

論文要旨

微小光共振器を用いた周波数コムはマイクロコムと呼ばれ、周波数軸上では等間隔にならんだスペクトルを持っている。マイクロコムの内、散逸性カーソリトンと呼ばれるモード同期したパルス状態はその高い安定性から応用が非常に期待されている。応用は光通信や分光・測距・マイクロ波発生など多岐にわたる。その中でも低ノイズのテラヘルツ波発生においては従来方法ではサイズと複雑さを犠牲にしており研究室外への移動は困難であったが、マイクロコムを用いることでその問題の解決が期待されている。そこで本研究ではオンチップ型の連続光テラヘルツ波発生を目指し、第一段階として CMOS 互換性のある窒化シリコン (SiN) を材料とした微小光共振器を作製の最適化を行い、Q 値（光の閉じ込め性能）が 5×10^5 を上回る共振器を作製およびマイクロコムの発生が実現できた。しかし、ソリトンコムの発生は達成できなかったため、第二段階として外注した微小光共振器とヒータ装荷型リングフィルタを用いてソリトンコムを切り出し、周波数再構成が可能なテラヘルツ波発生のための 2 トーン信号発生を行った。

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およびテラヘルツ波発生について述べたのち、本研究の目的を述べる。

第 2 章では SiN マイクロリング共振器作製とその最適化について述べる。

第 3 章ではマイクロコム発生に向けた SiN マイクロ共振器の高 Q 値化に向けた取り組みについて述べる。

第 4 章では作製した共振器を用いたマイクロコム発生実験について述べる。

第 5 章で周波数再構成可能なテラヘルツ波発生を目指した 2 トーン信号発生実験について述べる。

第 6 章で本研究の結論と展望について述べる

Thesis Abstract

Fabrication of SiN ring resonator toward two tone signal generation for frequency-reconfigurable THz wave generation

A frequency comb generated in a microresonator is called a microcomb, and it has an evenly spaced spectrum on the frequency axis. Among some types of microcombs, the mode-locked pulse state called dissipative Kerr soliton (DKS) has applications, e.g. optical communications, spectroscopy, ranging, and microwave generation, due to its high stability. Especially in low-noise terahertz wave generation, conventional methods sacrifice size and complexity, making it difficult to move them outside the laboratory, but microcomb is expected to solve this problem. In this study, I aimed at on-chip continuous optical terahertz wave generation. As a first step, I optimized the fabrication of a microresonator made of CMOS-compatible silicon nitride (SiN) material and achieved $Q > 5 \times 10^5$. However, because the generation of DKS was not achieved, so as a second step, two-tone signal was generated for frequency-reconfigurable terahertz wave generation using a subcontracted microresonator.

Chapter 1 describes the overview of the microresonators and Terahertz generation. Then, the purpose of this study is presented.

Chapter 2 describes the fabrication process flow of the SiN waveguides and resonator used in this study.

Chapter 3 describes efforts to improve Q factor of microresonator for microcomb generation.

Chapter 4 describes an experiment to generate microcomb using a device fabricated in Chapter 4.

Chapter 5 describes an experiment to generate 2 tone signal for the purpose of achieving frequency-reconfigurable terahertz wave generation.

Chapter 6 describes the summary of this research and the future outlook.

目次

| | |
|--------------------------------|----|
| 第 1 部 序論 | 6 |
| 1.1 はじめに | 6 |
| 1.2 光共振器 | 7 |
| 1.2.1 光共振器とは | 7 |
| 1.2.2 マイクロ共振器 | 7 |
| 1.2.3 光周波数コム | 7 |
| 1.2.4 マイクロコム | 10 |
| 1.2.5 マイクロ共振器形状とその材料 | 13 |
| 1.3 テラヘルツ波発生 | 17 |
| 1.3.1 テラヘルツ波とは | 17 |
| 1.3.2 テラヘルツ波発生方法 | 17 |
| 1.4 本研究の目的 | 19 |
| 第 2 部 実験原理・方法 | 20 |
| 2.1 SiN リング共振器の作製 | 20 |
| 2.1.1 作製の概要 | 20 |
| 2.1.2 SiN 堆積 | 21 |
| 2.1.2.a 概要 | 21 |
| 2.1.2.b 堆積の詳細 | 22 |
| 2.1.3 パターン描画 | 22 |
| 2.1.3.a 概要 | 22 |
| 2.1.3.b レジストコーティング | 23 |
| 2.1.3.c EB 描画 | 24 |
| 2.1.3.d 現像 | 26 |
| 2.1.4 エッチング | 26 |

| | | |
|---------|---------------------------------------|----|
| 2.1.4.a | 概要 | 26 |
| 2.1.4.b | リフロー | 26 |
| 2.1.4.c | CHF ₃ /Ar エッチング | 27 |
| 2.1.4.d | SF ₆ /O ₂ エッチング | 28 |
| 2.1.5 | オーバークラッド層堆積 | 28 |
| 2.1.5.a | 概要 | 28 |
| 2.1.5.b | SOG による堆積 | 29 |
| 2.1.5.c | PECVD による堆積 | 29 |
| 2.1.6 | ダイシング | 29 |
| 2.2 | 2 トーン信号発生 | 31 |
| 2.2.1 | Vernier 効果によるスペクトル抽出 | 31 |
| 2.2.2 | 高次リングフィルタ | 32 |
| | | |
| 第 3 部 | マイクロコム発生に向けた SiN マイクロ共振器の高 Q 化 | 34 |
| 3.1 | 表面粗さの低減 | 35 |
| 3.2 | マイクロマスクの低減 | 37 |
| 3.3 | ポストアニーリングによる吸収の低減 | 42 |
| 3.4 | Q 値向上のための損失源の検討 | 45 |
| | | |
| 第 4 部 | マイクロコムの発生実験 | 48 |
| 4.1 | 共振器分散の測定 | 48 |
| 4.2 | マイクロコム発生 | 50 |
| 4.3 | ソリトン発生の可能性 | 51 |
| | | |
| 第 5 部 | ヒータ搭載型 2 次リングフィルタによる 2 トーン信号発生 | 53 |
| 5.1 | 使用するデバイスの性能評価 | 53 |

| | | |
|-----|----------------|----|
| 5.2 | ヒータによる熱的クロストーク | 54 |
| 第6部 | 結論 | 59 |
| 第7部 | Appendix | 60 |
| A | 表面粗さ計算方法 | 60 |
| B | 金属ヒータ搭載プロセス | 62 |

第 1 部

序論

1.1 はじめに

今日、スマートフォンやタブレット端末などの情報端末の普及に伴い、超低遅延・高解像度のストリーミング配信や他アプリケーション、産業の IoT 化だけでなく、最終的にサイバー空間と現実世界とを一体化させた新たな社会 (Society 5.0) の実現が期待されており、大容量通信への需要が増大している。Society 5.0 実現には、あらゆる場所での高度で安全なデータ通信、すなわち 5G 通信を超える beyond5G の通信インフラが必要となる。その要素技術として、高周波利用技術が挙げられ [1]、中でもテラヘルツ波は光源開発が難しいとされてきたが、その発展により応用研究は近年活発化している。

そのようなテラヘルツ波発生のプラットフォームの一つとして、微小光共振器（マイクロ共振器）が提案される。この微小光共振器とは光共振器の中でも μm^3 オーダーの微小なモード体積を持つものを指し、さらに高い光の閉じ込め性能 (Q 値) を持つものであれば、比較的 low power で大きな共振器内部エネルギーを達成できるため、非線形光学効果を誘発し、光周波数コムを発生させることができるという特徴がある。微小光共振器から生成される光周波数コム（通称：マイクロコム）のパルスは繰り返し周波数が 10 GHz~1 THz となるため、単一走行キャリアフォトダイオード (UTC-PD: Uni-Travelling Carrier PhotoDiode) を用いて簡単にテラヘルツ波を発生できることから応用が期待されている。マイクロコムの応用はテラヘルツ波発生だけでなく、波長分割多重 (WDM) 通信や LiDAR に代表される測距技術、分光、センシングなど多岐にわたる。そのため、省エネなコム発生源である微小光共振器の作製プロセス最適化はテラヘルツ波発生技術に代表されるこれからの社会発展に重要な要素技術になるといえる。

以上を踏まえ、本研究ではテラヘルツ波発生のためのプラットフォームとして微小光共振器の高 Q 値化に加え、マイクロコムを用いたオンチップでのテラヘルツ波発生のための 2 トーン信号発生を目指す。

1.2 光共振器

1.2.1 光共振器とは

光共振器とは，光を閉領域に閉じこめて共振器内を往復または周回させることで干渉による定常波を作り出す光学系である．このとき，定在波を形成できる光の波長 λ は共振器の 1 往復分の光路長 L と自然数 m を用いて以下のようにあらわされる．

$$L = m\lambda(m = 1, 2, 3, \dots) \quad (1.2.1)$$

この条件を満たす波長（共振波長）を持つ光は共振器を何度も周回するため，光の干渉によって電界強度は増幅される．これを光の共振と呼ぶ．実際の光共振器は光を完全に閉じ込めることはできず，共振器内部の物質による吸収や散乱による損失，光が共振器外に出ることによる結合損失による減衰を受ける．この減衰を上回る利得を獲得することができる場合，共振器外に放出される光はレーザ光となる．ここでの利得とは，共振器内部を活性媒質を挿入し，入力光による励起を行うことで生じる誘導放出のことである．また，レーザ以外の応用例として共振器の波長選択性をフィルタとして機能させることもできる．

1.2.2 マイクロ共振器

光共振器の中でも，共振器サイズが $\mu\text{ m} \sim \text{mm}$ オーダーの共振器を微小光共振器（以下：マイクロ共振器）と呼ぶ．マイクロ共振器はモード体積（共振器内を周回する光の電界強度分布が占める体積）が小さく，同じパワーの光を入力した場合，他の共振器と比較して光密度が高くなるので，光と物質の相互作用発生が相対的に少ないパワーで可能となる．この相互作用によって後述する光周波数コムを発生させることができるため，集積化可能な光コム光源として近年非常に注目を集めている．

1.2.3 光周波数コム

光周波数コムとは周波数領域上で非常に高い精度で等間隔に並んでいるスペクトルのことを指す．この形状が櫛のようであることから光周波数コムと呼ばれている．光周波数コムは現在，マイクロ波発生^[1]，光ファイバ伝送^[2]，高感度分光^[3]や超短パルスレーザ発生^[4]に加えて光時計^[5]など様々な応用展開がなされているが，その起源は光絶対周波数

の測定を目的とした開発にある^[6]。1983年の「メートル」単位の改定で長さが光によって定義されるようになったことから、光の絶対周波数の精密計測が求められるようになったが既存のエレクトロニクス技術では直接計測が難しくより精密性を求めるのは困難を極めた。その中で9.2 GHzのセシウム原子時計を基準とし、数多くのマイクロ波発振器やレーザを用い、光周波数比較の数珠つなぎで任意の絶対周波数を測定する周波数チェーンという方法が開発され、可視光レーザ(657 nm, 456 THz)の周波数測定が1996年に達成された^[7]。しかし実際問題としてこの方法は時間もかかる上に、チェーンを増やすごとに不確かさも増大していったため、望ましいものではなかった。このような問題を解決したのが、1999年のモード同期レーザを周波数軸上で精密なものさしとして用いるという報告であった^[8]。この報告から「光周波数コム」という研究分野が確立され、現在に至るまで注目を浴び続けることとなった。光周波数コム(以下光コムとする)は前述の通り、周波数軸上で等間隔に光周波数モードが並んでおり Fig.1.1., その周波数間隔を f_{rep} とすると、このコム上の(左端から数えて) n 番目のモード周波数 f_n は

$$f_n = f_{\text{ceo}} + n f_{\text{rep}} \quad (1.2.2)$$

と表される。ここで f_{ceo} はキャリアエンベロープオフセット(carrier envelope offset)周波数と呼ばれ、0番目のモード周波数のオフセット量を指す。周波数軸上の光コムをフーリエ変換し、時間軸上で観察すると $1/f_{\text{rep}}$ の時間間隔でなるパルス列となる。この光パルスにおいて、キャリア電場のピークと包絡線のピーク間の位相(キャリアエンベロープオフセット位相)のずれ $\Delta\phi$ は以下のように表される。

$$\Delta\phi = 2\pi f_{\text{ceo}}/f_{\text{rep}} \quad (1.2.3)$$

光コムの f_{rep} はコムスペクトル同士の光ビート測定によって比較的容易に計測できるが、 f_{ceo} は周波数0付近のレーザが存在しないため直接測定することができない。 f_{ceo} 測定方法の一つに、光コムを1オクターブ(右端の周波数が左端の周波数の2倍)以上広げ、両端のスペクトルのビートを計測することで、以下の式から導出する「 f - $2f$ 自己参照法」が挙げられる Fig.1.2..

$$f_{\text{ceo}} = 2f_n - f_{2n} = 2(f_{\text{ceo}} + n f_{\text{rep}}) - (f_n = f_{\text{ceo}} + 2n f_{\text{rep}}) \quad (1.2.4)$$

2000年にモード同期 Ti:sapphire レーザの出力とフォトニック結晶ファイバを用いて自己参照法を適用することで、光コムのスペクトルに絶対値を付与し、オクターブ内の光周波数を常時測定できるようになった^[9] という事実が、2005年のノーベル賞受賞につながった。

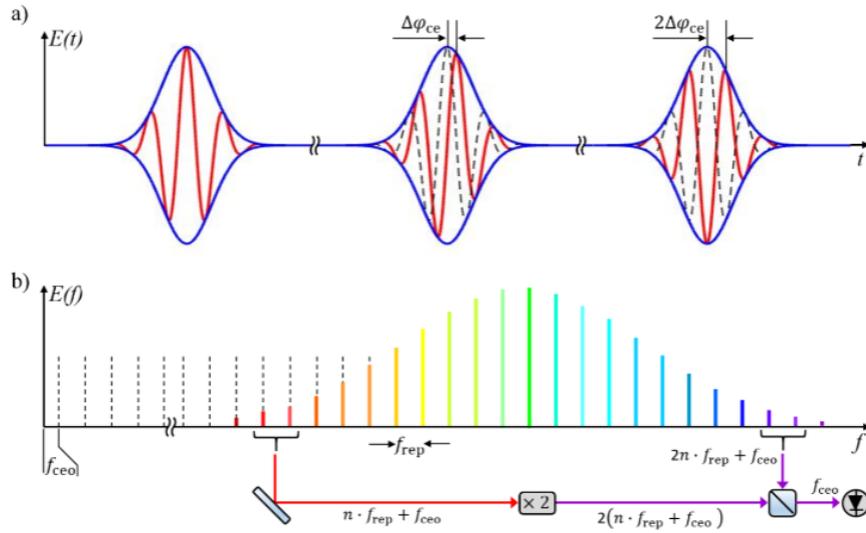


Fig. 1.1. Consecutive pulses of the pulse train generated by a mode-locked laser and the corresponding spectrum. (a) Optical pulse train. (b) A frequency comb spectrum. [Droste, Stefan, et al., Nanophotonics, vol. 5, no. 2, 2016, pp. 196-213.]

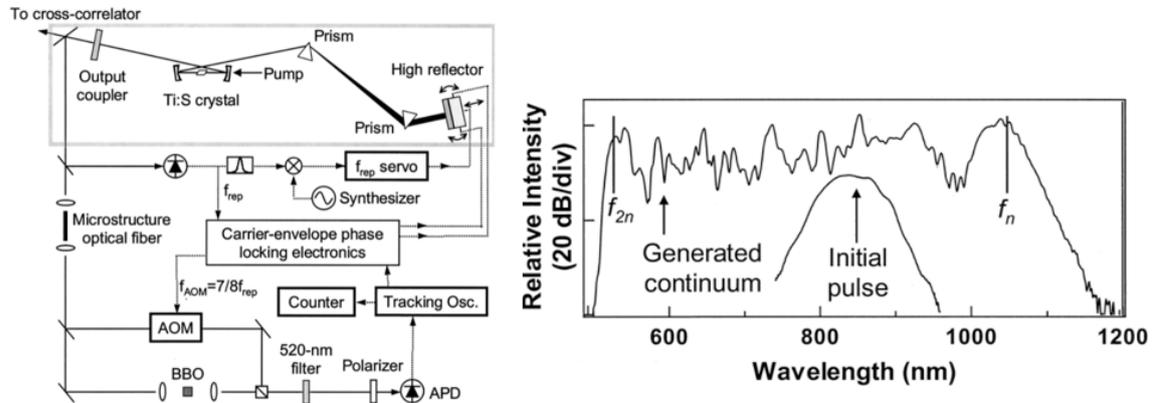


Fig. 1.2. Experimental setup for locking the carrier-envelope relative phase. The femtosecond laser is located inside the shaded box. Solid lines represent optical paths, and dashed lines show electrical paths. The highreflective mirror is mounted on a transducer to provide both tilt and translation. [D. J. Jones, et al., Science, 288, 635 (2000)]

1.2.4 マイクロコム

上述した光コムの発生手法は様々であるが、マイクロ共振器から発生させたものは特にマイクロコム（別称：光 Kerr コム）と呼ばれる。マイクロ共振器に単一周波数レーザーを入力することで非線形光学効果である四光波混合（Four Wave Mixing）を励起し、パラメトリック発振によりサイドバンドを発生させる。この過程がカスケード式に発生することでマイクロコムのスペクトルが広域化する。パラメトリック過程で発生するマイクロコムは共振器内部を周回する光パワーによって様々な状態を取る。すなわち、共振周波数に対する入力レーザーの離調（detuning）によってコムの包絡線形状が変化する。Fig.1.3. は入力レーザーの周波数を下げていく方向に掃引していった際の共振器を透過した光のスペクトルを表しており、(I)~(III)detuning の位置に対応したマイクロコムを表している。一般に primary コムと呼ばれる初期状態のマイクロコム（Fig.1.3.(I)）から detuning を大きくしていくと、非線形力学における変調不安定 (Modulation Instability) 状態にある Fig.1.3.(II),(III) のようなコムに変化する。このようなマイクロコムを総じて MI コムと呼んでいる。その後、さらに掃引を続けていくと Fig.1.3.(a) のように透過スペクトルがステップ状に上昇する状態が見られることがある。これをソリトンステップと呼び、このステップ上 (共振周波数の長波長側) にレーザーを掃引し、パワー等の条件を満たしたときに散逸性カーソリトン（以下ソリトンコム）と呼ばれるモード同期されたマイクロコムを発生することができる。

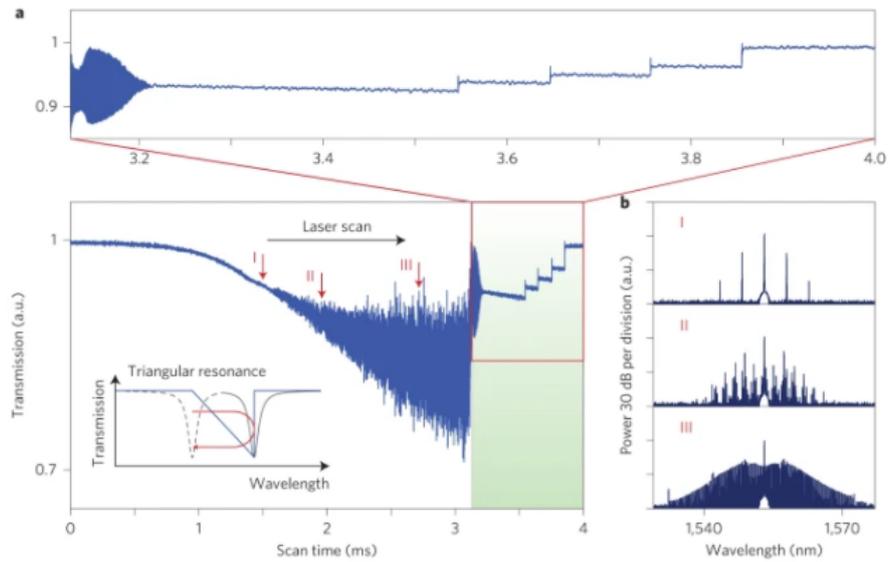


Fig. 1.3. a, Transmission observed when scanning a laser over a resonance of a high-Q Kerr-nonlinear MgF₂ microresonator (coupled pump power 5 mW). The transmission signal follows the expected triangular resonance shape (see inset) with deviations in the form of discrete steps (green shading). b, Evolution of the optical power spectrum for three different positions in the scan; spectrum II and, in particular, the mesa-shaped spectrum III exhibit a high-noise RF beat signal. [Herr, T., et al. Nature Photon 8, 145 - 152 (2014)]

それぞれのステップで発生するソリトンコムは次数（共振器を周回するパルス数）が違い (Fig.1.4.), 中でも次数が1（周回するパルスが1つだけのもの）は基本ソリトンと呼ばれ, 滑らかな sech² 関数型のスペクトルを持ち, パルスの時間間隔が共振周波数間隔 (FSR: Free Spectrum Range) の逆数に秩序化されていることから応用に最も望ましいソリトン状態とされている [10].

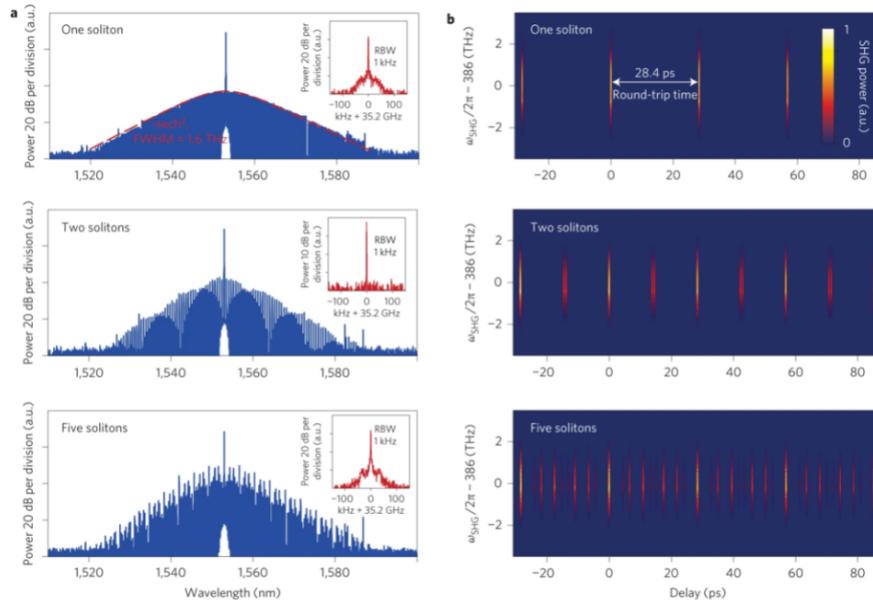


Fig. 1.4. a, Optical spectra of three selected states with one, two and five solitons, respectively. The insets show the RF beatnote, which is resolution-bandwidth limited to a 1 kHz width in all cases. The dashed red line in the optical spectrum of the one-pulse state shows the spectral sech2 envelope expected for solitons with a 3 dB bandwidth of 1.6 THz. b, FROG traces of the states in a that display the signal of the single and multiple pulses. [Herr, T., et al. Nature Photon 8, 145 - 152 (2014)]

ソリトンの発生（ソリトンステップの観察）は、共振器の分散と Kerr 効果による非線形位相シフトの釣り合い、利得（パラメトリック増幅）と損失によるパワーの釣り合いという 2 組の要素がバランスすることにより実現する^[11]。Kerr 効果による位相シフトは周波数軸上では共振周波数が低周波方向にシフトするため、このとき共振器の群速度分散が異常分散となり、共振周波数が高周波方向にシフトする必要がある (Fig.1.5.)。ソリトンコムはその安定性から、コヒーレント通信^[12]、光学測距^[13]、デュアルコム分光^[14]、天体物理学的分光器の較正^[15]、低ノイズマイクロ波合成^[16]、原子時計構築^[17]、テラヘルツ波発生^[18] などがあり、マイクロコムの中でも特に盛んに研究がなされている。

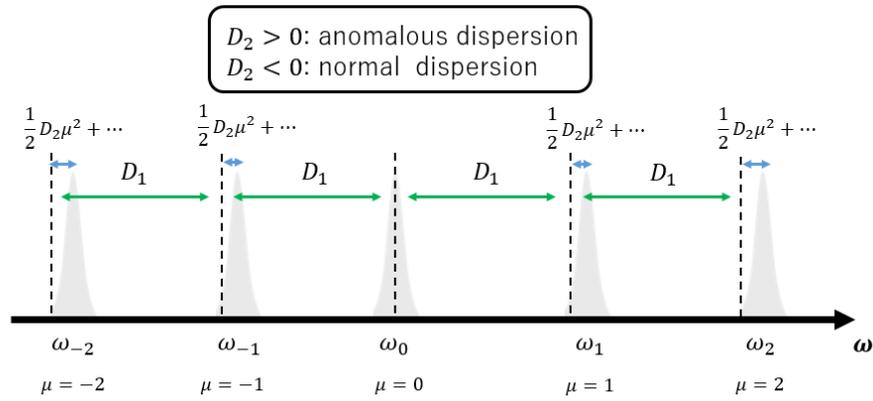


Fig. 1.5. Resonance frequency with cavity dispersion effects. D_1 and D_2 means FSR and group velocity dispersion respectively

1.2.5 マイクロ共振器形状とその材料

マイクロコムを発生させるマイクロ共振器の形状としては主に二つに分けられる。まず1つとして Fig.1.6.(a) のような WGM(Whispering Gallery Mode) 型共振器があり、もう1つに Fig.1.6.(b) の光導波路で構成されるリング型共振器がある。

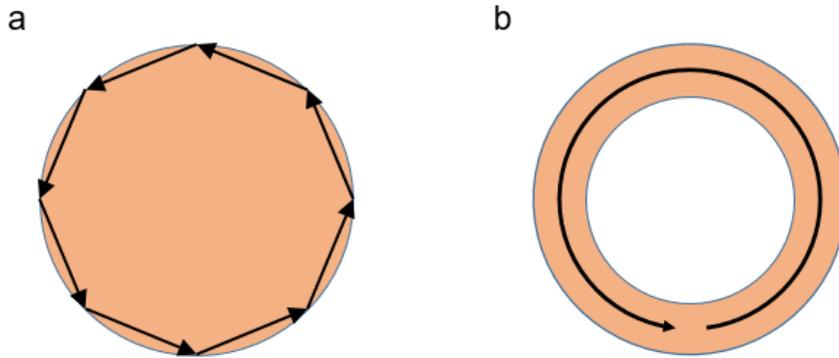


Fig. 1.6. Schematic illustration of (a) Whispering Gallery Mode resonator, (b) ring resonator.

