薄膜弾性定数の測定*

平尾雅彦^{*1}, 荻 博 次^{*2}

Measurements of Thin-Film Elastic Constants

Masahiko HIRAO^{*3} and Hirotsugu OGI^{*3} Graduate School of Engineering Science, Osaka University,
1-3 Machikaneyama-cho, Toyonaka-shi, Osaka, 560-8531 Japan**Key Words**: Elastic Constants, Thin Films, Anisotropy Microstructure, Ultrasound, Resonance

1. 弾性定数測定のための目的

半導体集積回路, 磁気記録媒体, MEMS (Micro-Electro-Mechanical Systems), 液晶ディスプレイ, 太陽電池等は薄膜によって構成されている。電子デバイスの配線も薄膜である。一般に, 薄膜材料の機械的特性はバルク材と異なるため, さらに成膜条件(基板, 成膜温度, 反応気体など)に大きく依存するため, 従来の材料データベースは役に立たない。弾性定数は, 本来物質を構成する原子間の結合力を反映する基本的な物理量であると同時に, 物質の弾性変形への抵抗力を表し, 構造物の設計・製作には欠くことができない材料定数でもある。また, 変形に寄与するあらゆる微視的な因子(転位やマイクロクラックなど)の影響を受けて, (見かけ上)変化する物理量である。

薄膜の弾性定数を測定することの重要性が認識されている。これには以下の背景がある:

(i) 異種材料からなる積層構造体の力学的・熱的な応答を知る必要がある。

(ii) SAW (surface-acoustic wave) フィルタや FBAR (film bulk acoustic resonator) フィルタに代表されるように, 薄膜の弾性定数および内部摩擦そのものが支配的な設計パラメータとなるデバイスが開発されている。

(iii) 熱力学的な平衡を保ちながら生成されるバルク材に比べ, 薄膜は多くの微視的な欠陥を含む。重要な薄膜の用途である電極配線においては, 細線化が進

み電流密度が上昇する中, 初期欠陥に起因した断線や破損が問題となる。これに対して, 不完全結合などの体積を持たない面欠陥は弾性定数に比較的強く影響を及ぼし, 弾性軟化⁽¹⁾⁽²⁾や弾性異方性^{(3)~(5)}を引き起こすため, 弾性定数の測定から薄膜の健全性を評価することが可能となる。この種の欠陥は, 他の検査方法では検出が困難である。

(iv) 弾性定数が薄膜の機能と強い相関を示すことが明らかとなってきたため, 薄膜の機能(例えば磁性)と弾性との関わりを探索することにより薄膜の物性に関する貴重な知見を得ることができる^{(6)~(8)}。

このように学術的・実用的に重要な薄膜弾性定数を測定する方法としては, バルク材に対する方法を発展させたマイクロ引張試験法⁽¹⁾⁽⁹⁾, マイクロ曲げ試験法⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾, バルジ試験などが提案されている。薄膜単体あるいは薄膜/基板からなる試料に静的荷重を加え, 生じた変形量を測定して, 応力-ひずみ関係を抽出し, 主に面内ヤング率を評価するものである。また, 動的な測定方法として, 振動リード法⁽¹²⁾⁽¹³⁾, Brillouin 散乱法⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾, 表面超音波法⁽¹⁶⁾なども利用されている。しかし, これらは, 把持の影響が大きい, 微小な変形量に対して測定精度が不十分である, などそれぞれの手法固有の困難さを持っている。また, ナノインデンテーション法は 10 nm 程度の高い空間分解能を有するが, 塑性変形を伴う測定であり, 圧子の形状や弾性率などの不確定パラメータが多く, 純粋に弾性定数を計測するのに適さない。さらに, 次に示すように薄膜弾性定数は一般に異方性を示すと考えるべきであるが, これらの従来法では複数の弾性定数成分を系統的に計測できないという欠点から免れることができない。このため, 今日まで信頼性の高い薄膜弾性定数の

* 原稿受付 2008 年 12 月 1 日。

^{*1} 正員, フェロー, 大阪大学大学院基礎工学研究科(〒560-8531 豊中市待兼山町1-3)。^{*2} 正員, 大阪大学大学院基礎工学研究科。
E-mail: hirao@me.es.osaka-u.ac.jp

