

令和 4 年 9 月 14 日現在

機関番号：26402

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18H01873

研究課題名(和文) ミストCVDによる超広バンドギャップ酸化物量子素子創出の為のナノ構造制御基礎研究

研究課題名(英文) Basic research on nanostructure control for the fabrication of ultra-wide bandgap oxide quantum devices by mist CVD

研究代表者

川原村 敏幸 (KAWAHARAMURA, Toshiyuki)

高知工科大学・システム工学群・教授

研究者番号：00512021

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：世界的な安心・安全な生活環境の確立と、超高速・超大容量化する情報化社会への対応等を、地球環境保護を確保して達成させる事を目的に、ミストCVDによるAlGaOx系深紫外発光素子と高移動度トランジスタの作製に挑戦した。各種機能膜の組成や特性を操作する術を確立し、酸化ガリウム系機能膜の表面粗さを操作する術やそれらを合成する時にミストCVDを用いる事の利点などを見出した。またSBDやHEMT等の形成と駆動を確認し、AlNと同等の6.22eVにもおよぶバンドギャップを有するSi:AlGaOx薄膜デバイスの駆動に成功した。一方、予算に関する問題や新型感染症対策禍のため一部研究を断念せざるをえず悔やまれる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

気液混相(ミスト)流を利用する事で、(ア)独立な操作変数数の拡張による操作変数選択自由度の向上と、(イ)反応場雰囲気制御範囲の拡張が可能となり、極めて高度に反応を制御できる可能性がある事を示すことに成功した。つまり、ミストCVDは未来デバイスを合成するための強力な技術であることを示せた。

研究成果の概要(英文)：For the purpose of establishing a global safe and secure life and adapting to an information-oriented society with ultra-high speed and ultra-large capacity while ensuring global environmental protection, I aimed to fabricate $\text{-Al}_2(1-x)\text{Ga}_2x\text{O}_3$ based deep ultraviolet LED and high mobility transistors by mist CVD. A technique for manipulating the composition and characteristics of various functional thin films have been built and a technique for controlling the surface roughness of Ga_2O_3 based functional thin films and the advantages of using mist CVD in synthesizing them have been found. Also, a Schottky barrier diode (SBD) and a high electron mobility transistor (HEMT) have been fabricated and a Si:AlGaOx thin film device with a bandgap of 6.22 eV, which is equivalent to AlN, have been succeeded in demonstration. On the other hand, due to budgetary problems and countermeasures against new infectious diseases, some research cannot be carried out and it is regrettable.

研究分野：化学工学・応用物理

キーワード：ミストCVD 気液混相流 反応メカニズム 酸化ガリウム 酸化亜鉛 高電子移動度トランジスタ(HEMT) ショットキーバリアダイオード(SBD)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

背景①：水銀灯に代わる超ワイドバンドギャップ金属酸化物を用いた深紫外発光源の必要性
 「水銀に関する水俣条約」が2017年8月16日に発効され、数年内に殺菌用途に利用される(低圧)水銀灯等の製造が制限される事は必至である。殺菌に有効な光波長は190 nmと260 nm付近であり、青色発光素子の開発を達成させた窒化物半導体(AIN： $E_{BG} \approx 6.3 \text{ eV}, \lambda \approx 200 \text{ nm}$)では190 nmの発光を達成させることが難しい。そこでより広バンドギャップな酸化物半導体 (Al_2O_3 ： $E_{BG} \approx 8.7 \text{ eV}, \lambda \approx 140 \text{ nm}$ や Ga_2O_3 ： $E_{BG} \approx 5.0 \text{ eV}, \lambda \approx 250 \text{ nm}$ 等の混晶： $\text{Al}_{2(1-x)}\text{Ga}_{2x}\text{O}_3$)によって達成出来ないかという発想が生じる。

背景②：電子デバイスにおける超ワイドバンドギャップ金属酸化物の必要性
 電子デバイスを構成する半導体をバンドギャップの小さなものから大きなものに変更すると単純にリーク電流を低下させることが出来るため整流特性を向上させる事が可能であり、電子デバイスの低消費電力化や高出力化に有効な手段である。実際、IGZO TFTはa-Si TFTよりも省エネであり、SiCやGaN等は現行パワーデバイス材料として利用されるSiよりもバリーガー性能指数が大きい。より広バンドギャップを有する $\text{Al}_{2(1-x)}\text{Ga}_{2x}\text{O}_3$ などの酸化物半導体では更に良い特性が期待できる。

本申請内容

そもそも酸化物は窒化物や炭化物にくらべイオン結合性が高く(図1)、電子電導に対する耐性は強く、同じ金属元素の炭化物や窒化物よりも高性能な電子デバイスを形成できる可能性があるが、そのイオン結合性の高さにより、熱や圧縮にセンシティブであり高品質な結晶を作製する事が困難であるとされ、不純物混入が致命的な結晶性の損失や欠陥発生を引き起こす要因となる。その為未だに産業界で活躍している材料は限られている。

そこで本申請では、窒化物や炭化物が達成出来ない超ワイドバンドギャップ領域の金属酸化物を対象として量子デバイスを達成させる為、酸化物が抱える上述問題を解決する手段を探る基礎研究を行うこととする。

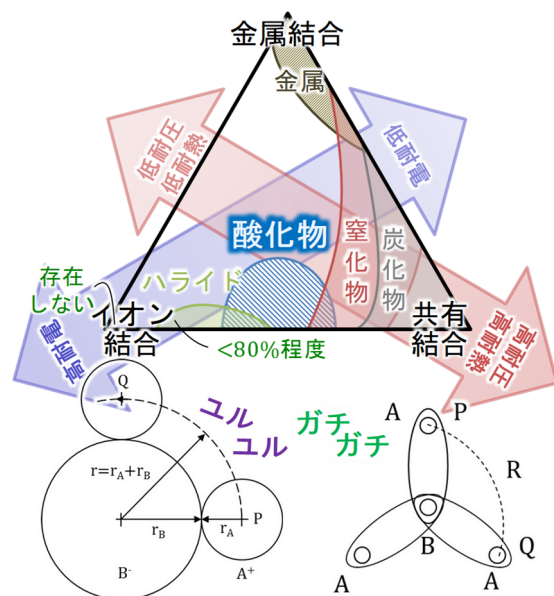


図1 金属化合物の結合状態

2. 研究の目的

これからの社会に関して必要な社会的要素を見据えると、世界的な安心・安全な生活環境の確立と、超高速・超大容量化する情報化社会への対応等を、地球環境保護を確保して達成させる事が必要不可欠であると申請者は考える。そこで本申請では、申請者が有する技術を用いて出来る最善手として、

