

平成 31 年 4 月 26 日現在

機関番号：11301

研究種目：国際共同研究加速基金（国際活動支援班）

研究期間：2015～2018

課題番号：15K21722

研究課題名（和文）原子層物質の国際的提供と共同研究の推進

研究課題名（英文）International supports of atomic layered materials and promoting the collaborated research

研究代表者

齋藤 理一郎 (Saito, Riichiro)

東北大学・理学研究科・教授

研究者番号：00178518

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 35,300,000円

研究成果の概要（和文）：究極に薄い物質は、1原子層からなる物質である。近年1原子層だけからなる、2次元物質（または原子層物質）が、従来の3次元の物質に比べて顕著で有用な特性を示すことから活発に研究が行われている。その中で、六方窒化ホウ素（hBN）の原子層試料は日本でしか合成することができないので、世界的に提供する必要がある。本国際共同研究加速基金では、このhBNやその他の原子層物質を国際的に提供することをサポートした。これによって国際共同研究を促進し、内外の原子層科学の分野の推進に大きく貢献した。また、多くの若手を派遣、招聘することにより、若手研究者の育成にも大きな成果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

六方窒化ホウ素の原子層面は、原子レベルで平坦な基板になるので、基板上に作成された、原子層半導体デバイスの特性が常にトップレベルになる、という学術的意義がある。またサンプル供給をすることで、世界において日本の原子層科学の重要性や評価が必然的に高くなる。原子層科学の成果は、ポストシリコンとしての半導体デバイス開発という、応用面における社会的意義がある。また若手研究者を海外に派遣または招聘することは、将来の日本の科学を担う研究者が、世界において研究ネットワークを確立することでアクティブに活躍する、という社会的意義がある。

研究成果の概要（英文）：Atomic layered materials, which are the thinnest material in the nature, have shown unique and significant properties and thus the research of the atomic layered materials are very active in the world for recent decades. In particular, hexagonal boron nitride (h-BN) is an important atomically-flat materials which can produce only in Japan. In this project, we support the supply of hBN samples internationally to enhance the international collaboration, which is very efficient for promoting the activity not only domestic but also international research. Further, sending or inviting many young researchers for the international collaborating research on atomic layer materials by this project, we encourage young scientists to establish a new network of the research. This is an important results of the project for our continuing the research for the next generation.

研究分野：ナノ構造物理、固体物理

キーワード：原子層物質 グラフェン 遷移金属カルコゲナイド 2次元物理 六方窒化ホウ素

様式 C - 19、 F - 19 - 1、 Z - 19、 CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

- (1) 新学術領域研究「原子層科学」が 2013 年度に発足し、国内の研究者による原子層科学に関する共同研究が始まった。共同研究の発展とともに、新学術領域の創成に関するプロジェクトは順調に進展した。しかし原子層科学の分野が世界的に展開している状況であったにもかかわらず、国際的に共同研究を進めるまでには至っていなかった。本領域に関連する国際的な研究者コミュニティをリードし、国際社会における我が国の存在感を維持・向上するための方針・戦略が必要であるにも関わらず、領域運営で国際共同研究に関してサポートできるものは限られていた。
- (2) 本領域開始時点において、本領域メンバーである渡邊・谷口らは、高純度の六方晶窒化ホウ素 (h-BN) を作製する技術をすでに持っていた。原子レベルで平坦な表面を持つ高純度 h-BN 試料は、グラフェンを始めとする様々な原子層膜を支える基板として非常に重要であり、原子層の多彩な物性を最大限引き出す基板として世界中で利用されていた。渡邊・谷口らは、2011 年ごろより数年間で延べ 50 機関以上の世界のグラフェン研究グループから h-BN 基板提供依頼を受け、グラフェンにおける分数量子ホール効果の発見を始めとする多くの画期的な発見に貢献し、更なる試料提供依頼を受けていた。このため、h-BN サンプルを高圧合成し、国内外への提供をさらに拡張するための予算的サポートが望まれる状況であった。

