

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「元素戦略を基軸とする物質・材料の革
新的機能の創出」
研究課題「軽元素を活用した機能性電子材料の創
出」

研究終了報告書

研究期間 平成23年10月～平成29年3月

研究代表者：長谷川哲也
(東京大学大学院理学系研究科、教授)

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

本研究では、H、N、Fといった軽元素を有効に用いることで、酸化物系電子材料の構造制御、バンドエンジニアリングを行い、革新的電子材料の開発を行うとともに、同材料の有機デバイスへの応用を目指した。

具体的には、SrTaO₂N系酸窒化物で初めて強誘電性を発現させることに成功した。ここでポイントとなったのがエピタキシャル歪であり、第一原理計算の結果に基づき、基板から面内圧縮歪を加えることで、窒素がtrans配列した強誘電相を安定化させた。当初、基板との格子不整合が大きく、格子緩和により十分な圧縮応力が印加できなかったため、強誘電相の分率は数%程度に留まっていた。しかしその後、より格子整合に優れたCaTaO₂Nとの固溶系(Ca_{1-x}Sr_xTaO₂N)を合成し、大きな格子歪を加えることに成功した。その結果、trans配列の割合を50%以上に高めることができた。同材料は可視光を吸収することから、可視光応答光電変換デバイスへの応用が見込まれる。理論計算については東大グループが、PLD合成についてはKASTが担当した。

また、有機薄膜太陽電池や有機ELといった有機デバイスへの実装を目指し、仕事関数や屈折率を制御した新規透明導電体の開拓を行った。その結果、低仕事関数材料としてアナターゼ型TaONを、高仕事関数材料としてInO_xF_y系を開発した。PLD合成については東大グループが、仕事関数評価については北大グループが担当した。特にTaON系については、アナターゼTiO₂との固溶系とすることで、光学特性の連続的な制御が可能となった。また、ソフト溶液プロセスを用いてLiをドーピングすることにより、実用レベルの10⁻⁴ Ωcm台の低抵抗を実現した。

一方、周辺材料を探索している過程で、アモルファス亜鉛窒化物(Zn-O-N)が非常に高い移動度(>200 cm²V⁻¹s⁻¹)を示すことを見出した。同移動度は結晶化の程度に依存し、微結晶の生成を抑制するほど高い移動度を示した。これは、粒界がキャリアの散乱源となっていることを示唆する。

気相合成と並行して、トポタクティック反応による酸化物への軽元素導入と、それによる新機能発現にも取り組んだ。CaH₂との固相反応は薄膜中への水素導入法として簡便であり、また基板からのエピタキシャル力を利用することで、導入したヒドリドの配列化も可能であった。一方、ポリ塩化ビニリデンと一緒に加熱する手法はフッ素導入に極めて有効であり、様々な遷移金属酸化物に適用し、フッ素化反応のデータを蓄積した。これにより、反応性を経験的に整理した。

上記のTaON-TiO₂系では、酸素雰囲気中でアニールすると表面に薄い絶縁層が生じる。これを利用し、透明電極とホールブロック層を一体化した有機薄膜太陽電池を提案した。実際にデバイスを試作し、高い性能を確認した。さらに、TiO₂系電極を用いた有機ELの試作も行った。この際、新規透明電極に適した有機材料の検討も併せて行った。前者は東大/KASTグループが、後者は北大グループが主に担当した。

平成27年度に、東大の福田准教授が東北大学教授として栄転した。それに合わせて、異常原子価イオンを含む化合物の合成と新機能発現を目指す「新物質合成」グループを立ち上げた。その成果として、岩塩型希土類単酸化物YOとBi²⁺を含むY₂O₃Biの合成に成功した。YOは、室温の電気抵抗率もY₂O₃より14桁以上も小さく、通常の酸化物半導体同様、酸素欠損の調節により制御可能である。このことは、希土類酸化物で異常原子価を実現することで新しい機能を発掘したことを意味する。また、一方Y₂O₃Biでは、過剰酸素を導入しBi二次元面間の間隔を広げることで、超伝導が発現した。層状物質を超伝導体にする新たな手段を得たとも言える。

(2) 顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1. $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TaO}_2\text{N}$ 薄膜において、基板から圧縮歪を印加することで、局所的な窒素配列を trans 型に制御し、酸窒化物で強誘電性を発現させることに初めて成功した。また、 $x=0.5$ の試料の直線偏光 X 線吸収分光により、窒素が 50%以上 trans 配列していることを確認した。エピタキシャル歪による酸素/窒素配列制御、並びにそれに応じた強誘電性発現という新しい概念を打ち立てた成果と言える。
2. エピタキシャル力を利用してアナターゼ型 TaON の単相薄膜を合成することに初めて成功した。また、アナターゼ型 TiO_2 との完全固溶体の合成にも成功し、光学特性の連続的な制御を可能とした。Li ドープした試料では、 $10^{-4} \Omega\text{cm}$ 台の低抵抗と $\sim 40 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ の高い移動度を達成した。さらに、 $\text{TaON}-\text{TiO}_2$ を用いた有機薄膜太陽電池を提案し、実際にデバイスを試作してその有用性を実証した。
3. Bi^{2-} 正方格子を持つ $\text{Y}_2\text{O}_x\text{Bi}$ で、超伝導を発見した。興味深いのは、酸素量 x が増加し、隣接する Bi 正方格子層の間隔がわずかに広がると超伝導が発現する点であり (T_c は最高 2.2 K)、酸素が結晶中の空隙に取り込まれて c 軸が伸張することで 2 次元性が増大し、超伝導が発現したと考えられる。次元性の制御により超伝導が現れる非常にユニークな系ある。また、層状物質を超伝導体にする新たな手段を得たともいえる。

<科学技術イノベーションに大きく寄与する成果>

1. アナターゼ系薄膜をオゾン処理すると表面に均一な絶縁層が形成することを利用し、透明電極とホールブロック層を一体化した有機太陽電池用を提案した。これにより、デバイス作製プロセスが簡略化されるばかりでなく、ホールブロック層は非常に薄いことから、電子の透過性能を大幅に向上できると期待される。実際に、有機薄膜太陽電池では、非常に高いシャント抵抗、すなわち低リークを確認した。極めて実用性の高い手法と言える。
2. アモルファス亜鉛酸窒化物で $200 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ を超える非常に高い移動度を達成した。今後、新たなアニオンドーパントの開拓や共添加により、高い移動度を保ったままキャリア量や透明性の制御が可能となれば、その応用上のインパクトは計り知れない。

§ 2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

① 「薄膜合成」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
長谷川 哲也	東京大学大学院理学系 研究科	教授	H23.10～
松尾 豊	同上	特任教授	H23.10～
福村 知昭	同上	准教授	H23.10～H27.3
廣瀬 靖	同上	助教/准教授	H23.10～
近松 彰	同上	助教	H23.10～
神坂 英幸	同上	特任助教	H24.1～H28.12
小川 大輔	同上	D1～D3	H23.10～H26.3
朴 瑛玉	同上	D2～D3	H23.10～H26.3
渡部 愛理	同上	D1～D3	H23.10～H27.3
岡 大地	同上	M2～D3	H23.10～H27.3
川嶋 辰典	同上	M2	H23.10～H24.3
小川 大輔	同上	D1～D3	H23.10～H26.3
重松 圭	同上	M2～D3	H23.10～H27.3
韋 嶸	同上	M2～D3	H23.10～H27.9
相澤 和樹	同上	M1～M2	H23.10～H25.3
井上 俊	同上	M1～M2	H23.10～H25.3
片山 司	同上	M1～D3	H23.10～H28.3
島本 憲太	同上	M1～M2	H23.10～H25.3
鈴木 温	同上	M1～D3	H23.10～H28.3
Thantip S. Krasienapibal	同上	M1～D3	H23.10～H28.3
沈 希	同上	M1～M2	H23.10～H25.3
楊 長	同上	博士研究員	H24.4～H26.9
岡 真悠子	同上	M1～D3	H24.4～
栗田 佳織	同上	M1～M2	H24.4～H26.3
清 良輔	同上	M1～D3	H24.4～
高木 亮介	同上	M1～M2	H24.4～H26.3
小島 峻吾	同上	M1～D3	H24.4～H28.3
Yeo Kee Sheng	同上	M1～M2	H24.10～H25.9
小野塚 智也	同上	M1～D2	H25.4～
佐野 真仁	同上	M1～D2	H25.4～
高橋 純平	同上	M1～M2	H25.4～H27.3
山竹 恭平	同上	M1～M2	H25.4～H28.3
IL Jeon	同上	D1～D3	H25.4～H28.3
神永 健一	同上	M1～D2	H25.10～
Vitchaphol Motaneeyachart	同上	M1～D2	H25.10～
内田 悠	同上	M1～M2	H26.4～H28.3
河原 佳祐	同上	M1～M2	H26.4～H28.3

倉内 裕史	同上	M1～D1	H26.4～
山崎 崇範	同上	M1～M2	H26.4～H28.3
杳澤 大	同上	M1～D1	H26.4～
寒竹 亮太	同上	M1～M2	H26.4～H28.3
Fahd S. Khan	同上	M1～M2	H26.4～H28.3
中川 貴文	同上	特任研究員	H26.4～
Delacou Clément	同上	外国人大学院生	H26.4～H26.9
柏 尚輝	同上	M1～M2	H27.4～
柴田 峻佑	同上	M1～M2	H27.4～
橋本 直明	同上	M1～M2	H27.4～
山田 佳補	同上	M1～M2	H27.4～
Sasa Zeljkovic	同上	客員共同研究員	H27.4～H27.9
川原 阜紀	同上	M1～M2	H27.4～
鈴木 雄介	同上	M1～M2	H27.4～
福本 通孝	同上	M1	H28.4～
藤原 聡士	同上	M1	H28.4～
丸山 敬裕	同上	M1	H28.4～
椎名 孝明	同上	M1	H28.4～

研究項目

- ・ 軽元素を含んだ機能性薄膜の理論計算とエピタキシャル薄膜合成

② 「デバイス作製」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
島田 敏宏	北海道大学大学院工学 研究院	教授	H23.10～
長浜 太郎	同上	准教授	H23.10～
柳瀬 隆	同上	助教	H23.10～
加藤 翔	同上	M2	H23.10～H24.3
富田 潤	同上	M2	H23.10～H24.3
早坂 浩昭	同上	M2	H23.10～H24.3
生田 裕	同上	M1～M2	H23.10～H25.3
久保田 翔生	同上	M1～M2	H23.10～H25.3
土田 裕也	同上	M1～M2	H23.10～H25.3
松田 悠弥	同上	M1～M2	H23.10～H25.3
謝 維	同上	D2～D3	H25.4～H27.9
楯 和也	同上	M1～M2	H24.4～H26.3
橋本 遊	同上	M1～M2	H24.4～H26.3
平谷 俊吾	同上	M1～M2	H24.4～H26.3
村谷 直紀	同上	M1～M2	H24.4～H26.3
渡辺 雄介	同上	M1～M2	H24.4～H26.3
大見 浩輔	同上	M1～M2	H25.4～H27.3
川人 愛子	同上	M1～M2	H25.4～H27.3
川井 智博	同上	M1～M2	H25.4～H27.3
高橋 望	同上	D1～D2	H25.4～
翁 夢婷	同上	D1	H28.4～

佐々木 駿	同上	M1～M2	H26.4～H26.3
高城 拓也	同上	M1～M2	H26.4～H26.3
田村 貴大	同上	M1～D1	H26.4～H30.9
荒木 真人	同上	M1～M2	H27.4～
梶田 博樹	同上	M1～M2	H27.4～
長谷川 幸樹	同上	M1～M2	H27.4～
三浦 拓也	同上	M1～M2	H27.4～
山川 貴恵	同上	M1～M2	H27.4～
渡邊 翔	同上	M1～M2	H27.4～
上部 宏晃	同上	M1	H28.4～
大森 圭太	同上	M1	H28.4～
荻原 初夏	同上	M1	H28.4～
高見 拓哉	同上	M1	H28.4～
山本 雄太	同上	M1	H28.4～

研究項目

- ・ 軽元素を含んだ機能性薄膜の有機デバイスへの展開

③ 「プロセス開発」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
中尾 祥一郎	神奈川科学技術アカデミー イノベーションセンター	常勤準研究員	H23.10～
岡崎 壮平	同上	常勤研究員	H24.4～H26.3
重松 圭	同上	常勤研究員	H27.4～H28.9

研究項目

- ・ 軽元素を含んだ機能性薄膜の実用合成プロセスの開発

④ 「新物質合成」グループ

研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
福村 知昭	東北大学大学院理学系 研究科	教授	H27.4～
古山 溪行	同上	助教	H27.4～H27.10
岡 大地	同上	助教	H27.4～
河底 秀幸	同上	助教	H28.4～
清 良輔	東京大学大学院理学系 研究科	D2～D3	H27.4～
神永 健一	同上	D1～D2	H27.4～
内田 悠	同上	M2	H27.4～H28.3
沓澤 大	同上	M2	H27.4～H28.3
福田 慎太郎	東北大学大学院理学系 研究科	M1	H28.4～

研究項目

- ・ 異常原子価酸化物機能性材料の合成と物性

(2) 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について
(研究チーム外での連携や協働についてご記入ください。ライフ分野では臨床医等を含みます。)

- ・薄膜の組成分析について、東京大学、筑波大学との共同研究を行った。
- ・Ti酸化物のラマン分光測定について、ミラノ工科大学(イタリア)と共同研究を行った。
- ・複合アニオン物質の光電子分光について、高エネルギー加速器研究機構との共同研究を行った。
- ・酸窒化物の局所ラマン分光について、京都工芸繊維大学と共同研究を行った。
- ・ALD法により合成した透明導電体の輸送特性について、アルト大学(フィンランド)と共同研究を行った。
- ・低次元物質の電気伝導計測について、ブラウン大学(米国)と共同研究を行った。
- ・酸窒化物の線形 X 線吸収の理論について、大阪大学と共同研究を行った。
- ・希土類単酸化物半導体の X 線吸収分光について、名古屋工業大学、広島市立大学、高輝度光科学研究センターとの共同研究を行った。
- ・ビスマス層状酸化物超伝導体の比熱測定について、東京工業大学との共同研究を行った。

§ 3 研究実施内容及び成果

3. 1 軽元素を含んだ機能性薄膜の理論計算とエピタキシャル薄膜合成(東京大学 薄膜合成グループ)

(1)研究実施内容及び成果

3. 1. 1. 可視光応答強誘電体の開発

ペロブスカイト型 SrTaO₂N における強誘電性の発見

強誘電性の発現に必要な *d* 電子配置と可視光吸収を両立可能な物質として、ペロブスカイト型酸窒化物 SrTaO₂N に着目した。ペロブスカイト型酸窒化物 ATaO₂N には熱力学的に最安定な *cis* 型構造と準安定な *trans* 型構造が存在するが、後者の構造のみ強誘電性を示すことが第一原理計算により示唆されている。そこで、基板からのエピタキシャル歪みを利用して *trans* 型構造を安定化することを着想した。エピタキシャル応力印加時の *cis* 型および *trans* 型 SrTaO₂N の相安定性を第一原理計算により評価したところ、*cis* 型 SrTaO₂N は面内方向への圧縮応力印加により急激に不安定化し、*trans* 型 SrTaO₂N が相対的に安定化することが確認された。この計算結果に基づいて、格子ミスマッチが-3.1%の SrTiO₃(100)基板上に SrTaO₂N 薄膜をヘテロエピタキシャル成長した(図 1)。XRD 逆格子マッピングで格子定数を評価した結果、印加したエピタキシャル歪みは部分的に緩和していたものの、バルク体(*c/a* = 1.002)に比べ明らかに大きな正方晶歪み(*c/a* = 1.02)を有していた。また、薄膜のバンドギャップは約 560nm で、可視光を吸収可能なことも確認した。

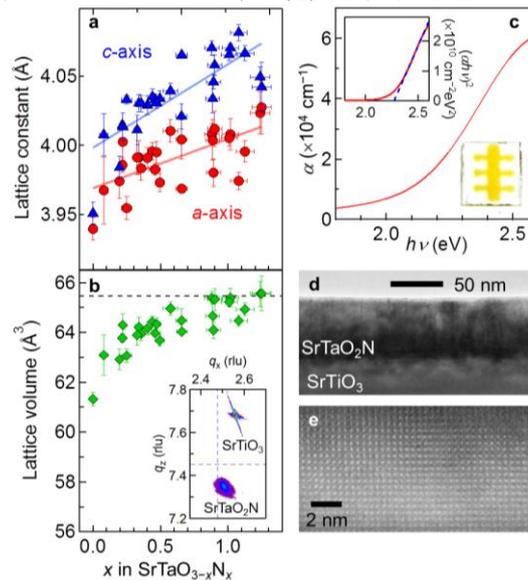


図 1. SrTiO₃(100)基板上に合成した SrTaO_xN_y薄膜の(a)格子定数と(b)格子体積。(b)の内包図は SrTaO₂N の逆格子マップ。(c)SrTaO₂N 薄膜の光吸収スペクトル。(d, e)断面 TEM 像。

PLD 法で作製した薄膜を圧電応答顕微鏡(PFM)で観察したところ、バージン状態で強い圧電応答を示す数十 nm から百 nm 程度の微小領域が観察された(図 2b。濃い赤の領域)。さらに、この領域に直流電圧パルスを印加すると、抗電界を超える直流電圧によって圧電応答の符号が反転する、通常の強誘電体と同様の挙動が酸窒化物では初めて観察された(図 3)(2014 年 5 月に Sci. Rep.に論文発表、関連記事が日刊工業新聞に掲載)。第一原理計算との比較から、強誘電性の領域は準安定な *trans* 型 SrTaO₂N に対応すると推測された。また、バージン状態では圧電応答を示さない、*cis* 型 SrTaO₂N とされる領域でも、直流電圧の印加によって自発分極が誘起されるリラクサー強誘電体的な挙動が見られた(図 2)。リラクサーの挙動の起源は明らかではないが、O/N の長距離配列や格子歪みとの関連が予想される。

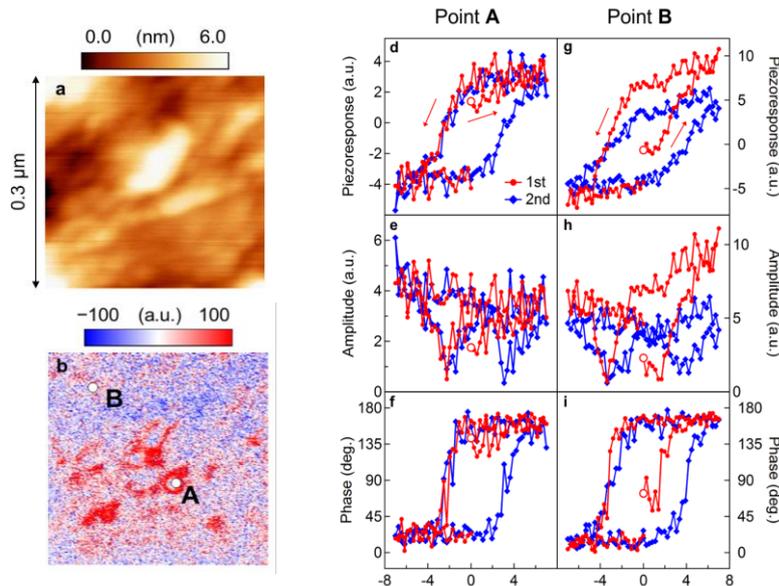


図 2. SrTaO₂N 薄膜の(a)原子間力顕微鏡像と(b)圧電応答顕微鏡(Acos) 像。(d-i) Nb:SrTiO₃(100) 基板上に合成した SrTaO₂N 薄膜の分極反転挙動。(d-f) 強誘電体領域 (図 2b の A 点) および(g-i) リラクサー強誘電体的領域 (図 2b の B 点)。

格子ミスマッチ最適化による SrTaO₂N の強誘電性増大

SrTaO₂N 薄膜では、PFM 像から求めた強誘電体相の割合は数%以下で、光電変換素子への応用には不十分であった。強誘電性の起源となる trans 型アニオン配列を安定化するためにはより大きなエピタキシャル歪みが有効と考えられるが、Nb:SrTiO₃ 基板上では格子ミスマッチ (-3.1%) が大きすぎるため、転移が導入されて歪みが緩和する。そこで、イオン半径が小さな Ca で Sr サイトを部分置換して SrTiO₃ 基板との格子ミスマッチの最適化を図った。CaTaO₂N (ミスマッチ-1.1%) から Ca_{0.5}Sr_{0.5}TaO₂N までの範囲で、面内格子定数が SrTiO₃ 基板に完全に拘束された薄膜が得られた。特に、Ca_{0.5}Sr_{0.5}TaO₂N では、第一原理計算から予想される trans 型 SrTaO₂N ($c/a \approx 1.06$) と同程度の正方晶歪み ($c/a \approx 1.05$) を実現した。得られた Ca_{0.5}Sr_{0.5}TaO₂N 薄膜を PFM 観察したところ、SrTaO₂N 薄膜とは異なり、バーজন状態でも圧電応答が観察され、直流電圧パルスの印加による圧電応答の反転挙動も確認された (図 3)。以上より、格子ミスマッチの最適化による強誘電体相の安定化が示された。

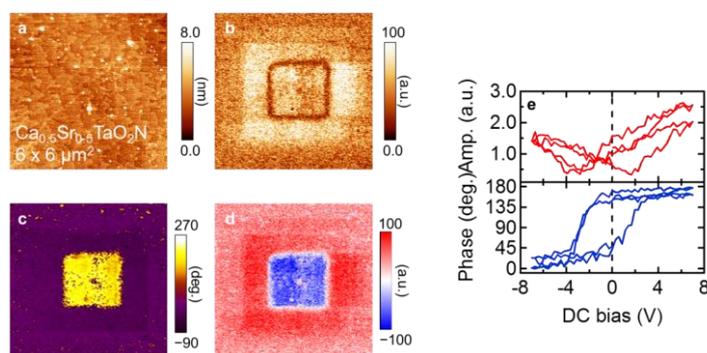


図 3. Nb:SrTiO₃(100)基板上に合成した Ca_{0.5}Sr_{0.5}TaO₂N 薄膜の(a)原子間力顕微鏡像と圧電応答顕微鏡像 (b:振幅像, c:位相像, d:Acos 像) および(e)分極反転挙動。(b-d)の像は中央の 2x2 μm および 4x4 μm の領域を ±10V で分極処理後に測定。

Ca_{1-x}Sr_xTaO₂N エピタキシャル薄膜のアニオン配列評価

第一原理計算による予測に基づくと、Ca_{1-x}Sr_xTaO₂N 薄膜で観察されたエピタキシャル歪みの増大に伴う強誘電体相の安定化は、trans 型構造の増加に起因するとして解釈できるが、その検証には、Ca_{1-x}Sr_xTaO₂N 薄膜のアニオン配列を明らかにする必要がある。しかし、薄膜試料は体積が小さく中性子回折による評価ができない。そこで、直線偏光X線吸収分光(LP-XANES) (図 4a,b) および走査型透過電子顕微鏡(STEM)を用いた原子分解能電子エネルギー損失分光(EELS)によるサイト選択的な元素分析を着想した。

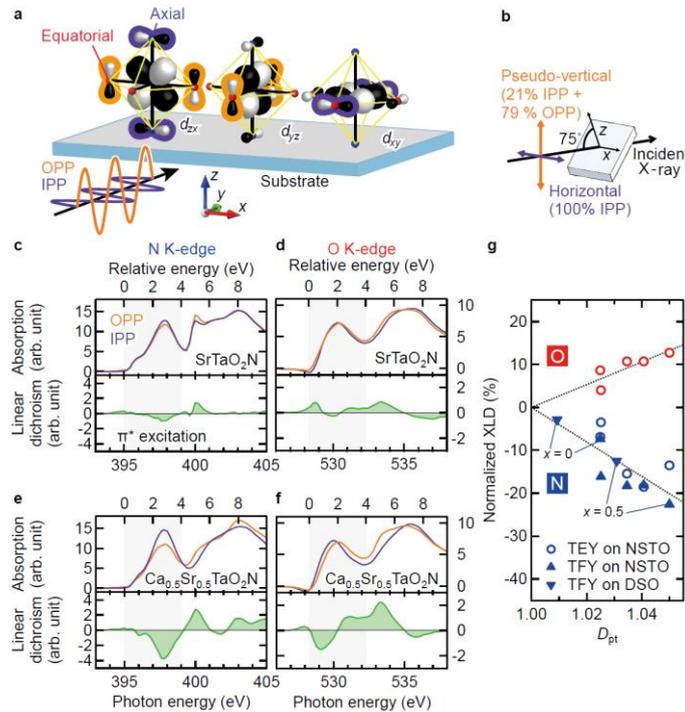


図 4. (a,b) LP-XANES 測定の様式図。面内偏光(IP)では axial サイト、面直偏光(OPP)では equatorial サイトのアニオンが選択的に X 線を吸収する。(c-f) SrTiO₃ 基板上に合成した (c,d)SrTaO₂N および (e,f)Ca_{0.5}Sr_{0.5}TaO₂N 薄膜の (c,e)N-K 端と (d,f)O-K 端スペクトル。(g) Ca_{1-x}Sr_xTaO₂N 薄膜の N-K 端および O-K 端スペクトルの正方晶歪みと線二色性の関係

SPring-8 の BL27SU で N-K 端および O-K 端の LP-XANES 測定を行ったところ、格子歪みが緩和した SrTaO₂N 薄膜ではほとんど線二色性が見られなかったのに対して、大きな格子歪みを有する Ca_{0.5}Sr_{0.5}TaO₂N 薄膜では明瞭な線二色性が観察された(図 4c-f)。第一原理計算によりシミュレーションしたスペクトル(島川チーム小口多美夫教授との共同研究)との比較から、観察された二色性は Ta からみて面直方向(axial)サイトの窒素量の増大、すなわち trans 型 SrTaO₂N の生成に起因することが示された。さらに、二色性の大きさは c/a 値とともに増大しており(図 4g)、エピタキシャル歪みによって trans 型構造が安定化することが実証された。また、Ca_{0.5}Sr_{0.5}TaO₂N 薄膜の原子分解能 STEM-EELS 測定のピーク強度からサイト選択的にアニオン占有率を評価したところ、axial サイトの窒素占有率が約 50%まで増大しており、LP-XANES 測定の結果とよく一致した(図 5)。これらの結果は、エピタキシャル歪みによる酸窒化物のアニオン配列制御の初めての例である。LP-XANES および STEM-EELS は、酸窒化物だけでなく、酸フッ化物や酸水素化物薄膜に対しても適用可能なため、これらの材料のアニオン配列評価技術としての発展が期待できる。