Fig. 1 Typical microstructures in thin films

測定とそれに基づく微視組織の評価には至っていない。

2. 異方性弾性定数

一般に、薄膜においては膜の成長方向(膜厚方向)とこれに垂直な方向(膜面方向)で弾性的性質が異なると考えるのが自然である。この異方性は、特定の結晶方位が基板面に垂直に配向したり(集合組織)、微小欠陥や不完全結合が結晶粒界に沿って特定の方向に並んで発生したり(この方向に軟化する)、基板との線膨張係数の差異に由来して面内に大きな格子ひずみが発生したりすることに起因する。たとえば、図1の柱状組織をもつ結晶薄膜では、仮に結晶方位がランダムであっても、成膜過程で微視的な欠陥が粒界に形成されれば、面内のヤング率が(面外ヤング率より)低下する。このようなとき、薄膜は巨視的に六方晶系の結晶と同様な弾性対称性を示し、膜厚方向を x_3 軸としたときの弾性定数マトリクスは、以下のように記述することができる。

$$[C_{ij}] = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & C_{44} & 0 & 0 \\ \text{sym.} & & & & C_{44} & 0 \\ & & & & & (C_{11}-C_{12})/2 \end{bmatrix}$$

すなわち、薄膜の弾性定数は、一般に5つの独立な弾性定数 C_{ij} によって表される異方性をもっている。 C_{11} や $C_{66}=(C_{11}-C_{12})/2$ の成分は、面内方向の変形に強く関与し、 C_{33} や C_{44} は面外方向の変形に関与する(図2)。

本稿では、異方性弾性定数を測定するための音響的な2つの手法である共鳴超音波スペクトロスコピーとピコ秒レーザー超音波法を、3つの測定例とともに紹介する。いずれの場合も、測定上の重要なパラメータである膜厚は、薄膜表面と基板界面からの全反射X線の干渉を利用して、低角でのX線全反射スペクトルから決定する⁽¹⁷⁾⁽¹⁸⁾。

Fig. 2 Relation between the components of elastic constants and deformation in thin films

薄膜に限らず、弾性定数の測定に関して重要なことは、非接触(これが困難なら点接触)の測定を行うことである。弾性定数はいわゆる構造に鈍感な材料特性であるため、たとえば上記(iii)の観点に基づく微視組織の評価には高精度測定が要求される。しかし、センサとの接触や試料の把持は試料を力学的に拘束し、ここで示す振動計測では共鳴周波数を増加させ、真値より大きい(誤った)弾性定数となる。このような誤差要因を取り除いていくと、電磁波やレーザーを介した非接触音響測定に行き着く。また、静的な負荷試験で弾性定数を決定するには、まず応力とひずみを測定することになるが、これらの測定精度に比べてはるかに高い精度で固体試料の共鳴周波数の測定が容易に行える。ここに周波数計測による弾性定数測定の顕著な優位性を見出すことができる。この特長を十分に生かすためにも非接触・点接触測定が要求される。

なお、熱力学的な議論によれば超音波等の動的(音響的)な手段で測定される断熱弾性定数は、静的に測定される等温弾性定数よりわずかに大きい。一般の金属でその差異は0.1%のオーダーであり、温度と線膨張係数の二乗に比例して増大する⁽¹⁹⁾。この差は、多くの場合無視できるものである。

3. 薄膜の弾性定数測定方法

3-1 RUS/LDI 法 固体の自由振動の共鳴周波数は、その形状・寸法・密度・弾性定数によって決ま

る。そのため、共鳴周波数を測定すれば、理論計算を組み入れた逆解析によって原理的には全ての弾性定数を求めることができる。これを共鳴超音波スペクトロスコピー (Resonant Ultrasound Spectroscopy: RUS) 法とよぶ。Ohno⁽²⁰⁾, Migliori⁽²¹⁾⁽²²⁾らの研究が先駆けとなっている。直方体や円柱など単純な形状の純金属単結晶⁽²¹⁾, 金属間化合物^{(23)~(25)}, 繊維強化複合材^{(26)~(28)}の弾性定数と内部摩擦, 圧電材料の弾性定数と圧電定数の測定^{(29)~(32)}などに適用されてきた。大きな利点は、一個の試料から独立な弾性定数(三斜晶系対称性の21個が最大)を全て決定できることである。しかし、薄膜については、薄膜/基板からなる複合体全体の共鳴周波数に対する薄膜弾性定数の寄与が高々数%程度であるため、多数の共鳴周波数をより高精度に測定し、振動モードを確実に同定する必要がある。

