

氏名(本籍)	しも やま かず お 下山和男(群馬県)
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第2900号
学位授与年月日	平成14年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	工学研究科
学位論文題目	金属酸化物単結晶基板上への金属酸化物薄膜のエピタキシャル成長
主査	筑波大学教授 博士 村上浩一
副査	筑波大学教授 博士 秋本克洋
副査	筑波大学教授 博士 名取研二
副査	筑波大学教授 博士 川辺光央
副査	筑波大学教授 博士 長谷川文夫
副査	筑波大学教授 博士 山部紀久夫

論文の内容の要旨

金属酸化物は、その結晶性および構成元素により、金属的性質から絶縁体的性質まで、幅広く制御することができることから、次世代電子デバイス材料として大きく期待されている。

本論文では、多くの金属酸化物の中でも、もっとも基本的な結晶構造を有する材料として注目されているペロブスカイト結晶チタン酸ストロンチウム (SrTiO_3) を基板として、分子ビームエピタキシャル法により、基板表面に同種結晶系および異種結晶系の薄膜を成長させる機構を論じている。

第4章では、金属酸化物単結晶表面形態の制御法を提案し、 SrTiO_3 では、 1050°C 常圧酸素雰囲気中1時間の熱処理により、単位格子高さのステップ/テラス構造で構成された制御表面が得られることを実験的に示し、同時にエピタキシャル成長時に形態が安定に維持されることを示した。以後の実験の基板全てに適用した。

第5章では、 SrTiO_3 基板上への BaTiO_3 薄膜成長に関するもので、微量酸素雰囲気中での Ba/Ti の交互供給では、一方の原子の過剰供給により三次元成長した薄膜は他方の原子の供給により平坦性が回復し、その繰り返しによって形成された薄膜は化学量論比になることを示し、表面形態および化学量論比に自己制御機能を有することを示した。

第6章では、 SrTiO_3 基板上への BiTiO_3 薄膜のエピタキシャル成長における雰囲気中酸素分圧の影響を評価し、酸素分圧が低いほど、厚い膜までエピタキシャル成長が継続することを示した。同時に、酸素分圧の低下に伴い、基板中の酸素供給の比率が高まり、基板中には酸素欠損を発生させることを示した。雰囲気中の酸素供給を停止し、基板からの酸素供給のみとし、多量の酸素あるいは酸素欠損が界面を通過しても、界面の急峻性は保たれ、構成金属原子の拡散に対する酸素および酸素欠損の寄与は極めて小さいことを明らかにした。

第7章では、蛍石型金属酸化物薄膜 CeO_2 のエピタキシャル成長へ応用により、同様に結晶薄膜が成長することを示した。しかし、 CeO_2 では、雰囲気中の酸素の有無により表面平坦性が明らかに変化し、雰囲気酸素が表面マイグレーションに影響を与えていることを明らかにした。また、 SrTiO_3 表面に CeO_2 膜成長した後、さらに、 SrTiO_3 膜が低酸素分圧でエピタキシャル成長することを示した。その際、中間層の CeO_2 膜成長直後には格子歪を受けるものの、 600°C の酸素アニールによる酸素充填により格子歪が回復することも示した。

第8章では、陽電子消滅法を用いて、SrTiO₃基板中の酸素欠損の挙動を評価した結果を述べている。基板中の酸素欠損は、薄膜成長表面近傍に留まらず、厚さ0.5mm基板全体に広がっており、基板中の酸素が表面に拡散したのではなく、成長表面で形成された酸素欠損が内部に拡散する機構が支配的であることを示した。

第9章では、従来、SrTiO₃膜のエピタキシャル成長は600℃以上でなされていたが、電子デバイスへの応用に対しては、低温成長が望まれる。そこで、前節までの技術を用いて、エピタキシャル成長の下限温度を求めたところ、少なくとも370℃までの低温化が可能であることが明らかになった。

審 査 の 結 果 の 要 旨

金属酸化物の薄膜エピタキシャル成長において、金属酸化物基板中の空孔拡散機構による酸素の表面への供給がエピタキシャル成長を低温化するという、新しい機構を提案し、MBE成長によって実証した。その研究内容は、博士（工学）学位受領に値するものである。

よって、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。