

令和 3 年 6 月 11 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K15054

研究課題名（和文）液体原料によるSiN低温再成長技術を用いた超高非線形導波路

研究課題名（英文）High-nonlinearity silicon nitride waveguide deposited by low-temperature LSCVD

研究代表者

高 磊（Kou, Rai）

国立研究開発法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス・製造領域・主任研究員

研究者番号：40650429

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,500,000円

研究成果の概要（和文）：バンドギャップが大きく、多光子非線形吸収の影響を受けにくいSiN導波路を用いることで、高効率かつ広帯域なコヒーレント光の生成を目指すと共に、液体原料によるSiN低温再成長技術を確立し、グラフェンと光伝搬モードの重なりを最大化するための検証を進めた。SiN成膜では、わずか100℃の低温環境において、高速成膜（>100 nm/min）かつ低損失（0.5 dB/cm）を達成し、埋込再成長や多層集積に適した手法を実現した。続いて、逆リブ構造のグラフェン埋込SiN導波路を設計し、非線形パルス伝搬シミュレーションや素子作製、基礎光学評価まで本年度中に終えた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光周波数コムは周波数軸上で規則正しく並んだ「光のモノサシ」であり、幅広い科学や産業分野に変革をもたらす重要な光技術である。長さの国家標準（特定標準器）が近年に光コム発生源をもって置き換えられたほか、光格子時計を利用した高精度な時刻標準の生成にも光周波数コム技術は欠かせず、今後身近な電子機器や通信技術へ波及する見込みである。一方で、既存の光コム装置は大型固体レーザもしくはファイバレーザが主流であり、消費電力、筐体サイズおよび作製コストなどの課題が山積している。本研究では、独創的な超高非線形導波路による高効率光コム発生源の基盤技術構築を目標とする。

研究成果の概要（英文）：The SiN waveguide, which has a large band gap and less susceptible to multi-photon nonlinear absorption, is used to generate highly efficient and broadband coherent light. For SiN deposition, we achieved high deposition speed (>100 nm/min) and low loss (0.5 dB/cm) in a low-temperature environment of only 100°C, making the method suitable for embedded regrowth and multi-layer integration. We designed a geographer-encapsulated SiN waveguide with an inverted rib structure, and completed nonlinear pulse propagation simulations, device fabrication, and several fundamental optical evaluation during this year.

研究分野：光エレクトロニクス

キーワード：SiN導波路 液体原料CVD グラフェン 非線形光学素子 シリコンフォトニクス

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

光周波数コムは周波数軸上で規則正しく並んだ「光のものさし」であり、幅広い科学や産業分野に変革をもたらす重要な光技術である。本技術は様々な分野に波及しており、4半世紀以上使われた長さの国家標準（特定標準器）としてのヨウ素安定化 He-Ne レーザが光コム発生源をもって置き換えられた。さらに、光格子時計を利用した高精度な時刻標準の生成にも本技術は欠かせず、今後身近な電子機器や通信技術への展開を見込む。しかし、既存の光コム装置は大型固体レーザーもしくはファイバレーザーが主流であり、消費電力、筐体サイズおよび作製コストなどの課題が山積し、依然として研究開発の域を脱していない。

光コム発生を発生する原理のひとつとして、既知の周波数をもつ励起光レーザーと高 Q 値共振器の組合せ 3 次非線形光学効果 (Kerr 効果ほか) によるスペクトル帯域拡大が知られる。本原理は、①連続光による励起、② >100 GHz の高繰り返し周波数、③高密度集積可能な素子形態などの特徴を有する。表 1 は Kerr 効果を発揮する代表的な光学材料の非線形光学係数（実部： n_2 、虚部： β_2 ）および線形屈折率 n の比較である。高非線形材料として用いられる Si と比較して、炭素原子の 2 次元層状物質であるグラフェンの非線形屈折率 n_2 は 4~5 桁大きい。これは、線形のバンド分散および共鳴吸収に由来する極めて大きな非線形感受率に基づく。

