

非線形光学効果による広帯域波長可変テラヘルツ電磁波放射

谷内 哲夫,四方 潤一,伊藤 弘昌 東北大学 電気通信研究所 (〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平2丁目1-1)

Widely Tunable Terahertz Electromagnetic Radiation by Nonlinear Optical Effect

Tetsuo TANIUCHI, Jun-ichi SHIKATA, and Hiromasa ITO

Research Institute of Electrical Communication, Tohoku University 2-1-1 Katahira, Aoba-ku Sendai, Miyagi 980-8577

(Received March 6, 2002)

A coherent terahertz (THz) wave can be generated by difference frequency generation (DFG) using nonlinear optical crystals. DFG has a potential advantage of wide tunability achieved by a proper selection of the DFG crystal and input wavelengths. In this paper, we present the latest progress in widely tunable THz-wave generation from 0.3 to 6.5 THz using DAST crystals. As a dual-wavelength light source for DFG, we employed a KTP optical parametric oscillator in the 1100-1200 nm range pumped at 532 nm. Using a thick DAST crystal more than 1 mm, maximum THz-frequency was limited to 0.6 THz. However, using thin DAST crystals less than 0.3 mm, a peak power of more than 10 mW were successfully generated at 2.5 and 4.3 THz. In spite of the present nanosecond-pulse operation, a compact system of widely tunable THz-waves, including a diode-pumped Q switched Nd:YAG laser and a pyroelectric detector, could be useful in THz-imaging and spectroscopic applications.

Key Words: THz-wave, Difference frequency generation, DAST, Optical parametric oscillator

1. はじめに

電磁周波数域の拡大は電気通信の歴史そのものとも言 え、フロンティアであるテラヘルツ(THz)帯の開拓が大き な夢となっている.THz帯は、波長が1mm以下の光波と ミリ波の狭間にある電磁波であり、化合物半導体電子デ バイスの超高速化のアプローチと、レーザー・非線形光 学技術を駆使したフォトニクスの両面からアプローチが 進められている.本論文では、近年急速に進展している フォトニクスからのアプローチの中で非線形光学効果を 用いる古くて新しいTHz波発生技術の最新動向を取り上げ る.

コヒーレント波長可変THz波発生は、レーザー出現の当 初から非線形光学効果である差周波発生(DFG)やパラメ トリック効果を用いて多くの研究が行われた.DFGは2波 長光源が必要ではあるが、種々の非線形光学結晶と組合 せて広い周波数範囲のTHz波発生が可能である.代表的な 研究としては、Aggarwalら¹⁾による2台のCO₂レーザーと GaAs結晶を用いた0.3~4.3 THz域のTHz波発生、Yajima ら²⁾による2台の色素レーザーとZnTe結晶を用いた0.15~ 0.9 THzのサブTHz波発生、Yangら³⁾による2台の色素レー ザーとLiNbO₃結晶(ノンコリニア位相整合)を用いた0.6~ 4.8 THz波発生等が報告されている.最近、大きな非線形 光学効果を有する有機DAST結晶と2波長動作光パラメト リック発振器(OPO)とを用いたDFGにより0.3~1.2 THz域 のサブTHz波発生⁴⁾と共に5 THz以上の波長可変THz波発生 にも成功し, DFGの新たな可能性を広げている.

一方,THzパラメトリック発振(TPO)によるTHz波発 生として,Piestrupら⁵⁾はLiNbO₃結晶におけるフォノンポ ラリトンとの相互作用を利用することにより0.42~1.96 THzの発生を報告している.本方式は,励起レーザーとし てナノ秒Qスイッチパルス動作のNd:YAGレーザーを用い ることが可能であるメリットがあるが,発生したTHz波の 取り出し効率が小さい難点があった.この問題点を解決 するためにKawaseら⁶⁾はLiNbO₃結晶の側面にSiプリズムカ プラーを圧着する新しいデバイス構成を提案し,1.1~2.5 THzの波長可変THz波発生を確認し,その後高出力化と狭 帯域化の両面で特性向上が図られている.TPOは,DFGと 比べ単一の励起レーザー光の入射角度を変化させること によりTHz波の波長制御が可能である特長を有する.

