

令和元年6月26日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K19078

研究課題名(和文)モノリシック共振器型ワイドギャップ半導体波長変換素子の開発

研究課題名(英文) Development of monolithic cavity wavelength converter made of widegap semiconductors

研究代表者

片山 竜二 (Katayama, Ryuji)

大阪大学・工学研究科・教授

研究者番号：40343115

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では「複屈折性や分極反転が必須」という波長変換素子の既成概念にとらわれない、簡素な構造と作製工程を用い、構成部品を全て一体集積化したモノリシック微小共振器型波長変換素子を開発した。c軸配向した窒化物半導体Ga_n薄膜を深掘りして形成されるモノリシック微小共振器構造を作製することで基本波の電界強度を増強し、かつ共振器鏡での反射位相変化を精密に制御し第二高調波の位相を調整することで、従来の強誘電体素子nにおける結晶方位の周期変調(分極反転)のような特殊な構造が一切不要となる。実際に、全長10 μmという世界最小サイズの波長変換素子の作製と、波長変換素子としての機能の実証に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で原理実証したモノリシック微小共振器型波長変換デバイスは、従来の「複屈折性や分極反転が必須」という波長変換素子の既成概念を覆す、結晶工学・量子光学分野における画期的な提案であり、これにより非線形光学材料の選択肢が劇的に広がる。またそのサイズは通常強誘電体のバルク非線形光学結晶の場合の1/10000という世界最小サイズであり、近い将来実現する光子コンピュータなどの光集積システムへの応用が期待される。

研究成果の概要(英文)：In this project, a novel monolithic microcavity wavelength converter with a simple structure and an easy fabrication process was demonstrated, which breaks the conventional notion of the nonlinear optics, the requirement for the birefringence and polarization inversion. A monolithic microcavity made by a deep etching of a single c-axis-oriented Ga_n film enables us to enhance the electric field strength of the fundamental wave, and a realization of a phase matching between fundamental wave and second harmonic wave by a fine tuning of the phase change upon reflection from the cavity reflector totally eliminates the special structure such as a periodic polarization inversion. Here we succeeded in the fabrication of the world smallest wavelength converter with a length of 10 μm and the demonstration of wavelength conversion for the first time.

研究分野：量子光学

キーワード：非線形光学 波長変換素子 第二高調波発生 窒化物半導体 モノリシック 微小共振器

1. 研究開始当初の背景

情報通信技術の発展に伴う計算速度向上の要請に対して、超並列計算による劇的な高速化を図った光を用いた量子計算機が提案されたが、励起光源に大型レーザー、量子光源である光パラメトリック共振器には強誘電体バルク結晶を用いるため巨大であり、さらに多数の光学部品で構成されるため調整が困難なうえ、安定性が乏しい問題がある。これらの問題が普及の障壁であり、この光源部の抜本的な簡素化が求められている。上記の共振器内に設置される強誘電体バルク結晶は、共振器中の励起光の一光子から量子相関を持つ二光子を発生する波長変換素子として働くが、低屈折性材料の場合は事前に電界を印加することで周期的に分極を反転させた特殊な構造（分極反転構造）を要する。この波長変換素子の小型化には、光導波路化により励起光のパワー密度を増大させて単位体積あたりの光子発生効率を向上させることが有効であるが、強誘電体の場合は光波の電磁界により分極が解消してしまうというジレンマがある。このため依然としてバルク結晶が用いられ、効率を高めるために長尺の結晶となり、系の小型化ひいては動作実証を阻んでいるといえる。そこで研究代表者は、分極解消の懸念のない常誘電性材料であり、透過波長域の広いワイドギャップ窒化物半導体を用いた光導波路型波長変換素子の開発を進めている。研究代表者らは実際に GaN の c 軸を周期反転させた光導波路を作製、常誘電性半導体で最短波長かつ最高効率の紫色第二高調波発生に成功、その効率が同帯域の強誘電体を凌ぐことを実証した。ただし、この手法は従来の強誘電体の分極反転構造の延長上のプロセスであり、高度な結晶再成長技術を要するとともに、共振器鏡を個別の光学部品を用いて構成してしまうと、結局のところ光軸調整や安定性の問題解決の目処がたたない。

