

まとめ

$$\begin{cases} \Delta_1^2 - \Delta_2^2 = \alpha^2 \left\{ \frac{n_{||}^2 - k_{||}^2}{(\varepsilon_1'')} - \frac{\sin^2 \phi_0}{|\tilde{\varepsilon}^\perp|^2} (\varepsilon_1'' \cdot \varepsilon_1^\perp + \varepsilon_2'' \cdot \varepsilon_2^\perp) \right\} \\ 2\Delta_1 \Delta_2 = \alpha^2 \left\{ \frac{2n_{||} k_{||}}{(\varepsilon_2'')} - \frac{\sin^2 \phi_0}{|\tilde{\varepsilon}^\perp|^2} (\varepsilon_2'' \varepsilon_1^\perp - \varepsilon_2^\perp \varepsilon_1'') \right\} \end{cases}$$

異方性 ($\tilde{\varepsilon}^\perp$ の奇数) は 位相項の第2項にのみ現れる。

(第2項が無ければ、 $\Delta_1 = \alpha n_{||}$ 、 $\Delta_2 = \alpha k_{||}$ が直ちに得られる。)

⇒ 従って異方性は第1項の奇数の小さい所で顕著。

⇒ ε_1'' と ε_2'' が min. なエネルギーとは? ($\hbar\omega_p$!!)

斜入射による p-波のスペクトルには $\hbar\omega_p$ の位置に $\tilde{\varepsilon}^\perp$ の奇数が (見かけ上) 大きく現れる。(斜入射による縦波モードの観測!)

▷ 結局斜入射スペクトルから逆に n_\perp, k_\perp が解ければ良いのだが..... (ちよと難しそう)

参考文献

- Heavens 薄膜の光学的性質
- Born・Wolf 光学の原理
- 工藤・上原 基礎光学
- 吉田 薄膜
- 問題を色々提起してくれた S 森君、とりとめのよい議論につまってくれた O 串君に感謝します。

楢田偏光解析の方が簡単らしい

学位請求論文

Dissertation

層状ニッケル酸化物単結晶薄膜の金属絶縁体転移

Metal-Insulator Transition
in Single-Crystalline Films of Layered Nickellate

篠森重樹

S. Shinomori

東京大学

University of Tokyo

2001

2-4 光学測定

2-4-1 測定方法

光学伝導度スペクトル $\sigma(\omega)$ を得るには、反射率スペクトル $R(\omega)$ と透過率スペクトル $T(\omega)$ の両方が必要のため、双方の測定を行った。測定は顕微鏡付きのフーリエ変換赤外分光器(中赤外)、回折格子分光器(近赤外・可視・紫外)を使用した。光源としては、中赤外ではグローバルランプ、近赤外・可視ではハロゲンランプ、紫外ではキセノンランプを使用した。検出器としては、中赤外では HgCdTe、近赤外では InAs、可視・紫外では Si を使用した。反射リファレンスとしては、紫外で Al を、それ以外の領域では Ag を用いた。それぞれの領域のエネルギー域は、中赤外(0.2-0.8eV)、近赤外(0.6-1.5eV)、可視(1.2-3eV)、紫外(2.4-5eV)である。ただし、低エネルギー側は基板のフォノンによる吸収、高エネルギー側はバンド間遷移による吸収で制限を受ける。基板の透過範囲は LSAT, LSAO とも、おおよそ 0.2-4.5eV である。低温測定を行う場合は、クライオスタットとして Oxford のマイクロスタットを利用した。その際光学窓としては、中赤外で BaF₂(KRS5)、近赤外・可視・紫外では石英(BaF₂)を用いた。

透過リファレンスとしては、(薄膜のついていない)裸の基板を用いるわけであるが、薄膜の一部を酸でエッチングして使うか、デポするときに、あらかじめ基板の一部を覆って薄膜が堆積しないところを作っておいて、そこをリファレンスとして利用する。これは、酸化物基板は、微量の不純物・欠陥により、着色しており、その着色具合が種々の条件により異なるからである。精度の高い測定をするには、基板の可視領域における吸収をできるだけキャンセルする必要がある。

