

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月27日現在

機関番号：13101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23654116

研究課題名（和文） 微細加工技術を用いた高周波超音波デバイスの開発による散逸量子系の研究

研究課題名（英文） Study of dissipative quantum state by means of high-frequency ultrasonic devices processed by micromachining

研究代表者

根本 祐一（NEMOTO YUICHI）

新潟大学・自然科学系・准教授

研究者番号：10303174

研究成果の概要（和文）：

超音波を用いた弾性定数測定の実験に必要な超音波発振デバイスは、その厚みによって固有振動数が異なるため、研究対象に応じて様々な圧電デバイスを準備する必要がある。本課題研究では、その中で縦波と横波を区分して発振できる単結晶圧電デバイスの薄厚化に取り組み、反転メサ加工することで高周波化を実現し、実際にラットリングを示すカゴ状化合物に適用し、高精度実験へ導入可能かどうかを検討した。まず、汎用性の高いATカット水晶チップについて反転メサ加工を行い、最薄部5 $\mu\text{m}$ を実現しブランク周波数260.0 MHzから261.9 MHzのチップを製造した。金蒸着による電極作成を経て、実際にカゴ状化合物 $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ の測定試料に接着して基本振動数155 MHzを発振した。次に、ヘリウム3冷凍機を用いて、弾性定数の温度依存性を極低温の0.4 Kまで測定し、ラットリングによる超音波分散現象を観測し、通常低温実験に用いる $\text{LiNbO}_3$ の高調波発振による実験結果を再現した。これにより、反転メサ加工により薄厚化した圧電デバイスでの超音波実験が可能であることを示した。他方、 $\text{LiNbO}_3$ と $\text{LiTaO}_3$ のエッチングについては、水晶と同様のプロセスを用いての実用的な加工スピードを維持した薄厚化は困難であった。これらの成果を踏まえ、ナノ微粒子を用いた反転メサ加工の研究開発に取り組んでいる。

研究成果の概要（英文）：

We usually use a variety of piezoelectric transducers for generation and detecting of ultrasound signals in low-temperature measurements of elastic constants and ultrasonic attenuation coefficients. In this work, we tried to make high-frequency transducers developed by using processing technology. At first, basic process is involved in manufacturing inverted mesa-type crystals. The thickness of limited central area of conventional AT-cut quartz crystal is etched down to 5  $\mu\text{m}$  for desired frequency over 150 MHz with fundamental mode. We successfully made devices with fundamental frequency of 260 MHz with blanks and applied to measure the elastic constant  $C_{44}$  in  $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$  with inverted mesa-type AT-cut quartz transducer. On the other hand, we found it is difficult to etch practically the  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$  in the same process with quartz crystal. The advanced technique using nano-particle fluid is now developed utilizing for inverted mesa-type tips made of  $\text{LiNbO}_3$ .

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性II

キーワード：超音波、圧電デバイス、微細加工

1. 研究開始当初の背景

| 超音波は物質中を伝搬する歪みの波動であ

り、その音速から物質の固さを表す弾性定数を決定できる。物質中に電気四極子をもつ電子やイオンの量子系が存在すると、超音波によって励起された歪みと結合するので、弾性定数は低温でソフト化を示し、電気四極子感受率として理解できる。これまで、 $\text{LiNbO}_3$ などの単結晶を  $40\ \mu\text{m}$  厚までの薄型化を標準化し、高調波発振を用いることで  $300\ \text{MHz}$  程度での超音波実験を可能とし、カゴ状化合物のラットリングによる超音波分散の観測やシリコン原子空孔軌道の観測、希土類化合物での多極子揺らぎと秩序の観測などに適用してきた。周波数を高めることで音速や超音波吸収の高精度化が進み、微小計測技術の開発とともに、鉄系超伝導体やシリコン原子空孔などでの電気四極子が役割を果たす新しい物性物理の開拓が期待できる。

## 2. 研究の目的

本研究課題では、微細加工を駆使して単結晶の水晶や  $\text{LiNbO}_3$ ,  $\text{LiTaO}_3$  チップの強度を維持しながら反転メサ加工することで薄厚化を試み、高周波超音波デバイスの開発を行い、これまで未踏であったギガヘルツ超音波計測を開発する。これにより、カゴ状化合物での非調和ラットリング振動および  $\text{Pr}$  化合物での非クラマース二重項  $\Gamma_3$  のバイプロニック状態などの超音波分散を伴う散逸量子系の解明を進め、新しい電気四極子の物理を開拓する。

