マイクロチップレーザー励起によるポータブル波長可変テラヘルツ光源

林 伸一郎^{1,2}, 渋谷 孝幸^{1,3}, 酒井 博⁴, 安井 孝成⁵, 平等 拓範⁶, 小川 雄一², 大谷 知行¹, 川瀬 晃道^{1,2,3}

¹理化学研究所 (〒980-0845 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉519-1399)

²東北大学 (〒981-8555 宮城県仙台市青葉区堤通雨宮町1-1)

³名古屋大学 (〒464-8603 愛知県名古屋市中種区不老町)

⁴浜松ホトニクス (〒434-8601 静岡県浜松市浜北区平口5000)

⁵長岡科学技術大学 (〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町1603-1)

⁶分子科学研究所 (〒444-8585 愛知県岡崎市明大寺町字西郷中38)

Portable and Tunable Terahertz-Wave Parametric Generator Pumped by Microchip Nd:YAG Laser

Shin'ichiro HAYASHI,^{1,2} Takayuki SHIBUYA,^{1,3} Hiroshi SAKAI,⁴ Takanari YASUI,⁵

Takunori TAIRA,⁶ Yuichi OGAWA,² Chiko OTANI,¹ and Kodo KAWASE^{1,2,3}

¹RIKEN, 519-1399 Aramaki-cho, Aoba, Sendai, Miyagi 980-0845

²Tohoku University, 1-1 Tsutsumidori Amamiyamachi, Aoba, Sendai, Miyagi 981-8555

³Nagoya University, Furo-cho, Chikusa, Nagoya, Aichi, 464-8603

⁴Hamamatsu Photonics K. K., 5000 Hiraguchi, Hamakita, Hamamatsu, Shizuoka 434-8601

⁵Nagaoka University of Technology, 1603-1 Kamitomiokacho, Nagaoka, Niigata 940-2188

⁶Institute for Molecular Science, 38 Nishigo-Naka, Myodaiji, Okazaki, Aichi 444-8585

(Received December 4, 2008)

We have developed a terahertz wave parametric source using MgO:LiNbO₃ pumped by a sub-nanosecond, passively Q-switched, microchip Nd:YAG laser. This pump source allows high intensity pumping without damaging of the nonlinear crystal and generates a narrow linewidth and tunable terahertz wave with injection seeding by an external cavity diode laser for the idler wave. The high intensity pumping causes a gain curve broadening of the terahertz wave parametric generation, especially in the high frequency region. We obtained an output terahertz wave with a tuning range of 0.9–3 THz (100–330 μ m), a peak power of 100 mW, and a linewidth of less than 10 GHz. This room temperature operated, palm-sized source promises to be a new widely tunable terahertz wave source that is suited to a variety of applications.

Key Words: Terahertz wave, Far-infrared lasers, Frequency conversion, Parametric amplifiers

1. はじめに

近年、遠赤外線あるいはサブミリ波の領域において新しい発生・検出方式の研究が急速に進展しつつあり、それに伴ってテラヘルツ光という言葉がよく用いられるようになった。テラヘルツ光とは、マイクロ波と赤外光の間に位置する電磁波であり、 10^{12} Hz (1 THz) 付近の周波数を持つことからこう呼ばれている。テラヘルツ光の厳密な定義はまだ存在しないが、およそ波長が1 mm～30 μ mの領域、周波数に換算すると0.3 THz～10 THzの領域を指す。

テラヘルツ光は電波のように紙、プラスチック、ビニール、繊維、半導体、セラミクス、脂肪、粉体、氷など様々な物質を透過すると共に、光波のようにレンズやミラーで空間を自在に取り回すことができる。また、電波に比べて波長が短いため、多くのイメージング用途に

