

Title	超音波共鳴法を用いたGaN結晶と誘電体ナノ薄膜の弾性特性の研究および深層学習を用いた弾性定数決定法の開発
Author(s)	福田, 大樹
Citation	大阪大学, 2024, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/96044
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

博士学位論文

超音波共鳴法を用いた GaN 結晶と誘電体ナノ薄膜の弾性特性の研究および深層学習を用いた弾性定数決定法の開発

福田大樹

2023年12月

大阪大学大学院工学研究科

Abstract

Elastic constants are fundamental physical quantities that provide the deformation response of a material to external forces within the linear regime, and their values are essential for the design of structures and devices to achieve desired performance and satisfy mechanical reliability. Additionally, elastic constants also play a pivotal role in condensed matter physics because they relate to the phononic properties of a material. Therefore, elucidating these values is essential in a wide variety of fields.

In this study, I studied elastic constants of GaN single crystals using resonant ultrasound spectroscopy (RUS) and developed a method to measure dielectric nano-thin films using picosecond ultrasonics. I also originally developed a methodology to predict elastic constants from free-vibration resonant frequencies using deep-learning technique, which overcomes a long-standing problem in RUS.

This dissertation consists of four research works. Firstly, I studied the acoustic properties of Fe-doped high resistivity GaN at elevated temperatures. I revealed the electron trap level which directly relates thermally activated conduction and elastic constants at elevated temperatures.

Secondly, I studied the oxygen impurity effect on the elastic constants of GaN. I experimentally found that oxygen impurity decreases significantly the in-plane elastic constants. I also found that this decrease in elastic constants reduces the magnitude of the Debye temperature.

Thirdly, I developed a methodology to predict elastic constants of cubic solid materials from free-vibration resonant frequencies using the deep-learning technique. Also, I found that this method can be extended to the hexagonal crystals and can accurately determine the averaged Young's modulus.

Finally, I developed a method to measure the dielectric nano-thin films using three-layer through-thickness resonance in picosecond ultrasonics.

The first and second works should contribute to evaluating the mechanical, electrical, and thermal properties of GaN-based power devices. The third work is expected to have an impact on the fields of solid-state physics and material science. Lastly, the final work is important for designing acoustic filters for next-generation communication.

目次

第 1 章	緒言	1
1.1	弾性定数の重要性	1
1.2	窒化ガリウム (GaN)	2
1.3	薄膜弾性率	5
1.4	本論文の目的と構成	6
第 2 章	共鳴超音波スペクトロスコピー法	9
2.1	概要	9
2.2	共鳴周波数の計算原理	10
第 3 章	GaN の弾性定数と内部摩擦の計測	21
3.1	はじめに	21
3.2	計測装置	21
3.3	試料	26
3.4	計測原理	26
3.5	熱活性伝導の電子トラップ準位	29
3.6	高温弾性定数	35
第 4 章	OVPE GaN の弾性定数計測	39
4.1	Oxide vapor phase epitaxy (OVPE) 法	39
4.2	試料	39
4.3	弾性定数計測	40
4.4	密度汎関数計算による弾性定数予測	41
4.5	Debye 温度	44
第 5 章	深層学習によるバルク材料の弾性定数推定法の確立	47

5.1	RUS 法の従来課題	47
5.2	弾性画像と学習データセット	48
5.3	弾性定数の予測精度	55
5.4	推定精度の向上化	59
5.5	実計測への応用	61
第 6 章	誘電体ナノ薄膜の弾性率計測	63
6.1	はじめに	63
6.2	ピコ秒超音波法	63
6.3	試料構造と貢献度	67
6.4	最適膜厚の決定法	71
6.5	弾性定数の決定	74
6.6	弾性率の決定誤差	78
第 7 章	結言	79
付録 A	最適膜厚計算のための補足理論	81
A.1	多層膜の 1 次元音響共鳴モデル	81
A.2	光学多重反射モデル	83
	参考文献	85
	謝辞	97
	研究業績	99

第 1 章

緒言

1.1 弾性定数の重要性

弾性定数は、弾性変形域において材料に外力が加わったときの変形状態を定める物性値である。固体物質の多くは、微小変形において応力は全てのひずみ成分の線形結合により表すことができ、これを表現したものが Hooke の法則 (応力 σ と工学ひずみ S の関係) である。Voigt 表記で記述すると、

$$\begin{bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & C_{14} & C_{15} & C_{16} \\ C_{12} & C_{22} & C_{23} & C_{24} & C_{25} & C_{26} \\ C_{13} & C_{23} & C_{33} & C_{34} & C_{35} & C_{36} \\ C_{14} & C_{24} & C_{34} & C_{44} & C_{45} & C_{46} \\ C_{15} & C_{25} & C_{35} & C_{45} & C_{55} & C_{56} \\ C_{16} & C_{26} & C_{36} & C_{46} & C_{56} & C_{66} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \\ S_4 \\ S_5 \\ S_6 \end{bmatrix}, \quad (1.1.1)$$

と書ける。あるいは、特定の応力成分について着目した形で書くと、

$$\sigma_I = \sum_{J=1}^6 C_{IJ} S_J, \quad (1.1.2)$$

と書ける。上記の 6 つの独立な応力 ($\sigma_1, \sigma_2, \dots, \sigma_6$) と工学ひずみ (S_1, S_2, \dots, S_6) を関連付ける 6×6 の行列 C_{IJ} が弾性定数である。これらは構造物やデバイスの設計、解析において必要不可欠である。弾性定数が直接デバイス特性に関わる具体例として、携帯電話などの無線通信機器に組み込まれる表面弾性波 (Surface Acoustic Wave : SAW) フィルタ¹⁻⁴ や、圧電薄膜共振子 (Film Bulk Acoustic Resonator : FBAR)⁵⁻⁷ 等が挙げられる。これらの弾性波フィルタにおいては、薄膜の弾性定数がバンドパス特性を決定づける直接的なパラメータである。また、弾性定数は材料の硬さとも関係した量でもある。体積

弾性率とせん断弾性率の比は Pugh 比⁸として知られた量であるが、経験式に代入することで Vickers 硬度⁹を予測することができる。

以上のように、弾性定数は工学的に重要であるが、固体物性においても重要である。弾性定数は物質のフォノン特性とも関係した量であり、弾性定数から計算したフォノンの伝播速度から固体の Debye 温度¹⁰や熱伝導率^{11,12}を計算することができる。また、弾性定数は原子間ポテンシャルを反映した量であることから、第一原理計算等の理論モデルの妥当性を評価する際にも重要な指標となる。¹³⁻¹⁵

近年は、コンピュータの計算能力が飛躍的に向上し、計算によって多くの固体物質が発見されており、密度汎関数理論に基づく第一原理計算によって計算された無機物質のデータベースも公開されている。広く使われているデータベースを具体的に挙げると、Materials Project,^{16,17} Open Quantum Materials Database,^{18,19} AFLOWLIB²⁰ などがある。さらには、これらのデータベースを学習データに利用した、AI による材料研究も加速度的に進んでいる。例えば、Google DeepMind 社が開発した Graph Networks for Materials Exploration (GNoME)²¹ は、200 万を超える結晶を予測しており、それらの一部は実際に実験的に存在を確認されている。これらの一般公開により、材料開発や物性研究が加速度的に進んでおり、今後は新物質の発見が進んでいくと考えられる。それに伴い、これらの弾性定数を解明することは、デバイスの性能設計や機械的安全性をシミュレーションする上で欠かすことができない。しかし、このような計算で求めた物質の弾性定数はポテンシャルの選定などの計算条件に強く依存するため、必ずしも実験値と整合するとは限らず、¹³⁻¹⁵ 取り扱いには注意が必要である。したがって、実験によって正しい弾性定数を計測することは極めて重要である。

1.2 窒化ガリウム (GaN)

1.2.1 パワーデバイス開発の現状

科学技術の発展と人口増加に伴い電力消費量は爆発的に増加し続けており、温室効果ガスによる気候変動問題が危惧されている。世界の電力需要の見通しについて様々な試算がなされており、2050 年までに現在と比べて 80-150% 増加すると考えられている。²² このような問題を解決するため、我が国は 2020 年 10 月にカーボンニュートラルを宣言し、2050 年までに温室効果ガスの排出をゼロにすることを目指している。²³ そのためには、電力損失を低減することも重要な要素であり、効率的な電力変換技術の発展が必要不可欠である。発電所で発電された電力は、送電網を経て、我々が普段使う電化製品から産業用機器に至るまで隅々まで行き渡っており、その過程のあらゆる場面で電力の変換が行われてい

Table 1.2.1 Physical properties of Si, SiC, and GaN.²⁸

	Si	4H-SiC	GaN
Bandgap (eV)	1.12	3.26	3.4
Electrical breakdown field (MV/cm)	0.3	3.5	3.3
Thermal conductivity (W/cm·K)	1.5	5	1.3
Carrier mobility (cm ² /V·s)	1500	650	990 / 2000*
Electron saturation velocity(10 ⁶ cm/s)	10	20	25

* In bulk GaN / 2D electron gas region of GaN/AlGaN HEMT, respectively.

る。これらの電力変換回路に組み込まれている半導体デバイスは、パワーデバイスと呼ばれている。パワーデバイスで生じる電力損失は、導通損失とスイッチング損失の2種類に分類できる。導通損失はデバイスのオン状態における電気抵抗（オン抵抗）に起因する損失であり、ドリフト層と呼ばれる、デバイスが破壊せずに保持できる電圧（耐圧）を確保するための層を薄くすることで下げることができる。しかし、ドリフト層を薄くすると耐圧が低下するので、デバイスの安全性も低下してしまう。スイッチング損失は、オンとオフの切り替えに要する時間に起因する損失であり、スイッチング時間を短縮すると損失を低減できる。したがって、これらの損失の改善が高効率パワーデバイスに重要である。

現在は、Si型のパワーデバイスが主流であり、市場の8割を占めている。²⁴ しかし、Si型デバイスはSiの物性限界から今後の大幅な性能向上は見込めず、上で述べたエネルギー問題の解決には至らない。このような背景から、Siに代わる新たな材料としてSiC、GaNといったワイドバンドギャップ半導体が注目されている。²⁴⁻²⁷ Table 1.2.1に主な半導体材料の各種物性値を示す。これらの半導体に共通する最も重要な特徴として、絶縁破壊電界強度がSiに比べて10倍程度大きいことが挙げられる。オン抵抗は絶縁破壊電界強度の3乗に反比例することから、理論上1000倍程度の大幅な導通損失の低下を見込むことができる。また、耐圧は絶縁破壊電界強度の2乗に比例することから、Siと同じドリフト層の不純物濃度や厚さであれば100倍以上の耐圧を実現することができる。したがって、安全性を確保しつつ省エネルギー化が可能な材料であるので魅力的な材料である。省電力化に向け、Si型のパワーデバイスからワイドバンドギャップ半導体型への置き換えが進んでいる。

GaNは1980年代から90年代にかけて製法の基礎技術が確立し、²⁹⁻³⁴ これによりGaNを用いたLEDが実現した。³⁵⁻³⁹ 一方で、パワーデバイスとしても優れた特性を有している。GaNはウルツ鉱型の結晶構造を持ち、c軸方向の反転対称性を持たないことから自発分極を有している。⁴⁰ また、AlGaIn/GaNのようなヘテロ構造を作製すると、格子不整合

から AlGaN に圧電分極が発現する。この圧電分極によりヘテロ界面の GaN 側に高い濃度の 2 次元電子ガスが発生し、これを利用した横型の高周波パワーデバイスが携帯電話の基地局で採用されている。自動車などの用途には、ノイズなどの影響による誤動作を防止するため、ノーマリーオフ動作かつ 3–5 V の閾値電圧が要求されるが、²⁵ これを満たす横型デバイスの作製は困難である。この課題を克服するため、縦型デバイスの研究開発も進んでいる。^{41–43}

GaN 型パワーデバイスは Si 型と比べて優位性があるのにも関わらず、現在は Si 型ほど広く普及していない。その理由として、安価な GaN 結晶成長法が確立していないことが挙げられる。実価格を見ると、Si は 12 インチウエハで約 1 万円、SiC が 6 インチウエハで約 11 万円なのに対し、2 インチの GaN ウエハが 20–40 万円もする。⁴⁴ 現在までで最も普及した結晶作製技術は、ハイドライド気相成長 (Hydride Vapor Phase Epitaxy : HVPE) 法である。これは、サファイアなどの GaN との格子定数が近い基板上に GaN を高速成長させる手法である。約 1000°C の高温下で GaN を成長させるが、異種基板を使用しているため熱膨張率に差があり、室温に戻したときに基板が湾曲してしまうという課題を抱えている。このような背景から、GaN 結晶成長法確立のため、HVPE 法の他にも Na フラックス法⁴⁵ やアモノサーマル法、⁴⁶ OVPE (Oxide Vapor Phase Epitaxy) 法^{47–49} などの手法が研究されているものの、結晶品質を維持しつつ大口径化が可能な GaN 結晶の作製法は未確立である。

1.2.2 弾性特性に関する課題

GaN は Si に比べてバンドギャップが大きいことから、Si では正常に動作しない 300 °C 以上の高温環境下での応用が期待されている。⁵⁰ よって、デバイスの設計や特性評価のためにはこの温度域での弾性定数が必要である。しかし、室温での弾性定数に関する報告は古くから存在するが、高温での弾性定数については未解明であった。これは、c 軸方向に厚い結晶を作製することができず、計測に十分な大きさの試料が得られなかったことが原因の 1 つだと考えられる。また、GaN は半導体としての特性を得るため、様々な不純物を含ませている。例えば、酸素不純物を含ませることで n 型の特性を得ることができる。~ 10²⁰ cm⁻³ もの高濃度の酸素不純物を有した GaN が実現している。^{48,49} この酸素不純物の影響に関しては、形成エネルギー、^{51,52} 光の吸収特性、⁵³ および熱伝導率^{54,55} についての報告は存在していた。しかし、不純物が弾性定数に及ぼす影響を議論した報告はなかった。酸素不純物により熱伝導率が低下することは実験で確認されている。^{11,12,55} しかし、酸素不純物による弾性定数の変化に関する知見が不足しているため、熱伝導率のモデル解析には酸素不純物を含まない弾性定数が使用されていた。^{11,12}

1.3 薄膜弾性率

コンピュータや、スマートフォンなどの通信機器のような電子機器は、薄膜をデバイスに組み込んでいる。よって、薄膜の特性を理解することは、これらの機器の性能を向上させる上で工学的に重要である。薄膜の弾性率や音速がデバイスの性能に直結する例として、弾性波を利用した電磁波のバンドパスフィルタがある。表面弾性波 (Surface Acoustic Wave: SAW) フィルタ¹⁻⁴ や圧電薄膜共振子 (Film Bulk Acoustic Resonator: FBAR),⁵⁻⁷ 音響ミラー^{56,57} はその代表例であり、様々な周波数の電磁波を弾性波に変換し、その中で共鳴周波数に一致した周波数成分のみを選択的に取り出すことができる。弾性波フィルタの一例として、Fig. 1.3.1 に FBAR の断面図を示す。電極で挟まれた圧電層の膜厚を d 、音速を V としたとき、厚み共鳴周波数は $f = V/2d$ となり、この周波数と一致する電磁波を弾性波に変換することができる。したがって、音速は弾性波フィルタのバンドパス特性に直結するパラメータであり、フィルタの性能向上には薄膜の音速を正確に計測する必要がある。一方で、薄膜の弾性率はバルク体に比べて変化することがあり、音響フィルタの設計に重要なパラメータであるにもかかわらず、その値が未知であるという問題がある。これが、新たなデバイスを設計・作製する際の課題となっており、薄膜弾性率の計測は工学的に重要である。薄膜の弾性率の高精度な計測法としてピコ秒超音波法がある。我々の研究室では、この手法を用いて、 ~ 100 nm 程度の金属薄膜の弾性率を計測し、バルク値に比べて数十パーセント程度低下することを明らかにしてきた。⁵⁸⁻⁶⁰

しかし、膜厚が ~ 100 nm 程度の誘電体ナノ薄膜の弾性率を計測することは難しい。アモルファス SiO_2 は温度上昇とともに音速が上昇する誘電体材料であり、^{61,62} 音響フィル

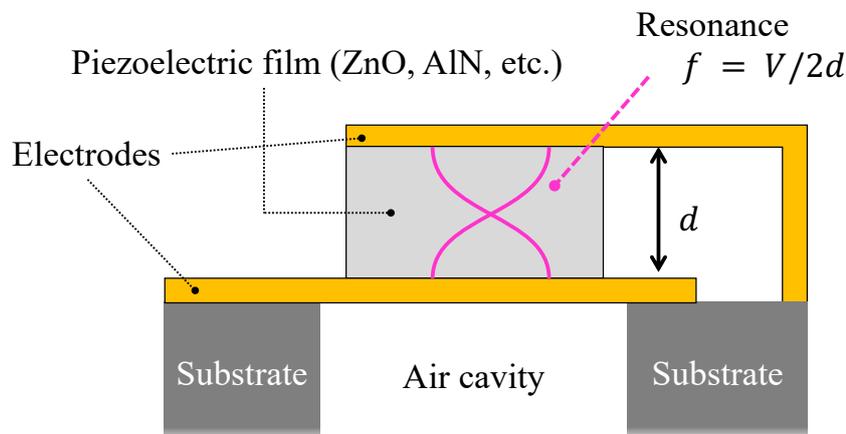


Fig. 1.3.1 Schematic of FBAR.

タの温度補償材として使用されている。^{63,64} 音響ミラーは、音響インピーダンスの大きな材料と小さな材料を組み合わせる構成されるが、誘電体が低音響インピーダンス材料として用いられるもある。^{65,66} ~10 nm 程度の薄い金属薄膜を成膜した試料に対してピコ秒超音波法による計測をすると、金属層が音源となって試料の膜厚方向に超音波が伝播する。SiO₂ や SiON, AlN などの誘電体薄膜では、Brillouin 振動を用いることで弾性率や音速を計測してきた。⁶⁷⁻⁷⁰ Brillouin 振動は、試料表面で反射したプローブ光と試料内を伝播する弾性波によって回折したプローブ光との干渉によって発現する。しかし、プローブ光の波長未満の膜厚試料ではプローブ光の回折条件が満たされなくなり、Brillouin 振動の周波数を正確に計測することができなくなる。したがって、膜厚が ~100 nm 未満の誘電体薄膜の弾性率を決定できないという課題があった。

1.4 本論文の目的と構成

以上で述べたように、材料の弾性特性を解明することは、工学的にも学術的にも重要な課題である。本研究では、従来は弾性定数を計測することが困難であった材料に対し、それらの弾性定数を決定することを目的とする。計測対象として、GaN 結晶と誘電体ナノ薄膜を選んだ。前節でも述べたように、GaN は次世代パワーデバイスを牽引する材料であり、我が国をはじめとして各国が開発競争を繰り広げている。一方で、高温下や不純物添加による弾性特性の変化に関する知見が不足しているため、その物性評価やデバイスの設計に支障をきたしていた。本研究では、独自に組み上げた共鳴超音波スペクトロスコーピー計測システムを用いて、GaN の高温での弾性特性と酸素不純物による弾性定数の変化を明らかにした。さらには、各温度での内部摩擦を計測することで、高抵抗 GaN において深い準位にトラップされた電子が熱的に活性化する際のエネルギー遷移も明らかにした。また、誘電体ナノ薄膜の弾性定数計測にも取り組んだ。金属/誘電体/金属の 3 層膜共鳴を利用した新たな弾性定数計測法を提案し、具体的にスパッタリング法により作製した厚さ ~30 nm の誘電体 NiO 薄膜の弾性定数を明らかにした。本手法は、次世代通信規格の 6G において重要なデバイスである音響フィルタの設計指針に直接関わる技術である。さらには、共鳴超音波スペクトロスコーピー法の新たな弾性定数決定法も確立した。本計測法は、ミリメートルオーダの微小固体材料の弾性定数を正確に計測することができる優れた手法であるが、解析の複雑さから産業界に広く一般に普及していないという課題があった。本研究で、深層学習を利用した解析法を提案し、従来の課題であった解析の複雑性を排除することに成功した。

本論文の構成は以下の通りである。まず第 2 章で共鳴超音波スペクトロスコーピー法の基礎理論について解説する。第 3 章で、Fe をドーブした高抵抗 GaN の高温弾性定数および、

Fe にトラップされた電子の熱活性伝導に起因するエネルギー遷移を, 内部摩擦を正確に計測することで明らかにした成果について述べる. 第 4 章では OVPE 法により作製された, 高濃度の酸素不純物を含んだ GaN の弾性定数について述べる. 第 5 章では, 深層学習を利用した共鳴超音波スペクトロスコピー法の新たな解析法を確立した成果について述べる. 第 6 章では, ピコ秒超音波法を用いた誘電体ナノ薄膜の弾性率計測法を開発した成果について述べる.

第 2 章

共鳴超音波スペクトロスコピー法

2.1 概要

ミリメートルオーダの微小固体材料の弾性定数は、特定の結晶方位に超音波パルスエコーを伝播させたり、⁷¹ 定在波を発生させる ^{72,73} などして計測されてきた。これらの手法は、結晶の対称性に応じて結晶方位の異なる複数の試料を独立に計測し、それらの情報を連立することで弾性定数を得る。しかし、固体材料の結晶性が低いほど独立な弾性定数の数が増えるため、計測に必要な試料数も増加してしまうという課題を抱えている。

このような問題を克服した計測法が、共鳴超音波スペクトロスコピー法 (Resonant Ultrasound Spectroscopy : RUS)⁷⁴⁻⁷⁸ である。超音波により試料を共鳴させる手法であり、原理的に単一の試料からすべての弾性定数を決定することができるという特徴を有している。また、計測システムが簡素であるため、クライオスタットやヒーターの中に装置を組み込むことができ、極低温から高温に至るまで幅広い温度範囲での計測が可能である。^{77,78} 超伝導マグネットを組み合わせることで高磁場環境での計測も可能である。⁷⁹

固体材料の自由振動の共鳴周波数は、寸法、密度、および弾性定数によって決まる。したがって、理論的に導出される共鳴周波数と、実験的に計測された共鳴周波数を比較し、逆解析することにより、試料の弾性定数を決定することができる。Figure 2.1.1(a) に一般的な計測系の概略図を示す。試料を 2 つの圧電トランスデューサで挟み、片方の励振用トランスデューサに正弦波信号を入力し、他方の検出用トランスデューサで試料の振動を受信する。この検出信号をデジタイザを介して PC に取り込み、フーリエ変換を施すことで送信周波数における振動の振幅と位相を取得する。送信周波数が試料の共鳴周波数と一致するとき、試料の振動振幅が増加するため、励起信号の周波数をスイープして各周波数における振動振幅を計測することにより、Fig. 2.1.1(b) に示すような共鳴スペクトルが得られる。各ピーク近傍の振幅データに Lorentz 関数や Gauss 関数などの関数をフィッティン

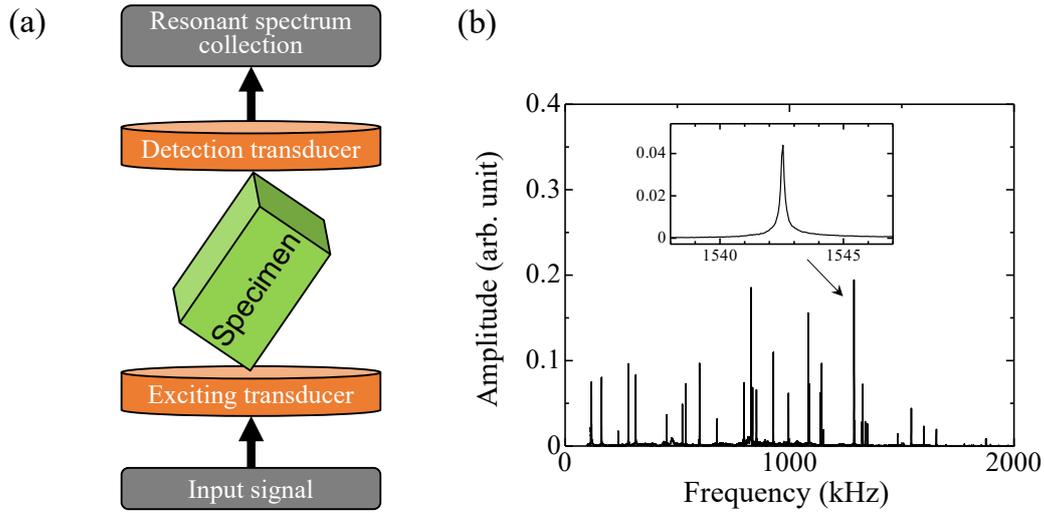


Fig. 2.1.1 (a) Schematic diagram for RUS measurement setup. (b) The resonant spectrum of the OVPE GaN specimen is shown as an example. The in-plane specimen dimensions are 3.503 mm and 3.002 mm, and the thickness (along the c-axis) is 0.289 mm. The inset shows an enlarged view of one resonance peak.

グすることにより、それらの中心軸から共鳴周波数を求めることができる。

2.2 共鳴周波数の計算原理

2.2.1 Ritz 法による固有値方程式への帰着

本研究では、直方体形状試料の弾性定数を RUS 法により決定する。そこで、共鳴周波数の計算理論について述べる。試料の共鳴状態を解析力学に基づいて解いていく。 (x_1, x_2, x_3) で定義される直交座標系を考える。自由共鳴状態では、試料の変位 u_i は $e^{i\omega t}$ にしたがって時間的に振動する (ω は振動の角振動数)。このとき、作用積分の一般式から時間依存項を分離することができ、変分計算における変位の時間境界条件 ($\delta u_i(t_1) = \delta u_i(t_2) = 0$) も空間部分の計算には影響しないため、以降では空間成分のみに着目する。Lagrangian は次式で書ける：

$$L = \int_V \left(\sum_{I,J} \frac{1}{2} C_{IJ} S_I S_J - \sum_i \frac{1}{2} \rho \omega^2 u_i u_i \right) dV. \quad (2.2.1)$$

ここで、 ρ は質量密度、 S は工学ひずみである。尚、 I, J は Voigt 表記を用いたときの添え字であり、1 から 6 の値を取る。また、本来の Lagrangian は運動エネルギー項からひずみエネルギー項を引いた形で与えられるが、後の固有値方程式と対応づけるため、式 (2.2.1) の形

で定義した. この力学問題を変分原理 (Hamilton の原理) を用いて解いていく. 変位に関する変分 $u_i \rightarrow u_i + \delta u_i$ のもとで, 停留条件 $\delta L = 0$ を解くことで共鳴状態が求まる. しかし, 一般形状に対してはこれを解析的に解くことができないため, Ritz 法を利用して解く. 変位を基底関数 $\psi(\mathbf{x})$ の重ね合わせで表現し,

$$u_i(\mathbf{x}) = \sum_{k=1}^{N_i} a_k^{(i)} \psi_k^{(i)}(\mathbf{x}), \quad (2.2.2)$$

各基底関数の係数 $a_k^{(i)}$ を決定する問題へと帰着させる. これらの変位から工学ひずみを計算すると, 次式のようなになる.

$$\begin{bmatrix} S_1 \\ S_2 \\ S_3 \\ S_4 \\ S_5 \\ S_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{\partial u_1}{\partial x_1} \\ \frac{\partial u_2}{\partial x_2} \\ \frac{\partial u_3}{\partial x_3} \\ \frac{\partial u_2}{\partial x_3} + \frac{\partial u_3}{\partial x_2} \\ \frac{\partial u_3}{\partial x_1} + \frac{\partial u_1}{\partial x_3} \\ \frac{\partial u_1}{\partial x_2} + \frac{\partial u_2}{\partial x_1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \sum_{k=1}^{N_1} a_k^{(1)} \frac{\partial \psi_k^{(1)}}{\partial x_1} \\ \sum_{k=1}^{N_2} a_k^{(2)} \frac{\partial \psi_k^{(2)}}{\partial x_2} \\ \sum_{k=1}^{N_3} a_k^{(3)} \frac{\partial \psi_k^{(3)}}{\partial x_3} \\ \sum_{k=1}^{N_2} a_k^{(2)} \frac{\partial \psi_k^{(2)}}{\partial x_3} + \sum_{k=1}^{N_3} a_k^{(3)} \frac{\partial \psi_k^{(3)}}{\partial x_2} \\ \sum_{k=1}^{N_3} a_k^{(3)} \frac{\partial \psi_k^{(3)}}{\partial x_1} + \sum_{k=1}^{N_1} a_k^{(1)} \frac{\partial \psi_k^{(1)}}{\partial x_3} \\ \sum_{k=1}^{N_1} a_k^{(1)} \frac{\partial \psi_k^{(1)}}{\partial x_2} + \sum_{k=1}^{N_2} a_k^{(2)} \frac{\partial \psi_k^{(2)}}{\partial x_1} \end{bmatrix} \quad (2.2.3)$$

このときの停留条件は次式である:

$$\begin{aligned} \delta L &= L[\mathbf{a}^{(1)} + \delta \mathbf{a}^{(1)}, \mathbf{a}^{(2)} + \delta \mathbf{a}^{(2)}, \mathbf{a}^{(3)} + \delta \mathbf{a}^{(3)}] - L[\mathbf{a}^{(1)}, \mathbf{a}^{(2)}, \mathbf{a}^{(3)}] \\ &= \sum_{k=1}^{N_1} \left(\frac{\partial L}{\partial a_k^{(1)}} \right) \delta a_k^{(1)} + \sum_{k=1}^{N_2} \left(\frac{\partial L}{\partial a_k^{(2)}} \right) \delta a_k^{(2)} + \sum_{k=1}^{N_3} \left(\frac{\partial L}{\partial a_k^{(3)}} \right) \delta a_k^{(3)} = 0. \end{aligned} \quad (2.2.4)$$

基底関数の各係数は独立であるため, 式 (2.2.4) が恒等的に成立するためには,

$$\frac{\partial L}{\partial a_k^{(i)}} = 0, \quad (2.2.5)$$

を満たす必要がある. 式 (2.2.5) の条件は, $(N_1 + N_2 + N_3)$ 個の連立方程式を与える. これらを解いていくことで, 最終的に係数を固有ベクトルとする固有値方程式を解く問題へと帰着し, その固有値から共鳴周波数が求まる. 以下では, 次の弾性マトリクスで表される斜方晶系の場合で具体的に書き下していく.

$$[C_{ij}] = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{22} & C_{23} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{23} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{66} \end{bmatrix}. \quad (2.2.6)$$

簡便のため, 式 (2.2.1) で表される Lagrangian を, ポテンシャル項 ($L_S = \sum_{I,J} \frac{1}{2} C_{IJ} S_I S_J$) と, 運動項 ($L_T = \sum_i \frac{1}{2} \rho \omega^2 u_i^2$) に分けて議論していく. L_S を斜方晶系の場合で展開すると, 次のようになる:

$$\begin{aligned} L_S &= \frac{1}{2} C_{11} \int_V S_1^2 dV + \frac{1}{2} C_{22} \int_V S_2^2 dV + \frac{1}{2} C_{33} \int_V S_3^2 dV \\ &\quad + C_{12} \int_V S_1 S_2 dV + C_{13} \int_V S_1 S_3 dV + C_{23} \int_V S_2 S_3 dV \\ &\quad + \frac{1}{2} C_{44} \int_V S_4^2 dV + \frac{1}{2} C_{55} \int_V S_5^2 dV + \frac{1}{2} C_{66} \int_V S_6^2 dV. \end{aligned} \quad (2.2.7)$$

いくつか具体的に式 (2.2.1) を計算する. 例えば, L_S の第 1 項について $a_i^{(1)}$ の微分を計算すると次のようになる.

$$\begin{aligned} \frac{\partial(L_S \text{の第 1 項})}{\partial a_i^{(1)}} &= \frac{1}{2} C_{11} \int_V \frac{\partial S_1^2}{\partial a_i^{(1)}} dV \\ &= C_{11} \int_V S_1 \frac{\partial S_1}{\partial a_i^{(1)}} dV \\ &= C_{11} \int_V S_1 \frac{\partial}{\partial a_i^{(1)}} \left(\sum_{k=1}^{N_1} a_k^{(1)} \frac{\partial \psi_k^{(1)}}{\partial x_1} \right) dV \\ &= C_{11} \int_V S_1 \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_1} dV \\ &= C_{11} \sum_{j=1}^{N_1} \left[\int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_1} \frac{\partial \psi_j^{(1)}}{\partial x_1} dV \right] a_j^{(1)}. \end{aligned} \quad (2.2.8)$$

式 (2.2.8) では, L_S を $a_i^{(1)}$ で微分した際に x_i 方向の係数についての和が現れる. このような和が出てくる L_S の他の項は, 第 8 項と第 9 項である. 次に示す [Γ] 行列のブロック

成分を書き下す際の実例のため、これらの項の計算も示しておく：

$$\begin{aligned}
\frac{\partial(L_S \text{の第8項})}{\partial a_i^{(1)}} &= \frac{1}{2} C_{55} \int_V \frac{\partial S_5^2}{\partial a_i^{(1)}} dV \\
&= C_{55} \int_V S_5 \frac{\partial S_5}{\partial a_i^{(1)}} dV \\
&= C_{55} \int_V S_5 \frac{\partial}{\partial a_i^{(1)}} \left(\sum_{k=1}^{N_3} a_k^{(3)} \frac{\partial \psi_k^{(3)}}{\partial x_1} + \sum_{k=1}^{N_1} a_k^{(1)} \frac{\partial \psi_k^{(1)}}{\partial x_3} \right) dV \\
&= C_{55} \int_V S_5 \sum_{k=1}^{N_1} \delta_{ik} \frac{\partial \psi_k^{(1)}}{\partial x_3} dV \\
&= C_{55} \int_V \left(\sum_{j=1}^{N_3} a_j^{(3)} \frac{\partial \psi_j^{(3)}}{\partial x_1} + \sum_{j=1}^{N_1} a_j^{(1)} \frac{\partial \psi_j^{(1)}}{\partial x_3} \right) \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_3} dV \\
&= C_{55} \sum_{j=1}^{N_1} \left[\int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_3} \frac{\partial \psi_j^{(1)}}{\partial x_3} dV \right] a_j^{(1)} + C_{55} \sum_{j=1}^{N_3} \left[\int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_3} \frac{\partial \psi_j^{(3)}}{\partial x_1} dV \right] a_j^{(3)},
\end{aligned} \tag{2.2.9}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial(L_S \text{の第9項})}{\partial a_i^{(1)}} &= \frac{1}{2} C_{66} \int_V \frac{\partial S_6^2}{\partial a_i^{(1)}} dV \\
&= C_{66} \sum_{j=1}^{N_1} \left[\int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_2} \frac{\partial \psi_j^{(1)}}{\partial x_2} dV \right] a_j^{(1)} + C_{66} \sum_{j=1}^{N_2} \left[\int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_2} \frac{\partial \psi_j^{(2)}}{\partial x_1} dV \right] a_j^{(2)}.
\end{aligned} \tag{2.2.10}$$

