薄膜および微細構造における GHz-THz 音響波伝播のイメージング

松田 理^{*1}・ライト オリバー B.^{*1}

Imaging GHz-THz Acoustic Wave Propagation in Thin Films and Microstructures

Osamu MATSUDA^{*1} and Oliver B. WRIGHT^{*1}

^{*1}Division of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Hokkaido University, Sapporo 060-8628, Japan

(Received August 28, 2009, Accepted December 10, 2009)

Ultrashort light pulses absorbed in a medium generate both bulk and surface acoustic waves: we focus here on imaging the surface waves and on monitoring the bulk acoustic waves that propagate in the depth direction. This is done in the time domain by delayed probe light pulses. For the bulk acoustic waves, the generated frequency ranges up to 1 THz. Some studies concerning the ultrafast electron-phonon relaxation in metal films, high frequency generation in semiconductor quantum wells, and high frequency shear acoustic wave generation and detection are reviewed here. For the surface acoustic waves the generated frequency ranges up to 1 GHz, and time-resolved two-dimensional images of the propagation are obtained with micron lateral spatial resolution. This imaging method is applied to anisotropic crystals and phononic crystals to elucidate their acoustic properties.

1. はじめに

音響波はあらゆる物質中を伝播し、また物質中の様々な構造不均一性によって散乱される。音響波の持つこのような性質は、古くから物質の内部構造を調べるために利用されてきた。身近な例としては魚群探知、航空機等の機体検査、内臓の超音波診断などがあげられる。波動をプローブとするこれらの方法では、回折限界のために空間分解能がプローブの波長によって制限される。上記の応用例では数 10 kHz～数 MHz の音響波（超音波）が用いられ、分解能は m から mm 程度となっている。

より小さな構造を観測するためには、より高い周波数の音響波を用いばよい。しかしながら、一般的な圧電体超音波トランスデューサは数 10 MHz 以上の音響波発生にあまり適していない。より高い周波数の音響波を発生させる有効な方法としては、超短光パルスの照射による物質中の急激かつ局所的な応力発生（例えば熱応力）を用いるものがあげられる。近年のレーザー技術の進歩により、サブピコ秒の時間幅を持つ光パルスは比較的容易に得られるようになった。このような超短光パルスを用いることで原理的には THz 超の音響波を発生させることができる。また、発生・伝播した THz 音響波の検出も超短光パルスを用いて可能である。THz 音響波は一般的な固体中では nm オーダーの波長を持ち、これを利用することで nm オーダーの構造物を調べることができる。また、音響波は光と比較して偏極自由度が高く、また物質の異方性の効果がより顕著に現れる（例えば GaAs などの立方晶結晶は光学的には等方的であるが、弾力的には異方的である）。これらを総合することで、対象物の物性をより深く理解できる。

本稿では、このような超短パルスレーザーを用いた高周波数音響波の発生・検出、およびそれによる物性研究の最近の

動向を我々の研究とあわせて紹介する。

2. ピコ秒レーザー音響法

1980年代に光学的手法を用いて物質中の電子の超高速ダイナミクスを研究していた Maris らは、数 100 nm 厚の薄膜にピコ秒時間幅のレーザーパルスを照射すると、試料の光反射率が数 10 ps 周期で変化することを見出した¹⁾。この過渡的光反射率変化は、光照射によって薄膜表面近傍で生成された空間幅数 10 nm の音響波パルスが、薄膜中を往復することによって生じており、光反射率変化の周期から、膜厚や膜の弾性定数などについての知見が得られた。この手法は金属¹⁻⁷⁾・半導体^{1,8,9)}・誘電体¹⁰⁻¹²⁾の単層・多層膜構や微細構造の研究に広く用いられるようになった。このような実験手法およびそれによる物性研究は、包括的にピコ秒超音波法（picosecond ultrasonics）またはピコ秒レーザー超音波法（picosecond laser ultrasonics, laser picosecond ultrasonics）と呼ばれる分野を形成している。

Fig. 1 に我々の用いているピコ秒レーザー超音波法の測定装置の概略を示す。光源にはモードロック Ti サファイア

Fig. 1 Schematic diagram of the typical setup for picosecond laser ultrasonics measurements. SHG: second harmonic generation crystal, AOM: acousto-optic modulator, HWP: half wave plate, QWP: quarter wave plate, pol.: polarizer, PBS: polarizing beam splitter, NPBS: non-polarizing beam splitter, and DM: dichroic mirror

^{*1} 北海道大学大学院工学研究院応用物理学部門（〒060-8628 札幌市北区北13条西8丁目）

レーザーを用いる。発生する光は波長 780~850 nm 程度、時間幅約 100 fs、繰り返し周波数約 80 MHz で 1 パルスあたりの強度は 10 nJ 程度である。この光を試料上の直径数 μm から数 10 μm の領域に集光する。以降この光をポンプ光とよぶ。試料に吸収されたポンプ光は主に試料の電子系を励起し、後に述べるような種々の機構によって音響波を発生する。音響波の伝播に伴って、試料の光反射率が時々刻々変化する。レーザーからの光はまた非線形光学結晶により波長が半分の第 2 高調波パルスに変換された後、試料上のポンプ光照射部分に集光される。以降この光をプローブ光と呼ぶ。反射されたプローブ光の強度を測定することにより、プローブ光が試料に照射された瞬間の試料の光反射率を測定できる。ポンプ光とプローブ光との試料への到着時間は、それぞれの光路長によって決まっており、図中の遅延光路の長さを変化させることにより、試料の過渡的光反射率の時間変化を得ることができる。このような測定方法を光ポンププローブ法と呼ぶ。測定系の時間分解能はほぼ光パルス幅でまじり ps 以下である。また測定可能な最大遅延時間は遅延光路の可変長でまじり ns のオーダーである。

