

「エネルギーの高度利用に向けたナノ構造材料・システムの創製」  
平成14年度採択研究代表者

鯉沼 秀臣

(東京工業大学 応用セラミックス研究所 教授)

## 「電界効果型ナノ構造光機能素子の集積化技術開発」

### 1. 研究実施の概要

レーザー-MBE法を中心とする原子スケールの薄膜技術を用いて、新しい半導体としての $\pi$ 共役有機材料と酸化物・窒化物に電界効果を利用した新機能発現と光応用デバイスの可能性を組織的に探索する。不純物のドーピングという欠陥の誘起を伴う方法に代わり、電界効果による電荷制御という手法を用いて、構成層、表面・界面、チャネルのナノサイズ制御をベースとする新エネルギー利用システムを構築する。以下の具体的なテーマを中心にコンビナトリアル技術を使って研究を加速的に展開する。

#### 1. 高品質有機薄膜の作製と有機電界効果デバイス

有機材料はその多様性から、無機材料にはない可能性を秘めており、近年新規半導体として盛んに研究が進められている。しかしながら、高品質薄膜の作製技術が立ち後れているため、我々がこれまで培ってきた酸化物・窒化物での薄膜作製技法を適用して、有機薄膜の高品質化を図り、新規電界効果デバイスを作製する。

#### 2. 酸化物・窒化物電子材料における内部電界効果および外部電界効果

六方晶系無機材料は、結晶の非対称性から、圧電効果・焦電効果などの内部電界効果が生じるものがある。これを利用したFET特性の向上や新機能探索を行う。また、高品質のナノ構造制御ZnO薄膜を作製して発見した紫外エキシトンレーザーを、電界効果p型化、超格子構造の導入などにより実用化する。

#### 3. 電界効果型太陽電池(FESC)の開発

これまで非晶質Siについて提案・実証してきたFESCの構造最適化を進めるとともに、ナノ結晶シリコン、有機半導体を用いるセルに拡張する。

#### 4. 光触媒、磁性における電界効果の研究

TiO<sub>2</sub>、ZnOなどの光触媒作用、及びこの材料の周辺に我々が見出した透明磁性、熱電変換特性の電界効果による特性向上と新機能発現機構を検証する。

これらの研究において、その基礎となるナノ構造の集積化形成装置、集積化ナノ基板など、研究を加速するコンビナトリアルシステムを開発する。

## 2. 研究実施内容

### ① 鯉沼G

#### (1) 有機半導体の電界効果と2段階成長法による有機薄膜の高品質化

有機薄膜デバイスを作製するためには、酸化物などの誘電体層上に高品質な薄膜を作製する必要がある。しかしながら、第一層目は基板上への堆積でありヘテロ成長となるのに対して、第二層目以降はホモ成長となるため、成長条件が大きく異なる。そこで、第一層目のみ低温で成長させ、第二層目以降は高温にして分子のマイグレーションを向上させることにより、デバイス作製に適した2次元的な成長様式に変化させることに成功した(図1)。

#### (2) 有機デバイス用一貫作製システムの開発

有機半導体は水・酸素によって著しく劣化するため、大気に晒すことなくデバイスを作製する必要がある。我々は有機半導体層の堆積、電極層の堆積、FET特性評価を一貫してIn-situで作製することが可能なシステムを開発した。パターニングは、基板ホルダーとマスクホルダーの組み合わせる方法を用いた。本開発装置を用いて、トップコンタクト型C<sub>60</sub>FETをIn-situで作製したところ、0.2 cm<sup>2</sup>/Vsと良好な移動度が得られた。

#### (3) 有機薄膜の光分解反応

TiO<sub>2</sub>やSrTiO<sub>3</sub>などのチタン酸化物では、光触媒活性が知られているが、その反応メカニズムや反応速度については解明されていない部分も多い。我々は、光触媒活性のある薄膜や基板を用いて、さらにペンタセン単分子薄膜を作製して、その分解をAFMやSTMで観察することにより、反応速度を明確にすることに成功した(図2)。また、In-situで光触媒反応を観測できる装置を開発することにより、外気やコンタミの影響を受けることなく正確な光触媒活性評価が可能となった。

