

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月23日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21760540

研究課題名（和文）重力場を利用した低融点材料の構造制御

研究課題名（英文）Structure control of low melting point materials using a gravity field

研究代表者

梶原 隆司（KAJIWARA TAKASHI）

九州大学・工学研究院・技術職員

研究者番号：80423507

研究成果の概要（和文）：

低融点材料の構造制御を行う手段として、高重力場の効果とレーザーアブレーション法とを組み合わせた GAPLA 法について研究を行い、低融点材料の組成傾斜にも GAPLA 法は使用可能であることがわかった。さらに、GAPLA 法で生じる組成傾斜プロセスが拡散によらないことが明らかとなり、材料の融点と組成傾斜の度合いとの関連はほとんどないことが示唆された。しかしながら、GAPLA 法によって生じる組成傾斜の度合いは各構成元素のアブレーション特性の違いにより決まるという重要な知見を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：

In this study, gravity assisted pulsed laser ablation (GAPLA) method is used to fabricate a compositional gradient thin film which consists of low melting point material. Although a composition gradient effect became smaller than the case of high melting point material, it turned out that the GAPLA method is effective also in the composition gradient of low melting point material. Furthermore, it became clear that the composition gradient process by the GAPLA method is not based on diffusion theory. This result means that there is almost no relation of the melting point of material and the composition gradient effect. However, it is acquired an important knowledge that the degree of composition gradient is decided by the difference in ablation characteristic of each constituent element.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010年度	1,100,000	330,000	1,100,000
2011年度	400,000	120,000	520,000
総計	3,600,000	1,080,000	4,350,000

研究分野：

科研費の分科・細目：複合材料・物性

キーワード：傾斜機能・重力場・レーザーアブレーション・低融点材料・高速度撮影

## 1. 研究開始当初の背景

高重力場を利用した物質の組成傾斜実験は、100万Gレベルでの原子の沈降や、数万Gでのセラミックスの遠心焼結等の例がある。100万Gレベルの超重力場の研究では、バル

ク物質中において拡散方程式で説明できないような原子の沈降が起り、原子レベルの組成傾斜が発生することが確認されている。たいへん興味深い現象であるが、高重力場を用いた物質科学の研究は盛んには行われて

おらず、対象物質が薄膜の場合には組成傾斜の可能性すらわかっていなかった。

## 2. 研究の目的

バルク物質の組成傾斜には大掛かりな装置による100万Gレベルの超重力場が必要である。それに対して我々の研究室では、PLA法の高エネルギー粒子付着による成膜の効果に着目し、高重力場中に置かれた基板上にPLAにより成膜するGAPLA法を用いて、比較的容易に発生可能である5,000G程度の重力場においてFeSi<sub>2</sub>組成傾斜薄膜の作製に成功した。しかしながら、広範な応用を考えた場合には様々な材料に適用できたほうが有利である。本研究では低融点材料においてもGAPLA法による組成傾斜が機能することを確認し、さらにはその構造制御を行うことを目的とした。

