

コヒーレント超音波を用いる新しいマイクロスコピーの開発と *in-situ* 材料評価法の研究

Development of a new microscopic technique using laser-induced coherent hypersonics

代表研究者 東京大学工学部教授 澤田嗣郎
Prof., Faculty of Engineering, The Univ. of Tokyo
Tsuguo SAWADA

協同研究者 東京大学工学部教授 小宮山 宏
Prof., Faculty of Engineering, The Univ. of Tokyo
Hiroshi KOMIYAMA

名古屋大学工学部助教授 寺前紀夫
Assoc. Prof., School of Engineering, Nagoya Univ.
Norio TERAMAE

東京大学工学部助教授 北森武彦
Assoc. Prof., Faculty of Engineering, The Univ. of Tokyo
Takehiko KITAMORI

東京大学工学部助手 原田 明
Res. Assoc., Faculty of Engineering, The Univ. of Tokyo
Akira HARATA

Surfaces and subsurfaces of materials processed by means of photoexcitation, plasma, ion implantation, or chemical and physical vapor deposition sometimes show higher-order structures such as gradient or multilayered structures. Since these processes are becoming important in the synthesis of functional materials, it is extensively required to evaluate such materials during their manufacturing processes. The evaluation places some technical requirements on the measurement method to be applied, *i.e.*, the method should be noncontact, nondestructive, *in-situ* and in-process. To fulfill these requirements, we have developed a novel method named laser-stimulated scattering microscope (LSSM) for evaluation of surface modification of materials. It is a kind of laser-scanning microscopes and based upon space- and time-resolved measurements of transient reflecting gratings consisted of thermal and electronical spatial modulations and laser-induced coherent hypersonics. Our findings are,

- 1) LSSM can be used for microscopic monitoring of implanted ion distribution in semiconductors and other materials even if the implantation dose is as small as 10^{10} atoms/cm² for Ar ions or 10^{15} atoms/cm² for He ions.
- 2) LSSM has technical advantages of surface selectivity and applicability to various opaque materials: *i.e.*, metal, semiconductor, metallic multilayers, liquid/solid and gas/liquid interfaces.
- 3) LSSM offers information on the three-dimensional spatial distribution of characteristic material constants such as absorptivity, diffusivity, elasticity, expansivity and radiationless relaxation rate.

研究目的

新機能性材料の開発には超格子のような人工的量子構造の製作から、CVD、イオン注入などのさまざまな手法が用いられるようになってきた。これらは、基本となる素材に対して人工的に電子、格子構造などの、表面構造を改質して利用するものである。例えばイオン注入技術は、半導体を初め、金属、絶縁体などの材料に対して応用されている。キャリア濃度などの電気特性のみでなく、耐食性、摩擦特性などの材料特性を高精度に制御することにより、従来にない優れた機能を持つ材料が合成されている。このような種々の素材に対する表面改質技術の進展に伴い、改質を受けた材料の新しい評価法が求められている。それは、表面の物性変化に対して敏感であり、測定上の制限が少なく、改質工程を *in-situ* に計測できる技術であることが望まれる。また耐食性などの化学的特性や耐摩耗性などの機械的な特性の迅速な評価法の開発も急務である。そこで本研究では、ピコ秒レーザ光の照射により生ずる GHz 領域の超高周波コヒーレント超音波からの誘導光散乱現象を利用した新規な計測手法を開発し、材料開発におけるプロセス診断に応用することを目的とした。具体的に以下を目標とした。

- (1) レーザー光の照射により生ずる GHz 周波数帯のコヒーレント表面波と誘導光散乱を利用して、材料表面の変化に高感度でありかつ高空間分解能をもつ非接触的な *in-situ* 計測法を開発する。
- (2) 従来の表面分析法では検出困難とされる 10^{10} atoms/cm² 程度のイオン打ち込みがもたらす物性変化（屈折率、弾性率、熱伝導率など）をも高感度かつ迅速に評価する手法を開発する。同時に不均一な欠陥分布を実時間観測しうる新しいマイクロスコープを開発する。

[後に、我々はこの測定法を過渡反射格子法、それを利用して行う顕微測定をレーザー誘導散乱顕微鏡（または、さざなみ顕微鏡）と命名した。]