このような計算を L_S のすべての項に対して行うと、最終的に式 (2.2.5) は次の行列でまとめられる：

$$\begin{bmatrix} \frac{\partial L_S}{\partial \mathbf{a}^{(1)}} \\ \frac{\partial L_S}{\partial \mathbf{a}^{(2)}} \\ \frac{\partial L_S}{\partial \mathbf{a}^{(3)}} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} [\Gamma_{11}] & [\Gamma_{12}] & [\Gamma_{13}] \\ [\Gamma_{21}] & [\Gamma_{22}] & [\Gamma_{23}] \\ [\Gamma_{31}] & [\Gamma_{32}] & [\Gamma_{33}] \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{a}^{(1)} \\ \mathbf{a}^{(2)} \\ \mathbf{a}^{(3)} \end{bmatrix} =: [\Gamma] \begin{bmatrix} \mathbf{a}^{(1)} \\ \mathbf{a}^{(2)} \\ \mathbf{a}^{(3)} \end{bmatrix}. \tag{2.2.11}$$

$$\mathbf{a}^{(i)} = \begin{bmatrix} a_1^{(i)} \\ a_2^{(i)} \\ \vdots \\ a_N^{(i)} \end{bmatrix}, \quad \frac{\partial L_S}{\partial \mathbf{a}^{(i)}} = \begin{bmatrix} \frac{\partial L_S}{\partial a_1^{(i)}} \\ \frac{\partial L_S}{\partial a_2^{(i)}} \\ \vdots \\ \frac{\partial L_S}{\partial a_{N_i}^{(i)}} \end{bmatrix}. \quad (2.2.12)$$

式 (2.2.8) から式 (2.2.10) を参照すると, $[\Gamma_{11}]$ は以下の項を持つ事が分かる:

$$\begin{aligned} [\Gamma_{11}]_{ij} = & C_{11} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_1} \frac{\partial \psi_j^{(1)}}{\partial x_1} dV + C_{55} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_3} \frac{\partial \psi_j^{(1)}}{\partial x_3} dV \\ & + C_{66} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_2} \frac{\partial \psi_j^{(1)}}{\partial x_2} dV, \quad (i, j = 1, 2, \dots, N_1). \end{aligned} \quad (2.2.13)$$

他成分は以下で与えられる:

$$\begin{aligned} [\Gamma_{22}]_{ij} = & C_{22} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(2)}}{\partial x_2} \frac{\partial \psi_j^{(2)}}{\partial x_2} dV + C_{44} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(2)}}{\partial x_3} \frac{\partial \psi_j^{(2)}}{\partial x_3} dV \\ & + C_{66} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(2)}}{\partial x_1} \frac{\partial \psi_j^{(2)}}{\partial x_1} dV, \quad (i, j = 1, 2, \dots, N_2), \end{aligned} \quad (2.2.14)$$

$$\begin{aligned} [\Gamma_{33}]_{ij} = & C_{33} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(3)}}{\partial x_3} \frac{\partial \psi_j^{(3)}}{\partial x_3} dV + C_{44} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(3)}}{\partial x_2} \frac{\partial \psi_j^{(3)}}{\partial x_2} dV \\ & + C_{66} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(3)}}{\partial x_1} \frac{\partial \psi_j^{(3)}}{\partial x_1} dV, \quad (i, j = 1, 2, \dots, N_3), \end{aligned} \quad (2.2.15)$$

$$\begin{aligned} [\Gamma_{12}]_{ij} = & C_{12} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_1} \frac{\partial \psi_j^{(2)}}{\partial x_2} dV + C_{66} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_2} \frac{\partial \psi_j^{(2)}}{\partial x_1} dV, \\ & (i = 1, 2, \dots, N_1; j = 1, 2, \dots, N_2), \end{aligned} \quad (2.2.16)$$

$$[\Gamma_{21}]_{ij} = [\Gamma_{12}]_{ij}, \quad (i = 1, 2, \dots, N_2; j = 1, 2, \dots, N_1),$$

$$\begin{aligned} [\Gamma_{23}]_{ij} = & C_{23} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(2)}}{\partial x_2} \frac{\partial \psi_j^{(3)}}{\partial x_3} dV + C_{44} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(2)}}{\partial x_3} \frac{\partial \psi_j^{(3)}}{\partial x_2} dV, \\ & (i = 1, 2, \dots, N_2; j = 1, 2, \dots, N_3), \end{aligned} \quad (2.2.17)$$

$$[\Gamma_{32}]_{ij} = [\Gamma_{23}]_{ij}, \quad (i = 1, 2, \dots, N_3; j = 1, 2, \dots, N_2), \quad (2.2.18)$$

$$[\Gamma_{13}]_{ij} = C_{13} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_1} \frac{\partial \psi_j^{(3)}}{\partial x_3} dV + C_{55} \int_V \frac{\partial \psi_i^{(1)}}{\partial x_3} \frac{\partial \psi_j^{(3)}}{\partial x_1} dV, \quad (2.2.19)$$

$$(i = 1, 2, \dots, N_1; j = 1, 2, \dots, N_3),$$

$$[\Gamma_{31}]_{ij} = [\Gamma_{13}]_{ij}, \quad (i = 1, 2, \dots, N_3; j = 1, 2, \dots, N_1). \quad (2.2.20)$$

次に、運動項 L_T の微分も同様に計算する。 L_T は以下の式で定義した:

$$L_T = \int_V \sum_p \frac{1}{2} \rho \omega^2 u_p u_p dV$$

$$= \int_V \sum_p \frac{1}{2} \rho \omega^2 \left(\sum_m^{N_p} a_m^{(p)} \psi_m^{(p)} \right) \left(\sum_n^{N_p} a_n^{(p)} \psi_n^{(p)} \right) dV. \quad (2.2.21)$$

具体的に $a_i^{(1)}$ の微分を計算する:

$$\begin{aligned} \frac{\partial L_T}{\partial a_i^{(1)}} &= \frac{1}{2} \rho \omega^2 \sum_p \left[\int_V \left(\frac{\partial}{\partial a_i^{(1)}} \left(\sum_m^{N_p} a_m^{(p)} \psi_m^{(p)} \right) \right) \left(\sum_n^{N_p} a_n^{(p)} \psi_n^{(p)} \right) dV \right. \\ &\quad \left. + \int_V \left(\sum_m^{N_p} a_m^{(p)} \psi_m^{(p)} \right) \left(\frac{\partial}{\partial a_i^{(1)}} \left(\sum_n^{N_p} a_n^{(p)} \psi_n^{(p)} \right) \right) dV \right] \\ &= \frac{1}{2} \rho \omega^2 \sum_p \left[\int_V \left(\sum_m^{N_1} \delta_{im} \delta_{1p} \psi_m^{(p)} \right) \left(\sum_n^{N_p} a_n^{(p)} \psi_n^{(p)} \right) dV \right. \\ &\quad \left. + \int_V \left(\sum_m^{N_p} a_m^{(p)} \psi_m^{(p)} \right) \left(\sum_n^{N_1} \delta_{in} \delta_{1p} \psi_n^{(p)} \right) dV \right] \\ &= \frac{1}{2} \rho \omega^2 \left[\int_V \psi_i^{(1)} \left(\sum_n^{N_1} a_n^{(1)} \psi_n^{(1)} \right) dV \right. \\ &\quad \left. + \int_V \left(\sum_m^{N_1} a_m^{(1)} \psi_m^{(1)} \right) \psi_i^{(1)} dV \right] \\ &= \rho \omega^2 \sum_j \left[\int_V \psi_i^{(1)} \psi_j^{(1)} dV \right] a_j^{(1)}. \quad (2.2.22) \end{aligned}$$

他の成分についても同様に計算すると、最終的に次の行列でまとめられる:

$$\begin{bmatrix} \frac{\partial L_T}{\partial \mathbf{a}^{(1)}} \\ \frac{\partial L_T}{\partial \mathbf{a}^{(2)}} \\ \frac{\partial L_T}{\partial \mathbf{a}^{(3)}} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} [M_1] & [0] & [0] \\ [0] & [M_2] & [0] \\ [0] & [0] & [M_3] \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{a}^{(1)} \\ \mathbf{a}^{(2)} \\ \mathbf{a}^{(3)} \end{bmatrix} =: \rho\omega^2 [M] \begin{bmatrix} \mathbf{a}^{(1)} \\ \mathbf{a}^{(2)} \\ \mathbf{a}^{(3)} \end{bmatrix}. \quad (2.2.23)$$

ここで, $[M]$ のブロックは以下で与えられる:

$$\begin{aligned} [M_1]_{ij} &= \int_V \psi_i^{(1)} \psi_j^{(1)} dV, \quad (i, j = 1, 2, \dots, N_1), \\ [M_2]_{ij} &= \int_V \psi_i^{(2)} \psi_j^{(2)} dV, \quad (i, j = 1, 2, \dots, N_2), \\ [M_3]_{ij} &= \int_V \psi_i^{(3)} \psi_j^{(3)} dV, \quad (i, j = 1, 2, \dots, N_3). \end{aligned} \quad (2.2.24)$$

以上より, 式 (2.2.11) と式 (2.2.23) から次の固有値方程式を得る:

$$([\Gamma] - \rho\omega^2 [M]) \begin{bmatrix} \mathbf{a}^{(1)} \\ \mathbf{a}^{(2)} \\ \mathbf{a}^{(3)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{0} \\ \mathbf{0} \\ \mathbf{0} \end{bmatrix}. \quad (2.2.25)$$

この固有値から共鳴周波数が求まり, 固有ベクトルから各モードの振動変位分布を計算することができる.

Ritz 法による近似精度は, 基底関数の種類と展開項数に依存する. Ohno は直方体試料の自由共鳴を計算する際には, Legendre 関数を基底関数として用いると直方体端部の急峻な変位を表現することができ, 少ない項数で高精度な近似計算が可能であることを示した.⁷⁵ よって, 本研究では Legendre 関数を基底関数に使用して計算した. Legendre 関数は以下の式で定義される (Rodrigues の公式):

$$P_n(x) = \frac{1}{2^n n!} \frac{d^n}{dx^n} (x^2 - 1)^n. \quad (2.2.26)$$

低次数の場合の具体形は,

$$P_0(x) = 1, \quad P_1(x) = x, \quad P_2(x) = \frac{1}{2}(3x^2 - 1), \quad P_3(x) = \frac{1}{2}(5x^3 - 3x). \quad (2.2.27)$$

であり, Fig. 2.2.1 にそれらのグラフを示す. 境界周辺で急峻な変化を取ることが分かる. また, 次のような偶奇性も有するため, 対称性の表現に適した関数である.

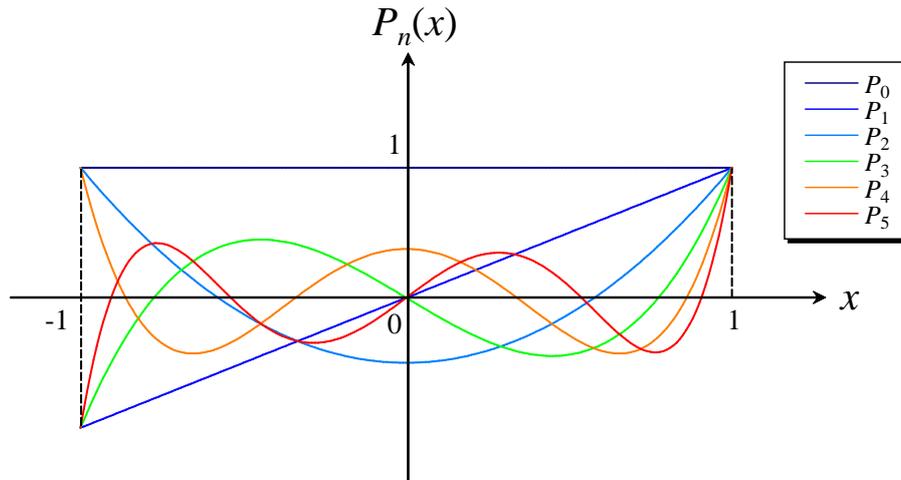


Fig. 2.2.1 Legendre functions with the order from zero to five.

$$P_n(-x) = (-1)^n P_n(x). \quad (2.2.28)$$

Legendre 関数は次の直交性

$$\int_{-1}^1 P_m(x) P_n(x) dx = \delta_{mn} \frac{2}{2n+1} \quad (2.2.29)$$

を有するので,

$$\overline{P}_n(x) = \sqrt{\frac{2n+1}{2}} P_n(x) \quad (2.2.30)$$

と定義すると, Legendre 関数は正規直交関数系

$$\int_{-1}^1 \overline{P}_m(x) \overline{P}_n(x) dx = \delta_{mn} \quad (2.2.31)$$

をなす. このように正規化した Legendre 関数を用いて, 本研究では次式を基底関数として使用した:

$$\psi_k(\mathbf{x}) = \sqrt{\frac{8}{l_1 l_2 l_3}} \overline{P}_l \left(\frac{2x_1}{l_1} \right) \overline{P}_m \left(\frac{2x_2}{l_2} \right) \overline{P}_n \left(\frac{2x_3}{l_3} \right). \quad (2.2.32)$$

ただし, l_i は x_i 方向の直方体試料の辺の長さである. 正規化 Legendre 関数の微分に関

Table 2.2.1 Vibration groups for an orthorhombic rectangular-parallelepiped specimen. E and O represent the even and odd symmetry displacements, respectively.

Group	Displacement	x_1	x_2	x_3	Group	Displacement	x_1	x_2	x_3
A _g	u_1	O	E	E	A _u	u_1	E	O	O
	u_2	E	O	E		u_2	O	E	O
	u_3	E	E	O		u_3	O	O	E
B _{3g}	u_1	O	O	O	B _{3u}	u_1	E	E	E
	u_2	E	E	O		u_2	O	O	E
	u_3	E	O	E		u_3	O	E	O
B _{2g}	u_1	E	E	O	B _{2u}	u_1	O	O	E
	u_2	O	O	O		u_2	E	E	E
	u_3	O	E	E		u_3	E	O	O
B _{1g}	u_1	E	O	E	B _{1u}	u_1	O	E	O
	u_2	O	E	E		u_2	E	O	E
	u_3	O	O	O		u_3	E	E	E

して,

$$\int_{-1}^1 \left(\frac{d\overline{P}_m(x)}{dx} \right) \left(\frac{d\overline{P}_n(x)}{dx} \right) dx$$

$$= \begin{cases} \frac{1}{2} n(n+1) \sqrt{(2m+1)(2n+1)} & (n+m = \text{even}, n \geq m) \\ 0 & (n+m = \text{odd}) \end{cases} . \quad (2.2.33)$$

が成り立つ. よって, 試料が直方体形状のとき, $[\Gamma]$ や $[M]$ の各成分の計算は, 数値積分を実行する必要がなく, Legendre 関数の次数と試料寸法から容易に求めることができる.

斜方晶系の直方体試料の振動モードは, 振動変位の対称性に従って, Table 2.2.1 に示した 8 つの振動グループに分類することができる.⁸⁰ 振動の変位は, 偶関数 (Even : E) もしくは奇関数 (Odd : O) のどちらかを取る. よって, 基底関数を用いて変位を表現するとき, Legendre 関数の次数は偶奇のどちらかを考慮すれば十分である. この性質を利用すると, 計算コストの大幅な削減が可能になる.

2.2.2 相似形試料の固有値

第5章の準備のため、互いに相似な直方体試料の固有値について議論する。[Γ] は弾性定数を反映した量であるが、後で確認するように、直方体試料の辺の長さの2乗に逆比例する量でもある。したがって、ある基準試料寸法を決めたときに、その基準試料に対して体積比 \tilde{V} を有する試料の [Γ] と、基準寸法の [Γ_R] との間には、

$$[\Gamma] = [\Gamma_R] \times \frac{1}{(\tilde{V})^{\frac{2}{3}}}, \quad (2.2.34)$$

の関係がある。これを式 (2.2.25) の固有値方程式に代入し、基準試料の [Γ_R] で書き直すと、

$$([\Gamma_R] - (\tilde{V})^{\frac{2}{3}} \rho \omega^2 [M]) \begin{bmatrix} \mathbf{a}^{(1)} \\ \mathbf{a}^{(2)} \\ \mathbf{a}^{(3)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{0} \\ \mathbf{0} \\ \mathbf{0} \end{bmatrix}, \quad (2.2.35)$$

となる。この式の固有値は、どの相似比の試料でも同一の値を示し、弾性定数のみに依存する量である。そこで、本研究ではこの固有値を弾性パラメータと名付け、

$$\tilde{C} = (\tilde{V})^{\frac{2}{3}} \rho \omega^2 \quad (2.2.36)$$

と置く。第5章で示す深層学習を利用した弾性定数の推定法では、この弾性パラメータ \tilde{C} を用いて学習データセットを作成する。

以下で、式 (2.2.34) が成り立つことを具体的に計算して確認する。式 (2.2.13) から式 (2.2.20) より、すべての [Γ] の成分は、既定関数 ψ の微分同士を積を積分した項で構成される。そこで、ある1つの積分に着目して計算を進める。簡単のため、積分と基底関数を以下のように単純化して記述する：

$$\int_V \frac{\partial \psi}{\partial x} \frac{\partial \psi}{\partial x} dV. \quad (2.2.37)$$

各辺が l_1, l_2, l_3 で、体積が $V = l_1 l_2 l_3$ の直方体を基準試料とする。これに対し、相似比 L 、体積比 $\tilde{V} = L^3$ の直方体を考える。このときの積分は、

$$\int_{\tilde{V}V} \frac{\partial \psi'}{\partial x'} \frac{\partial \psi'}{\partial x'} dV', \quad (2.2.38)$$

である。これを基準試料での積分に換算していく。まずは、積分範囲の座標変換を調べる。着目した試料の積分範囲を x' と書くと、これは元の座標系をスケール変換した形で与えら

れる。

$$x' = Lx. \quad (2.2.39)$$

これより,

$$dx' = Lx, \quad dV' = L^3 dV, \quad \frac{\partial}{\partial x'} = \frac{\partial x}{\partial x'} \frac{\partial}{\partial x} = \frac{1}{L} \frac{\partial}{\partial x}, \quad (2.2.40)$$

が直接導かれる。基底関数は,

$$\begin{aligned} \psi' &= \frac{1}{L^{3/2}} \sqrt{\frac{8}{l_1 l_2 l_3}} \overline{P}_l \left(\frac{2x'_1}{l_1} \right) \overline{P}_m \left(\frac{2x'_2}{l_2} \right) \overline{P}_n \left(\frac{2x'_3}{l_3} \right) \\ &= \frac{1}{L^{3/2}} \sqrt{\frac{8}{l_1 l_2 l_3}} \overline{P}_l \left(\frac{2x_1}{l_1} \right) \overline{P}_m \left(\frac{2x_2}{l_2} \right) \overline{P}_n \left(\frac{2x_3}{l_3} \right) \\ &= \frac{1}{L^{3/2}} \psi, \end{aligned} \quad (2.2.41)$$

でスケールされる。式 (2.2.40) と (2.2.41) より, 式 (2.2.38) を基準試料の積分で表すと次のようになる:

$$\begin{aligned} \int_{\tilde{V}'} \frac{\partial \psi'}{\partial x'} \frac{\partial \psi'}{\partial x'} dV' &= \int_V \left[\frac{1}{L} \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{1}{L^{3/2}} \psi \right) \right] \left[\frac{1}{L} \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{1}{L^{3/2}} \psi \right) \right] L^3 dV \\ &= \frac{1}{L^2} \int_V \frac{\partial \psi}{\partial x} \frac{\partial \psi}{\partial x} dV, \\ &= \frac{1}{(\tilde{V})^{\frac{2}{3}}} \int_V \frac{\partial \psi}{\partial x} \frac{\partial \psi}{\partial x} dV. \end{aligned} \quad (2.2.42)$$

相似比の 2 乗に逆比例する積分項の性質は, $[\Gamma]$ のすべての成分で成り立つ。よって, 式 (2.2.34) を示せた。次に, M についての変換性を調べる。同様に計算していくと,

$$\begin{aligned} [M'_p]_{ij} &= \int_{\tilde{V}'} \psi_i^{(p)} \psi_j^{(p)} dV' \\ &= \int_V \left(\frac{1}{L^{\frac{3}{2}}} \psi_i^{(p)} \right) \left(\frac{1}{L^{\frac{3}{2}}} \psi_j^{(p)} \right) L^3 dV \\ &= \int_V \psi_i^{(p)} \psi_j^{(p)} dV \\ &= [M_p]_{ij}, \end{aligned} \quad (2.2.43)$$

となり, $[M]$ は相似変換に対して不変であることが分かる。以上より, 式 (2.2.35) で示した, 基準寸法で表現した固有値方程式が成り立つことを示せた。

第 3 章

GaN の弾性定数と内部摩擦の計測

3.1 はじめに

GaN は次世代のパワー半導体材料として注目されており, AlGaN/GaN のヘテロ構造界面に発生する 2 次元の電子ガスを利用した高電子移動度トランジスタ^{81,82} が実用化されている. しかし, オン, オフのスイッチング時の素子に加わる大きな電圧の電流変化により, 電子がデバイスの内部にトラップされ, パフォーマンスが低下してしまうという問題が報告されている.⁸³⁻⁸⁶ このようなデバイスには, Fe や C をドープして高抵抗化したバッファ層が使用される場合もある.^{87,88} このようにしてトラップされたキャリアは熱によって活性化し, 伝導性を示すことがある (ホッピング伝導).⁸⁹ したがって, 熱活性伝導の発生メカニズムを解明することは, デバイスの性能や安全性を高めるうえで極めて重要である. トラップ準位の計測法として一般的なのが深層過渡分光法である. しかし, この手法は高抵抗試料の計測が困難であるという課題を抱えている. 実際に, Fe をドープして高抵抗化させた GaN を計測した場合, ドープ濃度が 10^{17} cm^{-3} を超えると, 計測の信号強度がノイズレベルになってしまう.⁹⁰ そこで, 本研究では超音波減衰を利用したトラップ準位の解明に取り組んだ. また, GaN は Si に比べて高温環境下での使用が想定されているが, 基礎物性値である弾性定数の高温下での値が報告されていないという課題があった. 本研究で, 初めて GaN の高温弾性定数を実験的に明らかにした.

3.2 計測装置

3.2.1 アンテナ発信超音波共鳴法

本研究では, 高抵抗 GaN に自由振動を励起するために, アンテナ発信超音波共鳴法 (Antenna Transmission Acoustic Resonance: ATAR) を使用した.^{91,92} 本計測法は, ア

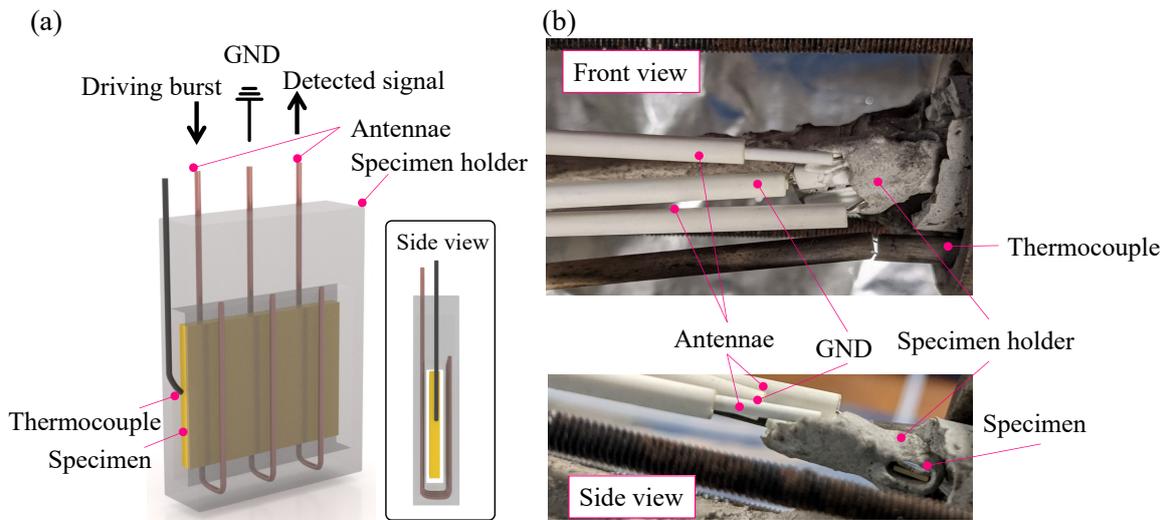


Fig. 3.2.1 Schematic diagram of (a) the handmade specimen holder and (b) its actual photos.

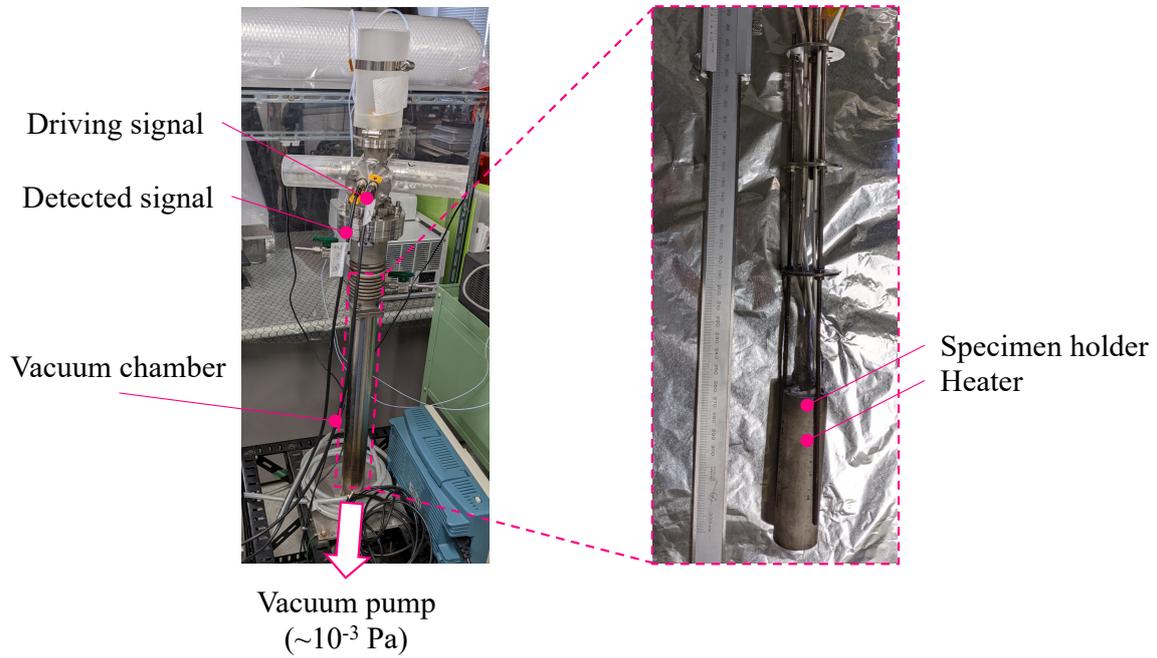
アンテナを介した非接触計測であるため、通常の接触計測で生じてしまう試料から計測系への音響エネルギーの漏洩を大幅に軽減することができる。よって、材料内部で生じた音響減衰の正確な計測が可能である。

Figure 3.2.1(a) に自作の試料ホルダの概要図を示す。試料およびアンテナの保持のため、 $\sim 1200^\circ\text{C}$ まで使用可能な耐熱性のアルミナセメントで試料ホルダを作製した。試料ホルダには穴を開けており、この中に試料を挿入する。試料には自重によるホルダからの抗力のみが働き、それ以外の外力は働いていない。高温での計測を可能にするため、NiCr合金の耐熱性ワイヤ ($\sim 1200^\circ\text{C}$) を振動の励起、検出、接地用のアンテナに用いた。試料を包み込むようにして、これら3本のアンテナを試料ホルダに埋め込んだ。3本のアンテナは板型試料の面内方向 (GaNの(0001)面) と平行に配置してある。励起用アンテナにバースト交流電圧を印加すると、試料の面内方向に交流電場が発生する。すると、逆圧電効果によって試料が振動電場と同じ周波数で振動する。試料内の圧電分極が時間的に周期的に変化するので、振動電場が試料内部から放射する。この振動電場を検出用のアンテナによって検出することで信号を取得する。このようにして、非接触での音響計測が可能となる。実際に使用したアンテナおよび試料ホルダを Fig. 3.2.1(b) に示す。試料ホルダを電熱線で作製したヒータの中に挿入し、これら全体を真空チャンバーの中に配置した。チャンバの下側から、ロータリポンプおよびターボポンプによって真空引きし、 $\sim 10^{-3}\text{ Pa}$ まで減圧した環境下で計測した。実際の装置系の写真を Fig. 3.2.2(a) に示す。計測システムの概略図を Fig. 3.2.2(b) に示す。高出力ゲートアンプを通じて、バースト電圧を励起用アン

テナに印加し、試料を振動させた。その残響信号を検出用アンテナで受信し、スーパーヘテロダイン検出機を用いて駆動振動数の振幅と位相成分を取り出した。

実験は次のようにして行った。まず初めに、駆動周波数を変えて試料の共鳴スペクトルを計測し、各共鳴モードの共鳴周波数を取得する。次に、そのようにして見つけた各共鳴モードに対し、共鳴時の残響信号から減衰曲線を計測して減衰定数と内部摩擦 Q^{-1} を決定した。15 MHz までの共鳴モードに対しては、この手順で減衰を計測した。15 MHz 以上の共鳴モードに対しては、装置の仕様により残響信号の減衰過程を直接計測することができないため、共鳴スペクトルの半値幅から内部摩擦を決定した。

(a)



(b)

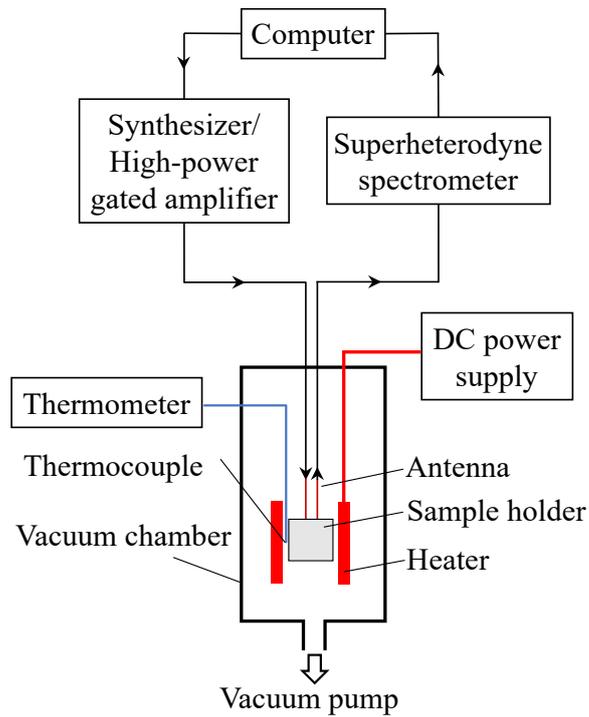


Fig. 3.2.2 (a) Photos of the vacuum chamber for the ATAR system and (b) the schematic diagram of the measurement system.

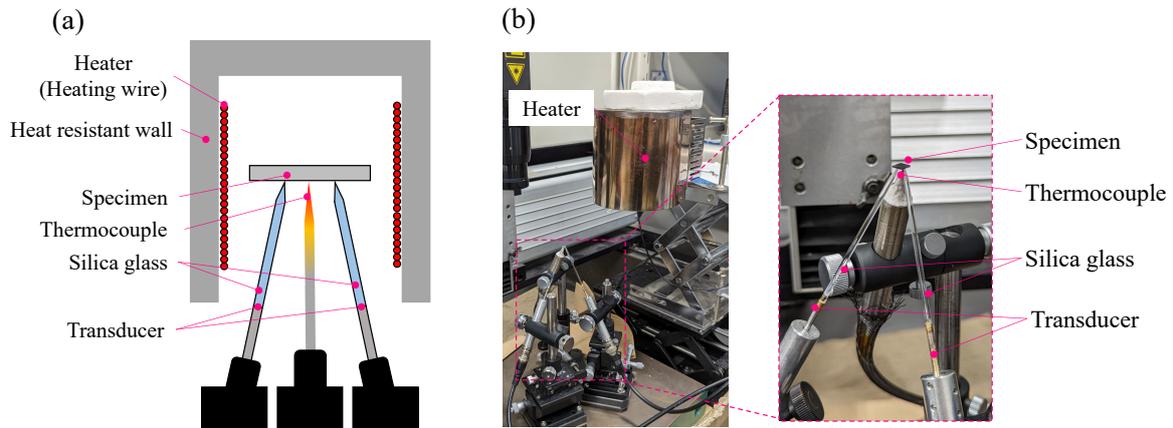


Fig. 3.2.3 Schematic diagram of (a) the measurement setup and (b) its actual photos.

3.2.2 高温 RUS 計測システム

高温弾性定数を計測するため、3点支持型の RUS 計測系⁹³⁻⁹⁵を自作した。Figure 3.2.3(a) に振動の励起、検出用のトランスデューサおよびヒータの概要図を示す。また、実際の装置の写真を Fig. 3.2.3(b) に示す。試料を2本の針状の石英ガラス棒と、1本の熱電対で支持する。これらを筒状ヒータの中に挿入することで、大気下で高温計測を実行した。石英ガラス棒には、棒状の圧電トランスデューサを接着している。これらのトランスデューサを使用し、振動の励起と検出を行う。試料温度は熱電対によって直接計測する。試料の励振は、マルチファンクションジェネレータ (株式会社エヌエフ回路設計ブロック製 WF1973) を使用して、圧電トランスデューサに 20 V_{pp} の連続正弦波信号を入力することで行った。検出用の圧電トランスデューサで取得した信号は、広帯域アンプ (RITEC 社製 BR-640A-LF-HG) を用いて 10 kHz から 5 MHz の信号を 60 dB で増幅した。これをデジタル化 (National Instruments 社製 NI USB-5133; 100 MS/s および 8bit) によって PC に取り込んだ。その後、取得信号にフーリエ変換を施すことで共鳴スペクトルを得た。

3.3 試料

本研究では, HVPE(Hydride Vapor Phase Epitaxy) 法で作製したウルツ鉱型の高抵抗 GaN を使用した. Fe を $8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ドープすることで, アクセプタ型のトラップ準位を形成させ高抵抗化させている. 室温での抵抗率は $2 \times 10^8 \Omega \text{ cm}$ である. 高抵抗化していない GaN は, 本来の圧電性が消失しており, 圧電性を利用する ATAR 法で計測することができない. しかし, Fe をドープして高抵抗化した GaN では圧電性が発現しており, ATAR 法で自由振動を励起し, 検出することができる.