表 1 SiO₂, Si, SiN, グラフェンの非線形・線形光学特性比

($\lambda=1.55 \mu\text{m}$)	Nonlinear ref. index n_2 [m^2/W]	2-photon abs. β_2 [m/W]	Ref. index n
SiO ₂	2.6×10^{-20}	0	1.46
Si	4.2×10^{-18}	8×10^{-12}	3.46
SiN	2.4×10^{-19}	0	2.0
Graphene	1×10^{-13}	1×10^{-7}	3

2. 研究の目的

本研究の目的は、一般的に使用される Si 導波路から非線形吸収を無視できる SiN 導波路に置き換えることで、より高効率かつ広帯域なコヒーレント光を発生することである。更に、液体原料による SiN 低温再成長技術を確認し、グラフェンと光伝搬モードの重なりを最大化するための検討を行う。

図 1 (A) は過去に我々が研究を進めてきたグラフェン表層装荷 Si 導波路の断面構造である。Si 導波路自身に高い非線形性を有するため、2 光子吸収に代表される効果によってグラフェン領域到達前にピーク強度が低下していた。本研究では、(B) Si より置き換えた同表層装荷 SiN 導波路、更には (C) 本提案となる同埋込 SiN 導波路の断面構造を示す。提案構造 (C) は作製工程上の困難を伴う一方、最大重なり率が得られる。材料の非線形効果を極限まで誘起することで、励起光の入射強度の低減を期待でき、後段の光増幅器を省くことで更なる省電力化および装置構成の簡略化に貢献する。

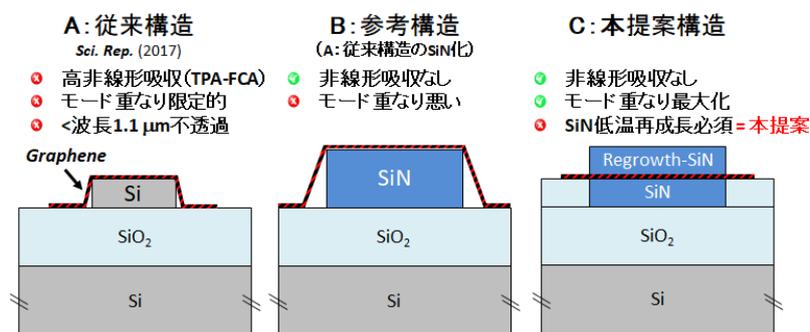


図 2 グラフェン表層装荷 Si 導波路 (A)、同表層装荷 SiN 導波路 (B)、同埋込 SiN 導波路 (C) の断面構造

3. 研究の方法

研究の目的で示した提案構造を実現するためには、液体原料化学気相成長法による SiN 成膜について基礎技術を構築し、その次にグラフェン埋込 SiN 導波路の設計および作製を実施した。以降では、項目 I と II に分割してそれぞれ研究の方法を示す。

I. 液体原料化学気相成長法による SiN 低温成膜

一般的な SiN 成膜では、SiH₄ ガスを原料とするプラズマ化学気相成長 (PECVD) を用いるが、成膜温度は>300 °Cと高く、更に N-H 基吸収 (波長 1.5 μm に倍音共鳴吸収) を削減するために 1100 °C以上のアニール処理が欠かせない。本研究で用いた液体原料 CVD (LSCVD) は、カソードカップリング成膜機構を組み合わせることで低温 (<100 °C) かつ高速 (>100 nm/min) に堆積できる特徴を有する。また、原料に由来する残存 N-H 基が光導波路に影響を及ぼす可能性があるため、定量的分析を行うことで分解反応機構の解明を進める。その後、グラフェン埋込再成長による SiN 導波路の実現をめざす。

II. グラフェン埋込 SiN 導波路

高効率な光コムおよび SC 光を得るには材料および構造分散を異常分散域へ導き、パルス圧縮を伴う複合的な非線形光学効果 (自己位相変調 (SPM) ,四光波混合 (FWM) ,ソリトン分裂ほか) を誘起するよう設計が欠かせない。また、作製プロセスでは化学機械研磨 (CMP) 工程によりグラフェンの形成を容易にするほか、原子層堆積法 (ALD) による保護膜を設ける。

