高強度テラヘルツ光発生と非線形テラヘルツ分光

田中 耕一郎^{1,2}, 廣理 英基^{1,2}

¹京都大学 物質-細胞統合システム拠点 (〒606-8501 京都市左京区)

²科学技術振興機構CREST (〒332-0012 埼玉県川口市)

High-Power Terahertz Pulse Generation and Nonlinear Terahertz Spectroscopy

Koichiro TANAKA and Hideki HIRORI

¹*Institute for Integrated Cell-Material Sciences (WPI-iCeMS), Kyoto University, Sakyo-ku, Kyoto 606-8501*

²*CREST, Japan Science and Technology Agency, Kawaguchi, Saitama 332-0012*

(Received May 1, 2012)

We present a review of the recent progress in the generation methods of intense terahertz pulses and their application to THz nonlinear spectroscopy in solids. Especially we pay special attention to large amplitude oscillation of the soft optical phonon mode and carrier multiplication process in semiconductors.

Key Words: Terahertz wave generation, THz nonlinear spectroscopy, Carrier multiplication, Anharmonic oscillation

1. はじめに

テラヘルツ (THz) 領域の光は、波長が「電波」と「光」の境界に位置し、これまで発生・制御・検出が困難であった¹⁾。それが、超短パルス光技術を基礎にしたTHz光パルスの発生・検出技術の開発をきっかけとして、現在目覚ましい発展をとげている²⁾。発生法は大別すると、近赤外～可視域のレーザーを用いた光学的手法と電流注入による半導体デバイスを用いた方法がある。前者では差周波発生を基本とした方法、光整流効果をもちいた方法があるし、後者では量子カスケードレーザーと呼ばれる半導体デバイスが爆発的な勢いで開発されつつある。前者の中でも、フェムト秒レーザーをもちいたTHz光発生と検出法は、高いS/Nとダイナミックレンジを有する測定手法である「時間領域分光 (Time-Domain Spectroscopy: TDS)」と相俟って、多くの研究者に採用されている³⁾。THz-TDSをもちいると、これまで技術的に難しかったTHz領域の物性、特に複素誘電率や複素透磁率を決定できる。THz領域には、分子の回転スペクトル、巨大分子の振動モード、強誘電体等のソフトモード、超伝導ギャップ、半導体中の励起子の束縛エネルギーなどといった数々の励起モードが存在することから、THz-TDSはこれらの励起モードの研究に欠かすことのできない手法となっている。以上の話はいわゆる線型応答の内容であるが、最近1 MV/cmに達するようなピーク電場を有するTHzパルスが生成可能となり、物質のTHz領域の光学

非線形性が次々と明らかになってきている⁴⁻⁷⁾。本稿では、このような高強度のTHz光の発生法を解説するとともに、最近の非線形分光の結果を紹介する。

2. 高強度THz光発生と進展

THz領域の非線形分光に関しては2000年までは目立った進展はなかった⁸⁾。これは偏に高強度のTHz光源が存在しなかったからである。しかし、現在では1 MV/cmを超える電場強度のTHz光の発生と検出が、相対論的電子ビームによる制動放射⁹⁾や高出力フェムト秒レーザーによる光整流効果 (OR)¹⁰⁾、パラメトリック波長変換 (OPA)/差周波発生 (DFG) などの方法により可能になってきた。OPA/DFGの場合は、積極的に2つの中心周波数のパルス (もしくはCW) 光源を用意し、差周波を取る。それに対し、ORの場合はパルス光によってDC電場を発生させるので、発生された電場はDCではなくパルス包絡関数の2回微分で与えられる時間波形をもつ。したがって、発生されたTHz光のスペクトルは励起レーザーのスペクトル帯域に制限を受けることになる。励起レーザーのパルス自身の差周波発生と考えても良い。GaSe結晶を用いたOPA/DFGは高強度THz光を15-75 THzの領域で発生できるので、非線形光学の観点から大いに注目されている¹¹⁾。実際、数サイクルのTHz光であれば、100 MV/cm¹²⁾、単一サイクルであれば10 MV/cm¹³⁾の電場強度が報告されている。