## 3. 研究の方法

Fig.1に実験装置の概略図を示す。真空チャンバー内の円板を高速回転させることで高重力場を発生し、PLA成膜を行う。

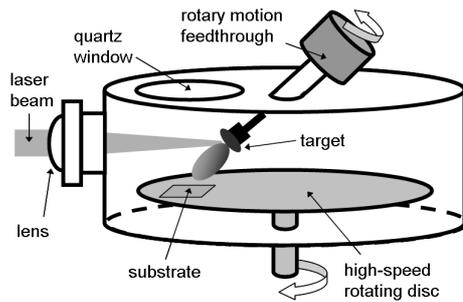


Fig.1 実験装置概略図

低融点材料の場合は、アブレーションによって与えられる熱運動による拡散が、重力場による元素移動よりも優勢になることが考えられる。つまり、重力場の効果によって組成傾斜が起こっていたとしても、熱運動による拡散によってキャンセルされ、均一な組成で安定してしまうのではないかとということである。よって、大きな熱運動を生じさせないようにできるだけ低いフルエンスでのアブレーションを行うことにした。しかしながら、物質にはアブレーション閾値が存在するため低くするにも限界があり、そこで考えたのがターゲット加熱である。低融点材料であれば、融点近くまでターゲットを加熱することでアブレーション閾値は小さくなり、低フルエンスによるアブレーションが可能となるであろうと考えた。本研究では発生するプラズマを高速度カメラで撮影することにより、その発光強度等を観測し、ターゲット加熱によるアブレーション特性の変化を調査した。作製した薄膜の組成傾斜の評価には

SEM-EDXによる元素分析を用いる。

## 4. 研究成果

Fig.2にAl-CuおよびFeSi<sub>2</sub>ターゲットを用いたGAPLA法によって得られた薄膜の組成傾斜のレーザーフルエンス依存性のグラフを示す。Al-Cu合金においてもその度合いは小さいが組成傾斜の発生を確認できた。FeSi<sub>2</sub>の場合と比較して組成傾斜の度合いが小さくなる要因は、アブレーションによる製膜時に膜を構成する粒子等に与えられるエネルギーがAl-Cu合金の融点に対して大きすぎるため、熱運動による拡散が重力場による元素移動よりも優勢になっていることが影響しているのではないかと予想していた。

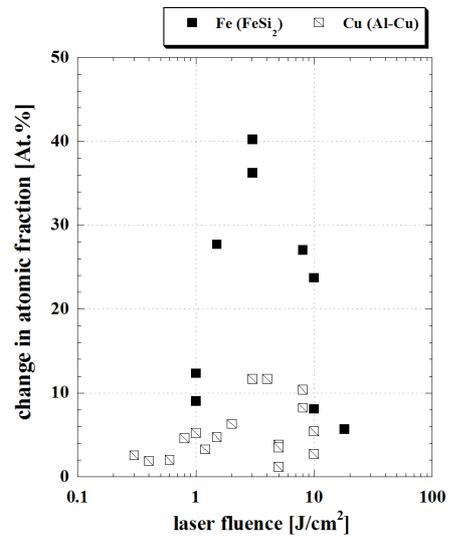


Fig.2 GAPLA法により作製したAl-CuおよびFeSi<sub>2</sub>薄膜の組成傾斜のレーザーフルエンス依存性

次にターゲット加熱なし(常温)およびターゲット加熱あり(約260°C)におけるAl-Cuターゲットのアブレーションプラズマの高速度撮影画像をFig.3に示す。このときレーザーフルエンスは3 J/cm<sup>2</sup>、カメラのゲインは最大値である64に設定した。Fig.3よりターゲット加熱を行った場合は常温の場合と比較するとプラズマの発光強度が大きくなっていることがわかった。これまで100°C程度のターゲット加熱では明確な違いは確認できなかったが、より高温にしたことで発光強度の変化が高速度撮影画像で確認できた。ターゲット加熱によって発光強度が強くなっていることから、低フルエンスでもアブレーションが起こりやすくなっている、つまり加熱によってアブレーション閾値の低下が生じているものと考えられる。

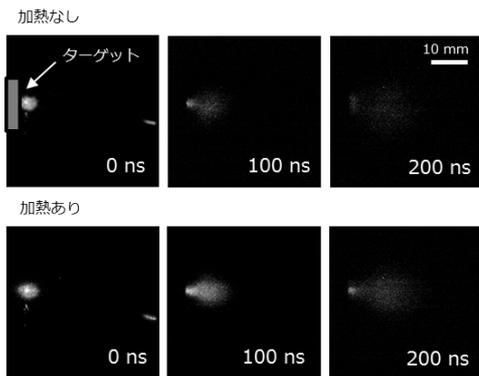


Fig.3 プルームの高速度撮影画像

基板加熱によって低フルエンスでアブレーションが可能ということが確認できたが、得られる薄膜の組成傾斜の傾向には明確な違いは見られなかった。また、基板加熱については当初より予想はしていたが真空中で高速回転しているものを加熱するのは非常に困難であるため実施できていない。

