

論文要旨

今日における光学分野での技術革新は近年急速に進んでいる。光周波数コムは、周波数軸上に光スペクトルが周波数に関わらず等間隔に櫛状に並んだ光スペクトル群であり、その非常に高い周波数安定度から近年注目を集めている。微小光共振器 (optical microresonator, optical microcavity) は、光共振器の中でも小さなモード体積を持つ素子のことを指し、そのモード体積は μm オーダー程度であるが、この小さなモード体積と同時に、高い光の閉じ込め性能 (Q 値 $> 10^6$) を持つ微小光共振器では、外部から小さなパワーのレーザー光を入力するだけで、大きな共振器内部パワーが実現でき、非線形光学効果によって高安定性・高精度な光周波数コムを容易に生成することができる。そのような微小光共振器の中でも、高い非線形性を持ち、集積性に優れ、CMOS コンパチブルなプロセスによる製造が可能であるシリコンナイトライド (SiN) リング共振器の作製は非常に重要である。先行研究では、高 Q 値の SiN 光共振器は高温の条件下で堆積させた SiN 膜を用いることでのみ実現されているが、そのようなプロセスでは下地膜との熱膨張係数差によるひび割れを阻害するために様々なパターンの工夫が必要となり、プロセスが複雑化してしまう。また、他のデバイスとの共集積化を将来的に考えたとき、高温プロセスでは前段工程のプロセスとの互換性を確保することが難しい。本研究では、ホットワイヤ化学気相成長法 (hot-wire CVD 法) によって低温堆積させた SiN 膜を用い、主に加工プロセスの最適化を通して、光通信波長 L バンドにおいて $Q \sim 2 \times 10^5$, FSR = 400 (GHz) が実現できた。

第 1 章では、共振器の概要と光周波数コム発生、様々なリング共振器デバイスの概要と SiN リング共振器の先行研究に触れたのち、本研究の目的を述べる。

第 2 章では光導波路の基礎理論や共振器と外部導波路の結合の理論について説明する。

第 3 章では SiN リング共振器の作製プロセスの概要とその詳細について述べる。

第 4 章では SiN リング共振器の作製プロセスの最適化とその性能評価を記述する。

第 5 章で本研究を総括して結論と展望を述べる。

Thesis Abstract

Study for fabrication of low-loss optical microresonators using silicon nitride deposited under low temperature conditions

Technological innovations in the field of photonics has progressed rapidly in recently years. Optical Frequency combs, a group of spectral lines arranged at equal intervals in the frequency domain, have been attracting a lot of attention due to their extremely high frequency stabilities that allow them to be used for a wide range of applications.

To generate optical frequency combs, high Q optical microresonators (optical microcavities) featured by their small mode volumes and high light confinement factors (Q -factors > 1 million) are becoming attractive options. In such microcavities, intense intracavity light fields can be built up by simply injecting low power continuous-wave laser fields, This in turn leads to strong light-matter interactions within the cavities, with which frequency combs can be formed via third order optical nonlinearity. Thus, significant reductions in both power requirements and device dimensions can be anticipated. Among microresonators, those made of SiN are technologically important due to its high nonlinearity and compatibility to the complimentary oxide semiconductor (CMOS) process. The high Q SiN microresonators reported to date were mainly fabricated using high temperature deposition techniques. However, such processes are practically challenging due to the large difference in thermal expansion coefficients between SiN and Si substrate that causes crack formations for thick films, relevant to nonlinear optical waveguides. Furthermore, high temperature deposition conditions may also restrict the compatibility to the other process when co-integrating with other devices.

In this study, fabrication of SiN microresonators by using hot-wire chemical vapor deposition (HW-CVD), one of the low temperature deposition techniques, is explored including the optimizations of the subsequent device fabrication processes. As a result, a Q factor as high as 2×10^5 is demonstrated in the telecommunication L band with a free spectral range of 400 (GHz). The organization of this thesis is as follows.

Chapter 1 describes the overview of the microresonators and frequency comb generation followed by a review of SiN ring resonators. Then, the purpose of this study is presented.

Chapter 2 describes the theory of optical waveguides and discusses the coupling between a

resonator and a bus waveguide.

Chapter 3 reports the fabrication process flow of the SiN waveguides used in this study.

In chapter 4, optimizations of the fabrication processes for two different kinds of electron beam resists are described and device characterization reported.

In chapter 5, the summary of this research is given and the future outlook is presented.

目次

1	序論	7
1.1	はじめに	7
1.2	光共振器	8
1.2.1	光共振器	8
1.2.2	微小光共振器による光周波数コムとソリトン	10
1.2.3	リング共振器材料とその作製手法	14
1.2.4	SiN リング共振器	16
1.3	本研究の目的	19
2	リング共振器の理論	20
2.1	マクスウェル方程式	20
2.2	波動方程式	21
2.3	光導波路の理論	22
2.3.1	光導波路	22
2.3.2	無限に長いスラブ光導波路中を伝搬する光電場	23
2.3.3	3次スラブ光導波路中を伝搬する光電場	24
2.3.4	3次光導波路中を伝搬する光電場	26
2.3.5	分散	27
2.4	光共振器の理論	29
2.4.1	モード結合理論	29
3	SiN リング共振器の作製	34
3.1	作製手法の概要	34
3.2	SiN 膜堆積	34
3.2.1	HWCVD 法の概要	34
3.2.2	堆積プロセス	35
3.2.3	堆積レートと膜の屈折率特性	35
3.3	電子線ビーム描画（露光）	36
3.3.1	レジスト塗布	36
3.3.2	電子線ビーム描画（露光）	38
3.3.3	現像	42
3.4	ドライエッチング（エッチング）	43
3.5	クラッド層の堆積	45
3.6	端面処理	47

4	デバイスプロセスの最適化	48
4.1	ポジ型レジストを用いたデバイスプロセスの最適化	48
4.1.1	EB パラメータの最適化	48
4.1.2	DE の最適化 — ICP パワーと RF パワーの最適化	49
4.1.3	DE の最適化 — 側壁後退抑制のための TEOS マスクの導入	51
4.1.4	ドライエッチングの最適化 — 露光後ベークと 2 回エッチング導入による側壁後退の低減化	53
4.1.5	SiN リング共振器の作製とその評価	55
4.1.6	まとめ	60
4.2	ネガ型レジストを用いたデバイスプロセスの最適化	61
4.2.1	EB パラメータの最適化	61
4.2.2	テストパターンの作製と短時間ドライエッチング時間の最適化	64
4.2.3	プロセス後残留物低減への取り組み	64
4.2.4	ギャップ部分の深堀時間の導出	66
4.2.5	長時間の DE プロセスへ向けたクーリングの導入	67
4.2.6	SiN リング共振器の作製とその評価	68
4.2.7	高パワーの光の入力	71
5	結論	73
付録 A	SiN の表面状態と損失の関係	74
A.1	材料の表面粗さの 2 パラメータ (RMS, 相関長) と損失係数 α の算出	74
A.2	AFM による材料表面の観察と表面粗さの導出	75
A.3	AFM による SiN 光導波路の表面粗さと損失	76
A.4	CMP 研磨の今後の展望	77

1 序論

1.1 はじめに

今日における光分野での技術革新は近年急速に進んでいる。光周波数コムは、周波数軸上に光スペクトルが周波数に関わらず等間隔に櫛状に並んだ光スペクトル群であり、その高精密性や高安定度から、光周波数基準として用いられてきた。

微小光共振器 (microresonator, microcavity) は、光共振器の中でも小さなモード体積を持つ素子のことを指し、そのモード体積は μm^3 オーダー程度であるが、この小さなモード体積と同時に、高い光の閉じ込め性能 (Q 値) を持つ微小光共振器では、外部から小さなパワーのレーザー光を入力するだけで、大きな共振器内部パワーが実現でき、非線形光学効果によって高安定性・高精度な光周波数コムを容易に生成することができる。この技術によって、コヒーレントな超短光パルスレーザーや光通信、分光、量子通信、光原子時計、センシング、マイクロ波発振器などの分野において画期的な応用技術実現が期待できる。そのような微小光共振器を用いた応用研究が盛んな昨今において、安価で大量生産が可能な微小光共振器の作製プロセスの確立は重要な立ち位置を占めている。

本章では、微小光共振器の特徴と応用研究、作製プロセスを紹介した後に、本研究の目的を述べる。

1.2 光共振器

1.2.1 光共振器

光共振器は閉じた経路で光を空間的に閉じ込める系であり、光線光学 (ray optics) では1つの閉じた光路で形成され、以下の式で表されるように、その光路長 (L) が波長 (λ) の整数倍になる波長で共振条件となる。

$$L = m \cdot \lambda \quad (m = 1, 2, 3, \dots) \quad (1.1)$$

波動光学的には、共振条件として、閉じた光路に加えて空間的な電磁界モードの再帰性が必要となり、光共振器を1巡した光を同一の空間モードにすることで、光共振器を何周も光が巡回できるようになる。このように、光が何度も周回することによって、光の干渉効果により、共振器内の電界強度が増強される現象を光の共振と呼ぶ。

一般的な光共振器は、Fig 1.1 に示す通り、複数枚のミラーで構成されたものや、光ファイバや平面光導波路を用いて構成したものなど、多様な形態がある。閉路の綴じ方としては、2つの反射端を有するファブリペロー共振器や、光路を1巡して閉じるリング共振器等がある。光ファイバや平面導波路を用いることで、横モードの空間分布は一定となるため、自由空間系に必要とされるミラーの幾何学的配置 (アライメント) に鈍感な光共振器を形成することが可能である。また、ユニークな系として、ウィスパリングギャラリーモード (WGM : Whispering-gallery mode) 共振器が挙げられる。WGM 共振器は、閉曲面に沿って全反射を繰り返しながら伝搬することでモードが1巡する光共振器である。

光共振器の主要な応用例としてレーザーが挙げられる。光共振器中に能動的な光の増幅を起こす活性媒質を配置し、励起することにより、発光した光は共振器のモードに結合され、共振器内部を巡回することによって誘導放出が生じる。誘導放出によって生じた光学利得が、光共振器の周回損失を上回ると、レーザー光が発生する。

光共振器の中でも、そのサイズが $\mu\text{m} \sim \text{mm}$ 程度の小さな共振器は微小光共振器と呼ばれる。微小光共振器のモード体積は小さいため、通常の光共振器に比べ、同一のパワーを注入しても、光子密度は相対的に高くなり、光と物質の相互作用を相対的に強めることが可能である。光共振器の主要な性能指数は Q 値 (Quality factor) と呼ばれる値で評価され、光の角周波数と光共振器の損失で決まる光子寿命の積で表される。その意味するところは、光の1振動サイクルあたりに散逸されるエネルギーに対する蓄積されるエネルギーの比である。つまり、 Q 値が高いほど、より高いエネルギー密度が光共振器に蓄積できることになり、光の閉じ込め性能が高いと言える (2.3.1 節参照)。Fig 1.2 に様々な微小光共振器の例 (アルミニウムナイトライド (AlN) [1], シリコンナイトライド (SiN) [2], シリカトロイド (SiO₂) [3], シリカウェッジ (SiO₂) [4], フッ化マグネシウム (MgF₂) [5], フッ化カルシウム (CaF₂) [6]) を示す。これらは平面導波路型リング共振器や、WGM 共振器の例であり、特に WGM 共振器は、様々な光共振器の中でも、最も高い Q 値を示す光共振器の1つである。

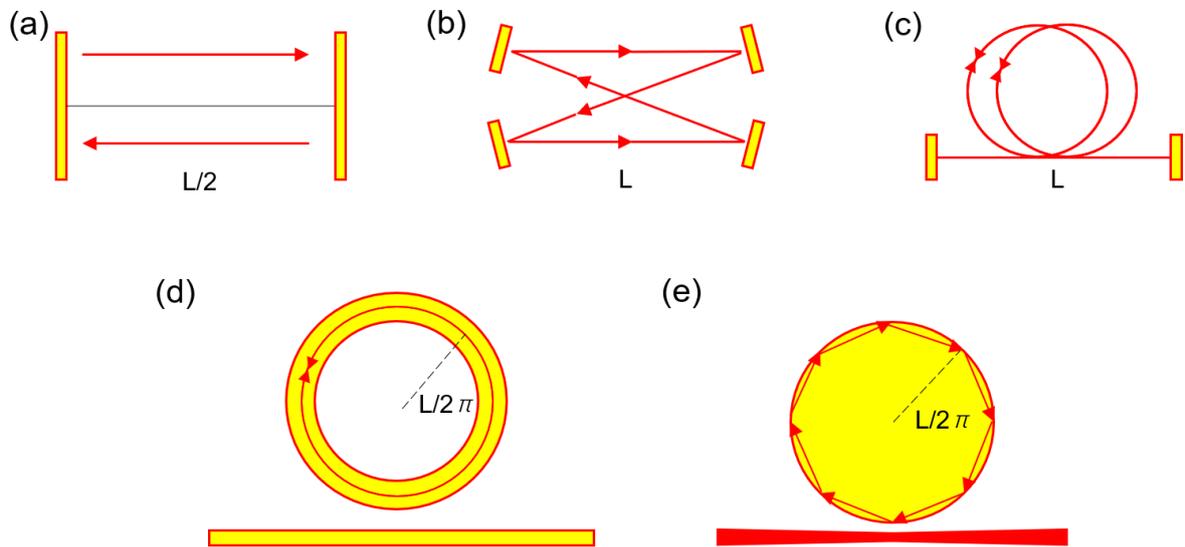


Fig.1.1 Illustration of optical resonators : (a) planar-mirror resonator (b) multi-mirror resonator (c) optical-fiber resonator (d) ring resonator (e) WGM resonator

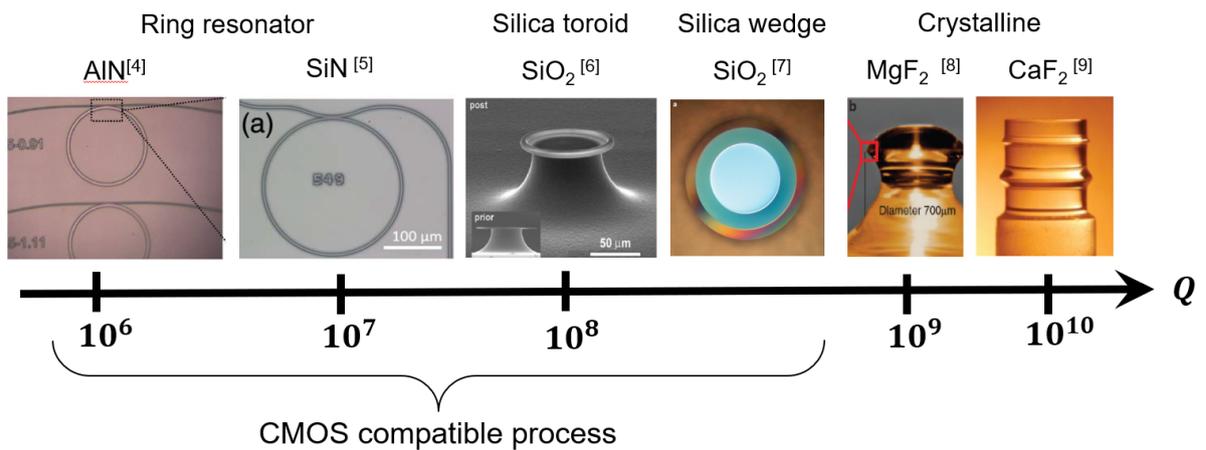


Fig.1.2 Various types of microresonators and its features.

1.2.2 微小光共振器による光周波数コムとソリトン

光周波数コム（光コム）は、周波数軸上に等間隔に並んだ周波数成分（縦モード）から構成される、櫛（コム）形のスペクトル信号を指す [7]. その光周波数は数 100 THz ほどであり、マイクロ波（300 - 30 GHz）と比較して周波数が 5~6 桁大きい。現在、物理量の中で最も正確に（有効数字の桁数が多く）測定できるものは周波数であり、セシウム原子時計（9192631770 Hz）がその基準となっている。その周波数安定度は 15 桁であるが [8]、その精度を確かめるためには、マイクロ波の周波数ではマイクロヘルツのオーダーで安定であることと同値なので、測定時間は 1000 秒を超える。しかし、この周波数安定度を光周波数に転写できれば、1 Hz 程度で測定できることになり、測定時間は大幅に短縮できる。そして、ある周波数基準に対して、任意の周波数を測定するために、周波数のものさしとして用いられるのが光コムである。従来は、マイクロ波の周波数基準を光領域に展開するためには、数多くの狭線幅レーザを位相同期し、周波数逡倍を行う必要があり、非常に複雑な設備構築の必要があった [9]。2000 年頃から、1 台のモード同期レーザから高非線形ファイバを用いてオクターブスパンのスーパーコンティニウム（縦モードが連続的に並んだ光スペクトル群）が発生できるようになり、この状況は一変した [10]。

Fig 1.3 に示すように、モード同期レーザの光コムは 2 つの自由度を有している。すなわち、光周波数軸上で等間隔（ f_{rep} ）に並んだレーザ光の縦モードは、時間軸上では $1/f_{\text{rep}}$ の間隔で並ぶパルス列となる。また、その時間的パルス幅は周波数帯域の逆数に比例する。しかし、そのキャリア周波数（光コムのスペクトル成分の周波数）のサイクルは時間的パルス幅よりも短いため、包絡線に対してキャリアの位相は時々刻々と変化してもよい。これをキャリアエンベロープオフセット位相という。

隣り合うパルスのキャリアエンベロープ位相のずれ（ $\Delta\phi$ ）と光周波数コムのキャリアエンベロープオフセット周波数（ f_{ceo} ）の間には以下のような関係が成り立つ。

$$f_{\text{ceo}} = (\Delta\phi/2\pi)f_{\text{rep}} \quad (1.2)$$

また、光周波数軸上の縦モードは

$$f(n) = nf_{\text{rep}} + f_{\text{ceo}} \quad (1.3)$$

で表される位置にあり、 f_{rep} と f_{ceo} が固定されることで、光コムの各縦モードの周波数位置が決まる。もしオクターブスパンのスーパーコンティニウムを発生できると、基本波と 2 倍波のビートを測定することで、 f_{ceo} を測定できるようになる。なお、この方法は $f - 2f$ 参照法と呼ばれる [11]。

$$2 \cdot f(n) - f(2n) = 2 \cdot (nf_{\text{rep}} + f_{\text{ceo}}) - (2nf_{\text{rep}} + f_{\text{ceo}}) = f_{\text{ceo}} \quad (1.4)$$

f_{rep} は通常マイクロ波周波数であり、光検出器で測定できる。また、 f_{ceo} もマイクロ波周波数であり、同様に光検出器で測定できる。このように f_{ceo} を測定し、光周波数を周波数逡倍せずに測定

できるようになったのが重要な事実であり、この技術は 2005 年のノーベル物理学賞の受賞理由となった。

周波数の安定度は、一般に短期的な安定度と長期的な安定度の 2 つの指標がある。短期的な安定度は、位相ノイズ (phase noise) という指標で、長期的な安定度はアラン分散という指標で測定される。例えば、狭線幅 (線幅: 1 Hz) のレーザ (光周波数: 100 THz) があっても、測定時間の短い位相ノイズは優れているが、周波数がドリフトしていれば、長期安定度は悪くなる。長期的安定度の指標であるアラン分散は、測定時間平均のばらつきを示すため、測定時間 τ の平方根に比例するが、比較する周波数基準の安定性が限界となり、有限な時間で下げ止まり、それ以下の周波数は制御できていないことと透過であるので、測定時間をさらに伸ばすと再び悪化する [12]。なお、光コムのアラン分散は、安定化手法を工夫することにより、 $\sigma = 10^{-14} \sim 10^{-17} \tau^{-0.53}$ もの精密さが実現されており、さまざまな光周波数領域において精密な周波数測定を可能にしている [13][14][15]。

一般に、微小光共振器から発生される光周波数コムである光 Kerr コムは、Fig 1.4 に示す通り、単一周波数レーザにより励起され、3 次の非線形光学効果である四光波混合 (FWM) を介してパラメトリック発振するサイドバンドを利用している。FWM は 2 光子励起で 2 光子が放出される過程であり、励起光周波数をまたいで、微小光共振器の自由スペクトル領域 (FSR: free spectral range) 間隔で規定される、励起光周波数から対称な光周波数位置にそれぞれサイドバンドペア (シグナルとアイドラ) が生成される。この過程がカスケード的に生じることで、Kerr コムのスペクトルは広帯域化される。すなわち、微小光共振器は 3 次の非線形光学効果を用いたパラメトリック発振器とみることができる。モード同期ファイバレーザが数 100 (mW) 以上の励起パワーが必要であったのに対し、Kerr コムは数 10 (mW) オーダーから発振可能であるため、省電力性に優れているといえる。一般的に、自発的に生成された Kerr コムの位相は揃っていない。しかし、Fig 1.5 に示す通り、ポンプレーザの光周波数を高周波数から低周波数へ (短波長から長波長へ) 共振周波数をまたいで離調 (デチューニング) を変化することによって、位相が揃った光共振器ソリトンを形成できることが発見され [16]、従来の光コムと同様の精密な周波数測定を利用する応用が可能となった。

光ソリトンは、3 次の非線形光学効果によって生じる瞬間的な屈折率変化と群速度分散がバランスして生じるものであり、光パルスとなるものを明ソリトン (Bright soliton)、連続波出力のディップとなるものを暗ソリトン (Dark soliton) という [17]。明ソリトンでは、包絡線光強度に比例して屈折率が変化するが、それに応じてパルスの中心部分では瞬時周波数 ($d\phi/dt \simeq dn_2 I(t)/dt = \omega$) が時々刻々と上昇する (アップチャープ)。これは、周波数領域ではサイドバンドが生成されていることに対応し、自己位相変調と呼ぶ。一方、光パルスが伝搬する媒質が異常分散と呼ばれる状態であると、伝搬に伴い相対的に高周波成分が速く進み低周波成分が遅く進む (ダウンチャープ) ため、あるピークパワーの値で、自己位相変調と釣り合うことができる。この状態が明ソリトンであり、損失が無視できれば、光パルスの時間波形が変化せず、安定に長距離伝搬できるので、歴史的には 1980 年代に長距離光通信への応用が検討された [18][19]。微小光共振器では、この 2 つのバランスに加え、光共振器のパラメトリック利得と損失がバランスする状態、すなわち共振器ソリトン (散逸性 Kerr ソリトン) と呼ばれる安定なパルス発振状態が存在する [20]。ここで重要

な点は、ソリトンの発振状態は、各縦モードの位相が揃っている（モード同期）状態になっていることである。なお、共振器ソリトンの中でも、正常分散領域では暗ソリトン（厳密には、プラティコンと呼ばれる暗ソリトンの形をした一種のソリトンパルス）が観測されているが [21]、明ソリトンパルスは従来の応用を直接的に踏襲できる形態であるため、以下では明示しない限り、明ソリトンについて述べるものとする。

微小光共振器による散逸性 Kerr ソリトンは様々な応用研究が報告されている。先行研究では、超高速ソリトンディアルコム距離測定 (LIDAR) [22]、光原子時計 [23]、デュアルコム分光法 [24]、低ノイズなマイクロ波発生器 [25]、光シンセサイザ [26]、太陽系外惑星探索のための天体分光キャリブレーション [27] などが報告されている。また、光コムを用いた応用研究としては、波長多重通信 [28] や量子光通信 [29] など、通信分野での応用が報告されている。

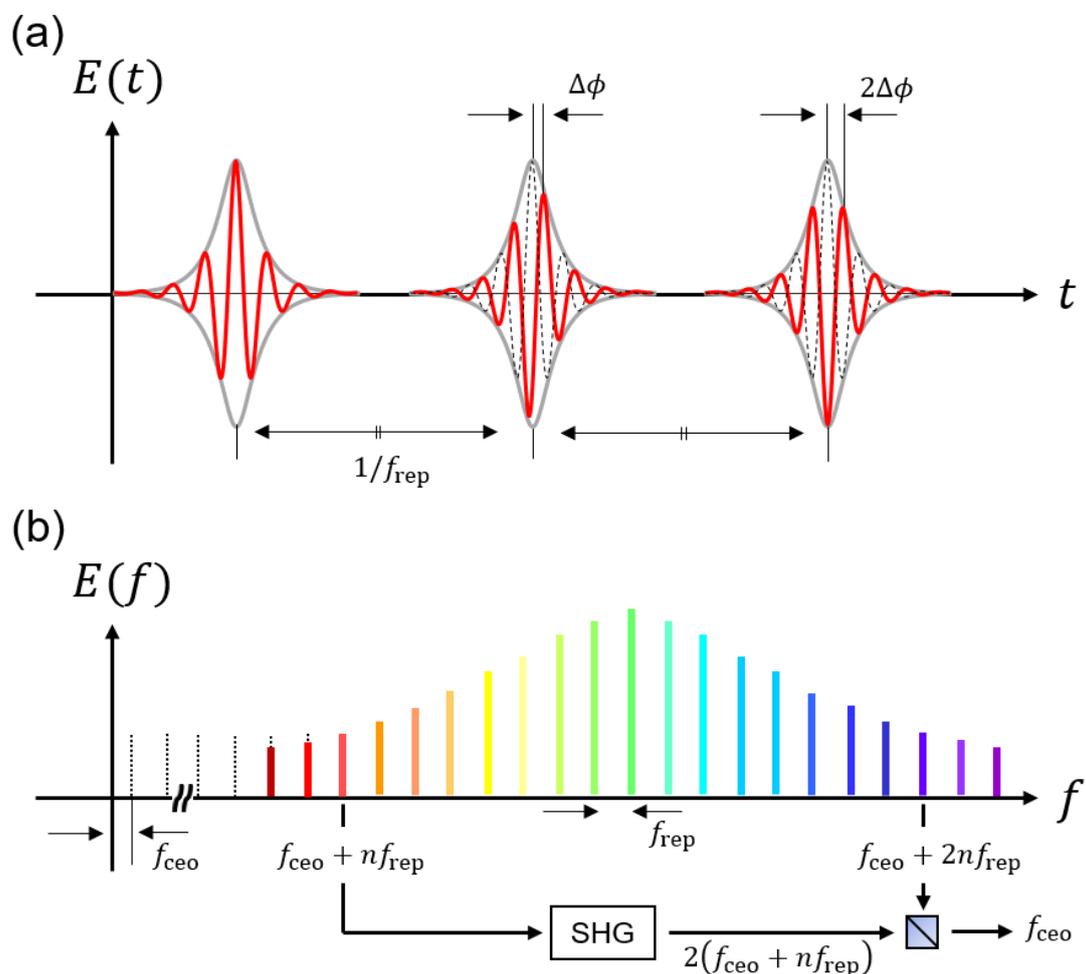


Fig.1.3 Consecutive pulses of the pulse train generated by a mode-locked laser and the corresponding spectrum. (a) Optical pulse train. (b) A frequency comb spectrum.

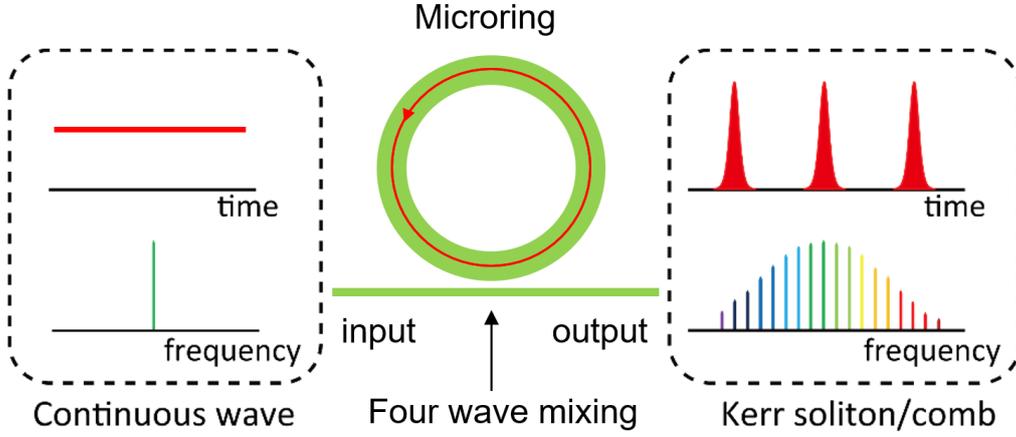


Fig.1.4 Schematic illustration of Kerr frequency comb generation.

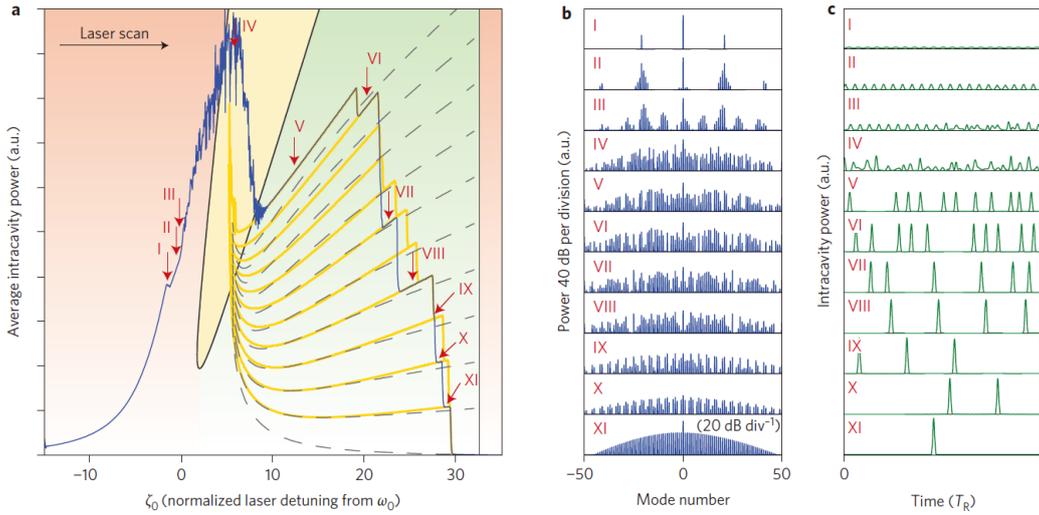


Fig.1.5 Numerical simulations of soliton formation in a microresonator. (a) Average intracavity power (blue, corresponding to the transmission signal in Fig. 2(a) when mirrored horizontally) during a simulated laser scan (101 simulated modes) over a resonance in a MgF_2 resonator. The step features are well reproduced. The orange lines trace out all possible evolutions of the system during the scan. The dashed lines show an analytical description of the steps. The green area corresponds to the area in which solitons can exist, the yellow area allows for breather solitons with a time-variable envelope; solitons cannot exist in the red area. (b) (c) Optical spectra and intracavity powers for the different positions I – XI in the laser scan. [Reprinted with permission from T. Herr, V. Brasch, J. D. Jost, C. Y. Wang, N. M. Kondratiev, M. L. Gorodetsky and T. J. Kippenberg, "Temporal solitons in optical microresonators," *Nat. photonics* **8**, 145-152 (2014).]

