

平成 26 年度 博士学位論文

励起光とテラヘルツ波の相互作用を用いた
近赤外光検出による新規分光法の開発

平成 27 年 3 月

秋葉 拓也

論文要旨

背景

電磁波はその可能性から多くの周波数帯において技術開発が進められ、われわれの身近においても、携帯電話、電子レンジ、蛍光灯、X線など多くの分野で利用されてきた。これらの電磁波はすべて異なった周波数で実施されており、適材適所で周波数を選択しながら実用化されてきた。こういった電磁波の中でも、近年、THz波と呼ばれる周波数にして0.1~10 THzに位置する電磁波が注目されている。この周波数帯には多くの物質の分子の骨格振動、格子振動、分子の回転、分子間振動などによる電磁波吸収スペクトルが現れることから分子構造を特定するための多くの情報を得ることができる。この特徴を活かした応用技術の開発が次世代の基盤技術になり得るとして期待されている。

目的

従来からテラヘルツ周波数帯での電磁波の発生は難しく、永らく未開拓の電磁波領域であった。この電磁波領域は電波と光波の中間に位置することから電波側からは主に電子回路による発振器で、光波側からはレーザー技術による周波数変換でこの周波数の発生が試みられてきたが、十分な出力が得られているとは言えず、そのアプリケーションも実用化・産業化には至っていない。現在、THz波を用いた分光法として主に用いられているのは、THz時間領域分光法 (THz-TDS) 及び単色 THz 波光源による分光法であるが、THz-TDSでは光学遅延ステージや光伝導スイッチなど実験系が複雑になることや長い測定時間が実用化へのボトルネックになっている。また、単色 THz 波光源の掃引による分光法では、THz-TDS で問題となっていた測定時間の問題は回避できるが、検出器が問題となる。この分光で用いられる検出器は常温での低雑音・高感度なものが存在せず、高感度な計測の為には、高価かつ極低温まで冷却しなければ使用できない検出器が必要となる。そのため、この分光法は、ユーザーフレンドリーであるとは言い難い。これらの理由から、本論文では、簡便な装置で、サンプルによらない測定の出来る分光法が実用化・産業化へのニーズであると考え、エバネッセント波を用いた励起光と THz 波の相互作用を利用した新規分光法によりこのニーズに応えることを目指した。

実験

この分光法では、THz 波の発生には二次の非線形光学効果である差周波混合を用いて、チェレンコフ位相整合により THz 波を発生させる。この時、チェレンコフ位相整合では、分光に重要とされる 1 ~ 5 THz の周波数帯において、フラットな出力を有しており、この範囲で分光可能であることを示している。また、チェレンコフ位相整合では THz 波が角度を持って放射されることから、結晶端面で THz 波が全反射する。この際、テラヘルツ・エバネッセント波が結晶表面に極在する。本分光法では、このエバネッセント波を用いて、

サンプルの持つテラヘルツ周波数帯での複素誘電率の情報を得る。通常、サンプルの情報を持つこの THz 波を受光すれば分光は成立するのだが、前述の通り、THz 波の受光には特殊な装置が必要となる。そこで、本分光法では、反射して再び結晶内に伝搬する THz 波と励起光との相互作用を利用し、THz 波の持つ情報を励起光である近赤外光に転写し、この近赤外光を安価で高感度な光領域の検出器を用いて受光することで、分光が可能となる。

結果

本分光法の可能性を検討するため、単一周波数での固体サンプルの測定を行った。この結果、エバネッセント波の極在する領域にサンプルが接触すると、サンプルのテラヘルツ周波数帯での複素誘電率に起因した励起二波長光の強度変化が得られることを確認した。また、この時に結晶端面からのサンプルの距離と観測される近赤外光の強度の関係は、エバネッセント波の指数関数的な強度分布に起因して変化することも併せて確認した。次に、本分光法の即時応答性を確認するため、常温において蒸発するエタノールをサンプルに測定を行った。その結果、本分光法では、ミリ秒オーダーでの応答が可能であり、前述の THz-TDS に対する大きなメリットを有することを確認した。最後に、分光を行う為に、周波数を変化させる必要があることから、グレーティングペアを用いて光学系を構築し、波長変化に伴う光路のズレを補正し、純水およびスクロース溶液において、分光測定を行い、サンプルの違いによる強度変化を確認した。以上より、本分光法において、近赤外光の検出により、テラヘルツ周波数帯での分光が可能であることを示した。

考察

本研究において、提案および実証した分光法では、テラヘルツ周波数帯でのサンプルの持つ複素誘電率に起因した変化を励起二波長光の強度の差として検出することに成功した。また、リアルタイムでの測定が可能となることから、化学変化や水溶液の濃度変化など従来までの測定法では困難であったサンプルも測定可能となり、実用化・産業化へのインパクトは大きいと考えられる。しかしながら、本分光法では、測定からサンプルの複素誘電率の導出を行う為には、励起光の強度の変化の絶対値が必要となる。この値は、THz 波の強度、エバネッセント波とサンプルの接地面積、サンプルの複素誘電率から決定される。そのため、今後の展望として、新しい分光法としての確立を目指す為にサンプルと THz 波のカップリング改善や基準サンプルから算出される計算式の樹立などを進める必要がある。また、本分光法の高感度化にむけた取り組みとして、端面反射位相整合による THz 波発生、全反射時に大きな位相変化を有する p 偏光の THz 波の利用や導波路構造の導入によるエバネッセント波とサンプルにおけるカップリング効率の向上が考えられる。

結論

以上をまとめると、本研究の意義として、以下の事項が挙げられる。

- ① THz 波を直接検出することなく、近赤外光への相互作用を利用した近赤外光の検出を行うことで、安価で常温動作可能な光領域での検出器によるテラヘルツ周波数帯での分光を可能にした。
- ② サンプルのリアルタイムの状態変化に起因するテラヘルツ周波数帯の複素誘電率の変化を観測することに成功した。これによりリアルタイムでのセンシングが求められる化学変化や濃度変化の測定に応用できると考えられる。

目次

第1章 序論	1
1.1 研究の背景	1
1.2 本研究の目的と論文の構成	4
参考文献	9
第2章 差周波発生に用いる励起光源の開発	11
2.1 はじめに	11
2.2 差周波発生による波長変換	11
2.2.1 非線形分極	11
2.2.2 差周波発生	13
2.2.3 差周波光の出力と相互作用長, 吸収係数の関係	16
2.3 二波長出力 KTP-OPO	18
2.3.1 動作原理と実験系	18
2.3.2 入出力特性, 出力波長依存特性	22
2.3.3 タンデム型 KTP-OPOs	24
2.4 KTP-OPO を用いた差周波発生 THz 波発生	26
2.4.1 有機非線形光学結晶 DAST の諸特性	26
2.4.2 THz 波出力スペクトル測定	32
2.5 まとめ	34
参考文献	35
第3章 チェレンコフ型位相整合方式による THz 波光源の開発	36
3.1 はじめに	36
3.2 チェレンコフ型位相整合の原理	37
3.2.1 発生原理	37
3.2.2 偏光依存性	40
3.3 LiNbO ₃ を用いたチェレンコフ型位相整合条件による THz 波発生	45
3.3.1 実験装置と実験方法	45
3.3.2 実験結果と考察	46
3.4 クラッド形状の最適化による p 偏光 THz 波の取り出し効率の向上	49
3.4.1 実験装置と実験方法	49
3.4.2 実験結果と考察	50
3.5 まとめ	51
参考文献	52

第4章	高感度計測に向けたピコ秒レーザーを用いた THz 波発生	53
4.1	はじめに	53
4.2	ピコ秒バウンスレーザー	54
4.2.1	レーザー媒質の選定	54
4.2.2	側面励起バウンス増幅器	58
4.2.3	実験系及び入出力特性	60
4.3	ピコ秒光源による差周波発生用励起光源	62
4.3.1	光パラメトリック発生による二波長光発生	62
4.3.2	光パラメトリック増幅による線幅の狭窄化	67
4.4	ピコ秒レーザーを用いた THz 波発生	70
4.4.1	実験装置と実験方法	70
4.4.2	実験結果と考察	71
4.5	まとめ	71
	参考文献	73
第5章	テラヘルツ・エバネッセント波を用いた光検出による分光法の検討	74
5.1	はじめに	74
5.2	テラヘルツ・エバネッセント波分光の原理	74
5.2.1	テラヘルツ・エバネッセント波発生原理	74
5.2.2	テラヘルツ・エバネッセント波分光の原理	76
5.3	テラヘルツ・エバネッセント波を用いた光検出によるセンシング	78
5.3.1	実験装置と実験方法	78
5.3.2	実験結果と考察	80
5.4	テラヘルツ・エバネッセント波を用いたリアルタイムセンシング	84
5.4.1	実験装置と実験方法	84
5.4.2	実験結果と考察	84
5.5	テラヘルツ・エバネッセント波を用いた分光計測	87
5.5.1	グレーティングペアを用いた実験系	87
5.5.2	実験結果と考察	89
5.6	まとめ	91
	参考文献	93
第6章	新規分光法の高感度化に向けた検討	94
6.1	はじめに	94
6.2	端面反射位相整合方式の原理	95
6.2.1	ノンコリニア位相整合の原理	95
6.2.2	端面反射位相整合の原理	97

6.3	端面反射位相整合による THz 波発生	100
6.3.1	実験装置と実験方法	100
6.3.2	実験結果と考察	101
6.4	ピコ秒励起光源への展開	106
6.4.1	実験装置と実験方法	106
6.4.2	実験結果と考察	107
6.5	励起光ビーム最適化による発生効率の向上	109
6.5.1	実験装置と実験方法	110
6.5.2	実験結果と考察	110
6.6	導波路構造の導入	112
6.6.1	実験装置と実験方法	112
6.6.2	実験結果と考察	113
6.7	まとめ	114
	参考文献	116
第7章	結言	117
付録 A	擬似位相整合	121
	参考文献	123
	論文目録記載の研究業績リスト	124
	各章の該当業績	132
	謝辞	137

第 1 章 序論

1.1 研究の背景

ヘルツによる電磁波の発生以来，電磁波はその無限の可能性から多くの周波数帯において技術開発が進展し，利用されてきた．われわれの身近で利用されている電磁波として思い出されるのは，携帯電話に使われている電波，テレビのリモコンに使われている赤外線，電子レンジに使われているマイクロ波といったものであろう．また，発光ダイオードや蛍光灯の光や病院や空港などで検査に使用されている X 線，肌の日焼けを引き起こす紫外線も電磁波の一種である．つまり少し考えただけでも，現代の世の中では，通信・情報処理・医療・バイオサイエンスなど幅広い分野にわたり，電磁波の果たす役割が多いことに気づかされる．中でも広い波長可変性と簡便さを兼ね備えたコヒーレント光源の開発は，基礎研究・産業応用いずれの発展においても強く望まれている技術である．光の領域においては 1960 年にルビーレーザー^[1]が発明されて以来，その発生可能域は紫外領域から赤外領域にまで拡大している．一方で，マルコーニの電波通信^[2]に端を発する電波帯の技術は，Gunn ダイオード^[3]などの電子回路をベースとした発振源やその逡倍技術の開発によりマイクロ波・ミリ波帯にまでその周波数域を伸ばしている．その中で，遠赤外域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 (THz) 波という言葉が注目を集めるようになってきた．

THz 波とは，周波数およそ 0.1 ~ 30 THz (波長 3 mm ~ 10 μm ，テラは 10 の 12 乗) の帯域を指す電磁波である^{[4][5]}．Figure 1-1 に電磁波の種類と，それぞれの電磁波で観測される主な物理現象を示す^[6]．マイクロ波やミリ波などの電波領域と可視光や赤外光といった光波領域とのちょうど中間に位置する電磁波領域であるため，THz 波は紙やセラミック・プラスチック・半導体など様々な物体を透過する性質を示すといった電波的な性質や，レンズによる集光やミラーによる取り回しが可能といった取り扱い易さを有する光波の特色を併せ持つ電磁波である．また，THz 周波数帯には分子の骨格振動，ねじれ振動，格子振動，分子の回転，分子間の振動などによる電磁波吸収スペクトルが現れ，分子構造に関する多くの情報を与える．そのため，THz 波を用いた分光計測により，そのスペクトルの周波数，吸収強度，スペクトル形状から物質の判別，化学組成などの分析が可能となる．

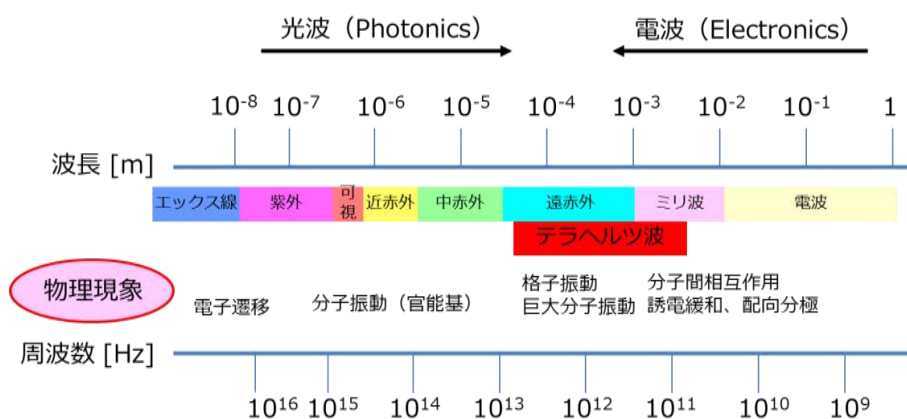


Fig. 1-1 各周波数領域における電磁波の呼称

これらの特性を活かし、THz 波は生命・医療・健康・工業・宇宙・環境・安全／安心・情報通信・基礎科学など、広範な領域において、新規科学技術・応用分野を切り拓き、大きな波及効果をもたらすことが期待されている。つまり、THz 波に関する研究は次世代基盤技術として必要不可欠であり、取り組むべき研究開発分野であるといえる。

しかし、従来から THz 周波数帯の発生は難しく、永らく未開拓の電磁波領域であった。Figure 1-2 に代表的な THz 周波数帯光源の出力特性を示す^[7]。0.5 ~ 10 THz の間に出力の谷間が存在し、この帯域は THz ギャップと呼ばれている。先に述べたとおり、電波帯では主に電子回路をベースとした発振器を用いた通倍技術により高周波側へと、光波帯ではレーザー技術と非線形光学素子をベースとした周波数変換により低周波数側へと、電磁周波数域の拡大がなされてきたが、高周波回路における伝搬ロスや変換効率の低下により、電波域と光波域の中間に位置する THz 周波数帯にこのような出力の谷間が生じたものと考えられる。

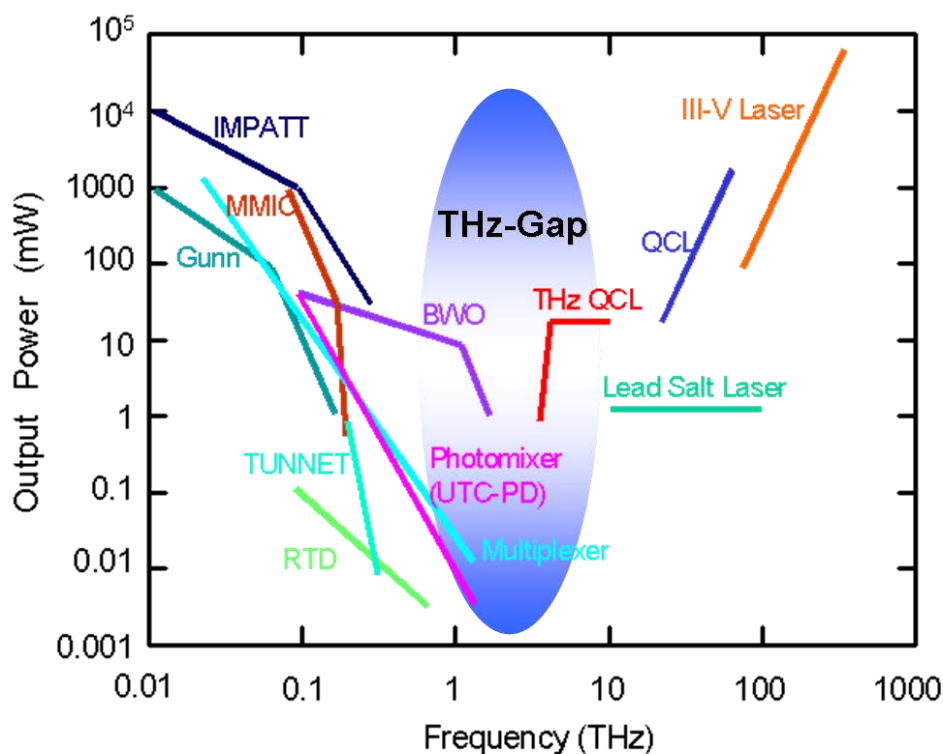


Fig. 1-2 代表的な THz 周波数帯光源の出力

THz ギャップを埋める大出力光源として自由電子レーザー^[8], p 型 Ge 半導体レーザー^{[9][10]}, CO₂ ガスレーザー^[11], などの開発が進められてきた。これらの光源は研究室レベルでの基礎研究に有効である一方、装置が大型、大量の液体 He を消費する、発生波長域が限定されるなど実用に向けた展開に不向きな点を有していた。しかしながら、近年、実用的な光源として、この問題を解決する光源が登場している。例えば、THz-QCL では、開発課題であった、高温動作・高出力化に改善が見られ、225K での動作が実現され、CW (Continuous Wave) で 140mW といった出力が得られている^[12]。また、電子デバイス開発では、共鳴トンネルダイオード (Resonant Tunneling Diodes : RTD) により、1THz を超える基本発振も達成されている^[13]。

これらの光源と並んで注目されているのが、光 THz 波変換による光源である。具体的には、フェムト秒レーザーを励起光源とした光電流の高速変調による電磁パルス発生 (THz-TDS: THz-wave Time Domain Spectroscopy) ^[14]や、非線形光学結晶を用いたレーザー光の波長変換による THz 波発生法^{[15][16]}が挙げられる。前者は光伝導スイッチと呼ばれる半導体にフェムト秒レーザーパルスを照射することで生じる光キャリアの過渡電流から、THz 周波数帯を含むパルス状の電磁波を発生する方法である。発生する電磁波パルスの時間幅は数百 GHz から数 THz 程度までの帯域を含んでおり、これを高速フーリエ変換 (FFT: Fast Fourier Transform) することによりスペクトルを算出する。THz 電磁波の電界強度と位

相情報により、測定対象の透過率・屈折率を同時に取得でき、パワースペクトルで4桁以上の信号対雑音比（SN比: Signal to Noise ratio）を得ることが可能であるため、各種結晶・半導体などの物性計測や気体分光などの基礎研究に威力を発揮する手法である。一方後者は、非線形光学結晶を用いてレーザー光のフォトンエネルギーを分割・周波数変換する方式で、差周波発生やパラメトリック発生といった手法に代表されるように、単一周波数のTHz波を広帯域に発生させる周波数可変光源である。本方式は非線形光学効果を利用するため、デバイスの工夫次第で高出力化が期待される発生法であり、小型レーザーなどと組み合わせることで、火災現場のガスセンシングや、空港における危険物検査など、各種用途に向けた応用展開が期待されている。

1.2 本研究の目的と論文の構成

THz波を用いた分光計測では、従来の赤外分光などでは測定が難しい分子間相互作用の振動モードを測定することができることから、水溶液や有機結晶、電子材料の評価において大きな需要があると考えられる^{[17][18]}。さらに、生体高分子の揺れやねじれ、水素結合などの吸収スペクトルはTHz周波数帯に存在する。そのため、生体高分子の中でも重要とされるタンパク質に関する応用も進められており^[19]、THz波を用いたバイオセンシングは今後の産業として大いに期待される分野である。しかしながら、前節にも述べた通り、従来からTHz周波数帯での電磁波の発生は難しく、永らく未開拓の電磁波領域であったことから、この電磁波領域において実用化・産業化されている分光法は少ない。そのため、これらの測定も限られた条件の中で成功しているが、実施例が少なく、産業化には至っていない。したがって、ユーザーフレンドリーな装置によるサンプルの形状によらない測定で、より多くのサンプルを測定し、その結果を産業につなげていくことが望まれている。そこで、本研究では、これらの特性評価が簡便な装置で測定可能となる新規分光法の提案・実証を目指した。

ここで、従来技術に着目してみると、現在、THz波を用いた分光法として主に用いられているのは、THz-TDS及び単色THz波光源による分光法である。まずTHz-TDSについてその特徴を見てみる。光領域での分光法では、周波数毎に回折格子などで分光し、それぞれの周波数での試料による透過を測定して透過スペクトルを得る。これに対し、THz-TDSでは、非常に時間幅の短いパルスが広帯域な周波数スペクトルを含んでいることを利用し、試料透過後の波形のひずみを測定し、フーリエ変換を用いて試料の透過スペクトルを導出する。この測定法の実験概略図をFig. 1-3に示す。この図にあるように一般的なTHz-TDSでは、フェムト秒レーザーを励起光源に用い、THz波の発生および検出には光伝導スイッチを用いる。光伝導スイッチを用いた検出の際、THz波の弱い電場で加速された光キャリアの電流を検出するために電流アンプが必要となる。また、THzパルスの時間波形の取得

には、サンプリングを用いる故に、光学遅延ステージを用いた遅延装置が必要となる。この方式の特徴として、光領域の測定では難しい位相測定が簡単に測定できることから屈折率や誘電率などの光学定数の実部と虚部を同時に得られるというメリットを有している。さらに、本方式のSN比は前節で述べた通り、一般的な装置のセットアップにおいても4桁程度得ることが可能であり、高感度な計測が簡単に行えるといった特徴がある。しかしながら、デメリットとして、フェムト秒レーザーや光学遅延ステージ、光伝導スイッチなど高価な実験装置が必要となること、また、実験系が複雑になることが問題となると考えられる。また、タンパク質の測定への応用について考えてみると、タンパク質などの巨大分子の活性には水和が深くかかわっていると考えられることから、試料の水和状態の変化の取得はTHz波を用いた測定において重要となる^[20]が、水は常温においてもわずかながら蒸発するため、リアルタイムの測定でなければ、ある程度の時間平均を行った結果を見ていることになる。THz-TDSを用いた通常の実験系のセットアップでは測定に要する時間は5分程度であり、リアルタイムでの状態変化には追従できないことがわかる。

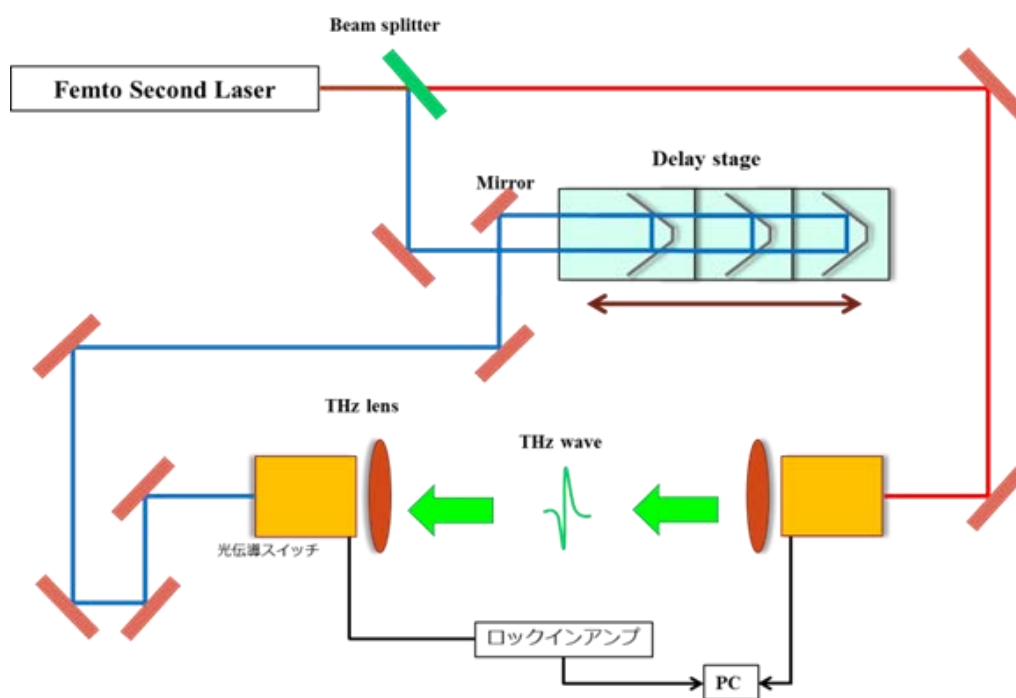


Fig. 1-3 THz-TDS の実験系概略図

次に、単色 THz 波光源の掃引による分光法について確認する。単色 THz 波光源による液体の分光の実験系の一例を Fig. 1-4 に示す。この方式では、THz-TDS とは異なり簡便な実験系により分光が可能となる。通常の方法では出力のみの測定となり、THz-TDS で取得可能であった位相の情報を取得することができないが、一般的な分光目的には十分に利用可能である。THz-TDS が広帯域な分光に適しているのに対し、この分光方式は、試料の特定の吸収線を狙った効率の良い分光に向いている。さらに、励起光源の線幅の狭窄化により、発生させる THz 波の線幅を減少させることが可能となり、高周波数分解能の測定が可能となるというメリットを有している。しかしながら、本方式では、高感度な検出の為に、液体ヘリウム温度まで冷却した Si-bolometer を検出器として用いることが多い。THz 周波数帯での代表的な検出器を Table 1-1 に示す^{[7][21]}。ここで NEP とは検出器の雑音と同じ出力を与える入力パワーであり、この値が小さいほど検出感度が高いことを示している。この表より、THz 周波数帯では、常温での低雑音・高感度なものが存在せず、高感度な計測の為に、高価かつ極低温まで冷却しなければ使用できない検出器が必要となることがわかる。この問題を解決するために、超伝導を利用した素子^[22]や非線形過程を利用した光波変換による検出法^[23]が開発されている。これらの検出器は感度の向上は見られるものの使いやすさや価格の面からみても研究段階であり、実用化からは程遠い。そのため、この単色 THz 波光源の掃引による分光法は、産業応用を考えると、検出器がネックとなり、ユーザーフレンドリーな分光法であるとは言い難い。

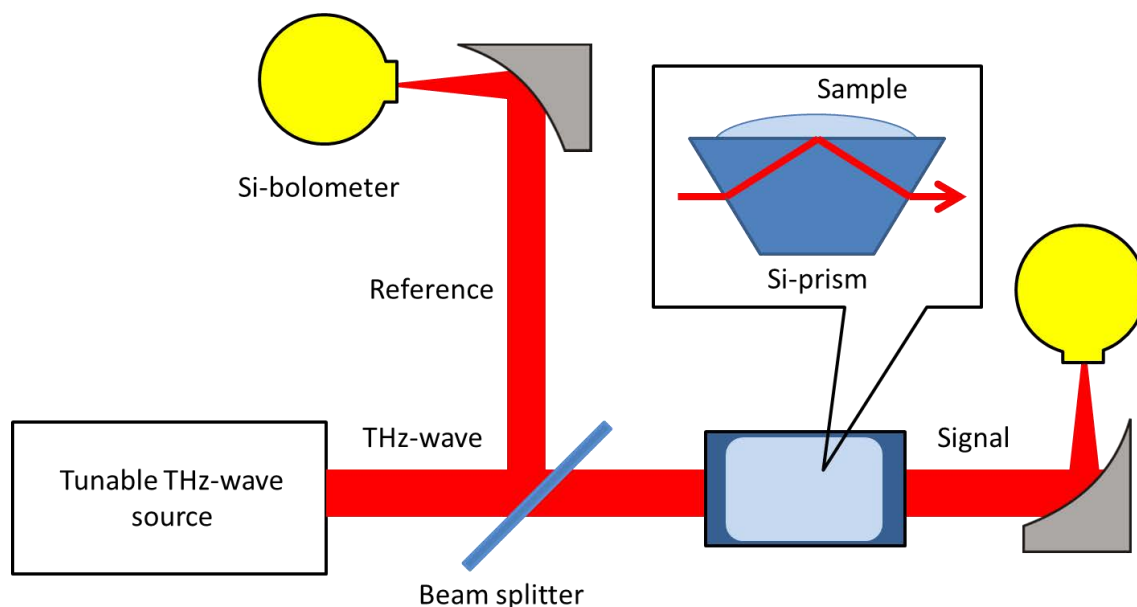


Fig. 1-4 単色 THz 波光源の実験系概略図

Table 1-1 THz 周波数帯で利用される検出器の種類と特徴

検出器の種類	NEP [W/Hz ^{1/2}]	動作温度	応答速度
焦電型検出器	~10 ⁻⁹	室温	~10 ⁻⁵
ゴーレイセル	~10 ⁻¹⁰	室温	~10 ⁻²
ショットキーバリア ダイオード	10 ⁻¹⁰ ~10 ⁻¹¹	室温 冷却により感度向上	~10 ⁻¹¹
Si-bolometer	~10 ⁻¹³	液体ヘリウム温度	~10 ⁻⁴

これらの理由から、本論文では、この二つの分光法に変わる新しい分光法の実証を目的にした。新しい分光法に求められる特徴は THz-TDS および単色 THz 波の掃引による分光法の問題点である以下の点である。

- ① 広帯域に分光可能であること
 - ② 検出器がユーザフレンドリーであること、常温で高感度であること
 - ③ 常時状態変化するサンプルの測定を想定し、リアルタイムでの分光が可能であること
- この特徴を満たす分光法として、高強度・高繰り返し回のピコ秒励起光源を励起光源とし、チェレンコフ位相整合による THz 波発生と励起光と THz 波の相互作用を利用した新規分光法を提案する。この方式では、チェレンコフ位相整合による THz 波発生を行うこと^{[24][29]}で広帯域な波長可変性を確保することができる。また、励起光と THz 波の相互作用を利用することで、測定対象を THz 波そのものではなく、励起光として用いる近赤外光 (1.5 μm 帯の光) にすることができる。原理については、第 5 章にて述べる。これにより測定対象が技術の成熟している光領域になることで、高速・高感度かつ安価で常温動作可能な検出器を用いることが可能となり、実用化・産業化につながる。さらに、高強度・高繰り返し回のピコ秒光源を励起光源に採用し、検出器の応答速度が高速なことから、リアルタイムでの分光が可能となる。以上から、本研究で提案する新規分光法が、上記の満たすべき特徴をすべてクリアしていることがわかる。

本論文では、新規分光法の実現に向けて励起光源の作製から THz 波の発生を行い、その後発生させた THz 波を利用した分光法の提案を行った。まず、第 2 章において非線形光学について簡単に紹介し、その一つである差周波発生に用いる励起二波長光源の開発について述べる。差周波発生は 1970 年代に Boyd らによって提案された手法^[30]であり、入射光の周波数の調整によって発生させる THz 波の周波数を簡単に可変なことや発生閾値が存在しないなどのメリットから様々な非線形光学結晶において研究されてきた^{[31][32]}。この特性を活かせる励起二波長光源の作製を行い、その特性を評価した。第 3 章においては、差周波発生による THz 波発生にチェレンコフ型位相整合方式を導入し、分光応用で重要となる 1 ~ 5 THz で吸収の無い THz 波発生を目指した。チェレンコフ型位相整合方式は、差周波発生による発生方式でありながら、THz 波が結晶の表面付近で発生するため結晶中における THz 波の吸収を低減することが可能となり、変換効率の向上につながると考えられる。ま

た, 本光源の分光応用への展開のために, s 偏光取り出しと p 偏光取り出しについて比較し, 両者の可能性を検討した. 第 4 章においては, 分光応用の要求からレーザーのパルス幅の変更を行った. 前節までに用いてきたパルス幅がナノ秒のレーザーでは, 結晶に対する熱ダメージの問題や繰り返し周波数が遅いという問題から分光応用に際し, デメリットを有していた. そこで, 本章では, このデメリットを回避するために, パルス幅がピコ秒のレーザーを構築し, 前章までの発生法をピコ秒レーザーでも実施できることを示した. また, 第 5 章では, THz 波を用いたアプリケーションとして, 第 3 章と第 4 章で開発した光源を応用し, 新しい分光法を提案した. この分光法では, 全反射時に生成するエバネッセント波を利用して, 測定対象の情報を得るという ATR (Attenuated Total Reflection) 分光法の考え方を応用した^[33]. 本章では, 新規分光法の原理について述べ, その後, 実験的に分光法の可能性について検証した. 第 6 章では, 新規分光法の高感度化を目指して, 励起光と THz 波の相互作用を増加させるために, 二つの方法を検討し, その可能性について議論した. 最後に, 第 7 章において本研究の総括を行った.

参考文献

- [1] T. H. Maiman: *Solid-State Electronics* **4** 236 (1962).
- [2] G. Marconi: *Proc. of the institute of radio engineers* **50** 1748 (1962).
- [3] J. B. Gunn: *Solid State Comm.* **1** 88 (1963).
- [4] M. Tonouchi: *Nat. Photonics* **1** 97 (2007).
- [5] 斗内政吉 監修: “テラヘルツ波新産業,” シーエムシー出版 (2011).
- [6] 深澤亮一: “分析・センシングのためのテラヘルツ波技術,” 日刊工業新聞社 p.16 (2013).
- [7] 斗内政吉 監修: “テラヘルツ技術,” オーム社 p.27 (2006).
- [8] *Free Electron Lasers and Other Advanced Sources of Light*, National Academy Press, p.24 (1994).
- [9] S. Komiyama: *Phys. Rev. Lett.* **48** 271 (1982).
- [10] E. Brundermann, A. M. Linhart, H. P. Roser, O. D. Dubon, W. L. Hansen, and E. E. Hallser: *Appl. Phys. Lett.* **68** 1359 (1996).
- [11] 水野皓司, 小野昭一: *応用物理* **44** 1007 (1975).
- [12] A. Wade, G. Fedorov, D. Smirnov, S. Kumar, B. S. Williams, Q. Hu, and J. Reno: *Nat. Photonics* **3**(1) 41 (2009).
- [13] M. Asada, S. Suzuki, and N. Kishimoto: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **47** 4357 (2008).
- [14] D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis, and D. A. Kleinman: *J. Opt. Soc. Am. A* **1** 1278 (1984).
- [15] K. Kawase, J. Shikata, and H. Ito: *J. Appl. Phys.* **34** R1-R14 (2001).
- [16] T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, T. Kimura, and K. Saito: *J. Appl. Phys.* **93** 4610 (2003).
- [17] Y. P. Kalmykov: “Recent Advances in Broadband Dielectric Spectroscopy,” Springer (2013).
- [18] T. Ikeda, A. Matsushita, M. Tatsuno, Y. Minami, M. Yamaguchi, K. Yamamoto, M. Tani, and M. Hangyo: *Appl. Phys. Lett.* **87** 034105 (2005).
- [19] Y. Ueno, R. Rungsawang, I. Tomita, and K. Ajito: *Anal. Chem.* **78** 5424 (2006).
- [20] T. Arikawa, M. Nagai, and K. Tanaka: *Chem. Phys. Lett.* **457** 12 (2008).
- [21] 萩行正憲: *応用物理* **81** p.271 (2012).
- [22] J. M. Gildemeister, Adrian T. Lee, and P. L. Richards: *Appl. Phys. Lett.* **77** 4040 (2000).
- [23] 南出泰垂: *応用物理* **81** p.284 (2012).
- [24] H. Z. Hu, K. Sh. Zhong, D. Q. Tang and Zh. X. Lu: *Opt. Comm.* **174**, 105 (2000).
- [25] M. I. Bakunov, A. V. Maslov and S.B. Bodrov: *Phys. Rev. B* **72**, 195336 (2005).
- [26] K. Suizu, T. Shibuya, T. Akiba, T. Tsutsui, C. Otani, and K. Kawase: *Opt. Express* **16**, 7493 (2008).
- [27] K. Suizu, K. Koketsu, T. Shibuya, T. Tsutsui, T. Akiba and K. Kawase: *Opt. Express* **17**, 6676

- (2009).
- [28] T. Shibuya, T. Tsutsui, K. Suizu, T. Akiba and K. Kawase : Appl. Phys. Express **2**, 032302 (2009).
- [29] K. Suizu, T. Tsutsui, T. Shibuya, T. Akiba and K. Kawase : Opt. Express **17**, 7102 (2009).
- [30] G. D. Boyd, T. J. Bridges, C. K. N. Patel, and E. Buehler: Appl. Phys. Lett. **21** 553 (1972).
- [31] W. Shi, Y. J. Ding, N. Fernelius, and K. Vodopyanov: Opt. Lett. **27** 1454 (2002).
- [32] T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, K. Saito, T. Kimura: Appl. Phys. Lett. **83** 237 (2003) .
- [33] H.Hirori, K. Yamashita, M. Nagai and K. Tanaka, Jpn J. Appl. Phys. **43** L1287 (2004).

第2章 差周波発生に用いる励起光源の開発

2.1 はじめに

本章では、非線形光学に基づく波長変換の手法の一つである差周波発生 (DFG: Difference Frequency Generation) を用いて、THz 波の発生を行う為の励起光源の開発を行った。差周波発生は二次の非線形現象であり、二つの異なる周波数のレーザー光を非線形媒質に入射することで、差分の周波数に相当する電磁波を発生させる方式である。二つのレーザー光が生成する分極波を起源として発生するため、パラメトリック利得などの制限を受けることなく、原理的には入射するレーザー光の周波数設定次第で任意の周波数の電磁波を発生させることができる。本章では、まず始めに、非線形光学の基礎について述べる。その後、差周波発生に必要な二波長光源の作製を行い、その特性について述べる。その後、実際に作成した励起二波長光源を用いて、差周波発生により THz 波発生を行った。非線形光学結晶として有機非線形光学結晶である DAST (4-Dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate) 結晶^[1]を採用した。

2.2 差周波発生による波長変換

本章で THz 波発生に用いる差周波発生は、二次の非線形光学効果を用いた発生法である。本節ではまず、マクスウェル方程式から導出される、差周波発生による THz 波発生の原理について述べる。次に、差周波発生による THz 波発生において重要なパラメータとなる、結晶の吸収係数・二次非線形光学係数と THz 波出力の関係について説明する。

2.2.1 非線形分極^[2]

非線形光学は、物質 (誘電体) が光に対して示す非線形な応答を扱う学問分野を指す。誘電体中を光が伝播する場合、すなわち外部電界が加わったとき、物質には分極 \mathbf{P} が誘起される。ここで、分極 \mathbf{P} は電界 \mathbf{E} の関数であり、光の強度が弱いとき分極 \mathbf{P} は光の電界強度 \mathbf{E} に比例 (線形応答) するが、レーザー光のようにコヒーレンスを保った非常に強い光を用いた場合には式 (2-1) のように、線形応答以外に非線形な応答を示すようになる。このときの分極は次のように表すことができる。

$$P = \epsilon_0 [\chi^{(1)}E + \chi^{(2)}E^2 + \chi^{(3)}E^3 + \dots] \quad (2-1)$$

ここで、 ϵ_0 は真空の誘電率である。また $\chi^{(n)}$ は $n+1$ 階のテンソルで表される非線形感受率であり、 $n \geq 2$ の項が n 次の非線形応答を表している。線形応答と非線形応答は Fig. 2 - 1 に表されるように応用範囲が異なる^[3]。非線形光学現象を利用することにより、光の周波数を変化したり、光を用いて物質の性質を制御したりすることができる。さらに、そのような現象を応用することで、各種の非線形光学計測や非線形分光が行われ、線形光学のみでは得られないさまざまな情報が得られる。これらの非線形応答現象の中でも重要な役割を果たすのが、周波数変換である。周波数変換を応用することで、任意の周波数のレーザー光を作り出すことができ、コヒーレント光源の開発において非常に重要な役割を持つ。一般に、低次の電気感受率は大きい値を持つために変換効率が高く、二次および三次の非線形光学効果は応用上特に重要である。Table 2 - 1 に代表的な非線形光学効果を示す。

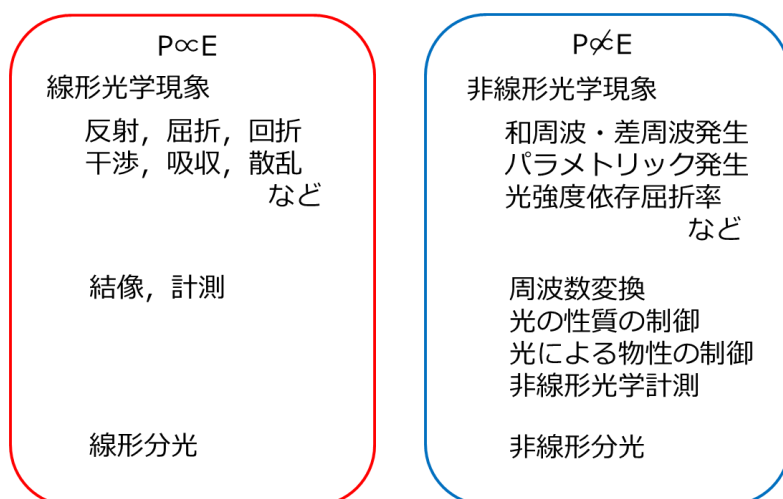


Fig. 2 - 1 線形応答と非線形応答の違い

Table 2 - 1 代表的な非線形光学現象

入射光周波数	発生する光の周波数	非線形感受率	非線形光学現象
ω	2ω	$\chi^{(2)}(2\omega)$	第2高調波発生 (SHG)
ω_1, ω_2	ω_3 ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$)	$\chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 + \omega_2)$	和周波発生 (SFG)
ω_3	ω_1, ω_2 ($\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$)	$\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2 = \omega_3)$	光パラメトリック効果
ω_1, ω_2	ω_3 ($\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$)	$\chi^{(2)}(\omega_3 = \omega_1 - \omega_2)$	差周波発生 (DFG)
ω	3ω	$\chi^{(2)}(3\omega)$	第3高調波発生 (THG)
ω	ω_s ($\omega_s = \omega - \omega_v$)	$\chi^{(2)}(\omega_s = \omega - \omega_v)$	ラマン散乱

2.2.2 差周波発生

前項にて述べたように、非線形光学結晶などの物質中を光が伝搬するとき、分極 \mathbf{P} が誘起される。分極 \mathbf{P} は電界 \mathbf{E} の関数であり、光の強度が弱いとき分極は光の電界強度に比例（線形応答）するが、レーザー光のようにコヒーレンスを保った非常に強い光を用いた場合には式 (2-1) のように、線形応答以外に非線形な応答を示すようになる。

一方、マクスウェル方程式からレーザー光入射の影響を考えると、

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \quad (2-2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2-3)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu \left(\mathbf{j} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \right) \quad (2-4)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2-5)$$

ここで、 \mathbf{D} は電束密度、 \mathbf{B} は磁束密度、 ρ は実電荷、 \mathbf{j} は電流、 μ は透磁率である。式 (2-5) の両辺のローテーションをとると、

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = -\frac{\partial}{\partial t} \nabla \times \mathbf{B} \quad (2-6)$$

実電荷分布と伝導電流がない ($\rho=0, \mathbf{j}=0$) として式 (2-2), (2-4) を (2-6) に代入すると、

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = -\mu \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + \varepsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \right) \quad (2-7)$$

$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E})$, $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$ の関係を用いると,

$$-\nabla^2 \mathbf{E} = -\mu \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + \varepsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \right) \quad (2-8)$$

上記の計算から

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \varepsilon \mu \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} = \mu \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\mathbf{P}^{(1)}(t) + \mathbf{P}^{(2)}(t) + \mathbf{P}^{(3)}(t) + \dots) \quad (2-9)$$

式 (2-9) 右辺は分極電荷の加速度を意味しており, この項がゼロでない場合, 入射電界 \mathbf{E} に応じて分極電荷が振動し, それぞれの次数の非線形分極成分が電磁波を放射することを示している.

