

基于宽禁带氮化物的微腔光频梳进展 (特邀)

孙长征, 郑焱真, 熊 兵, 汪 莱, 郝智彪, 王 健, 韩彦军, 李洪涛, 罗 毅

(清华大学 电子工程系, 北京 100084)

摘 要: 微腔光频梳在光谱测量、微波光子学、光学原子钟和相干光通信等领域具有重要的应用。宽禁带氮化物半导体材料, 如氮化铝 (AlN) 和氮化镓 (GaN) 等属于非中心对称晶体, 具有二阶和三阶光学非线性系数, 宽带的透明窗口以及与蓝宝石衬底较高的折射率差, 使其成为研究非线性光子器件的理想平台。文中介绍了氮化物微腔的特性, 同时对基于氮化物微腔光梳的相关研究进展, 包括 AlN 微腔中的宽谱光频梳产生和光学参量振荡、GaN 微腔中的孤子光频梳产生等进行了介绍和展望。

关键词: 氮化铝; 氮化镓; 光频梳; 光学微腔

中图分类号: TN256 文献标志码: A DOI: 10.3788/IRLA20220270

Advances in III-nitride-based microresonator optical frequency combs (*Invited*)

Sun Changzheng, Zheng Yanzhen, Xiong Bing, Wang Lai, Hao Zhibiao, Wang Jian,
Han Yanjun, Li Hongtao, Luo Yi

(Department of Electronic Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China)

Abstract: Chip-scale optical frequency combs based on microresonators have great potentials in spectroscopy, microwave photonics, optical atomic clocks and coherent optical communications. The non-centrosymmetric wurtzite crystal structure of aluminum nitride (AlN) and gallium nitride (GaN) allows them to exhibit both second- and third-order nonlinear optical coefficients, together with wide transparency window and large refractive index contrast against sapphire substrate, making III-nitrides an attractive platform for nonlinear photonics. The basic properties of AlN and GaN microresonators as well as recent advances in III-nitride-based microresonator frequency combs are presented, including broadband frequency comb generation and optical parametric oscillation in AlN microresonators, and soliton microcomb generation in GaN microresonators.

Key words: aluminum nitride; gallium nitride; optical frequency combs; optical microresonators

收稿日期: 2022-03-10; 修订日期: 2022-04-20

基金项目: 国家重点研发计划 (2021YFB2800604); 国家自然科学基金 (61975093)

作者简介: 孙长征, 男, 教授, 博士生导师, 博士, 主要从事半导体光电子器件及其集成技术方面的研究。

0 常见的微腔光频梳材料平台比较

微腔光频梳是一种利用连续波单频光泵浦产生的宽谱光频梳,它利用高 Q 值光学微腔中三阶光学非线性效应引起的四波混频 (FWM) 过程实现等间隔光谱梳齿的产生。与传统光频梳相比,微腔光频梳具有体积小、功耗低、自由光谱范围 (FSR) 大等特点,在光频率合成^[1]、测距与雷达^[2-3]、光谱分析技术^[4-5]、微波光子学^[6-7]以及天体物理^[8-9]等领域有着广泛的应用前景。

表 1 比较了常用于制作微腔光频梳的材料平台特性,包括氮化硅 (Si_3N_4)、铝镓砷 (AlGaAs)、铌酸锂 (LiNbO_3)、氮化铝 (AlN) 和氮化镓 (GaN) 等。 Si_3N_4 是最早用于微腔光梳产生的材料,也是目前最为成熟的微腔光频梳材料, Si_3N_4 微环谐振腔的品质因子 (Q) 值高达 10^7 。通常利用低压化学气相沉积 (LPCVD) 来制造高质量的 Si_3N_4 薄膜。然而,在绝缘体上硅 (SOI) 晶片上生长时会产生较大的应力,难以获得较

