

SiC 基板上的グラフェンへの Li インターカレーション過程での積層構造変化

遠藤由大¹⁾ 秋山了太²⁾ 保原 麗³⁾ 長谷川修司⁴⁾

1. はじめに

グラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイド、六方晶窒化ホウ素など、いわゆる van der Waals (vdWs) 2次元物質は、単層から数層の厚みの原子層がユニットになって積層された構造をもつ。各層はダングリングボンドを持たないため、結合力の弱い vdWs 力で層間が結合されているので容易に劈開できるだけでなく、原子層の相対的な積層の仕方(積層構造)が多様になり、それが物性制御の新しい自由度となって電子物性に大きな影響を及ぼすことが明らかとなっている。例えば、2015年に Long Ju らにより、2層グラフェンの異なる2つの積層構造(AB積層とBA積層)ドメインの境界でトポロジカルに保護されたエッジ伝導チャンネルが生じることが報告された⁽¹⁾。また2016年には我々のグループで Ca 原子を2層グラフェンの層間に挿入(インターカレーション)することで超伝導を実現した⁽²⁾⁻⁽⁴⁾。続いて2018年には Yuan Cao らが、2層グラフェンを約1.1°の相対回転角をつけて積層したときにも超伝導が発現することを報告した⁽⁵⁾。これらの研究をはじめとして、vdWs 2次元物質における原子層の積層構造の自由度を利用した物性制御は一つの研究領域となりつつある⁽⁶⁾⁻⁽¹³⁾。

一方で産業利用の観点では、vdWs 2次元物質の層間は古くから注目され利用されている⁽¹⁴⁾⁻⁽¹⁶⁾。その代表例として、リチウムイオン電池の負極として使われるグラファイト電極が挙げられる。グラファイトは多層のグラフェンが積層された物質であるが、その層間に Li イオンを出し入れすることでバッテリーの充放電を行っている。

また、グラフェン層間に Li イオンが入り込むと積層構造

が変わることが知られている⁽¹⁷⁾⁻⁽¹⁹⁾。図1(a)に示すように上下のグラフェン層が面内に半周期ずれて入れ子状に積層する AB 積層(もしくは BA 積層)がグラファイトにおいては最安定であるが、Li イオンが層間にインターカレーションされると AA 積層と呼ばれる、上下の炭素原子が同じ位置で重なる構造が安定となる。

これまでに vdWs 2次元材料の積層構造を操作する方法として、剥離転写技術が広く用いられてきた⁽²⁰⁾⁻⁽²²⁾。この手法では、vdWs 2次元物質をポリマーなどで接着して劈開

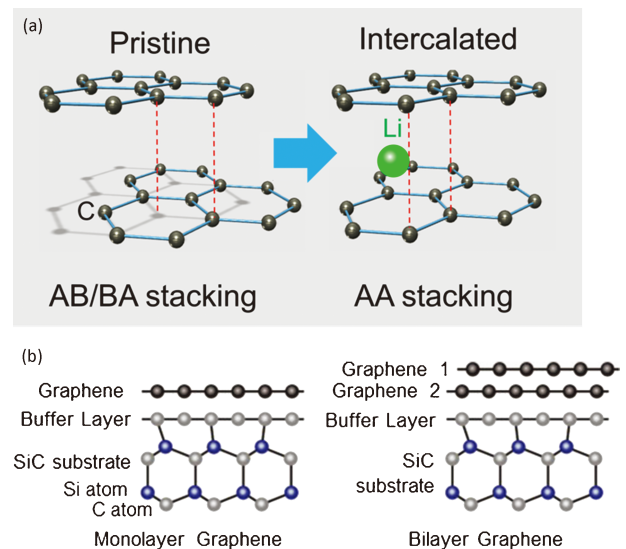


図1 (a) Li イオンのインターカレーションによる2層グラフェンの積層構造の変化。(b) SiC(0001)結晶表面上に成長した単層(1L+B)および2層グラフェン(2L+B)の積層構造。(オンラインカラー)

* 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻; 1) 博士学生(現; NTT 物性科学基礎研究所多元材料創造科学研究部低次元構造研究グループ(研究員)) 2) 助教 3) 特任研究員 4) 教授(〒113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1)

Stacking Structure Changes During the Li-intercalation Process in Graphene on SiC Substrates; Yukihiko Endo, Ryota Akiyama, Rei Hobara and Shuji Hasegawa (*Department of Physics, Faculty of Science, The University of Tokyo, Tokyo)

Keywords: graphene, intercalation, lithium, low-energy electron microscopy (LEEM), topological protection, van der Waals material, low-dimensional material

2024年7月4日受理[doi:10.2320/materia.63.829]

し、一定の角度だけ回転させてから貼り付けることを繰り返す、任意の面内角度で原子層を積み重ねることができる。さらに、異なる vdWs 物質のバルク結晶から原子層を剥離して積層したヘテロ構造試料も作製可能となり、物性探索を可能にしている。一方、単一原子層を得るためには一般に数十～数百回の劈開操作が必要であり、劈開するたびに試料サイズが小さくなる。その結果、最終的に得られる試料サイズは μm スケールと小さくなることが多く、また試料形状が不均一であったり、デバイス特性の再現性が乏しいなど、この方法には課題もある。

