



Title	有機金属気相成長法を用いた窒化ガリウムのエピタキシャル極性反転に関する研究
Author(s)	池田, 和久
Citation	大阪大学, 2025, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/103088">https://doi.org/10.18910/103088</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

## 論文内容の要旨

氏名 ( 池田和久 )

論文題名

有機金属気相成長法を用いた窒化ガリウムのエピタキシャル極性反転に関する研究

## 論文内容の要旨

本論文は有機金属気相成長 (MOVPE) 法を用いた窒化ガリウム (GaN) の極性反転に関する研究をまとめたものであり、全6章で構成される。

第1章では、まずGaNをはじめとした窒化物半導体の歴史について述べ、GaNの電気的性質や光学的性質についてまとめた。次に、GaNの新たな応用先としてスクイーズド光源を取り上げた。スクイーズド光源ではモノリシック化が進められている一方で、現状の窒化ケイ素を用いた光集積デバイスでは高スクイージングレベル達成と高速な光量子回路の実現は困難であることを指摘した。これに対し、GaNによる導波路デバイスではこれらの問題を解決可能であり、さらに励起レーザとスクイーズ、マッハツェンダー干渉計を集積できる利点を述べた。また、スクイーズド光の発生原理である波長変換と位相整合方法について説明し、その中で横型擬似位相整合 (QPM) を取り上げた。最後に、高効率なスクイーズド光発生にはGaNの極性を反転させる必要があることを述べた。第2章ではGaN極性反転の理論と、波長変換デバイス設計に必要な基礎理論を整理した。第3章では界面にAlN中間層を挿入することにより、 $+c$  /  $-c$  GaN極性反転積層構造の作製を試みた。有機金属気相成長法 (MOVPE法) を用い、 $c$ 面サファイア基板表面を窒化させた後、一層目に $-c$ -GaN薄膜を成膜した。その上に厚さ10 nmのAlNを成長させ、900 °Cの酸素雰囲気中で30 min酸化処理を施した後、再度GaNを成長した。極性の確認にはKOH水溶液 (60 °C、3 mol/L) を用いた異方性エッチングを実施し極性反転の成功を確認した。また、デバイスの光散乱損失を低減するため、一層目の $-c$ -GaNの平坦化を行った。表面荒れの原因を窒化不足による反転ドメインとらせん転位と考え、表面窒化時間と低温バッファ層膜厚を調節することで、光散乱損失が十分小さくなる表面平坦性を達成した。これらのプロセスを経て、横型QPM波長変換デバイスを作製した。デバイスの断面SEM像を観察した結果、極性反転界面および表面の平坦性が確認された。第4章では、中間層としてAlNを用いないGaN極性反転積層構造の作製を試みた。AlN中間層を使用する場合、GaNとAlN中間層の格子不整合による転位が発生し、再成長膜の結晶性が悪化する。また、膜厚200 nm以下での表面平坦化が困難であるといった問題がある。さらに、極性反転積層構造作製プロセスの自由度を考慮するとAlN中間層を使用しないことが望ましい。そこで、新たなプロセスによりAlN中間層を用いない $+c$  /  $-c$  GaN極性反転積層構造作製した。まず、AlN中間層を用いる場合と同様に、 $c$ 面サファイア基板を窒化させた後 $-c$ -GaN薄膜を成膜し、900 °Cの酸素雰囲気中で30 min酸化処理を行った。その後、再度GaNを成長させた。極性を確認した結果、極性反転には成功していたものの、成長初期には三次元成長を示し、極性反転界面に多数の空隙が確認された。成長挙動は酸化条件に依存し、酸化時間を30 minから10 minに短縮することで界面の空隙は消失し、さらに極性反転界面は平坦になったことで成長初期でも二次元成長が優勢となった。前章まででは、 $-c$ -GaNから $+c$ -GaNへの極性反転技術を確立した。しかし、高効率化を目指して3層以上の極性反転構造を作製するには、 $+c$ -GaN から $-c$ -GaNへのエピタキシャル極性反転が必要である。第5章では、この多層極性反転を実現するための $-c/+c$  GaN極性反転積層構造作製を行った。まず、 $c$ 面サファイア基板に $+c$ -GaNを4  $\mu\text{m}$ 成長させた後、900 °Cの酸素雰囲気中で30~240 min酸化処理を施した。その後、MOVPE法により870 °Cで10 min表面窒化を行い、その上に1000 °Cで膜厚2  $\mu\text{m}$ のGaN薄膜を再成長させた。酸化時間を60 minとしたとき、再成長開始とともに反射率は急激に減少し、表面にはグレイ状の凹凸構造が形成された。酸化時間を240 minまで延ばすと、反射率の推移が変化し、再成長初期に急激に増加したのち徐々に減少する傾向を示した。これは $-c$ -GaN薄膜のヘテロエピタキシャル成長の際に発生するヒロック成長時の挙動と類似しており、成長後の表面観察からも六角形状のヒロックが形成されていることを確認した。KOHエッチング後の表面ではヒロックが消失し、微小な凹凸で構成されたことから再成長膜の極性は $-c$ -GaNに反転していることが確認できた。以上より、 $+c$ -GaN表面の積極的な表面酸化とその後の窒化プロセスにより $+c$ -GaN から $-c$ -GaNへのエピタキシャル極性反転が可能であることを明らかにした。第6章では本研究で得られた成果をまとめた後、残された課題と将来の展望を述べ、本論文を締めくくった。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( 池 田 和 久 )			
	(職)	氏 名	
論文審査担当者	主 査	准教授	谷川 智之
	副 査	教授	片山 竜二
	副 査	教授	小島 一信
	副 査	教授	森 勇介
	副 査	教授	片山 光浩
	副 査	教授	丸山 美帆子
	副 査	教授	尾崎 雅則
	副 査	教授	近藤 正彦
	副 査	教授	森 伸也
	副 査	教授	廣瀬 哲也

