HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	ギガヘルツ弾性表面波時間分解イメージング法における任意周波数測定実現のための研究
Author(s)	兼子, 翔伍
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第11873号
Issue Date	2015-03-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k11873
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/58673
Type	doctoral thesis
File Information	Shogo_Kaneko.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

ギガヘルツ弾性表面波
時間分解イメージング法における
任意周波数測定実現のための研究

北海道大学大学院　工学研究科　応用物理学専攻
量子機能工学研究室
兼子　翔伍

2014/12/08

概要

弾性表面波は物質の表面近傍に局在して伝播する弾性波のモードである。現在では、数メガ～数ギガヘルツの弾性表面波は機械部品・構造物表面近傍の傷の検査をはじめ、ギガヘルツ帯無線通信機器のフィルタ素子などに応用される。一方、近年ではギガヘルツ帯の弾性表面波を対象とするフォノニック結晶・メタマテリアルの作製、それらを用いた導波路伝播、負屈折、超分解レンジング、クローキングなどの現象の研究が進められている。それとともに弾性表面波伝播特性の制御性は向上し、その応用の可能性は着々と拡大している。

さて、1980 年代の超短パルスレーザーおよびそれを用いた分光法の発展を機に、ギガヘルツ～テラヘルツという高周波数帯の弾性波の励起、そして時間領域の測定が比較的に容易に行えるようになった。そのような時間分解測定法の 1 つにピコ秒音響法がある。その試料表面近傍の弾性波を観測する手法と、2 次元走査機構および複素反射率の振幅または位相成分を選択的に測定可能な光学干渉計を組み込んだ系の構築により、ギガヘルツ帯の弾性表面波伝播の時間分解イメージング（以下、ギガヘルツ弾性表面波時間分解イメージング法）が可能である。時間領域の測定に加え、空間的な音場分布を取得することで、ギガヘルツ帯の弾性表面波伝播の様子は動画のように可視化される。また、可視化のみならず、メガ～ギガヘルツに及ぶ幅広い励起周波数成分と時空間分布のデータ取得は、時空間 Fourier 解析により周波数・波数空間における分散曲線または曲面の観測を可能にする。そのような解析手法は材料・構造の弾性的な伝播特性研究、特にフォノニック結晶・メタマテリアルのバンド構造の観測にも有用である。しかし、所望の周波数で周波数・波数空間のマッピングを行うには現状解決すべき課題が存在する。上記手法の下地にあたるポンプ・プローブ測定にて測定される周波数成分は、原理的制約のため通常は離散的で実験系ごとに固定である。周波数走査性の不足のため、狙った周波数での測定が困難となる。そのため一般的に複雑な分散関係を示すフォノニック結晶・メタマテリアルや、高いQ値での共振を示す構造などへの適応性は自ずと低くなってしまう。

本研究では既存のギガヘルツ弾性表面波時間分解イメージング法に存在する測定周波数の制約を克服し任意周波数測定を可能にすることで、同手法の発展と適用範囲拡大を目指した。本研究で提案するのはポンプ・プローブ測定における励起光の強度変調から、励起周波数を制御する手法である。励起光の強度変調は、ロックインアンプを用いたポンプ・プローブ測定の信号対雑音比向上のために以前から行われていたことであるが、ロックイン検出による時間信号取得の複雑化のため、任意周波数測定として充分に利用されてはいなかった。本研究ではそのような時間信号取得に対する周波数解析方法を理論的に開発し、理論の正当性を確認する実験系を構築し、試用した。その結果は有意義なもので、新手法は今後ギガヘルツ帯の弾性表面波を対象とするフォノニックバンドギャップや共振器の共振モードの測定に有用な手法となることが期待される。また、ポンプ・プローブ測定における測定周波数の制約の克服は、超音波関連に限らず、同様の周波数帯を持つ現象を対象とした他分野の分光測定への貢献も期待される。

目次

概要 1

第 1 章　序章 5

1.1　はじめに 5

1.2　弾性表面波 6

1.3　ポンプ・プローブ法による弾性表面波イメージング 8

1.3.1　ピコ秒音響法 9

1.3.2　ギガヘルツ弾性表面波時間分解イメージング法 9

1.3.3　周波数測定に関する原理的制約 11

1.4　本研究について 11

1.4.1　研究目的 12

1.4.2　ギガヘルツ弾性表面波イメージング法改良の提案 12

1.4.3　本論文の構成 13

第 2 章　弾性表面波イメージングシステム 14

2.1　はじめに 14

2.2　弾性波の光励起 14

2.2.1　レーザー照射による超音波の励起機構 14

2.2.2　Rayleigh 波 16

2.3　ポンプ・プローブ法による時間分解測定 17

2.3.1　ポンプ・プローブ法 17

2.3.2　ロックイン検出と高繰り返し周波数の光源の使用 18

2.3.3　ロックインアンプのフィルタリング原理 19

2.4　変形 Sagnac 干渉計による表面変位の検出 21

2.4.1　反射型ポンプ・プローブ法における測定量 21

2.4.2　変形 Sagnac 干渉計について 23

2.4.3　干渉計内部でのプローブパルスの動き 23

2.4.4　光反射率の位相変化の検出 27

2.5　2 次元走査系によるスポット走査 29
2.6　弾性表面波イメージの時空間 Fourier 解析 30
第 3 章　弾性表面波イメージング法の改良 32
3.1　はじめに 32
3.2　変調と側波帯 32
3.3　ポンプパルス列の変調と周波数測定 33
3.3.1　強度変調しない場合の励起周波数 34
3.3.2　強度変調する場合の励起周波数と周波数走査法の着想 34
3.3.3　測定対象の周波数スケール 35
3.3.4　実現のために必要な確認事項 36
3.4　方針 36
3.5　まとめ 36
3.5.1　既存法における周波数測定の考察 37
3.5.2　新たな弾性表面波イメージングシステムの構築と検証実験 37
第 4 章　繰り返し光源を用いたポンプ・プローブ法における励起周波数と測定周波数 38
4.1　はじめに 38
4.2　定式化の準備 39
4.2.1　光学系の自由度 39
4.2.2　光学系の場合分けから励起される弾性波動の定式化へ 41
4.2.3　励起される弾性波動の定式化（プローブディレイの場合） 41
4.2.4　励起される弾性波動の定式化（ポンプディレイの場合） 42
4.3　周波数測定の定式化（単一変調の場合） 43
4.3.1　プローブディレイ 43
4.3.2　ポンプディレイ（変調器、遅延光路の場合） 47
4.3.3　ポンプディレイ（遅延光路、変調器の順） 49
4.4　周波数測定の定式化（二重変調の場合） 50
4.4.1　ポンプディレイ（変調器、遅延光路の順） 51
4.4.2　ポンプディレイ（遅延光路、変調器の場合） 52

4.4.3　プローブディレイ（変調器、遅延光路の順）……52
4.4.4　プローブディレイ（遅延光路、変調器の順）……53
4.5　まとめ……54
第 5 章　任意周波数測定の実験系構成……55
5.1　はじめに……55
5.2　測定系の構築……55
5.2.1　光源と光路……56
5.2.2　変調器……56
5.2.3　走査系……57
5.3　まとめ……57
第 6 章　開発された系の検証……59
6.1　はじめに……59
6.2　試料……59
6.3　比較的低周波数での変調……59
6.3.1　実験……60
6.3.2　実験結果と考察……60
6.4　比較的高周波数での変調……63
6.4.1　実験……63
6.4.2　実験結果と考察……63
6.5　まとめ……64
第 7 章　総括……65
付録 A　干渉計に使用する光学素子……66
付録 B　偏光と Jones ベクトル……68
付録 C　Fourier 変換……72
付録 D　AOM の合わせ方……74
参考文献一覧……75
謝辞……77

第1章　序章

1.1　はじめに

音響波または弾性波は、ヒトが直接知覚できることもあり、代表的な波動として古くから研究対象とされてきた。現在では可聴域外を含めて様々な周波数の弾性波の励振・検出が可能となっている。そのような弾性波は興味深い物理現象であると同時に、産業的・工業的に広く普及し、計測・通信・加工などに応用される。弾性波でも電磁波などと同様に、周波数ごとに応用適用範囲が決定されたり[i]、媒質の伝播特性が変化したりと、周波数に注目する場面が多い。弾性波を制御する上で媒質の周波数特性を調べることは重要である。

本研究で開発する測定法の観測対象となる弾性波は、メガヘルツ～サブギガヘルツ帯の弾性表面波（surface acoustic wave、SAW）である。弾性表面波は媒質に表面（または境界面）が存在する場合に生じ得る。そのエネルギーは媒質表面から 1 波長程度の深さに局在し、表面に沿った伝播をする。池などの水面を伝う波紋を思い浮かべれば、それは弾性表面波伝播の想像として悪くない。ただ、水面の波紋のようにヒトの目で直接観察するには、媒質表面の変位が微小で、伝播が高速すぎる。そして、媒質が固体結晶であり弾性的異方性を有する場合には波の進行方向によって位相速度が異なるというように、水面の波紋との明確な違いも存在する。現在、数メガ～数ギガヘルツの弾性表面波は機械部品・構造物の表面近傍の傷の検査をはじめ、ギガヘルツ帯無線通信機器のフィルタ素子（おもに移動体通信に使用される）、ガス・液体のセンサ、タッチパネル（表面波方式と呼ばれる駆動方式のもの）などに応用されている。更に近年ではギガヘルツ帯の弾性表面波を対象とするフォノニック結晶・メタマテリアルの作製、それらによる伝搬特性の制御や導波路の伝播、負屈折、超分解レンズ（スーパーレンジング）、クローキングといった現象の観測を目的とした研究が進められるとともに、弾性表面波の応用の可能性は着々と拡大している。本研究ではそのようなギガヘルツ帯の弾性表面波の観測方法に注目する。

1980 年代には超短パルスレーザーおよびそれを使用する分光法が発展し、ギガヘルツ～テラヘルツという高周波数帯の弾性振動もしくは弾性波を発生させ、時間領域で測定するというようなことが比較的容易に行われるようになった。そのような時間領域の測定（すなわち時間プロファイル取得もしくは時間分解測定）の 1 つにピコ秒音響法（ピコ秒超音波法）がある。超短パルスレーザーの照射で試料にごく短い時間幅を持つ弾性波パルスを発生させると、試料内部方向に進行する弾性波パルスの一部は、試料の構造や欠陥によって反射され再び表面付近に到達するので、同方法ではこの反射波（エコー）を観測する。この方法は、同じく高周波数帯の弾性波の主要な光計測方法であるラマン散乱分光法のような周波数（エネルギー）領域の測定とは異なるアプローチにより、音響波の伝播情報を取得する（たとえば弾性振動の位相の情報を取得できる）。取得信号の Fourier 解析により周波数スペクトルを取得すれば、時間領域・周波数領域双方からの議論も可能である。ピコ秒音響法が試料表面付近の弾性波を時間領域で測定する手法であるから、その技術を基礎として、ギガヘルツ帯の弾性表面波伝播の時間分解イメージを取得する技術が開

[i] 計測への応用を例にとると、計測対象物の大きさと音響波の波長が同程度でなければならず、またその周波数は媒質中の音速により波長と結びつくから、自ずと使うべき周波数帯が決定する。

発されている（以下でこの方法をギガヘルツ弾性表面波時間分解イメージング法、または単に弾性表面波イメージング法と呼ぶことにする）。超短パルスレーザー照射では試料内部方向への進行波、つまり体積弾性波（バルク弾性波）に加え、弾性表面波が励起され得る。ピコ秒音響法では試料表面上のある 1 点でバルク弾性波を観測するが、弾性表面波イメージング法では試料表面にわたってプローブ光を走査（スキャン）し、2 次元的な弾性表面波の伝播の様子をイメージとして取得する。弾性表面波の時間発展を観測することは、試料奥行き方向に伝播するバルク弾性波の観測からでは知りえない試料の伝播特性を詳らかにすることに繋がる。時間信号とともにイメージという空間的な伝播情報を収めたデータセットは、時空間 Fourier 変換により弾性波の分散曲線マッピングが可能である。等方性媒質上[1], [2]、異方性媒質上[3]、球面上[4]などの弾性表面波を対象として、時間イメージ取得・周波数解析が行われている。また、フォノニック結晶[5], [6]・弾性的なメタマテリアルなどの研究を行う上で有用である。

上記のように、ギガヘルツ弾性表面波時間分解イメージング法は単なる弾性表面波の可視化手段というだけに留まらず、材料・構造の弾性的な伝播特性の研究に利用される。しかし、様々な構造の弾性振動または弾性波を測定する上で、この方法には解決すべき課題が存在する。それは「測定周波数の制限」である。ギガヘルツ弾性表面波時間分解イメージング法では、後に詳細を説明するが、その原理的な制約のために一般に連続的な周波数での励起・測定が困難である。言い換えれば、一度の測定で検出される弾性振動はとびとびの周波数しかもたない。さらに周波数を任意に選択して測定することも困難であり、これはすなわち周波数走査を用いて対象となる周波数帯を隈なく測定するようなことができないことを意味する。いきおい、フォノニック結晶や弾性的なメタマテリアルのように、一般的に複雑な分散関係を持つ構造物への測定の適応性は低くなってしまう。そのため、任意周波数で測定を行う弾性表面波イメージング法の開発が求められる。

本書では、既存のギガヘルツ弾性表面波時間分解イメージング法に存在する測定周波数の制約を克服し、同手法の発展と適用範囲拡大を目指す研究を行った。新たに開発した任意周波数測定の理論と、測定系を構築して行った実証実験について記述する[7]。冒頭の本章では、まず略述した背景を再度詳細に記述し、研究目的、研究内容を定義していく。

1.2　弾性表面波[ii]

無限に続く媒質内部を進行するバルク弾性波には、1 つの縦波モードと 2 つの横波モードが独立に存在し、媒質中を一様に伝播する。しかし、媒質に表面（または境界面）が存在する場合には、媒質表面（または境界面）から 1 波長程度の深さにエネルギーが局在し、表面（または境界面）に沿って伝播するモードが現れる。そのような波は一般的に表面波と呼ばれ、弾性体（特に固体）表面上を伝わる弾性波の場合には弾性表面波と呼ばれる。

弾性表面波は 1885 年に Rayleigh 卿によって理論的にその存在が指摘された。その後弾性表面波はまず地震学など地球環境科学の分野にて研究対象とされてきた。しかし近年すだれ状交差指電極（IDT、interdigital transducer）と呼ばれる素子が開発され、数十メガ～数ギガヘルツに及

[ii] 本セクションは総論として文献[22]を参考にした。

ぶ比較的高周波数の弾性表面波が固体表面に効率よく励振可能になってからは、それを利用した研究開発や産業的応用が進められた。たとえば、弾性表面波を利用した電子デバイスの研究開発が盛んに行われるようになった[iii]。弾性表面波を利用する電子デバイスは SAW デバイスと呼ばれる。代表的なものは、携帯電話などの無線通信機器の受信または送信のために回路に必要な周波数選択素子（SAW フィルタ）、気体や液体の検出器（SAW センサ）などである。また、高周波数であることから、薄膜などの微小構造の検査に使用されるようになった。

これら応用にも活かされる弾性表面波の特性を簡単に述べておく。まず、当然ながら弾性表面波も弾性波であるから弾性波の一般的な特性を持つ。たとえば音響インピーダンスの不整合面での反射・散乱が生じるから、材料や構造物内部の検査に利用される。高周波数であれば、微小な構造の検査に向く[iv]。また、同周波数の信号を乗せた弾性波と電磁波では、弾性波の方が短い波長を持つ。これは弾性波の位相速度が遅いからであり、SAW フィルタでは電磁波よりも 5 桁ほど速度が遅い弾性波[v]を用いることで信号の波長を短くし、フィルタの小型化を実現している。弾性波の中でも特に弾性表面波が使用されるのは、バルク波に比べてエネルギーの散逸が少なく減衰しにくいからである。また、弾性表面波は表面近傍に局在することから、表面の影響を伝播に反映しやすい。SAW センサでは、弾性表面波の伝播経路に検出対象のガス分子が付着するような物質を置き、付着時の弾性表面波の伝播特性の変化を利用して検出を行う[8]。

サブギガヘルツ帯域における弾性表面波利用の裾野は現在も広がっている。たとえば弾性表面波の存在下で生じる媒質のひずみやそれに伴う電場（圧電体の場合）を利用して、半導体表面のバンド構造を変調する技術が報告されている[9]。ここで弾性表面波が利用されるのは、空間における局所的変化を利用でき、時間とともに進行する変調を表面に作り出せるからである。このような変調は半導体表面における光学的性質の変調や光励起キャリアの輸送という現象の観察やその先の応用の可能性を秘めている。

以上のような様々な特性から広く興味を持たれている弾性表面波だが、その励起方法にも注目すべきである。数ギガヘルツに至る高周波数の弾性表面波は、先程も登場した IDT を利用した励起が広く行われる。IDT が比較的廉価[vi]で高い制御性を得られることが、そのおもな要因である。IDT を大量に精度よく、様々な形状で作製するには、集積回路の微細化が進む過程で培われた半導体産業の加工技術が活きることも重要である。

一方で、レーザー技術の発展[vii]に伴って光を用いる弾性波励起法が開発された。目的は、非接触での超音波励起である。レーザー光が照射された試料は、光吸収で得たエネルギーにより励起

[iii] 弾性表面波に限らず、高周波数の超音波励振が可能になったのは圧電トランスデューサの貢献が大きい。数ギガヘルツまでの音響波は、圧電トランスデューサの使用で比較的容易に発生させられる。トランスデューサとはあるエネルギーを別のエネルギーに変換する変換素子という意味である。圧電トランスデューサは電場の印加によりひずみが発生する性質（圧電性）を有する物質（圧電体）に電極を取り付けて電気－音（機械振動、力学的エネルギー）のエネルギー変換を行う。電気エネルギーが超音波の発生または検出に非常によく利用されるのは制御の容易さに由来する。

[iv] 対象物の空間的な大きさと音響波の波長は同程度でなければならない。周波数は伝播する物質中の音速により波長と結びつくから、計測では自ずと使うべき周波数帯が決定される。

[v] 弾性波と電磁波（光）の違いはこれに留まらない。計測用途で言えば、弾性波は気体・液体・固体、そして生体内を伝播し、光が透過できない媒質（つまり「不透明」な媒質）も透過するので非破壊検査が可能である。

[vi] たとえば高品質な弾性波波源は光源と比べると安価である。

[vii] レーザー光の特徴は空間的かつ時間的に高いコヒーレンスを持つことである[23]。空間的に言えば、レーザー光は指向性が高くビーム状であるためエネルギーの拡散が少なく、空間的に高いエネルギー密度を持つ。またパルス発振が可能であり、時間的にも高エネルギー密度の光を照射できる。そのため、フェムト秒パルスレーザーの実験室への普及はこの分野の拡大に貢献したと言える。

状態となる。弾性波励起は、物質が光エネルギーを吸収する際の熱膨張など[viii]を通じて行われる。励起におけるエネルギー変換効率[ix]や制御性（指向性、モードの選択性、測定の再現性）ではIDTをはじめとする圧電トランスデューサに劣るが、電気励起が適さない鉄鋼や機体の検査に使用される[x]。また、レーザーを用いて試料の弾性波を観測する方法も存在する。観測には音響光学効果が用いられることが多い。

レーザーを用いた非接触の弾性波励起・計測などの技術一般を指して、レーザー音響法（レーザー超音波法、laser ultrasonics）と言う。上記の例のような大規模なレーザー励起とは異なるが、次セクションでは本研究で用いる弾性表面波のレーザー励起方法とその検出方法を紹介していく。

1.3　ポンプ・プローブ法による弾性表面波イメージング

ポンプ・プローブ法（optical pump and probe technique、pump-probe technique）は、試料にピコ秒またはフェムト秒超短パルスレーザーを照射して、物理量の変化を時間領域かつ高い時間分解能で測定する方法である。この方法では試料励起・応答検出の両方に超短パルスレーザーを用いる。まず超短パルスレーザーから発振されるレーザーパルスを、試料を励起する役割の励起光（ポンプ光）と現象を観測する役割の検出光（プローブ光）の2つに分ける。超短光パルスによる励起は瞬間的（impulsive）で、素早い電子励起の直後から緩和が生じる。一方、プローブ光は試料の光学定数（誘電率、吸収係数）を測定量として、励起から緩和に至るまでの過渡的な試料応答（試料応答の時間変化）を測定する。検出にも超短光パルスを用いることで、光検出器の電気的な応答速度を超えた時間分解能を持つ測定が可能になる。この方法は、ストロボ撮影（フラッシュの瞬間的発光を利用してカメラのシャッター速度を超えた撮影を行う）によく似ている。プローブ光はポンプ光から遅れて試料に到達してその瞬間の応答の情報を取得する。ポンプ光の到達からプローブ光到達までの経過時間を（光学）遅延時間といい、遅延時間を連続的[xi]に変化させて物理量の時間変化を測定する。

素励起、原子の運動、電子分布の変化、化学反応[10]をはじめとする様々な高速現象の時間分解測定に用いられるポンプ･プローブ法だが、高時間分解能を持つ時間領域の測定であるために、高周波数帯の弾性波を測定する用途にも使用される。たとえば1 THzを超える超音波の検出には<1 psという時間分解能が必要であるが、ポンプ・プローブ法を用いればそのような検出が可能となる。以下では、ポンプ・プローブ法に基づく弾性波検出法であるピコ秒音響法とその派生測定技術の概要を述べる。

[viii] 超音波が生成される機構（励起機構）は試料により様々で熱弾性効果、圧電効果、アブレーション（表面の気化による爆発力を利用する）などが考えられる。

[ix] 電気エネルギーを一度光エネルギーに変換して、さらに音響エネルギーへと変換するから、エネルギー効率は当然レーザー励起の方が劣る。

[x] そのような用途では、レーザー励起による超音波の振動検出をマイクロフォンなどの電気的な検出器で行うのが一般的である[22]。

[xi] 時間遅延を連続的に行っても、実際に取得するのは時間領域で離散的な値となる。

1.3.1 ピコ秒音響法

金属薄膜を表面に持つ試料に対してポンプ・プローブ測定を実行し、弾性波を発生・検出する実験が 1980 年代半ばに Thomsen らによって報告されている[11][12]。光源にはピコ秒またはフェムト秒パルスレーザーを用いる。ポンプ光吸収時の電子励起から試料表面の熱膨張が生じ、それをきっかけに光吸収した面から深さ方向へ伝播する弾性波が発生する。フェムト秒レーザーパルス照射で発生する弾性波パルスは、数百ギガ～数テラヘルツ帯の周波数成分により形成される。一方、ひずみ存在下の試料では、誘電率がひずみの大きさに比例して変化する（光弾性効果）。この効果を利用し、弾性波の観察にはプローブ光を用いた試料の光反射率の計測を行う。不透明な試料において、プローブ光は試料表面から光吸収長程度の深さまで浸透するから、表面近傍の弾性波のみが観察可能である。このような方法で行う弾性波測定はピコ秒音響法（picosecond ultrasonics）と呼ばれる。ピコ秒音響法では、弾性波による変位やひずみの変化を直接測定するわけではないから、測定結果の解析手法、理論モデルとの比較、弾性振動解析ソフトによるシミュレーション結果との比較なども重要になり、測定法にはそれらまでもが含まれる場合も多い。

ピコ秒音響法は先に触れたレーザー音響法にも通じ、励起・検出をともに光学的に行うので[xii]測定全体が試料に対して非接触となる。そのため、励起する弾性波の自由度が高い、測定時に試料上の超音波を乱すことがないことが、電気励起に対しての利点となる。また、ポンプ・プローブ法はその時間分解能から様々な素励起――たとえば電子励起、キャリア励起――の時間領域での測定に用いられる。その観点からピコ秒音響法を捉えれば、最も基礎的な素励起の 1 つである「フォノン」の振る舞いを時間領域で観測する技術である。観測可能なフォノンを、特にコヒーレントフォノンと呼ぶ（有限温度の物質中で、熱揺らぎから来る位相の揃っていないインコヒーレントフォノンと区別する）。ラマン散乱分光法などの他の方法では周波数領域での測定だが、ポンプ・プローブ測定は既に述べてきたように時間領域の測定である。

1.3.2 ギガヘルツ弾性表面波時間分解イメージング法

ピコ秒音響法に試料表面の変位を検出する干渉計技術を用いることで、固体表面上のギガヘルツ帯の弾性表面波の可視化（時間分解イメージング）が可能である[1][13]。その測定系の模式図を図 1.1 の上図に示す。弾性表面波イメージング法における超音波励起機構や時間分解測定は、基本的にピコ秒音響法の測定原理を継承している。ポンプ光が発生させる弾性表面波は、ポンプ光のスポットサイズが周波数成分の上限に影響する。この方法の測定周波数上限は、レーザー光の回折限界のために数ギガヘルツ程度になる。光学スキャナを用いて試料表面に集光されたプローブ光スポットを 2 次元走査することで弾性表面波の伝播も検出する（特別にバルク波を検出しないような処理をするわけではない）。弾性表面波の伝播は試料表面に変位をもたらす。この表面変位に由来する微小な光路長の変化をプローブ光路に組み込んだ干渉計[14]により検出する。このとき横空間分解能は、プローブ光のスポットサイズにより決定され、数マイクロメートルとなる。図 1.1 の下図に示すような弾性表面波伝播の瞬間的なイメージ（スナップショット）を取得

[xii] 電気的に励起された音響振動を観測することもできる。たとえば文献[17]ではそれが行われている。

する。遅延時間が異なるスナップショットを 20～40 枚程度取得すれば、弾性表面波伝播の様子を動画化することができる。現象の可視化は直感的な理解が生まれる点で他の観測法には無い説得力がある。さらに、試料表面上の全方位への伝播成分や様々なモードを同時に励起できることや、広い周波数帯の応答が同時に観測できることなどが利点となる。取得されるデータセットは、表面変位速度の時間・空間分布（空間は 2 次元、$x-y-t$プロット）であり、時空間 Fourier 変換（spatio-temporal Fourier transform）による解析を施すことで周波数・波数空間（$k_x-k_y-\omega$ プロット）の分布が得られる。上に示したように多様な周波数・モードの弾性波を含むため、この手法により弾性波の分散曲面が取得可能であるのも試料の伝播特性を評価する上で大きな利点となる。反対に、指向性やモード選択性の低さなどが測定上の欠点となることもある。ただ、指向性はスポット形状の操作により改善の余地がある。たとえば進歩的な研究としてレーザーの横方向の空間分布に位相変調を加え、任意形状の波源での弾性表面波励起の研究がされ[15]、より高い制御性が今後実現する可能性がある。

このイメージング技術は、SH 波のモードを持つ弾性表面波（表面変位測定の代わりに光弾性効果を利用した測定を行う）[16]、バルク弾性波フィルタに電気励起された弾性振動[17]、弾性表面波と同じく表面変位を伴う板波（Lamb 波）のイメージング・解析にも適用されている。

励起される弾性表面波の波長域・周波数帯域は、使用するレーザー光に強く依存する。まず、波長域は試料表面のレーザースポットの大きさによって決まる。小さなスポットほど高い周波数成分が励起されるので、周波数上限は使用するレーザー光の回折限界で決まる（ただ、通常回折限界に達するまで集光することは難しい）。中心波長 830 nm の Ti:Sapphire レーザーが光源の場

