

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 1 日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24360028

研究課題名(和文)量子ドットと半導体多層膜結合共振器構造を用いた超高速波長変換素子

研究課題名(英文)Ultrafast wavelength conversion device by semiconductor multilayer coupled cavity with quantum dots

研究代表者

井須 俊郎 (Isu, Toshiro)

徳島大学・ソシオテクノサイエンス研究部・特任教授

研究者番号：00379546

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,500,000円

研究成果の概要(和文)：半導体多層膜三結合微小共振器構造と半導体量子ドットを用いて、高効率な四光波混合を利用した超高速面型波長変換素子を実現することを目指し、結合光共振器構造と量子ドットの作製を行い、その波長変換特性について評価した。薄い歪緩和層に埋め込んだErドーピング量子ドットを使って、1ピコ秒程度の超高速な吸収変化の非線形光学応答を得ることができたが、波長変換信号は量子ドットによる吸収の影響を大きく受けることが分かった。吸収のないAlAsキャップ層を有するInAs量子ドットを含む三結合共振器構造においては、波長変換信号を明瞭に観測することができ、超高速波長変換素子として応用可能であることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In order to realize an ultrafast wavelength-conversion device, we investigated nonlinear responses of a semiconductor multi-layer triple-coupled cavity with quantum dots (QDs) and crystal growth of the structure. We obtained ultrafast nonlinear transmission change of a cavity with the Er-doped quantum dots embedded in a thin strain-relaxed layer. We also found that the wavelength conversion signal by the four-wave-mixing was absorbed in the QDs, although degenerate four-wave-mixing signals were clearly observed due to saturable absorption. In the case of a triple-coupled cavity with QDs which were transparent for the incident lights, wavelength conversion signals were clearly observed. We confirmed that the triple-coupled cavity structure with QDs was promising for application to ultrafast wavelength-conversion devices.

研究分野：工学(応用光学・量子光工学)

キーワード：量子ドット 微小共振器 超高速光スイッチ 非線形光学応答 キャリア緩和 MBE,エピタキシャル成長 化合物半導体多層膜 波長変換

### 1. 研究開始当初の背景

高度情報化社会の構築に向け光通信ネットワークシステムの大容量化と超高速化が進められており、近い将来における基盤となるデバイスとして、光を光で制御する“全光スイッチ”の実用化が期待されている。全光スイッチは、材料の非線形光学応答を利用して動作するが、実用化のためには、非線形光学応答の高速性と高効率性を両立させることが極めて重要である。半導体はそのバンドギャップエネルギー付近の光に対しては、大きな非線形光学応答を示すが、光吸収により自由キャリアが生成されるとその緩和時間に動作速度が制限され、高速応答が困難になる。生成キャリアの寿命を短くする手段として、低温成長材料を使うことや、サブバンド間遷移を利用することなどが研究されてきている。一方、光吸収のほとんど無い透明領域の光に対しては、超高速な非線形応答が得られるが、非線形係数が小さいという問題点があり、非線形信号増大のために、フォトリソニック結晶構造や共振器構造によって光電場の増大を利用する方法が用いられてきた。この方法で生じる光電場強度の増大は、そのスペクトル幅が制限され、信号増大と応答速度とは相反するが、共振器のQ値が1000程度までであれば光信号処理に要求されるピコ秒程度の応答速度は十分にあり、大きな非線形信号の増大が得られる。

本研究の代表者は、GaAsの透明領域の超高速非線形光学応答を利用した一次元フォトリソニック結晶構造においてピコ秒程度の応答速度で大きな超高速光カーゲート信号が得られることを報告し[*phys. stat. solidi (c)* 3, 671 (2006)]、さらに、InGaAs格子歪緩和層内に埋め込んだInAs量子ドットを用いた半導体多層膜の微小共振器構造 [*Appl. Phys. Express*, 1, 092302 (2008)] において、光カー信号が2桁近くの増大が生じることを示した [*Appl. Phys. Express*, 2, 0802001 (2009)]。このInGaAs格子歪緩和層に埋め込んだInAs量子ドットは、1.5 $\mu\text{m}$ 帯のバンドギャップを持ち、その波長領域で大きな非線形屈折率変化を示すとともに、光励起キャリアの格子歪緩和層の非発光中心による超高速緩和特性を持つものである [*J. Cryst. Growth*, 311, 1807(2009)]。この量子ドットの超高速光キャリア緩和と共振器構造による光電場強度の増大の両者の実現により、きわめて低パワーで動作できる超高速応答の面型全光スイッチの実現可能性の検証が行われた。(基盤研究(B) 2136035)