従来の RUS 法では、試料を二つの圧電センサで挟んでいたが、力学的拘束を排除するために、筆者らは図3に示す二本の圧電トランスデューサと一本の支持棒(熱電対)で構成される三点支持型の圧電トランスデューサを開発した⁽³³⁾。三点の上に試料を水平に置き、一方の圧電トランスデューサから連続正弦波信号を入力して、試料内に超音波振動を励起する。励起周波数をスイープしながら試料の振動をもう一つのトランスデューサで受信する。受信信号から励起周波数成分を抽出し、励起周波数を変えながらこの振幅を測定すれば、同図に示すような共鳴スペクトルが得られる。励起周波数が試料の共鳴周波数と一致したとき試料内に定在波が発生し、振幅が高い値を示す。この共鳴ピ

ークをローレンツ関数でフィッティングしてその対称軸から共鳴周波数を決定する。この測定方法は数 mg, 数 mm 角の軽量な試料に対しても有効であり、音響結合材を一切必要としない。試料に働く外力はわずかな自重のみである。さらに、音響ノイズを避け、大気圧への振動の漏れを排除するため真空(数 Pa 以下)中で測定を行う。この結果、理論解析が前提とする自由振動がほぼ完全に実現している。恒温($30 \pm 0.05^\circ\text{C}$)環境下での完全に独立な測定ごとの共鳴周波数のばらつきは 0.05% 程度、もしくはそれ以下である。

RUS 法では、一般に全ての振動モードの自由振動が励起されるため、得られた共鳴周波数がどの振動モードに属するか同定が不可欠である。共鳴周波数の測定値と計算値とを同じ振動モードで比較しなければ、逆計算によって得られる弾性定数は物理的に意味をもたない。計算では共鳴周波数と振動モードが同時に得られるが、測定で振動モードを知る方法はなかった。ここでは図3のようにレーザードップラー干渉計測 (Laser-Doppler Interferometry: LDI) 法によって、共鳴状態における試料表面の面外変位分布を可視化し、振動モードの同定を実現した。振動モードの測定画像と計算結果の対比を同図に示す。両者は一致し、間違いのないモード同定を裏付けている。このように、RUS 法とレーザードップラー振動計を組み合わせた手法が RUS/LDI 法である。

薄膜の弾性定数を決定するまでの手順は以下の通りである。まず、基板のみの共鳴周波数を測定する。薄膜成膜後に再び共鳴周波数を測定し、複数の振動モード(通常 30-40 個の共鳴ピーク)において周波数変化量

Fig. 3 Resonance spectrum and resonance patterns of $6 \times 4 \times 0.2 \text{ mm}^3$ monocrystal silicon specimen measured with RUS/LDI method. Calculated patterns are shown in the upper row. Bright area indicates large amplitude (antinode) and black bands indicate zero amplitude (node). Maximum amplitude was around 1 nm

Δf_{meas} を決定する．これを同一の振動モードに対して計算した共鳴周波数変化量 Δf_{calc} と比較し，全てのモードにおいて両者が十分な精度で一致するまで計算を繰り返して最小自乗法により薄膜の弾性定数を決定する．なお，共鳴周波数および振動分布画像の計算はレイリー・リッツ法によって固有値問題を解くことによって求めることができる．基底関数には，膜厚方向にラグランジェ補間関数を，膜面方向にべき級数を用いた⁽³⁴⁾．

薄膜のようにアスペクト比の高い試料を共鳴させると，曲げやねじりの振動が優先的に起こる．このため RUS/LDI 法を薄膜に適用した場合，面内方向の弾性定数 (C_{11} , C_{13} , C_{66}) は精度よく決定できるが，面外方向の弾性定数 C_{33} と C_{44} の決定精度は低い．静的な従来法も，これらの測定は不可能である．したがって，このままでは弾性定数の異方性とこれの原因である微視組織を評価することが困難である．そこで， C_{33} を測定する手法として，次に説明するピコ秒レーザー超音波法を考案した．

