

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 23 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26600116

研究課題名(和文) 強誘電体結晶ナノ光導波路形成とナノ集積非線形量子フォトニックデバイス実現の研究

研究課題名(英文) Study on implementation of ferroelectric crystal nano-waveguides and nano-integrated nonlinear quantum photonic devices

研究代表者

栖原 敏明 (Suhara, Toshiaki)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：90116054

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：強誘電体結晶ナノ光導波路形成と非線形光学デバイス実現に関する実験的研究を行った。表面活性化直接接合、Heイオン注入スライス、プロトン交換増速化学エッチングによりLiNbO<sub>3</sub>チャンネル導波路を形成する技術確立し、断面積0.7×1.0平方マイクロメートルで従来より約1桁大きな非線形光学結合係数を持つ導波路を作製した。また電荷制御電圧パルス印加分極反転による擬似位相整合(QPM)構造形成法を適用し、ナノ導波路QPM非線形光学波長変換デバイスを作製した。さらに高光損傷耐性のMgO:c-LiTaO<sub>3</sub>や紫外光透過域の広いLaBGeO<sub>5</sub>などの新結晶において、導波路やQPM構造の形成とデバイス応用などの成果を得た。

研究成果の概要(英文)：Experimental work was performed on the titled subject. Techniques were established for formation of LiNbO<sub>3</sub> channel waveguides by surface-activated direct bonding, slicing with He ion implantation and proton-exchange-accelerated chemical etching. Channel waveguides of 0.7×1.0 squared micron cross section and a nonlinear-optic coupling coefficient one order of magnitude larger than that of conventional waveguides were obtained. Formation of quasi-phase matching (QPM) structures was accomplished by domain inversion with charge-controlled pulse voltage application to implement nano-waveguide QPM nonlinear optic wavelength conversion devices. The results include formation of waveguides and QPM structures in new crystals MgO:c-LiTaO<sub>3</sub> with high optical damage resistance and LaBGeO<sub>5</sub> with wide ultraviolet transparency range.

研究分野：集積光電子デバイス

キーワード：光制御 非線形光学デバイス

## 1. 研究開始当初の背景

強誘電体結晶を用いた導波型非線形光学デバイスは1980年代から光メモリ用波長変換光源実現を目指した研究がなされ、近年は波長多重光通信やレーザディスプレイへの応用を目指した開発がなされ、研究開始当初までに実用化も達成され、商品化開発が活発化していた。一方、研究者の興味は将来の量子情報分野への応用に向けられるようになった。単一光子検出用波長変換器、光子対発生器など量子光学機能デバイスの研究が活発化し、高度集積化による量子情報処理用光回路の構想も提案された。これらの応用には各要素の低パワー動作、高効率、超小型化が求められる。

この分野は導波路形成と擬似位相整合(QPM)用周期分極反転構造形成の技術を柱としている。前者はTi拡散とプロトン交換が標準的技術として多用されるが欠点もあり、結晶接着・研磨による薄板結晶導波路が有望視されるようになった。近年、欧州(独、仏、瑞)で、イオン注入による結晶薄板化(イオンスライス)技術の適用により導波路を形成し、電気光学デバイスやフォトニック結晶を実現する研究がなされ、非線形光学デバイスに応用する研究も始められた。後者は種々の研究がなされてきたが実用性の高いMgO:LiNbO<sub>3</sub>結晶では、これまで実現された構造の周期は数ミクロン以上であった。

代表者らはこの分野の理論的・実験的研究を20余年続けてきたが、いち早く量子光学機能実現を目指して提唱した『量子フォトニックデバイス』の研究に取り組み、各種量子エンタングル光子対発生デバイス実現などの先駆的な成果を得てきた。また本課題の研究に先立って、新イオンスライス結晶接合導波路形成、MgO:LiNbO<sub>3</sub>結晶における1ミクロン周期QPM構造形成などの実験的成果を得た。

本研究は上記の新たな潮流と実績のもとに着想を得たものであり、独自の最近の萌芽的成果を融合発展させようとする研究である。

## 2. 研究の目的

本研究は、代表者らのこれまでの強誘電体結晶導波型擬似位相整合非線形光学デバイスの理論的・実験的研究の成果を基盤として、最近の基礎検討で得た着想により、金属膜介在直接接合・結晶イオンスライスの技術によりナノメータ(サブミクロン)断面幅の強閉じ込めナノ光導波路を形成し、ナノ領域を含めた広範な周期の擬似位相整合(QPM)用周期分極反転構造を形成する技術を開発・確立し、超小型高効率波長変換デバイス、超小型量子エンタングル光子対発生デバイス、対向伝搬光子対発生デバイスやミラーレスパラメトリック光発振器など、新概念の非線形量子光学デバイス(ナノ量子フォトニックデバイス)の実現に挑戦するとともに、これらを構

