OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	波長可変ピコ秒超音波法の開発と酸化物薄膜の減衰評価法の提案
Author(s)	森田, 啓; 荻, 博次; 中村, 暢伴 他
Citation	日本機械学会論文集A編. 2010, 76(771), p. 1444-1451
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/2894
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

The Japan Society of Mechanical Engineers

日本機械学会論文集(A編)
76巻771号(2010-11)

論文 No. 10-0482

波長可変ピコ秒超音波法の開発と酸化物薄膜の減衰評価法の提案*

森田 啓*1, 荻 博次*2
中村 暢伴*2, 平尾 雅彦*3

Development of Wavelength-Tunable Picosecond Ultrasound Method for Evaluating Ultrasonic Attenuation in Oxide Thin Films

Kei MORITA, Hirotsugu OGI*4,
Nobutomo NAKAMURA and Masahiko HIRAO

*4 Graduate School of Engineering Science, Osaka University,
1-3 Machikaneyama-cho, Toyonaka-shi, Osaka, 560-8531 Japan

Thin-film mechanical resonators are promising for high frequency bandpass filters. Amorphous oxide thin films are expected to be important candidates because they are free from grain scattering loss. However, it has been difficult to characterize their acoustic properties, especially attenuation, which is a key parameter for designing a high-Q resonator. Here, we present a novel methodology for evaluating ultrasonic attenuation in amorphous oxide thin films deposited on silicon substrate very high frequencies between 200 and 300 GHz. This method uses the high sensitivity of the refractive index of light in silicon to the wavelength near 400 nm. Detecting Brillouin oscillations from silicon substrate, which is caused by the transmitted acoustic wave, we can evaluate the frequency dependence of the attenuation coefficient in the thin film through an inverse calculation.

Key Words: Ultrafast Measurement, Amorphous Oxide Thin Films, Brillouin Oscillation

1. 緒　　言

通信機器の普及に伴い，高周波バンドパスフィルタとして表面弾性波共振(SAW)デバイスが広く使用されているが，周波数不足が深刻な問題となっており，より高周波数領域において作動する弾性波フィルタの開発が望まれている．現行の表面弾性波フィルタにおいては，高周波化の実現は櫛形電極の間隔の減少により達成されるが，フォトリソグラフィを用いた電極の微細化には限界があり，現状では数GHzの作動周波数が上限である．そこで近年，これに代わって体積弾性波(Bulk Acoustic Wave : BAW)フィルタの研究開発が急速に行われている[1),(2)]．BAWフィルタでは薄膜の板厚振動の共振特性を利用した薄膜共振フィルタである．そのため膜厚による共振周波数のコントロールが可能で，薄膜の薄型化により高周波化（~10 GHz）が容易に達成できることが利点である．

この薄膜共振フィルタの材料として金属薄膜は不適切である．結晶粒界によって散乱が生じ，また，転位の振動による音響エネルギの吸収が起こり，振動のQ値が低下するためである．そこでアモルファス酸化物薄膜が注目されている．その理由として反応性スパッタリング法により容易に作製が可能であることと非晶質ゆえに粒界散乱による損失がないことがあげられる．

高効率（つまり高Q値）の弾性波フィルタを設計するためには，構成材料の音響物性評価が必要不可欠である．薄膜共振フィルタの場合，薄膜の音速と減衰が必要となる．しかし，薄膜という形状による制約や10 GHz以上という超高周波数域の計測のために，従来の音響計測法を適用することはできない．さらに，アモルファス薄膜においては，X線や電子線の回折を利用した構造解析が困難であり，組織観察によるフィルタ特性の予測を行うことができない．我々は，超高周波域における酸化物薄膜の弾性定数のピコ秒超音波法を用いた計測方法を考案し，膜厚が300 nm以上の酸化物薄膜の場合に1%以内の測定誤差で音速を決定することができることを示した[3),(4)]．しかし，薄膜共振フィル

* 原稿受付　2010年6月25日．
*1 学生員，大阪大学大学院基礎工学研究科(〒560-8531 豊中市待兼山町1-3)．
*2 正員，大阪大学大学院基礎工学研究科．
*3 正員，フェロー，大阪大学大学院基礎工学研究科．
E-mail : ogi@me.es.osaka-u.ac.jp

NII-Electronic Library Service

The Japan Society of Mechanical Engineers

タの最も重要な設計パラメタである減衰の計測は困難であった.

近年, Emery と Devos[5]は Si 基板上に成膜した酸化膜薄膜の減衰係数を評価する手法を提案した. これは, 酸化膜表面においてレーザー光によって励起した弾性波が Si 基板へ透過したときに発生するブリルアン振動という回折光強度の振動振幅を計測する手法である. しかしこの手法では膜厚が異なる複数の試料が必要であり, 異なる界面の影響が含まれてくる. また, Si からのブリルアン振動の強度は膜厚にも大きく依存することが理論的に示され, 膜厚を変えた試料では正確な減衰率が得られないことが示されている[3].