1.2.3 リング共振器材料とその作製手法

微小光共振器の中でも、リング形の微小光共振器（導波路型微小リング共振器）は、安価で大量生産が可能な半導体プロセス（CMOS（Complementary metal oxide semiconductor）互換性のあるプロセス）でも作製可能であり、入出力系を集積して他の CMOS 回路とも組み合わせることが可能であることという大きな利点を持つ。リング共振器は、シリコン（Si）やリチウムナイオベート（LiNbO₃）、Hydex（high-index core doped silica glass）、アルミニウムナイトライド（AlN）、アルミニウムガリウムヒ素（AlGaAs）、リン化ガリウム（GaP）、五酸化タンタル（Ta₂O₅）そして窒化シリコン（SiN）が主な導波路材料として挙げられる。表 1.1 に様々な微小光共振器の材料ごとの屈折率と非線形屈折率 n_2 、モード体積、最高 Q 値、応用技術である光コム生成（1.1.3 節（用編集）参照）のためのしきい値となるパワーとその共振周波数間隔（FSR：free spectral range）をまとめて示す。光 Kerr コムは三次の非線形光学効果を用いるため、リング共振器において低パワーでの光コム励起のためには、高い $\chi^{(3)}$ を有する非線形媒質からなる微小光共振器に光を閉じ込める必要がある。また、材料分散が正常分散である物質を用いて導波路を作製する場合は、光ソリトン発生のために、構造分散制御によって異常導波路分散を実現することが重要となる [30]。

Si は屈折率が 3.47 と非常に高いため、光の強い閉じ込めを得ることが容易であり、また Si 電子デバイスの作製技術を転用でき、加工しやすいという大きな利点がある [31]。しかし、Si はバンドギャップが約 1.11 (eV) と狭いため、光通信波長帯の光を吸収し、光コム生成のための四交波混合と競合してしまう二光子吸収や自由キャリア吸収が生じてしまう [32][33]。そのため、通信波長帯での光コムの生成は困難である。そのため、中赤外帯における光コムの発生のみ報告されている [34]。

Hydex は、材料として高屈折率（屈折率 1.7）のシリカ（SiO₂）系ガラスを用いている。組成的に N-H 基が存在しない関係上、通信波長帯の C バンドにおける材料の損失が少なく、CMOS 互換性のある低温プロセスで作製可能であるという利点を持つ。1550 nm の光を入力することによる光コムの生成が報告されている [35]。O-H 基の影響により、通信波長帯の E バンドにおける損失が大きいものの、近年では C バンド帯を利用した光通信の研究も進められている [36]。

LiNbO₃（通称 LN）は、2 次の非線形係数が非常に大きいため（ $d_{33} = 30$ (pm/V)[37]）、3 次の非線形光学効果であるカー効果を用いた光コム生成だけでなく、2 次の非線形効果である電気光学効果を利用し、位相変調をカスケード的に起こすことで光コムを生成することができる [38]。LN は熱酸化膜付き Si 基板上に結晶成長できないため、Si 基板上で広帯域に光コムを生成させることは困難であったが、近年熱酸化膜付き Si 基板上に LN をプラズマ活性化接合させる技術が実現され [39]、通信波長帯で広帯域の光コム発生が可能になりつつある。近年では、2 次と 3 次の非線形光学効果を同時に起こして光コムを 2/3 オクターブもの広帯域に生成した研究 [40] や、ソリトンの生成 [41] も報告された。

AlN も、2 次の非線形性と 3 時の非線形性どちらも大きく取れることから [42]、非線形材料として近年注目を集めている。大量生産に適している露光プロセスであるフォトリソグラフィによって、通信波長帯においてほぼ 1 オクターブに及ぶ広帯域の光コム生成を達成した研究 [1] や、780 nm

の短波長光を励起し、2次の非線形性を介してカスケード的にパラメトリック発振を起こすこと
によって1550 nmのCバンド帯でソリトン波を生成したとする報告もされている [43]。しかし、
AlNは共振器作製において、サファイア基板上に結晶成長させ、材料を堆積させる際、格子不整合
によって結晶欠陥が発生し、損失原因となったり、貫通転位による位相変化が生じてしまう欠点
が存在する（なお、低損失な導波路作製には、ウルツ鉱構造が多く用いられる） [44]。

AlGaAsは、結晶材料の中でも、トップレベルの2次と3次の非線形係数を持つ。以前は二光子
吸収を防ぐためにバンドギャップを広くとるためにAl成分を高くする必要があり、作製が困難で
あったが近年の結晶成長技術向上により非線形性が強く光コム発生に必要な透過帯域を有してい
るとして注目される材料である [45]。また、屈折率が3.3と高い値を持つため、モード体積が小さ
く、光を強く閉じ込められるため、薄膜導波路（厚さ \approx 400 nm）で光コム生成のために必要な異
常分散を得られるため、他の材料に比べて加工寸法が小さい点から、加工が容易であるという利点
を持つ [45]。通信波長帯での光コムの生成や、ソリトンステップの観測が報告されている [45]。し
かし、AlNと同様、絶縁膜上にデバイスを形成する転写プロセスにおいて、結晶欠陥が生成されて
しまい、損失増大の原因となってしまう。AlGaAsの表面に活性層（例：Al₂O₃, SiN）を導入し、
材料表面の結晶欠陥を取り除く取り組みが報告されているが [46]、低損失な共振器作製は困難なま
まである。

GaPも、2次と3次の非線形係数が大きい値をとる。屈折率が3.1と高い値を持つため、モード
体積が小さく、薄膜導波路（厚さ \approx 300 nm）で異常分散を得られ、加工が容易である利点を持つ
[47]。1オクターブに及ぶ光コムの生成を実現した研究が報告されているが [47]、他の結晶材料と
同様、転写プロセスにおいて発生する結晶欠陥のため、低損失な共振器作製は困難である。

Ta₂O₅（通称 Tantalum）は、3次の非線形係数が大きく、アモルファス（結晶構造を持たない）な
材料であるため、損失原因となる結晶欠陥が存在しないという利点から高Q値の共振器が作製し
やすい。低損失な Tantalum は、低温プロセスであるイオンビームスパッタリング（IBS : ion beam
sputtering）によって絶縁膜上に堆積される [48]。また、Tantalum は高温条件下で結晶化するため
[49]、導波路作製後に600度の高温条件下にさらすことで導波路の結晶化を部分的に行い、屈折率
を上げる工夫が行われている [50]。なお、そのQ値は現在 3.8×10^6 が達成されている [50]。

以上をまとめると、結晶材料（LN, AlN, AlGaAs, GaP）は、2次3次いずれも大きな非線形
係数を持つため、非線形効果を起こしやすいという利点が存在する。しかし、プロセス由来の結晶
欠陥が損失を大きくするため、高Q値（ $> 10^7$ ）の共振器作製は困難である。光コムは共振器内部
でモードロックが可能であり、ソリトン波を形成できることが先行研究 [16] によって示されてい
るが、低パワーでソリトン波を生成するためには共振器は高Q値でなければならない。オンチップの
光共振器作製において、結晶材料は一般的にデバイス作製が難しい。

SiNは、アモルファスな材料であり、高Q値（ $> 10^7$ ）が実現可能である点から、低パワーでの
ソリトン波生成が可能であるという大きな利点を持つ。また、SiNの2次非線形係数は大きな値で
はないが、堆積時にひずみ等の原因によって生成された、SiNとSiO₂間の界面を利用することで、
反転対称性を破り、2次の非線形光学効果を誘起した研究も報告されている [51][52][53]。

Table.1.1 Performances of various nonlinear materials for microcomb generation.

Material	Refractive index	n_2 (m^2W^{-1})	$\chi^{(2)}(2d_2)$ (pmV^{-1})	Mode area (μm)	Highest Q (intrinsic) for comb generation	Lowest threshold power (mW)(FSR)	References
Si	3.47	5×10^{-18}	-	~ 2	5.9×10^5	3.1(127GHz)	[34]
Hydex	1.7	1.15×10^{-19}	-	~ 2	1×10^6	50(200GHz)	[54]
LiNbO ₃	2.21	1.8×10^{-19}	60	~ 1	2.2×10^6	4.2(199.7GHz)	[41]
AlN	2.12	3.5×10^{-19}	0.43	~ 1	1.5×10^6	406(363GHz)	[1]
AlGaAs	3.3	2.6×10^{-17}	120	~ 0.28	1.5×10^6	0.036(1THz)	[45]
GaP	3.05	7.8×10^{-19}	82	~ 0.15	3×10^5	10(500GHz)	[47]
Ta ₂ O ₅	2.05	6.2×10^{-19}	-	~ 1.5	3.8×10^6	10(500GHz)	[50]
SiN	2	2.5×10^{-19}	-	~ 1.5	3.7×10^7	0.33(200GHz)	[2]

1.2.4 SiN リング共振器

SiN は、大きなバンドギャップ (~ 5 eV)、広い波長帯域における透明度、CMOS 互換性のあるプロセスで作製可能、導波路内外の高屈折率差、そして大きな実効非線形性を持つという点から、リング共振器や集積回路作製において、非常に魅力的なプラットフォームである [35]。先に述べた通り、様々なリング共振器の中で最も高い Q 値を実現しており、その値は $> 10^7$ に達する [2]。また、SiN 微小光共振器は共振器のリング部分の半径を数 $10\mu\text{m}$ まで小さくすることが可能であり、共振周波数間隔を約 1THz 以下の間隔で自由に設計できる。

SiN リング共振器の作製プロセスにおいても、光カーコム発生やソリトン波発生のためには導波路形状が重要である。SiN の材料分散は、Fig 1.6 に示す通り、通信波長帯 (1550 nm 付近) で正常分散となるため (D (ps/(nm · km)) が正で正常分散、負で異常分散を表す。 D の詳しい議論については 2.2.4 節参照。) ソリトン発生のためには SiN を厚膜 (> 700 nm) にし、横モードを十分に閉じ込めることで構造分散により導波路を異常分散にする必要がある [30]。厚膜の SiN を絶縁膜 (この場合は CMOS 互換性のあるプロセスでのデバイス作製をターゲットにしているため、絶縁膜は熱酸化膜付き Si 基板 (SiO₂/Si) を材料として使うものとする) 上に堆積させる必要があるが、その堆積プロセスは、高温条件下で行う方法と、低温条件下で行う方法とに大きく分けることができる。

高温条件下で厚膜 SiN の堆積を行うと、SiN 中の水素 (H) 残留濃度が低下し、光通信波長帯での損失原因となる N-H 基の存在が少なくなることによって、材料損失は低下するが、Fig 1.7(a) に示す通り、Si 基板との熱膨張係数差 (SiN : $3.0 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$, Si : $2.5 \times 10^{-6}\text{K}^{-1}$ [55]) によって、SiN の膜応力が大きくなり、基板にクラック (ひび割れ) が生じやすくなってしま (SiO₂ の膜厚は $10\mu\text{m}$ 以下なのに対し、Si の膜厚は $400 - 600\mu\text{m}$ であり、Si の膜厚は 100 倍以上厚いので、SiN は SiO₂ 上に堆積してはいるものの、SiN の熱膨張を考える上で支配的なのは Si であると考えられる。) [55]。

逆に、低温条件下で厚膜 SiN の堆積を行うと、クラックの発生は抑制できるが、SiN 中の水素 (H) 残留濃度が増加し、N-H 結合基 (3350cm^{-1}) や Si-H 結合基 (2160cm^{-1}) に由来する赤外振動モードの倍音吸収 (周波数の等倍間隔でおこる吸収スペクトル。およそ $800 - 2500\text{nm}$ ($12500 - 4000\text{cm}^{-1}$) の波長域に分布する) によって、通信波長帯において材料損失は増加し、 Q 値低下

の原因となってしまう [56]. Fig 1.7(b) に N-H 基の通信波長帯における吸収スペクトル（中心波長 1520 nm）を示す.

以下に示すのは、主な SiN リング共振器の先行研究をまとめたものである。EPFL Univ. や Columbia Univ., Purdue Univ., Chalmers Univ. などの Group は、いずれも高温での堆積法である減圧化学気相成長（LPCVD : Low-Pressure Chemical Vapor Deposition）法を用いることで、 $Q > 10^6 \sim 10^7$ の超高 Q 値の共振器の作製に成功している。しかし、高温 CVD 法を用いた SiN を用いてプロセスを行うためには、プロセス中のクラック伝搬防止のために、さまざまな工夫が必要となってくる。深いトレンチ（溝）[57] や、複雑なタイリングパターン [58] の形成が、クラック伝搬防止に有用な方法として、先行研究では示されている。しかし、このようなパターン形成はプロセスが複雑になりやすく、なおかつ将来的な共集積回路実現を考慮すると 750 度以上の高温化でのプロセスは好ましくない [59].

そのため、低温条件下でのプロセスが好ましいが、低温条件下での堆積方法であるプラズマ CVD 法はプロセス後のアニール（H 濃度低減を図り行われる高温でデバイスを温める処理）が難しい。これは、堆積速度が速いために SiN の膜密度が低くなりやすく、アニールによる熱効果の影響を大きく受け、ひびが入りやすくなってしまったためである。NIST は重水素を使うことで損失を低減する手法を提案しているが、そもそも重水素は希少なため値段が高く、安価なデバイスが実現しにくいという欠点がある。つまり、低温プロセスは残留 H 濃度低減のためにプロセス後高温アニール処理を施す必要があるが、それが難しいため、損失が以前高いままなのである。

本研究では、低温プロセスによる SiN 膜堆積の手法として、我々はホットワイヤ（HW : Hot-Wire）CVD (chemical vapor deposition) 法（別名触媒化学気相成長 (cat-CVD) 法）を用いた [60]. HWCVD 法は、広く用いられる低温堆積法であるプラズマ CVD（PECVD : Plasma-enhanced chemical vapor deposition）と比べ、様々な利点が存在する。

Table.1.2 Various methods of SiN deposition.

Group	CVD method	Q factor	Temperature	Residual H	Post annealing	Remarks
EPFL	LPCVD (SiCl_2H_2)	$> 1 \times 10^7$	high($> 750^\circ\text{C}$)	low	○	Tiling pattern
Columbia	LPCVD (SiCl_2H_2)	$> 1 \times 10^7$	high($> 750^\circ\text{C}$)	low	○	Deep trench formation
Purdue	LPCVD ($(\text{CH}_3)_2\text{SiCl}_2$)	$> 1 \times 10^7$	high($> 750^\circ\text{C}$)	low	○	Deep trench formation
Chalmers	LPCVD (-)	$> 1 \times 10^7$	high($> 750^\circ\text{C}$)	low	○	Deep trench formation
Chalmers	LPCVD (SiCl_2H_2)	$> 1 \times 10^6$	high($> 750^\circ\text{C}$)	low	○	Si-rich
NIST	PECVD (SiD_4)	$> 1 \times 10^6$	low(270°C)	-	-	using deuterium
Kyushu	PECVD (SN_2)	$\sim 1 \times 10^5$	low(150°C)	high	×	
NICT	Hot-Wire CVD (SiH_4)	$\sim 2 \times 10^5$	low($> 400^\circ\text{C}$)	high	?	

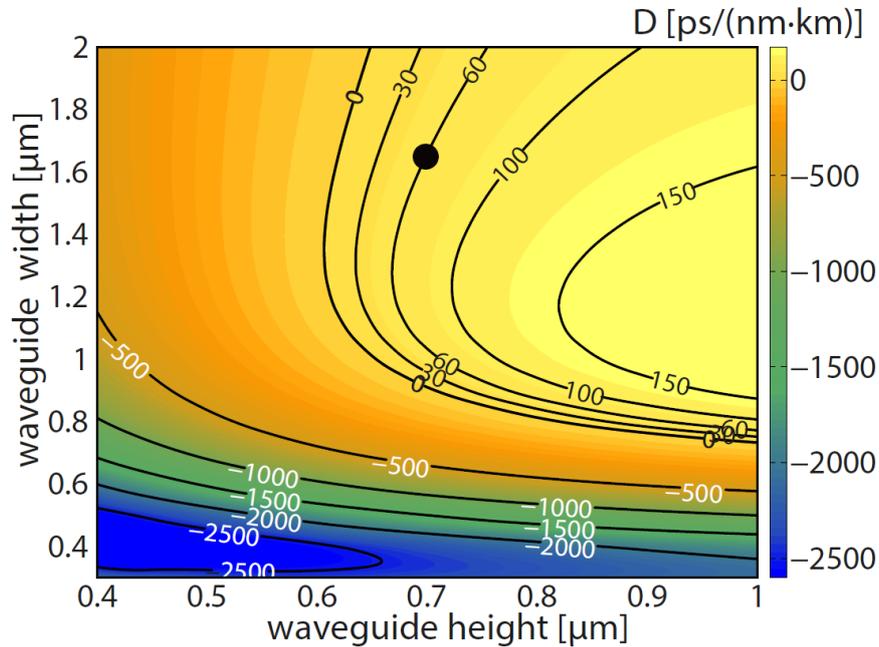


Fig.1.6 Simulation of dispersion D as a function of waveguide height and waveguide width of the fundamental TE-mode at 1550 nm wavelength. [Clemens J. Krückel, Attila Fülöp, Thomas Klintberg, Jörgen Bengtsson, Peter A. Andrekson, and Víctor Torres-Company, "Linear and nonlinear characterization of low-stress high-confinement silicon-rich nitride waveguides," *Opt. Express* **23**, 20, 25827-25837 (2015).]

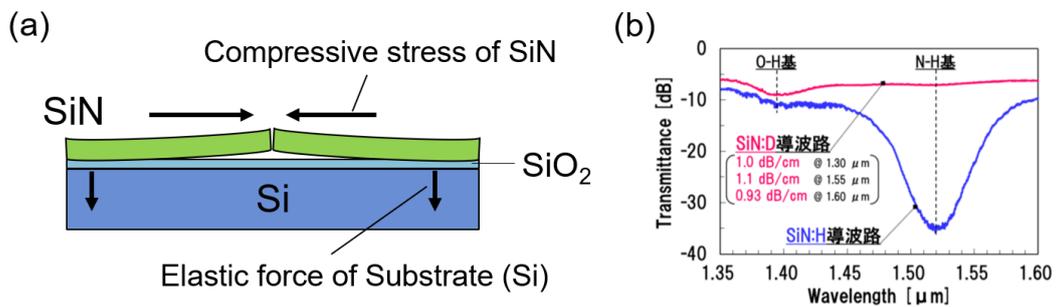


Fig.1.7 Desadvantages of SiN due to process conditions. (a) Clack formation (high temperature conditions) (b) Absorption of N-H bonds (low temperature conditions) [岡崎功太, 西英隆, 開達郎, 土澤泰, 山田浩治, 山本剛, "SiD₄ を用いた ECR プラズマ CVD 法により作製した低損失 SiON 光導波路," 第 76 回応用物理学会, 13p-2S-1 (2015). Copyright (2015) The Japan Society of Applied Physics. ※ 日本応用物理学会からの許可を得て転載.]

1.3 本研究の目的

微小光共振器は、高 Q 値で体積が非常に小さいとき、低パワーで非線形光学効果を効率的に起こすことを可能にする。微小光共振器内部ではカスケード的に四光波混合過程が生じ、光 Kerr コムが発生する。光 Kerr コムの研究は、ここ 10 年間で急速に発展してきた研究分野である。特に 2011 年から 2013 年にかけて、光 Kerr コムがモード同期の状態を取り得ることが理論的 [61] かつ実験的 [62][63] に示され、光 Kerr コム形成に関する物理的な仕組みが EPFL の T. Herr らによって始めて詳細に示されたことは画期的であった [64]。微小光共振器による光 Kerr コム発生は、従来の大掛かりな光コム発生装置の小型化を可能とし、同時に電気エネルギーを使わないことによる省エネルギー化、装置のコストダウンを実現する可能性を秘めている。しかし、さらに広範な応用を可能にする低温プロセスによる低損失な共振器の作製は実現されていない。

本研究の目的は、サブギガヘルツ (0.1-1THz) の繰り返し周波数を持ち、低閾値パワー発振するシリコンナイトライド (SiN) リング共振器の作製である。CMOS 互換性のあるプロセスで作製でき、なおかつ集積性を考慮した低温プロセスで作製された高 Q 値の SiN リング共振器共振器の作製を目指す。デバイスの性能としては、低パワーでパラメトリック発振 (光コム生成) が可能であることを目指す。先行研究 [65] によると、 Q 値が 5×10^5 で FSR が 400 GHz の SiN リング共振器を用いることで 310 mW の低閾値パワーでパラメトリック発振が可能であることが示されている。

本研究では、HWCVD 法によって堆積させた SiN 膜を用いて、CMOS 互換性のあるプロセスによって、 Q 値が 5×10^5 を超える SiN リング共振器を作製することを目的とする。

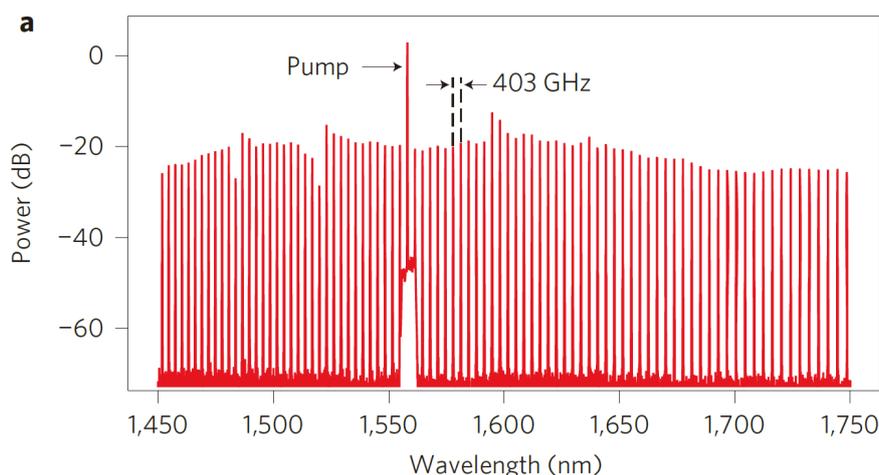


Fig.1.8 Demonstration of optical parametric oscillation for an integrated multiple-wavelength source. [Reprinted with permission from Jacob S. Levy, Alexander Gondarenko, Mark A. Foster, Amy C. Turner-Foster, Alexander L. Gaeta and Michal Lipson, "CMOS-compatible multiple-wavelength oscillator for on-chip optical interconnects," Nat. Photonics 4, 37-40 (2010).]

2 リング共振器の理論

本章では、光導波路について記述したのち、本研究で用いる光共振器の基本パラメータや理論について記述する [66].

2.1 マクスウェル方程式

媒質中の光の伝搬は、以下に表されるマクスウェル方程式により記述される。

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \quad (2.1)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = \frac{-\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.3)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (2.4)$$

ここで、 \mathbf{E} は電場、 \mathbf{H} は磁場、 \mathbf{D} は電束密度、 \mathbf{J} は電流密度、 ρ は電荷密度を表す。なお、ここでは外部からの電荷の供給は無いものとするので、 \mathbf{J} 、 ρ 共に 0 として良い。

また、電束密度と磁場の間には以下の関係も成り立つ。

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (2.5)$$

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H} + \mathbf{M} \quad (2.6)$$

ここで、 ϵ_0 は真空の誘電率、 μ_0 は真空の透磁率を表し、 $\epsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12}$ (F/m)、 $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$ (H/m) である。また、 \mathbf{M} は磁化を表すが、以下では非磁性材料について考えるため、 $\mathbf{M} = \mathbf{0}$ とする。

次に、誘電分極 \mathbf{P} について考察する。誘電分極は 2 つの観点から検討される。

1 つ目は、線形誘電媒質の誘電分極、つまりは誘電体内に外部電場をかけたときに誘電体が分極する現象が、その外部電場に対して線形に変化するという見方である。この場合は、誘電分極 \mathbf{P} は以下の通り表される。

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E} \quad (2.7)$$

ここで、 $\chi^{(1)}$ は 1 次の電気感受率であり、ある誘電体の比誘電率 ϵ を定義すると、以下の関係が成り立つ。

$$\chi^{(1)} = \epsilon - 1 \quad (2.8)$$

$$\mathbf{D} = \epsilon\epsilon_0\mathbf{E} \quad (2.9)$$

長い光学の歴史を通じて、古来よりすべての光学媒質は上記の通り線形であると考えられていたが、1960年のレーザーの発明により、光学媒質中の光の挙動を、それまでよりもより高強度な光で調べるができるようになった。その結果、生まれたのが以下の考えである。

2つ目は、非線形誘電媒質の誘電分極、つまりは誘電体内に外部電場をかけたときに誘電体が分極する現象が、その外部電場に対して非線形に変化するという見方である。誘電分極 \mathbf{P} は素の電界強度によって、非線形的に変化し、以下の通り表される。

$$\mathbf{P} = \epsilon_0\{\chi^{(1)}\mathbf{E} + \chi^{(2)}\mathbf{E}^2 + \chi^{(3)}\mathbf{E}^3 + \dots\} \quad (2.10)$$

ここで、 $\chi^{(2)}$ は2次の非線形係数、 $\chi^{(3)}$ は3次の非線形係数と呼ばれる値である。反転対称性を持つ材料 (SiN 等) では、 $\chi^{(2)}$ が消滅し、 $\chi^{(3)}$ が代わって分極の最小非線形項となる (ただし、1.2.5 節で述べた通り、コアとクラッド間の界面に光が伝搬することで $\chi^{(2)}$ が誘起される場合もある [51][52][53])。なお、フォトニクス材料として用いられる材料の $\chi^{(2)}$ のオーダーは一般的に MKS 単位で $10^{-24} \sim 10^{-21}$ 程度、 $\chi^{(3)}$ のオーダーは一般的に MKS 単位で $10^{-34} \sim 10^{-29}$ 程度である。

また、高次の項はまとめて \mathbf{P}_{NL} としても定義される。

$$\mathbf{P}_{\text{NL}} = \epsilon_0\{\chi^{(2)}\mathbf{E}^2 + \chi^{(3)}\mathbf{E}^3 + \dots\} \quad (2.11)$$

2.2 波動方程式

誘電体媒質を伝搬する光の電界を考えるため、マクスウェル方程式を解く。(2.2) 式の両辺に左から ∇ をかけ、(2.6) 式、(2.4) 式を代入すると以下の通りとなる。なお、簡単な場合を考えるため、今回は分極が電界に対して線形に応答する場合を考えるものとし、(2.9) 式も代入した。

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial}{\partial t}(\nabla \times \mathbf{B}) = -\frac{\partial}{\partial t}\{\nabla \times (\mu_0\mathbf{H})\} = -\mu_0\frac{\partial}{\partial t}\left(\frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}\right) = -\mu_0\frac{\partial^2}{\partial t^2}(\epsilon\epsilon_0\mathbf{E}) \quad (2.12)$$

$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - (\nabla \cdot \nabla)\mathbf{E} = -\nabla^2\mathbf{E}$ より、まとめると以下の式となる。

$$\nabla^2\mathbf{E} = \mu_0\epsilon_0\epsilon\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} \quad (2.13)$$

真空中の光の速度 c は $c = 1/\sqrt{\mu_0\epsilon_0} = 2.998 \times 10^8$ (m/s) として定義できる。次に、屈折率 n を定義する。線形および等方性材料の過程では、比誘電率 ϵ を用いて屈折率 n は以下の通り表される。

$$n = \sqrt{\epsilon} \quad (2.14)$$

以上より, (2.13) 式は以下の通り書き表せる.

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (2.15)$$

(2.15) 式は波動方程式と呼ばれる. 波動方程式を満たすような, 時間 t , 位置 \mathbf{r} における光電界 \mathbf{E} は以下の通り記述できる.

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}(\mathbf{r}) \exp(j\omega t) \quad (2.16)$$

ここで, $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ は位置 \mathbf{r} における光電場であり, スカラー量 E_0 を用いて以下の通り記述できる.

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = E_0 \exp(j\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \quad (2.17)$$

\mathbf{k} は光の波数を表し, 単位長さあたりの波の数を位相 2π に規格化したものである. ω は光の角周波数であり, 光の周波数 f を位相 2π に規格化したものである. 光の波長を λ とおく.

$$|\mathbf{k}| = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{n\omega}{c_0} \quad (2.18)$$

$$\omega = 2\pi f \quad (2.19)$$

(2.16) 式を (2.15) 式に代入することで, 波動方程式は以下の通り表すこともできる.

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) - \frac{n^2 \omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0 \quad (2.20)$$

なお, 高次の項の分極を考慮すると, (2.20) 式に (2.10) 式, (2.11) 式を代入して, 非線形効果を考慮した波動方程式を以下の通り記述できる.

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) - \frac{n^2 \omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\mathbf{r}) = -\frac{\omega^2}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{P}_{\text{NL}}(\mathbf{r}) \quad (2.21)$$

2.3 光導波路の理論

2.3.1 光導波路

リング導波路について考えるために, Fig 2.1 に示すような, コア層をクラッド層で挟み込んだ構造をしたスラブ光導波路について考える. スラブ光導波路は, 光が閉じ込められて伝搬するコア部分と, それを囲むクラッドあるいは基板から構成される. コアの屈折率 n_2 はクラッドの屈折率 n_1 より大きくなるよう設計されており, 端面から入射された光は, コアとクラッドの境界で全反

射されることで、コア内部に閉じ込められながら伝搬する。スネルの法則より、以下の関係が成り立つ。

$$n_1 \sin \theta_1 = n_2 \sin \theta_2 \quad (2.22)$$

全反射が起こるための条件は、クラッド部分の光の屈折角 θ_1 が 90 度を超えることであるから、(2.22) 式より、

$$\sin \theta_1 = \frac{n_2}{n_1} \sin \theta_2 \geq 1 \quad (2.23)$$

よって、コア部分の光の反射角 θ_2 について、以下の関係が成り立つ。

$$\theta_2 \geq \sin^{-1} \frac{n_1}{n_2} = \theta_c \quad (2.24)$$

全反射条件を満たす最小の角度 θ_c は臨界角と呼ばれる。

コア内部に外界から入射角 θ_0 で光を入射するとき、スネルの法則より、外界の空気の屈折率を 1 として、以下の関係が成り立つ。

$$\sin \theta_0 = n_2 \sin(\pi/2 - \theta_2) = n_2 \cos \theta_2 \quad (2.25)$$

(2.23) 式と (2.25) 式より、コアへの光の入射角 θ_0 について、コア内部の光が全反射を起こすための条件は以下の通り記述される。

$$\theta_0 \leq \sin^{-1} \sqrt{n_2^2 - n_1^2} \equiv \theta_{\max} \quad (2.26)$$

全反射条件を満たすコア内部への入射角の最小角度 θ_0 は開口数 (numerical aperture : NA) と呼ばれる。NA より大きい角度で入射した光はコア内部で全反射されずクラッドに染み出し、NA より小さい角度で入射光はコア内部全反射を起こし、伝搬していく。

2.3.2 無限に長いスラブ光導波路中を伝搬する光電場

Fig 2.1 に示すような、2次元スラブ導波路内の光の伝搬を考える。光電場は yz 平面を伝搬する平面波として考えることができ、 \mathbf{k} はその大きさ $k_0 = |\mathbf{k}|$ とおいて、以下の通り表せる。

$$\mathbf{k} = (0, kn_2 \cos \theta_2, -kn_2 \sin \theta_2) \quad (2.27)$$

またこのとき、 $\mathbf{r} = (0, y, z)$ であるから、(2.17) 式と (2.27) 式より、コア内を伝搬する光の電場 $\mathbf{E}_2(\mathbf{r})$ は以下の通り記述できる。

$$\mathbf{E}_2(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_2(y, z) = E_0 \exp\{jk_0 n_2 (y \cos \theta_2 - z \sin \theta_1)\} \quad (2.28)$$

ここで、(2.28) 式について、光の伝搬方向である z 方向成分に注目する。以下のように、係数 β を定義する

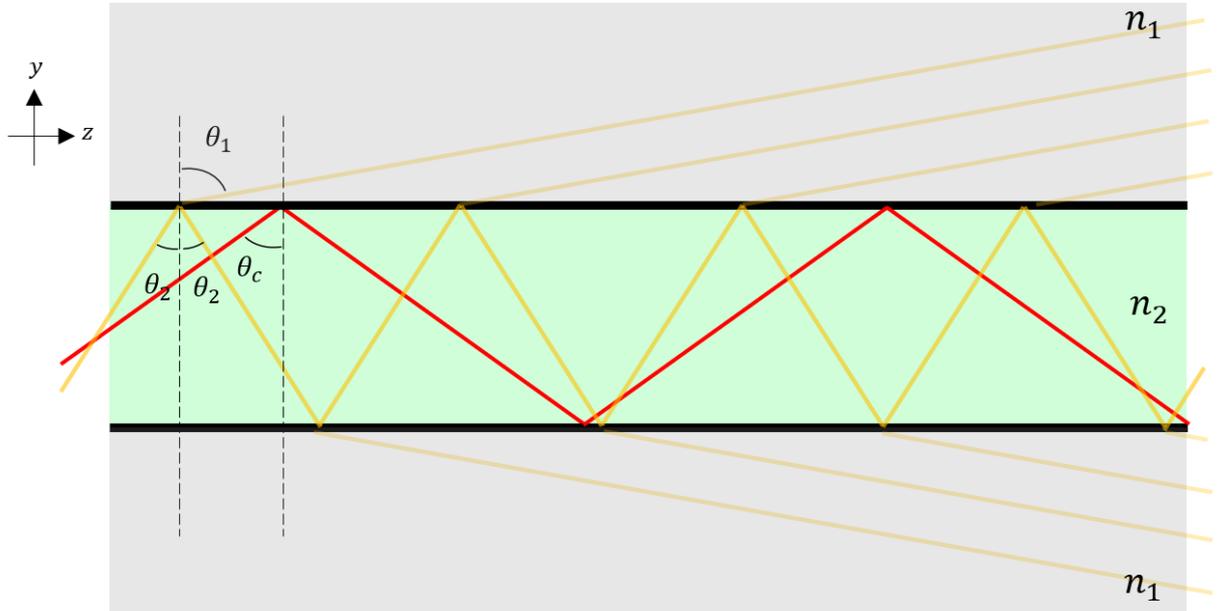


Fig.2.1 Schematic illustration of two dimensional slab waveguide.