#### (4) 酸化物FET(東大Lippmaa研との共同研究)

SrTiO<sub>3</sub>はドーピングされると低温で超伝導を示すため、電界効果と組み合わせることにより新機能デバイスの可能性がある。SrTiO<sub>3</sub>基板を半導体層として用いた電界効果デバイスを作製した。CaHfO<sub>3</sub>を誘電体層として用いることにより、従来よりも高い移動度を実現することができた。

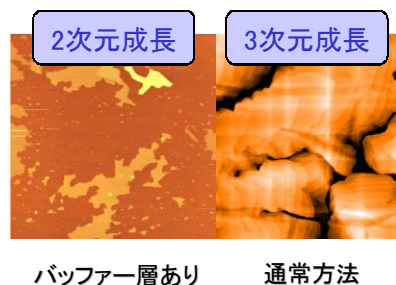


図1. 2段階成長法を用いたペンタセン薄膜のAFM像

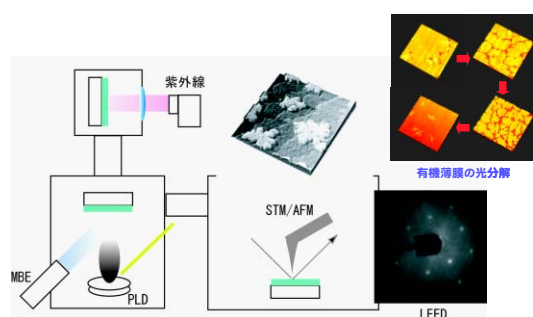


図2. In-situ 光触媒システムと、有機薄膜の光分解過程のAFM観察

## (5) 電界効果太陽電池（東大藤岡研・KAST松木氏との共同研究）

従来型アモルファスシリコン太陽電池とは全く構造の異なる電界効果型アモルファスシリコン太陽電池を作製し、その基本動作を初めて観察した。具体的には、電界効果電圧を印加しない場合の短絡電流密度値は $5.1 \text{ mA/cm}^2$ であったものが、 $+40 \text{ V}$ 印加することによって $6.4 \text{ mA/cm}^2$ まで増加した。これにより変換効率は $1.4 \%$ から $1.6 \%$ まで向上し、変換効率の向上率としては $28 \%$ であった。

## (6) $\text{TiO}_2$ の表面制御と新機能

透明磁石のような希薄磁性半導体を作製するためには、熱力学的に非平衡状態である低温製長が必要不可欠である。前年度、報告した原子レベルで平坦化された $\text{TiO}_2$ を用いることにより、従来基板を用いるよりもかなり低い基板温度でもエピタキシャル成長できるようになった。これにより、Co磁性不純物をドーピングした $\text{TiO}_2$ 薄膜を熱力学的に非平衡な状態で作製することが可能となった。

### ② 角谷G

#### 基板硝酸処理によるGaN薄膜の極性制御

ワイドギャップ半導体GaNはc軸方向に極性をもち、これによる内部電界を応用した新規デバイスの可能性を秘めている。しかしながら、極性面の制御はこれまで製膜条件を変化させることによるのみ行われているため、集積化が困難であり、デバイス利用への大きな隘路となっていた。我々は、水素クリーニングされたサファイア基板を硝酸溶液で処理することにより、その上に堆積するGaN膜の極性を自由に制御し、図3に示すようなパターンを形成できることを見いだした。

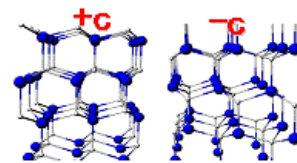
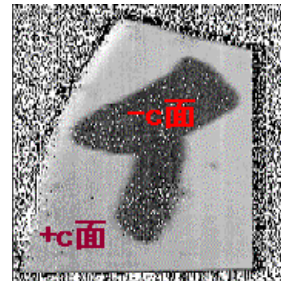


図3、硝酸溶液処理による極性制御されたGaN薄膜

### ③ 和田G

#### 分子エレクトロニクス用コンビナトリアル超平坦マイクロ電極の作製

ナノオーダーの分子を用いて新規デバイスを開発するには、ナノサイズ電極と高速スクリーニングのためのarray化が必要である。CMP（Chemical Mechanical Polishing）技術と微細加工技術を駆使して、ギャップ長数 $\mu\text{m}$ の超平坦マイクロ電極構造の作製に成功した。電極幅とギャップ長をコンビナトリアルに変化させ、様々な構造の電極を一度に実現し、FET特性を一度に計測できる。AFM観察によれば、電極と誘電体層の段差は $1 \text{ nm}$ 以下であった(図4)。この超平坦マイクロ電極を用いてペンタセンFETを作製したところ、移動度約 $0.01 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ と、比較的良好な値が得られた。また、微細電子線露光技術を用いて、

