研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和 5 年 5 月 1 1 日現在

機関番号: 17102

研究種目: 挑戦的研究(萌芽)

研究期間: 2021~2022

課題番号: 21K18878

研究課題名(和文)積層制御した二層グラフェンによる黒鉛層間化合物科学の革新

研究課題名 (英文) Revolution of graphite-intercalation-compound (GIC) research by highly controlled bilayer graphene

研究代表者

吾郷 浩樹 (Ago, Hiroki)

九州大学・グローバルイノベーションセンター・教授

研究者番号:10356355

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 5.000.000円

研究成果の概要(和文): 黒鉛に分子やイオンを挿入した黒鉛層間化合物 (GIC) は、挿入物質に依存して電子・光・磁気物性が著しく変化し、超伝導を含めた興味深い物性が多く観察される。本研究では大面積に合成した二層グラフェンと、最新の電子顕微鏡を用いて、金属塩化物のインターカレーションに関する研究を行った。層間にインターカレーションされた金属塩化物が、様々な準安定構造を形成するとともに、電子線によってダイナミックに構造変化することを見出した。さらに、インターカレーションが二層グラフェンのツイスト角度に依たよう。 といえる。

研究成果の学術的意義や社会的意義 黒鉛層間化合物(GIC)は多くの興味深い物性を示すことから、長い間、研究が行われてきたが、X線構造回折な どでマクロな測定結果に基づいて議論がなされてきた。本研究では二層グラフェンという最新のナノ材料と最先 端電子顕微鏡を用いて、ミクロな構造や詳しい機構を明らかにすることができた。本成果は、グラフェンなどの 層状物質の二次元空間を舞台にした科学という新たなコンセプトを与えるものであるとともに、リチウムイオン 電池やナトリウムイオン電池など今後のエネルギー応用において重要な設計指針をもたらすものである。

研究成果の概要(英文): Graphite intercalation compounds (GICs) have been studied for long time, because they show many intriguing properties, strongly depending on intercalants. In this research project, we studied the intercalation of metal chlorides in CVD-grown, large-area bilayer graphene with an aid of a high-performance electron microscope. We found that metal chlorides exhibit various unique sub-stable structures in the 2D nanospace which is sandwiched by two graphene layers. We also found that the intercalation strongly depends on the twist angle of bilayer graphene. These findings provide new insight on the GIC research, allowing to apply energy devices, such as Li and Na ion batteries.

研究分野: ナノテクノロジー

キーワード: 二層グラフェン インターカレーション 二次元ナノ空間 黒鉛層間化合物 CVD

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1.研究開始当初の背景

黒鉛層間化合物(GIC: graphite intercalation compound)は、黒鉛の層間に分子やイオンを挿入(インターカレーション)したものであり、1980年代から90年代にかけて精力的に研究が行われた材料である。我が国でもGICに関して活発に研究が行われ、世界を牽引していた。この研究の流れは、現在のリチウムイオン電池の基盤をなす、黒鉛のリチウムインターカレーションにつながっている。

GIC はその挿入物質の種類によって、p 型、あるいは n 型ドーピングが起こり、黒鉛の抵抗値を大幅に低下できるだけでなく、超伝導、磁性、電荷密度波など多彩な物性を示すことが知られている。例えば、Ca をインターカレーションした C_6Ca は 11.5 K の高い超伝導転移温度を示すことが報告されている。

しかし、従来の GIC 研究は、主に黒鉛結晶が用いられ、インターカレーションによる構造・物性変化は XRD や電気抵抗といったマクロな測定によって行われていた。つまり、試料、測定技術の両方の制約により、原子レベルでのインターカレーションの理解は難しく、これまでは黒鉛全体として平均的な描像でしか観察・議論されてこなかった。

一方、2004年に報告されたグラフェンの剥離とキャリア輸送特性に関する研究を契機として、二次元物質に関する研究は著しい発展を示してきた。このような「新しい材料」を使い、かつ最新の分析装置を活用して GIC 研究に取り組むことは新たな発見につながるものと期待される。そこで、本研究では、当該研究者が独自に開発してきた単層・二層グラフェンの合成法を活用して、原子レベルでのインターカレーションの理解を進め、GIC 研究にイノベーションを起こすことを目的として研究を行った。

2.研究の目的

本研究の目的は以下の3点である。

- (1) 二層グラフェンの層間にインターカレーションされた分子の原子レベルでの構造観察
- (2)二層グラフェンのツイスト角度がインターカレーションに及ぼす効果の理解
- (3) インターカレーションによる二層グラフェンの物性変化の測定

上記の一連の研究を通じて、黒鉛層間化合物研究に新たな知見を得て、学術分野の創成やグラフェンを使った応用研究の先鞭とすることを目標とした。

3.研究の方法

本研究では二種類の二層グラフェンを使用した。一つは、Cu-Ni(111)/サファイア基板を用いた CVD 法で直接二層グラフェンを合成したものである。もう一つは Cu(111)/サファイア基板を用いて合成した単層グラフェンを転写によって二層化したものである。これらのサンプルをシリコン基板に転写後、AlCl3, CuCl2, MoCl5 などの金属塩化物とガラス管を一緒に封入して加熱することで、インターカレーションを行った。評価には、ラマン分光、AFM、SEM、走査型透過電子顕微鏡(STEM)、真空プローバーと半導体パラメーターアナライザーなどを用いた。