試料は板型形状をした直方体であり, 試料の各辺の長さは, 3.503, 2.995, 0.413 mm である. 電子天秤で計測した質量と, 試料体積から計算した密度は 6080 kg/m^3 であり, 理論密度 (6081 kg/m^3)⁹⁶ との差は 0.1% 以下である. 六方晶結晶の c 軸方向が板厚方向と平行である.

3.4 計測原理

3.4.1 平面波板厚共鳴

本研究では, ATAR によって GaN 試料に平面波の板厚共鳴を励起する. GaN は圧電性を有するため, その圧電性により見かけの弾性定数が増加する. したがって, 共鳴周波数もこの影響を受ける. そこで, 本節では c 軸方向を板厚方向に取ったときの板厚共鳴周波数と弾性定数の間の関係式を導く. ウルツ鉱構造 GaN の弾性マトリクス, 圧電定数マトリクスはそれぞれ以下の成分を持つ.

$$[C_{ij}] = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{12} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{C_{11}-C_{12}}{2} \end{bmatrix} \quad (3.4.1)$$

$$[e_{ij}] = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & e_{15} & 0 & 0 \\ e_{31} & e_{31} & e_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (3.4.2)$$

試料内の応力 σ , 電束密度 D を印加する電場 E , 工学ひずみ S , 誘電率 κ を用いて表すと次のようになる.

$$[\sigma_I] = -[e_{Ij}]^T [E_j] + [C_{IJ}][S_J], \quad (3.4.3)$$

$$[D_i] = [\kappa_{ij}][E_j] + [e_{iJ}][\sigma_J]. \quad (3.4.4)$$

ただし, $i, j = 1, 2, 3, I, J = 1, 2, \dots, 6$ であり, 数式の簡略化のため総和規約を用いている. 弾性マトリクス, 圧電定数マトリクスを代入し, 各成分を書き下すと次のようになる.

$$\begin{bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -e_{31}E_3 + C_{11}S_1 + C_{12}S_2 + C_{13}S_3 \\ -e_{31}E_3 + C_{12}S_1 + C_{11}S_2 + C_{13}S_3 \\ -e_{33}E_3 + C_{13}S_1 + C_{13}S_2 + C_{33}S_3 \\ -e_{15}E_2 + C_{44}S_4 \\ -e_{15}E_1 + C_{44}S_5 \\ C_{66}S_6 \end{bmatrix} \quad (3.4.5)$$

$$\begin{bmatrix} D_1 \\ D_2 \\ D_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \kappa_{11}E_1 + e_{15}S_5 \\ \kappa_{11}E_2 + e_{15}S_4 \\ \kappa_{33}E_3 + e_{31}S_1 + e_{31}S_2 + e_{33}S_3 \end{bmatrix} \quad (3.4.6)$$

今回の実験では, x_2x_3 面内 (試料面内) に振動電場を印加し, x_3 方向 (GaN の c 軸方向) に伝播する縦波および横波平面波を扱う. そこで, 縦波と横波をそれぞれ (i) x_3 方向に振動する場合, (ii) x_2 方向に振動する場合で考え, 圧電性が平面波に与える影響を考える.

(i) 縦波の場合

変位を $\mathbf{u} = (0, 0, u_3)$, $u_3 = e^{j(\omega t - kx_3)}$ とおく. 平面波なので, 面内方向は一様であり $\frac{\partial}{\partial x_1} = 0, \frac{\partial}{\partial x_2} = 0$ となる. よって発生するひずみは $S_3 = \partial u_3 / \partial x_3$ のみである. 式 (3.4.6) より, S_3 によって D_3 が発生する,

$$D_3 = \kappa_{33}E_3 + e_{33}S_3. \quad (3.4.7)$$

第 2 項の電束密度の圧電効果成分は, 電磁場を介して弾性場に影響を与える. そこで, 次に Maxwell 方程式を解く.

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t}, \quad (3.4.8)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}. \quad (3.4.9)$$

ここで, \mathbf{H}, μ はそれぞれ磁場, 透磁率を表す. D_3 成分について解くと, $\partial D_3 / \partial t = 0$ となり, D_3 は時間的に変化しないことになる. 今は時間変化に着目しているので, $D_3 = 0$ としてよい. 式 (3.4.7) より,

$$E_3 = -\frac{e_{33}}{\kappa_{33}} S_3 \quad (3.4.10)$$

となる. これを式 (3.4.5) に代入すると,

$$\sigma_3 = \left(C_{33} + \frac{e_{33}^2}{\kappa_{33}} \right) S_3 \quad (3.4.11)$$

となり, 圧電効果によって見かけの弾性定数が増加する (各物性値の報告値⁹⁷⁻⁹⁹を用いると, 約 3% の増加である).

(ii) 横波の場合変位を $\mathbf{u} = (0, u_2, 0)$, $u_2 = e^{j(\omega t - kx_3)}$ とおく. このとき, 発生するひずみは $S_4 = \frac{\partial u_2}{\partial x_3}$ である. 式 (3.4.6) より, S_4 によって D_2 が発生する,

$$D_2 = \kappa_{11} E_2 + e_{15} S_4. \quad (3.4.12)$$

式 (3.4.9) の Maxwell 方程式と式 (3.4.12) から,

$$\frac{\partial H_1}{\partial x_3} = \kappa_{11} \frac{\partial E_2}{\partial t} + e_{15} \frac{\partial S_4}{\partial t} \quad (3.4.13)$$

と求まる. 時間で微分すると,

$$\frac{\partial^2 H_1}{\partial t \partial x_3} = \kappa_{11} \frac{\partial^2 E_2}{\partial t^2} + e_{15} \frac{\partial^2 S_4}{\partial t^2} \quad (3.4.14)$$

となる. また, 式 (3.4.8) の両辺を x_3 で微分すると,

$$\frac{\partial^2 H_1}{\partial t \partial x_3} = \frac{1}{\mu} \frac{\partial^2 E_2}{\partial x_3^2} \quad (3.4.15)$$

となる. 式 (3.4.14) と式 (3.4.15) より,

$$\frac{\partial^2 E_2}{\partial t^2} - \frac{1}{\mu \kappa_{11}} \frac{\partial^2 E_2}{\partial x_3^2} = \frac{e_{15}}{\kappa_{11}} \frac{\partial^2 S_4}{\partial t^2} \quad (3.4.16)$$

を得る. この式の左辺は E_2 に関する波動方程式であり, その源が右辺のひずみであることを意味する. ひずみは $S_4 = S_0 e^{j(\omega t - kx_2)}$ の形をとるので, 上式の特殊解として $E_2 = E_0 e^{j(\omega t - kx_2)}$ を考えると,

$$E_0 = -\frac{\mu e_{15} v^2}{1 - \mu \kappa_{11}^S v^2} S_0, \quad v = \frac{\omega}{k} \quad (3.4.17)$$

となる. これを式 (3.4.5) に代入すると,

$$\sigma_4 = \left(\frac{\mu e_{15}^2 v^2}{1 - \mu \kappa_{11}^S v^2} + C_{44} \right) S_4. \quad (3.4.18)$$

となる. したがって, 見かけ上の弾性定数が圧電効果によって変化する. しかし, 各物性値を代入してみると, 圧電性による弾性定数の変化量は C_{44} に比べ 10 桁以上も小さい. し

たがって、この場合圧電性は横波平面波の伝播にほとんど影響せず、有効弾性定数は通常の弾性体の弾性定数と見なすことができる。

以上から、縦波および横波平面波による板厚共振を考えると、それぞれの弾性定数は、板厚 d 、密度 ρ 、共振モードの次数 n 、共振周波数 $f_{L,S}$ を用いて次のように書ける：

$$C_{33} = \frac{4d^2 \rho f_L}{n^2} - \frac{e_{33}^2}{\kappa_{33}}, \quad (3.4.19)$$

$$C_{44} = \frac{4d^2 \rho f_S}{n^2}. \quad (3.4.20)$$

3.4.2 Debye 型緩和モデル

本研究では、高抵抗 GaN の熱活性伝導に関係する電子準位を、音響減衰（内部摩擦）を通じて計測した。緩和型のエネルギー損失に起因する内部摩擦 Q^{-1} は、以下の Debye 型の緩和モデルで表される：^{91,100}

$$Q^{-1} = \frac{e^2}{C\kappa} \frac{\omega\tau}{1 + (\omega\tau)^2}. \quad (3.4.21)$$

ここで、 e, C, κ は、それぞれ各振動モードにおける圧電定数、弾性率、誘電率の有効値である。 ω は超音波の角周波数である。 τ は熱活性伝導の緩和時間であり、 $\tau \propto \exp(E/k_B T)$ で表される。ここで、 E は熱活性伝導の活性化エネルギーである。 Debye 型緩和の内部摩擦 Q^{-1} は、 $\omega\tau = 1$ で最大ピークを示すので、このピークから緩和時間を決定することができる。

3.5 熱活性伝導の電子トラップ準位

3.5.1 準横波共鳴を用いた内部摩擦計測

Hutson らは、圧電半導体中を伝播する弾性波の内部摩擦から、熱活性伝導キャリアの緩和時間の評価が可能であることを示した。¹⁰⁰ 式 (3.4.2) で示したように、GaN は 3 つの独立な圧電定数を有する。 Adachi らの報告によると、 e_{33} は他の成分より 1 桁ほど大きい。⁹⁷ よって、 e_{33} が直接関連する縦波の板厚共鳴（式 (3.4.19)）について、Debye 型緩和式 (3.4.21) を適用すると、熱活性伝導を調べるのに適しているように思える。しかし、このアプローチでは上手くいかない。 ATAR 法では、自由振動の励起と検出には試料の圧電性が必要である。しかし、熱活性によって電子の伝導性が発現すると、GaN の有効圧電性が消失してしまう。 Figure 3.5.1(a) に、温度を変えて計測した縦波の板厚共鳴スペクトルを示す。熱活性伝導により、温度上昇とともに共鳴ピークの検出強度が減少していき、 ~ 430 K

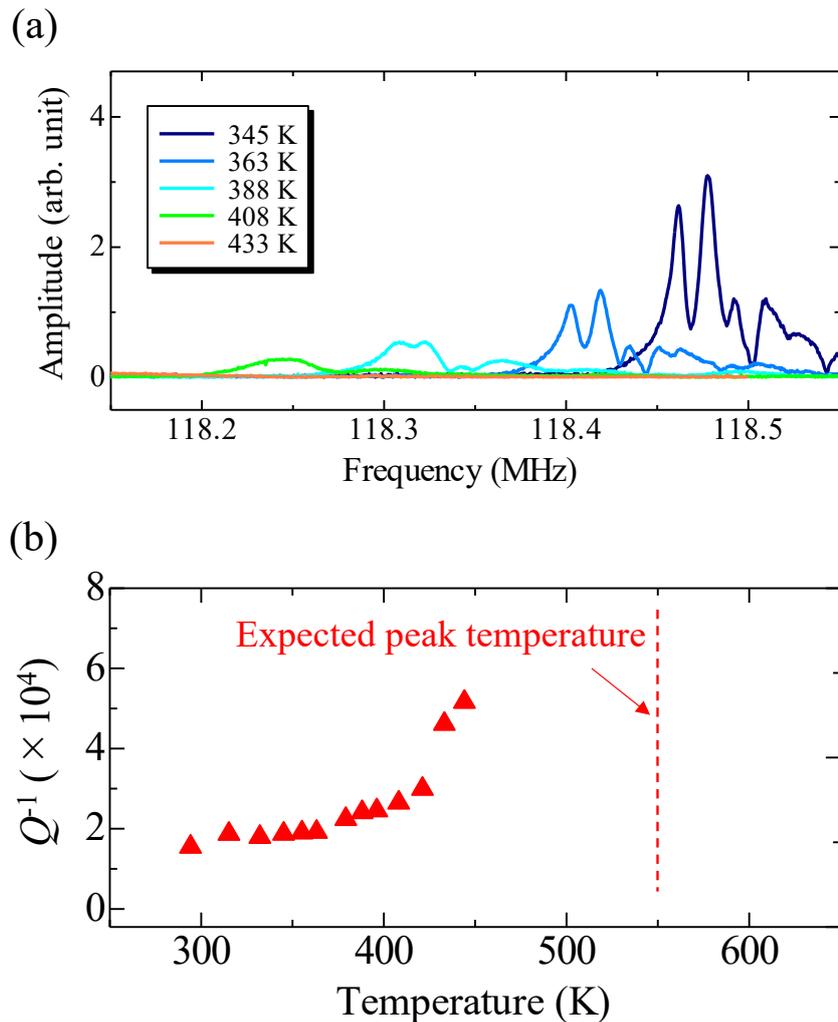


Fig. 3.5.1 (a) Measured resonance spectra of the longitudinal mode at various temperatures and (b) their internal friction. The red dashed line indicates the expected internal-friction peak of the mode.

以上で検出できなくなった(ただし, 温度上昇に伴う検出強度の減少は, 熱活性伝導の他にも内部摩擦の増加による影響も含まれている. この点については, 後の節(3.6 高温弾性定数)で議論する.). その結果, Fig. 3.5.1(b)に示すように, 共鳴ピークの消失温度以上で内部摩擦を計測することはできず, 内部摩擦ピークから緩和時間を決定することができない. 尚, 後に決定する活性化エネルギーを用いてこの共鳴モードの内部摩擦ピーク温度を計算すると 550 K と見積もられる.

次に, 横波の板厚共鳴に着目する. 式(3.4.20)で示したように, これらの共鳴モードは圧電性に依存しない. すなわち, これらの横波共鳴は, 圧電定数の e_{15} 成分を介して振動を

励起できるものの、熱活性伝導には無関係であり、内部摩擦も発現しない。よって、横波共鳴に対して Debye 型緩和式を適用して熱活性伝導現象を調べることはできない。

以上までの議論をまとめる。熱活性伝導を内部摩擦を通じて調べるには、(i) 内部摩擦を正確に計測しなければならず、非接触計測である ATAR 法を用いる必要がある。(ii) そのためには、熱活性伝導の寄与が大きい C_{33} に関係した共鳴モードを計測する必要があるが、(iii) 高温での計測時に熱活性伝導による圧電性の消失を抑えなければならない。このような複雑な要件を満たさなければ、熱活性伝導による内部摩擦を計測することができない。この問題を克服するため、本研究で準横波を使用した内部摩擦計測法を提案する。前節で導いた板厚共鳴周波数と弾性定数の関係式は、無限遠領域を伝播する平面波を仮定している。しかし、実際の試料は有限の大きさを持っており、境界の影響から完全な平面波共鳴は発現しない。つまり、実際の横波共鳴には C_{33} のように、圧電性の影響を強く受ける弾性定数成分が関与することになる。これを準横波共鳴と定義した。

準横波板厚共鳴の存在を確かめるため、共鳴周波数における C_{44} の影響度を調べる。共鳴周波数は弾性定数によって決まるが、各弾性定数が均一に依存するのではなく、共鳴モードごとに弾性定数の重み付けが異なる。その影響を調べるために、貢献度という量を導入し、各弾性定数が共鳴周波数にどれだけ影響するのかを定量的に評価する。以下で貢献度の導入過程を示す。一般に、弾性波の周波数の 2 乗は弾性定数に比例する。そこで、合理的な仮定として、共鳴周波数の 2 乗は弾性定数の各成分に比例すると考える:¹⁰¹

$$f^2 = \sum_m a_m C_m. \quad (3.5.1)$$

ここで、 C_m は独立な弾性定数であり、 a_m は弾性定数の重み係数である。 m は弾性定数の成分を表す ($m = 11, 12, 13, 33, 44$)。両辺を C_m で微分すると、係数が $a_m = 2f(\partial f / \partial C_m)$ と求まる。これを式 (3.5.1) に代入し、両辺を f^2 で割ると次式を得る:

$$1 = \sum_m \frac{2f}{C_m} \frac{\partial f}{\partial C_m}. \quad (3.5.2)$$

よって、各弾性定数の共鳴周波数に対する貢献度を次式で定義する:

$$\text{Contribution} := \left| \frac{2f}{C_m} \frac{\partial f}{\partial C_m} \right|. \quad (3.5.3)$$

これを用いて、横波共鳴での貢献度を計算する。

本研究では、振動の励起用アンテナとグランドアンテナを試料の面内方向と平行に配置した。この場合に励起できる共鳴モードは、面内方向 (x_1 方向) の変位 u_1 が板厚方向 (x_3 方向) に対して奇関数であり、 x_1 および x_2 方向に対して偶関数となるモードである。具体例として、1 次モードの模式図を Fig. 3.5.2(a) に示す。これらの共鳴は、 B_{2g} の振動グ

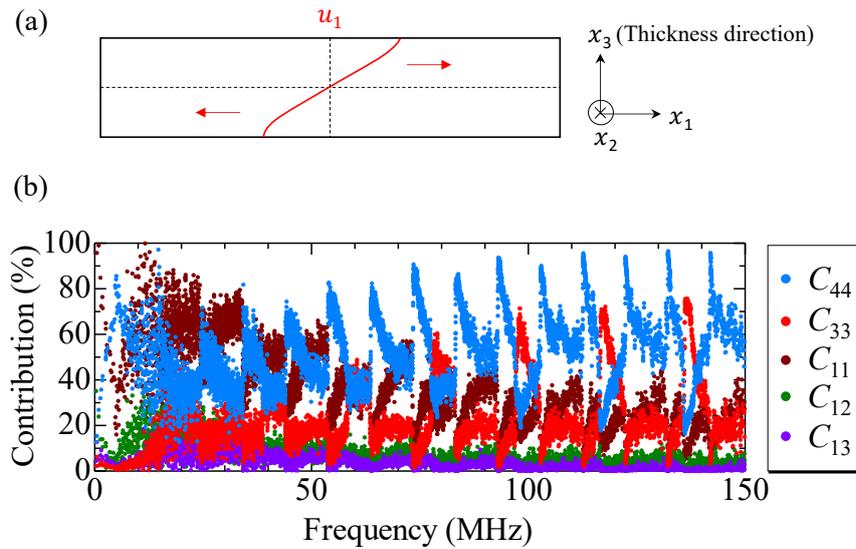


Fig. 3.5.2 (a) Schematic diagram of the first-order shear-plane-wave resonance mode. u_1 denotes the displacement along the x_1 direction. (b) Contribution of each C_{ij} for B_{2g} modes.

ループに属する共鳴モードである。Figure 3.5.2(b) に、 B_{2g} モードにおける各弾性定数の貢献度を示す。尚、弾性定数を 1% 変化させたときの共鳴周波数差を用いて貢献度を計算した。高周波数ほど C_{44} の貢献度が高くなる傾向を示した。これは、超音波の波長が短くなり理想的な横波共鳴に近づくためだと考えられる。具体的に調べると、横波平面波共鳴の 27 次モードに相当する 132 MHz 付近では、 C_{44} と C_{33} の貢献度は、それぞれ $\sim 95\%$ 、 $\sim 2\%$ である。このような横波共鳴は純粋な平面波共鳴ではなく、先に述べた準横波共鳴に相当する。Figure 3.5.3(a) に示すように、このモードの共鳴ピークは 600 K 以上でも計測可能である。また、ATAR 法による高精度な内部摩擦測定により、 C_{33} の貢献度がわずかであるにも関わらず、500–600 K 付近の小さな内部摩擦ピークの明確な計測に成功した (Fig. 3.5.3(b))。高温になるにつれて、共鳴ピーク強度が低下していったが、これは Fig. 3.5.3(c) に示すように熱活性伝導による圧電性の消失が原因である。

Figure 3.5.4(a) に示すように 0.6–150 MHz の広い周波数範囲で準横波共鳴モードの内部摩擦の温度依存性を計測し、Fig. 3.5.4(b) に示すように各温度における緩和時間 τ を求めた。Arrhenius プロットから熱活性伝導の活性化エネルギーを計算すると、 0.54 ± 0.04 eV と求めた。ATAR 法を用いた過去の報告値は 0.23 eV であり、⁹¹ 本研究で求めた値はこれと大きく異なった。先行研究では、計測した周波数帯が 0.5–15 MHz と狭く、Arrhenius プロットの傾きを正確に決定できていなかったと考えられる。本研究は 10 倍

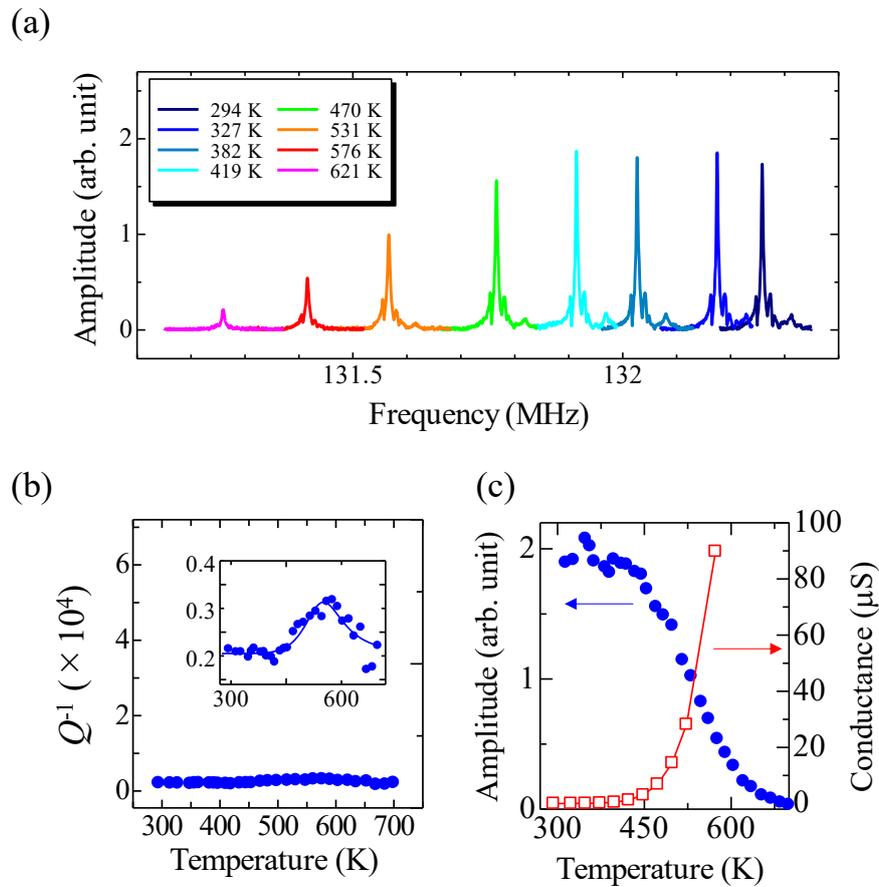


Fig. 3.5.3 (a) Measured resonant spectra of the quasi-shear resonance mode at various temperatures and (b) their internal friction. The inset shows the enlarged figure. The blue solid line is fitted Eq. 3.4.21. (c) Temperature dependence of the conductance (red open squares) and the resonance peak amplitude of the quasi-shear resonance mode (blue solid circles).

広い周波数帯の内部摩擦を計測しているため、新たに決定した活性化エネルギーの方が正しい値だと考えられる。

ここで、伝導率の温度依存性から活性化エネルギーを計測するような他手法¹⁰²⁻¹⁰⁴と比較したときの、ATAR法の利点について述べる。ATAR法を用いると、複数の緩和メカニズムが存在する場合に、それぞれの活性化エネルギーを個別に計測することが可能である。なぜなら、1つの緩和過程は1つの内部摩擦ピークと対応するため、複数メカニズムが存在する場合は内部摩擦ピークが複数発現するからである。一方で、伝導率測定では温度と伝導率の単調で滑らかな対応関係しか得られず、このような計測データに対して複数の活性化エネルギーを精度よく決定することは難しい。したがって、ATAR法は高抵抗 GaN の

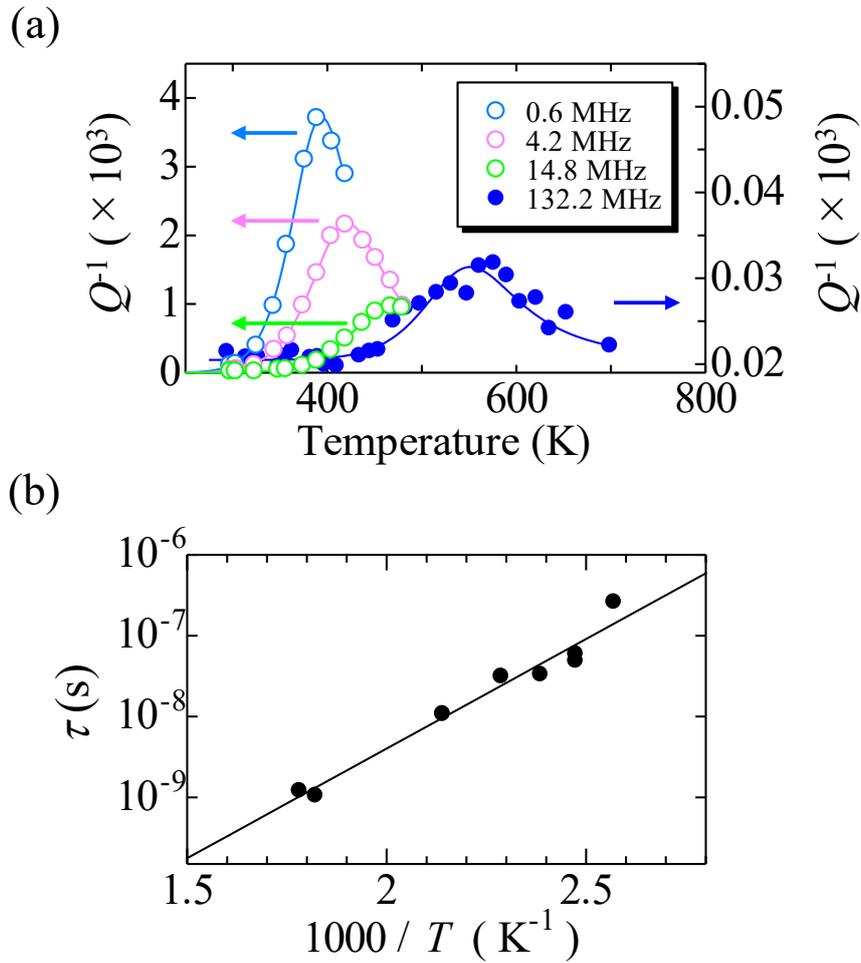


Fig. 3.5.4 (a) Temperature dependence of internal friction of various quasi-shear resonance modes. Solid lines represent the theoretical internal friction based on the Debye-type relaxation form of Eq. 3.4.21. (b) Relationship between the relaxation time and temperature. The activation energy of 0.54 eV is obtained from its slope.

熱活性特性を調べるのに適した手法である。

3.5.2 考察

決定した活性化エネルギーについて考察する。Fe ドープ GaN のトラップ準位に関して、様々な先行研究がある。Kordoš らは、伝導率と Hall 効果測定を用いて 0.58–0.60 の活性化エネルギーを示した。¹⁰⁵ Polyakov らは、光誘起電流過渡分光法を用いて 0.5 eV のトラップ準位を示した。¹⁰⁶ 密度汎関数理論による計算でも、Fe 原子は Ga 原子を置換し、

$E_c - 0.5$ eV にトラップ準位を形成することが示唆されている (E_c は伝導帯端).^{107,108} 尚, このトラップ準位は E_3 トラップと名付けられている. 近年, Horita らは Fe の密度と E_3 トラップ密度に強い相関があることを見出し, E_3 トラップの起源が Ga サイトを置換した Fe によるものであることを示唆した.¹⁰⁹ 以上を踏まえると, 本研究で計測した熱活性伝導で発現する 0.54 eV の活性化エネルギーは, Fe にトラップされた準位と伝導帯端の間をホッピングする電子の遷移に相当するものだと考えられる.

3.6 高温弾性定数

GaN の高温弾性定数について述べる. ATAR 法で計測した各温度の共鳴周波数から, C_{33} および C_{44} の高温弾性定数を決定することができる. しかし, その他の弾性定数 (C_{11}, C_{12}, C_{13}) を求めることはできない. そこで, RUS 法を組み合わせ GaN の独立なすべての弾性定数を決定した. 本研究で使用した GaN の試料は厚さ方向に薄いため, RUS 法において観測される 1 MHz 付近の共鳴周波数は, 主に曲げや面内ねじりなど面内変形に関わる共鳴モードであり, 面外弾性定数 (C_{33}, C_{44}) に対する貢献度が小さく, 決定精度が低い. 一方で, これらの面外弾性定数は ATAR 法で独立に決定することができる. したがって, ATAR 法と RUS 法を組み合わせることで, GaN のすべての独立な弾性定数を高精度に決定することができる.

C_{33} および C_{44} は, それぞれ式 (3.4.19), 式 (3.4.20) から計算することができる. C_{33} および C_{44} は, それぞれ 12 次モード (~ 118 MHz), 27 次モード (~ 132 MHz) の共鳴周波数を用いて決定した. 両者とも貢献度は $\sim 95\%$ である. 前節においては, 横波の板厚共鳴が完全な横波でないことによる, 他の弾性定数のわずかな貢献 ($< \sim 1\%$) を利用した. 本節においては, 弾性定数を決定することが目的であり, その精度は一般に 1% 程度の誤差は許容されるため, これらのモードから直接 C_{33} や C_{44} を決定してもその誤差は十分小さい. 解析には, 報告値の圧電定数⁹⁸ と誘電率⁹⁹ を使用した. これらの温度依存性については考慮しない. これらの弾性定数に対する貢献度はそもそも小さく ($< \sim 1\%$), それらの温度依存性が弾性定数の温度依存性に与える影響は無視することができるためである. 試料の熱膨張による体積変化と密度変化は, 報告されている格子定数の温度変化⁹⁶ を用いて考慮した. また, 熱活性伝導による圧電性の消失により, C_{33} は 444 K, C_{44} は 700 K までしか計測できない. そこで, 計測限界温度を超えた場合の弾性定数は, Varshni が提案した弾性定数の温度依存性の理論式¹¹⁰ による外挿により推定した. RUS の逆計算では, ATAR で決定した C_{33} と C_{44} を既知して解析する. 本来は外挿値を使用して解析するべきではないが, 今回の場合はそれほど影響しない. これは, RUS 法において使用する共鳴モードに対する面外弾性定数 (C_{33}, C_{44}) の貢献度が低いため, 他の弾性定数 (C_{11}, C_{12}, C_{13}) の

逆解析値にほとんど影響しないためである。

決定した弾性定数を Fig. 3.6.1 および Table 3.6.1 に示す。 C_{33} と C_{44} の黒破線は、Varshni の式によるフィッティング曲線を表す。その他の弾性定数に示した赤い三角プロットは、 C_{33} および C_{44} の計測できた最高温度値で固定したときの逆解析値を示す。面外弾性定数の貢献度が低いいため、これらの値は外挿値で逆解析した場合（黒丸プロット）とほとんど差がない事が分かる。RUS 法の計測では、400 K 前後で熱活性伝導による試料の内部摩擦が顕著になるため、共鳴周波数を計測できなかった。したがって、弾性定数に空白の温度域が生じている。

最後に、縦波共鳴の熱活性伝導と弾性定数の温度依存性について議論する。 C_{33} の弾性定数の温度係数 $((dC_{ij}/dT)/C_{ij})$ が、熱活性伝導が関与しない C_{44} に比べて大きかった。弾性定数が大きいほど、原子間の結合力が強いことを表すため、定性的には大きな弾性定数ほど温度係数の絶対値が小さいと考えられる。報告されている六方晶の単体金属 (Ti, Zr, Hf, Mg, Y) の各温度の弾性定数¹¹¹⁻¹¹³ と、それらから計算した温度係数を Table 3.6.1 に示す。実際に、弾性定数の大きな C_{33} の温度係数が、弾性定数の小さな C_{44} の温度係数に比べて小さいことが分かる。そこで、本研究の解析時に、高温域で圧電性が C_{33} に与える影響を過大に見積もっていた可能性を考えた。Figure 3.5.3(c) に示したように、熱活性伝導により温度が上がるほど GaN の圧電性は消失する。つまり、 C_{33} の値を実際の値より小さく見積もっていた可能性がある。ただし、式 (3.4.19) の第 2 項の補正を考慮せずに C_{33} を計算すると 400.5 GPa となり、これは圧電性の影響を引いた室温値 391.0 GPa を超えるため、444 K では圧電性が完全には消失していない。したがって、縦波共鳴において 444 K 以上で共鳴ピークを検出できなかった理由は、熱活性伝導による圧電性の低下の他にも、内部摩擦の増加によるピーク幅の広がりが原因だったと考えられる。また、ウルツ鉱構造を有する AlN と InN について、それらの各温度での弾性定数の報告値^{114,115} から計算した温度係数を Table 3.6.1 に示す。AlN, InN ともに C_{33} の方が C_{44} の温度係数より大きい。よって、 C_{33} の大きな温度係数は、ウルツ鉱構造特有の性質だと考えられる。

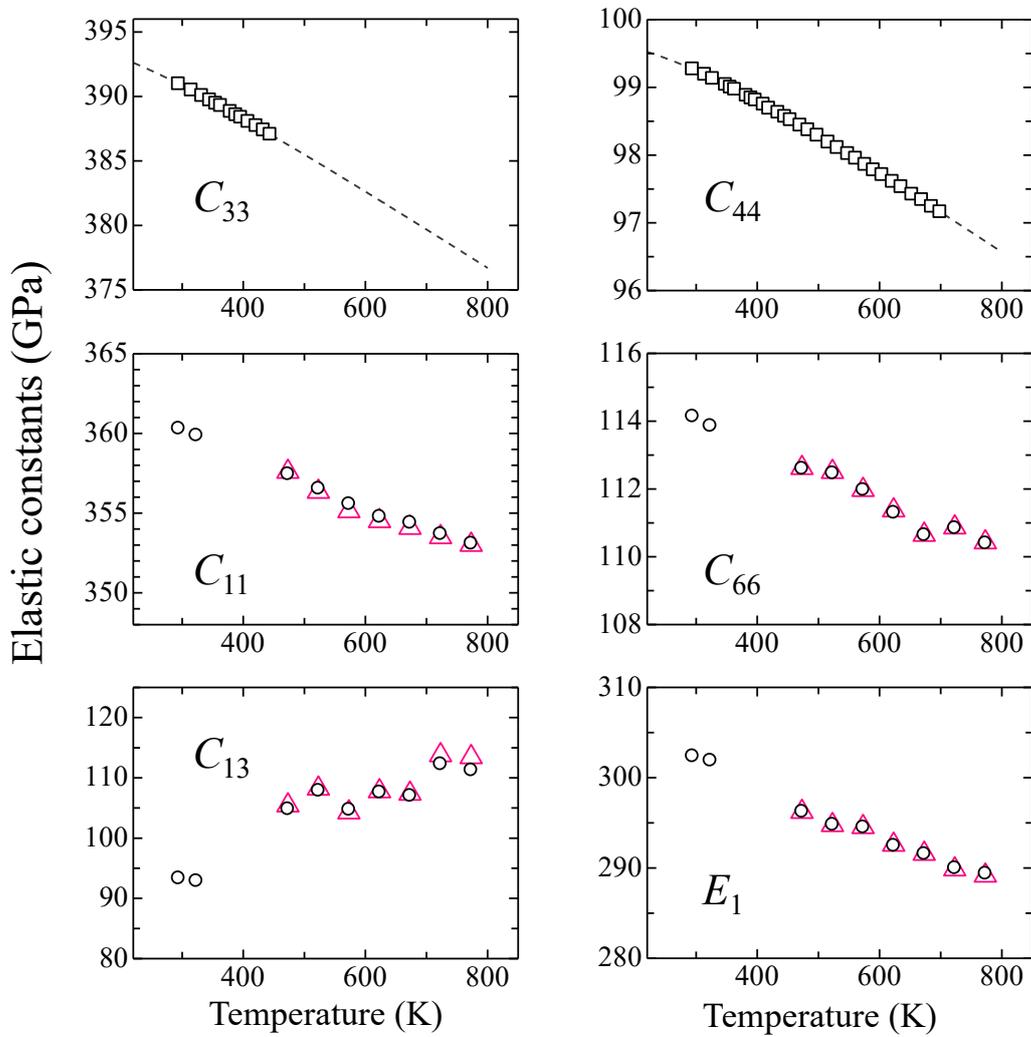


Fig. 3.6.1 Temperature dependence of the elastic constants of GaN. The black squares in C_{33} and C_{44} are obtained by the ATAR method, and dashed lines indicate fitted theory based on Varshni's equation. The black circles show the in-plane elastic constants (C_{11} , C_{66} , C_{13} , and E_1) inversely determined using C_{33} and C_{44} values from Varshni's theory. The red triangles show those determined by fixing the C_{33} and C_{44} values at their maximum temperatures.

