

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

平成30年11月

川部 昌彦

(同志社大学 大学院 理工学研究科)

目次

第 1 章	はじめに	1
1.1.	研究の背景	1
1.2.	研究の目的	2
1.3.	本論文の構成	4
第 2 章	Brillouin 散乱法	10
2.1.	光散乱現象	10
2.2.	Brillouin 散乱光による音速測定	12
2.3.	散乱配置	16
2.3.1	180° 散乱配置	16
2.3.2	90R 散乱配置	17
2.3.3	90A 散乱配置	18
2.3.4	Reflection Induced Θ Angle (RIOA) 散乱配置	20
2.4.	Brillouin 散乱光の測定	22
2.4.1	Fabry-Pérot 干渉計	22
2.4.2	タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計 (TFPI)	25
2.4.3	共焦点 Fabry-Pérot 干渉計 (CFPI)	30
2.4.4	Brillouin 散乱スペクトルの解析	33
2.5.	まとめ	34
第 3 章	フォノン励起による散乱	37
3.1.	フォノンの励起原理	37
3.2.	フォノン励起用トランスデューサの検討	39

3.2.1	ZnO 薄膜	41
3.2.2	ScAlN 薄膜	42
3.3	まとめ	44
第4章	圧電トランスデューサを用いたコヒーレントフォノン励起...	47
4.1	目的	47
4.2	測定試料と実験光学系	47
4.3	縦波フォノンの励起	55
4.4	横波フォノンの励起	61
4.5	まとめ	63
第5章	材料物性評価のための計測手法の検討	66
5.1	縦波・横波同時励起による材料物性評価	66
5.1.1	目的	66
5.1.2	測定試料および実験方法	66
5.1.3	チャープ信号によるフォノンの励起	68
5.2	共焦点 Fabry-Pérot 干渉計を用いた励起の検証	70
5.2.1	目的	70
5.2.1	測定試料および実験方法	70
5.2.2	縦波フォノンの励起	72
5.2.3	横波フォノンの励起	75
5.3	同軸共振器を用いた非接触フォノン励起	77
5.3.1	目的	77
5.3.2	測定試料および実験方法	77
5.3.3	フォノン励起	79

5.4. トランスデューサのモジュール化	83
5.4.1 目的	83
5.4.2 脱着可能な ZnO 圧電薄膜トランスデューサ	83
5.4.3 実験方法	86
5.4.4 フォノン励起	88
5.5. まとめ	92
第6章 より簡便な光散乱測定を目指して	96
6.1. 光ビート法の原理	96
6.2. 光ビート法による Brillouin 散乱光の観測	98
6.2.1 目的	98
6.2.2 測定試料および実験系	99
6.2.3 光ビート信号の観察	102
6.2.4 散乱光の強度と光ビート振幅の関係性	103
6.3. まとめ	105
第7章 結言	107

ABSTRACT

Brillouin scattering spectroscopy allows to investigate the shift frequency of the incident light in GHz range, which occurs by inelastically-scattering between photons and thermal phonons. Non-destructive and non-contact measurement of this shift frequency enables to determine acoustic velocities and furthermore the elastic properties in various transparent materials. For measurements, a Tandem Fabry-Pérot Interferometer has been commonly used. However, the interferometer needs a long measurement time because of the weak thermal phonon signal in the sample leads to low measurement accuracy and long measurement times and is extremely vulnerable to temperature and vibration. It is difficult to perform 2-D imaging of elastic properties using the Brillouin scattering technique

To improve the phonon signal, we artificially induced acoustic phonons using a ScAlN thin-film piezoelectric transducer, which has a giant piezoelectricity. The film was grown using RF magnetron sputtering of a ScAl alloy target on a silica glass bar sample. Using a microwave probe, the electric power applied to the film was 0 dBm at 875 MHz (longitudinal wave) and 622 MHz (shear wave). We obtained the enhancement of the Brillouin scattering signal in the silica glass bar sample due to the induced longitudinal and shear phonons, respectively. Compared with and without the induced phonons from the ScAlN film transducer, the peak intensity improved by nearly 3 orders of magnitude at longitudinal wave. This technique can significantly shorten the time required for the Brillouin scattering measurements.

However, the excitation of phonons at a fixed frequency made the simultaneous measurements of longitudinal and shear phonons impossible. Therefore, we used chirp signal to excite phonons in range of 300 - 1500 MHz. The intensity of the Brillouin peak from the induced phonons was about 350 times the peak from the thermal phonons. In addition, due to the very low intensity of the Brillouin peak from thermal phonons, generally Brillouin spectroscopy need tandem Fabry-Pérot interferometer (TFPI). But, since using the ScAlN transducer, the Brillouin peak was largely amplified, it was possible to substitute TFPI with confocal Fabry-Pérot interferometer making the measurement set up much simpler. Furthermore, the new light beating spectroscopy system would be discussed, which was succeeded in the observation of the elastic scattering but not in the inelastic Brillouin scattering unfortunately.

第1章 はじめに

1.1. 研究の背景

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、製作した材料の基本的な物性を詳細に評価する必要があり、製品の製作の場合は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ため、微細化の進歩にしたが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。

局所領域での物性評価としてナノインデンテーション[1-3]や超音波トランスデューサを用いた超音波顕微鏡[4-5]などが挙げられるが、前者は破壊測定、後者は水中でのみ測定可能、などの条件が必要になってくる[6]。そこで、非破壊・非接触でかつ局所領域の音速測定が可能である Brillouin 散乱法に着目した。Brillouin 散乱とは、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）にエネルギーの変化が生じ、そのエネルギーに対応する周波数がシフトする非弾性散乱現象のことである。この周波数シフトから GHz 域の音速を非破壊・非接触で、測定対象の弾性特性を得ることができる。さらに、Brillouin 散乱は、高温や高圧の環境や、非常に小さいサイズの物質においても生じる光現象なので[7-9]、様々な固体・液体・高分子物質などを測定試料として用いることが可能であり[10-13]、物理工学、デバイス工学、化学、バイオ工学、地質学など幅広い科学領域において利用かつ応用されてきた[14-23]。特に、生体試料の弾性率評価においても Brillouin 散乱法は有効に適応できる。現在広く用いられている超音波パルス法などでは、試料に超音波を照射し、その反射波を観測するため、試料の厚み方向の音波しか評価出来ない。Brillouin 散乱法では、試料の法線方向と面内方向が同時に計測可能なため、生体試料内の弾性特性測定において異方性の評価もできる。

この Brillouin 散乱計測のシステムとしては主に可視光の連続波レーザと Fabry-Pérot 干渉計が使用される。この干渉計の発展により、高性能で高分解能をもった Brillouin 散乱計測が可能となった[24]、現在は、Sandercock のタンデム型の

Fabry-Pérot 干渉計[25]がもっとも利用されているが、干渉計の特性上 nm オーダの精度が求められるため、温度変化や振動に大変敏感であることが問題である。さらに、熱フォノンによる Brillouin 散乱光強度は非常に微弱なため、他の超音波トランスデューサ法などによる物質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が低くなるということも問題であった[26].

1.2. 研究の目的

長時間測定かつ測定精度の低さの問題を改善するための解決法として、セラミック圧電性試料にコヒーレントな音響フォノンを人工的に励起させることにより、Brillouin 散乱光強度の改善を図ったという報告がある[27]. 一方で Fabry-Pérot 干渉計に頼らない分光法として光ビート分光法も報告されている[28]. これは、試料に入射するレーザー光の強度を大きくし、Brillouin 散乱光強度を強くすることで散乱光と入射光による光ビートを発生させるものである。このように、Brillouin 散乱光測定法について、様々な改善が試みられてきているが、前者の研究では測定対象が圧電性試料に限られ、後者の研究では試料に照射するレーザー光が数 W と強力であり生体試料など熱に弱い材質には適用できないといった問題点もあり、広く適用できる測定法が確立していない状況が続いている。

また、音波と光の相互作用という観点から、ブラッグ反射法や High resolution Bragg reflection (HRB:高分解能ブラッグ反射) 法なども物性評価で用いられている。ブラッグ反射法は数 MHz 以上の超音波を励振することによって測定試料中の屈折率変化が回折格子の働きをし、光の回折現象によって反射した光の強度を観測し、音波の強度分布を非破壊的に測定できる。また HRB 法は 100 MHz から 2 GHz を超える周波数で音波の音速と減衰を測定することができる。これらの測定手法ではレーザー光のビーム幅を mm オーダにする必要があり、局所領域の物性評価には不向きと言える[29-30].

本研究では、これらの問題点に対して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幾つかの測定手法の検討を試みた。まず、数十 mW のレーザー光を用いて Brillouin 散乱光強度を改善するために、試料の外部から人工的にコヒーレントフォノンを励起した。外部のトランスデューサから測定試料に音波を伝搬さ

せることで圧電性試料によらず Brillouin 散乱光強度の改善が可能と考えられる。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のであれば、強度改善された散乱光と入射レーザ光とで光ビート分光法が適用できると考えた。これによって、測定試料を選ばず、Fabry-Pérot 干渉計を用いない Brillouin 散乱光測定システムの構築を目指した。

1.3. 本論文の構成

本論文は全7章から成る。その構成は以下のとおりである。

第1章では序論に触れる。

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な分光器を用いたスペクトルの測定手法について述べる。Brillouin 散乱とは入射した光が物質の熱フォノンと相互作用を起し、入射光の一部が周波数を変化し、散乱光として全立体角に光が散乱する。この散乱光を検出し周波数の変化量を解析することによって物質の弾性特性を特定するのが Brillouin 散乱法である。しかし、Brillouin 散乱で得られる散乱光の強度は非常に小さい。精度良くスペクトラム解析を行うために必要な信号対雑音比 (S/N 比) を得るためには非常に長い時間、散乱光の信号を蓄積しなくてはならない。

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る。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することによって、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する。本研究ではフォノンを人工的に励起するために圧電薄膜トランスデューサを用いた。圧電薄膜トランスデューサは圧電薄膜の製作段階で膜厚を制御することによって GHz 領域の超音波を発生させることが容易である。

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る。トランスデューサの材質には極めて優れた電気機械結合係数を有する ScAlN を採用し、フォノン励起の有無によるピーク強度の改善率について基礎的な評価を行った。

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る。第4章で行った励起手法は Brillouin 散乱光強度の改善を第一目標としていたため、応用範囲が限られるものであった。本章では、より適用範囲の広い測定を目指して実験を行った。

第6章では、光ビート分光法への応用について述べる。人工的に励起したフォノンによって Brillouin 散乱光強度を大幅に改善させることによって、従来の干渉計による散乱光の分光システムを見直し、光半導体デバイスを用いた評価手法を構築するための検討を行った。本章では、新たな計測システムとして光ビート分光法に着目した。光ビート分光法とは、周波数成分がわずかに異なる二つの光を重ね合わせる際に生じる、その周波数の差分に等しい光のうなり（ビート）を観測し、情報を取り出す方法である。本実験ではレーザ光と Brillouin 散乱光の二つの光から、低周波のビート光の観測を試みた。

第7章では、各章の総括、本論文のまとめと、今後の課題、展望について述べる。

参考文献

- [1] R. Saha, W. D. Nix, “Effects of the substrate on the determination of thin film mechanical properties by nanoindentation” *Acta Materialia* 50 23–38 (2002)
- [2] A. G. Reisinger, D. H. Pahr, and P. K. Zysset, “Principal stiffness orientation and degree of anisotropy of human osteons based on nanoindentation in three distinct planes,” *J. Mech. Behav. Biomed. Mater.* 4, 2113–2127 (2011).
- [3] P. K. Zysset, X. E. Guo, C. E. Hoffler, K. E. Moore, and S. A. Goldstein, “Elastic modulus and hardness of cortical and trabecular bone lamellae measured by nanoindentation in the human femur,” *J. Biomech.* 32, 1005–1012 (1999).
- [4] K. Raum, J. Reibhauer, and J. Brandt, “Frequency and resolution dependence of the anisotropic impedance estimation in cortical bone using time-resolved scanning acoustic microscopy,” *J. Biomed. Mater. Res. Part A* 71, 430–438 (2004).
- [5] F. Rupin, A. Saïed, D. Dalmas, F. Peyrin, S. Hauptert, K. Raum, E. Barthel, G. Boivin, and P. Laugier, “Assessment of microelastic properties of bone using scanning acoustic microscopy; a face-to-face comparison with nanoindentation,” *Jpn. J. Appl. Phys.* 48, 07GK01 (2009).
- [6] W. C. Oliver and G. M. Pharr, “Measurement of hardness and elastic modulus by instrumented indentation: Advances in understanding and refinements to methodology”, *J. Materials. Res.*, Vol. 19, pp. 3-20, (2004).
- [7] M. Grimsditch and A. Polian, “Brillouin scattering at high pressures”, In: *Simple molecular systems at very high density*, A. Polian et al. (ed), Plenum, New York, pp. 237-255, 1989.
- [8] M. Eremets, “High Pressure Experimental Methods”, Oxford University Press, 1996.
- [9] M. Yoshida, K. Hisa, M. Matsukawa, T. Otani, and N. Ohtori, “Effects of Tensile Stress on the Hypersonic Properties of Thin Polymer Films”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 40, pp. 3511-3515, 2001.

- [10] G. B. Benedek, J. B. Lastovka, K. Fritsch, and T. Grevtal, "Brillouin Scattering in Liquids and Solids Using Low-Power Lasers", *J. Opt. Soc. Am.*, Vol. 54, pp. 1284-1285, 1964.
- [11] S. M. Shapiro, R. W. Gammon, H. Z. Cummins, "Brillouin scattering spectra of crystalline quartz, fused quartz and glass", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 9, pp. 157-159, 1966.
- [12] J. K. Krüger, "Brillouin spectroscopy and its application to polymers", In: *Optical Techniques to Characterize Polymer Systems*, Vol. 5. H. Bässler (ed), Elsevier, Amsterdam, pp. 429-534, 1989.
- [13] S. Tomohiro, M. Matsukawa, T. Otani, and N. Ohtori, "Brillouin scattering study on the opto-acoustic properties of thin piezoelectric polymer films", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 43, pp. 2916-2919, 2004.
- [14] M. Matsukawa, H. Yamura, S. Nakayama, and T. Otani, "Brillouin scattering study of epoxy adhesive layers during cure", *Ultrasonics*, Vol. 38, pp. 466-469, 2000.
- [15] S. Murata, M. Matsukawa, T. Kawamoto, S. Sugimoto, S. Goto, M. Kiuchi, and N. Ohtori, "Nondestructive evaluation of SiC layer by Brillouin scattering method", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 41, pp. 3374-3375, 2002.
- [16] K. Shintani, T. Yanagitani, M. Matsukawa, and T. Otani, "Non-destructive evaluation of thin ZnO shear wave transducer by Brillouin scattering", *Proc. IEEE Ultrason. Symp.*, pp. 1864-1867, 2004.
- [17] T. Yanagitani, H. Sano, and M. Matsukawa, "A method for measuring in-plane unidirectional electrical properties in a wide band-gap semiconductor using a Brillouin scattering method", *J. Appl. Phys.*, Vol. 108, 024910, 2010.
- [18] A. Polian and M. Grimsditch, "New high-pressure phase of H₂O: Ice X", *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 52, pp. 1312-1314, 1984.

- [19] M. Sakamoto, M. Kawabe, M. Matsukawa, N. Koizumi, and N. Ohtori, "Measurement of Wave Velocity in Bovine Bone Tissue by Micro-Brillouin Scattering", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 47, no. 5S, 2008.
- [20] M. Kawabe, Kenji Fukui Mami Matsukawa, Mathilde Granke, Amena Saïed, Quentin Grimal, Pascal Laugier, "Comparative investigation of elastic properties in a trabecula using micro-Brillouin scattering and scanning acoustic microscopy" *J. Acoust. Soc. Am.*, 132, pp. EL54-EL60 (2012)
- [21] V. Mathieu, K. Fukui, M. Matsukawa, M. Kawabe, R. Vayron, E. Soffer, F. Anagnostou, and G. Haiat, "Micro-Brillouin scattering measurements in mature and newly formed bone tissue surrounding an implant", *J. Biomech. Eng.*, Vol. 133, No. 2, 2011.
- [22] S. Speziale, F. Jiang, and T. S. Duffy, "Compositional dependence of the elastic wave velocities of mantle minerals; implications for seismic properties of mantle rocks. In: *Earth's Deep Mantle; Structure, Composition, and Evolution*", American Geophysical Union, Washington, DC, United States, pp. 301-320, 2005.
- [23] S. O. Demokritov, V. E. Demidov, O. Dzyapko, G. A. Melkov, A.A. Serga, B. Hillebrands, and A. N. Slavin, "Bose-Einstein condensation of quasi-equilibrium magnons at room temperature under pumping", *Nature*, vol. 443, pp. 430-433, 2006.
- [24] F. M. Jiang and S. Kojima, "Microheterogeneity and relaxation in 0.65Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O₃-0.35PbTiO₃ relaxor single crystals", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 77, pp. 1271-1273, 2000.
- [25] J. R. Sandercock, "Light scattering from thermally excited surface phonons and magnons", In: *Proceedings of the 7th international conference on Raman spectroscopy*, W. F. Murphy (ed), North-Holland, Amsterdam, p. 364, 1980.
- [26] Y. Minami, T. Yogi, and K. Sakai, "Thermal Phonon Resonance in Solid Glass", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 45, pp. 4469-4473, 2006.

- [27] J. K. Krüger, B. Vincent, O. Elmazria, L. Bouvot, and P. Alnot, “Brillouin microscopy on microwave-induced phonons in LiNbO_3 ”, *New. J. Phys.*, Vol. 6, pp. 57-65, 2004.
- [28] T. Yogi, K. Sakai, and K. Takagi, “Light beating spectroscopy of Brillouin scattering in gases and solids”, *J. Appl. Phys.*, 100, 023505 (2006).
- [29] 超音波便覧編集委員会編 「超音波便覧」 丸善 1999
- [30] T. Matsuoka, K. Sakai, and K. Takagi, “An improved system of HRB (high-resolution Bragg reflection) method for ultrasonic measurements up to 2.1 GHz”, *J. Acoust. Soc. Jpn. (E)* 13, 2 (1992)

第2章 Brillouin 散乱法

Brillouin 散乱法とは，光と物質の相互作用によって周波数が変化した散乱光から物質の弾性特性を求める非破壊物性評価法の一つである．本章では，一般的な Brillouin 散乱法の基本原理，散乱配置および実験系について説明する．

2.1. 光散乱現象

光と物質の相互作用には大きく分けて吸収と散乱がある．物質には後述するフォノンや分子間振動など様々な素励起が存在している．これらは固有の振動数を持ち，その振動数に応じた光を散乱したり吸収したりする．このため，光の吸収や散乱を調べることによって物質の状態について知ることができる．

このうち，光が物質に入射する際に生じる光散乱現象の発見は，J. Tyndall (1868 年) や L. Rayleigh (1899 年) により，液体中の浮遊粒子による光散乱を観測したことで，弾性散乱光を発見したことから始まった[1-2]．以降，A. Smekal (1923 年) が散乱光スペクトルの両側に量子化されたエネルギーをもつ成分が出現するようなシステムを考案したことから，非弾性散乱光の理論が発表され始まった[3]．L. Brillouin (1922 年) や L. I. Mandelstam (1926 年) が独立に，物質内で熱的に励起された音波に起因する密度の揺らぎ（微小部分の収縮と膨張）によって，周波数がシフトした散乱光を発生させることを発表した[4-5]．さらに，C. V. Raman ら (1928 年) は，分子の振動モードに起因する熱的揺らぎにより周波数シフトする散乱光が生じることを発見した[6]．彼らの発見以来，光散乱現象は，不均一な物質を構成する粒子（分子以下レベル）の密度変化・熱運動・不純物の影響に依存することから，物質の物理的及び化学的特性を調べるための測定に応用されてきた．特に Brillouin 散乱は，L. Brillouin の理論を論じた論文の後，1930 年 E. Gross により Brillouin 散乱現象は実験的に証明された[7]．それ以来，1960 年代からの入射光源であるレーザの発展と共に，固体・液体・ポリマーなどの幅広い物質領域の物性評価に利用されてきた．

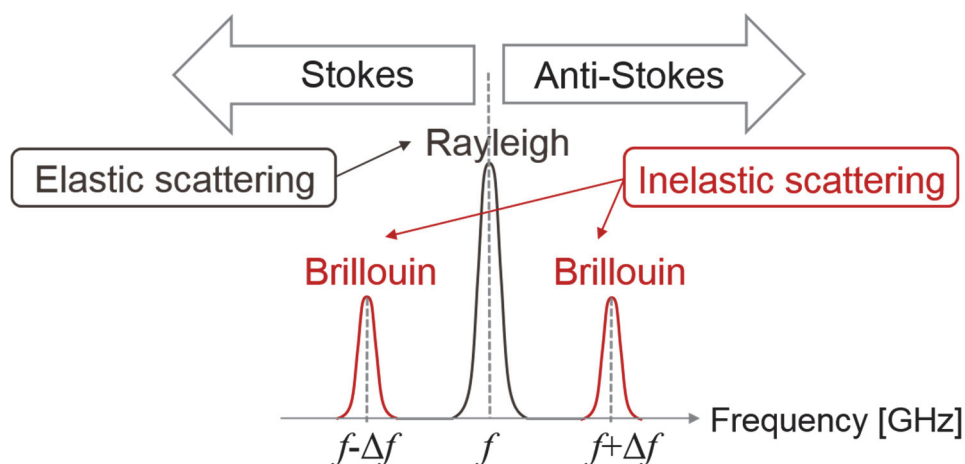


Figure 2-1: Schematic diagram of a Brillouin scattering spectrum.

(f : Frequency of the light source, Δf : Shifted frequency of Brillouin scattering)

物質への入射光は全立体角にあらゆる方向へランダムに散乱されるが、エネルギー変化の可否により、散乱光測定で Fig. 2-1 のような周波数スペクトルを得ることができる。

$$E = h\nu \quad (2.1)$$

そこで、この式のように、光のエネルギー E は、プランク定数 h と振動数 ν との積で表せることが知られている。Fig. 2-1 において、スペクトル中央に、散乱前と散乱後との間でエネルギー変化の無い弾性散乱光が発生しており、その両側にエネルギーの変動が生じた非弾性散乱光が観測されることがわかる。さらに、非弾性散乱の場合に見られる二つの成分は、エネルギーを得た成分であるストークス (Stokes) 成分と、エネルギーを失った成分である反ストークス (Anti-stokes) 成分である。

弾性散乱は、物質の内部にて空間的かつ構造的な変動が起こる場合、エントロピーの変化により生じる現象であり、代表的には、Rayleigh 散乱や Tyndall 散乱、Mie 散乱などが挙げられる。一方、非弾性散乱は、物質の内部に光学的不均一性が時間的にも変動する場合に生じる現象で、Brillouin 散乱や Raman 散乱がこれに該当する。Brillouin 散乱光は音波の揺らぎにより GHz 域で、また Raman 散乱光は分子振動による熱的揺らぎにより THz 域でそれぞれのピークが観測される。この非弾性

散乱光のスペクトルを測定することで、測定媒質の電子、波動、磁気特性を調べる
ことが可能である[8].

2.2. Brillouin 散乱光による音速測定

材料中では、構成される原子が熱揺動によって平衡位置の周辺で振動し、格子振動を形成している。Brillouin 散乱はこの格子振動の圧力変動による密度の変化に起因する。格子振動の各周波数成分を調和振動子として量子化し、準粒子としてとらえたものを熱フォノンという。この熱フォノンは材料中の密度ゆらぎで発生した音波を量子化したものに相当する。Brillouin 散乱とは、透明な材料に入射した光が材料中の熱フォノンによって、入射した光（フォトン）が全立体角に散乱され、その波長（周波数）や偏光面が変化する現象である。これは量子力学的には入射したフォトンと結晶中のフォノンの準粒子間の相互作用で起こる非弾性散乱過程として見ることができるし、古典力学的には材料中の格子振動によって入射光がドップラーシフトを起こしているとも解釈できる。

Brillouin 散乱法ではこの散乱光を利用した非破壊物性評価法である。測定によって得られた周波数スペクトルのピークから結晶中を伝搬する音波の速度や減衰（吸収）を測定することができる。照射するレーザーのスポット径に測定範囲が依存するため、局所的な音波物性の評価が行える。その上、測定試料に分布する熱フォノンを介して音波物性を測定するため、GHz 帯域の超高周波音速を測定できる。なかでも音波の速度は、媒質の弾性的性質と密接に関わっている。以下、音速の導出について説明する。

フォノンの特性は角振動数 $\Delta\omega$ および波数ベクトル \mathbf{q} で記述することができる。一般にフォノンの振動数と速度は波長（波数）に依存し、異方性物質中では進行方向にも依存する。そのため分散関係は波数ベクトル \mathbf{q} に依存する振動数 $\omega(\mathbf{q})$ と速度 $v(\mathbf{q})$ の間には次の関係がある。

$$\omega(\mathbf{q}) = v(\mathbf{q})|\mathbf{q}| \quad (2.2)$$

上述のように、Brillouin 散乱は式(2.2)で表されるフォノンと入射光のフォトンと

の散乱である．したがってフォトンのフォノンによる衝突散乱過程とみなせる．そのとき，散乱の前後で全系の運動量とエネルギーが保存されるので，プランク定数 h を用いて次のように表すことができる．

$$h\mathbf{k}_i \pm h\mathbf{q} = h\mathbf{k}_s$$

$$\left(\frac{h}{2\pi}\right)\omega_i \pm \left(\frac{h}{2\pi}\right)\omega_s = \left(\frac{h}{2\pi}\right)\omega(\mathbf{q}) \quad (2.3)$$

ここで， ω_i は入射光の振動数， ω_s は散乱光の振動数であり，+と-はそれぞれ，反ストークス (anti-Stokes) 過程とストークス (Stokes) 過程を示す．前者はフォノンを吸収する過程であり，後者はフォノンを放出する過程にあたる．この散乱前後での運動量保存則およびエネルギー保存則の概念図をそれぞれ Fig. 2-2 および Fig. 2-3 に示す．

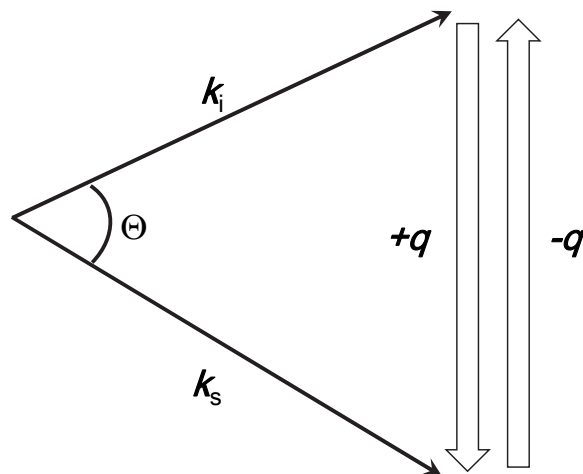


Figure 2-2: The law of momentum conservation. θ is the scattering angle, k_i the wave vector of the incident light, k_s the wave vector of the scattered light, and q the wave vector of the sound wave.

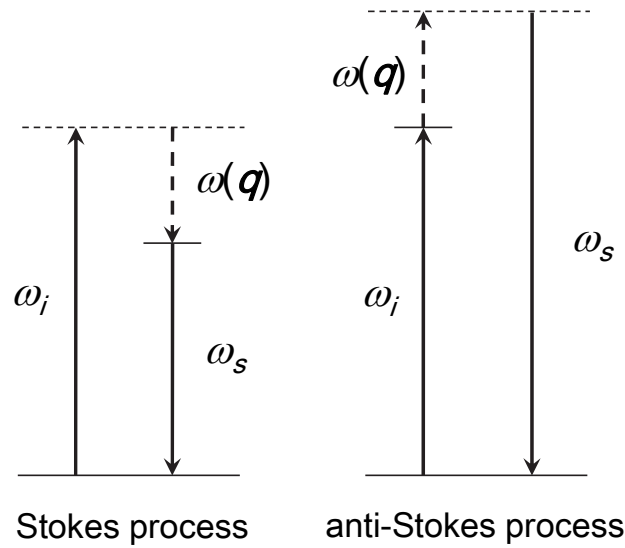


Figure 2-3: The law of the conservation of energy. ω_i : Frequency of incident light. ω_s : Frequency of scattering light. $\omega(q)$: Frequency of phonon.

Fig.2-2 から k_i と k_s を決めることで，フォノンの波数ベクトル q の方向および大きさ

$$|q| = 2nk \cdot \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (2.4)$$

が決定する．ただし，光学的に等方な物質の屈折率を n ，入射光および散乱光の波数ベクトルの大きさを k とし，スネルの法則より $k_i=k_s=nk$ としている．ここで，式(2.4)より

$$\omega(q) = 2nk\nu(q) \cdot \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (2.5)$$

となり，Brillouin シフト周波数 $\Delta f(q)(=\omega(q)/2\pi)$ を $k=2\pi/\lambda$ とすることで，波長と音速で次のように表すことができる．

$$\Delta f(q) = \pm \frac{2n\nu(q)}{\lambda_i} \cdot \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (2.6)$$

$$v(q) = f(q) \frac{\lambda_i}{2n \cdot \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)} \quad (2.7)$$

式(2.7)から、音速はシフト周波数と散乱角 θ より決定される波長との積によって求まる。つまり、Brillouin 散乱法は散乱角 θ によって波長と伝搬方向を決定することができる。Brillouin 散乱法によって得られるスペクトルの概念図は Fig. 2-1 に示したとおり、中央のピークは散乱に寄与しない入射光の Rayleigh 成分で、左右のピークは散乱によりドップラーシフトした散乱光の Brillouin 成分である。このシフト量を定量することで音波の音速を求めることができる。

このように、Brillouin 散乱測定において Brillouin 成分の周波数シフト量が極めて重要となってくる。このため、Rayleigh 成分と Brillouin 成分が分離できるためには非常に高い単色性 (Monochromatic) を有する光源が必要である。さらに、入射光の波長が散乱強度に影響することから、高い散乱強度を得るために、緑色や青色の気体や固体レーザ光が主に用いられる。さらに、レーザの強度としては通常 100 mW 以上のものが用いられる。

2.3. 散乱配置

前項で説明したように、散乱角 θ によって測定フォノンの波長および伝搬方向を決定し、シフト周波数からその音速を求める。散乱角 θ を決定するのは光学系であり、着目するフォノン q に対応して Brillouin 散乱法には幾つかの光学系が存在する。これらの光学系を総称して散乱配置と呼ぶ。以下、幾つかの散乱配置について説明し、測定フォノンの波長、伝搬方向および音速式の導出について述べる。

2.3.1 180° 散乱配置

180°散乱配置とは後方散乱とも呼ばれ、入射光の波数ベクトル k_i に対して 180° となるよう（入射方向に対して後方に散乱する）、散乱光の波数ベクトル k_s をとる散乱配置である。Fig. 2-4 に 180°散乱配置の概略図を示す。

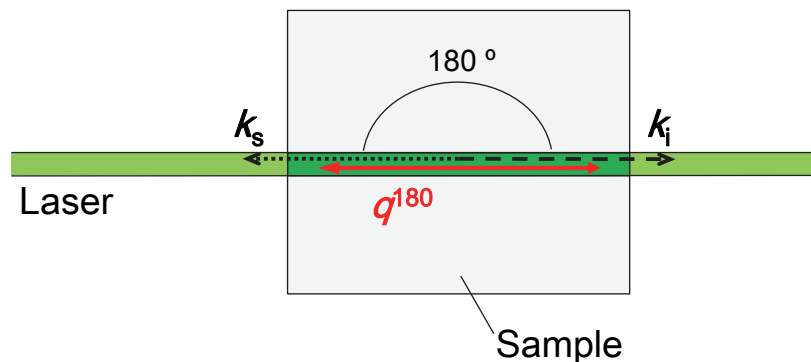


Figure 2-4: 180° scattering geometry. k_i is wave vector of incident light, k_s is wave vector of scattered light, q^{180} is wave vector of sound wave.