2. 研究の目的

本研究は、新学術領域研究「原子層科学」における国際活動支援班として、国際共同研究推進による新たな国際ネットワーク形成、原子層機能材料を全世界へ供給する国際ネットワーク形成、の 2 つが研究の目的である。

3. 研究の方法

(1) 国際共同研究推進による新たな国際ネットワーク形成

本領域内メンバーと卓越した技術を持つ海外研究者との間の国際共同研究をサポートする。海外から研究者の招聘、および領域メンバーあるいはポストドクター等の海外派遣を通して研究を推進する。

(2) 原子層機能材料の全世界への供給による国際ネットワーク形成

本領域メンバーである渡邊・谷口による、高純度の六方晶窒化ホウ素 (h-BN) の合成をサポートし、h-BN 試料を提供することで国際共同研究を加速する。

4. 研究成果

招聘または派遣による国際共同研究を実施した研究機関は、五大陸 11 ケ国、26 研究機関にまたがっていて、以下のとおりである(カッコの中は実施者名)。この中には、研究方法(2)の h-BN 試料を提供し共同研究によって得られた 126 件の論文は含まれない。

国際共同研究における招聘ならびに派遣における成果は、以下の 2 つに大別される。(1) 国際共同研究推進による新たな国際ネットワークの形成を進めている。(2) 原子層材料、特に高品質 h-BN の供給を通じた国際共同研究の推進。

(1) 新たな国際ネットワークの形成

齋藤は、ブラジル・ミナスジェライス大学より Ado Jorio 教授とスペイン・カタラン工科大学の Stephane Roche 教授を招へいし、それぞれ共鳴ラマン分光と、Bi 原子層国際共同研究を行った。また中国科学院・金属材料研究所を訪問し、グラフィジンに関する論文を発表した。**楠**は、中国 Bao Jianfeng 講師を日本に 2 週間招聘し、SiC 上エピタキシャルグラフェンの急冷法に依る準自立化グラフェンの作製およびカーボンナノチューブの合成と構造および電気的評価に関する共同研究を行なった。作製したサンプルは領域内・領域外 6 件に提供し、4 件の論文に発表した。

坂本は、スペイン・マドリード自治大学より Félix Zamora 教授を招へいし、また Zamora 教授の研究室学生 Javier Conesa 氏を受け入れ、1 次元ナノワイヤの規則配列により二次元ナノシート化を研究した。また昨年度共同研究を行った研究成果を論文にまとめた。

仁科は、エジプト・Central Metallurgical Research and Development Institute の S. M. El-Sheikh 教授を訪問し、共同研究を行った。また、中国・南京大学の Zheng Hu 教授を訪問し、共同研究を行った。国際共同研究に関する論文を 2 報報告した。

依光は、共同研究者の清水大貴氏(博士課程 2 年)を米国・ノースウエスタン大学の Michael Wasielewski 教授のもとに派遣し、トリアミノベンゼントリラジカルを埋め込んだ原子層物質の励起ダイナミクスに関する共同研究を行った。現在原著論文を共同執筆中である。また、国立台北科技大学から Chien-Chi Wu 氏を招聘し、原子層状分子の連結による大型原子層の合成に関する国際共同研究を 1 報論文にまとめた。

長田は、前年度に招聘して実験計画を議論した韓国梨花女子大学の Woun Kang 教授、共同研究者の田縁俊光氏(助教)と共に、米国国立強磁場研究所(NHML)の定常強磁場施設を 2 回にわたり利用し、多層グラファイトの磁場誘起電子相転移の層数依存性、ゲート電圧依存性に関する実験を行った。また Kang 教授を 1 週間ほど招聘し成果の検討を行い、論文にまとめた。

山本は、チューリッヒ工科大学(ETH)の Imamoglu 教授の研究室から Alexander Popert 氏 (大学院生) を招聘し、遷移金属カルコゲナイド原子層の光学的パレー・スピン制御に関する共同研究を行った。

柳は、共同研究者の一ノ瀬遥太氏 (修士大学院生) を米国・ライス大学の河野淳一郎教授の研究室に派遣し、原子層ナノ構造およびカーボンナノチューブにおけるテラヘルツ分光に関する共同研究を行った。

