

< 1 > 超高密度フォトン利用実証レーザーシステムの開発

< 1 - 2 > 超高密度フォトン反応制御技術の開発

サブテーマリーダー：光科学技術研究振興財団 コア研究室 研究員 青島紳一郎

応用のための計測・制御技術の開発

小テーマ： 波長域拡大技術の開発

研究従事者：光科学技術研究振興財団 コア研究室 研究員 黒柳和良、藤本正俊、青島紳一郎、高橋宏典

## ( 1 ) 研究の概要、新規性及び目標

### 研究の概要

#### [フェーズI]

再生増幅パルス光を光源とするTHz波発生用測定系を構築し、大口径GaAsアンテナ、BNA、DAST、ZnTe等からのTHz波放射の実験をおこなった。大口径アンテナでは、従来に比べ、ピーク電界強度235倍(光強度換算55,000倍)の高輝度化が達成できた。また、DAST結晶から5 THzまでの発生を確認した。DAST結晶では、高輝度のTHz波が得られる条件を解析し、入射光の偏光により、放射されるTHz波の強度やスペクトルの制御が可能であることを見出した。さらに、有機結晶のBNA結晶は無機結晶のZnTeやGaPより高輝度のTHz波を放射できることを明らかにした。THz波計測において、短時間でスペクトルが得られる周波数ドメイン分光(FDS)を導入し、2秒毎にデータが得られた。X線発生では、真空環境実験装置を整備して、アルミニウム金属およびマイラー(ポリエステル)フィルムに高密度レーザー光を集光照射してパルスX線発生を試みた。検出器として、電離箱式サーベイメーターを用いてX線発生の検出をおこない、ハードX線が発生していることを確認した。

#### [フェーズII]

中間評価の結果を踏まえTHz波に集中して平成15年度終了まで研究を実施した。高輝度THz波発生が有望な結晶としてBNA結晶を取り上げ、非線形光学テンソル成分、THz波領域の複素屈折率等の基礎特性を計測し、BNA結晶は、屈折率が小さく、THz波を効率良く取り出せることを明らかにした。また、プローブ光透過型測定系を構築し、従来の反射型測定系と同程度のS/Nを得た。さらに、入射光を波形整形してTHz波を放射し、THz波のスペクトル制御をおこなった。以上、THz波の適用範囲を拡大するための高輝度化・高機能化の検討をおこなった。

### 研究の独自性・新規性

高強度フェムト秒パルスを用いた波長域拡大技術の開発をおこない、特に、遠赤外THz波発生においては、我々が着目したBNA結晶は、唯一合成することのできる大阪市立大学との共同研究により本事業で初めてなされたものであり、得られた成果は独自で新規なものである。また、計測において、オリジナル技術であるFDS法導入による計測時間の短縮もおこなえ、独自の研究成果を得ることができた。

### 研究の目標

#### [フェーズI]

THz波発生に関しては、非線形感受率と結晶の耐光強度の向上を目指して、BNA、DASTを中心にした新規な有機非線形光学結晶の材料開発をおこない、周波数 0.1 ~ 5 THzの広帯域の遠赤外THz波を発生させる基盤技術を開発する。X線に関して、ガスやクラスターにおいて、レーザー光を効率良く集光する方法等の検討をおこなう。また、波形整形技術を適用して、波長域拡大の高効率化を狙う。

#### [フェーズII]

発生するTHz波の適用範囲を拡大するため、高輝度化の検討を継続しておこなう。THz波発生に有望な有機結晶を利用し、この材料に適したTHz波発生条件に関する検討、入射する再生増幅パル

ス光を波形整形することで、発生するTHz波の周波数などの制御、フィードバック制御をかけるなどのTHz波発生・計測の高機能化の検討をおこなう。波長域拡大された変換光の産業応用の検討については、<2-a>先導的探索研究で実施する。

## (2) 研究の進め方及び進捗状況

### [フェーズI]

超高密度フォトン反応制御において、発生・計測・制御できる波長域をX線から遠赤外線(THz波)まで拡大するために、超高密度フェムト秒パルス光を用いた発生方法の開発を行った。

THz波は、光と電波の中間に位置し生体に安全な光である。高強度THz波の発生のために、再生増幅パルス光を励起光源とするTHz波発生用測定系を構築した。非線形光学結晶の評価にモード同期レーザーを用いる場合には、集光することで励起光強度を稼いでいるが、熱により結晶が融けてしまうという問題点があることが明らかになっていた。これを避けるためには、ピーク強度が高く、繰返しの低い再生増幅パルス光を用いるのが有効と考えられる。再生増幅された光のピーク強度がモード同期レーザーのピーク強度と比べて10万倍程度高いことを利用し、高いピーク強度のTHz波が得られれば、測定系のS/Nを向上させられる可能性がある。そこで、THz波発生用測定系は、THz波発生素子に対して集光せずにフェムト秒パルス照射するなどの工夫をした。有機結晶評価におけるこの測定系の優位性を調べた。用いた*N*-2-naphthylmethyl-MNA結晶は、モード同期レーザーを用いた測定では得られるTHz電磁波の信号強度が弱いため測定が難しく、放射周波数成分の評価が困難であった。今回、新たに構築したTHz波発生用測定系を用いることで周波数成分の評価が可能で良好なデータを取得することができた。

また、高輝度THz波の発生に有効な材料の検討を行った。構築したTHz波発生用測定系を用いて大口径GaAsアンテナ、MNA、DAST、ZnTe等の各種結晶からのTHz波放射の実験を行った。大口径アンテナでは、従来よりピーク電界強度235倍(光強度換算55,000倍)の高輝度化が達成できた。また、有機光学結晶のDASTから5 THzまでの発生が確認され、さらに、有機結晶の*N*-benzyl-MNA(BNA)結晶からは無機結晶のZnTeやGaPより高輝度のTHz電磁波が放射されることが明らかになった。

DAST結晶、ならびに、BNA結晶からのTHz波放射が無機結晶からのものより強いがわかったが、DAST結晶からのTHz波放射における、最も高輝度のTHz波が得られた際の入射光の偏光方向と結晶角度の関係は、モード同期レーザーを用いた場合とは異なっていた。これは、モード同期レーザーと再生増幅パルス光の照射方法の違いに起因していると考えられる。そこで、再生増幅パルス光を用いた実験において、DAST結晶から放射されたTHz波スペクトルの入射光偏光角度依存性を計測し、その結果を理論的に解析することで、高輝度THz波を発生させるための結晶の条件を見いだした。その結果、高輝度THz波放射には屈折率分散が小さく、かつ、非線形性の大きな結晶が望ましいことが明らかになった。また、入射光の偏光を回転させるだけで、放射されるTHz波の強度やスペクトルの制御が可能であることを見出し、特許出願した。

THz波計測を波形整形器と組み合わせ、フィードバック制御することを考えた際には、数秒でデータ取得が完了することが望ましい。この問題を解決するために、参加企業のオリジナル技術であるFDS法を導入した。TDS法ではすべての時間波形が得られるまではスペクトルは全くわからなかったのに対して、FDS法では2秒毎にデータが得られ、おおまかなスペクトルが計測できる。フィードバック制御系と組み合わせる場合などは、リアルタイムでスペクトルが得られるFDS法の方が有利である。この利点を生かして、フェーズIでの波形整形によるTHz波放射スペクトルの変化の計測につなげた。

X線発生では、真空環境実験装置を整備して、アルミニウム金属およびマイラー(ポリエステル)フィルムに高密度レーザー光を集光照射してX線発生を試みた。検出器として、電離箱式サーベイメーターを用いてX線発生の検出を行い、ハードX線が発生していることを確認した。

### [フェーズII]

中間評価の結果を踏まえ、THz波に集中して研究を実施した。フェーズIの成果を踏まえ、開発した個別の要素技術を融合し、<2-a>先導的実証研究に重要となる計測・制御技術の高度化・適用化の検討をおこなった。

発生する THz 波の適用範囲を拡大するために、高輝度化の検討を継続して行い、高輝度 THz 波発生が有望な結晶として BNA 結晶を取り上げ、この材料に適した THz 波発生条件について検討した。BNA 結晶に関する研究は緒についたばかりであり、高輝度 THz 波の発生条件や、屈折率、結晶軸等の結晶パラメータを計測、検討する必要がある。フェーズで行った DAST 結晶の回転による THz 波放射スペクトルの変化において、DAST 結晶において入射光の偏光を回転させながら THz 波放射の強度を計測することにより、材料の特性が評価できることを示した。これと同様の手法を BNA 結晶に対して適用し、BNA 結晶における THz 波放射での効率の良い入射光の偏光の条件から有効な非線形光学テンソル成分を明らかにすることができた。また、BNA 結晶について THz 波領域における透過、吸収特性を計測し、複素屈折率の評価を行った。この結果、求められた  $x_3$  軸方向の屈折率の実部は、1.45~1.35 程度であり、この値は、DAST、ZnTe、GaP 等の結晶に比べて小さい。空気との屈折率差が小さいので、結晶内部で発生した THz 波を効率良く取り出すことが可能である。