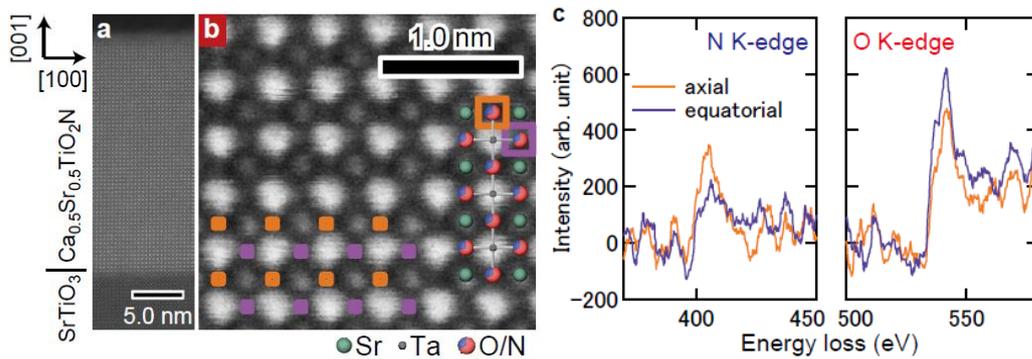


図 5. (a,b) Nb:SrTiO₃(100)基板上に合成した Ca_{0.5}Sr_{0.5}TaO₂N 薄膜の断面 HAADF-STEM 像。(c) N-K 端および(d) O-K 端のサイト選択 EELS スペクトル。各サイトのスペクトルは図 5b 中のオレンジ (axial) および紫 (equatorial) で示した領域を平均したもの。

A サイトイオンの効果の第一原理計算

SrTaO₂N は 10³ オーダーの非常に高い誘電率を示すのに対し、CaTaO₂N の誘電率は 10¹ オーダーに留まる。そこで、SrTaO₂N および CaTaO₂N について第一原理計算による比較を行い、両者の誘電特性の差を考察した。フォノンを考慮した構造最適化を行った結果、CaTaO₂N では TaO₆ 八面体の傾斜が大きく、傾斜反転のエネルギー障壁が高いことがわかった。この反転障壁の高さの違いが誘電率の違いをもたらすと推測された。

3. 1. 2. 軽元素を活用した新規透明導電体の開発 酸窒化タンタル(TaON)

アナターゼ型酸窒化タンタル(TaON)は酸窒化タンタルの準安定相で、Mg あるいは Sc を安定化剤として 5%以上添加した多結晶粉末として存在が知られていたが、電子材料としてのポテンシャルは全くの未知数であった。我々は窒素プラズマ支援 PLD 法によって TaON 単結晶薄膜の合成に世界で初めて成功した。その結果、TaON が比較的高い移動度(約 20 cm²V⁻¹s⁻¹)を持ち、電子材料として有望である事を見出した(図 6)(2013 年 12 月に Chem. Mater. に論文発表、関連記事が日刊工業新聞に掲載)。透明電極として重要なキャリアドーピングは格子間への Li 挿入によって制御可能であった。これにより、10⁻⁴ Ω cm 台の低抵抗と～40 cm²V⁻¹s⁻¹ の高移動度を達成した。また、従来の透明導電性酸化物と比べ屈折率が高いことから、光学設計の自由度を大幅に広げる事ができる。さらに、アナターゼ型 TiO₂ と完全固溶する事を見出した。この際、屈折率およびバンドギャップはエンドメンバーの TiO₂ と TaON の値から連続的に変化し、光学特性のテーラード制御が可能である事がわかった(図 6)。実用上重要なガラス基板への薄膜作製もアナターゼ型 TiO₂ をシード層として用いる事で可能となった。以上により、TaON が電子材料としてユニークな特徴と高いポテンシャルを持つ事を実証し、実用化に必要な基礎技術を確認する事ができた。

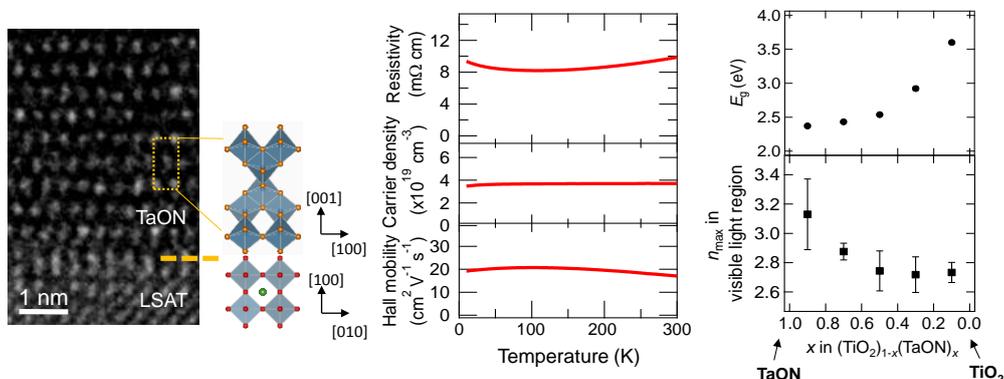


図 6. アナターゼ型 TaON 単結晶薄膜の断面 TEM 像(左)と電子輸送特性の温度依存性(中央)。

アナターゼ型(TiO₂)_{1-x}(TaON)_x 固溶体薄膜のおよび光学特性(右)。

非晶質酸化亜鉛系

非晶質 ZnO_xN_y (ZnON)はスパッタ法により 100 cm²V⁻¹s⁻¹を超える移動度が報告されており、高移動度の電子材料として非常に有望である。しかしながら、スパッタ膜では微結晶の存在が指摘されており、粒界散乱などの影響が排除できないため、本材料の本質的な移動度は不明であった。我々は窒素プラズマ支援 PLD 法を用い、アブレーション閾値付近に成膜条件を設定する事で、微結晶を含まない完全な非晶質を得る事に成功した。得られた薄膜の移動度は同じ組成のスパッタ薄膜の 3 倍以上の 250 cm²V⁻¹s⁻¹にも達し、本材料の優れたポテンシャルを明らかにした(図7)。

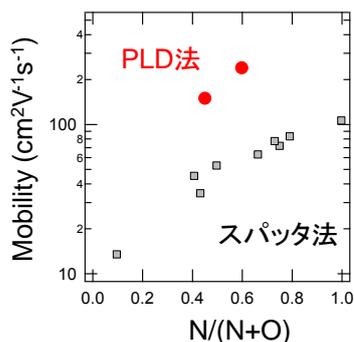


図7. 窒素プラズマ支援 PLD 法(本研究)およびスパッタ法(従来研究)で作製した ZnO_xN_y 薄膜のアニオン組成と移動度(最高値)の関係

非晶質 ZnON 高移動度の非晶質半導体であるが、光学ギャップは 1.3-1.7eV 程度のため、透明電極への応用は難しい。ZnO_{1-x}S_x (ZnOS)は、ZnON と同様に Zn 4s 軌道のみで伝導帯が構成されるため高移動度が期待されるが、非晶質薄膜の電気輸送特性は知られていなかった。我々は PLD 法を用いて ZnO と ZnS をサブ ML 単位で交互堆積することで非晶質 ZnOS 薄膜 (0.2 < S/(O+S) < 0.6) を合成することに成功した(図8)。非晶質 ZnOS 薄膜の移動度は最高で 20 cm²V⁻¹s⁻¹で、現在のところ非晶質 ZnON には及ばないが、光学ギャップは約 3eV で可視光に対して優れた透明性を示す。キャリアドーピング法の開発によって、透明電極への応用が期待できる。

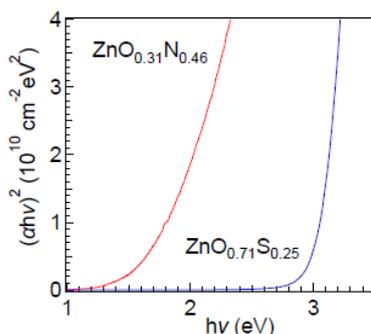


図8. Tauc プロットによる ZnOS 薄膜と ZnON 薄膜の光学特性の比較

3. 1. 3. トポタクティック軽元素導入法の開発

SrFeO₂ へのトポタクティック水素ドーピング

2007 年に初めて、水素化カルシウム(CaH₂)の強還元作用によって 280 °C という低温で無限層平面構造を持つ鉄酸化物 SrFeO₂ のバルク体での合成が報告された。我々は、還元剤である CaH₂ がトポタクティック水素化反応の水素源(ヒドリド源)となることと、薄膜形状が水素化カルシウムとの反応を高めることに着目し、格子定数の異なる KTaO₃ (001)、DyScO₃ (110)、SrTiO₃ (001) 基板上に SrFeO₂ 単結晶エピタキシャル薄膜を作製した。

結晶性の低い格子ミスマッチの大きな DyScO₃ (110)、SrTiO₃ (001)基板上に作製した薄膜はバルク体と同じ絶縁性を示したが、最も結晶性の高い格子マッチした KTaO₃ (001)基板上に作製した薄膜で金属的な伝導性を示すことを見出した。ホール効果測定から、この金属伝導のキャリアは電子であり、300 K でキャリア濃度 $3.1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ と移動度 $10.2 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ であることを明らかにした。さらに、金属伝導を示した薄膜中には $5 \times 10^{21} \text{ atom cm}^{-3}$ の水素イオンが存在していることが明らかになった。これらの結果から、導入された水素イオンがキャリアを生み絶縁体相から金属相へ転移したことが示唆され、酸水素化物エピタキシー実現の道筋を見出した。

トポタクティック水素導入による水素の配列化

これまでバルク体でのみ合成が報告されていた酸水素化物 SrVO₂H を、パルスレーザー堆積法と CaH₂ を用いたトポタクティック水素化反応により、SrVO₂H エピタキシャル薄膜の作製に成功した。作製した SrVO₂H 薄膜は、水素化物イオンが面直方向に一次的に整列した結合を持つことを明らかにした(図9)。また、膜厚を薄くすることで反応温度を下げられること、SrVO₂H 薄膜の大気アニールによる酸化反応によって SrVO₃ に戻ることを見出した。さらに、フェルミ準位上の状態密度が水素化により消失する様子を光電子分光測定により明瞭に観測し、正方晶歪みが金属絶縁体転移を引き起こすという第一原理計算の予測と一致する結果を得た。

コバルト系ヒドライド酸化物は、これまで層状ペロブスカイト構造でのみ報告例があった。本研究では、前駆体である SrCoO_{2.5} と格子マッチの良い SrTiO₃ 基板を用いて CaH₂ によるトポタクティック水素化反応を行うことで、層状構造を持たない SrCoO_xH_y 薄膜の作製に成功した。基板からのエピタキシャル力により、トポタクティック反応の間ペロブスカイトカチオン構造が維持されるのを確かめた。また、SrMO_{3-x}H_x (M = Cr, Ti, V) など他のペロブスカイト酸水素化物とは異なり、SrCoO_xH_y 薄膜はコバルト-ヒドライド結合が二次元平面状に広がった構造を持つことが明らかになった(図9)。これらの結果は、薄膜固有の基板からのエピタキシャル歪みが不安定なヒドライド酸化物相形成に有効であることを示している。

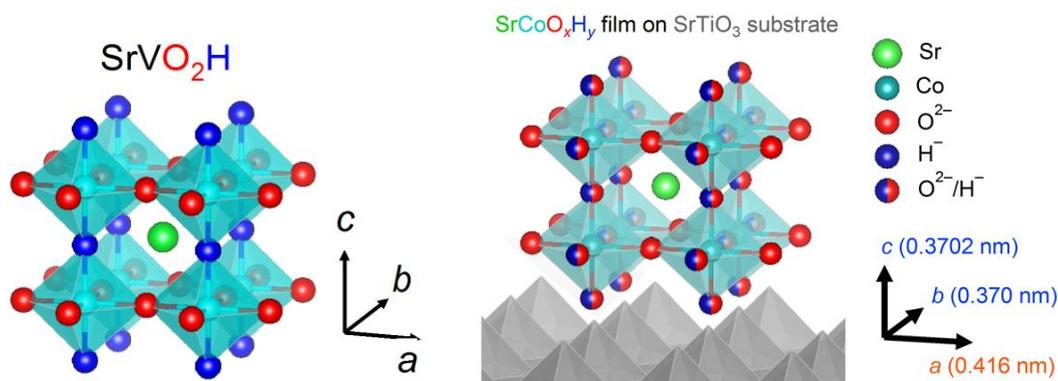


図9. トポタクティック手法により合成した SrVO₂H および SrCoO_xH_y 薄膜

ペロブスカイト酸化物へのトポタクティックフッ素導入

ポリフッ化ビニリデン(PVDF)をフッ素源として使用し、酸化物薄膜中へのフッ素導入を試みた。まず SrFeO_x 単結晶エピタキシャル薄膜に対してフッ素化反応を行い、薄膜特有の次の3つの特長を見出した。i) 酸素欠損量に応じてフッ素のドーピング量が変化する。酸素欠損の量が多いとフッ素は膜内に均一に取り込まれ、逆に少ない場合は膜表面近傍と内部でフッ素量の差が生じることを、深さ分解光電子分光の分析により明らかにした。ii) 薄膜ではより低温でフッ素化が起こる(バルク体では 400 °C、薄膜では 150 °C)。加えて SrF₂ と Fe₃O₄ に分解する温度も薄膜の方が低い。iii) 反応温度によりフッ素置換量が制御できる。バルク体では O と F の組成比=2:1 しか報告がないが、薄膜では 2:1 から 1:1 まで組成比を変化させることができた。これらの結果は、薄膜に対するアニオン置換が新奇物性探索においても極めて有効な手法であることを示している。

次に、ブラウンミレライト構造 $\text{SrCoO}_{2.5}$ 薄膜に PVDF を用いてフッ素を導入したところ、ペロブスカイト構造を持つ SrCoO_xF_y 薄膜を得た。同薄膜の c 軸長 (= 3.955 Å) は、 F_2 ガスでフッ化した場合に比べ伸びていることから、PVDF と F_2 ガスでフッ化反応機構が異なることが示唆される。エネルギー分散型 X 線分析と核反応解析法から見積もった組成は $\text{SrCoO}_{1.9\pm 0.4}\text{F}_{0.5\pm 0.1}$ であり、また光電子分光測定により、コバルトは $2+/3+$ の混合原子価状態にあることが確認された。これらの結果は PVDF との反応により、コバルトが Co^{3+} から $\text{Co}^{2.7+}$ に還元されたことを意味している。従って、PVDF を用いたフッ素化反応は、空孔サイトへのフッ素挿入ではなく酸素サイトへの置換が主であり、PVDF が還元剤として働いたと解釈できる。 NdNiO_3 薄膜のフッ素では、ごく少量のフッ素導入により金属—絶縁体転移を示すことを見出した。フッ素化した薄膜は酸素アニールにより可逆的に NdNiO_3 に戻ることから、電気化学的な抵抗スイッチ材料として有望である。

一方、 K_2NiF_4 構造では、非等価な酸素サイト間で、反応性に違いが見られた。 Sr_2RuO_4 ではフッ素化は起こらないのに対し、 Sr_2RuO_4 薄膜ではフッ素化後では面直方向の格子定数が 12.75 Å から 16.75 Å へと拡大した。また、弾性反跳検出分析測定から、フッ素化後の組成は $\text{Sr}_2\text{RuO}_3\text{F}_2$ であると同定された。これらの結果は、フッ化物イオンは主に岩塩ブロック層間に挿入されることを意味している (図 10)。

一方、ペロブスカイト型 BaBiO_3 では蛍石型フッ化物 BaBiF_5 へと変化した。特に、低温で反応させた試料では、001 超格子ピークが観測された。この結果は、PVDF のトポタクティックフッ素化反応がカチオン規則配列した蛍石構造の作製に有用であることを示している (図 10)。

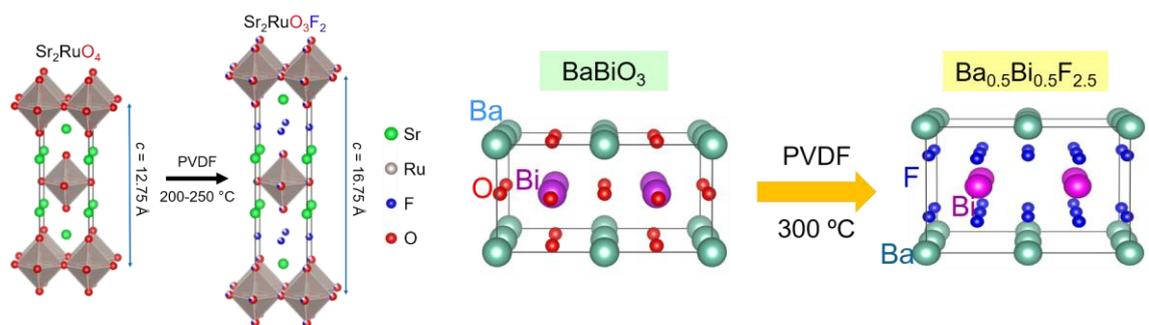


図 10. PVDF を用いた Sr_2RuO_4 薄膜と BaBiO_3 薄膜のフッ素化反応

トポタクティック強酸化還元反応

次亜塩素酸ナトリウム (NaClO) 水溶液を酸化エピタキシャル薄膜に適用させることで、トポタクティックな酸素の挿入反応が可能であることを見出した。A サイト秩序型ペロブスカイト YBaCo_2O_x は、通常の固相合成では $5.0 \leq x \leq 5.52$ の試料しか得られない。同薄膜に対し、 NaClO 水溶液を用いた酸化反応を施した結果、酸素量を $x = 6$ まで導入することに成功した。得られた YBaCo_2O_x 薄膜 ($x = 4.5 - 6$) は Ba と Y カチオンが [001] 軸方向 (面直方向) に交互に積み重なった A サイト秩序ペロブスカイト構造を有していた。また、 YBaCo_2O_6 薄膜の $M-H$ カーブで明瞭な磁気ヒステリシスが得られ、反強磁性絶縁体であった前駆体 ($x = 5.5$ 相) が酸素ドーピングにより強磁性金属相に転移することが明らかになった。さらに、巨大な磁気異方性 ($K_u = 1.5 \times 10^8 \text{ erg/cm}^3$) を有することも見出した。

3. 1. 4. 軽元素組成分析装置の立上げ

酸窒化物や酸フッ化物薄膜の合成においてアニオン組成の評価は重要であるが、EDS や XPS 等の一般的な手法では絶対量の評価は難しい。我々は酸素を含む軽元素に対して高感度で、多元素を同時に絶対定量可能な重イオン弾性反跳粒子検出 (ERDA) 測定に注目した。筑波大学のグループ (CREST チーム外) と共同で東京大学のタンデム型イオンビーム加速器に $\Delta E-E$ テレスコープ型検出器を備えた重イオン ERDA ラインを立上げ、酸窒化物および酸フッ化物薄膜のアニオン組成比の絶対定量に活用した (図 11)。

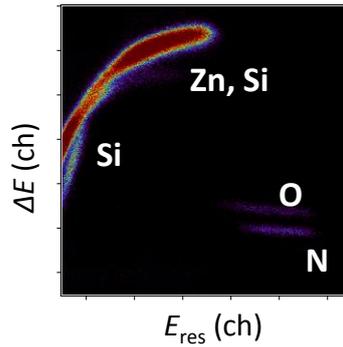


図 11. 非晶質 ZnON 薄膜の ^{35}Cl -ERDA 測定データ (ΔE - E_{res} ヒストグラム)。Cl イオンにより反跳された軽原子は元素ごとに分離して検出され、そのイベント数が存在量(絶対量)と反跳断面積の積に比例する。

3. 1. 5. エピタキシャル歪み下における薄膜の構造変化とイオン伝導性に関する第一原理計算

ZrO₂系

トポクティブ反応を考える上で、イオンの拡散速度の見積りが極めて重要となる。イオン伝導度を第一原理により計算した例は多数あるが、特に薄膜に関しては基板からの格子歪の影響も考慮しなければならず、計算のための統一的なプロトコルは確立されていない。そこでまず、典型的なモデル系と ZrO₂ を取り上げ、酸素イオン伝導度の第一原理シミュレーションを行った。

(ZrO₂)_{1-x}(Y₂O₃)_x (Yttria-stabilized zirconia ; YSZ) は典型的な固体酸化物系燃料電池用の電解質である。近年、YSZ/SrTiO₃ 多層薄膜界面における巨大イオン伝導性が報告され、*ab initio* MD 計算を含め、様々な理論的研究がなされている。しかし従来の計算は、母物質 ZrO₂ の Cubic 相をモデルに採用し、ドーパント、酸素欠損量、エピタキシャル歪みのそれぞれ影響について、系統立った研究が行われていない。そこで本研究では、ZrO₂ 系によるモデル化の是非、特にエピタキシャル歪みがもたらす効果の ZrO₂ 系と YSZ 系の差異について第一原理計算による研究を行った。また軽元素置換がイオン伝導に及ぼす影響についても調べた。

まず、歪み下での ZrO₂ の最安定構造を、密度汎関数摂動理論に基づくフォノン計算より決定した。その結果、エピタキシャル歪みによって ZrO₂ が新たな酸素副格子を構成することが観察された。次に、この安定構造を起点とした *ab initio* MD 計算を行い、酸素イオンの軌跡を観察した。モデルセルに酸素欠損を 1 つ導入した場合 (Zr₇₂O₁₄₃□)、YSZ に対応する組成をもつモデルセル (Zr₆₀Y₁₂O₁₃₈□₆) 及び、酸素欠損量を上記 YSZ と同一にしたモデルセル (Zr₇₂O₁₃₈□₆) の三つをシミュレーション対象とした。*ab* 面内には SrTiO₃ 基板からのエピタキシャル歪みに対応する格子変形 (約 7% の膨張) を加えた。計算の結果、エピタキシャル歪みが YSZ にもたらす影響は ZrO₂ として単純にモデル化できるものではなく、酸素配置の構造変化、ドーパントや酸素欠損の濃度などの複合的な要因が関わっていることが明らかとなった (図 12)。エピタキシャル歪みの役割は、当初予想していた伝導パスの間隙を広げるのではなく、ドーパントによる格子の乱れやすさが増大する点にあることに気づいた。

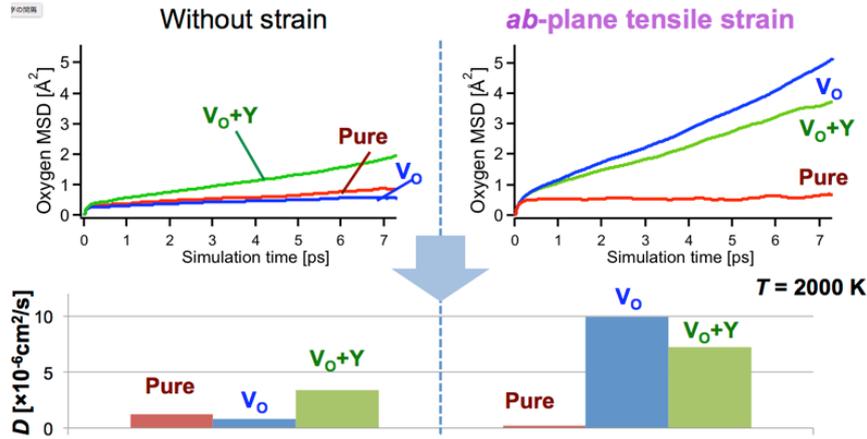


図 12. ZrO_2 のイオン伝導に対する歪みおよび酸素欠損 (V_O)、イットリウム (Y) の効果。

上記視点から見た場合、軽元素置換は、酸素副格子を直接置換するため、カチオン置換よりも大きなイオン伝導性の増大が期待できる。実際に、酸素イオンに対し、窒素イオン (N ドープ) およびフッ素イオン (F ドープ) を行ったモデルセルのシミュレーションを行うと、特定の酸素欠損濃度において、顕著なイオン伝導性の増大が見られた。ドープした軽元素と周辺の化学結合の強さを解析したところ、F ドープでは第一近接での Zr-O 結合が弱まり、N ドープでは第二近接領域付近の Zr-O 結合が弱まっていた。シミュレーションによる酸素イオンの伝導パスを観察すると、これらの結合強さの変化に対応した酸素イオン拡散が生じていることが確認できた。

LaOF 系

二次電池材料の新たな可能性として F 伝導体の応用も提唱されており、様々なイオン伝導体の開発が求められている。 $LaO_{1-x}F_{1+2x}$ ($x = 0-0.5$) は、組成比 x の増加に伴ってイオン伝導種が F から O^{2-} に変化する興味深い挙動を示す。また、 $x = 0.5$ の組成に類縁する希土類オキシフッ化物において、既存の酸素イオン伝導体に匹敵するイオン伝導性が報告されている。 $LaO_{1-x}F_{1+2x}$ の構造は、蛍石構造をもつ La のフレームと、F/O のアニオンオーダーで理解される。 $x=0$ の場合には [1 1 1] 方向へのオーダーが起き菱面体晶を取り、 x が僅かに増えると [0 0 1] 方向へオーダーし正方晶となる。しかし、こうしたアニオンオーダーとイオン伝導性の関係、またイオン伝導種のクロスオーバー現象が生じる機構は理解されていない。

本研究ではまず $x = 0$ の状況を調べた。第一原理バンド計算により、LaOF 中の F および O^{2-} について、Frenkel 欠陥生成エネルギー評価、*ab initio* MD 計算による拡散経路の観察、NEB 法による拡散障壁の評価を行った。Frenkel 対の生成エネルギーを比較した結果、F Frenkel 対は O Frenkel 対より 1.7 eV 以上安定であり、F Frenkel 対が支配的に生成することが分かった。正方晶構造に F Frenkel 対が導入された場合に、最も高いイオン伝導性が発現した。一方、O Frenkel 対の場合には、酸素イオンの拡散は観察されなかった。Frenkel 対を含まない構造は、いずれもイオン拡散を示さなかった。*Ab initio* MD 計算の軌跡を観察したところ、正方晶中の F Frenkel 対では、層間イオンが F 層の F を追い出して拡散する機構が見られた (interstitialcy 機構 またはキックアウト機構)(図 13)。同時に、F 欠損を介した拡散も観察された。菱面体晶構造においては、F/O Frenkel 対のいずれについても、欠損を介した F イオン拡散のみが観察された。

