平成 20 年度 実績報告

「新機能創成に向けた光・光量子科学技術」 平成17年度採択研究代表者

野田 進

京都大学工学研究科·教授

フォトニック結晶を用いた究極的な光の発生技術の開発

1. 研究実施の概要

フォトニック結晶は、様々な革新的な光制御を可能にする光ナノ構造として、現在、世 界的な関心を集めている。研究代表者は、このフォトニック結晶の分野において、これま で、(i)世界で最も理想的な結晶の開発、(ii)自然放出制御の可能性の実証、(iii)世界最大 のQ値をもつナノ共振器の実現、(iv)大面積コヒーレントレーザの提案・実証など、世界 をリードする様々な成果を挙げてきた。本研究は、光・光量子科学技術分野の重要戦略目 標の1つである「究極的な光の発生技術」を、研究代表者等がこれまで培ってきたフォト ニック結晶技術を用いて開発していくことを狙いとしている。具体的には、(A)2次元フォ トニック結晶による究極的な光の発生技術の開発、(B)3次元フォトニック結晶による究極 的な光の発生技術の開発、(C)大面積コヒーレント動作可能なレーザ技術の開発を3本柱 に設定して研究を進めている。

まず、前年度まで(H17-19年度)の成果を簡単に纏めると以下のようになる。(A)2次元フ <u>オトニック結晶による究極的な光の発生技術の開発</u>においては、(1)量子ナノ構造の導入 によるキャリアの3次元閉じ込め効果により、2次元フォトニックバンドギャップ効果に より期待されるキャリア寿命の増大効果を理論値近く(15~17倍程度)まで到達させ、不 要発光をほぼ除去することに成功するとともに、様々なフォトニックバンドギャップ波長 域をもつ試料を作製し、バンドギャップ波長域と、キャリア寿命増大の関係を系統的に調 ベ、フォトニックバンドギャップ全波長域にて、理想的なキャリア寿命増大効果が現れる ことを実証することに成功した。また、(2)2次元フォトニック結晶に、Q = 3,000~5,000 程度の光ナノ共振器を導入し、0.4 W/cm²という極微小励起レベルから、ナノ共振器モード に基づく明確な発光現象(弱結合状態での発光現象)の観察に成功し、蓄積キャリアの効 果的な再配分効果の実証を行った。さらに、ナノ共振器に存在する量子ドットの数が、 100-200程度以上であるとき、70~80%以上の高い量子効率を示す可能性があることを実験 的に突き止めた。また、ナノ共振器と量子ナノ構造の結合状態が、ナノ共振器のQ値の増 大とともに、弱から強結合へどのように遷移していくかを体系的に明らかにすることにも 成功した。さらに、以上の基礎として、(3)ナノ共振器のQ値の更なる増大にも取り組み、 世界記録をさらに更新し、250万という驚異的な Q 値実現に成功した。さらに、このよう な高い O 値の超高速制御を達成するなどの成果を挙げることが出来た。(B) 3 次元フォト ニック結晶による究極的な光の発生技術の開発に関しては、(1) ウエハボンディング法に よる完全3次元結晶に関し、その積層数を9層から、17層へと増大し、透過率の減衰を-30dB から、-46dBと大幅に増大することに成功するとともに、点欠陥モードの O 値の大幅な増 大を実現した。また、理論面での検討をも併せて行い、積層数、結晶揺らぎ等が、発光制 御に与える影響等、様々な知見を得た。さらに、この結果を踏まえ、高精度多層3次元結 晶実現を目指し、自動位置あわせ法を検討し、30-50 nm 程度以下という極めて高精度なが ら、自動で位置あわせ・ウエハボンディングが可能な装置の開発に成功することが出来た。 (2) 本 CREST では、新たに左右 45°斜めエッチングに基づく結晶作製技術の構築にも鋭意 取り組み、基本設計とともに、2 方向エッチングの可能性を実験的に実証することに成功 した。さらに、上下方向の周期が1~2周期の3次元フォトニック結晶を実際に形成し、理 論計算結果との比較から、確かに 3 次元結晶としての性質をもつことを示すとともに、 -20dBのフォトニックバンドギャップ効果を達成することに成功した。さらに、(3)将来の ナノ共振器の実現に向け、点欠陥共振器の基本設計や、発光層導入の効果などを理論的に 明らかにするなどの成果を挙げた。(C) 大面積コヒーレント動作可能なレーザ技術の開発 においては、(1) ビーム形状を変化させるために、フォトニック結晶中へ、複数の位相シ フトの導入、さらには、格子点形状の様々な制御を行い、単一縦・横モードを維持したま ま、動径方向偏光および接線方向偏光をもつドーナツビーム、2連および4連ドーナツビ ーム、さらには、単一ローブビームを得ることに成功した。(2)また、ユニットセル構造の 制御により、上下方向への光閉じ込め効果が制御され、面発光出力が増大する可能性を示 し、実際に、単一縦横モードで動作する面発光レーザとして世界最大の46 mW (CW)を 達成することに成功した。さらに、ユニットセル構造として、新たに直角3角形が有効で あることを見出し、室温パルス条件で、1 W に迫る出力強度を実現することに成功した。 一方、(3) レーザ特性の詳細な検討を可能とする 2 次元結合理論の構築を目指し、TM 波、 TE 波の両方の偏波に対応する結合方程式の導出を行うとともに、上下方向への光の回折効 果をも考慮した解析法を完成させた。さらに(4)青色フォトニック結晶レーザへの展開のた めに、短波長域フォトニック結晶パターンの形成条件、AROG と名付けた新たなフォトニ ック結晶形成法を確立し、世界で初めて、青紫色領域での電流注入発振に成功した。

