



Title	STUDIES ON LASER ABLATION PROCESSING AND ITS APPLICATION TO THE OXIDE ELECTRONICS
Author(s)	立木, 実
Citation	大阪大学, 1999, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/41490">https://hdl.handle.net/11094/41490</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、<a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">大阪大学の博士論文について</a>をご参照ください。

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

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

The University of Osaka

氏 名	立 木 実
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 1 4 7 2 5 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 11 年 3 月 25 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 基礎工学研究科物理系専攻
学 位 論 文 名	STUDIES ON LASER ABLATION PROCESSING AND ITS APPLICATION TO THE OXIDE ELECTRONICS (レーザーアブレーションプロセッシング及びその酸化物エレクトロニクス応用に関する研究)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 小林 猛  (副査) 教 授 奥山 雅則 教 授 川合 知二

### 論 文 内 容 の 要 旨

For the purpose of furthering electronics applications of functional oxide materials, thin film fabrication by pulsed laser deposition (PLD) method and characterization of obtained thin films were carried out, and novel PLD techniques for further improvement in qualities of oxide thin films were investigated. Behavior of ablated particles was demonstrated in a new PLD method (eclipse method) using Monte-Carlo computer simulation. To demonstrate the usability of conventional and eclipse PLD method, thin films of epitaxial bismuth layered materials ( $\text{Sr}_{m-3}\text{Bi}_4\text{Ti}_m\text{O}_{3m+3}$  ( $m = 4, 5, 6$ ) and  $\text{SrBi}_4\text{Ti}_4\text{O}_{15}/\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+y}$ ) were fabricated. Optical, dielectric, and crystal structural characterizations were also carried out to elucidate the fundamental properties of grown films. A problem that growth species arriving at the film surface are less active in eclipse PLD method was solved by using Ar as an activation-assistance gas in  $\text{O}_2$  ambient. Improvements of film quality are achieved in the growth of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{6+x}$  and  $\text{SrTiO}_3$  (STO). Especially, the droplet-free STO films showed marked improvement in their permittivity,  $320 \epsilon_0$  at room temperature. Time-resolved plume observation and spectral measurement were examined to investigate the PLD, and it was confirmed that Ar additive is effective for the plume activation. Using nonlinear permittivity of STO film against the applied field, as commonly observed in single-crystal bulk STO, the hole trap concentration in the STO films was deduced to be  $\sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . For further improvement of eclipse PLD in the transport of activated growth species, new composite shadow mask method using ring shaped masks (eclipse angel PLD method) was proposed. Time resolved observation and Monte-Carlo simulation showed the enhanced propagation of the ablated species in this method. Growth rate improvement of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  thin films in low ambient oxygen pressure was also confirmed. To manipulate laser ablation plume, dipole magnetic field was applied from the substrate side. Contrasting to the ordinary method, this new method (aurora method) gave rise to increasing ionization of the growth species in the plume as closing to the substrate. Deposition rate in eclipse method was also increased 2.6 times as high as that of zero magnetic field. Using aurora eclipse method, NiO film was epitaxially grown on (100) MgO substrate even at the room temperature.

## 論文審査の結果の要旨

次世代のエレクトロニクスには高度に制御された半導体、酸化物、等々の電子材料の利用が要求されている。それらの創製には従来の技術を超えた新しい概念である先端科学技術の準備が必要である。近年、高出力パルスレーザーとしてエキシマ・レーザーが市場に登場して以来、新しい薄膜作製手法としてレーザーアブレーション技術が注目を集めている（パルス・レーザー・デポジッション（PLD）法とも呼ぶ）。しかし、レーザーアブレーションはまだ新しい技術のため、未知の内容が多く、実用技術に到達させるには科学しなければならない要素が多数ある。審査論文では酸化物薄膜成長を対象において、アブレーション粒子の輸送過程を基礎科学しながら、得られた知見をもとに新しいレーザーアブレーション方法を提案して高品質薄膜成長に成功をおさめている。

論文では、まず、エキリプス PLD におけるアプレート粒子の輸送過程の解析方法が提案され、背景酸素分子との弾性散乱モデルのモンテカルロ・シミュレーションが実験結果を良く説明することを明らかにしている。超高速撮影画像と計算機実験の比較には意義深いものがある。粒子輸送の解析ができるようになると共に、薄膜成長速度の見積もり、成長の基板上の分布の様子、組成の均一性など重要な諸事項について初めて科学的に検討ができるようになった。経験則に基づいて実験がおこなわれることの多かったレーザーアブレーション分野に科学的な手法が導入された効果は極めて大きいことである。

レーザーアブレーション法の改善方策として3つの新技術が提案され、それぞれについて科学された結果がまとめられている。それらはエキリプス・エンジェル PLD 法、Ar アシスト PLD 法、そしてエキリプス・オーロラ PLD 法である。低圧酸素ガス中でもエキリプス法の効果を引き出せる PLD 法、そしてダイボール・磁場の作用を使って粒子のイオン化を成長基板の直上で強める PLD 法が誕生した。これらの新しいレーザーアブレーション法を使うことにより薄膜  $\text{SrTiO}_3$  の誘電率  $330\epsilon_0$  を得ることができ、一方では室温エピタキシャル成長が不可能と言われてきた  $\text{NiO}$  薄膜の室温エピタキシーに世界に先駆けて成功している。

最後に一連の新しい PLD 技術を使って得られた高品質酸化物薄膜のエレクトロニクス応用について触れている。高温超伝導体薄膜 SQUID、人工粒界多結晶性巨大磁気抵抗薄膜を使った磁気ヘッド、酸化物半導体 PIN 接合への展開など、今後の発展が期待されている応用に少なからぬ貢献をしている。

以上の内容はレーザーアブレーション・プロセッシングに関する先駆的な研究成果であると同時に、酸化物エレクトロニクスの今後の進展に多大な貢献をするものであり、博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。