WGM 型共振器の種類は大きくオンチップ型とバルク型に分けられる。オンチップ型はシリコン基板上に堆積されたシリカをエッチングすることで作製されるトロイド共振器がある^[19]。バルク型は、光ファイバの先端をレーザーフローして作製するシリカ微小球^[20]、石英棒をレーザー切削して作製するロッド共振器^[21]、フッ化マグネシウム等の結晶材

料を研磨することで作製する結晶共振器^[22]がある。前者のオンチップ型はクリーンルーム環境を必要とするため比較的設備構築が難しいが、後者のバルク型は作製に必要な系がオンチップ型および後述するリング共振器のどちらよりもコンパクトで構築しやすいという参入障壁の低さを大きな利点として持つ。(上記の共振器を Fig.1.7. にまとめた。)

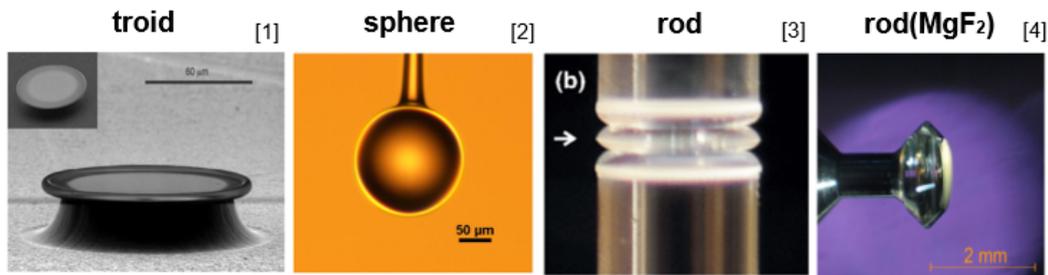


Fig. 1.7. Images of various WGM microresonators.[[1] Armani, D., et al., Nature 421, 925 - 928 (2003).[2] Yu, J., et al., Micromachines 2018, 9, 356.[3] Papp, Scott & Del'Haye, et al., Physical Review X. 3. 10.1103/PhysRevX.3.031003.[4] W. Liang, et al., Opt. Lett. 36, 2290-2292 (2011).]

一方のマイクロリング共振器は以下に説明するいずれの材料も半導体 CMOS プロセスの互換性があり、安価に大量生産が期待できることに加え、他の CMOS プロセスで作製された集積回路との統合が可能であるという利点がある。さらに光結合の点では、WGM 型共振器の場合プリズムによる結合^[23]やテーパファイバによる結合^[24]など空間的なアライメントが必要であるが、リング共振器の場合共振器と外部導波路の位置関係は作製時点で固定されるため集積化の際に結合条件が変化する心配がない(すなわち外乱に強い)という利点がある。

このマイクロリング共振器の材料としては、まずシリコン^[25]が挙げられる。シリコンは、マイクロコム発生のために必要な 3 次の非線形光学性が大きい ($n_2 \sim 10^{-14} \text{cm}^2 \text{W}^{-1}$ (at $2.5 \mu\text{m}$)^[26])、高い屈折率 (~ 3.48 (at $1.55 \mu\text{m}$)^[27]) を持つため内部に光を強く閉じ込めることができる、 $1.2 \mu\text{m} \sim 8 \mu\text{m}$ まで透明である^[28]といった利点がある。しかしながら、クラッドとの屈折率も大きくなるため導波路表面と側壁の荒さによる散乱損失が大きいことに加え、非線形現象である多光子吸収が起こるということが原因となり通信波長帯域でのマイクロコム発生は報告されていない(中赤外領域ではソリトンコムの発生が報告されている^[29])。

また、他にも High-index doped silica(Hydex)^[30] という材料がある。Hydex は、光集積回路時の曲げ損失を抑制するために、(従来のシリカ系材料では困難であった領域にお

いて) コア-クラッド間の高屈折率コントラストを達成できる材料として注目されている。この材料は化学気相成長 (CVD) プロセスで低温成膜される堅牢な材料であり, S, C, L バンド全域で低損失であるためアニール工程が不要であるというメリットがある^[31]。さらに屈折率のコントラストを 0% から 20% 以上まで調整可能であることから, 曲げ半径を $20\mu\text{m}$ にまで小さくすることができ, 非常にコンパクトな高次リングフィルタの作製が報告されている^[32]。この材料を用いて通信波長帯域でのマイクロコム発生も報告されており, Q 値 1.2×10^6 の共振器で 1544nm の光入力によって発生が達成されている^[33]。

窒化アルミニウム (AlN) は, 非中心対称性の結晶構造を持ち, 固有の二次非線形性に加えて三次非線形性, ポッケルス効果による電気光学特性および圧電特性を持っている。二次非線形性から高効率の第二高調波発生 (SHG)^[34] や三次非線形によるオクターブスパンの散逸性カーソリトン^[35], 二次・三次非線形性およびポッケルス効果を用いたソリトン (ポッケルスソリトン) 発生などが報告されている^[36]。さらに SiN リング共振器上に堆積させた AlN の圧電特性を用いて共振周波数チューニングを行うことでソリトンコムの f_{ceo} を変化させるという, 共振器材料としてだけではなく圧電材料として利用した報告もある^[37]。成膜はサファイア基板上にヘテロエピタキシャル結晶成長させるのだが, AlN は高融点材料であることから融液法と呼ばれる Si のような高品質な結晶を得るために用いられる方法を転用できず, 堆積は簡単ではない。実際に, 堆積時には格子不整合による格子欠陥が発生することで損失の原因となることや貫通転位 (原子の並びが乱れた部分) による位相変化も問題になってくる^[38]。

続いてニオブ酸リチウム (LiNbO_3 : LN) は非常に強い二次非線形性と程度な三次非線形性を持っており, さらに可視光域から $4.5\mu\text{m}$ まで透明であるという広い透明窓を持つ。マイクロコムの生成は三次非線形性を用いた発生だけでなく, 二次非線形効果 (電気光学効果) を用いたマイクロ (EO) コム発生も報告されている^[39]。さらに, 二次と三次の非線形光学効果を用いてコムを $4/5$ オクターブに広げることができ, $2f - 3f$ 参照法の可能性を示唆した報告がある^[40]。LN はこれまで Si 基板上絶縁膜に堆積させることが困難とされていたが, 「イオンスライス」と呼ばれる He イオンを注入し, 特殊なアニール工程を行うことで結晶接着させる方法で可能となった^[41]。

炭化ケイ素 (SiC) は Si と C 原子それぞれに近接する原子が 4 つであるような正四面体型構造を取り, この四面体の積層構造の違いにより様々な結晶多形が存在する。マイクロコムのプラットフォームとしては 4H-SiC と呼ばれる 4 つの六方最密構造の繰り返しである構造を持つものが報告されている^[42]。材料としての特徴は, 紫外領域から中赤外領域 ($400\text{nm} \sim 500\mu\text{m}$) まで透明であり, 上記の材料と同じく高い二次と三次の非線形性を持っており, 非線形屈折率は $n_2 \sim 6.9 \times 10^{-15}\text{cm}^2\text{W}^{-1}$ (at $1.55\mu\text{m}$) と高いという

ことが挙げられる。Si 基板上の酸化膜への堆積方法としては、用意した SiC 結晶基板上でわずかに熱酸化膜を成長させる。その後別途用意した SiO₂/Si 基盤の酸化膜と SiC の酸化膜を 900 °C の高温で結合させることで可能となる。パターンエッチングは Si や本研究で用いる SF₆ によるドライエッチングで行われる [43]。

以上の材料に加え、本研究で用いる窒化シリコン (SiN) もマイクロコム発生プラットフォームとして挙げられる [44]。SiN は広いバンドギャップを持っているため非常に幅広い波長帯域で透明である (470 nm~6.7μm) [45] ことから通信波長帯域での二光子吸収の影響を受けないこと、前述したが半導体 CMOS プロセスで作製が可能 (CMOS 互換性) であること、通信波長帯域で光ファイバ (シリカ) のおよそ 50 倍という非常に高い非線形性係数を持つという特徴を持っているため [46] 非常に注目を集めている材料である。SiN を材料としたマイクロ共振器作製プロセスも研究が非常に進んでおり、上記に挙げた材料を用いた共振器の Q 値よりも一桁高い値も報告されている [47] ため非常に低い入力光パワーでマイクロコムを発生することが可能となっている。高い Q 値を維持したままリング共振器サイズも幅広くとることができ、これまで報告されているソリトンコムの FSR は 10 GHz~1 THz と広い [37][48]。このことから、FSR を小さくすれば SiN マイクロ共振器からマイクロ波発生が可能となり、逆に FSR を大きくすると幅広い波長帯域をカバーすることができるため広域な分光や計測が可能となるため非常に魅力的な材料であることがわかる。

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

| Material | FSR (GHz) | Reported Q factor | Refractive index (around 1500/nm) | n_2 (m ² W ⁻¹) | Lowest threshold power (mW) | References |
|--------------------|-----------|-------------------|-----------------------------------|---|-----------------------------|------------|
| Si | 127 | 5.9×10^5 | 3.5 | 5×10^{-18} | 3.1(127GHz) | [27] [29] |
| Hydex | 403 | 1×10^6 | 1.5~1.9 | 1.15×10^{-19} | 50 | [30] |
| AlN | 433 | 1.6×10^6 | 2.1 | 2.3×10^{-19} | ~406 | [49] [35] |
| LiNbO ₃ | 200 | 2.2×10^6 | 2.2 | 1.8×10^{-19} | 4.2 | [50][51] |
| SiC | 667 | 1.1×10^5 | 2.6 | 7.8×10^{-19} | ~10 | [42][52] |
| SiN | 200 | 3.7×10^7 | 2.0 | 2.5×10^{-19} | 0.33 | [53] |

1.3 テラヘルツ波発生

1.3.1 テラヘルツ波とは

近年、テラヘルツ波と呼ばれる電磁波が注目を集めている。このテラヘルツ波とは一般的に 100 GHz~10 THz の周波数領域の電磁波のことを指しており、電波と呼ばれるマイクロ波やミリ波の周波数帯域と光と呼ばれる赤外線の周波数帯域の中間に位置しているため、最近までこの周波数域の電磁波は検出することが難しいとされていた。というのも、電波としては周波数が高すぎる・光としてはエネルギーが低いという問題があったためである。しかし、超短パルスレーザを用いて光伝導アンテナや光整流効果を用いた常温でのテラヘルツ波発生および EO 効果を用いての検出が可能となった^[54]。そして超短パルスレーザを用いた広域なテラヘルツ波の時間分解分光法も確立されたことで、2000 年ごろから盛んに研究されるようになっていった。その理由として、テラヘルツ波は木や紙、不透明プラスチックなど通常の光波長では透過できない物質を透過できる性質を持っており、いわゆる「モノの中を見る」ことが可能となる特徴に加え、X 線と異なり透過の際に電離作用を持たないため非破壊的な透過が可能であるという性質が注目されているからである。応用は、ワイアレス通信のほかに、その透過性を用いたあらゆる分野でのセンシング・イメージングが挙げられる。

1.3.2 テラヘルツ波発生方法

テラヘルツ波の発生方法は大きく分けて 3 つに分けられる。まず 1 つ目は熱放射による発生である。水銀ランプ^[55]、SiC 棒を電氣的に加熱するグローバルランプ^[56] などがある。2 つ目は電子源による発生である。真空電子源として、後進波発振器^[57]、拡張相互作用クライストロン^[58]、進行波管^[59]、ジャイロトロン^[60]、自由電子レーザ^[61] とシンクロトロン^[62] がある。これらの光源は一般的に高出力である^[63]。固体電子源もあり、ガンダイオード^[64] や共鳴トンネルダイオード^[7]、高周波トランジスタ^[65] がある。周波数通倍器は、基本的にサブテラヘルツの電子振動をテラヘルツの範囲にシフトさせるために使用される^[66]。ジョセフソン効果（絶縁体を介して弱く結合した 2 つの超伝導体の間に、超伝導電子対のトンネル効果によって超伝導電流が流れる現象）を用いたテラヘルツ光源も報告されている^[67]。3 つ目は光による発生である。光による発生の例としては、超短パルスを用いて光スイッチを励起する方法^[68]、炭酸ガスレーザにより気体分子の回転準位を励起させレーザ発振させる方法^[69]、2 つの波長可変レーザの差周波発生による方法^[70]、

非線形光学結晶にパルスレーザを入力しパラメトリック発振により発生させる方法^[71]などが挙げられる。特徴としては光による発生はコヒーレントなテラヘルツ波を発生できるということがある (Fig.1.8.)。上記した例は基本的に系が大掛かりなものとなるため、将来的なモバイル端末に統合する光源としては利用が難しい。しかしこの問題はマイクロコムを用いることで解決できる可能性がある。実際にマイクロコムを用いた発生は報告されており発生させたソリトンコムを UTC-PD(unitravelling-carrier photodiode) で光ビートを検出することで取得している^[18]。マイクロコムによるテラヘルツ波発生の特長は3つ挙げられ、まず共振器サイズが小さいため持ち運びが容易な光源となるという点、低入力パワーで低ノイズ光発生が可能である点、コム周波数間隔が 100GHz 以上と広い点である。

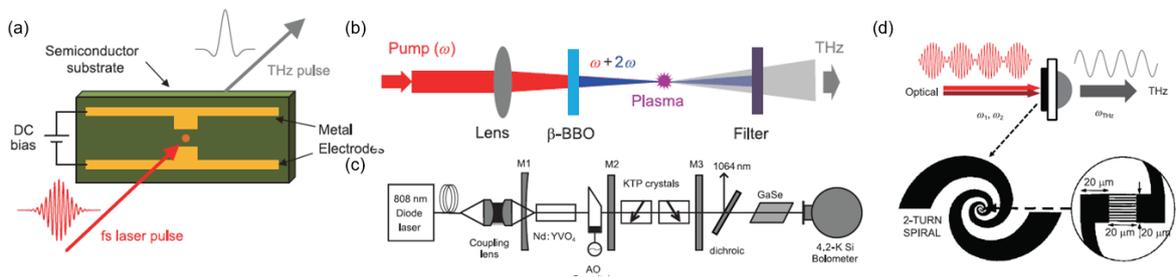


Fig. 1.8. Methods to generate Terahertz wave using (a) A photoconductive switch excited by a femtosecond laser pulse, (b) gas plasma driven by two-color lasers, (c) a nonlinear optical crystal, (d) photomixing.[Zhong, K., et al. Sci. China Technol. Sci. 60, 1801 - 1818 (2017).]

1.4 本研究の目的

SiN を材料としたソリトンコム発生が可能であるほど高い Q 値を持つマイクロリング共振器の作製は国外研究機関では可能となっているが、現状国内でマイクロコムが発生可能な高 Q 値共振器の作製は困難であり、SiN マイクロ共振器を用いた研究を行うためには国外ファウンダリから購入する必要がある。そのことを踏まえ、本研究では、ソリトンコムを発生させることのできる高 Q 値 SiN マイクロリング共振器作製を目指す。そして作製した共振器を用いることで、テラヘルツ波光源の集積化に向け、SiN チップ上でソリトンコムのコム線を切り出すことで周波数再構成が可能なテラヘルツ波発生のための 2 トーン信号発生を目指す。

第 2 部

実験原理・方法

本章では，本研究で行う実験の原理，概要や方法について述べる．

2.1 SiN リング共振器の作製

2.1.1 作製の概要

SiN リング共振器の作製フローは以下に示す (Fig.3.1.). (I) 酸化膜付き Si 基板の上に SiN を低温 (400°C) で堆積．(II) SiN 上にレジストをコーティング．(III) EB リソグラフィで導波路パターンを描画・現像．(IV) ドライエッチングにより SiN をパターンニング．(V) レジストを除去．(VI) シリカ層を堆積．その後，導波路端面出しのためにダイシングを行い，完成となる．それぞれの詳細は後述する．

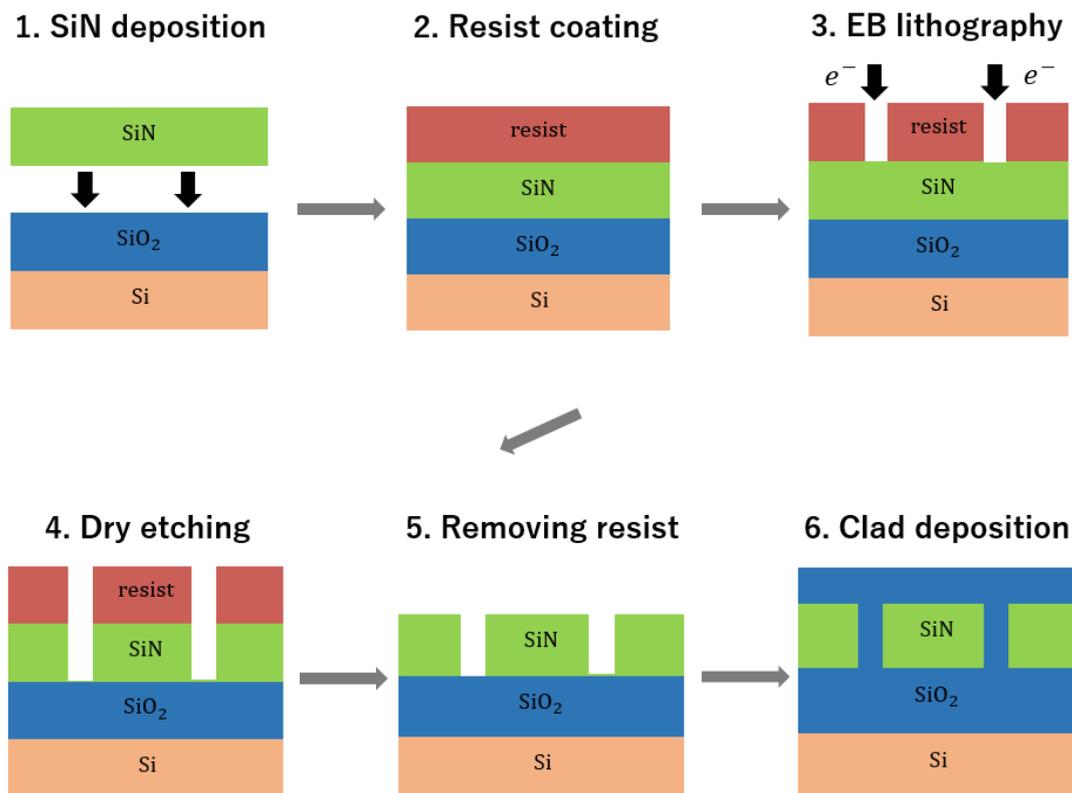


Fig. 2.1. Schematic diagram of fabrication process flow of SiN microring resonators

2.1.2 SiN 堆積

2.1.2.a 概要

既に高 Q 値マイクロ共振器作製が報告されているのは、LPCVD(Low-pressure CVD) 法と呼ばれる高温 ($\sim 750^\circ\text{C}$) 堆積と PECVD(Plasma Enhanced CVD) 法と呼ばれる低温 ($\leq 400^\circ\text{C}$) のプラズマ堆積を用いたプロセスである。前者は高温で堆積するため、SiN 膜内に残存する N-H および Si-H 基が少なく 1520 nm 付近での伸縮モードの倍音吸収 (Fig.2.2.(a)) が少ない膜生成が可能であるというメリットの一方で、SiN と母材の Si の熱膨張係数差から膜にクラック (ひび割れ) が発生してしまうため歩留まり悪化の原因となっている。しかし、PECVD 法を用いることでこのクラックの発生を防ぐことができるが、反対に膜内に N-H, Si-H 基が多く残ってしまうため比較的大きな吸収損失を受けてしまう。そのため高温ポストアニーリング^[72] や窒素基量のコントロール^[73] による低水素化が行われてきた。

本研究の SiN の堆積は Hot-Wire Chemical Vapor Depositon(Hot-Wire CVD) 法を用いて行う。Hot-Wire CVD 法はシラン (SiH_4) アンモニア (NH_3) をワイヤ状に張り巡らされたタングステン熱触媒 ($\leq 400^\circ\text{C}$) として分解することで、指定の基板の上に SiN 堆積をするという補法である (Fig.2.2.(b))。この方法の利点は低温堆積プロセスであるためクラックの発生が防止可能であるということに加え、残存する水素濃度が PECVD 法の堆積よりも少ない^[74] こと、プラズマとは違い基板へのダメージがないこと、プラズマの衝突による装置内壁の金属原子の堆積膜内混合の可能性がないことが挙げられる。

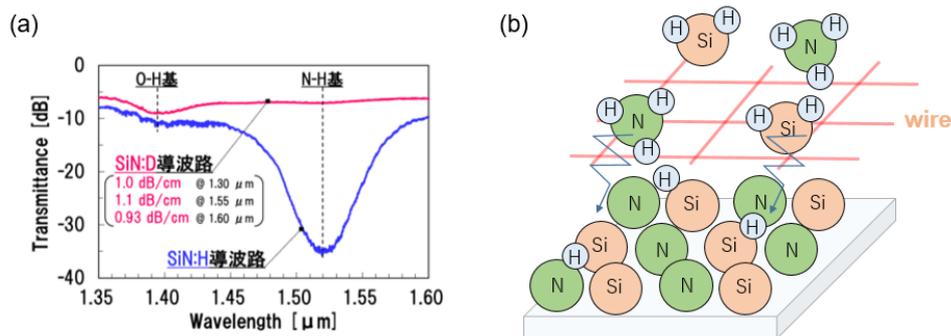


Fig. 2.2. (a) Absorption of N-H bonds (low temperature conditions) [岡崎功太, 西英隆, 開達郎, 土澤泰, 山田浩治, 山本剛, "SiD₄ を用いた ECR プラズマ CVD 法により作製した低損失 SiON 光導波路," 第 76 回応用物理学会, 13p-2S-1 (2015). Copyright (2015) The Japan Society of Applied Physics]. (b) Illustration of Hot-Wire CVD deposition method.