3・2 ピコ秒レーザー超音波法 パルスレーザーを薄膜表面に照射すると，表面原子層の温度がごく短時間に上昇し，熱膨張による体積変化が生じる．これによって超音波が発生し，薄膜内で多重反射を繰り返す．この状態で別のパルスレーザーを薄膜に照射すれば，その反射率の変化から縦波の超音波を検出することができる⁽³⁵⁾．この方法で光と音との相互作用を利用して膜表面に垂直な方向に伝わる縦波の音速を測定し，面外方向の弾性定数 C_{33} を決定する．

このレーザー超音波計測は，Thomsen らの研究⁽³⁵⁾⁽³⁶⁾ を端緒とする．膜厚が比較的厚い場合(およそ 50 nm 以上)は，図 4 のように，温度低下に対応す

Fig. 4 Train of longitudinal-wave echoes traveling in the thickness direction of 77-nm-thick Co/Pt superlattice thin film

るバックグラウンドの中に薄膜表面と基板界面とで多重反射した縦波エコーを分離して検出することができる．この測定例では，縦波が膜厚を約 37 ps で一往復しており，この伝ば時間と X 線全反射率測定で決定した膜厚から C_{33} を決定する．

さらに薄い膜の場合は反射波が互いに重なり合って伝ば時間を測定できなくなるが，極短パルス光 (≤ 100 fs) を照射することにより，高い周波数の音響フォノンを励起することができる．この中には薄膜内で共鳴する周波数成分が含まれ，短時間の間薄膜は共振する(音響フォノン共鳴)⁽¹⁸⁾⁽³⁷⁾．この共鳴周波数を検出するための光学系を構築した(図 5)．チタン-サファイアパルスレーザーから発振した出力光(波長: 800 nm, パワー: 1 W)を偏光ビームスプリッタ (PBS) によって二手に分ける．一方を非線形光学結晶によって倍波 (400 nm) とし，音響光学結晶 (A/O) で 100 kHz の変調を行い，スポット径を約 20 μm に絞って試料表面に照射して縦波を膜厚方向に励起する(ポンプ光)．もう一方のレーザー光は，非線形光学結晶 (SHG) によって波長を 400 nm に変化させた．その後，ビームスプリッタ (BS) によってレーザー光をさらに二手に分け，反射光を参照光としてバランス検出器に，透過光をプローブ光としてポンプ光と重ねて試料表面に入射させた．試料表面から反射したプローブ光を検出器に取り込み，ロックインアンプによって 100 kHz の変調成分のみを取り出して，プローブ光と参照光との強度差

Fig. 5 Optics of the measurement setup

を測定した。コーナリフレクタでポンプ光とプローブ光との光路差を変化させ、試料表面に入射するタイミングをずらすことによって、反射したプローブ光強度の変動 $\Delta R/R$ から超音波の情報を過渡的に得ることができる。共鳴周波数は、検出波形を FFT 処理して得られる。図 6 に、Si(100) に成膜した Pt 薄膜(厚さ 34 nm, 13 nm, 5.6 nm) の測定例を示す。 C_{33} は $C_{33} = \rho(2tf_n/n)^2$ から決定する。 ρ は薄膜の質量密度、 t は膜厚、 n は共鳴の次数を表す整数、 f_n は n 次の共鳴周波数である。

4. 測定例

4.1 CVD ダイヤモンド薄膜⁽²⁾⁽³⁸⁾ 熱フィラメント CVD 法を用いて CVD ダイヤモンド薄膜を単結晶基板上に作製した。原料ガスを CH_4 と H_2 とし、ここに N_2 ガスを全体の 0%, 0.2%, 0.5% 添加して 3 個の試料を作製した。膜厚は 2.4–11.3 μm の範囲である。走査型電子顕微鏡とラマン分光によって薄膜組織を調

べた結果、 N_2 ガスの添加によって粒径が 5–30 nm の範囲に微細化し、また sp^2 結合炭素相が混入されることを確認している。

図 7 に、上述した 2 つの方法で測定した面内および面外弾性定数をまとめて示す。この結果から、(i) C_{11} が C_{33} よりも大きい異方性が存在する：(ii) N_2 流量の増加にともなって対角弾性率は減少し非対角弾性率は増加する、という特異な弾性特性がわかった。