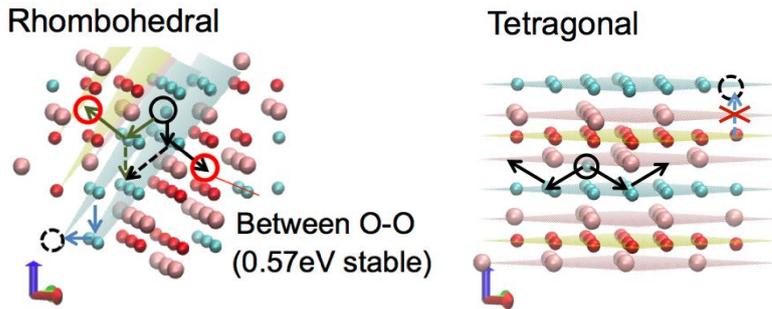


図 13. 菱面体構造および正方晶構造をもつ LaOF での格子間フッ素の拡散の違い

この結果は、複合アニオン系のイオン伝導が、アニオンオーダーによって影響を受けることを示唆している。特に interstitialcy 機構 (キックアウト機構) では、複数のアニオンが伝導の素過程に参与するため、追い出す F 原子および追い出される F 原子が距離的に近接したアニオンオーダーが重要であると考えられる。エピタキシャル歪みや超格子構造によるアニオンオーダー制御と組み合わせることで、新たなイオン伝導体の設計指針が期待できる。

3. 2 実用プロセスの開発と有機デバイスへの応用 (KAST プロセス開発グループ)

(1) 研究実施内容及び成果

3. 2. 1. 新規透明電極材料の有機太陽電池への応用 有機太陽電池における電子輸送層と透明電極の一体化

絶縁性の TiO_2 はホールブロック層として、様々な太陽電池(有機薄膜、色素増感、ペロブスカイト)で使われている。我々は TNO が過剰酸素の導入によって金属状態から絶縁状態まで導電性を幅広く制御できる事に着目し、TNO に透明電極とホールブロック層の両方の役割を同時に持たせる事を着想した。簡便な室温プロセスである UV オゾン処理によって、TNO 透明導電膜の表面に薄い絶縁性 TNO を形成できた。この層により、別途ホールブロック層を形成しなくても太陽電池として動作した。省プロセスであるだけでなく、ホールブロック性能の目安となるシャント抵抗が従来法に比べて1-2桁程度大きくリークが非常に少ない事がわかった(図 14)。この特徴により、TNO を用いても ITO と遜色の無い変換効率を示す太陽電池が得られた。以上は、単純なインジウム代替ではなく、 TiO_2 が持つ個性を利用したユニークな応用である。

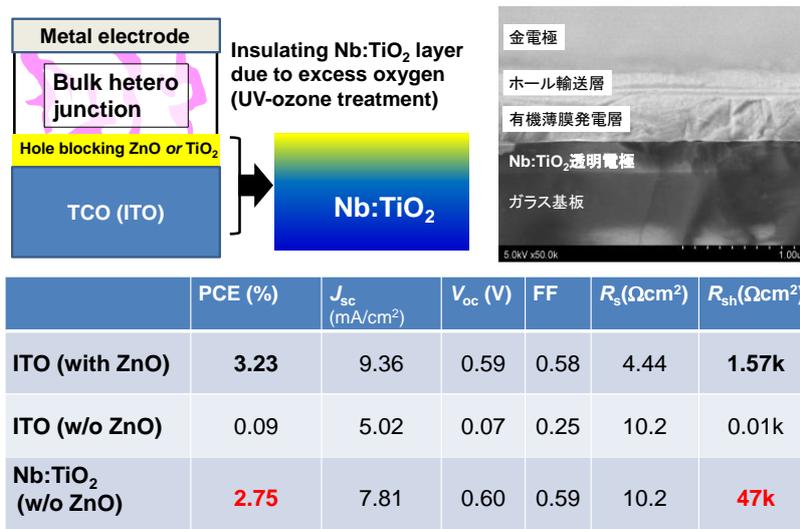


図 14. 透明電極とホールブロック層を兼ねる Nb:TiO₂ を用いた有機薄膜太陽電池

3. 2. 2. 高移動度透明導電体の開発 高移動度酸化スズ透明導電膜

酸化スズ(SnO_2)は非常に古い材料であるが、その高移動度化は遅れていた。我々は以前の研究で a 軸が格子整合する(Ti,Nb) O_2 のシード層を用いる事で(001)優先成長が起きること、非常に高い移動度が得られる事を見出していた。しかしながら移動度が大きく向上する機構は不明であり、スパッタ法に展開する際の障害となっていた。そこで基本に立ち返り、各種単結晶基板上的 SnO_2 エピタキシャル薄膜の輸送特性を詳細に調べた。その結果、(001)配向エピタキシャル薄膜のみで基板種(TiO_2 , Al_2O_3)によらず移動度 $120 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ 以上が得られた。この値はフォノン散乱とイオン化不純物散乱から見積もられる SnO_2 の移動度上限と良く一致し、材料のポテンシャルを十分に引き出している事が分かった(図 15)。その一方、他の方位のエピタキシャル膜は移動度が幾分、抑制された。断面 TEM 観察から{101}面欠陥がミスフィット転位から生成し、これらが粒界散乱源として働いている事が分かった。(001)配向膜では{101}面欠陥が基板に対して比較的浅い角度で生成し、その為、膜中で面結果が消失しやすい事が分かった。以上の結果は(001)配向が本質的に SnO_2 の高移動度化に重要である事を示す物である。

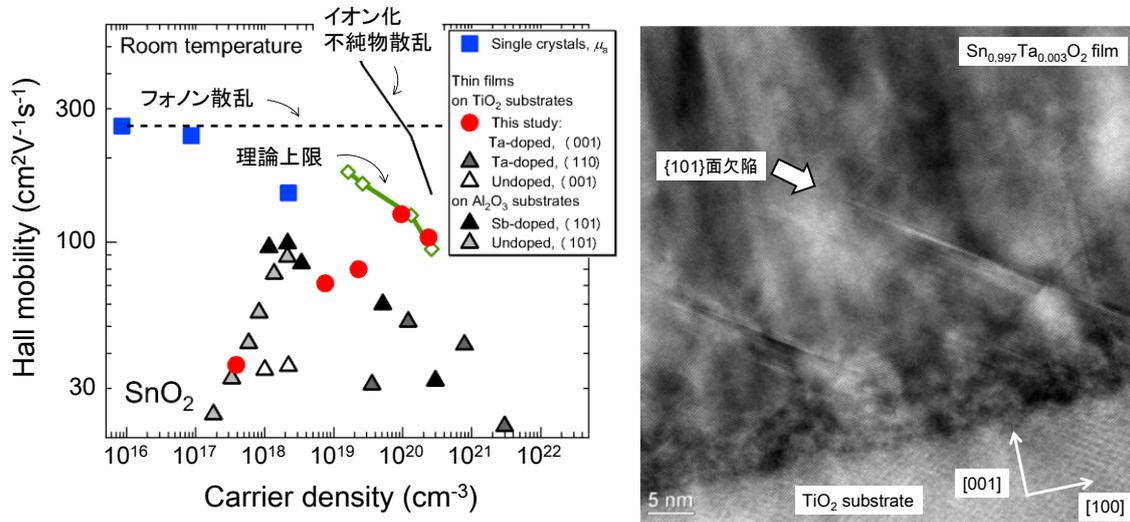


図 15. (001)配向 Ta ドープ SnO_2 エピタキシャル薄膜の移動度と断面 TEM 像

3. 3 軽元素を含んだ機能性薄膜の有機デバイスへの展開(北海道大学 デバイス開発グループ)

(1)研究実施内容及び成果

3. 3. 1. 新規材料の仕事関数評価

東大グループで開発した透明導電体である TaOF および TaON のエピタキシャル膜の仕事関数の評価を行った。

東大および KAST で開発された新規酸化物、酸フッ化物、酸窒化物の仕事関数を二次電子放出閾値法で測定した。仕事関数は表面の原子レベルの構造に敏感なため、大気下を輸送した試料の表面清浄化法を開発する必要があった。試行錯誤の結果、1 気圧の酸素中で波長 195nm の紫外光を照射するオゾン洗浄法で表面が清浄化できることがわかった。また、処理時間によって仕事関数が変化する結果が得られ、表面の酸素原子終端状況に敏感であることが明らかになった(図 16)。また、真空紫外線を照射して光電子を放出させている間に仕事関数が変化していく場合があることもわかった。これも表面酸素終端状況の変化に対応しているものと考えている。

具体的な仕事関数 (ϕ) の値については、 InO_xF_y については、 $\phi = 5.65\text{eV} \sim 4.85\text{eV}$ という高い値、 InO_xN_y については $\phi = 4.75 \sim 4.45\text{eV}$ という ITO ($\phi = 4.8\text{eV}$) に近い値、 TaO_xN_y については $\phi = 4.25 \sim 3.75\text{eV}$ という低い値が得られた。

さらに、清浄化した InO_xF_y 表面に有機半導体分子を蒸着し、光電子分光測定を行った。有機半導体として正孔ブロック層として用いられるバソクプロリン(BCP)の結果を図 17 に示す。有機半導体デバイスにおける電極からの電荷注入に重要な、新規の酸化物導電体と有機半導体の界面のエネルギー準位接続に関する情報を蓄積した。

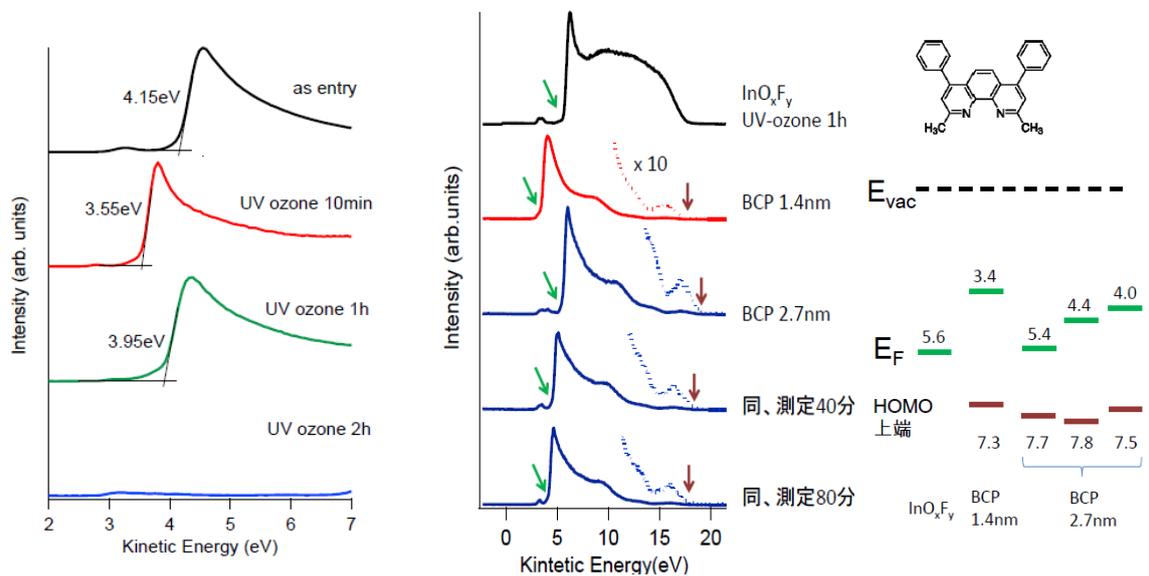


図 16. オゾン処理の効果

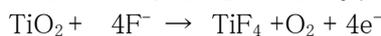
図 17. 有機半導体分子を吸着させた InO_xF_y の電子分光

3. 3. 2. Nb:TiO₂を利用した有機 EL デバイスの作製

前節で述べた仕事関数を制御した透明電極を有機 EL 素子に用いる実験を行った。デバイス加工のため、難加工性で知られる Nb:TiO₂ の反応性プラズマエッチング法を開発した。これを用いて有機 EL デバイスを作成した。Nb:TiO₂ を用いた有機デバイスは、東北大学(当時)の福村らによって、導電性高分子 PEDOT-PSS を正孔輸送層として塗布して仕事関数を調整して有機 EL 発光を行った例がある(M.Nakano, Jpn.J.Appl.Phys. 47, 1276 (2008))。酸化物と有機半導体の界面の電荷輸送を調べるため、ここでは正孔輸送層を用いずに素子を形成した。また、有機半導体層の結晶性を高めるために基板にナノスケールのガイド構造を周期的に作るグラフォエピタキシーの詳細を検討する実験も行った。

Nb:TiO₂ の微細加工法の開発と有機デバイス作製

東大および KAST で作成された酸化物透明電極を用いてデバイスを作製するにあたり、エッチングによる電極のパターン化が不可欠である。そのためのプロセス開発を行った。反応性イオンエッチングを用いてエッチングを行うことにより、さまざまな酸化物に対してエッチングガス及び処理条件(RF パワーおよび時間)を探索し、パターンを作製することに成功した。例として、Nbドープ TiO₂ に対する結果を図 18 に示す。このときの条件は CF₄ 圧力 2Pa 流量 10sccm である。175W, 6 分間で Nb:TiO₂ 膜厚 400nm を完全にエッチングすることができた。反応は



と書くことができると考えられる。

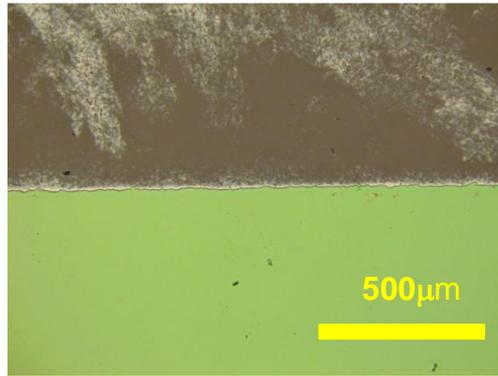


図 18. Nb:TiO₂の反応性プラズマエッチングによる加工結果
(上半分がエッチングされている)

Nb:TiO₂を用いた EL 素子の作製と特性評価

前節の結果で、Nb:TiO₂のパターン化が行えるようになったので、有機 EL 素子構造を作成した。Nb:TiO₂は p 型有機半導体の HOMO と n 型有機半導体の LUMO の中間付近の仕事関数(4.2eV)を持つので電荷注入が困難になると予想された。図 19 に示す構造の素子を作成して特性を評価したところ、図 20 に示すように注入障壁のある電流注入特性が観測された。目に見える発光が起こる前に素子が破壊されてしまうが、適切な正孔または電子注入層を設けることにより低分子でも発光が起こると予想して実験を続けている。

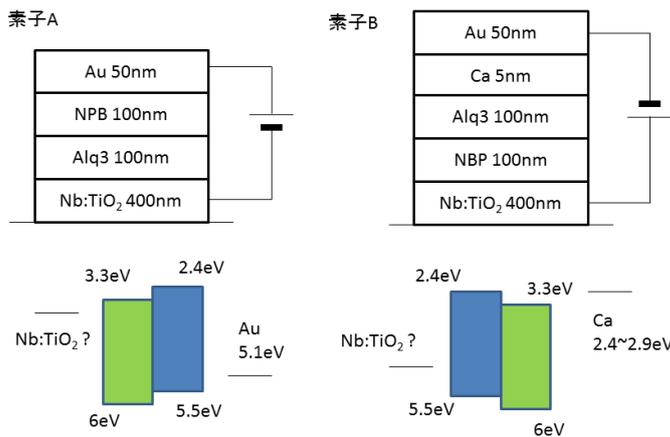


図 19. Nb:TiO₂を透明電極として用いた有機 EL 素子の構造

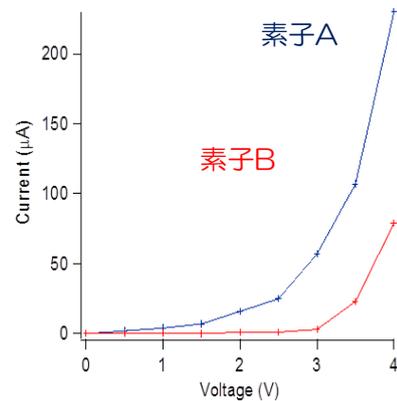


図 20. 素子特性

有機分子のグラフォエピタキシー

広い面積で単結晶的に配向した単分子膜の作製方法を探求した。一般的には、基板にナノスケールの周期的なガイド構造を作るグラフォエピタキシーが有効であることが我々の過去の研究で明らかになっている。微傾斜研磨したシリコン単結晶をビスマス原子で終端化した表面上で分子が配向する機構を明らかにするための実験を行い、電子線回折、表面 X 線回折、transverse shear force microscopy などを用いて作製条件の違う単分子膜の結晶配向を決定した。その結果、ペンタセンでは結晶配向をそろえるのに 3nm 高さのステップで十分なのに対し、DPh-BTBT では 10nm 高さのステップが必要であることがわかった。この理由として、基板および段差の側面(ファセット)との格子整合が分子によって違うことが考えられる。

3. 3. 3. 有機材料の限界を超えるための新規炭素材料合成

有機半導体では、一部の p 型有機半導体を除いては封止が必要である。これは、分子間に酸素分子・水分子など様々な異分子が侵入するためであり、電子素子の構成要素として動作する際には電荷をもつラジカルの状態になるため、入り込んだ異分子と化学反応を起こし劣化する。p 型半導体では関与する軌道のエネルギーを低くすることができるが、n 型半導体では難しい。そのため、異種分子が入り込まない緻密かつ変形可能な低次元物質(グラフェン、MoS₂ など層状物質やカーボンナノチューブ)が注目されている。本研究では、炭素そのものがダイヤモンド・グラファイトといった異性体を持ち、sp²混成軌道と sp³混成軌道のエネルギーの違いから様々な電子状態をとることが可能なことに注目し、新たな炭素材料の創成に取り組んだ。具体的には、sp³炭素が3次元ネットワークを組んだ polyhydridocarbyne (分子式(CH)_n)を原料とし、グラッシーカーボンの薄膜化と新しい炭素同素体の開発に取り組んだ。

塗布焼成によるグラッシーカーボン薄膜の作製

(CH)_nを溶媒に溶解し、耐熱基板(石英ガラス)に塗布して N₂ 中で焼成することによりグラッシーカーボン薄膜を合成することを試み、その光学特性および電気特性を評価した。

1000°Cで焼成した試料の導電性を評価すると、室温で抵抗率 $3.6 \times 10^{-3} \Omega \text{ cm}$ 、キャリア密度(p 型) $2.5 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ 、移動度 $0.68 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ であった。これはグラフェンには及ぶべくもない値ではあるが、導電性高分子よりは格段に高い値であり、特殊用途のデバイス応用(例:電気化学用透明電極など)に適したものであろう。

ラマンスペクトル、可視光透過率、電気伝導度の結果を合わせると、焼成によって起こる現象は次のようなものであると考えられる。まず、脱水素により共役長の短い二重結合が生じる。その後、焼成温度が上がるにつれて脱水素とともに炭素も気相に逃げる。その際に短い共役長を持つ sp²炭素がより多く減少する。同時に共役二重結合がグラフェン状のネットワークを作る。それにより電気伝導性と光透過性の両方が向上する。

(CH)_nの高温高压プロセスによる新規炭素固体の合成

石英ガラス管に(CH)_n試料を封入して 600°C加熱した。このとき、脱離する水素や炭化水素が逃げないため内圧は 10 気圧程度になっていると予想される。その結果、光沢をもつ黒色固体が得られた。これを砕いて TEM 観察を行ったところ、数 nm の固体からダイヤモンドに対応する電子線回折が得られた。

続いて、(CH)_nを原料として HTHP 処理を行い、得られた物質を分析した。HTHP 処理は、物質材料研究機構の超高压グループ(谷口尚グループリーダー、川村史朗研究員)の協力を得て実験を行った。ダイヤモンド-グラファイト境界条件で 10 分間処理した試料の TEM 像と回折像を図 21 に示す。同領域の EDS は炭素以外の成分は見られないが、電子線回折で見られる格子定数はダイヤモンド、グラファイトに対応しない。水素の含量を確認する必要があるが、新しい炭素物質が見出された可能性がある。

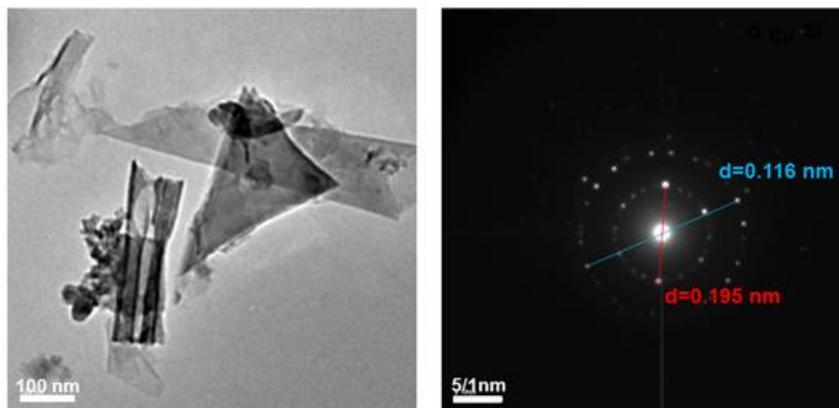


図 21. ダイヤモンド-グラファイト境界条件で 10 分間処理した試料の TEM 像と回折像

有機半導体-無機層状構造ナノ材料複合素子の作製

有機半導体の限界の一つとして、大気中安定なn型半導体が作りにくいということがあげられる。特に、有機ELや有機太陽電池等、光に関連するデバイスではn型半導体のLUMO準位が浅くなくてはならないため、今後も困難が予想される。無機半導体との複合化が検討されているが、一般的な無機半導体では表面にダングリングボンドが生じトラップとなるためキャリア輸送が阻害される。層状構造を持つ無機材料は層に垂直方向にダングリングボンドを持たないため、ナノ構造体を合成して有機半導体と複合化する方法に期待が持たれる。

そこで、層状半導体MoS₂をカーボンナノチューブ上にCVD成長させた物質を作製し、構造の評価を行った(図22)。これをn型半導体とし、有機半導体をp型半導体とする太陽電池をCREST分担者である東大の松尾研究室に依頼して作製し、特性を評価した。光電変換効率は0.46%と低いものであったが、MoS₂がn型半導体として動作していることが確認できた。

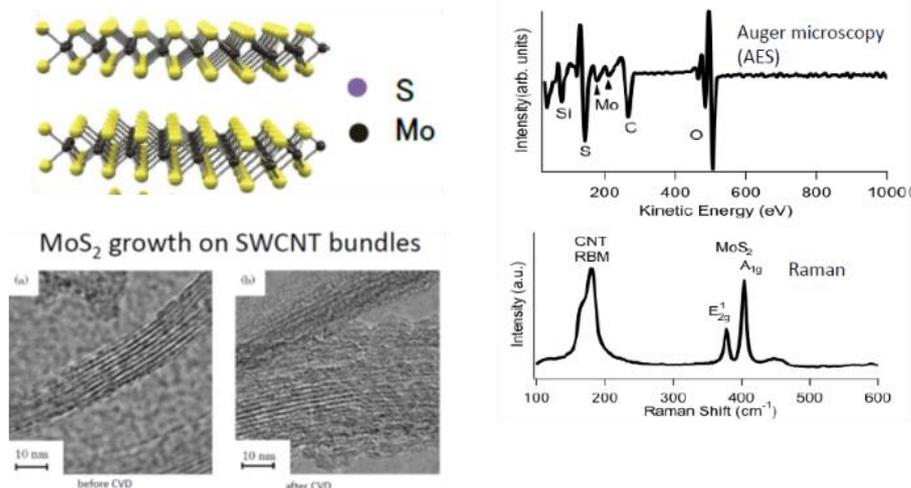


図 22. カーボンナノチューブ・MoS₂ 複合材料の評価

層状金属カルコゲナイドは、表面にダングリングボンドを持たない特異な物質であり、有機物との界面でトラップを生じないなど、デバイスの構成要素として魅力的である。層状金属カルコゲナイドを用いたナノワイヤを作製できれば、有機半導体と複合してバルクヘテロ接合太陽電池を作製することが可能となる。層状金属カルコゲナイドには有機半導体と異なり大気安定なn型半導体が容易に得られること、移動度が高いことなど、多くの特徴がある。我々は、層状金属カルコゲナイドの薄膜成長実験の際に偶然混入した酸化鉄ナノ粒子を起点としてナノワイヤが成長することを見出した。

大気安定な有機ラジカル分子の薄膜デバイス化

通常有機半導体では、大気安定なn型動作する物質はごく少ないことが問題である。森田グループのtBu-TOTは、大気安定な有機ラジカルであり、特異な性質が期待できる。我々は森田グループからtBu-TOTの提供を受け、電界効果トランジスタの作製を試みた。塗布乾燥により薄膜を得る目的で、tBu-TOTを高濃度に溶かす溶媒を探索した。その結果、ヘキシルアミンとジヘキシルアミンにtBu-TOTが溶解することを見出した(図23)。

これをAu/Crのソースドレイン電極がついたSiO₂/Si基板に塗布乾燥させることにより長さ40μmの針状結晶が析出した素子を作成した。そのFET特性を測定したところ、図24のように大気中でn型トランジスタとして動作することが分かった。移動度を算出すると、チャンネル領域全体が伝導に寄与していると仮定すると0.05 cm²/Vs、針状結晶のみが伝導に寄与していると仮定すると2cm²/Vsであった。ブレードコート法などで結晶性の高い薄膜を作ることにより、さらに高い移動度を示すことが予想される。

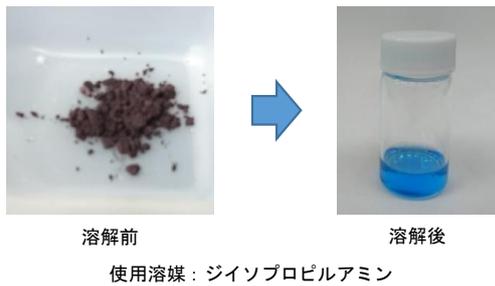


図 23. tBu-TOT の溶液

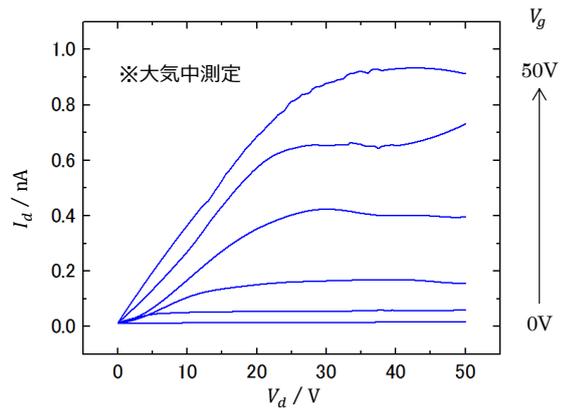


図 24. tBu-TOT 電界効果トランジスタの素子特性

3. 4 新規希土類単酸化物半導体の合成と機能開拓(東北大学 新物質合成グループ)

