

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 王 越

物質科学の劇的な進展によって、原子層レベルの厚みを有する多彩な2次元物質が得られるようになり、その物性や機能が大きな注目を集めている。「Two-dimensional magnets grown by van der Waals epitaxy (ファンデルワールス・エピタキシーによる2次元磁性体の研究)」と題された本博士論文は、2次元物質の作製法として、分子線エピタキシー(MBE)法というボトムアップ的な手法を導入し、2次元層状物質の高品質薄膜の作製に成功し、その技術をファンデルワールスヘテロ接合、2次元磁性体へと広げ、輸送現象、磁氣的性質を明らかにしていった研究の総合報告である。MBE法は、実際の多くの2次元物質に適用されているが、その物性計測は多くの場合その場観察の可能な角度分解光電子分光や、走査型トンネル分光に限られており、結晶相の同定や、輸送現象まで踏み込んだ物性研究は少ない。本研究は、結晶相の同定と、輸送現象、磁氣的性質を明らかにしたものである。特に、磁性元素を挿入した層状物質は、へき開によっては単層～数層レベルの物質を得ることが困難とされており、MBE法によってはじめて明確な結晶相の同定を行い、その伝導特性、磁氣的性質を明らかにした。本論文は6章から構成されている。

第1章では、本研究の背景と基礎知識となる、2次元物質、2次元磁性、およびこれらの合成法に関する事項がまとめられている。物質系は遷移金属ジカルコゲナイド(TMDC)を中心とした物質群を対象としている。

第2章では、本研究の目的が述べられている。

第3章では、実験手法の説明が簡潔に述べられている。MBEによる薄膜成長とその構造評価技術に関する事項である。

第4章では、MBE装置の立ち上げと、それを用いて作製したいくつかの物質の構造および物性評価が説明されている。4.1節で本章の構成を簡単に説明した後、4種類の物質を各節に分けて論じている。4.2節では、王氏が最初に手掛けた MoSe_2 と WSe_2 について説明している。両物質は、典型的なTMDCとして、へき開によって作製されたトランジスタデバイスについて多くの研究がある。氏は、両物質のMBEによる試料作製に成功すると共に、それらの両極性トランジスタ動作に初めて成功した。4.3節では、半金属性を示す TiSe_2 の薄膜成長と輸送特性についてまとめられている。この場合はエピタキシャル成長に2つの方向があり、これによって電荷密度波転移の温度が変化するという特徴を初めてとらえている。4.4節では、 ZrSe_2 と WSe_2 のファンデルワールスヘテロ界面を作製することに成功した。これらの格子不整合は10%にも達するが、それでも良質の界面を形成することが明らかになった。またこれらの物質は単体では高抵抗の半導体であるが、 $\text{ZrSe}_2/\text{WSe}_2$ ヘテロ接合では電気抵抗が3桁程度減少することを見出した。これは、両物質間に電荷移動が起こり、ヘテロ界面にキャリアが発生したこと由来すると解釈している。4.5節では、いくつかのテルル化物の作製について報告している。

第5章では、2次元磁性体のMBE成長と物性について報告している。王氏は物質の多様性を広げるため、自己インターカレーションによりへき開が困難な層状磁性体、 V_5Se_8 、 Cr_3Te_4 の合成に成功すると共に、極薄膜領域まで明瞭な強磁性が発現することを明らかにした。まず V_5Se_8 は $\text{V}_{1/4}(\text{VSe}_2)$ と書け

るが、これはバルクでは反強磁性体として知られている。しかしながら、MBE 成長した V_5Se_8 薄膜は数 10 層でも強磁性が発現し、少なくとも 3 層までは強磁性が発現することが明らかになった。また、 V_5Se_8 は異方性が非常に弱く、3 層レベルで遍歴型のハイゼンベルク型強磁性を示すことが明らかになった。このように異方性が弱い 2 次元強磁性体は、その磁性を様々な手法で制御できる可能性があるため重要である。実際、王氏の報告直後に V_5Se_8 を用いた磁性ファンデルワールス接合へと研究が発展しており、界面における近接相互作用を利用した磁性の変調が実現されている。

一方、テルル化クロム系は Cr と Te の比に応じて様々な相が存在することが知られているが、それらのほとんどが室温以上の T_C を示すため、数層レベルでも高い T_C を示すことが期待されている。しかしながら、これらの物質系は層間相互作用が強く、へき開で超薄膜試料を得るのは困難である。一方で、MBE による試料作製は特に近年活発に行われているが、単相試料を得るのが困難で、相の同定すら行われていない状況であった。王氏は、x 線回折、走査型透過電子顕微鏡観察、反射高速電子線回折などを駆使して、MBE で合成した薄膜の組成が Cr_3Te_4 つまり $Cr_{1/2}(CrTe_2)$ であると同定するとともに、 $T_C = 170\text{ K}$ の面直強磁性を示すことを明らかにした。また、試料を熱処理することでバルクと同程度の $T_C = 310\text{ K}$ に達することを見出した。そして、これが単層極限でも 200 K 以上の T_C を示すことを明らかにした。さらに、 $T_C = 170\text{ K}$ を示す熱処理前の Cr_3Te_4 は、層数によってほとんど変化しない T_C を示し、2 層でも $T_C = 170\text{ K}$ を示すことを明らかにした。これは、膜厚を減少させると T_C も減少する通常の強磁性体とは異なり、 Cr_3Te_4 が原子層レベルでも T_C が変わらない初めての強磁性体であることが明らかになった。王氏は、 Cr_3Te_4 薄膜が、非常に強い面直磁気異方性を有することを明らかにし、膜厚依存性のない T_C がこの強い異方性により発現すると結論付けた。

第 6 章では、研究の総括を行っている。

以上を要するに、本研究は、2 次元物質の科学という従来単結晶のへき開法が主であった分野において、TMDC の MBE 成長を導入し、新規 2 次元磁性体の作製と相同定、さらにはその物性を明らかにしたものである。この成果は、物質科学・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。