18p-A26-5

$^{18}O_2$ 含浸したアモルファス SiO_2 における真空紫外光誘起格子間酸素原子の拡散と反応

Diffusion and reactions of vacuum-ultraviolet-induced interstitial oxygen atoms in amorphous SiO_2 impregnated with ^{18}O-labeled interstitial oxygen molecules

首都大[1]、Latvia 大[2]、東工大[3]　○梶原 浩一[1]、Linards Skuja[2]、細野 秀雄[3]

TMU[1], Univ. Latvia[2], TITech[3]　○Koichi Kajihara[1], Linards Skuja[2], Hideo Hosono[3]

E-mail: kkaji@tmu.ac.jp

緒言　アモルファス SiO_2(a-SiO_2) 中での主要な過剰酸素種である格子間 O_2 を真空紫外光によって光解離させると酸素原子 (格子間 O^0) が生じる。格子間 O^0 は格子間 O_2 よりも a-SiO_2 中を拡散しやすく、シリコンの低温酸化などに利用できること、容易にパーオキシ (Si–O–O–Si) 結合 (POL) となり a-SiO_2 網目の組み替えを促すことなどが指摘されているが、詳しい知見は少ない。今回、^{18}O 標識した格子間 O_2 の濃度・同位体組成測定法を用いて、格子間 O_2 の F_2 レーザー (λ = 157 nm、$h\nu$ = 7.9 eV) 照射によって生成した格子間 O^0 の拡散と反応を調べた結果 [1] を報告する。

実験　^{18}O 標識した格子間 O_2 を ~4×10^{17} cm^{-3} 含浸した a-SiO_2(合成シリカガラス) に 77K で F_2 レーザー光 (~10 mJ cm^{-2}pulse^{-1}) を F J cm^{-2} 照射した後、室温まで昇温させた。格子間 O_2 の濃度は一重項酸素の赤外発光 ($a^1\Delta_g(v=0) \rightarrow X^3\Sigma_g^-(v=0)$) の強度から、$^{18}O$ 分率 f^* は O–O 伸縮振動と結合したサイドバンド $a^1\Delta_g(v=0) \rightarrow X^3\Sigma_g^-(v=1)$ の形状から評価した。格子間オゾン (O_3) の濃度は光吸収法によって求めた。

結果と考察

F_2 レーザー照射によって格子間 O_2 が分解し、格子間 O_3 が生成した。$F \simeq 0.3$ J cm^{-2} のとき、消滅した格子間 O_2 の ~80% が量子効率 ≳0.06 で格子間 O_3 に変換さた。Fig.1 に F_2 レーザー照射後の熱処理による格子間 O_2 濃度と f^* の変化を示す。$F \lesssim 1.5$ J cm^{-2} の試料は格子間 O_3 を含んでおり、これらの熱分解が 200°C 以下での格子間 O_2 濃度の回復を支配した。一方、200°C 以上および格子間 O_3 が光分解された $F \simeq 9.0$ J cm^{-2} の試料での格子間 O_2 濃度の回復は格子間 O^0 の再結合に由来した。格子間 O_3 の熱分解時に f^* はほとんど低下しないことから、格子間 O_2 と O_3 の ^{18}O 分率はほぼ等しいこと、すなわち格子間 O_3 の生成時には格子間 O^0 は a-SiO_2 網目と交換せずに拡散することが示唆される。一方で、$F \lesssim 1.5$ J cm^{-2} の試料での f^* は、単純な格子-格子間 O_2 酸素交換より ≳300°C も低い ~400–500°C で急激に低下した。これらの結果は、この温度域では格子間 O^0 は POL として格子間 O_2 との酸素交換を伴いながら熱拡散すること、POL の拡散距離と寿命は濃度が低下するほど延びること、を考慮すれば説明できる。以上の結果は、格子間 O^0 の拡散に、単純な格子間拡散と POL としての拡散の 2 通りの機構があることを示唆する。

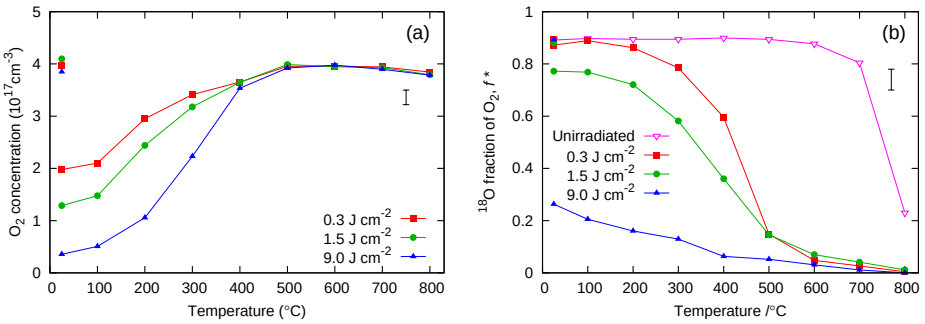


Fig. 1: Variations in the concentration of interstitial O_2 (a) and in their ^{18}O fraction (b) in samples irradiated with F_2 laser at 77K, which was followed by heat treatment for 10 min at each temperature. In each panel, points at the top left represent the data before F_2 laser irradiation. The ^{18}O fraction in the unirradiated sample is also shown in panel (b).

[1] K. Kajihara, L. Skuja, and H. Hosono, J. Phys. Chem. C **118**, 4282 (2014).

© 2014 年　応用物理学会