厚的氮化硅薄膜。采用大马士革镶嵌工艺可避免大应力产生,但是该工艺需要对 SOI 刻蚀后进行热回流,会导致一定的工艺误差。近年来,AlGaAs 因其具有较高的非线性系数 ($n_2 = 2.6 \times 10^{-17} \text{ m}^2\text{W}^{-1}$) 获得了极大的关注。同时,AlGaAs 在中红外波段具有极低的损耗系数,有望产生中红外波段光梳。然而,外延生长的 AlGaAs 折射率小于 GaAs 衬底,难以形成光波导。为了解决这一问题,可以利用晶片键合工艺,将 AlGaAs 与 SOI 晶片直接键合,从而形成较大的折射率差,实现有效的光限制。但是这会增加工艺复杂度,而且工艺造成的缺陷限制了器件 Q 值的提升。此外,AlGaAs 的热光系数较高,导致产生孤子较为困难。虽然可以利用低温制冷的方式产生孤子,但这限制了 AlGaAs 微腔的实际应用^[10]。 LiNbO_3 因其独特的光学特性受到广泛关注,特别是绝缘体上铌酸锂 (LNOI) 出现之后,更是成为研究热点,基于 LNOI 的微腔光梳也有诸多报道。但与 AlGaAs 一样,LNOI 微腔光频梳器件也需要利用键合工艺实现有效的光限制。

表 1 通信波段微腔光梳材料平台

Tab.1 Properties of microcomb material platforms at telecom wavelengths

Material	n	$\chi^{(2)}/\text{pm}\cdot\text{V}^{-1}$	$n_2/10^{-18}\text{m}^2\cdot\text{W}^{-1}$	$\lambda_{\text{TPA}}/\text{nm}$	Mode area/ μm^2	FSR/GHz	$Q_{\text{int}}/\times 10^6$	P_{th}/mW	Remarks
$\text{Al}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{As}^{[11]}$	3.3	180	26	1483	0.28	1000	1.5	~0.03	Bonding
$\text{Si}_3\text{N}_4^{[12]}$	2	-	0.25	460	~1	99	~10	<1	-
$\text{AlN}^{[13-14]}$	2.1	6	0.23	440	2.3	435	0.8	25	MOCVD growth
Diamond ^[15]	2.4	-	0.82	450	0.81	925	0.97	20	-
$\text{LiNbO}_3^{[16]}$	2.2	54	0.18	635	1	200	~4	4.2	Bonding
$\text{GaN}^{[17]}$	2.3	-9	1.4	729	1.6	324	1.8	6.2	MOCVD growth

AlN 和 GaN 属于非中心对称晶体,同时具有二阶和三阶光学非线性系数,有望实现电调谐光频梳。AlN 的禁带宽度高达 6.2 eV,其透明窗口覆盖深紫外到中红外,而 GaN 则在 729 nm~6 μm 范围内均保持较低的吸收系数。此外,在通信波段,AlN 的三阶非线性系数与 Si_3N_4 、 LiNbO_3 等相当,而 GaN 的非线性系数 n_2 约为 $1.4 \times 10^{-18} \text{ W}^{-1}$,是 Si_3N_4 、 LiNbO_3 和 AlN 等材料的数倍。较高的非线性系数有助于降低微腔光梳产生的阈值,从而实现低功耗微腔光频梳。随着半导体照明产业的不断成熟,可以利用金属有机化合物气相外延 (MOCVD) 在蓝宝石衬底上生长高质量且厚度可控的 GaN 和 AlN 薄膜。高晶体质量的薄膜有助于降低材料的光学损耗,从而实现高 Q 值光学微腔。