一方、研究代表者のグループは、二つの共振器層を持つ結合共振器構造における二つの共振器モードの差周波発生を利用したテラヘルツ波発生素子を提案し、その素子の実験的検証を進めているが、この結合共振器構造を発展させた三つの共振器モードを持つ三結合共振器構造を用いると、三つの波長の光電場強度を増強することができるので、四

光波混合による波長変換が効率よくできると期待され、その可能性の探索を進めた。(挑戦的萌芽研究 22656018) その結果、三結合共振器構造により四光波混合が有効に生じ大きな信号を得られることを明らかにした。

これらの研究成果を結び合わせ、量子ドットと三結合共振器構造を用いることにより、効率の高い超高速波長変換素子の実現できると期待されるが、その実現のためには、InAs量子ドットおよび三結合共振器構造の作製技術の確立と、その光学応答特性を実験的に測定評価し波長変換素子としての特性を明らかにすることが必要であった。

### 2. 研究の目的

本研究は、1.5 $\mu\text{m}$ 帯の光通信波長で動作できる超高速動作可能なデバイスを、量産化に有利なGaAs基板上で実現し面型デバイスとして並列処理や小型化・集積化に有利であるという構造的特徴を生かした素子を実現しようという意図がある。本研究では、半導体多層膜三結合微小共振器構造と半導体量子ドットを用いて、高効率な四光波混合を利用した超高速面型波長変換素子を実現することを目指して、超高速波長変換に適したGaAs基板上InAs量子ドットおよび半導体多層膜三結合共振器構造の作製技術の確立とそれらの特性を明らかにすることを目的とした。試作した量子ドットを含む三結合共振器構造の四光波混合過程の非線形光学応答の測定を行い、超高速波長変換素子としての実現可能性の検証を行った。

### 3. 研究の方法

#### (1)結合共振器の設計と結晶成長による作製

非線形媒質としての量子ドット層と共振器層を構成する半導体多層膜の両者がともに高品質に結晶成長ができる必要があり、構造の設計と作製条件を総合的に捉えてその最適化を図ることを目指した。このため、様々な多層膜共振器構造に対して、反射率スペクトルや共振器モードをマトリックス法による内部光電場のシミュレーションから求めるとともに、実験的には、分子線エピタキシー結晶成長法による試料構造の試作およびその反射率スペクトルの測定により、適切な構造の検討を行った。

#### (2)量子ドットの特性改善

歪緩和層に埋め込んだInAs量子ドットについては、非線形特性の向上と低速緩和成分の低減、更なる超高速緩和が課題であり、そのため、量子ドットサイズの均一化とともに、ドーピング条件や結晶成長条件の見直し等を行い、適正な条件を探求した。さらに、透明領域での非線形光学応答に適した量子ドットの作製法についても成長条件の探索を行い、その特性を原子間力顕微鏡観測やフォトルミネセンス測定などにより調べた。特に一原子層程度のAlAsキャップ層を加えた場

合の InGaAs 層や Sb 照射の効果などについて調べた。

### (3) 波長変換特性の測定評価

既存の 100fs パルスレーザを用いた二ビームの時間分解光学測定系において四光波混合信号を空間的に分離検出する測定系の構築を行った。グレーティングペアとスリットを用いた光学系により励起光源のスペクトル制御を行い、さらに、波長変換特性の高精度な評価のため、二つの共振器モード波長の光を独立して生成・制御できるように光学系の改善を行った。四光波混合信号の時間応答特性と信号スペクトルを測定し、波長変換信号の総合的な評価を行った。

