

---

# 原子層科学

---

領域番号：2506

平成25年度~平成29年度  
科学研究費助成事業（科学研究費補助金）  
（新学術領域研究（研究領域提案型））  
研究成果報告書

平成30年6月

領域代表者 齋藤 理一郎

東北大学・大学院理学研究科・教授

## はしがき

本学術領域研究「原子層科学」の目的は、グラフェン（グラファイトの1原子層）を中心として、「**原子層が創る科学**」を探索する新しい研究領域「原子層科学」の創成である。5年間の研究領域の活動によって、原子層科学の研究者が、物理、化学、工学の分野を超えたコミュニティを作り、国際共同研究を含む多くの共同研究を生み、当初想定した研究成果をはるかに超える成果を得た。本研究報告書では、研究組織から得られた主な研究成果と、領域の活動を報告する。本新学術領域の活動によって、新たに原子レベルで薄い2次元物質に対する科学が、新しい学理として確立したと自負している。新しい学理の形を示すために、最終報告書(720頁)をPDFの形で、原子層科学のHP (<http://flex.phys.tohoku.ac.jp/gensisou/>, 原子層科学で検索可能)の報告書のページからダウンロード可能である。本新学術領域の研究成果は、広く社会に還元され、2次元物質を用いた産業に今後発展する、大きな波及効果が期待できる。このため原子層科学の今後の研究活動の発展が必要であると考えている。

## 研究組織

### 計画研究

領域代表者 齋藤 理一郎 (東北大学・理学研究科・教授)

#### (総括班)

研究代表者 齋藤 理一郎 (東北大学・理学研究科・教授)  
研究分担者 楠 美智子 (名古屋大学・エコトピア科学研究所・教授)  
研究分担者 依光 英樹 (京都大学・大学院理学研究科・教授)  
研究分担者 長汐 晃輔 (東京大学・大学院工学系研究科・准教授)  
研究分担者 長田 俊人 (東京大学・物性研究所・准教授)  
研究分担者 塚越 一仁 (物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主任研究員)  
研究分担者 上野 啓司 (埼玉大学・大学院理工学研究科・准教授)  
研究分担者 越野 幹人 (大阪大学・理学研究科・教授)  
研究分担者 若林 克法 (関西学院大学・理工学部・教授)  
研究分担者 町田 友樹 (東京大学・生産技術研究所・教授)

#### (国際活動支援班)

研究代表者 齋藤 理一郎 (東北大学・理学研究科・教授)  
研究分担者 楠 美智子 (名古屋大学・エコトピア科学研究所・教授)  
研究分担者 依光 英樹 (京都大学・大学院理学研究科・教授)  
研究分担者 長汐 晃輔 (東京大学・大学院工学系研究科・准教授)  
研究分担者 長田 俊人 (東京大学・物性研究所・准教授)  
研究分担者 塚越 一仁 (物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主任研究員)  
研究分担者 上野 啓司 (埼玉大学・大学院理工学研究科・准教授)  
研究分担者 越野 幹人 (大阪大学・理学研究科・教授)  
研究分担者 若林 克法 (関西学院大学・理工学部・教授)  
研究分担者 町田 友樹 (東京大学・生産技術研究所・教授)  
研究分担者 坂本 良太 (東京大学・理学系研究科・助教)

(合成班)

研究代表者	楠 美智子	(名古屋大学・エコトピア科学研究所・教授)
研究分担者	斉木 幸一朗	(東京大学・新領域創成科学研究科・教授)
研究分担者	野田 優	(早稲田大学・理工学術院・教授)
研究分担者	北浦 良	(名古屋大学・大学院理学研究科・准教授)
研究分担者	依光 英樹	(京都大学・大学院理学研究科・教授)
研究分担者	丸山 茂夫	(東京大学・工学系研究科・教授)
連携研究者	篠原 久典	(名古屋大学・大学院理学研究科・教授)
連携研究者	大野 雄高	(名古屋大学・大学院工学研究科・教授)

(物性班)

研究代表者	長田 俊人	(東京大学・物性研究所・准教授)
研究分担者	町田 友樹	(東京大学・生産技術研究所・教授)
研究分担者	山本 倫久	(東京大学・大学院工学系研究科・特任准教授)
研究分担者	八木 隆多	(広島大学・大学院先端物質科学研究科・准教授)
研究分担者	劉 嶢	(産業技術総合研究所・ナノチューブ応用研究センター・主任研究員)
研究分担者	菅原 克明	(東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・准教授)
連携研究者	遠藤 彰	(東京大学・物性研究所・助教)
連携研究者	末永 和知	(産業技術総合研究所・材料 化学領域 ナノ材料研究部門・主席研究員)

(応用班)

研究代表者	長汐 晃輔	(東京大学・大学院工学研究科・准教授)
研究分担者	塚越 一仁	(物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主任研究員)
研究分担者	長谷川 雅考	(産業技術総合研究所・ナノチューブ応用研究センター・研究グループ長)
研究分担者	上野 啓司	(埼玉大学・大学院理工学研究科・准教授)
連携研究者	渡邊 賢司	(物質・材料研究機構光・電子材料ユニット・主任研究員)
連携研究者	谷口 尚	(物質・材料研究機構・先端材料プロセスユニット・グループリーダー)
連携研究者	山田 貴壽	(産業技術総合研究所・ナノチューブ応用研究センター・主任研究員)

(理論班)

研究代表者	越野 幹人	(大阪大学・理学研究科・教授)
研究分担者	齋藤 理一郎	(東北大学・理学研究科・教授)
研究分担者	青木 秀夫	(産業技術総合研究所・電子光技術研究部門・教授)
研究分担者	若林 克法	(関西学院大学・理工学部・教授)
研究分担者	齋藤 晋	(東京工業大学・大学院理工学研究科・教授)
連携研究者	安藤 恒也	(東京工業大学・大学院理工学研究科・名誉教授)
連携研究者	初貝 安弘	(筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授)
連携研究者	島 信幸	(兵庫県立大学・物質理学研究科・准教授)

公募研究

研究代表者	加藤 俊顕	(東北大学・工学研究科・准教授)
-------	-------	------------------

研究代表者	坂本 良太	(東京大学・理学系研究科・助教)
研究代表者	廣戸 聡	(名古屋大学・大学院工学研究科・助教)
研究代表者	仁科 勇太	(岡山大学・異分野融合先端研究コア・准教授)
研究代表者	宮田 耕充	(首都大学東京・理工学研究科・准教授)
研究代表者	高井 和之	(法政大学・生命科学部・准教授)
研究代表者	吾郷 浩樹	(九州大学・産学連携センター・教授)
研究代表者	近藤 剛弘	(筑波大学・数理物質科学研究科・准教授)
研究代表者	大久保 將史	(東京大学・工学系研究科・准教授)
研究代表者	伊藤 英人	(名古屋大学・教養教育院・理学研究科・講師)
研究代表者	田中 隆行	(京都大学・理学研究科・助教)
研究代表者	谷口 貴章	(物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主任研究員)
研究代表者	藤川 安仁	(弘前大学・理工学研究科・教授)
研究代表者	永村 直佳	(物質・材料研究機構・先端的の共通技術部門・研究員)
研究代表者	藤田 淳一	(筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授)
研究代表者	中村 潤児	(筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授)
研究代表者	神田 晶申	(筑波大学・大学院数理物質科学研究科・准教授)
研究代表者	矢野 隆章	(東京工業大学・総合理工学研究科・助教)
研究代表者	片山 郁文	(横浜国立大学・工学研究科・准教授)
研究代表者	小山 剛史	(名古屋大学・工学研究科・准教授)
研究代表者	松田 一成	(京都大学・エネルギー理工学研究所・教授)
研究代表者	速水 真也	(熊本大学・自然科学研究科・教授)
研究代表者	中村 大輔	(東京大学・物性研究所・助教)
研究代表者	田中 慎一郎	(大阪大学・産業科学研究所・准教授)
研究代表者	大塚 洋一	(筑波大学・大学院数理物質科学研究科・教授)
研究代表者	青木 伸之	(千葉大学・融合科学研究科・准教授)
研究代表者	宮内 雄平	(京都大学・エネルギー理工学研究所・准教授)
研究代表者	齊藤 結花	(学習院大学・理学部・教授)
研究代表者	柳 和宏	(首都大学東京・理工学研究科・教授)
研究代表者	清水 直	(理化学研究所・創発物性科学研究センター・研究員)
研究代表者	藤田 武志	(東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・准教授)
研究代表者	米谷 玲皇	(東京大学・工学研究科・准教授)
研究代表者	河野 行雄	(東京工業大学・未来産業技術研究所・准教授)
研究代表者	大野 雄高	(名古屋大学・工学研究科・教授)
研究代表者	川山 巖	(大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・准教授)
研究代表者	野内 亮	(大阪府立大学・ナノ科学・材料研究センター・特別講師)
研究代表者	小川 修一	(東北大学・多元物質科学研究所・助教)
研究代表者	山下 真司	(東京大学・先端科学技術研究センター・教授)
研究代表者	宮本 恭幸	(東京工業大学・工学院電気電子系・教授)
研究代表者	秋田 成司	(大阪府立大学・大学院工学研究科・教授)
研究代表者	野村 健太郎	(東北大学・金属材料研究所・准教授)
研究代表者	岡田 晋	(筑波大学・数理物質科学研究科・教授)
研究代表者	安藤 康伸	(東京大学・工学系研究科・助教)