次に, 周波数が ω_1 , ω_2 と異なる二つの光が二次の非線形感受率を持つ結晶に入射する場合を考える. ここでは, 簡単のために \mathbf{E}, \mathbf{P} をスカラー量で表す. 位置 z における, 入射する二つの光の電界振幅をそれぞれ, $E_1(t, z)$, $E_2(t, z)$ とする. $E_1(t, z)$, $E_2(t, z)$ はそれぞれ時間的に振動する位相項 $\exp\{i(\omega t - kz)\}$ を含むとすると, 次式のように表すことができる.

$$E_1(t, z) = E_1 \exp\{i(\omega_1 t - k_1 z)\} + c.c. \quad (2-10)$$

$$E_2(t, z) = E_2 \exp\{i(\omega_2 t - k_2 z)\} + c.c. \quad (2-11)$$

ただし, $\omega_1 > \omega_2$, $c.c.$ は複素共役を, k は波数を示す. このとき, 結晶に入射する電界強度 $E(t, z)$ は,

$$E(t, z) = E_1 \exp\{i(\omega_1 t - k_1 z)\} + E_2 \exp\{i(\omega_2 t - k_2 z)\} + c.c. \quad (2-12)$$

と表すことができる. すると, 結晶に誘起される二次の非線形分極 $P^{(2)}(t, z)$ は,

$$\begin{aligned} P^{(2)}(t, z) &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t, z) \\ &= \varepsilon_0 \chi^{(2)} [E_1^2 \exp\{2i(\omega_1 t - k_1 z)\} + E_2^2 \exp\{2i(\omega_2 t - k_2 z)\} \\ &\quad + 2E_1^* E_2 \exp\{i\{(\omega_1 + \omega_2)t - (k_1 + k_2)z\}\} + 2E_1 E_2^* \exp\{i\{(\omega_1 - \omega_2)t - (k_1 - k_2)z\}\} + c.c.] \\ &\quad + 2\varepsilon_0 \chi^{(2)} [E_1 E_1^* + E_2 E_2^*] \end{aligned} \quad (2-13)$$

となる. ただし, アスタリスクは複素共役を示す. 周波数ごとの分極成分を考えると, 式 (2-13) は下記の成分に分けることができる.

$$P_{SHG}(t, z) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^2 \exp \{2i(\omega_1 t - k_1 z)\} \quad (2-14)$$

$$P_{SHG}(t, z) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_2^2 \exp \{2i(\omega_2 t - k_2 z)\} \quad (2-15)$$

$$P_{SFG}(t, z) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1^* E_2 \exp [i\{(\omega_1 + \omega_2)t - (k_1 + k_2)z\}] \quad (2-16)$$

$$P_{DFG}(t, z) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} E_1 E_2^* \exp [i\{(\omega_1 - \omega_2)t - (k_1 - k_2)z\}] \quad (2-17)$$

$$P_{OR}(t, z) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} (E_1 E_1^* + E_2 E_2^*) \quad (2-18)$$

式中、周波数が負となる項は無視した。式 (2-14) は $E_1(t, z)$ の第二高調波発生 (SHG: Second Harmonic Generation), 式 (2-15) は $E_2(t, z)$ の SHG, 式 (2-16) は $E_1(t, z)$ と $E_2(t, z)$ の和周波発生 (SFG: Sum Frequency Generation), 式 (2-17) は $E_1(t, z)$ と $E_2(t, z)$ の差周波発生 (DFG: Difference Frequency Generation), 式 (2-18) は光整流 (OR: Optical Rectification) の起源となる分極成分である。これをイメージで表すと, Fig. 2-2 のようになる。光整流以外はゼロでない周波数をもつ分極成分が得られるが, 通常, 位相整合条件は 2 つの異なる周波数成分に対して同時に満たされることはないことから, 実際に光の強度が強く観測されるのはこれらの周波数成分のうち 1 つの成分のみとなる。また, 周波数成分がゼロとなる光整流成分は非線形光学結晶中の電圧として観測されることになる。本研究では, 技術が成熟しているレーザー光の波長変換による THz 波発生を目的としており, 赤外域, 可視光領域における光の周波数はおよそ数百 THz~数 PHz であるため, THz 波発生には差周波発生が適していると考えられる。差周波発生過程は, 周波数 ω_1 , ω_2 の入射光によって $P^{(2)}(\omega_3) = P(\omega_1 - \omega_2)$ の分極が誘起され, この分極により駆動される $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ の周波数の電磁波が発生する現象である。このとき, ω_1 , ω_2 の差分を THz 周波数帯の周波数とすることで, THz 波の発生が可能となる。また, $P^{(2)}(\omega_3)$ は $E_1(t, z)$ と $E_2(t, z)$ の積に比例するので, 発生する THz 波の出力は, 入射光 ω_1 , ω_2 の強度の積に比例して大きくなることがわかる。

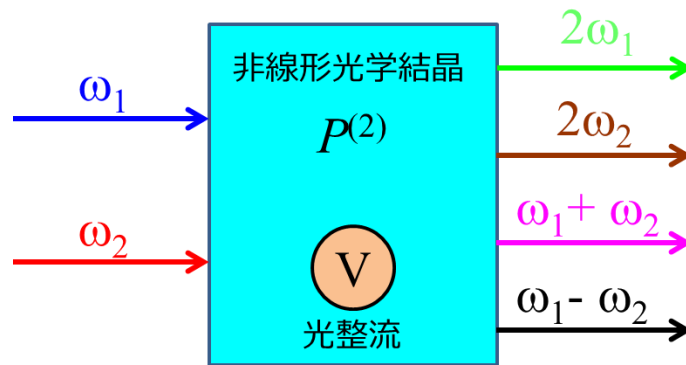


Fig. 2-2 二次の非線形光学効果による周波数変換

2.2.3 差周波光の出力と相互作用長、吸収係数の関係

前項において発生する THz 波の出力は、入射光 ω_1 , ω_2 の強度の積に比例して大きくなることを述べた。しかし、差周波発生に用いる結晶に対して無限にパワーを入力することは不可能であり、結晶の損傷閾値で制限される出力上限が存在する。また、差周波発生における THz 波の出力には、結晶の吸収係数や非線形光学係数および相互作用長が重要なパラメータとして関係するため、これらを考慮した条件の設定が必要となる。ここで、非線形光学係数とは次式の関係で定義される係数である。

$$d \equiv \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(3)} \quad (2-19)$$

結晶中の吸収係数、非線形光学係数を考慮した場合、差周波発生により発生する THz 波の強度 I_{THz} は式 (2-20) により与えられる^{[4][5]}。

$$I_{THz} = \frac{8\pi^2 d_{eff}^2 I_1 I_2}{\epsilon_0 c n_1 n_2 n_{THz} \lambda_{THz}^2} \frac{\exp(-\alpha L) + 1 - 2 \exp(-\frac{\alpha L}{2}) + 4 \exp(-\frac{\alpha L}{2}) \sin^2(\Delta k L / 2)}{\alpha^2 / 4 + \Delta k^2} \quad (2-20)$$

ここで、 I_1 , I_2 は励起光の入力強度、 n_1 , n_2 は励起光帯の結晶屈折率、 n_{THz} は THz 周波数帯の結晶屈折率、 λ_{THz} は発生する THz 波長、 L は励起光の相互作用長（結晶長）、 d_{eff} は発生に用いられる有効非線形光学係数、 α は結晶の吸収係数を示す。非線形光学定数は本来、テンソルの形で表されるが、ここでは簡単の為、 d_{eff} という形で表記する。また、 Δk は位相不整合であり、二つの励起光、THz 波の波数ベクトルを \mathbf{k}_1 , \mathbf{k}_2 , \mathbf{k}_{THz} とすると、下式で表される。

$$\Delta k = |\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_{THz}| \quad (2-21)$$

位相整合条件下で THz 波発生が行われたとすると、 $\Delta k = 0$ となり、式 (2-20) は次式となる。

$$I_{THz} = \frac{8\pi^2 d_{eff}^2 I_1 I_2}{\epsilon_0 c n_1 n_2 n_{THz} \lambda_{THz}^2} \frac{\exp(-\alpha L) + 1 - 2 \exp(-\frac{\alpha L}{2})}{\alpha^2 / 4} \quad (2-22)$$

$$\propto \frac{d_{eff}^2}{n_1 n_2 n_{THz}} \frac{\exp(-\alpha L) + 1 - 2 \exp(-\frac{\alpha L}{2})}{\alpha^2 / 4}$$

結晶長が無量大の極限を考えると、次式を得る。

$$\lim_{L \rightarrow \infty} I_{THz} = \frac{16\pi^2 I_1 I_2}{\epsilon_0 c n_1 n_2 n_{THz} \lambda_{THz}^2} \frac{d_{eff}^2}{\alpha^2} \quad (2-23)$$

相互作用長が十分に長い条件では、THz波の出力強度は二次の非線形光学係数 d_{eff} の二乗に比例し、吸収係数 α の二乗に反比例することがわかる。すなわち、非線形光学結晶として、非線形光学係数が大きく、発生帯域で吸収係数が小さいものを選ぶことができれば、高出力な THz 波発生が可能になると考えられる。しかし、実際には結晶長は有限の値であり、それぞれの結晶において育成可能な結晶長も異なるため、様々な条件を考慮して結晶を選定する必要がある。

Table 2 - 2 に代表的な非線形光学結晶の諸特性^{[6][7]}を示す。ただし、非線形光学係数の値は THz 周波数帯で正確に計測された文献は乏しく、光波帯のものとなっている。 d_{eff}^2 / α^2 に注目すると、 α -SiO₂ (水晶) と DAST 結晶が大きな値を示していることがわかる。また、Table 2 - 2 より THz 波が高強度に発生したとしても吸収が大きな結晶では結晶外部に THz 波出力として取り出すことは難しいことがわかる。

Table 2 - 2 代表的な非線形光学結晶の諸特性

非線形媒質	透過領域 [μm]	非線形光学係数 d_{eff} [pm/V]	THz 周波数帯 吸収係数 α [cm^{-1}]	$\frac{d_{eff}^2}{\alpha^2}$	損傷閾値 [GW/ cm^2]
KTiOPO ₄ (KTP)	0.35 - 4.5	$d_{33} = 13.7$	—	—	0.5
LiNbO ₃	0.33 - 4.4	$d_{33} = 27.2$	~50	0.30	0.2
LiTaO ₃	0.28 - 4.4	$d_{33} = 15.4$	~50	0.095	0.2
α -SiO ₂	0.193 - 3.6	$d_{11} = 0.37$	~0.1	14	5
DAST	0.7 - 2	$d_{11} = 230$	~50	4.6	2.3

2.3 二波長出力 KTP-OPO

差周波発生 THz 波発生用の励起光源に要求されるスペックとして、

- ① 二波長のレーザー光を同時に出力できること
- ② 広い帯域で波長可変であること

が挙げられる。これら要件を満たす光源として、 KTiOPO_4 (KTP) 結晶による光パラメトリック発振器 (OPO: Optical Parametric Oscillator) を本研究では採用した。本章ではまず、高速ランダムアクセスが可能な励起二波長光源として、共振器内に二つ連続に KTP 結晶が配置されている KTP-OPO を構築した^{[8]-[10]}。しかしながら、我々が用いたナノ秒励起光源との組み合わせでは、差周波発生において障害となるゲインの食い合いや四波混合といった問題が発生した為、タンデム構造による KTP-OPOs を構築し、この問題の解決を行った。以下に、KTP-OPO の原理と構成、構築した光源の基本特性について述べる。

2.3.1 動作原理と実験系

KTP 結晶の基礎特性は先に Table 2-2 にて述べたとおりである。非線形光学係数が比較的高く、 $0.35 - 4.5 \mu\text{m}$ において透過領域を有し、かつ損傷閾値が高いため、光波帯の波長変換素子としてよく用いられる結晶である。KTP 結晶を用いた波長変換の模式図を Fig. 2-3 に示す。励起光、シグナル光、アイドラ光のエネルギー保存則、位相整合条件は式 (2-24) 式 (2-25) となる。OPO によって発生するシグナル光、アイドラ光の波長は式 (2-25) の位相整合条件によって決定される。KTP 結晶は二軸性の結晶であり、 x , y , z 軸でそれぞれ異なる屈折率を示すため、光に対する結晶の向きによって実効的に感受する屈折率を変化させることができる。位相整合条件は屈折率の関数であるため、励起光に対する結晶の角度を制御することにより、これを満足させることが可能となる。KTP 結晶 x , y , z 軸における屈折率 n_x , n_y , n_z のセルマイヤ方程式^[11]を式 (2-26) - (2-28) に示す。ここで、式中の λ の単位は μm である。

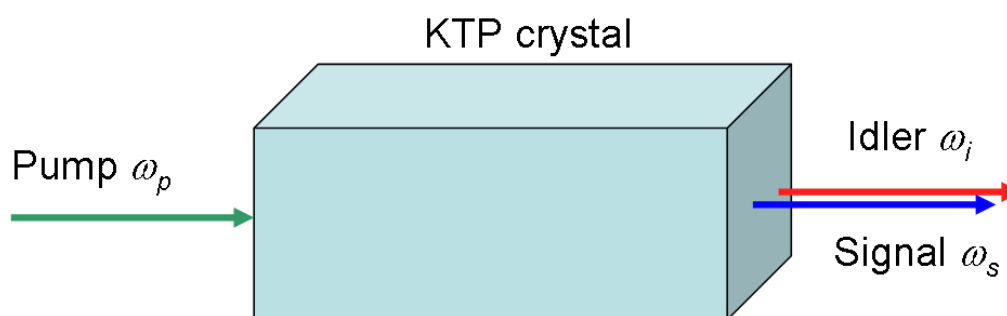


Fig. 2-3 KTP 結晶による波長変換

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i \quad (2-24)$$

$$\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_i \quad (2-25)$$

$$n_x = \sqrt{3.0065 + \frac{0.3901}{\lambda^2 - 0.04251} - 0.01327\lambda^2} \quad (2-26)$$

$$n_y = \sqrt{3.0333 + \frac{0.4154}{\lambda^2 - 0.04547} - 0.01408\lambda^2} \quad (2-27)$$

$$n_z = \sqrt{3.3134 + \frac{0.5694}{\lambda^2 - 0.05658} - 0.01682\lambda^2} \quad (2-28)$$

励起光に対する，結晶の光軸との関係を Fig. 2 - 4 に示す．励起光の波数ベクトルを結晶 xz 面に投影し，z 軸となす角を θ ，結晶 xy 面に投影し，x 軸となす角を ϕ とした．励起光波長 532 nm， $\phi=0$ 度で固定， θ を変化させた時のシグナル光，アイドラ光波長の関係 (θ チューニング) を Fig. 2 - 5 に， $\theta=0$ 度で固定， ϕ を変化させた時のシグナル光，アイドラ光波長の関係 (ϕ チューニング) を Fig. 2 - 6 に示す．

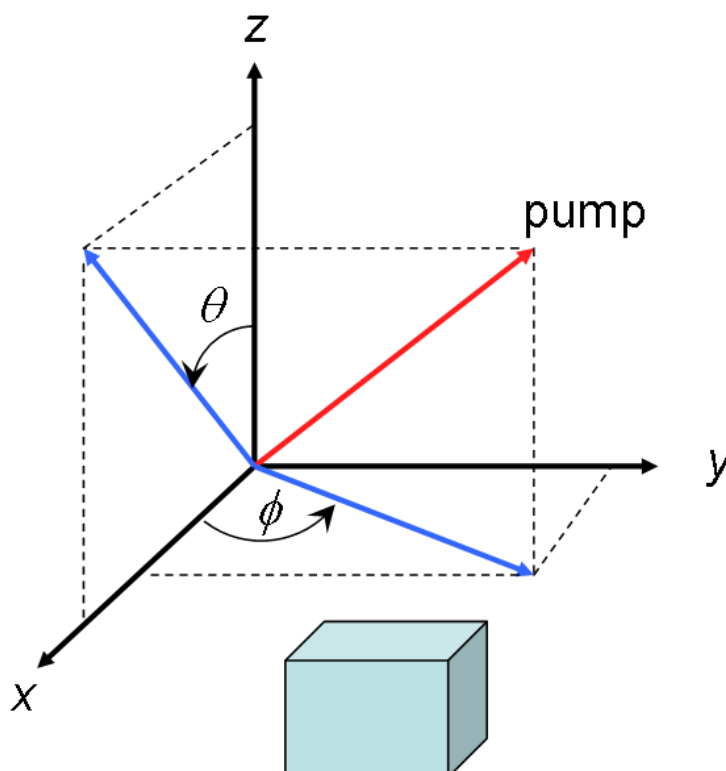


Fig. 2 - 4 結晶光軸と回転角の関係

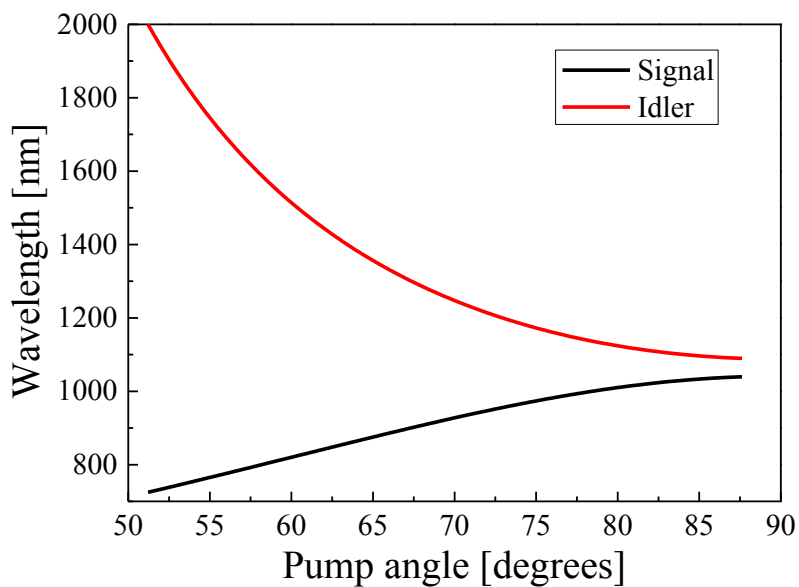


Fig. 2 - 5 励起光入射角度とシグナル光, アイドラ光波長の関係 (θ チューニング)

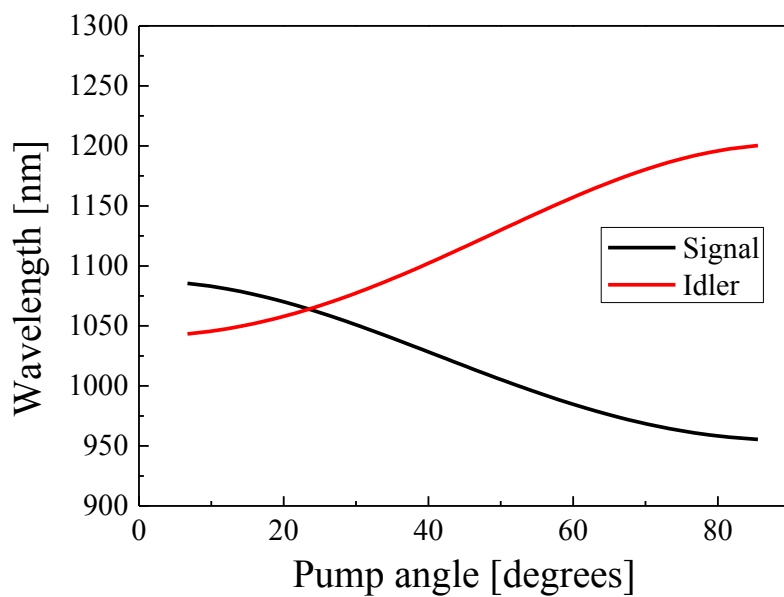


Fig. 2 - 6 励起光入射角度とシグナル光, アイドラ光波長の関係 (ϕ チューニング)

図から、 θ チューニングの場合、励起光と結晶の角度が 65 度のときにアイドラ光がおおよそ 1.4 μm となることがわかる。今回構築した KTP-OPO では、KTP 結晶をあらかじめ $\theta=65$ 度にカットしたものをを用いて、波長変換の中心波長が 1.4 μm として、結晶を回転させることで 1.2~1.6 μm の範囲で波長可変となるようにした。

次に、実際に構築した KTP-OPO の構成について説明する。Figure 2 - 7 に KTP-OPO の構成図を示す。キャビティ内に KTP 結晶を二つ配置し、ポンプ光として Nd:YAG レーザーの第二高調波（中心波長 532 nm, パルス幅 7 nsec, 繰り返し周波数 10 Hz）で励起する。KTP 結晶はガルバノスキャナにマウントされており、それぞれ独立に波長チューニングを行うことができる。また、キャビティは L 字配置とし、励起光及びアイドラ光が KTP 結晶をダブルパスで通過させることにより、複屈折によるビームのパスずれをキャンセルしている。透過率を 50 % に設定した M3 のアウトプットミラーから二波長光を出力する。

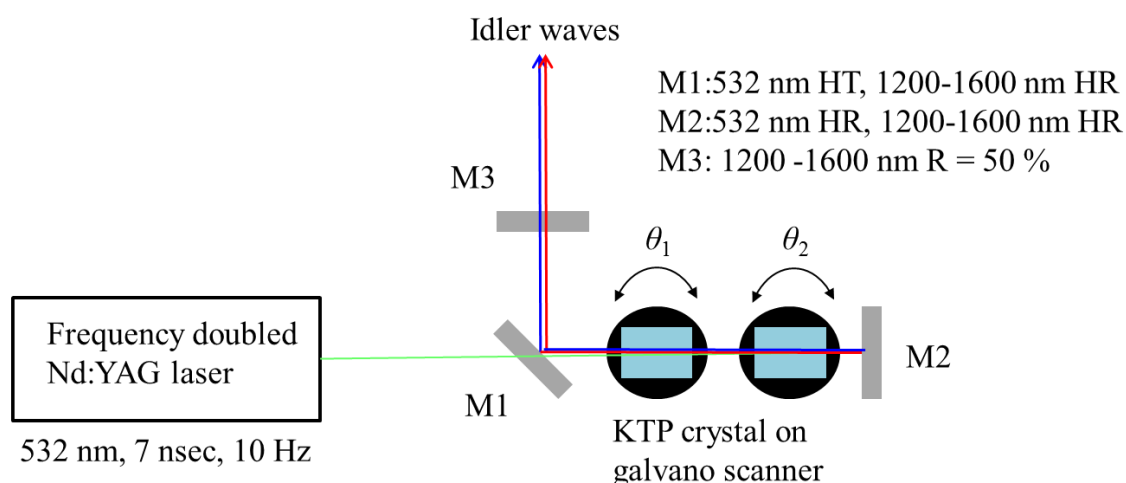


Fig. 2 - 7 KTP-OPO の構成図

2.3.2 入出力特性, 出力波長依存特性

Figure 2 - 8 に構築した KTP-OPO の入出力特性を示す. OPO の発振閾値はおよそ 125 mJ/pulse, スロープ効率は7.8 %, エネルギーの最大値はおよそ 12.5 mJ/pulse であった. Figure 2 - 9 に KTP-OPO 出力をスペクトラムアナライザでスペクトル計測を行った例を示す. 二波長の設定値はそれぞれ 1313.3 nm, 1337.7 nm であり, ピーク位置はほぼ一致していることがわかる. しかしながら, 1289.6 nm, 1328.5 nm, 1363.1 nm に所望の波長以外の余分な波長が存在している. これらはそれぞれ四波混合によるピークとビーム径が大きいことによる余分な位相整合が原因と考えられる. これらは同じ共振器内に OPO に用いる結晶が二つ存在することで発生する. また, 同じ共振器内に二つの結晶が存在することで, ポンプ光に対するゲインの食い合いが発生していることが考えられる. このゲインの食い合いについて評価するために, 励起二波長光をグレーティングを用いて空間的に分離し, 出力相関図を取得した. 結果を Fig. 2 - 10 に示す. Figure 2 - 10 より, 相関係数 r を算出すると $r = -0.46$ となる. これは励起二波長光の間に負の相関が存在していることを示しており, 励起二波長光のどちらか一方が強くなれば, どちらか一方が弱くなるゲインの食い合いが発生していることがわかる. 式 (2-20) より差周波発生において高強度な THz 波の発生には励起二波長光のバランスが重要となることから, 同一共振器内に二つの KTP 結晶を配置することは望ましくないと判断した.

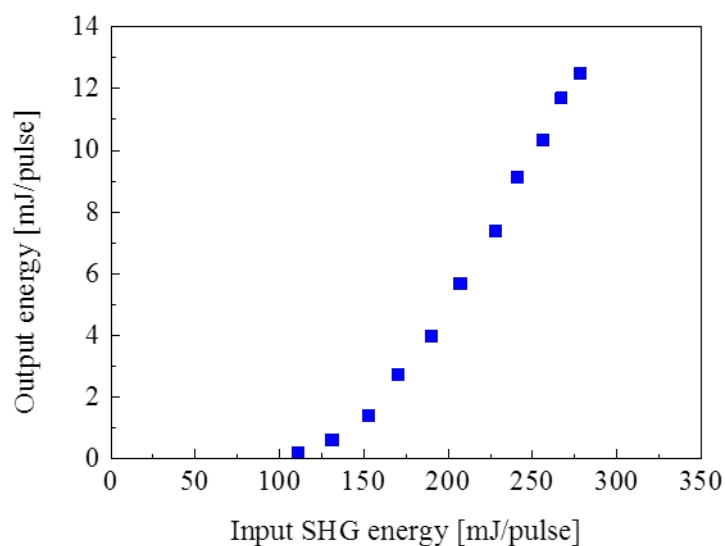


Fig. 2 - 8 KTP-OPO の入出力特性

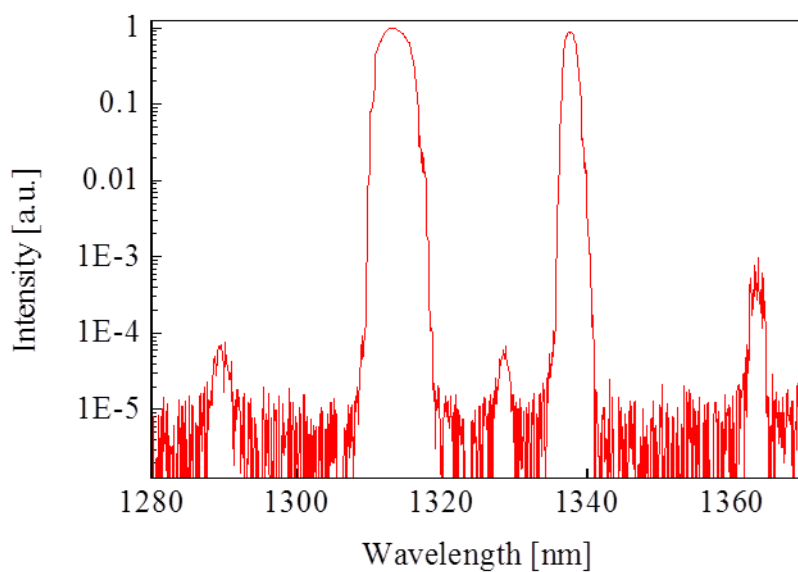


Fig. 2 - 9 二波長出力スペクトル特性の一例

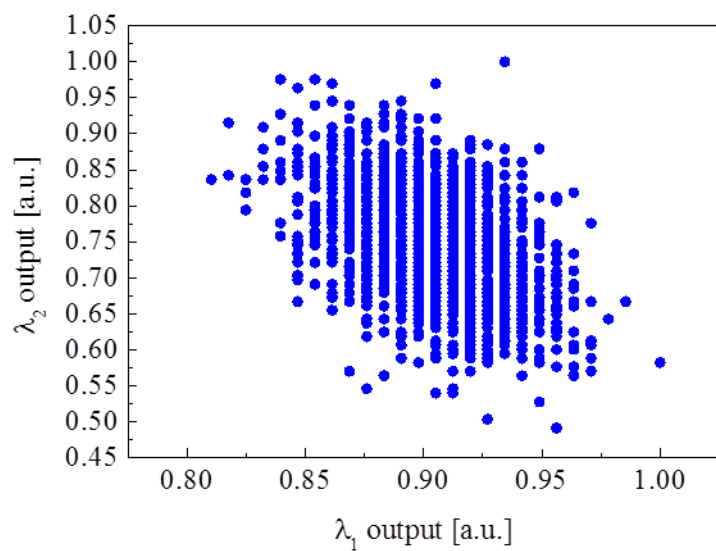


Fig. 2 - 10 KTP-OPO の出力相関図

2.3.3 タンデム型 KTP-OPOs

本項では、前節に述べた問題を解決することを目的にタンデム型の KTP-OPOs の構築を行った。タンデム型の KTP-OPOs を用いることのメリット、デメリットを以下に示す。

メリット

- 共振器内に結晶は一つであるので、四波混合や余分な波長の立ち上がりは発生しない
- ゲインの食い合いが起きないことから二波長光のバランスが改善
- ポンプに対して結晶一つの方が高効率にパラメトリック発振する

デメリット

- 空間的・時間的なオーバーラップを調整する必要がある
- 合波の際、出力をロスする
- オプティクスが増加

これらのメリット、デメリットを比較してみると実験系が複雑化するというデメリットはあるが前項で提起した問題は解決できることがわかる。差周波発生において、上記のメリットは必要不可欠であることから、タンデム型のKTP-OPOsを Fig. 2 - 11 のように構築した。

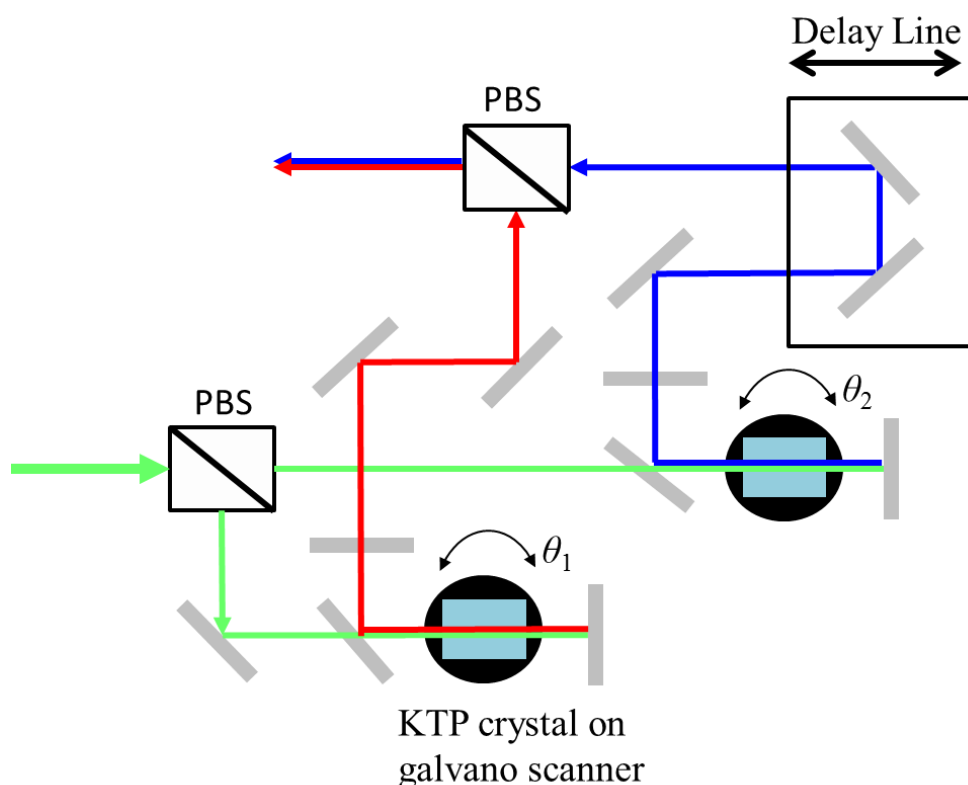


Fig. 2 - 11 タンデム型 KTP-OPOs の実験系

タンデム型の KTP-OPOs で得られた入出力特性を Fig. 2 - 12 に、スペクトル特性を Fig. 2 - 13 に示す。入出力特性では、前項までに構築した KTP-OPO と比べて、遜色ない出力が得られており、スペクトル特性では、問題となっていた余分な波長の立ち上がりは見られず、励起二波長光の波長差が小さい領域においても良好なスペクトルが得られている。また、励起二波長光の安定性を前節の光源同様に評価した結果を Fig. 2 - 14 に示す。この図の相関係数は $r=0.47$ であり、正の相関を有していることが確認できる。さらに、この励起二波長光の線幅は約 70 GHz であった。これにより、差周波発生にふさわしい励起光源の構築に成功したと考えられる。

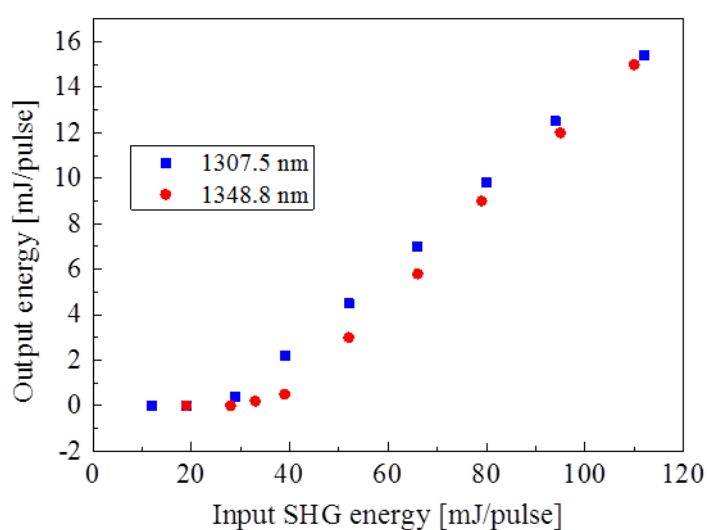


Fig. 2 - 12 タンデム型の KTP-OPOs の入出力特性

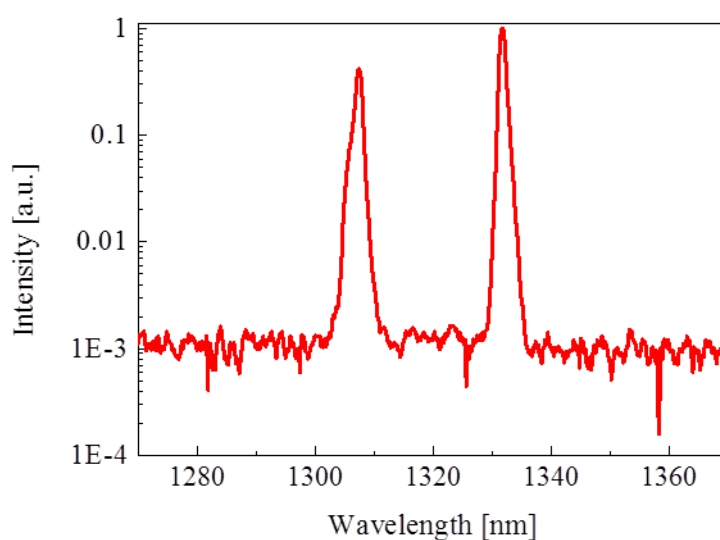


Fig. 2 - 13 タンデム型の KTP-OPOs によるスペクトル特性の一例

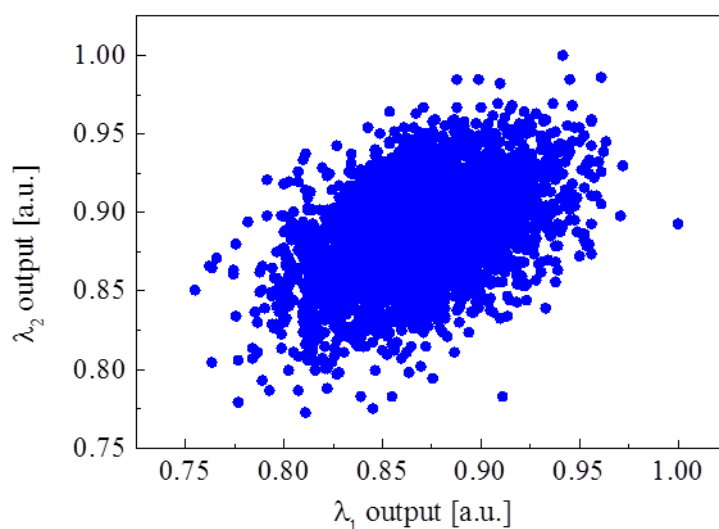


Fig. 2 - 14 タンデム型の KTP-OPOs の出力相関図

2.4 KTP-OPO を用いた差周波発生 THz 波発生

本節では、前節までに構築した励起二波長光源の特性を評価するため、実際に差周波発生による THz 波発生を行った。THz 波発生用の非線形光学結晶として DAST 結晶を用いたことから、まず始めに DAST 結晶の諸特性について説明する。その後、DAST 結晶を用いた差周波発生を行い、THz 波出力を得たのでその結果について述べる。

2.4.1 有機非線形光学結晶 DAST の諸特性

DAST 結晶は 1989 年に東北大学の中西らによって開発された有機イオン結晶であり、高い非線形光学係数と高速応答性から、次世代の光通信や波長変換素子として注目を集めている結晶である。Figure 2 - 15 に DAST の分子構造を示す。陽イオンとして強いドナー基 ($\text{N}(\text{CH}_3)_2$) とアクセプター基 (N_+CH_3) が、多数の非局在 π 電子を持つベンゼン環・ピリジン環を隔てて配置されている。ドナー基からベンゼン環、ピリジン環を通り抜け、アクセプター基に至る電荷移動を生じさせることで、大きな二次の非線形分極を実現している^[6]。この陽イオンにカウンターイオン（陰イオン）を組み合わせることで、陽イオンの非線形性を最大に引き出し得る結晶構造を作っている。DAST は二軸性の結晶で、多極子軸は a 軸方向に向いており、この方向の非線形性が最も高い値を示す。Figure 2 - 16 に DAST の晶癖と結晶方位を示す。c 軸方向にはほぼ菱形形状の結晶を構築し、菱形の対角線方向が結晶の a 軸、b 軸に相当する。Table 2 - 3 に DAST 結晶の諸特性^[12]を示す。非線形光学係数は

波長 $1.55 \mu\text{m}$ で 230 pm/V であり, 従来の非線形光学結晶に比べ非常に高い値を示している. Figure 2 - 17 に DAST 結晶の外観を示す.

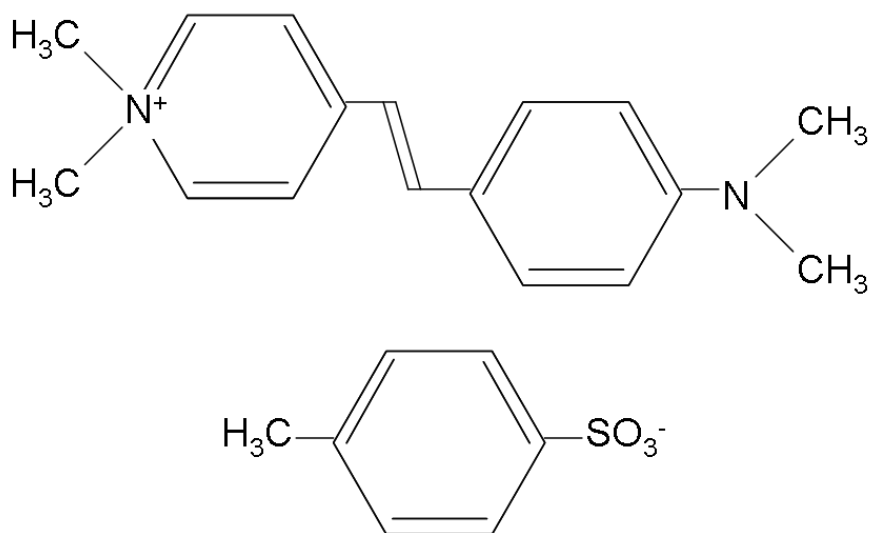


Fig. 2 - 15 DAST 結晶の構造式

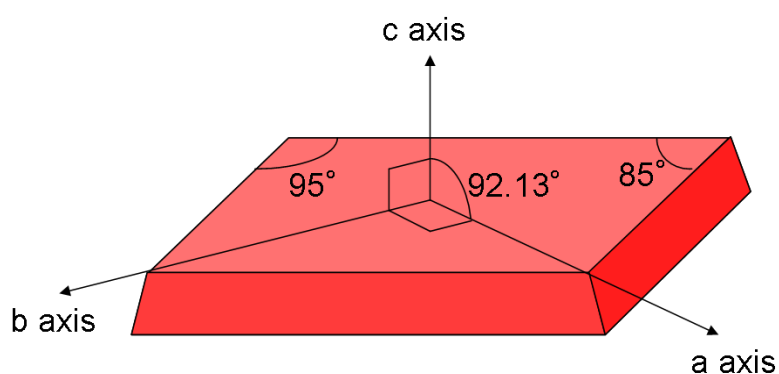


Fig. 2 - 16 DAST 結晶の晶癖と結晶方位

Table 2 - 3 DAST 結晶の諸特性

融点	256°C
透過領域	$0.72 - 3 \text{ mm}$
電気光学係数	$r_{11} = 82 \text{ pm/V}$ (@ $0.78 \mu\text{m}$)
非線形光学係数	$d_{11} = 230 \text{ pm/V}$ (@ $1.55 \mu\text{m}$)
結晶硬度	Vickers 65

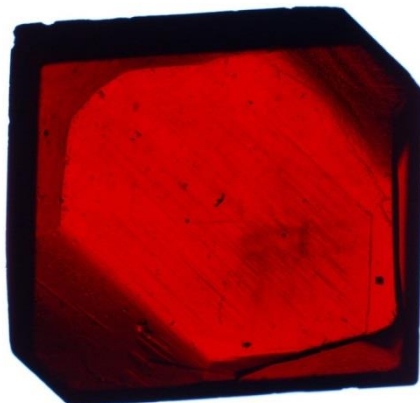


Fig. 2 - 17 DAST 結晶の外観

光波領域における DAST 結晶の屈折率は、次式のセルマイヤ方程式^[13]により求めることができる。

$$n(\omega) = \sqrt{\frac{f_{\omega} \omega_p^2}{\omega_0^2 - \omega^2} + A + 1} \quad (2-29)$$

光軸 x, y, z 軸に対する上記セルマイヤ方程式の各定数を Table 2 - 4 に示す。このセルマイヤ方程式は波長 0.6~2 μm の範囲で用いることができる。式 (2-29) から得られる各光軸の屈折率と波長の関係を Fig. 2 - 18 に示す。

Table 2 - 4 セルマイヤ方程式の各定数

	n_x	n_y	n_z
$f_{\omega} \omega_p^2 \quad (10^{30} \text{s}^{-1})$	20.3706	6.562	3.309
$\omega_0 \quad (10^{15} \text{s}^{-1})$	3.521	3.744	3.76
A	1.675	1.042	1.218

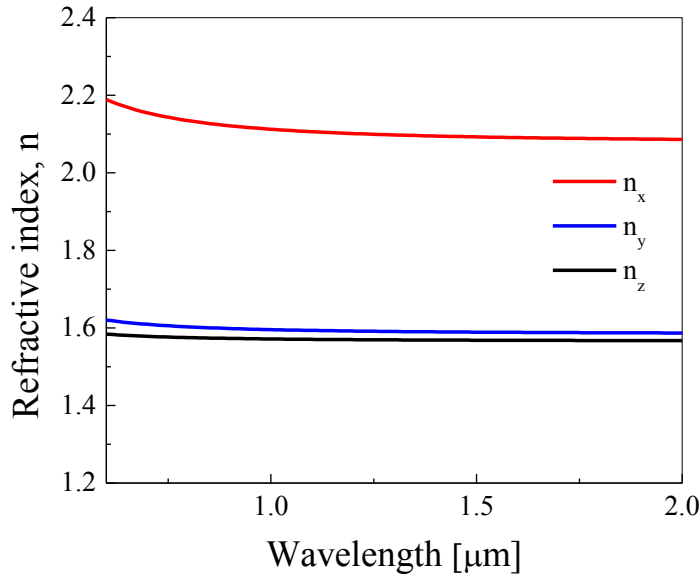


Fig. 2 - 18 DAST 結晶の光波帯屈折率

一方，THz 周波数帯の屈折率は結晶のイオン分極の寄与が支配的となるため，光波帯のようなセルマイヤ方程式は成立しないが，吸収係数のデータからクラマースクロニッヒの関係^[14]を用いて屈折率を求めることができる．本研究では，東北大学伊藤研究室で測定されたデータを用いた．式 (2-30) に吸収係数の実測値から得られる誘電率の実部 ε_1 と虚部 ε_2 のフィッティングの式を，式 (2-31) に誘電率から求められる屈折率 n と消衰係数 κ の式を示す．差周波発生には非線形光学係数が最も高い a 軸を用いるため，この軸の係数のみを求める．フィッティングパラメータには Table 2 - 5 を用いた．なお， ε_0 は真空中の誘電率， ω_0 は分子の固有振動数， Γ は振動子モデルのダмпング係数， Ne は総電荷量， m は電子の質量である．Figure 2 - 19, Fig. 2 - 20 に上式から求められる吸収係数，屈折率と THz 波周波数の関係を示す．

$$\varepsilon_1 = \varepsilon_0 + \sum \frac{Ne^2}{m} \cdot \frac{\omega_0^2 - \omega^2}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2} \quad (2-30)$$

$$\varepsilon_2 = \sum \frac{Ne^2}{m} \cdot \frac{\Gamma \omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \Gamma^2}$$

$$n = \sqrt{\frac{1}{2}(\varepsilon_1 + \sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2})} \quad (2-31)$$

$$\kappa = \sqrt{\frac{1}{2}(-\varepsilon_1 + \sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2})}$$

Table 2 - 5 THz 周波数帯屈折率フィッティングパラメータ

ω_0 [THz]	Γ	Ne^2/m
1.08	0.2	30
1.5	0.5	20
1.9	0.3	6
2.4	0.15	2
3	1.2	62
4	0.3	3
5.16	1.7	140
6.65	1	45
7.4	1.3	80
8.5	0.7	30
9.55	1.1	70
10.9	4	85
11	0.1	0.5
11.7	0.15	6.5
12.2	0.15	1
12.35	1.1	60
13.43	2	20
13.92	0.4	20
14.6	2	20
15	0.5	32
15.7	1.5	50
15.9	0.25	10
16.2	2	60
16.5	0.15	3
16.8	0.35	20
17.2	0.3	13
17.7	2	50
18.6	0.3	2
19.15	0.1	3
19.6	3	100
19.8	0.1	1
20	0.15	12
20.25	0.15	4

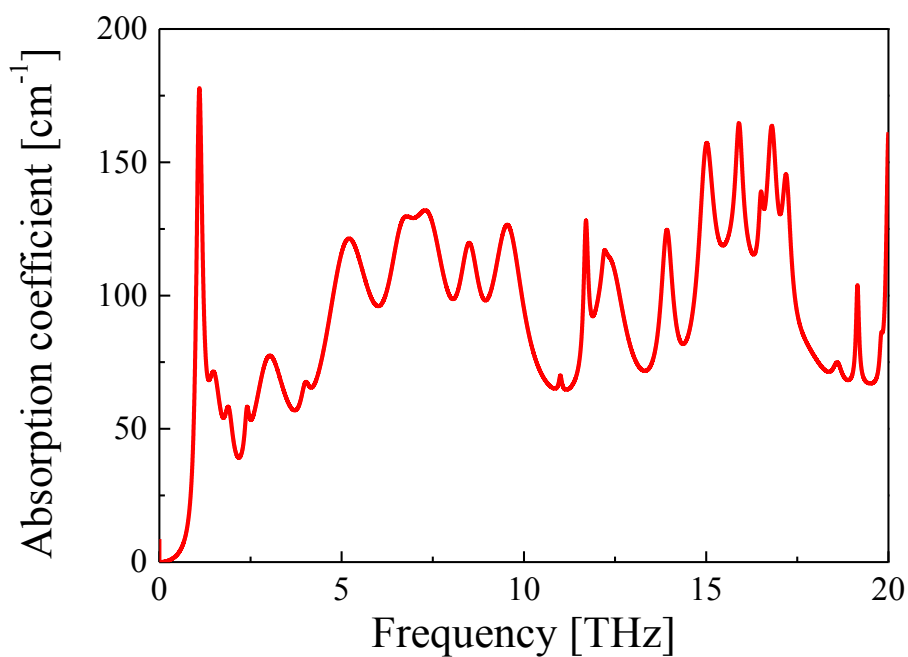


Fig. 2 - 19 DAST 結晶の吸収係数

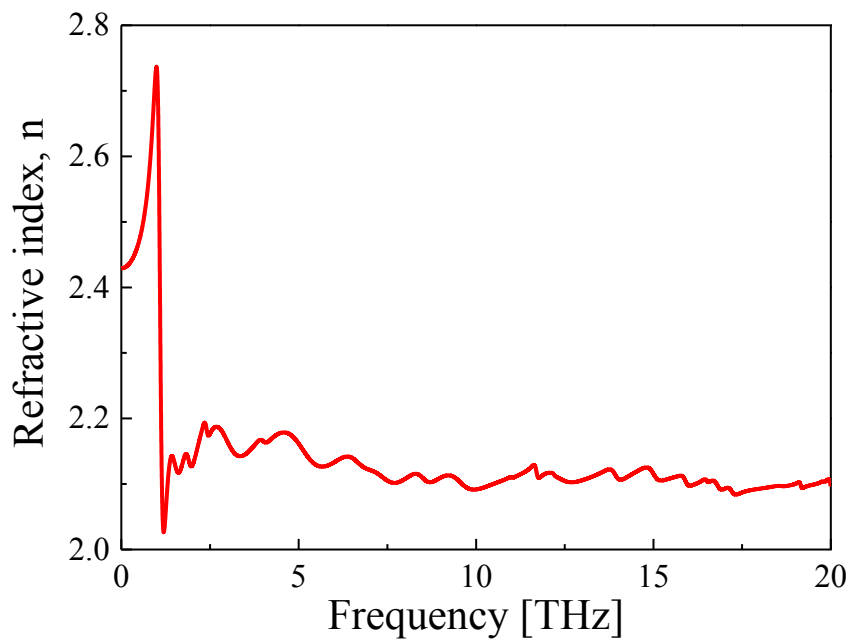


Fig. 2 - 20 DAST 結晶の屈折率

2.4.2 THz 波出力スペクトル測定

本項では、DAST 結晶を用いた差周波発生による THz スペクトルの取得を行った。Figure 2 - 21 に DAST 結晶による差周波発生 THz 波発生の実験系を示す。前節にて構築した KTP-OPOs から発生する二波長光を焦点距離 150 mm のレンズで集光し、DAST 結晶に入射する。このとき、入射する励起光のパワー密度は約 150 MW/cm^2 であった。DAST 結晶から発生する THz 波を放物面鏡 (Parabolic mirror) で集光し、焦電検出器である DTGS 検出器で検出を行う。二波長光は DAST 結晶を透過するが、DAST 結晶直後に配置したブラックポリエチレン (Black PE) により吸収され、検出器に到達することはない。コンピュータによりガルバノスキャナの回転角を制御することで、二波長光の波長を変化させるだけで、発生する THz 波の波長をコントロールすることができる。また、検出器からの信号を A/D コンバータを介してコンピュータに取り込み、THz 波の出力を計測した。二波長励起光の一方の波長 λ_1 を 1400 nm で固定し、もう一方の波長 λ_2 を変化させ、30 THz までの範囲で 100 GHz ごとに発生する THz 波の出力をモニタリングした。