従来の測定系は、レーザー結晶の前に Si 超半球レンズを用いることにより、THz 波の集光効率の向上を狙ったものであった。しかし、この Si 超半球レンズは、検出できる THz 波の周波数帯域を制限してしまうため、高周波領域までの計測を行うことはできない。また、2次元で一度にデータを取り込む方式のイメージングでは、レーザー結晶部において、プローブ光を透過させた際のイメージを CCD カメラに取り込むため、再生増幅レーザーパルスに対して不透明な Si 超半球レンズを光路中に用いることはできない。このように、THz 波の高周波領域までの計測や、2次元で一度にデータを取り込む方式のイメージングでは、プローブ光をレーザー結晶部分で透過させて計測することが望ましい。そこで、プローブ光透過型の測定系を構築した。この測定系では、Si 超半球レンズを使っていないにもかかわらず、従来の反射型測定系と同程度の S/N が得られた。

入射する再生増幅パルス光を波形整形することで、発生する THz 波の周波数などを制御し、各種応用に適した THz 波発生を試みた。波形整形器との組み合わせでは、THz 波測定に用いるプローブ光が影響されないように、ポンプ光側だけに波形整形器を組み込んだ測定系を構築した。波形整形器の制御ソフトウェアに組み込まれた簡易型フィルターを用いて、入射パルスをチャープパルスにした場合とダブルパルスにした場合について THz 波放射実験をおこない、波形整形による発生する THz 波のスペクトル制御が可能であることを明らかにした。以上、発生する THz 波の適用範囲を拡大するために、高輝度化・高機能化の検討をおこなった。

本小テーマは、平成 15 年度からは、「THz 波応用のための計測・制御」に引き継がれた。また、テーマ<1-2>での研究は平成 15 年度をもって終了し、平成 16 年度からは、テーマ<2-a>先導的探索研究の THz 波応用へ統合した。

本事業における目標の達成度は 100%である。

### (3) 主な成果

#### [フェーズI]

##### シード光を用いた測定系の構築

基本的な発生・計測系を整備して、有機材料を含む各種非線形光学結晶からのTHz波の発生実験を行い、その特性を評価した。

図1に示すようなTHz波の発生・検出のための光学系を構築し、シード光を用いた実験を開始した。GaAsアンテナ素子、有機非線形光学結晶であるDAST、N-Benzyl-MNA、無機非線形光学結晶であるZnTeを用いてTHz波の発生実験を行った。



図1 THz波発生・計測の実験系

THz波の計測は、一種のポンプ - プロブ計測であり、検出器に届くTHz波と励起光の時間差をパラメータとして計測する。測定された時間波形を図2に示す。この時間波形での横軸は、検出器でのTHz波とシード光の時間差に相当する。図2の信号をフーリエ変換することによって得られた周波数スペクトルを図3に示す。非線形光学結晶からは、アンテナ素子に比べて高周波の成分が多く放射していることが明らかになった。また、DASTでは、1 THz付近に大きなディップがあり、材料によって得られるTHz波のスペクトルに違いがあることがわかった。

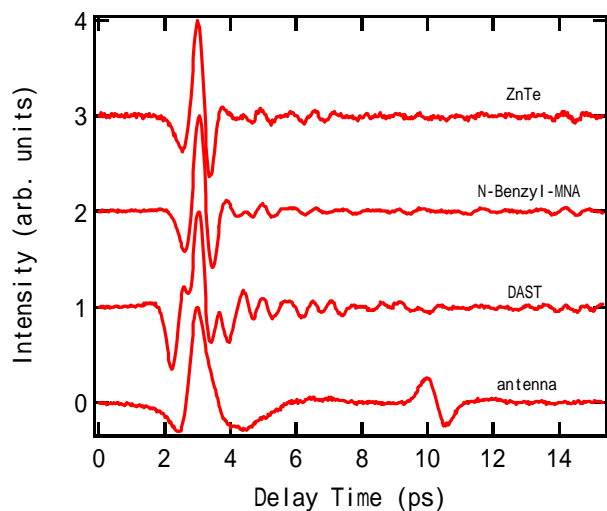


図2 計測されたTHz波の時間波形

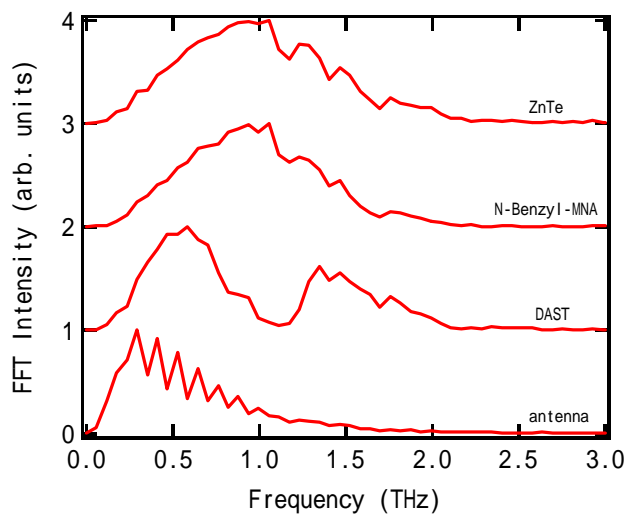


図3 計測されたTHz波の周波数成分

### 再生増幅器を用いた測定系の構築

で整備したTHz波の発生・計測系では、モード同期レーザーを用いていた。これに対し、高強度THz波発生のために、再生増幅器からの高強度光パルスを用いた系を新たに構築し、これまでの系と切り替え可能で実験できるようにした。

図4に新たに構築した測定系の構成を示す。モード同期レーザー用の計測系との違いは、ビームスプリッター、チョッパーの周波数、THz波放射部分近くの光学系である。パルスエネルギーが十分大きいため、ビームスプリッターを反射率 $r = 10\%$ のものに変更(これまでは、 $r = 30$  or  $50\%$ を使用)し、反射光をプローブ光に用いた。さらにNDフィルターで減光して用いているため、最適化すればより大きな励起レーザー光を利用できる可能性がある。チョッパーの周波数は、ロックインアンプでの検出効率を考え、再生増幅器からの1 kHzのトリガー信号を1/2分周した500 Hzとした。この時、光が500 Hzでオン・オフされるようにチョッパーの位相を調整した。THz放射部分近くの光学系は、アンテナに集光せずに広い面積で励起光を照射するように作り変えた。この測定系を用いて、大口径アンテナならびに有機結晶からのTHz波放射実験を行った。

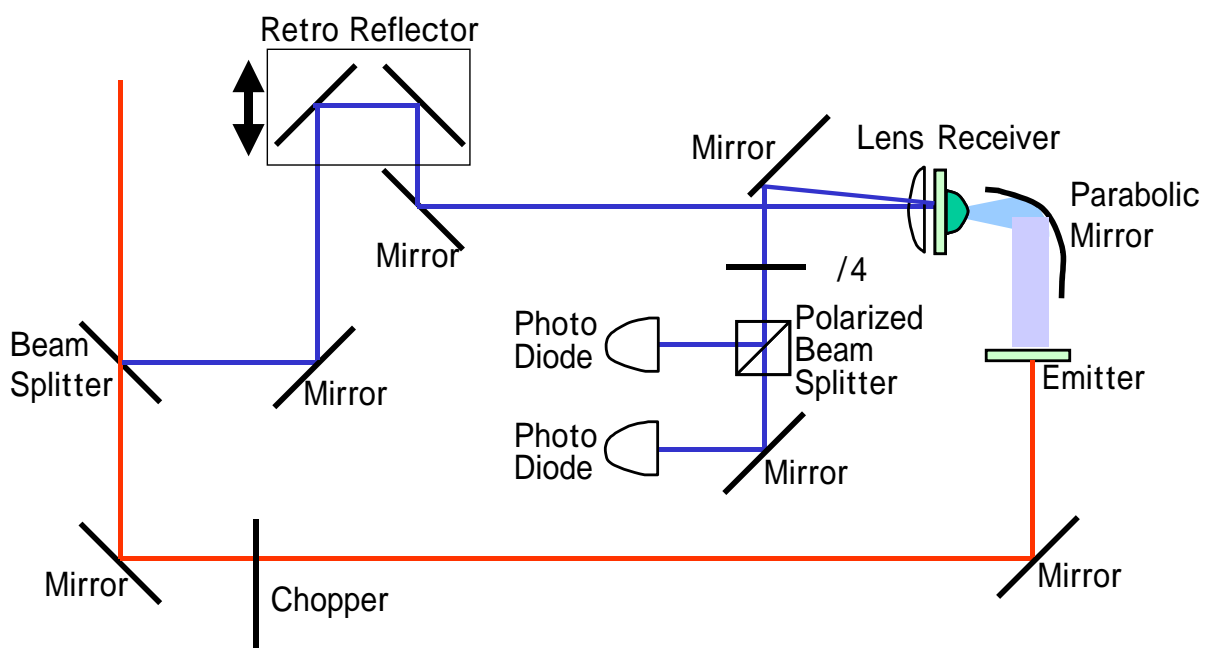


図4 再生増幅器からの高強度光パルスを用いたTHz波発生、計測系

### 大口径アンテナ素子によるTHz波放射

THz波計測において、アンテナ素子を大口径にすることのメリットとして、以下の特長が挙げられる。

- ・ 大面積から出てくるTHz波を集光することで高密度THz波場を作り出せる。
- ・ 輝度が高いため、これまで吸収が大きく透過が計測できなかった試料でも計測ができるようになる可能性がある。
- ・ 平行光に近いTHz波が得られるため、スキャンしないイメージング計測に適している。