成要素とする高度集積化デバイス構築への筋道を明らかにすることを目的とした。

## 3. 研究の方法

強誘電体結晶MgO:LiNbO<sub>3</sub>を用いて独自の金属膜直接接合/イオンスライスの技法により強閉じ込めナノ光導波路を形成し、その内部にナノ周期の擬似位相整合(QPM)用分極反転構造を形成する技術を確立し、これらを組み合わせることにより新概念の構造と新規な機能を持つ量子フォトニックデバイスを実現する技術を開拓するために、実験的な研究を行った。これまでの研究により整備してきた電子ビーム描画装置、イオンエッチング装置、各種薄膜堆積装置、表面活性化直接接合装置、結晶切断・研磨装置、周期分極反転構造形成用電圧パルス印加装置、各種顕微鏡、各種レーザ光源、光学実験装置、汎用光学測定装置などを有効活用して効率的に研究推進した。初年度に、既に予備的結果を得ていた手法に新たな代替候補手法を組み合わせ比較検討・改善することにより、ナノ導波路と微細周期QPM構造を形成する要素技術の確立を目指した。次年度には、ナノ導波路とQPM構造の基礎特性を実験的に評価した。また新デバイスの例として高効率光第2高調波発生デバイスと光通信波長帯光子対発生デバイスを取り上げ、デバイスの理論設計と試作を行い、実験による機能実証に取り組んだ。代表者による総括と実質的推進のもとに、大学院生が分担協力して研究を実施した。また企業研究者との連携により、新規結晶材料のMgO(8mol%):LiTaO<sub>3</sub>やLaBGeO<sub>5</sub>の基礎特性評価とデバイス化技術の検討を行った。

## 4. 研究成果

強誘電体結晶ナノ光導波路形成とナノ集積非線形量子フォトニックデバイスの実現に関する実験的研究を行い、基礎的な成果が得られた。主な成果は以下のように要約される。

### (1) ナノ薄膜結晶導波路

(薄膜結晶/SiO<sub>2</sub>膜/金属薄膜/基板結晶)構造のMgO:LiNbO<sub>3</sub>結晶ナノ薄膜結晶導波路を作製する技術を改善した。独自の金属膜表面活性化直接接合と高速Heイオン注入によるイオンスライスの手法において、イオン注入シミュレーション、作製条件最適化による再現性改善により、厚さ0.5~1.0μmの薄膜結晶導波路を作製する技術を開発できた。

### (2) チャネル結晶導波路

イオンスライス薄膜結晶導波路(薄膜LiNbO<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>/Au/LiNbO<sub>3</sub>構造)を微細加工してチャネル導波路を形成する技術の開発に取り組んだ。Arイオンエッチングによる作製において、電子ビーム直接描画への切替え、エッチング条件最適化により特性改善を行った。

また並行して、電子ビーム描画 Cr マスクを用いるプロトン交換増速化学エッチングによるリッジ形成法を初めて薄膜結晶に適用し、条件最適化して断面積  $0.7\mu\text{m} \times 1.0\mu\text{m}$ 、長さ  $6\text{mm}$  で、約  $8\text{W}^{-1/2}\text{cm}^{-1}$  と従前の導波路より約 1 桁大きな非線形光学結合係数を持つリッジ型強閉込め導波路の作製に成功した。その断面 SEM 写真と導波モードパターンを図 1 に示す。理論予測に近い閉込めと損失  $6\text{dB/cm}$  の良好な導波特性を得た。