音響波が光反射率を変調する機構についてもう少し詳しく見てみよう。物質の変形は「歪み」という物理量で記述される。音響波は物質の変形が波動として伝わるものであるが、これは物質中の歪みの時間・空間的な変化ととらえることができる。一方物質中の光伝播は物質の誘電率によって支配されており、光の反射・散乱は誘電率の空間的な不均一性（例えば異なる物質間の界面）によって引き起こされる。物質の誘電率は、物質の電子バンド構造によって支配されているが、物質中の歪みによって物質を構成する原子間の距離・配置が変化すると電子バンド構造も変化するので、結局歪みによって誘電率が変化し、ひいては光反射率が変化することになる。これを光弾性効果という。なお物質の誘電率およびその変化は一般に複素数であらわれ、反射光の電場は振幅のみならず位相も変調される。以降本稿では電場についての複素光反射係数（変化）を単に光反射係数（変化）と呼ぶ。

音響波による光反射係数変調の別の代表的な機構は、表面・界面の変位である。音響波の歪みが物質の密度変化を伴うような場合、試料の表面・界面の位置が音響波の伝播に伴って変化する。これによってプローブ光学系の光路長が変化し、反射光の位相が変調される。これは一般に使われる意味での試料の光反射係数変化ではないが、本稿ではこれも含めて試料の光反射係数変化と呼ぶことにする。音響波による光反射係数変調の機構には、これらの他にも圧電効果と電気光学効果とが組合わさったものや試料の局所的な回転なども考えられるが、ここでは割愛する。

上に述べた反射光の位相変調情報は、光反射係数変化の虚部に含まれている。しかし、光の強度は電場の振幅のみに依存するので、単に反射光の強度を測定するだけでは、この位相変調情報を取得することはできない。光反射率係数変化の実部、虚部をとともに測定するためには干渉計を使う必要がある。このためにマッハツェンダー干渉計を使う方法⁴⁾、サニャック干渉計を使う方法¹³⁾、マイケルソン干渉計を使う方法¹⁴⁾が提案されている。Fig. 1 では網掛け部分が時間分割・

共通光路型のサニャック干渉計になっており、これにより光反射係数変化 $\delta r/r$ の実部 ρ 、虚部 $\delta\phi$ をそれぞれ独立に測定することができる。

干渉計の動作の概略は以下の通りである。干渉系に入射したプローブ光パルスは偏光ビームスプリッター (PBS) によって 2 つに分けられ、それぞれが異なる光路を通ることにより、数 100 ps 程度の時間差を持って試料上の同一位置に入射する。試料から反射されたプローブ光パルスは PBS と $\lambda/4$ 波長板 (QWP) の働きにより、互いに往路と入れ替わった光路を逆に辿る。これにより 2 つの光パルスは先に獲得した時間差を解消し、ひとつになって光検出器に入射する。光検出器前の偏光子 (pol.) と QWP は 2 つの光パルスを干渉させる働きを持っており、光検出器では試料で反射された 2 つの光パルスの強度および位相差が検出される。一方の光パルスの試料入射時間をポンプ光入射前、他方をポンプ光入射後となるように選んでおけば、ポンプ光によって引き起こされた音響波伝播に伴う過渡的な光反射係数変化を測定できる。

ピコ秒レーザー超音波法測定で得られる光反射係数変化は通常 10^{-6} オーダーと極めて小さい。このような小さな信号を低雑音で感度良く検出するためにロックイン検出法を用いる。Fig. 1 においてポンプ光学系に配置された光音響変調器 (acousto-optic modulator, AOM) によって、レーザーからの繰り返し光パルス列を、1 MHz 程度の周波数で断続的に変調する。このように変調されたポンプ光パルス列を用いることにより、光検出器で検出される信号（干渉計の出力光強度）も同じ周波数で変調される。変調周波数に等しい周波数成分のみを増幅するロックインアンプを用いることで、微小な信号強度変化を感度良く検出することができる。測定対象は ps オーダーの超高速現象であるにもかかわらず、光検出器はロックイン検出の変調周波数程度の帯域幅のもので十分である。

3. バルク音響波

光照射によって発生する音響波は大きくバルク音響波と表面音響波に分けることができる。バルク音響波は試料内部を伝播する波、表面音響波は試料表面に沿って伝播する波である。本節ではバルク音響波に関する事項について述べる。ピコ秒レーザー超音波法における観測対象は、通常、試料表面から数 μm までの深さ領域である。多くの場合この深さはポンプ光のスポット径より小さい。この条件でかつ試料表面が平坦な場合は、表面に垂直な方向に伝播するバルク波が主に生成・観測される。

