



高エネルギー荷電粒子による高配向有機ナノ細線構造体の創製と 電気伝導機構の解明

京都大学大学院工学研究科

信岡 正樹*, 坂口 周吾, 河田 実里,
関 修平

Today, with the development of microfabrication technology, the need for structural dimensional control has come to be emphasized. Organic nanostructures are no exception. In this paper, we describe in detail the creation of organic 1D nanostructures: oriented assemblies of nanowires using energetic charged particles and the evaluation of their electrical properties. The high electrical conductivity, which is unique among organic materials, and the charge transport in the nanowire extension direction are discussed.

Keywords: High-energy charged particles, Nanowire, Organic device, Charge transport

1 はじめに

微細加工技術における空間制御は今や数ナノメートルオーダーの世界に到達しており、原理的に最小限界ともいえる单分子デバイスの提案にいたっている。“どれほど小さい”材料を“いかに精密に”集積するか、が今もってなおマテリアルサイエンスの一つの命題であり、今日のデジタル社会はその技術革新に裏打ちされている。一方で、今日の集積回路 (IC) 製造では「ムーアの法則」が破綻する物理的な集積限界が議論されるようになり、2次元集積構造から3次元集積構造への転換が企図されている。微細加工限界の到達のその先で、構造次元制御により集積限界を打破する次

世代 IC の目論見であり、現在、実用に向けた研究・開発が日々なされている。一方、新しい材料による電子デバイスの構築を模索する向きもある。たとえば、従来のシリコン (Si) に代わる、SiC や GaN を用いたパワー半導体では低電力損失・高耐電圧により大幅なエネルギー効率の向上が実現され、これらの市場規模は拡大の一途をたどっている。有機デバイス開発においても、低コスト、フレキシブル性、材料選択性、などの優位性を超え、機能面において無機材料を代替するものが見出されつつある。有機 EL ディスプレイはすでに我々の実生活に定着し、有機電界効果トランジスタ (OFET) や有機薄膜太陽電池 (OPV) が実装に向けて追従する。次世代電子デバイスにおいて、“3次元集積”と“材料選択”的重要性を踏まえ、本稿では、放射線の一種である高エネルギーイオンビームを用いた“有機材料”的“高次元集積化”的可能性について論じる。加えて、電子デバイスへの展開を見据え、電気特性評価に基づく電子物性測定についても詳説する。

我々の研究グループは、高エネルギー荷電粒子を用いた有機ナノワイヤ作製技術を広く展開してきた。2022年にも本会誌で紹介したが¹⁾、改めてこれまでの軌跡を簡潔にまとめる。高分子薄膜・有機薄膜に MeV-GeV オーダーの高エネルギー荷電粒子（重粒子線、特に Swift Heavy Ion に分類される）を照射することでナノワイヤを得る一連の手法をそれぞれ单一粒子ナノ加工法 (Single-Particle Nanofabrication Technique, SPNT)²⁻⁴⁾、单一粒子誘発線形固相重合法 (Single-particle Triggered Linear Polymerization, STLiP)⁵⁻⁸⁾ として報告した (Fig. 1)。荷電粒子の飛跡に沿った1次元円筒状空間 (イオントラック)において、粒子から付与されたエネルギーにより化学反応 (ここでは重合・架橋反応) を誘起することで、薄膜中に不溶性ゲル状の1次元ナノ構造体が形成される。その後、未照射・未反応部位を除去する (wet or dry process, Fig. 1) ことで、1次元ナノ構造体をナノワイヤとして単離できる。ここで、ナノワイヤ長は原料薄膜の膜厚に一致し、照

Fabrication of highly-oriented organic nanowire structures by high-energy charged particle beams and investigation of their electrical conduction mechanism

Masaki NOBUOKA*, Shugo SAKAGUCHI, Minori KAWATA and Shu SEKI (Department of Molecular Engineering, Graduate School of Engineering, Kyoto University),