- ① 本質的に環境負荷の小さな大気圧下溶液系機能膜形成手法「ミストCVD」を用いて、
- ② 超ワイドバンドギャップ金属酸化物薄膜の高品質化手段・性質制御手段を追求し、
- ③ 超ワイドバンドギャップ金属酸化物量子デバイスの開発

を行う。具体的にはミストCVDによる $\alpha\text{-Al}_{2(1-x)}\text{Ga}_{2x}\text{O}_3$ 系深紫外発光素子と高移動度トランジスタ(HEMT)の作製であり、それらの高性能化のため、機能膜を高品質化(結晶・配向性向上、膜内欠陥・転移の特定・低減)する術および性質(組成や伝導・導電性)を高度に制御する術を追求する。

3. 研究の方法

電子デバイスの中でも太陽電池、LEDやLD、HEMTや縦型トランジスタなど欠陥に非常に敏感なデバイスを形成するには、高エネルギー粒子の発生により欠陥・転位密度を低減させるのが難しいスパッタリングやMBE、PLDなどの非平衡反応系プロセスは利用されず、化学反応が支配的でありソフトに成膜反応が進行し欠陥・転移の発生防止や補償に長けているMOCVD等の平衡反応系プロセスが利用される(図2)。一方ミストCVDも平衡反応系プロセスの一つであり本開発が期待されるが、現在ほぼ手動操作のミストCVDシステムを用いて薄

膜を形成しており 10^{11} cm^{-2} もの欠陥がみられる(図3)。そこで、専用の装置を用意し半自動化可能なシステムを構築し、作製膜を高品質化(結晶・配向性向上、膜内欠陥・転移の特定・低減)する術、性質(組成や伝導・導電性)を高度に制御する術を明らかにする。

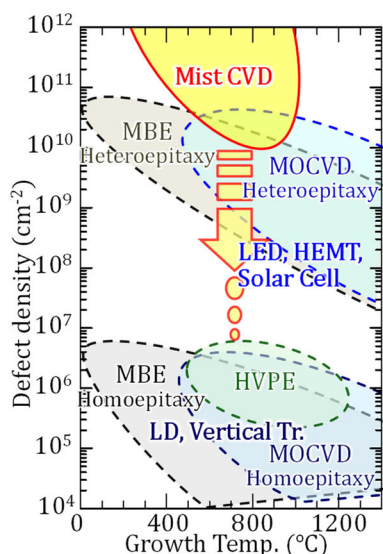


図2 成膜手法・環境(温度)と欠陥・転位密度との関係

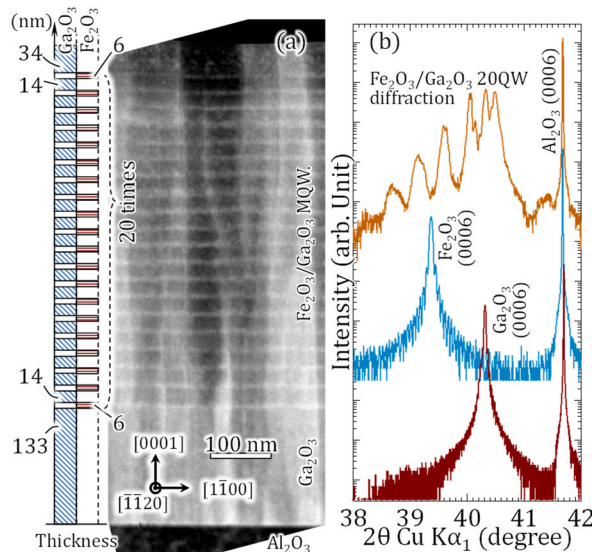


図3 c面サファイア(Al_2O_3)基板上に 400°C で作製した $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{Ga}_2\text{O}_3$ 20QW。(a) 走査透過型電子顕微鏡(STEM)像、(b) X線回折測定結果。

本申請の研究を3分野に分け以下のような計画で達成させる(表1)。

A. 機能膜のナノレベルでの構造制御を可能とするシステムの改良と機能膜形成・評価

① ミスト CVD システムの改良

現在の装置を基に、高度な組成制御技術を可能とする第3世代ミスト CVD を適用した、研究用半自動化ミスト CVD システムを試作する。

② 多成分材料の厳密な組成制御

①を用い、Al, In, Cr 等と Ga との混晶酸化物の厳密な組成制御を達成させバンドギャップ制御を試みる。また電気特性評価を行う。

③ 高品質化技術の確立

②の技術を利用し、サファイア基板との格子不整合を徐々に緩和させる傾斜バッファ層の導入などにより、欠陥・転移を減らした超高品質な $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 系結晶膜の形成を達成させる。

④ 量子井戸形成と評価

②③の技術を利用し高品質な $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 系結晶膜を用いた量子井戸を形成し、その光学特性評価を行う。

B. 量子・光・電子デバイス形成・評価

⑤ $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 系深紫外発光素子の試作

④により作製した量子井戸を冷陰極型(エミッタ)電子源と組み合わせた発光素子を試作する。

⑥ $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 系高移動度トランジスタの試作

⑦により見出した技術を用いて高移動度トランジスタ(HEMT)を試作・駆動させる。

C. 導電性制御技術に関する研究

⑦ 伝導・導電性制御技術

ドーピング剤を選定し $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 系結晶膜の伝導型や導電性の制御を試みる。この時①-③の技術を用いる。

