

ダブルレーザーアブレーション法による複合ナノ結晶形成に対するプルーム衝突の効果

Effect of collision of the plumes on formation of the hybrid nano-crystals by double pulsed laser ablation

橋口 友亮¹, 香下 将希¹, 福岡 寛², 坂本 直道³, 青木 珠緒¹, 杉村 陽¹, 梅津 郁朗¹⁽¹⁾甲南大, ⁽²⁾奈良高専, ⁽³⁾いわき明星大Y.Hashiguchi¹, M.Kashita¹, H.Fukuoka², N.Sakamoto³, T.Aoki¹, A.Sugimura¹, I.Umezu¹⁽¹⁾Konan Univ., ⁽²⁾Nara National College of Technology, ⁽³⁾Iwaki Meisei Univ.)

E-mail : m1221005@center.konan-u.ac.jp

我々は He ガス中で 9mm の間隔をあけて平行に配置した Si と Ge ターゲットに独立した二つの Nd:YAG レーザーを照射し、二つのプルームを衝突させるダブルレーザーアブレーション(D-PLA)法を用いて複合ナノ結晶の構造制御に取り組んでいる。これまでに、1) 雰囲気ガス圧 150Pa においてレーザーパルス間に遅延時間 $t_d < 90 \mu\text{s}$ のディレイをかけた時、高エネルギー状態の Ge プルームとすでに消光している Si プルームの衝突によって Si 原子種の再発光が観測される、2) t_d を大きくするとともに再発光が弱くなり $t_d = 90 \mu\text{s}$ で観測されなくなる、3) 再発光 Si 原子種の発光強度の減衰の時定数を遅延時間(t_d)の関数とした時、 $t_d = 50 \mu\text{s}$ を境に時定数が急激に減少するということを報告した。この時定数の減少は Si のナノ粒子化により Si 原子の数が急激に減少したためであると考えられる。本研究では以上の結果をもとに S-PLA、 $t_d = 0 \mu\text{s}$ 、そして、コアシェル構造のナノ結晶を期待し $t_d = 90 \mu\text{s}$ で試料を作成した。それらを EDS 付き TEM で分析することで、レーザーパルスにディレイをかけプルームの衝突時間をずらした時のナノ粒子形成プロセスについて議論する。堆積基板は 2 つのターゲットに対して垂直に設置し、レーザーは先に Si に照射し t_d 秒後に Ge に照射した。

右の図は雰囲気ガス 150Pa において作成した試料の TEM 画像((a) S-PLA, (b) D-PLA $t_d = 0 \mu\text{s}$, (c) D-PLA $t_d = 90 \mu\text{s}$)を示す。D-PLA $t_d = 0 \mu\text{s}$ の試料は S-PLA に比べてナノ粒子の凝集度が高い。これは、二つのプルームの衝突部分でナノ粒子が凝集したためだと考えられる。一方、D-PLA $t_d = 90 \mu\text{s}$ における凝集体の構造は S-PLA と同様なクラスター・クラスター凝集の特徴を持つ。これは、 $t_d = 90 \mu\text{s}$ において再発光が観測されなくなることと、D-PLA の Ge プルームの進展が S-PLA の Ge プルームと変わらないことと一致する。

スポット径約 25 nm に絞った電子線を堆積したナノ結晶の凝集体に数点照射し EDS 測定を行った。D-PLA $t_d = 0 \mu\text{s}$ の試料では全ての測定点において Si と Ge の組成比がほぼ 1 : 1 のナノ結晶が形成されていた。これから、Si と Ge が均一に混ざった混晶ナノ結晶の形成が期待できる。 $t_d = 90 \mu\text{s}$ では Si と Ge の組成比が約 1:9 ~ 約 9:1 の間で空間的な分布が多く、EDS の照射位置によって Ge リッチの領域と Si リッチの領域が存在していた。これは Si ナノ結晶が先に堆積し Ge プルームが進展を開始する時間では Si がターゲット間に存在していないためそれぞれのプルームが時間差で S-PLA の挙動を示すので Si リッチの領域と Ge リッチの領域が存在すると思われる。この結果は、ナノ結晶の凝集体の構造が S-PLA と D-PLA $t_d = 90 \mu\text{s}$ で同じであるということと矛盾しない。

これまでの結果から、 $t_d = 50 \mu\text{s}$ で時定数が急激に減少し Si 原子がナノ粒子化を開始すると考えられることと $t_d = 90 \mu\text{s}$ でターゲット間に Si が存在しなくなるということから $50 \mu\text{s} \leq t_d < 90 \mu\text{s}$ で D-PLA を行うことで Si を核、Ge を殻としたコアシェル構造のナノ結晶の形成が期待できる。

