

## 論文の内容の要旨

論文題目 GaP副格子交換エピタキシーの研究と  
その波長変換素子への応用

氏名 松下 智紀

分光、リモートモニタリング、センシングの分野において、指紋領域と呼ばれる近赤外から中赤外領域( $1\ \mu\text{m} - 20\ \mu\text{m}$ )で小型かつ広い波長可変域を有する中赤外コヒーレント光源が渴望されている。このコヒーレント光源を実現する手段として、差周波発生(difference frequency generation: DFG)および光パラメトリック発振(optical parametric oscillation: OPO)などの非線形光学効果を利用した下方波長変換が期待されている。

GaPはこの中赤外コヒーレント光源用の波長変換材料としてきわめて有望である。まず、二次非線形光学定数が $70\ \text{pm/V}$ と比較的大きく、透明領域が $0.55\ \mu\text{m} - 2\ \mu\text{m}$ まで広く透明である。さらに、 $1.064\ \mu\text{m}$ の二光子吸収係数が $0.011\ \text{cm/GW}$ で、 $1.0\ \mu\text{m}$ 帯において光学損傷が問題となっているGaAsと比べると3桁も小さく、 $1.0\ \mu\text{m}$ 帯ポンプ光の二光子吸収に起因した光学損傷を回避可能である。そこで、 $1.02\ \mu\text{m} - 1.1\ \mu\text{m}$ の間で単一縦モードcw発振する固体レーザーYb:YAGをポンプ光源として採用し、GaPをOPOの波長変換素子材料として組み合わせることで、超小型で中赤外領域において超広帯域波長可変光源を実現できる。また、GaPはSiとほぼ格子整合するために、Si基板上にGaP波長変換素子とSi電子デバイスをモノリシック集積化することが可能である。このようにGaPは利点が多いにもかかわらず、波長変換材料として用いられてこなかった。これは、GaPが閃亜鉛鉱構造であり光学的等方性を有するがゆえに複屈折位相整合を達成できないためである。近年、GaAsは副格子交換エピタキシーという空間反転結晶を得る成長技術により、擬似位相整合(quasi phase matching: QPM)波長変換素子の道が開かれ、さまざまな波長変換に利用されはじめている。

そこで本研究では、GaPにおいて副格子交換エピタキシーを実現することと、さらにGaPベースのQPM波長変換デバイスを作製してGaPの非線形光学材料としての高い潜在能力をしめすこと、さらにGaPベースの新規波長変換デバイスの提案を行うことを目的とした。

副格子交換は、GaAsなどIII-V族化合物半導体のエピタキシャル成長中にGe等のIV族原子を数原子層挿入することで、GaとAsの副格子配列を変えようとするもので、GaAs/Ge/GaAsへテロ構造にて達成される。GaP系材料にこれを適応するためには、ほぼ格子整合(格子不整合量0.4%)するSi層を中間層として採用し、GaP/Si/GaPへテロ構造を作製する必要がある。本研究ではまず、固体ソースMBEを用いて、GaP(100)ジャスト基板、[011]と $[0\bar{1}1]$ 方向に4°微傾斜した3種類のGaP基板上にGaP/Si/GaPへテロ構造を作製した。この構造に異方性エッチングにて副格子配列を確認したところ、 $[011]$ に微傾斜した基板上のGaP/Si/GaP構造において副格子交換が確認され、はじめてGaPの副格子交換エピタキシー技術の開発に成功した。透過型断面TEM観察から、その副格子交換メカニズムが、逆位相境界(anti-phase boundary:APB)の自己消滅であることが確かめられた。今回の成長条件においてはAPBがGa-Gaボンドからなる $\{1nn\}$ A面に形成されることが明らかとなった。得られた副格子交換GaPエピタキシャル膜の結晶性は副格子交換GaAsと比較して劣ってはいるものの、周期空間反転QPM素子作製の基板技術を開発できた意義は大きい。

