

(技術資料)

# 光学機能性フィルムのシミュレーションによる設計と実験的検証

## Simulating Design and Experimental Verification of Optical Functional Films



慈幸範洋\*<sup>1</sup> (博士(理学))  
Dr. Norihiro JIKO



田尾博昭\*<sup>1</sup>  
Hiroaki TAO



川上信之\*<sup>1</sup> (博士(工学))  
Dr. Nobuyuki KAWAKAMI



前田剛彰\*<sup>2</sup>  
Takeaki MAEDA



碓 賀充\*<sup>2</sup>  
Yoshimitsu IKARI



吉田栄治\*<sup>2</sup>  
Eiji YOSHIDA

Optical functional films prepared on flexible substrates are widely used for electronics and energy applications where a roll-to-roll system is a promising tool for depositing film stacks. This paper describes the basic approach of the film stack design and experimental verification. The optical spectra were simulated by a technique based on characteristic matrix calculations combined with optimization of the spectra by the conjugate gradient method, which was applied to design index-matched indium-tin-oxide (ITO) patterns for touch-screen sensors and to realize wavelength-selective properties for window films. The simulated stacks were experimentally demonstrated by sputtering deposition. Issues of the fabrication process are also discussed.

まえがき = 光学薄膜は、基材上に形成された薄膜による光の反射、吸収および干渉を利用することにより、分光特性が制御された薄膜である。所望の分光特性を得るために、光学定数の異なる複数の薄膜が重ねられた積層構造が採用されることが多い。この光学薄膜は反射防止、光学フィルタのような機能を利用してカメラ、プロジェクタなどの光学機器分野をはじめ、ディスプレイ、光通信、太陽光パネルなど幅広い分野に応用されている。

光学薄膜は真空蒸着法やスパッタリング法などにより形成されるが、適用される製品形態に応じて多様な成膜方法、成膜装置が利用される。当社機械事業部門では、ロール・ツー・ロールプロセスに対応した成膜装置（ロールコータ）事業を行っており、昨今、光学機能性フィルム向けの成膜装置へのニーズが高まりをみせている。この用途においては、装置仕様のみならず光学特性に対する機能設計と成膜実証までが装置メーカーに求められるようになってきた。

本稿では、ロールコータにより製造される光学機能性フィルムとして、1) タッチパネル向け透明電極フィルム、および2) ウィンドウフィルムに対して膜設計を行った事例を紹介する。まず、この取り組みで採用した光学設計技術について概説し、これら光学機能性フィルムに求められる機能と、それらの機能を実現するための薄膜積層構造設計、さらに設計に基づくサンプル試作結果について解説する。

### 1. 光学設計技術

本稿で述べる光学設計技術とは、①積層膜の層数および各層の光学定数と膜厚を与えて光学特性（反射率、透

過率）を計算することに加え、これを元に②層数と光学定数を与えた上で、所望の分光特性を得るために膜厚を最適化することの2点をいう。ここで、光学解析には特性マトリクス法を、最適化には共役勾配法を採用し、エクセルVBAによる設計プログラムを構築した。以下にそれぞれの技術の概要を述べる。

#### 1.1 光学解析法

積層膜各層の光学定数と積層膜表面への光入射角から、反射率と透過率を求めるための特性マトリクス法について概説する<sup>1), 2)</sup>。基材上に形成された*l*層積層膜の模式図を図1に示す。積層膜の各層および基板への光の入射角はスネルの法則により式(1)のように関係付けられる。

$$N_0 \sin \theta_0 = N_1 \sin \theta_1 = \dots = N_j \sin \theta_j = \dots = N_m \sin \theta_m \quad \dots (1)$$

