

「単一分子・原子レベルの反応制御」  
平成8年度採択研究代表者

鯉沼 秀臣

(東京工業大学 フロンティア創造共同研究センター 教授)

## 「低次元超構造のコンビナトリアル分子層エピタキシー」

### 1. 研究実施概要

本戦略的基礎研究も、半年あまりを残すのみとなった。本事業は、人工的に設計された組成、超格子、ナノデバイスの超高速合成法を開発し、よって新たな物質機能を組織的に探索することを目的としている。そのための要素技術として、原子レベルで制御された薄膜技術をコンビナトリアルケミストリー概念と組み合わせたナノマテリアルチップの作成技術、高速評価技術、および高速材料設計のための計算化学プログラムの開発を中心にこれまで研究を行ってきた。

平成12年度は、そのような各要素技術に基づいたコンビナトリアル合成装置や材料設計のためのコンビナトリアル計算化学プログラム、高速評価装置を活用することで、これまでにない、新規材料の探索と物性の発現、実用材料のコンビナトリアル開発に積極的に取り組んだ。これらの戦略的基礎研究の成果をベースに、ナノ(ダウンサイジング)の集積・高速化を実現するコンビナトリアル分子層エピタキシーを、ナノの次に来る基板技術として位置付け、展開する戦略・作戦を開始した。

### 2. 研究実施内容

#### (1) 酸化物超構造の形成と評価

鯉沼グループでは、新材料の探索とその薄膜作製の条件最適化に対し、これまで開発を行ってきた種々のコンビナトリアル薄膜形成装置、および高速評価装置の積極的な活用を図った。新材料の探索では、構造の異なるルチル/アナターゼ二酸化チタン薄膜にそれぞれ3d遷移金属を系統的に添加した試料において、走査型SQUID顕微鏡による高速評価の結果、コバルトをドーピングした二酸化チタン薄膜がコバルト濃度に依存した明瞭な磁区構造を示し、室温で透明でかつ強磁性的性質を示すことが見いだされた。この成果は、米国雑誌、Science 2/5号に掲載された。また、ペロブスカイト型酸化物である $M\text{HfO}_3$  ( $M=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$ )を母体結晶とした $T\text{m}$ 発光体の蛍光材料について、基板との相互作用(ストレス)により、粉末では発光しない $\text{CaHfO}_3$ を母体とする $T\text{m}$ 発光体の特性が向上すること、また、Caサイトを一部Srに置換したり、同じ組成であっても人工超格子化することによって、さらに発光特性を改善することができることを新たに見出した。一方、G

Hz帯で駆動し、高いデバイスパフォーマンスが期待される磁性薄膜インダクター用Y型マグネトプラムバイト(化学式： $\text{Ba}_2\text{Co}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ )薄膜の作製に世界で初めて成功した。この材料は、超巨大ユニットセル(c軸長 = 43.5Å)を持った4元系複合酸化物で、薄膜作製の成功のカギはコンビナトリアル手法を用いた高速条件最適化によるところが大きい。

装置開発では、コンビナトリアルPLD-STM装置の開発を新たに行い、ナノ構造研究に対するコンビナトリアルなアプローチを提案し、低次元ナノ構造の高速合成と評価を原子レベルで行うことを可能にした。さらに、高速評価法については、コンビナトリアル熱電特性測定装置を開発し、熱電材料の探索に威力を発揮しはじめている。その他、電界効果デバイス材料として注目を浴びているペンタセンのパルスレーザーアブレーション(PLD)法を用いた結晶性の高い薄膜の作成にも成功している。

