

# 研究報告書

## 「二次元原子薄膜の積層システムの創製とナノエレクトロニクスへの展開」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成 25 年 10 月～平成 29 年 3 月

研究者: 吾郷 浩樹

### 1. 研究のねらい

炭素からなる極薄の二次元層状物質であるグラフェンをはじめとして、原子レベルあるいは数 nm の厚みしかもたない「原子薄膜」が近年大きな注目を集めている。原子薄膜は、バルクの層状材料とは大きく異なる電子構造をもち、間接バンドギャップのバルク半導体が直接バンドギャップの原子薄膜に変わるなど、ユニークな特徴をもつことが明らかにされている。さらに、原子レベルで薄い材料であることから、透明でフレキシブルなデバイスへの応用も期待されている。材料の観点からも、極めて高い移動度を示すグラフェンをはじめ、層状の絶縁体である六方晶窒化ホウ素 (h-BN)、可視域にバンドギャップをもつ遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDC) と呼ばれる半導体、そして高いオン/オフ比と移動度を併せ持つ黒リンといった様々な二次元原子薄膜材料が次々と報告されている。このように多様な物性をもつ原子薄膜を合成し、それらを積層化によって融合させることは、人工的な層状物質の創製につながり、多様な機能をインテグレートした新たな電子・光機能材料の創出へと発展するものと期待できる。

本研究では、種々の原子薄膜を制御して大面積に合成する手法を確立するとともに、それらを用いた積層システムを作製して機能を発現させることを目指した。特に、多くの二次元材料の基盤をなす h-BN 薄膜、および高い移動度とオン/オフ比を示す黒リンなどの CVD 合成技術の開発を試みた。同時に、二次元材料のヘテロ構造を創出し、新たな機能の付与やフレキシブル・エレクトロニクスへの展開を進めた。このような一連の取り組みを通じて、次世代のナノエレクトロニクス開発のための要素技術の構築に資する研究を推進した。

### 2. 研究成果

#### (1) 概要

近年、グラフェンの研究を契機として、様々な層状物質の原子薄膜がバルクにはない特徴的な性質を示すことから大きな注目を集めている。本研究では、図 1 に示すように、CVD 法によって多様な原子薄膜を制御して合成する技術を開発するとともに、複数の原子薄膜からなる積層システムを実現することで、世の中に存在しない人工的な層状物質を創り出し、ナノエレクトロニクスの世界に新たな可能性を提示するこ

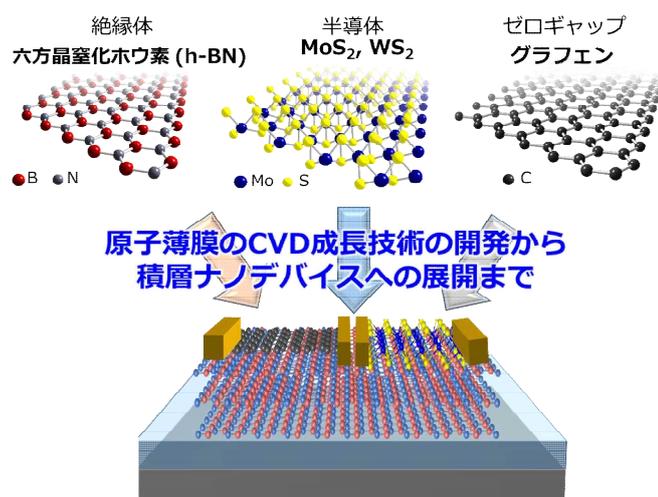


図 1 本さがけ研究で目指したこと。二次元原子薄膜の合成技術の開発を通じて積層システムへと展開し、ナノエレクトロニクス発展のシーズとする。

とを目的として研究を行ってきた。

原子薄膜の CVD 成長では、高い絶縁性と原子レベルの平坦性を有し、単層グラフェンや TMDC の電子デバイスの基板として優れた役割を果たす h-BN の合成に関する研究を行った。サファイア上に堆積した高結晶性 Cu(111)薄膜上で単層 h-BN のみならず、多層 h-BN の CVD 成長の研究開発も進めた。金属触媒、原料、合成雰囲気等を制御することで、均一性に優れた多層 h-BN を合成する手法を見出した。この多層 h-BN 上に WS<sub>2</sub> を CVD 合成したところ、SiO<sub>2</sub> やサファイア上に成長させたものよりも WS<sub>2</sub> の蛍光が 10 倍以上も強くなり、クオリティが非常に高い多層 h-BN が得られたことが分かった。