ここに、

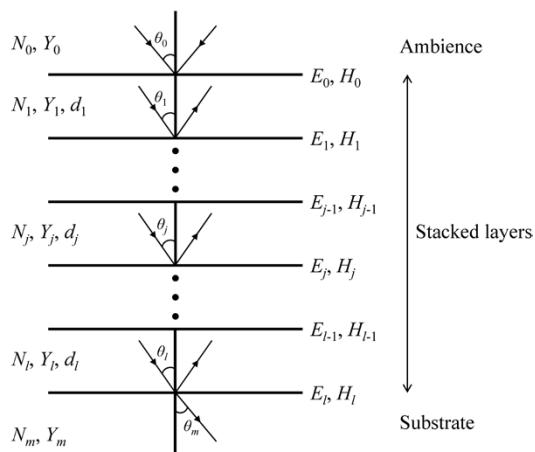


図1 基材上に形成された積層膜の模式図  
Fig. 1 Schematic illustration of stacked layers on substrate

\*<sup>1</sup> 技術開発本部 電子技術研究所 \*<sup>2</sup> 機械事業部門 産業機械事業部 高機能商品部

$N_j$ : 屈折率

$\theta_j$ : 各境界面における入射角および屈折角

屈折率  $N_j$  は一般に複素数となる。式 (1) の関係から、積層膜表面での入射角  $\theta_0$  が与えられれば、すべての  $\theta_j$  を求めることができる。また、屈折率  $N_j$  は光学アドミタンス  $Y_j$  と式 (2) の関係にある。

$$Y_j = Y_0 N_j \dots \dots \dots (2)$$

$Y_0$  は真空の光学アドミタンスであり、

$$Y_0 = \sqrt{\epsilon_0 / \mu_0} \dots \dots \dots (3)$$

ここに、

$\epsilon_0$ : 真空の誘電率

$\mu_0$ : 真空の透磁率

電磁波である光の電界と磁界について、境界に平行な成分は連続であるとの条件から、積層膜最表面での電磁界  $E_0, H_0$  と基板との境界面での電磁界  $E_l, H_l$  の関係は式 (4) で記述される。

$$\begin{bmatrix} E_0 \\ H_0 \end{bmatrix} = \prod_{j=1}^l \begin{bmatrix} \cos \Delta_j & (i \sin \Delta_j) / \eta_j \\ i \eta_j \sin \Delta_j & \cos \Delta_j \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_l \\ H_l \end{bmatrix} \dots \dots \dots (4)$$

ここに、光の波長を  $\lambda$ 、各層の膜厚を  $d_j$  とし、

$$\Delta_j = \frac{2\pi}{\lambda} N_j d_j \cos \theta_j \dots \dots \dots (5)$$

$$\eta_j = \begin{cases} Y_j \cos \theta_j, & s \text{ polarization} \\ Y_j / \cos \theta_j, & p \text{ polarization} \end{cases} \dots \dots \dots (6)$$

式 (4) を変形して、

$$\begin{bmatrix} E_0 / E_l \\ H_0 / E_l \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} B \\ C \end{bmatrix} = \prod_{j=1}^l \begin{bmatrix} \cos \Delta_j & (i \sin \Delta_j) / \eta_j \\ i \eta_j \sin \Delta_j & \cos \Delta_j \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 \\ \eta_m \end{bmatrix} \dots (7)$$

この  $B, C$  を用いて反射率  $R$  と透過率  $T$  は次のように与えられる。

$$R = \left| \frac{\eta_0 B - C}{\eta_0 B + C} \right|^2 \dots \dots \dots (8)$$

$$T = \frac{4\eta_0 \operatorname{Re}(\eta_m)}{|\eta_0 B + C|^2} \dots \dots \dots (9)$$

当社はこの光学理論に基づき、積層膜としての反射率、透過率を計算するプログラムを構築した。また光学特性をスペクトルとして求めるため、屈折率の波長分散性を盛り込んだ。なお、本稿で述べる反射率、透過率はいずれも垂直入射における特性である。

## 1.2 最適化

つづいて、所望の光学スペクトルを得るために各層の膜厚を最適化するプログラムを構築した。初期の膜厚構成における光学スペクトルと、目標とする光学スペクトルとの差を評価関数として設定した。すなわち、この評価関数の最小値を与える膜厚構成が最適な解であると判断できる。

関数の最小値 (または最大値) を求める手法には種々のアルゴリズムが提案されているが、ここでは勾配法の一つである共役勾配法を用いた。最適化すべき関数を  $f$ 、そのパラメータをベクトル  $\mathbf{x}_k$  とし、共役勾配法のアルゴリズムを以下に記す<sup>3)</sup>。