2.1.2.b 堆積の詳細

本研究では、まずピラニア酸 ($\text{H}_2\text{O}_2 : \text{H}_2\text{SO}_4 = 1 : 3$ の混合溶液) 洗浄を行った $25 \times 25 \text{ cm}^2$ サイズの SiO_2/Si 基板に SiN 堆積を行う。堆積膜厚は共振器分散を異常分散とするために $700 \sim 750 \text{ nm}$ 程度としている^[75]。

この際にチャンバー内圧力、 SiH_4 と NH_3 の流量、ワイヤへの印加電力によって生成される膜の組成が決定する。複数のパラメータを変化させたときの SiN の屈折率と堆積レート (nm/min) を以下にまとめた (ワイヤと基板との距離は $150 \mu\text{m}$ で一定である)。

Table. 2.1. Process conditions and results of cat-CVD.

| Process conditions | | | Results | |
|--------------------|---|---------------|--|--|
| Input Power | Gas flow ($\text{SiH}_4(\text{sccm}) : \text{NH}_3(\text{sccm})$) | Pressure (Pa) | Refractive index($\lambda = 632.8 \text{ nm}$) | Deposition rate (nm/min) |
| 500 | (2.4 : 80) | 4 | 2.062 | 6.35 |
| 500 | (2.4 : 80) | 3 | 2.084 | 5.19 |
| 600 | (2.4 : 80) | 4 | 2.070 | 6.23 |
| 600 | (2.1 : 80) | 4 | 2.021 | 5.64 |

この表からチャンバー内圧力が小さくなると膜の屈折率が大きくなるのがわかる。圧力低下によりチャンバー内に存在する SiH_4 に比べ NH_3 の絶対量が減少する割合が大きいことが Si リッチな (高屈折率) 膜になっていることの理由であると考えられる。一方、ワイヤに印加される電力を上昇 (ワイヤ温度上昇) させると、屈折率がわずかに上昇しているが、これは堆積の揺らぎの範囲内であると考え (堆積レートは同じ条件でも日によって $0.1 \text{ nm}/\text{min}$ 程変化したため)。そして、 SiH_4 の流量を減少させると屈折率と堆積レートいずれも下がった。以上を踏まえて、ストイキオメトリに近い SiN を堆積させるには屈折率を 2.01 程にすればよいので、条件は流量 $\text{SiH}_4(\text{sccm}) : \text{NH}_3(\text{sccm}) = 2.1 : 80$ 、圧力 4 Pa とすればよいと結論付けられた。

2.1.3 パターン描画

2.1.3.a 概要

本研究でのパターン描画は SiN 膜上にコーティングさせたフォトレジスト上に電子線ビームを照射することで行う。

描画原理はフォトレジストが感光性を持っており、光や電子が当たった部分が化学反応を起こし、分子量やポリマーの極性など物性変化を引き起こす高分子化合物であるという物性があるため、電子線を照射した後に専用溶液で現像することで所望の形状を持ったレジストパターンをチップ表面に残すことができるというものである。

フォトリソはポジ型とネガ型の大きく2つに分けることができる。前者は感光した部分の溶解性が増大し、非感光部が残る。ポジ型レジストは比較的解像度が比較的小さく扱いやすい(当研究室でのSiN共振器作製で過去使用されていたものは20nm以下であった)反面、導波路パターン描画のためには広い面積を描画しなければならないため、共振器作製時間が増加してしまうというデメリットがある。一方で後者のネガ型は、本研究で用いるものは解像度が50nmほどと先ほどよりも低くなっているが、感光した部分が残るので描画時間が短くできる。しかし、ネガ型は電子線用レジストであっても感光性を持っているので扱いが難しい。

電子線ビーム描画-Electron Beam Lithography(以下EB描画と呼ぶ)は、電子銃から放出された電子線を加速した後に電子レンズによって集光し、所定の材料上に非常に小さなスポットとして収束させる。電子線はビーム偏向制御系によって走査され、照射位置はこの偏向制御および資料ステージを移動することによって制御される。EB描画は紫外線を光源としたフォトリソグラフィや極紫外線を用いるEUVリソグラフィとは違い、描画用のマスクを必要としないため比較的自由的なパターン描画が可能であるというメリットを持つが、露光光源である電子銃から大きな電流を取り出せないため、時間当たりのパターン描画数(スループット)が低いというデメリットもある。しかし、熱電流源を用いれば大電流を取り出すことができるようになるが、電子放出面積も大きくなるのでウェハ上でのスポット径が大きくなるというトレードオフがあるため、この問題の克服は難しい。そのためEB描画は電流値を落とし露光処理能力は低いながら、高解像度のナノリソグラフィ用露光装置としての利用が一般的である。

2.1.3.b レジストコーティング

本研究で使用するレジストはmaN-2410(micro resist technology社製)である。このレジストの基板との密着性を高めるために密着性向上剤(プロモーター)Surpass4000(同社製)を用いている。密着性を高めることで現像時のパターン倒壊を防ぐことができるため、プロモーターは厚膜SiNエッチングを達成するための高いアスペクト比(レジスト膜厚に対する幅)を得るために重要となってくる。

レジストをコーティングするための前処理として、SiN/SiO₂/Si基板を酸素プラズマアッシングを施し、(本来は有機物除去のために用いられる)SiNの表面を還元させることでレジストの濡れ性(SiN基板に対する接着性)を改善できる。これによってレジストの密着性をより高めることができる。

その後、プロモーター Surpass4000 をスピンドーターでコーティングし、続けてネガ型レジスト maN-2410 をコーティングした。この時のコーティング条件(回転速度、回転時

間)は Fig.2.3. から $1\mu\text{m}$ の厚みとなるように条件を定めた (回転速度: 2500 rpm, 回転時間: 40 sec).

そしてレジストコーティング後に prebake を行うことで, レジストの溶媒を蒸発させレジストを固化させる. prebake は 110°C のホットプレートで 2 分間行った.

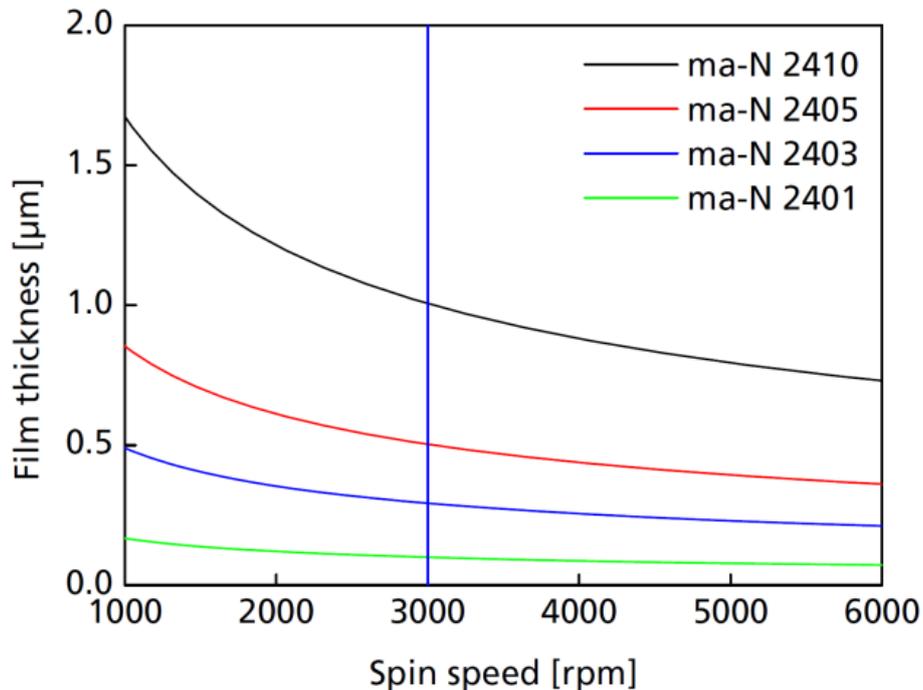


Fig.2.3. Spin curve of EB resist used in this theasis(black line).[https://www.microresist.de/en/produkt/ma-n-2400-series/]

2.1.3.c EB 描画

本研究では EB 描画を行う前に, コーティングされたレジスト上にエスペイサー (昭和電工製) も塗布した. エスペイサーは導電性を持つ高分子材料であり, 電子線が表面において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. また, EB 描画装置としては JEOL JBX-9500FSZ を使用している. この装置の加速電圧は 100kV と高く, 高い分解能を可能としている. 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. しかし, 高い加速電圧は後述する後方散乱を増大させてしまうため, 補正が必要となる. EB 描画を行う際に問題となるのが, 電子後方散乱とスティッチング (描画フィールド毎の導波路つなぎ合わせ時のズレ) である.

電子後方散乱は照射された電子が試料中を進行していく際に、様々な粒子と衝突する過程で多くの電子を発生させ、多重散乱を引き起こすことで、レジストが感じる実際のドーズ量 (単位面積あたりに照射する電荷 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$) は設定値よりも増加する。すなわち、設計通りパターンを描画するのが難しくなる。後方散乱の補正にはパターンに対するドーズ量を一定にするのではなく、局所的に変化させる必要がある (ドーズ補正)。ドーズ補正は、モンテカルロ法と呼ばれる乱数を用いて近似解を求める計算手法にて行うことができる。材料と加速電圧から実際のビームサイズを決定することができ、理想的なドーズ分布と実効ビームスポットを記述した空間関数との畳み込みによって、最終的なドーズ分布を計算することができる。しかし、実際の分布は、レジストの感光特性やビーム集光特性によって変化してしまうので、電子ビームのボケ (ブラー: 電子光学系の制約の多さから収差補正の自由度が少なく収差が存在するためにおこる) を同時に最適化させることで後方散乱を考慮に入れたパターン描画が可能となる。

本研究では、当研究室の先行研究で最適化された値を用いた (ベースドーズ量: $140\mu\text{C}/\text{cm}^2$, ブラー: 140nm)^[76]

続いてスティッチングとは、EB 描画においてステージを移動させることなく偏向のみで描画できる範囲 (フィールドサイズ) を超えて描画する際に問題となる導波路のズレのことを指し、公称 10nm であるが本研究で作製する導波路は幅 $1\mu\text{m}$ ほどであり、このずれは側壁粗さとして損失や位相変化の原因となる可能性がある^[77]。本研究では、スティッチングの防止のために Fig.2.4. のようにマルチパスリソグラフィといわれる境界付近を複数回低ドーズ量で凹凸形状を描画することでスティッチング誤差を平均化している^[78]。

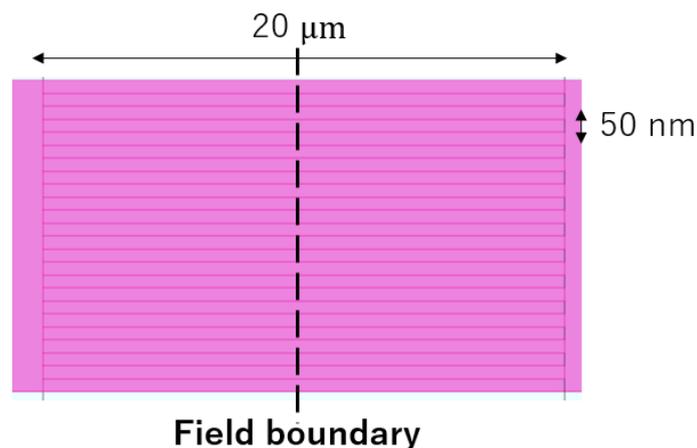


Fig. 2.4. Illustration of multipass lithography

2.1.3.d 現像

EB 描画によるパターン描画の後，現像液で感光していないレジストを除去することで所望の形状をしたレジストパターンを得ることができる。

本研究ではエスペイサーを塗布しているため描画後，基板を 2 分間流水に浸しエスペイサー除去を行った。その後，攪拌された Tetra Methyl Ammonium Hydroxide(micro resist technology 社製) 中で 2 分間パドリングを行い，非感光レジストを除去した。

2.1.4 エッチング

2.1.4.a 概要

SiN の導波路およびリング共振器を作製するためには，上述した方法で作製したレジストパターンをマスクとしたエッチングを行うことで所望の形状に SiN 膜を食刻する必要がある。このエッチングはウェットエッチングとドライエッチングの 2 つに分けられる。前者は対象を腐食溶解する液体でエッチングする方法であり，比較的安価に行うことができ，一度に複数の基板に対して行えるというメリットがある。一方のドライエッチングは，反応性の気体やイオン等によってエッチングする方法であり，設備投資は高額なものウェットエッチングに比べて微細な加工が可能であるというメリットを持つ。ドライエッチングはガスエッチング，スパッタエッチング，イオンエッチングに分けられるが異方性エッチング(ある方向にのみ進むエッチング)が可能なイオンエッチングを特に RIE(Reactive Ion Etching) と呼ぶ。

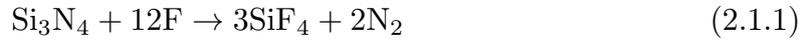
本研究ではドライエッチング (RIE エッチング) によって SiN 膜のエッチングを行った。この際ドライエッチングは 2 段構成で行った。1 回目のエッチングはトリフルオロメタン (CHF_3) とアルゴン (Ar) を用い常温で，続けて 2 回目のエッチングを六フッ化硫黄 (SF_6) と酸素 (O_2) を用いて -110°C で行った。

2.1.4.b リフロー

作製したレジストパターンの側壁は理想的には平らであるはずだが，電子線ビームにはショットピッチが存在するため境界は非常に密接した円の重ね合わせとなっているので，完全には平らになることはない。この側壁粗さは，ドライエッチングを介し SiN パターンの側壁に転写されうるため，ドライエッチング前に $113^\circ\text{C} \cdot 3$ 分間のリフローを行うことでレジストを表面張力によって平坦に変形させることができる。

2.1.4.c CHF₃/Ar エッチング

CHF₃/Ar エッチングは SiN を以下の反応式に沿って分解する。 [79]



この反応式の生成物の他に反応副生成物であるフルオロカーボンポリマーが生じている。この反応副生成物がエッチングした膜の側壁に付着することで異方性の垂直エッチングを可能にしている。しかし、本研究で用いるエッチング装置 (RIE-10iPHJF) ではエッチング深さが 600 nm 以上になるとこの反応副生成物の調整が難しくなり、作製した SiN 導波路の側壁が急激に荒れてしまうということがわかっているため (Fig.??F-ICP) のカラーリングされた部分), このエッチング工程は 30 秒間のみ (深さ 50 nm 程度) としている。この短時間のエッチングによって, SiN 側壁に反応副生成物を付着させておくことによって後述する cryo エッチングによって側壁後退を防ぐことが可能となっている (ボッシュプロセスと呼ばれている [80])[76]。

このエッチング条件は, ICP パワー: 170 W, RF パワー: 30 W, 圧力 0.1 Pa, (CHF₃:Ar)=(11:6) sccm であった。

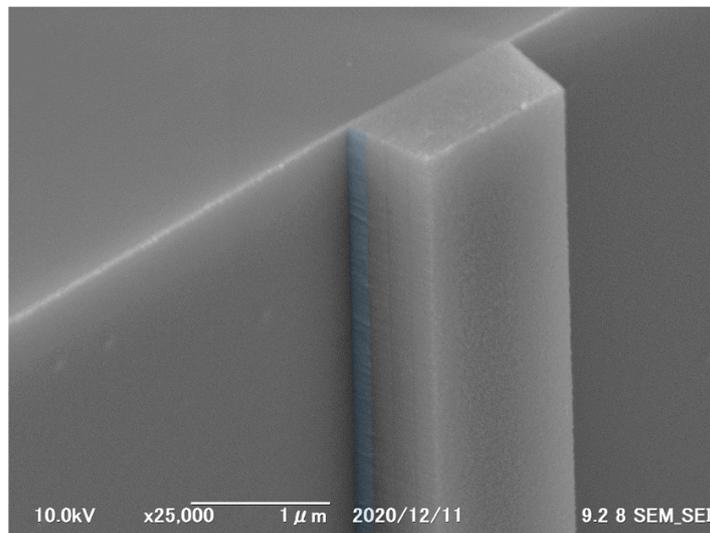


Fig. 2.5. SEM image of SiN waveguide etched by CHF₃ and Ar. The Side wall of the area colored in blue is rougher.

2.1.4.d SF₆/O₂ エッチング

続いて、SF₆/O₂エッチングを-110°Cの低温で行った。このエッチング法は cryo エッチングと呼ばれる。このエッチングは低温で行うために側壁での反応(サイドエッチング)を抑制している。この際の下方向へのエッチングはイオンアシスト(イオン同士の衝突による加速)が支配的であるため抑制される心配はない^[81]。このとき反応副生成物として SiO_xF_y が側壁に付着し、よりサイドエッチを抑制する^[82]。これは常温に戻すと、フッ素原子と反応し SiF₄ となり揮発するため除去の必要がない。しかし SF₆, O₂ いずれもレジストパターンを腐食してしまうため、低温でも側壁後退は避けられない (Fig.2.6.(a))。このため、ボッシュプロセスを導入し、上述したエッチングで側壁後退防止の反応副生成物を付着させ側壁後退を防いでいる (Fig.2.6.(b))。

エッチング条件は、ICP パワー: 650 W, RF パワー: 9 W であった。

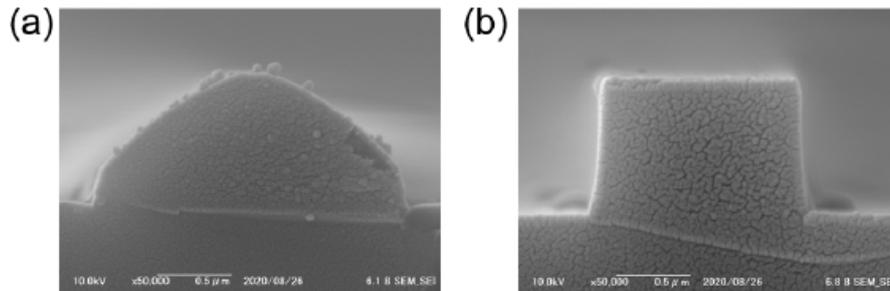


Fig. 2.6. SEM image of SiN waveguide etched using cryo-etching process (a) without, (b) with CHF₃ and Ar etching [半田 浩一郎 修士論文 慶應義塾大学大学院理工学研究科 総合デザイン工学専攻 (未公刊) (2021)]

2.1.5 オーバークラッド層堆積

2.1.5.a 概要

SiN 導波路内に光モードを閉じ込めるためには、SiN よりも屈折率の低い媒質で周囲を囲う必要がある。SiN のクラッドとしては SiO₂ が一般的であるが、オーバークラッドなし(エアクラッド)のものも利用されており、SiO₂ クラッドの共振器よりも小さい膜厚で異常分散を得ることができる^[83]。しかし、エアクラッド共振器は大気中に導波路がさらされるため、ゴミが付着し損失が増加してしまうなど扱いが難しい。本研究では、SiO₂ を SOG(Spin On Glass) と PECVD の 2 段構成で行った。

2.1.5.b SOG による堆積

SOG は作製したリング共振器とバス導波路の狭い (<300 nm) 幅 (gap 幅) を埋めるために用いる粘性の低いクラッド層の原材料液である。本研究で用いるのは FOx-16(FOx : owable oxide デュポン・東レ・スペシャルティ・マテリアル株式会社製) であり、その組成は $[\text{HSiO}_{3/2}]_n$ であらわされる。SOG の堆積は、Fox を SiN パターン上にスピコートし、加熱することで SiO_2 として堆積できる。

コーティング条件は、2000rpm, 30 秒で行った。その後、180°C の炉にて 30 分間 prebake を行い、赤外加熱装置によって 450°C まで徐々に温度を上げていき 25 分間 bake を行った。

2.1.5.c PECVD による堆積

SOG によって狭 gap 幅の埋め込みを行った後、 O_2 と TEOS(Tetraethyl Orthosilicate) の PECVD を用いて、2 μm ほどのクラッドを堆積させた。PECVD は以下のように TEOS を分解することでクラッドを堆積させる。



プラズマ CVD 装置 (PD-220NLJ : サムコ社製) を用いた。

堆積条件は、プラズマ: 200 W, $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4 : \text{O}_3 = (10:250)(\text{sccm})$ の流量で原料ガスを流し、内部ヒーターの温度を上部で 150°C, 下部で 300 °C, プロセス圧 75 Pa で行った。

2.1.6 ダイシング

オーバークラッド層を堆積後、導波路の端面出しを行うためにダイシングを行った。ダイシングは高速で回転させたダイヤモンドブレードでチップの切断を行うプロセスである。

ダイシング条件は、NBC-Z (半径 25 mm, ブレード厚さ 0.15 mm) のブレードにより基板を半分の厚さまでカットし (回転数 : 30000 rpm, 送り速度 : 0.1 mm/sec), SD-6000 (半径 25 mm, ブレード厚さ 0.22 mm) のブレードにより基板を表面から 100 nm 程度の深さまでカットし (表面を滑らかにするため), 最後に NBC-Z でチップを完全に切断した (Fig.2.7.)。

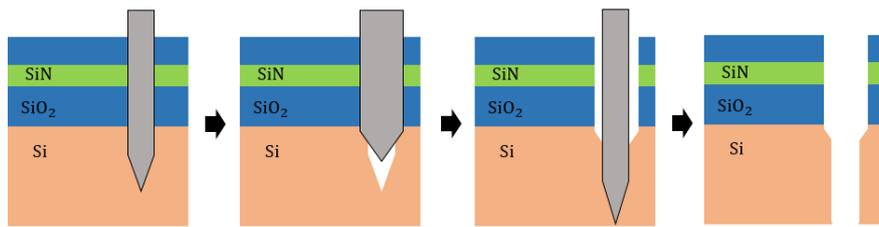


Fig. 2.7. Illustration of dicing process.

最後に以上の工程の重要なパラメータを以下の表にまとめる。

Table. 2.2. Process condition.

| | Input power(W) | SiH ₄ : NH ₃ (sccm) | Pressure (Pa) |
|--------------------------|---|---|---|
| Deposition | 600 | 2.1:80 | 4 |
| | Base Dose ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$) | blur (nm) | development |
| EB lithography | 140 | 140 | 2 (min) |
| | ICP Power (W) | RF (W) | CHF ₃ :Ar (sccm) |
| DE(CHF ₃ /Ar) | 170 | 30 | 11:6 |
| | ICP Power (W) | RF (W) | SF ₆ : O ₂ (sccm) |
| DE(SF ₆ /Ar) | 650 | 9 | 60:8.5 |
| | bake1 | bake2 | |
| Clad deposition(SOG) | 180°C: 30(min) | 450°C: 25(min) | |
| | RF (W) | TEOS : O ₂ (sccm) | Pressure(Pa) |
| Clad deposition(PECVD) | 200 | 10:250 | 75 |

2.2 2 トーン信号発生

本実験での2トーン信号発生は以下で説明する Vernier 効果を用いて、オンチップでソリトンコムのコムスペクトルを切り出すことで発生させる。

テラヘルツ波発生のために2トーン信号を目指すか2トーン信号とする理由は、切り出しを行わずに光ビート検出を行った場合、所望の周波数は複数のコム線からのビートで構成されているため、発生させたテラヘルツ波のノイズ低減を考える場合、コム線同士に相関するノイズとそれ以外のノイズの区別が難しいという信号処理面でのデメリットが想定されるためである。

2.2.1 Vernier 効果によるスペクトル抽出

本研究で用いるチップパターンは Fig.2.8. に示す。

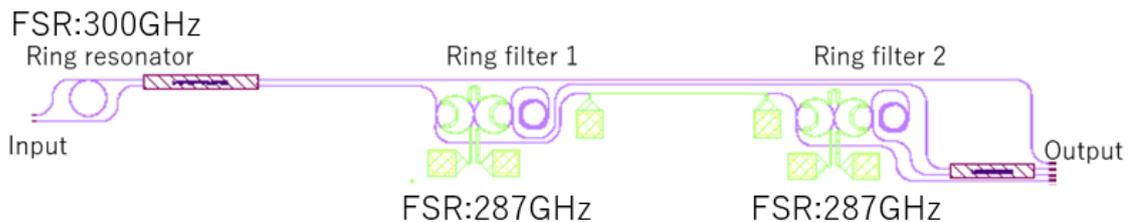


Fig. 2.8. Schematic diagram of this experiment.