3 THz以下の周波数領域の場合では、光整流効果が最も良く使われている発生方法である。位相整合条件の点でZnTe結晶が最も良く用いられている。Blanchardらは、30 mJ/パルスのパルスエネルギーを持つ超短パルス光を大口径でZnTe結晶に照射し、最大電場振幅が100 kV/cmのテラヘルツパルス(約1.5 μ J/パルス)の発生に成功している。このときのエネルギー変換効率は 10^{-4} 程度である¹⁴⁾。しかし、次節で詳しく述べるように、最近ニオブ酸リチウム(LiNbO₃)結晶と波面傾斜法をもちいた方法でそれを上回る効率でTHz光発生が可能になり、多いに注目を浴びている^{10,15-23)}。LiNbO₃結晶は非線形感受率が高いにも関わらず同軸配置の位相整合条件を満たさないためにチェレンコフ光放射が起きていた。チェレンコフ光放射によって得られるTHz光はコーン状に四方八方に伝搬するためにまったく集光することができないという問題があった。しかし、Hebling等が10フェムト秒以下の短パルス分光で使われていたパルス面傾斜法をLiNbO₃におけるチェレンコフ発生に適用するという画期的な方法を編み出し、単一方向に伝搬するTHz光発生が可能になった¹⁶⁾。発生効率で0.1%以上、パルス強度では10 μ J以上¹⁰⁾、電場強度では1 MV/cm以上¹⁵⁾のTHz光発生が達成されている。Fig. 1に我々の研究室での発生例を示す¹⁵⁾。ほぼ1回の振動で終了し、+側の振幅の方が非対称に大きい時間波形が得られている。また、挿入図にあるように、回折限界に近い集光スポットが得られている。このTHz光発生に関しては次節で詳しく解説する。

最近、OPA/DFGとLiNbO₃をもちいたパルス面傾斜法の中間の周波数帯で高強度THz光発生を発生することが可能な、レーザー生成ガスプラズマをもちいた発生法も盛んに研究されている²⁴⁾。ガスプラズマ用の気体としてはアルゴン、キセノンなどの希ガスや窒素などの分子気体が研究されている。実験室内の「空気」でも希ガスに比べて遜色のない強度の発生が可能である。これにより、

Fig. 1 Time profile of the electric field of the THz pulse generated by tilted wave-front technique with Ti: sapphire regenerative amplifier (4 mJ, 100 fs). The inset shows THz intensity image measured at the focused point.¹⁵⁾

1–20 THzの広帯域の領域で100 kV/cmのピーク電場値を得ることができる。Fig. 2に我々の研究室で発生させたTHz光の時間波形の例を示す。2 mJのパルスエネルギー、35 fsのパルス幅のチタンサファイアレーザーの基本波と2倍高調波の同時照射でTHz光発生をおこなっている。検出は、GaPを用いた電気光学検出でおこなった。これを見ると、パルス幅200 fsのTHz光パルスがほぼハーフサイクルで生成されていることがわかる。挿入図にあるように、8 THzまでの周波数を含んでおり、数THz帯での非線形光学実験にはこのレーザーガスプラズマ光源の方が上記のチェレンコフ光源より良いことがわかる。この時間波形は集光法によって大きく変わるので、集光光学系の調整には細心の注意が必要である。

最近、レーザー工科大学のZhangグループによって、レーザーガスプラズマをTHz光発生ばかりでなくTHz光検出に対しても適用する方法が編み出された。彼らは、この手法をair-biased-coherent-detection(ABCD)と呼んで様々なデモンストレーションを行っている^{25,26)}。何よりも素晴らしいのは、検出にも「空気」を使える点である。非線形結晶の場合は、結晶の光学フォノン吸収が高周波側に制限を加えているが、ガスの場合はそのような制限はなく、非常にフラットで分散のない良質な広帯域THz-TDSが可能になっている。