## 4. 研究成果

### (1) 歪緩和バリア層に埋め込んだ量子ドット層を含む結合共振器の四光波混合信号

歪緩和バリア層に埋め込んだ量子ドット層を含む単一の共振器構造に対して、四光波混合信号の観測を行い、量子ドットによる信号の増大を確認した。さらに、共振器層の中央に薄い格子歪緩和バリア層となる InGaAs 層を設け、その中央に Er ドープの InAs 量子ドットを挿入した共振器構造を作製し、その透過率変化の時間分解測定結果(図 1)から 1ps 程度の超高速応答信号を確認した。

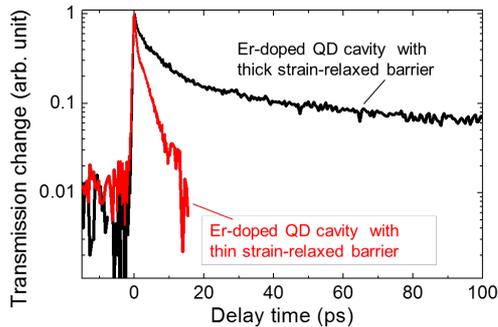


図 1 . 薄い歪緩和層に埋め込んだ量子ドットを含む共振器構造の透過率変化の時間プロファイル

### (2) GaAs 共振器層の三結合共振器構造の四光波混合信号

三結合共振器構造の基本的な非線形光学応答を調べるため、非線形媒質として GaAs 層を共振器層とする三結合共振器構造を作製し、四光波混合信号を観測した。図 2 はその入射光と四光波混合信号のスペクトルを示す。この実験において得られた波長変換された四光波混合信号は縮退四光波混合信号と比べて理論的に予想されるよりかなり弱かった。その原因を探求し、第三の共振器モード波長が波長変換光と正確に等しくないためであり、それは結晶成長時における DBR の膜厚のわずかな不均一性による共振器層の実効光路長の不均等性から生じるものであることを明らかにした。大きな四光波混合信号を得るためには共振器モードの波長間隔が一致するだけでなく、三つの共振器層の

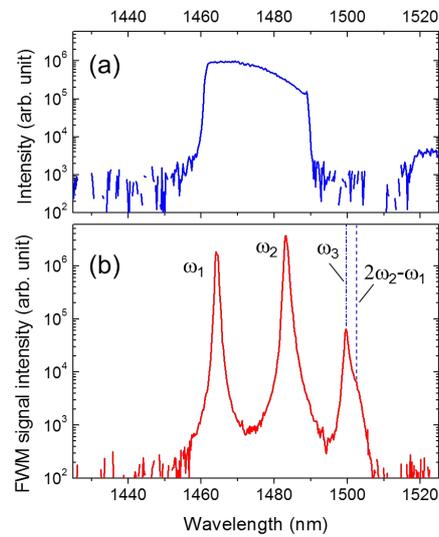


図 2 . (a)入射光スペクトルと(b)四光波混合信号スペクトル

実効光路長が等しいことが重要であることを明らかにした。

### (3) 歪緩和バリア層に埋め込んだ量子ドットを含む三結合共振器の四光波混合信号

薄い格子歪緩和 InGaAs バリア層に埋め込んだ InAs 量子ドット層を一つの共振器層の中央に挿入した構造の三結合共振器を作製した。MBE 成長の際に、InAs 量子ドット層を含む共振器層の AlAs 層部分の基板回転を止めることによって意図的に膜厚分布を導入し、共振器層の実効光路長の変化に対する共振器モード波長の変化について調べ、三結合共振器特性の膜厚依存性を実験的に明らかにするとともに、共振器層の実効光路長が等価な三結合共振器を作製した。図 3 に反射スペクトルと隣り合う共振器モードの波長差のウエハ内分布を示す。

