

報告番号	甲 第 12297 号
------	-------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 テラヘルツ波パラメトリック発生及び
 応用に関する研究
 (A study on injection-seeded
 terahertz-wave parametric generation
 and applications)

氏 名 村手 宏輔

論 文 内 容 の 要 旨

電波と光波の中間に位置するテラヘルツ波は、電波の物質透過性と、光波のようにレンズやミラーで取り回しが容易といった特長を併せ持ち、さらに、フォトンエネルギーが低いため生体安全性が高く、被曝のおそれがない。また、テラヘルツ波帯には、多くの試薬の回転エネルギーや分子間相互作用エネルギーに由来する特徴的なスペクトル構造（指紋スペクトル）が存在するため、種々の応用展開が期待される。その中でも特に、郵便物に隠匿された禁止薬物検査や、薬局における処方箋ミス検査などへの応用展開が待たれる。

他方、現在の汎用テラヘルツ分光器は、時間領域分光法(THz-TDS)を利用しているが、以下の三つの問題からターゲット中のテラヘルツ波の散乱、多重反射、回折などを苦手とし、上記検査応用には不向きであった。すなわち、散乱等に起因する時間波形の乱れを完全に時間サンプリングすることの難しさからフーリエ変換を介して分光結果の乱れが生じやすいという問題、高周波域でダイナミックレンジが急峻に低下する問題、および検出（光伝導アンテナ）エリアが数十マイクロメートルと小さいという三つの問題である。

我々が開発した高出力かつ広帯域周波数可変なテラヘルツ波発生手法として、光注入型テラヘルツパラメトリック発生器(is-TPG: injection-seeded THz-wave Parametric Generator)があり、テラヘルツ波帯の波長可変自由電子レーザーをも凌駕する尖頭値出力 50 kW をテーブルトップサイズで実現している。THz-TDS と

は異なり、波長可変光源であるため時間波形取得が不要であること、1~3 THz に渡って高いダイナミックレンジを有すること、また検出エリアが比較的大きいことから、テラヘルツ波の散乱、多重反射、回折などの影響を受け難く、遮蔽物下の薬品・禁止薬物検査などの産業応用には最適な光源であるといえる。

そこで本研究では、テラヘルツ波の産業応用を目指して、is-TPG を用いた分光システム開発およびパラメトリック増幅システム開発を主な目的として研究を行った。まずは、is-TPG の基礎性能の向上として、テラヘルツ波検出感度の向上を図り、ダイナミックレンジ 7 桁以上の分光システムを実現し、さらに従来 0.6~3 THz であった波長可変域を 0.6~5 THz まで拡大した。本システムを用いることで、従来は困難であった厚手の遮蔽物越しの試薬測定が可能となった。次に、テラヘルツ波の多波長発生による測定のリアルタイム化を行った。多波長テラヘルツ波を同時発生することで 1 ショット分光が可能となり、リアルタイム試薬識別に成功した。その上で、レファレンス光を常時取得することで測定安定化まで行った。最後に微弱テラヘルツ波の利用を目指し、これまで研究がほとんどなされていないテラヘルツ波パラメトリック増幅技術の確立を行い、極めて弱いテラヘルツ波入力に対しても高利得パルス増幅に成功した。以下に本論文の各章の要約を示す。

第 1 章 序論

本章では本研究の背景と目的を述べた。まずはテラヘルツ波の特徴や、期待される応用研究、および種々のテラヘルツ波光源を紹介した。また、現在の汎用テラヘルツ波分光器の THz-TDS では郵便物に隠匿された禁止薬物検査等が困難である一方で、本研究で用いる is-TPG であれば実現可能であることを示し、is-TPG の特徴や他光源に比した優位性、これまでの歴史を述べた。その上で、本研究ではテラヘルツ波の応用実現を目指して、is-TPG を用いた実用的な分光システム開発や、高利得テラヘルツ波増幅実現を目指すことを述べた。最後に本論文の構成を記した。

第 2 章 is-TPG によるテラヘルツ波発生、検出原理

本章では、非線形光学結晶である LiNbO_3 を用いたテラヘルツ波パラメトリック発生、検出原理に関して説明した。非線形光学結晶である LiNbO_3 結晶のポラリトンモードを介した誘導ラマン散乱により励起光が近赤外光のアイドラー光とテラヘルツ波に分割される。しかし、その状態では広帯域なテラヘルツ波パラメトリック発生 (TPG) であり、波長可変性は得られずまた出力も弱い。一方

で is-TPG は、TPG にノンコリニア位相整合条件を満たす角度で注入光を入射することで、単一周波数、高出力なテラヘルツ波を発生する。この時注入光の波長と角度を同時に変えることで広帯域波長可変性が得られる。近年パルス幅が 500 ps 程度のマイクロチップ Nd:YAG レーザーを励起光源として導入することで、テラヘルツ波出力は尖頭値で 50 kW に達し、また装置の小型化や安定化も実現した。

さらに同様の原理を用いることでテラヘルツ波の高感度検出も可能である。is-TPG において、近赤外光の代わりにテラヘルツ波を注入光として入射することで近赤外光（アイドラー光）を発生する。この近赤外光を測定することで、テラヘルツ波を直接検出する場合に比べて極めて高い検出感度が実現した。