本研究の独創性は、従来の静的な光散乱法ではなくピコ秒レーザ光を用いて動的光散乱現象を計

測に応用しようという点である。特に、(1) ピコ秒レーザを用いると材料表面に任意波長のコヒーレントな超音波を発生することが可能であるが、測定対象とする媒質に対して遠隔的計測できる点で、振動子を用いる従来の方法では考えられない新しい超音波計測法となりえる。(2) 他の方法では得られにくい局所的超音波物性の *in-situ* 測定が可能となる。(3) 超音波表面波はその波長 (数 μm 以下) 程度の領域に局在するので、非破壊的に表面下の欠陥分布などを知る手法となり得る。(4) 無放射緩和過程と強く相互作用するために、発光測定では計測できない非発光性の欠陥に対して、特に高感度に空間分布の計測が行える。(5) 以上述べた特徴を有するために直接フォノンを励起、検出する全く新しいタイプの超音波マイクロスペクトロスコープが開発できる可能性が期待された。

光励起超音波や動的光散乱を計測へ応用する試みは、近年の短パルスレーザーの性能向上を背景として、特に海外において幾つかのグループにより研究が進められるようになっている。半導体材料の評価においては、材料が赤外光に対して透明なこともあり物性研究の面からの動的光散乱計測結果が近年いくつか報告されていた。しかし、短パルスレーザー光の照射により発生するコヒーレントな超音波を光学的に不透明な材料評価や表面反応過程の追跡に応用した例は、国内外を問わず全く無いといってよかったです。本研究における音波物性と光物性を組み合わせた計測法は、新しい *in-situ* 評価法、表面反応計測法として、先駆的な試みであった。特に直接フォノンを励起、検出することを主眼とした超音波マイクロスペクトロスコープの開発は、本研究が初めてであった。

研究過程

本研究を開始する以前（平成 2 年度まで）に申請者らは、モードロック Q スイッチ Nd: YAG レーザー第二高調波を用いて超音波による動的な光散乱を計測する装置系を試作し、すでに金属や半導体の表面に GHz 周波数帯の表面波を励起して、それを光の反射回折を利用して検出できることを実証していた。そして、試料走査により 2 次

元的な欠陥分布を計測するための予備的検討を試行しつつあった。

これを踏まえて本研究は平成3年度を初年度とする2年計画で行われた。具体的な年度計画と目標を以下のとおりに設定した。

《第1年度：(1) 装置の試作、(2) 基礎実験、
(3) 理論解析》

- (1-1) 実時間空間分布測定の実現（目標：3.5イオンチャウバーを10秒以内に観察）。
- (1-2) 信号検出感度・精度の向上（目標：イオンドーズ量 10^{10} atoms/cm² 以下）。
- (1-3) 偏光面や波長の制御（目的：計測される物性情報の帰属の明瞭化）。
- (2-1) 金属薄膜、イオンを打ち込んだシリコン単結晶などの評価。
- (2-2) 偏光面、波長等をパラメータとした誘導散乱現象の解明。
- (2-3) 不均一な窒化薄膜を試料としての残留応力計測の可能性の検討。
- (3) レーザー誘起超音波発生、誘導光散乱機構の理論的検討。

《第2年度：(1) 装置改良と応用実験、
(2) 理論解析、(3)まとめ》

- (1-1) 試料温度制御の実現と欠陥拡散およびフォノン量子効果についての検討。
- (1-2) 信号周波数解析の実現と非平衡分子振動の立場からの誘導散乱現象の解析。
- (1-3) 深さ方向の情報（目標：~5 μm 以内を分解能 50 nm 程度）の非破壊的な抽出。
- (1-4) 熱アニール工程の *in-situ* 計測。時間的な欠陥分布挙動の解析。
- (2) 表面反応が過渡波形に及ぼす影響の理論的解析。
- (3) 「本法で何をどこまで評価できるのか」を明瞭にする。

以下研究経過を概要する。

《第1年度》 この年度に主要な目的としたところは、(1) 装置開発、(2) 基礎実験、(3) 基礎的な理論解析である。

- (1) 装置は主に以下の点を改良した。
() 内は、研究開始時点から比較した時の性

能向上の度合。

- 試料高速走査機構の導入など
→ 測定時間の短縮（約 1/60）
- ロックインアップなどの導入
→ 感度・精度の向上（約 2 枠）
- 光学遮延路の改良など
→ 観測時間幅の拡大（2 倍強）
- 偏光子、波長板などの導入
→ 測定条件の明確化
- 光学系の改良など
→ 実験準備時間の短縮（約 1/4）
- ソフトウェアの開発など
→ 測定条件の最適化、データ処理