ヘテロ構造の創出に関しても、グラフェンと MoS<sub>2</sub> の積層構造を CVD 法で得られることを実証するとともに、MoS<sub>2</sub> がグラフェン上ではエピタキシャルに結晶方位を揃えて成長することも見出した。このことは CVD で直接成長することで清浄な界面が得られることを示している。この研究はグラフェンナリボンと TMDC のヘテロ構造の創出やその光センサー応用、多結晶グラフェンのグレイン構造の解析などにも展開できた。また、多層グラフェンを電極に用いた WS<sub>2</sub> のフレキシブルデバイスを作製し、グラフェン電極が通常の金属電極よりもコンタクト性に優れていることなども見出した。このような一連の原子薄膜材料の CVD 成長、ならびにそれらを統合したヘテロ構造デバイスの創出は、超低消費電力デバイスなど次世代のナノエレクトロニクスや IoT への応用に展開できるものと期待される。

## (2) 詳細

### 研究テーマ1 「原子薄膜の CVD 成長技術の開発」

#### 1. 1. h-BN 原子薄膜の CVD 成長

グラフェンと同じ六方格子をもち、ホウ素と窒素原子からなる層状物質である h-BN は、二次元原子薄膜の中でも特異的に大きなバンドギャップ (5.9 eV) と優れた絶縁特性を有する。h-BN は、グラフェンなどの原子薄膜と層間ファンデルワールス相互作用を示す絶縁性基板として、大きな期待を集めている。一般に単層グラフェンの電界効果トランジスタ (FET) をシリコン基板上で作製すると、グラフェンのキャリア移動度は数千から、高くても 1 万 cm<sup>2</sup>/Vs 程度であることが知られている。一方、グラフェンチャネルの下面を、剥離した h-BN 片によりシリコン表面から保護すると、グラフェンの移動度が 3-5 万 cm<sup>2</sup>/Vs にまで向上することが分かっている (C. R. Dean et al., *Nat. Nanotechnol.*, **5**, 722 (2010))。この h-BN 片によるグラフェンの移動度向上は、シリコン表面にある電荷不純物、表面の凹凸や光学フォノンなどを h-BN が遮へいするためであると説明されている。TMDC においても、MoS<sub>2</sub> の上下両面を剥離 h-BN 片で保護することで、10 K という低温ながら 34,000 cm<sup>2</sup>/Vs という高いキャリア移動度が報告されている (X. Cui et al., *Nat. Nanotechnol.*, **10**, 534 (2015))。また、光学的にも WS<sub>2</sub> を h-BN 剥離片の上に CVD 成長させることで、WS<sub>2</sub> の蛍光スペクトルがシャープになるとともに、蛍光強度が著しく強まることが報告されている (M. Okada et al., *ACS Nano*, **8**, 8273 (2015))。

しかしながら、世界中で用いられている h-BN 片は、バルク単結晶から剥離して得られたもので、剥離片のサイズは数・m 程度と非常に小さい上、厚さや形状に大きなばらつきがある。そのため、原子薄膜の応用を考える上で、この h-BN の大面積・均一合成が非常に大きな課題となっておりつつある。

そこで、本研究では、大面積に低コストで原子薄膜の合成が可能な CVD 法を用い、高品質な h-BN の合成を試みた。この際、大面積化と高品質化の両立を目的として、サファイア上にエピタキシャルに Cu(111)薄膜を製膜し、それを h-BN 成長の触媒基板として用いた。図 2(a)に示す CVD 反応器を用い、アンモニアボラン(BH<sub>3</sub>NH<sub>3</sub>)を原料として、h-BN の成長を行った。その結果、図2(b)のように、単層 h-BN が、その単結晶グレインの方位を揃えて成長できるようになった。ここでは、Cu(111)面の対称性を反映して、h-BN の三角形グレインは二方向を向いている。さらに、CVD 時間を延ばすことで 10 mm 角の Cu(111)基板全面に単層 h-BN を合成することができた。

この h-BN/Cu(111)からの低エネルギー電子線回折(LEED)のパターンが図 2(c)である。下地の Cu と h-BN からの回折スポットがほぼ同じ位置に観察されており、h-BN の方位が Cu(111)によって決定されていることが確認された。その構造を図示したのが、図 2(d)である。理論計算により、h-BN 三角形グレインが窒素原子で終端され、かつ Cu 原子の上に窒素原子が位置するように生成していると考えられる。この単層 h-BN シートを用い、グラフェン/h-BN のヘ