〒615-8510 京都府京都市西京区京都大学桂

TEL: 075-383-2573, E-mail: nobuoka.masaki.36e@st.kyoto-u.ac.jp

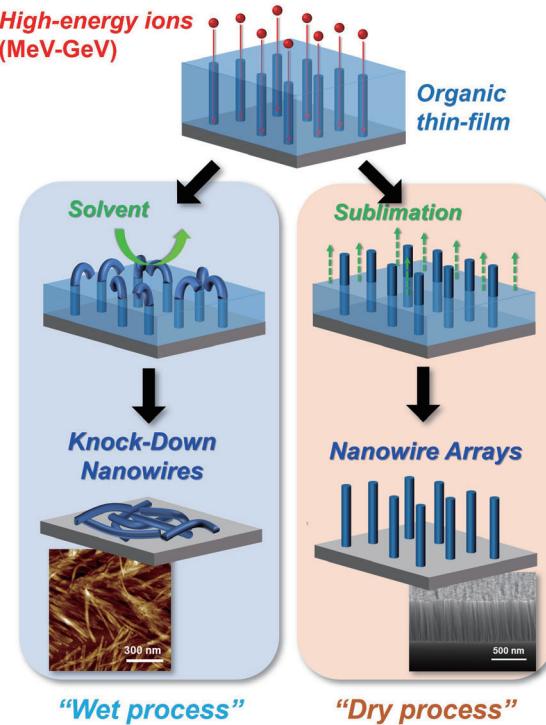


Figure 1. Schematic illustration of organic nanowire fabrication method via irradiation of high-energy charged particles: SPNT/STLiP protocol. The nanowire fabrication uses two types of development methods (wet- and/or dry-process). These development methods form separate nanowire assemblies, corresponding to lying nanowires (atomic force microscopy (AFM) image) and vertically oriented nanowires (scanning electron microscopy (SEM) image), respectively.

射粒子のフルエンスがナノワイヤの数密度に完全に対応する。これらの構造パラメータが容易に調整できることは、ナノ構造の精密制御という点において大きな利点であり、後述する高次元構造制御の基盤となっている。

2 実験・結果

量子科学技術研究開発機構・高崎量子技術基盤研究所の AVF サイクロトロンにより生成された 450 MeV $^{129}\text{Xe}^{23+}$ ビームを使用した。支持基板上に有機化合物（フラーレン, C_{60} ; チタニルフタロシアニン, TiOPc）を真空蒸着法により成膜した後、高真空中 ($\sim 10^{-4}$ Pa)

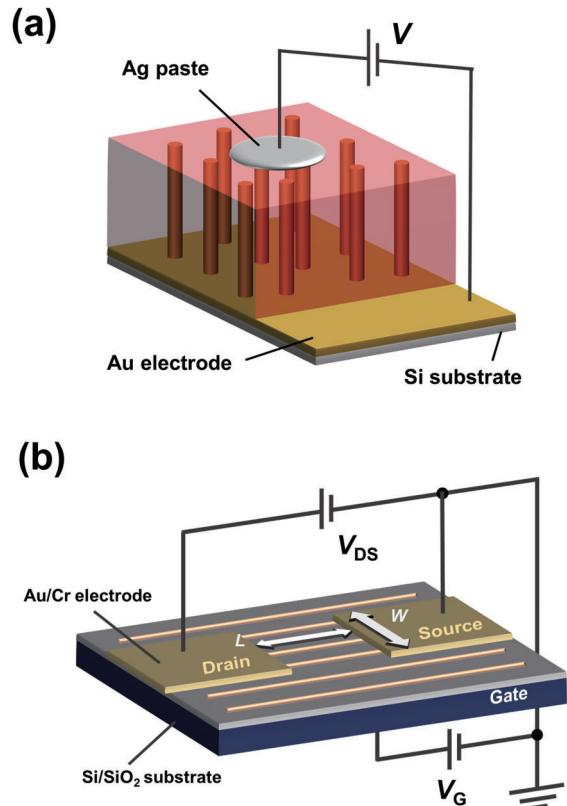


Figure 2. Schematic illustration of the organic nanowire devices. (a) The vertical device of irradiated organic films. (b) The lateral device as the back-gated FET configuration.

で $^{129}\text{Xe}^{23+}$ ビームを照射した。照射面内密度（フルエンス）は $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ – $1 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ の範囲で任意に設定した。有機ナノワイヤの (i) 3 次元集積、および (ii) 2 次元集積、について述べていく。まず、それぞれの電気特性評価デバイスの模式図を Fig. 2 に示しておく。(i) 3 次元集積 (Fig. 2(a)) に関しては、表面を金 (Au, 50 nm) 蒸着した Si 基板を支持基板として、 C_{60} 薄膜 (400 nm) を製膜した後、試料面に対して垂直にイオンビーム照射した。ここで、dry process 法によるナノワイヤ単離を行うと、上部電極を配置する際、ナノワイヤ同士の隙間に金属が侵入し導通を引き起こした。そのため、ナノワイヤは単離せず薄膜中に埋まった状態で上部に銀 (Ag) ペーストを塗布した。Ag ペーストは一定面積になるよう調整した。上部・下部の平行平板電極間に直流電圧を印加する二端子電気伝導度測定（以後、すべて真空中）を行ったところ、イオンビーム照射後試料に明確な電気伝導性を観測し

