フォトニック結晶ナノ共振器ラマンシリコンレーザー

高橋 和¹, 乾 善貴², 浅野 卓², 野田 進²

¹大阪府立大学 21世紀科学研究機構 (〒599-8570 大阪府堺市中区学園町1-2)

²京都大学 工学研究科 (〒615-8510 京都府京都市西京区京都大学桂)

Raman Silicon Laser Using a Photonic Crystal Nanocavity

Yasushi TAKAHASHI,¹ Yoshitaka INUI,² Takashi ASANO,² and Susumu NODA²

¹Osaka Prefecture University, 1-2 Gakuencho, Nakaku, Sakai, Osaka 599-8570

²Kyoto University, Kyotodaigakukatsura, Nishikyoku, Kyoto 615-8510

(Received November 6, 2013)

Continuous-wave Raman lasing in the silicon rib waveguide was presented in 2005 as the long-awaited silicon laser. However, the required miniaturization to micrometer dimensions and reduction of the threshold to microwatt energies had not advanced sufficiently since the initial discovery. Such lasers have remained limited to cm-sized cavities with thresholds higher than 20 mW, even with the assistance of reverse-biased p-i-n diodes. In this paper, we have report a continuous-wave Raman silicon laser using a photonic-crystal high-quality (Q) factor nanocavity without any p-i-n diode, which yield a device with a cavity size of less than 10 micrometers and an ultralow threshold of 1 μ W. We contrived a unique design of the high- Q nanocavity to bring out the tremendous potential derived from the simple principle that light-matter interactions are proportional to the ratio of Q and the volume of the cavity. Our demonstration represents a milestone in solid-state optics and may pave the way to the construction of practical silicon lasers and amplifiers for large-scale-integration in photonic circuits.

Key Words: Silicon laser, Raman scattering, Photonic crystal, High- Q nanocavity

1. はじめに

光技術の源泉となるレーザー光をシリコンから生み出すことは、シリコンフォトリクス分野の重要な課題とされてきた。Fig. 1に示すようにシリコンは間接遷移型半導体であり、バンド間遷移による発光確率を高くすることは物理的に困難である¹⁾。ガリウムヒ素などのIII-V属元素を用いた半導体レーザーの産業化が進められ始めた1970年代以降、シリコンでレーザーを作るために様々

Fig. 1 Raman scattering with energy dispersion relation for silicon. The probability for interband transition is low due to the inconsistency of the wavevector.

なエンジニアリングが試みられたが、通常の半導体レーザーと同等といえるレーザー光源は、未だシリコンでは実現していない。しかし、シリコンを用いてレーザー光を発生させることの産業上の利益は計り知れず、シリコンレーザー開発は、現在でもシリコンフォトリクスの中心テーマである。本稿では、誘導ラマン散乱現象を用いて、唯一、バルクシリコンでレーザー発振を実現しているラマンシリコンレーザーについて、最近、我々が実現した極微小・超低しきい値デバイスを中心に解説する²⁾。

2. ラマンシリコンレーザー

誘導ラマン散乱は、3次の非線形効果として古くから研究され、シリコンのラマン利得係数は非常に高いことが知られていた^{3,4)}。具体的には、10-70 cm/GWという値が報告されており、ラマン増幅素子として有名なシリカファイバ(0.01 cm/GW)よりも3~4桁大きい。またシリコン微細加工技術の進展により、2000年前後には、光を強く閉じ込めることが可能なシリコン細線導波路が開発され、シリコンフォトリクスは注目を浴び始めていた。このような背景のもと、2002年、シリコン細線導波路に

おける誘導ラマン散乱を用いて光利得を得る手法が提案された⁵⁾。この時の提案では、1.9 cmの長さをもつ導波路に、500 mWもの光を入れた時に10dBの光増幅が得られるというもので、これは一見すると実用性に乏しいものであったが、このデバイスの研究は活発に進められた⁶⁻⁹⁾。その結果、2005年インテル社により、ファブリペロー型の共振器構造を用いた室温連続発振が報告され¹⁰⁾、世界初の全シリコンによるレーザーとして大きな注目を集めた。