試料として多層膜を考え、試料表面近傍でバルク音響波が生成されるとすると、深さ方向に伝播する音響波は試料内の各界面においてその一部が反射され試料表面に戻ってくる。固体中の音速は概ね数 km/s すなわち数 nm/ps なので、100 nm 程度の薄膜中での音響波の往復に要する時間は数 10 ps となる。2 節で解説した測定系を用いて音響波伝播に伴う過渡的反射率測定を行うと、音響波の往復時間に対応した信号が得られる。このようにして、多層膜の構造を nm 精度で調べることができる^{4,11,15)}。しかしピコ秒レーザー超音波法

で得られる情報はこれにとどまらず、この他にも物質の弾性的性質^{1,5,7,10,16}、超音波減衰^{1,12}、光弾性効果^{4,10,11,15,17}、圧電効果⁸、熱拡散^{1,5}、電子格子相互作用^{1-3,6}、光励起キャリアの超高速ダイナミクス^{2,3,6,9}など様々な物性情報が得られる。以下にいくつかの事例を紹介する。

3.1 金属薄膜

金属表面に超短光パルスが入射する場合を考えよう。金属における可視光の吸収距離は概ね 10 nm 前後で、光吸収により吸収距離程度までの深さに電子が励起される。電子はフォトンから eV オーダーのエネルギーを受け取るので、励起直後の電子系は熱平衡状態から大きく逸脱した状態にある。この余剰のエネルギーは他の励起されていない電子に急速に分配される。物質を構成するもうひとつの主要な系であるフォノン系と電子系との相互作用は、電子系内の相互作用に比べてずっと弱いので、この初期段階の緩和は主に電子系の中だけで起り、励起後数 fs 以内には電子系はフォノン系とは独立に熱平衡状態になると考えられる。典型的なピコ秒レーザー超音波法の励起条件では電子系の温度上昇は 100 K のオーダーである。電子系に蓄えられたエネルギーは、電子格子相互作用を介してゆっくりとフォノン系にも分配されていき、励起後数 ps 程度で全系が熱平衡状態になる。この温度上昇は数 K のオーダーである。金属の場合、このフォノン系の温度上昇に伴う熱応力が音響波（コヒーレント音響フォノン）の発生源となる。

電子系とフォノン系が熱平衡になる過程において、励起電子の拡散を無視することはできない。この拡散のために、一般にフォノン系の温度上昇領域は最初の励起電子の分布領域（ $\approx$ 光の吸収距離）よりも広くなる。粗い近似としては、励起される音響波パルスの空間幅はフォノン系の温度上昇領域に一致していると考えてよいが、より詳細な議論を行うためには、電子系の拡散方程式、電子格子相互作用による電子系とフォノン系のエネルギー交換、フォノン系の熱応力の時空間発展を考慮した弾性波動方程式を連立させる二温度モデルが有効である¹⁸。

熱拡散定数が大きい金、銀、アルミニウムなどでは、電子系からフォノン系にエネルギーが緩和する間に励起電子は 100 nm 以上も拡散する。一方、熱拡散定数が小さく、電子格子相互作用が大きいクロム、ニッケルなどでは励起電子の拡散は吸収距離と同程度の大きさである。このため、生成される音響波パルスの周波数スペクトルは前者では数 10 GHz の程度であるのに対し、後者では数 100 GHz に達する。

例として Si(100) 基板上に電子ビーム蒸着で形成した厚さ 190 nm のクロム薄膜に対して、Fig. 1 の測定系を用いて測定を行った結果を Fig. 2(a) に示す⁶。遅延時間に対して光反射係数変化の実部 ρ 、虚部 $\delta\phi$ をプロットしてある。0 ps 付近の鋭いピークは電子系の励起によるものである。その後ゆっくりと緩和する背景信号に重畳して約 60 ps 周期で小さなピークが認められる。前者は 3 次元熱拡散による試料の温度変化、後者がクロム薄膜中を往復する音響波パルスによる信号である。

Fig. 2(b) に音響波パルスによる信号部分の拡大図を示す。実線が実験結果である。破線では、電子の拡散を無視

Fig. 2 (a) Transient reflectance change of a Cr/Si(100) sample. ρ and $\delta\phi$ are the real and imaginary parts of the reflectance change. (b) Magnified view of the reflectance change caused by the arrival of the acoustic pulses at the sample surface. Solid line: experimental result, dashed line: simulation ignoring electron diffusion, and dotted line: simulation including electron diffusion (two temperature model).

し、光が吸収された瞬間の励起電子分布に基づいて温度上昇ひいては熱応力分布を計算し、これを波源として音響波パルス形状を計算した。一方、点線では、電子の拡散、およびフォノン系へのエネルギー緩和を考慮した二温度モデルでフォノン系の温度を計算した。次にこれにもとづいて求めた熱応力分布の時空間発展を波源として音響波パルス形状を計算した。破線・点線いずれの場合も得られた音響波パルス形状から光弾性効果による誘電率の不均一な変調を求め、これにもとづいて光反射係数変化を計算した。破線では信号形状が左右対称であるのに対し、点線では非対称になっている。また拡散のために後者のパルス幅のほうが前者に比べて広がっている。後者による計算結果の方が実験結果をより忠実に再現している。このようなモデル計算と実験結果との比較により、電子・フォノン系の超高速緩和のモデルを検証するとともに、電子格子相互作用の強さや光弾性定数などを定量的に見積もることができた。

