

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 2 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17938

研究課題名(和文) 室温から極低温に渡るナノ～マイクロ薄膜の音速・屈折率・膜厚同時計測法の確立

研究課題名(英文) Sound velocity, refractive index, and thickness measurement of thin films below room temperature.

研究代表者

長久保 白 (Nagakubo, Akira)

大阪大学・基礎工学研究科・特任助教(常勤)

研究者番号：70751113

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では携帯電話などの無線通信機器に欠かすことのできない音響フィルタ材料の音速計測に取り組んだ。独自に開発した光学系を用いることによってマイクロオーダーの薄膜中を伝播する超音波を2つの異なる入射角度のもと観測する手法を確立することに成功した。これにより薄膜の音速・屈折率・膜厚を同時に計測する手法を開発した。またAlNやダイヤモンドといった材料の音響特性を室温から極低温域にわたって解明し、デバイス開発や材料科学の発展につながる重要な知見を数多く得た。

研究成果の概要(英文)：In this study, I have developed a method to accurately measure the sound velocity of functional materials, which are widely used in wireless communication devices such as cell phone. Using home built optics, I succeeded in observing ultrasound propagations in micro-order films with two different incident angle, which enable me to measure the sound velocity, refractive index, and film thickness of the film at the same time. Furthermore, I have measured the temperature dependence of acoustic properties of functional materials such as AlN and diamond. These results contribute to device design and give many important knowledge for material science.

研究分野：音響物理学

キーワード：音速 薄膜 温度依存性 レーザー超音波 GHz ナノ薄膜 弾性率

1. 研究開始当初の背景

現代の高度に発展した情報化社会では小型無線デバイスを用いた大容量・高速データ通信が欠かせず、この傾向は加速する一方である。それに伴い通信周波数はますます上昇しており、また無線通信の多様化(携帯電話、テレビ、ラジオのほか行政・公共通信無線など)のため身の回りには様々な周波数帯の電波が飛び交っている。このような中から特定の信号だけを取り出すためには所定の通信周波数の信号のみを選択的に取り出すフィルタ回路が欠かせない。このフィルタ回路に求められる特性として、小型・軽量・高効率であることはもちろんのほか、高い周波数選択性とその温度安定性が重要である。

そこで現在の携帯電話などで実用化されているのが圧電体という材料を用いた弾性波フィルタである。この圧電体という材料は電圧を加えるとそれに応じて変形する性質を有する。例えば圧電体の上に特定の間隔でくし型の電極を作成し、そこにアンテナで受信した信号を加えると、受信した信号の中からくし型電極の間隔に等しい波長の音が圧電中に発生する。その音は圧電体中を伝わり、反対側に作成した同形状のアンテナ電極で再び電気信号に変換される。こうして弾性波フィルタは電気信号をいったん音に変換することで特定の周波数の信号だけを取り出すことができる。

この弾性波フィルタの設計の根幹を担うパラメータは圧電体中を伝わる音の速さである。通信周波数は用途によって決まっているため、圧電体の音速が既知であれば音の波長、すなわち電極の間隔を計算できる。しかしデバイスの小型化に伴いこの圧電体も薄膜作成技術を用いて作成されるが、まず薄膜化した材料の音速自体がバルク体とは大きく異なりうるという問題がある。そのためこのようなフィルタで用いられる nm~ μ m オーダーの薄膜中を伝わる音速を正確に計測する手法は極めて重要である。

さらにこの音速は環境温度の変化とともに変化し、その変化の大きさも薄膜とバルクで異なる。携帯電話などは地域の違いや四季の変化によらず広い温度範囲で安定に動作することが求められるため、温度変化による音速の変化を最小限に抑える必要がある。この変化量は薄膜に別の材料を添加したりすることで調整できるが、薄膜試料に対する添加物の効果もバルク試料と異なる。そのため薄膜の音速の温度依存性を計測することはとても重要である。

しかし nm~ μ m オーダーの薄膜の音速を正確に計測するためには計測法にも高い周波数・時間分解能が必要とされるため、従来の圧電体や電磁気力を用いた超音波計測技術では困難である。その温度依存性を計測するためにはさらに課題を抱えており、薄膜の音速の温度依存性を計測するのに適した技術はいまだに確立されておらず物性解明が