た (Fig. 3(a)). また、照射フルエンスの増加に伴い電流値も増加した。ここで、Fig. 3(b) に示すように、印加電圧 +1 V 時のフルエンスに対する微分コンダクタンスをプロットすることで完全な線形を示した。これはナノワイヤが並列伝導パスとして働いていることを如実に表している。C₆₀ ナノワイヤの半径は約 6.6 nm であるが⁸⁾、10¹¹ cm⁻² 以上の高フルエンスではイオントラック同士のオーバーラップを考慮する必要がある。イオンビームの流束 (フラックス) が一定であるとした場合、ポアソン分布を用いてイオントラック断面による被覆率を算出すると、10¹⁰ cm⁻² で 1.4 %、

1 × 10¹¹ cm⁻² で 12.8 %、1 × 10¹² cm⁻² で 74.6 % となる。コンダクタンス G は式(1) で表される。

$$G = \frac{\sigma A}{l} \quad (1)$$

ここで、 σ ：電気伝導度、 A ：断面積、 l ：長さである。 l に相当するナノワイヤ長は一定値であるため、Fig. 3(b) のようにコンダクタンスがフルエンスに対して比例関係となるには、 σ が一定かつ A が被覆率で置き換え可能であることが必要である。特に、前者は、イオンビーム照射に伴って形成される C₆₀ 重合・架橋ゲルにおける伝導機構がそのモルフォロジーによらず等価であることを示唆している。

さて、STLiP 法は、有機ナノ構造体で簡便に異種材料接合：ヘテロ接合系を作製できるというおそらく唯一無二の特徴を備えている^{1,8,9)}。二層膜 (TiOPc: 600 nm, C₆₀: 600 nm) を作製し、イオンビーム照射後、電気特性評価を行った (Fig. 4)。ここで C₆₀ と TiOPc はそれぞれ代表的な n 型・p 型有機半導体である。我々はすでに同様の系でコンダクティブ AFM (C-AFM) 法による非接触電流特性評価を行っていたが^{1,8)}、今回改めて接触プローブ法でも実施した。電流が一定方向にのみ流れる整流作用が観測されたことから、連結部における pn 接合界面でのキャリアの授受が効率的に

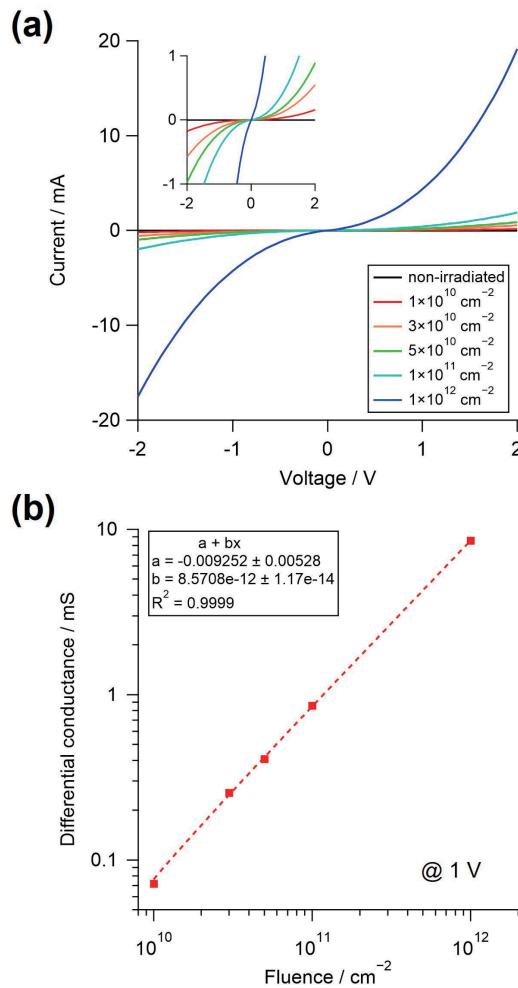


Figure 3. Current-voltage (I - V) characteristics of C₆₀ nanowire vertical devices. (a) I - V curves for non-irradiated and/or various irradiation fluences. The inset shows an enlarged image. (b) Differential conductance at applied voltage +1 V, relative to the fluence.

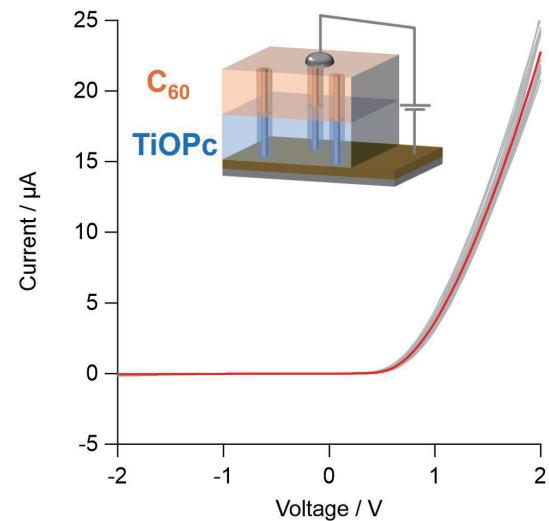


Figure 4. Current-voltage (I - V) characteristics of TiOPc-C₆₀ hetero-nanowire vertical devices. I - V curves of this system at the fluence of 5 × 10¹⁰ cm⁻². I - V curves show 20 measurements and their averages.