4.研究成果

まず、CVD 法によって二層グラフェンを合成するとともに、効率的に TEM グリッドに転写する方法を検討した。これを実現することで、STEM により多くのサンプルを観察することができるようになった。AICI3をインターカレーションしたところ、図1に示すように、二層グラフェンの層間の二次元ナノ空間中でのみ生成する、非常に興味深い金属塩化物の超構造を発見することができた。図1に示す3つの構造は、バルク結晶では見られないものであり、二次元ナノ空間では新たな現象が起こることを示唆している。また、これら複数の特異構造は電子線によって構造変化することも実験的に分かった。さらに、分子のインターカレーションによって層間カ

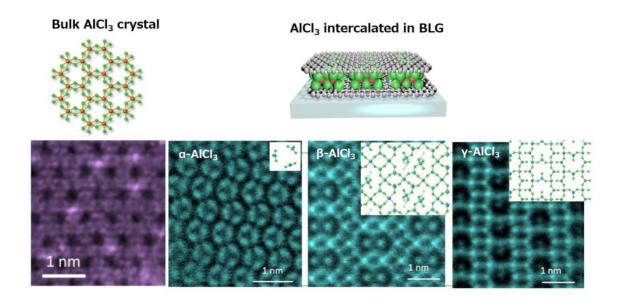


図 1 塩化アルミニウムのバルク結晶の結晶構造、および二層グラフェンの層間で発見された新しい三種類の塩化アルミニウムの二次元結晶構造。

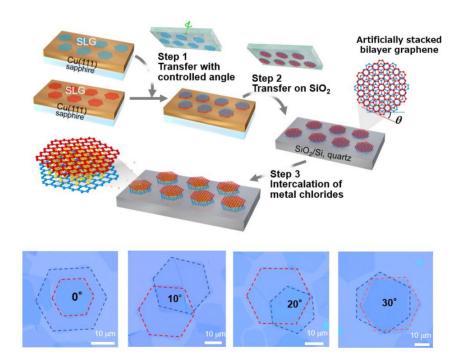


図 2 ツイスト角度を制御した人工二層グラフェンの作製スキーム、および実際の試料の光学顕微鏡写真。

次に、ツイスト角度の影響を知るため、CVD 合成した単層グラフェンを、転写によって二枚重ねることで、ツイスト角度を制御した大面積の二層グラフェンを作製し、それに対して金属塩化物のインターカレーションを行った(図2)。その結果、ツイスト角度に依存してインターカレーションの割合が変化し、ツイスト角が大きくなるほどインターカレーションの割合が増えることを初めて見い出すことができた(図3)。この成果は、リチウムイオン電池やナトリウムイオン電池など、エネルギー容量の高いバッテリーに向けた新たな設計指針を与えるものと期

待できる。また、本成果は ACS Nano に掲載されるとともに、同誌の Supplementary Cover としても採用された。この現象を活用して高い光透過率を維持したまま、 $50~\Omega$ \square を切る非常に低いシート抵抗を示す二層グラフェンの作製につなげることもできた(図 3~ \square

上記の他にも、アルカリ金属やアルカリ土類金属などもインターカレーションを行い、多くの 興味深い二次元構造を見い出し、論文を投稿中である。

本研究で得られた一連の成果は、二次元ナノ空間での科学という新しい研究フィールドにつながるものであり、今後の学術と応用研究の発展に寄与するものと考える。

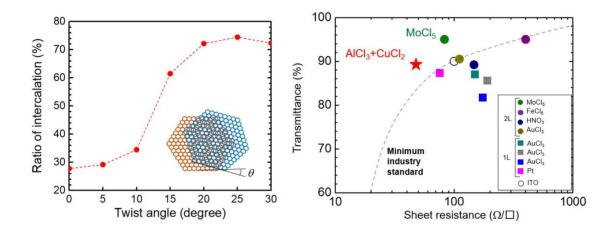


図3 インターカレーションの割合のツイスト角度依存性、および金属塩化物をインターカレーションした二層グラフェンと単層グラフェンのシート抵抗/透過率の比較。 $AICI_3+CuCI_2$ と $MoCI_5$ が本研究で得た結果であり、他の結果よりも優れており、かつ点線のMinimum industry standard を上回っていることが分かる。