(1)研究実施内容及び成果

3. 4. 1. 新酸化物半導体 YO

これまで知られているイットリウム酸化物は、Y の価数は 3 価で閉殻の電子配置で Y_2O_3 というワイドギャップ高誘電率絶縁体のみであった。しかしながら、イットリウム酸化物薄膜を超高真空中でパルスレーザー堆積法により作製すると、電気伝導性を有し着色した薄膜ができることを偶然発見した(図 25)。この物質は、Y の価数が 2 価 ($Y^{2+}: 4d^1$) という異常原子価をもつ岩塩構造の単酸化物 YO であることがわかった(図 26 挿入図)。これまで YO は気相でのみ存在が知られていたが、固相として観測されたのはこれが初めての新物質である。光吸収スペクトルは Y_2O_3 と大きく異なり、可視光領域に吸収をもち、バンドギャップは約 0.2 eV である(図 26 左)。また、室温の電気抵抗率も Y_2O_3 より 14 桁以上も小さく、通常の酸化物半導体と同じく、酸素欠損量を調節することで 4 桁もの範囲で制御可能である(図 26 右)。すなわち、YO が新しいクラスの酸化物半導体であり、これまで高誘電率絶縁体でゲート絶縁層材料としてしか見なされていなかった希土類酸化物において、異常原子価を実現することで新しい機能を発掘したことを意味する。この成果を記した論文はエディター選出 Editor's Picks 論文となり[K. Kaminaga et al., Appl. Phys. Lett. (2016)]、筆頭著者は学振特別研究生(DC2)に採択された。

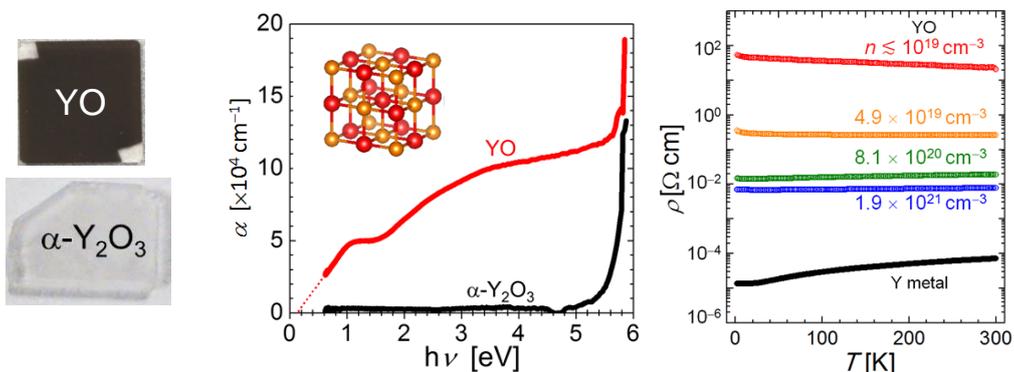


図 25. YO 薄膜と Y_2O_3 薄膜の写真 図 26. 光吸収スペクトル(左)と抵抗率の温度依存性(右)

3. 4. 2. ビスマス層状酸化物 Y_2O_2Bi での超伝導体発現

鉄系超伝導体は高温超伝導を示し、類似した結晶構造をもつ物質で超伝導体探索がさかんに行われている。そのなかの一つが 2011 年に合成が報告された R_2O_2Bi (R : Y および希土類) であるが、 R に依存した化学圧力による絶縁体-金属転移や反強磁性転移が見つかったものの [H. Mizoguchi et al., J. Am. Chem. Soc. (2011)]、非超伝導体と見なされていた [H. Hosono et al., S. Sci. Technol. Adv. Mater. (2015)]。この R_2O_2Bi は鉄系超伝導体 $BaFe_2As_2$ と同じ結晶構造をもつ (図 27)。後者では $FeAs$ ブロック層が超伝導を担う層であるが、前者では RO ブロック層は絶縁層で、逆に Bi 正方格子単原子層が電気伝導層と対照的である。また、 Bi は -2 価という異常原子価をもち、安定元素のなかでもっとも大きな原子番号をもつことから、大きなスピン軌道相互作用が期待できる。そのため、近年精力的に研究されているトポジカル絶縁体としての性質を持つ可能性がある。

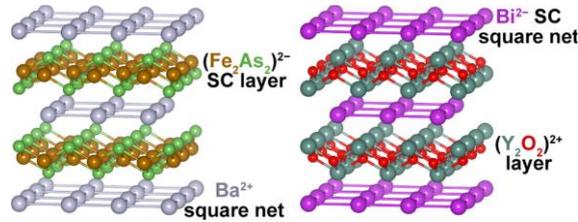


図 27. $BaFe_2As_2$ と Y_2O_2Bi の結晶構造

まだ単結晶合成の成功例がないため、エピタキシャル薄膜の作製を試みたところ、固相エピタキシー法の開発と改良により、高い結晶性をもつ Y_2O_2Bi 薄膜の作製に成功した [R. Sei et al., Cryst Growth Des. (2014); ACS Appl. Mater. Interf. (2015)]。元来は、 R_2O_2Bi 薄膜の合成と基礎物性を調べる予定であったが、超伝導転移の兆しが見えたため、 Y_2O_2Bi 多結晶の物性研究を開始した。化学量論組成の試料では超伝導転移は見られなかったが、酸素量過剰の試料ではゼロ抵抗と十分大きな超伝導体積分率をもつ超伝導を観測することに成功した (図 28)。それまで超伝導が発現していないとされていたため、想定外の結果である。Berezinskii-Kosterlitz-Thouless 転移も観測され、 Bi 正方格子を反映した二次元超伝導を示すことがわかった。初めての Bi 正方格子が主体となる超伝導体である。興味深いのは、隣接する Bi 正方格子の間隔がわずかに増えると超伝導が発現することであり (図 29)、その間隔がわずかに増加すると超伝導転移温度は急激に上昇する。酸素が結晶の隠れたサイトに取り込まれて c 軸が伸張することで超伝導が発現していると考えられ (図 29)、層状物質を超伝導体にする新たな手段ともいえる。

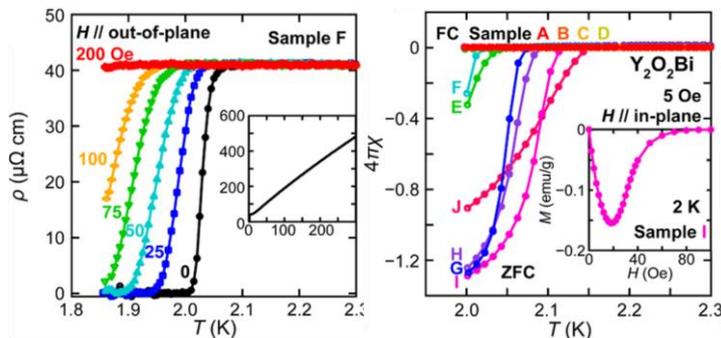


図 28. Y_2O_2Bi の抵抗率(左)と磁化(右)の温度依存性

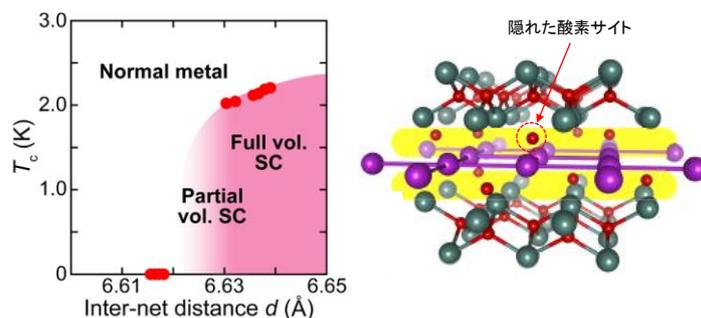


図 29. $\text{Y}_2\text{O}_2\text{Bi}$ の超伝導(SC)の Bi 正方格子間距離依存性(左)と磁化予想される隠れた酸素サイト位置(右)

§ 4 成果発表等

(1)原著論文発表 (国内(和文)誌 3 件、国際(欧文)誌 94 件)

1. 著者、論文タイトル、掲載誌 巻、号、発行年

1. Shoichiro Nakao, Naomi Yamada, Yasushi Hirose and Tetsuya Hasegawa, “Enhanced Carrier Generation in Nb-Doped SnO_2 Thin Films Grown on Strain-Inducing Substrates”, *Appl. Phys. Express* 5, 061201 (2012). (DOI: 10.1143/APEX.5.061201)

2. C. Yang, Y. Hirose, S. Nakao, N. L. H. Hoang and T. Hasegawa, “Metal-induced solid-phase crystallization of amorphous TiO_2 thin films”, *Appl. Phys. Lett.* 101, 052101 (2012). (DOI: 10.1063/1.4739934)

3. Shosei Kubota, Tetsu Yonezawa, Taro Nagahama and Toshihiro Shimada, “Change in the Morphology of the Terrace Edges on Graphite Surfaces by Electrochemical Reduction”, *Chem. Lett.* 41, 187 (2012). (DOI: 10.1246/cl.2012.187)

4. Takashi Yanase, Tetsuya Hasegawa, Taro Nagahama and Toshihiro Shimada “Fabrication of Piezoelectric Polyurea Films by Alternating Deposition” *Jpn. J. Appl. Phys.* 51, 041603 (2012) (DOI: 10.1143/JJAP.51.041603)

5. Kee Sheng Yeo, Shoichiro Nakao, Yasushi Hirose, Tetsuya Hasegawa, Yutaka Matsuo, “Application of Sputter-deposited Anatase TiO_2 as Electron-collecting Layers in Inverted Organic Photovoltaics”, *Org. Electron.* 14, 1715 (2013). (DOI: 10.1016/j.orgel.2013.04.007)

6. Akira Chikamatsu, Toshiya Matsuyama, Tsukasa Katayama, Yasushi Hirose, Hiroshi Kumigashira, Masaharu Oshima, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Electronic and transport properties of Eu-substituted infinite-layer strontium ferrite thin films”, *J. Cryst. Growth* 378, 165 (2013). (DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2012.12.067)

7. Kenta Shimamoto, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Solid phase epitaxy of EuTiO_3 thin films on SrTiO_3 (100) substrates with different oxygen contents”, *J. Cryst. Growth* 378, 243 (2013). (DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2012.12.117)

8. Kenta Shimamoto, Kunitada Hatabayashi, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Full compensation of oxygen vacancies in EuTiO_3 (001) epitaxial thin film stabilized by a SrTiO_3 surface protection layer”, *Appl. Phys. Lett.* 102, 042902 (2013). (DOI:10.1063/1.4789778)

9. J. Jaćimović, R. Gaál, A. Magrez, J. Piatek, L. Forró, S. Nakao, Y. Hirose, and T. Hasegawa, “Low temperature resistivity, thermoelectricity and power factor of Nb doped anatase TiO₂”, *Appl. Phys. Lett.* 102, 013901 (2013). (DOI:10.1063/1.4773517)
10. Sohei Okazaki, Junpei Ohkubo, Shoichiro Nakao, Yasushi Hirose, Taro Hitosugi, and Tetsuya Hasegawa, “Fabrication of Nb-Doped TiO₂ Transparent Conducting Films by Post-Deposition Annealing under Nitrogen Atmosphere”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 51, 118003 (2012). (DOI:10.1143/JJAP.51.118003)
11. Satoru Mohri, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, Naoomi Yamada, Toshihiro Shimada, and Tetsuya Hasegawa, “Transparent conductivity of fluorine-doped anatase TiO₂ epitaxial thin films”, *J. Appl. Phys.*, 111, 093528 (2012). (DOI:10.1063/1.4712061)
12. N. S. Sokolov, S. M. Sutturin, B. B. Krichevtsov, V. G. Dubrovskii, S. V. Gastev, N. V. Sibirev, D. A. Baranov, V. V. Fedorov, A. A. Sitnikova, A. V. Nashchekin, V. I. Sakharov, I. T. Serenkov, T. Yanase, T. Shimada, M. Tabuchi, “Cobalt epitaxial nanoparticles on CaF₂/Si(111): growth process, morphology, crystal structure and magnetic properties”, *Phys. Rev. B* 87, 125407 (2013). (DOI: 10.1103/PhysRevB.87.125407)
13. Toshihiro Shimada, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Toshiyuki Kanno, “Estimation of gas permeation characteristics of ultrahigh barrier edge sealing materials from asymptotic solution of diffusion equation”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 52, 05DA12 (2013). (DOI: 10.7567/JJAP.52.05DA12)
14. Toshihiro Shimada, Naoki Muraya, Jun Tomita, Takashi Yanase, Taro Nagahama, “Influence of molecular structure on plasma carbonization of organic semiconductor molecules”, *J. Phys. Conf. Ser.* 441, 012041 (2013). (DOI: 10.1088/1742-6596/441/1/012041)
15. Takashi Yanase, Tetsuya Hasegawa, Taro Nagahama, Toshihiro Shimada, “Solvent effects in the transient characteristics of liquid-gate field effect transistors with silicon substrate”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 51, 111803 (2012). (DOI: 10.1143/JJAP.51.111803)
16. Sawako Miyamoto, Tetsuya Hasegawa, Hiroyuki Takahashi, Tetsu Yonezawa, Hajime Kiyono, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Toshihiro Shimada, “Fabrication of ZnO nanorods by atmospheric pressure solid source CVD using ethanol-assisted low temperature vaporization”, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* 85, 1287 (2012). (DOI: 10.1246/bcsj.20120202)
17. Hajime Kiyono, Yuuya Matsuda, Toshihiro Shimada, Mariko Ando, Itaru Oikawa, Hideki Maekawa, Susumu Nakayama, Shinobu Ohki, Masataka Tansho, Tadashi Shimizu, Pierre Florian, Dominique Massiot, “Oxygen-17 Nuclear Magnetic Resonance Measurements on Apatite-Type Lanthanum Silicate (La_{9.33}(SiO₄)₆O₂) NMR apatite”, *Solid State Ionics* 228, 64 (2012). (DOI: 10.1016/j.ssi.2012.09.016)
18. Sohei Okazaki, Takuya Ohhashi, Shoichiro Nakao, Yasushi Hirose, Taro Hitosugi, and Tetsuya Hasegawa, “Wet Etching of Amorphous TiO₂ Thin Films Using H₃PO₄-H₂O₂ Aqueous Solution”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 52, 098002 (2013). (DOI:10.7567/JJAP.52.098002)
19. Chang Yang, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, and Tetsuya Hasegawa, “c-axis-oriented growth of anatase TiO₂ thin films on glass substrate with SrTiO₃/TiN template”, *J. Cryst.*

Growth 376, 66 (2013). (DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2013.04.050)

20. Takashi Yanase, Taro Nagahama, Toshihiro Shimada, “Fabrication and characterization of photo-responsive organic p-type/n-type/piezoelectric tricolor superlattices”, *Appl. Phys. Lett.* 103, 133305 (2013). (DOI:10.1063/1.4822312)

21. Manabu Ohtomo, Yuya Tsuchida, Naoki Muraya, Takashi Yanase, Seiji Sakai, Tetsu Yonezawa, Taro Nagahama, Tetsuya Hasegawa, Toshihiro Shimada, “In-plane Orientation Control of 2,7-Diphenyl[1]benzothieno[3,2-b][1]benzothiophene Monolayer on Bismuth-Terminated Si(111) Vicinal Surfaces with Wettability Optimization”, *J. Phys. Chem. C* 117, 11555 (2013). (DOI: 10.1021/jp3117837)

22. Atsushi Suzuki, Yasushi Hirose, Daichi Oka, Shoichiro Nakao, Tomoteru Fukumura, Satoshi Ishii, Kimikazu Sasa, Hiroyuki Matsuzaki, and Tetsuya Hasegawa, “High-Mobility Electron Conduction in Oxynitride: Anatase TaON”, *Chem. Mater.* 26, 976 (2014). (DOI:10.1021/cm402720d)

23. Shoichiro Nakao, Naomi Yamada, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, “Electrical and Structural Properties of Ta-doped SnO₂ Transparent Conductive Thin Films by Pulsed Laser Deposition”, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* 1604, (2014). (DOI: 10.1557/opl.2014.332)

24. Anri Watanabe, Yuki Kotake, Yoshiomi Kamata, Akira Chikamatsu, Kosei Ueno, Hiroaki Misawa, and Tetsuya Hasegawa, “Photoelectrochemical Behavior of Self-Assembled Ag/Co Plasmonic Nanostructures Capped with TiO₂”, *J. Phys. Chem. Lett.* 5, 25 (2014). (DOI:10.1021/jz402320p)

25. Y. Park, Y. Hirose, S. Nakao, T. Fukumura, J. Xu, and T. Hasegawa, “Quantum confinement effect in Bi anti-dot thin films with tailored pore wall widths and thicknesses”, *Appl. Phys. Lett.* 104, 023106 (2014). (DOI:10.1063/1.4861775)

26. Daichi Oka, Yasushi Hirose, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Heteroepitaxial Growth of Perovskite CaTaO₂N Thin Films by Nitrogen Plasma-Assisted Pulsed Laser Deposition”, *Cryst. Growth Des.* 14, 87 (2014). (DOI:10.1021/cg401176j)

27. T. Katayama, A. Chikamatsu, Y. Hirose, H. Kumigashira, T. Fukumura, T. Hasegawa, “Metallic conductivity in infinite-layer strontium iron oxide thin films reduced by calcium hydride”, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 47, 135304 (2014). (DOI: 10.1088/0022-3727/47/13/135304)

28. Chang Yang, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, and Tetsuya Hasegawa, “TiO₂ thin film crystallization temperature lowered by Cu-induced solid phase crystallization”, *Thin Solid Films* 553, 17 (2014). (DOI: 10.1016/j.tsf.2013.12.041)

29. Anri Watanabe, Katsura Ikemiya, Akira Chikamatsu, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, “Structural Variation in Ag-Co Nanostructures Embedded in TiO₂ Thin Films Fabricated by Pulsed Laser Deposition”, *Chem. Lett.* 43, 225 (2014). (DOI:10.1246/cl.130903)

30. Wei Xie, Naoki Muraya, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Toshihiro Shimada, “Diamond-like carbon doped with highly π -conjugate molecules by plasma-assisted CVD”,

Jpn. J. Appl. Phys. 53, 010203 (2014) (Selected Topics in Applied Physics)
(DOI:10.7567/JJAP.53.010203)

31. Toshihiro Shimada, Shosei Kubota, Takashi Yanase, Taro Nagahama, “Formation of graphite zigzag edges by cathodic electrochemical etching in acidic solution”, Carbon 67, 300 (2014). (DOI:10.1016/j.carbon.2013.09.092)

32. S. Okazaki, Y. Hirose, S. Nakao, C. Yang, I. Harayama, D. Sekiba, and T. Hasegawa, “Epitaxial Growth of Indium Oxyfluoride Thin Films by Reactive Pulsed Laser Deposition: Structural Change Induced by Fluorine Insertion into Vacancy Sites in Bixbyite Structure”, Thin Solid Films, 559, 96 (2014). (DOI: 10.1016/j.tsf.2013.11.059)

33. D. Oka, Y. Hirose, H. Kamisaka, T. Fukumura, K. Sasa, S. Ishii, H. Matsuzaki, Y. Sato, Y. Ikuhara, and T. Hasegawa, “Possible Ferroelectricity in Perovskite Oxynitride SrTaO₂N Epitaxial Thin Films”, Sci. Rep., 4, 4987 (2014). (DOI: 10.1038/srep04987)

34. T. Katayama, A. Chikamatsu, Y. Hirose, R. Takagi, H. Kamisaka, T. Fukumura and T. Hasegawa, “Topotactic Fluorination of Strontium Iron Oxide Thin Films using Polyvinylidene Fluoride”, J. Mater. Chem. C, 2, 5350 (2014). (DOI: 10.1039/C4TC00558A)

35. K. Shigematsu, A. Chikamatsu, T. Fukumura, S. Toyoda, E. Ikenaga, and T. Hasegawa, “Sr₂MgMoO₆ Thin Films Fabricated Using Pulsed-laser Deposition with High Concentrations of Oxygen Vacancies”, Appl. Phys. Lett., 104, 261901 (2014). (DOI: 10.1063/1.4886136)

36. K. Taira, Y. Hirose, S. Nakao, N. Yamada, T. Kogure, T. Shibata, T. Sasaki, and T. Hasegawa, “Lateral Solid-Phase Epitaxy of Oxide Thin Films on Glass Substrate Seeded with Oxide Nanosheets”, ACS Nano, 8, 6145 (2014). (DOI: 10.1021/nn501563j)

37. T. S. Krasienapibal, T. Fukumura, Y. Hirose, and T. Hasegawa, “Improved Room Temperature Electron Mobility in Self-Buffered Anatase TiO₂ Epitaxial Thin Film Grown at Low Temperature”, Jpn. J. Appl. Phys., 53, 090305 (2014). (DOI: 10.7567/JJAP.53.090305)

38. X. Shen, A. Chikamatsu, K. Shigematsu, Y. Hirose, T. Fukumura, and T. Hasegawa, “Metallic Transport and Large Anomalous Hall Effect at Room Temperature in Ferrimagnetic Mn₄N epitaxial thin film”, Appl. Phys. Lett., 105, 072410 (2014). (DOI: 10.1063/1.4893732)

39. R. Sei, T. Fukumura, and T. Hasegawa, “Reductive Solid Phase Epitaxy of Layered Y₂O₂Bi with Bi²⁻ Square Net from (Y, Bi) Powders and Y₂O₃ Amorphous Thin Film”, Cryst. Growth Des., 14, 4227 (2014). (DOI:10.1021/cg5009297)

40. W. Zhu, H. Kamisaka, D. Oka, Y. Hirose, A. Leto, T. Hasegawa, and G. Pezzotti, “Stress Stabilization of a New Ferroelectric Phase Incorporated into SrTaO₂N Thin Films”, J. Appl. Phys., 116, 053505 (2014). (DOI: 10.1063/1.4891981)

41. S. Nakao, Y. Hirose, T. Fukumura, and T. Hasegawa, “Carrier Generation Mechanism and Effect of Tantalum-Doping in Transparent Conductive Amorphous SnO₂ Thin Films”, Jpn. J. Appl. Phys., 53, 05FX04 (2014). (DOI: 10.7567/JJAP.53.05FX04)

42. J. P. Niemela, Y. Hirose, T. Hasegawa, and M. Karppinen, “Transition in Electron

Scattering Mechanism in Atomic Layer Deposited Nb:TiO₂ Thin Films”, *Appl. Phys. Lett.*, 106, 042101 (2015). (DOI: 10.1063/1.4906865)

43. T. Katayama, A. Chikamatsu, Y. Hirose, T. Fukumura, and T. Hasegawa, “Topotactic Reductive Fluorination of Strontium Cobalt Oxide Epitaxial Thin Films”, *J. Sol-Gel Sci. Technol.*, 73, 527 (2015). (DOI: 10.1007/s10971-014-3499-x)

44. Takashi Yanase, Aiko Kawahito, Yu Hashimoto, Takashi Endo, Yongming Wang, Taro Nagahama and Toshihiro Shimada, “Fe Whisker Growth Revisited: Effect of Au Catalysis for [02-1] Oriented Nanowires with 100-nm Diameter”, *RSC Advances*, 4, 27620 (2014). (DOI: 10.1039/C4RA02966F)

45. Toshihiro Shimada, Taro Nagahama, Takashi Yanase, “Electrostatic model of a solid state capacitor with ionizable charge traps”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 53, 088004 (2014). (DOI: 10.7567/JJAP.53.088004)

46. Takahiro Tamura, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Makoto Wakeshima, Yoshio Hinatsu, Toshihiro Shimada, “Versatile simple doping technique for diamond by solid dopant source immersion during microwave plasma CVD”, *Chem. Lett.*, 43, 1569 (2014). (DOI: 10.1246/cl.140598)

47. Taro Nagahama, Yuya Matsuda, Kazuya Tate, Shungo Hiratani, Yusuke Watanabe, Tomohiro Kawai, Nozomi Takahashi, Takashi Yanase, Toshihiro Shimada, “Magnetic properties of epitaxial Fe₃O₄ films with various crystal orientations and TMR effect in room temperature”, *Appl. Phys. Lett.*, 105, 102410 (2014). (DOI: 10.1063/1.4894575)

48. A. Kawahito, T. Endo, T. Yanase, T. Nagahama, T. Shimada, “Fabrication of Fe nanowires on yttrium stabilized zirconia single crystal substrates by thermal CVD methods”, *J. Appl. Phys.* 117, 17D506 (2015). (DOI: 10.1063/1.4908150)

49. Il Jeon, Dai Kutsuzawa, Yu Hashimoto, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Toshihiro Shimada, Yutaka Matsuo, “Multilayered MoS₂ Nanoflakes Bound to Carbon Nanotubes as Electron Acceptors in Bulk Heterojunction Inverted Organic Solar Cells”, *Organic Electronics*, 17, 285 (2015). (DOI: 10.1016/j.orgel.2014.12.025)

50. Jie Wei, Daisuke Ogawa, Tomoteru Fukumura, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, “Epitaxial Strain-Controlled Ionic Conductivity in Li-Ion Solid Electrolyte Li_{0.33}La_{0.56}TiO₃ Thin Films”, *Cryst. Growth Des.* 15, 2187 (2015). (DOI: 10.1021/cg501834s)

51. T. S. Krasienapibal, S. Inoue, T. Fukumura, and T. Hasegawa, “Observation of magnetic domain structure in anatase (Ti,Co)O₂ thin film at room temperature”, *Appl. Phys. Lett.* 106, 202402(2015). (DOI: 10.1063/1.4921464)

52. A. Suzuki, Y. Hirose, D. Oka, S. Nakao, T. Fukumura, and T. Hasegawa, “Low temperature epitaxial growth of anatase TaON using anatase TiO₂ seed layer”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 54, 080303 (2015). (DOI: 10.7567/JJAP.54.080303)

53. K. Kurita, A. Chikamatsu, K. Shigematsu, T. Katayama, H. Kumigashira, T. Fukumura and T. Hasegawa, “Effects of Cr substitution on the magnetic and transport properties and

electronic states of SrRuO₃ epitaxial thin films”, Phys. Rev. B 92, 115153 (2015). (DOI: 10.1103/PhysRevB.92.115153)

54. T. Katayama, A. Chikamatsu, H. Kamisaka, Y. Yokoyama, Y. Hirata, H. Wadati, T. Fukumura, and T. Hasegawa, “Topotactic synthesis of strontium cobalt oxyhydride thin film with perovskite structure”, AIP Adv. 5, 107147 (2015). (DOI: 10.1063/1.4935190)

