

光非線形結晶化ファイバーの創製と光学特性： 伝搬損失の評価およびポッケルス効果による光変調

東北大学大学院工学研究科 応用物理学専攻

高橋 儀宏, 中村 拓真, 寺門 信明, 藤原 巧, 小野 円佳

Fabrication of nonlinear optical glass-ceramic fiber and its optical property: Propagation loss and optical modulation

Yoshihiro Takahashi, Takuma Nakamura, Nobuaki Terakado, Takumi Fujiwara, Madoka Ono

Department of Applied Physics, Graduate School of Engineering, Tohoku University

1. はじめに

通信の光波制御にはポッケルス効果により動作する光導波路素子が用いられており、大きな自発分極を有する LiNbO_3 単結晶により構成されている。一方、シリカガラス製の光ファイバーは光波伝送を担うが、異種材料やモードプロファイルの不一致などから光波制御素子との物理的接合や光結合に困難を伴う。これらの解決策として、我々の研究グループは光ファイバーと同じガラス材料をベースとしたファイバー型光波制御素子の開発を提案してきた。¹⁻⁵⁾

これまでに林原らによって、非線形光学結晶 $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ を結晶化するシリケート系 $\text{SrO-TiO}_2\text{-SiO}_2$ ガラスを前駆体に用いた結晶化ファイバー試料の作製が報告されている。⁶⁾ この試

料は前駆体ファイバー表面から進行する競争的な結晶成長によって自発分極が放射状に整列しており、第二高調波発生による波長変換および偏光状態の空間的変換が同時に発現する。⁶⁾ しかしながら、結晶化後にファイバー試料の中心にはボイドが形成し、後述のように 10 dB/cm を超える伝搬損失を与えるといった応用上致命的な問題が生じる。本研究グループでは、結晶化ファイバー試料が少なくとも既存の単結晶光導波路と同等の伝搬損失を獲得することが光学素子応用への必須条件の一つであると考えた。

2. 結晶化ファイバーの創製と組織構造

本研究グループでは、高い光透過性および高度に結晶配向した緻密なドメイン構造を与える特異な結晶化現象「完全表面結晶化」を報告した。⁷⁻⁹⁾ また $\text{SrO-TiO}_2\text{-SiO}_2$ 系の前駆体ガラスから完全表面結晶化により作製されたファイバー試料において、クラックおよびボイドの発生が確認されている。⁶⁾ まずは前駆体ガラスの組成設計を検討した結果、 $32\text{SrO-20TiO}_2\text{-}$

〒 980-8579

宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-05

TEL 022-795-7965

FAX 022-795-7963

E-mail: yoshihiro.takahashi.a6@tohoku.ac.jp

48SiO₂ ガラス（バルク形態）では結晶化後でも試料が変形せず、かつ高クラック耐性を示すことを見出した。¹⁰⁾ 本研究で選定されたガラス組成において前駆体ファイバーを引き上げ法により作製し、以下の条件 A～C で結晶化処理を実施した。A: 940°C-1 h, B: 830°C-12 h, C: 800°C-36 h（以下、試料 A～C）。その結果、試料 A では中心部に細孔状のボイドが形成した

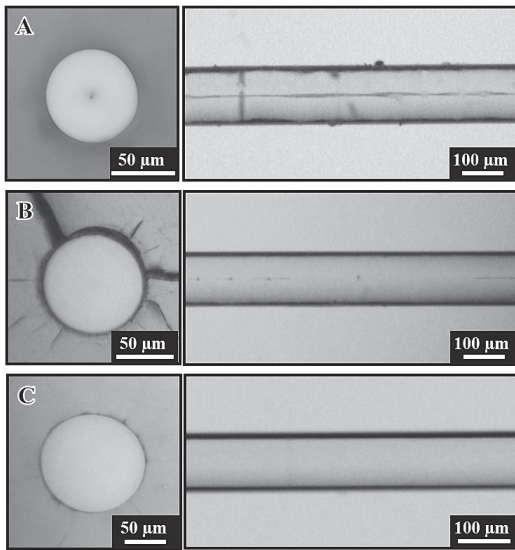


図1 各種熱処理条件で作製した結晶化ファイバーにおける断面および側面の顕微鏡観察結果。試料 A は細孔状のボイドが形成したが、試料 B ではボイドの発生は部分的となり、最終的に試料 C において完全に消失した。

が、熱処理温度の低下に従い縮小し、最も低温の結晶化処理で得られた試料 C ではファイバー全体に渡りボイドが消失した（図 1）。また電子線後方散乱回折（EBSD）により、試料表面から中心部へ成長した Sr₂TiSi₂O₈ の結晶ドメインおよび自発分極に相当する *c* 軸方向への配向成長が観察され、さらに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（図 2；中心の黒色領域）。本研究で選定された前駆体ガラスは、結晶化相と残存ガラス相との屈折率整合が良好な組成範囲であることから¹¹⁾、光学顕微鏡により確認されたボイドの消失は、ファイバー試料の中心領域に残存ガラス相が充填した結果であると考えられる。¹²⁾