まず、X 線回折によって結晶配向性を調べたところ、作製したダイヤモンド薄膜は、膜厚方向に (111) 面もしくは (110) 面が優位に配向していた。これらの方向の集合組織をもつ無欠陥の多結晶ダイヤモンドの弾性定数を計算すると、 $C_{11} < C_{33}$ であり、測定結果とは逆の傾向を示した。よって、結果 (i) は薄膜表面に平行なごく薄い面欠陥に起因すると推測される。

結果 (ii) は、炭素の sp 混成結合によって説明される。薄膜を等方的なダイヤモンド母材 (sp^3 結合炭素) と、不完全結合の粒界のモデルとしてランダムな方位分布を持つ無数の介在物から構成される複合材と見なして巨視的な弾性定数を計算した。介在物を極めて薄い回転楕円体とし、マイクロメカニクス計算を用いて検証した。介在物には、(a) 典型的な sp^2 結合炭素である単結晶グラファイトの c 軸が回転楕円体の厚さ方向に配向した場合、(b) a 軸が厚さ方向に配向した単結晶グラファイト、(c) ダイヤモンドライカーボン (DLC)、および (d) 空気(クラック)の 4 種類を考えた。これらのうち測定結果を説明するモデルは (a) と (b) のみであり、介在物の体積分率の増加とともに対角弾性定数が減少し、非対角弾性定数が増加した。ダイヤモンド薄膜内の炭素結合状態は、ラマン分光法や電子エネルギー損失分光法によって詳細に調べられてきた⁽³⁹⁾⁽⁴⁰⁾。それら多くの研究の一致した見解では、結晶粒内は sp^3 結合から構成されているが、粒界にはひずんだ sp^2 結合が多く含まれている。したがって、弾性定数の高いダイヤモンド結晶が結合力の弱いグラファイト系の結合によって結ばれており、上述したマイクロメカニクスのモデルと類似した組織であることが示唆されている。つまり、非対角弾性定数の意味するところは重要であり、 sp^2 結合の体積分率を示すものである。

4.2 Pt (111) 薄膜⁽³⁷⁾ 図 6 の測定によって決定した Pt 薄膜の C_{33} および X 線回折による面外面間隔 $d_{(111)}$ の膜厚依存性を図 8 に示す。Pt 薄膜は (111) 面が膜面と平行となる集合組織を示した。 C_{33} は膜厚とともに減少する傾向を示し、膜厚が 20 nm を下回ると大きく増加し、バルク値を上回った。これは面外方向

Fig. 6 Oscillations of the reflectivity and the Fourier spectra from Pt thin films on Si(100) substrates⁽³⁷⁾

Fig. 7 N_2 -flow-rate dependence of diagonal components (left) and off-diagonal components (right) of elastic constants of CVD diamond thin films. Broken lines represent those of the isotropic diamond

Fig. 8 Thickness dependence of the out-of-plane modulus C_{33} (upper) and the distance between the (111) planes $d_{(111)}$ (lower) in Pt thin films. C_{iso} and $C_{\langle 111 \rangle}$ are the calculated moduli of isotropic and (111)-textured Pt. S_3 is the strain in the thickness direction

の原子間距離の減少とよく対応しており、非線形弾性（原子間ポテンシャルの非調和性）によって弾性定数が増加したと考えられる。

4・3 Cu(100)エピタキシャル薄膜⁽⁴¹⁾⁽⁴²⁾ 図9は酸化膜を除去したSi(100)上に成膜したCu(100)エピタキシャル薄膜の C_{33} を示す。酸化膜を除去せずに成膜すると(111)集合組織を示すCu薄膜となるが、そのときのデータも示している。Cu(100)エピタキシャル薄膜においては、Siとの格子ミスフィットのために非常に大きな面外ひずみが生じているが(Siの方が面内の原子間距離が大きい)、それにもかかわらず弾性定数は膜厚依存性を示さず、ほぼバルク値に等しいことは興味深い。3次の弾性定数を用いてCuの $\langle 100 \rangle$ 方向の縦波弾性定数のひずみ依存性を計算したところ、一般の金属の結晶面と異なり、面内等方ひずみへの依存性はほとんど見られず、この方向の弾性定数が大きな弾性ひずみに対して極めて安定であることが判明した。2次および3次の弾性定数の組み合わせによる例外的な現象と考えられる。

