

令和 5 年 10 月 30 日現在

機関番号：84431

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2022

課題番号：19K15405

研究課題名（和文）非周期・超多層構造によるオールカーボン赤外フィルターの設計指針提示と作製

研究課題名（英文）The design and fabrication of all carbon-based aperiodic multi-layered infrared filter

研究代表者

近藤 裕佑（Kondo, Yusuke）

地方独立行政法人大阪産業技術研究所・和泉センター・主任研究員

研究者番号：30470397

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：DLC膜の赤外線領域の光学材料への活用のために超多層膜の構造設計プログラムの開発と製膜法を開発した。広帯域反射膜設計の結果、非周期構造やチャープミラー構造でこれらが実現できることが判明した。次に、設計した光学薄膜を実現するための効率的な手法をPIG-PECVD法を用いて開発した。その結果、基板パルスバイアスの制御により光学薄膜として機能する界面が簡便かつ正確に形成できることが判明した。本手法による積層を行ったところ100層超の積層に成功した。一方で応力の蓄積が大きく剥離の課題が見つかった。光学特性の最適化に加えて、製膜条件の調整等による構造全体での応力制御が必要であることが判明した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で使用したPECVD装置はDLC業界で広く普及している装置であり、本技術の産業化障壁は低い。材料の観点からも、既存の赤外線光学材料は高コスト、有毒性、低耐久性など産業応用を阻む要素が多い一方で、a-C:H膜にはこうしたデメリットがない。さらに、開発した基板パルスバイアスによる積層構造作製法は簡便な手法にもかかわらず、高精度な積層構造の作製に適し、構造の自由度が高い。したがって、今後、自動運転の普及などで市場規模拡大が確実視されている赤外線産業で使用する高機能光学フィルタへの活用が期待できる。本研究成果はDLCの用途探索にとどまらず、赤外線産業への本格参入の契機となるものと考えている。

研究成果の概要（英文）：In order to apply a-C:H film to the infrared optical material, thin film optimizing program and the deposition technique were developed. As a result of design optimization for broadband reflection film, it turned out that these can be realized by aperiodic structure and optimized chirped mirror. Next, we developed an efficient method to realize designed thin film using the PIG-PECVD method. As a result, it was found that the optical interface can be easily and accurately formed by controlling substrate pulse bias. By using this technique, we fabricated over 100-layer optical films without delamination and found that it worked as designed.

研究分野：電気電子工学

キーワード：ダイヤモンドライクカーボン a-C:H 光学薄膜 プラズマCVD法 赤外線

## 様式 C - 19 , F - 19 - 1 , Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

機械的特性に優れる DLC (Diamond like carbon) は、表面処理技術分野で産業応用が進んでおり、使用用途に合わせた機能性を持つ膜質探索、製膜技術開発、製膜装置開発が行われてきた。本研究で扱う PIG-PECVD (Penning Ion Gauge-Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition) 法は、高速製膜や低ダメージ製膜を特徴とし、作製される DLC 膜の一種である水素化アモルファスカーボン ( $a\text{-C:H}$ ) は、高耐久性と高赤外透過性を有している。しかし、既存の産業用途の大半はガスバリア性や低摩擦性、耐久性などの膜の機械的特性を活かしたものであり、その他の用途探索が十分に進んでいない状況であった。

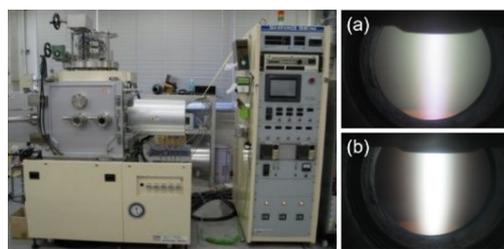


図 1 PIG-PECVD 装置 (ACV-1060, 神港精機社製) の外観 (左) と製膜時のプラズマの様子 (右上)  $\text{Ar} + \text{C}_2\text{H}_2$  ガス使用時 (右下)  $\text{Ar} + \text{CH}_4$  ガス使用時