しかし、一般的にラマン散乱の確率はバンド間遷移の確率よりも更に低いため、レーザー発振を起こすためには、200 mW以上の励起光パワーと1 cm以上の共振器長が必要となった。さらに不都合なことに、強励起により2光子吸収が発生して自由キャリアが細線中に生成され、自由キャリア吸収損失がもたらされるため¹¹⁾、これを除去するために、シリコン細線導波路に沿って逆バイアスP-i-Nダイオード構造を付加する必要がある。高 Q 値リング型共振器構造を用いて、共振器損失を極限まで抑えることが試みられたが、20 mWまでしきい値を低減した報告を最後に性能改善は進まなかった¹²⁾。

ラマンシリコンレーザーは光励起型のレーザーであり、一般的な電流注入型の半導体レーザーと比べれば利用範囲は制限されるが、いくつかの魅力的な利点を持つ。たとえば、バンドギャップ以下の透明な波長全てで動作可能なため、全ての光通信波長帯において動作可能である。また、カスケードレーザー発振を用いることで、半導体レーザーの空白波長域となっている2-4 μm の波長を持つレーザー光も原理的には発生可能である¹³⁾。さらに、レーザー発振だけでなく、光回路において光増幅機能としても誘導ラマン散乱は利用可能である。これらの理由から、小型で低しきい値動作するラマンシリコンレーザーが開発されれば、将来的に何らかの形で応用製品に寄与する可能性は高いと思われる。

3. ナノ共振器を用いた超小型・超低しきい値ラマンシリコンレーザーの開発

一般的に、レーザーのしきい値を下げるためには、高い Q 値と微小体積を持つ共振器により、光と物質の相互作用を増強する手法が有効である。Fig. 2に微小共振器を用いたラマンシリコンレーザーの概念図を示す。誘導ラマン散乱は、励起光がシリコンの光学フォノンにより散乱されて生じるストークスラマン光が非線形に増幅する現象である。そのため、レーザー発振を起こすためには、励起光とストークス散乱光の両方を強く閉じ込める2つの高 Q 値共振モード(Pump modeとStokes mode)が必要となる。この点が、通常の半導体レーザーと大きく異なっている。また、その周波数差はシリコンの Γ 点における光学フォノンエネルギーである15.6 THzに一致していなければならない。さらに、ラマン散乱確率が高くなるような電磁界分布を両者が持つことが望ましい。これらの条件を高度に満たせば、2光子吸収に起因する自由キャリア吸収にラマン利得が打ち勝ち、レーザー発振が

得られると原理的には期待できる。しかしながら、通常、共振器を小さくすると共振モードの Q 値は下がるの

Fig. 2 Configuration of Raman silicon laser using a small cavity. Two nanocavity modes with 15.6 THz spacing are required.

Fig. 3 (a) Schematic picture of heterostructure nanocavity in photonic crystal slab. The lattice constant at the center of the cavity is slightly larger in the x -direction. (b) Calculated band structure for the line-defect waveguide in k -space.

で、2つの高 Q 値共振モードを形成することは難しい。また共振モードの周波数が離散化されるため、周波数差を15.6 THzに一致させるのは容易でない。当然、デバイス作製の難易度も高くなるので電磁界分布を制御することは困難となり、微小デバイスゆえにラマンスペクトル測定も困難となる。

このような背景のもと、高 Q 値と微小体積を併せ持つ特長を有する2次元フォトニック結晶ナノ共振器¹⁴⁻¹⁶や導波路を用いたラマンシリコンレーザの開発が複数のグループで検討された¹⁷⁻²⁰。しかし、上述の困難さから実用的な構造の提案にはいたらず、発振に必要となる詳細な条件もほとんど不明であった。また、ナノ共振器からの自然ラマン散乱の実験報告もなかった。我々は2009年頃から、Fig. 3 (a)に示すヘテロ構造ナノ共振器を用いたラマンレーザ開発に取り組んだ。この共振器は2005年に開発されたもので¹⁶、線欠陥部分の導波可能周波数が減少するように格子定数 a を僅かに増加させ、ナノ共振モードを形成する。我々はこの共振器構造において、Fig. 3 (b)のバンド図に示す第1導波モードに由来するEven nanocavity modeを用いて、世界最高 Q 値400万程度を達成していた²¹。そこで、この共振モードをStokes modeとして用いることとした。