4. 研究成果

I. 液体原料化学気相成長法による SiN 低温成膜

液体原料の一種である SN-2 を導入し、LSCVD 装置によって成膜を実施した。プラズマ中のイオンエネルギー制御が可能なカソードカップリング方式を採用し、自己バイアスによる低温および高速成膜を特徴とする。さらに、面内均一性や被覆性が優れ、SiN 膜の応力を制御できることを確認した。続く、SiN 薄膜の物性分析では、広帯域 (波長 : 0.25~3.0 μm) 角度分解分光エリプソ装置により波長分散測定を行った結果、屈折率 1.85~1.90 の SiN 膜が得られた。続いて、水素前方散乱/ラザフォード後方散乱 (HFS/RBS) ,およびフーリエ赤外吸収分光 (FT-IR) による材料物性分析により、残存する N-H 基密度が 10²¹ cm⁻³に達していることが判明し、波長 1.52 μm 付近において光吸収帯域が存在することを予測した。実際に光導波路加工の後、広帯域 SLD 光源による損失評価結果を図 3 に示す。SiN 導波路の伝搬損失は波長 1.55 μm において 7 dB/cm の損失を与える一方、波長 1.3 μm や 1.65 μm では約 0.5 dB/cm 程度の低損失導波路を実現した。

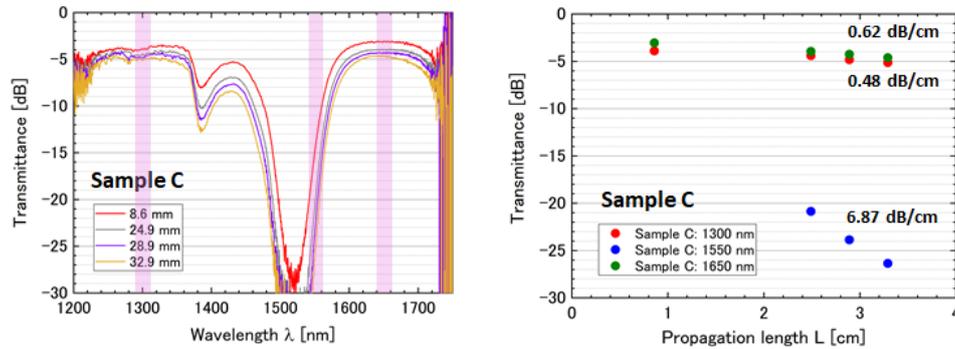


図 3 LSCVD 成膜した光導波路の透過スペクトルと損失評価結果

II. グラフェン埋込 SiN 導波路

グラフェン埋込化を行うことで光モード重なり係数がどの程度向上するかについて、はじめに数値計算を実施した。図 4 はグラフェン表層装荷 SiN 導波路、および同埋込 SiN 導波路における、伝搬光モード (TE モード) の電界振幅分布である。導波路幅 1.6 μm x 高さ 1.0 μm (屈折率 n: 1.85, 波長 1.55 μm) が最適であることを突き止め、約 8 倍程度の重なり効率改善を見込んだ。

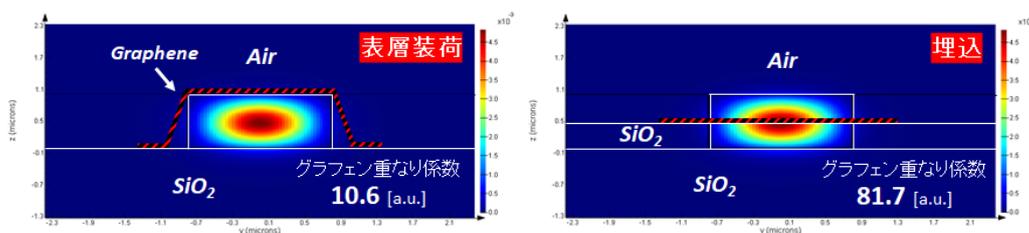


図 4 グラフェン表層装荷 SiN 導波路 (上), 同埋込 SiN 導波路 (下)