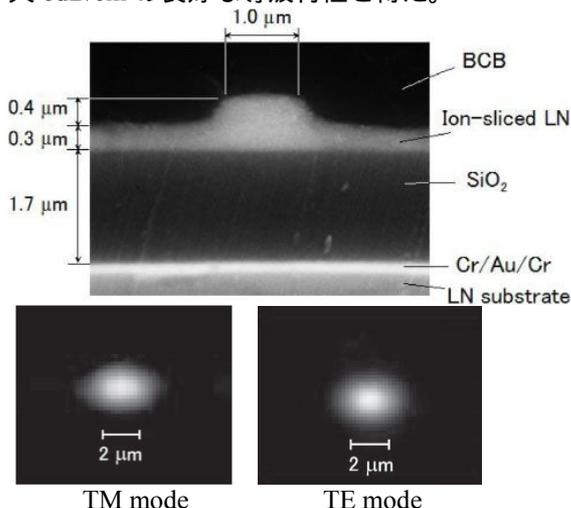


図 1 リッジ型強閉込めチャンネル導波路の断面 SEM 写真と導波モードパターン

### (3) 周期分極反転 QPM 構造の非破壊観察

LiNbO<sub>3</sub> 結晶に周期分極反転で形成した擬位相整合 (QPM) 構造の構造評価の手法として、走査型電子顕微鏡による非破壊観察、およびエリア限定マイクロ化学エッチングによる局所観察の手法を確立した。

### (4) 薄膜結晶導波路内 QPM 構造の形成

薄膜結晶導波路 (薄膜 LiNbO<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>/Au/LiNbO<sub>3</sub> 構造) の上に形成した周期電極を通じて電圧パルスを電荷量自動制御印加して分極反転する独自の技術の確立を目指した。イオンスライス薄膜結晶導波路においては、既知のバルク結晶反転抗電界から算出した値より大幅に低い電圧で分極反転が生じることなど新たな知見が得られ、印加電圧を最適化することにより周期約  $1.8\mu\text{m}$  までの QPM 構造を形成できるようになった。得られた構造をエッチングにより可視化して観察した顕微鏡写真を図 2 に示す。更なる短周期化と一様性改善および面積拡大が今後の課題である。

### (5) ナノ導波路非線形光学波長変換デバイス

断面積  $0.7\mu\text{m} \times 1.0\mu\text{m}$  のリッジチャンネル導波路を用いた波長  $1.55\mu\text{m}$  帯励起の光第 2 高調波発生デバイスと  $1.55\mu\text{m}$  帯光子対発生デバイスを設計した。イオンスライス薄膜結晶

導波路上に電子ビーム描画形成した櫛型電極を通じて電荷量自動制御電圧パルスを印加して周期  $3.5\mu\text{m}$  の QPM 構造を形成した後にリッジ型導波路を形成してナノ導波路 QPM 非線形光学波長変換デバイスを作製した。このデバイスの顕微鏡写真を図 3 に示す。

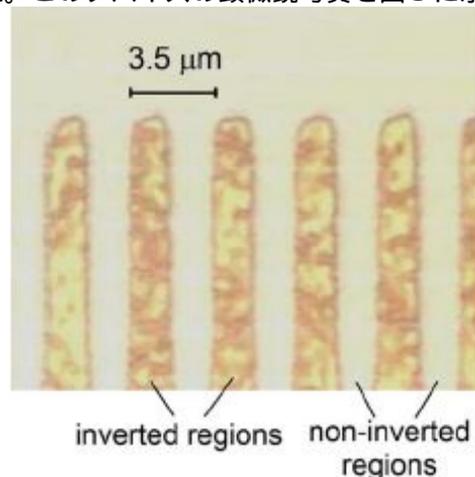


図 2 イオンスライス薄膜結晶導波路内に形成した周期分極反転構造

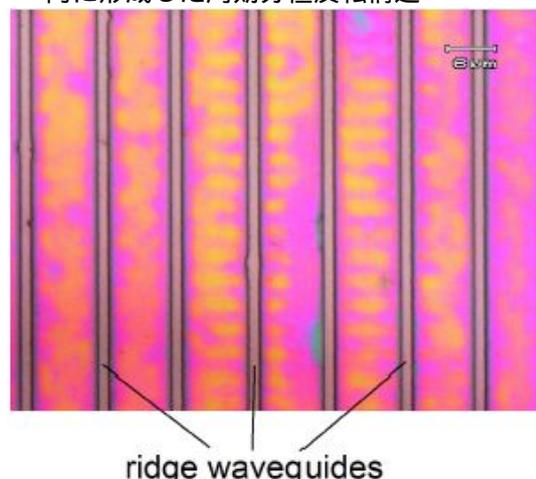


図 3 イオンスライス薄膜結晶に周期分極反転構造とチャンネル導波路を形成して作製したナノ導波路非線形光学波長変換デバイス

### (6) 新結晶の分極反転構造形成・導波路形成

高光損傷耐性結晶として最近開発され入手可能となった MgO(8mol%)添加 c-LiTaO<sub>3</sub> において、QPM 構造の作製と一様性改善、電気光学変調器への応用、アニールプロトン交換導波路の初めての作製、偏波変換型電気光学変調器、導波型光第 2 高調波発生デバイス、紫外和周波発生デバイスへの応用などの成果を得た。また紫外光透過特性に優れた新強誘電体結晶 LaBGeO<sub>5</sub> における QPM 構造形成の初期的成果を得た。