3.2 半導体量子井戸

3.1 節でみたように、金属に光パルスが照射された場合の音響波発生の機構は熱応力（熱膨張）を基本とするものであった。半導体における音響波発生では、これに加えて変形ポテンシャルが重要になってくる。これは電子系が励起されることによって格子の平衡位置が変化することに基づくもので、伝導帯に励起された電子あるいは荷電子帯に励起された正孔の密度に応じて応力が発生する。

幅の異なる 3 つの GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As 量子井戸層を GaAs (100) 基板上に成長させた試料 (Fig. 3(a)) に対して、Fig. 1 の光学系を用いて測定を行った¹⁹。ただし光源には同期して作動する 2 台のモードロック Ti サファイアレーザーを使用し、ポンプ光とプローブ光の波長を独立に選択できるようにした。プローブに用いる波長 415 nm の光は試料に対する侵入長が 10 nm 程度である。

Fig. 3(b)–(d) に様々なポンプ光エネルギーにおける実験結果を示す (expt.)。量子井戸構造の遷移エネルギーは、量子閉じ込め効果のために量子井戸層幅が狭いほど高くなる。図に示したポンプ光フォトンエネルギー 1.47 eV、1.50 eV、

Fig. 3 (a) Structure of a GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As quantum well sample. (b)–(d) Experimental results (expt.) and simulation (calc.) for the quantum well sample with various pump photon energies; (b) 1.47 eV, (c) 1.50 eV, and (d) 1.64 eV. ρ and $\delta\phi$ are the real and imaginary parts of the reflectance change.

1.64 eV はそれぞれ QW2, QW1, QW3 の最低励起エネルギー直上にあり、ポンプ光は自身のフォトンエネルギー以下の励起エネルギーを持つ井戸層および基板で吸収される。Al_{0.3}Ga_{0.7}As 層のバンドギャップは 1.83 eV でポンプ光を透過する。δφ の 250 ps 以降にみられる急激な立ち下がり、GaAs 基板で生成された音響波パルスが試料表面に到達することによる。δφ の減少は試料表面の外向き膨張に対応している。遅延時間 100 ps 付近にみられる振動構造が、量子井戸層で励起された音響波パルスが試料表面に到達することによるものである。ポンプ光エネルギーの増加とともに 100 ps 付近の振動の持続時間が長くなっている。これはエネルギーが増加することによって、より遷移エネルギーの高い量子井戸も励起されるようになるためである。

Fig. 3(b)–(d) にはあわせてシミュレーションの結果も示されている (calc.)。3.1 節の金属膜の場合と異なり、励起電子は量子井戸に閉じ込められており、拡散を考える必要はない。発生する音響波パルスの幅は量子井戸の幅程度と考えられるが、この音響波パルスがプローブ光の侵入長程度の領域に入ってくると光弾性効果によって反射係数が変調されるので、音響波パルスの時間幅よりもずっと長い時間にわたって振動信号が観測される。実験データへのシミュレーション結果のフィッティングにより、試料の構造、GaAs および Al_{0.3}Ga_{0.7}As の光弾性定数、Al_{0.3}Ga_{0.7}As の超音波減衰係数、各量子井戸層の実効的な光吸収係数などが求められた。

量子井戸による音響波パルス発生を調べるもうひとつの目的は、高い周波数成分を持つ音響波を得ることである。GaAs 中の縦波音速は 5 km/s の程度なので、数 nm 程度の空間幅を持つ音響波パルスを生成できれば THz 領域のフォノンを生成できたことになる。我々の上記の実験では、超音波減衰の効果もあり、試料表面で観測された音響波パルスのスペクトルは 0.5 THz 程度までしか伸びなかった。より高周波数の音響波の生成の例としては、GaN 系の多重超格子による 1 THz 超の音響波生成が報告されている²⁰⁾。

3.3 剪断波

一般に物質中を伝播する音響波は 3 つの偏極モードを持つ。例えば等方弾性体では変位の方向が音響波の進行方向と平行な縦（疎密）波モードが 1 つ、および変位の方向が音響波の進行方向と垂直な横（剪断）波モードが 2 つある。2 つの横波は変位の方向が直交しており音速は縮退している。縦波の伝播は主に体積弾性率に関係するのに対し、横波の伝播はずりの弾性率に関係している。3.1, 3.2 節で取り上げたような試料において光照射によって生成される（バルク）音響波は、対称性のために縦波に限られる。試料の弾性的性質等についてのより完全な知見を得るためには、縦波音響波に加えて剪断音響波を生成・観測することが望ましい。

ピコ秒レーザー超音波法で剪断音響波を発生させるためには、何らかの方法で試料もしくは測定系の対称性を崩す必要がある。例えば異方性物質と等方性物質の界面での音響波の

モード変換^{21,22)}，異方性物質における異方的な熱膨張^{16,17,22)}，試料表面に垂直でない方向に伝播する音響波の利用^{23,24)}などが調べられている．超格子構造を用いて高周波数の剪断音響波を発生する研究も進められている²⁵⁾．また生成した剪断音響波を用いて液体の粘弾性特性を調べることも行われている²⁶⁾．