$$\beta = k_0 n_2 \sin \theta_2 \quad (2.29)$$

係数 β は伝搬定数と呼ばれ、これを用いると光電場の進行方向における記述をまとめて書くことができるようになる。以上より、 $\mathbf{E}_2(y, z)$ は $E(y) = \exp(jk_0 n_2 y \cos \theta_2)$ とおくことで以下の通り記述できる。

$$E(y, z) = E_0 E(y) \exp(-j\beta z) \quad (2.30)$$

2.3.3 3次元スラブ光導波路中を伝搬する光電場

Fig 2.2(a) に示すような、無限に長い3次元スラブ導波路内の光の伝搬を考える。この図では、 z 方向への光の伝搬を想定しており、高屈折率のスラブが x 方向に無限遠に伸びていると仮定する。 yz 平面で切ることによって、無限に長いスラブ導波路は Fig 2.1 で示された2次元スラブ導波路として考えることができる。

このとき、(2.30) 式より、ある位置 x における x 方向の光の電場 $E_x(y, z)$ (TE モードの光の電場) は以下の通り記述できる。

$$E_x(y, z) = E_0 E_x(y) \exp(-j\beta z) \quad (2.31)$$

(2.20) 式に (2.31) を代入することで、以下の関係が求まる。

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial y^2} + (k_0^2 n_i^2 - \beta^2) E_x = 0 \quad (2.32)$$

ここで、 n_i はコア (n_2) またはクラッド (n_1) 部分の屈折率を表す。

(2.32) 式について、コア部分を $-a \leq y \leq a$ の領域、クラッド部分を $y < -a$, $a > y$ の領域と定義し、電磁界がコア及びその近傍に閉じ込められていることを考慮することで、(2.32) 式は以下の通りに解くことができる。

$$E_x(y) = \begin{cases} A_1 \exp \left\{ -(y-a) \sqrt{\beta^2 - k_0^2 n_1^2} \right\} & (y > a) & (2.33) \\ A_2 \cos \left(y \sqrt{k_0^2 n_2^2 - \beta^2} \right) \text{ or } A_3 \sin \left(y \sqrt{k_0^2 n_2^2 - \beta^2} \right) & (-a \leq y \leq a) & (2.34) \\ A_4 \exp \left\{ (y+a) \sqrt{\beta^2 - k_0^2 n_1^2} \right\} & (y < -a) & (2.35) \end{cases}$$

(2.34) 式において、 \cos は偶数番目のモードを、 \sin は奇数番目のモードを表す。なお、式を解くにあたって、全反射を考えるのでクラッド部分のモード伝搬において、 $\sin \theta_1 > 1$ として考えた。ここで、2つのパラメータを定義する。

$$\gamma \equiv \sqrt{\beta^2 - k_0^2 n_1^2} \quad (2.36)$$

$$\kappa \equiv \sqrt{k_0^2 n_2^2 - \beta^2} \quad (2.37)$$

γ はクラッド層の波数を、 κ はコア層の波数をそれぞれ示している。

上記の2パラメータを用い、境界条件として、 $y = \pm a$ における E_x と $\partial E_x / \partial y$ の値が等しいことを利用することで、(2.33) 式～(2.35) 式は以下の通り書き直すことができる。

$$E_x(y) = \begin{cases} A \exp \{ -\gamma(y-a) \} & (y > a) & (2.38) \\ A \frac{\cos(\kappa y)}{\cos(\kappa a)} \text{ or } \frac{\sin(\kappa y)}{\sin(\kappa a)} & (-a \leq y \leq a) & (2.39) \\ A \exp \{ \gamma(y+a) \} & (y < -a) & (2.40) \end{cases}$$

$$\tan(\kappa a) = \frac{\gamma}{\kappa} \quad (2.41)$$

また、ここで、実際の導波路構造を考慮した屈折率として、実行屈折率 n_{eff} を定義する。

$$n_{eff} \equiv \frac{\beta}{k_0} \quad (2.42)$$

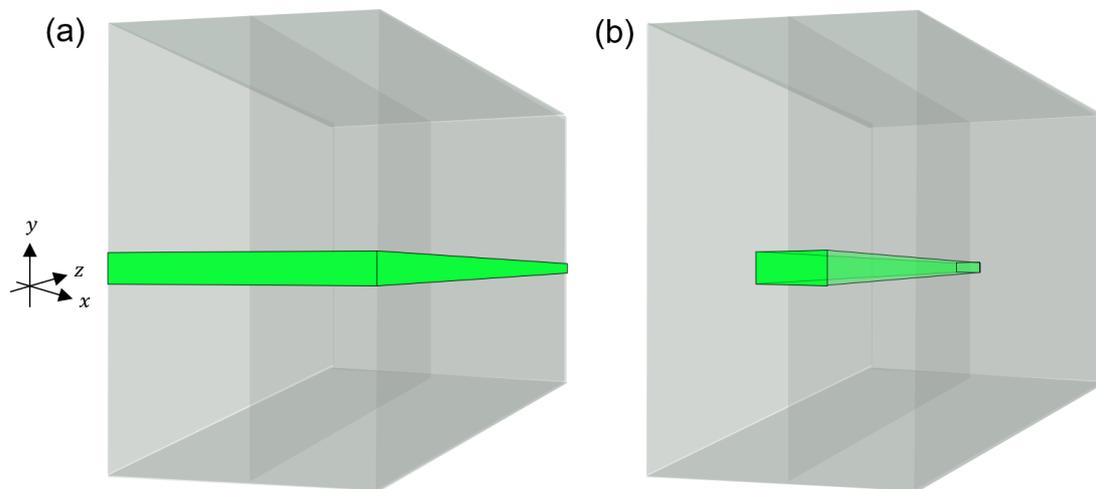


Fig.2.2 Schematic illustration of three dimensional slab waveguides. (a) An infinite slab waveguide. (b) A channel waveguide.

2.3.4 3次元光導波路中を伝搬する光電場

Fig.2.2(b) はチャンネル導波路と呼ばれる，基本的な光導波路の構造としてよく用いられる3次元型の導波路である．チャンネル導波路を伝搬する光は y 方向だけでなく， x 方向の閉じ込めにより側面での全反射も生じるため，電界が光の伝搬方向に垂直ではなくなる．これは，純粋な TE モードと TM モードの消滅を意味する．そこで，電界の主要成分が E_x であるモードを TE-like モード， E_y であるモードを TM-like モードとして定義される．なお，本論文では，これらのモードも単に TE または TM モードと呼ぶことにする．

チャンネル導波路を含む，任意の3次元閉じ込め構造をした導波路を伝搬する光の電磁界の偏微分方程式 (PDE : partial differential equations) を解析的に解く方法として，様々な方法が存在する．有限要素法 (FEM : finite element method) は広く用いられている手法の1つである．FEM を用いたシミュレーションは，微小光共振器などの軸対称構造の固有値ソルバーとして，市販のソフトウェア (COMSOL, Multiphysics など) を使用して実行できる [67]．

Fig.2.3 に示すのは，FEM ソルバーを用いて実際に計算された，波長 1550 (nm) の光を入力したときの SiO_2 クラッドの直線型 SiN チャンネル光導波路の電磁界分布である．Fig.2.3(a) は TE の基本モードの電磁界分布，Fig.2.3(b) は TM の基本モードの電磁界分布を表す．

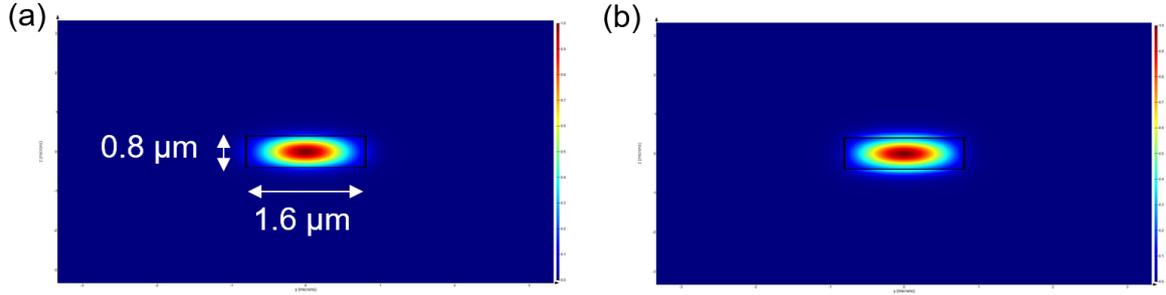


Fig.2.3 Mode profiles for a sample solution to a SiN waveguide. (a) The first order TE mode. (b) The first order TM mode.

2.3.5 分散

媒質中において、伝搬定数 β を持ち、様々な周波数成分を持った光波の伝搬を考える。 β は周波数依存性を持ち、ある周波数 ω_0 周りでテイラー展開されることで以下の関係を満たす [68].

$$\begin{aligned}\beta(\omega) &= \frac{\omega}{c}n(\omega) = \sum_{m=0}^n \left(\frac{1}{m!} \left. \frac{d^m \beta}{d\omega^m} \right|_{\omega=\omega_0} (\omega - \omega_0)^m \right) \\ &= \beta_0 + (\omega - \omega_0)\beta_1 + \frac{1}{2}(\omega - \omega_0)^2\beta_2 + \frac{1}{6}(\omega - \omega_0)^3\beta_3 + \dots\end{aligned}\quad (2.43)$$

ここで、(2.43) 式における初項 β_0 は位相速度 ν_p と呼ばれる値によって、以下の通り表される。

$$\beta_0 = \frac{\omega_0}{\nu_p}\quad (2.44)$$

ν_p は、ある周波数における位相、つまりは波のある特定の位置が移動する速度を表し、実行屈折率 n_{eff} を用いて以下の通り表せる。

$$\nu_p = \frac{c}{n_{eff}}\quad (2.45)$$

(2.43) 式における第二項 β_1 は以下の通り表される。

$$\beta_1 = \left. \frac{d\beta}{d\omega} \right|_{\omega=\omega_0} = \frac{1}{v_g} = \frac{n_g}{c} = \frac{1}{c} \left(n_{eff}(\omega) + \omega \frac{dn_{eff}}{d\omega} \right)\quad (2.46)$$

ここで、 ν_g は群速度と呼ばれる値で、光波の包絡線の進行速度を表す。 n_g は群屈折率と呼ばれる値であり、実行屈折率 n_{eff} の光導波路を伝搬するときに光波が感じる屈折率を表し、以下の関係を満たす。

$$n_g(\lambda) = n_{eff}(\lambda) - \lambda \frac{dn_{eff}(\lambda)}{d\lambda}\quad (2.47)$$

なお、長さ L の分散媒質中を伝搬した光波スペクトルの位相 $\Phi(\omega)$ は、 $\phi = \beta L$ で表される位相シフト ϕ を受けることで $\Phi(\omega) = \omega t - \beta L$ となる。(2.43) 式を代入することで、 Φ は以下の通り表される。

$$\Phi(\omega) \equiv \omega_0 \left(t - \frac{L}{v_p} \right) + (\omega - \omega_0) \left(t - \frac{L}{v_g} \right) + \dots \quad (2.48)$$

またこのとき、光波の群遅延 T_g は以下の通り表される。

$$T_g = \frac{d\phi}{d\omega} = L \frac{d\beta}{d\omega} = \frac{L}{v_g} = \beta_1 L \quad (2.49)$$

(2.43) 式における第三項 β_2 は以下の通り表される。

$$\beta_2 = \left. \frac{d^2\beta}{d\omega^2} \right|_{\omega=\omega_0} = \frac{1}{c} \frac{dn_g}{d\omega} = \frac{1}{c} \left(2 \frac{dn_{\text{eff}}}{d\omega} + \omega \frac{d^2 n_{\text{eff}}}{d\omega^2} \right). \quad (2.50)$$

β_2 は群速度分散 (GVD : group velocity dispersion) と呼ばれる値であり、光波の伝搬の際に生じるパルスの広がり方に関係する。 $\beta > 0$ は正常分散と呼ばれる状態で、光波の伝搬に伴い相対的に低周波数成分が速く進み、高周波成分が速く進む (アップチャープする) 状態を表す。 $\beta < 0$ は異常分散と呼ばれる状態で、光波の伝搬に伴い相対的に高周波数成分が速く進み、低周波成分が速く進む (ダウンチャープする) 状態を表す。

$$\frac{dT_g}{d\omega} = \frac{d^2\phi}{d\omega^2} = L \frac{d^2\beta}{d\omega^2} = \beta_2 L \quad (2.51)$$

ファイバ光学においては、分散は角周波数ではなく波長の関数として考える形式が主流であり、分散パラメータ D (単位 : ps/(nm · km)) を用いて以下の通り表される。なお、 D は、1 (km) の光波の伝搬において、1 (nm) の波長差を持つ光に生じる遅延時間を表す。

$$D = \frac{1}{L} \frac{dT_g}{d\lambda} = \frac{d\beta_1}{d\lambda} = \frac{1}{c} \frac{dn_g}{d\lambda} = -\frac{\lambda}{c} \frac{d^2 n_{\text{eff}}}{d\lambda^2} = -\frac{2\pi c}{\lambda^2} \beta_2 \quad (2.52)$$

$D < 0$ は正常分散を、 $D > 0$ は異常分散を表す。

2.4 光共振器の理論

2.4.1 モード結合理論

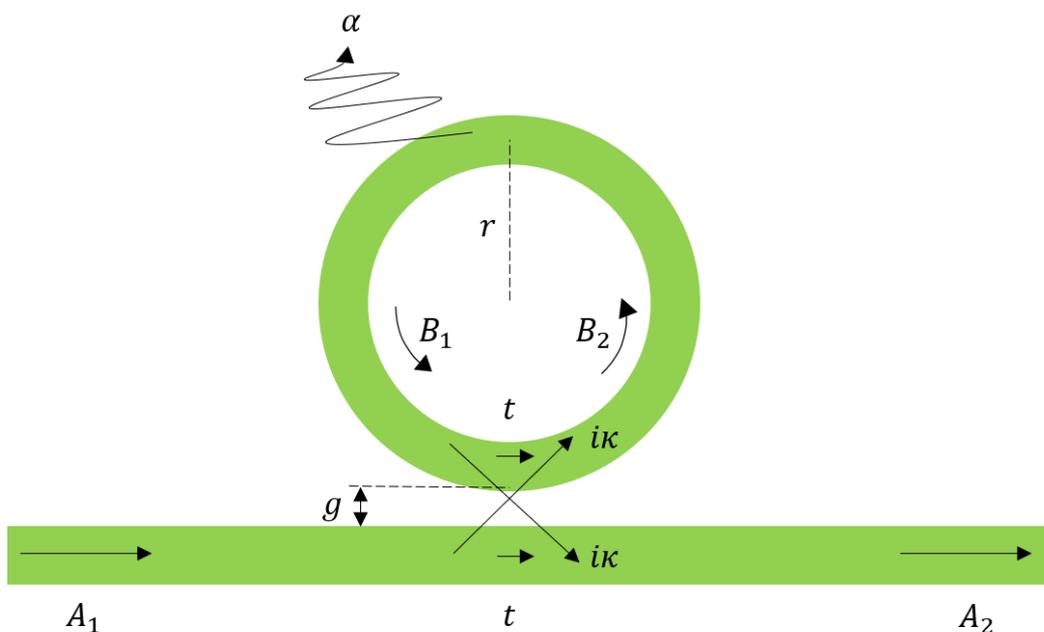


Fig.2.4 Waveguide-microresonator optical coupling system via evanescent field.

Fig 2.4 に示すような，導波路型リング共振器について考える．(2.31) 式より，ある波長 λ の光が中心半径 r の共振器を 1 周することにより受ける位相シフト量 $\phi(\lambda)$ は以下の通り表される．

$$\phi(\lambda) = \beta(\lambda)2\pi r = n_{eff}(\lambda) \frac{2\pi}{\lambda} \cdot 2\pi r \quad (2.53)$$

特に，共振器が共振状態のとき，自然数 m を用いて $\phi(\lambda) = 2m\pi$ と表せるから，(2.53) 式は以下の通り書き直せる．

$$m = \beta(\lambda_0)r = n_{eff}(\lambda_0) \frac{2\pi}{\lambda_0} \cdot r \quad (2.54)$$

m は共振器のモード番号と呼ばれる値であり，このときの波長 λ_0 は共振周波数と呼ばれる．

次に，導波路から共振器に入射する光電場 A_1 ，共振器内部に入射した光電場 B_1 ，共振器内部で 1 周した光電場 B_2 ，共振器から導波路に出射した光電場 A_2 の関係について考察する．これらの 4 電場の関係は，透過率 t ，結合効率 κ を用いて以下の通り表される．

$$\begin{cases} A_2 = tA_1 + j\kappa B_1 \\ B_2 = j\kappa A_1 + tB_1 \end{cases} \quad (2.55)$$

$$|t|^2 + |\kappa|^2 = 1 \quad (2.56)$$

なお、虚数単位 j は、カップリングによる位相シフト量 π を表したものである。

また、 B_1 は共振器を 1 周した後の B_2 の光電場の値であることから、以下の関係も成り立つ。

$$B_1 = \alpha \exp j\phi(\lambda) B_2 \quad (2.57)$$

α は共振器 1 周あたりの導波路の減衰係数であり、その原因は散乱や吸収、放射などである。また、 α は以下の通り表される。

$$\alpha = \exp(-\alpha_r \cdot 2\pi r) \quad (2.58)$$

ここで、 α_r は単位長さあたりの導波路の減衰係数である。

したがって、(2.55) 式、(2.57) 式より、光導波路を伝搬するパワーに対する共振器を周回するパワーの比 $P_{circ}(\lambda)$ 、共振器と結合した後の光の透過率 $P_{trans}(\lambda)$ は以下の通り表される。

$$P_{circ}(\lambda) = \left| \frac{B_1}{A_1} \right|^2 = \frac{\alpha^2 \kappa^2}{1 + \alpha^2 t^2 - 2\alpha t \cos(\phi(\lambda))} \quad (2.59)$$

$$P_{trans}(\lambda) = \left| \frac{A_2}{A_1} \right|^2 = \frac{\alpha^2 + t^2 - 2\alpha t \cos(\phi(\lambda))}{1 + \alpha^2 t^2 - 2\alpha t \cos(\phi(\lambda))} \quad (2.60)$$

共振状態における $P_{circ}(\lambda)$ 、 $P_{trans}(\lambda_0)$ は、 $\phi(\lambda_0) = 2m\pi$ であることから以下の通り表される。

$$P_{circ}(\lambda) = \frac{\alpha^2}{(1 - \alpha)^2} \quad (2.61)$$

$$P_{trans}(\lambda) = \frac{(\alpha - t)^2}{(1 - \alpha t)^2} \quad (2.62)$$

Fig 2.4 に共振器の透過波の計算例を示す。

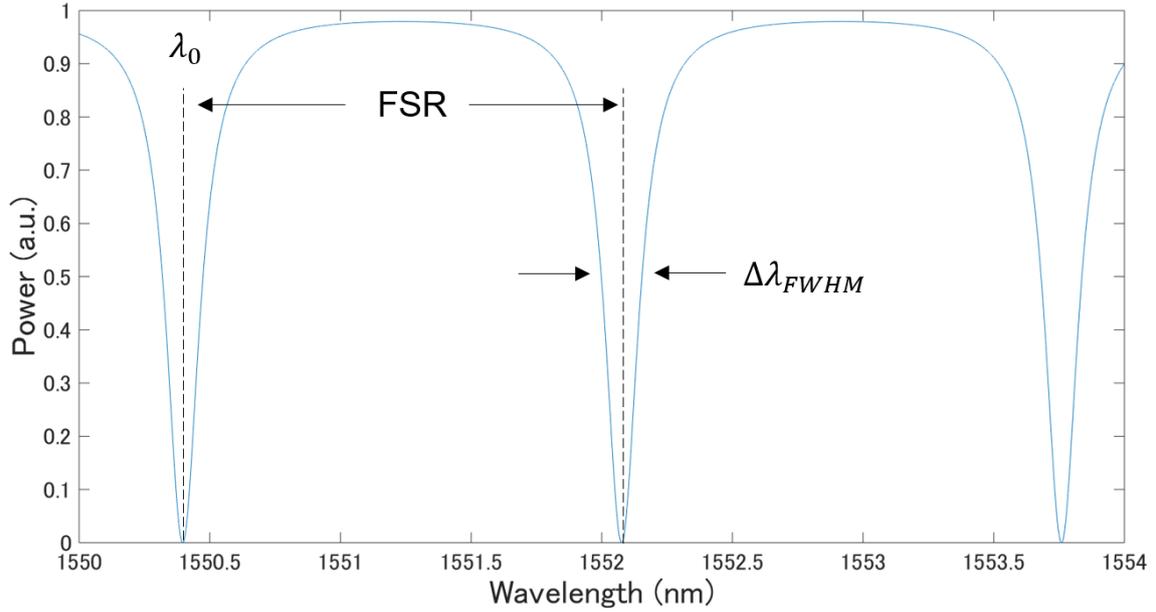


Fig.2.5 A calculated transmission spectrum of a microring resonator in critical coupling condition. In this calculation, $Q_{\text{load}} = 1.0 \times 10^4$, $n_g = 2.0$, $r = 114 \mu\text{m}$

共振器における光の閉じ込め性能は Q 値と呼ばれる指標が広く用いられる。共振器の Q 値は以下の式で定義される。

$$Q = 2\pi \frac{(\text{Intracavity optical energy})}{(\text{Energy loss per optical cycle})} = 2\pi \frac{U_{\text{cav}}(t)}{\frac{U_{\text{cav}}(t) 2\pi}{dt \omega_0}} \quad (2.63)$$

$$Q = \frac{\omega_0}{\Delta\omega_{\text{FWHM}}} \approx \frac{\lambda_0}{\Delta\lambda_{\text{FWHM}}} \quad (2.64)$$

ここで、 $U_{\text{cav}}(t)$ は共振器内部のパワー、 ω_0 は共振周波数、 $\Delta\omega_{\text{FWHM}}$ は周波数領域での透過スペクトルの半値全幅、 λ_0 は共振波長、 $\Delta\lambda_{\text{FWHM}}$ は波長領域での透過スペクトルの半値全幅を表す。

Q 値は共振器の閉じ込め性能を表し、一般的に Q 値は透過波スペクトルの半値幅とその共振周波数を測定することで算出できる。また、(2.63) 式より、 Q 値は光子寿命 τ_p を用いて以下の通りに表すことができる。

$$Q = \omega_0 \tau_p \quad (2.65)$$

τ_p は吸収や散乱、曲げ損失、結合効率に依存する値である。

共振器全体の損失（カップリングによる損失とリング部分による伝搬損失）を考慮した Q 値を Q_{load} (loaded Q factor, 先ほどまでの Q 値と同義) と定義する。 Q_{load} は式 (2.64) 式から半値幅を計算することで、以下の通りに表せる [69]。ここで、 L は共振器長である。

$$Q_{\text{load}} = \frac{\sqrt{t\alpha}L\pi n_g}{(1-t\alpha)\lambda_0} \quad (2.66)$$

共振器のリング部分の損失（放射損失，表面散乱損失，材料吸収に基づく損失等）を考慮した Q 値を Q_{int} （intrinsic Q factor）と定義する． Q_{int} は共振器固有の Q 値であり，共振器の材料や構造，作製手法が変わらない限り不変の値をとる．また， Q_{int} は，損失がリング内部にのみあると仮定し，(2.66) 式の $t = 1$ とすることで，以下の通り定義できる．

$$Q_{\text{int}} = \frac{\sqrt{\alpha}L\pi n_g}{(1-\alpha)\lambda_0} \approx \frac{k_0 n_g}{\alpha} \quad (2.67)$$

なお，ここでは十分損失が小さいと仮定して， $\alpha L \ll 1$ における以下の近似式を用いた．

$$1 - \alpha = 1 - \exp(-\alpha_r L) \approx \frac{\alpha_r L}{2} \quad (2.68)$$

$$\alpha = t = \exp(-\alpha_r L) \approx 1 \quad (2.69)$$

次に，バス導波路とリング導波路間の光結合による損失を考慮した Q 値を Q_{coup} （coupling Q factor）と定義する．ここで， Q 値は光の閉じ込め性能を表し，その逆数は共振器の損失を表すから，共振器全体の損失はリング部分の損失とカップリングによる損失を足し合わせたものと同義である．つまり， Q 値は以下の関係が成り立つ．

$$\frac{1}{Q_{\text{load}}} = \frac{1}{Q_{\text{int}}} + \frac{1}{Q_{\text{coup}}} \quad (2.70)$$

また，共振波長 λ_0 における透過率 $T_{\text{min}} = P_{\text{trans}}(\lambda_0)$ を用いることで， Q_{coup} は以下のように表すことができる．

$$Q_{\text{coup}} = \begin{cases} \frac{2Q_{\text{load}}}{1 - \sqrt{T_{\text{min}}}} & (\alpha < t) \\ \frac{2Q_{\text{load}}}{1 + \sqrt{T_{\text{min}}}} & (\alpha > t) \end{cases} \quad (2.71)$$

$$(2.72)$$

(2.67)，(2.70) ～ (2.72) 式を用いることで Q_{load} ， Q_{int} ， Q_{coup} はそれぞれ求めることが可能である．なお， $\alpha < t$ はアンダーカップリング（under coupling）状態， $\alpha > t$ はオーバーカップリング（over coupling）状態と呼ぶ．また， $\alpha = t$ はクリティカルカップリング（critical coupling）状態と呼ばれ，以下の関係が成り立つ．

$$Q_{\text{int}} = Q_{\text{coup}} = 2Q_{\text{load}} \quad (2.73)$$

カップリング強さ κ はバス導波路とリング導波路間の長さ g に依存し， g が短いほど光が共振器に結合しオーバーカップリングなり，長いほどアンダーカップリングになる．リング部分の損失と

バス導波路部分の透過率が一致する，入力光が全て共振器内部に入る長さ g でクリティカルカップリングとなる．

共振周波数の間隔は自由スペクトル間隔（FSR : free spectral range）で定義され，以下の通りである

$$FSR^{(\omega)} = \omega_{(m+1)} - \omega_{(m)} = 2\pi \times \left(\frac{2\pi r}{\nu_g} \right)^{-1} = \frac{c_0}{rn_g(\omega)} \quad (2.74)$$

$$FSR^{(\lambda)} = \frac{\lambda^2}{2\pi r n_g(\lambda)} \quad (2.75)$$

共振周波数の周波数幅はフィネス F と呼ばれるパラメータで定義される． F は以下の通り表される．

$$F = \frac{FSR^{(\lambda)}}{\Delta\lambda_{FWHM}} \quad (2.76)$$

クリティカルカップリング ($\alpha = t$) において， F は (2.56)，(2.66)，(2.73)，(2.76) 式を用いて以下の通り表すことができる．

$$F = \frac{\alpha\pi}{\kappa^2} \quad (2.77)$$

共振器内部の光パワー P_{circ} は，クリティカルカップリングにおいて (2.59) 式より以下の通りである．

$$P_{circ} = \frac{\alpha}{\kappa^2} = \frac{F}{\pi} \quad (2.78)$$

フィネスは共振器内の電界強度の増強度に比例し，フィネスが大きい共振器ほどその Q 値は高い．

3 SiN リング共振器の作製

本研究では、HWCVD 法を用いた低温条件下で絶縁膜上に堆積させた SiN を用い、CMOS 互換性のあるプロセスを用いることで低損失（高 Q 値）の SiN リング共振器を作製することを目的とする。本章では、作製手法の概要について述べたのちに、そのプロセスの詳細について述べる。

3.1 作製手法の概要

本研究で用いたデバイス作製手法の概略を Fig 3.1 に示す。主要なプロセスは以下の通りである。

- (1) HWCVD 法を用いて SiN 膜を堆積
- (2) 電子線ビームリソグラフィによるマスク形成
- (3) ドライエッチング加工
- (4) クラッド層堆積
- (5) ダイシングによる端面加工

次節以降では、(1)~(5) のプロセスについて詳細を述べる。

また、本研究では、特に (2) と (3) のプロセスの最適化を行った。その詳細は 4 章で述べるものとする。

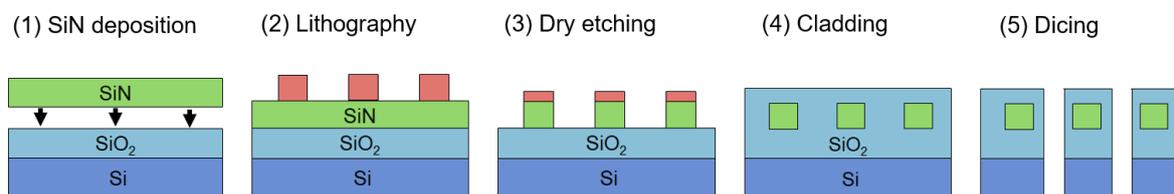


Fig.3.1 Fabrication process of SiN ring resonator.

3.2 SiN 膜堆積

3.2.1 HWCVD 法の概要

低温プロセスによる SiN 膜堆積の手法として、本研究ではホットワイヤ (HW: Hot-wire) CVD 法 (別名触媒化学気相成長 (cat-CVD) 法) を用いた [60]。この手法は、1985 年に北陸先端科学技術大学院大学 (JAIST) の松村英樹教授のグループによって開発された。原料ガスのシラン (SiH_4) とアンモニア (NH_3) をタングステンワイヤを触媒にすることで 400°C 以下の低温条件下で SiN 膜堆積を行う。タングステンワイヤの設置をデザインすることで大面積で均一な薄膜の堆積が可能である。

ホットワイヤ CVD 法は、低温条件下での堆積によるクラック生成の阻害が可能だけでなく、プラズマ CVD 法と比べて膜中の残留 H 濃度が少ない (PECVD が 10-20% なのに対し、ホット

ワイヤ CVD は 3% 以下 [70]). また, プラズマを使用せず, 高温雰囲気も必要としないために基板へのダメージが少なく, 低損失な膜が作製できることが期待できる. さらに, 本反応は約 6 (nm/min) とゆっくりとした堆積過程であるため, 緻密な膜が生成され, プロセス後のアニール処理による残留 H 濃度低減が期待できる.

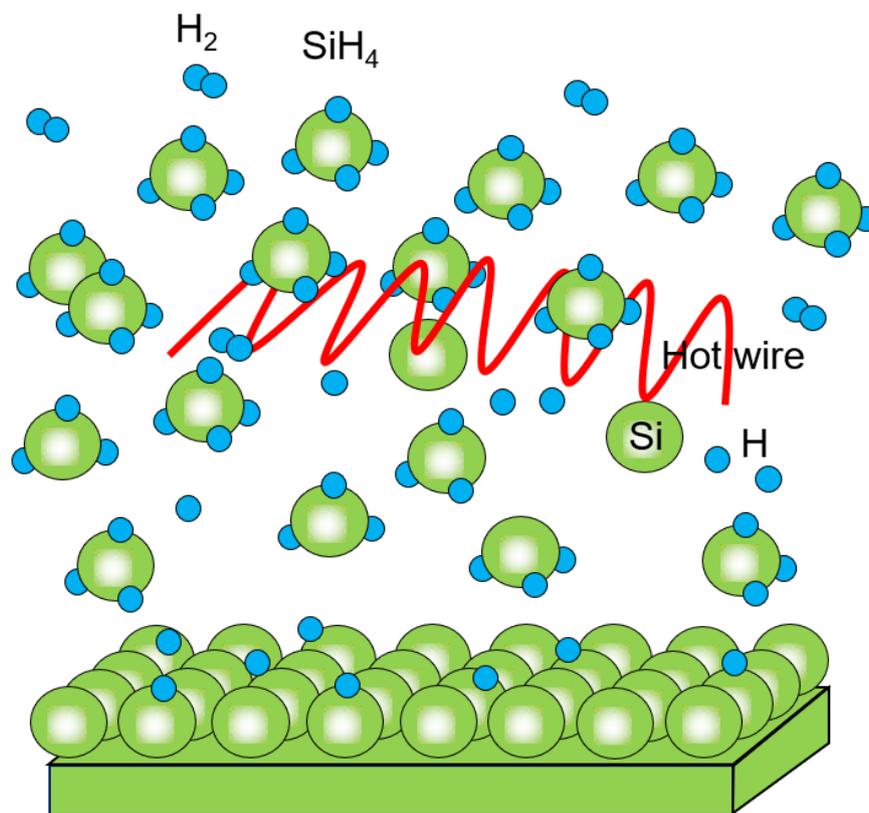


Fig.3.2 Schematic illustration of cat-CVD process

3.2.2 堆積プロセス

ピラニア洗浄を行った 4 分円の熱酸化 SiO_2 膜 ($4\mu\text{m}$ または $10\mu\text{m}$) 付き Si 基板上 (以下, SiO_2/Si 基板) に SiN 堆積を行った. ($\text{SiH}_4 : \text{NH}_3$) = ($2.4(\text{sccm}) : 80(\text{sccm})$) の流量で原料ガスを流し, 反応室内の圧力を $4(\text{Pa})$, 400°C に設定し, タングステンワイヤと基板間の距離 t を $150(\text{mm})$, タングステンワイヤに約 $600(\text{W})$ の電流を流すことで SiN の厚膜堆積 ($750(\text{nm})$) を行った. なお, 事前にレートチェックを行ったのちに SiO_2/Si 基板上に堆積を行った. なお, 堆積レートのばらつきは $\pm 0.4(\text{nm}/\text{min})$ 程度であった.