3. パルス面傾斜した超短パルス光による高強度THz光発生

2次の非線形光学過程である光整流過程では、入射パルス光が媒質中を伝播しながら非線形分極が発生し、これを源としてTHz光が放射される。このため高いTHz光の発生効率を実現するためには、高い非線形光学定数を持つ非線形結晶を選ぶことはもとより、入射パルス光とTHz光の間の位相整合条件を満足させる必要がある²⁷⁾。すなわち、入射パルス光の群速度 v_g とテラヘルツ領域の位相速度 v_{THz} が近い値であることが求められる。従来、この位相整合条件の制約のために、0.8 μ m帯のチタンサファイアレーザーを用いる場合の非線形結晶としては、ZnTeやGaPが広く用いられてきた。LiNbO₃はZnTeよりも2.5倍程度大きな非線形光学定数を持ち、4.5 eVと大きいバンドギャップをもつことから励起光の多光子吸収の

Fig. 2 Time-profile of electric field of the terahertz pulse generated by air-plasma method. Inset shows the power spectrum of the pulse.

抑制効果が期待される。そのため、THz光発生用の結晶として非常に有望に思われるが、入射パルス光の群速度 v_g がテラヘルツ領域の位相速度 v_{THz} の2.5倍ほど大きいので、同軸の位相整合条件を全く満たさない。このために、LiNbO₃はフェムト秒レーザーを励起光源としたTHz光発生用の結晶としてはまったく用いられてこなかった。

しかし、2002年にHeblingらによってパルス面傾斜法を用いれば位相整合条件の制約を克服できることが示された¹⁶⁾。ここでいうパルス面とは、非線形媒質(LiNbO₃)を励起する入射超短パルス光のエネルギーのピーク位置をつないだ面を意味する。この方法では入射パルス光の進行方向に対して非同軸の向きに放射されるチェレンコフ・THz光が用いられる。

Fig. 3に示すように、0.8 μm 帯に中心波長を持つ超短パルス光をLiNbO₃結晶に入射する場合を考える。0.8 μm 帯の群屈折率 n_g は約2であるのに対し、1 THz近傍のTHz光に対する位相屈折率 n_{THz} は5程度であり、大きな差がある^{28,29)}。このため、ちょうど荷電粒子が媒質中を伝播する際にチェレンコフ光放射がおきるのと同じように、超短パルス光がLiNbO₃結晶中を通過する際に、超短パルス光の進行方向に対して放射角 $\cos\theta_c = v_{THz}/v_g = n_g/n_{THz}$ でTHz光が放射される。つまり荷電粒子が励起光の波束、媒質中の光がテラヘルツ帯のチェレンコフ波というアナロジーが成り立つ。従来から、この方法でTHz光が発生することは知られてきたが³⁰⁾、入射励起光とは異なり円錐状にTHz光が放射されるために、高強度のTHz光を得るのは難しい。

パルス面傾斜法では、チェレンコフ・THz光が伝播する速度と同じ速度成分を持つ超短パルス光を非同軸方向に発生させるために、入射する超短パルス光のパルス面を空間的に傾ける。Fig. 3で示したように超短パルス光をLiNbO₃に照射したとき、発生するTHz光はチェレンコフ角 θ_c の方向に位相速度 $v_{THz} = v_g \cos\theta_c$ で伝搬する。一方、Fig. 4に示すように角度 γ_p だけパルス波面を傾斜させた場合、超短パルス光のパルス面は角度 γ_p 方向に速度

Fig. 3 Cherenkov generation of THz wave by the femtosecond pulse with group velocity v_g . THz wave with the phase velocity v_{THz} is generated in the angle of θ_c , where $\cos\theta_c = v_{THz}/v_g$.

Fig. 4 Group velocity of the femtosecond laser pulse projected to the tilted angle of the pulse front ($v_g \cos \gamma_p$) and phase velocity of the Cherenkov light (v_{THz}).