試料は片面研磨基板に成長しているので、透過スペクトル測定のために、裏面を研磨しなくてはならない。まず、薄膜を保護するためには、すでに感光してしまったレジストを表面に塗り、約 80°C で乾燥させる。その後、サンドペーパーで裏面の銀ペーストをよく落として、アルミナパウダーに水を混ぜて、研磨をする。水の変わりにエタノールを使うと当然のごとくレジストが解けてしまうので意味が無い。研磨が終わったら、アセトンでレジストを落とす。

a 軸配向膜では偏光測定を行う。その際、偏光子としては、中赤外では BaF₂ のワイヤグリッド偏光子を用いた。KRS5 のワイヤグリッド偏光子は波長域が長い(もっとも、長波長側は基板の透過で決まってしまうが)、偏光が混じるため、LSNO のように異方性が大きい場合、それが深刻である。近赤外・可視・紫外では Calcite 偏光子を使った。

2-4-2 光学伝導度の算出

バルク結晶の場合、その光学定数を得るには、反射率スペクトル $R(\omega)$ を測定し、測定で

きないエネルギー領域を適当な方法で外挿したうえで、Kramers-Kronig (K-K) 解析を行うわけである。薄膜結晶の場合も、基板からの戻り光が無視できるくらい厚く(通常 10000 Å 以上)堆積して、バルク結晶と同様な方法で光学定数を求めるという手もあるが、1000 Å 程度の薄膜の場合は通常、反射率スペクトル $R(\omega)$ と透過率スペクトル $T(\omega)$ を測定して、一義的に光学定数を求める方法がとられる。この方法の利点は、測定したエネルギー範囲のみで光学定数を算出できることであり、K-K 解析におけるような外挿の恣意性を排除できることにある。なお、この方法では $T(\omega)$ を測定するため、基板が不透明な領域では光学定数を求めることができない。したがって、低エネルギー側($E < 0.2$ eV)は基板のフォノンの吸収で制限され、高エネルギー側($E > 5$ eV)はバンド間遷移によって制限を受ける。測定できる範囲はおおむね 0.2 eV < E < 5 eV ということになる。以下にこの手続きを簡単に示す。

最終的にやるべきことは、図 2-8 (a) に示したような薄膜および基板からなる二層膜系の反射係数 r および透過係数 t を空気、薄膜、基板の光学定数(n_0, n_1, n_2)、薄膜、基板の厚さ(d_1, d_2)であらわすことである。それぞれの層境界では、フレネル係数(r_{ij}, t_{ij}) ($i, j = 0, 1, 2$) が定義できる。 r_{ij}, t_{ij} はフレネル公式により、 n_i で記述できる。

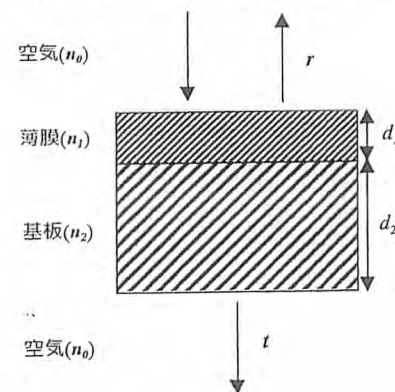


図 2-8 (a) 薄膜および基板からなる二層膜系。有効フレネル係数の方法を用いて、反射係数 r 、透過係数 t を求める。

ここでとりあえず基板の厚さ d_2 を ∞ として、単層膜系だと思つと、薄膜内の多重反射を考慮に入れた r, t (図 2-8 (b)) は、各層境界におけるフレネル係数(r_{ij}, t_{ij}) を用いて、簡単な計算から次のように得られる。

$$r = \frac{r_{01} + r_{12}e^{-2i\delta_1}}{1 + r_{01}r_{12}e^{-2i\delta_1}} \quad (2-1)$$

$$t_2 = \frac{t_{01}t_{12}e^{-i\delta_1}}{1 + r_{01}r_{12}e^{-2i\delta_1}} \quad (2-2)$$