このように 180°散乱配置では測定試料に対してレーザの入射方向と平行に伝搬する音速（フォノン q^{180} ）を測定することができる。また、波長は式(2.7)において $\theta=180^\circ$ となり、シフト周波数との積で音速は導出できる。

$$\Lambda^{180} = \frac{\lambda_i}{2n \cdot \sin\left(\frac{\pi}{2}\right)} = \frac{\lambda_i}{2n} \quad (2.8)$$

$$v^{180} = f^{180} \frac{\lambda_i}{2n} \quad (2.9)$$

180° 散乱配置の応用例として光ファイバの歪や温度の検知が知られている．一次元構造である光ファイバにレーザ光を入射し，後方散乱した光を解析することによって，敷設している光ファイバの物性変化を捉えることができる．この手法は光ファイバという既知材料の変化に着目しているため，周波数のシフト量がわかれば音速の算出が可能である．一方で，弾性特性が未知の試料や，既知試料の物性分布を評価するには，測定点ごとに屈折率の情報が必要となるため，これらの測定に180°散乱配置は適していないと言える．

2.3.2 90R 散乱配置

90R 散乱配置とは，試料に入射した光が試料面に対して反射する方向に散乱光の波数ベクトル k_s を持つ散乱配置である．Fig. 2-5 に 90R 散乱配置の概略図を示す．

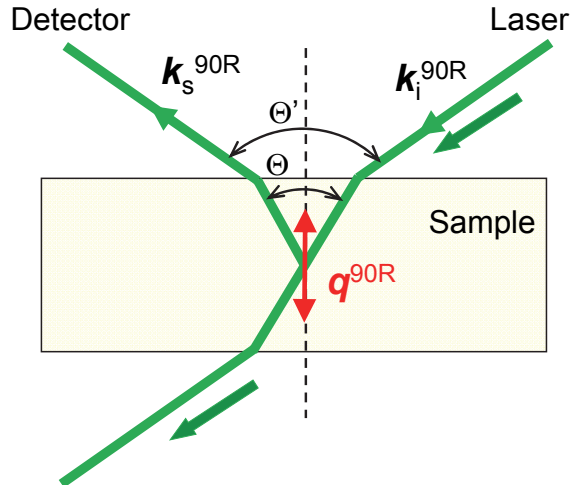


Figure 2-5 : 90R scattering geometry ($\theta' = 90^\circ$). k_i is wave vector of incident light, k_s is wave vector of scattered light, q^{180} is wave vector of sound wave.

このように 90R 散乱配置では試料面に対して法線方向に伝搬する縦波・横波音速を同時に測定することができる．算出される音速を次式に示す．

$$v^{90R} = f^{90R} \frac{\lambda_i}{2n \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)} = f^{90R} \frac{\lambda_i}{2\sqrt{n^2 - \sin^2\left(\frac{\theta'}{2}\right)}} \quad (2.10)$$

ただし、試料表面に対するレーザーの入射角を $\theta'/2$ とした場合、空気と試料の境界におけるスネルの法則から

$$\sin\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{\sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)}{n} \quad (2.11)$$

の関係を用いた。 θ は試料内における散乱角である。また、90R 散乱配置は $\theta'=90^\circ$ の場合を指すため、最終的に音速の算出は式 (2.12) で行える。

$$v^{90R} = f^{90R} \frac{\lambda_i}{2\sqrt{n^2 - 1}} \quad (2.12)$$

上式からわかるように原理上 θ' を変えることで任意の波長の伝搬音速を測定できる。実際に 90R 散乱配置を用いる場合は反射光の影響を避けるためにわずかに傾斜角度をつける。従って、測定音速の伝搬方向も傾斜角度に従って変化する。このように、傾斜角度をつけた 90R 散乱配置を Pseudo-reflection scattering geometry という[9]。

2.3.3 90A 散乱配置

90A 散乱配置とは、試料に入射した光が試料面内方向に伝搬する音波 q^{90A} によってレーザー光の透過方向側に散乱され、散乱光と入射光の波数ベクトル k_i と k_s が音波の波数ベクトル q と 45° を成す散乱配置である。Fig. 2-6 に 90A 散乱配置の概略図を示す。

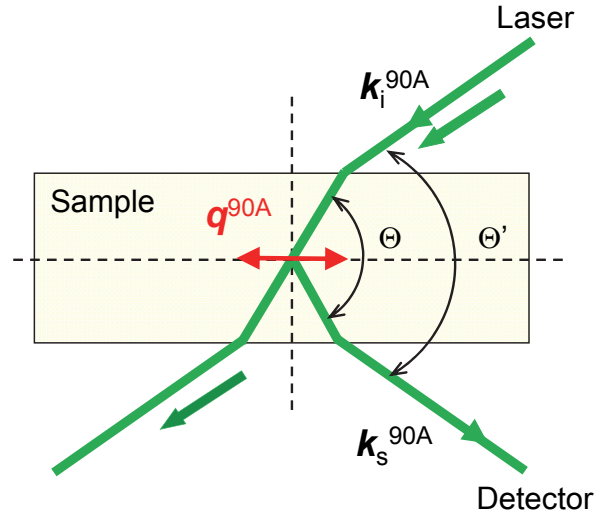


Figure 2-6: 90A scattering geometry ($\theta' = 90^\circ$). k_i is wave vector of incident light, k_s is wave vector of scattered light, q^{180} is wave vector of sound wave.

このように、90A 散乱配置では試料面内方向に伝搬する縦波・横波音速を同時に測定することができる。音速の算出式を次式に示す。

$$\begin{aligned}
 v^{90A} &= f^{90A} \frac{\lambda_i}{2n \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)} \\
 &= f^{90A} \frac{\lambda_i}{2 \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)} = f^{90A} \frac{\lambda_i}{\sqrt{2}} \quad (2.13)
 \end{aligned}$$

ただし、90R 散乱配置の場合と同様にスネルの法則 (2.10) 式を用いた。これより、屈折率を用いずに伝搬音速を算出できることがわかる。また、90A 散乱配置は $\theta=90^\circ$ の場合を指すが、式 (2.13) より原理上 θ を変えることで任意の波長の伝搬音速を測定可能である[10].

2.3.4 Reflection Induced Θ Angle (RI Θ) 散乱配置

RI Θ 散乱配置は、二つの伝搬方向および波長を持つフォノンを同時に観測できる散乱配置である[11]. 光学的反射板の上に試料を固定することで、レーザの入射光ベクトルを変化させ2種類の k_i を作り出すことによって実現する. Fig. 2-7, Fig. 2-8に散乱配置および試料内の反射板付近の概略図を示す. q^{180} および $q^{\Theta A}$ は Fig. 2-8に示すように、入射光に対して平行な伝搬方向と反射板に対して平行な伝搬方向をとる.

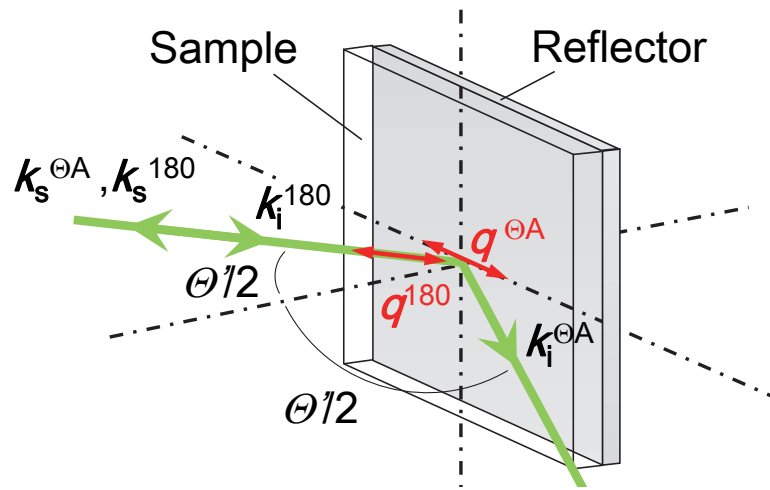


Figure 2-7: The RI Θ scattering geometry. k_i is the wave vector of the incident light, k_s the wave vector of the scattered light, q the wave vector of the sound wave, $\Theta/2$ the angle between the incident laser beam and the normal line of the sample surface.

入射光が反射板に到達するまでの間、入射光 k_i^{180} に対する散乱光 k_s^{180} で得られる 180° 散乱により q^{180} の観測が可能である. さらに、反射板により入射光ベクトルは $k_i^{\Theta A}$ へと変化し入射光 $k_i^{\Theta A}$ に対する散乱光 $k_s^{\Theta A}$ で得られる $q^{\Theta A}$ も観測することができる. q^{180} の波長および音速は、式(2.8)および(2.9)と同じである. 一方で $q^{\Theta A}$ の波長は式(2.7)に示すように、任意の Θ によって決定されるが、観測する散乱光をレーザの入射光と同一線上にすることで、屈折率に依存しない波長を選択することができる.

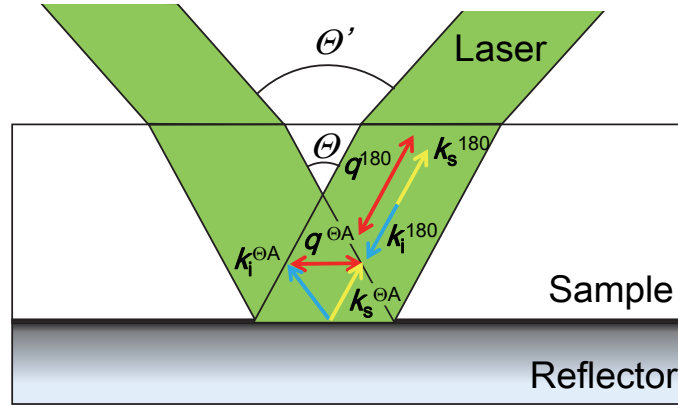


Figure 2-8: The RI θ A scattering geometry inside the sample. θ is the scattering angle.

試料表面に対するレーザーの入射角を $\theta'/2$ とした場合, 空気と試料の境界におけるスネルの法則 (2.10) 式を(1.5)式に代入することで, 次式のように音速値 $v^{\theta A}$ が求まる.

$$\Lambda^{\theta A} = \frac{\lambda_i}{2n \cdot \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)} = \frac{\lambda_i}{2 \cdot \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)} \quad (2.14)$$

$$v^{\theta A} = f^{\theta A} \frac{\lambda_i}{2 \cdot \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)} \quad (2.15)$$

以上より, RI θ A 散乱配置の $q^{\theta A}$ はレーザーの入射角度によらず, 常に試料の面内方向に伝搬する音波の音速測定が可能である. また, 同一地点においてはレーザーの入射角度に関わらず, 物理的に音速値は変わらず $v^{\theta A}$ は一意の値をとる. これより, RI θ A 散乱配置におけるレーザーの入射角度の設定は測定者が観測するフォノンの波長 $\Lambda^{\theta A}$ を選択することを表している.

また, RI θ A 散乱配置は 90A 散乱配置と同じ伝搬方向の音波 q を観測することができる. 観測する波長を変更する場合, 90A 散乱配置ではレーザーの入射角度と散乱光の取得角度を変更しなくてはならず, 光学系の変更が煩雑になる. 一方で RI θ A 散乱配置ではレーザーの入射角度と散乱光の取得角度が同じため, 光学系の変更が不要なく, 測定対象のみを回転させることによって波長を変更が可能である. このため, 音波の観測波長など条件を変更して Brillouin スペクトルを測定する場合には RI θ A 散乱配置が適していると考えられる.

2.4. Brillouin 散乱光の測定

Brillouin 散乱光測定においてフォノンのシフト周波数の量を定量することが重要であるため、高い周波数分解能を有する分光器を用いて散乱光のスペクトル情報を得る。この分光器としては、1 対の平面鏡で構成される Fabry-Pérot 干渉計が一般的に用いられている。本研究ではタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計 (Tandem Fabry-Pérot Interferometer: TFPI) や共焦点 Fabry-Pérot 干渉計 (Confocal Fabry-Pérot Interferometer: CFPI) を使用し分光を行った。以下、各分光器の簡単な動作原理と特長について述べる。

2.4.1 Fabry-Pérot 干渉計

Fabry-Pérot 干渉計（以後、単に FP と呼ぶ）は $\lambda/100$ 以上の面精度をもつ一対の平面ミラー（エタロン）で構成されている。エタロンには特定の波長範囲に対して 90 % 以上の反射率をもつように誘電体反射膜が蒸着されている。また、完全な平面ガラスでは透過光に干渉縞が発生する可能性があるため形状を楔形にすることで、干渉縞の発生を防止している。この反射面に対して垂直に入射した光 (E_i) は、2 個のエタロン間距離 d が半波長の整数倍のときだけ透過 (E_t) し、光学的な帯域通過フィルタとして機能する (Fig. 2-9)。このエタロン間距離をわずかに変えることによって透過波長を連続的に変化できる掃引型のフィルタとなる。

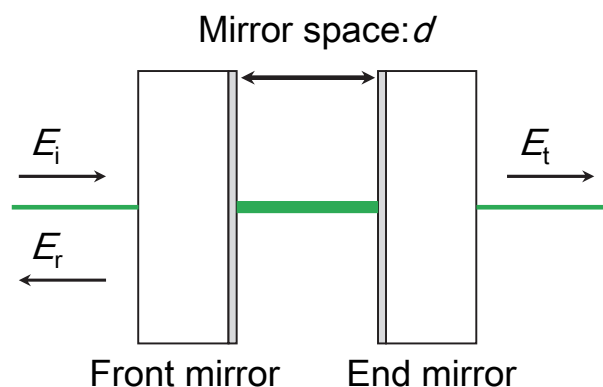


Figure 2-9: Fabry-Pérot Interferometer. E_i is the incident light, E_t is the transmitted light and E_r is the reflected light by the surface of the front mirror.

本研究では圧電素子を用いてエタロン間距離 d を電氣的に微小変位させる圧電掃引型を使用した。掃引中は式 (2.16) を満たすミラー間隔でその波長成分のレーザ光は透過するため、周期的にピークは現れる。

$$d = \frac{(\text{掃引レーザ光に含まれる波長})}{2} \cdot m \quad (2.16)$$

ここで、 m は正の整数をとる。Fig. 2-10 にエタロン間距離 d を微小変位させたときの Brillouin 散乱スペクトルの概念図を示す。

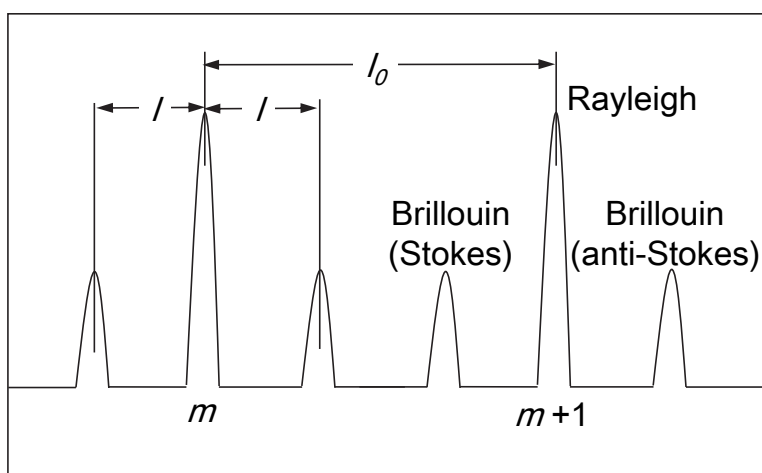


Figure 2-10: Free spectral range (FSR). l_0 is the interval between one Rayleigh component and the following similar component, l the interval between Rayleigh component and Brillouin component.

このように Rayleigh 及び Brillouin 成分は周期的に現れる。ここで、Rayleigh 成分の間隔は Free Spectral Range (FSR) と呼ばれ、次式で与えられる。

$$f_0 = \frac{c_0}{2d} \quad (2.17)$$

この f_0 は記録紙上の長さ l_0 に相当する周波数である。Fig. 2-10 に示す Brillouin スペクトルにおいて、記録紙上で Rayleigh 成分と Brillouin 成分の間隔 l を測定すれば熱フォノンの周波数 $\Delta f(q)$ は次式で与えられる。

$$\Delta f(q) = \frac{f_0}{l_0} l \quad (2.18)$$

このとき, Brillouin ピークのシフト周波数は以下の関係を満たさないといけない.

$$\Delta f(q) < \frac{f_0}{2} \quad (2.19)$$

Brillouin ピークのシフト周波数が FSR の半分以上になるように散乱配置を設定した場合, m 次の Brillouin ピークと $m+1$ 次の Brillouin ピークの区別ができなくなるためである. Fabry-Pérot 干渉計はもっとも基本的な分光器であるが, FSR が狭く, 測定できる音波の周波数に制約が発生するという欠点がある.

2.4.2 タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計 (TFPI)

タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計は前節で説明した FPI を直列に配置し、光が複数回掃引型フィルタを通過することによって高いコントラストと広い可変周波数範囲を合わせ持つ優れた分光器として知られている[12]. 本研究では Sandercock 方式のタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計 (TFP-1 : JRS Scientific Instruments 製) を用いて Brillouin 散乱光の分光を行った. Fig. 2-11 に TFP-1 の全景を示す. TFP-1 は周囲温度や振動などの外部環境の変化に対して非常に敏感であるため、専用の筐体に格納されている. また、実験室の室温は常に 23 °C となるようにコントロールされている.

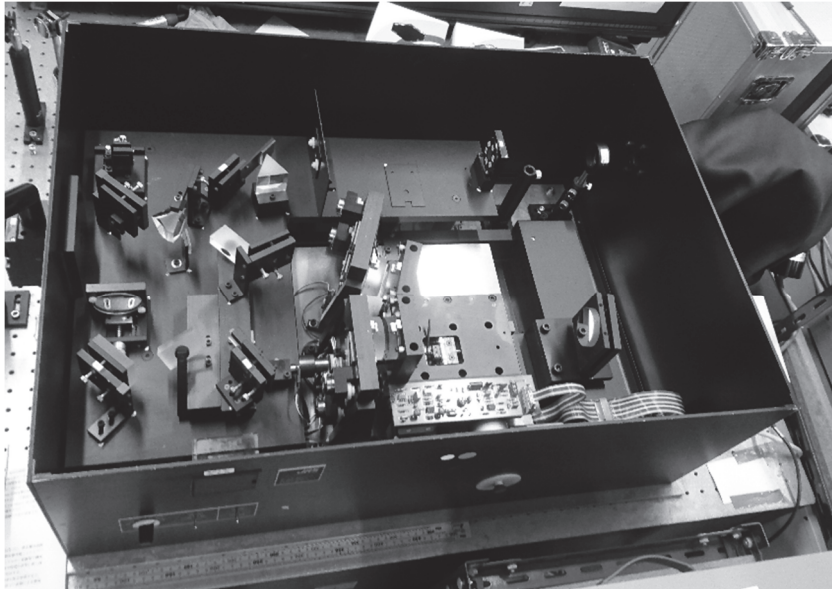


Figure 2-11: Photograph of the Tandem Fabry-Pérot Interferometer.

TFPI はミラー間隔がわずかに異なる 2 個の FP を同期掃引することで、上記の特長を実現する。TFPI の概略図を Fig. 2-12 に示す。

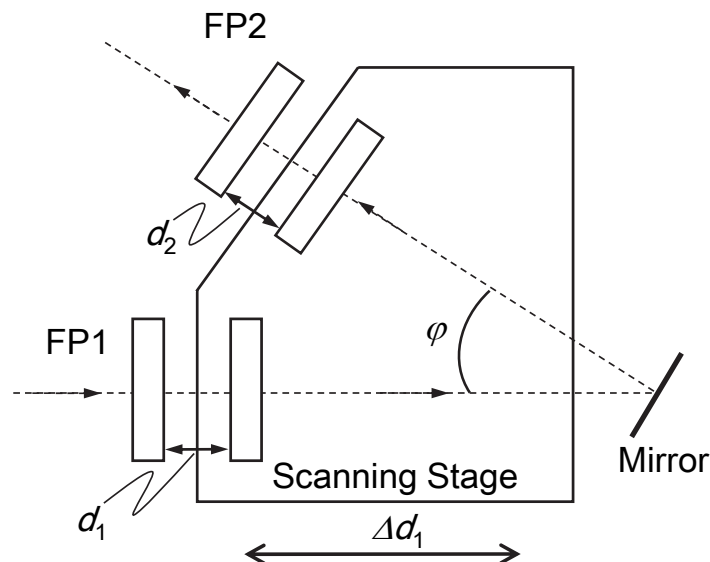


Figure 2-12: Tandem Fabry-Pérot interferometer.

2 台の干渉計(FP1, FP2)は、光軸が φ の角度をなすように共通の掃引ステージに搭載されている。それぞれのミラーは距離 d_1 方向に対して平行に掃引されるため、常に(2.20)式が成立し同期掃引される。

$$d_1 : d_2 = d_1 \pm \Delta d_1 : d_2 \pm \Delta d_2 = 1 : \cos \varphi \quad (2.20)$$

また、異なるミラー間隔およびスキャン幅を持つ 2 個の FP は、一方の FP と比較して隣接した Rayleigh ピークの間隔はわずかに広がる。Fig. 2-13 にミラー間隔 d_1 を横軸とした、単一波長の入射レーザに対するそれぞれの FP および TFPI のスペクトル概略図を示す。

FP2 のミラー間隔を独立して微調整できるようになっており、それぞれの Rayleigh 成分の位置を揃えることで、隣の Rayleigh 成分が TFPI の Rayleigh ピークの間隔が広がることがわかる。また、2 個の FP のずれた Rayleigh 成分は、弱い透過量であるが TFPI のスペクトルに出現するため、長時間測定の際は Brillouin ピークと混同しないよう、注意しなければならない。なお、ステージの変位 Δd_1 を、スキャン振幅と呼ぶ。このスキャン振幅を調整することにより、測定したいスペクトルの周波数範囲を選択することができる。

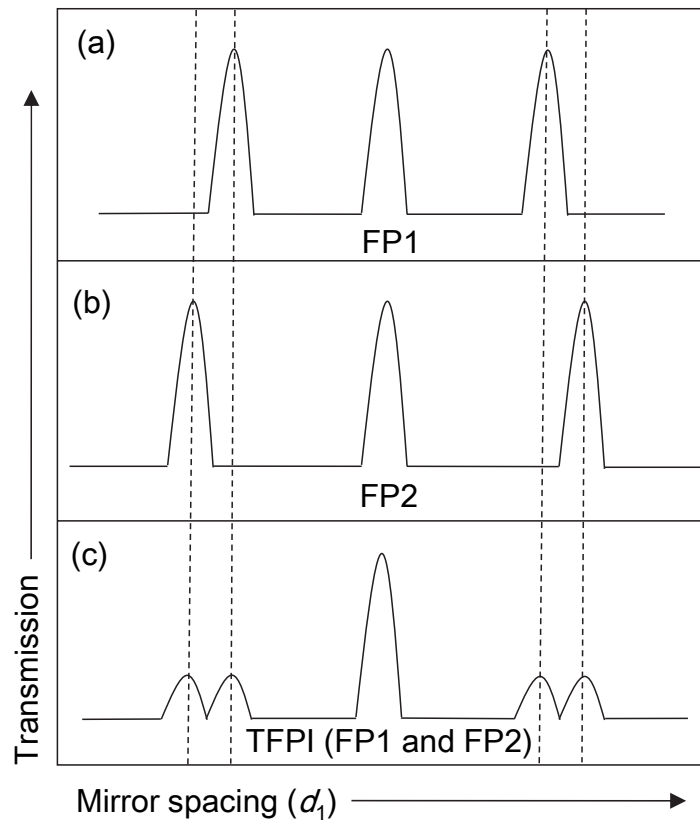
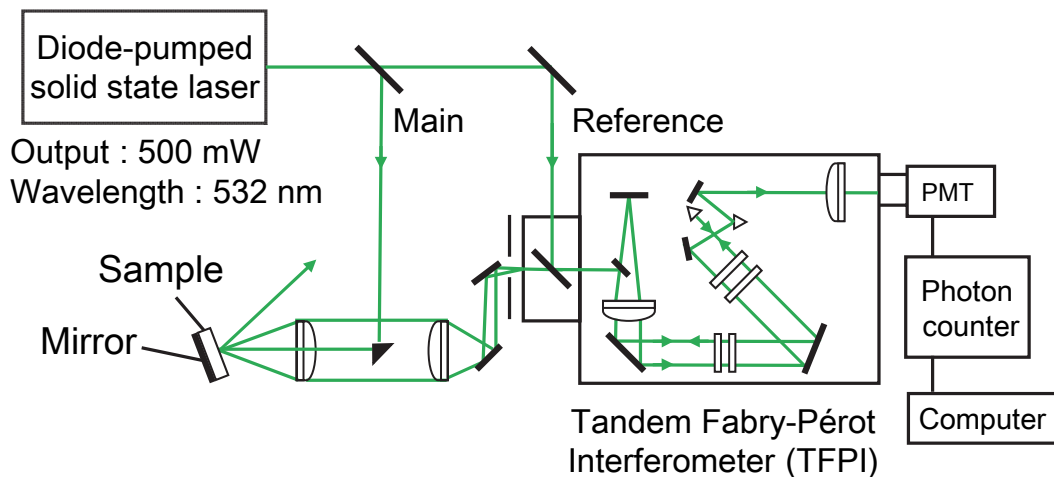


Figure 2-13: Conceptual spectra for an incident laser beam with one wavelength. (a) FP1 (b) FP2 (c) TFPI

また、本研究で使用した TFP-1 はこの 2 個の FP を合計 6 回透過させることによって、より高い周波数分解能を得られる。FP を複数回透過させることによって多段フィルタとして高い周波数分解能が得られる一方で、大面積のエタロンを用いる必要があり、エタロンの平行度安定性の要求もさらに高くなる。このため、TFPI では振動や周囲温度の変化を厳密に管理する必要がある。

TFPI の実験系を Fig. 2-14 に示す．波長 532 nm，出力 500 mW の固体レーザー（torus532. Laser Quantum）でレーザー光を発振し，ビームスプリッタを用いて Main 経路と Reference 経路に分離する．Main 経路を通るレーザー光はレンズにより収束され，測定試料に照射される．焦点距離 400 mm のレンズを使用し，測定試料付近でのレーザーのスポット径は約 50 μm である．これは Brillouin 散乱法によって音速測定をする場合の空間分解能となる．試料で全立体角に散乱した光のうち，後方に散乱された散乱光を選択しレンズで集光した後，TFPI で分光を行う．一方で Reference 経路を通るレーザー光は試料に照射せず，ND（Neutral density）フィルタで光強度を減衰させた上で直接干渉計内に入射する．



**Figure 2-14: Block diagram of measurement system.
(Tandem Fabry-Pérot interferometer).**

この2種類の光は，干渉計(FP1, FP2)を通過し，特定の周波数を持つ散乱光を光電子増倍管(R464S, 浜松ホトニクス)で受光する．この際，散乱光の Rayleigh 成分の光強度は Brillouin 成分に比べて非常に強いため，光電子増倍管を破損する恐れがある．これを防ぐために機械式シャッタを用いて散乱光の Rayleigh 成分を遮断し，Reference 経路を通過した微弱な参照光のみを受光する．さらに，TFPI では参照光のピーク強度を常時モニタし，強度が一定になるように干渉計(FP1, FP2)の平行度を制御することで長時間の測定が可能となっている．また，受光した光は光子カウンタで A/D 変換した後に加算平均され，横軸分解能 10 bit のスペクトルとしてコンピュータに記録される．通常，Brillouin 散乱光は微弱であるため，長時間収集した散乱光スペクトルを加算平均することによって S/N 比を向上させる．

この実験系を使用し、RI Θ A 散乱配置で測定したときのスペクトルの一例を Fig. 2-15 に示す.

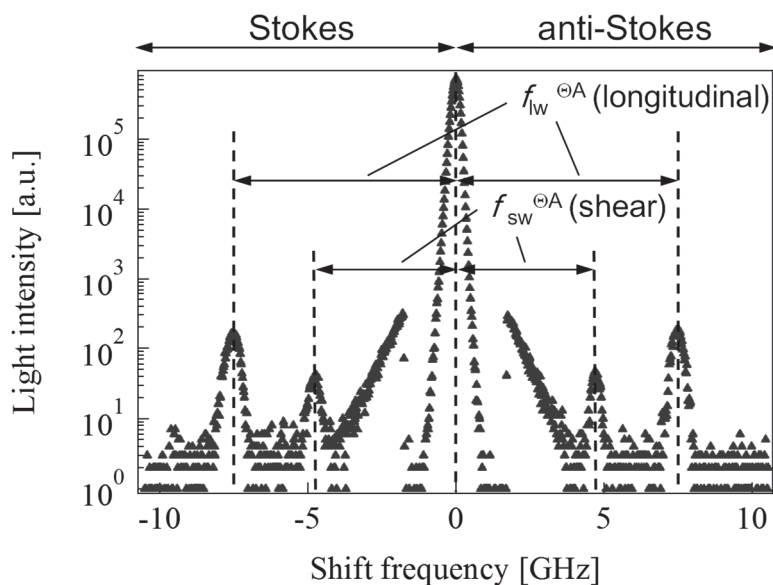


Figure 2-15: Brillouin spectrum of a silica glass sample.

散乱光と参照光を機械式シャッタで切り替えているため、Rayleigh 成分のピークが ± 0.6 GHz 付近で不連続となる。また、散乱光成分では内側のピークが横波成分の Brillouin スペクトル、外側のピークが縦波成分の Brillouin スペクトルとなっている。

2.4.3 共焦点 Fabry-Pérot 干渉計 (CFPI)

共焦点 Fabry-Pérot 干渉計は TFPI とは異なり，一对の FP で構成され，光学機構を最小限に留めることによって，より光路調整の作業を簡便にすることを目的とした干渉計である．本研究では Fig. 2-16 に示す共焦点 Fabry-Pérot 干渉計 (SA210-8B, THORLABS) を用いて Brillouin 散乱光の分光を行った．

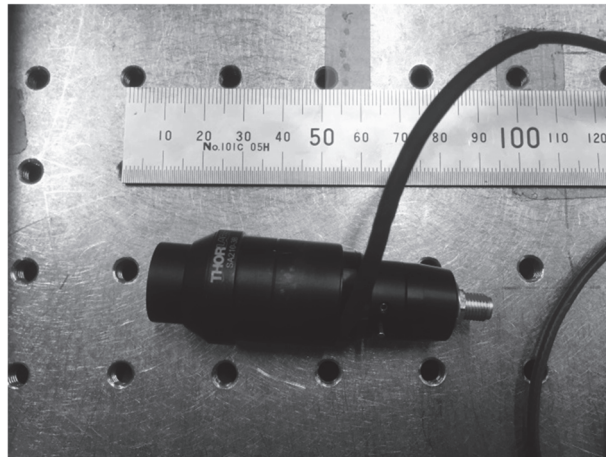


Figure 2-16: Photograph of the Confocal Fabry-Pérot Interferometer.

