

単一縦モード > 1 kW 出力テラヘルツ光パラメトリック光源

林 伸一郎[†] 縄田 耕二[†] 川瀬 晃道^{††} 南出 泰亜[†][†] 理化学研究所 〒980-0845 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 519-1399^{††} 名古屋大学 〒464-8603 愛知県名古屋市不老町E-mail: [†] {shayashi, k-nawata, minamide}@riken.jp, ^{††} kawase@nucee.nagoya-u.ac.jp

あらまし 近年、テラヘルツ光を利用した様々な応用研究が各分野で進んでおり、多くの有意義な結果を残している。このため、高出力・小型簡便で単色性の高い波長可変テラヘルツ光源が実現すれば、研究上のみならず産業上においても適応可能範囲が飛躍的に拡大することが期待される。本研究では、ニオブ酸リチウム結晶を利用したパラメトリック波長変換を礎に、光注入による発生テラヘルツ光の峽帯域化および高出力化を行った結果、単一縦モードかつ尖頭値出力 1 kW 以上 (1.4–2.2 THz)、波長可変域 1–3 THz が得られた。

キーワード テラヘルツ光, 非線形光学, 波長変換, パラメトリック増幅

> 1 kW-peak, single-longitudinal-mode terahertz-wave parametric source

Shin'ichiro HAYASHI[†] Kouji NAWATA[†] Kodo KAWASE^{††} and Hiroaki MINAMIDE[†][†] RIKEN ASI 519-1399 Aramaki-cho, Aoba, Sendai, Miyagi, 980-0845 Japan^{††} Nagoya University Furocho, Chikusa, Nagoya, Aichi, 464-8603 JapanE-mail: [†] {shayashi, k-nawata, minamide}@riken.jp, ^{††} kawase@nucee.nagoya-u.ac.jp

Abstract We report on the development of a high-peak-power, single-longitudinal-mode and tunable injection-seeded terahertz-wave parametric generator using MgO:LiNbO₃ which operates at room temperature. The high peak power (> 1 kW) is enough to allow easy detection by commercial and calibrated pyroelectric detectors, and the spectral resolution (< 5 GHz) is the Fourier transform limit of the sub-nanosecond terahertz-wave pulse. The tunability (1–3 THz) and the small footprint size are suitable for a variety of applications.

Keyword 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。テラヘルツ光に関する研究は、基礎科学から産業応用まで様々な分野において独自の応用開拓を目指し、多数のテラヘルツ光利用の提案がなされ、論文報告も年々増加する傾向にある。この背景には、テラヘルツ光領域のデバイス開発が、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]。過去の研究では、テラヘルツ光が持つ特性の解明が進み、その特性を用いた直感的に近い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深化され、専門的な議論も多数なされている [4–7]。

一方、多様なテラヘルツ光応用に対応できる要素技術開発は未だ十分とは言えず、より高出力・峽帯域・

広帯域波長可変な光源や高感度・高速・室温動作の検出技術が、高感度センシング・イメージング、テラヘルツ非線形分光 [8,9] などにおいて要求されている。フォトニクス技術を用いたテラヘルツ光発生・検出の発展は、サブ THz から数十 THz と動作周波数領域の超広帯域化や、高尖頭値化または連続波発生、さらに極低温動作のポロメータに匹敵する検出性能などと顕著である。テラヘルツ光発生のための非線形光学波長変換の特長は、図 1 に示すように、広帯域波長可変性、高出力、狭線幅発生を同時に満たす性能が得られることである。