$$\delta_1 = \frac{2\pi}{\lambda} n_1 d_1 \quad (2-3)$$

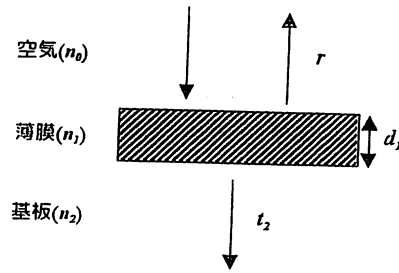


図2-8(b) 薄膜だけの単層膜と考えたときの反射係数 r 、透過係数 t_2 を求める。

実際には d_2 は有限であり、二層膜系である。多層膜の反射係数および透過係数を求める有効な方法のひとつとして「有効フレネル係数」の方法がある。これは下(上)の層からの反射(透過)を逐次、上(下)の層の反射(透過)係数にとりこんでいく方法である。ここで薄膜の中から基板へ入射したと考えたときの r_2, t は、(2-1)~(2-3)で添え字を $0 \rightarrow 1, 1 \rightarrow 2, 2 \rightarrow 0$ と書き直したものに過ぎない(図2-8(c))。

$$r_2 = \frac{r_{12} + r_{20}e^{-2i\delta_2}}{1 + r_{12}r_{20}e^{-2i\delta_2}} \quad (2-4)$$

$$t = \frac{t_{12}t_{20}e^{-i\delta_2}}{1 + r_{12}r_{20}e^{-2i\delta_2}} \quad (2-5)$$

$$\delta_2 = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 d_2 \quad (2-6)$$

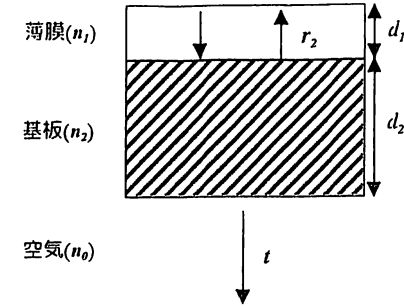


図2-8(c) 薄膜の中から、基板へ入射した光に対する反射係数 r_2 、透過係数 t を求める。

求めるべき r, t は(2-1), (2-5)の r_{12}, t_{12} を(2-4), (2-2)の r_2, t_2 で置き換えたものとなる。これで r, t は求まり、 n_0, n_1, n_2 および d_1, d_2 で書けるはずであるが、最後に有力な近似を行う。今の実験の範囲では、 $\lambda \ll d_2$ であるので、基板内での干渉効果は無視できる。したがって、基板の光学定数の位相因子が入った干渉項(\cos, \sin)はすべて落とせる($=0$ とできる)。また、実際の透過率測定では、リファレンスとして、裸の基板を使うので、基板の吸収(通常それほどないが、若干ある)はキャンセルすることになる。したがって、基板の光学定数 n_2 のうち、虚部の消衰係数 k_2 を無視する。こうして式を簡略化すると、 r, t は $n_0, n_1, n_2 (=n_0)$ および d_1 で次のように書ける。ただし、添え字 1 は省略してある。結果のみ示す。

$$R = |r|^2 = \frac{A}{B} \quad (2-7)$$

$$T = |t|^2 = \frac{C}{B} \quad (2-8)$$

ここで、

$$A = a_1 e^{2\Delta_1} + b_1 \cos 2\Delta_1 + c_1 \sin 2\Delta_1 + f_1 e^{-2\Delta_1} \quad (2-9)$$

$$B = a_2 e^{2\Delta_1} + b_2 \cos 2\Delta_1 + c_2 \sin 2\Delta_1 + f_2 e^{-2\Delta_1} \quad (2-10)$$

$$C = a \quad (2-11)$$

ただし、

$$\begin{aligned} \Delta_1 &= \frac{2\pi}{\lambda} nd \\ \Delta_2 &= \frac{2\pi}{\lambda} nkd \end{aligned} \quad (2-12)$$

$$\begin{aligned} a_1 &= [(n-1)^2 + k^2] \cdot [(n_s^2 + 1)(n^2 + k^2 + n_s^2) + 4nn_s^2] \\ a_2 &= [(n+1)^2 + k^2] \cdot [(n_s^2 + 1)(n^2 + k^2 + n_s^2) + 4nn_s^2] \\ b_2 &= -2 \cdot [(n_s^2 + 1)(n^2 + k^2 - 1)(n^2 + k^2 - n_s^2) + 8k^2n_s^2] \\ b_2 &= -2 \cdot [(n_s^2 + 1)(n^2 + k^2 - 1)(n^2 + k^2 - n_s^2) - 8k^2n_s^2] \\ c_1 &= 4k \cdot [-(n_s^2 + 1)(n^2 + k^2 - n_s^2) + 2n_s^2(n^2 + k^2 - 1)] \\ c_2 &= 4k \cdot [(n_s^2 + 1)(n^2 + k^2 - n_s^2) + 2n_s^2(n^2 + k^2 - 1)] \\ d_1 &= [(n+1)^2 + k^2] \cdot [(n_s^2 + 1)(n^2 + k^2 + n_s^2) - 4nn_s^2] \\ d_2 &= [(n-1)^2 + k^2] \cdot [(n_s^2 + 1)(n^2 + k^2 + n_s^2) - 4nn_s^2] \\ a &= 32n_s^2(n^2 + k^2) \end{aligned} \quad (2-13)$$

