

氏名(本籍)	みず た たい じ 水 田 泰 治 (広 島 県)		
学位の種類	博 士 (工 学)		
学位記番号	博 甲 第 3162 号		
学位授与年月日	平成 15 年 3 月 25 日		
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当		
審査研究科	工学研究科		
学位論文題目	レーザーアブレーション法による可視発光 Si ナノ微粒子の生成ダイナミックスと表面修飾 -時間分解測定-		
主査	筑波大学教授	工学博士	村 上 浩 一
副査	筑波大学教授	理学博士	喜 多 英 治
副査	筑波大学教授	工学博士	山 部 紀久夫
副査	筑波大学教授	工学博士	重 川 秀 実
副査	物質・材料研究機構研究グループリーダー	理学博士	北 島 正 弘

論 文 の 内 容 の 要 旨

現代の半導体産業の中心であるシリコン (Si) はLSIなど電子デバイスとして使われているが、間接遷移型半導体であるため、残念ながら発光効率は非常に低く光デバイスとしては利用できない。しかし、Siも数nmのオーダーのサイズにすることにより、ナノ構造Si (Siナノ微粒子) は可視発光することが近年明らかになった。そのため、ナノ構造Siの研究・開発が非常に重要になってきている。このうち、Siナノ微粒子は希ガス中でのレーザーアブレーションにより、気相中で生成することができ、レーザーアブレーションのパルス的な特長を利用することにより、Siナノ微粒子の表面修飾や不純物ドーピングが可能になると期待できる。これらを実現するためには、Siナノ微粒子の生成過程を明らかにすることは非常に重要であるが、生成過程のダイナミックスについては全く未解明な部分が多くある。その原因の一つとして、数nmの微粒子を検出する手法がないことがある。

本研究では、第一にナノ微粒子を検出する手法の開発を目的とし、時間分解フォトルミネッセンス (PL) 法とレーザー分解法という二種類の手法を開発している。どちらの手法も気相中に存在するSiナノ微粒子に、任意の時間遅延を付けた第二のパルスレーザー光を照射し、Siナノ微粒子を検出する。時間分解PL法は、レーザー光照射によってSiナノ微粒子を励起し、Siナノ微粒子のPLを観測することで微粒子を検出する手法である。レーザー分解法は、高エネルギー密度でレーザー光を照射し、Siナノ微粒子をSi原子やイオンに分解することで得られる発光を観測し、Siナノ微粒子を検出する手法である。第二に、上記の二種類の検出手法を用いて、Siナノ微粒子の生成過程を調べている。Siナノ微粒子を生成する際の希ガスの圧力を2 Torrから10 Torrまで増加した場合では、2.5msから0.6msとSiナノ微粒子の生成が早くなる。また、アブレーションレーザー光のエネルギー密度が約3.5から10J/cm²に増加させると、Siナノ微粒子の生成時間が0.7から1.5msに変化することを見出している。さらに、Siナノ微粒子が生成は、生成条件に依らず、電子系のエネルギー散逸に要する時間、つまり1ms前後であることが示されている。第三に、Siナノ微粒子の生成を水素ガス或いは酸素ガスを含む雰囲気ガス中で行い、Siナノ微粒子の表面修飾を試みている。希ガス中で生成したSiナノ微粒子のPLのブロードなスペクトルは600~700nmにピークがあり、また、表面からSi₂の解離放出によるSi₂からの発光の振動構造を始めて観測している。他方、水素化Siナノ微粒子のPLスペクトルには、1) 550nm付近に新たなピークが出現し、2) 水素がない場合に観測された振動構造が消滅し、Siナノ微粒子からSi₂の解離が抑制されることを見出した。一方、1mTorr以上の酸素ガス

中で生成した酸化Siナノ微粒子は、酸化によりSiコアが消えるため、第二レーザー光が吸収されずPLを示さない、ことも明らかにしている。

審 査 の 結 果 の 要 旨

ナノ秒レーザーアブレーション後に起こるクラスター化とその後のナノ微粒子の成長の動的過程を10nsから100msの時間領域で、新たに開発した二つの時間分解測定手法により研究している。特に、第二レーザー分解法の特長は、PLを示さないSiナノ微粒子まで分解して検出することができることであり、世界で初めてレーザーアブレーションに用いられた。時間分解測定の結果、多くの新たな知見が得られ、特に、雰囲気ガスの圧力とアブレーションレーザー光のエネルギー密度を制御することによってSiナノ微粒子が生成する時間を制御できることを明らかにした。また、論文要旨にある研究結果を得たほかにも、Siナノ微粒子の検出に用いるレーザー光の波長を変化させた結果、気相中にあるSiナノ微粒子の平均サイズが約3 nmと見積もることができ、さらに、レーザーアブレーションにより水素化または酸化Siナノ微粒子を生成できることも明らかにした。

これらは科学・技術面で非常に価値の高い知見であり、特に新しい時間分解測定手法を開発し、それを使って多くの成果を示した点が高く評価され、ナノ構造創製のための新しいパルス過程の可能性を示している。

よって、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。