再生増幅器と大口径アンテナの組み合わせによる測定結果をモード同期レーザーと通常のアンテナの組み合わせによる測定の場合と比較して図5に示す。実線はモード同期レーザーと通常のアンテナの組み合わせ、破線は再生増幅器と大口径アンテナの組み合わせであり、レーザーは共に1 mm厚のZnTe (110)結晶を用いている。

図5(a)は、時間波形であり、ピーク強度が1になるように規格化したものを、ゼロ点をシフトして表示している。メインのピークに注目し、データを比較するとほぼ同等のパルス幅が得られて

いることがわかる。

図5(a)の時間波形にFFTをかけて、周波数成分としたものが図5(b)である。周波数成分の変化の仕方をみるために、ピークを1に規格化した。再生増幅器と大口径アンテナの組み合わせでは、モード同期レーザーと通常のアンテナの組み合わせとほぼ同等の測定結果が得られていることがわかる。

時間波形、周波数スペクトル共にモード同期レーザーを用いた場合とほぼ同等であったが、そのピーク電界強度はモード同期レーザーを用いた場合に比べて著しく強い。実際に得られた信号強度から、ピーク電界強度比を見積もった。この見積もりから、再生増幅器を用いた場合にはモード同期レーザーを用いた場合に比べて235倍強いTHz波が発生できていることがわかった。上記のように、再生増幅器と大口径アンテナの組み合わせにより、従来のモード同期レーザーによる励起に比べて高強度のTHz波を得ることに成功した。

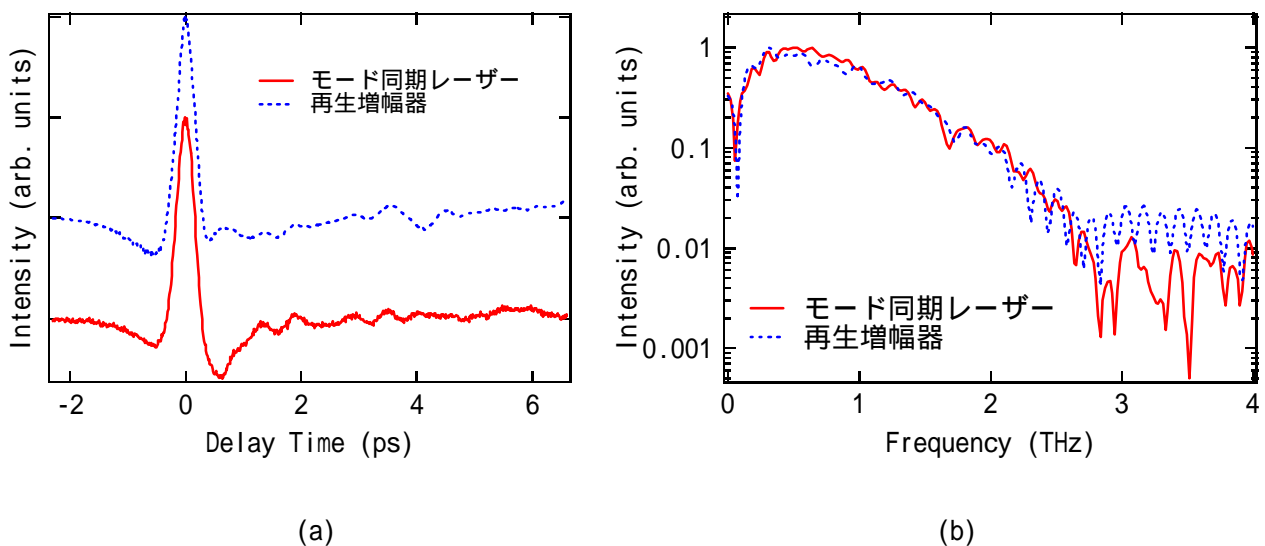


図5 大口径アンテナからのTHz波放射

(a) 時間波形、(b) スペクトル。比較のために、モード同期レーザーと通常のアンテナの組み合わせのデータをあわせて示した。(a)、(b)ともに、ピーク強度で規格化されている。(a)ではゼロ点位置をシフトして表示してある。

#### 有機非線形光学結晶からのTHz波放射実験

非線形光学結晶の評価を行うためには高強度の光を使うと効率が良い。モード同期レーザーを用いる場合には、集光することで励起光強度を稼いでいるが、熱により結晶が融けてしまうという問題点がある。モード同期レーザーの繰返しは80 MHz程度であり、熱的な分布を考えると、結晶の温度に与える影響はCWに近い。これを避けるためには、ピーク強度が高く繰返しの低い再生増幅器の光を用いるのが有効である。再生増幅された光のピーク強度はモード同期レーザーのピーク強度の10万倍程度高いため、高いピーク強度のTHz波を得ることが可能であると考えられる。再生増幅器で励起する場合の利点は、前述の大口径アンテナを用いた場合の3つの特長に加えて以下が挙げられる。

- ・ 繰返し周波数が下がることで、モード同期レーザーを集光した場合に問題となっていた熱の問題を回避することができる。
- ・ 非線形光学効果である光整流を用いているので、光のピーク強度が高い分だけ高強度のTHz波を得られる可能性がある(ただし、励起光を集光できないため、モード同期レーザーの場合とそれ程変わらない可能性もある)。

再生増幅器を用いた測定系の優位性を証明するため、*N*-2-naphthylmethyl-MNA結晶を測定した。この結晶は、モード同期レーザーを用いた測定では得られるTHz電磁波の信号強度が弱く測定が難しかったものである。両レーザーを用いて*N*-2-naphthylmethyl-MNA結晶から得られたTHz波放射の測定結果をそれぞれ、図6、ならびに、7に示す。図6(a)、図7(a)は、時間波形であり、これにFFTをかけて、周波数成分としたものが図6(b)、図7(b)である。従来のモード同期レーザーを用いていた場合、時間波形がノイズに埋もれており、スペクトルの評価を行うには不十分であった。これに対して、再生増幅パルスを用いた場合には、非常に良いS/Nの時間波形が得られており、そのフーリエ変換で得られるスペクトルを詳細に評価できるようになった。

