

## 戦略的国際共同研究プログラム(SICORP)

日本-V4 共同研究

終了報告書 概要

1. 研究課題名：「新奇半導体創出に基づくバンドギャップエンジニアリング」
2. 研究期間：令和3年11月～令和6年10月
3. 主な参加研究者名：

日本側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	北浦 良	グループリーダー	物質・材料研究機構	低次元系の創製と光物性
研究参加者	小澤 大知	主任研究員	物質・材料研究機構	量子光源探索
研究期間中の全参加研究者数			4名	

チェコ側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	Hidetsugu Shiozawa	Senior Researcher	J. Heyrovsky Institute of Physical Chemistry	分子系物質開発
研究期間中の全参加研究者数			1名	

ハンガリー側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	Ferenc Simon	Professor	Budapest University of Technology and Economics	バルク結晶評価
研究期間中の全参加研究者数			1名	

スロバキア側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	Viera Skakalova	Senior Scientist	Slovak Academy of Sciences	ドーピングおよび構造解析
研究期間中の全参加研究者数			1名	

ポーランド側チーム

	氏名	役職	所属	研究分担
研究代表者	Martin Kurpas	Assistant professor	University of Silesia in Katowice	第一原理計算
研究期間中の全参加研究者数			1名	

## 4. 国際共同研究の概要

本国際共同研究では、二次元半導体・ヘテロ構造を含む先進半導体に着目し、半導体の物質開発と機能開拓を縦断的に推進することを通して、次世代光・電子デバイスに資する新物質を創出することを目的とした。低次元半導体は、次世代電子デバイスのチャンネル材料として期待されているのみならず、制御性が良いことに加えて巨大な励起子結合エネルギーに起因して輻射緩和が極めて速いことから、単一光子光源をはじめとする量子光源への応用も期待されている。これらの研究は世界的な潮流として研究が活発に進められており、我が国においても関連するさきがけ、CRESTが現在進行中である。

このような背景のもと、国際共同研究として多様なバックグラウンドをもつ研究者がタッグを組み低次元半導体を主対象に探索的な研究を進めたのが本プロジェクトである。本研究ではとくに発光特性に焦点を絞り、薄膜成長法をはじめとする気相プロセスに基づく物質開発と、極低温顕微分光・マッピングを用いた光特性の研究を進めた。主要なテーマは、二次元半導体・絶縁体に色中心を埋め込むことによる新たな光源の開拓および分子混合系を用いた結晶の光特性などである。併せて、これら実験研究を支える第一原理計算による電子状態の解析も並行して進めることとした。各国の役割分担は、二次元半導体の試料作製および分光計測は日本グループが担当し、分子結晶系材料はチェコグループ、イオンインプラネーションによる色中心の埋め込みおよび透過型電子顕微鏡観察を用いた構造解析はスロバキアグループ、ハンガリーグループがバルク特性の評価を担当し、ポーランドグループは第一原理計算による理論解析を進めた。

## 5. 国際共同研究の成果

### 5-1 国際共同研究の学術成果および実施内容

国際共同研究を通じて、低次元半導体への色中心の埋め込みおよびその光学特性の探索を進めることができた。例えば、スロバキアグループが保有するエネルギーを抑えたイオンインプラネーション技術を適用することで、Ga を六方晶窒化ホウ素に埋め込むことに成功した。また、その発光スペクトルには Ga に由来する局在状態に起因した一連のフォノンサイドバンドが現れることが明らかになった。これらの結果は、ポーランドグループの第一原理計算の結果と定性的に一致しており、今後、実験と理論の協奏によって多彩な発光材料の開発が期待される。