## (2) 超構造の設計

分子層エピタキシーや低次元構造の実現には、原子・分子レベルでの結晶成長機構、析出分子の表面拡散過程、結晶核形成過程、ヘテロ接合界面などに対する深い理解が必要である。しかし、実験的にはこれら素過程を詳細に解明することは非常に困難であり、理論化学的アプローチが期待されている。宮本グループでは、そのためのプログラム開発として、本プロジェクトにおいて一昨年度、有限温度下での化学反応ダイナミクスをシミュレーションすることが可能な高速化量子分子動力学法の開発に成功した。本年度はそのプログラムを大幅に拡張し、高速化量子分子動力学法に基づく結晶成長シミュレータの開発に成功した。この成功により、電子移動ダイナミクスを含む結晶成長シミュレーションが世界的にも初めて可能になったとともに、予測された低次元薄膜構造に関する物性・特性予測をも可能にした。さらに、ハイブリッド法の実現により第一原理分子動力学計算に比較し10万倍以上の高速計算を実現した。本計算手法が酸化物のバンドギャップ予測、不純物予測に有効であることも確認され、低次元材料の「構造予測」とその「物性予測」の両方を兼ね備えた世界初の統合システムが完成した。さらに、我々が一昨年度提唱したコンビナトリアル計算化学を活用することにより、硫化物触媒、燃料電池用アノード触媒、メタノール合成触媒、ガソリン合成用FT触媒など様々な固体触媒の理論設計にも成功した。また、第一原理計算による金属ドーパTiO<sub>2</sub>触媒の強磁性発現に関する周期的第一原理計算を実施し、鯉沼グループの実験結果をサポートする理論計算結果が得られた。

## (3) 超構造の光物性

瀬川グループでは、超構造の一例として、コンビナトリアル手法により製作された酸化物半導体量子井戸構造の光学的性質を測定し、非常に系統的な量子閉じ

込め効果を観測し、コンビナトリアル手法の有効性を示した。また、超構造の新たな光学的評価手段として、低温光原子間力顕微鏡の開発を行った。

鯉沼グループがSCAM格子整合基板上にコンビナトリアル作成した(ZnMg)O薄膜ライブラリーを用いて、量子井戸の誘導放出機構が励起子間の非弾性散乱であることを明らかにした。エネルギー位置の解析から、励起子の束縛エネルギーの量子井戸幅依存性を実験的に求めることに成功し、井戸幅を薄くすることで、束縛エネルギーが90meVまで増大する顕著な量子閉じ込め効果を確認した。

また、PLD法による二酸化チタンアナターゼやウルツ型ZnSの高品質エピタキシャル薄膜の吸収スペクトルおよび発光スペクトルの温度依存性を検討した。アナターゼ薄膜では、透過法によって、直接バンドギャップを求めることに成功し、励起子発光の起源が自己束縛励起子であることを結論した。また、ZnS薄膜では、室温でも励起子による吸収ピークが観察され、励起子束縛エネルギーが室温の熱エネルギーよりも大きい、薄膜の結晶性の良さ、均質性を裏付ける結果を得た。

また、評価法では、典型的なモット絶縁体であり、大きな光学的非線形性を示す、 $(\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x})_2\text{CuO}_3$ 混晶の非線形感受率を決定するための第3高調波発生法による評価法を検討し、高調波発生効率の薄膜成長温度に対する依存性などの結果が得られはじめている。

#### (4) $\pi$ 共役系の作成と評価

$\pi$  共役高分子は、主鎖に沿った一次元  $\pi$  電子系に起因した興味深い電子・光特性を発現することから、山本グループでは、真空蒸着、およびPLDの双方で蛍光特性を有する種々の  $\pi$  共役高分子およびオリゴマーの薄膜作成の最適化を行い、薄膜堆積の最適条件と得られた膜の分光学的データを蓄積している。また、新たな化合物のデザイン、合成も併せて行っており、新規な高輝度青色発光をする薄膜やpn接合などのデバイス構造の作製をコンビナトリアル手法を用いて行った。