本研究では vdWs 2次元物質へのインターカレーションに着目した。インターカレーションはサンプルサイズに制限のない手法であり、挿入した原子や分子(インターカラント)の電荷を利用することで電場による制御も可能であるため、デバイス応用にも適している⁽²³⁾。また、上述のようにインターカレーションの前後でエネルギー的に安定な積層構造が変わることが知られているが⁽¹⁷⁾、どのように積層構造が変わっていくのかその詳細なダイナミクスはこれまで不明であった。そのダイナミクスを明らかにすることは、インターカレーションによる積層構造制御の具体的な指針を立てる際に必須である。また、インターカレーションによる積層構造制御において、特に魅力的なのは積層構造の面内分布が示すトポロジー(積層トポロジー)を利用できる点である。この詳細については、後に本稿の実験結果をもとに詳しく述べる。

本稿では、SiC 結晶基板表面上に成長させたグラフェンの層間に Li イオンがインターカレートする際に生じる積層構造変化を、高分解能低速電子顕微鏡(Low-Energy Electron Microscopy, LEEM)を用いてナノスケールで実時間観察し、積層構造の変化とインターカレーションの関係性を紐解いた研究成果を紹介する⁽²⁴⁾。そして、その構造変化がどのようなルールに基づいて起こるのかを解説する。

2. グラフェン/バッファ層の積層構造

本研究では SiC(0001) 基板上に熱脱離法によって成長させたグラフェンを舞台とした。この系は、図 1(b) 左に示すように、上からグラフェン層/バッファ層/SiC 基板のように構成される。バッファ層はグラフェンのようなハニカム格子状に炭素原子が並びつつも、SiC 結晶基板の最表面層の Si 原子と共有結合して絶縁化した炭素単原子層であり、これは Si 終端 SiC(0001) 面上には必ず形成される。したがって、ここではグラフェン層とバッファ層の 2 枚の炭素原子層(1L+B)が存在する。熱脱離時間を延ばして 2 層グラフェンを成長させた場合にも、図 1(b) 右に示すようにバッファ層を入れると 3 層の炭素原子層(2L+B)から構成される。

そこで Li イオンがグラフェン/バッファ層間にインターカレートする様子を、表面感度の高い LEEM で観察した。ここで、LEEM 観察がなぜ表面敏感な観察法であるか簡単に説明する。LEEM は、まず 15 keV 程度の高エネルギーに加速された電子線を照射レンズ系に通した後、試料直前で数

eV～数十 eV の低エネルギーまで減速して試料にほぼ垂直に入射させる。試料表面で反射や回折されて弾性後方散乱した電子を、再び 15 keV まで加速して拡大レンズ系を通してスクリーンに実空間拡大像を得る電子顕微鏡である⁽²⁵⁾。試料に照射される電子線の波長は数 Å 程度であり、結晶の原子間距離と同程度であるため、干渉効果により原子層の積層構造や原子配列を反映した顕微鏡像が得られる。

まずは、インターカレーションを行う前の pristine グラフェンを明視野観察した結果を図 2(a)に示す。大部分の灰色の領域がグラフェン/バッファ層(1L+B)、黒色のコントラストの領域がバッファ層(B)のみ、白色のコントラストの領域が 2 層グラフェン/バッファ層(2L+B)構造である。グラフェン層数が異なると電子線の干渉条件が変わって、コントラストが大きく変化している。細い暗線は SiC 基板結晶表面でのステップに起因する。図 2(b)は図 2(a)と同一領域の暗視野像である。グラフェンからの回折パターン(図 2(c))の 1 0 スポットのみ絞り孔を通過させて結像したものである。Free-standing な単層グラフェンだけなら 6 回対称性をもつが、バッファ層や SiC 基板結晶のために全体で 3 回対称性となるため、AB 積層構造と BA 積層構造ドメインでは異なる回折強度となり、暗視野像においてはその違いを反映したコントラスト差が生じる⁽²⁶⁾。1L+B の領域において、2 種類のコントラストが観察されており、図 2(b)の赤枠および青枠で示した領域を拡大したものが図 2(d)である。ストライプ状および三角形に AB 積層と BA 積層ドメインが交互に配列していることが観察できる。

グラフェン/バッファ層間、または 2 層グラフェン層間の積層構造について、後の議論のために理解を深めておく。層間での相対的なシフトにより積層構造が決定されるため、原子層間で定義される面内方向の変位ベクトル \mathbf{u} を用いると、図 2(e)に示すように整理することができる(例として、図 2(e)で示す変位ベクトルと図 2(d)の積層ドメインの対応を①～③として記載)。炭素原子層のハニカム格子の六員環の 1 辺の長さで $[11\bar{2}0]$ 方向のベクトルを \mathbf{a} 、 $[2\bar{1}\bar{1}0]$ 方向のベクトルを \mathbf{b} とする。2 枚の原子層間に相対的なシフトのない AA 積層($\mathbf{u}=\mathbf{0}$)を原点にとると、AB 積層の変位ベクトルは $\mathbf{u}=\mathbf{a}$ 、BA 積層の変位ベクトルは $\mathbf{u}=\mathbf{b}$ と表すことができる。さらに、変位ベクトル $\mathbf{u}=(\mathbf{a}+\mathbf{b})/2$ では SP(saddle-point)積層が、変位ベクトル $\mathbf{u}=\mathbf{a}/2$ (もしくは $\mathbf{u}=\mathbf{b}/2$)では IM(intermediate)積層が形成される。重要なことは、これら積層構造と変位ベクトルが一意的に対応付けられ、炭素原子層が破けたり、穴が開いたり、シワが寄ったりしない限り、各積層構造の相対関係が崩れることはない。

図 2(f)は分子動力学シミュレーションを用いて、図 2(d) 右に示すような三角形の AB 積層および BA 積層ドメインが形成されるときに積層構造分布を再現している。2 つのグラフェン間、またはグラフェン/バッファ層間では、AB 積層と BA 積層がエネルギー的に最安定であるため、これらの積層構造ドメインが可能な限り大面積に広がる。しかし、AB 積層ドメイン($\mathbf{u}=\mathbf{a}$)と BA 積層ドメイン($\mathbf{u}=\mathbf{b}$)は直接