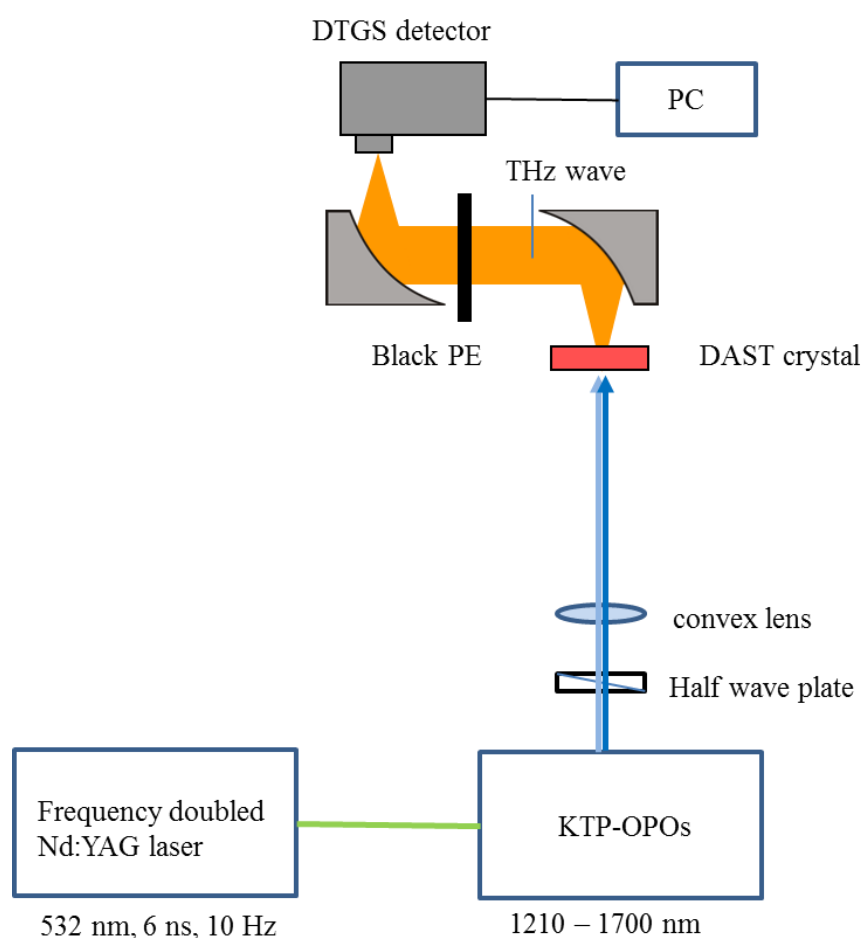


Fig. 2 - 21 DAST 結晶を用いた差周波発生 THz 波発生実験系

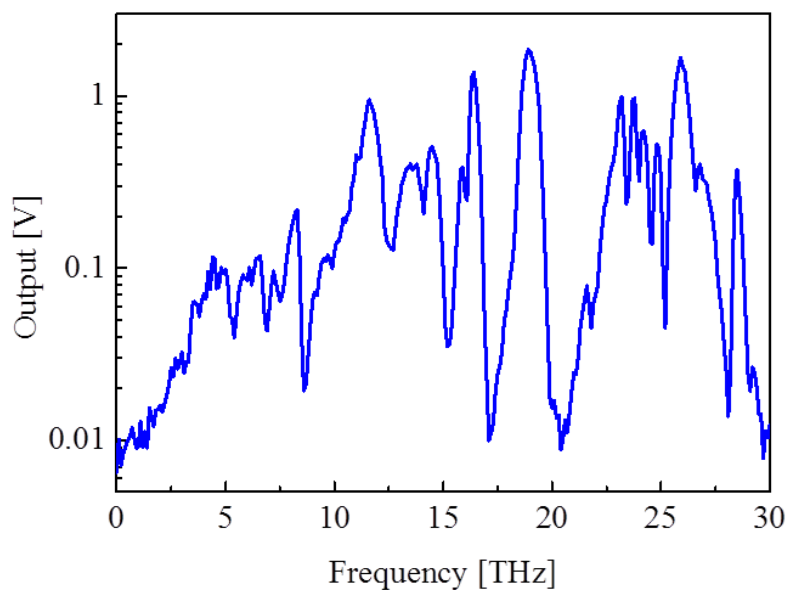


Fig. 2 - 22 THz 波スペクトル

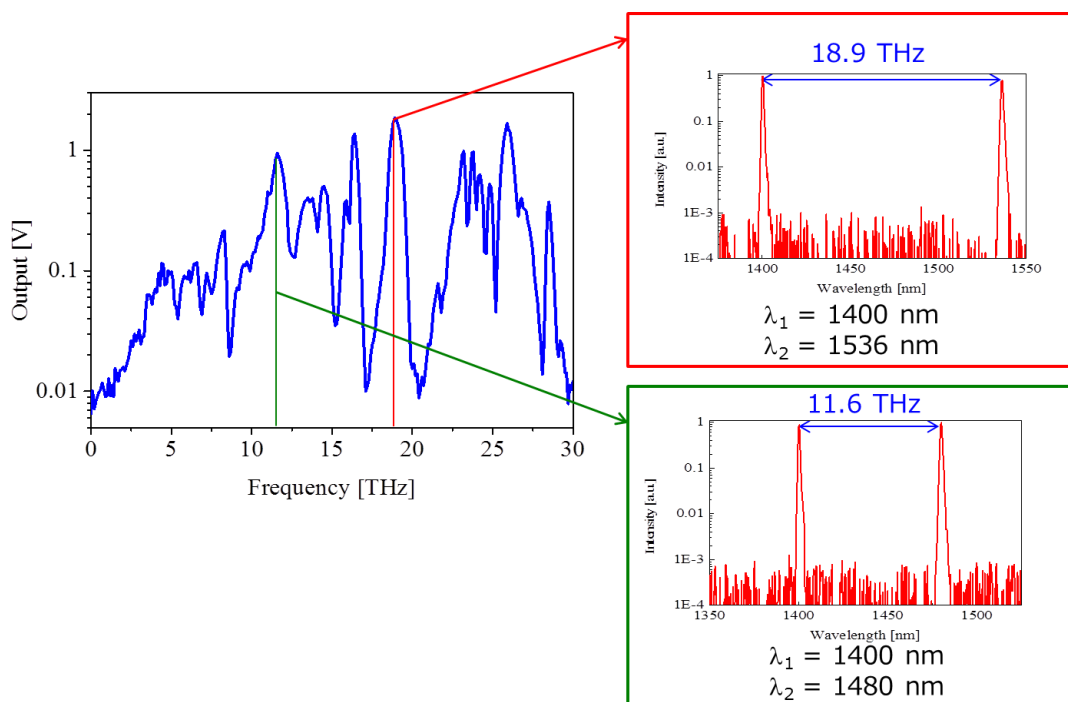


Fig. 2 - 23 励起光の波長と発生 THz 波の比較

Figure 2 - 22 に得られた出力スペクトルを示す。Figure 2 - 13 より励起二波長光源の線幅を考慮すると励起二波長光の線幅はそれぞれ約 70 GHz であり，得られた THz 波の線幅は 150 GHz 程度であることから，DAST 結晶の持つ強い吸収ピーク (1.1 THz, 8.3 THz, 15 THz, 17 THz, 20 THz) を明確に観察できる。また，2.5 THz 以下の帯域における出力が乏しいものの，2~30 THz に渡り，広帯域に THz 波発生を確認することができた。さらに，励起二波長光の波長と THz 波の周波数を比較すると，Fig. 2-23 のように励起光の変化に連携して THz 波の周波数が変化することがわかる。つまり，励起光の波長を任意に選択することで，所望の周波数の THz 波を発生することができる。この結果，本章で構築した光源が差周波発生にふさわしい光源であることを示唆していると言える。

2.5 まとめ

本章では，差周波発生による THz 波発生を目的にその励起光源の構築を行った。まず差周波発生用の励起光源として，KTP 結晶による OPO 光源の構築を行った。KTP-OPO 光源の発生波長域は 1250~1700 nm と広帯域であり，差周波発生に必要な条件を満たしている。しかしながら，共振器に二つの結晶を配置する方式では，四波混合による不要な波長の立ち上がりやゲインの食い合いが発生し，励起二波長光源として不十分であった。そこで，タンデム型の KTP-OPOs を構築し，この問題の解決を行った。タンデム型の KTP-OPOs では，ゲインの食い合いや四波混合は確認されず，出力や波長可変域は KTP-OPO と比較して遜色ないことから，この光源を用いた差周波発生による THz 波発生を行った。2~30 THz の領域で広範囲に THz 波の発生を確認し，構築した励起二波長光源が差周波発生に適していることを示した。

参考文献

- [1] U. Meier, M. Bosch, C. Bosshard, P. Gunter: *Synthetic metals* **109**, 19 (2000).
- [2] レーザー学会編: “レーザーハンドブック”, オーム社 p.115-161 (1982).
- [3] 服部利明 “非線形光学入門”, 裳華房 p.3 (2009).
- [4] Y. R. Shen: “Nonlinear Infrared Generation”, Springer, p. 28 (1977).
- [5] 斗内政吉 監修: “テラヘルツ波新産業”, シーエムシー出版 p.30 (2011).
- [6] Edward D. Palik: “Optical constants of solids”, (1985).
- [7] Y. Takahashi, S. Onduka, S. Brahadeeswaran, M. Yoshimura, Y. Mori, and T. Sasaki: *Opt. Mater.* **30** 116 (2007).
- [8] T. Taniuchi, J. Shikata, and H. Ito: *Electronics Lett.* **36**, 1414 (2000).
- [9] T. Taniuchi, S. Okada, and H. Nakanishi: *J. Appl. Phys.* **95**, 5984 (2004).
- [10] K. Suizu, K. Miyamoto, T. Yamashita, and H. Ito: *Opt. Lett.* **32**, 2885 (2007).
- [11] B. Boulanger, J. Feve, and Y. Guillian: *Opt. Lett.* **25**, 484 (2000).
- [12] Seth R. Marder, Joseph W. Perry, and Christopher P. Yakymyshyn: *Chem. Mater.* **6**, 1137 (1994).
- [13] F. Pan, G. Knopfle, C. Bosshard, S. Follonier, R. Spreiter, M. S. Wong and P. Gunter: *Appl. Phys. Lett.* **69**, 13 (1996).
- [14] Yariv: “光エレクトロニクス基礎編”, 丸善 p.517 (2010).

第3章 チェレンコフ型位相整合方式による THz 波光源の開発

3.1 はじめに

第2章では、差周波発生に用いる励起光源の開発に成功した。本章では、この光源を用いて、分光応用に必要な1～5 THzにおいて、特異な吸収の無いTHz波の発生を行う。THz波の発生に用いる結晶は、さまざまな非線形光学結晶の利用が可能であるが、本章では、実用化を考慮し、最もポピュラーであり且つ実績のあるLiNbO₃結晶を用いる。LiNbO₃結晶は7 THz以下の領域において特異な吸収ピークは存在しないため、差周波発生によるTHz波発生法を導入することができれば、7 THz以下の領域において効率的にTHz波を発生させる可能性を秘めている。また、新規分光法に用いる位相整合方式としては、LiNbO₃結晶を用いたチェレンコフ位相整合方式^{[1][2]}を採用した。

チェレンコフ型位相整合方式は差周波発生的一种であり、励起光と差周波光 (THz 波) での屈折率差を利用することによって、励起光がコリニアな条件下でも効率的に差周波光を発生させることのできる方式である。表面発生型 THz 波光源のような疑似位相整合方式^{[3]-[6]}でないため、分極反転構造などによる波長帯域の制限が無く、スペクトルの広帯域化が期待できる。この考え方に基づき、LiNbO₃結晶とチェレンコフ型位相整合方式を組み合わせ、2 THz以下の領域を含めた広帯域波長可変性を有するTHz波光源が開発されてきた^{[7]-[12]}。まず、本章では、この方式によりTHz波が第2章で構築した励起光源を用いて発生可能であることを確かめた。次に、新規分光法では、結晶内でTHz波が全反射することから、全反射時の物理現象について考察し、偏光の違いによる位相変化の差に着目した。全反射時の位相変化はs偏光に比べ、p偏光の方が大きく、これを分光に用いることができれば、分光の高感度化につながると考えた。現在までに開発されてきた光源のチェレンコフ位相整合における偏光状態は、結晶の持つ吸収の影響で、s偏光での取り出しが実施されており、p偏光の取り出しについては議論されてこなかった。そこで、本研究では、p偏光のTHz波に注目し、p偏光の取り出しについて、s偏光と比較し、その特性の評価を行った^[13]。

3.2 チェレンコフ型位相整合の原理

3.2.1 発生原理

チェレンコフ型位相整合方式の模式図を Fig. 3 - 1 に示す。非線形光学結晶に、二つの異なる周波数の励起光を入射すると、差周波発生により二次の非線形分極波が生成され、式 (3-1) で表される励起光のコヒーレンス長 Lc の二倍の周期で分極が極大となる点が生成される。

$$2Lc = \frac{\lambda_1 \lambda_2}{n_1 \lambda_2 - n_2 \lambda_1} \quad (3-1)$$

ここで、 λ_1 , λ_2 は励起光の波長、 n_1 , n_2 は励起光帯の LiNbO₃ 結晶の屈折率である。この非線形分極波は前章の式 (2-13) の周波数で振動しており、極大点では励起光周波数の差分に相当する電磁波 (THz 波) が、球面波として発生する。ここで、結晶中における励起光の伝搬速度が THz 波の伝搬速度を上回るとき、すなわち結晶中の THz 周波数帯の屈折率が励起光の屈折率を上回る条件下では、Fig. 3 - 1 のように各点で発生する球面波の波面が揃い、一定の方向に差周波光が強く放射される。このように、球面波の重ね合わせによる位相整合方式をチェレンコフ型位相整合方式と呼ぶ。このとき発生する THz 波の放射角 θ_{ch} は、幾何光学的に下式で求めることができる。

$$\cos \theta_{ch} = \frac{\lambda_{THz} / n_{THz}}{2Lc} = \frac{\lambda_{THz} / n_{THz}}{\lambda_1 \lambda_2 / (n_1 \lambda_2 - n_2 \lambda_1)} \cong \frac{n_{opt}}{n_{THz}} \quad (3-2)$$

λ_{THz} は球面波として発生する差周波発生による THz 波の波長、 n_{THz} は THz 周波数帯屈折率である。THz 波発生において λ_1 , λ_2 は非常に近い値をとるため、それぞれの励起光波長における屈折率を $n_1 \cong n_2 = n_{opt}$ と近似した。式 (3-2) から、チェレンコフ型位相整合は THz 周波数帯における媒質の屈折率が光波帯における屈折率よりも高い場合に満たされることが分かる。LiNbO₃ 結晶は THz 周波数帯における屈折率がおよそ 5.1、光波帯における屈折率がおよそ 2.1 であり、チェレンコフ型位相整合条件を満足する。Figure 3 - 2 に、励起光波長 λ_1 を 1300, 1400, 1500 nm に設定し、差周波光が 0.25~3 THz までの範囲で変化させた場合の THz 波放射角 θ の関係を示す。この図から分かるように、いずれの励起光波長においても放射角の変化量が 0.01 度以内であり、ほぼ一定の角度で放射されることが分かる。

これは同じ LiNbO₃ 結晶を用いた THz 波光源であるテラヘルツパラメトリック発振器 (TPO) 光源^[14]や光注入型テラヘルツパラメトリック発生器 (is-TPG) 光源^[15]の THz 波放射角変化量 (およそ 1~3 度) に比べ, 非常に小さい値であり, 波長可変光源として特筆すべき利点である. Figure 3 - 3 に 1~3 THz の範囲で周波数を変化させたときの THz 波放射角度の関係を示す. 横軸は THz 波周波数, 縦軸は 1.5 THz での THz 波放射角を基準とした放射角度変化量である.

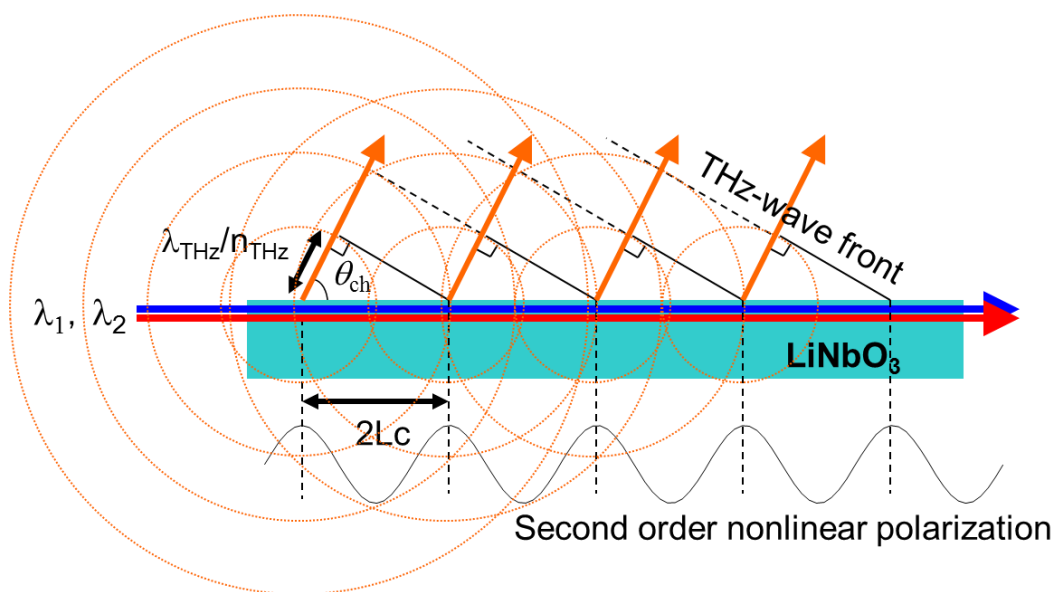


Fig. 3 - 1 チェレンコフ位相整合方式の模式図

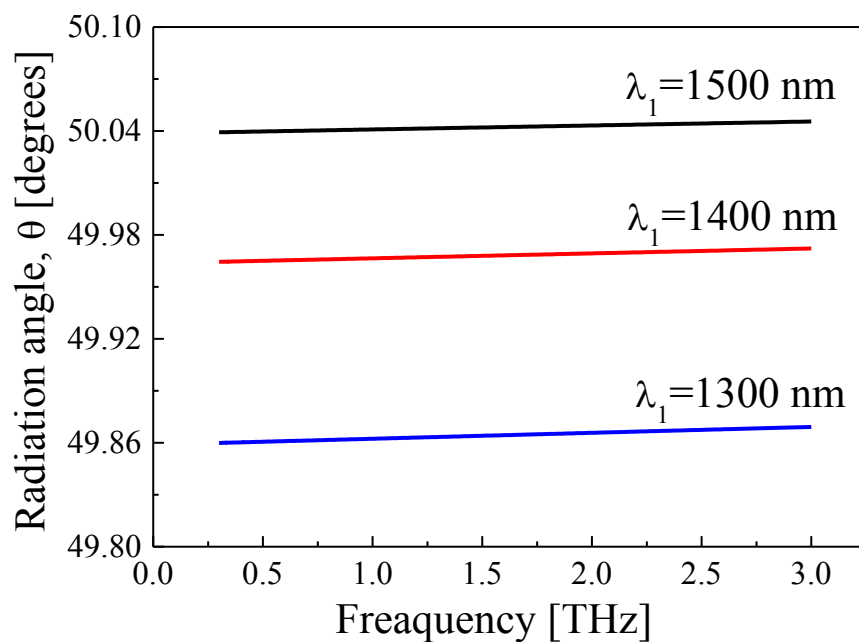


Fig. 3 - 2 周波数に対するチェレンコフ THz 波放射角の関係

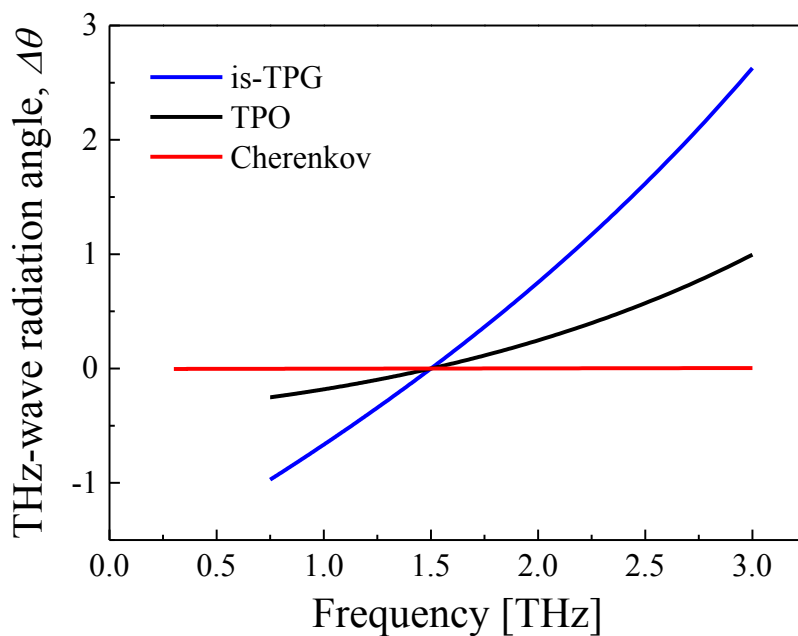


Fig. 3 - 3 THz 波放射角度の比較

3.2.2 偏光依存性

次に、新規分光法でのチェレンコフ位相整合の適用に向けて THz 波の偏光依存性について評価する。新規分光法では、THz 波が結晶内で全反射する際に局在するエバネッセント波を利用する。そこで、全反射時の THz 波の挙動について考察すると、Fig. 3-4 に示すように p 偏光の THz 波では急峻な位相変化が生じる。全反射を利用した分光では、位相変化が大きい方が有利である^{[16][17]}。その為、この急峻な位相変化を分光に利用することで、分光の感度の向上が期待できる。そこで、本項では s 偏光と p 偏光の違いについて確認する。

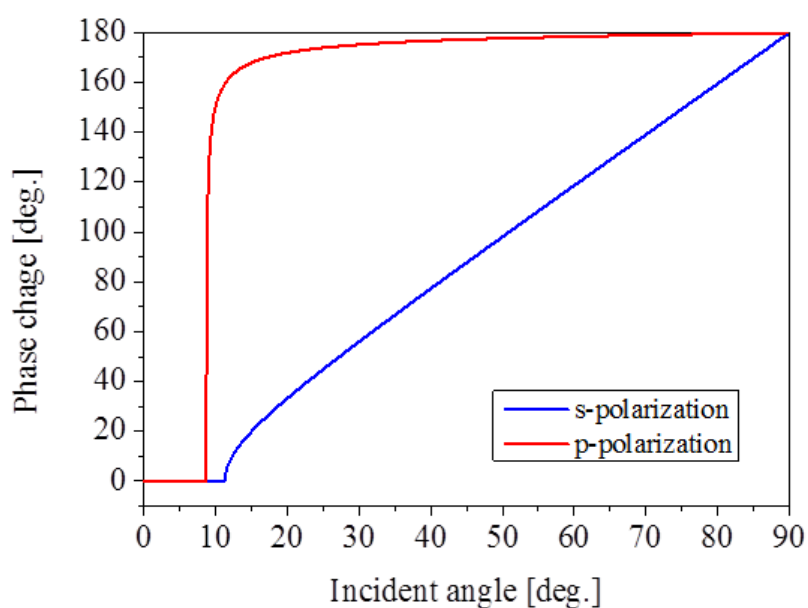


Fig. 3-4 各偏光状態における全反射時の THz 波の位相変化

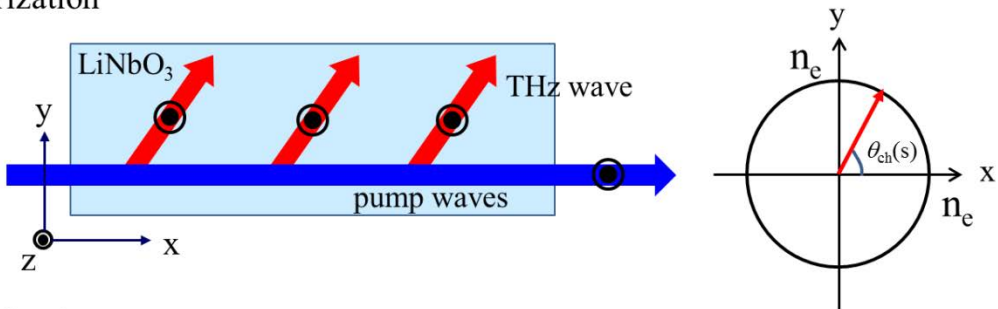
まず、s 偏光と p 偏光の結晶内における伝搬の違いについて Fig. 3 - 5 に示す。式 (3-2) からチェレンコフ位相整合方式で発生する THz 波は非線形光学結晶の屈折率により伝搬方向が決まる。本研究で用いた非線形光学結晶は、LiNbO₃ 結晶であり、この結晶は負の一軸性の結晶であることから、s 偏光取り出しでは、THz 波は異常光の屈折率で結晶中を伝搬し、p 偏光取り出しでは THz 波は Fig. 3 - 5 に示された屈折率楕円体から計算される屈折率で伝搬することとなる。各偏光に対する屈折率は式 (3-3) で求められる。

$$n_{THz}(s) = n_e$$

$$n_{THz}(p) = \frac{n_e n_o}{\sqrt{n_e^2 \sin^2 \theta_{ch} + n_o^2 \cos^2 \theta_{ch}}} \quad (3-3)$$

ここで n_e は LiNbO₃ 結晶における THz 周波数帯における異常光の屈折率であり、 n_o は THz 周波数帯における常光の屈折率である。式 (3-2) 及び式 (3-3) より、s 偏光と p 偏光では非線形光学結晶内での、THz 波の伝搬方向が異なることがわかる。また、伝搬する際の吸収は屈折率の影響を受けることから、s 偏光取り出しと p 偏光取り出しでは吸収の影響が異なることも見て取れる^[18]。

s-polarization



p-polarization

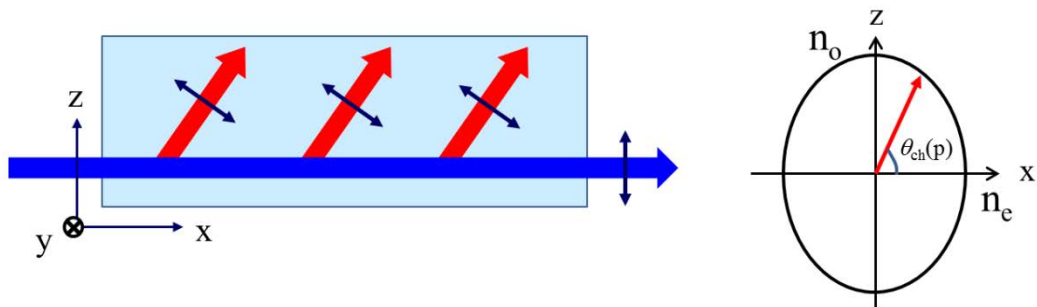


Fig. 3 - 5 各偏光による伝搬方向と屈折率

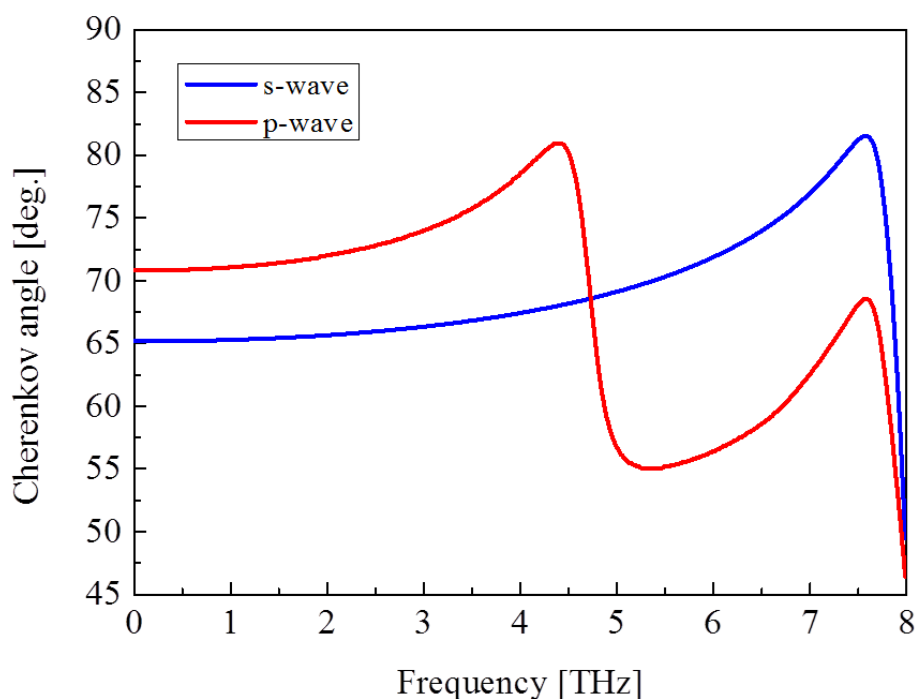


Fig. 3 - 6 結晶内でのチェレンコフ放射角周波数依存性

結晶内でのチェレンコフ放射角の周波数依存性を Fig. 3 - 6 に示す。どちらの偏光状態においても THz 波の結晶界面への入射角度は臨界角よりも大きく、ほとんどの周波数で全反射することがわかる。つまり、チェレンコフ位相整合を用いた THz 波発生が新規分光法に利用できることを示している。

しかしながら、結晶内部で全反射してしまっただの程度 THz 波が発生しているのか評価することができない。そこで、適度な屈折率を持つクラッド材を結晶に圧着することで、THz 波をカップリングし、結晶外部に取り出すことを考える。この関係を Fig. 3 - 7 に示す。この際、それぞれの偏光状態におけるクラッド材内の THz 波の伝搬方向は式(3-4)、式(3-5)で表される。

$$\begin{aligned}
 n_{pr} \sin\left(\frac{\pi}{2} - \theta_{clad}(s)\right) &= n_{THz}(s) \sin\left(\frac{\pi}{2} - \theta_{ch}\right) \\
 \cos \theta_{clad}(s) &= \frac{n_{THz}(s)}{n_{pr}} \cos \theta_{ch} = \frac{n_{THz}(s)}{n_{pr}} \frac{n_{opt}}{n_{THz}(s)} = \frac{n_{opt}}{n_{pr}}
 \end{aligned} \tag{3-4}$$

$$\begin{aligned}
 n_{pr} \sin\left(\frac{\pi}{2} - \theta_{clad}(p)\right) &= n_{THz}(p) \sin\left(\frac{\pi}{2} - \theta_{ch}\right) \\
 \cos \theta_{clad}(p) &= \frac{n_{THz}(p)}{n_{pr}} \cos \theta_{ch} = \frac{n_{THz}(p)}{n_{pr}} \frac{n_{opt}}{n_{THz}(p)} = \frac{n_{opt}}{n_{pr}}
 \end{aligned} \tag{3-5}$$

ここで、 θ_{clad} はクラッド材内部の THz 波の伝搬角度、 n_{pr} はクラッド材の THz 周波数帯での屈折率を示している。式 (3-4)、式 (3-5) から THz 波は非線形光学結晶に依存せず、クラッド材の屈折率に依存することがわかる。そのため、偏光に依存しないクラッド材を選定することで、どちらの偏光状態の THz 波であっても、同じ角度でクラッド材内部を伝搬し、クラッド材より同じ放射角度で取り出すことが可能である。Figure 3-7 における空間中への放射角度 θ_{air} は式 (3-6) にて決定される。

$$\theta_{air} = \frac{\pi}{2} - \theta_{pr} - \arcsin\left(n_{pr} \sin\left(\frac{\pi}{2} - \theta_{pr} - \theta_{clad}\right)\right) \tag{3-6}$$

ここで、 θ_{pr} はクラッド材のカット角であり、式 (3-6) より放射角度はクラッド材のカット角により、決定することができる。THz 波の周波数が 1 THz の際にクラッド材として Si を用いた場合の各偏光状態における取り出し効率を Fig. 3-8 に示す。Figure 3-8 から、p 偏光取り出しでは、クラッド材のカット角を調整することで (θ_{pr} が 55.4 度)、ブリュースター角を利用でき、クラッド材と空気の界面でのフレネル損失をほとんど 0 にすることができる。これにより、高効率な取り出しが可能になる。一方、s 偏光取り出しでは、 θ_{pr} が 39.0 度の時に最大の取り出し効率 70.2% となる。

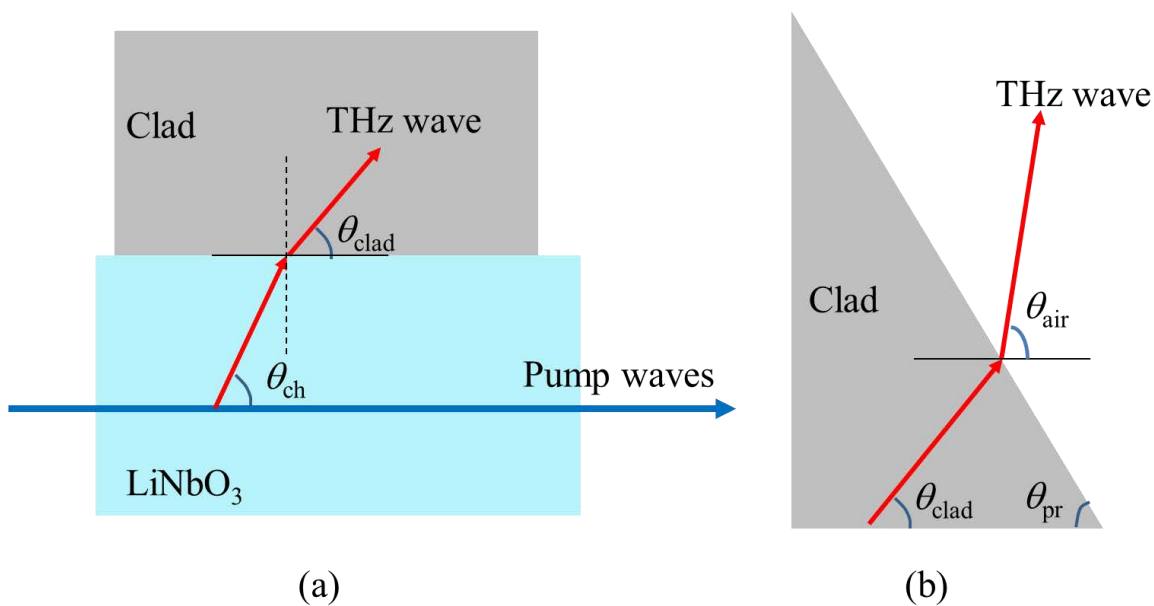


Fig. 3 - 7 チェレンコフ放射における THz 波のカップリング

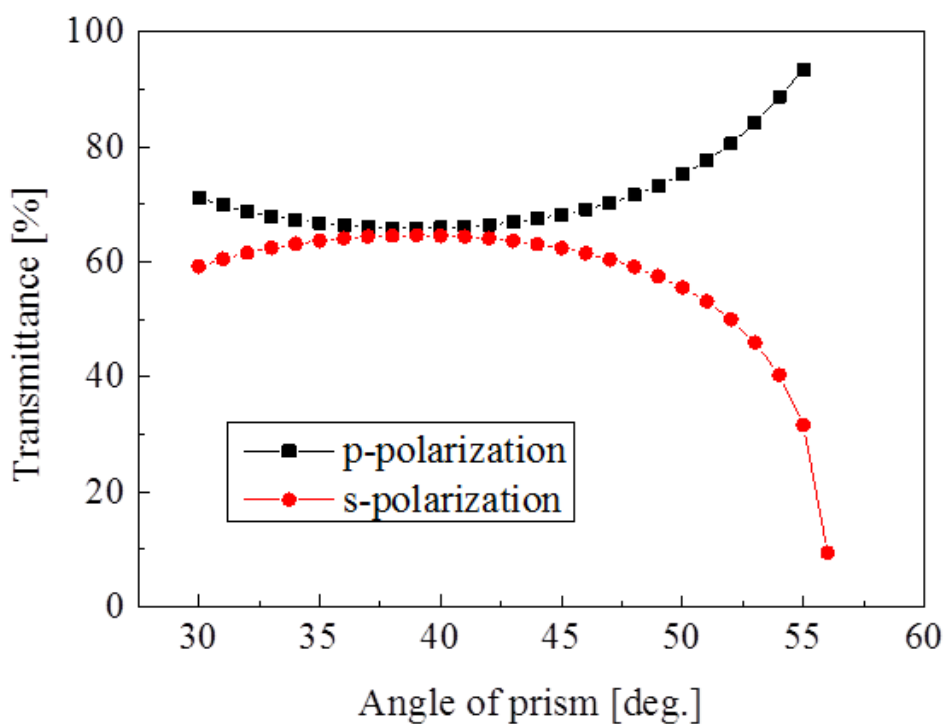


Fig. 3 - 8 各偏光状態におけるクラッド材の角度による THz 波の透過率

3.3 LiNbO₃ を用いたチェレンコフ型位相整合条件による

THz 波発生

本節では、第2章で構築した励起二波長光源を用いて、チェレンコフ位相整合により THz 波の発生を行った。発生させた THz 波はプリズムカップリングを行い、結晶外部に取り出し、両偏光状態において出力を評価した。

3.3.1 実験装置と実験方法

チェレンコフ型位相整合 THz 波発生の実験系を Fig. 3 - 9 に示す。差周波発生用の光源として、第2章にて構築を行ったタンデム型の KTP-OPOs を用いた。Nd:YAG レーザーの第二高調波 (532 nm、7 nsec、10 Hz) により KTP-OPOs を励起し、1300~1600 nm の二波長光を発生させた。この時、二波長光の出力は 6.0 mJ であった。励起二波長光を用いて THz 波を発生させる非線形光学結晶には MgO を 5 mol% ドープした LiNbO₃ 結晶を用い、LiNbO₃ 結晶の大きさは 50 × 4 × 5 mm³、結晶のカット角は $\theta = 90$ 度、 $\phi = 0$ 度であった。全ての結晶面を光学研磨し、クラッド材には高抵抗の Si を用いた。Si は、結晶面直近を通過する励起光が界面で散乱を起こして Si プリズムに照射されると、Si 内部で励起されるフリーキャリアにより THz 波が吸収されてしまうという問題があるため結晶表面との結合ギャップを最小にする目的で、接触面に鏡面研磨加工を施している。本実験では s 偏光での THz 波を発生させる際に、Si を結晶の y 面上に接触させ、p 偏光での THz 波発生の際には Si を結晶の z 面上に接触させた。また、Si は $\theta_{pr} = 40$ 度の直角三角形に加工し、プリズムとして用いた。励起二波長光の偏波を LiNbO₃ 結晶の z 軸に沿って維持するために半波長板を用いた。さらに、励起二波長光をシリンダリカルレンズ ($f = 50$ mm, $f = 30$ mm) を用いて集光させ、 $f = 50$ mm のレンズを用いて集束させた際、焦点位置での励起二波長光の平行ビーム径 200 μm 、垂直ビーム径 5200 μm において、エネルギー密度は 192 MW/cm² であった。 $f = 30$ mm のレンズを用いた際は、並行ビーム径 160 μm 、垂直ビーム径 5200 μm において、255 MW/cm² であった。THz 波の検出には 4K に冷却された Si-bolometer を用いて測定を行った。

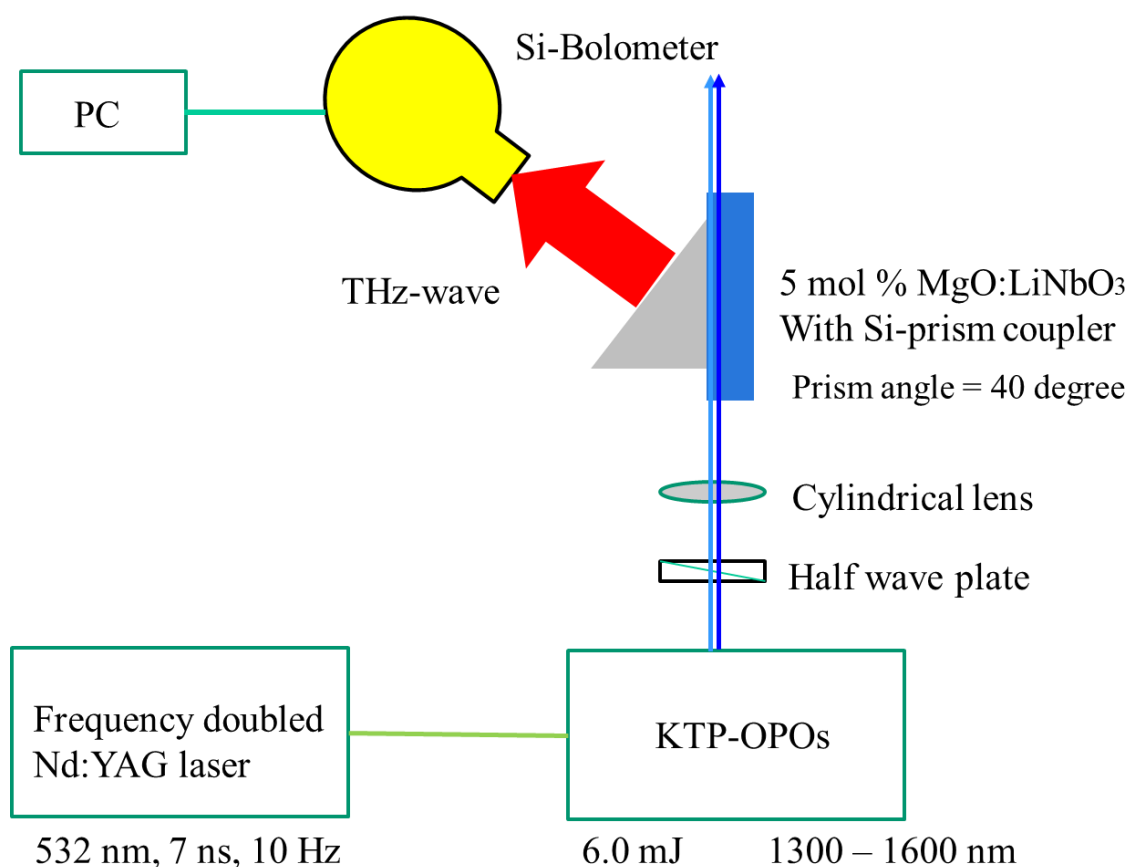


Fig. 3 - 9 チェレンコフ位相整合条件を用いた実験装置の概略図

3.3.2 実験結果と考察

励起光波長を 1300~1600 nm の範囲で変化させ、差周波が 0~8 THz となる領域でチェレンコフ型位相整合による THz 波発生を行った。各偏光で得られた THz 波の出力スペクトルを Fig. 3 - 10, Fig. 3 - 11 に示す。縦軸は、Si-bolometer の出力電圧から算出した THz 波のパルスエネルギーである。横軸は THz 波の周波数である。このとき今回得られた THz 波のパルスエネルギーの最大値は s 偏光にて 204 pJ/pulse, p 偏光にて 13 pJ/pulse であり、それぞれの偏光における周波数可変域は, s 偏光で 0.2~6.5 THz, p 偏光で 0.2~4.2 THz 及び 5.4~6.9 THz であった。この結果, Fig. 3 - 11 に示すようにバルク LiNbO₃ 結晶を用いたチェレンコフ位相整合方式による THz 波発生で初めて p 偏光での THz 波発生を達成した。

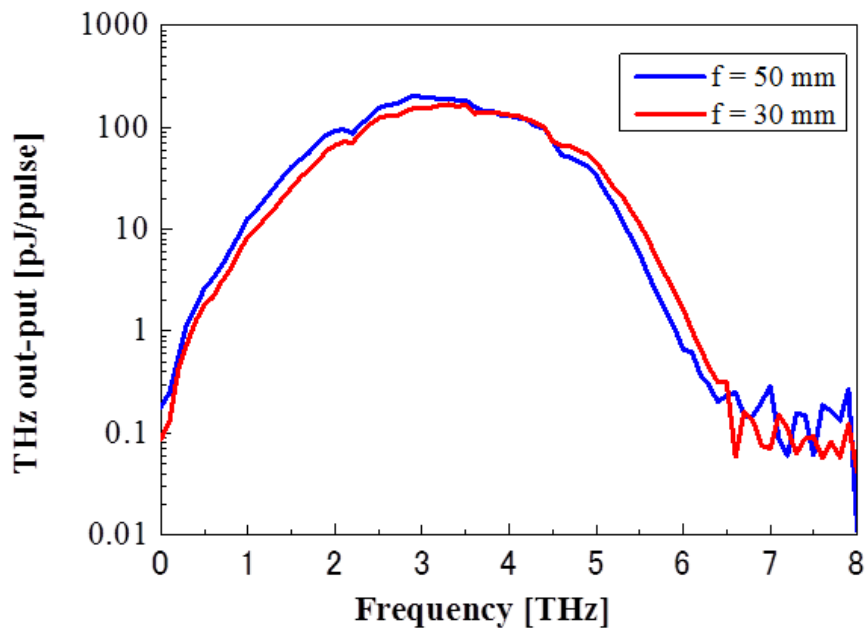


Fig. 3 - 10 s 偏光における THz 波出力スペクトル特性

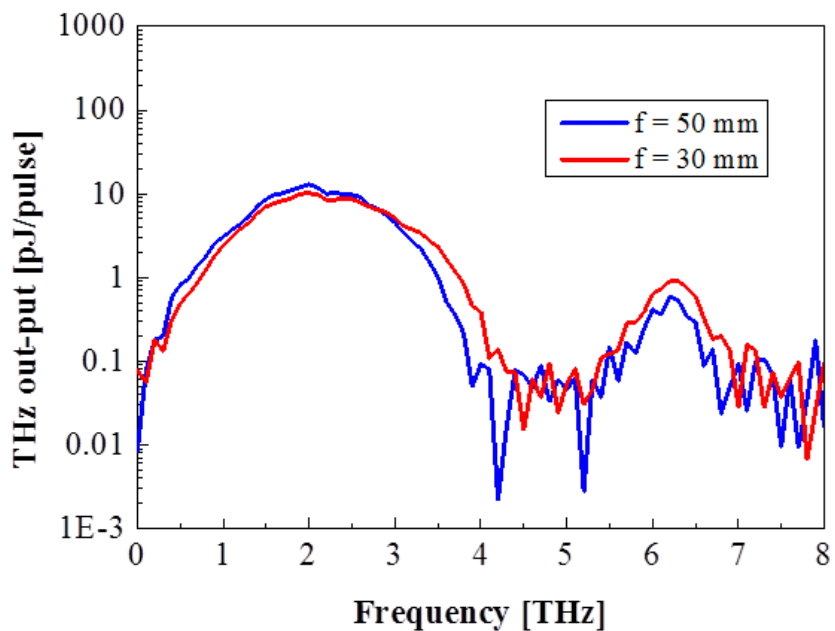


Fig. 3 - 11 p 偏光における THz 波出力スペクトル特性

チェレンコフ型位相整合は前述のように非線形分極波の極大点を波源とする球面波の重ね合わせによる位相整合であり，励起光のビーム幅を考えた場合，結晶端面からの距離に応じて発生する THz 波に位相遅れが生じるため，位相不整合の原因となる．この様子を Fig. 3 - 12 に示す．チェレンコフ型位相整合方式では，励起光が Fig. 3 - 12 (a) のような理想的な線光源の場合に位相整合となる．しかし，実際には励起光は有限のビーム径を持っており，Fig. 3 - 12 (b) のように励起光を細い励起光の集合と考えると，ビーム径の大きさに比例して，隣り合う励起光から発生する THz 波が干渉し合って位相不整合となり，出力が低下する．この位相不整合及び，LiNbO₃ 結晶では周波数が増加するにつれて，吸収が増加することから 5 THz 以上の高周波領域では出力が低下したと考えられる．

