

# 常温接合を用いた擬似位相整合

## 中赤外波長変換デバイスの高品質化

### Improvement of quasi-phase-matching mid-infrared wavelength conversion devices by use of room-temperature bonding

電気電子情報通信工学専攻 河合 直太郎

21N5100022J Chokutaro KAWAI

#### 1. はじめに

中赤外レーザ光源（波長約 3~20  $\mu\text{m}$ ）は、分子分光をはじめとする計測や、穴あけ、切断といった加工など幅広い分野に有用である。しかし、中赤外域で直接で動作するレーザの種類は限られているため、二次の非線形光学効果を利用した第二高調波発生(SHG: Second Harmonic Generation)や、光パラメトリック発振(OPO: Optical Parametric Oscillation)といった波長変換の利用が中赤外光を発生させる有望な手段として検討されている。これまで多くの実用的成功を収めてきた波長変換材料として  $\text{LiNbO}_3$ 、 $\text{LiTaO}_3$  など無機酸化物誘電体結晶が挙げられる。しかし、これらの材料は透明となる波長領域が短く、特に中赤外光で透明でないため、中赤外波長変換材料には適していない。そこで本研究では、波長約 17  $\mu\text{m}$  まで透過域がある化合物半導体 GaAs を用いて、高品質な中赤外波長変換デバイスの作製を行うことを目的とする。

波長変換材料としての GaAs は、波長変換において一般的に用いられる  $\text{LiNbO}_3$  と比較して二次非線形光学定数が 5 倍以上大きく、熱伝導率も約 40 倍高いため、高出力の赤外波長変換に適している材料である。しかし GaAs は光学的に等方的な材料であるため、従来の位相整合手段である複屈折位相整合(BPM: Birefringent Phase Matching)が利用できず、擬似位相整合(QPM: Quasi Phase Matching)構造の作製が必要となる。

図 1 に、SHG における非線形結晶の結晶長と変

換光のパワーの関係を示す。(a)位相整合が達成されていない場合には各点の非線形分極から発生した第二高調波の位相が揃わず、 $z = 2l_c$ ではそれらが足し合わされて出力が 0 となる。(b)位相整合が達成されている場合は各点の非線形分極から発生した第二高調波と位相が揃い、第二高調波パワーは相互作用長  $L$  の 2 乗に比例して増大する。しかし、すべての材料が位相整合が達成できるわけではない。(c)擬似位相整合は、材料が等方的などの理由で位相整合条件を満たすことが難しい場合に用いる方法であり、一般的には結晶をコヒーレンス長  $l_c$  の大きさに区切り、分極を反転することで擬似位相整合を達成させることができる。このように周期的に分極を反転させるとことで媒質中の各点の非線形分極から放射される第二高調波の位相をある程度揃えることができ、第二高調波強度が相互作用長に対して単調に増加するようにできる。この方法により、光学的に等方的な材料である GaAs は擬似位相整合を達成することができる。

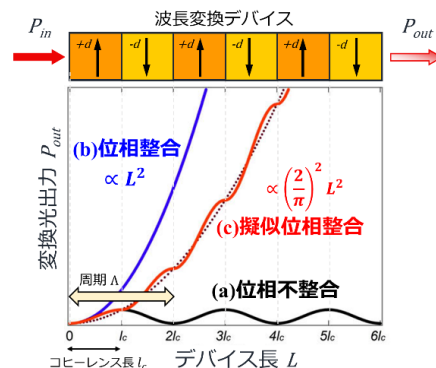


図 1 擬似位相整合

GaAs を用いて QPM 構造を作製するために、従来では二つの方法が開発されていた。一つ目は、副格子交換エピタキシーによる方法[1]である。しかしながら、この方法では厚みが 2.1~3.5 mm 程度と小さい[2] ため高出力レーザには使用できないという問題がある。二つ目は、拡散接合によるプレートの貼り合わせ[3]である。この方法では、大口径化は可能であるが、高温プロセスによる砒素抜けのために、結晶品質が劣化してしまうという問題がある。これらの問題を解決するために、本研究では常温接合(RTB: Room-Temperature Bonding)を用いて大口径 QPM 構造の作製を試みている。

