

審 査 の 結 果 の 要 旨

氏 名 小野寺 桃子

六方晶窒化ホウ素 (hexagonal boron nitride, h-BN) は二次元材料としては唯一の絶縁体であり、あらゆる二次元材料の基板、キャップ層、中間層、トンネルバリア、ポテンシャルモジュレータとして使用され、二次元材料研究にとって欠かせない存在である。これまで h-BN 結晶品質の研究はバルク結晶の光学測定評価など、バルク結晶自体の評価がほとんどであり、h-BN を二次元材料にファンデルワールス接合した際に二次元材料に与える影響は理論・実験ともに未知であった。本論文では、ファンデルワールスヘテロ接合で利用する観点から h-BN を評価する実験を行い系統的な結果を報告している。さらに、グラフェン/h-BN 接合を用いて本質的な物性観測及びバンド構造評価の実験を行っている。特にランダウ準位を直接的に検出する非常に強力な手法としてサイクロトロン共鳴に着目し、複数のグラフェン/h-BN 系におけるサイクロトロン共鳴吸収観測実験を行っている。

本論文は、上記の内容を "Cyclotron resonance and carrier transport in graphene/hexagonal boron nitride van der Waals heterostructures" (グラフェン/六方晶窒化ホウ素ファンデルワールスヘテロ構造におけるサイクロトロン共鳴とキャリア輸送) という題目の下まとめたものであり、全 6 章から構成されている。

第 1 章では、本論文全体の目的と意義を述べたのちに、h-BN に関する基礎事項、グラフェンにおけるサイクロトロン共鳴吸収の基礎概要について説明している。

第 2 章では、ファンデルワールスヘテロ接合デバイスの作製方法及び具体的なプロセス条件、用いた実験装置について概説している。

第 3 章では、ファンデルワールスヘテロ接合での利用の観点から h-BN 結晶の評価実験を行っている。まず始めに、h-BN 不純物として最も代表的な炭素不純物に着目した。高温高压合成 h-BN 結晶に炭素をアニールすることで炭素ドーピング結晶を作製し、グラフェンとの接合における極低温下での量子輸送特性を評価した。ランダウ準位の電子側に特徴的な構造が観測され、アクセプター準位の存在が示唆された。

次に、世界中の研究機関で利用されている高温高压合成 h-BN 結晶中には実は炭素不純物の多い領域：ドメインが存在することを報告し、ドメインがグラフ

ェンの量子輸送特性に与える影響を評価した。ドメイン内においてはグラフェン移動度の低下及びランダウファンダイアグラム電子側の曲がり観測された。上記 2 つの h-BN に関する実験を受けて、常圧合成 h-BN の評価実験を行った。常圧合成 h-BN は不純物ドメインを持たず炭素不純物濃度は非常に低いことから、均一性の面においては高圧合成結晶よりも優れる可能性を提示した。グラフェン/常圧合成 h-BN デバイスの量子輸送特性では移動度・荷電不純物濃度共に高圧合成結晶デバイスに匹敵する良い値が得られ、グラフェン基板として十分な品質をもつことを実証した。

第 4 章では、グラフェン/h-BN 系におけるサイクロトロン共鳴吸収観測実験についてまとめている。1 つ目の系は ABA 積層 3 層グラフェン(TLG)である。TLG のランダウ準位が垂直電場の印加により大きく変化することを利用し、サイクロトロン共鳴磁場の電界制御を実現した。光起電力を効率的に検出しながらゲート電界制御する目的に特化した独自のデバイス構造を構築し、サイクロトロン共鳴エネルギーが電場で制御できる様子を実証した。サイクロトロン遷移および TLG エネルギー準位の詳細な同定も行っている。

2 つ目の対象とした系はダブルモアレグラフェンである。h-BN/グラフェン/h-BN 接合において 3 層すべての積層角度が一致した際に 2 つのグラフェン/h-BN 間モアレが干渉してより長周期のモアレポテンシャルが生じるが、この系のランダウ準位構造は完全に未知である。ダブルモアレグラフェンにおけるサイクロトロン共鳴吸収を世界で初めて観測し、バンドギャップ、電子正孔非対称性、多体効果によるスピニングギャップの増大といった物理量を定量的に評価した。

第 5 章では、窒化層状化合物 ReN_2 の電気伝導特性を明らかにする実験について述べている。 ReN_2 は二次元超伝導材料であることを世界で初めて報告した。

第 6 章は以上の総括および将来展望を述べている。

以上を要するに、本研究ではファンデルワールスヘテロ接合において必要不可欠な h-BN に関して隣接する二次元材料をプローブとしてその品質を評価し、ファンデルワールスヘテロ接合へ応用した際の影響を明らかにした。さらには複数のグラフェン/h-BN 系に対してサイクロトロン共鳴測定を行い、ランダウ準位の直接的観測を行った。これらはいずれも本研究において初めて実証された成果であり、ファンデルワールスヘテロ接合の品質向上及び評価法の確立に貢献する非常に重要な業績であり、二次元材料研究分野全体にとって意義が大きい。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。