これらにより、本研究の実験装置の中核を成す光学系・試料走査部・データ処理部などはほぼ完成し【試料の温度制御、信号周波数の解析に関する部分を除く】、以下の基礎実験を系統的に行うことが可能となった。

なお、測定感度・精度に関しての目標は達成した。また、測定時間は1画像につき1分強にまで短縮された（当初の目標ではさらに1/10程度短縮）。この段階すでに以降の実験計画に全く支障が無い範囲にあると判断し、さらなる改善については計画立案にとどめて実行を保留した。

- (2) いくつかの基礎的実験を系統的に行い、超音波音速や過渡波形の形状と計測される物性値との対応関係を明らかにした。同時に、特定の情報（光吸収量、熱伝導度、ある深さ位置での欠陥密度などに関連する量）のみを選択的に画像化するために、いくつかの手法を新たに開発した。主に検討した項目を以下に列挙する。

- I. 単結晶基板上の表面波励起。
 - a) 面・方位依存性の検討。b) レーザ光の強度、偏光面依存性の検討。
- II. 薄膜/単結晶基板系、液体/単結晶基板系の表面波励起。
 - a) 膜厚、膜物質依存性の検討。b) 試料雰囲気（試料電位など）依存性の検討。
- III. イオン打ち込み半導体の評価。
 - a) 打ち込み量依存性の検討（表面波音速、信号の立ち上がり時間、減衰時間、信号強

度など)。b) 画像測定結果の実験条件依存性の検討。

(3) 理論解析を行い、実験結果と比較検討した。主に次の観点から検討した。

I. 热弹性論に基づいた過渡応答波形の完全な説明(単結晶基板)。

II. 多層構造試料表面での超音波伝播と過渡波形挙動の解明。

III. 超音波波形の試料雰囲気依存性の解明。

以上、先に述べた測定時間の短縮に関する点の外は、第1年度の計画はほぼ達成された。そのほかに、当初の予定を越えた新たな発見があった(後述)。これを踏まえて、次年度の研究計画に手を加えたが、基本的に大きな変更は無く、基本的に計画どおりに遂行した。

《第2年度》 この年度に主要な目的としたところは、(1) 装置改良と応用実験、(2) 理論解析、(3)まとめである。

(1-1) 装置は主に以下の点を改良した。

- 試料温度制御機構の導入
→ 80K～500K の測定可
- 高速デジタイザなどの導入
→ 感度・精度の向上、測定時間の短縮、パルスごとの信号処理
- 光学系の改良など
→ 実験準備時間の短縮、バックグラウンド抑制
- ソフトウェアの開発など
→ 新しいデータ処理法の開発

これらにより新たにいくつかのことが可能となった。特にパルスごとの信号処理により雑音源を探査することが可能となり、雑音の低減、測定時間の短縮、および本測定の最大の問題であるバックグラウンド散乱光の抑制などを実現するめどがついた。(なお、時間の制限から一部を除いてこれらの成果を装置に反映させるには至っていない)。新しいデータ処理を開発することで、測定結果から物性値と直接関係づけることができる定量的な数値を導出することを可能とした。これは、材料評価法として応用するにあたり重要な点である。試料温度制御に関しては、装置の基本動作を

確認するに留まり、十分な検討が進まなかった。

(1-2) 応用実験として検討した項目のうち、主なものを以下に列挙する。以下に述べるものうちのいくつか(特に、V、VI)は、当初の予定を越えて新たに見いだした現象を解析するための実験である。

I. 金属多層膜/石英基板の表面波励起。

a) 波長依存性の検討。b) 実験配置依存性の検討。c) 誘導散乱光のパルス毎の励起光強度依存の検討。d) 表面下にあるナノメータ厚の中間層の物性値の導出と量子効果の検討。

II. イオン打ち込み半導体の評価。

a) GHz 超音波スペクトル測定と深さ方向分析。b) 物性値の空間分布測定。c) 結晶異方性とイオン打ち込みによる異方性変化の評価。d) 光励起キャリアと熱効果の分離と画像化。e) 低損傷試料での損傷域の画像化。