行われていることがうかがえる。今回の結果は元の分子の電子的性質を維持していることを示しており、分子構造はある程度保持したままイオンビームによる重合・架橋反応が進行したと考えられる。

次に、Fig. 2(b) に示した (ii) 2 次元集積: 横型デバイスについて説明する。デバイス作製について、まず、P ドープ Si/SiO₂ 基板 (n 型) 上に C₆₀ (200 nm) を製膜し、試料面に対して水平にイオンビームを照射した後、*o*-dichlorobenzene でナノワイヤを単離した。この手法で得られるナノワイヤは、その長さがイオンの飛跡に並ぶ数 10 μm に達するだけでなく（厳密には飛跡とナノワイヤ長は一致しない）、面内でイオン入射方向に配列した水平アレイ構造をとる (Fig. 5)。ちなみに、C₆₀ 以外の原料で作製するとナノワイヤ同士の絡み合いが多く配向性が保持されない、ナノワイヤの切断が多くみられる、といった問題があった。水平配向を維持するには単離時の溶媒の表面張力に耐えうるナノワイヤとしての剛直性が必要だと考えられる。また、水平配向 C₆₀ ナノワイヤの半径は (4.6 ± 0.3) nm であり、上述

した垂直配向時の (6.6 ± 0.6) nm よりも小さい。これは、イオンビームの線エネルギー付与 (LET) が侵入深さに依存するためであり、SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) シミュレーションによると、450 MeV ¹²⁹Xe²³⁺ に関しては 10 μm までは約 14100 eV nm⁻¹ でほぼ一定であるが、その後は減衰していき飛程 40 μm

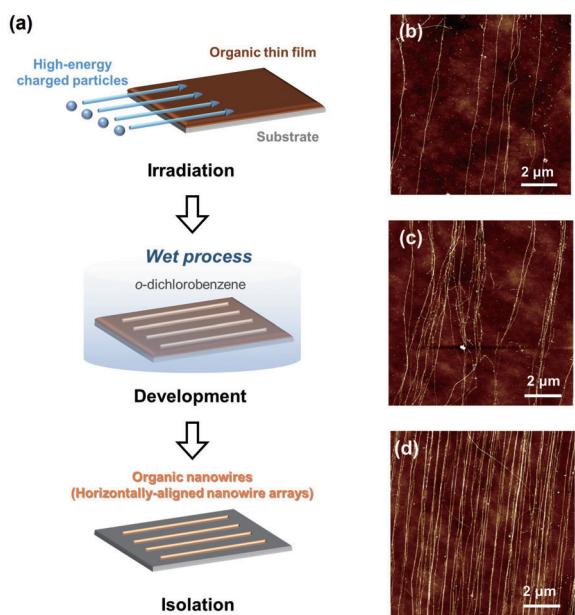


Figure 5. Fabrication of horizontally-aligned C₆₀ nanowire arrays by high-energy charged particle irradiation. (a) Schematic illustration of horizontally-aligned nanowire arrays via STLiP method. AFM images of horizontally-aligned nanowire arrays at the fluence of (b) $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, (c) $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, and (d) $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, respectively.