以上の成果は結晶イオンスライス技術、直接接合技術と微細エッチング技術で作製した強閉込め導波路を用いた集積非線形量子

フォトニックデバイスの技術的基礎を構築するものと評価され、学会の奨励賞を受けるなど研究者の関心を集めている。また QPM 構造の走査型電子顕微鏡による非破壊観察や、新結晶の分極反転構造形成・導波路形成技術の開発など、当初計画には含めていなかった成果も得られ、今後の発展が期待される。しかし当初目標としたデバイスの機能実証は達成できていないので、今後も更に研究を継続する必要がある。

## 5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 18 件)

T.Oka and T.Suhara: “Fabrication of short-period poled structures and UV sum-frequency generation in 8 mol% MgO-doped congruent LiTaO<sub>3</sub> crystal,” Jpn. J. Appl. Phys., vol. 55, 040304-1-3, 2016, 査読有 DOI:<http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.55.040304>.

M.Okazaki and T.Suhara: “High-performance 1024-pixel EO spatial light modulator using cascaded periodically-poled Raman-Nath gratings,” J. Lightwave Tech., vol.33, No.24, pp.5195-5200, Dec. 15, 2015, 査読有 DOI: 10.1109/JLT.2015.2496999.

K.Tanaka and T.Suhara: “Fabrication of 0.7 $\mu\text{m}^2$  ridge waveguide in ion-sliced LiNbO<sub>3</sub> by proton-exchange accelerated chemical etching,” Jpn. J. Appl. Phys., vol. 54, 128002-1-3, 2015, 査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.128002>.

T.Oka and T.Suhara: “Annealed proton-exchanged waveguide quasi-phase-matched second-harmonic generation devices in 8 mol% MgO-doped congruent LiTaO<sub>3</sub>,” Jpn. J. Appl. Phys., vol. 54, 100304-1-3, 2015, 査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.100304>.

M.Okazaki, T.Chichibu, S.Yoshimoto, H.Mizuno and T.Suhara: “Electrooptic spatial light modulator using periodically-poled MgO:s-LiTaO<sub>3</sub> waveguide,” IEEE Photon. Tech. Lett., vol.27, no.15, pp.1646-1648, 2015, 査読有 DOI: 10.1109/PTL.2015.2433313.

T.Oka and T.Suhara: “Fabrication of periodically-poled structures in 8mol% MgO-doped congruent LiTaO<sub>3</sub> crystal and green second harmonic generation,” Jpn. J. Appl. Phys., vol. 54, 070310-1-3, 2015, 査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.070310>.

A.Saha and T.Suhara: “Two-wavelength lasing of ring / Fabry-Perot composite cavity semiconductor lasers,” Jpn. J. Appl. Phys., vol. 54, 070307-1-4, 2015, 査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.070307>.

M.Okazaki, T.Chichibu, S.Yoshimoto, H.Mizuno and T.Suhara: “Fabrication and evaluation of deep proton-exchanged and annealed waveguide in MgO:s-LiTaO<sub>3</sub>,” Jpn. J. Appl. Phys., vol.54, 070301-1-3, 2015, 査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.070301>.

K.Tanaka and T.Suhara: “Nondestructive observation of ferroelectric domain-inverted structures in MgO:LiNbO<sub>3</sub> by scanning electron microscope,” Electron. Lett., vol.51, no.12, pp.923-925, 2015, 査読有 DOI:なし.  
T.Inoue, D.Kuwamura and T.Suhara: “Electro-optic polarization conversion type modulator using periodically poled 8 mol% MgO doped congruent LiTaO<sub>3</sub>,” Appl. Phys. Express, vol. 8, 062601-1-3, 2015, 査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.7567/APEX.8.062601>.