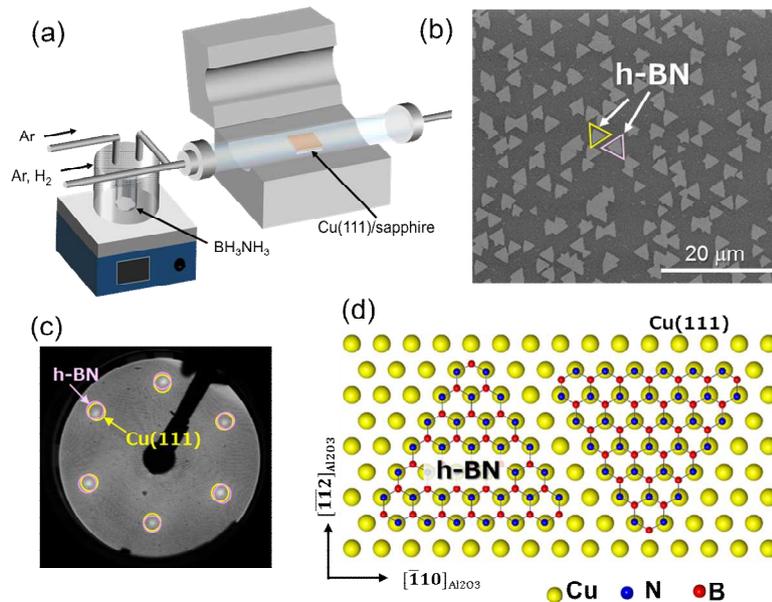


図 2 単層 h-BN のエピタキシャル CVD 成長。(a) CVD のセットアップ。(b) Cu(111) 上で配向成長した h-BN の三角形グレイン。(c) 単層 h-BN 膜の LEED パターン。(d) LEED から決定された h-BN グレインの結晶方位。

テロ構造を作製して、グラフェンの FET を評価したところ、単層 h-BN シートでは、上述の遮へい効果が十分でないことが分かった。この単層 h-BN の成果については、*Phys. Chem. Chem. Phys.*, in press (2017) (DOI: 10.1039/C6CP08903H)に発表した。

そこで、h-BN の多層膜の合成に関する検討を始めた。しかし、多層グラフェンの CVD 合成で知られている通り、一般的に金属触媒を用いた CVD で均一な多層膜を合成するのは非常に困難である。なぜなら、原料の触媒への溶解と、その後の原子薄膜の析出の制御、つまり析出量(溶解量)と析出点の制御が難しいからである。しかし、触媒金属、反応原料、結晶基板、CVD プロファイルなどを全面的に見直して検討を行ったところ、従来は剥離でしか得られなかった多層 h-BN 膜を、CVD 法で合成できるようになった。多層 h-BN の膜厚均一性や平坦性は十分高くなる可能性を見出している。さらに、この多層 h-BN 上に WS<sub>2</sub> を成長させたところ、WS<sub>2</sub> から非常に強く、かつシャープな蛍光を観察することができた。この結果は、本研究で合成した多層 h-BN が原子薄膜に対する絶縁膜として十分な特性を備えていることを示している。

## 1. 2. 他の原子薄膜の CVD 成長法の開発

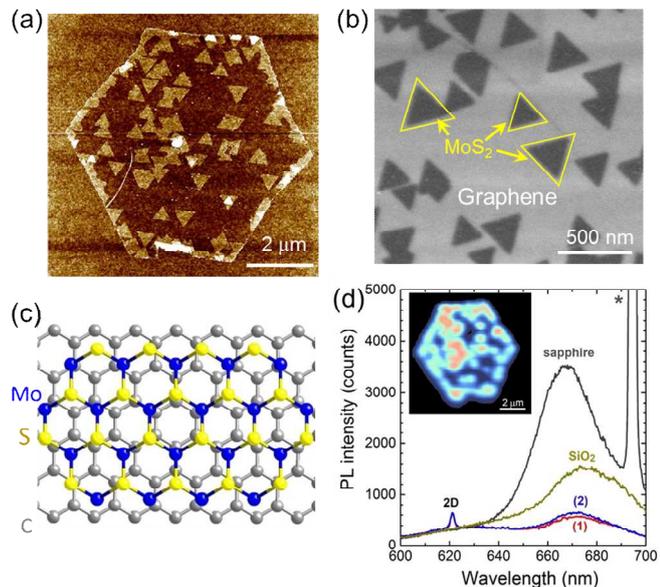
h-BNに加え、他の原子薄膜の CVD 成長に関しても研究を行ってきた。合金触媒を用いて 90%