研究代表者	岸 亮平	(大阪大学・基礎工学研究科・助教)
研究代表者	草部 浩一	(大阪大学・基礎工学研究科・准教授)
研究代表者	中西 毅	(産業技術総合研究所・ナノ材料研究部門・主任研究員)
研究代表者	宮本 良之	(産業技術総合研究所・機能材料コンピューテーショナルデザイン研究センター・チーム長)
研究代表者	是常 隆	(東北大学・理学研究所・准教授)
研究代表者	樋口 克彦	(広島大学・先端物質科学研究科・准教授)
研究分担者	中西 毅	(産業技術総合研究所・ナノ材料研究部門・主任研究員)
研究分担者	宮本 良之	(産業技術総合研究所・機能材料コンピューテーショナルデザイン研究センター・チーム長)
連携研究者	山田 容子	(奈良先端科学技術大学院大学・物質創成科学研究科・教授)
連携研究者	竹延 大志	(名古屋大学・工学研究科・教授)
連携研究者	Campeon Benoit	(岡山大学・異分野融合先端研究コア・研究員)
連携研究者	Ahmad Sohail	(岡山大学・異分野融合先端研究コア・研究員)
連携研究者	Mohammed Nizami	(岡山大学・異分野融合先端研究コア・研究員)
連携研究者	嶽山 正二郎	(東京大学・物性研究所・教授)
連携研究者	長汐 晃輔	(東京大学・大学院工学研究科・准教授)
連携研究者	堀場 弘司	(高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・准教授)
連携研究者	吹留 博一	(東北大学・電気通信研究所・准教授)
連携研究者	笹居 高明	(東北大学・多元物質科学研究所・准教授)
連携研究者	落合 勇一	(千葉大学・大学院融合科学研究科・名誉教授)
連携研究者	村上 勝久	(産業技術総合研究所・ナノエレクトロニクス研究部門・主任研究員)
連携研究者	小幡 誠司	(東京大学・新領域創成科学研究科・助教)
連携研究者	樋口 雅彦	(信州大学・学術研究院理学系・教授)
連携研究者	萱沼 洋輔	(東京工業大学・応用セラミクス研究所・特任教授)
連携研究者	柳 和宏	(首都大学東京・理工学研究科・教授)
連携研究者	渡邊 聡	(東京大学・工学系研究科・教授)

#### 交付決定額（配分額）

	合計	直接経費	間接経費
平成25年度	279,760,000円	215,200,000円	64,560,000円
平成26年度	291,200,000円	224,000,000円	67,200,000円
平成27年度	288,600,000円	222,000,000円	66,600,000円
平成28年度	267,670,000円	205,900,000円	61,770,000円
平成29年度	236,080,000円	181,600,000円	54,480,000円
総計	1,363,310,000円	1,048,700,000円	314,610,000円

## 研究発表

雑誌論文 総数 889 件

国際雑誌論文 (査読有り) 817 件、国際雑誌論文 (査読無し) 10 件、  
国内雑誌論文 (査読有り) 12 件、国内雑誌論文 (査読無し) 50 件、

### (主要な論文)

1. H. S. Song, S. L. Li, L. Gao, Y. Xu, K. Ueno, J. Tang, Y. B. Cheng, K. Tsukagoshi, "High-performance top-gated monolayer SnS<sub>2</sub> FETs and their integrated logic circuits", *Nanoscale*, (査読有), **5**, (2013), 9666-9670.
2. C. R. Dean, L. Wang, P. Maher, C. Forsythe, F. Ghahari, Y. Gao, J. Katoch, M. Ishigami, P. Moon, M. Koshino, T. Taniguchi, K. Watanabe, K. L. Shepard, J. Hone, P. Kim, "Hofstadter's butterfly in moire superlattices: A fractal quantum Hall effect", *Nature* (査読有), **497**, (2013), 598-602.
3. M. Okada, T. Sawazaki, K. Watanabe, T. Taniguchi, H. Hibino, H. Shinohara, R. Kitaura, Direct Chemical Vapor Deposition Growth of WS<sub>2</sub> Atomic Layers on Hexagonal Boron Nitride, *ACS Nano*, (査読有), **8**, (2014), 8273-8277.
4. R. Kato, K. Tsugawa, Y. Okigawa, T. Yamada, M. Ishihara, M. Hasegawa, "Bilayer graphene synthesis by plasma treatment of copper foils without using a carbon-containing gas", (査読有), *Carbon*, **77**, (2014), 823-828.
5. M. Yamamoto, S. T. Wang, M. Ni, Y. -F. Lin, S. -L. Li, S. Aikawa, W. -B. Jian, K. Ueno, K. Wakabayashi, K. Tsukagoshi, "Strong Enhancement of Raman Scattering from a Bulk-Inactive Vibrational Mode in Few-Layer MoTe<sub>2</sub>", *ACS Nano*, (査読有), **8**, (2014), 3895-3903.
6. Y. -F. Lin, Y. Xu, S. -T. Wang, S. -L. Li, M. Yamamoto, A. Aparecido-Ferreira, W. Li, H. Sun, S. Nakaharai, W. -B. Jian, K. Ueno, K. Tsukagoshi, "Ambipolar MoTe<sub>2</sub> Transistors and Their Applications in Logic Circuits, *Adv. Mater.*, (査読有), **26**, (2014), 3263-3269.
7. X. He, N. Fujimura, J. M. Lloyd, K. J. Erickson, A. A. Talin, Q. Zhang, W. Gao, Q. Jiang, Y. Kawano, R. H. Hauge, F. Leonard J. Kono. "Carbon Nanotube Terahertz Detector", *Nano Lett.*, (査読有), **14**, (2014), 3953-3958.
8. N. Fukaya, D. Y. Kim, S. Kishimoto, S. Noda, and Y. Ohno, "One-Step Sub-10 um Patterning of Carbon-Nanotube Thin Films for Transparent Conductor Applications", *ACS Nano*, (査読有), **8**, (2014), 3285-3293.
9. Y. -H. Chang, W. Zhang, Y. Zhu, Y. Han, J. Pu, J. -K. Chang, W. -T. Hsu, J. -K. Huang, C. -L. Hsu, M. -H. Chiu, T. Takenobu, H. Li, C. -I. Wu, W. -H. Chang, A. T. S. Wee, L. -J. Li, "Monolayer MoSe<sub>2</sub> Grown by Chemical Vapor Deposition for Fast Photodetection", *ACS Nano*, (査読有), **8**, (2014), 8582-8590.
10. Y. Sakai, S. Saito, and M.L. Cohen, "Lattice matching and electronic structure of finite-layer graphene/h-BN thin films", *Phys. Rev. B* (査読有) **89**, (2014).115424-1-6.
11. X. Chen, P. Zhao, R. Xiang, S. Kim, J. H. Cha, S. Chiashi, S. Maruyama, "Chemical Vapor Deposition Growth of 5 mm Hexagonal Single-Crystal Graphene from Ethanol" *Carbon*, (査読有), **94**, (2015), 810-815
12. Y. Shimazaki, M. Yamamoto, I. V. Borzenets, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Tarucha, "Generation and detection of pure valley current by electrically induced Berry curvature in bilayer graphene", *Nat. Phys.* (査読有), **11**, (2015), 1032-1036
13. Y. Miyata, K. Nakayama, K. Sugawara, T. Sato, T. Takahashi, "High-temperature superconductivity in potassium-coated multilayer FeSe thin films", *Nat. Mater.* (査読有), **14**, (2015). 775-779
14. S. Morikawa, Z. Dou, S.-W. Wang, C. G. Smith, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Masubuchi, T. Machida, M. R. Connolly, "Imaging ballistic carrier trajectories in graphene using scanning gate microscopy", *Appl. Phys. Lett.* (査読有), **107**, (2015), 243102-1-4
15. Y. Okigawa, R. Kato, M. Ishihara, T. Yamada, M. Hasegawa, "Electrical properties and domain sizes of graphene films synthesized by microwave plasma treatment under a low carbon concentration", *Carbon*, (査読有), **82**, (2015), 60-66
16. D. Voiry, A. Goswami, R. Kappera, C. de Carvalho, C. e Silva, D. Kaplan, T. Fujita, M. W. Chen, T. Asefa, and M. Chhowalla, "Covalent functionalization of monolayered transition metal dichalcogenides by phase engineering", *Nature Chemistry*, (査読有) **7**, (2015). 45-49
17. T. Kariyado and Y. Hatsugai, "Manipulation of Dirac Cones in Mechanical Graphene", *Scientific Reports*, (査読有), **5**, (2015).18107-1-8 .
18. D. Kozawa, A. Carvalho, I. Verzhbitskiy, F. Giustiniano, Y. Miyauchi, S. Mouri, A. H. Castro Neto, K. ◎▲M. Yamamoto, S. Dutta, S. Aikawa, S. Nakaharai, K. Wakabayashi, M. S. Fuhrer, K. Ueno, K. Tsukagoshi, "Self-limiting layer-by-layer oxidation of atomically thin WSe<sub>2</sub>", *Nano Lett.* (査読有)**15**, (2015)2067-2073.
19. Y. Hattori, T. Taniguchi, K. Watanabe and K. Nagashio, "Layer-by-Layer Dielectric Breakdown of Hexagonal Boron Nitride", *ACS nano*(査読有), **9**, (2015) 916-921.
20. H. Guo, T. Yang, M. Yamamoto, L. Zhou, R. Ishikawa, K. Ueno, K. Tsukagoshi, Z. Zhang, M.S. Dresselhaus, R. Saito, "Double resonance Raman modes in monolayer and few-layer MoTe<sub>2</sub>", *Phys. Rev. B*(査読有), **91**, (2015)205415-1-8 .
21. L. Wang, Y. Gao, B. Wen, Z. Han, T. Taniguchi, K. Watanabe, M. Koshino, J. Hone, and C. R. Dean, "Evidence for a fractional fractal quantum Hall effect in graphene superlattices", *Science*(査読有), **350**, (2015)1231-1234.
22. H.L. Liu, H. Guo, T. Yang, Z. Zhang, Y. Kumamoto, C.C. Shen, Y.T. Hsu, R. Saito, S. Kawata, "Anomalous lattice vibrations of monolayer MoS<sub>2</sub> probed by ultraviolet Raman scattering" *Phys. Chem. Chem. Phys.* (査読有), **17**, (2015) 14561-14568,
23. Matsuda, and G. Eda, "Evidence for fast interlayer energy transfer in MoSe<sub>2</sub>/WS<sub>2</sub> heterostructures", *Nano Lett.* (査読有) **16**, (2016)4087-4093.

