

レーザー光照射されて生成するシリコンクラスター

—ナノ秒の原子過程—

研究者氏名 岡野晃子

要旨

カーボンフラレンや Si, Ge などの半導体クラスターは、バルクとは異なる構造や物性を有するサブナノサイズの新物質として興味を持たれている。これらをレーザーアブレーションやアーク放電で生成させたとき、粒子の放出が短時間に大量に起こる。その結果、原子・粒子群の高密度時空間域が生じる。本研究では、ナノ秒レーザー照射により放出されるシリコン粒子と放出粒子間相互作用を調べ、クラスター生成に関与する時間空間領域の原子過程を調べた。

真空中で結晶シリコンに 1.2eV のレーザー光を照射すると、100 個程度までの原子からなる中性クラスター Si_n の放出が起こることがわかった (図 1)。クラスターの速度分布を調べた結果、放出速度はサイズによらずほぼ同じであることがわかった (図 2)。放出後の原子同士の衝突は各原子あたり 1 回以下と見積もられることから、クラスターは表面から直接放出していると考えられる。熱的蒸発では重い粒子ほど速度が遅くなること、また $n>1$ のクラスターで 1eV 以上の高い並進エネルギーを伴うことから、クラスター放出には電子励起過程が関与していると考えられる。

レーザー照射により放出した粒子に対し Si 原子に共鳴するレーザー光を入射したところ、レーザー励起による $4s(^6P_2)$ 準位からの発光線の他に、 $4s(^1P_1)$ 準位からの蛍光を観測した (図 3)。両準位からの蛍光強度の時間・空間変化を同時に調べた結果、同じ速度で運動する高密度の原子・粒子群の中で、 $4s(^6P_2)$ 準位の原子が他の原子と衝突して $4s(^1P_1)$ 準位へ再励起されるという過程が生じていることがわかった (図 4)。

参考文献

- [1] Okano, A.; Takayanagi, K. Neutral silicon clusters produced by laser ablation in vacuum. *Appl. Surf. Sci.* 127-129, 1998, 362-367.
- [2] Okano, A.; Takayanagi, K. Laser-induced fluorescence from collisionally excited Si atoms in laser ablation plume. *J. Appl. Phys.* in press.

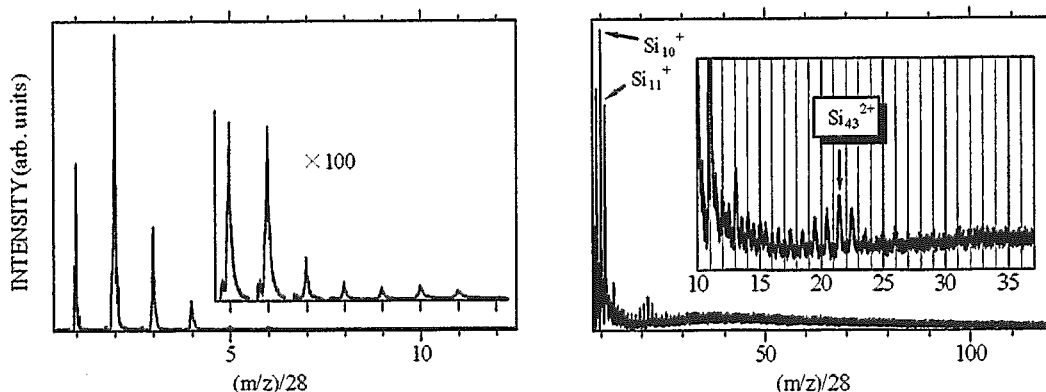


図 1 放出した中性クラスター Si_n を ArF レーザー光 (6.4eV) でイオン化し、飛行時間型質量分析器で検出して得た質量スペクトル。横軸は ^{28}Si 原子の質量で規格化しており、1 個にイオン化された場合にはクラスターサイズに相当する。左図は 1 個にイオン化されて検出された $n=1-11$ のクラスターの質量スペクトルである。イオン化効率はサイズによって異なると考えられるため、収量は放出量と必ずしも一致しない。右図は $n>11$ のサイズ領域の質量スペクトルで、 $n=40$ 付近をピークとする $n=100$ 程度までのブロードなクラスターの分布が見られる。また $(m/z)/28=12-25$ の範囲の半整数位置に 2 個にイオン化されたクラスターの信号が観測される。