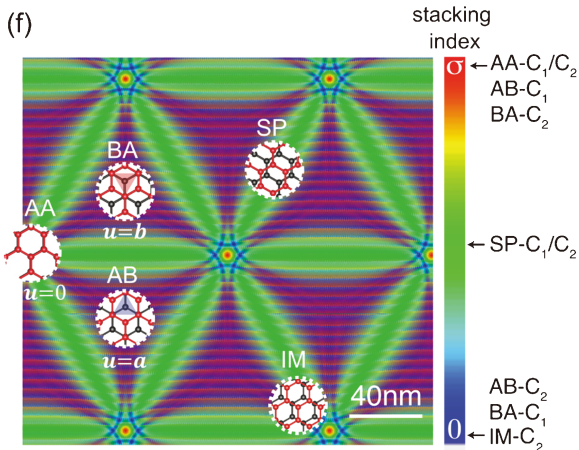
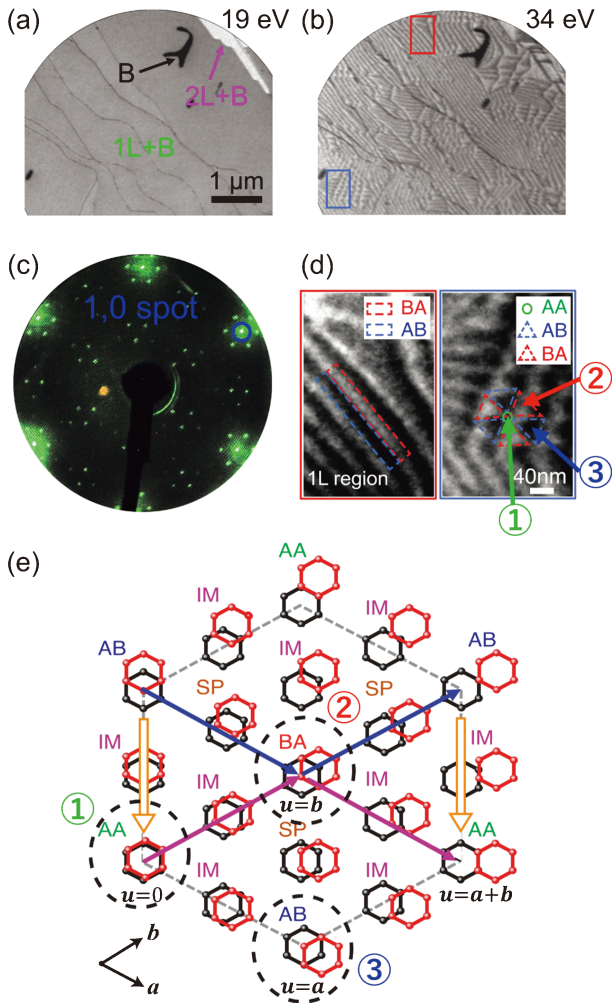


図2 SiC(0001)上グラフェンのLEEMの (a) 明視野像, (b) 暗視野像, (c) 電子回折パターン. (d) (b)の赤枠および青枠の拡大と積層構造分布. (e) 変位ベクトルと積層構造の関係. (f) 積層分布のMDシミュレーション⁽²⁴⁾. (オンラインカラー)

繋がることはできないので、その間にはそれらを繋ぐような変位ベクトルをもつSP積層構造ドメイン($u = (\mathbf{a} + \mathbf{b})/2$)が必要となる。つまり、異なる積層構造のドメイン間の境界に必ずできるので、積層トポロジーに保護されたドメイン壁と

いう意味で「トポロジカルドメインウォール(TDW)」と呼ぶことにする。さらに、そのドメインウォールが交差する点(トポロジカルクロッシングポイント, TCPと呼ぶ)では、 $\mathbf{u} = \mathbf{a} + \mathbf{b}$ なので積層トポロジーの制約によって必ずAA積層を形成する。したがって、図2(d)の緑丸で囲った点はTCPであり、AA積層をもっていることが分かる。

3. Liインターカレーションダイナミクス

ここでLiインターカレーションと積層構造の関係を見ていく。まず、室温に保ったグラフェン上にLiを超高真空中で蒸着すると、層間へインターカレートされていくが、その様子をLEEMにより観察した。本実験では、Liインターカレーションの動的変化を観察するために、低いフラックスレート(~ 0.001 Li/C/min)でLi蒸着を行い、0.018 Li/C程度のLi濃度までインターカレーションを行った。このLi濃度はグラフェン層間へのインターカレート可能な最大濃度(0.083 Li/C)⁽¹⁷⁾より少ない。図3(a)に、1L+Bおよび2L+Bの領域におけるLiインターカレーション前後でのLEEM-IV(反射強度(I)対電子線エネルギー(V))曲線を示す。それぞれ、1L+B(水色線)の領域では1つ、2L+B(赤線)の領域では2つのディップ構造がLEEM-IVカーブに見られ、これはグラフェン層数に依存した反射電子波の干渉によるものである。このような層数とディップの数に対応する

