

東京工業大学フロンティア創造共同研究センター 教授

鯉沼 秀臣

「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. 研究実施の概要

1.1 基本構想

科学技術の進歩は、新しい物質や応用機能の発見ばかりでなく、研究開発の効率を飛躍的に高める手法の提案とそのシステム化によってもたらされる。大量の実験データを系統的かつ高速に蓄積し、処理することは、単なる量的問題ではなく、研究開発の質を向上させ、優先権の確保にもつながる。溶液系有機合成の高速化に成功をおさめたコンビナトリアルケミストリーの考え方を、方法的には全く異なる固体材料に展開するシステムを発想し、本プロジェクト提案を行った。従来の1つ1つ作ってはテストする方法に代わって、コンビナトリアル手法は目的とする物質、材料の探索に最も影響すると考えられる（または計算で予測した）因子（組成、種々の作製条件）を系統的に変え、その影響を高速かつ定量的に評価する科学的手法である。その基本は1つ1つの反応系を小型化し、多数集積化・自動化することにある。本研究は、固体材料・デバイス用のコンビナトリアルテクノロジーを世界に先駆けて開発するとともに、特に1つ1つを分子層レベルで制御した集積化材料ライブラリーを構築するシステムを開発し、ナノ固体材料開発速度を画期的に向上させるばかりでなく、新機能を発見することを目的とした。

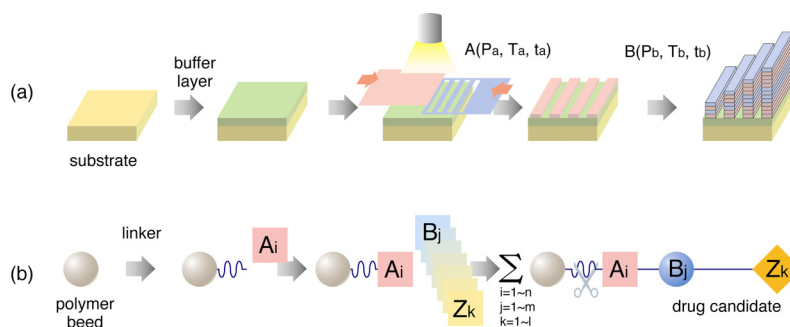


図 2.1.1 コンビナトリアルナノテクノロジーと医薬における
コンビナトリアルケミストリーとの対比

1.2 研究の実施方針と経過

具体的システムとして、すでに開発していたレーザ MBE 法をコンビナトリアルケミストリーの概念と組み合わせ、“コンビナトリアルレーザ MBE”を提案した。1回の実験で、効率良く1～数原子の厚みを有する電荷中性の成長単位を自由に積み重ねた人工超構造を複数集積化したコンビナトリアルライブラリーを作成する反応技術を確認する(図 2.1.1)。また、それに見合う高速評価技術、および高速材料設計のための計算化学プログラムを開発し、高速材料設計、高速材料合成と高速評価の三位一体のシステム構築を第一の目的とした。次にこのシステムの有用性を半導体よりも遥かに多彩な基礎物性を有するセラミックス、および有機材料に展開し、実証した。さらに、次元制御された新物質構造(人工結晶、超格子、量子細線、量子ドット)をパラレル合成し、構造と物性の相関を系統的に調

べ、新規材料探索を積極的に推し進めた。

このような研究を推進するに当たって、コンビナトリアル材料開発の3本柱である、高速材料設計（宮本グループ）、高速材料合成（鯉沼、山本グループ）、および高速材料評価（瀬川グループ）の研究拠点を配置した。最終年度では、高速材料評価に強力なサポートを得るため、新たに川崎グループを組織した。

合成システム（ハードウェア）の開発では、まず、酸化物薄膜の原子レベル成長を可能にするレーザ MBE 装置にマスキング機構を組み込み、1枚の基板上をいくつかの堆積領域に区分けし、異なる組成・構造の薄膜を、一度に（パラレル型）もしくは連続的に（シーケンシャル型）堆積することが可能なコンビナトリアルレーザ MBE 装置の設計コンペを行った。一流メーカーが尻込みするなか、パスカル社が強い関心を示し、設計をつめて世界に先駆けた新装置を開発した（日米特許取得）。ベル研究所にも本装置が納入される実績を有し、さらに第3世代のコンビナトリアルレーザ MBE 装置は、“Mobile Combi-PLD”として、特許化、商品化され、ベンチャー化の可能性も検討され始めている。また、プラズマ CVD プロセスにコンビナトリアル手法を適用したコンビナトリアル PCVD デバイス作製装置やコンビナトリアルスパッタ装置など、レーザアブレーション以外の薄膜プロセスを用いた種々のコンビナトリアル薄膜作製装置の開発も行った。STM などの表面構造評価装置と組み合わせたコンビナトリアル PLD-STM 装置も開発し、様々な材料研究にコンビナトリアル手法が適用できることも実証した。

ハイスループット評価システムの開発では、一括して複数のコンビ試料の X 線回折を短時間で測定できるコンビナトリアル X 線回折装置を理学電機と共同開発を行った。本装置により、超格子の周期や組成の違いによる回折ピークの系統的な変化を高速に評価することが可能となった。一方、原子レベルでの構造解析には、日立製の“マイクロサンプリングシステム”を用いて、コンビナトリアル薄膜ライブラリーの任意の組成／構造に対応した箇所断面 TEM 観察を高速に行うシステムを確立した（物質・材料研究機構、知京らとの共同研究）。物性評価では、熱電材料のコンビナトリアル探索のために、多チャンネル型の熱電材料評価装置を開発した。high-k 材料の探索のためには、パークレー国立研究所の試作した円筒共振型のマイクロ波顕微鏡を導入し、テストした。東工大・応セラ研の長谷川との共同研究では、従来主として超伝導体のボルテックス観察に用いられてきた走査型 SQUID 顕微鏡が、遷移金属ドーパ希薄磁性半導体のコンビナトリアル探索に有効であることを明らかにした。

インフォマティクス・計算化学プログラムの開発では、コンビナトリアル計算化学の提唱とそのための高速量子分子動力学計算プログラムの開発などの成果を得るとともに、Lab ViewTM プログラムによる、種々のコンビナトリアルシステムの自動化制御ソフトの開発も併せて行った。

5年の研究期間の半分は、このような高速合成、高速評価装置、ならびに種々の高速計算化学プログラムの独自開発期間に当てられた。研究期間の後半は、これらの道具立てを

積極的に活用し、コンビナトリアル材料探索を実践し、本手法の有効性を実証した。代表的な材料探索の成果を各サブグループを代表とする成果とともに以下にまとめる。より詳細な成果は4節に述べる。

鯉沼グループ

コンビナトリアル手法を用いた材料合成において、(1) 新材料の探索、(2) 薄膜の作製条件の最適化、(3) デバイス構造に用いる各材料の組み合わせの最適化、について、主な成果を示す。

(1) 遷移金属イオンを系統的に添加した ZnO と TiO₂ から、Co をドーピングした ZnO が、低温で吸収端付近の紫外光領域の波長の光で、CdMnTe のそれに匹敵するファラデー回転効果を有することを見出し、さらに、Co をドーピングした TiO₂ では、室温で透明かつ強磁性的であることを新たに見出した。

(2) Y 型マグネトプラムバイト (化学式 : Ba₂Co₂Fe₁₂O₂₂ : Co₂Y) は、GHz 帯の優れた高周波透磁率材料である。43.5A の超巨大格子定数を有するこの材料の薄膜は全く報告がなかったが、CoO バッファ層の最適化にコンビ薄膜作製技術を適用することで、世界で初めてこの Co₂Y 薄膜の作製に成功した。

(3) 我々が提案した電界効果による内部電界でキャリアを収集する構造の「電界効果型 a-Si:H 太陽電池」をコンビナトリアル PCVD-PLD 法を用いて、高速最適化を行い、電界効果による太陽電池特性の向上を実証した。

瀬川グループ

格子整合基板 SCAM 上に ZnO/MgZnO の種々の多重量子井戸構造をコンビナトリアル合成することで、光学特性の変化を系統的に調べることが出来た。その結果、量子効率が GaN に匹敵する高いものであること、量子井戸の閉じこめ効果により、励起子の束縛エネルギーが最大 90meV 程度まで増加し、光学フォノンエネルギーを大幅に凌駕することなどを見出した。

宮本グループ

高速化量子分子動力学法などの新しい計算化学プログラムを開発し、従来に比べて 5000 倍の高速計算を可能にするとともに、「コンビナトリアル計算化学」という新しい計算化学の概念を提唱した。「コンビナトリアル計算化学」の有効性を実証するため、ゼオライト触媒の耐水性、耐 SO_x 性を有するイオン交換ゼオライトの高速スクリーニングを行った。その結果、まったく新しい IrZSM-5 触媒の理論的予測に成功した。