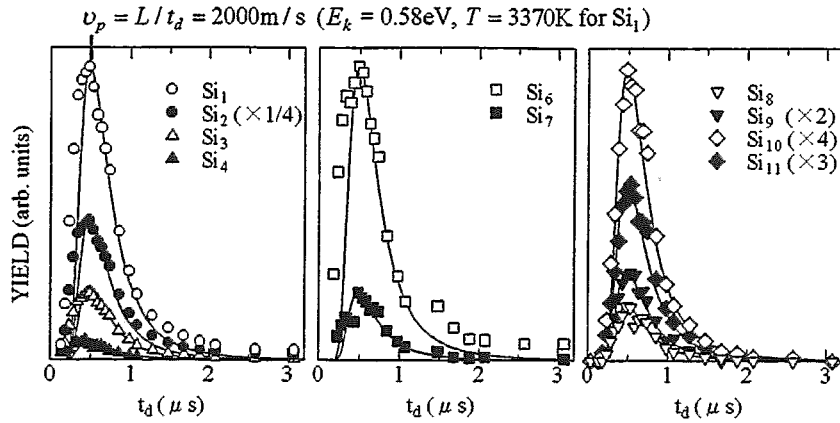


図2 シリコンクラスターの速度分布. アブレーションレーザーフルエンス 0.3 J/cm^2 において, アブレーションレーザーに対するイオン化レーザーのディレイ t_d を変えてクラスター収量 $Y(t_d)$ をサイズ選別して測定した. いずれのクラスターも実線で示す Maxwell-Boltzmann 分布 $Y(t_d) \propto t_d^{-4} \exp(-2(L/t_d)^2/v_p^2)$ を持つ. ここで L はシリコン表面とイオン化レーザーとの距離, v_p は最確速度である. 最確速度は, $Y(t_d)$ が最大になる t_d の値とイオン化距離 $L=0.97 \text{ mm}$ から得られる速度に相当し, いずれのクラスターも 2000 m/s であった. このとき各クラスターの並進運動エネルギーは, 構成原子1個あたり 0.58 eV ずつサイズと共に増加する.

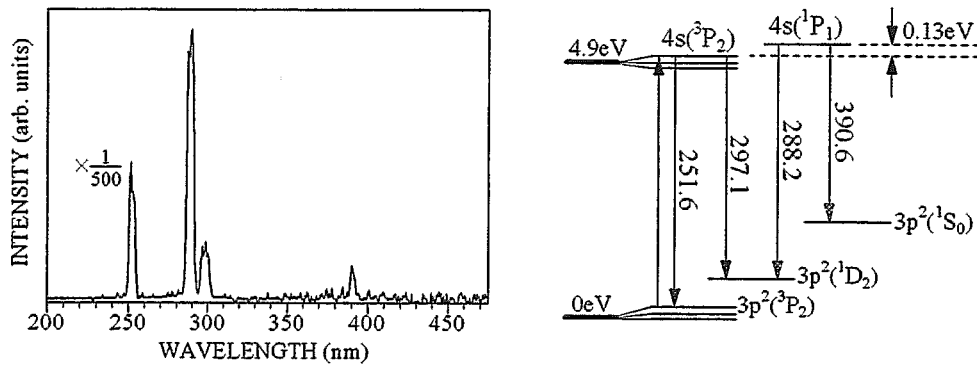


図3 レーザー照射により放出するシリコン粒子群に, Si 原子の共鳴波長である 251.6 nm のレーザー光を入射したときに得られた発光スペクトル (左) と Si 原子のエネルギーダイアグラム (右). レーザー励起された $4s(^3P_2)$ 準位からの発光 (251 nm , 297 nm) の他に, $4s(^3P_2)$ 準位より 0.13 eV 高い $4s(^1P_1)$ 準位からの蛍光 (288 nm , 391 nm) が観測された.

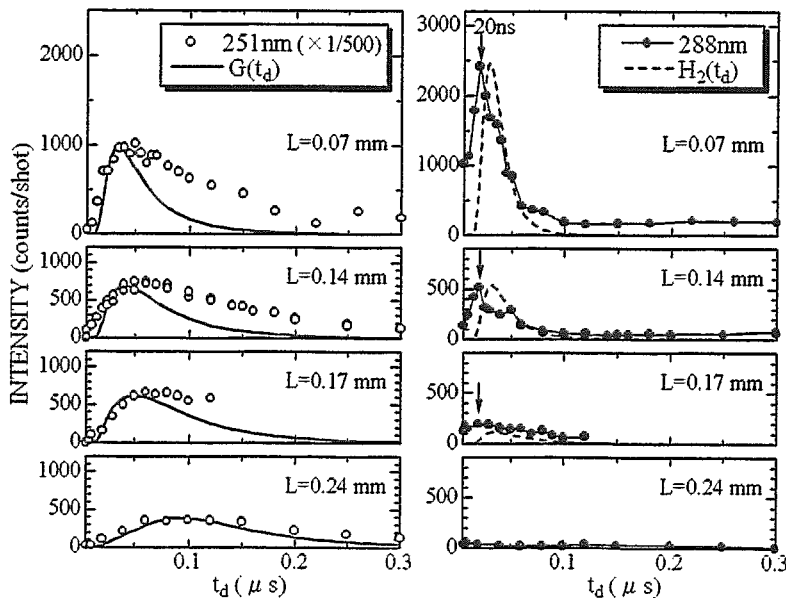


図4 251 nm と 288 nm の蛍光強度のプローブディレイ (t_d) 依存性. 表面とプローブレーザーの距離 L が大きくなるにつれて 251 nm のピークは遅い t_d へシフトするが, 288 nm のピークは 20 ns のまま変化しない. この蛍光強度のふるまいを説明するため, $4s(^3P_2)$ 準位の原子が他の放出原子と衝突することにより $4s(^1P_1)$ 準位へ励起され 288 nm の蛍光が生じるというモデルを提案し, それぞれの蛍光強度の t_d 依存性 $G(t_d)$ (実線) および $H_2(t_d)$ (破線) を計算した. 計算結果は 251 nm と 288 nm の蛍光強度のふるまいをほぼ再現している.