$\pi$  共役高分子積層膜の作製と電流-電圧特性の検討を行った。p型の  $\pi$  共役高分子のポリチオフェン(PTh)およびn型  $\pi$  共役高分子であるポリ(4,8-ジニトロ-1,5-アントラキノン)(P(4,8-NO<sub>2</sub>-1,5-AQ))を原料とし、スリットマスクを用いてコンビナトリアルに25種類のpn接合をITOガラス上に作成した。得られたpn接合の電流-電圧特性を測定したところ、整流比が3の整流特性を示すものが得られた。また、得られたpn接合にXeランプを照射しながら電流-電圧特性を測定した結果、いくつかの組み合わせから光誘起による起電力効果が観測された。さらに、電子輸送層と金属電極との間にLiF層を挿入することでA1/LiF/P(4,8-NO<sub>2</sub>-1,5-AQ)/PTh/ITO太陽電池特性を解析した結果、光起電力の向上が見られた。ポリマーおよびLiF層の膜厚をコンビナトリアルに最適化することも行った。

### 3 . 主な研究成果の発表 ( 論文発表 )

H. Koinuma, H.N. Aiyer, Y. Matsumoto, Combinatorial Solid State Material Science and Technology, Science and Technology of Advanced Materials, 1, 1-10( 2000 )

A. Ohtomo, K. Tamura, M. Kawasaki, T. Makino, Y. Segawa, Z.K. Tang, G.K.L. Wong, Y. Matsumoto, H. Koinuma, Room-temperature simulated-emission of exciton in ZnO/( Mg, Zn )O superlattices, Appl. Phys. Lett., 77, 2204-2206( 2000 )

T. Fukumura, M. Ohtani, M. Kawasaki, Y. Okimoto, T. Kageyama, T. Koida, T. Hasegawa, Y. Tokura, H. Koinuma, Rapid construction of a phase diagram of doped Mott insulators with a composition-spread approach, Appl. Phys. Lett., 77 3426-3428( 2000 )

N. Matsuki, J. Ohta, H. Fujioka, M. Oshima, M. Yoshimoto, H. Koinuma, Fabrication of oxide-gate thin-film transistors using PECVD/PLD multichamber system, Sci. Tech. Adv. Mat., 1, 187-190( 2000 )

I. Ohkubo, Y. Matsumoto, A. Ohtomo, T. Ohnishi, A. Tsukasaki, M. Lippmaa, H. Koinuma, M. Kawasaki, Investigation of ZnO/sapphire interface and formation of ZnO nanocrystalline by laser MBE, Appl. Surf. Sci., 159-160, 514-519( 2000 )

H. Koinuma, M. Kawasaki, T. Itoh, A. Ohtomo, M. Murakami, Z.W. Jin, and Y. Matsumoto, Concept and Development of Combinatorial Laser MBE for Oxide Electronics, Physica C, 335, 245-250( 2000 )

Z.W. Jin, M. Murakami, T. Fukumura, Y. Matsumoto, A. Ohtomo, M. Kawasaki, and H. Koinuma, 18. Combinatorial laser MBE synthesis of 3d ion doped epitaxial ZnO thin films, J. Cryst. Growth, 214/215, 55-58( 2000 )

鯉沼秀臣, 「新機能の宝庫・酸化物」巻頭言, 表面科学、21, 61( 2000 )

鯉沼秀臣, 「先端材料開発をリードするコンビナトリアル・ケミストリー」( コラム ) 糸れきてる、75 SPRING、5( 2000 )

鯉沼秀臣、小宮山大補、鯉田 崇, 「ソリッドステートコンビナトリアルケミストリー」SEAJ Journal、65, 62-68( 2000 )

鯉沼秀臣、宮崎香織, 「固体材料・デバイス開発のIC技術」, 化学工学、64、276-278( 2000 )

知京豊裕、鯉沼秀臣, 「コンビナトリアル材料化学の現状と今後の展望 先導プログラム「コンビナトリアル科学技術の創造と先端産業への展開( COMET )」セラミックデータブック 2000( 工業と製品、28[ 82 ] )、工業製品技術協会、32-36 ( 2000 )