ここでは Zn 単結晶を用いた我々の研究について紹介する^{16,17)}．試料は c 軸が試料表面に 45° の角度をなすようにカットされた Zn 単結晶の表面に $1.1\ \mu\text{m}$ 厚の SiO_2 薄膜を RF スパッタリングにより形成したものである．測定光学系の概略を Fig. 4(a) に示す．ポンプ光，プローブ光の波長はそれぞれ $407\ \text{nm}$ ， $815\ \text{nm}$ である．後で述べる理由によりプローブ光を試料に 45° の角度で入射している．また入射光の偏光を変化させるために入射側に $\lambda/2$ 板を，反射光の偏光を選択するために反射側に偏光子を配置している．図には説明のための xyz 軸の定義もあわせて示してある．試料の c 軸は yz 面内にある．

Fig. 4 に反射率変化の測定結果を示す． p - u はプローブ光として p 偏光を入射し，偏光子を通さずに反射光強度を測定した．一方 45 - s は偏光面が入射面に対して 45° 傾いた直線偏光を入射プローブ光に使い，反射光のうち s 偏光成分のみの強度を測定した．いずれの場合でも $400\ \text{ps}$ 付近に幅の狭いピーク信号が得られる．これは SiO_2 層に面した Zn 表面近傍で生成された音響波パルスが，縦音響波として SiO_2 中を伝播し，試料表面で反射された後，再び Zn/ SiO_2 界面に到達した時に，Zn の光弾性効果によって光反射率が変調されるために生じる．この縦音響波の一部は再び SiO_2 層に向けて反射され， $800\ \text{ps}$ 付近に第 2 のピークを生じる．試料表面での音響波反射では歪みの極性が反転するのにに対し，Zn/ SiO_2 界面での音響波反射では歪みの極性が反転しないので， $400\ \text{ps}$ と $800\ \text{ps}$ のピークは反対の極性で観測される．別の特徴として，いずれの偏光配置でも $700\ \text{ps}$ 付近に幅の広いピークがみられる．これは SiO_2 層に面した Zn 表面近傍で

生成された音響パルスが横音響波として SiO_2 中を伝播し，試料表面で反射された後 Zn/ SiO_2 界面に到達した時に Zn の光弾性効果によって光反射率が変調されるために生じる．

更に別の特徴として， $0\sim 400\ \text{ps}$ の間に顕著な振動信号がみられる．これは試料表面や界面で反射した光と，試料中を伝播する音響波パルスで反射した光とが干渉するために生じるものでブリルアン振動と呼ばれる．ブリルアン振動の周波数は音響波の速度に比例する． p - u 配置では，振幅がほぼ一定であるのに対し， 45 - s 配置では振幅が周期的に変化する．これは前者が単一の振動数成分からなるのに対し，後者が複数の振動数成分を含むことを示している．Fig. 4(b) の右側に $0\sim 400\ \text{ps}$ の範囲をフーリエ変換したものを示したが，確かに p - u 配置では単一のピークが， 45 - s 配置では 2 つのピークが認められる．観測された振動数と SiO_2 中での縦・横波音速との関係から，前者が縦音響波によるブリルアン振動，後者が縦音響波と横音響波によるブリルアン振動の重ねあわせであるとわかった．

本実験の試料の結晶軸配置では， SiO_2 中の横波による歪みテンソルは yz 成分のみが非 0 になると考えられる．この歪みは光弾性効果を介して誘電率テンソルの yz 成分のみを変調する．この誘電率テンソルの変調を光反射率変化として観測するためには，プローブ光の電場が試料中で非 0 の z 成分を持つことが必須である．このため本実験では斜め入射プローブ光を用いた．更により詳しい理論的考察によると，誘電率の yz 成分の変調は， p 偏光成分を s 偏光(またはその逆)に散乱する．しかし例えば純粋な p 偏光をプローブとして用いると，散乱によって生じる s 偏光の電場強度は歪みの大きさに比例し，従って散乱光の強度は歪みの 2 乗に比例する．この散乱光強度は，歪みが小さい場合には非常に微弱なものとなってしまい観測不可能となる．そこで入射プローブ光にあらかじめ p , s 両偏光成分を含ませておき，もともとからある s 偏光成分と散乱によって生じる s 偏光成分とを干渉させることによって，歪みの 1 乗に比例した光強度変化を生じさせる．これが SiO_2 における横音響波の検出に斜め入射プローブ光と 45 - s 偏光配置を必要とした理由である．

我々は更に実験結果の定量的解析のために，音響波の発生・伝播・検出の各段階をモデル化し実験のシミュレーションを行った．音響波の発生では 3.1 節で述べた二温度モデルと試料の異方的弾性・熱膨張を考慮した熱弾性モデルを用いた．音響波の伝播では，試料の異方的弾性，試料界面におけるモード変換，超音波減衰を考慮した．音響波の検出過程においては，不均一な誘電率変調を受けた任意の異方性多層薄膜構造に斜め入射する光の散乱についての理論を構築し，これにより音響波伝播による光反射係数変化を求めた．Fig. 4 に構築したモデルによる計算結果を示す．実験結果の細部にわたってよく再現されている．実験結果に対するモデル計算のフィッティングにより，Zn および SiO_2 の光弾性テンソルの各成分，超音波減衰係数，Zn 中の電子格子相互作用定数などの様々な物性定数が得られた．

4. 表面音響波イメージング

物質表面には表面に沿って伝播する表面音響波モードが存

Fig. 4 (a) Schematic diagram of the experimental setup for shear wave generation and detection. HWP: half-wave plate, and pol.: polarizer. (b) Transient reflectivity change of a SiO_2/Zn sample. Left hand side: from top to bottom; experimental result for p - u configuration, simulation for p - u configuration, experimental result for 45 - s configuration, simulation for 45 - s configuration. Right hand side: Fourier transform of the experimental curves on the left hand side. The arrow shows the frequency component due to the shear acoustic waves in SiO_2 .

