

# 論文審査の結果の要旨

氏名 田中 悠太

本論文は6章からなる。

第1章は序論である。パルス幅が電子格子エネルギー緩和の時間スケールより短い、フェムト秒からピコ秒の超短パルスレーザーで照射された固体では、高エネルギーの電子系と低エネルギーの格子系が共存する。このような平衡状態とは大きく異なる状態に置かれた固体から表面を構成する物質が放出される現象をアブレーションと呼ぶ。低フルエンスのレーザーアブレーションでは熱的な損傷が極めて小さく（非熱的アブレーション）、格子をあたためる熱源としてレーザーをとらえたのでは説明できない。このように、アブレーションは基礎的な物理過程として興味深いのに加え、超短パルスレーザーを利用した精密加工のメカニズムを理解する観点からも重要である。非熱的アブレーションのメカニズムとしてはこれまで、高エネルギー電子が飛び出したあと、残されたイオンがクーロン斥力で放出されるクーロン爆発機構が提唱されているが、高速な中性化が起こる金属ではその正当性が疑問視されている。また、従来の分子動力学計算では、nm以下のアブレーションや高エネルギー粒子放出の実験結果を説明できていない。これらの背景を述べた後、本論文では、金属の非熱的アブレーションを対象とし、閾値程度のフルエンスの超短パルスレーザーを照射した際に観測されるアブレーションを、イオン化を必要とせずに説明できる機構を提案し、連続体モデルや分子動力学によるシミュレーションを通してその正当性を議論するという目的が述べられている。

第2章では、電子エントロピー誘起のアブレーション機構を提案している。物質としては銅をとりあげ、有限温度密度汎関数理論に基づく第一原理計算を実行して、自由エネルギーを体積の関数として求めた。その結果、常温においては存在する安定な状態（自由エネルギーが最小となる体積）が、電子温度 25,000K の場合には消失することが分かった。これは、電気的に中性のままでも体積が際限なく増大し物質が破壊されることを示している。また、内部エネルギー項は安定な状態を持つのに対し電子エントロピー項は体積が大きいほど利得が大きいこと、これは状態密度の増加に起因することが分かった。これらの結果に基づいて、超短パルスレーザーを照射された銅では表面の電子が高温になり、電子エントロピーの効果で固体が不安定化してアブレーションが起こるといふ電子エントロピー誘起機構を提案している。

第3章では、連続体モデルシミュレーションによって、電子エントロピー誘起機構の正当性を議論している。電子系と格子系に別個の温度を割り当てる2温度モデルを採用し、電子温度および格子温度の時間・空間発展を記述する連立偏微分方程式を立式している。レーザーから電子系へのエネルギー付与、電子系における熱伝導、電子・格子間の熱伝達を考慮し、表面の格子温度が自由エネルギーの活性化障壁を超えることをアブレーションの判定条件としている。銅のアブレーション深さのフルエンス依存性を計算したところ、実験を定量的に再現する結果が得られ、特に低フルエンス領域では電子エントロピー

の寄与が支配的であることが分かった。

第4章では、2温度モデル分子動力学シミュレーションによって、電子エントロピー誘起機構の正当性を議論している。電子系と深い位置にある格子系を連続体として扱いつつ表面付近の原子の動きを分子動力学でシミュレーションしている。エネルギー保存を満たす電子系の熱拡散方程式の導出、原子間ポテンシャルの有限温度への拡張などの工夫を施している。銅のアブレーションをシミュレーションした結果、実験や連続体モデルと整合したアブレーション深さが得られた上に、フルエンスの増加にともなって実際に見られる atomic emission から spallation、さらに phase explosion への様態変化を再現している。

第5章では、アブレーション閾値の物質依存性を議論している。電子エントロピー誘起機構に基づき、表面反射率、電子系熱容量、凝集エネルギー、レーザー侵入深さ、閾電子温度からアブレーション閾フルエンスを計算する表式を提案している。様々な金属に適用した結果、低反射率の物質では実験とよく一致しているものの、高反射率の物質ではずれがみられた。反射率の温度依存性がずれの原因であると考察している。

第6章は結論であり、本論文のまとめと展望が述べられている。

以上のように本研究では、フルエンスが比較的低い超短パルスレーザーによる金属のアブレーションのメカニズムとして、有限温度密度汎関数理論による計算の結果から電子エントロピー誘起機構を提唱し、それに基づいた連続体モデルおよび分子動力学によるシミュレーションを実行し、アブレーション深さや様態変化について実験を説明する結果を得ることで、電子エントロピー誘起機構の正当性を示すことに成功している。本論文の成果は、平衡状態とは大きく異なる状態に置かれた固体から発現する現象を記述する理論の発展に寄与する点で、また、従来職人の経験と勘に頼ってきたレーザー加工のメカニズムの学理的解明に寄与する点で、その意義は大きい。

なお、本論文第2～5章は、常行真司との共同研究であるが、論文提出者が主体となって計算手法の開発、原子間ポテンシャルの開発、コードの実装と実行、結果の解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。

○