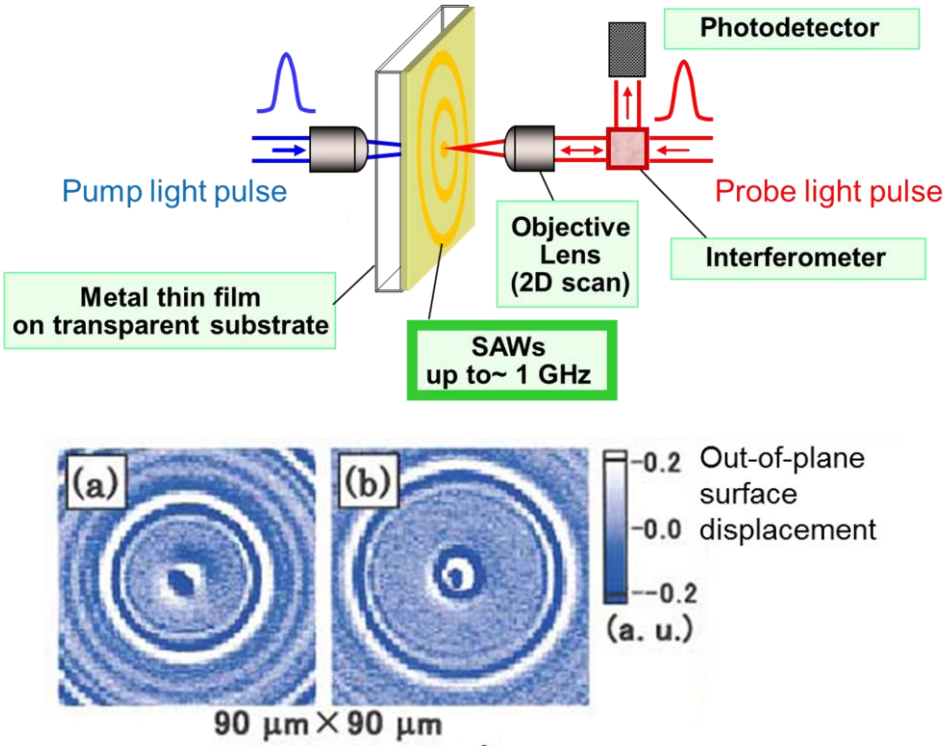

図 1.1: 上）ポンプ・プローブ法による弾性表面波イメージングの模式図。下）弾性表面波イメージの例[1]。イメージの遅延時間は a) 10.4 ns、 b) 14.2 ns である。a と b の 2 つを見比べることで、3.8 ns 間にパルスが進行する様子が窺える。

合、弾性表面波の波長は数マイクロメートル程度、周波数にして数十メガ～数ギガヘルツ程度である。このスケールは IDT と同程度であることを追記しておく。

1.3.3　周波数測定に関する原理的制約

ポンプ・プローブ法による弾性表面波イメージングは、以上で記述したようにギガヘルツ帯という比較的高周波数の弾性表面波を時間領域で観測する技術である。そのためマイクロメートルスケールの弾性振動を制御対象にしたフォノニック結晶・メタマテリアルの測定などにも活用される。しかし、この方法には周波数測定において原理的な制約がある。

ポンプ・プローブ法のレーザー光源には通常高繰り返し光源を使用する。これは一般的に測定値（物理量の変化量）が微小であるポンプ・プローブ測定の信号対雑音比（S/N比、Signal to noise ratio）を信号積算により向上させるためだが、この場合には励起可能な弾性波の周波数が繰り返し周波数の整数倍に限定され、それ以外の周波数の励起および検出が困難となる。たとえば、ポンプ・プローブ測定の典型的な光源であるモードロック Ti:Sapphire レーザーなら、繰り返し周波数は～80 MHz（～12.5 ns）である。よって、80 MHz、160 MHz、240 MHz、...の周波数でしか励起・検出が行われない（つまり、励起・検出周波数が離散値かつ固定値である）。関心のある（測定対象の）周波数領域がメガヘルツ～ギガヘルツ帯である弾性表面波イメージング法において、見かけの周波数分解能が 80 MHz というのは非常に粗い。そのため、分散曲線マッピングを想定しても、複雑な分散曲線の機微を測定することは困難となる。また、共振器における共鳴のように高いQ値（Q-factor、quality factor）の振動[xiii]は、周波数のピークが偶然 80 MHz の整数倍の検出以前にまず励起することができない。これではフォノニック結晶またはメタマテリアルの分散曲線の取得に支障をきたす場合もある。

繰り返し光源の使用は避けられないのだから、この問題の解決策としてもっとも直接的なのは、レーザーの繰り返し周波数の変更となる。しかし、繰り返し周波数の変更にはレーザー装置のキャビティの間隔を変更し、調整し直す必要があり、系のアライメントを崩したり、手間が掛かったりと大きな欠点が目につく。さらに、繰り返し周波数の低下は、装置の大型化と、レーザーパルスの間隔に応じた時間走査の必要性から測定の長時間化を招く。

1.4　本研究について

前節で述べたように、ポンプ・プローブ法に基づく弾性表面波イメージング法では高繰り返し光源を使用しなければならないから励起・検出周波数がどうしても制限されてしまい、所望の周波数応答が得られない場合がある。そのような背景をまとめ、以下では本研究の目的および内容を成文化する。次に、上記の周波数制限を克服するための方法を提案する。ここでは簡潔に概要のみを述べることとして、具体的な研究方針は第 3 章で議論する。

[xiii] 線幅が細いとも言われる。

1.4.1　研究目的

ここでは本研究の目的を述べる。弾性表面波は物質の表面近傍に局在する弾性波のモードであり、機械部品・構造物の表面近傍の傷の検査やギガヘルツ帯無線通信機器のフィルタ素子等に広く応用されている。そのような応用開発においては弾性表面波の伝播を時間領域でイメージングする観測法は非常に有効である。

一方、ギガヘルツ～テラヘルツ程度の高周波数帯の弾性波の生成・検出は 1980 年代に超短パルスレーザーの開発・発展によって可能となった。この技術と併用するために開発された振幅反射率・位相反射率をともに測定可能な光干渉計技術、そして 2 次元走査機構を組み込んだ光学系構築により、固体試料表面におけるギガヘルツ帯の弾性表面波伝播の時間分解 2 次元イメージングが可能となった。測定系は改良が重ねられ、フォノニック結晶のバンドギャップ等を測定対象に成果を残しているが、原理的な下地にあたるポンプ・プローブ法に存在する生成・検出周波数に対する制約のため､任意周波数で弾性表面波を生成･検出する技術は充分には発達していない。そこで本研究では比較的簡便な任意周波数測定を可能にするため、励起光の変調から生じる側波帯を利用した任意周波数測定法を確立し、弾性表面波イメージング法の発展を目指す。

1.4.2　ギガヘルツ弾性表面波イメージング法改良の提案

本研究では、任意周波数測定の理論の確立と実験を通したその理論の実証までを行うこととする。

弾性表面波イメージング法における任意周波数測定実現のため、本研究では「ポンプパルス列の強度変調」を利用して所望の周波数の弾性表面波を励起する方法を提案する。波を強度変調すると、強度変調は幾つかの周波数成分の波が重なる際の「うなり」とみなせるため、変調後の波は変調前の波が持つ周波数とは異なる周波数成分を持つことになる。もっとも基本的な正弦波形の変調のとき、うなり由来の周波数成分は、変調前の波の周波数f_0と変調周波数F_{pu}の差$f_0 - F_{\mathrm{pu}}$と和$f_0 + F_{\mathrm{pu}}$となる。これらの周波数は当然変調周波数F_{pu}に依存して変化するから、変調周波数を変化させることで所望の周波数が得られる。これにならい、弾性表面波イメージング法でもポンプパルス列を強度変調すれば、高繰り返し光源を用いたとしても励起周波数の走査を行うことができるようになる。これが提案する方法である。

この方法は導入が非常に簡便である。というのも、実はポンプパルス列の強度変調は既存の弾性表面波イメージング法（さらに言えばポンプ・プローブ法）で行われている。しかし解決すべき問題点も存在する。そもそも強度変調が行われているのは、微小信号を取得するフィルタリング（ロックイン検出）のためであり､励起周波数走査のためではない（変調周波数は固定である）。ポンプパルス列の強度変調による周波数走査が確立されていない理由は幾つか考えられる。その理由の 1 つが「励起した周波数の振動がどのような周波数で記録されるか」に関心が払われていなかったことであり、これを理解しなければ周波数走査は実現できない。そのため本研究ではこの問題を解決しなければならない。この問題は第 3 章にて改めて議論することとなる。

1.4.3　本論文の構成

以上の内容を受け、本論文は次のような構成をとる。

本章では本研究の背景ともいえる、音響波の一般的な特徴、発生・検出方法の概要、先行研究である弾性表面波イメージング法の概要を述べた。また、研究目的の大枠を述べた。

続く第 2 章では、従来からの弾性表面波イメージング法に関して記述する。変位が小さく、非常に速い弾性表面波伝播をどう検出するのかなどの測定原理を中心に記述していく。

第 3 章では、ポンプパルス列の強度変調を用いて任意周波数測定を行う際に生じる課題について具体的に記述する。また、第 3 章以降の研究方針を決定する。

第 4 章では、今回提案するポンプパルス列の強度変調を用いて任意周波数測定の手法をまとめる。

第 5 章では、前章までに述べた測定原理に基づいて、任意周波数を行う実際の実験装置について記述する。

第 6 章では新測定法を試用した実験に関して記述する。同章にて引き続き測定結果を示し、考察もここで行う。

最後に、第 7 章では研究の総括を行い、本論文を締め括る。

第2章　弾性表面波イメージングシステム

2.1　はじめに

本章では、本研究で取り扱う弾性表面波イメージング法の原理について述べる。同方法ではパルスレーザーを使用し、ポンプ・プローブ法に基づいて弾性表面波を発生・検出する。そこでまず§2.2 にて同方法における弾性波の光励起機構、表面波のモードの一般的な説明を行う。対して§2.3～§2.5 では、同方法における弾性表面波の検出機構について述べる。§2.6 では、測定後に行う時空間 Fourier 変換による取得データの解析方法の原理を説明する。

2.2　弾性波の光励起

ポンプ・プローブ法に基づく弾性表面波イメージングでは、レーザー照射時に試料が光吸収を行うことで弾性表面波を励起する。一般的に、レーザー照射時の弾性波の励起機構は、熱弾性効果を介した機構、変位励起機構（半導体試料の場合）、圧電効果を利用した表面電界遮蔽機構（圧電体試料の場合）[18]など多岐にわたる。以下では、主な励起機構である熱弾性効果、変形ポテンシャルを介した励起を取り上げる。

2.2.1　レーザー照射による超音波の励起機構

試料にレーザーを照射すると、試料ではスポット径程度の表面積、光吸収長程度の深さにわって光吸収が生じ電子が励起される。このとき格子系は光により直接励起されない。励起された電子系のエネルギーが（非輻射過程を通じた）緩和の際に電子・格子（フォノン）相互作用により格子系に付与されてはじめて格子系が励起する。すると試料表面には局所的に熱が生じ（局所的に試料温度が上昇し）、いきおい試料表面には応力が生じる。この熱による伝播しない応力は熱応力と呼ばれる。

熱弾性効果を介した励起には温度上昇による熱応力が関与する。その熱応力を打ち消すような応力が伝播成分となるひずみを生み出す。最も一般的な（多くの試料で生じる）励起機構がこの熱弾性効果を介した機構である。後に行う実験では金属試料を使用するが、その場合にはこの機構が支配的だと考えられる。

変形ポテンシャルによる励起では、電子励起の前後で格子の平衡位置が変わることでひずみが生じる。変形ポテンシャルを介した励起は、光吸収によるバンド間遷移が生じる半導体が試料の場合に支配的だと考えられる。この励起は、バンド間遷移が生じた際の電子系と格子系のエネルギーを合わせて、その平衡位置を考える簡単なモデルにより定性的な理解ができる。

まず格子系の持つ単位体積当たりの弾性エネルギーWを考える。簡単のため、1 次元空間を仮定する（本来ひずみはテンソル量だが、1 次元のひずみとなる）。弾性エネルギーWはひずみηの

2 乗に比例する。すなわち、

$$W = \frac{1}{2}C\eta^2 \tag{2.1}$$

である。但し、Cは弾性スティフネスである。この関係式は連続体の微小体積においてが Hooke の法則（応力がひずみに比例する）が成り立つことに由来する。

続いては電子系のエネルギーである。半導体では光吸収により電子のバンド間遷移が生じる。このとき、単純に電子が単位体積当たりN個励起され、その全てがバンド端遷移のみを行うとする。基底状態のエネルギーを 0 とすれば、励起状態ではギャップ幅E_g相当のエネルギーを持つ電子がN個生じることになる。つまり、

$$E_\mathrm{ground} = 0 \tag{2.2}$$

$$E_\mathrm{ex} = NE_\mathrm{g} \tag{2.3}$$

である。

ところで、ギャップ幅E_gはひずみηの関数である。これは大まかに言えば以下の理由による。結晶中の電子のバンド構造は、格子の空間的周期性の影響を考慮して導かれるから、格子にひずみが生じて格子間距離が変化すれば当然変調を受ける。結果として、$E_\mathrm{g} = E_\mathrm{g}(\eta)$となる。さらに$\eta$が十分小さければ$E_\mathrm{g}$と$\eta$の関係は線形の範囲に収まる。すなわち、

$$E_\mathrm{g}(\eta) \simeq E_\mathrm{g0} + \left.\frac{\partial E_\mathrm{g}}{\partial \eta}\right|_{\eta=0} \eta \tag{2.4}$$

が成り立つ（E_gをηについて 1 次までテイラー展開した）。但し、$E_\mathrm{g0} = E_\mathrm{g}(0)$（無歪時のギャップエネルギー）で、定数である。ギャップエネルギーの 1 次の展開係数$\left(\partial E_\mathrm{g}/\partial\eta\right)|_{\eta=0}$は変形ポテンシャルと呼ばれる[i]。

ここまでの議論で全系のエネルギーは、基底状態、励起状態についてそれぞれ

$$U_\mathrm{ground}(\eta) = E_\mathrm{ground} + W = \frac{1}{2}C\eta^2 \tag{2.5}$$

$$\begin{aligned} U_\mathrm{ex}(\eta) &= E_\mathrm{ex} + W = NE_\mathrm{g}(\eta) + \frac{1}{2}C\eta^2 \\ &= NE_\mathrm{g0} + N\left.\frac{\partial E_\mathrm{g}}{\partial \eta}\right|_{\eta=0} \eta + \frac{1}{2}C\eta^2 \end{aligned} \tag{2.6}$$

となる。この表式でU_ground、U_exはともにη の 2 次関数である。

U_ground、$U_\mathrm{ex}$vs.ηのプロットを図 2.1 に示す。この図において、エネルギーの平衡位置（最も安定する状態＝極小値）に注目する。時間経過とともに系は平衡位置へと緩和する。

まず励起前の状態は$\eta = 0$の位置（$U = U_\mathrm{ground}$上のオレンジ色の点の位置）が平衡位置である。この状態から励起状態になると$\eta \neq 0$の位置（$U = U_\mathrm{ex}$上のオレンジ色の点の位置）が平衡位置になる。

---

[i] 本来変形ポテンシャルは変形（ひずみ）による価電子帯、伝導帯のエネルギー変化の傾き（1 次の展開係数）のことを言う。価電子帯エネルギーE_v、伝導帯エネルギーE_cとすると、ギャップエネルギーは$E_\mathrm{g} = E_\mathrm{c} - E_\mathrm{v}$であるから、$\left(\partial E_\mathrm{g}/\partial\eta\right)|_{\eta=0}$は 2 つの変形ポテンシャルの差であり、ここではそれを変形ポテンシャルと呼ぶ。

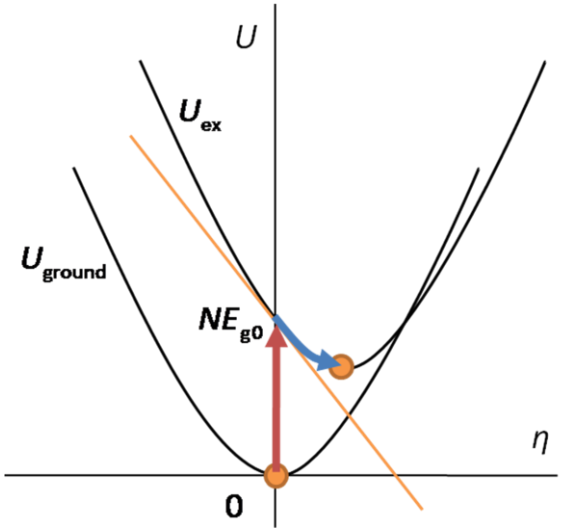

図 2.1: U_{ground},, U_{ex}vs.ηのプロット。オレンジの点が平衡位置を表わす。

実際の励起では電子系の励起は格子系の励起より非常に速い。励起前に全系は状態$(\eta, U) = (0,0)$にあるが、ひとたび光が入射すると電子が励起されて$(\eta, U) = (0, NE_{\mathrm{g0}})$の状態に変化する（図中赤矢印の遷移)。この時点でひずみはまだ励起されない。しかし、その直後に変形ポテンシャルを利用してひずみを生み出すことで電子系はエネルギーを減らそうとする（図中オレンジの直線に沿う動き)。その一方でひずみの発生は弾性エネルギーを増やしてしまう（実際にオレンジの直線に沿うことはなく、$U = U_{\mathrm{ex}}$の曲線に沿う青矢印の遷移を行う)。結局、このような電子系エネルギー減少と格子系エネルギー増大の兼ね合いから、全系のエネルギー的に最も得をする大きさのひずみを生み出す。

このような機構により生じた伝播する成分のひずみ（超音波）は、境界条件を満たすような波以外は伝播し始めるとともに激しく減衰していく。

2.2.2 Rayleigh 波

媒質に表面（境界面）が存在する場合、通常とは異なり媒質表面（境界面）から 1 波長程度の深さに局在し、表面（境界面）に沿って伝播する弾性波のモードが現れる。それが弾性表面波である。物質の性質・形状などにより様々なモードの表面波が存在するが、弾性表面波という場合には半無限媒質の表面に局在するものを総称する。波長に対して充分に厚い等方性媒質においては、Rayleigh 波と呼ばれるモードの弾性表面波が伝播することが知られている。Rayleigh 波は弾性的に等方的な半無限媒質（現実には、波長に対して充分厚い等方性試料）の表面を、境界条件[ii]を満たしながら伝播する。Rayleigh 波は弾性表面波の中でも最も基本的なモードであり、連続体における弾性方程式を境界条件に従って解くことで数学的に導出される（この場合の弾性方程式は解析的に解ける)。表面応力ゼロを満たすために縦波成分（進行方向に平行な変位）と SV

[ii] 作用・反作用の法則から自由境界表面に応力ははたらかない。

波[iii]成分（固体表面に垂直な変位）をともに持つ。格子点のひとつひとつは楕円運動をする。

2.3　ポンプ・プローブ法による時間分解測定

弾性表面波イメージング法では、弾性表面波伝播で生じる試料の表面変位[iv]を、光反射率という物理量を通して観測する。試料表面にわたる測定から光反射率の空間分布を取得し、その分布を輝度・色彩に置き換えて画像化する。要約すれば以上のようになるが、毎秒数キロメートルと高速で、生じる変位も数十ピコメートル程度と僅かな固体試料上の弾性表面波伝播を測定するために、可視化には幾つかの測定技術を複合する。本セクション§2.3 から§2.5 までを、それらの測定技術の説明に充てる。

まず、本節では高速の現象を捉える「ポンプ・プローブ法」に基づいた光学測定の説明を行う。この方法で測定される光反射率変化は一般的に微小（10^{-4}～10^{-6}が一般的）であり、「ロックイン検出」を併用して所望の信号を得るので、それについても本節で説明を行う。

ロックイン検出のほかには、微小な表面変位を検出して測定光の強度として測定するために、光学干渉計が重要な役割を果たす。§2.4 では、ポンプ・プローブ法と併せて使用される「変形 Sagnac 干渉計」による表面変位測定を説明する。また、試料表面にわたる光反射率の空間分布を取得するのには、レーザー光のスポットを試料表面上で 2 次元走査させる必要があり、§2.5 ではその原理を説明する。なお、本研究で改良を施すのは、本節§2.3 にて説明するポンプ・プローブ法による時間分解測定とロックイン検出の組み合わせの部分である。従来の方法における問題点および改良点に関しては、第 3 章、第 4 章に譲る。§2.4、§2.5 にて説明する干渉計と 2 次元走査系の部分は改良後も共通する。

以下では光学素子や機器の名称・略称がことわりなく登場するが、付録 A に纏めて掲載しているのでそちらを参照されたい。

2.3.1　ポンプ・プローブ法

ポンプ・プローブ法については第 1 章でも述べているが、どのような測定を行うのかを再度提示しよう。一般に光を吸収した物質はそのエネルギーにより励起状態となり時間とともに緩和するので、励起後の経過時間に応じて物質の状態は変化する。別の光を照射してその反射・透過から光学応答を観察すると、経過時間によって異なる応答が得られる。ポンプ・プローブ法では過渡的な応答変化を時間分解して測定するために、時間幅の短い 2 つのレーザーパルス（ポンプ光とプローブ光）を用いる。それらパルスの時間幅の短さから、高周波数成分の励起と、試料応答の高時間分解測定が可能である。高時間分解能はポンプ・プローブ法の最大の特徴であり、ストロボ写真のように検出器の応答速度（ストロボ写真なら機械的なシャッター速度、ポンプ・プローブ法なら光検出器の立ち上がり速度）に捉われない。基本的には、使用するレーザーパルスの

[iii] Shear Vertical の意。

[iv] §2.4.4 から、正確に言えば測定値は表面変位速度である。

時間幅が時間分解能に相当し、たとえば<1 ps の超短パルスを発振する Ti:Sappire レーザーでは <1 ps の時間分解能が得られる。ポンプ光に対するプローブ光の到達の遅延時間を変化させることで時間走査を行い、光学応答を遅延時間の関数として取得する。

2.3.2　ロックイン検出と高繰り返し周波数の光源の使用

§2.3.1 で述べた原理からすると、1 対のポンプパルスとプローブパルスがあればよい。しかしポンプパルスが引き起こす光学定数の変化は10^{-4}～10^{-6}程度と微小であり、たとえば「プローブ光の強度をオシロスコープにてモニタリングする」という観測は、とても現実的ではない。そこで直流成分、不要な信号、雑音などを除去して信号対雑音比（S/N比、signal to noise ratio）を向上させるため、ポンプ・プローブ法ではロックインアンプを併用した測定（ロックイン検出）を行うのが一般的である。ロックインアンプ（ロックイン増幅器、Lock-in amplifier）は電気的なフィルタリングにより、変調に同調する検出信号のみを取り出して増幅する測定装置である。ロックインアンプを用いた光学測定では、連続的な励起光（パルスであれば繰り返しのもの）を光学チョッパもしくは変調器により変調する手法が基本であり、ポンプ・プローブ法においても高繰り返し光源から発振される「ポンプパルス列」を変調する[v]。

ロックイン検出を組み入れたポンプ・プローブ法の測定系の概略図を図 2.2 に示す。ロックイ

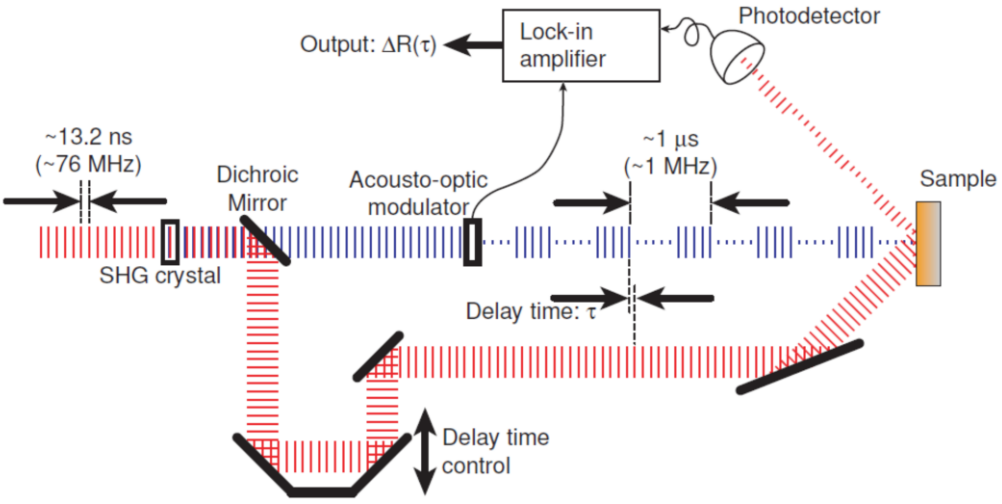

図 2.2: ポンプ・プローブ法の模式図。赤色のビームは赤外の波長を持つプローブ光を表し、青色のビームはその高調波の青色の波長を持つポンプ光を表す。光源からは赤外の波長のビームが来て、第 2 次高調波発生結晶（SHG crystal）により青色の波長のビームが発生することを想定している。ビームが点線として描かれているのは、それがパルス列であることを模しており、線の長さが各パルスの強度を表している。

[v] 時間的な変調を与えるための断続的な光として「ポンプパルス列」が求められる一方で、励起の繰り返しは測定回数の増加につながるという単純な意味でも、パルス列の使用は雑音低減に与している（繰り返し励起による信号積算）。仮に定常状態での反射率に対してポンプパルスの引き起こす反射率変化が充分に大きいとすれば、オシロスコープを用いた観察から各パルスでの応答（反射率変化）の平均値に相当するもの（すなわち 1 対のパルスを用いた時よりS/N比の向上した値）が観測できると考えられる。しかし、反射率変化は微小なので測定回数増加の効果は表向きには見えない。

ン検出ではまずポンプ光（図中青色ビーム）を変調器により一定周期で変調する。すると試料の励起に周期が生まれ、試料の状態が周期的に変化する。プローブ光（図中赤色ビーム）は試料での反射時にその変調を受ける。最終的には、プローブ光の入射した光検出器からの出力電気信号も同一周期で変調される。その出力信号はロックインアンプを経由し、参照信号の周波数に等しい周波数成分の振幅・位相が検出される。

以下では、ロックイン検出（それに伴うポンプ光の強度変調を含む）が測定量に与える様々な影響について述べていく。まず、時間振動しない定常状態の反射率が観測されなくなる。プローブ光が発生させてしまう超音波も変調周波数をもたないために観測されない。また、ロックイン検出に用いる変調周波数も重要である。弾性表面波イメージング法では AOM（Acousto-optic modulator、音響光学変調器）や EOM（Electro-optic modulator、電気光学変調器）を変調器として使用して高速変調を行うのが一般的である。これは、低周波数帯では熱（弾性波と同じく格子振動に由来する）の影響が顕著になり、伝播成分である弾性波の測定を妨げるからである。ロックインアンプは同調増幅器と位相敏感検波器の組み合わせであり，周波数と位相が既知の電気信号を増幅し、高感度で検出する（つまりフィルタ兼増幅器である)。つまり、ロックインアンプを用いると微小信号から参照信号の周波数に応じた成分の振幅と位相を測定できるから、ポンプ・プローブ測定のS/N比は格段に向上する。

ところで、図 2.2 においては、レーザー発振のビームとその第 2 次高調波という異なる波長の光パルスを、それぞれポンプ光とプローブ光に使用することを想定している。ポンプ光・プローブ光の選択では、両者の色（波長）を同じにしない方が比較的容易に測定が行えるからである。測定ではプローブ光のみを光検出器に入れなくてはならないが、ポンプ光とプローブ光が試料上のスポットで重なる（または非常に近い）ことが多い。微小信号を検出するロックイン検出を用いるから、ポンプ光が光検出器に入ると測定したい信号は埋もれてしまう。そこで、特別な場合[vi]を除いて、ポンプ光・プローブ光にはレーザー光源から発振されたものと、SHG 結晶（第 2 次高調波発生結晶）を用いて発生させたその第 2 次高調波を使用すると便利である。たとえば光検出器の手前にカラーフィルタ（バンドパスフィルタ）を設置すれば、2 光の分離は容易である。