在しうる。表面音響波は概ね表面から1波長程度の深さに波動振幅が局在しているため減衰しにくく、デバイス応用面からも重要である。例えば携帯電話やWiFi機器などで使用されるGHz帯通信では、表面音響波を利用したフィルタデバイスが多用される。表面音響波の理解を深めその応用範囲の拡大を図る上で、表面音響波の伝播状況のイメージング技術は極めて有用である²⁷⁻³⁴⁾。

ピコ秒レーザー超音波法の実験装置 (Fig. 1) において、ポンプ光はバルク音響波とともに表面音響波も励起している。この装置でポンプ・プローブ光の照射位置を独立に制御することにより、表面音響波の伝播状況を時間分解の2次元イメージとして取得することができる。後述するようにこの方法で計測可能な音響波の周波数は数GHz程度までとなっており、通例ピコ秒レーザー超音波法というときには表面音響波のイメージングを含まないが、技術的には共通する部分が多い。

プローブ光を試料に集光入射する光学系 (例えば対物レンズ) としてポンプ光のそれとは独立なものを使用しているときは、プローブ光のレンズのみをその光軸に垂直な面内で移動させることでプローブ光の照射位置の制御が可能である。このような光学系配置は、試料が透明でポンプ・プローブ光を試料の表裏それぞれから入射できるような場合には便利である³⁵⁾。しかし不透明試料などポンプ光・プローブ光ともに試料の同じ側から照射する必要がある場合には、ポンプ用・プローブ用の2つのレンズがぶつかってしまいうまく配置できないことがある。

この問題を解決するために、2軸角度可変鏡と4f光学系を組み合わせた光走査光学系を構築した¹⁴⁾。その概略をFig. 5に示す。ポンプ光とプローブ光は単一の対物レンズを共用する。可動鏡を回転させると、4f光学系の働きにより、プローブ光ビームが対物レンズの開口に入射する角度が変化する。対物レンズは入射角の変化を試料上でのプローブ光スポット位置の変化に変換する。このような方法により、試料上の数100 μm 四方程度の領域の反射率変化を2次元的にイメージングすることが可能である。

上記装置でポンプ・プローブ間の遅延時間を変化させながら複数枚のイメージを測定することで、表面音響波伝播の時空間発展を取得することができる。我々の装置では遅延光路長を0から4m程度の範囲で変化させることができ、これによってレーザーパルスの繰り返し周期 (12~13 ns) 全域

にわたる測定が可能である。

試料上に集光されるポンプ光のスポット径は、回折限界のために光の波長程度に制限される。このため生成される表面音響波の空間的なパルス幅の最小値も1 μm 程度が限界である。一般的な物質ではこれは数GHz程度の周波数帯域に対応する。2節で述べたように、干渉計が検出する信号は、数100 ps離れた時刻における試料の光反射率変化の位相部分の差である。我々の検出するGHz領域までの表面音響波の場合には、この位相差は近似的に表面変位速度とみなすことができる。

以下では我々の表面波イメージング技術を用いた研究からいくつかを紹介する。

4.1 結晶表面

厚さ1mmのクラウンガラス基板上に厚さ70nmの金薄膜を蒸着した試料における表面音響波イメージングの様子をFig. 6(a)に示す。イメージング領域は200 μm ×200 μm である。ポンプ光はイメージ中央付近に点状に集光して照射されており、その後7.0 ns経過した時刻における表面変位速度の分布が示されている³⁵⁾。

基板、薄膜ともに等方的なので、励起位置から円形に広がる波束が観測される。観測領域内には、レーザーの繰り返し3~4周期分に対応する波束が含まれている。ひとつの励起パルスに対応する波束は、内側に向かって波長が短くなる傾向 (分散) を示しているが、これは金薄膜の音速がガラス基板の音速より遅いために生じている。表面音響波は波長程度の深さ領域を伝播するので、波長の短い波ほど表面の金の影響を強く受けるのである。このような振る舞いを利用して、音響波の分散関係から逆に試料の深さ方向の構造についての知見を得ることも可能である^{36,37)}。

物質の異方性は音響波伝播に大きな影響を及ぼす。厚さ1mmのTeO₂(001)基板上に厚さ60nmの金薄膜を蒸着した試料における音響波イメージングの様子をFig. 6(b)に示す。イメージング領域は150 μm ×150 μm である。ポンプ光はイメージ中央付近に点状に集光して照射されており、その後4.9 ns経過した時刻における表面変位速度の分布が示されている³⁵⁾。

Fig. 6で見られる複雑なパターンは、音響波の伝播方向に

Fig. 5 Schematic diagram of the two-dimensional spatial scanner for the probe light. By rotating the mirror, the spot moves across the sample surface. f denotes the focal length of the lenses. DM: dichroic mirror.