以上の背景から, 本研究では新たな減衰計測法を提案する. ブリルアン振動の計測波長を変化させることにより, Si 基板内において観測可能な透過超音波の周波数帯域を広げ, 200-300 GHz の帯域の超音波振幅を計測することにより, 酸化物薄膜の減衰係数の周波数依存性を評価するという手法である. Si に対する光の屈折率は, 波長が 400 nm 近辺で急激に変化する[6]. 後述するように, ブリルアン振動は Si 内の超音波によって回折される光により発生し, 回折条件はブラッグの条件に従う. つまり, 光の屈折率が大きく変化するということは, 回折を起こす超音波の周波数も大きく異なることになり, 広帯域の周波数領域の音響計測が可能となる. この手法では使用する試料は一枚で良く, 試料間の界面状態の違いや構造の差異にも影響されることがない.

本研究ではさらに, 新たなモデルを構築してブリルアン振動の理論計算を行う. これにより, 理論的に計算したブリルアン振動と測定したブリルアン振動を各波長において比較し, 両者が一致するときの減衰パラメタを逆計算により抽出する.

2. 測定原理

Thomsen らは極短パルス光を利用して世界で初めて薄膜内の超高周波の音響計測を可能とした[7],[8]. これは極短パルス光（ポンプ光）を薄膜表面に照射して超音波を基板方向へ伝播させ, 遅延プローブ光を入射して, 基板からの反射波を検出するというポンプ・プローブ法である. 試料が透過性または半透過性材料の場合, ポンプ光によって薄膜内部に発生した超音波がプローブ光を後方（つまり薄膜表面へ）に回折する. 超音波とは, 粗密波であり, 超音波の周期に従って物質の密度が空間的に変化し, 誘電率にも同周期で変化が生じる. この変化は光に対する回折格子となり超音波の波長が回折格子の間隔に相当する. これによりプローブ光は回折する. 超音波により後方へ回折された回折光は薄膜表面での反射光と干渉するためプローブ光の反射率には周期的な変化が生じる[9]. これをブリルアン振動とよぶ（図 1 参照）. 超音波の波長の二倍が光の波長と一致するとき, 回折光は強めあう（ブラッグ回折）ため, ブリルアン振動の周波数 f は次式のように表せる.

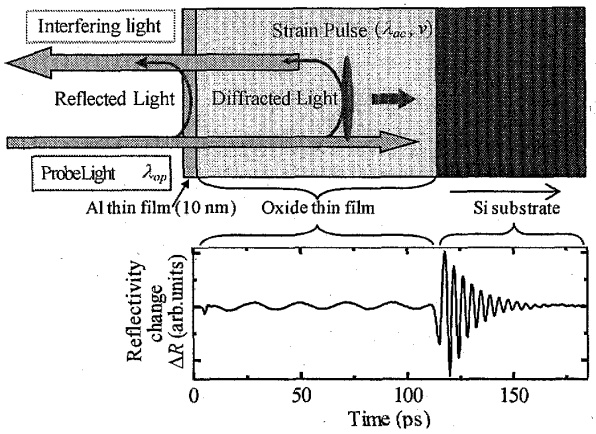

Fig. 1 Principle of Brillouin oscillation (upper) and measured Brillouin oscillation (bottom) for 400 nm amorphous SiO_2 thin film deposited on (001) Si substrate.

$$f = \frac{2nv}{\lambda}. \qquad (1)$$

ここで λ は真空におけるプローブ光の波長, n は屈折率, v は縦波音速である.

図 1 の実線は Si 基板上に成膜したアモルファス SiO_2 薄膜に対して計測したブリルアン振動の例である（計測法は後述する）. 低周波の振動に続いて高周波の振動が観測される. 前者は, アモルファス SiO_2 薄膜内のブリルアン振動であり, 後者は Si 基板へ透過した超音波からのブリルアン振動である. 式(1)により, ブリルアン振動の周波数は, 音速と屈折率に比例して高くなるが, 波長 400 nm での Si の屈折率が高いことから Si からのブリルアン振動の周波数が高い（~235 GHz）.

式(1)の周波数 f は, 材料内に存在する超音波の周波数と等しいから, Si における超高周波数の超音波の情報が得られることを意味する. 一方, アモルファス SiO_2 薄膜のブリルアン振動は 40 GHz 程度の周波数成分の超音波の情報であり, この程度の周波数では超音波はほとんど減衰しないため, 減衰係数の評価は難しい. そこで, アモルファス SiO_2 薄膜内で減衰の影響を受けた超音波が Si 基板へ侵入したときに, 超高周波成分を観測することができることを利用して, この成分を評

NII-Electronic Library Service

The Japan Society of Mechanical Engineers

価することにより，アモルファス SiO_2 薄膜の減衰の評価を行うことができる．

アモルファス物質の場合，結晶粒界や介在物のような散乱要因を含まないため，超音波の減衰は回折損失と吸収損失により発生する．前者は，超音波が進行方向に対して垂直方向に広がる性質をもつことに起因する．一般に，Seki ら[10]の解析によりこの影響は推測することができるが，本測定のように極めて高い周波数かつ短い伝播距離では回折損失は生じず，考慮する必要はない．したがって，後者のみを考慮する．これは，励起した弾性波（コヒーレントフォノン）が熱平衡状態の格子振動と相互作用を起こすことにより発生する吸収量であり，周波数が高いほど弾性波が熱振動フォノンと近い状態となるために相互作用を起こしやすく，この減衰量は増加する．弾性波の波長が結晶格子間距離よりも十分に大きいとき，この効果による減衰係数 α_{ac} は下記の式に従うことが示されている[11]．