⑧ $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 系深紫外 LED の試作

②-⑦等の技術を利用し発光ダイオード(LED)を試作し評価する。

ミスト CVD は、一日に 30 条件もの実験を遂行することが出来、従来技術にない実験速度で研究を進められる優れた技術である。本研究内容に精通した外国人特別研究員 Dang T. Giang と研究室メンバーと共に開発を進め、少なくとも期間中に上述の①~⑦を行い、本申請を達成させる。⑧については本申請からその開発ヒントを見出し、次の開発目標とする。

表1 研究計画

	29	30	31	32	33	34
	10	04	10	04	10	04
A	①	■				
	②	■	■			
	③	■	■	■		
	④	■	■	■	■	
B	⑤	■	■	■	■	
	⑥	■	■	■	■	■
C	⑦		■	■	■	■
	⑧			■	■	■

4. 研究成果

① ミスト CVD システムの改良：ミスト流の特性を 100%活用し低環境負荷・大面積均一・高品質・組成制御の 4 点を同時に叶える装置のデザイン設計や材料選定(高温耐性、高熱伝導性、酸化反応耐性)を行った。申請時、厳密に計画し予算を算出した上で本申請に備えたにもかかわらず、交付金を申請額より減額されたので、高温仕様へ拡張可能な仕様の装置を改めて設計し直した。2018 年度、実験の手間の削減、装置の精度や実験者の熟練度の差に起因する信頼性(サンプル間特性差)問題の解決、本機器使用に精通してない人でも容易に利用しサンプル作製を可能とする事、等をコンセプトとし、浮き子式の流量計の代わりにマスフローコントローラーを用意し、システム半自動制御用プログラムの設計および導入をした。また 2020 年度、半自動で成膜が可能ないようにシーケンスを見直し、プログラムを改良した。

② 多成分材料の厳密な組成制御：詳細は割愛するが、従来のミスト CVD(第 2 世代)では、多元(混晶)系機能膜の組成を厳密に制御できない等の問題が生じたため、液滴が反応炉内で特殊なライデンフロスト状になっていること(ELSD)とミスト液滴同士の衝突確率の低さ(平均自由行程の計算) (LPCD)とを利用した次世代ミスト CVD の構築を進めていた。装置を整え(①)、2019 年度に組成制御を達成し[JJAP 58 (2019) 035503]、ZnO の特性を操作することに成功した[APEX 12 (2019) 065505]。要するに、気液混相(ミスト)流を利用する事で、(1)独立な操作変数数の拡張による操作変数選択自由度の向上と、(2)反応場雰囲気制御範囲の拡張が可能となり、極めて高度に反応を制御できる可能性がある事を示すことに成功した。

③ 高品質化技術の確立：詳細は割愛するが、高品質化のために格子不整合を改善する方法が一般的であるが、本申請では表面状態改質や成膜雰囲気調整を検討することとした。研究に先立ち、これまで作製したサンプルやデバイスの評価を進めていたところ、表面の至る所に「円形の何か」が存在する事が確認された。特性の優れたサンプルにはこの「円形の何か」が多く存在する傾向が見られたため、この円の内外で表面荒さの差異がないかを評価したところ、円内部の方が外部に比べ表面荒さが小さく、またその「円形の何か」の中心に塩素(Cl)の含まれた核のような物が存在している事が判明した(図 4)。成膜時に出発源を溶解するため