鯉沼秀臣, 「世界をリードする期待のコンビナトリアル材料科学研究で、効率を大

幅にアップして“もの作り技術”に革命をもたらす」, M&E 12月号, 27[13] 88-89(2000)

Y. Matsumoto, M. Murakami, T. Shono, T. Hasegawa, T. Fukumura, M. Kawasaki, P. Ahmet, T. Chikyow, S. Koshihara, and H. Koinuma, Room-Temperature Ferromagnetism in Transparent Transition Metal-Doped Titanium Dioxide, Science, 291, 854-856(2001)

Hemantkumar N. Aiyer, D. Nishioka, N. Matsuki, H. Shinno, V.P.S. Perera, T. Chikyow, H. Kobayashi, H. Koinuma, Improved performance of amorphous silicon thin film transistors by cyanide treatment, Appl. Phys. Lett., 78, 751-753 (2001)

Murakami, Y. Matsumoto, K. Nakajima, T. Makino, Y. Segawa, T. Chikyow, P. Ahmet, M. Kawasaki, H. Koinuma, Anatase TiO<sub>2</sub> thin films grown on Lattice-matched LaAlO<sub>3</sub> substrate by laser molecular-beam epitaxy, Appl. Phys. Lett., 78, 2664-2666(2001)

K. Ando, H. Saito, Ahengwu Jin, T. Fukumura, M. Kawasaki, H. Koinuma, Large magneto-optical effect in an oxide diluted magnetic semiconductor Zn<sub>1-x</sub>CoxO, Appl. Phys. Lett., 78, 2700-2702(2001)

Hemantkumar N. AIYER, D. Nishioka, R. Maruyama, H. Shinno, N. Matsuki, K. Miyazaki, H. Fujioka, H. Koinuma, Combinatorial Fabrication Process for a-Si:H Thin Film Transistors, Jpn. J. Appl. Phys., 40, L81-L83(2001)

T. Chikyow, P. Ahmet, K. Nakajima, T. Koida, M. Takakuraa, M. Yoshimoto, H. Koinuma, A Combinatorial Methodology for Optimizing Oxide/semiconductor Interface with Atomic Interfacial Layers, Proc. SPIE, 4281, 1-16(2001)

Fukumura, M. Ohtani, J. Nishimura, T. Kageyama, T. Koida, M. Lippmaa, M. Kawasaki, T. Hasegawa, H. Koinuma, Temperature-gradient and composition-spread deposition of epitaxial oxide films and high throughput characterization, Proc. SPIE, 4281, 17-26(2001)

P. Ahmet, T. Koida, M. Takakura, K. Nakajima, M. Tanaka, M. Takeguchi, M. Yoshimoto, H. Koinuma, T. Chikyow, Combinatorial Approach to the Interface Structure Characterizations of SrTiO<sub>3</sub> on Si(100), Proc. SPIE, 4281, 43-50(2001)

川崎雅司、牧野哲征、瀬川勇三郎、鯉沼秀臣、「コンビナトリアル酸化亜鉛超格子研究」, 応用物理、70[5] 523-529(2001)

鯉沼秀臣「総論 コンビナトリアル技術によるマテリアルハイウェイの構築」, 機能材料、21[1] 5-10(2001)

松本祐司、鯉沼秀臣「透明な磁石の製作に成功」, 子供の科学、64[4] 44-45

( 2001 )

鯉沼秀臣、 「 Time is money: コンビナトリアルテクノロジー 」、 東工大クロニル、  
354、 8- 9( 2001 )

T-W. Kim, N. Arai, Y. Matsumoto, M. Yoshimura, H. Furuya, Y. Mori, T. Sasaki  
and H. Koinuma, Laser molecular beam epitaxy of high-quality  $Gd_xY_{1-x}Ca_4O_3$  thin films, J. Cryst. Growth in press