$$\alpha_{ac}(\omega)=\beta\omega^2 . \qquad (2)$$

ωは角振動数であり，βは吸収減衰パラメタである．つまり，高周波振動子においては，β値によって減衰特性が決定される．

Si の屈折率は 400 nm 付近で大きく変化する．そこでプローブ光の波長を400-375 nm の間で変化させると，Si の屈折率が 5.5-6.7 の範囲で変化するため[6]，式(1)によりブリルアン振動の周波数を 235-300 GHz と大きく変化させることができる．この特徴を式(2)に利用して，周波数依存性から酸化物薄膜におけるβ値を決定する手法を新しく提案する．

3. 理論計算

本研究では，測定したブリルアン振動に理論的に再現したブリルアン振動をフィッティングし，逆計算によりβ値を決定する．そこで，まず理論的に弾性波による光の回折現象を解析してブリルアン振動を再現する必要がある．従来のブリルアン振動の解析においては，後述する式(3)および式(8)のみを考慮し，表層の Al 層の影響を無視して単層膜からの回折現象として近似した[3]．また，回折応答を線形近似することにより（後述の式(21)の線形化），簡素化を行っていたために[12]，例えばSi内のブリルアン振動の非対称な振る舞いなどを再現することができなかった[3]．本研究では，以下に示すように，多層膜からの多重反射をすべて考慮したモデルを構築し，また，線形化近似を行うことなく，より厳密にブリルアン振動を解析する．以下にその手法を述べる．

3・1 反射率変化計算 式(1)に示すブラッグの回折条件は，ひずみおよび屈折率変化量が微小と考えたときの一次近似の結果である[3]．しかしながら実際の測定においては，酸化物表面に超音波励起のために Al の極薄膜を成膜するため，Al -酸化物薄膜-Si 基板という系の各層で光の多重反射が起きており，弾性波による光の回折現象は非常に複雑である．そのため実際に観測されるブリルアン振動はブラッグの条件に示されるように単純ではない．理論的に弾性波による光の回折現象を解析し，正確に再現する必要があるため，超音波による光の反射率変化を求める．

図2右に示すように Si 基板上に N 層からなる多層膜が存在し，その上に半無限長さの空気層が存在するとする．このとき多層膜全体からの光の回折を考える．多層薄膜を Si 基板から近い順に Layer 1, Layer 2, …, Layer N と呼ぶことにする．Si 基板の誘電率を ε_0 とし，また，Layer m の誘電率，光の波数，膜厚をそれぞれ ε_m, k_m, d_m とする（$1\le m\le N$）．（N 層全体の膜厚 D は，$D=d_1+d_2+\cdots d_N$ である．）また，Layer i から来た光が Layer j との界面で反射するときの反射率を r_{ij} とする．

まず超音波が存在しないときの反射率を求める．図3の左図のように基板上に Layer 1 のみが存在する場合，薄膜内の光の多重反射を考慮すると，Layer 1 全体からの反射率 R_1 は以下となる[12]．

$$R_1=\frac{r_{21}+R_0e^{-2ik_1d_1}}{1+r_{21}R_0e^{-2ik_1d_1}} . \qquad (3)$$

ここで，R_0 は Layer 1 と Si 基板の界面における反射率 $(R_0=r_{10}=(\sqrt{\varepsilon_1}-\sqrt{\varepsilon_0})/(\sqrt{\varepsilon_1}+\sqrt{\varepsilon_0}))$ である．

式(3)と同様に順次下から反射率を計算してゆくと，N 層からなる多層膜全体の反射率として次式を得る．

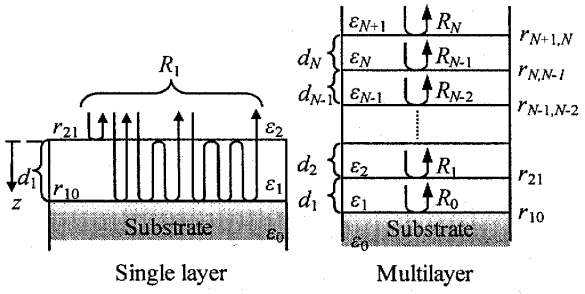

Fig. 2 The models of the multiple reflections of the single layer (left) and multilayer (right) without ultrasound.