にとって必要十分な波長程度の空間分解能を有している。さらに近年、ビタミンや糖、医薬品、農薬、禁止薬物、爆薬など様々な試薬類に固有の吸収スペクトル(指紋スペクトル)が3 THz以下の低周波数領域で見出され、その分光応用可能性が広がりつつある。また、これまでこの領域の光源・検出器が未発達のために解明されていない物理現象・生命現象・物質構造の解明、および宇宙、大気や生体、プラズマなどの計測・診断、さらにはテラヘルツ光による非線形現象など幅広い基礎的研究分野の発展につながる可能性も大きいばかりでなく、この周波数帯の電磁波の特徴を生かしたイメージング、非破壊計測、爆薬・禁止薬物検出、バイオテクノロジーや医学への応用、および様々な産業応用への可能性など、テラヘルツ光研究は今後ますます重要になることが予想される¹⁾。

しかしながら、この領域は、光波と電波のそれぞれの領域が重要な応用技術とともに発展・成熟してきたのと

は対照的に、発生および検出技術面および応用面共に開拓が遅れているが、近年、レーザー光の波長変換を用いて比較的簡便にテラヘルツ光発生が実現できるようになってきた。最も一般的なテラヘルツ光の発生・検出方法は、電気光学結晶や光伝導性アンテナ、半導体、超伝導体等をフェムト秒レーザーで励起して広帯域なテラヘルツ光パルスを発生・検出するテラヘルツ時間領域分光法(THz Time Domain Spectroscopy)²⁻⁵⁾である。このTHz-TDSは、従来の熱型光源を用いた遠赤外フーリエ変換分光光度計に比べて非常に感度が高く、物質のテラヘルツ分光やイメージング等に应用され成果を上げている。

一方で、物質の特定量子状態への励起、超高分解能の分光、超高速光エレクトロニクス等への応用にはスペクトル線幅の狭い周波数可変テラヘルツ光源が必要である。現在、周波数1 THz程度以下の領域では、比較的コンパクトで発振スペクトル幅の狭い周波数可変な光源である後進波管(Backward Wave Oscillator)が利用できるが、寿命が数百時間程度と短く、BWOの出力が急減する1 THz以上の高周波領域での光源開発は遅れている。この領域における広帯域周波数可変テラヘルツ光源には、自由電子レーザー⁶⁾、p-Geレーザー⁷⁾、フォトミキサー⁸⁾などがあるが、それぞれシステムが大規模である、極低温を要する、出力が低いなどの課題を抱えている。また、中赤外域で高出力を実現している量子カスケードレーザー⁹⁾も、原理的に波長可変性に乏しく、3 THz以下の領域では、数例の報告例はあるものの現在はレーザー発振が困難である。このため、可搬性にも通じるコンパクトで室温動作可能かつ簡便なテラヘルツ光源が実現すれば、この領域の研究が飛躍的に進展するのは間違いない。

このような背景の下、我々は非線形光学効果(ニオブ酸リチウム(LiNbO₃)結晶中の誘導ポラリトン散乱現象^{10,11)})を用いたパラメトリック波長変換によるテラヘルツ光源(テラヘルツ光パラメトリック発生器: Terahertz-wave Parametric Generator, およびテラヘルツ光パラメトリック発振器: TP Oscillator, 光注入型テラヘルツ光パラメトリック発生器: injection-seeded TPG)の研究に取り組んでいる¹²⁾。本光源は非線形光学結晶と励起光源だけでテラヘルツ光を発生させるため、小型簡便かつ室温動作可能であり、LiNbO₃結晶のパラメトリック利得の広帯域性から、周波数領域も1 THz以下から3 THz以上と広い。従来、テラヘルツ光パラメトリック光源の小型化を制限していた要因のひとつに、励起光源が挙げられる。テラヘルツ光の波長制御のため、共振器によってアイドラー光を選択するためには、パルス幅の長い励起光が必要であるため、励起光源のサイズが大きくなってしまふ。共振器を用いないパラメトリック発生の場合、パルス幅の制約なくコンパクトな短パルス励起光源を用いることができる。このとき、発生するテラヘルツ光は励起光源の性質に依存する。高出力化、広帯域化を目指す場合にはトップハット型の強度分布を持つマルチモード励起光源を¹³⁾、種光注入による線幅の狭窄化を目指す場合には線幅の狭いシングルモード発振の励起光源を用いれ