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

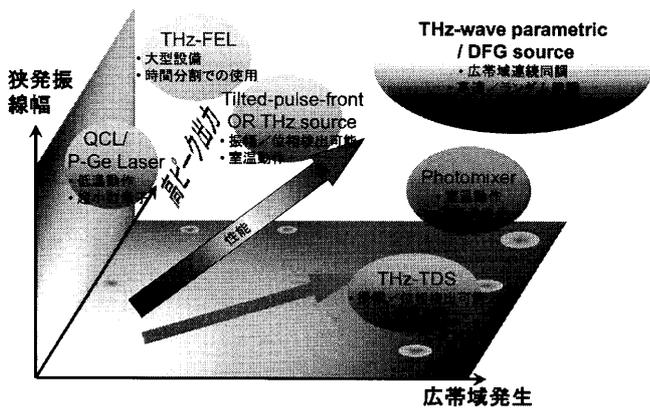


図 1 帯域・出力・線幅, それぞれを軸とした場合の各種光源の性能比較 (THz-wave parametric / DFG source:テラヘルツ光パラメトリック / 差周波光源, THz QCL:テラヘルツ量子カスケードレーザー, FEL:自由電子レーザー, Tilted-pulse-front OR THz source:波面をチルトさせたフェムト秒レーザー用いた光整流によるテラヘルツ波光源, THz-TDS:テラヘルツ時間領域分光システム, THz photomixer:テラヘルツ・フォトミキサー)

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。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閾値に達してしまい, 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, 損傷閾値が上昇し, 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原理

Qスイッチ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。図 2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^[13]。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)^[14], 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^[15], 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

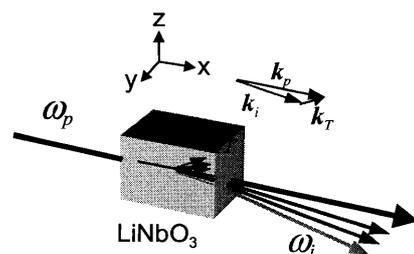
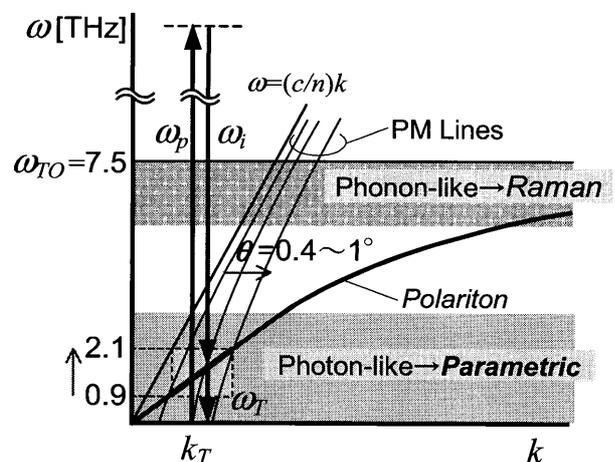


図 2 ポラリトンの分散曲線とノンコリニア位相整合条件。

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 ($\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_i + \mathbf{k}_r$) を考慮して求めると、パラメトリック利得 g_T は、

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

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、

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

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

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

である^[16]。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 A_1 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 LiNbO_3 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、 A_1 モードの固有周波数および線幅（減衰定数）を

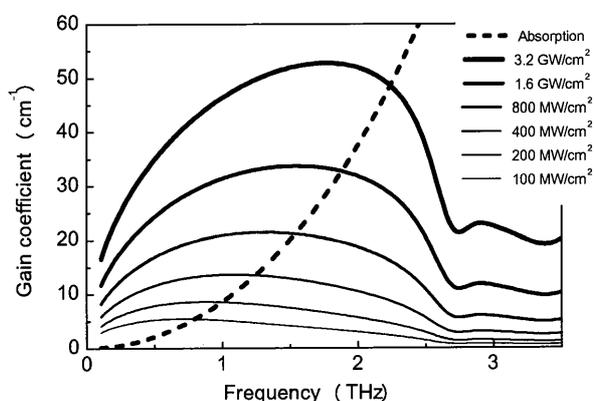


図3 LiNbO_3 結晶を Nd:YAG レーザーで励起した場合の利得および吸収係数の計算結果。

決定し、周波数依存性を示した^[16]。図3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

図4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 (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 ($\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$)、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^[17,18]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 ($\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$) 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 $\pm 2\%$ 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 ($\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$) 結晶 ($4 \times 5 \times 65 \text{ mm}$) 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: 500 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。