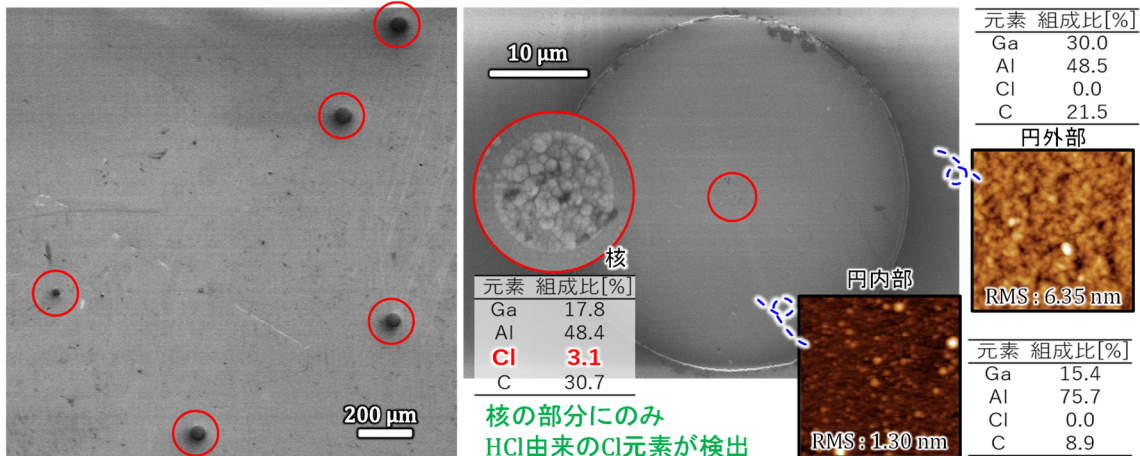


図4 作製した α -Ga₂O₃系素子(量子井戸MQWs)表面に確認された円形の何か。円形の内外で表面粗さが異なり、円形の中心にはCl元素を含む核が見られた。

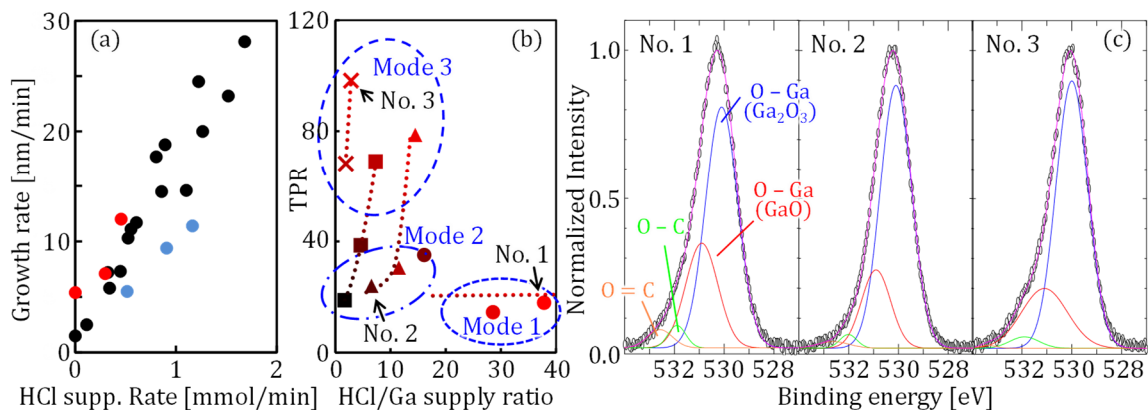


図5 GaCl₃を出発源として用いて作製したGa₂O₃薄膜の特性。(a) 支援剤(HCl)供給量に対する成膜速度。(b) 出発源(GaCl₃)供給量に対する支援剤(HCl)供給量、対、表面粗さに対する膜厚の比。(c) 各モードのXPS測定結果およびO_{1s}の解析結果。

に HCl を用いており、Cl 元素もしくは HCl が α - Ga_2O_3 薄膜の成長に影響を与え、表面平坦性を向上させている可能性を発見した。そこで詳しく調査を進めたところ、支援剤だけでなく出発原料と支援剤どちらも重要で有り、供給量や供給量比に最適な条件があることが判明した。 GaCl_3 を出発源として用いた場合、成膜速度は、出発源(GaCl_3)の供給量によらず支援剤(HCl)供給量に比例して上昇し、表面粗さは、出発源(GaCl_3)の供給量が充分であれば、支援剤(HCl)供給量を出発源(GaCl_3)に対してバランス良く供給することで向上することが判明した。また XPS を用いて結合状態を解析し、 GaCl_3 を出発源とする場合における Ga_2O_3 薄膜の成膜メカニズムを解明することが出来た(図 5)[AIP Adv. 11 (2021) 045123]。他にも $\text{Ga}(\text{acac})_3$ を出発源として用いた時、支援剤(HCl)の供給に伴い、 Ga_2O_3 薄膜の成膜速度や表面状態がどのように変化するのかについても調査し、特性変化の傾向と成膜メカニズムを解明することに成功した[第 69 回応物 26p-E202-1]。

一方、レーザー干渉リソグラフィを用いた選択的横方向成長(ELO)技術の構築をおこない、パターン化できる事を確認し、 α - Ga_2O_3 を形成した(図 6)。TEM 測定結果から、貫通転移が SiO_x 障壁で停まることが確認された。また ELO により Ga_2O_3 を合成すると、一般の成膜手法では SiO_x 障壁上において β 相になってしまう事が報告されているが、ミスト CVD の場合には SiO_x 障壁直上から α 相が形成されていることを確認した(図 7)[APL 119 (2021) 041902]。

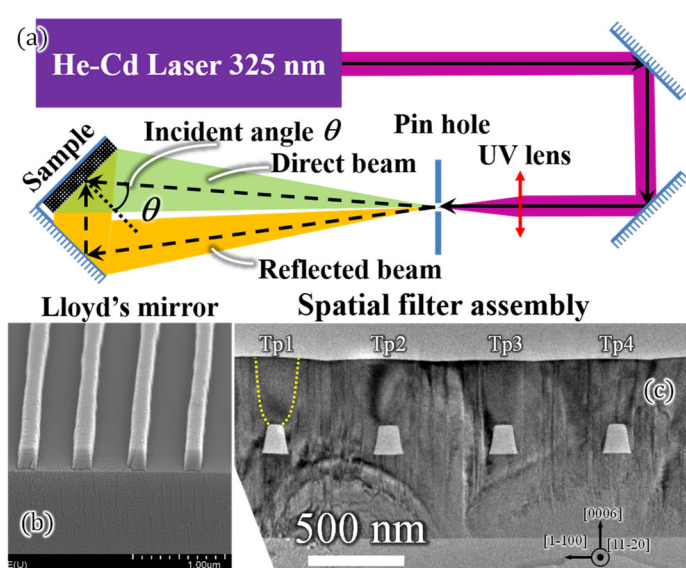


図6 (a) 自作したレーザー干渉リソグラフィの系と、(b) それを用いて作製したパターン、及び、(c) 選択的に横方向成長(ELO)した Ga_2O_3 薄膜の断面TEM像。

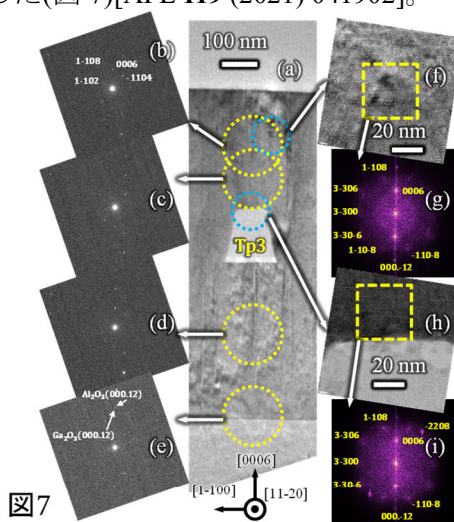


図7 (a) 選択的横方向成長(ELO)した Ga_2O_3 薄膜の断面TEM像とSAED像。(b)-(e) 黄色の線で囲まれた領域のSAED像。(f)&(h) 青い線で囲まれた領域のHRTEM像。(g)&(i) 黄色の四角の内側の領域のFFT像。

④ 量子井戸形成と評価：成膜条件をある程度最適化した上で井戸厚および障壁厚の異なる量子井戸および組成比の異なる量子井戸を数種類形成し、東北大多元研秩父教授・小島准教授の協力の下、CLにより発光特性の評価を行い、発光素子形成のための指標をつかんだ。

⑥ α - Ga_2O_3 系高移動度トランジスタの試作：酸化ガリウム系素子として、ショットキーバリアダイオード(SBD)や高電子移動度トランジスタ(HEMT)を形成した。特に Si ドープした AlGaO_x 薄膜を用いた素子に関しては、 AlN と同等の 6.22eV にもおよぶバンドギャップを有する半導体にもかかわらず、デバイス駆動する事ができた事を報告した[AIP Advances 10, (2020) 115019]。

