

Title	Structural Study of New Material Thin Films of BiSrCaCuO Superconductors, Flavin Derivative Molecules and C60 Fullerenes using Transmission Electron Microscopy
Author(s)	和田, 理
Citation	大阪大学, 1995, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/39576
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について <a>〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏 名	和田 理
博士の専攻分野の名称	博士 (工学)
学位記番号	第 12056 号
学位授与年月日	平成 7 年 7 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 2 項該当
学位論文名	Structural Study of New Material Thin Films of BiSrCaCuO Superconductors, Flavin Derivative Molecules and C ₆₀ Fullerenes using Transmission Electron Microscopy (透過電子顕微鏡法による, 新薄膜材料としての BiSrCaCuO 超伝導体, フラビン誘導体および C ₆₀ フラーレン薄膜の構造的な研究)
論文審査委員	(主査) 教授 平田 光児 (副査) 教授 中島 尚男 教授 鈴木 直

論文内容の要旨

新しい機能を有する薄膜デバイスの開発には、高品質の単結晶薄膜の実現および結晶の配向や格子欠陥の制御が求められている。薄膜の制御には原子レベルで薄膜を評価し、結晶成長機構を理解することが必要であり、透過電子顕微鏡法 (TEM) はそのための有効な手段である。

本論文は TEM により、新しい材料である高温超伝導薄膜、Langmuir - Blodgett (LB) 法によるフラビン単分子膜および C₆₀ の薄膜について、その薄膜の構造、成長機構の研究についてまとめたもので、次の 5 章からなる。

第一章は緒論であり、本研究の背景と実験手法を要約し、論文構成について述べてある。

第二章は液体ヘリウムを用いないジョセフソン素子等に応用が期待されている Bi 系高温超伝導薄膜について、c 軸方向にコヒーレンス長が短いことによる素子作製上の困難な課題を解決する手法の一つを提案している。

まず基板に SrTiO₃ (110) を用いて、スパッタ法により BiSrCaCuO を成膜すると c 軸が 45° 傾く現象を断面 TEM 法で調べ、2 方向に配向した多結晶膜であること、基板との方位関係、結晶粒内の積層欠陥の存在などを明らかにしている。また、微傾斜した基板を用いると、基板の傾斜方向に依存して膜の配向方位の 1 方向が優先的になることを示し、基板傾斜角度 5° 近傍でほぼ単結晶膜が得られることを明らかにした。さらに、成膜メカニズムを考察し、傾斜基板表面上のステップから優先的に成長が起こることを示した。

第三章ではスイッチング素子等の分子電子デバイスの開発のため、LB 法により作製した電子伝達蛋白質の機能団であるフラビン誘導体の単分子膜の構造解析結果について述べてある。

暗視野法による観察結果から、フラビン単分子膜はわずかにゆらいだ一軸配向性の繊維構造を持つことを明らかにした。また、結晶内の分子配向も赤外分光法により同定している。さらに、このような繊維構造の結晶が形成されるメカニズムについて調べ、LB 膜における成膜過程を表す表面圧 - 面積曲線に現れる変曲点を過ぎると結晶相が形成されることを明らかにし、変曲点の意味を説明した。

第四章では新しい電子材料として期待されている C₆₀ をイオンクラスタービーム (ICB) 法により成膜した C₆₀ 薄膜の微細構造解析の結果について述べている。

ICB - C_{60} 薄膜は NaCl 基板上では fcc 構造の多結晶で、ICB 条件の加速電圧を変えることにより、 C_{60} 膜の配向方位を制御できることを示した。一方、マイカ基板上では C_{60} 膜はエピタキシャル成長し、基板温度を制御することにより単結晶が得られた。さらにその中の格子欠陥の基板温度依存性を調べ、温度が高くなると、欠陥密度は減少するが、欠陥の長さは長くなることを明らかにした。欠陥については高分解能 TEM 法により、{111} 面に入った積層欠陥と同定した。

第五章は本研究のまとめと結論であり、本研究の新しい薄膜デバイス開発のための位置づけを行っている。

論文審査の結果の要旨

透過型電子顕微鏡法 (TEM) により、新しい薄膜デバイスとしての応用が期待されている BiSrCaCuO 高温超伝導体、フラビン誘導体分子、 C_{60} フラーレン薄膜を作成してその構造を調べ、それぞれの薄膜の成長機構を明らかにした。

スパッター法により BiSrCaCuO 薄膜を SrTiO₃ (110) 基盤上に成膜した場合、その c 軸方向が基盤に対して 45 度傾斜する現象を断面 TEM 法で調べ、薄膜が 2 方向に配向した多結晶膜であること、結晶子と基盤との方位関係、粒内の積層欠陥の性質を明らかにした。これらの結果から良質の成膜は微傾斜基盤を用いることにより可能となることが明らかになり、薄膜の構造の基盤傾斜角度依存性から (110) よりほぼ 5° 傾斜した基盤の使用により単結晶薄膜となることを見いだした。この結果は従来 Bi 系超伝導薄膜においてコヒーレント長が c 軸方向に短いことによる素子作成の問題点を解決するための手がかりを得た。

スイッチング素子としての分子デバイス開発のために電子伝達蛋白質の機能団であるフラビン誘導体の単分子膜を Langmuir - Blodgett (LB) 法によって作成しそれが僅かに揺らいだ一軸配向性の繊維構造を有すること暗視野法で明らかにし、さらにた。さらに成膜過程での表面圧 - 面積曲線での変曲点は結晶相の形成に対応することを明確に示した。

ドーパントの選択により新電子材料としての可能性の期待がある C_{60} 薄膜をイオンクラスタービーム (ICB) 法により異なる基盤上に様々な条件で作成してその微細構造を解析した。へき開 NaCl (100) は基盤上では面心立方の多結晶であるが ICB の加速電圧を 100V から 500V に変化させると優先方位は $\langle 110 \rangle$ から $\langle 111 \rangle$ へ変化化することから電圧を制御することにより薄膜の配向を制御できることを明らかにした。またマイカ (100) 基盤上では単結晶が得られるが、{111} 積層欠陥が導入されることが分かった。

本論文ではそれぞれ異なった目的を有する近未来の薄膜電子デバイス材料として期待されている Bi 系超伝導体、フラビン誘導体分子、 C_{60} 薄膜を様々な条件で作成し、透過型電子顕微鏡観察を主としてそれらの膜の微視的構造と成長機構を明らかにし、それらの結果をふまえて実用化のための極めて重要な指針を提案しており、学位論文として価値あるものと認める。