続いて、本埋込 SiN 導波路における広帯域光特性を見積もるため、短パルス励起光 (波長 1.56

μm , パルス幅 80 fs) を組み合わせた SC 光発生シミュレーションを行った。図 5 はスプリットステップフーリエ-非線形シュレディンガー方程式解析 (SSFM-NLSE) 法によるスペクトル帯域拡大を示す数値計算結果であり、それぞれ入射パルスの時間発展とスペクトル発展を左右に示す。相互作用長わずか 2 mm, ポンプ光強度 2 kW (ピーク値) において、波長 0.5–4 μm に及ぶ超広帯域発生が得られる。

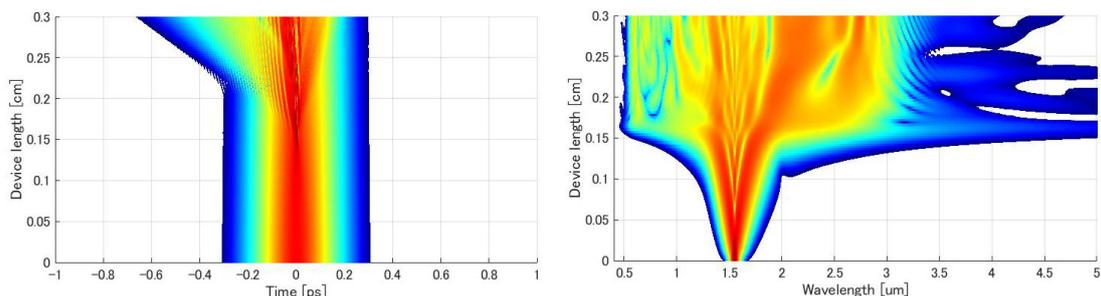


図 5 グラフェン埋込 SiN 導波路によるスペクトル帯域拡大の数値解析結果

実際の素子作製プロセスでは、SiN によって構成される光導波路の光閉じ込めは Si の場合と比較して弱く、約 1 μm の段差が発生することから、グラフェン転写前の平坦化研磨加工が必要である。本課題に対し、SiO₂ オーバークラッド層成膜後に化学機械研磨 (CMP) 工程を新たに導入した。続いて、独自開発のグラフェンの転写/加工技術を適用することで、所望の素子が完成している。グラフェンへ欠陥を及ぼさない成膜や保護条件を探索した結果、ALD 法による 10 nm 未満の Al₂O₃ 成膜によってグラフェンの特性を維持できることを発見した。現在、本埋込 SiN 導波路のパッシブ光学評価を実施しており、グラフェンによる線形吸収係数は表層装荷時比較で 20 倍以上の効果が得られていることから原因解析に注力している。一連の原因解析および更なる改良を終えた後に広帯域光コム発生実験へ移行予定である。また、当初計画外の成果として、本素子は >70 dB/mm の偏波消光比を有することが判明しており、集積型偏光子としての利用も検討している。