山本グループ

π 共役高分子の分子配列の制御をニッケルやパラジウムなどの有機金属錯体を用いたジハロゲン化芳香族化合物の重縮合により、可能にすることを見出した。また、このようにして新たに合成された π 共役高分子をコンビナトリアル真空蒸着法を用いて、様々な組み合わせの多層集積膜を作成し、蛍光特性の最適化を高速に行った。さらに、pn 接合や有機太陽電池の有機デバイスの作成にもコンビ手法を適用し、有機デバイスの開発にコンビナトリアル手法が有用であることを実証した。

川崎グループ

一括して複数のコンビ試料の X 線回折を短時間で測定できるコンビナトリアル X 線回折装置を理学電機と共同開発した。一括 X 線回折装置では、X 線の発散を利用したパラレル評価法を採用し、イメージングフィルター上への約 5 秒の露光で 1 枚の基板に集積された薄膜超格子の主ピークとサテライトピークを 1 度に解析できることを実証した。さらにコンポジションスプレッドによる組成変調に依存した格子定数の変化、ストレスの緩和などの現象を高速にかつ詳細に調べることができた。

2. 研究構想

医薬品開発の定法となってきたコンビナトリアルケミストリーとは、例えば、小型試験管のようなマイクロな反応場を多数用意し、x 軸、y 軸に系統的に原料や反応条件を変化させ、1 回の実験で目的とする物を効率よく見つけ出す方法である。実際には、前段階として、計算化学による最適原料や反応条件の予測、後段に生成物の高速評価があり、各プロセスの自動化も重要な因子である。均一溶液系では、メルフィールド法と呼ばれる不溶化したポリマービーズを用いることで、マイクロの反応場を規定し、図 2.1.1(b)に示すような、固液界面での反応とリンスによる精製を繰り返しながら、次々と系統的にアミノ酸を反応させていく。

このコンビナトリアルケミストリーの手法を固体材料にも使えると最初に考えついたのが、ちょうど 6 年前に製薬会社にいる友人からこの話を聞いたときであった。後に判明したことであるが、すでにアメリカのローレンスバークレーの研究グループが、俗に言う、Precursor 法と呼ばれる無機材料のコンビナトリアル開発を報告した時期でもあった。マスクングによって複数の蒸着源からの薄膜堆積の場所を、時間によって厚み（組成）を制御し、1 枚の基板上に多数の系統的に積層膜厚または混合比の異なる膜を作成し、その後、適当な温度と雰囲気下で焼き固めるといった簡便な方法である。コンビナトリアルと言っても、有機物の場合のように結合の配列は制御されず、古典的な焼結をパラレルに行う第一世代のコンビナトリアル材料探索手法であった。当時、我々はレーザー MBE 法を用いた酸化物薄膜の原子レベル成長技術を確立しつつある時期にあり、図 2.1.1(a)に示すような、メルフィールド法の 2 次元化によるコンビナトリアル格子工学へと展開することに

より、パークレーの研究グループのそれよりも、さらに発展した「コンビナトリアル分子層エピタキシー技術」を確立できることを本戦略基礎研究事業に提案した。幸いにも採択していただいたのが本研究の始まりである。東北大の宮本チーム（計算化学）、理研の瀬川チーム（光物性）と東工大の山本（ π 共役ポリマー）、そして、最終年度には川崎チーム（酸化物、高速評価）を新たに加え、コンビナトリアルケミストリーの3本柱である、「高速合成」、「高速評価」、および「高速材料設計」の三位一体の取り組みにより、研究を行った。

まずはじめは、装置設計と開発である。VP社の石田氏とパスカル社の協力を得て、2種類のコンビナトリアルレーザMBE装置を試作した。1つは、基板のレーザ加熱機構と走査型RHEEDとの組み合わせにより、ナノ構造超格子を一枚の基板に集積化して作成することに特化したコンビナトリアル超格子作成装置である。もう1つは、研究開始当時、新規高温超伝導体を発見することを想定して設計したスーパーコンビ装置である。基板の表面処理、コンビナトリアル製膜、酸素量を制御するポストアニール用の3つの真空チャンバーを大型真空槽内に設置し、各チャンバー間の試料搬送と外部との基板受け渡し機構により、コンビナトリアルライブラリーの作成を空間的だけでなく、時間的にも集約化して実験効率を飛躍的に高めることが可能である。

高速評価装置の開発では、市販の装置ではあるが、コンビナトリアル評価に活用できる可能性をいち早く検討し、走査型SQUID顕微鏡やマイクロ波顕微鏡、顕微赤外分光器やマイクロサンプリング法などの評価手法が、高速評価に有効であることを示した。一方で、一括X線回折装置やマルチチャンネル光物性評価装置、マルチチャンネル熱電評価装置など、独自に開発を行ったものも少なくない。

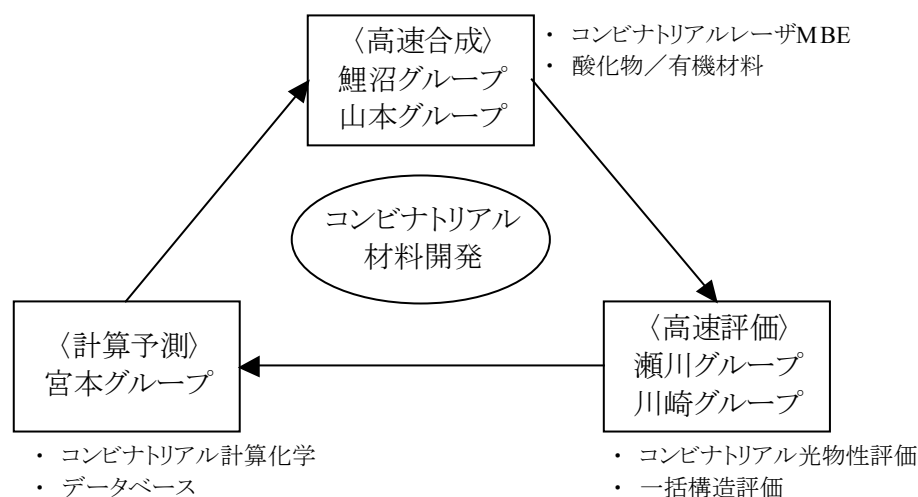
高速材料設計では、反応条件の予測を目的とした結晶成長シミュレーションプログラムの開発から始まった研究も、やがて、計算化学そのものにコンビナトリアルケミストリー概念を導入した「コンビナトリアル計算化学」概念を提案するに至った。

一方でコンビナトリアル手法を取り入れた様々な合成装置や評価装置が充実してくると、予想もしなかった問題点も生じた。コンビナトリアル手法を用いた実験では、一度に得られるデータは、通常の10倍にも100倍にも達する。この膨大なデータを各装置間で試料のアドレスなどのやりとりをしつつ、得られた結果を相互に関連づけて解析し、すべてを有効利用することは、それこそ“人の手”では、ほとんど不可能に近いことが分かった。現在では、インフォマティクス、もしくはデータマイニングと呼ばれる高度な情報処理技術をコンビナトリアルケミストリーに導入することを試み始めたが、急務な課題の1つである。

研究全体としては、概ね順調に研究を進めることが出来たと感じている。この分子層エピタキシー技術をベースにしたコンビナトリアル材料開発研究は、日米を中心としたコンビナトリアル研究に関するシンポジウムの相次ぐ開催に見るように、今まさに大きく発展しようとする研究分野である。本プロジェクトが終了するのは残念なことではあるが、本プロジェクトで得た成果をもとに、本研究はコンビナトリアル手法を様々な材料に適用す

ることを目的とした文部科学省の Comet プロジェクトへと展開している。本研究プロジェクトは、そういう意味で時代を先取りした戦略的基礎研究にふさわしいプロジェクトであったと確信している。