3.2.3 堆積レートと膜の屈折率特性

ガスの流量と反応室内の圧力, フィラメントと基板間の長さ t を変えることによる SiN の屈折率変化と膜厚変化を計測した. 具体的には, Si 基板上に SiN を様々な条件で堆積させ, SiN の屈折

率と膜厚をエリプソメータでそれぞれ計測した。その結果を Fig 3.1 に示す。SiH₄ の流量が減ると堆積レートは減り、Si が減ることにより屈折率が低くなることが分かった。反応室内の圧力が減ると堆積レートは減るが、圧力の減少量に対して大きく減らないことが分かった。また、1 (Pa) になると屈折率が上がり、Si の組成が多いシリコンリッチの SiN になることが分かった（エリプソメータの測定において、Si は短波長（300-400nm）付近の光を吸収するので、測定では短波長側を無視して測定することが必要となる）。また、 t を大きくすることで堆積レートが減ることが分かった。

Table.3.1 Process conditions and results of cat-CVD.

Process conditions			Results	
Gas flow (SiH ₄ (sccm) : NH ₃ (sccm))	Pressure (Pa)	t (mm)	Refractive index($\lambda = 632.8\text{nm}$)	Deposition rate (nm/min)
(2.4 : 80)	4	150	2.062	6.35
(2.4 : 80)	3	150	2.084	5.19
(2.4 : 80)	3	175	2.086	3.43
(2.4 : 80)	1	175	2.364	2.26
(2.4 : 80)	0.5	175	2.464	2.00
(0.8 : 80)	0.5	175	1.864	0.945

3.3 電子線ビーム描画（露光）

3.3.1 レジスト塗布

レジストはデバイス層上に感光材として塗布される。レジストは、光や電子が当たり（露光）、それが一定量を超えると分子構造が変化し、レジストを溶解する液体である現像液に対する溶解度が変化することによって、パターン形成が可能となる。この分子構造が変化する光や電子の量（ドーズ量）の閾値は感度によって表される。同じ面積のパターンを露光する時、感度が低いレジストほどドーズ量が多く必要となるため露光時間が増え、感度が高いレジストほどドーズ量が少なく露光できるため露光時間が減る。レジストは大きく分けて2種類存在する。露光部分が現像時に溶解するポジ型レジストと、露光部分のみが現像時に残るネガ型レジストである。

ポジ型レジストは取り扱いが容易であり、解像度が高い（< 20 nm）という利点が挙げられる[71]。しかし、露光していない部分が残ってしまうため、光導波路の外側（クラッド部分）を露光してパターンを描かなければならず、結果的に描画面積が広がるため、露光に時間がかかってしまうという欠点が存在する。

ネガ型レジストは、ポジ型レジストほどではないものの解像度が高く（< 50 nm）、感度が高いものの、導波路部分のみ露光すれば良いため、結果的に短時間で露光ができる（同じ共振器を作ろうとした場合、ポジ型の約2倍以上の速度で可能）[72]。また、露光して反応した部分は、ポリマーの重合反応によって現像液の溶解度が下がるため、ポジ型レジストと比べてドライエッチング（3.4節参照）に耐性があるという利点もある。しかし、ネガ型レジストは扱いが難しいという欠点

が存在する。具体的には、電子線レジストであっても感光性（可視光に反応する性質）を有していたり、感度曲線の閾値特性がポジ型レジストに比べて緩やかであり（ガンマ値が低い）、劣化が速いことが挙げられる。

本研究では、異常分散特性を有する厚膜 SiN のドライエッチングを行うために、ドライエッチングの選択比（3.4 節参照）を考慮して、厚膜（ $>1 \mu\text{m}$ ）で堆積できるレジストを選択した。ポジ型レジストとして gL2000-H（グルーオンラボ社製）を、ネガ型レジストとして ma-N 2410（micro resist technology 社製、以下 maN）を用いた。なお、レジストパターンによってどれほど微細なパターンを描けるかはアスペクト比によって制限される。アスペクト比とは、あるレジストパターンにおけるレジスト高さに対するレジスト幅の比を表し、各々のレジストで固有の値を持つ。厚膜でレジストを堆積する場合は、薄膜の場合と比べて微細なパターンが描くことが難しくなる点に注意が必要である。また、maN には密着性プロモーターとして SurPass 4000 を使用した。SurPass 4000 は、レジストと基板の接着性を強めることで現像プロセス（3.3.3 節参照）において、レジストと基板の間における現像液の侵入を防ぐことができる。また、従来用いられていた HMDS（Hexamethyldisilazane）、TTA（Thenoyltrifluoroacetone）などと比べてレジストと基板の接着力を最大 80% 向上できるといった利点も存在する [73]。

また、後述の EB 描画のために、レジスト塗布後にエスペイサー（昭和電工製）も塗布した。エスペイサーとは導電性の高分子材料であり、基板表面を導電性にするすることで、電子線が不導体表面において散乱（チャージアップ）することによる導波路の描画位置ずれを防ぐことができる。

レジスト塗布は以下の通りである。

前処理

SiO₂/Si 基板上に SiN を堆積させた基板（以下 SiN/SiO₂/Si 基板）を有機洗浄後にアッシングを 1 分（レート：10 nm/min）行い、レジストを塗布した。なお、アッシングとは、O₂ プラズマアッシングのことを表し、高エネルギー状態の酸素ラジカルを照射し、炭素と結合させ、CO₂ として気化・分解（灰化:アッシング）させる方法である。本来は、有機物除去のために用いられるが、本プロセスでは短時間のアッシングを行うことで SiN の表面を還元させ、レジストの濡れ性（SiN 基板に対する接着性）を改善できる。

塗布条件

レジスト塗布には、ポジ型レジストとネガ型レジスト共にスピコートを用いた。スピコートとは、レジスト塗布後にスピコーターを用いて基板を回転させることでレジストを基板上に均一に広げるプロセスである。ポジ型レジストは、1 μm レジストを積むことをターゲットに、500 rpm（rotation per minute）で 5 秒回転（レジストをまず基板全体に広げる）→ 1100 rpm で 80 秒回転を行うことでスピコートされ、210 °C で 5 分間ホットプレートに置くことでレジストのプリベークを行った。ネガ型レジストは、ポジ型レジストは、1.1 μm レジストを積むことをターゲットに、SurPass 4000 を 500 rpm で 5 秒回転（レジストをまず基板全体に広げる）→ 2000rpm で 30 秒回転を行うことでスピコートした後に、500 rpm で 5 秒回転 → 2500rpm で 40 秒回転を行うことでスピコートされ、110 °C で 2 分間ホットプレートに置くことでレジストのプリベークを行った。なお、参考として Fig 3.3 に gL2000-M と maN のスピンカーブ（スピコーターの回

転数に対するレジスト膜厚)を示す。

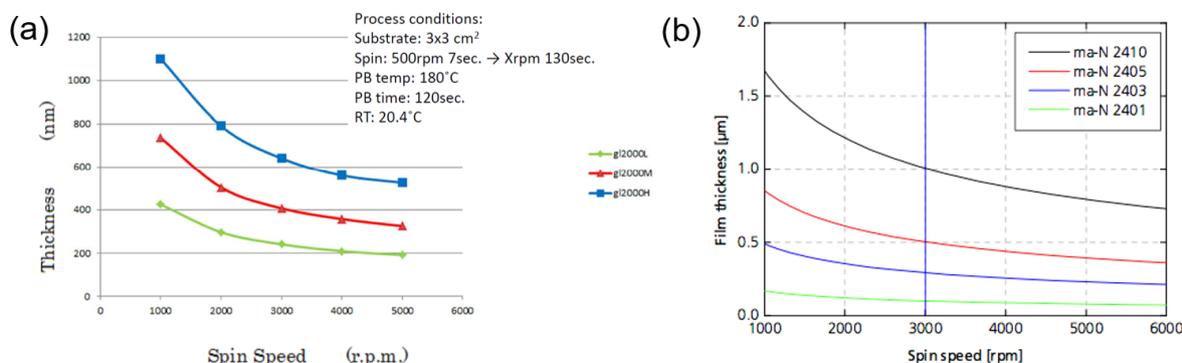


Fig.3.3 Spin curf of EB resist. (a) gL2000. [Gluon Labo LLC, Private communications (2015).] (b) ma-N. [https://static1.squarespace.com/static/57b26cc76b8f5b7524bf9ed2/t/5b043113562fa7bfe33b412b/1527001364364/2400_man_datasheet.pdf]

3.3.2 電子線ビーム描画 (露光)

レジスト上にパターンを形成する際に重要となるのは、プロセスの空間分解能である。空間分解能はプロセスの様々な因子によって劣化するため、デバイスを作製する上で必要な空間的スケールをクリティカル・ディメンジョン (CD) として、その CD 値を実現するためにプロセスの最適化を行う。SiN リング共振器を描くことを考えた際、ポジ型レジストであれば CD 値は方向性結合器のギャップ部分 (200 - 500 nm) であり、ネガ型レジストであれば導波路先端にある入出力のスポットサイズコンバータの先端部分 (150 - 300 nm) である。どちらもその長さはサブ μm オーダーであり、この値は通常の紫外線 (UV : ultra violet) リソグラフィーによる露光プロセスの空間分解能と同程度であるため、より空間分解能の高い描画プロセスが必要となる。なお、大量生産を目的とした UV リソグラフィーでは多重露光プロセスなどを用いることで、サブ 100 (nm) の空間分解能が実現され、実用化されている [74]。

本研究では、UV リソグラフィーに比べ、スループットは劣るが、光リソグラフィー用のマスクを作製するツールである電子線ビーム (EB : electron beam) 描画装置 (JEOL JBX-9500FSZ) を用いた。本 EB 描画装置は、電子銃から放出される電子線を加速し、電子ビーム光学系でサンプル上の 1 点に集光されたナノメートルスケールのビームスポットを空間的に走査することで、パターン描画を行うものである。一般に、電子ビームのスポット径は、電子銃の輝度や電子工学系の週さに律速するが、電子銃の加速電圧が高いほど、高い空間分解能が得られる。本装置の公称スポットサイズは電流量 2 (nA) において直径 6 (nm) 程度であり、ステージの位置再現性精度と同程度となっている。

EB 描画は、サブミクロンスケールの微細なパターンが容易に描けるが、光導波路マスクパターンを描画する上で、2つの問題が存在する。1つ目は、電子の後方散乱効果である。2つ目は、スティッチングと呼ばれる問題である。

(1) 電子の後方散乱

固体試料表面に照射された電子は、試料を構成する原子や電子と衝突を繰り返しながら試料内部を通過していく。しかし、照射電子の一部は散乱過程によって進行方向が大きく変わる。この電子が失活するまでに多重散乱されることで、より多くの電子が発生し、レジストの実効的な照射ドースを上昇させる。これは後方散乱電子と呼ばれ、後方散乱電子の量は、パターン密度に依存する。したがって、ドース量を一定にして描画しても、パターン密度に応じてドースは局所的に変化し、CD は変わってしまう。これが後方散乱電子の効果である。後方散乱電子の結果を考慮して、パターン密度に依存せずに設計通りのパターンを描画するためには、パターン密度に応じてドースを最適化しなければならない。

ドース補正

電子散乱過程は、材料構成と加速電圧を決めてモンテカルロ (MC) シミュレーションを行うことによって、後方散乱電子の寄与を考慮した実効的なビームスポットサイズを決めることが可能である [75]。この空間分布情報を瞳関数として、最終的なドース分布は、理想的なドース分布の逆畳み込みとして計算することができる。しかし、ビーム集光特性、レジストの感度特性によって、実際の観光特性は理想的な MC シミュレーションとは異なってくるため、実効的なビームのボケ (Effective blur, 以下ブラー) という現象論的なパラメータを用いて、ドースと共にキャリブレーションする必要がある。

ドース量

ドース量は基板の単位面積あたりに照射する電荷量であり、単位は ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$) である。ドース量 D ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$) は以下の式で表される。

$$D = I_p \times \frac{1}{f_{\max}} \times \frac{1}{\Delta x^2} \quad (3.1)$$

ここで、 I_p (nA) は電流量、 f_{\max} は電子線の照射周波数であり、 $f_{\max} = 125$ (MHz) は装置の偏向器の性能で決まる。また、 Δx (nm) はショットピッチ (shot pitch) と呼ばれ、基板上におけるビームスポットの間隔である。あるドース量でパターンを描くとき、電流値を小さくすることによりショットピッチは小さくなり、より狭ピッチでパターンが描けるようになる。また、一般に電子銃の安定性を確保するために、電流量は固定して描画する。したがって、ドース補正は偏向器の掃引周波数 f_{\max} を変調して行う (最低ドース量は $f_{\max} = 125$ (MHz) で固定される)。

ブラー

ブラーは前述の通り、ビーム集光特性、レジストの感光特性、材料の層構成などに依存して変化するが、10~100 (nm) のオーダーの範囲の値をとる。Fig 3.5 に異なるブラー値に対してドース依存性の計算例を示す。なお、計算においては、ハーフピッチ (HP : half pitch) 300 (nm) のラインアンドスペース (LS : line and space) ネガ型レジストパターンを SiN/SiO₂/Si 基板上に EB 描画すると仮定する。LS パターンは Fig 3.4(a), (b) に示すような図形であり、HP は 50% としてトレンチ幅とリッジ幅それぞれの長さを表す。この計算から、ブラー値に比例して、ドースとパ

ターン密度の依存性が大きくなることが分かった。補正量は少ない方が高精度な補正が可能であると考え、ブラー値は低い方が一般的に好ましい。

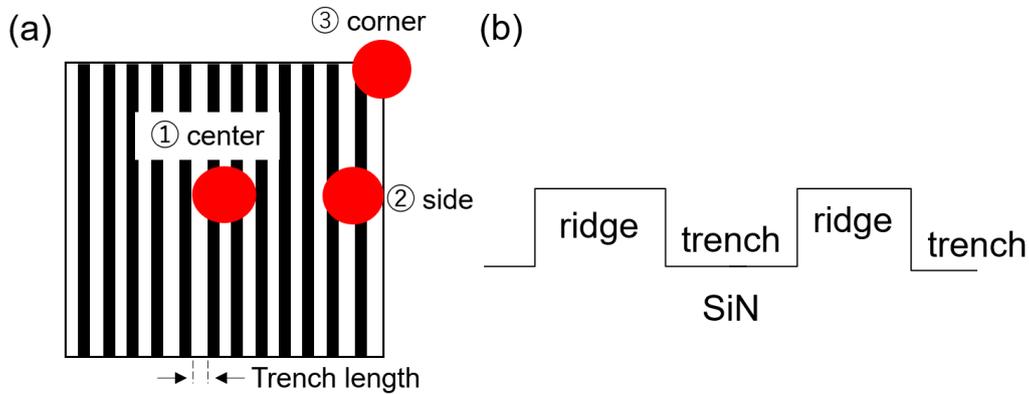


Fig.3.4 Schematic illustration of LS pattern and measured trench width. (a) Front view of LS pattern. (b) Side view of LS pattern.

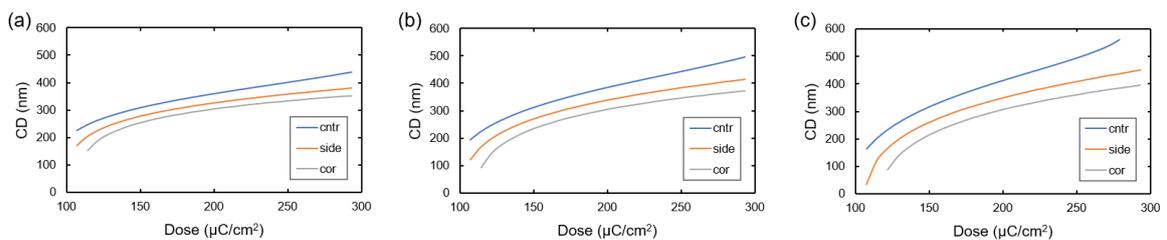


Fig.3.5 Simulation results of CD by changing blur. (a) blur = 100 (nm). (b) blur = 150 (nm). (c) blur = 200 (nm).

エッチバイアス

以上の2パラメータを用いて補償し、後方散乱電子に起因するパターン密度依存性の問題を回避できるようになる。しかし、EB描画後の現像によってもCD値が変わる場合がある。特に、感光閾値特性が緩やかな（ガンマ値の低い）レジストにおいては、膜厚方向にパターンが解像される間に、面内方向の現像も有限速度で進行してしまう。この補正（etch bias）も利用した（この値はレジスト膜厚が大きいほど顕著になる）。

これらの3パラメータ（ドース量、ブラー、エッチバイアス）を同定することで、パターン密度に依存せず、所望のCDを実現するドース分布を決定することができる。詳細は4章で述べるものとする。

(2) フィールド・スティッチング

EB描画によって光導波路のパターンを形成する上で、2つ目の課題は、描画フィールドごとのパターンのずれから生じる導波路損失である。JBX-9500では、偏向器で電子ビームスポットを走

査できる範囲（フィールドサイズ）は1（mm）角であり，それ以上のサイズのパターンは機械式のステージ移動によって描画を行う．このステージの位置は，分解能1（nm）の光学干渉計信号を偏向器にフィードバックすることで，公称10（nm）以下のビーム位置再現性を確保しているが，サブミクロンスケールの光導波路では数 nm の導波路のずれは，遷移損失（transition loss）を生じる．例えば，光導波路のパターンを5（mm）のスパンで描画する必要があるれば，1（mm）角のフィールドサイズを仮定して4箇所接続部分が必要となる．1接続点あたりの損失が0.3（dB）であれば，接続だけで1.2（dB）の損失となるため，非線形効果を利用する実験では特に低減できることが好ましい．

この問題を低減するため，マルチパスリソグラフィーを導入した [76][77]．この方法によって，フィールドの境界付近を複数回低ドース量で描画し，スティッチング誤差を平均化することでパターンの接続性を向上することができる．本研究では，Fig 3.6 に示す通り，パターンの境界の2（ μm ）の範囲を50（nm）の幅のストライプパターンで接続する形でマルチパスリソグラフィーを行った．

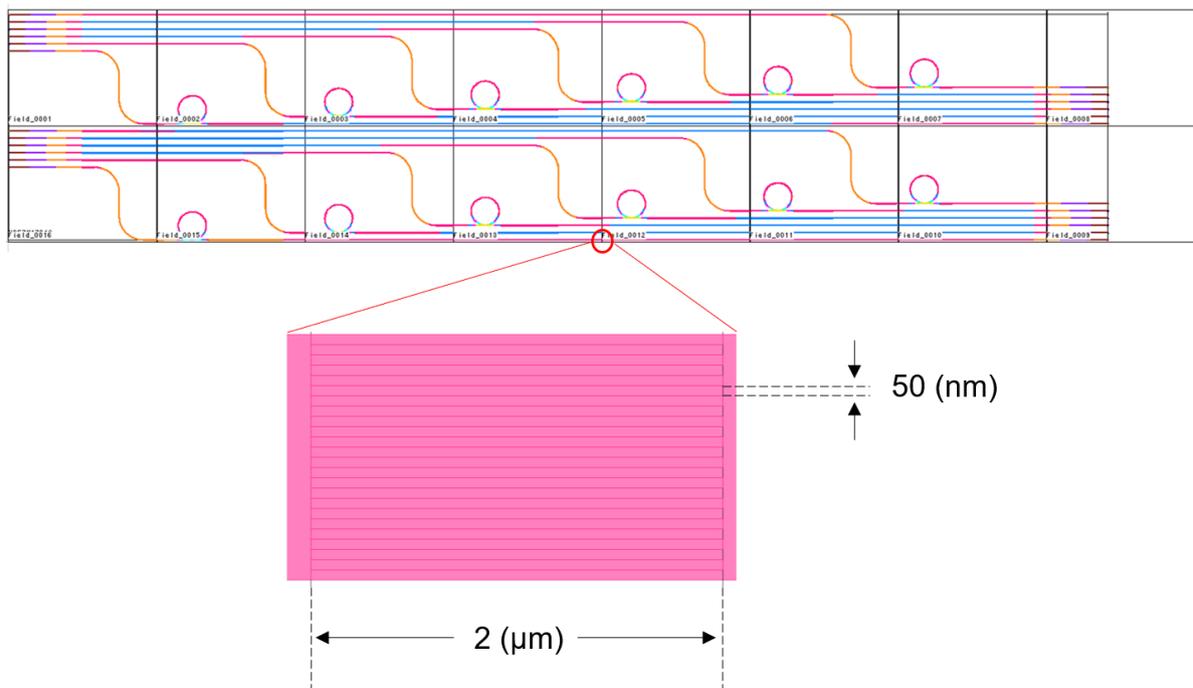


Fig.3.6 Field size setting and multipass of EB.

3.3.3 現像

現像は、露光後の基板をレジストと化学反応を起こす現像液にさらすことで感光された部分を溶解し、最後にリンス液を使用して不要な現像液を除去することで、基板上にレジストのデバイスパターンを形成させるプロセスである。現像処理はピンセットなどで基板をつまみ、液体中にそれを揺らすことで行うことができる。現像時間は短すぎるとレジストが膜厚方向に十分現像され切らず、逆に長すぎると未感光領域のレジストが削れてしまう。

現像条件

ポジ型レジストパターンにおいては有機溶剤である α -キシレンに 60 秒間さらすことで現像し、低表面張力を呈するフッ素系溶剤（アサヒクリン）で 20 秒間リンスした。ネガ型レジストパターンにおいてはアルカリ系の溶剤である ma-D525 (TMAH: tetramethylammonium hydroxide 1.0 %) に 2 分間さらすことで現像した。その後、流水に 5 分間さらすことでリンスを行った。

3.4 ドライエッチング（エッチング）

現像後、基板にはレジストパターンが形成されている。エッチングプロセスとは、レジストパターンが乗った基板を薬品やプラズマイオンにさらすことで、レジストパターンを保護マスクとして、材料（本研究では SiN）を加工するプロセスである。エッチングプロセスには 2 種類存在する。薬液で腐食で加工を行うウェットエッチングと、気相プラズマを用いて加工を行うドライエッチング（DE : dry etching）である。

SiN のウェットエッチングでは、高温のリン酸（ H_3PO_4 ）を用いた手法が一般的に用いられ、そのエッチングレートは $180\text{ }^\circ\text{C}$ で $\sim 10\text{ nm/min}$ である [78]。しかし、ウェットエッチングは等方性エッチングであり、レジストマスク下の SiN さえ削ってしまい、光導波路として要求される垂直性の高い（異方性）エッチングができない（アンダーカットが入ってしまう）という欠点が存在する。

DE プロセスでは主に反応性イオンエッチング（RIE : reactive-ion etching）が用いられる。この手法では、材料が削られると同時に加工側壁を保護する反応副生成物（堆積物）が堆積されることで材料の側壁を保護し、垂直性の高い導波路が作製できるという利点が存在する。SiN の RIE では、原料ガスとして、 CHF_3 [79] [80]、 CF_4 [81]、そして SF_6 [82] [83] など、フッ素系ガスを用いる手法（F 系 ICP（inductive coupled plasma）エッチング）が一般的である。また、それらのガスは、 O_2 、Ar、 H_2 または CO_2 を組み合わせることで、エッチングレートや選択比、堆積物の調整が可能である。以下に、エッチングにおける SiN の反応式を示す。実際のプロセスにおいては、この他にも反応副生成物の生成反応が存在する。反応副生成物は異方性を実現する一方、空間的に不均一に堆積することで側壁の荒れの原因となりうるため、その抑制のためのプロセス最適化は重要である。



SiN リング共振器作製の先行研究では、 CHF_3 と O_2 を用いたエッチング [2][84] や、 CF_4 と O_2 を用いたエッチング [85] が報告されている。特に CHF_3 と O_2 を用いたエッチング場合、酸素の流量を増やすことで、堆積物の量を減らせるという報告もなされている [2]。しかし、 CHF_3 のドライエッチングでは、堆積物の調整が難しく、本研究で実際に用いた DE 装置（RIE - 101iPHJF）では、 600 nm 以上のエッチングを行うと、SiN 導波路の側壁が急激に荒れてしまうことが分かっている。

本研究では、 CHF_3 と Ar を用いたエッチングと、 SF_6 と O_2 を組み合わせたエッチングの両方を用いた。 CHF_3 と Ar を用いたエッチングは、 CHF_3 と O_2 を用いたエッチングに比べて堆積物の量が多くなることが先行研究で示されている [86]。最初に、短時間、 CHF_3 と Ar を用いたエッチングを行い、その後、 SF_6 と O_2 を組み合わせたエッチングを長時間行うことで、長時間のエッチングによるドライエッチングによる側壁の後退を抑制できることを見出した。

また、長時間行う SF_6 と O_2 を組み合わせたエッチングにあたり、Fig 3.7 に示される極低温下（ $-100\text{ }^\circ\text{C}$ 未満の条件下）でエッチングする手法（以下、クライオエッチング（CE : cryo-etching））

を用いた [87]. Si に対する CE では、極低温下におけるエッチングにより、反応副生成物として側壁に付着した不動態化層 (SiO_xF_y 層) は、プロセス終了後、室温に戻ることで活性化したフッ素原子が表面で拡散し、酸素と置き換わって Si と結合し、揮発性の SiF_4 となる。このため、CE では反応副生成物がプロセス後に残留しない (Fig 3.8 参照)。 CHF_3 や CF_4 を用いたエッチングは、室温で行うために反応副生成物がプロセス後も残留し、光導波路の光学的損失の原因となるため、反応副生成物が残らないことは大きな利点である。

なお、DE プロセス条件は最適化が行われ、そのプロセスは 4 章で示す。DE 後は残存したレジスト除去のために、アッシングを 1 分間 (レート: 200-300nm/min) 行った後、無機洗浄を行った。

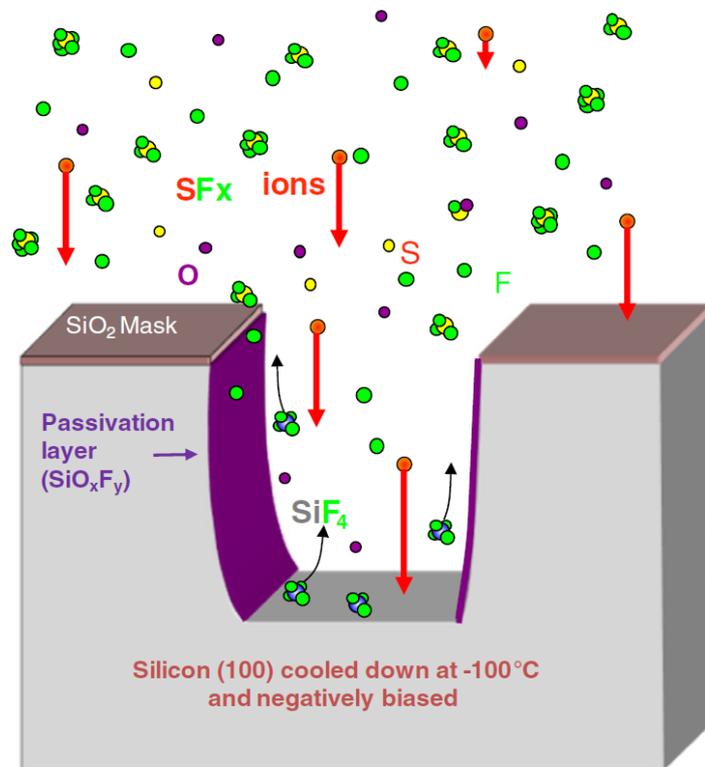


Fig.3.7 Scheme of principle of physical and chemical mechanisms involved in cryoetching. [Reprinted with permission from R Dussart, T Tillocher, P Lefauchaux and M Boufnichel, "Plasma cryogenic etching of silicon: from the early days to today's advanced technologies," J. Phys. D: Appl. Phys. **47** 123001 (2014).]

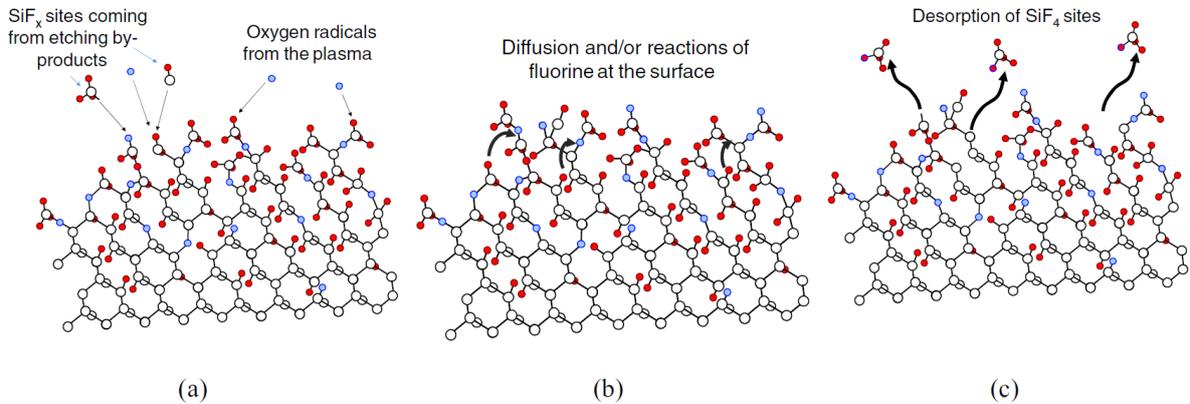
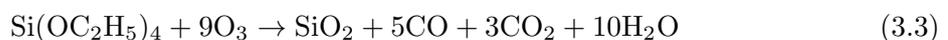


Fig.3.8 Illustration of passivation and desorption mechanisms involved in Silicon cryo-etching. (a) SiF_x and O radicals deposit at the surface during the plasma process. (b) After plasma, during the wafer warm-up, the surface is reorganized and SiF₄ molecules are formed by fluorine diffusion and chemical reactions. And, (c) when formed, SiF₄ molecules desorb from the surface. [Reprinted with permission from R Dussart, T Tillocher, P Lefauchaux and M Boufnichel, "Plasma cryogenic etching of silicon: from the early days to today's advanced technologies," J. Phys. D: Appl. Phys. **47** 123001 (2014).]

3.5 クラッド層の堆積

光モードの閉じ込めを得るために、SiN の導波路を SiO₂ (クラッド層) で埋め込むプロセスについて述べる。クラッド層堆積において重要となるのは、SiN 導波路の完全な埋め込みである。特に、非常に狭いギャップ部分 (< 200 nm) の埋め込みは難しく、一般的なプラズマ CVD 法では埋め込みが不十分なことによる空孔ができてしまうことで損失の原因となることが先行研究では示されている [58]。ギャップ部分を十分埋め込むことができる粘性の低いクラッド層の原材料として、スピノングラス (SOG : spin on glass) が存在する。基板上に塗布された SOG はその後高温処理されることで SiO₂ を形成する。本研究では SOG として、FO_x-16 (FO_x : flowable oxide. 別名 HSQ. 東レダウコーニング社製) を用いた。FO_x は高分子であり、その組成は (HSiO_{3/2})_n で表される。粘性が低いため、半導体の埋め込み平坦化プロセスで実績があり、光デバイスにもしばしば利用されるが [88]、低屈折率材料であるため、低損失性は実証されていない。

FO_x-16 による平坦化後は、プラズマ CVD (PECVD) を用いることで光導波路と表面を隔離するために十分な膜厚 (2 (μm)) の SiO₂ で導波路を完全に埋め込んだ。PECVD では、オルトケイ酸テトラエチル (TEOS : tetraethyl orthosilicate) を酸素で分解することで SiO₂ を堆積させた。反応は以下の通りである。



プロセス条件

FOx-16 は 500 rpm で 5 秒回転 → 2000rpm で 30 秒回転を行うことでスピコートされた。その膜厚は 662.32 (nm) で、屈折率は 1.378 であった。その後、100 °C に温度設定されたオープン内に入れ、180 °C に内部を上げることで 30 分間加熱することで 1 回目のプリベークを完了した。その後、赤外線加熱装置 (RTP-6) を使い、窒素雰囲気内で 450 °C で ~30 分焼成 (cure process) を行った。Fig 3.9 に昇温プロファイルを示す。

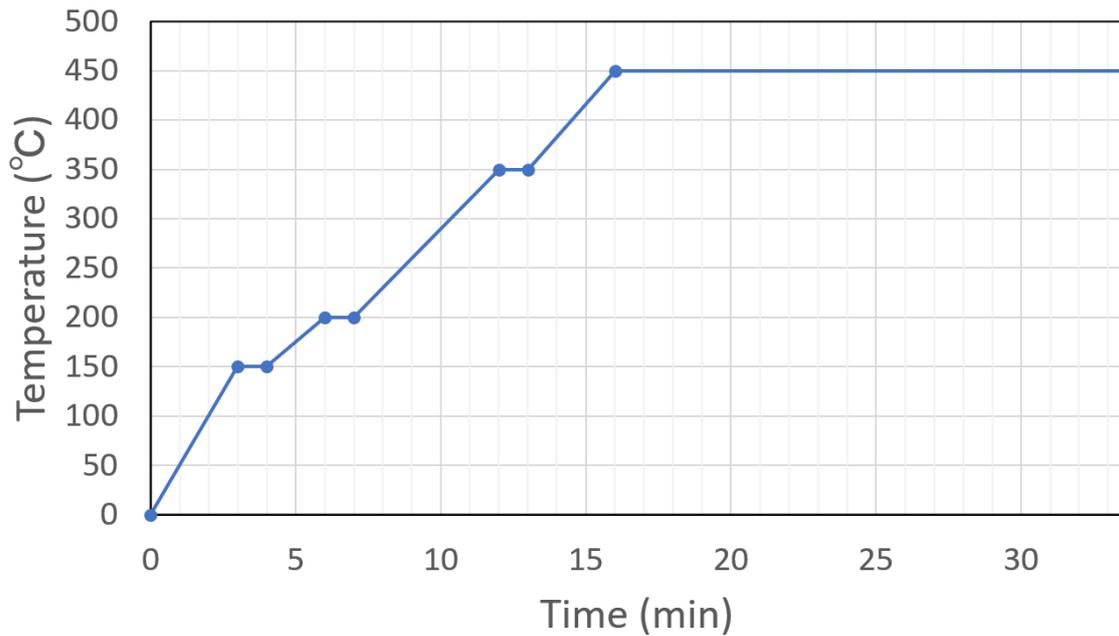


Fig.3.9 Hot and cure process of SOG.