### 5-2 国際共同研究による相乗効果

本プロジェクトの特長は多様なバックグラウンドを擁するV4各国との研究者とタッグを組んだことであり、これによって Ga ドープ六方晶窒化ホウ素の作製やその透過型電子顕微鏡観察による構造解析、さらには第一原理計算による電子状態解析までを協働研究として進めることができた。これらは、それぞれの研究者の得意とするところをあわせて進めたものであり、V4プロジェクトがなければ進めることができなかったものである。こうした共同研究を活発化するために、コアメンバーで1、2カ月に一回の定例オンラインミーティング、加えてトピックと参加者を絞ったサブ定例ミーティングを実施し、緊密にやり取りをするように努力した。

### 5-3 国際共同研究成果の波及効果と今後の展望

研究成果はすぐに実機に乗るようなものではないが、得られた成果は基本的・基礎的なもので、今後同様の方向性で研究を進めていくことで、将来ダイヤモンドNVセンターに代わるような新たな色中心が実現できる可能性がある。また、本共同研究には大学院生が参加し、実際の実験を進めた。定例ミーティングとくに細部定例ミーティングには大学院生も参加をしてもらい、国際共同研究を進めていく過程を体感してもらった。これらの経験は、今後国際的に活躍する研究者になっていく上での貴重な経験になる。

Strategic International Collaborative Research Program (SICORP)  
Japan – V4 Joint Research Program  
Executive Summary of Final Report

1. Project title : 「Band-gap engineering in unconventional semiconductors」
2. Research period : November 2021 ~ October 2024
3. Main participants :

Japan-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Ryo Kitaura	Group Leader	National Institute for Materials Science	Optical properties of low-dimensional systems
Collaborator	Daichi Kozawa	Chief Scientist	National Institute for Materials Science	Quantum Light Source
Total number of participants throughout the research period:				4

Czech-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Hidetsugu Shiozawa	Senior Researcher	J. Heyrovsky Institute of Physical Chemistry	Development of Molecular crystals
Total number of participants throughout the research period:				1

Hungary-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Ferenc Simon	Professor	Budapest University of Technology and Economics	Characterizations of bulk crystals
Total number of participants throughout the research period:				1

Slovakia-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Viera Skakalova	Senior Scientist	Slovak Academy of Sciences	Doping and Structural characterizations
Total number of participants throughout the research period:				1

Poland-side

	Name	Title	Affiliation	Role in the research project
PI	Martin Kurpas	Assistant professor	University of Silesia in Katowice	Ab-initio calculations
Total number of participants throughout the research period:				1

4. Summary of the international joint research

In this international joint research project, we focused on advanced semiconductors,

particularly low-dimensional semiconductors and heterostructures. The project aims to develop new materials that can enhance next-generation optical and electronic devices through material fabrication and properties exploration. Low-dimensional semiconductors hold great promise as channel materials for next-generation electronic devices. In addition, they are expected to contribute to quantum light sources, such as single-photon light sources, due to their extremely fast radiation relaxation and high exciton binding energy, coupled with their excellent controllability. These studies are actively pursued as part of a global trend, with related PRESTO and CREST projects currently underway in Japan.

Our project unites researchers from diverse backgrounds to conduct exploratory research, primarily on low-dimensional semiconductors. We emphasized the luminescence properties of these materials and utilized vapor phase deposition techniques, such as thin film growth, while investigating optical properties through cryogenic microspectroscopy and mapping. Key themes include the development of new light sources by embedding color centers in two-dimensional semiconductors and insulators, as well as examining the optical properties of crystals using molecular mixtures. Additionally, we will conduct electronic structure analyses using first-principles calculations to support these experimental studies.

The responsibilities of each participating country are as follows: the Japanese group handles sample preparation and spectroscopic measurements of two-dimensional semiconductors; the Czech group focuses on molecular crystal materials; the Slovak group is in charge of implanting color centers through ion implantation and performing structural analysis using transmission electron microscopy; the Hungarian group evaluates bulk properties; and the Polish group conducts theoretical analysis based on first-principles calculations, as well as bulk characterization.