55. Janne-Petteri Niemelä, Y. Hirose, K. Shigematsu, M. Sano, T. Hasegawa, and Maarit Karppinen, “Suppressed grain-boundary scattering in ALD Nb:TiO₂ thin films”, Appl. Phys. Lett., 107, 192102 (2015). (DOI: 10.1063/1.4935425)

56. D. Oka, Y. Hirose, S. Nakao, T. Fukumura and T. Hasegawa, “Intrinsic high electrical conductivity of stoichiometric SrNbO₃ epitaxial thin film”, Phys. Rev. B 92, 205102 (2015). (DOI: 10.1103/PhysRevB.92.205102)

57. M. Oka, H. Kamisaka, T. Fukumura, and T. Hasegawa, “DFT-based Ab Initio MD Simulation of the Ionic Conduction in Doped ZrO₂ systems under Epitaxial Strain”, Phys. Chem. Chem. Phys. 17, 29057 (2015). (DOI: 10.1039/C5CP03238E)

58. Ryosuke Sei, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “2D Electronic Transport with Strong Spin-Orbit Coupling in Bi²⁺ Square Net of Y₂O₂Bi Thin Film Grown by Multilayer Solid-Phase Epitaxy”, ACS Appl. Mater. Interfaces 7, 24998 (2015). (DOI: 10.1021/acsami.5b07825)

59. S. Kojima, T. Fukumura, and T. Hasegawa, “Effect of Central Metals on Langmuir-Blodgett Monolayers of Phthalocyanines with Flexible Substituents”, e-J. Surf. Sci. Nanotech. 13, 155 (2015). (DOI: 10.1380/ejssnt.2015.155)

60. J. Takahashi, Y. Hirose, D. Oka, S. Nakao, C. Yang, T. Fukumura, I. Harayama, D. Sekiba, and T. Hasegawa, “Composition-induced structural, electrical, and magnetic phase transitions in AX-type mixed-valence cobalt oxynitride epitaxial thin films”, Appl. Phys. Lett. 107, 231906 (2015). (DOI: 10.1063/1.4937431)

61. T. Katayama, A. Chikamatsu, H. Kamisaka, H. Kumigashira and T. Hasegawa, “Experimental and theoretical investigation of electronic structure of SrFeO_{3-x}F_x epitaxial thin films prepared via topotactic reaction”, App. Phys. Express 9, 025801 (2016). (DOI: 10.7567/APEX.9.025801)

62. Il Jeon, S. Nakao, Y. Hirose, T. Hasegawa, and Y. Matsuo, “Indium-free Inverted Organic Solar Cells Using Niobium-doped Titanium Oxide with Integrated Dual Function of Transparent Electrode and Electron Transport Layer”, Adv. Electron. Mater. 1, 1500341 (2016). (DOI: 10.1002/aelm.201500341)

63. S. Nakao, Y. Hirose, and T. Hasegawa, “Effects of reductive annealing on insulating polycrystalline thin films of Nb-doped anatase TiO₂: recovery of high conductivity”, J. Semiconductors 37, 022001 (2016) (DOI: 10.1088/1674-4926/37/2/022001)

64. T. S. Krasienapibal, T. Fukumura and T. Hasegawa, “Curie temperature of Co-doped TiO₂ as functions of carrier density and Co content evaluated from electrical transport and

magnetization at low temperature regime”, AIP Adv. 6, 055802 (2016). (DOI: 10.1063/1.4942554)

65. T. Katayama, A. Chikamatsu, T. Fukumura, and T. Hasegawa, “Topotactic reductive synthesis of A-site cation-ordered perovskite YBaCo_2O_x ($x = 4.5\text{--}5.5$) epitaxial thin films”, Jpn. J. Appl. Phys., 55, 04EJ05 (2016). (DOI: 10.7567/JJAP.55.04EJ05)

66. Kenichi. Kaminaga, Ryosuke Sei, Kouichi Hayashi, Naohisa Happo, Hiroo Tajiri, Daichi Oka, Tomoteru Fukumura, Tetsuya Hasegawa, “A divalent rare earth oxide semiconductor: Yttrium monoxide”, Appl. Phys. Lett., 108, 122102 (2016). (DOI: 10.1063/1.4944330)

67. 島田敏宏、柳瀬隆、長浜太郎、土田裕也、村谷直紀, “逐次蒸着した有機半導体 pn 接合における自発的な分子の混合”, 電気学会論文 C 部門誌 135, 160 (2015).

68. 島田敏宏、柳瀬隆、長浜太郎, “フレキシブルデバイスのための 価数変化可能な極板を持つ蓄電素子の静電気学的考察” 電気学会論文 C 部門誌 135, 164 (2015).

69. Wei Xie, Aiko Kawahito, Takuya Miura, Takashi Endo, Yongming Wang, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Yukitoshi Otani, Toshihiro Shimada, “Colorful carbon nanopopcorns formed by co-depositing C60 with diamond-like carbon followed by reaction with water vapor”, Chem. Lett. 44, 1205 (2015). (DOI: 10.1246/cl.150470)

70. Nozomi Takahashi, Tomohiro Kawai, Takashi Yanase, Toshihiro Shimada, and Taro Nagahama, “Investigation of epitaxial growth and tunnel magnetoresistance effects in magnetic tunnel junctions including spinel ferrite layers”, Jpn. J. Appl. Phys. 54, 118003 (2015). (DOI: 10.7567/JJAP.54.118003)

71. Wei Xie, Takashi Yanase, Taro Nagahama and Toshihiro Shimada, “Carbon-Doped Hexagonal Boron Nitride: Analysis as π -Conjugate Molecules Embedded in Two Dimensional Insulator”, C: Journal of Carbon Research 2, 2 (2016). (DOI: 10.3390/c2010002)

72. Takashi Yanase, Sho Watanabe, Mengting Weng, Taro Nagahama, and Toshihiro Shimada, “Chemical Vapor Deposition of MoS_2 : Insight into the Growth Mechanism by Separated Gas Flow Experiments”, J. Nanosci. Nanotechnol. 16, 3223 (2016). (DOI: 10.1166/jnn.2016.12313)

73. T. Onozuka, A. Chikamatsu, T. Katayama, T. Fukumura and T. Hasegawa, “Formation of defect-fluorite structured NdNiO_xH_y epitaxial thin films via a soft chemical route from NdNiO_3 precursors”, Dalton Trans. 45, 12114 (2016). (DOI: 10.1039/C6DT01737A)

74. P. Mazzolini, V. Russo, C. S. Casari, T. Hitosugi, S. Nakao, T. Hasegawa, and A. L. Bassi, “Vibrational – Electrical Properties Relationship in Donor Doped TiO_2 by Raman Spectroscopy”, J. Phys. Chem. C 120, 18878 (2016). (DOI: 10.1021/acs.jpcc.6b05282)

75. Ryosuke Sei, Suguru Kitani, Tomoteru Fukumura, Hitoshi Kawaji, and Tetsuya Hasegawa, “Two Dimensional Superconductivity Emerged at Monatomic Bi_2 - Square Net in Layered $\text{Y}_2\text{O}_2\text{Bi}$ via Oxygen Incorporation”, J. Am. Chem. Soc. 138, 11085 (2016). (DOI: 10.1021/jacs.6b05275)

76. Tsukasa Katayama, Akira Chikamatsu, Keisuke Yamada, Kei Shigematsu, Tomoya Onozuka,

Makoto Minohara, Hiroshi Kumigashira, Eiji Ikenaga and Tetsuya Hasegawa, “Epitaxial growth and electronic structure of oxyhydride SrVO₂H thin films”, *J. Appl. Phys.* 120, 085305 (2016). (DOI: 10.1063/1.4961446)

77. I. Harayama, K. Nagashima, Y. Hirose, H. Matsuzaki, and D. Sekiba, “Development of ΔE -E telescope ERDA with 40 MeV ³⁵Cl⁷⁺ beam at MALT in the University of Tokyo optimized for analysis of metal oxynitride thin films”, *Nucl. Instr. Meth. Phys. Phys. Res. B* 384, 61 (2016). (DOI: 10.1016/j.nimb.2016.07.019)

78. T. Tamura, T. Takami, S. Kobayashi, T. Nagahama, T. Yanase, T. Shimada, “Formation of bismuth-core-carbon-shell nanoparticles by bismuth immersion during plasma CVD synthesis of thin diamond films”, *Diamond & Related Materials* 69, 127 (2016). (DOI: 10.1016/j.diamond.2016.07.015)

79. T. Yanase, S. Watanabe Mengting Weng, M. Wakeshima, Y. Hinatsu, T. Nagahama, T. Shimada, “Chemical Vapor Deposition of NbS₂ from a Chloride Source with H₂ Flow: Orientation Control of Ultrathin Crystals Directly Grown on SiO₂/Si Substrate and Charge Wave Transition”, *Cryst. Growth Des.* 16, 4467 (2016). (DOI: 10.1021/acs.cgd.6b00601)

80. Y. Nakano, T. Yanase, T. Nagahama, H. Yoshida, T. Shimada, “Accurate and stable equal-pressure measurements of water vapor transmission rate reaching the 10⁻⁶ g m⁻² day⁻¹ range”, *Scientific Reports* 6, 35408 (2016). (DOI: 10.1038/srep35408)

81. Il Jeon, Yang Qian, Shoichiro Nakao, Daisuke Ogawa, Rong Xiang, Taiki Inoue, Shohei Chiashi, Tetsuya Hasegawa, Shigeo Maruyama, and Yutaka Matsuo, “Room Temperature-processed Inverted Organic Solar Cells using High Working-Pressure-Sputtered ZnO film”, *J. Mater. Chem. A* 4, 18763 (2016). (DOI: 10.1039/C6TA08068E)

82. 島田敏宏、柳瀬隆、田村貴大、高見拓哉、伊高健治, “真空封止・試料固定用の接着技術”, *表面科学* 38, 89 (2017). (DOI: 10.1380/jsssj.38.89)

83. K. Kawahara, A. Chikamatsu, T. Katayama, T. Onozuka, T. Fukumura and T. Hasegawa, “Topotactic fluorination of perovskite strontium ruthenate thin films using polyvinylidene fluoride”, *CrystEngComm*, 19, 313 (2017). (DOI: 10.1039/C6CE02358D)

84. Yutaka Uchida, Kenichi Kaminaga, Tomoteru Fukumura, Tetsuya Hasegawa, “Samarium monoxide epitaxial thin film as a possible heavy fermion compound”, *Phys. Rev. B* 95, 125111 (2017). (DOI: 10.1103/PhysRevB.95.125111)

85. Thantip S. Krasienapibal, Tomoteru Fukumura, Tetsuya Hasegawa, “Recovery of magnetically dead layer at surface of anatase (Ti,Co)O₂ thin film via ultrathin TiO₂ capping layer”, *Electronics* 6, 23 (2017). (DOI: 10.3390/electronics6010023)

86. M. Sano, Y. Hirose, S. Nakaob and T. Hasegawa, “Strong Carrier Localization in δ Perovskite Oxynitride LaVO_{3-x}N_x Epitaxial Thin Film”, *J. Mater. Chem. C* 5, 1798 (2017). (DOI: 10.1039/C6TC04160D)

87. Takanori Yamazaki, Kei Shigematsu, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, Isao Harayama, Daiichiro Sekiba, and Tetsuya Hasegawa, “Amorphous ZnO_xN_y thin films with high electron Hall

mobility exceeding $200 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ”, *Appl. Phys. Lett.* 109, 262101 (2016). (DOI: 10.1063/1.4973203)

88. Shoichiro Nakao, Hideyuki Kamisaka, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, “Structural, electrical, and optical properties of polycrystalline NbO_2 thin films on glass substrates grown by solid phase crystallization”, *Phys. Status Solidi A* 214, 1600604 (2017). (DOI:10.1002/pssa.201600604)

89. Daisuke Ogawa, Shoichiro Nakao, Kazuo Morikawa, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, “Effect of micromorphology on transport properties of Nb-doped anatase TiO_2 films: a transmission electron microscopy study”, *Phys. Status Solidi A* 214, 1600606 (2017). (DOI:10.1002/pssa.201600604)

90. Daichi Oka, Yasushi Hirose, Fumihiko Matsui, Hideyuki Kamisaka, Tamio Oguchi, Naoyuki Maejima, Hiroaki Nishikawa, Takayuki Muro, Koichi Hayashi, and Tetsuya Hasegawa, “Strain engineering for anion arrangement in perovskite oxynitrides”, *ACS Nano* 11, 3860 (2017). (DOI: 10.1021/acsnano.7b00144)

91. Yuji Kurauchi, Hideyuki Kamisaka, Tsukasa Katayama, Akira Chikamatsu, and Tetsuya Hasegawa, “First-Principles Calculations on the Crystal/Electronic Structure and Phase Stability of H-Doped SrFeO_2 ”, *J. Phys. Chem. C* 121, 7478 (2017). (DOI: 10.1021/acs.jpcc.6b12863)

92. Tomoya Onozuka, Akira Chikamatsu, Tsukasa Katayama, Yasushi Hirose, Isao Harayama, Daiichiro Sekiba, Eiji Ikenaga, Makoto Minohara, Hiroshi Kumigashira, and Tetsuya Hasegawa, “Reversible Changes in Resistance of Perovskite Nickelate NdNiO_3 Thin Films Induced by Fluorine Substitution”, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 9, 10882 (2017). (DOI: 10.1021/acsmi.7b00855)

93. Daichi Oka and Tomoteru Fukumura, “Crystal engineering for novel functionalities with oxide thin film epitaxy” (Highlight article), *CrystEngComm* 19, 313 (2017). (DOI: 10.1039/C7CE00322F)

94. Tomoteru Fukumura, Thantip S. Krasienapibal, Daichi Oka, and Tetsuya Hasegawa, “Recent progress of an oxide-based diluted ferromagnetic semiconductor cobalt-doped TiO_2 ”, *Materials*, 投稿中.

95. Toshihiro Shimada, Takuya Miura, Wei Xie, Takashi Yanase, and Taro Nagahama, “A thermocouple-based remote temperature controller of an electrically-floated sample for plasma CVD of nanocarbons with bias voltage”, *Measurement* 102, 244 (2017). (DOI: 10.1016/j.measurement.2017.02.012)

96. Takahiro Tamura, Takuya Takami, Takashi Yanase, Taro Nagahama, and Toshihiro Shimada, “ N_2 plasma etching processes of microscopic single crystals of cubic boron nitride”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 56, 06HF01 (2017). (DOI: 10.7567/JJAP.56.06HF01)

97. Shunsuke Shibata, Ryosuke Sei, Tomoteru Fukumura, Tetsuya Hasegawa, “Magnetic and magnetotransport properties of ThCr_2Si_2 -type $\text{Ce}_2\text{O}_2\text{Bi}$ composed of conducting Bi^{2-} square net and magnetic Ce-O layer”, *Appl. Phys. Lett.* 110, 192410 (2017). (DOI: 10.1063/1.4983280)

(2)その他の著作物(総説、書籍など)

1. 島田敏宏, “第一原理計算 - 構造最適化に向けた材料・デバイス別事例集 -”, 「有機半導体の第一原理計算」, 情報機構 ISBN [9978-4-905545-38-5]
2. 中尾祥一郎、長谷川哲也, “透明導電性酸化物の新展開 ~脱インジウムと新機能の開拓~”, CSJ カレントレビュー11 未来を拓く元素戦略 持続可能な社会を実現する化学, 第 10 章, 87 (2013).
3. 中尾祥一郎、長谷川哲也, “透明導電膜の実用化と新機能開拓-赤外まで透明な SnO₂ 透明導電膜の開発”, 未来材料 12, 33 (2012).
4. 長谷川哲也、廣瀬靖、中尾祥一郎, “透明導電材料の新展開”, 工業材料 60, 70 (2012).
5. 柳瀬 隆、島田敏宏, “有機三色超格子の作製と物性”, 電気学会論文誌 C (電子・情報・システム部門誌) 132, 1418 (2012) //DOI:10.1541/ieejciss.132.1418.
6. Takashi Yanase and Toshihiro Shimada, “Fabrication and Physical Properties of Organic Tricolor Superlattice”, Electrical Engineering in Japan, Wiley, in press (上記の英訳版)
7. 中尾祥一郎、長谷川哲也, “二酸化チタンを用いた透明導電膜の高屈折率化”, 「(高・低)屈折率材料の作製と屈折率制御技術」, 第2章第9節 pp. 87-95、技術情報協会 (2014).
8. 廣瀬靖、鈴木温、長谷川哲也, “ヘテロエピタキシャル成長を利用したアナターゼ型酸窒化タンタル単結晶薄膜の合成”, FCレポート 32, 142 (2014).
9. 廣瀬靖、長谷川哲也, “最新のトピックス”狭バンドギャップ強誘電体の開発”, 化学 69, 69 (2014)
10. 岡大地、廣瀬靖、長谷川哲也, “ペロブスカイト型酸窒化物 SrTaO₂N の強誘電性とアニオン配列”, 固体物理 50, 21 (2015).
11. Takashi Yanase and Toshihiro Shimada, “Chapter 1: Thin Film Growth of MoS₂” in “Molybdenum Disulfide: Synthesis, Properties and Industrial Applications” Ed. by J. McBride, Nova Science Publishers, New York, ISBN: 978-1-63485-032-2
12. Toshihiro Shimada and Takashi Yanase, “Chapter 4: Doping to MoS₂” in “Molybdenum Disulfide: Synthesis, Properties and Industrial Applications” Ed. by J. McBride, Nova Science Publishers, New York, ISBN: 978-1-63485-032-2
13. 島田敏宏、山川貴恵、柳瀬隆、長浜太郎, “計算科学によるフレキシブル半導体材料の物性研究”, 日本写真学会誌 78, 248 (2015).
14. Tomoteru Fukumura, “Electric-field control of magnetism in ferromagnetic semiconductors”, *Spintronics for Next Generation Innovative Device*, ed. by K. Sato,

E. Saitoh, A. Willoughby, P. Capper and S. Kasap, Wiley, (June, 2015) 280 pages, p. 209–226.

15. Takashi Yanase and Toshihiro Shimada, “Amorphous Organic Superlattices” in “Horizons in World Physics”, Volume 291, ed. by A. Reimer, Nova Scientific Publishers. [ISBN: 978-1-53611-020-3] (2017)

(3)国際学会発表及び主要な国内学会発表

① 招待講演 (国内会議 21 件、国際会議 29 件)50

1. 発表者(所属)、タイトル、学会名、場所、月日

1. 島田敏宏、“有機 EL に対応したガスバリア評価技術” 有機 EL 討論会、大阪、2011 年 11 月 20 日

2. 島田敏宏、“ガスバリア性の迅速・高感度測定法”、高分子学会 印刷・情報研究会、横浜、2011 年 10 月 7 日

3. Toshihiro Shimada, “Ultrasensitive and Rapid Measurement of Water Vapor Transmission Rate in Barrier Materials”, 2011 International Display Workshop (IDW '11), Nagoya, Dec. 8 (2011).

4. 長谷川哲也、中尾祥一郎, “SnO₂ 系フルスペクトル透明導電膜、電気学会プラズマ研究会”、茨城大学、茨城、2013 年 3 月 15 日

5. Tetsuya Hasegawa, “Fabrication of ferroelectric SrTaO₂N epitaxial thin films by nitrogen plasma assisted pulsed laser deposition”, The 8th China-Korea-Japan Workshop on Advanced Inorganic Materials, Shanghai, China, Nov. 17 (2012).

6. S. Okazaki, K. Taira, N. L. H. Hoang, S. Nakao, Y. Hirose, T. Hitosugi, and T. Hasegawa, “Fabrication of highly conducting Nb-doped TiO₂ thin films on glass substrate”, 4th International Symposium on Transparent Conductive Materials (former TCOs), Crete, Greece, Oct. 26 (2012).

7. Hideyuki Kamisaka, Koichi Yamashita, Tetsuya Hasegawa, “DFT-based First-Principle Calculations of Nb and F-doped anatase TiO₂ Systems as candidates of alternative transparent conductive oxides”, Cambodian Malaysian Chemical Conference (CMCC), Siem Reap, Cambodia, Oct. 20 (2012).

8. Hideyuki Kamisaka, Daichi Oka, Yasushi Hirose, Tetsuya Hasegawa, “The Anion Ordering and the Dielectric Properties of Perovskite Oxynitride Epitaxial Thin Film SrTaO₂N”, 17th Malaysian Chemical Congress (17MCC), Kuala Lumpur, Malaysia, Oct. 16 (2012).

9. Yasushi Hirose, Daichi Oka, Tetsuya Hasegawa, “Ferroelectricity in Epitaxial thin film of Perovskite Oxynitride SrTaO₂N”, International Conference of Young Researchers on Advanced Materials, Singapore, Singapore, July 1 (2012).

10. Shoichiro Nakao and Tetsuya Hasegawa, “Indium-free TCO for various applications”, The International Conference on Coatings on Glass and Plastics (ICCG9), Breda, The Netherlands,

June 27 (2012).

11. 長谷川哲也, "TiO₂ 系及び SnO₂ 系透明導電膜", 新材料・新技術利用研究会、京都、2014 年 2 月 21 日

12. 島田敏宏, "有機無機複合エレクトロニクスのための層状物質半導体微粒子の合成", 電子情報通信学会 2014 年総合大会、新潟、2014 年 3 月 17 日

13. 福村知昭 "Toward transparent flexible spintronics using RT ferromagnetic semiconductor", 第 61 回応用物理学会春季学術講演会、青山学院大学相模原キャンパス、相模原、2014 年 3 月 18 日

14. 島田敏宏, "有機エピタキシー", 応用物理学会 第 61 回春季学術講演会、青山学院大学相模原キャンパス、相模原、2014 年 3 月 18 日

15. Tetsuya Hasegawa, "Fabrication of ferroelectric SrTaO₂N epitaxial thin films by nitrogen plasma assisted pulsed laser deposition", UT-SNU-NTU Chemistry Department Joint Symposium 2013, Seoul, June 9-10 (2013).

16. Shoichiro Nakao, Naoomi Yamada, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, "Study on SnO₂ Transparent Conductive Thin Films by Pulsed Laser Deposition", 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Kyotanabe, Sept. 1 (2013).

*17. Tetsuya Hasegawa, "Development of Electronic Functional Materials by Using Novel Thin Film Technology", UTokyo Forum: Frontier of effective utilization of elements and material sciences, Santiago, Nov. 7-8 (2013).

18. Tetsuya Hasegawa, "Magnetic and magnetoelectric properties of EuTiO₃ epitaxial thin films", The 9th China-Korea-Japan Joint Symposium on Advanced Materials, Saga, Nov. 24-27 (2013).

19. Akira Chikamatsu, Tsukasa Katayama, Ryosuke Takagi, Yasushi Hirose, Tomoteru Fukumura and Tetsuya Hasegawa, "Carrier doping into infinite-layer iron oxide thin films by rare-earth substitution", SPIE OPTO, San Francisco, Feb. 2 (2014).

20. Tetsuya Hasegawa, "Development of ferroelectric oxynitrides with visible light absorption", Seminar at Department of Chemistry, National Taiwan University, March 7 (2014).

21. 柳瀬隆、渡邊翔、橋本遊、沓澤大、長浜太郎、島田敏宏, "層状金属カルコゲナイドの CVD: 成長機構と自発的ナノ構造形成", 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学(札幌), 2014 年 9 月 18 日

22. 近松彰, "トポタクティク合成法による酸化物薄膜へのアニオンドーブ", 放射光セミナー, 東京大学物性研究所、柏、2015 年 1 月 13 日

23. 長谷川哲也, "TiO₂ 系透明導電体の新進展" 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 厚木, 2015 年 3 月 12 日

*24. Y. Hirose, A. Suzuki, Y. Chang and T. Hasegawa, "Electrical and optical properties of

transitionmetal oxynitride epitaxial thin films”, EMN Summer Meeting, Cancun (Mexico), June 11 (2014).

*25. A. Chikamatsu, T. Katayama, Y. Hirose, H. Kamisaka, T. Fukumura and T. Hasegawa, “Topotactic reaction of iron oxide thin films”, Collaborative Conference on Materials Research 2014 (CCMR), Incheon, Korea, June 25 (2014).

26. Y. Hirose, “Transition Metal Oxynitrides for Electronic Applications”, 1st E-MRS/MRS-J Joint Symposium, Yokohama, Japan, Dec. 10 (2014).

*27. Hideyuki Kamisaka, Koichi Yamashita, and Tetsuya Hasegawa, “First principle calculation of carrier activation ration in Nb-doped and F-doped TiO₂ systems”, E-MRS Fall Meeting 2014, Warsaw, Poland, Sept. 18 (2014).

28. Yasushi Hirose, “Optical Properties of (GaN)_{1-x}(ZnO)_x thin films in the full compositional range synthesized by low temperature epitaxial growth”, Energy Materials and Nanotechnology (EMN) Qingdao Meeting, Qingdao, China, June 15 (2015).

29. Shoichiro Nakao, “SnO₂ and TiO₂ transparent conductive thin films for solar cell application”, Energy Materials and Nanotechnology (EMN) Qingdao Meeting, Qingdao, China, June 15 (2015).

30. 長谷川哲也, “複合アニオン化合物エピタキシャル薄膜の合成と物性開拓”, 日本セラミックス協会第 28 回秋季シンポジウム, 富山大学, 2015 年 9 月 18 日

31. Yasushi Hirose, “Electrical Properties of Oxynitride Semiconductor Thin Films Fabricated by Using Pulsed Laser Deposition”, 9th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (TOEO9), Tsukuba, Japan, Oct. 21 (2015).

