

博士学位論文審査要旨

2019年1月22日

論文題目： 高周波コヒーレントフォノン励起による Brillouin 散乱光の強度改善に関する研究

学位申請者： 川部 昌彦

審査委員：

主査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 松川 真美

副査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 戸田 裕之

副査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 小山 大介

要 旨：

近年、微細化技術の進歩に伴って局所領域の物性評価が可能な計測手法の重要性が高まっている。そこで本論文では Brillouin 散乱法に着目し、工業計測への応用を目指して非接触かつ非破壊で薄膜中の縦波・横波音速を局所的に測定する計測技術の開発を目指している。特に Brillouin 散乱光が微弱である欠点の解決を試み、測定対象試料中にコヒーレントフォノンを励起することによって Brillouin 散乱光強度を大幅に改善するとともに、簡便な測定システムの構築を目指している。

まず、本論文では現状の Brillouin 散乱法の特長や応用例および問題点の分析を行い、解決策としてフォノン励起手法の検討を進めている。そして数百 MHz から数 GHz のフォノンを人工的に励起するために、ScAlN 等を用いた超音波トランスデューサを採用し、石英ガラス試料中でのフォノン励起に成功している。この手法により熱フォノンの約 8,600 倍（縦波）もの散乱光強度の改善と、文献値と比較して音速誤差 0.02×10^3 m/s におよぶ高確度測定を実現している。また、トランスデューサの工夫により、縦波・横波フォノンの同時励振と計測にも成功し、音速が未知の新材料でも迅速に局所評価を可能としている。より簡便な音速の局所測定を目指して、高い散乱光強度を生かした測定用干渉計システムの分光手法の簡略化にも取り組むとともに、トランスデューサのモジュール化をすすめ、試料を非破壊で測定できることも確認している。また分光システムのさらなる簡略化にむけて、光ビート分光への展開を図り、試料からの弾性散乱光によるビート信号計測にも成功している。

本研究の成果はこれまで物性計測の一手法であった Brillouin 散乱法を工業用非破壊材料計測手法として展開する試みとして高く評価できる。よって、本論文は、博士（工学）（同志社大学）の学位論文として十分な価値を有するものと認められる。

総合試験結果の要旨

2019年1月22日

論文題目： 高周波コヒーレントフォノン励起による Brillouin 散乱光の強度改善に関する研究

学位申請者： 川部 昌彦

審査委員：

主査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 松川 真美

副査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 戸田 裕之

副査： 同志社大学大学院理工学研究科 教授 小山 大介

要 旨：

本論文の提出者は同志社大学大学院理工学研究科電気電子工学専攻博士課程前期課程を2010年3月に修了し、2013年4月に本学理工学研究科電気電子工学専攻博士課程後期課程に入学し、現在在籍中である。

本論文の主たる内容は IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq. Contr., Vol. 65, No. 10, pp.1882-1887 (2018)と2015年および2016年の IEEE International Ultrasonics Symposium Proceedings に掲載済みであり、すでに十分な評価を得ている。2019年1月12日午前10時より1時間45分にわたり、提出論文に関する博士論文公聴会が開かれた。講演後種々の質疑が行われたが、提出者の説明により十分な理解が得られた。公聴会終了後、審査委員による学力確認のための口頭試験を実施したところ、論文提出者の十分な学力を確認することができた。また、博士課程在学中に第一著者として国際会議で4件の英語の発表を行ったほか、上述の論文に加えて第一著者として Japanese Journal of Applied Physics 誌、アメリカ音響学会誌にも英文論文を掲載し、語学試験にも合格しており、高い英語能力を有するものと認められる。以上より、論文提出者の専門分野における学力ならびに語学力は十分であることが確認された。よって総合試験の結果は合格と認める。