本年度(H20年度)は、上記のような成果をさらに発展させ、以下のような成果を得た。(A) 2次元フォトニック結晶による究極的な光の発生技術の開発においては、(1)高Q値ナノ 共振器と、量子ドットとの融合に関する深い検討を行い、両者の相互作用の本質を明らか にすることを目指した。その結果、パーセル効果、ラビ分裂に次ぐ、第3の発光メカニズ ムを見出すことに世界で初めて成功した。これは、量子アンチゼノ効果により、量子ドッ トとナノ共振器に大きな離調があっても、量子ドットからナノ共振器モードへ効率良く、 エネルギー移動が可能であることを示すもので、これまで、謎とされてきた量子ドット・ ナノ共振器系の発光現象を様々に説明できるものとして極めて重要と言える。さらに、(2) 相互作用の基礎与えるナノ共振器のの値のさらなる増大をも目指し、揺らぎの影響や、共 振器表面の詳細な検討を行い、本年度、さらに 300 万を越える Q 値の実現、すなわち、世 界記録の更新に成功した。(B)3次元フォトニック結晶による究極的な光の発生技術の開発 に関しては、(1)発光制御に留まらず、3次元フォトニック結晶分野の新たな展開の基礎を 築くため、3 次元フォトニック結晶における表面モードの存在を実験的に初めて明らかに するとともに、3次元結晶ならではの立体光導波の実現にも成功した。特に、前者の表面 モードの研究は、3次元結晶の新たな応用の道につながることを示す重要な成果と言うこ とが出来る。また、(2)本 CREST にて提案になる左右 45°斜めエッチングに基づく 3次元 結晶作製においては、結晶の特性向上を図るために、プラズマ解析を行なった。自己無撞 着シース解析法を開発し、イオン軌道とエッチング角度分布の導出に成功した。さらに、 この新しい3次元結晶への発光体導入を試みた。発光層としては、極薄量子井戸層を用い た。様々な試行錯誤ののち、3次元結晶表面に、わずか、30 nm という極薄の発光層の導 入に成功し、フォトニック結晶を持たない試料に比べ、40 倍以上の発光強度の増大の観察 に成功した。これは、3次元結晶による効果により、光の3次元結晶への進入をほぼ完全 に遮断することが可能になったことを強く示唆している。(C) 大面積コヒーレント動作可 <u>能なレーザ技術の開発</u>においては、まず、(1)本レーザの特徴である様々なビーム発生に 関して、特に径偏光ドーナツビームの集光特性について深い検討を行った。その結果、ド ーナツビームの内径と外径を調整し、両者の大きさを近づけるにつれ、焦点位置でのビー ムの大きさが大幅に縮小し、かつ焦点距離が伸びることを見出した。これは、ニアフィー ルド光学を始め、様々な応用に向けて極めて重要な成果と言える。また、(2) 本レーザの もう一つの大きな特長である、高出力化を図るため、格子点形状の一層の最適化を目指す と共に、デバイス内部の光帰還作用を利用するという新しい方法を考案し、0.85W/A とい う極めて高いスロープ効率を実現することに成功した。さらに、(3) 昨年度、世界で初め て、青紫色領域での電流注入発振に成功した GaN 系フォトニック結晶レーザに関し、本年 度は、より詳細な評価を行なうとともに、デバイス特性の大幅向上(しきい値の低減)を 目指した。その結果、これまで、65 kA/cm²であったしきい値電流密度を、5.4 kA/cm²と大 幅に低減することに成功した。

以上のような成果は、Nature Photonics 誌を始めとする各種国内外のメディアに取り上げ られるとともに、CLEO、IEEE LEOS、ICEM、GaN International Workshop を始めとする多 く(全部で、10件以上)の国際会議で、基調講演や招待講演を行なうという栄誉を得た。 また、フォトニック結晶レーザに関する成果は、シーテック(エレクトロニクスショウ) での展示をも行い、好評を博した(日経 BP などでも報道された)。さらに、本研究の推進 は、若手研究者の育成にもつながり、2件の応用物理学会奨励賞や、その他を受賞した。 また、2009年4月には、研究代表者が、文部科学大臣表彰を受賞するという栄誉を得た。

今後も、引き続き、上記(A)-(C)の研究課題を3本柱として、フォトニック結晶による究極的な光の発生技術の開発を鋭意進めていきたい。

2. 研究実施内容(文中にある参照番号は 4.(1)に対応する)

前節でも述べたように、本研究は、光・光量子科学技術分野の重要戦略目標の1つである「究極的な光の発生技術」を、研究代表者等がこれまで培ってきたフォトニック結晶技術を用いて開発していくことを目指すものである。具体的には、

(A)2次元フォトニック結晶による究極的な光の発生技術の開発

(B)3次元フォトニック結晶による究極的な光の発生技術の開発

(C)大面積コヒーレント動作可能なレーザ技術の開発

を3本柱に設定して研究を進めている。以下に具体的に、H20年度の研究実績を纏める。

(A) 2 次元フォトニック結晶による究極的な光の発生技術の開発

本研究項目は、2次元フォトニック結晶スラブ(薄板)構造を基本とし、研究代表者等が世 界に先駆け実証したバンドギャップ効果による自然放出制御と、世界最大の閉じ込め効果 をもつナノ共振器の実現をもとに、究極の光の発生技術開発へと展開していくものである。 本研究目の中で挙げていた、

(A-1) バンドギャップ効果による2次元面内への発光抑制と励起キャリアの蓄積¹³⁾、

(A-2) 点欠陥共振器への量子ナノ構造の導入と弱結合状態での発光過程の検討

の2つの課題については、前年度までの研究で、ほぼ完了させることが出来、H20年度は、次に挙げる、(A-3)の課題に主として取り組み、以下のような成果を得た。

(A-3) 高 Q 値点欠陥共振器の実現と量子ナノ構造との融合による弱結合~強結合状態での発光過程の解明・制御:

本項目は、これまでの(A-1)、(A-2)に関する成果を踏まえつつ、ナノ共振器の Q 値を高 めることにより、量子ナノ構造とナノ共振器の相互作用を明らかにし、さらに高度な発 光制御(量子状態の形成を含めて)を目指すものである。ここで、重要なことは、(1)高 Q 値ナノ共振器と量子ナノ構造の融合による光子-電子系の結合状態の体系的な理解、さ らに、(2) これらの研究のベースとなる、ナノ共振器について、如何に高い Q 値を実現 していくかということである。以下、(1)、(2)について、本年度、得られた成果について 述べる。