Table 3.6.1 Elastic constants C_{ij} (GPa) (upper row) and the temperature coefficients $(dC_{ij}/dT)/C_{ij}$ (ppm/K) (lower row) around room temperature of wurtzite GaN and other materials.

	C_{33}	C_{44}	C_{11}	C_{13}	C_{66}	E_1
GaN (This work)	391.0	99.3	360.3	93.4	114.1	302.4
	-72	-54	-43	418	-71	-93
AlN ¹¹⁴	386.1	127.4	412.6	118.8	143.0	354.5
	-61	-42	-49	-25	-55	-57
InN ¹¹⁵	221.6	48.0	223.1	92.0	54.1	153.1
	-104	-37	-104	-133	-78	-84
Ti ¹¹¹	180.7	46.7	162.4	69.0	35.2	104.4
	-219	-418	-345	65	-1033	-875
Zr ¹¹¹	164.8	32.0	143.4	65.3	35.3	99.6
	-219	-422	-334	29	-967	-794
Hf ¹¹¹	196.9	55.7	181.1	66.1	52.0	139.9
	-154	-314	-201	17	-470	-362
Mg ¹¹²	61.60	16.40	59.40	21.44	16.90	45.60
	-341	-599	-302	-69	-477	-426
Y ¹¹³	76.9	24.3	77.9	21	24.71	65.0
	-146	-406	-241	571	-340	-350

第4章

OVPE GaN の弾性定数計測

4.1 Oxide vapor phase epitaxy (OVPE) 法

OVPE 法は Ga_2O と NH_3 の反応を利用した気相成長法であり、大阪大学の森勇介教授のグループによって開発された GaN の結晶成長法である。⁴⁷⁻⁴⁹ この手法の GaN の生成反応式は、次式である:



この成長手法では、固体の副生成物を生じない。現在の GaN 基板作製の主流である HVPE 法では、GaN の生成過程における副反応で、固体の塩化アンモニウム NH_4Cl が生じてしまう。これが装置の排気管を閉塞してしまい、厚膜成長を阻害してしまうという課題を抱えていた。したがって、OVPE 法はバルク結晶成長のポテンシャルを有した手法である。

OVPE 法で作製した GaN には高濃度 ($> 10^{20} \text{ cm}^{-3}$) の酸素不純物が含まれてる。^{48, 49} GaN 中の酸素はドナーとして働くことから、OVPE 法を使用することで低抵抗 ($\sim 10^{-4} \Omega \text{ cm}$) な GaN 自立基板を作製することができる。本研究では、この高い酸素不純物が GaN の弾性特性に及ぼす影響を実験的に明らかにする。

4.2 試料

OVPE 法で作製した直方体形状の GaN の弾性定数を計測した。試料面内の辺々の長さは、3.503 mm, 3.002 mm である。試料の厚さは 0.289 mm である。厚さ方向は結晶の c 軸方向と平行である。試料寸法から計算した体積と質量から計算した密度は 6032 kg/m^3 であり、報告されている格子定数から計算した理論密度 (6081 kg/m^3)⁹⁶ と比べ

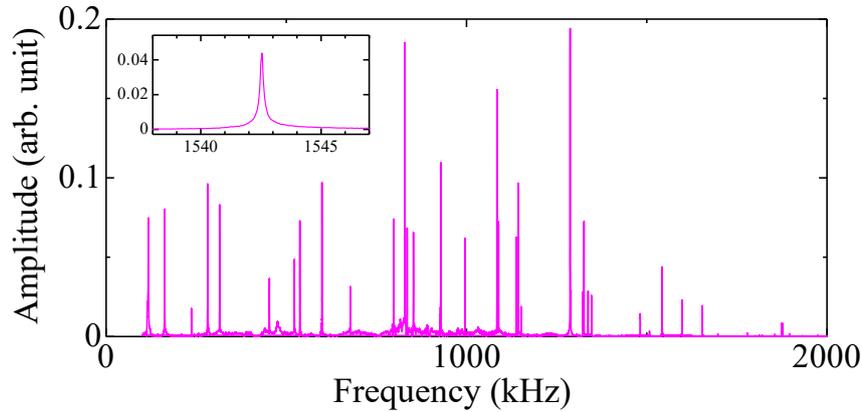


Fig. 4.3.1 Measured resonant spectrum of the specimen. The inset shows an enlarged view of one resonance peak.

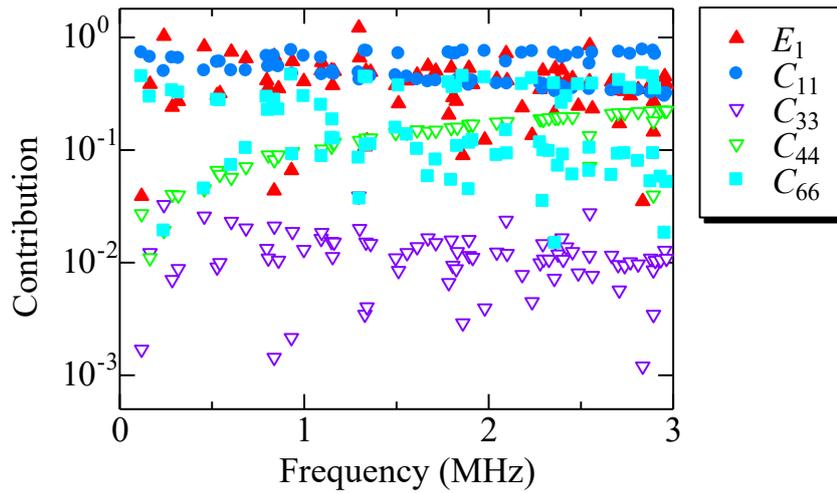


Fig. 4.3.2 Contributions of elastic constants C_{ij} and the in-plane Young's modulus E_1 to resonance frequencies calculated for the OVPE GaN specimen.

て1%以内の誤差で一致した。抵抗率と酸素濃度は、それぞれ $7.75 \times 10^{-4} \Omega \text{ cm}$ および $4.3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ である。

4.3 弾性定数計測

RUS法を用いて、OVPE GaNの室温での弾性定数を計測した。計測スペクトルをFig. 4.3.1に示す。また、本試料は酸素濃度が高くキャリア濃度が大きいことから、RUS法で

弾性定数を計測する際に圧電性が弾性定数に与える影響を無視することができる。GaN は厚膜成長させることが難しく、本研究で使用した GaN の厚さは面内寸法に比べて 10 分の 1 程度である。前章で議論したように、このような試料を RUS を用いて計測する場合、板厚方向の弾性定数の決定精度が悪くなる。弾性定数が共鳴周波数に与える影響を定量的に評価するため、式 (3.5.3) で定義した貢献度を Fig. 4.3.2 に示す。今回の試料においても、 C_{33} の貢献度は低く、RUS 法により正確な値を決定することができない。そこで、180 MHz のパルス超音波を用いる走査型超音波顕微鏡によって、厚さ方向に伝播する超音波の往復時間を計測し、試料厚と往復時間から C_{33} を独立に決定したところ、392.1 GPa と求まった。他の 4 つの弾性定数については RUS 法で 46 本の共鳴周波数を計測し、逆計算によって決定した。この弾性定数から計算した共鳴周波数と、実験で計測した共鳴周波数の二乗平均平方根誤差は、0.16% であった。決定した弾性定数を Table 4.3.1 に示す。また、同表には報告されている GaN の弾性定数の実験値も示した。¹¹⁸⁻¹²⁵ 表に示した HVPE GaN の値は、前章で示した RUS 法による計測値である。文献値にばらつきがあるが、これは試料の結晶性や計測法の測定精度が原因だと考えられる。本研究で計測した OVPE GaN や HVPE GaN の値は、文献値の平均値と近い値を取っている。

次に、酸素不純物が弾性定数に与える影響を考察する。GaN の弾性定数の文献値にはばらつきがあるため、OVPE GaN に含まれている高酸素不純物が弾性定数に及ぼす影響を、単純に文献値と比較することでは調べることができない。しかし、前章で計測した HVPE GaN に限り比較可能である。両試料とも RUS 法で弾性定数を計測しており、試料のアスペクト比も近い。よって、各弾性定数の貢献度も同程度であることから、貢献度の高い弾性定数間の比較が可能である。本試料は面内方向に広く、厚さ方向が薄いため、面内弾性定数 (E_1, C_{66}, C_{11}) の貢献度が高い。そこで、これらの弾性定数を HVPE GaN と比較すると、 E_1 は 1.8% 低下、 C_{66} は 1.3% 低下、 C_{11} は 0.4% 増加することが分かった。

4.4 密度汎関数計算による弾性定数予測

酸素不純物が弾性定数に与える影響を考察するため、密度汎関数理論 (Density Functional Theory: DFT) を用いて、酸素不純物が含まれている場合の弾性定数を計算した。計算には、VASP (the Vienna *ab initio* simulation package)¹²⁶ を使用した。交換相関エネルギーとして局所密度近似 (Local Density Approximation: LDA) を用いると、GaN の弾性定数を実験値と近い値で計算できるため、¹²⁷ これを使用した。酸素不純物の導入方法として、窒素サイトとの置換 (O_N) を仮定した。この置換は GaN の酸素不純物として一般的な置換タイプである。^{128, 129}

計算には、合計で 72 個の原子から構成される $3 \times 3 \times 2$ のスーパーセルを用いた。この

Table 4.3.1 Elastic constants C_{ij} (GPa), in-plane Young modulus E_1 (GPa), mass density ρ (kg/m³), and Debye temperature Θ_D (K) of wurtzite GaN.

Sample (fabrication (or company), Shape) / method	C_{11}	C_{12}	C_{13}	C_{33}	C_{44}	C_{66}	E_1	ρ	Θ_D ^{*1}	Θ_D ^{*2}
OVPE, bulk / RUS (This work)	361.9	136.7	111.0	392.1	94.4	112.6	296.9	6032	625	621
HVPE, bulk / RUS ¹¹⁸	360.3	132.1	93.4	391.0	99.3	114.1	302.3	6080	636	633
Mitsubishi, bulk / RUS ¹¹⁹	359.4	129.2	92.0	389.9	98.0	115.1	303.5	6070	635	631
Chloride vapor phase transport, bulk / RUS ¹²⁰	377	160	114	209	81.4	109	284	6102	569	584
Ammonothermal, bulk / Bulk acoustic waves ¹²¹	366.9	135	97.5	398.1	99.1	116.0	307.0	6087	638	634
Not specified, needle like single crystal / Brillouin ¹²²	390	145	106	398	105	123	324	6095	653	653
MOCVD, thin film / Brillouin ¹²³	365	135	114	381	109	115	300	6089	642	657
MOCVD, thin film / Brillouin ¹²⁴	374	106	70	379	101	134	337	N/A	660 ^{*3}	650 ^{*3}
Kyma, bulk / SAW ¹²⁵	345	128	129	430	96.5	109	280	5986	623	623
Literature statistics										
Mean	367	134	102	372	99	117	305	6073	632	633
Std. dev. (%)	3.7%	11.5%	17.6%	18.2%	8.2%	7.1%	6.2%	0.7%	4.4%	3.6%

*1 Debye temperature calculated by Anderson's method.¹⁰

*2 Debye temperature calculated by Siethoff's method.¹³⁷

*3 $\rho = 6081$ kg/m³ is assumed for the calculation.

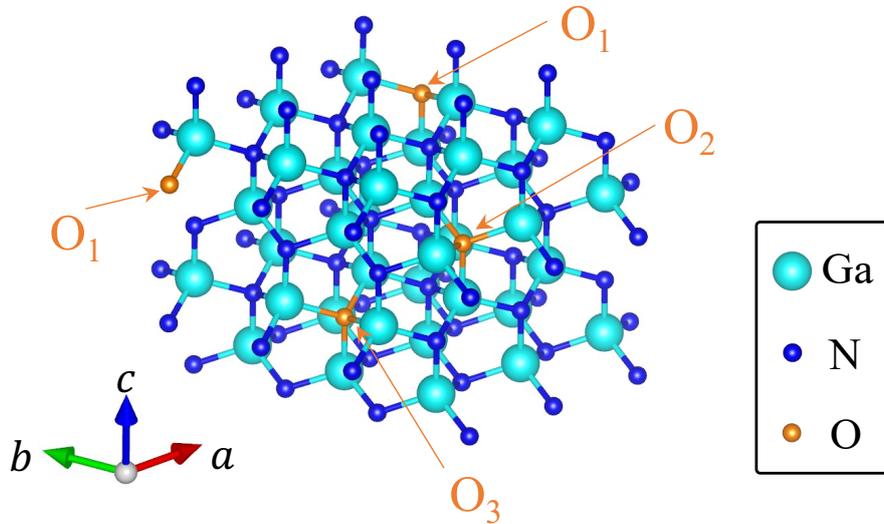


Fig. 4.4.1 Supercell of wurzite GaN with substitution of oxygen to nitrogen sites.

中の N 原子を O 原子で最大 3 個まで置換して、酸素不純物を導入した。Figure 4.4.1 に、酸素原子を 3 個導入した場合の図を示す (VESTA を用いて描画した¹³⁰)。酸素原子が 2 個, 1 個, 0 個の場合は, それぞれ O₃, O₂ および O₁ の酸素を窒素と置換することで作成した。カットオフエネルギーおよび k 点メッシュは, それぞれ 500 eV, $3 \times 3 \times 4$

とした。

弾性定数は次の手順で計算した。初めに、体積、形状、原子位置を変えて構造最適化計算を行い、平衡状態における結晶構造を決定した。次に、その構造をもとにスーパーセル内に $\pm 1\%$ までのひずみを加えることで様々な変形状態を考え、それらの全エネルギーの変化量を計算した。この変化量に対して、式 (4.4.1) に示すひずみ・エネルギー曲線の曲率を対応させることで弾性定数を計算した。

物質を平衡状態から弾性変形させると、そのひずみ状態を形成するための外力の仕事により、系の全エネルギー E が増加する。全エネルギーを体積 V とひずみ ϵ の関数として表し、平衡状態まわりで展開すると、Voigt 表記した全エネルギーは次式となる:¹³¹

$$E(V, \epsilon) = E(V_0, \epsilon) + V_0 \left(\sum_I \tau_I \epsilon_I \xi_I + \frac{1}{2} \sum_{I,J} C_{IJ} \epsilon_I \epsilon_J \xi_I \xi_J \right). \quad (4.4.1)$$

ただし、ひずみの 3 次以上の高次項は無視した。ここで、 τ は残留応力である。 ξ は工学ひずみをひずみテンソルで記述するための係数である ($I = 1, 2, 3$ のとき $\xi_I = 1$, $I = 4, 5, 6$ のとき $\xi_I = 2$ をとる)。スーパーセル内にひずみ変形を加えた際には、セルの形状および体積は固定して計算した。

計算で求めた各不純物濃度における格子定数を Table 4.4.1 に示す。これらの計算値と実際の (HVPE GaN の) 格子定数 a, c の差は、酸素不純物がない場合はそれぞれ 0.10%, -0.02% であり、現実の格子定数と十分に整合した。また、酸素を 3 個置換した場合 ($[O] = 3.6 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$) の格子定数 a, c の差は、それぞれ 0.27%, -0.64% であった。酸素導入により、格子は a 軸方向に伸び、 c 軸方向に縮んだ。この傾向は、Table 4.4.1 に示したように、実際の OVPE GaN でも確認されている。

Figure 4.4.2 および Table 4.4.1 に、各濃度における弾性定数の計算値を示す。また、Table 4.4.1 には、計算で求めた弾性定数の報告値も示している。 C_{13} を除き、弾性定数は酸素濃度の増加とともに線形的に減少した。OVPE GaN の実際の酸素濃度 $4.3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ における E_1 および C_{66} の変化量は、両者とも -1.4% であり、実験で計測した弾性定数の減少量と近い値である。一方で、Fig. 4.3.2 に示したように、 C_{11} の貢献度は高く計測値の信頼性は高い。しかし、酸素濃度に対する傾向は DFT 計算の結果と矛盾した。実験では C_{11} は HVPE GaN と比べてわずかに増加したが、DFT 計算では C_{11} は酸素濃度の増加とともに減少した。Figure 4.4.2 に示したように、酸素不純物による E_1 および C_{66} の減少量は、 C_{11} と比べて大きい。よって、この酸素濃度に対する弾性定数の感度の違いが、実験で C_{11} の減少が現れなかった原因だと考えられる。Table 4.3.1 に示したように、実験で計測した弾性定数の他成分は、HVPE GaN と比べて異なっている。しかし、これらの弾性定数の共鳴周波数に対する貢献度は低いため、酸素不純物による影響であると断定

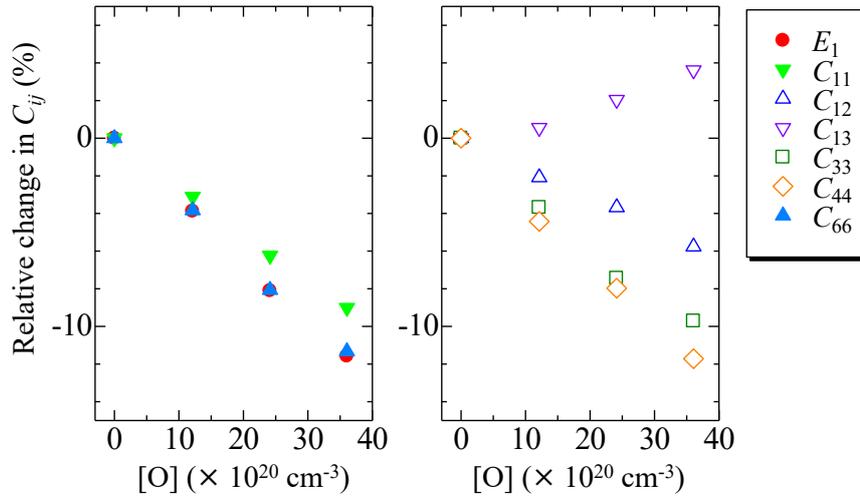


Fig. 4.4.2 Oxygen impurity effect on the elastic constants.

Table 4.4.1 Calculated elastic constants C_{ij} (GPa), in-plane Young modulus E_1 (GPa), and lattice constants a, c (Å) of wurtzite GaN. $[O]$ ($\times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$) denotes the oxygen impurity concentration.

	[O]	C_{11}	C_{12}	C_{13}	C_{33}	C_{44}	C_{66}	E_1	a	c	c/a
This work (calc. / LDA)	0	371	154	118	405	92	108	294	3.187	5.184	1.627
	12	360	151	118	390	88	104	283	3.191	5.197	1.629
	24	348	149	120	375	85	100	270	3.195	5.208	1.630
	36	338	146	122	365	81	96	260	3.198	5.219	1.632
$\frac{dC_{ij}}{d[O]} \times \frac{1000}{C_{ij}(0)}$ ($\times 10^{-20} \text{ cm}^3$)		-2.51	-1.57	1.03	-2.74	-3.22	-3.18	-3.24
Ref. ⁴⁸ (exp. / HVPE GaN)	3.1896	5.1854	1.6257
Ref. ⁴⁸ (exp. / OVPE GaN)	4.3	3.1899	5.1852	1.6255
Ref. ¹³² (calc. / LDA)	0	396	144	100	392	91	126	333	3.17	5.13	1.618
Ref. ¹³³ (calc. / LDA)	0	350	140	104	376	101	115	283	3.210	5.237	1.631
Ref. ¹³⁴ (calc. / LDA)	0	334	132	99	372	86	101	271	3.232	5.268	1.630

することは難しい。

4.5 Debye 温度

最後に、実験で計測した弾性定数から Debye 温度を計算した。弾性定数から Debye 温度を計算する方法は 2 つある。1 つは、Debye モデルから直接導出される Debye 温度の音速に、弾性定数から計算した平均音速を使用する Anderson の方法である。他方は、低温比熱で決定した Debye 温度と弾性定数の間に成り立つ経験式を基に Debye 温度を推定する

方法である。この方法は、Debye モデルにおける音速を見積もる必要がなく、弾性定数から直接 Debye 温度を計算できる。Debye 温度は計測法によってばらつきが生じることがあるため、¹³⁵ 本研究では GaN の Debye 温度をこの 2 手法で計算した。

初めに、Anderson の方法で計算する。Debye 温度は次の式で求まる：¹⁰

$$\Theta_D = \frac{h}{k_B} \left(\frac{3}{4\pi V_a} \right)^{1/3} v_m, \quad (4.5.1)$$

$$v_m = \left(\frac{1}{3} \left(\frac{2}{v_s^3} + \frac{1}{v_l^3} \right) \right)^{-1/3}. \quad (4.5.2)$$

ここで、 h および k_B はそれぞれ Planck 定数と Boltzmann 定数である。 V_a は 1 原子あたりの体積であり、 v_m は固体中の平均音速である。 v_s および v_l は、平均の横波および縦波音速であり、Hill 近似²⁰⁴ を適用することで求まる。計測した弾性定数をもとに、OVPE GaN の Debye 温度を計算すると $\Theta_D = 625$ K となる。比較のため、Table 4.3.1 に他の文献値から計算した Debye 温度を示す。弾性定数の報告値は、文献によってばらつきがあるため、Debye 温度も統一的な値が得られなかった。よって、酸素不純物による影響を調べるため、RUS で計測した HVPE GaN の弾性定数を使用して計算した Debye 温度 (636 K) と OVPE GaN の Debye 温度を比較する。

Debye 温度を計算する別の方法は、H. Siethoff と K. Ahlborn によって提案された、特定の結晶方向に伝播する横波音速に関するせん断弾性率の相乗平均を使用する方法である。Debye 温度は次に示す半経験式で計算できる：¹³⁷

$$\Theta_D = C_h \frac{h}{k_B} s^{-1/6} \sqrt{\frac{a G_h}{M}}, \quad (4.5.3)$$

$$G_h = \sqrt{C_{44} \sqrt{C_{44} \frac{C_{11} - C_{12}}{2}}}. \quad (4.5.4)$$

C_h は、様々な物質の Debye 温度と弾性定数を用いてフィッティングで求まる定数であり、 $C_h = 5.94 \times 10^{11}$ である。 s は単位胞内の原子数、 a は結晶の a 軸方向の格子定数、 M は 1 原子あたりの体積である。 G_h は、六方晶系の面内方向と面外方向に伝播する横波に関する、せん断弾性率の相乗平均である。OVPE GaN と HVPE GaN の Debye 温度を計算すると、それぞれ 621 K と 633 K である。

これら 2 手法で計算した Debye 温度は、完全ではないが数 K 以内の差で一致した。OVPE GaN の Debye 温度は HVPE GaN と比べて約 2% 低下した。本研究により、酸素不純物が Debye 温度を低下させることを実験的に示した。

第5章

深層学習によるバルク材料の弾性定数推定法の確立

5.1 RUS法の従来課題

RUS法は、微小試料の弾性定数を正確に計測することができる優れた手法であるが、解析には細心の注意が必要である。実験で計測した共鳴周波数と、計算で求めた共鳴周波数を対応させ、両者の差が最小になるように逆計算を実行して弾性定数を決定する。このとき、誤った共鳴モードの対応付けをしてしまうと、正しい弾性定数が得られない。これを回避するためには、実験で得た共鳴周波数と十分に整合する共鳴周波数を逆計算の初期段階において再現する必要があり、そのためには真値に近い弾性定数を予め知っておく必要がある。この弾性定数の初期値は、試行錯誤して見つけてくる他なく、解析には非常に労力を要する。共鳴モードの正確な対応付けは、各共鳴モードの振動状態をレーザドップラー振動計を用いて可視化することで可能である。¹³⁸ しかし、装置系が複雑になってしまうことや、通常の計測に比べて計測時間が長くなること、計算による振動状態の可視化には複雑な解析プログラムを組み上げる必要があるなどの課題があり、導入へのハードルが高かった。

そこで、本研究では深層学習を利用した新たな解析法を提案する。¹³⁹ この手法では、様々な材料の共鳴周波数を学習させることで弾性定数を予測する。従来の解析で必要としていた共鳴周波数のモード同定が、本手法では不要である。したがって、共鳴周波数を計測するだけで弾性定数を得ることができる。

5.2 弾性画像と学習データセット

5.2.1 3層弾性画像

本研究では、RUS法で通常使用される直方体形状試料を扱う。ここでは、特に試料の辺々比が3:4:5であることを仮定する（寸法比を限定することは、用途を限定することになると思われがちだが、RUS法においては、試料を直方体形状に切り出す必要がある。その際、この寸法比において切り出すことは、大きな支障にはならない。また、後述するように、薄板等のように、この寸法比の試料を切り出すことが困難な場合においては、その寸法比に対するデータセットを作成することにより対応可能である。）。この寸法比を使用すると共鳴モードの縮退が発生しづらく、RUS法の解析に適している。特に、辺々が3, 4, 5 mmを基準寸法とした。また、立方晶系材料を扱う。結晶軸は、直方体試料の辺に沿っているとす。後に示すが、この寸法比からの～1%程度の誤差は、弾性定数の推定値にそれほど影響を及ぼさない。本手法では、深層学習の画像認識を用いて、共鳴周波数から弾性定数を予測する独自の手法を提案する。次に示すパラメータを画像化に用いる:¹³⁹

$$\tilde{C}_n = \tilde{V}^{\frac{2}{3}} \rho f_n^2. \quad (5.2.1)$$

ここで、 ρ と f_n ($n = 1, 2, 3, \dots$)は、それぞれ質量密度および共鳴周波数を表す。 \tilde{V} は、基準試料との体積比を表す。たとえば、辺々が30, 40, 50 mmの試料の共鳴周波数を扱う場合は $\tilde{V} = 10^3$ である。 \tilde{C} は密度と試料寸法に依存せず、弾性定数を純粋に反映したパラメータである。よって、これを用いて画像を作成すると、弾性定数のみに依存した学習用データ（弾性画像）を作成できる。Figure 5.2.1(a)に弾性画像の構成法の概略図を示す。弾性画像として、 $15 \times 15 = 225$ ピクセルの3層RGB画像を作成した。ここで、 \tilde{C} に関して次の2つの条件を課す。

1. 弾性画像の画像化には、100個の共鳴周波数を使用する。今回仮定している直方体の基準寸法だと、通常は100個以上の共鳴周波数を計測することができるためである。
2. 共鳴スペクトルを正規化するために、 \tilde{C} の範囲を100–13,000 TPa m⁻²とした。軟らかい材料の基本振動モード(f_1)でも正規化範囲に含まれるように下限値を設定した。上限値は、材料の正確な識別に必要な共鳴モードを含めるのに十分な値で設定しており、硬い材料の f_{100} も正規化範囲に含まれる。

\tilde{C} の範囲について、Cuの場合で具体例を示す。基準寸法の場合、 \tilde{C} の下限値と上限値を周波数換算すると、それぞれ0.106 MHzと1.206 MHzとなる。Cuの共鳴周波数の1次

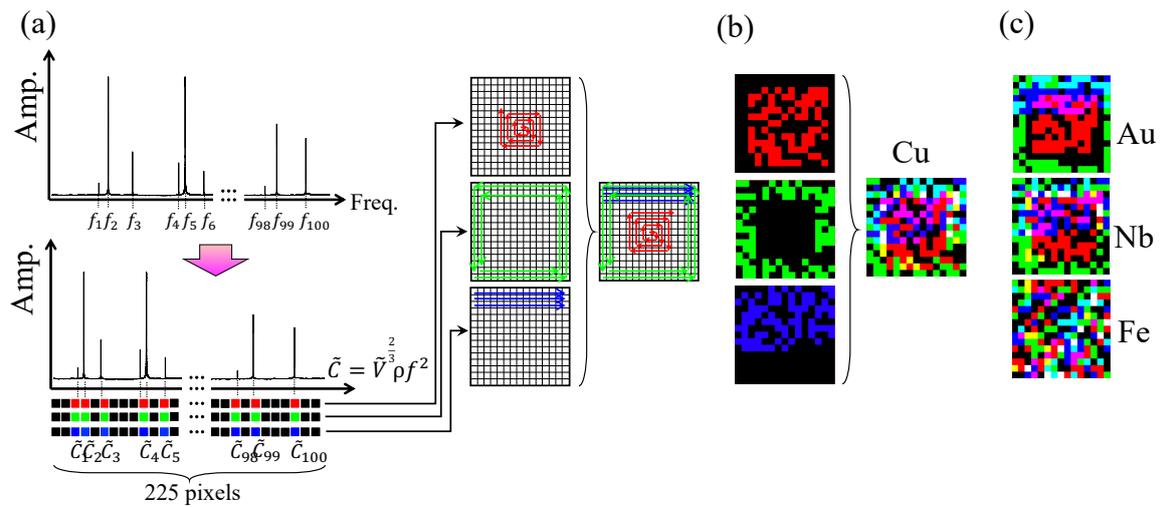


Fig. 5.2.1 Construction of the three-layer elasticity image. (a) Conversion of measured resonance frequencies to arguments of 225 pixels labeled according to the elasticity parameter \tilde{C}_n over a predefined frequency range. (b) Construction of three layers for the case of single crystal copper. This material is different from that shown in (a). Yellow, magenta, light blue, and white pixels result from the overlapping of red and green, red and blue, green and blue, and red, green, and blue pixels, respectively. (c) Elasticity images for gold, niobium and iron. Freq. is an abbreviation for Frequency.

モードと 100 次モードは、それぞれ 0.20 MHz と 0.96 MHz であり、確かに 100 個の共鳴モードは正規化範囲に含まれている。通常の RUS の逆解析では、実験で計測した共鳴周波数と計算した共鳴周波数の正確な対応付けが必要であったため、例え 100 個もの共鳴周波数を計測できたとしても、モード同定の難しさから高次数モードを解析に使用できなかった。しかし、この手法では共鳴モードの対応付けが不要であるため、このような高次の共鳴周波数を積極的に活用できる点が本手法の特徴である。

Figure 5.2.1(a) に示すように、この \tilde{C} の範囲を $15 \times 15 = 225$ 等分に分割し、各領域を画像の各ピクセルに対応させる。RGB の 3 層画像を作成するため、この 225 ピクセルの 1 次元データを 3 つ用意する。各ピクセルには、共鳴モードの存在の有無を表すバイナリ情報を書き込む。すなわち、あるピクセルに共鳴モードが存在する場合は、赤、緑、青のいずれかの色に対応させる。この 3 つの 225 成分を持つバイナリデータを使って、それぞれ異なるパターンで 15×15 ピクセルの領域を描画し、RGB の 3 層画像を構築する。第 1 層 (赤) は、内側から外側に向けて時計回りのスパイラル状に描画する。第 2 層 (緑) は、外側から内側に向けて反時計回りのスパイラル状に描画する。第 3 層 (青) は、横方向に上から下に向けて左上から描画する。Cu の場合について、各層と 3 層の合成画像を Fig.

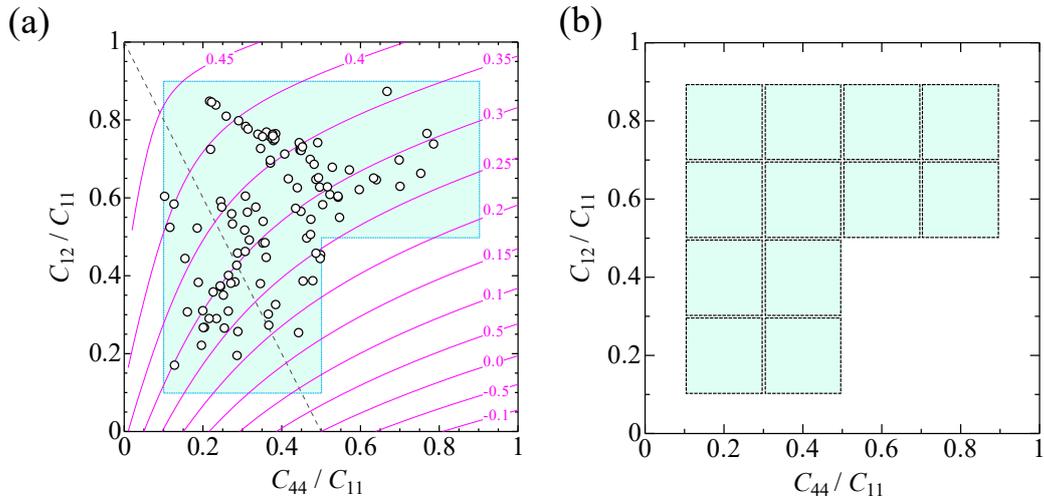


Fig. 5.2.2 Classification on the Blackman diagram. (a) Plots of reported cubic materials on the Blackman diagram (open circles). Red curves indicate Poisson's ratio and the broken line indicates the isotropic material case. The shaded area is considered for making the datasets. (b) 12 classes (solid circles) set on the Blackman diagram at each C_{11} value. The error bars indicate the stiffness blurring used for preparing the datasets.