32. 近松彰, “トポタクティック反応を用いた複合アニオン酸化物エピタキシー”, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学, 東京, 2016 年 3 月 20 日

33. 福村知昭, “透明磁石の物質探索: 強磁性を電圧で制御する”, 東北大学理学研究科化学専攻一般雑誌会講演会, 東北大学, 仙台, 2015 年 4 月 17 日

34. 福村知昭, “遷移金属ドーパ酸化物半導体: 室温強磁性の発現と局所構造の役割”, 3D 活性サイト科学春の学校【3D 活性サイト研究のための分光・回折技術の基礎と応用】, 奈良県公会堂, 奈良, 2015 年 5 月 31 日

35. 福村知昭, “非平衡合成による無機固体新物質と新物性”, 第 32 回無機分析化学コロキウム, 東北大学川渡共同セミナーセンター、大崎, 2015 年 6 月 5 日

36. 福村知昭, “室温透明強磁性酸化物半導体の物性と最近の進展”, 第24回日本磁気学会光機能磁性材料・デバイス専門研究会「光磁気の新しい材料と機能, 応用」, 東北工業大学、仙台, 2015 年 6 月 9 日

37. 福村知昭, “遷移金属酸化物の非平衡合成と物性”, 物性勉強会, 東北大学, 仙台, 2015 年 7 月 4 日

38. Tomoteru Fukumura, “World of oxide electronics”, Tohoku University Campus Asia Summer School 2015, Tohoku University, Sendai, Aug. 28 (2015).
39. Tomoteru Fukumura, “Transparent Oxide Spintronics”, The 4th Dalian University of Technology-Tohoku University Joint Symposium on Chemistry “Challenges in Environmental, Biomedical, and Materials Science & Technology”, Dalian Institute of Technology, China, Oct. 28 (2015).
40. Tomoteru Fukumura, “Oxide electronics”, Invited lecture at National Chung Hsing University, National Chung Hsing University, Taiwan, Nov. 18 (2015).
- *41. Tomoteru Fukumura, “Oxide electronics”, Invited lecture at National Jiao Tong University, National Jiao Tong University, Taiwan, Nov. 20 (2015).
42. 島田敏宏, “有機半導体の伝導機構”, 写真学会, 第 12 回光機能性材料セミナー, 東京工芸大学, 2015 年 7 月 15 日
43. 島田敏宏, “分科内シンポジウム 機能性原子薄膜化合物材料の応用展開 –はじめに”, 第 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 2015 年 9 月 13 日
44. Toshihiro Shimada, “COMPUTATIONAL STUDIES OF ORGANIC AND CARBON-BASED MATERIALS FOR FLEXIBLE ELECTRONICS(Keynote)”, 15th International Discussion and Conference on Nano Interface Controlled Electronics (IDC-Nice 2015), Tokyo Institute of Technology, Tokyo, Oct. 8 (2015).
45. 島田敏宏, “層状金属カルコゲナイド CVD 成長におけるナノ形態制御”, 2015 年真空・表面科学合同講演会, つくば国際会議場, 2015 年 12 月 1 日
- *46. Tomoteru Fukumura, “Bi²⁻ square net superconductivity in Y₂O₂Bi”, 29th International Superconductivity Symposium (ISS2016), Tokyo, Japan, Dec. 13–15 (2016).
47. Y. Hirose, S. Nakao, T. Hasegawa, “Towards Indium-free oxide semiconductors: TiO₂-based transparent conductors and mixed anion amorphous semiconductors”, E-MRS 2016 Spring Meeting, Lille, France, May 3 (2016).
48. Mayuko Oka, Hideyuki Kamisaka, Tomoteru Fukumura, Tetsuya Hasegawa, “DFT-based ab initio MD Simulation of the Ionic Conduction in Doped ZrO₂ Systems under Epitaxial Strain”, EMN Fuel Cell Meeting 2016 Jeju, Korea, May 24 (2016).
49. M. Oka, H. Kamisaka, T. Fukumura, T. Hasegawa, “DFT-based Computational Approach to Ionic Conduction in Transition Metal Oxide: Effect of strain, defects, and dopants in ZrO₂”, E-MRS2016 Fall Meeting, Warsaw, Poland, Sept. 19 (2016).
50. 島田敏宏, “パネルディスカッション –カルコゲナイド系層状物質薄膜成長の現状と諸問題–”, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 新潟, 2016 年 9 月 14 日

- ② 口頭発表 (国内会議 120 件、国際会議 38 件)
 1. 発表者(所属)、タイトル、学会名、場所、月日

1. 島本憲太、廣瀬靖、中尾祥一郎、福村知昭、長谷川哲也、“EuTiO₃(111)薄膜の合成とその磁気特性”、2012年春季第59回応用物理関係連合講演会、東京、2012年3月16日
2. 近松彰、片山司、廣瀬靖、組頭広志、尾嶋正治、福村知昭、長谷川哲也、“放射光電子分光による無限層構造 Sr_{1-x}Sm_xFeO₂ 薄膜の電子状態”、2012年春季第59回応用物理関係連合講演会、東京、2012年3月16日
3. 渡部愛理、池宮桂、近松彰、廣瀬靖、長谷川哲也、“(Ag,Co)共添加 TiO₂ 薄膜における局在プラズモン共鳴”、2012年春季第59回応用物理関係連合講演会、東京、2012年3月18日
4. 平谷俊吾、長浜太郎、島田敏宏、“分子線エピタキシー法による超薄 CoFe₂O₄ エピタキシャル膜の作製”、日本セラミックス協会年会、2012年3月21日
5. 渡部愛理、小竹勇己、近松彰、廣瀬靖、上野貢生、長谷川哲也、三澤弘明、“Ag, Co ナノ構造を有する TiO₂ 薄膜の光電変換”、第60回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013年3月27日
6. 小野塚智也、近松彰、片山司、重松圭、福村知昭、長谷川哲也、“NdNiO₂ エピタキシャル薄膜の作製と物性評価”、第60回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013年3月28日
7. 重松圭、近松彰、福村知昭、豊田智史、池永英司、長谷川哲也、“Sr₂MgMoO_{6-δ} 単結晶薄膜の電気特性・電子状態評価”、第60回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013年3月28日
8. Youngok Park, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, Tomoteru Fukumura, Jinho Kim, Jimmy Xu, Tetsuya Hasegawa, “Electrical transport properties of porous Bi thin films”、第60回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013年3月29日
9. 岡崎壮平、廣瀬靖、中尾祥一郎、楊長、鈴木温、岡大地、長谷川哲也、“酸化インジウム(InO_xN_y)エピタキシャル薄膜の物性”、第60回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013年3月29日
10. Xi Shen, 近松彰、廣瀬靖、福村知昭、長谷川哲也、“パルスレーザー堆積法を用いた Mn₄N エピタキシャル薄膜の作製と評価”、第60回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013年3月30日
11. 清良輔、福村知昭、長谷川哲也、“多層膜ブリカーサーを用いた Y₂O₂Bi 薄膜の固相エピタキシャル成長”、第60回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013年3月30日
12. 片山司、近松彰、廣瀬靖、福村知昭、長谷川哲也、“CaH₂ による SrFeO₂ 薄膜へのトポタクティック水素注入”、第60回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013年3月30日
13. 神坂 英幸、水口 菜々子、山下 晃一、長谷川 哲也、“第一原理計算を用いた F ドープ TiO₂ 系のキャリア活性化率と TiOF₂ 生成の熱力学”、第60回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013年3月30日

14. 岡大地, 廣瀬靖, 神坂英幸, 長谷川哲也, 伊藤誠二, 森田明, 松崎浩之, 福谷克之, 石井聡, 笹公和, 関場大一郎, “ペロブスカイト型酸窒化物エピタキシャル薄膜の誘電特性”, 日本セラミックス協会 第 25 回秋季シンポジウム, 名古屋大学, 名古屋, 2012 年 9 月 19 日
15. 鈴木温, 廣瀬靖, 岡大地, 福村知昭, 長谷川哲也, 松崎浩之, 福谷克之, 石井聡, 笹公和, 関場大一郎, アナターゼ型 TaON “エピタキシャル薄膜の物理特性”, 日本セラミックス協会 第 25 回秋季シンポジウム, 名古屋大学, 名古屋, 2012 年 9 月 19 日
16. Anri Watanabe, Katsura Ikemiya, Akira Chikamatsu, Yasushi Hirose, Tetsuya Hasegawa, “Local surface plasmon resonance of Ag/Co nanostructures self-assembled in TiO₂ films”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学・松山大学, 愛媛, 2012 年 9 月 11 日
17. 相澤和樹, 廣瀬靖, 中尾祥一郎, 近松彰, 福村知昭, 長谷川哲也, “六方晶 YMnO₃ 強誘電体薄膜の光応答”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学・松山大学, 愛媛, 2012 年 9 月 12 日
18. Thantip Krasienapibal, 福村知昭, 廣瀬靖, 長谷川哲也, “Enhanced Mobility in self-buffered Anatase TiO₂ Grown at Low Temperature”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学・松山大学, 愛媛, 2012 年 9 月 13 日
19. 鈴木温, 廣瀬靖, 岡大地, 中尾祥一郎, 松崎浩之, 福谷克之, 石井聡, 笹公和, 関場大一郎, 福村知昭, 長谷川哲也, “アナターゼ型 TaON エピタキシャル薄膜の物理特性 II”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学・松山大学, 愛媛, 2012 年 9 月 13 日
20. 岡大地, 廣瀬靖, 伊藤誠二, 森田明, 松崎浩之, 福谷克之, 石井聡, 笹公和, 関場大一郎, 長谷川哲也, “ペロブスカイト型酸窒化物 ATaO₂N (A = Sr, Ca) エピタキシャル薄膜の誘電特性”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学・松山大学, 愛媛, 2012 年 9 月 14 日
21. 清良輔, 福村知昭, 長谷川哲也, “Bi²⁺-二次元正方格子を含む Y₂O₂Bi 薄膜のエピタキシャル成長”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学・松山大学, 愛媛, 2012 年 9 月 14 日
22. Jie Wei, 福村知昭, 長谷川哲也, “Epitaxial Growth of Li_{3x}La_{2/3-x}TiO₃ Thin Films on Perovskite Substrates by Pulsed Laser Deposition”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学・松山大学, 愛媛, 2012 年 9 月 14 日
23. 土田裕也, 村谷直紀, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏, “蒸着で形成した C60-p 型有機半導体接合の光電子分光による評価(2)”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 神奈川工科大学, 厚木, 2013 年 3 月 28 日
24. 久保田翔生, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏, “電気化学エッチングで作成したグラファイトエッジの評価”, 2013 年春季 第 60 回 応用物理学会学術講演会, 神奈川工科大学, 厚木, 2013 年 3 月 27 日
25. 土田裕也, 村谷直紀, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏, “蒸着で形成した C60-p 型有機半導体接合の光電子分光による評価”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会, 愛媛大学・松山大学, 愛媛, 2012 年 9 月 11 日

26. 橋本遊, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏, “プリンタブル半導体としての MoS_2 の特性評価”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会、愛媛大学・松山大学、愛媛、2012 年 9 月 13 日
27. 村谷直紀, 富田潤, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏, “有機半導体のプラズマ炭化における分子構造の影響”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会、愛媛大学・松山大学、愛媛、2012 年 9 月 11 日
28. 柳瀬隆, 川人愛子, 長浜太郎, 島田敏宏, “Fe ナノワイヤの CVD 成長における触媒効果”, 2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会、愛媛大学・松山大学、愛媛、2012 年 9 月 13 日
29. Daichi Oka, Yasushi Hirose, Hideyuki Kamisaka, Tomoteru Fukumura, Seiji Ito, Akira Morita, Hiroyuki Matsuzaki, Katsuyuki Fukutani, Satoshi Ishii, Kimikazu Sasa, Daiichiro Sekiba and Tetsuya Hasegawa, “Dielectric properties of perovskite oxynitride epitaxial thin films”, APS March Meeting, Baltimore, Maryland, March 19 (2013).
30. Hideyuki Kamisaka, Nanako Mizuguchi, Koichi Yamashita, Tetsuya Hasegawa, “DFT-base first-principle calculation of the carrier activation ratio in the F-doped anatase TiO_2 and the thermodynamic analysis of the formation of TiOF_2 phases”, American Physical Society March Meeting, Baltimore, Maryland, March 19 (2013).
31. Tsukasa Katayama, Akira Chikamatsu, Yasushi Hirose, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Metallic conduction behavior in Sm-substituted SrFeO_{2+d} thin films with infinite-layer structure”, The 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Nara, Japan, Sept. 25 (2012).
32. Y. Ikuta, T. Shimada, T. Yanase, T. Nagahama, “Thermoelectric Effect of Doped Organic Semiconductors”, International Conference on Nano and Molecular Electronics 2012, Awaji, Hyogo, Japan, Dec. 15 (2012).
33. Naoki Muraya, Jun Tomita, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Toshihiro Shimada, “Influence of Molecular Structure On Plasma Carbonization of Organic Semiconductor Molecules”, Asia-Pacific Conference on Plasma Science and Technology 11 & Symposium on Plasma Science for Materials 25, Kyoto, Oct. 5 (2012).
34. Toshihiro Shimada, Yu. Ikuta, Takashi Yanase, Taro Nagahama, “Crystal Growth of Doped Organic Semiconductors”, Solid State Materials and Devices 2012, Kyoto, Sept. 26 (2012).
35. 渡部愛理, 小竹勇己, 鎌田義臣, 近松彰, 廣瀬靖, 上野貢生, 三澤弘明, 長谷川哲也, “Ag, Co ナノロッド構造を担持した TiO_2 薄膜の光電変換特性”, 第 5 回日本化学会新領域研究グループ「液相高密度エネルギーナノ反応場」研究会、産業技術総合研究所臨海副都心センター、東京、2013 年 8 月 9 日
36. 佐野真仁, 廣瀬靖, 中尾祥一郎, 楊長, 岡崎壮平, 福村知昭, 石井聡, 笹公和, 関場大一郎, 福谷克之, 長谷川哲也, “ LaVO_xN_y エピタキシャル薄膜の作製及び物性評価”, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013 年 9 月 16 日
37. 大伴真名歩, 島田敏宏, “有機半導体単分子薄膜の配向制御と評価”, 第 74 回応用物理

学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013年9月16日

38. 岡崎壮平, 廣瀬靖, 中尾祥一郎, 楊長, 長谷川哲也、“酸フッ化インジウム(InO_xF_y)エピタキシャル薄膜の作製”、第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013年9月17日

39. 鈴木温, 廣瀬靖, 岡大地, 中尾祥一郎, 松崎浩之, 福谷克之, 石井聡, 笹公和, 関場大一郎, 福村知昭, 長谷川哲也、“アナターゼ型 $\text{Ti}_x\text{Ta}_{1-x}\text{O}_{1+y}\text{N}_{1-z}$ 薄膜のエピタキシャル成長”、第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013年9月17日

40. 山竹恭平, Jie Wei, 福村知昭, 長谷川哲也、“幾何学的フラストレーション構造を持ったパイロクロア型 $\text{Bi}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 薄膜のエピタキシャル成長”、第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013年9月17日

41. Jie Wei, Tomoteru Fukumura, Yasushi Hirose, Tetsuya Hasegawa、“Epitaxial Growth of $\text{Li}_{3x}\text{La}_{2/3-x}\text{TiO}_3$ Thin Film on Perovskite Substrates by Pulsed Laser Deposition”、第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013年9月18日

42. 片山司, 近松彰, 廣瀬靖, 高木亮介, 神坂英幸, 福村知昭, 長谷川哲也、“トポタクティック反応による SrFeO_x 薄膜のフッ素置換”、第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013年9月18日

43. 小野塚智也, 近松彰, 片山司, 福村知昭, 長谷川哲也、“ポリフッ化ビニリデンを用いた RNiO_3 ($\text{R} = \text{La}, \text{Nd}$) 薄膜へのフッ素ドーピング”、第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013年9月18日

44. 川人愛子, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏、“熱 CVD 法による Fe ナノワイヤの作製”、第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013年9月18日

45. 橋本遊, 沓澤大, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏、“熱 CVD 法による MoS_x ナノワイヤの作製”、第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013年9月19日

46. 高橋純平, 廣瀬靖, 中尾祥一郎, 楊長, 岡崎壮平, 福村知昭, 長谷川哲也、“反応性パルスレーザー堆積法による CoO_xN_y 薄膜のエピタキシャル成長”、第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013年9月20日

47. 橋本遊, 沓澤大, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏、“触媒を用いた熱 CVD 法による MoS_x ナノワイヤの作製”、応用物理学会第49回北海道支部講演会、札幌、2013年12月10日 (発表奨励賞 受賞)

48. Thantip S Krasienapibal, 福村知昭, 長谷川哲也、“Improved magnetization in $(\text{Ti},\text{Co})\text{O}_2$ with non-magnetic capping layer”、第61回応用物理学会春季学術講演会、青山学院大学相模原キャンパス、相模原、2014年3月18日

49. 岡大地, 廣瀬靖, 中尾祥一郎, 福村知昭, 長谷川哲也、“Nb 系ペロブスカイト型酸窒化物薄膜の電気輸送特性”、第61回応用物理学会春季学術講演会、青山学院大学相模原キャンパス、相模原、2014年3月18日

50. 神永健一, 清良輔, 福村知昭, 長谷川哲也, “還元条件下で作製したイットリウム酸化物エピタキシャル薄膜”, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学相模原キャンパス, 相模原, 2014 年 3 月 19 日
51. Shoichiro Nakao, Yasushi Hirose, Tomoteru Fukumura and Tetsuya Hasegawa, “Fabrication of NbO₂ Thin Films Using Solid Phase Crystallizations”, The 40th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2013), Kobe, Japan, May 21 (2013).
52. Daichi Oka, Yasushi Hirose, Hideyuki Kamisaka, Tomoteru Fukumura, Seiji Ito, Akira Morita, Hiroyuki Matsuzaki, Katsuyuki Fukutani, Satoshi Ishii, Kimikazu Sasa, Daiichiro Sekiba, Tetsuya Hasegawa, “Dielectric Properties of d0 Perovskite Oxynitride ATaO₂N Epitaxial Thin Films”, E-MRS 2013 SPRING MEETING, Strasbourg, France, May 27 (2013).
53. A. Suzuki, Y. Hirose, D. Oka, S. Nakao, H. Matsuzaki, K. Fukutani, S. Ishii, K. Sasa, D. Sekiba, T. Fukumura, T. Hasegawa, “Optical and electrical transport properties of anatase TaON epitaxial thin film”, E-MRS 2013 SPRING MEETING, Strasbourg, France, May 29 (2013).
54. T. Yanase, T. Nagahama, T. Shimada, “Photoresponsive piezoelectric properties of organic tricolor superlattices”, JSAP-MRS Joint Symposia, Doshisha Univ., Kyoto, Sept. 18 (2013).
55. Wei Xie, Naoki Muraya, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Toshihiro Shimada “Diamond like carbon doped with highly π -conjugate molecules by plasma-assisted CVD”, 26th Symposium of Plasma Science for Materials (SPSM26), Kyushu Univ., Fukuoka, Sept. 24 (2013).
56. 小川大輔, 赤塚公章, 福村知昭, 長田実, 佐々木高義, 長谷川哲也, “単一 Ti_{0.87}O₂^{0.52}-ナノシートの絶縁・誘電特性”, 日本ブルーゲル学会 第 12 回討論会, 茨城, 2014 年 8 月 8 日
57. 長浜太郎, 川井智博, 高橋望, 柳瀬隆, 島田敏宏, “Fe₃O₄/Cr/Fe 多層膜における Fe 層の磁化過程”, 第 38 回日本磁気学会(MSJ)学術講演会(横浜市港北区), 2014 年 9 月 4 日
58. 川人愛子, 柳瀬隆, 遠堂敬, 石岡準也, 柴山環樹, 渡辺精一, 長浜太郎, 島田敏宏 “熱 CVD 法による酸化物基板上への Fe ナノワイヤの作製”, 第 27 回日本セラミックス協会年会(鹿児島市), 2014 年 9 月 10 日
59. 島田敏宏, 田村貴大, 柳瀬隆, 長浜太郎, “有機薄膜形成過程の分子動力学シミュレーション”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道, 2014 年 9 月 17 日
60. 田村貴大, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏, “ダイヤモンドのプラズマCVD成長における固体挿入ドーピング”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道, 2014 年 9 月 17 日
61. Jie Wei, 福村知昭, 廣瀬靖, 長谷川哲也, “Impedance Study of Epitaxial Li_{3x}La_{2/3-x}TiO₃ Thin Films on Perovskite Substrates Deposited by Pulsed Laser Deposition”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道, 2014 年 9 月 17 日
62. 清良輔, 福村知昭, 長谷川哲也, “Bi²⁻正方格子を持つ層状酸化物 Y₂O₂Bi エピタキシャル薄膜の物性”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道, 2014 年 9 月 17 日

63. 片山司, 近松彰, 神坂英幸, 廣瀬靖, 福村知昭, 長谷川哲也, “ペロブスカイト構造を有するコバルト系ヒドリド酸化物薄膜の作製”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道, 2014 年 9 月 17 日
64. 岡大地, 廣瀬靖, 神坂英幸, 福村知昭, 長谷川哲也, “エピタキシャル歪みによるペロブスカイト型酸窒化物 SrTaO_2N のアニオン配列制御”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道, 2014 年 9 月 18 日
65. 河原佳祐, 近松彰, 片山司, 小野塚智也, 福村知昭, 長谷川哲也, “ $\text{Sr}_{n+1}\text{Ru}_n\text{O}_{3n+1}$ 薄膜へのポリフッ化ビニリデンによるトポタクティックフッ素ドーブ”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道, 2014 年 9 月 18 日
66. 小野塚智也, 近松彰, 片山司, 福村知昭, 長谷川哲也, “水素ドーブに伴う NdNiO_3 薄膜の構造変化”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道, 2014 年 9 月 18 日
67. 山崎崇範, 廣瀬靖, 中尾祥一郎, 原山勲, 関場大一郎, 長谷川哲也, “移動度 $200 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ を超える非晶質 ZnO_xN_y 薄膜の合成”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道, 2014 年 9 月 18 日
68. 小川大輔, 赤塚公章, 福村知昭, 長田実, 佐々木高義, 長谷川哲也, “単一 $\text{Ti}_{0.87}\text{O}_2^{0.52}$ -ナノシートの絶縁・誘電特性”, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 京都, 2014 年 9 月 19 日
69. 岡真悠子, 神坂英幸, 福村知昭, 長谷川哲也, “エピタキシャル歪み下における ZrO_2 系薄膜の構造変化とイオン伝導性に関する第一原理計算” 第8回分子科学討論会 2014 東広島, 広島, 2014 年 9 月 24 日
70. 清良輔, 福村知昭, 長谷川哲也, “ Bi^{2-} 正方格子を持つ層状酸化物 $\text{Y}_2\text{O}_2\text{Bi}$ 薄膜の還元性固相エピタキシーと電子輸送特性” 第一回「3D 活性サイト科学」公開ワークショップ, 大阪, 2014 年 11 月 21 日
71. 小島峻吾, 福村知昭, 長谷川哲也, “ペロブスカイト型酸化物単結晶表面におけるフタロシアニン極薄層の形成” 第一回「3D 活性サイト科学」公開ワークショップ, 大阪, 2014 年 11 月 21 日
72. T. S. Krasienapibal, S. Inoue, T. Fukumura, T. Hasegawa, “Study of magnetic domain structure in anatase $(\text{Ti,Co})\text{O}_2$ thin film” 第一回「3D 活性サイト科学」公開ワークショップ, 大阪, 2014 年 11 月 21 日
73. 中尾祥一郎, “新機能を持つ透明電極” nano tech 2015 第 14 回国際ナノテクノロジー総合展・技術会議, 東京, 2015 年 1 月 28 日
74. 中尾祥一郎, 廣瀬靖, 長谷川哲也, “2 段階アニールによる $\text{Nb}:\text{TiO}_2$ 透明導電膜作製プロセスウインドウの拡大” 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 2015 年 3 月 11 日
75. 片山司, 近松彰, 福村知昭, 長谷川哲也, “トポタクティック酸化・還元法による A サイト秩序型ペロブスカイト YBaCo_2O_x ($x = 4.5-6$)エピタキシャル薄膜の作製” 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 2015 年 3 月 11 日

76. 山田佳補, 近松彰, 重松圭, 福村知昭, 長谷川哲也, “SrRu_{0.5}Cr_{0.5}O₃ エピタキシャル薄膜の作製及び物性評価” 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 2015 年 3 月 11 日
77. 大見浩輔, 長谷川幸樹, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏, “(CH)_nポリマーと Al₂O₃(0001)との反応による Al₄C₃ のエピタキシャル成長”, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 2015 年 3 月 11 日
78. Wei Xie, Aiko Kawahito, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Toshihiro Shimada, “Formation of popcorn-like nanostructure in C₆₀-incorporated DLC by exposing to H₂O vapor”, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 2015 年 3 月 12 日
79. 柳瀬 隆、渡邊 翔、翁 夢婷、長浜 太郎、島田 敏宏, “化学気相蒸着法による六角形 NbS₂フレークの合成”, 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 2015 年 3 月 12 日
80. 内田悠, 神永健一, 福村知昭, 長谷川哲也, “PLD 法を用いたサマリウム単酸化物薄膜の作製” 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 2015 年 3 月 12 日
81. 佐野 真仁, 廣瀬 靖, 中尾 祥一郎, 福村 知昭, 長谷川哲也, “LaVO_xN_y エピタキシャル薄膜の電気輸送特性及び光学特性” 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 2015 年 3 月 13 日
82. Thantip Krasienapibal, Tomoteru Fukumura, Tetsuya Hasegawa “The dependence on carrier density, Co content, and thickness of magnetic domain structure in anatase (Ti,Co)O₂ thin films” 第 62 回応用物理学会春季学術講演会, 神奈川, 2015 年 3 月 14 日
83. T. Shimada, A. Kawahito, T. Yanase and T. Nagahama, “Growth and physical properties of aligned single crystalline iron nanowires”, 2nd Int. Symp. on Nanostructures: Physics and Technology, Saint Petersburg, Russia, June 26, 2014
84. Takahiro Tamura, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Susumu Sato and Toshihiro Shimada, “Versatile Doping Technique for Diamond by Solid Dopant Immersion During Microwave Plasma CVD”, Solid State Devices and Materials 2014 (Tsukuba), Sept. 11, 2014.
85. Toshihiro Shimada, “Photo-responsive organic p-type/n-type/piezoelectric tricolor superlattices”, The 14th International Discussion and Conference on Nano Interface Controlled Electronic Devices (IDC-NICE), Seoul, Korea, Oct. 9, 2014.
86. Toshihiro Shimada, Aiko Kawahito, Takashi Yanase and Taro Nagahama, “Catalytic nucleation in Fe nanowire growth by chemical vapor deposition”, The 7th International Symposium on Surface Science (ISSS-7), Matsue, Shimane, Nov. 3, 2014.
87. S. Kojima, T. Fukumura and T. Hasegawa, “Adsorption of phthalocyanine molecules on perovskite oxide surface”, The 7th International Symposium on Surface Science (ISSS-7), Matsue, Shimane, Nov. 6, 2014.
88. D. Oka, Y. Hirose, H. Kamisaka, T. Fukumura and T. Hasegawa, “Control of Anion Arrangement in d⁰ Perovskite Oxynitrides with Epitaxial Strain”, 2014 MRS Fall Meeting & Exhibit, Boston(USA), Dec 1 (2014).