5. おわりに

筆者らが開発したRUS/LDI法およびピコ秒レーザ超音波法の原理と測定例を示し、薄膜の組織と弾性との関わりを議論した。欠陥を含みやすい薄膜においては、弾性定数は強度に関する情報をも与え、デバイスの信頼性評価の基準となることが期待される。もちろん、バルク材では強度と弾性定数の間に直接の関

Fig. 9 Thickness dependence of the out-of-plane modulus C_{33} and strain S_3 in Cu(100)/Si and Cu(111)/Si (left) and the X-ray diffraction spectra (right)

連はない。しかし、成膜した材料は既知であり、薄膜の弾性定数が期待される（バルク材の）値よりも大きく低下しているときは、微視的な欠陥の存在、そして強度の低下を示している。薄膜においては弾性定数のバルク材での標準値に対する割合そのものが力学的な健全性を示す指標となり得る。強度を計測することは容易ではなく、定量性と再現性が疑問視されるなか、精密に計測することが可能な薄膜の弾性の情報は、バルク材の弾性定数以上に重要な役割を担うことができる。

また、弾性定数は薄膜の機能に直接影響を及ぼすことから、その測定法の標準化が強く望まれている。本稿において示した2つの手法を組み合わせることにより、精度の高い弾性定数測定が可能となる。標準基板としてSi基板の寸法と方位、さらに使用するモードをあらかじめ規定しておくことにより、複雑な逆計算を行うことなく弾性定数を迅速に決定することが可能である。振動子膜厚計がそうであるように、チャンバー内に三点支持型トランスデューサを設置すれば、成膜中の弾性定数のモニタリングも可能となる。

文 献

- (1) Huang, H. and Spaepen, F., *Acta Mater.*, Vol. 48 (2000), p. 3261.
- (2) Ogi, H., Nakamura, N., Tanei, H., Ikeda, R., Hirao, M. and Takemoto, M., *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 86 (2005), 231904.
- (3) Ogi, H., Shimoike, G., Hirao, M., Takashima, K. and Higo, Y., *J. Appl. Phys.*, Vol. 91 (2002), p. 4857.
- (4) Ogi, H., Nakamura, N. and Hirao, M., *Fatigue Fract. Eng. Mat. Struc.*, Vol. 28 (2005), p. 657.
- (5) Nakamura, N., Ogi, H. and Hirao, M., *Acta Mater.*, Vol. 52 (2004), p. 765.
- (6) Nakamura, N., Ogi, H., Ono, T., Hirao, M. and Nishiyama, M., *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 44 (2005), p. 4427.
- (7) Nakamura, N., Ogi, H., Ono, T. and Hirao, M., *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 86 (2005), 111918.

