高出力・波長可変テラヘルツ光パラメトリック光源

林 伸一郎¹, 縄田 耕二¹, 川瀬 晃道^{1,2}, 南出 泰聖¹

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

²名古屋大学 (〒464-8603 名古屋市千種区不老町)

High-Peak-Power, Tunable Terahertz-Wave Parametric Source

Shin'ichiro HAYASHI,¹ Koji NAWATA,¹ Kodo KAWASE,^{1,2} and Hiroaki MINAMIDE¹

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

²Nagoya University, Furo-cho, Chikusa, Nagoya, Aichi 464-8603

(Received March 26, 2012)

We report on the development of a high-peak-power, single-longitudinal-mode and tunable injection-seeded terahertz-wave parametric generator using $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$, which operates at room temperature. The high peak power ($> 120 \text{ W}$) is enough to allow easy detection by commercial and calibrated pyroelectric detectors, and the spectral resolution ($< 5 \text{ GHz}$) is the Fourier transform limit of the sub-nanosecond terahertz-wave pulse. The tunability ($1.2\text{--}2.8 \text{ THz}$) and the small footprint size ($\text{A3 paper}, 29.7 \times 42 \text{ cm}$) are suitable for 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、 1 THz (10^{12} Hz) 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、およそ周波数が $0.3\text{--}10 \text{ THz}$ 、波長に換算すると $1 \text{ mm}\text{--}30 \mu\text{m}$ の領域を指す。このテラヘルツ光領域に関する研究は、基礎科学応用から産業応用まで様々な分野において独自の応用開発を目指して多数のテラヘルツ光応用の提案がなされ、論文報告数も年々増加する傾向にある。この背景には、テラヘルツ波領域の開発が成熟した光技術や超高速エレクトロニクスの技術を基盤として飛躍的に進歩してきたことが挙げられる¹⁻³⁾。これまで、様々なテラヘルツ光領域における電磁波の特徴が報告されている。例えば、「電波のように」紙やプラスチック、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性質を持つと共に、「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、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とって必要十分な波長($100 \mu\text{m}$)程度の空間分解能を有していることや、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ていることが挙げられる。これらの特性を直接利用した利用方法が数多く提案されることで、テラヘルツ光を利用する新しい応用分野の開拓に繋がってきた。最近では、テラヘルツ光研究がそれぞれの分野で発展し始め、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に関する専門的な議論が多数なされつつあり⁴⁻⁷⁾、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。

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生じ・検出するテラヘルツ時間領域分光法(THz Time Domain Spectroscopy)⁸⁻¹¹⁾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応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、比較的に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¹²⁾、p-Geレーザー¹³⁾、フォトミキサー¹⁴⁾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¹⁵⁾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、コンパクトで室温動作可能かつ簡便な高出力テラヘルツ光源が実現すれば、この領域における非線形分光^{16,17)}等の新たな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^{18,19)})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²⁰⁾。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出力を制限していた要因のひとつは、非線形光学結晶の損傷しきい値である。テラヘルツ光の波長制御は、共振器によってアイドラー光を選択することによって実現できるが、その波長選択性向上のためには、共振器長よりも十分に長いパルス幅を持つ励起光が必要である。このため、励起光のパルス幅を維持したまま高強度化していくと、非線形光学結晶の熱的な損傷しきい値に達してしまい、高強度励起によるテラヘルツ光の高出力化が困難であった。これに対し、アイドラー光の選択を光注入によって行えば、パルス幅の制約なく短いパルス幅の励起光源を用いることができるので、損傷しきい値が上昇し、高強度励起による高出力化が期待できる。本稿では、高出力・波長可変テラヘルツ光パラメトリック光源を目指し、サブナノ秒のパルス幅を持つ励起光源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. テラヘルツ光パラメトリック発生の原理

パルスレーザー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、

フォトンとフォノン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_{TO} 付近ではフォノンライクに振舞うが、共鳴周波数から十分離れた低周波数領域ではフォトンライクに振舞う。このため、ポラリトンを経た誘導ラマン散乱(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²¹⁾。特にLiNbO₃は、可視～近赤外領域で広帯域に(0.4–5.5 μm)強い吸収がなく、光損傷に対する耐性が高く(損傷限界>数百MW/cm²)²²⁾、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²³⁾、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) $k_p = k_i + k_T$ 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: $\omega_{TO} = 250 \text{ cm}^{-1} = 7.5 \text{ THz}$)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

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

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

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($k_p = k_i + k_r$)を考慮して求めると、パラメトリック利得 g_T は、

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

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、

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

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

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

である²⁴⁾。ただし、 I_p は励起光強度、 c は真空中の光速、 n_r 、 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_r は誘電率を表す。

東北大の四方らは、一致熔融組成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²⁴⁾。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。

3. 実験装置

Fig. 3に、実験装置の概要を示す。実験装置は、励起光源(Microchip Nd: YAG laser)、半導体励起光増幅器

Fig. 3 Experimental setup.