田中は、ドイツ・ユーリッヒ総合研究機構・P. Grünberg 研究所の F. S. Tautz 教授の研究室に滞在し、同所のマルチチャンネル型電子エネルギー損失分光装置を使用してグラフェンおよび関連物質の電子格相互作用に関する共同研究を行った。

長谷川は、共同研究者の沖川侑揮氏をスイス EMPA (Swiss Federal Laboratories for Materials Science and Technology) の Roland Hany 博士の下に派遣し、グラフェン OLED の共同研究に関する議論を行った。

河野は、共同研究者の Xiangying Deng 氏 (博士課程 3 年) をケンブリッジ大学の Stephan Hofmann 教授のもとに派遣し、プラズモニック構造とグラフェンテラヘルツ検出器、並びにテラヘルツ検出にとって重要なアンテナの表面電界分布に関する共同研究を行った。

町田は、ケンブリッジ大学キャベンディッシュ研究所の Malcolm Connolly 博士および Ziwei Dou との共同研究を行い、グラフェン/h-BN モアレ超格子におけるトポロジカル電流の空間分布を Scanning Gate Microscopy により明らかにし、1 報の論文にまとめた。

越野は、ニューヨーク大学上海校の Pilkuyng Moon 博士を招聘し、原子層モアレ積層系および原子層準結晶についての共同研究に関する議論を行った。またドイツの Max Planck の Elena Hessinger 博士の研究室に滞在し、原子層 Weyl 半金属についての共同研究に関する議論を行った。

若林は、英国エクセター大学の Hai-Yao Deng 博士を招聘し、2 次元物質の表面プラズマ波に関する共同研究を行った。また、インド統計大学より Santanu K. Maiti 博士を招聘し、原子膜物質での熱伝導効果に関する理論計算について、共同研究を実施した。

(2) 高品質 h-BN の供給を通じた国際共同研究

塚越・谷口・渡邊は、国内外の研究機関からの h-BN 試料提供の依頼を受け、試料を送付し共同研究を行っている。米国をはじめ、英国、ドイツ、オランダ、シンガポール、韓国等の約 20 か国の大学との共同研究を行い、成果を論文としてまとめている。

(2019 年 4 月 22 日現在で国際共同研究基金に基づいた成果発表は 126 件である)。

上野は、遷移金属ダイカルコゲナイド単結晶試料を国内外研究機関 (国内多数、国外 3 件) に提供し、共同研究を推進した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 28 件) この 28 件には、h-BN 供給による成果発表 126 件は含まれない。

B. Dong, Z. Wang, N. T. Hung, A. R. Oganov, T. Yang, R. Saito, Z. Zhang, New two-dimensional phase of tin chalcogenides: candidates for high-performance thermoelectric material, Phys. Rev. Mater., 査読有、Vol. 3、2019、013405-1-9
DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.3.013405

M. G. Hell, N. Ehlen, B. V. Senkovskiy, E. H. Hasdeo, A. Fedorov, D. Dombrowski, C. Busse, T. Michely, G. di Santo, L. Petaccia, R. Saito, A. Gruneis, Resonance Raman spectrum of doped epitaxial graphene at the Lifshitz transition, Nano Lett., 査読有、Vol. 18、2018、6045-6056
DOI: 10.1021/acs.nanolett.8b02979

H. S. Liu, T. Yang, Y. Tastumi, Y. Zhang, B. Dong, H. Guo, Z. D. Zhang, Y. Kumamoto, M. Y. Li, L. J. Li, R. Saito, S. Kawata, Deep-ultraviolet Raman scattering spectroscopy of monolayer WS₂, Sci. Rep., 査読有、Vol. 8、2018、11398-1-10
DOI: 10.1038/s41598-018-29587-0

B. Dong, H. Guo, Z. Liu, T. Yang, P. Tao, S. Tang, R. Saito, Z. Zhang, Spontaneous antiferromagnetic order and strain effect on electronic properties of -graphyne, Carbon, 査読有、Vol. 131、2018、223-228
DOI: 10.1016/j.carbon