5 . 主な発表論文等

「雑誌論文 〕 計15件(うち査読付論文 15件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 3件)

| 〔雑誌論文〕 計15件(うち査読付論文 15件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 3件) | |
|---|------------------------|
| 1.著者名 | 4 . 巻 |
| Hirokawa Sota、Teshima Hideaki、Solis-Fernandez Pablo、Ago Hiroki、Li Qin-Yi、Takahashi Koji | 37 |
| 2.論文標題 | |
| Pinning in a Contact and Noncontact Manner: Direct Observation of a Three-Phase Contact Line | 2021年 |
| Using Graphene Liquid Cells | 2021- |
| 3 . 雑誌名 | 6.最初と最後の頁 |
| Langmuir | 12271 ~ 12277 |
| | |
| | 査読の有無 |
| 対象に耐火のDOT () クラルオフクエン 下版のサー) 10.1021/acs.langmuir.1c01589 | 直流の行 無 有 |
| 10.1021/acs.1angiiiu11.1c01309 | Ħ |
| オープンアクセス | 国際共著 |
| オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | - |
| | |
| 1.著者名 | 4 . 巻 |
| Lin Yung-Chang、Motoyama Amane、Solis-Fernandez Pablo、Matsumoto Rika、Ago Hiroki、Suenaga Kazu | 21 |
| 2.論文標題 | |
| | 2021年 |
| Stapting and Society ing of Strayor Staphistic monitoriou by Electron Energy Ecob opeotioscopy | |
| 3.雑誌名 | 6.最初と最後の頁 |
| Nano Letters | 10386 ~ 10391 |
| | |
| | |
| 10.1021/acs.nanolett.1c03689 | 有 |
| 10.1021/ 463.11411010111.1000003 | н |
| オープンアクセス | 国際共著 |
| オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | <u>-</u> |
| | . ** |
| 1.著者名 | 4.巻 33 |
| Lin Yung Chang、Motoyama Amane、Kretschmer Silvan、Ghaderzadeh Sadegh、Ghorbani Asl Mahdi、 Araki Yuji、Krasheninnikov Arkady V.、Ago Hiroki、Suenaga Kazu | 33 |
| 2.論文標題 | 5.発行年 |
| Polymorphic Phases of Metal Chlorides in the Confined 2D Space of Bilayer Graphene | 2021年 |
| | |
| 3.雑誌名 | 6.最初と最後の頁 |
| Advanced Materials | 2105898 ~ 2105898 |
| | |
| 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) | 査読の有無 |
| 10.1002/adma.202105898 | 有 |
| | |
| オープンアクセス | 国際共著 |
| オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 該当する |
| 1.著者名 | 4.巻 |
| Solis-Fernandez Pablo、Ago Hiroki | 4 · 包 5 |
| Solito Foliation Type III I III | - |
| 2 . 論文標題 | 5 . 発行年 |
| Machine Learning Determination of the Twist Angle of Bilayer Graphene by Raman Spectroscopy: | 2022年 |
| Implications for van der Waals Heterostructures | C 8 77 1 8 14 5 7 |
| 3.雑誌名 | 6.最初と最後の頁 |
| ACS Applied Nano Materials | 1356 ~ 1366 |
| | |
| 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) | 査読の有無 |
| 10.1021/acsanm.1c03928 | 有 |
| | |
| オープンアクセス | 国際共著 |
| オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | |

| 1 . 著者名 Ago Hiroki、Okada Susumu、Miyata Yasumitsu、Matsuda Kazunari、Koshino Mikito、Ueno Kosei、 Nagashio Kosuke | |
|---|---|
| Ago Hiroki、Okada Susumu、Miyata Yasumitsu、Matsuda Kazunari、Koshino Mikito、Ueno Kosei、 | 4 . 巻 |
| | 23 |
| | 20 |
| | |
| 2 . 論文標題 | 5 . 発行年 |
| Science of 2.5 dimensional materials: paradigm shift of materials science toward future social | 2022年 |
| innovation | 2022— |
| | |
| 3 . 雑誌名 | 6.最初と最後の頁 |
| Science and Technology of Advanced Materials | 275-299 |
| detended and recliniology of Advanced materials | 210-200 |
| · · · · · · · · · · · · · · · · · · · | |
| | |
| 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) | 査読の有無 |
| 10.1080/14686996.2022.2062576 | 有 |
| 16.166671166666.2522.2562676 | 13 |
| | |
| オープンアクセス | 国際共著 |
| オープンアクセスとしている(また、その予定である) | - |
| | |
| 1 英字夕 | 4 . 巻 |
| 1 . 著者名 | |
| 吾鄉 浩樹 | 90 |
| · · | |
| 2.論文標題 | 5 . 発行年 |
| | |
| 2次元物質から2.5次元物質科学へ | 2021年 |
| · · | |
| 3.雑誌名 | 6.最初と最後の頁 |
| ** *** * | |
| 応用物理 | 617 ~ 622 |
| · · | |
| · · | |
| 担事をみず DOL / デンタリナブン・クト かいフン | 木芸の左仰 |
| 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) | 査読の有無 |
| 10.11470/oubutsu.90.10_617 | 有 |
| - | |
| オープンアクセス | 国際共著 |
| = | 当际 六百 |
| オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | <u> </u> |
| | |
| 1 . 著者名 | 4 . 巻 |
| | |
| Ago Hiroki、Taira Takanobu | 65 |
| · · | |
| 2.論文標題 | 5.発行年 |
| | |
| CVD Growth of High-quality Graphene and Visualization of the Growth Process | 2022年 |
| | |
| | |
| 3 雑誌名 | 6 最初と最後の百 |
| | 6.最初と最後の頁 |
| 3.雑誌名 Vacuum and Surface Science | 6 . 最初と最後の頁 177~183 |
| | |
| | |
| Vacuum and Surface Science | 177 ~ 183 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) | 177~183 査読の有無 |
| Vacuum and Surface Science | 177 ~ 183 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) | 177~183 査読の有無 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 | 177~183 査読の有無 有 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス | 177~183 査読の有無 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 | 177~183 査読の有無 有 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス | 177~183 査読の有無 有 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 177~183 査読の有無 有 国際共著 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1. 著者名 | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 177~183 査読の有無 有 国際共著 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1. 著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1.著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 12 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1. 著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2. 論文標題 | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 12 5.発行年 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1. 著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2. 論文標題 Graphene-based deep-ultraviolet photodetectors with ultrahigh responsivity using chemical vapor | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 12 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1. 著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2. 論文標題 Graphene-based deep-ultraviolet photodetectors with ultrahigh responsivity using chemical vapor | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 12 5.発行年 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1. 著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2. 論文標題 Graphene-based deep-ultraviolet photodetectors with ultrahigh responsivity using chemical vapor deposition of hexagonal boron nitride to achieve photogating | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 12 5.発行年 2022年 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1.著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2.論文標題 Graphene-based deep-ultraviolet photodetectors with ultrahigh responsivity using chemical vapor deposition of hexagonal boron nitride to achieve photogating 3.雑誌名 | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 12 5.発行年 2022年 6.最初と最後の頁 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1.著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2.論文標題 Graphene-based deep-ultraviolet photodetectors with ultrahigh responsivity using chemical vapor deposition of hexagonal boron nitride to achieve photogating | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 12 5.発行年 2022年 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1.著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2.論文標題 Graphene-based deep-ultraviolet photodetectors with ultrahigh responsivity using chemical vapor deposition of hexagonal boron nitride to achieve photogating 3.雑誌名 | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 12 5.発行年 2022年 6.最初と最後の頁 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1.著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2.論文標題 Graphene-based deep-ultraviolet photodetectors with ultrahigh responsivity using chemical vapor deposition of hexagonal boron nitride to achieve photogating 3.雑誌名 | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 12 5.発行年 2022年 6.最初と最後の頁 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1.著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2.論文標題 Graphene-based deep-ultraviolet photodetectors with ultrahigh responsivity using chemical vapor deposition of hexagonal boron nitride to achieve photogating 3.雑誌名 Optical Materials Express | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 12 5 . 発行年 2022年 6 . 最初と最後の頁 2090~2101 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1.著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2.論文標題 Graphene-based deep-ultraviolet photodetectors with ultrahigh responsivity using chemical vapor deposition of hexagonal boron nitride to achieve photogating 3.雑誌名 Optical Materials Express | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 12 5.発行年 2022年 6.最初と最後の頁 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 12 5 . 発行年 2022年 6 . 最初と最後の頁 2090~2101 |
| 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1.著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2.論文標題 Graphene-based deep-ultraviolet photodetectors with ultrahigh responsivity using chemical vapor deposition of hexagonal boron nitride to achieve photogating 3.雑誌名 | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 12 5 . 発行年 2022年 6 . 最初と最後の頁 2090~2101 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 1. 著者名 Fukushima Shoichiro、Fukamachi Satoru、Shimatani Masaaki、Kawahara Kenji、Ago Hiroki、Ogawa Shinpei 2. 論文標題 Graphene-based deep-ultraviolet photodetectors with ultrahigh responsivity using chemical vapor deposition of hexagonal boron nitride to achieve photogating 3. 雑誌名 Optical Materials Express 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OME.457545 | 直読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 12 5 . 発行年 2022年 6 . 最初と最後の頁 2090~2101 |
| Vacuum and Surface Science 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1380/vss.65.177 オープンアクセス | 177~183 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 12 5 . 発行年 2022年 6 . 最初と最後の頁 2090~2101 |