以上の被覆率の二層グラフェンの合成に成功するなどした。他の材料に関しては現在も研究を継続中である。二層グラフェンに関しては、*Chem. Mater.*, **28**, 4583 (2016) に掲載され、ACS Editors' Choice としてハイライトされるとともに、同誌の表紙も飾っている。

## 研究テーマ2「ヘテロ積層薄膜の創製と応用」

### 2. 1. MoS<sub>2</sub>/グラフェンのヘテロ積層構造

異なる物性をもつ原子薄膜を積層することは、電氣的・光学的にも興味深い。優れたキャリア輸送特性をもつグラフェンに、可視域に吸収をもつ MoS<sub>2</sub> の原子薄膜を積層成長させることは、グラフェンに光機能性をもたせるという観点から有効であると期待できる。そこで、まず六角形の形状をもつ単層グラフェンの単結晶グレインを Cu 上で合成し、それをシリコン基板に転写後、MoO<sub>3</sub>と硫黄を用いた CVD により MoS<sub>2</sub> を合成した。その結果、図 3(a) の原子間力顕微鏡 (AFM) 像に示すように、三角形の形状をもつ MoS<sub>2</sub> グレインを、六角形の形状のグラフェングレイン上に合成することができた。これらのグレインは、図 3(b) で分かるように、配向成長しており、単層グラフェンの六方格子によって、MoS<sub>2</sub> が方位を揃えて成長したことを示している。そのイメージが図 3(c) である。両者の格子定数は大きく異なるものの、上から見たときの六角格子が向きを揃えるように MoS<sub>2</sub> が成長する。グラフェン上に MoS<sub>2</sub> を直接的に成長させることにより、図 3(d) に示すように MoS<sub>2</sub> からの蛍光が大きくクエンチされ、二枚の原子薄膜間の強い層間相互作用が観測された。これは MoS<sub>2</sub> からグラフェンへのエネルギー移動に起因すると解釈しており、転写で積層した CVD 膜ではこの蛍光のクエンチが見られなかったことから、直接成長によって強い層間カップリングをもたらしたといえる。



**図 3** MoS<sub>2</sub>/グラフェンの積層ヘテロ構造。(a) 単層グラフェンの六角形グレイン上に選択的に単層 MoS<sub>2</sub> の三角形グレインが生成する。(b) 配向した MoS<sub>2</sub> グレインの SEM 像。(c) MoS<sub>2</sub>/グラフェンの原子モデル。(d) グラフェンとサファイア、SiO<sub>2</sub> 上の MoS<sub>2</sub> の蛍光スペクトル。グラフェン上 (1) と (2) で強く蛍光がクエンチされており、層間相互作用が強いことを示している。

なお、反応時間や基板の位置などの制御によって、グラフェン全面にも MoS<sub>2</sub> を成長させることもできることも確認しており、界面に不純物の存在しない MoS<sub>2</sub>/グラフェンヘテロ構造を CVD 法により実現することができた。この成果は *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **7**, 5265 (2015) に掲載された。

この成果は *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **7**, 5265 (2015) に掲載された。

### 2. 2. グラフェンナリボン-MoS<sub>2</sub>ヘテロ構造

グラフェンナリボン (GNR) は、グラフェンがバンドギャップをもたないという課題を解決する一

つの材料として期待されている。本研究では当該研究者が行ってきた CVD 法によって合成する GNR をテンプレートとして、 $\text{MoS}_2$  の成長とその光ディテクターとしての応用を検討した。図 4(a-c) に示すように、合成条件の制御により GNR 表面に部分的、あるいは全面に  $\text{MoS}_2$  を成長させることができた。ここで興味深いのは、シリコン基板には  $\text{MoS}_2$  が観察されないことで、ファンデルワールス相互作用により優先的にグラフェンのような二次元材料に  $\text{MoS}_2$  が成長することを示している。

このヘテロ構造の FET を作製し、波長 532 nm の可視光に対する応答性を調べたのが図 4(e)である。光照射とともに、グラフェンの電荷中性点(Dirac 点)が負にシフトすることが明らかとなった。40  $\text{W}/\text{m}^2$  の光に対して 16-17%もの電流変調が観察された。このように、ヘテロ構造化することにより、グラフェンの FET に光機能性をもたせることができるようになった。本成果は *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 17, 2510 (2015) に掲載された。