共焦点 Fabry-Pérot 干渉計 (CFPI) は 2.4.1 項，2.4.2 項で説明したような一般的に用いられる平行平面ミラーのエタロンではなく，共振器長と曲率半径が等しい 2 個のミラーで構成される干渉計である．平行平面の FPI は調整が難しく平面ミラーの平行度の変化に著しく影響を受ける．それに対して，共焦点球面共振器は球面ミラーの平行度の変化に対しても比較的安定で調整し易い特長を持つ．

CFPI は，Fig.2-17 に示すように等しい曲率半径の 2 個の球面ミラーで構成され，ミラー間の距離もその曲率半径に等しくなっている．この構成は，一般には共焦点 Fabry-Pérot 型と呼ばれている [13-14]．

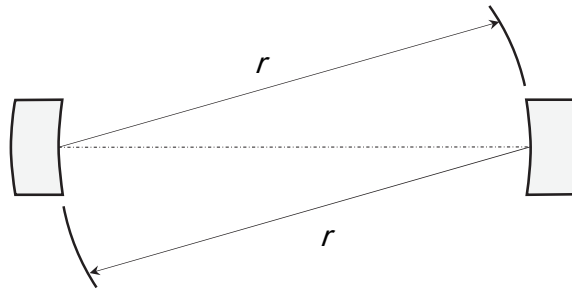


Figure 2-17: Confocal Fabry-Pérot Interferometer.

CFPI も平面ミラーの Fabry-Pérot 干渉計と同様に，各ミラー内側の凹面には非常に反射率の高いコーティングが施してある一方で，外側の凸面の表面には広帯域の反射防止コーティングを施すことによって干渉縞を抑えている．また，外側表面の曲率は内側表面の曲率と一致するので，レンズ効果が起こることはない．

Fig. 2-18 に CFPI の基本原理を示す．レーザ光が共振器の中心から H の高さで入射した場合を示している．最初の Front mirror を透過したレーザ光は光路①，②，③，④の順に進み，反射された後に再び光路①を進む．このように CFPI では光の入射高さに対して縮退しているため，共振器への光の入射を注意深く調整する必要がなく光学系の調整が非常に簡単になる特徴がある．

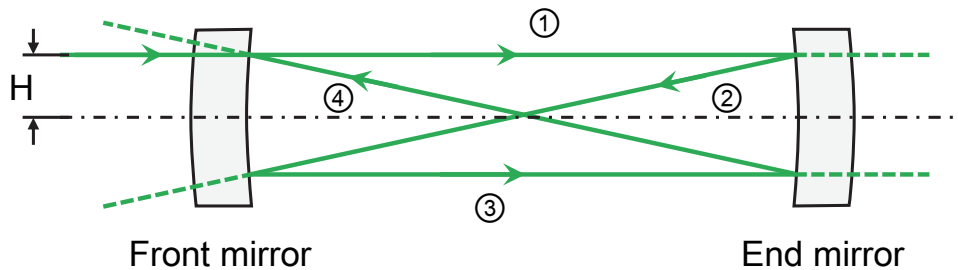


Figure 2-18: Optical path using the CFPI.

共振器内を 1 往復した光路長を L とした場合，式 (2.18) を満たす場合においてミラーを透過し，透過した光は Fig. 2-18 中の共振器の外にある点線の光路を通る．

$$L = 4r \quad (2.21)$$

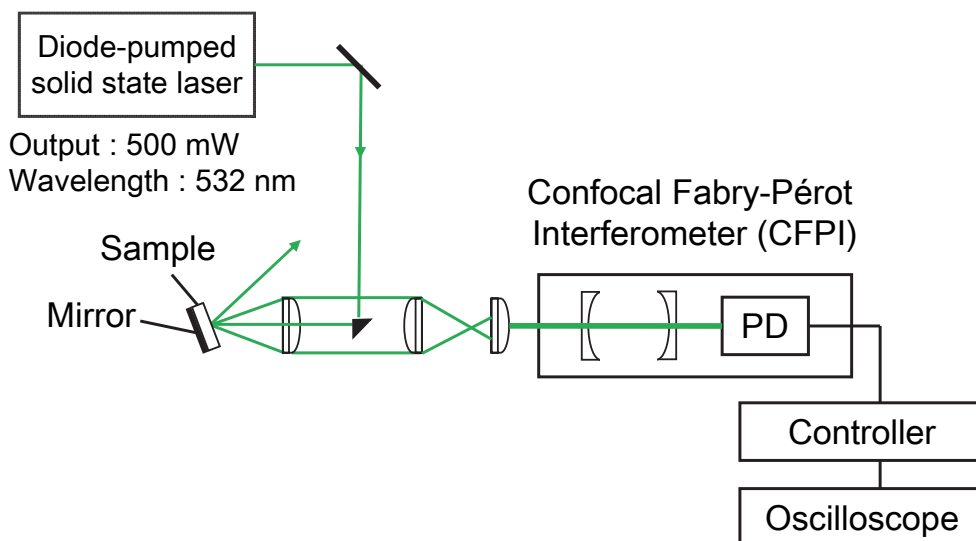
ただし， $0 < H \ll r$

ここで、一般的に Fabry-Pérot 干渉計の FSR は式 (2.17) で決定するが、CFPI では光が 1 往復する距離が長くなっており、式 (2.21) から次式で表される。

$$f_0 = \frac{c_0}{4r} \quad (2.22)$$

なお、本研究で用いた CFPI (SA210-8B, THORLABS) は FSR が 10 GHz 固定で設計されている。

CFPI の実験系を Fig. 2-19 に示す。TFPI の際と同様に波長 532 nm、出力 500 mW の固体レーザ (torus532, Laser Quantum) でレーザ光を発振し、レンズにより収束されたレーザ光を測定試料に照射する。試料で全立体角に散乱した光のうち、後方に散乱された散乱光を選択しレンズで集光した後、干渉計 (SA210-8B, THORLABS) に入射する。干渉計で分光された光は、特定の周波数を持つ散乱光としてフォトダイオードで受光する。干渉計は専用のコントローラ (SA201, THORLABS) で制御される。コントローラにオシロスコープを接続することで、干渉計の掃引信号や受光信号を記録することができる。



**Figure 2-19: Block diagram of measurement system.
(Confocal Fabry-Pérot interferometer)**

2.4.4 Brillouin 散乱スペクトルの解析

TFPIの分光で形成された Brillouin 散乱光のピークを定量的に取り扱うためには、一般的に適切な数理モデルの関数でスペクトルをフィッティングする必要がある。分光学のスペクトルには有名な分布関数が存在し、これを Voigt 関数という。干渉計で光のスペクトルを観測すると、原子の熱振動によって Gauss 関数に依存する散乱光が光共振器 (Fabry-Pérot) によって Lorentz 関数のフィルタリングを受ける。従って、Brillouin 散乱光のスペクトルをフィッティングするためには Gauss 関数に Lorentz 関数を畳み込みして得られた Voigt 関数を用いるのが最適である[15]。このフィッティングによって各ピークの周波数シフト幅と半値全幅 (Full width and Half Maximum: FWHM) が決定する。

この半値全幅には試料中を伝搬する音波 (熱フォノン) の吸収 (減衰) に関する情報が含まれている。そもそも試料中に伝搬する音波は微小部分の収縮と膨張によって発生している。これを断熱過程として考えると、収縮した部分は温度が高くなり、膨張した部分は温度が低くなる。従って高温部から低温部への熱の移動が生じ、この熱伝導が音波の吸収をもたらす。また、一般に緩和現象の際は並進エネルギーが新しい相の構築のために分子内のエネルギーへ再分配されるため音波の吸収が生じる。そのため音波が減衰し、波形の歪みから周波数成分に幅が生じて Brillouin ピークの半値全幅が大きくなる[16]。このように半値全幅の変化は緩和過程を捉える重要な判断要因となる。

2.5. まとめ

本章では、Brillouin 散乱法の原理や測定手法および一般的に用いられている分光器の動作原理について述べた。

ここで、Brillouin 散乱法で重要となる散乱配置について一般的によく知られている 4 種類を紹介した。ナノインデンテーションや超音波顕微鏡といった他の局所領域を評価する手法は測定試料の法線方向の弾性特性しか評価できないが、Brillouin 散乱法では最適な散乱配置を採用することによって測定する音波の伝搬方向を 3 次元的に選択が可能である。本研究では、上記の 2 種の手法では評価できない面内方向に伝搬する音波に着目した。また、より簡便な計測システムを目指すことから、RIGA 散乱配置を採用し実験を行った。

また、散乱光の分光法については従来手法と同様に TFPI を用いた。これで、Brillouin 散乱光強度の改善について詳細に調査し、より簡便な CFPI の検証を行った。

参考文献

- [1] J. Tyndall, “On the blue colour of the sky, the polarization of skylight, and on the polarization of light by cloudy matter generally”, Proc. Royal. Soc. London., Vol. 17, pp. 223-233, 1868.
- [2] L. Rayleigh, “On the transmission of light through an atmosphere containing small particles in suspension, and on the origin of the blue of the sky”, Philos. Mag., Vol. 47, pp. 375-394, 1899.
- [3] A. Smekal, “Zur Quantentheorie der Dispersion”, Naturwissenschaften, Vol. 11, pp. 873-875, 1923.
- [4] L. Brillouin, “Diffusion de la lumière et des rayons X par un corps transparent homogène: Influence de l’agitation thermique”, Ann. Phys. (Paris), Vol. 17, pp. 88-122, 1922.
- [5] L. I. Mandelstam, “On light scattering by an inhomogeneous medium (in Russian)”, J. Russian Phys. Chem. Soc., Vol. 58, 381, 1926.
- [6] C. V. Raman and K. S. Krishnan, “A new type of secondary radiation”, Nature, Vol. 121, pp. 501-502, 1928.
- [7] E. Gross, “Change of wavelength of light due to elastic heat waves at scattering of liquids”, Nature, Vol. 126, pp. 201-202, 1930.
- [8] W. Hayes and R. Loudon, “Scattering of Light by Crystals”, Wiley, New York, 1978.
- [9] L. C. Parsons and G. T. Andrews, “Probing near-normally propagating bulk acoustic waves using pseudo-reflection geometry Brillouin spectroscopy,” AIP Adv., vol. 2, no. 032157, Aug. 2012.
- [10] K. Hisa, M. Matsukawa, T. Otani, B. D. Huey, G. A. D. Briggs and N. Ohtori, “Birefringence measurement of thin polymer films under tensile stress by a Brillouin Scattering method”, Jpn. J. Appl. Phys., Vo. 43, No. 5A, pp. 3080-3083, (2003).

- [11] J. K. Krüger, J. Embs, J. Brierley, and R. Jimenez, "A new Brillouin scattering technique for the investigation of acoustic and opto-acoustic properties: application to polymers", *J. Phys.*, Vol. 31, pp. 1913-1917, 1998.
- [12] J. R. Sandercock, "Light scattering from thermally excited surface phonons and magnons", In: *Proceedings of the 7th international conference on Raman spectroscopy*, W. F. Murphy (ed), North-Holland, Amsterdam, p. 364, 1980.
- [13] J. Johnson, "A High Resolution Scanning Confocal Interferometer", *Applied Optics*, vol. 7, no. 6, pp. 1061 - 1072, 1968.
- [14] M. Hercher, "The Spherical Mirror Fabry-Perot Interferometer", *Applied Optics*, vol. 7, no. 5, pp. 951 - 966, 1968.
- [15] K. Shintani, T. Yanagitani, M. Matsukawa, and T. Otani, "Non-destructive evaluation of thin ZnO shear wave transducer by Brillouin scattering", *Proc. IEEE Ultrason.Symp.*, vol. 3, pp. 1864–1867, 2004.
- [16] A. S. Pine, "Brillouin scattering study of acoustic attenuation in fused quartz", *Phys. Rev.*, vol. 185, no. 3, pp. 1187-1193, Sep. 1969.

第3章 フォノン励起による散乱

本章では、従来の Brillouin 散乱法での問題点は、測定対象の熱フォノンに由来する Brillouin 散乱光強度が非常に弱く、タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計で十分な散乱ピークを得るためには、安定した測定環境で長時間測定が必要ということであった。この問題点を克服するために、Brillouin 散乱過程で重要となるフォノンを励起することによって、Brillouin 散乱光強度を改善する方法について述べる。

3.1. フォノンの励起原理

通常、熱フォノンは物質内でランダムな方向に振動しており、その振幅は非常に小さい。フォノンの数は振動の振幅と表すことができるため、物質内に存在する熱フォノンの数は非常に少ないといえる。このため、物質内に光子が入射しても、熱フォノンによって光子が非弾性散乱を起こす頻度が低い。したがって、Brillouin 散乱光強度が弱くなる。一般的に用いられるタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計である程度十分な散乱ピークを得るためには、測定試料や測定環境によって異なってくるが、数分から数時間に及ぶ平均加算が必要となる。ここで問題となるのが、タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計の振動や温度といった外部の環境変化に対する安定性が低いことである。この環境変化に対してエタロンの平行度を維持するためにフィードバック制御で常にエタロンを調整しているが、長時間の測定によって制御範囲を超えてしまい、エタロンの平行度が維持できなくなってしまう場合がある。この結果、分光器としての性能が悪化し、正確な Brillouin ピークの測定が不可能になる。

本研究で行ったフォノンの励起とは物質の外部から人工的に音波を伝搬させることで、物質内の格子振動を加振させる。この結果、格子振動の振幅が増幅し、フォノンの数を増やすことにつながる。物質内のフォノンの数が増えることによって光子が非弾性散乱を起こす頻度が高くなり、結果、Brillouin 散乱光強度が強く改善される。Brillouin 散乱光強度が強くなれば、長時間の測定が不要となり、測定精度の向上や容易に 2 次元分布測定が可能になるといったメリットが得られる。

フォノンの励起を用いた Brillouin 散乱光測定は幾つか報告されている。

J. K. Krüger らの研究では、圧電性セラミック試料 (LiNbO₃) に外部から IDT を用いて電界を印加することにより、測定対象である LiNbO₃ を励振し、人工的にフォノンを励起させた[1]。その結果、Fig. 3-1 のように、反ストークス成分の Brillouin 散乱光強度が励起前と比べておよそ 330 倍に改善されている。しかし、この手法では IDT の測定部位によって改善率が異なることや、測定試料が圧電性試料だけに限られるという問題点があった。

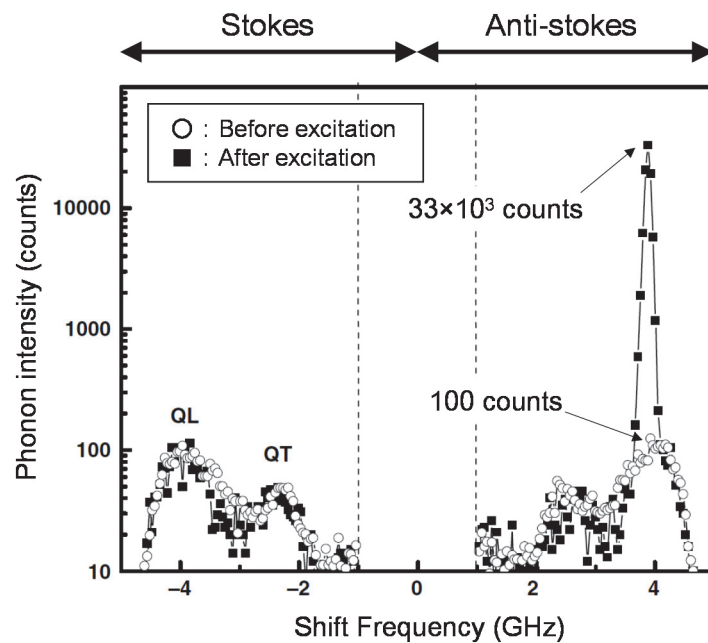


Figure 3-1: Improvement of Brillouin scattering intensity by excitation of phonons in LiNbO₃ (QL: Quasi-Longitudinal phonon mode, QT: Quasi-Transverse phonon mode)[1].

3.2. フォノン励起用トランスデューサの検討

本研究では、光学的に透明なバルク試料であれば、材質を選ばずフォノンを励起することを目的として、トランスデューサを用いて、測定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手法を試みた。

今回用いたトランスデューサは圧電材料を用いた。圧電材料は結晶に加えた応力に伴って電気分極が発生し、結晶表面に正負の電荷が生じる（圧電効果）。逆に、結晶に交流電界を印加すると電界に伴って歪みが生じる（逆圧電効果）。このように圧電材料は電氣的エネルギーと機械的エネルギーを可逆的に変換が可能という特長を持つ。圧電トランスデューサはこの逆圧電効果を利用して電気エネルギーを機械振動に変換することによって音波を発生させる。ここで圧電体を用いた共振子の基本駆動周波数 f_r は式 (3.1) に示すように圧電材料の音速 v_p と圧電材料の膜厚 d_p によって決定される[2-3]。

$$f_r = \frac{v_p}{2d_p} \quad (3.1)$$

この式からわかるように、Brillouin 散乱法で測定する数百 MHz～数十 GHz の高周波音波を発生することができる圧電トランスデューサを作製しようとするとき、圧電材料の薄膜化が重要である。近年では、スパッタリングすることにより Si などの基板の上に圧電薄膜を形成する方法が用いられており、高周波音波を励振できるトランスデューサを容易に製作できるようになってきている[4]。

また、一般的に圧電材料としてロッシェル塩 ($\text{KNaC}_4\text{H}_{12}\text{O}_{10}$)、水晶 (SiO_2)、ニオブ酸リチウム (LiNbO_3) などの単結晶や、チタン酸バリウム (BaTiO_3) やチタン酸ジルコン酸鉛 ($\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$) などの圧電セラミックス（多結晶体）が古くから知られている。さらに、圧電膜として酸化亜鉛 (ZnO) や窒化アルミニウム (AlN)、窒化アルミニウムにスカンジウムをドーピングした窒化スカンジウムアルミニウム (ScAlN)、高分子では PVDF や P(VDF-TrFE)（ポリフッ化ビニリデン三フッ化エチレン共重合体）などが利用されている[3, 5]。

本研究では薄膜化が容易である ZnO 圧電薄膜と ScAlN 圧電薄膜を用いて圧電トランスデューサを製作した。この2種類の圧電材料は六方晶系に属しており圧電軸

(c 軸) の配向方向を制御して成膜することによって縦波音波や横波音波を励振することができる。

Fig. 3-2(a) のように c 軸を基板面に対して垂直に成膜すると縦波音波が励振され、Fig. 3-2(b) のように c 軸を基板面に対して平行に成膜すると横波音波が励振される。さらに、Fig. 3-2(c) に示すような傾斜配向で成膜すると、縦波と横波音波が同時に励振される[6]。

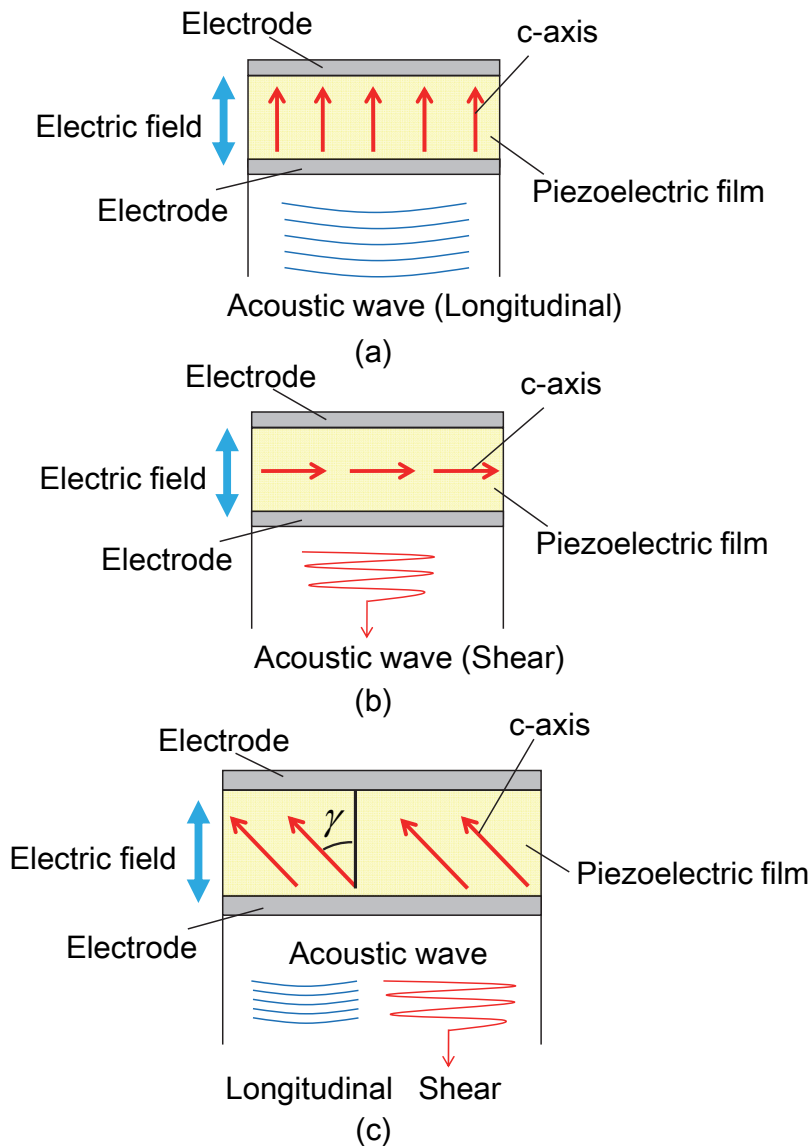


Figure 3-2: Relationship between crystalline orientation and acoustic waves.

3.2.1 ZnO 薄膜

ZnO は弾性波デバイス用の圧電材料の一種である。ZnO 膜は六方晶ウルツァイト型に属した II-IV 族半導体である。ZnO の圧電定数 d_{33} は 12.4 pC/N [7-8]で、スパッタなどで簡単に薄膜化でき、GHz 帯の音波の励振が可能となる。ZnO 膜は同じ六方晶系に属する CdS, AlN と比較して大きな電気機械結合係数をもつ。使用する材料が安全で安価なうえ、成膜後の分極処理が不要のため、最もよく研究・実用化されている[9-11]。良好な圧電性を持たせるためには、良好な配向性と高い抵抗率が必要とされる。c軸配向 ZnO 薄膜はスパッタ法などにより容易に薄膜化できるため、圧電トランスデューサや表面波デバイスなどに広く用いられている。

吉田らは、この ZnO 圧電薄膜を用いて測定試料上にトランスデューサを製作し、圧電性を持たない試料内部にコヒーレントフォノンを励起することによって Brillouin 散乱光強度の改善を行っている[12]。ZnO 圧電薄膜トランスデューサに周波数 3.65 GHz 、 15 dBm の電界を印加し、縦波フォノンを励起することによって、ストークス側の Brillouin ピークが約 200 倍改善した結果が報告されている (Fig. 3-3)。また、横波音波についても周波数 3 GHz 、 15 dBm の電界を印加することによって Brillouin ピークは約 116 倍改善することが確認されている (Fig. 3-4)。

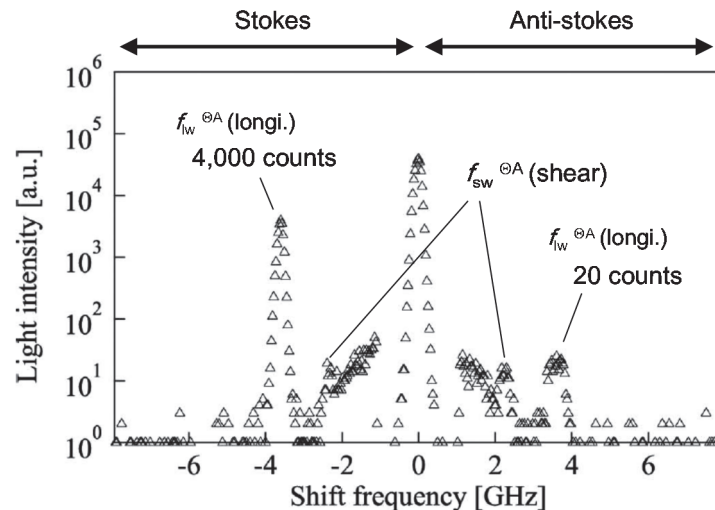


Figure 3-3: Brillouin spectra from a silica glass sample with shear wave excitation ($\theta/2=12.0^\circ$, $f_{sw}=3.00 \text{ GHz}$). Number of scans was 500[12].

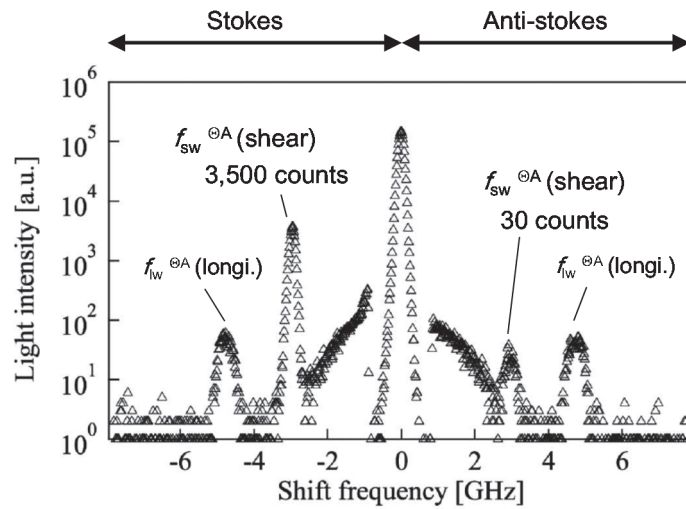


Figure 3-4: Brillouin spectra from a silica glass sample with longitudinal wave excitation ($\theta/2=9.0^\circ$, $f_{\text{long}}=3.65$ GHz). Number of scans was 100[12].

3.2.2 ScAlN 薄膜

ScAlN は ZnO などと同じ弾性波デバイス用の圧電材料である。この ScAlN は Sc の濃度 x によって構造が変化する特徴があり、濃度 x が 40 %以下で AlN 優位の六方晶、50 %以上では ScN 優位の立方晶となる。また、40 ~ 50 %の間では相転移が生じる。濃度 x と ScAlN の圧電定数 d_{33} の関係を Fig. 3-5 に示す[13]。これからわかるように、Sc の濃度が 43 %のとき、 $\text{Sc}_{(0.43)}\text{Al}_{(0.57)}\text{N}$ の圧電定数 d_{33} が最大の 24.6 pC/N に達し、AlN や ZnO に比べておよそ 2 ~ 4 倍大きい圧電性を示す。これは、現状の窒化物では最も高い値を示す。しかし、Sc 濃度が 43 %以上になると、圧電定数は急激に低下してしまうので、ScAlN の製作において濃度調節が非常に重要となる。さらに、この 24.6 pC/N という値はピエゾメータで測定した直流的な測定値である。しかし、実際に圧電デバイスへ応用するためには、圧電定数が膜の弾性的変化や誘電率変化に依存することを考慮して、エネルギー交換効率を直接示す圧電性の指標の一つである電気機械結合係数 k で評価する必要がある。

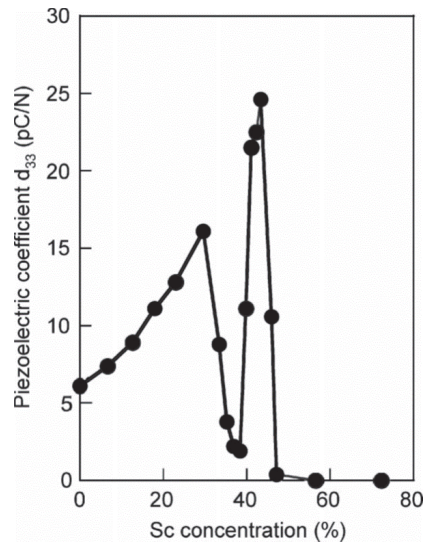


Figure 3-5: Piezoelectric coefficient d_{33} as a function of Sc concentration[13].

そこで、最近の研究で、Fig. 3-6 の図のように、Sc 濃度が相変異境界付近の 41 % のとき、電気機械結合係数 k_t^2 が一番高く ($k_t = 0.35$)、弾性定数 c_{33}^E が一番低いことが報告されている[14]。ここで、電気機械結合係数 k_t^2 とは、厚み方向の入力電気エネルギーに対する出力機械エネルギーの交換効率を表す量であり、弾性定数 c_{33}^E は内部電界が一定の場合の弾性定数のことである。

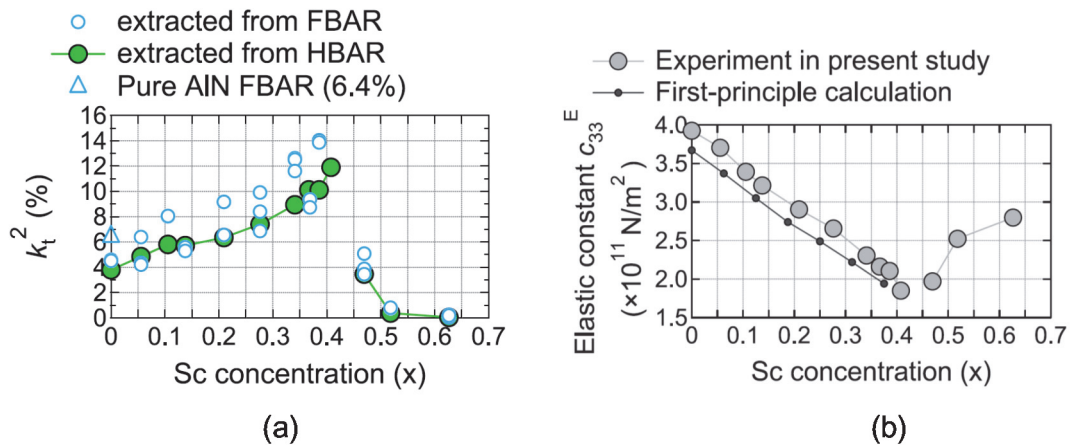


Figure 3-6: Piezoelectric properties of ScAlN film. (a) Thickness extensional mode electromechanical coupling coefficient as a function of the Sc concentration. (b) Elastic constant as a function of the Sc concentration[14].