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、PIG-PECVD 法を用いて作製される  $a\text{-C:H}$  膜を利用し、非周期、超多層膜を特徴とするオールカーボン積層膜により、耐久性が高く材料候補の少ない赤外領域で光学薄膜設計及び製作を行うことである。CVD 法によって作成されるカーボン系薄膜は、製膜条件制御によって、炭素と水素の膜組成を変化させることで、膜密度を制御することができる。これを利用して、光学定数値を制御することができれば、一材料のみで構成された積層光学薄膜を作製することができる。

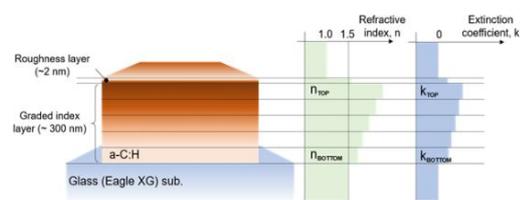


図 2  $a\text{-C:H}$  膜の光学等価モデル

具体的な光学薄膜の試作目標は、近赤外領域の広帯域・低角度依存性および高反射の反射膜とした。このため、1) 構造設計プログラムの作成 2) PIG-PECVD 法による  $a\text{-C:H}$  膜の製膜条件探索と光学定数値の制御範囲確認 3) 光学薄膜に適した製膜手法の開発の 3 点を目的として研究を実施した。

### 3. 研究の方法

#### 3 - 1. 構造設計プログラムの作成

構造設計プログラムは Python を用いて自作した。光学定数値として、高、低それぞれの波長分散を含めた  $n$ ,  $k$  データを任意に入力することが可能であり、全層の膜厚を最適化の対象とした最適化が可能である。目的関数は設計対象領域の反射率とした。また、最適化には遺伝的アルゴリズムを用いた。本プログラムにより 500 層以下程度の構造の最適化が可能とした。

#### 3 - 2. PIG-PECVD 法による $a\text{-C:H}$ 膜の製膜条件探索と光学定数値の制御範囲確認

図 1 に本研究で使用した PIG-PECVD 装置 (神港精機社製, ACV-1060) の外観および製膜時の写真を示す。基板にはガラス基板 (Corning 7059) を用い、非加熱で製膜した。製膜パラメータとして、製膜ガス  $\text{Ar}$ ,  $\text{C}_2\text{H}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{TMS}$  ( $\text{Si}(\text{CH}_3)_4$ ) を用いた。 $\text{Ar}$  は 20 ~ 50 sccm, その他のガスは 50 ~ 150 sccm の範囲で供給した。全圧は約 0.1 Pa であった。基板パルスバイアスは、Duty 比 20%, パルス周波数 100 kHz で印可し、絶対値は 300 ~ 600 V の範囲で調整した。60 ~ 120 秒間の製膜を行い、膜厚は 200 ~ 400 nm であった。

光学測定には、分光エリプソメータ (J. A. Woolam 社製, M-2000) を用い、波長範囲 245 ~ 1683 nm の光学定数値を算出した。光学モデルには Tauc-Lorentz と Gaussian の混合モデルを用い、信頼性向上のため多角度のフィッティングを行った。シミュレーションのフィッティング精度を確認し、図 2 のような傾斜屈折率モデル (5 層構造) を用いて解析を行った。本モデルは作製した全ての試料で均一屈折率モデルよりもフィッティング精度が高くなった。なお、本特性はチャンパー内のプラズマの安定化時間を反映したものと考えられる。プラズマ安定状態での膜特性を評価するために表面層側の光学定数を評価した。