3. 研究実施体制



4. ワークショップ・シンポジウム等

年月日	名称	場所	参加人数	概要
平成 8 年 11 月 3 日	第 1 回鯉沼戦略研究会	東京工業大学 応用セラミックス研究所	20	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 8 年 12 月 26-27 日	第 2 回鯉沼戦略研究会	宮城県松島町 「ホテルの坊」	20	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 9 年 2 月 28 日- 3 月 1 日	第 3 回鯉沼戦略研究会	盛岡市愛真館	25	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 9 年 6 月 6-7 日	第 4 回鯉沼戦略研究会	山形大学工学部	25	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 9 年 9 月 9-10 日	第 5 回鯉沼戦略研究会	湯河原厚生年金会館	25	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 10 年 3 月 10-11 日	第 6 回鯉沼戦略研究会	東北大学金属材料研究所	25	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 10 年 7 月 3-4 日	第 7 回鯉沼戦略研究会	福島県西白河郡西郷村 大黒屋	25	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 10 年 11 月 6-7 日	第 8 回鯉沼戦略研究会	福島県郡山市熱海町 磐梯向滝	25	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 11 年 2 月 27-28 日	第 9 回鯉沼戦略研究会	新潟県蓬平町 よもやま館	25	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 11 年 6 月 3-4 日	第 10 回鯉沼戦略研究会	宮城県松島町 「ホテルの坊」	25	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 11 年 6 月 21-22 日	第 2 回 CREST 計算化学研究会	仙台 青葉記念会館	50	計算化学に関する最新の 研究成果の発表及び討論
平成 11 年 8 月 6 日	分子シミュレーション 工学シンポジウム	仙台国際センター	30	計算化学に関する最新の 研究成果の発表及び討論

年月日	名称	場所	参加人数	概要
平成 11 年 8 月 24 日	Indo-Japan Workshop on Materials Design by Computer Simulation	仙台 日立 HIT プラザ	50	計算化学に関する最新の 研究成果の発表及び討論
平成 11 年 9 月 1-4 日	1999 年秋季応用物理学会 シンポジウム 「コンビナトリアル手法 による材料開発とデバ イスへの応用」	甲南大学	50	コンビナトリアル材料科 学に関する最新の研究成 果の発表及び討論
平成 11 年 10 月 4-5 日	第 11 回鯉沼戦略研究会	福島県福島市 ホテル天竜閣	25	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 12 年 1 月 23-28 日	SPIE Symp. on Integrated Optoelectronics “Combinatorial and Composition Spread Techniques in Materials and Device Development”	サンノゼ	50	コンビナトリアル材料科 学に関する最新の研究成 果の発表及び討論
平成 12 年 2 月～7 月 (第 1 期)	化学技術戦略推進機構・ 調査委員会			機能材料設計へのコンビ ナトリアル手法の適用可 能性調査研究
平成 12 年 3 月 7-8 日	第 12 回鯉沼戦略研究会	信州大学 地域共同研究センター	30	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 12 年 5 月 29 日	「触媒とコンピュータケ ミストリーの新展開」 講演会	仙台 青葉記念会館	30	触媒と計算化学に関する 最新の研究成果の発表及 び討論
平成 12 年 6 月 5-6 日	第 13 回鯉沼戦略研究会	長野県徳高町 セミナーハウス花村	30	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 12 年 8 月 24-25 日	「コンビナトリアルテク ノロジー・戦略的基礎研 究/先導プログラム合同 研究会 (第 14 回)」	宮城県松島町 「ホテルの坊」	40	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 12 年 9 月 ～平成 13 年 3 月 (第 2 期)	化学技術戦略推進機構・ 調査委員会			機能材料設計へのコンビ ナトリアル手法の適用可 能性調査研究
平成 12 年 10 月 1-4 日	The 1st Japan-US workshop on Combinatorial Material Science and Technology	ハワイ	50	コンビナトリアル材料科 学に関する最新の研究成 果の発表及び討論
平成 12 年 11 月 1-2 日	第 3 回 CREST 計算化学研 究会	仙台 青葉記念会館	50	計算化学に関する最新の 研究成果の発表及び討論
平成 12 年 12 月 21-22 日	第 15 回鯉沼戦略研究会	福島県会津若松市 瀧の湯	30	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 13 年 1 月 25 日	SPIE Symp. on Integrated Optoelectronics “Combinatorial and Composition Spread Techniques in Materials and Device DevelopmentII”	サンノゼ	50	コンビナトリアル材料科 学に関する最新の研究成 果の発表及び討論
平成 13 年 3 月 20-21 日	「コンビナトリアルテク ノロジー・戦略的基礎研 究/先導プログラム合同研 究会 (第 16 回)」	愛知県蒲郡市 松風園	30	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 13 年 7 月 3-4 日	第 17 回鯉沼戦略研究会	高知共済会館	30	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 13 年 10 月 26-27 日	第 18 回鯉沼戦略研究会	宮城県松島町 「ホテルの坊」	30	各グループ研究発表及び 研究打合せ
平成 13 年 11 月 26-29 日	2001 MRS fall meeting Symposium S “Combinatorial and Artificial Intelligence Methods in Materials Science”	ボストン	60	コンビナトリアル材料科 学に関する最新の研究成 果の発表及び討論

5. 主な研究成果

(1) 原著論文等

鯉沼、川崎グループ

- 1) R. Tsuchiya, M. Kawasaki, H. Kubota, J. Nishino, and H. Koinuma, “YBa₂Cu₃O_{7-δ} Trilayer Junction with nm Thick PrGaO₃ Barrier”, *Appl. Phys. Lett.*, 71, 1570 (1997)
- 2) N. Kanda, M. Kawasaki, T. Kitajima, and H. Koinuma, “Diagnosis of Precipitate Formation in Pulsed Laser Deposition of YBa₂Cu₃O_{7-δ} by Means of in-situ Laser Light Scattering and ex-situ Atomic Force Microscopy”, *Phys. Rev. B*, 56, 8419 (1997)
- 3) N. Kanda, M. Kawasaki, K. Nakano, T. Shiraiishi, A. Takano, and H. Koinuma, “In-situ Optical Diagnosis of Pulsed Laser Deposition and Oxidation of YBa₂Cu₃O_{7-δ} Thin Films”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 36, 2103-2108 (1997)
- 4) H. Koinuma, N. Kanda, J. Nishino, A. Ohtomo, H. Kubota, M. Kawasaki, and M. Yoshimoto, “Laser MBE of Ceramic Thin Films for Future Electronics”, *Appl. Surf. Sci.*, 109/110, 514-519 (1997)
- 5) T. Ohnishi, M. Yoshimoto, G. H. Lee, T. Maeda, and H. Koinuma, “Unit Cell Layer-by-Layer Heteroepitaxy of BaO Thin Films at Temperatures as Low as 20°C”, *Journal of Vacuum Science & Technology A*, 15[5], 2469-2472 (1997)
- 6) T. Ohnishi, A. Ohtomo, M. Kawasaki, T. Takahashi, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, “Determination of Surface Polarity of c-axis oriented ZnO Films by Coaxial Impact-collision Ion Scattering Spectroscopy”, *Appl. Phys. Lett.*, 72 824-826 (1998)
- 7) T. Ohnishi, A. Ohtomo, I. Ohkubo, M. Kawasaki, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, “Coaxial impact-collisions ion scattering spectroscopy analysis of ZnO thin films and single crystals”, *Mat. Sci. Eng. B.*, 56, 256-262 (1998)
- 8) M. Lippmaa, K. Takahashi, T. Ohnishi, S. Ohashi, N. Nakagawa, A. Ohtomo, T. Sato, M. Iwatsuki, H. Koinuma, and M. Kawasaki, “Atom technology for Josephson tunnel junctions: SrTiO₃ substrate surface”, *Mat. Sci. Eng. B.*, 56, 111-116 (1998)
- 9) M. Kawasaki, A. Ohtomo, H. Koinuma, K.Z. Tang, P. Yu, George K.L. Wong., and Y. Segawa, “Room Temperature Ultraviolet Laser Emission from ZnO Nanocrystal Thin Films Grown by Laser MBE”, *Mat. Sci. Eng. B*, 54, 24-28 (1998)
- 10) H. Koinuma, X.G. Qiu, T. Tsuchiya, N. Kanda, J. Nishino, A. Ohtomo, M. Kawasaki, “Dimension controlled epitaxy of quantum functional oxide thin films by pulsed-laser process”, *Appl. Surf. Sci.*, 127-129, 403-409 (1998)
- 11) H. Koinuma, “Quantum Functional oxides and combinatorial chemistry”, *Solid State Ionics* 108, 1-7 (1998)
- 12) T. Ohnishi, K. Takahashi, J. Nakamura, M. Kawasaki, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, “A-site Terminated Perovskite Substrate: NdGaO₃”, *Appl. Phys. Lett.*, 74, 2531-2533 (1999)
- 13) M. Lippmaa, N. Nakagawa, M. Kawasaki, S. Ohashi, Y. Inaguma, M. Itoh, H. Koinuma, “Step-flow growth of SrTiO₃ thin films with a dielectric constant exceeding 10⁴”, *Appl. Phys. Lett.*, 74, 3543-3545 (1999)
- 14) T. Fukumura, Z.W. Jin, A. Ohtomo, H. Koinuma, M. Kawasaki, “A Novel Oxide Diluted Magnetic Semiconductor: Mn doped ZnO”, *Appl. Phys. Lett.*, 75, 3366-3368 (1999)