## 3. 研究の方法

研究室レベルではドライエッチング微細加工が不可能であるので、超音波水晶デバイスに豊富な経験と実績がある九州電通株との共同研究を進めた。図 1 に示すように素子の厚さと発振周波数の関係は逆比例しており、これまでの成果からほぼ機械研磨の限界である  $20\ \mu\text{m}$  厚で  $120\ \text{MHz}$  の縦波超音波、 $90\ \text{MHz}$  の横波超音波の基本波発振に成功した。これ以降の極薄化は、図 2 に示したように振動部位を局部的に掘り込み、全体のチップ強度を確保した上で微細加工を行う必要がある。そのため水晶基板およ

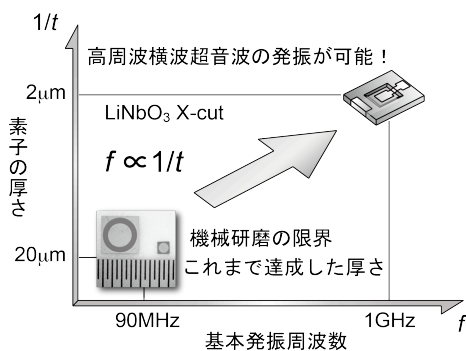


図 1 デバイスの厚みと周波数の関係

び 4 インチ  $\text{LiNbO}_3$  ウェハを全面  $40\ \mu\text{m}$ ,  $100\ \mu\text{m}$ ,  $200\ \mu\text{m}$  の各種厚に前研磨後ダイシングし、チップごとに局部的に  $20\sim 30\ \mu\text{m}$  厚までの機械研磨を施した後にドライエッチングにより最終的に  $5\ \mu\text{m}$  厚まで反転メサ構造を成形した高周波超音波デバイスを製造する。高周波を取り扱うにはインピーダンス整合が必須であるので、既設のインピーダンスアナライザを用いて電極面積の最適化を行う。基本発振で高周波化することのメリットとして、デバイス自身の共振近傍の高調波成分を排除でき、安定的かつ高精度な超音波計測が期待できる。試作した極薄型超音波デバイスを、ラットリングを示すカゴ状化合物  $\text{R}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$  に適用し、超音波デバイスとして利用できるか検討する。

## 4. 研究成果

工業的に汎用性の高い水晶単結晶の AT カット板 (ブランク外形  $3.00\ \text{mm} \times 5.00\ \text{mm}$ ) について、九州電通株で最薄部  $5\ \mu\text{m}$  の反転メサ加工を行い、ブランク周波数  $260.0\ \text{MHz}$  から  $261.9\ \text{MHz}$  のチップを製造した。そのチップを用いて研究室にて金蒸着による電極加工を行った。カゴ状化合物  $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$  の単結晶表面に接着し、室温で超音波発振試験を行った。ネットワークアナライザで共振試験を行ったところ、図 3 に示すように、基本周波数の  $162\ \text{MHz}$  で鋭い共振をもつことを確認できた。3 倍高調波および 5 倍高調波では超音波エコー信号は確認できなかった。水晶の電気機械結合定数は  $\text{LiNbO}_3$  や  $\text{LiTaO}_3$  と比較すると小さいが、通常低温実験で設定する計測機器の増幅回路と変更せず基本波発振できることが分かった。次に、液体窒素温度および液体ヘリウム温度領域まで順次超音波計測を行った。超音波エコー信号が最も良好であった周波数  $155\ \text{MHz}$  を用いて  $0.4\ \text{K}$  の極低温まで温度変化の実験を行った結果を図 4 に示す。その結果、 $\text{LiNbO}_3$  を用いて計測したデータを再現した。これにより、反転メサ構造の圧電デバイスの超音波実験への適用が可能であることを示

