

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 16 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26289108

研究課題名(和文)高屈折率コア/電気光学ポリマー導波路構造の低電圧動作光変調器

研究課題名(英文)Hybrid electro-optical polymer waveguide modulator for low-driving voltage operation

研究代表者

横山 士吉(Yokoyama, Shiyoshi)

九州大学・先端物質化学研究所・教授

研究者番号：00359100

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、高屈折率コア複合の電気光学(EO)ポリマー光変調器の低電圧動作と高速応答を目指して、光導波路構造化、電場配向条件、進行波型電極などの最適化を進め、光学特性の評価を行った。本研究で提案のハイブリッド型光導波路構造は、従来の逆リッジ型導波路に比べて、電場配向効率を高めるばかりでなく、光伝搬損失の低減などにも繋げることができた。特に薄膜シリコン導波路を用いたハイブリッドEOポリマー変調器は、半波長電圧特性が1V以下に達し、高周波応答も40GHzまで確認することができたことから、本研究目的を達成することができた。

研究成果の概要(英文)：The EO polymers offer intrinsic advantages such as a large EO coefficient, high bandwidth, low dielectric constant and loss, and excellent compatibility with other materials and substrates. In this study, we showed the EO polymer waveguide modulator having small driving voltage and high-bandwidth properties. The waveguide consists of the high refractive index core and the EO polymer cladding. Such a hybrid structure was advantageous to increase the EO activity due to the high poling efficiency compared to the common polymer waveguides. The measured half-wave voltage was 0.9 V. We tested the high-speed response of the hybrid EO polymer modulator by applying RF frequency signals up to 40 GHz. We measured the transmission spectra under the high-frequency modulation by using the sideband analysis technique. Clear sideband spectrum consisting of the optical carrier and modulated signals was obtained for 10-40 GHz. The half-value change in the index was observed at 23 GHz and 25% at 40 GHz.

研究分野：ポリマー光デバイス

キーワード：光変調 光導波路 シリコン導波路 電気光学 ポリマー

### 1. 研究開始当初の背景

強い電子ドナーアクセプタ型の有機色素を導入した電気光学(EO)ポリマーは、ニオブ酸リチウム( $r_{33}=30\text{pm/V}$ )を超える高いEO効果( $>100\text{pm/V}$ )を実現可能としてきている[1-3]。また、EOポリマーを用いた導波路型光変調器への応用では、半波長電圧の低減だけでなく、有機材料に特有の低誘電率特性から性能指数(FOM)が高く、広帯域変調(100-200GHz)でも期待されている(表1)

表1 EOポリマーとニオブ酸リチウムのEO特性と光導波路特性の比較

EO材料	LiNbO <sub>3</sub>	EOポリマー
EO係数( $r_{33}$ )	30 pm/V	60 -150 pm/V
半波長電圧(@ 1 kHz)	3 - 6 V	3 -10 V
性能指数( $\text{FOM}=n^3r_{33}/\epsilon$ )	6	100
動作帯域	10 - 40 GHz	100-200 GHz
小型・集積化	困難	可能

この様にEOポリマーは通信帯波長の光変調器など、低消費電力・高速光デバイス実現の期待が集まっている状況であるが、これまで光導波路変調器の半波長電圧に関して考察すると、材料本来のEO効果を十分に発揮できていない課題があった(表1)。すなわち、EOポリマーはニオブ酸リチウムよりも数倍以上のEO効果を持つにもかかわらず、半波長電圧は同レベルに留まっており、動作電圧の大幅な低減に応える課題を残していた。この原因として、導波路中でのEOポリマーのポーリング電界効率の問題を挙げることができる。一般的にEOポリマーは $\pi$ 電子色素を高濃度に分散しており、その電気的抵抗率は低くなる傾向がある。一方、導波路中でクラッド層として用いる透明性樹脂は抵抗率が高いため、ポーリング時の印可電圧はクラッド層に集中し、クラッド層に挟まれたEOポリマーコアのポーリング電界効率が低下してしまうことに原因がある。

