

## 論文の内容の要旨

論文題目 ゾルゲル法を用いた強誘電体(Pb,La)(Zr,Ti)O<sub>3</sub>  
二次元フォトニック結晶の作製に関する研究

氏名 青木 剛

近年、インターネットの爆発的な普及により通信トラフィックは増大の一途をたどっている。波長分割多重(Wavelength Division Multiplexing: WDM)技術等によりネットワークの信号波長数を増大させた結果、光アドドロップ多重化装置(Optical Add Drop Multiplexing: OADM)や光クロスコネクタ(Optical Cross Connect: OXC)等の通信装置のチャンネル数は爆発的に増加しつつある。将来的にはそれらの通信デバイスのチャンネル数増加に対応した高集積化、小型化、高い波長選択性および高速信号処理技術が求められる。

通信装置を小型化する要素技術の一つとして、フォトニック結晶が注目されている。フォトニック結晶とは複数の誘電体からなる周期構造である。フォトニック結晶では、半導体での電子のエネルギーバンド構造同様、光に対してフォトニックバンド構造とよばれる変調された周波数バンドが形成される。フォトニックバンド構造の形成により、ある周波数帯域でフォトニックバンドギャップ(Photonic Band Gap: PBG)と呼ばれる光の禁制帯やスーパープリズムと呼ばれる群速度異常による大きな光偏向が観測されており、それらを利用した従来にない超小型の光デバイスが提案されている。

一般的なフォトニック結晶内部のフォトニックバンド構造は、そのパラメータである周期構造および屈折率により一意的に決定される。このため、ある周波数を持つ入射光に対して受動的に機能する。しかしながら、最近、フォトニックバンド構造を決定するパラメータを外部場により動的に制御しようとする試みがなされている。これらはチューナブルフォトニック結晶と呼ばれており、動的制御を行うデバイス、例えば波長可変光フィルタ、導波路型OADMやOXC、および光変調器等の小型化への応用が考えられている。

超小型の通信デバイスを実現するためには、通信用光信号を高速で制御できる材料が求められる。本研究では、特にフォトニック結晶の材料として、強誘電体であるチタン酸ジルコン酸ランタン鉛((Pb,La)(Zr,Ti)O<sub>3</sub>: PLZT)に着目した。PLZTは大きな電気光学効果および高い透光性を持ち、強誘電体のドメインスイッチングを利用した高速

の屈折率制御が可能であるためである。また、フォトニック結晶の構造として二次元型を選択した。二次元フォトニック結晶は従来の電気・光デバイスで主流の平面実装と整合性があり、上下部からの電界制御ではその制御電圧の低減が可能なのである。最近、強誘電体PLZTフォトニック結晶の屈折率の 1 %の変化で、スーパープリズムによる光偏向を制御可能であるという理論予測が他のグループにより報告されている。PLZT強誘電体二次元フォトニック結晶を作製し、バンドチューニングを確認したという報告は現在まで無い。

多元素の酸化物である PLZT 厚膜形成後の通常のドライエッチングでは微細パターンニングは難しい。そこで本研究では、電子線鋳型を用いたゾルゲル法における乾燥ゲル段階でのパターンニング後、焼成による結晶化を行うプロセスの開発に取り組んだ。このとき PLZT の単結晶基板上でのエピタキシャル成長を試みた。エピタキシャル成長させた PLZT 膜は光学等方性や耐電圧性に優れているためである。ゾルゲル法によるエピタキシャル成長のメカニズムはまだ良くわかっておらず、フォトニック結晶のような微細パターンをもつ強誘電体を作製し、結晶性を調査した報告も無い。

本研究の目的は 強誘電体 PLZT からなる二次元フォトニック結晶を設計、作製および評価し、強誘電体二次元チューナブルフォトニック結晶デバイスの実現可能性を調査すること、 作製した微細 PLZT パターンの結晶成長様式から、ゾルゲル法によるエピタキシャル成長過程を明らかにすることの二つを主目的とした。

二次元フォトニック結晶の構造として、ロッド型およびエアホール型が一般的である。PLZT の屈折率を仮定し、シミュレーションツールを用いた平面波展開法により、ロッド型、エアホール型とした場合のフォトニックバンド構造の計算を行った。その結果、光信号を PBG で制御するためには PLZT をサブミクロンスケールで基板上にパターンニングする必要があることがわかった。また、電圧印加時のブレイクダウン回避のため、フォトニック結晶の空気部に樹脂充填を行った場合のシミュレーションを行った結果、PBG が形成されることがわかった。(001)面にエピタキシャル成長させた PLZT を樹脂充填した場合のフォトニック結晶を仮定し、例えば 1%の屈折率変化を発生させる場合の PBG のチューニング幅は 10 nm 以下程度であることがわかった。

次に強誘電体を微細加工するプロセスを開発した。PLZT 前駆体溶液をスピンコーティングにより電子線レジスト鋳型内部に充填し、乾燥させた。鋳型上部に形成された乾燥ゲル膜を除去する必要がある。除去方法として、ECR ドライエッチングおよびバフ研磨に取り組み、完全に除去可能なバフ研磨を採用した。微細パターン化により、通常の膜の場合と同様の焼成では、表面からの鉛成分揮発が顕著になり十分結晶化しないことがわかった。鉛揮発等の問題を克服するため、急速昇温、短時間焼成、および鉛前駆体によりパターン表面を被覆し、微細パターン PLZT の結晶化促進する焼成プロセスを開発した。この過程で、ゾルゲル法におけるエピタキシャル薄膜での結晶成長機構では説明できない高アスペクトパターン内部での核生成および多結晶

配向によるエピタキシャル成長モデルを立案した。

次に開発したプロセスを用いて基板上に柱構造および空孔を三角格子状に周期配列させたロッド型、エアホール型 PLZT 二次元フォトニック結晶を作製した。ロッド型の周期は 600-800 nm、直径は約 200 nm、高さは約 1  $\mu\text{m}$  である。エアホール型の周期は 400-450 nm、直径は約 270-330 nm、厚さは約 200 nm である。圧電特性評価によりその強誘電性を確認し、分光反射測定により異なる波長帯域、偏光状態で異なる帯域出現しているピークを観測した。これらのピークは計算から予測される帯域に出現しており、PBG に起因していると考えられる

また、完全にエピタキシャル成長させたロッド型強誘電体 PLZT 二次元フォトニック結晶を作製した。周期は 450 nm、直径は約 160 nm、高さは 500 nm である。ロッド間に透明樹脂を充填後、上部電極を形成し、電界によるフォトニックバンド構造のチューニングに取り組んだ。その結果、反射スペクトル中の PBG に起因するピークのシフトを観測した。30 V の電圧印加により TM 偏光に対して約 3 nm の PBG 中間ギャップ位置のシフト量が観測された。TE 偏光に対しては約 1 nm 程度シフトすることがわかった。TM 偏光に対し、TE 偏光に対しこのシフト量は PLZT の電気光学効果を仮定したシミュレーション結果と近く、電界による強誘電体の二次元フォトニック結晶のチューニングを初めて観測できたと考えられる。