K. Matsuda, W. Norimatsu, Jianfeng Bao, Hiroshi Kawarada, M. Kusunoki, In-plane electrical conduction mechanisms of highly dense carbon nanotube forests on silicon carbide, J. Appl. Phys., 査読有、Vol. 123、2018、045104-1-7
DOI: 10.1063/1.5004507

Giacomo Reina, Ngoc Do Quyen Chau, Yuta Nishina, Alberto Bianco, Graphene oxide size and oxidation degree govern its supramolecular interactions with siRNA, Nanoscale, 査読有、Vol. 10、2018、5965-5974
DOI: 10.1039/C8NR00333E

Z. Dou, S. Morikawa, A. Cresti, S.-W. Wang, C. G. Smith, C. Melios, O. Kazakova, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Masubuchi, T. Machida, M. R. Connolly, Imaging Bulk and Edge Transport near the Dirac Point in Graphene Moiré Superlattices, Nano Lett., 査読有, Vol. 26, 2018, 2530-2537
DOI: 10.1021/acs.nanolett.8b00228

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, Y.-F. Lin, Reversible and Precisely Controllable p/n-Type Doping of MoTe₂ Transistors through Electrothermal Doping, Adv. Mater., 査読有, Vol. 30, 2018, 1706995-1-7
DOI: 10.1002/adma.201706995

F. Liu, H.-Y. Deng, K. Wakabayashi, Topological photonic crystals with zero Berry curvature, Phys. Rev. B, 査読有, Vol. 97, 2018, 035442-1-10
DOI: 10.1103/PhysRevB.97.035442

Ahmed Zubair, Xuan Wang, Francesca Mirri, Dmitri E. Tsentalovich, Naoki Fujimura, Daichi Suzuki, Karuppasamy P. Soundarapandian, Yukio Kawano, Matteo Pasquali, Junichiro Kono, Carbon nanotube woven textile photodetector, Phys. Rev. Materials, 査読有, Vol. 2, 2018, 015201-1-8
DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.2.015201

Kazuhiro Yanagi, Ryotaro Okada, Yota Ichinose, Yohei Yomogida, Fumiya Katsutani, Weilu Gao, Junichiro Kono, Intersubband plasmons in the quantum limit in gated and aligned carbon nanotubes, Nature Commun., 査読有, Vol. 9, 2018, 1121-1-7.
DOI: 10.1038/s41467-018-03381-y

Toshihiro Taen, Kazuhiro Uchida, Toshihiro Osada, Woun Kang, Tunable magnetoresistance in thin-film graphite field-effect transistor by gate voltage, Phys. Rev. B, 査読有, Vol. 98, 155136-1-7 (2018).
DOI: 10.1103/PhysRevB.98.155136

H. Imaeda, T. Koyama, H. Kishida, K. Kawahara, H. Ago, R. Sakakibara, W. Norimatsu, T. Terasawa, J. Bao, M. Kusunoki, Acceleration of Photocarrier Relaxation in Graphene Achieved by Epitaxial Growth: Ultrafast Photoluminescence Decay of Monolayer Graphene on SiC, J. Phys. Chem. C, 査読有, Vol. 122, 2018, 19273-19279
DOI: 10.1021/acs.jpcc.8b06845

Sung Joon Ahn, Pilkyung Moon, Tae-Hoon Kim, Hyun-Woo Kim, Ha-Chul Shin, Eun Hye Kim, Hyun Woo Cha, Se-Jong Kahng, Philip Kim, Mikito Koshino, Young-Woo Son, Cheol-Woong Yang, Joung Real Ahn, Dirac electrons in a dodecagonal graphene quasicrystal, Science, 査読有, Vol. 361, 2018, 782-786
DOI: 10.1126/science.aar8412

Carlos Forsythe, Xiaodong Zhou, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Abhay Pasupathy, Pilkyung Moon, Mikito Koshino, Philip Kim, Cory R. Dean, Band structure engineering of 2D materials using patterned dielectric superlattices, Nature Nanotechnology, 査読有, Vol. 13, 2018, 566-571
DOI: 10.1038/s41565-018-0138-7