次に本研究では、GaP/AlGaP導波路型QPM素子の設計を行った。AlGaPの屈折率を分光エリプソメトリーで調べ、有効媒質近似を用いてAlGaPの屈折率を0.006のオーダーで決定することができる。この屈折率データに基づいてGaP/AlGaP導波路型光パラメトリック素子の設計を行い、コア幅9  $\mu\text{m}$ を持つ埋め込み導波路において、5本の異なるQPM周期の導波路とYb:YAGレーザによるポンプ光波長チューニングを用いることで、1  $\mu\text{m}$ から10  $\mu\text{m}$ まで超広帯域な波長可変域を実現できることを示し、パルス発振するYb:YAGレーザで光パラメトリック発振を実現できることを示した。

さらに、GaAsと比べると圧倒的に先行研究の少ないこの系におけるプロセス開発を進め、GaP/Si/GaP(100)副格子交換エピタキシー、フォトリソグラフィとウェットエッチング技術を駆使し、周期的空間反転構造の作製に成功した。さらに導波路用作製プロセスを新たに開発し、GaP/AlGaP導波路型QPM素子の作製に成功した。作製したGaP/AlGaPリッジ導波路型QPMデバイスにて、1.064  $\mu\text{m}$ 光パラメトリック蛍光測定を行ったところ、1.605 nmにシグナル光を検出することに成功した。これは、GaP/AlGaP系素子における初めての疑似位相整合達成である。また、素子温度を変調することにより、シグナル光の波長を変えることができ、シグナル光は0.5 nm/Kで、アイドラ光が2 nm/Kで変化した。この過程から見積もられた規格化変換効率は、50 %/(W $\cdot$ cm<sup>2</sup>)であった。シグナル光線幅32nmから見積もられたロスは、16dB/cmと比較的大きいため、今後、GaAs系QPM素子に導入されている導波路内段差解消平坦化プロセスの導入または、リッジ形状の異方性をなくすドライエッチングの導入が必要である。

積層方向の空間反転構造を利用した横方向疑似位相整合と曲げ導波路QPMを組み合わせた新しいタイプの高性能波長変換デバイスをはじめて提案した。幅  $0.5\ \mu\text{m}$  のGaP/Aloxリブ導波路に対して曲げ導波路QPMの設計を行った。曲げ半径  $30\ \mu\text{m}$  で基本波TE<sub>00</sub>モードと第二高調波TM<sub>00</sub>モードでは疑似位相整合を達成することはない。一方、基本波TE<sub>00</sub>モードと第二高調波TM<sub>10</sub>モード間においては位相整合達成可能であり、2つのコア厚で疑似位相整合が達成された。この過程に対して横方向疑似位相整合を達成することにより、それぞれ、 $1850\ \%/W$ の高効率を実現することを示した。さらに、曲げ半径  $20\ \mu\text{m}$ 、 $10\ \mu\text{m}$  についても基本波TE<sub>00</sub>モードと第二高調波TM<sub>10</sub>モード間横方向疑似位相整合特性について変換効率を見積もったところ、それぞれ、 $163\ \%/W$ 、 $2.56\ \%/W$ であった。変換効率を決定する要因としては、変曲点でのモード結合損による伝搬損失に起因する効率の頭打ち係数が支配的であることがわかった。曲げ導波路半径を小さくすることで、曲げ導波路接合部分でのモード結合損が大きくなり、最大変換効率が減少結果となった。曲げ半径  $30\ \mu\text{m}$  の曲げ導波路を正方形基板上に折りたたむことにより、一辺  $1.2\ \text{mm}$  という超小型なSHG素子を実現する可能性を同時に示した。既存の直線導波路QPM波長変換素子サイズと比較して、LiNbO<sub>3</sub>と比べて $1/50$ に小さくすることが可能であることを明らかにした。

以上の研究を通じて、GaPを用いた真に実用的な波長変換デバイスが実現可能であることを示すことができた。本研究の成果は、高い性能を有するGaPを用いた高性能波長変換デバイスの開発の基礎となるものである。これを契機に、GaP波長変換デバイスの研究開発が進展することを期待している。