まとめ

後半に計画していた一部内容(④,⑥,⑦)は、2020年からの新型コロナウイルス対策禍のため、深く研究を行うことが出来ず、その下流の内容(⑤や⑧)に関しては取り組むことができなかった。非常に心残りである。一方、こういった特殊な状況下ではあったが、ミスト CVD に係わる研究では、一回の実験で多くの条件を調査することが出来るため、それなりに多くの成果を排出できたのではないかと思います。

要望：申請時、研究計画は予算含めかなり厳密に計算している方が大半だと思います。物価上昇や消費税など、必要な費用が増額する可能性を見越して、余裕を持って交付していただけるように制度を見直していただきたい。当時の制度ですと申請研究を達成できない可能性が高くなるため、もし仕組みが変わっていないのでしたら検討していただければ幸いです。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計17件（うち査読付論文 17件 / うち国際共著 7件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Dang G. T., Yasuoka T., Kawaharamura T.	4. 巻 119
2. 論文標題 Sub- μm features patterned with laser interference lithography for the epitaxial lateral overgrowth of $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ via mist chemical vapor deposition	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 041902 ~ 041902
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0057704	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yasuoka Tatsuya, Liu Li, Ozaki Tamako, Asako Kanta, Ishikawa Yuna, Fukue Miyabi, Dang Giang T., Kawaharamura Toshiyuki	4. 巻 11
2. 論文標題 The effect of HCl on the $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ thin films fabricated by third generation mist chemical vapor deposition	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 045123 ~ 045123
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0051050	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Ghadbeigi Leila, Cooke Jacqueline, Dang Giang T., Kawaharamura Toshiyuki, Yasuoka Tatsuya, Sun Rujun, Ranga Praneeth, Krishnamoorthy Sriram, Scarpulla Michael A., Sensale-Rodriguez Berardi	4. 巻 50
2. 論文標題 Optical Characterization of Gallium Oxide and Polymorph Thin-Films Grown on c-Plane Sapphire	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Electronic Materials	6. 最初と最後の頁 2990 ~ 2998
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11664-021-08809-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Liu Li, Kawaharamura Toshiyuki, Sakamoto Masahito, Nishi Misaki, Dang Giang T., Sato Shota	4. 巻 258
2. 論文標題 The Quality Improvement of Yttrium Oxide Thin Films Grown at Low Temperature via the Third Generation Mist Chemical Vapor Deposition Using Oxygen Supporting Sources	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 physica status solidi (b)	6. 最初と最後の頁 2100105 ~ 2100105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/pssb.202100105	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Dang Giang T., Tagashira Yuki, Yasuoka Tatsuya, Liu Li, Kawaharamura Toshiyuki	4. 巻 10
2. 論文標題 Conductive Si-doped $-(Al_xGa_{1-x})_{203}$ thin films with the bandgaps up to 6.22 eV	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 115019 ~ 115019
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0026095	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Dang Giang T., Sato Shota, Tagashira Yuki, Yasuoka Tatsuya, Liu Li, Kawaharamura Toshiyuki	4. 巻 8
2. 論文標題 $-(Al_xGa_{1-x})_{203}$ single-layer and heterostructure buffers for the growth of conductive Sn-doped $-Ga_{203}$ thin films via mist chemical vapor deposition	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 101101 ~ 101101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0023041	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Phimolphan Rutthongjan, Misaki Nishi, Li Liu, Shota Sato, Yuya Okada, Giang T. Dang, Toshiyuki KAWAHARAMURA	4. 巻 12
2. 論文標題 Growth mechanism of Zinc Oxide thin film by mist chemical vapor deposition via the modulation of $[H_2O]/[Zn]$ ratios	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Appl. Phys. Express	6. 最初と最後の頁 65505
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1882-0786/ab2134	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Giang T. Dang, Martin Allen, Mamoru Furuta, Toshiyuki KAWAHARAMURA	4. 巻 58
2. 論文標題 Electronic devices fabricated on mist-CVD-grown oxide semiconductors and their applications	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 90606
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab2195	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Shrikant Saini, Paolo Mele, Takafumi Oyeke, Junichiro Shiomi, Janne Petteri Niemela, Maarit karppinen, koji Miyazaki, Chaoyang Li, Toshiyuki Kawaharamura, Ataru Ichinose	4. 巻 685
2. 論文標題 Porosity-tuned thermal conductivity in thermoelectric Al-doped ZnO thinfilms grown by mist-chemical vapor deposition	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Thin Solid Films	6. 最初と最後の頁 180-185
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.tsf.2019.06.010	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Rutthongjan Phimolphan, Liu Li, Nishi Misaki, Sakamoto Masahito, Sato Shota, Pradeep Ellawala K C, Dang Giang T, Kawaharamura Toshiyuki	4. 巻 58
2. 論文標題 Composition control of Zn1-xMgxO thin films grown using mist chemical vapor deposition	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 035503 ~ 035503
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/aafd18	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Liu Li, Kawaharamura Toshiyuki, Dang Giang Thai, Pradeep Ellawala K. C., Sato Shota, Uchida Takayuki, Fujita Shizuo, Hiramatsu Takahiro, Kobayashi Hiroshi, Orita Hiroyuki	4. 巻 58
2. 論文標題 Study on fabrication of conductive antimony doped tin oxide thin films (SnOx:Sb) by 3rd generation mist chemical vapor deposition	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 025502 ~ 025502
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/aaf4b6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Dang Giang T., Suwa Yuta, Sakamoto Masahito, Liu Li, Rutthongjan Phimolphan, Sato Shota, Yasuoka Tatsuya, Hasegawa Ryo, Kawaharamura Toshiyuki	4. 巻 11
2. 論文標題 Growth of -Cr203 single crystals by mist CVD using ammonium dichromate	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 111101 ~ 111101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/APEX.11.111101	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sato Shota, Nitta Noriko, Sakamoto Masahito, Liu Li, Rutthongjan Phimolphan, Nishi Misaki, Ueda Mariko, Yasuoka Tatsuya, Hasegawa Ryo, Tagashira Yuki, Ozaki Tamako, Pradeep Ellawala K. C., Dang Giang T., Kawaharamura Toshiyuki	4. 巻 57
2. 論文標題 Challenges of fabrication of a large-area-uniform molybdenum disulfide layered thin film at low growth temperature by atmospheric-pressure solution-based mist CVD	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 110306 ~ 110306
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/JJAP.57.110306	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Dang G. T., Yasuoka T., Tagashira Y., Tadokoro T., Theiss W., Kawaharamura T.	4. 巻 113
2. 論文標題 Bandgap engineering of $(Al_xGa_{1-x})_2O_3$ by a mist chemical vapor deposition two-chamber system and verification of Vegard's Law	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 062102 ~ 062102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5037678	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 SATO Shota, SAKAMOTO Masahito, KAWAHARAMURA Toshiyuki	4. 巻 68
2. 論文標題 Fabrication of Molybdenum Disulfide (MoS ₂) Layered Thin Films by Atmospheric-Pressure Solution Based Mist CVD	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the Society of Materials Science, Japan	6. 最初と最後の頁 155 ~ 161
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2472/jsms.68.155	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tahara Daisuke, Nishinaka Hiroyuki, Sato Shota, Li Liu, Kawaharamura Toshiyuki, Yoshimoto Masahiro, Noda Minoru	4. 巻 58
2. 論文標題 Mist chemical vapor deposition study of 20 and 100 nm thick undoped ferroelectric hafnium oxide films on n+-Si(100) substrates	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SLLB10 ~ SLLB10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab38d8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Liu Xiaojiao, Dang Giang T., Liu Li, Kawaharamura Toshiyuki	4. 巻 596
2. 論文標題 Fabrication of Zn1-xMgxO/AgxO heterojunction diodes by mist CVD at atmospheric pressure	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Surface Science	6. 最初と最後の頁 153465 ~ 153465
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apsusc.2022.153465	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