2.3.3　ロックインアンプのフィルタリング原理

以下ではロックインアンプによる周波数フィルタリング原理を説明する。

ロックインアンプのフィルタリングの原理は、端的に言えば Fourier 変換に基づく。入力信号は、計測したい周波数の参照信号と掛け合わされたのち、ローパスフィルタ（LPF）を通過する。一般の入力信号$u(t)$から、周波数ω_0成分の参照信号を用いて、同一周波数成分の振幅$A(\omega=\omega_0)$および位相$\phi(\omega=\omega_0)$を計測するとしよう。まず含まれる周波数成分ごとに$u(t)$を展開すると、

$$u(t)=\int_{-\infty}^{\infty}A(\omega)\cos[\omega t+\phi(\omega)]\,d\omega$$

と表現できる。ロックインアンプは参照信号を受け取り、その基本周波数ω_0の正弦波$\cos(\omega_0 t+\phi_0)$を作り出す。最初に、ロックインアンプは信号$u(t)$にその正弦波$\cos(\omega_0 t+\phi_0)$を乗じる。結

[vi] 分光実験（波長ごとに試料の応答の違いを調べる）の場合などである。

果として、信号は

$$\begin{aligned} & u(t)\cos(\omega_0 t+\phi_0) \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} A(\omega)\cos[\omega t+\phi(\omega)]\times\cos(\omega_0 t+\phi_0)\,d\omega \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{A(\omega)}{2}\{\cos[(\omega-\omega_0)t+(\phi(\omega)-\phi_0)] \\ &\qquad +\cos[(\omega+\omega_0)t+(\phi(\omega)+\phi_0)]\}d\omega \end{aligned} \tag{2.7}$$

となる。(2.7)式の被積分関数は第 1 項、第 2 項ともに正弦波であるが、$\omega=\omega_0$の時の第 1 項のみがt依存性のない（時間振動しない）直流成分となる。つまり、最初の処理では所望の周波数成分（$\omega=\omega_0$）のみが直流成分に落とし込まれる。残りの周波数成分がこの処理によって直流になることは決してない。そのため次の処理ではローパスフィルタ（LPF）により低周波数帯のみを取り出せばよい。LPF を用いた直流成分の取得は、(2.7)式の信号を長時間積分する（時間平均する）ことと等価である[vii]。ここでは理想的な LPF で直流成分のみ取り出せるとする（無限大の時間領域にわたる積分）。(2.7)式に含まれる直流成分の大きさは、(2.7)式の被積分関数の第 1 項に$\omega=\omega_0$を代入して

$$\frac{A(\omega_0)}{2}\cos[\phi(\omega_0)-\phi_0]$$

と与えられる。この直流成分の大きさは参照信号の位相ϕ_0の値によって電圧が変化し、$\phi_0=\phi(\omega_0)$の時に最大値$A(\omega_0)/2$が現れる。つまり、直流成分が最大になるようにαを動かせば、最大値をとる時の位相から$\phi(\omega_0)$が取得でき、また最大値から$A(\omega_0)$が取得できることを意味する（すなわち、ロックインアンプが位相の検知器となっていることがわかる）。

上の処理において参照信号の位相を調整する替わりに 90°の位相差がついた 2 つの参照信号を用いても同様の結果を生む。なぜなら、上記の問題において 2 つの未知数$A(\omega_0)$、$\phi(\omega_0)$の取得と$A(\omega_0)\cos[\phi(\omega_0)]$、$A(\omega_0)\sin[\phi(\omega_0)]$の取得は同値だからである。90°位相差のついた参照信号 2 つを用いるロックインアンプは 2 位相ロックインアンプと呼ばれる。本実験で用いるのもこのタイプである。2 位相ロックインアンプにおける信号処理の回路の模式図を図 2.3 に記載する。実際に参照信号を$\cos(\omega_0 t)$と$\sin(\omega_0 t)$として計算を行うと[viii]、

$$\begin{aligned} & u(t)\cos(\omega_0 t) \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} A(\omega)\cos[\omega t+\phi(\omega)]\times\cos(\omega_0 t)\,d\omega \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{A(\omega)}{2}\{\cos[(\omega-\omega_0)t+\phi(\omega)]+\cos[(\omega+\omega_0)t+\phi(\omega)]\}d\omega \end{aligned} \tag{2.8}$$

と

$$\begin{aligned} & u(t)\sin(\omega_0 t) \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} A(\omega)\cos[\omega t+\phi(\omega)]\times\sin(\omega_0 t)\,d\omega \end{aligned} \tag{2.9}$$

[vii] 実際、ロックインアンプの雑音除去能力を決定している LPF の特性は、遮断周波数（カットオフ周波数）ではなく、時定数（タイムコンスタント）で与えられることが多い。

[viii] 実測定で参照信号の位相を測定信号の位相に合わせることを位相合わせと言う。

$$= \int_{-\infty}^{\infty} \frac{A(\omega)}{2} \{-\sin[(\omega - \omega_0)t + \phi(\omega)] + \sin[(\omega + \omega_0)t + \phi(\omega)]\} d\omega$$

となる。(2.8)式と(2.9)式の信号が LPF 通過する際の計算は上記と同じで、その結果

$$\frac{A(\omega_0)}{2} \cos[\phi(\omega_0)]$$

および

$$-\frac{A(\omega_0)}{2} \sin[\phi(\omega_0)]$$

が得られ、$A(\omega_0)$、$\phi(\omega_0)$が求まった[ix]。

2.4　変形 Sagnac 干渉計による表面変位の検出

序章にて弾性表面波イメージングは試料の表面変位の測定であることは述べた。表面変位の測定には反射率の位相成分を測定する必要がある。ここでは、その振幅成分・位相成分を独立に検出する干渉計について説明する。

2.4.1　反射型ポンプ・プローブ法における測定量

反射型のポンプ・プローブ法の測定量を考える。光は物質の境界面などで反射や透過をすると振幅・位相が変化する。対して、光学測定における測定量は一般的に光の振幅・位相ではなく、光強度であるから、それらを結び付けておかなければならない。

まず平面波$\exp[i(kz - \omega t)]$の入射を想定し、試料での反射前後の複素振幅E_i、E_rから

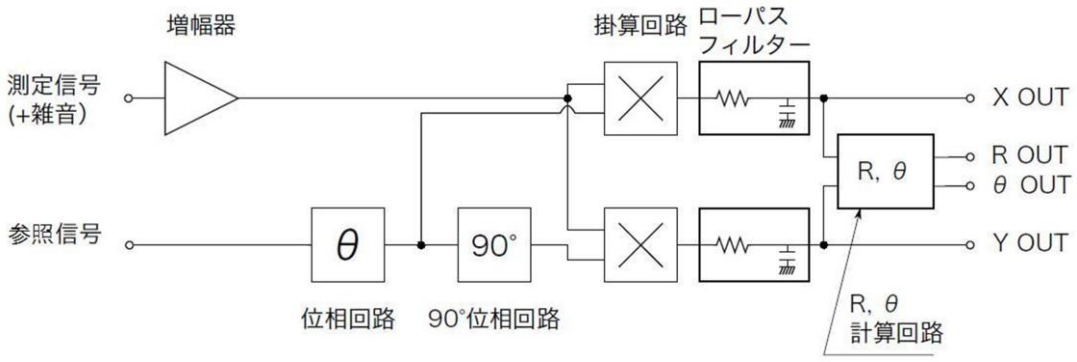

図 2.3: 2 位相ロックインアンプの回路模式図。R, θは本文中の議論における$A(\omega_0)$、,$\phi(\omega_0)$に対応する測定値であり、X, Yは 90°位相差の付いたそれぞれの参照光の位相に対応する測定値で、cos 成分と sin 成分になっている。

[ix] この結果は結局始めに述べたように、ロックインアンプのフィルタリングが Fourier 変換と等価であることを示す。

$$r = \frac{E_r}{E_i} \tag{2.10}$$

のように光反射係数[x]が定義される。右辺が複素数であるから左辺の光反射係数rも複素数である。

超音波などの影響を受け複素反射係数rは変化する。複素反射係数rは、反射する光の振幅を変化させる振幅成分、位相を変化させる位相成分に区別できる。変化のない定常状態における複素反射係数rを記述する際、振幅変化r_0、位相変化φ_0（r_0、φ_0ともに実数）を明示的にするため、極形式で

$$r = r_0 \exp(i\varphi_0) \tag{2.11}$$

とする。そうすれば、(2.11)式に対して音響振動などの影響を受けてrから微小変化した複素反射係数r'は、微小な振幅変化ρ、位相変化$\delta\varphi$（$|\rho|, |\delta\varphi| \ll 1$）を用いて

$$\begin{aligned} r' &= r_0(1+\rho)\exp[i(\varphi_0 + \delta\varphi)] \\ &= r(1+\rho)\exp(i\delta\varphi) \\ &\simeq r(1+\rho+i\delta\varphi) \end{aligned} \tag{2.12}$$

と記述できる。但し、(2.12)式の 3 つ目の式変形は近似であり、$\exp(i\delta\varphi)$を$\delta\varphi$についてテイラー展開し、$\rho, \delta\varphi$についての 2 次以降の項を無視している。変化量$\delta r = r' - r$をρ、$\delta\varphi$により記述したいが、ここで、δrをrで除して規格化したもの

$$\frac{\delta r}{r} = \frac{r' - r}{r} = \frac{r'}{r} - 1 \tag{2.13}$$

を定義する。これは相対反射係数変化（率）と呼ばれる。この値は(2.12)式よりρ、$\delta\varphi$を使って表すことができ、

$$\frac{\delta r}{r} \simeq \rho + i\delta\varphi \tag{2.14}$$

となる。(2.14)式の形から、ρ、$\delta\varphi$はそれぞれ光反射係数変化の実部・虚部とも呼ばれる

さて、超音波による試料の光反射係数変化の主な原因は、光弾性効果による試料表面近傍の屈折率変化と試料表面の変位（表面変位）による光の伝播距離の変化である。前者は振幅成分ρと位相成分$\delta\varphi$の両方を、後者は位相成分$\delta\varphi$のみを変化させる。対して、光学測定における測定値は光強度である。そのため、反射率変化$\delta r/r \simeq \rho + i\delta\varphi$の測定は強度反射率変化を通して行われる。一般的な強度反射率は、(2.10)式と同状況下で

$$R = \frac{I_r}{I_i} = \frac{|E_r|^2}{|E_i|^2} = |r^2| \tag{2.15}$$

と与えられる。但し、I_r、I_iはそれぞれ反射光、入射光の強度である。定常状態の強度反射率を$R = |r^2|$、そこから微小変化した後の強度反射率を$R' = |r'^2|$とすれば、相対強度反射率変化は

$$\frac{\delta R}{R} = \frac{R' - R}{R} = \frac{R'}{R} - 1 = \frac{|r'^2|}{|r^2|} - 1 \tag{2.16}$$

と定義され、(2.12)式より、

$$\frac{\delta R}{R} = \frac{|r'^2|}{|r^2|} - 1 \tag{2.17}$$

---

[x] ここでは強度反射率と区別するため振幅反射率を「反射係数」と表記する。複素数であることを強調するために「複素反射係数」とする時もある。

$$\simeq |1+\rho+i\delta\varphi|^2-1$$
$$=(1+\rho)^2+(\delta\varphi)^2-1$$
$$\simeq 2\rho$$

となる。但し、$\rho,\delta\varphi$についての 2 次以降の項を無視した。

ポンプ・プローブ測定では、ロックインアンプが定常状態からの変化量のみを測定値として返すので、δRに比例した値が計測される（測定値を定常状態の反射強度で割った値が$\delta R/R$である）。しかし以上の計算から、振幅変化ρは強度反射率変化$\delta R/R$に現れる一方で、位相変化$\delta\varphi$は現れないことがわかる。本研究の弾性表面波イメージング法では試料の表面変位[xi]を検出するが、それには位相変化$\delta\varphi$の測定が必要である。そこで干渉計が必要となる。干渉計は 2 光波の干渉から光の位相に含まれる情報を光強度と結び付けるはたらきをする。

2.4.2 変形 Sagnac 干渉計について

変形 Sagnac 干渉計は、ポンプ・プローブ測定において反射係数の振幅変化・位相変化をともに測定可能な高安定の干渉計として開発された[14]。一般的な干渉計と同様に、1 つの光源から発振される検出光（ポンプ・プローブ法においてはプローブパルス）を 2 つに分けて、その干渉から測定を行う。以下では 2 つに分けられたプローブパルスをそれぞれ測定パルス、参照パルス（＝測定パルスと干渉させるためのもの）と呼び、参照パルスが先に試料に到達して、遅れて測定パルスが到達するとする。参照パルスと測定パルスはその時間差のため、各々のタイミングで試料の過渡的な反射係数の情報を得る。そして、それらの干渉から反射係数の振幅変化と位相変化が選択的に取得できる。このとき参照パルスと測定パルスが全体を通して同一の光路（共通光路）を通ることで、空気の揺らぎなどに影響されにくい高安定の干渉計が実現できる。但し、測定されるのは時間差の付いた 2 つのプローブ光が得た「振幅変化の和」や「位相変化の差」となる（詳細は後に述べる）。そのため弾性表面波イメージング法のように位相変化を検出する場合の測定値は表面変位速度（表面変位の時間微分）となる。

2.4.3 干渉計内部でのプローブパルスの動き

以下では変形 Sagnac 干渉計を用いた場合の測定量について議論する。

変形 Sagnac 干渉計の模式図を図 2.4 に示す[xii]。この図には、プローブパルスが試料へと向かい、試料表面で反射されて元の光路を戻り、光検出器に入射するまでが描かれている。その往路ではプローブパルスを 2 つに分離し、さらに試料到達のタイミングに差を付けている。また復路では 2 つのパルスの時間差をなくし、両者を干渉させている。時間差付与実現のため、光路の途中に光路長の異なる 2 つの光路と偏光操作を行う光学素子が用意されている。偏光操作で 2 パルスの進路操作を行う。ただ、進路操作程度にしか偏光を用いないから、各光学素子の説明は最小

[xi] 薄膜を持つ試料などの場合に SH 波のモードを持つ弾性表面波が現れるが、今回の測定法では試料に表面変位を生じさせない弾性表面波は感知できない。

[xii] 位相差の付け方は、図 2.4 の十字型のものでなくともよい。参考文献[14]では別の型のものを用いている。

限に留める。詳細な素子の説明については付録 A に譲り、以下に各光学素子の最小限の機能を記述しておく。

i) 半波長板（HWP）は、直線偏光の偏光方向を変える（付録 B 参照）。
ii) 非偏光ビームスプリッタ（NPBS）は、等強度でビームを 2 つに分ける（ハーフミラー）。一方は反射、もう一方は透過である。
iii) 偏光ビームスプリッタ（PBS）は、横偏光を透過、縦偏光を反射させる。
iv) 1/4 波長板（QWP）は、遅軸方向成分の位相を速軸方向成分の位相に対して遅らせる（これは元来の機能である）。
v) 0°反射のミラー・速軸を 45°（または 135°）に設置した QWP の組み合わせでは、それらに縦直線偏光が入射した場合には横直線偏光に、横直線偏光が入射した場合には縦直線偏光に変換されて戻ってくる（図 2.6 ではその様子が示されている。付録 B では Jones 行列を用いて証明している）。

続いて説明に必要な軸を定義する。プローブパルスの進行方向を常にz軸正の向きにとり、それと垂直にx、y軸をとる。図 2.4 において紙面垂直上向きにy軸正の向きを、$\boldsymbol{e_y} \times \boldsymbol{e_z}$の向き（紙面平行）に$x$軸正の向きをとる。また、直線偏光の方向は$x$軸に対する角度（図 2.5 の$\theta$）で指定する。偏光子、波長板のように設置に$xy$平面内での回転自由度がある（付録 A 参照）ものについても、同様に素子の特徴的な光学軸の角度をθで指定する。但し、偏光子では透過軸、波長板では速軸を特徴的な光学軸と定める。

まず、プローブパルスを干渉計における参照パルス・測定パルスに分離する過程である。これ

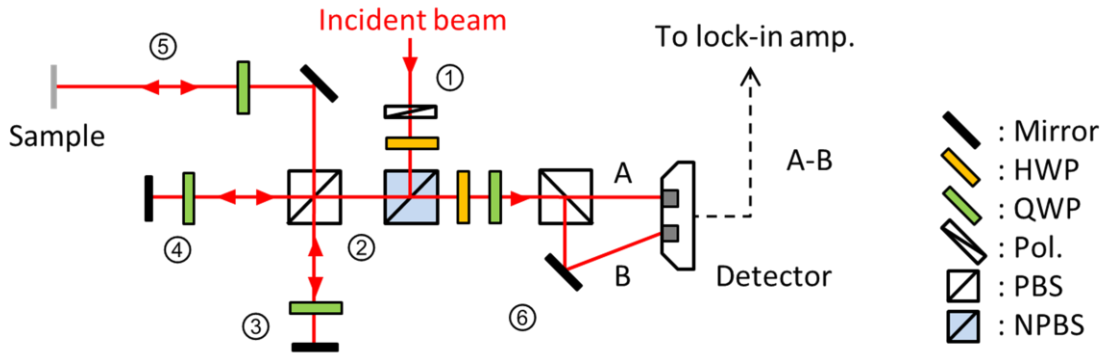

図 2.4: 本実験に用いる干渉計の模式図（上面図）。光路には①－⑥のラベリングがされている。2 つに分かれたパルスは、一方が③、⑤、④、②、⑥という進路を辿り、他方は④、⑤、③、②、⑥という進路を辿る。光路③、④、⑤ではプローブパルスが垂直方向に反射され、一度来た光路を再び戻ることを表している。

は光路①、②で行われる。分離前のプローブパルスは光路①から入射する。光路①でプローブパルスの偏光を 45°直線偏光とする。そのために Pol.と HWP を続けて配置する。Pol.でプローブ

パルスに含まれる特定の直線偏光成分のみを透過させ、続く HWP の直線偏光を回転させる i)の性質を利用して、プローブパルスの偏光を 45°直線偏光にする。こうすることで、図 2.4 への入射時の偏光によらず 45°直線偏光のプローブパルスが得られる。Pol.の透過軸の角度をレーザー強度を最大にするように設置できるので、パワーロスを最低限に留められる。さて、45°直線偏光のプローブパルスは NPBS で反射されて光路②を通過する。干渉計十字部分の PBS は、iii)の性質でプローブパルスを等しい強度で 2 分割する（直線偏光を 45°としたのはこのとき強度を等しくするためである）。それぞれ十字部分の異なる「腕」（③または④）へと進む。それぞれが参照パルス・測定パルスとなる。

次は 2 分割されたパルスに時間差が付く過程である試料への往路（光路③（または④）～⑤）を議論する。図 2.6 上図に往路における偏光の様子を示す。往路では、2 つのパルスの試料到達に時間差が付く。素子 v)の効果により、縦偏光（横偏光）だったパルスは横偏光（縦偏光）になって干渉計十字部分の PBS に到達する。すると、十字部分の PBS の反射・透過が入れ替わり、今度は両パルスとも光路⑤、つまり試料の方へ向かう。この過程の目的は③、④の「腕」の長さに差を付けて、2 つのパルスに時間差を付けることである。そうすることで 2 つのパルスは試料反射時にそれぞれの到達時間において光反射率変化をサンプリングする。

次は試料での反射後の 2 つのパルスが、光路⑤、④（③）、②を進行する過程（試料からの復路）である。光路⑤でも、試料（0°反射のミラーの役割をする）と試料手前の QWP の組み合わせが、③・④と同じく iv)の効果をもたらす。それにより復路の 2 つのパルスは往路とは別の腕を通過する（往路が③ならば復路は④、また逆も成り立つ）。そのため試料到達時に時間差の付いていた 2 つのパルスは、②の地点では再び時間差がなくなっている。

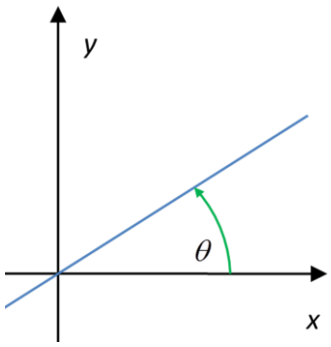

図 2.5: 偏光方向および光学素子設置角度$\boldsymbol{\theta}$の定義。

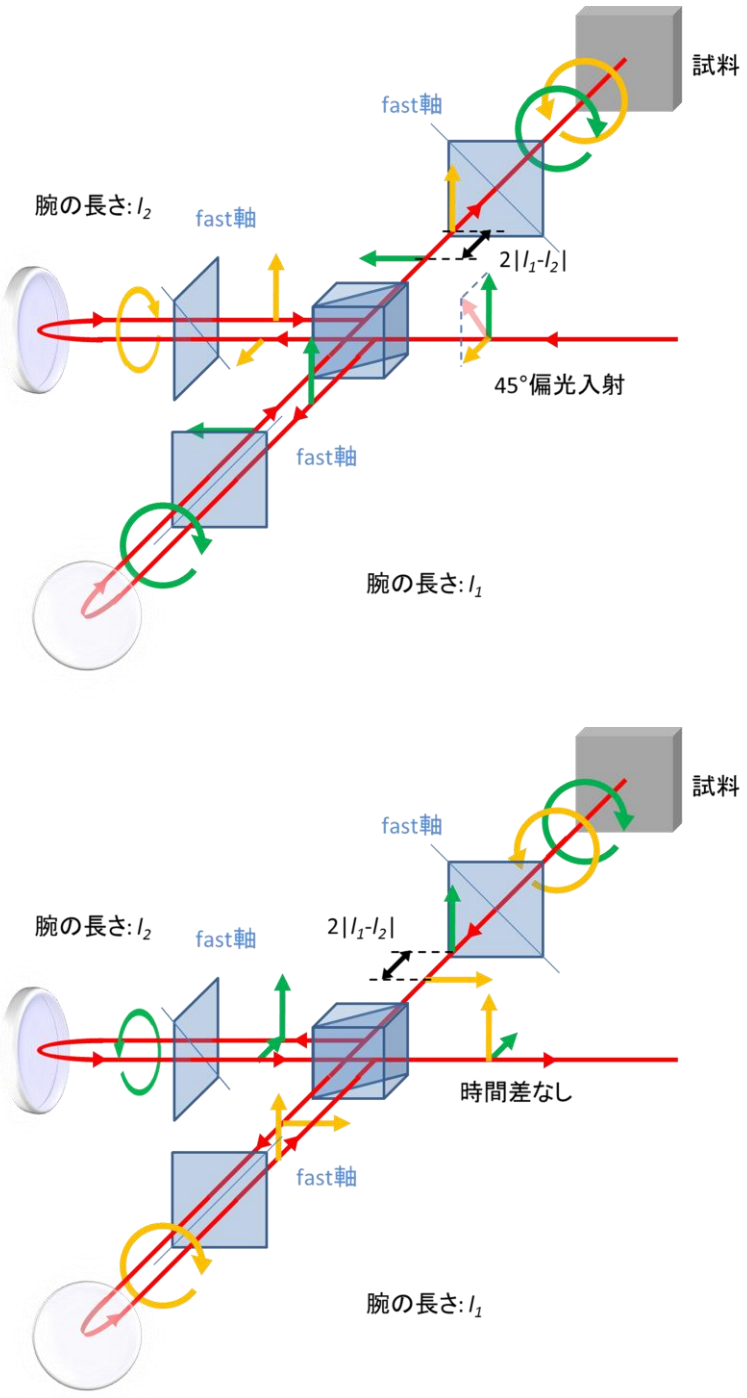

図 2.6: 干渉計十字の部分通過におけるプローブパルスの推移（上: 試料までの往路、下: 復路)。橙の矢印の形状が参照パルスの偏光を、緑のものが測定パルスの偏光を表す（直線: 直線偏光、円形: 円偏光)。時間差の付いた２つのパルスとなり、再び時間差がなくなる過程が理解される。

2.4.4　光反射率の位相変化の検出

§2.4.3 でのプローブパルスの偏光の変遷を、Jones ベクトルを用いた議論に移す。これにより、光路①での Jones ベクトル（プローブパルスの電場）が復路の光路②の最後でどのように変化するかを、§2.4.1 の反射係数の議論と交えて定量的に考えていく。Jones ベクトルについては付録 B を参照されたい。

まず光路①通過後の 45°直線偏光の Jones ベクトルは、ともに実数であるE_1, E_2を用いて

$$\begin{bmatrix} E_1 \\ E_2 \end{bmatrix}$$

と表される。45°直線偏光なので、$E_1 = E_2 = 1$としてよいが、ここでは縦・横偏光の寄与を明瞭にするためE_1、E_2のまま計算を進める。(E_1, E_2)は、PBS 通過により、縦偏光$(0, E_2)$・横偏光$(E_1, 0)$がそのまま参照パルス・測定パルスのどちらかになる。ここでは横偏光E_2を参照パルス（先に試料に当たる）、縦偏光E_1を測定パルス（後から試料に当たる）とする。②→③→⑤→④→②もしくは②→④→⑤→③→②の過程では、図 2.6 からも明らかなように縦・横偏光が入れ替わる（往路と復路で別の腕を通るためには往路で PBS に透過（反射）されたものが、復路では反射（透過）にならなければ、光路⑥の方へ戻って来られないので当然である）。さて、試料反射後の電場E_1、E_2には反射係数が乗ぜられる。超音波によって定常状態から乱された光反射係数r'は遅延時間τの関数である（時間に伴う超音波の進行などが時間変化の原因である）。参照パルスと測定パルスはそれぞれのタイミングτ_1、τ_2で試料の光反射係数変化r'をサンプリングしているから、$r_1' = r'(\tau_1)$、$r_2' = r'(\tau_2)$を定義すると、⑥の光路に入射した時点（再び 1 つに戻っている）の Jones ベクトルは

$$\begin{bmatrix} r_1' E_2 \\ r_2' E_1 \end{bmatrix}$$

と表される[xiii]。

さて、超音波によって定常状態から乱された光反射係数r'とその振幅変化ρ、位相変化$\delta\varphi$の関係(2.12)式を思い出すと、

$$\begin{bmatrix} r_1' E_2 \\ r_2' E_1 \end{bmatrix} \simeq r \begin{bmatrix} (1 + \rho_1 + i\delta\varphi_1) E_2 \\ (1 + \rho_2 + i\delta\varphi_2) E_1 \end{bmatrix} \tag{2.18}$$

である。ρ、$\delta\varphi$は遅延時間τの関数であり、rは定常状態の試料の反射係数である。

ここまではプローブパルスが参照パルス、測定パルスの 2 つに分けられて、各々のタイミングで試料から反射係数の情報を持ち帰る過程であった。続く⑥の地点では、異なる反射係数の情報を持つ参照パルス（縦偏光$r_2' E_1$）・測定パルス（横偏光$r_1' E_2$）を干渉させることを考える。ただ縦偏光の参照パルスと横偏光の測定パルスは互いに独立で干渉しないから、それらを混ぜ合わせて干渉させるためには、透過軸が 0°または 90°でない Pol.を使用すればよい。干渉さえ起これば、考えている問題は「位相差の付いた 2 光波の干渉」という一般的なものに還元される。2 光波の干渉では、位相差に対して cosine で強度が表される。ただ、cosine の場合には微小な位相差$\delta\varphi(\ll 1)$に対して敏感でないので、QWP を同時に使用して一方の位相を遅らせる。また、Pol.