- 15) A. Ohtomo, R. Shiroki, I. Ohkubo, H. Koinuma, M. Kawasaki, "Thermal stability of supersaturated $Mg_xZn_{1-x}O$ alloy films and $Mg_xZn_{1-x}O/ZnO$ heterointerfaces", *Appl. Phys. Lett.*, 75, 4088-4090 (1999)
- 16) I. Ohkubo, A. Ohtomo, T. Ohnishi, Y. Matsumoto, H. Koinuma, M. Kawasaki, "In-Plane and polar orientations of ZnO thin films grown on atomically sapphire", *Surf. Sci. Lett.*, 443, L1043-1048 (1999)
- 17) H. Koinuma, T. Koinda, T. Ohnishi, D. Komiyama, M. Lippmaa, M. Kawasaki, "Parallel fabrication of artificially designed superlattices by combinatorial laser MBE", *Appl. Phys. A*, 69, S29-S31 (1999)
- 18) Y. Matsumoto, M. Murakami, Z.W. Jin, A. Ohtomo, M. Lippmaa, M. Kawasaki, and H. Koinuma, "Combinatorial Laser Molecular Beam Epitaxy (MBE) Growth of Mg-Zn-O Alloy for Band Gap Engineering", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 38, L603-L605 (1999)
- 19) M. Lippmaa, N. Nakagawa, M. Kawasaki, S. Ohashi, H. Koinuma, "Growth mode mapping of $SrTiO_3$ epitaxy", *Appl. Phys. Lett.*, 76, 2439-2441 (2000)
- 20) 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)
- 21) H. Koinuma, H.N. Aiyer, Y. Matsumoto, "Combinatorial Solid State Material Science and Technology", *Science and Technology of Advanced Materials*, 1, 1-10 (2000)
- 22) 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)
- 23) 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)
- 24) 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)
- 25) M. Lippmaa, N. Nakagawa, T. Kinoshita, T. Furumochi, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Growth dynamics of oxide thin films at temperatures above $1000^\circ C$ ", *Physica C*, 335, 196-200 (2000)
- 26) Z.W. Jin, M. Murakami, T. Fukumura, Y. Matsumoto, A. Ohtomo, M. Kawasaki, and H. Koinuma, "Combinatorial laser MBE synthesis of 3d ion doped epitaxial ZnO thin films", *J. Cryst. Growth*, 214/215, 55-58 (2000)
- 27) Y. Matsumoto, M. Murakami, Z. Jin, A. Nakayama, T. Yamaguchi, T. Ohmori, E. Suzaki, S. Nomura, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Combinatorial synthesis and high throughput evaluation of doped TiO_2 thin films for the development of photocatalysts", *SPIE Proc.*, 3941, 19-27 (2000)
- 28) A. Ohtomo, T. Makino, K. Tamura, Y. Matsumoto, Y. Segawa, Z. Tang, G.K.L. Wong, H. Koinuma, M. Kawasaki, "High throughput optimizations of alloy and doped films based on ZnO and parallel synthesis of $ZnO/Mg_xZn_{1-x}O$ quantum wells using combinatorial laser MBE towards ultraviolet laser", *SPIE Proc.*, 3941, 70-83 (2000)

- 29) K. Omote, T. Kikuchi, J. Harada, M. Kawasaki, A. Ohtomo, M. Ohtani, T. Ohnishi, D. Komiyama, H. Koinuma, "Convergent-beam parallel detection x-ray diffraction system for characterizing combinatorial epitaxial thin films", *SPIE Proc.*, 3941, 84-91 (2000)
- 30) 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)
- 31) H. 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)
- 32) T. Fukumura, Z.W. Jin, M. Kawasaki, T. Shono, T. Hasegawa, S. Koshihara, H. Koinuma, "Magnetic properties of Mn-doped ZnO", *Appl. Phys. Lett.*, 78, 958-960 (2001)
- 33) M. Murakami, Y. Matsumoto, K. Nakajima, T. Makino, Y. Segawa, T. Chikyow, P. Ahmet, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Anatase TiO₂ thin films grown on Lattice-matched LaAlO₃ substrate by laser molecular-beam epitaxy", *Appl. Phys. Lett.*, 78, 2664-2666 (2001)
- 34) K. Ando, H. Saito, Ahengwu Jin, T. Fukumura, M. Kawasaki, Y. Matsumoto, H. Koinuma, "Large magneto-optical effect in an oxide diluted magnetic semiconductor Zn_{1-x}Co_xO", *Appl. Phys. Lett.*, 78, 2700-2702 (2001)
- 35) Zhengwu Jin, T. Fukumura, M. Kawasaki, K. Ando and H. Saito, T. Sekiguchi, Y.Z. Yoo, M. Murakami, Y. Matsumoto, T. Hasegawa, H. Koinuma, "High throughput fabrication of transition-metal-doped epitaxial ZnO thin films: A series of oxide-diluted magnetic semiconductors and their properties", *Appl. Phys. Lett.*, 78, 3824-3826 (2001)
- 36) T. Ohnishi, D. Komiyama, T. Koida, S. Ohashi, C. Stauter, H. Koinuma, A. Ohtomo, M. Lippmaa, N. Nakagawa, and M. Kawasaki, T. Kikuchi and K. Omote, "Parallel integration and characterization of nanoscaled epitaxial lattices by concurrent molecular layer epitaxy and diffractometry", *Appl. Phys. Lett.*, 79, 536-538 (2001)
- 37) T.-W. Kim, N. Arai, H. Koinuma, Y. Matsumoto, M. Yoshimura, H. Furuya, H. Nakao, Y. Mori, T. Sasaki, "Atomic-scale surface control and second-harmonic generation in Gd_{1-x}Y_xCa₄O(BO₃)₃ thin films grown by combinatorial laser molecular-beam epitaxy", *Appl. Phys. Lett.*, 79, 1783-1785 (2001)
- 38) M. Ohtani, T. Fukumura, M. Kawasaki, K. Omote, T. Kikuchi, J. Harada, A. Ohtomo, M. Lippmaa, T. Ohnishi, D. Komiyama, R. Takahashi, Y. Matsumoto, H. Koinuma, "Concurrent x-ray diffractometer for high throughput structural diagnosis of epitaxial thin films", *Appl. Phys. Lett.*, 79, 3594-3596 (2001)
- 39) K. Ando, H. Saito, Zhengwu Jin, T. Fukumura, M. Kawasaki, Y. Matsumoto, H. Koinuma, "Magneto-optical properties of ZnO-based diluted magnetic semiconductors", *J. Appl. Phys.*, 89, 7284-7286 (2001)
- 40) Y.-Z. Yoo, T. Fukumura, Zhengwu Jin, K. Hasegawa, M. Kawasaki, P. Ahmet, T. Chikyow, H. Koinuma, "ZnO-CoO solid solution thin films", *J. Appl. Phys.*, 90, 4246-4250 (2001)
- 41) A.K. Sarin Kumar, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Overdoping: a suitable method to get crack-free YBa₂Cu₃O_{7-δ} films", *Supercond. Sci. Technol.*, 14, 1148-1151 (2001)
- 42) Sarin Kumar A.K., T. Itoh, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Fabrication of carrier controlled Y_{1-x}Ca_xBa₂Cu₃O_{7-δ} films on SrTiO₃(100) substrate by pulsed laser deposition", *Physica C*, 349, 83-88 (2001)