3.3. まとめ

本章では、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コヒーレントなフォノンを励起することによって、光子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する。本研究ではフォノンを人工的に励起する手段として、膜厚を制御することによって 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。

ZnO 圧電薄膜は古くからトランスデューサに応用されており、成膜の制御方法などの研究が進んでいる。一方で、ScAlN 圧電薄膜は Sc 濃度を調整することによって非常に強い圧電性を示すことが近年報告され、新たな圧電材料として注目されている。本研究では Brillouin 散乱光強度の改善を目指して ScAlN 圧電薄膜トランスデューサによるフォノン励起によって基礎実験を行った。また、様々なトランスデューサを製作する場合には成膜技術が成熟している ZnO 圧電薄膜も採用した。

参考文献

- [1] J. K. Krüger, B. Vincent, O. Elmazria, L. Bouvot, and P. Alnot, “Brillouin microscopy on microwave-induced phonons in LiNbO₃”, *New. J. Phys.*, Vol. 6, pp. 57-65, 2004.
- [2] 日本学術振興会弾性波素子技術第 150 委員会編「弾性波デバイス技術」オーム社 2004
- [3] 超音波便覧編集委員会編「超音波便覧」丸善 1999
- [4] S. Takayanagi, T. Yanagitani, M. Matsukawa, “Effect of metal mode and oxide mode on unusual c-axis parallel oriented ZnO film growth on Al/glass substrate in a reactive magnetron sputtering of Zn target”, *J. Crystal Growth*, Vol. 363, pp. 22-24 (2013).
- [5] 塩寄忠「圧電材料」シーエムシー出版 1987
- [6] T. Yanagitani, N. Morisato, S. Takayanagi, M. Matsukawa, Y. Watanabe, c-Axis Zig-Zag ZnO film ultrasonic transducers for designing longitudinal and shear wave resonant frequencies and modes, *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq. Contr.*, Vol. 58, No. 5, pp. 1062-1068 (2011)
- [7] K. Jeganathan, T. Kitamura, M. Shimizu, and H. Okumura, “High-Quality Growth of AlN Epitaxial Layer by Plasma-Assisted Molecular-Beam Epitaxy”, *Jpn. Appl. Phys.*, Vol. 41, L28, 2002.
- [8] A. D. Corso, M. Posternak, R. Resta and A. Baldereschi, “Ab initio study of piezoelectricity and spontaneous polarization in ZnO”, *Phys. Rev. B*, Vol. 50, 10715, 1994.
- [9] S. Takayanagi, T. Yanagitani, M. Matsukawa, “A method for predicting the crystalline orientation of ZnO film in depth direction using piezoelectric distribution”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, Vol. 46, p. 315305 (2013).
- [10] T. Kawamoto, T. Yanagitani, M. Matsukawa, Y. Watanabe, Y. Mori, S. Sasak, M. Oba, “Large-area growth of in-plane oriented (1120) ZnO films by linear cathode magnetron sputtering”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 49, No. 7, p. 07HD16 (2010).

- [11] 八百隆文 監修「ZnO 系の最新技術と応用」シーエムシー出版 2007
- [12] T. Yoshida, M. Matsukawa, and T. Yanagitani, “Observation of Induced Longitudinal and Shear Acoustic Phonons by Brillouin Scattering”, IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control., Vol. 58, pp. 1255-1260, 2011.
- [13] M. Akiyama, T. Kamohara, K. Kano, A. Teshigahara, Y. Takeuchi, and N. Kawahara, “Enhancement of Piezoelectric Response in Scandium Aluminum Nitride Alloy Thin Films Prepared by Dual Reactive Cosputtering”, Adv. Mater., Vol. 21, pp. 593-596, 2009.
- [14] T. Yanagitani and M. Suzuki, “Electromechanical coupling and gigahertz elastic properties of ScAlN films near phase boundary”, Appl. Phys. Lett., Vol. 105, 122907, 2014.

第4章 圧電トランスデューサを用いた

コヒーレントフォノン励起

4.1. 目的

本章では、Brillouin 散乱光のピーク強度を改善するために圧電薄膜を用いて測定試料の外部から人工的にフォノンを励起することを試みた。これまで、ZnO 圧電薄膜トランスデューサを用いて圧電性を持たない試料内部にもフォノンを励起させ散乱光強度の改善に成功している[1-2]。本章では、ZnO 圧電薄膜よりも優れた圧電性を有する ScAlN 圧電薄膜を採用し、石英ガラス内の縦波および横波音波に由来する Brillouin 散乱光強度の改善結果について述べる。

4.2. 測定試料と実験光学系

測定対象として石英ガラス (ED-H, TOSOH, $5 \times 5 \times 20 \text{ mm}^3$) を用いた。このタイプの石英ガラスは櫛引らによって音速が精密測定されており、縦波音速は $5,961.3 \text{ m/s}$ 、横波音速は $3,766.8 \text{ m/s}$ と報告されている[3]。本章では、より効率的にフォノンを励起することを重視して、強い圧電性を示す ScAlN を採用し、石英ガラスに直接 ScAlN 圧電薄膜トランスデューサを成膜した。本章で用いたトランスデューサは早稲田大学柳谷博士によって石英ガラス上に作製されたものであり、Sc 濃度は高い圧電特性を示す 41 % に設定した $\text{Sc}_{(0.41)}\text{Al}_{(0.59)}\text{N}$ としている。

本実験で用いた測定試料を Fig. 4-1 に示す。まず、測定対象である石英ガラスを圧電薄膜の基材とし、DC スパッタ蒸着によって厚さ約 150 nm の Ti 薄膜を試料の一面に成膜した。その上に RF マグネトロンスパッタ法によって厚さ約 4 μm の ScAlN を成膜した[4]。なお、ScAlN の c 軸の配向方向は成膜面に対してほぼ垂直方向としている。さらに ScAlN の上に Ti を蒸着することによって HBAR (High-overtone Bulk Acoustic Resonator) 共振子とした。HBAR の圧電薄膜トランスデューサは、基板の上に圧電薄膜が上部電極と下部電極に間に挟まれた状態で成膜されている構造をした共振器のことである。通常のパルク波共振子 (Bulk

Acoustic Wave Resonator ; BAW Resonator) や表面波共振子 (Surface Acoustic Wave Resonator ; SAW Resonator) で圧電薄膜が用いられる場合よりも, HBAR の方がより効果的な圧電性が得られることが報告されている[5]. このとき, 電極のサイズは直径約 0.5 mm とし, インピーダンスを 50Ω に設定している. この HBAR に対して高周波プローブ (Z10-V-SG-750, Cascade Microtech) を用いて薄膜に電界を印加して高周波音波を発生させ, 石英ガラス内にフォノンを励起する.

また, 本章では散乱配置として R θ A 散乱配置を採用し, 試料の面内方向に伝搬する音波に着目している. このため, 光学的反射板として ScAlN 薄膜を成膜した面に対して 90° 回転した面に, 厚さ約 300 nm の Al を蒸着した.

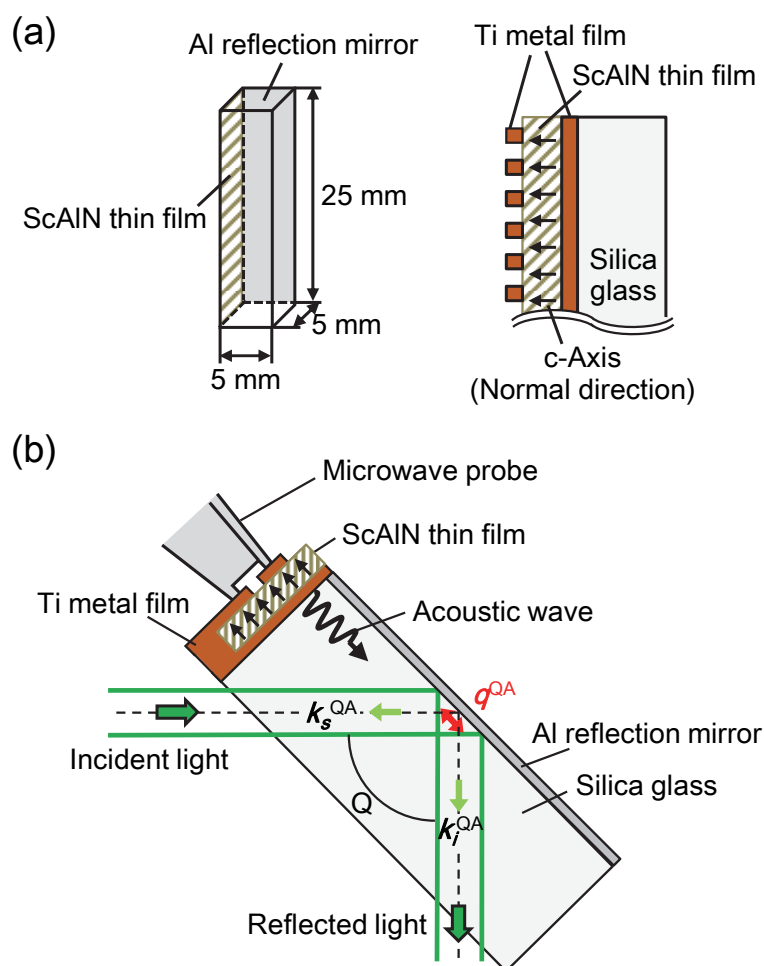


Figure 4-1: Sample configurations. (a) Measurement sample and the structure offilms. (b) Top view of the sample with the induced phonon image.

さらに、石英ガラスに成膜した ScAlN 圧電薄膜の配向方向を評価するために、極点 X 線回折法を用いた。今回製作した ScAlN 圧電薄膜の c 軸の傾斜方向を確認するために、 ω - 2θ 走査 X 線回折法ではなく極点 X 線回折法を用いて ScAlN 圧電薄膜の結晶配向性を評価した。

結晶軸方向のばらつきは大きく分けて次の二つである。

- (1) 基板面法線方向に対する傾斜角度のばらつき (ψ 方向)。
- (2) 基板面内方向のばらつき (ϕ 方向)。

上記の 2 種類のばらつきを評価するため、2.2.1 節で述べたように 2θ は 34.42° で固定することで(0002)面極点図を測定した (X-pert Pro MRD, Philips)。極点図とは、全ての微結晶の極を投影した球を 2 次元で表したステレオ投影図である。よって、極の集中度合より上記(1)、(2)のばらつきを評価することができ、極が集中しているほど結晶軸が一方向に配向していることを意味する。石英ガラス上に成膜した ScAlN 薄膜の配向特性を極点 X 線回折法で確認した結果を Fig. 4-2 に示す。この図は(0002)面の極点図であり、極の集中から ScAlN の c 軸が一方向に配向していることがわかる。また、c 軸が成膜面に対して垂直方向からわずかに傾斜していることも確認できる。具体的な傾斜方向を評価するため、(0002)面 ψ 走査 X 線回折法を行い、具体的な c 軸傾斜角度を求めた。この測定結果を Fig. 4-3 に示す。これより、 $\psi=5.0^\circ$ であり、成膜面の垂直方向から 5.0° 傾斜していることがわかった。また、 ψ 軸と ϕ 軸のピークの半値全幅 FWHM はそれぞれ、 3.8° と 27° であり、配向度の高い薄膜といえる[6]。

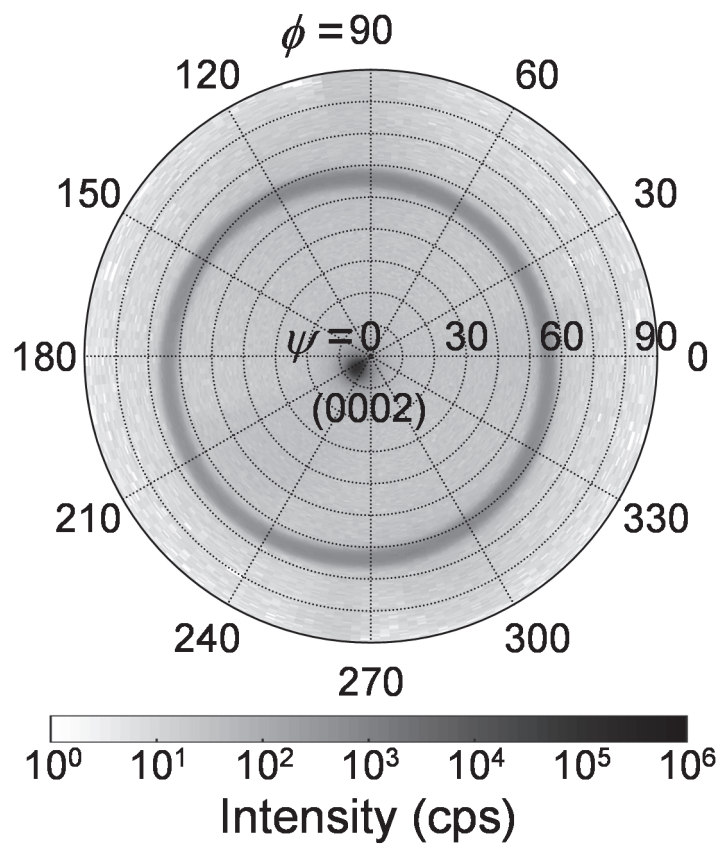
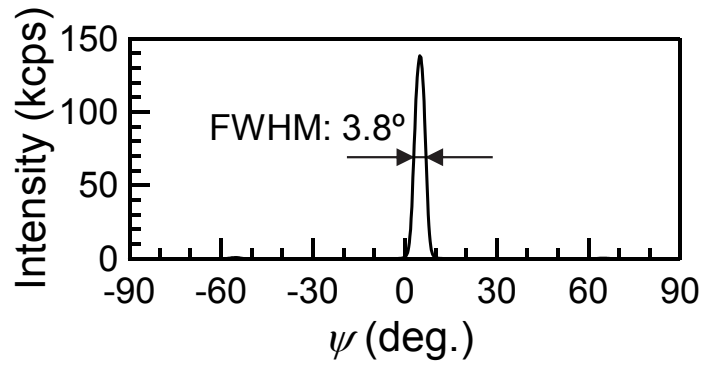
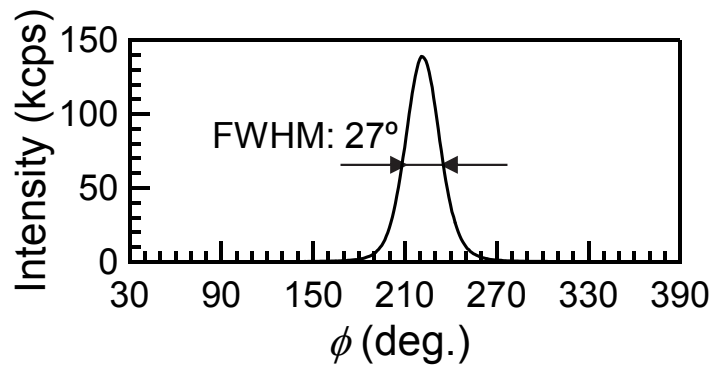


Figure 4-2: XRD (0002) pole figure of the ScAlN film grown on the Ti film/silica glass bar.



(a)



(b)

Figure 4-3: (a) ψ -scan, and (b) ϕ -scan profile curves of (0002) pole of the ScAlN film grown on the Ti film/silica glass bar.

また、ネットワークアナライザ (E5071C, Agilent Technologies) を用いて石英ガラス上に作製した ScAlN 圧電薄膜トランスデューサの共振周波数を確認した。ScAlN 圧電薄膜トランスデューサのインパルス応答の結果を Fig. 4-4 に示す。ScAlN の c 軸が 5° 傾斜していることから、縦波音波だけでなく疑似横波音波も発生していることが確認できた。たま、それぞれの音波が周期的に表れているが、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサから石英ガラス内を伝搬した音波が端面で反射し、石英ガラス内を往復しているためである。

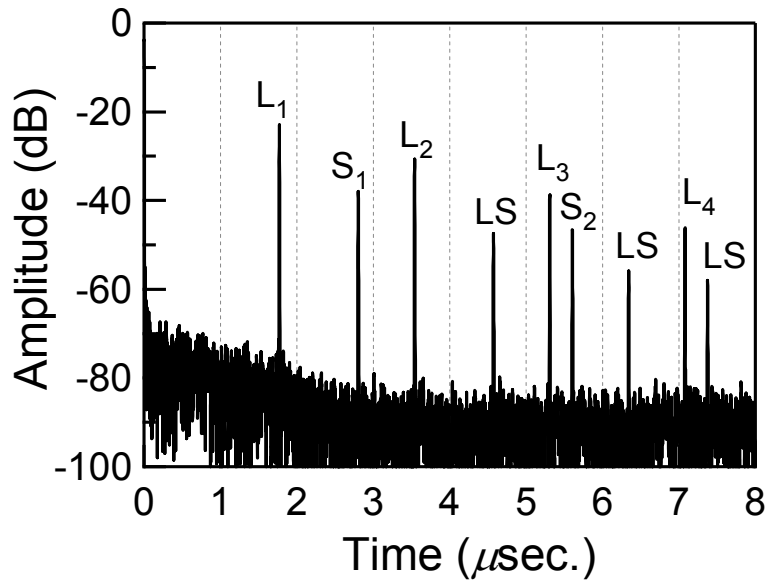


Figure 4-4: Impulse response of the transducer on silica glass sample.

Fig. 4-5 にネットワークアナライザで測定した ScAlN 圧電薄膜トランスデューサの縦波音波のと横波音波の挿入損失を示す. ここで, 挿入損失は Fig. 4-4 において, 縦波は L1, 横波は S1 のパルス波形を逆フーリエ変換することで得られる. これより, 縦波音波の共振周波数は 875 MHz であり, 横波音波の共振周波数は 622 MHz であった.

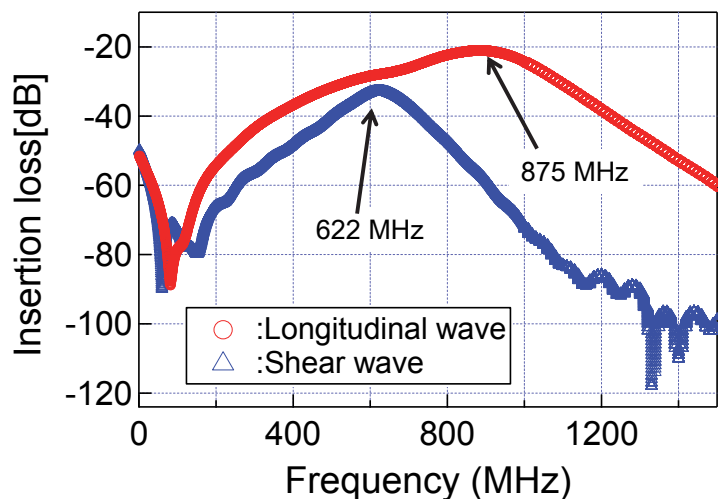
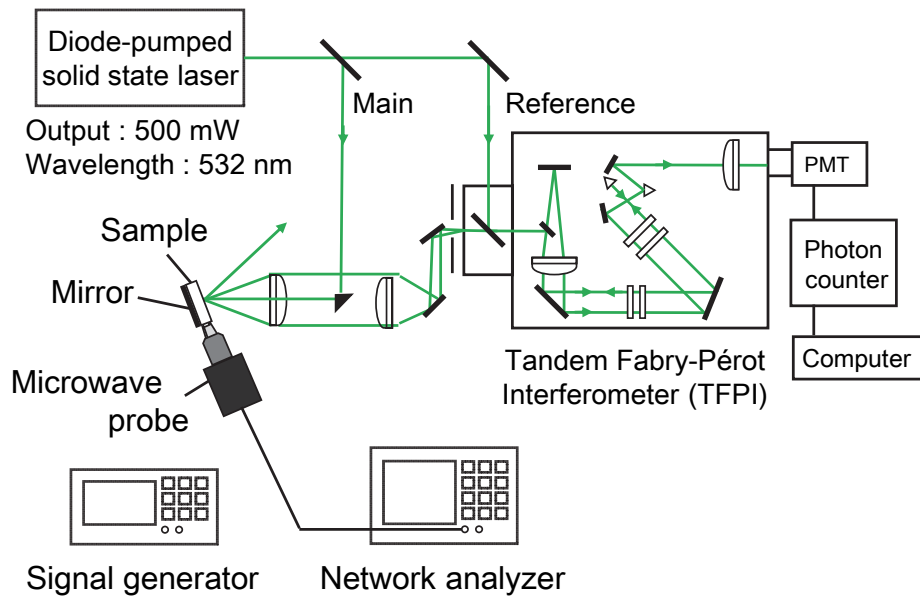
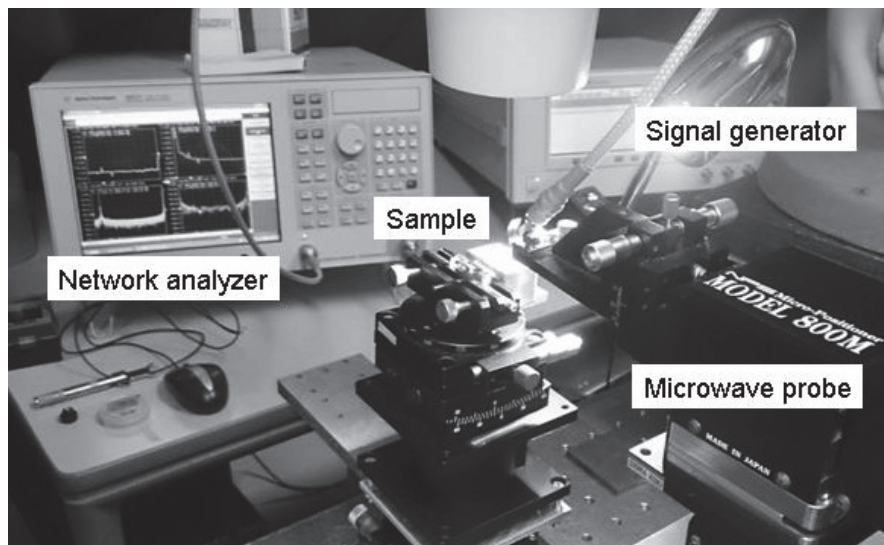


Figure 4-5: Frequency response of the longitudinal and shear wave conversion loss, which is obtained by an inverse Fourier transform of the first longitudinal and shear wave echo.

次に、TFPI を用いて Brillouin 散乱光の分光を行った実験系を Fig. 4-6 に示す。



(a)



(b)

Figure 4-6: (a) Brillouin scattering measurement system with TFPI.

(b) Photograph of the measurement system.

ネットワークアナライザで得られるトランスデューサの挿入損失の波形から高周波プローブの接続を確認した後、高周波プローブを信号発生器（E8257D、

AgilentTechnologies)へ繋ぎ換えてトランスデューサに電界を印加した。ここで、縦波音波の Brillouin ピーク強度を改善するためには ScAlN 圧電薄膜トランスデューサの縦波共振周波数である 875 MHz の連続波を、横波音波の Brillouin ピーク強度を改善するためには横波の共振周波数である 622 MHz の連続波を印加した。また、印加する電界の入力電圧はそれぞれ 0 dBm としている。この結果、ScAlN 薄膜の圧電効果によって、印加した電界の周波数に一致する縦波もしくは横波音波を励振し、試料内のフォノンがコヒーレントに励起される。

ここで、R θ A 散乱配置を用いて観測するフォノンの波長を選択する必要があるが、本実験では音速が既知の試料を用いるため、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサの共振周波数と一致する入射角とした。第 1 章で述べた式 (2.15) に縦波音速、横波音速とそれぞれの励振周波数を代入することで、入射角を算出することができる。

縦波音波の場合、 $v_L^{\theta A} = 5961.3 \text{ m/s}$, $f_L^{\theta A} = 875 \text{ MHz}$ より

$$\frac{\theta'}{2} = \sin^{-1} \left(\frac{\lambda_i f_L^{\theta A}}{2v_L^{\theta A}} \right) = \sin^{-1} \left(\frac{532 \text{ nm} \times 875 \text{ MHz}}{2 \times 5961.3 \text{ m/s}} \right) = 2.23^\circ \quad (4.2)$$

また、横波音波の場合、 $v_S^{\theta A} = 3766.8 \text{ m/s}$, $f_S^{\theta A} = 622 \text{ MHz}$ より

$$\frac{\theta'}{2} = \sin^{-1} \left(\frac{\lambda_i f_S^{\theta A}}{2v_S^{\theta A}} \right) = \sin^{-1} \left(\frac{532 \text{ nm} \times 622 \text{ MHz}}{2 \times 3766.8 \text{ m/s}} \right) = 2.51^\circ \quad (4.3)$$

となる。これより、縦波音波の Brillouin ピークの改善効果を確認する場合は入射角を $\theta'/2=2.23^\circ$ に選択し、横波音波の場合は入射角を $\theta'/2=2.51^\circ$ とした。なお、音速の測定点は ScAlN 圧電薄膜から近く、光学的反射材として蒸着した Al 薄膜の厚さが安定している場所とし、ScAlN 圧電薄膜から約 1 mm 離れた点とした。

4.3. 縦波フォノンの励起

Fig. 4-7 にフォノンを励起していない状態で石英ガラスを測定した Brillouin 散乱スペクトルを示す。ここで、測定時間は約 1 分とした。この場合、Brillouin ピークは非常に弱く 900 MHz 付近にわずかにピークが確認できる程度である。反ストークス側のピーク強度は約 430 cps であった。従来の測定であれば、測定時間を延ばすことによって S/N 比を改善し、Brillouin ピーク解析を行うことになる。なお、Fig. 4-7 において Rayleigh 成分のピークが Stokes 側に歪んでいることがわかる。これはスペクトル測定において TFPI のミラースペースを非常に大きな値に設定しているためである。本章では縦波 875 MHz、横波 622 MHz の Brillouin ピークを観測するため、ミラースペースを設定上限に近い 30 mm とした。これによって、より低周波領域のスペクトル測定が可能になるが、FP の平行度が僅かでもずれると、光学フィルタとしての特性が悪化し、低周波数側に歪んだスペクトルが観測されることになる。

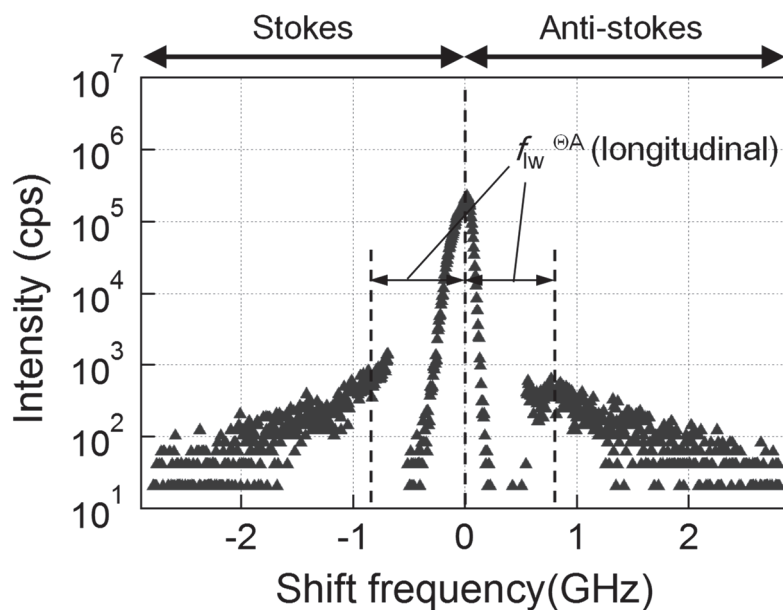


Figure 4-7: Measured Brillouin spectrum in the silica glass without induced longitudinal wave.

一方で, ScAlN 圧電薄膜トランスデューサでフォノンを励起した状態で石英ガラスを測定した Brillouin 散乱スペクトルを Fig. 4-8 に示す. 励起していない場合と同様に測定時間は約 1 分である. 外部から人工的にフォノンを励起することによって, Brillouin ピークの強度が大幅に改善していることがわかる. このとき反ストークスのピーク強度は約 37.2×10^5 cps (37.2×10^8 cps/W) となり, 励起していない場合と比較してピーク強度が約 8,600 倍改善した. ここで, cps/W はトランスデューサに入力した電力あたりの計数率を表している. これにより, 一回の測定時間を大幅に削減できることを確認した. しかし, フォノンを励起した場合の Brillouin ピークの半値全幅が約 140MHz と幅の広いピークとなっている. これは TFPI の周波数フィルタの特性に依存している. 本来 Brillouin ピークの半値全幅は第 2 章でも述べたとおり, 試料を伝搬する音波の減衰情報が含まれている. しかし, 外部から人工的にフォノンを励起する本手法では連続的なコヒーレントフォノンを観測していることになり, 従来の熱フォノンの吸収とは異なる. このため Brillouin ピークの半値全幅は音波の減衰を表していないことになり, 注意が必要である.

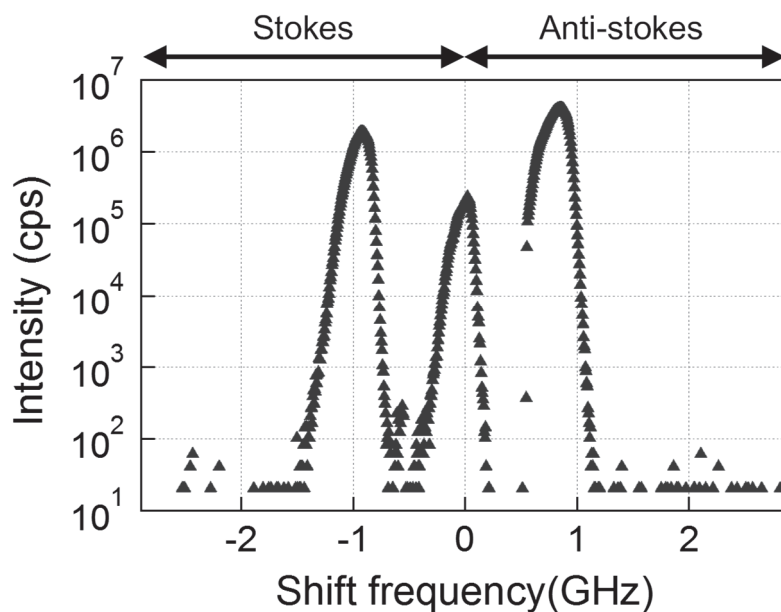


Figure 4-8: Measured Brillouin spectrum in the silica glass with induced longitudinal wave.