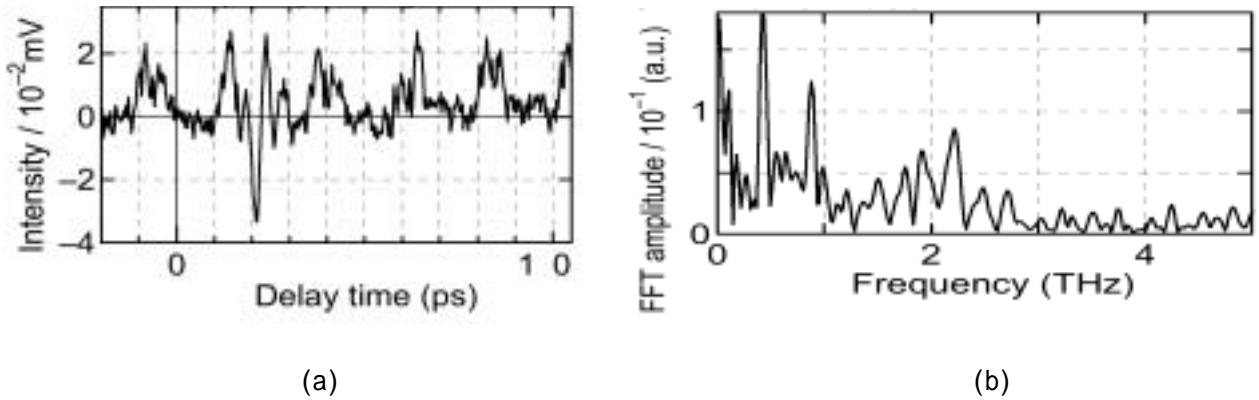


図6 モード同期レーザーによる測定結果  
(a) 時間波形、(b) スペクトル

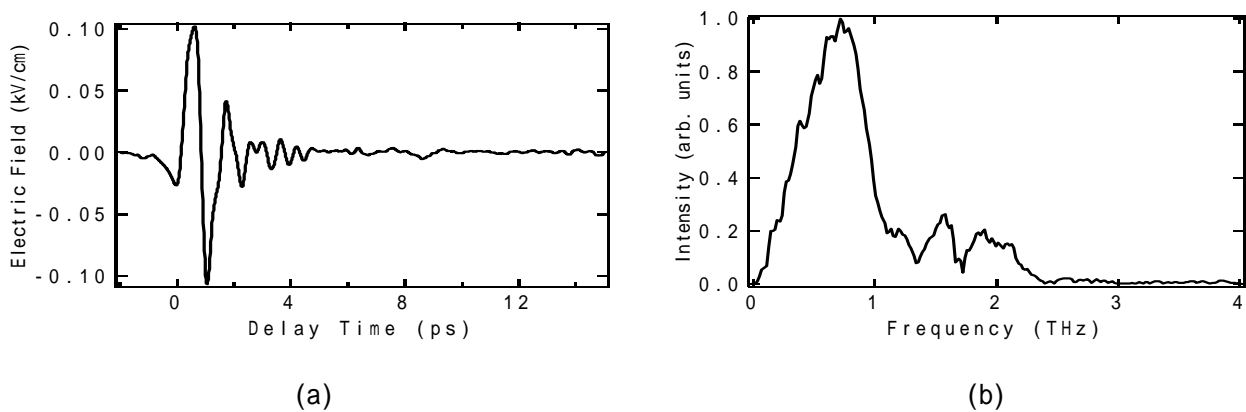


図7 再生増幅パルス光による測定結果  
(a) 時間波形、(b) スペクトル

### 結晶の違いによるTHz波放射強度の比較

THz波の発生・計測において、再生増幅パルス光を用いた計測では、高強度のTHz波の発生が期待される。そこで、再生増幅パルス光を用いて有機非線形光学結晶を含む各種結晶からTHz波を発生させ、その放射強度を比較して評価した。

実験に用いた測定系は、再生増幅器を用いた測定系の構築にて報告したものである。エミッターとして評価したサンプルは、無機結晶のZnTe(110)、GaP(110)と有機結晶のBNA、*N*-2-naphthylmethyl-MNA、*N*-diphenylmethyl-MNA、DAST(001)の計6種類である。THz波の時間波形の測定結果を図8に示す。図8の縦軸は、計測に用いたロックインアンプの出力値に対応しており、測定ごとにゼロ点をシフトして表示した。ZnTeとGaPについては、入射光の偏光方向を変えて2種類の偏光方向で計測を行った。後に述べるが、それぞれの結晶で、面積や厚さが異なるので、この出力値の比がそのまま結晶からのTHz波放射能力を表す訳ではない。

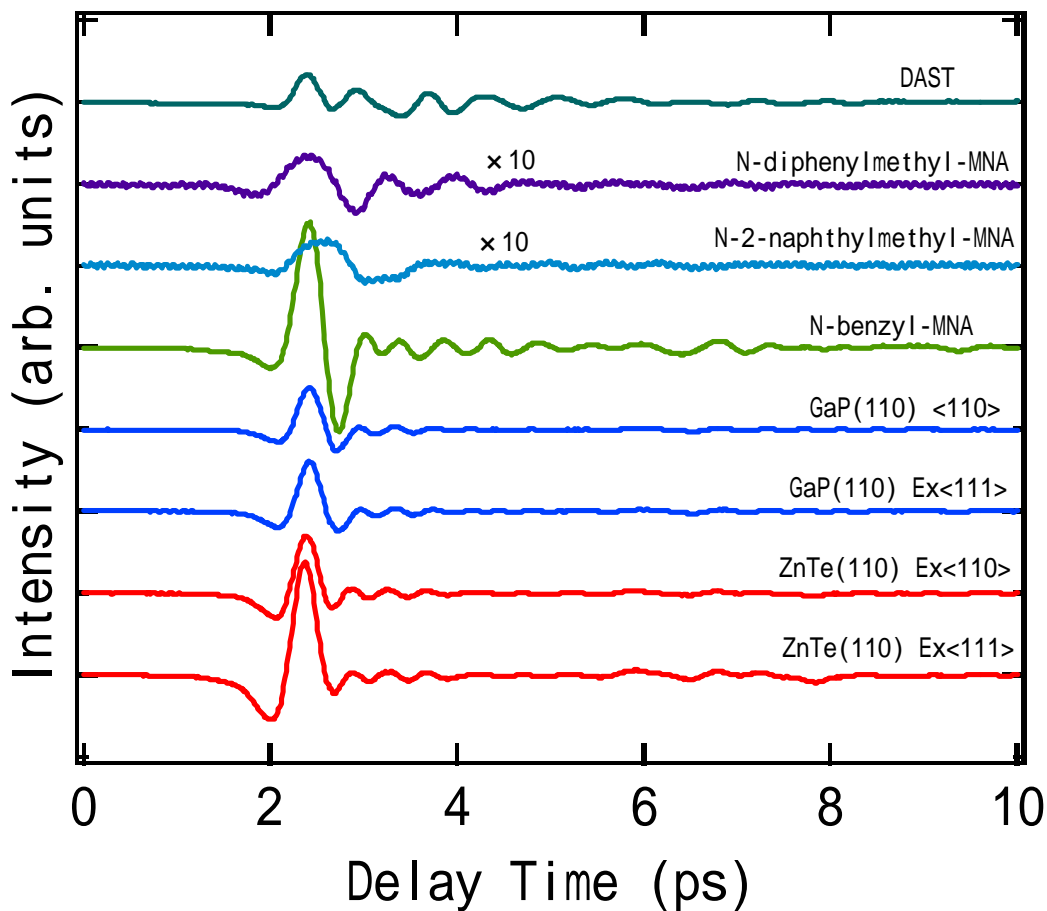


図8 6種類のサンプルからのTHz波時間波形計測結果  
(*N*-2-naphthylmethyl-MNA、ならびに、*N*-diphenylmethyl-MNAのデータは10倍して表示した。)

表1に測定した8種類の条件におけるTHz波放射特性についてまとめて示す。BNA、*N*-2-naphthylmethyl-MNA、*N*-diphenylmethyl-MNAの3つの結晶については、X線回折による構造解析結果と結晶のファセットの関係が明らかにできなかったため、明確な測定条件が把握できず、結晶軸を表示していない。中央付近に示した測定値は、図8の測定結果から求めたピーク値である。



表1 実験のパラメータとTHz波放射強度

	測定条件		結晶の大きさ		測定値	換算値		強度比 (ZnTeを1とした)
	光の進行方向の結晶軸	入射光の偏光方向の結晶軸	面積 (mm <sup>2</sup> )	厚さ (mm)	ロックイン出力のピーク値(mV)	単位面積辺りの強度 (mV/cm <sup>2</sup> )	結晶厚さ 0.5 mm での強度 (mV/cm <sup>2</sup> /0.5 mm)	
ZnTe	<110>	<-111>	12.6	0.20	2.75	21.8	54.5	1
		<-110>			1.41	11.2	28.0	0.514
GaP	<110>	<-111>	12.6	0.40	1.21	9.60	12.0	0.220
		<-110>			1.01	8.02	10.0	0.183
BNA			0.78	0.51	3.07	394	386	<b>7.08</b>
N-2-naphthyl methyl-MNA			1.4	0.62	0.058	4.1	3.3	0.061
N-diphenylmethyl-MNA			2.8	1.0	0.066	2.4	1.2	0.022
DAST	<001>	<010>	1.2	0.48	0.67	56	58	<b>1.1</b>

サンプルの大きさが異なるため、この測定値を用いてTHz波の発生特性を比較することができない。そこで、この値を単位面積当りの強度に換算した。この時、ZnTe、ならびに、GaPは結晶が大きいいため、ビーム径である4 mm の面積(= 12.6 mm<sup>2</sup>)を用いたが、その他の結晶の大きさはいずれもビーム径以下であるため、結晶面積の実測値を用いて換算した。また、約8 mm のビームを切り出して実験に使用したので、ビーム内強度分布は無視して単純に面積で換算した。

