

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	
Title(English)	Electronic, structural, and vibrational properties of monolayer materials and their heterostructures
著者(和文)	酒井佑規
Author(English)	Yuki Sakai
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第9380号, 授与年月日:2014年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:斎藤 晋,西森 秀稔,村上 修一,平山 博之,西田 祐介,町田 友樹
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第9380号, Conferred date:2014/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	酒井 佑規		
論文審査 審査員		氏 名	職 名		氏 名	職 名
	主査	斎藤 晋	教授	審査員	町田 友樹	准教授
	審査員	西森 秀稔	教授		西田 祐介	准教授
		村上 修一	教授			
		平山 博之	教授			

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は “Electronic, structural and vibrational properties of monolayer materials and their heterostructures” と題し、6 章から構成されている。

第 1 章 “Introduction” では、まず、 sp^2 混成軌道をとる炭素原子からなる安定同素体結晶であるグラファイト（黒鉛）とその単原子膜であるグラフェンについて、フラーレンとナノチューブとの関連も含めてこれまでの研究展開をまとめている。そして、近年、グラフェンに加えて研究が盛んになっている六方晶 BN (h-BN) 単原子膜をはじめとする多様な原子膜物質、さらには金属表面上の単分子膜を紹介し、本研究の対象であるグラフェンと h-BN の複合原子膜物質、および金表面上のアダマンタン単分子膜について、それらの重要性と興味深い点について解説している。

第 2 章 “Methods” では、本研究で用いた各理論手法について詳説している。まず、Born-Oppenheimer 近似と密度汎関数法の基礎理論、さらには、局所密度近似と一般化された勾配近似、そして、近年、その研究展開が進んでいるファン・デア・ワールス力を加えた密度汎関数法について述べている。さらに、単位胞と原子位置の最適化に必要な、応力と各原子に働く力の表式、擬ポテンシャル法、そして第一原理電子構造計算から格子振動を導出する方法である密度汎関数摂動法を解説している。

第 3 章 “Graphene/h-BN superlattices” では、グラフェンと h-BN 原子膜からなる超格子、即ち、グラフェン層と h-BN 層を交互に積層させた系の安定構造と電子状態について報告している。まず、h-BN 結晶とその単原子膜の電子構造を示した後、グラフェン層と h-BN 層の積層パターンの詳細に依存したエネルギーと層間距離を求めて、ホウ素原子の上（下）に炭素原子がくる様に積層した界面構造が最安定であることを報告している。そして、グラフェン単層と h-BN 単層を交互に積層した系では、価電子帯と伝導帯の間に微小なギャップがブリルアンゾーンの K 点において開くものの、B 原子が媒介するグラフェン膜間相互作用により、価電子帯・伝導帯の電子状態が KH ラインに沿って分散を持つことから半金属となることを報告している。他方、グラフェン単層と h-BN 二層とを交互に積層した超格子系では、複数の安定な積層パターンが考えられ、半導体となる場合、金属となる場合、さらには半導体として振る舞うグラフェン層と金属として振る舞うグラフェン層が共存する場合があることを示している。さらに、グラフェンと h-BN が格子整合せずに積層した系と比較して、格子整合した超格子系が安定であることも示している。

第4章 “Graphene/h-BN thin films” では、前章で議論した無限に交互積層した超格子系ではなく、グラフェン膜と h-BN 原子膜が有限枚数だけ積層した「薄膜」における格子整合・不整合の予測結果と電子構造について報告している。まず、グラフェン一層と h-BN 膜一層が積層した2層薄膜系では、格子整合した系よりも格子整合していない系の方がエネルギー的に安定であること、他方、4層薄膜系以上の膜厚になった場合は、格子整合した系の方が安定となることを報告している。そして、グラフェン層と h-BN 層が交互に積層した薄膜系では、積層パターンに依存して金属になる場合と微小なギャップを持つ半導体膜となる場合とがあることを示している。さらに、電場を薄膜に垂直にかけることにより金属薄膜が半導体となること、そして、グラフェン膜2層と h-BN 膜4層の合計6層からなる薄膜系で 0.1 eV のギャップを持つ半導体膜を構築できることも示している。最近、グラフェン膜と h-BN 膜からなる薄膜をはじめとして、多様な複合膜物質が実験的に作製されつつあり、本章の結果は物質設計の観点からも興味深い予測と捉えられる。

第5章 “Adamantane monolayer on Au(111)” では、 sp^3 混成軌道をとる炭素原子と水素原子から構成されるアダマンタン分子が金表面上に単分子層を構成した系の格子振動モードについて解析している。この様な単分子膜の赤外吸収スペクトルの測定を STM (Scanning Tunneling Microscope) と組み合わせて可能にした実験グループとの共同研究による成果である。まず、アダマンタン単分子膜における分子間の相互作用の効果、そして、単分子膜と基盤の金表面との相互作用の効果を評価することにより、測定された二つのピークの起源を明らかにしている。

第6章 “Conclusion” では、本研究で対象としたグラフェンと h-BN 膜からなる複合膜物質の構造と電子物性に関する予測結果と、金表面上のアダマンタン単分子膜の赤外吸収スペクトルの解析結果について、それらの意義をまとめた上で、本研究で用いた手法が同等な系に対しても広く有効であることを述べている。

本博士論文研究において、最近、実験研究が活発に展開されている非常に重要な複合膜物質であるグラフェンと h-BN 膜からなる複合系に対して、先駆的かつ系統的な理論研究が展開されてきたこと、そして単分子膜における STM 法と組み合わせた赤外吸収スペクトルの理論解析手法を構築したことから、本論文は博士（理学）の学位論文として、十分な価値があると認められる。