G. S. N. Eliel, H. B. Ribeiro, K. Sato, R. Saito, C. C. Lu, P. W. Chiu, C. Fantini, A. Righi, M. A. Pimenta, Raman Excitation Profile of the G-band Enhancement in Twisted Bilayer Graphene, Brazilian Journal of Physics, 査読有, Vol. 47, 2017, 589-593
DOI: 10.1007/s13538-017-0526-8

L. Zhou, S. Huang, Y. Tatsumi, L. Wu, H. Guo, Y. Q. Bie, K. Ueno, T. Yang, Y. Zhu, J. Kong, R. Saito, M. Dresselhaus, Sensitive Phonon-Based Probe for Structure Identification of 1T' MoTe₂, J. Am. Chem. Soc., 査読有, Vol. 139, 2017, 8396-8399
DOI: 10.1021/jacs.7b03445

J. Wang, B. Dong, H. Guo, T. Yang, Z. Zhu, G. Hu, R. Saito, Z. Zhang, Stability and electronic properties of two-dimensional indium iodide, Phys. Rev. B, 査読有, Vol. 95, 2017, 045404-1-7
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.045404

A. Endo, J. Bao, W. Norimatsu, M. Kusunoki, Two-carrier model on the magnetotransport of epitaxial graphene containing coexisting singlelayer and bilayer areas, Philos. Mag, 査読有, Vol. 97, 2017, 1755-1767
DOI: 10.1080/14786435.2017.1311429

R. Sakamoto, T. Yagi, K. Hoshiko, S. Kusaka, R. Matsuoka, H. Maeda, Z. Liu, Q. Liu, W. Y. Wong, H. Nishihara, Photofunctionality in Porphyrin-Hybridized Bis(dipyrrinato)zinc(II) Complex Micro- and Nanosheets, Angew. Chem. Int. Ed.,

査読有、Vol. 56、2017、3526-3530

DOI: 10.1002/anie.201611785

- ⑳ S. I. El-Hout, H. Suzuki, S. M. El-Sheikh, H. M. A. Hassan, F. A. Harraz, I. A. Ibrahim, E. A. El-Sharkawy, S. Tsujimura, M. Holzinger, Y. Nishina, Tuning the redox potential of vitamin K3 derivatives by oxidative functionalization using a Ag(I)/GO catalyst, Chem. Commun., 査読有、Vol. 53、2017、8890-8893
DOI: 10.1039/C7CC03910G
- ㉑ H. Kawashima, T. Yanagi, C.-C. Wu, K. Nogi, H. Yorimitsu, Regioselective C-H Sulfanylation of Aryl Sulfoxides by Means of Pummerer-Type Activation, Org. Lett., 査読有、Vol. 19、2017、4552-4555
DOI: 10.1021/acs.orglett.7b02147
- ㉒ G. Chen, M. Sui, D. Wang, S. Wang, J. Jung, P. Moon, S. Adam, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Zhou, M. Koshino, G. Zhang, Y. Zhan, Emergence of Tertiary Dirac Points in Graphene Moiré Superlattices, Nano letters, 査読有、Vol. 17、2017、3576-3581
DOI: 10.1021/acs.nanolett.7b00735
- ㉓ M. Koshino, K. Sugisawa, E. McCann, Interaction-induced insulating states in multilayer graphenes, Phys. Rev. B, 査読有、Vol. 95、2017、235311-1-9
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.235311
- ㉔ Hai-Yao Deng, Katsunori Wakabayashi, Chi-Hang Lam, Universal self-amplification channel for surface plasma waves, Phys. Rev. B、査読有、Vol. 95、2017、045428-1-10
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.045428
- ㉕ M. Sei、S. Masubuchi、K. Watanabe、T. Taniguchi、T. Machida、Comparison of Magnetoresistances of Triangular and Rectangular Ballistic Graphene Npn Junctions, Japanese Journal of Applied Physics, 査読有、Vol. 55、2016、100305-1-4
DOI: 10.7567/JJAP.55.100305
- ㉖ Youngwook Kim, Patrick Herlinger, Pilkyung Moon, Mikito Koshino, Takashi Taniguchi, Kenji Watanabe, Jurgen H Smet, Charge inversion and topological phase transition at a twist angle induced van Hove singularity of bilayer graphene, Nano Letters, 査読有、Vol. 16、2016、5053-5059
DOI: 10.1021/acs.nanolett.6b01906
- ㉗ Z. Dou, S. Morikawa, A. Cresti, S-W. Wang, C. G. Smith, C. Melios, O. Kazakova, K. Watanabe, T. Taniguchi, S. Masubuchi, T. Machida, M. R. Connolly, Imaging Bulk and Edge Transport near the Dirac Point in Graphene Moiré Superlattices, Nano Letters, 査読有、Vol. 18、2018、2530-2537
DOI: 10.1021/acs.nanolett.8b0022