さらに、サンプルの厚さを考慮して、厚さ0.5 mmを基準として換算値を計算で求めた。サンプルへ照射するレーザー光はほぼ平行光であるため、THz波発生強度は単純に厚さに比例するものとして換算した。この数値を用いて、ZnTe結晶を基準として比較した結果(強度比)を表1の右端に示した。

その結果、用いたサンプルの中では、BNAが7.08倍と最も高輝度THz波の放射が可能であることが分かった。この他にもDASTが1.1倍であり、有機結晶の有効性が実証された。

ここで、厚さに関して厳密に補正するためには、効率良くTHz波を放射できる厚さの限界を与える目安として、THz波を有効に放射できるコヒーレント長を考慮する必要がある。THz波放射におけるコヒーレント長は、結晶の励起光波長領域における群屈折率 $n_g$ 、THz波の波長 $\lambda_{THz}$ 、屈折率 $n_{THz}$ を用いて、 $l_c = \lambda_{THz} / 2(n_g - n_{THz})$ で与えられる。周波数2 THz (波長150  $\mu$ m)に対するZnTeのコヒーレント長を計算すると、0.267 mmとなる。ZnTe結晶のコヒーレント長が0.5 mmよりも短いことから、0.2 mm厚のZnTe結晶が0.5 mmの厚さになった場合に放射されるTHz波の放射強度は、単純な厚さの比である2.5倍には達しないことが予想される。このように有機結晶に対して不利な条件での比較になっているにも関わらず、上記のような高強度化が実現できていることがわかった。

### DAST結晶の回転によるTHz波放射スペクトルの変化

前項において、DAST、ならびに、BNA結晶からのTHz波放射が無機結晶からのものより強いことを報告した。この時、DAST結晶からのTHz波放射において、最も高強度のTHz波が得られた際の入射光の偏光方向と結晶角度の関係は、モード同期レーザーを用いた場合とは異なっていた。これは、モード同期レーザーでは集光照射したのに対し、再生増幅パルス光では平行照射したというレーザーの照射方法の違いに起因していると考えられる。

そこで、再生増幅パルス光を用いた実験において、結晶軸と入射光の偏光の関係をより詳細に調べた。DAST結晶の $x_3$ 軸方向に光を伝播させ、 $x_1$ - $x_2$ 面内で入射光の偏光を回転してTHz波の放射強度、ならびに、スペクトルを計測した。実験に用いた測定系の概念図を図9に示す。入射レーザー光の偏光は、 $\lambda/2$ 板により回転させ、集光することなくTHz波発生用のDAST結晶(厚さ620  $\mu\text{m}$ )に入射した。DAST結晶にて発生されたTHz波を放物面鏡とSi超半球レンズ(図9では省略)を用いてTHz波検出用のZnTe(110)結晶(厚さ1 mm)に集光した。DAST結晶から放射されるTHz波の偏光は、結晶の対称性から、 $x_1$ 軸に平行な成分しかないことがわかっている。この成分のTHz波を効率良く検出するため、検出用のZnTe(110)結晶は、 $\langle -110 \rangle$ 軸をDASTの $x_1$ 軸と平行にし、読み出し光の偏光を $\langle 001 \rangle$ 軸に平行な偏光とした。入射光の偏光はDAST結晶の $x_2$ 軸方向に並行な向きを0度とし、反時計回りに回転した角度を  $\theta$  とした。したがって、90度の方向が $x_1$ 軸の方向となる。

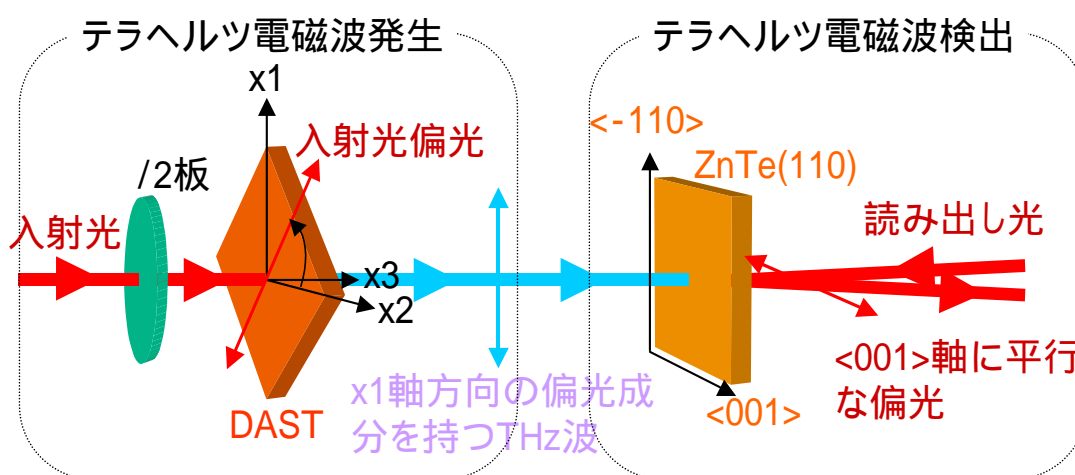


図9 測定系の概念図  
(放物面鏡とSi超半球レンズは省略した)

測定された周波数スペクトルを図10に示す。縦軸は周波数、横軸は入射光の偏向角度に対応しており、検出された信号の強度を疑似カラー表示した。実際に計測を行ったのは、一周期分の-70度から100度の部分であるが、結晶の対称性による繰返しを見やすくするために、二周期分に対応する-70度から280度の範囲として表示した。図から、以下のことがわかる。

周波数1 THz付近ではどの角度に対しても放射が弱い。

最も強いTHz波放射が得られたのは、入射光の角度を0度とした場合であった(この結果は、90度が最も強いモード同期レーザーを用いた計測結果と異なっている)。

0度のスペクトルは、1.4, 2.2, 2.9 THz付近にピーク、1.7, 2.6 THz付近にディップを有している。また、40度のスペクトルは、1.3 THzより高周波側で際立った構造が見えず滑らかなスペクトルとなっている。

60度のスペクトルでは、2.2 THz付近に急峻なディップが見られる。

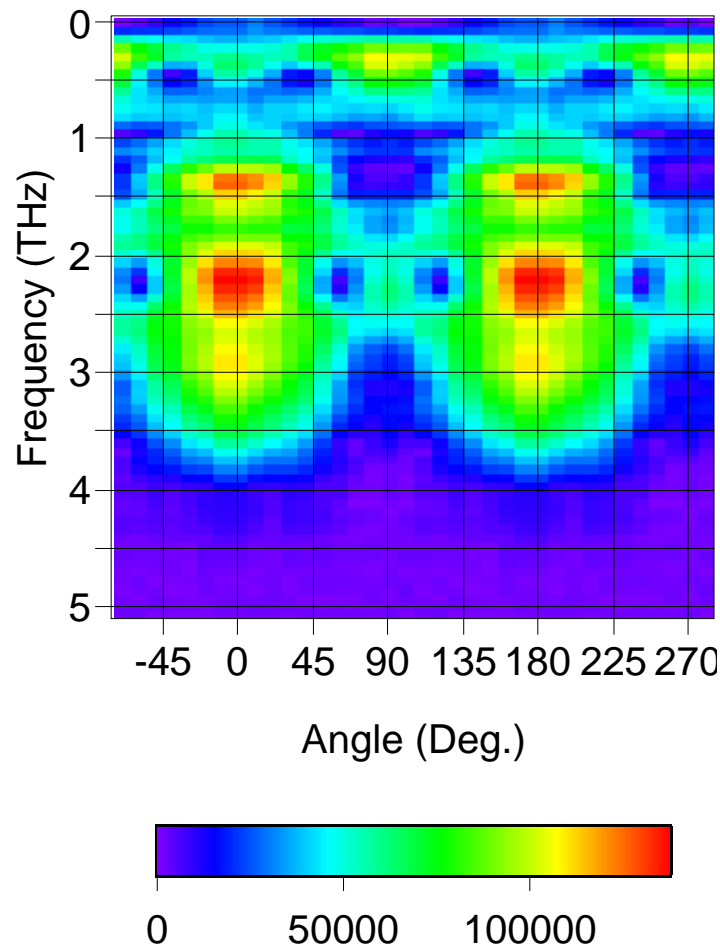


図10 測定結果

測定により観測された周波数スペクトルの特徴は、それぞれ、以下のような理由による。

の1 THz付近で放射が弱い理由は、 $x_1$ 軸方向の偏光を有するTHz波に対してDAST結晶の吸収が存在するためである。のTHz波放射強度の最も強い偏光角度がモード同期レーザーと再生増幅器を用いた場合で異なる理由は、レーザーの照射方法の違いにより相互作用長が異なるために、入射光に対する屈折率分散によるパルス拡がりの影響が異なることを考慮すると理解できる。の偏光角度の違いによるスペクトル形状の違いは、入射光に対する屈折率とTHz波に対する屈折率の差から導かれる応答関数から説明することができる。の特定の角度におけるTHz放射スペクトル上の急峻なディップは、入射光に対する $x_1$ 軸成分と $x_2$ 軸成分の屈折率の違いにより生じる位相ずれによるものである。