III. 半導体への光照射効果の評価。

a) 可視光の連続照射効果の評価。b) 可視パルス光照射効果の検討。c) 紫外パルス光照射効果の検討。

IV. ダイヤモンド薄膜の評価

a) イオン打ち込みによる表面硬度変化の検討。b) 膜製造法による差の評価。

V. 液体/金電極系の表面波励起。

a) 試料雰囲気(試料電位、電解質濃度、添加イオン種など)依存性の検討。

VI. 液体表面での誘導散乱現象。

a) 試料吸光度、励起光強度依存の検討。

(2) 表面反応などが過渡波形に及ぼす影響の理論的解析を行い、実験結果と比較検討した。主に次の観点から検討した。

I. 半導体試料での光励起キャリアの非線形的な挙動と過渡応答へ影響の解明。

II. 多層構造試料表面での熱伝導と過渡波形挙動の解明。

III. 熱由来の信号波形の試料雰囲気依存性の解明。

(3) 研究結果をまとめ、本法で何をどこまで評価

できるのかを明瞭にするとともに、将来的にどのような展望があるかを提案するなど、論文、学会発表、新聞発表などを通して、精力的に研究成果の公表に努めた。(4-5. 発表論文リスト、参照)。

以上、試料温度を制御しての系統的な実験に関する点の外は、第2年度は当初の計画を越えて検討が進んだ。当初の予定を越えた新たな発見もあり、今後の検討が望まれるしだいである。

研究成績

当研究から期待される成果として当初期待していたものは以下のとおりである。

- (1) 従来の表面分析法では検出困難とされる 10^{10} atoms/cm² 程度のイオン打ち込みを計測可能な高感度実時間欠陥分布測定法の実現
- (2) ラマン測定等が困難な材料(金属、有機薄膜など)に対しても適応可能な局所的熱伝導率、残留応力などの非接触測定法の実現
- (3) 表面近傍(～数μm)の欠陥分布の非破壊検査法、微粒子・クラスターなど反応、中間体の超高速時間分解計測などの新しいプロセスモニタリング技術の開発
- (4) 直接～数十GHzの高周波コヒーレントフォノンを励起、検出する全く新しい超音波マイクロスペクトロスコピーの方法論の開発

(1)に関して 試料移動台のハード的な制限により実時間観測こそ実現することはかなわなかったが、高感度な欠陥分布測定法としては、目標以上のレベルを達成した。それは、光励起キャリアの緩和挙動でキャリア濃度に対して3次の非線形効果にあたる項が、欠陥が存在することに敏感に影響することを見いだしたことによる。これにより、ヘリウム原子を打ち込んだ半導体試料で、ヘリウム照射領域を区別することも可能であることを見いだしている。なお、実時間測定に関しても、パルスごとのデータ処理の結果から単一の光パルスで情報を得ることが可能であることを見いだしているので、試料移動台に関する技術的な問題(容易にクリアできるはず)が残るだけであり、大いに有望であるという感触を得ている。

(2)に関して 局所的な領域の物性値(弾性率、

粘性、熱膨張率、吸光度、熱拡散率、無輻射緩和速度など)に直接関連するパラメータを導出するのに成功している。特に、数百ナノメーター程度の金属膜のおおわれた数ナノメータ厚金属膜の縦波・横波弹性率を導出することに成功している。また、部分的なイオン打ち込みや光照射により表面を一部改質した試料で、物性値の空間分布を測定できることをデモンストレーションしている。本測定が材料系を選ばないことは、半導体・金属・誘電体で測定し実証している。唯一の弱点である表面荒さの制限もバックグラウンドを抑制することで改善されつつある。

(3)に関して 欠陥検出法としては先に述べたとおりに実現した。本研究では、当初、光照射効果を反射回折を用いて検出することを、技術的な利点から計画していた。反射回折を利用することで表面選択性になるという予想はあったが、これに関しての理論的な裏付けが得られた。すなわち本法は、2次の非線形光学効果を利用して表面を選択的に観測する高調波法・和周波数法などと同等な表面・界面選択性があることが分かった。プロセスモニタリング法としての検討は進まなかつた。これは温度制御装置系の立ち上げに手間取ったためであり、本質的な問題があったためではない。微粒子状物質に関しては、我々がここで扱った誘導散乱現象とはまた異なる挙動を示すことが見いだされているが、詳細な検討は今後の課題である。光照射後に表面・界面に起こる現象を選択的に高時間分解能で検討する点に関しては、先に述べた光励起キャリアの問題を含めて検討を行った。特に、光照射後の初期に関しては不明な点も多く見いだされている。