PECVD を用いた導波路の完全埋め込みに際し、プラズマ CVD 装置 (PD-220NLJ : サムコ社製) を用いた。Si(OC₂H₅)₄ : O₃ = (10(sccm) : 250(sccm)) の流量で原料ガスを流し、ヒーターの温度を上部で 150 °C、下部で 350 °C に設定し、プラズマを 200W のパワーで立てることで 75 (Pa) のプロセス圧力で堆積レートはおおよそ 65-80 (nm/min) を得た。

3.6 端面処理

クラッド層の堆積後、デバイスの光学測定のため、デバイスを基板から切り取る作業（ダイシング）を行った。ダイシングには、ダイヤモンドブレードを使用するダイシングソー（DAD3230：DISCO社製）を用いた。ダイシングとは、ブレードを高速に回転（ > 10 (krpm)）させながらゆっくり（ 0.1 (mm/sec)）と動かすことで基板をカットするプロセスである。なお、ダイシングプロセスの前に、適当なレジストを塗布することでダイシングによる基板の保護を行うことが必要となる。レジストは超音波洗浄をそれぞれ1分に設定した有機洗浄を行うことでダイシング後に除去される。条件を最適化することで、鏡面精度で垂直性の高い端面が得られるため、研磨工程を省くことができるメリットがある。

プロセス条件

Fig. 3.10 に示す通り、ダイシングを3段階に分けることでダイシングを行った。1段階目は目が粗いブレードを用いたカットである。NBC-Z（半径25mm、ブレード厚さ0.15mm）のブレードにより基板を半分の厚さまでカットした（回転数：30000 rpm、送り速度：0.1mm/sec）。2段階目は目が細かいブレードを用いたカットである。1段階目のダイシングによりできたカット溝に沿ってゆっくりダイシングすることでSiN導波路端面を滑らかにする。SD-6000（半径25mm、ブレード厚さ0.22mm）のブレードにより基板を表面から150nmの深さまでカットした（回転数：16000 rpm、送り速度：0.02 mm/sec）。3段階目は目が粗いブレードを用いたフルカットである（回転数：30000 rpm、送り速度：0.1mm/sec）。端面処理が不十分であると、導波路端面への結合損失の増加や透過波のファブリペロー反射特性に波長依存性が強くなるため、端面を十分滑らかにするようなダイシングを行うことは非常に重要である。

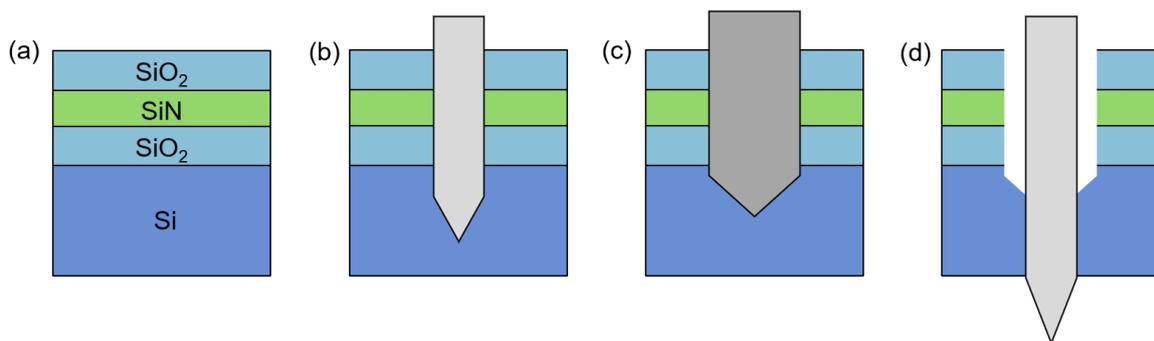


Fig.3.10 Schematic illustration of chipping. (a) SiN ring pattern after cladding process. (b) 1st chipping by NBC-Z. (c) 2nd chipping by SD-6000. (d) 3rd chipping by NBC-Z.

以上でSiNリング共振器の作製プロセスは完了する。

4 デバイスプロセスの最適化

本研究では、SiN リング共振器作製における、EB 描画と現像、ドライエッチングプロセスの最適化を行った。本章ではその結果を示す。

4.1 ポジ型レジストを用いたデバイスプロセスの最適化

4.1.1 EB パラメータの最適化

まず始めに EB 描画プロセスの最適化を行う。ポジ型レジスト (gL2000-H) を用いて HP : 250 (nm) のラインアンドスペース (LS : line and space) パターンを SiO₂/Si 基板上に描いた (LS パターンについては、3.3.2 節参照)。パラメータとしてはドース量を 310 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ ~ 480 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ まで 10 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ ずつ計 18 種類で描画し、80 秒間現像したレジストパターンを得た。理想的には、レジストパターンを直接 SEM (scanning electron microscope) で観察することが望ましいが、SiN 光導波路は厚膜 (> 4 μm) 酸化膜基板上にレジストを形成するため、SEM の電子線によるパターンの変形だけでなく、導電性コートを行ってもチャージアップの効果によって SEM 観察は困難である。そこで、レジストパターンをマスクとして、CHF₃ と Ar を用いたエッチングを 30 秒間行い、50 (nm) の SiN パターンに転写を行い、レジストを除去した後、SEM を用いてその測長を行った。EB 描画におけるパターン密度依存性を調べるため、LS パターンの中心部分 (center)、側面部分 (side)、端部分 (corner) のトレンチ部分 (電子線が当たった箇所) の測長を行った。その結果を Fig 4.1 に示す。中心 (パターン密度 1/2)、側面 (パターン密度 1/4)、端 (パターン密度 1/8) と移動するにつれてパターン密度は低下し、近接効果は小さくなり、トレンチ幅は細くなっていく。BEAMER (GenISys 社製) を用いて (3.3.2) 節で示した近接効果を考慮したトレンチ幅の計算を行った結果、ベースドース量 (描画において基準となるドース量。描画の際はこの量を基準としてパターン密度に応じて描画が行われる) が 380 ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)、ブラーが 118 (nm)、エッチバイアスが 30 (nm) と求まった。

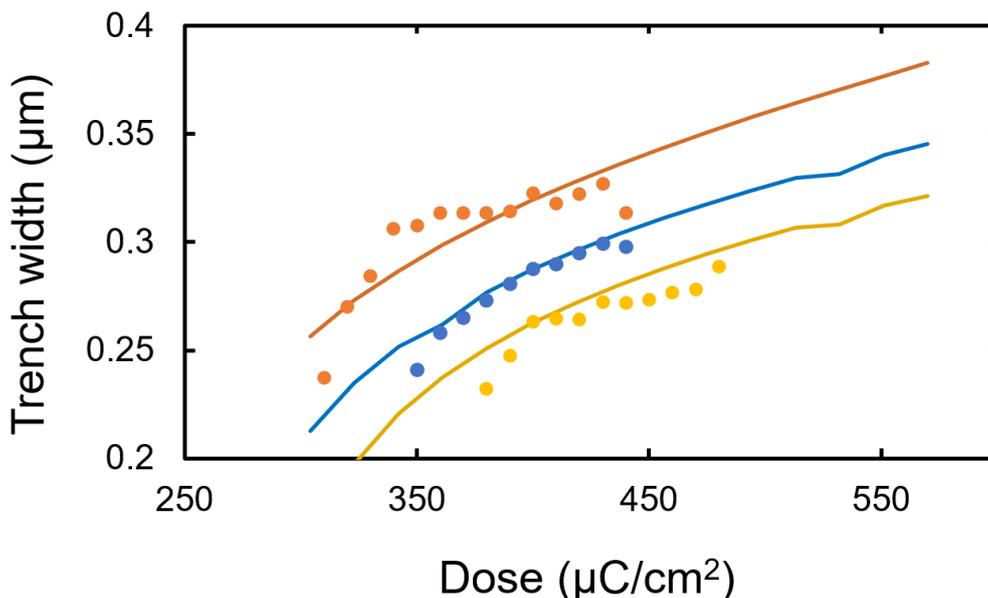


Fig.4.1 Measured trench width of positive resist pattern. Orange dots: center(experiment), Blue dots: side(experiment), Yellow dots: corner(experiment), Orange line: center(simulation), Blue line: side(simulation), Yellow line: corner(simulation).

4.1.2 DEの最適化 — ICP パワーと RF パワーの最適化

次にドライエッチング (DE) の最適化を行う。4.1.1 節で求めた EB パラメータを用いて、クライオエッチング (CE) によって SiN の LS パターンと導波路パターンを作製し、SEM 観察や選択比の比較によって評価した。なお、選択比は以下の式で表される値である。選択比が高いデバイスほど、レジストマスクの DE 耐性が高く、レジストマスクの厚みを減少できる。

$$(\text{選択比}) = \frac{(\text{SiN が削れるレート (nm/min)})}{(\text{レジストが削れるレート (nm/min)})} \quad (4.1)$$

ファーストステップとして、誘導結合プラズマ (ICP : Inductive coupled plasma) パワー、高周波 (RF : Radio frequency) パワーの 2 パラメータの最適化を行った。ここで、ICP パワーとは、ICP コイルに投入する電力であり、主にプラズマの電離度やラジカルの量を制御するために用いる。RF パワーとは、ICP コイルにて発生したプラズマを基板側に引き出して照射するために投入するパワーを意味する。

ICP パワーが 300 (W), 550 (W), 750 (W) で CE した SiN 3 パターンで比較を行った (なお、3 条件いずれも RF パワーは 10 (W) とした)。その画像の比較を Fig 4.2 に示す。Fig 4.2(a) や (b) で観察されるエッジ部分の薄片は洗浄で除去できなかった反応副生成物である。Si の CE では、反応副生成物は室温で気化するため [87], CE 後の SEM 観察で反応副生成物は観察されないが、SiN では窒素が混入することで、室温でも気化しない反応副生成物が生成されていることを

示している。また、側壁の傾斜角は、ICP パワーが 300 (W) で 80 度、550 (W) で 77 度、750 (W) で 58 度であり、ICP パワーが低いほど大きくなった。つまり、異方性 DE における堆積物の効果 [87] を考慮すると、ICP パワーが低いほど反応副生成物が側壁につきやすくなり、側壁の垂直性が増すことが分かった。また、300 (W)、550 (W) の選択比はそれぞれ 0.977 と 0.936 であり、ICP パワーが低いと選択比は少し良くなる傾向にあることが分かる。

本結果から、プロセス後に残存した反応副生成物を考慮すると、ICP パワーが 550~750 (W) 付近が良いことが分かった。

次に、ICP パワーを固定にして RF パワーを変えたときの比較を行った。一般に RF パワーを上昇すると加工側壁の傾斜角が大きくなり、垂直性が上昇する (エッチング異方性が改善される)。また、ICP パワーを 300 (W)、RF パワーが 20 (W) のパターンを作製したところ、実際に垂直性は増したが、選択比は 0.771 であり、10 (W) の場合と比較し、選択比は 20 % 以上落ちてしまった。一方、傾斜角は 85 度であった。

目的としている 700 (nm) 以上の SiN を CE 加工するためには、選択比 1 としても 700 (nm) 以上のレジストマスクが必要となる。3.3.1 節で述べたように、レジストマスクの膜厚が大きくなるにしたがって、微細なパターンを構造制御することは困難になる。一方、文献 [65] で報告されているように、傾斜角が小さい SiN 光導波路 (67 度) でも高 Q 値光共振器 ($Q_{\text{load}} \sim 5 \times 10^5$) が報告されていることを鑑みると、RF パワーを上昇して異方性を改善することは必要不可欠とは言えない。したがって、RF パワーは 10 (W) で固定した。

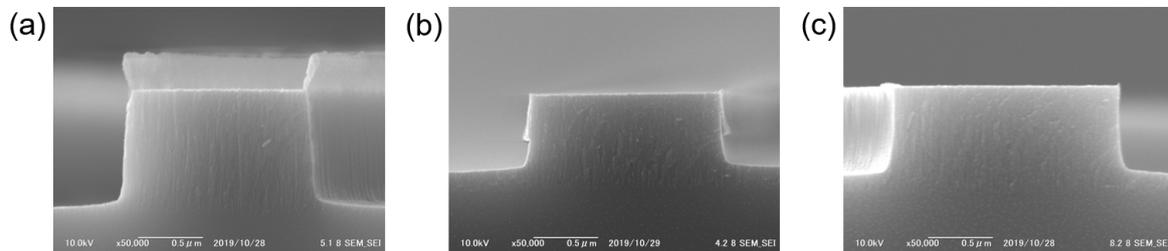


Fig.4.2 SEM images of SiN microring cross section. (a) ICP 300 (W). (b) ICP 550 (W). (c) ICP 750 (W).

CE で加工した LS パターンの結果を Fig 4.3 に示す。いずれのパターンも 700 (nm) 以上の SiN 層エッチングを行う中で 100 (nm) 以上に及ぶ、側壁の大きな後退が起きることが分かった。次節でこれに対する対策を述べる。

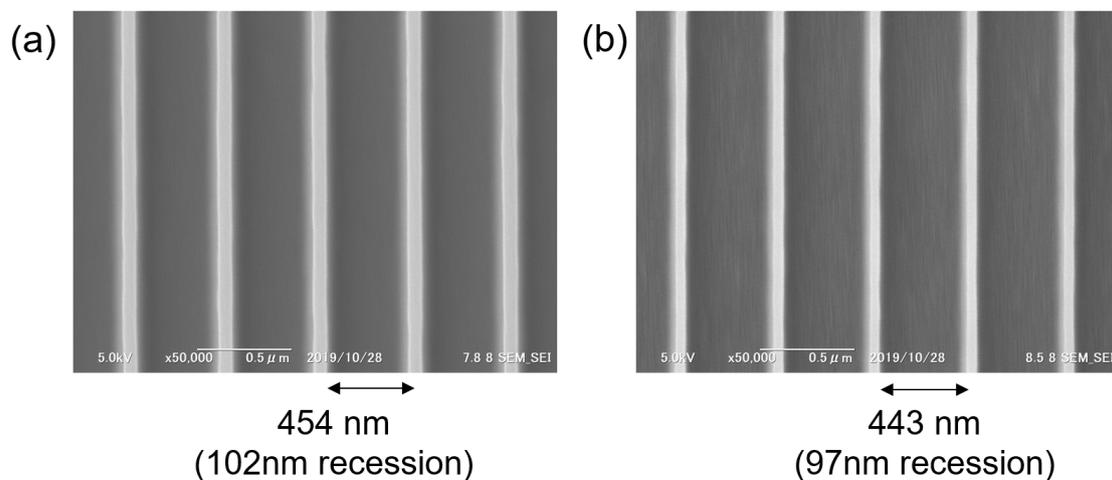


Fig.4.3 SEM images of SiN LS pattern. (a) ICP 300 (W), RF 20 (W) . (b) ICP 550 (W), RF 10 (W) .

4.1.3 DE の最適化 — 側壁後退抑制のための TEOS マスクの導入

セカンドステップとして、側壁後退の抑制のために TEOS マスクの導入を行った。Fig 4.4 に示すのは TEOS マスクの導入手法である。SiN 膜上に TEOS-CVD により作製した SiO₂ を堆積させることで、その TEOS – SiO₂ を側壁後退抑制のためのマスク（保護層）とする手法である。電子線リソグラフィの後に、CHF₃ と Ar によって TEOS 膜にドライエッチング加工（20～30 (nm) のオーバーエッチング）を行い、CE は SiN 表面が暴露されている状態から開始した。



Fig.4.4 Schematic illustration of CE with TEOS mask.

また、以下では、側壁後退レート (SER: Side etch rate) と側壁粗さ (LER: Line edge roughness) の 2 パラメータを導入して、DE 後の側壁状態の比較を行った。

SER は SiN のエッチング量に対する側壁後退量の比と定義し、以下の通り表される。SER が大きいほど側壁の後退（サイドエッチ）が大きいことを表す。

$$(\text{SER}) = \frac{(\text{SiN 導波路側壁の後退量 (nm/min)})}{(\text{SiN エッチング深さ (nm/min)})} \quad (4.2)$$

LER は 1 本のラインの側壁粗さを表し、その値はエッジ点位置のばらつきが 99.7% に収まる範囲である 3σ (σ は標準偏差) で表される。なお、SER と LER 共に ProSEM (GenISys 社製) を

用いて導波路側壁の検出を行うことで計算を行った。

ICP パワー 550 (W), RF パワー 10 (W) の条件下で, TEOS 層無し, 20 (nm), 40 (nm), 60 (nm) の比較を行った。ただし, 0 (nm) の場合は, CHF_3 と Ar によるドライエッチングは行っていない。その結果を Table 4.1 と Fig 4.5 に示す。TEOS マスクの厚みを増やすほど選択比, SER ともに改善する傾向にあることが分かった。これらの結果は, TEOS 膜の存在, またはそれに加えて CHF_3 と Ar によるドライエッチングを行ったことで, 反応副生成物の生成レートが変化していることを示唆する。

SER に関しては, CHF_3 と Ar のエッチングで生成された反応堆積物が CE の初期条件として存在すること, TEOS 膜からの酸素分子が存在することが理由として考えられる。実際に, LER は側壁の反応副生成物の累積堆積量が主因で増加するパラメータであり, TEOS 膜厚の有無で約 2 倍増加しているが, 膜厚依存性は認められない。このことは, CHF_3 と Ar で TEOS 膜をエッチングした際に生じる反応堆積物が存在することが重要な因子であることを示唆する。しかし, それによって CE の反応副生成物の堆積レートが上昇するのか, 化学的組成が変化するのかの区別はつかない。

一方, 選択比の増加は, CHF_3 と Ar でレジストマスク上に堆積された反応副生成物が, レジストマスクの CE のレートを低下させていると考える。なお, 反応副生成物は, DE 中には加工表面に常に存在し, その膜を通して加工分解反応が進行していくことが知られている [87]。したがって, CE 初期にレジストマスクのエッチレートが低下するのではなく, プロセス全体に渡ってレートが低下する要因となる。

Table.4.1 Evaluation of SiN side wall by TEOS mask thickness.

DE time of TEOS layer (sec)	TEOS thickness (nm)	Selectivity	SER	LER (nm)
0	0	0.936	0.14	4.64
12	20	0.946	0.062	9.5
24	40	0.979	0.036	8.5
48	60	1.01	0.0018	7.56

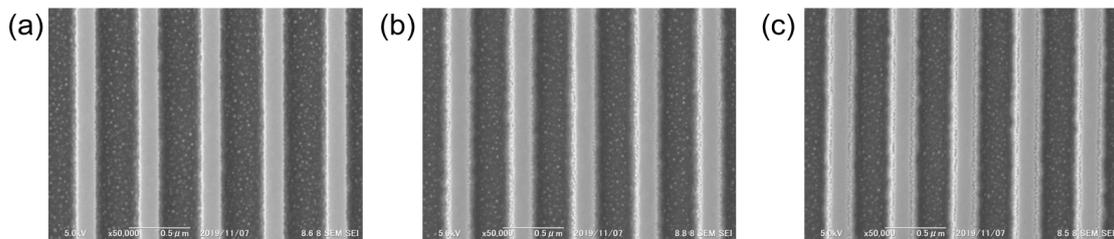


Fig.4.5 SEM images of SiN LS pattern. (a) TEOS thickness 20 (nm). (b) TEOS thickness 40 (nm). (c) TEOS thickness 60 (nm).

4.1.4 ドライエッチングの最適化 — 露光後ベークと 2 回エッチング導入による側壁後退の低減化

側壁後退の抑制に TEOS マスクは有効であるが、側壁粗さ増加の原因になってしまうことが分かった。そこで、露光後のレジストリフローと TEOS マスク無しの CHF_3 と Ar のエッチングの 2 つを導入することで側壁後退の抑制を図った。現像後、デバイスをレジストのガラス転移温度以上にすると、レジストパターンは表面張力によって変形する。表面張力は曲率半径に反比例するため、微小な構造ほど急激に平坦化される。レジストパターンにナノメートルスケールの粗さが存在しても、ミクロンスケールの変形はほぼ無視できる範囲で表面を平滑化することが可能である。このプロセスをレジストリフローと呼ぶ (Fig 4.6(a))。また、露光後ベークの後に短時間 CHF_3 と Ar のエッチングを行うことで SiN の側壁に反応副生成物を付着させ、その部分をマスク材料として CE を行った (Fig 4.6(b))。

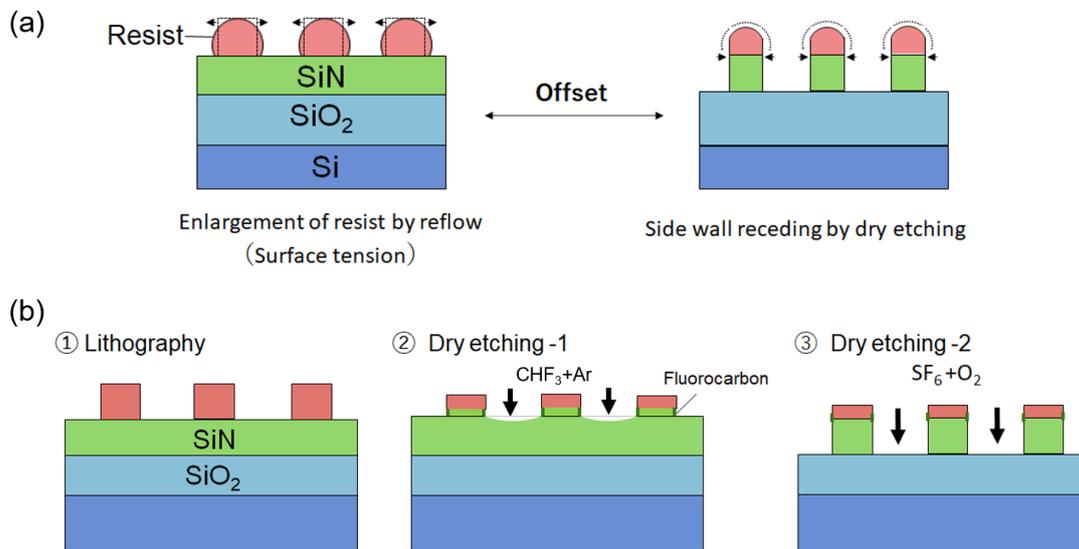


Fig.4.6 Added process for suppressing side etch. (a) Schematic illustration of process post exposure bake. (b) Schematic illustration of two-time DE.

様々なプロセスにおける LS パターンの比較結果を Fig 4.7 に示す。この結果より、 CHF_3 プラズマによる側壁保護膜は、側壁の後退を低減しつつ低 LER を両立するのに有効であることが分かった。また、レジストリフローは実際に LER を低減し、表面張力によりレジスト幅を肥大化させることによって側壁後退を低減できることが分かった

以上の結果より、Sample 5 のプロセスで実際の SiN リングパターンの作製を行う。

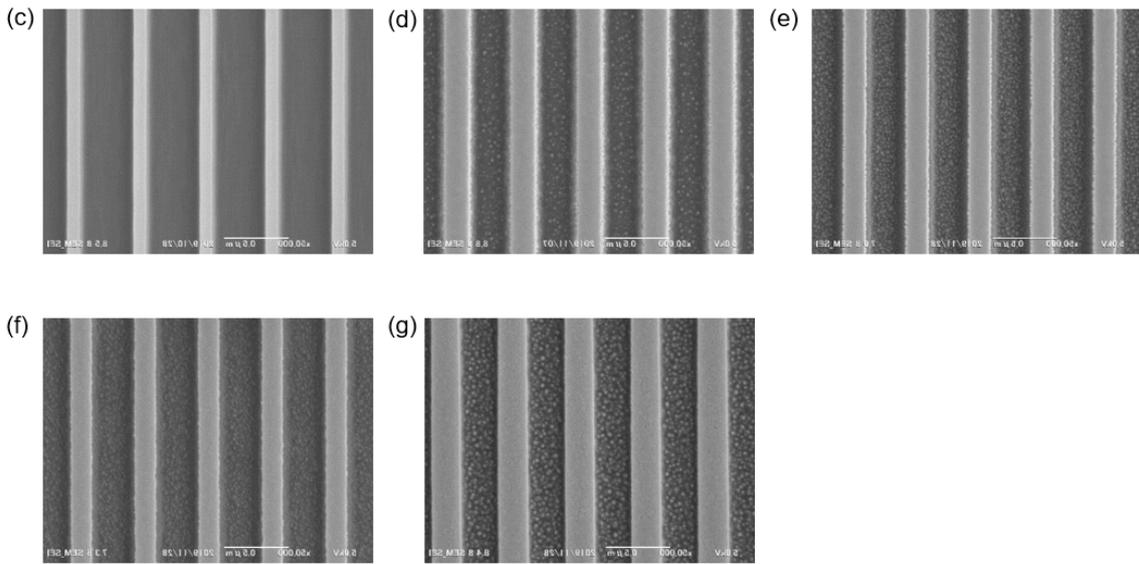
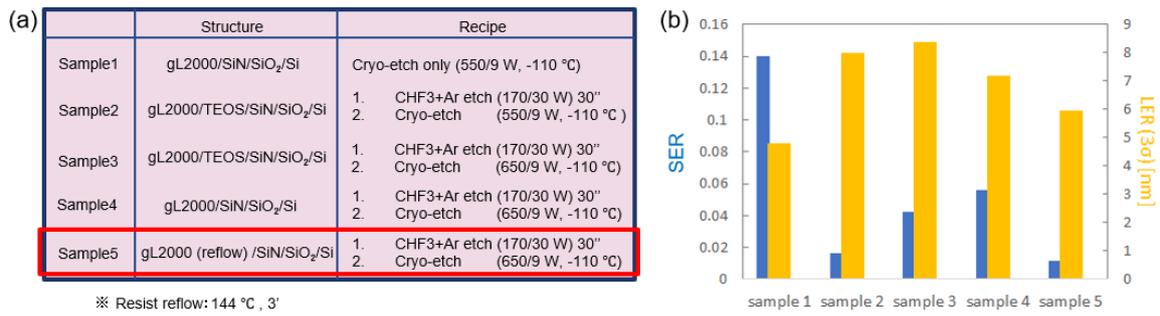


Fig.4.7 Comparison of various DE patterns. (c)-(g) shows SEM images of SiN LS pattern. (a) Sample information. (b) Calculated SER and LER. (c) Sample 1. (d) Sample 2. (e) Sample 3. (f) Sample 4. (g) Sample 5.

4.1.5 SiN リング共振器の作製とその評価

前節の通り、露光後ベークと2回ドライエッチングを行う方法で Fig 4.8(a), (b) に示すような SiN リング共振器を作製した。重要な設計値は、リング幅 w (μm)、バス導波路幅 b (μm)、リング半径 R (μm)、ギャップ幅 g (μm)、光結合のためのテーパ部分の幅 t (μm) である。なお、リング半径は、57 (μm) と 114 (μm) の2パターン作製した。

また、実際の光リング共振器の作製において、EB 描画プロセスで描画するのはデバイスのクラッド部分である。その面積は、クラッド幅を 7.4 (μm) とすると、1 リング共振器あたり、入力から出力までで 7.9×10^4 (μm^2) ほどである。EB 描画装置の電流量は 0.3 (nA)、平均ドーズ量は 380 ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$) とすると、描画時間は 10^3 秒ほどとなる。ある値のドーズ量で SiN のリングパターンを描画する際、電流値 (I_p (nA)) を下げるとショットピッチ (Δx (nm)) が小さくなって細かいパターンを描くことができるが、 I_p に比例して描画に時間がかかってしまう。そこで、大きなパターンの内側は粗く描画し、外側のみ I_p と Δx を小さくして描画することで、描画時間を短縮する方法 (バルクアンドスリーブス法) が提案されており [89]、本実験で用いた。Fig 4.8(c) に示すのは、バルクアンドスリーブス法を用いて描画した $R = 57, w = 1.7, b = 1.2$ (以下 R57W17B12) のパターンである。ここで、赤い領域は $(I_p, \Delta x) = (4, 4)$ で描画され、青い領域は $(I_p, \Delta x) = (0.3, 1)$ で描画されることを示している。この手法を用いることで、描画時間は1 リング共振器あたり 200 秒ほどで描画可能となり、80% 短縮される。

バルクアンドスリーブス法と DE の工夫を行うことによって、実際に作製したデバイスの測長結果を表 4.2 に示す。また、ギャップ部分の測長結果を Fig 4.9 に示す。導波路は、CE による側壁後退によって、側壁が全体的に 50 (nm) 削れた。また、テーパ部分は、バスやリング部分以上に削れてしまい、ターゲットである 150 (nm) (経験的に最も光が結合できる長さ) よりもさらに 20 (nm) 削れた。これは、テーパ部分のレジスト幅は他の導波路部分と比べて狭いため、結果としてレジストがテーパ部分以外の他の導波路部分と比べて早く削れ切ってしまう、レジストの側壁の後退スピードが早くなってしまうことが原因として考えられる。また、ギャップ部分は平均して 116 (nm) 広がったが、これは導波路の削れるレートの2倍ほどであり、ギャップ部分の両側は導波路で囲まれているため、整合性が取れている。

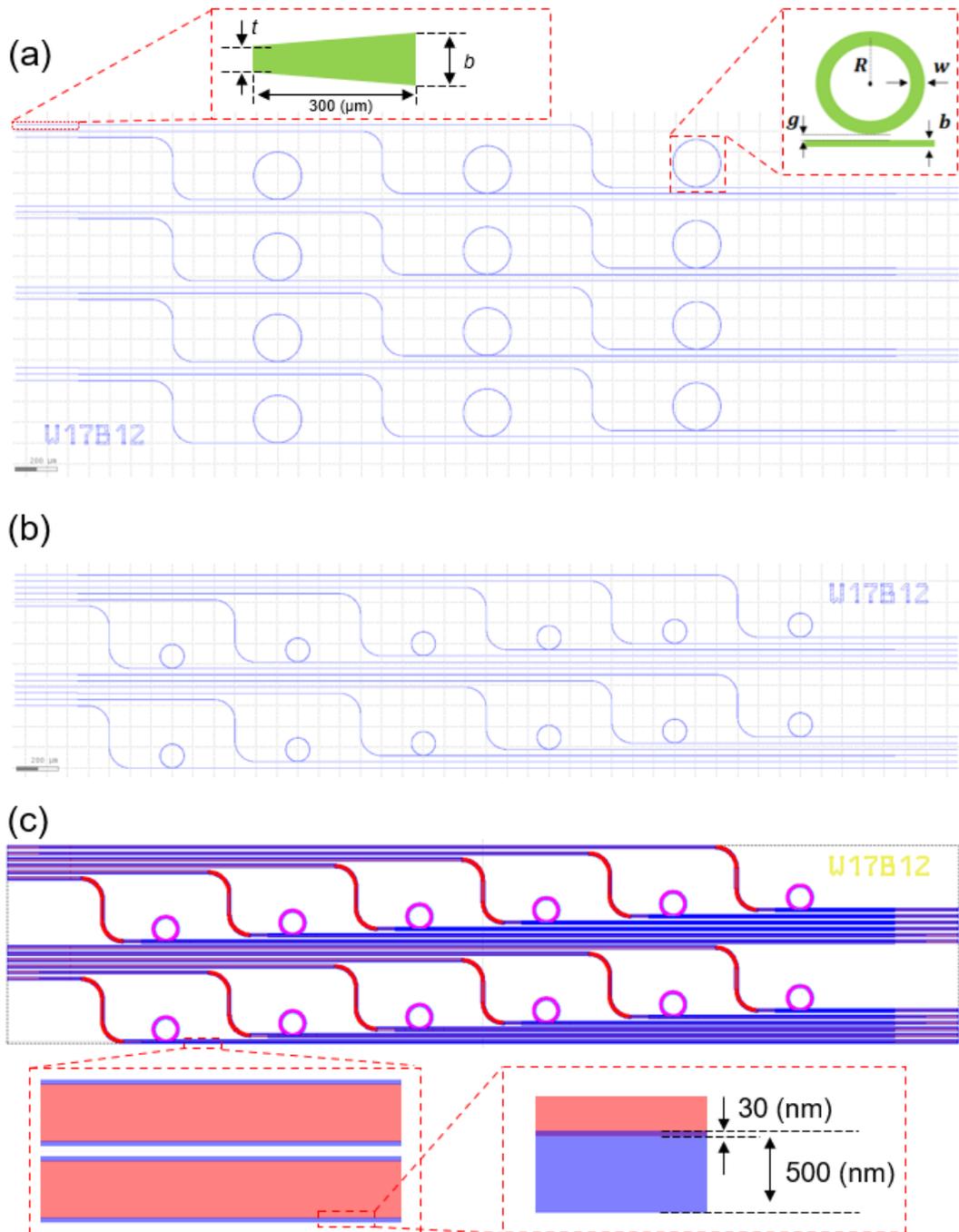


Fig.4.8 Designed SiN ring pattern. (a) $R = 114 \mu\text{m}$ (FSR = 200 GHz). Inset shows tapered structure and coupling region. (b) $R = 57 \mu\text{m}$ (FSR = 400 GHz). (c) Dose modulated SiN ring pattern ($R = 57 \mu\text{m}$). Inset shows bulk and sleeve process.