24. J. Bao, W. Norimatsu, H. Ito, and M. Kusunoki, "Synthesis of Freestanding Graphene on SiC by a Rapid-Cooling Technique", *Phys. Rev. Lett.* (査読有) **117**, (2016).205501-1-5.
25. X. Chen, R. Xiang, P. Zhao, H. An, T. Inoue, S. Chiashi, and S. Maruyama, "Chemical vapor deposition growth of large single-crystal bernal-stacked bilayer graphene from ethanol" *Carbon* (査読有), **107**, (2016).852-856.
26. K. Gao, N. Fukui, S. I. Jung, H. Yorimitsu, D. Kim, and A. Osuka, "Pictet-Spengler Synthesis of Quinoline-Fused Porphyrins and Phenanthroline-Fused Diporphyrins", *Angew. Chem. Int. Ed.*, (査読有) **55**, (2016)13038-13042.
27. Y. Kobayashi, S. Yoshida, R. Sakurada, K. Takashima, T. Yamamoto, T. Saito, S. Konabe, T. Taniguchi, K. Watanabe, Y. Maniwa, O. Takeuchi, H. Shigekawa, Y. Miyata, "Modulation of electrical potential and conductivity in an atomic-layer semiconductor heterojunction", *Sci. Rep.* (査読有), **6**, (2016)31223-1-8.
28. D. Ding, P. S. Fernandez, H. Hibino, H. Ago, "Spatially-controlled nucleation of single-crystal graphene on Cu assisted by stacked Ni", *ACS Nano*(査読有), **10**, (2016),11196-11204.
29. N. Yabuki, R. Moriya, M. Arai, Y. Sata, S. Morikawa, S. Masubuchi, and T. Machida, "Supercurrent in van der Waals Josephson junction", *Nat. Commun.* (査読有) **7**, (2016),10616/1-5.
30. F. Amet, C. T. Ke, I. V. Borzenets, Y.-M. Wang, K. Watanabe, T. Taniguchi, R. S. Deacon, M. Yamamoto, Y. Bomze, S. Tarucha, G. Finkelstein, "Supercurrent in the quantum Hall regime", *Science* (査読有) **382**, (2016),966-969.
31. I. V. Borzenets, F. Amet, C. T. Ke, A. W. Draelos, M. T. Wei, A. Seredinski, K. Watanabe, T. Taniguchi, Y. Bomze, M. Yamamoto, S. Tarucha, and G. Finkelstein, "Ballistic Graphene Josephson Junctions from the Short to the Long Junction Regimes", *Phys. Rev. Lett.* (査読有) **117**, (2016),237002-1-5.
32. C. R. da Cunha, M. Mineharu, M. Matsunaga, N. Matsumoto, C. Chuang, Y. Ochiai, G.-H. Kim, K. Watanabe, T. Taniguchi, D. K. Ferry, and N. Aoki, "Conductance fluctuations in high mobility monolayer graphene: Nonergodicity, lack of determinism and chaotic behavior", *Sci. Rep.* (査読有) **6**, (2016),33118/1-8.
33. T. Koyama, K. Mizutani, H. Ago, and H. Kishida, "Two-Step Excitation Triggered by One-Photon Absorption on Linear Dispersion in Monolayer Graphene", *J. Phys. Chem.* (査読有) C **120**, (2016),11225-11229.
34. D. Suzuki, S. Oda and Y. Kawano, "A flexible and wearable terahertz scanner", *Nature Photonics*, (査読有) **10**, (2016),809-814.
35. Z. Q. Wang, S. C. Ning, T. Fujita, A. Hirata, M. W. Chen, "Unveiling Three-Dimensional Stacking Sequences of 1T Phase MoS<sub>2</sub> Monolayers by Electron Diffraction", *ACS Nano*, (査読有) **10**, (2016), 10308-10316.
36. R. Saito, Y. Tatsumi, S. Huang, X. Ling, M.S. Dresselhaus, "Raman spectroscopy of transition metal dichalcogenides" *Journal of Physics: Condensed Matter* (査読有) **28**, (2016), 353002 -1-16.
37. N. T. Hung, A. R. T. Nugraha, E. H. Hasdeo, M. S. Dresselhaus, R. Saito, "Quantum Effects in the Thermoelectric Power Factor of Low-Dimensional Semiconductors", *Phys. Rev. Lett.* (査読有) **117**, (2016),036602-1-5.
38. T. Kikuchi, T. Koretsune, R. Arita, and G. Tatara, "Dzyaloshinskii-Moriya Interaction as a Consequence of a Doppler Shift due to Spin-Orbit-Induced Intrinsic Spin Current", *Phys. Rev. Lett.*, (査読有) **116**, (2016),247201-1-5.
39. M. Maruyama and S. Okada, "Magnetic Properties of Quantum Dots Embedded in h-BN Sheet", *J. Phys. Chem. C*, (査読有) **120**, (2016),1293-1302.
40. N. Morishita, G.K. Sunnardianto, S. Miyao, K. Kusakabe, "Theoretical Analysis on Pseudo-Degenerate Zero-Energy Modes in Vacancy-Centered Hexagonal Armchair Nanographene", *J. Phys. Soc. Jpn.*, (査読有) **85**, (2016),084703.
41. N. Morimoto, H. Suzuki, Y. Takeuchi, S. Kawaguchi, M. Kunisu, C. W. Bielawski, Y. Nishina, "Real-Time, in Situ Monitoring of the Oxidation of Graphite: Lessons Learned", *Chem. Mater.* (査読有) **29**, 2150-2156 (2017).
42. R. Matsuoka, R. Sakamoto, K. Hoshiko, S. Sasaki, H. Masunaga, K. Nagashio, H. Nishihara, "Crystalline Graphdiyne Nanosheets Produced at a Gas/Liquid or Liquid/Liquid Interface", *J. Am. Chem. Soc.*, (査読有) **139**, (2017),3145-3152.
43. H. Nishino, T. Fujita, A. Yamamoto, T. Fujimori, A. Fujino, S. Ito, J. Nakamura, H. Hosono, T. Kondo, "Formation Mechanism of Boron-Based Nanosheet through the Reaction of MgB<sub>2</sub> with Water", *J. Phys. Chem.* (査読有) C **121**, (2017),10587-10593.
44. C. Ogata, R. Kurogi, K. Awaya, K. Hatakeyama, T. Taniguchi, M. Koinuma, Y. Matsumoto, "All-graphene oxide flexible solid-state supercapacitors with enhanced electrochemical performance", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, (査読有) **9**, (2017),26151-26160.
45. S. Kajiyama, L. Szabova, H. Iinuma, A. Sugahara, K. Gotoh, K. Sodeyama, Y. Tateyama, M. Okubo, A. Yamada, "Enhanced Li-ion accessibility in MXene titanium carbide by steric chloride termination" *Adv. Energy Mater.* (査読有) **7**, (2017),1601873.
46. Y. Ichinose, J. Eda, Y. Yomogida, Z. Liu, and Kazuhiro Yanagi "Extraction of High-Purity Single-Chirality Single-Walled Carbon Nanotubes through Precise pH Control Using Carbon Dioxid Bubbling", *J. Phys. Chem.* (査読有) C **121**, (2017) 13391-13395.
47. M. Matsumoto, S. Shimizu, R. Sotoike, M. Watanabe, Y. Iwasa, Y. Itoh, and T. Aida, "Exceptionally High Electric Double Layer Capacitances of Oligomeric Ionic Liquids", *J. Am. Chem. Soc.* (査読有) **139**, (2017),16072-16075.
48. T. Osada, "Chern Insulator Phase in a Lattice of an Organic Dirac Semimetal with Intracellular Potential and Magnetic Modulations", *J. Phys. Soc. Jpn.* (査読有) **86**, (2017),123702/1-5.

