

Title	Study of Laser Ablation Mechanism and Its Application to the Formation of Multilayered Oxide Thin Films
Author(s)	西川, 博昭
Citation	
Issue Date	
Text Version	ETD
URL	https://doi.org/10.11501/3143753
DOI	10.11501/3143753
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	にし かわ ひろ あき 西 川 博 昭
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	第 1 3 6 3 9 号
学 位 授 与 年 月 日	平成10年3月25日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第4条第1項該当 理学研究科無機及び物理化学専攻
学 位 論 文 名	Study of Laser Ablation Mechanism and Its Application to the Formation of Multilayered Oxide Thin Films. (レーザアブレーションによる酸化物積層薄膜結晶の創成)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 川 合 知 二 (副査) 教 授 徂 徠 道 夫 教 授 大 野 健

論 文 内 容 の 要 旨

パルスレーザを用いたアブレーションは、薄膜化プロセスとしての応用的側面が急速に進歩・発展しているのに比較して、アブレーションメカニズムの理解が十分ではない。本論文においては、アルカリ土類金属のCa、Sr、Baについて、アブレーションにおける一価イオン生成量のレーザ光強度依存性をレーザ波長・パルス幅を変化させて測定し、その結果に基づいて、アルカリ土類金属のアブレーション機構を明らかにした。一価イオンの生成量は光強度のべき乗に比例するという結果が得られ、これらアルカリ土類金属のレーザアブレーションは多光子による光化学過程であると提案した。多光子過程で吸収されるエネルギーは、内殻最高準位と真空準位のエネルギー差とよく一致することから、アルカリ土類金属のアブレーションは加熱蒸発ではなく、多光子過程によって内殻最高準位の電子を真空準位以上に励起することで起こっていることが明らかになった。また、レーザパルス幅を変化させたところ、生成量変化は加熱蒸発機構ではなく、多光子過程を支持する結果を示した。

レーザアブレーションの応用のうち、最も普及している遷移金属酸化物の積層薄膜化では、界面の原子レベルでの平坦性制御技術が問題点として挙げられる。そこでペロブスカイト構造のSrTiO₃ (100) 基板上に、同じペロブスカイト構造の遷移金属酸化物であるCaTiO₃、La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃及びその積層構造を作製し、成長中の最表面を原子レベルで平坦に保つための因子を理解することを行った。具体的には①成長中の最表面元素の違いによる表面形態の違い、②格子不整合による表面形態の違い、の二つに注目した。その結果、①ペロブスカイト構造 (ABO₃) のAサイトが最表面の成長が安定、②物質そのものの安定性の違いによる格子不整合の許容値変化、を考慮することにより原子レベルで平坦な表面を保った結晶成長に成功した。

原子レベルで界面を平坦化する必要がある積層構造の一例として、強磁性体内のスピン配列制御を取り上げた。これは層間交換結合と呼ばれ、スピン配列の人工的制御方法として注目されているが、交換結合が界面からどのぐらいの距離まで有効に働くかは、理論的には推測されているものの実験的には磁性体結晶内部のスピン配列を直接観察することが困難なため、明らかになっていない。そこで本研究においては、強磁性体の「スピン依存散乱による磁気抵抗効果」を利用し、電気伝導性を通して結晶内のスピン配列変化を検出することを提案した。この結果、界面からブロッホ磁壁の厚み程度まではスピン配列制御が可能であり、それ以上の距離ではスピンは磁場に応答可能になるといふ、理論的推測を明確に支持する結果が得られた。このことから、電気伝導性はスピン配列変化の検出手法として有効であることが明らかになった。

以上のように本論文において、レーザアブレーションを薄膜作製手法としての技術面のみならず、光化学分野の課題としてのメカニズム理解についても発展させることができた。

論文審査の結果の要旨

近年急速に発展しているレーザアブレーション法は、固定表面層の分解メカニズム及び生成した化学種の挙動など、興味深い問題を提起している。西川博昭君は、アルカリ土類金属のアブレーション機構について、多光子過程により内殻電子を励起することがトリガになる新しいモデルを、系統的な実験結果から提案した。また、化学種の基板上での挙動について、反射高速電子線回折を用い、原子レベルで明らかにすることに成功した。さらに、アブレーション法を用いて強磁性酸化物の積層薄膜結晶を作製し、強磁性体界面での層間交換結合における、スピン配列のピン止め効果について研究した。本効果の影響が及ぶ距離を強磁性体の磁気抵抗効果によって調べる新手法を提案し、有効距離を明らかにした。

以上のように本論文は、固体化学の進歩に大きく貢献し、博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。