Table.4.2 Measured length of fabricated SiN ring resonator.

	Design	SEM result
w (μm)	1.70	1.66
	1.60	1.53
b (μm)	1.20	1.15
	1.00	0.930
t (nm)	200	120

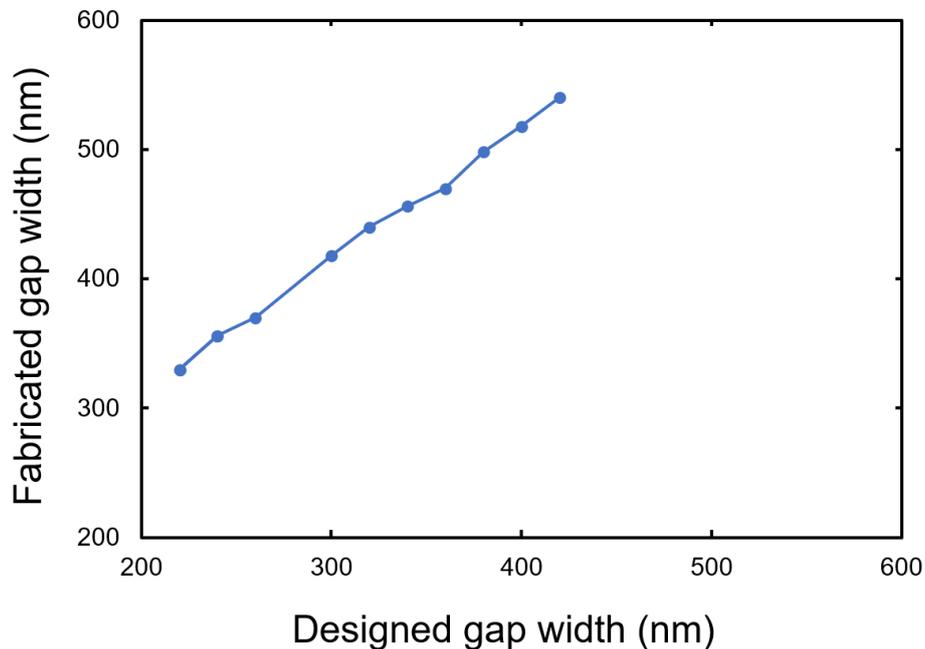


Fig.4.9 Measured gap width of SiN ring resonator.

次に、光学特性の評価として、 Q 値測定を行った。実験セットアップは Fig 4.10(a) の通りである。連続光 (CW 光) を共振器内部に入力し、共振器からの透過光を PD で収集した。なお、得られた透過光は同時にアセチレンガスセルの透過スペクトルから波長の校正が行われた。 Q 値測定結果を Fig 4.10(b),(c) に示す。なお、デバイスパターンとしては、 $R = 114$ (μm), $w = 1.7$ (μm), $b = 1.2$ (μm) (以下, R114W17B12) で、ギャップ幅 $g = 440$ (μm) と最もギャップが広いパターンである。Fig 4.10(b) に示す通り、光通信波長帯 C バンド (1530-1565 nm 帯) では波長が短くなるほど H 基による吸収により Q 値の減衰が確認できた。しかし、Fig 4.10(c) に示す通り、共振器の最高 Q_{load} 値は、通信波長帯 L バンド (1565-1625 nm) においても $Q_{\text{load}} = 1.12 \times 10^5$ と低 Q 値であった。

この主な原因を考えるため、集束イオンビーム加工装置付きの走査電子顕微鏡 (FIB-SEM : Focused ion beam scanning electron microscope) を用いて、さまざまな LS パターンの断面の深

さ測定を行った。Fig 4.11(a) に示す通り，FIB 加工によってパターン断面を削りだしたのち，試料を傾けて断面の高さを測長し，基準の長さ（本研究では，段差計で測った長さを基準にした）から逆算することで断面高さを計測した．その結果を Fig 4.11(b) に示す．SiN を 750 (nm) 削り切ったとしても，ギャップ部分は 1.4 (μm) 以上なければエッチングによって十分削り切ることができず，リングとバスが繋がってしまうことが分かった．

リングバス間が繋がってしまうことは低損失な共振器を作る際に様々な問題となりうる．1 つは，ギャップ部分における光損失である．ギャップ部分に SiN が不均一に残ってしまった場合，そこで光が散乱する要因になりうる．また，断熱的に光モードが伝搬しなくなることによって，ギャップ部分における入力損失が大きくなることも考えられる．2 つ目は，ファブリケーションにおける歩留まりの悪化である．今回作った共振器は，ギャップ部分が繋がってしまったためにオーバーカップリングとなり， Q 値が下がってしまった．しかし，クリティカルカップリングを狙って，今以上にギャップ部分を広げることは困難であると考えられる．というのも，あるギャップ長さでクリティカルカップリングの共振器作製に成功したとしても，ギャップ部分が十分削れていなければ，作製する時々によって逐一ギャップ部分の構造は変わってしまい，次回作製するときには同じ条件であったとしてもクリティカルカップリングになるとは限らなくなるからである．

以上の観点から，ギャップ部分を十分削り切れるようなプロセスを導入する必要性があることが分かった．

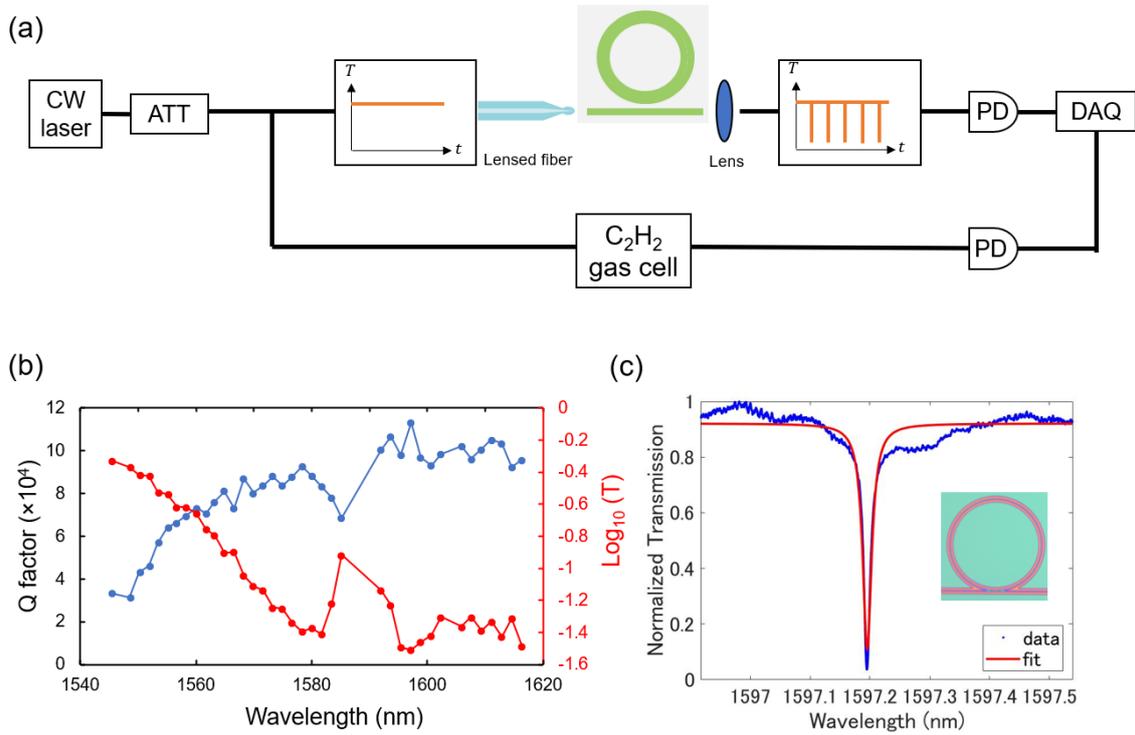


Fig.4.10 Q factor measurement of SiN ring resonator. (a) Measurement setup. CW laser: continuous-wave laser, ATT: attenuator, PD: photodetector, DAQ: data acquisition. (b) Wavelength dependence of the Q factor (blue line) and transmittance (red line). (c) Transmission spectrum with a center wavelength of 1597.19 (nm). Inset shows a microscope image of fabricated SiN ring resonator.

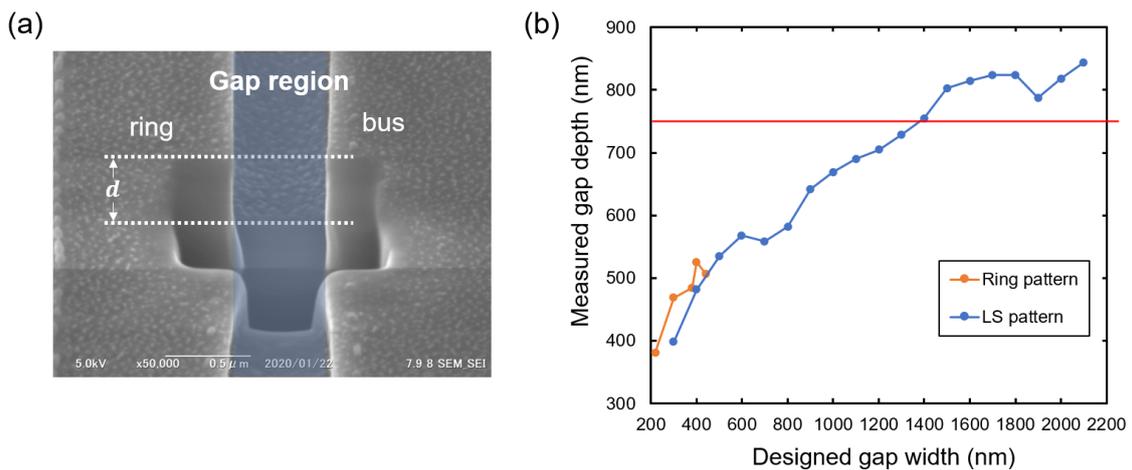


Fig.4.11 Gap depth measurement of SiN ring resonator. (a) Measurement method of gap width by FIB. d shows gap depth. (b) Measured gap depth. Red line shows gap depth of 750 (nm).

4.1.6 まとめ

EB プロセスとドライエッチングプロセスを最適化し、SiN リング共振器を作製した結果、 $Q > 5 \times 10^5$ を図ったものの、 $Q = 1.12 \times 10^5$ の共振器の作製に成功した。高 Q 値の SiN リング共振器を歩留まり良く作製するために、方向性結合基部分（ギャップ部分）を十分削り切るようなプロセスの導入の必要性が生じた。なお、この問題は、リングバス間を削り切れるほど十分長い時間ドライエッチングを行うことで解決できる。Fig 4.11(b) のデータから、ある gap 幅に対してドライエッチング深さが時間に対して線形に変化すると近似すると、例えば gap 幅が 300 (nm) 付近での SiN 深さが 468 (nm) であるため、750 (nm) まで削り切ることを考慮すると、1.6 倍のドライエッチング時間が必要な計算となる。つまりは SiN を 1.2 (μm) 削るようなドライエッチングを行わなければいけないのである。しかし、本研究で用いたポジ型レジスト (gL2000-H) は選択比が 1.00 であるため 1 (μm) 以上の SiN エッチングには耐えられない。また、当時ポジ型レジストで 1 (μm) 以上堆積することは困難であり、長時間のエッチングのためにはこれ以上ポジ型レジストの使用は困難であると結論づけられた。

4.2 ネガ型レジストを用いたデバイスプロセスの最適化

長時間のエッチングに耐えられるレジストとして、ネガ型レジストを導入した。ネガ型レジストは 3.3 節で説明した通り、ポリマーの重合反応によって現像液への溶解度が下がる。この重合したポリマーは、分解するためによりエネルギーが必要であるため、一般にネガ型レジストはポジ型レジストと比べて DE に耐性があり、前節で本質的な課題である選択比の改善が見込める。

4.2.1 EB パラメータの最適化

EB 描画プロセスの最適化を行う。ネガ型レジスト (maN 2410) を用いてハーフピッチ (HP : half pitch) 300 (nm) のラインアンドスペース (LS : line and space) パターンを SiO₂/Si 基板上に描いた。パラメータとしてはドース量を 100 (μC/cm²) ~270 (μC/cm²) まで 10 (μC/cm²) ずつ計 18 種類で描画し、125 秒間現像したレジストパターンを SEM で観察した。なお、レジストパターンの測長は困難なため、前節と同様、CHF₃ と Ar を用いたエッチングを短時間行い (30 秒間、50nm の高さの SiN パターン作製をターゲットにする)、レジストを除去した後の SiN パターンの測長を行った。LS パターンの中心部分 (center)、側面部分 (side)、端部分 (corner) のリッジ部分 (電子線が当たった個所) の測長を行った。その結果を Fig 4.12 に示す。中心、側面、端と移動するにつれてパターン密度は低下し、近接効果は小さくなり、リッジ幅は細くなっていく。BEAMER を用いて近接効果を考慮したトレンチ幅の計算を行った結果、ベースドース量 (描画において基準となるドース量。描画の際はこの量を基準としてパターン密度に応じて描画が行われる) が 143 (μC/cm²)、ブラーが 130 (nm)、エッチバイアスが -10 (nm) と求まった。なお、中心部分で実験値に対する計算値のフィットが悪いのは、密度が高い中心部分でレジストが後方散乱効果を多く受けてしまったために、フィッティングによる誤差が大きくなってしまったことが挙げられる。なお、ドース補正してリング共振器を作製する際の最低ドース量は 200 (μC/cm²) であり、これは Fig 1.12 の側面部分のフィッティングにおける適正なりッジ幅 (300 (nm)) を描画する際のドース量と一致する。つまり、リング共振器をドース補正して描画する際は、パターン密度は最高でもサイド部分のパターン密度であるため、中心部分のフィッティングの悪さは無視できる。

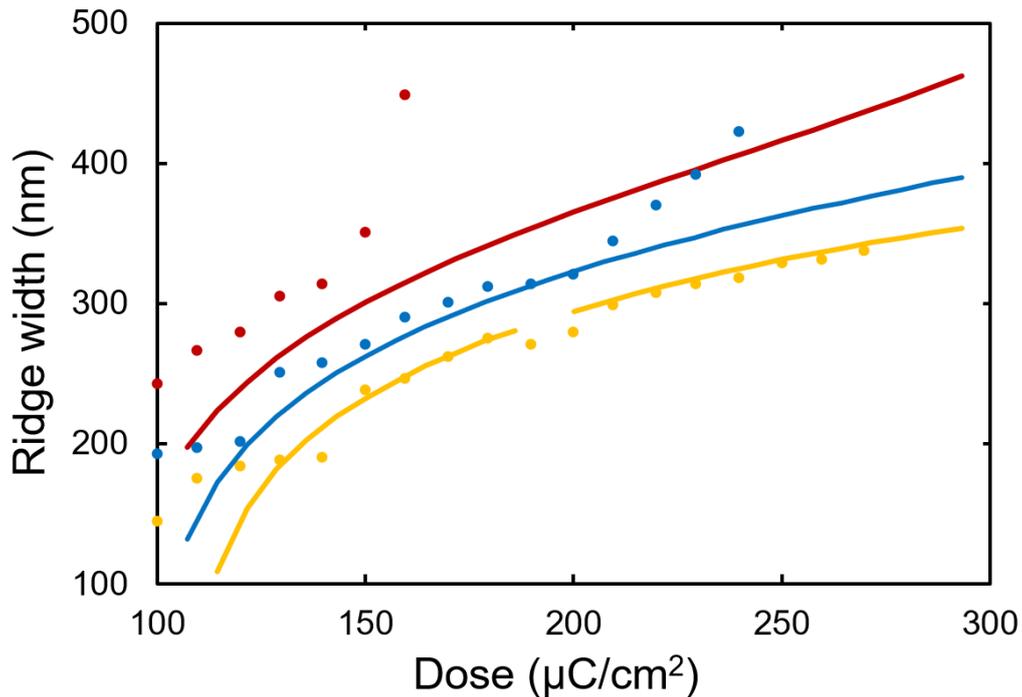


Fig.4.12 Measured ridge width of negative resist pattern: Orange dots: center(experiment), Blue dots: side(experiment), Yellow dots: corner(experiment), Orange line: center(simulation), Blue line: side(simulation), Yellow line: corner(simulation).

次に、フィッティングパラメータの正確性を同定するため、求めた EB パラメータ付近でドース補償を行った HP 300 (nm) の LS パターンを作製した。パラメータとしてはドース量を $120 (\mu\text{C}/\text{cm}^2) \sim 180 (\mu\text{C}/\text{cm}^2)$ まで $10 (\mu\text{C}/\text{cm}^2)$ ずつ 6 種類、そのそれぞれにブラーを $130 (\text{nm}) \sim 170 (\text{nm})$ まで $10 (\text{nm})$ ずつ 6 種類、合計 36 種類の LS パターンを描画し、125 秒間現像したレジストパターンを SEM で観察した。観察方法は先ほどと同様である。その結果を Fig 4.13(a) に示す。縦軸をリッジ幅の偏差（各パラメータにおける、センター、サイド、コーナー 3 つの平均値からのずれ）で見た結果、ドース量が $140 (\mu\text{C}/\text{cm}^2)$ で最もリッジ幅の偏差が少なくなることが分かった。次に、ドース量を $140 (\mu\text{C}/\text{cm}^2)$ で固定し、ブラー毎に結果をまとめ直した結果を Fig 4.13(b) に示す。ブラーが $140 (\text{nm})$ で最もリッジ幅の偏差が少なくなることが分かった。

以上の結果から、ドース量が $140 (\mu\text{C}/\text{cm}^2)$ 、ブラーが $140 (\text{nm})$ として次節以降の実験を行った。

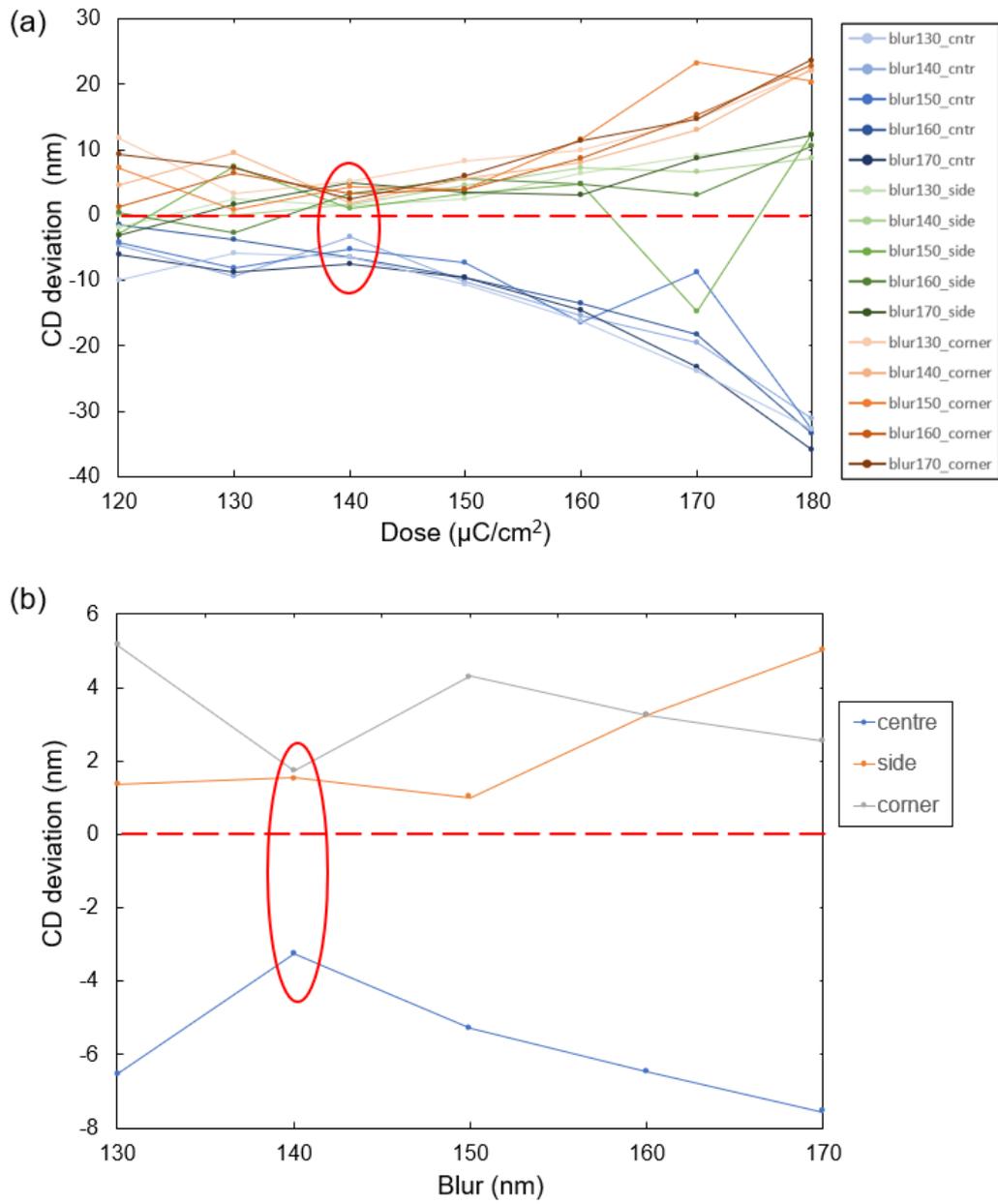


Fig.4.13 Measured ridge width of dose-modulated negative resist pattern. (a) All 36 patterns. (b) 6 patterns of Dose = 140 ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)

4.2.2 テストパターンの作製と短時間ドライエッチング時間の最適化

前節の結果を用い、ドース変調を行ったパターンで実際に SiN リング共振器の作製を行った。なお、作製プロセスについては 4.1.6 節で述べた手法を用いるものとする。なお、レジストリフローについては、115 度で 3 分間行った。

ネガ型レジストの選択比は 1.38 であり、ポジレジストの選択比 (1) と比べて選択比が高いことが実際に確認できた。CHF₃ と Ar による短時間のエッチング時間を 0 秒、30 秒 (これまで通り)、90 秒の 3 パラメータで条件を振り、SEM 観察による比較を行った。それらの結果を Fig 4.14 に示す。短時間の DE を行わない場合、側壁が削れてしまい、導波路形状が三角形に変化してしまうことが分かった。また、ドライエッチング時間を延ばすと (90 秒)、垂直性が増すことが分かった。これは、側壁に損失原因となる反応副生成物がより多くつ区ことが原因である。なお、Fig 4.14(c) の図において、導波路の両端部分が割れてしまっていることが観察できるが、これはドライエッチング時間が長引いたことによりレジストが持たず、オーバーエッチされてしまったことが原因である。

以上の結果から、短時間 DE の時間は 30 秒に同定された。

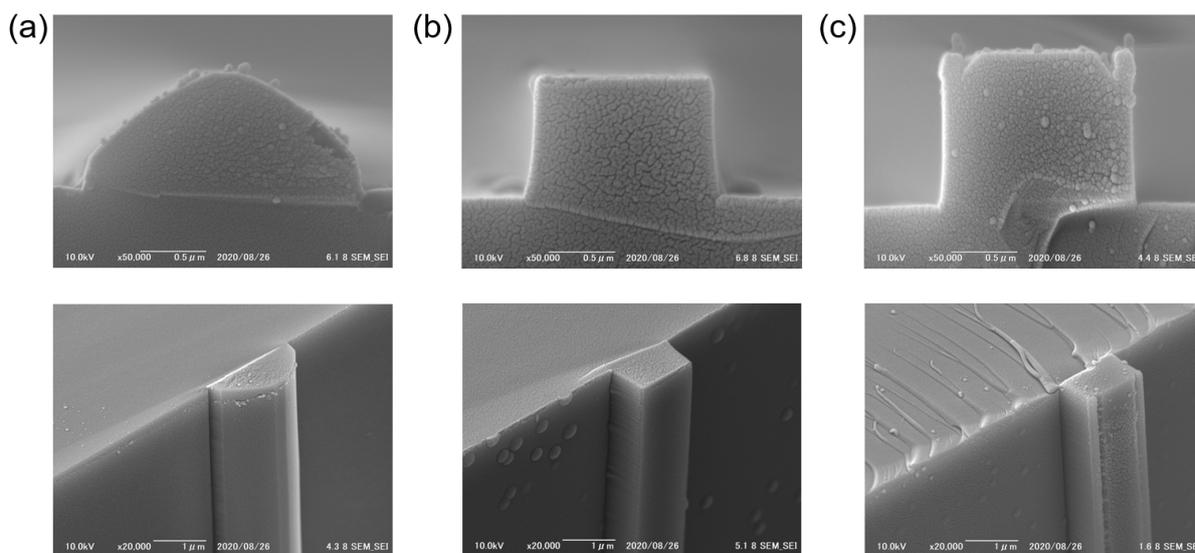


Fig.4.14 SEM images of SiN pattern. Upper images show cross sections. Lower images show side walls. (a) DE:0 sec. (b) DE:30 sec. (c) DE: 90sec.

4.2.3 プロセス後残留物低減への取り組み

ネガ型レジストでパターンを作製した場合、Fig 4.15 に示されるようなレジスト由来の細かい球状の残存物 (以下ダマ) が残ってしまうことが分かった。ダマは DE 後にマイクロマスクとなり、光散乱による損失原因となることが懸念される。

ダマの起源には、複数の可能性が考えられる。ひとつは、レジストで現像された際に、残るレ

ジストパターンから発生した微粒子である。これがマイクロマスクとなり、CE後にダマとして観測される可能性である。特にLSパターンでは高頻度・高密度に微粒子が残留するため、しばしば微粒子の分布がSEM観察されることがこの仮説の根拠となっている。同じLSパターンを複数描画しても、微粒子の発生状況は場所依存性が強く、その再現性もある（同じ場所で微粒子が多い）ため、単純なレジストの劣化は無視できる。また、現像方法（パドリングや攪拌子の利用、治具の工夫など）にも顕著な依存性は認められなかった。

この仮説を支持する結果が得られたのは、 O_2 アッシングプロセスの導入である。リフローにより、微粒子は空間的に広がり、薄膜化されるはずである。そこで、その後に短時間アッシングを行うことでダマの抑制を試みた。その結果を Fig 4.16 に示す。

Fig 4.16(a)~(c) は CHF_3 と Ar の DE 無しでの比較である。方向性結合基付近での $25.6 (\mu m) \times 15.7 (\mu m)$ の領域において、ダマの数はそれぞれ 197 個、118 個、72 個であり、アッシング時間を延ばすごとに分子ダマの低減ができることが観察できた。また、Fig 4.16(d) に示す通り、アッシング時間 10 秒で短時間 DE を行った場合でも方向性結合基付近で先ほどの $1/4$ の領域におけるダマの数は 21 個であり、先ほどと同じ領域に拡大してもダマの数は $21 \times 4 = 84$ 個ほどとなり、アッシング導入前と比べて約 57% のダマの低減が確認できた。

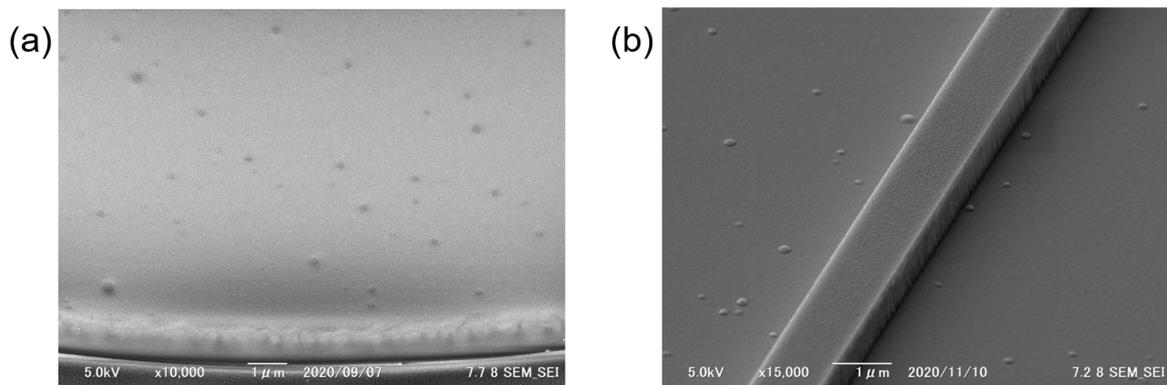


Fig.4.15 SEM images of remained resist ball. (a) After lithography. (b) After CE and resist removal.