Step 0 : 初期点  $\mathbf{x}_0$  を与える。探索方向  $\mathbf{d}_0$  を  $\mathbf{d}_0 = -\nabla f(\mathbf{x}_0)$  に従って求める。

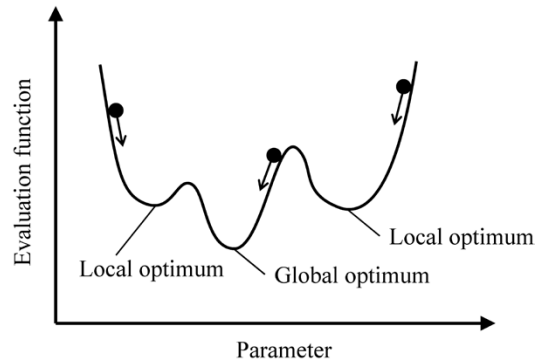


図2 大域的最適値と局所的最適値  
Fig. 2 Global optimum and local optimum

Step 1 :  $\mathbf{d}_k$  方向の直線上で関数値が最小となる点までのステップ幅  $a_k$  を求める (直線探索)。

Step 2 : 近似解を  $\mathbf{x}_{k+1} = \mathbf{x}_k + a_k \mathbf{d}_k$  と修正する。

Step 3 : 収束条件が満たされていれば  $\mathbf{x}_{k+1}$  を最適値とし、手順を終了する。そうでなければ探索方向を  $\mathbf{d}_{k+1} = -\nabla f(\mathbf{x}_{k+1}) + \beta_{k+1} \mathbf{d}_k$  と定める。

Step 4 :  $k \leftarrow k + 1$  として Step 1 へ。

本稿で述べる膜厚構成の最適化においては、

$$\beta_{k+1} = \frac{\|\nabla f(\mathbf{x}_{k+1})\|^2}{\|\nabla f(\mathbf{x}_k)\|^2} \text{ とした。}$$

なお、関数は一般に多峰性を有しており、極値がいくつも存在する。このため、求めた極値が真の最小値あるいは最大値 (大域的最適値) であるかの判別が困難である (図2)。そこで、本稿で述べるウインドウフィルムの設計においては、複数の初期値のもとで最適化を実施した上で、その中でも最小の評価関数が得られた膜厚構成を最適値とした。

## 2. タッチパネル向けITO透明電極フィルム

タッチパネルにおけるタッチ検出方式には各種あるが、昨今、マルチタッチに対応する方式の一つである投影型静電容量方式が主流となっている<sup>4), 5)</sup>。本方式では、位置検出のための透明電極としてITO膜が適用されている。ITO透明電極膜はポリエチレンテレフタレート (PET) 基材の上に形成され、ダイヤモンドパターンと呼ばれる構造にパターンニングされている (図3 (a))。

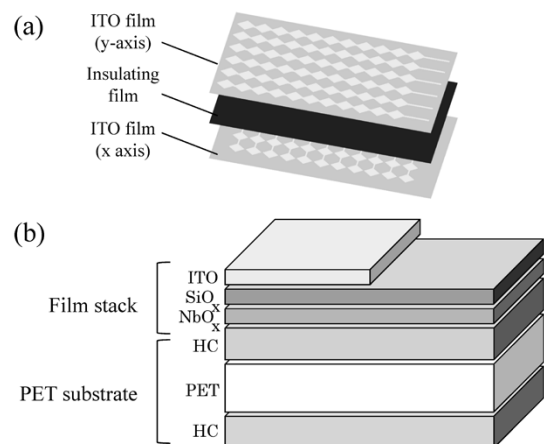


図3 (a) ダイヤモンドパターンを有するITOフィルム, (b) ITOフィルムの積層構造

Fig. 3 (a) ITO film with diamond pattern, (b) Film stack of ITO film

ITO透明電極が形成されたフィルム（以下、ITOフィルムという）には導電性、光透過率に加えて、電極層の“不可視化<sup>注)</sup>”が求められる。不可視化を実現するために、ITOパターンとPET基材の間にはインデックスマッチング層と呼ばれる層が設けられている。本稿では、インデックスマッチング層として低屈折率層 ( $\text{SiO}_x$ ) と高屈折率層 ( $\text{NbO}_x$ ) が積層された構成において設計を行った例について述べる (図3 (b))。ITOフィルムとしての光学特性はPET基材の光学特性にも依存するため、PET基材の種類ごとに最適な膜厚構成を見出す必要がある。