[xiii] 反射率の偏光依存性は考えない。ここでの偏光操作はあくまでパワーをロスせずに 2 つのパルスに時間差をつけるためのものである。

は透過軸がx軸に対して 45°のとき、最もコントラストがよい。

しかし、図 2.4 の光学系では Pol.を使用せず、替わりに PBS を使用する。PBS は入射する縦・横偏光成分それぞれに対して Pol.と同じ効果を持つ。Pol.と PBS の類似性は付録 B に記載した Jones 行列から明らかである。ただ、PBS は透過軸が 0°及び 90°の Pol.に相当するから、HWP を用いた直線偏光の回転により、プローブパルス$(r_1'E_2, r_2'E_1)$の偏光の方を 45°回転させる（HWP の速軸は 22.5°に固定する）。この操作は上記の PBS を 45°傾けることに相当する。結局、⑥の部分に必要な素子は上流から HWP、QWP、Pol.になる。

付録 B に記載した Pol.と QWP の Jones 行列を用いれば、これらの素子通過後の Jones ベクトルを計算できる。その結果は、PBS 透過光（横偏光）$\boldsymbol{J_x}$、PBS 反射光（縦偏光）$\boldsymbol{J_y}$でそれぞれ

$$\begin{aligned}\boldsymbol{J_x} &= T_{\mathrm{PBS}t}T_{\mathrm{QWP}}(\frac{\pi}{4})T_{\mathrm{HWP}}(\frac{\pi}{8})\begin{bmatrix}r_1'E_2\\ r_2'E_1\end{bmatrix}\\ &= \frac{1}{\sqrt{2}}(r_2'E_1 - ir_1'E_2)\begin{bmatrix}1\\0\end{bmatrix}\\ &= \frac{r}{\sqrt{2}}[(E_1 + E_1\rho_2 + E_2\delta\phi_1) - i(E_2 + E_2\rho_1 - E_1\delta\phi_2)]\begin{bmatrix}1\\0\end{bmatrix}\end{aligned} \tag{2.19}$$

$$\begin{aligned}\boldsymbol{J_y} &= T_{\mathrm{PBS}r}T_{\mathrm{QWP}}(\frac{\pi}{4})T_{\mathrm{HWP}}(\frac{\pi}{8})\begin{bmatrix}r_1'E_2\\ r_2'E_1\end{bmatrix}\\ &= -\frac{1}{\sqrt{2}}(r_2'E_1 + ir_1'E_2)\begin{bmatrix}0\\1\end{bmatrix}\\ &= -\frac{r}{\sqrt{2}}[(E_1 + E_1\rho_2 - E_2\delta\phi_1) + i(E_2 + E_2\rho_1 + E_1\delta\phi_2)]\begin{bmatrix}0\\1\end{bmatrix}\end{aligned} \tag{2.20}$$

となる。強度$I_x = |\boldsymbol{J_x}|^2$と$I_y = \left|\boldsymbol{J_y}\right|^2$に直すと、それぞれ

$$I_x \simeq \frac{{r_0}^2}{2}\left[(E_1^2 + E_2^2) + (2E_1^2\rho_2 + 2E_2^2\rho_1) - 2E_1E_2(\delta\phi_2 - \delta\phi_1)\right] \tag{2.21}$$

$$I_y \simeq \frac{{r_0}^2}{2}\left[(E_1^2 + E_2^2) + (2E_1^2\rho_2 + 2E_2^2\rho_1) + 2E_1E_2(\delta\phi_2 - \delta\phi_1)\right] \tag{2.22}$$

である。但し、$\rho, \delta\varphi$についての２次以降の項を無視し、$|r|^2 = {r_0}^2$を使用した。図 2.4 に示す 2 チャンネル差動式の光検出器は２チャンネルの光強度信号を電圧信号に変換してその差をリアルタイムに返す。(2.21) 式と(2.22)式について差を取れば、

$$I_x - I_y = {r_0}^2E_1E_2(\delta\phi_2 - \delta\phi_1) \tag{2.23}$$

となる[xiv]。よって、図 2.4 の干渉計を用いた測定からは確かに$(\delta\phi_2 - \delta\phi_1)$に比例する値が検出される。

光弾性効果の寄与が充分小さければ、試料垂直方向の表面変位がu_zである時、それによって変化する光の位相は

$$\delta\varphi = 2k_0u_z \tag{2.24}$$

である。つまり、

[xiv] ちなみに強度の和$I_x + I_y$は、$E_1 = E_2$であったから、反射率変化の振幅成分の和$\rho_1 + \rho_2$と線形な関係を示す。ロックイン検出では変化量（定常状態と変化時の差）しか検出されないので、$I_x + I_y$は$\rho_1 + \rho_2$に比例する。

$$\delta\phi_2 - \delta\phi_1 = 2k_0\big(u_z(\tau_2) - u_z(\tau_1)\big) \tag{2.25}$$

であり、

$$\delta\phi(\tau) - \delta\phi(\tau - \Delta\tau) = 2k_0\big(u_z(\tau) - u_z(\tau - \Delta\tau)\big) \tag{2.26}$$

である。

2.5　2 次元走査系によるスポット走査

プローブ光は試料表面に集光されたスポット内の情報のみを得る（空間分解能がスポット径に対応する）。試料表面上における 2 次元的な弾性表面波伝播をイメージングするためには、測定位置を 2 次元走査しなければならない。しかし、このとき試料の走査は意味をなさない。あくまで励起位置に対して測定位置を相対的に走査する必要がある。つまり、ポンプ光とプローブ光のスポットの内、一方を固定して他方を走査したい。この要求に応じる測定系は 1 つではない。特に、ポンプ光とプローブ光を試料に集光する際に、それぞれに 1 つずつの対物レンズを使用するか、両者とも同じ対物レンズを使用するかで状況は大きく異なる。

ポンプ光とプローブ光を個々の対物レンズで集光する場合[xv]、特別な 2 次元走査系を用意せずにプローブ光の対物レンズの 2 次元走査を行えばよい。適切なアライメントが施されていれば、系の試料と対物レンズは、対物レンズの焦点距離だけ離れている。このとき近軸近似（paraxial approximation）が適用できるほどに狭い範囲内で対物レンズを 2 次元走査すれば、対物レンズの移動距離と試料上のスポットの移動距離は1:1となる。

ポンプ光とプローブ光を同一の対物レンズで集光する場合は対物レンズの 2 次元走査を行うわけにはいかない。この場合には、共焦点のレンズペア（$4f$ レンズペア）と 2 軸可動鏡を用いた 2 次元走査系[13]を構築する。

対物レンズ走査はポンプ光・プローブ光が同時に移動してしまうため使用できず、後者はその際に使用する。

本実験では図 2.7 のように、レンズペアと左右・上下の 2 自由度を持つステージを使用した光学系を組む。この系では、プローブビームの対物レンズへの入射角を可変にすることで試料表面のビームスポットを走査する。このときビームが常に対物レンズの開口の中心を外れることがない。共焦点のレンズペアにより、対物レンズに入射するビームの径も変わることがなく（敢えて変えることもできる）、平行ビームでの入射となる。測定時にはコンピュータを用いて外部からステッピングモータによる 2 軸ステージを位置制御する。

コンピュータ上では、走査範囲、ラインピッチ、走査速度、サンプリングレートをパラメータ指定することにする（図 2.8）。但し、これらのパラメータは独立に決定するよりも測定状況と合致させるのが望ましい。サンプリングレートはロックインアンプの時定数（Time constant、この値が大きい程長時間にわたって時間積分する）に、ラインピッチ、スキャン速度はスポット径に合わせるのが良い。具体的には、ロックインアンプの時定数が 30 ms で、スポットが直径 2 μm の時、ラインピッチ 2 μm、スキャン速度 60 μm/s、サンプリングレート 30 points/s といった具

[xv] 透明基板を持つ試料であれば、2 つの対物レンズを使用して試料の表裏からポンプ光とプローブ光をそれぞれ照射することが可能である場合も多い。しかし、不透明試料（たとえば半導体試料はそのバンドギャップの幅のため一般的に不透明である）の場合にこの方法を使用するのは難しい。

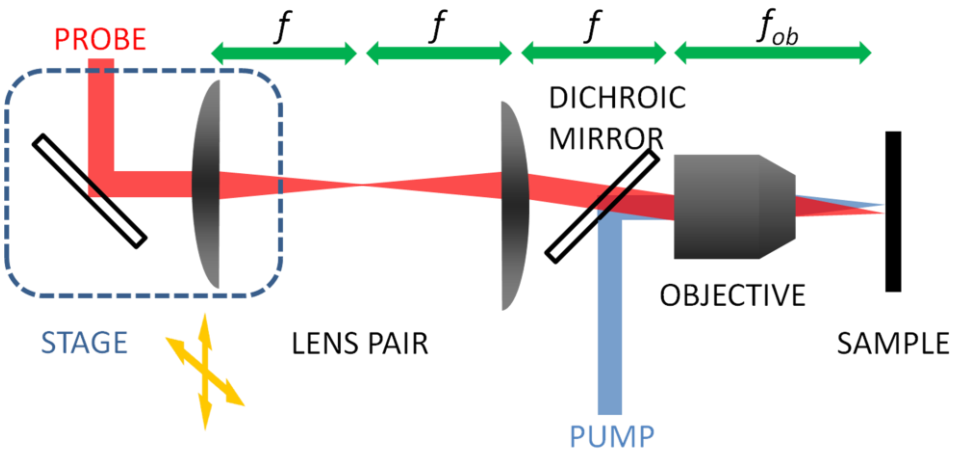

図 2.7: スキャンシステムの幾何光学的な模式図。

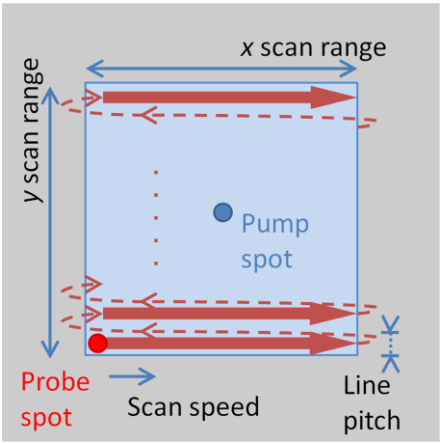

図 2.8: スキャンのパラメータ。

合である。ロックインアンプは時定数で平均した値を返すため、コンピュータ側のサンプリングレートもそれに合わせると良い。またスキャン速度をサンプリングレートで割ると、1 回の測定値取得が 2 μm のスキャンに対応することが判る。そして、スキャン範囲は使用するレンズペアや対物レンズの焦点距離などで限界が決まってくる。今回のセットアップにおける最大スキャン範囲は調べていないが、250×250 μm^2 程度は問題なく見ることができる。

2.6 弾性表面波イメージの時空間 Fourier 解析

§1.3.2 でも少し触れたように、弾性表面波イメージングにより取得されたデータセットは測定値の時間・2 次元空間分布（$x-y-t$プロット）であり、時空間 Fourier 変換を施すことで周波数・2 次元波数空間（$k_x-k_y-\omega$プロット）に変換される。ここではそのような時空間 Fourier 解析の原理[3]を記す。

まずデータセットに記録される測定値の分布を$u(\boldsymbol{r},t)$とする。但し、$\boldsymbol{r}=(x,y)$は 2 次元位置ベクトルである。実際のデータではx,y,tとも離散値であるが、ここでは連続値として議論を進める。

測定値を Fourier 変換することは、$u(\boldsymbol{r},t)$の平面波展開することにあたる。平面波展開は

$$\begin{aligned} u(\boldsymbol{r},t) &= \iiint U(\boldsymbol{k},\omega)\cos[(\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}-\omega t)+\phi(\boldsymbol{k},\omega)]\,d^2\boldsymbol{k}\,d\omega \\ &= \mathrm{Re}\iiint U(\boldsymbol{k},\omega)\exp[\phi(\boldsymbol{k},\omega)]\exp[i(\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}-\omega t)]\,d^2\boldsymbol{k}\,d\omega \end{aligned} \tag{2.27}$$

である。但し、$\boldsymbol{k}=(k_x,k_y)$は 2 次元波数ベクトルである。また振幅$U(\boldsymbol{k},\omega)$と位相$\phi(\boldsymbol{k},\omega)$は実数である。結局、測定値の 3 次元 Fourier 変換では、$U(\boldsymbol{k},\omega)$、$\phi(\boldsymbol{k},\omega)$を求めようとしているのである。すなわち、

$$U(\boldsymbol{k},\omega)=\frac{1}{(2\pi)^3}\iiint u(\boldsymbol{r},t)\exp[-i(\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}-\omega t)]\,d^2\boldsymbol{r}\,dt \tag{2.28}$$

である。

測定値から求められる周波数・波数分布に対し、続いては試料が持つべき周波数・波数分布を考える。試料が弾性波のブランチを複数もつとして、あるブランチjの示す分散関係が方程式$\omega=\omega_j(\boldsymbol{k})$で表されるとする。このとき、固有モードによる展開は、上の議論の表式に似せて

$$u(\boldsymbol{r},t)=\sum_j\iiint A_j(\boldsymbol{k})\delta\big(\omega-\omega_j(\boldsymbol{k})\big)\exp[i(\boldsymbol{k}\cdot\boldsymbol{r}-\omega t)]\,d^2\boldsymbol{k}\,d\omega \tag{2.29}$$

と書くことができる。但し、$\delta(x)$は Dirac デルタ関数、$A_j(\boldsymbol{k})$は非零の複素振幅である。結局、試料の持つ周波数・波数分布$U(\boldsymbol{k},\omega)$は

$$U(\boldsymbol{k},\omega)=\sum_j A_j(\boldsymbol{k})\delta\big(\omega-\omega_j(\boldsymbol{k})\big) \tag{2.30}$$

を満たすときのみ非零となる。

第3章　弾性表面波イメージング法の改良

3.1　はじめに

本章では、ギガヘルツ弾性表面波イメージング法において任意周波数測定を実現する新手法として、ポンプ光の強度変調を取り入れることを提案する。高繰り返し光源を用いたポンプ・プローブ法が基礎にあるギガヘルツ弾性表面波イメージング法にて、任意周波数測定が可能でないのは、任意の周波数での弾性振動の励起手法が確立されていなかったことが大きい。改良部分がポンプ光関連であるのは、ポンプ光の周波数が弾性振動の励起周波数を決定しているからである。励起に対する試料応答が線形の範囲内であれば、励起される弾性振動の周波数はポンプ光のもつ周波数成分と同一となる。強度変調は元々のポンプパルス列に含まれない周波数成分（側波帯という）を変調周波数に応じて発生させるから、従来は固定であった励起周波数を走査することが可能になる。変調周波数の変更は、変調器を駆動する信号の周波数の変更であり、それは高繰り返しレーザー光源の繰り返し周波数の変更に比べてずっと容易である。

提案する新手法と既存手法の差分は、周波数測定の関連部分のみとなる（周波数領域・時間領域の関係を考えれば、周波数測定は時間波形の取得に等しいとも言える)。すなわち、弾性表面波イメージング法の基本原理としては第 2 章にて説明した既存の原理を踏襲し、既存手法から新手法への変更は最小限で済ませられる。しかし、一方では確認事項も存在することを忘れてはならない。ロックイン検出の併用によりポンプ・プローブ測定で既にポンプ光強度変調が行われていることを思い出すべきである。それにも関わらず周波数走査が行われていなかった理由を述べる必要がある。

本章における構成を以下に示す。§3.2 にて、まず前提となる波動の強度変調について記述する。次の§3.3 では、ポンプ・プローブ法におけるポンプパルス列の強度変調を考える。強度変調が引き起こす励起周波数変化について述べ、側波帯により任意周波数での弾性表面波イメージングが可能だと示す。周波数測定の原理を述べたところで、測定周波数のスケールについて確認する。§3.4 では改良を行う上で確認すべき事項を洗い出し、最後の§3.5 で具体的な研究内容として提示する。

3.2　変調と側波帯

そもそも変調は、通信のために電波などの信号を媒介する波動に対して信号に応じた変化を与えることをいう。変調は強度（振幅）変調に限らないが、本論文中で変調と言う場合強度（振幅）変調を指す。信号を媒介する波動は搬送波（carrier）と呼ばれ、変調波形の周波数帯域はこの搬送波周波数よりも低いことが暗黙に想定される。

ある波動の振幅または強度変調を考えるとき、変調後の波形は幾つかの周波数成分の重ね合わせで生じる「うなり（beat)」とみなせる。その成分は搬送波とは周波数が異なり、周波数領域では搬送波周波数の近傍にそれとは別の周波数成分が現れることになる。そのような周波数成分は

側波帯（sideband）という。

周波数f_1の搬送波に周波数f_2の振幅変調を与える状況を考える。結果として生じる波形は$\cos 2\pi f_1 t \times \cos 2\pi f_2 t$である。このとき初等な三角関数公式を用いて式変形すると、

$$\cos 2\pi f_1 t \times \cos 2\pi f_2 t = \frac{1}{2}\cos 2\pi(f_1 + f_2)t + \frac{1}{2}\cos 2\pi(f_1 - f_2)t \qquad (3.1)$$

となる。この式変形は単に数学的なものであるから一般の波動について成立するが、現在の議論をという状況に限定すれば$f_1 \gg f_2$を想定すべきである。さて、(3.1)式の右辺に現れたのは搬送波周波数f_1よりも低い周波数の$(f_1 - f_2)$と高い周波数の$(f_1 + f_2)$の波動であり、これが側波帯である。図 3.1 は、(3.1)式からわかる搬送波と側波帯の様子をスペクトルとして比較したものである。一般的に搬送周波数f_1から高周波数側と低周波数側にずれた位置に対称的に側波帯が立つ。高周波側のものを上側波帯（upper sideband; USB)、低周波側のものを下周波数帯（lower sideband; LSB）と呼ぶ。

強度変調が単一周波数でなく一般の波形であっても、変調波形を各周波数成分の和に展開して（つまり Fourier 変換/Fourier 級数展開して）から(3.1)式のように乗算を考えればよい。その場合、結果として、複数の周波数成分が搬送波近傍に出現して上・下側波帯となる。また、搬送波が単一周波数でないとすると、搬送波が含む周波数成分のそれぞれに対して上記のような側波帯が出現する。

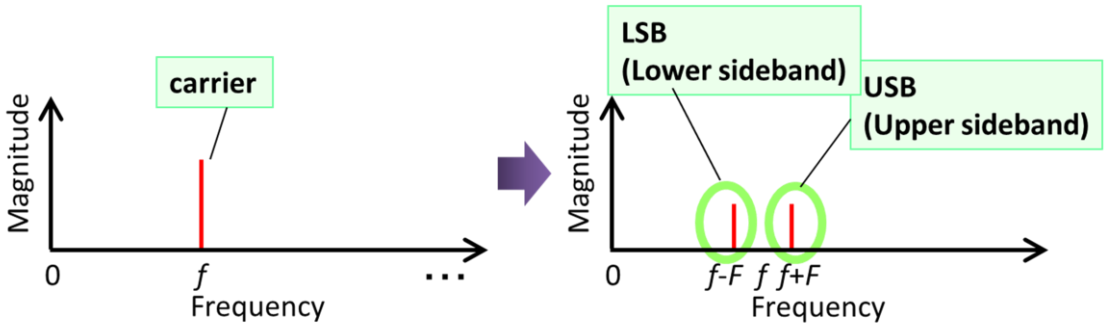

図 3.1: 周波数領域（スペクトル）での変調前後の周波数成分の比較。搬送波・側波帯は図中 carrier・LSB または USB と表示されている。搬送波周波数fの成分は変調を受けて、「側波帯」という呼称そのままに、その近傍で上下に分かれる。

3.3　ポンプパルス列の変調と周波数測定

以下では、弾性表面波イメージング法における弾性振動励起を想定する。試料上の弾性振動の励起はポンプパルス列によってなされる。励起に対する試料応答が線形の範囲内のとき、励起される弾性振動はポンプ光の波形が含むのと同一の周波数成分のみを持つ。そこで、ポンプパルス列が含む周波数成分を考える。強度変調の有無でポンプパルス列の周波数成分を比較し、変調後には励起周波数走査が可能であることを示す。

3.3.1　強度変調しない場合の励起周波数

繰り返し周期T_0（周波数$\omega_0 = 2\pi/T_0$）のレーザー光源が発振するポンプパルス列が持つ光強度の時間波形を考える。まずパルス 1 つを考えると、典型的な場合のパルス時間幅~100 fs は測定対象周波数 MHz~GHz（周期 ns~μs）と比べ非常に短い[i]。そのため単一ポンプパルスの強度波形は Dirac デルタ関数とみなせる。更に同一強度のポンプパルスが周期的に連なったポンプパルス列を考えると、それは Dirac コム関数とみなせる。時間をtとしたとき、コム関数の Fourier 級数展開を実行すると、

$$\sum_{s=-\infty}^{\infty} \delta(t - sT_0) = \frac{1}{T_0}\left(1 + 2\sum_{n=1}^{\infty} \cos 2\pi n f_0 t\right) \tag{3.2}$$

となる。(3.2)式はポンプパルス列が周波数f_0の基本波（$n = 1$）、n次高調波（$n = 2,3,4,\cdots$）を含むことを表す。但し、nが無限である（周波数上限がない）のは、はじめにパルス時間幅を Dirac デルタ関数として無限小とみなしたことに由来する。現実にはnの増加に伴い強度は弱まり、周波数成分nf_0の上限はおおよそパルス時間幅~100 fs の逆数程度となる[ii]。また、光強度は非負であるから、ポンプパルス列は必ず定数項（オフセット、$n = 0$の成分）を持つことを付け加えておく。

(3.2)式から、変調なしのパルス列による励起の場合に励起周波数がわかる。励起周波数はnf_0（$n = 0,1,2,\cdots$）であり、幅$\Delta f = f_0$で離散化している。

3.3.2　強度変調する場合の励起周波数と周波数走査法の着想

一方、(3.2)式のポンプパルス列に変調周波数F_{pu}の強度変調$\left(1 + \cos 2\pi F_{\mathrm{pu}} t\right)/2$を掛けるとき[iii]、変調されたパルス列の波形は

$$\begin{aligned} &\sum_{s=-\infty}^{\infty} \delta(t - sT_0) \times \frac{1}{2}\left(1 + \cos 2\pi F_{\mathrm{pu}} t\right) \\ &= \frac{1}{2T_0}\left\{1 + \cos 2\pi F_{\mathrm{pu}} t \right. \\ &\qquad \left. + \sum_{n=1}^{\infty}\left[2\cos 2\pi n f_0 t + \cos 2\pi\left(nf_0 + F_{\mathrm{pu}}\right)t + \cos 2\pi\left(nf_0 - F_{\mathrm{pu}}\right)t\right]\right\} \end{aligned} \tag{3.3}$$

となる。(3.3)式ではnでラベリングされる各周波数成分に対して上側波帯$nf_0 + F_{\mathrm{pu}}$、下側波帯$nf_0 - F_{\mathrm{pu}}$が形成される[iv]（$n = 0$では上側波帯のみ）。加えて、先ほど言及した変調のオフセット（0 次成分）の存在のため、搬送波の周波数成分nf_0が残る。しかし、この搬送波成分は弾性振動として励起されるものの、実は測定に寄与しない（励起周波数成分はnf_0を含むが、測定周波数成分は含まなくなる）。その理由は後に第 4 章にて述べることとし、ここでは(3.3)式から搬送波成分を総和から除外し、

---

[i] レーザーから発振された光パルスの時間幅は、試料に到達するまでに測定に必要な幾つもの光学素子を通過することで、試料到達時には~1 ps 程度に広がっていることが予想される。

[ii] 理解には有限時間幅のガウシアンの Fourier 変換を考えればよい。

[iii] 強度変調のエンベロープにも強度非負が前提としてある。さらに 2 で除したのは、最大値を 1、最小値を 0 と規格化するためである。

[iv] ここでは 3 つの周波数成分に分離することがわかればいいので、ポンプパルス列変調の包絡線の初期位相は考えない。

$$\frac{1}{2T_0}\sum_{n,l}\cos 2\pi\left(nf_0 + lF_{\mathrm{pu}}\right)t \tag{3.4}$$

を実効的なポンプパルス列の強度波形とする。(3.4)式では、$n = 0,1,2,\cdots$かつ$l = -1,1$を満たす(n,l)について和をとる。但し、$(n,l) \neq (0,-1)$を除外する。

(3.4)式から、ポンプパルス列を単一周波数で強度変調する際の励起周波数は$nf_0 + lF_{\mathrm{pu}}$（$l = -1,1$）とわかる。変調なしの場合と比較すると、周波数幅$\Delta f = f_0$で離散化した励起周波数がさらに$2F_{\mathrm{pu}}$の幅で 2 つに分離するように見える。このとき、変調周波数F_{pu}の適切な選択により、光源の繰り返し周波数f_0を変更せずともポンプパルス列を成す周波数成分を変化させられるから、任意の周波数の弾性振動が励起可能であることがわかる。

3.3.3 測定対象の周波数スケール

ポンプ・プローブ法の励起周波数と測定で関心のある（測定対象の）周波数領域とを比較する。以下では典型的な繰り返し周波数f_0~80 MHz を想定する。また、強度変調の典型的な変調周波数F_{pu}が 1~2 MHz 程度であるから、そのように想定する。

まず、ポンプ・プローブ法の多くの場合でそうであるようにテラヘルツに及ぶような高周波数領域が測定対象である場合、幅$\Delta f = f_0$の励起・測定周波数離散化は充分小さく、無視できる（励起・測定周波数が連続とみなせる）。ピコ秒音響法はこの場合に当たる。この場合には、Δfが測定対象周波数に対して非常に小さいから、測定周波数の離散性に関心を払う必要はなく連続とみなせ、当然新たな任意周波数測定法が必要とならない（そのため、従来の手法でロックイン検出用の強度変調が行われていても、関心が払われることはほとんどなかった）。

次に、もう少し対象周波数が低く、周波数領域がf_0と同等から数十倍程度までのサブギガヘルツ～ギガヘルツ領域だとする。弾性表面波イメージング法の場合はこの領域である。この場合には、幅$\Delta f = f_0$を持つ励起周波数の離散化が生じる。これらの励起周波数は固定だから励起可能な振動は限られる。特に、f_0以下の狭い線幅の共振の振動モードは励起できない可能性が高い（f_0以上の線幅を持つ場合も、共振のピーク周波数に正確に励起周波数を決められるわけでないので、測定に充分な強度の振動を励起できない可能性がある）。従来の手法でもロックイン検出用の強度変調が行われるから、正確には励起周波数はnf_0でなく$nf_0 \pm F_{\mathrm{pu}}$だが、f_0に対してF_{pu}は小さく、$nf_0 \pm F_{\mathrm{pu}}$はともにnf_0とみなせる。新手法ではこの領域の測定で、F_{pu}の周波数走査を行うことで、任意周波数の励起を実現する。その場合もはやF_{pu}はf_0に対して小さくはなく、むしろF_{pu}は上限$f_0/2$までの走査が必要となる。この上限周波数は上・下側波帯を考慮したもので、$F_{\mathrm{pu}} = f_0/2$のとき$nf_0 + F_{\mathrm{pu}} = (n+1)f_0 - F_{\mathrm{pu}}$が成り立ち、上側波帯が 1 つ上の次数を持つ下側波帯と同一周波数となる。

測定対象の周波数領域がさらに低周波数でf_0より小さい場合、測定に関与する周波数はせいぜいF_{pu}、$f_0 - F_{\mathrm{pu}}$である。この周波数領域でもF_{pu}の周波数走査を行えば、従来励起が難しかった周波数の振動を励起できると期待される。

結局、関心ある周波数領域がf_0と同等かそれより小さい場合、特にf_0以下のQ値の共振を測定したい場合に任意周波数測定が望まれる。ポンプ光の強度変調による周波数走査は、$F_{\mathrm{pu}} = f_0/2$ま

での走査が行えれば任意周波数測定が実現可能となる。

3.3.4　実現のために必要な確認事項

以上の議論から、弾性表面波イメージング法では強度変調を用いた周波数走査が任意周波数測定として有効という判断に至る。しかし、任意周波数測定の実現に向けては、以下に示すような確認事項も存在する。

確認事項の 1 つは変調周波数F_{pu}の大きさについてである。典型的なレーザー光源の繰り返し周波数はf_0~80 MHz であるから、変調周波数Fを最大でその半分の 40 MHz まで大きくする必要がある。通常F_{pu}は 1~2 MHz 程度であったから、40 MHz 程度までの変調を行いながら実際に弾性表面波イメージングが可能かどうかを確認する必要がある。