NII-Electronic Library Service

The Japan Society of Mechanical Engineers

$$R_N = \frac{r_{N+1,N} + R_{N-1}e^{-2ik_N d_N}}{1 + r_{N+1,N}R_{N-1}e^{-2ik_N d_N}}. \quad (4)$$

ここで

$$r_{N+1,N} = \frac{\sqrt{\varepsilon_{N+1}} - \sqrt{\varepsilon_N}}{\sqrt{\varepsilon_{N+1}} + \sqrt{\varepsilon_N}}, \quad (5)$$

は最上層（Layer N）と真空層（Layer N+1）の界面における反射率である．

3・2 誘電率変化層による反射率変化　図3に示すように，励起された超音波がLayer 1内を膜厚方向へ伝播する場合を考える．Layer 1内の微小厚さの層（これをLayer 1′とする）におけるひずみ η によって媒質の誘電率が変化しプローブ光が回折され，その結果，反射率が変化するとする（$\varepsilon_1 \rightarrow \varepsilon_1 + \Delta\varepsilon_1$）．Layer 1′の光の波数と厚さをそれぞれ k_1', δz とする．この微小層内で単層膜の場合（図2左図）と同様の多重反射が起きると考えられる．したがってLayer 1′の反射率 r_1' は次式となる．

$$r_1' = \frac{r_{11'} + r_{1'1}e^{-2ik_1'\delta z}}{1 + r_{11'}r_{1'1}e^{-2ik_1'\delta z}}. \quad (6)$$

ここで $\frac{\Delta\varepsilon_1}{\varepsilon_1} \ll 1$, $\delta z \ll 1$ よりこれらの二乗以上の項を無視するとLayer 1′全体における反射率は次のようになる．

$$r_1' = -i\frac{1}{2}\frac{k_v^2}{k_1}\frac{\Delta\varepsilon_1}{\varepsilon_v}\delta z. \quad (7)$$

ただし添え字の v は真空での値を示す．$r_1' \ll 1$ であるため，この層により二回以上反射したとき $r_1'^2 \approx 0$ として無視できるとみなす．このことからLayer 1′での二回以上の反射は考えず，多くても一回だけ反射する場合を考えればよい．このとき図3に示すように三つの光路パターンが考えられる．よって超音波の存在により，超音波が存在しない場合の単層膜における反射率（R_1）からの反射率変化（Δr_1）を求めると，以下の式となる．

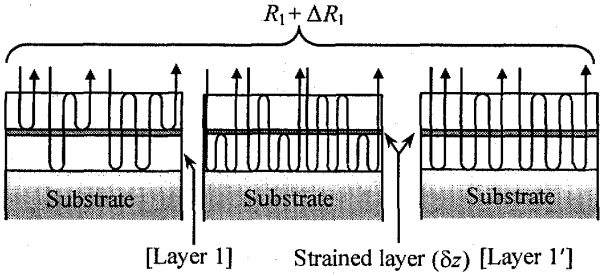

Fig. 3 The models of the multiple reflections of the single layer with ultrasound.

$$\Delta r_1 = \frac{t_{21}t_{12}e^{-2ik_1 z}}{1 + r_{21}R_0 e^{-2ik_1 d_1}}\left[1 + R_0 e^{-2ik_1(d_1 - z)}\right]^2 r_1'. \quad (8)$$

実際には，ひずみは薄膜全体に分布していると考えられるため薄膜全体（ここではLayer 1）での反射率変化（ΔR_1）は上式を膜厚全体で積分した値となる．

$$\Delta R_1 = \int_0^{d_1} \Delta r_1 \delta z. \quad (9)$$

超音波が基板内に伝播したときに，基板において誘電率が微小に変化した層（これを厚さδz のLayer 0′とする）での反射率は，式(6)と同様に考えると，次式となる．

$$r_0' = \frac{r_{00'} + r_{0'0}e^{-2ik_0'\delta z}}{1 + r_{00'}r_{0'0}e^{-2ik_0'\delta z}}. \quad (10)$$

さらに，基板表面での反射率が r_{10} であり，δz 層での反射率が r_0' であることから，式(3)と同様に多重反射を考えると，超音波の存在による基板での反射率変化は，

$$\Delta r_0 = T_{+0}T_{-0}\frac{r_{10} + r_0'e^{-2ik_0(z-D)}}{1 + r_{10}r_0'e^{-2ik_0(z-D)}}. \quad (11)$$

と表せる．ここで T_{+0} は試料表面に入射してきた光が基板表面に至るまでの透過率，T_{-0} は基板表面から試料表面まで戻る光の透過率とする．つまり，$T_{+0} = 1 + R_N$ および $T_{-0} = 1 - R_N$．以上から式(11)を展開し，基板からの反射率変化量を求めると次式を得る．

$$\Delta r_0 = -i\frac{1}{2}T_{+0}T_{-0}\left(1 - r_{10}^2\right)e^{-2ik_0(z-D)}\frac{k_v^2}{k_0}\frac{\Delta\varepsilon_0}{\varepsilon_v}\delta z. \quad (12)$$

次にLayer m（$1 \le m \le N$）における反射率を考える．試料表面からLayer m 表面に至るまでの透過率を T_{+m}，Layer m 表面から試料表面に戻る光の透過率を T_{-m} と

NII-Electronic Library Service

The Japan Society of Mechanical Engineers

する．式(6)，(7)と同様にLayer m 内にある誘電率変化層による反射率 r_m' を以下に示す．

$$r_m' = -i\frac{1}{2}\frac{k_v^2}{k_m}\frac{\Delta\varepsilon_m}{\varepsilon_v}\delta z \,. \tag{13}$$

このときLayer m での反射率変化は単層膜における反射率変化の場合（式(8)）と同様に考えると，次式のように表すことができる．

$$\Delta r_m = F_m e^{-2ik_m z_m}\left[1+R_{m-1}e^{-2ik_m(d_m-z_m)}\right]^2 r'_m \,. \tag{14}$$