- 43) Sarin Kumar A.K., H. Koinuma, M. Iwasaki, X.G. Qiu, Y. Segawa, T. Itoh, M. Kawasaki, E. Saitoh, Y. Tokura, "Observation of Josephson plasma in orientation and carrier-controlled $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ films", *Physica C*, 362, 134-137 (2001)
- 44) X.G. Qiu, H. Koinuma, M. Iwasaki, T. Itoh, Sarin Kumar A.K., M. Kawasaki, E. Saitoh, Y. Tokura, K. Takehana, G. Kido, Y. Segawa, "c-axis charge dynamics in oxygen deficient (110) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ films", *Physica C*, 362, 305-309 (2001)
- 45) 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 $\text{Gd}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ca}_4\text{O}(\text{BO}_3)_3$ thin films", *J. Cryst. Growth*, 229, 208-211 (2001)
- 46) Z.W. Jin, K. Hasegawa, T. Fukumura, Y.Z. Yoo, T. Hasegawa, H. Koinuma and M. Kawasaki, "Magnetoresistance of 3d transition-metal-doped epitaxial ZnO thin films", *Physica E*, 10, 256-259 (2001)
- 47) H.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)
- 48) Y. Matsumoto, R. Takahashi, M. Murakami, T. Koida, X.-J. Fan, T. Hasegawa, T. Fukumura, M. Kawasaki, S. Koshihara, and H. Koinuma, "Ferromagnetism in Co-Doped TiO_2 Rutile Thin Films Grown by Laser Molecular Beam Epitaxy", *Jpn. J. Appl. Phys.* 40 L1204-L1206 (2001)
- 49) I. Ohkubo, Y. Matsumoto, T. Hasegawa, K. Ueno, K. Itaka, P. Ahmet, T. Chikyow, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Pulsed laser epitaxy and magnetic properties of single phase Y-type magnetoplumbite thin films", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 40, L1343-L1345 (2001)
- 50) T. 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)
- 51) K.S. Yun, B.D. Choi, Y. Matsumoto, J.H. Song, N. Kanda, T. Itoh, M. Kawasaki, T. Chikyow and P. Ahmet, H. Koinuma, "Vapor-liquid-solid tri-phase pulsed-laser epitaxy of $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ single-crystal films", *Appl. Phys. Lett.*, 80, 61-63 (2002)
- 52) T. Koida, D. Komiyama, H. Komiyama, M. Ohtani, M. Lippmaa, M. Kawasaki, "Temperature- Gradient Epitaxy Under *in situ* Growth Mode Diagnostics by Scanning Reflection High- Energy Electron Diffraction", *Appl. Phys. Lett.*, 80, 565-567 (2002)
- 53) T. Koida, M. Lippmaa, D. Komiyama, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Oscillation of surface in-plane lattice spacing during epitaxial growth of BaTiO_3 and SrTiO_3 on SrTiO_3 (100)", *Appl. Surf. Sci.*, 185 226-230 (2002)
- 54) R. Takahashi, Y. Matsumoto, T. Ohsawa, M. Lippmaa, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Growth dynamics of the epitaxial SrO film on SrTiO_3 (001)", *J. Cryst. Growth*, 234, 505-508 (2002)
- 55) H. Minami, K. Itaka, P. Ahmet, D. Komiyama, T. Chikyow, M. Lippmaa, H. Koinuma, "Rapid Synthesis and Scanning Probe Analysis of $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ Composition Spread Films on a Temperature Gradient", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 40, L149-L151 (2002)
- 56) Y. Matsumoto, M. Murakami, T. hasegawa, T. Fukumura, M. Kawasaki, P. Ahmet, K. Nakajima, T. Chikyow, H. Koinuma, "Structural control and combinatorial doping of titanium dioxide thin films by laser molecular beam epitaxy", *Appl. Surf. Sci.*, in press.

- 57) M. Lippmaa, T. Koida, H. Minami, Z.W. Jin, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Design of compact pulsed laser deposition chambers for the growth of combinatorial oxide thin film libraries", *Appl. Surf. Sci.*, in press.
- 58) T. Fukumura, Y. Okimoto, M. Ohtani, T. Kageyama, T. Koida, M. Kawasaki, T. Hasegawa, Y. Tokura, H. Koinuma, "A composition-spread approach to investigate band-filling dependence on magnetic and electric phases for Perovskite manganite", *Appl. Surf. Sci.*, in press.
- 59) H. Koinuma, "Combinatorial materials research projects in Japan", *Appl. Surf. Sci.*, in press.
- 60) T-W. Kim, N. Arai, H. Kubota, Y. Matsumoto, H. Koinuma, "Re-evaporation effect on the surface morphology of $Gd_xY_{1-x}Ca_4O(BO_3)_3$ films grown by combinatorial laser molecular-beam epitaxy", *Appl. Surf. Sci.*, in press.
- 61) N. Arai, T.-W. Kim, H. Kubota, Y. Matsumoto, H. Koinuma, "Combinatorial fabrication and cathode-luminescence properties of composition spread $MhfO_3:Tm^{3+}$ (M=Ca, Sr and Ba) films", *Appl. Surf. Sci.*, in press.
- 62) R. Takahashi, Y. Matsumoto, M. Lippmaa, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Combinatorial optimization of atomically controlled growth for oxide films by the carousel type laser molecular beam epitaxy", *Appl. Surf. Sci.*, in press.
- 63) I. Ohkubo, Y. Matsumoto, M. Ohtani, K. Ueno, K. Itaka, AHMET Parhat, T. Chikyow, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Quick optimization of Y-type magnetoplumbite thin films by combinatorial pulsed laser deposition technique", *Appl. Surf. Sci.*, in press.
- 64) Zheng-Wu Jin, T. Fukumura, K. Hasegawa, Y.-Z. Yoo, K. Ando, T. Sekiguchi, P. Ahmet, T. Chikyow, T. Hasegawa, H. Koinuma and M. Kawasaki, "Optical and electrical properties of Co-doped epitaxial ZnO films", *J. Cryst. Growth*, in press.
- 65) Y. Matsumoto, T. Ohsawa, R. Takahashi, H. Koinuma, "Development of combinatorial PLD-STM system for the quick nano-fabrication and evaluation", *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, in press.
- 66) R. Takahashi, Y. Matsumoto, M. Lippmaa, M. Kawasaki, H. Koinuma, "Combinatorial Optimization of Atomically Controlled Growth for Oxide Films by the Carousel type Laser Molecular Beam Epitaxy", *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, in press.
- 67) N. Arai, T.-W. Kim, H. Kubota, Y. Matsumoto, H. Koinuma, "Combinatorial Molecular Layer Epitaxy of Hf Based Phosphor Oxides", *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, in press.
- 68) I. Ohkubo, Y. Matsumoto, M. Ohtani, T. Hasegawa, K. Ueno, K. Itaka, AHAMT Parhat, T. Chikyow, M. Kawasaki and H. Koinuma, "High throughput optimization of Y-type magnetoplumbite epitaxial thin film growth by combinatorial pulsed laser deposition technique", *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, in press.
- 69) K. Ueno, I. Ohkubo, Y. Matsumoto, N. Okazaki, T. Hasegawa, K. Itaka, M. Kawasaki and H. Koinuma, "Characterization of magnetic and dielectric properties on Y-type magnetoplumbite epitaxial thin films for high frequency application", *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, in press.

瀬川、川崎グループ

- 70) Y. Segawa, A. Ohtomo, M. Kawasaki, H. Koinuma, Z.K. Tang, P. Yu, and G.K.L. Wong, "Growth of ZnO Thin Film by Laser MBE: Lasing of Excitons at Room Temperature.",

- Physica Status Solidi (b)*, 202, 669-672 (1997)
- 71) P. Zu, Z.K. Tang, G.K.L. Wong, M. Kawasaki, A. Ohtomo, H. Koinuma, and Y. Segawa, "Ultraviolet spontaneous and stimulated emissions from ZnO microcrystallite thin films at room temperature.", *Solid State Communications*, 103, 459-464 (1997)
 - 72) Z.K. Tang, P. Yu, K.L. Wong, M. Kawasaki, A. Ohtomo, H. Koinuma, and Y. Segawa, "Room temperature ultraviolet laser emission from microstructured ZnO thin film.", *Nonlinear Optics*, 18 (2-4), 355-362 (1997)
 - 73) A. Ohtomo, M. Kawasaki, T. Koida, K. Masubuchi, H. Koinuma, Y. Sakurai, Y. Yoshida, T. Yasuda, Y. Segawa, "MgZnO as a II-VI widegap semiconductor alloy.", *Appl. Phys. Lett.*, 72, 2466-2468 (1998)
 - 74) Z.K. Tang, G.K.L. Wong, P. Yu, M. Kawasaki, A. Ohtomo, H. Koinuma, Y. Segawa, "Room-temperature ultraviolet laser emission from self-assembled ZnO microcrystallite thin films.", *Appl. Phys. Lett.*, 72, 3270-3272 (1998)
 - 75) M. Kawasaki, A. Ohtomo, H. Koinuma, Y. Sakurai, Y. Yoshida, Z.K. Tang, P. Yu, G.K.L. Wang, Y. Segawa, "Ultraviolet Excitonic Laser Action at Room Temperature in ZnO Nanocrystalline Epitaxial Films", *Materials Science Forum*, 264-268, 1459-1462 (1998)
 - 76) A. Ohtomo, M. Kawasaki, T. Koida, H. Koinuma, Y. Sakurai, Y. Yoshida, M. Sumiya, S. Fuke, T. Yasuda, Y. Segawa, "Double Heterostructure Based on ZnO and Mg_xZn_{1-x}O", *Materials Science Forum*, 264-268, 1463-1466 (1998)
 - 77) M. Kawasaki, A. Ohtomo, I. Ohkubo, H. Koinuma, Z.K. Tang, P. Yu, G.K.L. Wong, B.P. Zhang, Y. Segawa, "Excitonic ultraviolet laser emission at room temperature from naturally made cavity in ZnO nanocrystal thin films", *Mat. Sci. & Eng. B*, 56, 239-245 (1998)
 - 78) A. Ohtomo, M. Kawasaki, Y. Sakurai, I. Ohkubo, R. Shiroki, Y. Yoshida, T. Yasuda, Y. Segawa, H. Koinuma, "Fabrication of alloys and superlattices based on ZnO towards ultraviolet laser", *Mat. Sci. & Eng. B*, 56, 263-266, (1998)
 - 79) X.G. Qiu, H. Koinuma, M. Iwasaki, M. Kawasaki and Y. Segawa, "Influence of annealing oxygen pressure on in-plane epitaxy and twinning in (110) YBa₂Cu₃O₇ thin films", *Phys. Rev. B*, 60, 707-712 (1999)
 - 80) A. Ohtomo, M. Kawasaki, I. Ohkubo, H. Koinuma, T. Yasuda and Y. Segawa, "Structure and optical properties of ZnO/Mg_{0.2}Zn_{0.8}O superlattices", *Appl. Phys. Lett.*, 75, 980-982 (1999)
 - 81) A. Ohtomo, K. Tamura, K. Saikusa, K. Takahashi, T. Makino, Y. Segawa, H. Koinuma, M. Kawasaki, "Single crystalline ZnO films grown on lattice-matched ScAlMgO₄ (0001) substrates", *Appl. Phys. Lett.*, 75, 2635-2637 (1999)
 - 82) 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. Appl. Phys.*, 87, 1844-1848 (2000)
 - 83) 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)
 - 84) K. Tamura, A. Ohtomo, K. Saikusa, Y. Osaka, T. Makino, Y. Segawa, M. Sumiya, S. Fuke, H. Koinuma, and M. Kawasaki, "Epitaxial growth of ZnO films on lattice-matched ScAlMgO₄ (0001) substrates", *J. Cryst. Growth*, 214/215, 59-62 (2000)