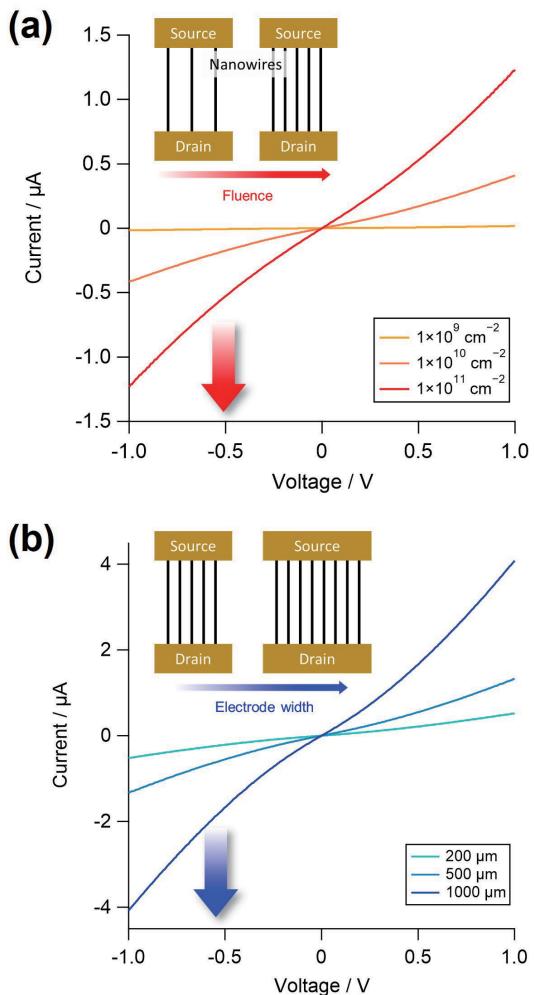


Figure 6. Evaluation of electrical conductivity of horizontally-aligned nanowires. (a) I - V characteristics ($V_G = 0$) vs. V_{DS} , with $W = 200 \mu\text{m}$ fixed, at the fluence of $1 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$, $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, and $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, respectively. (b) I - V characteristics ($V_G = 0$) vs. V_{DS} , at the fluence of $1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ fixed, with $W = 200 \mu\text{m}$, $500 \mu\text{m}$, and $1000 \mu\text{m}$, respectively. In both (a) and (b), the figures on insets represent schematic diagrams of the measurement conditions.

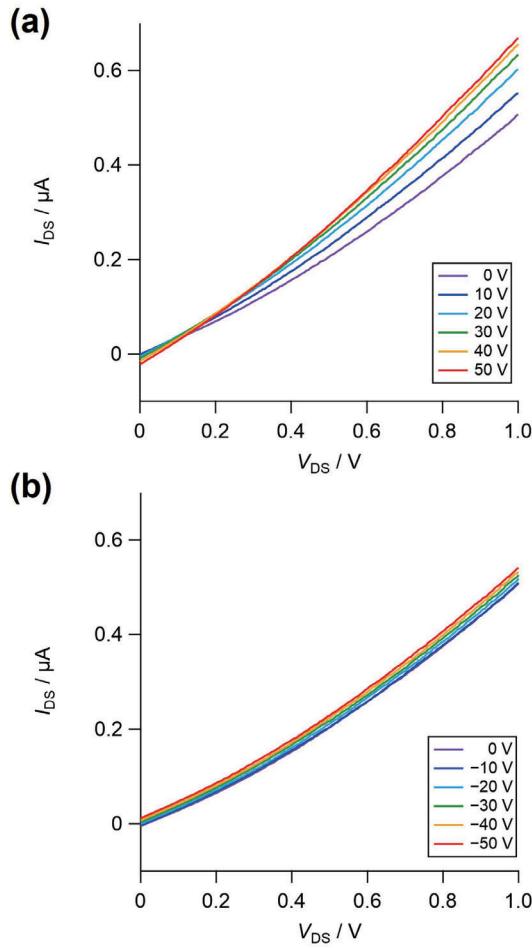


Figure 7. FET characteristics of C_{60} nanowires. I - V characteristics (I_{DS} vs. V_{DS}) at (a) $V_G = 0$ to 50 V and (b) $V_G = 0$ V to -50 V in a step of 10 V. These measurements were fixed for $W = 200$ μ m and $f = 1 \times 10^{10}$ cm^{-2} .

程で0となる。このことから、水平配向ナノワイヤで観測されたナノワイヤ半径は統計的に減少したと考えられる。

続いて、単離した水平配向ナノワイヤアレイ上にフォトリソグラフィによって金電極(50 nm)をソース・ドレイン電極として作製した(Fig. 2(b))。このとき、電極間ギャップ(L)を5 μ mに固定し、電極幅(W)を200 μ m, 500 μ m, 1000 μ mとした。 $W = 200$ μ mに固定し、ドレイン・ソース電圧(V_{DS})に対する電流・電圧特性(ゲート電圧: $V_G = 0$)を照射フルエンス(f)に応じて測定した(Fig. 6(a))。同様に、 $f = 1 \times 10^{10}$ cm^{-2} の時の W 依存測定をFig. 6(b)に示す。いずれも本質的に示す結果は同じであるが、Fig. 3で述べたように、

伝導パスとなるナノワイヤの本数が電極幅に対して増加するほど電流値も上昇する。ところで、Fig. 6はFig. 3(b)と比較して線形性が悪くなるが、これはイオンビーム照射角が完全に水平になっておらず(完全に0°にすることは技術的に難しい)、試料ごとの均一性が保証されていないためと考えられる。そこで、低フルエンス($f = 1 \times 10^9$ cm^{-2} , $W = 100$ μ m)試料で、走査型電子顕微鏡(SEM)からドレイン・ソース電極間を架橋しているナノワイヤの本数を直接数え上げ、 C_{60} ナノワイヤ1本あたりの電気抵抗率を算出することにした。得られた C_{60} ナノワイヤの電気抵抗は 1.1×10^{10} Ω であり、上述のナノワイヤ半径を用いることで電気抵抗率(ρ)が 0.15 $\Omega \text{ m}$ と見積もられた。この値はシリコンより4桁程度小さく、ゲルマニウム(Ge)とほぼ同程度である。また、真空蒸着法で作製した C_{60} 薄膜の電気抵抗率はおよそ 10^8 $\Omega \text{ m}$ – 10^{14} $\Omega \text{ m}$ のため¹⁰⁾、イオンビーム照射により絶縁体から半導体領域に転移したといえる。紫外光または電子線照射によりポリマー化した C_{60} 薄膜の電気抵抗率がそれぞれ 30 $\Omega \text{ m}$ 、および 0.07 $\Omega \text{ m}$ である¹¹⁾ことから、イオンビーム照射による重合反応は電子線重合と同等であると考えられる。この差は C_{60} 分子の重合形式によるものであり、前者は[2+2]環化反応を介したピーナッツ型、後者がダンベル型に相当する。