## 論文審査の結果の要旨

本論文は有機金属気相成長法を用いた窒化ガリウム (GaN) のエピタキシャル極性反転技術に関する研究をまとめたもので、全6章で構成される。

第1章では、まず GaN をはじめとした窒化物半導体の歴史について述べ、Si や SiC と比較した GaN の電気的性質や光学的性質の特長を示し、それらを活かしたデバイス応用についてまとめている。次に、光量子技術と光量子コンピューティングの歴史をまとめ、チップ化の重要性を示している。先行研究では窒化ケイ素を用いたモノリシック化が進められている一方、窒化ケイ素を用いた光集積デバイスでは高スキューズングレベル達成と高速動作の実現は材料の性質に由来して不可能であることを指摘している。これらを踏まえて GaN の新たな応用先として、励起レーザ、スキューズド光源、マッハツェンダー干渉計を集積した光量子コンピュータを挙げている。GaN を用いたスキューズド光源の高効率化のために必要な横型擬似位相整合構造を概説し、サブミクロン程度の薄い GaN 極性反転構造が必要であることを述べ、本論文の構成をまとめている。第2章では GaN 極性反転構造と横型擬似位相整合導波路型波長変換デバイスの作製にあたって必要となる理論や知識をまとめている。先行研究の極性制御成長や極性反転構造の報告事例をまとめており、サファイア (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) 基板上への GaN のヘテロエピタキシャル成長では基板表面の窒化により酸窒化アルミニウム (Al<sub>x</sub>O<sub>y</sub>N<sub>z</sub>) 構造が形成され、エピタキシャル膜の極性が+c 極性から-c 極性に変化することと、GaN や AlN の成長において中間層として Al<sub>x</sub>O<sub>y</sub>N<sub>z</sub> 構造や Mg<sub>3</sub>N<sub>2</sub> 構造などを挿入することにより成長途中で極性が反転することを述べている。次に高効率な波長変換を実現するための擬似位相整合構造について第二高調波発生を事例に挙げて結合波方程式による波長変換効率の導出と、光の伝搬方向に極性を反転させた縦型擬似位相整合構造と高次導波モードの電界の節の部分で極性を反転させた横型擬似位相整合構造を導入した場合の波長変換の原理をまとめている。さらに、本論文で採用した横型擬似位相整合導波路型波長変換デバイスの実効屈折率と位相整合条件、極性反転構造の各層の膜厚、非線形結合係数を見積もった結果をまとめている。第3章では界面に AlN 中間層を挿入した+c/-c GaN 極性反転積層構造の作製を試みている。有機金属気相成長法を用い、c 面サファイア基板表面を窒化させた後、一層目に-c GaN 薄膜を成膜し、その上に厚さ 10 nm の AlN を成長させ、900 °C の酸素雰囲気中で酸化処理を施した後、再度 GaN を成長させている。KOH 水溶液を用いた異方性エッチングを応用して各層の極性を確認したところ実施し、酸化処理条件、特に酸化温度の最適化により極性反転構造が作製できることを実証している。また、デバイスの光散乱損失を低減するため、一層目の-c GaN の平坦化を行っている。表面荒れの原因を窒化不足による反転ドメインとらせん転位と考え、表面窒化時間と低温バッファ層膜厚を調節することで、光散乱損失が十分小さくなる表面平坦性を達成している。これらのプロセスを経て、波長変換デバイス構造を作製している。デバイスの断面 SEM 像観察により、第2章で設計した構造と同様の極性反転構造を確認している。第4章では、中間層として AlN を用いない GaN 極性反転積層構造の作製を試みてい