(4)に関して 本研究では、すでに、高周波コヒーレントフォノンを励起、検出する全く新しい超音波マイクロスペクトロスコピーの方法として開発した装置を用いて応用測定を行っている。本研究で測定に使用した光源であるレーザーは、パルス幅が80ピコ秒であるため観測できる周波数帯は4GHz以下に限られていた。実際我々は、3.8GHzのコヒーレントフォノンを励起・検出している。音波の波長を変えての超音波マイクロスペ

クトル測定も実証している。

その他の成果に関して さまざまな材料評価に本測定を応用することで得られた当初の予想を越えた発見を以下に列挙する。

- ① 半導体へのイオン打ち込みは、打ち込み量が少ないとときに弾性率を増加させ、過剰に打ち込むことで弾性率低下を引き起こす。その際に、増減の度合は試料の本来の異方性とイオン打ち込み量に依存する。
- ② また、打ち込み量が少ないときには、イオン打ち込みが異方性を必ずしも減少させない。条件によっては、イオン打ち込みが巨視的な異方性を助長する。
- ③ ダイヤモンド薄膜の物性はイオン打ち込みで大きく変わる。膜厚が数十ナノメーター程度であってもその物性変化は、表面下数ミクロン程度の領域にまで影響を及ぼしている。
- ④ 時刻の零点で生じる散乱は、金属・半導体で機構が異なる。散乱光強度が偏光依存性を示すことから、過剰なエネルギーを持った電子が光散乱を誘起していると予想される。この散乱光強度も、イオン打ち込みに敏感に反応する。
- ⑤ また、金属と誘電体とに挟まれたナノメーター厚の金属薄膜では、電子の散乱に関するコヒーレント時間が延びる可能性がある。
- ⑥ 半導体表面近傍では熱拡散率が、バルクに比べて小さい値を持つ。
- ⑦ GHz周波数の弾性表面波には分散が現れる。この分散は表面酸化膜の影響ではない。
- ⑧ 溶液/固体界面の弾性波速度・過渡波形は、固体の電位、溶液中のイオン強度、溶液中の添加化学種に依存する。イオン強度が強いほど、添加化学種が金属へ吸着する度合いが大きいほど電位依存は抑制される。
- ⑨ 本法が液体の表面の測定にも応用できることを初めて実証した。液液界面への適用も可能と予想される。表面吸着量、界面張力の新しい測定法となる可能性が見いだされた。

今後の課題と発展

本研究によりコヒーレント超音波を用いる新し

いマイクロスコッパーの開発においてハードとソフトの両面で多大な成果を挙げることができた。*In-situ*な材料評価法としての基礎的な検討もほぼ終わったと考える。しかし、研究成果の項目でその他の成果に関して述べたように、本研究で開発してきた手法は、予想を越えて適用範囲が広く、思いがけぬ応用の広がりの可能性を示している。

以下に我々が考える今後の課題と研究の方向を整理しておく。

- 1) 光源の短パルス化によるより高時間分解能での測定、超音波の高周波数化。光照射後の初期過程フェムト秒時間分解能での検討。時刻の零点近傍で生じる散乱の機構の解明。これに関しては、本研究終了後フェムト秒パルス幅のレーザー光が利用できるようになり現在装置化に向けて検討しつつある。
- 2) 全体としての比重は大きくないが、測定装置系の課題として以下が残っている。
 - 単一パルスサンプリング、試料移動台の高速化による実時間測定の実現。
 - 光学系の最適化によるより高空間分解能での測定。
 - バックグランドの抑制。
これら課題の検討は、応用測定を行いながら現在も継続的に進めている。
- 3) 試料系の課題としては、以下が挙げられる。
 - 3-1) プロセスマニタリング法としての検討。
 - 温度制御装置系、真空装置系を用いた検討。
これは本研究で十分に検討することができなかっただけでなく、*In-situ*な材料評価法としてより具体的な課題に踏み込んだ検討を本研究の延長線上で行っていく予定である。関連して、次の検討も計画している。
 - 高強度光照射下にある材料の*In-situ*な測定評価法としての検討。
 - 3-2) 電気化学系での測定法としての検討。
 - 溶液/電極界面の新しい分析評価法としての検討。光を用いた*In-situ*分析法として本法は、これまで検討されてきたさまざまな手法と異なり、界面特有な熱力学的な状態量を測定できる可能性がある。すでに現象論的な検