(1) 高Q値ナノ共振器と量子ナノ構造の融合による光子-電子系の結合状態の体系的な理解

これまで、ナノ共振器と、量子ナノ構造との融合系においては、ナノ共振器の共振波長 と量子ナノ構造の遷移波長がほぼ一致しているとき、弱結合状態においては、"パーセル効 果"が生じ、強結合状態においては、"ラビ分裂"が起こるということが知られていたが、本 年度、両者の波長が大きく離調している時において、<u>第3の発光メカニズム</u>が存在するこ とを見出した^{6,9)}。これは固体系に特有の、発光体(量子ドット)とその周辺物質との相互 作用(弾性的なクーロン散乱やフォノン散乱)に基づく純位相緩和あるいは意図しない観 測が生じることにより、量子ドットからナノ共振器モードへのエネルギー移動が効率的に 生じるというメカニズムである。これは、最近、各所で論争を呼んでいる量子ドット・ナ ノ共振器系の発光現象、すなわち、「量子ドットとナノ共振器に大きな離調があるにもかか わらず、直感に反してナノ共振器から強い発光が起こる」という不可思議な現象の理由を 初めて解き明かしたものであり、極めて重要な成果と言える。また、このメカニズムが発 現するためには上述の純位相緩和に加えて、1)量子ドットとナノ共振器との電磁気的結合 が非常に強く、かつ、2)量子ドットの自然放出が抑制されており、さらに 3)ナノ共振器の *Q*値が高いことが必要であり、そのため、これはフォトニック結晶ナノ共振器だからこそ 生じる効果と言える。一般に、このように観測によって状態の遷移が加速される現象はア ンチゼノ効果と呼ばれるが、今回の発見は「ナノ共振器により強調されたアンチゼノ効果 (Nanocavity-Enhanced Quantum-Anti-Zeno Effect))」とも、名付けることの出来る発光メカ ニズムである。以下、本メカニズムについて、より詳細に説明する。

図1に理論検討に用いたモデルを模式的に示す。光ナノ共振器と2準位電子系が相互作 用しており、散逸過程として2準位電子系が直接自由空間モードに緩和する過程と、光ナ ノ共振器の光子が自由空間モードに緩和する過程

との2つを考慮している。このモデルにおいて、 初期状態を2準位電子系のみが励起されている状 態とし、マスター方程式を用いて系全体の時間発 展と発光スペクトルを計算した。電子系(QD)と光 ナノ共振器(Cavity)のエネルギー差を様々に変え つつ計算した発光スペクトルを図2(a)に示す。同 図からわかるように、電子系と光ナノ共振器のエ ネルギーが一致している場合には、光ナノ共振気 の波長において発光ピークが観測されるが、両者





がずれている場合には光ナノ共振器からの発光は生じないという結果が得られた。

しかし、ここで固体系に特有の現象である、電子系の双極子の位相が周辺の物質(別の 電子やフォノン等)による弾性散乱のために乱されるという過程(純位相緩和過程)を計 算に取り入れたところ、エネルギーにずれがある場合にもナノ共振器からの発光が生じる という計算結果が得られることが分かった(図 2(b))。さらにここでパラメータΥ_{phase}は純位 相緩和過程が生じるレートであり、このレートを増やすほどナノ共振器からの発光が強く なることが分かる(図 2(c))。この結果から純位相緩和が、エネルギー的に一致していない 共振器からの発光を支配する過程であることが明らかとなった。これは前述のアンチゼノ 効果という範疇の物理現象であり、その原理は、本系の場合、純位相緩和によって電子系 のエネルギーが僅かにぼけて広がり、その僅かな裾が共振器のエネルギーと一致すること により電子系とエネルギー的にずれた共振器からの発光が可能になる過程と定性的には説 明できる。しかし、実際に計算結果を見てみると、図 2(b),(c)から分かるように電子系のエ ネルギー広がりが共振器と電子系のエネルギー差に比べて小さく、直感的にはその裾が共 振器のエネルギーにかかっているようには見えない場合においても共振器からの発光が生 じている。さらに詳しい検討の結果、これは光ナノ共振器と量子ドットの融合系ならでは の現象であることが分かった。具体的には、(a)共振器体積が小さいことに起因して電子-光子相互作用が非常に強くなっていること、(b)フォトニック結晶のバンドギャップ効果に

よって電子系が共振器モード以外の光モードと結 合する発光緩和過程が非常に抑制されており、ま た低温の量子ドットでは非発光緩和パスも抑制さ れていること、(c)電子系がナノ共振器を強制振動 させて自由空間モードへ緩和するパスも、共振器 の

の
値
が
高いために
強く
抑制されている
こと、
と いう3つの効果に基づくものである。まず(a)によ って電子系の励起エネルギーが共振器に移るレー トが増強され、また(b)、(c)によって電子系の励起 エネルギーが他の緩和過程を通じて失われるレー トが極端に抑制される。このため電子系のエネル ギーが共振器のエネルギーからずれている場合で も、エネルギー広がりの裾を介して共振器にエネ ルギーが移ってから、そのエネルギーが自由空間 に放出されるという過程が主要なエネルギー緩和 過程となり、その結果共振器のエネルギーにおけ る強い発光が観測されることになる。ここで、エ ネルギー広がりを与える過程が純位相緩和ではな く、エネルギー緩和に付随するものであった場合、 緩和レートの増大に伴って(a)と同時に(b)の過程 も速くなるために、今回のような効果は生じ得な い。よって、エネルギー緩和を伴わない純位相緩 和過程が生じていることが重要である。この結果 は、今後の量子ドットーナノ共振器結合系の研究 に指針を与えるものであり、超高効率発光やナノ 共振器レーザ等の実現においてきわめて有力な技 術となる。また、量子ゲート等の応用を検討して



図 2:2 次元フォトニック結晶ナノ共振器と量 子ドットの融合系の発光スペクトル。(a)純位 相緩和なし、(b)ħ_r_{phase}=33 μeV、(c)ħ_r_{phase}=94 μeV

いく上では、このアンチゼノ効果による緩和過程を考慮することで、今後より精密な制御 が可能になっていくものと考えられる。

(2) 高 Q 値ナノ共振器の進展

本研究では、前年度までの研究に引き続き、以上の基礎となるナノ共振器の<u>Q</u>値増大な ど、その機能を向上させるための検討^{1,5,7,9,11,12}も合わせて行った。具体的には(i)ナノ共 振器の<u>Q</u>値の増大、(ii)ナノ共振器の<u>Q</u>値制御に取り組んだ。