また, 過去に吉田らによって ZnO 圧電薄膜トランスデューサを用いた同様の実験が報告されている[1].この結果と本実験で得られたピーク強度の改善率を比較す

ると、トランスデューサの材料を ZnO から ScAlN へ変更することによって、約 1,400 倍効果があることがわかる。これは ScAlN 圧電薄膜が強い圧電特性を有しているからと言える。

本実験で得られたそれぞれのスペクトルから Brillouin ピークのシフト周波数を定量するために Voigt 関数でフィッティングを行った。この結果、縦波音速を式 (2.12) から求めると、励起無しの場合、石英ガラスの縦波音速は 5.60×10^3 m/s と算出された。このとき Brillouin ピークのシフト周波数のフィッティングによる推定誤差は 8 MHz であった。これが音速誤差 0.05×10^3 m/s の要因となる。一方でフォノンを励起した場合、縦波音速は 6.00×10^3 m/s と算出された。同様に音速誤差は 0.02×10^3 m/s と 1% 以下を実現し、従来の測定法に比べて速く、精度の良い測定が可能であることを示した。なお、実のところフォノンを励起した場合、Brillouin ピークの強度が改善される周波数はトランスデューサで励振した周波数と一致するため、Brillouin ピークのシフト周波数解析は不要となる。したがって、音速の誤差は、周波数測定による推定誤差はなく、レーザー光の入射角精度のみに起因することになる。今回得られた縦波音速からレーザー光の入射角を逆算すると 2.20° であった。推定した入射角と設定した入射角との間には約 1% (0.1×10^3 m/s) の差があり、これは入射角の設定誤差であると考えられる。

今回、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサを測定試料の一面に作製したことによって、励起されたフォノンはトランスデューサから一方向に伝搬するため、通常はストークスと反ストークスで非対称の Brillouin ピークが得られる。Fig. 4-9 で示すようにトランスデューサから伝搬する励起フォノンのベクトルが一致する反ストークスの Brillouin ピークの強度が強められることが予想される。

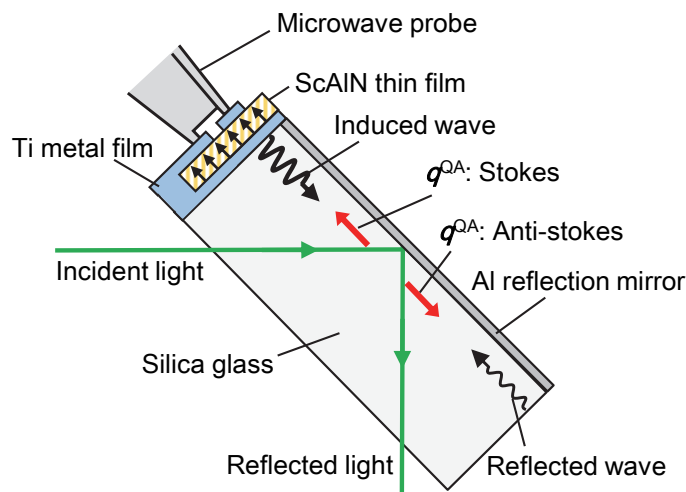
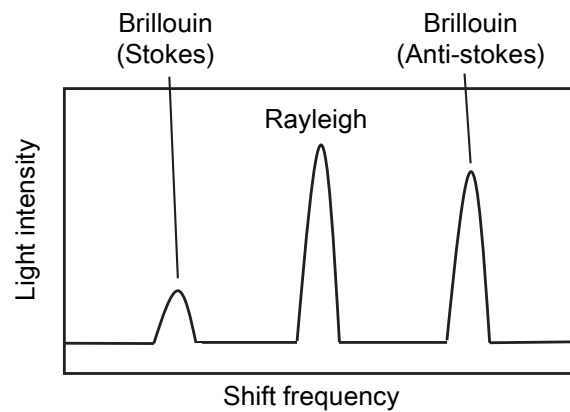


Figure 4-9: Predicted Brillouin spectrum.

しかし、Fig. 4-8 で得られたスペクトルではストークス側にも強い Brillouin ピークが得られた。これは測定試料からトランスデューサに向かって伝搬するフォノンに対応する。また、ストークスのピークは反ストークスのピークよりわずかに小さかった。ScAlN 圧電薄膜トランスデューサ（直径 0.5 mm）と波長（6.8 μm ）の大きさから、測定試料内の波面の状態を推定することができる。875 MHz では、試料全体がほぼ近距離音場（フレネルゾーン）にあった[7]。この場合、音波はほぼ平面波のように伝搬し、試料の反対面で反射しトランスデューサに戻る。このため、ストークスの Brillouin 成分の強度が改善した理由として、試料の端面で反射した音波によって伝搬方向が逆転したフォノンが励起されたと考えられる。そこで、実際に得られたスペクトルの二つのピーク比と試料での音波の反射や伝搬距離から石英ガラスの縦波音波の減衰率を推定した結果を Fig. 4-10 に示す。反ストークス側のピーク強度は ScAlN 圧電薄膜から 1 mm 離れており、ストークス側のピーク強度

は試料の端面で反射したフォノンによるため、ScAlN 圧電薄膜から 9 mm 伝搬していることになる。これより、ストークス側と反ストークス側のピーク強度比から求めた減衰率は約 8.0 dB/cm となり、報告されている石英ガラスの縦波音波の減衰率 7.3 dB/cm と比較し良好な値が得られた[8].

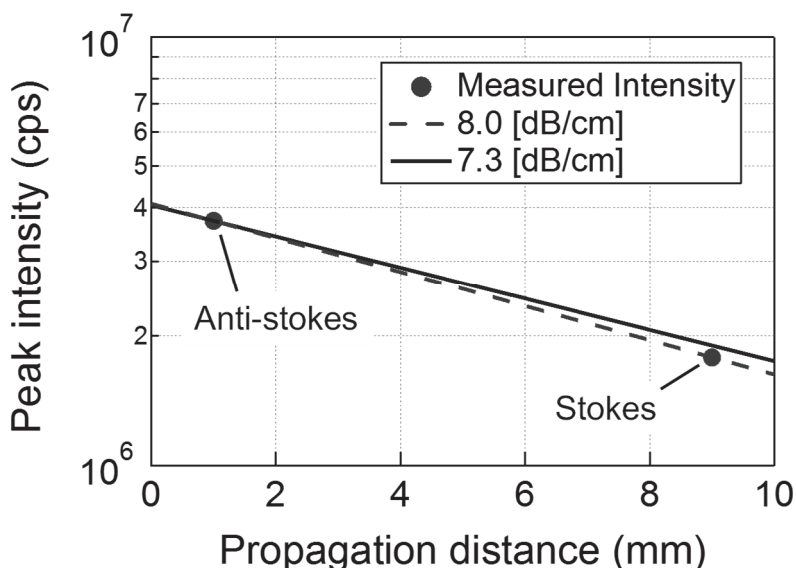


Figure 4-10: Light intensity as a function of a distance from the microprobe.

次に、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサに印加する電力と Brillouin 散乱光ピーク強度の関係を調べるために、信号発生器の入力電力[dBm]を変化させた。すべての測定条件は同様の下、信号発生器の入力電力のみを-10 dBm から 16 dBm まで変化させながら、それぞれの場合の Brillouin 散乱強度を測定した。その結果、Fig. 4-11 のように、入力電力の増加に従って、Brillouin 散乱光強度は大きくなっている。よって、高周波プローブを用いて ScAlN 圧電トランスデューサに電界を印加することによって Brillouin 散乱光強度が改善されたことがわかる。これはトランスデューサによって音波を励振することによって測定試料内のフォノンが励起されたと言える。また、本実験では大きな電力を印加すると散乱光強度が強くなりすぎて光電子増倍管を破損させる恐れがあるため、16 dBm 以上の電力は入力しなかったが、原理上はより大きな電力を入力することによって散乱ピークの強度をさらに大きくできることが示された。

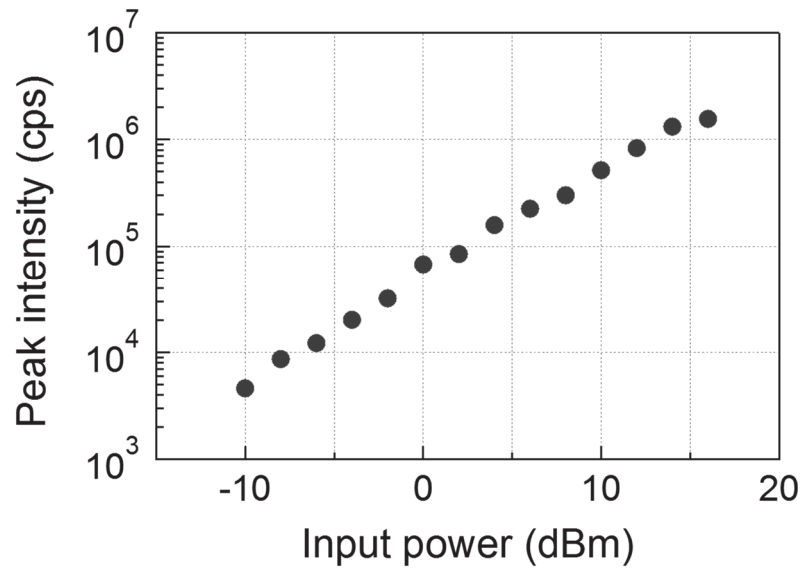


Figure 4-11: Intensity of the excited Brillouin scattering as a function of input power.

4.4. 横波フォノンの励起

縦波音波と同様に、フォノンを励起しない状態で石英ガラスを測定した Brillouin 散乱スペクトルを Fig. 4-12 に示す。ここで、測定時間は約 10 分とした。本実験ではレーザ光の入射角をわずかに大きくしているため、縦波音速測定の場合に比べシフト周波数が大きくなっている。このとき、横波音波の Brillouin ピークは反ストークス側の 640 MHz 付近に約 620 cps であった。

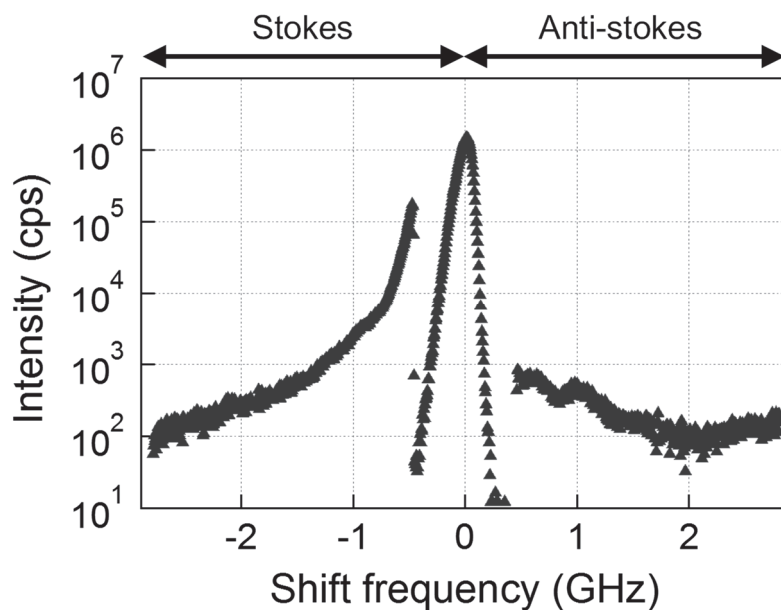


Figure 4-12: Measured Brillouin spectrum in the silica glass without induced shear wave.

Fig. 4-13 に 622 MHz の横波音波を励振し、試料内のフォノンを励起した場合の Brillouin 散乱スペクトルを示す。ここで測定時間は約 5 分とした。縦波フォノンの励起のときと同様に Brillouin ピークの強度が改善され、反ストークスのピーク強度は約 60.7×10^4 cps (60.7×10^7 cps/W) となり、励起していない場合と比較してピーク強度が約 970 倍改善した。

ただし、横波のピーク強度改善率は縦波に比べて小さなものであった。この原因は ScAlN 圧電薄膜トランスデューサの挿入損失の値が横波に比べて縦波の方が小さいため、音波の励振強度そのものが異なるためと考えられる。また、横波の場合

でも、ストークス側のピーク強度が同時に改善されていることがわかる。しかし、フォノン励起時のストークス側、反ストークス側のピーク強度を比較すると、縦波の場合と異なり、ストークス側の強度が大きくなる結果となった。これは、ストークス側の Brillouin 成分が Rayleigh 成分と重なりあっているためである。

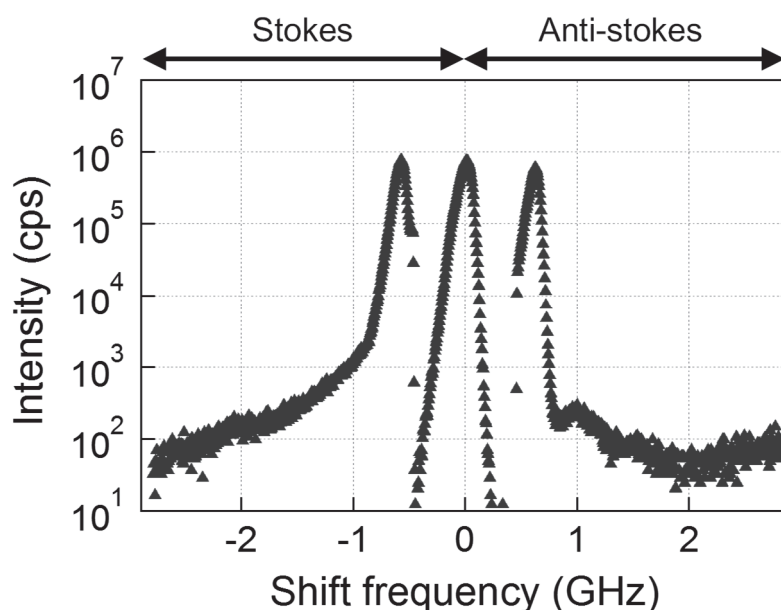


Figure 4-13: Measured Brillouin spectrum in the silica glass with induced shear wave.

一般的なタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計を用いた Brillouin 散乱測定で測定する周波数に比べて今回測定した周波数（622 MHz）は低いため、Rayleigh 成分との分離が難しくなってくる。本実験においても TFPI のミラースペースを 30 mm に設定しているため、縦波フォノンを励起した際と同様にピークが低周波側に歪んでいる。この結果、ストークス側と反ストークス側の Brillouin ピーク強度比から減衰率を推定するためにはストークス側の Brillouin 成分を Rayleigh 成分から分離する必要が出てくる。これより、Brillouin ピーク強度から測定試料の音波減衰の値を推定するためにはおおよそ 800 MHz を超える周波数である必要があることがわかった。

4.5. まとめ

本章では、Brillouin 散乱光のピーク強度を改善するために圧電薄膜を用いて測定試料の外部から人工的にフォノンを励起することを試みた。圧電薄膜トランスデューサの材料として優れた圧電性を有する ScAlN 圧電薄膜を採用し、石英ガラスの縦波および横波音波に由来する Brillouin 散乱光の強度が大幅に改善することを確認した。ここで、散乱配置は RIOA 散乱配置を採用し、試料の面内方向に伝搬する音波に対して強度改善を試みた。

縦波音波については、フォノンを励起しない場合のピーク強度は約 430 cps であったのに対し、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 37.2×10^5 cps とおおよそ 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、レーザ光の入射光を変化させ、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のピーク強度は約 620 cps に対し、励起した場合は約 60.7×10^4 cps となり、励起していない場合と比較してピーク強度が約 970 倍改善した。なお、縦波音波と比較して改善率が小さかったが、これは、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサの挿入損失が縦波より横波の方が大きく、そもそも励起フォノンの強度が異なっていたためと考えられる。

以上より、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサを用いて測定試料の外部からフォノンを励起することによって、これまでに報告されていた値に比べ大幅に縦波音波および横波音波の Brillouin 散乱光強度を改善できた。散乱光強度を改善できたことは、タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計を使用する時間（測定時間）を大幅に短縮できる可能性を示した。

しかし、今回採用した手法には幾つかの問題点が存在することも明らかになった。問題点について以下に述べる。

- (1) トランスデューサで励振できる縦波と横波の周波数が異なるため、縦波音波と横波音波の同時観測ができない。
- (2) ScAlN 圧電薄膜で強い散乱光強度が得られたが、分光器としてタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計を用いているため、干渉計の取り扱いや測定環境に配慮する必要がある。
- (3) トランスデューサに電界を印加する手法が高周波プローブによる接触のため、機械振動に弱く、また音波励振の再現性が悪い。
- (4) 測定試料に圧電薄膜を直接成膜しているため、成膜不可能な材料には適用できない。

これらの問題により、たとえ散乱光の測定時間の短縮が見込めたとしても、フォノンを励起する工程で手間がかかってしまい、全体的な測定時間短縮とはならない。そこで、次章では上記の問題点に対する解決法について述べる。

参考文献

- [1] T. Yoshida, M. Matsukawa, and T. Yanagitani, “Observation of Induced Longitudinal and Shear Acoustic Phonons by Brillouin Scattering”, IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control., Vol. 58, pp. 1255-1260, 2011.
- [2] H. Sano, T. Yanagitani, S. Takayanagi, T. Sugimoto, and M. Matsukawa, “High-Performance Brillouin Spectroscopy of Phonons Induced by Piezoelectric Thin Film with a Coaxial Microwave Resonator”, IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control., Vol. 60, pp. 873-876, 2013.
- [3] J.-I. Kushibiki, T.-C. Wei, Y. Ohashi, and A. Tada, “Ultrasonic microspectroscopy characterization of silica glass,” J. Appl. Phys., vol. 87, no. 6, p. 3113, 2000.
- [4] T. Yanagitani, K. Arakawa, K. Kano, A. Teshigahara, and M. Akiyama, “Giant shear mode electromechanical coupling coefficient k_{15} in c-axis tilted ScAlN films”, in Proc. IEEE Ultrason. Symp., Oct. 2010, pp. 2095–2098
- [5] S. Ballandras, T. Baron, E. Lebrasseur, G. Martin, D. Gachon, A. Reinhardt, P.-P. Lassaragne, J.-M. Friedt, L. Chommeloux, and D. Rabus, “High overtone Bulk Acoustic Resonators: application to resonators, filters and sensors”, Proc. Acous. 2012 Nantes. Conf., pp. 3111-3117, 2012.
- [6] T. Yanagitani and M. Suzuki, “Significant shear mode softening in a c-axis tilt nanostructured hexagonal thin film induced by a self-shadowing effect”, Scripta mater. vol. 69, pp. 724-727, 2013.
- [7] 超音波便覧編集委員会編 「超音波便覧」 丸善 1999
- [8] J. Kushibiki, M. Arakawa, and R. Okabe, “Longitudinal Acoustic Property Measurements of Solid Specimens by the Plane-Wave Ultrasonic Material Characterization System in the VHF/UHF Range”, IEICE Tech. Rep., Vol. 72, pp. 37-42, 2004.

第5章 材料物性評価のための計測手法の検討

第4章で ScAlN 圧電薄膜トランスデューサを用いて、従来の熱フォノンによる Brillouin 散乱光と比較して非常に強度の強い散乱光が得られることを確認した。しかし、様々な材料に対して適用するには問題点が存在することもわかった。そこで、本章では第4章で指摘した問題点の解決法について検討した結果を述べる。

5.1. 縦波・横波同時励起による材料物性評価

5.1.1 目的

第4章では縦波と横波ピークの増幅には単一周波数の印可信号で励起されたフォノンを用いていた。しかし、この手法では、縦波と横波を励振できるトランスデューサを作製しても入射角一定の場合は、どちらか一方の音波しか励起できず、Brillouin 散乱法の特徴である縦波・横波の同時測定が実現できない。そこで、より簡便な計測を目指し、励起フォノンの周波数を掃引することでレーザー光の入射角を変化させずに、縦波と横波の同時かつ高速な音速測定を試みた。

5.1.2 測定試料および実験方法

本節では測定試料として石英ガラス (ED-H[1], TOSOH, $5 \times 5 \times 25 \text{ mm}^3$) に ScAlN 圧電薄膜を成膜した第4章と同一の試料を用いた。ScAlN 圧電薄膜トランスデューサは高周波プローブを用いてネットワークアナライザに接続する。ネットワークアナライザで縦波および横波音波の励振を確認した上で、入力電力 0 dBm, 周波数 300-1500 MHz, 掃引時間 2.16 s のチャープ信号を ScAlN 圧電薄膜トランスデューサに印加した。このとき、試料へのレーザー光の入射角は 2.5° とした。入射角を $\theta/2=2.5^\circ$ とすると、式 (2.15) より縦波および横波の周波数は以下の値をとると予想される。

$$f_L^{\theta A} = \frac{2v_L^{\theta A} \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)}{\lambda_i} = \frac{2 \times 5961.3 \text{ m/s}}{532 \text{ nm}} \sin(2.5^\circ) = 977.5 \text{ MHz} \quad (5.1)$$

$$f_s^{\theta A} = \frac{2v_s^{\theta A} \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)}{\lambda_i} = \frac{2 \times 3766.8 \text{ m/s}}{532 \text{ nm}} \sin(2.5^\circ) = 617.6 \text{ MHz} \quad (5.2)$$

Fig. 5-1 に掃引周波数と ScAlN 圧電薄膜の挿入損失の関係を示す. 300-1500 MHz の周波数範囲に対して縦波の挿入損失は-21 dB から-60 dB, 横波の挿入損失は-33 dB から-99 dB の範囲で変動する. 入射角を $\theta'/2=2.5^\circ$ とした場合, Brillouin ピークのシフト周波数と ScAlN 圧電薄膜トランスデューサの共振周波数は完全に一致しないため, 入射角を一定にした場合に比べて音波の励振強度は悪くなる.

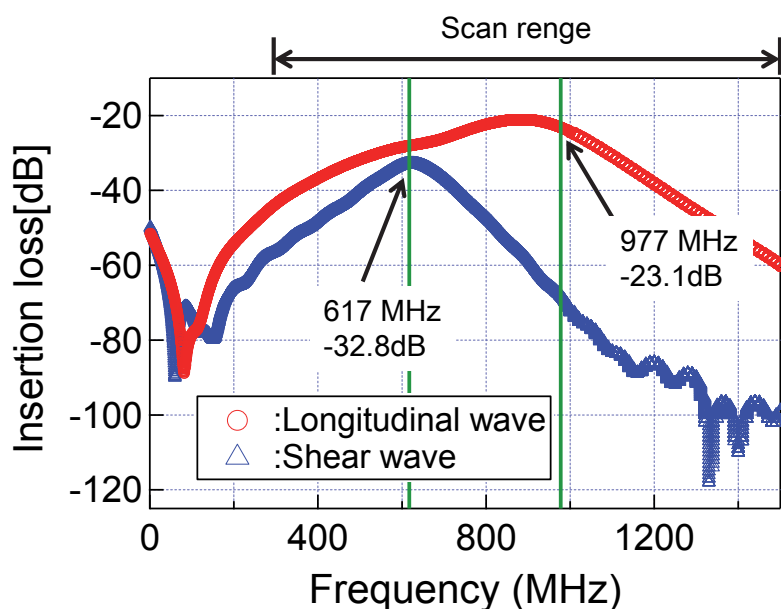


Figure 5-1: Frequency response of the longitudinal and shear wave conversion loss in ScAlN piezoelectric thin film.

5.1.3 チャープ信号によるフォノンの励起

Fig. 5-2, Fig. 5-3 に ScAlN 薄膜トランスデューサによる励起前後の散乱光スペクトルを示す. 励起前後のスペクトルを比較すると, c 軸傾斜配向の ScAlN 薄膜トランスデューサにチャープ信号を印加することによって, 縦波と横波に対応する Brillouin ピークが同時に強度改善できることを確認した. 励起前の散乱強度は縦波 : 2.41×10^2 cps, 横波 : 3.38×10^2 cps に対して, 励起後はそれぞれ縦波 : 8.40×10^4 cps, 横波 : 3.21×10^4 cps となり, 散乱光の強度が縦波では約 350 倍, 横波では約 95 倍改善した. なお, 本実験ではトランスデューサに印加したチャープ信号の周期と TFPI の掃引周期が異なるため, 散乱光強度の cps は単一周波数を印加したときに比べて小さくなるため, 比較はできない. また, 励起後の散乱光強度が横波よりも縦波の方が強い理由として, 第 4 章で述べたとおり, 縦波の挿入損失の方が横波の挿入損失よりも小さかったためと考えられる.

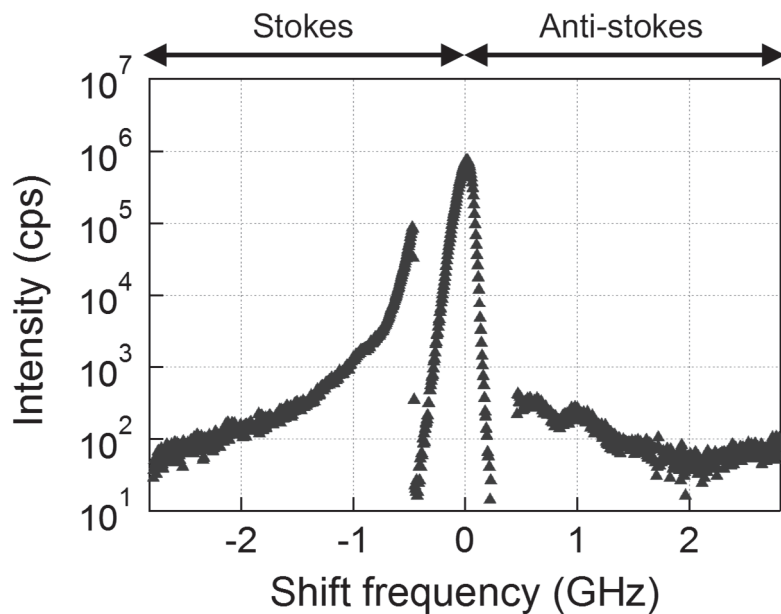


Figure 5-2: Measured Brillouin spectrum in the silica glass without applied electric field.

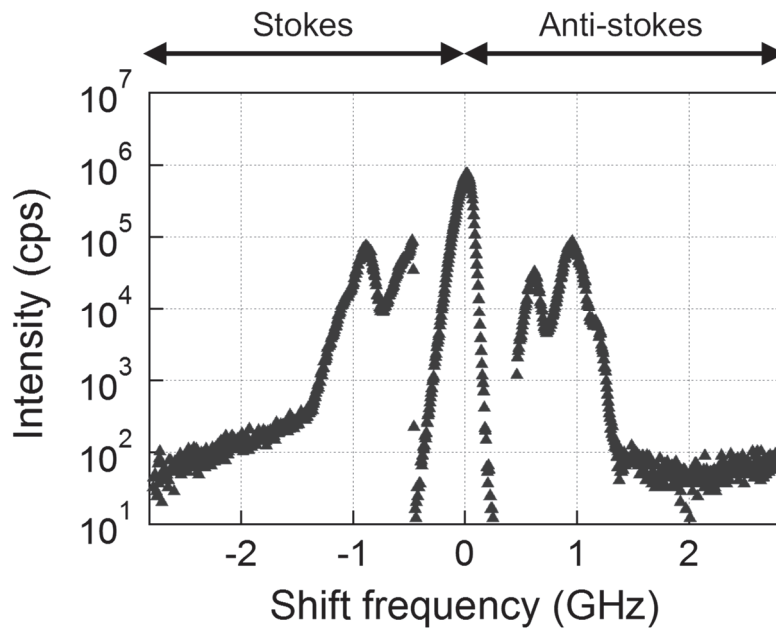


Figure 5-3: Measured Brillouin spectrum in the silica glass with applied chirp signal.

また、励起前の反ストークス側のシフト周波数は縦波：968 MHz，横波：654 MHzであったのに対して，励起後のシフト周波数は縦波：951 MHz，横波：618 MHzとなり，一致しなかった．この理由として，Fig. 5-1 に示す縦波・横波それぞれの共振周波数付近では挿入損失が小さく励起フォノンの強度が強いため，共振周波数の方へシフト周波数がずれたことや，チャープ信号の周波数掃引と干渉計の掃引が一致したときのみ励起フォノンが観測できるが，二つの掃引を同期出来ていなかったことが考えられる．

このため，本手法で未知材料の音速を測定する場合，チャープ信号の印加で縦波・横波シフト周波数のおおよその値を推定することができる．さらに詳細な周波数シフト量を得るためにはチャープ信号ではなく，単一周波数を印加し縦波と横波について，それぞれ散乱光強度が最大となる入射角を見つけ出す，という二段階の計測を行えばより正確で高速な音速測定が可能となる．

5.2. 共焦点 Fabry-Pérot 干渉計を用いた励起の検証

5.2.1 目的

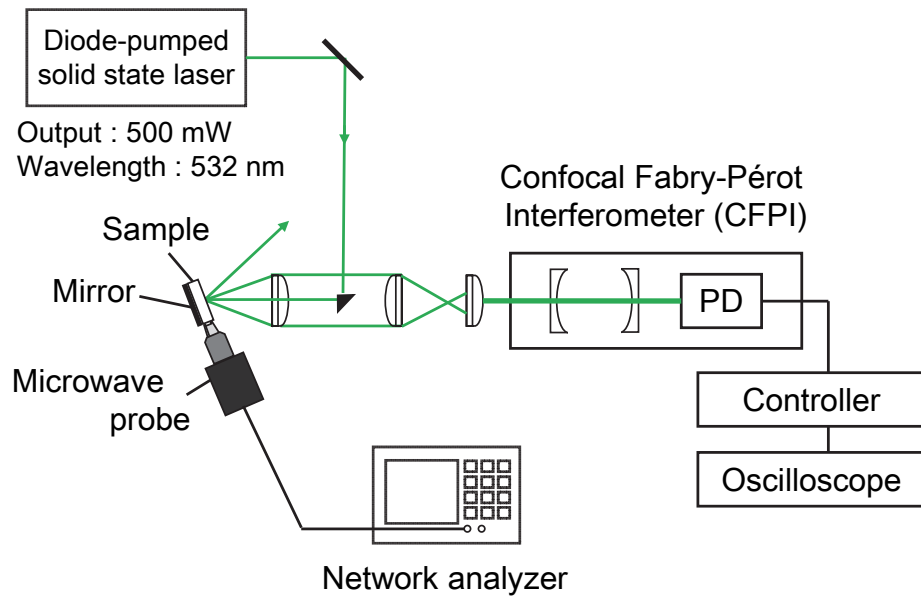
第4章では Brillouin 散乱光の分光にタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計を用いた。この装置は 1.3.2 項にて述べたように 2 台の干渉計のミラー間隔を同期して変化させることで分光を行う。また、この干渉計を透過する光は $d = (\text{掃引レーザ光に含まれる波長}) / 2m$ ($m=1, 2, 3 \dots$) の成立が必要であるために、この動作には nm オーダの精度が求められる。以上のことから、タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計は振動や温度変化に弱いという問題がある。これに対して、我々の提案する Brillouin 散乱光の高速検出法はフォノン励起の散乱強度の増幅が確認されれば、シフト周波数は圧電薄膜トランスデューサの共振周波数で決定される。つまり、フォノンの励起の ON/OFF さえ確認できれば良いので、タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計を用いた分光を行う必要はない。そこで、微弱な散乱光の測定には適さないが比較的安価で簡易測定可能な干渉計である共焦点 Fabry-Pérot 干渉計に着目して、簡便な実験系による Brillouin 散乱測定を目指した。

5.2.1 測定試料および実験方法

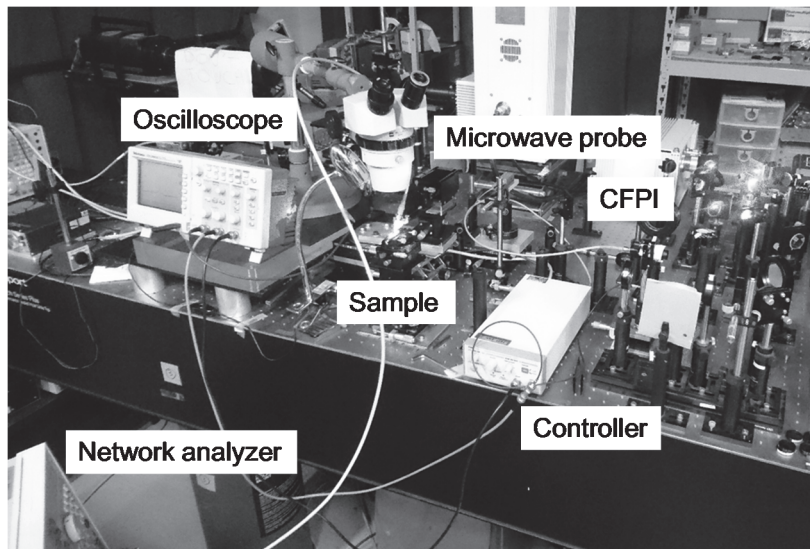
本節では測定試料として石英ガラス (ED-H, TOSOH, $5 \times 5 \times 25 \text{ mm}^3$) に ScAlN 圧電薄膜を成膜した第4章と同一の試料を用いた。Fig. 5-4 に測定系を示す。散乱光の分光には共焦点 Fabry-Pérot 干渉計 (SA210-8B, THORLABS) を用いた。干渉計の制御には専用コントローラ (SA201, THORLABS) を使用し、オシロスコープ (TDS2002B, Tektronix) で電圧波形としてスペクトルを取得する。

縦波音波を励振するために、高周波プローブへの入力信号は 10 dBm, 883 MHz とした。ここで、試料への入射角は報告されている伝搬音速[1]と ScAlN 圧電薄膜の共振周波数を考慮して、式 (2.15) より $\theta/2=2.3^\circ$ とした。一方で横波音波を励振するために、高周波プローブへの入力信号は 10 dBm, 585 MHz とした。ここで、試料への入射角は伝搬音速[1]と ScAlN 圧電薄膜の共振周波数を考慮して、 $\theta/2=2.4^\circ$ とした。なお、縦波・横波音波の共振周波数が第4章と異なっている。これは、トランスデューサと電界を印加する電源のインピーダンスの関係が変化したためと

考えられる[2]. 測定毎に高周波プローブを ScAlN 圧電薄膜トランスデューサに接続していることから, 高周波プローブのプロービングによって寄生容量や寄生インダクタンスが変化する. また, トランスデューサ電極が磨耗などで構造的に変化すると当初の設計値であるインピーダンス 50Ω から逸脱していくためである.