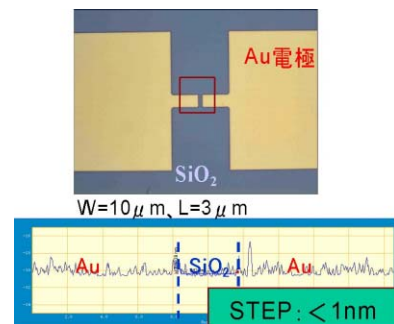


図4、超平坦マイクロ電極の光学顕微鏡像とAFM断面プロファイル

10 nmオーダーのデバイス構造を作製するため、ギャップ構造を形成するための基礎技術を確立した。

#### ④ 福元G

分子エレクトロニクス用フルオレンをベースとした新有機半導体の合成

電子・光学的に特異な性質を有する棒状π共役有機分子として、発光特性を有するフルオレンをベースとしたπ共役高分子

(図5)を合成した。合成した各高分子はいずれも450-500 nmにフルオレン類に見られる発光が観測された。また、これらの薄膜は遷移金属錯体と反応し、その蛍光強度が変化することから化学センサーとしての役割も有することも明らかにした。

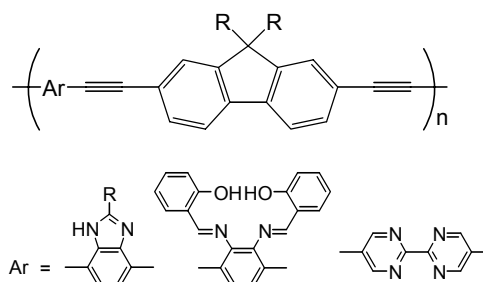


図5、フルオレンベースπ共役高分子

### 3. 研究実施体制

#### 鯉沼グループ

- ① 研究分担グループ長：鯉沼 秀臣（東京工業大学 応用セラミックス研究所、教授）
- ② 研究項目：電界効果デバイスの作製・集積化技術の開発

#### 福元グループ

- ① 研究分担グループ長：福元 博基（東京工業大学 資源化学研究所、助手）
- ② 研究項目：ナノスケールFETの作製を指向したπ共役有機高分子の合成とその特性評価

#### 角谷グループ

- ① 研究分担グループ長：角谷 正友（静岡大学 工学部 電気電子工学科、助手）
- ② 研究項目：内部電界効果による無機半導体薄膜の新機能探索

#### 和田グループ

- ① 研究分担グループ長：和田 恭雄（早稲田大学ナノテクノロジー研究所、教授）
- ② 研究項目：有機ナノ構造機能素子と集積化技術の開発

### 4. 主な研究成果の発表（論文発表および特許出願）

#### (1) 論文発表

##### ① 鯉沼G

- R. Takahashi, Y. Matsumoto, H. Koinuma  
Recognition of the Atomic Termination Layer in Perovskite Oxide Substrates by Reflection High Energy Diffraction  
*Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, L389-L390, 2003
- Terajima, K. A. Chaudhary, K. Inomata, H. Koinuma