まず、上段 (左端) のリング共振器でソリトンコムを発生させる。その後、後段の二次リングフィルタでコムスペクトルを抽出し、右端の MMI(マルチモード干渉型) 導波路で光を合波させている。ソリトン発生用リングの FSR は 300 GHz としており、リングフィルタの FSR は 287 GHz で全て固定している。

このフィルタはわずかに FSR をずらすことで周波数が一致したコムのスペクトルのみを抽出することができるようになる (Vernier 効果)。この一致する共振周波数は以下のモード番号差ごとにあらわれる (Fig.2.9.)。

$$\text{モード番号差} = ((\text{マイクロコムの FSR}) - (\text{フィルタの FSR})) / \text{FSR の差} \quad (2.2.3)$$

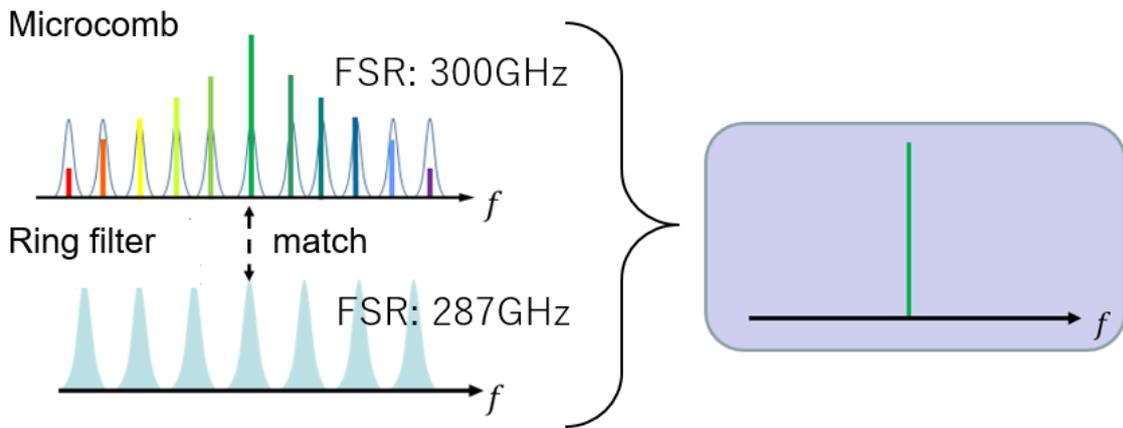


Fig. 2.9. Illustration of spectrum filtering using Vernier effect.

2.2.2 高次リングフィルタ

本研究ではスペクトルを抽出するフィルタとして単一リングではなく、二つのリングを結合した二次のリングフィルタを用いている。

単一のリングフィルタのフィルタ特性は共進周波数スペクトル (ローレンツ型) に依存する。そのため、スペクトルの裾の部分で意図しないコムスペクトルを抽出してしまう恐れがある (Fig.2.10.)。

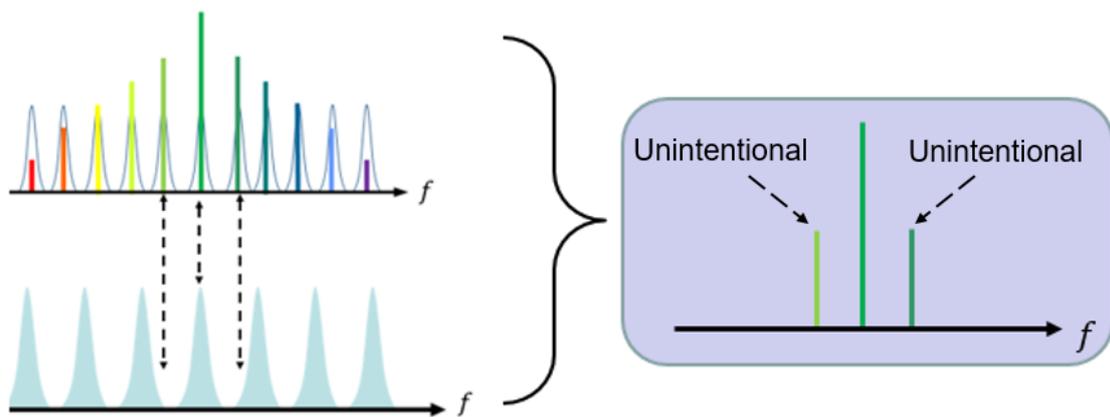


Fig. 2.10. Illustration of extraction unintentional spectra using single ring filter.

これを防ぐために高次のリングフィルタが提案される。結合させるリング共振器を増加

させることで、Fig.2.11. のようなスペクトルの裾が抑えられた矩形に近いフィルタ特性を得ることができる^[84]。しかし、高次になるほど設計のトレランスが小さくなっていくため作製誤差との兼ね合いから再現性が難しくなる場合がある。

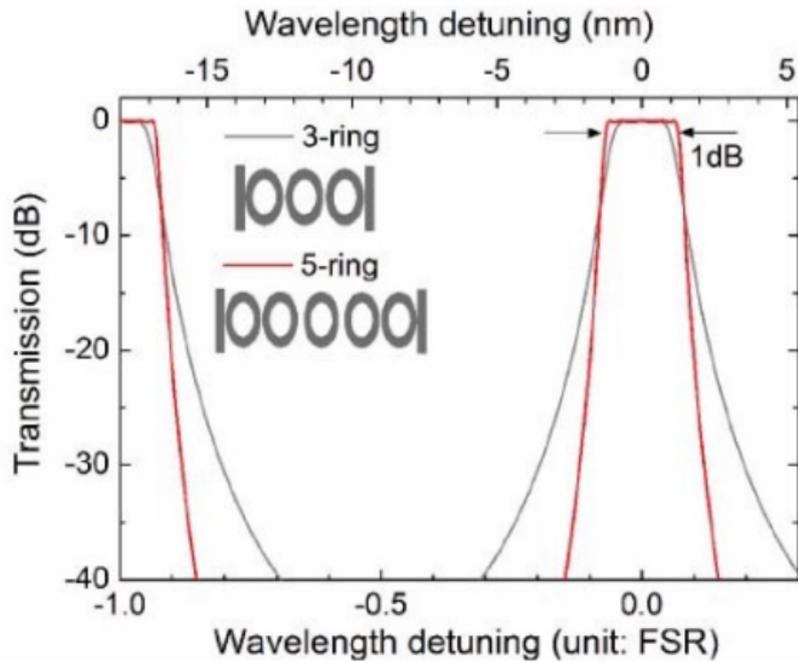


Fig.2.11. Simulated responses of optical filters with 3 and 5 coupled ring resonators.[Fengnian Xia, et al., Opt. Express 15, 11934-11941 (2007)]

本研究では、比較的作製が容易な二次リングフィルタを用いた。

第3部

マイクロコム発生に向けた SiN マイクロ共振器の高 Q 化

本章では、本研究の第一の目標であるソリトン発生のための高 Q 値 SiN マイクロリング共振器作製のために行った想定される損失源に対する取り組みの結果および検討について述べる。

なお、共振器 Q 値の測定セットアップは以下の通りで、導波路に入力した波長可変レーザを掃引したときの透過スペクトルを Photo Diode(PD) によって受光し、そのスペクトル半値全幅から Q 値を測定する。

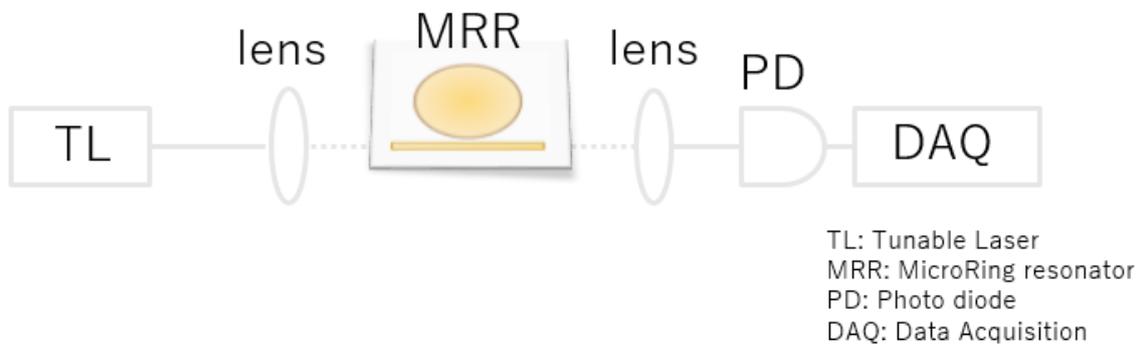


Fig. 3.1. Experimental setup to measure Q factor.

以下の結果では全て FSR:400 GHz の共振器の Q 値を比較している。共振器サイズの小さい共振器は比較的低パワーでマイクロコム発生が可能であるため、サイズの小さい共振器の Q 値向上が優先事項であると考えられるからである。

3.1 表面粗さの低減

まず，導波路表面粗さの低減による Q 値向上について検討するために CMP 研磨を行った SiN 膜と行っていないもので共振器作製を行った．作製条件は 2 章で記述した通りである．CMP 研磨は SiN 堆積後にハイソル株式会社に委託した．FSR: 400 GHz の共振器に対して計測した intrinsic Q 値のある波長付近の平均値を Fig.3.2. に示した．

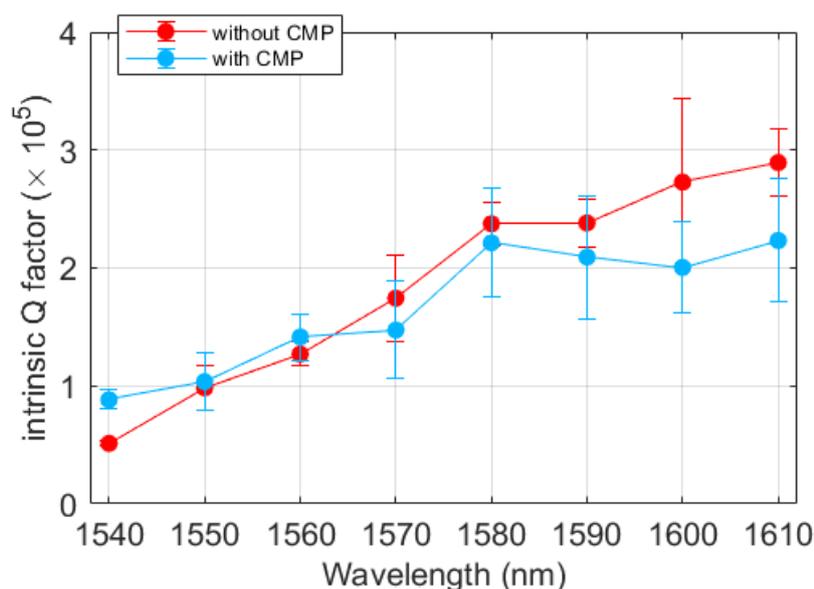


Fig.3.2. Average intrinsic Q factor from 1540 to 1610 nm. The blue(red) line shows rings with(without) CMP.

表面を研磨することで Q 値をおよそ 1.8 倍としたという報告がなされていたが^[47]，今回の結果では長波長側で Q 値の低下が見られた． Q 値の低下は DE のチャンバー内が汚れており，エッチング条件が変化し側壁粗さが悪化した可能性が考えられる．また， Q 値が向上しなかった原因としては， Q 値をリミットする機構が表面粗さ以外にあり研磨による Q 値向上への影響が抑制されてしまっていたということも考えられる．．そこで，研磨の有無による基板の表面粗さを AFM(Atomic Force Microscopy) を用いて測定し，得られた表面粗さの rms(root mean square deviation) 値および Correlation length(相関長) から見積もられる損失 (Q 値) によって研磨によるリミット値を概算した (計算方法については Appendix に示す．)．以下が AFM のトポグラフィである (Fig.3.3.)．

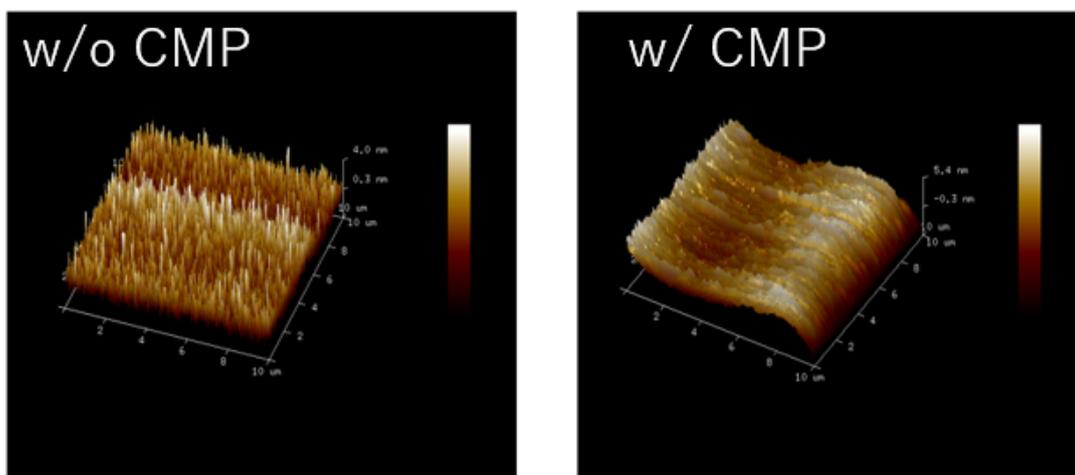


Fig. 3.3. Topography of SiN films (a) with CMP, (b) without CMP. These measurement ranges are both $10\mu\text{m}^2$.

AFM から取得したデータおよびそこから算出される損失および Q 値を表 3.1. にまとめた. ここでの Q 値は表面粗さによる値で, すなわち表面粗さによるリミット値を表している. 表面粗さを示すパラメータである rms 値が研磨をしないものの方が低くなっており, 研磨によって粗さが上昇してしまっているように取れるが, これは研磨を行った基板が 4 インチ (100 mm) SiO_2/Si 基板に SiN を堆積させた比較的大きな基板であったため, 堆積の不均一性と CMP 研磨の不均一性が合わさり, 測定面に傾きがあったことが rms 値が高くなっている原因であると考えられる. そのため, 実際の rms 値は研磨を行ったものはより低い値であると推定される (本研究では得られた値をそのまま用いている).

Table. 3.1. Data from AFM analysis and calculation result of loss and Q factor.

| Sample | RMS (σ (nm)) | Correlation length (L_c (μm)) | Loss (dB/cm) | Q factor |
|-------------|----------------------|---|--------------|-------------------|
| without CMP | 0.8875 | 0.2893 | 0.25 | 1.5×10^6 |
| With CMP | 1.158 | 24.13 | 0.015 | 2.5×10^7 |

この結果を見ると, 表面研磨によって Q 値のリミットを伸ばすことができることがわかる. しかし, 測定で得られた intrinsic Q 値と比べると明らかに研磨を行っていない SiN 表面粗さによる Q 値のリミットである $Q \sim 1.5 \times 10^6$ よりも低い値であった. このことから, 上述したように導波路の表面粗さによる損失は現状の Q 値のリミットとなっておらず, 現状では表面研磨は Q 値向上の大きな要因とはならないと結論付けることができる.

そのため、別の損失源について考えることとした。

3.2 マイクロマスクの低減

続いて、 Q 値向上のためにマイクロマスクが現状のリミットとなっていると推測し、この低減を目指した。

まずマイクロマスクとは DE(ドライエッチング) 工程において、意図しないエッチングマスクとなる表面に付着した粒子のことを指しており、これによって構造上の欠陥が発生してしまう。

本研究では Fig.3.4.(a) のように導波路近辺に数十 nm スケールの微小物体 (以下ダマと呼ぶ) が形成されていることが SEM(Scanning Electron Microscope) を用いて表面観察を行った際に見受けられた。このダマによる光散乱が現状の損失原因となっていると考え、この提言を目指した作製を行った。

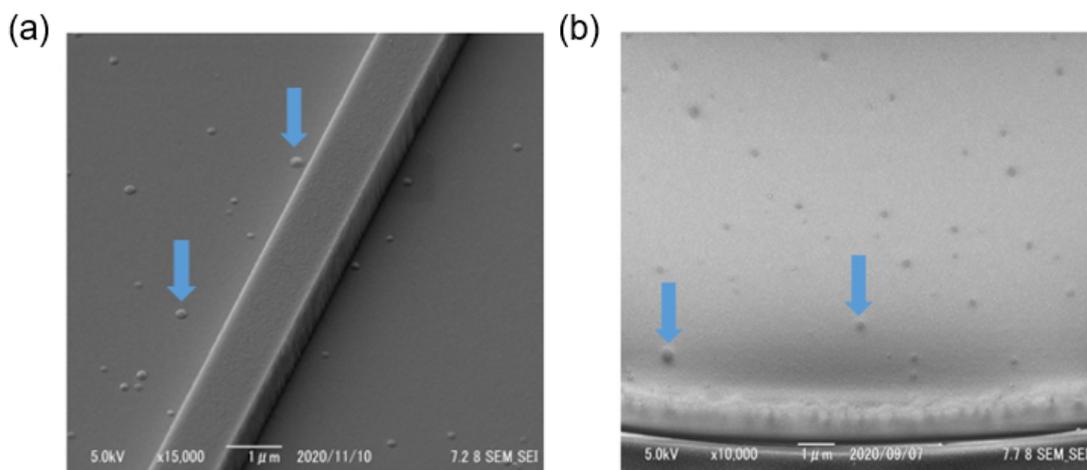


Fig. 3.4. SEM images of (a) SiN waveguide, (b) resist pattern. Arrows in images show parts of lumps and micromasks respectively.

この低減のためにマイクロマスクがレジスト由来となっていると仮定した。すなわち、レジストパターン描画後の現像時に飛散し除去しきれなかったレジストが表面に残留し、マイクロマスクとなって DE を経ることで Fig.3.4.(a) のようなダマ発生の原因となっていると考えた。

実際に現像後のレジストパターンを SEM 観察すると Fig.3.4.(b) のようにマイクロマスクが多数見られた。

そこでマイクロマスクの低減策として、DE 工程前のリフロー後に酸素プラズマアッシングを導入することでマイクロマスクを除去するという方法を取った。酸素プラズマアッシングに加え、リフローを行うためわずかに残留したマイクロマスクは空間的に広がり、薄膜化されるためダマ形成をしなくなると考えられる。リフロー時間は変化させず、リフロー後アッシングを行ったレジストパターンを観察した結果が Fig.3.5.(c) で DE を行い SiN パターンを形成させたものが Fig.3.5.(d) である (アッシング以外の工程は全て 2 章の通りである)。本研究で用いたアッシング装置 (PC-3000 サムコ社製) はレジストを $\sim 20 \text{ nm/min}$ で除去するため、アッシング時間は 30 秒間 (10 nm エッチング) を行った。

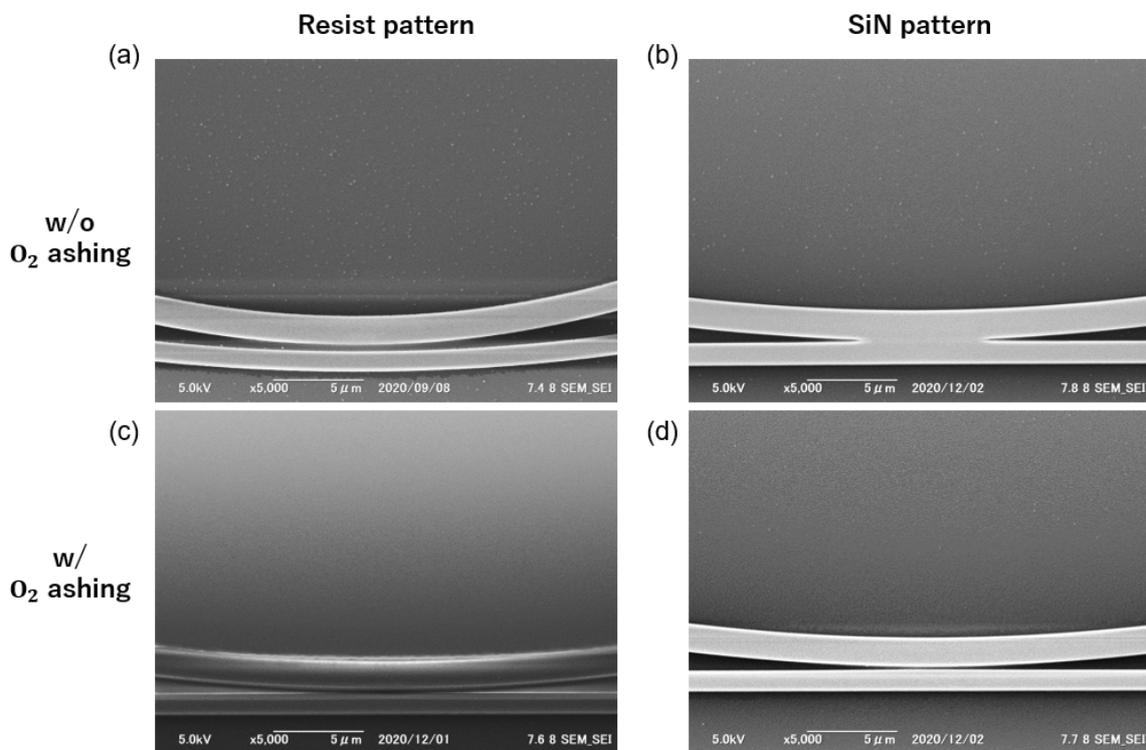


Fig. 3.5. (a) and (c) show SEM images of resist pattern without and with 30 sec O₂ ashing after reflow, respectively. (b) and (d) show SiN pattern without and with 30 sec O₂ ashing.

上図を見ると、アッシングを 30 秒間行ったものはレジストパターンの時点でマイクロマスクが大きく低減できていることがわかる。そのため、作製した SiN パターンもダマが少なく、散乱源を低減できているといえる。

酸素プラズマアッシングの有無によって共振器の Q 値がどれほど変化するか測定した。

以下の Fig.3.6. に波長ごとの intrinsic Q の平均値を示した。

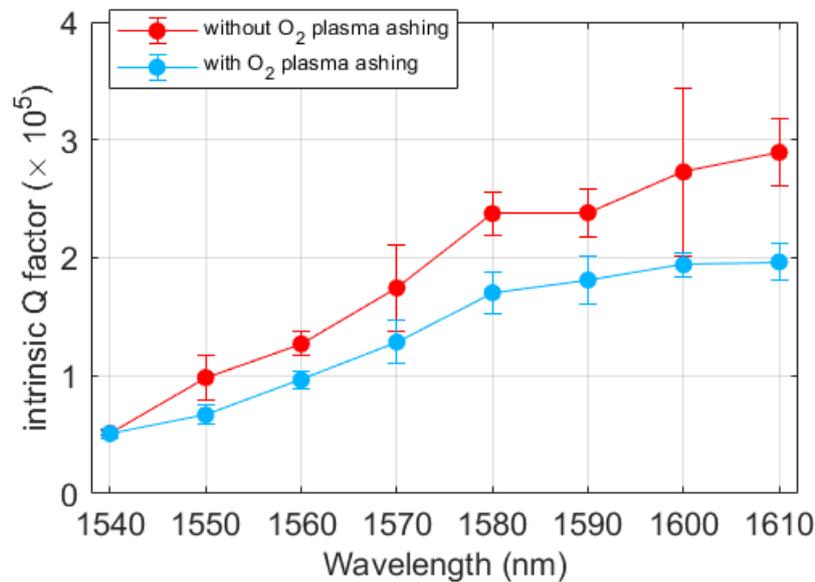


Fig. 3.6. Average intrinsic Q factor from 1540 to 1610 nm. The blue(red) line shows rings with(without) O₂ plasma ashing.

