

3D13 ガス雰囲気下でのシリコンのレーザーアブレーション

発光スペクトルの導入ガス依存性

(原研¹・京大エネルギー理工研²) 佐伯盛久¹, 平田紘一², 作花哲夫², 大場弘則¹, 横山 淳¹

【序】近年、ガス雰囲気下において固体試料のレーザーアブレーションを行うことにより、窒素のような通常では反応不活性なガスと固体試料を反応させ、様々な機能性材料を製作する手法が注目を集めている。この手法では、レーザーアブレーションにより生成する固体試料のプラズマが非常に高温でイオンや電子が多く存在する環境になっており、原子・イオン・電子衝突を通じて試料ガスを活性化することにより反応を起こしていると考えられる。よって、レーザーアブレーションによりガス雰囲気下での材料製作を行うためには、プラズマからガスへのエネルギー移動過程に関する知見を得ることが必要である。本研究では圧力を変化させたネオン雰囲気下でシリコンをアブレーションし、生成したシリコン原子およびシリコンイオンの発光を観測すると同時に、励起したネオンからの発光を観測することにより、プラズマからガスへのエネルギー移動のメカニズムを調べたのでここに報告する。

【実験方法】本研究のために製作した実験装置を図1に示す。まず、何回かネオンガスでフラッシングして洗浄した後に、バラトロンで圧力を確認しながら試料槽にネオンガスを充たす。そこに、YAGレーザー基本波（1064nm）をf=150mmのレンズにより集光して2mm厚のシリコン板に照射し（レーザーパワーは $\sim 10\text{J}/\text{cm}^2$ ）、試料を蒸発させる。そして、アブレーションにより発生する発光を真横に設置した2枚のf=30mmの平凸レンズにより集め、ファイバーカップリングした分光器に導き、光電子倍

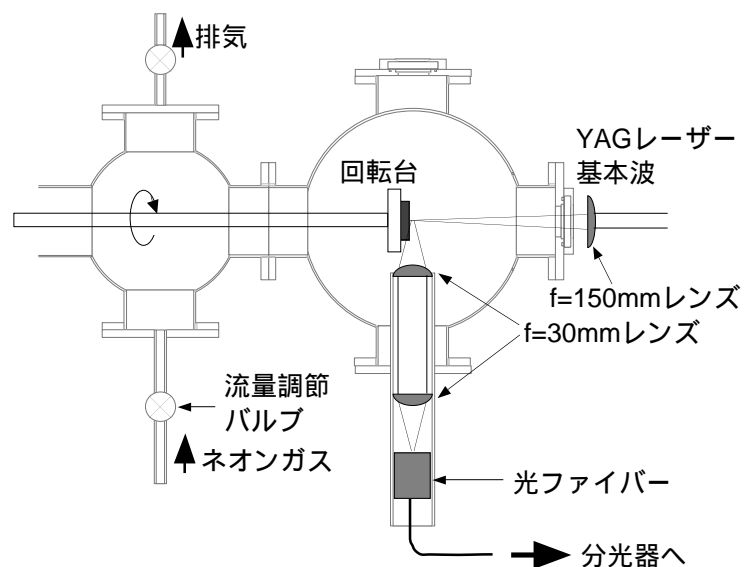


図1 実験装置図

増管（浜松ホトニクス社製R374）により検出した。検出した信号は50Ωインピーダンスで接続したオシロスコープに取り込み、コンピューターにより処理した。また、ボックスカーを用いてレーザー照射後一定時間後にゲート（幅50ns）をかけ、波長スキャンを行うことにより、時間分解した発光スペクトルを測定した。

【結果と考察】図2aに76Torrのネオンガス雰囲気下において、レーザー照射後200nsおよび400nsに観測した230–750nmにおける発光スペクトルを示す。200ns後では全波長領域に広がる連続発光（イオンと電子の再結合過程に由来）の上に複数のシャープなバンドが重なって観測されるのに対し、400ns後では連続放射のバンドはほぼ消滅し、シャープなバンドのみが観測された。これらのシャープなバンドは580nm付近を境にして、それよりも短波長側はシリコン原子・イオンまたはそのクラスターの電子遷移に、また長波長側はネオンの電子遷移に帰属される。なお、ネオンガスの圧力を変化させて同様のスペクトルを測定したが、発光強度は変化するものの、パターンに大きな差異は見られなかった。ここで観測したネオンの電子遷移を図2bにまとめた。この図より、ネオンは18.97eVに位置する非常に高いエネルギー状態まで励起されていることがわかる。