- Fabrication of carbonaceous thin films and clusters using the low temperature rf plasma generated under atmospheric pressure  
*New diamond and frontier carbon technology*, **13**, 231-244, 2003
- Y. Matsumoto, H. Koinuma, T. Hasegawa, I. Takeuchi, F. Tsui, and Young K. Yoo  
 Combinatorial Investigation of Spintronic Materials  
*MRS Bulletin*, **28**, 734-739, 2003
- C.H. Chia, T. Makino, Y. Segawa, M. Kawasaki, A. Ohtomo, K. Tamura, and H. Koinuma  
 Confinement-Enhanced Biexcitation Binding Energy in ZnO/ ZnMgO Multi-Quantum Wells  
*Appl. Phys. Lett.*, **82**, 1848-1850, 2003
- X.J. Fan, H. Koinuma and T. Hasegawa  
 Ferromagnetic Correlation and Metallic Behavior in Slightly Electron-Doped Antiferromagnetic CaMnO<sub>3</sub>  
*Physica B*, **329**, 723-724, 2003
- T. Fukumura, Y. Yamada, K. Tamura, K. Nakajima, T. Aoyama, A. Tsukazaki, M. Sumiya, S. Fuke, Y. Segawa, T. Chikyow, T. Hasegawa, H. Koinuma, M. Kawasaki  
 Magneto-Optical Spectroscopy of Anatase TiO<sub>2</sub> Doped with Co  
*Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, L105-L107, 2003
- H. Hayashi, A. Ishizaka, M. Haemori, H. Koinuma  
 Bright blue phosphors in ZnO-WO<sub>3</sub> binary system discovered through combinatorial methodology  
*Appl. Phys. Lett.*, **82**, 1365-1367, 2003
- K. Horiba, H. Ohguchi, H. Kumigashira, M. Oshima K. Ono N. Nakagawa M. Lippmaa M. Kawasaki H. Koinuma  
 A high-resolution synchrotron-radiation angle-resolved photoemission spectrometer with in situ oxide thin film growth capability  
*Rev. Sci. Instrum.*, **74**, 3406-3412, 2003
- Faruque M. Hossain, J. Nishii, S. Takagi, A. Ohtomo, T. Fukumura, H. Fujioka, H. Ohno, H. Koinuma, M. Kawasaki  
 Modeling and simulation of polycrystalline ZnO thin film transistors  
*J. Appl. Phys.*, **94**, 7768-7777, 2003
- Z. -W. Jin, Y. -Z. Yoo, T. Chikyow, T. Sekiguchi, H. Ofuchi, H. Fujioka, M. Oshima, H. Koinuma  
 Blue and ultraviolet cathodoluminescence from Mn-doped epitaxial ZnO thin

films

*Appl. Phys. Lett.*, **83**, 39–41, 2003

- T. Koida, S. Chichibu, A. Uedono, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, T. Sota, Y. Segawa, H. Koinuma  
Correlation between the photoluminescence lifetime and defect density in bulk and epitaxial ZnO  
*Appl. Phys. Lett.*, **82**, 532–534, 2003
- Y. Konishi, M. Ohsawa, Y. Yonezawa, Y. Tanimura, T. Chikyow, T. Wakisaka, H. Koinuma, A. Miyamoto, M. Kubo, K. Sasata  
Possible Ferroelectricity in SnTiO<sub>3</sub> by First-Principles Calculations  
*Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **748**, 211–216, 2003
- H. Kumigashira, K. Horiba, H. Ohguchi, K. Ono, and M. Oshima N. Nakagawa, M. Lippmaa, M. Kawasaki H. Koinuma  
In situ photoemission characterization of terminating-layer-controlled La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>MnO<sub>3</sub> thin films  
*Appl. Phys. Lett.*, **82**, 3430–3432, 2003
- T. Makino, K. Tamura, C. H. Chia, Y. Segawa, M. Kawasaki, A. Ohtomo, and H. Koinuma  
Temperature Quenching of Exciton Luminescence Intensity in ZnO/(Mg,Zn)O Multiple  
*J. Appl. Phys.*, **93**, 5929–5933, 2003
- T. Makino, Y. Segawa, M. Kawasaki, Y. Matsumoto, H. Koinuma, M. Murakami, R. Takahashi  
Temperature dependence of absorption spectra in anatase TiO<sub>2</sub> epilayers  
*J. Phys. Soc. Jpn.*, **72**, 2696–2697, 2003
- T. Makino, K. Tamura, C. H. Chia and Y. Segawa, M. Kawasaki and A. Ohtomo, H. Koinuma  
Absorption-edge singularity observed at room-temperature in n-type ZnO thin films  
*Proc. Conference on the Physics of Semiconductors*, **D27**, 1–6, 2003
- J. Nishii, F. M. Hossain, T. Aita, Y. Ohmaki, S. Kishimoto, T. Fukumura, Y. Ohno, H. Ohno, S. Takagi, K. Saikusa, I. Ohkubo, A. Ohtomo, F. Matsukura, H. Koinuma, M. Kawasaki  
High Mobility Thin Film Transistors with Transparent ZnO Channels  
*Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, L347–L349, 2003
- J. Nishimura, T. Fukumura, M. Ohtani, Y. Taguchi, M. Kawasaki, I. Ohkubo, H. Koinuma, H. Ohguchi, K. Ono, M. Oshima, Y. Tokura