本研究では低電圧動作のEOポリマー光変調器の作製のため、ポーリング処理の改善に取り組んできたが、得られた半波長電圧特性は4-6Vであった(図1)。さらに大幅な低減を実現するためには、抜本的に導波路構造を変えた新しい設計が必要との考に至った。

### 2. 研究の目的

本研究では、優れた光学特性を持つEOポリマーの光変調器を作製するため、従来の光導波路とは全く異なるハイブリッド型導波路を考案し、高い電場配向にもとづく光変調特性の低電圧駆動を目指した。

図1に本研究で作製したハイブリッド光導波路の断面構造を示す。伝搬光の閉じ込め効

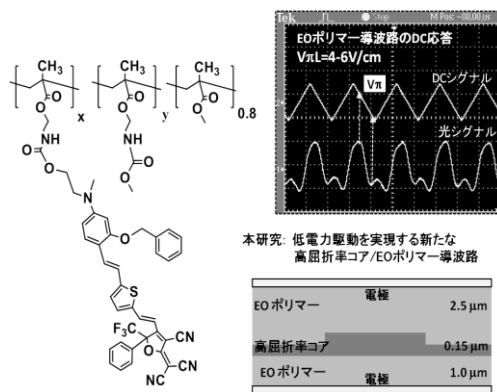


図1 EOポリマーと従来型の導波路応用(DC応答)、及び本研究で考案の新しい導波路

果が強い高屈折率コアをEOポリマー層で挟んだ構造を有している。ここで、コア層を数100nmレベルに薄膜化すると、コア中の光伝搬モードはEOポリマー層へも浸み出しながら導波することとなる。この浸み出し電場は周辺部材との相互作用を起こすため、EOポリマーに屈折率変化を誘起することで光変調が可能になると考えた。従って、従来のリッジ型構造で生じていた不均一な電場の問題を解消し、また光伝搬計算の結果から導波路の膜厚も薄くすることができるため、電場配向効率の向上も期待できる。

### 3. 研究の方法

研究開始の初年度は高屈折率コアを使ったEOポリマー光導波路の設計と作製、ポーリング電界効率の検討、及び光学特性の解析を進める。まず高屈折率コアとしてTiO<sub>2</sub>を選定し、ビーム伝搬計算をもとに導波路構造の最適化と作製の高精度化について検討し、そのEO特性を評価した。EOポリマーはこれまでの研究をもとに合成を継続した。2年度目は、マッハツェンダー型光変調器とリング共振器スイッチの作製を進め、初年度に得られた作製条件をもとに駆動電圧の詳細を検討した。ここでは、高い消光比(20dB)特性も指標として光変調器及びスイッチの作製条件を整えた。動作帯域の広帯域化に向けた方策を検証するため、マイクロストリップ電極の作製、低周波から高周波の光変調特性について適宜、課題抽出と解決に取り組み、研究を実施した。

### 4. 研究成果

本研究の目的は、電気光学(EO)ポリマーを用いた光導波路変調器の低電圧動作を実現するため、高屈折率光導波路を応用したハイブリッド導波路を設計・作製し、その高性能な光変調特性を実証することである。初年度は、スパッタ法によって成膜可能なTiO<sub>2</sub>を導波路コアとして選定し、ハイブリッド型リング共振器や細線導波路構造を持つ波長スイッチデバイスと光変調器の作製を行った。

図2にリング共振器の共鳴ピークをEOポリマーの電気光学特性でシフトしたスペク

トル変化を示す。 $\pm 10V$  の範囲で共鳴ピークは大きくシフトし、光透過率の 3dB 変化を  $V_{pp}=1.9V$  でスイッチできることを示した。これによってデバイス EO 係数として  $96\text{pm/V}$  を達成した。ハイブリッドリング共振器の詳細の設計、光モード計算による最適化、およびリング共鳴スペクトルの詳細は、*Optical Express*(2014)に報告した。