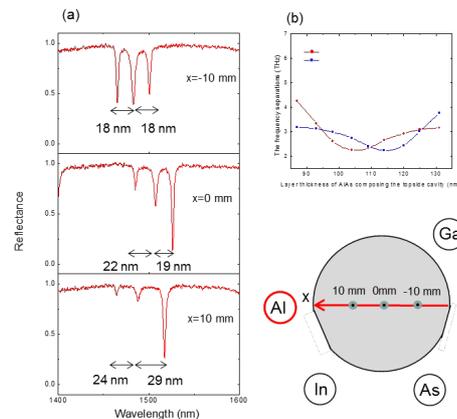


図 3 . (a)反射スペクトルのウエハ内分布と(b)隣り合う共振器モードの波長差の場所依存性

この三結合共振器構造の四光波混合信号の強度は、わずか一層の InAs 量子ドット層であるにも関わらず、厚さ約 110nm の GaAs 共振器層の場合とほぼ同等の超高速応答を示すことが観測され、量子ドット層は大きな非線形効果を示すことが確認できた。図 4 に示すように、二つの共振器モードの波長のみを含む入射光による四光波混合信号のスペク

トル測定では、縮退四光波混合の信号のみが観測されており、GaAs 共振器層の場合に観測された波長変換信号が観られなかった。

この原因を探求したところ、縮退四光波混合信号は同じ波長の入射光があるため可飽和吸収によって透過するが、波長変換光は量子ドットによる吸収が大きく影響していることが分かった。

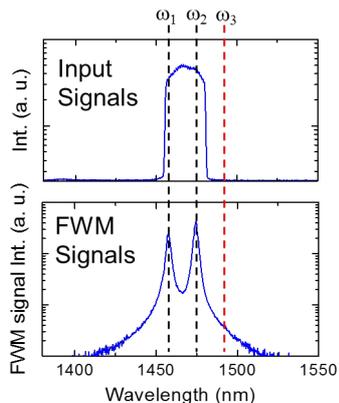


図4．入射光スペクトルと四光波混合 (FWM) 信号のスペクトル

(4)透明領域の量子ドットを含む三結合共振器の四光波混合信号

波長変換光の吸収を避けるため、1.5 $\mu\text{m}$ 帯に吸収を持ち超高速キャリア緩和を示すInAs 量子ドットに替えて、1.5 $\mu\text{m}$ 帯が透明領域となる GaAs 上の InAs 量子ドットを含む三結合共振器構造を作製した。この量子ドットは層数を増やしても良好な共振器構造が作製可能であるので、非線形効果を高めるために9層の量子ドット層を2 共振器層に挿入する構造とした。また、前述のように結晶成長時にウエハ内に膜厚分布を付け、反射率スペクトルの面内分布を測定した。図5にウエハ内の様々な点での反射スペクトルを示す。赤線で示したスペクトルは共振器モードの波長が等間隔となっており、この場所は光学的に等価な三つの共振器層を持つ三結合共振器構造ができていることが確認された。

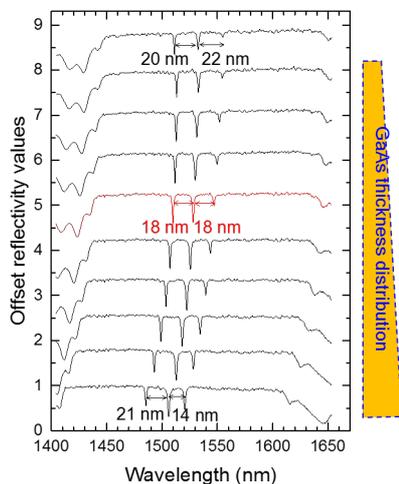


図5．共振器層に膜厚分布のあるウエハ内の様々な点の反射スペクトル

測定光学系を、二つの波長制限系を用いて二つの励起光を独立に波長制御できるように改良し、四光波混合信号の測定を行った。図6に透過スペクトルと、異なる二波長の励起光スペクトル、および四光波混合信号スペクトルを示す。遅延時間-2psで観測されている信号は、遅延時間に依存しない励起光の散乱光であり、測定系の調整不足に基づくものである。遅延時間0 psでのスペクトルに於いて、明瞭に波長変換信号が観測されていることがわかり、この構造で超高速波長変換素子の実現可能であることが確認できた。