49. Y. Yamasaki, R. Moriya, M. Arai, S. Masubuchi, S. Pyon, T. Tamegai, K. Ueno, and T. Machida "Exfoliation and van der Waals heterostructure assembly of intercalated ferromagnet  $\text{Cr}_{1/3}\text{TaS}_2$ ", *2D Mater.* (査読有) **4**, (2017),041007/1-10.
50. A. I. Chernov, P. V. Fedotov, H. E. Lim, Y. Miyata, Z. Liu, K. Sato, K. Suenaga, H. Shinohara, and E. D. Obraztsova, "Band gap modification and photoluminescence enhancement of graphene nanoribbon filled single walled carbon nanotubes", *Nanoscale*, (査読有) **10**, (2017),2936-2943.
51. S. Kanayama, K. Nakayama, G. N. Phan, M. Kuno, K. Sugawara, T. Takahashi, and T. Sato, "Two-dimensional Dirac semimetal phase in non-doped one-monolayer FeSe film", *Phys. Rev.* (査読有) **B 96**, (2017),220509(R)/1-5.
52. A. Endo, J. Bao, W. Norimatsu, M. Kusunoki, S. Katsumoto and Y. Iye, "Two-carrier model on the magnetotransport of epitaxial graphene containing coexisting single layer and bilayer areas", *Philos. Mag.* (査読有) **97**, (2017),1755-1767.
53. T. Taira, S. Obata, and K. Saiki, "Nucleation site in CVD graphene growth investigated by radiation-mode optical microscopy", *Appl. Phys. Express*, (査読有) **10**, (2017),55502-1-4.
54. N. Fukui, W. Cha, D. Shimizu, J. Oh, K. Furukawa, H. Yorimitsu, D. Kim, and A. Osuka, "Highly planar diarylamine-fused porphyrins and their remarkably stable radical cations", *Chem. Sci.*, (査読有) **8**, (2017),189-199.
55. Y. Nagai, A. Okawa, T. Minamide, K. Hasegawa, H. Sugime, and S. Noda, "Ten-second epitaxy of Cu on repeatedly used sapphire for practical production of high-quality graphene" *ACS Omega*, (査読有) **2**, (2017),3354-3362.
56. H. Shiraie, K. Hasegawa, H. Sugime, E. Yi, R. M. Laine, and S. Noda, "Catalyst nucleation and carbon nanotube growth from flame-synthesized Co-Al-O nanopowders at ten-second time scale" *Carbon*, (査読有) **114**, (2017),31-38.
57. I. Lovchinsky, J. D. Sanchez-Yamagishi, E. K. Urbach, S. Choi, S. Fang, T. I. Andersen, K. Watanabe, T. Taniguchi, A. Bylinskii, E. Kaxiras, P. Kim, H. Park, M. D. Lukin, "Magnetic resonance spectroscopy of an atomically thin material using a single-spin qubit", *Science*, (査読有) **355**, (2017),503-1-11.
58. S. Sekizaki, M. Osada, and K. Nagashio, "Molecularly-thin Anatase field-effect transistors fabricated through the solid state transformation of titania nanosheets", *Nanoscale*, **9**, (2017), 6471-6477.
59. F. Liu, K. Wakabayashi, "Novel Topological Phase with a Zero Berry Curvature", *Phys. Rev. Lett.* (査読有) **118**, (2017),076803-1-5.
60. Nguyen N. T. Nam, M. Koshino, "Lattice relaxation and energy band modulation in twisted bilayer graphene", *Phys. Rev.* (査読有) **B, 96**, (2017),075311-1-12.
61. T. Taen, K. Uchida, and T. Osada, "Thickness-dependent phase transition in graphite under high magnetic field", *Phys. Rev.* (査読有) **B 97**, (2018),115122-1-7.
62. S. Obata, M. Sato, K. Akada and K. Saiki, "High Degree Reduction and Restoration of Graphene Oxide on  $\text{SiO}_2$  at low temperature via remote Cu-assisted Plasma Treatment", *Nanotechnology*, (査読有) **29**, (2018),245603-1-10.
63. Y.-M. Chang, S.-H. Yang, C.-Y. Lin, C.-H. Chen, C.-H. Lien, W.-B. Jian, K. Ueno, Y.-W. Suen, K. Tsukagoshi, and Y.-F. Lin, "Reversible and Precisely Controllable p/n-Type Doping of  $\text{MoTe}_2$  Transistors through Electrothermal Doping", *Adv. Mater.*, (査読有) **30**, (2018),1706995-1-7.
64. Y. Hattori, T. Taniguchi, K. Watanabe, and K. Nagashio, "Determination of Carrier Polarity in Fowler-Nordheim Tunneling and Evidence of Fermi Level Pinning at the Hexagonal Boron Nitride/Metal Interface", *ACS appl. mater. interfaces*, (査読有) **10**, (2018),11732-11738.
65. M. Okada, A. Kutana, Y. Kureishi, Y. Kobayashi, Y. Saito, T. Saito, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Gupta, Y. Miyata, B. I. Jacobson, H. Shinohara, and R. Kitaura, Direct and Indirect Interlayer Excitons in a van der Waals Heterostructure of  $\text{hBN}/\text{WS}_2/\text{MoS}_2/\text{hBN}$ , *ACS Nano*, (査読有) **12**, (2018), 2498-2505.