Tsuyoshi Ohnishi, Daisuke Komiyama, Takashi Koida, Akira Ohtomo, Mikko  
Lippmaa, Satoru Ohashi, Naoyuki Nakagawa, Christian Stauter, Tetsuo Kikuchi,  
Kazuhiko Omote, Masashi Kawasaki, and Hideomi Koinuma, Combinatorial  
Integration of Nano-Structured Materials by Concurrent Molecular Layer  
Epitaxy and Diffractometry, Appl. Phys. Lett. in press

H. Tamura, H. Zhou, Y. Hirano, S. Takami, M. Kubo, R. V. Belosludov, A.  
Miyamoto, A. Imamura, M. N. Gamo, and T. Ando, First Principle Study on  
Reactions of Diamond(100) Surfaces with Hydrogen and Methyl Radicals, Phys.  
Rev. B, 62, 16995-17003( 2000 )

Y. Kobayashi, K. Mizukami, Y. Oumi, H. Takaba, M. Kubo, K. Teraishi, and A.  
Miyamoto, Development of Dual Ensemble Monte Carlo Program and Its  
Application to the CO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> Separation, Mol. Simul., 25( 2000 )187-196.

N. Ohashi, A. Endou, S. Takami, M. Kubo, and A. Miyamoto, Molecular  
Adsorption on Ultrafine Precious Metal Particles Studied by Density Functional  
Calculation, Jpn. J. Appl. Phys., 39, 4261-4265( 2000 )

H. Zhou, H. Tamura, S. Takami, M. Kubo, N. Zhanpeisov, and A. Miyamoto,  
Adsorption Properties of CH<sub>3</sub>OH on Al(111) and Fe(100) Surfaces : A Periodic  
First-Principles Investigation, Jpn. J. Appl. Phys., 39, 4275-4278( 2000 )

M. Nimura, A. Yamada, S. Takami, M. Kubo, and A. Miyamoto, Ab Initio Study  
for Si-H Bond Vibration on the Surface of Silicon Vacancy, Jpn. J. Appl. Phys., 39,  
4292-4294( 2000 )

A. Endou, K. Teraishi, K. Yajima, K. Yoshizawa, N. Ohashi, S. Takami, M. Kubo,  
A. Miyamoto, and E. Broclawik, Potential Energy Surface and Dynamics of  
Pd/MgO(001) System as Investigated by Periodic Density Functional  
Calculations and Classical Molecular Dynamics Simulations, Jpn. J. Appl. Phys.,  
39, 4255-4260( 2000 )

Y. Matsuo, M. Nimura, A. Koukitu, Y. Kumagai, H. Seki, S. Takami, M. Kubo, and  
A. Miyamoto, Investigation of Hydrogen Chemisorption on GaAs(111)A Ga  
Surface by In Situ Monitoring and Ab Initio Calculation, Jpn. J. Appl. Phys., 39,

6174-6179( 2000 )

H. Tamura, H. Zhou, Y. Inaba, K. Suzuki, S. Takami, M. Kubo, and A. Miyamoto, Molecular Dynamics Simulations of Adhesional Forces via Hydrocarbon Films, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39, 4425-4426( 2000 )

H. Zhou, H. Tamura, S. Takami, M. Kubo, R. Belosludov, N. Zhanpeisov, and A. Miyamoto, Periodic Density Functional Study on Adsorption Properties of Organic Molecules on Clean Al(111) Surface, *Appl. Surf. Sci.*, 158, 38-42( 2000 )

A. Endou, N. Ohashi, S. Takami, M. Kubo, A. Miyamoto, and E. Broclawik, The Adsorption and Activation Properties of Precious Metal Clusters toward NO : A Density Functional Study, *Topics in Catalysis*, 11/12, 271-278( 2000 )

K. Yajima, Y. Ueda, H. Tsuruya, T. Kanougi, Y. Oumi, S. S. C. Ammal, S. Takami, M. Kubo, and A. Miyamoto, Computer-Aided Design of Novel Heterogeneous Catalysts - A Combinatorial Computational Chemistry Approach, *Stud. Surf. Sci. Catal.*, 130, 401-406( 2000 )