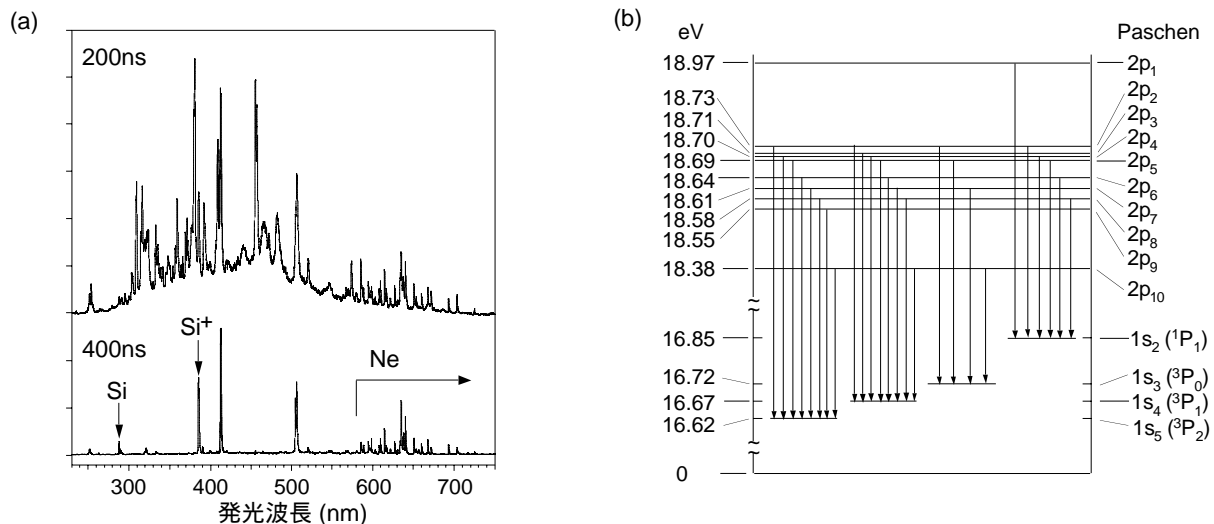


図2 (a)76Torrネオンガス存在下で観測した発光スペクトル (b)観測したネオン発光の電子準位

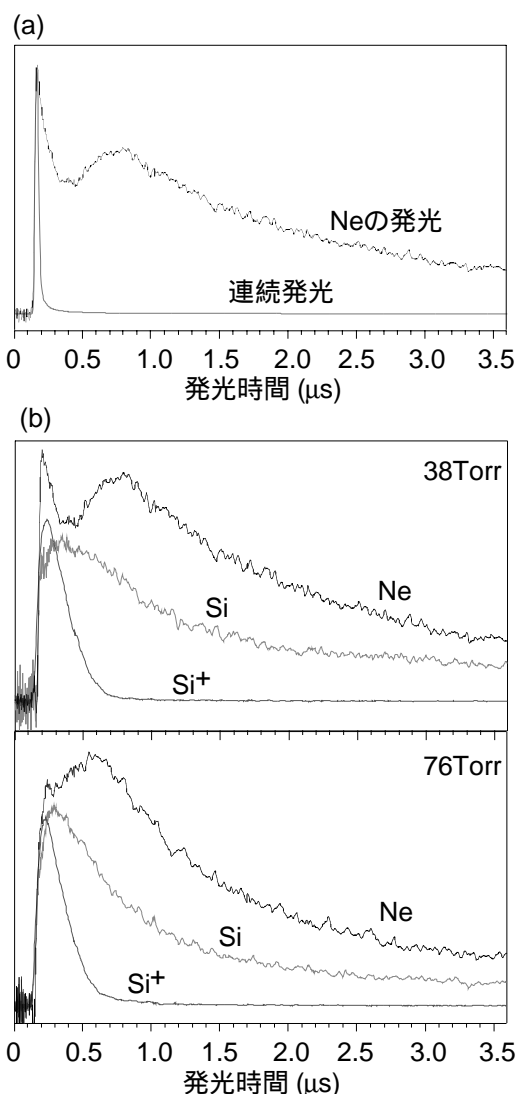


図3 (a)ガス圧38Torrで観測したネオンの発光強度変化
(b)連続発光成分を除去した後のネオンおよびシリコン中性原子・イオンの発光強度変化

次に、ネオンの励起過程に関する情報を得るために、580–750nmに観測されたネオンの発光バンドのうち614.31nm ($^3P_2-2p_6$)の強い電子遷移に着目し、その発光強度の経時変化を調べた(図3a)。この図では連続発光の成分が重なっているため、ネオンの強度変化を知るためにはその成分を取り除く必要がある。そこで、~610nmにおいて連続発光のみの強度変化を測定し、強度変化をよく再現するような関数を数値的に計算し、その関数により連続発光の成分(灰色線で示す)を図3aのデータより差し引いた。このようにして得られたネオンの強度変化を、同様の処理をしたシリコン中性原子(288.16nm)およびシリコン1価イオン(386.26nm)とともに図3bに示す。ガス圧38Torrの結果から明らかのように、ネオンの発光は立ち上がりの速い短寿命成分と遅れて立ち上がる長寿命成分に区別することができる。そして、ガス圧を76Torrに上げると長寿命成分の立ち上がりが速くなり、短寿命成分と重なるようになる。ネオンの $2p_6$ 状態の自然寿命は19.7nsと測定されており[Physical Review **149**, 38 (1966)]、ネオンの2つの成分の寿命はそれよりも長い。よって、図3bにおけるネオンの挙動は電子やシリコン中性原子・イオンとの衝突過程により決まっている。シリコン中性原子およびシリコン1価イオンの寿命との比較より、速い成分はシリコン1価イオンとの衝突に、遅い成分はシリコン中性原子との衝突に起因すると考えられる。ネオン励起の詳細なメカニズムについては、現在検討中である。