学会発表 (招待講演のみ掲載) 総数 617 件

国際学会における招待講演	389 件
国内学会における招待講演	228 件

(2017-2018 年度、海外における国際学会における招待講演)

1. S. Maruyama, Carbon Nanotubes and Graphene for Perovskite Solar Cells, 2018 MRS Spring Meeting & Exhibit, (2018)
2. Riichiro Saito, Controlling THz absorption of graphene in dielectric materials, International Winterschool on Electronic Properties of Novel Materials, (2018).
3. Takeshi Nakanishi, Effective-mass theory of inter-layer interaction in bi-layer graphene and collapsed carbon nanotubes, 14th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering (ICCMSE), (2018), Thessaloniki, Greece, Mar. 15, 2018.
4. Ryo Kitaura, Transition metal dichalcogenides based van der Waals heterostacks: fabrication and properties, The 8th A3 Symposium on Emerging Materials, Suzhou, (2017).

5. Ryo Kitaura, Transition metal dichalcogenides based van der Waals heterostacks: fabrication and properties, 18th International Conference on the Science and Application of Nanotubes and Low-dimensional Materials (NT17), (2017).
6. Hideki Yorimitsu, Aromatic Metamorphosis: Conversions of Heteroaromatic Skeletons into Different Rings, 8th International Collaborative and Cooperative Chemistry Symposium, (2017).
7. Hideki Yorimitsu, Aromatic Metamorphosis by Means of Catalytic Cleavage of Endocyclic Bonds, Perspectives on Organometallics in Organic Synthesis, Daejeon, (2017).
8. Hideki Yorimitsu, Aromatic Metamorphosis: Conversion of a Heteroaromatic Skeleton into a Different Ring System, Japanese-Spanish Symposium on Modern Synthetic Methodology, (2017).
9. R. Sakamoto, Bottom-up synthesis of functional molecule-based nanosheets, International Winterschool on Electronic Properties of Novel Materials (IWEPNM 2018), (2018).
10. R. Sakamoto, Photofunctional Bis(dipyrrinato)zinc(II) Coordination Nanosheets, 2017 NEA Symposium of Emerging Materials Innovation, (2017).
11. R. Sakamoto, Crystalline Graphdiyne Nanosheets Produced at a Gas/Liquid or Liquid/Liquid Interface, International Symposium on Pure & Applied Chemistry (ISPC 2017), (2017).
12. S. Maruyama, Carbon Nanotubes and Graphene for Perovskite Solar Cells, 2017 International Conference on Functional Carbons (ICFC), (2017)
13. S. Maruyama, Carbon Nanotubes for Perovskite Solar Cells, 8th A3 Symposium on Emerging Materials: Nanomaterials for Electronics, (2017).
14. S. Maruyama, I. Jeon, T. Sakaguchi, C. Delacou, S. Chiashi, E. I. Kauppinen, Y. Matsuo, Carbon nanotube films for organic-inorganic hybrid perovskite solar cells, 231st ECS Meeting, (2017).
15. S. Maruyama, R. Xiang, H. An, A. Kumamoto, T. Inoue, S. Chiashi, Y. Ikuhara, The evolution of W-Co-C catalyst during the CVD growth of chirality-selective growth of single-walled carbon nanotubes, 231st ECS Meeting, (2017).
16. S. Maruyama, H. An, R. Yoshikawa, H. Bou, T. Inoue, R. Xiang, S. Chiashi, The evolution of catalyst structure during the CVD growth and the chirality - determining step of single - walled carbon nanotubes, Guadalupe Workshop VIII, Workshop on Nucleation and Growth Mechanisms of Single Wall Carbon Nanotubes, (2017).
17. S. Maruyama, Carbon nanotube films and graphene for perovskite solar cells, 2017 International Forum on Graphene in Shenzhen, (2017).
18. H. Ago, Syntheses and applications of bilayer and multilayer graphene, 8th A3 Symposium on Emerging Materials: Nanomaterials for Electronics, Energy and Environment (2017).
19. H. Ago, Exploring the Growth of High-Quality Graphene, Related 2D Materials, and Their Heterostructures for Electronic Applications, 2017 NEA Symposium of Emerging Materials Innovation (第 19 回北東アジアシンポジウム), (2017).
20. Yasumitsu Miyata, Semiconductor Heterojunctions Based on 2D Materials, 2017 Workshop on Innovative Nanoscale Devices and Systems (WINDS), USA, (2017).
21. Yasumitsu Miyata, Semiconductor Heterojunctions Based on 2D Materials, The 8th A3 Symposium on Emerging Materials, (2017)
22. Yasumitsu Miyata, Semiconductor heterojunctions based on 2D materials, Compound Semiconductor Week 2017, (2017).
23. H. Ago, Syntheses of high-quality graphene and related 2D materials for enhancing their applications, Graphene EU Flagship-Japan Second Workshop, (2017).
24. S. Noda, Practical production and functionalization of carbon nanotubes for energy devices, 2017 International Conference on Functional Carbons (ICFC), (2017).
25. S. Noda, Single-wall carbon nanotubes from supported and floating catalysts on substrates, in fluidized bed, and in gas-phase, Guadalupe Workshop VIII: Workshop on Nucleation and Growth Mechanisms of Single Wall Carbon Nanotubes, (2017)
26. Y. Miyauchi, Linewidth and carrier screening effects on exciton valley relaxation in monolayer transition metal dichalcogenides, The 3rd International Conference on 2D Materials and Technology (ICON-2DMAT 2017), (2017).
27. Y. Miyauchi, Up-conversion photoluminescence of CNTs and its enhancement by defect engineering, Defect Chemistry and Physics of Low Dimensional Materials, (2017).
28. T. Kanazawa, Y. Miyamoto, Development of Field-Effect Transistor Using 2D Layered Hafnium Disulfide, XIX International Workshop on The Physics of Semiconductor Devices (IWPSD 2017), (2017).
29. K. Tsukagoshi, Heterojunctions for atomically thin 2D semiconductors based on two-dimensional transition metal dichalcogenides, 17th International Meeting on Information Display (IMID 2017), (2017).
30. K. Tsukagoshi, Self-assembled hetero-structure based on two-dimensional transition metal dichalcogenides, 2017 Low Dimensional Science (LDS), (2017).
31. K. Tsukagoshi, Heterojunctions for atomically thin 2D semiconductors based on two-dimensional transition metal dichalcogenides, The EMN Meeting on 2D materials 2017, (2017).

32. K. Nagashio, Gap engineering and reliability study for 2Delectronics, 6th Int. Conf. on Semiconductor Technology for ULSI & TFT,(2017).
33. Iwao Kawayama, Terahertz Spectroscopy of Graphene, Collaborative Conference on Materials Research (CCMR 2017), (2017).
34. K. Nagashio, Interface engineering for 2D electronics, 2017 NEA Symposium of Emerging Materials Innovation, (2017).
35. Koichi Kusakabe, Topological zero modes of nanographene arm-chair edges and hydrogenated vacancy, 9-th IACS APCTP Joint Activity on Novel Quantum Phases in Oxide Materials and Low Dimensional Systems (2017).
36. Koichi Kusakabe, Nanographene with a Hydrogenated Vacancy V111 : Its Topological Zero Modes and Hydrogen-Storage Applications, International Conference on Functional Nanomaterials & Nanotechnology (2017).
37. Katsunori Wakabayashi, Topological Properties and Edge Effects on Electronic States of Graphene and Related Nanomaterials, The 10th International Conference on Advanced Materials and Devices (ICAMD 2017), (2017).
38. Katsunori Wakabayashi, Topological Properties and Edge Effects on Electronic States of Graphene and Related Nanomaterials, International Conference on Condensed Matter Physics, (2017).
39. Katsunori Wakabayashi, Topological Properties and Edge Effects on Electronic States of Graphene and Related Nanomaterials, International Conference on Functional Nanomaterials&Nanotechnology (ICFNN 2017), (2017).
40. Hideo Aoki, Quantum phases induced by circularly-polarised light --- Floquet-topological states, New trends in theory for experiments at advanced light sources, (2017).
41. Hideo Aoki, Condensed-matter systems shaken, not stirred: non-equilibrium avenue to novel quantum phases, Zurich Colloquium , (2017).
42. Riichiro Saito, Diffusive and ballistic thermal conductivity of graphene, The 8th A3 Symposium on Emerging Materials: Nanomaterials for Energy and Electronics ,(2017).
43. Riichiro Saito, Circular dichroism of single wall carbon nanotubes (keynote), 11th International Workshop on Metrology, Standardization and Industrial Quality of Nanotubes (MSIN17), (2017).
44. Riichiro Saito, Thermoelectricity and THz optics of two dimensional materials (invited), EU Japan 2nd Workshop, (2017).
45. Y. Matsuura, T. Haga, Y. Fujimoto, S. Saito, Materials: Nanomaterials for Energy and Electronics , 8th A3 Symposium on Emerging (2017),
46. T. Ando, Exotic topological phenomena in graphene, First SAINT-BK21Plus International Workshop, (2017)
47. Mikito Koshino, Hofstadter's butterfly in 2D and 3D, Symposium: Hofstadter Butterfly, ( 2017).
48. Mikito Koshino, Physics of moire superlattices, Collaborative Conference on 3D & Materials Research (CCMR 2017), (2017).
49. Katsuhiko Higuchi, Energy-band calculations of materials immersed in the magnetic field, EMN Meeting on Computation and Theory 2017, (2017).