ここで，F_m および z_m は以下に示す通りである．

$$F_m = T_{+m}T_{-m}\frac{t_{m+1,m}t_{m,m+1}}{1+R_{m-1}e^{-2ik_m d_m}} \,, \tag{15}$$

$$z_m = z - \sum_{l=m+1}^{n} d_l \,, \tag{16}$$

ひずみは薄膜全体に分布していると考えられるため，Layer m の反射率変化への寄与は，これをその膜厚で積分した量となる．また光学損失も考慮する必要がある．物質内での光エネルギの吸収を表す消衰係数（屈折率の虚部）を K とすると，光の減衰係数は $\alpha_{op}=-2\pi K/\lambda_{op}$ である．

以上より基板および多層薄膜の各層において，超音波の存在による反射率変化は次式となる．

$$\Delta R_0 = \int e^{-\alpha_{op}(z-D)}\Delta r_0 \delta z \,, \tag{17}$$

$$\Delta R_m = \int_{\sum_{l=m+1}^{n} d_l}^{\sum_{l=m}^{n} d_l} e^{-\alpha_{op} z_m}\Delta r_m \delta z \,. \tag{18}$$

以上より任意の多層膜において，薄膜内に超音波が伝播し誘電率が微小変化した場合の反射率変化を求めることができる．

3・3 誘電率変化とひずみの関係 次に，誘電率変化とひずみの関係について説明する．上述したように誘電率はひずみにより変化する（光弾性効果）．このとき誘電率とひずみ分布の関係はひずみ関数 η を用いると次式により近似的に表せる[12]．

$$\frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon_v} = \frac{1}{\varepsilon_v}\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\eta}\right)\eta \equiv p\eta \,. \tag{19}$$

ここで $p=\left(\frac{\partial\varepsilon}{\partial\eta}\right)\Big/\varepsilon_v$ は誘電率変化とひずみの関係の比例定数であり，ピエゾ光学定数に相当するものである[3]．ポンプ光により熱膨張を介して発生・伝播するひずみ η は次式，

$$\eta(t,z) = -\eta_0 e^{-\alpha_{ac}z}e^{\frac{-|z-vt|}{\zeta}}\,\mathrm{sgn}(z-vt), \tag{20}$$

で示される[8]．ここで η_0 は初期ひずみの大きさで正の定数，ζ はパルス幅を表すパラメタ，v は超音波の伝播速度，α_{ac} は超音波の距離減衰係数である．前述したように，α_{ac} は式(2)に従って周波数に依存するとする．

以上よりプローブ光が基板を含めた薄膜全体で反射された際の強度変化は次式で求められる．

$$\Delta R = \left|R_N + \sum_{l=0}^{N}\Delta R_l\right|^2 - \left|R_N\right|^2 \,. \tag{21}$$

以上の手法を用いることで再現したブリルアン振動を図4に破線で示す．計算に用いたパラメタは，AlとSiの音速（v_{Al}=6489 m/s，v_{Si}=8438 m/s[13]），Al，SiO_2，Siの密度（ρ_{Al}=2699 kg/m^3[13]，ρ_{SiO2}=2220 kg/m^3[14]，ρ_{Si}=2329 kg/m^3[13]），SiO_2の屈折率（=1.48；エリプソメトリー法により測定），Si部の屈折率（表2）であり，フィッティングパラメタ

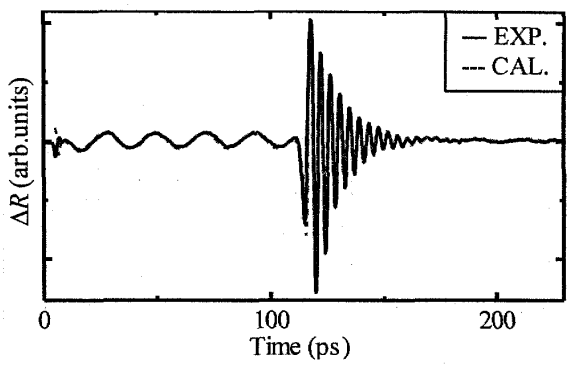

Fig. 4 Measured (solid line) and calculated (broken line) Brillouin oscillations of amorphous SiO_2/Si specimen.

NII-Electronic Library Service

The Japan Society of Mechanical Engineers

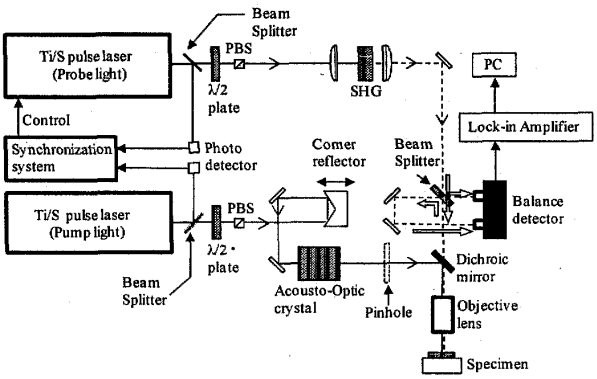

Fig. 5 Schematic of the optics. Dashed lines show the probe beam (wavelength λ=400 nm). Solid lines show the pump beam (λ=800 nm).