レーザ開発において、まず一番の問題だったのは、Pump modeの選択である。それまでの提案では、第1導波モードに由来する高次の共振モードを用いていたが、我々はヘテロ構造ナノ共振器の高エネルギーモードを詳細に調べた結果^{22,23}、Fig. 3 (b)に示している第2導波モードに由来するOdd nanocavity modeを用いることとした。その理由は、Even nanocavity modeと同じ空間に局在するモードであったこと、 Q 値10万以上が容易に得られたこと、空気孔径を少し変えるだけでEven nanocavity modeとの周波数差を大きく調整できることを発見したからである²⁴。また、ほぼ同時期に、ナノ共振器からのラマンスペクトル測定にも初めて成功して、高 Q 値ナノ共振モードから増強ラマン散乱光が得られることを実証した²⁵。その後、2つのモードの周波数差を15.6 THzに一致させたサンプルを作製して、非常に強いラマン散乱光の観測(10^{-5} 程度の効率)に成功したが、レーザ発振の観測には至らなかった²⁶。連続励起下で、2光子吸収

Fig. 4 Calculated electric field distributions for (a) the odd nanocavity mode and (b) the even nanocavity mode.

がもたらす自由キャリア吸収損失をラマン利得が上回るためには、ラマン散乱確率が高くなるような電磁界分布の組み合わせが必要不可欠だった。

Fig. 4に数値計算によるOdd nanocavity modeとEven nanocavity modeの電磁界分布 E_x , E_y を示す。波長程度の微小領域に閉じ込められた共振モードのため x , y 両方の偏光成分を持つが、由来する導波モードが異なるため、空間対称性が正反対となっている。一方で良く見ると、たすき成分間($E_{x_pump} \rightarrow E_{y_Stokes}$ または $E_{y_pump} \rightarrow E_{x_Stokes}$)では同一の対称性を持ち、電磁界分布も類似していることが分かる。そのため、たすき成分間での重なり積分が重要となるような誘導ラマン散乱を利用できれば、レーザ発振の可能性が高まる。そのためには、シリコンのラマンテンソルと結晶の方位が重要となる。

我々は、ナノ共振器を面方位が(001)のシリコン基板上に作製しており、ナノ共振器を作製する方向としては、[100]方向か[110]方向が候補となる。詳細は割愛するが、それぞれの方向における誘導ラマン散乱の大きさは以下の積分に比例する^{27,28}。

$$\iiint_{\text{Si}} |E_{x_Stokes}^* E_{y_pump} + E_{y_Stokes}^* E_{x_pump}|^2 dx dy dz \quad (1)$$

$$\iiint_{\text{Si}} |E_{x_Stokes}^* E_{x_pump} - E_{y_Stokes}^* E_{y_pump}|^2 dx dy dz \quad (2)$$

これらの式より、我々の共振器は[100]方向に作製することがベストと分かる。一方、仮に同一の空間対称性を持つ高 Q 値共振モード対を発見して、共振器を[110]方

Fig. 5 Schematic of in-plane Raman scattering in (001) silicon. (a) Raman scattering for the x-axis aligned to [100]. Dotted lines show the outline of a unit cell. (b) Raman scattering for the x-axis aligned to [110].

向に作製したとしても、式(2)には負の項が関与しているため、我々のデバイス以上の重なりを得ることは困難と予想される。

Fig. 5は、式(1)と(2)のメカニズムを直観的に示している。Fig. 5 (a)のように入射光が[100]方向に進行している時、入射光の偏光に対してシリコン結晶の結合ボンドのx-y面に対する射影は45度傾いており、面内へのストークスラマン散乱光は入射光から90度回転した偏光を持つ。この偏光回転により、たすき成分間の重なり積分が式(1)では重要となる。一方で、Fig. 5 (b)のように入射光の進行方向が[110]方向の時は、入射光の偏光に対して結合ボンドは平行または直交しており、面内へのラマン散乱光は入射光と同じ偏光を持つ。つまり、同一成分間の重なり積分が重要となる。