## 図書 総数 10 件

1. 齋藤 理一郎, 共立出版, 「フラーレン・ナノチューブ・グラフェンの科学」, 2015, 物理科学最前線 5, 163 頁.
2. 齊木 幸一朗他, 情報機構, 「in-situ 測定/その場観察 実例集」, 2013, 315 頁
3. 大野 雄高他, シーエムシー出版, 「カーボンナノチューブ応用最前線」, 2014, 416 頁
4. 齊木 幸一朗他編集, 日本化学会編 化学同人, 「二次元物質の科学 グラフェンなどの分子シートが生み出す新世界」 , 2017, 224 頁.
5. H. Aoki and M. S. Dresselhaus (ed.), "Physics of Graphene" (Springer,2014). 345 頁.
6. Y. Ohno, "High-Mobility Thin-Film Transistors for Flexible Electronics Applications" in in Frontiers of graphene and carbon nanotubes-Devices and applications-, Springer, 2015, pp. 269-283. [ISBN: 978-4-431-55371-7].
7. Y. Kawano, "Terahertz Technology based on Nanoelectronic Devices" in High-Speed Devices and Circuits with THz Applications, pp. 1-26, CRC Press, 2014. [ISBN: 9781466590113].
8. 丸山茂夫監修, 「カーボンナノチューブ・グラフェンの応用研究最前線」, エヌ・ティー・エス, 東京, 2016, 480 頁.
9. K. Nagashio, A. Toriumi, "Graphene/metal contact" in Frontiers of graphene and carbon nanotubes -Devices and applications-, Springer, 2015, pp.53-78. [ISBN: 978-4-431-55371-7].
10. T. Terasawa and K. Saiki, "Graphene: Synthesis and Functionalization", Inorganic Nanosheets and Nanosheet-Based Materials, Springer, 2017, pp. 101-132. [ISBN 978-4-431-56494-2].

## 産業財産権 総数 14 件

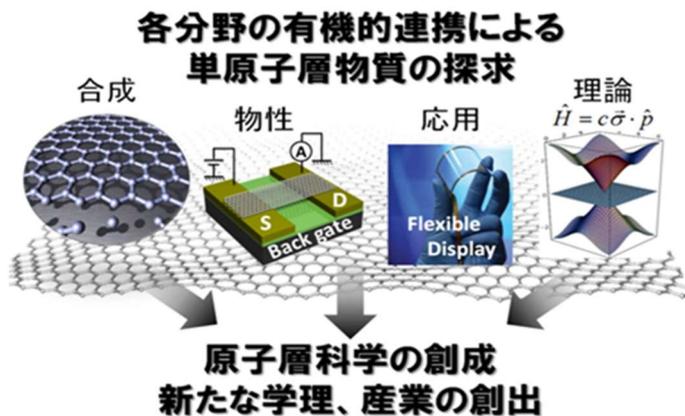
1. 熱電素子とその製造方法, 清水直, 岩佐義宏, 特願 2017-002727, 2017 年 1 月 11 日出願.
2. テラヘルツ波を利用した、受光素子ならびに給電素子に適した炭素膜およびテラヘルツ波検出装置, 河野行雄, 鈴木大地, 落合雄輝, 特願 2017-036214, 2017 年 2 月 28 日出願.
3. テラヘルツ波検出装置およびテラヘルツ波検出システム, 河野行雄, 鈴木大地, 特願 2017-093256, 2017 年 5 月 9 日出願.
4. カーボンナノチューブ膜、テラヘルツ波検出装置およびカーボンナノチューブ膜の P N 接合形成方法, 河野行雄, 鈴木大地, 落合雄輝, 長宗勉, 特願 2017-093445, 2017 年 5 月 9 日出願.
5. 自己触媒能を有する炭素系水素貯蔵材料、その製造方法、その化合物を用いる水素の吸蔵方法及び水素の放出方法、及び水素吸蔵用デバイス, 草部浩一, スナルディアト・ガグス・ケトウト, 榎敏明, 丸山勲, 特願 2016-169558, 2016 年 8 月 31 日出願.
6. 熱電素子材料とその製造方法, 岩佐義宏, ビスリ サトリア ズルカルナエン, 清水直, 特願 2016-137453, 2016 年 7 月 12 日出願.
7. ポリマーおよびその製造法, 伊藤英人, 矢野裕太, 伊丹健一郎, 特願 2016-014380、2016 年 1 月 28 日出願, 特願 2015-024271, 2015 年 2 月 10 日出願.
8. テラヘルツ波検出装置およびアレーセンサ, 河野行雄、鈴木大地, 特願 2016-091298, 2016 年 4 月 28 日出願.
9. プラズモニクアンテナ、プラズモニクアンテナの製造方法および検出装置, 河野行雄、シャインデング、井口崇, 特願 2016-153599, 2016 年 8 月 4 日出願.
10. 熱デバイス, 河野行雄、伊藤良一、陳明偉、藤田武志, 特願 2016-172073, 2016 年 9 月 2 日出願.
11. グラフェン / S i C 複合材料の製造方法, 楠 美智子, 乗松 航, 包 建峰, 特願 2015-35117, 2015 年 2 月 25 日出願.
12. テラヘルツ発振素子, 宮本良之, 特願 2015-024271, 2015 年 2 月 10 日出願.
13. テラヘルツ検出センサ及びテラヘルツ画像測定装置, 河野行雄, 特願 2015-244218, 2015 年 12 月 15 日出願.
14. カーボンナノチューブアレイ, 材料, 電子機器, カーボンナノチューブアレイの製造方法および電界効果トランジスタの製造方法, 丸山 茂夫, 千足 昇平, 大塚 慶吾, 井ノ上 泰輝, 特願 2014-040003, 2015 年 2 月 27 日出願

## 研究成果

研究成果を、交付申請書に記載した「研究目的・研究実施計画」に対応させて記載する。

### 交付申請書に記載した研究目的

本学術領域研究「原子層科学」の目的は、グラフェン(グラファイトの1原子層)を中心として、「原子層が創る科学」を探索する新しい研究領域「原子層科学」の創成である。物質初の「単原子層の物質」であるグラフェンは、従来の半導体物質を凌駕する著しい性質をもつ。各国で大きなプロジェクトが始動するなど、原子層科学の有用性は世界の認めるところである。本物質群に関して我が国の学術水準を向上・強化することは、炭素科学において長年世界をリードしてきた日本にとって急務の



課題であり、本領域の創成を切望するものである。研究目標は、(1)原子層の合成法の探索(化学、工学)、(2)原子層固有の物性の探求(物理、工学)、(3)原子層デバイスへの応用(工学、物理)、(4)原子層電子状態の理論の構築(物理、化学)、の4つの分野を有機的に連携させ、他の原子層(h-BN, MoS<sub>2</sub>など)との複合層を含め原子層物質の探求を行うことである。本申請では、原子層科学を創成し、新たな学理と産業の創出を目指すものである。

### 交付申請書に記載した研究実施計画

本研究領域を4つの計画研究に分け、5年間の各計画研究の目的を以下のように設定した。総括班は計画研究間の共同研究を円滑に進めることを主な目的とした。また、各計画年度における研究実施計画を図のように設定した。図中、赤丸は中間審査時の達成度。緑丸は、後半の活動で達成された達成度(○計画年次に達成、◎計画年次より以前に達成)。赤丸+緑丸は当初の設定目的以上の達成した計画を示す。