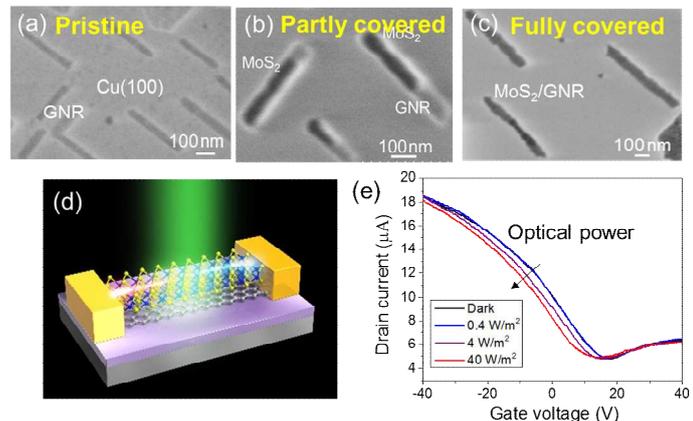


図 4 GNR への  $\text{MoS}_2$  の選択成長と光ディテクター応用。(a) 未処理の GNR。(b) 部分的に  $\text{MoS}_2$  で覆われた GNR。(c) 全面が  $\text{MoS}_2$  で被覆された GNR。(d) 光ディテクターのイメージと (e) FET の光変調の結果。

### 2. 3. グラフェンのグレイン構造解析

CVD グラフェンにおいて、結晶粒界(グレインバンダリー)の存在が、キャリア移動度の低下やシート抵抗の増大、機械強度の低下など様々な物性値の低下につながる事が知られている。しかし、グラフェンのグレイン構造の観察は、透過型電子顕微鏡(TEM)などの高価な装置が必要で、しかもデバイスの観察には利用できないという問題があった。そこで、本さがけ研究で開発した「グラフェン上への  $\text{MoS}_2$  のエピタキシャル成長」の技術を、グラフェンのグレイン構造の解析に応用した(図 5(a))。ここで多結晶グラフェンは、市販の Cu ホイルを用いて合成を行った。

グラフェン上に  $\text{MoS}_2$  を成長させ、走査型電子顕

微鏡(SEM)で  $\text{MoS}_2$  の方向分布を測ることにより、多結晶グラフェンのグレイン構造を可視化する

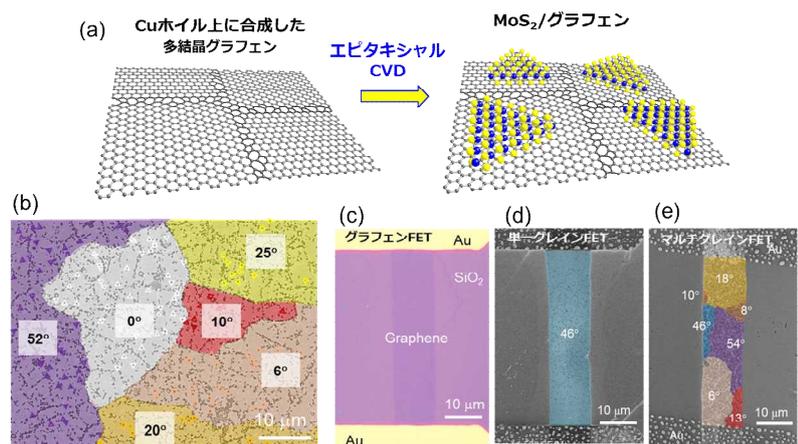


図 5 (a)  $\text{MoS}_2$  のエピタキシャル成長による多結晶グラフェンの方位解析のイメージ。(b) 実験的に決定された多結晶グラフェンのグレイン構造。(c) グラフェン FET の光学顕微鏡と (d, e)  $\text{MoS}_2$  によるラベリングにより明らかとなったグラフェンチャンネルのグレイン構造。

ことができた(図 5(b))。図 5(c)は、グラフェン FET の光学顕微鏡写真であるが、このグラフェンのチャンネルが単結晶か多結晶か、もし後者の場合、チャンネル内に何個のグレインを含んでいるか、などは分からない。しかし、MoS<sub>2</sub> による可視化を用いると、図 5(d,e)のようにシングルグレインとマルチグレインを明瞭に区別できる。これら異なるグレインを構造をもつグラフェン FET を比較すると、シングルグレインの方がマルチグレインよりも移動度が高く、かつ Dirac 点がよりゼロ V に近いことが明らかになった。これらの結果から、グラフェンの結晶粒界が、転写時のポリマー残渣などをトラップし、物性の低下につながっているものと結論づけられた。この新しい可視化の方法は、ACS Nano, 10, 3233 (2016) に掲載された。