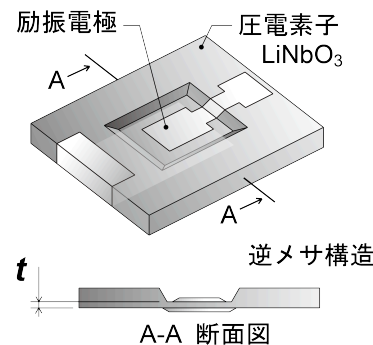


図 2 微細加工により製造する反転メサ構造の模式図

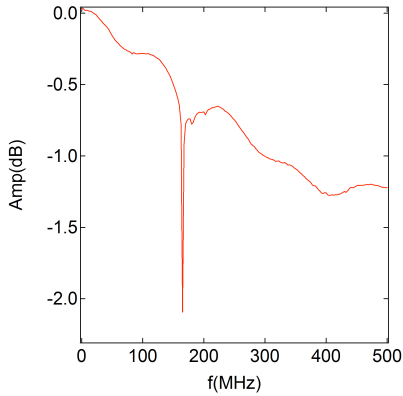


図3 ATカット水晶板を用いた反転メサデバイスの共振周波数特性 162 MHz

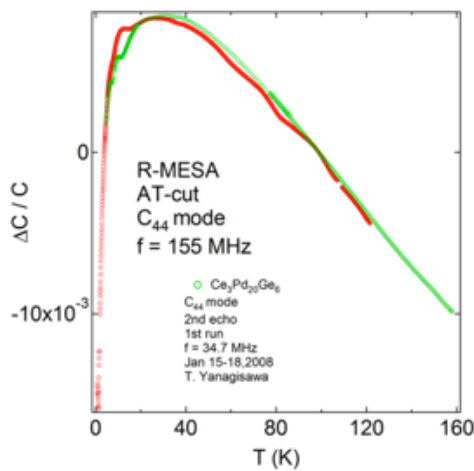


図4 反転メサ構造の水晶圧電デバイスとLiNbO<sub>3</sub>で測定したCe<sub>3</sub>Pd<sub>20</sub>Ge<sub>6</sub>の弾性定数C<sub>44</sub>の比較

した。他方、LiNbO<sub>3</sub>やLiTaO<sub>3</sub>の反転メサ加工については、水晶と同じプロセスではエッチング処理が実用的な速度で実施できないことが分かった。これを踏まえ、LiNbO<sub>3</sub>やLiTaO<sub>3</sub>などについては、ナノ微粒子による液体流機械研磨にてメサ加工を可能にする研究開発を産学連携で進めている。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計9件)

1. Terutaka Goto, Ryosuke Kurihara, Koji Araki, Keisuke Mitsumoto, Mitsuhiro Akatsu, Yuichi Nemoto, Shunichi Tatematsu, Masatoshi Sato, Quadrupole Effects of Layered Iron Pnictide Superconductor Ba(Fe<sub>0.9</sub>Co<sub>0.1</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 073702 1-4. 注目論文賞 査読有

2. Koji Araki, Yuichi Nemoto, Mitsuhiro Akatsu, Shinya Jyumonji, Terutaka Goto, Hiroyuki S. Suzuki, Hiroshi Tanida, Shigeru Takagi, Multipole effects of  $\Gamma_3$  doublet -  $\Gamma_4$  triplet states in PrMg<sub>3</sub>, Phys. Rev. B **84** (2011) 045110 1-8. 査読有

3. Isao Ishii, Hitoshi Muneshige, Yasuhiko Suetomi, Takahiro K. Fujita, Takahiro Onimaru, Keisuke T. Matsumoto, Toshiro Takabatake, Koji Araki, Mitsuhiro Akatsu, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Takashi Suzuki, Antiferro-Quadrupolar Ordering at the Lowest Temperature and Anisotropic Magnetic Field-Temperature Phase Diagram in the Cage Compound PrIr<sub>2</sub>Zn<sub>20</sub>, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 093601 1-4. 査読有

4. Shotaro Baba, Terutaka Goto, Yuta Nagai, Mitsuhiro Akatsu, Hajime Watanabe, Keisuke Mitsumoto, Takafumi Ogawa, Yuichi Nemoto, and Hiroshi Yamada-Kaneta, Quadrupole Effects of Vacancy Orbital in Boron-Doped Silicon, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 094601-8. 査読有

5. Koji Araki, Terutaka Goto, Keisuke Mitsumoto, Yuichi Nemoto, Mitsuhiro Akatsu, Hiroyuki S. Suzuki, Hiroshi Tanida, Shigeru Takagi, Shadi Yasin, Sergei Zherlitsyn, Joachim Wosnitzer, Dissipation In Non-Kramers Doublet of PrMg<sub>3</sub>, J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 023710 1-4. 査読有

6. Genki Ano, Mitsuhiro Akatsu, Koji Araki, Kazuo Matsuo, Yoshiaki Tachikawa, Keisuke Mitsumoto, Takashi Yamaguchi, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Naoya Takeda, Andreas Donni, Hideaki Kitazawa, Quadrupole Ordering and Rattling Motion of Clathrate Compound Pr<sub>3</sub>Pd<sub>20</sub>Ge<sub>6</sub>, J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 034710 1-11. 査読有

7. Hiroshi Yamada-Kaneta, Satoru Komatsu, Shotaro Baba, Yuta Nagai, Mitsuhiro Akatsu, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Effect of nitrogen Doping on Vacancy state in Silicon Crystals Observed by Low-Temperature Ultrasonic Measurements, Mater. Sci. forum Vol. **725** (2012) 217-220. 査読有

