

機関番号 : 32641

研究種目 : 基盤研究 (C)

研究期間 : 2008 ~ 2010

課題番号 : 20560038

研究課題名 (和文) SiC の 2 次非線形光学定数精密測定

研究課題名 (英文) Accurate measurements of the second-order nonlinear-optical coefficients of SiC

研究代表者

庄司 一郎 (SHOJI ICHIRO)

中央大学 理工学部 教授

研究者番号 : 90272385

研究成果の概要 (和文) : 次世代の高出力可視光発生波長変換材料として期待される SiC の 2 次非線形光学定数の精密測定を行った。複数の製造業者で作製された 4H と 6H の 2 種類の結晶多形, (0001) と (11-20) の 2 種類の面方位の高品質試料に対し, 回転型メーカーフリッジ法とウェッジ法の 2 種類の測定法を用い, 基本波波長 1.064 μm で測定し, 厳密な解析を行った。その結果, 製造業者・面方位・測定法によらず一致した正確な値が得られた。また, 4H-SiC の d_{33} は 6H-SiC の d_{33} より 6 % 小さいことがわかった。今回明らかとなった SiC の 2 次非線形光学定数は, 今後, SiC を用いた高出力高効率波長変換デバイスを精密に設計するうえで不可欠となる。

研究成果の概要 (英文) : We have accurately measured the second-order nonlinear-optical coefficients of SiC, which is expected to be a material for next-generation high-power frequency-conversion devices. We carried out the measurements with several combinations of different manufacturers, polytypes, surface orientations of the samples, and different measurement techniques at the fundamental wavelength of 1.064 μm . The same accurate values were obtained for the same polytype samples, and d_{33} of 4H-SiC was found to be 6 % smaller than that of 6H-SiC. The magnitudes of the nonlinear-optical coefficients determined in this research should be useful for precise design of high-power and highly efficient frequency-conversion devices using SiC.

交付決定額

(金額単位 : 円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野 : 工学

科研費の分科・細目 : 応用物理学 / 工学基礎・応用光学 / 量子光工学

キーワード : SiC, 非線形光学定数, 波長変換, 多重反射効果, メーカーフリッジ法, ウェッジ法

1. 研究開始当初の背景

SiC は Si に比べ絶縁破壊電圧が 10 倍, 熱伝導率が 3 倍以上大きく, 次世代の高耐

圧・大電流容量パワーデバイス用半導体材料として大きな期待を集めている。特に近年では, 異種ポリタイプ(結晶多形)の混入のな

い、単一ポリタイプの高品質単結晶を成長する技術が著しく進歩し、パワーデバイス実現へ向けた研究が国内外で精力的に展開されている。

現在、SiC は主に電子デバイス用として検討されているが、絶縁破壊電圧および熱伝導率が大きいという特徴は、高出力光デバイス用材料としても極めて望ましい。SiC は Si とは異なり 2 次の光学的非線形性に対して活性であるうえ、バンドギャップエネルギーが 3.2 eV と大きいことから、光第 2 高調波発生 (SHG) や和周波発生 (SFG) によるレーザー光の波長変換によって、可視光全域の発生が可能である。可視光発生波長変換材料として現在用いられている代表的材料は LiNbO₃ (LN) であるが、LN は非線形光学定数は大きいものの光損傷閾値や熱伝導率が小さく、高出力化には限界がある。SiC は高出力可視光発生波長変換デバイス用材料の決定版になる可能性がある。

一方、波長変換デバイスを設計するうえで、波長変換の効率を決定づける 2 次非線形光学定数 d の正確な値は不可欠である。しかしながら、SiC は最近になって高品質バルク単結晶が得られるようになったこともあり、信頼するに足る測定が行われたことは皆無である。我々はこれまで、代表的な非線形光学結晶および将来波長変換材料として有望と考えられる誘電体結晶や化合物半導体結晶十数種類について、2 次非線形光学定数の精密測定を行ってきた経験を有しており、SiC についても、できるかぎり早く正確な 2 次非線形光学定数の値を測定すべきであると判断した。

2. 研究の目的

本研究は以下の 2 点を目的として行った。

(1) 複数の製造業者により作製された高品質 6H-SiC (0001) および最近開発された 6H-SiC (11-20) 基板に対し、回転型 Maker フリンジ法を用いて測定を行い、多重反射を完全に考慮した解析を行うことにより、2 次非線形光学定数の全テンソル成分 d_{31} , d_{15} , d_{33} を求める。