まず、(i)のナノ共振器の Q 値増大^{5,7,12)}に関しては、ナノメートルオーダの孔径の揺ら ぎ、格子間隔の揺らぎが共振器特性に与える影響について、詳細な検討を行った。Q 値や、 共振波長、電磁界分布、さらには、偏光特性などが受ける影響について、FDTD 法にて理 論計算を行い、1 nm 程度の揺らぎが、これらの特性に大きな影響をもつことを示した。ま た、揺らぎのパターンにも大きな影響を受けることを見出した。以上の詳細な検討ととも に、本 CREST にて購入した電子ビーム露光技術をさらに、深化させることにより、前年 度を上回る Q 値 300 万以上を実現し、世界最高記録を更新することに成功した。以下、そ のポイントを説明する。

図3 に構造揺らぎがナノ共振器の特性に与える影響を調べるために用いたモデルを示す。共



図3:構造揺らぎがナノ共振器の特性に与える影響を解析するためのモデル。 (a)基本共振器構造、(b)孔半径揺らぎの模式図、(c)孔位置揺らぎの模式図、(d)誘電率分布の変化の一例。 (位置揺らぎの標準偏差が1nmの場合。)誘電率は空気を0、スラブ材料を1として正規化してある。

振器構造は三角格子状に円孔を配置したSiスラブからなる2次元フォトニック結晶に導入 した線状の欠陥を基本としており、線状欠陥に沿って格子定数を変えることで、中心の格 子定数の大きな領域に光を閉じ込めることができる。計算対象とした構造では格子定数が 410 nm、415 nm、420 nm と3段階に変化しており、空気穴の半径は115 nm、スラブの厚 さは250 nm である。この構造を基本として、乱数ルーチンを用いて空気孔の位置および半 径がランダムに揺らいだナノ共振器構造を設定し、マクスウェル方程式を差分法を用いて数値的 に解いて行くことで、構造揺らぎによって共振器の特性がどのように影響を受けるかを計算した。 特性としては Q 値、共振波長、電磁界分布、および偏光特性を評価したが、ここでは最も 興味深い Q 値と共振波長についての結果を述べる。

まず揺らぎがないとき、この共振器のQ値は約1500万、共振波長は1589.28 nmと計算された。 次に、26 種類の異なる構造揺らぎパターンを用意し、揺らぎの大きさを様々に変化させてQ値と 共振波長を計算し、その依存性を調べた。揺らぎの大きさは孔半径および位置のばらつきの標準 偏差で表すことができ、一般に両者は独立であるが、本計算では孔半径および位置の揺らぎが 同じ加工プロセスで決まることから、両者の標準偏差は同じ大きさをもつと仮定して計算を行った。 図4(a)に構造揺らぎの標準偏差に対する共振器Q値の計算結果を示す。揺らぎのパターンが異 なると得られるQ値は異なるが、どのパターンに対しても揺らぎが増加すると損失が構造揺らぎの 大きさの2乗に比例して増大することが分かった。また、揺らぎの大きさを固定した場合、様々な揺 らぎパターンに対して得られるQ値はばらつきをもつものの、その分布は正規分布的なものとなる ことが分かった。例えば、構造揺らぎの標準偏差が1 nmのとき、Q値のばらつきの平均値は121 万となり、ばらつきの標準偏差内で取り得るQ値は84~212万となる。構造揺らぎがないときの共振 器 Q 値は 1500 万であるので、この結果から1 nm 程度の構造揺らぎであっても共振器特性に大き な影響を与えることが分かった。また、共振波長についての計算結果を図 4(b)に示す。同じ揺らぎ パターンの場合、構造揺らぎの大きさに比例して共振波長がシフトすることが分かる。また、揺らぎ の大きさを固定した場合、揺らぎパターンによって共振波長はばらつく。例えば構造揺らぎの標準 偏差が 1 nm のとき、共振波長のばらつきの標準偏差は 0.73 nm 程度となる。共振スペクトルの線 幅が 0.001 nm 程度であることを考慮すると、共振波長に関しても 1 nm 程度の構造揺らが与える影 響は無視できない大きさであると言える。

この結果を基に、電子ビーム露光装置による共振器パターンの描画方法を向上させて構造揺 らぎをさらに低減させるべく様々な検討を行った結果、前年度を上回る実験Q値を得ることに成功 した。作製された共振器の光損失を評価するために、共振器に光パルスを入力して光子寿命を 測定した結果を図5に示す。同図より、光子寿命2.56 nsが得られていることが分かる。これはQ 値に換算すると310万という非常に高い値であり、昨年度の結果を塗り替えて世界最高記録を更



図4:穴半径および位置の揺らぎの標準偏差に対する(a)Q値および(b)共振波長。26種類の揺らぎパターンに対して計算は行われており、各線は揺らぎパターンを固定して揺らぎの大きさを変化させていることに対応する。揺らぎパターンの違いに対するQ値および共振波長の分布を見たときの平均が赤直線で、標準偏差分の範囲が赤波線で示されている。



図5:最大のQ値が得られたナノ共振器に対する光子寿命測定の結果。(a)共振器の走査型電子顕微鏡 写真。(b)共振器に導入した光パルスの形状、(c)共振器からの放射光の時間変化。光子寿命2.56 ns が観 測されており、これはQ値にして300万に対応する。

新することができた。

一方、(ii)の Q 値制御は、ナノ共振器(量子ナノ構造を内蔵)における光子―電子系の結

合状態を、弱結合から強結合状態へ動的に変化させることや、チップ上に集積された共振 器間の光子のやり取り等の実現に向けて、極めて重要である。昨年度、その基本概念の提 唱と、その実証(Q値のピコ秒の時間スケールでの増大)に成功したが、本年度は、より 詳細な検討を行うと共に、Q値の動的増大と動的減少の2つをピコ秒の時間スケールで同 時に実現することに成功した¹¹⁾。以下、そのポイントを説明する。

まず、我々が提唱する Q 値制御の概念図を図 6 に示す。本システムは、共振器と導波路、ヘテ

ロ界面を利用した完全反射鏡からなる。このシス テムでは、共振器の Q 値は、共振器と導波路と の結合により決まる面内 Q 値(Q_{in})と、共振器と自 由空間との結合により決まる面垂直方向の Q 値 (Q_v)に分けることができる。この系における Q_{in}は、 共振器から導波路右方向へ漏れる光と左方向 へ漏れ、ヘテロ界面を経由して漏れる光の干渉 によって決まるため、共振器とヘテロ界面の間の 屈折率を変化させることにより Q_{in}を動的に変化 させることが可能である。屈折率変化は、スラブ 上方の自由空間から共振器-ヘテロ界面間の導