$v_g^y = v_g \cos \gamma_p$ で伝わることになる。このため、 $\gamma_p = \theta_c$ となるようにパルス面の角度を γ_p だけ傾けた場合には、角度 γ_p の方向に発生するチェレンコフ・THz光と入射超短パルス光のパルス面が一致するという位相整合条件、

$$v_{THz} = v_g^y, \quad (1)$$

が満足され、効率的にTHz光が角度 γ_p の方向に放射される。パルス波面の傾斜手法の詳細は文献^{31,32)}が詳しい。

Fig. 5に実際に我々が構築した高強度THz光の発生・検出の実験系の模式図を示す¹⁵⁾。ここでは入射パルス光のパルス面角度 γ_c が62°に近づくように、回折格子のGroove数、L1, L2からなるイメージング光学系の倍率を合わせてある。実際には倍率が0.6になるように $f_1 = 250 \text{ mm}$ と $f_2 = 150 \text{ mm}$ のシリンドリカルレンズを用いた。回折格子への入射角度を35.3°とし、回折角度55.7°である次数1の回折光を使用した。これらのパラメータ

Fig. 5 Schematics of the THz pulse generation setup with the tilted pump-pulse-front scheme and the electro-optic sampling setup. The lens configuration consists of two cylindrical lenses L1 and L2 with respective focal lengths of 250 mm and 150 mm in horizontal direction. The grating we used has a groove density of 1800 cm. The incident angle and diffracted angle of the grating are set at 35.3 and 55.7 degrees, respectively. The LN prism angle is 62 degree. The off-axis parabolic mirrors PM1, PM2, and PM3 have effective focal lengths of 10, 100, and 50 mm, respectively. Their respective diameters are 10, 50, and 50 mm. M: mirror, WP: Wollaston prism, PD: photo detector.¹⁵⁾

は、大口径のTHz光が発生するように回折格子のイメージ面の角度がパルス面の角度と一致するような設定にもなっている²³⁾。また、発生したTHz光をLiNbO₃結晶から垂直に出射させるために結晶の角度は $\theta_{LN} = 62^\circ$ とした。ここで使用した光源は、再生増幅されたチタンサファイアレーザー(中心波長 $\lambda_0 = 780$ nm, パルス幅80 fs, パルスエネルギー4 mJ)である。また、回折格子には高い回折効率を得るためp偏向の光パルスを入射し、その後にレンズL1とL2の間に配置した半波長板によって偏向がLiNbO₃のc軸と一致するように90°回転させた(Fig. 5には半波長板は記していない)。

この方法によって発生および観測されたTHz光の時間波形をFig. 1に示す。これを達成するために集光光学系にも工夫をした。高い電場振幅を得るために、Fig. 5に示すように縮小光学系を成す放物面鏡を使ってLiNbO₃結晶から放射したTHz光のスポット径をなるべく小さく絞り、最大のピーク電場振幅は1.2 MV/cmに到達した。また、エネルギー変換効率は、 10^{-3} 程度に達する。挿入図は、常温で動作するマイクロボロメーターアレイ(NEC社製, RV-T0830)によって実際に観測されたTHz光のスポットで、回折限界近くまで小さく絞られている。

4. 固体におけるテラヘルツ非線形光学効果

ここでは、高強度THz光と固体との相互作用の結果あらわれるTHz非線形光学効果を紹介する。前節までで見てきたように、100 kV/cm~1 MV/cmの電場強度のTHz光がテーブルトップのシステムで現実のものとなっている。この電場強度は半導体デバイス中の内部電場強度(10~50 kV/cm)や空気の絶縁破壊電場強度(35 kV/cm)よりはるかに大きいし、固体そのものの絶縁破壊電場強度(300~600 kV/cm)と同程度である。これらの場合は直流電場(DC)が想定されているのに対し、THz光は周期が1ピコ秒程度の交流電場(AC)であることが異なる。その意味で、Fig. 1やFig. 2に示すようなTHz光は、ピコ秒以下の非常に短い時間だけ半導体に電場をかけることのできるゲートパルスであると言える。半導体中の典型的な電子の運動量緩和時間が10~100フェムト秒、エネルギー緩和を担う光学フォノンとの電子-格子相互作用時間が100フェムト秒であることを考えると、光でホットキャリアを生成しそれが動的に相関を失っていく核心的な時間領域にだけ電場することが可能となる。また、フォノンのような振動モードとの間の共鳴を考えると、コヒーレントに振動子を駆動し、大振幅の振動モードを誘起させることが可能となる。