5.2.1(b) に示す。各層は、共鳴モードの有無に対応して各層の色と黒の 2 色のみである。しかし、3 層を 1 つの 2 次元画像に合成することで、各層の重なりに応じて色の混ざりが生じる。1 次元の共鳴スペクトルをこのような 2 次元の 3 層構造にすることで、周波数の離れた共鳴モード同士を関連づけることができる。このような画像に対し 2 次元の畳み込み演算をすると、周波数の離れた共鳴モード同士の関連性を抽出することができる。

このように構成した弾性画像は、物質の弾性的な特徴を直観的に表現することができる。Figure 5.2.1(c) に Au, Nb, Fe の弾性画像を示す。弾性定数が小さく軟らかい材料の弾性画像は、赤が中央に、緑は外縁に、青は上部に集まる。一方で、弾性定数が大きく硬い材料は、赤、緑、青が画像全体に分布する。したがって、硬い材料は各色が画像全体に分布するため、色の重なる部分が多い。よって、弾性画像の色の分布とそれらの重なりの特徴は、物質の弾性特性を表現している。

5.2.2 Blackman diagram

立方晶系材料の、独立な弾性定数は C_{11}, C_{12}, C_{44} の 3 つである。深層学習を用いてこれらの弾性定数を予測するためには、学習データセットに含める弾性定数の範囲を決め

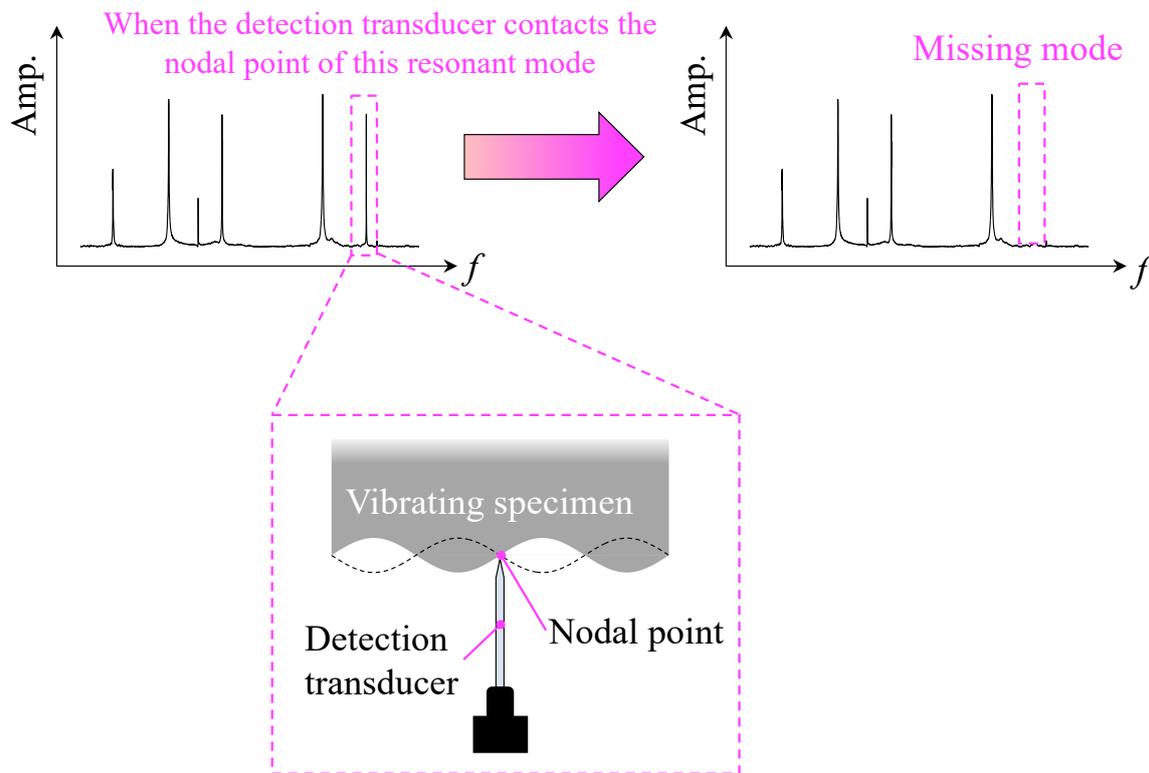


Fig. 5.2.3 Schematic illustration of the missing mode.

なければならない。そこで、Blackman diagram を用いて立方晶系において考慮すべき弾性定数の範囲を制限することにした。Blackman diagram とは、 C_{44}/C_{11} の比を横軸に、 C_{12}/C_{11} の比を縦軸に取り、両軸の範囲を 0–1 で描いたグラフであり、^{140,141} 立方晶材料の特徴を弾性論的に可視化できる図である。弾性定数が報告されている 111 個の立方晶材料について、Blackman diagram にプロットした図を Fig. 5.2.2(a) に示す。図の赤線は平均化した等方体の Poisson 比を表しており、黒の破線は等方体の場合を表している。図の右下領域に位置する物質はなかったが、これは通常材料が負の Poisson 比を示すことがないということで定性的に理解できる。図の青色領域は、111 個の材料をすべて包含している。よって、学習用のデータセットはこの青色領域で作成する。各 C_{11} について、Blackman diagram を Fig. 5.2.2(b) のように 12 個の小領域に分割した。この小領域を学習データセットの各クラスとする。各クラスの面内領域は、中心点から縦と横方向に ± 0.1 の範囲である。データセットで考慮する C_{11} の範囲は、50–450 GPa まで 25 GPa 間隔で区切った。ダイヤモンドなどの弾性定数が極端に大きな材料を除き、ほとんど全ての立方晶系の固体材料は、ここで決めた弾性定数の範囲に収まる。データセットの総クラス数は 204 である。

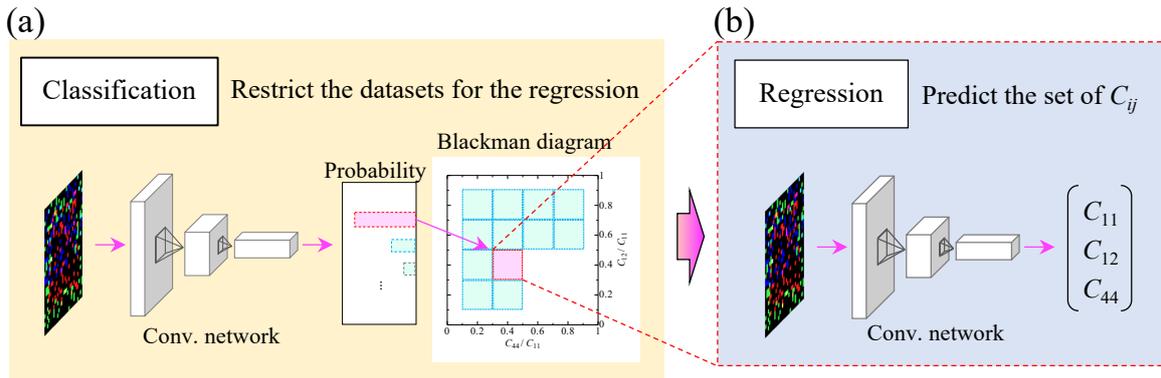


Fig. 5.2.4 Schematic illustration of the prediction processes: (a) Classification and (b) regression processes.

実際の RUS の計測では、検出用圧電トランスデューサが特定の共鳴モードの振幅の節と接していることがある。このとき、試料の振動を検出することができないため、共鳴周波数の計測漏れが生じる。このときの模式図を Fig. 5.2.3 に示す。本論文では、計測漏れした共鳴モードのことを歯抜けモード (missing mode) と呼ぶことにする。このような歯抜けは、実験と計算間の共鳴モードの対応付けを困難にし、弾性定数の逆解析を困難にする。そこで、この歯抜けモードをデータセットで考慮するため、ランダムに 0 から 5 個の共鳴モードを省いた画像を作成した。各クラスの画像枚数は 18,000 枚であり、全データセットは 3,672,000 枚の画像で構成した。データセット作成の所要時間は、市販のデスクトップ PC (CPU: Intel Core i9-13900K, 24 cores, 5.4 GHz, 4.3 GHz; RAM: Crucial DDR4 128GB, 3200 MHz; GPU: Nvidia Geforce RTX 3090, RAM 24GB) で 2, 3 日程度である。

本研究では、弾性定数の決定において、2 段階の深層学習法を提案する。その概要図を Figs. 5.2.4(a) および 5.2.4(b) に示す。まずは、弾性画像を事前学習させた分類ネットワークへ代入し、Blackman diagram 上で取りうる確率の高いクラス (通常は 1–4 個) を出力する。この分類プロセスは、次の回帰学習で使用するデータセットの数を減らすことが目的である。次に、分類プロセスで抽出してきたクラスをもとに弾性画像を回帰学習させ、弾性定数を出力する。分類と回帰学習は、それぞれ Fig. 5.2.5 および Fig. 5.2.6 に示した構造のネットワークを使用した。学習の最適化アルゴリズムには Adam を使用した。また、分類学習にはデータセットの 99% を学習に使用し、残りの 1% を検証に用いた。分類ネットワークの学習過程を Fig. 5.2.7(a) に示す。学習精度は 80% を超えており、検証精度は 71% であった。検証精度が学習精度より低い値を示したが、これはデータセットに取り入れた歯抜けモードの組み合わせと弾性定数の組み合わせが膨大であることに起因する。検

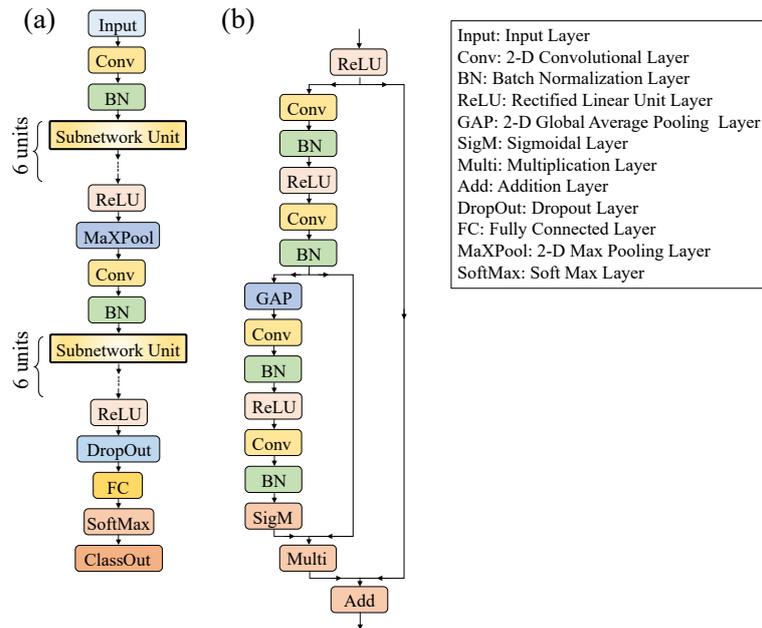


Fig. 5.2.5 Three-layer two-dimensional deep-learning (3L2DDL) network for classification. (a) Overall structure of the 3L2DDL network, and (b) structure of the Subnetwork Unit.

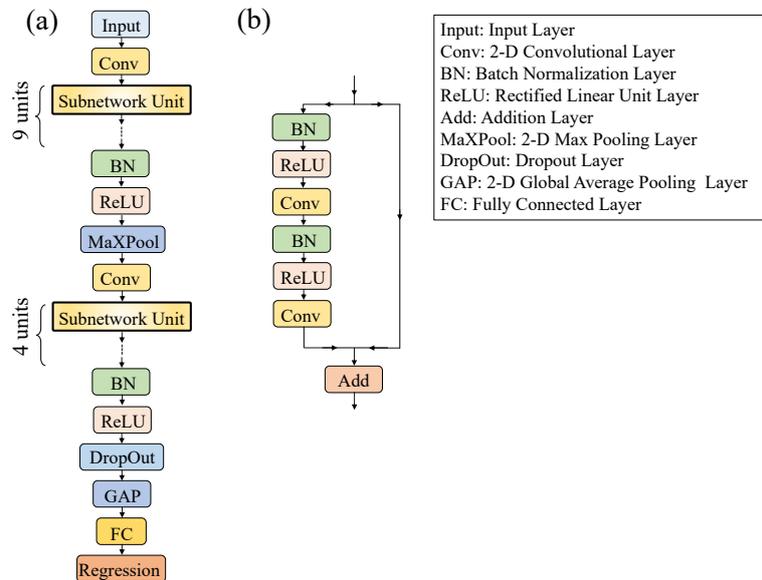


Fig. 5.2.6 Network structure used for the regression process. (a) Overall structure of the network, and (b) structure of the Subnetwork Unit.

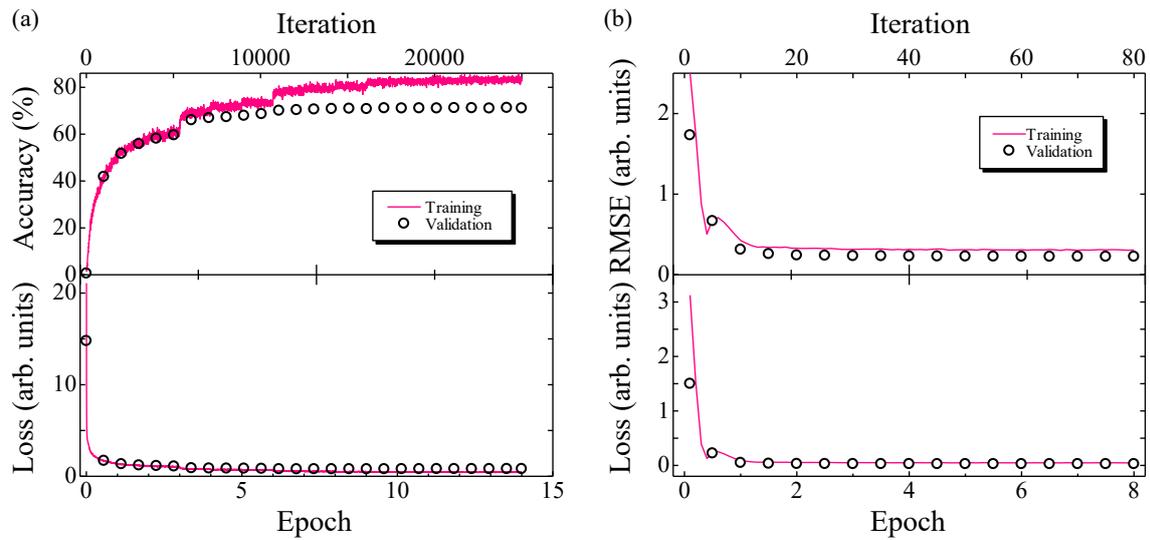


Fig. 5.2.7 Conversion behaviors during the training of (a) the classification network and (b) the regression network for the case of Si.

証精度が 71% であることから、未学習画像の約 3 割は正しいクラスに分類されない。弾性画像が本来属すべき正しいクラスを使用して次の回帰学習をしなければ、正しい弾性定数を予測できない。分類ネットワークに画像を入力すると、全てのクラスの分類確率が出力される。そこで、ある一定以上の分類確率を有するクラスを、次の回帰学習のデータセットに使用することで、この問題を回避した。この分類確率の閾値は、低く見積もるほど正しいクラスを使用して回帰学習できるが、その回帰学習の所要時間が増える。本研究では、閾値を 5% に設定した。回帰学習では、データセットの内 90% を学習に使用し、10% を検証に使用した。Si の場合について、回帰学習中の過程を Fig. 5.2.7(b) に示す。

5.3 弾性定数の予測精度

5.3.1 弾性画像の誤差耐性

歯抜けモード耐性

まず初めに、弾性画像の歯抜けモードに対する耐性を検証する。ここでは、特に Si について歯抜けモードが予測精度に及ぼす影響を検証する。歯抜けを 0 から 10 個まで含めた Si の画像を Fig. 5.3.1(a) に示す。歯抜けを 10 個含めた画像でも、80% の画像は分類ネットワークで正しいクラスに分類された。すなわち、最も分類確率が高かったクラスが正しいクラスであった。また、歯抜け 6 個までは全ての画像が正しいクラスに分類された。回帰プロセスでは、分類ネットワークで確率が 5% 以上のクラスをデータセットとして使用するが、全ての歯抜け画像について回帰学習に正しいクラスが使用された。回帰の推定誤差を Fig. 5.3.1(b) に示す。歯抜けが 10 個含まれている場合でも、弾性定数の対角成分 (C_{11} , C_{44}) と結晶軸に沿った Young 率 (E_1) の予測誤差は数 % 程度で収まった。よって、

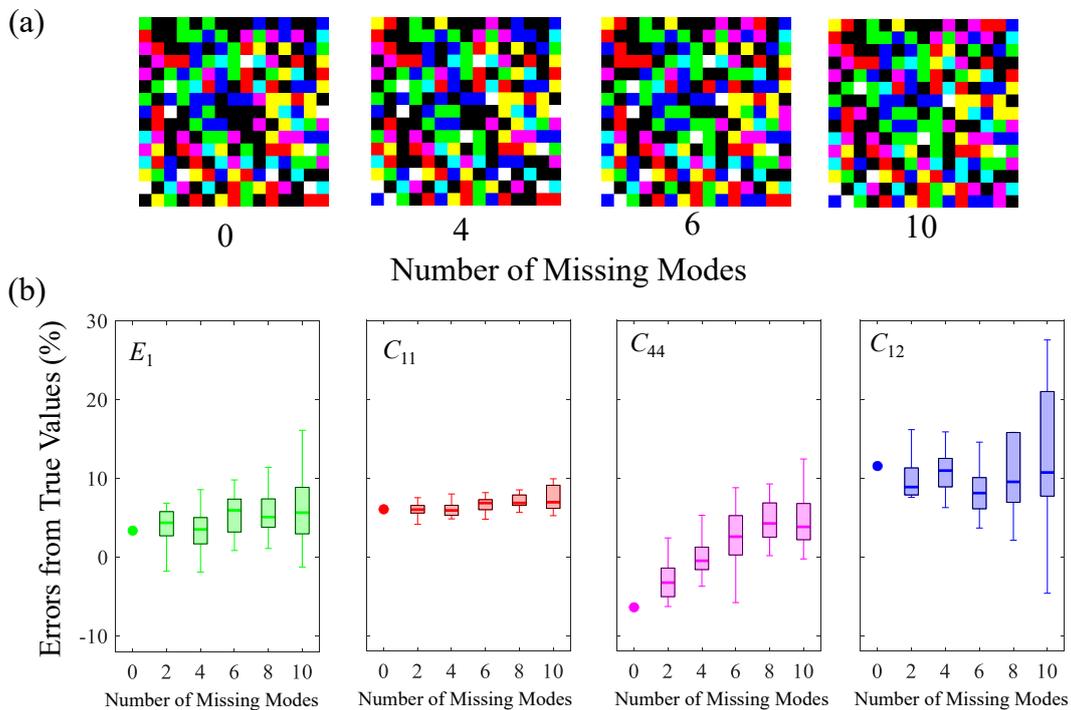


Fig. 5.3.1 (a) Elasticity images for Si involving 0, 4, 6, 10 missing modes, and (b) box plots showing the difference between regression-derived and true elastic constants with up to 10 missing modes.

3層の弾性画像は歯抜けモードに対して十分な耐性を有することが分かる。歯抜けモードは画像中の特定のピクセルを省くことに相当するが、画像全体としてはその影響を強く受けないという定性的な理解と合致する。

寸法誤差耐性

次に、寸法誤差による影響を述べる。先に述べたように、ここでは辺々比が3:4:5の直方体試料を仮定しているが、実際に試料をこの形状に切り出す際には、寸法誤差が生じることがある。そこで、Siについて最も長い辺(L_1)を0-2%変化させたときの予測精度を検証した。各寸法誤差における弾性画像と予測誤差を、それぞれ Figs. 5.3.2(a) および 5.3.2(b) に示す。各寸法誤差における予測誤差はほとんど横並びであり、この3層弾性画像が寸法誤差に対して高い耐性を有することが分かる。

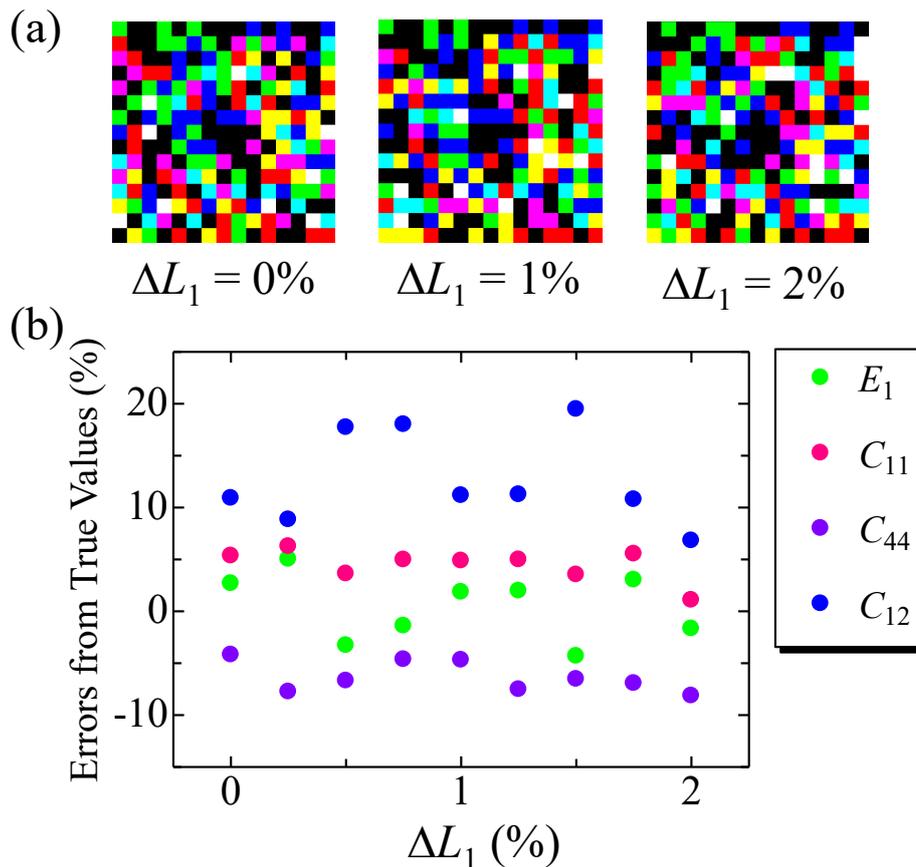


Fig. 5.3.2 (a) Elasticity images of Si with dimension errors of 0, 1 and 2% in the longest side. (b) Difference between regression-derived and true elastic constants with the dimension errors up to 2%.

周波数誤差耐性

同様に Si を用いて、周波数の計測誤差が及ぼす影響を調べた。それぞれの共鳴周波数に対してガウス分布に従ったランダムな周波数誤差を 0–1% まで導入した画像と、それらの予測誤差をそれぞれ Figs. 5.3.3(a) および 5.3.3(b) に示す。周波数誤差が 0.5% までは、弾性定数の予測精度に影響がなかった。0.5% を超えると推定精度が低下していった。しかし、通常の RUS の計測で生じる周波数誤差は 0.2% に満たないため、周波数誤差は推定精度に実質的に影響しないと言える。

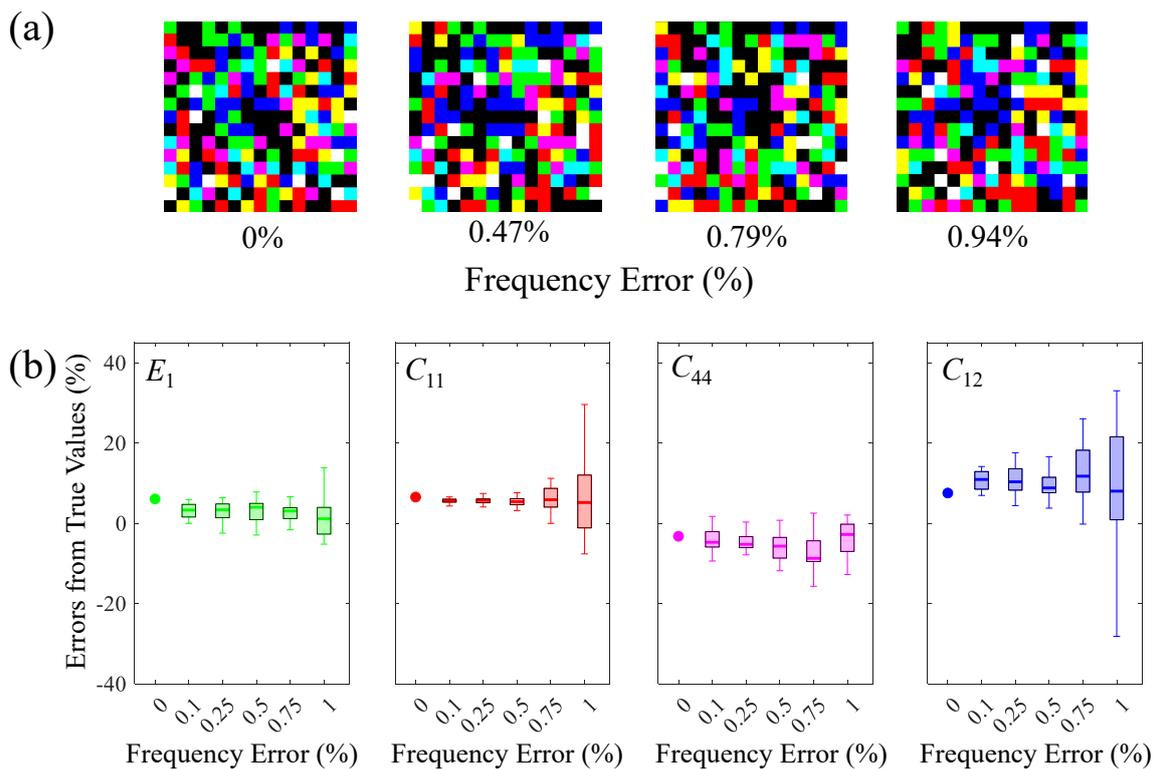


Fig. 5.3.3 Effect of the measurement error in the resonant frequency on the prediction of the elastic constants for Si. (a) Elasticity images including the root-mean-square errors in the resonant frequencies up to 0.94%. (b) Box plots for comparison between the predicted elastic constants and true values with frequency errors up to 0.94%. The frequency errors are artificially and randomly introduced based on a Gaussian distribution.

5.3.2 実材料の弾性定数予測

本手法を用いて、弾性定数が報告されている 111 個の立方晶材料^{142–203} の弾性定数を予測した。それらの予測誤差を Fig. 5.3.4 に示す。共鳴周波数に対する影響が小さい C_{12} を除き、歯抜けモードが 9 個ある場合でも予測誤差が 5% 程度であった。よって、深層学習を利用し、従来は必須であったモード同定を必要としない、新たな弾性定数推定法を本研究で確立した。

最後に、本手法をより対称性の低い結晶に応用する際の展望を述べる。ここでは、特に六方晶系を扱う。本手法で作成したデータセットは立方晶系専用のものであり、六方晶の画像は含めていない。しかし、六方晶系の弾性画像を立方晶系のデータセットとネットワークに代入し、出力された立方晶の弾性定数に対して Hill 近似 (等方体近似)²⁰⁴ を施すと、平均 Young 率 (等方体の Young 率) を予測できることが分かった。ここで、六方晶弾性画像は、寸法が 3, 4, 5 mm の直方体で、3 mm 方向を結晶の c 軸に沿わせたときの画像である。11 個の六方晶材料^{111–113, 118, 205–208} について、この方法で推定した平均 Young 率を Fig. 5.3.5 に示す。これらの材料の真値からの推定誤差は 9.4% であった。六方晶材料の弾性定数を立方晶のデータセットで推定することは、物理的には無意味な操作である。しかし、この方法で推定した弾性率が平均 Young 率と関係していることから、本研究で提案した弾性画像は物質の本質的な弾性特性を反映していることを示唆している。また、この特徴は立方晶系よりも結晶対称性が低い場合に対して本手法を拡張できる可能性も示唆している。

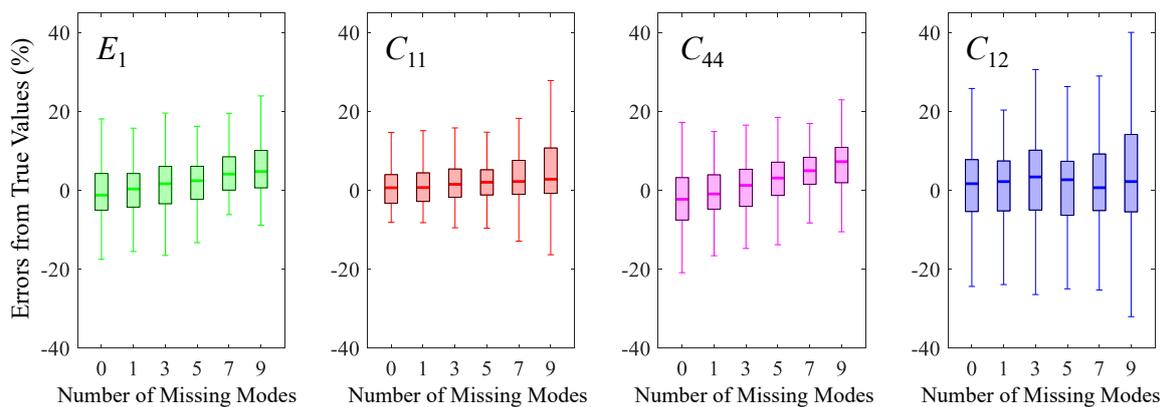


Fig. 5.3.4 Box plots for comparison between regression-calculated elastic constants by the 3L2DDL method and reported values for 111 cubic materials with up to 9 missing modes.

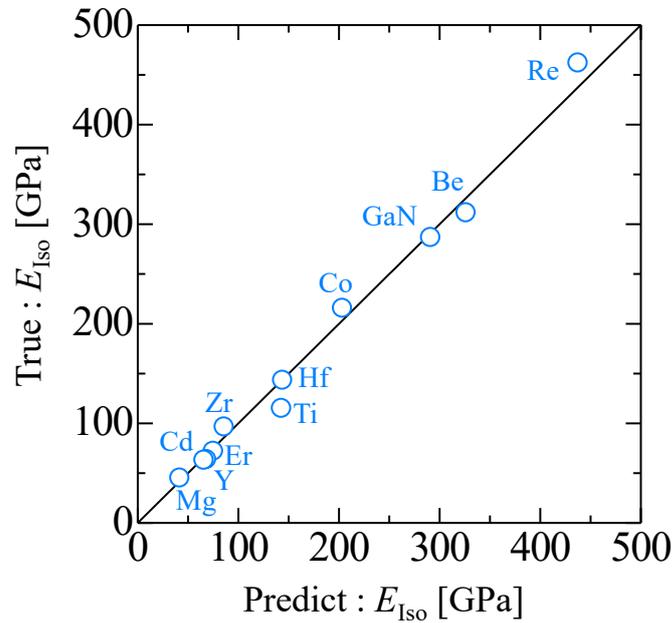


Fig. 5.3.5 Application to hexagonal materials: comparison between the average (isotropic) Young modulus E_{Iso} calculated using five independent elastic constants from the literature with that using three elastic constants obtained by the regression process for various hexagonal materials.

5.4 推定精度の向上化

次に、弾性画像の画像サイズを変えたときの推定精度について述べる。前節では、 $15 \times 15 = 225$ ピクセルの弾性画像を使用していたが、ここでは $30 \times 30 = 900$ ピクセルの画像を扱う。このサイズにすると、外れ予測値を示す材料数が減少し、全体的に弾性定数の推定精度が向上することが分かった。推定値が真値より 15% 以上離れた材料の個数を Fig. 5.4.1(a) に示す。 C_{44} を除き、外れ値を示した材料数が減った。 C_{44} が改善しなかった理由を考察する。検証に使用した材料は、 C_{11} や C_{12} と比べて C_{44} の値が小さなものが多かった。相対的に小さな弾性定数の回帰推定精度は低くなるので、 C_{44} の推定精度が向上しなかったと考えられる。900 ピクセルにしたときの推定精度の向上は、分類ネットワークを事前学習したときの検証精度にも反映されている。225 ピクセルから 900 ピクセルにすることで、検証精度が 71% から 82% まで増加した。900 ピクセルへの高解像度化により、六方晶材料の平均 Young 率の推定精度も上がり、推定誤差が 9.4% から 4.2% まで下げることができた。Figure 5.4.1(b) に、各物質の 225 ピクセルと 900 ピクセルの平

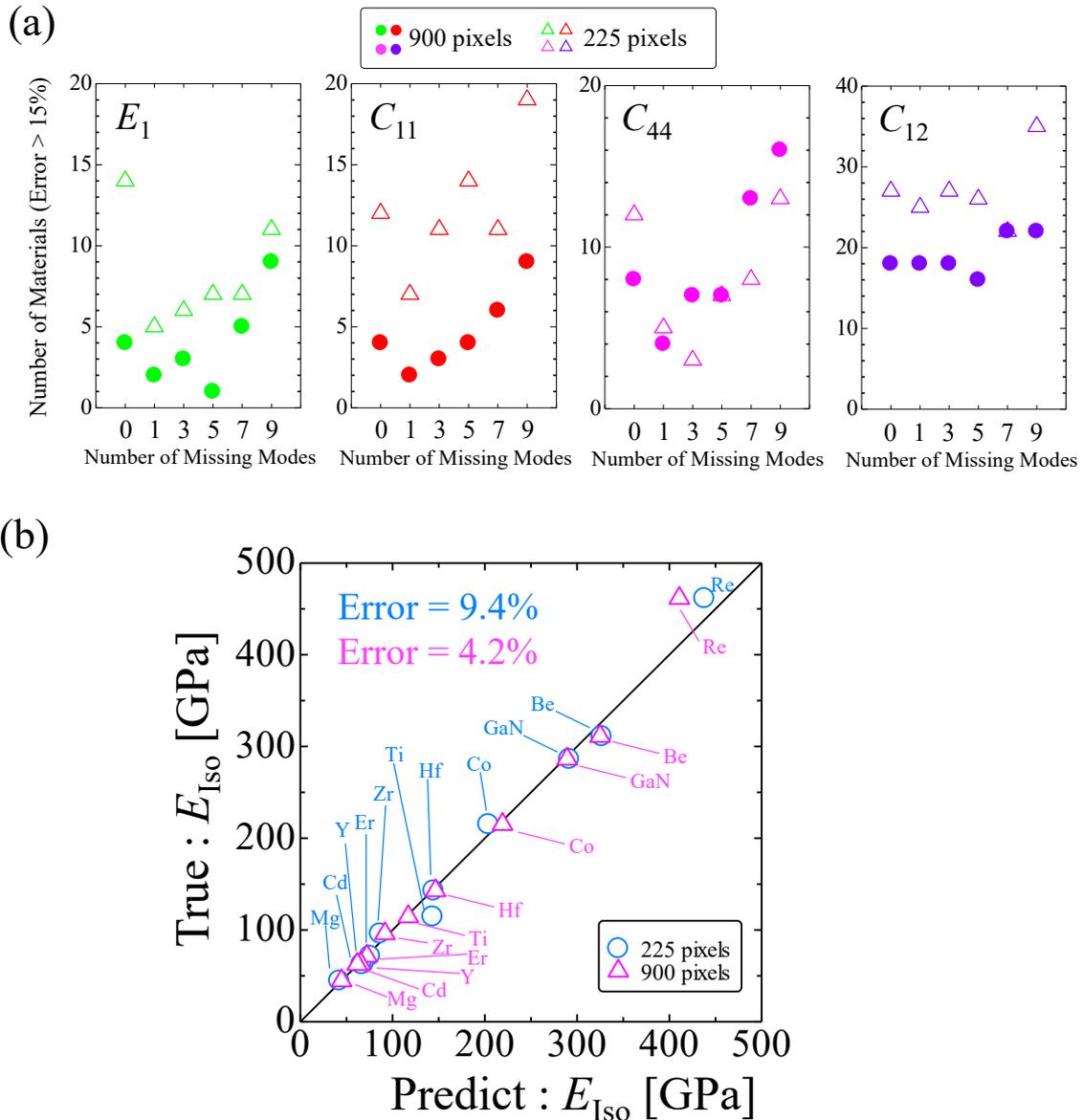


Fig. 5.4.1 (a) Number of materials whose prediction error exceeds 15%. (b) Comparison of average (isotropic) Young's modulus E_{Iso} between the predicted values from the regression process and with reported values obtained by applying the Hill averaging method to hexagonal elastic constants.

