

〈特別研究課題〉 テラヘルツ帯における被膜付き
モスアイ型反射防止微細構造の開発
助成研究者 名古屋工業大学 小野 晋吾



テラヘルツ帯における被膜付き モスアイ型反射防止微細構造の開発

小野 晋吾
(名古屋工業大学)

Development of moth-eye type antireflective coated microstructures in terahertz region

Shingo Ono
(Nagoya Institute of Technology)

Abstract :

The effect of coatings on the antireflection properties of moth-eye structures was evaluated by simulation using the electromagnetic field analysis software HFSS. Silicon dioxide coatings on silicon moth-eye structures improve the antireflection properties. The uncoated moth-eye structure showed a 54.7% improvement in antireflection properties compared to the unprocessed flat surface in the frequency range of 0.1 to 1.25 THz. Coating the moth-eye structure with a thickness of 40 μm improved the improvement to 78.6%. In general, the antireflection effect of a moth-eye structure increases with increasing aspect ratio, and it was found that an aspect ratio of 2.1 is necessary to fabricate a moth-eye structure that shows the same level of antireflection improvement as the coated moth-eye structure. We have experimentally demonstrated that structures with this high aspect ratio are mechanically fragile and the protrusions are easily broken. Therefore, in order to evaluate the mechanical strength of the moth-eye structure, we performed a stress evaluation when force is applied to the slope of the protrusions using the finite element method with COMSOL. Calculation of the stress distribution when a pressure of 1 MPa was applied to the slope of the protrusion revealed stress concentration at the bottom of the protrusion. In addition, the von Mises stress of the coated moth-eye structure was 0.29 times higher than that of the uncoated moth-eye structure, making it clear that the coated structure has higher mechanical

strength. Silicon moth-eye structures coated with titanium dioxide were fabricated and their transmission and reflection spectra were evaluated. In the frequency range up to 0.5 THz, all coated moth-eye structures showed higher anti-reflection properties than those without coating. The decrease in anti-reflection properties in the high-frequency band is thought to be related to the absorption of terahertz waves due to oxygen vacancies in the coating, but this can be improved by thermal annealing. The coated moth-eye structure demonstrated improved anti-reflection properties in the next-generation high-speed communication (6G) band. In the future, it is expected to contribute to vehicle-to-vehicle communication and remote surgery in autonomous driving.

1. はじめに

6G通信¹⁾、イメージング²⁾、分光学³⁾等、幅広い領域の様々な応用が期待されているテラヘルツ帯(周波数0.1-10 THzの遠赤外領域)では、窓やレンズなどに用いられる光学材料の屈折率が高く、材料と空気の界面での不連続な屈折率変化のために起こるエネルギー反射損失が問題になっている⁴⁾。この界面に波長よりも十分に小さいサイズの凹凸構造を周期的に配列することができれば、界面における等価屈折率変化を滑らかにすることで広帯域での反射損失を低減することができる。この構造は蛾の複眼を模しているため、モスアイ構造とも呼ばれる。我々は超短パルスレーザーを用いた加工により、図1 (a)に示すようなシリコン表面にモスアイ構造を作製することに成功している。この加工手法は溶融物を抑えた高品質かつ高アスペクト加工が可能であり、遠赤外領域のモスアイ構造となる数十マイクロメートルの

(a) 微細構造の作製に適している^{5,6)}。さらに、近年、超短パルスレーザーの高平均出力化により、高アスペクト(縦横比)加工が可能になったことから、図1 (b)に示すようなアスペクト比6.22までの深溝加工も可能になっている。このような高アスペクト比加工が可能に

なったことで、界面における等価屈折率を緩やかに変化させる高性能な反射防止構造が実現できる^{7,8)}。しかし、テラヘルツ帯の光学素子に一般的に用いられるシリコンや砒化ガリウムなどは脆性材料であり、これらの材料における高アスペクト構造の追求は、機械的強度を犠牲することになり、実用性の面で問題が生じる。図2には、モスアイ構造を超音波洗浄にかけた後の電子顕微鏡像を示す。振動により多数の突起が破損していることが見て取れ、実用化のためには機械的強度の向上が必要である

ことが分かる。そこで、我々は、微細構造に低誘電率材料でコーティングし、機械的強度と反射防止特性をともに向上させる機構を実現したので、これについて報告する⁹⁻¹¹⁾。