もう 1 つは測定信号の周波数についてである。本章ではここまで励起周波数に焦点を当てて議論を行ってきた。弾性パルスが励起された時点で持つ周波数成分は(3.4)式に示した通りである。しかし、検出の際に取得する信号はそれと同一波形とは限らない。なぜなら、弾性振動が最終的な信号として記録されるまでに周波数が 2 度変化する可能性があるからである。1 度目の周波数変化は、弾性振動がプローブパルス列によりサンプリングされる際、弾性振動とサンプリング周波数とのうなりのために生じる。2 度目の周波数変化はロックイン検出による。ロックイン検出の際に信号の周波数が変化する問題は、これまでポンプパルス列の強度変調による任意周波数測定が実現されていなかった原因の 1 つである（弾性振動の周波数が信号としてはどのような周波数で記録されるのかがあまり問題とされていなかった)。どのような点で問題となるかというと、たとえば上側波帯$nf_0 + F_{\mathrm{pu}}$と下側波帯$nf_0 - F_{\mathrm{pu}}$の信号がどちらもnf_0の信号として記録される場合がある。これは非常に厄介で、上・下側波帯に対する応答を分離できない。この問題については後に第 4 章で問題点に具体的に立ち入り、その解決策を提示する。

3.4　方針

本論文では周波数に関する制約を打破するために側波帯$nf_0 \pm F$を積極的に測定に利用する方法を提案する。側波帯の存在は、変調周波数F_{pu}を適切に選ぶことで、任意の周波数に対する試料応答が検出できるにも関わらず、従来は$nf_0 \pm F_{\mathrm{pu}}$の 2 成分に対する応答を分離して検出できなかった。そこで本研究では、ポンプ・プローブ法における周波数測定を見直すことでその問題を解決する。

3.5　まとめ

ポンプ光変調で生じる側波帯を利用することで、任意周波数の弾性振動を選択的に励起することが原理的に可能である。現実に任意周波数測定法を確立するには以下のような研究を行うべき

ことが本章の議論からわかる。当該測定法を測定周波数に関わる部分のみ見直し、新たな解析法を提案することが本論文の第一の目標となる。続いて、それに基づく測定を試験することが第二の目標となる。具体的な研究内容を以下のように設定する。

3.5.1 既存法における周波数測定の考察

第一の目標は既存法を考察し、弾性振動の周波数が信号としてどのような周波数に記録されるかを明確にすることである。既存の測定法では励起光の光学変調とロックイン検出が用いられている。このとき生成される弾性表面波には、パルスレーザーの繰り返し周波数をf_0、変調周波数をFとおけば、搬送波nf_0及び側波帯$nf_0 \pm F_{\mathrm{pu}}$（nは整数）の 3 成分の周波数が含まれる。しかし、周波数Fに対するロックイン検出の測定値は$nf_0 \pm F_{\mathrm{pu}}$の 2 成分に対する試料の応答の和であった。Fが小さい場合は、それをnf_0に対する応答と解釈しても問題はなかった。

これに対して本論文で提案する新手法では、周波数に関する制約を打破するために周波数$nf_0 \pm F_{\mathrm{pu}}$のサイドバンドを積極的に測定に利用する。サイドバンドの存在は変調周波数Fを適切に選ぶことで任意の周波数に対する試料応答が検出できることを示唆する。しかし、従来のままでは$nf_0 \pm F_{\mathrm{pu}}$の 2 成分に対する応答を分離して検出できないため、この問題を解消する新たな測定法・解析法について考える。

3.5.2 新たな弾性表面波イメージングシステムの構築と検証実験

第二に、測定系を構築し、上記の新手法の理論を実証する実験を行う。今回提案する新手法は新たな装置を導入するといった大きな変更なしで導入可能だが、任意の周波数での測定には従来数 MHz であった変調周波数を必要に応じて最大 40 MHz ほどにしなければならない（cf. 光源となる Ti:sapphire レーザーの繰り返し周波数は～80 MHz である）。そのような高周波数の変調を用いた場合、同様の測定が可能である保証はない。そこで、そのような測定が可能かどうかを確認する必要がある。このとき、従来と同様の数 MHz 帯の光検出器を用いるならば、ヘテロダイン検出により信号を低周波数に変換する必要があり、そちらも確認事項となる。

第4章　繰り返し光源を用いたポンプ・プローブ法における励起周波数と測定周波数

4.1　はじめに

ギガヘルツ弾性表面波イメージング法において任意周波数測定を実現する新手法として、第 3 章では「ポンプ光の強度変調により生じる側波帯」を使用する励起周波数走査を提案した。同時にそれを実現する上での確認事項も提示した。その確認事項の 1 つが、強度変調で生じるポンプ光の上下側波帯がどちらも同一の測定周波数として記録される問題である。そうなると、いくら強度変調を行ったとしても、両信号を区別できないため周波数走査は困難である。§3.3.3 でも述べたように、ポンプ・プローブ法ではこれまで強度変調にて生じる側波帯にあまり関心が払われていなかったため、今まであまり問題にされてこなかった。したがって、本書では新たに解決策を論じる必要がある。

弾性表面波イメージング法で任意周波数測定を行うために､第 3 章では励起方法について論じ、励起周波数を走査することを提案した。本章ではさらにポンプ・プローブ法における時間信号取得、つまり検出方法を定式化することで、励起信号の周波数成分の記録のされ方に立ち入る。以下では､「ポンプ・プローブ法における時間信号取得」および「測定データに対して Fourier 変換を施す周波数解析」の定式化を行う。但し、ポンプ・プローブ法の光学系を構築する際、光学素子の配置に幾つかの自由度があり、それぞれの配置により時間信号取得のされ方は少しずつ異なるから、定式化でもそれに対応した場合分け（全部で 7 通り）を考慮せねばならない。7 通りの中には励起された上下側波帯がそのままの周波数で検出され、問題とならない場合もある。しかし、7 通りのどの素子配置を選んでもポンプパルス列強度変調による任意周波数測定が可能だと示す意味を込め、本章ではそれら全ての場合を定式化する。定式化を進める中で、件の問題が生じる理由やそれに対する解決策を論じることになる。

以降のセクションの構成をここに示す。§4.2 では、光学系の素子配置による場合分けについて論じ、定式化の準備を行う。§4.3 では、7 つの場合分けの内から 3 つの場合を考える。この 3 つは、後に詳しく説明するが、いずれも単一変調（single modulation）の場合である。§4.4 では残りの 4 つの場合を説明する。これらはいずれの場合も二重変調（double modulation）であり、今回採用する周波数走査法を従来の弾性表面波イメージング法にスームズに適用する上で、より現実的な光学系構成である。

4.2　定式化の準備

ポンプ・プローブ法における信号の取得に必要な手順は以下の手続き i~iii である。但し、光源から発振されるレーザーパルスは理想的に強度一定で、繰り返し周波数には揺らぎがないと仮定する。

i) ポンプパルス列が励起する弾性振動の波形を考える。一般的な弾性振動をuとすると、定式化では時間tの関数として波形$u = u(t)$を示す。弾性振動の時間波形はポンプパルス列の時間波形により決まるから、ポンプパルス列の波形を議論することになる。

ii) プローブパルス列は試料上の波形uをレーザーの繰り返し周波数T_0でサンプリングする。それはすなわちuの離散化に等しい。手続き i のuの表式で$t = NT_0$と置換すれば、N番目のパルスにおける信号強度$u_N = u(NT_0)$が求まる。

iii) 信号u_Nをのせたプローブパルス列は光検出器で電気信号に変換されたのち、ロックインアンプで処理される。入力信号u_Nに対し、ロックインアンプが出力する信号が測定結果となる。ロックインアンプは入力信号に正弦波形の参照信号を乗じてから時間積分を行う。2 位相ロックインアンプにおける参照信号は同相のものと 90°位相遅れ（または進み）のものの 2 つである[i]。結果として出力される同相成分Xと直交成分Yを我々は測定値として記録する。定式化でも同じように、信号u_Nに参照信号を乗じてから、LPF を模して信号の時間積算（時間積分）を行うことでX、Yは求められる。

上の手続き i~iii は、ある遅延時間に対する信号取得についての記述であり、遅延時間走査（delay-time scanning）については言及していない（つまり、時間信号取得は考慮されていない）。遅延時間を考慮して定式化を行うには、まずポンプ・プローブ測定（ロックイン検出を含む）の光学系について考察しなければならない。本セクション§4.2 では、光学系の素子位置による場合分けから手続き i の定式化までを行う。

4.2.1　光学系の自由度

手始めに、光学系の中で測定時に時間走査を行う「遅延光路」の配置について考える。ポンプ・プローブ測定において、遅延光路はポンプ光路とプローブ光路のどちらに配置してもよい。なぜなら遅延時間は「ポンプパルスの試料到達に対してプローブパルスがどれだけ遅れたか」という相対的なものだからである。ポンプ光路に遅延光路を設置する場合（ポンプディレイの場合）、弾性振動の時間信号取得は、励起される弾性振動が遅延時間τの関数となる[ii]ことでなされる。つまり手続き i にて遅延時間τを考慮すれば時間信号取得の定式化は可能である。一方、プローブ光路

[i] 同相の参照信号は、参照信号を検出信号に対して適切に位相合わせした場合に同相となる。

[ii] この議論では、（実）時間tと遅延時間τを区別することが重要となる。

に遅延光路を設置する場合（プローブディレイの場合）、プローブパルス列によるサンプリング点が遅延時間τの分だけずれる。この場合は手続き ii にて遅延時間τを考慮すれば、時間信号取得の定式化が可能になる。

時間走査により時間波形を取得する際には、遅延光路に加えてもう 1 つ議論すべき素子（機器）がある。それは「変調素子」である。ポンプディレイである場合、遅延光路を変調素子の前後どちらに配置してもよい。その選択は実は手続き i の定式化において、弾性振動のτ依存性に影響を与える。その理由は弾性振動を励起するポンプパルス列の波形を考えることで明らかになる。遅延光路・変調素子の配置の前後を入れ替えると、ポンプパルス列の「変調の包絡線の遅延のされ方」が変化する。図 4.1 に 2 つの場合の遅延時間走査の比較を示す。上流から変調素子、遅延光路の順ならば、ポンプパルス列・変調包絡線の両方が遅延される。一方、上流から遅延光路、変調素子の順ならば、ポンプパルス列のみが遅延されて変調包絡線は遅延されない。つまり、τに応じてポンプパルス列の強度の波形が変化することになり、ひいては結局弾性振動の波形が変化する（但し、波形が変化すると言っても、変化するのはポンプパルス列と強度変調波形の相対的な位相差であるから、τは位相にしか弾性振動の位相にしか効かない）。定式化ではそのような差異を反映させる必要がある。

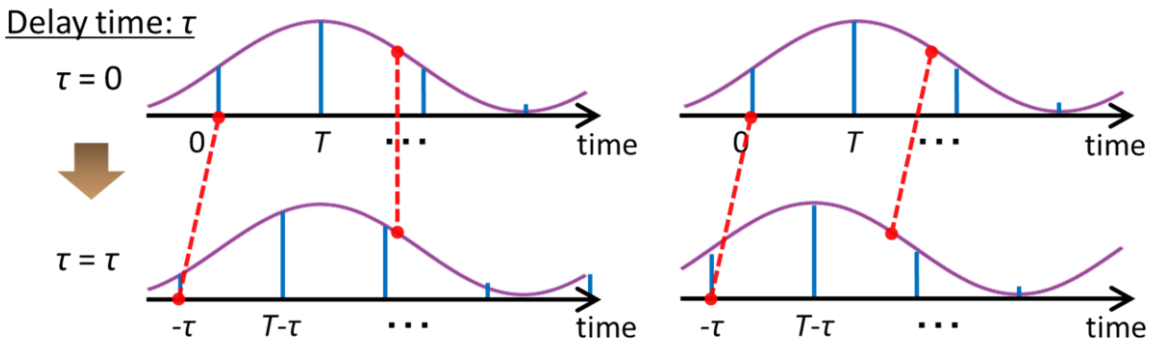

図 4.1: ポンプディレイの場合に、遅延光路・変調素子の配置の順番が遅延時間走査に影響をおよぼすことを示すポンプパルス列の時間プロファイルの模式図。左図が上流から遅延光路、変調器の順の場合、右図が変調器、遅延光路の順の場合を示す。青い垂線がポンプパルス 1 つの強度を表し、紫の正弦波が強度変調による変調を表している。素子配置の差異は、変調の包絡線に遅延が生じるか否かを決定する。左図では包絡線は遅延されることなく、包絡線の中身のポンプパルス列のみが遅延されている。一方、右図では包絡線が中のポンプパルス同様に遅延されている。

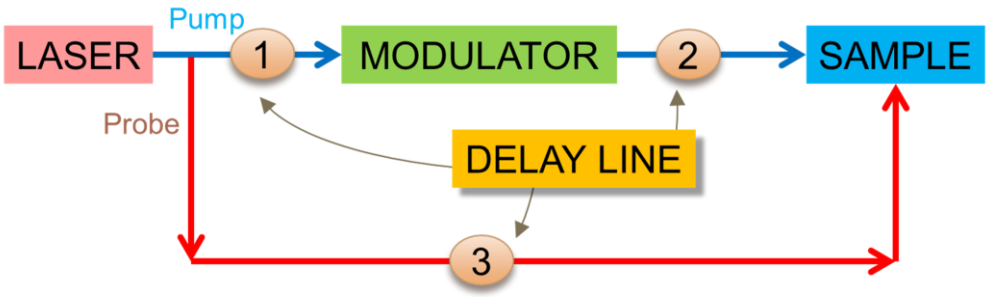

図 4.2: ポンプ・プローブ測定の光学系をデフォルメした図。番号は遅延光路の設置箇所の選択肢を表す。①ポンプ光路で変調器の上流、②ポンプ光路で変調器の下流、③プローブ光路の 3 か所の選択肢がある。

変調素子はロックイン検出および励起周波数選択のために当然ポンプ光路に配置しなければ意味はないが、遅延光路はポンプ光路とプローブ光路のどちらに配置してもよいから、結局のところ光学系の選択肢は 3 つになる[iii]。図 4.2 には、遅延光路の配置箇所の観点からそれら選択肢を模式的に示した。

4.2.2 光学系の場合分けから励起される弾性波動の定式化へ

素子の配置による光学系の場合分けが済んだところで、漸く時間信号取得の定式化を開始できる。ここではまず手続き i までを行う。

手続き i は励起される弾性波動の定式化である。ポンプパルス列が持つ波形を周波数展開した表式は§3.3.2 にて既に求めたが、そこでは単に「ポンプパルス列がどのような周波数成分を含むか」という議論だけを行ったから、遅延時間走査が特に考慮されていなかった。前サブセクションの議論からわかるように、ポンプディレイの場合には遅延時間の影響を考慮せねばならない。以下では、まずプローブディレイの場合の定式化を行った後、ポンプディレイのために遅延時間走査を考慮した定式化を行う。

4.2.3 励起される弾性波動の定式化（プローブディレイの場合）

まずはプローブディレイの場合である。ポンプパルス列（繰り返し周波数$f_0 = 1/T_0$）を周波数F_{pu}で正弦変調する際のポンプパルス列の強度波形を周波数成分の和で表すと、(3.4)式のようになる。(3.4)式を(4.1)式として以下に再提示する。

[iii] 実際の測定系でどの系を選択するかは現在の議論とは無関係に決められる。アライメントの容易さから①、③が選ばれることが多い。一般的に遅延光路はアライメントがシビアであるから、それより上流に配置された素子のアライメントに変更があると手戻りが大きい。そのため遅延光路の上流に多くの素子を配置しないことが多い。しかし、系の光学配置に自由度がある方が何かと都合がよいので、全ての場合で任意周波数測定が行える方がよい。

$$\frac{1}{2T_0}\sum_{n,l}\cos 2\pi\left(nf_0 + lF_{\mathrm{pu}}\right)t \tag{4.1}$$

但し、総和は$n = 0,1,2,\cdots$かつ$l = -1,1$を満たす(n,l)についてであるが、$(n,l) \neq (0,-1)$は除外する（振動の周波数は正である[iv]）。このとき、nは高調波の次数を表し、$l = -1,1$はそれぞれの成分に対する下側波帯・上側波帯を表す。(4.1)式において、搬送波の成分（$l = 0$の成分）は、現実の弾性振動としては含まれるが、信号として記録されることのないため、総和から除外していることに注意されたい[v]。補足となるが、変調波形が正弦波形でない場合に生じる$l = \pm 2, \pm 3, \cdots$の高次のサイドバンドも同様にロックイン検出を通して検出されることはない[vi]。

応答が線形の領域のとき、励起される弾性振動は(4.1)式が含むのと同じ周波数成分のみを持つ。したがって、弾性振動を表すためには、(4.1)式の各周波数成分に試料の持つ周波数応答を付与（重み付け）する。したがって、弾性振動を$u = u(t)$とすると、試料の振幅応答$A_{n,l} = A\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)$および位相応答$\phi_{n,l} = \phi\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)$を付与して

$$u(t) = \sum_{n,l} A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)t + \phi_{n,l}\right] \tag{4.2}$$

という周波数展開を得る。但し、周波数に代えて角周波数$\omega_0 = 2\pi f_0$、$\Omega_{\mathrm{pu}} = 2\pi F_{\mathrm{pu}}$を導入した。遅延時間$\tau$に依存しないポンプパルス列となるプローブディレイでは、これがポンプパルス列の表式である。

(4.2)式はすべての周波数成分の振動の和だが、以降は単一の周波数成分について注目しよう。つまり

$$u(t) = \sum_{n,l} u_{n,l}(t) \tag{4.3}$$

のように定義される単一の(n,l)成分$u_{n,l}$を考える。プローブディレイの場合、$u_{n,l} = u_{n,l}(t)$の表式は

$$u_{n,l}(t) = A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)t + \phi_{n,l}\right] \tag{4.4}$$

である。

4.2.4　励起される弾性波動の定式化（ポンプディレイの場合）

続くポンプディレイの場合では、変調器、遅延光路という順と遅延光路、変調器という順の 2 つのケースが存在する。

まず、変調器、遅延光路という順の場合に議論は比較的簡単である。この場合のポンプパルス波形の遅延時間走査では、図 4.1 を思い出すと、ポンプパルス列と変調による包絡線がともに遅延されていた。この場合、遅延により(4.4)式の波形は変化せず、単に遅延時間τだけタイミングが早まる。すなわち、(4.4)式のtを$t + \tau$に置き換えれば遅延時間τにおけるポンプパルス波形とな

[iv] $(n,l) = (0,-1)$の成分の周波数は$-\Omega_{\mathrm{pu}}$であり、周波数Ω_{pu}の成分と同じである。

[v] 除外は単に表記簡単化でしかない。もちろん(4.3)式の総和に$l = 0$を含めて以降の計算を追えば、ロックイン検出（手続き iii）の時点で搬送波の周波数成分が検出されないことは確認できる。

[vi] 一般的に、ロックインアンプ内部では入力された参照信号をもとにその周波数と同じ周波数の正弦波が作り出され、それが改めて参照信号となる。参照信号に高次の成分が含まれないから、弾性振動の方高次の成分を含んでいても検出されない。(4.3)式の総和に$l = \pm 2, \pm 3\cdots$含めて以降の計算を追えば、これを証明できる。

る。結局$u_{n,l} = u_{n,l}(t,\tau)$の表式は

$$u_{n,l}(t,\tau) = A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)(t+\tau) + \phi_{n,l}\right] \tag{4.5}$$

である。

遅延光路、変調器という順の場合にはやや複雑になる。図 4.1 を見ると、ポンプパルス列は遅延されて、変調の包絡線は遅延されない。この場合遅延時間走査に応じて波形が変化するから、もう一度§3.3.1、§3.3.2 の議論を繰り返さねばならない。

変調前のポンプパルス列にτ依存性をもたせるため、(3.2)式のtを$t+\tau$に置き換えたもの

$$\sum_{s=-\infty}^{\infty}\delta(t+\tau-sT_0) = \frac{1}{T_0}\left[1 + 2\sum_{n=1}^{\infty}\cos n\omega_0(t+\tau)\right] \tag{4.6}$$

に、τ依存性のない強度変調$\left[1+\cos\left(-\Omega_{\mathrm{pu}}t\right)\right]/2$を乗ずると、$n$次波は

$$\begin{aligned}\cos[-n\omega_0(t+\tau)] \times \frac{1}{2}[1+\cos\left(-\Omega_{\mathrm{pu}}t\right)] \\ = \frac{1}{4}\cos\left[-\left(n\omega_0 - \Omega_{\mathrm{pu}}\right)t - n\omega_0\tau\right] + \frac{1}{2}\cos[-n\omega_0(t+\tau)] \\ + \frac{1}{4}\cos\left[-\left(n\omega_0 + \Omega_{\mathrm{pu}}\right)t - n\omega_0\tau\right]\end{aligned} \tag{4.7}$$

となる。ポンプパルス列の表式は(4.7)式を全てのnについて足し合わせたものになる。よって、$u_{n,l} = u_{n,l}(t,\tau)$の表式は

$$u_{n,l}(t,\tau) = A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)t - n\omega_0\tau + \phi_{n,l}\right] \tag{4.8}$$

と与えられる。(4.5)式と(4.8)式を比較すると、結局遅延光路・変調素子の配置の順番で生じる差異は弾性振動のτ依存性であることがわかる。

4.3　周波数測定の定式化（単一変調の場合）

繰り返し光源およびロックイン検出を使用するポンプ・プローブ測定では、観測対象となる物理現象の速度とは関係なく変調周波数F_{pu}の信号を光検出器に入力する。ここで、ポンプ光・プローブ光をともに強度変調してそれら 2 つの変調周波数の差周波数の信号を検出することで、信号の周波数をF_{pu}から上下させられる。二重変調は励起周波数の走査をポンプ・プローブ法に組み入れる上で必要な技術となる。ポンプ光の変調周波数F_{pu}が光検出器の帯域幅を超えるほど高い場合に二重変調を用いて、光検出器への入力信号の周波数を帯域幅以下に変化させられる。

ここではまず単一変調の 3 通りのセットアップでの時間信号取得（遅延時間走査）を定式化して、音響振動の各周波数成分の応答が検出を通してどのように記録されるのかを考える。

4.3.1　プローブディレイ

まずプローブディレイの場合の定式化を始める。(4.4)式で求めたように、励起される弾性振動の(n,l)成分の表式は

$$u_{n,l}(t) = A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)t + \phi_{n,l}\right] \tag{4.9}$$

である。$u_{n,l}(t)$は遅延時間τのプローブパルス列によってサンプリングされる。ポンプパルス列同様、プローブパルス列も典型的なパルス時間幅が取得対象の弾性振動の時間スケールに対して充分短いために Dirac コム関数とみなせる。そのためサンプリングでは瞬間値が取得されると考えて差し支えない。プローブパルス列にのる離散的な信号を数列$u_{n,l,N} = \{u_{n,l,0}, u_{n,l,1}, \cdots\}$として表すと、その$N$番目の値（$N$番目のプローブパルスが取得する値）は

$$\begin{aligned} u_{n,l,N}(\tau) &= u_{n,l}(NT_0 + \tau) \\ &= A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)(NT_0 + \tau) + \phi_{n,l}\right] \\ &= A_{n,l}\cos\left[-l\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0 - \left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)\tau + \phi_{n,l}\right] \end{aligned} \tag{4.10}$$

と表される。但し、3 番目の式変形には$\omega_0 T_0 = 2\pi$を用いた。(4.10)式より、サンプリング後の離散信号$u_{n,l,N}(\tau)$はNT_0領域（これは離散化されているだけで実時間のt領域に同じ）で、どの(n,l)成分でも周波数Ω_{pu}を持つ。これは当然のことで、弾性波に含まれるどんな(n,l)成分もサンプリング後には周波数$l\Omega_{\mathrm{pu}}$となるから、周波数Ω_{pu}成分のみを取り出す（つまり「バンドパスさせる」）ロックイン検出（手続き iii）が成立する。一方で$u_{n,l,N}(\tau)$の遅延時間τの依存性を考える。NT_0領域の振動の位相がτに比例して$-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)\tau$で変化するとも言えるし、$\tau$領域の振動が周波数$n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}$を持つとも言える。

続いては、ロックインアンプによる信号処理である。プローブパルス列が取得した信号$u_{n,l,N}(\tau)$を入力した際のロックインアンプの出力を考える。ロックインアンプは内部で$u_{n,l,N}(\tau)$に参照信号$\cos\left(\Omega_{\mathrm{pu}}t\right)$、$\sin\left(\Omega_{\mathrm{pu}}t\right)$を掛けるが[vii]、離散化された$NT_0$領域の信号$u_{n,l,N}(\tau)$に合わせてそれぞれを$\cos\left[\Omega_{\mathrm{pu}}(NT_0 + \tau)\right]$、$\sin\left[\Omega_{\mathrm{pu}}(NT_0 + \tau)\right]$と表記すべきである[viii]。そして、参照信号乗算後には LPF を模して信号の時間積算（時間積分）を行う。結局、同相成分$X_{n,l}(\tau)$は

$$X_{n,l}(\tau) = \langle u_{n,l,N}(\tau)\cos\left[\Omega_{\mathrm{pu}}(NT_0 + \tau)\right]\rangle \tag{4.11}$$

と表記される。但し、

$$\langle f_N\rangle = \frac{1}{N_{\max}}\sum_{N=0}^{N_{\max}} f_N \tag{4.12}$$

である。(4.11)式に(4.10)式の$u_{n,l,N}(\tau)$を代入すると、

$$\begin{aligned} X_{n,l}(\tau) &= \frac{A_{n,l}}{2}\langle\cos\left[-(l-1)\Omega_{\mathrm{pu}}(NT_0 + \tau) - n\omega_0\tau + \phi_{n,l}\right]\rangle \\ &\quad + \frac{A_{n,l}}{2}\langle\cos\left[-(l+1)\Omega_{\mathrm{pu}}(NT_0 + \tau) - n\omega_0\tau + \phi_{n,l}\right]\rangle \\ &\simeq \frac{A_{n,l}}{2}\cos\left(-n\omega_0\tau + \phi_{n,l}\right) \end{aligned} \tag{4.13}$$

と計算できる。2 番目の式変形は充分大きいNまで平均を取るとき成り立つ近似である。(4.13)式で$X_{n,l}(\tau)$の周波数は$n\omega_0$で、lの値に依らない。まだ弾性振動だったときには(4.4)式の$u_{n,l}(t)$の

[vii] 参照信号同相成分・直交成分が（初期位相を持たずに）cosine と sine で表記されるのは、そうなるよう$t = 0$を決定しているからである。

[viii] ロックインアンプの参照信号の表式にτ依存性を与えたが、現実に参照信号にτ依存性があるわけではない。ロックインアンプへの入力信号がN番目のパルスにのる信号強度$u_{n,l,N}$として表されるが、プローブディレイのためこのN番目のパルスはロックインが行う時間積分の積分領域に対してτで遅延する。その遅延を参照信号側に繰り込んでいるのである。

ように正しく周波数$n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}$であったから、$n$次の下側波帯$n\omega_0 - \Omega_{\mathrm{pu}}$と上側波帯$n\omega_0 + \Omega_{\mathrm{pu}}$がともに同一周波数$n\omega_0$の信号に変化したということである。

さて、弾性振動から単一(n,l)成分$u_{n,l}(t)$を記録した場合の信号$X_{n,l}(\tau)$に対して、実際の弾性振動を記録した場合には、同相成分の信号

$$X(\tau) \equiv \sum_{n,l} X_{n,l}(\tau) \tag{4.14}$$

を得る。(4.14)式のように$X_{n,l}(\tau)$が重ね合わせられると、同じ周波数として記録される$(n,-1)$と$(n,1)$成分は混ざり、測定信号に対して Fourier 変換

$$F_T(\omega) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} X(\tau)\exp(i\omega\tau)\,d\tau \tag{4.15}$$

