

令和 5 年 5 月 29 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2021～2022

課題番号：21K18809

研究課題名（和文）アモルファス材料を前駆体とするポッケルス効果型デバイス材料の創出

研究課題名（英文）Fabrication of optical device based on Pockels effect by amorphous material as precursor

研究代表者

高橋 儀宏（Takahashi, Yoshihiro）

東北大学・工学研究科・准教授

研究者番号：50442728

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究課題では、アモルファス酸化物を前駆体とした、結晶化による構造秩序化によりポッケルス効果に基づく光波制御機能を有する透明な多結晶材料の開発を行った。SrO-TiO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub>系アモルファス物質を用いることで、非線形光学結晶Sr<sub>2</sub>TiSi<sub>2</sub>O<sub>8</sub>が放射状に結晶化したファイバー型試料の創製に成功した。加えて、電圧印加による位相変化に基づく光強度変調を実証し、ポッケルス効果に基づくファイバー型光波制御素子としての基本原理を確認した。さらに光通信波長域において、現行の単結晶光導波路材料に匹敵する伝搬損失をファイバー型試料において実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光波制御デバイスの作製には機能性の観点から単結晶材料がほぼ独壇場であるが、非晶質物質、特に酸化物ガラスは低コストで量産性に優れ、さらにはファイバー/薄膜など高い形態制御性を有することから、多くの実用上のメリットを有していると考えられる。本研究課題をさらに発展させることによって、特異な分極配向や組織構造を有する新しい光学材料の創出、ならびに光学デバイス応用へ大きな進展があるものと期待される。

研究成果の概要（英文）：This project has aimed to develop a transparent polycrystalline material with optical function based on Pockels effect by the structural ordering in an amorphous oxide as precursor, i.e., crystallization. By use of the SrO-TiO<sub>2</sub>-SiO<sub>2</sub> precursor, the fiber-type samples, in which nonlinear optical crystal Sr<sub>2</sub>TiSi<sub>2</sub>O<sub>8</sub> radially crystallized, has successfully fabricated, and have been demonstrated to show the optical intensity modulation based on the phase shift by means of voltage application. Furthermore, a fiber-type sample has realized a low propagation loss comparable to current single-crystal optical waveguide in the optical communication wavelength region.

研究分野：無機材料化学

キーワード：アモルファス物質 ポッケルス効果 光波制御素子 結晶化ガラス

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

光通信は、メールや大規模災害における情報伝達など生活に必要なインフラである。この通信システムには、光信号を制御するための光スイッチや光変調器などの光波制御デバイスが必須である。光波制御の動作原理として、強誘電体などが有する電気光学効果の一種であるポッケルス効果（電圧印加による屈折率の変化）が活用される。

ニオブ酸リチウム ( $\text{LiNbO}_3$ ) は大きな自発分極に基づく優れたポッケルス効果を示し、現行の光波制御デバイス材料として独占的に利用されている。しかしながら、一般に光学単結晶は育成に時間を要することや加工の困難性から高コストであり、その光波制御デバイスは極めて高価となることや、結晶（デバイス）～ガラス（光ファイバー）の異種材料間の接合による散乱ロスなどが懸念される。

### 2. 研究の目的

上述の問題を解決すべく、本研究課題において構造的・形状的自由度に優れかつ大規模生産に適したアモルファス酸化物を前駆体とし、結晶化による構造秩序化によりデバイス応用に可能なポッケルス係数を有する透明性バルク多結晶体を作製し、その光波制御特性を実証する。

### 3. 研究の方法

これまでに申請者は、光ファイバーの原料でもある二酸化ケイ素 ( $\text{SiO}_2$ ) を主成分とする多成分系アモルファス前駆体において、試料の両面から結晶化が起こり、それらの結晶成長が試料内部で衝突するまで進行する「完全表面結晶化」を見出し、それにより得られた試料からのポッケルス効果を確認している。本研究課題では、高いポテンシャルを有するアモルファス前駆体の組成設計を行い、完全表面結晶化によるファイバー形状を有する透明多結晶体の作製を試みた。また、ファイバー型試料を用いてポッケルス効果型デバイスを構築し、その光変調特性をマツハツェンダー型干渉計により調査した。さらに、光学応用において重要となる伝搬損失をカットバック法により評価した。