4.1 強誘電性結晶におけるソフト光学フォノンの強制振動

BaTiO₃に代表される強誘電性ペロブスカイト結晶はソフト光学フォノンモード(TOフォノンモード)を有し、その振動数は温度の低下とともに0にむかって減少する。振動数の減少は静的誘電率の増大を招き、ある温度で強誘電相転移が誘起されることとなる。このような温度変

化は、もともとのTOフォノンモードがFig. 6のような非調和ポテンシャル $U = -aQ^2 + bQ^4$ ($a > 0, b > 0$)を有していることから説明される。ここでは振動モードの基準座標である。このポテンシャルは平均場近似をもちいて近似すると、 $U = (b < Q^2 > - a) Q^2$ のように書き換えることができる。二乗平均は $\langle Q^2 \rangle \propto k_B T$ のように統計的に温度 T と関係させることができるので、 $U = c(T - T_c) Q^2$ と書くことができる。これから、固有モードの振動数は温度の低下とともに減少し、 T_c で0になり相転移を起こすことが説明される。ポテンシャル上の運動を考えると、温度が高い時は $\langle Q^2 \rangle$ が大きいので大振幅の振動が誘起されており、振動数の高い領域が運動を支配することになる。一方、温度が低くなると $\langle Q^2 \rangle$ が小さくなり、小振幅の振動すなわち低い振動数の運動が支配的となる。ここまでは、温度変化の説明であった。以下では $T > T_c$ に温度を固定し、そこでの強制振動を考えることにする。もし、外場(ここでは交流電場)が小さく、強制振動による振動振幅が、温度ゆらぎによる振幅 $\sqrt{\langle Q^2 \rangle}$ より小さい場合には、振動数が一定の線形応答が見えるはずである。一方、強制振動による振動振幅が温度ゆらぎによる振幅 $\sqrt{\langle Q^2 \rangle}$ を凌駕すると運動の振動数は高くなり、外場の大きさによって運動が変わる非線形応答が期待される。

以下では、上のようなコンセプトでFig. 1に示したようなテラヘルツ電場を実際に強誘電性結晶に照射した結果を紹介する。試料はFig. 7(a)に示した量子常誘電体として知られるチタン酸ストロンチウム(SrTiO₃)の薄膜結晶である。Fig. 7(b)に、薄膜結晶を透過した電場波形をフーリエ変換し、それを印可したテラヘルツ電場波形で割り算して得られた有効感受率の実部と虚部を示す³³⁾。明らかに、印可電場強度の増大とともに振幅数が高周波側にシフトしていることがわかる。これは高強度のテラヘルツ電場印可により大振幅の運動が誘起され、それにより運動の振動数が高くなったことをあらわしている。最大電場強度におけるソフトモードの振幅は強誘電転移に必要な原子変位の10分の1程度と見積もられている。今後、更なるテラヘルツ電場強度の増大により、相転移を誘起することも可能になると考えられる。たと

Fig. 6 Schematic view of the potential of the soft-mode in ferroelectrical perovskite oxides. Motions of oscillator are shown for the cases driven by high and low electric field.³³⁾

Fig. 7 (a) Schematic representation of the crystal structure (perovskite structure) and soft-mode oscillation (Slater mode) in SrTiO₃. (b) Derived real and imaginary parts of effective susceptibility. E₀ is equal to 80 kV/cm. Lines indicate the corresponding calculation using the classical anharmonic oscillator model with quartic anharmonicity and nonlinear dephasing. Arrows indicate zero-crossings and peaks of real and imaginary parts, respectively, which correspond approximately to the resonant frequencies.³³⁾