2. 研究の目的

上記の経緯を踏まえ、本研究では、「複屈折性や分極反転が必須」という波長変換素子の既存概念にとらわれない、簡素な構造と作製工程を用い、部品を全て一体集積化したモノリシック共振器型波長変換素子の開発を目的とした。新規提案する素子構造は、具体的には c 面サファイア基板上的単結晶窒化物半導体 GaN により構成されるモノリシック微小共振器型構造である。この素子に励起光を入射すると、非線形光学効果により直交偏光した量子もつれ光子対が発生し、量子暗号通信や量子コンピュータに用いる量子光源を実現できる。加えてこの共振器鏡での反射位相変化を精密制御すると、従来の強誘電体素子のような結晶方位の周期変調（分極反転）などの特殊な構造は一切不要である。従来個別の光学部品を用い構成され光学定盤を専有していた大型の共振器型波長変換素子を、10 μm 程度のサイズへと縮小することで劇的な小型化と高安定化を狙い、実際に波長変換素子としての機能の実証を目指した。

3. 研究の方法

デバイスの構造を図 1 に示す。共振器長をコヒーレンス長にあたる 1107 nm とし、その左右に GaN と空気からなる 3 次ブラッグ反射鏡 (DBR) を配置し、左側から基本波（波長 825 nm）を入射すると、高反射率の左右反射鏡により共振器内で電界強度は顕著に増強され、高効率に第二高調波が発生する。そのデューティと周期を調整することで、基本波の反射率を 1 付近に保ったまま第二高調波 (412.5 nm) の反射率を幅広く調整できる。第二高調波に対しては左右の反射鏡をそれぞれ高反射率と低反射率とすることで、共振器内で前進・後進波として発生した第二高調波が共に右方向に出射する。このとき共振器と左側反射鏡の間に位相調整領域を設け、第二高調波の前進波と後進波の位相が揃うように反射させ位相整合させれば、分極反転が不要となる。波長変換効率 η_{SH} と波長許容幅のバランスから、左側反射鏡はペア数 4、デューティ 0.335、周期 851 nm、GaN と空気の位相調整層を 288 nm と 422 nm、右側反射鏡はペア数 6、デューティ 0.287、周期 888 nm と決定した。このとき、基本波 1 W を 3.2 μm 径で入射すると、共振により基本波強度が 2700 倍に増強されるため、極めて微小な体積にも関わらず η_{SH} は 21% に達する。

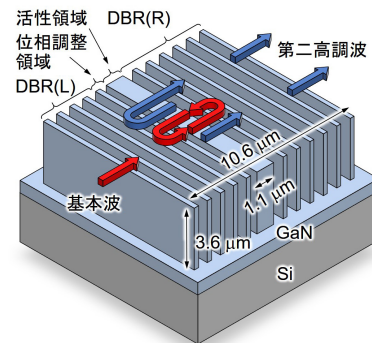


図 1 本研究で作製した GaN モノリシック微小共振器型波長変換デバイスの概念図。

4. 研究成果

4.1 GaN モノリシック微小共振器の作製プロセスの検討

GaN 側壁が a 面、m 面と平行になるような二通りの結晶方位のデバイスを作製し、GaN 側壁の垂直性・平坦性の側壁面方位依存性を調べた。EB 描画と EB 蒸着・リフトオフにより GaN 上に Ni/Cr マスク（厚さ 260、10 nm）を形成し、塩素系 ICP-RIE により 3.8 μm エッチングした。このとき側壁傾斜角度は約 80° で、その平坦性も低かった（図 2(a)）。そこで KOH 水溶液を用いた結晶異方性ウェットエッチング（3 mol/L, 90°C, 90 min）により、側壁垂直性の改善を試みた。その結果、a 面に平行に形成した側壁の垂直性は劇的に改善したが、微小な m 面により構成される三角形の微小な凹凸構造が出現し、平坦性は悪かった。一方で m 面に平行に形成した側壁は高い垂直性と平坦性を有しており、広い面積で設計通りのデューティと位相調整領域長を有する共振器構造を得ることができた（図 2(b)）。