- 85) A. Ohtomo, H. Kinura, K. Saito, T. Makino, Y. Segawa, H. Koinuma and M. Kawasaki, "Lateral grain size and electron mobility in ZnO epitaxial films grown on sapphire substrates", *J. Cryst. Growth*, 214/215, 284-288 (2000)
- 86) 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. Cryst. Growth*, 214/215, 289-293 (2000)
- 87) 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. Lumin.*, 87-89, 210-212 (2000)
- 88) T. Makino, C.H. Chia, N.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)O multiple quantum wells on lattice-matched substrates", *Appl. Phys. Lett.*, 77, 975-977 (2000)
- 89) 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)O/(Mg, Zn)O multi-quantum wells", *Appl. Phys. Lett.*, 77, 1632-1634 (2000)
- 90) A. Ohtomo, K. Tamura, M. Kawasaki, T. Makino, Y. Segawa, Z.K. Tang, G.K.L. Wong, Y. Matsumoto and H. Koinuma, "Room-temperature stimulated-emission of excitons in ZnO/(Mg,Zn)O superlattices", *Appl. Phys. Lett.* 77, 2204-2206 (2000)
- 91) 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. Appl. Phys.*, 88, 2480-2483 (2000)
- 92) 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)
- 93) X.G. Qiu, M. Iwasaki, T. Itoh, A. Kumar, M. Kawasaki, H. Koinuma and Y. Segawa, "Interlayer Carrier Dynamics in Underdoped High Tc Cuprates", *Physica C*, 341-348, 183-184 (2000)
- 94) 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) YBa₂Cu₃O_{7- δ} films", *Appl. Phys. Lett.*, 78, 506-508 (2001)
- 95) T. Makino, Y. Segawa, M. Kawasaki, A. Ohtomo, R. Shiroki, K. Tamura, T. Yasuda and H. Koinuma, "Band gap engineering based on Mg_xZn_{1-x}O and Cd_yZn_{1-y}O ternary alloy films", *Appl. Phys. Lett.*, 78, 1237-1239 (2001)
- 96) 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/ZnMgOMQWs", *Appl. Phys. Lett.*, 78, 1979-1981 (2001)
- 97) 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_{0.88}Mg_{0.12}O multi-quantum wells grown on lattice-matched substrates", *Appl. Phys. Lett.*, 78, 2464-2466 (2001)
- 98) M. Murakami, Y. Matsumoto, K. Nakajima, T. Makino, Y. Segawa, T. Chikyo, P. Ahmet. M. Kawasaki and H. Koinuma, "Anatase TiO₂ thin films grown on lattice-matched LaAlO₃

- substrate by laser molecular-beam epitaxy”, *Appl. Phys. Lett.*, 78, 2664-2666 (2001)
- 99) H.D. Sun, T. Makino, Y. Segawa, M. Kawasaki, A. Ohtomo, T. Tamura, H. Koinuma, “Biexciton emission from ZnO/Zn_{0.74}Mg_{0.26}O multiquantum wells”, *Appl. Phys. Lett.*, 78, 3385-3387 (2001)
- 100) T. Makino, T. Yasuda, Y. Segawa, A. Ohtomo, K. Tamura, M. Kawasaki and H. Koinuma, “Strain effects on exciton resonance energies of ZnO epitaxial layers”, *Appl. Phys. Lett.*, 79, 1282-1284 (2001)
- 101) C.H. Chia, T. Makino, Y. Segawa, M. Kawasaki, A. Ohtomo, K. Tamura and H. Koinuma, “Well-width dependence of radiative and nonradiative recombination times in ZnO/Mg_{0.12}Zn_{0.88}O multiple quantum wells”, *J. Appl. Phys. Lett.*, 90, 3650-3652 (2001)
- 102) X.G. Qiu, H. Koinuma, M. Iwasaki, T. Otoh, Sarin Kumar. A.K., M. Kawasaki, E. Saitoh, Y. Tokura, K. Takehana, G. Kido and Y. Segawa, “c-axis charge dynamics in oxygen deficient (110) Yba₂Cu₃O_{7-δ} films”, *Physica C*, 362, 305-309 (2001)
- 103) Y.Z. Yoo, T. Vhikyow, A. Parhat, M. Kawasaki, T. Makino, Y. Segawa and H. Koinuma, “High-Temperature Epitaxy of Metastable Sulfides on Oxide Substrates Using Stoichiometric Transpotation”, *Advanced Materials*, 13, 1624-1627 (2001)
- 104) T. Makino, K. Tamura, C.H. Chia, Y. Segawa, M. Kawasaki, A. Ohtomo and H. Koinuma, “Optical Properties of ZnO: Al Epilayers and of Undoped Epilayers Capped by Wider-Gap MgZnO Grown by Laser MBE”, *Phys. Stat. Sol. (b)*, 229, 853-857 (2002)

宮本グループ

- 105) M. Kubo, Y. Oumi, R. Miura, A. Stirling, A. Miyamoto, M. Kawasaki, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, “Atomic Control of Layer-by-Layer Epitaxial Growth on SrTiO₃ (001): Molecular Dynamics Simulations”, *Physical Review B*, 56, 13535-13542 (1997)
- 106) M. Kubo, Y. Oumi, R. Miura, A. Stirling, A. Miyamoto, M. Kawasaki, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, “Layer-by-Layer Homoepitaxial Growth Process of MgO (001) as Investigated by Molecular Dynamics, Density Functional Theory, and Computer Graphics”, *J. Chem. Phys.*, 107, 4416-4422 (1997)
- 107) K. Tsujimichi, H. Tamura, A. Hirotani, M. Kubo, M. Komiyama, and A. Miyamoto, “Simulation of Atomic Force Microscopy Images of Cleaved Mica Surfaces”, *J. Chem. Phys.*, 101, 4260-4264 (1997)
- 108) M. Kubo, Y. Oumi, R. Miura, A. Stirling, A. Miyamoto, M. Kawasaki, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, “Molecular Dynamics Simulation on a Layer-by-Layer Homoepitaxial Growth Process of SrTiO₃ (001)”, *J. Chem. Phys.*, 107, 4416-4422 (1997)
- 109) M. Kubo, Y. Oumi, R. Miura, A. Stirling, A. Miyamoto, M. Kawasaki, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, “Layer-by-Layer Heteroepitaxial Growth Process of a BaO Layer on SrTiO₃ (001) as Investigated by Molecular Dynamics”, *J. Chem. Phys.*, 109, 9148-9154 (1997)
- 110) R. Yamauchi, M. Kubo, A. Miyamoto, R. Vetrivel, and E. Broclawik, “Independent and Interdependent Atomistic Structural Features of Pd Clusters Supported on the MgO (001) Surface”, *J. Phys. Chem. B*, 102, 795-803 (1998)
- 111) K.G. Nakamura, K. Ishioka, M. Kitajima, A. Endou, M. Kubo, and A. Miyamoto, “Theoretical Calculation of Hydrogen Molecule in Silicon”, *J. Chem. Phys.*, 108, 3222-3225 (1998)