均 Young 率の推定値を示す。以上より、弾性画像の解像度が推定精度に影響することが分かった。画像サイズや学習のネットワーク構造を変えることで、さらなる推定精度の向上を期待できる。

5.5 実計測への応用

実際に実験で計測した共鳴周波数に対して、本手法を用いて弾性定数を予測した。材料は、Si(立方晶) および GaN(六方晶) を使用した。これらの試料の寸法比は 3:4:5 とは異なるので、上で作成したデータセットを使用することはできない。そこで、新たに各試料専用のデータセットを作成した。これまでは 100 個の共鳴モードを使用して弾性画像を作成していたが、実験で得られた共鳴周波数の個数は Si で ~ 50 , GaN で ~ 60 だった。そこで、今回はこれら 100 本に満たない共鳴周波数で $30 \times 30 = 900$ ピクセルの弾性画像を作成した。試料寸法は、Si で 8.015, 9.009, 9.993 mm, GaN で 0.412, 2.990, 3.488 mm である。データセットには歯抜けモードを 0, 2, 4 個含めた。 \tilde{C} の範囲は、Si で 10–3,200 TPa/m², GaN で 10–50,000 TPa/m² とした。各クラスには 15,000 枚の画像を含めた。

Figure 5.5.1 に計測スペクトルから描画した弾性画像を示す。また、Table 5.5.1 に、弾性定数の予測値と文献値を示す。文献値と比べた Si の C_{ij} の予測誤差は、5–8% であった。この誤差範囲は、900 ピクセル画像で 111 材料を予測したときの、全体の予測誤差と同程度である。この結果は、900 ピクセルの解像度においては、共鳴モード数を半分程度まで減らした弾性画像でも推定精度がそれほど低下しないことを示唆する。参考のため、同一寸法の Si で共鳴周波数が 100 本を含めた場合の弾性画像を Fig. 5.5.1 に示す。次に GaN の平均 Young 率の推定精度に注目する。平均 Young 率の推定値とその文献値の誤差は 1.3% であった。以上のことから、各試料に対してデータセットを作成することにより、本手法を実計測の解析に応用できることを実証した。

Table 5.5.1 Predicted elastic constants C_{ij} and Young’s modulus along the crystal axis E_1 for Si and the average Young’s modulus E_{Iso} for GaN. The unit is GPa.

Si	C_{11}	C_{12}	C_{44}	E_1
Literature ¹⁹²	165.78	63.94	79.62	130.2
This work	177	67	75	140
GaN	E_{Iso}			
Literature ¹¹⁸	286.3			
This work	290			

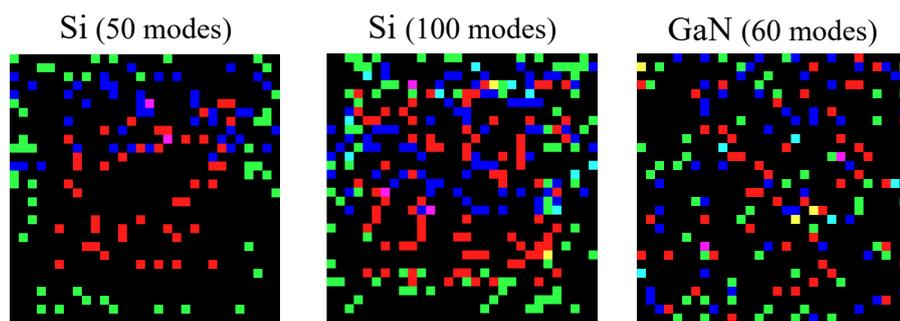


Fig. 5.5.1 Elasticity images converted from resonance frequencies of Si and GaN.

第 6 章

誘電体ナノ薄膜の弾性率計測

6.1 はじめに

本研究では誘電体ナノ薄膜を金属薄膜で挟みこむ 3 層構造にし、3 層膜共鳴を用いることで、その共鳴周波数から誘電体ナノ薄膜の弾性率を決定する手法を新たに提案する。さらに、この 3 層共鳴を用いた弾性率の決定に適した金属膜厚の決定法も考案した。

本章では、3 層膜共鳴を利用した誘電体ナノ薄膜の弾性率計測法について述べる。誘電体層には、NiO を使用した。Pt/NiO/Pt の 3 層膜共鳴を利用することで膜厚が ~ 30 nm の NiO 薄膜の弾性率を計測する。本研究では、効率関数と名付けた式によって、Pt 層の最適膜厚を決定する手法を提案した。まずは最適膜厚の決定法について述べる。その後、決定した最適膜厚をもとに作製した試料の弾性率計測結果を述べる。最後に、3 層膜共鳴を利用した弾性率の決定精度についての考察を述べる。尚、本研究で用いた多層膜の自由共鳴モデルは付録で詳細を述べ、本章では説明を割愛する。

6.2 ピコ秒超音波法

6.2.1 計測原理

ピコ秒超音波法とは、1980 年代に Brown 大学の Maris らの研究グループが提案した極短パルス光 (fs - ps) を用いたポンプ・プローブ法である。^{209, 210} ピコ秒超音波法の基本的な計測原理について述べる。光を吸収する試料にポンプ光を入射すると、照射部の温度が急激に上昇する。これによりポンプ光照射部に瞬間的な熱応力が発生し、試料の膜厚方向に超音波が伝播する。超音波により試料内にひずみが生じ、格子が変形した結果、電子密度分布に変化が生じる。これにより屈折率が変化するため、試料から反射したプローブ光の反射率が変化する。ポンプ光とプローブ光の到達時刻を変化させ、そのときの反射率変化

を追うことで試料を伝播する超音波の様子が分かる。光は 3×10^8 m/s もの速度を有しているので、例えば $30 \mu\text{m}$ の距離を伝播するのに要する時間はわずか 0.1 ps である。したがって、光路長を μm オーダで制御することで、fs オーダの高い時間分解計測が可能である。

6.2.2 光学系

光学系の概略図と実際に構築した光学系の写真をそれぞれ Fig. 6.2.1, Fig. 6.2.2 に示す。光源として、パルス幅約 140 fs, パルス発生周波数 80 MHz, 中心波長 800 nm のチタン・サファイアパルスレーザー (Chameleon, COHERENT 製) を用いる。光源から発振したパルスレーザー光の偏光方向を $\lambda/2$ 波長板で調整し、偏光ビームスプリッタ (Polarization Beam Splitter: PBS) によってポンプ光とプローブ光に分離する。ポンプ光は強度調整のため、再び $\lambda/2$ 波長板と PBS へ入射させ、PBS によって反射した s 偏光をステージコントローラ上に設置したコーナリフレクタへ入射する。このステージコントローラは光の進行方向に可動し、1 ステップで $4 \mu\text{m}$ 移動するが、ポンプ光はコーナリフレクタによって 2 往復する仕様なので、実際の光路長は 1 ステップで $16 \mu\text{m}$ 変化する。したがって、本光学系は最高で 53.3 fs の時間分解能を持つ。試料内に発生した超音波によるプローブ光の反射率変化をロックイン計測で抽出するために、音響光学素子 (Acousto-Optic crystal: AO) を用いてポンプ光に 100 kHz の強度変調を施し、1 次回折光を計測に用いる。次に、焦点距離 f_{100} , f_{50} の平凸レンズによってビーム径を調整する。また、コーナリフレクタ直前の PBS での S 偏光反射率は 98% 程度であり、わずかに P 偏光成分も反射する。偏光子を挿入することで、この P 偏光成分をカットする。その後、ポンプ光を波長 800 nm 近傍の光のみを反射するダイクロイックミラー (Dichroic Mirror: DM) によって反射させ、対物レンズ (Objective Lens: OL) を通して試料に入射する。

プローブ光も同様に、 $\lambda/2$ 波長板と PBS で強度調整し、PBS で透過した P 偏光を第二次高調波発生源 (Second harmonic generation: SHG) を用いて中心波長を 400 nm に変換する。ここで、SHG の変換効率を高めるため、SHG で焦点を結ぶように前後に平凸レンズ (f_{50} , f_{80}) を挿入した。その後、ビームスプリッタ (Beam Splitter: BS) でプローブ光を 2 つに分離し、片方をバランスディテクタ (Balance Detector: BD) へ参照光としてそのまま入射し、他方を検出光として試料へ入射する。その後、DM を透過したプローブ光を対物レンズを通して試料へ入射し、反射させる。反射した検出光は同じ光路を逆進し、BS を透過した後に BD へ取り込まれる。

AO によってポンプ光は 100 kHz の強度変調が施されているので、試料から反射した検出光もこの強度変調成分を持つ。そこで、BD 内で参照光と検出光の強度差に対して 10 – 300 kHz のバンドパスフィルタおよび 1000 倍のアンプ処理を施し、ロックインアンプ

に出力することで、ポンプ光により発生した超音波によるプローブ光の反射率変化を読み取る。

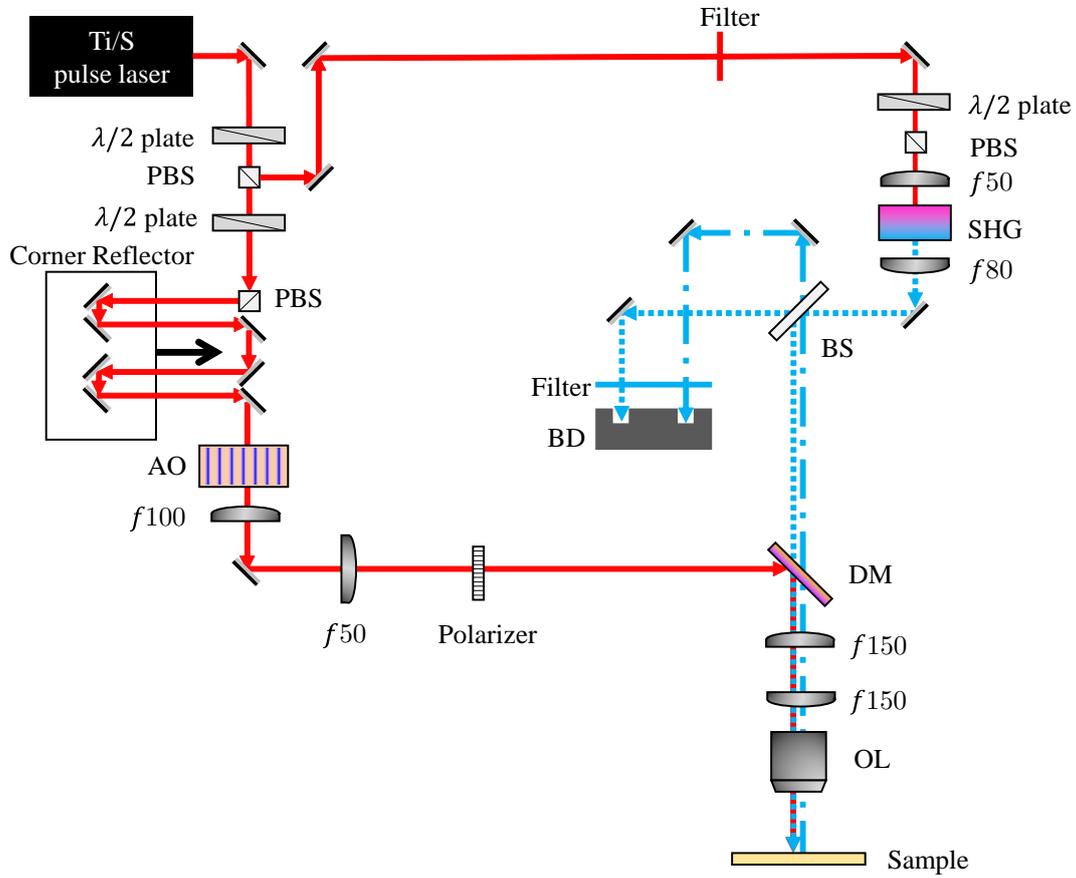


Fig. 6.2.1 Schematic of the optics.

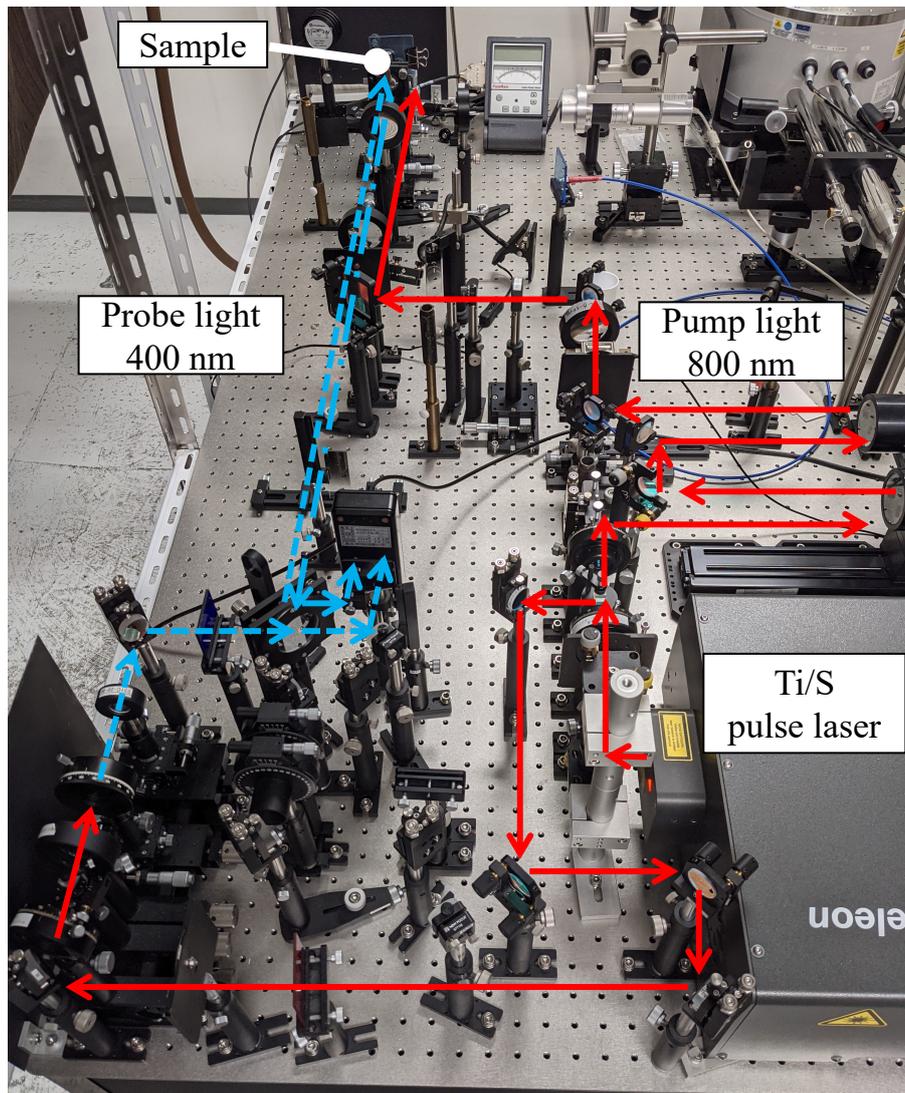


Fig. 6.2.2 Picture of the optics.

6.3 試料構造と貢献度

NiO の弾性率を決定するため, Pt/NiO/Pt の 3 層構造に着目した. このような 3 層構造にすると, 厚み共鳴の 1 次モードにおいて, 表面と底面での自由応力境界条件から変位が最大になる (Fig. 6.2.3). その結果, ひずみエネルギーが Pt 層に比べて相対的に大きくなり, NiO の弾性率が Pt の弾性率に比べて共鳴周波数に大きく貢献する. これを以前の章の式 (3.5.3) で定義した貢献度で評価する:

$$\beta_m = \left| 2 \frac{C_m}{f} \frac{\partial f}{\partial C_m} \right|. \quad (6.3.1)$$

ここで, C_m は第 m 層 ($m = 1, 2, 3$) の弾性率, f は多層膜の共鳴周波数である. 3 層膜の共鳴周波数は, 各層の膜厚や音速に依存する. Pt 層が薄い場合は, 3 層膜全体のひずみエネルギーに対する Pt のひずみエネルギーが小さくなるので, 共鳴周波数 f は Pt の弾性率 C_{Pt} に対して鈍感になる. すなわち, Pt の膜厚が薄いほど β_{Pt} が小さくなる. NiO 層から見ると, Pt の膜厚が薄いほど NiO の弾性率 C_{NiO} が共鳴周波数 f に対して支配的になり, β_{NiO} が大きくなる. 本手法では, 3 層膜の共鳴周波数から C_{NiO} を間接的に求めるので, β_{NiO} が大きいほど正確に C_{NiO} を決定することができる.

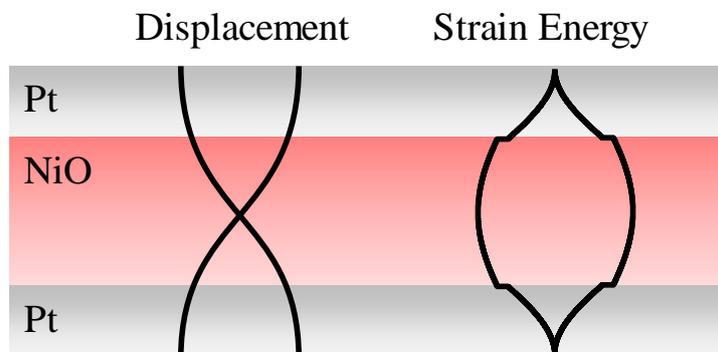


Fig. 6.2.3 Schematic of the three-layer structure.

6.3.1 作製試料と結晶性評価

薄膜作製は RF マグネトロンスパッタリング法を用いて行った。成膜前には事前に超音波洗浄とプラズマエッチングによる基板洗浄を行った。はじめに、超音波洗浄機浴槽の水を 10 分間脱気し、NMP(N0-メチル-2 ピロリドン, $C_4H_5N(CH_3)O$) 溶液内に試料を入れ温度を $60^\circ C$ に保ち、40 kHz と 33 kHz を交互に繰り返しながら 10 分間超音波洗浄した。続けて IPA(2-プロパノール, CH_3CHOH) 溶液で同様に洗浄し、その後蒸留水ですすぎ、直後に空気噴射装置で乾燥させた。次にプラズマエッチングを 0.8 Torr で 10 分間行った。基板温度を 533–773 K の範囲で加熱し、20 分以上待機し温度が安定した状態で成膜した。昇温前の初期圧力, 成膜パワー, Ar 流量, 成膜時の Ar 圧力はそれぞれ $\sim 1 \times 10^{-5}$ Pa, 50 W, 8.0 sccm, 0.8 Pa であった。

Pt/NiO/Pt の 3 層膜を $Al_2O_3(0001)$ 基板 (以下 AO で表す), 熱酸化膜付き Si(100) 基板 (以下 TO-Si で表す), Si(100) 基板 (以下 Si で表す) に成膜温度を変えて作製した。XRR スペクトルおよびフィッティング曲線を Fig. 6.3.1 (a) に, XRD スペクトルを Fig. 6.3.1 (b) に示す。ただし, 多層膜では XRR スペクトルから各層の密度を正確に決定することが難しいため, フィッティングにはバルク値 ($\rho_{NiO} = 6670 \text{ kg/m}^3$, $\rho_{Pt} = 21450 \text{ kg/m}^3$) を用いた。また, 決定した膜厚・界面粗さを Table 6.3.1 に示す。すべての基板で成膜温度の上昇とともに, 最上面の Pt の表面粗さが低減した。 $T_d = 293 \text{ K}$ はすべての基板で Pt(100) ピークが発現し, 多結晶化していることが分かる。 $T_d = 706 \text{ K}$ の Si 基板試料では, NiO の酸素が欠損し, XRD スペクトルに Ni(111) ピークが発現した。このような複雑化した膜構造によって, XRR スペクトルに干渉ピークが発現しなかったと考えられる。それ以外のすべての試料で成膜温度の上昇とともに (111) 面の回折強度が上昇, Pt(100) ピークが減少し, 結晶性が向上した。

同様の成膜条件で Pt 単層膜を作製し, XRR 計測から膜厚, 界面荒さを求めた。計測スペクトルおよび計測した膜厚, 界面粗さを Fig. 6.3.2, Table 6.3.2 に示す。

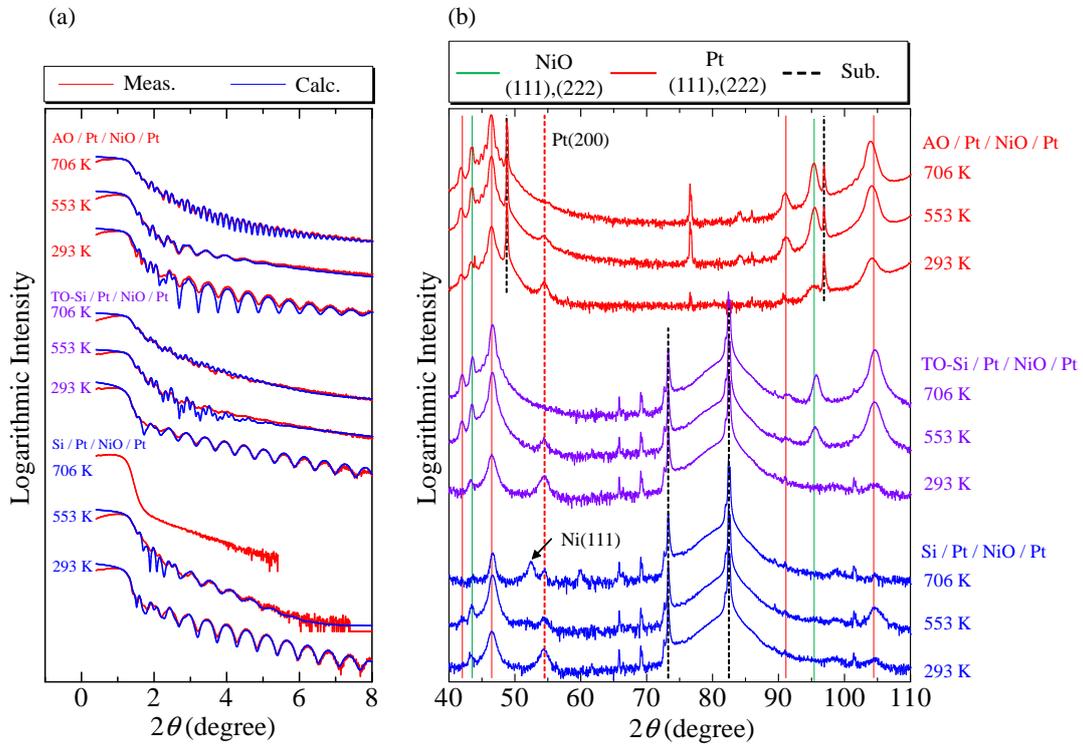


Fig. 6.3.1 (a) XRR spectra and (b) XRD spectra of Pt/NiO/Pt films.

Table 6.3.1 Measured film thicknesses of Pt (d_{Pt}) and NiO (d_{NiO}) and surface roughness σ of Pt⁽¹⁾/NiO/Pt⁽³⁾ films. T_d is the deposition temperature.

	T_d (K)	d_{Pt} (nm)	d_{NiO} (nm)	$\sigma_{\text{Pt}}^{(1)}$ (nm)	σ_{NiO} (nm)	$\sigma_{\text{Pt}}^{(3)}$ (nm)	$\sigma_{\text{sub.}}$ (nm)
AO/Pt/NiO/Pt	293	17.52	34.42	1.39	1.77	0.39	0.14
	553	17.77	26.05	1.45	2.13	0.00	0.81
	706	17.94	27.24	0.55	1.76	0.86	0.00
TO-Si/Pt/NiO/Pt	293	17.97	33.46	3.55	1.95	0.21	0.28
	553	17.44	28.36	0.87	1.77	1.32	0.19
	706	17.97	28.37	0.35	1.06	1.37	0.71
Si/Pt/NiO/Pt	293	17.67	33.70	3.09	1.16	0.30	0.43
	553	17.11	26.18	1.79	1.70	0.84	0.61

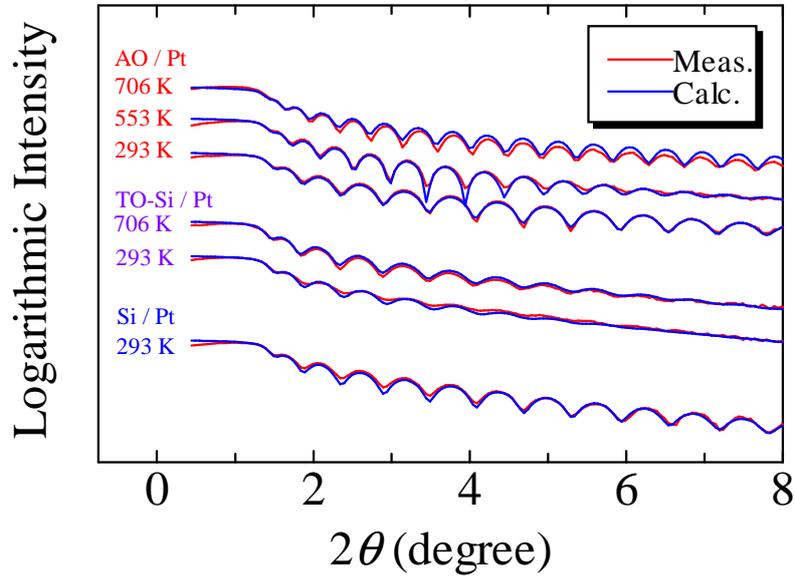


Fig. 6.3.2 XRR spectra of Pt films.

Table 6.3.2 Measured film thickness d'_{Pt} of Pt monolayers at each deposition temperature T_d . σ'_{Pt} and $\sigma'_{\text{sub.}}$ are the surface roughness of Pt layer and substrate, respectively.

Substrate	T_d (K)	d'_{Pt} (nm)	σ'_{Pt} (nm)	$\sigma'_{\text{sub.}}$ (nm)
AO/Pt	293	16.04	0.22	0.25
	553	19.39	0.55	0.10
	706	21.76	0.17	0.30
TO-Si/Pt	293	15.76	0.28	0.77
	706	15.97	0.28	0.60
Si/Pt	293	15.99	0.29	0.38

6.4 最適膜厚の決定法

Pt の膜厚 d_{Pt} が薄いほど、共鳴周波数から C_{NiO} を正確に決定することができる。しかし、 d_{Pt} が小さいほどピコ秒超音波法を用いた多層膜共鳴の励起と検出が難しくなる。なぜならば、 d_{Pt} が小さいほどポンプ光の吸収量が減少し、Pt 層のひずみが小さくなるからである。したがって、多層膜共鳴を用いた C_{NiO} の決定法には最適な Pt 膜厚が存在する。そこで、NiO の貢献度 β_{NiO} 、励起・検出効率を考慮することにより、最適な Pt 膜厚を決定する「効率関数」を考案した。まずは、励起効率について考える。ポンプ光は Pt の熱膨張を引き起こす。このとき、ポンプ光の電場を $E_{800}(z)$ とすると、熱膨張は電場強度 $|E_{800}(z)|^2$ に比例する。ただし、 z は膜厚方向の座標である。この熱膨張による応力が共鳴を励起する。共鳴状態での応力分布はひずみ分布 $\varepsilon(z)$ と比例関係にある。熱膨張によるひずみ分布と、共鳴状態でのひずみ分布の相関が強いほど、効率よく共鳴を励起できる。したがって、励起効率は次式で表現できる：

$$\text{Excitation Efficiency} = \int_{\text{Pt}} \bar{\varepsilon}(z) |E_{800}(z)|^2 dz. \quad (6.4.1)$$

ここで、 $\bar{\varepsilon}(z)$ は多層膜全体のひずみエネルギー $\frac{1}{2} \int C \bar{\varepsilon} dz$ が 1 となるように規格化したひずみである。電場 $E(z)$ は、多重反射を考慮することで求める（詳細は付録で解説する）。また、ポンプ光は主に Pt 層で吸収されるため、積分範囲は Pt 層に限定している。

次に検出効率について考える。多層膜の共鳴現象は、プローブ光の反射率変化を通じて検出することができる。反射率変化は、多層膜内に生じたひずみとプローブ光の強度に比例する。したがって、検出効率は次式で表現できる：

$$\text{Detection Efficiency} = \int_{\text{Pt}} \bar{\varepsilon}(z) |E_{400}(z)|^2 dz. \quad (6.4.2)$$

ただし、プローブ光は主に Pt 層で反射されるため、積分範囲は Pt 層に限定している。

最後に、 C_{NiO} の決定精度を反映した貢献度 β_{NiO} (式 (6.3.1)) を考慮に入れ、Pt の最適膜厚を決定するための「効率関数 (Efficiency function)」 $\Psi(d_{\text{Pt}})$ を次で定義する：

$$\Psi(d_{\text{Pt}}) = \beta_{\text{NiO}} \int_{\text{Pt}} \bar{\varepsilon}(z) |E_{800}(z)|^2 dz \times \int_{\text{Pt}} \bar{\varepsilon}(z) |E_{400}(z)|^2 dz. \quad (6.4.3)$$

Figures 6.4.1(a)–(d) に NiO の膜厚が $d_{\text{NiO}} = 34 \text{ nm}$ の場合での効率関数 $\Psi(d_{\text{Pt}})$ 及び貢献度、励起効率、検出効率の計算結果を示す。Pt 膜厚の増加につれて Pt 層のひずみ量が増加し、その結果 Ψ は $d_{\text{Pt}} \sim 15 \text{ nm}$ まで増加する。さらに膜厚が増加すると β_{NiO} の減少効果が大きくなり、 Ψ は $d_{\text{Pt}} = 13 - 18 \text{ nm}$ でピークを持つ。

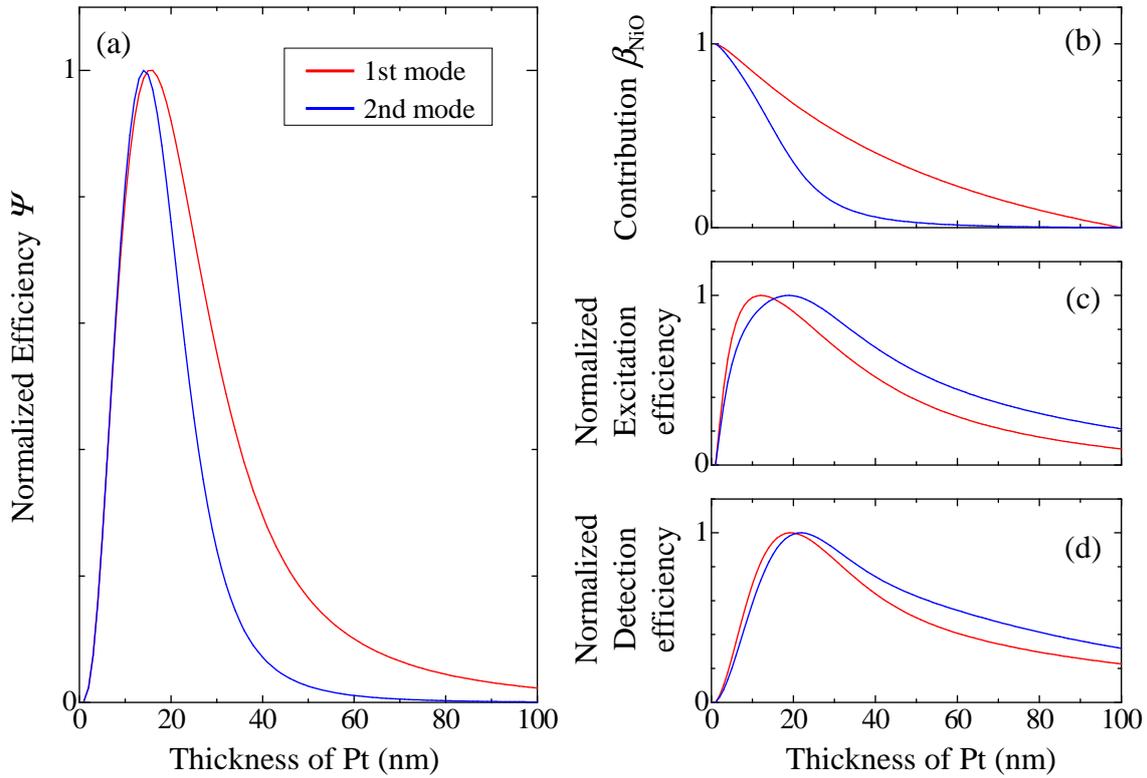


Fig. 6.4.1 (a) Calculated efficiency function Ψ for $d_{\text{NiO}} = 34$ nm, and its Pt-thickness dependence of each term: (b) the contribution, (c) the normalized excitation efficiency, and (d) the normalized detection efficiency.