(2) 高品質 6H-SiC および 4H-SiC の (0001) 基板を特殊加工した試料に対し、ウェッジ法を用いることにより、2 次非線形光学定数 d_{31} , d_{15} , d_{33} の測定を行い、正確な値を求める。

3. 研究の方法

回転型 Maker フリンジ法、ウェッジ法いずれの測定においても、基本波光源として波長 1.064 μm の Q スイッチ Nd:YAG レーザを用い、Quartz および LiNbO₃ を参照物質とした相対測定により非線形光学定数を決定した。測定試料として、SiXON 社製 6H-SiC の (0001)

および (11-20) 基板、Intrinsic Semiconductor 社 (以下 IS 社と略す) 製および Cree 社製の (0001) 基板を用いた。

回転型 Maker フリンジ法では、(0001) 基板に対しては、基本波を s 偏光で入射し第 2 高調波が p 偏光で出射する配置で d_{31} を、基本波 45 度偏光入射で s 偏光の第 2 高調波のみ検出する配置で d_{15} を、基本波 p 偏光入射-第 2 高調波 p 偏光出射で d_{33} を測定した。一方、(11-20) 基板に対しては c 軸を回転軸とし、基本波 p 偏光入射-第 2 高調波 s 偏光出射の配置で d_{31} 、45 度偏光入射-p 偏光出射の配置で d_{15} 、s 偏光入射-s 偏光出射の配置で d_{33} をそれぞれ求めた。試料内で基本波・第 2 高調波双方の多重反射による干渉が起こるが、その際、回転角によって試料内でのビームの重なりが変化する効果まで考慮した解析を行った。

ウェッジ法はウェッジ試料に対して垂直入射配置で測定するため、SiC では (0001) 基板を用いることができない。そこで、ウェッジ法においても高品質試料での測定を実現するために、厚さ 400 μm 程度の高品質 (0001) 基板から (11-20) 面を切り出し、その面の厚さを 100 μm 程度、かつ、0.1° 程度のテーパのついたウェッジ形状に両面光学研磨する (図 1)。基本波をビーム径数十 μm に集

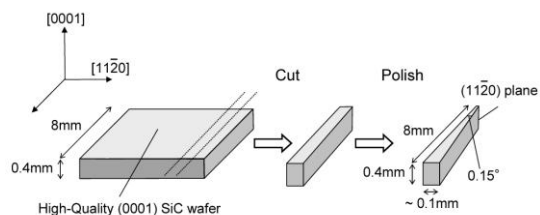


図 1 ウェッジ試料の準備模式図

光して (11-20) 面に垂直入射し、試料をテーパのついた方向に移動すると、発生する第 2 高調波の試料厚さ依存性 (Maker フリンジ) が測定できる。 d_{31} , d_{15} , d_{33} を求めるための偏光配置は回転型 Maker フリンジ法での (11-20) 基板測定と同様である。用いるウェッジ試料は薄く平行平板に近いので、試料内で基本波・第 2 高調波双方の多重反射による干渉効果が顕著となり、その影響が第 2 高調波パワーに現れる。得られた測定データに対して、多重反射効果を完全に考慮した解析を行うことにより、正確な非線形光学定数を求める。その際、実際には試料にテーパがついているため、有限なビーム径の中で試料厚さがどれだけ変化しているかも考慮して解析した。

解析に必要な屈折率値は、過去の文献値をもとに、Maker フリンジおよび多重反射干渉周期の測定値から同定することにより求めた。

4. 研究成果

(1) 回転型メーカーフリンジ測定

回転型メーカーフリンジ法による測定結果の一例として、SiXON製6H-SiC(11-20)面平行平板試料に対し、基本波s偏光入射-第2高調波s偏光出射の配置で d_{33} を測定した際の、第2高調波パワーの試料入射角依存性を図2に示す。 $-60^\circ \sim +60^\circ$ の範囲で測定したうち、正の入射角側のデータのみ拡大して示してある。多重反射干渉による短周期の振

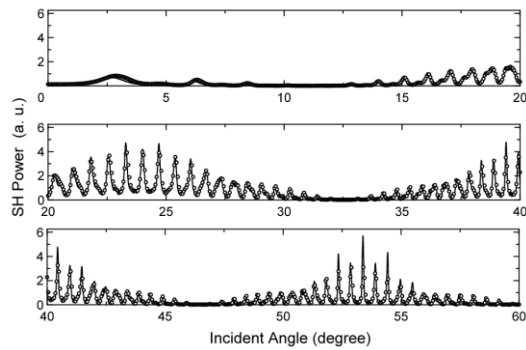


図2 6H-SiC(11-20)面(SiXON製)に対する回転型Makerフリンジ法を用いた d_{33} 測定結果. 白丸は実測値, 線は理論曲線によるフィッティングを示す.

