

論文内容の要旨

博士論文題目 新規 Sol-Gel プロセスによる(Pb,La)(Zr,Ti)O₃ 薄膜の作製と
その電気光学特性に関する研究

氏 名 越前 正洋

(論文内容の要旨)

電気光学効果はディスプレイ、光シャッター、光変調器から光集積回路などの電気光学素子に広く応用されている。次世代電気光学材料には高い透過率と電気光学係数を有し、それらを組成変調により容易に制御できることが求められており、その実現にむけた材料探索に対する期待は大きい。このような条件をあわせ持つ材料として(Pb,La)(Zr,Ti)O₃(PLZT)系材料が上げられるが、低電圧駆動を実現するため薄膜化すると、電気光学係数などの物性値が低下し、その結果素子特性が低下するという問題があった。

そこで本論文では、PLZT 薄膜の作製法として組成制御に有利な Sol-Gel 法を選択し、それに新しい結晶化制御技術を付加することで、高い結晶性とバルクに匹敵する電気光学特性を持つ PLZT 薄膜を実現すること、および、それを用いて電気光学効果の結晶方位依存性や従来未知であった低 La 組成領域における電気光学特性に関する知見を得ること、を目的としている。

第1章では、電気光学効果と電気光学材料の一般的な知見をまとめ、誘電体膜の作製手法に関する比較検討を行い、本論文の目的を示した。

第2章では、Sol-Gel 法による成膜プロセスを、結晶配向性の観点から成膜条件を最適化した。特に、メタノールによる基板表面処理および前駆体溶液に対するメタノール添加という2つの新規プロセスを導入した結果、これら新規プロセスは結晶性の改善に有効であり、PLZT 薄膜は Sapphire 基板に対してエピタキシャル成長することを見出した。

第3章では、各種 Sol-Gel プロセスにより作製した PLZT 薄膜において、PLZT の屈折率はその結晶性に依存しないが、消衰係数は結晶性の改善と共に低下することを見出した。さらに、エピタキシャル PLZT 薄膜の電気光学係数はバルクと同等、またはそれ以上の値を示すことを明らかにした。

第4章では、エピタキシャル PLZT 薄膜を用いて電気光学特性の異方性の評価を行い、従来大型の単結晶を作製することが困難なため明らかにならなかった電気光学効果の結晶方位依存性を明らかにした。

第5章では、新規プロセスを用いLaを0-12 at%の範囲で組成変調したエピタキシャルPLZT薄膜を作製し、従来測定ができなかった低La領域でのPLZTの電気光学特性評価を行った。その結果、La=2at%において最も大きな電気光学効果が得られることを初めて見出した。

第6章では、本論文で得られた新規Sol-Gelプロセス、およびそれにより作製したPLZT薄膜の電気光学特性に関する知見を総括し、今後の課題を提示した。

以上のように、本論文では、Sol-Gelプロセスの最適化を行うことでPLZT薄膜のエピタキシャル成膜に成功し、バルクに匹敵する高い電気光学効果を薄膜で初めて実現するとともに、それを用いて従来明らかにならなかった結晶方位依存性や低La領域における電気光学効果に関する知見を得ている。本研究成果は、電気光学効果を利用した光集積回路の高性能化を実現できる指針を示すものであり、大変有意義な知見であると言える。

(論文審査結果の要旨)

電気光学効果はディスプレイ、光シャッター、光変調器から光集積回路などの電気光学素子に広く応用されている。次世代電気光学材料には高い透過率と電気光学係数を有し、それらを組成変調により容易に制御できることが求められており、その実現にむけた材料探索に対する期待は大きい。このような条件をあわせ持つ材料として $(\text{Pb,La})(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ (PLZT)が上げられるが、低電圧駆動を実現するため薄膜化すると、電気光学係数などの物性値が低下し、その結果素子特性が低下するという問題があった。

そこで本論文では、PLZT 薄膜の作製法として組成制御に有利な Sol-Gel 法を選択し、それに新しい結晶化制御技術を付加することで高い結晶性とバルクに匹敵する電気光学特性を持つ PLZT 薄膜を実現すること、および、それを用いて従来未知であった電気光学効果の結晶方位依存性や低 La 組成領域における電気光学特性に関する知見を得ること、を目的している。

まず、本論文では、電気光学効果と電気光学材料の一般的な知見をまとめ本論文の目的を示したのち、Sol-Gel 法による成膜プロセスを、結晶配向性の観点から成膜条件を最適化した結果について述べている。その結果、メタノールによる基板表面処理および前駆体溶液に対するメタノール添加という2つの新規プロセスが結晶性の改善に有効であり、その結果 PLZT 薄膜は Sapphire 基板に対してエピタキシャル成長することを見出している。

次に、各種 Sol-Gel プロセスにより作製した PLZT 薄膜の電気光学効果を測定し、PLZT 薄膜の屈折率はその結晶性に依存しないが、消衰係数は結晶性の改善と共に低下することを見出している。また、エピタキシャル PLZT 薄膜の電気光学係数はバルクと同等、またはそれ以上の値を示すことを明らかにしている。

次に、エピタキシャル PLZT 薄膜を用いて電気光学特性の異方性の評価を行い、従来大型の単結晶を作製することが困難なため明らかにならなかった電気光学効果の結晶方位依存性を初めて明らかにしている。

次に、新規プロセスを用い La を 0-12 at% の範囲で組成変調したエピタキシャル PLZT 薄膜を作製し、従来測定ができなかった低 La 領域での PLZT の電気光学特性の測定を行い、La=2at% において最も大きな電気光学効果が得られることを見出している。

以上のように、本論文では、Sol-Gel プロセスの最適化を行うことで PLZT 薄膜のエピタキシャル成膜に成功し、バルクに匹敵する高い電気光学効果を薄膜で初めて実現するとともに、それを用いて結晶方位依存性や低 La 領域における電気光学効果を明らかにしており、電気光学効果を利用した光集積回路の高性能化を実現する指針を示すものであり、大変多

くの知見を得ている。よって審査委員一同は本論文が博士(工学)の学位論文として価値あるものと認めた。