### 4. 研究成果

#### (1) 非線形光学結晶が析出したファイバー型試料の作製とポッケルス効果の発現

$\text{SrO-TiO}_2\text{-SiO}_2$  系アモルファス物質からファイバー形状を有する前駆体を作製し、非線形光学結晶  $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$  の析出条件を詳細に検討した結果、放射状分極構造を有するファイバー型多結晶体試料が得られた（図1）。また、ファイバー型試料において電圧印加による位相変化に基づく光強度変調を確認し、ポッケルス効果に基づくファイバー型光波制御素子としての基本原理を実証した（図2）。この測定によって得られた半波長電圧  $V_\pi$  から、実効的なポッケルス係数の定量評価にも成功した。

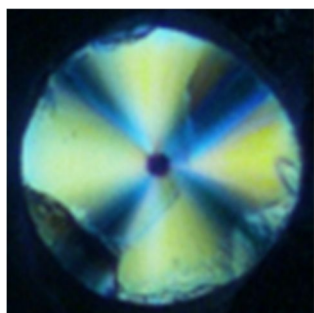


図1.  $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$  結晶が析出したファイバー型試料の断面における偏光顕微鏡写真。

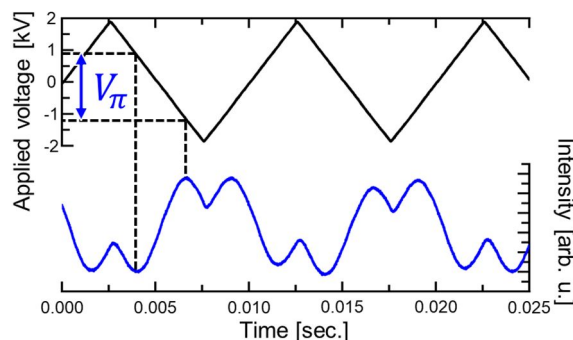


図2. ファイバー型試料への電圧印加時における干渉光強度測定の一例（青色曲線）。

#### (2) ファイバー型試料の伝搬損失の評価

図1で見られるように、結晶化後にファイバー試料の中心にはボイドが形成し、これにより  $10\text{ dB/cm}$  を超える光学応用上致命的な光伝搬損失が生じる。ファイバー型試料において  $\text{LiNbO}_3$  光導波路に匹敵する伝搬損失を実現するため、結晶化で発生するボイドの抑制および伝搬損失の改善を試みた。そこで、以下に示す3種類の条件A～Cで結晶化処理を実施した、A:  $940^\circ\text{C-1 h}$ , B:  $830^\circ\text{C-12 h}$ , C:  $800^\circ\text{C-36 h}$ 。その結果、試料Aでは中央部に細孔状のボイドが形成したが、熱処理温度の低下に従い縮小し、試料Cではファイバー全体に渡りボイドが消失した（図3）。加えて、EBSDにより試料表面から中心部へ成長した、自発分極方向に相当するc軸への成長方位を有する  $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$  の結晶ドメインが観察されたが、ボイド発生が抑制された試料Cの中心部には非晶質相の存在が明らかとなった。

ファイバー試料 A~C の光伝搬損失を計測した結果、結晶化温度の減少に伴い著しく伝搬損失が改善され、ポイド抑制による伝搬損失の向上を実証した (Fig. 4). 特に、試料 C における波長 1550 nm の値は約 0.37 dB/cm を示し、LiNbO<sub>3</sub> 導波路に匹敵する値を達成することに成功した。またこの値は、表面結晶化ガラスで報告された伝搬損失では最小である。