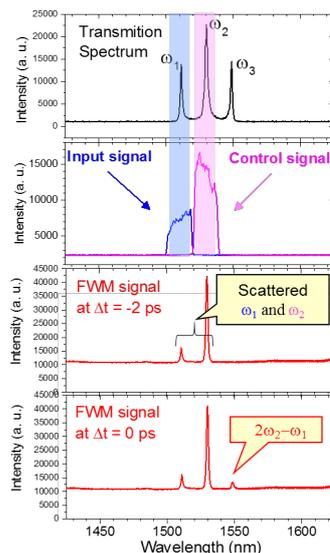


図6．三結合共振器構造の等価スペクトルと異なる二波長の励起による四光波混合信号の測定結果

(5)量子ドットの特性改善

歪緩和InGaAsに埋め込んだInAs量子ドットの超高速キャリア緩和と低速緩和成分の低減をErドーブと適切な結晶成長条件により実現した。非線形光学応答特性の向上にむけて、AlAsキャップ層を導入したGaAs上InAs量子ドットの特性を調べた。濡れ層からの発光が減少し、量子ドットからの発光特性が大きく改善することが分かった。(図7) またInGaAsバリア層の効果、発光の温度依存性などの種々の特性を明らかにした。さらに量子ドット結晶成長時におけるSb照射の効果について調べ、ドット密度と発光スペクトルに与える影響を明らかにした。

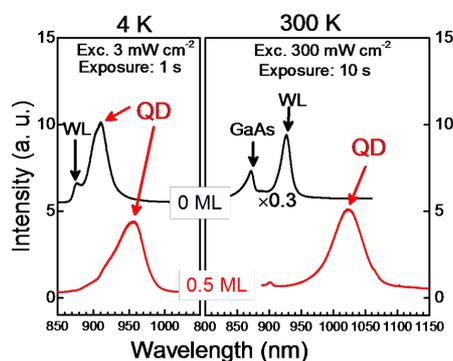


図7．AlAs キャップ層を付けた InAs 量子ドットのフォトルミネッセンススペクトル

## 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 9件)

Masanori Ogarane, Yukinori Yasunaga, Yoshinori Nakagawa, Ken Morita, Takahiro Kitada and Toshiro Isu, “Four-wave mixing in GaAs/AlAs triple-coupled cavity with InAs quantum dots”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 54, 04DG05, (2015), DOI 10.7567/JJAP.54.04DG05, 査読有.

X. M. Lu, S. Matsubara, Y. Nakagawa, T. Kitada, and T. Isu, “Suppression of photoluminescence from wetting layer of InAs quantum dots grown on (113)B GaAs with AlAs cap”, Journal of Crystal Growth, Vol.425, pp.106-109, (2015), DOI 10.1016/j.jcrysgro.2015.02.074, 査読有.

Takahiro Kitada, Yukinori Yasunaga, Yoshinori Nakagawa, Ken Morita, and Toshiro Isu, “Four-wave mixing in a GaAs/AlAs triple-coupled multilayer cavity for novel ultrafast wavelength conversion devices”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 53 No. 4S 04EG03, (2013), DOI 10.7567/JJAP.53.04EG03, 査読有.

Takahiro Kitada, Yukinori Yasunaga, Yoshinori Nakagawa, Ken Morita, and Toshiro Isu, “Wavelength conversion via four-wave mixing in a triple-coupled multilayer cavity”, Applied Physics Letters, Vol.103, 101109, (2013), DOI 10.1063/1.4820813, 査読有.

Takahiro Kitada, Hyuga Ueyama, Ken Morita, Toshiro Isu, “Ultrafast photocarrier relaxation processes in Er-doped InAs quantum dots embedded in strain-relaxed InGaAs barriers”, Journal of Crystal Growth, 378, pp.485-488, (2013), DOI 10.1016/j.jcrysgro.2012.11.005, 査読有.

Ken Morita, Hyuga Ueyama, Yukinori Yasunaga, Yoshinori Nakagawa, Takahiro Kitada, Toshiro Isu, “GaAs/AlAs multilayer cavity with Er-doped InAs quantum dots embedded in extremely thin strain-relaxed InGaAs barriers for ultrafast all-optical switches” Japanese Journal of Applied Physics, **52** (4) 04CG04 (2013), DOI 10.7567/JJAP.52.04CG04, 査読有.