| | 1. " |
|--|--|
| 1.著者名 | 4 . 巻 |
| Araki Yuji, Solis-Fernandez Pablo, Lin Yung-Chang, Motoyama Amane, Kawahara Kenji, Maruyama | 16 |
| Mina、Gao Yanlin、Matsumoto Rika、Suenaga Kazu、Okada Susumu、Ago Hiroki | 5 387- F |
| 2. 論文標題 | 5.発行年 |
| Twist Angle-Dependent Molecular Intercalation and Sheet Resistance in Bilayer Graphene | 2022年 |
| 3.雑誌名 | 6.最初と最後の頁 |
| 3 、雅志の石 ACS Nano | |
| AUD INDIIU | 14075 ~ 14085 |
| | |
| 曷載論文のDOⅠ(デジタルオブジェクト識別子) | 査読の有無 |
| 10.1021/acsnano.2c03997 | 有 |
| †ープンアクヤス | 国際共著 |
| 「一ノンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | |
| カーノファフ ヒヘ Claない、 Xlaカーフファフ ヒスか凶無 | <u>-</u> |
| | 4 . 巻 |
| Yi Hsin, Solis-Fernandez Pablo, Hibino Hiroki, Ago Hiroki | 4 |
| THOM, SOLID FORMANDE FABRO, HISTING HITCHI, AND HITCHI | · |
| 2.論文標題 | 5.発行年 |
| Surface etching and edge control of hexagonal boron nitride assisted by triangular Sn | 2022年 |
| nanoplates | |
| . 雑誌名 | 6.最初と最後の頁 |
| Nanoscale Advances | 3786 ~ 3792 |
| | |
| 引載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) | <u></u> 査読の有無 |
| 『朝神文のDOT (デンタルオフシェクト画が子) 10.1039/D2NA00479H | 宜祝の有無 有 |
| 10.1003/DZIVNOU41311 | 1 |
| - -ープンアクセス | 国際共著 |
| オープンアクセスとしている(また、その予定である) | - |
| , | · |
| . 著者名 | 4.巻 |
| Inukai Daiki, Koyama Takeshi, Araidai Masaaki, Kawahara Kenji, Ago Hiroki, Kishida Hideo | 132 |
| | |
| 1.論文標題 | 5.発行年 |
| Fermi energy dependence of ultrafast photoluminescence from graphene | 2022年 |
| かたさされるフ | (見知し見後の否 |
| 3.雑誌名 | 6.最初と最後の頁 |
| Journal of Applied Physics | 134301 ~ 134301 |
| | |
| 載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) | |
| 10.1063/5.0092558 | 有 |
| | |
| 「ープンアクセス | 国際共著 |
| オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | - |
| | |
| | 4 *** |
| .著者名 | 4 . 巻 |
| | 4 . 巻 201 |
| . 著者名 Vincent Tom、Kawahara Kenji、Antonov Vladimir、Ago Hiroki、Kazakova Olga | 201 |
| . 著者名 Vincent Tom、Kawahara Kenji、Antonov Vladimir、Ago Hiroki、Kazakova Olga . 論文標題 | 201 5 . 発行年 |
| . 著者名 Vincent Tom、Kawahara Kenji、Antonov Vladimir、Ago Hiroki、Kazakova Olga | 201 |
| . 著者名 Vincent Tom、Kawahara Kenji、Antonov Vladimir、Ago Hiroki、Kazakova Olga 論文標題 Data cluster analysis and machine learning for classification of twisted bilayer graphene | 201 5 . 発行年 2023年 |
| . 著者名 Vincent Tom、Kawahara Kenji、Antonov Vladimir、Ago Hiroki、Kazakova Olga . 論文標題 Data cluster analysis and machine learning for classification of twisted bilayer graphene . 雑誌名 | 201 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 |
| . 著者名 Vincent Tom、Kawahara Kenji、Antonov Vladimir、Ago Hiroki、Kazakova Olga . 論文標題 Data cluster analysis and machine learning for classification of twisted bilayer graphene | 201 5 . 発行年 2023年 |
| . 著者名 Vincent Tom、Kawahara Kenji、Antonov Vladimir、Ago Hiroki、Kazakova Olga 2. 論文標題 Data cluster analysis and machine learning for classification of twisted bilayer graphene 3. 雑誌名 Carbon | 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 141~149 |
| . 著者名 Vincent Tom、Kawahara Kenji、Antonov Vladimir、Ago Hiroki、Kazakova Olga 2. 論文標題 Data cluster analysis and machine learning for classification of twisted bilayer graphene 3. 雑誌名 Carbon | 201 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 |
| . 著者名 Vincent Tom、Kawahara Kenji、Antonov Vladimir、Ago Hiroki、Kazakova Olga 2. 論文標題 Data cluster analysis and machine learning for classification of twisted bilayer graphene 3. 雑誌名 Carbon | 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 141~149 |
| . 著者名 Vincent Tom、Kawahara Kenji、Antonov Vladimir、Ago Hiroki、Kazakova Olga 2. 論文標題 Data cluster analysis and machine learning for classification of twisted bilayer graphene 3. 雑誌名 Carbon の の の の の の の の の の の の の の の の の の の | 201 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 141~149 査読の有無 |
| 1 . 著者名 Vincent Tom、Kawahara Kenji、Antonov Vladimir、Ago Hiroki、Kazakova Olga 2 . 論文標題 Data cluster analysis and machine learning for classification of twisted bilayer graphene 3 . 雑誌名 Carbon | 201 5 . 発行年 2023年 6 . 最初と最後の頁 141~149 査読の有無 |

