

論文審査の結果の要旨

氏名 清水 亮太

チタン酸ストロンチウム(SrTiO_3)は、ペロブスカイト系酸化物薄膜を作製する際に汎用的に用いられる単結晶基板であり、その上でのホモエピタキシャル成長は、酸化物薄膜の成長様式を理解する上での最も基礎的な系と位置付けられている。本研究では、酸化物薄膜のさらなる高品質化のためのボトムアップアプローチとして、真に原子レベルの秩序を有する $\text{SrTiO}_3(001)$ 基板表面(原子制御基板表面)を得るための手法の確立と、その基板上における薄膜成長初期過程の原子スケール観察について議論している。

第1章は序論であり、本論文の背景および目的が述べられている。 $\text{SrTiO}_3(001)$ 単結晶表面は、薄膜成長、表面科学の両分野において盛んに研究が繰り広げられているが、互いの表面準備条件には大きな隔たりがあり、薄膜成長時に原子制御表面を保障する基板処理技術は確立されていない。とりわけ、酸化物極薄膜における金属-絶縁体転移などの興味ある現象を理解するには、原子制御基板の準備と、初期成長過程の原子スケール観察を通じて、薄膜の結晶性と物性との関係を明らかにすることが重要であると指摘している。

第2章では、実験手法と装置の概略について説明している。まず、本研究における表面観察の主な手法である走査型トンネル顕微鏡(STM)について詳説し、続いて、他の表面観察手法として、低速電子線回折(LEED)、反射高速電子線回折(RHEED)、Auger電子分光(AES)、原子間力顕微鏡(AFM)について紹介している。また、薄膜結晶構造評価手法であるX線回折(XRD)、及び薄膜作製手法であるパルスレーザー堆積法(PLD)についても解説し、最後に本研究で使用したPLD-STM装置の仕様について概説している。

第3章では、STM装置の超安定化のために本研究で導入した除振機構について議論している。除振における理論的背景をまとめた後、その原理に基づいて導入したアクティブ制御除振台を含む除振機構の振動伝達について、系統的かつ定量的な解析を行っている。また、実際のトンネル電流測定時における影響について議論し、その除振機構の有用性を示している。

第4章では、原子制御酸化物基板の準備手法の確立とその表面構造について議論している。まず、ルチル型 $\text{TiO}_2(110)$ 基板をモデルケースとして、薄膜成長に向けた酸化物基板表面作製の基礎について議論し、表面不純物及びアニール時の雰囲気、とりわけ酸素分圧の影響について考察している。それらの知見を踏まえた上で $\text{SrTiO}_3(001)$ 基板表面の処理を行い、通常の薄膜成長条件下で $(\sqrt{13} \times \sqrt{13})$ 再構成表面を再現性良く得る手法を確立している。この $(\sqrt{13} \times \sqrt{13})$ 再構成表面の構造は、過去に提案されたモデルでは説明できないことを示した後、新たな構造提案に向け、走査トンネル分光法(STS)による電子状態観察のデータを提示している。

第5章では、第4章で作製した $\text{SrTiO}_3(001)-(\sqrt{13} \times \sqrt{13})$ 基板表面上にホモエピタキシャル成長を行い、その成長過程初期における原子スケール観察について議論している。特に、原子制御基板を用いることで、薄膜第1層目からコヒーレントなエピタキシーが実現していることを明らかにしている。

第 6 章では、本研究の結論と今後の展望が述べられている。

以上のように、本研究では、真に原子レベルの秩序を有する SrTiO₃(001)基板表面の準備手法を確立するとともに、その上にホモエピタキシャル成長を行うことで、薄膜第 1 層目からのコヒーレントエピタキシーが実現していることを明らかにした。この基板準備・薄膜作製・表面観察という一連の手法は、他のヘテロエピタキシャル薄膜成長にも容易に応用できることから、これらの研究は機能性薄膜のさらなる高品質化、低次元酸化物における物性物理の解明に大きく寄与する成果である。なお本論文は、複数の研究者との共同研究であるが、論文提出者が主体となって行ったものであり、論文提出者の寄与は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。