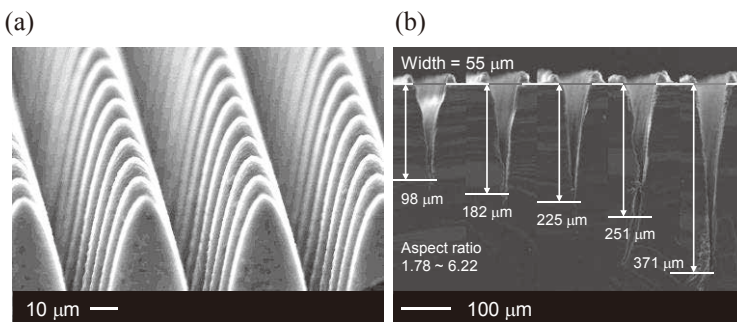


図1 (a) 超短パルスレーザー加工によってシリコン単結晶基板上に作製したモスアイ構造。(b) 高平均出力の超短パルスレーザーで単結晶シリコン基板に作製した高アスペクト比の深溝。

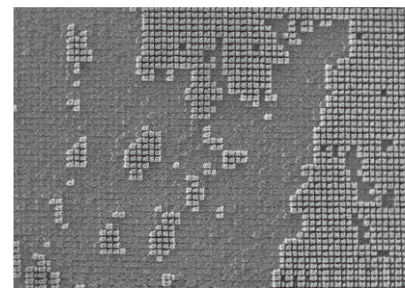


図2 超音波洗浄したモスアイ構造の電子顕微鏡像。

2. 試料および実験方法

単結晶シリコン基板表面に形成したモスアイ構造への二酸化ケイ素によるコーティングの影響を評価するため、電磁界解析ソフトウェアHFSSにてシミュレーションを行った。図3(a)は、コーティングモスアイ構造のシミュレーションモデル、この構造が周期的に配列された表面のテラヘルツ波パワー反射スペクトル、未加工の平坦な表面に対する反射防止特性の改善度を示している。二酸化ケイ素のテラヘルツ領域における屈折率は2.0であり、シリコンの3.42に比べて非常に小さい。そのため、空気屈折率1.0により近い低屈折率材料を堆積させることで、空気とシリコン間の屈折率変化をゆるやかにすることができ、反射防止効果の向上が見込まれる。また、コーティングの厚みが均一である場合、表面に形成される微細構造の溝深さは変わらないが、屈折率変化は二酸化ケイ素の頂点からシリコンの溝の底までで起こるため、機械強度を維持しながら反射防止帯域の拡大も可能である。ここでは、膜厚が10から50 μm までのモデルのパワー反射特性を評価した。パワー反射スペクトルの青い網掛け部分がモスアイ構造によって反射を低減できる領域を示しており、膜厚を大きくすることで屈折率が変化する領域が大きくなるため、低周波数側において反射率低減の効果が確認できる。高周波数側の反射防止帯域は基本的に回折効果で決定され、微細突起の周期が影響するため1.25THz付近までの低反射率が維持されている。膜厚を増やすほど低周波側の反射率は改善されるが、0.6~0.7THz付近での反射率の増加により、40 μm での反射防止改善度が最も高くなる。またこれ以上膜厚を大きくしすぎると、二酸化ケイ素表面とシリコン溝の底の間隙付近に屈折率の変化の少ない領域が形成されるため、反射特性の改善度はさらに低くなる。このコーティングモスアイ構造との比較のため、図3(b)には、コーティングを施していないモスアイ構