博士學位論文要旨

論文題目： 高周波コヒーレントフォノン励起による Brillouin 散乱光の
強度改善に関する研究

氏名： 川部 昌彦

要旨：

近年、情報機器の高度化により、CPU や各種 LSI の薄膜・小型化に対する要求が増している。これを受けて半導体プロセスの微細化や薄膜化といった開発が日進月歩で進んでいる。新たな材料開発の場合、新規材料の基本的な物性を詳細に評価する必要があるほか、製品品質を維持するために製造工程で生じた欠陥の有無を非破壊で検査する必要がある。このため、微細化技術の進歩に伴って局所領域の物性評価が可能な計測手法の発展も重要性が増してきている。

Brillouin 散乱法は、物質内の熱的な格子振動であるフォノン（熱フォノン）により、入射した光（フォトン）のエネルギーが変化し、周波数がシフトする非弾性散乱現象のことであり、この現象を利用して非破壊・非接触でかつ局所領域の音速測定が可能である。光を集束することにより局所的な材料の音速や弾性、弾性特性を求めることができる。しかし、Brillouin 散乱法は材料中の熱フォノンに起因する光散乱のため散乱光は非常に微弱である。このため、他の超音波トランスデューサ法などによる材料の音速や弾性特性測定法と比較して、長時間の測定が必要で測定精度も低くなるという問題があった。

本研究ではこれらの問題の解決を試みる。具体的には試料の外部から人工的にコヒーレントフォノンを励起することによって Brillouin 散乱光強度を改善し、より簡便かつ測定対象の広い測定システムの構築を目指して検討を行った。さらに、上記の手法で非常に強い Brillouin 散乱光強度が得られることによって、光ビート分光法の適用を試みた。この手法は、2種類の異なる周波数の光をビートさせることによって差分周波数をフォトディテクタで検出する方法である。これによって、測定試料を選ばず、Fabry-Pérot 干渉計（TFPI）を用いない Brillouin 散乱光測定システムの構築を目指した。

以下に本論文の構成について述べる。

第1章では、Brillouin 散乱法の特長や応用例および問題点について紹介する。さらに、本論文の目的と既存測定システムの改善に向けた取り組みについて述べた。

第2章では、本研究全般を通して用いた光散乱の一つである Brillouin 散乱についての原理と一般的に用いられる干渉計を用いたスペクトルの測定手法について紹介した。

第3章では、従来の Brillouin 散乱光の測定手法で問題となっていた散乱強度を改善するための方法として、フォノン励起について述べた。測定材料が有する熱フォノンだけでなく材料の外部から人工的にフォノンを励起し、フォトンとの相互作用に寄与する因子を増幅することによって実現した。本研究ではフォノンを人工的に励起するために、GHz 領域の超音波を発生させることができる圧電薄膜トランスデューサを用いた。特に圧電材料として古くから用いられている ZnO、近年強い圧電性を示すことが報告され極めて優れた電気機械結合係数を有する ScAlN を用い、これらの特長についても言及した。

第4章では、圧電薄膜トランスデューサを用いて人工的にフォノンを励起させ、Brillouin 散乱光強度の改善を試みた結果について述べた。トランスデューサの材質には ScAlN を採用し、フォノンの励起の有無によるピーク強度改善率について基礎的な評価を行った。この結果、縦波音波については、フォノンを励起しない場合に比べ、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサでフォノンを励起した場合は約 8,600 倍の改善が確認できた。また、測定されたピークのシフト周波数よ

り縦波音速は 6.00×10^3 m/s と算出され、報告値と比較して音速誤差は 0.02×10^3 m/s と 1% 以下を実現した。この音速誤差はレーザ光の入射角度の設定誤差に由来するものと考えられる。実際に試料を測定する場合は、レーザ光の入射角を変化させ、散乱光強度が最も大きくなる入射角度を記録し、この角度から未知材料の音速を算出することができる。一方で、横波音波についてはフォノンを励起しない場合に対し、励起した場合は約 970 倍改善した。

第 5 章では、第 4 章のフォノン励起の概念を応用し、様々なフォノン励起手法について検証を試みたのでその結果について述べた。第 4 章で行った基本的な励起手法は Brillouin 散乱光強度の改善を第一目標としていたため、音波の励振に取り扱いの難しい高周波プローブを利用したり圧電薄膜を成膜できる材料にしか適用できないといった問題点も明らかになった。本章では、これらの問題点に対する解決を目指して検討を行った。