| 1 . 著者名 Knill Christopher J.、Yamaguchi Hisato、Kawahara Kenji、Wang Gaoxue、Batista Enrique、Yang Ping、Ago Hiroki、Moody Nathan、Karkare Siddharth | 4.巻 19 |
|--|----------------------------|
| 2.論文標題 Near-Threshold Photoemission from Graphene-Coated Cu(110) | 5 . 発行年 2023年 |
| 3.雑誌名 Physical Review Applied | 6.最初と最後の頁 14015 |
| 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.19.014015 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |
| 1 . 著者名 Nakajima Shun、Wasai Yoko、Kawahara Kenji、Nabatova-Gabain Nataliya、Gomasang Ploybussara、Ago Hiroki、Akinaga Hiroyuki、Ueno Kazuyoshi | 4.巻 62 |
| 2.論文標題 Structural analysis of graphene-capped copper by spectroscopic ellipsometry for humidity reliability assessment | 5 . 発行年 2023年 |
| 3.雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics | 6.最初と最後の頁 SC1092~SC1092 |
| 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/acb77a | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 |
| 1.著者名 Fukamachi Satoru、Solis-Fernandez Pablo、Kawahara Kenji、Tanaka Daichi、Otake Toru、Lin Yung-Chang、Suenaga Kazu、Ago Hiroki | 4.巻 6 |
| 2.論文標題 Large-area synthesis and transfer of multilayer hexagonal boron nitride for enhanced graphene device arrays | 5 . 発行年 2023年 |
| 3.雑誌名 Nature Electronics | 6.最初と最後の頁 126~136 |
| 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) | 査読の有無 |

〔学会発表〕 計29件(うち招待講演 24件/うち国際学会 13件)

1.発表者名

Ago Hiroki

オープンアクセス

10.1038/s41928-022-00911-x

2 . 発表標題

Controlled CVD Growth of High-Quality 2D Layered Materials for Electronic and Photonic Applications

オープンアクセスとしている(また、その予定である)

3 . 学会等名

EU Graphene Flagship, 2D Experimental Pilot Line (2D-EPL) workshop "Pioneering 2D materials for the semiconductor industry" (招待講演) (国際学会)

有

国際共著

4 . 発表年

2021年

| 1.発表者名 |
|--|
| Ago Hiroki |
| |
| |
| |
| 2.発表標題 |
| Controlled synthesis and functionalization of 2D materials for future applications |
| Commence Cymres and Canada Can |
| |
| |
| 3.学会等名 |
| |
| Device science of 2D organic and inorganic materials: from fundamentals to applications(招待講演)(国際学会) |
| 4 3% ± /r |
| 4 . 発表年 |
| 2021年 |
| |
| 1.発表者名 |
| Ago Hiroki |
| |
| |
| |
| 2.発表標題 |
| Controlled synthesis and modifications of 2D materials for electronic applications |
| controlled synthesis and modifications of 25 materials for electronic approachous |
| |
| |
| 3.学会等名 |
| |
| 2DMAT2021(招待講演)(国際学会) |
| . We to |
| 4.発表年 |
| 2021年 |
| |
| 1.発表者名 |
| Ago Hiroki |
| · · |
| |
| |
| 2.発表標題 |
| 2.5 dimensional materials: new frontier of atomic layers |
| 2.3 dillensional lilaterials. New Frontier of atoline layers |
| |
| |
| 3 当△年々 |
| 3.学会等名 |
| SSDM2021 (2021 International Conference on Solid State Devices and Materials)(招待講演)(国際学会) |
| |
| 4.発表年 |
| 2021年 |
| |
| 1 . 発表者名 |
| Yuji Araki, Pablo Solis-Fernandez, Kenji Kawahara, Hiroki Ago |
| .aj. maki, tasto sorto formanaez, nenji namanara, mroki ngo |
| |
| |
| 2.発表標題 |
| |
| Stacking angle-dependent intercalation in bilayer graphene |
| |
| |
| - WARE |
| 3.学会等名 |
| 第61回FNTG総合シンポジウム |
| |
| 4.発表年 |
| |
| 2021年 |
| 2021年 |
| 2021年 |

| 1.発表者名 吾鄉浩樹 |
|--|
| 2 . 発表標題 二次元物質の高品質CVD成長とデバイス応用への展開 |
| 3 . 学会等名 第30回 ポリマー材料フォーラム(招待講演) |
| 4 . 発表年 2021年 |
| 1.発表者名 吾郷浩樹 |
| 2.発表標題 二次元物質のCVD成長と機能化 |
| 3 . 学会等名 日本学術振興会 分子系の複合電子機能第181委員会(招待講演) |
| 4 . 発表年 2021年 |
| 1 . 発表者名 Ago Hiroki |
| 2 . 発表標題 Bilayer graphene: CVD growth, machine learning-based analysis, and intercalation |
| 3 . 学会等名 11th Asian Nanomaterials symposium (A3 Symposium)(招待講演)(国際学会) |
| 4.発表年 2021年 |
| 1 . 発表者名 Ago Hiroki |
| 2 . 発表標題 Bilayer graphene: CVD growth, machine learning-based analysis, and intercalation |
| 3 . 学会等名 The 9th International Workshop on 2D Materials(招待講演)(国際学会) |
| 4 . 発表年 2022年 |
| |