Fig. 6 Snapshot of the surface displacement velocity field caused by the SAW propagation. (a) 200 μm ×200 μm area of a Au/crown glass sample at a moment 7.0 ns after the pump pulse arrival. (b) 150 μm ×150 μm area of a Au/TeO₂(001) sample at a moment 4.9 ns after the pump pulse arrival.

よって群速度が異なることを表しており、フォノンフォーカシングと呼ばれる特定の方向に音響波のエネルギーが集中する様子も明瞭に観察されている²⁷⁾。実験データは時刻の異なる多数のイメージから構成される（ここには示していない）が、これらを時空間フーリエ変換することにより波数および周波数空間のイメージ（分散関係）を得ることもできる^{38,39)}。

これらの結果は理論と非常に一致を示す。ここで示した2つの結果は均一な試料に対するもので比較的単純に解析できる例であるが、より複雑な構造を持つ試料、例えば比較的大きなグレイン構造を持つ多結晶試料などの測定結果から、試料の内部構造についての知見が得られる可能性についても指摘されている⁴⁰⁾。

4.2 フォノンニック結晶

音響インピーダンスの異なる物質を周期的に配列することにより、音響波の伝播状況を制御することができる。このような構造はフォノンニック結晶と呼ばれる。半導体結晶において原子の周期的な配列によって電子の伝播状況が制御されバンドギャップが現れるように、適切に設計されたフォノンニック結晶においては特定の振動数領域の音響波の伝播を遮断するフォノンニックバンドギャップが現れる。

フォノンニック結晶は、周期構造の空間次元性によって1次元、2次元、または3次元フォノンニック結晶と分類される。ここでは1次元フォノンニック結晶についての我々の研究を紹介する⁴¹⁾。試料はSi(100)基板上に銅とSiO_xでストライプ構造を形成したもので、いずれも幅2 μm厚さ800 nmである。Fig. 7(a)にストライプに垂直な試料断面の模式図を示す。音響波の励起効率を高めるために最表面に厚さ30 nmの金薄膜を蒸着した。

4.節に述べた方法により、上記1次元フォノンニック結晶上の一点で表面音響波を励起し、その伝播の様子を時間分解2次元イメージとして取得した。得られた時系列2次元空間データを時間領域および2次元空間領域でフーリエ変換することにより、各周波数における2次元波数空間での振幅イメージが得られる。その一例として534 MHzのフーリエ振幅の絶対値を(k_x , k_y) 2次元波数空間上に明暗でプロットしたものをFig. 7(b)に示す。試料の周期軸は k_x に沿っている。周期4 μmに対応して k 空間でのブリルアンゾーン端

Fig. 7 (a) Cross section of a 1D phononic crystal sample. (b) The modulus of the Fourier amplitude at 534 MHz is plotted in k space. The small arrows indicate the first Brillouin zone boundary, arising due to the periodicity of the sample.

が $k_x = 0.79 \mu\text{m}^{-1}$ に位置し（図中の矢印）、振幅イメージは強度を除けばブリルアンゾーンで折り返した（より正確には逆格子ベクトルの並進対称性を持った）形になっている。外側の曲線はゾーン端の $k_y = 0$ 付近で途切れているが、これはこの方向に伝播するモードが存在しないこと、すなわちフォノンニックバンドギャップが生じていることを表している。

このように時間分解表面音響波イメージングはフォノンニック結晶の分散関係解析において極めて強力な手法である。同様の手法による2次元フォノンニック結晶の研究も報告されている⁴²⁾。

5. まとめと展望

光学的手法を用いて数100 MHzから1 THzの周波数領域の音響波を生成し、その伝播様態を時間・空間領域で観測することによって、物質の構造や様々な物性を調べる方法について述べた。速度が遅く波長の短い音響波は、ナノスケールのプローブとして、あるいはミクロンスケールのGHzデバイスの信号キャリアとして幅広い応用領域を持つ。フォノンニック結晶などのメタマテリアルを用いて音響波を自在に操ることも可能になってきた。光、電子、プラズモンなどの異種の波動と音響波の相互作用の利用も大きな可能性を持っている。ここで紹介したような研究手法を足がかりに、広大な音響波物理およびその応用の世界により深く分け入りたいと考えている。

