



Title	レーザーアブレーション法によるナノ加工技術に関する研究
Author(s)	川上, 裕二
Citation	大阪大学, 2003, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/44520">https://hdl.handle.net/11094/44520</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">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</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	川 上 裕 二 かわ しみ ゆう じ
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学位記番号	第 17407 号
学位授与年月日	平成 15 年 1 月 24 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 2 項該当
学位論文名	レーザーアブレーション法によるナノ加工技術に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 宮本 勇
	(副査) 教授 黄地 尚義 教授 伊東 一良 助教授 實野 孝久

### 論 文 内 容 の 要 旨

本研究は、レーザー光と被照射材料間の相互作用が照射条件の変化とともにどのように変化するかを明らかにするために、照射時に生成されるナノ粒子と照射された後の照射痕の構造変化について検討した。本論文は、以下の 6 章から構成されている。

第 1 章では、レーザーアブレーション法を用いたナノ粒子生成及びオンライン分級技術、さらにレーザー照射による構造体形成技術について過去の研究と本研究の背景及び意義について述べた。

第 2 章では、金属ナノ粒子生成技術に関する研究であり、これまで生成困難であった高融点金属を含む金属ナノ粒子の生成、その場熱処理による粒子形状調整及び本研究で開発した低圧型微分型電気移動度分級装置を用いたオンライン計測・分級について行い、透過型電子顕微鏡像の結果と比較し、金属ナノ粒子形状制御及び分級について考察した。また、ノーマルパルスレーザーと短パルスレーザーを用いて作製したそれぞれのナノ粒子生成機構について解明した。

第 3 章では、金属ナノ粒子生成及び膜形成技術に関する研究を行った。レーザーアブレーション法で生成した金ナノ粒子を、ノズルを介して吹き付け、金ナノ粒子膜を作製し、その作製時の雰囲気圧力、レーザーフルエンスの変化が電気・光学特性に及ぼす影響について検討・考察した。さらに、電気抵抗体である Ni-Cr 系材料及び強誘電体である BST (チタン酸バリウムストロンチウム) 系材料の膜形成を二種類のナノ粒子の同時生成、混合により作製した結果について検討し、マスクレスで 20  $\mu\text{m}$  以下のタングステン微細配線の作製も行った。

第 4 章では、基板表面に形成したレーザー照射痕、すなわち被照射材料に形成した構造体形成に注目し、その表面の微小構造の変化について検討した。これは世界で初めて発見した現象である微小突起自己規則配列に関するものであり、照射痕周辺に形成した微小突起自己規則配列のレーザー波長、偏光、フルエンスなどの影響について検討した。さらにレーザー照射条件によっては照射痕内部にコーン型のマイクロ突起が形成し、その形成過程についての詳細なメカニズムを提案した。

第 5 章では、各種金属ナノ粒子膜 (低温接合、微細配線、マイクロコイル、誘電体素子など) やコーン型マイクロ突起 (電界放出型ディスプレイ) の応用への可能性と応用例について提案した。

6 章では、総括として本研究で得られた成果を要約し、結論を述べた。

## 論文審査の結果の要旨

本研究はレーザー照射と被照射材料間の相互作用に関するものであり、大きく分けて3つのことについて検討した。まず、1つ目は、レーザー照射により離脱されたものをターゲットにした 1) ナノ粒子生成、2) ナノ粒子分級技術、3) ナノ粒子整形、2つ目は、レーザー照射により離脱されたものから膜形成についてであり 4) ナノ粒子堆積技術、最後にレーザー照射により、残された構造物についてであり 5) 微小突起自己規則配列現象、6) コーン状マイクロ突起形成について検討し、それらのメカニズムの検討及び応用への展開について行っている。その成果を要約すると以下の通りである。