これらの非線形光学効果に基づくアプローチ以外に, フェムト秒パルス光を低温成長GaAs薄膜に照射した時に 誘起される高速光伝導(PC)現象を利用した電磁パルス発 生⁷⁾がある.発生された電磁パルスの波形をフーリエ変換 するとTHz域まで広がるきわめて広い周波数成分を有して おり,時間領域THz分光法(THz-TDS)⁸⁾あるいはTHzイ メージング⁹⁾等の新たな応用分野を拓いている.また2波 長のLD光を高速PC素子において光ミキシングすることに よりnWレベルではあるがCWの波長可変コヒーレントTHz 波発生¹⁰⁾も行われ,気体分子の高分解能分光¹¹⁾等へも応 用されている.

これら様々なTHz波発生の中で、本論文は非線形光学効 果であるDFGによるTHz波発生技術として、筆者らが進め ているDAST結晶を用いた5THz以上の広帯域波長可変THz 波発生に関する最新の研究成果を述べる.

2. THz波発生方式と非線形光学材料

非線形光学技術を用いてTHz波を発生させる方式とし て, Fig. 1に示すようにDFGとTPOがある. DFGはFig. 1 (a) に示すように2つの入射光波を非線形光学結晶中でミ キシングすることにより差周波発生させる方式であり, 波長間隔(~nm)を変化させることにより発生するTHz波 の周波数制御を行う、DFGは、2波長光源が必要であるが 入射波長とDFG結晶の組合せによりきわめて広い波長域 のTHz波発生が可能である.また、しきい値はなく小型半 導体レーザー励起Nd:YAGレーザーの利用が可能である点 も大きな特長である.一方,TPOを用いる方式はFig.1(b) に示すように、励起光は固定した1波長でよく、またその 入射角の変化により発生するTHz周波数を制御できる特長 があるが、発振しきい値が高く30 mJ以上の励起レーザー で動作させる必要がある点と周波数可変範囲が1~3 THz と比較的狭い点が課題であるが、最近200mW以上の高出 力化と100 MHz以下の狭帯域化¹²⁾も進められており、波長 可変THz波分光システムとして実用化が期待されている.

高効率なDFGを実現するためにはコリニア位相整合条件を満たすことが重要であり、使用するDFG結晶に適した位相整合波長を選択する必要がある.DFG用の波長可変光源としては、Tiサファイアレーザー(0.8 µm帯),Er:Ybガラスレーザー(1.5 µm帯),DFB-LDあるいはOPOが有望であると考えられる.特に、OPOは非線形光学結晶と励起レーザーを最適に組み合わせることにより広帯域な



Fig. 1 Configurations for THz-wave generation: (a) difference frequency generation (DFG) and (b) THz parametric oscillation (TPO).

連続波長可変性を有し、発振波長域と2波長間隔の両方の 設定が容易であり、また非線形光相互作用に必要なkW以 上のパルスピークパワーを得ることが容易である特長が ある.これらの理由により、本研究ではDFG用2波長光源 としてKTP結晶を用いた角度位相整合方式の2波長動作 OPOを採用した.

THz波発生用非線形光学材料としての条件を以下に示す.

- (1) 光波とTHz波域の両方で透明であること.
- (2) 大きな非線形光学係数を有すること.
- (3) THz波発生の高効率化のためにはコリニア位相整合 することが望ましい.
- (4) パルス動作をさせる場合,光ダメージが小さいこと.

本論文では非線形光学定数の大きなDAST結晶を取り上 げる. DASTは, 4-N, N-dimethylamino- 4'-N'-methylstilbazolium tosylateの略称であり、1989年Nakanishiら¹³⁾に より開発された有機イオン結晶である. 大きな非線形光 学定数d11 = 210 pm/V¹⁴⁾(波長1907 nmで測定)を有し、ま た誘電率が6程度と小さいために光波とTHz波の速度整合 に有利であるために高効率なTHz波発生が期待される. 我々は、徐冷法を用いて育成した15×15×2 mm程度の DAST単結晶¹⁵⁾を用いて、2波長発振Tiサファイアレー ザー(800 nm, 803 nm)を用いたDFGにより1.4 THzのTHz 波発生¹⁶⁾, 1060 nm域の2波長動作OPOを用いたDFGによ り0.3~1.2 THz域のサブTHz波発生4)に既に成功しており, 現在THz波の高帯域化と高出力化を進めている.ただし, DASTは、1.1 THz付近にTOフォノンの共鳴周波数がある ために, THz波発生領域は1 THz以下, あるいは2 THz以上 に制限される.