## 5. Outcomes of the international joint research

### 5-1 Scientific outputs and implemented activities of the joint research

Through international collaborations, we have advanced the embedding of color centers in low-dimensional semiconductors and explored their optical properties. For instance, gallium (Ga) was successfully embedded into hexagonal boron nitride using a low-energy ion implantation technique developed by a Slovak research group. Additionally, we observed a series of phonon sidebands in the emission spectra, which are attributed to Ga-derived localized states. These findings align qualitatively with the first-principles calculations a Polish research group conducted. It is anticipated that the collaboration between experimental and theoretical efforts will lead to the development of versatile luminescent materials in the future.

### 5-2 Synergistic effects of the joint research

This project is characterized by collaboration among researchers from four countries with diverse backgrounds. This collaboration facilitated the fabrication of gallium-doped hexagonal boron nitride and its structural analysis through transmission electron microscopy, as well as electronic structure analysis using first-principles calculations. The research was conducted collectively, leveraging the strengths of each researcher, and would not have been possible without the V4 project. To promote such collaborative research, core members held regular online meetings once or twice a month. Additionally, specific sub-meetings were organized to focus on particular topics and participants, ensuring effective communication and collaboration throughout the project.

### 5-3 Scientific, industrial or societal impacts/effects of the outputs

Although the research results are not immediately applicable to actual optical devices, they are fundamental and may pave the way for developing a new color center that could potentially replace the diamond NV center in the future. Continuing research in this direction holds promise. Additionally, graduate students participated in this collaborative research and conducted actual experiments. They took part in regular meetings, particularly detailed discussions, which allowed them to experience the process of international joint research. These experiences will be invaluable for those who aspire to become internationally active researchers in the future.

## 国際共同研究における主要な研究成果リスト

### 1. 論文発表等

\*原著論文（相手側研究チームとの共著論文）発表件数：1件

・査読有り：発表件数：0件

・査読無し：発表件数：1件

1. Hanen Mechi, Arthur Mantel, Vipin Mishra, Yuto Urano, Ryo Kitaura, Hidetsugu Shiozawa. Fluorescence from pentacyanopropenide aggregates in melamine, 10.26434/chemrxiv-2024-r0r1z

\*原著論文（相手側研究チームを含まない日本側研究チームの論文）：発表件数：21件

・査読有り：発表件数：21件（以下5件のみ抜粋）

1. Feng Zhang, Ryo Tamura, Fanyu Zeng, Daichi Kozawa, **Ryo Kitaura**. Bayesian Optimization for Controlled Chemical Vapor Deposition Growth of WS<sub>2</sub>. ACS Applied Materials & Interfaces. **16** [43] (2024) 59109-59115 10.1021/acsmi.4c15275
2. Mengsong Xue, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, **Ryo Kitaura**. Gate-modulated reflectance spectroscopy for detecting excitonic states in two-dimensional semiconductors. Applied Physics Letters. **123** [6] (2023) 063101 10.1063/5.0159245
3. Shaochun Zhang, Mina Maruyama, Susumu Okada, Mengsong Xue, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Kazuki Hashimoto, Yasumitsu Miyata, Ruben Canton-Vitoria, **Ryo Kitaura**. Observation of the photovoltaic effect in a van der Waals heterostructure. Nanoscale. **15** [12] (2023) 5948-5953 10.1039/d2nr06616e
4. Sihan Zhao, **Ryo Kitaura**, Pilkyung Moon, Mikito Koshino, Feng Wang. Interlayer Interactions in 1D Van der Waals Moiré Superlattices. Advanced Science. **9** [2] (2022) 2103460 10.1002/adv.202103460
5. Takato Hotta, Haruna Nakajima, Shohei Chiashi, Taiki Inoue, Shigeo Maruyama, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, **Ryo Kitaura**. Trion confinement in monolayer MoSe<sub>2</sub> by carbon nanotube local gating. Applied Physics Express. **16** [1] (2022) 015001-1-015001-5 10.35848/1882-0786/aca642