| 1. 発表者名 |
|--|
| 吾鄉浩樹 |
| |
| |
| 0 7V + LEGE |
| 2.発表標題 |
| From two-dimensional materials to 2.5-dimensional materials science(二次元物質から2.5次元物質科学へ) |
| |
| |
| |
| 3. 学会等名 |
| 第62回 フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム(招待講演) |
| · Water |
| 4.発表年 |
| 2022年 |
| . With 6 |
| 1. 発表者名 |
| Ago Hiroki |
| |
| |
| 2 及主価的 |
| 2. 発表標題 |
| 2.5-Dimensional Materials Science: Controlled Growth, Integration, and Applications of Graphene and h-BN |
| |
| |
| 3.学会等名 |
| |
| ISPIasma2022(招待講演)(国際学会) |
| 4.発表年 |
| |
| 2022年 |
| 4 W=±47 |
| 1.発表者名 |
| 荒木勇治,パブロ・ソリス-フェルナンデス,河原憲治,吾郷浩樹 |
| |
| |
| 2 . 発表標題 |
| - こんないは - 二層グラフェンのツイスト角度に依存した金属塩化物のインターカレーション |
| 一周ノフノエスのフェスト 内皮に似けらに並病・血に物のコンテーカレーフョン |
| |
| |
| 3 . 学会等名 |
| 2022年第69回応用物理学会春季学術講演会 |
| |
| 4.発表年 |
| 2022年 |
| -v I |
| 1.発表者名 |
| Ago Hiroki |
| ngo mroki |
| |
| |
| 2.発表標題 |
| Science of 2.5 Dimensional Materials |
| The second secon |
| |
| |
| 3. 学会等名 |
| Users' Meeting of Brookhaven National Laboratory "2D Materials and Beyond (Workshop 7)" (招待講演) |
| О |
| 4 . 発表年 |
| 2022年 |
| • |
| |
| |
| |

| 1.発表者名 吾郷浩樹 |
|--|
| |
| 2.発表標題 |
| 2. 光表標題 六方晶窒化ホウ素のCVD成長から 2.5 次元物質科学へ |
| |
| |
| 化学工学会 反応工学部会 第36回CVDシンポジウム(招待講演) |
| 4 . 発表年 |
| 2022年 |
| 1.発表者名 吾郷浩樹 |
| |
| |
| 2 . 発表標題 二次元物質から「 2 . 5 次元物質 」の創出へ |
| |
| |
| 光電相互変換第125委員会 第260回研究会「2次元層状物質のデバイス創出に向けて」(招待講演) |
| 4.発表年 |
| 2022年 |
| 1.発表者名 Ago Hiroki |
| Ago IIII oki |
| |
| 2.発表標題 Science of 2.5-Dimensional Materials: Controlled Growth, Integration, and Applications of 2D Materials |
| |
| 2 |
| 3.学会等名 IUMRS-ICAM2022(招待講演)(国際学会) |
| |
| 2022年 |
| 1.発表者名 |
| <u> </u> |
| |
| 2.発表標題 二次元物質の魅力とこれからの展望:2.5次元物質科学への展開 |
| ― (A) (1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/1/ |
| |
| 3.学会等名 東京大学 第7回CURIEセミナー(招待講演) |
| 4 . 発表年 |
| 2022年 |
| |
| |

| 1.発表者名 大津柚紀子,Solis-Fernandez Pablo, Lin Yung-Chang,松永貴子,松本里香,末永和知,吾郷浩樹 |
|---|
| 2.発表標題 CVD合成した大面積二層グラフェンへのカルシウムのインターカレーション |
| 3.学会等名 2022年第83回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4 . 発表年 2022年 |
| 1.発表者名 Ago Hiroki |
| 2 . 発表標題 From 2D materials to 2.5D materials science |
| 3 . 学会等名 第41回電子材料シンポジウム(EMS41)(招待講演) |
| 4.発表年 2022年 |
| 1.発表者名 P. Solis-Fernandez, H. Ago |
| 2. 発表標題 "CVD growth, twist angle, and intercalation in bilayer graphene |
| 3.学会等名 10th KPS-JSAP Joint Symposium(招待講演)(国際学会) |
| 4.発表年 2022年 |
| 1 . 発表者名 吾郷浩樹 |
| 2.発表標題 グラフェンの合成・物性・応用、そして2.5次元物質への広がり |
| 3.学会等名 炭素材料学会基礎講習会(招待講演) |
| 4.発表年 2022年 |
| |