しかしながら、これらの研究を行う過程において非常に重要なことがわかった。GAPLA 法によって生じる組成傾斜は薄膜中の物質の拡散によるものではないということである。Fig.2 に示している組成傾斜について、これほどの大きなオーダーの組成傾斜が短時間で生じることを、どうしても拡散理論では説明できないのである。そこで GAPLA 法による組成傾斜プロセスを考えなおした結果、これらの組成傾斜は構成元素のうちの片方（通常は原子量がより小さいほうの元素）がアブレーション製膜時にエッチングされて減少し、より重い方の元素も再蒸発によって薄膜面を離れるが、離れる際に重力方向への加速度が与えられ、なおかつプルームによるプラズマで薄膜近傍に閉じ込められる形となって、薄膜上のわずかに移動した位置に戻ってくる。軽い方の元素は再蒸発時の速度が大きいので薄膜上には戻ってこない。この繰り返しによって組成傾斜が生じるという結論に至った。これは GAPLA 法によって生じる組成傾斜の度合いは各構成元素のアブレーション特性の違いにより決まるということであり、今回着目した材料の融点はさほど重要な要素ではないということである。その組成傾斜プロセスについては Defect and Diffusion Forum の投稿論文にて触れている。

##### 5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計 3 件）

Compositionally gradient thin film deposition by pulse laser ablation under high gravity

Takashi NISHIYAMA, Takashi KAJIWARA, Kunihito NAGAYAMA

Defect and Diffusion Forum 323-325, pp 559-563, 2012

査読有

Optical Emission Spectroscopy of Thin Film Fabrication by Pulsed Laser Ablation under High-Gravity

Takashi KAJIWARA, Takashi NISHIYAMA, Sachi MORINAGA, Kunihito NAGAYAMA

Applied Physics A: Materials Science & Processing, 101-4, 739-742, 2010

査読有

Fabrication of Compositionally Graded Thin Films by Gravity-Assisted Pulsed Laser Ablation

Sachi MORINAGA, Takashi NISHIYAMA, Takashi KAJIWARA, Kunihito NAGAYAMA

Applied Physics A: Materials Science & Processing, 101-4, 743-746, 2010

査読有

〔学会発表〕（計 5 件）

西山 貴史、梶原 隆司、永山 邦仁  
重力場支援レーザーアブレーション法による組成傾斜薄膜形成に関する考察  
第 72 回応用物理学会学術講演会  
2011. 8. 30 山形大学

K. Nagayama, T. Nishiyama, T. Kajiwara  
Compositionally gradient thin film deposition by pulse laser ablation under high gravity  
Dimat 2011  
2011. 7. 5 Dijon (France)

西山 貴史、梶原 隆司、永山 邦仁  
重力場支援レーザーアブレーション法による組成傾斜薄膜の形成過程  
応用物理学会西部支部  
2010. 11. 27 九州大学伊都キャンパス

梶原 隆司、西山 貴史、森永 幸、矢野 文彬、永山 邦仁  
重力場支援 P L A 法におけるレーザーアブレーションプラズマ中の発光粒子種の空間分布  
高速度イメージングとフォトニクスに関する総合シンポジウム 2009  
2009. 12. 11 大阪大学

Takashi KAJIWARA, Takashi NISHIYAMA,

Sachi MORINAGA, Kunihito NAGAYAMA  
OPTICAL EMISSION SPECTROSCOPY OF THIN FILM  
FABRICATION BY PULSED LASER ABLATION UNDER  
HIGH-GRAVITY  
10th annual Conference on Laser Ablation  
(COLA)  
2009.11.24 Singapore

6. 研究組織

(1) 研究代表者

梶原 隆司 (KAJIWARA TAKASHI)

研究者番号 : 80423507