(Diode Pumped Nd: YAG amplifier)、注入光源(外部共振器型半導体レーザー + 光増幅器: ECDL + amp.)、非線形光学結晶(MgO:LiNbO₃)、焦電素子型検出器(Pyroelectric Detector)によって構成される。励起光源として、サブナノ秒のパルス幅をもつマイクロチップNd:YAGレーザー^{25,26)}を用いた。この励起光源は、尖頭値出力1 MW以上(エネルギー0.7 mJ/pulse, パルス幅420 ps)、単一縦モード発振(線幅<0.009 nm)、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。

光増幅器によって増幅された励起光を、両端面に励起光(1064 nm)に対する無反射膜を施した非線形光学(MgO:LiNbO₃)結晶(4×5×65 mm)に入射した。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: 80 mW、波長: 1068–1075 nm)の波長を選択すると、回折格子と結像光学系によって、結晶入り口において励起光とのノンコリニア位相整合条件を満たすように入射角度が決まるよう調整しておき、注入することによってテラヘルツ光の波長を選択する。

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、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結果、結晶端面からの距離と励起光のビーム径は同程度である。発生したテラヘルツ光は、結晶のy面に圧着したシリコン製プリズムによって結晶外に取り出され、レンズ系で集光後、焦電素子型検出器(SpectrumDetector社製: SPI-A-65 THZ)によって検出される。

また、発生したテ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、励起光源に小型のマイクロチップNd:YAGレーザーを使用したことで、A3用紙程度(29.7×42 cm)程度と非常に小型である。

4. 結果および考察

Fig. 4に、周波数1.8 THzのときのテラヘルツ光出力の励起光強度依存性を示す。励起光強度が上昇し、

Fig. 4 Pumping energy dependence of terahertz-wave.

6 mJ/pulse (1.5 GW/cm^2) 付近に達するとテラヘルツ光が観測され始め、励起光エネルギーの増加に伴ってテラヘルツ光出力は単調に増加する。励起光強度が14 mJ/pulse (3.5 GW/cm^2) のとき、最高のテラヘルツ光出力、約120 W (尖頭値) が観測された。このとき、注入光を遮断すると、出力は100 mW (尖頭値) 以下にまで減少した。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) を励起光源として利用した場合と比較すると、非線形光学結晶の損傷しきい値は 450 MW/cm^2 から 3.5 GW/cm^2 以上へと改善されたことによって、高強度励起が可能になり大幅な出力向上を達成した。これは、励起光のパルス幅が短いため、励起光強度は大幅に上昇したにもかかわらずエネルギーは小さく抑えられており、非線形光学結晶の熱的な損傷を避けることができたために実現されたと考えられる。

Fig. 5に、テラヘルツ光出力の周波数依存性を示す。励起光のエネルギーが12 mJ/pulse、注入光の出力が80 mWのとき、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、1.2–2.8 THzの範囲でテラヘルツ光の発生を観測した。最大のテラヘルツ光出力は、1.8 THz付近において約110 W (尖頭値) であった。この最高出力は、市販の室温動作可能な校正された検出器で容易に検出することができる水準に達している。

一方、光波からのエネルギー変換効率は約 10^{-6} 程度で

Fig. 5 Tunability of an injection-seeded terahertz-wave parametric generator.

Fig. 6 Wavelength and linewidth of the terahertz-wave measured with a scanning Fabry-Perot etalon consisting of two metal mesh plates. The stability of the spectrum is demonstrated and the displacement between the two periods (220 μm) corresponds directly to the wavelength. The FSR of the etalon is 12 GHz and the linewidth of the terahertz wave is measured to be less than 5 GHz.

あり (理論的にはマンリー・ロー限界により最大 10^{-2} まで得られる)、光学系の最適化や結晶冷却による吸収損失の低減によって更に10~100倍の改善ができると期待されている^{27,28)}。

Fig. 6に、メタルメッシュエタロンによる出力テラヘルツ光の出力安定性および波長計測、発生線幅計測の結果を示す。メタルメッシュ間の距離を変化させ、2種類のFSRについて計測を行った。揺らぎの少ない安定した動作を観測した。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220 μm (周波数約1.4 THz)、発生線幅5 GHz以下と見積もることができる。光注入を行った結果、パルス幅によって制限されるフーリエ限界に迫る狭線幅のテラヘルツ光が発生していることがわかる。

Fig. 7に、ワイアグリッド偏光子透過率の角度依存性を示す。図中の0, 180, 360度付近のとき、ワイア方向が垂直方向になるよう配置した。テラヘルツ光の透過率が計算結果 ($\sin^2$ (ワイアグリッドの回転角度)) に

Fig. 7 Polarization measurement using wire grid polarizer. A inset shows magnified figure of rectangle area around 180 degree of wire grid angle.