Fabrication of spin-frustrated Sm<sub>2</sub>Mo<sub>2</sub>O<sub>7</sub> epitaxial films: High throughput optimization using a temperature gradient method

*Appl. Phys. Lett.*, **83**, 1571-1573, 2003

- I. Ohkubo, Y. Matsumoto, H. Koinuma, K. Ueno, T. Chikyow, M. Kawasaki  
Synthesis of epitaxial Y-type magnetoplumbite thin films by quick optimization with combinatorial pulsed laser deposition  
*J. Crystal Growth*, **247**, 105-109, 2003
- K. Shibuya, T. Ohinishi, M. Kawasaki, H. Koinuma, M. Lippmaa  
Growth and structure of wide-gap insulator films on SrTiO<sub>3</sub>  
*Solid. State. Elec.*, **47**, 2211-2214, 2003
- K. Shibuya, T. Ohinishi, M. Kawasaki, H. Koinuma, M. Lippmaa  
Materials selection for SrTiO<sub>3</sub>-based epitaxial oxide field-effect devices  
*Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, **747**, 275-280, 2003
- J.H. Song, T. Chikyow, Y.Z. Yoo, T. Sekiguchi, K. Nakajima, T. Aoyama, P. Ahmet, H. Koinuma  
Growth of non-polar a-plane III-nitride thin films on Si (100) using non-polar plane buffer layer  
*Phys. stat. sol.*, **0**, 2520-2524, 2003
- K. Tamura, T. Makino, A. Tsukazaki, M. Sumiya, S. Fuke, T. Furumochi, M. Lippmaa, C. H. Chia, Y. Segawa, H. Koinuma, and M. Kawasaki  
Donor-acceptor pair luminescence in nitrogen-doped ZnO films grown on lattice-matched ScAlMgO<sub>4</sub> (0001) substrates  
*Solid State Communications*, **127**, 265-269, 2003
- A. Tsukazaki, A. Ohtomo, S. Yoshida, M. Kawasaki, C.H. Chia, T. Makino, Y. Segawa, T. Koida, S. F. Chichibu, and H. Koinuma  
Layer-by-layer growth of high-optical-quality ZnO film on atomically smooth and lattice relaxed ZnO buffer layer  
*Appl. Phys. Lett.*, **83**, 2784-2786, 2003
- Uedono, T. Koida, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, Z.Q. Chen, S.F. Chichibu, H. Koinuma  
Defects in thin ZnO films grown on ScAlMgO<sub>4</sub> substrates probed by a monoenergetic positron beam  
*J. Appl. Phys.*, **93**, 2481-2485, 2003
- Y.-Z. Yoo, P. Ahmet, Zheng-Wu Jin, K. Nakajima, T. Chikyow, M. Kawasaki, Y. Konishi, Y. Yonezawa, J. H. Song, H. Koinuma  
45° rotational epitaxy of SrTiO<sub>3</sub> thin films on sulfide-buffered Si  
*Appl. Phys. Lett.*, **82**, 4125-4127, 2003