Yukinori Yasunaga, Hyuga Ueyama, Ken Morita, Takahiro Kitada and Toshiro Isu, “Strongly Enhanced Four-Wave Mixing Signal from GaAs/AlAs Cavity with InAs Quantum Dots Embedded in Strain-Relaxed Barriers”, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 52, No. 4, 04CG09, (2013), DOI 10.7567/JJAP.52.04CG09, 査読有.

(学会発表)(計 35件)

盧翔孟, 熊谷直人, 北田貴弘, 井須俊郎, “超高速波長変換素子に向けた InAs 量子ドットを有する GaAs/AlAs 多層膜三結合共振器”, 21p-S621-2, (2016.3.19-22 第63回応用物理学会春季学術講演会 東工大 大岡山キャンパス(東京都目黒区)).

X. M. Lu, A. Kawaguchi, N. Kumagai, T. Kitada, and T. Isu, “Temperature Dependence Photoluminescence From InAs Quantum Dots With AlAs Cap Grown on (311)B and (100) GaAs Substrate”, The 42th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2015), Mo3GN1.5, (2015.6.28-7.2, University of California Santa Barbara, CA USA).

大柄根齊宣, 安長千徳, 中河義典, 森田健, 北田貴弘, 井須俊郎, “InAs 量子ドットを有する GaAs/AlAs 多層膜三結合共振器の四光波混合信号測定”, 18p-A27-3. 2014 年第 75 回応用物理学会秋季学術講演会 (2014.9.17-20 北海道大学札幌キャンパス(北海道札幌市)).

盧翔孟, 川口晃弘, 中河義典, 熊谷直人, 北田貴弘, 井須俊郎, “AlAs キャップ付 InAs 量子ドットのフォトルミネッセンスに対する InGaAs 層の影響”, 18p-A20-16, 2014 年第 75 回応用物理学会秋季学術講演会 (2014.9.17-20 北海道大学札幌キャンパス(北海道札幌市)).

Masanori Ogarane, Yukinori Yasunaga, Yoshinori Nakagawa, Ken Morita, Takahiro Kitada, and Toshiro Isu, “GaAs/AlAs triple-coupled cavity with InAs quantum dots for novel ultrafast wavelength conversion devices”, Fr1-15, 第 33 回電子材料シンポジウム(EMS-33) (2014.7.9-11 ラフォーレ修善寺(静岡県伊豆市)).

X. M. Lu, S. Matsubara, Y. Nakagawa, T. Kitada, and T. Isu, “Reduced wetting layer and enhanced photoluminescence of InAs quantum dots with AlAs cap grown on (113)B GaAs by molecular beam epitaxy”, Th2-14, 第 33 回電子材料シンポジウム(EMS-33) (2014.7.9-11 ラフォーレ修善寺(静岡県伊豆市)).

Xiangmeng Lu, Shuzo Matsubara, Takahiro Kitada, and Toshiro Isu, “Enhanced photoluminescence form InAs quantum dots with a thin AlAs cap layer grown on (100) and (311)B GaAs substrate”, The 41th International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2014), Tu-B3-4, (2014.5.11-15, Montpellier, France).

盧翔孟, 松原修三, 中河義典, 北田貴弘, 井須俊郎, “分子線エピタキシーによる(001)と(113)B GaAs 基板上に成長した InAs 量子ドットのフォトルミネッセンスに与える AlAs キャップの影響”, 18a-E15-1, 第 61 回応用

物理学会春季学術講演会(2014.3.17-20 青山学院大学相模原キャンパス(神奈川県相模原市))。

大柄根齊宣, 安長千徳, 中河義典, 森田健, 北田貴弘, 井須俊郎, “超高速波長変換素子に向けた InAs 量子ドットを有する GaAs/AlAs 多層膜三結合共振器の作製”, 17a-E15-3, 第61回応用物理学会春季学術講演会(2014.3.17-20 青山学院大学相模原キャンパス(神奈川県相模原市))。