ここで，各偏光状態の出力について考える．p 偏光での THz 波の最大出力は，s 偏光の出力の約 10 分の 1 であった．しかし，6.2 THz 付近における p 偏光の出力は，s 偏光を用いた場合よりも出力が大きかった．この原因は THz 波の吸収は結晶の複素定数によって決定されることに起因する．p 偏光状態の THz 波発生の場合，LiNbO₃ 結晶は s 偏光状態と比べ大きな屈折率を有しているため，p 偏光状態の THz 波の吸収は s 偏光状態よりも大きくなる^[18]．また，p 偏光状態において 4.5 THz 付近に LO フォノンモードに起因する共振周波数の影響で，p 偏光状態の THz 波の吸収は 4.6 THz 以上の周波数で減少すると考えられる．同様に s 偏光状態においては，7.5 THz 付近に LO フォノンモードに起因する共振周波数の影響で，7.5THz 付近の周波数帯域で THz 波の吸収が増加する．そのため，6.2 THz 付近の帯域において p 偏光の THz 波の出力エネルギーは，s 偏光よりも増加したと考えられる．

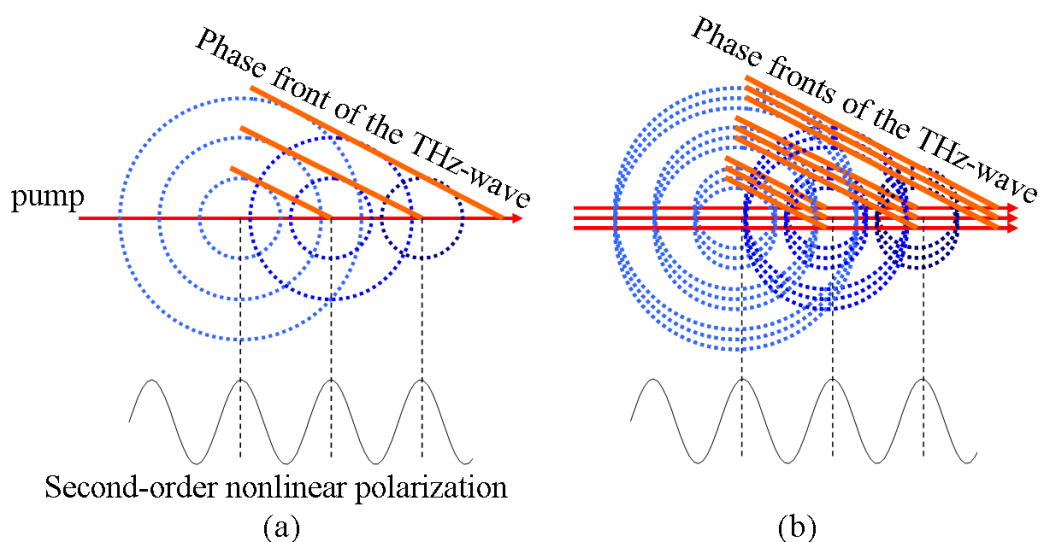


Fig. 3 - 12 (a) 位相整合 (b) 有限のビーム径に由来する位相不整合

次に、ビーム径に対する出力の比較について考察する。s 偏光では、4 THz 付近を境に $f=50$ mm のレンズを用いた場合と $f=30$ mm のレンズを用いた場合で出力が逆転していることがわかる。これは、4 THz 以下の低周波帯においては $f=50$ mm のレンズを用いた場合のコンフォーカル長が $f=30$ mm のレンズを用いた場合のコンフォーカル長よりも長いいため、出力が高くなっているものと考えられる。また、4 THz 以上の高周波帯においては $f=30$ mm のレンズを用いた場合のビーム径が小さく、位相不整合による出力の低下が緩和されるため出力が高くなっているものと考察される。同様に、p 偏光では、3 THz 付近を境に同様の結果が得られた。

このように、チェレンコフ位相整合による THz 波光源が分光応用上必要となる 1~5 THz において THz 波発生が可能であることを確認することができた。また、p 偏光の THz 波発生では、s 偏光同様に発生可能であることを確認し、これを分光に利用することができれば将来高感度化が期待できる結果となった。

3.4 クラッド形状の最適化による p 偏光 THz 波の

取り出し効率の向上

前節において、チェレンコフ位相整合による THz 波発生を行い、それぞれの偏光状態の THz 波の発生に成功した。新規分光法では、THz 波を結晶外部に取り出し、取り回すことはないが、取り出し効率が向上することで、通常の吸収分光などでは有効となることから、本節では、p 偏光における取り出し効率の向上について評価する。3.2.2 節にて述べたように、p 偏光取り出しではブリュースター角の考え方を取り入れることで、さらに高効率化が可能になると考えられる。クラッド材である Si プリズムの θ_{pr} を変更することにより、p 偏光での THz 波取り出し効率も調べ、THz 波取り出し効率の向上を図った。

3.4.1 実験装置と実験方法

構築した実験系は Fig. 3-9 と同様である。しかし、Si プリズムを $\theta_{pr}=40$ 度と $\theta_{pr}=50$ 度で測定し、出力を比較した。励起二波長光のエネルギーは 3.9 mJ であり、焦点位置での励起二波長光のエネルギー密度は 145 MW/cm^2 であった。この時、Si プリズムは、 $\theta_{pr}=40$ 度では光学研磨面が LiNbO_3 結晶に接着しているが、 $\theta_{pr}=50$ 度では光学研磨はされていないベア素材の面が接着面になっている。

3.4.2 実験結果と考察

得られた THz 波出力スペクトルを Fig. 3 - 13 に示す。横軸は THz 波周波数、縦軸は THz 波パルスエネルギーである。図から、 $\theta_{pr}=40$ 度の Si プリズムを使用した場合よりも、 $\theta_{pr}=50$ 度の Si プリズムを使用した場合の方が THz 波の出力が大きくなった。この結果は、Si プリズム角 θ_{pr} が、プリズムと空気との界面でのブリュースター角に近づくことで、THz 波の取り出し効率が增加することを示している。つまり、p 偏光での THz 波出力においては、Fig. 3 - 7 より $\theta_{pr}=55.4$ 度であるプリズムを用いることによって取り出し効率はさらに改善されると考えられる。

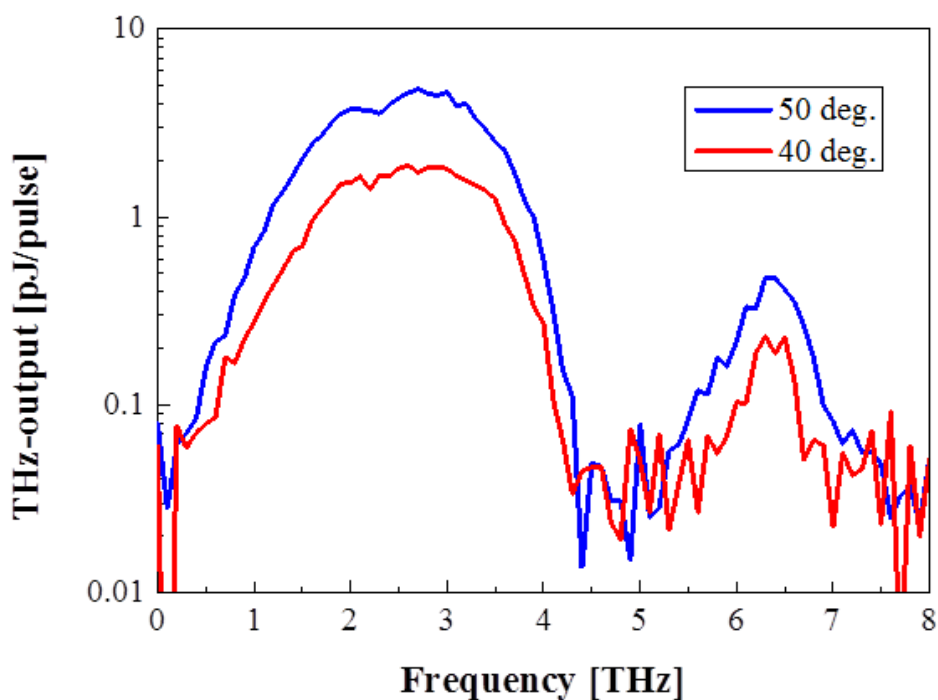


Fig. 3 - 13 異なるプリズム角での THz 波出力の比較図

3.5 まとめ

本章では、チェレンコフ型位相整合条件下において、 LiNbO_3 結晶を用いた差周波発生による THz 波発生を行った。まず、s 偏光と p 偏光においてチェレンコフ位相整合条件を満足することにより、THz 波を発生させることに成功し、結晶の配置を変化させることにより、THz 波の偏光を変化させることにも成功した。その結果、s 偏光状態において、0.2-6.5 THz と分光応用に必要な範囲で吸収のない THz 波の発生を確認し、同じ実験条件で p 偏光状態において、0.2-4.2 THz 及び、5.4-6.9 THz での THz 波発生に成功した。また、s 偏光での THz 波発生よりも低出力ではあったが、初めてバルク LiNbO_3 結晶を用いたチェレンコフ位相整合を用いて、p 偏光での THz 波発生に成功した。このとき得られた THz 波の最大エネルギーは s 偏光にて 204 pJ/pulse、p 偏光にて 13 pJ/pulse であった。

次に、クラッド材の形状の最適化により、p 偏光における THz 波の取り出しの高効率化を図った。結果、クラッド材である Si プリズムの角度を変えることによって改善されることを確認した。以上のように、s 偏光及び p 偏光の THz 光源の作製に成功し、本光源の新規分光法への応用の可能性を示した。今後、チェレンコフ位相整合を用いた光源では、励起二波長光のビーム径の最適化やクラッド材の最適化により、さらなる高効率化が可能になると考えられる。

参考文献

- [1] H. Z. Hu, K. Sh. Zhong, D. Q. Tang and Zh. X. Lu: *Opt. Comm.* **174**, 105 (2000).
- [2] K. Suizu and T. Akiba: *Jpn. J. Appl. Phys.* **53**, 092701 (2014).
- [3] Y. Avetisyan, Y. Sasaki, and H. Ito: *Appl. Phys. B* **73**, 511 (2001).
- [4] Y. Sasaki, Y. Avetisyan, K. Kawase, and H. Ito: *Appl. Phys. Lett.* **81**, 3323 (2002).
- [5] Y. Sasaki, H. Yokoyama, and H. Ito: *Electron. Lett.* **41**, 712 (2005).
- [6] Y. Sasaki, Y. Avetisyan, H. Yokoyama, and H. Ito: *Opt. Lett.* **30**, 2927 (2005).
- [7] M. I. Bakunov, A. V. Maslov and S.B. Bodrov: *Phys. Rev. B* **72**, 195336 (2005).
- [8] K. Suizu, T. Shibuya, T. Akiba, T. Tsutsui, C. Otani, and K. Kawase: *Opt. Express* **16**, 7493 (2008).
- [9] K. Suizu, K. Koketsu, T. Shibuya, T. Tsutsui, T. Akiba and K. Kawase: *Opt. Express* **17**, 6676 (2009).
- [10] T. Shibuya, T. Tsutsui, K. Suizu, T. Akiba and K. Kawase: *Appl. Phys. Express* **2**, 032302 (2009).
- [11] K. Suizu, T. Tsutsui, T. Shibuya, T. Akiba and K. Kawase: *Opt. Express* **17**, 7102 (2009).
- [12] 澁谷孝幸、水津光司、筒井俊博、秋葉拓也、川瀬晃道: *レーザー研究* **37**, 366 (2009).
- [13] T. Akiba, Y. Akimoto, K. Suizu, K. Miyamoto, and T. Omatsu: *Appl. Opt.* **53** 1518 (2014).
- [14] K. Kawae, J. Shikata, H. Minamide, K. Imai, and H. Ito: *Appl. Optics* **40**, 1423 (2001).
- [15] K. Kawae, H. Minamide, K. Imai, J. Shikata, and H. Ito: *Appl. Phys. Lett.* **80**, 195 (2002).
- [16] T. Okada, M. Nagai, and K. Tanaka: *Opt. Express* **16**, 5633 (2008).
- [17] D. A. Newnham, and P. F. Taday: *Appl. Spectroscopy*, **62** 394 (2008).
- [18] D. Li, G. Ma, J. Ge, S. Hu and N,Dai: *Appl. Phys. B* **94**, 623 (2009).

第 4 章 高感度計測に向けたピコ秒レーザー を用いた THz 波発生

4.1 はじめに

第3章では、チェレンコフ位相整合の THz 波発生法を導入し、分光応用に必要な 1~5 THz までの THz 波出力を獲得することに成功した。この発生させた THz 波の分光応用を検討してみると、前章で用いたパルス幅がナノ秒のレーザーでは常温での高感度計測が難しい。そこで、本章では、高輝度・高繰り返しを実現可能なパルス幅がピコ秒のレーザーをポンプソースに用いることを考えた。

ここで、パルス幅がピコ秒のレーザーを用いる利点を考える。パルス幅が異なるレーザーでは、用いられる分野や用途が大きく異なる。本研究では、THz 波を用いた分光を目的としていることから、単色の THz 波を発生させることが望ましい。そこで、実現可能なパルス幅は数ピコ秒以上になると考えられる。これらの光源において、前章までに用いていたナノ秒オーダーのポンプソースでは、パルスのピークパワーが高く、簡単に非線形光学効果を起こすことができるというメリットがあるものの、繰り返し周波数が 10 Hz と遅いこと及びパルスを Q スイッチを用いて発生させていることから Q スイッチのノイズが検出器に検出されてしまうこと、さらには熱の影響が大きく、非線形光学結晶へのダメージの心配があるというデメリットを抱えていた。そこで、本研究では、パルス幅がピコ秒オーダーの光源の採用を検討した。この光源では、繰り返し周波数は MHz オーダーと高く、ノイズ源となるような機構もないため、分光応用にはふさわしいと考えた。しかしながら、ナノ秒オーダーの励起光では問題とならなかった線幅とピークパワーが問題となる。そこで、この問題を解決するため、本章では、千葉大学の尾松研究室の協力の下、光増幅器 (MOPA: Master-Oscillator-Power-Amplifier) を用いた高いピークパワーを有する光源の開発を行った。

本章では、ピコ秒レーザーでの THz 波発生を目標に、まず始めに非線形光学効果を行う為に必要な励起光源を準備するため、光増幅器による高品質、高ピークパワー、高繰り返しのピコ秒光源の作製を行った。その後、このピコ秒光源を用いて、第 2 章で用いた非線形光学効果による波長変換を応用し、第 3 章で示したチェレンコフ位相整合に必要な励起二波長光源の作製を行った。次に、作製した励起二波長光源の特性を評価するため、実際にこの光源を用いて THz 波発生を行い、分光応用が可能であることを確認した。

4.2 ピコ秒バウンスレーザー

差周波発生のポンプソースとして求められるのは、二波長が選択的に発生可能であり、且つチェレンコフ位相整合によって十分な THz 波を発生させることができる輝度である。しかしながら、一つの結晶から簡単かつ選択的に二波長を同時発振するレーザーの構築は困難である。そこで、その前段階として、光増幅器を用いた高輝度・高繰り返し回のポンプソースの構築を行い、そのポンプ光を用いた光パラメトリック発生を行うことで所望の励起光源の構築を行った。

4.2.1 レーザー媒質の選定

本項では、光増幅器を用いた高輝度・高繰り返し回のポンプソースの構築を目的にその光源にふさわしいレーザー媒質の選定を行った。現在、半導体レーザーの進歩とともに簡単に MOPA を構築できるようになってきている。そこで、本研究では、半導体レーザーの発振波長である 808 nm の光で励起可能なレーザー媒質を選定した。

Nd³⁺をドープした固体レーザー材料は、808 nm 帯に大きな吸収を持ち、半導体レーザーで励起することができる。Figure 4 - 1 に Nd³⁺をドープしたレーザー材料のエネルギー遷移^[1]を示す。この図からわかるように Nd³⁺は 808 nm の光を入射すると、基底状態の ⁴I_{9/2} から ⁴F_{5/2} の励起状態へと遷移する。この励起準位からレーザー上準位 ⁴F_{3/2} への緩和時間は、基底状態へ戻るときと比べて非常に短く、定常状態で ⁴F_{3/2} 準位に反転分布を形成する。この準位から、⁴I_{13/2}、⁴I_{11/2}、⁴I_{9/2} の準位に遷移する際にそれぞれ 1350 nm、1064 nm、930 nm の波長を持つ近赤外線を放出する。この中でも 1064 nm を放出する遷移がもっとも強く現れるため、レーザー発振に利用される。また基底状態 ⁴I_{9/2} と ⁴I_{11/2} とのエネルギー差は約 2200 cm⁻¹ と大きいことから室温におけるレーザー下準位への熱的な励起は無い。

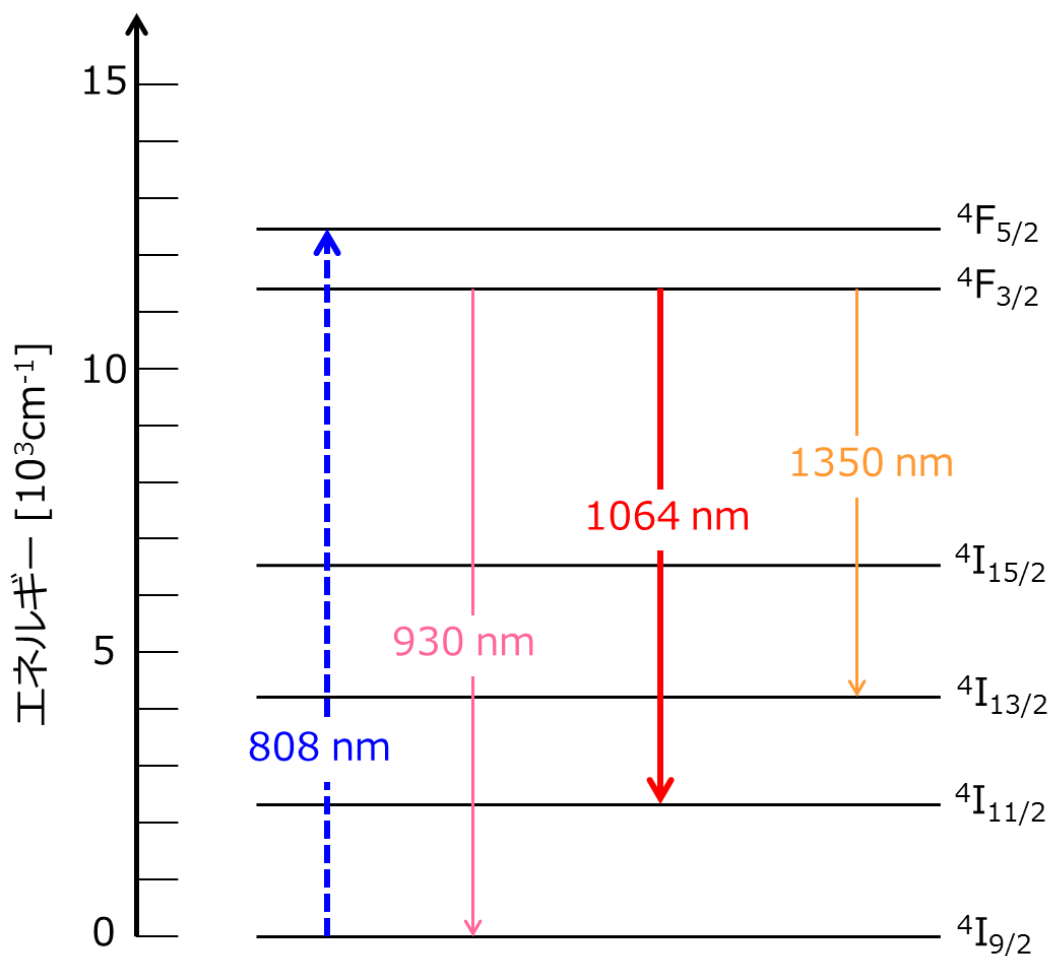


Fig. 4 - 1 Nd³⁺イオンのエネルギー準位図

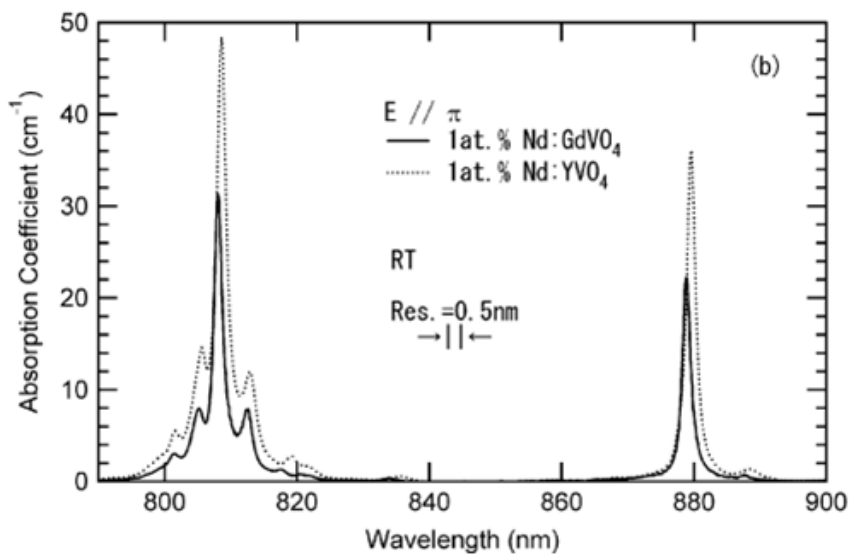
次に、Nd³⁺をドープした数種類の固体レーザー材料の特性について述べる。代表的な Nd 系固体レーザー材料の特性を Table 4 - 1 に示す。ここに示す特性はすべて 1.0 at.% で Nd をドープしたものである。本研究で必要な高い平均出力を有する高繰り返し光源には、以下の特性が求められる。

- ① 大きな利得を得るために、大きな誘導放出面積を持つ
- ② 短いパルスを得るために、広い増幅帯域を持つ
- ③ 高い繰り返しを実現するため、蛍光寿命が短い

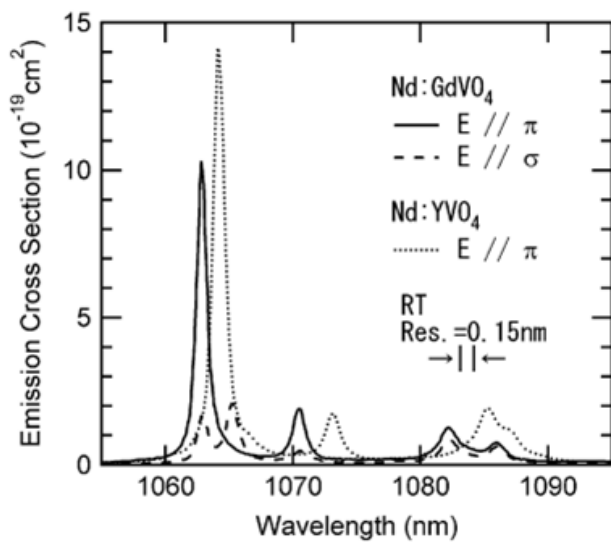
これらの特徴から Table 4 - 1 に示すレーザー材料を比較してみると、Nd:YVO₄ 結晶がレーザー材料としてふさわしいことがわかる。そこで、本研究では、Nd:YVO₄ 結晶を用いてポンプ光源の構築を行った。また、Nd:YVO₄ 結晶の吸収・蛍光スペクトル特性を Fig. 4 - 2 に示す^[2]。

Table 4 - 1 Nd 系固体レーザー材料の分光特性

	Nd:YVO ₄	Nd:YAG	Nd:GdVO ₄
誘導放出断面積 ($\times 10^{19} \text{ cm}^2$)	14.1	2.63	10.3
吸収係数@808 nm (cm^{-1})	53.5	9.1	33.2
吸収スペクトル幅 (nm)	1.7	1.2	1.5
蛍光スペクトル幅 (nm)	1.1	1.1	1.0
蛍光寿命 (μs)	84.1	225	83.4



(a) 吸収スペクトル特性



(b) 蛍光スペクトル特性

(c)

Fig. 4 - 2 Nd:YVO₄の吸収・蛍光スペクトル

4.2.2 側面励起バウンス増幅器

固体レーザーの半導体レーザー (LD) による励起方法には、大別して端面励起法と側面励起法がある。Figure 4 - 3 に示す端面励起法は、増幅前のシグナル光と励起光の入射方向と光軸を一致させる方法である。シグナル光と励起光の光軸が一致しているため、高効率励起が可能であり、また、熱負荷による収差を受けにくいという利点がある。しかし、励起光入射側に、シグナル光の波長に対して高反射、励起波長に対して非反射の二波長に対する特殊コーティングが必要である。さらに、励起 LD の高出力化に伴い空間的ビーム品質が低下するので、励起光をシグナル光のサイズまで集光しづらく、励起光がランバート則に従い吸収されるため、利得長を長くできないため、高出力化が難しいという欠点がある。

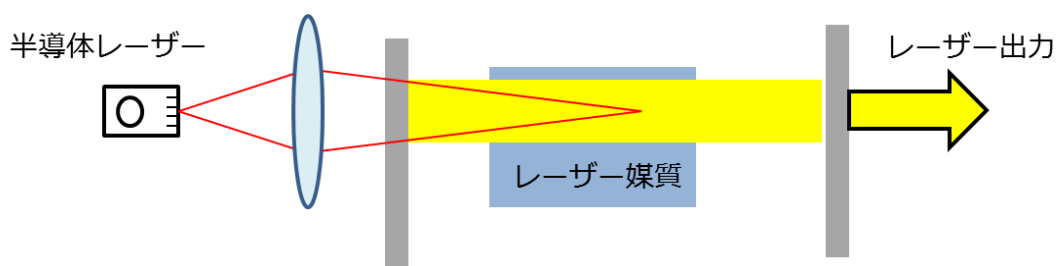


Fig. 4 - 3 端面励起方式による半導体励起固体レーザーの構成

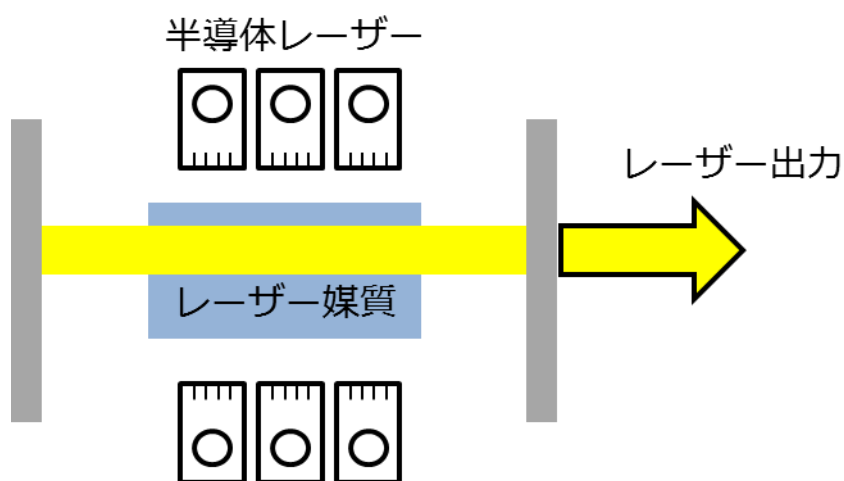


Fig. 4 - 4 側面励起方式による半導体励起固体レーザーの構成

一方, Fig. 4 - 4 に示す側面励起法は, 励起 LD からの励起光をシグナル光の光軸に対してほぼ垂直方向から入射する. すなわち, 固体結晶の側面から励起光を集光させる為, 励起光の相互作用長を長くとることができ, 高出力化が可能である. 同時に, 光学系の複雑化を避けることもできる. 以上のことから, 高出力化を目指す本研究では, 側面励起法を採用した.

側面励起法は, 励起光が増幅媒質に吸収され, 利得の分布が励起面から指数関数的に減少する. これではシグナル光はビーム断面内で不均一な利得を受け, 効率的ではない. この問題を解決するために, シグナル光を結晶の側面で折り返し反射させるように入射させた. これをバウンス配置と呼ぶ. Figure 4 - 5 に側面励起バウンス増幅器の概念図を示す^{[3][4][5]}. この方法を採用することで, 長い相互作用長を得ることが可能となり, 大きな利得を得ることができる. また, 結晶側面でビームを折り返すことによって, 励起面からの深さ方向に対してある程度均一に増幅をさせることも可能である.

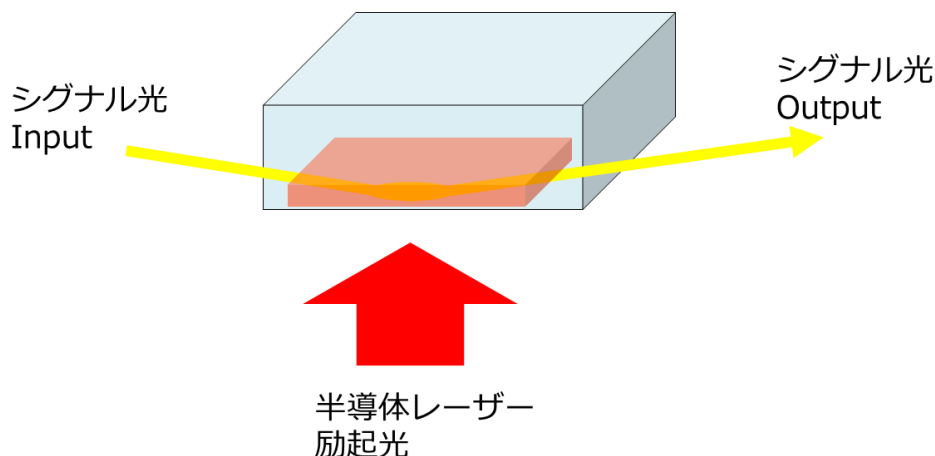


Fig. 4 - 5 側面励起バウンス増幅器

4.2.3 実験系及び入出力特性

Figure 4 - 6 に側面励起バウンス増幅器の実験系を示す。マスターレーザーには、中心波長 1064.5 nm，繰り返し周波数 100 MHz，最大平均出力 986 mW の CW モードロックレーザーを用いた。またレーザーの尖頭値を稼ぐために、パルスピッカー（ポッケルスセルと音響光学素子から形成される）により、最大平均出力 4 mW，繰り返し周波数 1 MHz に変換後，増幅器へと入射する。増幅器は、1.0 at.% Nd:YVO₄ 結晶(a-cut、20×5×2 mm)と半導体レーザー($\lambda=808$ nm)で構築されている。この時、熱収差によるビームパターンの変化を低減するために入射光の入射角度は約 21° と大きくした。また、増幅器での励起ボリュームと入射光のモードマッチングの向上と励起光の広がりを抑える目的で入射光はシリンダリカルレンズ (VCL) を用いて縦方向を集光した。増幅器を一度透過し、増幅された光は、焦点距離 250 mm の凸レンズを用いた等倍結像系により、増幅直後と同じビームサイズのまま再び増幅器へと入射される。入射角度は一度目の増幅の際よりも深くなり、約 26° となっている。

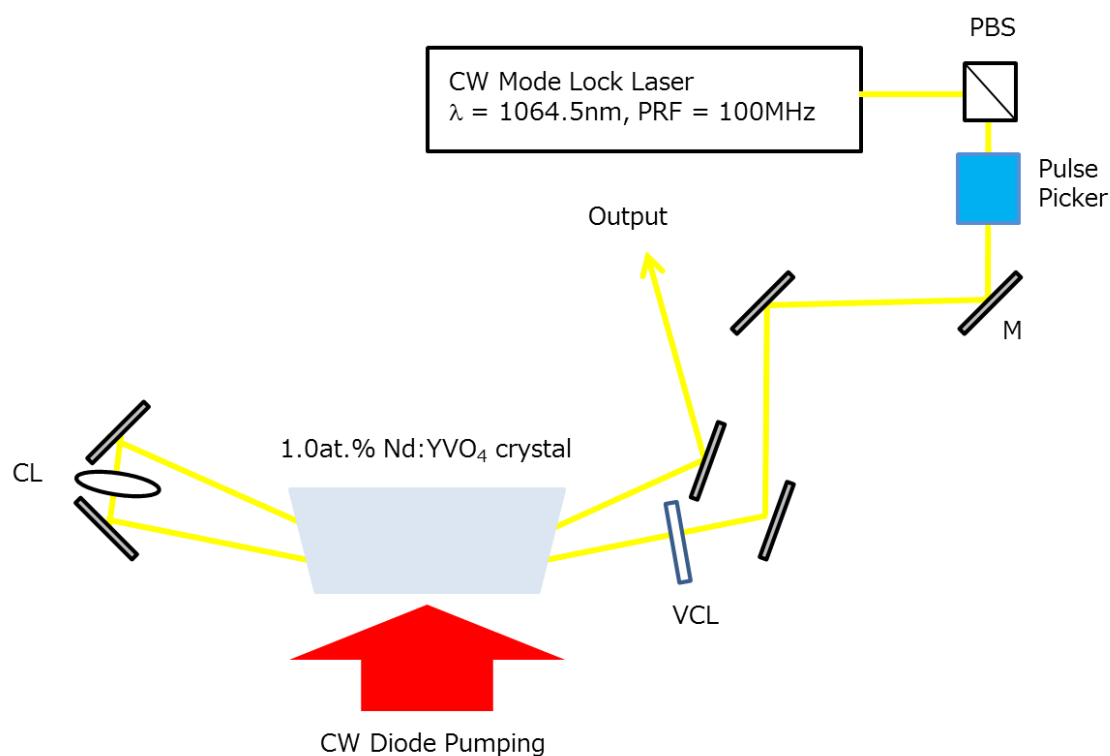


Fig. 4 - 6 側面励起バウンス増幅器実験系

この実験系を用いて得られた増幅光の入出力特性を Fig. 4 - 7 に示す. 最大平均出力は, 半導体レーザーの励起出力が 54 W 時で 8.92 W を得た. パルス幅 7.4 ps, 繰り返し周波数が 1 MHz であることを考慮すると, ピークパワーは 1.2 MW と高い値を達成することができた. また, 得られた増幅光のビームパターンをカメラを用いて測定した結果を Fig. 4 - 8 に示す. この図からアンプによるビームパターンの崩れはほとんどなく, 効率的に光増幅が行えていることがわかる. この光を励起光源とする差周波発生用の励起二波長光源の構築を次節以降で行う.

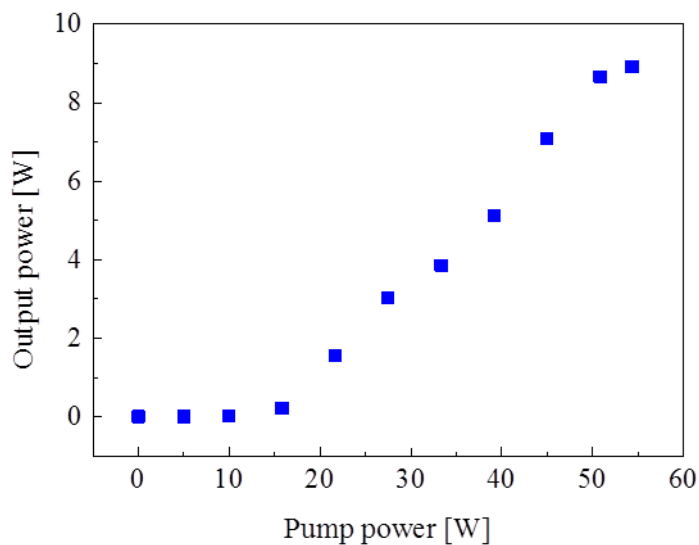


Fig. 4 - 7 バウンス増幅器における励起光強度に対する出力光強度

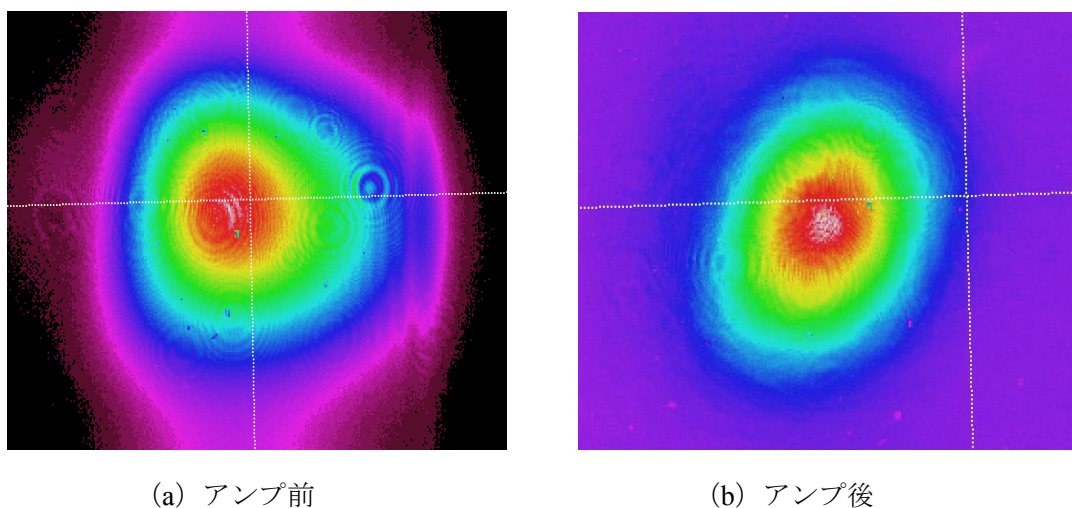


Fig. 4 - 8 側面励起バウンス増幅前後のビームパターン比較

4.3 ピコ秒光源による差周波発生用励起光源

前節において、側面励起バウンス増幅器によって高輝度・高繰り返しピコ秒ポンプ光の生成に成功した。本節では、このポンプ光を励起光源として差周波発生に必要な励起二波長光の作製を行った。励起二波長光の作製には、擬似位相整合を用いた光パラメトリック発生を使用した。第2章でも用いたタンデム配置で光パラメトリック発生を行うことで、独立に制御可能かつ広帯域に波長可変な励起二波長光源の構築を行った。

4.3.1 光パラメトリック発生による二波長光発生

励起二波長光の生成には光パラメトリック発生を用いた。光パラメトリック発生は第2章で述べた二次の非線形光学効果のひとつであり、差周波発生と同様に運動量保存とエネルギー保存を満たすことで、ポンプ光を任意の周波数に変換することができる。本節では運動量保存、エネルギー保存を満たすために、擬似位相整合（付録 A 参照）を用いて波長変換を行った。擬似位相整合を満たす周期分極反転構造を有した PPSLT (Periodically Poled Stoichiometric Lithium Tantalate) 結晶を用いた。この結晶は、他の代表的な非線形光学結晶に比べ、高い損傷閾値を有しており、高強度の光の励起にふさわしいと考えられる。Table 4-2 に PPSLT 結晶と他の周期分極反転構造を有した非線形光学結晶の非線形係数及び損傷閾値の比較を示す^[6]。この結晶の屈折率は式 (4-1) に示すセルマイヤ方程式により求めることができる。ここで、セルマイヤ方程式に用いるパラメータは Table 4-3 に示す^[7]。また、Fig. 4-9 に代表的な PPSLT 結晶の温度同調曲線を示す。

$$n_e^2(\lambda, T) = A + \frac{B + b(T)}{\lambda^2 - [C + c(T)]^2} + \frac{E}{\lambda^2 - F^2} + \frac{G}{\lambda^2 - H^2} + D\lambda^2 \quad (4-1)$$

Table 4-2 一般的な擬似位相整合結晶の特性比較

結晶種類	PPSLT (MgO doped)	PPLN (MgO doped)	KTP
有効非線形光学定数 (pm/V)	10	16	10
損傷閾値 (MW/cm ²)	570	300	300

Table 4 - 3 セルマイヤ方程式のパラメータ

定数	数値
A	4.502483
B	0.007294
C	0.185087
D	-0.02357
E	0.073423
F	0.199595
G	0.001
H	7.99724
b(T)	$3.483933 \times 10^{-8}(T+273.15)^2$
c(T)	$1.607839 \times 10^{-8}(T+273.15)^2$

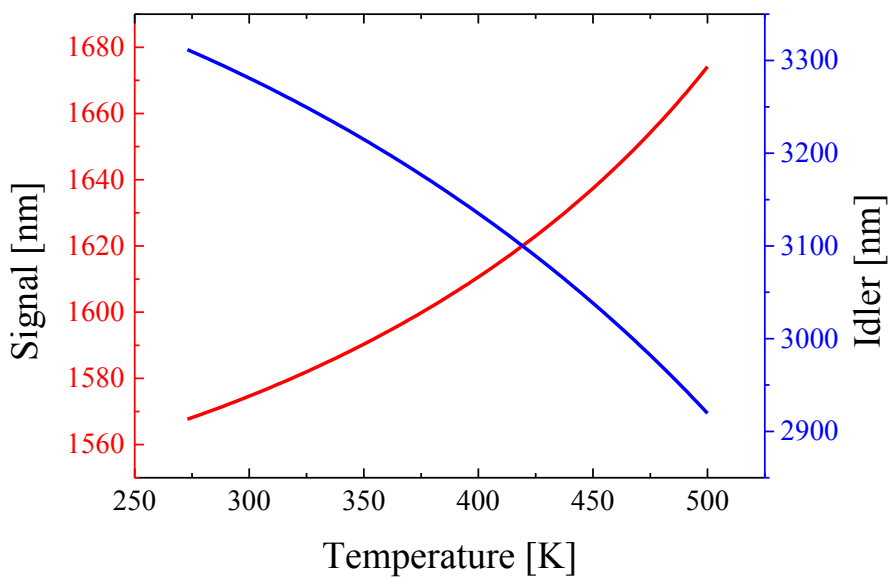


Fig. 4 - 9 PPSLT 結晶の温度同調曲線

さらに、本研究では、PPLST 結晶に fan-out 構造を有する結晶を使用することで、周期分極反転長を物理的に変えることができる構造を持つ結晶を使用した^[8]。Figure 4-10 に fan-out 構造の概略図を示す。この図より、ポンプ光の入射位置を変えることにより、発生波長の中心を変えることが可能となり、高速な波長可変性を持たせることができることが分かる。本研究で用いた PPLST 結晶は周期分極反転長が 29 ~ 31 μm の間で変化している結晶を使用したことから、この範囲での周期分極反転長の変化に伴う発生波長の特性を Fig. 4-11 に示す^[9]。

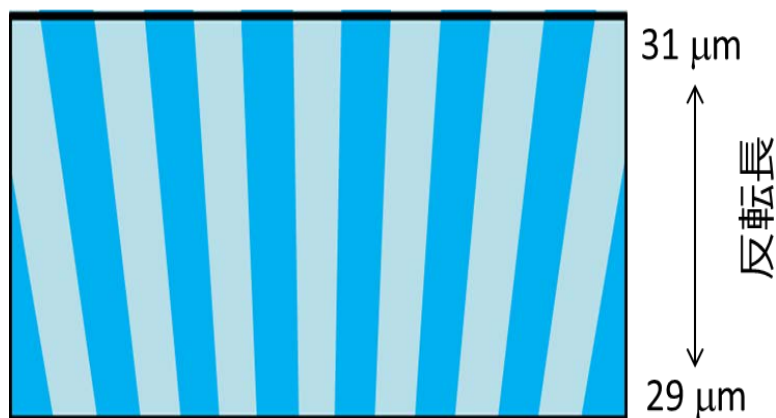


Fig. 4-10 fan-out 構造を有する PPLST 結晶の概略図

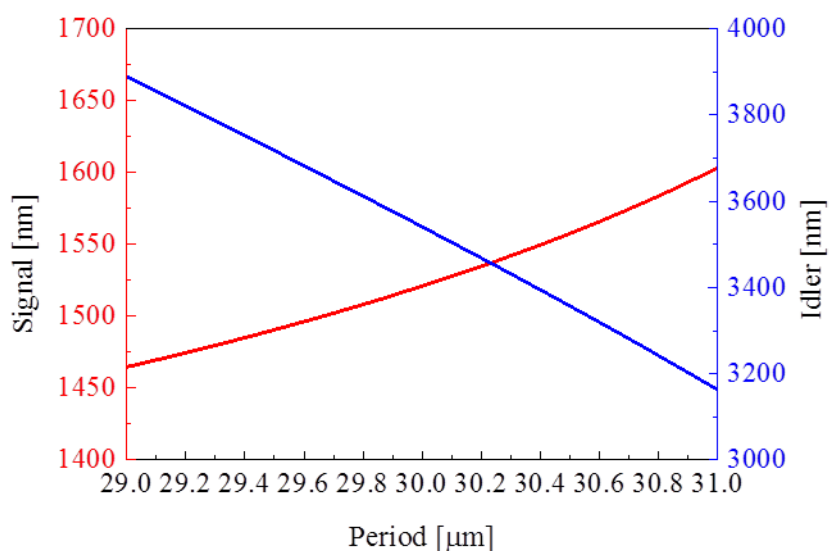


Fig. 4-11 PPLST 結晶の分極反転長依存性

この結晶を用いて構築した光パラメトリック発生の実験系を Fig. 4 - 12 に示す. 前節で述べた高出力ピコ秒レーザーを励起光源として, その励起光を偏光ビームスプリッターにておよそ半分ずつに分割して, タンデム配置した PPSLT 結晶による光パラメトリック発生を行った. 二つの PPSLT 結晶は独立に温度調節が可能なオーブンに設置した. このオーブンをを用いることで温度同調により広帯域な分光が可能となる. それぞれの結晶において発生した $1.5 \mu\text{m}$ 帯の近赤外光は再び偏光ビームスプリッターによって合波され, 空間的にオーバーラップさせた. また, 時間的なオーバーラップは片方の光パラメトリック発生に設けたディレイステージで調整した.

この実験系で得られた励起二波長光の出力を Fig. 4 - 13 に示す. 短波長側の波長は 1512 nm , 長波長側の波長は 1543 nm であった. 励起二波長光のそれぞれの最大平均出力は短波長側が 3.4 W の励起光で 743 mW , 長波長側が 2.8 W の励起光で 954 mW であった. 長波長側の出力が大きいのは, PPSLT の反転長及び結晶長が影響していると考えられる. 次に, 光パラメトリック発生でのスペクトルを Fig. 4 - 14 に示す. 短波長側の中心波長は 1574 nm , 長波長側の中心波長は 1601 nm であった. この図から短波長側と長波長側の強度のバランスは良好であり, 差周波発生用の光源として十分に利用可能であると考えられる. しかし, スペクトル線幅が約 10 nm 程度と広いとため, 差周波発生帯域幅も 1 THz 以上の広帯域な THz 波になることが考えられ, 単色の分光が難しいと考えられる.