ばよい。本報告では、ポータブル波長可変光源を目指し、励起光源としてマイクロチップレーザーを用いた光注入型テラヘルツ光パラメトリック光源について述べる。

2. 波長可変テラヘルツ光発生原理

Qスイッチ動作のパルスレーザーから発生したレーザー光のような強電場を持つ電磁波が横光学フォノンモードをもつ非線形光学結晶を通過すると、光子と格子振動が結合してポラリトンと呼ばれる素励起状態を形成する。Fig. 1に、非線形光学結晶としてLiNbO₃を利用した場合のポラリトンの分散曲線を示す。共鳴周波数 ω_0 付近では格子様に振舞うが、共鳴周波数から十分離れた低周波数領域では光子様に振舞う。このため、ポラリトンを介した誘導ラマン散乱(誘導ポラリトン散乱)によって、広帯域なテラヘルツ光発生を行うことができる。誘導ポラリトン散乱は、LiNbO₃やLiTaO₃、GaPなどの極性結晶で観測されることが報告されている¹⁴⁾。特にLiNbO₃は、可視～近赤外領域で広帯域に透明(0.4-5.5 μm)で光損傷に対する耐性が高く(損傷限界>数百MW/cm²)¹⁵⁾、誘導散乱で高い利得が得られ、テラヘルツ光の結晶中のロスが他の材料に比べて小さい¹⁶⁾、などの特性をもつことから高出力、広帯域なテラヘルツ光発生に有利である。

誘導ポラリトン散乱過程では、励起光(周波数 ω_p)とアイドラー光(ω_i)、ポラリトン(テラヘルツ光; ω_T)の間に、エネルギー保存則 $\omega_p = \omega_i + \omega_T$ と運動量保存則(ノンコリニア位相整合条件) $\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_T$ が成立し、屈折率の波長分散特性のために励起光の光軸からの散乱角に応じてアイドラー光およびテラヘルツ光の波長が定まる。光強度が $\sim 100 \text{ MW/cm}^2$ 程度以上のナノ秒パルスレーザーを用いてシングルパスでLiNbO₃結晶(A₁対称モードの最低準位: $\omega_{T0} = 250 \text{ cm}^{-1} = 7.5 \text{ THz}$)を励起すると、帯域が1 THzを超えるアイドラー光およびテラヘルツ光の発生が観測される。本稿では、このシングルパス励起の広帯域なテラヘルツ光の発生をテラヘルツ光パラメトリック発生と呼ぶ。

テラヘルツ光パラメトリック発生の利得幅は、パラメトリック利得と非線形光学結晶によるテラヘルツ光の吸収によって決まり、共鳴周波数から十分離れた低周波領域において、平面波近似の下でノンコリニア位相整合条件($\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_T$)を考慮して求めると、パラメトリック利得 g_T は、

$$g_T = \frac{\alpha_T}{2} \left\{ \sqrt{1 + 16 \cos \phi \left(\frac{g_0}{\alpha_T} \right)^2} - 1 \right\} \quad (1)$$

と表される。ここで、 ϕ は励起光とテラヘルツ光の間の位相整合角、 g_0 は低ロス限界でのパラメトリック利得、 α_T はテラヘルツ光の吸収係数を表し、

$$g_0 = \sqrt{\frac{\pi \omega_p \omega_i I_p}{2 c^3 n_i n_p}} \chi_p \propto \sqrt{\omega_i \omega_T I_p} \quad (2)$$

Fig. 1 The dispersion relation of the polariton and the noncollinear phase matching condition in LiNbO₃.

$$\chi_p = d_E + \frac{S_0 \omega_0^2}{\omega_0^2 - \omega^2} d_Q \quad (3)$$

$$\alpha_T = \frac{2\omega}{c} \left| \text{Im}(\sqrt{\epsilon_T}) \right| \quad (4)$$