[学会発表] 計49件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 15件)

1. 発表者名 Toshiyuki Kawaharamura
2. 発表標題 Growth Mechanism of mist CVD
3. 学会等名 The 2022 Spring Meeting of the European Materials Research Society (E-MRS 2022) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Tatsuya Yasuoka, Yoshiro Kawanishi, Li Liu, Giang T. Dang, Toshiyuki Kawaharamura
2. 発表標題 Influence of HCl Support on the -Ga2O3 Thin Film Properties Growth by Mist Chemical Vapor Deposition
3. 学会等名 2022 MRS Spring Meeting & Exhibit (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Xiaojiao Liu, Giang T. Dang, Li Liu, Tatsuya Yasuoka, Yoshiro Kawanishi, Toshiyuki Kawaharamura
2. 発表標題 Challenge of Using Mist-CVD for Preparation of AgxO/Zn1-xMgxO Schottky Diodes
3. 学会等名 Solid State Devices and Materials (SSDM 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 朝子 幹太, 福江 雅, 安岡 龍哉, 劉 麗, 川原村 敏幸
2. 発表標題 ミストCVD法によるMoS ₂ の作製と膜特性
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 須佐美 大夢, 安岡 龍哉, 劉 麗, ダン タイジャン, 川原村 敏幸
2. 発表標題 ファインチャンネル式ミストCVD法における $(Al_xGa_{1-x})_2O_3$ 薄膜の成膜条件と組成比の関係
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 福江 雅, 安岡 龍哉, 石川 祐奈, 朝子 幹太, 劉 麗, 伊藤 亮孝, 藤村 俊伸, 川原村 敏幸
2. 発表標題 ミストCVD法による酸化アルミニウム薄膜の作製とその絶縁特性に関する研究
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 安岡 龍哉, 劉 麗, ダン タイジャン, 川原村 敏幸
2. 発表標題 HCl 支援が $\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 薄膜作製に及ぼす影響
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1 . 発表者名 Toshiyuki Kawaharamura, Liu Li, Phimolphan Rutthongjan, Shota Sato, Mariko Ueda, Tatsuya Yasuoka, Yuki Tagashira, Tamako Ozaki, Yuna Ishikawa, Miyabi Fukue, Giang T. Dang
2 . 発表標題 Growth Mechanism of mist CVD
3 . 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 S. Sato, P. Rutthongjan, L. Liu, G.T. Dang, T. Kawaharamura
2 . 発表標題 Development of Fabrication process for tin sulfide (SnS _x) thin films by solution-based atmospheric-pressure mist CVD
3 . 学会等名 Solid State Devices and Materials (SSDM 2019) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 P. Rutthongjan, M. Nishi, L. Liu, S. Sato, G.T. Dang, T. Kawaharamura
2 . 発表標題 Growth mechanism of Zinc Oxide thin film by mist-CVD via the modulation of [H ₂ O]/[Zn] ratios
3 . 学会等名 Solid State Devices and Materials (SSDM 2019) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 Phimolphan Rutthongjan, Misaki Nishi, Li Liu, Giang Dang, Shota Sato, Toshiyuki Kawaharamura
2 . 発表標題 Growth mechanism of Zinc Oxide thin film by mist-chemical-vapor-deposition via the modulation of [H ₂ O]/[Zn] ratios
3 . 学会等名 The 2nd Materials Research Society of Thailand International Conference (MRS-Thailand 2019) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 Li Liu, Misaki Nishi, Phimolphan Rutthongjan, Shota Sato, Masahito Sakamoto, Giang T. Dang, and Toshiyuki Kawaharamura
2. 発表標題 Oxygen Source-supported Fabrication of Yttrium Oxide Thin Films by 3rd Generation Mist CVD for Low Temperature Growth
3. 学会等名 The 2019 Spring Meeting of the European Materials Research Society (E-MRS) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Li Liu, Mariko Ueda, Misaki Nishi, Giang T. Dang, Hiroshi Yanagimoto, Tomoko Kozaki, Toshiyuki Kawaharamura
2. 発表標題 Effectively Enhanced Electrical Properties of SnO ₂ :Sb Films Fabricated by 3rd Generation Mist CVD Using Supporting Materials
3. 学会等名 The 2019 Spring Meeting of the European Materials Research Society (E-MRS) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Toshiyuki Kawaharamura, Misaki Nishi, Li Liu, Masahito Sakamoto, Phimolphan Rutthongjan, Shota Sato, Mariko Ueda, Tatsuya Yasuoka, Yuki Tagashira, Tamako Ozaki, Giang T. Dang
