

審査の結果の要旨

氏名 阿部 真

六方晶ワイドギャップ半導体である SiC, GaN, ZnO は結晶構造に反転対称性が無いため光学的 2 次非線形性を示し、中赤外から紫外の波長域における波長変換デバイスの材料として有望である。従来の非線形光学材料と比べて高い熱伝導率と光損傷閾値、既存の半導体微細加工技術を用いて導波路構造などを作製可能であることも、上記波長域で動作する高効率・高出力な波長変換デバイス材料として有利な点である。これらワイドギャップ半導体の 2 次非線形光学定数については、それぞれ既に複数の報告があるものの、測定試料の質、測定精度、測定データの解析法などに問題があり信頼できる値が無いのが現状である。本論文は、SiC, GaN, ZnO の (11-20) 面あるいは (10-10) 面のバルク単結晶を測定試料に用いた精密なメーカーフリッジ測定をおこない、回転型メーカーフリッジ測定における多重反射干渉効果および試料面方位のずれを考慮できる理論計算手法を開発したうえで、これを用いて測定データを解析することで、これらの材料の真の 2 次非線形光学定数を正確に決定している。さらに、n 型 GaN バルク単結晶の内部電場を変化させながら実効 2 次非線形光学定数の精密測定を行うことで、結晶の 3 次非線形性と内部電場が 2 次非線形光学特性に与える影響を定量的に評価している。本論文は 5 章からなる。

第 1 章は緒言であり、六方晶ワイドギャップ半導体の波長変換材料としての利点について述べた後、SiC, GaN, ZnO の 2 次非線形光学定数の既報値と過去の報告における問題点をまとめている。特に、ほとんどの報告で (0001) 面試料が用いられていることが d_{33} の測定精度を制限しており、また半導体のような高屈折率材料の平行平板試料を用いて非線形光学定数測定を行う場合、試料内部における基本波および第 2 高調波の多重反射干渉効果による影響が顕著に現れてくるにもかかわらず、過去の多くの報告においてこの多重反射干渉効果の影響を無視していることが問題であると主張している。さらに、過去の報告で用いられている GaN と ZnO の極性面エピタキシャル薄膜においては強い内部電場が 3 次非線形光学効果を介して第 2 高調波発生に影響を与えている可能性があることを指摘し、本研究の目的を明確にしている。

第 2 章では、一般的な非線形光学定数測定法であるメーカーフリッジ法について述べ、既存の多重反射干渉の影響を取り扱った理論解析手法の限界を指摘したうえで、本研究において新たに開発した理論解析手法について記述している。第 2 高調波発生 Green 関数を用いて、部分的にしか重なっていない基本波・第 2 高調波ビームの多重反射干渉効果の影響を厳密に考慮した回転型メーカーフリッジの理論計算手法、試料の面方位がずれている場合にも多重反射干

渉効果を含めて扱うことのできる理論計算手法を新たに開発し、次章でおこなったすべての測定データの多重反射干渉効果を厳密に考慮して解析することを可能としている。

第3章では、SiC, GaN, ZnOの3種類の六方晶ワイドギャップ半導体に対する2次非線形光学定数測定について記述している。測定試料にバルク単結晶を用いることで、試料内部の電場のない状況で真の2次非線形光学定数を測定している。高品質なSiC, GaN, ZnOのバルク単結晶試料を用い、(0001)面だけではなく(11-20)面あるいは(10-10)面の試料も用いることに加えて、本研究において開発した手法により試料内部における多重反射干渉効果を厳密に考慮して測定データを解析することで、これらのワイドギャップ半導体のもつ非線形光学定数の3種類の独立な非0テンソル成分である $d_{31} = d_{32}$, $d_{15} = d_{24}$, d_{33} の値を基本波波長1.064 μm で高い精度で決定している。得られた正確な2次非線形光学定数と既報値を比較し、これまでの測定の問題点を指摘している。さらに、2次非線形光学定数の比 d_{33}/d_{31} について材料間で比較し、この理想値(ひずみのない理想的な六方晶の場合 $d_{33}/d_{31} = -2$)からのずれが6H-SiC, 4H-SiC, GaN, ZnOの順に大きくなっており、結晶構造のひずみの大きさとコンシステントであることを見出している。さらに、 d_{33}/d_{31} の理想値からのずれは、bond-chargeモデルのような電子の波動関数がボンドに局在したモデルでは定量的には説明できず、波動関数の非局在性が2次非線形性の大きさを決定していることも示唆している。

第4章では、電解液中のバイアスしたバルクn型GaN(0001)試料表面の空乏層電場を利用して電場誘起第2高調波発生の影響を定量評価した結果がまとめられている。基本波波長1.064 μm での反射第2高調波発生測定により、電場誘起第2高調波発生の3次非線形感受率の値を決定している。この3次非線形性とGaNの自発分極の大きさから見積もられるGaNエピタキシャル薄膜中の内部電場を考慮すると、3次の非線形光学効果による第2高調波発生への寄与は、真の2次非線形光学効果と比較して無視できないことをあきらかにしている。

第5章は総括である。

以上のように、本論文は、高品質バルク試料に対する極めて精密なメーカーフリンジ測定および厳密な理論解析手法を組み合わせることで、SiC, GaN, ZnOの2次非線形光学定数を正確に決定し、また、GaNの内部電場による電場誘起第2高調波発生が2次非線形光学特性に与える影響を初めて定量的にあきらかにしている。本論文の化合物半導体の材料科学、非線形光学材料の分野への寄与は大きい。

よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。