4. 超低しきい値ラマンシリコンレーザーの実証

数年に及ぶ以上の基礎研究に基づいて、[100]方向と[110]方向に作製したナノ共振器に対して、顕微ラマン測定を行った結果がFig. 6である。測定には、 $a_1 = 410 \text{ nm}$, $\Delta a = 5 \text{ nm}$ の2 stepヘテロ構造ナノ共振器を

Fig. 6 Resonant spectra for (a) odd and (b) even nanocavity modes. (c) Raman spectrum for the [100] nanocavity, measured while pumping the odd nanocavity mode with 1 μW input power. (d) Raman spectrum for the reference [110] nanocavity.

用いた。Fig. 6 (a), (b)に示すように、Odd nanocavity modeのQ値は10万以上、Even nanocavity modeのQ値は100万以上が得られ、周波数差はほぼ15.6 THzに一致している。Fig. 6 (c), (d)の挿入図は、作成したサンプルの電子顕微鏡像であり、3本の線欠陥のうち、中央の欠陥がヘテロ構造ナノ共振器、上下の欠陥はナノ共振器に励起光を送り込むための導波路である。本サンプルでは、ラマンスペクトル測定上の都合からラマン散乱光の多くが垂直方向に放出されるようにデバイスを設計してある。Fig. 6 (c), (d)は、Odd nanocavity modeを波長可変レーザー (Santec TSL-510)で励起したときの両者のラマンスペクトルであり、自然ラマン散乱によるブロードなピークとEven nanocavity modeに共鳴したことによるシャープなピーク両方が明瞭に観測されている。自然ラマンピークとEven nanocavity modeによるピークの離調は両者で同程度(0.14 THz程度)であるが、明らかに[100]方向に作製した共振器の方で、強い共鳴ピークが得られており、その強度比は10倍以上に及ぶ。離調が小さくなると、共鳴ピークの強度が強くなるが、[110]方向に作製した共振器ではレーザー発振は観測されなかった。

Fig. 7が周波数差がほぼ15.6 THzに一致した共振器(離調0.01 THz以下)を用いた時のレーザー発振の結果を示している。Odd nanocavity modeのQ値は約10万、波長

Fig. 7 (a) Laser output power as a function of pump power coupled into the nanocavity. Inset shows the log-log plot. (b) Full laser spectrum of total output including the pump wavelength at 3.0 μW input.

1428 nm, Even nanocavity modeの Q 値は150万, 波長1543 nmである. 共振器への入射強度が約1 μ Wに達したところで明瞭なレーザー発振が確認されており, このしきい値は, 高 Q リング共振器を用いたインテルのラマンレーザーの2万分の1である¹²⁾. ログプロットを見て分かるように, 発振前後でラマン散乱光の生成効率に1000倍以上の差があることがわかる. これは, 我々の知る限りナノ共振器レーザーとしては最も大きな値であり, 直接遷移型半導体をナノ共振器に埋め込んだナノレーザーの振る舞いとは大きく異なっている²⁹⁻³¹⁾. 発振時の微分効率は8%, Fig. 7 (b)に示すように, エネルギー効率の最大は4%となり, 初めて作製したサンプルとしては良好な特性が得られた. また, バルクSiのみを利得材質に用いていることから, デバイスは堅牢であり, 測定を繰り返すことによる性能劣化は見られていない. 我々はごく最近, Even nanocavity modeの Q 値を900万まで増大することに成功しており, レーザー性能は, 今後さらに改善可能と予想される. また, Fig. 3 (a)の高 Q 値ヘテロ構造ナノ共振器は, すべての通信波長帯で実現されているため³²⁾, 今回は1.55 μ m帯でのレーザー発振を実証したが, 本デバイスは1.3 μ m帯でも作製可能と考えている.