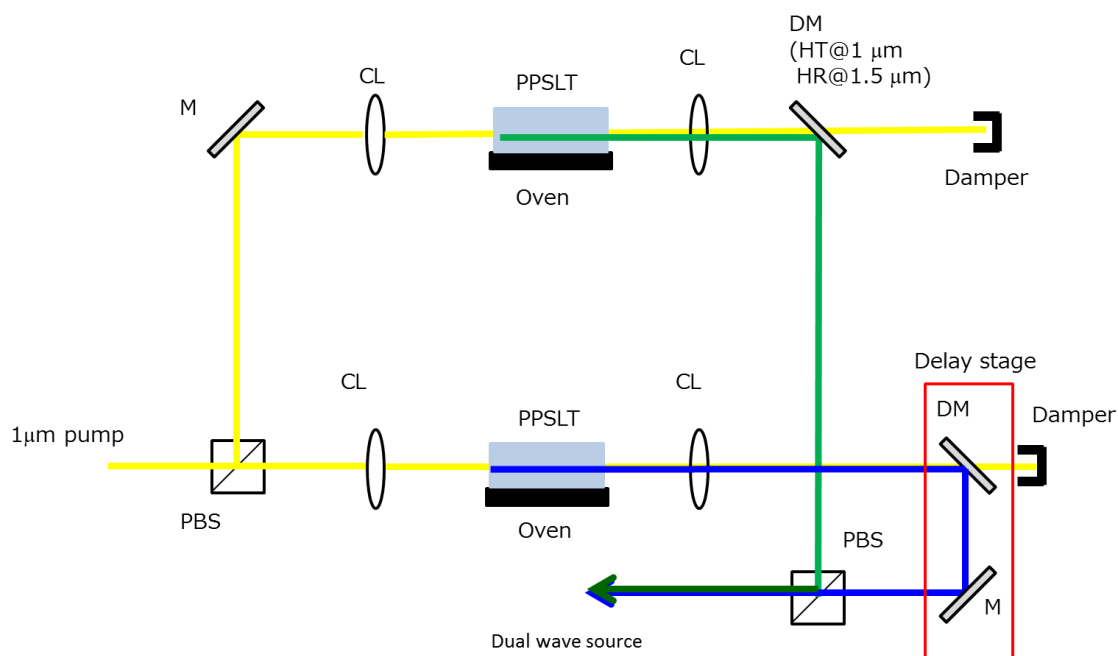


Fig. 4 - 12 光パラメトリック発生の実験系

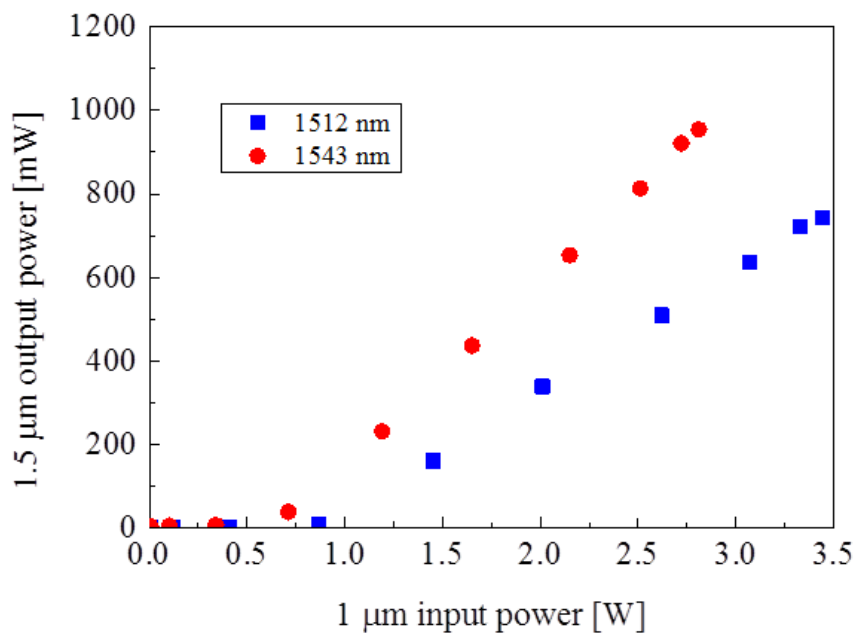


Fig. 4 - 13 光パラメトリック発生入出力特性

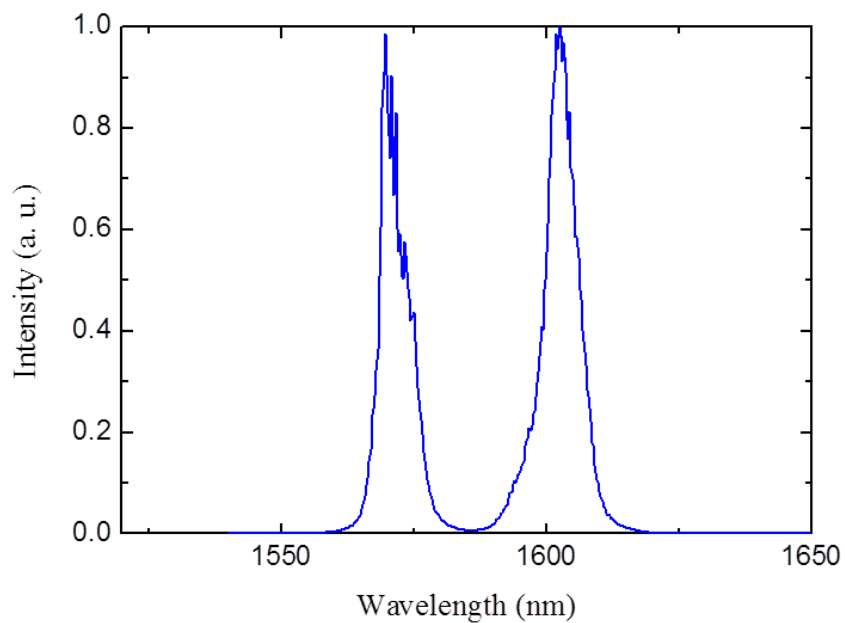


Fig. 4 - 14 光パラメトリック発生スペクトル特性

4.3.2 光パラメトリック増幅による線幅の狭帯化

前項で構築した PPSLT 結晶を用いた光パラメトリック発生光源では、差周波発生に十分な出力を得ることに成功したが、スペクトル線幅が広く、発生させる THz 波は単色の THz 波とは言い難い。THz 周波数帯において液体分光を行うには数百 GHz 程度に線幅を狭くする必要がある。そこで、光注入法による線幅の狭帯化を行った^{[10][11]}。光注入法では、線幅の細い微弱なレーザーをシード光としてポンプ光と同軸に非線形光学結晶に入射することで、非線形光学結晶内で光パラメトリック増幅を行う手法である。この手法を用いることで、シード光に引きずられ発振線のゲインが集中し、発振線幅が細くなることを期待できる。この時、シード光を入射する波長は光パラメトリック発生を中心波長に入射することが望ましい。そこで、高速な波長可変を実現するため、前項で述べた fan-out 構造を有する結晶の特性を利用し、ポンプ光の入射位置を変化させながら光注入を行った。

光パラメトリック増幅を行う実験系を Fig. 4 - 15 に示す。実験系は Fig. 4 - 12 の際とほとんど同様であるが、同軸に外部共振器型半導体レーザー (ECLD: Extra cavity laser diode) の光をシード光として、ポンプ光と同軸で PPSLT 結晶に入射した。このシード光は連続波であり、かつ波長が 1510 nm から 1640 nm の範囲で可変なものを使用した。

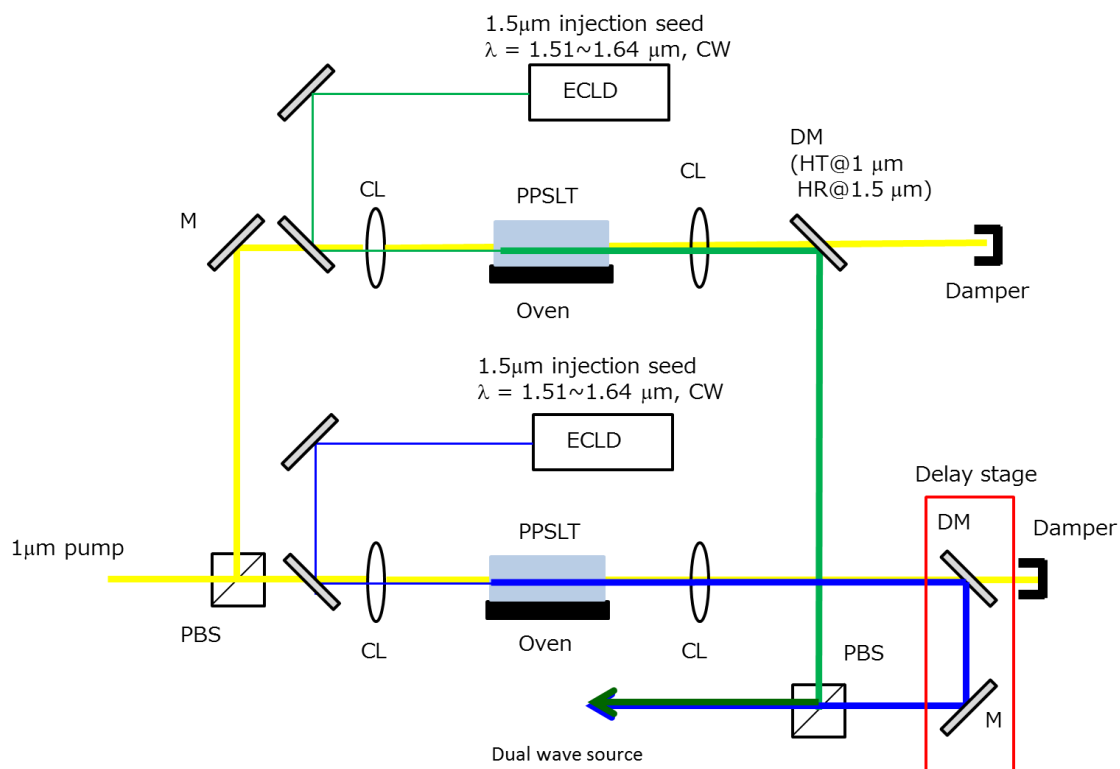


Fig. 4 - 15 光パラメトリック増幅実験系

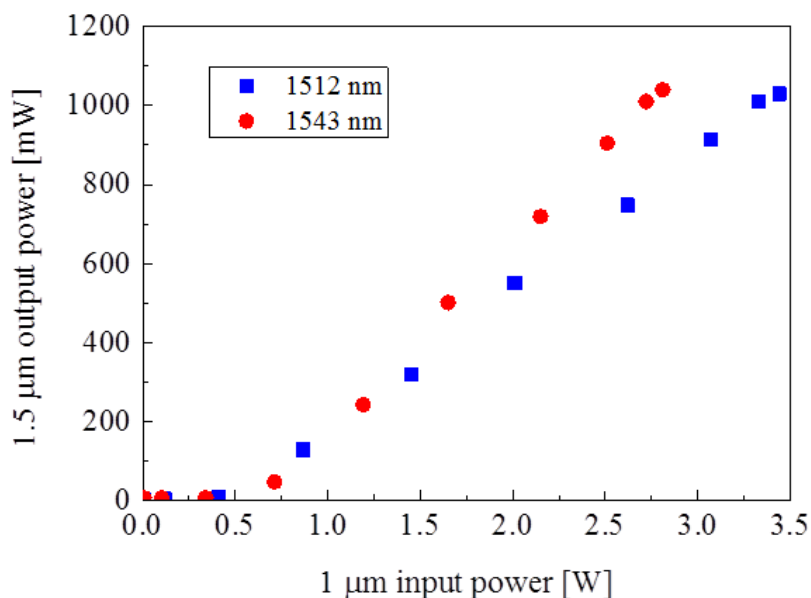


Fig. 4 - 16 光パラメトリック増幅の入出力特性

この実験系で得られた励起二波長光の入出力特性を Fig. 4 - 16 に示す。短波長側及び長波長側の波長は前節で発生させた光パラメトリック発生の際と同様であり，両者の中心波長にシード光の波長を合わせて入射した。光パラメトリック発生の際と比較して，発振閾値の低下及び出力の向上が確認できる。これはシード光によって励起光が効果的にアンプされたことを示している。

また，光パラメトリック増幅のスペクトル特性を光パラメトリック発生の際と比較した結果を Fig. 4 - 17 に示す。前節の光パラメトリック発生では，約 10 nm 以上 (1.2 THz 程度) の線幅であったが，線幅 0.1 nm 以下のシード光を光パラメトリック増幅した結果，得られた光の線幅は 0.9 nm (100 GHz 程度) と 10 分の 1 以下に狭窄化することができた。これにより発生する THz 波の線幅は約 200 GHz と見積もることができ，液体の分光に十分な線幅が得ることができた。この時，励起二波長光のスペクトル特性を Fig. 4 - 18 に示す。両者のバランスは良好であり，差周波発生による THz 波発生が可能であると判断した。

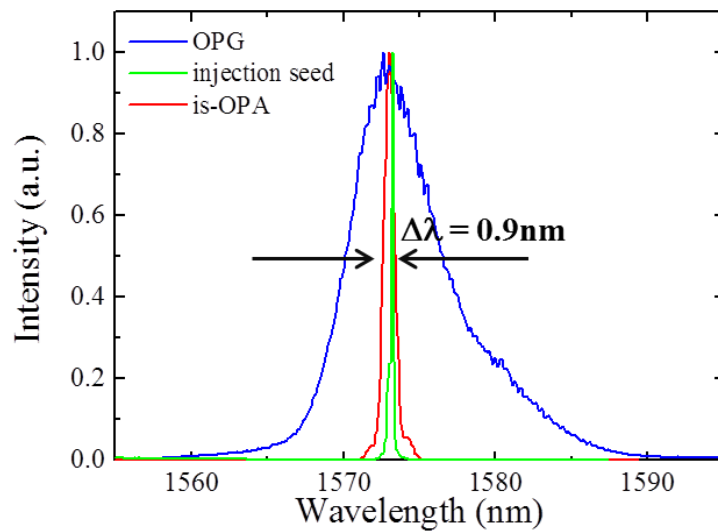


Fig. 4 - 17 スペクトル狭窄化の効果比較

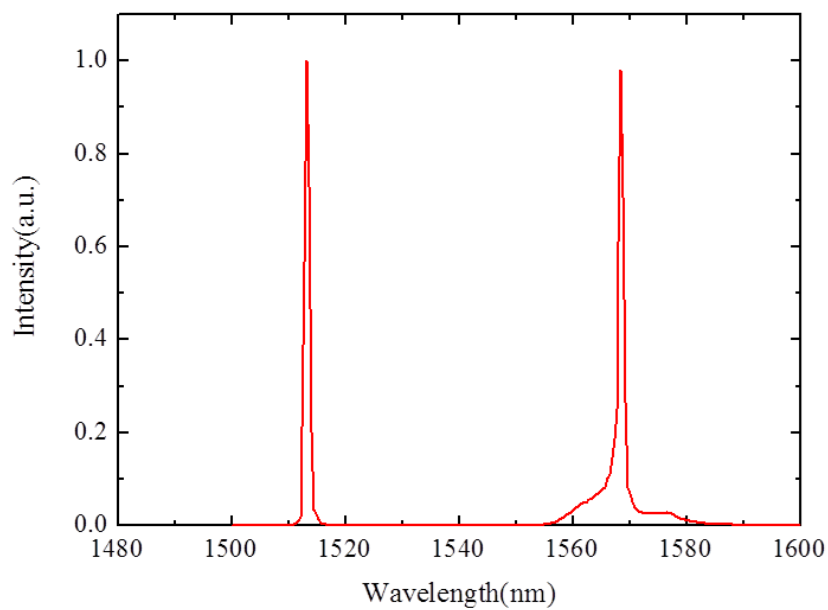


Fig. 4 - 18 光パラメトリック増幅のスペクトル特性

4.4 ピコ秒レーザーを用いた THz 波発生

本節では、前節で構築したピコ秒励起二波長光光源を用いて差周波発生による THz 波発生を行った^[12]。差周波発生による THz 波の発生には、第2章でも用いた有機非線形光学結晶である DAST 結晶を用いて確認した。

4.4.1 実験装置と実験方法

Figure 4 - 19 に DAST 結晶を用いて差周波発生を行う実験系を示す。前節で発生させた励起二波長光をレンズを用いて集光し、DAST 結晶に入射した。励起二波長光の偏光は半波長板を用いて、Fig. 2 - 16 に示す DAST 結晶の a 軸に平行になるように調整した。発生させた THz 波は放物面鏡を用いて集光し、液体ヘリウム温度まで冷却した Si-bolometer を用いて測定した。

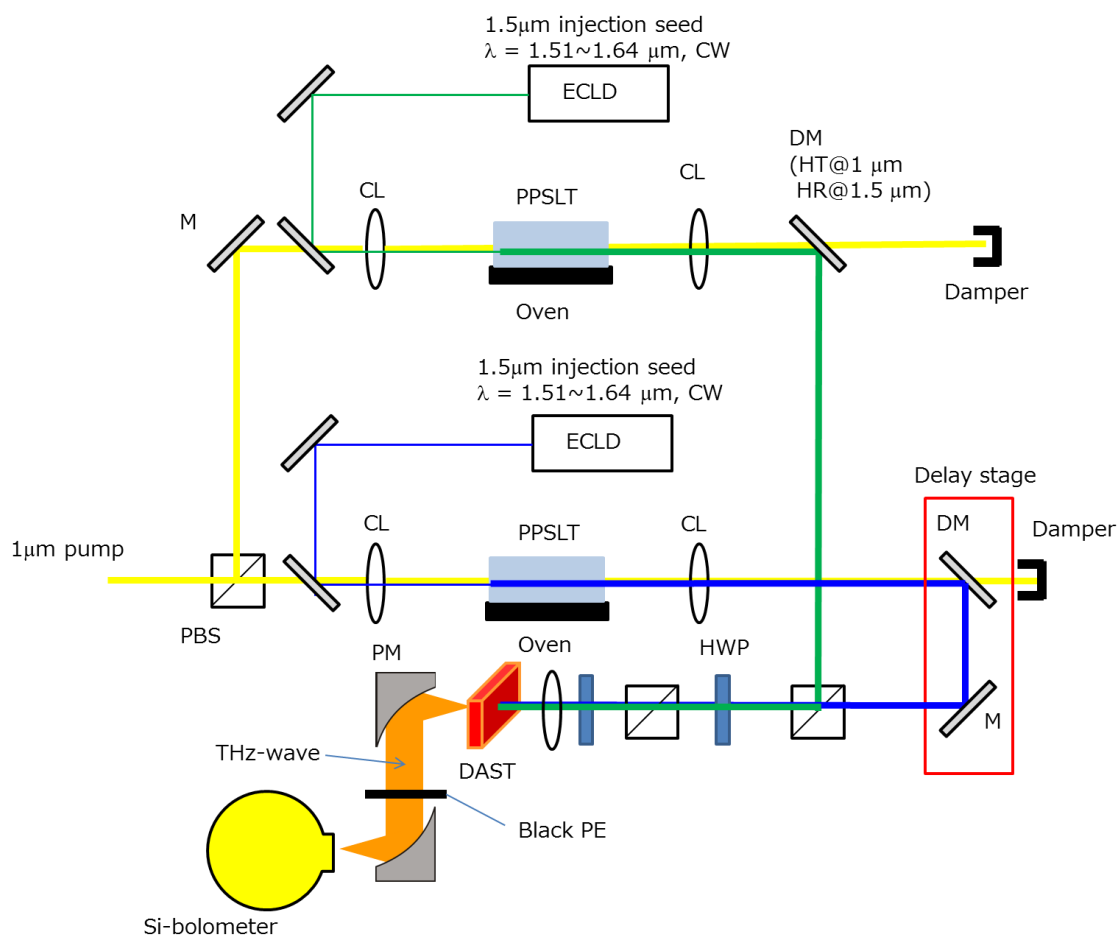


Fig. 4 - 19 差周波発生 THz 波発生実験系

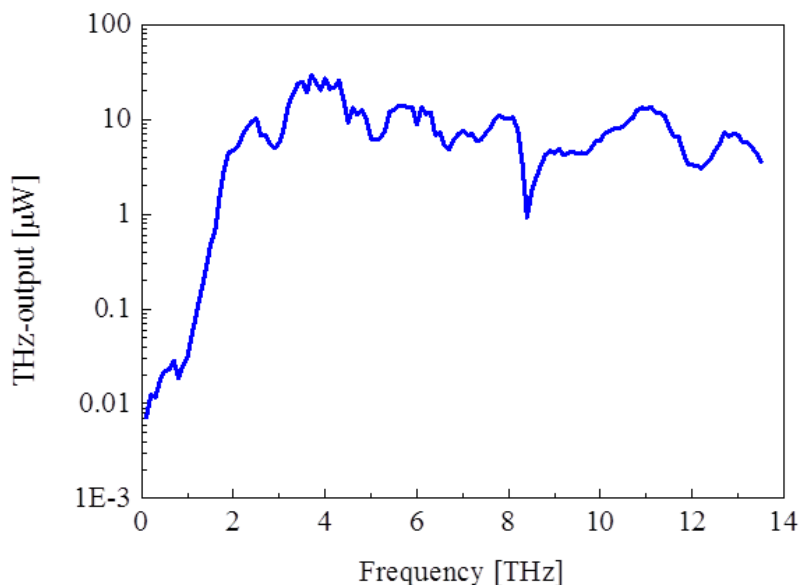


Fig. 4 - 20 DAST を用いた THz 波発生結果

4.4.2 実験結果と考察

Figure 4 - 20 に Fig. 4 - 19 を用いて得られた THz 波スペクトルを示す. 2 THz から 13.5 THz にわたり広帯域に THz 波が発生していることが確認できる. DAST 結晶に起因する吸収の影響は Fig. 2 - 22 に比べて鈍って見えるがこれは励起二波長光源の線幅によるものである. しかしながら, 8.4 THz の吸収のピークは明確に確認できることから, 液体の分光には十分な線幅であることがわかる. この結果から構築した光源により差周波発生による THz 波発生が可能であることを示しており, これにより本章で構築した励起二波長光源が分光応用に適用可能な光源であることを示した.

4.5 まとめ

本章では, 分光応用に向けて, レーザー光のパルス幅の変更を行った. 分光応用には高輝度・高繰り返し周波数の光源が望ましいことからこれをパルス幅がピコ秒の光源を構築することで実現した. まず, 高輝度・高繰り返しのポンプソースとして, 側面励起バウンズ増幅器を用いたピコ秒ポンプソースの構築を行い, 平均パワーが 8.9 W, 繰り返し周波数が 1 MHz, ピークパワー 1.2 MW の高輝度・高繰り返しのポンプソースの作製に成功した. 次に, このポンプソースを利用したタンデム配置の光パラメトリック発生により, 広帯域に波長可変な励起二波長光の作製を行った. この光源では, パルス幅がナノ秒からピコ秒

に変わることで、スペクトル線幅が増加し、差周波発生において、発生する THz 波の線幅が太くなるという問題が生じた。そこで、光注入法により、線幅の狭窄化を行い、線幅を 10 分の 1 以下（約 100 GHz）にすることに成功した。これにより、十分に液体の分光に必要な線幅を満たす励起二波長光源の構築に成功した。次に、この光源を用いた DAST 結晶による THz 波発生を行い、2 THz から 13.5 THz にわたり広帯域に THz 波の発生を確認することができた。この結果、構築した励起二波長光源が差周波発生に適した光源であることを確認した。

参考文献

- [1] レーザー学会編: "先端固体レーザー" オーム社 p.47-57 (2011).
- [2] Y. Sato, and T. Taira: IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron, **1** 613 (2005).
- [3] T. Yoshino, H. Seki, Y. Tokizane, K. Miyamoto and T. Omatsu, J.Opt.Soc.Am.B, **30** 894 (2013).
- [4] K. Nawata, M. Okida, K. Furuki, K. Miyamoto and T. Omatsu, Opt. Exp. **17** 20816 (2009).
- [5] M. Koichi, K. Miyamoto, S. Ujita, T. Saito, H. Ito and T. Omatsu, Opt. Exp. **19** 18523 (2011).
- [6] N. Yu, S. Kurimura, Y. Nomura and K. Kitamura: JJAP, **43** L1265 (2004).
- [7] A. Bruner, D. Eger, M. B. Oron, P. Blau and M. Katz: Opt. Lett. **28** 194 (2003).
- [8] P. E. Powers, T. J. Kulp, and S. E. Bisson: Opt. Lett. **23** 159 (1998)
- [9] A. V. Smith: SNLO nonlinear optics code available from A. V. Smith, AS-Photonics, Albuquerque, NM
- [10] K. Miyamoto, A. Lee, T. Saito, T. Akiba, K. Suizu and T. Omatsu: Appl. Phys. B, **110** 321 (2013).
- [11] P. E. Powers, R. A. Alkuwari, J. W. Haus, K. Suizu, and H. Ito: Opt. Lett. **30** 640 (2005).
- [12] K. Miyamoto, K. Suizu, T. Akiba, and T. Omatsu: Appl. Phys. Lett. **104** 261104 (2014).

第5章 テラヘルツ・エバネッセント波を用いた 光検出による分光法の検討

5.1 はじめに

前章までにおいて、新規分光法に必要な要素技術を確認した。本章では、この要素技術を応用した新しい分光法の提案・実証を目指す。

現在、THz波を用いた分光法として広く用いられている分光法はTHz波時間領域分光法(THz-time domain spectroscopy THz-TDS)である^{[1][2]}。THz-TDSでは電磁波の時間波形そのものを計測することができることから、振幅と位相の両方をまとめて取得できるという特徴を持つ。しかしながら、この分光方法は光伝導スイッチや光学遅延ステージなどの装置が必要であり、実験系が複雑となるといった問題点や一回の測定時間が数分必要なことからリアルタイムで変化する物質の測定には向かないといったデメリットを有しており、コスト面やハンドリング面からみて産業応用に適しているとは言い難い。このデメリットを補う分光法として、非線形光学結晶を用いた単色光源による分光法が開発されている^{[3][4][5]}。この分光法はTHz-TDSに比べて、装置が小型、簡便、堅牢であり、産業応用に適した大きな魅力を持つ。しかし、この方法で高感度計測を行うには、4 Kまで冷却した特殊な測定装置が必要となり、常温での高感度測定は難しいことから、この点が産業応用へのボトルネックとなっていた。そのため、室温での高感度検出が可能なテラヘルツ分光技術の開発が待ち望まれている。そこで、本章では励起光とTHz波の相互作用を利用した新しい分光法の提案を行い、この分光法を実験的に検証した^{[6][7]}。

5.2 テラヘルツ・エバネッセント波分光の原理

5.2.1 テラヘルツ・エバネッセント波発生原理

新規分光法では、第3章で述べたチェレンコフ位相整合を用いてTHz波を発生させる。チェレンコフ型位相整合方式の模式図をFig. 5-1に示す。第3章で示した通り、LiNbO₃結晶を用いたチェレンコフ位相整合ではTHz波は式(3-2)より約66度で結晶内を伝搬し、結晶界面に到達する。この時、結晶界面に存在する物質の屈折率でTHz波がその後どのように伝搬するか決まる^[8]。もし、結晶界面に存在する物質の屈折率が2.2よりも小さい場合、THz波は結晶界面にて全反射を受け、再び結晶内部へと伝搬することになる。また、結晶

界面に存在する物質の屈折率が 2.2 よりも大きい場合，THz 波はスネルの法則に従い伝搬する．結晶界面が空気の場合，空気の屈折率はおよそ 1 なので，THz 波は全反射を受ける．

ここで，THz 波が非線形光学結晶である LiNbO₃ 結晶から空気へと伝搬する際，二つの物質界面にて，THz 波の全反射が起こる場合を考える．THz 波は全反射といえども完全に空気内部に侵入しないわけではなく，式 (5-1) に示す長さ l 程度，空気の界面に局在することになる^[9]．

$$l = \left(\frac{\omega_{THz}}{c} \sqrt{n_{THz}^2 \sin^2 \theta - n^2} \right)^{-1} \quad (5-1)$$

n は結晶界面に存在する物質の屈折率である．式 (5-1) で表される長さ（侵入長）分，空気の界面に局在し伝搬しない波をエバネッセント波という．本研究ではこのエバネッセント波を分光に用いた．空気の際の侵入長を計算すると THz 波の周波数が 1 THz の時，侵入長は約 25 μm となる．

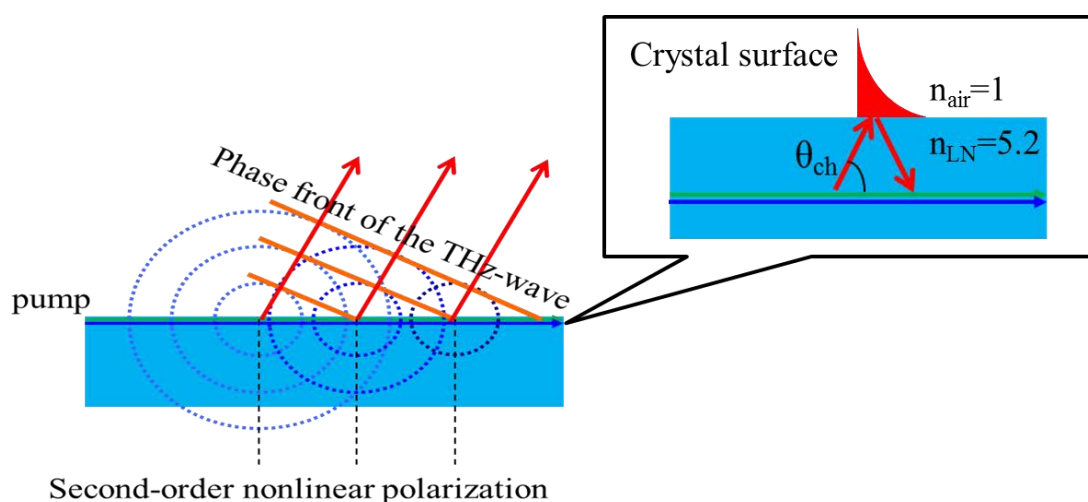


Fig. 5 - 1 チェレンコフ位相整合方式における THz 波の伝搬

5.2.2 テラヘルツ・エバネッセント波分光の原理

次に、このテラヘルツ・エバネッセント波をどのようにセンシングに利用するかを述べる。エバネッセント波の存在する領域にサンプルが存在するとエバネッセント波はサンプルの影響を受け、位相ずれや振幅減衰といったサンプルの複素誘電率に起因した変化を生じる。したがって、全反射された THz 波はこのサンプルの複素誘電率の情報をもつことになる。この原理を利用した方法が THz 全反射減衰分光法として報告されている^{[10][11]}。この方法では、全反射後、再び伝搬してきた THz 波を検出して、分光を行っているが、本研究では、この反射 THz 波の持つサンプルの複素誘電率の情報を THz 波を直接検出することなく、得ようと考えた。そこで、反射された THz 波の動きに着目すると、反射された THz 波は結晶内部を再び伝搬し、異なるタイミングで発生した THz 波の非線形分極と干渉する。この干渉の影響で、THz 波の電場の振幅は変化する。この現象を差周波発生における結合波方程式で考えてみると、結合波方程式は式 (5-2) のように表される。

$$\begin{aligned}\frac{\partial A_p}{\partial z} &= i \frac{\omega_p}{n_p c} d_{\text{eff}} A_s A_{\text{THz}} \exp(ikz), \\ \frac{\partial A_s}{\partial z} &= i \frac{\omega_s}{n_s c} d_{\text{eff}} A_{\text{THz}}^* A_p \exp(-ikz), \\ \frac{\partial A_{\text{THz}}}{\partial z} &= i \frac{\omega_{\text{THz}}}{n_{\text{THz}} c} d_{\text{eff}} A_p A_s^* \exp(-ikz),\end{aligned}\tag{5-2}$$

ここで、 A_p, A_s, A_{THz} はポンプ、シグナル、THz 波のそれぞれの複素振幅、 c は光速、 d_{eff} は非線形光学結晶の非線形光学定数である。この式から、THz 波の電場の変化は励起光それぞれの電場の変化につながっていることがわかる。つまり、サンプルの影響で THz 波の電場が変化すると、その影響で励起光の電場も変化するのである。この関係を差周波発生のエネルギー保存則から見てみると、Fig. 5-2 のようになる。角周波数 ω_p の光子一つが角周波数 ω_s の光子一つと角周波数 ω_{THz} の光子一つに変換されることから、角周波数 ω_p の光子が増加すると、他の二つの光子は減少し、角周波数 ω_p の光子が減少すると他の二つの光子は増加することがわかる。この光子数の変化が励起光の強度の違いにつながるのである。そこで、我々は励起光の強度差を測定することで、エバネッセント波を介した THz 周波数帯の分光が可能になると考えた。この方法の考え方をまとめると Fig. 5-3 のようになる。Figure 5-3 より以下の手順で分光が可能となると考えられる。

- ① チェレンコフ位相整合方式により THz 波が発生
- ② THz 波が結晶内部を伝搬し、結晶界面で全反射し、テラヘルツ・エバネッセント波が発生
- ③ エバネッセント波の定在する領域にサンプルが存在するとサンプルの影響でエバネッセント波に振幅変化・位相変化が生じる

- ④ サンプルの影響を受けた THz 波が再び結晶内を伝搬し、異なるタイミングで発生した THz 波に干渉し、THz 波の振幅に変化が生じる
- ⑤ THz 波の振幅の変化に起因して、励起二波長光の振幅に変化が生じる
- ⑥ 励起二波長光の振幅の変化を励起二波長光の強度差として検出することで THz 周波数帯での分光を行う

この方法では、検出が THz 波ではなく、励起光である近赤外光になることから、THz 波検出に用いられる極低温を必要とする検出器ではなく、近赤外周波数帯の常温で高感度な検出器を用いることができ、エバネッセント波を介した分光であることから、サンプルの形状によらない測定が期待できる。

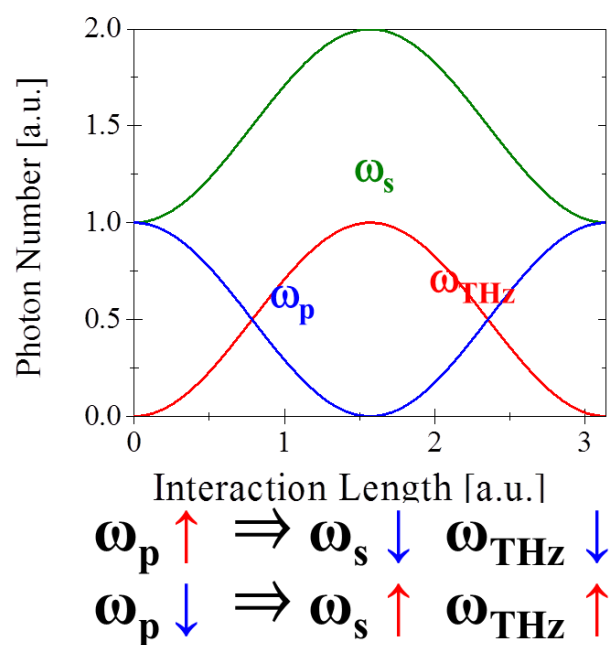


Fig. 5 - 2 差周波発生におけるエネルギー保存則

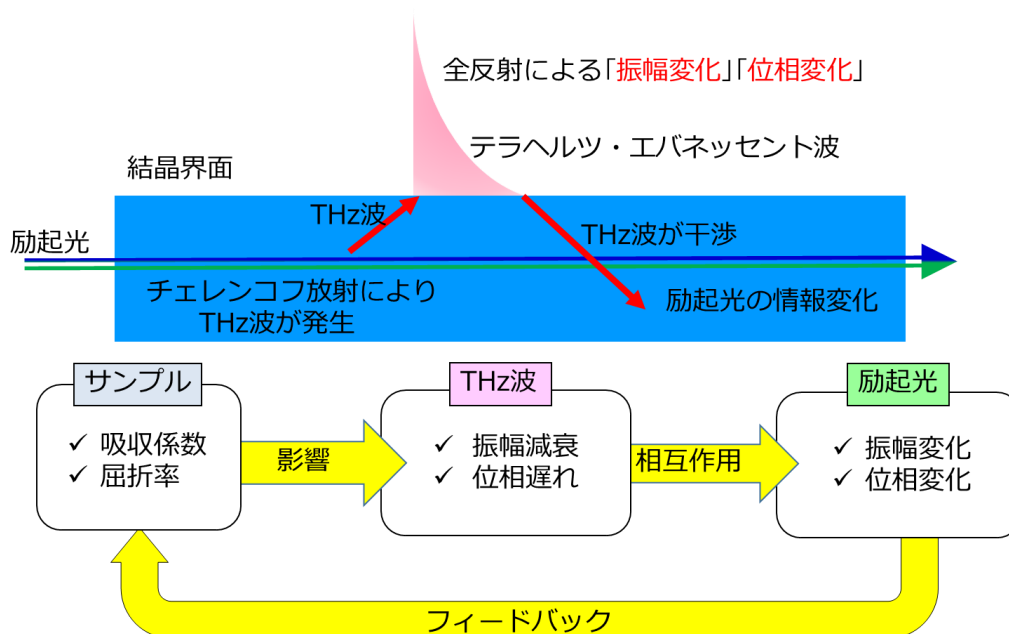


Fig. 5-3 テラヘルツ・エバネッセント波分光の分光スキーム

5.3 テラヘルツ・エバネッセント波を用いた光検出によるセンシング

5.3.1 実験装置と実験方法

テラヘルツ・エバネッセント波を用いた分光法の検討を行う前に、本方式の可能性を検討する目的で、単一周波数によるセンシングを行った。テラヘルツ・エバネッセント波を用いたセンシングの実験系を Fig. 5-4 に示す。第4章にて構築したピコ秒励起二波長光源を励起光とした^{[12]-[15]}。励起光はパルス幅 7.4 ps, 励起光パワー600 mW, 波長可変域は 1510 ~1640 nm であった。励起光は、エバネッセント波の侵入長も考慮し、 $\lambda_p=1569$ nm, $\lambda_s=1581$ nm に調整し、差周波数は 1.45 THz で行った。この時、THz 波の波長は 206 μm である。THz 波発生用の非線形光学結晶には、結晶サイズ $5 \times 65 \times 6$ mm³ の MgO:LiNbO₃ 結晶を用い、励起光が入射する結晶 x 面及び y 面の両端は鏡面研磨加工した。また、励起光は $f = 50$ mm の単焦点レンズで集光し、MgO:LiNbO₃ 結晶に入射した。テラヘルツセンシングを行う前に、THz 波が発生していることを確かめる為、結晶 y 面に Si プリズムを圧着し、液体ヘリウム温度まで冷却した Si-bolometer にて THz 波の出力を測定した。次に、テラヘルツセンシングを行う為、MgO:LiNbO₃ 結晶を透過した励起光を単焦点レンズを用いてコリメートし、

回折格子により空間的に分離した。空間的に分離した励起光は、近赤外光用のバランスディテクタで強度差を測定した。測定はサンプルを $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ 結晶に近づけていき、励起光の強度差を距離の関数として測定した。測定は励起光をおよそ 300 Hz でチョッピングし、ロックインアンプにて検出感度の向上を図った。

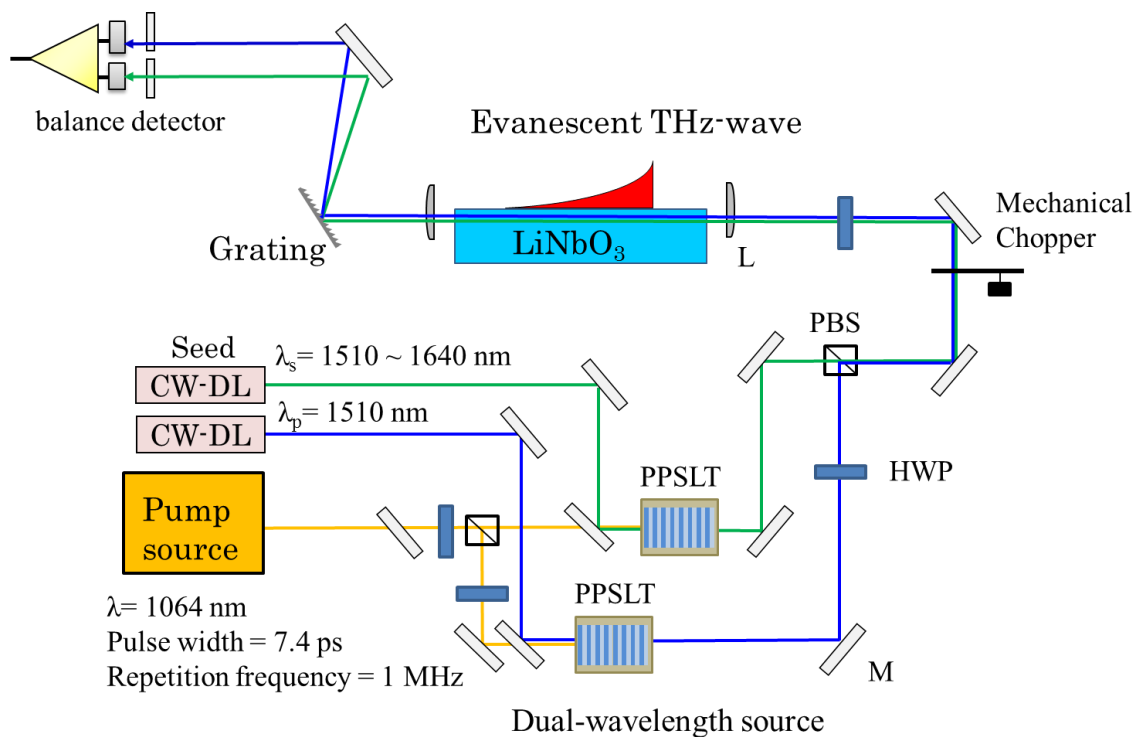


Fig. 5 - 4 テラヘルツ・エバネッセント波を用いたセンシング実験装置の概略図

5.3.2 実験結果と考察

始めに、テラヘルツ・エバネッセント波センシングの準備として、THz波の発生の確認を行った。液体ヘリウム温度まで冷却した Si-bolometer の電氣的利得を 1000 とした時、Si プリズムカップリングを介して、得られた THz 波出力は約 300 mV であった^[16]。この様に、THz 波の発生を外部取り出しにより確認した後、Si プリズムを撤去することで THz 波を結晶内で全反射させることができる。次に、Si プリズムを LiNbO₃ 結晶に徐々に近づけていった時の THz 波出力とバランスディテクタの出力を測定した。測定のイメージを Fig. 5-5 に示す。結果を Fig. 5-6 に示す。この測定を行う際、Si プリズムが結晶端面から十分に離れている状態（結晶端面には空気が接している状態）をリファレンスとして定めた。また、同時に、この時のバランスディテクタの出力が 0 になるように実験系を構築した。Figure 5-6 のグラフは Si プリズムカップリングによる THz 波の取り出し出力と励起二波長光の強度差出力の距離依存性を示している。このグラフの横軸が LiNbO₃ 結晶とサンプルである Si 間の距離を、左の縦軸が THz 波の出力、右の縦軸がバランスディテクタの出力である励起二波長光の強度差を表す。THz 波の取り出し出力と励起二波長光の強度差出力の両方において、エバネッセント波の指数関数的な減少に対応した出力を示しており、テラヘルツ・エバネッセント波の存在を示す結果となっている。また、Fig. 5-6 からサンプルの距離が 0 μm 時点において、励起二波長光の強度差出力において大きな変化が確認できる。この結果からサンプルによるテラヘルツ・エバネッセント波の変化が励起光の変化を引き起こしており、この新しいセンシング方法が可能であることを示している。

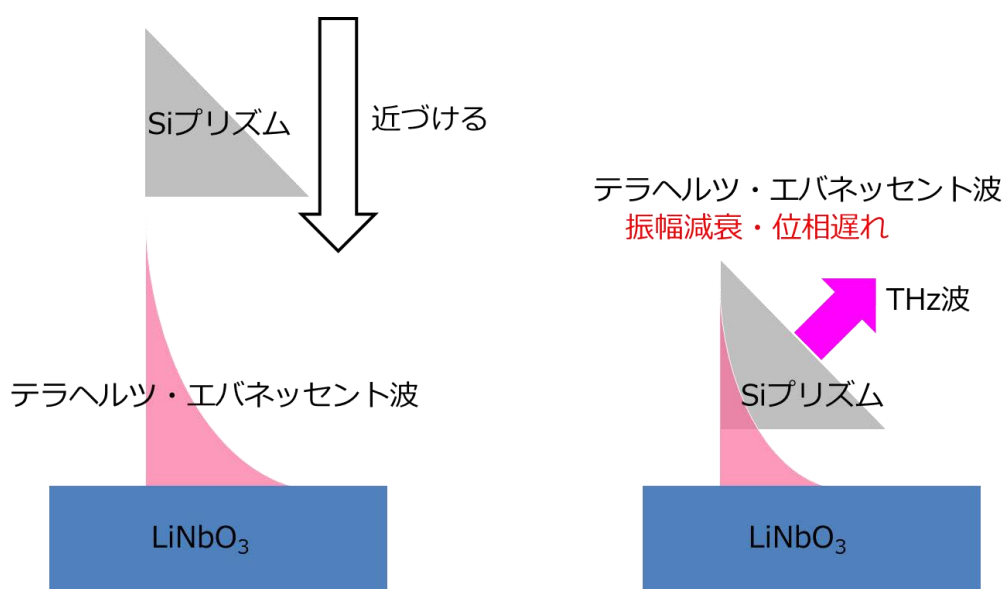


Fig. 5-5 測定イメージ

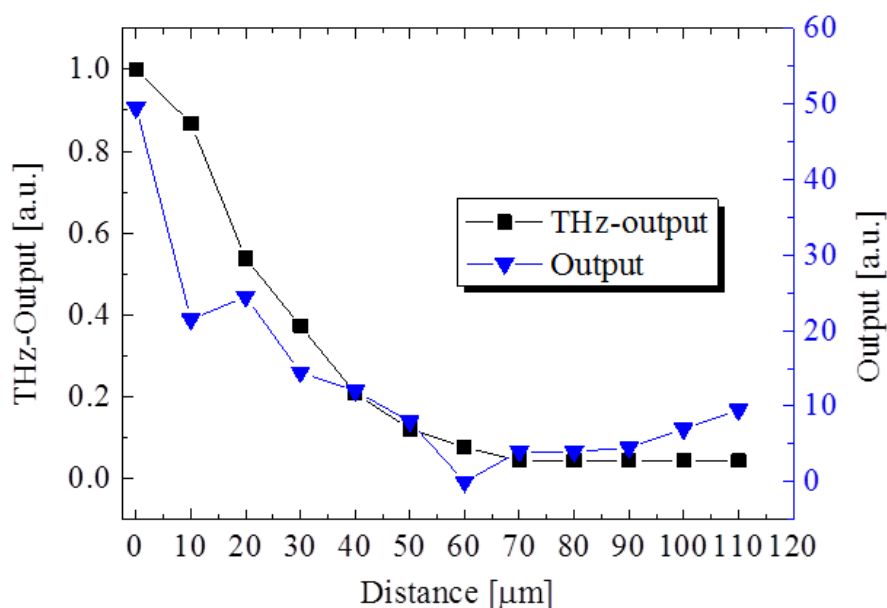


Fig. 5 - 6 エバネッセント波センシングによる Si の測定結果

次に、テラヘルツ・エバネッセント波センシングで3種類のサンプルを測定した結果を、Fig. 5 - 7に示す。サンプルは、金属として銅、誘電体としてガラスと THz 周波数波帯で透明なプラスチックを測定した。Figure 5 - 7のグラフ横軸は結晶端面からのサンプルの距離、縦軸はバランスディテクタの出力を示しており、縦軸のプラス方向が式(5-2)における A_s が増加していることを示す。Figure 5 - 7からテラヘルツ・エバネッセント波の侵入長を確認することができる。バランスディテクタの出力は、サンプルがテラヘルツ・エバネッセント波の存在する領域にある間、サンプルの距離に応じて変化している。これを式(5-1)に当てはめて考えてみると、THz波の周波数が1.45 THz、MgO:LiNbO₃結晶のTHz周波数帯の屈折率が5.1であることから、侵入長 $l=16.8 \mu\text{m}$ である。銅のサンプルとガラスのサンプルにおいて、この計算結果より算出した指数関数的な減衰と実験値を比較した結果を Fig. 5 - 8に示す。この図より、本研究の実験結果が理論計算から導かれる指数関数的な減少とよく一致していることがわかる。また、それぞれのサンプルの実験結果から、三つのサンプルには明確な違いがあることが見て取れる。金属は負の出力を示しているのに対し、誘電体は正の出力を示している。これは、金属でTHz波が反射された際、反射されたTHz波の位相が反射前の位相に比べて、反転することに起因する。金属でTHz波が反射された場合、位相が反転したTHz波が異なるタイミングで生成されたTHz波に干渉することにより、THz波の電場は打ち消しあうことになる。これにより、THz波の電場は減少する（つまり、 A_{THz} が減少する）。したがって、サンプルが金属の場合、 A_p が増加する。一方、THz波が誘電体で反射された場合、反射されたTHz波の位相のずれは小さい。それゆえ、反射されたTHz