〔文 献〕

- 1) C. Thomsen, H. T. Grahn, H. J. Maris and J. Tauc: Phys. Rev. B, **34** (1986) 4129.
- 2) G. Tas and H. J. Maris: Phys. Rev. B, **49** (1994) 15046.
- 3) O. B. Wright: Phys. Rev. B, **49** (1994) 9985.
- 4) B. Perrin, B. Bonello, J. C. Jeannet and E. Romatet: Prog. Nat. Sci., **S6** (1996) S444.
- 5) C. J. K. Richardson, M. J. Ehrlich and J. W. Wagner: J. Opt. Soc. Am. B, **16** (1999) 1007.
- 6) T. Saito, O. Matsuda and O. B. Wright: Phys. Rev. B, **67** (2003) 205421.
- 7) H. Ogi, M. Fujii, N. Nakamura, T. Yasui and M. Hirao: Phys. Rev. Lett., **98** (2007) 195503.
- 8) C.-K. Sun, J. C. Liang and X. Y. Yu: Phys. Rev. Lett., **84** (2000) 179.
- 9) O. B. Wright, B. Perrin, O. Matsuda and V. E. Gusev: Phys. Rev. B, **64** (2001) 081202(R).
- 10) O. B. Wright: J. Appl. Phys., **71** (1992) 1617.
- 11) O. B. Wright: Opt. Lett., **20** (1995) 632.
- 12) C. J. Morath and H. J. Maris: Phys. Rev. B, **54** (1996) 203.
- 13) D. H. Hurley and O. B. Wright: Opt. Lett., **24** (1999) 1305.
- 14) T. Tachizaki, T. Muroya, O. Matsuda, Y. Sugawara, D. H. Hurley and O. B. Wright: Rev. Sci. Instrum., **77** (2006) 043713.
- 15) O. Matsuda and O. B. Wright: J. Opt. Soc. Am. B, **19** (2002) 3028.
- 16) O. Matsuda, O. B. Wright, D. H. Hurley, V. E. Gusev and K. Shimizu: Phys. Rev. Lett., **93** (2004) 095501.
- 17) O. Matsuda, O. B. Wright, D. H. Hurley, V. E. Gusev and K. Shimizu: Phys. Rev. B, **77** (2008) 224110.
- 18) S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich and T. L. Perel'man: Sov. Phys. JETP, **39** (1974) 375.
- 19) O. Matsuda, T. Tachizaki, T. Fukui, J. J. Baumberg and O. B. Wright: Phys. Rev. B, **71** (2005) 115330.
- 20) K.-H. Lin, G.-W. Chern, C.-T. Yu, T.-M. Liu, C.-C. Pan, G.-T. Chen, J.-I. Chyi, S.-W. Huang, P.-C. Li and C.-K. Sun: IEEE

- Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control, **52** (2005) 1404.
- 21) D. H. Hurley, O. B. Wright, O. Matsuda, V. E. Gusev and O. V. Kolosov: Ultrasonics, **38** (2000) 470.
 - 22) T. Pezeril, P. Ruello, S. Gougeon, N. Chigarev, D. Mounier, J. M. Breteau, P. Picart and V. Gusev: Phys. Rev. B, **75** (2007) 174307.
 - 23) C. Rossignol, J. M. Rampnoux, M. Perton, B. Audoin and S. Dilhaire: Phys. Rev. Lett., **94** (2005) 166106.
 - 24) T. Dehoux, N. Chigarev, C. Rossignol and B. Audoin: Phys. Rev. B, **76** (2007) 024311.
 - 25) R. N. Kini, A. J. Kent, N. M. Stanton and M. Henini: Appl. Phys. Lett., **88** (2006) 134112.
 - 26) T. Pezeril, C. Kilieber, S. Andrieu and K. A. Nelson: Phys. Rev. Lett., **102** (2009) 107402.
 - 27) A. A. Kolomenskii and A. A. Maznev: Phys. Rev. B, **48** (1993) 14502.
 - 28) R. E. Vines, S. Tamura and J. P. Wolfe: Phys. Rev. Lett., **74** (1995) 2729.
 - 29) K. Nakano, K. Hane, S. Okuma and T. Eguchi: Opt. Rev., **4** (1997) 265.
 - 30) T. Hesjedal and G. Behme: Appl. Phys. Lett., **78** (2001) 1948.
 - 31) D. Shilo and E. Zolotoyabko: Phys. Rev. Lett., **91** (2003) 115506.
 - 32) J. A. Scales and A. E. Malcolm: Phys. Rev. E, **67** (2003) 046618.
 - 33) T. Fujikura, O. Matsuda, D. M. Profunser, O. B. Wright, J. Masson and S. Ballandras: Appl. Phys. Lett., **93** (2008) 261101.
 - 34) N. Wu, K. Hashimoto, K. Kashiwa, T. Omori and M. Yamaguchi: Jpn. J. Appl. Phys., **48** (2009) 07GG01.
 - 35) Y. Sugawara, O. B. Wright, O. Matsuda, M. Takigahira, Y. Tanaka, S. Tamura and V. E. Gusev: Phys. Rev. Lett., **88** (2002) 185504.
 - 36) C. Glorieux, W. Gao, S. E. Kruger, K. V. de Rostyne, W. Lauriks and J. Thoen: J. Appl. Phys., **88** (2000) 4394.
 - 37) O. Matsuda and C. Glorieux: J. Acoust. Soc. Am., **121** (2007) 3437.
 - 38) Y. Sugawara, O. B. Wright and O. Matsuda: Appl. Phys. Lett., **83** (2003) 1340.
 - 39) O. B. Wright, O. Matsuda and Y. Sugawara: Jpn. J. Appl. Phys., **44** (2005) 4292.
 - 40) D. H. Hurley, O. B. Wright, O. Matsuda, T. Suzuki, S. Tamura and Y. Sugawara: Phys. Rev. B, **73** (2006) 125403.
 - 41) D. M. Profunser, O. B. Wright and O. Matsuda: Phys. Rev. Lett., **97** (2006) 055502.
 - 42) D. M. Profunser, E. Muramoto, O. Matsuda and O. B. Wright: Phys. Rev. B, **80** (2009) 014301.