

論文の内容の要旨

論文題目 化学溶液法による β -BaB₂O₄ 光学薄膜の合成と結晶化

氏名 小林 健

第1章 序論

本研究では β -BaB₂O₄(β -BBO)薄膜導波路を実現するために必要不可欠な、 β -BBO 薄膜の単結晶化と、そのパターンニングに関する研究をおこなった。 β -BBO 薄膜導波路の実現のために達成されるべき課題を、薄膜に関する研究の現状と問題点から抽出した。この課題は次のとおりである。

- ・化学溶液法により面内配向した β -BBO 薄膜を、低屈折率基板上に作製すること。
- ・完全な面内配向が達成されていなくても、少なくとも数十 μm のオーダーの結晶からなる β -BBO 薄膜にすること。
- ・金属アルコキシド溶液だけでなく、酢酸塩溶液などの化学的に安定な前駆体溶液からの作製法を提案すること。
- ・優先配向の機構を明らかにすること。
- ・ β -BBO 薄膜のパターンニング法を、マイクロモールド法を中心に検討すること。

第2章 金属アルコキシド溶液からの β -BaB₂O₄ 粉末、薄膜の作製

β -BBO 薄膜を、金属アルコキシド溶液から作製し、溶液のコーティング後の乾燥温度を最適化することで、(001)優先配向の配向度が 0.93 という、高配向性 β -BBO 薄膜を作製することに成功した。しかしながら、金属アルコキシド溶液からの β -BBO 薄膜作製には再現性に問題があり、化学的に安定な前駆体溶液からの薄膜作製の必要性を指摘した。また、 β -BBO 粉末の結晶化温度、粒径が加水分解条件、溶液濃度に依存していることを示した。

第3章 酢酸バリウム-ホウ酸系溶液を用いた β -BaB₂O₄薄膜の作製と微構造

第2章で明らかになった問題点を受け、金属アルコキシド溶液を用いない β -BBO 薄膜の作製法について検討した。その結果、酢酸バリウム、ホウ酸系溶液を出発原料として高配向性 β -BBO 薄膜が作製できることを明らかにした。面内配向の達成は依然として不可能であったが、サイズが 1 μm 以上の薄膜が作製可能であることを明らかにした。また、薄膜の(001)優先配向性、ならびに結晶子サイズが膜厚に依存していることを明らかにした。

第4章 β -BaB₂O₄ 薄膜における結晶成長

第3章で作製された、 β -BBO 薄膜についてその結晶化過程と結晶成長の関係を明らかにし、それをもとに結晶子サイズを増大させるための指針を提示した。また、薄膜/基板界面の状態を調べ、薄膜/基板界面反応に由来する非晶質層が存在することを明らかにした。この結果から結晶子サイズの制御においては、薄膜/基板反応を回避できるような、バッファー層導入の必要性を指摘した。

第5章 マイクロモールド法による β -BaB₂O₄ 薄膜のパターニング

マイクロモールド法による β -BBO 薄膜のパターニングについて検討した。1 μm オーダーにパターニングした β -BBO 薄膜の作製に成功した。また、断面の形状制御が、マイクロモールドの溝幅、厚さ、および薄膜の厚さを制御によって可能であることを示した。さらに、 β -BBO 薄膜の優先配向性が形状に依存していることを見出し、これを積極的に利用した、 β -BBO 薄膜の配向制御の可能性を提案した。

第6章 β -BaB₂O₄ 薄膜の光学特性

薄膜の光学特性について調べた。今回作製した薄膜では面内配向が達成されていないため、微弱な SHG しか観測されなかった。しかしながら、金属アルコキッド溶液から作製した β -BBO 粉末が、十分に結晶化した場合は、明確な SHG を示しており、薄膜に関しても第4章で述べた、基板/界面反応の問題を解決できれば、明確な SHG を示す β -BBO 薄膜にできることを述べた。

第7章 総括

本研究の成果をまとめ、最初にあげた課題の到達度について述べた。これらのうち、3, 4, 5 については本研究でほぼ解決されたといえる。 β -BBO 薄膜の結晶子サイズを、1 μm 前後にまで大きくできたとはいえ面内配向はランダムであり、1, 2 はほとんど達成されていないと、言わざるを得ない。しかしながら、第4章で、結晶成長の核の数を減らすことによる、結晶子サイズを増大の可能性を示しており、この点からの検討が2つめの課題解決の糸口になるであろう。結晶子サイズを数十 μm にまで大きくできれば、パターニングによって、数十 μm のライン状薄膜にすることで(これは第5章で方法を確立した)、面内配向した β -BBO 薄膜導波路が作製できるであろう。