89. A. Suzuki, Y. Hirose, S. Nakao, T. Fukumura, and T. Hasegawa, “Novel approach for controlling optical properties of anatase TiO₂: Solid-solution with anatase TaON”, European Materials Research Society Spring Meeting, Lille, France, May 11 (2015).
90. Jie Wei, Daisuke Ogawa, Tomoteru Fukumura, Yasushi Hirose, Tetsuya Hasegawa, “High Ionic Conductivity and Its Control via Epitaxial Strain in Li_{0.33}La_{0.56}TiO₃ Thin Films”, European Materials Research Society Spring Meeting, Lille, France, May 11 (2015).
91. Tsukasa Katayama, Akira Chikamatsu, Hideyuki Kamisaka, Tomoteru Fukumura and Tetsuya Hasegawa, “Topotactic reactions of strontium cobalt oxide thin films with metal hydride”, EMRS 2015 Fall Meeting, Warsaw, Poland, Sept. 16 (2015).
92. Tsukasa Katayama, Akira Chikamatsu, Tomoteru Fukumura and Tetsuya Hasegawa, “Topotactic Reductive Synthesis of A-site Cation-Ordered Perovskite YBaCo₂O_x (x= 4.5–5.5) Epitaxial Thin Films”, Sapopro, Japan, Sept. 28 (2015).
93. Masahito Sano, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Strong carrier localization in LaVO_{3-y}N_y perovskite-type oxynitride epitaxial thin films grown by nitrogen-plasma-assisted pulsed laser deposition”, PacifiChem2015, Honolulu, USA, Dec. 19 (2015).
94. Keisuke Kawahara, Akira Chikamatsu, Tsukasa Katayama, Tomoya Onozuka, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Topotactic fluorination of perovskite-type strontium ruthenate thin films using polyvinylidene fluoride”, PacifiChem2015, Honolulu, USA, Dec. 19 (2015).
95. Tomoya Onozuka, Akira Chikamatsu, Tsukasa Katayama, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Structural chemistry and physical properties of fluorine-substituted perovskite nickelate NdNiO_{3-x}F_x thin films”, PacifiChem2015, Honolulu, USA, Dec. 19 (2015).
96. Yasushi Hirose, Jumpei Takahashi, Daichi Oka, Shoichiro Nakao, Chang Yang, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Structural, electrical, and magnetic phase transitions in AX-type mixed valence cobalt oxynitrides epitaxial thin films”, PacifiChem2015, Honolulu, USA, Dec. 18 (2015).
97. Akira Chikamatsu, Xi Shen, Kei Shigematsu, Yasushi Hirose, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa “Large perpendicular magnetic anisotropy in noble metal-free manganese nitride epitaxial thin film”, PacifiChem2015, Honolulu, USA, Dec. 19 (2015).
98. 岡真悠子, 神坂英幸, 福村知昭, 長谷川哲也, “エピタキシャル歪み下におけるZrO₂系薄膜の構造変化とイオン伝導性に関する第一原理計算”, 第18回理論化学討論会, 大阪大学, 大阪, 2015年5月20日
99. 河原 佳祐, 近松 彰, 片山司, 小野塚智也, 長谷川 哲也, “トポタクティック合成法によるカチオン規則配列した蛍石構造Ba_{0.5}Bi_{0.5}F_{2.5}薄膜の作製”, 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際展示場, 名古屋, 2015年9月13日
100. 山田佳補, 近松彰, 重松圭, 簗原誠人, 組頭広志, 長谷川哲也, “秩序相 SrRu_{0.5}Cr_{0.5}O₃

エピタキシャル薄膜の作製および電子状態評価”，第 76 回応用物理学会秋季学術講演会，名古屋国際展示場，名古屋，2015 年 9 月 14 日

101. 倉内裕史、神坂英幸、片山司、近松彰、長谷川哲也，“水素ドーピング SrFeO₂ における、ドーピングサイトと金属伝導性の関係についての第一原理計算”，第 76 回応用物理学会秋季学術講演会，名古屋国際展示場，名古屋，2015 年 9 月 14 日

102. 山口裕生、中尾祥一郎、井野龍一朗、河村益徳、長谷川哲也、山田直臣，“アナターゼ型 Ti_{1-x}Nb_xO₂ の電気伝導の方位依存性”，第 76 回応用物理学会秋季学術講演会，名古屋国際展示場，名古屋，2015 年 9 月 16 日

103. 遠藤剛志、小野理恵子、奥谷昌之、岩城諒、竹村秀一郎、中尾祥一郎、岡崎壮平、坂井延寿、山田直臣、一杉太郎、長谷川哲也，“TNO 透明導電膜の導入による色素増感太陽電池の作用電極界面の最適化”，第 76 回応用物理学会秋季学術講演会，名古屋国際展示場，名古屋，2015 年 9 月 16 日

104. 廣瀬靖、楊張、柏尚輝、長谷川哲也，“GaN-ZnO 混晶エピタキシャル薄膜の低温合成と光学特性評価”，日本セラミックス協会第 28 回秋季シンポジウム，富山大学，富山，2015 年 9 月 17 日

105. 岡大地，廣瀬靖，中尾祥一郎，福村知昭，長谷川哲也，“ペロブスカイト型 SrNbO₂N エピタキシャル薄膜の巨大正磁気抵抗”，第 63 回応用物理学会春季学術講演会，東京工業大学，東京，2016 年 3 月 19 日

106. 小野塚智也、近松彰、廣瀬靖、長谷川哲也，“ドメイン構造と酸素量の変調による LaCuO_x 薄膜の輸送特性制御”，第 63 回応用物理学会春季学術講演会，東京工業大学，東京，2016 年 3 月 19 日

107. 遠藤剛志、小野理恵子、岩城諒、竹村秀一郎、奥谷昌之、中尾祥一郎、岡崎壮平、坂井延寿、山田直臣、一杉太郎、長谷川哲也，“耐熱性 TNO 透明導電膜の導入による色素増感太陽電池の高効率化”，第 63 回応用物理学会春季学術講演会，東京工業大学，東京，2016 年 3 月 20 日

108. 鈴木温、廣瀬靖、中尾祥一郎、中川貴文、岡田洋史、松尾豊、長谷川哲也，“ソフト化学的 Li 挿入によるアナターゼ型 TaON へのキャリアドーピング”，第 63 回応用物理学会春季学術講演会，東京工業大学，東京，2016 年 3 月 21 日

109. 柴田峻佑、清良輔、福村知昭、長谷川哲也，“Ce₂O₂Bi エピタキシャル薄膜における金属絶縁体転移”，第 63 回応用物理学会春季学術講演会，東京工業大学，東京，2016 年 3 月 21 日

110. 清良輔、気谷卓、福村知昭、川路均、長谷川哲也，“Bi²⁻ 正方格子を持つ新規層状酸化物超伝導体 Y₂O₂Bi”，第 63 回応用物理学会春季学術講演会，東京工業大学，東京，2016 年 3 月 20 日

111. 神永 健一、清 良輔、林 好一、八方直久、田尻寛男、岡大地、福村知昭、長谷川哲也，“YO エピタキシャル薄膜の電気輸送特性と光学特性”，第 63 回応用物理学会春季学術講演会，東京工業大学，東京，2016 年 3 月 19 日

112. Ryosuke Sei, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Reductive Solid Phase Epitaxy of Layered Y_2O_2Bi Thin Film with Bi_2 - Square Net and its Electronic Transport Properties”, 2015 MRS Spring Meeting, San Fransisco, USA April 10 (2015).
113. Jie Wei, Daisuke Ogawa, Tomoteru Fukumura, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, “High Ionic Conductivity and Its Control via Epitaxial Strain in $Li_{0.33}La_{0.56}TiO_3$ Thin Films”, E-MRS Spring Meeting, Lillie, France, May 11 (2015).
114. Thantip S. Krasienapibal, Tomoteru Fukumura, Hideyuki Kamisaka, and Tetsuya Hasegawa, “On the high TC ferromagnetism in Co-doped TiO_2 ”, E-MRS Fall Meeting, Warsaw, Poland, Sept. 15 (2015).
115. Toshihiro Shimada, “High Energy Chemistry for Carbon-Based Materials Synthesis”, 8th NTHX Symposium, Urmuqi, China, Aug. 9 (2015).
116. 渡邊翔、翁夢婷、柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏, “化学気相蒸着法による NbS_2 結晶薄膜の作製”, 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 13 日
117. 長浜太郎、川井智博、柳瀬隆、島田敏宏, “スピネルフェライト/ Cr/Fe 三層膜における Fe 層の保磁力の増大と Cr 膜厚依存性”, 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 13 日
118. 柳瀬隆、長谷川幸樹、上部宏晃、長浜太郎、島田敏宏, “ポリマー焼成法によるナノダイヤモンドの合成”, 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 14 日
119. Xie Wei, 柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏, “炭素ドーパ h-BN の電子状態計算”, 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 15 日
120. Takahiro Tamura, “Plasma CVD synthesis of new diamond-bismuth thin films by solid-source immersion”, 9th International Conference on Reactive Plasmas (ICRP-9/GEC-68/SPP-33), Hawaii, USA Oct. 14 (2015).
121. Toshihiro Shimada, “Colorful carbon nanopopcorns formed by plasma CVD of diamond-like carbon by CH_4 with exposure to H_2O vapor”, 9th International Conference on Reactive Plasmas (ICRP-9/GEC-68/SPP-33), Hawaii, USA Oct. 14 (2015).
122. 柳瀬隆、荻原初夏、三浦拓也、翁夢婷、長浜太郎、島田敏宏, “ナノ粒子を触媒とした鉄ナノワイヤの作製”, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学、東京, 2016 年 3 月 19 日
123. 佐々木駿、長浜太郎、島田敏宏, “ $Fe_3O_4(110)$ を用いた強磁性トンネル接合の磁気伝導特”, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学、東京, 2016 年 3 月 20 日
124. 田村貴大、柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏, “固体挿入プラズマ CVD 法による Bi を含む新規炭素系物質の合成”, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学、東京, 2016 年 3 月 20 日

125. 島田敏宏、山川貴恵、柳瀬隆、長浜太郎，“有機半導体に対する変形効果の計算機シミュレーション”，第 63 回応用物理学会春季学術講演会，東京工業大学、東京，2016 年 3 月 20 日
126. Shoichiro Nakao, Yasushi Hirose and Tetsuya Hasegawa, “Fabrication of Nb-doped anatase TiO₂ transparent conductive thin films by two-step annealing with widened process window”E-MRS 2016 Spring Meeting, Lille, France, May 3 (2016).
127. 岡真悠子、神坂英幸、福村知明、長谷川哲也，“LaOF におけるイオン伝導機構の第一原理計算”，第 10 回 分子科学討論会 2016，神戸，2016 年 9 月 13 日
128. 柴田峻佑、廣瀬靖、重松圭、中尾祥一郎、近松彰、池永英司、長谷川哲也，“ルチル型 ReO₂ エピタキシャル薄膜の合成及び特性評価”，第 77 回応用物理学会秋季学術講演会，新潟，2016 年 9 月 13 日
129. 近松彰、河原佳祐、小野塚智也、簗原誠人、組頭広志、池永英司、長谷川哲也，“新規層状ペロブスカイト型酸フッ化物 Sr₂RuO_{4-x}F_{2x} 薄膜の電子状態”，第 77 回応用物理学会秋季学術講演会，新潟，2016 年 9 月 13 日
130. 丸山敬裕、近松彰、小野塚智也、山田佳補、長谷川哲也，“パルスレーザー堆積法による EuNbO₃ 薄膜の合成と物性評価”，第 77 回応用物理学会秋季学術講演会，新潟，2016 年 9 月 14 日
131. 柏尚輝、楊長、廣瀬靖、重松圭、中尾祥一郎、原山勲、関場大一郎、長谷川哲也，“固相エピタキシー法によるペロブスカイト酸窒化物 LaMnO_xN_y の合成”，第 77 回応用物理学会秋季学術講演会，新潟，2016 年 9 月 14 日
132. 藤原聡士、高橋純平、廣瀬靖、重松圭、中尾祥一郎、長谷川哲也，“スピネル型 Mg, Ti 酸窒化物エピタキシャル薄膜の合成と物性評価”，第 77 回応用物理学会秋季学術講演会，新潟，2016 年 9 月 14 日
133. 鈴木 雄介、近松 彰、小野塚 智也、長谷川 哲也
“トポクティブフッ素化反応を用いた鉄酸フッ化物／ルテニウム酸化物ヘテロ構造の作製”
第 77 回応用物理学会秋季学術講演会，新潟，2016 年 9 月 14 日
134. 福本通孝、中尾祥一郎、重松圭、小川大輔、森河和雄、廣瀬靖、長谷川哲也，“Ta:SnO₂ エピタキシャル薄膜の輸送特性”，第 77 回応用物理学会秋季学術講演会，新潟，2016 年 9 月 15 日
135. 重松圭、山崎崇範、中尾祥一郎、廣瀬靖、長谷川哲也，“アモルファス半導体 ZnON 薄膜へのカチオン添加効果”，第 77 回応用物理学会秋季学術講演会，新潟，2016 年 9 月 16 日
136. 岡真悠子、神坂英幸、福村知昭、長谷川哲也，“LaOF におけるイオン伝導機構の第一原理計算”，第 10 回分子科学討論会，神戸，2016 年 9 月 13 日
137. 神坂英幸、清水亮太、岩谷克也、大澤健男、白木将、長谷川哲也、一杉太郎，“TiO₂(110)表面の sub-surface Ti サイトにおける余剰電子の強い局在化”，第 10 回分子科学討論会，神戸，2016 年 9 月 13 日

138. T. Nagahama, K. Oomori, T. Kawai, T. Yanase and T. Shimada, “Magnetic coupling and enhancement of the switching field in $\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{NM}/\text{Fe}$ tri-layer system”, 61st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM2016), New Orleans, USA, Nov. 2 (2016).
139. Takashi Yanase, Koki Hasegawa, Taro Nagahama, Takashi Taniguchi, Fumio Kawamura, Toshihiro Shimada, “Synthesis of high-purity sp^3 network polymer and its controlled conversion to nanodiamonds by high pressure high temperature”, International Conference on Diamond and Carbon Materials (ICDCM) 2016, Montpellier, France, Sept. 6 (2016).
140. T. Shimada, T. Tamura, T. Nagahama, T. Yanase, “Molecular Dynamics Simulation of Thin Film Growth of Organic Semiconductors”, 18th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE18), Nagoya, Japan, Aug. 11 (2016).
141. Nozomi Takahashi, Yuta Yamamoto, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Toshihiro Shimada, “Fabrication of Epitaxial Fe_3O_4 Film on Si(111) Substrate”, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 新潟, 2016 年 9 月 13 日
142. Hiroki kajita, Takashi Yanase, Toshihiro Shimada, Taro Nagahama, “Fabrication of perpendicular magnetized spin-filter junctions using ferromagnetic insulator CoFe_2O_4 ”, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 新潟, 2016 年 9 月 13 日
143. 上部宏晃, 長谷川幸樹, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏, “新規グラッシーカーボン薄膜の作製と光学特性および電気特性の評価”, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 新潟, 2016 年 9 月 14 日
144. 渡邊翔, 上原史也, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏, “化学気相蒸着法による $\text{Mo}_x\text{Nb}_{1-x}\text{S}_2$ 薄膜の作製”, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 新潟, 2016 年 9 月 14 日
145. 高見拓哉, 田村貴大, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏, “固体挿入法により合成された Eu-B 多結晶ダイヤモンドの電気特性の評価”, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 新潟, 2016 年 9 月 14 日
146. 荻原初夏, 柳瀬隆, 長浜太郎, 長島一樹, 柳田剛, 島田敏宏, “化学気相成長法による Fe ナノワイヤの作製と特性評価”, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 新潟, 2016 年 9 月 14 日
147. 大森圭太, 川井智博, 柳瀬隆, 島田敏宏, 長浜太郎, “ $\text{Fe}_3\text{O}_4(110)/$ 非磁性金属/Fe 系多層膜における飽和磁場の非磁性金属層膜厚に対する依存性”, 第 40 回日本磁気学会, 金沢, 2016 年 9 月 5 日
148. 山本雄太, 佐々木 駿, 柳瀬 隆, 島田敏宏, 長浜太郎, Fe_3O_4 電極と MgO バリアを用いたトンネル磁気抵抗素子の作製, 第 40 回日本磁気学会, 金沢, 2016 年 9 月 7 日
149. 島田敏宏, 高見拓哉, 田村貴大, 柳瀬隆, 長浜太郎, “中・遠赤外メタマテリアルを目指す耐火物薄膜微細加工技術の開発”, 日本セラミックス協会秋季シンポジウム, 東広島, 2016 年 9 月 8 日
150. 島田敏宏, “有機半導体に対する変形効果の分子動力学シミュレーション”, 電子通信学会 ソサエティ大会, 札幌, 2016 年 9 月 21 日

151. ○Kenichi. Kaminaga, Ryosuke. Sei, Hiroo Tajiri, Naohisa Happo, Kouichi Hayashi, Daichi. Oka, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “A divalent rare earth oxide semiconductor: Yttrium monoxide”, APS2017, New Orleans, LA, USA, March 13–17 (2017).

152. Vitchaphol Motaneeyachart, Yasushi Hirose, Atsushi Suzuki, Shoichiro Nakao, Tetsuya Hasegawa, “Pulsed laser deposition and characterization of NbON epitaxial thin films”、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、横浜、2017 年 3 月 14 日

153. 川原 阜紀, 神坂 英幸, 長谷川 哲也, “Li_{3x}La_{2/3-x}TiO₃ 中の Li イオン伝導に対する格子歪みの効果: 分子動力学シミュレーション”、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、横浜、2017 年 3 月 14 日

154. 椎名 孝明, 近松 彰, 簗原 誠人, 組頭 広志, 長谷川 哲也, “ポリフッ化ビニリデンを用いた SrCeO₃ 薄膜の還元的フッ素化反応”、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、横浜、2017 年 3 月 14 日

155. 倉内 裕史, 神坂 英幸, 近松 彰, 長谷川 哲也, “層状ルテニウム酸フッ化物 Sr₂RuO₃F₂ の第一原理計算”、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、横浜、2017 年 3 月 14 日

156. 小野塚 智也, 近松 彰, 片山 司, 廣瀬 靖, 原山 勲, 関場 大一郎, 池永 英司, 簗原 誠人, 組頭 広志, 長谷川 哲也, “トポタクティックフッ素導入/酸素アニールによる NdNiO₃ 薄膜の可逆的抵抗制御”、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、横浜、2017 年 3 月 14 日

157. 豊田 太郎, 廣中 基記, 廣瀬 靖, 小林 久芳, 早瀬 修二, 沈 青, “アナターゼ型 TiO₂ 単結晶 (001), (102)面に吸着した CdSe 量子ドットの光吸収評価”、第 64 回応用物理学会春季学術講演会、横浜、2017 年 3 月 16 日

158. A. Chikamatsu, T. Katayama, K. Yamada, K. Shigematsu, T. Onozuka, M. Minohara, H. Kumigashira, E. Ikenaga, and T. Hasegawa, “Topotactic synthesis of strontium vanadium oxyhydride epitaxial thin films”, The 18th International Symposium on Eco-materials Processing and Design, Naha, Japan, Feb. 19 (2017).

③ ポスター発表 (国内会議 55 件、国際会議 41 件)

1. 発表者(所属)、タイトル、学会名、場所、月日

1. 相澤和樹、廣瀬靖、岡大地、中尾祥一郎、近松彰、福村知昭、長谷川哲也、”YMnO₃ 強誘電体薄膜の光起電力効果”、2012 年春季第 59 回応用物理関係連合講演会、東京、2012 年 3 月 15 日

2. 鈴木温、岡大地、廣瀬靖、伊藤誠二、森田明、松崎浩之、福谷克之、石井聡、笹公和、関場大一郎、福村知昭、長谷川哲也、”アナターゼ型 TaON エピタキシャル薄膜の物理特性”、2012 年春季第 59 回応用物理関係連合講演会、東京、2012 年 3 月 15 日

3. 橋本遊、長浜太郎、島田敏宏、”無機半導体微粒子の銀無電解めっき特性”、日本セラミックス協会年会 2012 年 3 月 19 日

4. 早坂浩昭、長浜太郎、島田敏宏、“大気圧 CVD 法による Fe ナノ構造の形成”、日本セラミックス協会年会 2012 年 3 月 19 日
5. 中尾祥一郎、廣瀬靖、福村知昭、長谷川哲也、“固相成長による NbO₂ 薄膜の作製”、第 60 回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、神奈川、2013 年 3 月 27 日
6. 高木亮介、近松彰、片山司、廣瀬靖、福村知昭、長谷川哲也、“CaH₂ 反応による SrCuO₂ 薄膜の構造変化”、第 60 回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013 年 3 月 27 日
7. 栗田佳織、近松彰、重松圭、福村知昭、長谷川哲也、“SrTiO₃ 基板上に堆積させた SrRu_{0.9}Cr_{0.1}O₃ 薄膜の輸送・磁気特性”、第 60 回応用物理学会春季学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013 年 3 月 27 日
8. 神坂 英幸、水口 菜々子、山下 晃一、長谷川 哲也、“第一原理計算を用いた F ドープ TiO₂ 系のキャリア活性化率と TiOF₂ 生成の熱力学”、第 3 回 CMSI 研究会、岡崎コンファレンスセンター、愛知、2012 年 12 月 4 日
9. 片山司、近松彰、廣瀬靖、福村知昭、長谷川哲也、“SrFeO₂ 薄膜における輸送特性の基板依存性”、2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会、愛媛大学・松山大学、愛媛、2012 年 9 月 11 日
10. 島本憲太、廣瀬靖、中尾祥一郎、福村知昭、長谷川哲也、“固相エピタキシー法による高品質 EuTiO₃(100)薄膜の合成”、2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会、愛媛大学・松山大学、愛媛、2012 年 9 月 11 日
11. 中尾祥一郎、山田直臣、廣瀬靖、長谷川哲也、“基板からの格子歪による Nb:SnO₂ 薄膜のキャリア生成の増強”、2012 年秋季第 73 回応用物理学会学術講演会、愛媛大学・松山大学、愛媛、2012 年 9 月 12 日
12. 川井智博、平谷俊悟、長浜太郎、島田敏宏 “The interlayer exchange coupling in CoFe₂O₄/Cr/Fe systems”, 2013 年春季第 60 回応用物理学会学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013 年 3 月 27 日
13. 松田悠弥、楯和也、高橋望、長浜太郎、島田敏宏、“Fabrication of Fe₃O₄/Al₂O₃/Fe and Fe₃O₄/CoCr₂O₄/Fe tunnel junctions”, 2013 年春季第 60 回応用物理学会学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2013 年 3 月 27 日
14. 島田敏宏、橋本遊、柳瀬隆、長浜太郎、米澤徹、“溶液合成した前駆体の MoS₂ への変化過程”、2013 年春季第 60 回応用物理学会学術講演会、神奈川工科大学、厚木、2012 年 3 月 27 日
15. Kenta Shimamoto, Tatsunori Kawashima, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, “Composition- and temperature-gradient approaches to epitaxial growth of multiferroic perovskite oxide thin films by pulsed laser deposition”, 7th International Workshop on Combinatorial Materials Science and Technology, Charleston, South Carolina, 2012 年 10 月 21 日
16. Kenta Shimamoto, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya

Hasegawa,, “Improved surface morphology in EuTiO₃ epitaxial thin film grown by solid phase epitaxy”, The 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Nara, Japan, 2012 年 9 月 25 日

17. Akira Chikamatsu, Toshiya Matsuyama, Tsukasa Katayama, Yasushi Hirose, Hiroshi Kumigashira, Masaharu Oshima, Tomoteru Fukukmura, and Tetsuya Hasegawa, “Electronic and transport properties of infinite-layer Sr_{1-x}Eu_xFeO_{2+δ} thin films”, The 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Nara, Japan, 2012 年 9 月 25 日

18. T. S. Krasienapibal, T. Fukumura, Y. Hirose, and T. Hasegawa, “Low temperature epitaxial growth of anatase TiO₂ thin film by pulsed laser deposition”, The 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Nara, Japan, 2012 年 9 月 25 日

19. Anri Watanabe, Katsura Ikemiya, Akira Chikamatsu, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, “Local surface plasmon resonance of Ag/Co nano-rod structures embedded in TiO₂ films”, Yamada Conference LXVI-International Conference on the Nanostructure-Enhanced Photo-Energy Conversion, Tokyo, Japan, 2012 年 6 月 2 日

20. S. Kubota, T. Yanase, T. Yonezawa, T. Nagahama, and T. Shimada, “Structural Control of Graphene Edges by Electrochemical Etching”, International Conference on Nano and Molecular Electronics 2012, Awaji, Hyogo, Japan, 2012 年 12 月 14 日 (Best Poster Award)

21. Thantip Krasienapibal, 福村知昭, 廣瀬靖, 迫龍太, 長尾雅則, 綿打敏司, 田中功, 長谷川哲也, “Electrical Transport Properties of Self-buffered Anatase TiO₂”, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013 年 9 月 18 日

22. 岡真悠子, 神坂英幸, 福村知昭, 長谷川哲也, “ジルコニアの酸素イオン伝導におけるアニオンドープの効果と電荷状態の第一原理計算”, 第 74 回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺、2013 年 9 月 19 日

23. 川人愛子, 柳瀬隆, 長浜太郎, 島田敏宏, “熱 CVD 法を用いた Fe ナノワイヤの作製”, 日本化学会 第3回CSJ化学フェスタ、タワーホール船堀、東京、2013 年 10 月 23 日 (優秀ポスター発表賞 受賞)

24. 片山司, 近松彰, 廣瀬靖, 福村知昭, 長谷川哲也, “PVDFを用いた SrCoO_{2.5} 薄膜のトポタクティックフッ素化反応”, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会、青山学院大学相模原キャンパス、相模原、2014 年 3 月 17 日

25. 山崎崇範, 廣瀬靖, 中尾祥一郎, 原山勲, 関場大一郎, 長谷川哲也, “パルスレーザー蒸着法を用いた SnO_xN_y 薄膜の合成と物性評価”, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会、青山学院大学相模原キャンパス、相模原、2014 年 3 月 17 日

26. 中尾祥一郎, 廣瀬靖, 福村知昭, 長谷川哲也, “非晶質 SnO₂ 薄膜の電気伝導: Ta 置換量依存性”, 第 61 回応用物理学会春季学術講演会、青山学院大学相模原キャンパス、相模原、2014 年 3 月 17 日