3. 結晶化ファイバーの伝搬損失およびポッケルス効果

前駆体ファイバーをより低温の熱処理条件で結晶化させることで、空隙が存在しない緻密かつ均質な結晶化ファイバーを得ることに成功した。そこで、結晶化ファイバーおよび各種光学材料における伝搬損失の比較を行った。He-Ne レーザ（波長 633 nm）を光源に用いたカットバック法により伝搬損失を評価した結果、細孔状のボイドが存在する試料 A では約 13 dB/

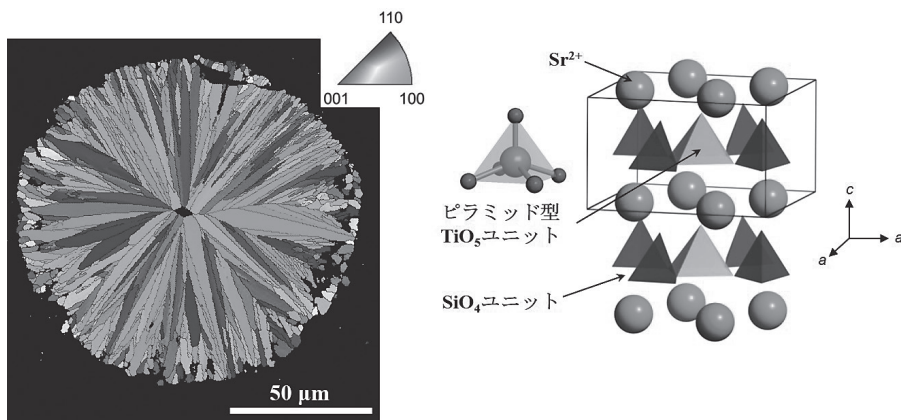


図2 試料 C における EBSD 観測で得られた逆極点図（左）および試料に析出した Sr₂TiSi₂O₈ 相の結晶構造（右）。試料は放射状の Sr₂TiSi₂O₈ 単結晶ドメインの集合体であり、放射方向は *c* 軸に相当する。また Sr₂TiSi₂O₈ 相は正方晶系に属し、TiO₅ ユニットの配列によって、*c* 軸に沿った自発分極が生じる。

cm の大きな損失が観察されたが、結晶化温度の減少に伴い著しく伝搬損失が改善され、ボイドの抑制によって伝搬損失が向上することを見出した (図 3)。特に、試料 C において通信波長領域に相当する波長 1550 nm における損失を再度評価した結果、約 0.37 dB/cm の値を得た。このように、結晶化ファイバー試料において LiNbO₃ 導波路に匹敵する伝搬損失を達成することに成功した (表 1)。^{12,13)}

次にマッハツェンダー干渉計を用いることで、結晶化ファイバー試料のポッケルス効果の観察を試みた。試料への電圧印加時における干渉光強度変化を測定した結果、ポッケルス効果に基づく明瞭な光変調動作を確認した (図 4)。

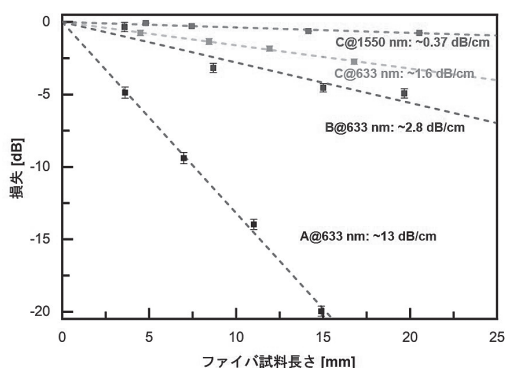


図 3 カットバック法による試料 A~C の伝搬損失の測定結果。

表 1 本研究で得られた試料および各種材料における伝搬損失との比較

評価試料	伝搬損失 [dB/cm] @ 1550 nm
Sr ₂ TiSi ₂ O ₈ 結晶化ファイバー (本研究)	0.37
LiNbO ₃ 薄膜導波路*	0.37
LiNbO ₃ ファイバー*	0.79
電気光学ポリマー材料*	2.2
Li ₂ Si ₂ O ₅ 表面結晶化ガラス*	4.59 - 5.04
SnO ₂ ナノ結晶化シリカガラス導波路*	0.6**

* これら試料の値は下記論文を参考にした。

L. Cai, Opt. Express (2019) ; J. S. Wang, Opt. Lett. (2013) ; G. W. Lu, Nat. Commun. (2020) ; Y. Ding, Electron. Lett. (1999) ; T. N. L. Tran, Ceram. Int. (2021).