えば、強誘電転移以下の温度において同様な実験を誘起することで、強誘電相の融解やドメイン反転などの劇的な効果が観測される可能性がある。

4.2 衝突イオン化過程によるキャリア増幅

半導体における強電場下でのキャリアダイナミクスを支配する現象に衝突イオン化(impact ionization)がある。Fig. 8に示すように、衝突イオン化がおきるとキャリア数が劇的に増幅されることから、太陽電池の増感過程などの応用が期待される。Markeltz等はFELからの高強度THz光をもちいて、InAs/AlSbヘテロ構造においてキャリア増幅が起きることを示した³⁴⁾。電場強度依存性から3.7~8.9 kV/cm(周波数帯: 0.3~0.66 THz)でしきい値的にキャリアが増加するのを明らかにしている。Wen等はいわゆる α -scan法でアンドープのInSbにおける衝突イオン化を調べた³⁵⁾。レーザー生成ガスプラズマによって生成した~30 kV/cmのピーク強度をもつTHz光を集光することにより、自己位相変調が生じることを見いだしている。このような状況下で、THz-TDSを時間分解で行うことにより、自由キャリアの密度が増加していることを明らかにした。最近、InSbにおいてキャリア増幅過程がHoffman等によって報告されている³⁶⁾。彼らは、3節で詳しく述べたパルス面傾斜法によってLN結晶から100 kV/cm以上の高強度THz光を発生し、その照射下でのキャリア

Fig. 8 The sketch visualizes the impact ionization process, where an electron loses its kinetic energy and an electron-hole pair is created simultaneously. A significant number of electron-hole pairs are generated by a series of impact ionizations.

の応答をポンププローブ法により調べた。その結果、THz電場によるキャリアの加熱と衝突イオン化を見いだしている。生成された自由キャリアの密度は 10^{16} cm^{-3} を超えており、初期キャリア密度の実に7倍のキャリアが生成されたことになる。同様のキャリア増幅過程は単層カーボンナノチューブにおいても観測されている³⁷⁾。これらの研究は、1ピコ秒という短い時間の間に伝導帯の電子がバンドギャップを超える運動エネルギーを持つ状態まで加速可能であることを意味している。

最近、我々の研究室において1 MV/cmを超える電場強度のTHz光を用いることで、GaAs/Al_{0.3}Ga_{0.7}As多重量子井戸において3桁以上のキャリア増幅過程が確認された³⁸⁾。ここではFig. 1に示した、チェレンコフ効果をもちいたTHz光源をもちいた。Fig. 9 (a)に示すように、THz光照射だけでGaAs多重量子井戸の励起子発光(1.55 eV)の観測に成功した。このスペクトルは可視光パルス励起によって観測した発光と一致し、同様の温度変化を示すことから、バンドギャップの380分の1の光子エネルギーしかもたないTHz光パルス照射によって、電子-正孔対の生成がおき、励起子発光が生じたことを示唆している。Fig. 9 (b)に示すように、励起子発光は0.45 MV/cmの電場強度以上で急激に出現し、それより高電場では、電場強度の8乗で増加することがわかった。可視光励起での発光強度との比較から縦軸をキャリア密度に換算している。これから、電場を約3倍に増加させただけで3桁にもおよぶキャリア増幅が生じたことがわかる。これは、最大THz光印可の場合に、Fig. 8に示すような衝突イオン化過程が10回ほどおきたと考えると理解できる。この結果は、高電場化でのホットキャリアの非平衡ダイナミクスという観点で面白い。今後、テラヘルツ領域で動作する増幅器を考える場合の一つの指針となることが期待される。また、THz光でゲート動作するアバランシェフォトダイオードや高効率の単一光子計測に展開していく可能性がある。