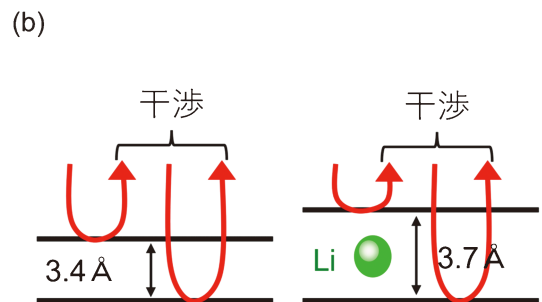
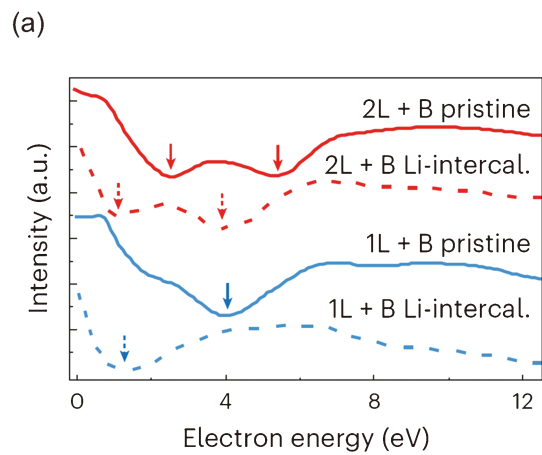


図3 Liインターカレーション前後での (a) LEEM-IV 曲線⁽²⁴⁾と、(b) グラフェン/バッファ層間距離の変化の様式図. (オンラインカラー)

ことは先行研究で明らかにされている⁽²⁷⁾. 各色の点線から分かるように, Li インターカレート後の LEEM-IV カーブにおいてもディップの数は変わっていないため層数は変化していないことが分かる. さらに, ディップ位置が Li インターカレーションによって低エネルギー側にシフトしており, これは図 3(b)の模式図に示すように, Li インターカレーションにより層間距離が広がり, 干渉条件が変化したことによるものと解釈できる.

上述した Li インターカレーションにより生じる干渉条件の変化を利用すると, Li イオンがインターカレートした領域とそうでない領域が LEEM 観察により明瞭に見分けられる. これを利用して Li インターカレーションダイナミクスを詳細に見ていく. 図 4(a)-(d)に, Li インターカレーションの最中を LEEM 観察した動画からとったスナップショットと, 対応する積層構造の模式図を示す⁽⁹⁾. 図 4(a)は, 図 2(d)と同様に, Li イオンをインターカレートする前の LEEM 暗視野像である. 暗い領域(青線で囲った領域)が AB 積層, 明るい領域(赤線で囲った領域)が BA 積層であり, これらの間に生じる TDW が交わる点(TCP)が AA 積層となる(図 4(b)). 続いて Li イオンの蒸着を開始し, 約 7 分経過後, 図 4(c)の stage 1 に示すように, LEEM の明視野像(BF)において輝点が現れる. これらは, 図 4(a)の暗視野像(DF)と比較すると, はじめから AA 積層であった TCP 領域であることが分かる. 図 4(d)のように Li イオンがまず

その AA 積層の層間に入ることにより電子線の反射強度が変わり, 明るい点として現れている. さらに, Li イオンの蒸着を続けていくと, 9 分後には図 4(c)の stage 2 のように AB 積層だった領域に Li イオンがインターカレートし, 明るいコントラストのドメインが成長する. AB 積層だった領域への Li インターカレーションが完了すると, その後, stage 3(18分後)のように BA 積層だった領域にも Li イオンのインターカレーションが進み, 殆どの領域が明るいコントラストに変わる. しかし, 各ドメインは互いに結合することなく, 黒い細い線状の境界で隔てられている様子が見てとれる. すなわち, Li インターカレーションが生じていない領域がドメイン間に残っている. このメカニズムについては, 5 章で詳細を述べる.

Li インターカレーションが, AA 積層(TCP)→AB 積層→BA 積層ドメインの順番に生じる理由を明らかにするため, 密度汎関数法(DFT)計算を行った. 図 5(a)-(c)に示すように, グラフェン-バッファ層間に Li イオンを挿入したときのエネルギー利得(Li 吸着エネルギー, E_{ads})を計算した結果,

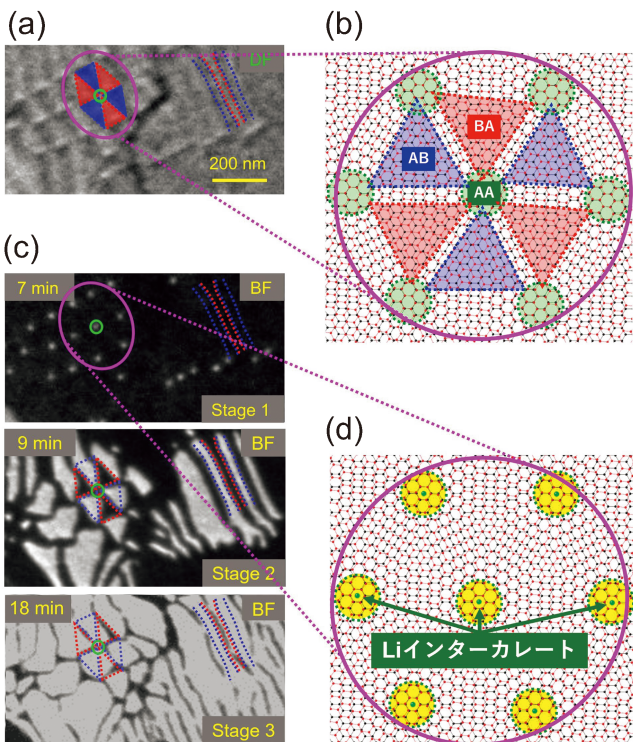


図 4 (a) Li インターカレーション前の LEEM 暗視野像, (b) グラフェンの AB, BA, AA 積層の分布, (c) Li インターカレーションの最中の LEEM 明視野像, (d) まず最初に Li イオンが AA 領域にインターカレーションする様子⁽²⁴⁾. (オンラインカラー)