さらに光変調器への応用のため、 $\text{TiO}_2$  細線

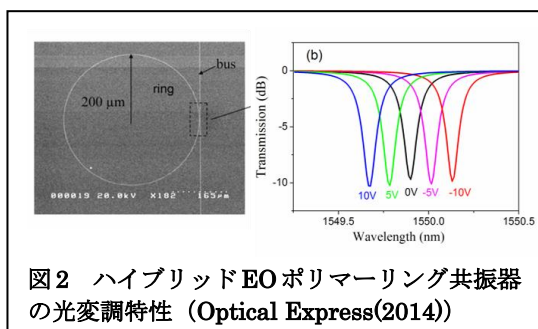


図2 ハイブリッドEOポリマーリング共振器の光変調特性 (*Optical Express*(2014))

導波路( $300\text{nm}\times 300\text{nm}$ )とコプレナ型電極を使った光導波路の設計と作製を行った。得られた位相変調器の半波長電圧は  $3.6V$  であり、この結果よりマッハ・ゼンダー型に応用することによって、動作電圧  $1V$  台の低電圧化に向けた方策を得ることができた。モード計算による詳細の設計や光学特性の結果は、*App.Phys.Lett.*(2014) に報告した。

近年、高屈折率光導波路の微細化によって特異な光電場を誘起できるスロット型導波路が着目されている。EO ポリマーとのハイブリッド化によって、伝搬光との間で強い光電場相互作用の発生が期待できることから、光変調の低電圧化に繋げることが期待できる。このため  $\text{TiO}_2$  導波路を使ったスロット型細線導波路を提案し、デバイス構造の最適化と作製、光変調特性の解析を行った。得られたデバイス EO 係数は  $140\text{pm/V}$  に達し、半波長電圧が  $1.6V$  の低電圧動作特性を得ることができた(図 3)。理論的な光モード計算と電界計算による解析から、スロット型光導波路による電界強度の増強効果を見出し、デバイス性能の向上に繋げた。本研究成果は *Scientific Reports* (2015)に報告した。

研究の初年度までに、 $\text{TiO}_2$  を選定してハイ

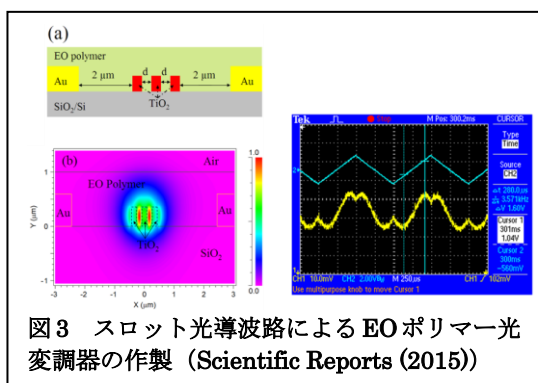


図3 スロット光導波路によるEOポリマー光変調器の作製 (*Scientific Reports* (2015))

ブリッド導波路を進めてきた。2年度目は新

たにシリコンを用いたハイブリッド光変調器に関する検討を行った。ここで考案したシリコン/EOポリマーハイブリッド光変調器は、厚さ  $50\text{nm}$  のシリコン超薄膜を使うところに特徴がある。シリコンとEOポリマーの間には大きな屈折率差があるため、コアとクラッドとして適切なハイブリッド形状を設計することによって、光電場を大きくEOポリマー中に浸透させて光伝搬することができる。はじめに、光変動作を実証するためにマッハ・ゼンダー型変調器を作製し、コプレナ型電極によって光変調の実験を行ったところ、動作電圧  $2V$  で  $10\text{MHz}$  応答の強度変調特性を確認することができた。ここで提案した薄膜シリコン/EOポリマー光変調器の結果は、*Appl.Phys.Lett.* (2015)に報告した。また、同ハイブリッド導波路のリング共振器への応用についても検討を行い、半径  $60\mu\text{m}$  の小型光スイッチングデバイスの作製にも成功した。本成果は、*ACS Photonics*(2015)に報告した。