#### 3 - 3. 光学薄膜に適した製膜手法の開発

基板パルスバイアス制御装置 (PINACLE PLUS, Advanced Energy 社製) をレシピ運転させ、百層超の積層膜を自動、かつ正確に積層するために Labview を用いて制御プログラムを自作した。本プログラムにより、基板パルスバイアスの印可時間、バイアス設定値を全ての膜で制御可

能である．パルスバイアスの状態（電圧値，電流値，電力地）の時間変動のロガーを搭載させた．

#### 4．研究成果

##### 4 - 1.構造設計結果

図 3 に 300 層の構造で設計した非周期構造の最適構造の結果と，その反射特性の計算結果を示す．左は屈折率差の小さい組み合わせであり，右は屈折率差の大きい場合の組み合わせである．波長 1000 nm 付近に高反射率の領域を持つ構造を用意し，この帯域を拡大する構造を計算している．初期状態では s, p 偏光共に，狭帯域反射構造であるが，最適化の結果膜構造は非周期構造となり，帯域が大きく拡大していることが分かる．この傾向は，屈折率差が大きいほど顕著であり，広帯域反射膜の作製には屈折率差の絶対値が重要であることが分かる．なお，同等の光学特性を有する非周期構造は屈折率差以外から生じる設計制約（波長分散を含む，膜の消衰係数の変動等）がない場合には無数に存在している．

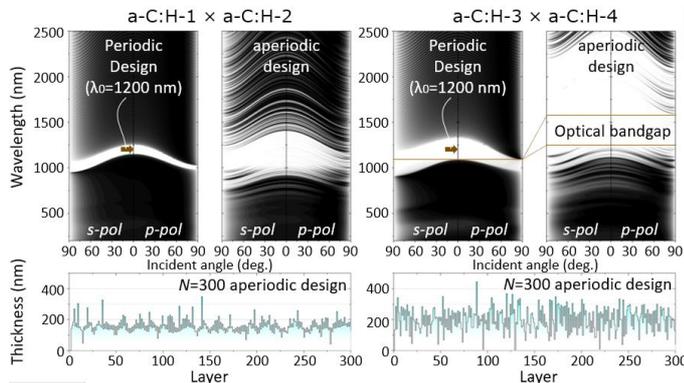


図 3 屈折率の異なる（左：屈折率差小，右：屈折率差大）2 材料を用いた 300 層光学干渉膜における周期構造及び非周期構造（左：周期構造，右：周期構造）の反射率スペクトル中の反射帯域幅の比較

次に，図 4 に制約条件を設けた場合の最適構造を示す．例えば，膜厚が表面側から基板側へ

徐々に厚くなる制約をかけたところ，同様の広帯域反射膜を作成する場合，いわゆるチャープミラー構造が得られた．チャープミラーは広帯域反射膜の一般的な形であるが，波長分散や設計帯域によっては，単純な厚みの分布にはならない．これを反映して，本プログラムでの最適化結果も特徴的な膜厚分布を形成することが分かった．

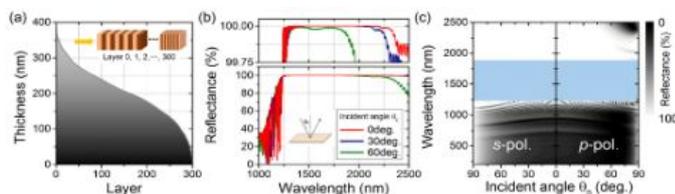


図 4 広帯域反射膜の設計結果．(a)設計構造 (b)垂直反射率 (c) 反射率スペクトルの入射角度, s, p 偏光依存性

##### 4 - 2. PIG-PECVD 法による a-C:H 膜の製膜条件探索と光学定数値の制御範囲確認

図 5 に，波長 550nm における n, k の分布を示す．概ね k の増加に伴い n も増加しており，屈折率は約 1.6~2.4，消衰係数は 0~0.3 付近まで幅広く分布していることが分かった．また，消衰定数は 1,000 nm 以降で非常に小さくなっており，赤外領域の光学材料として有望であることが分かる．