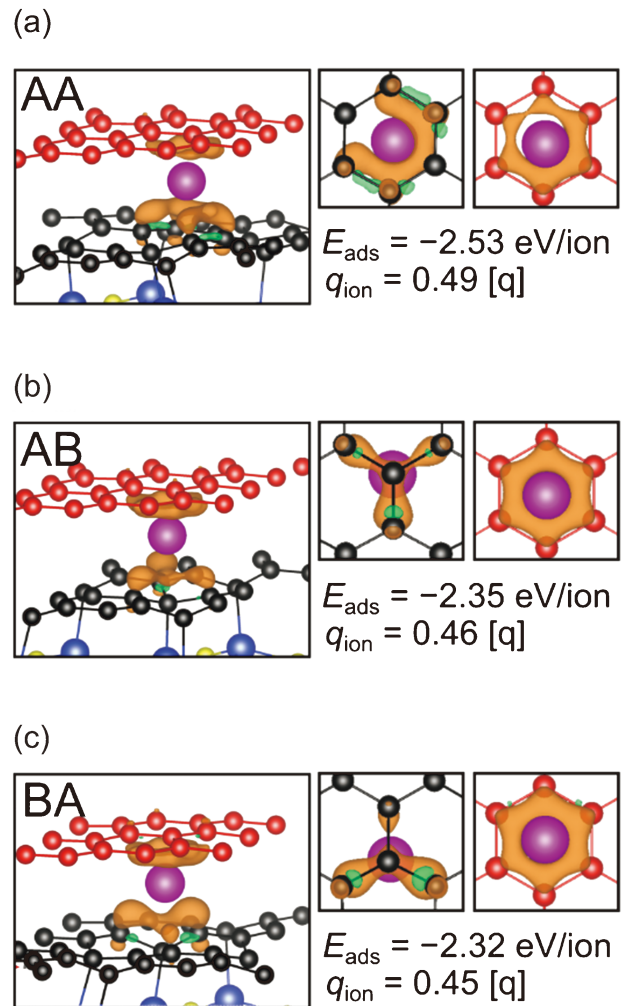


図 5 (a) AA, (b) AB, (c) BA 積層の SiC 上グラフェンへ Li イオンを挿入したときのエネルギー利得(Li 吸着エネルギー, E_{ads})⁽²⁴⁾. (オンラインカラー)

$E_{\text{ads}}(\text{AA}) < E_{\text{ads}}(\text{AB}) < E_{\text{ads}}(\text{BA})$ となることが分かった．したがって，エネルギー利得が大きい順番に Li イオンがインターカレートされると言える．

4. TCP のピンング効果

図 6(a) 左上に Li インターカレーションの初期で，AA 積層である TCP だけにインターカレートされた状態の LEEM 像を示す．さらに，図 6(a) の他の LEEM 像は，時間が経過して Li インターカレートされたドメインが成長していく様子である．これらの LEEM 像の中の TCP を緑色点でマークした．観察結果から，インターカレートされたドメインそれぞれに 1 個の TCP が存在することが分かる．また，図 6(a) の赤の点線に沿って，TCP を跨ぐように LEEM コントラストのラインプロファイルを取った結果を図 6(b) に示す．

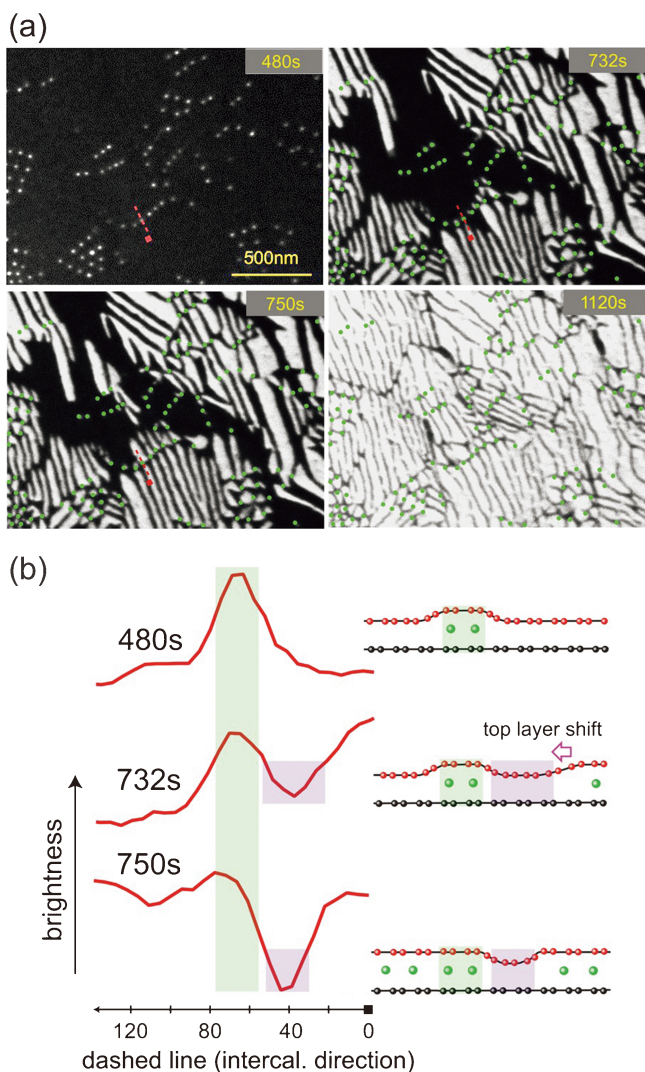


図 6 (a) Li インターカレーションは TCP (輝点) から始まり，それ(緑色点)を起点にして広がっていく．(b) Li インターカレーションの最中での TCP 付近の LEEM コントラストの，(a) の赤点線に沿ったラインプロファイル⁽²⁴⁾．(オンラインカラー)