EOポリマー光変調器の高性能化に向けて、低電圧動作に加えて広帯域化は重要な課題である。特にポリマー材料は低い誘電率特性から、光波とマイクロ波の伝搬整合性が高く、光導波路の優れた高周波応答性を期待することができる。本研究の最終年度では、ハイブリッド型光変調器の広帯域化を目指して、進行波型電極などを導入した光導波路作製と高速応答特性について検討を行った。はじめに、すでに作製実績のある  $\text{TiO}_2$  導波路を用いた光変調特性を  $4\text{-}10\text{GHz}$  の範囲で定性的な評価を行った。その結果、この周波数範囲では大きな変調度変化はなく、良好な周波数応答を示した(*Appl.Phys.Lett.* 2016)。

さらに広帯域特性の詳細を検討するため、シリコン/EOポリマー光変調器を作製し、低電圧動作の最適化と超高速応答について検討を行った。ここではハイブリッド変調器のモードの最適化、ポーリングの最適化、および高周波動作の解析など検討を行った。ハイブリッド構造の最適化では、ストリップ型電極に対応するシリコン導波路の新たなハイブリッド構造について検討し、理論的なモード解析と相補的に考察することによって最大限に電気光学特性が得られる導波路構造を決定した。また、EOポリマー合成の改良も進め、熱安定性向上のためガラス転移温度の高温化をした。これらのポリマーの熱特性をもとに導波路のポーリング条件の検討を行った。以上の諸条件を検討して得られたハイブリッド光変調器の半波長電圧は  $0.9V$  であり、本研究で目的とした  $1V$  以下の動作電圧の低減化を実現した。高速変調の実験では進行波型電極を組み込んだ導波路の、帯域特性の評価を行った。その結果、3dB帯域で  $24\text{GHz}$  の帯域特性を得た。6dB帯域では  $40\text{GHz}$  の広変調も可能であり、ポリマー変調器特有の高周波数応答特性を確認した(図 4)。

本研究成果は *Optical Express* (2017) に報告した。

さらに、作製したシリコン-EO ポリマー

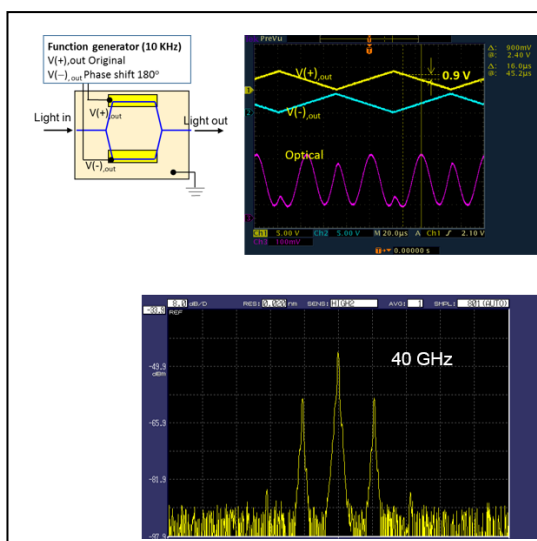


図 4 シリコン/EO ポリマー光変調器による低電圧・高速光変調器の作製(*Optical Express* (2017))

ハイブリッド導波路をシリコンフォトニクスの研究分野に展開するために、シリコン細線導波路への光結合について検討を行った。ハイブリッド導波路の薄膜シリコン導波路とシリコン細線導波路間をテーパ結合器で結合し、その結合損失等について評価を行ったところ低損失で結合できることを明らかにした (*Appl.Phys.Lett.*(2015))。以上によって、シリコン光導波路技術にポリマー技術を融合した高度化デバイスの作製についても本研究で実施した。

#### まとめ

本研究では、EO ポリマー光変調器の低電圧動作と高速応答を目指して、光導波路構造化、電場配向条件、進行波型電極などの最適化を進めた。高屈折率コアと EO ポリマークラッドの光導波路構造は、従来の逆リッジ型導波路に比べて、電場配向効率を高めるばかりでなく、光伝搬損失の低減などにも繋げることができた。本研究で得られた半波長電圧特性は最終的に 1V 以下に達し、高周波応答も 40GHz まで確認することができたことから、本研究目的を達成することができた。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 15 件) すべて査読有り

1. Fabrication of high-Q factor ring resonator using LSCVD deposited  $\text{Si}_3\text{N}_4$  film, X. Cheng, J. Hong, A. M. Spring, and S. Yokoyama, *Optical Materials Express*, 7,

2182-2187 (1017).

