

フェムト秒レーザーアブレーションプラズマ内クラスター生成

小林 徹

基幹研究所 緑川レーザー物理工学研究室

【序】

我々は種々の試料に対するフェムト秒レーザーアブレーション(fsLA)によって、様々な正・負イオン種の生成を観測して来た。その結果明らかとなったのは、固体試料の高効率原子イオン化が可能である事だけでなく[1]、アブレーションレーザー強度の制御によって、フラグメント・クラスターイオンの生成や、表面不純物由来の水素原子による水素化反応 2 など[2]、アブレーションプラズマ内部における多様な物理化学過程の存在である。その中で今年度は、観測されるクラスターイオンが、本当に試料が解離して生成するフラグメントイオンなのか、それとも実際にプラズマ中で fsLA によって一旦生成した原子がクラスター化過程を経てクラスターイオンになっているのか明らかにすることを目標としている。絶縁体セラミックスである窒化ホウ素(BN)による実験では、その判定が下せなかった。そこで同じく絶縁体セラミックスである窒化アルミニウム(AlN)を試料に用いて fsLA によって生成する正イオンの観測を行い、念願の結論を得る事が出来たので報告する。

【実験装置の概略】

パルス時間幅 200fs のフェムト秒レーザーシステム(Spectra-Physics 社製)と既報の飛行時間型質量分析装置(TOF-MS)を併用して、fsLA による生成イオンを検出・同定している。

今回は試料として厚さ 1 ミリの絶縁セラミックス(窒化ホウ素および窒化アルミニウム)を用いた。

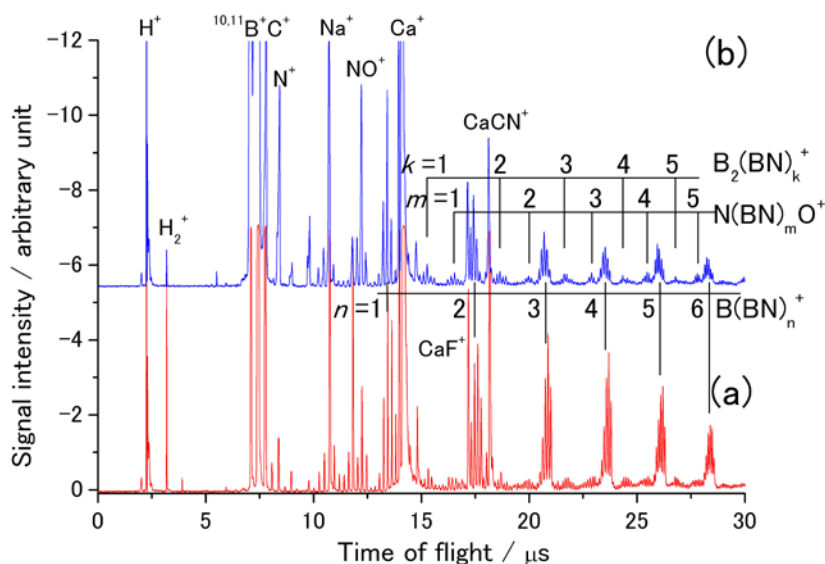


図1. TOF spectra of positive ions produced by fsLA of a boron nitride (BN) substrate at $I = 0.25 \text{ J/cm}^2$. (a) A TOF spectrum after the 1st laser shot and (b) after the 2nd laser shot.

【結果と考察】

試料に絶縁体セラミックスを使用する理由は、フェムト秒レーザー照射による表面クーロン爆発によって、金属等の電気伝導体に比べて試料表面に大きな局所電界が誘起されて、効率よくアブレーションプラズマが生成するからである。

図1に窒化ホウ素基板をfsLAして得られたTOF質量スペクトルを示す。主として $B(BN)_n^+$ 系列およびそれらの水素化物イオ

ンが観測されている。これらのイオンの構成元素は試料である BN とほとんど同じであるため、「生成物はフラグメントかクラスターか？」という疑問には答えてくれない。

そこで窒化アルミニウムを試料に測定した結果を図2に示す。純アルミニウムクラスター系列(Al_n^+)が顕著に生成している事がわかる。この結果から、fsLA によって試料は一旦原子化され、その後クラスター化

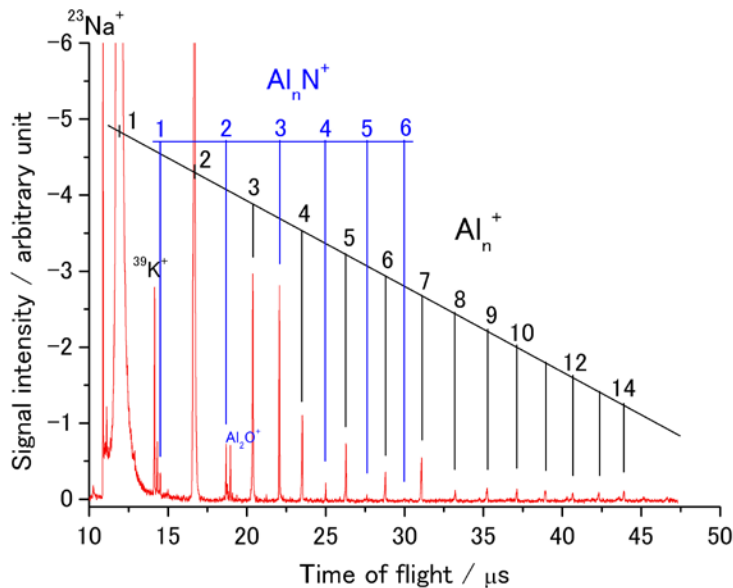


図2. Time-of-flight (TOF) spectrum of the cations produced by fsLA of aluminum nitride (AlN) at laser fluence $I = 0.68 \text{ J/cm}^2$.

が進行したという事が判明した。このような原子イオン化に引き続くクラスター化は、物質との間に熱的な相互作用を及ぼすナノ秒レーザーアブレーション(nsLA)では、プラズマ温度が高すぎて実現しない。

今回得られた結果は、中性および正イオンクラスターの結合エネルギーによって説明する事が出来る。窒化アルミニウムの場合、中性分子と正イオンでは結合エネルギーが逆転するため、fsLA による原子イオン化の後に純アルミニウムクラスターイオンが生成する。窒化ホウ素の場合は、結合エネルギーは逆転しないため、一旦原子イオン化しても、元通りの窒化ホウ素クラスターに戻ってしまうのである。

【展望】

我々の実験から、fsLA によってプラズマ中クラスターイオン生成が判明した。クラスター研究の常識的な手法として、nsLA により気化させた原子を、バッファーガスとともに超音速ジェットによって内部エネルギーの小さな「冷たい」中性クラスターを生成することは知られている。しかしジェット冷却を必要としない fsLA によるクラスターイオン生成では、内部エネルギーを持つ「暖かい」クラスターイオンの物性研究が可能となるため、クラスターに関するこれまで以上の知見を得る事が可能となるだろう。

【参考文献】

- [1] M. Kurata-Nishimura, F. Tokanai, Y. Matsuo, T. Kobayashi, J. Kawai, H. Kumagai, K. Midorikawa, I. Tanihata, and Y. Hayashizaki, Appl. Sur. Sci. 197-198, 715-719 (2002).
- [2] T. Kobayashi and Y. Matsuo, J. Chem. Phys. 135, 204504 (2011).