

非線形振動分光法を用いた固体表面ナノアモルファス層の観測

Observation of nano-amorphous layers on solid surfaces by nonlinear vibrational spectroscopy

総研大¹, 分子研², 理研播磨³ ○(M2)吉澤 龍^{1,2}, 櫻井 敦教^{1,2,3}, 杉本 敏樹^{1,2,3}

SOKENDAI¹, IMS², RIKEN HARIMA³

°Ryu Yoshizawa^{1,2}, Atsunori Sakurai^{1,2,3}, Toshiki Sugimoto^{1,2,3}

E-mail: yoshizawa-r@ims.ac.jp

【序論】ナノメートルオーダーのアモルファス層は、半導体デバイスにおけるゲート絶縁酸化膜や表面活性化接合におけるナノ密着層などに応用されており、様々な機能的デバイスの開発において非常に重要な役割を担っている。特に代表的なアモルファス物質であるアモルファス SiO₂ は、不規則に配置された SiO₄ 四面体の Si 原子を頂点として構成する員環構造を持つ (図 1)。形成条件・過程によって員環構造の幅広い分布 (3-8 員環) も変化することが知られており、それに伴ってアモルファス SiO₂ の物性も様々に変化する[1]。一方で、長距離構造秩序を持たないナノメートルオーダーのアモルファス層[2]の測定は一般的に困難であり、その微視的構造や状態と種々の物性との関連性を実験的に明らかにすることは難しい。

【実験手法】本研究では、周波数領域分光法と時間領域分光法をハイブリッド化させることにより、表面に存在する振動モードの選択的なプローブが可能なコヒーレントアンチストークスラマン分光法 (CARS) を新規に開発した (図 2)。光源は、高出力・高繰り返し Yb レーザー (CARBIDE ; 1030 nm, 280 fs, 60 W, 100 kHz) を 3 つの光に分岐させ、 ω_1 (1030 nm, 280 fs)、 ω_2 (1100-1200 nm, 280 fs)、 ω_3 (515 nm, 3 ps) の光を準備した。これら 3 パルス光を照射し、Si およびクォーツ基板表面に形成させたナノアモルファス層に由来する微弱信号の高感度検出を試みた。

【結果】Si 基板を 1000 °C で 48 時間、熱酸化処理して形成させたアモルファス SiO₂ 層 (厚さ 500 nm) の測定を行い、300-500 cm⁻¹ にブロードなピークと 495 cm⁻¹ に鋭いピーク形状が観測された。また、 ω_3 パルスの遅延時間を操作することにより、各員環構造の振動モードの位相緩和時間の差を利用して、ブロードなピークが複数のピークからなる様子を観測することに成功した。これにより、バルクの合成石英とは異なるナノアモルファス層特有の員環構造分布を捉えた。また、真空中における原子ビーム照射によってクォーツ表面に形成させた厚さ約 10 nm のアモルファス層の観測にも成功した。

以上のように、本研究では独自の非線形振動分光手法を用いて固体表面のナノアモルファス層の観測に成功してきており、当日はより詳細な結果について報告する。

[1] K. Awazu et. al., *J. Appl. Phys.* **94**, 6243–6262 (2003). [2] T. Sugimoto et. al., *Phys. Rev. B* **99**, 121402(R) (2019).

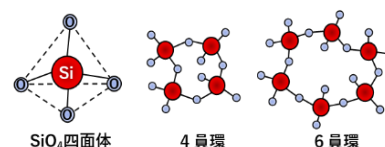


図 1 アモルファス SiO₂ の員環構造の例。

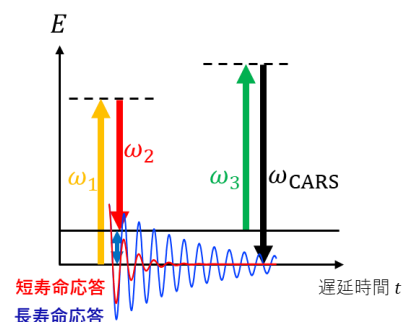


図 2 時間遅延法を用いた CARS スキーム。