## 2. 常温接合法

常温接合は、Suga らにより提案された画期的な接合方法である[4]。常温接合は固相接合の一種で、真空中において、原子ビームを用いて表面を活性化させ常温のまま接合を行う技術である。

図 2 に常温接合のメカニズムを示す。(a)通常、試料の表面は大気中室温において形成される自然酸化膜や、吸着した水分子などの汚染物に覆われている。(b)活性状態とは、接合を阻害しているこれらを取り除き、表面原子の結合手を露出させた状態のことである。接合表面を活性化するための照射ビーム源として高速原子ビーム (FAB: Fast Atom Beam) 源を用いる。加速されたアルゴン原子ビームを高真空中で照射することにより、結晶表面を活性化させる。(c)この活性表面をそれぞれ接触させ加圧することで、接合を行う。このようにして、強固で信頼性の高い結合を作り出すことができる。

常温接合の特徴として高温プロセスを用いないため接合材料にかかる負荷が小さいこと、金属・酸化物・誘電体・化合物半導体など、接合に適用できる材料の選択肢が多いこと等がある。本研究では、この常温接合を用いて薄い GaAs プレート多数枚貼り合わせることで、高品質な QPM 構造の作製を試みる。

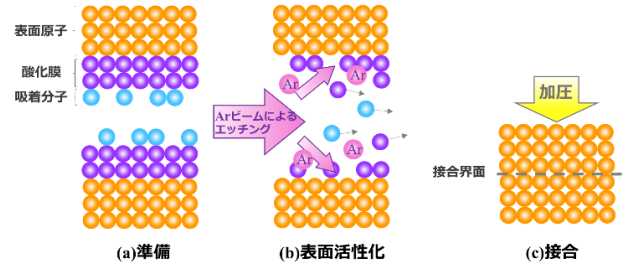


図 2 常温接合のメカニズム

## 3. 先行研究における課題

本研究室では先行研究においてエラストマーシートを用いた作製プロセス(従来プロセス)にて、サイズ 5.5 mm×5.0 mm、厚さ 106 μm の(111)面プレートを 53 枚積層した全長 5.6 mm の QPM 構造を作製することに成功した。さらに波長 10.6 μm の CO<sub>2</sub> レーザを用いた第二高調波発生で、過去作製した 9 枚積層構造に比べ 29 倍大きい変換効率を得た[5]。しかしながら、デバイス面内での透過率のバラつきが大きく、透過率の高い部分が限られた。これは、積層枚数を増やすにつれて貼り合わせた GaAs プレートの表面平坦性が悪化し、複数箇所で接合界面に空隙が発生したためと考えられる。

## 4. YAG 結晶を用いた接合プロセス 1 による QPM デバイスの作製

本研究では常温接合を用いて GaAs プレート多数枚積層し作製した QPM デバイスの高品質化を目的とする。高品質化とは、デバイスの透過率を向上させ、表面平坦性向上を達成することである。今回図 3 に示すレーザグレードに研磨した平坦性の高い YAG 結晶表面上に GaAs プレートを設置する方法(作製プロセス 1)を新たに検討した。

QPM デバイス作製は以下の手順で行った。図 4 に手順を示す。(a)1 枚の GaAs プレートが設置されたステージと 1 枚の GaAs プレートを準備したロッドをチャンバにセットし、30 min~60 min かけて高真空(10<sup>-5</sup> Pa 程度)状態にする。(b)Ar 原子ビームを照射する。(c)上部のロッドを下げ加圧を行うことで密着を促進させる。(d)ロッドを引き上

げ大気開放する。(e)方位反転させた次のプレート  
を新たにセットする。これを繰り返すことで厚さ  
106  $\mu\text{m}$  のプレートを用いた 53 枚積層 QPM デバ  
イス(全長: 5.6 mm)の作製に成功した。これは波  
長 10.6  $\mu\text{m}$  の CO<sub>2</sub> レーザを用いた第二高調波発生  
(SHG)のための波長変換デバイスである。