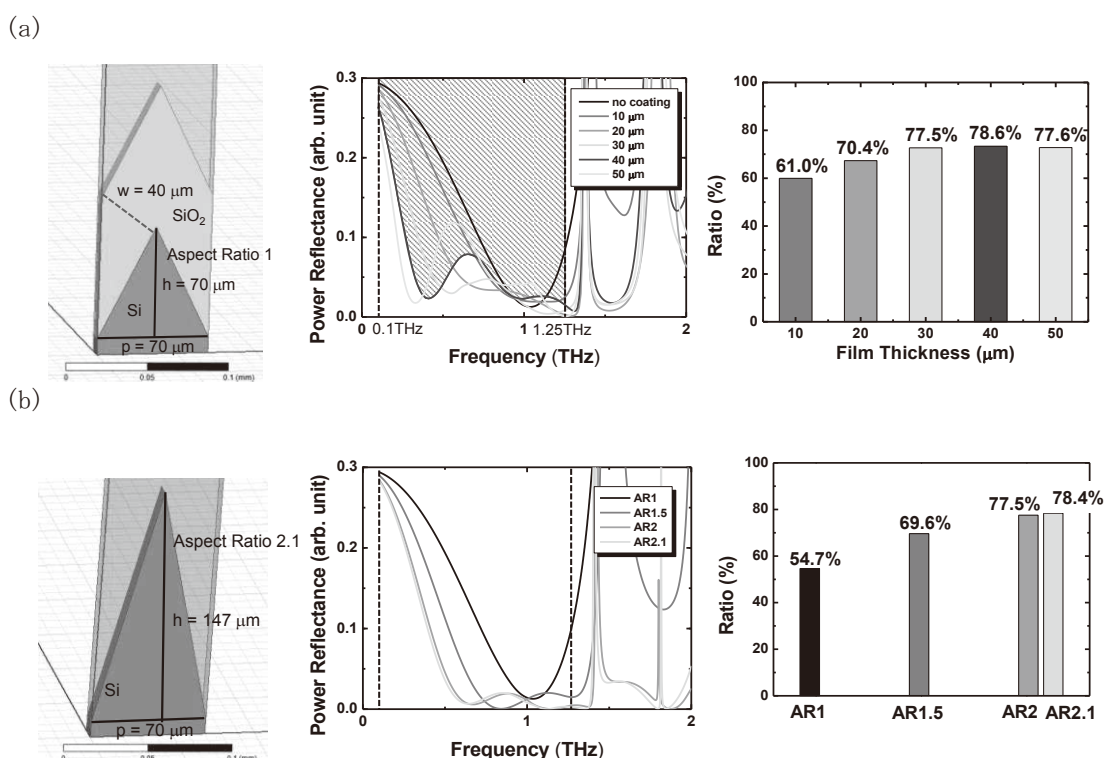


図3 (a) コーティングモスアイ構造のシミュレーションモデル、この構造が周期的に配列された表面のテラヘルツ波パワー反射スペクトル、未加工の平坦な表面に対する反射防止特性の改善度。(b) コーティングを施していないモスアイ構造のシミュレーションモデル、異なるアスペクト比のパワー反射スペクトル、未加工の平坦な表面に対する反射防止特性の改善度。

造のシミュレーションモデル、異なるアスペクト比のパワー反射スペクトル、未加工の平坦な表面に対する反射防止特性の改善度を示している。モスアイ構造のアスペクト比を大きくするほど、主に低周波側の反射率の改善が大きくなるため、反射防止特性の改善度は増加する。コーティングを施したものとコーティング無しとのモスアイ構造を比較すると、アスペクト比1のモスアイ構造に40 μm の厚みのコーティングを施したものと、アスペクト比2.1のコーティング無しのモスアイ構造の反射改善度がそれぞれ78.6%と78.4%であり、同程度になっていることが分かる。実際に表面にあらわれる凹凸の深さはコーティングモスアイの方が半分以下となり、機械的強度の改善も期待できる。

次にこれらのモスアイ構造の機械的強度の評価のため、突起の斜面に一定の力を加えた場合の、突起部の根本での応力計算をCOMSOLを用いた有限要素法によって行った。図4(a)(b)はそれぞれ、シリコン単結晶表面のアスペクト比1.0の凹凸構造に二酸化ケイ素でコーティングしたモスアイ構造とアスペクト比2.1のコーティングをしていないモスアイ構造の斜面のシミュレーションモデルであり、図4(c)は、図4(b)のモデルにおいてモスアイ構造の突起部の片側の斜面に1MPaの圧力を加えた場合の形状変化と応力分布の計算結果を示している。ただし、変形の度合いを分かりやすくするため変形倍率を100倍として表示しており、実際はここまでの変形は起こらない。図4(d)は、二つのモデルにおける応力集中が起きている突起底のエッジ部におけるミーゼス応力の比較を示しており、コーティングを施したモスアイ構造の方がコーティング無しのものに対して、ミーゼス応力が0.29倍と低くなっており、より破壊が起きにくい構造になっていることが分かる。これらの二つのモスアイ構造は上述したように、周波数帯域0.1~1.25THzにおける反射防止特性の改善度