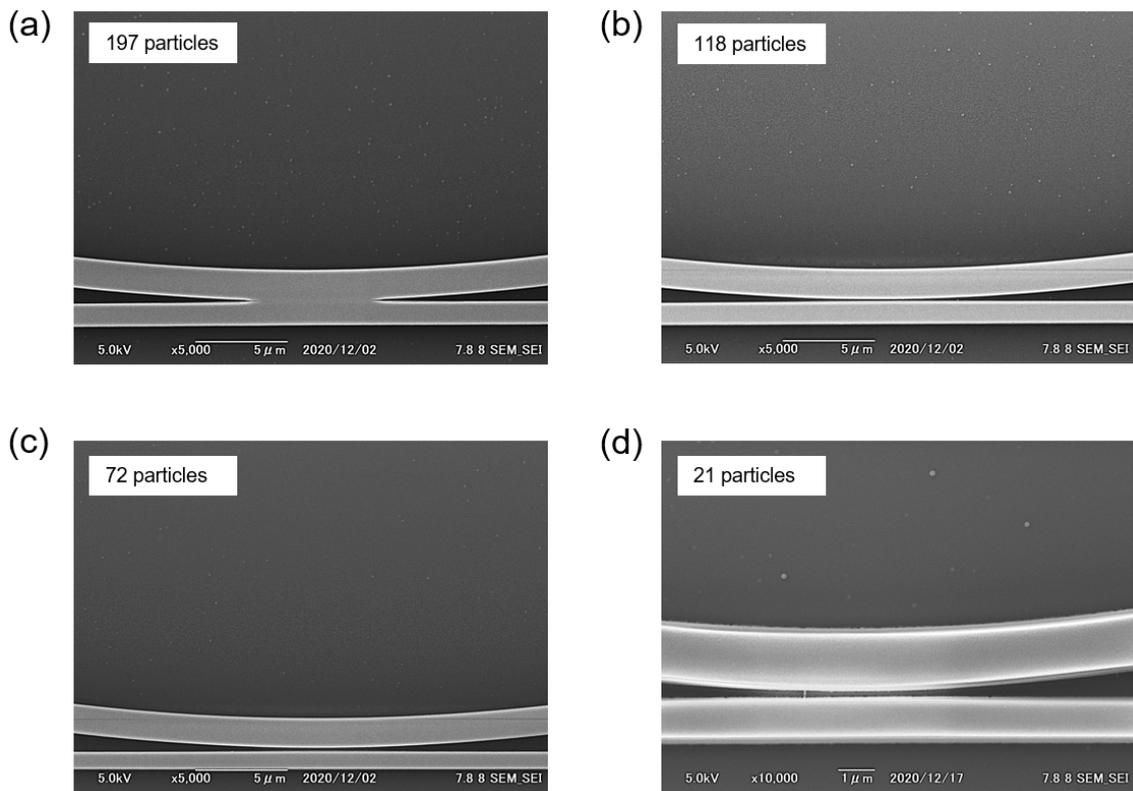


Fig.4.16 SEM images of ashing SiN pattern. (a) Without short-time DE. Ashing: 0 sec. (b) Without short-time DE. Ashing: 5 sec. (c) Without short-time DE. Ashing: 10 sec. (d) With short-time DE. Ashing: 10sec

4.2.4 ギャップ部分の深堀時間の導出

ネガ型レジストを用いた DE によるエッチング深さのギャップ依存性を調べるため、743.5 (nm) 導波路を削ったパターンの DE 深さを測定した。その結果を Fig 4.17 に示す。ギャップ幅が 340 (nm) におけるエッチング深さは 535 (nm) であるため、340 (nm) 以上のギャップ幅を削り切るには、SiN を $743.5 \times (743.5/535) \approx 1033$ (nm) 削ることをターゲットに DE を行えばよいことが分かった。

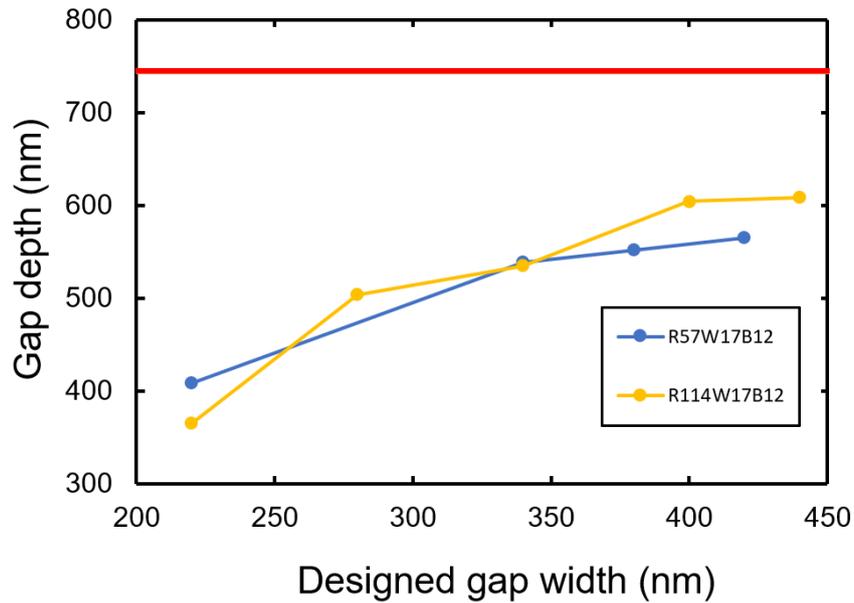


Fig.4.17 Gap depth of SiN ring pattern. R57W17B12 means $R = 57(\mu\text{m}), w = 1.7(\mu\text{m}), b = 1.2(\mu\text{m})$. R114W17B12 means $R = 57(\mu\text{m}), w = 1.7(\mu\text{m}), b = 1.2(\mu\text{m})$.

4.2.5 長時間の DE プロセスへ向けたクーリングの導入

5分以上にわたる長時間のエッチング ($> 1\mu\text{m}$) を行うと基板温度が上昇し、理想的な設定温度 (-110°C) からずれることで、エッチングの反応が短時間のエッチングとは異なってきてしまうことが考えられる。そこで、DE を複数回に分けて行い、間にクーリングの時間 (5分) を導入した。Fig 4.18 にその結果を示す。5分 21秒 (SiN の CE レート : $190 (\text{nm}/\text{min})$) を 1分 47秒で 3回に分けて行った結果、垂直性の高い ($\cong 90^\circ$) DE に成功した。この結果は、クーリング時間を設けたことでエッチングにおける温度が -110°C から大きくずれることなく CE が行われ、CE における一連の反応を安定して行うことができたことを示している。

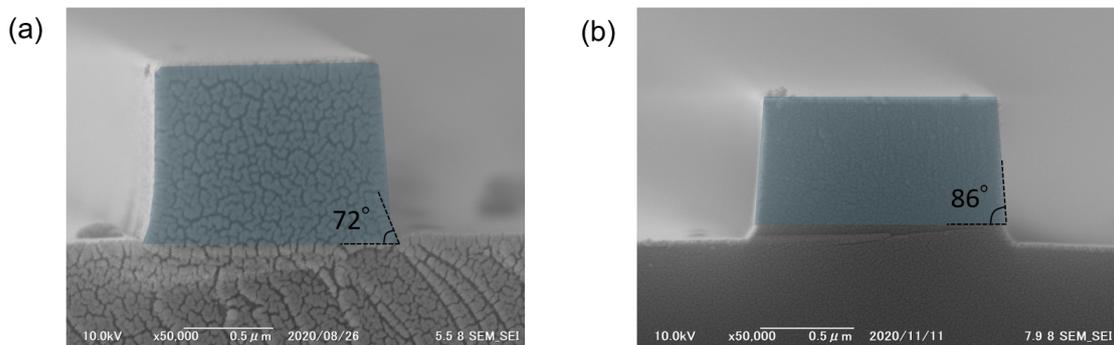


Fig.4.18 SEM images of SiN cross section. (a) CE : 3 min 40 sec. (b) CE : 1 min 47 sec $\times 3$.

4.2.6 SiN リング共振器の作製とその評価

作製したデバイスの測長結果を表 4.3 に示す。また、ギャップ部分の測長結果を Fig 4.19 と Fig 4.20 に示す。長時間のエッチングによって、ギャップ幅が 280 (nm) 以上の部分において、導波路が十分削り切れることを確認した。

Table.4.3 Measured length of fabricated SiN ring resonator.

	Design	SEM result
w (μm)	1.70	1.62
b (μm)	1.20	1.17
t (nm)	260	158

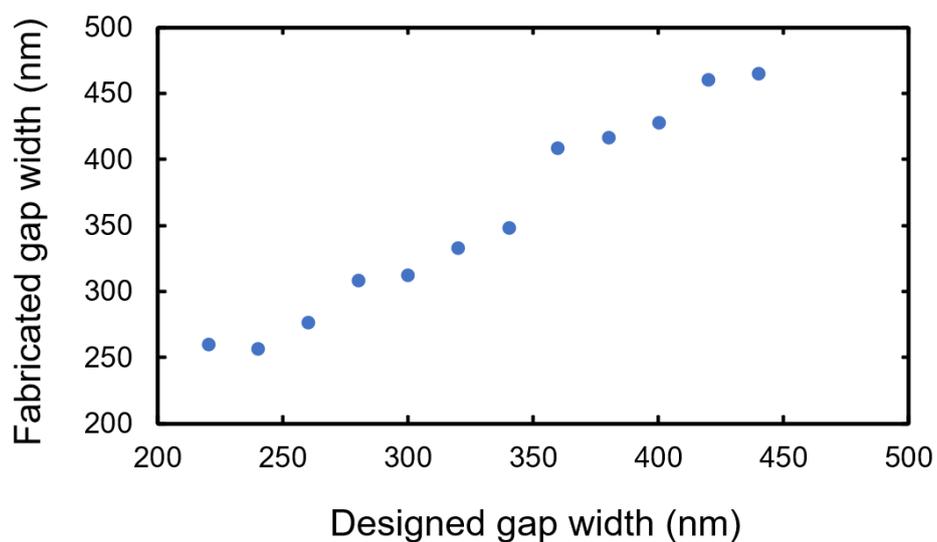


Fig.4.19 Measured gap width of SiN ring resonator.

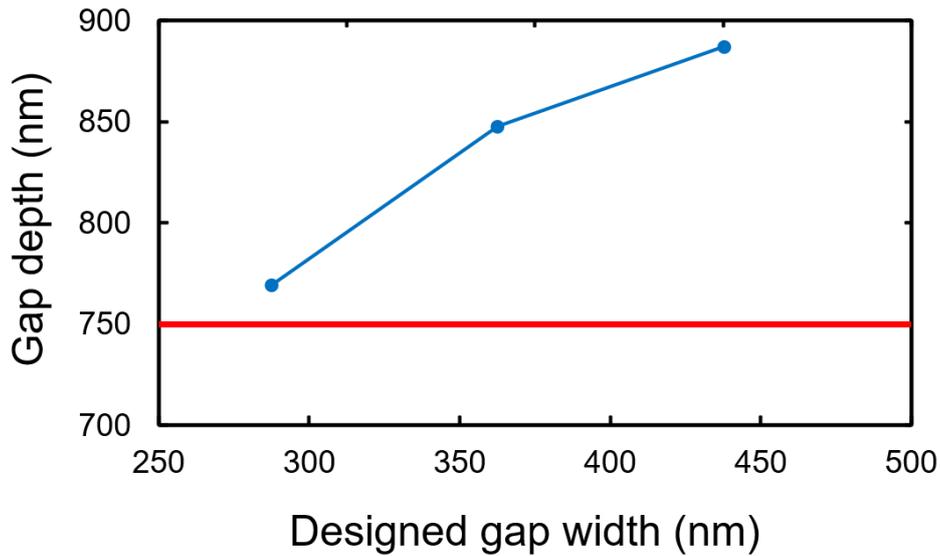


Fig.4.20 Measured gap depth of SiN ring resonator.

次に，光学特性の評価として， Q 値測定を行った．実験セットアップは Fig 4.10(a) と同様である．

ギャップ毎の共振波長付近における透過率 T の変化を Fig 4.21 に示す．R57W17B12 のパターンについては，ギャップ幅が 360 (nm) で，R114W17B12 のパターンについては，ギャップ幅が 340 (nm) で，透過率が最も低くなり，クリティカルカップリングに近づくことが分かった．次に，クリティカルカップリング付近における Q 値測定結果を Fig 4.22(a) に示す．アッシング有りと無しの 2 パターンを比較した結果，アッシングを含めたパターンは Q 値が下がることが分かった．なお，L バンドにおける最も高い Q 値として，Fig 4.22(b) に示す通り， $Q = 1.96 \times 10^5$ を得た．

アッシングによる Q 値減少の原因としてレジストの変性が考えられる． CHF_3 と Ar の DE では，反応容器内の残留酸素が反応副生成物を増加させることが知られている．したがって，リフロー後にレジストを酸素プラズマにさらすことによって，レジスト表面が酸素が結合し，ドライエッチングにおける反応副生成物の累積体積量が増加し，側壁における損失が大きくなってしまったことが考えられる．この結果は，4.1.3 節で示した TEOS 層を導入したポジ型レジストの DE 結果との類似性が確認できる．また，少なくとも現在の Q 値では，ダマの存在が主要な損失原因にはなっていないことも示唆している．

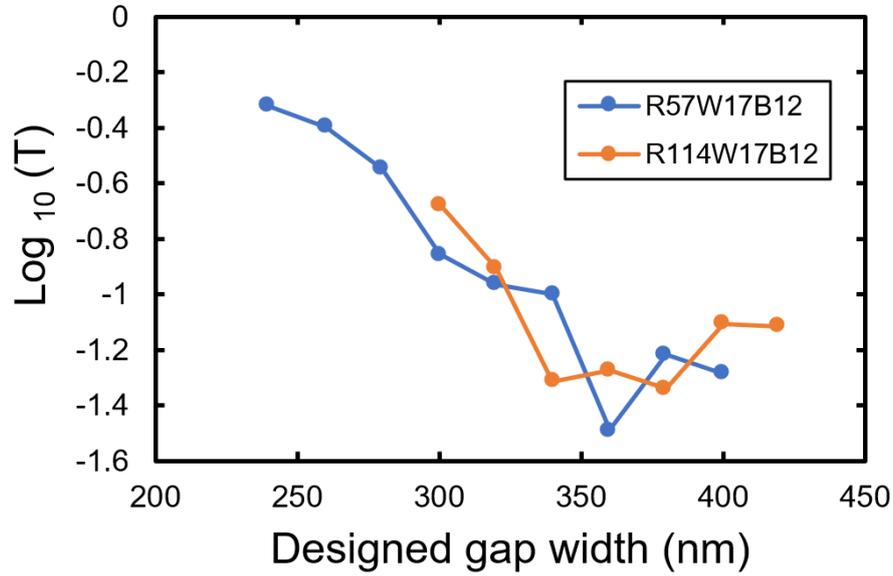


Fig.4.21 Transmittance of resonance wavelength.

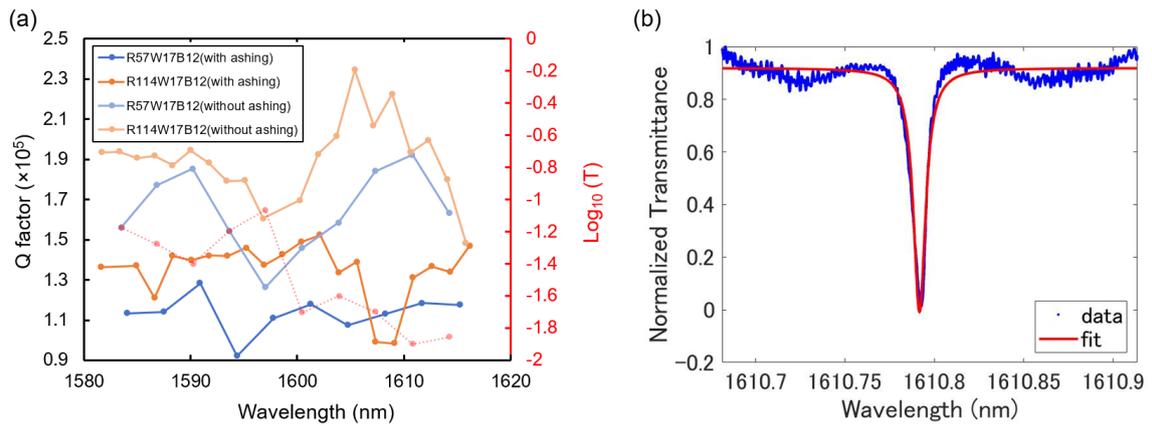


Fig.4.22 Measured Q factor. (a) With ashing and without ashing. Red dashed line shows transmittance of R57W17B12 (without ashing). (b) Example of the resonance peak spectra (without ashing).

4.2.7 高パワーの光の入力

効率よく光を結合させるには，入出力のテーパ構造（幅 150 (nm)）の作製が重要となる．しかし，maN で実現可能なアスペクト比（レジスト幅とレジスト厚さの比）は 6 ほどであり [90]，テーパ構造のアスペクト比（1200/150 = 8）の実現は困難である．Fig 4.23 に示すのは倒れてしまったレジストの例である．そこで，Fig 4.24(a) に示すような，テーパの先に四角いボックス（2 μm \times 2 μm ）を導入した．その結果，Fig 4.24(b) に示される通り，レジストを倒さず幅 157 (μm) のテーパ構造を作製することに成功した．

実際に強励起光を入力したときの透過率変化を Fig 4.25 に示す．デバイスパターンとしてはアッシング無し，半径 57 (μm)，クリティカルカップリング付近から少し離れた（ギャップ幅 440 (nm)）の共振器を用いた．また，Fig 4.25 に示されたパワー (mW) は SiN リング導波路端における出力パワーを示す．結果として，パラメトリック発振は確認されなかったが（先行研究から算出すると，パラメトリック発振には入力パワーを 2 (W) 以上入れなければならない），結合効率 30 % 以上であることが確認でき，2.4 (nm) に及ぶ共振波長の熱光学効果によるシフトが確認でき，テーパ構造の有用性が証明された．

テーパ構造における導波路端での結合効率について考察する．先行研究では，Si のテーパ構造において，理論的には 74%，実際に作製されたテーパ構造（幅：100 (nm)，厚さ 270 (nm)）を用いることで TM₀₀ モードで 47% もの結合効率を得たことが示されている [91]．なお，当該研究では，結合損失の主な原因としてモードミスマッチによるロスが挙げられており，テーパ幅が最適条件（120 (nm)）から 20 (nm) 短くなった結果，モードミスマッチによって結合効率が最適な場合と比べて 50% 落ちてしまうことも示されている．本研究で用いた SiN リング導波路においても，幅を短くするなどのテーパ構造の最適化によって，結合効率の上昇が見込める．

より多くのパワーを効率よく入れるための入出力テーパ構造の最適化も今後の課題である．

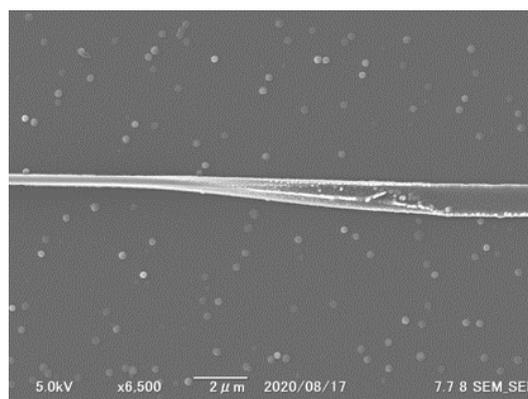


Fig.4.23 Collapsed waveguide tip.

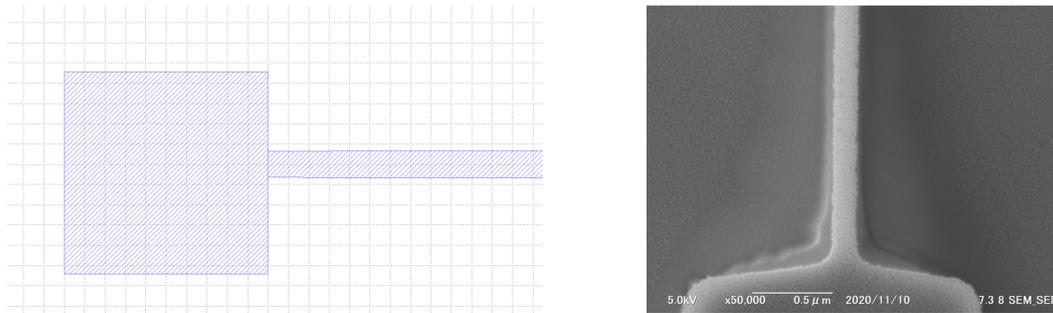


Fig.4.24 A scheme for making a tapered structure and the fabricated pattern. (a) Introduced pad structure. (b) Fabricated tip pattern.

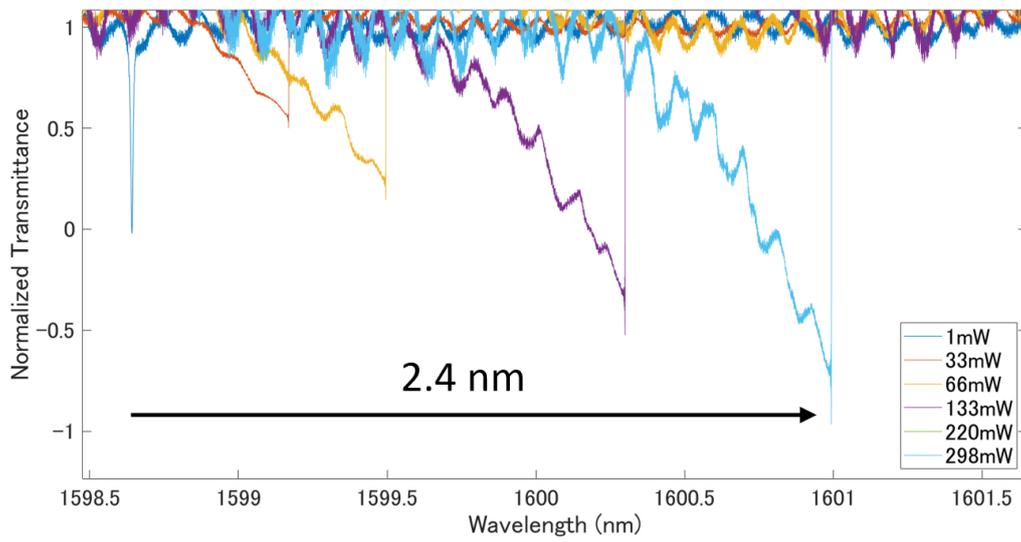


Fig.4.25 Resonance shift by high input power.

5 結論

低温堆積された SiN 膜を用いた低損失な SiN リング共振器 ($Q > 5 \times 10^5$) の作製を目的として、ホットワイヤ CVD 法を用いた SiN リング共振器を作製し、その評価を行った。

CMOS 互換性のあるプロセスを用いることで共振器の一連の作製を行った。EB 描画プロセスと DE プロセスの最適化を行い、設計通りで低損失な光共振器作製プロセスの最適化を行った。

ポジ型レジストを用いて $Q = 1.12 \times 10^5$ の共振器を作製したが、ギャップ部分が繋がることによる損失が大きいため、目的とする $Q = 5 \times 10^5$ に届かず、低 Q 値となった。また、その当時に入手可能なレジストでは、選択比の関係上これ以上の深堀がポジ型レジストでは困難であることが分かった。

さらなる深堀を行うために選択比の高いネガ型レジストを用いて共振器の作製を行った。選択比が改善されたことで、長時間の DE に成功し、ギャップ部分の深堀に成功した。また、エッチングに冷却サイクルを導入することにより、垂直性の高い DE に成功した。光通信波長帯 L バンドにおいて FSR 400GHz の共振器で、ほぼクリティカルカップリング付近が得られ、そのときの $Q = 1.89 \times 10^5$ であった。また、深堀に対して作製が困難となる入出力テーパ構造も、設計に工夫を加えることで実現し、30% 以上の結合効率を得た。さらに、実際にハイパワーを共振器内部に入力し、共振波長の熱光学効果によるシフトを確認した。

今後の展望としては、 $Q = 5 \times 10^5$ へ向けたさらなる高 Q 値化である。EB プロセスと DE プロセスの最適化を本研究では中心に行ったが、SiN の膜表面の最適化は本研究では行わなかった。そのため、膜表面の損失因子を低減する手法として、表面研磨である化学的機械 (CMP : Chemical mechanical polishing) 研磨の導入が考えられる。先行研究では、CMP 研磨の導入によって表面粗さを低減し、 Q 値が約 1.73 倍向上したとの報告がある [2]。導波路の表面粗さについての議論は Appendix にて述べる。

また、デバイス加工後の高温焼成による膜中の水素結合基の低減も考えられる。先行研究では、同一時間のアニールにおいて、1000 度以上のポストアニールによって急激に水素残留濃度が減り、1050 度付近で N-H 基の密度が約半分にまで低減されたとする報告が存在する [92]。ポストアニールを行うことで水素残留濃度が減少することで N-H 基による吸収が軽減され、通信波長帯 C バンドにおける Q 値の改善が期待できる。

以上が本論文の結論及び展望である。

付録 A SiN の表面状態と損失の関係

A.1 材料の表面粗さの 2 パラメータ (RMS, 相関長) と損失係数 α の算出

SiN 光導波路の表面状態の評価のために、二乗平方根平均高さ (RMS : Root Mean Square) σ (単位 : nm) と相関長 L_c (単位 : μm) の 2 パラメータを用いた。Fig 付録 A.1 に簡単な光導波路の表面図を示す。

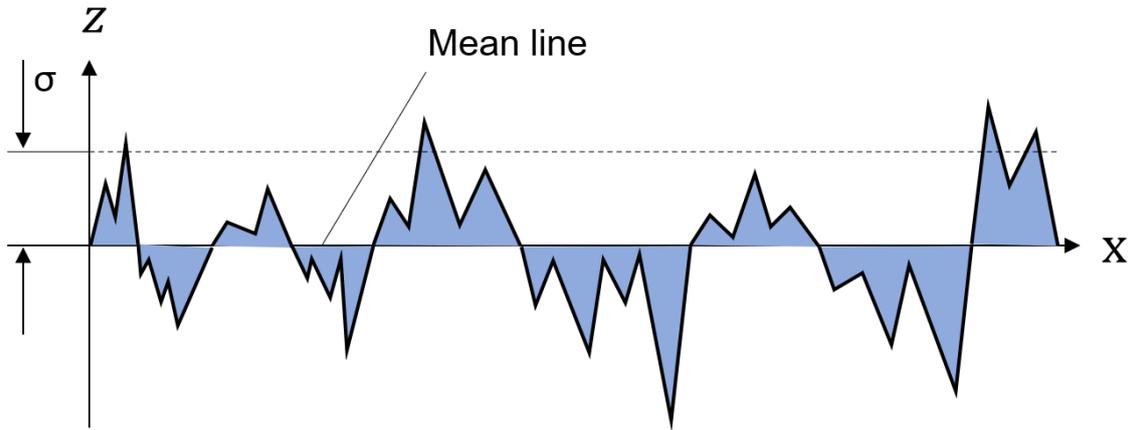


Fig. 付録 A.1 The RMS roughness based on a mean line.

σ は導波路の平均面からの高低差の標準偏差を示し、ある x 方向の長さ範囲 $0 - L$ において、以下の式で表される [93].

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{L} \int_0^L |z^2(x)| dx} \quad (\text{付録 A.1})$$

L_c は、表面の 2 点間における高さの自己相関が指数関数またはガウス関数で減衰すると仮定したときの、その関数の広がりを表す。高さの相関を表す自己相関関数を $R(u)$ (nm^2) とおくことで、 L_c は以下の関係式を満たす [94].

$$R(u) = \begin{cases} \sigma^2 \exp\left(-\frac{|u|}{L_c}\right) & (\text{Exponential autocorrelation function}) \\ \sigma^2 \exp\left(-\frac{u^2}{L_c^2}\right) & (\text{Gaussian autocorrelation function}) \end{cases} \quad (\text{付録 A.2})$$

R_q と L_c を得ることで、ある光導波路における表面散乱による減衰係数 α (cm^{-1}) を求めることができる。以下にその導出方法を記述する [94].

導波路厚みを d , コアの屈折率を n_1 , クラッドの屈折率を n_2 , 光モード (以下では TE01 モードとする) の伝搬定数を β_1 , 自由空間における波数を $k_0 = 2\pi/\lambda_0$ とおくことで、正規化パラメータ U, V, W を定義する。

$$U = d\sqrt{n_1^2 k_0^2 - \beta^2} \quad (\text{付録 A.3})$$

$$V = k_0 d \sqrt{n_1^2 - n_2^2} \quad (\text{付録 A.4})$$

$$W = d\sqrt{\beta^2 - n_2^2 k_0^2} \quad (\text{付録 A.5})$$

U, V, W を用いることで、5つの無次元パラメータ $\Delta, \chi, \gamma, g(V), f_e(\chi, \gamma)$ を定義する。

$$\Delta = \frac{n_1^2 - n_2^2}{2n_1^2} \quad (\text{付録 A.6})$$

$$\chi = W \frac{L_c}{d} \quad (\text{付録 A.7})$$

$$g(V) = \frac{U^2 V^2}{(1 + W)} \quad (\text{付録 A.8})$$

$$f_e(\chi, \gamma) = \frac{\chi \left[\left\{ (1 + \chi^2)^2 + 2\gamma^2 \chi^2 \right\}^{1/2} + 1 - \chi^2 \right]^{1/2}}{\left\{ (1 + \chi^2)^2 + 2\gamma^2 \chi^2 \right\}^{1/2}} \quad (\text{付録 A.9})$$

これらのパラメータを用いることで、 α は以下のとおり表すことができる。

$$\alpha = \frac{\sigma^2}{\sqrt{2k_0 d^4 n_1}} g(V) f_e(\chi, \gamma) \quad (\text{付録 A.10})$$

A.2 AFM による材料表面の観察と表面粗さの導出

表面状態の観察を観察し、 $z(x)$ を求めるため、原子間力顕微鏡 (AFM: Atomic Force Microscope) を用いた [93]。AFM は、探針とサンプル表面間に働く原子間力が常に一定となるよう探針を操作し、探針の上下方向の変位が記録される。探針の操作は、レーザ光を探針の先端に当てながら行われ、探針の変位の測定と同時にレーザ光の反射光強度の測定も行われる。探針とサンプル表面が十分に近づくと原子間力によって互いに引き寄せられて接触するため、反射光強度が変化し接触が感知される。これをサンプル表面の特定の面積内において行うことで、通常の光学顕微鏡では観察出来ないほど高精度な 3 次元の表面画像を得ることが出来る。本研究では、Dimension Icon (Bruker 社製) を用いて、AFM 画像を得た。 R_q は、取得した AFM 画像の高さデータから標準偏差を求めることで得た。 L_c は、取得した AFM 画像からパワースペクトル密度を求め、その半値全幅の逆数を L_c とした。

A.3 AFM による SiN 光導波路の表面粗さと損失

SiO₂/Si 基板上に HWCVD 法で SiN 膜を堆積させ、実際に CMP 研磨を行い、その表面を AFM で観察した (スキャン範囲: 10 (μm) × 10 (μm)). そのトポ像を Fig 付録 A.2 に示す. また, 様々な条件で堆積させた SiN 膜における R_q と L_c を Table 付録 A.1 に示す. なお, Table 付録 A.1 において, "Rate no change" はガスの流量を Table 3.1 の上から 1 番目の条件で 2 時間堆積させたことを示す. また, "Rate change" は, ガスの流量を開始から 0~30 分は Table 3.1 の上から 6 番目の条件, 30 分~1 時間 50 分は Table 3.1 の上から 1 番目の条件, 1 時間 50 分~2 時間は Table 3.1 の上から 6 番目の条件で堆積させたことを示す.

CMP 研磨無しの SiN/SiO₂/Si 膜 (SiN の膜厚 750 (nm)) の表面状態は, 成膜条件に大きく依存せず, 概ね表面粗さ $R_a \sim 1.0$ (nm) となり, 良好な平坦性が得られた. しかし, (付録 A.2) 式を用いて表面粗さプロファイルから算出された L_c は, 200~400 (nm) の値を取ることが分かった.

光導波路の散乱損失を決める支配的な因子は, A.1 節に示した通り, 表面粗さ (σ), 相関長 (L_c), 及び光導波路のモード空間分布である. 例えば, 膜の表面粗さを測定している光学界面において, モードの染み出しが大きく, 光強度が高ければ, 損失は大きくなる. また, 基本モードと放射モードのビート長が相関長と同程度であれば, 両者のパワーは結合するため, 同じ表面粗さ, 同じ光閉じ込め特性であったとしても損失は大きくなる. Fig 付録 A.3 は, TE01 モードに対して相関長と光損失の関係を (付録 A.10) 式から計算した結果である. 相関長がサブミクロンオーダーであることは, 低損失化の障害になっていることがわかる.

それに対して, CMP 研磨後は, 表面粗さの改善はほぼ無いものの, 相関長が > 10 (μm) となり, 同程度の表面粗さであっても実効的な損失を 1/10 程度にできることがわかった.

Table. 付録 A.1 RMS (σ) and correlation length (L_c) of SiN surfaces.

CVD condition	CMP	SiN thickness (nm)	RMS (σ (nm))	Correlation length (L_c (μm))
Rate no change	without	750	0.8875	0.2893
Rate change	without	750	1.068	0.3298
Rate no change	with	570	1.158	24.13

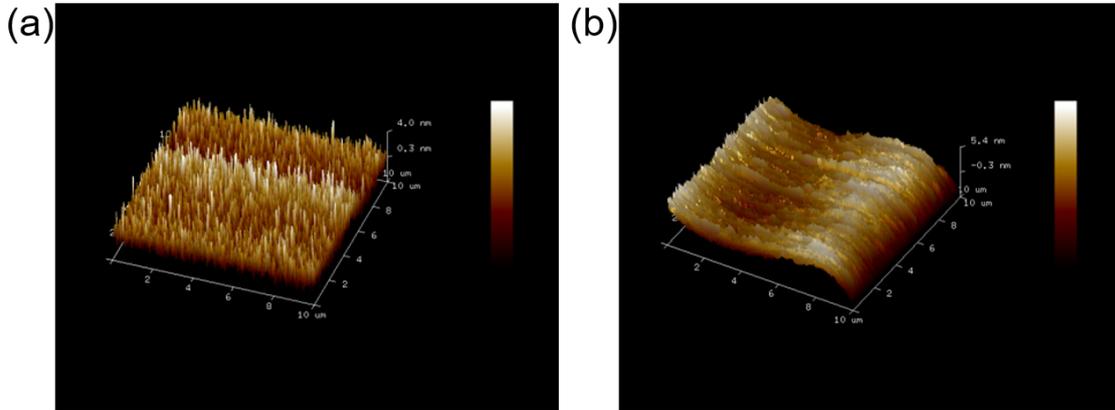


Fig. 付録 A.2 3D AFM image of the top surface of SiN. (a) Before CMP. (b) After CMP.

