

氏名・本籍	片山 慶太 (福岡県)
学位の種類	博士 (理学)
報告番号	乙第 54 号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 16 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 2 項該当者
論文題目	ダブルパルスレーザーアブレーションにおける プルーム混合過程が複合ナノ構造形成に与える 影響
審査委員	(主査) 教授 梅津 郁朗 (副査) 教授 青木 珠緒 (副査) 教授 須佐 元

### 論文内容の要旨

ガス中でのパルスレーザーアブレーション法はナノ粒子の作製法の一つとして知られている。この方法では、パルスレーザー励起によってターゲットから発生するプルームからナノ粒子が形成され、それが基板に堆積する。本研究は、二つのプルームを衝突させて複合ナノ粒子の作製を行う、ダブルパルスレーザーアブレーション法に関する研究である。Si および Ge ターゲットを 9mm の間隔で平行に配置し、パルスレーザーを同時に照射した。Si および Ge プルームを分光して原子種を区別することにより、これまで観察されていなかった二つのプルームの衝突・混合過程を観察することを可能にした。

その結果、プルームの衝突過程は He 雰囲気ガス圧力 500Pa、2000Pa、6000Pa の低、中、高ガス圧力領域で特徴的な振る舞いを見せた。低ガス圧力領域では中央部でほぼ 100% 混合するのに対して、中ガス圧力領域ではプルームが衝突する前に後退する現象がみられた。点源爆発モデルを用いた衝撃波の進展の見積りから、後退の原因は対向衝撃波との衝突であることを明らかにした。プルームは一端後退した後、再び中央付近まで進展し、わずかな混合が観察された。高ガス圧力領域ではプルームは雰囲気ガスに妨げられて進展が停止し、衝突・混合はしなかった。低および中ガス圧力領域でのプルームの進展を平均自由行程の見積もりとプルームの進展から考察し、平均自由行程の短い中ガス圧力領域ではプルームは対向衝撃波との衝突によって後退するが、低ガス圧力領域では平均自由行程が長くなることに加えてプルームと衝撃波の位置関係がプルームの混合を決定することを示した。

ナノ粒子はターゲットと垂直に置かれた基板に堆積させ、ナノ粒子凝集構造の観察と組成分析を行なった。堆積物は低ガス圧力領域では柱状の混晶ナノ粒子、中ガス圧力領域では混晶の凝集構造、高ガス圧力領域では Si ナノ粒子で構成された繊維状構造と Ge ナノ粒子で構成された繊維状構造が結合した複合繊維状構造であった。プルーム進展と堆積構造の雰囲気ガス圧力依存性の結果から、堆積過程及び複合構造の形成過程の考察を行ない、以下のようなモデルを構築した。低ガス圧力領域ではプルームが衝突後に混合し、空間中で形成された混晶ナノ粒子が基板上で凝集する。中ガス圧力領域ではプルーム衝突によって、混晶ナノ粒子が形成された後、繊維状構造を形成する。高ガス圧力領域では Si または Ge プルーム中で繊維状構造を形成する。中および高ガス圧領域で形成された繊維状構造は、後続のレーザーパルスによって生じた衝撃波による流れによって基板に到達する。このモデルは本研究のすべての実験結果を矛盾なく説明できるものである。

以上のように本研究ではダブルパルスレーザーアブレーション過程でのプルーム混合過程と生成されたナノ粒子凝集体構造の相関を実験的に明らかにし、混合過程と凝集体形成過程を説明できるモデルを構築した。

## 審査結果の要旨

本研究はパルスレーザーアブレーションの非平衡的ナノ粒子生成過程を解明して複合ナノ粒子作製に応用する開拓的研究と位置づけられる。その基本となるのはプルームの衝突過程である。本研究では二つの異なるターゲットを用いてプルームの時間的・空間的進展と混合を可視化したことが大きな特色である。これによってこれまでに知られていなかったプルームの進展と混合、およびそれらに対する対向衝撃波の影響を明らかにした。この成果はレーザーアブレーションの分野のみならずプラズマの衝突過程の解明という学際的な側面を持つものでもある。

申請者はマスクを用いて衝突したプルームから発生したナノ粒子を堆積させる独自の手法を用いて、堆積物の凝集構造と組成分析を行った。レーザーアブレーションによるナノ粒子の形成過程はプルームと堆積したナノ粒子に関しては数多くの報告があるが、プルーム消滅後からナノ粒子堆積までの過程は測定方法が限られていて研究が進んでいない。申請者はプルームの衝突過程、混合過程の観察と、複合ナノ粒子凝集体の観察から、これまでほとんど議論されていなかったプルーム消滅後に生じる複合ナノ粒子の形成、凝集、堆積過程を矛盾なく説明できるモデルを構築した。特に後続のレーザーパルスによって生じる衝撃波の影響に関するモデルは、従来型の一つのターゲットを使用するレーザーアブレーション過程に関しても新たな知見を与えるものであり、適用範囲が広い。

以上の様に申請者はこれまでによく知られていなかった二つのプルームの衝突過程と混合過程を明らかにし、複合構造の形成モデルを構築することによってダブルパルスレーザーアブレーション法を用いて複合ナノ粒子の構造を制御する道を開拓した。本研究におけるプルーム形成から堆積構造形成までの一貫した議論は、こ

の分野の基礎から応用にわたる重要な成果と言える。

本論文の内容はすでに2篇の欧文論文紙に掲載されており、2020年には電気学会での研究発表によって、電子・情報・システム部門において研究会奨励賞を受賞している。

本申請については2024年6月5日に物理学専攻において予備審査を行ない、2024年8月6日に公開講演会が行われた。申請者は明快に論文の内容を説明し、質疑応答に関しても問題なく行われた。

以上により下記審査委員は本論文提出者(片山慶太)が、必要な研究指導を受け、博士論文の審査及び最終試験に合格したので、博士(理学)の学位を授与せられるに充分なる資格をもつものであると認める。