この結果を見ると、Fig.3.4. でダマが低減されていたにもかかわらず、 Q 値が全体的に減少している。この理由としては、アッシング過程においてレジスト表面の濡れ性 (親水性) が向上してしまい、レジストに通常よりも多量の H₂O が付着することで、一段目の DE(CHF₃/Ar エッチング) での反応副生成物の量増加することで、側壁粗さの増加を招いてしまったことが考えられる (CHF₃ を用いたエッチングではエッチング対象内の酸素がポリマー生成の反応経路を提供することが知られている^[85])。

酸素プラズマアッシングを用いた方法では Q 値が減少してしまったため、別のマイクロマスク低減方法として EB 描画時のベースドース量を増加させる方法およびレジスト prebake 温度の変更を行った。

prebake 温度を 108°C と 106°C の 2 通りで、ベースドース量が 185 μC/cm² とを 275 μC/cm² の L & S(Line and Space) レジストパターンの比較を SEM 観察で行った (Fig.3.7.)。

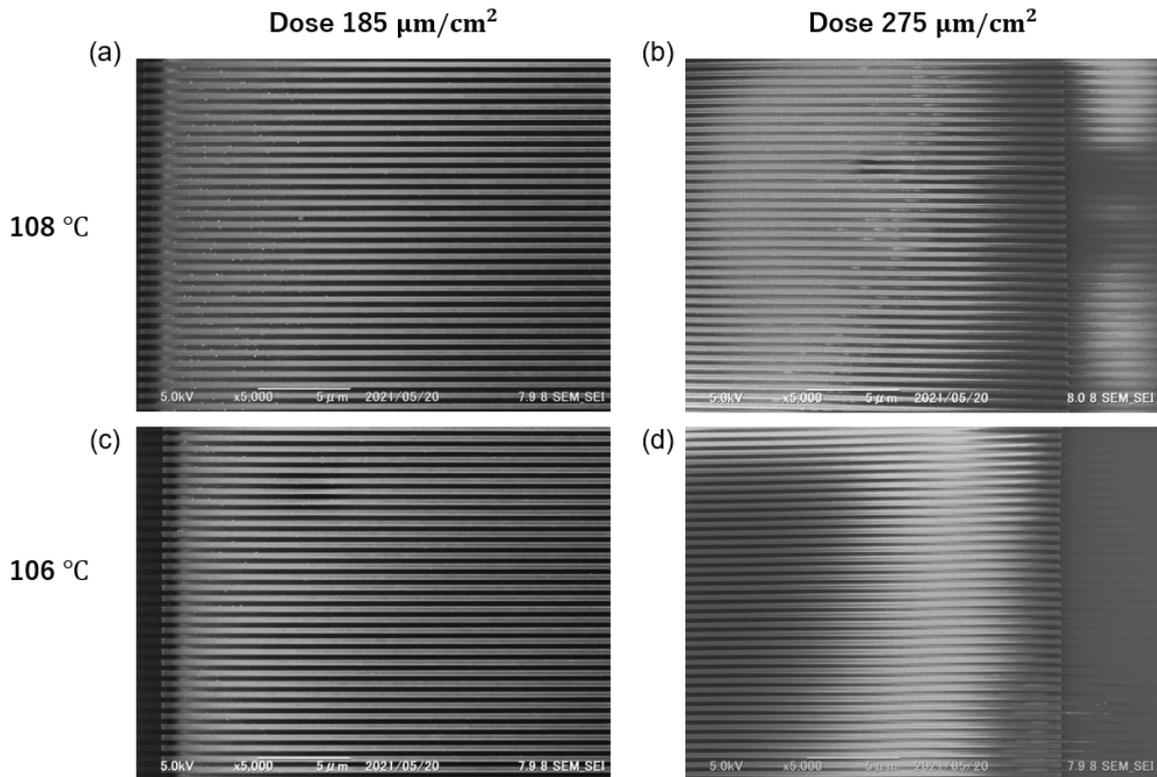


Fig.3.7. SEM images of L & S resist patterns whose prebake temperature and EB base dose are (a) 108 °C and 185 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$, (b) 108 °C and 275 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$, (c) 106 °C and 185 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$, (d) 106 °C and 275 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$

Fig.3.7.(a) と (c) を比べると、(c) の方がマイクロマスクが減少していることがわかる。prebake 温度を下げることでマイクロマスクが低減できるのは、レジストの固化が 110 °C の場合よりも不十分であるため、現像によって従来残っていたマイクロマスクが除去しやすくなったことが理由であると推測できる。

次に Fig.3.7.(a) と (b) を比べると、(b) はマイクロマスクが減少していることがわかる。EB 描画時のベースドース量を増加させるとマイクロマスクが減少した理由は、レジストに照射される電子線の電荷が増加するために同形状のレジストパターンを比較した際、ドース量の多いパターンの方が十分に感光しているため、現像時にレジストが崩れにくくなり、マイクロマスク (の原因となっているレジスト) が飛散しにくくなったためであると考えられる。

以上の結果から、prebake 温度を下げ、EB 描画時のベースドース量を増加させることでマイクロマスクの原因となっているレジストを除去することができると推測できたため、2 章の共振器作製条件から prebake 温度を (110 °C →)108 °C, (140 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$

→)180 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ とした. このとき prebake 温度を 106°C としなかったのは, 現像でパターンが崩れてしまい条件の最適化が必要であったためである. なお, 現像条件は従来 2 分間であったものを 2 分 10 秒間とした.

さらに, オーバークラッド層の堆積方法を改善した. SOG は通常のシリカよりも低屈折率 (~ 1.38) であるためコア-クラッド間の屈折率が大きくなることから導波路界面散乱雑による損失増加の原因となっている可能性があるため, 今回の作製では PECVD を用いてのみオーバークラッド層堆積を行った (SOG を用いていた理由は狭い gap 部分を埋めるためであったが, PECVD だけでの堆積でも十分に gap 部分を埋められていた (Fig.3.13.)).

その結果を, 先ほどのアッシングを行っていない共振器と比較したため以下に示す (Fig.3.8.).

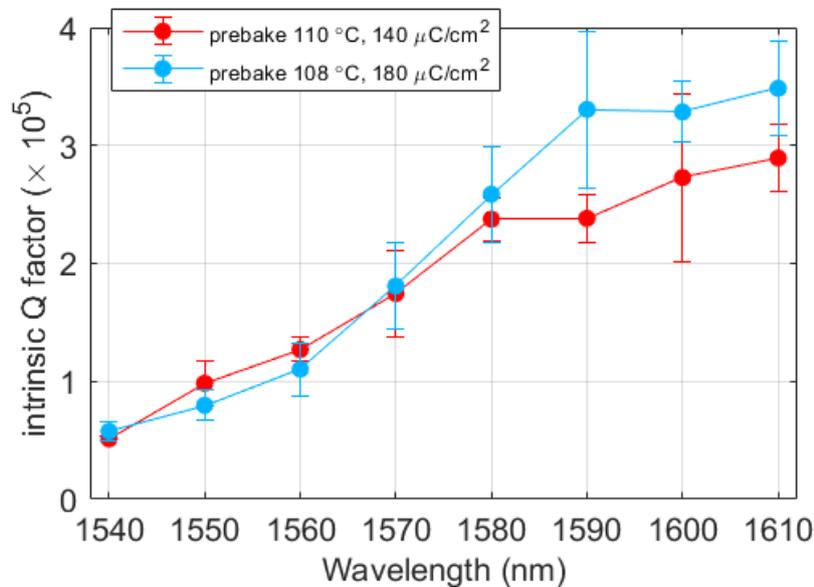


Fig. 3.8. Average intrinsic Q factor from 1540 to 1610 nm. The blue(red) line shows rings whose prebake temperature is 108 °C and base dose is 180 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ (prebake temperature is 110 °C and base dose is 140 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$). The device represented by blue line is cladded only using PECVD.

この結果から, prebake 温度上昇および EB 描画時のベースドース量を増加させることによるマイクロマスク低減によって散乱源を抑制し Q 値が向上する可能性があることが言える. 一方で Fig.3.8. の Q 値向上には SOG を利用しなかったことによりコア-クラッド間の屈折率が小さくなり界面における散乱が抑制されたことも寄与していると考えられる.

より Q 値を向上させるためには、さらにレジスト prebake 温度を減少させ、EB 描画時のベースドース量を増加させたデバイス作製を行う必要があると考える。しかし、この二つの条件が変化すると現像条件も大幅に変化することが見込まれるためその最適化が必要になる。

3.3 ポストアニールングによる吸収の低減

Fig.3.2., Fig.3.6., Fig.3.8. を比べると、 Q 値の向上は長波長であるほど顕著であり、短波長側の Q 値はほとんど向上していないことがわかる。これは N-H および Si-H 基による吸収が支配的であることを示しており、この吸収が Q 値のリミットとなっている可能性が高い。実際、低温堆積された SiN を 800°C で 5 分間アニールすることで Q 値を 1.5 倍ほどにしたという報告がある^[86]。しかし、この方法はクラッド層堆積を堆積させた後にアニールを行っているので長時間かつより高温のアニールはデバイス全体にクラックを発生させる恐れがあるため難しい。

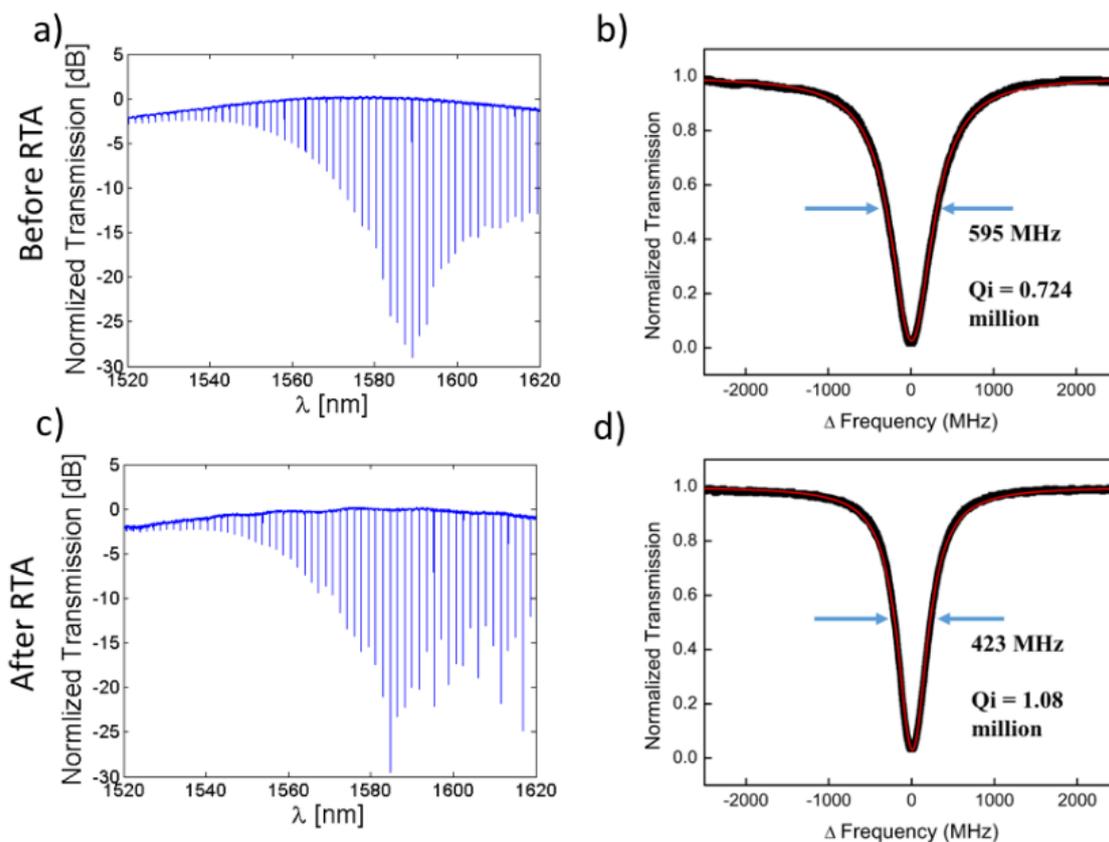


Fig. 3.9. Normalized transmission spectra of the same ring resonator before and after rapid thermal anneal (RTA). (a) Transmission spectrum before RTA with the finely scanned resonance outlined in red. (b) Resonance with 595 MHz linewidth corresponding to an intrinsic Q of 0.72 million. (c) Transmission spectrum after RTA with the finely scanned resonance outlined in red. (d) Resonance with 423 MHz linewidth corresponding to an intrinsic Q of 1.08 million [X. Ji, et al., in Conference on Lasers and Electro-Optics, OSA Technical Digest (Optical Society of America, 2019), paper SM2O.6].

Fig. 3.9.(a),(c) を比べると短波長側での損失はほとんど変化していないことがわかる。このことから、 800°C での短時間アニールでは H 基を完全に取り除けないと考えられるため、本研究ではそこで DE 後に 1050°C のポストアニールを行うことで導波路内の H 基を除去することを試みた。

アニール条件は、 N_2 中で、 1050°C 、 $3 \cdot 6 \cdot 9 \cdot 15$ 時間の 4 パターン行った。

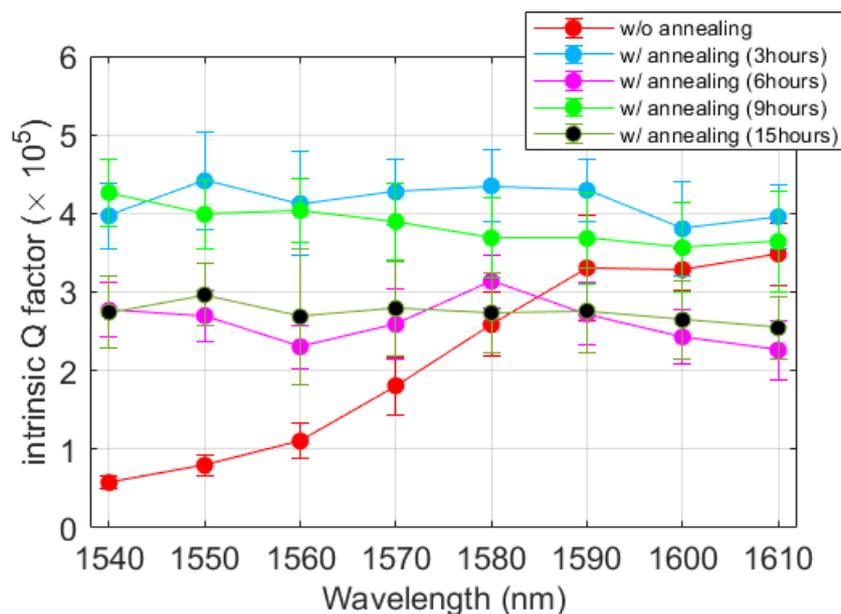


Fig. 3.10. Average intrinsic Q factor from 1540 to 1610 nm. Red line indicated devices without annealing. Blue, magenta, green and black show devices with annealing for 3, 6, 9, 15 hours respectively.

Fig.3.10. の結果の内, 3 時間アニールを行ったデバイスで Q 値は高いもので 5.4×10^5 を記録することができた (300 mW 程度の入力パラメトリック発振が観測できるようになった). また, ポストアニールを行ったデバイスのいずれも波長ごとの Q 値の差が抑えられていることがわかる. つまり, N-H 基および Si-H 基の吸収を低減しているといえる. アニールを行ったデバイス同士の違いを見ると, 3 時間行ったデバイスが全体的にも Q 値が高い一方で 6 時間と 15 時間は特に低く長波長側ではアニールを行っていないものよりも低い値を示している. この理由は, 長時間アニールを行うことで導波路に熱によるダメージが入ってしまい, 微細な欠陥が発生していることが推測される. また, この欠陥が起こる原因はアニール後のオーバーラッド層の堆積時のヒータ (350°C) の可能性もある. アニールを施した導波路は H 基が除去された分, 高密度化が進むと考えられ, 膜質が変化していることから 350°C で欠陥が起きてしまう可能性はないとは言えないためである.

3 時間アニールを行ったものとアニールを行っていないものを比べると, N-H 基および Si-H 基による吸収が大きかった短波長側だけでなく長波長側の Q 値も向上していたため, 吸収が長波長側での Q 値向上のリミットともなっていた可能性がある. そのため, アニールを行ったデバイスに対し, マイクロマスク低減や表面粗さ低減を試みることはさらなる Q 値向上に不可欠であると考えられる.

また、アニールを行っていない共振器と 3 時間アニールを行った共振器の広域な透過スペクトルを比較した結果 Fig.3.11. となった.

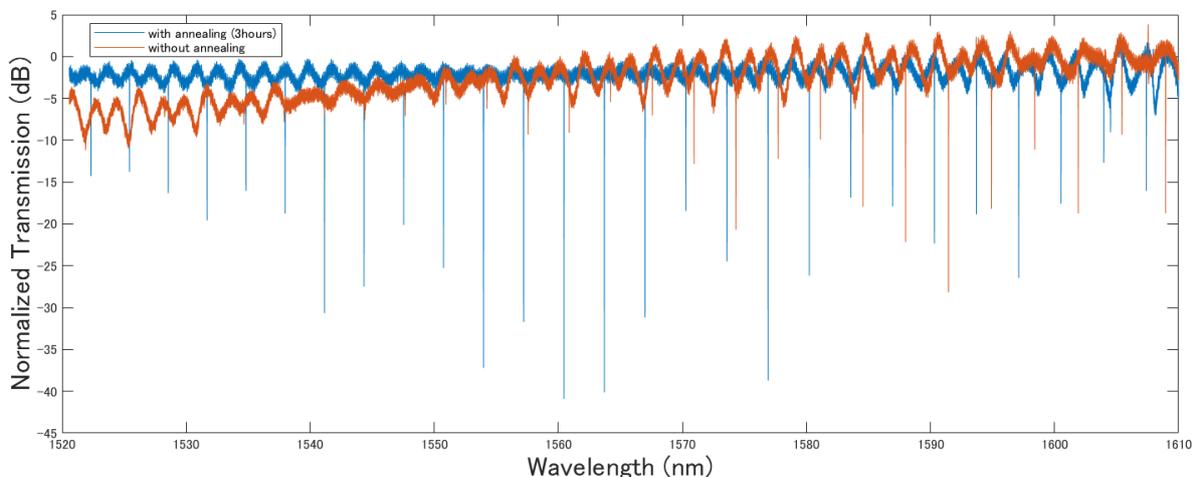


Fig. 3.11. Transmission spectra of a ring without annealing (red line) and with 3 hours annealing (blue line).

短波長側での透過率を比べると最大 4dB ほど損失が向上していることがわかる。このことから 1050°C, 3 時間のアニールで十分に H 基を除去できているとこの結果からもいえる。(透過率が 0dB を超えている箇所があるのは background 光のアライメントが波長依存性を持っていたことが理由である。)

また、この共振器はいずれも同じ設計値の gap 幅 (500 nm) をもっているが、損失が小さくなったために、アニールを行っていないものは C-band 帯では under-coupling であったが 3 時間アニールを施したものは critical-coupling になっている。さらに、共振器の FSR がアニールを行ったものは 8 GHz 程度小さくなっていることから、H が減ったことで膜の屈折率が高くなっている (~0.046) といえる。FSR を精密に制御したマイクロコムを発生させる際にはアニールによって FSR が小さくなることは留意する必要がある。

3.4 Q 値向上のための損失源の検討

以上の作製の取り組みを踏まえると、これまで Q 値をリミットしていた原因の一つとして N-H 基および Si-H 基の吸収が支配的であったことが考えられる。さらなる Q 値の向上を図る場合、まずマイクロマスクによるダマ低減が必要になると考えるが、このダマはレジストマイクロマスクによってのみ発生しているわけではない可能性がある。というのも、堆積後の基板表面を段差計で測定したところ、Fig.3.12. のように数十 nm の粒子が

堆積している様子が観察された。この粒子はリフローおよび酸素プラズマアッシングを施しても除去できなかったことからレジストではないため、堆積時に混合した不純物や堆積用基板のダイシングを行った際に飛散し付着した基板破片であると推定される。したがって、堆積後に HF(フッ化水素酸)などで洗浄を行い、除去可能かどうかを検討する必要がある。

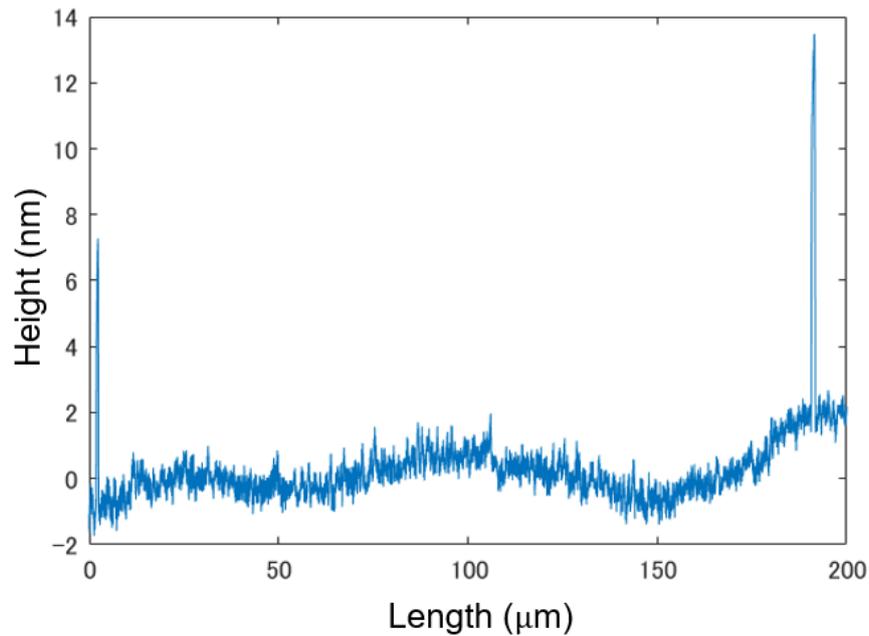


Fig.3.12. SiN surface measurement results.

マイクロマスク低減に加え、オーバークラッド層の堆積においても最適化の必要性がある。PECVDでクラッド層を堆積したデバイスのパターン断面をFIB(Focused Ion Beam)で削り出し観察した(Fig.??)ところ、ボイド(気泡)がgap部分に見られた。このボイドがカップリングの際に散乱源となってしまうことが考えられるため、この防止が必要である。具体的な方法としては、クラッド層堆積を複数回に分けて行い、都度RIEエッチングを導入しカバレッジの高い堆積を行う方法が考えられる。

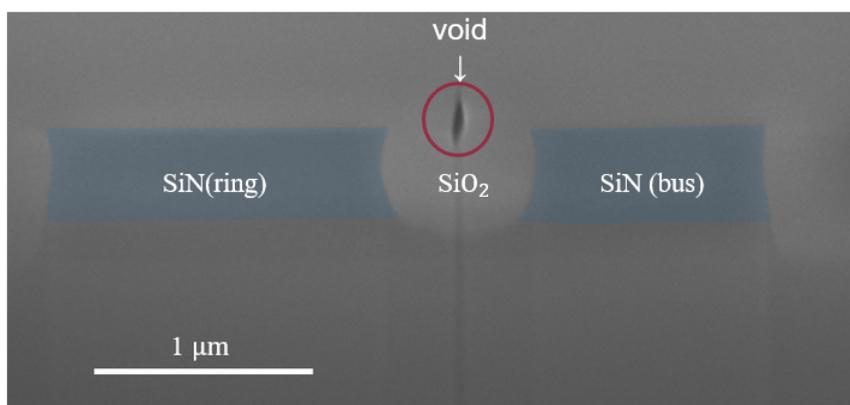


Fig. 3.13. Cross-sectional SEM image near the coupling region.

そして、側壁粗さの低減も Q 値向上において重要になると考える。現在の DE パラメータにおいて作製される導波路の側壁は Fig.3.14. のようになっている。この画像から側壁に凹凸があり、滑らかでないことがわかる。この粗さの低減には DE パラメータのさらなる最適化に加え、 180°C のリン酸 (H_3PO_4) によるウェットエッチングを行い側壁を滑らかにする方法^[7]、 1050°C の H_2O および O_2 中に導波路パターンをさらすことで、側壁を酸化させた後に HF によって導波路表面の酸化膜を取り除き粗さを低減するという方法^[7]を試すことも解決案として考えられる。

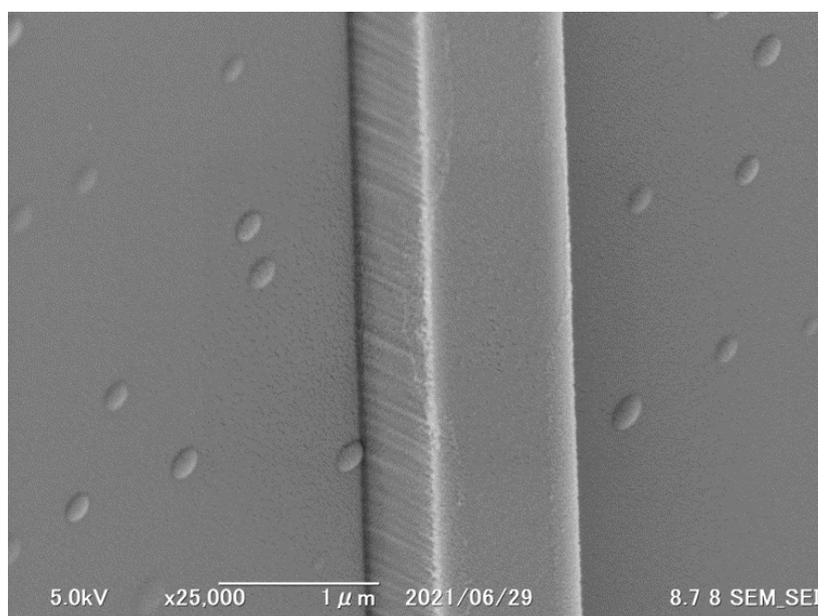


Fig. 3.14. SEM image of SiN waveguide.