<https://doi.org/10.1364/OME.7.002182>

2. A high-speed electro-optic triple-microring resonator modulator, J. Hong, F. Qiu, X. Chen, A. M. Spring, and S. Yokoyama, *Scientific Report, in press*
3. Electro-optic properties of a side chain poly(norbornenedicarboximide) system with an appended phenylvinylene thiophene chromophore, A. M. Spring, F. Qiu, J. Hong, A. Bannaron, and S. Yokoyama, *Polymer* **119**, pp.13-27 (2017). <http://dx.doi.org/10.1016/j.polymer.2017.05.005>
4. Low Driving Voltage Mach-Zehnder Interference Modulator Constructed from an Electro-optic Polymer on Ultr-thin Silicon with a Broadband Operation, H. Sato, H. Miura, Feng Qiu, A. M. Spring, T. Kashino, T. Kikuchi, M. Ozawa, H. Nawata, K. Odoi, and S. Yokoyama, *Optical Express* **25**, pp. 768-775 (2017). <http://dx.doi.org/10.1364/OE.25.000768>
5. Electro-optic polymer-cladded  $\text{TiO}_2$  waveguide modulator, F. Qiu, H. Miura, A. M. Spring, J. Hong, D. Maeda, M. Ozawa, K. Odoi, and S. Yokoyama, *Appl. Phys. Lett.* **109**, pp.173301-1-4 (2016). <http://dx.doi.org/10.1063/1.4966272>
6. High stability poly(N-adamantyl-exo-norbornene-5,6-dicarboximide) and phenyl vinylene thiophene electro-optic host-guest system, A. M. Spring, F. Qiu, and S. Yokoyama, *European Polymer Journal* **84**, pp.89-99 (2016). <https://doi.org/10.1016/j.eurpolymj.2016.09.012>
7. Efficiently poled electro-optic polymer modulators, F. Qiu and S. Yokoyama, *Optical Express* **24**, pp. 19020-19025 (2016). DOI: 10.1364/OE.24.019020 (2016/08/09)
8. Athermal Hybrid Silicon/Polymer Ring Resonator Electro-optic Modulator, F. Qiu, A. M. Spring, H. Miura, D. Maeda, M. Ozawa, K. Odoi, and S. Yokoyama, *ACS Photonics* **3**, pp.780-783 (2016). DOI: 10.1021/acsp Photonics.5b00695
9. Ultra-thin Silicon/ Electro-optic Polymer Hybrid Waveguide Modulator, F. Qiu, H. Sato, A. M. Spring, D. Maeda, M. Ozawa, K. Odoi, I. Aoki, A. Otomo, and S. Yokoyama, *Appl. Phys. Lett.* **107**, pp. 123302-1-6 (2015). DOI: 10.1063/1.4931490
10. Athermal and high-Q hybrid  $\text{TiO}_2$ - $\text{Si}_3\text{N}_4$  ring resonator via an etching-free fabrication technique, F. Qiu, A. M. Spring, and S. Yokoyama, *ACS Photonics* **2**, pp. 405-409 (2015). DOI: 10.1021/ph500450n
11. A hybrid electro-optic polymer and  $\text{TiO}_2$  double-slot waveguide modulator, F. Qiu, A.