#### 2. 4. TMDC-TMDC のヘテロ構造の合成

本研究では、グラフェンと TMDC のヘテロ構造に加え、異なる TMDC 同士の積層ヘテロ構造の合成も進めた。図 6 がその一例である。WS<sub>2</sub> の上にも MoS<sub>2</sub> をエピタキシャルに成長させることを確認した(ACS Nano, 10, 3233 (2016))。この MoS<sub>2</sub>/WS<sub>2</sub> のヘテロ構造は、タイプ II の半導体の組み合わせであり、整流作用など、デバイス応用の観点からも興味深い対象である。なお、これとは異なる合成法で TMDC のヘテロ構造を合成し、太陽電池へと応用することを目指した研究を行っており、本さきがけ研究の終了後も継続して進める計画である。

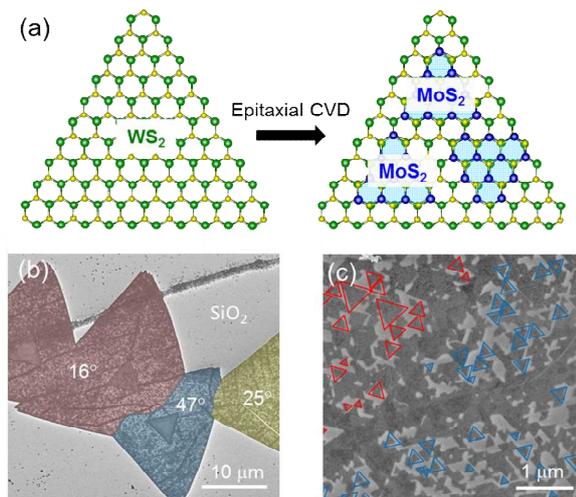


図 6 (a) WS<sub>2</sub> 上への MoS<sub>2</sub> の積層 CVD 成長。(b) MoS<sub>2</sub> の向きから判断した WS<sub>2</sub> のグレインの方位。(c) WS<sub>2</sub> 上の MoS<sub>2</sub> グレインの SEM 像。

#### 2. 5. 二次元ヘテロ構造によるフレキシブルトランジスタへの応用

二次元原子薄膜の特徴である機械的柔軟性と透明性を活用し、フレキシブルデバイスへの展開を目指した。デバイス

の作製には、単層 WS<sub>2</sub>、多層グラフェンをそれぞれ独立に CVD で合成し、リソグラフィーやプラズマ処理でパターニング後に多重転写により積層デバイスとした。ここで WS<sub>2</sub> と多層グラフェンはそれぞれチャンネル材料、電極材料として用いている。

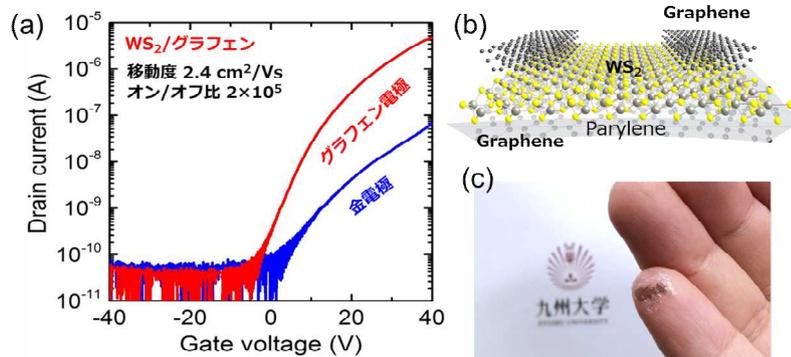


図 7 (a) グラフェンを電極にした WS<sub>2</sub> の FET と一般的な金属を電極として用いた WS<sub>2</sub>-FET の比較。(b, c) 極薄のパリレン上に作製したグラフェン/WS<sub>2</sub> ヘテロ積層デバイスのイメージと写真。

図 7(a)は WS<sub>2</sub> をチャネルとした FET で、一般的に用いられる Au/Ti 電極と、CVD で合成した多層グラフェンを電極として SiO<sub>2</sub> 基板上で比較したものである。多層グラフェンの方がオン電流、オン/オフ比ともに Au/Ti 電極よりもはるかに高く、WS<sub>2</sub> のような二次元材料にはファンデルワールス相互作用をするグラフェンの方が電極材料として優れたコンタクトを提供することを明らかにできた。この多層グラフェン電極を用いて得られた WS<sub>2</sub> の電子移動度は、世界トップクラスの値である。最後に、この積層デバイスを厚さ 1 μm と非常に薄いパリレン基板上で転写して、フレキシブルデバイスとした(図 7(b,c))。この成果は現在論文としてまとめているところである。