第4部

マイクロコムの発生実験

アニーリング処理によって Q 値が 5×10^5 を超えることができたため、3時間アニーリングを行った FSR: 400GHz のマイクロリングを用いてマイクロコムの発生実験を行った。

4.1 共振器分散の測定

3章の結果からアニールによって SiN 膜質が変化してるので、導波路の光の閉じ込め方が変化し正常分散に変化していた場合、マイクロコム発生が難しくなり、より綿密な分散設計が必要となってしまう。そのため、マイクロコム発生の必要条件である異常分散性がアニーリング工程を経ることで保たれるかどうかを測定した。

実験セットアップは Fig.4.1. に示す。波長可変レーザを掃引することにより共振器の共振スペクトルを取得すると同時に、MZI(Mach-Zehnder Interferometer) から周波数 4 MHz の正弦波干渉信号を取得し、この信号を基に共振器の共進周波数間隔を求めるという方法である。

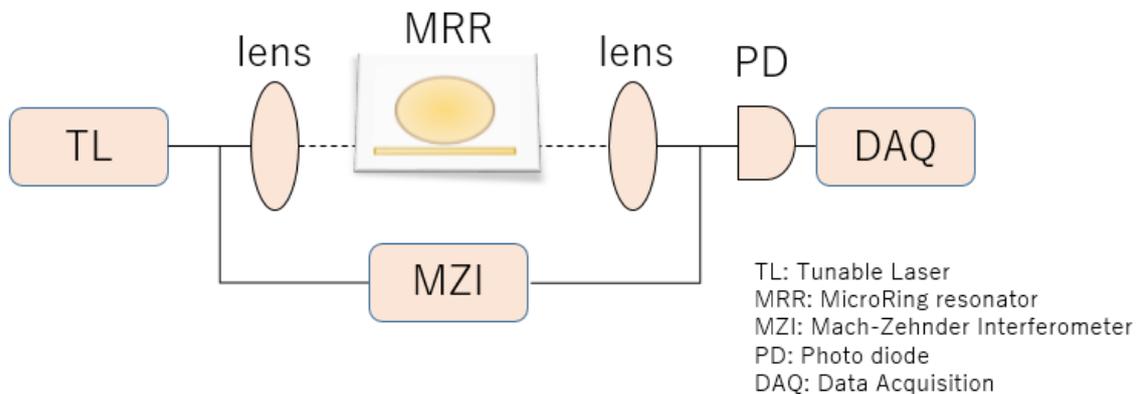


Fig. 4.1. Experimental setup to measure dispersion.

比較のために、アニール処理を行っていないデバイスとクラッド層堆積を SOG を用いて行ったデバイス (SOG 堆積のために 450°C での熱処理を行っている) の分散を 1550 nm を中心として測定した (Fig.4.2.). 分散値はデータ点が多いほど正確に算出できるが、FSR: 400 GHz の共振器ではアニールを行ったデバイス以外十分なデータ点が取れ

なかったため (短波長側の吸収により共振スペクトルが観測できなかった), 便宜上 FSR: 200 GHz の共振器で比較を行った. FSR: 400 GHz の共振器分散は Fig.4.2.(II) に示した.

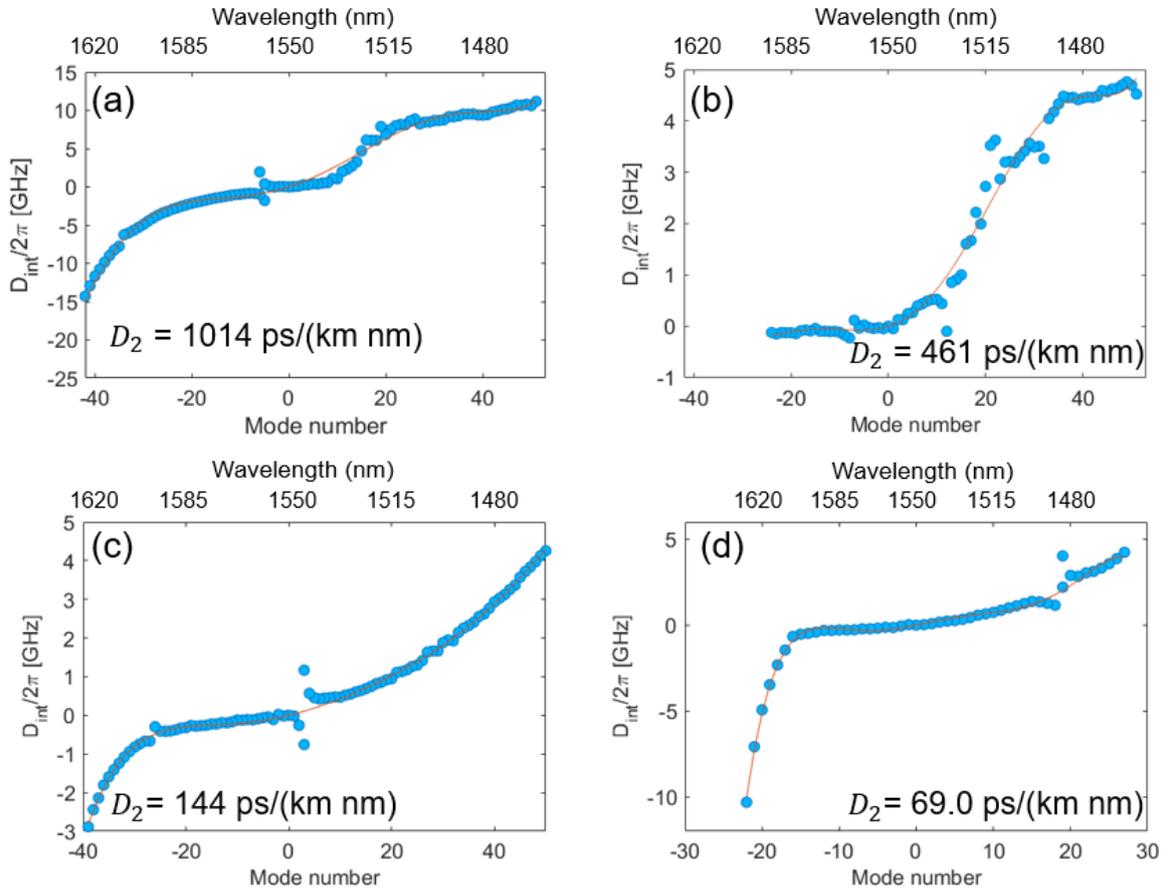


Fig. 4.2. Measured dispersion of a 200 GHz ring (a) without annealing (b) with rapid 450°C annealing (c) with 1050°C annealing. (d) Measured dispersion of a 400 GHz ring with 1050°C annealing. Mode number 0 indicates resonance mode around 1550 nm

(群速度) 分散値はアニールによって膜内の H 基が少なくなるほど, ゼロ分散に近づくことがわかる. この理由としては, 通信波長帯域での (アニーリングを行っていない共振器の) 分散は N-H 基による吸収が引き起こす屈折率の急激な変化が起こるために異常分散性が大きくなっていることが考えられる. アニーリングによって N-H および Si-H 基の吸収が低減されることで吸収による異常分散が低減され, 分散はゼロ分散に近づいたと考えられる.

一方, リング幅 1.7 μm, 厚み 750 nm のとき分散は 80 ps/(km nm) 程度となるという報告があり^[87], 分散値は大きくなっている. この理由としては, 屈折率が増加したことに

より光がより強く閉じ込められるようになり、光の感じる導波路厚が大きくなったことにより（幅に比べて厚さ方向の境界付近の電界強度の方が大きいため、影響は厚さの方が大きいと考える）、異常分散が強くなったと考えられる（導波路厚が大きくなると分散値は大きくなる）。また、別の理由としては、単純に N-H 基がまだ膜内に残留していることが考えられる。

また、アニールを行った FSR: 400 GHz の共振器でも異常分散性が保たれていることがわかった。そのため、この共振器を用いてマイクロコム発生を行った。

4.2 マイクロコム発生

マイクロコム発生の実験セットアップは Fig.4.3.(a) に示した。波長可変レーザを後段の EDFA(Erbium Doped Fiber Amplifier) で増幅し、導波路に入力し、その出力スペクトルを OSA(Optical Spectrum Analyzer) で観察した。このとき、デバイスへ光を入力する際の空間系 (前段レンズとデバイス出力間) の結合効率は 30~40% であった。

また、実験に用いた共振器の共振周波数 (波長) は Fig4.3.(b) に示した。この intrinsic Q 値は 5.3×10^5 であった。

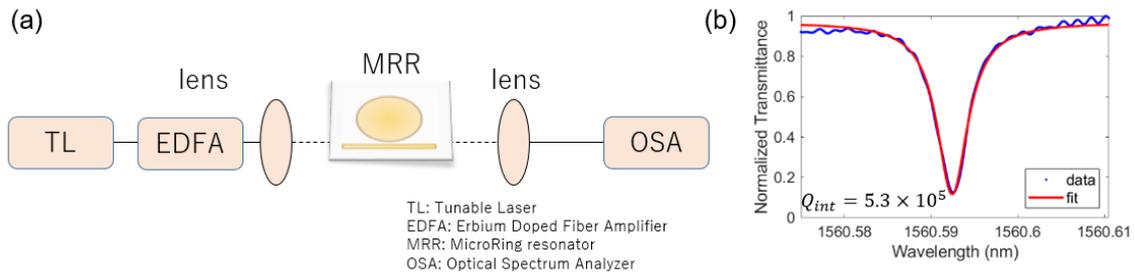


Fig. 4.3. (a) Experimental setup to generate microcomb. (b) Resonance spectrum used to generate microcomb.

マイクロコム発生方法は、Fig4.3.(b) の共振波長に対し、長波長側に入力レーザの波長を掃引していくことで発生させる。マイクロコムはデバイスからの出力 (以下共振器入力と呼ぶ) が 100 mW 程度 (EDFA 出力 330 mW 程) で発生した。その形状は Fig.4.4.(a) に見られる primary コムであった。そこからパワーを上昇させていくと共振器入力が 150 mW 程度 (EDFA 出力 500 mW 程) になると Fig.1.1.(b) のようなチューリングパターンコムと呼ばれる比較的安定で大きなコム間隔を持ったマイクロコムが発生した。さらに共振器入力を上昇させ、200 mW 程度 (EDFA 出力 670 mW 程) で Fig.4.4.(c) のような

MI コムの発生が確認できた．そして共振器入力が 500 mW(EDFA 出力 1.4 W) を超えた付近から Fig.4.4.(d) に見られる，フラットトップで非常に滑らかな MI コムが得られた．

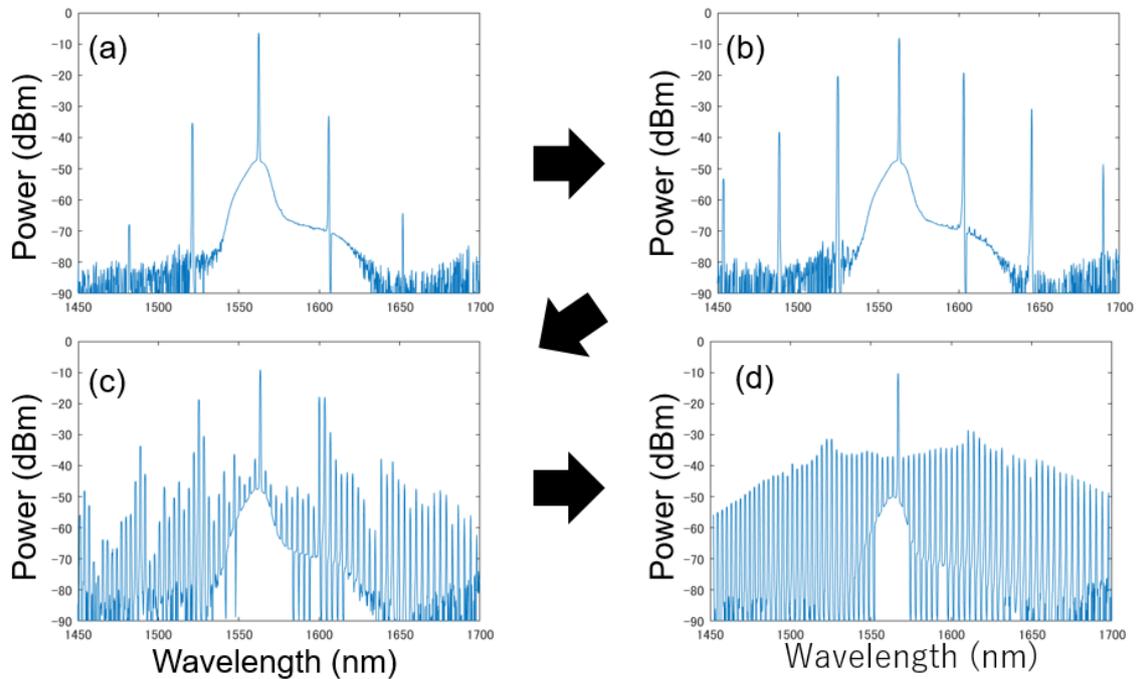


Fig.4.4. Evolution of comb spectra with different pump detuning. From (a) to (d), pump is detuned toward longer wavelength.

4.3 ソリトン発生の可能性

上記のフラットトップな MI コムは，MI コムの最終段階であり，ソリトン発生報告の論文においても観測されているため，ソリトン領域に達する可能性がある．さらに Q 値の比較的低い共振器 ($Q_{\text{load}} \sim 5 \times 10^5$) でもソリトン発生が報告されている^[88]．しかし，本研究で用いる共振器は高パワー (>500 mW) を入力するため，熱シフトが大きく (Fig.4.5.) ソリトン発生が難しい．この熱の問題を克服するために，入力レーザを熱光学効果よりも早く掃引することで，ソリトン領域に達する Fast Scan と呼ばれる方法があるが^[89]，この方法で一度に掃引できる周波数は多くとも 10 GHz 程度であり，今回のように大きな熱シフトを持つ共振器では不十分である．そのため，大きな熱シフトを乗り越えるためには power kicking^[90] と呼ばれる方法を取り入れるとよいと考える．この手法は入力レーザパ

ワーを変調し共振器を一瞬だけ冷却することで、共振周波数を短波長側にシフトさせソリトン領域に達するというものである。

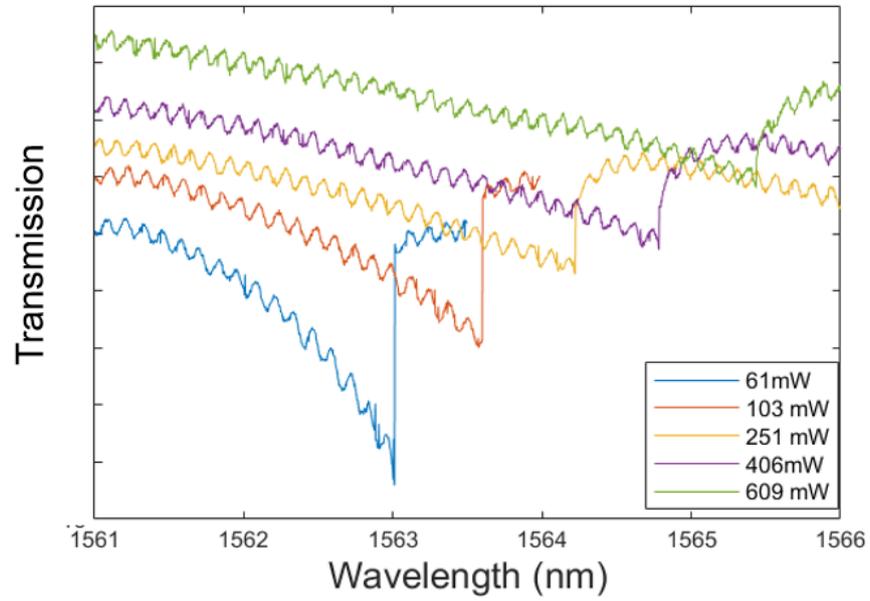


Fig. 4.5. Evolution of comb spectra with different pump detuning. From (a) to (d), pump is detuned toward longer wavelength.

第5部

ヒータ搭載型2次リングフィルタによる2 トーン信号発生

本研究ではソリトン発生が達成できなかったため外部ファウンドリ (Ligentec) で作製されたソリトン発生が可能な SiN デバイスを用いて2トーン信号発生実験を行った。

5.1 使用するデバイスの性能評価

本実験で使用する SiN のチップパターンは Fig.2.8. に示した通りで、ソリトン発生用のリングが FSR: 300 GHz で $Q \sim 1.5 \times 10^6$, フィルタ用リングが 287 GHz となっている。ソリトンコム発生 (2トーン信号発生) のための実験セットアップ, 発生させたソリトンコムのスペクトル, 二次リングフィルタの透過スペクトルを Fig.5.1. に示す。入力光を cs-SSB MZM(carrier suppressed Mach-Zehnder Modulator) で高速に ($\sim 1 \text{ GHz}/\mu\text{s}$) に掃引することで、ソリトンを発生させる。

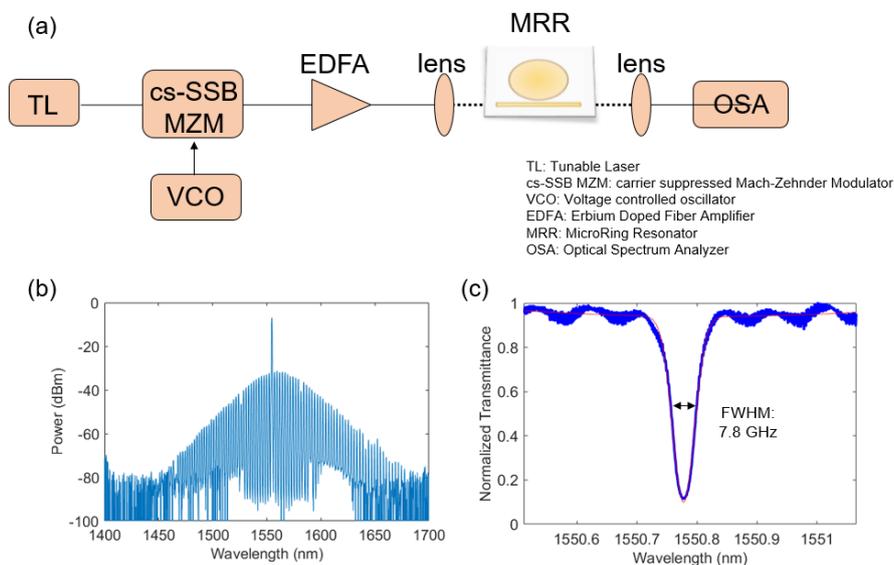


Fig. 5.1. (a) Experimental setup to generate soliton comb and 2 tone signal. (b) Spectrum of generated soliton comb. (c) Transmission spectrum of 2nd order ring filters.

本実験では任意の周波数差を持つ2トーン信号発生のために、リングフィルタを Al(アルミニウム) ヒータに電力を印加することによって熱的に制御する (Fig.2.8.). Al ヒータ

によるフィルタ周波数のチューニング特性は Fig.5.2. のようであった。

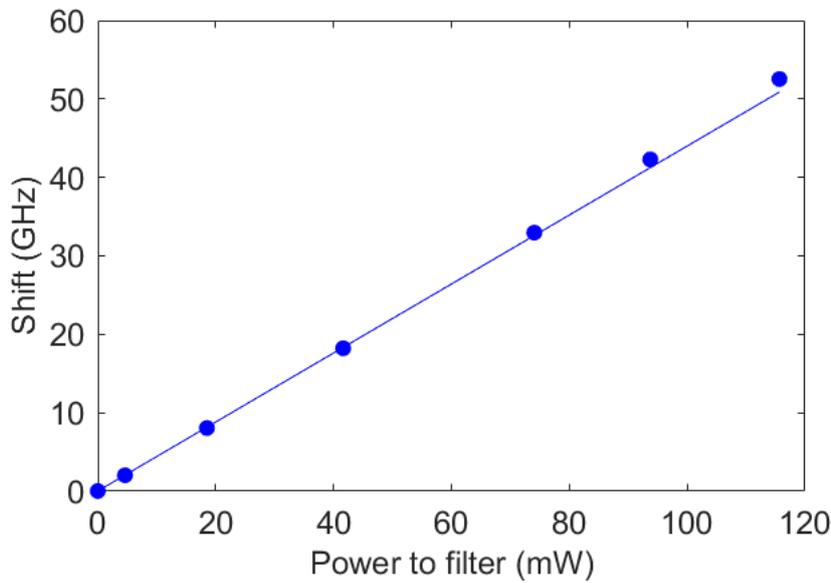


Fig. 5.2. Tuning characteristic of filter frequency using Al heater.

5.2 ヒータによる熱的クロストーク

Fig.5.2. においてヒータによる熱的制御を行っている際にソリトンコム発生リング共振器の共振周波数のシフトが見られた。これはヒータの熱がチップ上で広がり、フィルタだけでなくコム発生用共振器まで加熱してしまっているといえる。周波数差を任意に選択できる2トーン信号発生(周波数再構成可能なテラヘルツ波発生)を目指すにあたり、この熱的なクロストークを想定したモデルを作製することは実験の再現性を取る点で必要となると考え、モデル作製を行った。

シフト量を詳細に測定するために Fig.?? に示したセットアップで実験を行った。この実験は、波長可変レーザーを Fig.2.8. のパターンおよび MZI, C_2H_2 (アセチレン) ガスセルに入力することで、 C_2H_2 ガスの吸収スペクトルを絶対波長基準としてリング共振器の共振波長のシフト量を MZI の干渉信号を用いて測定するというものである。フィルタ 1(前段) とフィルタ 2(後段) いずれにも電力を印加し、二つのフィルタからの熱的なクロストークを測定した。Fig.5.3.(b) はフィルタ 2 への印加電力を固定した際の、フィルタ 1 による熱的クロストークを表している。同様に Fig.5.3.(c) はフィルタ 1 への印加電力を固定した際の、フィルタ 2 による熱的クロストークを表している。

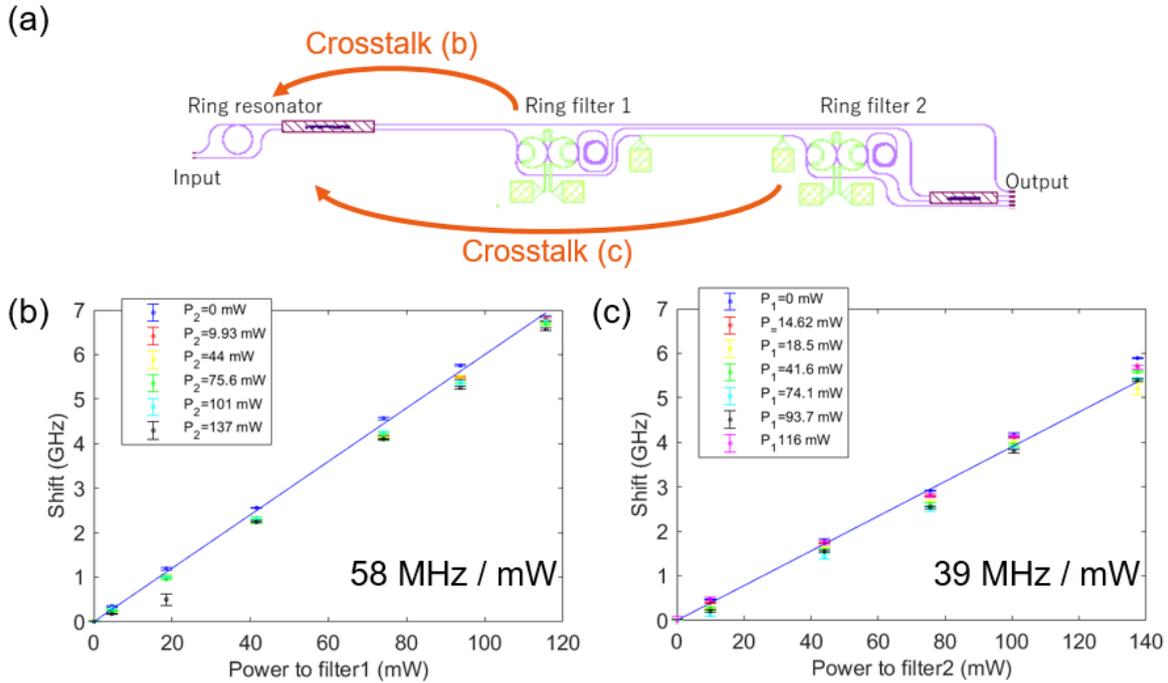


Fig. 5.3. (a) Schematic diagram of chip pattern. (b) Crosstalk shift of ring resonator caused by heater of filter1. (c) Crosstalk shift of ring resonator caused by heater of filter2.