$\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 結晶は数 THz 帯に大きな吸収係数 ($10 \sim 100 \text{ cm}^{-1}$ @ $1 \sim 3 \text{ THz}$) 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

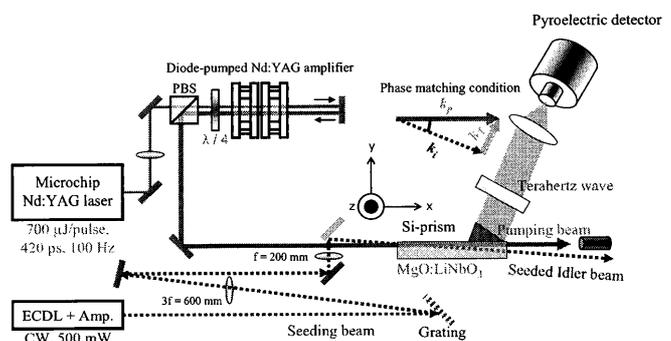


図4 実験装置。

生じたテラヘルツ光は、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。

4. 結果および考察

図 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 14 mJ/pulse、注入光の出力が 500 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、1.0 - 3.0 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、1.7 THz 付近において約 1.1 kW (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。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閾値は 450 MW/cm² から 3.5 GW/cm² 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。

一方、光波からのエネルギー変換効率は約 10⁻⁵ 程度であり (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 [19,20]。

図 6 に、発生させたテラヘルツ光の強度分布を示す。円柱レンズによって平行テラヘルツ光束とした後、焦

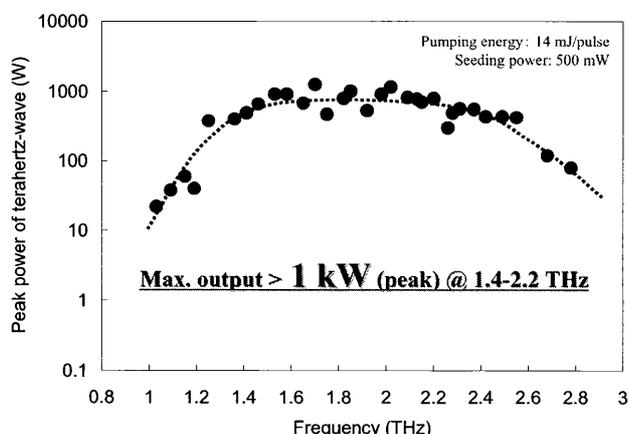


図 5 テラヘルツ光出力の周波数依存性。

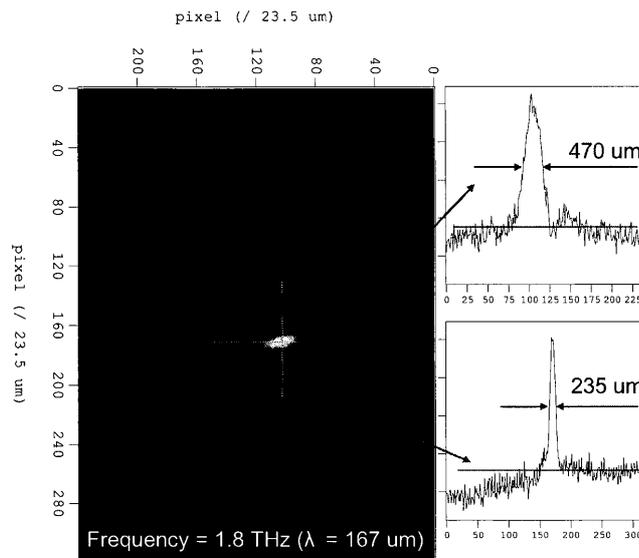


図 6 テラヘルツ光強度分布。

点距離 30 mm のレンズで集光させ、テラヘルツカメラ (NEC 社製: IRV-T0831) によって観測した。入射するテラヘルツ光の周波数が 1.8 THz (波長: 167 μm) のとき、ビーム径が最小となる部分は、235 × 470 μm (半値全幅) であった。このことから、M₂ 値は 1.1 以下と見積もられる。