以上により、

$$\begin{aligned} R(n, k, d) &= R(\text{測定値}) \\ T(n, k, d) &= T(\text{測定値}) \end{aligned} \quad (2-14)$$

が求まる。これを Newton-Raphson 法で解くわけである。

実際の例を示そう。図2-9(a)は測定で得られた $R(\omega)$ 、 $T(\omega)$ である。ここで注意を要

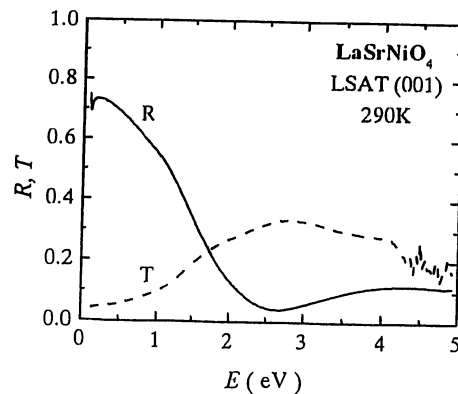


図2-9(a) 測定した反射率スペクトル $R(\omega)$ と透過率スペクトル $T(\omega)$

するのは、実際の透過率測定では、リファレンスとして、裸の基板を使っているので、真の $T(\omega)$ を求めるには、基板の反射率スペクトル $R_s(\omega)$ を測定しておいて、 $(1 - R_s(\omega))$ を測定した生のスペクトルに掛けてやらなくてはならない。図2-9(a)に示されている $T(\omega)$ はこのようにして補正されたものである。図2-9(b)には上の計算を経て得られた $n(\omega)$ 、 $k(\omega)$ である。 $n_s=2$ として計算した。図2-9(c)には $\sigma(\omega) = \omega n(\omega)k(\omega)/2\pi$ で得られる光学伝導度を示した。

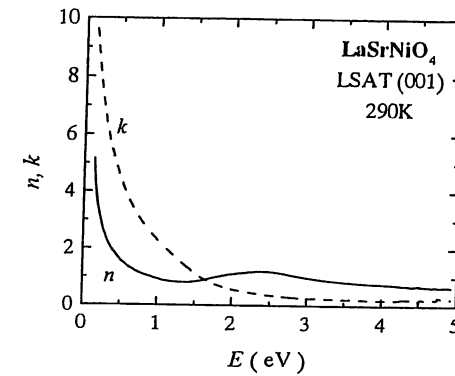


図2-9(b) 計算で得られる屈折率 $n(\omega)$ と消衰係数 $k(\omega)$

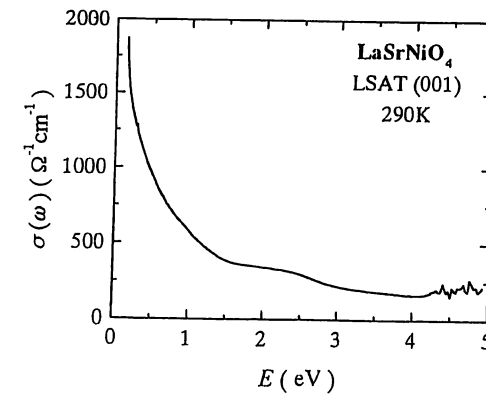


図2-9(c) 光学伝導度 $\sigma(\omega)$

2-5 参考文献

- [2-1] 田沼静一・家康弘編、高温超伝導体とエキゾチック超伝導体、共立出版
- [2-2] 山本、内藤、佐藤、固体物理 33, 463 (1998).
- [2-3] R. J. Cava, B. Batlogg, T. T. Palstra, J. J. Krajewski, W. F. Peck, J., A. P. Ramirez, and L. W. Rupp, Jr., Phys. Rev B 43, 1229 (1991).