(a)



(b)

**Figure 5-4: (a) Brillouin scattering measurement system with CFPI.
(b) Photograph of the measurement system.**

5.2.2 縦波フォノンの励起

Fig. 5-5 に共振点 Fabry-Pérot 干渉計を用いてフォノンを励起していない状態での石英ガラスの測定スペクトルを示す. 測定時間は掃引時間 10 ms の 1 スキャンを記録したものである. フォノンを励起しない状態では石英ガラスの Brillouin 散乱光のピークを確認することができなかった. 共焦点 Fabry-Pérot 干渉計はタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計に比べて干渉計を光が通過する回数が少ないため干渉計としての特性は悪い. このため, 弾性散乱である Rayleigh ピークも大きく歪んでいる.

以上より, 熱フォノンによる Brillouin 散乱光強度は共焦点 Fabry-Pérot 干渉計で検出できる光強度の検出限界を下回っていると考えられる. このように共焦点 Fabry-Pérot 干渉計は簡便に分光できる分光器であるが, 熱フォノンによる微弱な Brillouin 散乱光を観測するためには光の受光感度が足りず, 現状ではタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計に頼らざるを得ないことがわかる.

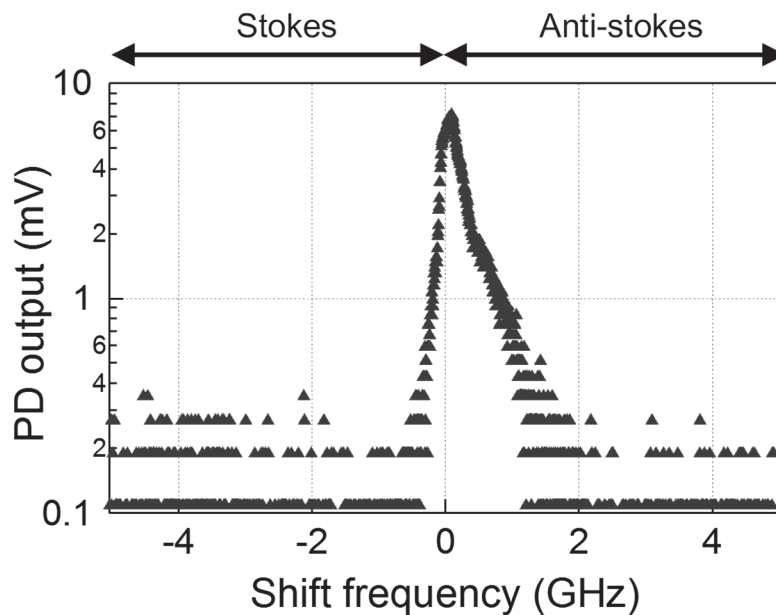


Figure 5-5: Measured Brillouin spectrum in the silica glass without induced longitudinal wave by CFPI.

一方で、トランスデューサを用いて人工的にフォノンを励起した場合の石英ガラスの Brillouin 散乱スペクトルを Fig. 5-6 に示す。測定時間は掃引時間 10 ms の 1 スキャンを記録したものである。これにより Brillouin 散乱光強度が改善され、共焦点 Fabry-Pérot 干渉計で観測できるほどの光強度が得られたことがわかる。励起前の散乱光強度は雑音に埋もれ観測できなかったのに対して、コヒーレントフォノンを励起後は 5.24 mV であった。

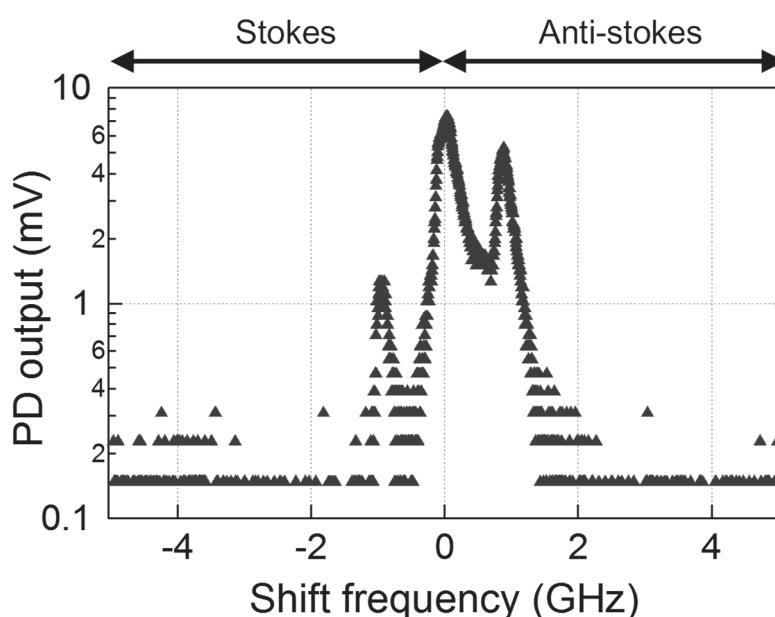


Figure 5-6: Measured Brillouin spectrum in the silica glass with induced longitudinal wave by CFPI.

そこで、共振点 Fabry-Pérot 干渉計で観測できる Brillouin 散乱光強度の限界を調べた。トランスデューサに印加する電力を 0 dBm から 10 dBm (1 mW ~ 10mW) まで変化させたときの Brillouin ピーク強度の関係を Fig.5-7 に示す。ここで、励起していないときのスペクトル波形をノイズ成分とみなし、フォノン励起で得られたスペクトルから差し引いている。このため、励起していない状態 (0 mW) のピーク強度は 0 mV となる。これより、共焦点 Fabry-Pérot 干渉計を用いた場合、入力電力が 1 mW 以下のとき Brillouin ピークはほぼ観測できないと言える。

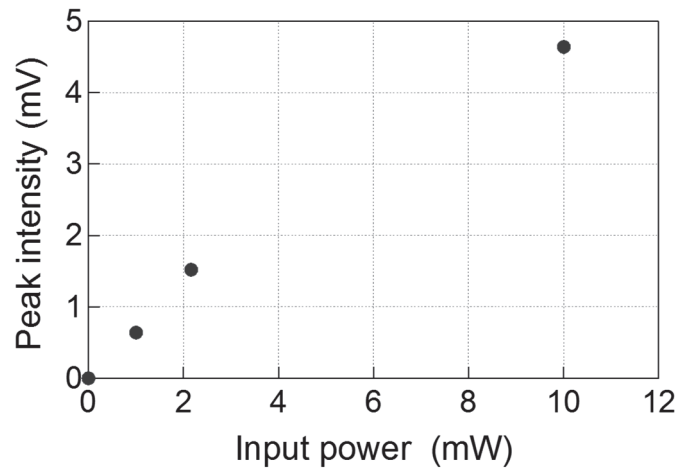


Figure 5-7: Brillouin peak intensity in the silica glass by CFPI as a function of input power.

そこで、共焦点 Fabry-Pérot 干渉計を用いて Brillouin ピークを観測するために必要なピーク強度改善率を推定するために、タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計を用いて印加電力 0 dBm の条件でスペクトル観測を行った。このときの結果を Fig. 5-8 に示す。これより Brillouin 散乱光強度は 1.39×10^6 cps であった。これは熱フォノンによる Brillouin ピークに比べ約 2,200 倍の改善率である。これより、共焦点 Fabry-Pérot 干渉計で Brillouin 散乱光ピークを観測するためには、約 2,200 倍以上の Brillouin ピーク改善率が必要であり、高い圧電性を示す ScAlN 圧電薄膜トランスデューサを用いたからこそ実現できたといえる。

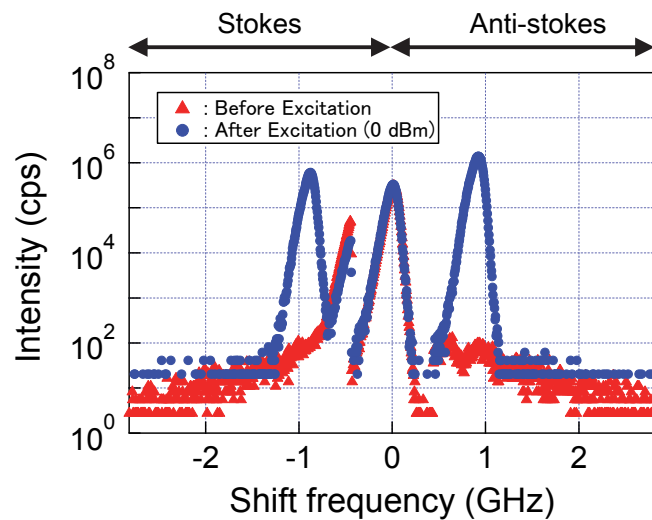


Figure 5-8: Measured Brillouin spectrum in the silica glass by TFPI.

5.2.3 横波フォノンの励起

5.2.2 項と同様に ScAlN 薄膜トランスデューサによる横波励起前後の散乱光スペクトルを Fig. 5-9 示す. 励起前だけでなくフォノン励起した状態でも Brillouin 散乱光のピークを観測できなかった. なお, 観測スペクトルがどちらも歪んでいるのは散乱光の入射角度と干渉計のスキンの線形性によるものと考えられる.

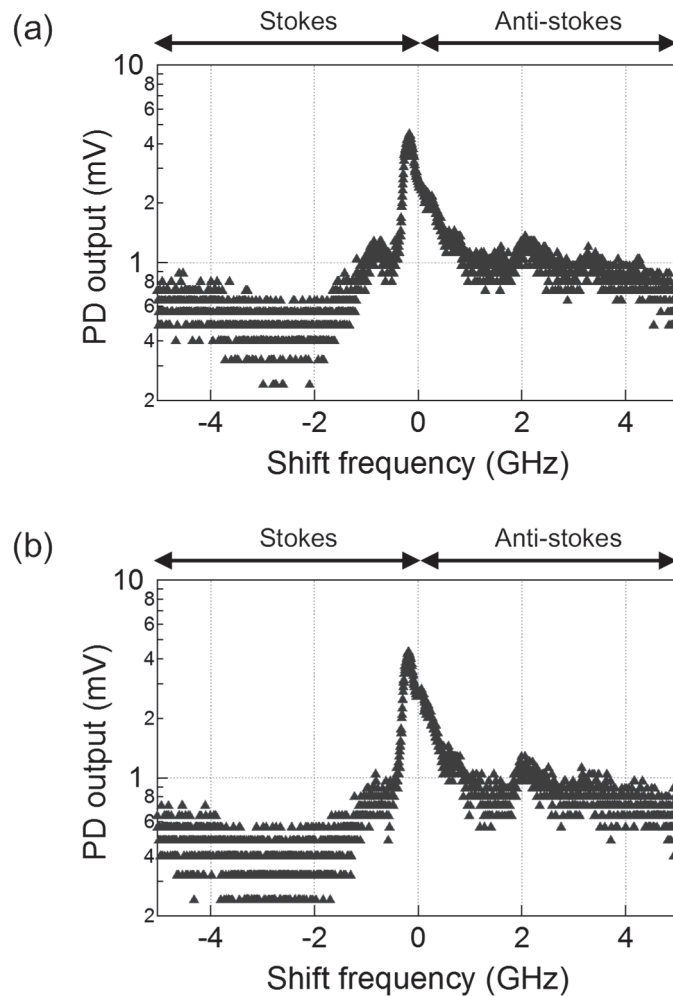


Figure 5-9: Measured Brillouin spectrum in the silica glass by CFPI.

(a) Without induced shear wave. (b) With induced shear wave.

共振点 Fabry-Pérot 干渉計で横波の Brillouin 散乱ピークが確認できなかった理由として、フォノン励起をした状態でも散乱光強度が弱かった可能性が考えられる。

そこで、第 4 章の結果から横波のフォノンを励起した場合の Brillouin 散乱光強度を確認するとタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計で 60.7×10^4 cps であった。一方で、前節で共振点 Fabry-Pérot 干渉計の入力光強度に対する感度を調べた結果では 1.39×10^6 cps 以上の強度が必要であることから、現状の横波のピーク強度改善率では検出できないことがわかる。

今回は製作した ScAlN 薄膜の c 軸の傾斜角度が 5° であったため、縦波の挿入損失が横波の挿入損失よりも小さく縦波音波の方が励振効率が良かった。横波も同様に共振点 Fabry-Pérot 干渉計で観測できるようにするためには ScAlN 薄膜の c 軸の傾斜角を変更し、より強い横波音波を励振できるトランスデューサを製作する必要がある[3]。

5.3. 同軸共振器を用いた非接触フォノン励起

5.3.1 目的

これまでの実験では、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサと高周波プローブを用いてフォノンの励起を行ってきた。これまでの結果では、未知の試料に対してチャープ信号でフォノンの励起を行うことでレーザ光の入射角度を変化させずに Brillouin 散乱のピーク強度を改善し、おおよそのシフト周波数を確認できた。しかし、精密測定では入射角度を変化する必要がある。現状のシステムでは、高周波プローブをトランスデューサに接触させた状態で入射角度を変化させると、プローブによってトランスデューサの電極を破壊してしまう可能性があり、機械的に入射角を変更する測定には向いていない。そこで本節ではトランスデューサに非接触で電界を印加する手法を試みた。この手法ではトランスデューサに電極を製作する必要がなくなり、さらにフォノンを励起しながら入射角を自由に変更できる。これによって、よりフレキシブルなシステムについて検討を行った。

5.3.2 測定試料および実験方法

測定試料として第 4 章と同一の石英ガラス(ED-H, TOSOH, $5 \times 5 \times 25 \text{ mm}^3$)に ScAlN 圧電薄膜トランスデューサを作製した試料を用いた。圧電薄膜に非接触で電界を印加するために開放型同軸共振器 (SN/D0905-1, AET Inc. : 基本共振周波数 1.989 GHz) を用いた。同軸共振器内部は Fig. 5-10 のように中央が空洞になっており、内部で発生した共振電場が先端の微小開口端から漏洩する(エバネッセント波)。このエバネッセント波を利用することで、共振器を圧電薄膜に近づけるだけで、非接触で圧電薄膜に電界印加が可能となる (Fig. 5-11) [4-7]。

同軸共振器に印加する電力は 0 dBm とした。また、レーザ光の入射角は、同軸共振器の基本共振周波数 1.989 GHz に縦波音波[1]の Brillouin ピークが一致するように式 (2.15) より $\theta/2 = 5.08^\circ$ に設定した。なお、励起前後のピーク強度を比較するため、散乱光は TFPI を用いて分光し Brillouin スペクトルを得た。

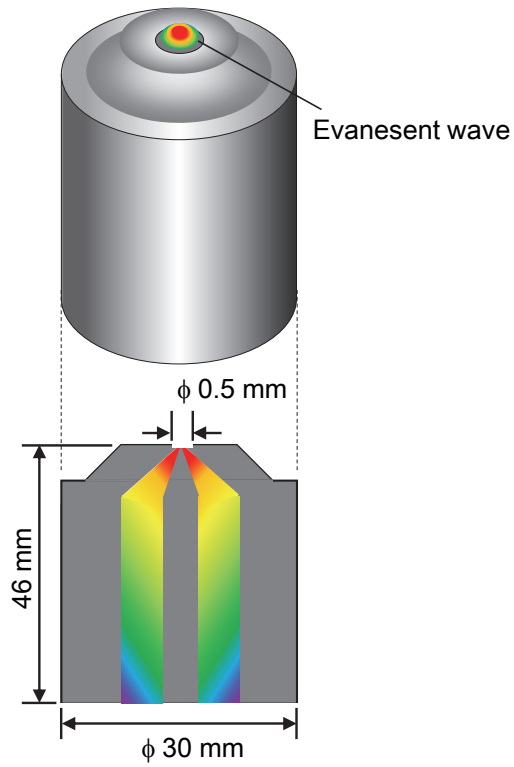


Figure 5-10: Coaxial resonator

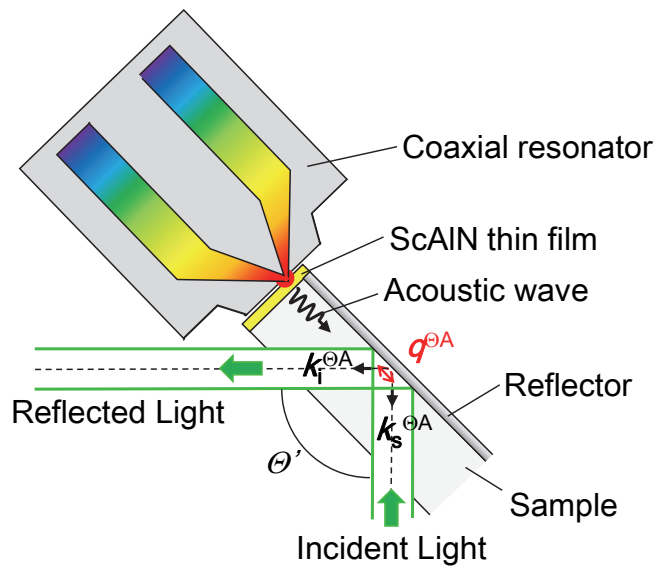


Figure 5-11: Sample configuration with a coaxial resonator.

5.3.3 フォノン励起

Fig. 5-12 は、同軸共振器でフォノンを励起しない状態で石英ガラスを測定した Brillouin 散乱スペクトルである。ここで、測定時間は約 5 分とした。本実験では TFPI のミラースペースを 11 mm に設定している。このため、5.1 節で得られた Brillouin スペクトルに比べて歪みが少ないことがわかる。

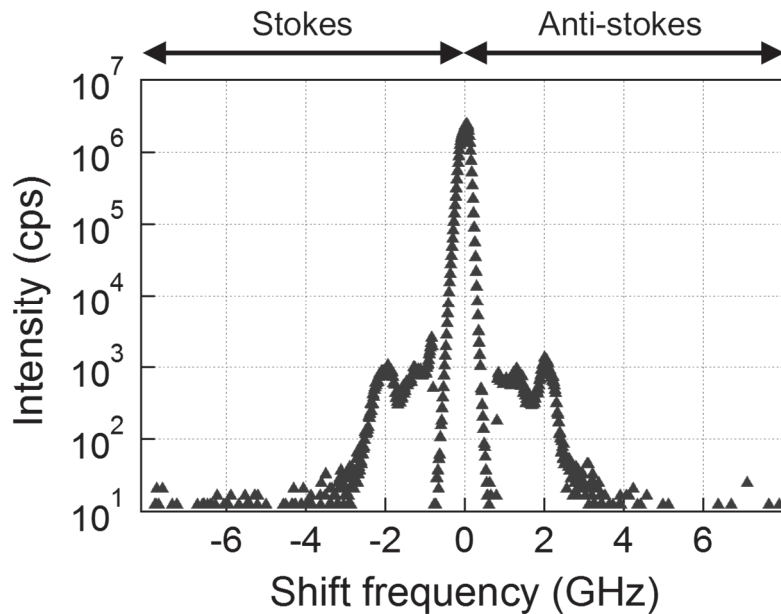


Figure 5-12: Measured Brillouin spectrum in the silica glass without induced longitudinal wave.

一方で、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサでフォノンを励起した状態で石英ガラスを測定した Brillouin 散乱スペクトルを Fig. 5-13 に示す。励起していない場合と同様に測定時間は約 5 分である。外部から人工的にフォノンを励起することによって、Brillouin ピークの強度が改善していることがわかる。なお、本節ではこれまでの実験とレーザ光の入射方向を変えているため、このときストークス側のピーク強度が改善されている。ストークス側のピーク強度は励起しない状態で約 820 cps、励起した状態で約 90.3×10^4 cps (90.3×10^7 cps/W) となり、励起によってピーク強度は約 1,100 倍改善した。ここで、cps/W はトランスデューサに入力した電力あたりの計数率を表している。

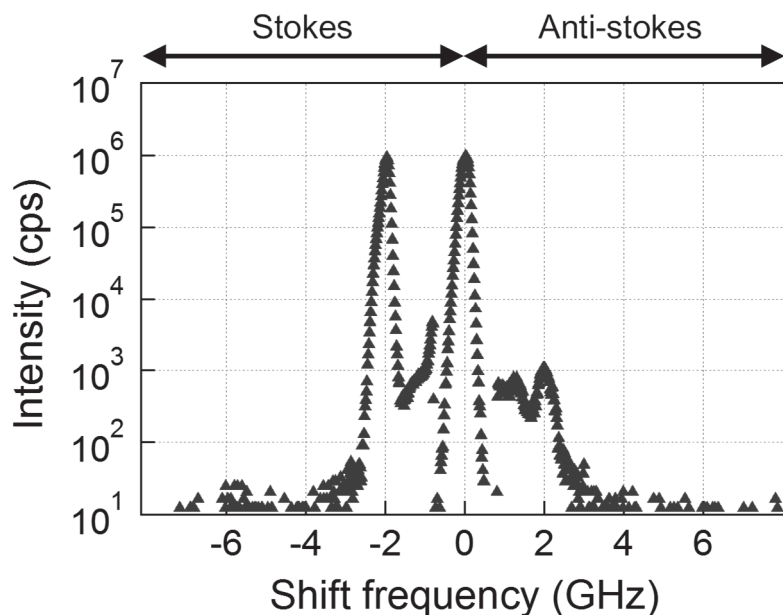


Figure 5-13: Measured Brillouin spectrum in the silica glass with induced longitudinal wave using coaxial resonator.

同軸共振器を用いたフォノンの励起では印加できる電界の周波数が同軸共振器の共振周波数に制限されてしまう。Fig. 5-14 に今回作製した ScAlN 圧電薄膜トランスデューサの縦波音波の挿入損失と同軸共振器の共振周波数の関係を示す。

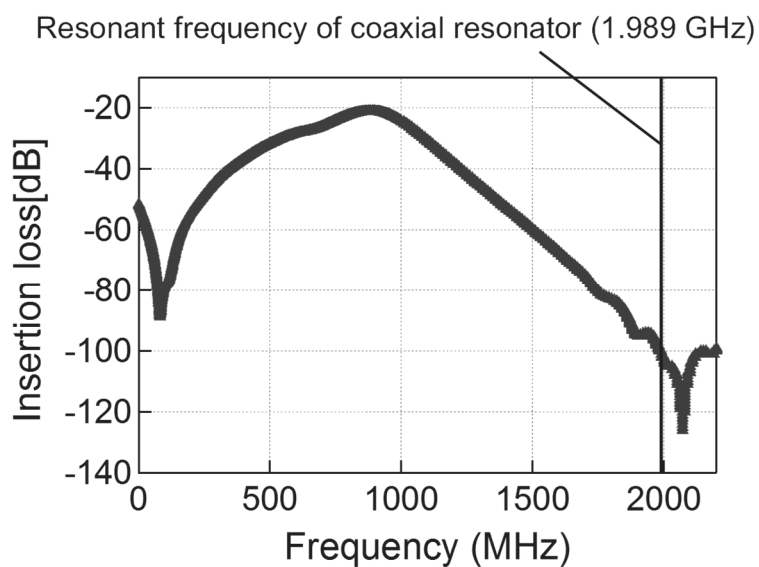


Figure 5-14 Frequency response of the longitudinal conversion loss in ScAlN piezoelectric thin film.

ここで同軸共振器の Q 値は 927.6 と非常に大きく、1.989 GHz の単一周波数の電界がトランスデューサに印加されるとみなせる。これより、1.989 GHz におけるトランスデューサの挿入損失は -100 dB であり、高周波プローブを用いて電界を印加した場合と比べて損失が大きくなっている。加えて、同軸共振器ではエバネッセント波で間接的に電界を印加しているため、電界を印加する段階でも損失が発生している。これより、同軸共振器を用いてフォノンを励起する場合は、トランスデューサの電極を作製する工程が省ける一方で、圧電薄膜に電極を作製して高周波プローブで直接電界を印加する手法と比べて Brillouin ピーク強度の改善率は劣ることになる。

また、Fig.5-15 は石英ガラス試料中の Brillouin 散乱光強度の二次元分布を測定した結果である。測定点を 50 μm 刻みで変化させ、 $750 \times 700 \mu\text{m}^2$ の範囲を測定した。ここで、原点は同軸共振器の中心を示し、z 軸の値は原点の散乱光強度で規格化を行っている。測定した縦波音波の周波数 1.989 GHz において、この測定範囲は近距離音場（フレネルゾーン）である[8]。また、Fig.5-15 の結果からも励振された縦波音波は測定試料内で直線的に伝搬していることがわかる。

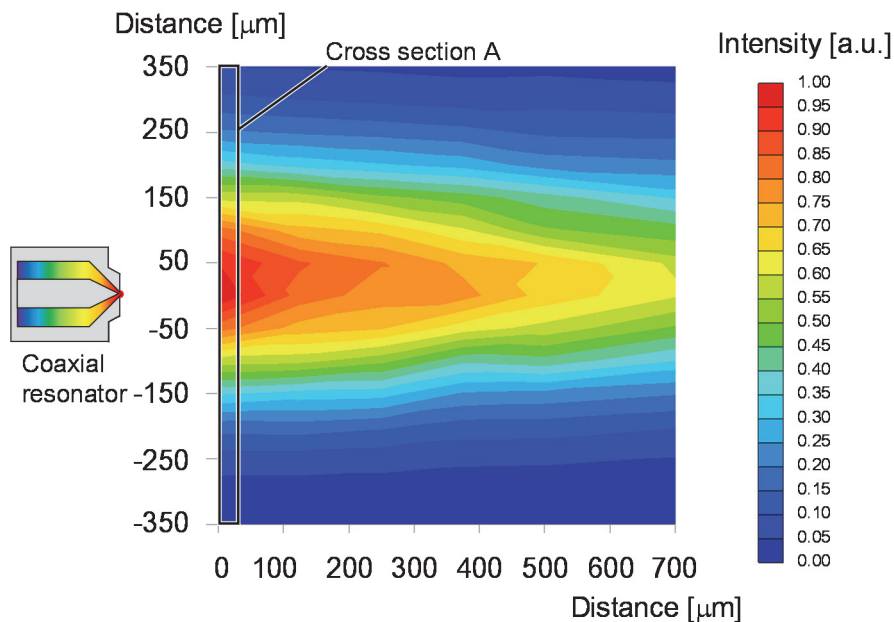


Figure 5-15 Two-dimensional distribution of light intensity (stokes peak).

また、薄膜近傍 (Fig. 5-15:領域 A) の強度分布を Fig. 5-16 に示す。これより、圧電薄膜トランスデューサから励振された縦波音波はガウス関数形状のビームであることがわかる。ここで、光強度のピークをガウス関数でフィッティングすると、縦波音波ビームの半値幅 (FWHM) は約 $288 \mu\text{m}$ であった。同軸共振器の開口端が約 0.5 mm であることから微小領域において音波を励振していることがわかる。

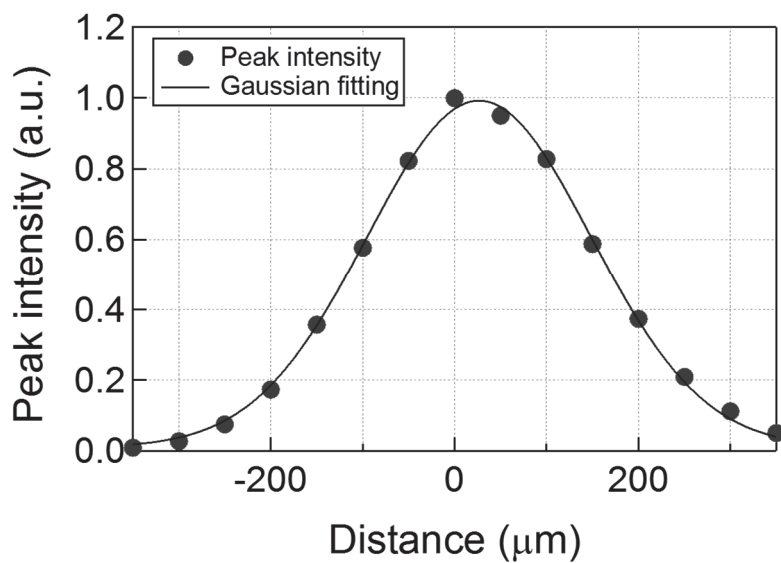


Figure 5-16 The distributions of scattered light intensity in cross section A.