高精度に膜厚構成を最適化するためには、まずは不可視化特性を定量化する必要がある。そこで、ITO層を備えた構成 (ITO/ $\text{SiO}_x$ / $\text{NbO}_x$ /PET基材) とITO層のない構成 ( $\text{SiO}_x$ / $\text{NbO}_x$ /PET基材) でそれぞれ反射率および透過率のスペクトルをシミュレーションにより算出した上で、上記二種の構成の差を評価関数と定義し、これを最小化する膜厚構成を求めることとした (図4)。まず、PET基材、およびロールコートによりPET基材上に成膜されたITO、 $\text{SiO}_x$ 、 $\text{NbO}_x$ 各単層膜のエリプソメータによる測定から、PET基材のPET層、HC層、および各単層膜の光学定数を求め、それらをシミュレーションにおける光学定数として適用した。ここで、シート抵抗に対する要求からITO膜厚を決定すれば、最適化におけるパラメータは $\text{SiO}_x$ 層と $\text{NbO}_x$ 層の膜厚のみとなる。したがってここでは、両層の膜厚をパラメータとした評

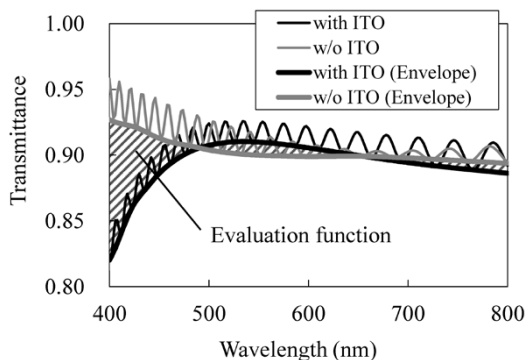


図4 ITOフィルムの透過スペクトルと評価関数  
Fig. 4 Transmittance spectra of ITO film and evaluation function

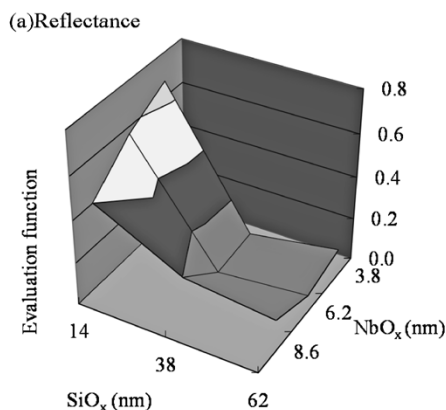


図5 ITOフィルムにおける $\text{SiO}_x$ 、 $\text{NbO}_x$ の膜厚をパラメータとした評価関数の等高線図  
Fig. 5 Contour map of evaluation function with varied  $\text{SiO}_x$  and  $\text{NbO}_x$  thickness in ITO film

価関数の等高線図から最適値を求めた。図5にITO膜厚を31nmとしたときの評価関数の等高線図を示す。この結果から、このPET基材を用いる場合、 $\text{SiO}_x$ 、 $\text{NbO}_x$ の膜厚をそれぞれ38nm、6.2nmとした場合に、反射率および透過率の評価関数が最小値をとることが確認された。シミュレーション結果をもとに当社スパッタロールコートによりITO、 $\text{SiO}_x$ 、 $\text{NbO}_x$ の各層を成膜して作製したITOフィルムと、不可視化が不十分な構成で作製されたITOフィルムの光学顕微鏡像を図6に示す。シミュレーションを活用することにより、不可視化を実現できていることが確認できた。なお、基材および薄膜の吸収特性によっては、反射率と透過率において最適な膜厚が異なることがある。その場合には、両者のバランスから膜厚を決定する必要がある。