急務となっていた。

2. 研究の目的

この研究では室温から極低温領域にわたって音速を計測する技術を開発し、様々な音響材料の物性を解明することを目的とする。固体材料の音速は極低温領域において一定となり、高温域においては温度とともに直線的に変化することが知られている。デバイス応用はこの直線係数が重要であるため、まず実際のフィルタに用いられている材料に対してこの直線係数を決定しながら、正確に音速の温度依存性を計測する手法を開発していくことがこの研究の目的である。

また音速が一定となる極低温領域は物理学的に重要な情報を含んでいる。この温度領域は材料によって異なり、ゼロ点振動の大きさと関係する。実際、この極低温領域における音速の温度依存性から材料の振動特性をつかさどるパラメータ(デバイ温度)を見積もることができる。そこで本研究では音速が直線的に変化する範囲のみならず、一定となる極低温領域まで計測することで、デバイス応用の観点のみならず材料の物性解明にも貢献することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では nm~ μ m オーダーの薄膜の音速を計測するためにフェムト秒 Ti/Sapphir パルスレーザーを用いる。これはパルス光によって試料表面を瞬間的に加熱し、熱膨張によって超音波を発生させ、その超音波を時間遅延させたパルス光によって検出するという手法である。本研究においては薄膜試料の音速及び膜厚・屈折率を同時に高精度で決定する手法を開発するために図1のような光

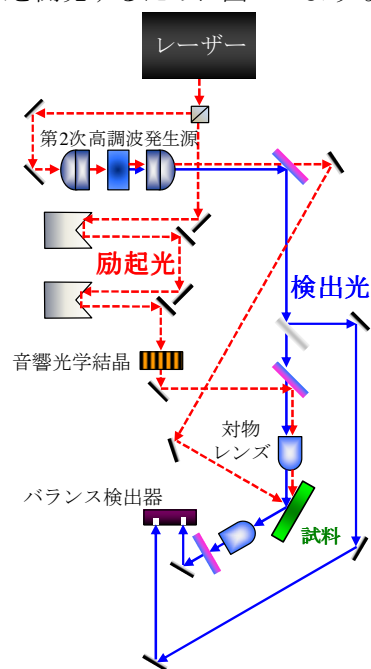


図1 構築した射角入射光学系。試料を交換しても試料法線角度が変化しないように調整することが可能。

光学系を構築した。この光学系では試料の斜め方向から光を入射し、試料を交換してもその角度を一定に保つことを可能とした。薄膜内を伝播する超音波と光の干渉によって Brillouin 振動という振動が観測できる。この周波数 f_{θ} は試料の音速 v 、屈折率 n および検出光の入射角 θ 、波長 λ を用いて

$$f_{\theta} = 2v(n^2 - \sin^2\theta)^{1/2}/\lambda \quad (1)$$

で与えられる。従って入射角が 0 度の時の周波数を f_0 とすれば f_0 と f_{θ} を計測することで試料の音速と屈折率を

$$v = \lambda(f_0^2 - f_{\theta}^2)^{1/2}/2\sin\theta \quad (2)$$

$$n = f_0\sin\theta/(f_0^2 - f_{\theta}^2)^{1/2} \quad (3)$$

から同時に決定することができる。ここで重要となるのが入射角度 θ を正確に計測することである。幾何学配置や回転ステージなどによって計測することもできるが、本研究では屈折率が既知である材料を校正材料として用いることでまず入射角度を計測し、その入射角度を用いることで薄膜の音速と屈折率を同時に決定する手法の開発に取り組む。

4. 研究成果

(1) フッ素添加石英ガラス薄膜

まず弾性波フィルタの温度補償材料として利用されているフッ素添加石英ガラス薄膜に対して上述の光学系を用いた計測結果を図 2 に示す。これは厚さが約 2 または 4 μm で、フッ素添加量の異なる 3 枚の石英ガラス薄膜に対する計測結果である。このように垂直入射と射角入射で周波数が異なる明瞭な信号を観測することに成功し、屈折率と音速を 0.27% 以下の誤差で決定することに成功した。また途中で超音波の振幅が急激に小さくなる時刻は超音波が薄膜/基板界面に到達した時刻に相当する。したがって超音波が薄膜表面で発生してから基板に到達するまでの時間もこの手法によって計測することがで