次に，図 6 に基板パルスバイアスの周波数および Duty 比に対する光学定数値の測定結果を示す．パルス周波数が高いほど，屈折率差が大きくなる傾向が得られた．一方で，絶縁被膜である DLC の製膜では，高周波数ではチャージアップによる異常放電等が頻発することで膜質が不均質になりやすく，最適な周期と Duty 比を選択する必要がある．また，屈折率とバイアスの間の線形関係が望ましい．以上の観点から，100 kHz で Duty 比が 20% 以上の領域の線形性が高く，安定していることが分かった．

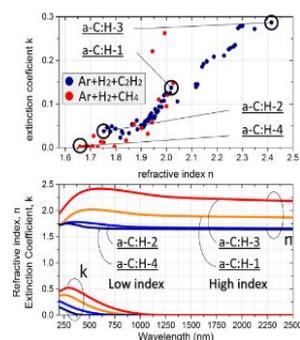


図 5 作製した a-C:H 膜の波長 550 nm における n, k の分布(上)と代表的な波長分散スペクトル(下)

し  
へ  
の  
で  
か  
き  
ー  
や  
る

特許出願準備中につき非公開

特許出願準備中につき非公開



特許出願準備中につき非公開

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 0件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 近藤裕佑	4. 巻 1
2. 論文標題 水素化アモルファスカーボンを用いた光学干渉膜の作製	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 大阪技術研テクノレポート 令和3年度（令和2年度研究成果）	6. 最初と最後の頁 14, 14
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 近藤 裕佑, 松村 直巳
2. 発表標題 PIG-PECVD法で作製したa-C:H膜による赤外帯域除去フィルター設計
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 近藤 裕佑
2. 発表標題 ダイヤモンドライクカーボンで作る光学薄膜
3. 学会等名 産業技術支援フェア in KANSAI 2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Kondo, Y. Kakehi, K. Satoh, N. Matsumura, and Yong-Gu Shim
2. 発表標題 Dependence of substrate pulse bias on optical constants of a-C:H film fabricated by the PIG-PECVD method
3. 学会等名 12th International Conference on Optics-photonics Design & Fabrication (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 近藤 裕佑, 松村 直巳, 寛 芳治, 佐藤 和郎
2. 発表標題 スパッタAg-カーボン混合膜によるTHMの検討
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 近藤 裕佑, 寛 芳治, 佐藤 和郎, 松村 直巳
2. 発表標題 PIG-PECVD法による積層DLC膜の残留応力の低減
3. 学会等名 第143回 表面技術協会講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 近藤 裕佑, 寛 芳治, 佐藤 和郎, 松村 直巳, 沈 用球
2. 発表標題 PIG-PECVD法によって作製されるa-C:H膜の光学特性の基板温度依存性
3. 学会等名 第80回 応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 近藤 裕佑, 寛 芳治, 佐藤 和郎, 松村 直巳, 沈 用球
2. 発表標題 PECVD法により作製したDLC膜の光学定数の基板パルスバイアス周波数, Duty比及び電力依存性
3. 学会等名 第33回 ダイヤモンドシンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 近藤 裕佑, 筧 芳治, 佐藤 和郎, 松村 直巳, 沈 用球
2. 発表標題 PIG-PECVD製膜法により作製したa-C:H薄膜の光学定数に及ぼす基板パルスバイアスの影響
3. 学会等名 第141回 表面技術協会講演大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

大阪技術研テクノロジーレポート 令和3年度 (令和2年度研究成果)  
[https://xn--orist-246jp00t.jp/content/files/pdf/technoreport/technoreport\\_2021.pdf](https://xn--orist-246jp00t.jp/content/files/pdf/technoreport/technoreport_2021.pdf)  
 マイクロデバイス開発支援センターのご案内  
<https://orist.jp/kenkyu-bu/denshi-kikai/micro.html>

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関