式 (6.4.3) で導入した効率関数 Ψ の妥当性を実証するため, Pt の膜厚を 5.5–33.1 nm の範囲で変えた Pt/NiO/Pt 膜を 4 つ作製し, 共鳴時の反射率変化の振幅を計測した. 試料は NiO の膜厚を 34 nm に固定し, 室温環境下で AO 基板上に作製した. Figure 6.4.2 (c) に 1 次モードのひずみエネルギー分布を示す. Pt の膜厚が薄いほど, 膜全体のひずみエネルギーに対する NiO のひずみエネルギーが大きくなっている. これは Pt の膜厚が薄いほど NiO の貢献度が高くなることと対応している. これらの試料をピコ秒超音波法で計測した波形 Figure 6.4.2 (a) に示す. ただし, 各試料間で共鳴の振幅を比較するため, これらの波形は試料がポンプ光を吸収した瞬間 (0 ps) での振幅で規格化している. この波形から熱拡散による反射率変化の過渡応答を多項式関数で差し引いた波形を Fig. 6.4.2 (b) に示す. Pt の膜厚が 5.5 nm の試料では, Pt の膜厚が薄いため, 他の膜厚の試料に比べ共鳴を励起・検出し辛いことが分かる. Pt 膜厚が 17.5 nm と 22.0 nm の試料では, 明確な共鳴が現れたが, 33.1 nm の試料は共鳴の振幅が減少した. Figure 6.4.2 (d) で示した各試料の振幅を時間で積分した値と, 効率関数 Ψ の励起・検出効率と比較した結果を Fig.

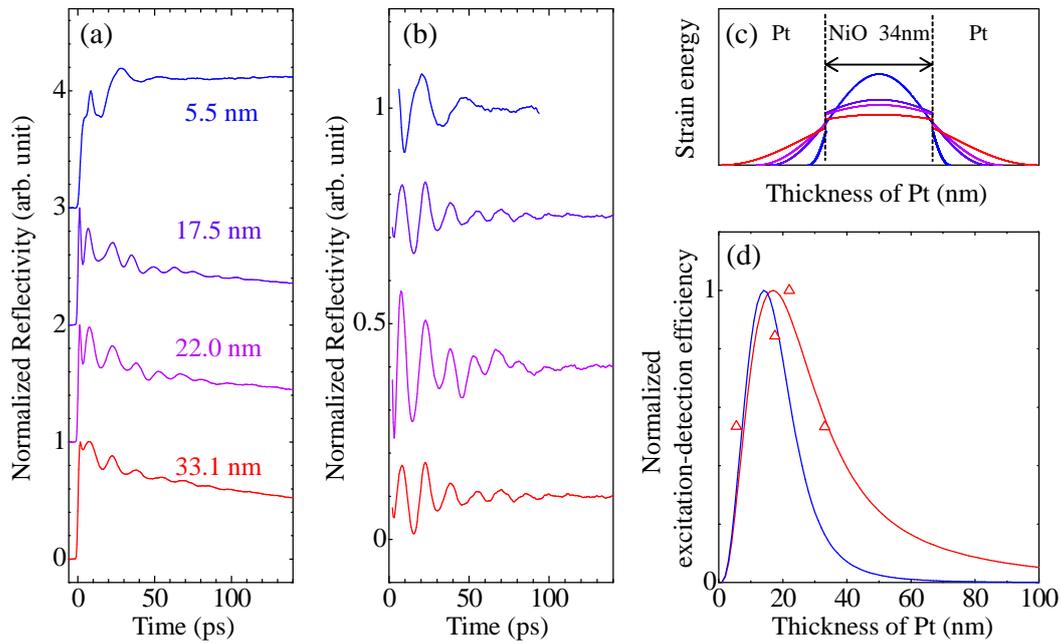


Fig. 6.4.2 (a) Observed reflectivity changes of Pt/NiO/Pt films deposited on AO substrate at room temperature, whose intensity is normalized at initial absorption intensity, and (b) extracted resonances. (c) Calculated strain-energy distributions for $d_{\text{Pt}} = 5.5, 17.5, 22.9,$ and 33.1 nm. (d) The excitation-detection efficiency. Triangle plots represent the measured resonance amplitudes of Pt/NiO/Pt films.

6.4.2(d) に示す。実験値は Pt 膜厚が 20 nm 付近でピーク持ち、15–18 nm でピークを持つ励起・検出効率曲線と似た傾向を示した。このことから、先に述べた共鳴の励起・検出モデルの妥当性と、効率関数 Ψ の有効性を示せた。以上より、NiO が 34 nm の試料では、 ~ 15 nm が Pt の最適膜厚だと結論付けた。

6.5 弾性定数の決定

先ほど X 線で結晶性を評価した AO, TO-Si, Si 基板上に製膜した 3 層膜に対して, NiO 層の弾性率を解析した. C_{NiO} の逆計算で使用する C_{Pt} の値を決めるため, Pt 単層膜も同じ基板・成膜温度で作製し, 弾性率を計測した. Pt 単層膜のピコ秒超音波法による反射率計測の波形と, これらに対して高速 Fourier 変換 (Fast Fourier Transform: FFT) を施したスペクトルを Fig. 6.5.1 に示す. Pt 単層膜の C_{Pt} は, これらを使用して逆計算で決定した C_{NiO} とともに Table 6.5.1 に示す.

次に, 3 層膜試料について述べる. Figure 6.5.2 に観測した波形とそれらの FFT スペクトルを示す. すべての試料で共鳴の 1 次モードが発現し, $T_d = 293 \text{ K}$ の試料では 2 次モードも現れた. 実験で得た共鳴周波数から, $\sum_j (1 - f_j^c / f_j^m)^2$ が最小になるように C_{NiO} を逆計算によって求めた. ただし, f_j^c, f_j^m はそれぞれ j 次モードにおける共鳴周波数の計算値と計測値である. f_j^c の計算には, C_{Pt} の値が必要である. そこで, 同じ条件で作製した

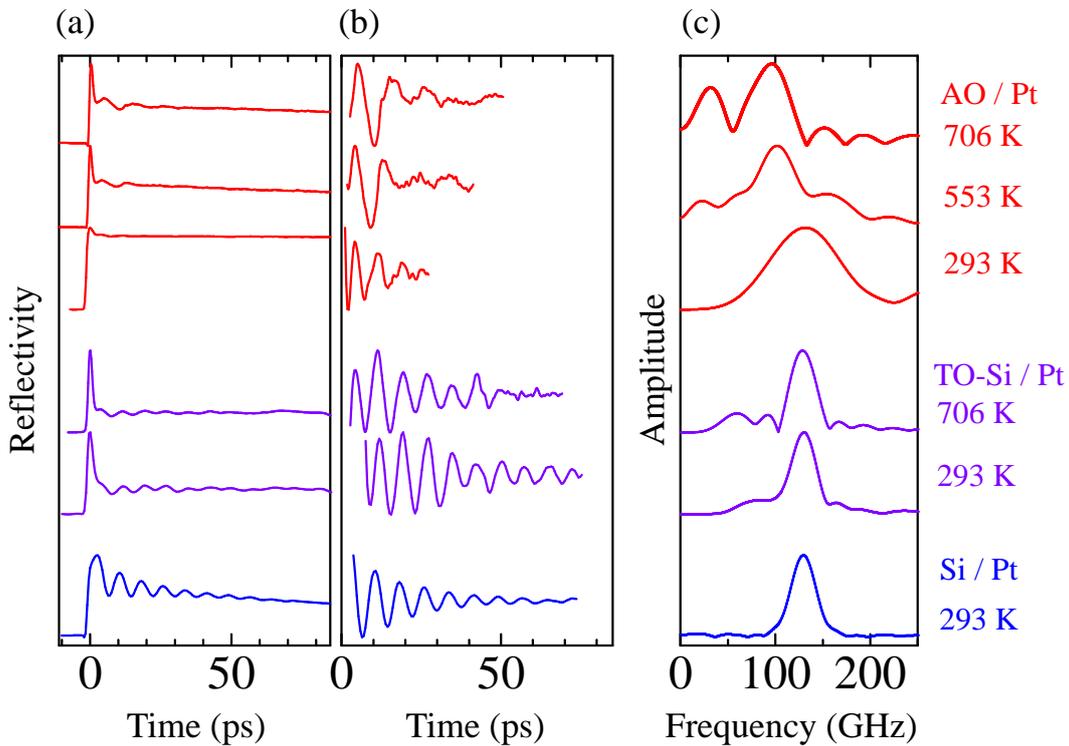


Fig. 6.5.1 (a) Observed reflectivity changes of Pt monolayers, (b) extracted resonances, and (c) corresponding FFT spectra.

Table 6.5.1 Longitudinal elastic constant of Pt (C_{Pt}) of monolayer films at each deposition temperature T_d . C_{NiO} and C_{NiO}^* are the inversely determined elastic constants of NiO using C_{Pt} of the monolayer films and a bulk, respectively. The standard deviations of C_{NiO}^* are equivalent to those of C_{NiO} .

Substrate	T_d (K)	C_{Pt} (GPa)	C_{NiO} (GPa)	C_{NiO}^* (GPa)
AO	293	369.9 ± 30.8	173.0 ± 12.5	171.6
	553	362.2 ± 36.0	249.7 ± 21.4	245.2
	706	377.6 ± 4.7	286.7 ± 44.1	284.8
TO-Si	293	357.6 ± 8.5	204.3 ± 3.8	204.6
	553			300.0
	706	357.4 ± 2.8	341.3 ± 8.2	331.8
Si	293	368.4 ± 0.0	199.0 ± 3.7	196.4
	553			232.6
	706			119.4

Pt 単層膜の計測から求めた C_{Pt} を採用した (Table 6.5.3). また, $\langle 111 \rangle$ 方向のバルク値 $C_{\text{Pt}} = 384.7 \text{ GPa}^{211}$ も使って C_{NiO}^* を決定した. 逆計算には各層の密度も必要であるが, Fig. 6.3.1 に示したバルク値を用いた計算スペクトルは計測スペクトルとよく一致していることから, ここではバルク値を用いた. 厳密には密度変化が C_{NiO} の逆計算値に影響するが, 仮に密度が 1% 変化したとしても逆計算値の変化量は $\sim 1\%$ 程度であり, 計測誤差の範囲内である.

決定した C_{NiO} , C_{NiO}^* を Fig. 6.5.3, Table 6.5.1 に示す. NiO のバルク体の弾性率の報告値は大きくばらついている. よって比較のため, Fig. 6.5.3 には 3 つのバルク体弾性率を示した. C_{NiO} , C_{NiO}^* の差は 3% 以内であり, 計測誤差 $\sim 7\%$ の範囲に収まっている. 薄膜とバルク値で $\sim 6\%$ 程度異なる C_{Pt} を使用したのにも関わらず, C_{NiO} と C_{NiO}^* の差が小さい理由は, 3 層構造にすることにより C_{NiO} の弾性定数の共鳴周波数に対する貢献度が高いためである. $T_d = 293 \text{ K}$ では, C_{NiO} がバルク値の 313.3 GPa^{212} より $\sim 40\%$ 程度小さく, Si 基板を除き T_d の上昇とともに増加しバルク値に近づく傾向を示した. 薄膜に存在する結晶粒界同士の不完全結合が弾性率の低下を引き起こすが, 熱処理によって弾性率が回復することが知られている.^{213,214} 今回の C_{NiO} の T_d 依存性もこれと一致するので, NiO 膜内の欠陥が熱処理によって緩和したと考えられる. Si 基板については T_d の上昇で結晶構造が崩れるので C_{NiO} の低下が起こったと考えられる. AO 基板に比べて TO-Si 基

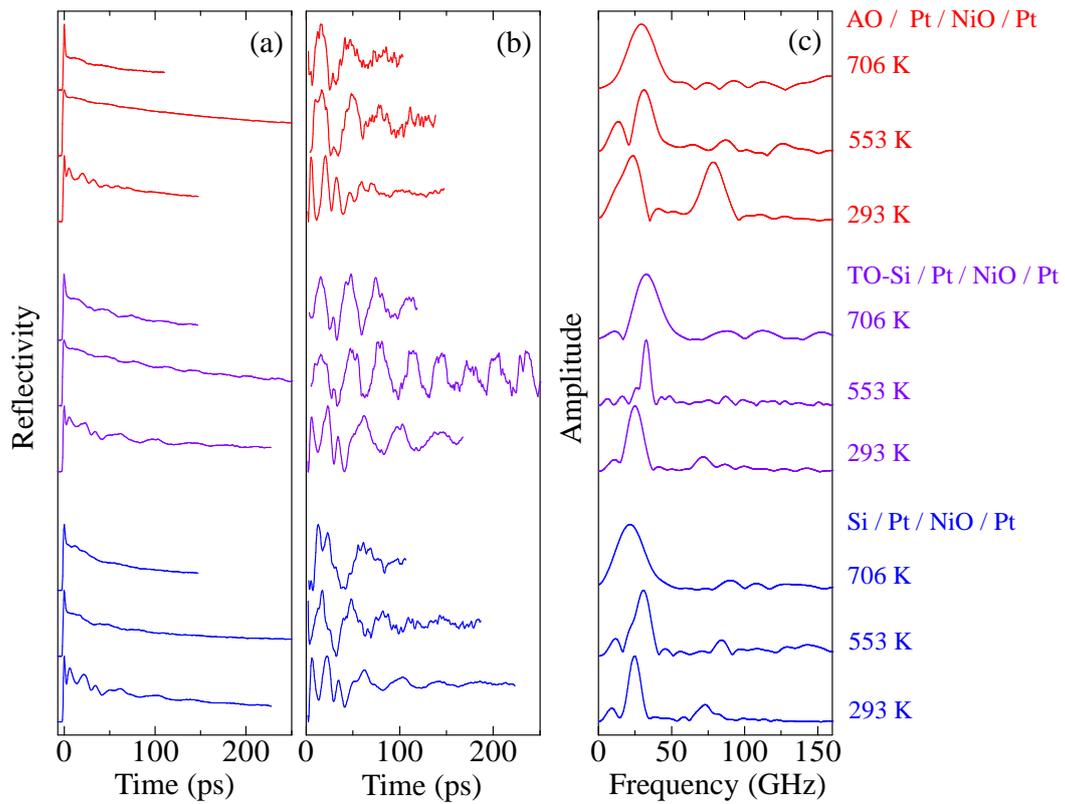


Fig. 6.5.2 (a) Observed reflectivity changes of Pt/NiO/Pt films of $d_{\text{Pt}} \sim 18$ nm, (b) extracted resonances, and (c) corresponding fast Fourier transformation (FFT) spectra.

板の C_{NiO} が $\sim 16\%$ 程度小さな原因は、基板に由来する結晶性や界面構造の違いにより発生したと考えられる。

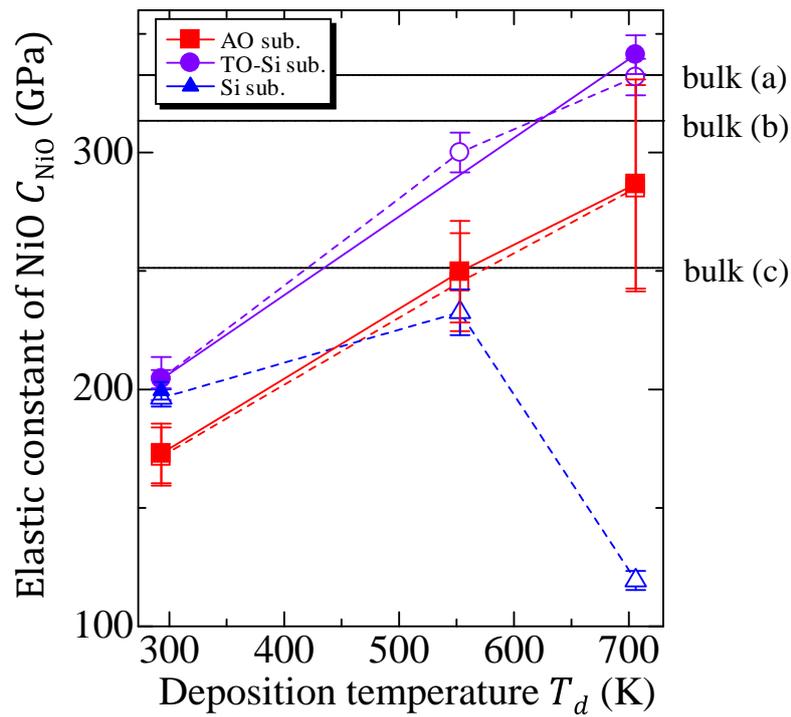


Fig. 6.5.3 Determined longitudinal elastic constant C_{NiO} of Pt/NiO/Pt films of $d_{NiO} \sim 34$ nm and $d_{Pt} \sim 18$ nm. Closed symbols with solid lines and open symbols with dashed lines denote that we use the elastic constant of Pt of corresponding monolayer films and bulk values in the inverse calculation, respectively. Reported bulk values: bulk (a),²¹⁵ bulk (b),²¹² bulk (c).²¹⁶

6.6 弾性率の決定誤差

C_{Pt} と各層の膜厚の不確定性による C_{NiO} の決定誤差について考察する. バルク値の弾性率・密度を用いて膜厚が $d_{NiO} = 34$ nm, $d_{Pt} = 18$ nm のときの理想的な共鳴周波数の1次, 2次モードを計算し, C_{Pt} , d_{Pt} , d_{NiO} をそれぞれ独立に $\pm 10\%$ 以内で変化させたときの C_{NiO} を逆計算で求めた. バルク値と逆計算値との差 δC_{NiO} を Fig. 6.6.1 に示す. C_{Pt} は同じ成膜温度, 基板でも3層膜と単層膜で異なると考えられる. また, Pt 単層膜から求めた値も計測誤差を含んでいる. よって, 逆計算で用いる C_{Pt} は実際の3層膜中での値とは異なる. しかし, 仮に C_{Pt} が5% 変化したとしても C_{NiO} の変化量は $\sim 3\%$ 程度であり, 本実験で生じた典型的な計測誤差 $\sim 5\%$ の範囲に収まっている. したがって, この試料構造において C_{Pt} の不確定性は C_{NiO} の決定精度にあまり影響しないことが分かる. 一方で, 5% の膜厚変化で C_{NiO} は $\sim 8\%$ 変化する. したがって, 本手法で C_{NiO} を正確に決定するには, 正確な膜厚測定が重要である. 本実験では, 膜厚を XRR によって決定した. このとき生じる膜厚の不確定性は $\sim 1\%$ 程度であり, これは C_{NiO} の逆計算値に2% 程度の変化を与えるが, 計測誤差の範囲内に収まっている. 以上より, 3層膜共鳴を用いた本手法によって ~ 30 nm の NiO 薄膜の弾性率を計測誤差の範囲内で計測できると結論付けた.

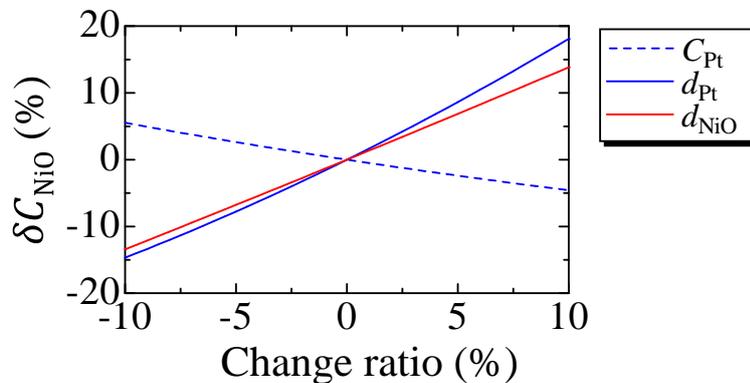


Fig. 6.6.1 Evaluated determination error δC_{NiO} in the elastic constant of NiO due to the changes of elastic constant of Pt (dashed line), film thicknesses of Pt and NiO (solid lines).

第7章

結言

本研究では以下の成果を得た。

- Fe をドープした高抵抗 GaN の内部摩擦を室温から 700 K までの温度域で正確に計測することで、熱活性伝導に由来する電子のエネルギー遷移を決定することができた。また、高温での GaN の弾性定数を初めて実験的に解明することに成功した。
- OVPE 法により作製された、酸素不純物を高濃度 ($\sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$) に含む GaN の弾性定数を計測することで、GaN 中の酸素により面内 Young 率 E_1 , C_{66} の弾性定数が約 1.5% 低下することを実験的に示した。酸素不純物を含むスーパーセルを作成し、第一原理計算により弾性定数した。計算された弾性定数の減少量 1.4% であり、実験での減少量と整合した。また、弾性定数の減少により Debye 温度が約 2% 低下することが分かった。
- 共鳴超音波スペクトロスコピー法による弾性定数の解析には、従来は共鳴周波数のモード同定が必要不可欠であった。本研究では、深層学習の画像認識能力を利用することで、立方晶系材料についてモード同定が不要な弾性定数推定法を確立した。また、本手法で使用するネットワークは、立方晶系のみ共鳴周波数で構成したデータセットで学習するが、このネットワークに六方晶系の画像を入力することで平均 Young 率を正確に推定することができる。
- 金属/誘電体/金属の 3 層の板厚共鳴を利用することで、膜厚が 30 nm の誘電体ナノ薄膜の弾性率をピコ秒超音波法で計測する手法を新たに提案し、計測することに成功した。本研究では誘電体膜として、スパッタリング法で成膜した NiO を使用した。成膜時の基板温度が 300–700 K の範囲では、NiO の弾性率は成膜温度の上昇とともに増加することが分かった。

付録 A

最適膜厚計算のための補足理論

A.1 多層膜の 1 次元音響共鳴モデル

ここでは, N 層からなる一般の多層膜についての 1 次元自由共鳴モデル²¹⁷⁻²¹⁹ について述べる. m 番目の層を伝播する縦波平面波を次のように書く.

$$u_m^{(\pm)} = A_m^{(\pm)} e^{i(\omega t \mp k_m z)} \quad (\text{A.1.1})$$

ここで, $u_m^{(\pm)}$ および $A_m^{(\pm)}$ は x 軸正負方向を伝播する平面波の変位と振幅である. k_m は波数であり, m 層目の弾性率と密度を C_m, ρ_m , 振動周波数を f とすると次のように書ける.

$$k_m = 2\pi f \sqrt{\frac{\rho_m}{C_m}} \quad (\text{A.1.2})$$

今は 1 次元モデルを考えているので, 応力は $\sigma_m^{(\pm)} = C_m \frac{\partial u_m^{(\pm)}}{\partial z}$ となる. 次に境界条件を考える. 与える境界条件は, 「多層膜の両端面で応力がゼロ」と「 $z = D_m$ での変位と応力の連続性」であり, それぞれ次のように書ける.

$$C_1 \left(\frac{\partial u_1^{(+)}}{\partial z} + \frac{\partial u_1^{(-)}}{\partial z} \right) = 0 \quad \text{at } z = D_0 \quad (\text{A.1.3})$$

$$C_N \left(\frac{\partial u_N^{(+)}}{\partial z} + \frac{\partial u_N^{(-)}}{\partial z} \right) = 0 \quad \text{at } z = D_N \quad (\text{A.1.4})$$

$$u_m^{(+)} + u_n^{(-)} = u_{m+1}^{(+)} + u_{m+1}^{(-)} \quad \text{at } z = D_m \quad (\text{A.1.5})$$

$$C_m \left(\frac{\partial u_m^{(+)}}{\partial z} + \frac{\partial u_m^{(-)}}{\partial z} \right) = C_{m+1} \left(\frac{\partial u_{m+1}^{(+)}}{\partial z} + \frac{\partial u_{m+1}^{(-)}}{\partial z} \right) \quad \text{at } z = D_m \quad (\text{A.1.6})$$

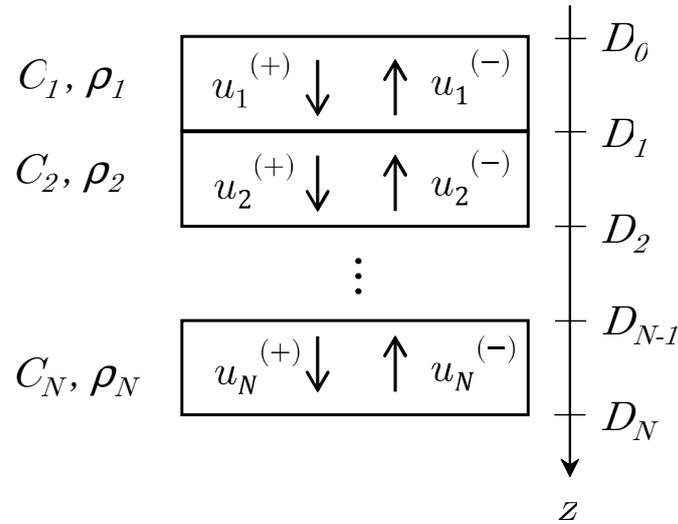


Fig. A.1.1 Schematic of the one-dimensional plane wave propagation.

上の4つの式を計算するとそれぞれ次のようになる.

$$A_1^{(+)} - A_1^{(-)} = 0 \quad (\text{A.1.7})$$

$$A_N^{(+)} e^{-ik_N D_N} - A_N^{(-)} e^{ik_N D_N} = 0 \quad (\text{A.1.8})$$

$$e^{-ik_m D_m} A_m^{(+)} + e^{ik_m D_m} A_m^{(-)} - e^{-ik_{m+1} D_m} A_{m+1}^{(+)} - e^{ik_{m+1} D_m} A_{m+1}^{(-)} = 0 \quad (\text{A.1.9})$$

$$\begin{aligned} & -C_m k_m e^{-ik_m D_m} A_m^{(+)} + C_m k_m e^{ik_m D_m} A_m^{(-)} \\ & + C_{m+1} k_{m+1} e^{-ik_{m+1} D_m} A_{m+1}^{(+)} - C_{m+1} k_{m+1} e^{ik_{m+1} D_m} A_{m+1}^{(-)} = 0 \end{aligned} \quad (\text{A.1.10})$$

これら4式は $2N$ 個の変数 $A_{1,\dots,N}^{\pm}$ についての連立方程式と見なすことができる. 振幅ベクトル $\mathbf{A} = (A_1^{(+)}, A_1^{(-)}, \dots, A_N^{(+)}, A_N^{(-)})$ を導入し, (A.1.7)-(A.1.10) を $2N \times 2N$ 行列 Γ を用いて行列表示すると次のようになる.

$$\Gamma \mathbf{A} = \mathbf{0} \quad (\text{A.1.11})$$

$\mathbf{A} = \mathbf{0}$ 以外の解を持つための条件は,

$$\det \Gamma = 0 \quad (\text{A.1.12})$$

である. これを解くことで, 共鳴周波数を得ることができ, 振幅ベクトルからひずみ分布を計算することができる.

A.2 光学多重反射モデル

多層膜内部の電場強度分布の計算に、光が試料に対して垂直に入射した場合の多重反射モデルを使用した。概略図を Fig. A.2.1 に示す。\$z\$ 座標は入射光と平行であり、試料表面は \$xy\$ 平面にあるとする。また、電場 \$E_m(z, t)\$ と磁場 \$H_m(z, t)\$ はそれぞれ \$y, x\$ 成分のみを持つとする。ここで、\$m\$ は5つの領域を表す (0, 4 は大気, 1-3 は各層)。1次元波動方程式の一般解から、各領域の電場は進行波と後退波の線形和で次式のように書ける：

$$E_m(z, t) = F_m e^{i(q_m z - \omega t)} + G_m e^{-i(q_m z + \omega t)}. \quad (\text{A.2.1})$$

ここで、\$F_m, G_m\$ は進行波と後退波の振幅、\$q_m\$ は領域 \$m\$ の光の波数である。Maxwell 方程式 (\$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}\$) より、磁場は次のように求まる：

$$H_m(z, t) = \frac{q_m}{\omega \mu_0} \left(F_m e^{i(q_m z - \omega t)} - G_m e^{-i(q_m z + \omega t)} \right), \quad q_m = \tilde{n}_m q_0. \quad (\text{A.2.2})$$

ここで、\$\tilde{n}_m, \mu_0\$ および \$q_0\$ はそれぞれ領域 \$m\$ の複素屈折率、真空の透磁率および真空の波数である。以下で示す式は任意の時間で成り立つので、時間依存項 \$e^{-i\omega t}\$ を無視する。また、電磁場を表現するため次のような行列表示を導入する：

$$\begin{pmatrix} E_m(z) \\ H_m(z) \end{pmatrix} = W_m(z) \begin{pmatrix} A_m \\ B_m \end{pmatrix}, \quad W_m(z) = \begin{pmatrix} e^{iq_m z} & e^{-iq_m z} \\ \frac{q_m}{\omega \mu_0} e^{iq_m z} & -\frac{q_m}{\omega \mu_0} e^{-iq_m z} \end{pmatrix}. \quad (\text{A.2.3})$$

領域 \$m\$ と \$m+1\$ の境界条件、

$$\begin{pmatrix} E_{m+1}(z_m) \\ H_{m+1}(z_m) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_m(z_m) \\ H_m(z_m) \end{pmatrix}, \quad (\text{A.2.4})$$

より、振幅について次の関係式を得る：

$$\begin{pmatrix} F_{m+1} \\ G_{m+1} \end{pmatrix} = M_m \begin{pmatrix} F_m \\ G_m \end{pmatrix}, \quad (\text{A.2.5})$$

$$M_m = \frac{1}{2q_{m+1}} \begin{pmatrix} (q_{m+1} + q_m) e^{-i(q_{m+1} - q_m) z_m} & (q_{m+1} - q_m) e^{-i(q_{m+1} + q_m) z_m} \\ (q_{m+1} - q_m) e^{i(q_{m+1} + q_m) z_m} & (q_{m+1} + q_m) e^{i(q_{m+1} - q_m) z_m} \end{pmatrix}. \quad (\text{A.2.6})$$

行列 \$W_m, M_m\$ を用いて、領域 \$m\$ の電磁場は、

$$\begin{pmatrix} E_m(z) \\ H_m(z) \end{pmatrix} = W_m(z) M_{m-1} \cdots M_0 \begin{pmatrix} A_0 \\ -\frac{M(2,1)}{M(2,2)} A_0 \end{pmatrix}, \quad M = M_3 M_2 M_1 M_0. \quad (\text{A.2.7})$$

となる。実際の数値計算では \$A_0 = 1\$ とし、Pt^{220, 221} と NiO²²² の複素屈折率 (\$\tilde{n} = n + i\kappa\$) の報告値を使用した。400 nm のプローブ光で \$n_{\text{Pt}} = 1.72, \kappa_{\text{Pt}} = 2.84, n_{\text{NiO}} =

2.59, $\kappa_{\text{NiO}} = 0$, 800 nm のポンプ光で $n_{\text{Pt}} = 2.83$, $\kappa_{\text{Pt}} = 4.94$, $n_{\text{NiO}} = 2.32$, $\kappa_{\text{NiO}} = 0$ である.

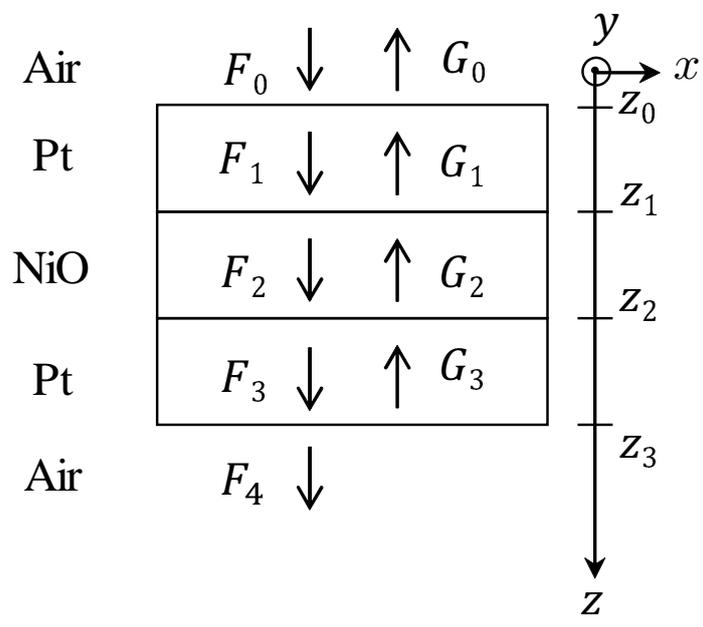


Fig. A.2.1 Schematic of the one-dimensional propagation of the electromagnetic wave.

参考文献

- [1] M. Kadota, T. Ogami, K. Yamamoto, Y. Negoro, and H. Tochishita, *Jpn. J. Appl. Phys.* **48**, 07GG08 (2009).
- [2] M. Kadota and T. Ogami, *Jpn. J. Appl. Phys.* **50**, 07HD11 (2011).
- [3] R. Goto, J. Fujiwara, H. Nakamura, and K. Hashimoto, *Jpn. J. Appl. Phys.* **57**, 07LD20 (2018).
- [4] M. Kadota, Y. Ishii, and S. Tanaka, *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, SKKC11 (2020).
- [5] M. Ueda, M. Hara, S. Taniguchi, T. Yokoyama, T. Nishihara, K. Hashimoto, and Y. Satoh, *Jpn. J. Appl. Phys.* **47**, 4007 (2008).
- [6] F. Thalmayr, K. Hashimoto, M. Ueda, T. Omori, and M. Yamaguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **49**, 07HD11 (2010).
- [7] M. Hara, T. Yokoyama, T. Sakashita, S. Taniguchi, M. Iwaki, T. Nishihara, M. Ueda, and Y. Satoh, *Jpn. J. Appl. Phys.* **49**, 07HD13 (2010).
- [8] S. F. Pugh, *Philos. Mag.* **45**, 823 (1954).
- [9] X.-Q. Chen, H. Niu, D. Li, Y. Li, *Intermetallics* **19**, 1275 (2011).
- [10] O. L. Anderson, *J. Phys. Chem. Solids* **24**, 909 (1963).
- [11] B. A. Danilchenko, I. A. Obukhov, T. Paszkiewicz, S. Wolski, and A. Jeżowski, *Solid State Commun.* **144**, 114 (2007).
- [12] A. Jeżowski, O. Churiukova, J. Mucha, T. Suski, I. A. Obukhov, and B. A. Danilchenko, *Mater. Res. Express* **2**, 085902 (2015).
- [13] A. Nagakubo, H. Ogi, H. Sumiya, K. Kusakabe, and M. Hirao, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 241909 (2013).
- [14] S. Lebègue, J. Harl, T. Gould, J. G. Ángyán, G. Kresse, and J. F. Dobson, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 196401 (2010).
- [15] K. Kusakabe, A. Wake, A. Nagakubo, K. Murashima, M. Murakami, K. Adachi, and H. Ogi, *Phys. Rev. Mater.* **4**, 043603 (2020).