である^{10,17)}。ただし、 I_p は励起光強度、 c は真空中の光速、 n_T , n_i , n_p はそれぞれ、テラヘルツ光、アイドラー光、励起光の屈折率、 S_0 は振動子強度、 ω_0 はA₁モードの共鳴周波数、 d_E , d_Q はそれぞれ電子分極、イオン分極に起因した2次と3次の非線形光学過程、 ϵ_T は誘電率を表す。

東北大の四方らは、一致溶融組成LiNbO₃結晶をX(ZZ)Y配置で測定したラマンスペクトルの解析により、A₁モードの固有周波数および線幅(減衰定数)を決定し、周波数依存性を示した¹⁷⁾。Fig. 2に、これらの結果を用いてパラメトリック利得(1)式を計算した結果を示す。非線形結晶を高強度で励起した場合、3 THz以上の領域に及ぶ周波数領域にわたって数cm⁻¹以上の高い利得を有することがわかる。上記の低周波モードは、吸収係数 α_T に付加的なピークとして寄与するため、パラメトリック利得にディップ(2.7 THz付近)となって現れる。

3. 実験装置

Fig. 3に、実験装置の概略図を示す。実験装置は、励起光源(マイクロチップNd:YAGレーザー)、波長板、レンズ、ミラー、非線形光学結晶(MgO:LiNbO₃)、注入光源(外部共振器型半導体レーザー)、アイソレーター、テラヘルツ光用レンズ、テラヘルツ光検出器(4 Kシリコンボロメーター、SBD)によって構成される。発生したテ

Fig. 2 Calculated gain coefficient for terahertz wave generation using MgO:LiNbO₃ crystal pumped at 1064 nm.

ラヘルツ光を検出するための光学系を除くと、テラヘルツ光パラメトリック発生に必要な部分は、励起光源に小型の単一縦モードLD励起受動Qスイッチ動作マイクロチップNd:YAGレーザー^{18,19)}を使用したことで、15×25 cm²程度と非常に小型である。このレーザーは、発振線幅0.009 nm以下、出力1.3 MW(0.7 mJ/pulse、パルス幅0.5 ns)、繰り返し100 Hzである。また、過飽和吸収体(Cr⁴⁺:YAG)による受動Qスイッチ動作のため電気ノイズが少なく、出力揺らぎも±2%と小さい。

両端面に励起光(1,064 nm)に対する無反射膜を施した2本のMgO:LiNbO₃結晶(各4×5×65 mm³)を間隔100 μm以下になるように縦列配置し、レンズによって並行光となった励起光(φ 0.3 mm)を入射した。励起光は結晶中を、ノンコリニア位相整合条件を満たす方向にアイドラー光およびテラヘルツ光を発生させながら通過する。このとき、注入光(連続波、出力:100 mW、波長:1,065~1,080 nm)を、1本目の結晶入り口において、ノンコリニア位相整合条件を満たすように波長と入射角度を選択し、注入する。

MgO:LiNbO₃結晶は数THz帯に大きな吸収係数(10~100 cm⁻¹@1~3 THz)を持つため、効率よくテラヘルツ光を取り出すためには、励起光を結晶の取り出し面近くを励起しなければならない。本研究では、出力テラヘルツ光が最大になるように調整した。発生したテラヘルツ光は、2目目の結晶のy面に圧着したシリコン製プリズムアレイによって結晶外に取り出され、レンズ系で集光後、4 Kシリコンボロメーターによって検出される。検出器が飽和する場合は薄膜減衰器を使用した。なお、テラヘ

Fig. 3 Experimental setup.