よる計算結果とよく一致していることから、直線偏光であることが分かる。差し込み図は透過テラヘルツ光強度が最低となるワイアーグリッドの回転角度が180度付近を拡大して示してある。最高および最低の透過率より求められる消光比は約800:1であり、ワイアーグリッド偏光子の限界に達している。

5. まとめ

サブナノ秒のパルス幅、単一縦モード発振のマイクロチップNd:YAGレーザーを増幅し、励起光源として用いることによって、テラヘルツ光の大幅な高出力化を達成した。A3紙程度の小型テラヘルツ光パラメトリック光源から、最高出力120 W(尖頭値)、波長可変範囲1.2 ~ 2.8 THz、発振線幅5 GHz以下、偏光度800:1以上のテラヘルツ光を発生させ、観測した。このコンパクトな高出力波長可変テラヘルツ光源は、常温動作で操作も簡便であり、検出にも常温動作の焦電素子が利用できることから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、分子研の平等 拓範准教授、理研の緑川 克美ディレクター、伊藤 弘昌サブディレクター、大谷 知行チームリーダー、保科 宏道研究員に深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 伊藤 弘昌：応用物理 **79** (2010) 524.
- 2) M. Tonouchi: Nature Photonics **1** (2007) 97.
- 3) D. Dragoman and M. Dragoman: Prog. Quantum Electron. **28** (2004) 1.
- 4) 斗内 政吉監修：テラヘルツ波新産業(シーエムシー出版, 2011).
- 5) T. Kleine-Ostmann and T. Nagatsuma: J. Infrared Millim. Tera-hertz Waves **32** (2011) 143.
- 6) M. Hangyo, M. Tani, and T. Nagashima: Int. J. Infrared and Millim. Waves **26** (2005) 1661.
- 7) P. H. Siegel: IEEE Trans. Micro. Theory Tech. **52** (2004) 2438.
- 8) P. R. Smith, D. H. Auston, and M. C. Nuss: IEEE J. Quantum Electron. **24** (1998) 255.
- 9) P. Y. Han and X.-C. Zhang: Appl. Phys. Lett. **73** (1998) 3049.
- 10) D. M. Mittleman, R. H. Jacobsen, and M. C. Nuss: IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **2** (1996) 679.
- 11) R. A. Cheville, R. W. McGowan, and D. Grischkowsky: Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 269.
- 12) J. Allen: *Free Electron Lasers and Other Advanced Sources of Light* (National Academy Press, Washington, DC, 1994).
- 13) S. Komiyama: Phys. Rev. Lett. **48** (1982) 271.
- 14) E. B. Brown, K. A. McIntosh, K. B. Nichols, and C. L. Dennis: Appl. Phys. Lett. **66** (1995) 285.
- 15) J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchinson, and A. Y. Cho: Science **264** (1994) 553.
- 16) J. Hebling, K. L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K. A. Nelson: J. Opt. Soc. Am. B **25** (2008) B6.
- 17) 田中 耕一郎, 廣理 英基：固体物理 **46** (2011) 689.
- 18) S. S. Sussman: Microwave Lab. Report No. 1851 (Stanford University, 1970).
- 19) M. A. Piestrup, R. N. Fleming, and R. H. Pantell: Appl. Phys. Lett. **26** (1975) 418.
- 20) K. Kawase, J. Shikata, and H. Ito: J. Phys. D: Appl. Phys. **35** (2002) R1.
- 21) Y. R. Shen: *The Principle of Nonlinear Optics* (John Wiley and Sons, New York, 1984).
- 22) V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, and D. N. Nikogosyan eds.: *Handbook of Nonlinear Optical Crystals* (Springer-Verlag, Berlin, 1997).
- 23) E. D. Palik ed.: *Handbok of Optical Constants of Solids* (Academic Press, San Diego, 1985).
- 24) J. Shikata, K. Kawase, K. Karino, T. Taniuchi, and H. Ito: *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.* **48** (2000) 653.
- 25) N. Pavel, J. Saikawa, S. Kurimura, and T. Taira: Jpn. J. Appl. Phys. **40** (2001) 1253.
- 26) H. Sakai, H. Kan, and T. Taira: Opt. Express **16** (2008) 19891.
- 27) S. Hayashi, K. Nawata, H. Sakai, T. Taira, H. Minamide, and K. Kawase: Opt. Express **20** (2012) 2881.
- 28) 南出 泰亜：応用物理 **81** (2012) 284.