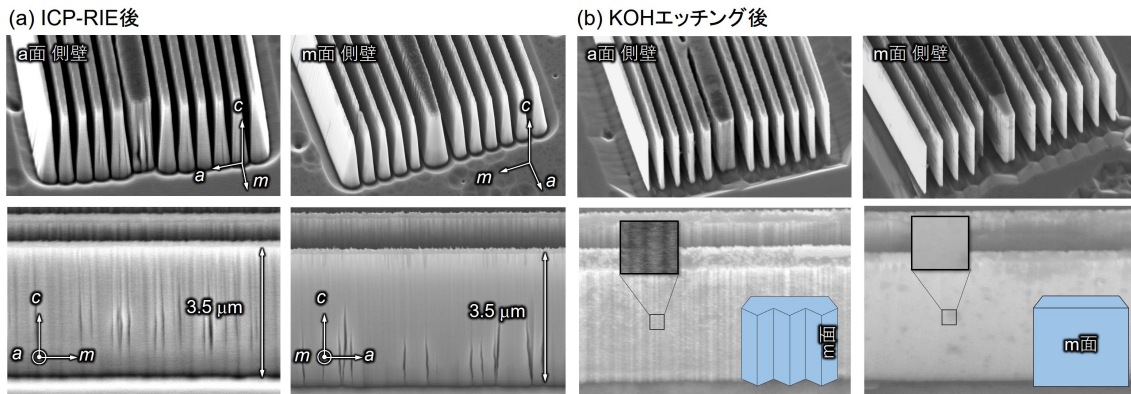


図2 GaNモノリシック微小共振器構造の側壁垂直性と平坦性の面方位依存性：
(a) ICP-RIE後、(b) KOHエッチング後。

4.2 Si台座構造上のデバイス形成プロセスの検討

しかしながら、上記のデバイスは全長が約 $10\ \mu\text{m}$ と微小であることから、集束して入出射する基本波と第二高調波の光路と基板が干渉しないよう、共振器の入出射端の基板を深く掘り込む必要がある。そこで本研究ではサファイア基板と比較して加工が容易なSi基板上に成長したGaNを用いたSi台座構造上のGaNモノリシック微小共振器型デバイスを提案した。基本波としてビーム径 $1.2\ \text{mm}$ のレーザ光を50倍対物レンズ(焦点距離 $3.6\ \text{mm}$)を用いて集光すると、ビームウエストおよび焦点深度はそれぞれ $3.2\ \mu\text{m}$ 、 $18.9\ \mu\text{m}$ となる。デバイス全長が $10.6\ \mu\text{m}$ であることを考慮するとデバイス高さは $3.5\ \mu\text{m}$ 以上必要となり、また取り扱いの容易さから基板長さを $1\ \text{mm}$ とすると、共振器端のSi基板を $83\ \mu\text{m}$ 程度掘り込む必要がある。

図3(a)に作製プロセスを示す。EB描画とEB蒸着・リフトオフによりSi(111)基板上成長GaN上にNi/Crマスクを形成し、塩素系ICP-RIEによりGaNを $3.6\ \mu\text{m}$ エッチングした。次に側壁垂直性・平坦性向上のためKOHウェットエッチングを施し、共振器構造を形成した。その後共振器上に SiO_2 を堆積し、さらにその上にNi/Crマスクを形成した。 SiO_2 、下地GaN、AlGaN/AlNバッファ層を除去した後、 SF_6 ガスを用いたICP-RIEによりSi基板を $80\ \mu\text{m}$ 深掘りすることで、Si台座構造を形成した。最後にNi/Cr、 SiO_2 マスクをウェットエッチングにより除去することでGaN微小共振器を露出させ、デバイスの作製に成功した(図3(b,c))。