を実行しても$A_{n,1}$と$A_{n,-1}$、$\phi_{n,1}$と$\phi_{n,-1}$は区別できなくなる。これが§3.3.4 で提示した問題である。

既存の手法のようにポンプ光強度変調による周波数走査を行わないならば、これは些末な問題として片付けられる。なぜなら変調周波数Ω_{pu}が測定対象の周波数領域と比較して小さいとき、多くの場合$\gtrsim 2\Omega_{\mathrm{pu}}$程度の領域で試料の応答が一様とみなせるからである。$A_{n,-1} = A_{n,1} = A_{n,0}$かつ$\phi_{n,-1} = \phi_{n,1} = \phi_{n,0}$ならば、記録される$(n,l)$成分が

$$\frac{A_{n,-1}}{2}\cos\left(-n\omega_0\tau + \phi_{n,-1}\right) + \frac{A_{n,1}}{2}\cos\left(-n\omega_0\tau + \phi_{n,1}\right) = A_{n,0}\cos\left(-n\omega_0\tau + \phi_{n,0}\right)$$

となり、単に変調周波数を無視した結果が得られるだけである。しかし、新手法でポンプ光強度変調による周波数走査を行う場合、変調周波数は$0 < \Omega_{\mathrm{pu}} \le \omega_0/2$ という広範囲の値を取るため試料の応答が一様とはみなせない（そもそも高いQ値を持つ振動のように広い周波数領域で応答が一様でない振動の測定を実現するために、周波数走査を考えていた）。

この問題の解決策を提示するため、新手法では 2 位相ロックインアンプが入力信号の同相成分と同時に直交成分も返すことに注目する。弾性振動$u_{n,l}(t)$を記録する場合の直交成分出力は

$$Y_{n,l}(\tau) = \langle u_{n,l,N}(\tau)\sin\left[\Omega_{\mathrm{pu}}(NT_0 + \tau)\right]\rangle \tag{4.16}$$

である。既存手法の場合にはロックインアンプの同相成分の出力$X_{n,l}(\tau)$を「弾性振動$u_{n,l}(t)$が検出信号として記録されたもの」とみなしていたが、新手法ではその考え方を拡張し、2 つの出力$X_{n,l}(\tau)$、$Y_{n,l}(\tau)$から複素数の信号

$$\begin{aligned} Z_{n,l}(\tau) &\equiv X_{n,l}(\tau) + iY_{n,l}(\tau) \\ &= \langle u_{n,l,N}(\tau)\exp\{i\left[\Omega_{\mathrm{pu}}(NT_0 + \tau)\right]\}\rangle \end{aligned} \tag{4.17}$$

を定義しよう[ix]。さらに、実際の弾性振動を記録した場合には、(4.14)式の同相成分出力および直交成分出力

$$Y(\tau) \equiv \sum_{n,l} Y_{n,l}(\tau) \tag{4.18}$$

を用いて複素数の信号

$$Z(\tau) \equiv \sum_{n,l} Z_{n,l}(\tau) \tag{4.19}$$

[ix] ロックインアンプの出力では、$Y_{n,l}(\tau)$は$X_{n,l}(\tau)$に対して 90°の位相差が付くことしか保証されないとしたら、$X_{n,l}(\tau) - iY_{n,l}(\tau)$と定義すべきかもしれない。ここでは$X_{n,l}(\tau) + iY_{n,l}(\tau)$と定義しているが、他の値の自由度でカバーできるのでこのように決め打ちで定義してよい。

$$= \sum_{n,l} X_{n,l}(\tau) + i \sum_{n,l} Y_{n,l}(\tau)$$
$$= X(\tau) + iY(\tau)$$

となる。この$Z(\tau)$について Fourier 変換を施す。(4.16)式の$u_{n,l,N}(\tau)$は(4.10)式で与えられるから、$Z_{n,l}(\tau)$は(4.13)式の$X_{n,l}(\tau)$のような表式に変形できる。

$$Z_{n,l}(\tau) = \frac{A_{n,l}}{2}\langle \exp\{i[-(l-1)\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0 - \{n\omega_0 + (l-1)\Omega_{\mathrm{pu}}\}\tau + \phi_{n,l}]\}\rangle$$
$$+ \frac{A_{n,l}}{2}\langle \exp\{-i[-(l+1)\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0 - \{n\omega_0 + (l+1)\Omega_{\mathrm{pu}}\}\tau + \phi_{n,l}]\}\rangle \quad (4.20)$$
$$\simeq \frac{A_{n,l}}{2}\exp[i\ \mathrm{sgn}(l)(-n\omega_0\tau + \phi_{n,l})]$$

但し、

$$\mathrm{sgn}(x) = \begin{cases} -1, & (x < 0) \\ 1, & (x \geq 0) \end{cases} \quad (4.21)$$

である[x]。2 式目の近似は

$$\langle \exp(icN)\rangle = 0 \quad (4.22)$$

（定数cは非零の実数を仮定）を利用している。補足として、(4.20)式から$Y_{n,l}(\tau)$の具体的な表式を提示すると、

$$Y_{n,l}(\tau) = \mathrm{Im}[Z_{n,l}(\tau)] \simeq \frac{A_{n,l}}{2}\sin[-n\omega_0\tau + \phi_{n,l}] \quad (4.23)$$

となる。

$Z(\tau)$の Fourier 変換による Fourier 振幅は次のようになる。

$$F_T(\omega) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} Z(\tau)\exp(i\omega\tau)\,d\tau \quad (4.24)$$

この式の$Z(\tau)$に(4.20)式の表式を代入すると

$$F_T(\omega) \simeq \frac{1}{2\pi}\sum_{n,l}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{A_{n,l}}{2}\exp\{i\ \mathrm{sgn}(l)[-n\omega_0\tau + \phi_{n,l}]\}\exp(i\omega\tau)\,d\tau$$
$$= \sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\exp[i\ \mathrm{sgn}(l)\phi_{n,l}]\,\delta(\omega - \mathrm{sgn}(l)n\omega_0) \quad (4.25)$$

となる。(4.25)式から、(n,l)成分の振動が周波数領域で$\omega = \mathrm{sgn}(l)n\omega_0$におけるピークとなる。また、ピーク値からは振動の振幅$A_{n,l}$と初期位相$\phi_{n,l}$が求められる。$\mathrm{sgn}(l)$は正負の符号を表し、$(n,1)$成分は必ず$\omega > 0$の領域に、$(n,-1)$成分は$\omega < 0$の領域に現れる。そのため、元々の周波数が$n\omega_0 \pm l\Omega$であった(n,l)成分の振動が周波数$n\omega_0$と記録されても、両者は周波数領域の正負で区別される。比較のため、$X(\tau)$の Fourier 変換を実行する。

$$F_T(\omega) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} X(\tau)\exp(i\omega\tau)\,d\tau \quad (4.26)$$

[x] $l = \pm 1$であるから、必ず$\mathrm{sgn}(l) = l$となり本来sgn表記は必要ないが。sgnと明記することで符号のみにしか意味ないことを表す。

$$
\begin{aligned}
&\simeq \frac{1}{2\pi}\sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\int_{-\infty}^{\infty}\cos\left(-n\omega_0\tau+\phi_{n,l}\right)\exp(i\omega\tau)\,d\tau \\
&=\frac{1}{2\pi}\sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\int_{-\infty}^{\infty}\left\{\exp\left[i\left(-n\omega_0\tau+\phi_{n,l}\right)\right]\right. \\
&\qquad\left.+\exp\left[-i\left(-n\omega_0\tau+\phi_{n,l}\right)\right]\right\}\exp(i\omega\tau)\,d\tau \\
&=\sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\exp\left(-i\phi_{n,l}\right)\left[\delta(\omega-n\omega_0)+\delta(\omega+n\omega_0)\right]
\end{aligned}
$$

この場合、1 つの(n,l)成分が周波数領域の正負両方に現れるため、上下側波帯は区別できない。

(4.24)式の Fourier 変換は積分に必要な遅延時間領域が無限大であるため実現が難しいが、(4.20)式の表式から$Z_{n,l}(\tau)$が(n,l)によらず周期T_0を持つ周期関数であることを考えれば積分範囲は有限で済む。すなわち、

$$
\begin{aligned}
F_T(\omega)&=\frac{1}{T_0}\int_0^{T_0}Z(\tau)\exp(i\omega\tau)\,d\tau \\
&\simeq\frac{1}{T_0}\sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\int_0^{T_0}\exp\left\{i\,\mathrm{sgn}(l)\left[-n\omega_0\tau+\phi_{n,l}\right]\right\}\exp(i\omega\tau)\,d\tau \\
&=\sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\exp\left[i\,\mathrm{sgn}(l)\phi_{n,l}\right]\delta_{\omega,\mathrm{sgn}(l)n\omega_0}
\end{aligned}
\tag{4.27}
$$

となる。但し、$\delta_{s,s'}$は Kronecker のデルタであり、

$$
\delta_{s,s'}=\frac{1}{T_0}\int_0^{T_0}\exp[i(s-s')2\pi\tau/T_0]\,d\tau \tag{4.28}
$$

という関係がある。遅延時間τが$[0,T_0]$と有限となったことで、周波数ωは幅$\Delta\omega=\omega_0$で離散化する（これは$Z(\tau)$の Fourier 級数展開と同じである）。

4.3.2 ポンプディレイ（変調器、遅延光路の場合）

ポンプディレイで、ポンプ光路上流から変調器、遅延光路を配置した場合を考える。この場合、まず弾性振動の周波数(n,l)成分は、(4.5)式で求めたように

$$
u_{n,l}(t,\tau)=A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0+l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)(t+\tau)+\phi_{n,l}\right] \tag{4.29}
$$

と表される。次に、サンプリング後にプローブパルス列にのる離散的な信号$u_{n,l,N}=\{u_{n,l,0},u_{n,l,1},\cdots\}$の表式は、

$$
\begin{aligned}
u_{n,l,N}(\tau)&=u_{n,l}(NT_0,\tau) \\
&=A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0+l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)(NT_0+\tau)+\phi_{n,l}\right] \\
&=A_{n,l}\cos\left[-l\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0-\left(n\omega_0+l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)\tau+\phi_{n,l}\right]
\end{aligned}
\tag{4.30}
$$

で与えられる。続いて、その信号をロックインアンプに入力したときの出力を表す複素数$Z_{n,l}(\tau)$は、

$$
Z_{n,l}(\tau)=\langle u_{n,l,N}(\tau)\exp\left\{i\left[\Omega_{\mathrm{pu}}(NT_0+\tau)\right]\right\}\rangle \tag{4.31}
$$

$$= \frac{A_{n,l}}{2}\langle \exp\{i[-(l-1)\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0 - (n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}})\tau + \phi_{n,l}]\}\rangle$$

$$+ \frac{A_{n,l}}{2}\langle \exp\{-i[-(l+1)\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0 - (n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}})\tau + \phi_{n,l}]\}\rangle$$

$$\simeq \frac{A_{n,l}}{2}\exp\{i\,\mathrm{sgn}(l)[-(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}})\tau + \phi_{n,l}]\}$$

となる。全ての(n,l)成分について$Z_{n,l}(\tau)$を重ね合わせた$Z(\tau)$を Fourier 変換すると、

$$\begin{aligned} F_T(\omega) &= \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} Z(\tau)\exp(i\omega\tau)\,d\tau \\ &\simeq \frac{1}{2\pi}\sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\int_{-\infty}^{\infty}\exp\{i\,\mathrm{sgn}(l)[-(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}})\tau + \phi_{n,l}]\}\exp(i\omega\tau)\,d\tau \\ &= \sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\exp(i\,\mathrm{sgn}(l)\phi_{n,l})\,\delta\left(\omega - \mathrm{sgn}(l)(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}})\right) \end{aligned} \tag{4.32}$$

になる。$\mathrm{sgn}(l)(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}})$は以下のようにも書ける。

$$\mathrm{sgn}(l)(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}) = \mathrm{sgn}(l)n\omega_0 + |l|\Omega_{\mathrm{pu}} \tag{4.33}$$

また、$l = \pm 1$より、単に

$$\mathrm{sgn}(l)n\omega_0 + |l|\Omega_{\mathrm{pu}} = ln\omega_0 + \Omega_{\mathrm{pu}} \tag{4.34}$$

と書ける。

本サブセクションのセットアップの場合には、(4.31)式が示すように全ての(n,l)成分が元の弾性振動と同じ周波数$n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}$に正しく記録されることがポイントとなる。(4.32)式で実行した Fourier 変換では、§4.3.1 のセットアップの際の(4.26)式と同様にピークが周波数領域の正負どちらに現れるかで下側波帯$(n,-1)$と上側波帯$(n,1)$を区別できるが、そうでなくとも両者は異なる周波数で記録されるから元々区別できないことはない。そのため本セットアップではロックインアンプの同相出力$X(\tau) = \mathrm{Re}[Z(\tau)]$（すなわち既存手法の際に記録していた信号）さえあれば、直交出力までも考慮する$Z(\tau)$は不要に思われるが、ここでは別の理由から$Z(\tau)$が必要とされる。

今回も§4.3.1 同様に、Fourier 変換の積分範囲を有限に留めたいという要求が存在する。しかし、$Z(\tau)$は§4.3.1 と異なり、どの(n,l)成分でも周期はT_0でなく、τの積分範囲を$[0,T_0]$とするわけにはいかない。必要とされる積分領域は、全ての(n,l)成分について次の関係式を満たすような$\tau_{\max}$である。

$$Z_{n,l}(\tau + \tau_{\max}) = Z_{n,l}(\tau) \tag{4.35}$$

(4.31)式から、この関係式は次の関係と同値である。

$$(ln\omega_0 + \Omega_{\mathrm{pu}})\tau_{\max} = 2\pi s \tag{4.36}$$

但し、sは整数である。この関係を満たす最小の$\tau_{\max}$はレーザー繰り返し周期$T_0 = 2\pi/\omega_0$、変調周期$T_{\mathrm{pu}} = 2\pi/\Omega_{\mathrm{pu}}$の 2 つの周期の最小公倍数$\tau_{\mathrm{LMC}}$となる。$\tau$を無限に長くとるならば、$T_0$と$T_{\mathrm{pu}}$は必ず最小公倍数$\tau_{\mathrm{LMC}} = M_{\max}T_0 = M'_{\max}T_{\mathrm{pu}}$（$M_{\max}$、$M'_{\max}$は整数）を持つ。このとき、

$$(ln\omega_0 + \Omega_{\mathrm{pu}})\tau_{\mathrm{LMC}} = 2\pi(lnM_{\max} + M'_{\max}) \tag{4.37}$$

となり、(4.36)式を満たす。このようなτ_{LMC}の範囲を遅延時間走査して$[0,\tau_{\mathrm{LMC}}]$の時間データを得た場合、そのデータから得られる Fourier 振幅は次のようになる。

$$
\begin{aligned}
F_T(\omega) &= \frac{1}{\tau_{\mathrm{LMC}}}\int_0^{\tau_{\mathrm{LMC}}} Z(\tau)\exp(i\omega\tau)\,d\tau \\
&\simeq \frac{1}{\tau_{\mathrm{LMC}}}\sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\int_0^{\tau_{\mathrm{LMC}}}\exp\{i\,\mathrm{sgn}(l)\left[-\left(n\omega_0+l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)\tau+\phi_{n,l}\right]\}\exp(i\omega\tau)\,d\tau \\
&= \sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\exp\left[i\,\mathrm{sgn}(l)\phi_{n,l}\right]\delta_{\omega,ln\omega_0+\Omega_{\mathrm{pu}}}
\end{aligned}
\tag{4.38}
$$

これは結局以下のことを示す。まず(4.38)式の Fourier 変換は Fourier 級数展開に等しいから幅 $\Delta\omega = 2\pi/\tau_{\mathrm{LMC}}$（積分範囲$\tau_{\mathrm{LMC}}$の逆数）で周波数領域の離散化が生じる。それに対して、(4.37)式より

$$
\begin{aligned}
ln\omega_0+\Omega_{\mathrm{pu}} &= \left(lnM_{\max}+M'_{\max}\right)\frac{2\pi}{\tau_{\mathrm{LMC}}} \\
&= \left(lnM_{\max}+M'_{\max}\right)\Delta\omega
\end{aligned}
\tag{4.39}
$$

の関係があるから、弾性振動の測定信号周波数$Z(\tau)$のピークは$\omega = \left(lnM_{\max}+M'_{\max}\right)\Delta\omega$の位置に立つ。

以上で無限の遅延時間走査を行う必要はないことが理解できた。しかし、さらに工夫を施すことで遅延時間走査をτ_{LMC}ほども行う必要がなくなる。そのためには$Z(\tau)\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pu}}\tau\right)$と、その$(n,l)$成分 $Z_{n,l}(\tau)\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pu}}\tau\right)$を考える。$Z_{n,l}\,(\tau)\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pu}}\tau\right)$は、$\tau$を$\tau+T_0$に置き換えると(4.31)式により

$$
\begin{aligned}
Z_{n,l}(\tau+T_0)\exp\left[i\Omega_{\mathrm{pu}}(\tau+T_0)\right] &= Z(\tau)\exp\left(-i\Omega_{\mathrm{pu}}T_0\right)\exp\left[i\Omega_{\mathrm{pu}}(\tau+T_0)\right] \\
&= Z(\tau)\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pu}}T_0\right)
\end{aligned}
\tag{4.40}
$$

が成立し、周期T_0の周期関数である。したがって$Z_{n,l}\,(\tau)\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pu}}\tau\right)$を全ての$(n,l)$成分について足し合わせた$Z(\tau)\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pu}}\tau\right)$は$[0,T_0]$の遅延時間領域のみで Fouirer 変換可能である。その場合の Fouirer 振幅は

$$
\begin{aligned}
F_T(\omega) &= \frac{1}{T_0}\int_0^{T_0} Z(\tau)\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pu}}\tau\right)\exp(i\omega\tau)\,d\tau \\
&\simeq \frac{1}{T_0}\sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\int_0^{T_0}\exp\left\{i\,\mathrm{sgn}(l)\left(-n\omega_0\tau+\phi_{n,l}\right)\right\}\exp(i\omega\tau)\,d\tau \\
&= \sum_{n,l}\frac{A_{n,l}}{2}\exp\left[i\,\mathrm{sgn}(l)\phi_{n,l}\right]\delta_{\omega,\mathrm{sgn}(l)n\omega_0}
\end{aligned}
\tag{4.41}
$$

となるので、§4.3.1 のセットアップにおける(4.27)式の Fourier 変換と全く同じになる。

4.3.3　ポンプディレイ（遅延光路、変調器の順）

次は、ポンプディレイの場合で、ポンプ光路上流から遅延光路、変調器を配置した場合の定式化である。この場合には、弾性振動の周波数(n,l)成分は、(4.8)式で求めたように

$$
u_{n,l}(t,\tau) = A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0+l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)t-n\omega_0\tau+\phi_{n,l}\right] \tag{4.42}
$$

と表される。τ依存性が(4.29)式とは異なることに注意されたい。サンプリング後にプローブパルス列にのる離散的な信号$u_{n,l,N}=\{u_{n,l,0},u_{n,l,1},\cdots\}$の表式は

$$\begin{aligned} u_{n,l,N}(\tau) &= u_{n,l}(NT_0,\tau) \\ &= A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0+l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)NT_0-n\omega_0\tau+\phi_{n,l}\right] \\ &= A_{n,l}\cos\left(-l\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0-n\omega_0\tau+\phi_{n,l}\right) \end{aligned} \tag{4.43}$$

で与えられる。実時間NT_0の領域ではΩ_{pu}の周波数を持つが、遅延時間τの領域では$n\omega_0$の周波数を持つ。続いて、その信号をロックインアンプに入力したときの出力を表す複素数$Z_{n,l}(\tau)$は、

$$\begin{aligned} Z_{n,l}(\tau) &= \langle u_{n,l,N}(\tau)\exp\{i\left[\Omega_{\mathrm{pu}}(NT_0+\tau)\right]\}\rangle \\ &= \frac{A_{n,l}}{2}\langle\exp\{i\left[-(l-1)\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0-n\omega_0\tau+\phi_{n,l}\right]\}\rangle \\ &\quad+\frac{A_{n,l}}{2}\langle\exp\{-i\left[-(l+1)\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0-n\omega_0\tau+\phi_{n,l}\right]\}\rangle \\ &\simeq \frac{A_{n,l}}{2}\exp\{i\,\mathrm{sgn}(l)\left[-n\omega_0\tau+\phi_{n,l}\right]\} \end{aligned} \tag{4.44}$$

となる。この結果は(4.20)式と同じであり、以降の議論は§4.3.1 と同じになる。

4.4　周波数測定の定式化（二重変調の場合）

ポンプ光同様にプローブ光を強度変調することができる。前セクションでの計算からもわかるように、ポンプ光のみ変調する場合、光検出器に入射するプローブ光が含む信号の周波数はポンプ光の変調周波数F_{pu}（角周波数Ω_{pu}）と同じである。しかし、プローブ光をも変調することで、プローブ光が含む信号の周波数をF_{pu}よりも低くすることが可能である。なぜなら、二重変調時にプローブ光が含む周波数成分はポンプ光変調周波数F_{pu}、プローブ光変調周波数F_{pr}（角周波数Ω_{pr}）、その 2 つの差周波$\left|F_{\mathrm{pu}}-F_{\mathrm{pr}}\right|$、和周波$F_{\mathrm{pu}}+F_{\mathrm{pr}}$を含むので、差周波数成分をロックイン検出における検出対象とできるようになるからである（但し、差周波数成分取得のための参照信号は別途用意する必要がある）。この手法のおかげでF_{pu}が大きい場合でも既存法と同じように数 MHz 程度の信号を取り扱うことができ、帯域幅の広い光検出器も不要になる。この手法を二重変調と呼ぶこととする。

二重変調の場合の素子配置の自由度は、遅延光路とポンプ光の変調器に加えてプローブ光の変調器を考慮すると、全部で 4 通り考えられる（図 4.3）。以下ではそれらひとつひとつに対して定式化を行う。

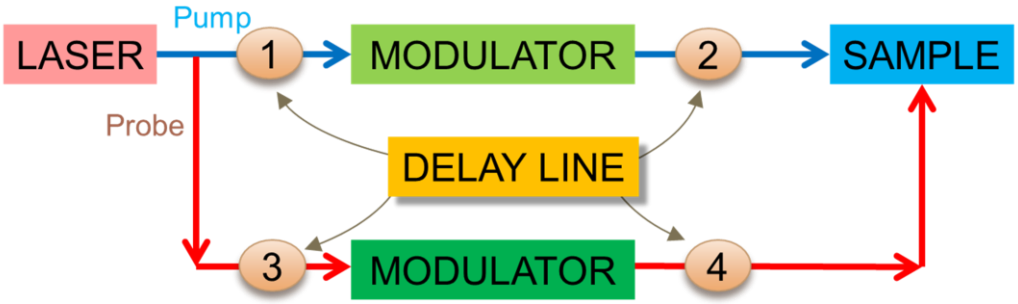

図 4.3: 二重変調の場合のセットアップの選択肢を表す模式図。番号は遅延光路の設置箇所の選択肢を表す。①ポンプ光路で変調器の上流、②ポンプ光路で変調器の下流、③プローブ光路で変調器の上流、④プローブ光路で変調器の下流の 4 か所の選択肢がある。

4.4.1 ポンプディレイ（変調器、遅延光路の順）

ポンプディレイで、ポンプ光路上流から変調器、遅延光路を配置した場合を考える。まず弾性振動の周波数(n,l)成分は、(4.5)式で求めたように

$$u_{n,l}(t,\tau) = A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)(t+\tau) + \phi_{n,l}\right] \tag{4.45}$$

と表される。次は、変調$\left[1+\cos\left(\Omega_{\mathrm{pr}}t\right)\right]/2$が与えられたプローブパルス列によるサンプリングである。サンプリング後にプローブパルス列にのる離散的な信号$u_{n,l,N} = \{u_{n,l,0}, u_{n,l,1}, \cdots\}$の表式は、

$$\begin{aligned} u_{n,l,N}(\tau) &= u_{n,l}(NT_0,\tau) \times \frac{1}{2}\cos\left(\Omega_{\mathrm{pr}}NT_0\right) \\ &= A_{n,l}\cos\left(-l\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0 - n\omega_0\tau + \phi_{n,l}\right) \times \frac{1}{2}\cos\left(\Omega_{\mathrm{pr}}NT_0\right) \end{aligned} \tag{4.46}$$

と表される。続くロックインアンプによる信号処理では、周波数$\Omega_{\mathrm{ref}} = \Omega_{\mathrm{pu}} - \Omega_{\mathrm{pr}}$の信号が作り出され、参照用として使われる。よって、$u_{n,l,N}(\tau)$をロックインアンプに入力したときの出力を表す複素数$Z_{n,l}(\tau)$は、

$$\begin{aligned} Z_{n,l}(\tau) &= \langle u_{n,l,N}(\tau)\exp[i(\Omega_{\mathrm{ref}}NT_0)]\rangle \\ &\simeq \langle A_{n,l} \times \frac{1}{2}\left(\exp\left\{i\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)(NT_0+\tau) + \phi_{n,l}\right]\right\} + \mathrm{c.c.}\right) \\ &\qquad \times \frac{1}{4}\left[\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pr}}NT_0\right) + \mathrm{c.c.}\right] \times \exp(i\Omega_{\mathrm{ref}}NT_0)\rangle \\ &= \frac{A_{n,l}}{8}\langle\left(\exp\left\{i\left[-l\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0 - \left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)\tau + \phi_{n,l}\right]\right\} + \mathrm{c.c.}\right) \\ &\qquad \times \left[\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pr}}NT_0\right) + \mathrm{c.c.}\right] \times \exp[i\Omega_{\mathrm{ref}}NT_0]\rangle \\ &\simeq \frac{A_{n,l}}{8}\exp\left\{i\ \mathrm{sgn}(l)\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)\tau + \phi_{n,l}\right]\right\} \end{aligned} \tag{4.47}$$

となる。この結果は比例定数を除いて(4.31)式と同じであり、以降の議論は§4.3.2 と同じになる。

4.4.2　ポンプディレイ（遅延光路、変調器の場合）

今度は、ポンプディレイで、上流から変調器、遅延光路を配置した場合を考える。まず弾性振動の周波数(n,l)成分は、(4.8)式で求めたように

$$u_{n,l}(t,\tau) = A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)t - n\omega_0\tau + \phi_{n,l}\right] \tag{4.48}$$

と表される。サンプリング後にプローブパルス列にのる離散的な信号$u_{n,l,N} = \{u_{n,l,0}, u_{n,l,1}, \cdots\}$の表式は、

$$u_{n,l,N}(\tau) = u_{n,l}(NT_0,\tau) \times \frac{1}{2}\cos\left(\Omega_{\mathrm{pr}}NT_0\right) \tag{4.49}$$

となる。続いて、その信号をロックインアンプに入力したときの出力を表す複素数$Z_{n,l}(\tau)$は、

$$\begin{aligned} Z_{n,l}(\tau) &= \langle u_{n,l,N}(\tau)\exp[i(\Omega_{\mathrm{ref}}NT_0)]\rangle \\ &\simeq \langle A_{n,l} \times \frac{1}{2}\left(\exp\left\{i\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)NT_0 - n\omega_0\tau + \phi_{n,l}\right]\right\} + \mathrm{c.c.}\right) \\ &\qquad \times \frac{1}{4}\left[\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pr}}NT_0\right) + \mathrm{c.c.}\right] \times \exp(i\Omega_{\mathrm{ref}}NT_0)\rangle \\ &= \frac{A_{n,l}}{8}\langle\left\{\exp\left[i\left(-l\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0 - n\omega_0\tau + \phi_{n,l}\right)\right] + \mathrm{c.c.}\right\} \times \left[\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pr}}NT_0\right) + \mathrm{c.c.}\right] \\ &\qquad \times \exp(i\Omega_{\mathrm{ref}}NT_0)\rangle \\ &\simeq \frac{A_{n,l}}{8}\exp\left[-i\ \mathrm{sgn}(l)\left(-n\omega_0\tau + \phi_{n,l}\right)\right] \end{aligned} \tag{4.50}$$