2. 発表標題 Thin Film Growth Mechanism in CVD using Flow Containing Mist Droplets
3. 学会等名 The 2019 Spring Meeting of the European Materials Research Society (E-MRS) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tatsuya Yasuoka, Masahito Sakamoto, Tamako Ozaki, Yuki Tagashira, Li Liu, Giang. T. Dang, Toshiyuki Kawaharamura
2. 発表標題 Effect of HCl on fabrication of α -Ga ₂ O ₃ by Mist CVD
3. 学会等名 The 2019 Spring Meeting of the European Materials Research Society (E-MRS) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Phimolphan Rutthongjan, Misaki Nishi, Li Liu, Giang Dang, Toshiyuki Kawaharamura
2. 発表標題 Crystallinity Improvement of Mist Chemical Vapor Deposition Grown ZnO Thin Films by Controlling Film Crystal Orientation
3. 学会等名 2019 MRS Spring Meeting & Exhibit (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 川原村 敏幸
2. 発表標題 ミストCVDプロセス
3. 学会等名 CEATEC (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮地 啓太, 秦 暦, 岡田 雄哉, 川原村 敏幸
2. 発表標題 高温下気相中を流動する微小液滴挙動の観測
3. 学会等名 日本機械学会2019年度年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 朝子 幹太 (高知工科大), 佐藤 翔太, 岡田 雄哉, 川原村 敏幸
2. 発表標題 機能薄膜成膜装置「KAGUYA」内におけるミスト流れの解析と流路および成膜条件の最適化
3. 学会等名 日本機械学会2019年度年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 秦 暦, 宮地 啓太, 川原村 敏幸, 岡田 雄哉
2. 発表標題 高温壁面近傍における液滴挙動とその液滴消滅時間に関する研究
3. 学会等名 日本機械学会2019年度年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 上田真理子, 劉麗, DANG Tai Giang, 川原村敏幸
2. 発表標題 ミスT-CVDによるSn系透明導電膜の作製とその特性
3. 学会等名 2019年度 応用物理・物理系学会 中国四国支部 合同学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 福江雅, 安岡龍哉, 石川祐奈, 劉麗, DANG Tai Giang, 川原村敏幸
2. 発表標題 ミスT-CVDによるCu系薄膜の作製
3. 学会等名 2019年度 応用物理・物理系学会 中国四国支部 合同学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 安岡龍哉, 坂本雅仁, 尾崎珠子, 田頭侑貴, L. Liu, G. T. Dang, 川原村敏幸
2. 発表標題 ミスT-CVD法による Ga ₂ O ₃ 薄膜作製時におけるHClの影響
3. 学会等名 2019年度 応用物理・物理系学会 中国四国支部 合同学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石川祐奈, P. RUTTHONGJAN, 安岡龍哉, 上田真理子, 福江雅, 劉麗, G. T. DANG, 川原村敏幸
2. 発表標題 第III世代ミストCVDを利用した酸化亜鉛系透明導電薄膜の作製
3. 学会等名 2019年度 応用物理・物理系学会 中国四国支部 合同学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤翔太, 劉麗, G. T. Dang, 川原村敏幸
2. 発表標題 溶液系大気圧ミストCVDによる硫化スズ (SnSx) 薄膜の作製プロセスの開発
3. 学会等名 2019年度 応用物理・物理系学会 中国四国支部 合同学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 L. Liu, T. Kawaharamura, M. Ueda, G.T. Dang, S. Sato, S. Fujita, T. Hiramatsu, H. Orita
2. 発表標題 Study on the Behaviors of HNO ₃ in Highly Conductive Antimony Doped Tin Oxide Thin Films Deposited by Novel Mist CVD System
3. 学会等名 Solid State Devices and Materials (SSDM 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 S. Sato, N. Nitta, M. Sakamoto, D.T. Giang, E.K.C. Pradeep, L. Liu, R. Phimolphan, M. Nishi, M. Ueda, T. Kawaharamura
2. 発表標題 Fabrication of Molybdenum disulfide (MoS ₂) with environmental-friendly by atmospheric pressure solution-based mist CVD
3. 学会等名 Solid State Devices and Materials (SSDM 2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 西 美咲, 劉 麗, ルトンジャン ピモンパン, 佐藤 翔太, 上田 真理子, 安岡 龍也, 長谷川 諒, 田頭 侑貴, 尾崎 珠子, 鄧 太 江, 川原 村 敏幸
2. 発表標題 ミストCVD法によるn型およびp型ZnO成膜への挑戦
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 川原村 敏幸, 西 美咲, 劉 麗, 坂本 雅仁, ルトンジャン ピモンパン, 佐藤 翔太, 上田 真理子, 安岡 達也, 長谷川 諒, 田頭 侑貴, 尾崎 珠子, 鄧 太 江
2. 発表標題 ミストCVDにおける薄膜成長メカニズム
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田原 大祐, 西中 浩之, 野田 実, 佐藤 翔太, 川原村 敏幸, 吉本 昌広
2. 発表標題 ミストCVD法によるn+-Si(100)基板上への強誘電体HfO ₂ 薄膜の作製とその電気特性評価
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤 翔太, 坂本 雅仁, 西 美咲, 劉 麗, ルトンジャン ピモンパン, 鄧 太 江, 川原村 敏幸
2. 発表標題 ミストCVDにより作製した硫化スズ薄膜の特性評価