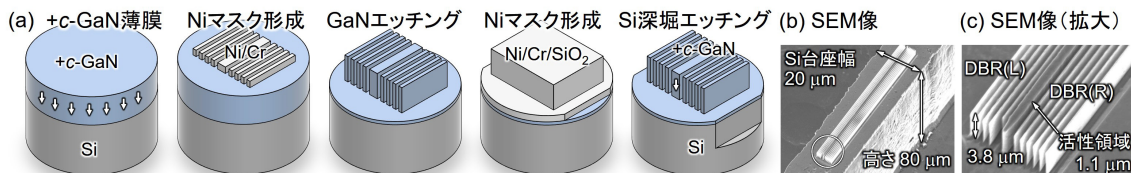


図3 GaNモノリシック微小共振器型波長変換デバイスの(a)作製プロセスと(b,c)鳥瞰SEM像。

4.3 第二高調波発生の実証

波長可変チタンサファイアレーザ(パルス幅 $100\ \text{fs}$ 、繰り返し周期 $80\ \text{MHz}$)を基本波として用い、第二高調波発生の実証実験を行った。上記で作製したデバイスを温度制御したピエゾステージ上に設置し、50倍対物レンズにて集光してこれを励起し、発生する第二高調波を同様の対物レンズでコリメートし、CCD分光器にて検出した。その際、基本波の偏光方向はGaNのc軸に平行とした。基本波中心波長を変化させ測定を繰り返すことで、目視できる強度の第二高調波が観測された(図4(a))。グラントムソンプリズムを用いてその偏光特性を調べたところ、GaNの二次非線形光学テンソルの d_{33} 成分からの高調波発生に相当するc軸に平行な異常光成分が支配的であった(図4(b))。またその強度は基本波強度の二乗に比例し(図4(c))、かつ基本波波長に対して典型的なチューニング特性を呈することから、二次光学非線形性に基づく波長変換により発生した第二高調波であることが確認された。

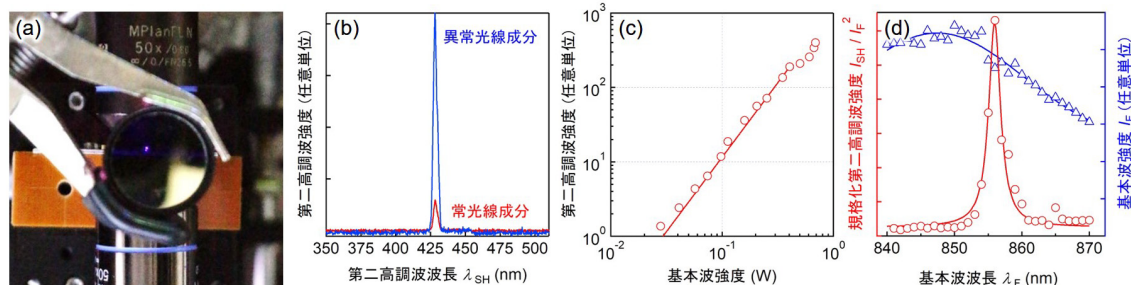


図4 GaNモノリシック微小共振器型波長変換デバイスからの第二高調波発生：
(a) 散乱光の遠視野像、(b) 偏光特性、(c) 基本波強度依存性、(d) 基本波波長依存性。

4.4 得られた成果と今後の展望

本研究で提案し、その作製と原理実証に成功した GaN モノリシック微小共振器構造は、単一の結晶配向を有する極性半導体のエピタキシャル膜を微細加工するだけで形成できるため、従来の「複屈折性や分極反転が必須」という波長変換素子の既成概念を覆す、これまで例のない画期的な成果である。またそのデバイスサイズは通常強誘電体のバルク非線形光学結晶を用いる場合の 1/10000 程度であり、世界最小サイズの波長変換デバイスとなる。更にはこの原理を用いた波長変換デバイスにおいては、紫外領域の波長変換に用いられるポレート系非線形光学結晶のような複屈折性も原理的には不要となるため、非線形光学材料の選択枝が劇的に広がる。特に GaN と同じ結晶構造で、よりワイドギャップな AlN を用いることで、深紫外領域での波長変換への展開が期待される。

また本研究期間においては第二高調波発生の実証を行ったが、これと同じ二次非線形光学効果に基づき、逆過程である光パラメトリック下方変換についても、同様のデバイス構造を用いて実現できる見込みである。今後は本研究で動作実証したデバイスを光導波路型デバイス化することで、その超小型かつ安定であるという利点を活かし、今後は背景で述べた光導波路型の量子情報処理システムへの集積・実装が大いに期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