井須俊郎, 北田貴弘, 森田健, 盧翔孟, 中河義典, “半導体多層膜結合共振器構造の非線形光学応答とそのデバイス応用”, 第9回量子ナノ材料セミナー(2013.11.5-6 阿南工業高等専門学校(徳島県阿南市))。

北田貴弘, 安長千徳, 中河義典, 森田健, 井須俊郎, “GaAs/AlAs 三結合共振器への波長帯域制限したパルス光照射による四光波混合信号光のスペクトル形状”, 19a-D6-3, 2013年 第74回応用物理学会秋季学術講演会(2013.9.16-20 同志社大学(京都府京田辺市))。

Takahiro Kitada, Ken Morita, and Toshiro Isu, “Molecular Beam Epitaxy of InAs Quantum Dots Embedded in Strain-Relaxed Barriers for Ultrafast Nonlinear Optical Devices”, Collaborative Conference on Crystal Growth (3CG), A7, (2012.12.11-14, Orland, Florida, USA). (Invited)

Takahiro Kitada, Ken Morita, and Toshiro Isu, “Novel semiconductor quantum dots for ultrafast nonlinear optical devices”, International Conference on Emerging Advanced Nanomaterials (ICEAN2012), 4C-1L-6, (2012.10.22-25, Mercure Hotel, Brisbane, Australia). (Invited)

Yukinori Yasunaga, Hyuga Ueyama, Ken Morita, Takahiro Kitada and Toshiro Isu, “Four-wave mixing signal measurements of GaAs/AlAs multilayer cavity with InAs QDs embedded in strain-relaxed barriers”, International Conference on Emerging Advanced Nanomaterials (ICEAN2012), P11-105, (2012.10.22-25, Mercure Hotel, Brisbane, Australia).

Hidetada Komatsu, Zhao Zhang, Yoshinori Nakagawa, Ken Morita, Takahiro Kitada, and Toshiro Isu, “A GaAs/Air multilayer cavity for a planar-type non-linear optical device”, 2012 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2012), PS-7-19, (2012.9.25-27, Kyoto International Conference Center, Kyoto, Japan).

安長千徳, 上山日向, 森田健, 北田貴弘, 井須俊郎, “波長変換機能を実現する GaAs/AlAs 多層膜三結合共振器の四光波混合信号の時間分解測定”, 2012年 秋季第73

回応用物理学会学術講演会, 12a-F1-2, (2012.9.11-14, 愛媛大学(愛媛県松山市))。

北田貴弘, 上山日向, 森田健, 井須俊郎, “歪緩和バリア層に埋め込んだ Er 添加 InAs 量子ドットにおける超高速キャリア緩和の励起波長依存性”, 2012年 秋季第73回応用物理学会学術講演会, 11p-F1-1, (2012.9.11-14, 愛媛大学(愛媛県松山市))。

Y. Yasunaga, H. Ueyama, K. Morita, T. Kitada, and T. Isu, “Strongly enhanced four-wave mixing signal from GaAs/AlAs cavity”, 第31回電子材料シンポジウム(EMS-31) Fr1-8, (2012.7.11-13, ラフォーレ修繕時(静岡県伊豆市))

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.frc.tokushima-u.ac.jp/frc-na/no/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

井須 俊郎 (ISU TOSHIRO)

徳島大学・大学院ツツクサイエンス研究部・特任教授

研究者番号: 00379546

### (2) 研究分担者

北田 貴弘 (KITADA TAKAHIRO)

徳島大学・大学院ツツクサイエンス研究部・特任准教授

研究者番号: 90283738

熊谷 直人 (KUMAGAI NAOTO)

徳島大学・大学院ツツクサイエンス研究部・特任講師

研究者番号: 40732152

盧 翔孟 (LU XIANGMENG)

徳島大学・大学院ツツクサイエンス研究部・特任助教

研究者番号: 80708800

森田 健 (MORITA KEN)

千葉大学・工学研究科・准教授

研究者番号: 30448344

### (3) 連携研究者

なし