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 ルトンジャン ピモンパン, 西 美咲, 川原村 敏幸, 坂本 雅仁, 劉 麗, 佐藤 翔太, 上田 真理子, 安岡 龍哉, 長谷川 諒, 尾崎 珠子, 鄧 太 江
2. 発表標題 ミストCVD における酸化亜鉛薄膜形成時の水の効果
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 坂本 雅仁, 安岡 龍哉, 西 美咲, 劉 麗, ルトンジャン ピモンパン, 佐藤 翔太, 上田 真理子, 田頭 侑貴, 長谷川 諒, 尾崎 珠子, 鄧 太 江, 川原村 敏幸
2. 発表標題 ミストCVD法における原料溶媒が薄膜成長に及ぼす影響
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 秦 暦, 宮地 啓太, 西村 一宏, 川原村 敏幸
2. 発表標題 高温壁面近傍における液滴挙動と液滴消滅時間に関する研究
3. 学会等名 日本機械学会中国四国支部第57期総会・講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 朝子 幹太, 佐藤 翔太, 川原村敏幸
2. 発表標題 円筒管内壁への機能薄膜作製技術の開発
3. 学会等名 日本機械学会中国四国支部第57期総会・講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 上田 真理子, 劉 麗, 佐藤 翔太, 西 美咲, 鄧 太 江, 川原村 敏幸
2. 発表標題 ミスTCVD法で作製されたATO薄膜の電気的および光学的特性
3. 学会等名 ナノテク研シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐藤 翔太, 新田 紀子, 坂本 雅仁, 劉 麗, RUTTHONGJAN Phimolphan, 西 美咲, 上田 真理子, 安岡 龍哉, 長谷川 諒, 田頭 侑貴, 尾崎 珠子
2. 発表標題 低環境負荷型機能膜形成手法ミスTCVDによる二硫化モリブデン (MoS ₂) 層状膜作製とその特性評価
3. 学会等名 ナノテク研シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 西 美咲, 劉 麗, 佐藤 翔太, 長谷川 諒, 安岡 龍哉, 上田 真理子, 尾崎 珠子, RUTTHONGJAN Phimolphan, 鄧 太 江, 川原村 敏幸
2. 発表標題 FC式ミスTCVDの原料供給濃度変化による反応メカニズム解析
3. 学会等名 ナノテク研シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 長谷川 諒, 安岡 龍哉, 尾崎 珠子, 上田 真理子, 西 美咲, 坂本 雅仁, 佐藤 翔太, RUTTHONGJAN Phimolphan, 劉 麗, 鄧 太 江, 川原村 敏幸
2. 発表標題 ミスTCVD法による鉄酸化物系磁性薄膜の作製とその特性
3. 学会等名 ナノテク研シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 安岡 龍哉, 長谷川 諒, 田頭 侑貴, 尾崎 珠子, 佐藤 翔太, 劉 麗, 鄧 太 江, 川原村 敏幸
2. 発表標題 ミストCVD法によるGa ₂ O ₃ 成膜とその特性
3. 学会等名 ナノテク研シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 RUTTHONGJAN Phimolphan, 西 美咲, 劉 麗, 鄧 太 江, 川原村 敏幸
2. 発表標題 Influence of H ₂ O on ZnO thin film fabrication by mist CVD
3. 学会等名 ナノテク研シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 西 美咲, 長谷川 諒, 安岡 龍哉, 上田 真理子, 坂本 雅仁, 佐藤 翔太, Phimolphan Ruttongja, Liu Li, Dang. T Gian, 川原村 敏幸
2. 発表標題 ミストCVD法による高品質酸化亜鉛薄膜の作製および反応メカニズムの解明
3. 学会等名 化学工学会 第50回秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 上田 真理子, 劉 麗, 佐藤 翔太, ダン ジャン, 川原村 敏幸, 藤田 静雄, 織田 容征, 平松 孝浩
2. 発表標題 ミストCVD法で作製されたATO薄膜の電気的および光学的特性
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 西美咲, 劉麗, 佐藤翔太, ルトンジャンピモンパン, 坂本雅仁, 上田真理子, E.K.C. プラディーブ, 鄧太江, 川原村敏幸
2. 発表標題 FC式ミストCVDにおける高品質金属酸化物薄膜作製を目的とした反応メカニズム解析
3. 学会等名 材料学会 第67期通常総会・学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 佐藤翔太, 坂本雅仁, 新田紀子, 劉麗, E.K.C. プラディーブ, 鄧太江, 川原村敏幸
2. 発表標題 ミストCVDにより作製した二硫化モリブデン(MoS ₂)層状薄膜
3. 学会等名 材料学会 第67期通常総会・学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 坂本雅仁, 佐藤翔太, 西美咲, 上田真理子, 川原村敏幸
2. 発表標題 水蒸気雰囲気下における金属化合物の熱分解挙動
3. 学会等名 材料学会 第67期通常総会・学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Phimolphan Rutthongjan, Li Liu, Misaki Nishi, Misahito Sakamoto, Shota Sato, Ellawala K. C. Pradeep, Giang T. Dang, Toshiyuki Kawaharamura
2. 発表標題 Crystallinity Improvement of Mist CVD grown ZnMgO Thin Films by Using ZnO buffer
3. 学会等名 19th International Conference on Metalorganic Vapor Phase Epitaxy (ICMOVPE-XIX) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 富田 英幹, 原田 彩花, 大川 峰司, 長里 喜隆, 劉 麗, 川原村 敏幸
2. 発表標題 界面制御による縦型パワーデバイス適用を目指したGaN MOSFET特性
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 川原村 敏幸
2. 発表標題 ミスト流を用いた機能膜形成技術「ミスト CVD法」の開発とその特徴
3. 学会等名 薄膜材料デバイス研究会 第17回研究集会（招待講演）
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 Ga2O3薄膜の製造方法	発明者 川原村 敏幸、ダン タイ ジャン、劉 麗、安岡 龍哉	権利者 高知県公立大学 法人
産業財産権の種類、番号 特許、JP2020-206374	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

産業財産権の名称 強誘電体薄膜の製造方法、強誘電体薄膜製造装置および強誘電体薄膜	発明者 川原村 敏幸, 他6名	権利者 国立大学法人京 都工芸繊維大学,  高知県公
産業財産権の種類、番号 特許、JP2019-185711	出願年 2019年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------