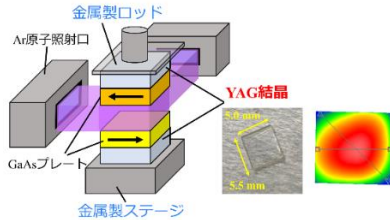


図 3 YAG を用いた接合プロセス

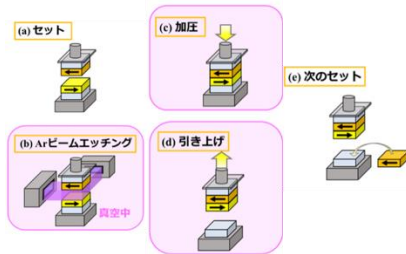


図 4 YAG を用いた積層 QPM デバイスの作製

### 5. 53 枚積層 QPM デバイスの評価

従来プロセスで作製した 53 枚積層 QPM デバ  
イスの表面高低差は 4  $\mu\text{m}$  程度であった(図 5)のに対  
し、YAG 結晶を用いるプロセス 1 では 1  $\mu\text{m}$  とな  
り(図 6)、平坦性の改善が確認できた。さらにデバ  
イスの透過率を FT-IR(フーリエ変換赤外分光光度  
計)を使用して測定した。内部透過率はデバイスの  
透過率をプレート 1 枚の透過率で除算した値であ  
る。積層枚数を考慮して算出した接合界面あたり  
の損失によって品質評価を行った。デバイスの透  
過率を図 7 に示し、波長 10.6  $\mu\text{m}$  における接合界  
面あたりの損失を表 1 に示す。界面あたりの損失  
は従来プロセスと同程度という結果になった。波  
長約 10  $\mu\text{m}$ ・13  $\mu\text{m}$  で透過率の低減が発生してい  
る。これは作製に使用しているグリースが原因で

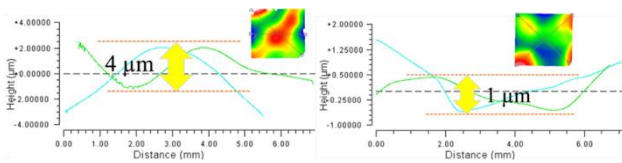


図 5 従来(左)プロセス 1(右)53 枚積層の表面平坦性

あり、これを用いないプロセスを行う必要がある。

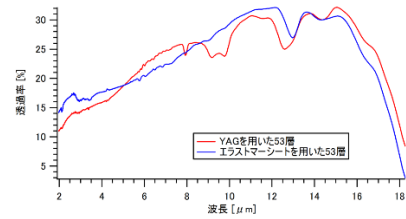


図 7 53 枚積層の透過スペクトル

表 1 53 枚積層の透過率 @10.6  $\mu\text{m}$

接合方法	枚数	内部透 $T_{in}$	損失 $\alpha$
従来プロセス	53 枚	52%	1.2%
プロセス 1	53 枚	50%	1.3%

### 6. 接合プロセスおよび接合条件の最適化

新規接合プロセスとして荷重変換器の導入、グ  
リースの代替品の使用、接合条件である試料間距  
離の最適化を行う。

加圧荷重が大きすぎると塑性変形が生じて透過  
率が低下する[6]と示唆されている。常温接合装  
置の真空チャンバ内に荷重変換器を導入し、接合時  
の加圧荷重の精密な制御と測定を可能とした。

加圧荷重のみを変更し、10 枚積層 QPM デバ  
イスを作製した。透過スペクトル (図 8) より加圧  
荷重が小さい方が透過率が高く、加圧荷重 50 N  
が最適である。

図 7 および図 8 に示すように作製した積層構造  
は波長 10  $\mu\text{m}$  および 13  $\mu\text{m}$  近くにおいて大きく  
透過率が減少する場合がある。これは YAG と  
GaAs の接着のために使用するグリースが原因だ  
と考えられる。図 9 に GaAs プレート 1 枚のグ  
リースの有無による透過スペクトルの変化を示す。  
これより特定波長における大幅な透過率の低減は  
グリースによって引き起こされていることが分か  
る。以降のプロセスにおいてはグリースの代替品  
として、透過率に影響を与えないことが確認され  
た付箋を用いる。