動が、長周期のMakerフリンジに重畳しているのがわかる。多重反射効果により第2高調波パワーは強められるため、特にSiCのように2.5以上の高い屈折率を持つ材料では、この効果を無視して解析すると非線形光学定数を過大評価してしまう。そこで我々は、回転型Makerフリンジ法において、入射角により試料内で多重反射するビームの重なりが変化する割合も考慮して多重反射干渉効果の解析を初めて行い、それを用いて測定データに対する最小2乗フィッティングを行って非線形光学定数を求めた。また、解析に用いた屈折率はフィッティングの過程で一意に決定することができた。

回転型Makerフリンジ測定ではいずれもQuartzとの相対測定を行い、基本波波長 $1.064 \mu\text{m}$ における d_{11} の値 0.30 pm/V を用いてSiCの非線形光学定数の絶対値を決定した。表1にその結果をまとめる。

表1 回転型メーカーフリンジ法による測定結果

試料	d_{11} (pm/V)	d_{15} (pm/V)	d_{33} (pm/V)
(0001)基板6H-SiC(SiXON製)	$6.7 (\pm 0.3)$	$6.4 (\pm 0.3)$	$9.7 (\pm 8.0)$
(11-20)基板6H-SiC(SiXON製)	$7.0 (\pm 0.4)$	$6.6 (\pm 0.3)$	$12.2 (\pm 0.6)$

(2) ウェッジ法測定

ウェッジ法による測定結果の一例として、IS製の6H-SiC(11-20)面ウェッジ試料を用い、基本波をc軸に垂直な偏光方向で入射し、発生する第2高調波の偏光方向がc軸に平行

な配置で d_{31} を測定した際の、第2高調波パワーの試料厚さ依存性を図3に、Cree製4H-SiC(11-20)面ウェッジ試料を用い、基本波 45° 偏光入射に対し、c軸と垂直な偏光方向の第2高調波のみ検出し d_{15} を測定した際の、第2高調波パワーの試料厚さ依存性を図4にそれぞれ示す。用いた試料のウェッジ角

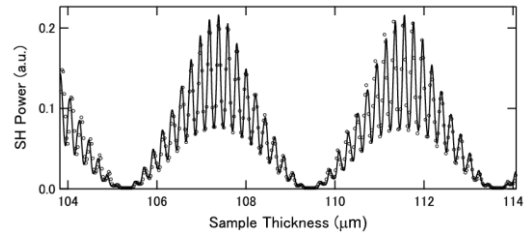


図3 6H-SiC(11-20)面(Intrinsic Semiconductor製)に対するウェッジ法を用いた d_{31} 測定結果. 白丸は実測値, 線は理論曲線によるフィッティングを示す.

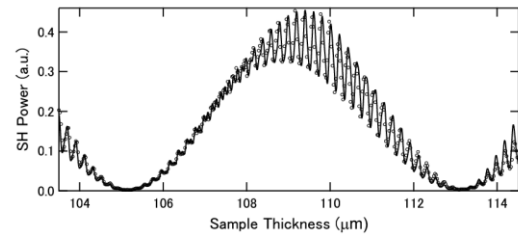


図4 4H-SiC(11-20)面(Cree製)に対するウェッジ法を用いた d_{15} 測定結果. 白丸は実測値, 線は理論曲線によるフィッティングを示す.

が小さく平行平板に近い場合、多重反射干渉による短周期の激しい振動がMakerフリンジに重畳して現れる。したがって、測定データに対し多重反射効果を考慮した解析を行い、非線形光学定数を求めた。

ウェッジ法では LiNbO_3 の d_{33} ($= 25.2 \text{ pm/V}$)との相対測定を行い、SiCの非線形光学定数の絶対値を決定した。表2にその結果をまとめる。