第 3 章 is-TPG を用いた高ダイナミックレンジ分光システム

本章では is-TPG を用いたテラヘルツ波分光システム開発に関して述べた。is-TPG を発生/検出に用いることで分光システムを構築可能だが、従来、検出結晶励起光として発生結晶の透過光を再利用しており、それではノイズレベルが高くダイナミックレンジ 4 桁程度しか得られなかった。そこで、本研究では透過光の再利用をやめ、励起光を分離して検出結晶にも乱れのない励起光を入射したところ、ノイズレベルが低下し 7 桁以上もの高いダイナミックレンジを実現した。

次に光源が開発されてからこれまで 15 年ほど改善されていない可変周波数域の拡大を行った。結晶を僅かに傾け、励起光をテラヘルツ波発生面で浅く全反射させることで、結晶のテラヘルツ波吸収を抑えることができ、従来の 0.6~3.0 THz から、0.6~5.0 THz と大幅な帯域拡大に成功した。

さらにこの分光システムを用いて、実際の郵便物内禁止薬物検査を想定した、遮蔽物越しの試薬測定を行った。厚紙封筒、ダンボール、気泡緩衝材からなる 2 cm 以上の遮蔽物下でも 3 種類の糖類を識別することが出来た。

第 4 章 is-TPG による多波長発生

本章では is-TPG の多波長発生によるリアルタイム分光システム開発について述べた。通常 is-TPG は単一波長発生で、分光を行う際に波長を変える必要があり時間を要していた。そこで本研究では、波長を変える必要をなくすために、注入光を多波長化することで多波長のテラヘルツ波を同時に発生し、さらに is-TPG を用いた検出手法によりそれぞれの波長を分離して検出可能であることから、1 ショットでの分光を実現した。多波長注入光として、まずは 2 台の ECLD

の出力を増幅器内部の四光波混合により多波長化し用いた。4 波長までの安定的な発生、検出が実現し、ダイナミックレンジ最大 6 桁が得られた。その後、ECLD を 5 台まで増やして、5 波長発生を行った。糖類ペレットを測定した所、サンプル挿入と同時にスペクトルの変化が確認でき、1 ショットでの分光が実現した。本方式を用いることで、カメラのビデオレートで測定が行え、従来では困難であったリアルタイム測定が実現する。

第 5 章 高安定リアルタイム分光システム

本章では、リアルタイム分光の高安定化について述べた。第 4 章で述べた is-TPG の多波長化によりリアルタイム分光が実現した一方で、単一波長発生時に比べて安定性が低下した。不安定になる要因は、励起光、注入光および空気の揺らぎ等様々が考えられるが特定できていない。そこで本研究では、実験系の改良によりその揺らぎをキャンセルできる装置開発を行った。テラヘルツ波ビームを 2 つに分割し、サンプル測定光とは別にレファレンス光を同時取得し、前者を後者で除して安定化を図った。それら 2 つの検出光間には比較的高い相関があり、3 波長発生時においても不安定性を 1% 以下に抑制することに成功した。本システムは従来の分光システムやイメージングシステムでも用いることができ、例えば測定に数時間を要するテラヘルツ波 CT の測定において、長時間の出力変動による影響を低減でき、さらに分光イメージングシステムにおいても、パルス間の揺らぎによるノイズを除去し、より正確な試薬同定が実現すると考えられる。

第 6 章 高利得テラヘルツ波パラメトリック増幅システム

本章では、極微弱テラヘルツ波の高利得増幅に関して述べた。サンプル等を通過する際に大きく減衰した極微弱テラヘルツ波は、4K 動作のボロメータ検出器等を用いても検出ができない。修士課程の時に is-TPG の原理を用いてテラヘルツ波パラメトリック増幅に成功し、利得の高い 1.6 THz 付近において 40 万倍の増幅度を得たが、散乱光ノイズが邪魔となり、LiNbO₃ 結晶のパラメトリック利得が低い 1 THz 以下において極微弱テラヘルツ波の増幅はできなかった。そこで本研究では、低周波かつ極微弱光の高利得増幅を目指して新たな増幅手法を考案した。is-TPG の原理を用いてテラヘルツ波を一旦近赤外光(アイドラー光)に波長変換し、近赤外光の状態でアイリス(絞)を用いて散乱光ノイズを空間的に除去した後に、アイドラー光を再度テラヘルツ波に変換して増幅することで、ノイズの除去と利得の大幅な向上を可能とした。これにより 0.9 THz の極微弱テ

ラヘルツ波 ($100 \text{ zJ} = 10^{-19} \text{ J}$ 以下)を、20 億倍に増幅することに成功した。

第7章 結論

本章では以上の内容に対する総括を行い結論とした。テラヘルツ分光・イメージング応用に対するニーズは大きく、世界的にも重要課題であると認識されているにも関わらず未だ実用化されていないのは、過去の研究が散乱に弱い THz-TDS を主に用いたものであり、遮蔽物越しの測定が困難であったことによる。一方、本研究では独自技術である is-TPG を発展させ、高ダイナミックレンジ分光システムを実現し、厚い遮蔽物越しの試薬同定に成功した。また、測定のリアルタイム化、高安定化も可能とし、応用可能性を示すことが出来た。さらに、常温素子による高利得テラヘルツ増幅を実現し、20 億倍の増幅度を利得の低い 1 THz 以下の極微弱テラヘルツ波入力に対して実現した。

本研究のこれら成果は、郵便物内禁止薬物検査をはじめ広く用いることができると考えており、テラヘルツ波を用いた安全安心な社会実現を目指して、今後も引き続き研究を進めていきたい。