27. A. Kawahito, T. Yanase, T. Nagahama, T. Shimada, “Fabrication of Fe Nanowires by Thermal CVD Method”, 11th International Conference on Ferrites, Okinawa, April 16 (2013). (Yamazaki Yohtaro Memorial Student Award 受賞)

28. Shoichiro Nakao, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, "Fabrication of Ta-doped SnO₂ Thin Films on Unheated Glass Substrates by Pulsed Laser Deposition", 8th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (TOEO-8), Tokyo, Japan, May 13 (2013).
29. A. Suzuki, Y. Hirose, D. Oka, S. Nakao, H. Matsuzaki, K. Fukutani, S. Ishii, K. Sasa, D. Sekiba, T. Fukumura and T. Hasegawa, "A novel high mobility oxynitride semiconductor: anatase TaON epitaxial thin film", 8th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (TOEO-8), Tokyo, Japan, May 14 (2013).
30. Sohei Okazaki, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, Yang Chang and Tetsuya Hasegawa, "Physical Properties of Anion-Substituted Indium Oxide Epitaxial Thin Film", 8th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (TOEO-8), Tokyo, Japan, May 14 (2013).
31. Yasushi Hirose, Satoru Mohri, Shoichiro Nakao, and Tetsuya Hasegawa, "Epitaxial growth fluorine-doped anatase TiO₂ thin films by reactive-pulsed laser deposition", E-MRS 2013 SPRING MEETING, Strasbourg, France, May 28 (2013).
32. Chang Yang, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, and Tetsuya Hasegawa, "Lowering the synthesis temperature of anatase TiO₂ thin films by oxide-metal interactions", E-MRS 2013 SPRING MEETING, Strasbourg, France, May 30 (2013).
33. Mayuko Oka, Hideyuki Kamisaka, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, "DFT-Based Theoretical Observation of the ionic charge states during the colossal ionic conduction in doped zirconia systems", The 19th International Conference on Solid State Ionics, Kyoto, Japan, June 6 (2013).
34. Anri Watanabe, Yuki Kotake, Akira Chikamatsu, Yasushi Hirose, Kosei Ueno, Tetsuya Hasegawa, Hiroaki Misawa, "Local surface plasmon resonance and photoelectric conversion of TiO₂ films with self-assembled Ag/Co nanostructures", The International Photochemistry Conference ICP2013, Leuven, Belgium, July 22 (2013).
35. Y. Tsuchida, N. Muraya, T. Yanase, T. Nagahama, T. Shimada, "Spontaneous mixing of molecules at organic p/n junctions", JSAP-MRS Joint Symposia, Doshisha Univ., Kyoto, Sept 19 (2013).
36. 中尾祥一郎, 山田直臣, 廣瀬靖, 長谷川哲也, "Ta:SnO₂ 透明導電膜における低基板温度でのシード層の有効性", 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 京都, 2014年9月17日
37. 倉内裕史, 神坂英幸, 片山司, 近松彰, 長谷川哲也, "第一原理計算による水素ドープ SrFeO₂ の金属伝導性の起源の解明", 第8回分子科学討論会 2014 東広島, 広島, 2014年9月21日
38. A. Suzuki, Y. Hirose, D. Oka, S. Nakao, T. Fukumura and T. Hasegawa, "混晶アナターゼ型 (TiO₂)_x(TaON)_{1-x} による光学特性制御 / Tunable optical properties in solid-solution of anatase (TiO₂)_x(TaON)_{1-x}", 第24回日本 MRS 年次大会(第1回 E-MRS/MRS-J ジョイントシンポジウム), 神奈川, 2014年12月11日

39. Takanori Yamazaki, Yasushi Hirose, Shoichiro Nakao, Isao Harayama, Daiichiro Sekiba, Tetsuya Hasegawa, “高移動度非晶質 ZnO_xN_y 薄膜の合成 / Fabrication of High Mobility Amorphous ZnO_xN_y Thin Films”、第 24 回日本 MRS 年次大会(第 1 回 E-MRS/MRS-J ジョイントシンポジウム), 神奈川, 2014 年 12 月 11 日
40. T. Katayama, A. Chikamatsu, Y. Hirose, T. Fukumura and T. Hasegawa, “Topotactic Fluorination of Strontium Iron Oxide Thin Films using Polyvinylidene Fluoride”, European Materials Research Society Spring meeting, Lille (France), May 27 (2014).
41. S. Nakao, Y. Hirose, and T. Hasegawa, “Widened Process Window in Sputter Deposition of Nb-Doped Anatase TiO_2 Transparent Conductive Thin Films by Two-Step Annealing method”, 9th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (TOEO9), Tsukuba, Japan Oct. 10 (2015).
42. A. Suzuki, Y. Hirose, S. Nakao, and T. Hasegawa, “Growth of anatase TaON thin film on glass substrate using anatase TiO_2 polycrystalline seed layer”, 9th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (TOEO9), Tsukuba, Japan, Oct. 10 (2015).
43. Shoichiro Nakao, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, “Widened process window in fabrication of Nb-doped anatase TiO_2 transparent conductive thin films by two-step annealing”, PacifiChem2015, Honolulu, USA, Dec. 19 (2015).
44. Daisuke Ogawa, Yoonhyun Kim, Kosho Akatsuka, Minoru Osada, Tomoteru Fukumura, Tetsuya Hasegawa, and Takayoshi Sasaki, “Dielectric properties of molecularly-thin titania nanosheets”, PacifiChem2015, Honolulu, USA, Dec. 17 (2015).
45. Takeshi Endo, Masayuki Okuya, Ryo Iwaki, Shuichiro Takemura, Shoichiro Nakao, Sohei Okazaki, Enju Sakai, Naomi Yamada, Taro Hitosugi, and Tetsuya Hasegawa, “Reduction of TiO_2 / TCO interface resistance for dye-sensitized solar cell with TNO transparent conductive film”, PacifiChem2015, Honolulu, USA, Dec. 19 (2015).
46. 寒竹亮太、近松彰、長谷川哲也, “Bi と Sn を含む有機無機ペロブスカイト化合物の光学特性”, 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 13 日
47. 中尾祥一郎、廣瀬靖、長谷川哲也, “大気アニールによるスパッタ Nb: TiO_2 透明導電膜の作製”, 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 13 日
48. 橋本直明、神坂英幸、廣瀬靖、長谷川哲也, “ペロブスカイト酸窒化物 ATaO_2N (A = Ba, Sr, Ca) の誘電特性に関する 第一原理計算による理論的考察”, 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 14 日
49. 鈴木温、廣瀬靖、中尾祥一郎、長谷川哲也, “ TiO_2 多結晶シード層導入によるアナターゼ型 TaON 薄膜のガラス基板上成長”, 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 14 日
50. 小野塚智也、近松彰、片山司、福村知昭、長谷川哲也, “低温トポクティブ合成で作製した $\text{NdNi}(\text{O},\text{F})_3$ 薄膜の構造と物性”, 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議

場, 名古屋, 2015 年 9 月 14 日

51. 重松圭、中尾祥一郎、近松彰、廣瀬靖、長谷川哲也, “ $\text{Sr}_2\text{MgMoO}_{6-\delta} / \text{KTaO}_3$ (100)における金属的電気伝導”, 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 14 日

52. 小川大輔、中尾 祥一郎、森河和雄、廣瀬靖、長谷川哲也, “透過電子顕微鏡による Nb ドープ TiO_2 透明導電膜の膜内構造観察”, 76 回応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 14 日

53. 沓澤大、岡大地、福村知昭、長谷川哲也, “ルチル型二酸化ルテニウム薄膜における電気輸送特性の膜厚依存性”, 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 東京工業大学, 東京, 2016 年 3 月 22 日

54. Tomoteru Fukumura, Jie Wei, Shungo Kojima, Thantip S. Krasienapibal, Ryosuke. Sei, Kenichi Kaminaga, Daichi Oka, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, “Thin film epitaxy of functional oxides”, Element Specific Structure Determination in Materials on Nanometer and Sub-Nanometer Scales using modern X-Ray and Neutron Techniques, Bad Honnef, Germany, April 27 (2015).

55. Dai Kutsuzawa, Daichi Oka, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Thin film growth of HP-PdF₂ type RuO₂”, Tohoku University Campus Asia Summer School 2015, Tohoku University, Japan, Aug. 28 (2015).

56. Ryosuke Sei, Daichi Oka, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Reductive Solid Phase Epitaxy and Physical Properties of Layered Y₂O₂Bi Thin Film with Bi²⁻ Square Net”, Tohoku University Campus Asia Summer School 2015, Tohoku University, Japan, Aug. 28 (2015).

57. Kenichi Kaminaga, Ryosuke Sei, Daichi Oka, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Nonequilibrium Synthesis of Solid State Yttrium Monoxide”, Tohoku University Campus Asia Summer School 2015, Tohoku University, Japan, Aug. 28 (2015).

58. Thantip K. Krasienapibal, Tomoteru Fukumura, and Tetsuya Hasegawa, “Microscopic magnetism in high TC ferromagnetic oxide semiconductor: anatase Co-doped TiO₂”, MMM InterMag 2016 Joint Conference, San Diego, USA, Jan. 14 (2016).

59. Kenichi Kaminaga, Ryosuke Sei, Tomoteru Fukumura, Tetsuya Hasegawa, “Epitaxial growth of yttrium monoxide thin film”, 2015 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2015), Sapporo, Japan, Sept. 29 (2015).

60. 清良輔、岡大地、福村知昭、長谷川哲也, “2D electronic nature with strong spin-orbit coupling in unusual Bi²⁻ square net”, 6 専攻合同シンポジウム—ヤングブレインズの連携による新学術領域の創起—, 東北大学、仙台, 2016 年 2 月 9 日

61. Il Jeon, Dai Kutsuzawa, Yu Hashimoto, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Toshihiro Shimada, and Yutaka Matsuo, “Multilayered MoS₂ nanoflakes bound to carbon nanotubes as electron acceptors in bulk heterojunction inverted organicsolar cells”, 8th International Symposium on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE8), Tower Hall Funabori, Japan, June 18

(2015).

62. Toshihiro Shimada, Takashi Yanase, Taro Nagahama, Yuya Tsuchida, and Naoki Muraya, "Spontaneous mixing of molecules at the organic semiconductor pn junction fabricated by sequential deposition", 8th International Symposium on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE8), Tower Hall Funabori, Japan, June 18 (2015).

63. Weng Mengting, Takashi Yanase, Taro Nagahama, and Toshihiro Shimada, "Growth Mechanism of Chemical Vapor Deposition of MoS₂", 8th NTTHX Symposium, Urmuqi, China, Aug. 9 (2015).

64. 荒木真人、柳瀬隆、島田敏宏、長浜太郎, "反応性 MBE 法によるエピタキシャル Sn_xFe_{3-x}O₄ 薄膜の作製", 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 9 日

65. 佐々木駿、島田敏宏、長浜太郎, "エピタキシャル Fe₃O₄/AlO_x/Fe トンネル接合の伝導特性評価", 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 9 日

66. 高城拓也, 長浜太郎, 島田敏宏, "MBE 法を用いた LiTi₂O₄ エピタキシャル薄膜及びスピントフィルター接合の作製", 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 9 日

67. 梶田博樹、柳瀬隆、島田敏宏、長浜太郎, "CoFe₂O₄を用いた垂直磁化型スピントフィルター素子の作製", 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015 年 9 月 9 日

68. Kie Yamakawa, Wei Xie, Takashi Yanase, Taro Nagahama, and Toshihiro Shimada, "Molecular dynamics and electronic structure studies of organic semiconductors under mechanical stress", International Conference on Solid State Devices and Materials 2015, Sapporo Convention Center, Sept. 29 (2015).

69. Masato Araki, Hiroki Kajita, Nozomi Takahashi, Takashi Yanase, Toshihiro Shimada, Hiromichi Ohta and Taro Nagahama, "Influence of oxygen partial pressure on electrical and magnetic characteristics of spinel CoFe₂O₄ thin films", International Conference on Solid State Devices and Materials 2015, Sapporo Convention Center, Sept. 29 (2015).

70. 高橋望、柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏, "γ-Al₂O₃ 単結晶膜を用いたスピン注入素子の作製", 第 5 回 CSJ 化学フェスタ 2015, タワーホール船堀, 東京, 2015 年 10 月 13 日

71. 梶田博樹、柳瀬隆、島田敏宏、長浜太郎, "Pt 上に蒸着した CoFe₂O₄ エピタキシャル超薄膜の垂直磁気特性", 第 5 回 CSJ 化学フェスタ 2015, タワーホール船堀, 東京, 2015 年 10 月 14 日

72. Takuya Miura, Wei Xie, Takashi Yanase, Taro Nagahama, and Toshihiro Shimada, "A thermocouple-based remote temperature controller of an electrically floated sample to study plasma CVD growth of carbon nanotube", 9th International Conference on Reactive Plasmas (ICRP-9/GEC-68/SPP-33), Hawaii, USA, Oct. 15 (2015).

73. 高橋望、柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏, "γ-Al₂O₃ エピタキシャル薄膜を用いた Si へのス

ピン注入素子の作製”,第 45 回結晶成長国内会議 NCCG-45, 北海道大学, 2015 年 10 月 15 日

74. 中尾祥一郎, 廣瀬靖, 長谷川哲也, “新機能を持った透明導電膜の開発:酸化スズと酸化チタン”, 日本表面科学会第 1 回関東支部講演大会, 東京, 2016 年 4 月 9 日

75. 福本通孝, 中尾祥一郎, 重松圭, 廣瀬靖, 長谷川哲也, “高移動度 SnO₂ エピタキシャル薄膜の合成”, 日本表面科学会第 1 回関東支部講演大会, 東京, 2016 年 4 月 9 日

76. Shoichiro Nakao, Hideyuki Kamisaki, Yasushi Hirose, and Tetsuya Hasegawa, “Electrical and Optical Properties of Polycrystalline NbO₂ Thin Films Grown by Solid Phase Crystallization”, the 2016 Compound Semiconductoe Week (CSW2016), Toyama, June 27 (2016).

77. D. Ogawa, S. Nakao, K. Morikawa, Y. Hirose, and T. Hasegawa, “Microstructural Analysis of Nb-doped Anatase TiO₂ Transparent Conductive Films by Transmission Electron Microscopy”, the 2016 Compound Semiconductoe Week (CSW2016), Toyama, June 27 (2016).

78. 山田佳補, 近松彰, 重松圭, 蓑原誠人, 組頭広志, 池永英司, 長谷川哲也, “水素化カルシウムを用いた SrRu_{0.5}Cr_{0.5}O₃ 薄膜の還元反応”, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 新潟, 2016 年 9 月 13 日

79. 片山司, 近松彰, 廣瀬靖, 蓑原誠人, 組頭広志, 原山勲, 関場大一郎, 長谷川哲也, “A サイト秩序型ペロブスカイト構造 YBaCo₂O₆ 薄膜の合成と巨大磁気異方性、及びスピン状態遷移の観測”, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 新潟, 2016 年 9 月 15 日

80. 中尾祥一郎, 神坂英幸, 廣瀬靖, 長谷川哲也, “固相成長法で作製した NbO₂ 多結晶薄膜の電気・光学特性”, 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 新潟, 2016 年 9 月 15 日

81. Mayuko Oka, Hideyuki Kamisaka, Tomoteru Fukumura, Tetsuya Hasegawa, “DFT-based ab initio MD simulation of the ionic conduction in N/F-doped ZrO₂ under epitaxial strain”, 2016 International Conference on Solid State Devices and Materials, Tsukuba, Japan, Sept. 28 (2016).

82. T. Shimada, T. Tamura, T. Nagahama, and T. Yanase, “Molecular Dynamics Simulation of Thin Film Growth of Organic Semiconductors”, International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2016), Tsukuba, Sept. 27 (2016).

83. N. Takahashi, Y. Yamamoto, T. Yanase, T. Shimada, T. Nagahama, “Epitaxial Growth and Magnetic Properties of Fe₃O₄ Film on Si (111) Substrate”, International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2016), Tsukuba, Sept. 27 (2016).

84. Y. Yamamoto, S. Sasaki, T. Yanase, T. Shimada, T. Nagahama, “Fabrication of Tunnel Junctions with Fe₃O₄ Electrode and MgO Barrier”, International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2016), Tsukuba, Sept. 27 (2016).

85. T. Tamura, T. Nagahama, T. Yanase, T. Shimada, “Molecular Dynamics Simulation of molecular crystals under mechanical stress for Flexible Electronics”, KJF-ICOMP 2016,

Fukuoka, Sept. 5 (2016).

86. T. Takami, T. Tamura, T. Yanase, T. Nagahama, and T. Shimada, "Plasma surface process of cubic boron nitride studied by using microscopic single crystals", 38th International Symposium on Dry Process (DPS38), Sapporo, Nov. 21 (2016).

87. 上部宏晃、柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏, "新規グラッシーカーボン薄膜の作製と光学特性", 日本セラミックス協会東北・北海道支部講演会, 札幌市, 2016年10月27日

88. 大森圭太、柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏, " $\text{Fe}_3\text{O}_4(110)$ /非磁性金属/Fe系多層膜における飽和磁場の非磁性金属層厚依存性", 日本セラミックス協会東北・北海道支部講演会, 札幌, 2016年10月27日

89. 荻原初夏、柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏, "化学気相成長法によるFeナノワイヤの作製とその特性評価", 日本セラミックス協会東北・北海道支部講演会, 札幌, 2016年10月27日

90. 高見拓哉、柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏, "立方晶窒化ホウ素のプラズマプロセス:エッチングとダイヤモンドCVD", 日本セラミックス協会東北・北海道支部講演会, 札幌, 2016年10月27日

91. 山本雄太、柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏(北海道大学)、 Fe_3O_4 電極を用いたトンネル磁気抵抗素子の作製、日本セラミックス協会東北・北海道支部講演会, 札幌, 2016年10月27日

92. 島田敏宏、長谷川幸樹、柳瀬隆、長浜太郎、山口誠, "三次元ネットワーク高分子を用いた立方晶窒化ホウ素結晶上への新規炭素薄膜の合成", 日本セラミックス協会秋季シンポジウム, 東広島, 2016年9月8日

93. 荻原初夏、柳瀬隆、長浜太郎、長島一樹、柳田剛、島田敏宏, "化学気相成長法によるFeナノワイヤの作製とその特性評価", 第6回CSJフェスタ, 東京都, 2016年11月14日

94. 上部宏晃、長谷川幸樹、柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏, "新規グラッシーカーボン薄膜の作製と光学特性および電気特性の評価", 第6回CSJフェスタ, 東京都, 2016年11月14日

95. 大森圭太、川井智博、柳瀬隆、島田敏宏、長浜太郎, " $\text{Fe}_3\text{O}_4(110)$ /非磁性金属/Fe系多層膜における飽和磁場の非磁性金属層厚依存性", 第6回CSJフェスタ, 東京都, 2016年11月14日

96. 高見拓哉、田村貴大、柳瀬隆、長浜太郎、島田敏宏, "立方晶窒化ホウ素のプラズマ表面化学プロセス-エッチングとダイヤモンドCVD-", 第6回CSJフェスタ, 東京都, 2016年11月15日

(4)知財出願

② 国内出願 (4件)

② 海外出願 (2件)

③ その他の知的財産権

(5)受賞・報道等

① 受賞

1. Best Poster Award, Yamada Conference LXVI, 渡部愛理(博士2年), 2012.06.04
2. Best Poster Award, 久保田翔生(修士2年生)
International Conference on Nano and Molecular Electronics 2012, Awaji, Hyogo, Japan, 2012年12月14日
3. A. Kawahito, Yamazaki Yohtarō Memorial Student Award, 11th International Conference on Ferrites, Okinawa, April 16 (2013).
4. Atsushi Suzuki, 8th International Symposium on Transparent Oxide and Related Materials for Electronics and Optics (TOEO8), Best Poster Award (Gold), May 15 (2013).
5. 川人愛子、第2回応用物理学会フォトコンテスト優秀賞、2013年9月16日
6. 川人愛子、第3回CSJ化学フェスタ、優秀ポスター発表賞、2013年10月23日
7. 鈴木温、第24回日本MRS年次大会 奨励賞、2015年1月16日
8. 藤原聡士、理学部学修奨励賞、東京大学理学部、2016年3月29日
9. 福本通孝、日本表面科学会関東支部第1回支部講演大会、学生講演奨励賞、2016年4月9日
10. 鈴木温、第40回(2016年春季)応用物理学会、講演奨励賞、2016年5月13日

② マスコミ(新聞・TV等)報道

1. “単結晶薄膜合成 アナターゼ型酸窒化タンタル 高性能半導体材に”、日刊工業新聞、2013年12月30日
2. “酸窒化物 強誘電体の挙動観察”、日刊工業新聞、2014年5月20日
3. “単結晶並み薄膜結晶 ガラス基板上に作製”、日刊工業新聞、2014年6月6日
4. “インジウム不使用”、日刊工業新聞、2016年1月27日
5. “太陽電池 安く作る電極材”、日刊工業新聞、2016年2月1日
6. “極薄 超電導シート 高速演算に応用期待”、日経産業新聞、2016年8月25日

③ その他

1. 日本学術振興会特別研究員(DC2)、神永健一、平成29年度より
2. 国際会議論文発表者助成(公益財団法人 NEC C&C 財団)、神永健一

(6)成果展開事例

①実用化に向けての展開

・KAST グループが開発した高移動度酸化スズ系薄膜について、NEDO の「低炭素社会構築に向けたオフグリッドエネルギーハーベストデバイスの開発」(H27)に参画。

②社会還元的な展開活動

- ・ 科学未来館では定期的にラボツアーを行い、研究成果を一般情報提供している。
- ・ 本研究成果を元に、イットリウム酸化物として代表的な、絶縁体として知られる Y_2O_3 をYOという単酸化物にすると、半導体としての機能性が付与されることを提言した。発表論文は Editor's Pick 論文に選出された。今後、希土類酸化物の電子機能が発展する可能性がある。
- ・ 本研究成果を元に、非超伝導体とされていたビスマス層状酸化物 Y_2O_2Bi の酸素量を調整すると超伝導が発現する、という新たな超伝導体設計に関する提言を行った。

§ 5 研究期間中の活動

5.1 主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動

年月日	名称	場所	参加人数	概要
平成 25 年 8 月 22 日	日本科学未来館ワーク ショップ	日本科学未 来館	20 人	研究成果の発信
平成 25 年 11 月 29 日	JST 元素戦略合同シン ポジウム	東京国際フ ォーラム		研究進捗報告、チーム間の 研究交流
平成 26 年 8 月 22 日、24 日	日本科学未来館オープ ンラボツアー	日本科学未 来館	60 人	有機太陽電池の来場者へ の紹介
平成 27 年 9 月 26-29 日	SSDM 2015	札幌市		プログラム委員
2016 年 1 月 11-15 日	MMM INTERMAG 2016 Joint Conference	San Diego, CA, USA		Program Committee
平成 28 年 2 月 23 日	元素戦略／希少金属代 替材料開発第 10 回 同シンポジウム	東京国際フ ォーラム		成果の発信、プロジェクト間 の交流
平成 28 年 8 月 4 日	2016 年度理学部オープ ンキャンパス	東京大学	約 200 人	機能性材料合成に関する講 義とラボツアー
平成 28 年 8 月 26 日	高校生一日体験化学教 室	東京大学	7 人	太陽電池を作製する実験 を実施
平成 28 年 9 月 27-30 日	SSDM 2016	つくば市		プログラム委員

§ 6 最後に

・トポクティブ反応が特に薄膜試料に対しては思いのほか有効であり、多くの新しい物質やそこで表れる新物性に触れることができた。現在はまだ知識を蓄えつつあり、幾つか経験則が見えてきた段階であるが、今後は理論計算の協力も得て、学理として高めていきたい。また、気相から結晶が生じる反応とはことなり、反応メカニズムを理解することの重要性を学んだ。化学としても興味深い分野が広がりつつあるのを感じる。

・一方で、研究の「出口」であるデバイスの作製や高パフォーマンスの実証は必ずしもスムーズには進まなかった。目的意識の統一がやや欠けていたのではないかと大いに反省している。まだ3月まで研究機関は残されているので、それまでには目標に到達したい。

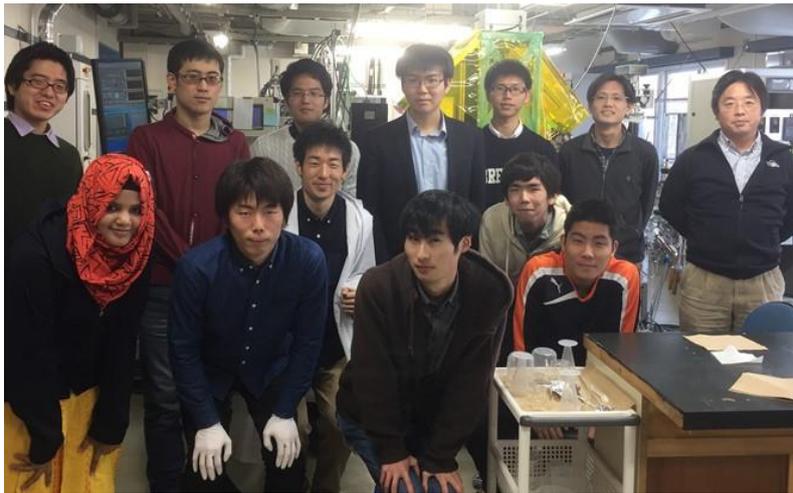
・東大グループでは、教育の一環として、新入生全員に対し計算機演習を課した。1年後には、バンド計算ができることを目標とした。年を追うごとに学生の計算機化学への学習意欲は増しており、一定の成果があったと考えている。ただし、これを続けていくには理論家がスタッフとして必要であり、人員確保が今後の課題である。



長谷川研究室の集合写真

・異常原子価をもつ物質、希土類単酸化物 RO ($R: Y$, 希土類元素) とビスマス層状酸化物 R_2O_2Bi にターゲットを絞り、それらの合成手法の開発、試料の高品質化、および基礎物性の評価を行った。異常原子価 (RO 中の R^{2+} 、 R_2O_2Bi 中の Bi^{2+}) をもつエピタキシャル薄膜試料の合成手法の開発を達成し、基礎物性評価が可能な程度の高品質化も達成した。よく知られた希土類酸化物 R_2O_3 と異なり、良好な電気伝導性をもつ希土類単酸化物、および Bi^{2+} 正方格子に起因した二次元的な電気伝導を示すビスマス層状酸化物の物性は、当初から予見できたもので予定通りの成果であった。

・2015 年度に研究室がスタートして以降、研究室の人員も毎年増えており、これまでに得られた成果をさらに展開していきたい。



福村研究室メンバーの写真