以上、DAST結晶から放射されたTHz波スペクトルの入射光偏光角度依存性を計測し、その結果を理論的に解析することができ、高強度THz波を発生させるための結晶の条件を見いだすことができた。すなわち、THz波放射では、入射光に対する屈折率分散によるパルス拡がりの影響が大きく、高強度のTHz波放射には屈折率分散が小さく、かつ、非線形性の大きな結晶が望ましいことが明らかになった。また、上記の ~ で得られたスペクトル形状の変化は、入射光の偏光を回転するだけで得られたものであり、他の制御は一切していない。この結果から、入射光の偏光を回転させるだけで、放射されるTHz波の強度やスペクトルの制御が可能であることを見出した。

### 周波数ドメイン分光(FDS)法による測定時間短縮の検討

THz波計測を、波形整形器との組み合わせ、フィードバックを考えた際には、数秒でデータ取得が完了することが望ましい。そのためには、これまで用いてきたスローキャン時間ドメインスペクトロスコピー(TDS)法ではなく、ファーストスキャンTDS法、もしくは、FDS法を新たに導入することが必要である。今年度、FDSの手法を導入した。

FDS法により得られた周波数スペクトルとスローキャンTDS法によるデータの比較をしたものが図11である。これらは、同一の測定系において、厚さ400  $\mu\text{m}$ のGaP(110)結晶をTHz放射素子として用いた結果である。FDS法の周波数軸は、換算式に基づきTHzに換算した後の値のみを示してある。元のTDS法のデータは、FDS法のデータと周波数解像度が異なるため、必要な分のデータだけを抜き出し、周波数解像度が同程度になるように合わせた。また、強度については、スペクトル形状の比較をするためにピーク強度で規格化した。両者の周波数スペクトルを比較すると、FDS法の方が低周波成分が弱い、3 THz付近のディップの周波数や3-4 THz付近のスペクトル形状が異なる等、細かい部分で違いは見られるものの、ほぼ同等のスペクトルが得られている。FDS法を、より精密な計測とするためには、ディレイ機構の振り幅に対するリニアリティーの校正が必要になる。

ここで、TDS法ではすべての時間波形が得られるまではスペクトルは全くわからなかったのに対して、FDS法では2秒毎にデータが得られ、大体の様子がわかる。従って、フィードバック制御系と組み合わせる場合などは、リアルタイムでスペクトルが得られるFDS法の方が有利である。また、FDS法の他の大きな利点として、特定の周波数に着目した計測が可能になることが挙げられる。

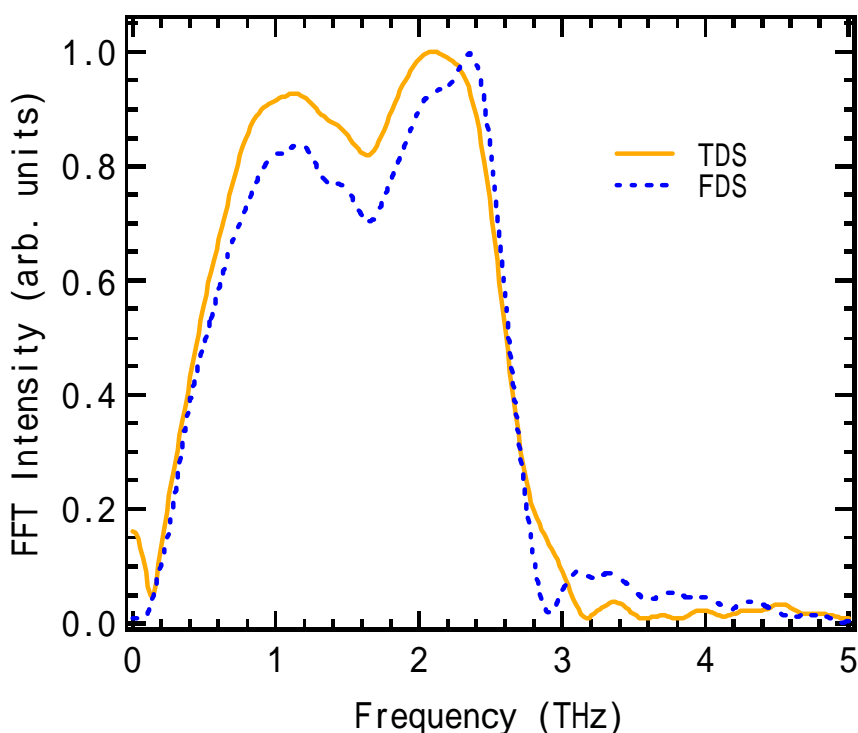


図11 周波数ドメインスペクトロスコピー法とスローキャン時間ドメインスペクトロスコピー法により得られたGaPからのTHz波放射スペクトルの比較

## X線発生

大気中で高密度レーザーを集光させると集光途中で空気がプラズマ化し、X線を発生させるような強い相互作用を効率的に生じさせることができないため、真空環境の実験系が必要である。また、本事業では、短寿命放射性同位体発生の実験も予定されている他、地域の研究機関と共同で先導的探索研究を進める予定であるため、様々な実験に対応できる真空環境実験系の検討を行い、図12に示すような真空環境実験装置を整備した。

真空環境の実験空間は、約600 mm×600 mm×高さ約500 mmである。実験の際、照射するレーザー光や発生する現象を各方向から観測する必要があるため、真空槽本体の形状は八角柱型とし、各側面に取り外し可能な角フランジを備え必要に応じて観測用のフランジ等が追加できるようにした。また、本体の上部には垂直ポート1個と角度45°に配置されたポート4個を備えた。真空環境はオイルによる汚染を防ぐため排気系はターボ分子ポンプとドライポンプによる組合せとし、到達真空度 $10^{-4}$  Pa台 ( $10^{-6}$  torr 台) が1時間程度で得られた。

さらに、この真空環境実験装置と高密度フォトン発生・実験装置とを結合する結合真空系の検討・整備を行い、両者間の真空系を分離するためにゲートバルブを設置した。このゲートバルブには直径68 mmのガラス窓付きのものを採用した。これにより、高密度フォトン発生・実験装置の出力側を真空に保ったまま、調整用のレーザー光を大気圧にした真空環境実験装置へ導くことが可能になり、集光光学系の調整等を容易におこなうことができるようになった。

レーザーを用いたX線発生に関して、真空環境実験装置内に置いたアルミニウム金属ターゲットにテラワットレベルの高密度レーザー光を集光して照射した時、実験装置の外側に設置した30 keV~2 MeVのX線と線に感度を有する電離箱式サーベイメーターで最大30  $\mu$ Sv/hの放射線が観測された。線ではあり得ないため、真空環境実験装置を通り抜けて観測されたのは硬X線であると考えられ、整備された実験系でX線発生に成功した。なお、今回の実験は数分間程度ときわめて短時間で終了したため、環境に与える影響は無視できる。



図12 高密度フォトン発生・実験装置と真空系で結合された真空環境実験装置

## [フェーズ II]

### BNA結晶の回転によるTHz波放射スペクトルの変化

発生するTHz波の適用範囲を拡大するために、高輝度化の検討を継続して行った。ここでは、有望な有機結晶を利用し、この材料に適したTHz波発生条件について検討する。この高輝度化と周波数ドメイン分光(FDS)法による測定時間短縮の検討にて導入したFDS法などを融合することで、短時間計測化を検討する。また、入射する再生増幅パルス光を波形整形することで、発生するTHz波の周波数などを制御し、各種応用に適したTHz波発生を試みる。さらに、フィードバック制御をかけるなどのTHz波発生・計測の高機能化の検討を行う。

結晶の違いによるTHz波放射強度の比較において、高輝度THz波発生が有望な結晶としてBNA結晶を取り上げた。この結晶に関する研究は緒についたばかりであり、高輝度THz波の発生条件や、屈折率、結晶軸等の結晶パラメータを計測、検討する必要がある。また、DAST結晶の回転によるTHz波放射スペクトルの変化において、DAST結晶において入射光の偏光を回転させながらTHz波放射の強度を計測することにより、材料の特性が評価できることを示した。これと同様の手法をBNA結晶に対して適用することにより、BNA結晶におけるTHz波放射での効率の良い入射光の偏光の条件から有効な非線形光学テンソル成分を求めることを試みた。