- 112) K. Teraishi, H. Takaba, A. Yamada, A. Endou, I. Gunji, A. Chatterjee, M. Kubo, A. Miyamoto, K. Nakamura, and M. Kitajima, "Quantum Chemical Study on the Oxidation Process of a Hydrogen Terminated Si Surface", *J. Chem. Phys.*, 109, 1495-1504 (1998)
- 113) K. Suzuki, M. Kubo, Y. Oumi, R. Miura, H. Takaba, A. Fahmi, A. Chatterjee, K. Teraishi, and A. Miyamoto, "Molecular Dynamics Simulation of Enhanced Oxygen Ion Diffusion in Strained Yttria-Stabilized Zirconia", *Appl. Phys. Lett.*, 73, 1502-1504 (1998)
- 114) A. Chatterjee, T. Iwasaki, T. Ebina, M. Kubo, and A. Miyamoto, "Oxidation and Stabilization of Unreconstructed Hydrogen- and Fluorine-Terminated Si(100) Surface: A Periodic Density Functional Study", *J. Phys. Chem. B*, 102, 9215-9223 (1998)
- 115) X. Yin, H. Han, A. Endou, M. Kubo, K. Teraishi, A. Chatterjee, and A. Miyamoto, "Reactivity of Lattice Oxygens Present in V₂O₅ (010): A Periodic First-Principles Investigation", *J. Phys. Chem. B*, 103, 1263-1269 (1999)
- 116) M. Kubo, Y. Oumi, H. Takaba, A. Chatterjee, and A. Miyamoto, "Chemical Vapor Deposition Process on the ZSM-5 (010) Surface as Investigated by Molecular Dynamics", *J. Phys. Chem. B*, 103, 1876-1880 (1999)
- 117) X. Yin, A. Fahmi, H. Han, A. Endou, S.S.C. Ammal, M. Kubo, K. Teraishi, and A. Miyamoto, "Adsorption of H₂O on the V₂O₅ (010) Surface Studied by Periodic Density Functional Calculations", *J. Phys. Chem. B*, 103, 3218-3224 (1999)
- 118) X. Yin, H. Han, I. Gunji, A. Endou, S.S.C. Ammal, M. Kubo, and A. Miyamoto, "NH₃ Adsorption on the Bronsted and Lewis Acid Sites of V₂O₅ (010): A Periodic Density Functional Study", *J. Phys. Chem. B*, 103, 4701-4706 (1999)
- 119) H. Tamura, H. Zhou, K. Sugisako, Y. Yokoi, S. Takami, M. Kubo, K. Teraishi, R.V. Belosludov, A. Miyamoto, A. Imamura, M.N.-Gamo, and T. Ando, "Periodic Density-Functional Study on Oxidation of Diamond (100) Surfaces", *Phys. Rev. B*, 61, 11025-11033 (2000)
- 120) A. Endou, N. Ohashi, K. Yoshizawa, S. Takami, M. Kubo, and A. Miyamoto, "Comparative Investigation on the Adsorption Properties of Precious Metal Clusters toward NO: A Density Functional Study", *J. Phys. Chem. B*, 104, 5110-5117 (2000)
- 121) M. Kubo, Y. Oumi, H. Takaba, A. Chatterjee, A. Miyamoto, M. Kawasaki, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, "Homoepitaxial Growth Mechanism of ZnO (0001): Molecular-Dynamics Simulations", *Phys. Rev. B*, 61, 16187-16192 (2000)
- 122) 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*, 61, 16995-17003 (2000)
- 123) H. Tamura, H. Zhou, S. Takami, M. Kubo, A. Miyamoto, M.N.-Gamo, and T. Ando, "Effect of S and O on the Growth of CVD Diamond (100) Surfaces", *J. Chem. Phys.*, 115, 5284 (2001)

山本グループ

- 124) T. Maruyama and T. Yamamoto, "An Effective Photocatalytic System Based on Chelating π -Conjugated Poly(2,2'-bipyridine-5,5'-diyl) and Platinum for Photoevolution of H₂ from Aqueous Media and Spectroscopic Analysis of the Catalyst", *J. Phys. Chem., B*, 101, 3806-3810 (1997)

- 125) T. Yamamoto and T. Kimura, "Preparation of π -Conjugated Poly(hydroquinone-2,5-diyl) and Poly(p-benzoquinone-2,5-diyl) and Their Electrochemical Behavior", *Macromolecules*, 31, 2683-2685 (1998)
- 126) T. Yamamoto, B.-L. Lee, H. Suganuma, and S. Sasaki, "Comparison of Packing Modes of Poly(thiophene)s and Poly(thiazoles)", *Polym. J.*, 30, 853-856 (1998)
- 127) T. Yamamoto, S.-B. Kim, and M. Horie, "Redox Behavior of Poly(diphenylamine-4,4'-diyl) in Acidic Aqueous Media and Electronic Properties of the Doped Polymer", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 38, L273-276 (1999)
- 128) T. Yamamoto and H. Kokubo, "Electrochemical Deposition of Films of p-Doped Regioregular Poly(3-hexylthiophene-2,5-diyl)", *Chem. Lett.*, 12, 1295-1296 (1999)
- 129) T. Morikita and T. Yamamoto, "Preparation of Poly (aryleneethynylene) Type π -Conjugated Polymer Constituted of 2-alkylbenzimidazole-4,7-diyl Units by Using Palladium Catalyzed Cross Coupling Reaction", *Inorg. Chim. Acta*, 296, 254-260 (1999)
- 130) Y. Muramatsu, T. Yamamoto, T. Hashimoto, T. Hayakawa, M. Yoshimoto, and H. Koinuma, "Combinatorial Synthesis of π -Conjugated Polymer Library", *Proc. SPIE*, 3941, 92-99 (2000)
- 131) T. Hashimoto, Y. Muramatsu, T. Hayakawa, H. Fukumoto, T. Yamamoto, and H. Koinuma, "Combinatorial Synthesis of π -Conjugated Polymer Thin Films for Functional Material Research", *Proc. SPIE*, 3941, 36-44 (2000)
- 132) K. Shiraishi, T. Kanbara, and T. Yamamoto, and L. Groenendaal, "Preparation of Soluble and Neutral Alkyl Derivative of Poly(3,4-ethylenedioxythiophene) and Its Optical Properties", *Polymer*, 42, 7229-7232 (2001)

(2) 特許出願

① 国内

- 133) 山本隆一、「ポリ (ビフェニルビニレン) 類及びその製造法」、特開平 11-140168 (1999.5.25)
- 134) 鯉沼秀臣、川崎雅司、「コンビナトリアル分子層エピタキシー装置」、特許第 3018000 号 (2000.1.7)
- 135) 鯉沼秀臣、川崎雅司、「コンビナトリアルレーザー分子線エピタキシー装置」、特許第 3018001 号 (2000.1.7)
- 136) 鯉沼秀臣、川崎雅司、「同軸型真空加熱装置」、特許第 3028129 号 (2000.2.4)
- 137) 鯉沼秀臣、川崎雅司、「並列型高速電子線回折装置」、特許第 3057437 号 (2000.4.21)
- 138) 鯉沼秀臣、松本祐司「基板マスキング機構およびコンビナトリアル成膜装置」、特願 2000-259777、(2000.8.29)
- 139) 鯉沼秀臣、松本祐司、「二酸化チタン・コバルト磁性膜及びその製造方法」、特願 2000-261050、(2000.8.30)、特願 2001-091276、(2001.3.27)
- 140) 鯉沼秀臣、川崎雅司、松本祐司、大久保勇男「Y型マグネトプラムバイト薄膜及びその製造方法並びに Y型マグネトプラムバイト薄膜を使用した薄膜インダクタ」、特願 2000-266189、(2000.9.1)
- 141) 鯉沼秀臣、川崎雅司、「微小ピクセル用コンビナトリアル成膜装置」、特開 2000-292378 (2000.10.20)