同时,AlN 和 GaN 与蓝宝石衬底具有较大的折射率差,可以形成良好的光学限制,如图 1 所示。因此,蓝

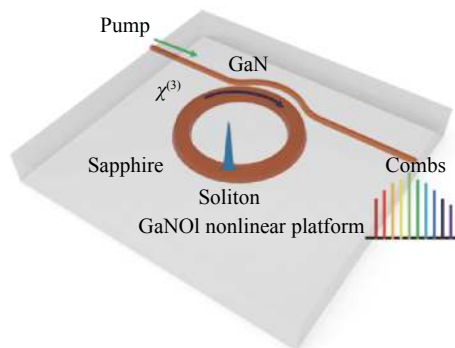


图 1 片上 GaN 非线性光子平台

Fig.1 GaNOI nonlinear photonics platform

宝石上的 AlN 和 GaN 薄膜非常适于开展集成化非线性光子器件的研究。

1 基于 AlN 微腔的宽谱光频梳产生

2013 年,美国耶鲁大学 H. Tang 研究小组首次报道了基于溅射 AlN 的微环谐振腔,其本征 Q 值约为 8×10^5 。他们采用溅射的方式在 SOI 衬底上制备厚度约 650 nm 的 AlN 薄膜,并通过氧气退火提升微环的 Q 值,最终在 1550 nm 波段产生了光谱覆盖范围约 400 nm 的光频梳^[18],如图 2(a) 所示。2014 年,该研究小组又报道了基于 AlN 微环中二阶非线性效应的可见光频梳,如图 2(b) 所示。该工作采用 1550 nm 波段激光作为泵浦,通过高阶模模式匹配,利用二次和频(SFG)和二次谐波产生(SHG)过程实现了 780 nm 附近的近可见光波段光频梳产生。同时,基于三阶非线性效应引起的三次和频和三次谐波产生(THG)过程,观测到了 550 nm 附近的绿光频梳光谱^[19]。但是,所产生的近可见光频梳的光谱范围较窄,仅能观测到少量的梳齿。这是由于溅射的 AlN 薄膜属于非晶态,其晶体质量较差,限制了微腔 Q 值的进一步提升。

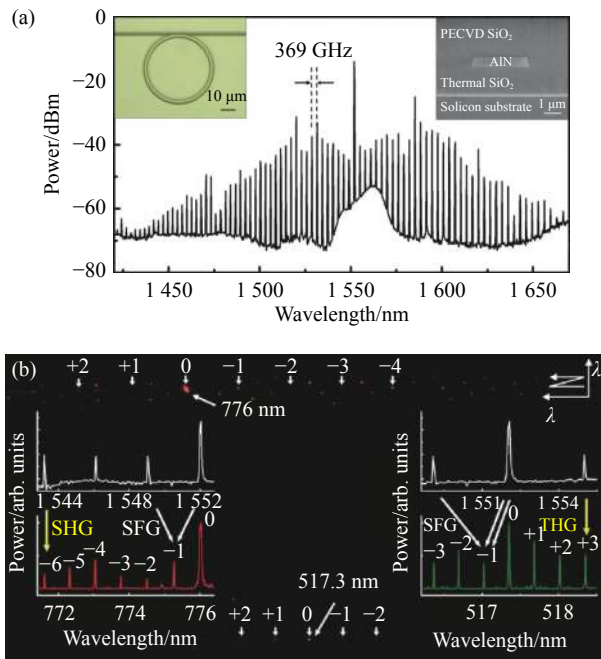


图 2 (a) 溅射 AlN 微环谐振腔中的近红外光频梳^[18]; (b) 基于 SHG、SFG 和 THG 过程的近可见光和绿光波段光频梳^[19]

2017 年,笔者课题组率先采用在蓝宝石衬底上通过 MOCVD 生长的晶体 AlN 薄膜,实现了加载 Q 值超过 1.2×10^6 的晶体 AlN 微环谐振腔。同时,首次观察到了晶体 AlN 微环谐振腔中的拉曼激射现象^[20]。2018 年,笔者课题组利用高 Q 值的晶体 AlN 微环谐振腔,在通信波段实现了超过 2/3 倍频程的宽谱光频梳的产生,并且观测到了拉曼效应导致的拉曼光梳^[14]。同年,笔者课题组利用高阶模相位匹配的方案,实现了 780 nm 附近光谱覆盖范围达 120 nm 的近可见光光梳产生^[21],如图 3 所示。