- (8) Nakamura, N., Ogi, H., Yasui, T., Fujii, M. and Hirao, M., *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 99 (2007), 035502.
- (9) Nix, W., *Metall. Trans. A*, Vol. 20 (1989), p. 2217.
- (10) Takashima, K., Koyama, S., Nakai, K. and Higo, Y., *2002 MRS Fall Meeting*, (2002), J 3.3.
- (11) Ogura, A., Tarumi, R., Shimojo, M., Takashima, K. and Higo, Y., *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 79 (2001), p. 1042.
- (12) Mizubayashi, H., Matsuno, J. and Tanimoto, H., *Scripta Mater.*, Vol. 41 (1999), p. 443.
- (13) Sakai, S., Tanimoto, H. and Mizubayashi, H., *Acta Mater.*, Vol. 47 (1999), p. 211.
- (14) Rowell, N. L. and Stegeman, G. I., *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 41 (1978), p. 970.
- (15) Wittkowski, T., Distler, G., Jung, K., Hillebrands, B. and Comins, J. D., *Phys. Rev. B*, Vol. 69 (2004), 205401.
- (16) Moretti, A., Robertson, W., Fisher, B. and Bray, R., *Phys. Rev. B*, Vol. 31 (1985), p. 3361.
- (17) Parratt, L. G., *Phys. Rev.*, Vol. 95 (1954), p. 359.
- (18) Ogi, H., Fujii, M., Nakamura, N., Shagawa, T. and Hirao, M., *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 90 (2007), 191906.
- (19) Ledbetter, H., in *Handbook of Elastic Properties of Solids, Liquids, and Gases*, Vol. 2 (2001), p. 337, Academic Press, San Diego.
- (20) Ohno, I., *J. Phys. Earth*, Vol. 24 (1976), p. 355.
- (21) Migliori, A., Sarrao, J. L., Visscher, W. M., Bell, T. M., Lei, M., Fisk, Z. and Leisure, R. G., *Physica B : Cond. Matt.*, Vol. 183 (1993), p. 1.
- (22) Migliori, A. and Sarrao, J., *Resonant Ultrasound Spectroscopy*, (1997), Wiley-Interscience, New York.
- (23) Tanaka, K. and Koiwa, M., *Intermetallics*, Vol. 4 (1996), S 29.
- (24) Tanaka, K., Mitarai, Y. and Koiwa, M., *Phil. Mag. A*, Vol. 73 (1996), p. 1715.
- (25) Ichitsubo, T., Ogi, H., Hirao, M., Tanaka, K., Osawa, M., Yokokawa, T., Kobayashi, T. and Harada, H., *Ultrasonics*, Vol. 40 (2002), p. 211.
- (26) Ledbetter, H., Fortunko, C. and Heyliger, P., *J. Appl. Phys.*, Vol. 78 (1995), p. 1542.
- (27) Ogi, H., Dunn, M. L., Takashima, K. and Ledbetter, H., *J. Appl. Phys.*, Vol. 87 (2000), p. 2769.
- (28) Ogi, H., Kai, S., Ichitsubo, T., Hirao, M. and Takashima, K., *Philos. Mag. A*, Vol. 83 (2003), p. 503.
- (29) Ogi, H., Kawasaki, Y., Hirao, M. and Ledbetter, H., *J. Appl. Phys.*, Vol. 92 (2002), p. 2451.
- (30) Ogi, H., Fukunaga, M., Hirao, M. and Ledbetter, H., *Phys. Rev. B*, Vol. 69 (2004), 024104.
- (31) Ogi, H., Nakamura, N., Sato, K., Hirao, M. and Uda, S., *IEEE Trans. Ultrason. Freq. Contr.*, Vol. 50 (2003), p. 553.
- (32) Ogi, H., Ohmori, T., Nakamura, N. and Hirao, M., *J. Appl. Phys.*, Vol. 100 (2006), 053511.
- (33) Ogi, H., Sato, K., Asada, T. and Hirao, M., *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 112 (2002), p. 2553.
- (34) Heyliger, P., *J. Acoust. Soc. Am.*, Vol. 107 (2000), 1235.
- (35) Thomsen, C., Grah, H. T., Maris, H. J. and Tauc, J., *Phys. Rev. B*, Vol. 34 (1986), p. 4129.
- (36) Thomsen, C., Strait, J., Vardeny, Z., Maris, H. J., Tauc, J. and Hauser, J. J., *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 53 (1984), p. 989.
- (37) Ogi, H., Fujii, M., Nakamura, N., Yasui, T. and Hirao, M., *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 98 (2007), 195503.
- (38) Tanei, H., Nakamura, N., Ogi, H., Hirao, M. and Ikeda, R., *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 100 (2008), 016804.
- (39) Birrell, J., Carlisle, J. A., Auciello, O., Gruen, D. M. and Gibson, J. M., *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 81 (2002), p. 2235.
- (40) Birrell, J., Gerbi, J. E., Auciello, O., Gibson, J. M., Gruen, D. M. and Carlisle, J. A., *J. Appl. Phys.*, Vol. 93 (2003), p. 5606.
- (41) Nakamura, N., Ogi, H. and Hirao, M., *Phys. Rev. B*, Vol. 77 (2008), 245416.
- (42) Nakamura, N., Ogi, H., Shagawa, T. and Hirao, M., *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 92 (2008), 141901.