THz電磁波発生部とE0サンプリング部分でのレーザー光、THz電磁波と結晶軸の関係を図13に示す。実際の測定系では、THz波を集光するために放物面鏡とSi超半球レンズを用いているが図では省略した。THz波発生に用いたBNA結晶は、大きな塊から切り出したものであり、サイズは3.16 mm × 3.09 mm、厚さは717 μmである。今回用いたBNA結晶に対するX線回折解析は行われていないので、結晶軸とファセットの関係は不明である。

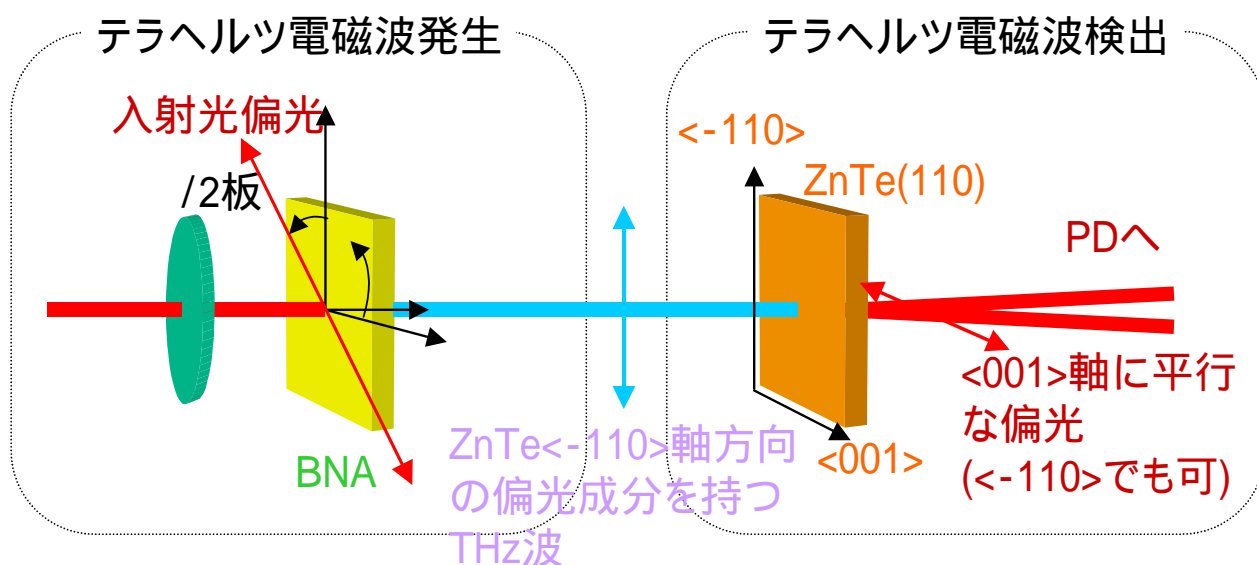


図13 実験系の概念図  
(放物面鏡とSi超半球レンズは省略した)

THz波検出には、厚さ1 mmのZnTe結晶を用いた。配置した条件で計測されるTHz波は、ZnTe結晶の<math>\langle -110 \rangle</math>軸に平行な成分のみである。THz波放射に用いたBNA結晶の結晶軸がわからないため、結晶軸と入射光の偏光を適当に回転させ、最も高輝度のTHz波が得られる条件で結晶軸を固定した。入射光の偏光を1/2板により回転し、入射光の偏光角度をパラメータとしてBNA結晶からのTHz波放射スペクトルを計測した。入射光の偏光の角度は、検出されるTHz波と入射光の偏光が平行な場合を0度、直交する場合を90度とした。

図14はBNA結晶から放射されたTHz波の周波数スペクトルを並べて疑似カラー表示したものである。最も高輝度のTHz波放射が得られたのは、入射光の偏光の角度が0度の場合である。これは、入射光の偏光と放射されたTHz波の偏光方向が平行な場合に高輝度のTHz波が放射されることを意味

している。この条件でTHz波を放射するために寄与することのできる非線形光学テンソルの要素は、 $\chi_{33}$ のみであることから、BNA結晶からのTHz放射では  $\chi_{33}$ が有効であることを見出した。

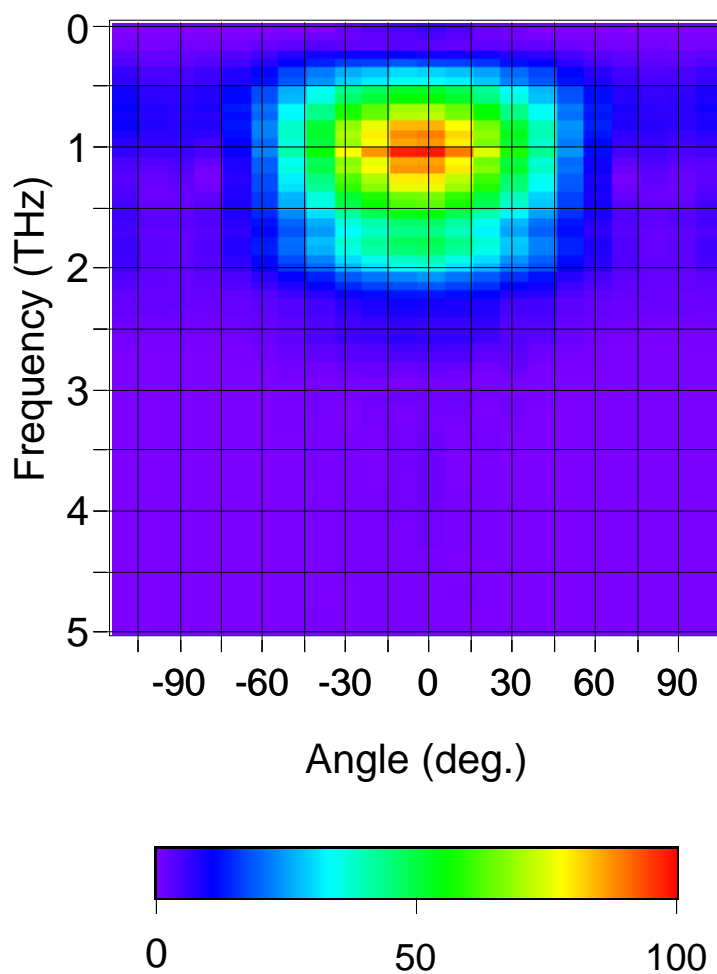


図14 BNA結晶から発生するTHz波周波数スペクトルの入射光偏光角依存性

### BNA結晶の屈折率の測定

BNA 結晶について THz 波領域における透過、吸収特性を計測することにより、THz 波領域における複素屈折率の評価を行った。

測定系を図 15 に示す。エミッターには、ZnTe(110)結晶の 200  $\mu\text{m}$  厚のものを入射光の偏光の向きを $\langle 111 \rangle$ として用いた。透過を計測した BNA 結晶の厚さは 779  $\mu\text{m}$  である。結晶は回転ホルダーに入れられており、面内で様々な方向に回転することが可能である。THz 波の検出には、ZnTe(110)結晶の 1 mm 厚のものを用いた。測定は様々な方向に対して行ったが、 $x_3$  軸を含む方向とそれに直交する方向のみについて述べる。以下では、これらの軸を単に、 $x_3$  軸方向と  $x_3$  軸方向として記述する。