根据四波混频阈值确定的晶体 AlN 材料三阶非

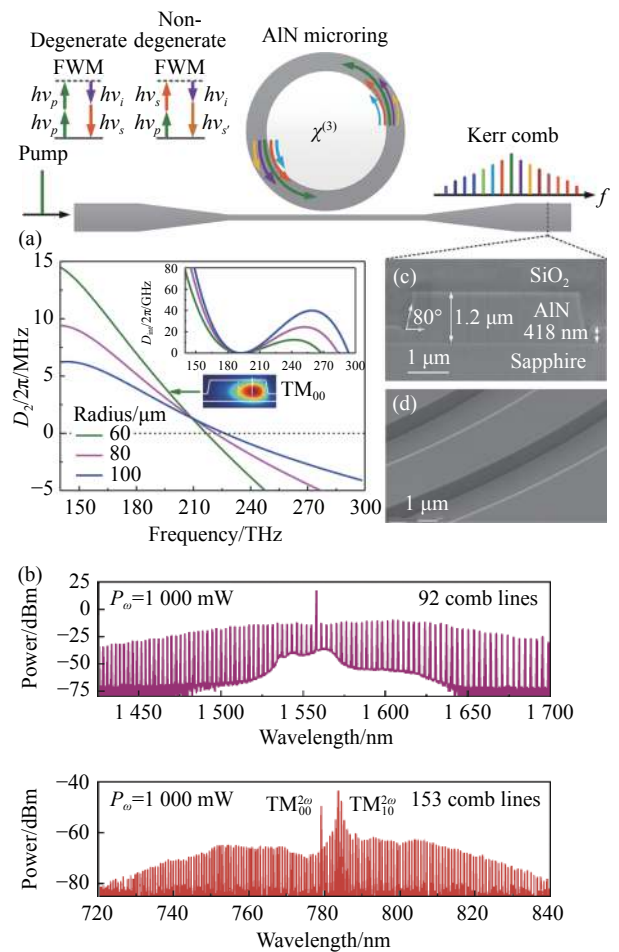


图 3 晶体 AlN 微环谐振腔的结构示意图 (a), 色散曲线 (b), 微环波导 (c), 耦合波导端面扫描电镜照片 (d)^[14]; (e)、(f) 宽谱近红外和近可见光波段光频梳产生^[21]

线性系数为 $2.3 \times 10^{-19} \text{ m}^2 \text{ W}^{-1}$, 该结果与文献报道的溅射 AlN 材料的三阶非线性系数类似。由于外延 AlN 材料的晶体质量较溅射 AlN 材料有显著改善, 采用外延生长的晶体 AlN 薄膜不但可以获得更高的 Q 值, 并可以进一步实现宽谱光频梳的产生。因此, 蓝宝石衬底上外延生长的晶体 AlN 薄膜已经成为 AlN 材料非线性光子器件研究的主流。

为了满足自参考稳频的需要, 一般要求光梳的光谱覆盖范围超过一个倍频程。2021 年, H. Tang 研究小组通过对 AlN 微环进行色散设计, 利用双色散波实现了超过一个倍频程的孤子光梳^[22], 并利用相位匹配 AlN 波导进行了 $f\text{-}2f$ 自参考稳频的实验验证, 为未来实现全集成的稳频片上光梳打下了重要的基础。同年, 华中科技大学国伟华研究小组与爱尔兰都柏林圣三一大学合作报道了利用近简并的 TE_0 和 TE_1 谐振

模实现孤子台阶的拓展, 最终实现了覆盖 1100~2300 nm 波长的倍频程孤子光梳^[23]。

2 AlN 微腔中的光学参量振荡

光学参量振荡 (OPO) 是一种产生长波长相干光的有效方式^[24-26]。AlN 材料具有较高的二阶非线性系数, 通过适当的相位匹配设计, 利用 AlN 微环谐振腔实现高效的片上参量振荡具有极强的吸引力。2018 年, H. Tang 研究小组利用 AlN 微环中的二阶非线性效应, 采用 780 nm 的泵浦光, 通过热调谐的方式在 1550 nm 处实现了高效率的片上参量振荡^[27]。2020 年, 他们进一步利用光学参量振荡的方式实现长波长波段孤子, 即普克尔斯孤子 (Pockels soliton)^[28]。如图 4 所示, 该工作采用 780 nm 的泵浦, 通过 OPO 实现了 1560 nm 附近光孤子的产生^[28]。