8. Naoyuki SANADA, Yuta AMOU, Ryuta WATANUKI, Kazuya SUZUKI, Isao YAMAMOTO, Hiroyuki MITAMURA, Toshiro SAKAKIBARA, Mitsuhiro AKATSU, Yuichi NEMOTO, Terutaka GOTO, Coexistence of Ising and XY Spin Systems on a Single Tb Atom in TbCoGa<sub>5</sub>, J. Phys. Soc. Jpn. **82** (2013) 044713 1-8. 査

読有

9. Isao Ishii, Hitoshi Muneshige, Shuhei Kamikawa, Takahiro K. Fujita, Takahiro Onimaru, Naohiro Nagasawa, Toshiro Takabatake, Takashi Suzuki, Genki Ano, Mitsuhiro Akatsu, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Antiferroquadrupolar ordering and magnetic-field-induced phase transition in the cage compound  $\text{PrRh}_2\text{Zn}_{20}$ , Phys. Rev. B 87 (2013) 205106 1-7. 査読有

〔学会発表〕(計 27 件)

1. 強相関電子系国際会議 2011, イギリス, ケンブリッジ大学, 2011 年 8 月 31 日, Ultrasonic investigation of quadrupole effects in  $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$  under magnetic fields along [111], Y. Nemoto, Y. Ikeda, T. Nishikata, G. Ano, K. Araki, K. Mitsumoto, M. Akatsu, T. Goto, N. Kurotaki, N. Takeda<sup>7</sup> Graduate School of Science and Technology, Niigata University, Niigata, Japan, Center for Quantum Materials Science, Niigata University, Niigata, Japan, Dresden High Magnetic Field Laboratory (HLD), Helmholtz Zentrum Dresden Rossendorf (HZDR), Germany, Faculty of Engineering, Niigata University, Niigata, Japan

2. 日本物理学会 2012 年秋季大会, 横浜国立大学, 2012 年 9 月 19 日, 超音波による  $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$  の結晶場と多極子秩序の解明, 根本祐一<sup>A</sup>, 池田佳生<sup>A</sup>, 三本啓輔<sup>A, B</sup>, 赤津光洋<sup>A, C</sup>, 阿野元貴<sup>A</sup>, 荒木幸治<sup>D</sup>, 後藤輝孝<sup>A</sup>, 黒瀧直哉<sup>E</sup>, 中野智仁<sup>E</sup>, 武田直也<sup>E</sup>, 新潟大院自然<sup>A</sup>, MPI CPFS<sup>B</sup>, HZDR HLD<sup>C</sup>, 東大物性研<sup>D</sup>, 新潟大工<sup>E</sup>

他 25 件

〔産業財産権〕

○出願状況(計 3 件)

名称: シリコンウェーハ中に存在する原子空孔濃度の定量評価方法, シリコンウェーハの製造方法, および当該製造方法により製造したシリコンウェーハ

発明者: 後藤輝孝, 金田寛, 根本祐一, 赤津光洋

権利者: 国立大学法人 新潟大学

種類: 特許

番号: 特願 2009-206397 (日本), PCT/JP2010/063967 (PCT), 第 99129214 (台湾)

出願年月日: 平成 21 年 9 月 7 日 (2009.9.7)

(日本), 平成 22 年 8 月 19 日 (2010.8.19)

(PCT), 平成 22 年 8 月 31 日 (2010.8.31)

(台湾)

国内外の別: 国内および国外

名称: シリコンウェーハ表層中の原子空孔評価方法及び装置

発明者: 後藤輝孝, 根本祐一, 金田寛, 赤津光洋, 三本啓輔

権利者: 国立大学法人 新潟大学

種類: 特許

番号: 特願 2013-017810 号

出願年月日: 2013 年 1 月 31 日

国内外の別: 国内

名称: シリコンウェーハ中の原子空孔濃度の絶対値の決定方法

発明者: 後藤輝孝, 根本祐一, 金田寛, 赤津光洋, 三本啓輔, 鹿島一日兒

権利者: 国立大学法人 新潟大学

種類: 特許

番号: 特願 2013-017811 号

出願年月日: 2013 年 1 月 31 日

国内外の別: 国内

○取得状況(計 1 件)

名称: シリコンウェーハ中に存在する原子空孔の定量評価装置, その方法, シリコンウェーハの製造方法, 及び薄膜振動子

発明者: 後藤輝孝, 根本祐一, 金田寛

権利者: 国立大学法人 新潟大学

種類: 特許

番号: 第 8,215,175 号

取得年月日: 2012 年 7 月 10 日

国内外の別: 米国

〔その他〕

ホームページ:

<http://www.sc.niigata-u.ac.jp/goto/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

根本 祐一 (NEMOTO YUICHI)

新潟大学・自然科学系・准教授

研究者番号: 10303174

(2)研究分担者

赤津 光洋 (AKATSU MITSUHIRO)

新潟大学・自然科学系・博士研究員

研究者番号: 10431876