K. Yajima, S. Sakahara, Y. Ueda, R. Belosludov, S. Takami, M. Kubo, and A. Miyamoto, Combinatorial Computational Chemistry Approach to the Design of Catalysts, *Proceedings of SPIE*, 3941, 62-69( 2000 )

R. Belosludov, S. S. C. Ammal, Y. Inaba, Y. Oumi, S. Takami, M. Kubo, A. Miyamoto, M. Kawasaki, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, Combinatorial Computational Chemistry Approach to the Design of Metal Oxide Electronics Materials, *Proceedings of SPIE*, 3941, 2-10( 2000 )

S. Takami, K. Yajima, K. Suzuki, A. Endou, M. Kubo, and A. Miyamoto, Interaction between SiO<sub>2</sub> Surface and Au Clusters Studied by Computational Chemistry, *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 26, 770-775( 2000 )

Y. Inaba, T. Onozu, S. Takami, M. Kubo, A. Miyamoto, and A. Imamura, Computational Chemistry Study on Crystal Growth Process of InGaN/GaN, *Jpn. J. Appl. Phys.*, in press.

H. Zhou, Y. Yokoi, H. Tamura, S. Takami, M. Kubo, A. Miyamoto, M. N-Gamo, and T. Ando, Quantum Chemical Calculations of Sulfur Doping Reactions in Diamond CVD, *Jpn. J. Appl. Phys.*, in press

R. V. Belosludov, S. Sakahara, K. Yajima, S. Takami, M. Kubo, and A. Miyamoto, Combinatorial Computational Chemistry Approach as a Promising Method of Fischer-Tropsch Catalysts Based on Fe and Co, *Appl. Surf. Sci.*, in press

S. Sakahara, K. Yajima, R. Belosludov, S. Takami, M. Kubo, and A. Miyamoto, Combinatorial Computational Chemistry Approach to the Design of Methanol

Synthesis Catalysts, Appl. Surf. Sci., in press

K. Suzuki, Y. Kuroiwa, S. Takami, M. Kubo, and A. Miyamoto, Combinatorial Computational Chemistry Approach to the Design of the Cathode Materials for Lithium Secondary Battery, Appl. Surf. Sci., in press

N. Ohashi, K. Yoshizawa, A. Endou, S. Takami, M. Kubo, and A. Miyamoto, The Adsorption Properties of SO<sub>2</sub> on Ultrafine Precious Metal Particles Studied by Density Functional Calculation, Appl. Surf. Sci., in press

M. Kubo, H. Kurokawa, Y. Inaba, K. Suzuki, S. Takami, A. Miyamoto, M. Kawasaki, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, Atomistic Crystal Growth Simulation of Metal Oxide Materials, Trans. Mater. Res. Soc. Jpn., in press

J. W. Tomm, B. Ullrich, X. G. Qiu, Y. Segawa, A. Ohtomo, M. Kawasaki and H. Koinuma, Optical and photoelectrical properties of oriented ZnO films, J. of Appl. Phys. 87, 1844-1848( 2000 )

T. Makino, N. T. Tuan, Y. Segawa, C. H. Chia, M. Kawasaki, A. Ohtomo, K. Tamura and H. Koinuma, Exciton spectra of ZnO epitaxial layers on lattice-matched substrates grown with laser-molecular-beam epitaxy, Appl. Phys. Lett. 76, 3549-3551( 2000 )

T. Makino, G. Isoya, Y. Segawa, C. H. Chia, T. Yasuda, M. Kawasaki, A. Ohtomo, K. Tamura and H. Koinuma, Optical spectra in ZnO thin films on lattice-matched substrates grown with laser-MBE method, J. of Cryst. Growth 214/215, 289-293 ( 2000 )

T. Makino, N. T. Tuan, Y. Segawa, C. H. Chia, A. Ohtomo, M. Kawasaki and H. Koinuma "Temperature dependence of four-wave-mixing spectra in ZnO thin films on sapphire substrates grown with laser MBE, J. of Luminescence 87-89, 210-212( 2000 )