この二つの測定値が線形に近似できたため、両ヒータからのコム発生用リング共振器が受ける熱的クロストークは以下線形モデルであらわされる。 Δf_{comb} はコム発生用リング周波数のシフト量、 P_{filter1} と P_{filter2} はそれぞれフィルタ 1,2 上に搭載したヒータに印加する電力 (mW) を表す。

$$\Delta f_{\text{comb}} [\text{MHz}] = 58P_{\text{filter1}} + 39P_{\text{filter2}} \quad (5.2.1)$$

続いて、フィルタのチューニング特性が他方の熱によってどれほど変化するか検討した (相互クロストーク)。簡単のために $\Delta f_{\text{filter1}} = \alpha P_{\text{filter1}} + \beta P_{\text{filter2}}$ とモデルを仮定した。そこで、フィルタ 2 の電力を固定してフィルタ 1 のチューニング特性を測定した結果から、フィルタ 2 によるオフセットを取り除いた値 (純粋なチューニング特性)(Fig.5.4.(b)) と抽出したオフセット値 (Fig.5.4.(c)) を導出した。 Fig.5.4.(c) を見ると、データの傾き (β 値) は定数となっていない。この傾きをプロットしたものが Fig.5.4.(d) である。

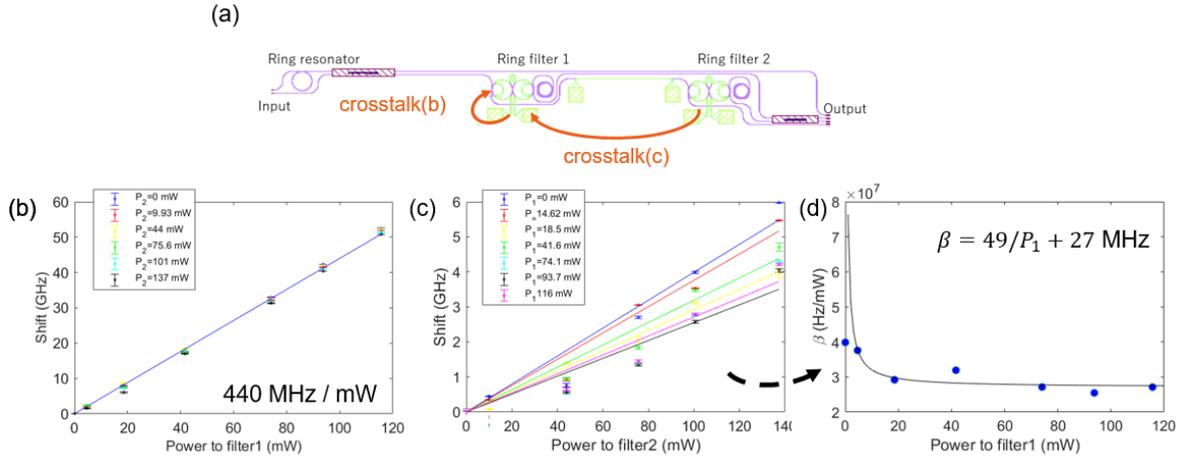


Fig. 5.4. (a) Schematic diagram of chip pattern. (b) Tuning characteristic of filter1 with heat from filter2. (c) Crosstalk shift of filter1 caused by heater of filter2.

Fig.5.4.(d) のプロットに対して $1/x$ 関数の fitting を行っている. この理由は, フーリエの法則から熱伝導によって生じる熱流束 $q \text{ W/m}^2$ は物質内部の温度勾配 K/m に比例するため比例係数 (熱伝導率) を λ とすると以下のような式が成り立つ.

$$q = -\lambda \times dT/dx \quad (5.2.2)$$

そのため, 熱源が二つある場合の温度勾配は Fig.5.5. のようになると考えられる.

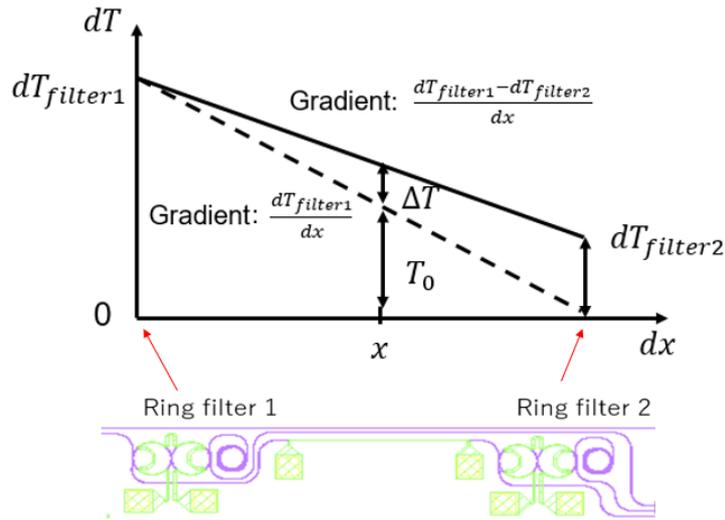


Fig. 5.5. Temperature gradient between filter1 and 2. dT_{filter} indicates temperature increase due to heater integrated on the filter.

すると、ある地点での温度上昇 ΔT は式 5.2.3 のようにあらわされる。

$$\Delta T = (1 - T_0/dT_{\text{filter1}})T_{\text{filter2}} \quad (5.2.3)$$

SiN の熱光学定数は一定であるはずなので、共振周波数の熱シフトは温度変化に比例し、 β が $(1 - T_0/dT_{\text{filter1}})$ と求まるため、 $1/x$ の fitting を行った。

以上を踏まえて任意のコムスペクトルのフィルタリングを行う際の必要電力は、以下のように与えられる。電力印加を行っていない初期状態のフィルタ周波数とリング共振器の共振周波数間の周波数差を $\Delta f_{\text{comb-filter}}$ とする。

$$\Delta f_{\text{comb-filter1,2}} + 58P_1 + 39P_2 = 440P_{1,2} + 49P_{2,1}/P_{1,2} + 27 \quad (5.2.4)$$

実際に周波数差 600 GHz の 2 トーン信号発生を行った。Fig.5.6.(a) の赤矢印はフィルタ 1 で切り取るコムスペクトルの波長，緑矢印はフィルタ 2 で切り取る波長を示している。フィルタ周波数とコムスペクトルの周波数差はそれぞれ 18.3 GHz，4.40 GHz であった。式 5.2.4 から電力は $P_1 \sim 50 \text{ mW}$ ， $P_2 \sim 18 \text{ mW}$ と求まった。

そして、発生させた 2 トーン信号は Fig.5.6.(b) に示す。この際、SBSR(Side Band Suppression Ratio) を 3 つのサイドバンドに対し同様な値にするために入力電力の微調整を行った ($P_1 = 53.3 \text{ mW}$ ， $P_2 = 18.8 \text{ mW}$)。得られた 2 トーン信号の SBSR は 20dB 程を達成した。

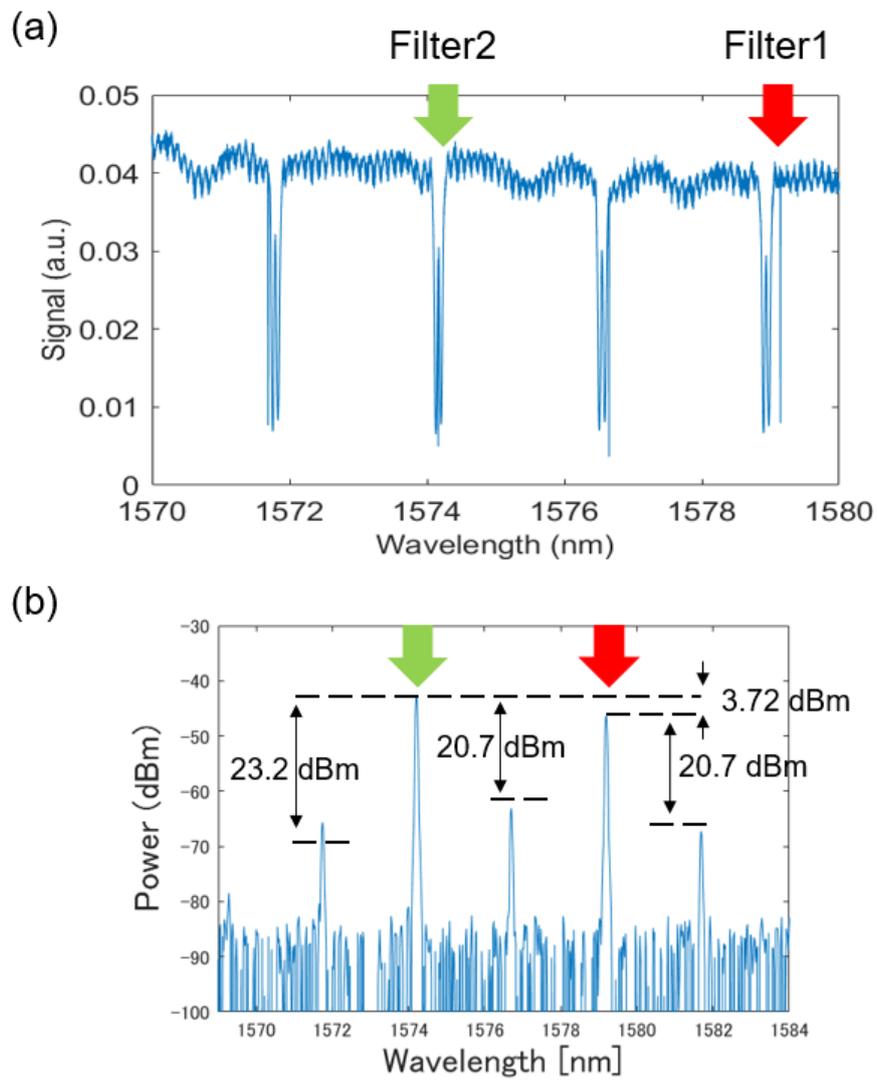


Fig.5.6. Temperature gradient between filter1 and 2. dT_{filter} indicates temperature increase due to heater integrated on the filter.

第 6 部

結論

本研究ではオンチップテラヘルツ波光源に向けた SiN マイクロリング共振器の高 Q 値化および 2 トーン信号発生を目指した実験を行った。

まず前者の高 Q 値共振器作製では、従来プロセスにおける損失源となっていると想定された表面粗さによる散乱・マイクロマスクによる散乱・膜内残留 H 基による吸収に関して低減を目指した取り組みおよび Q 値向上への寄与の検討を行った。

表面散乱は表面研磨 (CMP) を取り入れることで低減でき、 Q 値のリミットを 10 倍以上に上昇させることができたが作製したデバイスの Q 値自体は向上しなかったため、表面散乱以外の損失源が支配的であると結論付けた。

マイクロマスクによる散乱は、酸素プラズマアッシングによる低減・EB 描画時のベースドース量増加による低減の 2 通りの方法で抑制を図った。酸素プラズマアッシングによる低減は、マイクロマスクの減少は見られたがレジストパターンの組成変化により DE にて発生する反応副生成物 (フルオロカーボンポリマー) の量が増加し、損失上昇を引き起こしてしまったことで Q 値が低下してしまった。一方で、EB 描画時のベースドース量増加させる方法では同様にマイクロマスクの低減が見られた。作製した共振器の Q 値は (クラッド層の堆積方法を変化させたことも寄与している可能性もあるが) 向上したため、この方法の効果は期待できるといえる。

上記の取り組みの中で 1520 nm に近い波長域では Q 値の向上が見られなかったため、H 基による吸収が支配的なりミットとなっていると考え DE 後に高温アニーリングを行った。結果、1520 nm に近い Q 値だけでなく 1600 nm での向上も見られたため、アニーリングが Q 値向上に非常に有効な方法であることがわかった。

さらにアニーリングを行った共振器でマイクロコムが発生が観測でき、非常に滑らかな MI コム状態の発生も達成した。

また、2 トーン信号発生実験は作製した共振器ではなく外注の SiN 共振器を用いたが、金属ヒータによってリングフィルタを制御することでオンチップで周波数差が任意に変更可能な 2 トーン信号の発生を実証でき、その SBSR を 20dB 程とすることができた。

今後の展望としては、共振器作製は導波路側壁粗さ低減およびマイクロマスクのさらなる低減が、2 トーン信号はオンチップ上での位相制御が課題として残っている。以上の課題を解決することが 10^6 を超える高 Q 値共振器の作製および低ノイズテラヘルツ波発生が達成につながると考える。

第 7 部

Appendix

A 表面粗さ計算方法

ここでは 3 章にて行った AFM で取得した表面粗さのデータから損失および Q 値を算出する方法について述べる。算出方法は^[91]に報告された方法を用いた。

まず、AFM から直接取得できるデータは表面粗さの rms 値 (二乗平均の平方根) σ である。

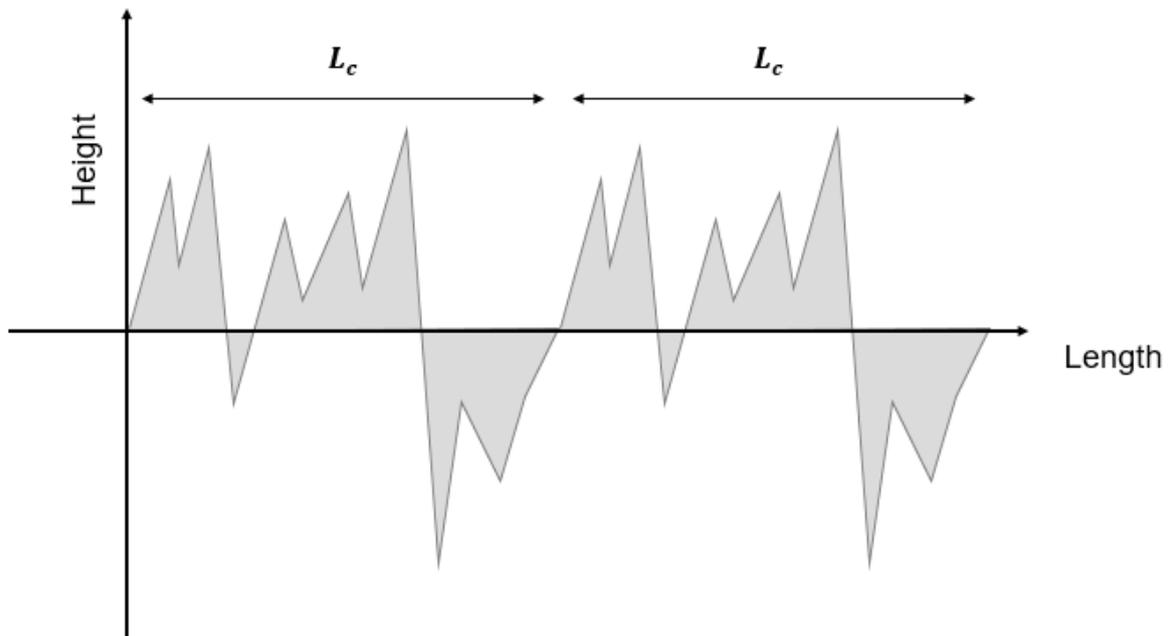


Fig. A.1 Illustration of surface roughness.

続いて粗さの相関長 L_c を求める (相関長とはどれほどの (長さ) 周期で粗さが存在するかというパラメータである (Fig.??)). 相関長を求めるためには測定表面の高さデータの自己相関関数を求めればよい。その関数を Lorentz 関数または Gaussian 関数で fitting する。このとき自己相関関数 $R(u)$ と相関長は以下の式のような関係を持つ。

$$R(u) = \begin{cases} \sigma^2 \exp\left(-\frac{|u|}{L_c}\right) & \text{(Exponential autocorrelation function)} \\ \sigma^2 \exp\left(-\frac{u^2}{L_c^2}\right) & \text{(Gaussian autocorrelation function)} \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

式 A.11 を用いて、相関長 L_c を求める。続いて、rms 値と相関長から導波路損失を求

める。計算に必要なパラメータは以下に示す。

- ・導波路幅: d
- ・コアの屈折率: n_{core}
- ・クラッドの屈折率: n_{clad}
- ・モード伝搬定数: β
- ・自由空間における波数: k_0
- ・表面粗さの rms 値: σ
- ・粗さの相関長: L_c

これらのパラメータで正規化された新たなパラメータ U, V, W および無次元パラメータ Δ, χ, γ を以下の式より求める。

$$U = d\sqrt{n_{\text{core}}^2 k_0^2 - \beta^2} \quad (\text{A.2})$$

$$V = k_0 d \sqrt{n_{\text{core}}^2 - n_{\text{clad}}^2} \quad (\text{A.3})$$

$$W = d\sqrt{\beta^2 - n_{\text{clad}}^2 k_0^2} \quad (\text{A.4})$$

$$\Delta = \frac{n_{\text{core}}^2 - n_{\text{clad}}^2}{2n_{\text{core}}^2} \quad (\text{A.5})$$

$$\chi = W \frac{L_c}{d} \quad (\text{A.6})$$

$$\gamma = \frac{n_{\text{clad}} V}{n_{\text{core}} W \sqrt{\Delta}} \quad (\text{A.7})$$

以上のパラメータを用いて単位長さあたりの減衰係数 α_r を

$$\alpha_r = \frac{\sigma^2}{\sqrt{2} k_0 d^4 n_1} g(V) f_e(\chi, \gamma) \quad (\text{A.8})$$

と表すことができる。ここで

$$g(V) = \frac{U^2 V^2}{(1 + W)} \quad (\text{A.9})$$

$$f_e(\chi, \gamma) = \frac{\chi \left[\left\{ (1 + \chi^2)^2 + 2\gamma^2 \chi^2 \right\}^{1/2} + 1 - \chi^2 \right]^{1/2}}{\left\{ (1 + \chi^2)^2 + 2\gamma^2 \chi^2 \right\}^{1/2}} \quad (\text{A.10})$$

である。共振器 1 周あたりの長さを L とすると、損失 $A(\text{dB}/\text{cm})$ と単位長さあたりの減衰係数の関係は以下の式であらわされる。

$$\alpha_r = \frac{-1}{L} \ln(10^{A/10}) \quad (\text{A.11})$$

ここで intrinsic Q 値は、光子寿命 τ_p および角周波数 ω と以下の関係を持つ。

$$Q_{\text{int}} = \omega\tau_p \quad (\text{A.12})$$

一般に光共振器内の光強度の時間応答 $I(t)$ は以下であらわされる。

$$I(t) = I_0 \exp(-t/\tau_p) \quad (\text{A.13})$$

共振器を 1 周する時間は $t_r = Ln_g/c$ である。ここで I_0 は光強度の初期値 $I(t=0)$ 、 n_g は群屈折率、 c は光速である。周回損失が導波路の伝搬損失だけであれば以下が成り立つ。

$$I(t_r) = I_0 \exp(-Ln_g/c\tau_p) = I_0 \exp(-\alpha_r L) \quad (\text{A.14})$$

この指数の内部を比較すると、 $\tau_p = n_g/c\alpha_r$ が得られる。すると A.12 は

$$Q_{\text{int}} = \omega\tau_p = 2\pi n_g/\lambda\alpha_r = 20\pi n_g/\lambda A \ln(10) \quad (\text{A.15})$$

となる。

B 金属ヒータ搭載プロセス

金属ヒータ搭載プロセスを行ったのでその方法を説明する。

SiN 共振器上にヒータを搭載する際、正確な位置に搭載するには EB 描画の直接描画を行う必要がある (直接描画は基板上のマークを SEM で検出し、正確な位置を決定し描画する方法である。SiN 共振器作製の描画はステージの位置を検出して描画しているが、この描画方法は基板をステージにセットする際のズレによって正確に共振器上にヒータ搭載ができなくなってしまう..)。

直接描画の正確性を検討するために 30 mm 角 Si 基板に対し、以下のフローでウェハマーク (×2)・チップマーク (× 100) のリフトオフを行った。

【ウェハマーク・チップマークのリフトオフフロー】

ポジ型レジスト (Z-EP) 塗布 [500 rpm/ 5s + 2000rpm/30s + 180°C bake/3min]

→ ウェハマーク・チップマーク描画 (Fig.B.2) → 現像 [o-Xelene/45 s + IPA/20 s] →

O_2 プラズマアッシング 10 s → 金属蒸着 [Ti/10 nm + Au/20 nm] (※ Ti は EB 蒸着、

Au は抵抗加熱蒸着) → リフトオフ

今回描画したマークの形状と大きさ，間隔は以下の図の通り．

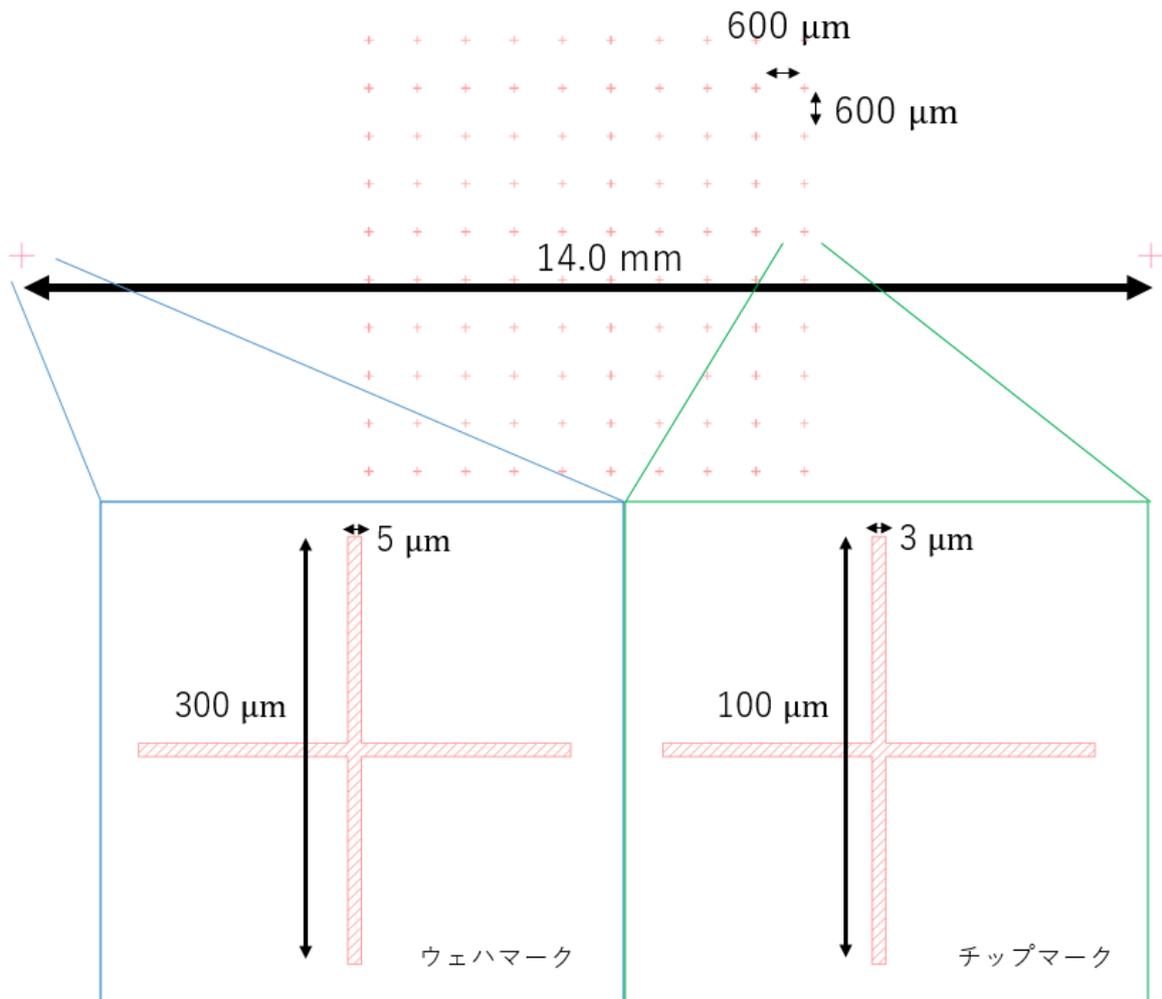


Fig. B.2 Illustration of wafer mark and chip mark.