図6: 共振器 Q 値の動的制御のための系

波路に光パルス(制御光)を照射し、自由キャリアを生成する方法を利用する。共振器全体の Q 値 (Qtotal)は、前述の 2 波の位相差を0、ヘテロ界面がない場合の面内 Q 値を Qin0 として

 $1/Q_{total} = (1 + \cos \theta)/Q_{in0} + 1/Q_{v}$

と表せる。この式より、 θ を 0 から π に変化することで Q_{total} を最小値の $Q_{in0}/2$ から最大値の Q_v まで 変化させることが可能である。また逆に θ を π から 2 π まで変化させることで Q 値を最大値の Q_v から 最小値の $Q_{in0}/2$ まで変化させることが可能である。

本年度は、まずQ値の動的変化(増加)に関して、昨年度の結果を、詳細に分析することから始めた。前述のように共振器のQ値の動的制御には自由空間からの光パルス照射による自由キャリア生成を利用しているが、このパルス光の一部が共振器に直接照射されると、共振器内にトラップされた光が自由キャリアにより吸収され、Q値の最大値が低く抑えられることが判明した。また、実

際、昨年度の実験では、この自由キャリア吸収が起こっていたことが判明した。そこで、動的制御に利用する制御光の照射位置を、より精密に制御し、その結果、 図7に示すようにQ値を3800から22000まで増加させることに成功した。これは昨年度と比較してほぼ2 倍のQ値の動的制御に成功したことを意味する。



図 7: 共振器 Q 値の動的制御の実験結果 (a):動的制御を行った場合 (b):動的制御を 行わない場合。

本年度は、さらに、Q 値を動的に 増加させた後に、新たにもう 1 つの パルスを照射することで、Q 値を動 的に低減させることを試みた。このた め、Q 値増大のための制御光パル ス 1 の照射の後、Q 値低減用の制 御パルス 2 を照射するタイミング、 すなわち両者の時間差Tを様々に 変化させ、共振器から自由空間へ 放射される全光強度を測定した。 図 8 の青点にその結果を示す。両



図8:2 つのパルスの照射時間間隔を変えた場合の共振器からの放射エネルギーの時間積算結果。赤線はFDTD計算結果を表し、青点は実験結果を示す。

制御パルス時間差 T が小さいほど、自由空間へ放射される光の強度が減少することが分か る。これは、制御パルス2により、面内 Q 値(Q_{in})が低減したことにより、共振器から上 下方向への放射過程が停止し、導波路へ急激に光パルスが放射されたことを意味する。図 8 の右側には、FDTD 法により計算した各制御光タイミングにおける共振器内部エネルギ 一の時間変化を示している。また、図の赤線は、上下方向への全出射光強度を FDTD 法で 計算した結果を示す。これらの結果から、実験と理論は非常によく一致しており、共振器 Q 値をピコ秒という超高速で、動的な増加・減少と、それによるナノ共振器への光の捕獲 および解放が確かに達成されたと言える。

(B)3次元フォトニック結晶による究極的な光の発生技術の開発

2 次元結晶における発光制御においては、バンドギャップ効果の存在しない上下方向へのわずかな光の漏れが最終的なボトルネックとなると考えられる。従って、真の意味で、 究極的な光の発生および制御を実現するためには、全方向にバンドギャップをもつ完全 3 次元結晶の活用が不可欠である。本研究項目に於いては、このような 3 次元結晶を用いた 究極的な光の発生/制御技術の開発を進めている。H20 年度の成果は以下の通りである。

(B-1) ストライプ積層型フォトニック結晶による究極的な光の発生 / 制御の検討

フォトニック結晶としては、これまで研究代表者等が取り組んできたストライプ積層型 3 次元結晶構造を基本としている。これまで、幸いにも、世界最大の自然放出抑制効果 (-30dB)の実現に成功するとともに、結晶揺らぎが、発光制御に与える影響について、系 統的に検討し、有限性と揺らぎの関係を明らかにすることに成功している。また、結晶の 層数を大幅に増大させるとともに揺らぎの影響を極力低減することにより完全な発光制御 を実現するため、精密自動化位置合わせ・ウエハボンディング装置の開発をも進めてきた。 H20 年度は、発光制御に留まらず、3 次元フォトニック結晶分野の新たな展開の基礎を築 くことを目指し、3 次元フォトニック結晶における表面モードの存在を実験的に初めて明 らかにすることに成功した。この表面モードの研究は、これまで3 次元フォトニック結晶 においては、その内部における光制御が主であったことを考慮すると、3 次元結晶の新た な応用の道につながることを示す重要な成果と言うことが出来る。また、金属表面におけ るプラズモン効果との類似性の存在など、関連分野の研究にも大きな影響を与える可能性 がある。以下、表面モードの存在を初めて明らかにした成果について、説明する。

まず、ストライプ積層型 3 次元結晶の表面(図 9(a))の電磁界解析を行うことにより、同 図(b)に示すように、表面に局在し、伝搬可能なモードが形成されることが明らかになった。 続いて、実験的に、表面モードの存在を明らかにするため、全反射減衰法を用いて、その 分散特性を測定した。その結果を、図 10 に示す。同図赤線には、解析結果が示されている が、実験と計算は、よく一致することが分かる。



図 9: (a) 3 次元フォトニック結晶表面。(b) 表面伝搬光の解析結果。



図 10:3 次元フォトニック結晶表面におけるバンド構造の実測結果。(a), (b)は、代表的な2方向(Γ-X 方向およびΓ-M 方向)に対する測定結果を示している。挿入図は試料表面の電子顕微鏡写真。

次に、図 11(a), (b)のように、プリズム結合法を用いて、エバネッセント光を、3 次元フ オトニック結晶表面に入射することにより、結晶表面での光伝搬の観察を試みた。その結 果、図 11(c)に示すように、波長 1.35~1.45 µm の光に対して、照射部から右側へと光が 伝播する様子が観察された。この結果は、特定の波長の光のみが表面モードに結合可 能であること、さらに結晶表面内を 100 µm 以上を直線状に伝搬可能であることを、直 接的に示す結果である。以上により、初めて、3 次元フォトニック結晶の表面モード の存在と、表面モードによる光の伝播現象の観測に成功したと言える。