討は進めてきてはいるが、理論的な考察も含めより深く検討する必要があると考えている。

- 3-3) 気液・液液界面の測定法としての検討。
・異種溶媒の接する界面は、物質輸送の場であるとともに界面反応の場であり、化学反応において極めて重要な役割をはたしている。しかし、表面の分析法に比べると界面を分析する手法はほとんど無いに等しい。本法が新しい界面分析法となる可能性はおおいにある。表面吸着量、界面張力の新しい測定法となる可能性の検討を始めている。

- 4) 材料物性に関する検討。量子物性発現機構に関する本法による実験と理論解析。本研究では装置・方法論開発に主眼がおかれていたために、個々の課題に対して深く検討できなかった部分がある。以下の検討を押し進めることを計画している。
- 4-1) 微粒子状物質を初めとするさまざまな形態の試料が起こす誘導散乱挙動の詳細な検討。
- 4-2) 金属と誘電体とに挟まれたナノメートル厚の金属薄膜での電子散乱に関する検討。
- 4-3) 半導体表面近傍で熱拡散率、表面波音速分散に現れる異常現象の原因の特定。
- 4-4) 半導体やダイヤモンド薄膜へのイオン打ち込みによりどのような構造で物性が変化して、どのように発現するのかに関する検討。他。
- 5) 研究体制の拡大。我々は新しい計測法の開発にウェートをおいてきたが、本法をさらに材料評価および物性研究に役立てるために、学際的な研究グループを構成したい。貴財団のさらなる御援助を期待する。

発表論文リスト

A. 論文

- 1) A. Harata and T. Sawada: Novel Microscopy Using Stimulated Light Scattering by Laser-Induced Transient Reflecting Gratings on Metallic Surfaces. *Appl. Phys. Lett.*, **58**, 1839-1841 (1991).
- 2) H. Nishimura, A. Harata and T. Sawada: Study

on Damages in Ion-Implanted Si Using Transient Reflecting Gratings. *Anal. Sci.*, **7**(Suppl.), 1235-1236 (1991).

- 3) T. Kawasaki, A. Harata and T. Sawada: Measurements of Fast Relaxation Processes Using Pump-Probe Photothermal Spectroscopy. *Anal. Sci.*, **7**(Suppl.), 653-654 (1991).
- 4) A. Harata and T. Sawada: Excitation of Hypersonic Waves at Metal/Liquid Interfaces Using Transient Reflecting Gratings. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**(Suppl. 31-1), 88-90 (1992).
- 5) H. Nishimura, A. Harata and T. Sawada: Application of Laser-Induced GHz Surface Acoustic Waves to Evaluate Ion-Implanted Semiconductors. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **31**(Suppl. 31-1), 91-93 (1992).
- 6) A. Harata, H. Nishimura, T. Tanaka and T. Sawada: Laser Stimulated Scattering Microscope: A Tool for Investigating Modified Metallic Surfaces. *Rev. Sci. Instrum.*, **64**, 618-622 (1993).
- 7) A. Harata and T. Sawada: Evaluation and Imaging of Materials Using Picosecond Laser-Induced Ultrasonics. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32**, 2188-2191 (1993).
- 8) Q. Shen, A. Harata and T. Sawada: Analysis of Metallic Multilayers Using Hypersonic Surface Waves Induced by Transient Reflecting Gratings. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32**, 3628-3632 (1993).
- 9) A. Harata, Q. Shen, T. Tanaka and T. Sawada: Laser-Stimulated Scattering Microscope Study of an Ion-Implanted Silicon Surface. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32**, 3633-3638 (1993).
- 10) H. Hishimura, A. Harata and T. Sawada: Fast Photothermal Relaxation Processes in Metals and Semiconductors Studied by Transient Reflecting Grating. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **32** (1993), in press.
- 11) T. Tanaka, A. Harata and T. Sawada: A New Application of Laser-Stimulated Scattering Microscope: Separation of Photoexcited Carriers' Effect from Thermal Effects Using Picosecond Time-Resolved Measurements of Transient Reflecting Gratings. *J. Appl. Phys.*, in preparation.
- 12) A. Harata, T. Kawasaki, M. Ito and T. Sawada: Study of Electrochemical Interfaces by Transient Reflecting Gratings. *Anal. Chem. Acta*, in preparation.
- B. 口頭発表
- 1) 西村祐行, 原田 明, 澤田嗣郎: レーザー誘起格子超音波法による GHz 表面波の発生と検出 (II).