次に、 C_{60} 水平配向ナノワイヤの電界効果トランジスタ(FET)特性を調査した。ゲート電圧(V_G)を0 V– ± 50 V、と走査印加した際のそれぞれのドレイン・ソース電流(I_{DS})応答をFig. 7に示す。いずれも $0 < V_{DS} < 1$ ではFET特性における非飽和領域の挙動を示したが、Fig. 7(a)に示すように $V_G > 0$ で明確な差がみられた。これは、 C_{60} ナノワイヤのキャリアが電子である直接的な証拠である。先述したように C_{60} はn型(電子アクセプター)の有機半導体であり、必ずしも一致するわけではないが、n型FET特性を示したことと整合性が取れる。一方、今回の測定では I - V 曲線における飽和領域は観測できなかった。この要因の一つとして、基板とナノワイヤの接触抵抗の存在が推測される。そこで、我々が展開する時間分解マイクロ波伝導度(TRMC)法^{12–14)}によって微分電気伝導度の非接触評価を実施した。この手法は、電気伝導度測定として主流なプローブ法とは異なり、マイクロ波をプローブ波として照射することでサンプル中のキャリア移動度を非接触で測定できる。Figure 8に示すように、ナノワイヤアレイの配向に対して異方伝導性がみられ、ナノワイヤの1次元方向に対するキャリアの移動効率が非常に高いことを示した。

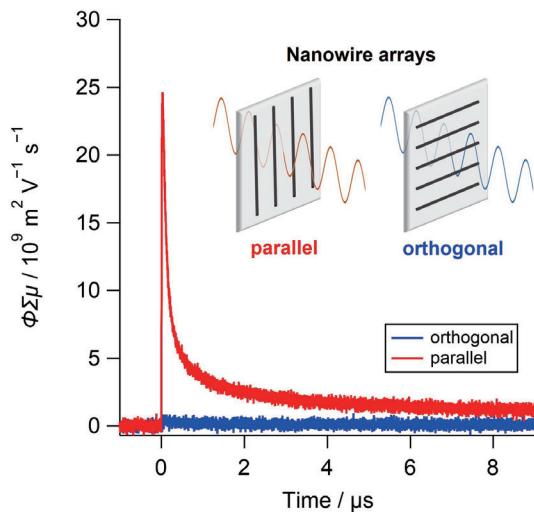


Figure 8. Non-contact electrical conduction measurement of nanowires by TRMC method. Flash-photolysis(FP)-TRMC profiles ($\lambda_{\text{ex}} = 355$ nm, photon intensity = 10 mJ cm^{-2}) of C_{60} nanowire arrays (red: parallel and blue: orthogonal). The inset illustration represents TRMC measurement for horizontally-aligned nanowire arrays. Polarized microwaves were injected with electric field oscillation directions parallel or perpendicular along the nanowire arrays. These measurements were fixed for $W = 200 \mu\text{m}$ and $f = 1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. ϕ and μ represent charge separation efficiency and carrier mobility, respectively.

最後に横型デバイスについて、50 K–300 K で温度変調して電気伝導度を測定した (Fig. 9). Figure 9(a) に示すように、温度の低下とともに抵抗が増加する一般的なアモルファス有機半導体的挙動であった。実際、本手法の有機ナノワイヤは形成原理上、原料分子が化学結合することで形成したオリゴマーが複雑に絡み合っているため、結晶性は低くアモルファスであると考えられる。よってキャリアの伝導機構はホッピング伝導が優勢であると推測される。この仮定のもと、最近接ホッピング (Nearest neighbor hopping, NNH) モデルによるアレニウスプロットを施すと、比較的高温領域 (200 K–300 K) ではホッピング伝導の温度依存性を近似できた一方で、低温領域 (50–200 K) では線形から外れた。低温ではフォノンの寄与が極めて小さくなり局在中心間のトンネル効果が有利となる広域ホッピング (Variable range hopping, VRH) (式 (2)) が現れ