表2 ウェッジ法による測定結果

試料	d_{31} (pm/V)	d_{15} (pm/V)	d_{33} (pm/V)
(11-20)面6H-SiC(SiXON製)	$6.5 (\pm 0.3)$	$6.3 (\pm 0.3)$	$12.3 (\pm 0.6)$
(11-20)面6H-SiC(I.S.製)	$6.5 (\pm 0.3)$	$6.6 (\pm 0.3)$	$12.9 (\pm 0.6)$
(11-20)面4H-SiC(Cree製)	$6.5 (\pm 0.3)$	$6.7 (\pm 0.3)$	$11.7 (\pm 0.6)$

(3) 得られた成果の位置づけと重要性

本研究では、複数の製造業者で作製された4Hと6Hの2種類の結晶多形、(0001)と(11-20)の2種類の面方位の高品質試料に対し、回転型メーカーフリンジ法とウェッジ法の2種類の測定法を用い、厳密な解析を行うことによってSiCの非線形光学定数を正確に

決定した(表1および表2)。測定誤差は±5%以下と見積もられる。ただし、(0001)基板に対して回転型メーカーフリッジ法で測定した d_{33} のみは、誤差が±80%と極めて大きい。これは、この配置では d_{33} のみを独立して測定することができず、かつ、測定データへの d_{33} の寄与が d_{31} 、 d_{15} に比べ小さいためであり、本質的な原因によるものである。したがって、本研究で行った、高品質(0001)基板から(11-20)面を切り出しウェッジ法によって独立に d_{33} を測定する手法は意義が大きいと考えている。

また、今回、従来にない高品質試料と高精度測定法を組み合わせることにより、異なる結晶多形である6Hと4Hの非線形光学定数を同時に明らかにした意義は極めて大きい。表2の測定結果によると、 d_{31} と d_{15} については6Hと4Hでほぼ一致したが、 d_{33} は4Hの方が6Hより6%小さい。これは、結晶構造から理論的に予測される傾向と整合しており、今後、2Hの結晶が高品質に作製できるようになった時点で精密測定を行うことにより、さらに詳細な検討ができると考えている。

本研究によって正確に決定したSiCの非線形光学定数は、今後、SiCを用いた高性能波長変換素子の開発をするうえで不可欠な基礎データとなるものであり、これを機に実現へ向けた研究が加速するものと考えている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計5件)

- ① 庄司一郎、近藤高志，“マイクロ固体フォトニクス材料—波長変換材料の非線形光学定数—，” レーザー研究，Vol. 37 (2009) 235-241，査読有。
- ② Hiroaki Sato, Makoto Abe, Ichiro Shoji, Jun Suda, and Takashi Kondo, “Accurate measurements of second-order nonlinear optical coefficients of 6H and 4H silicon carbide,” J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 26 (2009) 1892-1896, 査読有。
- ③ Makoto Abe, Ichiro Shoji, Jun Suda, and Takashi Kondo, “Comprehensive analysis of multiple-reflection effects on rotational Maker-fringe experiments,” J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 25 (2008) 1616-1624, 査読有。

[学会発表] (計28件)

- ① 阿部真, 庄司一郎, 須田淳, 近藤高志, “n型GaNの2次非線形光学定数精密測定,” Optics & Photonics Japan 2010, 2010年11月8日, 中央大学(神田駿河台)。
- ② 庄司一郎, 近藤高志, “分極反転材料における非線形光学定数の精密測定,” 第56回応用物理学関係連合講演会, 2009年3月30日, 筑波大学(つくば)。
- ③ Hiroaki Sato, Ichiro Shoji, Jun Suda, and Takashi Kondo, “Accurate Measurements of Second-Order Nonlinear-Optical Coefficients of Silicon Carbide,” 7th European Conference on Silicon Carbide and Related Materials, 2008年9月8日, バルセロナ。

[産業財産権]

○出願状況(計1件)

名称: 複屈折位相整合波長変換デバイス及び当該デバイスの作製方法

発明者: 庄司一郎

権利者: 同上

種類: 特許

番号: 特願2011-045454

出願年月日: 23年3月2日

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

庄司 一郎 (SHOJI ICHIRO)

中央大学・理工学部・教授

研究者番号: 90272385

(2) 連携研究者

近藤 高志 (KONDO TAKASHI)

東京大学・工学系研究科・教授

研究者番号: 60205557

須田 淳 (SUDA JUN)

京都大学・工学研究科・准教授

研究者番号: 00293887

(3) 研究協力者

佐藤 弘章 (SATO HIROAKI)

中央大学・理工学研究科・修士課程

(H20)

阿部 真 (ABE MAKOTO)

東京大学・工学系研究科・博士課程