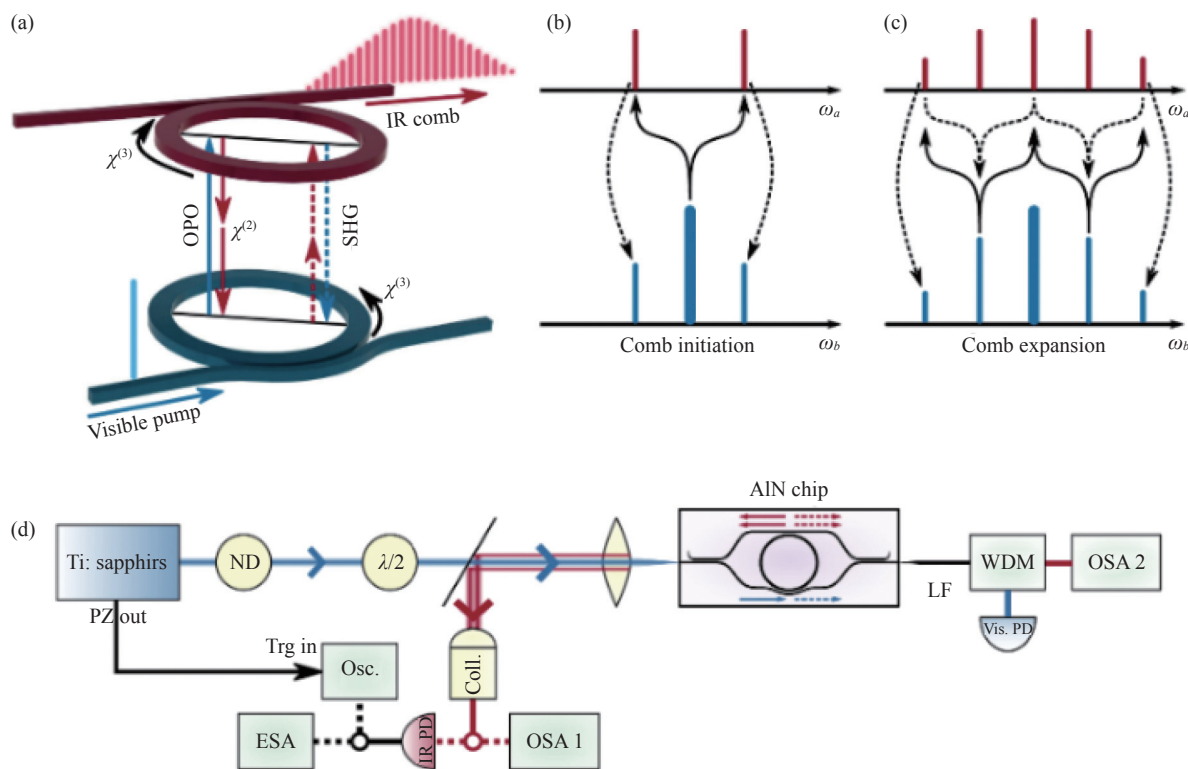


图 4 (a) OPO 产生普克尔斯孤子示意图; (b)-(c) 工作原理及 (d) 实验架构^[28]

Fig.4 (a) Schematic of Pockels soliton microcomb generation via OPO; (b)-(c) Comb initiation and expansion, and (d) the experimental setup^[28]

同时, 由于二阶非线性系数的存在, AlN 微环也可用于高效率的二次谐波产生 (SHG)。2018 年, 该小组报道了片上转换效率高达 17000%/W 的 SHG 结果^[29]。

3 基于 GaN 微腔的低功耗微腔光频梳

GaN 的三阶非线性系数比 AlN 高近一个数量级, 因而有望实现高效低功耗微腔光频梳。美国耶鲁大

学 H. Tang 研究小组较早开展了通信波段高 Q 值 GaN 微腔的研究^[30]。然而,所报道的 GaN 波导损耗偏高,约为 1 dB/cm,微环谐振腔的 Q 值约为 72000,难以满足孤子产生的需要。