(1) 縦波・横波同時励起による材料物性評価

第 4 章で用いた手法では励振する周波数が変われば、その都度レーザの入射角度を変更しなければならない。そこで、ここでは ScAlN 圧電薄膜トランスデューサに広帯域のチャープ信号を印加することによって、レーザの入射角度を固定した状態で縦波・横波音波の同時励振を試みた。励起後の Brillouin 散乱光強度は縦波で約 350 倍、横波で約 95 倍まで改善した。従って、本手法では未知材料の縦波・横波音波のおおよその音速を瞬時に確認することが可能となった。ただし、励起することによってシフト周波数はわずかにずれた。これは、圧電薄膜トランスデューサの挿入損失の周波数特性の問題と思われる。正確な音速を算出するためには次のステップとして単一周波数でレーザの入射角度を変化させる、という二段階の計測が必要であることが確認された。

(2) 共焦点 Fabry-Pérot 干渉計を用いた励起の検証

ScAlN 圧電薄膜トランスデューサで Brillouin 散乱光強度を大幅に改善できたことから、TFPI 以外での分光器を用いてスペクトル測定を試みた。本研究では共焦点 Fabry-Pérot 干渉計(CFPI)を用いた。CFPI は非常に取扱いは容易な分光器であるが、検出感度や周波数分解能に劣る。しかし、石英ガラス中に縦波音波のフォノンを励起することにより CFPI で検出できる Brillouin 散乱光ピークが観測できた。ただし、縦波より弱い横波音波は確認できなかった。また、定量的な計測により CFPI で Brillouin 散乱光ピークを観測するためには、熱フォノンより約 2,200 倍以上の光強度改善が必要であることがわかった。

(3) 同軸共振器を用いた非接触フォノン励起

薄膜電極を利用した手法では電極性膜や配線など測定試料の加工が必要となる。そこで、電極不要な励起を行うために同軸共振器を用いて圧電薄膜に非接触で電界を印加する手法を試みた。同軸共振器の先端から漏洩するエバネッセント波を利用して圧電薄膜に電界を印加した。この結果、励起後の Brillouin 散乱光強度は縦波で約 1,100 倍改善した。本手法は複雑なトランスデューサ構造も不要で、レーザの入射角度の調整や、2次元分布測定などが容易にできることが確認できた。

(4) トランスデューサのモジュール化

圧電薄膜が成膜できない材料中にフォノン励起を行うために、測定試料から独立したトランスデューサによって散乱光強度の改善を試みた。本実験では石英ガラス基板上に ZnO 圧電薄膜を成膜した。このトランスデューサを接触媒質を介して測定試料(石英ガラス、アクリル樹脂)に接続し、フォノンの励起を試みた。石英ガラスの測定試料では、フォノン励起によって縦波の散乱光強度が約 4,000 倍改善した。アクリル樹脂の測定試料では縦波の散乱光強度が約 6.7 倍に改善した。これより、接触媒質を介して独立したトランスデューサからフォノンを励起しても Brillouin 散乱光強度を改善できることを確認した。

第 6 章では、光ビート分光法への応用について述べた。人工的に励起したフォノンにより増大した Brillouin 散乱光強度を利用して干渉計不要のシステム構築を進めた。音響光学変調器

(AOM)により周波数シフトされた参照光と、測定試料からの散乱光を重畳し、フォトダイオードで受光した後、周波数を解析する。本手法では、参照光と弾性散乱光間でビート信号が確認された。これにより、今後システムの高度化により Brillouin 散乱光もビートが観測される可能性が示された。

第7章では、各章の総括、本論文のまとめと、今後の課題、展望について述べた。

本研究では、圧電薄膜を用いてコヒーレントなフォノンを励起させることで、Brillouin 散乱光強度の大幅な改善が確認され、測定の時間短縮及び精度改善の可能性を示した。また、本研究で組み立てた光ビート分光法を用いて干渉計不要のシステム構築を進めた。今後は圧電薄膜トランスデューサの高度化等により光ビート分光法の Brillouin 散乱測定への応用が期待される。