す．輝度のピークが TCP の位置に対応するが，そのすぐ右側はインターカレーションが進んでも常に暗いコントラストを維持しており，これが TDW に対応する．すなわち，TCP から Li インターカレートドメインが広がるが，TDW をまたいで広がることができず，また，その TDW は TCP と常に隣接している(ピンングしている)．これは積層トポロジーの保護によって起こっており，その説明をするために，まずは Li インターカレーションによって生じる積層構造変化の詳細を見ていく．

5. トポロジーに保護された積層構造変化

図 7(a) は，Li イオン濃度を系統的に変えながら，DFT 計算によりグラフェン/Li/バッファー/SiC 基板の多層構造の全エネルギーを計算した結果である．積層構造は，AB 積層から AA 積層に連続的に変化させて計算しており，積層構造の安定性を Li イオン濃度の依存性として示している．Li イオン濃度を 0 から 0.012 Li/C に増加させるにしたがって，AA 積層の方が AB 積層より全エネルギーが低くなるのわかる．実験における Li イオン濃度は ~ 0.018 Li/C と見積もられており，Li インターカレーションにより積層構造が AB 積層から AA 積層へと変化していると考えられる．図 7(b) に Li インターカレーション前後での積層構造分布の

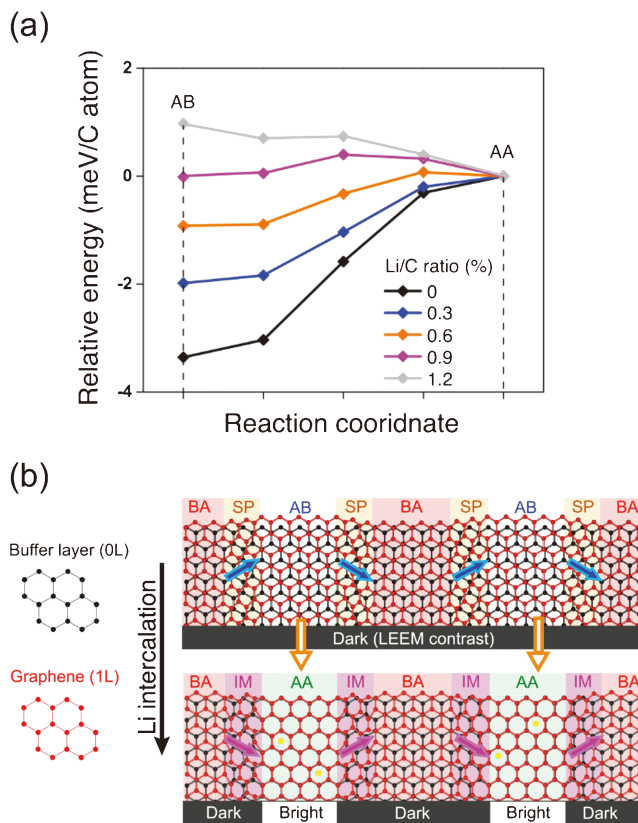


図 7 (a) Li イオン濃度に依存した積層構造の安定性に関する計算．(b) AB 積層領域への Li インターカレーションによる積層構造分布の変化⁽²⁴⁾．(オンラインカラー)

模式図を示す。Li インターカレーションにより、AB 積層が AA 積層へと変化すると、BA 積層ドメインとの間に生じる TDW が持つ積層構造も同時に SP 積層から IM 積層へと変化する。これは、AA/BA 積層ドメイン間の積層構造が積層トポロジーの要請から必ず IM 積層になるためである (図 2 (e) 参照)。

さらに詳細な積層構造分布の変化を理解するため、LEEM 観察像 (図 8(a)) と分子動力学シミュレーションの結果 (図 8(b), (c)) を比較する。図 8(a) 左上の暗視野像 (DF) において、特に AB 積層ドメイン (青マーカー) と BA 積層ドメイン (赤マーカー) がストライプ状に配列している箇所に注目する。図 8(a) の明視野像 (BF) では Li インターカレーション過程の特徴的なシーンを Stage 1~Stage 5 として切り出している。観察箇所はすべて同一である。Region A において、図 8(a) の stage 1 から stage 3 へと Li インターカレーションが進むと、AB 積層ドメインの形状に沿って Li インターカレートドメインが成長している様子が観察される。図 8(b) の分子動力学シミュレーションでも同様に、AB 積層ドメインの形状を保ったままに Li インターカレーションが進

み、AB 積層領域が AA 積層へと変化している。また、それと同時に Stage 1 の SP 積層が Stage 3 では IM 積層に変化している。次に Region B に注目すると、Stage 3 から Stage 5 になる過程で、LEEM 像において BA 積層領域にも Li インターカレーションが進んでいる。このときの積層変化に対応する分子動力学シミュレーションの結果が図 8(c) である。Li インターカレーションが進むにつれて、AA 積層の領域が拡大してきて、BA 積層の領域が縮小する。そして、AA 積層ドメインの間に TDW として IM 積層-BA 積層-IM 積層が介在することになる。異なる AA 積層ドメインがそれぞれ異なる変位ベクトル \mathbf{u} を持つ場合 (たとえば $\mathbf{u}=0$ と $\mathbf{u}=\mathbf{a}+\mathbf{b}$, 図 2(e) 参照), これらが同一の AA 積層ドメインとなることはない。それと同時に、AA 積層ドメイン間の TDW は AA 積層となることができないため、Li イオンがインターカレートされないまま IM 積層-BA 積層-IM 積層ドメインであり続けるので (図 2(e) の $\mathbf{u}=0$ と $\mathbf{u}=\mathbf{a}+\mathbf{b}$ の AA 積層の間の構造), 黒いコントラストとして LEEM 像に現れる。この IM 積層-BA 積層-IM 積層構造をもつ黒いドメインウォールが TDW である。さらに、4 章で述べたピニング効果について、既述のように TCP は AA 積層をもつため、TDW の通過を許すことができず、これにより Li インターカレートドメインが TCP とそれに隣接する TDW によってピニングされると理解できる。