[学会発表](計2件)

M. Koshino, Physics of moire superlattices and Weyl semimetals, Regensburg-Tohoku Workshop on Solid-State Physics and Spintronics Zao, 2017

M. Koshino, Physics of incommensurate 2D crystals, 11th International Symposium on Computational Challenges and Tools for Nanotubes Vienna, 2016

[図書](計1件)

齋藤理一郎他、化学同人、二次元物質の科学、2017、208

[その他]

ホームページ等

<http://flex.phys.tohoku.ac.jp/satl/index.html>

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：楠 美智子

ローマ字氏名：(KUSUNOKI, michiko)

所属研究機関名：名古屋大学

部局名：未来材料・システム研究所

職名：教授

研究者番号(8桁)：10134818

研究分担者氏名：依光 英樹

ローマ字氏名：(YORIMITSU, hideki)

所属研究機関名：京都大学

部局名：大学院理学研究科

職名：教授

研究者番号(8桁): 00372566
研究分担者氏名: 長汐 晃輔
ローマ字氏名: (NAGASHIO, kousuke)
所属研究機関名: 東京大学
部局名: 大学院工学系研究科
職名: 准教授
研究者番号(8桁): 20373441
研究分担者氏名: 長田 俊人
ローマ字氏名: (OSADA, toshihito)
所属研究機関名: 東京大学
部局名: 物性研究所
職名: 准教授
研究者番号(8桁): 00192526
研究分担者氏名: 塚越 一仁
ローマ字氏名: (TSUKAGOSHI, kazuhito)
所属研究機関名: 国立研究開発法人物質・材料研究機構
部局名: 国際ナノアーキテクトニクス研究拠点
職名: MANA 主任研究者
研究者番号(8桁): 50322665
研究分担者氏名: 上野 啓司
ローマ字氏名: (UENO, keiji)
所属研究機関名: 埼玉大学
部局名: 大学院理工学研究科
職名: 教授
研究者番号(8桁): 40223482
研究分担者氏名: 越野 幹人
ローマ字氏名: (KOSHINO, mikito)
所属研究機関名: 大阪大学
部局名: 大学院理学研究科
職名: 教授
研究者番号(8桁): 60361797
研究分担者氏名: 若林 克法
ローマ字氏名: (WAKABAYASHI, katsunori)
所属研究機関名: 関西学院大学
部局名: 理工学部
職名: 教授
研究者番号(8桁): 50325156
研究分担者氏名: 町田 友樹
ローマ字氏名: (MACHIDA, tomoki)
所属研究機関名: 東京大学
部局名: 生産技術研究所
職名: 教授
研究者番号(8桁): 00376633admin
研究分担者氏名: 坂本 良太
ローマ字氏名: (SAKAMOTO, ryota)
所属研究機関名: 東京大学
部局名: 大学院理学系研究科
職名: 助教
研究者番号(8桁): 80453843

(2) 研究協力者

研究協力者氏名: 仁科 勇太
ローマ字氏名: (NISHINA, yuta)
研究協力者氏名: 柳 和宏
ローマ字氏名: (YANAGI, kazuhiro)
研究協力者氏名: 河野 行雄
ローマ字氏名: (KAWANO, yukio)