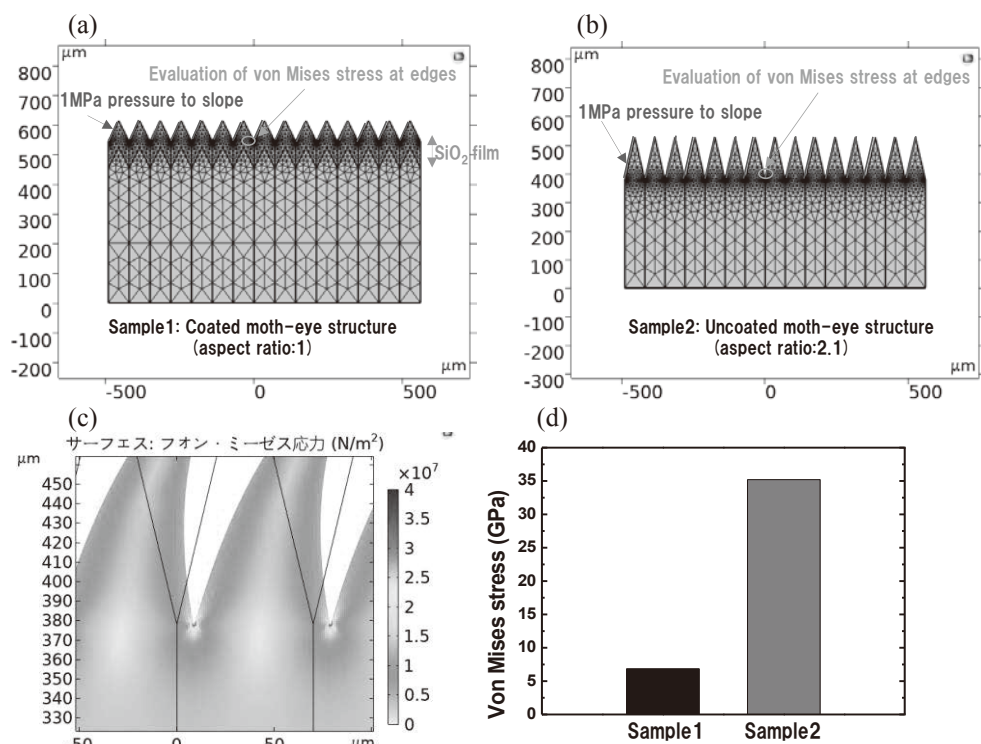


図4 (a) シリコン単結晶表面のアスペクト比1の凹凸構造に二酸化ケイ素でコーティングしたモスアイ構造と(b) アスペクト比2.1のコーティングをしていないモスアイ構造の斜面のシミュレーションモデル。(c)モスアイ構造の突起部の斜面に1MPaの圧力を加えた場合の形状変化と応力分布。ただし、変形の度合いを分かりやすくするため変形倍率を100倍とした。(d)応力集中が起きている突起底のエッジ部におけるミーゼス応力のコーティング有り無しのサンプルの比較。

は同程度であるにもかかわらず、コーティングモスアイ構造の方が非常に高い機械的強度を示している。

次にコーティングを施したモスアイ構造作製のために、まず超短パルスレーザーを用いた加工により、図5に示すような断面形状をシリコン単結晶基板表面に作製した。図5(a)と(b)のサンプルはどちらも溝加工の周期は約 $70\mu\text{m}$ で、アスペクト比はそれぞれ1.2と2.0である。溝深さは、加工に用いたレーザーの走査回数で

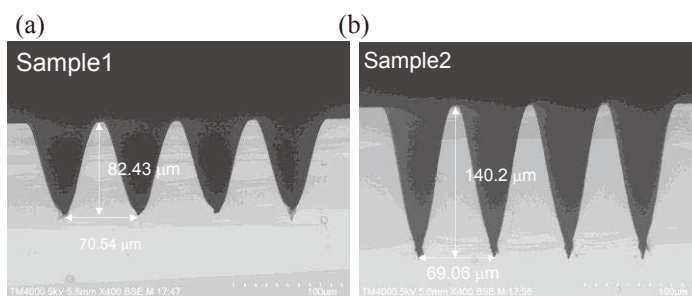


図5 (a)超短パルスレーザー加工によってシリコン単結晶基板上に作製した一次元モスアイ構造断面の電子顕微鏡像。アスペクト比はそれぞれ(a)1.2と(b)2.0。

制御している。当初の予定では、ここに二酸化ケイ素の粉末を焼結することでセラミックスのコーティングを施す予定であったが、焼結温度がシリコンの融点と近く、極めて精密で空間的に均一な温度制御をしない限り表面が変形してしまったため、マグネトロンスパッタによってコーティングの作製を行うこととした。また、目標とするコーティングの厚みがマイクロメートルオーダーであることから、テラヘルツ領域における屈折率が二酸化ケイ素の2.0に近く、さらにマグネトロンスパッタによる膜形成において堆積速度の大きい二酸化チタン(屈折率2.3)のコーティングに変更した。この二酸化チタンを図5(a)のサンプル(sample1)には、