ルツ光の時間波形を取得する場合は、4 Kシリコンボロメーターの代わりにショットキーバリアダイオード(SBD)を使用した。アイドラー光の強度、スペクトルはそれぞれ、パワーメーター、光スペクトラムアナライザーによって検出した。

4. 結果と考察

Fig. 4に、アイドラー光出力の、励起光強度依存性を示す。光注入を行わない場合、励起光強度が上昇し、400 $\mu\text{J/pulse}$ (尖頭値1.4 GW/cm^2) 付近に達するとアイドラー光が観測され始める。その後、励起光エネルギーの増加に伴ってアイドラー光出力は単調に増加し、最高出力は、励起光強度が750 $\mu\text{J/pulse}$ (2.9 GW/cm^2) のとき、アイドラー光は110 $\mu\text{J/pulse}$ であった。従来の励起光源である単一縦モード動作のフラッシュランプ励起QスイッチNd:YAGレーザー(パルス幅15 ns)を利用した場合と比較すると、アイドラー光の発生しきい値が41 $\text{mJ/pulse}^{12)}$ から400 $\mu\text{J/pulse}$ 以下と約1/100に、非線形光学結晶の損傷しきい値は450 $\text{MW/cm}^2^{12)}$ から2.9 GW/cm^2 以上と約6倍に改善された。これらはいずれも、励起光のパルス幅が短くエネルギーが小さいため、熱的な損傷を抑えられたことにより実現されたと考えられる。また、飽和や損傷の傾向は見られないことから、さらに高強度励起することによってアイドラー光の出力向上が見込まれる。

Fig. 5に、励起光エネルギーが750 $\mu\text{J/pulse}$ のときのアイドラー光スペクトルを示す。アイドラー光は1,069.1～1,074.9 nmの領域で観測された。これは、テラヘルツ光周波数1.45～2.97 THzに相当する。励起光の尖頭値が高いため、従来型と比較して、アイドラー光強度の最大値が1,070 nm付近(1.5 THz相当)¹²⁾ から1,072 nm付近(2.1 THz相当)へと長波長側に移動している。

Fig. 6に、出力テラヘルツ光時間波形を示す。注入光を行う場合と行わない場合を重ねて示してある。励起光エネルギーはいずれの場合も550 $\mu\text{J/pulse}$ である。注入光がない場合(下方)、出力約1 mW(尖頭値)、周波数1.5～2.7 THzの広帯域なテラヘルツ光が観測された。光注入(200 mW)を行った場合、出力約20 mW(尖頭値)、周波数1.6 THzのテラヘルツ光が観測された。これは、光

Fig. 4 Pumping energy dependence of Idler wave.

Fig. 5 Idler wave spectrum.

注入を行わない場合と比較して20倍程度の出力増強である。

Fig. 7に、光注入を行った場合の、メタルメッシュエタロンによる出力テラヘルツ光の波長および発生線幅計測の結果を示す。メタルメッシュエタロンの透過テラヘルツ光強度変化より、波長約140 μm (周波数約2.14 THz)、発生線幅10 GHz以下と見積もることができる。これは、光注入がない場合と比較して、100倍以上の発生テラヘルツ光線幅の狭窄化(1 THz以上→10 GHz以下)である。

Fig. 8に、テラヘルツ光出力の周波数依存性を示す。注入光の波長と励起光とのなす角を、ノンコリニア位相整合条件を満たすように変化させることによって、0.9～3 THzの範囲でテラヘルツ光の波長が変化する様子を観測した。最大のテラヘルツ光出力は、励起光エネルギーが550 $\mu\text{J/pulse}$ 、注入光が100 mWのとき、約100 mW(尖頭値)、1.85 THz付近であった。これは、アイドラー光スペクトルと同様に、過去の報告(1.4 THz付近¹²⁾)と比較して高周波側に移動しており、これは主に、Fig. 2に示した、高強度励起による利得曲線の広帯域化およびピーク周波数の移動を反映していると考えられる。1,073 nm付近に見られるテラヘルツ光出力の落ち込みは、損傷しきい値向上のためにドーブしたMgOに起因している。MgOはLiNbO₃の結晶に格子欠陥として作用するため、利得曲線に特定周波数における利得の落ち込みが現れる¹⁷⁾。これは、結晶の損傷しきい値の制約により、計算により予想されていたが観測できなかったスペクトル形である。

Fig. 6 Time dependent signal of terahertz-wave.

