスで自作した 3 本梁型ホルダーで保持し、これと凹面ミラーをそれぞれ精密ホルダーに設置後

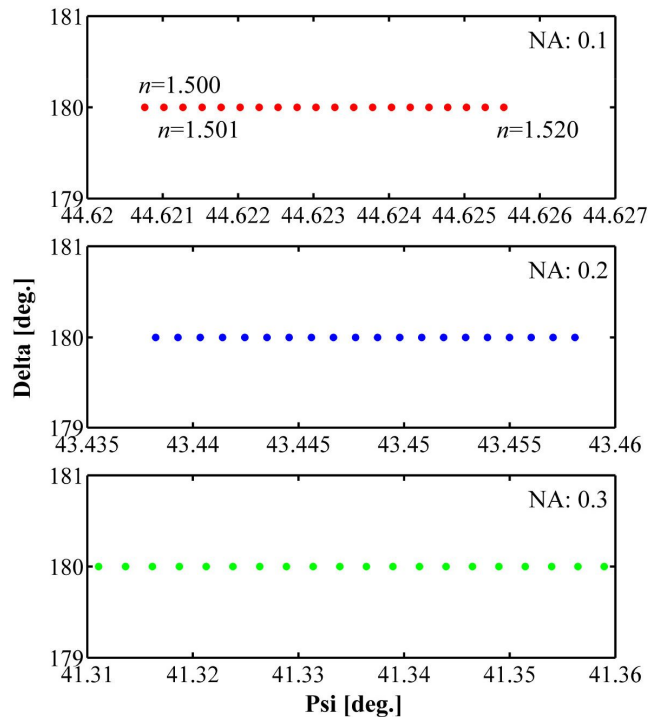


図 2. 反射偏光の開口数変化。

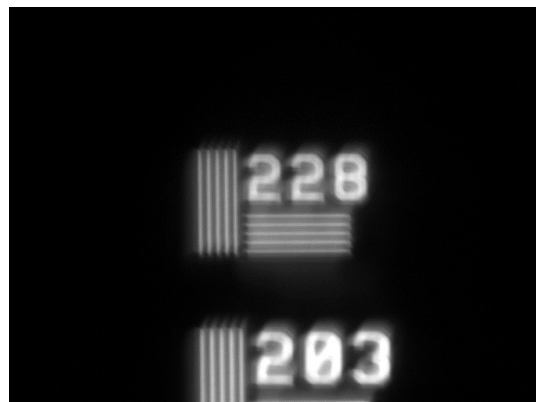


図 3. 作製した反射型対物ミラーで撮像した分解能テストターゲット。

に組み合わせて一体型の反射型対物ミラーを作製した。さらに、対物ミラーと透過照明を用いて透過型顕微鏡を構築した。市販の分解能テストターゲット(NBS 1963A)を用いて結像特性を評価したところ、図3に示すようにターゲット中で最も分解能が高い228 (line pair/mm)の撮像に成功した。本研究で試料とするのは数100 μmの大きさの斑晶鉱物や火山ガラスであることから十分な空間分解能を有する対物ミラーを実現できた。

## (2) 偏光計測部の開発

(1)で作製した反射型対物ミラーと現有の消光型エリプソメーターを組み合わせて図4のような顕微偏光解析装置を作製した。図上部は直線配置の消光型エリプソメーターで金を成膜した直角プリズムミラーで波長633 nmのレーザー光を反射型対物ミラーへと導く。凹面ミラーと凸面ミラーで反射した光は試料を照射し、反射光は再び凸面ミラー、凹面ミラーで反射した後、直角プリズムミラーで折り返されてエリプソメーターの検出部へと向かう。直角プリズムミラーを光路から外せば試料の透過拡大像が検出できる構成とした。直径1 mmのレーザー光は対物ミラーで縮小され試料を照射するため微小領域の計測が可能である。

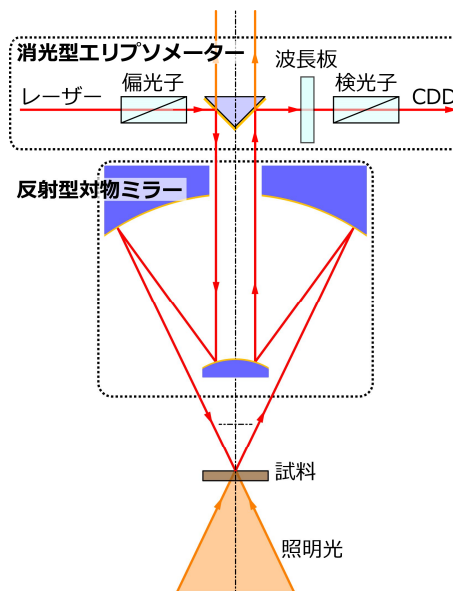


図4. 反射型対物ミラーと消光型エリプソメーターを組み合わせた顕微消光エリプソメーターの模式図。

## (3) 顕微消光エリプソメーターの開発

- 高精度で屈折率を決定するためには、
- 消光状態の確認
- 各反射ミラーのジョーンズ行列の決定
- 試料への入射角の決定

が不可欠である。消光状態については、金属膜試料やガラス基板を観察し、4ゾーン計測時の各方位角のバラつきが通常の消光エリプソメーターと同程度であることが確認できた。ジョーンズ行列の決定については、光学定数既知の2つの参照試料を用いて計測試料の複素振幅反射率比を得るための解析法を新たに考案した。本手法を用いれば、折り返しミラーや反射対物ミラーの反射面の状態などに関わらず全ての反射面を含めた複素振幅反射率が決定できる。予め消光エリプソメーターで光学定数を計測したガラス基板上的金膜とSiウエハーを参照試料として観察系の合成複素振幅反射率を求め、また、これらの計測値を数値解析して試料への入射角を $11.313^\circ$ と決定できた。

今後、作製した計測システムと解析法を用いて斑晶鉱物や火山ガラスなどの屈折率を精密計測し、データベース化を目指す。

## 5. 主な発表論文等

### 〔雑誌論文〕(計2件)

- 津留俊英、傾斜エリプソメーターとその応用、光アライアンス、査読無、29、2018、31-35
- T. Hatano, T. Ejima, T. Tsuru, Cr/Sc/Mo multilayer for condenser optics in water window microscopes, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., 査読有, 220, 2017, 14-16
- <https://doi.org/10.1016/j.elspec.2016.12.010>

### 〔学会発表〕(計5件)

- 津留俊英、八木浩司、顕微偏光解析法による高精度屈折率計測、第79回応用物理学会秋季学術講演会、2018年
- 津留俊英、田所利康、分散と散乱を利用した旋光の可視化、日本理科教育学会第56回東北支部大会、2017年
- 津留俊英、八木浩司、微小試料の高精度屈折率計測のための顕微偏光解析装置の開発、第78回応用物理学会秋季学術講演会、2017年
- 津留俊英、田所利康、旋光の可視化、第64回応用物理学会春季学術講演会、2017年
- 若山俊隆、水谷康弘、津留俊英、大谷幸利、偏光技術による可視化、Optics & Photonics Japan 2016、2016年

### 〔図書〕(計1件)

- Toshihide Tsuru et al., The Surface Science Society of Japan ed., Springer, Singapore, Compendium of Surface and Interface Analysis, (2018), pp. 155-164

## 6 . 研究組織

### (2)研究協力者

研究協力者氏名：八木浩司

ローマ字氏名：(YAGI, Hiroshi)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。