A.Saha, M.Uemukai and T.Suhara: “Single-mode operation of GaAsP ring Fabry-Perot composite cavity semiconductor lasers,” Jpn. J. Appl. Phys., vol.54, 060302-1-4, 2015, 査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.060302>.

M.Uemukai, S.Terai and T.Suhara: “InGaAs ridge-waveguide distributed Bragg reflector laser with first-order grating fabricated by nanoimprint lithography,” Jpn. J. Appl. Phys., vol.54, 058002-1-3, 2015, 査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.058002>.

H.Seo, and T.Suhara: “Polarization-selective directional coupler using Ti-indiffused MgO:LiNbO<sub>3</sub> waveguides,” Jpn. J. Appl. Phys. vol.54, 058001-1-3, 2015, 査読有 DOI: <http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.54.058001>.

T.Inoue and T.Suhara: “High-performance electro-optic polarization conversion type modulator for short-wavelength light using periodically poled MgO:LiNbO<sub>3</sub>,” Electron. Lett. Vol.50, No.22, pp.1622-1624, 2014, 査読有 DOI:10.1049/el.2014.2848.

M.Okazaki and T.Suhara: “Electro-Optic Raman-Nath modulator using cascaded periodically-poled gratings,” IEEE Photon. Tech. Lett., vol.26, no.23, pp.2334-2336, 2014, 査読有 DOI: 10.1109/LPT.2014.2355913.

T.Inoue and T.Suhara: “Fabrication of MgO:LiNbO<sub>3</sub> domain-inverted structures with short period and application to electro-optic Bragg deflection modulator,” IEIC E Trans. Electron., vol.E97-C, No.7, pp.744-748, 2014, 査読有 DOI:10.1587/transele.E97.C.744.

A.Saha, M.Uemukai and T.Suhara: “InGaAs circular-grating-coupled surface emitting laser with focusing function fabricated by electron-beam writing with circular scanning,” Opt. Rev., vol. 21, no. 3,

pp.206-209, 2014, 査読有 DOI:なし.  
大森豊, 栖原敏明: “通信波長帯用 Ti 拡散 MgO:LiNbO<sub>3</sub> チャネル両偏波光導波路の作製と特性評価,” レーザー研究, vol.42, No.5, pp.412-416, 2014, 査読有 DOI:なし.

[学会発表](計21件)

渡辺雄太, 栖原敏明: “2周期分極反転導波路型 Type-II 擬似位相整合ポストセレクションフリー偏波エンタングル光子対発生デバイスの量子干渉実験,” 平成28年春季第63回応用物理学会学術講演会, 21p-S321-11, 2016年3月19日~22日, 東京工業大学.

岡寿治, 栖原敏明: “MgO(8mol%)添加 c-LiTaO<sub>3</sub> 周期分極反転構造による 355nm 紫外光と周波発生,” 平成28年春季第63回応用物理学会学術講演会, 21a-S611-7, 2016年3月19日~22日, 東京工業大学.

沖野行佑, 栖原敏明: “電圧印加による LaBGeO<sub>5</sub> 結晶周期分極反転構造作製の基礎検討,” 平成28年春季第63回応用物理学会学術講演会, 21a-S611-6, 2016年3月19日~22日, 東京工業大学.

K.Tanaka and T.Suhara: “Fabrication of domain inverted ridge waveguide in ion-slices LiNbO<sub>3</sub> for wavelength conversion devices,” 20th Microoptics Conference (MOC'15), H61, Fukuoka, Japan, Oct.25-28, 2015.

T.Inoue and T.Suhara: “Electro-optic polarization conversion type modulator using domain-inverted 8 mol% MgO doped congruent LiTaO<sub>3</sub>,” 20th Microoptics Conference (MOC'15), L4, Fukuoka, Japan, Oct.25-28, 2015.

M.Okazaki and T.Suhara: “EO Raman-Nath spatial light modulator with 1024 pixels using cascaded periodically-poled three-stage gratings,” 20th Microoptics Conference (MOC'15), L3, Fukuoka, Japan, Oct.25-28, 2015.

T.Oka and T.Suhara: “Fabrication of periodically-poled structures in MgO(8mol%):c-LiTaO<sub>3</sub> crystal and waveguide SHG devices,” 20th Microoptics Conference (MOC'15), L2, Fukuoka, Japan, Oct.25-28, 2015.