- Y. Z. Yoo, T. Chikyow, M. Kawasaki, T. Onuma, S.F. Chichibu, T. Koinuma  
Heteroepitaxy of Hexagonal ZnS Thin Films Directly on Si (111)  
*Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, 7029-7032, 2003
- K. S. Yun, Y. Matsumoto, S. Arisawa, Y. Takano, A. Ishii, T. Hatano, K. Togano, M. Kawasaki, H. Koinuma  
Synthesis and characterization of single crystalline REBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-y</sub> thin film grown by tri-phase epitaxy  
*IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, **13**, 2813-2816, 2003
- P. Zhang, L. H. Mann, K. Wakatsuki, K. Tamura, T. Ohnishi, M. Lippmaa, N. Usami, M. Kawasaki, H. Koinuma, and Y. Segawa  
In-plane orientation and polarity of ZnO epitaxial films on as-polished sapphire ( $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) (0001) substrates grown by metal organic chemical vapor deposition  
*Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, L264-L266, 2003
- XQ. Zhang, ZK. Tang, M. Kawasaki, A. Ohtomo, H. Koinuma  
Resonant exciton second-harmonic generation in self-assembled ZnO microcrystallite thin films  
*J. Phys.-Condes. Matter*, **15**, 5191-5196, 2003
- X. Q. Zhang, Z. K. Tang, M. Kawasaki, A. Ohtomo, H. Koinuma  
Optical gain in self-assembled ZnO microcrystallite thin films  
*J. Cryst. Growth*, **259**, 286-290, 2003
- M. Zhu, T. Chikyow, P. Ahmet, T. Naruke, M. Murakami, Y. Matsumoto, H. Koinuma  
A high-resolution transmission electron microscopy investigation of the microstructure of TiO<sub>2</sub> anatase film deposited on LaAlO<sub>3</sub> and SrTiO<sub>3</sub> substrates by laser ablation  
*Thin Solid Films*, **441**, 140-144, 2003
- N. Matsuki, Y. Abiko, K. Miyazaki, M. Kobayashi, H. Fujioka, H. Koinuma  
Concept and performance of field-effect amorphous silicon solar cell  
*Semicond. Sci. Tech.*, **19**, 61-64, 2004
- W. Q. Lu, Y. Yamamoto, I. Ohkubo, V. V. Petrykin, M. Kakihana, Y. Matsumoto, H. Koinuma  
Highly c-oriented RuSr<sub>2</sub>(Eu<sub>1.5</sub>Ce<sub>0.5</sub>)Cu<sub>2</sub>O<sub>10- $\delta$</sub>  Thin Film Growth by Pulsed Laser Deposition and Subsequent Post-annealing  
*Physica C*, **403**, 21-24, 2004
- R. Takahashia, Y. Matsumotob, T. Kohnoc, M. Kawasakid, H. Koinuma  
Fabrication of Nd<sub>1-x</sub>CaxBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-d</sub> (x=0 ~ 0.3) single crystalline films by



Tri-Phase Epitaxy

*Journal of Crystal Growth*, **2004**, 308-312, 2004

- Takeshi Terajima and Hideomi Koinuma  
A cold plasma generator and its applications to combinatorial copolymerization of carbon dioxide with organic molecules  
*Macromolecular rapid communications*, **25**, 312-314, 2004
- K. Itaka, Q.J. Wang, H. Minami, H. Kawaji, H. Koinuma  
Rapid characterization of thermoelectric properties of composition spread (La<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)VO<sub>3</sub> films  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 20-23, 2004
- M. Murakami, Y. Matsumoto, M. Nagano, T. Hasegawa, M. Kawasaki, H. Koinuma  
Combinatorial Fabrication and Characterization of Ferromagnetic Ti-Co-O System  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 245-248, 2004
- T. Ohsawa, Y. Matsumoto, H. Koinuma  
Combinatorial Investigation of Transition Metals Deposited on Anatase TiO<sub>2</sub> Surface  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 84-86, 2004
- T. Wakisaka, T. Koida, Y. Matsumoto, K. Itaka, H. Koinuma  
Sr<sub>2</sub>Rh<sub>1-x</sub>Ru<sub>x</sub>O<sub>4</sub> (0 ≤ x ≤ 1) composition spread film growth on a temperature-gradient substrate by pulsed laser deposition  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 264-267, 2004
- Jun Yamaguchi, Kenji Itaka, Tomohiro Hayakawa, Keiichiro Arai, Mitsugu Yamashiro, Seiichiro Yaginuma, Hideomi Koinuma  
Combinatorial pulsed laser deposition of pentacene films for field effect devices  
*Macromolecular Rapid Communications*, **25**, 334-338, 2004
- M. Murakami, Y. Matsumoto, T. Hasegawa, P. Ahmet, K. Nakajima, T. Chikyow H. Ofuchi, I. Nakai, H. Koinuma  
Cobalt valence states and origins of ferromagnetism in Co doped TiO<sub>2</sub> rutile thin films  
*J. Appl. Phys.*, **95**, 5330-5333, 2004
- T. Ohsawa, Y. Yamamoto, M. Sumiya, Y. Matsumoto, H. Koinuma  
Combinatorial STM study of Cr deposited on Anatase TiO<sub>2</sub>(001) surface  
*Langmuir*, **20**, 3018-3020, 2004
- R. Takahashi, T. Tanigawa, Y. Yamamoto, Y. Yonezawa, Y. Matsumoto, H. Koinuma