- (a) 2台（デュアル式）の高出力ノーマルパルス Nd : YAG レーザーを用いることにより、各種高融点金属ナノ粒子を作製し、その生成条件と性状の関係について検討している。さらに、ナノ粒子の粒径分布については、Q スイッチレーザーを用いることによりデュアル式ノーマルパルスレーザーの結果と比較し、両者間で生成機構が異なることを明らかにしている。
- (b) 粒径分布計測及び分級では、微分型電気移動度分級装置 (DMA) を用いて生成条件と粒径分布の関係について検討している。タングステンナノ粒子については、均一・均質なナノ粒子分級制御技術を得るため、粒径 10 nm で幾何標準偏差  $\sigma_g \leq 1.2$  を目標にし、DMA 装置を用いることにより分級することに成功している。また、金ナノ粒子の生成・分級を行い、熱処理をすることによって粒子形状調整について行い、熱処理温度によって形状を制御している。
- (c) 本研究で開発したレーザーアブレーション・ガスデポジション法を用いて金ナノ粒子膜を作製し、その電気・光学特性について検討し、比抵抗値においては  $1 \times 10^{-5} \sim 1 \times 10^{-1} \Omega \cdot \text{cm}$  の非常に幅広く制御できることを確認している。光学特性においては雰囲気圧力を低圧にすることにより金黒膜を作製し、近赤外領域では吸収率を 99% 以上のものが得られ、微細な赤外線センサー素子の吸収膜としての応用が期待できる。また、2種類のナノ粒子より複合化合物膜を形成し、電気抵抗体及び誘電体の膜を作製している。微細配線としては、高温で電氣的に安定な材料で、タングステンを用いて作製している。
- (d) 短パルス Nd : YAG レーザーを照射した単結晶タングステン表面に、粒径 150 nm 程度に規則正しく整列することを世界で初めて発見している。その配列状態が、レーザー光の照射角度、波長、偏光性、レーザーフルエンス及び結晶構造と関連しているかどうかについて実験的に検討し、その結果、これまでの LIPSS 理論では理解できない現象であることを確認している。現時点では、配列現象の要因としては、レーザーフルエンス、表面の結晶性、結晶の優先成長方向、冷却速度・方向、表面張力、熱衝撃などが考えられている。
- (e) 純タングステンを用いてコーン型のマイクロ突起物を形成し、レーザーフルエンス、雰囲気ガスの影響について検討している。その結果、従来報告のなかった不活性雰囲気中での突起形成にも成功している。コーンについては形成メカニズムを明らかにし、それはタングステンの高表面張力のために起こる毛管現象によりコーンの前駆体である半熔融のチップが発生し、そのチップの側面の陰効果によってチップ自体のアブレーションが押さえられる。そしてチップ周辺下部はアブレーションされ、飛び出してきた原子あるいはナノ粒子のチップへ付着するため、成長を促進させ、コーンのアスペクト比は増加してマイクロコーンが形成されることと結論している。
- (f) ナノ粒子の応用として、半導体製造プロセスにおける微粒子コンタミネーションの評価装置を提案している。ナノ粒子の特性を活かした低温接合技術については、温度：150°C 以下、荷重：3 kg/mm<sup>2</sup> 以下、接合時間：60 秒で接合することに成功している。
- (g) ナノ粒子膜製造技術に対する応用は、赤外線吸収センサーの吸収体（金黒膜）、Ni-Cr 系抵抗体素子の形成によるマイクロヒーター、金ナノ粒子膜でサンドウィッチ構造を持つ BTO 誘電体膜、W、Pt、Au のマイクロコイルやマイクロバンプなどへの可能性について考察している。
- (h) ナノ構造体の応用への可能性としては電界放出型ディスプレイへの応用について電界電子放出特性測定を行

い、その可能性について検討している。

以上のように、本論文は、レーザーアブレーション法によるナノ加工全般を幅広く研究されている。ナノ粒子生成・分級においてはナノテク分野の様々な応用に発展させられるような結果が得られており、ナノ粒子、ナノ粒子膜についても様々な応用への提案がなされている。また、ナノ突起規則配列は応用といった点では様々な問題があるにしても、サイエンスとしては非常に興味深いものがある。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。