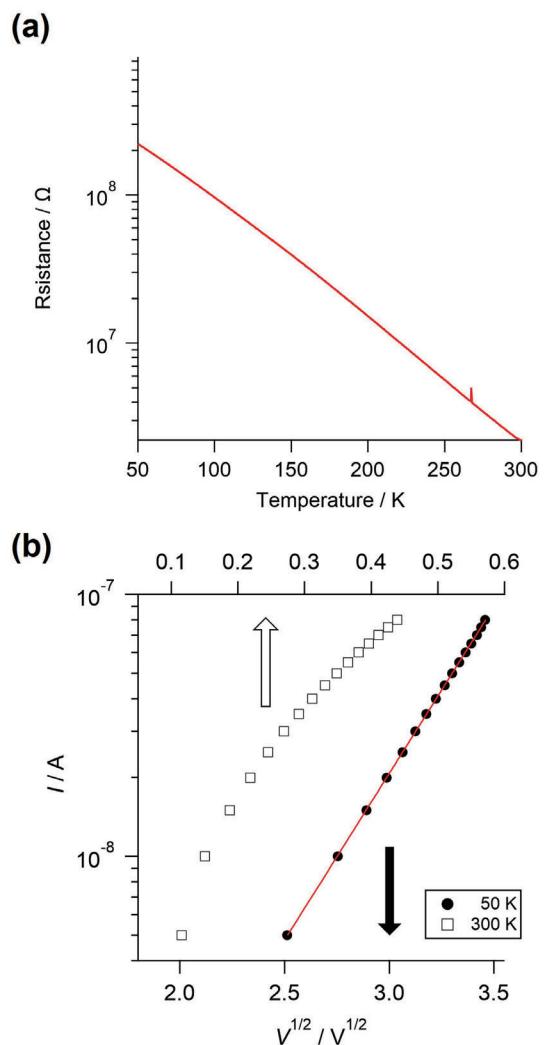


Figure 9. Temperature-dependent electrical properties of C_{60} nanowires. (a) Resistance of C_{60} nanowires plotted against temperature (50–300 K). The nanowires were fabricated by irradiation at the fluence of $1 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. The electrode width $W = 200 \mu\text{m}$. (b) I_{DS} vs. V_{DS} plots at 50 K and 300 K.

る^{15,16)}.

$$G = G_0 \exp \left\{ - \left(\frac{T_0}{T} \right)^{\frac{1}{n}} \right\} \quad (2)$$

ここで、 $n = d + 1$ であり、 d は次元パラメータである。 C_{60} ナノワイヤの直径は $\sim 10 \text{ nm}$ であり、量子的に 1 次元方向に電子運動の制限される領域であるため、 $d = 1$ として改めてプロットしたが、低温領域での線形性が確認できなかった。 $d = 2, 3$ でも低温領域の線形性は

記述できなかったが、高温領域の線形性が上昇したことから、 C_{60} ナノワイヤの伝導次元性は 1 次元ではなく 3 次元であることが示唆された。完全な 1 次元伝導を実現するにはホッピング電子の平均自由行程より直径の小さいナノワイヤの形成が必要だろう。さて、低温領域について、温度低下とともに非オーミックな挙動を示したことから、ホッピング伝導に要するエネルギーの供給源が熱ではなく電場である、電界駆動ホッピング伝導であることが示唆された。単結晶では、規則的な配列と不整・トラップの不在からキャリア移動度 (μ) に電場 (E) 依存がないのに対して、多結晶・アモルファスでは束縛開放に電場が駆動力となる。このとき、 \sqrt{E} に対して $\log \mu$ が線形となることが知られており、今回の系においても低温領域で非常によい線形性を示した (Fig. 9(b))。つまり、 C_{60} ナノワイヤの伝導機構は、低温領域、高温領域においてそれぞれ電界駆動ホッピング、熱駆動ホッピングが支配的であると考えられる。

3 おわりに

STLiP 法で作製した有機ナノワイヤは量子細線に分類できる構造を持つことから効率的な電荷輸送パスとして期待でき、本研究はその可能性に迫った。高エネルギー荷電粒子の高い直進性と線エネルギー付与をもとに、2 次元、および 3 次元集積構造の作製に成功した。3 次元集積縦型デバイスでは、ナノワイヤの定量的な電気伝導性を観測し、ヘテロ接合系におけるダイオード特性をみた。一方、2 次元集積横型デバイスでは C_{60} ナノワイヤの詳細な電気伝導機構を検討した。 C_{60} ナノワイヤの半導体領域に達する高い電気伝導性は、電子線照射と同様の高エネルギーイオンビームが誘起する放射線化学反応による特異な C_{60} の重合形式によるものであると示唆された。また、元の分子特性を反映した（電子）キャリア特性を有していたことから、STLiP 法での重合反応における原料分子構造の保持が期待できる。一方、温度変調電気特性評価では、 C_{60} ナノワイヤの伝導次元性は 3 次元的であり、量子細線に相当する構造をもつものの完全な 1 次元伝導にはいたっていないと考えられる。今後は、 C_{60} 以外のナノワイヤでも電気特性評価を行うとともに、有機材料における量子 1 次元構造を利用した電子相転移現象へ挑戦していきたい。