5.4. トランスデューサのモジュール化

5.4.1 目的

前節までは測定試料である石英ガラス上に直接 ScAlN 圧電薄膜を成膜し，外部から人工的にコヒーレントなフォノンを励起してきた．この手法によって，Brillouin 散乱光強度を大幅に改善することを確認できたが，測定対象がスパッタ蒸着などの成膜工程の環境に耐える材質である必要があった．このため，高分子ポリマーや生体材料など融点が低かったり，熱によって組成が変わったりしてしまう材料には適用できない．そこで，本節では石英ガラスを基材とし，独立した圧電薄膜トランスデューサを作製した．このトランスデューサから音響整合層を介して測定試料内のフォノンを励起することによって，材質を選ばない散乱光強度の改善手法の検討を行った．

5.4.2 脱着可能な ZnO 圧電薄膜トランスデューサ

本節では，圧電材料として ZnO を採用した．ScAlN 圧電薄膜の方が圧電性は優れているが，様々な形状の基板に成膜できる技術が確立している ZnO で複数のトランスデューサを作製した．ZnO 圧電薄膜トランスデューサの模式図を Fig. 5-17 に示す．石英ガラス基板上に Al 薄膜を下部電極として基板上の一面に蒸着し，その上に RF マグネトロンスパッタ法によって ZnO 薄膜を成膜した．なお，本節では縦波のフォノン励起に着目したことから，縦波音波の励振効率が最も高くなるよう，ZnO の c 軸の配向方向は成膜面に対して垂直方向に設定した．そして，その上に上部電極として Cu 薄膜を蒸着し，HBAR 共振子の ZnO 薄膜トランスデューサを作製した．なお，同形状のトランスデューサを 2 種類製作した．

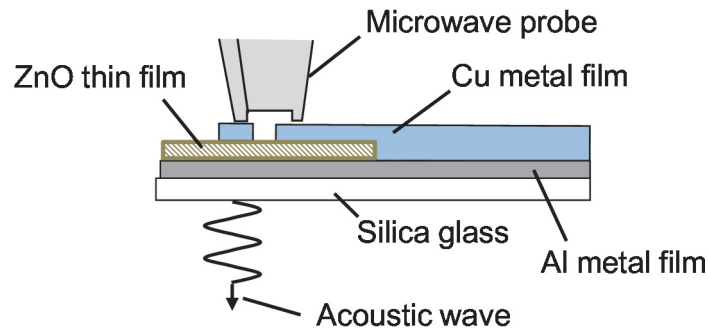


Figure 5-17: Transducer configurations (ZnO piezoelectric thin film).

トランスデューサ1とトランスデューサ2の挿入損失をネットワークアナライザで測定した結果を Fig. 5-18 に示す. これより縦波音波の共振周波数はトランスデューサ1のとき 822 MHz, トランスデューサ2のとき 749 MHz であった.

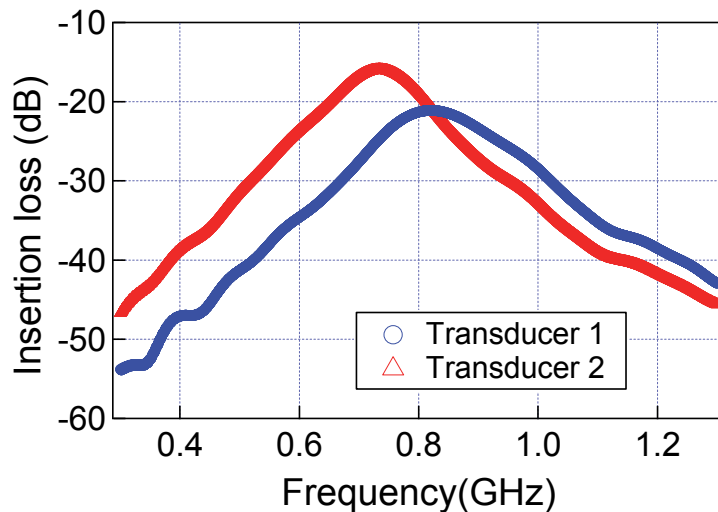


Figure 5-18: Insertion loss of ZnO transducer 1, 2.

また, 測定試料のフォノン励起は Fig. 5-19 に示すように音響整合層として測定試料に接触媒質(BS-400, 大陽日酸ガス&ウェルディング)[9]を塗布し, 低損失で測定試料内部に励振音波を伝搬させるようにした. ここで, 測定試料とトランスデューサは接触媒質を薄く塗布した上, 治具を用いて固定しているため, 励振した音波は試料に対して垂直に入射することになる.

また、散乱配置として RIAO 散乱配置を採用した。ここで、必要となる光学的反射板も別の石英ガラス基板に Al を蒸着することによって測定試料と分離できるようにしている (Fig. 5-20).

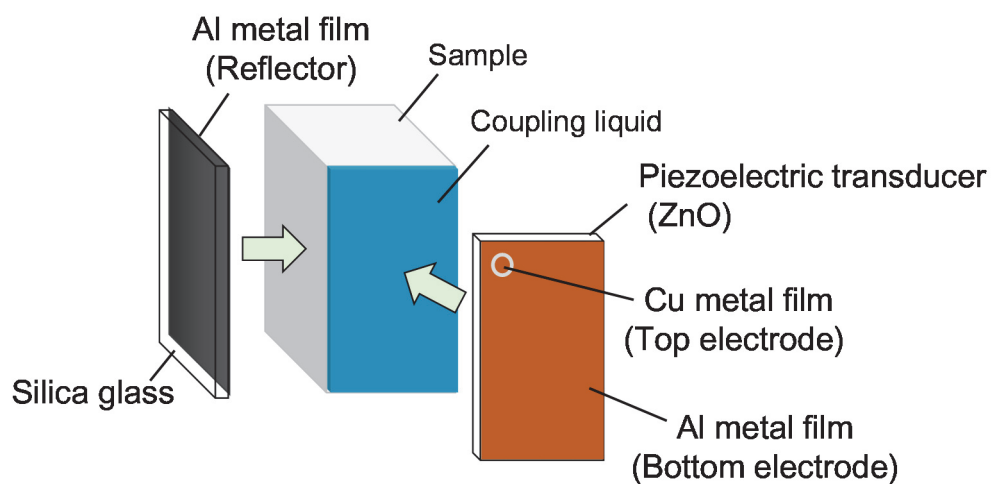


Figure 5-19: Sample configuration (ZnO).

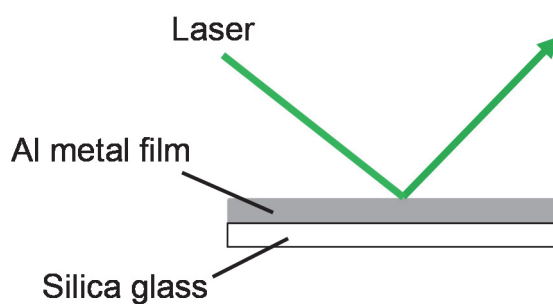


Figure 5-20: Mirror configuration.

5.4.3 実験方法

トランスデューサを測定対象と分離してフォノンを励起する手法を検証するために Table 1 に示す 2 種類の条件で実験を行った。前節まで行ってきた実験結果と比較するために、測定試料の一つは石英ガラスとした。また、直接圧電薄膜を成膜できない試料としてアクリル樹脂を選定した。また、測定試料である石英ガラス、アクリルおよび接触媒質 BS-400 の音響特性を Table 2 に示す。

Table 1 The experimental conditions.

TRANSDUCER	MEASUREMENT SAMPLE	RESONANT FREQUENCY [MHz]	INPUT POWER [dBm]	INCIDENT ANGLE [degree]
Transducer 1	Silica glass	822	10	2.1
Transducer 2	Acrylic resin	749	10	4.0

Table 2 Acoustic characteristic [1, 8, 9].

MATERIAL	LONGITUDINAL WAVE VELOCITY [m/s]	DENSITY [kg/m ³]	ACOUSTIC IMPEDANCE [kg/m ² s]
Silica glass	5961.3	2202.5	13.1×10 ⁶
Acrylic resin (PMMA)	2720	1180	3.21×10 ⁶
Contact medium (BS-400)	1847	1193	2.20×10 ⁶

実験時の試料構成を Fig. 5-21 に示す。まず、前節までと同様に測定対象として石英ガラス(ED-H, TOSOH, 5×10×20 mm³)を用いた。トランスデューサには高周波プローブを用いて電界を印加し、入力信号は 10 dBm, 822 MHz とした。このとき、レーザの入射角は石英ガラスの縦波音速[1]とトランスデューサの共振周波数から $\theta/2=2.1^\circ$ に設定した。なお、測定点はトランスデューサに面する端面から 1 mm の点に調整した。ここで、分光器には TFPI を用いて測定時間は約 1 分としている。

次に，測定対象を石英ガラスからアクリル樹脂(8.35×31.6×17 mm³)へ変更し同様の測定を行った．トランスデューサへは 10 dBm，749 MHz の信号を入力し，レーザの入射角はアクリルの縦波音速を考慮して $\theta'/2=4.0^\circ$ に設定した．測定点はトランスデューサに面する端面から 1 mm の点に調整した．ここで，分光器には TFPI を用いて測定時間は約 1 分としている．

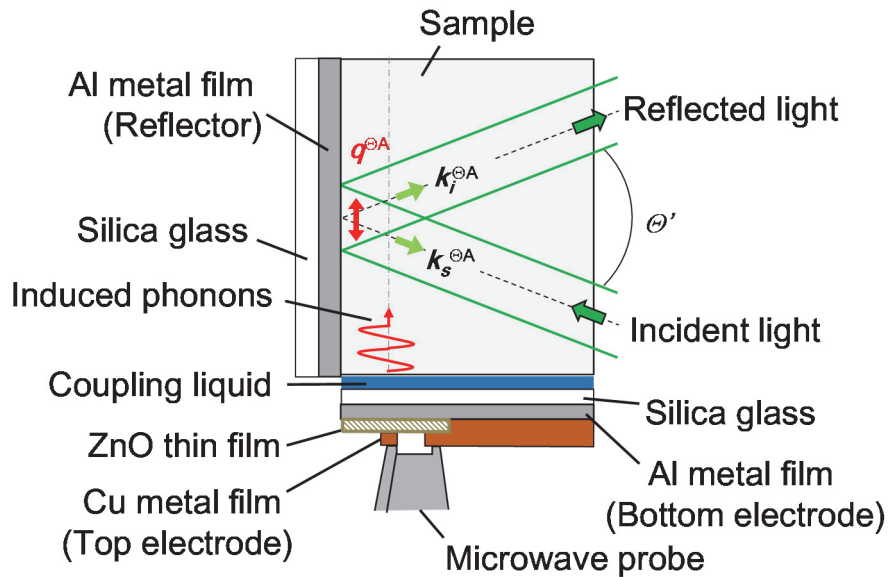


Figure 5-21: Sample configuration

5.4.4 フォノン励起

Fig. 5-22 にフォノンを励起しない状態で石英ガラスを測定したときの散乱光スペクトルを示す。ここで、タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計で機械的に切り替えられている Rayleigh 成分は削除し、測定試料からの散乱スペクトルのみ注目している。このときの縦波音波の Brillouin ピークはほぼ確認できず、シフト周波数から散乱光強度を求めたところ約 700 cps であった。第 4 章で測定した場合のスペクトル(ピーク強度 : 約 430 cps) と比較すると、Fig. 5-22 の方が散乱光強度が大きいことがわかる。しかし、今回測定したスペクトルは Brillouin ピーク以外の周波数においても光強度が強く、ノイズが多い。このため、スペクトルとしての信号強度は大きいにも関わらず、Brillouin ピークが確認できなかった。また、本実験においても TFPI のミラースペースを 30 mm に設定しているため、スペクトルの歪みが現れている。

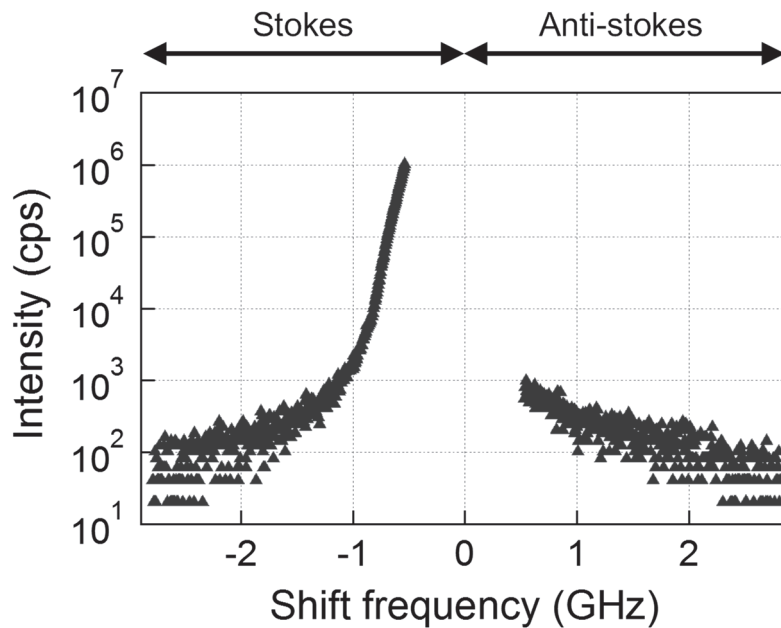


Figure 5-22: Measured Brillouin spectrum in the silica glass without induced longitudinal wave.

一方で, ZnO 薄膜トランスデューサによってフォノンを励起した場合で石英ガラスを測定した際の散乱光スペクトルを Fig. 5-23 に示す. このとき, 励起後の縦波音波の Brillouin 散乱光強度は反ストークス側で約 2.79×10^6 cps (2.79×10^8 cps/W) となった. ここで, cps/W はトランスデューサに入力した電力あたりの計数率を表している. また, Rayleigh 成分の歪みによって見えにくくなっているが, ストークス側にも改善された Brillouin ピークが認められる. このとき, ピーク強度は 6.46×10^4 cps であり, 4 章の励起実験と同様に試料の端面で反射した音波によってストークス側の Brillouin ピークが改善されたことがわかる.

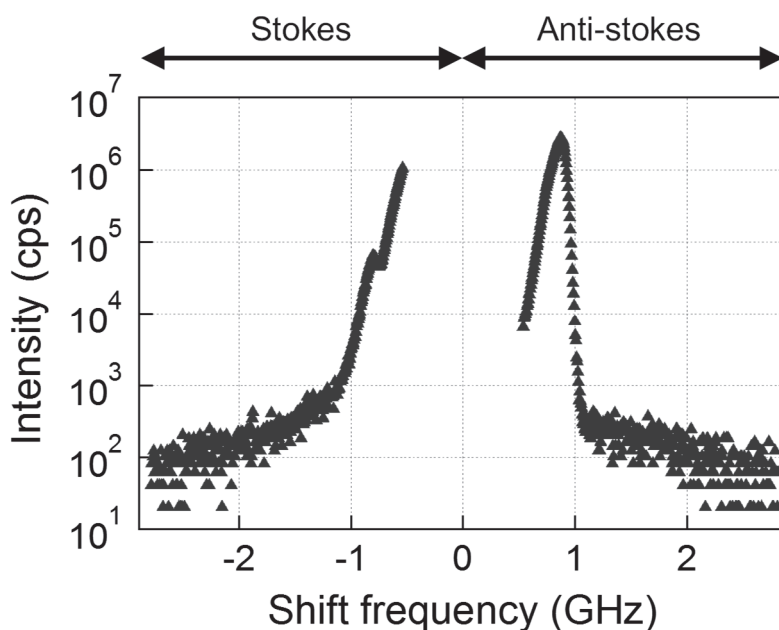


Figure 5-23: Measured Brillouin spectrum in the silica glass with induced longitudinal wave.

これより, 圧電トランスデューサを測定試料から分離しても接触媒質を介して縦波音波を試料内に伝搬させることによって素早くスペクトルが得られることがわかる. また, フォノンの励起前後で反ストークス側の Brillouin 散乱光強度は約 4,000 倍改善した. ただし, 第 4 章で確認した散乱光強度に比べると改善率は半減した. これは, 圧電薄膜トランスデューサの圧電材料が異なるだけでなく, トランスデューサと測定試料間の音波伝搬損失によるものと考えられる. 今回用いた接触媒質の音響インピーダンス 2.20×10^6 kg/m²s に対して石英ガラスの音響インピーダンスは 13.1×10^6 kg/m²s であるため, 試料の境界面で音波が反射していることになる.

また、ピーク強度の改善が ZnO 薄膜トランスデューサによる縦波フォノンの励起によるものか確認するために、高周波プローブへの入力電力を 0, 5, 10 dBm と変化させて入力電力と Brillouin 散乱光の強度比較を行った。ここで、測定時間はそれぞれ約 1 分とした。Fig. 5-24 にその関係を示す。これより入力電力の増加に従い散乱光強度の増幅が確認できた。フォノンを励起することによって最終的に Brillouin 散乱光の増幅を可能にしたことが確認された。

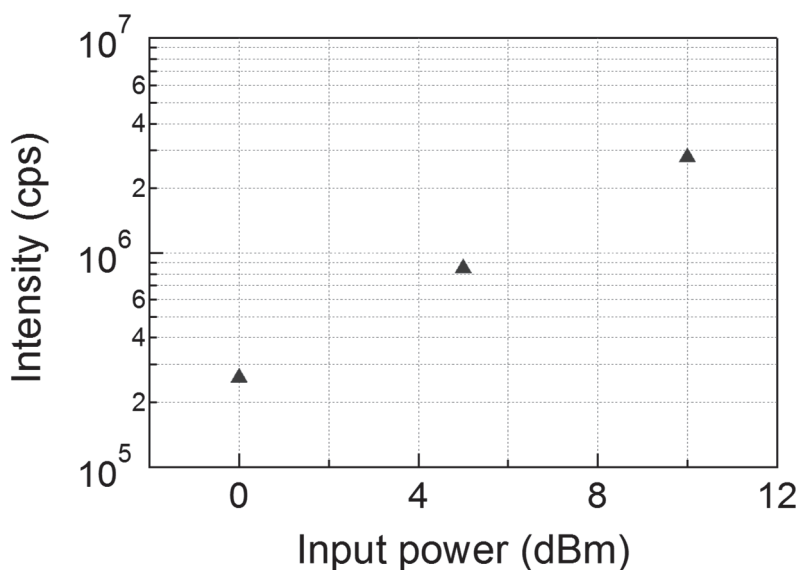


Figure 5-24: Intensity of the excited Brillouin scattering as a function of input power.

以上より、接触媒質によってトランスデューサと測定試料を接続すれば、フォノンを励起するためのトランスデューサを分離できることが確認された。この結果より、直接圧電薄膜トランスデューサを成膜できない材質の測定試料であっても外部トランスデューサからフォノンを励起し、Brillouin 散乱光強度を改善できることが示された。なお、本節では縦波フォノンの励起に着目して実験を行ったが、横波フォノンの励起を行う場合は接触媒質によって横波音波の伝搬が大幅に阻害されることが予想される。ただし、粘性の高い接触媒質を用いることで測定試料内へ横波音波を伝搬させることが可能であると考えられる。

次に、アクリル樹脂を測定した際の散乱光スペクトルを Fig. 5-25 示す。励起前の散乱光強度は 1.40×10^4 cps だったのに対し、励起後は 9.40×10^4 cps (9.40×10^6 cps/W) となり、約 6.7 倍改善した。ここで、cps/W はトランスデューサに入力した電力あたりの計数率を表している。アクリル樹脂の音響インピーダンスは 3.21×10^6 kg/m²s と接触媒質と近い特性のため、石英ガラス試料に比べて境界面における音波の反射は小さいにも関わらず、散乱光強度の改善率は石英ガラスに大きく劣る結果となった。

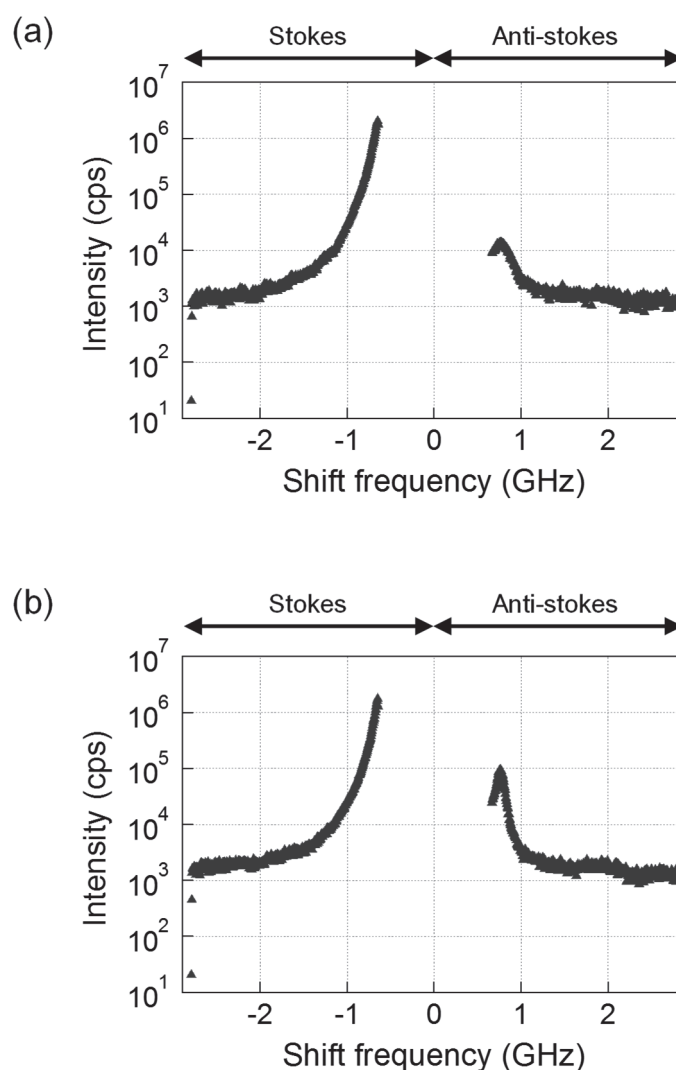


Figure 5-25: Measured Brillouin spectrum in the acrylic resin sample.

(a) Without induced longitudinal wave. (b) With induced longitudinal wave.

これは、アクリル樹脂の音波減衰が非常に大きいためであると考えられる。しかしながら、圧電薄膜トランスデューサを直接成膜できない試料に対しても本手法によって Brillouin 散乱光強度を改善することができ、高速検出が可能であることが確認できた。

5.5. まとめ

本章では第 4 章で明らかになったフォノン励起方法の問題点の解決法を検討した。各手法のまとめを以下に示す。ただし、それぞれの手法において長所と短所がある。今後、より良い手法の検討が望まれる。

- (1) トランスデューサで励振できる縦波と横波の周波数が異なるため、縦波音波と横波音波の同時観測ができない。

測定試料の石英ガラスの一面に直接成膜した ScAlN 薄膜トランスデューサに、高周波プローブを用いてチャープ信号を印加することで、一度の測定中に縦波音波と横波音波を同時に励振した。その結果、縦波音波の Brillouin 散乱ピークと横波音波の Brillouin 散乱ピーク強度を同時に改善できることを確認した。

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。しかし、シフト周波数が励起前と励起後で変化した。これは、圧電薄膜トランスデューサの周波数特性やチャープ信号と干渉計の掃引が同期出来ていなかったためと考えられる。

この結果より、チャープ信号を印加することで、縦波、横波フォノンを同時に励起することが可能であったが、得られたシフト周波数から正確な音速を求めることが難しいことがわかった。そのため、本手法では未知材料の音速を測定する場合、チャープ信号印加で縦波・横波シフト周波数のおよその値を測定した後、測定値近傍の周波数のフォノンを励起させ、散乱光強度が最大となる入射角を見つけ出す、という二段階の計測を行えばより正確で高速な音速測定が可能となると考えられる。

- (2) ScAlN 圧電薄膜で強い散乱光強度が得られたが、分光器としてタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計を用いているため、干渉計の取り扱いや測定環境に配慮する必要がある。

ScAlN 圧電薄膜トランスデューサを用いて Brillouin 散乱光強度を大幅に改善できることから、タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計に比べ性能は劣るが、より扱いが簡便な共焦点 Fabry-Pérot 干渉計(CFPI)を用いて分光を行った。その結果、従来の熱フォノンによる Brillouin 散乱光は全く観測できなかったにも関わらず、縦波フォノンを励起することによって CFPI で観測できることが確認された。一方で横波の Brillouin 散乱光はトランスデューサによる音波の励振強度が足りずピークを観測することはできなかった。この結果より、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサで強い音波を励振することができれば、CFPI で十分測定が可能であることを示した。これは温度や振動を厳密に管理しなければならぬ TFPI から置き換えが可能になり、測定精度を維持した状態でシステム全体でのメンテナンス性を向上することができる。

- (3) トランスデューサに電界を印加する手法が高周波プローブによる接触のため、機械振動に弱く、また音波励振の再現性が悪い。

圧電薄膜トランスデューサに電界を印加する方法として同軸共振器を用いて非接触で音波の励振を試みた結果、Brillouin 散乱光強度の改善を確認できた。これは、同軸共振器を用いて非接触でトランスデューサを励振できたといえる。また、励起後の Brillouin 散乱光強度は縦波で約 1,100 倍改善したが、高周波プローブによる励起（約 8,600 倍）と比較すると散乱光強度の改善率は悪化した。

これより、圧電薄膜トランスデューサの電極に高周波プローブを接触させるという繊細な作業を行わなくてよく、レーザの入射角度を容易に変化させることができることが確認できた。また、本手法では圧電薄膜トランスデューサに電極を作製する必要がなくなり、トランスデューサの製作工程も簡素化することが可能になる。

- (4) 測定試料に圧電薄膜を直接成膜しているため、成膜不可能な材料には適用できない。

測定試料とは別に、ガラス基板上に作製した ZnO 薄膜トランスデューサを用いて外部から測定試料中に音波を伝搬させることによって試料中のフォノン励起を試みた結果、Brillouin 散乱光強度を改善できることを確認した。なお、トランスデューサと測定試料の間は接触媒質を用いて音響整合層としている。測定試料を石英ガラスとした場合、フォノン励起によって縦波の散乱光強度は約 4,000 倍改善し、測定試料をアクリル樹脂とした場合はフォノン励起によって縦波の散乱光強度は約 6.7 倍まで改善した。つまり、接触媒質を介してフォノンを励起しても Brillouin 散乱光強度を改善できることがわかった。この結果より、本手法を用いることで直接圧電薄膜を成膜することが困難な試料においても Brillouin 散乱法の高速測定を応用できると考えられる。

参考文献

- [1] J.-I. Kushibiki, T.-C. Wei, Y. Ohashi, and A. Tada, “Ultrasonic microspectroscopy characterization of silica glass”, *J. Appl. Phys.*, vol. 87, no. 6, p. 3113, 2000.
- [2] M. Nishihira, M. Kaido and K. Imano, “Experimental Determination of Piezoelectric Constants of Transversal Effects of $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ (PZT) Transducer Using Transient Response”, *Jpn. J. of Appl. Phys.*, Vol. 41, no. 5B, 2002.
- [3] S. Takayanagi, T. Yanagitani, M. Matsukawa, “Effect of metal mode and oxide mode on unusual c-axis parallel oriented ZnO film growth on Al/glass substrate in a reactive magnetron sputtering of Zn target”, *J. Crystal Growth*, Vol. 363, pp. 22-24 (2013).
- [4] E. H. Jacobsen, “Sources of Sound in Piezoelectric Crystal,” *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 32, pp.949-953, 1960.
- [5] H. Bömmel and K. Dransfeld, “Attenuation of Hypersonic Waves in Quartz,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 2, pp.298-300, 1959.
- [6] H. Bömmel and K. Dransfeld, “Excitation and Attenuation of Hypersonic Wave in Quartz,” *Phys. Rev.*, vol. 117, pp.1245-1252, 1960.
- [7] A. J. Canós Marín, B. García-Baños, J. M. Catalá-Civera, F. L. Peñaranda-Foix, and J. D. Gutiérrez-Cano, “Improvement in the Accuracy of Dielectric Measurement of Open-Ended Coaxial Resonators by an Enhanced De-Embedding of the Coupling Network”, *IEEE trans. microwave theor. Tech.*, Vol 61, Issue: 12, pp.4636-4645, 2013.
- [8] 超音波便覧編集委員会編「超音波便覧」丸善 1999.
- [9] 大陽日酸ガス&ウエルディング株式会社「ソニコート総合カタログ」 2017.

第6章 より簡便な光散乱測定を目指して

第4章、第5章で人工的に励起したフォノンによって Brillouin 散乱光強度が改善されることを示した。本章では高強度の散乱光を用いてビート分光法への展開を図る。これにより、従来の干渉計による散乱光の分光システムを見直し、より簡便なシステム構築を目指す。光ビート分光法とは、周波数成分がわずかに異なる二つの光を重ね合わせる際に生じる、その周波数の差分に等しい光のうなり（ビート）を観測し、帯域の狭い信号として情報を取り出す方法である。本実験ではレーザ光と Brillouin 散乱光の二つの光から、低周波のビート光の観測を試みた。

6.1. 光ビート法の原理

光ビート分光法(別名として, 光ヘテロダイン干渉法: Optical Heterodyne Detection)は, 周波数成分がわずかに異なる二つの光を重ね合わせる際に生じる光のうなり(ビート)を観測し, 測定したい光の強度, 周波数, 位相などの情報を測定することができる[1-5]. ここで, 測定したい光を信号光, 信号光に重ね合わせる光を参照光と呼ぶ. 現在, フォトダイオードなどの光半導体素子の周波数帯域は GHz オーダであり, 周波数が数百 THz である光のスペクトル情報を直接電気信号に変換することはできない. しかし, この光ビート分光法を用いると, 周波数の差分情報を生成するため, 現状の電子デバイスで光情報を直接電気情報に変換することができる. このため, 光ビート分光法を用いることによって, 光学的干渉計が不要になり, 非常に簡便なシステムで光情報を取得することが可能になる.

この際, 信号光と参照光はフォトディテクタの受光面に平行かつ同軸に入射させることが重要である. フォトディテクタを用いることより, 光ビート分光法ではこれらの二つの光の電場成分を観測していることになる. 互いにわずかに異なる周波数を持つ光の電場をそれぞれ E_S (信号光), E_R (参照光) とすると,

$$E_S(x, t) = u_S(x) \exp[j\{2\pi f_S t + \varphi_S(x)\}] \quad (6.1)$$

$$E_R(x, t) = u_R(x) \exp[j\{2\pi f_R t + \varphi_R(x)\}] \quad (6.2)$$

とおける. この二つの式で表される光を干渉させて, その強度の時間的変化を測

定する．フォトディテクタに流れる光電流の大きさ I は，光電場の 2 乗に比例することから，次式のように表される[6]．

$$I(x, t) = |E_S(x, t) + E_R(x, t)|^2$$
$$\propto \frac{E_r^2 + E_s^2}{2} + 2E_r E_s \cos[2\pi(f_r - f_s)t + \{\varphi_s(x) - \varphi_R(x)\}] \quad (6.3)$$

ここで， E_r と E_s はそれぞれ参照光と散乱光の電場， f_r と f_s はそれぞれ参照光と散乱光の周波数である．この式の 2 番目の項の交流成分における周波数成分 $f_r - f_s$ が光ビート信号として観測されるのである．

6.2. 光ビート法による Brillouin 散乱光の観測

6.2.1 目的

光ビート分光法は、従来の電気信号処理に用いられるヘテロダイン検波を応用した散乱光測定法の一つであり、Brillouin 散乱では入射レーザ光から周波数がわずかにシフトした散乱光が発生することから、入射光と散乱光を重ね合わせることによって光ビートが観測できる。この光ビート分光法は散乱光の測定方法として、Fabry-Pérot 干渉計による測定法と並んで発展してきた。また、この手法は電気的な分光を用いるため、機械的な分光が行われる Fabry-Pérot 干渉計のような温度や振動などの影響が無くなる。さらに、周波数分解能が Fabry-Pérot 干渉計よりも高く、Fabry-Pérot 干渉計システムのようにフォトンの長時間計測が不要で、光子の検出と同時に生成される光ビートを観測するだけで済むので迅速な測定が利点であった。しかし、そのような単純な平均加算が出来ないことから、散乱光の検出感度の低さなどが問題となっている[6]。また、従来の光ビート分光法の研究においては、入射光と参照光を試料内で交差させていたため、様々な測定試料の散乱配置による測定したい伝搬音波の方向及び種類の決定が困難である。その上、検出感度を上げるために直径数 cm の集光口径と数 W 程度のレーザ光を用いたので、生体試料など熱に弱い試料の測定には向いていなかった。

この問題を解決するために、数百 mW 程度のレーザ光と RIGOL 散乱配置を用いたシステムで光ビート分光法による測定が可能か検証を行った。数十 mW のレーザ光では、従来の熱フォノンによる Brillouin 散乱光強度は非常に小さいため式(6.3)より光ビートの振幅が十分得られないと考えられる。そこで、第4章、第5章で行ってきたトランスデューサによるフォノン励起を用いて散乱光強度を改善し、入射レーザ光の強度が弱くても光ビート分光法での Brillouin 散乱成分の観測の可能性について基礎的な検討を行った。

6.2.2 測定試料および実験系

本章では測定試料として石英ガラス (ED-H, TOSOH, $5 \times 5 \times 25 \text{ mm}^3$) に ScAlN 圧電薄膜を成膜した第4章と同一の試料を用いた. 本実験で用いた散乱配置を Fig. 6-1 に示す. この ScAlN 圧電薄膜トランスデューサに高周波プローブで電界を印加し, コヒーレントフォノンを励起した. 本実験で ScAlN 圧電性薄膜の縦波の共振周波数を確認すると 884.5 MHz であった. このため, レーザ光の入射角は $\theta/2=2.26^\circ$ に設定した.

