OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	パルスレーザー堆積/超高真空走査プローブ顕微鏡複合装置の開発とアナターゼ型TiO2(001)-(1×4)再構成表面の研究
Author(s)	勝部, 大樹
Citation	大阪大学, 2019, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/72286
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

様式3

論 文 内 容 の 要 旨

氏 名	（ 勝 部 大 樹 ）
論文題名	パルスレーザー堆積/超高真空走査プローブ顕微鏡複合装置の開発と アナターゼ型TiO_2(001)-(1×4)再構成表面の研究

論文内容の要旨

アナターゼ型TiO_2は高活性な光触媒活性を持ち、光照射により水の分解反応や超親水性といった特性を示す．この反応を原子レベルで理解するためには、反応の最初の段階となる水分子の吸着について原子レベルで理解しなければならない．しかし、アナターゼ型TiO_2(001)表面は、原子レベルの研究を行う際に必要な原子レベルで平坦な試料の作製が困難であることから研究が進んでいなかった．室温における水吸着について、走査トンネル顕微鏡(STM)の先行研究とX線光電子分光(XPS)の先行研究では互いに矛盾した報告がなされており、水分子の吸着サイトと吸着状態について明らかになっていなかった．本研究では、パルスレーザー堆積装置と超高真空走査プローブ顕微鏡(UHV-SPM)を複合化した装置の開発を行い、アナターゼ型TiO_2(001)表面の水分子の吸着について研究を行い、水分子の吸着状態と吸着サイトを明らかにした．

UHV-SPMに適したPLD装置を設計・開発することで、複合装置の開発を行った．開発した複合装置を用いて、原子レベルで平坦なアナターゼ型TiO_2(001)薄膜の作製手法を確立し、表面の原子スケール観察が可能であることを実証した．

NC-AFMは、探針先端の状態に依存して、様々なパターンの像が得られることを示した．これらの各パターンの像に対して、コントラストの対応関係を明らかにし、STMを参考データとすることでアナターゼ型TiO_2(001)-(1×4)再構成表面の周期構造とコントラストの対応関係を明らかにした．

XPS測定により、室温環境下でのアナターゼ型TiO_2(001)-(1×4)再構成表面の水の吸着状態を調べることで、表面で乖離吸着水がOH基となることを確認した．水分子を吸着したアナターゼ型TiO_2(001)-(1×4)再構成表面をNC-AFMを用いて調べることにより、OH基はそのほとんどが特定の周期構造上に局在することを明らかにした．また、フォーススペクトロスコピーにより、理論計算による先行研究で吸着しないとされていたサイトにOH基が存在していることを明らかにした．

これらは、アナターゼ型TiO_2(001)-(1×4)再構成表面の水吸着の原子レベルにおける先駆的な研究であり、NC-AFMを用いた原子レベルの研究分野を新たに開拓したものである．

様式7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名（勝　部　大　樹）		
論文審査担当者	（職）	氏　　名
	主査　教授	阿　部　真　之
	副査　教授	中　村　芳　明
	副査　教授	浜　屋　宏　平
	副査　教授	一　杉　太　郎（東京工業大学物質理工学院）
	副査　准教授	杉　本　宜　昭（東京大学大学院大学院新領域創成科学研究科）

論文審査の結果の要旨

光触媒材料であるアナターゼ型と水の吸着反応を原子レベルで理解するために、室温で動作する超高真空走査型プローブ顕微鏡（UHV-SPM）を用いて研究を行った。従来、TiO_2の原子レベルでの研究はルチル型構造をもつタイプの結晶で行われることが多かった。その理由としては、試料作製の難しさにあった。また、原子レベルでの研究はSPMの一つである走査型トンネル顕微鏡を用いられることが多かったが、表面構造を理解するための非接触原子間力顕微鏡（NC-AFM）での研究は測定が難しいゆえに、重要な研究分野であるにもかかわらずほとんど行われてこなかった。申請者はこれらの問題を解決するために、UHV-SPMとパルスレーザー堆積法（PLD）を組み合わせた装置を開発し、アナターゼ型TiO_2の清浄表面における、NC-AFM画像化機構および水分子吸着サイトと吸着状態を明らかにした。具体的には、アナターゼ型TiO_2薄膜の原子レベルで平坦でかつ清浄な表面を作製し、真空一貫のままUHV-SPM測定ができる装置を開発し、原子分解能測定に成功した。さらに、アナターゼ型TiO_2(001)表面が(1×4)再構成構造を持つことを、STMおよびNC-AFM、低速電子線回折（LEED）で確認し、複数あるNC-AFM像の解釈を示した。また、水吸着サイトをフォーススペクトロスコピーによって明らかにするとともに、これまでの理論計算による研究で存在しないとされていたBulk-cut列におけるOH基の存在を観測するとともにその形成サイトを明らかにしている。また、水が吸着しやすいサイトとそうでないサイトがあることを明らかにした。これらの結果は、アナターゼ型TiO_2(001)表面の研究に新たな重要な情報を与えるものであり、アナターゼ型TiO_2(001)表面における光触媒反応を理解する上で重要な知見となるものである。したがって、博士（理学）の学位論文として価値のあるものと認める。