〈謝 辞〉

本研究の実施にあたり、量子科学技術研究開発機構・高崎量子技術基盤研究所の出崎亮博士、八巻徹也博士にサイクロトロン利用で多大なご協力を賜りました。この場を借りて深く御礼申し上げます。また、本研究の一部は JSPS 科研費 19KK0134, 22K19061, 23KJ1261, ならびに MEXT 科研費 20H05862, 20H05867 の助成を受けて行われました。

〈参考文献〉

- 1) 信岡 正樹, 神谷 昂志, 関 修平, 放射線化学, 113 (2022) 79.
- 2) S. Seki, K. Maeda, S. Tagawa, H. Kudoh, M. Sugimoto, Y. Morita, H. Shibata, *Adv. Mater.*, 13 (2001) 1663.
- 3) H. L. Cheng, M. T. Tang, W. Tuchinda, K. Enomoto, A. Chiba, Y. Saito, T. Kamiya, M. Sugimoto, A. Saeki, T. Sakurai, M. Omichi, D. Sakamaki, S. Seki, *Adv. Mater. Interfaces*, 2 (2015) 1400450.
- 4) W. Tuchinda, K. Enomoto, T. Sakurai, V. S. Padalkar, H. L. Cheng, M. T. Tang, A. Horio, D. Sakamaki, M. Omichi, A. Saeki, K. Kikuchi, Y. Hori, A. Chiba, Y. Saito, T. Kamiya, M. Sugimoto, S. Seki, *ACS Sens.*, 1 (2016) 766.
- 5) A. Horio, T. Sakurai, G. B. V. S. Lakshmi, D. K. Avasthi, M. Sugimoto, T. Yamaki, S. Seki, *Nanoscale*, 8 (2016) 14925.
- 6) S. Sakaguchi, T. Sakurai, J. Ma, M. Sugimoto, T. Yamaki, A. Chiba, Y. Saito, S. Seki, *J. Phys. Chem. B* 122 (2018) 8614.
- 7) T. Sakurai, S. Sakaguchi, Y. Takeshita, K. Kayama, A. Horio, M. Sugimoto, T. Yamaki, A. Chiba, Y. Saitoh, G.B.V.S. Lakshmi, D.K. Avasthi, S. Seki, *ACS Appl. Nano Mater.* 3 (2020) 6043.
- 8) K. Kamiya, K. Kayama, M. Nobuoka, S. Sakaguchi, T. Sakurai, M. Kawata, Y. Tsutsui, M. Suda, A. Idesaki, H. Koshikawa, M. Sugimoto, G.B.V.S. Lakshmi, D.K. Avasthi, S. Seki, *Nat. Commun.* 12 (2021) 4025.
- 9) M. Nobuoka, K. Kamiya, S. Sakaguchi, A. Idesaki, T. Yamaki, T. Sakurai, S. Seki, *J. Photopolym. Sci. Technol.* 34 (2021) 167.
- 10) T. Arai, Y. Murakami, H. Suematsu, K. Kikuchi, Y. Achiba, I. Ikemoto, *Solid State Commun.* 84 (1992) 827.

- 11) J. Onoe, T. Nakayama, M. Aono, T. Hara, *J. Phys. Chem. Solids* 65 (2004) 343.
- 12) 佐伯 昭紀, 関 修平, 田川 精一, 放射線化学, 81 (2006) 29.
- 13) S. Seki, T. Fukumatsu, A. Saeki, 高分子論文集, 68 (2011) 53.
- 14) S. Seki, A. Saeki, T. Sakurai, D. Sakamaki, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 16 (2014) 11093.
- 15) C. K. Chiang, Y. W. Park, A. J. Heeger, H. Shirakawa, E. J. Louis, A. G. MacDiarmid, *J. Chem. Phys.*, 69 (1978) 5098.
- 16) R. Colson, P. Nagels, *J. Non-Cryst. Solids*, 129 (1980) 35.

〈著 者 略 歷〉

信岡 正樹：京都大学大学院工学研究科分子工学専攻博士後期課程. 日本学術振興会・特別研究員 (DC2).

坂口 周吾：京都大学大学院工学研究科分子工学専攻博士後期課程修了. 博士 (工学).

河田 実里：京都大学大学院工学研究科分子工学専攻修士課程修了.

関 修平：京都大学大学院工学研究科分子工学専攻教授 (現職).