として，SiO_2部の音速，Al，SiO_2およびSiのピエゾ光学定数（p_{Al}, p_{SiO2},p_{Si}），さらに，β値とした．また，真空の誘電率は$\varepsilon_0=8.8541\times10^{-12}$F·m^{-1}[14]とした．その結果，$p_{Al}$=-3.39，$p_{SiO2}$=-7.91，$p_{Si}$=497 $\beta=0.5\times10^{-3}$ nm^{-1}THz^{-2}, v_{SiO2}=6206 m/sを得た．SiO_2部の音速値は過去の結果と近い値となった[3]．

計算した応答（破線）は実験値（実線）と極めてよく一致しており，本研究において構築した理論計算の妥当性を強く裏付けている．ただし，p_{Si}とβ値はともにSi部のブリルアン振動の強度に影響するため，単一波長の結果だけからは両者を独立に決定することはできない．

4. 実験手法

試料として反応性スパッタリング法を用いて単結晶Si基板(001)上にアモルファスSiO_2薄膜を成膜した．雰囲気気体には，放電ガスArと反応ガスO_2の混合気体を用い，ターゲットにはSi単体を用いて成膜を行った．成膜時の基板温度は25℃とした．

図5に構築した光学系を示す．二台のチタン・サファイアパルスレーザーを使用した．両者からの出力光の一部を電気変換パルスとして同期システムに取り込み，位相差をフィードバックして片方のレーザーキャビティ長に直結したピエゾステージに送り，同期させた．これにより，二つのパルスレーザーの同期ジッタリングは50 fs以下とした．

一台をポンプ用に使用し，波長とパワー（800 nm, 8 mW）を固定化したポンプ光を試料表面に照射し，常に同じ音場の超音波が発生させた．もう一台はプローブ用として波長を変化させたパルス光を生成した（375 - 400 nm）．

5. 結果と考察

5・1 ブリルアン振動測定結果 図6の実線は同一試料について，プローブ光波長を400-375 nm 間で5 nm おきに変化させたときに観測されたブリルアン振動の測定結果である．ここでは波長400 nm のときのSiO_2部分におけるブリルアン振動の振幅（η_0, p_{SiO2}に相当する）により正規化した．プローブ光の波長を短くするほどSi内部からのブリルアン振動の振幅が減少し，周波数が増加している．

観測されたブリルアン振動からバックグラウンドを差し引いた後，FFT（Fast Fourier Transform：高速フーリエ変換）解析を行い，ブリルアン振動の周波数f_aを決定した．表1にその結果を示す．

短波長側でSi基板におけるブリルアン振動の振幅が低下する原因として二つの要因が考えられる．第一に光の減衰によるものである．Siの消衰係数の波長依存性により波長が短くなるにつれてSi内での光の吸収量が多くなり内部へプローブ光が浸透できなくなる．第二に，超音波の減衰が考えられる．波長を短くすることにより，より高周波成分によるブリルアン振動を検出することができるが，超音波の減衰は式(2)より周波数増加に対して顕著に増加する．このためにアモルファス薄膜内を伝播する際に高周波成分が減衰してしまい，Si内での振幅が低下したと考えられる．

5・2 減衰評価 各層の音速と密度は図4の計算に使用した値を用いた．プローブ光の波長(λ_{op})による各層の屈折率n，および消衰係数Kは報告値を用いた（表2参照）[6]．

以上のパラメタは詳細な実験結果に基づいており，信頼性は高い．ブリルアン振動の理論計算において必要となる他のパラメタは初期ひずみη_0，パルス幅ζ，

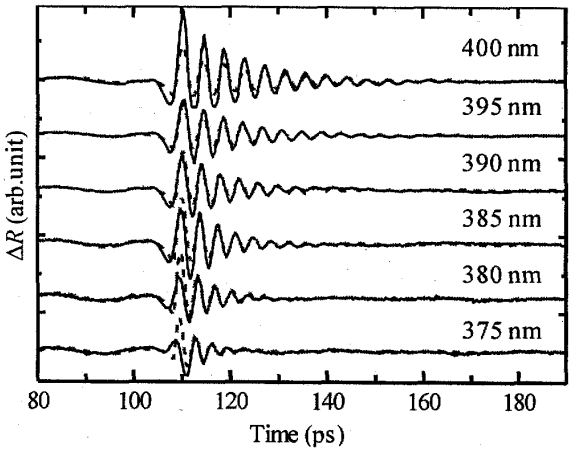

Fig. 6 Measured (solid lines) and fitted (broken lines) Brillouin oscillations at the various wavelength of the probe light, 400-375 nm.

NII-Electronic Library Service

The Japan Society of Mechanical Engineers

Table 1 Frequencies of SiO_2 film and Si substrate.