3. DASTを用いたDFG

効率の良いDFGを実現するためにはコリニア位相整合 条件を求める必要がある.位相整合は、光波域とTHz波域 の屈折率分散から求めることができる.

energy conservation:
$$\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} = \frac{1}{\lambda_3}$$

momentum conservation: $\frac{n_1}{\lambda_1} - \frac{n_2}{\lambda_2} = \frac{n_3}{\lambda_3}$

ここで, *n*₁, *n*₂は入射光, *n*₃はDFG波長における屈折率 である.

光波域における屈折率分散は, Panら¹⁷⁾によって求めら れており, 0.7~1.6 μmの波長範囲において次式で示され る.

$$n^2 = 2.675 + \frac{20.3706}{12.397 - 3.553/\lambda^2}, \quad \lambda: \mu m$$

THz波域におけるDASTの誘電分散特性は、フェムト秒 レーザーを用いたTDSにより求められており、Walther ら¹⁸⁾の実測データからフィッティングし1THz以下の屈折 率分散を導出すると次式が得られる.

$$n^2 = 4.7231 + \frac{0.8604\lambda^2}{\lambda^2 - 74380}$$

また、コヒーレンス長Lcは次式で表される.

CoherenceLength: $L_c = \frac{1}{2\left|\frac{n_1}{\lambda_1} - \frac{n_2}{\lambda_2} - \frac{n_3}{\lambda_3}\right|}$

DASTにおける最大非線形光学係数d₁₁を用いた効率の良いDFGを行うためには、上式における屈折率はいずれもDASTのa軸成分の値を用いる必要があり、コヒーレンス長 L_c と入射光波長 λ_1 の関係の計算結果をFig. 2に示す.またFig. 3は位相整合波長 λ_1 のTHz周波数依存性を示したものであり、位相整合波長は1100~1200 nmの範囲にありTHz波の周波数の増大と共に位相整合波長が短波長化することが分かる.

これらの位相整合波長を考慮した結果,我々は2波長光 源として θ =90°, ϕ =55°cutのKTP結晶を2ヶ用いた532 nm 励起OPOを新たに開発した.Fig.4は,DASTを用いたTHz 波DFGの実験系であり,KTP-OPOは15 nm長のKTP結晶と 反射率98%,82%の平板ミラーにより構成し,励起光源 はQスイッチパルス動作の半導体レーザー励起Nd:YAG レーザーの第二高調波であり,出力10 mJ,パルス幅10 ns,繰返し20 Hzである.OPO特性としては,しきい値は 5 mJ,8 mJの励起時において2波長光出力0.5 mJ,パルス 幅はほぽ8 nsであった.本構成においては,Fig.5に示す ような角度位相整合特性となり ϕ =55~70°変化させること により1150~1190 nm域のアイドラ光発生が可能である.



Fig. 2 Calculated coherence length as a function of input wavelength.



Fig. 3 Calculated phase-matching wavelength as a function of THz frequency.



Fig. 4 Experimental setup for THz-DFG with DAST crystal using dual-wavelength KTP-OPO.



Fig. 5 Angle-tuning characteristics of KTP-OPO.

1150 nm付近の2波長はDAST 結晶における1 THz以下の DFGにおけるコリニア位相整合波長であるが,0.5 mm以 下の比較的薄いDAST結晶では1 THz以上の周波数域にお いても有効であると考えられる.KTP-OPO出力のスペク トルは,Fig.6に示すように2波長共スペクトル幅はほぼ 0.2 nmであり,KTP結晶の角度によるスペクトル幅および 出力変化は小さい.2波長スペクトルにわずかなアンバラ ンスがあるが,これは2ヶのKTP結晶の内,前方のKTPに おける励起光の減衰(depletion)によるものと考えられる.