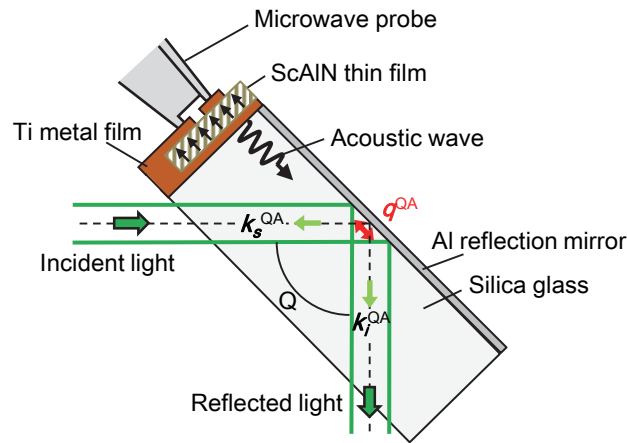


Figure 6-1: Sample configuration in light beating spectroscopy.

Fig. 6-2 に光ビート分光法の実験系を示す. 周囲温度や振動などの外部環境の変化に対して非常に敏感で特性維持が困難なタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計を用いず, 比較的調整が容易なミラーやレンズなどの光学部品と取り扱いが簡単なフォトディテクタのみを使用して実験系を構築した. 本実験では, まず初めにトランスデューサに電界を印加し, コヒーレントフォノンの励起状態やレーザー光の入射角度を確認する必要がある. このため, 事前に Brillouin 散乱光強度が改善されているかを確認するために, タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計で Brillouin 散乱光のスペクトルを測定できるように光学系を設計した. 散乱光の光路を切替式のミラー (Switchable mirror; S.M.) で変更することによって, タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計と光ビートの光学系との切り替えを実現している.

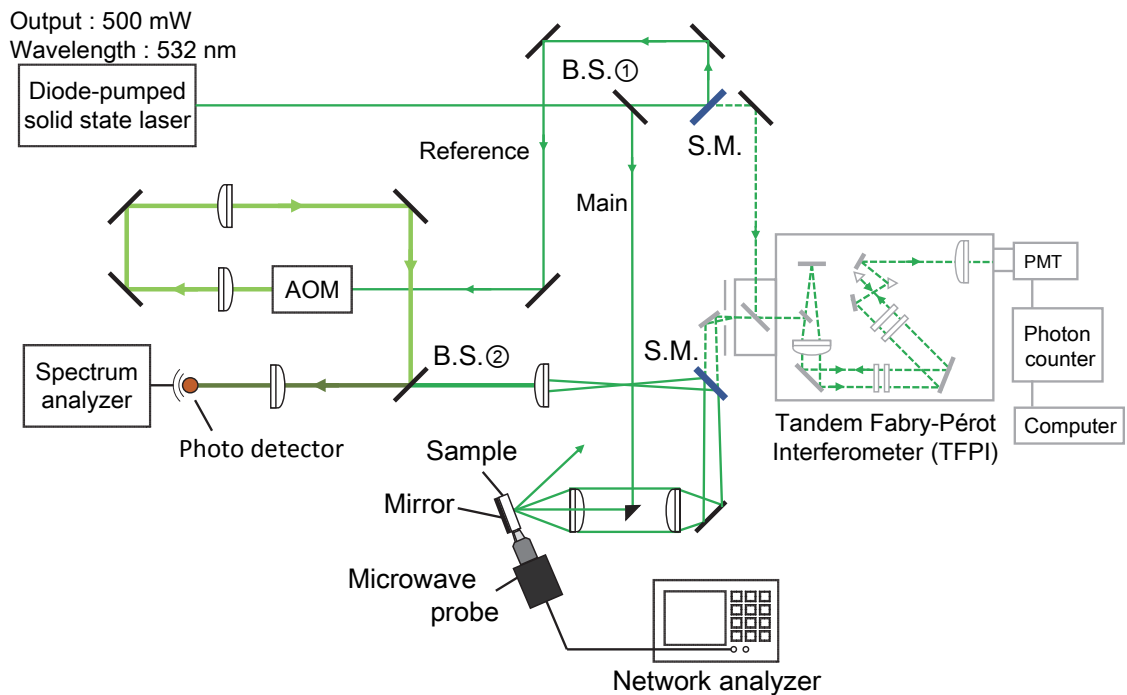


Figure 6-2: Light beating spectroscopy system.

ここで、信号光を測定試料で散乱される Brillouin 散乱光，参照光を測定試料への入射光として用いたレーザ光とする．図に示すように，レーザ光 (torus532, Laser Quantum, 532 nm) はビームスプリッタ (B. S.) ①で参照光と入射光の光路に分かれる．参照光は周波数変調器 (Acousto-Optic Modulator (AOM), Brimrose Corporation) を用いて 110 MHz 周波数シフトさせた．入射光は RIFOA 散乱配置で設置されている試料で散乱し，その散乱光と参照光が B. S. ②で合成される．その後，レンズで絞られた合成光は遮断周波数 2 GHz の Si PIN フォトダイオード (S9055-1, 浜松ホトニクス) を受光面とするフォトディテクタで受光され，スペクトルアナライザ (N9010, Agilent Technologies) で周波数解析する．ここで，測定試料付近のレーザ強度は約 100 mW である．

最初に，光ビート分光法の実験系が正しく構築できているかを確認するために，Brillouin 散乱光の代わりに弾性散乱光である Rayleigh 散乱光との光ビートを測定した．弾性散乱光 (Rayleigh 散乱) は，非弾性散乱光に比べて光強度が遥かに大きく，エネルギー変化が無いので周波数シフトしないため，Brillouin 散乱光を用いるよりも確実に確認試験が行える．Rayleigh 散乱光の周波数は周波数シフトしない

め、レーザ光と同様の 564 THz である。一方で参照光の周波数は AOM を用いて 110 MHz シフトさせた 564 THz + 110 MHz である。よって、式(6.3)によりこの二つの周波数の差分である 110 MHz の光ビート信号スペクトルが観察されると予想される。

弾性散乱光で光ビート分光法の実験系が確認できると、次に Brillouin 散乱光を用いて光ビートの観測を行う。まず、ネットワークアナライザ(E5071C, Agilent Technologies)で挿入損失の波形を確認しながら高周波プローブ (Z10-V-SG-750, Cascade Microtech) を ScAlN 圧電薄膜トランスデューサに接続する。その後、ネットワークアナライザを用いて 884.5 MHz, 10 dBm の電界をトランスデューサに印加し、コヒーレントフォノンを励起した。ここで、高周波プローブの接続先を信号発生器 (E8257D, Agilent Technologies) に繋ぎ換えずに、そのままネットワークアナライザからトランスデューサに電界を印加している。これは、接続先を切り替えることによって高周波プローブや同軸ケーブルが僅かに動き、トランスデューサの電気的特性が変化することを防ぐためである。

次に、コヒーレントフォノンの励起による Brillouin 散乱光強度の改善を確認するために、切替式ミラー S.M. を切り替えてタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計でスペクトルの測定を行う。タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計で測定したスペクトルで散乱強度の改善が確認できれば、再度、切替式ミラー S.M. を切り替えて光ビート分光法で Brillouin 散乱光成分の光ビート信号スペクトルを観測する。

6.2.3 光ビート信号の観察

Rayleigh 散乱光を信号光とし, 光ビートを行ったときの信号スペクトルを Fig. 6-3 に示す. これより, 109.9986 MHz にピークを持つ光ビート信号が観測された. これは, 信号光 : 564 THz と参照光 : 564 THz + 110 MHz の差分である. ここで得られたビート信号は kHz オーダのスペクトル幅を持つことから分光器を用いるよりも遥かに周波数分解能を向上させることができる. 以上から, Rayleigh 散乱光の光ビートが観測され, 本実験で構築した光ビート分光法の実験系で Brillouin 散乱光の測定の可能性が示唆された.

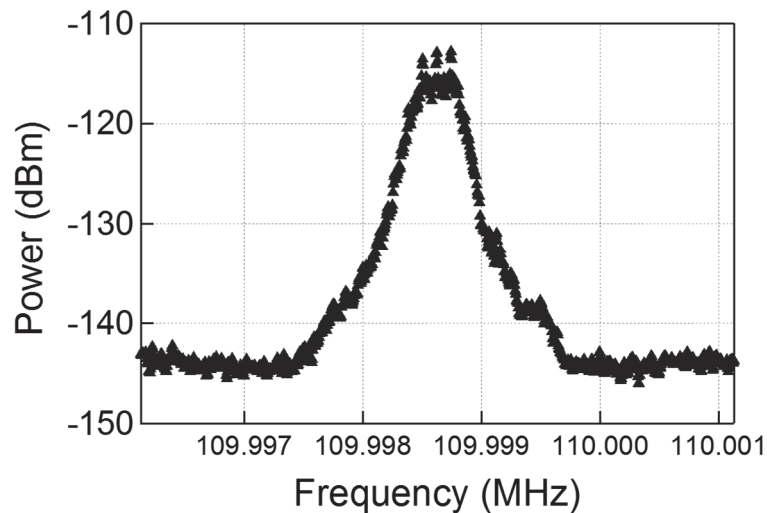


Figure 6-3: Light beating spectrum of the elastic scattering.

次に, ScAlN 圧電薄膜トランスデューサによってフォノンを励起した場合, 反ストークス成分の縦波の Brillouin 散乱光の周波数は, 564 THz + 884.5 MHz となる. 一方で, 参照光の周波数は弾性散乱光の光ビート測定と同様の 564 THz + 110 MHz である. よって, (6.1)式によりこの二つの周波数の差分である 774.5 MHz 周辺にピークを持つ光ビートのスペクトルが見られると予想したが, 光ビート信号は観測されなかった. Rayleigh 弾性散乱光による光ビートのスペクトルが観察されたのに対し, Brillouin 散乱光の光ビートスペクトルが観察されなかった理由として以下の点が考えられる.

- (1) Brillouin 散乱光の強度がこの光ビート分光実験系で用いるのにまだ不十分であった可能性がある。コヒーレントフォノンを励起したとしても、Brillouin 散乱光の強度は弾性散乱光に比べ、約 1000 分の 1 程度しかないので、弱い散乱光強度が問題であると予想される。これを確かめるために散乱光強度と光ビート振幅の関係性を調べた。
- (2) 弾性散乱光と非弾性散乱光の物理的性質上、光ビート分光法における受光において考慮すべき事項が他に存在していた可能性がある。光の偏光や位相などの細部調節がさらに必要であるかもしれない[7]。

6.2.4 散乱光の強度と光ビート振幅の関係性

光ビートに必要な光強度について Rayleigh 弾性散乱光を用いて、その強度と光ビート信号の振幅の関係性を調べた。そのために、様々な透過率の ND フィルタを使用して弾性散乱光の強度を調整し、それぞれの場合の光ビート信号の振幅を測定した。光ビート信号の振幅の測定は、得られたスペクトルからノイズを除去するために、ガウス関数でカーブフィッティングを行なった[8]。なお、ND フィルタを使用しない場合、弾性散乱光の強度はおよそ 156 μW であった。

測定の結果、Fig. 6-4 のような関係が得られた。ここで、縦軸は ND フィルタを使用しない場合のピーク高さで規格化している。弾性散乱光の強度が低下するに従って光ビート信号の振幅も小さくなっている。ここで、ND フィルタで弾性散乱光の強度を 0.015 %以下で通るように調整したとき、つまり 20 nW 以下になると光ビート信号が観測できなくなった。この結果から、Brillouin 散乱光の強度が 20 nW 以下であったために光ビートが発生しなかったと推測できる。これを確かめるために、Brillouin 散乱光の強度を正確に推定する必要がある。

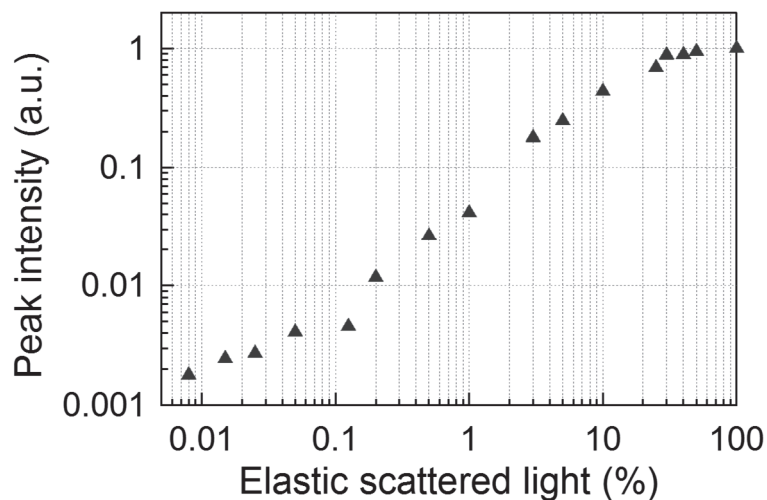


Figure 6-4: Intensity of light beating signal as a function of the elastic scattering light rate.

そこで、タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計を用いて弾性散乱光と非弾性散乱光 (Brillouin 散乱光) を測定し、ピーク強度の比から、Brillouin 散乱光の光強度を算出した。Fig. 6-5 は、フォノンを励起したときの Brillouin スペクトルである。タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計では光強度を弱くしたレーザー光 (干渉計用の参照光) と試料からの Brillouin 散乱光を機械式シャッタで切り替えていたが、今回は機械式シャッタを切り替えず試料から散乱された Rayleigh 成分を観測した。

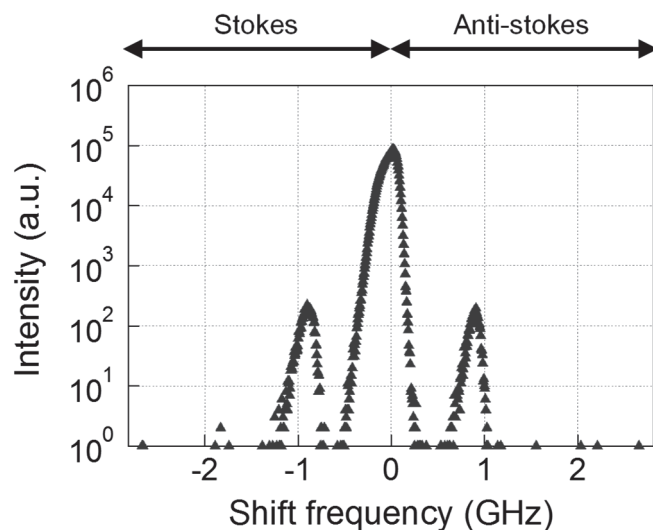


Figure 6-5: Measurement of intensity ratio between elastic scattering (Rayleigh) and excited Brillouin scattering.

このスペクトルより Rayleigh 散乱光と Brillouin 散乱光の強度比を計算し、Rayleigh 散乱光強度を実際に測定することによって、Brillouin 散乱光強度をワット [W]単位で算出した。その結果、本実験で得られた Brillouin 散乱光の強度は、Rayleigh 散乱光強度のおよそ 0.19 %であった。この際の Rayleigh 散乱光強度が約 160 μ W であったため、本計測で得られた Brillouin 散乱光強度はおよそ 300 nW と算出された。この値は、Rayleigh 弾性散乱光強度と光ビート信号の振幅との関連性を調べた測定の結果で、散乱光が約 20 nW 以下で光ビート信号の観測が出来なかったことを考えると、光ビート信号が観測可能な強度であった可能性が高い。今後、更なる実験条件の高度化と検討が必要である。

6.3. まとめ

本章では、多くの Brillouin 散乱測定で用いられるタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計の、温度や振動に大変敏感で、測定時間が長いなどの問題点を解決するために、散乱光と参照光の光うなり（光ビート）を発生させる光ビート分光法の検討を行なった。まず、光ビート分光システムの健全性を確認するために、弾性散乱光（Rayleigh 散乱）においては光ビート信号の観測を行ったところ、二つの周波数の差分にあたる 110 MHz に中心周波数をもつピークが観測された。

次に、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサによってフォノンを励起することで強度が改善した Brillouin 散乱光で光ビート信号の観測を行ったが、光ビートによるピークは得られなかった。そこで、弾性散乱光による光ビートにおいて光強度の差が与える影響を確認したところ、ScAlN 圧電薄膜トランスデューサによって改善された散乱光で光ビートが発生できる可能性が見いだされた。

以上より、光ビート分光システムを見直すことによって、励起フォノンによる Brillouin 散乱光で光ビートを観測することが可能であると考えられる。一つは、光の偏光や位相などの処理を行うことによって、より最適な条件を実現する必要がある。一方で、現状ではフォトディテクタの出力も非常に微弱であるため、受光回路のノイズ低減の検討も必要である。

参考文献

- [1] J. B. Lastovka and G. B. Benedek, In; Physics of Quantum Electronics, J. Singer (ed), Columbia Univ. Press, New York, 1961.
- [2] D. Eden and H. L. Swinney, “Optical Heterodyne Studies of Brillouin Scattering in Xenon Near the Critical Point”, Opt. Commu., Vol. 10, no. 2, pp. 191-194, 1974.
- [3] T. Matsuoka, K. Sakai, and K. Takagi, “High resolution Brillouin-Rayleigh spectroscopy with an optical beating technique”, Rev. Sci. Instrum., Vol. 64, 2136, 1993.
- [4] T. Matsuoka, K. Sakai, and K. Takagi, “Light beating spectroscopy of polarized and depolarized scattering in *p-n*-hexyl *p'*-cyanobiphenyl”, Phys. Rev. Lett., Vol. 71, 2136, 1993.
- [5] Y. Minami, Y. Yogi, and K. Sakai, “Millisecond Brillouin scattering spectroscopy”, Appl. Phys. Lett., Vol. 93, pp. 161107 1-3, 2008.
- [6] 南康夫, 平野太一, 酒井啓司, 日本物理學會誌, “光ビート法による高精度・迅速 Brillouin 散乱観察 (実験技術)”, Vol. 65, no. 1, pp. 10-16, 2010.
- [7] K. Sakai, K. hattori, and K. Takagi, “Brillouin Scattering Experiment under Strong Background Light”, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 34, pp. 2786-2789, 1995.
- [8] E. Jakeman and E. R. Pike, “Statistics of heterodyne detection of Gaussian light”, J. Phys., Vol. 2, pp. 115-125, 1969.

第7章 結言

本論文では、Brillouin 散乱法の測定システムの問題点を解決することを目的として大きく分けて二つの手法を用いて検討を行った。一つは、圧電薄膜トランスデューサを用いたフォノン励起による Brillouin 散乱光強度の改善に関する検討を行った。もう一つは、改善された Brillouin 散乱光を利用した光ビート分光法に関する検討を行った。その内容を章別にまとめる。

第1章では、Brillouin 散乱法の測定システム改善に向けたこれまでの取り組みや本論文の目的、構成などについて述べた。

第2章では、Brillouin 散乱法の原理や測定手法および一般的に用いられている分光器の動作原理について述べた。

第3章では、本論文の基本となるフォノン励起の原理と先行研究について述べた。また、本研究で用いた圧電薄膜の特長についても述べた。

第4章では、Brillouin 散乱光のピーク強度を改善するために圧電薄膜を用いて測定試料の外部から人工的にフォノンを励起し、Brillouin 散乱光の強度が大幅に改善することを確認した。圧電薄膜トランスデューサには周波数 875 MHz および 622 MHz、入力電力 0dBm の電界を印加し、周波数に合わせてレーザの入射角を変更することによって縦波と横波の Brillouin ピークを観測した。この結果、Brillouin ピークの強度は縦波では約 8,600 倍、横波では約 970 倍改善された。以上より、タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計を使用する時間（測定時間）を大幅に短縮でき、長時間測定に伴う精度等の問題を解決することができる。また、強力な散乱光強度が得られることから光ビート分光法への応用も視野に入れることが可能になった。

第5章では、第4章で明らかになったフォノン励起方法の問題点に対して4通りの手法を用いて有用性を確認した。各問題に対してそれぞれ対策が可能であることを示したが、同時に欠点も存在している。今回検証した手法の長所と短所を次表にまとめる。

(1) 縦波・横波の同時励起

トランスデューサで励振できる縦波と横波の周波数が異なるため、縦波音波と横波音波の同時観測ができないという問題に対して、測定試料の石英ガラスに直接成膜した ScAlN 薄膜トランスデューサに高周波プローブを用いてチャープ信号を印加することで、一度の測定中に縦波音波と横波音波を同時に励振した。

チャープ信号は周波数 300-1500 MHz、掃引時間 2.16 s、入力電力 0 dBm とし、信号の掃引中に 875 MHz の縦波および 622 MHz の横波を励振できるようにした。その結果、縦波音波の Brillouin 散乱ピークと横波音波の Brillouin 散乱ピーク強度を同時に改善できることを確認した。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。しかし、シフト周波数が励起前と励起後で変化した。これは、圧電薄膜トランスデューサの周波数特性やチャープ信号と干渉計の掃引が同期出来ていなかったためと考えられる。

以上より、チャープ信号を印加することで、縦波、横波フォノンを同時に励起することが可能であったが、得られたシフト周波数から正確な音速を求めることは難しい。そのため、本手法では未知材料の音速を測定する場合、チャープ信号印加で縦波・横波シフト周波数のおよその値を測定した後、測定値近傍の周波数のフォノンを励起させ、散乱光強度が最大となる入射角を見つけ出す、という二段階の計測を行えばより正確で高速な音速測定が可能となると考えられる。

(2) 共焦点 Fabry-Pérot 干渉計による分光

分光器としてタンデム型 Fabry-Pérot 干渉計を用いているため、依然、干渉計の取り扱いや測定環境に配慮する必要があるという問題に対して、フォノン励起によって強度改善された Brillouin 散乱光を共焦点 Fabry-Pérot 干渉計 (CFPI) を用いて分光を行った。

タンデム型 Fabry-Pérot 干渉計に比べ性能は劣るが、より扱いが簡便な共焦点 Fabry-Pérot 干渉計 (CFPI) を用いて分光を行った。ScAlN 薄膜トランスデューサを用いて縦波および横波のフォノン励起を行った。縦波音波は周波数 883

MH, 入力電力 0 dBm の信号を印加し, 横波音波は周波数 585 MHz, 入力電力 10 dBm とした. その結果, 従来の熱フォノンによる Brillouin 散乱光は全く観測できなかつたにも関わらず, 縦波フォノンを励起することによって CFPI で観測できることが確認された. 一方で横波の Brillouin 散乱光はトランスデューサによる音波の励振強度が足りずピークを観測することはできなかつた.

以上より, ScAlN 圧電薄膜トランスデューサで強い音波を励振することができれば, CFPI で十分測定が可能であることを示した. これは温度や振動を厳密に管理しなければならない TFPI から置き換えが可能になり, 測定精度を維持しつつシステム全体のメンテナンス性を向上させることができる.

(3) 同軸共振器を用いた非接触フォノン励起

トランスデューサに電界を印加する手法が高周波プローブによる接触のため, 機械振動に弱く, また音波励振の再現性が悪いという問題に対して同軸共振器を用いて非接触で音波の励振を試みた.

同軸共振器から漏洩するエバネッセント波を用いて ScAlN 薄膜トランスデューサに非接触で電界を印加した. 入力電力 0 dBm で同軸共振器の基本共振周波数である 1.989 GHz を印加することで縦波音波を励振した. フォノンの励起前後で比較すると Brillouin 散乱光強度は縦波で約 1,100 倍改善した. ただし, 高周波プローブを用いて直接トランスデューサに電界を印加した場合 (約 8,600 倍) と比較すると散乱光強度の改善率は悪化した.

以上より, 圧電薄膜トランスデューサの電極に高周波プローブを接触させるという繊細な作業を行わなくてよく, レーザの入射角度を容易に変化させることができることが確認できた. また, 本手法では圧電薄膜トランスデューサに電極を作製する必要がなくなり, トランスデューサの製作工程も簡素化することが可能になる.

(4) トランスデューサのモジュール化

測定試料に圧電薄膜を直接成膜しているため, 成膜不可能な材料には適用できないという問題に対して測定試料とトランスデューサを分離し, 音響整

合層を介して試料内のフォノンを励起する手法を試みた。

ZnO 薄膜トランスデューサを独立してガラス基板上に作製した。この音響整合層として接触触媒を用いてトランスデューサと測定試料を結合した。この状態でトランスデューサに入力信号は 10 dBm, 周波数 822 MHz および 749 MHz を印加し, 縦波音波を励振した。

この結果, Brillouin 散乱光強度を改善できることを確認した。なお, トランスデューサと測定試料の間は接触媒質を用いてしている。測定試料を石英ガラスとした場合, フォノン励起によって縦波の散乱光強度は約 4,000 倍改善し, 測定試料をアクリル樹脂とした場合で縦波の散乱光強度は約 6.7 倍まで改善した。つまり, 接触媒質を介してフォノンを励起しても Brillouin 散乱光強度を改善できることがわかった。この結果より, 本手法を用いることで直接圧電薄膜を成膜することが困難な試料においても Brillouin 散乱法の高速測定を応用できると考えられる。

第 6 章では, 散乱光と参照光の光うなり (光ビート) を発生させる光ビート分光法の検討を行なった。ScAlN 圧電薄膜トランスデューサによってフォノンを励起することで強度が改善した Brillouin 散乱光での光ビート信号は観測できなかったが弾性散乱光 (Rayleigh 散乱) においては光ビート信号を観測できた。また, 改善された散乱光強度は光ビートが発生する強度に達していたことから, 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。

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。今後はより安定的に強力な励振が可能なトランスデューサモジュールの製作といった圧電薄膜トランスデューサの高度化等や光ビート分光法における光の偏光や位相変換などの調整を行うことによって, Brillouin 散乱法への応用が期待される。

関連発表

【論文】

1. Masanori Sakamoto, Masahiko Kawabe, Mami Matsukawa, Noriko Koizumi and Norikazu Ohtori, “Measurement of Wave Velocity in Bovine Bone Tissue by Micro-Brillouin Scattering”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 47, no. 5S, pp. 4205-4208, 2008.
2. Masahiko Kawabe, Mami Matsukawa and Norikazu Ohtori, “Measurement of wave velocity distribution in a trabecula by micro-Brillouin scattering technique”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 49, no. 7S, 07HB05, 2010.
3. Vincent Mathieu, Kenji Fukui, Mami Matsukawa, Masahiko Kawabe, Romain Vayron, Emmanuel Soffer, Fani Anagnostou and Guillaume Haiat, “Micro-brillouin scattering measurements in mature and newly formed bone tissue surrounding an implant”, *J Biomech Eng* 133(2), 021006, 2011.
4. Masahiko Kawabe, Kenji Fukui, Mami Matsukawa, Mathilde Granke, Amena Saïed, Quentin Grimal and Pascal Laugier, “Comparative investigation of elastic properties in a trabecula using micro-Brillouin scattering and scanning acoustic microscopy”, *J. Acoust. Soc. Am.*, 132, pp. EL54-EL60, 2012.
5. Hayato Ichihashi, Takahiko Yanagitani, Shinji Takayanagi, Masahiko Kawabe and Mami Matsukawa, “Gigahertz acoustic wave velocity measurement in GaN single crystals considering acousto-electric effect”, *IEEE Trans. Ultrason., Ferroelect., Freq. Control*, Volume 61, Issue 8, pp.1307-1313, 2014.
6. Mami Matsukawa, Ryo Tsubota, Masahiko Kawabe and Kenji Fukui, “Application of a micro-Brillouin scattering technique to characterize bone in the GHz range”, *Ultrasonics*, Volume 54, Issue 5, pp. 1155-1161, 2014.

7. Hayato Ichihashi, Takahiko Yanagitani, Masashi Suzuki, Shinji Takayanagi, Masahiko Kawabe, Shota Tomita and Mami Matsukawa, “Acoustic-Wave Velocities and Refractive Indices in an m-Plane GaN Single-Crystal Plate and c-Axis-Oriented ScAlN Films Measured by Brillouin Scattering Techniques”, IEEE trans. ultrason. ferroelectr. freq. control, Volume 63, Issue 5, pp. 717-725, 2016.
8. Masahiko Kawabe, Shinji Takayanagi, Hayato Ichihashi, Masashi Suzuki, Takahiko Yanagitani and Mami Matsukawa, “Rapid Wave Velocity Measurement by Brillouin Scattering Using Coherent Phonons Induced by ScAlN Piezoelectric Thin-Film Transducer”, IEEE trans. ultrason. ferroelectr. freq. control, Volume 65 , Issue 10, pp. 1882-1887, 2018.

謝 辞

本研究を進めるにあたり，貴重なご指導とご助言を賜りました松川真美教授に深甚なる感謝の意を表します．また，同じく貴重なご指導とご助言を賜りました渡辺好章教授に心から感謝申し上げます．さらに，多大なご助言，ご教示を頂きました秋山いわき教授，小山大介教授に深く感謝申し上げます．

また，本研究の圧電薄膜トランスデューサにおいて，製作，貴重なご助言，ご教示頂きました早稲田大学 柳谷隆彦准教授，名古屋工業大学 高柳真司助教，山梨大学 鈴木雅視助教に深く感謝申し上げます．

同じ研究テーマで，共に議論し，研究に励んだ趙恩慧氏，柴垣慶明氏に深く感謝申し上げます．

そして，この様な研究の機会を与えて頂き，多岐にわたっての暖かいご指導とご鞭撻を賜りました日立造船株式会社機械事業本部電子制御ビジネスユニット中村豪志ビジネスユニット長をはじめとします多くの方々に厚く御礼申し上げます．

そして，多岐にわたりお世話になりました超音波エレクトロニクス・応用計測研究室および超音波エレクトロニクス・生体計測研究室の皆様にお礼申し上げます．

最後に，長きにわたる研究生活を支えていただきました家族に感謝申し上げて，謝辞といたします．