Wave length (nm)	Frequency [SiO_2] (GHz)	Frequency [Si] (GHz)
400	46.66	234.41
395	46.80	245.51
390	47.20	256.77
385	48.33	270.69
380	49.18	284.77
375	49.28	299.41

SiO_2膜の減衰パラメタβおよびピエゾ光学定数（p_{Al}, p_{SiO2}, p_{Si}）である．η_0は超音波振幅を表すパラメタであり，本研究では同一強度・波長のポンプ光を使用することから，この値は不変であり，SiO_2における振動の振幅に合わせて正規化することにより，考慮する必要はない．ζはパルスのピークの鋭さを示すパラメタである．この値が変化すると発生する超音波の周波数特性に変化が生じる．しかしこの影響は各層のピエゾ光学定数に含めて考えることができる．なぜなら，各層において発生するブリルアン振動の周波数が異なり，異なる周波数の超音波振幅を観測していることになるためである．また，超音波の音源として厚さ10 nmのAl膜を成膜しているため，ζはこれと同程度の長さであると考えられることからζ= 10 nmとした．

以上から実質的にブリルアン振動の形態を支配するパラメタは，アモルファスSiO_2薄膜において音響吸収に関する減衰係数（β），ピエゾ光学定数（p_{Al}, p_{SiO2}, p_{Si}）である．ピエゾ光学定数は各層のブリルアン振動の振幅に関するパラメタである．このうちp_{Al}に関してAl層は10 nm程度しかなく全体の振動にはほとんど影響を及ぼさない（実際下記の逆計算においてはAl部の情報は用いていない）．またSiO_2は光を吸収しないためp_{SiO2}は光の波長によって変化しないと考えられる．このことからプローブ光波長400 nmのとき観測されたブリルアン振動のAl層，SiO_2層に対して一致するようなp_{Al}とp_{SiO2}を決定した．その結果p_{Al}= -0.56, p_{SiO2}= -7.91を得た．結局，Si部のブリルアン振動に最も影響を与えるパラメタはβとp_{Si}の二つだけであり，これらを可変パラメタとして理論を実験にフィッティングし，逆計算により両者を決定した．

Table 2 Fitting parameters of Al, SiO_2 and Si.

	Al		SiO_2		Si	
	n_{Al}	K_{Al}	n_{Al}	K_{SiO2}	n_{Si}	K_{Si}
400	0.490	4.86	1.48	0	5.570	0.387
395	0.478	4.80	1.48	0	5.744	0.456
390	0.466	4.74	1.48	0	5.948	0.651
385	0.454	4.68	1.48	0	6.185	0.714
380	0.443	4.61	1.48	0	6.452	0.945
375	0.431	4.55	1.48	0	6.709	1.321

まず評価関数を決定する．ある時刻tにおける反射率変化の値を比べる．つまり測定値ΔR_t^{mes}と計算値ΔR_t^{cal}を比較する．そしてその差の二乗を全時刻(t=1～T)において積算する．

$$\Theta = \sum_{t=1}^{T} \left(\Delta R_t^{mes} - \Delta R_t^{cal} \right)^2 . \qquad (22)$$

式(22)は単一波長においてのものである．これを全ての波長(400-375nm)における結果に対して行い，その合計を求める．

$$\Theta_{all} = \Theta_{400} + \Theta_{395} + \Theta_{390} + \Theta_{385} + \Theta_{380} + \Theta_{375} . \qquad (23)$$

以上から式(23)を評価関数と決め，このΘ_{all}が最小となるようなパラメタ [β, p_{Si}] を決定する．p_{Si}は本研究で変化させたプローブ光の波長の範囲では波長に強く依存しないため[15]，βと同様，定数パラメタとした．

パラメタ [β, p_{Si}] をシンプレックス法により決定し，測定結果に対してフィッティングを行った結果を図6の破線に示す．決定したパラメタ値はβ=0.81×10^{-3} $nm^{-1}THz^{-2}$, p_{Si}=577である．βの初期値を0.0001~0.001 $nm^{-1}THz^{-2}$で変化させても誤差1%以内の精度で同じ値に収束し，収束性は良いこと確認した．得られた値はEmeryらの報告値（1.3×10^{-3} $nm^{-1}THz^{-2}$）[5]よりも小さな値となった．

図6の理論値と実験値の差異は，式(2)において仮定した減衰の周波数依存性からの逸脱およびp_{Si}の波長依存性に起因すると考えられる．散乱因子となる欠陥（ボイドや組成の偏析など）が存在した場合，減衰係数の周波数依存性は式(2)よりも顕著となり，短波長側でのブリルアン振動の振幅は低下する傾向となる．また，厳密にはp_{Si}は波長に依存するため，その影響も考えられる．現段階では，理論と実験の差異を特定するには至っていないが，今後，さらに波長領域を拡大することにより，より厳密な議論が可能と思われる．

また，今回得たp_{Si}は相対的な値である点に留意したい．前述したように，逆計算に用いたブリルアン振動のデータは，SiO_2部の強度によって正規化している．これによりp_{Al}やp_{SiO2}, η_0などの情報がp_{Si}に含まれる．ただし，これらはいずれも波長依存性を示さないため，波長に強く依存する減衰係数の情報は感度良く抽出される．

NII-Electronic Library Service

The Japan Society of Mechanical Engineers

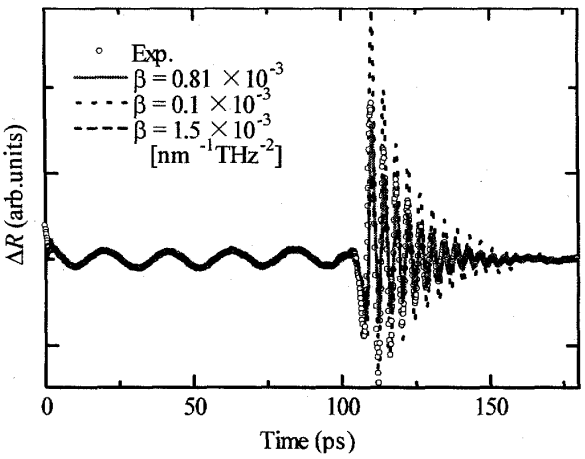

Fig. 7 Brillouin oscillation of SiO_2/Si with several β values for amorphous SiO_2 layer.