2019 年,丹麦技术大学的 E. Stassen 等人在 700 nm

厚的 GaN 外延片上,实现了 Q 值超过 137000 的 GaN 微环,相比于之前的结果有了较大的进步^[31]。将 250 mW 的泵浦光输入 3 mm 长的 GaN 直波导中,可以观察到明显的四波混频 (FWM) 现象,测试结果如图 5 所示。

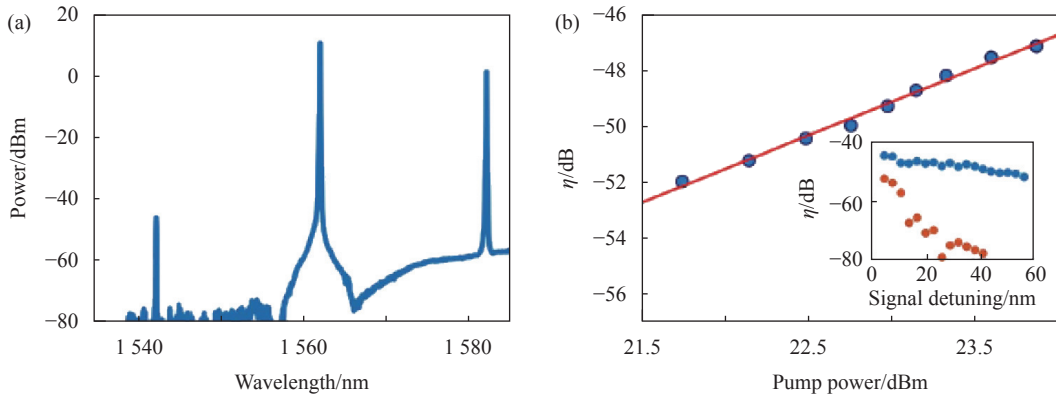


图 5 (a) 250 mW 泵浦下 3 mm 长 GaN 波导中的 FWM 谱线; (b) FWM 效率随泵浦功率的变化^[31]

Fig.5 (a) FWM spectrum from a 3-mm-long GaN waveguide with 250 mW pump power; (b) FWM conversion efficiency vs. pump power^[31]

为了进一步提升 GaN 材料微腔的 Q 值,笔者课题组通过研究 GaN 材料的刻蚀工艺,优化工艺参数,最终制作出 Q 值超过 10^6 的光学微腔^[17],其工艺流程如图 6 所示。

频阈值约为 6.2 mW,孤子光梳光谱范围为 1450~1650 nm,这是首次在 GaN 微环中观测到的孤子光梳,实验结果如图 7 所示。

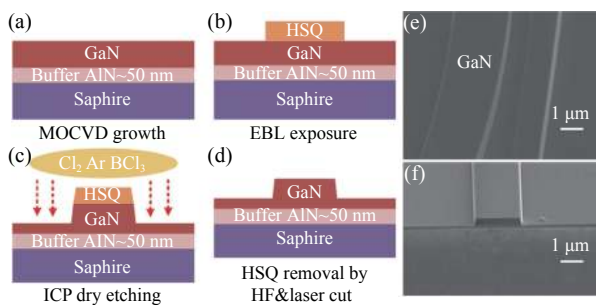


图 6 (a)~(d) GaN 微环谐振腔的制作流程; (e)~(f) GaN 微环谐振腔及耦合波导的扫描电镜照片^[17]

Fig.6 (a)~(d) Fabrication procedures of GaN microring resonators; (e)~(f) SEM images of the ring waveguide and the bus waveguide in a GaN microring resonator^[17]

从孤子产生的角度而言,由于 GaN 材料较高的热光系数,孤子台阶较短,难以通过泵浦光扫频或者功率跳变 (power kicking) 的方式直接产生孤子。利用双泵浦方式对孤子产生过程中的热效应进行补偿,最终实现了孤子光梳的产生。实验测试得到的四波混