発生したTHz波の検出は2ケの放物面ミラーによりコリ メートおよび集光し、ポリエチレンのフィルターにより 入射光波を完全にカットした後、常温動作のDTGS焦電型 検出器(日本分光(株)製)によりTHz波パワーを測定した. DTGS検出器の出力はボックスカー積分器によりピーク ホールドしアナログ出力とした.DTGS検出器のノイズレ ベルはほぼ0.1 mW程度であり、従来の液体He温度に冷却 したSiボロメータと比較すると感度はほぼ1/100程度であ るが、DFGのTHz波ピーク出力は最大で10 mW程度ありS/ Nの良い安定した出力特性が得られた.DAST結晶におけ る最大の非線形光学定数d₁₁を利用した非線形相互作用が 行われているかを確認するために、2波長OPOの偏光方向 とDAST結晶のa軸方向を一致させ、またTHz波の偏光方向



Fig. 6 Typical idler spectrum of dual wavelength KTP-OPO.

は金属メッシュ偏光素子を回転することによりTHz波出力の変化を測定した結果,THz波の偏光方向はDASTのa軸方向と一致することを確認した.

THz周波数の設定は、光波の一方の波長λ₁を1150 nmに 固定し、片方のKTP結晶の角度を変化させλ2を1150~1190 nmまで変化させることにより行った. Fig. 7は、結晶長L = 1.1 mmのDASTを用いた時のTHz波出力の周波数依存性 を示したものであり, 0.6 THzにおいて最大2.3 mWを示 し、1.1 THzで大きく低下するが3.5 THz付近までTHz波発 生が行われていることを確認した. 1.1 THzの低下はDAST におけるTOフォノンの共鳴吸収によるものであり、また 3THz以上の低下はDASTにおけるTHz波吸収が大きく影響 しているものと考えられる.そこで、THz波吸収の影響を 低減するために結晶長0.3 mm以下のDASTを用いてTHz波 発生を行った結果, Fig. 8に示すように結晶長L=0.3 mm では2.5 THzにピークを示し、またL=0.2 mmでは4.3 THz にピークを示し1.5~7 THzの広い周波数範囲のTHz波が発 生していることを新たに見出した.最大ピークパワーは ほぼ4.3 THzにおいて11 mW(パルスエネルギーで表わすと 88 pJ/pulse)のTHz波が得られており、この時の2波長光波 の平均入射パワーは8 mW(パルスエネルギーは0.4 mJ/ pulse)であった. 1.5 THz以下のTHz波の低下はFig. 7と同 様に1.1 THzにおける共鳴吸収と相互作用長が小さいこと による変換効率の低下であり、6 THz以上の周波数依存性 は位相整合特性と材料吸収によるものと考えられる. Fig. 7,8の結果からわかるように,DAST結晶は0.3~7THz域 において有望なDFG結晶であるが、1.1 THzに共鳴吸収が



Fig. 7 Frequency dependence of THz-DFG output from 1.1 mm-thick DAST crystal.



Fig. 8 Frequency dependence of THz-DFG output from 0.2and 0.3 mm- thick DAST crystals.

あるために例えば0.5~3 THz域で分光する目的には必ずし も有効ではない.これらの周波数域においては,0.5~3 THz域を連続的にカバーできるGaP結晶を用いたDFG¹⁹⁾が 有利であると考えられる.

THz波発生における今後の課題としては、出力の増大、 波長可変域の増大およびスペクトルの狭帯域化がある. THz波出力の増大のためにはOPOの高出力化が必要である が、OPOは一般に励起強度を上げるとスペクトル幅が広 がり、DFGの効率が低下する問題点がある.そこで、比 較的スペクトル幅の小さいOPOの後段に光パラメトリッ ク増幅器を置くことにより2波長光波出力の増大を図る方 式が有効であると考えられる.本実験におけるTHz波の周 波数幅は、光波のスペクトル幅(0.2 nm)から推定するとほ ぼ60 GHz程度と考えられ、今後THz波分光等の応用におい て狭帯域化が必要であれば、グレーティングや光注入等 によるOPOスペクトルの狭帯域化が有効である. また, 材料面ではより均質なDAST結晶の育成技術の開発がDFG の高出力化と広帯域化のために必要であり、我々の研究 グループではこれらの実験結果をフィードバックするこ とにより育成条件の改良による高品質化を進めている.