金属の蒸着は Ti/30 nm でも行ったが，EB リソグラフィー内の SEM では検出できなかった．これは Ti が電気伝導率が比較的低いためである．このマークを検出することで絶対位置の測定を行い正確な描画を行う．チップマークを任意に四つ選び直接描画を行う際，選ぶチップマークの間隔がどれほどまで離れていても正確に描画可能かをチェックするために Fig.B.3 のような「コ」の字マークを描画し，チップマーク間隔ごとのズレの相関を調べた．

【「コ」の字マークのリフトオフフロー】ポジ型レジスト (Z-EP) 塗布 [500 rpm/ 5s + 2000rpm/30s + 180°C bake/3min]

→ 「コ」の字描画現象 (o-Xelene : 45 s paddling + IPA : 20 s) → O₂ プラズマアッシ

ング 10 s → 金属蒸着 [Ti/10 nm + Au/50 nm] (※ Ti は EB 蒸着, Au は抵抗加熱蒸着) → リフトオフ

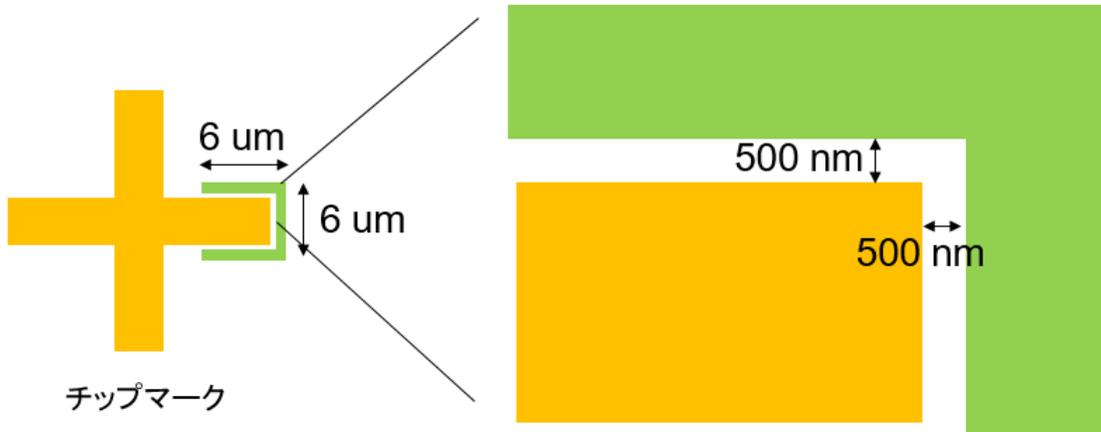


Fig. B.3 Illustration of drawn mark by direct writing.

チップマーク間隔と縦および横方向のズレの値を表にまとめると以下ようになった。
(h_{ij} の意味：縦方向のチップマーク間隔が $600 \times i \mu\text{m}$, 横が $600 \times j \mu\text{m}$)

Table. B.1 Chip mark spacing and values of vertical and horizontal misalignment
Chip mark spacing and values of vertical and horizontal misalignment.

| | h_{11} | h_{13} | h_{15} | h_{17} | h_{33} | h_{35} | h_{55} | h_{57} |
|---------------------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|----------|
| 縦 (μm) | 0.027 | -0.007 | 0 | 0.027 | -0.007 | -0.02 | -0.013 | -0.02 |
| 横 (μm) | -0.04 | -0.047 | -0.034 | -0.06 | -0.044 | -0.04 | -0.053 | -0.054 |

縦横のズレをグラフにしてみると、以下のようになりチップマーク間隔に対し相関はないことがわかる。したがって、このズレは値も数十 nm 程度であることからリフトオフ（現像）において生じた金属蒸着の誤差に由来することが考えられる。

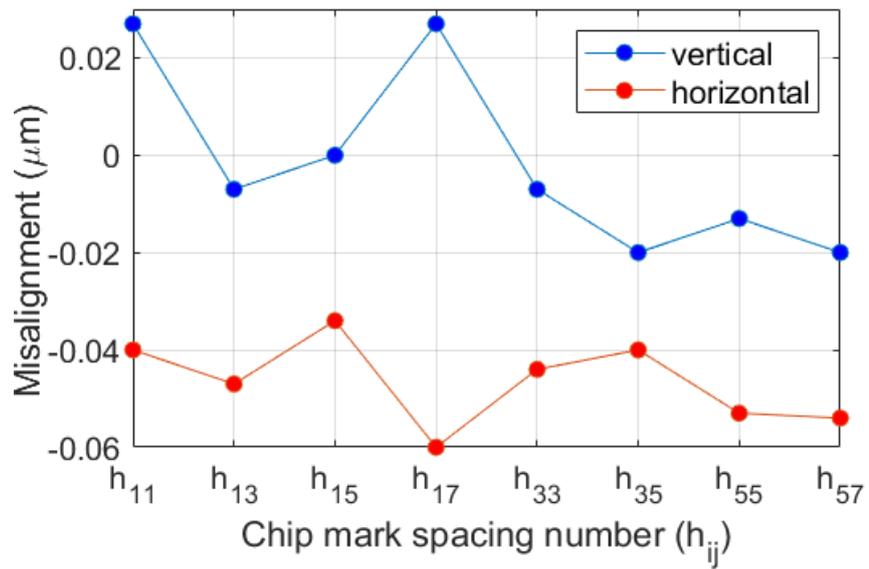


Fig. B.4 Chip mark spacing and values of vertical and horizontal misalignment
 Chip mark spacing and values of vertical and horizontal misalignment.

といえる

以上からヒータ搭載プロセスの実現可能性を示せたといえる。

参考文献

- [1] V. Torres-Company and A. M. Weiner, “Optical frequency comb technology for ultra-broadband radio-frequency photonics,” *Laser & Photonics Reviews* **8**, 368–393 (2014).
- [2] L. Lundberg, M. Mazur, A. Mirani, B. Foo, J. Schröder, V. Torres-Company, M. Karlsson, and P. A. Andrekson, “Phase-coherent lightwave communications with frequency combs,” *Nature Communications* **11**, 201 (2020).
- [3] I. Coddington, N. Newbury, and W. Swann, “Dual-comb spectroscopy,” (2016).
- [4] H. R. Telle, G. Steinmeyer, A. E. Dunlop, J. Stenger, D. H. Sutter, and U. Keller, “Carrier-envelope offset phase control: A novel concept for absolute optical frequency measurement and ultrashort pulse generation,” *Applied Physics B* **69**, 327–332 (1999).
- [5] S. B. Papp, K. Beha, P. Del’Haye, F. Quinlan, H. Lee, K. J. Vahala, and S. A. Diddams, “Microresonator frequency comb optical clock,” *Optica* **1**, 10–14 (2014).
- [6] T. Fortier and E. Baumann, “20 years of developments in optical frequency comb technology and applications,” *Communications Physics* **2**, 153 (2019).
- [7] 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).
- [8] T. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch, “Absolute optical frequency measurement of the cesium d_1 line with a mode-locked laser,” *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3568–3571 (1999).
- [9] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, and S. T. Cundiff, “Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis,” *Science* **288**, 635–639 (2000).
- [10] W. Wang, L. Wang, and W. Zhang, “Advances in soliton microcomb generation,” *Advanced Photonics* **2**, 1 – 27 (2020).
- [11] 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).
- [12] P. Marin-Palomo, J. N. Kemal, M. Karpov, A. Kordts, J. Pfeifle, M. H. P. Pfeif-

- fer, P. Trocha, S. Wolf, V. Brasch, M. H. Anderson, R. Rosenberger, K. Vijayan, W. Freude, T. J. Kippenberg, and C. Koos, “Microresonator-based solitons for massively parallel coherent optical communications,” *Nature* **546**, 274–279 (2017).
- [13] S. Myoung-Gyun and V. K. J., “Soliton microcomb range measurement,” *Science* **359**, 884–887 (2018).
- [14] Y. Qi-Fan, S. Boqiang, W. Heming, T. Minh, Z. Zhewei, Y. K. Youl, W. Lue, B. Chengying, B. John, Y. Amnon, and V. Kerry, “Vernier spectrometer using counterpropagating soliton microcombs,” *Science* **363**, 965–968 (2019).
- [15] 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).
- [16] W. Liang, V. S. Ilchenko, D. Eliyahu, A. A. Savchenkov, A. B. Matsko, D. Seidel, and L. Maleki, “Ultralow noise miniature external cavity semiconductor laser,” *Nature Communications* **6**, 7371 (2015).
- [17] 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).
- [18] S. Zhang, J. M. Silver, X. Shang, L. D. Bino, N. M. Ridler, and P. Del’Haye, “Terahertz wave generation using a soliton microcomb,” *Opt. Express* **27**, 35257–35266 (2019).
- [19] D. K. Armani, T. J. Kippenberg, S. M. Spillane, and K. J. Vahala, “Ultra-high-q toroid microcavity on a chip,” *Nature* **421**, 925–928 (2003).
- [20] Y. Jibo, E. Lewis, G. Farrell, and P. Wang, “Compound glass microsphere resonator devices,” (2018).
- [21] S. B. Papp, P. Del’Haye, and S. A. Diddams, “Mechanical control of a microrod-resonator optical frequency comb,” *Phys. Rev. X* **3**, 031003 (2013).
- [22] W. Liang, A. A. Savchenkov, A. B. Matsko, V. S. Ilchenko, D. Seidel, and L. Maleki, “Generation of near-infrared frequency combs from a mgf2 whispering gallery mode resonator,” *Opt. Lett.* **36**, 2290–2292 (2011).

- [23] G. Liu, V. S. Ilchenko, T. Su, Y.-C. Ling, S. Feng, K. Shang, Y. Zhang, W. Liang, A. A. Savchenkov, A. B. Matsko, L. Maleki, and S. J. B. Yoo, “Low-loss prism-waveguide optical coupling for ultrahigh-q low-index monolithic resonators,” *Optica* **5**, 219–226 (2018).
- [24] J. C. Knight, G. Cheung, F. Jacques, and T. A. Birks, “Phase-matched excitation of whispering-gallery-mode resonances by a fiber taper,” *Opt. Lett.* **22**, 1129–1131 (1997).
- [25] S. Xiao, M. H. Khan, H. Shen, and M. Qi, “Silicon-on-insulator microring add-drop filters with free spectral ranges over 30 nm,” *Journal of Lightwave Technology* **26**, 228–236 (2008).
- [26] F. Gholami, S. Zlatanovic, A. Simic, L. Liu, D. Borlaug, N. Alic, M. P. Nezhad, Y. Fainman, and S. Radic, “Third-order nonlinearity in silicon beyond 2350 nm,” *Applied Physics Letters* **99**, 081102 (2011).
- [27] C. D. Salzberg and J. J. Villa, “Infrared refractive indexes of silicon germanium and modified selenium glass*,” *J. Opt. Soc. Am.* **47**, 244–246 (1957).
- [28] M. M. Milošević, P. S. Matavulj, P. Y. Yang, A. Bagolini, and G. Z. Mashanovich, “Rib waveguides for mid-infrared silicon photonics,” *J. Opt. Soc. Am. B* **26**, 1760–1766 (2009).
- [29] A. G. Griffith, R. K. 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).
- [30] 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).
- [31] B. Little, “A vlsi photonics platform,” in “Optical Fiber Communication Conference,” (Optical Society of America, 2003), p. ThD1.
- [32] B. Little, S. Chu, P. Absil, J. Hryniewicz, F. Johnson, F. Seiferth, D. Gill, V. Van, O. King, and M. Trakalo, “Very high-order microring resonator filters for wdm applications,” *IEEE Photonics Technology Letters* **16**, 2263–2265 (2004).
- [33] D. J. Moss, R. Morandotti, A. L. Gaeta, and M. Lipson, “New cmos-compatible platforms based on silicon nitride and hydrex for nonlinear optics,” *Nature Photonics* **7**, 597–607 (2013).

- [34] A. W. Bruch, X. Liu, X. Guo, J. B. Surya, Z. Gong, L. Zhang, J. Wang, J. Yan, and H. X. Tang, “17 \times 000%/w second-harmonic conversion efficiency in single-crystalline aluminum nitride microresonators,” *Applied Physics Letters* **113**, 131102 (2018).
- [35] X. Liu, Z. Gong, A. W. Bruch, J. B. Surya, J. Lu, and H. X. Tang, “Aluminum nitride nanophotonics for beyond-octave soliton microcomb generation and self-referencing,” *Nature Communications* **12**, 5428 (2021).
- [36] A. W. Bruch, X. Liu, Z. Gong, J. B. Surya, M. Li, C.-L. Zou, and H. X. Tang, “Pockels soliton microcomb,” *Nature Photonics* **15**, 21–27 (2021).
- [37] J. Liu, H. Tian, E. Lucas, A. S. Raja, G. Lihachev, R. N. Wang, J. He, T. Liu, M. H. Anderson, W. Weng, S. A. Bhave, and T. J. Kippenberg, “Monolithic piezoelectric control of soliton microcombs,” *Nature* **583**, 385–390 (2020).
- [38] 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).
- [39] 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).
- [40] Z. Gong, X. Liu, Y. Xu, and H. X. Tang, “Near-octave lithium niobate soliton microcomb,” *Optica* **7**, 1275–1278 (2020).
- [41] G. Poberaj, H. Hu, W. Sohler, and P. Günter, “Lithium niobate on insulator (lnoi) for micro-photonic devices,” *Laser & Photonics Reviews* **6**, 488–503 (2012).
- [42] M. A. Guidry, K. Y. Yang, D. M. Lukin, A. Markosyan, J. Yang, M. M. Fejer, and J. Vučković, “Optical parametric oscillation in silicon carbide nanophotonics,” *Optica* **7**, 1139–1142 (2020).
- [43] D. M. Lukin, C. Dory, M. A. Guidry, K. Y. Yang, S. D. Mishra, R. Trivedi, M. Radulaski, S. Sun, D. Vercauteren, G. H. Ahn, and J. Vučković, “4h-silicon-carbide-on-insulator for integrated quantum and nonlinear photonics,” *Nature Photonics* **14**, 330–334 (2020).
- [44] 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).

- [45] R. Soref, “Mid-infrared photonics in silicon and germanium,” *Nature Photonics* **4**, 495–497 (2010).
- [46] 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).
- [47] 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).
- [48] M. H. P. Pfeiffer, C. Herkommer, J. Liu, H. Guo, M. Karpov, E. Lucas, M. Zervas, and T. J. Kippenberg, “Octave-spanning dissipative kerr soliton frequency combs in si_3n_4 microresonators,” *Optica* **4**, 684–691 (2017).
- [49] 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).
- [50] 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 linbo_3 soliton microcomb,” *Optica* **6**, 1138–1144 (2019).
- [51] D. E. Zelmon, D. L. Small, and D. Jundt, “Infrared corrected sellmeier coefficients for congruently grown lithium niobate and 5 mol. % magnesium oxide-doped lithium niobate,” *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 3319–3322 (1997).
- [52] S. Wang, M. Zhan, G. Wang, H. Xuan, W. Zhang, C. Liu, C. Xu, Y. Liu, Z. Wei, and X. Chen, “4h-sic: a new nonlinear material for midinfrared lasers,” *Laser & Photonics Reviews* **7**, 831–838 (2013).
- [53] X. Ji, S. Roberts, M. Corato-Zanarella, and M. Lipson, “Methods to achieve ultra-high quality factor silicon nitride resonators,” *APL Photonics* **6**, 071101 (2021).
- [54] D. H. Auston, A. M. Johnson, P. R. Smith, and J. C. Bean, “Picosecond optoelectronic detection, sampling, and correlation measurements in amorphous semiconductors,” *Applied Physics Letters* **37**, 371–373 (1980).
- [55] V. M. Zolotarev, R. K. Mamedov, A. N. Bekhterev, and B. Z. Volchek, “Spectral emissivity of a globar lamp in the 2-50- μm region,” *J. Opt. Technol.* **74**, 378–384

- (2007).
- [56] K. Charrada, G. Zissis, and M. Aubes, “Two-temperature, two-dimensional fluid modelling of mercury plasma in high-pressure lamps,” *Journal of Physics D: Applied Physics* **29**, 2432–2438 (1996).
 - [57] M. Mineo and C. Paoloni, “Corrugated rectangular waveguide tunable backward wave oscillator for terahertz applications,” *IEEE Transactions on Electron Devices* **57**, 1481–1484 (2010).
 - [58] Y. Shin, G. Park, G. Scheitrum, and G. Caryotakis, “Circuit analysis of ka-band extended interaction klystron,” in “4th IEEE International Conference on Vacuum Electronics, 2003,” (2003), pp. 108–109.
 - [59] S. Bhattacharjee, J. Booske, C. Kory, D. van der Weide, S. Limbach, S. Gallagher, J. Welter, M. Lopez, R. Gilgenbach, R. Ives, M. Read, R. Divan, and D. Mancini, “Folded waveguide traveling-wave tube sources for terahertz radiation,” *IEEE Transactions on Plasma Science* **32**, 1002–1014 (2004).
 - [60] V. L. Bratman, Y. K. Kalynov, and V. N. Manuilov, “Large-orbit gyrotron operation in the terahertz frequency range,” *Phys. Rev. Lett.* **102**, 245101 (2009).
 - [61] B. A. Knyazev, G. N. Kulipanov, and N. A. Vinokurov, “Novosibirsk terahertz free electron laser: instrumentation development and experimental achievements,” *Measurement Science and Technology* **21**, 054017 (2010).
 - [62] J. M. Byrd, W. P. Leemans, A. Loftsdottir, B. Marcellis, M. C. Martin, W. R. McKinney, F. Sannibale, T. Scarvie, and C. Steier, “Observation of broadband self-amplified spontaneous coherent terahertz synchrotron radiation in a storage ring,” *Phys. Rev. Lett.* **89**, 224801 (2002).
 - [63] J. H. Booske, R. J. Dobbs, C. D. Joye, C. L. Kory, G. R. Neil, G.-S. Park, J. Park, and R. J. Temkin, “Vacuum electronic high power terahertz sources,” *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology* **1**, 54–75 (2011).
 - [64] S. Pérez, T. González, D. Pardo, and J. Mateos, “Terahertz gunn-like oscillations in ingaas/inalas planar diodes,” *Journal of Applied Physics* **103**, 094516 (2008).
 - [65] J. Lusakowski, W. Knap, N. Dyakonova, L. Varani, J. Mateos, T. Gonzalez, Y. Roelens, S. Bollaert, A. Cappy, and K. Karpierz, “Voltage tuneable terahertz emission from a ballistic nanometer ingaas \boxtimes inalas transistor,” *Journal of Applied Physics* **97**, 064307 (2005).
 - [66] A. Maestrini, J. S. Ward, J. J. Gill, C. Lee, B. Thomas, R. H. Lin, G. Chattopad-

- hyay, and I. Mehdi, “A frequency-multiplied source with more than 1 mw of power across the 840 - 900-ghz band,” *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques* **58**, 1925–1932 (2010).
- [67] G. A. Alvarez, T. Puzzer, X. L. Wang, R. A. Lewis, C. Freeth, and S. X. Dou, “Subterahertz josephson plasma emission in layered high-tc superconducting tunnel junctions,” *Journal of Applied Physics* **103**, 07C719 (2008).
- [68] D. H. Auston, “Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon,” *Applied Physics Letters* **26**, 101–103 (1975).
- [69] G. Dodel, “On the history of far-infrared (fir) gas lasers: Thirty-five years of research and application,” *Infrared Physics & Technology* **40**, 127–139 (1999).
- [70] K. A. McIntosh, E. R. Brown, K. B. Nichols, O. B. McMahan, W. F. DiNatale, and T. M. Lyszczarz, “Terahertz photomixing with diode lasers in low - temperature - grown gaas,” *Applied Physics Letters* **67**, 3844–3846 (1995).
- [71] K. Kawase, M. Sato, T. Taniuchi, and H. Ito, “Coherent tunable thz - wave generation from linbo3 with monolithic grating coupler,” *Applied Physics Letters* **68**, 2483–2485 (1996).
- [72] L. Wang, W. Xie, D. V. Thourhout, Y. Zhang, H. Yu, and S. Wang, “Nonlinear silicon nitride waveguides based on a pecvd deposition platform,” *Opt. Express* **26**, 9645–9654 (2018).
- [73] S. C. Mao, S. H. Tao, Y. L. Xu, X. W. Sun, M. B. Yu, G. Q. Lo, and D. L. Kwong, “Low propagation loss sin optical waveguide prepared by optimal low-hydrogen module,” *Opt. Express* **16**, 20809–20816 (2008).
- [74] 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).
- [75] C. J. Krüchel, 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).
- [76] 半田浩一郎, “低温条件下で堆積させた窒化シリコンを用いた低損失微小光共振器の作製に向けた研究,” Master’s thesis, 慶應義塾大学大学院理工学研究科総合デザイン工学専攻 (未公開) (2021).
- [77] M. Gnan, D. S. Macintyre, M. Sorel, R. M. De La Rue, and S. Thoms, “Enhanced

- stitching for the fabrication of photonic structures by electron beam lithography,” *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena* **25**, 2034–2037 (2007).
- [78] 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).
- [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] F. Laermer and A. Schilp, “Method for anisotropic plasma etching of substrates us pat. 5498312 “,” ,” March-12 (1996).
- [81] S. Tachi, K. Tsujimoto, and S. Okudaira, “Low - temperature reactive ion etching and microwave plasma etching of silicon,” *Applied Physics Letters* **52**, 616–618 (1988).
- [82] 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).
- [83] Q. Li, T. C. Briles, D. A. Westly, T. E. Drake, J. R. Stone, B. R. Ilic, S. A. Diddams, S. B. Papp, and K. Srinivasan, “Stably accessing octave-spanning microresonator frequency combs in the soliton regime,” *Optica* **4**, 193–203 (2017).
- [84] F. Xia, M. Rooks, L. Sekaric, and Y. Vlasov, “Ultra-compact high order ring resonator filters using submicron silicon photonic wires for on-chip optical interconnects,” *Opt. Express* **15**, 11934–11941 (2007).
- [85] C. Gatzert, A. W. Blakers, P. N. K. Deenapanray, D. Macdonald, and F. D. Aurret, “Investigation of reactive ion etching of dielectrics and si in CHF_3/O_2 or CHF_3/Ar for photovoltaic applications,” *Journal of Vacuum Science & Technology A* **24**, 1857–1865 (2006).
- [86] X. Ji, S. P. Roberts, and M. Lipson, “High quality factor pecvd Si_3N_4 ring resonators compatible with cmos process,” in “Conference on Lasers and Electro-Optics,” (Optical Society of America, 2019), p. SM2O.6.
- [87] T. J. Kippenberg, R. Holzwarth, and S. A. Diddams, “Microresonator-based optical frequency combs,” *Science* **332**, 555–559 (2011).

- [88] H. Zhou, Y. Geng, W. Cui, S.-W. Huang, Q. Zhou, K. Qiu, and C. Wei Wong, “Soliton bursts and deterministic dissipative kerr soliton generation in auxiliary-assisted microcavities,” *Light: Science & Applications* **8**, 50 (2019).
- [89] N. Kuse, T. C. Briles, S. B. Papp, and M. E. Fermann, “Control of kerr-microresonator optical frequency comb by a dual-parallel mach-zehnder interferometer,” *Opt. Express* **27**, 3873–3883 (2019).
- [90] V. Brasch, M. Geiselmann, M. H. P. Pfeiffer, and T. J. Kippenberg, “Bringing short-lived dissipative kerr soliton states in microresonators into a steady state,” *Opt. Express* **24**, 29312–29320 (2016).
- [91] 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).