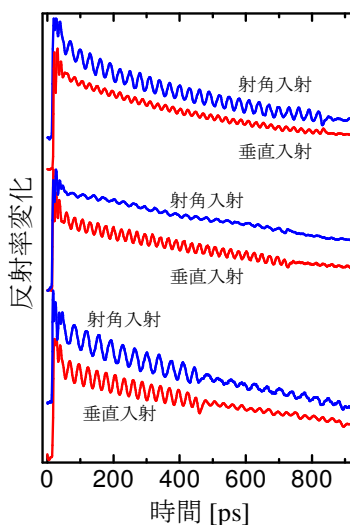


図 2 石英ガラス薄膜に対する射角-垂直入射計測の結果。

き、上述の手法で決定した音速を乗算することによって薄膜の厚さも同時に決定することに成功した。

このように異なる 2 つの入射角度を用いる手法によって室温における薄膜の音速・屈折率・膜厚を同時に決定する手法の確立に成功した。

(2) 窒化アルミニウム

窒化アルミニウム (AlN) は製造が簡便な圧電体として弾性波フィルタとして用いられている。高温域まで圧電性を維持するという優れた特徴を有するが、圧電率が低いという問題を抱えている。そこで近年他元素を添加してその性能を向上させる試みがなされている。本研究では MgZr、MgHf を添加した厚さ 1 μm の AlN 薄膜の音速の温度依存性を 2 つの現象を同時に観測しながら決定する手法の開発に取り組んだ。

室温と 10 K において観測した波形を図 3(a) に示す。(a) は熱の拡散による反射率変化を取り除き Brillouin 振動を抽出した波形である。この Brillouin 振動の周波数から音速を決定することができる。また (b) は Brillouin 振動を取り除きエコーシグナルを抽出した波形である。既知の屈折率と膜厚を用いればこの 2 種類の信号からそれぞれ音速を算出することができる。音速の温度依存性を決定するためには、屈折率か膜厚の温度依存性が必要となり、両者の変化量は異なる。この手法では音速の温度依存性を決めるために報告値を用いてこの 2 つの方法で音速の温度依存性を求め、その精度などを比較した。

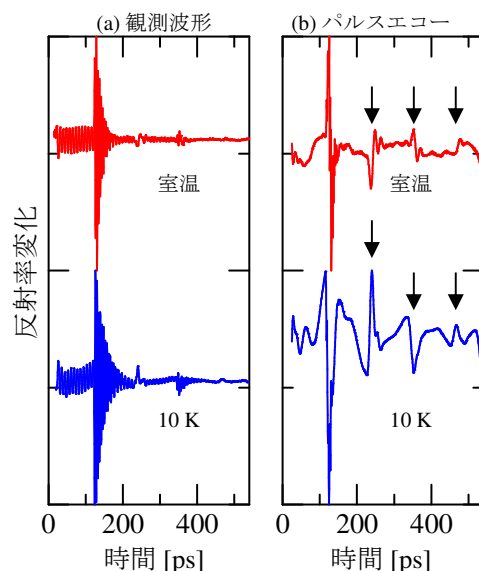


図 3 室温と 10 K において AlN 薄膜試料に対して観測した波形。(a) は観測波形から熱による変化を取り除いたもので、(b) はその波形から Brillouin 振動を取り除き界面におけるエコーシグナル(矢印)を抽出した波形。

その結果、両者の手法で音速の温度依存性の決定精度に大きな差はないことが分かり、膜厚の温度依存性は小さいのでほぼ無視できることが分かった。屈折率は温度と組成の影響が大きいため、パルスエコー法を用いれば十分な精度で音速の温度依存性を解明できるということは重要な成果である。そしてこの手法によって AlN に対して MgHf または MgZr を最大 13% 添加した薄膜の音速・弾性率とその温度依存性を計測することに成功した。その結果、弾性率は 20% 近く低下するのに対して音速の温度依存性は誤差の範囲内で同程度の大きさとなることを解明した。