T. Makino, C. H. Chia, Nguen T. Tuan, H. D. Sun, Y. Segawa, M. Kawasaki, A. Ohtomo, K. Tamura and H. Koinuma, Room-temperature luminescence of excitons in ZnO( Mg,Zn )<sub>0</sub> multiple quantum wells on lattice-matched substrates, Appl. Phys. Lett. 77, 975-977( 2000 )

T. Makino, C. H. Chia, N. T. Tuan, Y. Segawa, M. Kawasaki, A. Ohtomo, K. Tamura and H. Koinuma, Radiative and nonradiative recombination processes in lattice-matched( Cd, Zn )<sub>0</sub>/( Mg, Zn )<sub>0</sub>multiquantum wells, Appl. Phys. Lett. 77, 1632-1634( 2000 )

F. Siah, Z. Yang, Z. K. Tang, G. K. L. Wong, M. Kawasaki, A. Ohtomo, H. Koinuma, and Y. Segawa, In-plane anisotropic strain of ZnO closely



- packed microcrystallites grown on tilted (0001) sapphire, *J of Appl. Phys.* 88, 2480-2483 (2000)
- H. D. Sun, T. Makino, N. T. Tuan, Y. Segawa, Z. K. Tang and G. K. L. Wong, M. Kawasaki, A. Ohtomo, and K. Tamura and H. Koinuma, Stimulated emission induced by exciton-exciton scattering in ZnO/ZnMgO multi-quantum wells up to room temperature, *Appl. Phys. Lett.* 77, 4250-4252 (2000)
- X. G. Qiu, H. Koinuma, M. Iwasaki, T. Itoh, A. K. Sarin Kumar, M. Kawasaki, E. Saitoh, Y. Kido and Y. Segawa, Josephson plasma observed in underdoped (110) YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> films, *Appl. Phys. Lett.* 78, 506-508 (2001)
- T. Makino, Y. Segawa, M. Kawasaki, A. Ohtomo, R. Shiroki, K. Tamura, T. Yasuda and H. Koinuma, Band gap engineering based on Mg<sub>x</sub>Zn<sub>1-x</sub>O and Cd<sub>y</sub>Zn<sub>1-y</sub>O ternary alloy films, *Appl. Phys. Lett.* 78, 1237-1239 (2001)
- T. Makino, N. T. Tuan, H. D. Sun, C. H. Chia, Y. Segawa, T. Suemoto, H. Akiyama, M. Baba, S. Saito and H. Koinuma, Temperature dependence of near ultraviolet photoluminescence in ZnO/ZnMgO MQWs, *Appl. Phys. Lett.* 78, 1979-1981 (2001)
- H. D. Sun, T. Makino, N. T. Tuan, Y. Segawa, M. Kawasaki, A. Ohtomo, K. Tamura and H. Koinuma, Temperature dependence of excitonic absorption spectra in ZnO/Zn<sub>0.88</sub>Mg<sub>0.12</sub>O multi-quantum wells grown on lattice-matched substrates, *Appl. Phys. Lett.* 78, 2464-2466 (2001)
- T. Yamamoto and H. Kokubo, Selective Stacking of HT-Poly(3-n-alkylthiophene-2,5-diyl) in Mixed Systems, *J. Polym. Sci. : Part B : Polym. Phys.*, 38, 84-87 (2000)
- T. Yamamoto, T. Shimizu, and E. Kurokawa, Doping Behavior of Water-soluble p-Conjugated Polythiophenes Depending on pH and Interaction of the Polymer with DNA, *Reactive & Functional Polymers*, 43, 79-84 (2000)
- T. Yamamoto, Y. Xu, T. Inoue, and I. Yamaguchi, Preparation of Poly(biphenylene vinylene) Type Polymers by Ni-Promoted Polycondensation and Their Basic Optical Properties, *J. Polym. Sci. : A, Polym. Chem.*, 38, 1493-1504 (2000)
- T. Yamamoto, T. Kamijyou, and I. Wataru, Preparation and Spectroscopic Data of <sup>13</sup>C-Labeled Polythiophenes and Corresponding Iodide Monomers, *J. Polym. Sci. : A, Polym. Chem.*, 38, 1642-1646 (2000)
- T. Yamamoto, M. Takeuchi, and K. Kubota, New Information on Linear and Stiff p-Conjugated Poly(pyridine-2,5-diyl) *J. Polym. Sci.: B, Polym. Phys.*, 38, 1348-1351 (2000)
- I. Nurulla, I. Yamaguchi, and T. Yamamoto, Preparation and Properties of New p-