- ① Y. Hayashi, R. Katayama, T. Akiyama, T. Ito, and H. Miyake, Polarity inversion of aluminum nitride by direct wafer bonding, *Appl. Phys. Express*, 査読有, 11(3)巻, 2018, 05FA04-1-5
DOI: 10.7567/APEX.11.031003

〔学会発表〕(計 10 件)

- ② 南部 誠明, 永田 拓実, 塩見 圭史, 藤原 康文, 大西 一生, 谷川 智之, 上向井 正裕, 片山 竜二, Si 台座構造上 GaN モノリシック微小二重共振器型第二高調波発生デバイスの作製, 第 66 回 応用物理学会 春季学術講演会, 2019.
- ③ 矢野 岳人, 松井 裕輝, 上向井 正裕, 片山 竜二, 量子相関光子対発生に向けた ZnO/ZnMgO 多重量子井戸微小共振器の設計, 第 66 回 応用物理学会 春季学術講演会, 2019.
- ④ T. Nambu, T. Komatsu, M. Uemukai, K. Shiomi, Y. Fujiwara and R. Katayama, Fabrication of GaN monolithic doubly-resonant microcavity SHG device on Si trapezoidal structure, *SPIE Photonics West 2019*, 2019.
- ⑤ 片山 竜二, 量子コンピュータ開発と結晶技術, 日本学術振興会 第 161 委員会 第 109 回 研究会, 2019. (招待講演)
- ⑥ T. Nambu, T. Komatsu, M. Uemukai, K. Shiomi, Y. Fujiwara, J. Tajima, T. Hikosaka, S. Nunoue and R. Katayama, Fabrication of GaN Monolithic Doubly-Resonant Microcavity SHG Device on Si Substrate, 窒化物半導体国際ワークショップ IWN2018, 2018.
- ⑦ Y. Matsui, T. Yano, M. Uemukai and R. Katayama, Design of ZnO-Based Microcavities with SiO₂/ZrO₂ Distributed Bragg Reflectors for Entangled Photon Pair Generation, 第 37 回 電子材料シンポジウム EMS37, 2018.
- ⑧ T. Nambu, T. Komatsu, K. Shiomi, Y. Fujiwara, M. Uemukai and R. Katayama, Fabrication of GaN Monolithic Doubly-Resonant Microcavity SHG Device, 第 37 回 電子材料シンポジウム EMS37, 2018.
- ⑨ 矢野 岳人, 上向井 正裕, 片山 竜二, ZnO 系ワイドギャップ半導体微小共振器を用いた量子相関光子対発生素子の設計, 第 10 回 日本結晶成長学会 ナノ構造・エピタキシャル成長講演会, 2018.
- ⑩ T. Nambu, M. Uemukai, R. Fuji, T. Yamada, Y. Fujiwara and R. Katayama, Design and Fabrication of GaN Monolithic Doubly-Resonant Microcavity SHG Device, 第 19 回 有機金属気相成長法に関する国際会議 ICMOVPE-XIX, 2018.

〔図書〕(計 0 件)

該当なし

〔産業財産権〕

該当なし

〔その他〕

ホームページ: www.qoe.eei.eng.osaka-u.ac.jp/research.html

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名： 川原村 敏幸
ローマ字氏名： Toshiyuki Kawaharamura
所属研究機関名： 高知工科大学
部局名： 総合研究所 ナノテクノロジー研究センター
職名： 准教授
研究者番号（8桁）： 00512021

研究分担者氏名： 谷川 智之
ローマ字氏名： Tomoyuki Tanikawa
所属研究機関名： 東北大学
部局名： 金属材料研究所
職名： 講師
研究者番号（8桁）： 90633537

研究分担者氏名： 上向井 正裕
ローマ字氏名： Masahiro Uemukai
所属研究機関名： 大阪大学
部局名： 大学院工学研究科
職名： 助教
研究者番号（8桁）： 80362672