(3) ダイヤモンドの弾性率の温度依存性

ダイヤモンドは特異な特性を数多く有するため工学的にも重要で学術的にも大変興味深い材料である。その特徴的な特性の一つとして音速が大きくまたその温度依存性が非常に小さいという点があげられる。これを弾性波フィルタに応用すれば高周波化することができまた温度依存性の小さいフィルタとなる。

ダイヤモンドに関しては音速の温度依存性が非常に小さいため、10 K から 600 K までという広い温度範囲にわたって音速の計測を行った。その結果、過去の 0~300 K における計測結果よりも温度依存性がさらに小さく、室温と 10 K で音速が 0.02% しか変わらないということを解明した。これはダイヤモンドの特異な特性により詳細に迫る重要な結果である。またこの温度変化による音速の変化量は他の材料の計測誤差程度であることが分かった。つまりダイヤモンドを用いて入射角度の校正を行うなどすることで他の材料の音速を高精度で計測できるようになるなど、今後さらなる計測法の発展にも貢献する。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 4 件)

- [1] A. Nagakubo, M. Arita, H. Ogi, H. Sumiya, N. Nakamura, and M. Hirao, Elastic constant C_{11} of ^{12}C diamond between 10 and 613 K, Appl. Phys. Lett., 査読あり, Vol. 108, 2016, pp221902-1-221902-4.
<http://dx.doi.org/10.1063/1.4952613>
- [2] A. Nagakubo, H. Ogi, and M. Hirao, Refractive index and extinction coefficient of Si at 400 nm between 10 and 300 K, Jpn. J. Appl. Phys., 査読あり, Vol. 54, 2015, 128001-1-128001-3.
<http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.128001>
- [3] A. Nagakubo, H. Ogi, H. Ishida, M. Hirao, T. Yokoyama, and T. Nishihara, , Temperature behavior of sound

velocity of fluorine-doped vitreous silica thin films studied by picosecond ultrasonics, J. Appl. Phys., 査読あり, Vol. 118, 2015, 014307-1-014307-8.

<http://dx.doi.org/10.1063/1.4923353>

- [4] A. Nagakubo, M. Arita, T. Yokoyama, S. Matsuda, M. Ueda, H. Ogi, and M. Hirao, Acoustic properties of co-doped AlN thin films at low temperatures studied by picosecond ultrasonics, Jpn. J. Appl. Phys., 査読あり, Vol. 54, 2015, 07HD01.
<http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.07HD01>

[学会発表] (計 4 件)

- ① 坪井誠也、荻博次、長久保白、平尾雅彦、松田聡、壁義郎、ピコ秒超音波法による酸窒化シリコン薄膜の音速計測、日本物理学会第 72 回年次大会、2017 年 3 月 18 日、大阪大学豊中キャンパス
- ② A. Nagakubo, H. Ogi, and M. Hirao, Discussion on very small temperature dependence of diamond's elastic constants, 5th Joint Meeting of the Acoustical Society of America and Acoustical Society of Japan, 2016 年 11 月 30 日、Hilton Hawaiian Village Waikiki Beach Resort, Honolulu, Hawaii, USA
- ③ M. Arita, A. Nagakubo, T. Ishihara, H. Sumiya, H. Ogi, and M. Hirao, Elastic Constant of Highly Pure Diamond at Cryogenic Temperatures Studied by Picosecond Ultrasound Spectroscopy, 9th International Conference on New Diamond and Nano Carbons, 2015 年 5 月 25 日、Shizuoka Granship, Shizuoka, Japan
- ④ A. Nagakubo, H. Ishida, H. Ogi, and M. Hirao, Precise measurement of sound velocity of amorphous silica at low temperatures by picosecond ultrasounds: correction of static heating effect, 2015 International Congress on Ultrasonics, 2015 年 5 月 12 日、Metz, France

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長久保 白 (NAGAKUBO, Akira)

大阪大学・大学院基礎工学研究科・特任助教

研究者番号 : 70751113