4. 応用に向けての課題と対応

フェムト秒パルスレーザー励起ブロードバンドTHz波を 用いたTDSシステムにより多くの材料の複素誘電特性が0.5 ~10 THz域で測定されており、材料物性および生体科学分 野における新しい分光ツールとなっている.本論文で取り 上げたDFGによる波長可変THz波は、現状ではナノ秒パル スではあるがほぼ7 THzに至る広い周波数域で利用可能で あり, またピークパワーはmW以上得られるために室温動 作の焦電素子で検出可能であり、コンパクトなTHz波分光 システムやTHz波イメージングシステムへの実用化に有利 であると考えられる.特に,TDSと比較すると検出系に複 雑な分光系が不要であり,また励起レーザーとして現在完 成度・高信頼性が高いNd:YAGレーザーをベースに用いる ことが可能であるメリットはきわめて大きい. このような 波長可変THz波分光システムは、遠赤外FT-IRのような汎 用分光システムとしての応用よりも特定の周波数域におけ る透過・反射特性を短時間で計測する場合に有利であり. また2周波差分イメージング等により特定物質の検査シス テムとしての実用化が期待される. 今後これらに対応する ためには、1kHz以上の高繰返しNd:YAGレーザーを励起光 として用いたシステムにより平均パワーを増大しシステム 全体のS/N向上と安定化を図る必要がある.

DFGによるTHz波発生の将来方向としては,Fig.9に示 すように比較的自由に発振制御可能な光波を用いてTHz波 発生を自在に制御する「THz波シンセサイザー」の実現が期 待される.DFGは2波長光波から1周波数のTHz波を発生さ せるだけではなく,3波長光波から2周波THz波発生(Fig.9 (b))も可能であり,THz波域における2周波差分分光の実 現が容易になる.またFig.9(c)に示すように光波2波長の 内1波長をブロードスペクトルとすることによりブロード なTHz波発生を行い,Martin-Puplett分光器と組合せた高分



Fig. 9 Schematic of THz-DFG using various types of optical spectra: (a) for frequency-scanning spectroscopy, (b) for difference-frequency spectroscopy, and (c) for Fourier-transformed spectroscopy using broadband THz-waves.

解フーリエ変換型分光²⁰⁾も可能である. さらにDFGの大 きな特長として,2波長光波をTHz波が必要な場所まで光 ファイバーで伝送し,光ファイバーの先端に置いたDFG 結晶からTHz波を発生させ,分光対象物に照射することが 可能である.例えばこのような光ファイバーTHz波発生プ ローブを顕微鏡に実装し,特定の生体物質の振動をTHz波 で励起したときの生体反応や分光特性の変化を画像計測 することが可能になる.

5. まとめ

非線形光学効果であるDFGにより,波長可変THz波の広 帯域化および高出力化が急速に進展している.2波長動作 KTP-OPOと有機DAST結晶を用いたDFGにより,ナノ秒パ ルスではあるが0.3~7 THz域においてピークパワーが10 mWレベルの広帯域波長可変THz波発生に成功した.1mm 程度の厚いDAST結晶ではロスの小さなサブTHz波の発生 に有利であるが,厚み0.3 mm以下の薄いDAST結晶を用い ることにより5 THz以上の高周波域のTHz波発生が可能で あることを新しく見出した.今後DAST結晶におけるTHz 波損失の低減と位相整合条件の最適化により10 THz以上 の高周波発生も可能であると考えられ、ミリ波と中赤外 光波の周波数ギャップを非線形光学技術により埋めるこ とができるものと期待される.

DFGによる波長可変THz波発生系は、励起レーザーおよ び検出器として現在完成度および信頼性が高い半導体 レーザー励起Nd:YAGレーザーと室温動作の焦電素子を用いることが可能である点が大きな特長であり、また検出 系に複雑な分光系が不要であるために、コンパクトなTHz 波分光システムやTHz波イメージングシステムへの実用化 に有利であると考えられる.