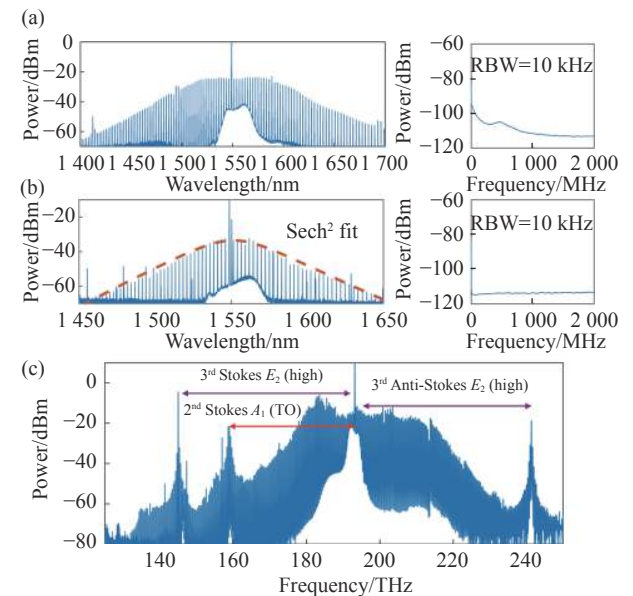


图 7 (a) TM_{00} 泵浦下混沌态光梳; (b) TM_{00} 泵浦下孤子态克尔光梳; (c) TE_{00} 泵浦下拉曼辅助的混沌态光梳^[17]

Fig.7 (a) Chaotic frequency comb under TM_{00} pump; (b) Soliton microcomb under TM_{00} pump; (c) Raman assisted chaotic Kerr comb with TE_{00} pump^[17]

4 结论与展望

AlN 和 GaN 作为非中心对称结构材料,同时具有二阶和三阶光学非线性系数,其透明窗口覆盖了从紫外到中红外较宽的光谱范围,作为微腔光频梳的材料平台,显示出独特的优越性。随着半导体照明技术的发展,高质量 AlN 和 GaN 薄膜的制备技术日臻成熟,基于 AlN 和 GaN 材料平台的微腔光频梳器件的特性也将获得更大的提升。

近年来,基于 AlN 的非线性光子器件研究已有较多的内容,涉及的内容也较为广泛,而 GaN 材料非线性器件的研究则仍处于起步阶段。受益于 GaN 较高的非线性系数,预期在未来可以获得较大的发展。

由于 GaN 和 AlN 都具有较高的二阶非线性系数,因此探讨利用电光效应进行光梳的 FSR 以及中心频率的调谐也是一种可能的方向。此外,由于 AlN 和 GaN 以及蓝宝石衬底都有很宽的透明窗口,利用 AlN 和 GaN 平台探索可见光以及中红外波段的孤子光梳也具有重要的研究价值。

参考文献:

- [1] Spencer D T, Drake T, Briles T C, et al. An optical-frequency synthesizer using integrated photonics [J]. *Nature*, 2018, 557(7703): 81-85.
- [2] Suh M-G, Vahala K J. Soliton microcomb range measurement [J]. *Science*, 2018, 359(6378): 884-887.
- [3] Trocha P, Karpov M, Ganin D, et al. Ultrafast optical ranging using microresonator soliton frequency combs [J]. *Science*, 2018, 359(6378): 887-891.
- [4] Suh M-G, Yang Q F, Yang K Y, et al. Microresonator soliton dual-comb spectroscopy [J]. *Science*, 2016, 354(6312): 600-603.
- [5] Dutt A, Joshi C, Ji X, et al. On-chip dual-comb source for spectroscopy [J]. *Science Advances*, 2018, 4(3): e1701858.
- [6] Liu J, Lucas E, Raja A S, et al. Photonic microwave generation in the X- and K-band using integrated soliton microcombs [J]. *Nature Photonics*, 2020, 14: 486-491.
- [7] Brasch V, Lucas E, Jost J D, et al. Self-referenced photonic chip soliton Kerr frequency comb [J]. *Light: Science & Applications*, 2017, 6(1): e16202.
- [8] Obrzud E, Rainer M, Harutyunyan A, et al. A microphotonic astrocomb [J]. *Nature Photonics*, 2019, 13(1): 31-35.
- [9] Suh M-G, Yi X, Lai Y H, et al. Searching for exoplanets using a microresonator astrocomb [J]. *Nature Photonics*, 2019, 13(1): 25-30.
- [10] Moille G, Chang L, Xie W, et al. Dissipative Kerr solitons in a III-V microresonator [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2020, 14(8): 2000022.
- [11] Chang L, Xie W, Shu H, et al. Ultra-efficient frequency comb generation in AlGaAs-on-insulator microresonators [J]. *Nature Communications*, 2020, 11(1): 1331.
- [12] Ji X, Barbosa F A S, Roberts S P, et al. Ultra-low-loss on-chip resonators with sub-milliwatt parametric oscillation threshold [J]. *Optica*, 2017, 4(6): 619.
- [13] Gong Z, Bruch A, Shen M, et al. High-fidelity cavity soliton generation in crystalline AlN microring resonators [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(18): 4366.
- [14] Liu X, Sun C, Xiong B, et al. Integrated high-Q crystalline AlN microresonators for broadband Kerr and Raman frequency combs [J]. *ACS Photonics*, 2018, 5(5): 1943-1950.
- [15] Hausmann B J M, Bulu I, Lončar M, et al. Diamond nonlinear photonics [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(5): 369.
- [16] He Y, Yang Q-F, Ling J, et al. Self-starting bi-chromatic LiNbO₃ soliton microcomb [J]. *Optica*, 2019, 6(9): 1138.
- [17] Zheng Y, Sun C, Xiong B, et al. Integrated gallium nitride nonlinear photonics [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2022, 16(1): 2100071.
- [18] Jung H, Xiong C, Fong K Y, et al. Optical frequency comb generation from aluminum nitride microring resonator [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(15): 2810-2813.
- [19] Jung H, Stoll R, Guo X, et al. Green, red, and IR frequency comb line generation from single IR pump in AlN microring resonator [J]. *Optica*, 2014, 1(6): 396.
- [20] Liu X, Sun C, Xiong B, et al. Integrated continuous-wave aluminum nitride Raman laser [J]. *Optica*, 2017, 4(8): 893.
- [21] Liu X, Sun C, Xiong B, et al. Generation of multiple near-visible comb lines in an AlN microring via $\chi^{(2)}$ and $\chi^{(3)}$ optical nonlinearities [J]. *Applied Physics Letters*, 2018, 113(17): 171106.
- [22] Liu X, Gong Z, Bruch A W, et al. Aluminum nitride nanophotonics for beyond-octave soliton microcomb generation and self-referencing [J]. *Nature Communications*, 2021, 12(1): 5428.
- [23] Weng H, Liu J, Afridi A A, et al. Directly accessing octave-spanning dissipative Kerr soliton frequency combs in an AlN microresonator [J]. *Photonics Research*, 2021, 9(7): 1351.

- [24] Tang C L, Bosenberg W R, Ukachi T, et al. Optical parametric oscillators [J]. *Proceedings of the IEEE*, 1992, 80(3): 365-374.
- [25] Godard A. Infrared (2–12 μm) solid-state laser sources: A review [J]. *Comptes Rendus Physique*, 2007, 8(10): 1100-1128.
- [26] Breunig I, Haertle D, Buse K. Continuous-wave optical parametric oscillators: recent developments and prospects [J]. *Applied Physics B*, 2011, 105(1): 99.
- [27] Bruch A W, Liu X, Surya J B, et al. On-chip $\chi^{(2)}$ microring optical parametric oscillator [J]. *Optica*, 2019, 6(10): 1361.
- [28] Bruch A W, Liu X, Gong Z, et al. Pockels soliton microcomb [J]. *Nature Photonics*, 2021, 15: 21-27.
- [29] Bruch A W, Liu X, Guo X, et al. 17 000%/W second-harmonic conversion efficiency in single-crystalline aluminum nitride microresonators [J]. *Applied Physics Letters*, 2018, 113(13): 131102.
- [30] Bruch A W, Xiong C, Leung B, et al. Broadband nanophotonic waveguides and resonators based on epitaxial GaN thin films [J]. *Applied Physics Letters*, 2015, 107(14): 141113.
- [31] Stassen E, Pu M, Semenova E, et al. High-confinement gallium nitride-on-sapphire waveguides for integrated nonlinear photonics [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(5): 1064.