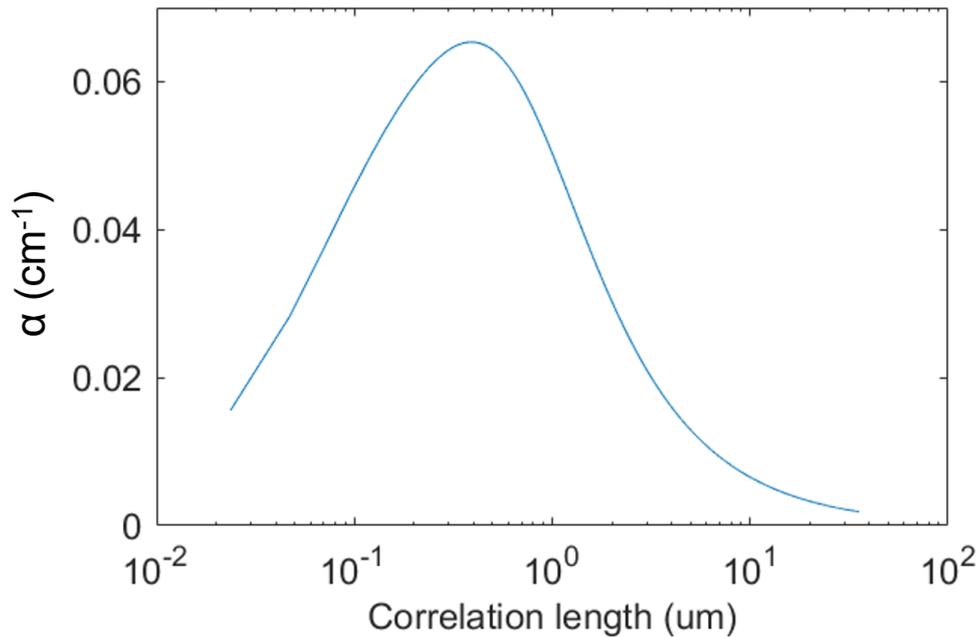


Fig. 付録 A.3 Simulation result of propagation-loss factor α (cm^{-1}). In this calculation, $n_1 = 2.0$, $n_2 = 1.44$, $d = 700$ (nm), $\sigma = 0.5$ (nm), $\lambda_0 = 1550$ (nm), $\beta = 7.40$ (nm^{-1}).

A.4 CMP 研磨の今後の展望

今後の展望としては、CMP 研磨プロセスの最適化が挙げられる。今回用いた CMP 研磨後のサンプルの膜厚は 570 (μm) であり、ターゲットである 750 (μm) と比べてモードの染み出しが大きくなり、損失が大きくなったと考えられる。CMP 研磨後における σ , L_c の値をそのまま用いて (付録 A.10) 式から α の計算を行うと、Fig 付録 A.4 に示す通り、膜厚が 570 (μm) から 750 (μm) になることで、 α の値は $2/3$ 程度に低減できることがわかった。また、表面粗さは先行研究

[2] で示されるような原子層レベルの平坦化 (~ 0.3 (nm)) には至っておらず, CMP の条件最適化でさらなる改善が期待できる. (付録 A.10) 式より, α は σ の 2 乗に比例するため, 表面粗さ σ の低減 (~ 0.3 (nm)) によってさらに 9/100 程度の損失低減が見込める.

以上をまとめると, 膜厚 750 (μm) で原子層レベルの平坦化 (~ 0.3 (nm)) に成功した CMP 研磨 SiN/SiO₂/Si 基板を用いることで, 従来の CMP 研磨なしの SiN/SiO₂/Si 基板を用いた光導波路と比べて表面散乱を $(1/10) \times (2/3) \times (9/100) = 3/500$ 程度まで抑えることができると期待できる. これは, SiN の固有損失において, 表面損失が支配的であると仮定すると, (2.67) 式で表される Q_{int} を約 167 倍向上できる可能性を持つことと同値である. 今現在達成しているクリティカルカップリング付近での $Q_{\text{load}} = 1.89 \times 10^5$ であるため, Q_{int} 値が 167 倍になることによって, (2.73) 式より, Q_{load} も 167 倍となり, $Q_{\text{load}} > 3 \times 10^7$ となるため, 励起パワー 110 (μW) でパラメトリック発振が可能になると期待できる [65].

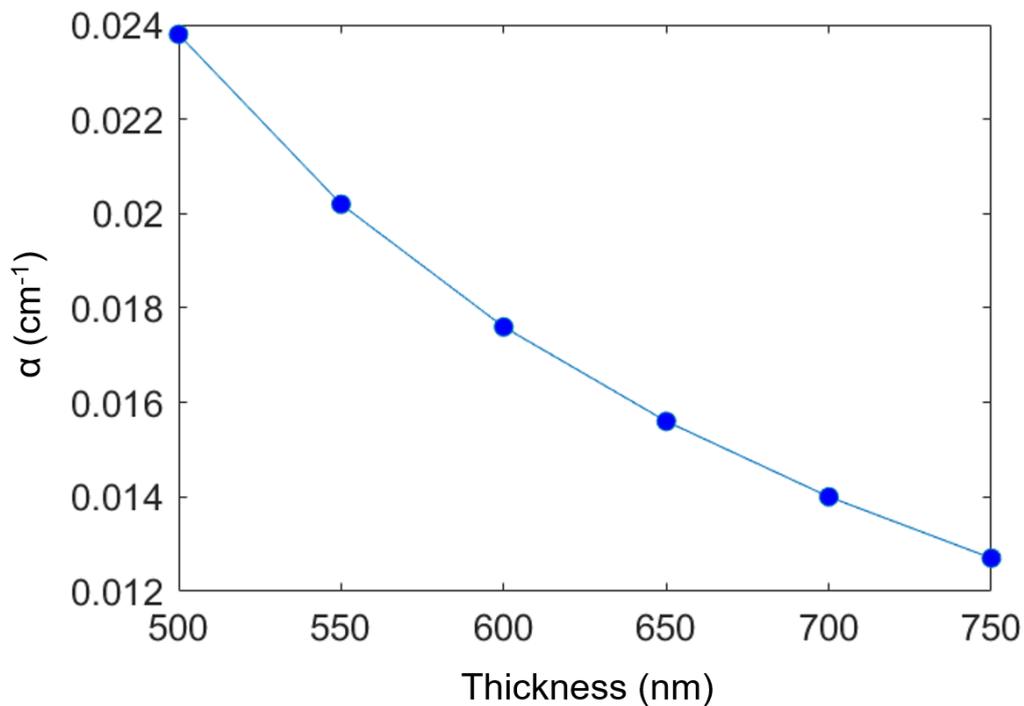


Fig. 付録 A.4 Simulation result of propagation-loss factor α (cm^{-1}). In this calculation, $n_1 = 2.0$, $n_2 = 1.44$, $L_c = 24.13$ (μm), $\sigma = 0.5$ (nm), $\lambda_0 = 1550$ (nm), $\beta = 7.40$ (nm^{-1}).

参考文献

- [1] J. Liu, H. Weng, A. A. Afridi, J. Li, J. Dai, X. Ma, H. Long, Y. Zhang, Q. Lu, J. F. Donegan, and W. Guo, “Photolithography allows high-Q AlN microresonators for near octave-spanning frequency comb and harmonic generation,” *Opt. Express* **28**, 19270–19280 (2020).
- [2] X. Ji, F. A. S. Barbosa, S. P. Roberts, A. Dutt, J. Cardenas, Y. Okawachi, A. Bryant, A. L. Gaeta, and M. Lipson, “Ultra-low-loss on-chip resonators with sub-milliwatt parametric oscillation threshold,” *Optica* **4**, 619–624 (2017).
- [3] T. J. Kippenberg, S. M. Spillane, and K. J. Vahala, “Demonstration of ultra-high-Q small mode volume toroid microcavities on a chip,” *Applied Physics Letters* **85**, 6113–6115 (2004).
- [4] H. Lee, T. Chen, J. Li, K. Y. Yang, S. Jeon, O. Painter, and K. J. Vahala, “Chemically etched ultrahigh-Q wedge-resonator on a silicon chip,” *Nature Photonics* **6**, 369–373 (2012).
- [5] C. Y. Wang, P. Herr, T. Del’Haye, A. Schliesser, J. Hofer, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, N. Picqué, and T. J. Kippenberg, “Mid-infrared optical frequency combs at 2.5 μm based on crystalline microresonators,” *Nature Communications* **4**, 1345 (2013).
- [6] J. Hofer, A. Schliesser, and T. J. Kippenberg, “Cavity optomechanics with ultrahigh-Q crystalline microresonators,” *Phys. Rev. A* **82**, 031804 (2010).
- [7] Y. V. Baklanov and V. P. Chebotayev, “Narrow resonances of two-photon absorption of super-narrow pulses in a gas,” *Applied physics* **12**, 97–99 (1977).
- [8] R. Wynands and S. Weyers, “Atomic fountain clocks,” *Metrologia* **42**, S64–S79 (2005).
- [9] H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle, and G. Zinner, “First phase-coherent frequency measurement of visible radiation,” *Phys. Rev. Lett.* **76**, 18–21 (1996).
- [10] J. K. Ranka, R. S. Windeler, and A. J. Stentz, “Visible continuum generation in air–silica microstructure optical fibers with anomalous dispersion at 800 nm,” *Opt. Lett.* **25**, 25–27 (2000).
- [11] T. C. Briles, J. R. Stone, T. E. Drake, D. T. Spencer, C. Fredrick, Q. Li, D. Westly, B. R. Ilic, K. Srinivasan, S. A. Diddams, and S. B. Papp, “Interlocking Kerr-microresonator frequency combs for microwave to optical synthesis,” *Opt. Lett.* **43**, 2933–2936 (2018).
- [12] W. J. Riley, “Handbook of frequency stability analysis. nist: Gaithersburg us-md.” (2008).
- [13] L.-S. Ma, Z. Bi, A. Bartels, L. Robertsson, M. Zucco, R. S. Windeler, G. Wilpers, C. Oates, L. Hollberg, and S. A. Diddams, “Optical frequency synthesis and comparison with uncertainty at the 10^{-19} level,” *Science* **303**, 1843–1845 (2004).
- [14] P. Del’Haye, A. Schliesser, T. Wilken, R. Holzwarth, and T. J. Kippenberg, “Optical

- frequency comb generation from a monolithic micro-resonator via the kerr nonlinearity,” in “Nonlinear Optics: Materials, Fundamentals and Applications,” (Optical Society of America, 2007), p. FB3.
- [15] J. R. Stone, T. C. Briles, T. E. Drake, D. T. Spencer, D. R. Carlson, S. A. Diddams, and S. B. Papp, “Thermal and nonlinear dissipative-soliton dynamics in Kerr-microresonator frequency combs,” *Phys. Rev. Lett.* **121**, 063902 (2018).
- [16] T. Herr, V. Brasch, J. D. Jost, C. Y. Wang, N. M. Kondratiev, M. L. Gorodetsky, and T. J. Kippenberg, “Temporal solitons in optical microresonators,” *Nature Photonics* **8**, 145–152 (2014).
- [17] C. Godey, I. V. Balakireva, A. Coillet, and Y. K. Chembo, “Stability analysis of the spatiotemporal lugiato-lefever model for kerr optical frequency combs in the anomalous and normal dispersion regimes,” *Phys. Rev. A* **89**, 063814 (2014).
- [18] J. P. Gordon, “Interaction forces among solitons in optical fibers,” *Opt. Lett.* **8**, 596–598 (1983).
- [19] J. P. Gordon and H. A. Haus, “Random walk of coherently amplified solitons in optical fiber transmission,” *Opt. Lett.* **11**, 665–667 (1986).
- [20] T. J. Kippenberg, A. L. Gaeta, M. Lipson, and M. L. Gorodetsky, “Dissipative Kerr solitons in optical microresonators,” *Science* **361** (2018).
- [21] X. Xue, Y. Xuan, Y. Liu, P.-H. Wang, S. Chen, J. Wang, D. E. Leaird, M. Qi, and A. M. Weiner, “Mode-locked dark pulse Kerr combs in normal-dispersion microresonators,” *Nature Photonics* **9**, 594–600 (2015).
- [22] P. Trocha, M. Karpov, D. Ganin, M. H. P. Pfeiffer, A. Kordts, S. Wolf, J. Krockenberger, P. Marin-Palomo, C. Weimann, S. Randel, W. Freude, T. J. Kippenberg, and C. Koos, “Ultrafast optical ranging using microresonator soliton frequency combs,” *Science* **359**, 887–891 (2018).
- [23] Z. L. Newman, V. Maurice, T. Drake, J. R. Stone, T. C. Briles, D. T. Spencer, C. Fredrick, Q. Li, D. Westly, B. R. Ilic, B. Shen, M.-G. Suh, K. Y. Yang, C. Johnson, D. M. S. Johnson, L. Hollberg, K. J. Vahala, K. Srinivasan, S. A. Diddams, J. Kitching, S. B. Papp, and M. T. Hummon, “Architecture for the photonic integration of an optical atomic clock,” *Optica* **6**, 680–685 (2019).
- [24] M.-G. Suh, Q.-F. Yang, K. Y. Yang, X. Yi, and K. J. Vahala, “Microresonator soliton dual-comb spectroscopy,” *Science* **354**, 600–603 (2016).
- [25] W. Liang, D. Eliyahu, V. S. Ilchenko, A. A. Savchenkov, A. B. Matsko, D. Seidel, and L. Maleki, “High spectral purity kerr frequency comb radio frequency photonic oscillator,” *Nature Communications* **6**, 7957 (2015).
- [26] D. T. Spencer, T. Drake, T. C. Briles, J. Stone, L. C. Sinclair, C. Fredrick, Q. Li, D. Westly, B. R. Ilic, A. Bluestone, N. Volet, T. Komljenovic, L. Chang, S. H. Lee,

- D. Y. Oh, M.-G. Suh, K. Y. Yang, M. H. P. Pfeiffer, T. J. Kippenberg, E. Norberg, L. Theogarajan, K. Vahala, N. R. Newbury, K. Srinivasan, J. E. Bowers, S. A. Diddams, and S. B. Papp, “An optical-frequency synthesizer using integrated photonics,” *Nature* **557**, 81–85 (2018).
- [27] E. Obrzud, M. Rainer, A. Harutyunyan, M. H. Anderson, J. Liu, M. Geiselmann, B. Chazelas, S. Kundermann, S. Lecomte, M. Cecconi, A. Ghedina, E. Molinari, F. Pepe, F. Wildi, F. Bouchy, T. J. Kippenberg, and T. Herr, “A microphotonic astrocomb,” *Nature Photonics* **13**, 31–35 (2019).
- [28] J. Pfeifle, V. Brasch, M. Laueremann, Y. Yu, D. Wegner, T. Herr, K. Hartinger, P. Schindler, J. Li, D. Hillerkuss, R. Schmogrow, C. Weimann, R. Holzwarth, W. Freude, J. Leuthold, T. J. Kippenberg, and C. Koos, “Coherent terabit communications with microresonator Kerr frequency combs,” *Nature Photonics* **8**, 375–380 (2014).
- [29] X. Lu, Q. Li, D. A. Westly, G. Moille, A. Singh, V. Anant, and K. Srinivasan, “Chip-integrated visible-telecom entangled photon pair source for quantum communication,” *Nature Physics* **15**, 373–381 (2019).
- [30] C. J. Krückel, A. Fülöp, T. Klintberg, J. Bengtsson, P. A. Andrekson, and V. Torres-Company, “Linear and nonlinear characterization of low-stress high-confinement silicon-rich nitride waveguides,” *Opt. Express* **23**, 25827–25837 (2015).
- [31] W. Bogaerts, R. Baets, P. Dumon, V. Wiaux, S. Beckx, D. Taillaert, B. Luyssaert, J. V. Campenhout, P. Bienstman, and D. V. Thourhout, “Nanophotonic waveguides in silicon-on-insulator fabricated with CMOS technology,” *J. Lightwave Technol.* **23**, 401 (2005).
- [32] T. Liang, L. Nunes, T. Sakamoto, K. Sasagawa, T. Kawanishi, M. Tsuchiya, G. Priem, D. V. Thourhout, P. Dumon, R. Baets, and H. Tsang, “Ultrafast all-optical switching by cross-absorption modulation in silicon wire waveguides,” *Opt. Express* **13**, 7298–7303 (2005).
- [33] M. D. Pelusi, F. Luan, E. Magi, M. R. E. Lamont, D. J. Moss, B. J. Eggleton, J. S. Sanghera, L. B. Shaw, and I. D. Aggarwal, “High bit rate all-optical signal processing in a fiber photonic wire,” *Opt. Express* **16**, 11506–11512 (2008).
- [34] A. G. Griffith, R. K. W. Lau, J. Cardenas, Y. Okawachi, A. Mohanty, R. Fain, Y. H. D. Lee, M. Yu, C. T. Phare, C. B. Poitras, A. L. Gaeta, and M. Lipson, “Silicon-chip mid-infrared frequency comb generation,” *Nature Communications* **6**, 6299 (2015).
- [35] D. J. Moss, R. Morandotti, A. L. Gaeta, and M. Lipson, “New cmos-compatible platforms based on silicon nitride and hydex for nonlinear optics,” *Nature Photonics* **7**, 597–607 (2013).
- [36] B. Corcoran, M. Tan, X. Xu, A. Boes, J. Wu, T. G. Nguyen, S. T. Chu, B. E. Little, R. Morandotti, A. Mitchell, and D. J. Moss, “Ultra-dense optical data transmission over standard fibre with a single chip source,” *Nature Communications* **11**, 2568 (2020).

- [37] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland, and M. Sheik-Bahae, “Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and n_2 in wide bandgap solids,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **32**, 1324–1333 (1996).
- [38] M. Zhang, B. Buscaino, C. Wang, A. Shams-Ansari, C. Reimer, R. Zhu, J. M. Kahn, and M. Lončar, “Broadband electro-optic frequency comb generation in a lithium niobate microring resonator,” *Nature* **568**, 373–377 (2019).
- [39] R. Takigawa and T. Asano, “Thin-film lithium niobate-on-insulator waveguides fabricated on silicon wafer by room-temperature bonding method with silicon nanoadhesive layer,” *Opt. Express* **26**, 24413–24421 (2018).
- [40] C. Wang, M. Zhang, M. Yu, R. Zhu, H. Hu, and M. Loncar, “Monolithic lithium niobate photonic circuits for Kerr frequency comb generation and modulation,” *Nature Communications* **10**, 978 (2019).
- [41] Y. He, Q.-F. Yang, J. Ling, R. Luo, H. Liang, M. Li, B. Shen, H. Wang, K. Vahala, and Q. Lin, “Self-starting bi-chromatic LiNbO₃ soliton microcomb,” *Optica* **6**, 1138–1144 (2019).
- [42] H. Jung, K. Y. Fong, C. Xiong, and H. X. Tang, “Electrical tuning and switching of an optical frequency comb generated in aluminum nitride microring resonators,” *Opt. Lett.* **39**, 84–87 (2014).
- [43] A. W. Bruch, X. Liu, Z. Gong, J. B. Surya, M. Li, C.-L. Zou, and H. X. Tang, “Pockels soliton microcomb,” *Nature Photonics* (2020).
- [44] Y. Zhang, H. Long, J. Zhang, B. Tan, Q. Chen, S. Zhang, M. Shan, Z. Zheng, J. Dai, and C. Chen, “Fast growth of high quality AlN films on sapphire using a dislocation filtering layer for ultraviolet light-emitting diodes,” *CrystEngComm* **21**, 4072–4078 (2019).
- [45] L. Chang, W. Xie, H. Shu, Q.-F. Yang, B. Shen, A. Boes, J. D. Peters, W. Jin, C. Xiang, S. Liu, G. Moille, S.-P. Yu, X. Wang, K. Srinivasan, S. B. Papp, K. Vahala, and J. E. Bowers, “Ultra-efficient frequency comb generation in AlGaAs-on-insulator microresonators,” in “Conference on Lasers and Electro-Optics,” (Optical Society of America, 2020), p. STu3H.8.
- [46] L. Chang, A. Boes, X. Guo, D. T. Spencer, M. J. Kennedy, J. D. Peters, N. Volet, J. Chiles, A. Kowligy, N. Nader, D. D. Hickstein, E. J. Stanton, S. A. Diddams, S. B. Papp, and J. E. Bowers, “Heterogeneously integrated GaAs waveguides on insulator for efficient frequency conversion,” *Laser & Photonics Reviews* **12**, 1800149 (2018).
- [47] D. J. Wilson, K. Schneider, S. Hönl, M. Anderson, Y. Baumgartner, L. Czornomaz, T. J. Kippenberg, and P. Seidler, “Integrated gallium phosphide nonlinear photonics,” *Nature Photonics* **14**, 57–62 (2020).
- [48] M. S. Farhan, E. Zalnezhad, and A. Bushroa, “Properties of Ta₂O₅ thin films prepared by ion-assisted deposition,” *Materials Research Bulletin* **48**, 4206 – 4209 (2013).

- [49] N. Kim and J. F. Stebbins, “Effects of annealing on the structure of ion beam sputtered amorphous tantalum oxide: Oxygen-17 NMR spectra and relaxation times,” *Journal of Non-Crystalline Solids* **378**, 158 – 162 (2013).
- [50] H. Jung, S.-P. Yu, D. R. Carlson, T. E. Drake, T. C. Briles, and S. B. Papp, “Tantala Kerr-nonlinear integrated photonics,” arXiv:2007.12958 (2020).
- [51] S. Lettieri, S. D. Finizio, P. Maddalena, V. Ballarini, and F. Giorgis, “Second-harmonic generation in amorphous silicon nitride microcavities,” *Applied Physics Letters* **81**, 4706–4708 (2002).
- [52] J. S. Levy, M. A. Foster, A. L. Gaeta, and M. Lipson, “Harmonic generation in silicon nitride ring resonators,” *Opt. Express* **19**, 11415–11421 (2011).
- [53] A. Billat, D. Grassani, M. H. P. Pfeiffer, S. Kharitonov, T. J. Kippenberg, and C.-S. Brés, “Large second harmonic generation enhancement in Si_3N_4 waveguides by all-optically induced quasi-phase-matching,” *Nature communications* **8**, 1016–1016 (2017).
- [54] L. Razzari, D. Duchesne, M. Ferrera, R. Morandotti, S. Chu, B. E. Little, and D. J. Moss, “CMOS-compatible integrated optical hyper-parametric oscillator,” *Nature Photonics* **4**, 41–45 (2010).
- [55] P. Temple-Boyer, C. Rossi, E. Saint-Etienne, and E. Scheid, “Residual stress in low pressure chemical vapor deposition SiN_x films deposited from silane and ammonia,” *Journal of Vacuum Science & Technology A* **16**, 2003–2007 (1998).
- [56] W. A. Lanford and M. J. Rand, “The hydrogen content of plasma - deposited silicon nitride,” *Journal of Applied Physics* **49**, 2473–2477 (1978).
- [57] K. Luke, A. Dutt, C. B. Poitras, and M. Lipson, “Overcoming Si_3N_4 film stress limitations for high quality factor ring resonators,” *Opt. Express* **21**, 22829–22833 (2013).
- [58] M. H. P. Pfeiffer, C. Herkommer, J. Liu, T. Morais, M. Zervas, M. Geiselmann, and T. J. Kippenberg, “Photonic damascene process for low-loss, high-confinement silicon nitride waveguides,” *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **24**, 1–11 (2018).
- [59] H. El Dirani, A. Kamel, M. Casale, S. Kerdiles, C. Monat, X. Letartre, M. Pu, L. K. Oxenløwe, K. Yvind, and C. Sciancalepore, “Annealing-free Si_3N_4 frequency combs for monolithic integration with Si photonics,” *Applied Physics Letters* **113**, 081102 (2018).
- [60] H. Matsumura, “Formation of silicon-based thin films prepared by catalytic chemical vapor deposition (Cat-CVD) method,” *Japanese Journal of Applied Physics* **37**, 3175–3187 (1998).
- [61] A. B. Matsko, A. A. Savchenkov, W. Liang, V. S. Ilchenko, D. Seidel, and L. Maleki, “Mode-locked Kerr frequency combs,” *Opt. Lett.* **36**, 2845–2847 (2011).
- [62] P.-H. Wang, F. Ferdous, H. Miao, J. Wang, D. E. Leaird, K. Srinivasan, L. Chen, V. Aksyuk, and A. M. Weiner, “Observation of correlation between route to formation, coherence, noise, and communication performance of Kerr combs,” *Opt. Express*

- 20**, 29284–29295 (2012).
- [63] K. Saha, Y. Okawachi, B. Shim, J. S. Levy, R. Salem, A. R. Johnson, M. A. Foster, M. R. E. Lamont, M. Lipson, and A. L. Gaeta, “Modelocking and femtosecond pulse generation in chip-based frequency combs,” *Opt. Express* **21**, 1335–1343 (2013).
- [64] T. Herr, K. Hartinger, J. Riemensberger, C. Y. Wang, E. Gavartin, R. Holzwarth, M. L. Gorodetsky, and T. J. Kippenberg, “Universal dynamics of Kerr-frequency comb formation in microresonators,” in “Conference on Lasers and Electro-Optics 2012,” (Optical Society of America, 2012), p. QF3G.7.
- [65] J. S. Levy, A. Gondarenko, M. A. Foster, A. C. Turner-Foster, A. L. Gaeta, and M. Lipson, “CMOS-compatible multiple-wavelength oscillator for on-chip optical interconnects,” *Nature Photonics* **4**, 37–40 (2010).
- [66] J. S. Levy, “Integrated nonlinear optics in silicon nitride waveguides and resonators,” PhD thesis (Cornel University, 2011).
- [67] M. Oxborrow, “How to simulate the whispering-gallery modes of dielectric microresonators in FEMLAB/COMSOL,” in “Laser Resonators and Beam Control IX,” , vol. 6452 A. V. Kudryashov, A. H. Paxton, and V. S. Ilchenko, eds., International Society for Optics and Photonics (SPIE, 2007), vol. 6452, pp. 146 – 157.
- [68] G. P. Agrawal, “Nonlinear fiber optics,” (Academic, 2007).
- [69] P. Rabiei, W. H. Steier, Cheng Zhang, and L. R. Dalton, “Polymer micro-ring filters and modulators,” *Journal of Lightwave Technology* **20**, 1968–1975 (2002).
- [70] H. Matsumura, “Summary of research in NEDO Cat-CVD project in Japan,” *Thin Solid Films* **395**, 1 – 11 (2001). Proceedings of the First International Conference on Cat-CVD (Hot-Wire CVD) Process.
- [71] “<https://technolivesite.wordpress.com/2016/02/29/latest-photoresists-products-available-with-global-marketing-services/>,” .
- [72] “<https://www.microresist.de/en/produkt/ma-n-2400-series/>,” .
- [73] “<https://cleanroom.groups.et.byu.net/photoresists.parts/surpass4000.pdf>,” .
- [74] S. Lee, J. Byers, K. Jen, P. Zimmerman, B. Rice, N. J. Turro, and C. G. Willson, “An analysis of double exposure lithography options,” in “Optical Microlithography XXI,” , vol. 6924 H. J. Levinson and M. V. Dusa, eds., International Society for Optics and Photonics (SPIE, 2008), vol. 6924, pp. 784 – 795.
- [75] D. F. Kyser and K. Murata, “Quantitative electron microprobe analysis of thin films on substrates,” *IBM Journal of Research and Development* **18**, 352–363 (1974).
- [76] R. J. Bojko, J. Li, L. He, T. Baehr-Jones, M. Hochberg, and Y. Aida, “Electron beam lithography writing strategies for low loss, high confinement silicon optical waveguides,” *Journal of Vacuum Science & Technology B* **29**, 06F309 (2011).
- [77] D. M. Tennant, R. Fullowan, H. Takemura, M. Isobe, and Y. Nakagawa, “Evaluation

- of a 100 kV thermal field emission electron-beam nanolithography system,” *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena* **18**, 3089–3094 (2000).
- [78] W. van Gelder and V. E. Hauser, “The etching of silicon nitride in phosphoric acid with silicon dioxide as a mask,” *Journal of The Electrochemical Society* **114**, 869 (1967).
- [79] Y. Kuo, “Reactive ion etching of PECVD amorphous silicon and silicon nitride thin films with fluorocarbon gases,” *Journal of The Electrochemical Society* **137**, 1235–1239 (1990).
- [80] T. C. Mele, J. Nulman, and J. P. Krusius, “Selective and anisotropic reactive ion etch of LPCVD silicon nitride with CHF₃ based gases,” *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics Processing and Phenomena* **2**, 684–687 (1984).
- [81] M. Kumar and S. G. Chamberlain, “Selective reactive ion etching of pecvd silicon nitride over amorphous silicon in CF₄/H₂ and nitrogen containing CF₄/H₂ plasma gas mixtures,” *Solid-State Electronics* **39**, 33 – 37 (1996).
- [82] S. Hicks, S. Murad, I. Sturrock, and C. Wilkinson, “Improving the resistance of pecvd silicon nitride to dry etching using an oxygen plasma,” *Microelectronic Engineering* **35**, 41 – 44 (1997). *Micro- and Nano- Engineering* 96.
- [83] D. Celo, R. Vandusen, T. Smy, J. Albert, N. G. Tarr, and P. D. Waldron, “Low temperature plasma etching for Si₃N₄ waveguide applications,” *Journal of Vacuum Science & Technology A* **26**, 253–258 (2008).
- [84] Y. Xuan, Y. Liu, L. T. Varghese, A. J. Metcalf, X. Xue, P.-H. Wang, K. Han, J. A. Jaramillo-Villegas, A. A. Noman, C. Wang, S. Kim, M. Teng, Y. J. Lee, B. Niu, L. Fan, J. Wang, D. E. Leaird, A. M. Weiner, and M. Qi, “High-q silicon nitride microresonators exhibiting low-power frequency comb initiation,” *Optica* **3**, 1171–1180 (2016).
- [85] J. Chiles, N. Nader, D. D. Hickstein, S. P. Yu, T. C. Briles, D. Carlson, H. Jung, J. M. Shainline, S. Diddams, S. B. Papp, S. W. Nam, and R. P. Mirin, “Deuterated silicon nitride photonic devices for broadband optical frequency comb generation,” *Opt. Lett.* **43**, 1527–1530 (2018).
- [86] C. Gatzert, A. W. Blakers, P. N. K. Deenapanray, D. Macdonald, and F. D. Auret, “Investigation of reactive ion etching of dielectrics and Si in CHF₃/O₂ or CHF₃/Ar for photovoltaic applications,” *Journal of Vacuum Science & Technology A* **24**, 1857–1865 (2006).
- [87] R. Dussart, T. Tillocher, P. Lefauchaux, and M. Boufnichel, “Plasma cryogenic etching of silicon: from the early days to today’s advanced technologies,” *Journal of Physics D: Applied Physics* **47**, 123001 (2014).
- [88] H. Zhang, D. A. Cohen, P. Chan, M. S. Wong, P. Li, H. Li, S. Nakamura, and S. P. Denbaars, “High performance of a semipolar ingan laser with a phase-shifted embedded hydrogen silsesquioxane (HSQ) grating,” *Opt. Lett.* **45**, 5844–5847 (2020).

- [89] "<https://www.genisys-gmbh.com/advanced-exposure-technique.html>," .
- [90] "<https://wiki.nanotech.ucsb.edu/w/images/5/59/man2403-e-beam-resist-datasheet.pdf>," .
- [91] V. R. Almeida, R. R. Panepucci, and M. Lipson, "Nanotaper for compact mode conversion," *Opt. Lett.* **28**, 1302–1304 (2003).
- [92] E. San Andrés, A. del Prado, F. L. Martínez, I. Mártil, D. Bravo, and F. J. López, "Rapid thermal annealing effects on the structural properties and density of defects in SiO₂ and SiN_x : H films deposited by electron cyclotron resonance," *Journal of Applied Physics* **87**, 1187–1192 (2000).
- [93] D. V. Bellitto, "Atomic force microscopy - imaging, measuring and manipulating surfaces at the atomic scale," (2012).
- [94] F. P. Payne and J. P. R. Lacey, "A theoretical analysis of scattering loss from planar optical waveguides," *Optical and Quantum Electronics* **26**, 977–986 (1994).