4.47、8.94 μm の膜厚で、図5(b)のサンプル(sample2)には、2.43、3.40 μm の膜厚でコーティングしたサンプルを作製した。このサンプルに対して図6に示すテラヘルツ時間領域分解分光法を用いた透過及び反射スペクトルの測定を行った。テラヘルツ波を測定サンプルに集光照射し、サンプルを透過した後のテラヘルツ波の波形を時間分解計測し、その波形をフーリエ変換することにより周波数ごとの振幅と位相を得る分光法である。発生器及び検出器には同じダイポールアンテナを用いており、透過だけでなく反射したテラヘルツ波の検出も行うことができるため、透過及び反射スペクトルが得られる。

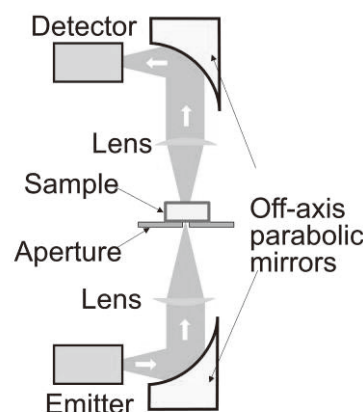


図6 テラヘルツ波の透過及び反射スペクトル評価装置。

3. 実験結果

図7にシリコン上に作製したモスアイ構造に二酸化チタンコーティングを施したサンプルのテラヘルツ波の透過及び反射スペクトル測定結果を示す。周波数0.5THzまでの低周波領域では、反射と透過の両方のスペクトルにおいて、コーティングしたすべてのサンプルがコーティング無しのサンプルよりも高い反射防止特性を示している。特にアスペクト比1.2のモスアイ構造に二酸化チタンコーティングを施したサンプルは、コーティングの膜厚が大きいことから、0.7THzまでの周波数領域において非常に高い反射防止改善度を示している。コーティングモスアイ構造の高周波帯域での反射特性の悪化については、二酸化チタンコーティング作製時に形成される酸素欠陥などによるテラヘルツ波吸収の影響が考えられる。我々は以前に酸化亜鉛単結晶への超短パルスレーザー

加工において、加工面における欠陥形成を電子線励起発光分光によって明らかにしており、この欠陥とテラヘルツ波の吸収に関係があることを見出している12)。そのため、二酸化チタンにおいても同様の現象が起こることが予測されるが、これは、コーティング形成後に熱アニール処理を行うことで欠陥を減少させ、テラヘルツ波の吸収を低減できる可能性がある。