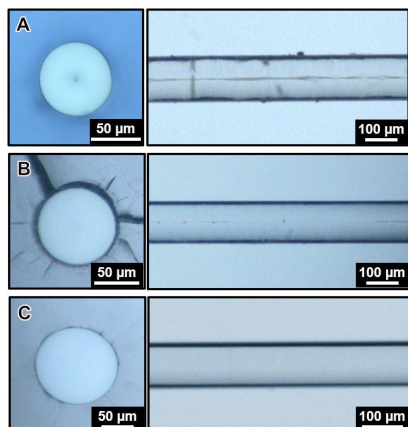


図 3. 熱処理条件 A~C により得られたファイバー型試料の光学顕微鏡写真。

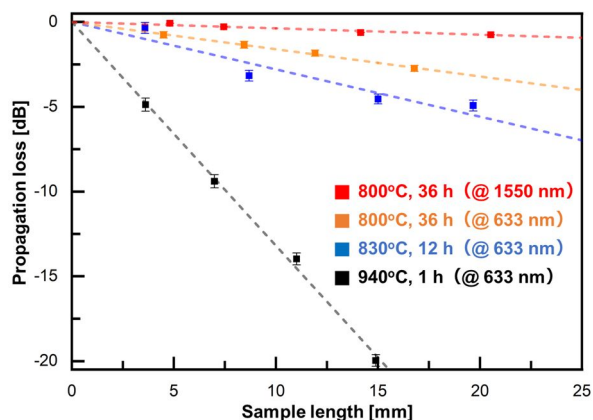


図 4. カットバック法により得られた各種ファイバー型試料の伝搬損失測定の結果。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Takuma Nakamura, Nobuaki Terakado, Yoshihiro Takahashi, Takumi Fujiwara	4. 巻 -
2. 論文標題 Radially-Polarized Glass-Ceramic Fiber toward Electro-Optic Device	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optica Advanced Photonics Congress 2022, Technical Digest Series (Optica Publishing Group, 2022)	6. 最初と最後の頁 SoM2H.2
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/SOF.2022.SoM2H.2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takuma Nakamura, Nobuaki Terakado, Yoshihiro Takahashi, Takamichi Miyazaki, Takumi Fujiwara	4. 巻 -
2. 論文標題 Prominent Propagation Loss in Nonlinear Optical Glass-Ceramic Fiber	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optica Advanced Photonics Congress 2022, Technical Digest Series (Optica Publishing Group, 2022)	6. 最初と最後の頁 BTu4A.6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/BGPPM.2022.BTu4A.6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yoshihiro Takahashi, Nobuaki Terakado, Takumi Fujiwara	4. 巻 -
2. 論文標題 Nonlinear Optical Glass-Ceramics for Fiber-Type Device Application: From Precursor Design to Pockels Effect	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Optica Advanced Photonics Congress 2022, Technical Digest Series (Optica Publishing Group, 2022)	6. 最初と最後の頁 SoM2H.2
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1364/BGPPM.2022.BTu4A.5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 1件／うち国際学会 1件）

1. 発表者名 中村拓真, 寺門信明, 高橋儀宏, 宮崎孝道, 藤原巧
2. 発表標題 光波制御素子に向けたファイバ型結晶化ガラスにおける空洞発生の抑制
3. 学会等名 2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋儀宏, 寺門信明, 藤原巧
2. 発表標題 完全表面結晶化ガラスの電子顕微鏡学的研究および光波制御素子への応用
3. 学会等名 2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中村拓真, 高橋儀宏, 寺門信明, 宮崎孝道, 藤原巧
2. 発表標題 結晶化ガラスファイバーの伝搬損失 熱処理によるポイド抑制及び各種光学材料との比較
3. 学会等名 The 32nd Meeting on Glasses for Photonics
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中村拓真, 寺門信明, 高橋儀宏, 宮崎孝道, 藤原巧
2. 発表標題 光非線形結晶化ガラスファイバの超低損失化
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takuma Nakamura, Nobuaki Terakado, Yoshihiro Takahashi, Takumi Fujiwara
2. 発表標題 Nonlinear optical glass-ceramic fiber with prominent optical propagation
3. 学会等名 26th International Congress on Glass (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中村拓真, 寺門信明, 高橋儀宏, 藤原巧
2. 発表標題 光非線形結晶化ガラスにおける未知のPockels係数の決定
3. 学会等名 2022年度 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中村拓真, 寺門信明, 高橋儀宏, 宮崎孝道, 藤原巧
2. 発表標題 非線形結晶化ガラスファイバの光学特性 損失の低減と電気光学効果
3. 学会等名 The 33rd Meeting on Glasses for Photonics 2023
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 高橋儀宏, 中村拓真, 寺門信明, 藤原巧, 小野円佳	4. 発行年 2023年
2. 出版社 一般社団法人ニューガラスフォーラム	5. 総ページ数 4
3. 書名 NEW GLASS	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------