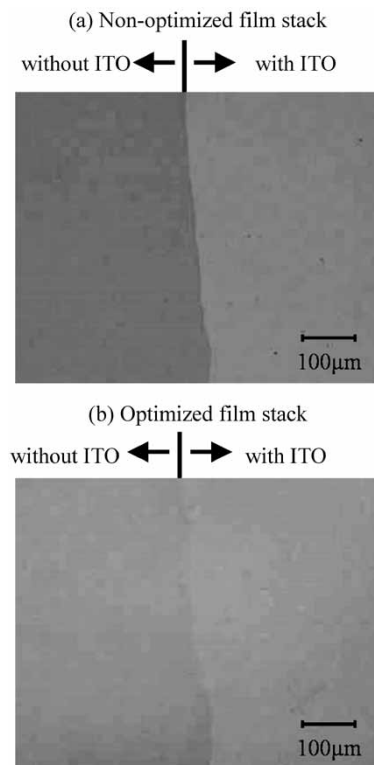


図6 ITOフィルム成膜サンプルにおけるITOパターン境界の光学顕微鏡像  
Fig. 6 Optical microscopic images at ITO pattern boundary in ITO films

脚注) 電極形状が視認されにくいこと

### 3. ウィンドウフィルム

ウィンドウフィルムは日射調整フィルムとも呼ばれ、窓の断熱性能向上および日射の選択的な取り込みを目的に、住宅やオフィスビルの窓に貼り付けて使用される。日差しをさえぎることによるエアコン稼働時の省エネルギー化、あるいは紫外線カットによる家具の色あせ防止などが可能になることから、近年、需要が高まっている。ウィンドウフィルムには、取り付け箇所に応じて様々な光学特性が求められるが、ここでは熱線および紫外線を遮蔽し、可視光に対して高い透過率を備えたウィンドウフィルムについて述べる。

ウィンドウフィルムの膜構成の最適化にあたり、図7に矩形で示すスペクトルを透過スペクトルの目標と設定した。積層膜の膜構成はTiO<sub>x</sub>/SiO<sub>x</sub>/Ag/SiO<sub>x</sub>/Ag/SiO<sub>x</sub>/TiO<sub>x</sub>/PET基材とした。つぎに、各単層膜のエリブソメータ測定結果を解析することにより、それぞれの光学定数を求め、シミュレーションによりウィンドウフィルムとしての透過率を算出した。このスペクトルと上記目標スペクトルの差を評価関数と定め、1章で述べた共役勾配法によってこの評価関数を最小化した。ただし、ウィンドウフィルムの生産効率の観点から、成膜レートの違い層については膜厚を抑えることが望ましい。そこで、TiO<sub>x</sub>層については膜厚を50nm以下とする制約を設けた。また、Ag層については、透過率の確保と膜厚バラツキに対する性能安定性の観点から膜厚を10nmに固定した。得られた膜厚構成はTiO<sub>x</sub>(16.6nm)/SiO<sub>x</sub>(5.1nm)/Ag(10.0nm)/SiO<sub>x</sub>(154.8nm)/Ag(10.0nm)/SiO<sub>x</sub>(10.7nm)/TiO<sub>x</sub>(21.3nm)/PET基材である。

つぎに、この構成での光学特性を実験的に検証するために、ガラス基板に成膜を行った。Ag層は純AgターゲットまたはAg-Pd-Cuターゲットを用いたDCスパッタ、SiO<sub>x</sub>層とTiO<sub>x</sub>層はそれぞれSiO<sub>2</sub>およびTiO<sub>2</sub>ターゲットを用いたRFスパッタにより成膜した。プロセスガスは、AgとSiO<sub>x</sub>の成膜ではArとし、TiO<sub>x</sub>成膜ではO<sub>2</sub>添加Arとした。このようにして得られた積層膜サンプルの透過スペクトルを図7に示す。Ag層として純Agを適用した場合、その透過スペクトルはシミュレーションとは大きく異なるものとなった。その原因調査のため、別途、SiO<sub>x</sub>