Fig. 9 (a) Spectra of luminescence excited at 10 K by THz pulses with peak electric field amplitudes of 0.54 MV/cm (green dotted line), 0.70 MV/cm (blue dashed line) and 1.05 MV/cm (red solid line). (b) THz pulse excitation intensity dependence of peak luminescence intensity (magenta closed circles). The eye guide (black solid line) corresponds to a fourth-power-law intensity dependence.³⁸⁾

5. まとめと謝辞

本稿では、最近進展著しい高強度THzパルスの発生法の現状とそれをもちいた強誘電性結晶と半導体における非線形光学応答の例を紹介した。THz周波数帯の非線形光学や分光研究はここ数年で急激に立ち上がってきた研究領域であり、光誘起相転移や分子性結晶における非調和振動の大振幅励起³⁹⁾など、ここでは紹介しきれなかった結果が多数報告されている。本稿がこの分野に興味を抱き、今後参画して来られる研究者の一助となれば幸いである。

ここで紹介した高強度THz光発生については土井 厚志氏(オリンパス(株))とブランチャード・フランソア博士(京都大学)、大学院生の谷 峻太郎氏との共同研究でおこなった。また半導体や誘電体のテラヘルツ非線形分光については大学院生の篠北 啓介氏(京都大学)と永井 正也助教(現大阪大学准教授)、片山 郁文准教授(横浜国立大)、角屋 豊教授(広島大学)らとの共同研究による成果である。また、本研究は文部科学省の科学研究費補助金(学術創成(18GS0208)、新学術領域研究(20104007)、基盤研究A(23244065)、若手研究B(21760038)の補助を受けている。ここに感謝する。