波と異なるタイミングで生成された THz 波との位相差は小さく，これら二つの電場の足し合わせが THz 波の電場になることから， A_{THz} は増加する．つまり，サンプルが誘電体の場合， A_s が増加する．以上から，我々は，テラヘルツ・エバネッセント波の存在する領域にサンプルを近づけることで，THz 周波数帯でのサンプルの持つ光学定数の情報を，テラヘルツ・エバネッセント波を介して励起光である近赤外光に転写して確認することができた．この近赤外光の測定における明確な違いは金属と誘電体の複素誘電率の差が影響していると考えられる．

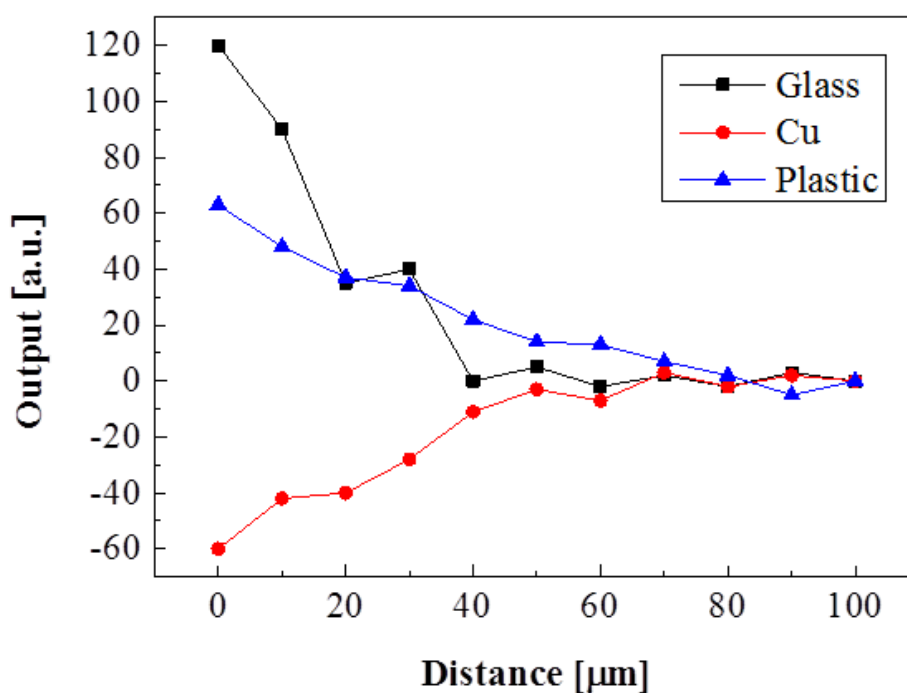


Fig. 5 - 7 エバネッセント波センシングによる距離依存性

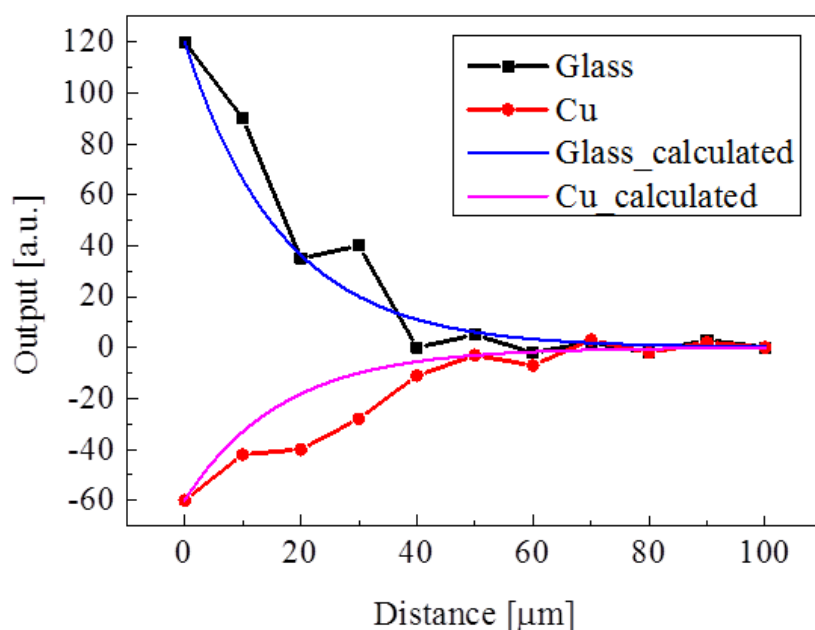


Fig. 5-8 指数関数的減少の計算結果と実験値の比較

本センシング法により，サンプルの複素誘電率の導出を行うには，励起光の変化の絶対値が必要である．励起光の変化の絶対値は THz 波の強度，サンプルの複素誘電率，サンプルとテラヘルツ・エバネッセント波の接触面積で決定されることから，サンプルを結晶端面に完全に密着させる必要がある．しかしながら，固体サンプルを測定する際，結晶とサンプルの完全な密着は困難であり，もし，固体のサンプルを測定する場合，サンプルの表面状態が重要である．サンプルの表面状態が悪い場合，励起光の変化が減少することになる．本研究での測定では，金属として使用した銅の表面状態がわるく，テラヘルツ・エバネッセント波との接触面積が減少し，結果として，励起光の変化の絶対値が減少した．そのため，今回の測定では，複素誘電率そのものを計算から導くことはできなかった．そこで，今後の予定として，表面状態の良い固体サンプルを用いることで，本センシング方法にて，THz 周波数帯での複素誘電率の測定が可能になると考えている．さらに，今後の展望として，チェレンコフ位相整合に用いる結晶に導波路構造を取り入れることで，サンプルとテラヘルツ・エバネッセント波の接触面積の増加が可能になり，金属同士の複素誘電率の差の測定が可能になると考えられる．

また，本センシング法の SN 比を従来の分光法と比較すると，極低温まで冷却して使用する Si-bolometer を用いた単色 THz 波による分光では，SN 比が 3 桁程度であるのに対し，本センシング法では常温で 2 桁を達成した．本センシング法の感度には，励起二波長光源の安定性が関係しており，励起二波長光源の安定性の向上により，更なる高感度化が期待できると考えられる．

5.4 テラヘルツ・エバネッセント波を用いた

リアルタイムセンシング

前節において、テラヘルツ・エバネッセント波によるセンシングを行い、サンプルの複素誘電率の違いによる測定結果の相違を確認することに成功した。本節では、本センシング法の更なる可能性を確認するため、測定物のリアルタイム変化の測定を行った。

5.4.1 実験装置と実験方法

構築した実験系は Fig. 5 - 4 と同じ実験系を用いた。測定は Labview を用いてロックインアンプの時定数である 30 ms と同期して測定した。励起二波長光の出力は 300 mW であった。

5.4.2 実験結果と考察

リアルタイムセンシングのサンプルとして Si を測定した結果を Fig. 5 - 9 に示す。励起二波長光の波長は $\lambda_p=1512$ nm, $\lambda_s=1524$ nm であり、THz 波の周波数は 1.5 THz であった。横軸は THz 波周波数、縦軸はバランスディテクタの出力である。Figure 5 - 9 から Si プリズムがエバネッセント波の存在する領域にコンタクトした瞬間にバランスディテクタの出力に変化が生じていることがわかる。この結果から本センシング法の測定応答時間が THz-TDS に比べて非常に短く、かつ秒単位で測定できることがわかる。また、本センシング法の出力の応答を決めている要因は測定に用いるロックインアンプの時定数が支配的であり、この時定数を短くすることで、高速応答性が確保でき、また時定数を長くすることで、測定の SN 比を向上できる。つまり、測定サンプルの要求する時間応答性併せて最適な時定数を選定することで、測定対象に合わせた測定が可能となる。

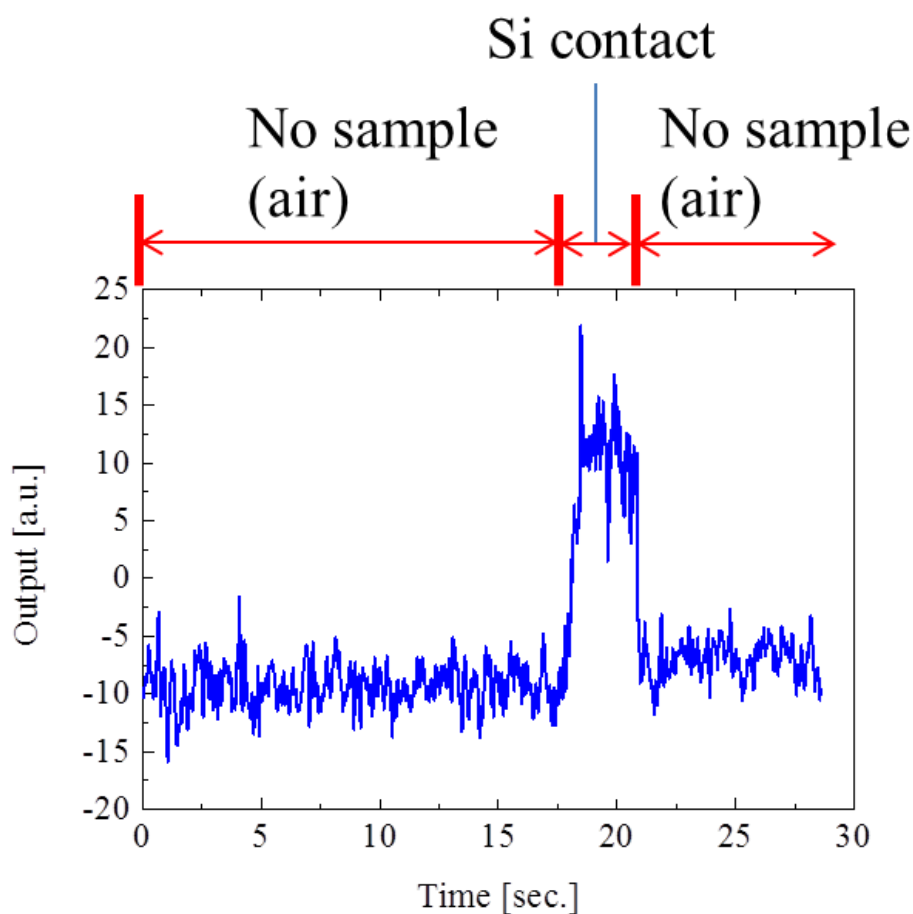


Fig. 5-9 Si のリアルタイムセンシング結果

次に、サンプルの状態がリアルタイムに変化するケースを想定し、常温で蒸発するエタノールをサンプルとして測定した。その結果を Fig. 5-10 に示す。この図より、エタノールがエバネッセント波の定在する領域にコンタクトした瞬間に複素誘電率の変化からバランスディテクタの出力は正方向に振れ、エタノールの蒸発に伴う複素誘電率の変化からバランスディテクタの出力が負方向に変化する様子が見取れる。この結果はサンプルが常に変化していく化学変化や状態変化の様子を THz 周波数帯でセンシングできることを示している。また、エタノールが完全乾燥後、バランスディテクタの出力が 0 に戻っていないが、これはエタノール塗布による結晶表面の汚れの凝縮および励起二波長光源の揺らぎなどが考えられる。

以上の結果から、本センシング法ではサンプルのリアルタイムでの状態変化を THz 周波数帯で観測できることから THz 周波数帯で観測が難しかった水和物の状態変化等への応用が期待できると考えられる。

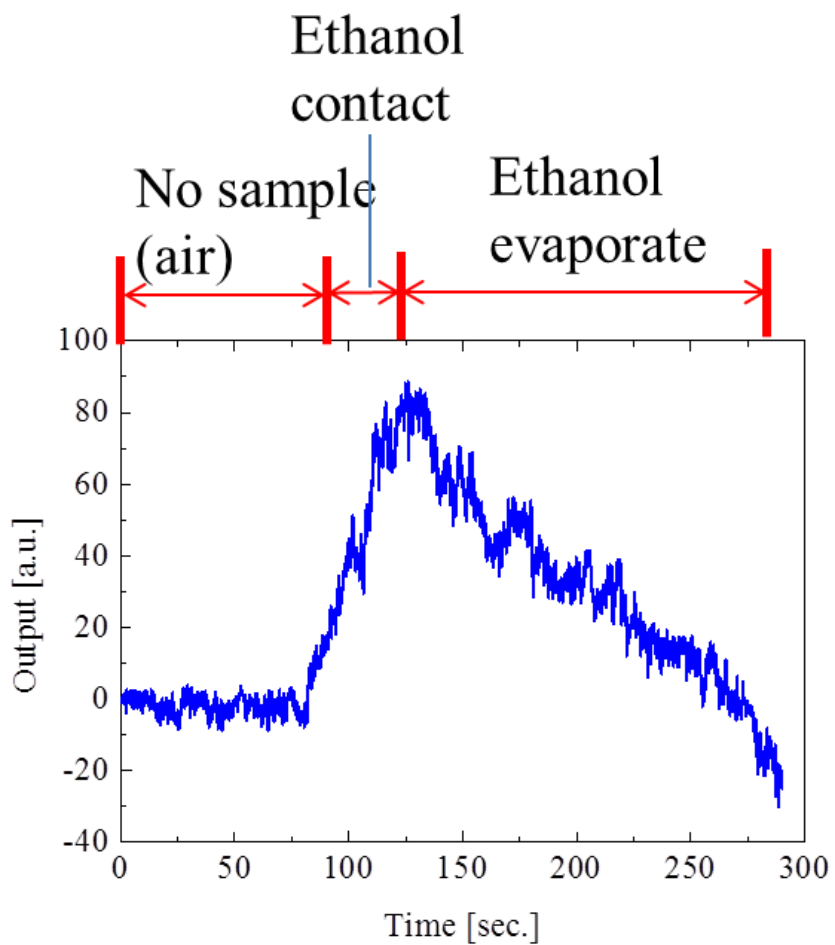


Fig. 5-10 エタノールのリアルタイムセンシング結果

5.5 テラヘルツ・エバネッセント波を用いた分光計測

前節において、テラヘルツ・エバネッセント波を用いたセンシングの高速な時間応答について実験的に示した。本節では、このセンシング法を応用し、発生させる THz 波の波長を掃引することで、分光が可能となることを確認した。

5.5.1 グレーティングペアを用いた実験系

センシングから分光へと応用する際、考慮しなければならないのが、励起二波長光の波長掃引に伴う光路のズレである。テラヘルツ・エバネッセント波を利用した分光では、励起二波長光をグレーティングにより空間的に分離し、その光をバランスディテクタにカップリングしている。そのため、波長が変化することで、励起光の伝搬角度が変わるという問題点がある。波長掃引に伴う大幅な光路のズレは検出器への光の入射が不可能となり、分光が困難になってしまう。そこで、本研究では、Fig. 5 - 4 に示した実験系を改良し、波長掃引に対応できるようにグレーティングペアによる光路のズレの補償を行った。グレーティングペアによる補償では Fig. 5 - 11 に示すようにグレーティングを2つ使用することで、励起二波長光の波長が変化しても角度が変化することなく励起二波長光が平行に取り回すことが可能となる。平行に伝搬する光であればレンズの集光を行うことで、検出器へのカップリングが可能となり、分光を行うことができる。

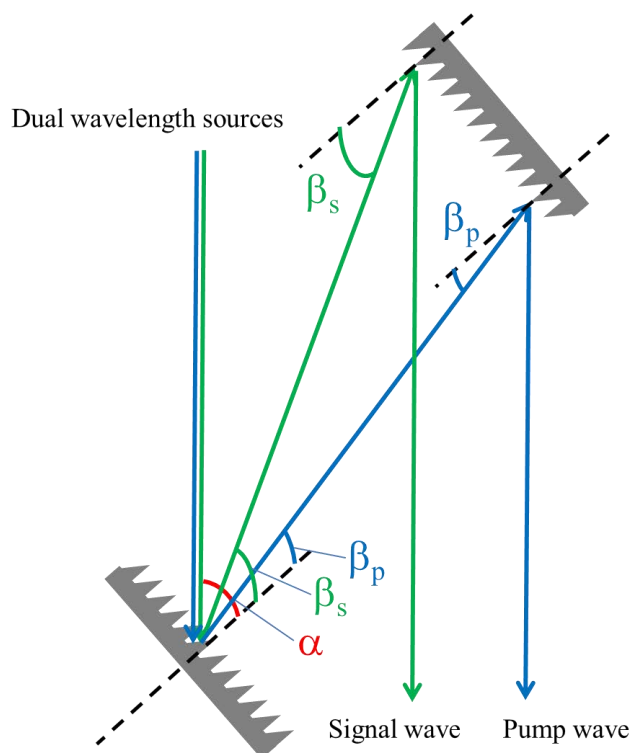


Fig. 5 - 11 グレーティングペアによる光路の補償

実際に構築した実験系を Fig. 5 - 12 に示す. この図からわかるようにグレーティングペアで光路の角度ズレを解消し, レンズで集光することで, 検出器へのロスを減らし, 分光を可能にした. また, 本実験系では, グレーティングの本数を決定する際, グレーティングの物理的な大きさの制限及び実験に使用する励起二波長光の波長などから条件として下記を考慮した.

- ① 励起二波長光の入射角度 (α) よりも一次回折光 (β_p, β_s) が小さい
- ② グレーティングの使用可能な実効的な面積 (グレーティングの面積 $\times \cos \alpha$) が大きい
- ③ β_p と β_s の差が大きい

これらを考慮し, 式 (5-3) に表されるグレーティング方程式よりグレーティングの本数は $N = 900$ 本/mm を採用した.

$$\sin \alpha + \sin \beta = Nm\lambda \tag{5-3}$$

ここで, N はグレーティングの本数, m は回折光の次数を示している. THz 波の波長掃引はシグナル光に注入する ECLD の波長を掃引して行った. 測定はロックインアンプの時定数 30 ms で THz 波の周波数は 1.0 ~ 2.0 THz まで掃引した.

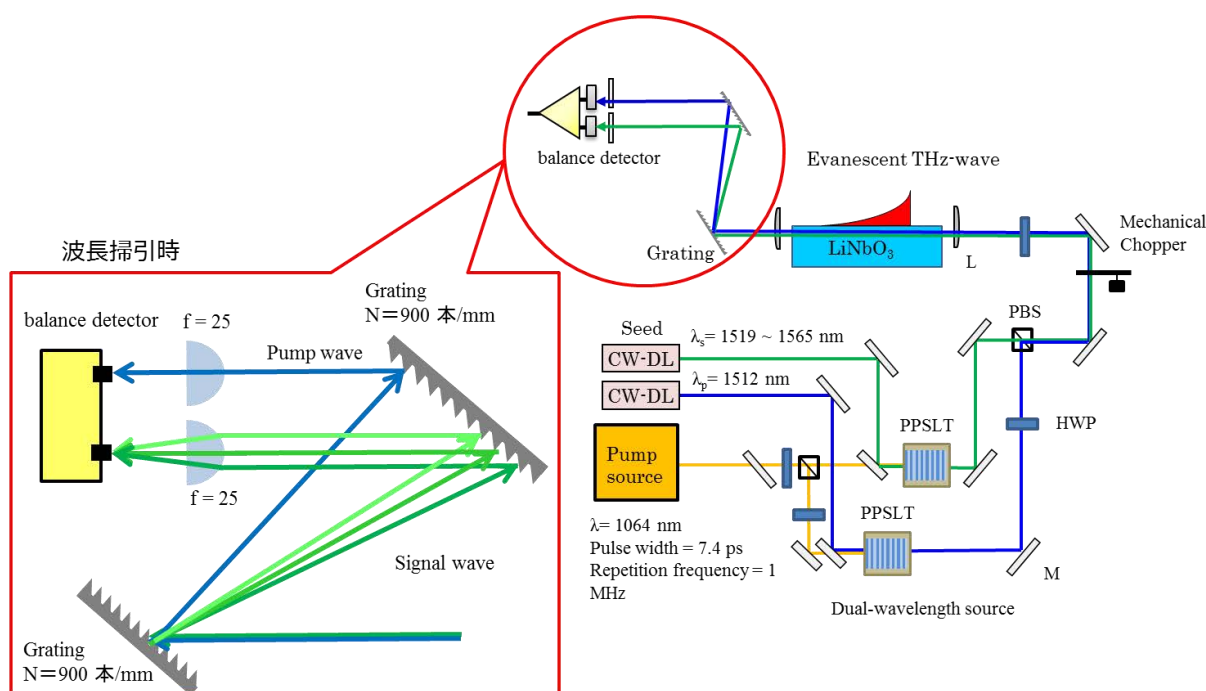


Fig. 5 - 12 テラヘルツ・エバネッセント波分光実験系

5.5.2 実験結果と考察

分光測定に用いたサンプルは5.3節で述べたようにサンプルとテラヘルツ・エバネッセント波とのコンタクトの問題を回避する目的で液体サンプル（純水，スクロース水溶液）を選択した。取得したスペクトルを Fig. 5 - 13 に示す。この図の横軸は THz 波の周波数，縦軸はバランスディテクタの出力を示している。純水とスクロース水溶液の二つの結果に明確な差異が確認できることから，本方式が分光に適用可能であることを示している。この測定結果を THz 波時間領域全反射減衰分光法の結果と比較してみる。全反射減衰分光の測定結果を Fig. 5 - 14, Fig. 5 - 15 に示す。Figure 5 - 14 はサンプルの屈折率を示しており，Fig. 5 - 15 はサンプルの吸収係数を示している。全反射減衰分光において，この周波数帯では屈折率に差はほとんど見られず，吸収は水の方が大きいという結果である。これはスクロースと水の水和によるバルク水の吸収がスクロース水溶液では小さくなることに起因している。つまり，この影響を新規分光法でも計測できたと考えられ，バルク水による吸収の減少の結果が Fig. 5 - 13 の結果につながっていると考えられる。この結果より，本研究で提案する新規分光法では，水が関係してくるタンパク質などの生体高分子のリアルタイム測定が可能となると考えられる。

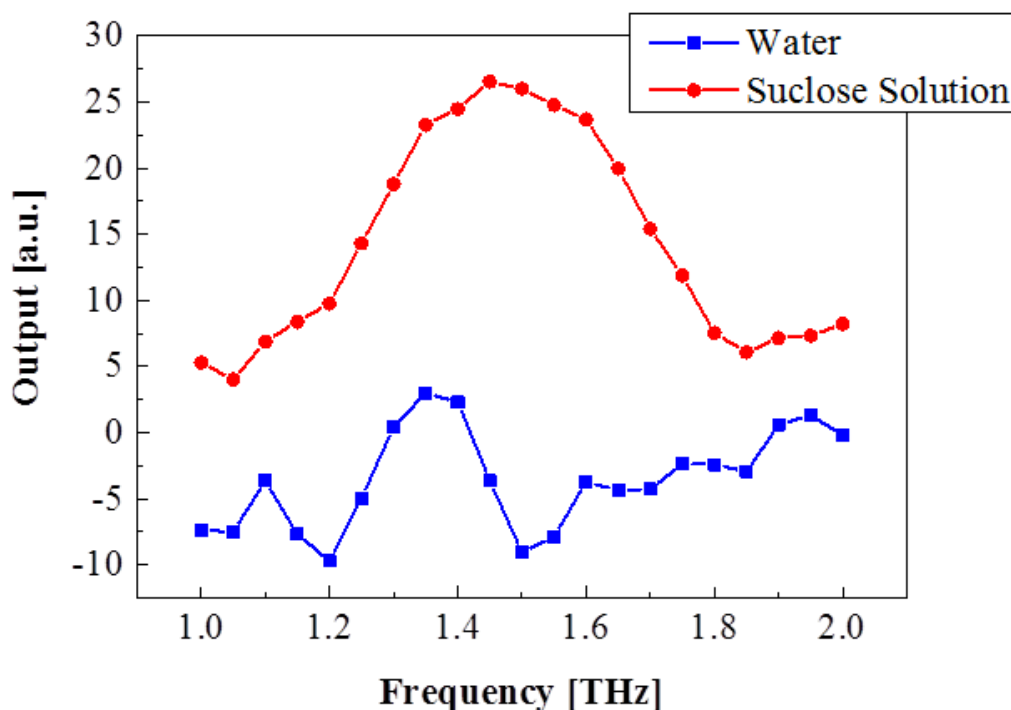


Fig. 5 - 13 テラヘルツエバネッセント波による分光結果

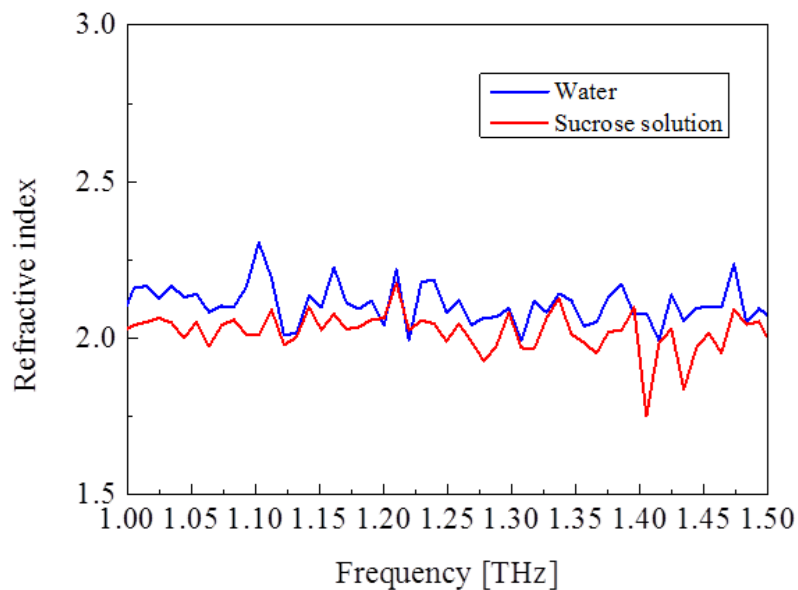


Fig. 5 - 14 全反射減衰分光で測定した屈折率

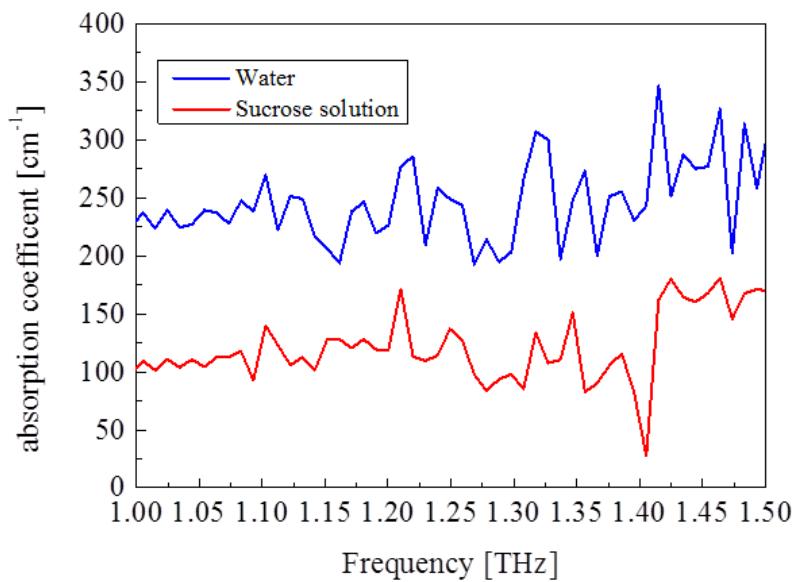


Fig. 5 - 15 全反射減衰分光で測定した吸収係数

しかしながら、全反射減衰分光では、サンプルの光学定数を測定結果より求められているが、テラヘルツ・エバネッセント波分光では、現状、この測定結果から単純にサンプルの THz 周波数帯での光学定数を導き出すことは困難であり、本分光法の産業応用・実用化に向けて、測定結果を光学定数にフィードバックするための理論構築、既知の光学定数と測定結果の比較やデータベースの構築が必要となる。

5.6 まとめ

本章では、2~4章の要素技術を用いて、励起光と THz 波の相互作用を用いた近赤外光検出による新規分光法の検証を行った。この分光法では、THz 波を直接検出することなく、励起光に使用する近赤外光を検出することで、THz 周波数帯の分光が可能となる。まず、単一周波数における固体サンプルのセンシングを行い、エバネッセント波の局在する領域にサンプルが近づくと励起光の強度差が変化することを確かめた。これにより励起光と THz 波の相互作用が確認できた。次に、液体サンプルのリアルタイムセンシングを行い、この方式では、物理的なスキャンが必要ないことから、ミリ秒のオーダーでセンシング可能であることを示した。これは THz-TDS と比較して、大きなメリットであり、今後、状態変化のリアルタイム観測などに応用が期待される。次に、波長掃引による分光を行った。その結果、サンプルの吸収の違いによる励起二波長光の強度差を測定することに成功した。

また、従来分光法との比較として SN 比を比較すると、THz-TDS は 4 桁、単色 THz 波による分光法は Si-bolometer などの極低温装置を用いて 3 桁であるのに対し、本方式は 2 桁と低い結果となった。しかし、常温において、THz 周波数帯の物性を近赤外光の検出により検出できたという結果は実用化・産業化に向けた大きな前進であり、技術の成熟している近赤外光領域のアイデアを本方式に取り込むことで高速高感度計測の実用化が期待できる結果となった。さらに、感度についても、励起二波長光源の改善により、向上すると考えられることから、励起光源の安定性向上が今後の課題となる。

また、以上の実験結果から、本方式の応用範囲を考えると、本方式では物性の評価において、力を発揮する分光法であると考えられる。本方式では、サンプルが結晶の数 μm の範囲に近づくことが分光の条件となる。そのため、遠距離に存在する物質の測定や反射を利用する測定には使用できない。しかしながら、このエバネッセント波の存在する領域については、サンプルによらない測定が可能となる。本方式は、この領域の範囲内では、液体や粉体など他の分光法においては分光用の治具等が必要となるサンプルについても、全く同様な実験系で測定できるという利点を有している。そのため、本方式は、化学変化や状態変化の測定に対し効果を発揮する分光法となることが期待される。

また、今後の予定としては、二つの課題に取り組む必要があると考えられる。一つ目は、分光法の感度向上である。前述の通り、励起光源の安定性を向上させることで、測定結果

のばらつきを改善し、感度の向上を図る。さらに、分光法において THz 波の強度及び相互作用に係る距離は感度に直結する要因である。そのため、THz 波の発生強度向上や相互作用に使用できる距離の増加に対する検討も必要となる。この項目については、第 6 章において検討したので、そこで報告する。二つ目は、理論構築の推進である。結合波方程式への物理現象モデルの導入により、数値計算からの光学定数の導出を検討していく必要がある。具体的には、全反射時の物理について考察し、グースヘンシェンシフトや偏光依存性を考慮し、計算式の構築を進めていきたい。また、光学特性が既知のサンプルや他の分光法において測定した光学特性を用いて、比較検討を行い、計算モデルの構築に応用していきたいと考えている。

参考文献

- [1] K. Sakai, “Terahertz Optoelectronics,” Springer (2005).
- [2] D. Mittleman, “Sensing with Terahertz Radiation,” Springer (2002).
- [3] K. Kawase, Y. Ogawa, and Y. Watanabe: Opt. Exp. **11** 2549 (2003).
- [4] 澁谷孝幸, 山下雅弘, 小川雄一, 大谷知行, 井上博之, 金森達之, 川瀬晃道: 電気学会論文誌 C, **125** 545 (2005).
- [5] 澁谷孝幸, 小川雄一, 山下雅弘, 大谷知行, 川瀬晃道: レーザー研究, **33** 837 (2005).
- [6] T. Akiba, N. Kaneko, K. Suizu, K. Miyamoto, and T. Omatsu: Opt. Lett. **38** 3687 (2013).
- [7] T. Akiba, N. Kaneko, K. Suizu, K. Miyamoto, and T. Omatsu: Optical Review accepted.
- [8] K. Suizu, K. Koketsu, T. Shibuya, T. Tsutsui, T. Akiba, and K. Kawase: Opt. Exp. **17** 6676 (2009).
- [9] 江馬一弘: 光物理学の基礎－物質中の光の振る舞い－, 朝倉書店 p.95, (2010).
- [10] H. Hirori, K. Yamashita, M. Nagai and K. Tanaka: Jpn J. Appl. Phys. **43** L1287 (2004).
- [11] M. nagai, H. Yada, T. Arikawa and K. Tanaka: Int. J. Infrared Milli. Waves **27** 50 (2006).
- [12] T. Yoshino, H. Seki, Y. Tokizane, K. Miyamoto and T. Omatsu: J. Opt. Soc. Am. B **30** 894 (2013).
- [13] K. Nawata, M. Okida, K. Furuki, K. Miyamoto and T. Omatsu: Opt. Exp. **17** 20816 (2009).
- [14] M. Koichi, K. Miyamoto, S. Ujita, T. Saito, H. Ito and T. Omatsu: Opt. Exp. **19** 18523 (2011).
- [15] K. Miyamoto, A. Lee, T. Saito, T. Akiba, K. Suizu and T. Omatsu: Appl. Phys. B **110** 321 (2013).
- [16] K. Kawase, J. Shikata, H. Minamide, K. Imai, and H. Ito: Appl. Opt. **40** 1423 (2001).

第6章 新規分光法の高感度化に向けた検討

6.1 はじめに

第5章では、チェレンコフ位相整合を用いて新規分光法の検討を行った。本章では、この新規分光法の高感度化を目指し、新しいTHz波発生法の検討および導波路構造の導入の検討を行う。新規分光法における高感度化に発生させるTHz波の強度を増加させる他に、いかに励起二波長光である近赤外光とTHz波の相互作用を増加させるかが焦点となる。チェレンコフ位相整合では、高周波数になると位相不整合及び結晶の吸収によりTHz波の出力が低下するという問題点を有していた。この問題点を解決するためには、可能な限り励起二波長光を細く集光すること及び励起二波長光を結晶端面付近に入射することが必要である。しかし、集光によるコンフォーカル長の減少は励起光とTHz波の相互作用を減少させ、分光において感度低下の原因となる。そこで、本章では、この問題に焦点を当て、LiNbO₃結晶を用いた新しいTHz波発生方法を提案する。位相整合の方式の内、理想的であると考えられている方式は、励起光と発生する光の相互作用長が長くとることができるコリニア位相整合である。しかしながら、LiNbO₃結晶の屈折率は光波帯でおよそ2.1、THz周波数帯で5以上と大きく異なるため、コリニア位相整合が満たされず、差周波発生における高効率なTHz波発生が望めない。このため、従来は前述のTPOやis-TPGにおいて、ノンコリニア位相整合によるTHz波発生が行われてきた^[1]。この方式では、コリニア位相整合ほどの高効率なTHz波発生は望めないが、チェレンコフ位相整合とは異なり、時間的に異なるタイミングで発生したTHz波とのアンプ効果が期待できる。さらに、励起光と発生する光の相互作用長もチェレンコフ位相整合方式に比べて長くすることが期待できる。この様な背景から、本章では、差周波発生に基づく、ノンコリニア位相整合を結晶端面近傍で起こし、結晶の吸収を低減した新しいTHz波光源を提案する^[2]。

新しく提案する方式では、今まで利用してきた励起二波長光はそのままに、励起二波長光の間の角度を調整することで、位相整合を満たし、THz波を発生させる。励起二波長光の波長と入射角度の関係で発生するTHz波の周波数が決定されるため、分極反転構造などによる波長帯域の制限が無く、スペクトルの広帯域化が期待できる。is-TPGで発生困難な3THz以上の帯域でも位相不整合の影響がないため、高効率なTHz波の発生が可能である。さらに、励起二波長光を結晶端面で反射させ、反射光と非反射光による位相整合を実施することで、THz波の発生箇所が結晶端面近傍となることから、吸収の影響が少なく、高効率なTHz波発生が可能となる。また、チェレンコフ位相整合に比べて、励起光を強く集光する必要が無い為、励起光とTHz波の相互作用長は結果的に大きくなる。本章では、端面反射位相整合方式についての原理、実験方法、実験結果について述べ、ナノ秒、ピコ秒レ

一ザ一それぞれで実施した。また、その結果から本方式が新規分光法に適用可能であるか検討した。

次に、もう一つの高感度化の方法として、導波路構造の導入の検討を行った。導波路構造では、励起光が導波路を伝搬することで、前述のチェレンコフ位相整合における問題点が無視でき、かつ結晶長すべてにおいて、励起光と THz 波の相互作用が可能となる。これにより、強度差変化が大きくなることが予想され、高感度化につながると考えられる。

これら二つの方法は、どちらも高感度化が期待できるが、二者択一の方法であり、端面反射位相整合では、バルク結晶での新規分光法の実施において効果を発揮する方法であると考えられる。また、導波路構造を用いた方法では、結晶の価格は向上するが、分光法全体のパッケージ化まで見据えた検討においては、機械的な機構を必要としないことから、有利になることが期待される。

6.2 端面反射位相整合方式の原理

本節では、チェレンコフ位相整合において問題となる高周波域での相互作用の減少を回避するために、新しい位相整合方式の導入を検討する。基本となるノンコリニア位相整合の原理について述べた後、新しい位相整合である端面反射位相整合の方法について述べる。

6.2.1 ノンコリニア位相整合の原理

ノンコリニア位相整合方式の波数ベクトルの関係を Fig. 6 - 1 に示す。ノンコリニア位相整合とは、非線形光学結晶内で励起二波長光の波数ベクトルの関係を利用して位相整合を図る方法であり、複屈折性を有する非線形光学結晶に対して用いられる。本研究で用いた LiNbO₃ 結晶は励起光が含まれる光波帯（近赤外領域）と THz 周波数帯とで複屈折性を有する非線形光学結晶であるため、ノンコリニア位相整合が可能である。LiNbO₃ 結晶の励起光に対する屈折率を n_{opt} 、THz 周波数帯に対する屈折率を n_{THz} とすると、ノンコリニア位相整合条件は式 (6-1) で表される。

$$n_{opt} < n_{THz} \quad (6-1)$$

このとき、励起二波長光の短波長側をポンプ光、長波長側をシグナル光とすると Fig.6 - 1 の関係を満足するように、励起光のなす角を調整することで位相整合が可能となる。波数ベクトル k は波長を λ 、屈折率を n とすると、式 (6-2) のように表される。

$$|k_{\alpha}| = \frac{2\pi n_{\alpha}}{\lambda} \quad (\alpha = p, s, THz) \quad (6-2)$$

これにより、位相整合を決定する要因は、LiNbO₃ 結晶の光波帯及び THz 周波数帯での屈折

率と発生させる THz 波の波長であることがわかる。つまり、Fig. 6-1 の関係について余弦定理を用いて表すと、式 (6-3) のようになる。

$$\cos \theta_k = \frac{k_p^2 + k_s^2 - k_{THz}^2}{2k_p k_s} = \frac{n_p^2 \omega_p^2 + n_s^2 \omega_s^2 - n_{THz}^2 \omega_{THz}^2}{2n_p \omega_p n_s \omega_s} \quad (6-3)$$

ここで、 θ_k は励起二波長光のなす角、すなわち位相整合角を表し、 n_p 、 n_s 、 n_{THz} はそれぞれの周波数帯における屈折率、 ω_p 、 ω_s 、 ω_{THz} はそれぞれの周波数における角周波数を表す。したがって、位相整合角 θ_k は式 (6-4) のように求めることができる。

$$\theta_k = \text{Cos}^{-1} \left(\frac{n_p^2 \omega_p^2 + n_s^2 \omega_s^2 - n_{THz}^2 \omega_{THz}^2}{2n_p \omega_p n_s \omega_s} \right) \quad (6-4)$$

つまり、ポンプ光とシグナル光の周波数と位相整合角を制御することにより、所望の周波数の THz 波を発生させることができる。ポンプ光の波長が 1300 nm, 1400 nm, 1440 nm の際の、各周波数における位相整合角を式 (6-4) にて計算した結果を Fig.6 - 2 に示す^{[3][4]}。Figure 6 - 2 より発生する THz 波が高周波になるにつれて指数関数的に θ_k が大きくなり、6 THz 付近では θ_k が 6 度程度となることがわかる。また、位相整合角はポンプ光の波長にほとんど依存せずどの波長でも THz 波の発生が可能であることが見て取れる。

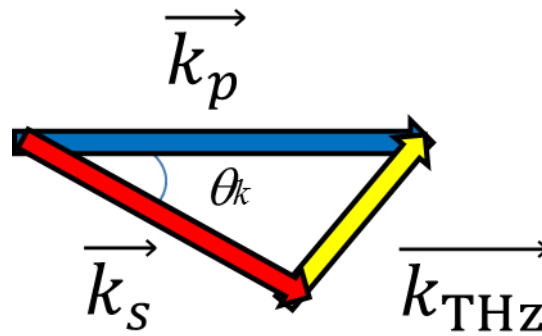


Fig. 6 - 1 波数ベクトルの関係

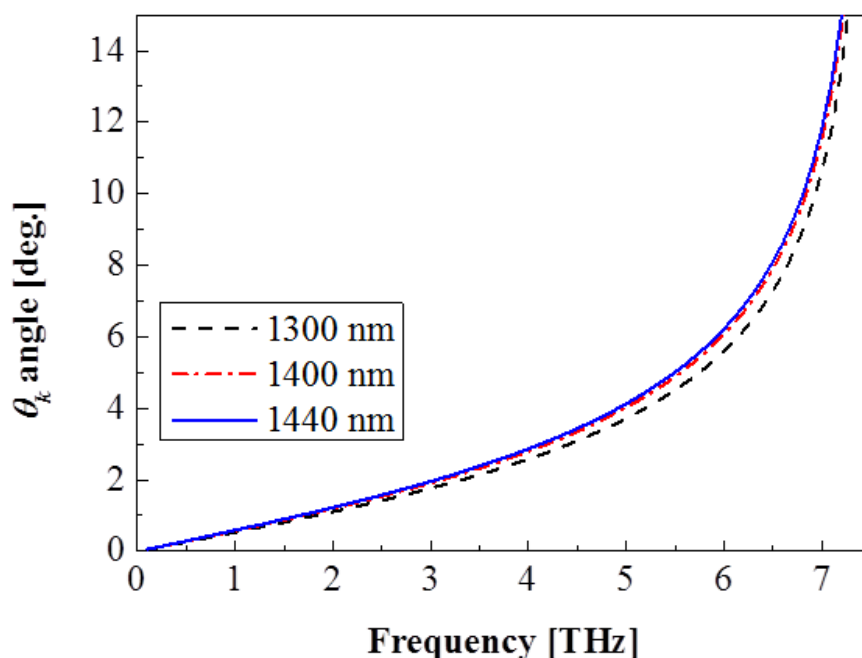


Fig. 6 - 2 ポンプ光波長毎の位相整合角の周波数依存性

6.2.2 端面反射位相整合の原理

前項では、複屈折性を有する非線形光学結晶における位相整合方法として用いられるノンコリニア位相整合について述べた。端面反射位相整合はノンコリニア位相整合を用いた位相整合方式であり、最大のメリットは THz 波の発生箇所が結晶端面付近であり、高周波数域まで吸収の影響を抑えて発生可能なことである^[5]。端面反射位相整合とは、励起二波長光（シグナル光とポンプ光）の内、シグナル光を LiNbO₃ 結晶の端面にて反射させ、反射していないポンプ光と反射したシグナル光によりノンコリニア位相整合を図る方法である。

Figure 6 - 3 に端面反射位相整合の概略図を示す。この図では、ポンプ光を青、シグナル光を赤、発生する THz 波を黄、反射したシグナル光を桃で示した。この図から励起二波長光が有限のビーム径を有する場合、反射したシグナル光とポンプ光の間で位相整合角が満たされることが見て取れる。また、この時の THz 波の発生する領域を斜線で示しているが、この領域が相互作用に用いることができる領域となる。チェレンコフ位相整合では、高周波域の THz 波発生には励起二波長光のビーム径を数十 μm 程度に集光する必要がある。この時、コンフォーカル長は 1 mm 以下になると考えられる。一方、端面反射位相整合における相互作用長は Fig. 6 - 3 中の L で求められる。ここで L は、式 (6-5) で求められ、ビーム径 $w = 200 \mu\text{m}$ の場合においても Fig. 6 - 4 のように数 mm の相互作用を確保することができる。

$$L = 2 \frac{w}{\sin \theta_k} \cos \frac{\theta_k}{2} \quad (6-5)$$

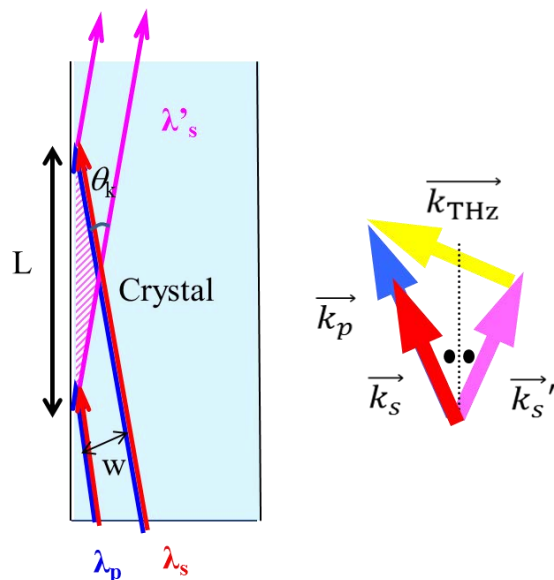


Fig. 6 - 3 端面反射位相整合の概略図

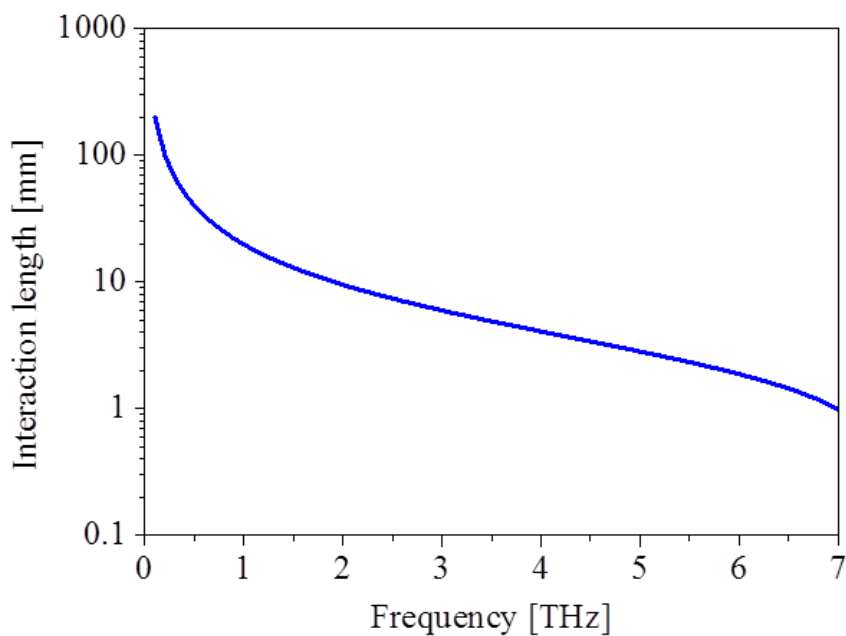


Fig. 6 - 4 端面反射における相互作用に使用できる距離

次に、端面反射位相整合での、THz 波の放射角度について考察する。新規分光法においては発生する THz 波は結晶端面にて全反射することが求められる。端面反射位相整合では、THz 波は角度を持ち伝搬する。これは Fig. 6-5 のように表される。この図及び式 (6-4)、式 (6-6)、式 (6-7) から THz 波の放射角度は計算することができる。また、この端面反射位相整合における放射角度とチェレンコフ位相整合の放射角度を比較してみると Fig. 6-6 のようになる。

$$\theta = \text{Cos}^{-1} \left(\frac{n_{\text{THz}}^2 \omega_{\text{THz}}^2 + n_s^2 \omega_s^2 - n_p^2 \omega_p^2}{2 n_{\text{THz}} \omega_{\text{THz}} n_s \omega_s} \right) \quad (6-6)$$

$$\theta_{\text{放射}} = \pi - \theta - \frac{\theta_k}{2} \quad (6-7)$$

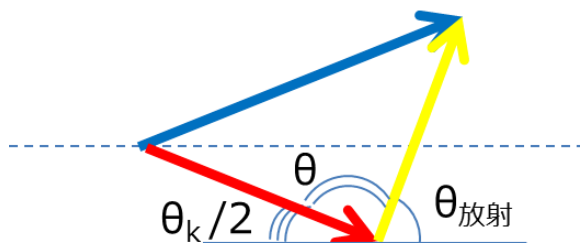


Fig. 6-5 端面反射位相整合における THz 波の放射角度

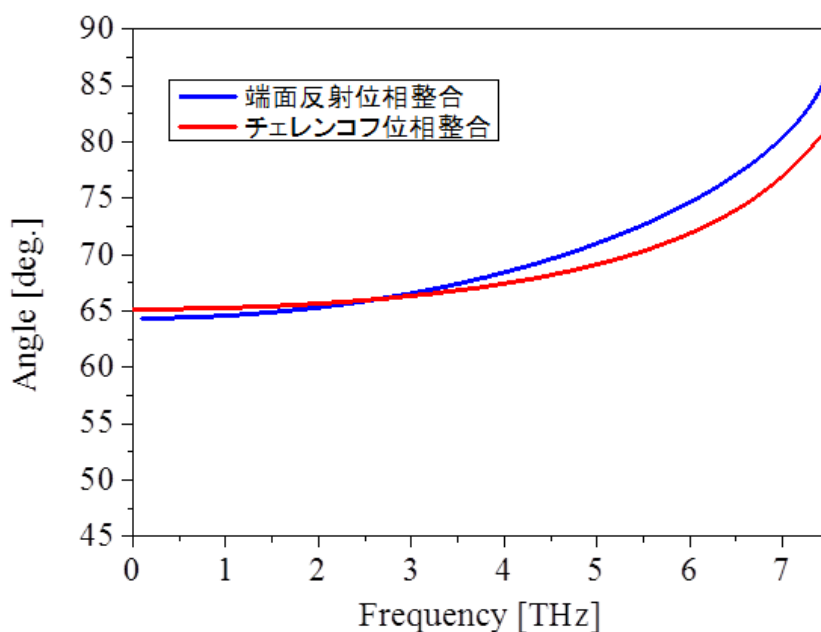


Fig. 6-6 THz 波の放射角度の比較

この図より，端面反射位相整合ではチェレンコフ位相整合同様に結晶端面で THz 波が全反射することがわかる．また，第 3 章同様に，適度な屈折率を有するクラッド材なしには THz 波を結晶外部に取り出すことができない．そのため，本研究では，クラッド材にチェレンコフ位相整合と同様に Si を選択し，THz 波の取り出しを行い，その出力の評価を行った．

6.3 端面反射位相整合による THz 波発生

6.3.1 実験装置と実験方法

端面反射位相整合 THz 波発生の実験系を Fig. 6-7 に示す．まず，差周波発生用の光源として，チェレンコフ位相整合と同様に，第 2 章にて構築を行ったタンデム型の KTP-OPOs を用いた．この励起二波長光源の出力は 7.5 mJ であり，波長可変域は 1300 – 1600 nm であった．励起二波長光は半波長板を用いて LiNbO₃ 結晶の z 軸に平行となるように調整し，単焦点レンズを用いてビーム整形して入射した．LiNbO₃ 結晶はチェレンコフ位相整合で用いたものと同じであり，結晶サイズは 50 × 4 × 5 mm³ で，位相整合角の調整のため回転ステージにマウントされている．クラッド材として用いた Si は 40 度の角度を持つ直角三角形の形を採用し，LiNbO₃ 結晶に接着する面は鏡面光学研磨を施し，長さは 20 mm とした．THz 波は 4.2 K 動作の Si-bolometer 検出器により検出を行った．LiNbO₃ 結晶に入射した励起二波長光のパワー密度は単焦点のレンズを変えて，40，75，92 MW/cm² を用意した．それぞれのパワー密度における楕円の大きさ (z 軸 × x 軸) は 3.3 × 1.4 mm²，2.1 × 1.2 mm²，2.6 × 0.8 mm² であった．

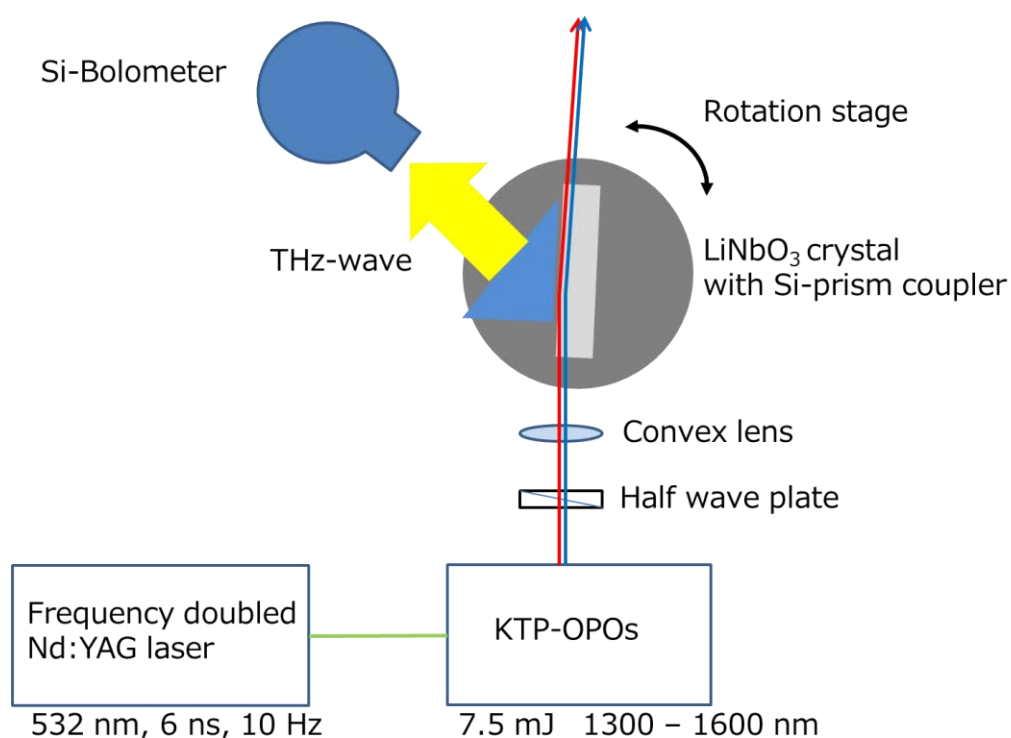


Fig. 6 - 7 端面反射位相整合の実験系概略図

6.3.2 実験結果と考察

6.2.1 項で述べた通り，ポンプ光の波長による位相整合角の変化は小さいことから本研究ではポンプ光の波長を 1440 nm としてシグナル光を 1440~1600 nm の範囲で変化させて THz 波を発生させた. Figure 6 - 8 に示す実験系においてパワー密度が 75 MW/cm^2 で得られた THz 波出力スペクトルを, またその時の位相整合角の実験値と理論値の比較を Fig. 6 - 9 に示す.