Si および SiN 材料による光コム/SC 光発生に関する報告は近年急増している。本研究で得られる知見や成果は将来的な小型光コム発生器へ向けた第一歩であり、増幅器を必要としない高効率化および集積化を含む小型光源の実現へ向けて継続して研究を進める予定である。その上で、本研究分野の進展に貢献し、従来の計量や標準応用に加えて環境計測や材料開発、更には超広帯域光通信などの様々な分野で適用を期待したい。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 松田 信幸, 武居 弘樹, 清水 薫, William John Munro, 西 英隆, 福田 浩, 土澤 泰, 高 磊, 山田 浩治, 石澤 淳, 柏崎 貴大, 倉持 栄一, 谷山 秀昭, 納富 雅也, 小熊 学, 井藤 幹隆, 橋本 俊和	4. 巻 J103-C
2. 論文標題 量子情報実験のための光導波路デバイス	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 電子情報通信学会論文誌C	6. 最初と最後の頁 78-85
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 高 磊, 石澤 淳, 松田 信幸, 山田 浩治	4. 巻 48
2. 論文標題 Si集積プラットフォームの非線形光学応用開拓	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 レーザー研究	6. 最初と最後の頁 530-534
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 R. Kou, N. Yamamoto, G. Fujii, T. Aihara, T. Tsuchizawa, A. Ishizawa, K. Hitachi, H. Gotoh, M. Ukibe, K. Yamada	4. 巻 126
2. 論文標題 Spectrometric analysis of silicon nitride films deposited by low-temperature liquid-source CVD	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 133101-133101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5114675	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Y. Yonezu, R. Kou, H. Nishi, T. Tsuchizawa, K. Yamada, T. Aoki, A. Ishizawa, N. Matsuda	4. 巻 27
2. 論文標題 Evaluation of graphene optical nonlinearity with photon-pair generation in graphene-on-silicon waveguides	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 30262-30271
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.27.030262	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 R. Kou, Y. Kobayashi, S. Inoue, T. Tsuchizawa, Y. Ueno, S. Suzuki, H. Hibino, T. Yamamoto, H. Nakajima, K. Yamada	4. 巻 27
2. 論文標題 Dopamine detection on activated reaction field consisting of graphene-integrated silicon photonic cavity	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Optics Express	6. 最初と最後の頁 32058-32068
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1364/OE.27.032058	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

[学会発表] 計10件(うち招待講演 4件/うち国際学会 4件)

1. 発表者名 米津 佑哉, 高 磊, 西 英隆, 土澤 泰, 山田 浩治, 青木 隆朗, 石澤 淳, 松田 信幸
2. 発表標題 グラフェン装荷Si細線光導波路を用いた光子対生成
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 川島 滉太, 石澤 淳, 高 磊, 徐 学俊, 土澤 泰, 相原 卓磨, 西川 正, コン グァンウェイ, 山本 宗継, 山田 浩治, 小栗 克弥
2. 発表標題 分散制御Si3N4導波路を用いた2オクターブ帯域光発生
3. 学会等名 フォトンクス分科会研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高 磊
2. 発表標題 μ -Transfer Printing技術による異種材料光集積回路
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第41回年次大会(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高 磊
2. 発表標題 Si集積プラットフォーム上の広帯域光発生
3. 学会等名 第6回超光速光エレクトロニクス研究会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 川島 滉太, 石澤 淳, 高 磊, 徐 学俊, 土澤 泰, 相原 卓磨, 西川 正, コン グァンウェイ, 山本 宗継, 山田 浩治, 小栗 克弥
2. 発表標題 SiN導波路の分散制御による非常に簡便な キャリアエンベロープオフセット周波数検出
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 R. Kou
2. 発表標題 Hybrid Integration on Silicon Photonic Platform Enabled by Thin-layer Transfer Technology
3. 学会等名 IWOO 2019（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Kou, N. Yamamoto, G. Fujii, T. Aihara, T. Tsuchizawa, A. Ishizawa, K. Hitachi, H. Gotoh, M. Ukibe, K. Yamada
2. 発表標題 100 oC deposited transparent silicon nitride film for O-band photonic applications
3. 学会等名 MOC 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Crepalidi, A. Ishizawa, R. Kou, T. Aihara, T. Tsuchizawa, N. Yamamoto, K. Hitachi, K. Yamada, and H. Gotoh
2. 発表標題 Supercontinuum generation in silicon-nitride waveguides pumped at telecommunications wavelengths
3. 学会等名 ISNTT 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高 磊
2. 発表標題 転写技術に基づく異種材料集積光デバイス
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第40回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 A. Ishizawa, K. Kawashima, R. Kou, X. Xu, T. Tsuchizawa, T. Aihara, K. Yoshida, T. Nishikawa, K. Hitachi, G. Cong, N. Yamamoto, K. Yamada, K. Oguri
2. 発表標題 Simple method of carrier-envelope-offset locking with f-3f self-referencing solely by a dispersion-controlled silicon-nitride waveguide
3. 学会等名 CLEO Europe 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

2020年度 レーザー学会 奨励賞

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------