・査読無し：発表件数：0件

\*その他の著作物（相手側研究チームとの共著総説、書籍など）：発表件数：0件

\*その他の著作物（相手側研究チームを含まない日本側研究チームの総説、書籍など）：発表件数：0件

### 2. 学会発表

\*口頭発表（相手側研究チームとの連名発表）

発表件数：0件（うち招待講演：0件）

\*口頭発表（相手側研究チームを含まない日本側研究チームの発表）

発表件数：28件（うち招待講演：24件）

【招待講演】（以下5件のみ抜粋）

1. Kitaura, R., Pacifichem 2021: Carbon nanotubes and related materials: Preparation, Characterization and, Applications (#295), online, 12/21 Dec, 2021, One- and

- two-dimensional superlattices: Fabrication and properties
2. Kitaura Ryo., special seminar at iCeMS, 2022/3/22, Low-dimensional heterostructures - an exploration of mix-dimensional systems -
  3. R. Kitaura, "Ultrathin Lateral Heterostructures Based on Two-Dimensional Semiconductors", 241st ECS meeting, Vancouver, Canada, Jun. 3rd, 2022
  4. KITAURA, Ryo. Heterostructures based on Two-Dimensional materials. NT23 (THE 23RD INTERNATIONAL CONFERENCE on the Science and Applications of Nanotubes and Low-Dimensional Materials). 2023
  5. 北浦 良. 二次元物質・ヘテロ構造の構築と機能探索. 基礎物理学研究所研究会 「創発量子現象のフロンティア：超伝導接合、エッジ伝導、エニオン」. 2024

【一般発表】

\*ポスター発表（相手側研究チームとの連名発表）

発表件数：0件

\*ポスター発表（相手側研究チームを含まない日本側研究チームの発表）

発表件数：13件（以下5件のみ抜粋）

1. URANO, Yuto, 薛 梦松, WATANABE, Kenji, TANIGUCHI, Takashi, KITAURA, Ryo. Polarization-resolved Photoluminescence spectroscopy of twisted heterobilayer of 2D semiconductors. 第67回 フラールレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム. 2024
2. ZHANG, Shaochun, KITAURA, Ryo. The Investigation of Bulk Photovoltaic Effect in 3R-MoS<sub>2</sub> through Strain and Gate Modulation. 第66回 フラールレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム. 2024
3. 薛 梦松, WATANABE, Kenji, TANIGUCHI, Takashi, KITAURA, Ryo. Gate-modulated reflectance spectroscopy for detecting excitonic states in two-dimensional semiconductors. APS March Meeting 2024. 2024
4. 薛 梦松, WATANABE, Kenji, TANIGUCHI, Takashi, KITAURA, Ryo. Gate-modulated reflectance spectroscopy for detecting excitonic states in two-dimensional semiconductors. MANA International Symposium 2023. 2023
5. 浦野 裕斗, 薛 梦松, WATANABE, Kenji, TANIGUCHI, Takashi, KITAURA, Ryo. Assessment of valley coherence in a high-quality monolayer molybdenum diselenide. 第65回 フラールレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム. 2023

**3. 主催したワークショップ・セミナー・シンポジウム等の開催**

V4J キックオフミーティング、北浦良・グループリーダー、オンライン、2021、5名

**4. 研究交流の実績（主要な実績）**

【合同ミーティング等】

オンライン定例交流会およびサブオンライン定例交流会 合計 22 回  
オンラインにて最近の進展を報告しあうとともに、連携の可能性について議論した。また、特定のトピックにフォーカスしたミーティングも併せて行った。

【学生・研究者の派遣、受入】

- ・ 2022 12/19 チェコより Dr. Shiozawa を受入れ共同実験を実施
- ・ 2023 12/28 チェコより Dr. Shiozawa を受入れ共同実験を実施
- ・ 2024 9/23 チェコより Dr. Shiozawa を受入れ議論および共同実験を実施

**5. 特許出願**

研究期間累積出願件数：0 件

**6. 受賞・新聞報道等**

【新聞報道等】

【受賞】

**7. その他**