謝 辞

本研究は、文部科学省科学研究費補助金(特定領域研究 (B),課題番号11231201)の補助により行われた.DAST結 晶に関しては、東北大学電気通信研究所伊藤研究室の大 崎直樹氏らDASTグループにおいて育成したものを使用し たものであり深謝致します.

参考文献

- R. L. Aggarwal, B. Lax, H. R. Fetterman, P. E. Tannenwald, and B. J. Clifton: J. Appl. Phys. 45 (1974) 3972.
- 2) N. Matsumoto and T. Yajima: Jpn. J. Appl. Phys. 12 (1973) 90.
- D. H. Auston, A. M. Glass, and P. LeFur: Appl. Phys. Lett. 23 (1973) 47.
- 4) T. Taniuchi, J. Shikata, and H. Ito: Electron. Lett. **36** (2000) 1414.
- 5) M. A. Piestrup, R. N. Fleming, and R. H. Pantell: Appl. Phys. Lett. 26 (1975) 418.
- K. Kawase, M. Sato, T. Taniuchi, and H. Ito: Appl. Phys. Lett. 71 (1997) 753.
- 7) K. H. Yang, J. R. Morris, P. L. Richards, and Y. R. Shen: Appl. Phys. Lett. 23 (1973) 669.
- 8) M. Exter and D. Grischkowsky: Appl. Phys. Lett. 56 (1990) 1694.
- 9) D. M. Mittleman, R. H. Jacobsen, and M. C. Nuss: IEEE J. Selected Topics Quantum Electron. 2 (1996) 679.
- K. A. McIntosh, E. R. Brown, K. B. Nichols, O. B. Mcmahon, W. F. DiNatale, and T. M. Lyszczarz: Appl. Phys. Lett. 67 (1995) 3844.
- S. Matsuura, M. Tani, and K. Sakai: Appl. Phys. Lett. 70 (1997) 559.
- 12) K. Kawase, H. Minamide, K. Imai, J. Shikata, and H. Ito: Appl. Phys. Lett. 80 (2002) 195.
- 13) H. Nakanishi, H. Matsuda, S. Okada, and M. Kato: Proceedings of the MRS International Meeting on Advanced Materials 1 (1989) 97.
- 14) U. Meier, M. Bosch, Ch. Bosshard, F. Pan, and P. Gunter: J.Appl.Phys. 83 (1998) 3486.
- 15) S. Souma, H. Takahashi, T. Taniuchi, and H. Ito: Chem. Phys. 245 (1999) 359.
- 16) K. Kawase, M. Mizuno, S. Souma, H. Takahashi, T. Taniuchi, Y. Urata, S. Wada, H. Tashiro, and H. Ito: Opt. Lett. 24 (1999) 1065.
- 17) F. Pan, G. Knople, Ch. Bosshard, S. Follonier, R. Spreiter, M. S. Wong, and P. Gunter: Appl. Phys. Lett. 69 (1996) 13.
- 18) M. Walther, K. Jensby, S. R. Keiding, H. Takahashi, and H. Ito: Opt. Lett. 25 (2000) 911.
- T. Taniuchi, J. Shikata, and H. Ito: 8th IEEE International Conference on Terahertz Electronics, P-8 (2000) 225.
- 20) J. Shikata, K. Kawase, T. Taniuchi, and H. Ito: Jpn. J. Appl. Phys. 41 (2002) 134.

レーザーワード―

DFG (difference frequency generation)

DFGとは2次の非線形光学効果の1つであり,2周波数光 波あるいは電磁波を非線形相互作用させることによる差 周波発生のことである.直接レーザー発振や光パラメト リック発振で得られにくい中赤外光~ミリ波を,発振し やすい光波域の2周波光源と非線形光学結晶の組み合わせ により実現する方式であり,レーザー出現の当初から2台 の色素レーザーやCO₂レーザーを光源に用いて,LiNbO₃, GaAs, GaP, ZnTe等におけるDFG特性の研究が行われた. DFGは,特に遠赤外領域にあるTHz波発生に有効であり,大きな非線形光学定数を有する結晶と位相整合条件を考慮した2周波光波を組み合わせることにより周波数可変コヒーレントTHz波発生の広帯域化が進められ,光波とミリ波の電磁スペクトルのギャップがほぼつながるまでに至っている. (谷内哲夫)