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。図 7 に、テラヘルツ光パラメトリック光源の尖頭値出力を示す。尖頭値出力は年々増大し、本稿において、1 kW を超える出力を観測した。また、発生したテラヘルツ光の M₂ 値は 1.1 以下と見積もることが出来た。この高尖頭値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

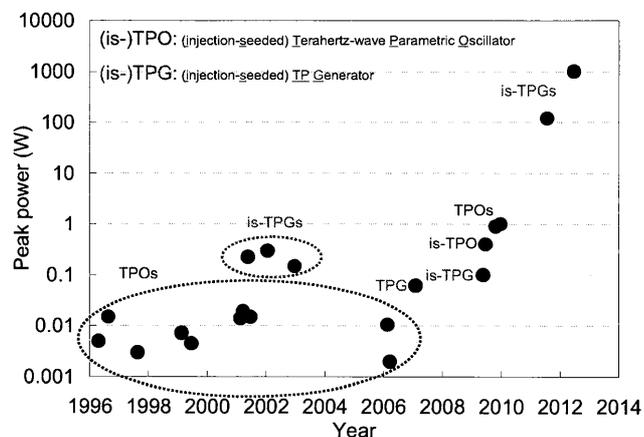


図 7 テラヘルツ光パラメトリック光源の出力。

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。

文 献

- [1] 伊藤弘昌：応用物理，**79**，524 (2010)。
- [2] M. Tonouchi, *Nature Photonics*, **1**, 97 (2007).
- [3] D. Dragoman and M. Dragoman, *Progress in Quantum Electronics*, **28**, 1 (2004).
- [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. of Infrared Millim. and Terahertz Waves*, **32**, 143 (2011).
- [6] M. Hangyo, M. Tani, and T. Nagashima, *International Journal of Infrared and Millim. Waves*, **26**, 1661 (2005).
- [7] P. H. Siegel, *IEEE Trans. Micro. Theory Tech.*, **52**, 2438 (2004).
- [8] J. Hebling, K. L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K. A. Nelson, *JOSA B-Optical Physics*, **25**, B6 (2008).
- [9] 田中耕一郎，廣理英基：固体物理，549 (2011)。
- [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**, 418 (1975).
- [12] K. Kawase, J. Shikata, H. Ito, *J. of Phys. D: Appl. Phys.*, **35**, R1 (2002).
- [13] Y. R. Shen: The Principle of Nonlinear Optics (John Wiley and Sons, New York, 1984).
- [14] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, D. N. Nikogosyan eds.: Handbook of Nonlinear Optical Crystals (Springer-Verlag, Berlin, 1997).
- [15] E. D. Palik ed.: Handbok of Optical Constants of Solids (Academic Press, San Diego, 1985).
- [16] J. Shikata, K. Kawase, K. Karino, T. Taniuchi, and H. Ito, *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.*, **48**, 653 (2000).
- [17] N. Pavel, J. Saikawa, S. Kurimura and T. Taira, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **40**, 1253 (2001).
- [18] H. Sakai, H. Kan, and T. Taira, *Opt. Exp.*, **16**, 19891 (2008).
- [19] S. Hayashi, K. Nawata, H. Sakai, T. Taira, H. Minamide, and K. Kawase, *Opt. Exp.*, **20**, 2881 (2012).
- [20] 南出泰亜：応用物理，**81**，284 (2012)。