** 波長 1542 nm における値。

また干渉光強度の変化は、結晶化ファイバー試料を通過したレーザー光のコヒーレンシーが高いことを意味しており、均一な結晶化組織の形成を示している。さらにこの測定によって、各入射レーザーの偏光状態における実効的なポッケルス係数は $r_x \sim 0.9$ pm/V および $r_y \sim 1.6$ pm/V と見積もられ、基本的な光位相変調器として機能することを実証した。¹⁴⁾

4. おわりに

本研究では、非線形光学結晶が析出する SrO-TiO₂-SiO₂ 系ガラスにおいて、熱処理により得られる結晶化ファイバー中に発生するボイドの完全な抑制を目指し、前駆体ファイバーのガラス組成設計と結晶化処理条件の検討を行った。ボイドフリーかつ均質性の高い結晶化ファイバーの創製に成功し、単結晶光導波路級の低伝搬損失を実現するに至った。さらに本研究の結晶化ファイバーにおいて、透過光の高いコヒーレンシー (位相揺らぎの均一性) と光変調動作を達成した。量子論の実験的検証と量子も

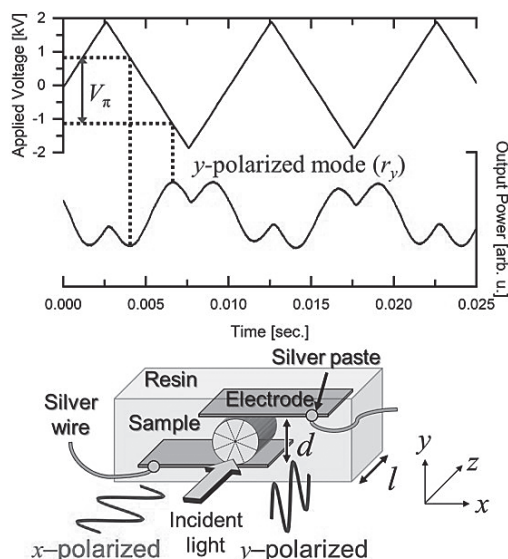


図 4 試料 C から観察された光変調測定結果 (上) および測定試料の構造と入射光の偏光条件 (下)。結晶化ファイバー試料を電極で挟み込み、樹脂で固定することで測定試料を構築した。

つれの制御に関する昨年のノーベル物理学賞を思い出すまでもなく、ガラスファイバーによる光情報通信は、近い将来に量子情報伝送を担う主要な幹線網として新たな時代を迎えるに違いない。そこでは従来の光子数の強弱に着目した透明性という古色蒼然としたアプローチから、光子の位相状態（もつれ）の長距離伝送路として、種々の揺らぎを低減する方向へと、このガラス材料やガラス結晶化の研究も進化させて行かねばならない。新たな光時代におけるガラスファイバーの画期的な有用性を目指して、今後は真に役立つ材料・製品を生み出す強い意志を持った研究活動が望まれる。

謝辞

本研究を遂行するに当たり、東北大学工学研究科技術部合同計測分析室の宮崎孝道博士に協力を賜った。

参考文献

- 1) S. Ohara, H. Masai, Y. Takahashi, T. Fujiwara, Y. Kondo, N. Sugimoto, *Opt. Lett.* **34**, 1027 (2009).
- 2) N. Iwafuchi, M. Hirokazu, Y. Takahashi, T. Fujiwara, *Electron. Lett.* **46**, 69 (2010).
- 3) K. Yamaoka, Y. Takahashi, Y. Yamazaki, N. Terakado, T. Miyazaki, T. Fujiwara, *Sci. Rep.* **5**, 12176 (2015).
- 4) H. Okamoto, Y. Takahashi, T. Nakamura, N. Terakado, T. Miyazaki, T. Fujiwara, *J. Eur. Ceram. Soc.* **40**, 5576 (2020).
- 5) Y. Takahashi, N. Terakado, T. Fujiwara, *Advanced Photonics Congress 2022, Technical Digest (Optica Publishing Group, 2022)*, SoM2H.2.
- 6) Y. Hayashibara, K. Funajima, N. Terakado, Y. Takahashi, Y. Kozawa, S. Sato, S. Nagano, T. Fujiwara, *Advanced Photonics 2018, Technical Digest (Optica Publishing Group, 2018)*, JTu6A.1. [Post-deadline paper]
- 7) 高橋儀宏, 山崎芳樹, 井原梨恵, 藤原巧, *NEW GLASS* **28**, 29 (2013)。
- 8) Y. Takahashi, Y. Yamazaki, R. Ihara, T. Fujiwara, *Appl. Phys. Lett.* **102**, 191903 (2013).
- 9) Y. Takahashi, K. Yamaoka, Y. Yamazaki, T. Miyazaki, T. Fujiwara, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 071909 (2013).
- 10) K. Takano, Y. Takahashi, T. Miyazaki, N. Terakado, T. Fujiwara, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 021904 (2018).
- 11) 藤原巧, 高橋儀宏, 寺門信明, *レーザー研究* **48**, 334 (2020).
- 12) T. Nakamura, N. Terakado, Y. Takahashi, T. Miyazaki, T. Fujiwara, *Advanced Photonics Congress 2022, Technical Digest (Optica Publishing Group, 2022)*, Btu4A.6.
- 13) T. Nakamura, Y. Takahashi, N. Terakado, T. Miyazaki, T. Fujiwara, submitted.
- 14) T. Nakamura, N. Terakado, Y. Takahashi, T. Fujiwara, *Advanced Photonics Congress 2022, Technical Digest (Optica Publishing Group, 2022)*, SoM2H.2.