従来プロセスにおいて接合条件である試料間距  
離は 15 mm である。GaAs の接合強度が低い原因  
として Ar ビームの照射が十分に行えていないと

考えられた。照射範囲を測定すると有効範囲は約 10 mm であり従来条件では有効に照射できていない。そこで試料間距離を 4.5 mm に変更する。

以上接合プロセスおよび接合条件の変更を行った作製プロセス(プロセス 2)にて 9 枚積層 QPM デバイスの作製に成功した。プロセス 1 で作製した 10 枚積層とプロセス 2 で作製した 9 枚積層 QPM デバイスの透過率を表 2 に示す。内部透過率は 92%から 97%、接合界面当たりの損失は 0.88%から 0.36%となり品質の向上に成功した。

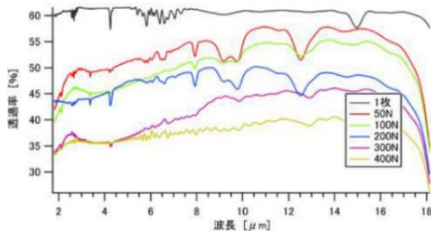


図 8 加圧荷重の異なる 10 枚積層の透過スペクトル

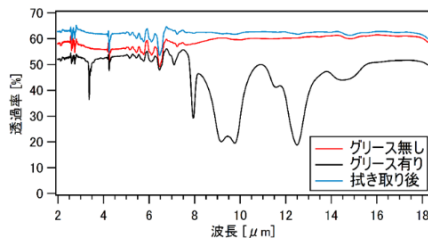


図 9 グリースの有無による透過スペクトル変化

表 2 プロセス 2 の 9 枚積層透過率 @10.6 μm

接合方法	枚数	内部透 $T_{in}$	損失 $\alpha$
プロセス 1	10 枚	92%	0.88%
プロセス 2	9 枚	97%	0.36%

## 7. 500 μm 厚 GaAs を用いた QPM デバイス

従来の厚さ 106 μm だけでなく、厚さ 500 μm の GaAs プレートを使用したプロセス (プロセス 3) により多数枚積層構造の作製を目指す。以下に作製方法を記す。①10 枚積層の両端に厚さ 500 μm の GaAs プレートを使用する。②厚さ 500 μm の GaAs プレートを 106 μm に研磨を行う。③厚さ 106 μm の 10 枚積層同士を接合し多数枚積層を達成する。

プロセス 2 と同様の接合条件にて厚さ 500 μm GaAs を用いた 10 枚積層 QPM デバイスの作製に成功した。波長 10.6 μm における透過率は 58%であり、界面散乱損失は 0.56%である。この品質の 53 枚積層デバイスを仮定すると透過率は 37.8%であり、先行研究の 53 枚積層デバイス 30.8%より透過率が 7%向上すると考えられる。

## 7. 総括

常温接合法を用い、平坦性の高い YAG 結晶上にプレートを設置する接合プロセスで 53 枚積層 QPM デバイスを作製した。作製した 53 枚積層 QPM デバイスはエラストマーシートを用いた接合プロセスで作製された 53 枚積層 QPM デバイスと比較して、接合界面あたりの損失は同程度であったが表面平坦性の向上に成功した。そこで、新規接合プロセスとして荷重変換器の導入、グリースの代替品の使用、接合条件である試料間距離の最適化を行い 9 枚積層 QPM デバイスを作製した。界面当たりの損失の大幅な改善に成功した。また多数枚積層の達成を目指し、厚さ 106 μm だけでなく厚さ 500 μm の GaAs プレートを使用したプロセスにて 10 枚積層 QPM デバイスを作製した。本デバイスも界面当たりの損失の低減に成功した。

現在 2 通りの作製プロセスによってデバイスの品質向上が期待されている。今後は多数枚積層デバイスの作製のみならず、デバイスを使用した第二高調波の測定を行い本研究の有用性の証明が望まれる。

## 参考文献

- [1] S. Koh, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **38**, L508 (1999).
- [2] P. Schunemann, *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **33**, SD36 (2016).
- [3] L. Gordon, *et al.*, Electron. Lett. **29**, 1942 (1993).
- [4] T. Suga, *et al.*, Acta Metall. Mater. **40**, S133 (1992).
- [5] H. Takase *et al.*, Proc. SPIE **10902**, 109020I (2019).
- [6] S. Yoo, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **66**, 3410 (1995).