- 第 38 応用物理学関係連合討論会（1991 年 4 月，東京）。
- 2) 原田 明，澤田嗣郎：パルスレーザー光照射による固液界面での GHz 周波数帯超音波の励起・検出とその応用。第 52 回分析化学討論会（1991 年 5 月，帯広）。
 - 3) H. Nishimura, A. Harata and T. Sawada: Study of Damages in Ion-Implanted Si Using Transient Reflecting Gratings. International Congress on Analytical Sciences 1991 (1991 年 8 月, 千葉)。
 - 4) T. Kawasaki, A. Harata and T. Sawada: Measurements of a Fast Relaxation Process Using Pump-Probe Photothermal Spectroscopy. International Congress on Analytical Sciences 1991 (1991 年 8 月, 千葉)。
 - 5) 原田 明，川崎隆広，西村祐行，澤田嗣郎：サブナノ秒で起こる光熱変換プロセスを利用した計測法。日本化学会第 62 秋季年会（1991 年 9 月，札幌）。
 - 6) 原田 明，伊藤正樹，澤田嗣郎：パルスレーザー光照射による固液界面での GHz 周波数帯超音波の励起・検出とその応用 (II)。日本分析化学会第 40 年会（1991 年 11 月，横浜）。
 - 7) 西村祐行，原田 明，澤田嗣郎：レーザー誘起表面格子法によるイオン打ち込み半導体の表面物性計測。日本分析化学会第 40 年会（1991 年 11 月，横浜）。
 - 8) 川崎隆広，原田 明，澤田嗣郎：高速熱レンズ分光法の開発とサブナノ秒無輻射緩和現象の測定。日本分析化学会第 40 年会（1991 年 11 月，横浜）。
 - 9) 原田 明，川崎隆広，澤田嗣郎：ポンプ・プローブ熱レンズ分光法によるサブナノ秒無輻射緩和の測定。第 36 回音波の物性と化学討論会（1991 年 11 月，東京）。
 - 10) 西村祐行，原田 明，澤田嗣郎：レーザ励起 GHz 表面波のイオン打ち込み半導体評価への応用。第 12 回超音波エレクトロニクスシンポジウム（1991 年 12 月，東京）。
 - 11) 原田 明，澤田嗣郎：パルスレーザー光照射による固液界面への GHz 超音波の励起：理論と応用。第 12 回超音波エレクトロニクスシンポジウム（1991 年 12 月，東京）。
 - 12) 原田 明，川崎隆広，澤田嗣郎：温度レンズ分光法による高速無輻射緩和測定。日本化学会第 63 春期年会（1992 年 3 月，京都）。
 - 13) 澤田嗣郎：レーザー光熱変換分光法による微小空間及び微小領域における化学計測。第 53 回分析化学討論会（1992 年 6 月，秋田）。
 - 14) 原田 明，西村祐行，澤田嗣郎：レーザー誘起 GHz 超音波の誘導散乱現象を利用する走査型顕微鏡の開発と応用。第 53 回分析化学討論会（1992 年 6 月，秋田）。
 - 15) 原田 明，伊藤正樹，川崎隆広，澤田嗣郎：サブナノ秒時間分解光熱変換分光法を用いた金電極/水溶液界面の研究。日本分析化学会第 41 年会（1992 年 9 月，京都）。
 - 16) 川崎隆広，原田 明，澤田嗣郎：レーザ誘起 GHz 界面超音波を用いた金電極/水溶液界面の研究。第 37 回音波の物性と化学討論会（1992 年 11 月，浜松）。
 - 17) 澤田嗣郎：ピコ秒レーザーを用いる超音波/熱顕微鏡の開発と材料評価への応用。第 13 回超音波エレクトロニクスシンポジウム（1992 年 12 月，仙台）。
 - 18) 田中崇之，原田 明，澤田嗣郎：過渡反射格子法による GHz 表面波の励起に関する理論と応用。第 13 回超音波エレクトロニクスシンポジウム（1992 年 12 月，仙台）。
 - 19) 原田 明，川崎隆広，澤田嗣郎：過渡反射格子法による固液界面での GHz 超音波の励起。第 13 回超音波エレクトロニクスシンポジウム（1992 年 12 月，仙台）。
 - 20) 沈 青，原田 明，澤田嗣郎：過渡反射格子励起 GHz 超音波による金属多層膜の解析。第 13 回超音波エレクトロニクスシンポジウム（1992 年 12 月，仙台）。
 - 21) 川崎隆広，原田 明，澤田嗣郎：ピコ秒過渡反射格子法による金電極/水溶液界面の研究。日本化学会第 65 春季年会（1993 年 3 月，横浜）。
 - 22) 田中崇之，原田 明，澤田嗣郎：過渡反射格子法を用いた Si のキャリア緩和定数の測定。第 40 回応用物理学関係連合講演会（1993 年 4 月，東京）。
 - 23) 原田 明，田中崇之，沈 青，澤田嗣郎：さざなみ顕微鏡（レーザー誘導散乱顕微鏡）の開発とイオン打ち込み半導体材料評価への応用。第 54 回分析化学討論会（1993 年 6 月，茨城）。
 - 24) 原田 明，田中崇之，沈 青，澤田嗣郎：さざなみ顕微鏡の開発とイオン打ち込み Si の異方性評価への応用。分析機器と解析システムに関する東京討論会（1993 年 9 月，千葉）。
 - 25) 原田 明：光熱変換分光法による非破壊 3 次元局所分析に関する基礎的研究。日本分析化学会第 42 年会（1993 年 10 月，広島）。
 - 26) 田中崇之，原田 明，澤田嗣郎：レーザーを用いた新たな気液界面計測法の開発。日本分析化学会第 42 年会（1993 年 10 月，広島）。
 - 27) 原田 明，沈 青，田中崇之，澤田嗣郎：過渡反射格子法による半導体表面の超音波スペクトロスコピーと応用。第 13 回超音波エレクトロニクスシンポジウム（1992 年 12 月，横浜）。
 - 28) A. Harata, H. Nishimura, Q. Shen, T. Tanaka and T. Sawada: Transient Reflecting Grating Study of Ion-Implanted Semiconductors. 8th International Topical Meeting on Photoacoustic and Photothermal Phenomena (Jan. 1994,