- 142) 鯉沼秀臣、川崎雅司、表 和彦、菊池哲夫、「コンビナトリアル X 線回折装置」、特開 2000-338061 (2000.12.8)
- 143) 宮本 明、久保百司、高見誠一、「潤滑剤分子の構造設計方法および動的挙動解析方法ならびにそれらの装置」、特願 2000-341056 (2000.12)
- 144) 鯉沼秀臣、松本祐司、佐々木孝友、森 勇介、吉村政志、「酸化物結晶表面の超平坦化、その方法を用いた $\text{ReCaO}_4(\text{BO}_3)_3$ 系酸化物単結晶薄膜の作製方法および $\text{ReCaO}_4(\text{BO}_3)_3$ 系酸化物単結晶薄膜、および上記超平坦化方法を用いた光入射面の超平坦化方法、並びに結晶欠陥評価方法」、特願 2001-075458、(2001.3.16)
- 145) 鯉沼秀臣、川路 均、伊高健治、南 秀樹、「コンビナトリアル試料の熱電特性測定方法及びその装置」、特願 2001-075954、(2001.3.16)
- 146) 鯉沼秀臣、川崎雅司、福村知昭、大谷 亮、表 和彦、菊池哲夫、「X 線回折を用いた結晶の観察方法及びその観察装置」、特願 2001-089382、(2001.3.27)
- 147) 鯉沼秀臣、川崎雅司、「基板加熱搬送プロセス処理装置」、特許第 3192404 号 (2001.5.25)
- 148) 鯉沼秀臣、松本祐司、下村康夫、木島直人、「エピタキシャル蛍光体薄膜及びその製造方法」、特願 2001-190271、(2001.6.22)
- 149) 鯉沼秀臣、松本祐司、下村康夫、木島直人、「超格子蛍光体薄膜及びその製造方法」、特願 2001-190271、(2001.6.22)
- 150) 鯉沼秀臣、川崎雅司、福村知昭、寺井恒太、「面内格子定数調整基板の作製方法及び面内格子定数調整基板」特願 2001-250842、(2001.8.21)
- 151) 鯉沼秀臣、「コンビナトリアル薄膜形成方法及びコンビナトリアルプラズマ CVD 装置」、特開 2001-329366 (2001.11.27)
- 152) 鯉沼秀臣、松木伸行、「コンビナトリアルデバイス作製装置」、特開 2002-033283 (2002.1.30)
- 153) 鯉沼秀臣、川崎雅司、「レーザー加熱装置」、特許第 3268443 号 (2002.1.18)
- 154) 鯉沼秀臣、川崎雅司、「基板加熱装置」、特許第 3268446 号 (2002.1.18)

② 海外

- 155) 鯉沼秀臣、川崎雅司、「コンビナトリアル分子層エピタキシー装置」、国際公開番号：WO00/15884 (2000.3.23)、指定国：US, EP
- 156) 鯉沼秀臣、川崎雅司、「レーザー加熱装置」、国際公開番号：WO00/15864 (2000.3.23)、指定国：US, EP
- 157) 鯉沼秀臣、川崎雅司、「高速電子線回折装置」、国際公開番号：WO00/16372 (2000.3.23)、指定国：US, EP
- 158) 鯉沼秀臣、川崎雅司、表 和彦、菊池哲夫、「コンビナトリアル X 線回折装置」、国際公開番号：WO00/73773 (2000.3.23)、指定国：US, EP
- 159) 鯉沼秀臣、松本祐司、「二酸化チタン・コバルト磁性膜及びその製造方法」、国際出願番号：PCT/JP01/07089 (2001.8.17)、指定国：US, EPO、中国、韓国
- 160) 鯉沼秀臣、川崎雅司、松本祐司、「単結晶酸化物薄膜の製造方法」、国際出願番号：PCT/JP01/07582 (2001.8.31)、指定国：US, EPO、中国、韓国

(3) 受賞等、新聞報道等

① 受賞

- 161) 鯉沼秀臣：日本化学会賞（1997年3月）「無機薄膜の原子レベル構造制御と新機能開発に関する研究」
- 162) G.H. Lee: Outstanding Student Award in 4th Int'l Conf. on Laser Ablation（1997年7月）“Self-Assembled Island Formation of LiNbO₃ by Pulsed Laser Deposition on α -Al₂O₃ Substrate”
- 163) 大友 明：第2回応用物理学会講演奨励賞（1997年10月）「Ex-situ 紫外線オゾン処理による酸化物表面の清浄化」
- 164) 李 謹炯：第2回応用物理学会講演奨励賞（1997年10月）「超平坦サファイア基板上での LiNbO₃ ナノ結晶の形成」
- 165) M. Kubo: Best Poser Award in XII Int'l Conf. on Computers in Chemical Research and Education (ICCCRE)（1998年1月）“Development of Atomistic Crystal Growth Simulator and Its Application to Epitaxial Growth Processes of Metal Oxides”
- 166) 小出美幸：第2回応用物理学会講演奨励賞（1998年3月）「大気圧コールドプラズマを用いた SiO₂ 膜の作製」
- 167) 鯉沼秀臣：日本セラミックス協会学術賞（1998年5月）「酸化物表面および薄膜形成の原子レベル制御に関する研究」
- 168) 久保百司：第5回応用物理学会講演奨励賞（1999年3月）「粗視化結晶成長分子動力学シミュレーションの理論構築とプログラム開発」
- 169) 村上 真：第6回応用物理学会講演奨励賞（1999年9月）「コンビナトリアルレーザ-MBE法による TiO₂ および TiN 薄膜の作製とその高酸素加熱処理効果」
- 170) 金 太源：第7回応用物理学会講演奨励賞（2000年3月）「PLD法によるカルシウム・オキシボレート系光学結晶の薄膜成長」
- 171) 吉本 護、鯉沼秀臣：手島記念発明賞（2001年3月）「表面特性を改善するサファイア単結晶基板の熱処理方法」
- 172) 久保百司：化学工学会奨励賞（實吉雅郎記念賞）（2001年4月）「結晶成長シミュレータの開発と低次元構造の原子レベル設計」
- 173) 南 秀樹：第10回応用物理学会講演奨励賞（2001年9月）「走査型マイクロ波顕微鏡によるシリコン基板上 Ba_xSr_{1-x}TiO₃ 薄膜の誘電特性の高速評価」
- 174) 塚崎 敦：第11回応用物理学会講演奨励賞（2002年3月）「不純物ドーピング n 型 ZnO 薄膜の電気伝導特性」

② 新聞報道

- 175) 日経産業新聞 : 1997年3月26日「増える公募型研究」
- 176) 朝日新聞 (夕刊) : 1997年3月26日「サファイア使い DNA 観察」
- 177) 朝日新聞 : 1997年4月9日「原子の世界 自在に体感」
- 178) 化学新聞 : 1997年4月11日「計算化学に VR 導入」
- 179) 朝日新聞 : 1997年5月2日「環境保護で理念生かす」
- 180) 日経産業新聞 : 1997年7月13日「凹凸表面を平たんに」
- 181) 神奈川新聞 : 1997年11月18日「酸化物単結晶ステップ基板」
- 182) 毎日新聞 : 1998年5月23日「「酸化物エレクトロニクス」研究最前線」

- 183) 化学工業日報 : 1998年11月27日「真空蒸着法で発光素子」
- 184) 読売新聞 : 1999年5月27日「東工大吉本研 研究紹介」
- 185) 日本工業新聞 : 1999年5月27日「東工大吉本研 研究紹介」
- 186) 朝日新聞 (夕刊) : 1999年6月7日「東工大吉本研 研究紹介」
- 187) 日経産業新聞 : 1999年5月22日「研究所のエージェンシー化」
- 188) 日本工業新聞 : 1999年9月6日「初のVR機能を実現ー研究、教育現場で活用期待」
- 189) 日本工業新聞 : 1999年9月7日「排ガス新触媒に適用ーコンビナトリアル化学で薄膜設計シミュレーション」
- 190) 日本工業新聞 : 1999年9月8日「計算化学で安全確保ー汚染物質除去研究にも活用 (ダイオキシン代替物質)」
- 191) 日本工業新聞 : 1999年9月9日「原子の熱振動を眼前にー環境にも優しいVR計算化学」
- 192) 日経産業新聞 : 2000年2月21日「新構造の非晶質太陽電池」
- 193) 読売新聞 : 2001年1月12日「透明な磁石」
- 194) 中部経済新聞 : 2001年1月12日「透明な永久磁石発見」
- 195) 東奥日報 : 2001年1月12日「透明な永久磁石発見」
- 196) 山陰新聞 : 2001年1月12日「透明な永久磁石発見」
- 197) 北日本新聞 : 2001年1月12日「IT向けの万能材料？」
- 198) 愛媛新聞 : 2001年1月12日「“IT万能材料”発見」
- 199) 沖縄タイムス : 2001年1月12日「「透明な永久磁石」を発見」
- 200) 河北新報 : 2001年1月12日「透明な「永久磁石」発見」
- 201) 東京新聞 : 2001年1月12日「「透明な永久磁石」発見」
- 202) 高知新聞 : 2001年1月12日「透明な永久磁石発見」
- 203) 日本経済新聞 : 2001年2月5日「先端人：松本祐司」
- 204) 半導体産業新聞 : 2002年1月30日「ナノテクノロジー」

③ その他

- 205) NHK 教育テレビ : 2001年5月12日、2002年1月12日「サイエンス・アイ」