5. まとめ

我々は, ヘテロ構造ナノ共振器に形成される異なる導波モードに由来する2つのナノ共振器モードを用いて, ラマンシリコンレーザーの室温連続発振に成功した. デバイスサイズ, 消費エネルギーともにインテルのレーザーの1万分の1以下であり, P-i-N構造は不要である. メタルフリーという意味で, より純粋なラマンシリコンレーザーである. 今後, しきい値をさらに下げることが十分可能であり, 100 nWレベルの励起強度であれば, シリコンからの自然放光でもレーザーの励起源として利用可能と期待される. つまりシリコンLEDからの発光を介した電流注入型のラマンシリコンレーザーが期待できる. 今回我々が発明したデバイスコンセプトは, さまざまなナノ共振器構造に適用可能であると同時に, フォトニック結晶導波路にも適用可能であり, 光増幅器の開発までが今後の研究ターゲットになると予想される³³⁻³⁷⁾. 最後に, 本デバイスは, Q 値100万以上を持つヘテロ構造ナノ共振器でなければ実現不可能であり, 10年に及ぶナノ共振器の高 Q 値化研究が1つの結実をみたものであることを強調したい.

謝 辞

本研究は, 科学技術システム改革事業, 科学技術振興機構さがけ, 科研費および光拠点, 未来開拓研究プロジェクト等の支援を受けた. また, 顕微ラマン測定系の構築について, たくさんの専門家よりアドバイスをいただいた. ここに深く感謝いたします.

参考文献

- 1) S. S. Iyer and Y.-H. Xie: Science **260** (1993) 40.
- 2) Y. Takahashi, Y. Inui, M. Chihara, T. Asano, R. Terawaki, and S. Noda: Nature (London) **498** (2013) 470.
- 3) R. Loudon: Adv. Phys. **13** (1964) 423.
- 4) J. M. Ralston and R. K. Chang: Phys. Rev. B **2** (1970) 1858.
- 5) R. Claps, D. Dimitropoulos, and B. Jalali: IEE Electron. **38** (2002) 1352.
- 6) B. Jalali and S. Fathpour: Journal of Lightwave Tech. **24** (2006) 4600.
- 7) A. Barkai, Y. Chetrit, O. Cohen, R. Cohen, N. Izhaky, M. Morse, O. Dosunmu, A. Liu, L. Liao, and M. Paniccia, et al.: Journal of Optical Networking **6** (2007) 25.
- 8) O. Boyraz and B. Jalali: Opt. Express **12** (2004) 5269.
- 9) H. Rong, A. Liu, R. Jones, O. Cohen, D. Hak, R. Nicolaescu, A. Fang, and M. Paniccia: Nature (London) **433** (2005) 292.
- 10) H. Rong, R. Jones, A. Liu, O. Cohen, D. Hak, A. Fang, and M. Paniccia: Nature (London) **433** (2005) 725.
- 11) T. K. Liang, and H. K. Tsang: Appl. Phys. Lett. **84** (2004) 2745.
- 12) H. Rong, S. Xu, Y. Kuo, V. Sih, O. Cohen, O. Raday, and M. Paniccia: Nature Photon. **1** (2007) 232.
- 13) H. Rong, S. Xu, O. Cohen, O. Raday, M. Lee, V. Sih, and M. Paniccia: Nature Photon. **2** (2008) 170.
- 14) S. Noda, A. Chutinan, and M. Imada: Nature (London) **407** (2000) 608.
- 15) Y. Akahane, T. Asano, B. S. Song, and S. Noda: Nature (London) **425** (2003) 944.
- 16) B. S. Song, S. Noda, T. Asano, and Y. Akahane: Nature Mater. **4** (2005) 207.
- 17) X. Yang and C. W. Wong: Opt. Express **15** (2007) 4763.
- 18) 高野 仁路, 浅野 卓, 野田 進: 第54回春季応用物理学会 29a-ZB-8 (2007).
- 19) 篠森 直哉, 中山 茂, 岩本 敏, 荒川 泰彦: 第57回春季応用物理学会 20p-M-7 (2010).
- 20) X. Checoury, M. E. Kurdi, Z. Han, and P. Boucaud: Opt. Express **17** (2009) 3500.
- 21) Y. Taguchi, Y. Takahashi, Y. Sato, T. Asano, and S. Noda: Opt. Express **19** (2011) 11916.
- 22) Y. Takahashi, Y. Tanaka, H. Hagino, T. Asano, and S. Noda: Appl. Phys. Lett. **92** (2008) 241910.
- 23) Y. Takahashi, Y. Inui, M. Chihara, T. Asano, R. Terawaki, and S. Noda: Phys. Rev. B **88** (2013) 235313.
- 24) 千原 賢大, 寺脇 了, 高橋 和, 浅野 卓, 野田 進: 第71回秋季応用物理学会 16p-J-2 (2010).
- 25) Y. Takahashi, R. Terawaki, M. Chihara, T. Asano, and S. Noda: Quantum Electronics and Laser Science Conference (CLEO) QWC3 (2011).
- 26) 千原 賢大, 寺脇 了, 高橋 和, 浅野 卓, 野田 進: 第72回秋季応用物理学会 31p-ZR-2 (2011).
- 27) 乾 善貴, 高橋 和, 浅野 卓, 野田 進: 第73回秋季応用物理学会 14p-B1-6 (2012).
- 28) Y. Takahashi, Y. Inui, M. Chihara, T. Asano, R. Terawaki, and S. Noda: Nature **498** (2013) 470 Supplementary.
- 29) K. Nozaki, S. Kita, and T. Baba: Opt. Express **15** (2007) 7506.
- 30) M. Nomura, N. Kumagai, S. Iwamoto, Y. Ota, and Y. Arakawa: Nature Physics **6** (2010) 279.
- 31) K. Takeda, T. Sato, A. Shinya, K. Nozaki, W. Kobayashi, H. Taniyama, M. Notomi, K. Hasebe, T. Kakitsuka, and S. Matsuo: Nature Photon. **7** (2013) 569.
- 32) R. Terawaki, Y. Takahashi, M. Chihara, Y. Inui, and S. Noda: Opt. Express **20** (2012) 22743.
- 33) E. Kuramochi, M. Notomi, S. Mitsugi, A. Shinya, T. Tanabe, and T. Watanabe: Appl. Phys. Lett. **88** (2006) 041112.
- 34) M. Notomi, E. Kuramochi, and H. Taniyama: Opt. Express **16** (2008) 11095.
- 35) T. Baba: Nature Photon. **2** (2008) 465.
- 36) B. S. Song, S. B. Jeon, and S. Noda: Opt. Lett. **36** (2011) 91.
- 37) H. Sumikura, E. Kuramochi, H. Taniyama, and M. Notomi: Appl. Phys. Lett. **102** (2013) 231110.