る。AlN 中間層を使用する場合、GaN と AlN 中間層の格子不整合による転位が発生し、再成長膜の結晶性が悪化している。また、膜厚 200 nm 以下での表面平坦化が困難であるといった問題がある。さらに、極性反転積層構造作製プロセスの自由度を考慮すると AlN 中間層を使用しないことが望ましい。そこで、新たなプロセスにより AlN 中間層を用いない  $+c/-c$  GaN 極性反転積層構造の作製を試みている。まず、AlN 中間層を用いる場合と同様に、 $c$  面サファイア基板を窒化させた後  $-c$ -GaN 薄膜を成膜し、900 °C の酸素雰囲気中で 30 min 酸化処理を行っている。その後、再度 GaN を成長させ極性を確認した結果、極性反転には成功していたものの、極性反転界面に多数の空隙が確認されている。反射光モニタを用いたその場観察により成長挙動を調べたところ、再成長中の表面モフォロジーの推移は酸化条件に強く依存しており、AlN 中間層を用いない場合には GaN のアニールによる酸化反応とその後の結晶成長雰囲気の還元反応の競合が生じることを見出している。酸化時間の最適化を行ったところ、界面の空隙が消失し極性反転界面が平坦になることを示している。第 5 章では、横型擬位相整合型波長変換デバイスの高効率化に向けて 3 層以上の極性反転構造が必要であることを述べ、3 層以上の極性反転構造の作製には、 $+c$ -GaN から  $-c$ -GaN へのエピタキシャル極性反転が必要であることから、第 5 章では、多層極性反転を実現するための  $-c/+c$  GaN 極性反転積層構造作製を行っている。まず、 $c$  面サファイア基板上に  $+c$ -GaN を 4  $\mu$ m 成長させた後、900 °C の酸素雰囲気中で 30~240 min 酸化処理を施している。その後、870 °C で 10 min 表面窒化を行い、その上に 1000 °C で膜厚 2  $\mu$ m の GaN 薄膜を再成長させている。酸化時間を 60 min としたとき、再成長開始とともに反射率は急激に減少し、表面にはグレイン状の凹凸構造が形成されている。酸化時間を 240 min まで延ばすと、反射率の推移が変化し、再成長初期に急激に増加したのち徐々に減少する傾向を示している。これは  $-c$ -GaN 薄膜のヘテロエピタキシャル成長の際に発生するヒロック成長時の挙動と類似しており、成長後の表面観察からも六角形状のヒロックが形成されていることを確認している。KOH 異方性エッチングによる極性反転から、再成長 GaN 膜の極性は  $-c$  に反転していることが確認できている。以上より、 $+c$ -GaN 表面の積極的な表面酸化とその後の窒化プロセスにより  $+c$ -GaN から  $-c$ -GaN へのエピタキシャル極性反転が可能であることを明らかにしている。第 6 章では本研究で得られた成果をまとめた後、残された課題と将来の展望を述べ、本論文を締めくくっている。

以上のように本論文では、窒化ガリウムを用いたスクイーズド光源の実現に必要な極性反転構造をエピタキシャル成長技術で作製するための様々な課題について実験的に解決する手段を提案し、実証している。これらの成果は結晶工学、量子光学、非線形光学分野において卓越した成果であり、高い学術的意義が認められる。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。