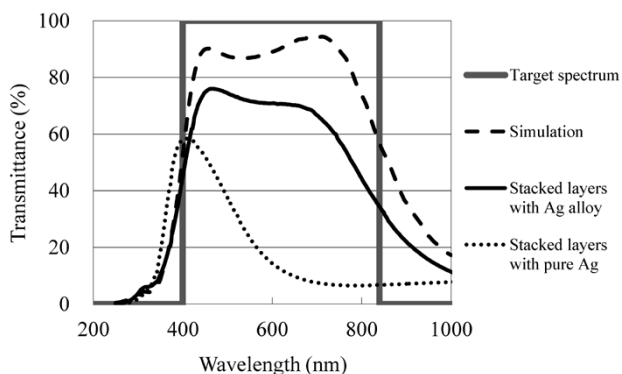


図7 ガラス基板上積層膜のシミュレーションと成膜サンプルの透過スペクトル

Fig. 7 Transmittance spectra of simulation and deposited samples of stacked layers on glass substrates

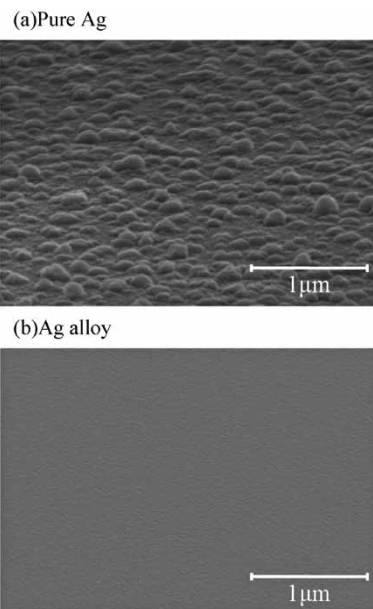


図8 Ag層として(a)純Agおよび(b)Ag合金を適用したSiO<sub>x</sub>/Ag/SiO<sub>x</sub>/TiO<sub>x</sub>/ガラス基板サンプルのSEM観察像

Fig. 8 SEM images of SiO<sub>x</sub>/Ag/SiO<sub>x</sub>/TiO<sub>x</sub>/Glass substrate with (a) pure Ag and (b) Ag alloy

/Ag/SiO<sub>x</sub>/TiO<sub>x</sub>/ガラス基板のSEM観察を実施したところ、図8に示すとおり、純Agを適用したサンプルでは凝集が認められた。この凝集は、Ag層上にSiO<sub>x</sub>を成膜することによる熱とプラズマの影響によるものと考えられる。そこで、Ag合金であるAg-Pd-Cuを適用したところ、図7に示すように紫外線と熱線を遮蔽し、可視光に高い透過率を備えた特性を得ることができた。なお、シミュレーションとの差異が認められるが、その要因は純AgとAg合金の光学定数の違いだけでは説明できず、Ag合金層のわずかな凝集やAg合金層とその上下層の間の拡散が影響していると想定される。合金組成の最適化やバリア層追加などの積層構成の工夫により、より精度の高い膜設計が期待できる。

むすび= 光学機能性フィルム向けの成膜装置に対するニーズが高まる中、これに対応するソリューション技術として光学理論に基づく設計ツールを用いた積層膜の設計と成膜実験による検証に取り組んだ。その事例として、ITO透明電極フィルムおよびウィンドウフィルムにおける膜構造の最適化と成膜実験による検証について紹介した。本技術は種々の光学機能性フィルム、あるいは光学薄膜に対応した基盤技術であり、今後も成膜装置顧客の要望に応えるソリューション提案や新規アプリケーションの創出に活用していきたい。

#### 参考文献

- 1) H. A. Macleod. MACLEOD: 光学薄膜原論. アドコム・メディア, 2013, p.13-50.
- 2) 小椋山光信. 光学薄膜フィルターデザイン. オプトロニクス社, 2006, p.1-61.
- 3) 矢部 博. 工学基礎 最適化とその応用. 数理工学社, 2006, p.140-150.
- 4) G. Barrett et al. Information DISPLAY. 2010, Vol. 26, No.3, p.16-21.
- 5) 中谷健司. 電気ガラス. 2011, 45号, p.7-13.