- (1) **A01 合成**: 原子層複合系の新規合成手法(複数)を確立し、用途に合わせた原子層を作製する。特に大面積化、高品質化、複合原子層の合成法を実用レベルまで高める。
- (2) **A02 物性**: 原子層構造の新規物性探索。特に、原子層の加工・制御法を確立し、本物質の特異な電子(質量が0の電子)状態がもたらす新規物性を探索・解明する。
- (3) **A03 応用**: 原子層デバイスのプロセス技術を開発・展開する。六方晶窒化ホウ素原子層との複合原子層の作製技術を用いて積層構造の制御と高性能デバイスを実現する。
- (4) **A04 理論**: 原子層系の接合構造・層端構造の理論設計、第一原理計算による電子状態評価を行い、新規物性の提案を行う。原子層物理における理論体系を構築する。

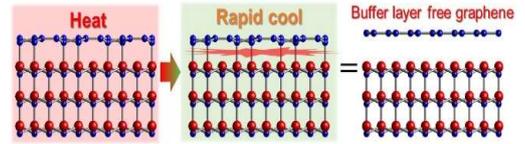


## 主な研究成果

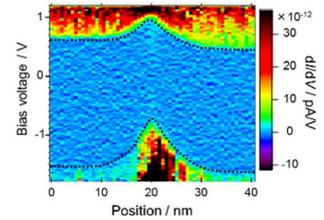
### 計画研究 A01 : 「グラフェン関連原子層の新規合成法および大面積合成法の開発」

#### ・主要論文 1. 急冷法 SiC 上自立グラフェン形成

楠美智子 (A01)、J.Bao (中国) との国際共同研究 [Phys. Rev. Lett., **117**, 205501 (2016).] グラフェンと基板の熱膨張係数の違いを用いて、グラフェンを基板から分離する方法を開発した。各種グラフェン合成法が抱える、基板との強い相互作用の問題を解決し、大きな波及効果となった。(特願 2015-35117)



熱膨張の違いを利用し、急冷でグラフェンを基板から分離



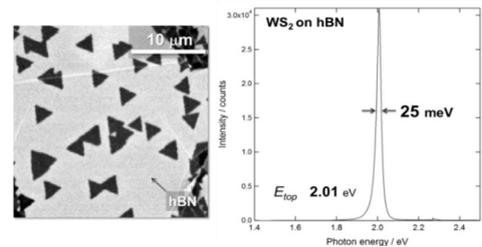
面内 TMD ヘテロ構造の界面電子状態

#### ・主要論文 2. 遷移金属ダイコルゲナイド (TMD) 面内ヘテロ接合界面

宮田耕充 (A01 公募)、渡邊賢司 (A03)、谷口尚 (A03 連携)、理科大、筑波大学との共同研究 [Sci. Rep., **6**, 31223 (2016).] 2つの遷移金属ダイコルゲナイド (TMD) を面内で接合した1次元の界面を合成した。STS で界面のポテンシャル障壁の観測した。面内原子層界面構造解明の学術的意義は大きい。

#### ・主要論文 3. h-BN 上への TMD 直接成長

北浦良 (A01)、渡邊賢司 (A03)、NTT 物性基礎研との共同研究 [ACS Nano, **8**, 8273 (2014).] CVD 法により、h-BN を基板として、単層 WS<sub>2</sub> を直接成長させた。原材料の反応温度を最適化するために、3 連結電気炉を用いて、高い単結晶原子層 (三角形) が実現。非常にシャープな発光ピーク (25meV) は、高い結晶性を示している。



CVD 法による単結晶 WS<sub>2</sub>/h-BN と高い結晶性を示す発光スペクトル

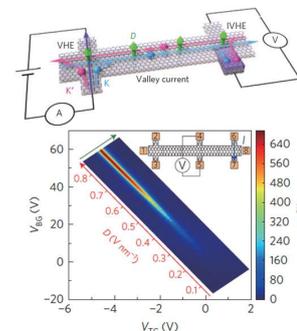
#### ・その他の重要な成果：大面積・良質グラフェン合成技術の開発

齊木幸一朗 (A01) は、安価な酸化グラフェンを Cu の近傍に置きメタンプラズマ照射すると、著しい還元効果を示すことを発見した。これにより大量合成実現が可能になった [Nanotechnology, **29**, 245603 (2018)]。坂本良太 (A01 公募) は、液液界面合成法により、炭素-炭素共有結合生成を用いて単結晶グラフィジンを合成した [J. Am. Chem. Soc., **139**, 3145 (2017)]。依光英樹 (A01) は、パラジウム触媒を用いた有機化学合成法によりグラフェン様リボン分子を合成した。また、Yonsei 大学との国際共同研究により近赤外光吸収の増強を解明した [Chem. Sci., **8**, 189 (2017).]

### 計画研究 A02 : 「原子層の量子物性測定と新規物性探索」

#### ・主要論文 1. 2層グラフェンにおけるバレーホール効果の観測

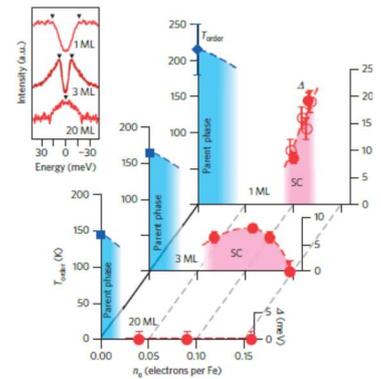
山本倫久 (A02) と渡邊賢司・谷口尚 (A03) による共同研究 [Nat. Phys. **11**, 1032 (2015)]. 2層グラフェンに垂直電場を加えてギャップを開くと、K点とK'点のバレー(エネルギーバンドの底)で逆向きのバレー曲率(電子の運動を記述する面の曲率)が発生するため、面内電場に直交する方向に、異なるバレーの電子が逆方向に動く「バレー流」が発生する。山本らはバレー流を逆バレーホール効果で電圧に変換して、バレーホール効果を観測した。本研究はグラフェン系のトポロジカル伝導物性の端緒であると同時に、バレー自由度を情報担体として利用するバレートロニクス技術の基礎原理の実証であり、基礎・応用両面で大きな学術的意義を持つ。



バレーホール効果の原理と非局所抵抗の測定結果

・主要論文2. カリウム吸着による FeSe 原子層の高温超伝導の制御

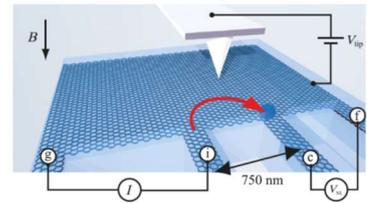
菅原克明 (A02) による基礎研究 [Nat. Mater. **14**, 775 (2015)].  $T_c = 8\text{ K}$  の層状鉄系超伝導体 FeSe は SrTiO<sub>3</sub> 基板上的単原子層になると  $T_c \sim 65\text{ K}$  の高温超伝導を示すが、系統的研究は進んでいなかった。菅原らは単層～少数層 FeSe 膜上にカリウム原子を吸着させることで電子濃度を系統的に制御する手法を考案し、角度分解光電子分光法で電子構造を確認しながら電子濃度・原子層数を変えて超伝導特性の測定を行い、系統的研究を成功させた。その結果、多層系でも高温超伝導 ( $T_c < 48\text{ K}$ ) が現れること、臨界温度が層数減少と共に増大することを発見し、2次元高温超伝導機構に関する重要な知見を得た。



FeSe 超薄膜の超伝導相図

・主要論文3. グラフェンにおけるバリスティック電子軌道の実空間観測

町田友樹 (A02)、渡邊賢司・谷口尚 (A03) と英国ケンブリッジ大 M. R. Connolly の国際共同研究 [Appl. Phys. Lett. **107**, 243102 (2015)]. 高移動度グラフェンでは、入射電子は垂直磁場下で散乱されずにバリスティック (弾道) 軌道上を運動し、軌道が検出電極に集中する (フォーカシング) と電極電位が変化する。電圧をかけたゲート探針を試料表面上で走査すれば、探針が電子軌道上に位置したとき軌道が乱されフォーカシング信号が変化する。町田らは走査プローブ顕微鏡技術を有する英国グループと協力して電子のフォーカシング軌道の可視化に初めて成功した。