参考文献

- 1) 本稿では「テラヘルツ領域」もしくはTHz光を0.3 THz ($1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz}$)から30 THzの周波数の光とする。これは波長でいうとほぼ1 mmから10 μm に対応する。
- 2) M. Tonouchi: Nat. Photonics **1** (2007) 97.
- 3) Y.-S. Lee: *Principles of Terahertz Science and Technology* (Springer, 2009).
- 4) A. Dienst, M. C. Hoffmann, D. Fausti, J. C. Petersen, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, and A. Cavalleri: Nature Photonics **5** (2011) 485.
- 5) K. Tanaka, H. Hirori, and M. Nagai: IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology **1** (2011) 301.
- 6) T. Suzuki and R. Shimano: Phys. Rev. B **83** (2011) 085207.
- 7) K. Yoshioka, E. Chae, and M. Kuwata-Gonokami: Nat. Commun. **2** (2011) 328.
- 8) F. Keilmann: Infrared Physics **31** (1991) 373.
- 9) G. L. Carr, M. C. Martin, W. R. McKinney, K. Jordan, G. R. Neil, and G. P. Williams: Nature **420** (2002) 153.
- 10) K. -L. Yeh, M. C. Hoffmann, J. Hebling, and K. A. Nelson: Appl. Phys. Lett. **90** (2007) 171121.
- 11) K. Reimann, R. P. Smith, A. M. Weiner, T. Elsaesser, and M. Woerner: Opt. Lett. **28** (2003) 471.
- 12) A. Sell, A. Leitenstorfer, and R. Huber: Opt. Lett. **33** (2008) 2767.
- 13) F. Junginger, A. Sell, O. Schubert, B. Mayer, D. Brida, M. Marangoni, G. Cerullo, A. Leitenstorfer, and R. Huber: Opt. Lett. **35** (2010) 2645.
- 14) F. Blanchard, L. Razzari, H.C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J. C. Kieffer, T. Ozaki, M. Reid, H. F. Tiedje, H. K. Haugen, and F. A. Hegmann: Opt. Express **15** (2007) 13212.
- 15) H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka: Appl. Phys. Lett. **98** (2011) 091106.
- 16) J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl: Opt. Express **10** (2002) 1161.
- 17) G. Stepanov, J. Kuhl, I. Z. Kozma, E. Riedle, G. Almási, and J. Hebling: Opt. Express **13** (2005) 5762.
- 18) M. C. Hoffmann, K.-L. Yeh, J. Hebling, and K. A. Nelson: Opt. Express **15** (2007) 11706.
- 19) J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K. A. Nelson: J. Opt. Soc. Am. B **25** (2008) B6.
- 20) J. Hebling, K.-L. Yeh, K. A. Nelson, and M. C. Hoffmann: IEEE J. Quantum Electron. **14** (2008) 345.
- 21) M. Nagai, M. Jewariya, Y. Ichikawa, H. Ohtake, T. Sugiura, Y. Uehara, and K. Tanaka: Opt. Express **17** (2009) 11543.
- 22) M. Jewariya, M. Nagai, and K. Tanaka: J. Opt. Soc. Am. B **26** (2009) A101.
- 23) J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling: Opt. Express **18** (2010) 12311.
- 24) H. G. Roskos, M. D. Thomson, M. Kreß, T. Löffler, Laser Photonics Rev. **1** (2007) 349.
- 25) J. Dai, X. Xie, and X.-C. Zhang: Phys. Rev. Lett. **97** (2006) 103903.
- 26) N. Karpowicz and X.-C. Zhang: Phys. Rev. Lett. **102** (2009) 093001.
- 27) A. Nahata, A. S. Weling, and T. Heinz: Appl. Phys. Lett. **69** (1996) 2321.
- 28) J. Hebling, A. G. Stepanov, G. Almási, B. Bartal, and J. Kuhl: Appl. Phys. B: Lasers Opt. **78** (2004) 593.
- 29) M. C. Hoffmann and J. A. Fülöp: J. Phys. D: Appl. Phys. **44** (2011) 083001.
- 30) D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis, and D. A. Kleinman: Phys. Rev. Lett. **53** (1984) 1555.
- 31) 田中 耕一郎, 廣理 英基: 固体物理 **46** (2011) 129.
- 32) 廣理 英基, 田中 耕一郎: 応用物理 **81** (2012) 0291.
- 33) I. Katayama, H. Aoki, J. Takeda, H. Shimosato, M. Ashida, R. Kinjo, I. Kawayama, M. Tonouchi, M. Nagai, and K. Tanaka: Phys. Rev. Lett. **108** (2012) 097401.
- 34) A. G. Markelz, N. G. Asmar, B. Brar, and E. G. Gwinn: Appl. Phys. Lett. **69** (1996) 3795.
- 35) H. Wen, M. Wiczer, and A. M. Lindenberg: Phys. Rev. B **78** (2008) 125203.
- 36) M. C. Hoffmann, J. Hebling, H. Y. Hwang, K.-L. Yeh, and K. A. Nelson: Phys. Rev. B **79** (2009) 161201(R).
- 37) S. Watanabe, N. Minami, and R. Shimano: Opt. Express **19** (2011) 1528.
- 38) H. Hirori, K. Shinokita, M. Shirai, S. Tani, Y. Kadoya, and K. Tanaka: Nat. Commun. **2** (2011) 594.
- 39) M. Jewariya, M. Nagai, and K. Tanaka: Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 203003.

レーザーワード

電気光学検出(electro-optic sampling detection)

「電気光学検出」はテラヘルツ電場波形を、電場によって屈折率異方性が誘起される結晶(電気光学結晶)をもちいて測定する手段である。フェムト秒レーザーによって発生されたコヒーレントなテラヘルツ光の電場の定量的な計測に用いられる。具体的には、テラヘルツ光とフェムト秒レーザー光を時間遅延をつけて電気光学結晶に入射し、フェムト秒レーザー光の偏光回転を遅延時間の関

数としてサンプリング計測することで、テラヘルツ光の電場波形が得られる。電気光学定数が分かっているれば、偏光回転度と電気光学結晶の厚さから電場の向きと絶対値が計算される。検出感度には、位相整合条件が重要であり、1 THzのテラヘルツ光、800 nmのフェムト秒レーザーに対してはZnTe結晶が最適である。(田中 耕一郎)