となる。この結果は比例定数を除いて(4.20)式と同じであり、以降の議論は§4.3.1 と同じになる。

4.4.3　プローブディレイ（変調器、遅延光路の順）

プローブディレイで、プローブ光路上流から変調器、遅延光路の順に配置する場合を考える。まず弾性振動の周波数(n,l)成分は、(4.4)式で求めたように

$$u_{n,l}(t) = A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)t + \phi_{n,l}\right] \tag{4.51}$$

と表される。サンプリング後にプローブパルス列にのる離散的な信号$u_{n,l,N} = \{u_{n,l,0}, u_{n,l,1}, \cdots\}$の表式は、

$$u_{n,l,N}(\tau) = u_{n,l}(NT_0 + \tau) \times \frac{1}{2}\cos\left(\Omega_{\mathrm{pr}}NT_0\right) \tag{4.52}$$

となる。続いて、その信号をロックインアンプに入力したときの出力を表す複素数$Z_{n,l}(\tau)$は、

$$Z_{n,l}(\tau) = \langle u_{n,l,N}(\tau)\exp\{i\ [\Omega_{\mathrm{ref}}(NT_0 + \tau)]\}\rangle \tag{4.53}$$

$$\simeq \langle A_{n,l} \times \frac{1}{2}\left(\exp\left\{i\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)(NT_0 + \tau) + \phi_{n,l}\right]\right\} + \mathrm{c.c.}\right)$$

$$\times \frac{1}{4}\left[\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pr}}NT_0\right) + \mathrm{c.c.}\right] \times \exp[i\Omega_{\mathrm{ref}}(NT_0 + \tau)]\rangle$$

$$= \frac{A_{n,l}}{8}\langle\left(\exp\left\{i\left[-l\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0 - \left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)\tau + \phi_{n,l}\right]\right\} + \mathrm{c.c.}\right)$$

$$\times \left[\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pr}}NT_0\right) + \mathrm{c.c.}\right] \times \exp[i\Omega_{\mathrm{ref}}(NT_0 + \tau)]\rangle$$

$$\simeq \frac{A_{n,l}}{8}\exp\left[-i\ \mathrm{sgn}(l)\left(n\omega_0\tau - \phi_{n,l}\right)\right]$$

となる。この結果は比例定数を除いて(4.20)式と同じであり、以降の議論は§4.3.1 と同じになる。

4.4.4　プローブディレイ（遅延光路、変調器の順）

プローブディレイで、プローブ光路上流から遅延光路、変調器の順に配置する場合を考える。まず弾性振動の周波数(n, l)成分は、(4.4)式で求めたように

$$u_{n,l}(t) = A_{n,l}\cos\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)t + \phi_{n,l}\right] \tag{4.54}$$

と表される。サンプリング後にプローブパルス列にのる離散的な信号$u_{n,l,N} = \{u_{n,l,0}, u_{n,l,1}, \cdots\}$の表式は、

$$u_{n,l,N}(\tau) = u_{n,l}(NT_0 + \tau) \times \frac{1}{2}\cos\left[\Omega_{\mathrm{pr}}(NT_0 + \tau)\right] \tag{4.55}$$

となる。続いて、その信号をロックインアンプに入力したときの出力を表す複素数$Z_{n,l}(\tau)$は、

$$\begin{aligned} Z_{n,l}(\tau) &= \langle u_{n,l,N}(\tau)\exp\{i\ [\Omega_{\mathrm{ref}}(NT_0 + \tau)]\}\rangle \\ &\simeq \langle A_{n,l} \times \frac{1}{2}\left(\exp\left\{i\left[-\left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)(NT_0 + \tau) + \phi_{n,l}\right]\right\} + \mathrm{c.c.}\right) \\ &\quad \times \frac{1}{4}\left\{\exp\left[i\Omega_{\mathrm{pr}}(NT_0 + \tau)\right] + \mathrm{c.c.}\right\} \times \exp[i\Omega_{\mathrm{ref}}(NT_0 + \tau)]\rangle \\ &= \frac{A_{n,l}}{8}\langle\left(\exp\left\{i\left[-l\Omega_{\mathrm{pu}}NT_0 - \left(n\omega_0 + l\Omega_{\mathrm{pu}}\right)\tau + \phi_{n,l}\right]\right\} + \mathrm{c.c.}\right) \\ &\quad \times \left\{\exp\left[i\Omega_{\mathrm{pr}}(NT_0 + \tau)\right] + \mathrm{c.c.}\right\} \times \exp[i\Omega_{\mathrm{ref}}(NT_0 + \tau)]\rangle \\ &\simeq \frac{A_{n,l}}{8}\exp\left\{-i\ \mathrm{sgn}(l)\left[n\omega_0\tau + l\Omega_{\mathrm{pr}}\tau - \phi_{n,l}\right]\right\} \end{aligned} \tag{4.56}$$

となる。$Z_{n,l}(\tau)$の最終的な表式にΩ_{pr}が現れる点に注意が必要である。しかし、Ω_{pr}とΩ_{pr}の差異を除けばこの結果は(4.47)式と同じである。そのため、以降の議論は§4.4.1 とほとんど同じで、$Z(\tau)\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pu}}\tau\right)$に代えて$Z(\tau)\exp\left(i\Omega_{\mathrm{pr}}\tau\right)$を Fourier 変換することで$A_{n,l}$と$\phi_{n,l}$を取得できる。

4.5　まとめ

弾性表面波イメージング法における時間信号取得（周波数測定）で要となる光学素子として遅延光路と変調器の配置を考察し、時間信号取得の数式表現を得た。高繰り返し光源を用いたポンプ・プローブ法を通じて、実時間tの領域の弾性振動波形を遅延時間τの領域の信号波形として記録するとき、素子の配置によってはt領域の周波数とτ領域のそれが等しくならない。しかし、どの場合でもロックインアンプからの同相・直交出力を同時に測定していれば、後に Fourier 解析を行うことで元の弾性振動の振幅および位相を取得可能であることがわかった。

第5章　任意周波数測定の実験系構成

5.1　はじめに

本章のおいては、前章までに記した弾性表面波の任意周波数測定を検証するための実験系について記載する。新手法のための構成を記載するとはいえ、ポンプ光の変調を用いて励起周波数を操作する手法は導入が簡便であるから、実験系は既存手法（たとえば文献[13]に詳しい）と比べて大きな変更はない。

5.2　測定系の構築

第 4 章にて遅延光路・変調器の配置にまつわる光学系の自由度について述べたが、受光部が帯域幅≲3 MHz の Si フォトダイオード（photodiode、PD）である検出器の使用を想定し、二重変調によるヘテロダイン検出を行う系を構築する。使用するのは二重変調の場合の 4 つのケースのどれでもよいが、ここでは§4.4.4 で定式化を行ったセットアップを採用する。また、第 2 章にて

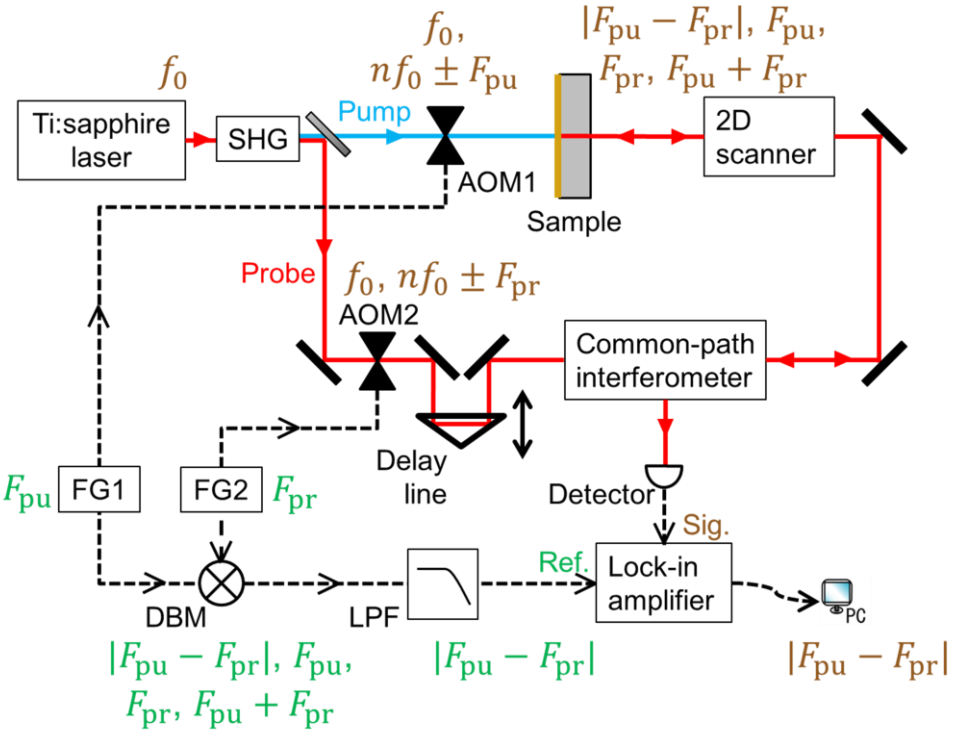

図 5.1: 光学系全体の模式図。図中「Pump」と表記の青線がポンプ光、「Probe」と表記の赤線がプローブ光を表す。破線は周波数電気信号の流れを表す。全ての矢印は信号の向きを表す。各機器に添えられる文字式は、それぞれの機器の位置での信号の周波数を表す。SHG: Second harmonic modulator, AOM: Acousto-optic modulator, FG: Function generator, DBM: Double balanced mixer, LPF: Low-pass filter, Sig.: Signal in, Ref.: Reference in.

述べた測定原理に基づき、2 次元光学スキャナと共通光路干渉計等を設置する。結果として、図 5.1 の模式図に示す測定系を構築する。ここで使用する個々の光学素子の持つ機能については別途付録 A を参照されたい。また、光学実験一般で使用する光学素子に関しては文献[19]が参考になる。

5.2.1 光源と光路

光源にはパルス幅~100 fs、繰り返し周波数 75.69 MHz（周期は 13.2 ns/pulse）[i]の波長可変モード同期 Ti:sapphire レーザーを用いる。発振パルスの中心波長は 830 nm（赤外）とする。まずレーザー発振のビームを SHG 結晶に入射させ、第 2 次高調波（中心波長 410 nm、青色）を得る。第 2 次高調波に変換されるのは一部であり、その後 2 つの波長のビームを 2 色ミラー（dichroic mirror）で分離して、青色ビームをポンプ光、赤外ビームをプローブ光として使用する。

プローブ光路には§2.4 の共通光路干渉計を、ポンプ光路には対物レンズ走査による 2 次元走査系を組み入れる。遅延光路はプローブ光路上で、変調器より下流の配置となる。ポンプ光、プローブ光は対物レンズ（倍率 50x）を用いて試料表面に集光される。試料へは垂直入射である。試料上で反射されたプローブ光は再び対物レンズ、干渉計などの経路を経て、今度は光検出器の設置された光路の方へと進み、光検出器に入射する。光検出器はプローブ光の信号を電圧値に変換する。変換後の電気信号はロックインアンプで変調周波数の信号のみがフィルタリングにより取り出される。

光検出器（フォトディテクタ、photodetector）

光検出器は定量的な光強度の計測のため、入射光強度に応じた電圧値を返す。本研究で用いたフォトディテクタは Si フォトダイオードから成る。フォトダイオードの受光原理は光子による電子・正孔の励起に基づく。今回使用したのは差動式のもので、2 つの入射口で測定される光強度の差を返す。

5.2.2 変調器

既存手法と新手法を比較したときに大きな違いとなるのは、既に述べているように変調周波数の大きさである。既存手法の 1 MHz 程度に対し、新手法の変調周波数は光源の繰り返し周波数の半分の~40 MHz を上限として、任意に変更しなければならない。そのため、これまであまり行われなかった数十 MHz 帯での強度変調が可能であるかが、検証実験の 1 つのポイントとなる。数十 MHz 帯での強度変調には、従来通り音響光学変調器（AOM; acousto-optic modulator）や電気光学変調器（EOM; Electro-optic modulator）が充分使用可能だと判断し、本実験ではそれらを使用する。

[i] ロックインアンプのロックイン周波数表示機能により確認した値である。

AOM（Acousto-optic modulator、音響光学変調器）

弾性波と光波の相互作用（音響光学効果）から生じる光波のブラッグ回折（Bragg refraction）を利用して入射光を強度変調する装置である。装置内部の透明結晶に取り付けられたトランスデューサが周期的なひずみを発生させる。入力電気信号の on/off でひずみの on/off を制御すると、ひずみの伝播領域への入射光は、on の時のみ周期性によりブラッグ回折する。そして、入射光の一部は出射方向が変化する。立ち上がり速度を無視すれば、入力電気信号の形状が、光強度の包絡線の形状となる。ブラッグ回折の 0, 1 次光は 2 次光以上に比べて強度が大きいことから、これらを使用するのが一般的である。

EOM（Electro-optic modulator、電気光学変調器）

EOM は電場の印加により複屈折を示す結晶（現象を電気光学効果、結晶を電気光学結晶と呼ぶ）を用いて、強度変調を行う。

変調器への入力信号は関数発生器から得る。関数発生器の設定で変調周波数・変調波形（正弦波、矩形波、鋸波、三角波など）を選択することが可能である。

ロックインアンプの参照信号を適切に得るためには、各変調器に接続された関数発生器からの参照信号をミキシング（mixing）することが必要になる。そのために二重平衡変調器（DBM, double-balanced mixer）を使用する。ミキシングされた後の信号には、元の 2 周波数、和周波数、差周波数が含まれる。ローパスフィルタで差周波数のみを取り出す。

5.2.3　走査系

遅延光路には、ポンプ・プローブ測定を行う際に一般的なステッピングモータ駆動のステージ上に反射鏡を設置した装置を使用し、測定時にはコンピュータにより位置制御を行う（機械的な方法での光学遅延）。反射鏡には、全反射プリズムを使用する。ステージには可動域 500 mm のものを使用し、ビームを 4 往復させることで 500 mm×8 ＝4 m（13.3 ns）までの光学遅延に対応させる。これは、レーザーパルスの繰り返し周波数が～76 MHz（13.2 ns/pulse）の場合に、ポンプパルスの試料到達から次のポンプパルスの試料到達までの全タイミングをカバーする距離である。新手法を行う上で遅延光路がこの 4 m という距離で充分なのは、§4.4.4 にて示したレーザー繰り返し周期分の時間データの Fourier 変換から弾性振動を恢復する方法を使用するからである。

5.3　まとめ

今回の検証では遅延光路をプローブ光上で、変調器の下流に置いた場合の光学系を使用する。ポンプ光・プローブ光の二重変調により信号周波数を下げたり、レーザー繰り返し周期分の時間データの Fourier 変換から弾性振動を恢復する方法を用いたりすることで、従来の実験装置と構

成を大きく変えることなく励起周波数の走査が可能になる。

第6章　開発された系の検証

6.1　はじめに

実際に弾性表面波イメージング法の測定を行い、ポンプ光の変調による励起周波数走査が可能であるかを確かめる検証実験を行う。共通の試料を用いて、変調周波数 7.70 MHz（比較的低い）と 32.00 MHz（比較的高い）の 2 つのケースで弾性表面波伝播の様子を動画として記録する。

本章においては、§6.2 にて使用した試料を説明し、§6.3 にて変調周波数 7.70 MHz の実験結果および考察を、§6.4 にて変調周波数 32.00 MHz の実験結果および考察を述べる。

6.2　試料

検証実験では試料に厚さ 1 mm のクラウンガラス基板上に厚さ~40 nm の金薄膜を蒸着した試料を用いることとする。金/クラウンガラス試料は弾性表面波イメージング法による測定がよくなされており、たとえば文献[2], [16]においても用いられている。その分散曲線も典型的な形であるから、検証が容易だろうと判断した。試料作製には RF（radio frequency）スパッタリング装置を用いた。スパッタリングにより形成された金薄膜は弾性的等方性を持つ。

実験では、金薄膜とクラウンガラスの境界面上にポンプ光およびプローブ光をフォーカスさせる。今回、ポンプ光を金膜側から、プローブ光をクラウンガラス側から垂直入射した。金膜がポンプ光を吸収すると、金膜の蒸着されている側の試料表面に局在する弾性表面波が発生する。プローブ光はその弾性表面波を検出する。金の弾性的性質については表 1 に示す。

今回はポンプ光を金膜側、プローブ光をクラウンガラス側から入射する。

表 1: 金の一般的な物性

縦波音速[ms^{-1}]	3240
横波音速[ms^{-1}]	1200
密度[gcm^{-3}]	19.3

6.3　比較的低周波数での変調

既に記述した通り、新手法では最大で光源の繰り返し周波数半分の周波数~40 MHz におよぶ変調が必要となる。ここではその周波数範囲内で比較的低い周波数 7.70 MHz の変調を加えた場合の検証結果と考察を記す。

6.3.1 実験

図 5.1 に示した測定系を用いる。ポンプ光およびプローブ光の二重変調には AOM を使用する。ポンプ光の変調周波数をF_{pu}=7.70 MHz、プローブ光の変調周波数をF_{pr}=9.40 MHz、検出信号の周波数をそれらの差周波数 1.40 MHz に設定する。ポンプ光は対物レンズにより集光され、~2 μm 程度のスポットを形成する。ポンプ光スポット形状を特別に整形することはしないので、弾性表面波は点励起となる。1 つのポンプ光パルスは点波源から全方位に拡散する弾性表面波パルスを励起する。繰り返し励起と変調により、弾性表面波のパルス列は周波数 $75.69\,n \pm 7.70$ MHz（$n = 0,1,2,\cdots$、但し$n = 0$のとき複号はプラスのみ）の周波数成分を持つ。弾性表面波パルスの波面の伝播のスナップショットを、プローブ光の走査により取得する。スナップショットに記録される波動は、§4.4 の議論を思い出すと、プローブ光の変調周波数を考慮して $75.69\,n \pm 9.40$ MHz の周波数成分により形成される。遅延時間の最大走査範囲を 34 等分し、全部で 34 枚のスナップショットを取得する（つまり$\Delta\tau = T_0/34$につき 1 枚取得する）。

周波数・波数空間における分散曲線のマッピングでは測定周波数に対して波数が正しく記録される必要があるから、側波帯成分が対応する波数を正しく持つかどうかを検証すべきである。目下のところ、同じ次数nを持つ USB と LSB を比較して、波数が区別できるかを検証する。

6.3.2 実験結果と考察

まず、実験で取得した遅延時間の異なる 34 枚のスナップショットの中から、遅延時間~11.6 ns における弾性表面波パルスの波面を記録した 1 枚を図 6.1 に示す。イメージ中央付近（図 6.1 では赤色の点となっている位置）に波源がある。試料は面内方向に一様でかつ弾性的等方性を持つ

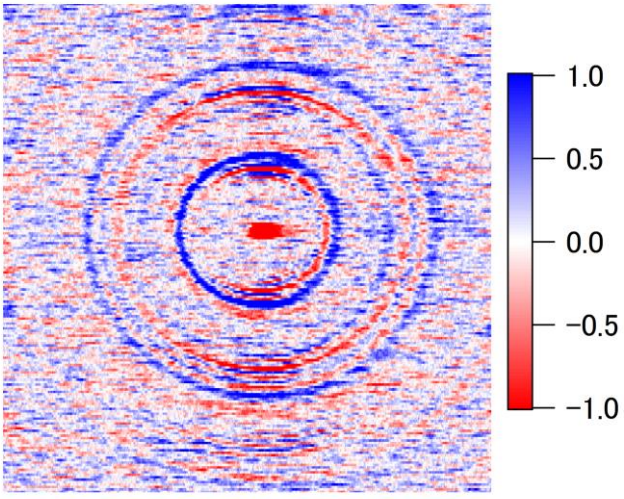

図 6.1: クラウンガラス/金膜上を伝播する弾性表面波のスナップショット（イメージング範囲 200 μm×200 μm、遅延時間~11.6 ns）。測定量は表面変位速度（任意単位）。イメージ中央付近が波源である。波源から円形に広がる。

ので、波源から拡散するほぼ円形の波面が確認できる。イメージング範囲は 200 μm×200 μm であり、周期的なパルス励起のためにその範囲内に 3 パルス分の波面が同心円状に記録されている（最も外側の波面はかろうじて視認できる）。最後に発生した（波源に最も近い）波面ほど信号が大きく、視認が容易なのには 2 つの原因が考えられる。1 つは、波源からの距離とともに拡散によって弾性表面波のエネルギー密度の低下である。点励起かつ平面の伝播という状況下では、エネルギー密度は距離の 2 乗に反比例して減衰する。もう 1 つは、金膜の存在から弾性表面波に群速度分散が生じ、時間とともに複数モードの弾性波の進行に差が生じることが要因だと考えられる。生じる弾性表面波のモードについては、Fourier 変換後に議論する）。また、図 1.1 に示した先行研究のスナップショットと比較して図 6.1 のイメージに多少雑音（ノイズ）が目立つのは、従来よりも高周波数の変調がもたらす雑音や、二重変調時に取得される振幅が単一変調時の 1/4 になることに由来する（詳しくは§4.4 を参照されたい）。ほかにはスキャン方向とそれと直交する方向でイメージの見え方に差異がある。図 6.1 のスキャン方向はイメージ横方向であるが、この方向に尾を引いたように見える。これは雑音低減のため、ロックインアンプの時定数を大きくしたことによる。

全 34 枚のイメージを含む$x-y-t$データセットに Fourier 変換を実行して、$k_x-k_y-\omega$の分布を得る。弾性的等方性試料から来る波源中心の回転対称性を利用して、その分布を 1 周平均して Fourier 振幅の絶対値の$k-\omega$プロファイルを作成し、図 6.2 に示す。但し、kとはデータを 1 周平均した際の波数である（$k=\sqrt{k_x^2+k_y^2}$）。図 6.2 の分布から局所極大値を取り出したものが図 6.3 である。但し、音速から鑑みたときモードのブランチのピークとして不適切だと思われる極大値は除外している。イメージ上に見られるモードは、表面波である Rayleigh 波（Rayleigh wave、RW）のほか、表面に沿う縦波 surface-skimming longitudinal wave（SSLW）が考えられる（この予測は音速から検証される）。図 6.3 において、同じnに対する USB・LSB の対の波数kの値を比較する。すると、多くの USB・LSB 対において、USB と LSB では異なるkの値が記録されていることが確認できる。SSLW の分枝においては 0.3 GHz～0.6 GHz あたりでkの区別がついていないが、これは分枝の傾きの急さに対して波数分解能が不足しているためだと考えられる。

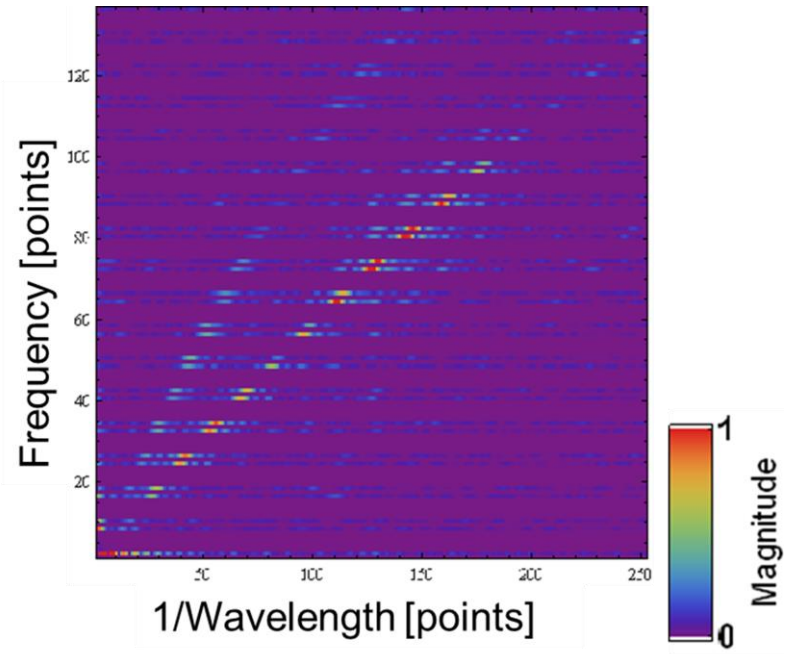

図 6.2: Fourier 解析から得た周波数・波数空間における信号強度分布。

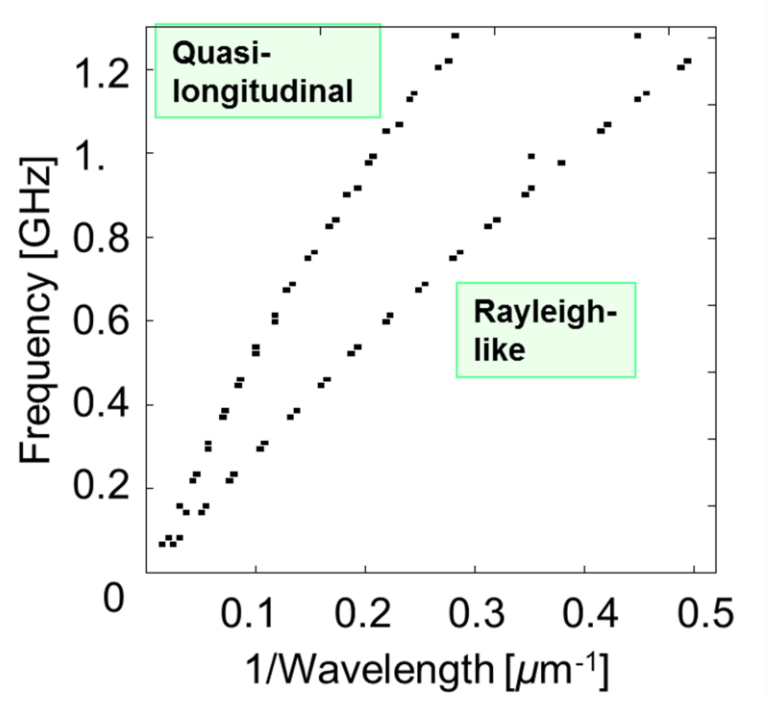

図 6.3: Fourier 解析から得た周波数・波数空間における強度分布から極大部分を抽出したイメージ。分散曲線が見られる。

6.4　比較的高周波数での変調

周波数~40 MHz までの変調が必要な中、より上限に近い周波数 32.00 MHz でポンプ光を変調した場合の系の試験の様子を記す。

6.4.1　実験

測定系は§6.3 と同じく、二重変調を行う図 5.1 のものを用いたが、プローブ光の変調素子のみ AOM に代えて EOM を使用した[i]。ポンプ光の変調周波数をF_{pr}=32.00 MHz、プローブ光の変調周波数をF_{pu}=31.00 MHz と設定した。ポンプ・プローブ測定による検出信号はその差周波数の 1.00 MHz である。

6.4.2　実験結果と考察

図 6.4 には、§6.3 と§6.4 の両方の実験から得られた分散関係の様子を示す。グラフ中の平行な黒線群の幅が既存手法の周波数分解能に相当するから、新手法で測定した今回の実験の方が周波数分解能が向上していることがわかる。1 つの黒線とその隣の黒線との間に 4 つのピークを得ているから実効的な周波数分解能は約 4 倍向上した。