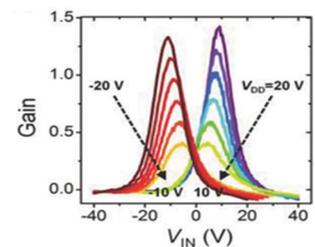
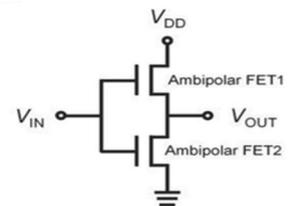


走査ゲート顕微鏡法の原理

計画研究 A03 : 「複合原子層の界面特性理解と原子層デバイスへの応用」

・主要論文1. 新規2次元半導体のインバータ動作

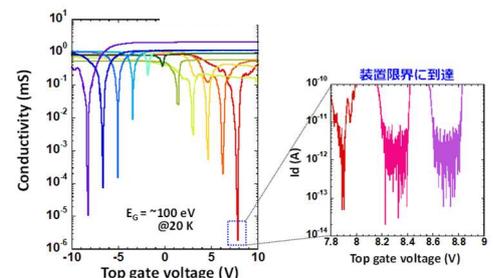
塚越一仁・上野啓司 (A03)、若林克法・齋藤理一郎 (A04) らによる共同研究 [Nano Lett., **156**, 2720 (2016). Nano Lett., **15**, 2067 (2015)., ACS Nano, **8**, 3895 (2014). Phys. Rev. B, **91**, 205415 (2015) (A04 と重複して掲載) . Nano Lett., **13**, 3546 (2013). ACS Nano, **8**, 12836 (2014).] 上野が成長させた MoTe<sub>2</sub> 結晶を塚越が単層化し未同定の振動モードを発見した。齋藤が理論的側面から解析し、未定振動モードの同定に成功した。実験と理論の共同により原子層科学への理解の深まった好例である。さらに、MoS<sub>2</sub>, WSe<sub>2</sub> の電子輸送特性に関しても、実験と理論の比較から、基板に存在する荷電不純物がデバイス動作の律速になっていることを見出した。この問題を解決し、最終的に、2次元半導体によるインバータ動作を世界に先駆け実証した。一連の論文は 500 を超える引用がある。



(上) インバータ回路の模式図、(下) 動作の実現を示すグラフ。

・主要論文2. 2層グラフェンの h-BN との複層化とギャップ形成

長汐晃輔・渡邊賢司・谷口尚 (A03) の共同研究 [ACS Appl. Mater. Interfaces, **10**, 11732 (2018), **8**, 27877 (2016), Sci. Rep., **5**, 15789 (2015). 2D Mater., **2**, 041002 (2015). ACS Nano, **9**, 916 (2015) ] high-k 酸化膜/2層グラフェン界面において、エネルギーギャップ内に  $\sim 10^{13}\text{ cm}^{-2}$  もの界面準位が存在することを定量的に評価した。原子層絶縁体 h-BN は層がめくれるように絶縁破壊が進行すること、絶縁破壊電界に強い異方性が存在することなど h-BN 自身の物性を解明した。この知見を基に、h-BN とグラフェンの2次元ヘテロ FET 作成の複層化技術を確立した。この技術ではギャップ内準位の数を測定感度以下まで低減し(前ページ図)、電流の on/off 比 (注: デバイスの電流が流れている on 状態と流れていない off 状態の電流比を on/off 比と呼ぶ。デバイスの性能を示す数値。)を現時点で最高値の  $5 \times 10^5$  まで向上させた。今後の2

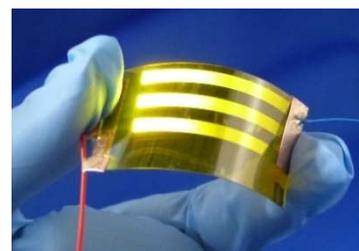


(左) 伝導度のゲート電圧依存性。(右) 伝導度が測定感度以下に低減。

次元ヘテロ界面デバイス応用に大きな波及効果がある。

・主要論文3. グラフェン透明電極を利用したフレキシブル有機 EL 素子

長谷川雅考(A03)と企業のグラフェンの実用化共同研究 [Carbon, **82**, 60 (2015). Jpn. J. Appl. Phys., **54**, 095103 (2015). Carbon, **77**, 823 (2014).] グラフェンを用いた有機 EL (エレクトロルミネッセンス、電界発光) 素子の最重要課題である低抵抗化を、ドーパント材料として塩化金を選択することで達成し、PEN 基板上グラフェン透明電極を用いた有機 EL の発光を実証した (右図)。最大で  $8,000 \text{ cd/m}^2 @15 \text{ V}$  と輝度の格段の向上に成功した。更なる低抵抗化かつ大気中での長期安定化を、グラフェンへの紫外線照射と有機導電性インクの併用により達成した。本技術は企業へライセンス提供した。



グラフェン透明電極を用いたフレキシブル有機 EL 素子

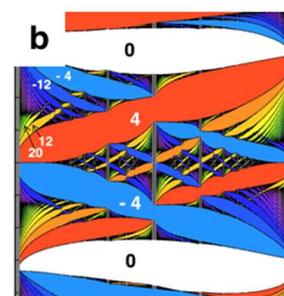
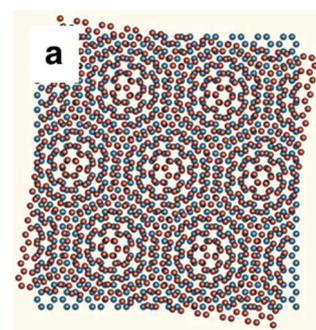
計画研究 A04 : 「原子層の電子物性、量子輸送および光物性の理論」

・主要論文1. モアレ複合原子層の物性理論

越野幹人 (A04)、ニューヨーク大学上海との共同研究 [Phys. Rev. B **96**, 075311 (2017). New J. Phys. **17**, 015014 (2015). Phys. Rev. B **90**, 155406 (2014). Phys. Rev. B **87**, 205404 (2013)] 異なる原子層を積層することで得られる、モアレ複合原子層 (右図(a)) の電子状態を解明した。近年グラフェン h-BN 系で、磁場下の電子状態が量子フラクタル (右図(b)) を示すことが発見され、また 2018 年には回転積層グラフェンでは 1.1K の超伝導が観測されるなど、モアレ複合原子層薄膜は当初の予想を超え世界中で爆発的に研究されるようになり、この理論の波及効果は非常に大きい。4 件の論文は計 200 件を超える引用がある。

・主要論文2. 複合原子層における量子フラクタルの実現

越野幹人 (A04)、渡邊賢司 (A03)、谷口尚 (A03)、コロンビア大学、ハーバード大学、MIT、復旦大学、マックスプランク研究所 [Nano Lett. **17**, 3576 (2017). Nano Lett. **16**, 5053 (2016). Science **350**, 1231 (2015)] グラフェンと h-BN のモアレ複合原子層に磁場を印加し、量子効果により生ずる電子状態のフラクタル (自己相似) スペクトルを国際共同研究で観測した。このスペクトルはホフスタッターの蝶と呼ばれ、1970 年代より理論的に予想されたが、40 年後に実験的に観測された。発足以前の 2013 年発表の論文 2 編とあわせて 1300 件を超える引用がある。実現には越野らによる理論と、渡邊・谷口による高品質 h-BN の供給が不可欠であった。



・主要論文3. 遷移金属カルコゲナイド・黒リン原子層におけるラマン分光

齋藤理一郎 (A04)、塚越(A03)、上野(A03)、マサチューセッツ工科大との共同研究 [Nano Lett. **16**, 2260 (2016). Phys Rev. B **91**, 205415 (2015). (A03 と重複して掲載), J. Amer. Chem. Soc. **137**, 11892 (2015). Phys. Chem. Chem. Phys. **17**, 14561 (2015).] 遷移金属カルコゲナイド原子層及び黒リン原子層のラマン分光を解析した。ラマン分光は物質の同定に広範に用いられる極めて強力な実験手法であり、この理論の確立により遷移金属カルコゲナイド系の物質評価法に確固たる基盤が与えられた。また応用班との共同でラマンスペクトルの同定、また大面積原子層の評価も行われた。4 件の論文は計 216 件の引用がある。