Conjugated Polyquinoxalines with Aromatic Fused Rings in the Side Chain, *Polym. Bull.*, 44, 231-238( 2000 )

T. Yamamoto, H. Nakajima, N. Hayashida, K. Shiraishi, and H. Kobubo, p-Conjugated Polymers Prepared by Organometallic Polycondensation and Metal Complexes of the Polymers, *Polym. Adv. Tech.*, 11, 658-664( 2000 )

I. Yamaguchi, K. Miya, K. Osakada, and T. Yamamoto, Synthesis of Polyurea Rotaxanes Using a Cyclodextrin Complex of  $\alpha$ , $\omega$ -diamine, *Polym. Bull.*, 44, 247-253 ( 2000 )

I. Yamaguchi, M. Arai, K. Osakada, and T. Yamamoto, Synthesis and Properties of Europium Complex of Polybenzimidazole Containing N-Eu Bond, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, 342, 57-62( 2000 )

H. Fukumoto, N. Hayashida, T. Maruyama, and T. Yamamoto, Synthesis and Characterization of New p-Conjugated Polymer Complexes with Transition Metal Fragments, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, 342, 237-24( 2000 )

T. Yamamoto, B. -K. Choi, and K. Kubota, Linear Structure and Viscometric and Electrical Properties of Nitrated Poly( p-phenylene ), *Polym. J.*, 32, 619-621( 2000 )

山口 勲、イスマイル ヌルラ、山本隆一、シクロデキストリン包接  $\pi$  共役高分子の合成と光学的性質、*高分子論文集*、57, 472-473( 2000 )

T. Yamamoto, N. Fukushima, H. Nakajima, T. Maruyama, and T. Yamaguchi, Synthesis and Chemical Properties of p-Conjugated Zinc Porphyrin Polymers with Arylene and Aryleneethynylene Groups between Zinc Porphyrin Units, *Macromolecules* ,33, 5988-5994( 2000 )

I. Yamaguchi, K. Osakada, T. Yamamoto, Pseudopolyrotaxane Composed of an Azobenzene Polymer and  $\gamma$ -Cyclodextrin. Reversible and Irreversible Photoisomerization of the Azobenzene Groups in the Polymer Chain, *Chem. Commun.*, 1335-1136( 2000 )

B. -K. Choi, H. Takahashi, T. Kanbara, and T. Yamamoto, Synthesis of Poly( 3-nitropyridine-2,5-diyl )and Poly( 3,3'-dinitro-2,2'-bipyridine-5,5'-diyl )and Electrochemical Response, *Polym. J.*, 32, 991-994( 2000 )

S. Sasaki, K. Maehara, I. Nurulla, and T. Yamamoto, X-ray Investigation of Poly ( thiophene-alt-thiophenedioxide ) , *Polym. J.*, 32, 984-986( 2000 )

I. Nurulla, K. Sugiyama, B. -L. Lee, and T. Yamamoto, Solvatochromism of p-Conjugated Polyquinoxaline and a Copolymer of Heptylbenzimidazole and Thiophene Caused by Protonation with Trifluoroacetic Acid, *Reactive & Functional Polymers*, 46, 49-53( 2000 )