-
- [16] M. de Jong, W. Chen, T. Angsten, A. Jain, R. Notestine, A. Gamst, M. Sluiter, C. K. Ande, S. van der Zwaag, J. J. Plata, C. Toher, S. Curtarolo, G. Ceder, K. A. Persson, and M. Asta, *Sci. Data.* **2**, 150009 (2015).
- [17] A. Jain, S. P. Ong, G. Hautier, W. Chen, W. D. Richards, S. Dacek, S. Cholia, D. Gunter, D. Skinner, G. Ceder, K. A. Persson, *APL Mater.* **1**, 011002 (2013).
- [18] J. E. Saal, S. Kirklin, M. Aykol, B. Meredig, and C. Wolverton, *JOM* **65**, 1501 (2013).
- [19] S. Kirklin, J. E. Saal, B. Meredig, A. Thompson, J. W. Doak, M. Aykol, S. Rühl, and C. Wolverton, *Npj Comput. Mater.* **1**, 15010 (2015).
- [20] S. Curtarolo, W. Setyawan, S. Wang, J. Xue, K. Yang, R. H. Taylor, L. J. Nelson, G. L.W. Hart, S. Sanvito, M. Buongiorno-Nardelli, N. Mingo, and O. Levy, *Comput. Mater. Sci.* **58**, 227 (2012).
- [21] A. Merchant, S. Batzner, S. S. Schoenholz, M. Aykol, G. Cheon, and E. D. Cubuk, *Nature* (2023).
- [22] International Energy Agency. (2023), *World Energy Outlook 2023*, (IEA, Paris, 2023).
- [23] 環境省 脱炭素ポータル, カーボンニュートラルとは, https://ondankataisaku.env.go.jp/carbon_neutral/about/ (2023/11/24 アクセス)
- [24] F. Roccaforte, P. Fiorenza, G. Greco, R. Nigro, F. Giannazzo, F. Iucolano, M. Saggio, *Microelectron. Eng.* **187**, 66, (2018).
- [25] T. Oka, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, SB0805 (2019).
- [26] A. Hassan, Y. Savaria and M. Sawan, *IEEE Access* **6**, 78790 (2018).
- [27] M. Kasu, N. Saha, T. Oishi, and S. Kim, *Appl. Phys. Express* **14**, 051004 (2021).
- [28] T. J. Flack, B. N. Pushpakaran, and S. B. Bayne, *J. Electron. Mater.* **45**, 2673 (2016).
- [29] H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki, and Y. Toyoda, *Appl. Phys. Lett.* **48**, 353 (1986).
- [30] H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu, and I. Akasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* **28**, L2112 (1989).
- [31] S. Nakamura, M. Senoh, and T. Mukai, *Jpn. J. Appl. Phys.* **30**, L1708 (1991).
- [32] S. Nakamura, T. Mukai, M. Senoh, and N. Iwasa, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, L139 (1992).
- [33] S. Nakamura, N. Iwasa, M. Senoh, and T. Mukai, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, 1258

- (1992).
- [34] S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, 2883 (1992).
 - [35] S. Nakamura, M. Senoh, and T. Mukai, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, L8 (1993).
 - [36] S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1687 (1994).
 - [37] S. Nakamura, M. Senoh, N. Iwasa, S. Nagahama, T. Yamada, and T. Mukai, *Jpn. J. Appl. Phys.* **34**, L1332 (1995).
 - [38] T. Mukai, D. Morita, and S. Nakamura, *J. Cryst. Growth* **189**, 778 (1998).
 - [39] T. Mukai, H. Narimatsu, and S. Nakamura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, L479 (1998).
 - [40] F. Bernardini, V. Fiorentini, and D. Vanderbilt, *Phys. Rev. B* **56**, R10024, (1997).
 - [41] T. Oka, Y. Ueno, T. Ina, and K. Hasegawa, *Appl. Phys. Express* **7**, 021002 (2014).
 - [42] T. Oka, T. Ina, Y. Ueno, and J. Nishii, *Appl. Phys. Express* **8**, 054101 (2015).
 - [43] R. Tanaka, S. Takashima, K. Ueno, H. Matsuyama, and M. Edo, *Jpn. J. Appl. Phys.* **59**, SGGD02 (2020).
 - [44] 国立研究開発法人科学技術振興機構 低炭素社会戦略センター, GaN 系半導体デバイスの技術開発課題とその新しい応用の展望 (Vol.4) (東京, 令和 2 年 2 月).
 - [45] Y. Mori, M. Imanishi, K. Murakami, and M. Yoshimura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, SC0803 (2019).
 - [46] T. Hashimoto, E. R. Letts, D. Key, and B. Jordan, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, SC1005 (2019).
 - [47] M. Imade, H. Kishimoto, F. Kawamura, M. Yoshimura, Y. Kitaoka, T. Sasaki, and Y. Mori, *J. Cryst. Growth* **312**, 676 (2010).
 - [48] J. Takino, T. Sumi, Y. Okayama, M. Nobuoka, A. Kitamoto, M. Imanishi, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, SC1043, (2019).
 - [49] J. Takino, T. Sumi, Y. Okayama, A. Kitamoto, S. Usami, M. Imanishi, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Jpn. J. Appl. Phys.* **60**, 095501 (2021).
 - [50] A. Hassan, Y. Savaria, and M. Sawan, *IEEE Access* **6**, 78790 (2018).
 - [51] W. J. Moore, Jr. J. A. Freitas, G. C. B. Braga, R. J. Molnar, S. K. Lee, K. Y. Lee, and I. J. Song, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2570 (2001).
 - [52] A. F. Wright, *J. Appl. Phys.* **98**, 103531 (2005).
 - [53] M. A. Alreesh, P. Von Dollen, T. F. Malkowski, T. Mates, H. Albrithen, S. DenBaars, S. Nakamura, and J. S. Speck, *J. Cryst. Growth* **508**, 50 (2019).
 - [54] G. A. Slack, L. J. Schowalter, D. Morelli, Jr. J. A. Freitas, *J. Cryst. Growth* **246**,

- 287 (2002).
- [55] R. B. Simon, J. Anaya, and M. Kuball, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 202105 (2014).
 - [56] H. Kanbara, H. Kobayashi, and K. Nakamura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **39**, 3049 (2000).
 - [57] T. Kimura, K. Daimon, T. Ogami, and M. Kadota, *Jpn. J. Appl. Phys.* **52**, 07HD03 (2013).
 - [58] H. Ogi, M. Fujii, N. Nakamura, T. Yasui, and M. Hirao, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 195503 (2007).
 - [59] N. Nakamura, H. Ogi, T. Yasui, M. Fujii, and M. Hirao, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 035502 (2007).
 - [60] A. Nagakubo, H. T. Lee, H. Ogi, T. Moriyama, and T. Ono, *Appl. Phys. Lett.* **116**, 021901 (2020).
 - [61] H. J. McSkimin, *J. Appl. Phys.* **24**, 988 (1953).
 - [62] O. L. Anderson and H. E. Bömmel, *J. Am. Ceram. Soc.* **38**, 125 (1955).
 - [63] H. Nakahata, H. Kitabayashi, T. Uemura, A. Hachigo, K. Higaki, S. Fujii, Y. Seki, K. Yoshida, and S. Shikata, *Jpn. J. Appl. Phys.* **37**, 2918 (1998).
 - [64] K. Yamanouchi and T. Ishii, *Jpn. J. Appl. Phys.* **41**, 3480 (2002).
 - [65] C. D. Corso, A. Dickherber, and W. D. Hunt, *J. Appl. Phys.* **101**, 054514 (2007).
 - [66] I. Koné, F. Domingue, A. Reinhardt, H. Jacquinet, M. Borel, M. Gorisse, G. Parat, F. Casset, D. Pellissier-Tanon, J. F. Carpentier, L. Buchillot, and B. Dubus, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 223504 (2010).
 - [67] H. Ogi, T. Shagawa, N. Nakamura, M. Hirao, H. Odaka, and N. Kihara, *Phys. Rev. B* **78**, 134204 (2008).
 - [68] A. Nagakubo, H. Ogi, H. Ishida, M. Hirao, T. Yokoyama, and T. Nishihara, *J. Appl. Phys.* **118**, 014307 (2015).
 - [69] A. Nagakubo, S. Tsuboi, Y. Kabe, S. Matsuda, A. Koreeda, and Y. Fujii, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 251905 (2019).
 - [70] A. Nagakubo, M. Arita, T. Yokoyama, S. Matsuda, M. Ueda, H. Ogi, and M. Hirao, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 07HD01 (2015).
 - [71] G. A. Alers and J. R. Neighbours, *J. Phys. Chem. Solids* **7**, 58 (1958).
 - [72] D. I. Bolef and M. Menes, *J. Appl. Phys.* **31**, 1010 (1960).
 - [73] D. I. Bolef, N. T. Melamed, and M. Menes, *J. Phys. Chem. Solids* **17**, 143 (1960).
 - [74] H. H. Demarest, *J. Acoust. Soc. Am.* **49**, 768 (1971).

-
- [75] I. Ohno, *J. Phys. Earth* **24**, 355 (1976).
- [76] I. Ohno, *Phys. Chem. Minerals* **17**, 371 (1990).
- [77] A. Migliori, J. Sarrao, M. W. Visscher, T. Bell, M. Ley, Z. Fisk, and R. Leisure, *Physica B* **183**, 1 (1993).
- [78] J. Maynard, *Phys. Today* **49**, 26 (1996).
- [79] J. Schiemer, L. J. Spalek, S. S. Saxena, C. Panagopoulos, T. Katsufuji, A. Busmann-Holder, J. Köhler, and M. A. Carpenter, *Phys. Rev. B* **93**, 054108 (2016).
- [80] E. Mochizuki, *J. Phys. Earth* **35**, 159 (1987).
- [81] K. Shinohara, D. C. Regan, Y. Tang, A. L. Corrion, D. F. Brown, J. C. Wong, J. F. Robinson, H. H. Fung, A. Schmitz, T. C. Oh, S. J. Kim, P. S. Chen, R. G. Nagele, A. D. Margomenos, and M. Micovic, *IEEE Trans. Electron Devices* **60**, 2982 (2013).
- [82] A. Hassan, Y. Savaria, and M. Sawan, *IEEE Access* **6**, 78790 (2018).
- [83] T. Mizutani, Y. Ohno, M. Akita, S. Kishimoto, and K. Maezawa, *IEEE Trans. Electron Devices* **50**, 2015 (2003).
- [84] R. Vetury, N. Q. Zhang, S. Keller, and U. K. Mishra, *IEEE Trans. Electron Devices* **48**, 560 (2001).
- [85] F. Yang, M. J. Uren, M. Gajda, S. Dalcanale, S. Karboyan, J. W. Pomeroy, M. Kuball, *Semicond. Sci. Technol.* **36**, 095024 (2021).
- [86] M. Meneghini, I. Rossetto, D. Bisi, A. Stocco, A. Chini, A. Pantellini, C. Lanzieri, A. Nanni, G. Meneghesso, and E. Zanoni, *IEEE Trans. Electron Devices* **61**, 4070 (2014).
- [87] P. B. Klein, S. C. Binari, K. Ikossi, A. E. Wickenden, D. D. Koleske, and R. L. Henry, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 3527 (2001).
- [88] D. W. Cardwell, A. Sasikumar, A. R. Arehart, S. W. Kaun, J. Lu, S. Keller, J. S. Speck, U. K. Mishra, S. A. Ringel, and J. P. Pelz, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 193509 (2013).
- [89] D. C. Look, D. C. Reynolds, W. Kim, Ö. Aktas, A. Botchkarev, A. Salvador, and H. Morkoç, *J. Appl. Phys.* **80**, 2960 (1996).
- [90] A. Y. Polyakov, N. B. Smirnov, A. V. Govorkov, A. V. Markov, T. G. Yugova, E. A. Petrova, A. M. Dabiran, A. M. Wowchak, A. V. Osinsky, P. P. Chow, S. J. Pearton, K. D. Shcherbatchev, and V. T. Bublik, *J. Electrochem. Soc.* **154**,

- H749 (2007).
- [91] H. Ogi, Y. Tsutsui, N. Nakamura, A. Nagakubo, M. Hirao, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 091901 (2015).
 - [92] N. Nakamura, M. Sakamoto, H. Ogi, and M. Hirao, *Rev. Sci. Instrum* **83**, 073901 (2012).
 - [93] H. Ogi, K. Sato, T. Asada, and M. Hirao, *J. Acoust. Soc. Am.* **112**, 2553 (2002).
 - [94] H. Ogi, T. Ohmori, N. Nakamura, and M. Hirao, *J. Appl. Phys.* **100**, 053511 (2006).
 - [95] N. Nakamura, T. Nakashima, H. Ogi, M. Hirao, and M. Nishiyama, *J. Appl. Phys.* **107**, 103541 (2010).
 - [96] V. Kirchner, H. Heinke, D. Hommel, J. Z. Domagala, and M. Leszczynski, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 1434 (2000).
 - [97] K. Adachi, H. Ogi, A. Nagakubo, N. Nakamura, M. Hirao, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Appl. Phys. Lett.* **109**, 182108 (2016).
 - [98] K. Shimada, *Jpn. J. Appl. Phys., Part 2* **45**, L358 (2006).
 - [99] D. D. Manchon, Jr., A. S. Barker, Jr., P. J. Dean, and R. B. Zetterstrom, *Solid State Commun.* **8**, 1227 (1970).
 - [100] A. R. Hutson and D. L. White, *J. Appl. Phys.* **33**, 40 (1962).
 - [101] H. Ogi, N. Nakamura, K. Sato, M. Hirao, and S. Uda, *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **50**, 553 (2003).
 - [102] F. Mott and W. D. Twose, *Adv. Phys.* **10**, 107 (1961).
 - [103] H. Fritzsche and M. Cuevas, *Phys. Rev.* **119**, 1238 (1960).
 - [104] P. Hache, A. Maekawa, N. Koide, K. Hiramatsu, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, 6443 (1994).
 - [105] P. Kordoš, M. Morvic, J. Betko, J. Novák, J. Flynn, and G. R. Brandes, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 5616 (2004).
 - [106] A. Y. Polyakov, N. B. Smirnov, A. V. Govorkov, and S. J. Pearton, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 3314 (2003).
 - [107] D. Wickramaratne, J. X. Shen, C. E. Dreyer, M. Engel, M. Marsman, G. Kresse, S. Marcinkevičius, A. Alkauskas, and C. G. Van de Walle, *Appl. Phys. Lett.* **109**, 162107 (2016).
 - [108] Y. S. Puzyrev, R. D. Schrimpf, D. M. Fleetwood, and S. T. Pantelides, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 053505 (2015).

-
- [109] M. Horita, T. Narita, T. Kachi, and J. Suda, *Appl. Phys. Express* **13**, 071007 (2020).
- [110] Y. P. Varshni, *Phys. Rev. B* **2**, 3952 (1970).
- [111] E. S. Fisher and C. J. Renken, *Phys. Rev.* **135**, A482 (1964).
- [112] L. J. Slutsky and C. W. Garland, *Phys. Rev.* **107**, 972 (1957).
- [113] J. F. Smith and J. A. Gjevne, *J. Appl. Phys.* **31**, 645 (1960).
- [114] T. Kim, J. Kim, R. Dalmau, R. Schlessner, E. Preble, and X. Jiang, *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control.* **62**, 1880 (2015).
- [115] K. Wang and R. R. Reeber, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 1602 (2001).
- [116] D. Chen, B. Shen, K. Zhang, Y. Tao, X. Wu, J. Xu, R. Zhang, and Y. Zheng, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, 18 (2006).
- [117] A. S. Yalamarthy and D. G. Senesky, *Semicond. Sci. Technol.* **31**, 035024 (2016).
- [118] H. Fukuda, A. Nagakubo, S. Usami, M. Ikeda, M. Imanishi, M. Yoshimura, Y. Mori, K. Adachi, and H. Ogi, *Appl. Phys. Express* **15**, 071003 (2022).
- [119] N. Nakamura, H. Ogi, and M. Hirao, *J. Appl. Phys.* **111**, 013509 (2012).
- [120] R. B. Schwarz, K. Khachatryan, and E. R. Weber, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1122 (1997).
- [121] P. Witczak, Z. Witczak, R. Jemielniak, M. Kryśko, S. Krukowski, and M. Boćkowski, *Semicond. Sci. Technol.* **30**, 035008 (2015).
- [122] A. Polian, M. Grimsditch, and I. Grzegory, *J. Appl. Phys.* **79**, 3343 (1996).
- [123] M. Yamaguchi, T. Yagi, T. Azuhata, T. Sota, K. Suzuki, S. Chichibu, and S. Nakamura, *J. Phys.: Condens. Matter* **9**, 241 (1997).
- [124] Y. Takagi, M. Ahart, T. Azuhata, T. Sota, K. Suzuki, S. Nakamura, *Physica B* **219-220**, 547, (1996).
- [125] W. Soluch, E. Brzozowski, M. Lysakowska, and J. Sadura, *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Frq. Control* **58** 2469 (2011).
- [126] G. Kresse and J. Hafner, *Phys. Rev. B* **47**, 558 (1993).
- [127] K. Adachi, H. Ogi, A. Nagakubo, N. Nakamura, M. Hirao, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *J. Appl. Phys.* **119**, 245111 (2016).
- [128] A. F. Wright, *J. Appl. Phys.* **98**, 103531 (2005).
- [129] J. L. Lyons, D. Wichramaratne, and C. G. Van de Walle, *J. Appl. Phys.* **129**, 111101 (2021).
- [130] K. Momma and F. Izumi, *J. Appl. Crystallogr.* **44**, 1272 (2011).

-
- [131] L. Fast, J. M. Wills, B. Johansson, and O. Eriksson, Phys. Rev. B **51**, 17431 (1995).
- [132] K. Kim, W. R. L. Lambrecht, and B. Segall, Phys. Rev. B **53**, 16310, (1996).
- [133] K. Shimada, T. Sota, and K. Suzuki, J. Appl. Phys. **84**, 4951, (1998).
- [134] Y. Duan, J. Li, S.-S. Li, and J.-B. Xia, J. Appl. Phys. **103**, 023705 (2008).
- [135] D. T. Morelli, J. P. Heremans, and G. A. Slack, Phys. Rev. B **66**, 195304 (2002).
- [136] R. Hill, Proc. Phys. Soc. A **65**, 349 (1952).
- [137] H. Siethoff and K. Ahlborn, J. Appl. Phys. **79**, 2968 (1996).
- [138] H. Ogi, K. Sato, T. Asada, and M. Hirao, J. Acoust. Soc. Am. **112**, 2553 (2002).
- [139] H. Fukuda, A. Nagakubo, O. B. Wright, K. Kyotani, and H. Ogi, Phys. Rev. Appl. **20**, 034048 (2023).
- [140] M. Blackman, Proc. Roy. Soc. Lond. **164**, 62 (1938).
- [141] H. Ledbetter, in *Handbook of Elastic Properties of Solids, Liquids, and Gases II*, eds. M. Levy, H. E. Bass, and R. R. Stern (Academic Press, New York, 2001) p.57.
- [142] J. R. Neighbours and G. A. Alers, Phys. Rev. **111**, 707 (1958).
- [143] H.-G. von Purwins, R. Labusch, and P. Haasen, Zeitschrift fur Metallkunde **57**, 867 (1966).
- [144] D. S. Tannhauser, L. J. Bruner, and A. W. Lawson, Phys. Rev. **102**, 1276 (1956).
- [145] R. F. S. Hearmon, Adv. Phys. **5**, 323 (1956).
- [146] P. M. Sutton, Phys. Rev. **91**, 816 (1953).
- [147] D. I. Bolef and M. Menes, J. Appl. Phys. **31**, 1426 (1960).
- [148] B. Golding, S. C. Moss, and B. L. Averbach, Phys. Rev. **158**, 637 (1967).
- [149] R. F. S. Hearmon, Rev. Mod. Phys. **18**, 409 (1946).
- [150] K.-O. Park and J. M. Sivertsen, Phys. Lett. **55A**, 62 (1975).
- [151] K. S. Aleksandrov and T. V. Ryzhova, Sov. phys, Crystallogr. **6**, 228 (1961).
- [152] H. J. McSkimin and D. G. Thomas, J. Appl. Phys. **33**, 56 (1962).
- [153] J. Gump, H. Xia, M. Chirita, R. Sooryakumar, M. A. Tomaz, and G. R. Harp, J. Appl. Phys. **86**, 6005 (1999).
- [154] N. Uchida and S. Saito, J. Acoust. Soc. Am. **51**, 1602 (1972).
- [155] D. I. Bolef and J. de Klerk, Phys. Rev. **129**, 1063 (1963).
- [156] W. C. Overton and Jr. J. Gaffney, Phys. Rev. **98**, 969 (1955).

-
- [157] S. Siegel, Phys. Rev. **57**, 537 (1940).
- [158] J. R. Neighbours and C. S. Smith, Acta Metal. **2**, 591 (1954).
- [159] R. E. Schmunk and C. S. Smith, Acta Metal. **8**, 396 (1960).
- [160] J. A. Rayne, Phys. Rev. **112**, 1125 (1958).
- [161] H. M. Rosenberg and J. K. Wigmore, Phys. Lett. **24A**, 317 (1967).
- [162] J. A. Rayne and B. S. Chandrasekhar, Phys. Rev. **112**, 1714 (1961).
- [163] H. J. Leamy, E. D. Gibson and F. X. Kayser, Acta Metal. **15**, 1827 (1967).
- [164] J. R. Drabble and A. J. Brammer, Solid State Commun. **4**, 467 (1966).
- [165] R. Weil and W. O. Groves, J. Appl. Phys. **39**, 4049 (1968).
- [166] H. J. McSkimin, A. Jayaraman, P. Andreatch, and Jr. T. B. Bateman, J. Appl. Phys. **39**, 4127 (1968).
- [167] G. W. Shannette and J. F. Smith, J. Appl. Phys. **40**, 79 (1969).
- [168] T. Alper and G. A. Saunders, J. Phys. Chem. Solids **28**, 1637 (1967).
- [169] D. Gerlich, J. Appl. Phys. **35**, 3062 (1964).
- [170] F. S. Hickernell and W. R. Gayton, J. Appl. Phys. **37**, 462 (1966).
- [171] R. F. Potter, Phys. Rev. **103**, 47 (1956).
- [172] K. M. Koliwad, P. B. Ghate, and A. L. Ruoff, Phys. Stat. Sol. **21**, 507 (1967).
- [173] L. C. Davis, W. B. Whitten, and G. C. Danielson, J. Phys. Chem. Solids **28**, 439 (1967).
- [174] C. H. Cheng, J. Phys. Chem. Solids **28**, 413 (1967).
- [175] M. F. Lewis, J. Acoust. Soc. Am. **40**, 728 (1966).
- [176] D. W. Oliver, J. Appl. Phys. **40**, 893 (1969).
- [177] D. I. Bolef and J. de Klerk, J. Appl. Phys. **33**, 2311 (1962).
- [178] D. L. Davidson and F. R. Brotzen, J. Appl. Phys. **39**, 5768 (1968).
- [179] M. A. Durand, Phys. Rev. **50**, 449 (1936).
- [180] R. Viswanathan, J. Appl. Phys. **37**, 884 (1966).
- [181] J. T. Lewis, A. Lehoczky, and C. V. Briscoe, Phys. Rev. **161**, 877 (1967).
- [182] P. E. Armstrong, J. M. Dickinson, and H. L. Brown, Trans. Metal. Soc. AIME **236**, 1404 (1966).
- [183] K. R. Keller and J. J. Hanak, Phys. Lett. **21**, 263 (1966).
- [184] R. J. Wasilewski, Trans. Metal. Soc. AIME **236**, 455 (1966).
- [185] E. Z. Vintaikin, Sov. Phys.-Dokl. **11**, 91 (1966).
- [186] S. G. Epstein and O. N. Carlson, Acta Metal. **13**, 487 (1965).

- [187] J. H. Wasilik and M. L. Wheat, *J. Appl. Phys.* **36**, 791 (1965).
- [188] J. A. Rayne, *Phys. Rev.* **118**, 1545 (1960).
- [189] N. G. Einspruch and L. T. Claiborne, *J. Appl. Phys.* **35**, 175 (1964).
- [190] R. E. MacFarlane, J. A. Rayne, and C. K. Jones, *Phys. Lett.* **18**, 91 (1965).
- [191] M. Ghafelehbash, D. P. Dandekar, and A. L. Ruoff, *J. Appl. Phys.* **41**, 652 (1970).
- [192] H. J. McSkimin, Jr. P. Andreatch, *Appl. Phys.* **35**, 2161 (1964).
- [193] D. Gerlich, *Phys. Rev.* **136**, A1366 (1964).
- [194] D. L. Johnston, P. H. Thrasher, and R. J. Kearney, *J. Appl. Phys.* **41**, 427 (1970).
- [195] J. B. Wachtman, Jr. M. L. Wheat, and S. Marzullo, *J. Res. Natl. Bur. Stand* **67A**, 193 (1963).
- [196] D. I. Bolef, *J. Appl. Phys.* **32**, 100 (1961).
- [197] P. E. Armstrong, O. N. Carlson, and J. F. Smith, *J. Appl. Phys.* **30**, 36 (1959).
- [198] P. M. Macedo, W. Capps, and Jr. J. B. Wachtman, *J. Amer. Ceram. Soc.* **47**, 651 (1964).
- [199] S. von Haussühl, *Acta Cryst.* **13**, 685 (1960).
- [200] L. J. Graham, H. Nadler, and R. Chang, *J. Appl. Phys.* **34**, 1572 (1963).
- [201] J. B. Wachtman, Jr. M. L. Wheat, H. J. Anderson, and J. L. Bates, *J. Nucl. Mat.* **16**, 39 (1965).
- [202] G. A. Alers, *Phys. Rev.* **119**, 1532 (1960).
- [203] D. Berlincourt, H. Jaffe, and L. R. Shiozawa, *Phys. Rev.* **129**, 1009 (1963).
- [204] R. Hill, *Proc. Phys. Soc. A* **65**, 349 (1952).
- [205] J. F. Smith and C. L. Arbogast, *J. Appl. Phys.* **31**, 99 (1960).
- [206] Y. A. Change and L. Himmel, *J. Appl. Phys.* **37**, 3787 (1966).
- [207] E. S. Fisher and D. Dever, *Trans. Metal. Soc. AIME* **239**, 48 (1967).
- [208] M. L. Shepard and J. F. Smith, *J. Appl. Phys.* **36**, 1447 (1965).
- [209] C. Thomsen, J. Strait, Z. Vardeny, H. J. Maris, and J. Tauc, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 989 (1984).
- [210] C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris, and J. Tauc, *Phys. Rev. B* **34**, 4129 (1986).
- [211] R.E. Macfarlane, J.A.Rayne, and C.K. Jones, *Phys. Lett.* **18**(2), 91 (1965).
- [212] N. Uchida and S. Saito, *J. Acoust. Soc. Am* **51**, 1602 (1972).

-
- [213] N. Nakamura, H. Ogi, T. Shagawa, and M. Hirao, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 141901 (2008).
- [214] N. Nakamura, Y. Nakamichi, H. Ogi, M. Hirao, and M. Nishiyama, *Jpn. J. Appl. Phys.* **52**, 07HB05 (2013).
- [215] M. Grimsditch, Sudha Kumar and R.S. Goldman, *J. Magn. Magn. Mater* **129**, 327 (1994).
- [216] J. Wang, E.S. Fisher and M.H. Manghnani, *Chinese Phys. Lett.* **8**, 153 (1991).
- [217] H. Ogi, Y. Fukunishi, T. Omori, K. Hatanaka, M. Hirao, M. Nishiyama, and, *Anal. Chem.* **80**, 5494 (2008).
- [218] K. Uehara, H. Ogi, and M. Hirao, *Appl. Phys. Express* **7**, 025201 (2014).
- [219] A. Nagakubo, K. Adachi, T. Nishihara, and H. Ogi, *Appl. Phys. Express* **13**, 016504 (2020).
- [220] S. Adachi, *The Handbook on Optical Constants of Metals: In Tables and Figures* (World Scientific, Singapore, 2012)p.381.
- [221] J. H. Weaver, *Phys. Rev. B* **11**, 1416 (1975).
- [222] R. J. Powell and W. E. Spicer, *Phys. Rev. B* **2**, 2182 (1970).

謝辞

博士論文を完成させるまでの過程で、たくさんの方々から貴重な知識や経験を学ばせていただきました。まずは、指導教員である荻博次教授に心から感謝申し上げます。私は学部では理論物理学研究室に所属しており、全く超音波の経験はありませんでしたが、快く私を受け入れてくださり、5年間熱心に指導してくださりました。荻先生の学問に対する探究心や、研究を進める際のアプローチなどは間違いなく私の生涯の手本になると確信しています。また、面白い結果が出てきた時の研究に対する熱量などは、まさしく私の思い描く理想の研究者像と合致しており、非常に刺激的な研究生活を送ることができました。

長久保白助教には、実験技術や研究結果に対して様々なアドバイスをいただきました。何かを実行する際の見通しの立て方、根拠の示し方、どのようにすれば綺麗なデータが取れるのかなど、日々長久保さんから学ぶことが多くありました。長久保さんならどうするか、ということをもまず第一に考える習慣が身につく、今後の私の研究生活に間違いなく役立つと確信しています。心から感謝申し上げます。

中島吉太郎助教には、研究会などで様々なご指摘やアドバイスをいただきました。感謝申し上げます。また、秘書の戸田さんと山元さんには様々な場面において、研究室運営を助けてくださりました。感謝申し上げます。薬品管理などを行ってくださった押鐘寧助教にも感謝申し上げます。

研究室の博士課程の貴重な先輩である周さん、ケビンさんには大変お世話になりました。博士課程とはどういうものか、ということの後輩目線でお二人から学ぶことができました。また、日常的に英語で会話することができる貴重な留学生でもありました。英語を気軽に話せるようになったのは、間違いなくお二人のお陰です。本当にありがとうございました。Wenlou 君は博士課程の同期として切磋琢磨し合える存在で、とても心強かったです。ありがとうございました。その他の学生メンバーにも、日々の生活を助けていただきました。本当にありがとうございました。

本論文をご精読いただき有益なご助言を賜りました大阪大学工学研究科の山内和人教授、森川良忠教授に心より感謝申し上げます。大阪大学工学研究科の森勇介教授、宇佐美茂

佳助教には GaN の試料をご提供いただきました。心より感謝申し上げます。論文の執筆に際し、招聘教授の Oliver B. Wright 先生 (北海道大学名誉教授) には様々なアドバイスをいただきました。心より感謝申し上げます。

最後に、あらゆる面で生活を支えてくれた両親へ心から感謝申し上げます。大学へ9年間通わせてくれ、欲しいと思った専門書なども惜しみなく購入してくれました。博士論文を完成させることができたのは、間違いなく両親の献身的なサポートのお陰です。今までの身に着けてきた経験を活かし、立派な人物になることで恩を返していこうと思います。本当にありがとうございました。

研究業績

発表論文

1. **Hiroki Fukuda**, Akira Nagakubo, Shigeyoshi Usami, Masayuki Imanishi, Yusuke Mori, and Hirotsugu Ogi,
"Elastic constants of GaN grown by oxide-vapor-phase-epitaxy method",
Applied Physics Express **17**, 016501 (2024).
2. **Hiroki Fukuda**, Akira Nagakubo, Oliver B Wright, Kazuhiro Kyotani, and Hirotsugu Ogi,
"Deep-learning-assisted resonant ultrasound spectroscopy for cubic solids",
Physical Review Applied **20**, 034048 (2023).
3. **Hiroki Fukuda**, Akira Nagakubo, Shigeyoshi Usami, Masashi Ikeda, Masayuki Imanishi, Masashi Yoshimura, Yusuke Mori, Kanta Adachi, and Hirotsugu Ogi,
"Determination of the electron trap level in Fe-doped GaN by phonon-assisted conduction phenomenon",
Applied Physics Express **15**, 071003 (2022).
4. **Hiroki Fukuda**, Akira Nagakubo, and Hirotsugu Ogi,
"Elastic constant of dielectric nano-thin films using three-layer resonance studied by picosecond ultrasonics",
Japanese Journal of Applied Physics **60**, SDDA05 (2021).

国際会議

1. **Hiroki Fukuda**, Akira Nagakubo, Oliver B. Wright, Kazuhiro Kyotani, and Hirotsugu Ogi,
”Deep-learning prediction of elastic constants for rectangular parallelepiped cubic materials using free-vibration resonant frequencies”, 2E2-1,
The 44th Symposium on UltraSonic Electronics, (Toyama International Conference Center, Toyama, Japan, 13–15/11/2023).
 2. **Hiroki Fukuda**, Akira Nagakubo, Shigeyoshi Usami, Yusuke Mori, and Hirotsugu Ogi,
”Elastic and thermal diffusion properties of OVPE GaN studied by picosecond ultrasonic microscopy”,
The 2023 IEEE International Ultrasonics Symposium (Palais des congrès de Montréal, Montreal, Quebec, Canada, 3–8/9/2023).
 3. **Hiroki Fukuda**, Akira Nagakubo, and Hirotsugu Ogi,
”Machine learning prediction of initial values of elastic constants in resonant ultrasound spectroscopy”, 2Pb2-7,
The 43rd Symposium on UltraSonic Electronics (Doshisha University, Kyoto, Japan, 7–9/11/2022).
 4. **Hiroki Fukuda**, Akira Nagakubo, Masayuki Imanishi, Yusuke Mori, and Hirotsugu Ogi,
”Anelastic properties of gallium nitride studied by resonant ultrasound spectroscopy at elevated temperatures”, 2Pa1-2,
The 42nd Symposium on UltraSonic Electronics (ACT CITY HAMAMATSU Congress Center, Shizuoka, Japan, 25–27/10/2021).
 5. **Hiroki Fukuda**, Akira Nagakubo, and Hirotsugu Ogi,
”Acoustic properties of metal/antiferromagnet epitaxial multilayers”, 3Pa1-3,
The 41st Symposium on UltraSonic Electronics (25–27/11/2020, Osaka University, Osaka, Japan).
- * Received the Young Scientist Award.

国内会議

1. 福田 大樹, 長久保 白, 今西 正幸, 宇佐美 茂佳, 吉村 政志, 森 勇介, 荻 博次,
”アンテナ発信超音波共鳴法を用いた高抵抗 GaN のホッピング伝導による緩和現象の計測”, 23p-D113-3,
第 69 回 応用物理学会 春季学術講演会 (青山学院大学 相模原キャンパス, 2022 年
3 月 22 日-26 日).

受賞

1. Young Scientist Award (The 41st Symposium on UltraSonic Electronics).