High-Throughput Screening of Flux Materials for Single Crystal Growth by Combinatorial Pulsed Laser Deposition

*MRS Fall meeting proceedings*, **804**, JJ9.20.1-6(仮), 2004

- R. Takahashi, H. Kubota, M. Murakami, Y. Yamamoto, Y. Matsumoto, H. Koinuma  
Design of Combinatorial Shadow Masks for Complete Ternary Phase Diagramming of Solid State Materials  
*Journal of Combinatorial Chemistry*, **6**, 50-53, 2004
- Mika Nagano, Tetsuya Hasegawa, Norikatsu Myoujin, Jun Yamaguchi, Kenji Itaka, Hiroki Fukumoto, Takakazu Yamamoto, Hideomi Koinuma  
The First Observation of <sup>1</sup>H-NMR Spectrum of Pentacene  
*Jpn. J. Appl. Phys.*, **43**, 315-316, 2004
- T. Fukumura, Y. Yamada, H. Toyosaki, T. Hasegawa, H. Koinuma, M. Kawasaki  
Exploration of oxide-based diluted magnetic semiconductors toward transparent spintronics  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 62-67, 2004
- K. Hasegawa, P. Ahmet, N. Okazaki, T. Hasegawa, K. Fujimoto, M. Watanabe, T. Chikyow, H. Koinuma  
Amorphous Stability of HfO<sub>2</sub> Based Ternary and Binary Composition Spread Oxide Films as Alternative Gate Dielectric  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 229-232, 2004
- F. M. Hossain, J. Nishii, S. Takagi, A. Ohtomo, T. Fukumura, H. Fujioka, H. Ohno, H. Koinuma, M. Kawasaki  
Modeling and simulation of polycrystalline ZnO thin film transistors  
*Physica E*, **21**, 911-915, 2004
- H. Kubota, R. Takahashi, T.-W. Kim, T. Kawazoe, M. Ohtsu, N. Arai, M. Yoshimura, H. Nakao, H. Furuya, Y. Mori, T. Sasaki, Y. Matsumoto, H. Koinuma  
Combinatorial synthesis and luminescent characteristics of RECa<sub>40</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> epitaxial thin films.  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 241-244, 2004
- T. Makino, A. Ohtomo, C.H. Chia, Y. Segawa, H. Koinuma, M. Kawasaki  
Internal Electric Field Effect on Luminescence Properties of ZnO/(Mg,Zn)O Quantum Wells  
*Physica E*, **21**, 671-675, 2004
- J. Okabayashi, K. Ono, M. Mizuguchi, M. Oshima, Subhra Sen Gupta, D. D. Sarma, T. Mizokawa, A. Fujimori, M. Yuri, C. T. Chen, T. Fukumura, M.

Kawasaki, H. Koinuma

- X-ray absorption spectroscopy of transition-metal doped diluted magnetic semiconductors  $Zn_{1-x}M_xO$   
*J. Appl. Phys.*, **95**, 3573-3575, 2004
- M. Ohtani, T. Makino, K. Yamamoto, Y. Segawa, T. Fukumura, H. Sakurada, J. Nishimura, H. Koinuma, M. Kawasaki  
High-throughput characterization of linear and nonlinear optical properties in composition-spread  $(Sr,Ca)_2CuO_3$  thin films  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 133-137, 2004
- N. Okazaki, S. Okazaki, H. Higuma, S. Miyashita, Y. Cho, J. Nishimura, T. Fukumura, M. Kawasaki, M. Murakami, Y. Yamamoto, Y. Matsumoto, H. Koinuma, T. Hasegawa  
Characterization of  $LiNb_{1-x}Ta_xO_3$  composition-spread thin film by the scanning microwave microscope  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 196-199, 2004
- Keisuke Shibuya, Tsuyoshi Ohnishi, and Mikk Lippmaa Masashi Kawasaki Hideomi Koinuma  
Domain structure control of epitaxial  $CaHfO_3$  gate insulator films on  $SrTiO_3$   
*Appl. Phys. Lett.*, **84**, 2412-2414, 2004
- H. Sugaya, S. Okazaki, T. Hasegawa, N. Okazaki, J. Nishimura, T. Fukumura, M. Kawasaki and H. Koinuma  
Photo-induced magnetism in perovskite-type Mn oxides investigated by using combinatorial methodology  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 68-72, 2004
- R. Takahashi, H. Kubota, T. Tanigawa, M. Murakami, Y. Yamamoto, Y. Matsumoto, H. Koinuma  
Development of a new combinatorial mask for addressable ternary phase diagramming: application to rare earth doped phosphors  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 249-252, 2004
- K. Terai, T. Ohnishi, M. Lipmaa, H. Koinuma, M. Kawasaki  
Magnetic properties of strain-controlled  $SrRuO_3$  thin films  
*Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**, L227 - L229, 2004
- H. Toyosaki, T. Fukumura, Y. Yamada, K. Nakajima, T. Chikyow, T. Hasegawa, H. Koinuma, M. Kawasaki  
Anomalous Hall effect governed by electron doping in a room-temperature transparent ferromagnetic semiconductor