6. おわりに

本研究では、Li インターカレーションによりグラフェン/バッファ層間に生じる積層構造の変化を、積層トポロジーと紐づけて明らかにすることができた。Li インターカレーションにより、安定な積層構造は AB/BA 積層から AA 積層へと変化するが、全領域を AA 積層にすることはできない。その理由は、インターカレーションによる積層構造変化が、ドメイン分布のために必然的に表れる積層トポロジーの制約のもとで起こるためである。積層構造は 2 枚の原子層間の変位ベクトルにより定量的に規定されており、AA 積層になることがトポロジカル的に許される領域のみ Li インターカレーションが進むが、AA 積層になれない TDW が Li インターカレートドメイン間に介在して消滅することはない。すなわち、インターカレーションによって、積層トポロジーによる保護を利用した積層構造の操作が可能になる。今後、これらの知見をもとにインターカレーションを新たな積層構造制御技術として応用していくことで、例えば電場や電流によって Li の動きを操作することで不揮発な TDW を制御し、磁気ドメインウォールのように状態を記録する位相メモリーが開発できるかもしれない。また、インターカレーションによって積層構造分布を変化させることで、例えば AB/BA 積層間の TDW に生じるドメインエッジ状態を制御し演算に応用するカイラルエッジコンピューティングや、TDW でのプラズモン反射を利用した可変 2 次元プラズモン導波路への展開など、様々な未来も期待できると考えている。

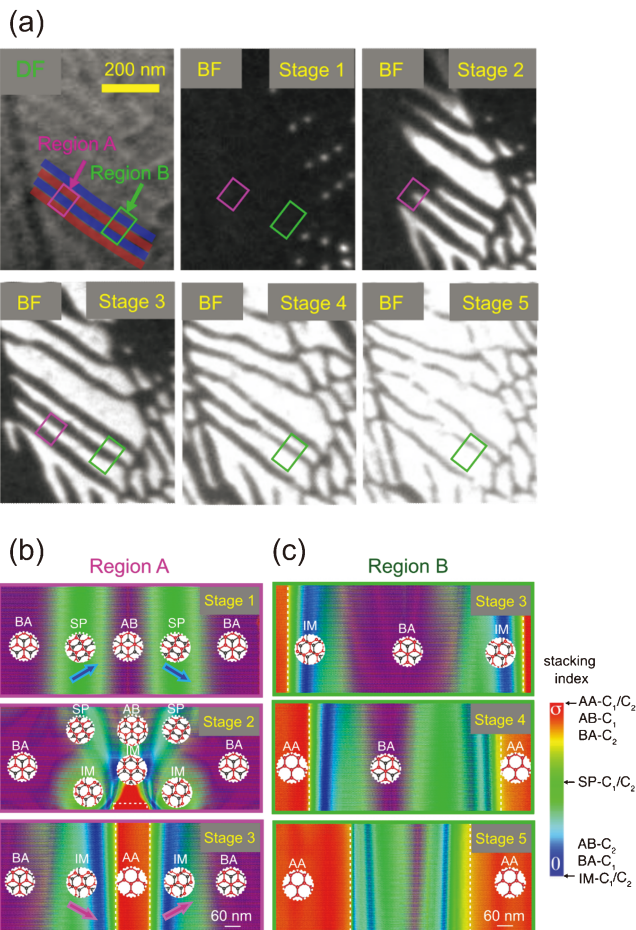


図 8 ストライプ形状の AB/BA 積層ドメインへの Li インターカレーションダイナミクスの (a) LEEM 観察結果と (b), (c) 分子動力学シミュレーションの結果⁽²⁴⁾。(オンラインカラー)

本研究のLEEM実験は重慶大学のTang教授, Li准教授らと共同で行われ, また計算や解釈においてメルボルン大学, 上海科技大学, シンガポール国立大学とも共同研究を行った成果である。