図 11: (a) プリズム結合を利用した 3 次元フォトニック結晶表面へのレーザ光の結合法。(b) フォトニ ック結晶の顕微鏡写真(上方から観察)と結晶方向。(c) レーザ光の照射時の様子。表面モードが形成 される波長近傍(1.35~1.45 µm)においてのみ、光が面内方向に伝搬し、フォトニック結晶の端部で強く 散乱されている。

(B-2) 斜めエッチングによる3次元フォトニック結晶の一括形成とその光学特性

3 次元結晶における上下方向のバンドギャップ効果をさらに強めるためには積層数のさ らなる増大が望まれる。上述のウエハ融着の繰り返しによる作製方法では、積層数および 位置合わせ誤差の蓄積の点から、積層数の増大に限界があると考えられるために、新たな 3 次元結晶の実現方法を検討する必要がある。そのため本研究では左右 2 方向からの斜め エッチングに基づく新たな 3 次元フォトニック結晶作製方法を提案し、その基礎技術の開 発を行っている。その結果、幸いにも、エッチング法のよる 3 次元フォトニック結晶の中 で、世界最大のフォトニックバンドギャップ効果 (1.5 µm 帯域で、20 dB 以上の減衰率と、 >97%の反射率)を実現した。H20 年度は、結晶の特性向上を図るために、斜めエッチング プロセスのプラズマ解析を行なった。自己無撞着シース解析法と名づける計算手法を開発 し、イオン軌道とエッチング角度分布の導出に成功した。これにより、より深く、垂直性 の良い斜め 45° エッチングを行なうための知見を得ることが出来るようになった。以下、 その成果について説明する。

プラズマエッチングにおけるイオンシース長の値は数十 µ m~数十 mm であり、基本的 にシースは半導体ウエハ表面に沿って形成されるため斜めエッチングは不可能である。そ こで本研究では、電界制御板をウエハ上方に設置し、ウエハ表面に形成されるイオンシー スおよびシース電界を直接制御するという独自の技術を用いている。この技術を解析する ために求めるべき情報は、シース端位置、シース内の電荷分布(イオン軌道)、シース内の 電位分布、の3つであるが、これらの間には相互依存関係が存在するため、量子力学の第 一原理計算等で使用される自己無撞着法を適用することによって解を導出することが可能 となる。解析結果を図 12 に示す。図 12 (a)の電荷分布に示すとおり、電界制御板の周囲を



図12:斜めエッチング技術の解析結果。(a)電荷分布。(b)電位分布。(c)イオン軌道。(d)エッチング角度。

取り囲むようにして正電荷層、すなわちイオンシースが形成され、同図(b)に示すようにシ ース中では急激に電位が変動して加速電界が発生する。同図(c)はこのシース電界によって 加速されたイオンの軌道をプロットしたものであり、おおよそ 45 度の角度で制御板中に入 射していく様子がわかる。同図(d)は、同図(c)で定義した位置 x を横軸としてエッチング角 度をプロットしたものであり、実験結果を定量的に説明することに成功した。このように、 自己無撞着イオンシース解析法によって、電界制御板の効果を効率的にシミュレートする ことが可能となった。今後は計算機上での幅広い検討と深い物理的洞察により、斜めエッ チング技術のさらなる向上が期待される。

さらに、本年度はいよいよ、結晶への発光体導入を試みた。発光層としては、前年度検 討を行った極薄量子井戸層を用いた。これは、3 次元 Si フォトニック結晶と、III-V 族半導 体量子井戸の融合という意味でも非常に興味深いと言える。様々な試行錯誤ののち、3 次 元結晶表面に、わずか、30 nm という極薄の発光層の導入に成功し、フォトニック結晶を 持たない試料に比べ、40 倍以上の発光強度の増大の観察に成功した。これは、3 次元結晶 による効果により、光の3 次元結晶への進入をほぼ完全に遮断することが可能になったこ とを強く示唆している。以下、発光層導入の成果について説明する。

3 次元 Si フォトニック結晶と III-V 族半導体量子井戸の融合には、本研究で以前より開 発を続けているウエハボンディング法を用い、Si 系でのプロセス開発に取り組んだ。異種 材料同士のボンディングであるため、熱膨張係数差に起因したウエハの剥離が大きな問題 となる。そこで、以前本研究室で開発された GaAs と InP のウエハボンディング技術をヒ ントに、段階的に温度を上昇させながら加熱処理と基板薄膜化を繰り返すサイクルプロセ スを考案した。その結果、図 13 に示すように、Si ウエハ表面に厚さ 30 nm の InGaAsP 単 一量子井戸をボンディングし、さらにその量子井戸層のみを残して基板を除去することに

成功した。30 nm という驚異的な薄さのため、 一連のプロセスによる光学特性の劣化が懸念されたが、フォトルミネッセンス測定による評価 を行ったところ、図 14 に示すように、量子井戸 としての発光特性は保ったまま、3 次元フォト ニック結晶の存在する領域では無い場合に比べ て約 40 倍の発光強度増大が観測された。この結 果は4 K の冷却測定時のものであるが、室温に おいても同様の発光強度の増大が得られた。こ れらは、3 次元結晶のフォトニックバンドギャ ップにより、基板方向への無駄な放射が禁止な



図 13:Si 基板上にボンディングされた InGaAsP 単一量子井戸層(厚さ 30 nm)の電子顕微鏡像 俯瞰図。



図14:フォトルミネッセンス測定結果。(a)試料の模式図。(b)量子井戸のフォトルミネッセンス スペクトル(4K時)。

った結果であると考えられる。なお、この効果は、例えば、LED 等、不要な輻射が損失原因となっている発光素子で大幅な効率向上にも適用することが可能と考えられる。

(C) 大面積コヒーレント動作可能なレーザ技術の開発

本レーザは、2 次元フォトニックバンドギャップ端での定在波状態を共振器として利用 するという研究代表者独自のアイデア(2001 年 Science)に基づくものである。これまでの研 究で、この定在波状態を用いて、大面積での単一縦横モードでの室温連続発振に成功して いる。現在の重要な課題としては、出射ビームパターンの制御、高出力動作の実証、波長 範囲の拡大、さらにデバイス理論の確立などが挙げられ、これらを本研究にて深く検討し ていく。H20 年度の成果は以下の通りである。