*Nature Materials*, **3**, 221-224, 2004

- A. Tsukazaki, A. Ohtomo, M. Kawasaki, T. Makino, C. H. Chia, Y. Segawa, H. Koinuma

Emission from the higher member of exciton ( $n = 2$ ) in ZnO films grown on annealed buffer templates

*Appl. Phys. Lett.*, **84**, 3858-3860, 2004

- Y. Yamamoto, R. Takahashi, Y. Matsumoto, T. Chikyow, H. Koinuma  
Mathematical design of linear action masks for binary and ternary composition spread film library

*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 9-13, 2004

- Y.-Z. Yoo, T. Sekiguchi, T. Chikyow, M. Kawasaki, T. Onuma, S.F. Chichibu, J.H. Song, H. Koinuma

V defects of ZnO thin films grown on Si as an ultraviolet optical path

*Appl. Phys. Lett.*, **84**, 502-504, 2004

- X. Q. Zhang, Z. K. Tang, M. Kawasaki, A. Ohtomo and H. Koinuma

Second harmonic generation in self-assembled ZnO microcrystallite thin films

*Thin Solid Films*, **450**, 320-323, 2004

- X. R. Zhao, N. Okazaki, Y. Konishi, K. Akahane, Z. Kuang, T. Ishibashi, K. Sato, H. Koinuma and T. Hasegawa

Magneto-optical imaging for high-throughput characterization of combinatorial magnetic thin films

*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 73-77, 2004

## ② 福元G

- Takakazu Yamamoto, Yutaka Saitoh, Kazushige Anzai, Hiroki Fukumoto, Takuma Yasuda, Yoshiki Fujiwara, Byoung-Ki Choi, Kenji Kubota, and Takayuki Miyamae

Poly(1,10-phenanthroline-3,8-diyl) and Its Derivatives. Preparation, Optical and Electrochemical Properties, Solid Structure, and Their Metal Complexes

*Macromolecules*, **36**, 6722-6729, 2003

- Hiroki Fukumoto, Yukiko Muramatsu, Takakazu Yamamoto, Jun Yamaguchi, Kenji Itaka, Hideomi Koinuma

Combinatorial Physical Vapor Deposition of  $\pi$ -Conjugated Organic Thin Film Libraries

*Macromolecular Rapid Communications*, **25**, 196-203, 2004

③ 角谷 G

- M. Sumiya, S. Fuke, A. Tsukazaki, K. Tamura, A. Ohtomo, M. Kawasaki, H. Koinuma  
Quantitative control and detection of heterovalent impurities in ZnO thin films grown by pulsed laser deposition  
*J. Appl. Phys.*, **93**, 2562-2569, 2003
- M. Sumiya, A. Tsukazaki, A. Ohtomo, S. Fuke, H. Koinuma, M. Kawasaki  
SIMS Analysis for ZnO Films Co-Doped with N and Ga by Using Temperature Gradient Method in Pulsed Laser Deposition  
*Appl. Surf. Sci.*, **223**, 206-209, 2004

④ 和田 G

- K. Tagami, M. Tsukada, Y. Wada, T. Iwasaki and H. Nishide  
Electronic Transport of Benzothiophene-based Chiral Molecular Solenoids Studied by Theoretical Simulations  
*The Journal of Chemical Physics*, **119**, 7491-7497, 2003

(2) 特許出願

H15年度特許出願件数：6件（CREST研究期間累積件数：8件）