### 3. 今後の展開

二次元原子薄膜は、材料と物性の多様性、それらの豊富な組み合わせ、機械的柔軟性、および光透過性などから、様々な応用が期待されている。本研究では、単層 h-BN の CVD 成長から多層 h-BN の成長へとシフトし、現在は均一な多層 h-BN 膜の合成法を確立しつつある。多層 h-BN は、グラフェンや TMDC を用いたデバイスのプラットフォームとなることから、二次元薄膜デバイスで重要な位置を占める。本さきがけの研究シーズをさらに発展させることにより、高品質で大面積の h-BN を様々な形で供給できるようになり、二次元材料の分野に大きなインパクトを与えるとともに、グラフェンなどの機能向上にもつながることから社会的な波及効果も期待できる。二層グラフェンに関して、再現性良く合成できるようになっており、今後、積層様式の高度な制御を通じて、グラフェンの半導体応用の可能性が拓けるものと考えている。また、二層グラフェンの層間を利用したインターカレーションについても興味深い結果が得られはじめている。原子薄膜の積層システムに関しては、本研究で得たエピタキシャル成長技術を発展させ、超低消費電力のデバイス応用へと発展できるものと考えている。このように本さきがけ研究の成果をベースにして、科学的にも産業的にもさらなる発展が期待できる。

### 4. 評価

#### (1) 自己評価

(研究者)

本研究の目標である、二次元ヘテロ構造の創出では、グラフェンと MoS<sub>2</sub> の組み合わせ、および MoS<sub>2</sub> と WS<sub>2</sub> の組み合わせで、積層構造をエピタキシャルに成長できることを見出した。このことは、他の二次元材料の組み合わせにも発展でき、今後につながるものとして期待できる。その一方、応用という面からは、ヘテロ構造ならではのデモンストレーションが十分ではなく、(二次元材料の今後の進展ともリンクするが)アプリケーションの開発の必要性を強く感じた。なお、この方向に関しては、超低消費電力デバイスを目指した研究に着手しており、今後も推進していきたいと考えている。

一方、h-BN の合成では、単層膜から多層膜へとシフトし、均一な多層膜の CVD 成長を実現しつつあることは、さきがけの大きな成果である。多層 h-BN については、従来剥離膜しか得られなかったものが、大面積に CVD で合成できるようになれば、二次元原子薄膜材料の分野に大きなインパクトを与え、今後の原子薄膜デバイスの発展に多大な寄与をするものと期待できる。これも副総括、アドバイザーの助言や励ましのおかげと感謝している。この他にも二層グラフェンなどの研究開発も行い、90%以上の割合で二層が選択成長できるようになったことは、大きな進展である。その他の二次元材料で、1年半以上に亘る検討にもかかわらず合成に至らなかったも

のもある。これについては、かなり挑戦的な課題であることから、長期的な視点で今後も継続して進めていく計画である。このように二次元材料の合成を中心として、先駆的な研究を行えたと自負している。今後は、このさきがけ研究の経験を活かし、オリジナリティを一層追及して大きなインパクトを与える研究を目指して進めていきたいと考えている。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

目標は、様々な二次元ヘテロ材料の大面积積層技術を開発するとともに、それをを用いた新奇デバイスの可能性を明らかにすることであった。しかしながら2015年度末までに結晶膜の大きさはいずれも10~20  $\mu\text{m}$  角程度と目標の大面积化には至っていない。またこれらを用いて作製した FET の特性に特筆すべきものはなかった。そこで研究テーマを大面积積多層 h-BN の成長に絞り込むとともに、エネルギーギャップ・移動度の点で最近注目を集め、本人の希望の強い黒リンの成長を新たに研究項目として設定した。

h-BN の CVD 成長に関しては、多層化を制限していた要因の解明と対策を行い(Fe 合金触媒および窒素キャリアガスの採用)多層化を可能にするるとともに、その上に成長した  $\text{WS}_2$  の高品質化(PL スペクトル半値幅の低減、バルク h-BN 上成長と同レベル)を実現した点は、新たな二次元ヘテロ構造開拓につながる成果と考える。大面积化についてはグレインサイズが5  $\mu\text{m}$  角程度と小さく、更なる改善が望まれる。新規デバイスについては、大面积化、高品質化、物性解明を優先させるべきと考える。

黒リンについては研究期間が1年弱と短く、原子層膜は得られていない。本テーマ追加からの研究期間が短かったのでやむを得ないと感じるが、さきがけ内で研究するよりは、自主研究とすべきであったかもしれない。