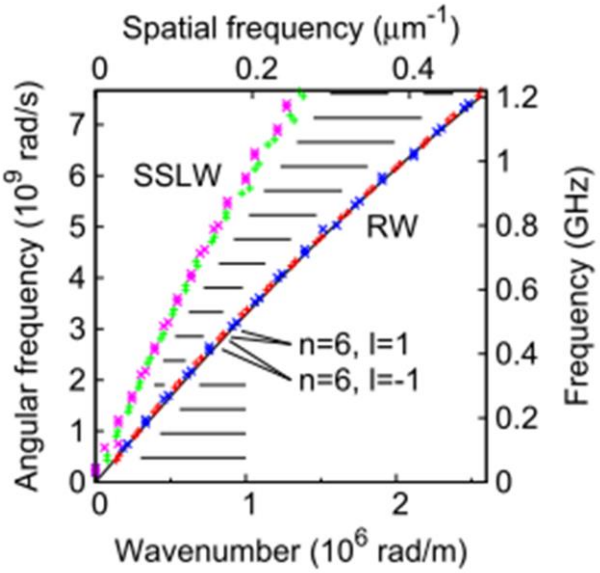

図 6.4: §6.3 と§6.4 の 2 つの実験から得られる分散関係。+がポンプ光変調周波数が 7.70 MHz のとき、×がポンプ光変調周波数が 32.00 MHz のときのデータの局所極大値を表す。平行な黒い実線群は、光源の繰り返し周波数の整数倍値を表す。RW の分枝を表す極大値に沿う実線は、数値計算による RW の分枝である。

[i] AOM の性能が不足していたわけではなく、単に持ち合わせていた機器の都合による変更である。

6.5　まとめ

共通の試料を用いて、変調周波数 7.70 MHz と 32.00 MHz の 2 ケースで弾性表面波イメージングを行った。2 つの実験結果から得られた既存手法より実効的に周波数分解能の高い分散関係マッピングを行うことができたことから、今回提案する新手法が有用だと考えられる。

第7章　総括

本論文の総括として、以下では研究内容と成果、将来の展望などをまとめる。

本研究では、高繰り返し光源使用によるポンプ・プローブ法に基づいたギガヘルツ弾性表面波時間分解イメージング法を改良し、既存手法で困難であった任意周波数測定が可能となる新手法を開発した。既存手法の問題点は、一般的に高繰り返し光源を使用することでギガヘルツ帯以下の周波数帯で試料応答の測定周波数が離散化することであった。新手法は、ポンプ・プローブ法におけるポンプパルス列を強度変調することで発生する側波帯を利用し、励起周波数走査するものであり、本書では既存手法をもとに変調周波数とロックイン検出で検出可能な周波数との関係を見直して解析理論を構築した。その理論をもとにして、励起周波数走査の検証実験では上・下側波帯成分の分離に成功した。さらに、変調周波数を変更した測定を行うことで励起周波数走査を検証し、側波帯周波数を選択して測定することに成功した。

この成果は、ギガヘルツ弾性表面波時間分解イメージング法を用いて複雑な分散関係をもつ試料（例えばフォノニック結晶や弾性的なメタマテリアル）や共振器のように高いQ値を示す構造もつ試料の共振現象の測定に有用である。また、新手法は既存手法の装置を大きく変更させずに導入することができる。もちろん一般的なポンプ・プローブ法のギガヘルツ帯以下の信号測定にも応用が利く。

一方で測定法としての発展の余地は未だ残されており、次なる課題を挙げるならば、

- ヘテロダイン検出におけるノイズの低減
- 周波数走査
- 異なる周波数で 2 台のロックインアンプを用いて、混合周波数での同時計測

などである。

付録A　干渉計に使用する光学素子

干渉計に使用する光学素子と測定機器についての一覧である。

遅相子（波長板）

入射光に含まれる直交する 2 つの直線偏光との間に特定の位相差を付けるため、光路に挿入する板状の素子を遅相子と呼ぶ。素子は、面内に直交した遅軸（slow 軸）・速軸（fast 軸）をもち、入射光は slow 軸に沿う直線偏光成分に対して fast 軸に沿う直線偏光成分の位相が遅れる。

・HWP（Half-wave plate、1/2 波長板、λ/2 板）

HWP は、通過後の光の直交する 2 成分に対して位相差が半波長分（180°）加わるように設計されている。内部では結晶の屈折率異方性を利用して 2 成分の光路差を変える。そのため、必要な HWP は入射光の波長ごとに異なる。HWP を用いれば、たとえば直線偏光を回転させることができる（付録 B 参照）。本実験では使用時には回転ホルダーに取り付けて、軸の角度を任意に選択する。

・QWP（Quarter-wave plate、1/4 波長板、λ/4 板）

QWP は、通過後の光の直交する 2 成分に対して位相差が 4 分の 1 波長分（90°）加わるように設計されている。QWP を用いれば、たとえば直線偏光は円偏光に、逆に円偏光は直線偏光に変えることができる。HWP 同様、本実験では回転ホルダーに取り付け、軸の角度を任意に選択できるようにしている。

偏光子（偏光板、Pol.; Polarizer）

偏光を揃えるために光路に挿入する板状の光学素子である。軸方向の直線偏光成分のみを透過させ、それ以外の偏光成分は排除する。HWP・QWP 同様、使用時は回転ホルダーに取り付け、軸角度を任意に選択する。

ビームスプリッタ（BS）

ビームスプリッタとは、入射光を分割するための光学素子である。または、波長や偏光などの条件により光が分離されるものも含む。

・PBS（Polarizing beam splitter、偏光ビームスプリッタ）

PBS は入射光の縦・横の偏光成分を分離する。我々が使用するものは縦偏光成分を反射させ、横偏光成分を透過させる。

・NPBS（Non-polarizing beam splitter、非偏光ビームスプリッタ）

入射した光を、偏光に関わらず、均等な強度に分ける。

・DM（Dichroic mirror、2 色鏡）

入射光の波長領域により、反射率・透過率が異なる BS である。本実験では、レーザー発振の超短光パルスと、SHG 結晶からほぼ同一光路で発振されるその第２次高調波を分離するために使用する。また、逆にそれらを試料入射直前で同一光路に戻すために使用する。

付録B　偏光と Jones ベクトル

光は 3 次元的に振動する電磁波であり、振動方向の偏り、つまり偏光が生じる。偏光の表記法には Jones ベクトル[20]、Stokes パラメータ[21]などがあるが、平面波が複数の線形な光学素子を通過する際の偏光変化を理論的に追う場合には Jones ベクトルを用いると便利である。

Jones ベクトルの定義を以下で示していく。まず真空中をz軸正の方向に進行する平面波（単色光）の電場は、

$$\begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_{x0}\exp[i(kz-\omega t+\phi_x)] \\ E_{y0}\exp\big[i\big(kz-\omega t+\phi_y\big)\big] \\ 0 \end{bmatrix}$$

$$= \begin{bmatrix} E_{x0} \\ E_{y0}e^{i(\phi_y-\phi_x)} \\ 0 \end{bmatrix}\exp[i(kz-\omega t+\phi_x)] \qquad \text{(B.1)}$$

と表わされる。E_x, E_yは横波成分、E_zは縦波成分であり、光は真空中で縦波モードを持たないので$E_z = 0$である。(B.1)式の最終的な表式では、表記が exp で表される平面波の振動とベクトルで表される複素振幅に分けられている。偏光（振動の方向）はxyz方向各成分の相対的な振幅・位相によるから、偏光表示には複素振幅部分のみでよい。このとき複素振幅のy成分では、位相の表示をx成分に対する相対的な位相差$\phi = \phi_y - \phi_x$とし、値のないz成分は無視して、2 次元ベクトル表記にする。そのように再表示したものを Jones ベクトル

$$\boldsymbol{J} = \begin{bmatrix} E_{x0} \\ E_{y0}e^{i\phi} \end{bmatrix} \qquad \text{(B.2)}$$

として定義する[i]。Jones ベクトルを用いると、偏光変化は複素 2 次元ベクトル空間におけるベクトルの回転に還元される。すなわち 2×2 の行列Tを素子の偏光特性として、平面波が線形な光学素子通過する際の入射光$\boldsymbol{J}_1$、透過光$\boldsymbol{J}_2$の関係は

$$\boldsymbol{J}_2 = T\boldsymbol{J}_1 \qquad \text{(B.3)}$$

のように表される。偏光特性を表す行列Tは Jones 行列と呼ばれる。更にN個の光学素子の通過では、(B.3)式を繰り返し適用して、最終的な Jones ベクトルを

$$\begin{aligned} \boldsymbol{J}_{N+1} &= T_N\boldsymbol{J}_N \\ &= T_N T_{N-1}\boldsymbol{J}_{N-1} \\ &= T_N \cdots T_2 T_1 \boldsymbol{J}_1 \end{aligned}$$

と表示できる。行列

$$T = T_N \cdots T_2 T_1 \qquad \text{(B.4)}$$

を改めて定義することで、1 つの素子の場合と同様の計算が可能である。

以下、今回使用する光学素子の Jones 行列を記載する[20]。

・（ミラーや試料等での）反射

[i] 本来は複素振幅を$\sqrt{{E_{x0}}^2+{E_{y0}}^2}$で除して大きさ 1 に規格化したものを Jones ベクトルと定義する。振幅の「大きさ」の情報を排しても、各方向成分の相対的な振幅さえわかれば偏光がわかるためである。しかし、ここでは振幅の情報も含んでいた方が便利であるから、規格化をせずに用いる。

$$T_{\mathrm{ref}} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \tag{B.5}$$

・x軸正方向（$\theta = 0$）を向いた偏光子

$$T_{\mathrm{pol}}(0) = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{B.6}$$

・PBS の透過と反射

$$T_{\mathrm{PBS}t} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{B.7}$$

$$T_{\mathrm{PBS}r} = \begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \tag{B.8}$$

・fast 軸がx軸正方向（$\theta = 0$）を向いた QWP の Jones 行列

$$T_{\mathrm{QWP}}(0) = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & i \end{bmatrix} \tag{B.9}$$

・fast 軸がx軸正方向（$\theta = 0$）を向いた HWP の Jones 行列

$$T_{\mathrm{HWP}}(0) = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \tag{B.10}$$

上記の HWP、QWP、Pol.のように、特徴的な光学軸をxy面内で任意に回転させられる素子については、以下の手法により上記の Jones 行列を素子回転後の Jones 行列に変換できる。

x軸から角度θだけ回転させた場合には、座標回転を行う行列

$$R(\theta) = \begin{bmatrix} \cos\theta & -\sin\theta \\ \sin\theta & \cos\theta \end{bmatrix} \tag{B.11}$$

$$R^{-1}(\theta) = \begin{bmatrix} \cos\theta & \sin\theta \\ -\sin\theta & \cos\theta \end{bmatrix} = R(-\theta) \tag{B.12}$$

を用いて、回転した素子の行列$T(\theta)$を

$$T(\theta) = R^{-1}(\theta)T(0)R(\theta) = R(-\theta)T(0)R(\theta) \tag{B.13}$$

と表わすことができる。

<u>HWP による直線偏光の回転</u>

HWP によりある角度の直線偏光を別の角度の直線偏光に回転させることを考える。そのような系は本実験では§2.3.1 の干渉計に使用する。

軸を角度θに設定した HWP を表す Jones 行列は

$$\begin{aligned} T_{\mathrm{HWP}}(\theta) &= R(-\theta)T_{\mathrm{HWP}}(0)R(\theta) \\ &= \begin{bmatrix} \cos 2\theta & \sin 2\theta \\ \sin 2\theta & -\cos 2\theta \end{bmatrix} \end{aligned} \tag{B.14}$$

である。これにx軸から角度ψ傾いた直線偏光

$$\boldsymbol{J_1} = \begin{bmatrix} \cos\psi \\ \sin\psi \end{bmatrix}$$

が入射されると、通過後の光は

$$\boldsymbol{J_2} = \begin{bmatrix} \cos 2\theta & \sin 2\theta \\ \sin 2\theta & -\cos 2\theta \end{bmatrix} \boldsymbol{J_1}$$

$$= \begin{bmatrix} \cos(2\theta - \psi) \\ \sin(2\theta - \psi) \end{bmatrix} \tag{B.15}$$

となる。この結果を図示すると図 B.1 のようになる。HWP は入射された直線偏光を fast 軸に対して折り返す効果を持つ。これを利用して直線偏光を回転させられる。

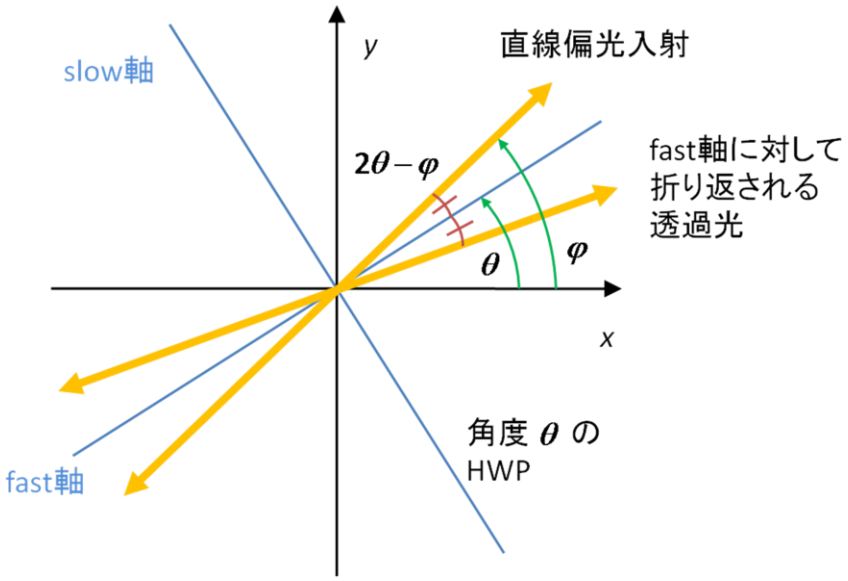

図 B.1: HWP による直線偏光の回転。

<u>QWP(45°)→反射→QWP(135°)の組み合わせ</u>

§2.3.1 にて説明する干渉計では図 B.2 のような光学素子を組み合わせた偏光操作も重要な役割を担うので、Jones 行列を用いてその効果を示しておこう。この系では縦（/横）偏光を横（/縦）偏光に変更できる。図 B.2 にて、光は QWP(45°)→反射→QWP(135°)の順番に通過していくので、それらの組み合わせを表わす Jones 行列は

$$T_{\mathrm{QWP}}\left(\frac{3\pi}{4}\right) T_{\mathrm{ref}}(0) T_{\mathrm{QWP}}\left(\frac{\pi}{4}\right) = \begin{bmatrix} 0 & -1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} \tag{B.16}$$

となる。この式の形を見れば、縦（横）偏光→横（縦）偏光の変化を表わすことは明らかである。

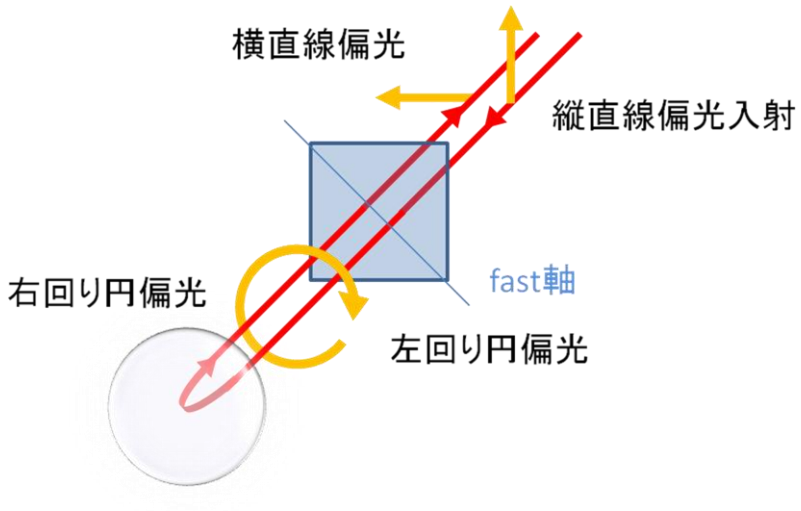

図 B.2: HWP による直線偏光の回転。

付録C　Fourier 変換

任意の時間領域の信号は、$(-\infty,\infty)$の周波数範囲の正弦波を用いて展開することができる（正弦波形の重ね合わせとして表される）。すなわち任意の時間領域（t領域）の信号を$f(t)$としたとき、

$$f(t)=\int_{-\infty}^{\infty}F(\omega)\exp(-i\omega t)\,d\omega \tag{C.1}$$

である。但し、ωを角周波数（以下では単に「周波数」という）である。このとき、展開係数$F(\omega)$は$f(t)$の周波数領域での分布である（ここでは振幅および位相の分布を意図しているが、強度分布$|F(\omega)|$に直せばそれは「スペクトル」である）。この$F(\omega)$は、数学的には$f(t)$の Fourier 変換

$$F(\omega)=\frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty}f(t)\exp(i\omega t)\,dt \tag{C.2}$$

として記述される。反対に(C.2)式は$F(\omega)$の逆 Fourier 変換である。

より現実的に$f(t)$が$[0,T_{\max}]$と有限の範囲に限定される場合、t領域の$f(t)$とω領域の$F(\omega)$の関係は複素 Fourier 級数展開で記述される。$f(t)$の周波数展開は

$$f(t)=\sum_{s=-\infty}^{\infty}F_s\exp(-is\Delta\omega t) \tag{C.3}$$

となり、展開係数は

$$F_s=\frac{1}{T_{\max}}\int_{0}^{T_{\max}}f(t)\exp(is\Delta\omega t)\,dt \tag{C.4}$$

と与えられる。F_sは上の Fourier 振幅に合わせると、$F_s=F(s\Delta\omega)$である。そもそも複素 Fourier 級数展開の「周期関数は周期$T_{\max}$の逆数の周波数を持つ基本波とその高調波のみの重ね合わせで表すことができる」という考えに基づくから、$f(t)$を周期$T_{\max}$の周期関数とみなすことでω領域の$F(\omega)$は幅$\Delta\omega=2\pi/T_{\max}$で離散化する。離散化により、データ取得の際には、信号に含まれる周波数成分を考えて、適切な時間範囲を選択せねばならないことがわかる。

さらに議論を進める。先ほどはt領域が連続かつ有限範囲で、その場合ω領域は無限の範囲$(-\infty,\infty)$を持つが離散的になる。今度はt領域も信号のサンプリング等により等幅で離散化される場合を想定する。t領域に続きω領域の範囲も$[0,\omega_{\max}]$に限定されると、t領域が$\Delta t=2\pi/\omega_{\max}$の幅で離散化される。(C.1)式と(C.2)式の対称性を考慮すれば、これはtが有限となる際のω離散化と同じだと理解できる。t領域のf_pからω領域のF_sを求める Fourier 変換は、離散 Fourier 変換（Discrete Fourier Transform、DFT）と呼ばれる。周波数展開の表式は

$$f_p=\sum_{s=0}^{N-1}F_s\exp\left(-\frac{i2\pi sp}{N}\right) \tag{C.5}$$

となり、展開係数は

$$F_s=\frac{1}{N}\sum_{p=0}^{N-1}f_p\exp\left(\frac{i2\pi sp}{N}\right) \tag{C.6}$$

と与えられる。但し、Nはt領域のデータ点の数であり、ω領域のデータ点の数でもある。Nを用いることでΔt、$\Delta\omega$、$T_{\max}$、$\omega_{\max}$の値が現れない表式となる。f_pとt領域の対応関係$f_p=f(p\Delta t)$は

データ取得時のサンプリング幅Δtからわかる。$\Delta t \Delta\omega = 2\pi/N$を用いて$\Delta t$から$\Delta\omega$を求めることで、対する$F_s$と ω領域の関係$F_s = F(s\Delta\omega)$もわかる。

以上では時間領域における波形の周波数展開のために Fourier 変換を考えたが、空間的な波形を波数に展開する場合も Fourier 変換が利用できる。1 次元空間の波形の周波数展開は、時間tと周波数ωを位置xと波数kで置き換えれば、t、ωの離散化の議論も含めてt領域の波形の周波数展開の場合と等価である。さらに、本書で登場する 2 次元の空間波形では、平面波展開を行う場合に 2 次元の Fourier 変換を利用することになる。

付録D　AOM の合わせ方

AOM は、進行する変調された連続波の超音波のブラッグ回折により、レーザーを変調するから、AOM 入射時にレーザーはレンズにより絞られる必要がある。そのための一連のセットアップは手前のレンズ（以下 L1）、AOM、後ろのレンズ（以下 L2）になる。

手前のレンズは、高周波数でも十分深い強度変調を掛けるため、焦点距離を短めにする。

機器自身とそれを取り付けるホルダーがある程度の大きさを持つため、レンズペア間の距離をなるべく大きく確保したい。そのためには、後ろのレンズの焦点距離は長めにとる（エキスパンダーの役割も果たす、たとえば 50:100）。

*まず L1 を自由に固定する。

*次に L2 を 1 軸ステージに乗せて設置する。このとき、ビーム径が遠くに行っても変わらないようにする。

*AOM を設置する（ステージは要らない。上下の動きだけ可動のポストホルダーが必要）。

*AOM の変調をオンにして、適当に手で動かし回折が起こるようにする（回折の具合はカメラでみる）。発生した幾つかの回折光がすべて平行になるように、AOM の位置を前後させることで、最もビーム径が細くなるところを探す。

*AOM の変調をオフにして、改めてビームが AOM を綺麗に通り抜けるようにする（ビームが AOM をうまく通ってないと、0 次光の光路や形状が微妙になるから。但し、そんなにしっかり合わせなくてもよい。パワーメータで見たときの強弱で合わせるのもいいが、衝立&カメラで見る方法がよい）。

*ここまでの合わせでは、AOM を入れたことにより、レンズペア間のビーム焦点は元の位置からずれて、レンズペア出射後の「遠くに行ってもビーム径が変わらない」ようなアライメントは崩れる（おそらく短い焦点距離のレンズペアを使う時ほど、レンズペアの間隔に対する焦点ずれの割合は大きいので、影響も大きい）。それは、L2 の 1 軸ステージ操作により、元に戻す。

*最後に改めて AOM の 1 次光が最大強度になるように、AOM のステージの 4 軸操作でアライメントする。

参考文献一覧

[1] Y. Sugawara, O. Wright, O. Matsuda, M. Takigahira, Y. Tanaka, S. Tamura, and V. Gusev, "Watching Ripples on Crystals," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 88, no. 18, p. 185504, Apr. 2002.

[2] O. B. Wright, Y. Sugawara, O. Matsuda, M. Takigahira, Y. Tanaka, S. Tamura, and V. E. Gusev, "Real-time imaging and dispersion of surface phonons in isotropic and anisotropic materials," *Phys. B Condens. Matter*, vol. 316–317, pp. 29–34, May 2002.

[3] Y. Sugawara, O. B. Wright, and O. Matsuda, "Direct access to the dispersion relations of multiple anisotropic surface acoustic modes by Fourier image analysis," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 83, no. 7, p. 1340, 2003.

[4] P. H. Otsuka, O. Matsuda, M. Tomoda, and O. B. Wright, "Interferometric imaging of surface acoustic waves on a glass sphere," *J. Appl. Phys.*, vol. 108, no. 12, p. 123508, 2010.

[5] D. Profunser, O. Wright, and O. Matsuda, "Imaging Ripples on Phononic Crystals Reveals Acoustic Band Structure and Bloch Harmonics," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 97, no. 5, p. 055502, Aug. 2006.

[6] D. M. Profunser, E. Muramoto, O. Matsuda, and O. B. Wright, "Dynamic visualization of surface acoustic waves on a two-dimensional phononic crystal," *Phys. Rev. B*, vol. 80, no. 1, p. 014301, Jul. 2009.

[7] S. Kaneko, M. Tomoda, and O. Matsuda, "A method for the frequency control in time-resolved two-dimensional gigahertz surface acoustic wave imaging," *AIP Adv.*, vol. 4, no. 1, p. 017124, Jan. 2014.

[8] K. Yamanaka, S. Ishikawa, N. Nakaso, N. Takeda, T. Mihara, a. Mizukami, I. Satoh, S. Akao, and Y. Tsukahara, "Ultramultiple roundtrips of surface acoustic wave on sphere realizing innovation of gas sensors," *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control*, vol. 53, no. 4, pp. 793–801, Apr. 2006.

[9] C. Rocke, S. Zimmermann, a. Wixforth, J. Kotthaus, G. Böhm, and G. Weimann, "Acoustically Driven Storage of Light in a Quantum Well," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 78, no. 21, pp. 4099–4102, May 1997.

[10] 山崎巖, 光化学のためのレーザー分光・非線形分光法. 講談社, 2013.

[11] C. Thomsen, "Coherent Phonon generation and Detection by Picosecond Light Pulses," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 53, no. 10, pp. 3–6, 1984.

[12] C. Thomsen, “Surface generation and detection of phonons by picosecond light pulses,” *Phys. Rev. B*, vol. 34, no. 6, 1986.

[13] T. Tachizaki, T. Muroya, O. Matsuda, Y. Sugawara, D. H. Hurley, and O. B. Wright, “Scanning ultrafast Sagnac interferometry for imaging two-dimensional surface wave propagation,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 77, no. 4, p. 043713, 2006.

[14] D. H. Hurley and O. B. Wright, “Detection of ultrafast phenomena by use of a modified Sagnac interferometer,” *Opt. Lett.*, vol. 24, no. 18, p. 1305, Sep. 1999.

[15] S. D. Sharples, M. Clark, and M. Somekh, “Surface acoustic wavefront sensor using custom optics.,” *Ultrasonics*, vol. 42, no. 1–9, pp. 647–51, Apr. 2004.

[16] T. Saito, O. Matsuda, M. Tomoda, and O. B. Wright, “Imaging gigahertz surface acoustic waves through the photoelastic effect,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 27, no. 12, p. 2632, Nov. 2010.

[17] T. Fujikura, O. Matsuda, D. M. Profunser, O. B. Wright, J. Masson, and S. Ballandras, “Real-time imaging of acoustic waves on a bulk acoustic resonator,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 93, no. 26, p. 261101, 2008.

[18] H. J. Zeiger, “Theory for displacive excitation of coherent phonons,” vol. 45, no. 2, 1992.

[19] 日本分光学会, *分光測定入門シリーズ 2 光学実験の基礎と改良のヒント*. 講談社サイエンティフィク, 2009.

[20] B. E. A. Saleh and M. C. Teich, “Fundamentals of Photonics.”

[21] E. Hecht, 善治尾崎, and 利光朝倉, *ヘクト光学 II 波動光学*. .

[22] 超音波便覧編集委員会, 超音波便覧. 丸善, 1999.

[23] 日本分光学会, *分光測定入門シリーズ 4 分光測定のためのレーザー入門*. 講談社サイエンティフィク, 2009.

謝辞

本論文は量子機能研究室の関係者の皆様の協力の下で作成されました。

まず指導教官である松田理准教授に感謝の意を示したいと思います。松田准教授は担当教官として私にとって非常に有意義な議論を沢山してくださり、また助言もくださいました。そして、研究の方向性の適切な舵取りをしてくださいました。同氏は本研究にて私の力の及ばない電子回路作製を担当してくださいました。おかげで精度の高い測定が実現できました。

直接の指導教官でないお二人にも、同様に大変お世話になりました。

友田基信助教は測定系構築や解析に関する助言を幾度も下さいました。また、必要不可欠な測定機器の制御プログラムを作製していただきました。

Wright Oliver B.教授には、非常に研究のしやすい環境を提供して頂いたことにまず感謝を申し上げたいです。伸び伸びとした環境で研究でき、じっくり研究の事を考えられました。加えて Wright 教授は私の実験が思うように進まないときや研究の発表のときなど重要な場面で必ず助言をくださいました。

学生生活を支えて下さった研究室のメンバーにも感謝しております。

また、３名の教官がたには本論文の校正も担当してくれました。

学生生活を支えて下さった研究室の先輩、同期、OB・OG の方々、秘書の木村さん、高橋さんには、とても楽しい時間を過ごせたことに深く感謝します。