レーザワード

Q値(Q factor)

共振器が光を閉じ込める強さを表す無次元量。英語の Quality の頭文字に由来しており、英語では *Q factor* と呼ばれる。より一般には、機械振動や電気共振回路の振動状態の性能を表すためにも頻繁に使用される。*Q* 値が高い共振器は、光を長く閉じ込めることが出来るので、光と物質の相互作用を高めることが可能となる。たとえ

ば、反射率の高いミラーで作った共振器ほど *Q* 値が高いことになり、光は共振器内を何度も往復して共振器内の媒質と何度も相互作用できる。また、*Q* 値が高い共振器は、共振スペクトルの波長幅がシャープなため、高感度センサー応用に適している。(高橋 和)

ヘテロ構造ナノ共振器(Heterostructure nanocavity)

2005年に報告されたナノ共振器構造で^{*}、非常に高い *Q* 値を持つことを特徴とする。それまで報告されていたナノ共振器の *Q* 値は10万程度が最高であったが、この共振器構造の発明により、1億を超えるナノ共振器構造の設計も可能となった。ナノ共振器の *Q* 値を上げるためには、電磁界分布が共振器の長手方向に対して緩やかに変化することが重要となる。それまでの共振器構造では、共振器の端に空気孔を置いて空気との大きな屈折率変化

を用いて光を反射させて閉じ込めていた。一方、ヘテロ構造ナノ共振器では共振器端に空気孔は無く、格子定数を中心だけ少し大きくしたことによるモードギャップ差を利用して光を反射させている。このモードギャップ差による光の反射により、緩やかに電磁界分布が変化して、非常に高い *Q* 値を実現した。(高橋 和)

^{*}B. S. Song, S. Noda, T. Asano, and Y. Akahane: *Nature Mater.* **4** (2005) 207.