

Electrical transport and optical functionality in two-dimensional crystals of transition-metal dichalcogenides

その他のタイトル	遷移金属カルコゲナイド二次元結晶の電気伝導と光機能
学位授与年月日	2016-03-24
URL	http://doi.org/10.15083/00073545

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 : 張 奕勁

グラフェンの発見以降、ファンデルワールス層状結晶の単層、あるいは数層からなる物質の物性、デバイス応用の研究が始まり、近年その研究が非常に加速されている。その契機となる物質が遷移金属ダイカルコゲナイドである。ディラック点を有するゼロギャップのグラフェンに対し、単層遷移金属ダイカルコゲナイドは、グラフェンと等価なハチの巢格子を有しながらも、面内の反転対称性の破れのため有限のエネルギーギャップが開いた半導体となっている。このため、バレー自由度を有する新たな機能性物質として注目されている一方、高性能トランジスタや光デバイスへの応用が期待されている。遷移金属ダイカルコゲナイドをはじめとする新しい2次元物質の物性研究は始まったばかりであり、その解明が大いに期待されている。本論文では遷移金属ダイカルコゲナイドをベースとする2次元物質について、電気二重層トランジスタを用いた系統的研究を行っている。その結果、両極性伝導・電界誘起超伝導の観測、電界誘起 *p-i-n* 接合の形成とそれを用いた円偏光発光、およびその電界による反転動作など、2次元物質としての新しい物性の開発に成功した。本論文は5章から構成されており、以下にその概要を述べる。

第1章では、対象物質である遷移金属ダイカルコゲナイドの単層および数層の2次元物質についての先行研究を含む背景が簡潔に述べられている。第2章では、当人が立ち上げてきた単層薄膜作製とその評価装置、電子ビームリソグラフィを用いたデバイス作製から輸送現象測定、さらには円偏光分光測定の詳細が説明されている。

第3章では輸送特性に関する成果がまとめられている。まず、本論文で主要な役割を果たす電気二重層トランジスタについての基本事項の説明ののち、二硫化モリブデン MoS_2 、二セレン化モリブデン MoSe_2 、二セレン化タングステン WSe_2 の3種類の物質についての電気二重層トランジスタ特性が述べられている。本論文では、機械的剥離法で作製した MoS_2 ナノ薄膜に対し、はじめて電気二重層トランジスタを作製した。その結果、電気二重層に発生する強電界の効果によって非常に大きな範囲でフェルミエネルギーを変化させることに成功し、ゲート電圧によってキャリアの反転が起こる両極性動作を実現した。 MoS_2 で正孔電流を初めて観測するとともに、電子、正孔蓄積ともに電界誘起による絶縁体—金属転移を実現した。さらに、電子側のキャリア数を $1 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ 程度まで蓄積することによって、超伝導が発現することを観測した。 MoS_2 においては二重ゲート法を用いて詳細なキャリア数制御を行い、超伝導転移温度がキャリア密度の上昇とともにはじめは増加し、その後最大値を取って減少するドーム型相図を有することを明らかにした。電界誘起超伝導は MoS_2 においても観測されたが、 WSe_2 では観測されなかった。

第4章では、単層の遷移金属カルコゲナイドの光物性についての背景の説明に続いて、電界発光デバイスの研究成果がまとめられている。まず、 WSe_2 についてトランジスタの両極性動作を用いて電界効果ドーピングによってプレーナー型の *p-i-n* 接合を作製し、ホール効果や電流-電圧特性の測定によって確認した。その接合に電流注入を行うことによって電界発光を観測し、しかも、この発光が円偏光していることを見出した。さらに、その偏光が電圧によって切り替わるこ

とを発見した。この実験結果を、多バレー構造を有する単層遷移金属ダイカルコゲナイドの電子構造に基づき議論している。本系は反転対称性の破れによってバレーに依存した円偏光選択側が現れることが特徴である。それをベースに、価電子帯の有するトリゴナルワーピングと呼ばれる非放物線性のバンド構造のために円偏光した電界発光が生じ、しかも電場の反転とともに円偏光が反転するというモデルを提唱し、ボルツマン方程式に基づくシミュレーションにより実験結果を再現した。さらに MoSe_2 についても同様の特性を観測し、その円偏光発光機構に関する上記の機構に対し、強い証拠を提示した。

本章の最後には、単層 WSe_2 の伝導帯と価電子帯がバレーに依存したスピン偏極を持っていることを利用し、磁気抵抗効果の測定からバレー散乱時間を評価した。このバレー散乱時間と発光の円偏光度との相関を議論し、電子のバレー緩和が円偏光度の解消の重要な要因となっていることを示した。

第5章では、本研究によって得られた成果について総括を行い、展望について述べている。

以上をまとめると本論文では、遷移金属ダイカルコゲナイドの単層および数層の薄膜に対し電気二重層トランジスタによる輸送特性の解明と機能開発の研究を行い、以下のような知見を得た。まず、電界誘起超伝導を発見し、超伝導転移温度がバルクよりも高くなることを明らかにした。また、電界誘起 $p-i-n$ 接合を用いて電圧制御可能な円偏光光源としての機能を明らかにし、バレーエレクトロニクスデバイスの提案・実証した。以上の知見は、遷移金属ダイカルコゲナイド2次元物質の物性研究の基礎を与えるとともに、素子開発の上での設計指針となるものである。また、2次元物質が新たな物性・機能開拓の対象として非常に有力であることを示した。

今回得られた成果は、物性科学・物理工学の発展に大きく寄与すると期待され、本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。