図7は波長395 nmについて，β値だけを1.5×10^{-3}，0.1×10^{-3}，0.81×10^{-3}と変化させたときの計算結果を実験とともに示している．アモルファスSiO_2部分の振動には違いが見られないが，Si部分の振動ではβ値によって大きな変化が見られる．このことから高周波振動の減衰に関してβの寄与は大きく，得られた値の信頼度が高いことが分かる．前述したようにEmeryらの実験では異なる試料を多数用いており試料間の誤差を含むだけでなく，緒言で述べたように原理的に正確な減衰率を求めることができない．そのため，本研究で得られた値は妥当であるといえる．

本研究の手法により，これまで非常に困難とされてきたアモルファス酸化物薄膜における減衰評価が可能となる．

6. 結　　言

本稿ではアモルファス酸化物薄膜の減衰評価手法を提案した．これはSi基板におけるブリルアン振動の強い波長依存性を利用したものであり，超高周波帯の超音波計測を可能とした．ブリルアン振動に対する理論モデルを構築し，実験結果にフィッティングすることにより，吸収減衰係数パラメタを抽出する手法を確立した．そして薄膜共振フィルタの高周波における性能評価の手法として，今後，有効な手法であると期待できる．

文　　献

(1) Rabaste, S., Bellessa, J., Brioude, A., Bovier, C., Plenet, J. C., Brenier, R., Marty, O., Mugnier, J., and Dumas, J., Sol–gel fabrication of thick multilayers applied to Bragg reflectors and microcavities, *Thin Solid Films*, Vol. 416 (2002), pp 242-247.
(2) Rey-Mermet, S., Lanz, R., and Muralt, P., Bulk acoustic wave resonator operating at 8 GHz for gravimetric sensing of organic films, *Sensors and Actuators B*, Vol. 114 (2006), pp 681-686.
(3) Ogi, H., Shagawa, T., Nakamura, N., and Hirao, M., Elastic constant and Brillouin oscillations in sputtered vitreous SiO_2 thin films, *Physical Review B*, Vol. 78, 134204 (2008).
(4) Shagawa, T., Ogi, H., Nakamura, N., Hirao, M., Odaka, H., and Kihara, N., Elastic constant and microstructure of oxide thin films studied by Brillouin oscillation, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A*, Vol. 75, No. 749 (2009), pp 72-78.
(5) Emery, P. and Devos, A., Acoustic attenuation measurements in transparent materials in the hypersonic range by picosecond ultrasonics, *Applied Physics Letters*, Vol. 89, 191904 (2006).
(6) Palik, E. D., *Handbook of Optical Constants of Solids*, (1985), Academic Press.
(7) Thomsen, C., Strait, J., Vardeny, Z., Maris, H. J., Tauc, J. and Hauser, J. J., Coherent Phonon Generation and Detection by Picosecond Light Pulses, *Physical Review Letters*, Vol. 53, No. 10 (1984), pp. 989-992.
(8) Thomsen, C., Grahn, H. T., Maris, H. J. and Tauc, J., Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses, *Physical Review B*, Vol. 34, No. 6, (1986), pp. 4129-4138.
(9) Devos, A. and Côte, R., Strong oscillations detected by picosecond ultrasonics in silicon:Evidence for an electronic-structure effect, *Physical Review B* 70, 125208 (2004).
(10) Seki, H., Granato, A. and Truell, R., Diffraction Effects in the Ultrasonic Field of a Piston Source and Their Importance in the Accurate Measurement of Attenuation, *The Journal of the Acoustical Society of America*, Vol. 28, No. 2 (1956), pp. 230-238.
(11) Mason, W., *Physical Acoustics*, Vol. 3 (1965), Academic, New York.
(12) Zhu, T. C., Maris, H. J. and Tauc, J., Attenuation of longitudinal-acoustic phonons in amorphous SiO_2 at frequencies up to 440 GHz, *Physical Review B*, Vol. 44, No. 4281 (1991).
(13) Ledbetter, H. and Kim, S., *Monocrystal elastic constants and derived properties of the cubic and the hexagonal elements: in Handbook of Elastic Properties of Solids, Liquids, and Gases*, Vol. 2, (2001), Academic, San Diego.
(14) National Astronomical Observation of Japan, *Chronological Scientific Tables*, (2008), MARUZEN Co., Ltd.
(15) Etchegoin, P., Kircher, J. and Cardona, M., Elasto-optical constants of Si, *Physical Review B*, Vol. 47, No. 16, (1993), pp. 10292-10303.

NII-Electronic Library Service