Fig. 7 An example of wavelength and linewidth measurement by scanning Fabry-Perot etalon consisting of two metal mesh plate.

Fig. 9に、検出器としてSBDを用いた場合のテラヘルツ光出力の時間波形を示す。受動Qスイッチ動作の励起光源を用いたため、従来の励起光源使用時に比べてQスイッチによる電気雑音の少ない、S/N比の良い信号を観測した。

5. まとめ

小型短パルス、単一縦モード発振、受動Qスイッチ動作のマイクロチップNd:YAGレーザーを励起光源として用いて光源全体の小型化を図ると共に、熱損傷閾値を緩和し、高強度励起による広帯域波長可変、高尖頭値テラヘルツ光源を実現した。15×25 cm²程度の小型テラヘルツ光パラメトリック光源から、波長可変範囲0.9～3.0 THz、発振線幅10 GHz以下、最高出力100 mW(尖頭値)のテラヘルツ光を発生・観測した。この小型励起光源、非線形光学結晶をベースとするコンパクトなテラヘルツ波光源は、常温動作で操作も簡便であり、テラヘルツ領域における応用研究において有力なツールとなることが期待される。

謝 辞

本研究を進めるにあたりご協力いただいた、理研の南出 泰亜サブチームリーダー、伊藤 弘昌チームリーダー、平山 秀樹チームリーダー、緑川 克美主任研究員、庄子 長一氏、東北大の四方 潤一准教授、田久 長一氏に深く感謝いたします。また、本研究の一部は、第24回(平成20年度)(財)村田学術振興財団研究助成によって行われました。感謝いたします。

参考文献

- 1) 斗内 政吉：テラヘルツ技術(オーム社、(2006))。
- 2) P. R. Smith, D. H. Auston, and M. C. Nuss: IEEE J. Quantum Electron. **24** (1998) 255.
- 3) P. Y. Han and X.-C. Zhang: Appl. Phys. Lett. **73** (1998) 3049.

Fig. 8 Tunability of an is-TPG.

Fig. 9 Temporal waveform of terahertz wave.

- 4) D. M. Mittleman, R. H. Jacobsen, and M. C. Nuss: IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **2** (1996) 679.
- 5) R. A. Cheville, R. W. McGowan, and D. Grischkowsky: Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 269.
- 6) J. Allen: *Free Electron Lasers and Other Advanced Sources of Light* (National Academy Press, Washington, DC, (1994)) p.24.
- 7) S. Komiyama: Phys. Rev. Lett. **48** (1982) 271.
- 8) E. B. Brown, K. A. McIntosh, K. B. Nichols, and C. L. Dennis: Appl. Phys. Lett. **66** (1995) 285.
- 9) J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho: Science **264** (1994) 553.
- 10) S. S. Sussman: Microwave Lab. Report No. 1851 (Stanford University (1970)).
- 11) M. A. Piestrup, R. N. Fleming, and R. H. Pantell: Appl. Phys. Lett. **26** (1975) 418.
- 12) K. Kawase, J. Shikata, and H. Ito: J. Phys. D: Appl. Phys. **35** (2002) R1.
- 13) S. Hayashi, H. Minamide, T. Ikari, Y. Ogawa, J. Shiata, H. Ito, C. Otani, and K. Kawase: Appl. Opt. **46** (2007) 117.
- 14) Y. R. Shen: *The Principle of Nonlinear Optics* (John Wiley and Sons, New York, (1984)).
- 15) V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, D. N. Nikogosyan eds.: *Handbook of Nonlinear Optical Crystals* (Springer-Verlag, Berlin, (1997)).
- 16) E. D. Palik ed.: *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, San Diego, (1985)).
- 17) J. Shikata, K. Kawase, K. Karino, T. Taniuchi, and H. Ito: IEEE Trans. Microwave Theory Tech. **48** (2000) 653.
- 18) N. Pavel, J. Saikawa, S. Kurimura, and T. Taira: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) 1253.
- 19) H. Sakai, H. Kan, and T. Taira: Opt. Express **16** (2008) 19891.