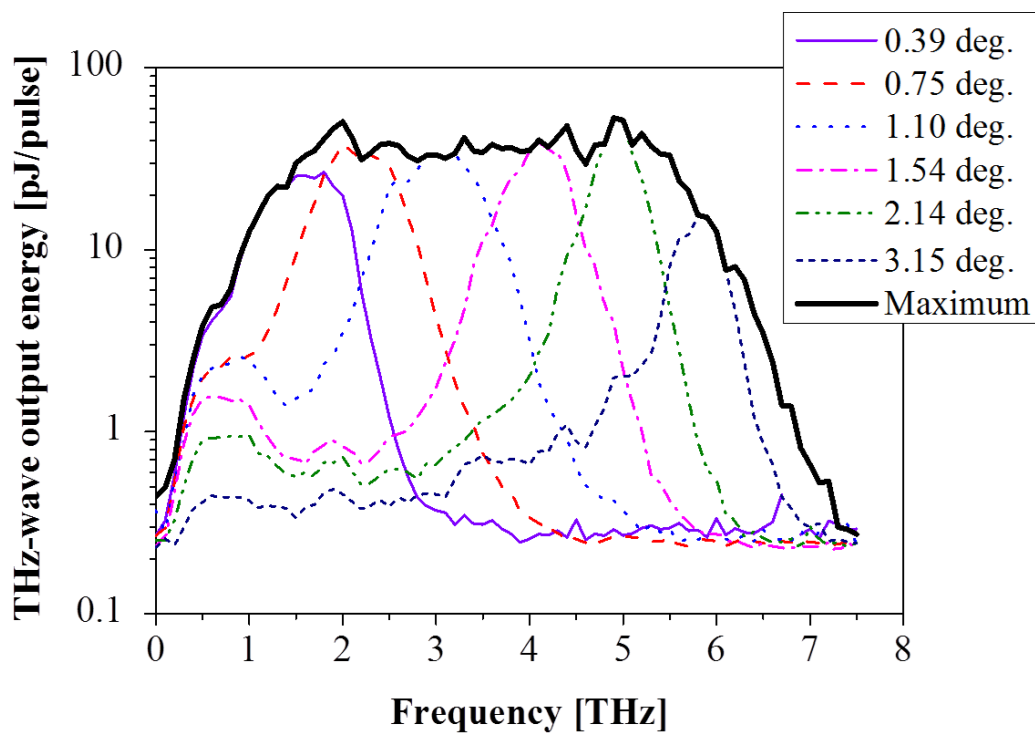


Fig. 6 - 8 THz 波出力スペクトル

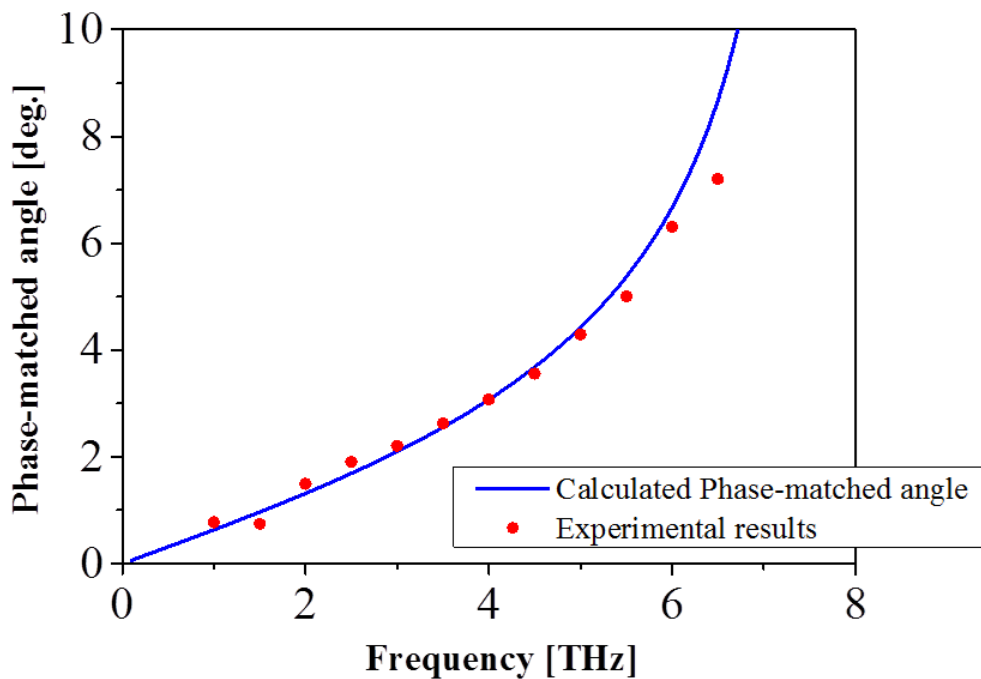


Fig. 6 - 9 位相整合角の実験値と理論値の比較

Figure 6 - 8 において横軸は THz 波の周波数, 縦軸は THz 波の出力である. この図より LiNbO₃ 結晶の回転に応じて, 発生する THz 波が高周波側にシフトしていく様子が見て取れる. 各回転角における最大出力を取ったものを太線で示している. この結果より, 波長可変域にして 0.2~7.2 THz とバルクの LiNbO₃ 結晶を用いた最大の波長可変域を有する THz 波光源の開発に成功した. また, 本光源の出力波形は, 1~6 THz 付近まで吸収の無い出力波形をしており, この範囲での分光利用が大いに期待できる結果となった. ここで, Fig. 6 - 8 の出力スペクトルにおいて, 6 THz 以上における THz 波出力の低下は LiNbO₃ 結晶における LO フォノンモードによる屈折率の増加である. 屈折率の増加により, 位相整合角は大きくなり, 相互作用面積の減少が起き, これにより THz 波出力が減少している. また, 位相整合角が高周波領域を発生させる際にも, 低周波領域に THz 波の出力が確認できるが, これはチェレンコフ位相整合により発生していると考えられる. この現象は第 3 章にも示したが, 吸収の影響が少ない低周波領域で顕著に表れることから, このような出力スペクトルが得られたと考えられる. また, Fig. 6 - 9 より, 回転角が理論値と良い一致を示しており, 本光源の簡便な波長可変性を示しているといえる.

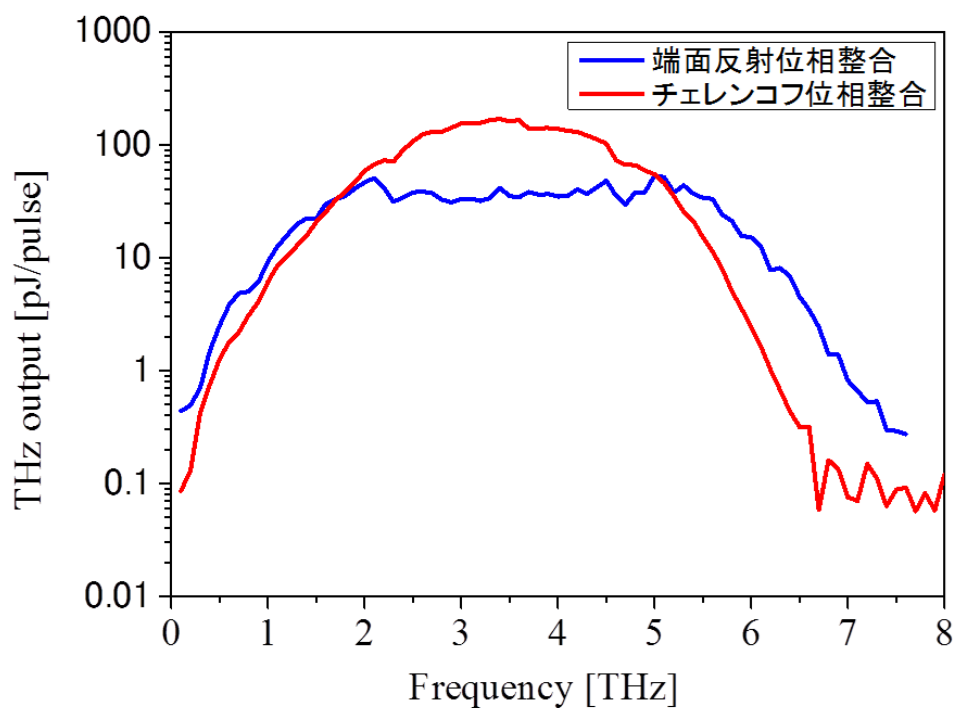


Fig. 6 - 10 チェレンコフ位相整合と端面反射位相整合の出力比較

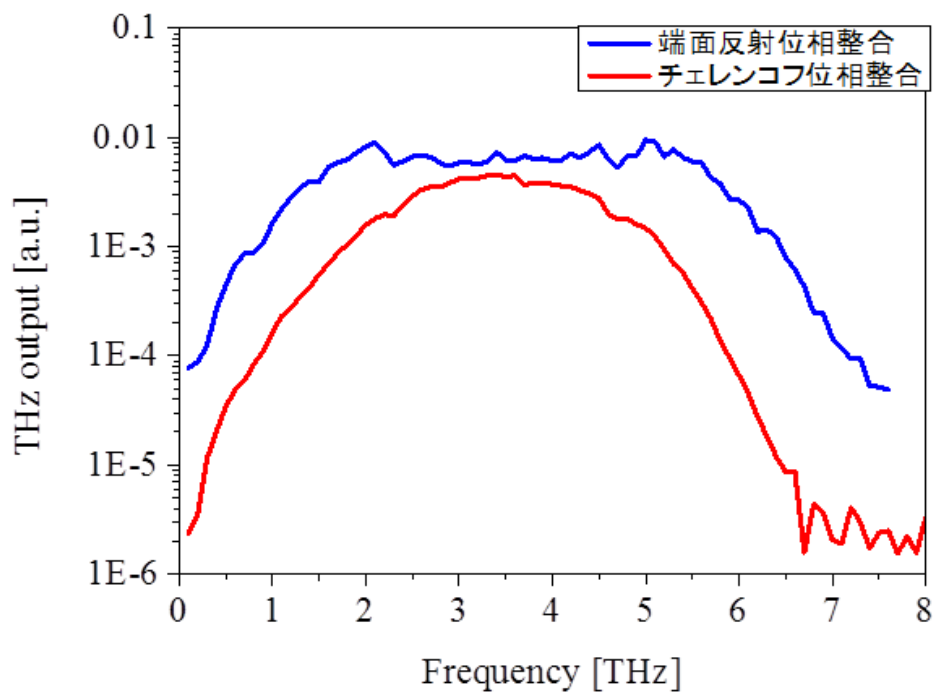


Fig. 6 - 11 チェレンコフ位相整合と端面反射位相整合のピークパワーで
正規化した出力比較

得られた THz 波出力を第 3 章で得たチェレンコフ位相整合の出力と比較してみると、Fig. 6 - 10 のようになる。周波数帯域では端面反射位相整合の方が広帯域に発生可能であることが分かる。また、出力はチェレンコフ位相整合の方が高いが、これは励起二波長光のパワー密度がチェレンコフ位相整合の場合 192 MW/cm^2 、端面反射位相整合が 75 MW/cm^2 と小さいことに起因する。両者のグラフを励起光のピークパワーで正規化し、比較した結果を Fig. 6 - 11 に示す。Figure 6-11 より端面反射位相整合の効率はチェレンコフ位相整合に比べて大きいことがわかる。これは、チェレンコフ位相整合では、THz 波は時間的に異なるタイミングで発生した THz 波によるアンプ効果が得られないが端面反射位相整合では、THz 波の伝搬方向に対して、アンプ効果が得られることに起因する。そのため、端面反射位相整合ではパワー密度を調整することで高出力化が期待できる。

そこで、本方式の励起二波長光のパワー密度依存性について評価した結果を Fig.6 - 12 に示す。この図よりすべてのパワー密度においてブロードな THz 波出力が得られていることがわかる。ここで、差周波発生における THz 波出力の強度は式 (6-8) で表される^[6]。

$$I_{THz} = \frac{8\mu_0\omega_{THz}^2}{n_p n_s n_{THz} c} d_{eff}^2 I_p I_s \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k z}{2}\right)}{\Delta k^2} \quad (6-8)$$

μ_0 は真空の透磁率、 d_{eff} は LiNbO₃ 結晶の非線形光学定数、 c は光速、 I_p 、 I_s 、 I_{THz} はそれぞれポンプ光、シグナル光、THz 波の強度を示している。この式より THz 波の出力は励起二波長光のパワー密度の 2 乗に比例することがわかる。しかしながら、Fig.6 - 12 の結果はこれに等しくない。この原因は励起二波長光のパワー密度とポンプ光と反射したシグナル光の相互作用する体積との関係であると考えられる。つまり、THz 波出力の増加には、励起二波長光のパワー密度及びポンプ光と反射したシグナル光の相互作用する体積の増加が求められる。そこで、この二つの関係を考えると、これら二つの関係は、励起二波長光のパワー密度を増加させるためには、励起二波長光のビーム径を小さくすることが求められるが、ビーム径が小さくなることで、励起二波長光の相互作用する体積は減少するというトレードオフの関係にある。それゆえ、本研究で使用した条件をそれぞれのパワー密度と相互作用する体積の積をとることで考えてみると、40, 75, 92 MW/cm²ではそれぞれ 1, 1.60, 1.29 (40 MW/cm²で規格化) となり、75 MW/cm²が最大であり、Fig.6 - 12 の実験結果と一致する。この結果から端面反射位相整合方式において、高い THz 波出力を得るためには、ビーム径を最適化することが求められる。

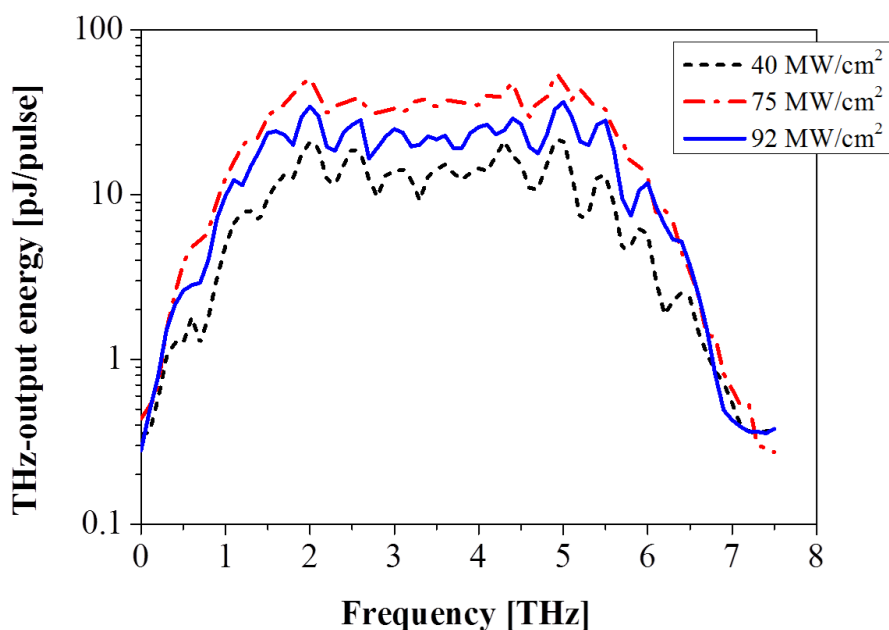


Fig. 6-12 THz 波出力スペクトルのパワー密度依存性

6.4 ピコ秒励起光源への展開

本節では、前節で実施した端面反射位相整合について、新規分光法への適用を見据えて、第4章で構築したピコ秒励起二波長光源へと展開する。

6.4.1 実験装置と実験方法

高繰り返しピコ秒励起光源を用いた端面反射位相整合によるTHz波光源の実験系をFig. 6-13に示す。励起二波長光源には第4章で構築した高強度・高繰り返しピコ秒励起光源を用いた。この励起二波長光源の出力は720 mW、波長可変域は1510~1600 nmであった。ロックイン検出が可能となるように、結晶に入射する前にメカニカルチョッパーにより励起二波長光を350 Hzに変調した。結晶に入射するためのレンズは $f = 50$ mmの単焦点レンズを用いて、ビーム径は $220 \mu\text{m} \times 145 \mu\text{m}$ であり、パワー密度は 172 MW/cm^2 であった。THz波の発生に用いた非線形光学結晶は5 mol%の濃度でMgOをドープしたLiNbO₃結晶を用いた。LiNbO₃結晶のサイズは $60 \times 5 \times 6 \text{ mm}^3$ を用いた。測定は4.2 K動作のSi-bolometer検出器により検出を行った。

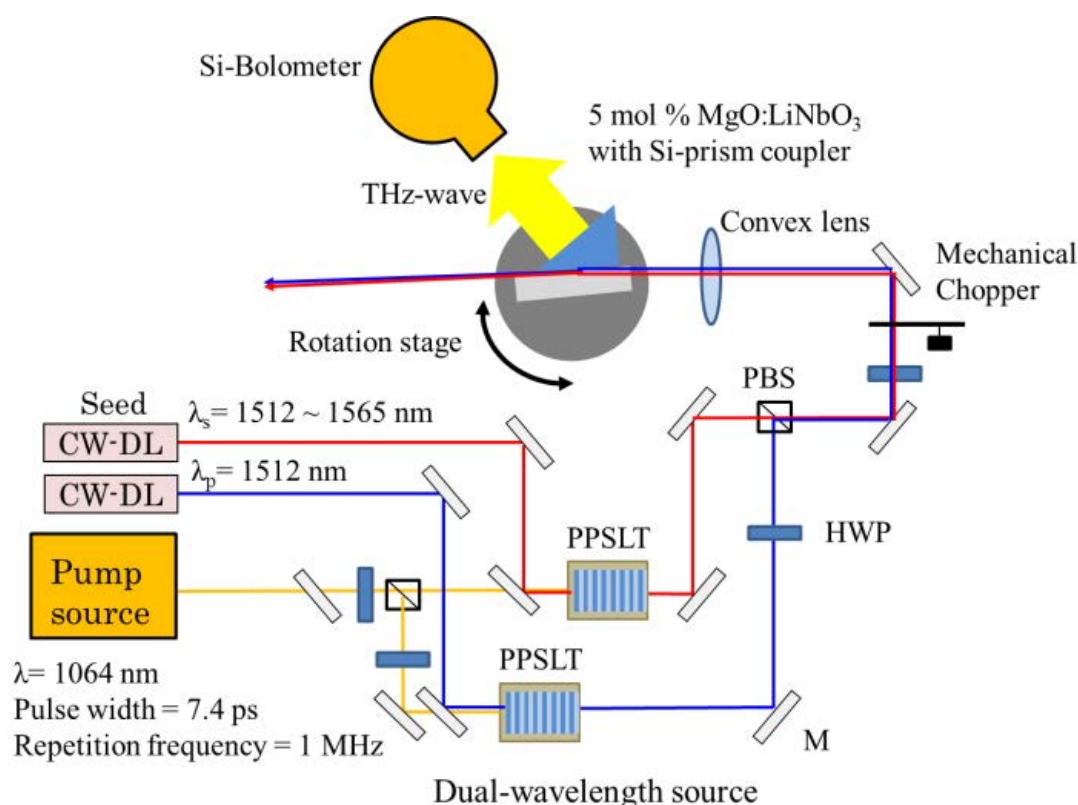


Fig. 6 - 13 ピコ秒励起光源による端面反射位相整合 THz 波光源の概略図

6. 4. 2 実験結果と考察

ピコ秒光源による端面反射位相整合を用いて位相整合角が 1.22 度の際に得られた THz 波出力を Fig. 6 - 14 に示す。この図の横軸は THz 波の周波数、縦軸は THz 波の平均パワーを示す。この結果から、位相整合角が 1.22 度の時、最大の出力は 1.9 THz で得られることがわかる。次に、位相整合角を 0.06~8.52 度で調整し、得られた THz 波出力スペクトルを Fig. 6 - 15 に示す。この結果、波長可変域が 0.2~6.1 THz、最大平均パワーが 165 nW の光源の作製に成功した。この時の励起二波長光からの変換効率率は $\sim 0.52 \times 10^{-4}$ %と高効率な THz 波光源であるといえる。また、Fig. 6 - 8 に比べて、高周波域での出力の減少が顕著であるが、この原因は一つ目にピコ秒光源では、ナノ秒光源に比べてビーム径が 10 分の 1 以下と小さく、相互作用長が稼げていないこと、二つ目に励起二波長光源として利用した PPSLT による OPG の出力が 5 THz 以上の高周波数領域において 2 THz 付近の出力に比べて、約 10 %程度低下することに起因すると考えられる。しかしながら、新規分光法において、必要な出力は 3 nW 程度であることから本方式の新規分光法への適用が十分に可能であることがわかる。

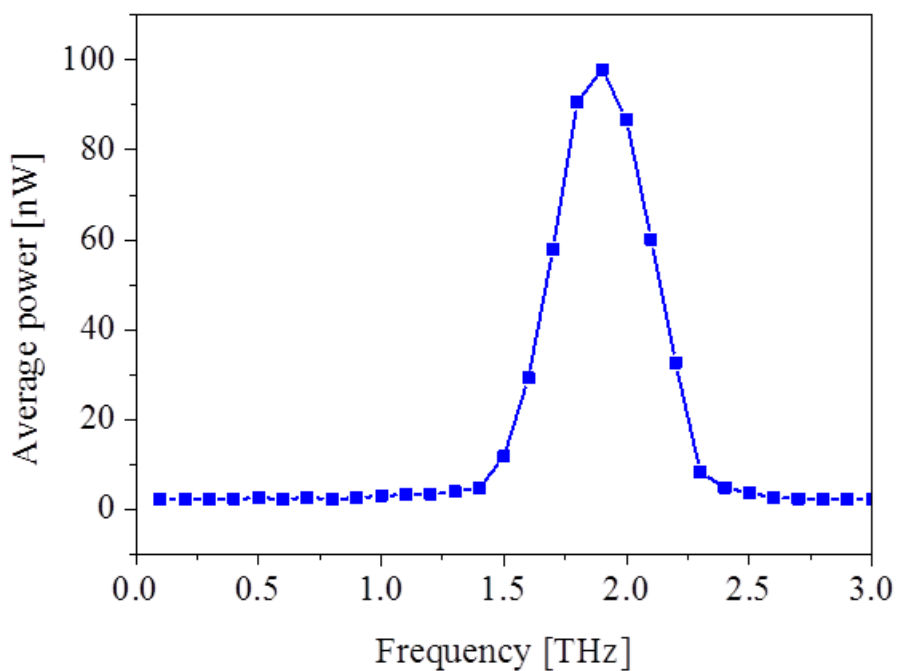


Fig. 6 - 14 ピコ秒光源による THz 波出力 (位相整合角が 1.22 度)

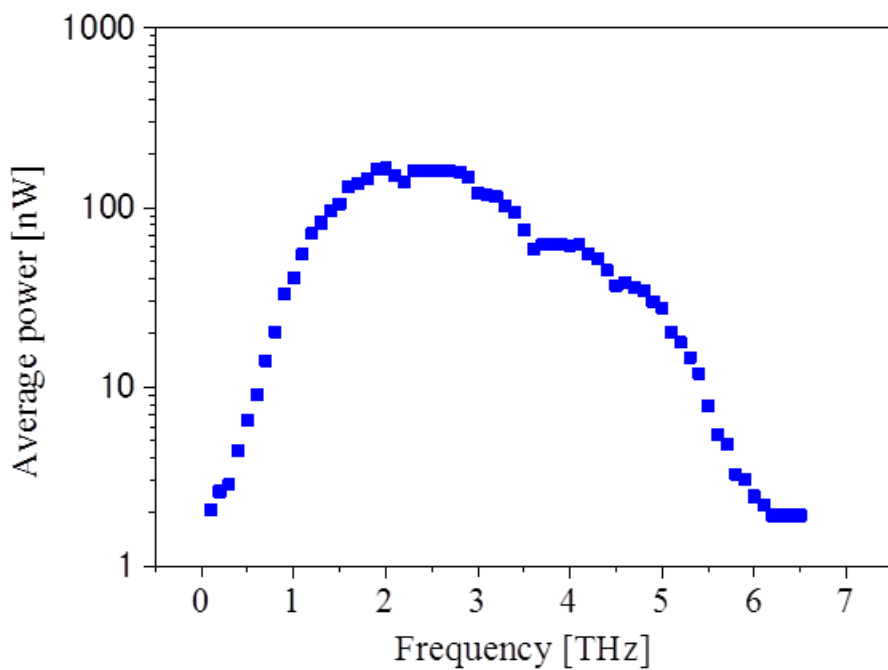


Fig. 6 - 15 ピコ秒光源による THz 波スペクトル

6.5 励起光ビーム最適化による発生効率の向上

6.3 節にて、励起二波長光のパワー密度と相互作用体積がトレードオフの関係にあることを確認し、ビーム径の最適化により本方式の高出力化の可能性を示した。ここで、吸収の存在する差周波発生について考えてみると、THz 波の出力は吸収に応じた相互作用長で飽和する為、吸収の増減により最適なビーム径が変化すると考えられる。本節では、ビーム径と相互作用長の関係を明らかにすることを目的として、THz 波の伝搬と吸収に関する Fig. 6-3 の斜線部が存在する平面においてこの現象を解析した。まず、吸収を考慮した際の差周波発生における最適結晶長の指標 L_{if} を式 (6-9) のように求めた^[7]。

$$L_{if} = \frac{4 \ln 2}{\alpha} \quad (6-9)$$

ここで、 α は LiNbO₃ 結晶の各周波数における吸収を示している^[3]。計算結果を Fig. 6-16 に示す。 L_{if} よりも相互作用長を長くしても出力は飽和することから、 L_{if} と THz 波の伝搬距離が等しくなるとき、差周波発生においてロスなくかつ高いパワー密度を実現できることになる。

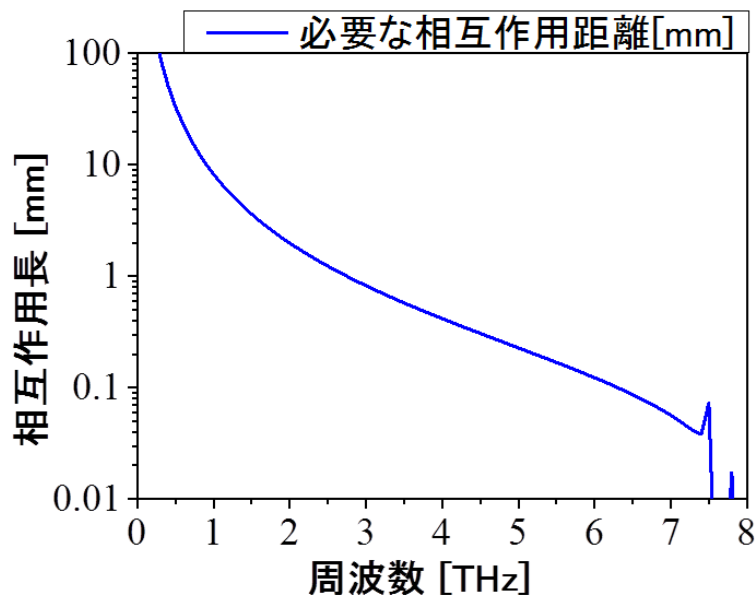


Fig. 6-16 LiNbO₃ 結晶を用いた差周波発生における相互作用長の指標

次に、ビーム径と THz 波の伝搬距離の関係を明らかにするため、端面反射位相整合による THz 波の伝搬距離を計算した。THz 波の LiNbO₃ 結晶での伝搬距離を L_p とすると、 L_p は式 (6-10) ように表すことができる。

$$L_p = \frac{\frac{w}{\sin \theta_k} \sin \frac{\theta_k}{2}}{\sin \theta_{\text{放射}}} \approx \frac{w}{\sin \theta_{\text{放射}}} \quad (6-10)$$

ここで、 w は励起二波長光のビーム径を表している。つまり、 L_p は w により決定することから L_p と L_{if} が等しくなるようにビーム径を調整することが求められる。そこで、本節では、 x 軸方向のビーム径、つまり w が変化した際、どのように出力に影響するか実際に THz 波を発生させて確認した。

6.5.1 実験装置と実験方法

構築した実験系は Fig. 6 - 7 とほぼ同一であり、単焦点レンズをシリンドリカルレンズに変更した。励起光のビーム幅は、 z 軸方向は統一して、4037 μm とし、 x 軸方向においては、それぞれ 950, 1160, 1640, 2890, 3970 μm であり、励起二波長光のパワー密度はそれぞれ 60, 49, 35, 20, 14 MW/cm^2 であった。

6.5.2 実験結果と考察

位相整合角が 2 THz, 4 THz のときの得られた THz 波出力スペクトルを Fig. 6 - 17, Fig. 6 - 18 に示す。横軸は THz 波周波数、縦軸は THz 波パルスエネルギーである。THz 波パルスエネルギーはパワー密度の影響をキャンセルするために、正規化を行っている。図から、2 THz を発生させている場合には、ビーム径が大きくなるにつれて、THz 波出力が高くなり、かつ線幅が細くなっていることがわかる。これは、前述したように、ビーム径が大きくなることで相互作用長が長く取れ、差周波発生におけるアンプ効果が効果的に得られているからであると考えられる。また、4 THz を発生させている場合には、THz 波の出力の変化や線幅の変化があまり見られない。これは、4 THz では、ビーム径が 1 mm 以下でアンプ効果が飽和しているからである。つまり、より細いビーム径でパワー密度を増加させて発生させることが望ましいということを示唆している。これらの結果から端面反射位相整合方式では、周波数毎に最適なビーム径が存在し、アンプ効果が効果的に得られる範囲でビーム径をできる限り細くし、励起二波長光のパワー密度を増加させることが高出力化には必要であると考えられる。最適なビーム径での THz 波発生はチェレンコフ位相整合に比べて THz 波の出力が大きくなることが期待できることから、この方式を用いて新規分光法を実施することで、分光の感度向上につながると考えられる。

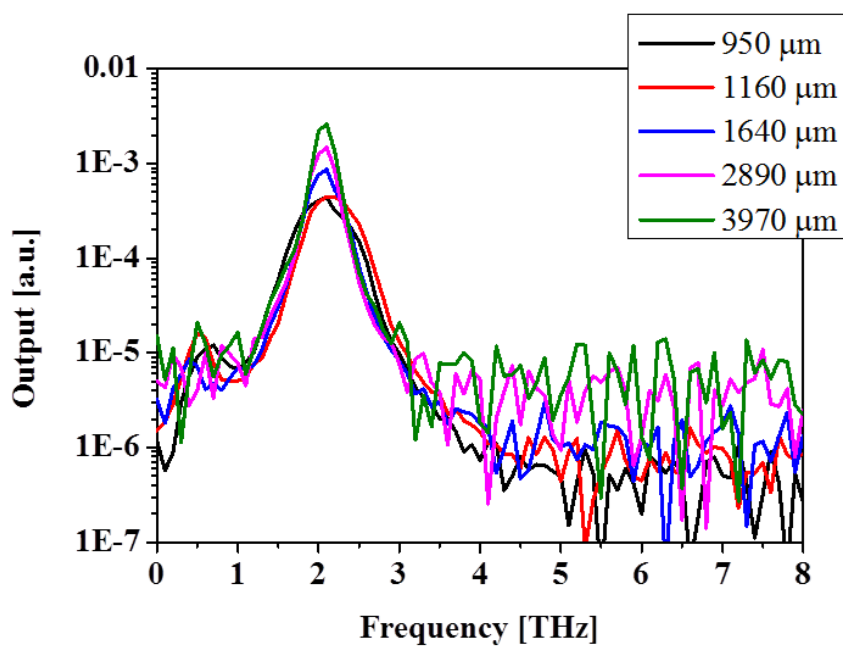


Fig. 6 - 17 ビーム径の変化によるアンプ効果 (2 THz)

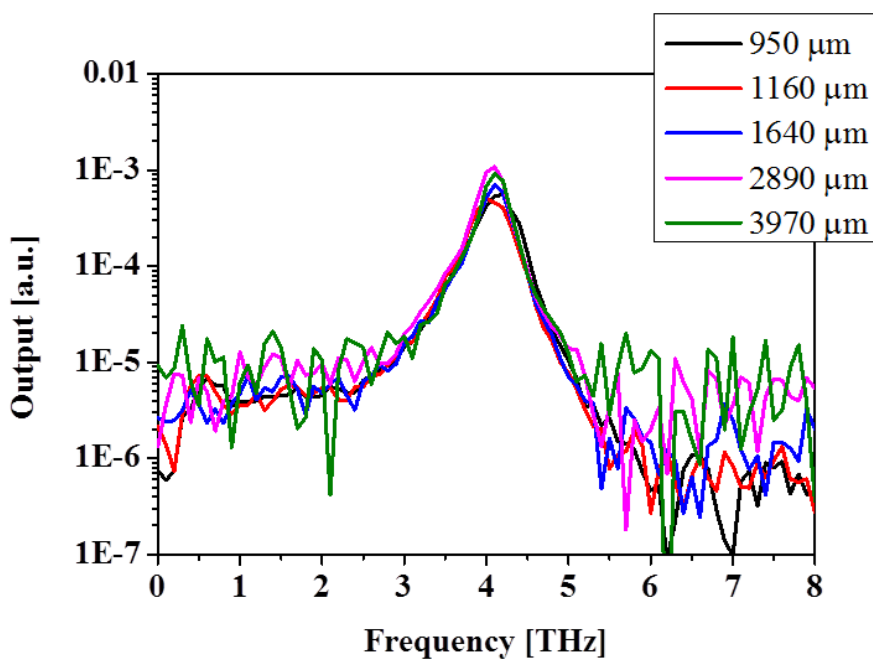


Fig. 6 - 18 ビーム径の変化によるアンプ効果 (4 THz)

6.6 導波路構造の導入

前節までにおいて、新しい位相整合方式による THz 波発生を検討し、新規分光法における高感度化へ適用可能であることを示した。本節では、別の方法としてチェレンコフ位相整合における導波路構造の導入を検討する。導波路構造を導入することで、導波路全てが相互作用に使用でき、新規分光法において、励起二波長光の強度変化が大きくなり、高感度化につながると考えられる。

6.6.1 実験装置と実験方法

実験装置はチェレンコフ位相整合での実験系 (Fig. 3 - 8) と同じであるが、チェレンコフ位相整合における THz 波の発生に用いる非線形光学結晶を Fig. 6 - 19 に示す導波路構造を有する LiNbO₃ 結晶に置き換える。導波路構造は Fig. 6 - 19 に示すように MgO ドープの LiNbO₃ 結晶と LiNbO₃ 結晶とを貼りあわせることで屈折率を調整し、励起二波長光が MgO ドープの LiNbO₃ 結晶中を伝搬することで、THz 波を発生させる。

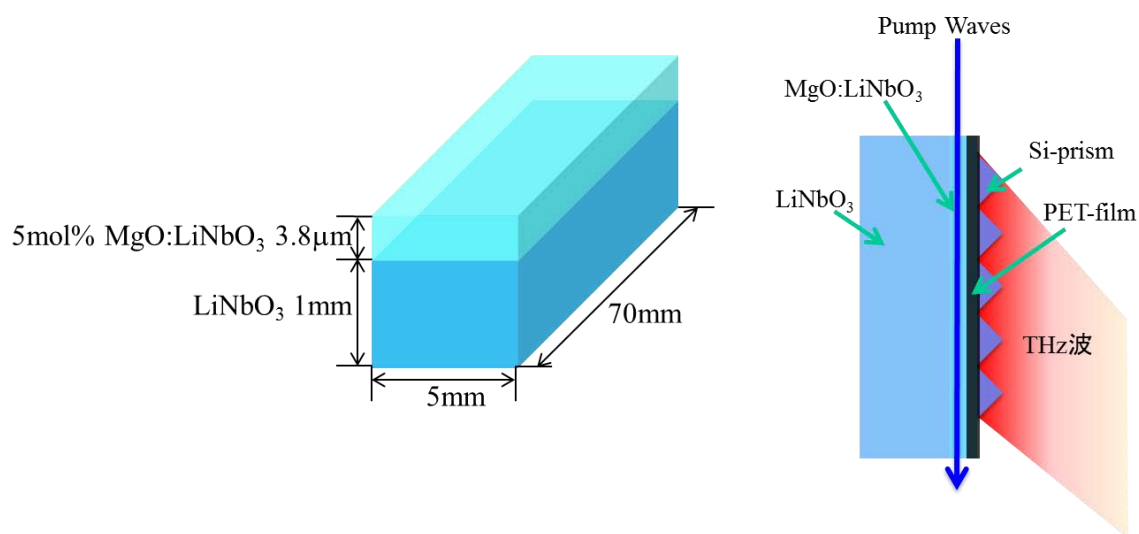


Fig. 6 - 19 導入予定の導波路構造

6.6.2 実験結果と考察

Figure 6-19 に示す結晶を持ちいた実験にて広帯域な THz 波の発生は Fig. 6-20 に示すように実現できている^[8]。広帯域な THz 波の発生が確認できることから、この導波路の導入により広帯域な分光範囲が期待される。また、相互作用に使用できる距離は導波路結晶中すべてになることから、バルク結晶でのチェレンコフ位相整合に比べて、この要素のみでも 10 倍以上の高感度化が期待できると考えられる。

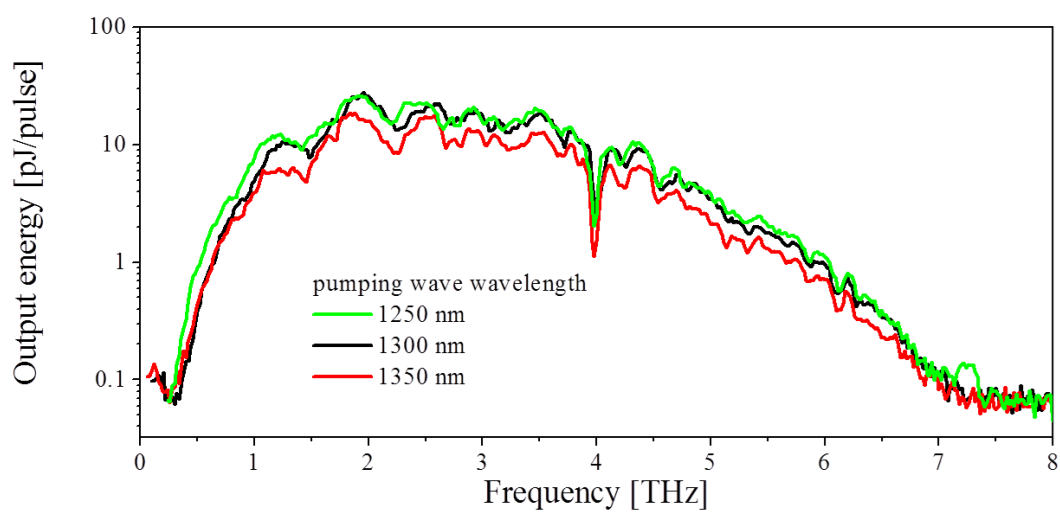


Fig. 6-20 導波路構造を用いたチェレンコフ位相整合による THz 波スペクトル

6.7 まとめ

本章では、新規分光法の高感度化を目指して、2種類の方法の検討を行った。一つ目の方法は、非線形光学結晶内で反射したシグナル光と反射していないポンプ光を用いてノンコリニア位相整合を行うという新しい位相整合方式である端面反射位相整合の導入検討を行った。本方式は、チェレンコフ位相整合同様、THz波が角度を持って発生し、結晶端面で全反射するという特徴を有していることを確認した。本方式はチェレンコフ位相整合に比べて、広帯域・高出力が期待でき、かつ相互作用長を長く取れることから、新規分光法において有利になると考えられる。また、ナノ秒光源だけでなく、ピコ秒光源においても実施可能であることを確かめ、新規分光法への展開が可能であることを示した。次に、本方式の高出力化として、ビーム径と相互作用長との関係の解析を行った。この結果、吸収を含む差周波発生では相互作用長に対し出力は飽和することを確認し、アンプ効果を効果的に得ることができる相互作用長を計算より求め、その長さとの関係を明らかにした。今後はこの方式の新規分光法への適用を実施していきたいと考えている。また、本方式はTHz波光源として、さらにパルス幅の短いフェムト秒レーザーへの展開も可能である。これらの光源ではポンプ光に多くの周波数を含んでいることから、端面反射位相整合をこれらのレーザーへ適応することで、チルトパルスを用いたTHz波発生法^[9]に比べて、簡便な方法で広帯域なTHz波光源が期待できる。

次に、二つ目の方法として、導波路構造の導入を検討した。まず、導波路用の結晶の準備として、MgOをドープしたLiNbO₃結晶とノンドープのLiNbO₃結晶を組み合わせ導波路とすることで、屈折率を調節し、MgOドープ結晶中を励起光が導波できるようにした。この結晶を用いたチェレンコフ位相整合により0.5–6.0 THz付近まで特異な吸収の無い出力が確認できていることから、この結晶の新規分光法への応用により広帯域な分光が可能となる。また、励起光とTHz波の相互作用の増加も期待できる。導波路結晶を用いたチェレンコフ位相整合では、THz波の発生が導波路結晶すべてになることから、励起光とTHz波の相互作用も結晶中すべてにおいて効果的な相互作用が得られることになる。これによりバルク結晶を用いたチェレンコフ位相整合に比べて10倍以上の相互作用を確保できると考えられる。

この二種類の検討の使用用途を考えると、この二種類の方法は同時に利用することはできない。端面反射位相整合はバルク結晶を用いた際の高感度化の方法であり、導波路構造は結晶そのものを置き換える必要がある。バルク結晶を用いた場合、結晶の値段は導波路構造に比べて格段に安価であることから、実用化に際し、メリットを有している。一方、導波路構造では、結晶単価は向上するが、導波路の構造次第では、リファレンスの同時取得も可能となり、パッケージ化に向けては、この方法がふさわしいと考えられる。どちらの方式が新規分光法の実用化・産業化に向けてふさわしいかは実際に分光法に応用し、検

討していく必要があることから、今後の課題としたい。

参考文献

- [1] K. Kawase, M. Sato, T. Taniuchi, and H. Ito: Appl. Phys. Lett. **68**, 2483 (1996).
- [2] T. Akiba, Y. Akimoto, M. Tamura, K. Suizu, K. Miyamoto, T. Omatsu, J. Takayanagi, T. Takada, and K. Kawase: Appl. Optics, **52**, 8305 (2013).
- [3] E. D. Palik: Handbook of Optical Constants of Solids, p.695 (1985).
- [4] D. H. Jundt: Opt. Lett. **22** 1553 (1997).
- [5] M. Schall, H. Helm, and S.R. Keiding: Int. J. Infrared and MW Waves **20**, 595 (1999).
- [6] P. E. Powers: Fundamentals of Nonlinear Optics, p. 92 (2011).
- [7] 斗内政吉: テラヘルツ波新産業, p. 30 (2011).
- [8] K. Suizu, K. Koketsu, T. Shibuya, T. Tsutsui, T. Akiba and K. Kawase: Opt. Express **17**, 6676 (2009).
- [9] J. Hebling, G. Almasi, I. Z. Kozma and J. Kuhl, : Opt. Express **10**, 1161-1165 (2002).