- Guadelope, France).
- 29) Q. Shen, A. Harata, and T. Sawada: Analysis of Ion-Implanted Diamond-Like-Carbon Films Using Laser-Induced Transient Reflecting Grating Technique. 8th International Topical Meeting on Photoacoustic and Photothermal Phenomena (Jan. 1994, Guadelope, France).
 - 30) T. Tanaka, A. Harata and T. Sawada: A Study of a New System for Measuring Semiconductor Using Laser Stimulated Scattering Microscope. 8th International Topical Meeting on Photoacoustic and Photothermal Phenomena (Jan. 1994, Guadelope, France).
- C. 総説
- 1) 原田 明: 「光熱変換分光法による超高速・微小空間計測への挑戦—サブナノ秒・サブミクロン時空間を観る—」. 化学と工業, 45, 229-233 (1992).
 - 2) 原田 明, 澤田嗣郎: 「進歩総説: 光音響分光法」. ぶんせき, 4, 289-294 (1992).
- 3) 原田 明, 澤田嗣郎: 「速い無輻射緩和過程を観測する一高時間分解光熱変換分光法」. 化学, 9, 644-645 (1992).
 - 4) 原田 明, 澤田嗣郎: 「干渉レーザー光を利用した光音響顕微鏡」. 超音波テクノ, 5, 19-23 (1993).
 - 5) 澤田嗣郎, 原田 明: 「レーザーさざ波顕微鏡」. 現代化学, 12月号, 24-29 (1993).
- D. 新聞, 技術情報誌など
- 1) 「光音響顕微鏡: サブミクロンで欠陥検出」: 日刊工業新聞, 1992年5月29日.
 - 2) 「表面の“さざなみ”で物質の性質を判定」: 読売新聞, 1992年6月6日夕刊.
 - 3) 「レーザーさざなみ顕微鏡」: 科学新聞, 1992年6月19日.
 - 4) 「レーザー誘起GHz超音波の誘導散乱を利用する走査型顕微鏡の開発と応用」: 科学新聞, 1992年7月3日.
 - 5) 「Microscope Using Laser Induced Grating」: JETRO, 1992年9月号, p. 17.