文 献

(1) J. Long, Z. Shi, N. Nair, Y. Lv, C. Jin, J. Velasco Jr, C. Ojeda-Aristizabal, H. A. Bechtel, M. C. Martin and A. Zettl *et al.*: Nature, **520**(2015), 650-655.
(2) S. Ichinokura, K. Sugawara, A. Takayama, T. Takahashi and S. Hasegawa: ACS Nano, **10**(2016), 2761-2765.
(3) Y. Endo, Y. Fukaya, I. Mochizuki, A. Takayama, T. Hyodo and S. Hasegawa: Carbon, **157**(2020), 857-862.
(4) H. Toyama, R. Akiyama, S. Ichinokura, M. Hashizume, T. Imori, Y. Endo, R. Hobara, T. Matsui, K. Horii and S. Sato *et al.*: ACS Nano, **16**(2022), 3582-3592.
(5) Y. Cao, V. Fatemi, S. Fang, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras and P. Jarillo-Herrero: Nature, **556**(2018), 43-50.
(6) G. Li, A. Luican, J. M. B. Lopes dos Santos, A. H. C. Neto, A. Reina, J. Kong and E. Y. Andrei: Nature Phys., **6**(2010), 109-113.
(7) G. Chen, L. Jiang, S. Wu, B. Lyu, H. Li, B. L. Chittari, K. Watanabe, T. Taniguchi, Z. Shi and J. Jung *et al.*: Nature Phys., **15**(2019), 237-241.
(8) K. Tran, G. Moody, F. Wu, X. Lu, J. Choi, K. Kim, A. Rai, D. A. Sanchez, J. Quan and A. Singh *et al.*: Nature, **567**(2019), 71-75.
(9) C. Jin, E. C. Regan, A. Yan, M. I. B. Utama, D. Wang, S. Zhao, Y. Qin, S. Yang, Z. Zheng and S. Shi *et al.*: Nature, **567**(2019), 76-80.
(10) T. Li, S. Jiang, B. Shen, Y. Zhang, L. Li, Z. Tao, T. Devakul, K. Watanabe, T. Taniguchi and L. Fu *et al.*: Nature, **600**(2021), 641-646.
(11) H. Li, S. Li, E. C. Regan, D. Wang, W. Zhao, S. Kahn, K. Yumigeta, M. Blei, T. Taniguchi and K. Watanabe *et al.*: Nature, **597**(2021), 650-654.
(12) K. Yasuda, X. Wang, K. Watanabe, T. Taniguchi and P. Jarillo-Herrero: Science, **372**(2021), 1458-1462.
(13) X. Wang, K. Yasuda, Y. Zhang, S. Liu, K. Watanabe, T. Taniguchi, J. Hone, L. Fu and P. Jarillo-Herrero: Nature Nanotechnol., **17**(2022), 367-371.
(14) W. Rüdorff: Adv. Inorg. Chem. Radiochem., **1**(1959), 223-266.
(15) M. Noel and R. Santhanam: J. Power Sourc., **72**(1998), 53-65.
(16) J. Xu, Y. Dou, Z. Wei, J. Ma, Y. Deng, Y. Li, H. Liu and S. Dou: Adv. Sci., **4**(2017), 1700146.
(17) M. S. Dresselhaus and G. Dresselhaus: Adv. in Phys., **30**(1981), 139-326.
(18) R. Akiyama, Y. Takano, Y. Endo, S. Ichinokura, R. Nakanishi, K. Nomura and S. Hasegawa: Appl. Phys. Lett., **110**(2017), 233106.
(19) Y. Endo, S. Ichinokura, R. Akiyama, A. Takayama, K. Sugawara, K. Nomura, T. Takahashi and S. Hasegawa: J. Phys.: Condens. Matter., **30**(2018), 305701.
(20) S. Fan, Q. A. Vu, M. D. Tran, S. Adhikari and Y. H. Lee: 2D Mat., **7**(2020), 022005.
(21) A. Castellanos-Gomez, M. Buscema, R. Molenaar, V. Singh, L.

Janssen, H. S. J. van der Zant and G. A. Steele: 2D Mater., **1**(2014), 011002.
(22) S. Masubuchi, M. Morimoto, S. Morikawa, M. Onodera, Y. Asakawa, K. Watanabe, T. Taniguchi and T. Machida: Nature Commun., **9**(2018), 1413.
(23) M. Kühne, F. Paolucci, J. Popovic, P. M. Ostrovsky, J. Maier and J. H. Smet: Nature nanotech., **12**(2017), 895-900.
(24) Y. Endo, X. Yan, M. Li, R. Akiyama, C. Brandl, J. Z. Liu, R. Hobara, S. Hasegawa, W. Wan and K. S. Novoselov *et al.*: Nature Nanotech., **18**(2023), 1154-1161.
(25) W. Wan, L. Yu, L. Zhu, X. Yang, Z. Wei, J. Z. Liu, J. Feng, K. Kunze, O. Schaff, R. Tromp and W.-X. Tang: Ultramicroscopy, **174**(2017), 89-96.
(26) H. Hibino, S. Mizuno, H. Kageshima, M. Nagase and H. Yamaguchi: Phys. Rev. B, **80**(2009), 085406.
(27) H. Hibino, H. Kageshima, F. Maeda, M. Nagase, Y. Kobayashi and H. Yamaguchi: Phys. Rev. B, **77**(2008), 075413.

遠藤由大
2019年4月-2020年3月 日本学術振興会特別研究員 DC2
2020年3月 東京大学大学院理学系研究科博士課程修了
2020年4月 日本電信電話株式会社 NTT 物性科学基礎研究所 研究員: 現職
専門分野: 原子層物質, 結晶成長
©原子層物質であるグラフェンやIII-V族原子層半導体に関する研究に従事。結晶成長技術を駆使して, 原子層物質の新構造や新物性を開拓。
E-mail: yukihiko.endo@ntt.com
秋山了太
2012年 東京大学大学院工学系研究科博士課程修了 博士(工学)
2012年4月-2014年11月 筑波大学数理物質系物質工学域助教
2014年12月-現職
専門分野: ナノ量子物理学・表面物理学
E-mail: akiyama@surface.phys.s.u-tokyo.ac.jp
保原 麗
2006年 東京大学大学院理学系研究科博士課程単位取得退学
2006年12月-現職
専門分野: 表面物理学・装置製作
E-mail: rei@surface.phys.s.u-tokyo.ac.jp
長谷川修司
1985年 東京大学大学院理学系研究科修士課程修了
1985-1990年 日立製作所研究員
1990-1994年 東京大学大学院理学系研究科助手
1991年3月 東京大学 論文博士(理学)
1994年から 同准教授
2010年-現職
専門分野: 表面物理学
E-mail: shuji@surface.phys.s.u-tokyo.ac.jp



遠藤由大 秋山了太 保原 麗 長谷川修司