第7章 結言

本研究では、実用化・産業化のニーズを満たす新しい分光法の確立を目的に励起光と THz 波の相互作用を用いた近赤外光検出による新規分光法の開発を行った。

まず、第2章では、THz 波の発生の基本となる非線形光学について、二次の非線形光学を中心に述べた。レーザー光などのコヒーレントで高強度な光を物質に入射すると、その光に対する応答は線形の領域だけではなく、非線形な応答も観測されるようになる。この非線形な応答に着目することで、光の波長変換が可能となり、任意に必要とする光を発生させることができる。この技術を応用し、二次の非線形光学である差周波発生により THz 波発生を行うことを目標にその励起光源である二波長光源の作製を行った。励起二波長光源には KTP 結晶による光パラメトリック発振を採用し、この原理及び特性について述べた。また、励起二波長光のゲインの食い合いや四波混合の問題を解決するためにタンデム方式による KTP-OPOs を構築し、特性の評価を行った。最後に、構築した励起二波長光源の評価の為に、非線形光学結晶として有機非線形光学結晶である DAST 結晶を採用し、差周波発生による THz 波の発生を行い、構築した励起二波長光源が差周波発生にふさわしいことを確認した。この結果、差周波発生により広帯域で波長可変な THz 波光源が開発可能であることを示した。

第3章では、第2章で構築した励起二波長光源を用いて、チェレンコフ型位相整合による THz 波の発生および評価を行った。チェレンコフ型位相整合は、差周波発生を応用した位相整合方式であり、非線形光学結晶として LiNbO₃ 結晶を用いることで、分光応用に重要とされる 1~5 THz の範囲で特異な吸収の無い出力を得ることができる。しかしながら、本光源は従来研究として、結晶の吸収が大きくなり取り出し効率が低下するという観点から s 偏光での取り出しのみ研究されており、p 偏光での取り出しは確認されていなかった。p 偏光の THz 波では、フレネル損失が少ないこと及び全反射時での位相変化が大きく、位相変化を利用した分光法で s 偏光に比べて高感度計測が期待できることから分光応用に際し、重要となると考えられる。そこで、本章では、s 偏光と p 偏光での違いを明らかにするため、両偏光状態での THz 波光源の開発を行い、その後、両偏光状態の出力の違いを評価した。また、p 偏光について、取り出しに必要なクラッド材を最適化することで、出力が向上することを確認した。

第4章では、THz 波を用いた高感度計測を目標に、レーザーのパルス幅の変更を行った。前章までに、開発してきた光源は、パルス幅がナノ秒オーダーの光源であり、非線形光学効果において重要となるピーク値が高いというメリットを有する一方で、レーザーの繰り返し周波数が遅く、高速で高感度な計測においてその点がデメリットになっていた。さらに、ナノ秒オーダーの光源では、非線形光学結晶の熱による損傷が高強度の THz 波の発生を妨げていた。そこで、本章では、パルス幅がピコ秒となる高繰り返し回のピコ秒光源を作

製し、第2章同様に二次の非線形光学効果を用いて、差周波発生用の励起二波長光源の作製をおこなった。パルス幅がナノ秒からピコ秒へと変わることによって、線幅の増加という問題点が発生する。この問題を解決するため、連続波のレーザー光を種光として光注入を行うことで、線幅の狭窄化および出力の増加を行い、分光応用に必要な励起二波長光源の作製を行った。この励起二波長光源の評価をする為、実際に差周波発生を用いた THz 波の発生により特性の評価を行った。この結果、本光源により THz 波の発生を確認し、分光応用に適した光源の構築に成功した。

第5章では、THz 波を用いた新規分光法として、テラヘルツ・エバネッセント波を用いた分光法の提案および実証を行った。THz 波を用いた一般的な分光法はテラヘルツ時間領域分光法であり、この分光法は実験系に光学遅延ステージや光伝導スイッチを必要とすることから実験系が複雑になる。また、光学遅延ステージを用いての測定は一回の測定に数分の測定時間を要し、常時状態が変化するサンプルの測定は難しい。そこで、この問題点を解決するために、エバネッセント波を分光に利用した新規分光法を考案した。この新規分光法では、励起光と THz 波の相互作用を利用して、THz 波の持つ情報を励起光である近赤外光に転写することで、THz 周波数帯での情報を得ることができる。この分光法では、THz 波を直接検出せず、近赤外光を検出する。この分光法の大きなメリットは、検出が近赤外光になることで、常温動作で高感度な光検出器を利用できることおよびリアルタイムでサンプルの状態変化に追従できることである。本章ではこの分光法の可能性を検討するため、まず始めに、固体サンプルにおいて、単一周波数でのセンシングを行った。その結果、エバネッセント波の存在する領域にサンプルが接触すると、サンプルの THz 周波数帯での複素誘電率に起因した励起二波長光の強度変化が得られることを確認した。また、この時に結晶端面からのサンプルの距離と観測される近赤外光の強度の関係は、エバネッセント波の指数関数的な強度分布に起因して変化することも併せて確認した。次に、本分光法の即時応答性を確認するため、常温において蒸発するエタノールをサンプルに測定を行った。その結果、本分光法では、ミリ秒オーダーでの応答が可能であり、上述の THz-TDS に対する大きなメリットを有することを確認した。最後に、分光を行う為に、周波数を変化させる必要があることから、グレーティングペアを用いて光学系を構築し、波長変化に伴う光路のズレを補正し、純水およびスクロース水溶液において、分光測定を行い、サンプルの違いに起因した近赤外光の強度変化を確認した。以上より、本分光法において、近赤外光の検出により、THz 周波数帯での分光が可能であることを示した。これにより、タンパク質等のバイオセンシングにおいて重要となる水和状態の変化の測定など THz 波を用いた分光の応用範囲が広がり、THz 周波数帯での新たな発見につながる可能性があると考えられる。

第6章では、第5章で提案した新規分光法の高感度化を目的に新しい THz 波発生法の検討や導波路構造の導入の検討を行った。新規分光法における高感度化には、発生させる THz 波の強度を増加させる他に、いかに励起二波長光である近赤外光と THz 波の相互作用を増

加させるかという問題がある。THz 波の発生に用いる結晶は、励起二波長光の吸収は無視できるが、THz 波の吸収は大きく、高周波領域では THz 波は相互作用を行う前に結晶により吸収され、分光は困難となる。そこで、第 5 章では THz 波発生にチェレンコフ位相整合を用いたが、本章ではこの問題に焦点を当て、新しい THz 波の発生法を実証した。この方法では、励起二波長光を結晶界面で反射させることで、反射した励起光と反射していない励起光でノンコリニア位相整合を満たして THz 波を発生させる。この時、THz 波の発生箇所は結晶界面付近に位置し、放射される THz 波は結晶界面で全反射する。この方式では、チェレンコフ位相整合とは異なり、ビーム径を強く集光する必要はないことから、THz 波と励起二波長光の相互作用を確保でき、高周波領域でも分光が可能となる。この新しい発生法をナノ秒レーザー光源にて実証し、同様にピコ秒レーザー光源においても発生できることを確認した。また、別の観点からの高感度化として、導波路構造の導入の検討を行った。導波路構造では励起光のビーム径及び THz 波の伝搬距離は無視することができ、且つ励起光が伝搬する結晶長すべてにおいて THz 波と励起光との相互作用を行うことができる。これにより、相互作用が増加し、大きな強度変化を得ることができる。以上より、新規分光法の問題点からその解決法を提示し、高感度化につながる可能性を示した。

今後の課題として、新規分光法の実用化・産業化に向けて、以下の事項を推し進めていく必要がある。まず、一つ目として、新規分光法の SN 比の向上である。今回の新規分光法の SN 比は 2 桁であった。これは従来技術である THz-TDS（常温で 4 桁）や単色 THz 波光源による分光法（極低温で 3 桁）と比較しても、低い値となった。この為、新規分光法には前述のようなメリットがあるものの、SN 比の改善は本方式の応用に向けて必然の課題である。この改善に向けて、励起光源の安定性の向上、相互作用効果の増加にむけた検討、新規検出技術の模索を進めていきたい。励起光源の安定性の向上のためには、ピコ秒光源の見直しを行い、十分なポンプ光による光パラメトリック発生を実施していきたいと考えている。光パラメトリック発生においてはポンプ光の強度が向上することで、発生させる光の安定性を向上できる。したがって、ポンプ光源の見直しにより、新規分光法の感度向上が実施できると考えている。また、相互作用効果の増加に向けた検討では、第 6 章で検討した技術を導入して比較検討していきたいと考えている。第 6 章で、検討した内容である端面反射位相整合は結晶がバルク結晶の場合に、導波路構造は結晶を置き換えての使用と 2 者択一の技術であるので、その応用先も含めて検討していく必要がある。さらに、新規検出技術の模索については、新規分光法では、検出が近赤外光となることから、近赤外光では実現されている高感度な検出技術や検出器の導入が可能となると考えられる。このため、近赤外光の技術の模索を進めていきたいと考えている。二つ目の課題は、新規分光法の計算モデルの構築である。新規分光法において、本論文内で実証できたのはサンプルの影響で THz 波を介して励起光の強度変化が生じること確認したところまでである。つまり、この強度変化からサンプルの光学特性を導く課程については今後の課題となる。そのため、この課題をクリアするためには、結合波方程式への物理現象モデルの導入により、

数値計算からの光学定数の導出を検討していく必要がある。具体的には、全反射時の物理について考察し、グースヘンシェンシフトや偏光依存性を考慮し、計算式の構築を進めていきたい。また、光学特性が既知のサンプルや他の分光法において測定した光学特性を用いて、比較検討を行い、計算モデルの構築に応用していきたいと考えている。さらに、強度変化だけではなく、位相変化の情報を取得することも併せて検討していきたいと考えている。これによりサンプルの持つ光学特性を取得できると考えている。

本研究で提案した新規分光法は、その特性上、THz 波を伝搬させて測定する必要がある壁面などの遠距離に存在するサンプルの測定には使用できないが、即応性を有し、常温で測定可能なことからサンプルの物性評価において、大きな期待が持てる分光法である。このため、上記の課題に取り組み、問題を解決することにより、本方式の実用化・産業化を目指していきたい。

付録 A 擬似位相整合

擬似位相整合^{[1][2]}とは、位相整合条件である $\Delta k=0$ を満たすことが難しい時に、使用する非線形光学結晶に周期性を持たせることにより、条件を緩和する位相整合方式である。この方式では、位相不整合に対応した周期で結晶の光学軸を周期的に反転（周期分極反転）させ、非線形光学定数の符号を変調することにより、位相整合を擬似的に成立させる。擬似位相整合は、非線形光学過程を用いた周波数変換一般に対して有効であるが、ここでは、第2高調波発生について考察する。

今、周期分極反転により擬似位相整合を行うことを考える。始めに、第2高調波発生の位相不整合の大きさを Δk とする。また、使用する非線形光学結晶を Fig. A-1 のように長さ $\Lambda/2$ 毎に結晶の分極の向きを反転させて貼りあわせることで、周期 Λ の周期構造を作製する。この時、

$$\frac{n}{\Lambda} = \Delta k \quad (\text{A-1})$$

であれば、擬似位相整合の条件を満足する。このうち、 $n=1$ の場合が最も周波数変換の効率が高くなることから、以下ではこの場合について考察する。周期的に結晶の非線形光学定数が反転することから、非線形光学定数 d は位置 z に依存するので、式 (A-2) のように表される。

$$d(z) = \begin{cases} d_{bulk} \left(n\Lambda \leq z < \left(n + \frac{1}{2} \right) \Lambda \right) \\ -d_{bulk} \left(\left(n + \frac{1}{2} \right) \Lambda \leq z < (n+1)\Lambda \right) \end{cases} \quad (\text{A-2})$$

これをフーリエ級数に展開すると、

$$d(z) = d_{bulk} \sum_{m=-\infty}^{\infty} a_m \exp\left(im \frac{2\pi}{\Lambda} z \right) \quad (\text{A-3})$$

$$a_m = \begin{cases} \frac{2i}{m\pi} & (m \text{が奇数}) \\ 0 & (m \text{が偶数}) \end{cases} \quad (\text{A-4})$$

となる。

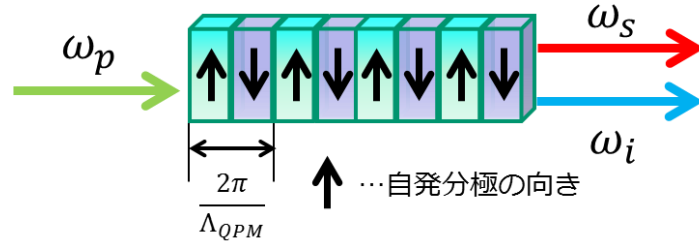


Fig. A - 1 擬似位相整合の模式図

今、入射する電磁波の電場を

$$E_1(z, t) = \frac{1}{2} A_1(z) \exp[i(k_1 z - \omega t)] + c.c. \quad (\text{A-5})$$

とすると、第2高調波に関する非線形分極は、

$$P^{NL}(z, t) = \frac{\varepsilon_0 d(z)}{2} [A_1(z)]^2 \exp[i(2k_1 z - 2\omega t)] + c.c. \quad (\text{A-6})$$

となる。つまり、第2高調波の電場は、

$$E_2(z, t) = \frac{1}{2} A_2(z) \exp[i(k_2 z - 2\omega t)] + c.c. \quad (\text{A-7})$$

で表される。この時、この電磁波の伝搬方程式は、

$$\frac{dA_2(z)}{dz} = \frac{i\omega}{cn_{2\omega}} d(z) [A_1(z)]^2 \exp[i\Delta k z] \quad (\text{A-8})$$

である。ここで、

$$\Delta k \equiv 2k_1 - k_2 \quad (\text{A-9})$$

である。 $A_1(z)$ が定数であるとし、式 (A-8) に式 (A-9) を代入すると、

$$\frac{dA_2(z)}{dz} = \frac{i\omega}{cn_{2\omega}} d_{bulk} [A_1(0)]^2 \sum_{m=-\infty}^{\infty} a_m \exp\left[i\left(m\frac{2\pi}{\Lambda} + \Delta k\right)z\right] \quad (\text{A-10})$$

となる。この時、第2高調波の電場振幅 $A_2(z)$ が z に比例して成長していくためには、整数 m に対して、以下の式 (A-11) が求められる。

$$m\frac{2\pi}{\Lambda} + \Delta k = 0 \quad (\text{A-11})$$

この式 (A-11) を通常の位相整合条件と比較してみると、位相整合条件が緩和されていることがわかる。式 (A-11) が満たされた際の実効的な非線形光学定数は

$$\left| d_{eff} \right| = \frac{2}{\pi} d_{bu} \quad (\text{A-12})$$

となる。また、周期 Λ は式 (A-11) より以下の式を満たせばよいことが計算できる。

$$\Lambda = \frac{2\pi}{\Delta k} \quad (\text{A-13})$$

参考文献

- [1] 服部利明 “非線形光学入門”，裳華房 p.55 (2009).
- [2] 的場修 “光エレクトロニクス”，オーム社 p.112 (2013).

論文目録記載の研究業績リスト

● 学術論文(査読有り)第一著者

1. Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, and Takashige Omatsu, "THz-wave sensing via pump and signal wave detection interacted with evanescent THz waves," *Optics Letters*, Vol. 38, Iss. 18, (Sep. 2013) pp. 3687-3689.
※Advances In Engineering(AIE)により、工学的に特に重要度の高い論文として選ばれ、AIE のサイトにて紹介されました。
2. Takuya Akiba, Yasuhiro Akimoto, Motoaki Tamura, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, Jun Takayanagi, Tomoya Takada, and Kodo Kawase, "Broadband THz-wave generation by satisfying the non-collinear phase matching condition with a reflected signal beam," *Applied Optics*, Vol. 52, Iss. 34, (Nov. 2013) pp. 8305-8309.
3. Takuya Akiba, Yasuhiro Akimoto, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, and Takashige Omatsu, "Evaluation of polarized terahertz waves generated by Cherenkov phase matching," *Applied Optics*, Vol. 53, Iss. 8, (Mar. 2014) pp. 1518–1522.
4. Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, and Takashige Omatsu, "Real-time terahertz-wave sensing via infrared detection interacted with evanescent terahertz waves," *Optical Review* accepted.

● 学術論文(査読有り)

1. Katsuhiko Miyamoto, Koji Suizu, Takuya Akiba, and Takashige Omatsu, "Direct observation of the topological charge of a terahertz vortex beam generated by a Tsurupica spiral phase plate," *Applied Physics Letters*, Vol.104, Iss. 26, (Jun. 2014) 261104.
2. Koji Suizu and Takuya Akiba, "Behavior of three waves in Cherenkov phase matched monochromatic terahertz wave generation investigated by numerical analysis," *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol. 53, Iss. 9, (Aug. 2014) 092701.

● 学術報告(査読無し)第一著者分

1. 秋葉拓也, 金子直也, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, "テラヘルツエバネッセント波を用いた光検出によるテラヘルツセンシング," *化学工業*, Vol. 64, No. 11, (Nov. 2013) pp. 828-834.

● 国際会議発表 第一著書分

1. Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, “Real-time THz-wave sensing via infrared lights detection interacted with evanescent THz waves,” OPIC2014 1st OPTICAL MANIPULATION CONFERENCE (OMC2014), OMCp3-7, Pacifico Yokohama, Kanagawa, Japan (Apr. 22-25, 2014).
2. Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, “Real-time THz-wave spectroscopy via infrared lights detection interacted with evanescent THz waves,” Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2014), JTh2A.135, San Jose Convention Center, San Jose, USA (Jun 8-13, 2014).

● 国内会議発表 第一著者分

1. 秋葉拓也, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント分光の実験的検証,” 日本学術会議総合工学委員会 IC0 分科会「第3回先端フォトニクスシンポジウム」, 日本学術会議 (Apr. 26, 2013).
2. 秋葉拓也, 秋元康尋, 田村基晃, 水津光司, 高柳順, 宮本克彦, 尾松孝茂, “端面反射位相整合による広帯域 THz 波光源の開発,” 第61回応用物理学会春季学術講演会, 17p-E17-12, 青山学院大学 (Mar.17-20,2014).
3. 秋葉拓也, 秋元康尋, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, “チェレンコフ位相整合によるテラヘルツ波の偏光依存性の評価,” 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 19a-C6-2, 北海道大学 (Sep.17-20,2014).

● 国内会議発表 第一著者分以外

1. 金子直也, 秋葉拓也, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント波による新規分光法の提案,” 電子情報通信学会エレクトロニクスソサイエティ テラヘルツ応用システム研究会 フォトニクスを用いたテラヘルツ波発生・検出およびシステム化技術, 北海道大学 (Aug.6,2013).
2. 宮本克彦, 水津光司, 秋葉拓也, 尾松孝茂, “波長可変(1-15THz)狭線幅ピコ秒テラヘルツ発生,” 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 17p-A14-5, 同志社大学 (Sep. 16-20, 2013).

3. 金子直也, 秋葉拓也, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント波によるリアルタイム計測,” 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 17a-PA2-12, 青山学院大学 (Mar.17-20,2014).
4. 宮本克彦, 水津光司, 秋葉拓也, 尾松孝茂, “連続螺旋位相板を用いたテラヘルツ光渦の発生およびモード解析,” 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 19a-C6-11, 北海道大学 (Sep. 17-20, 2014).
5. 金子直也, 秋葉拓也, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント波と励起光の相互作用を利用した分光応用,” 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 20a-C6-1, 北海道大学 (Sep. 17-20, 2014).

その他の業績

● 学術論文（査読有）第一著者以外

1. Koji Suizu, Takayuki Shibuya, Shigehiro Nagano, Takuya Akiba, Keiichi Edamatsu, Hiromasa Ito, and Kodo Kawase, "Pulsed high peak power millimeter wave generation via difference frequency generation using periodically poled lithium niobate," Japanese Journal of Applied Physics Part2, Vol. 46, Iss. 40, (2007) pp. L982 - L984.
2. Takayuki Shibuya, Takuya Akiba, Koji Suizu, Hirohisa Uchida, Chiko Otani, and Kodo Kawase, "Terahertz-Wave Generation Using a 4-Dimethylamino-N-methyl-4-stilbazolium tosylate Crystal Under Intra-Cavity Conditions," Applied Physics Express, Vol.1, Iss. 4, (2008) pp.042002-1-042002-3.
3. Koji Suizu, Takayuki Shibuya, Takuya Akiba, Toshihiro Tutui, Chiko Otani, and Kodo Kawase, "Cherenkov phase-matched monochromatic THzwave generation using difference frequency generation with a lithium niobate crystal," Optics Express, Vol. 16, Iss. 10 (2008) pp. 7493-7498.
4. Takayuki Shibuya, Toshihiro Tsutsui, Koji Suizu, Takuya Akiba, and Kodo Kawase, "Efficient Cherenkov-Type Phase-Matched Widely Tunable THz-Wave Generation via an Optimized Pump Beam Shape," Applied Physics Express, Vol. 2, Iss. 3, (2009) pp. 032302.
5. Koji Suizu, Kaoru Koketsu, Takayuki Shibuya, Toshihiro Tsutsui, Takuya Akiba, and Kodo Kawase, "Extremely frequency-widened terahertz wave generation using Cherenkov-type radiation," Optics Express, Vol.17, Iss. 8, (2009) pp. 6676-6681.
6. Koji Suizu, Toshihiro Tsutsui, Takayuki Shibuya, Takuya Akiba, and Kodo Kawase, "Cherenkov phase-matched THz-wave generation with surfing configuration for bulk lithium niobate crystal," Optics Express, Vol.17, Iss. 9, (2009) pp. 7102-7109.
7. 澁谷孝幸、水津光司、筒井俊博、秋葉拓也、川瀬晃道 "チェレンコフ型位相整合方式による差周波光混合テラヘルツ波発生," レーザー研究 vol. 37, Iss. 5, (2009) pp. 366-369.

8. Katsuhiko Miyamoto, Andrew Lee, Takefumi Saito, Takuya Akiba, Koji Suizu, and Takashige Omatsu, "Broadband terahertz light source pumped by a 1 μ m picosecond laser," Applied Physics B, Vol. 110, Iss. 3, (March, 2013) pp. 321-326.

● 学術報告(査読無し)

1. 内田裕久, 秋葉拓也, 鶴岡祐亮, 深山達也, 渡辺啓太, 水津光司, "高出力テラヘルツ波光源開発に向けた有機非線形光学結晶の育成と評価," 千葉工業大学研究報告 理工編, No. 60, (2013) pp. 47-55.

● 特許

1. 高柳順, 水津光司, 秋葉拓也, "テラヘルツ波発生装置および方法," 特願 2014-81558

● 招待講演 第一著書分以外

1. Koji Suizu, Hirohisa Uchida, and Takuya Akiba, "(Invited) Monochromatic - Wide Tunable THz-wave generation by Difference Frequency Generation with Cherenkov Phase Matching Method," Topological lightwave synthesis and its applications 2012 (Topological LWS 2012) 5A-2.
2. Koji Suizu, Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Hirohisa Uchida, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, "Cherenkov phase-matched terahertz wave generation and its spectroscopic applications (Invited)," The 5th International Symposium on Photoelectronic Detection and Imaging (ISPD2013), Beijing, China (June 25-27, 2013).
3. 水津光司, 秋葉拓也, 金子直也, 宮本克彦, 尾松孝茂, "テラヘルツ・エバネッセント波と励起光の相互作用を利用した新規分光法の開拓 (Invited)," 日本学術振興会 テラヘルツ波科学技術と産業開拓 第182委員会 第19回研究会, 大阪大学, 大坂 (Jun. 30, 2014).
4. Koji Suizu, Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, "THz-wave Spectroscopy via Pump and Signal Wave Detection Interacted with Evanescent THz Waves (Invited)," BIT's 3rd Annual Conference and EXPO of AnalytiX 2014, Daliang, China (Apr. 25-28, 2014).

● 国際会議発表 第一著書分以外

1. Katsuhiko Miyamoto, Koji Suizu, Takefumi Saito, Takuya Akiba, Tashige Omatsu, "Widely Tunable (1-15THz), Narrowband Picosecond Terahertz Light Source," The 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim, and The 18th OptoElectronics and Communications Conference / Photonics in Switching 2013 (CLEO-PR & OECC/PS 2013), MC 1-6, Kyoto, Japan (June 30-July 4, 2013).

● 国内学会・研究会発表 第一著書分

1. 秋葉拓也, 澁谷孝幸, 水津光司, 内田裕久, 川瀬晃道, "差周波発生発生方式による高出力 THz 波光源の開発," 2007 年秋季 第 68 回応用物理学会学術講演会, 北海道工業大学 (Sept. 2007).
2. 秋葉拓也, 澁谷孝幸, 水津光司, 内田裕久, 大谷知行, 川瀬晃道, "DAST-共振器内差周波発生による THz 波発生," レーザー学会学術講演会第 28 回年次大会, 名古屋国際会議場 (Jan. 30 - Feb. 1, 2008).
3. 秋葉拓也, 澁谷孝幸, 水津光司, 内田裕久, 川瀬晃道, "DAST 結晶を用いたイントラキャビティ DFG による THz 波発生," 2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会, 日大, 千葉 (Mar. 27 - 30, 2008).
4. 秋葉拓也, 水津光司, 五十嵐智史, 小石川将晃, 斎藤岳史, 宮本克彦, 尾松孝茂, "テラヘルツ・エバネッセント波による複素誘電率分光," 応用物理学会テラヘルツ電磁波技術研究主催・研究討論会「テラヘルツセンシング及びシミュレーション技術の進展」, 機械振興会館 (Mar. 3-4, 2013).

● 国内学会・研究会発表 第一著書分以外

1. 澁谷孝幸, 秋葉拓也, 水津光司, 大谷知行, 川瀬晃道, "差周波光混合を用いた THz 波光源の高出力化に関する研究," テラヘルツ秋の学校 in 信州, 信州大学 (Oct. 4-5, 2007).
2. 澁谷孝幸, 筒井俊博, 秋葉拓也, 水津光司, 大谷知行, 川瀬晃道, "チェレンコフ位相整合方式による広帯域波長可変テラヘルツ波発生," 2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会, 28p-ZH-5, 日大, 千葉 (Mar. 27 - 30, 2008).

3. 内田裕久, 秋葉拓也, 澁谷孝幸, 水津光司, 深作昇, 大谷知行, 川瀬晃道, "アニーリング法を用いた高レーザー耐性 DAST 結晶の開発," 2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会, 28a-ZV-4, 日大, 千葉 (Mar. 27 - 30, 2008).
4. 澁谷孝幸, 筒井俊博, 秋葉拓也, 水津光司, 大谷知行, 川瀬晃道, "チェレンコフ型位相整合方式による広帯域波長可変 THz 波光源," 第 7 回理研・分子研合同シンポジウム エクストリームフォトンクス研究, P50, 理化学研究所, 和光 (May. 15 - 16, 2008).
5. 筒井俊博, 澁谷孝幸, 秋葉拓也, 水津光司, 川瀬晃道, "チェレンコフ型位相整合方式による広帯域波長可変テラヘルツ波発生," 平成 20 年度電気関係学会東海支部連合大会, O-338, 愛知県立大学 (Sept. 19, 2008).
6. 水津光司, 澁谷孝幸, 筒井俊博, 秋葉拓也, 川瀬晃道, "チェレンコフ型位相整合による差周波 THz 発生," 応用物理学会テラヘルツ電磁波技術研究会「最近のテラヘルツ要素技術」討論会, 広島大学, 広島 (Oct. 10-11, 2008).
7. 水津光司, 秋葉拓也, 金子直也, 近藤啓司, 五十嵐智史, 小石川将晃, 宮本克彦, 尾松孝茂, "テラヘルツ・エバネッセント波による複素誘電率分光計測," 産学共創基礎基盤研究プログラム「テラヘルツ波新時代を切り拓く革新的基盤技術の創出」サイトビジット, 千葉工業大学, 千葉 (Jun. 4, 2012).
8. 水津光司, 秋葉拓也, 金子直也, 近藤啓司, 五十嵐智史, 小石川将晃, 宮本克彦, 尾松孝茂, "テラヘルツ・エバネッセント波による複素誘電率分光計測," 産学共創基礎基盤研究プログラム「テラヘルツ波新時代を切り拓く革新的基盤技術の創出」合同分科会, セミナーハウスフォーリッジ, 東京 (Sept. 14-15, 2012).
9. 水津光司, 秋葉拓也, "チェレンコフ位相整合単色テラヘルツ波発生の数値解析," 応用物理学会テラヘルツ電磁波技術研究主催・研究討論会「テラヘルツセンシング及びシミュレーション技術の進展」, 機械振興会館 (Mar. 3-4, 2013).
10. 水津光司, 秋葉拓也, 宮本克彦, 斎藤岳史, 尾松孝茂, "チェレンコフ位相整合テラヘルツ波発生の偏光依存性," 2013 年春季第 60 回応用物理学関係連合講演会, 29a-D1-9, 神奈川工科大, (Mar. 27-30, 2013).

11. 宮本克彦, 水津光司, 斎藤岳史, 秋葉拓也, 尾松 孝茂, "テラヘルツエバネッセント分光のための $1.5\mu\text{m}$ 帯狭線幅ピコ秒レーザー", 2013 年春季第 60 回応用物理学関係連合講演会, 30p-C1-1, 神奈川工科大, (Mar. 27-30, 2013).
12. 金子直也, 秋葉拓也, 水津光司, 梅本翔太, 宮本克彦, 尾松孝茂, "テラヘルツ・エバネッセント波手法の提案," 第 14 回レーザー学会東京支部研究会, 東海大学高輪キャンパス(Mar.5,2014)
13. 原麻里子, 秋葉拓也, 水津光司, "電界印加法による二次非線形光学効果の検討," 第 14 回レーザー学会東京支部研究会, 東海大学, 高輪キャンパス(Mar,5,2014)
14. 関裕次郎, 秋葉拓也, 小田切政樹, 橋野風, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, "Type II バックワード位相整合によるテラヘルツ波光源の開発" 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 18p-PA5-8, 北海道大 (Sep. 17-20, 2014).

各章の該当業績

第2章

論文なし

その他

1. 秋葉拓也, 澁谷孝幸, 水津光司, 内田裕久, 川瀬晃道, “差周波発生発生方式による高出力 THz 波光源の開発,” 2007 年秋季 第 68 回応用物理学学会学術講演会, 北海道工業大学 (Sept. 2007).
2. 澁谷孝幸, 秋葉拓也, 水津光司, 大谷知行, 川瀬晃道, "差周波光混合を用いた THz 波光源の高出力化に関する研究," テラヘルツ秋の学校 in 信州, 信州大学 (Oct. 4-5, 2007).
3. 内田裕久, 秋葉拓也, 澁谷孝幸, 水津光司, 深作昇, 大谷知行, 川瀬晃道, "アニーリング法を用いた高レーザー耐性 DAST 結晶の開発," 2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会, 28a-ZV-4, 日大, 千葉 (Mar. 27 - 30, 2008).

第3章

論文

1. Takuya Akiba, Yasuhiro Akimoto, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, and Takashige Omatsu, “Evaluation of polarized terahertz waves generated by Cherenkov phase matching,” Applied Optics, Vol. 53, Iss. 8, (Mar. 2014) pp. 1518–1522.
2. Koji Suizu and Takuya Akiba, "Behavior of three waves in Cherenkov phase matched monochromatic terahertz wave generation investigated by numerical analysis," Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 53, Iss. 9, (Aug. 2014) 092701.
3. Koji Suizu, Takayuki Shibuya, Takuya Akiba, Toshihiro Tutui, Chiko Otani, and Kodo Kawase, “Cherenkov phase-matched monochromatic THzwave generation using difference frequency generation with a lithium niobate crystal,” Optics Express, Vol. 16, Iss. 10 (2008) pp. 7493-7498.
4. Takayuki Shibuya, Toshihiro Tsutsui, Koji Suizu, Takuya Akiba, and Kodo Kawase, “Efficient Cherenkov-Type Phase-Matched Widely Tunable THz-Wave Generation via an Optimized Pump Beam Shape,” Applied Physics Express, Vol. 2, Iss. 3, (2009) pp. 032302.
5. Koji Suizu, Toshihiro Tsutsui, Takayuki Shibuya, Takuya Akiba, and Kodo Kawase, “Cherenkov phase-matched THz-wave generation with surfing configuration for bulk lithium niobate crystal,” Optics Express, Vol.17, Iss. 9, (2009) pp. 7102-7109.
6. 澁谷孝幸、水津光司、筒井俊博、秋葉拓也、川瀬晃道 “チェレンコフ型位相整合方式による差周波光混合テラヘルツ波発生,” レーザー研究 vol. 37, Iss. 5, (2009) pp. 366-369.

その他

1. 秋葉拓也, 秋元康尋, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, “チェレンコフ位相整合によるテラヘルツ波の偏光依存性の評価,” 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会, 19a-C6-2, 北海道大学 (Sep.17-20,2014).
2. Koji Suizu, Hirohisa Uchida, and Takuya Akiba, “(Invited) Monochromatic - Wide Tunable THz-wave generation by Difference Frequency Generation with Cherenkov Phase Matching Method,” Topological lightwave synthesis and its applications 2012 (Topological LWS 2012) 5A-2.
3. 澁谷孝幸, 筒井俊博, 秋葉拓也, 水津光司, 大谷知行, 川瀬晃道, “チェレンコフ位相整合方式による広帯域波長可変テラヘルツ波発生,” 2008 年春季第 55 回応用物理学関係連合講演会, 28p-ZH-5, 日大, 千葉 (Mar. 27 - 30, 2008).
4. 澁谷孝幸, 筒井俊博, 秋葉拓也, 水津光司, 大谷知行, 川瀬晃道, “チェレンコフ型位相整合方式による広帯域波長可変 THz 波光源,” 第 7 回理研・分子研合同シンポジウム エクストリームフォトンクス研究, P50, 理化学研究所, 和光 (May. 15 - 16, 2008).
5. 筒井俊博, 澁谷孝幸, 秋葉拓也, 水津光司, 川瀬晃道, “チェレンコフ型位相整合方式による広帯域波長可変テラヘルツ波発生,” 平成 20 年度電気関係学会東海支部連合大会, O-338, 愛知県立大学 (Sept. 19, 2008).
6. 水津光司, 澁谷孝幸, 筒井俊博, 秋葉拓也, 川瀬晃道, “チェレンコフ型位相整合による差周波 THz 発生,” 応用物理学会テラヘルツ電磁波技術研究会「最近のテラヘルツ要素技術」討論会, 広島大学, 広島 (Oct. 10-11, 2008).
7. 水津光司, 秋葉拓也, 宮本克彦, 斎藤岳史, 尾松孝茂, “チェレンコフ位相整合テラヘルツ波発生の偏光依存性,” 2013 年春季第 60 回応用物理学関係連合講演会, 29a-D1-9, 神奈川工科大, (Mar. 27-30, 2013).

第 4 章

論文

1. Katsuhiko Miyamoto, Koji Suizu, Takuya Akiba, and Takashige Omatsu, “Direct observation of the topological charge of a terahertz vortex beam generated by a Tsurupica spiral phase plate,” Applied Physics Letters, Vol.104, Iss. 26, (Jun. 2014) 261104.
2. Katsuhiko Miyamoto, Andrew Lee, Takefumi Saito, Takuya Akiba, Koji Suizu, and Takashige Omatsu, “Broadband terahertz light source pumped by a 1 μ m picosecond laser,” Applied Physics B, Vol. 110, Iss. 3, (March, 2013) pp. 321-326.

その他

1. Katsuhiko Miyamoto, Koji Suizu, Takefumi Saito, Takuya Akiba, Tashige Omatsu, “Widely Tunable (1-15THz), Narrowband Picosecond Terahertz Light Source,” The 10th Conference on

Lasers and Electro-Optics Pacific Rim, and The 18th OptoElectronics and Communications Conference / Photonics in Switching 2013 (CLEO-PR & OECC/PS 2013), MC 1-6, Kyoto, Japan (June 30-July 4, 2013).

2. 宮本克彦, 水津光司, 秋葉拓也, 尾松孝茂, “波長可変(1-15THz)狭線幅ピコ秒テラヘルツ発生,” 第74回応用物理学会秋季学術講演会, 17p-A14-5, 同志社大学 (Sep. 16-20, 2013).
3. 宮本克彦, 水津光司, 秋葉拓也, 尾松孝茂, “連続螺旋位相板を用いたテラヘルツ光渦の発生およびモード解析,” 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 19a-C6-11, 北海道大学 (Sep. 17-20, 2014).
4. 宮本克彦, 水津光司, 斎藤岳史, 秋葉拓也, 尾松孝茂, “テラヘルツエバネッセント分光のための1.5 μ m帯狭線幅ピコ秒レーザー”, 2013年春季第60回応用物理学関係連合講演会, 30p-C1-1, 神奈川工科大, (Mar. 27-30, 2013).

第5章

論文

1. Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, and Takashige Omatsu, "THz-wave sensing via pump and signal wave detection interacted with evanescent THz waves," Optics Letters, Vol. 38, Iss. 18, (Sep. 2013) pp. 3687-3689.
2. Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, and Takashige Omatsu, “Real-time terahertz-wave sensing via infrared detection interacted with evanescent terahertz waves,” Optical Review accepted.

その他

1. 秋葉拓也, 金子直也, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツエバネッセント波を用いた光検出によるテラヘルツセンシング,” 化学工業, Vol. 64, No. 11, (Nov. 2013) pp. 828-834.
2. Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, “Real-time THz-wave sensing via infrared lights detection interacted with evanescent THz waves,” OPIC2014 1st OPTICAL MANIPULATION CONFERENCE (OMC2014), OMCp3-7, Pacifico Yokohama, Kanagawa, Japan (Apr. 22-25, 2014).
3. Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, “Real-time THz-wave spectroscopy via infrared lights detection interacted with evanescent THz waves,” Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO2014), JTh2A.135, San Jose Convention Center, San Jose, USA (Jun 8-13, 2014).

4. 秋葉拓也, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント分光の実験的検証,” 日本学術会議総合工学委員会 IC0 分科会「第3回先端フォトニクスシンポジウム」, 日本学術会議 (Apr. 26, 2013).
5. 金子直也, 秋葉拓也, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント波による新規分光法の提案,” 電子情報通信学会エレクトロニクスソサイエティ テラヘルツ応用システム研究会 フォトニクスを用いたテラヘルツ波発生・検出およびシステム化技術, 北海道大学 (Aug.6,2013).
6. 金子直也, 秋葉拓也, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント波によるリアルタイム計測,” 第61回応用物理学会春季学術講演会, 17a-PA2-12, 青山学院大学 (Mar.17-20,2014).
7. 金子直也, 秋葉拓也, 水津光司, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント波と励起光の相互作用を利用した分光応用,” 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 20a-C6-1, 北海道大学 (Sep. 17-20, 2014).
8. Koji Suizu, Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Hirohisa Uchida, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, “Cherenkov phase-matched terahertz wave generation and its spectroscopic applications (Invited),” The 5th International Symposium on Photoelectronic Detection and Imaging (ISPD12013), Beijing, China (June 25-27, 2013).
9. 水津光司, 秋葉拓也, 金子直也, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント波と励起光の相互作用を利用した新規分光法の開拓 (Invited),” 日本学術振興会 テラヘルツ波科学技術と産業開拓 第182委員会 第19回研究会, 大阪大学, 大坂 (Jun. 30, 2014).
10. Koji Suizu, Takuya Akiba, Naoya Kaneko, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, “THz-wave Spectroscopy via Pump and Signal Wave Detection Interacted with Evanescent THz Waves (Invited),” BIT's 3rd Annual Conference and EXPO of AnalytiX 2014, Daliang, China (Apr. 25-28, 2014).
11. 秋葉拓也, 水津光司, 五十嵐智史, 小石川将晃, 斎藤岳史, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント波による複素誘電率分光,” 応用物理学会テラヘルツ電磁波技術研究主催・研究討論会「テラヘルツセンシング及びシミュレーション技術の進展」, 機械振興会館 (Mar. 3-4, 2013).
12. 水津光司, 秋葉拓也, 金子直也, 近藤啓司, 五十嵐智史, 小石川将晃, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント波による複素誘電率分光計測,” 産学共創基礎基盤研究プログラム「テラヘルツ波新時代を切り拓く革新的基盤技術の創出」合同分科会, セミナーハウスフォーリッジ, 東京 (Sept. 14-15, 2012).
13. 水津光司, 秋葉拓也, “チェレンコフ位相整合単色テラヘルツ波発生の数値解析,” 応用物理学会テラヘルツ電磁波技術研究主催・研究討論会「テラヘルツセンシング及びシミュレーション技術の進展」, 機械振興会館 (Mar. 3-4, 2013).

14. 金子直也, 秋葉拓也, 水津光司, 梅本翔太, 宮本克彦, 尾松孝茂, “テラヘルツ・エバネッセント波光法の提案,” 第 14 回レーザー学会東京支部研究会, 東海大学高輪キャンパス (Mar.5,2014)

第 6 章

論文

1. Takuya Akiba, Yasuhiro Akimoto, Motoaki Tamura, Koji Suizu, Katsuhiko Miyamoto, Takashige Omatsu, Jun Takayanagi, Tomoya Takada, and Kodo Kawase, "Broadband THz-wave generation by satisfying the non-collinear phase matching condition with a reflected signal beam," Applied Optics, Vol. 52, Iss. 34, (Nov. 2013) pp. 8305-8309.
2. Koji Suizu, Kaoru Koketsu, Takayuki Shibuya, Toshihiro Tsutsui, Takuya Akiba, and Kodo Kawase, “Extremely frequency-widened terahertz wave generation using Cherenkov-type radiation,” Optics Express, Vol.17, Iss. 8, (2009) pp. 6676-6681.

その他

1. 秋葉拓也, 秋元康尋, 田村基晃, 水津光司, 高柳順, 宮本克彦, 尾松孝茂, “端面反射位相整合による広帯域 THz 波光源の開発,” 第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 17p-E17-12, 青山学院大学 (Mar.17-20,2014).
2. 高柳順, 水津光司, 秋葉拓也, “テラヘルツ波発生装置および方法,” 特願 2014-81558

謝辞

本研究は千葉工業大学工学部電気電子情報工学科水津研究室において水津光司准教授の指導の下行われました。本研究を遂行するにあたり、多くの方々の御協力、御支援を頂きましたので、ここに感謝の意を表します。

本研究を遂行するにあたり、専門研究員として快く受け入れて頂くと共に、テラヘルツ波という興味深いテーマを研究するきっかけと環境を与えてくださり、また浅学非才な私に終始親身な御指導・御教授頂いた、千葉工業大学電気電子情報工学科 水津光司准教授に心より御礼申し上げます。

本研究を遂行するに当たり、他大学の研究員にもかかわらず、快適な実験環境を提供して頂くと共に熱心な御討論・御助言を頂きました、千葉大学大学院融合科学研究科 尾松孝茂教授に心より感謝申し上げます。

研究に関する数々の貴重なアドバイス・議論の場を頂き、さらには生活面においても数々のアドバイスを頂きました千葉大学大学院融合科学研究科 宮本克彦准教授に深甚なる御礼を申し上げます。

ご多忙中、本論文を審査して頂くと共に多くの御助言を頂きました千葉工業大学電気電子情報工学科 脇田和樹教授、長敬三教授、陶良教授、室英夫教授に感謝申し上げます。

研究員の先輩として、良き相談相手として、公私ともに貴重なご意見を頂きました理化学研究所 テラヘルツ光源研究チーム 時実悠博士に心より感謝申し上げます。

本研究を進めるに当たり、なくてはならない実験パートナーとして、ともに試行錯誤を続け、苦楽を共にした、金子直也君に深く感謝致します。

わずか1年という短い期間でしたが、実験の実施に際して、多大な協力を頂きました、三菱電機エンジニアリング株式会社 秋元康尋君に感謝申し上げます。

博士課程の先輩として公私ともに数々のアドバイスを頂いた、アイシン精機株式会社 高柳順博士、東京都立産業技術研究センター 澁谷孝幸博士に心より感謝申し上げます。

学生時代のつながりにとどまらず、同じ光を扱う仕事を通じて、貴重な情報を頂きました、西浦匡則氏に深く感謝申し上げます。

DAST 結晶の御提頂いた、アークレイ株式会社 内田裕久氏に感謝申し上げます。

様々なアドバイスを頂き、実験においても多大なご協力を頂いた千葉大学 尾松研究室の皆様、千葉大学理学部極低温室 吉本佐紀氏に御礼申し上げます。

本研究を遂行するにあたり、支援頂きました（独）科学技術振興機構（JST）の研究成果展開事業【産学共創基礎基盤研究プログラム】に感謝申し上げます。

学部時代、テラヘルツ波と出会う機会を与えて下さった、名古屋大学工学研究科 川瀬晃道教授に心より感謝いたします。

名古屋大学在籍時、学生生活を共にし、現在の研究生生活の礎を与えてくれた吉田茂樹君、後藤泰徳君に心より御礼申し上げます。

また、明るく楽しい研究生生活を送るうえで、原動力となった千葉工業大学 水津研究室の皆様へ深く感謝致します。

自分たちを取り巻く環境が変わっていく中でも、変わらずに楽しみを分かち合い、共感しあえた大切な友人の皆様へ心より感謝致します。

最後に、遠く三重、愛知より何もできない私を見守り、励まし続けてくれた両親・親族と、日々の生活において、笑顔を絶やさずに優しく支え続けてくれた妻 秋葉妙子と、生まれてきてくれた娘 秋葉美織に、心からありがとうの言葉を捧げたいと思います。

平成 27 年 3 月

秋葉 拓也