(C-1) 出射ビームパターン制御

これまでの研究により、フォトニック結晶レーザによって、フォトニック結晶の構造を 様々に変化させることにより、ドーナツから、円形に至る様々なビームが得られることを 示してきた。本年度は、特に径偏光ドーナツビームの集光特性について、そのビームの特 徴を明らかにするべく、理論、実験面から検討を進めた^{3,4)}。そのために、ナイフエッジを 内蔵した受光デバイスを内作し、高 NA レンズでの焦点位置でのビーム特性を調べる新た な測定システムを立ち上げるところから始めた。以上により、ドーナツビームの内径と外 径を調整し、両者の大きさを近づけるにつれ、焦点位置でのビームの大きさが大幅に縮小 し、かつ焦点距離が伸びることを見出した。これは、ニアフィールド光学を始め、様々な 応用に向けて極めて重要な成果と言える。以下、その成果について説明する。

図 15(a)(b)には、ドーナツビームの外径に対する内径の比(rout:rm)が 10:2、および 10:8 の 場合の集光特性の実験結果を示している。同図より、内径を外径に近づけることにより、 集光点の大きさが大幅に減少することが分かる。これは、径偏光ドーナツビームの特長で ある光軸方向の成分(図 15 中の赤矢印)が、内径を外径に近づけることで、強調されるため と考えられる。さらに、同図から、焦点深度についても興味深い振る舞いが得られている ことが分かる。図 15(a)では、焦点から前後 1.0 μ m離れると光強度分布が大幅に変化する のに対して、図 15(b)では、焦点とほぼ等しい強度分布を示すことが分かる。この結果は、 内径を外径に近づけることにより、焦点深度が伸びうることを示すものである。図 16(a)、 (b)に内径、外径比 10:2 および 10:9 の理論解析結果を示す。同図から明らかなように、内 径を外径に近づけることによって、確かに焦点深度が伸びることが分かる。図には示して いないが、図 16(b)の場合には、焦点深度は波長の 10 倍程度まで伸びることが判明した。 このような、集光点の大きさが極めて小さく、かつ長い焦点深度は、様々な光学システム、 例えば、高集積度の光メモリや超高分解能な光学顕微鏡などへの応用上、非常に有効な特 長と言える。



図 15: 高 NA レンズでの集光の概念図と焦点での光強度分布の測定結果。 (a) r_{out}:r_{in}=10:2 の場合。(b) r_{out}:r_{in}=10:8 の場合



図 17: 数値解析による集光点での光強度分布。 (a) r_{out}:r_{in}=10:2 の場合、(b) r_{out}:r_{in}=10:9 の場合。内径が外径にほぼ等しい場合(b)、小さく焦点深度の長い焦点が形成される。

(C-2) 高出力動作への展開

さらに、本レーザの特長は、大面積でコヒーレント発振が出来ることにあり、高出力動作 が期待出来る。これまで、CW状態では、42 mW、パルス状態では、1 W に迫る 700 mW までの単一縦横モード動作を実現している。本年度は、さらなる高出力化を目指し、格子 点形状の一層の最適化を目指すと共に²⁾、デバイス内部の光帰還作用を利用するという新 しい方法を考案し、85 W/A という極めて高いスロープ効率を実現することに成功した。



図18:(a) フォトニック結晶レーザの構造。(b)DBR を加えたデバイスの断面構造

図 18(a)に、本レーザのデバイス構造を示す。フォトニック結晶により、2 次元的に発振したレー ザ光は、結晶面に対して上下方向へ回折され、出力光となる。デバイス下方に回折された光を上 方へ反射させ、さらに双方の光の位相差を調整することで出力効率の向上が期待されるが、本年 度は、こうした光帰還作用を、より積極的に利用するため、p 側クラッド層下部に分布帰還型ミラー 構造(DBR)を導入した(図 18(b))。p 側クラッド層の厚みを調整することにより、上下方向へ回折さ れた光の位相差を制御できる。p 側クラッド層の厚みを変化させた複数のサンプルの外部微分量 子効率を、図 19(a)に示す。外部微分量子効率は、波長の半分の長さに対応する周期(約 150 nm 程度)で大きく変動することが分かる。図 19(b)に作製したデバイスの電流-光出力特性を示 す。図より明らかなように、0.85 W/A 以上という極めて高い外部微分量子効率を得ることに成功 した。今後は、面積の拡大をも行うことで、極限的に高出力な単一モード半導体レーザが 実現可能であると考えられる。



図 19: (a) p クラッド層厚に対する外部微分量子効率。(b) DBR を加えた p 側クラッド層厚が、1060 nm の デバイスの電流-光出力特性。

(C-3)2次元結合波理論の確立

上記の高出力化を始め、様々なデバイス特性を設計する上で、本研究において、平面波 展開法や FDTD 法に代わって、レーザ物理を良く反映し、より使いやすい解析法を得るた め、2 次元結合波モデルによる解析法を確立してきた。前年度までの研究で、TM および TE 両偏波に対する結合波理論の構築に成功し、面発光の効果をも取り込めるようになった。 <u>H20 年度</u>は、さらに、これまで考慮してこなかった、より高次の回折効果の導入などを行 い、さらに厳密な解析法へと発展させるとともに、実際に、新たな設計へと適用を行なっ た¹²⁾。具体的には、効率向上に関わるデバイス上部への回折効果を、これまでの2倍以上 に増大させることの可能な新しい構造を考案した。以下、デバイス上部への回折効果を取 り込んだ、計算結果について、述べる。



図 20: (a) 従来の構造 (b) 半周期離れた格子点の上部と下部の光は打ち消しあう。(c) 新たな構造。(d) 格子点深さに対する放射係数。従来の構造に比べて、新たな構造では、2倍以上の回折効率が得られる。