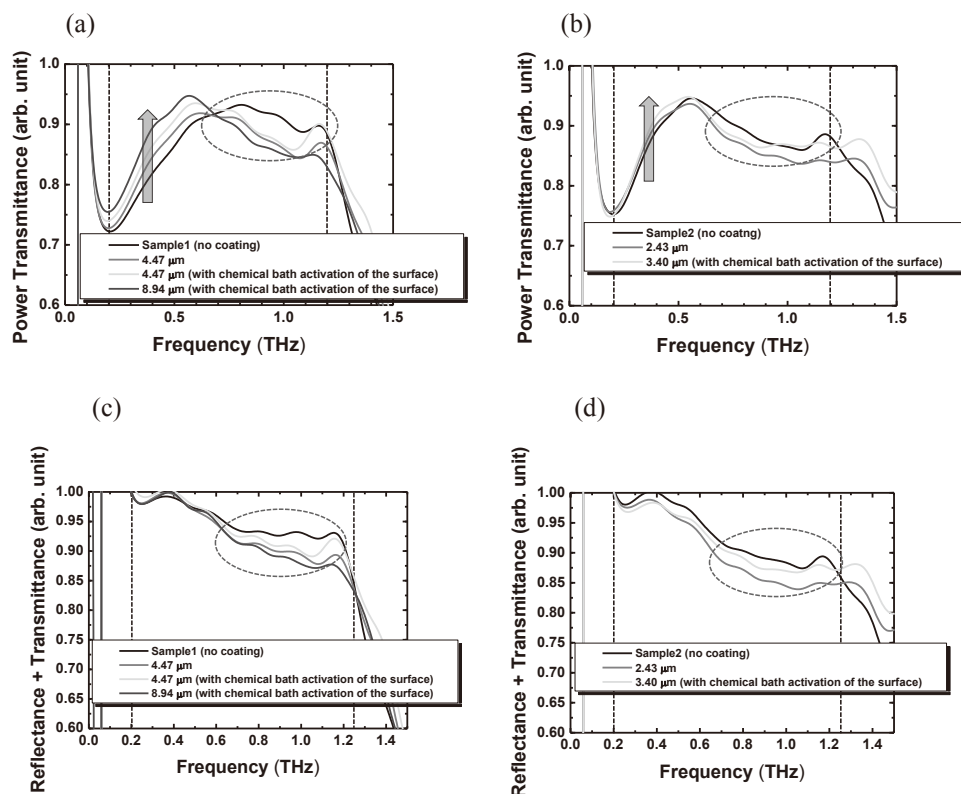


図7 アスペクト比1.2のモスアイ構造およびこれに二酸化チタンコーティングを施したサンプルの(a)パワー透過スペクトルと(b)パワー反射スペクトル。アスペクト比2.0のモスアイ構造およびこれに二酸化チタンコーティングを施したサンプルの(c)パワー透過スペクトルと(d)パワー反射スペクトル。

次に、初期の構造設計時と異なり、レーザー加工によってより滑らかな構造が形成されたため、図8(a)(c)に示すような実際に作製したモスアイ構造の二酸化チタンでコーティングしたモスアイ構造の断面形状を電子顕微鏡像からトレースしたHFSSモデルを作成した。図8(a)(c)のモデルのアスペクト比はそれぞれ1.2と2.0である。図8(b)(d)は、これらのモデルをもとに計算したパワー反射スペクトルと実際に測定した結果から求めた反射スペクトルであり、どちらもコーティングを施すことによる広い帯域での反射率低減が確認できる。また、パワー反射スペクトルの測定値を破線で、計算値を実線で示しており、測定結果は、計算値よりも広い周波数帯域での反射率の低減ができていていることを示している。計算では、二酸化チタン単結晶の屈折率を用いているが、二酸化チタンコーティングの密度が単結晶よりも低く、これに伴って屈折率も低減したため、反射防止効果の向上につながった可能性がある。また、超短パルスレーザー加工及び二酸化チタンコーティングの際に、単結晶シリコン表面が酸化され、屈折率が低い層の厚みが想定よりも厚くなったために、反射率が計算値よりも低下した可能性もあげられる。