M.Uemukai and T.Suhara: “GaAsP tunable distributed Bragg reflector laser with ITO thin-film heater,” 20th Microoptics Conference (MOC'15), G5, Fukuoka, Japan, Oct.25-28, 2015.

渡辺雄太, 栖原敏明: “2周期分極反転導波路型 Type-II 擬似位相整合ポストセレクションフリー偏波エンタングル光子対発生デバイスの作製と実験,” 平成

27年秋季第76回応用物理学会学術講演会, 15a-4D-7, 2015年9月13日~16日, 名古屋国際会議場.

岡寿治, 栖原敏明: “MgO(8mol%)添加 c-LiTaO<sub>3</sub> 周期分極反転構造を用いた導波路型擬似位相整合第2高調波発生デバイスの作製と評価,” 平成27年秋季第76回応用物理学会学術講演会, 14p-2G-7, 2015年9月13日~16日, 名古屋国際会議場.

田中圭介, 栖原敏明: “接合イオンスライス LiNbO<sub>3</sub> 結晶におけるプロトン交換増速エッチングによるリッジ光導波路の作製・評価およびデバイス応用,” 平成27年秋季第76回応用物理学会学術講演会, 14p-2G-1, 2015年9月13日~16日, 名古屋国際会議場.

K.Tanaka and T.Suhara: “Fabrication of 0.7μm<sup>2</sup> ridge waveguides in ion-sliced LiNbO<sub>3</sub> by proton-exchanged accelerated etching,” Conf. Laser and Electro-Optics Pacific Rim, 26I1-5, BEXCO, Busan, Korea, August 24-28, 2015.

岡寿治, 栖原敏明: “MgO(8mol%)添加 c-LiTaO<sub>3</sub> アニールプロトン交換導波路の作製,” 平成27年春季第62回応用物理学会学術講演会, 13a-A13-7, 2015年3月11日~15日, 神奈川県平塚市.

田中圭祐, 栖原敏明: “接合イオンスライス LiNbO<sub>3</sub> 結晶におけるプロトン交換増速エッチングによるリッジ光導波路の作製,” 平成27年春季第62回応用物理学会学術講演会, 13a-A13-6, 2015年3月11日~15日, 神奈川県平塚市.  
(講演奨励賞受賞)

沖野行佑, 栖原敏明: “金属/液体電極を用いた電圧印加による MgO:LiNbO<sub>3</sub> 周期分極反転構造作製と緑色第2高調波発生,” 平成27年春季第62回応用物理学会学術講演会, 13a-A13-5, 2015年3月11日~15日, 神奈川県平塚市.

井上敏之, 岡寿治, 栖原敏明: “MgO(8mol%)添加 LiTaO<sub>3</sub> 周期分極反転構造を用いた電気光学プラグ偏向型光変調器,” 電子情報通信学会技術報告, vol.114, No.430, pp.17-21, PN2014-30, OPE2014-155, LQE2014-142, 2015年1月29日~30日, 大阪府豊中市.

田中圭祐, 栖原敏明: “走査型電子顕微鏡による MgO:LiNbO<sub>3</sub> 周期分極反転構造の非破壊的観察,” 平成26年秋季第75回応用物理学会学術講演会, 18p-C7-12, 2014年9月17日~20日 北海道札幌市.

岡寿治, 栖原敏明: “MgO(8mol%)添加 c-LiTaO<sub>3</sub> 短周期分極反転構造作製と一

様性改善,”平成26年秋季第75回応用物理学会学術講演会, 18p-C7-11, 2014年9月17日~20日 北海道札幌市.

T.Inoue and T.Suhara: “High-performance electro-optic polarization conversion type modulator for short-wavelength light using periodically poled MgO:LiNbO<sub>3</sub>,” European Conference on Integrated Optics / Microoptics Conference (ECIO-MOC2014), Th4bR1, pp.124-125, Nice, France, June.24-27, 2014.

T.Suhara and M.Uemukai: “Grating coupler integrated semiconductor laser diodes,” (Invited Paper) European Conference on Integrated Optics / Microoptics Conference (ECIO-MOC2014), Tu3bI1, pp.35-36, Nice, France, June.24-27, 2014.

〔その他〕

ホームページ <http://ioe.eei.eng.osaka-u.ac.jp/>

## **6 . 研究組織**

### (1)研究代表者

栖原 敏明 (SUHARA Toshiaki)  
大阪大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：90116054