図 20(a)に、従来の構造におけるフォトニック結晶の断面図を示す。活性層に平行な方向

に共振したレーザ光は、結晶格子点で上下方向へ回折される。この際、格子点の上部と下 部で回折される光の間には位相差が生じ、互いの位相が半周期ずれる場合には打ち消し合 いの干渉のため (図 20(b))、回折効果が大幅に低下する。これに対して、今回、結合波理 論に基づき検討を行った結果、図 20(c)に示す新たな構造が、回折効果の向上へ非常に有効 であることを見出した。本構造では、結晶格子点の上部を下部に対して半周期ずらすこと により、上部および下部より回折される光の位相を等しくすることが可能となる。図 20(d) にデバイス上下方向への回折効率(放射係数)を示す。実線で示す従来の構造に対し、点線 で示す新たな構造は、2 倍以上の回折効率を有することが分かる。ここで提案する新たな 構造に加え(C-2)で述べたデバイス内部の光帰還作用や、およびこれまで報告している格子 点形状の非対称性を組み合わせることで、さらなる効率の向上が期待できる。

(C-4) 青紫色レーザ等への展開

フォトニック結晶面発光レーザの発振波長を青紫色域まで、短波長化することが出来る と、その応用可能性は、格段に広がるものと期待される。例えば、次々世代の高密度光デ ィスク用光源や、極微小物質の観測・操作用光源として活躍出来るものと期待される。ま た、単一縦横モードで、かつ偏光まで制御した大出力青紫面発光レーザとして動作が期待 され、かつ2次元的にアレイ化することも可能となる。つまり、情報記憶、処理、加工、 ナノバイオ等を始めとする様々な分野における新しいキー光源としての展開が期待される。 前年度、GaNフォトニック結晶形成のために、新たに、AROG(Air-hole retained overgrowth) と命名した形成法を開発し、本原理に基づくGaNフォトニック結晶面発光レーザの電流注 入による発振に世界で初めて成功した。本年度は、前年度実現したデバイスの詳細な評価 を行なうとともに、デバイス特性の大幅向上(しきい値の低減)を目指した。その結果、 これまで、65 kA/cm²であったしきい値電流密度を、5.4 kA/cm²と大幅に低減することに成 功した。本 GaN 系フォトニック結晶面発光レーザの研究も、世界的に大きな関心を集め、 GaN 国際会議、CLEO、IEEE LEOS など多くの国際会議で、Plenary 講演や招待講演を行な うという栄誉を得た。その他、英国科学誌 Nature Photonics や、Optics Org、SPIE Press room などで、大きく取り上げられた。

3. 研究実施体制

(1)「総合研究推進グループ(京大+ローム+住友電工+三菱)」

①研究分担グループ長:野田 進(京都大学、教授)
 ②研究項目

京都大学が全研究項目に責任をもって研究を推進している。ロームと住友電工は、研 究項目(C)、すなわち、大面積コヒーレント動作可能なレーザ技術の開発に関与してい る。特に、ロームは、2 次元フォトニック結晶レーザにおけるビームパターンの制御 や,高出力化に関する項目に関与し、住友電工は、2 次元フォトニック結晶レーザの GaN/InGaN 系への展開に関与している。一方、三菱電機は、研究項目(A)、すなわち 2 次元フォトニック結晶による究極的な光の発生技術の開発に関与した。3 社とも、京 都大学へ来て、大学設置の装置を使用して、研究を進めている。

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表(原著論文)

- B. S. Song, T. Nagasima, T. Asano, and S. Noda: "Resonant-wavelength control of nanocavities by nanometer-scaled adjustment of two-dimensional photonic crystal slab structures", IEEE Photonic Technology Letters, vol.20, no.7, pp.532-534 (2008).
- 2. K. Sakai, L. Yue, S. Noda: "Coupled-wave model for triangular-lattice photonic crystal with transverse electric polarization", Optics Express, Vol.16, No.9, pp.6033-6040 (2008).
- E. Miyai, K. Sakai, T. Okano, W. Kunishi, D. Ohnishi, and S. Noda: "Linearly-Polarized Single-Lobed Beam in a Surface-Emitting Photonic-Crystal Laser", Applied Physics Express, vol.1, no.6, pp.62002-1-62002-3 (2008).
- 4. 宮井英次、野田進: "フォトニック結晶面発光レーザ", 電気学会論文誌 C, Vol.128, No.5 (2008).
- 5. Y. Tanaka, T. Asano, and S. Noda: "Design of photonic crystal nanocavity with Q- favtor of $\sim 10^9$ ", Journal of Lightwave Technology, vol.26, no.11, pp.1532-1539 (2008).
- M. Yamaguchi, T. Asano, M. Fujita, and S. Noda: "Theoretical analysis of light emission from a coupled system of a photonic nanocavity and a quantum dot", Physica Status Solidi c, vol.5, no.9, pp.2828-2830 (2008).
- Y. Takahashi, Y. Tanaka, H. Hagino, T. Asano, and S. Noda: "Higher-order resonant modes in a photonic heterostructure nanocavity", Applied Physics Letters, vol.92, no.241910, pp.1-3 (2008).
- M. Fujita, Y. Tanaka, and S. Noda: "Light emission from silicon in photonic crystal nanocavity", IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, vol.14, no.4, pp.1090-1097 (2008).
- M. Yamaguchi, T. Asano, and S. Noda: "Photon emission by nanocavity-enhanced quantum anti-Zeno effect in solid-state cavity quantum-electrodynamics", Optics Express, Vol.16, No.22, pp.18067-18081 (2008).
- Y. Kurosaka, K. Sakai, E. Miyai and S. Noda: "Controlling vertical optical confinement in two-dimensional surface-emitting photonic-crystal lasers by shape of air holes", Optics Express, Vol.16, No.22, pp.18485-18494 (2008).
- J. Upham, Y. Tanaka, T. Asano, and S. Noda: "Dynamic increase and decrease of photonic crystal nanocavity Q factors for optical pulse control", Optics Express, Vol.16, No.26, pp.21721-21730 (2008).
- H. Hagino, Y. Takahashi, Y. Tanaka, T. Asano, and S. Noda: "Effects of fluctuation in air hole radii and positions on optical characteristics in photonic crystal heterostructure nanocavities", Physical Review B, Vol. 79, pp.085112-1-085112-8 (2009).
- 13. S. Noda and M. Fujita: "Photonic crystal efficiency boost", Nature Photonics, Vol.3, No.3,

pp.129-130 (2009).

(2) 特許出願

平成 20 年度 国内特許出願件数:4件(CREST 研究期間累積件数:19件)