| 1.発表者名 |
|--|
| Ago Hiroki |
| - |
| |
| |
| 2.発表標題 |
| Twist angle-dependent molecular intercalation and carrier transport in bilayer graphene |
| 2 1 and an analysis of the first of the firs |
| |
| |
| 3.学会等名 |
| 12th A3 Symposium on Emerging Materials (招待講演) (国際学会) |
| |
| 4 . 発表年 |
| 2022年 |
| =v== 1 |
| 1.発表者名 |
| |
| Ago Hiroki |
| |
| |
| 2.発表標題 |
| |
| From 2D materials to 2.5D materials science |
| |
| |
| 3 . 学会等名 |
| |
| RPGR2022 (Recent Progress in Graphene and Two-Dimensional Materials Research Conference)(招待講演)(国際学会) |
| |
| 4 . 発表年 |
| 2022年 |
| |
| 1.発表者名 |
| Ago Hiroki |
| |
| |
| |
| 2.発表標題 |
| Science of 2.5-Dimensional Materials: Controlled Growth, Integration, and Applications of 2D Materials |
| |
| |
| |
| 3 . 学会等名 |
| The 2.5D Materials; NANOCARBON joint workshop(招待講演)(国際学会) |
| |
| 4.発表年 |
| 2022年 |
| |
| 1.発表者名 |
| 吾郷浩樹 |
| |
| |
| |
| 2.発表標題 |
| グラフェンの次元性拡張へ:二層グラフェンの選択成長と二次元ナノ空間、そして積層の科学 |
| |
| |
| |
| 3.学会等名 |
| 第49回炭素材料学会(招待講演) |
| NE CHIMON DELLE MANAGEMENT / |
| 4 . 発表年 |
| 2022年 |
| =v== 1 |
| |
| |
| |

| 1 . 発表者名 吾郷浩樹 |
|--|
| 口/W/口ID |
| |
| 2.発表標題 |
| エレクトロニクス応用を目指した2.5次元物質の研究開発 |
| |
| 3.学会等名 |
| 第28回 電子デバイス界面技術研究会(招待講演) |
| 4 . 発表年 2022年 |
| |
| 1 . 発表者名 Y. Otsu, P. Solis-Fernandez, J. Pu, YC. Lin, T. Matsunaga, R. Matsumoto, K. Suenaga, T. Takenobu, H. Ago |
| Stad, Solita Formandoz, G. Fd, F. G. Etti, F. matsunaga, N. matsumoto, N. Suenaga, F. Fakenobu, H. Ago |
| |
| 2.発表標題 |
| Intercalation of Ca in bilayer graphene and its electrical characteristics |
| |
| 3 . 学会等名 |
| 2023 A3 Seoul Meeting (The 11th International Workshop on 2D Materials) (国際学会) |
| 4 . 発表年 2022年 |
| |
| 1 . 発表者名 吾郷浩樹 |
| |
| |
| 2.発表標題 |
| 2 . 5 次元材料とは何か? 今、何が必要か? |
| |
| 3 . 学会等名 |
| 研究会「1次元、2次元物質科学の展望と課題」(招待講演) |
| 4. 発表年 |
| 2022年 |
| 1.発表者名 |
| 大津柚紀子,Pablo Solis-Fernandez,蒲江,Yung-Chang Lin,松永貴子,松本里香,末永和知,竹延大志,吾郷浩樹 |
| |
| 2. 発表標題 |
| "CaをインターカレーションしたCVD二層グラフェンの作製と電気特性 |
| |
| 3 . 学会等名 |
| 第70回 応用物理学会 春季学術講演会 |
| 4 . 発表年 |
| 2022年 |
| |
| |

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

| 産業財産権の名称 | 発明者 | 権利者 |
|--------------------|------------------------|---------|
| 磁気トンネル接合素子及びその製造方法 | 楠瀬宏規,深町悟, 河原憲治,吾郷浩樹 | JST |
| 産業財産権の種類、番号 | 出願年 | 国内・外国の別 |
| 特許、特願2023-27540 | 2023年 | 国内 |

〔取得〕 計0件

| • | ~ | $\overline{}$ | /ı L | ٦, |
|---|---|---------------|------|----|
| | そ | (I) | 1117 |) |
| | | | | |

| 开究室ホームページ | | |
|--|--|--|
| ttps://www.gic.kyushu-u.ac.jp/ago/index.html | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |

| 6 | 5.研究組織 | | | | | | | |
|-------|---------------------------|-----------------------|----|--|--|--|--|--|
| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 | | | | | |
| | 末永 和知 | | | | | | | |
| 研究協力者 | (Suenaga Kazutomo) | | | | | | | |
| | 松本 里香 | | | | | | | |
| 研究協力者 | (Matsumoto Rika) | | | | | | | |
| | 岡田 晋 | | | | | | | |
| 研究協力者 | (Okada Susumu) | | | | | | | |
| | リン ユンチャン | | | | | | | |
| 研究協力者 | (Lin Yung-Chang) | | | | | | | |

7.科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 | | | | |
|---------|------------|-----------|--|--|--|
| 米国 | ブルックヘプン研究所 | ロスアラモス研究所 | | | |
| 英国 | 国立物理研究所 | | | | |
| 中国 | 台湾師範大学 | | | | |
| | | | | | |