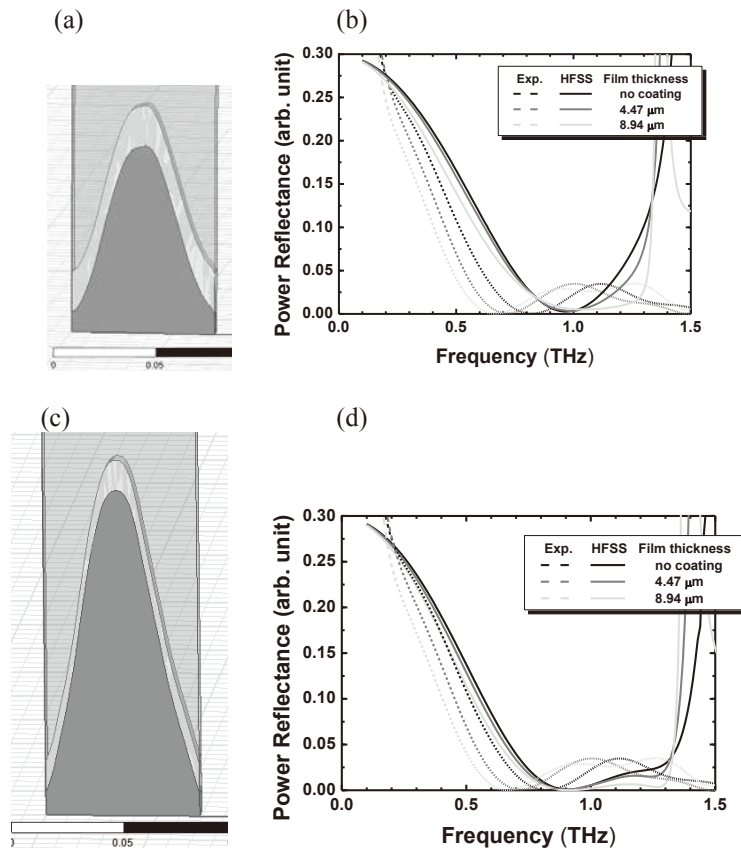


図8 (a) 二酸化チタンでコーティングしたアスペクト比1.2のモスアイ構造のHFSSシミュレーションモデル。(b)(a)のモデルをもとに計算したパワー反射スペクトルと実際に作製したサンプルを評価した結果得られたパワー反射スペクトル。(c) 二酸化チタンでコーティングしたアスペクト比2.0のモスアイ構造のHFSSシミュレーションモデル。(d)(c)のモデルをもとに計算したパワー反射スペクトルと実際に作製したサンプルを評価したパワー反射スペクトル。

4. まとめ

本研究は、テラヘルツ領域で用いられる光学材料の表面にモスアイ構造を作製し、さらにコーティングを施すことによって反射防止特性と機械的強度の改善を可能にした。コーティング材料に光学材料よりも低屈折率材料を用い、これを厚膜として堆積することで、空気とシリコン間の屈折率変化をゆるやかにすることができ、特に低周波数帯での反射防止特性を向上させた。一般的に、モスアイ構造は高アスペクト構造にするほど反射防止特性が改善されるが、低アスペクト比の構造でもコーティング形成によって、倍以上のアスペクト比を持つ構造と同程度の反射防止性能を示すことを証明した。これは、機械的強度の高い低アスペクト構造のまま、反射防止特性の改善ができていないことを示す。テラヘルツ帯において用いられる光学材料には、シリコンや砒化ガリウムなどの脆性材料も多いが、この構造を用いることで、振動などによる破損の恐れのない反射防止表面形成が可能になった。これは、次世代高速通信(6G)をはじめ、自動運転における車両間通信や遠隔手術などへの貢献が期待できる。

参考文献

- 1) M. Giordani, M. Polese, M. Mezzavilla, S. Rangan, and M. Zorzi: IEEE Commun. Mag. 58 (2020) 55.
- 2) J. Wang, Q. Sun, R. I. Stantchev, T.-W. Chiu, A. T. Ahuja, and E. Pickwell-MacPherson,

- Biomed: Opt. Express **10** (2019) 3584.
- 3) H. Wang, S. Tsuchikawa, and T. Inagaki: Cellulose **28** (2021) 5293.
 - 4) Y. W. Chen and X. C. Zhang: Front. Optoelectron. **7** (2014) 243.
 - 5) S. I. Kuroo, S. Oyama, K. Shiraishi, H. Sasho, and K. Fukushima: Appl. Opt. **49** (2010) 2806.
 - 6) X. Yu, M. Ohta, N. Takizawa, K. Mikame, S. Ono, and J. Bae: Appl. Opt. **58** (2019) 9595.
 - 7) X. Yu, J. Bae, and S. Ono: *Proc. 44th IRMMW-THz, Paris, France 2019* (IEEE, 2019) p.1-2.
 - 8) X. Yu, Y. Yasunaga, K. Goto, D. Liu, and S. Ono: Opt. Lasers Eng. **142** (2021) 106584.
 - 9) S. Ono, “Functional surface formation by ultrashort pulse laser processing,” New Zealand Institute of Physics 2023 Conference (2023).
 - 10) 三浦悠杜, 余希, 前川覚, 糸魚川文広, 小野晋吾, “テラヘルツ波用Siモスアイとコーティング構造による性能改善,” 2023年応用物理学会スチューデントチャプター東海地区学術講演会 (2023) B2.
 - 11) 小野晋吾, 余希, Verdad C. Agulto, 中嶋誠, 劉曉旭, 前川覚, 糸魚川文広, “短パルスレーザーを用いた機能表面形成,” レーザー学会学術講演会第44回年次大会 (2024) D04-18a-X-01.
 - 12) X. Yu, F. Itoigawa, and S. Ono, Micromachines, **12** (2021) 596.