多層 h-BN 膜の合成において、ホウ素、窒素の溶解度を高めることをポイントに置いて、金属触媒の合金化を推し進め、徹底した温度制御により、粒径の増大を短期間に実現させた。今後の二次元膜材料の応用に向け貴重な成果である。今後、良質な多層 h-BN の供給を行うことで、その開発を推進することができれば、ナノエレクトロニクス分野全体の振興に向けて大きな貢献になると期待している。

## 5. 主な研究成果リスト

### (1) 論文(原著論文)発表

1. H. Ago,\* H. Endo, P. Solís Fernández, R. Takizawa, Y. Ohta, Y. Fujita, K. Yamamoto, M. Tsuji  
"Controlled van der Waals epitaxy of monolayer  $\text{MoS}_2$  triangular domains on graphene"  
*ACS Appl. Mater. Interfaces*, **7**, 5265–5273 (2015).
2. Y. Takesaki, K. Kawahara, H. Hibino, S. Okada, M. Tsuji, H. Ago\*  
"Highly uniform bilayer graphene on epitaxial Cu–Ni(111) alloy"  
*Chem. Mater.*, **28**, 4583–4592 (2016).
3. H. Ago,\* S. Fukamachi, H. Endo, P. Solís Fernández, R. M. Yunus, Y. Uchida, V. Panchal, O. Kazakova, M. Tsuji  
"Visualization of grain structure and boundaries of polycrystalline graphene and

two-dimensional materials by epitaxial growth of transition metal dichalcogenides” <i>ACS Nano</i> , <b>10</b> , 3233–3240 (2016).
4. D. Ding, P. Solís Fernández, H. Hibino, H. Ago “Spatially-controlled nucleation of single-crystal graphene on Cu assisted by stacked Ni” <i>ACS Nano</i> , <b>10</b> , 11196–11204 (2016)
5. Y. Uchida, T. Iwaizako, S. Mizuno, M. Tsuji, H. Ago* “Epitaxial chemical vapour deposition growth of monolayer hexagonal boron nitride on Cu(111)/sapphire substrate” <i>Phys. Chem. Chem. Phys.</i> , in press (2017). (DOI: 10.1039/C6CP08903H)

(2)特許出願

研究期間累積件数: 1件

(2)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. 受賞

応用物理学会優秀論文賞、2014/9/17

2. 主要な招待講演

[1] IEDM 2015 (International Electron Devices Meeting 2015)

“Epitaxial CVD Growth of High-Quality Graphene and Recent Development of 2D Heterostructures”

2015/12/9, Washington DC, USA

[2] 227th ECS Meeting

“Synthesis, Characterization, and Applications of Single- and Double-Layer Graphene Grown on Epitaxial Metal Films”

2015/5/27, Chicago, USA

[3] 11th International Conference of Pacific Rim Ceramic Societies (PacRim-11)

“Exploring the Growth of Graphene and Related 2D Materials for Electronic Applications”

2015/9/1, Jeju, Korea

[4] IUMRS-IECM2016 (IUMRS International Conference on Electronic Materials)

“Vertical and In-Plane Heterostructures of Graphene and MoS<sub>2</sub>”

2016/7/6, Singapore

[5] 第 77 回 応用物理学会秋季学術講演会

”二次元物質の CVD 成長とそのフロンティア”

2016/9/14、新潟

[6] 日本化学会春季年会 中長期テーマシンポジウム「エレクトロニクスの新パラダイム – 二次元機能性薄膜を基軸とする超低消費電力デバイスの開発 –」

”エレクトロニクス応用を目指した高品質グラフェンの触媒成長”, 吾郷浩樹

2014/3/27、名古屋

招待講演合計 国際 15 件、国内 21 件

### 3. 著書

[1] “グラフェン上でのカルコゲナイド系層状物質の CVD 成長”

「カルコゲナイド系層状物質の最新研究」, CMC 出版 (2016)

[2] “高品質グラフェンの CVD 成長”

カーボンナノチューブ・グラフェンの応用研究最前線」, (株)エヌ・ティー・エス (2016)

[3] “CVD Growth of High-Quality Single-Layer Graphene”

in “Frontiers of Graphene and Carbon Nanotubes: Devices and Applications”

Ed. by K. Matsumoto, Springer, 3-20 (2015)

### 4. 解説記事

[1] 吾郷浩樹

「エレクトロニクス応用を目指した高結晶性グラフェンの CVD 成長と将来展望」

NEW DIAMOND(ニューダイヤモンドフォーラム編), 32(1), 15-20 (2016).