- M. Spring, D. Maeda, M. Ozawa, K. Odoi, I. Aoki, A. Otomo, and S. Yokoyama, *Scientific Reports* **5**, 8561-1-6 (2015). DOI: 10.1038/srep08561
12. Glass Transition Temperature Control by Poly(norbornene-dicarboximide) Copolymers, A. M. Spring, D. Maeda, M. Ozawa, K. Odoi, F. Qiu, K. Yamamoto, and S. Yokoyama, *Polymer Bulletin*, **72**, pp.503-521 (2015). DOI: 10.1007/s00289-014-1283-2 (2014)
13. An Analysis of the Structural, Thermal and Optical Characteristics as well as the Electrical Resistivity of *tert*-butyldiphenylsilyl Substituted Poly(norbornene-dicarboximide)s, A. M. Spring, D. Maeda, M. Ozawa, K. Odoi, F. Qiu, K. Yamamoto, and S. Yokoyama, *Polymer*, **56**, pp. 189-198 (2015). DOI:10.1016/j.polymer.2014.11.043
14. A Straightforward Electro-optic Polymer Covered Titanium Dioxide Strip Line Modulator with a Low Driving Voltage, F. Qiu, A. M. Spring, D. Maeda, M. Ozawa, K. Odoi, I. Aoki, A. Otomo, and S. Yokoyama, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 73305-1-4 (2014) DOI: org/10.1063/1.4893925
15. TiO<sub>2</sub> ring-resonator-based EO polymer modulator, F. Qiu, A. M. Spring, D. Maeda, M. Ozawa, K. Odoi, I. Aoki, A. Otomo, and S. Yokoyama, *Opt. Express* **22**, pp. 14101-14107 (2014). DOI:10.1364/OE.22.014101

[学会発表] (計 64 件)

1. S. Yokoyama, *Electro-optic polymer modulator toward silicon photonics integration*, **14th International Conference on Frontiers of Polymer and Advanced Materials**, 2016/10/12 (Daejeon Korea)
2. S. Yokoyama, *Hybrid electro-optic polymer modulator compatible to silicon photonic waveguide*, **SPIE Optic+Photonics** 2016/9/1 (サンディエゴ 米国)
3. S. Yokoyama, *Hybrid silicon and RO polymer waveguide for high bandwidth application*, **9th International Symposium on Organic Molecular Electronics** 2016/5/8(新潟大学、新潟)
4. S. Yokoyama, *Electro-optic polymer for ultra-fast optical modulator*, **10th International Conference on Optics-photonics Design and Fabrication** 2016/3/1 (Weingarten ドイツ)
5. S. Yokoyama, *Hybrid EO polymer modulator to CMOS compatible waveguides*, **SPIE Photonics West** 2016/2/16 (サンフランシスコ 米国)
6. S. Yokoyama, *Electro-optic polymer modulator for low-driving voltage and large bandwidth application*, **2015 CRL Forum**

- International* 2015/10/19 (東京工業大学、東京)
7. S. Yokoyama, *Electro-optic polymer for high-speed and low driving voltage modulator application*, **EMN Meeting on Polymer** 2015/1/8(オランダ 米国)
  8. S. Yokoyama, *Recent Progress of Electro-optic Polymers and Optical Modulators for Telecommunications*, **International Polymer conference** 2014/12/5 (エポカル筑波、筑波市)
  9. S. Yokoyama, *Electro-optic polymer modulator for low-driving voltage and large bandwidth applications*, **The 14th International Symposium on Advanced Organic Photonics** 2014/11/5 (大阪大学、大阪市)

[その他]

ホームページ等

[http://www.cm.kyushu-u.ac.jp/dv15/Yokoyama\\_Labo.html](http://www.cm.kyushu-u.ac.jp/dv15/Yokoyama_Labo.html)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

横山 士吉 (Shiyoshi Yokoyama)

九州大学・先導物質化学研究所・教授

研究者番号：0059100

(2) 連携研究者

チュウ フン (Qiu Feng)

九州大学・先導物質化学研究所・学術研究員

研究者番号：50727063

アンドリュー スプリング (Andrew Spring)

九州大学・先導物質化学研究所・学術研究員

研究者番号：60624864