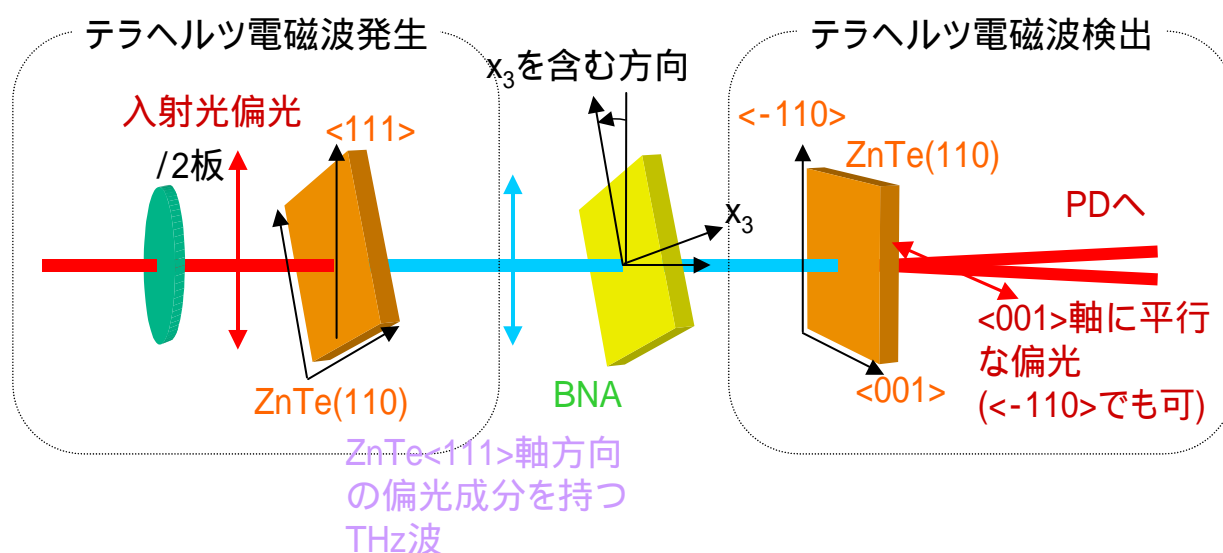


図15 BNA結晶のTHz波透過スペクトル測定系  
放物面鏡とSiレンズは省略した

測定結果に基づき計算された複素屈折率を図 16 に示す。図 16(a)は複素屈折率の実部、図 16(b)は複素屈折率の虚部である。THz 放射は  $x_3$  軸方向の偏光で放射されるため、 $x_3$  軸方向の屈折率が特に重要になる。もとめられた  $x_3$  軸方向の屈折率の実部は、1.45 ~ 1.35 程度であり、この値は、DAST, ZnTe, GaP 等の結晶に比べて屈折率が小さい。空気との屈折率差が小さいので、結晶内部で発生した THz 波を効率良く取り出すことが可能である。 $x_3$  軸方向の屈折率の実部は、 $x_3$  軸方向の屈折率に比べてさらに小さい。 $x_3$  軸方向では、2.2 THz 付近に分散があることがわかる。 $x_3$  軸方向の屈折率の 1.4 THz 以下の領域で振動が見られるが、これは、計測された時間波形においてピークから 6 ps 程度後ろに反射が存在するためである。屈折率の虚部  $k$  と吸収係数  $\alpha$  の間には、周波数を  $f$ 、光の速度を  $c$  として、 $\alpha = 4\pi k/c$  なる関係があるので、屈折率の虚部から吸収の大きさがわかる。 $x_3$  軸方向では、2.2 THz 付近に大きな吸収が、 $x_3$  軸方向では、0.6 THz 付近に急峻な吸収と 1 ~ 2 THz 付近に掛けてのブロードな吸収があることがわかった。



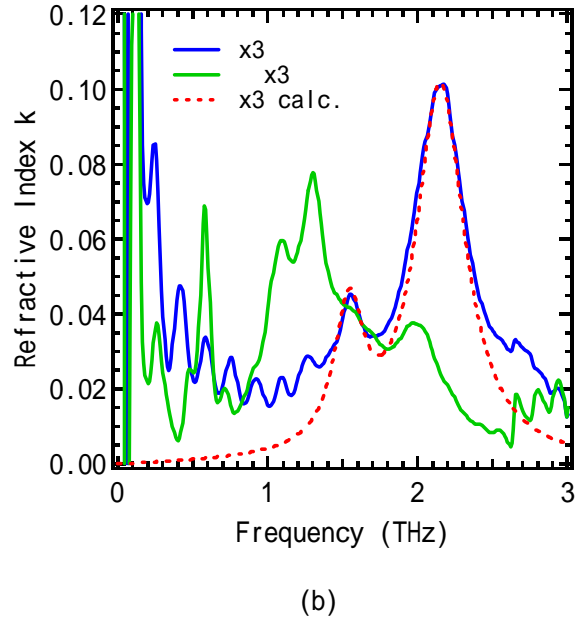
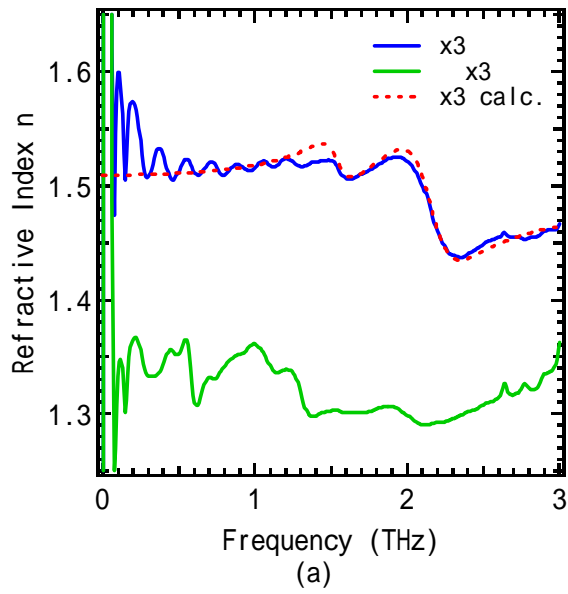


図16 複素屈折率  
(a) 実部 $n$ 、(b) 虚部 $k$

図中の赤の破線はLorentzian Oscillatorを用いて $x_3$ 軸に対する吸収係数と屈折率の虚部をフィッティングした結果である。フィッティングにより求められた振動子の固有周波数は、1.55 THzと2.15 THzである。

### プローブ光透過型測定系の構築

THz波の高周波領域までの計測や、2次元で一度にデータを取り込む方式のイメージングでは、プローブ光をレーザー結晶部分で透過させて計測することが望ましい。高周波のTHz波が発生、計測可能になれば、中赤外-遠赤外を同一の方法で計測可能となる。また、入射する再生増幅パルス光を波形整形することで、発生するTHz波の周波数などを制御する際にも、ごく限られた周波数範囲のTHz波の発生・計測しかできないのであれば、その変化はごくわずかなものとならざるをえない。これらの理由から、レーザー結晶部分でプローブ光を透過させて計測する測定系を新たに構築した。

プローブ光透過型測定系（新たに構築した測定系）をプローブ光反射型測定系（従来の測定系）と比較して図17に示す。(a)は、従来のプローブ光反射型の計測系であり、(b)は、本四半期に新たに構築したプローブ光透過型の計測系である。従来の測定系は、レーザー結晶の前にSi超半球レンズを用いることにより、THz波の集光効率の向上を狙ったものであった。しかし、このSi超半球レンズは、検出できるTHz波の周波数帯域を制限してしまうため、高周波領域までの計測を行うことはできない。また、2次元で一度にデータを取り込む方式のイメージングでは、レーザー結晶において、プローブ光を透過させた際のイメージをCCDカメラに取り込むため、再生増幅レーザーパルスに対して不透明なSi超半球レンズを光路中に用いることはできない。

測定結果を従来のものと比較して、図18に示す。(a)は従来の反射型測定系による測定結果であり、(b)は、本項目で構築した新しい透過型測定系による測定結果である。測定には、エミッター結晶に、ZnTe 208  $\mu\text{m}$ 、レーザー結晶に、ZnTe 1 mmのものを用いた。

プローブ光透過型計測系ではSi超半球レンズを使っていないにもかかわらず、従来の反射型測定系と同程度のS/Nが得られた。

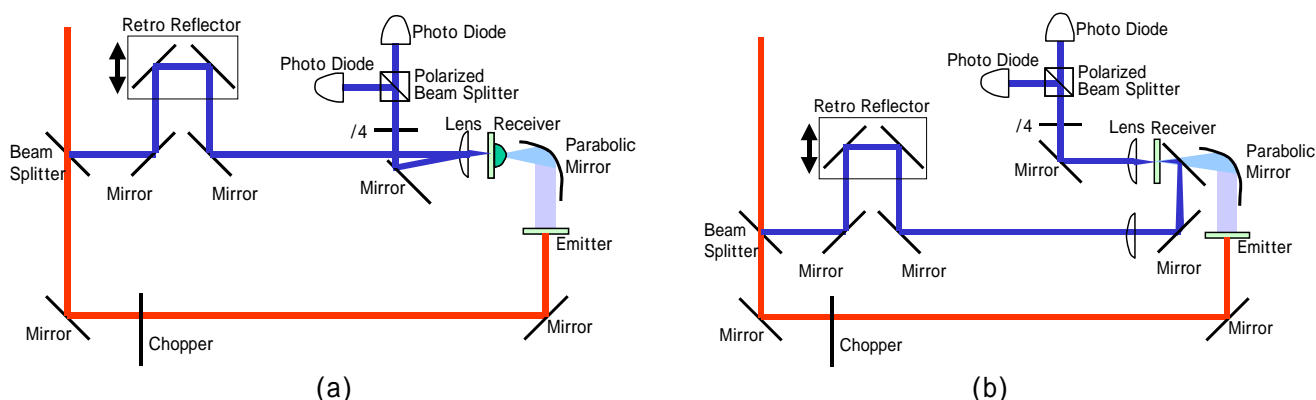


図17 THz波測定系

- (a) 従来のプローブ光反射型測定系。レーザー結晶は、Si超半球レンズ(緑色半円)に貼り付けられている。(b) 本四半期に作製したプローブ光透過型測定系

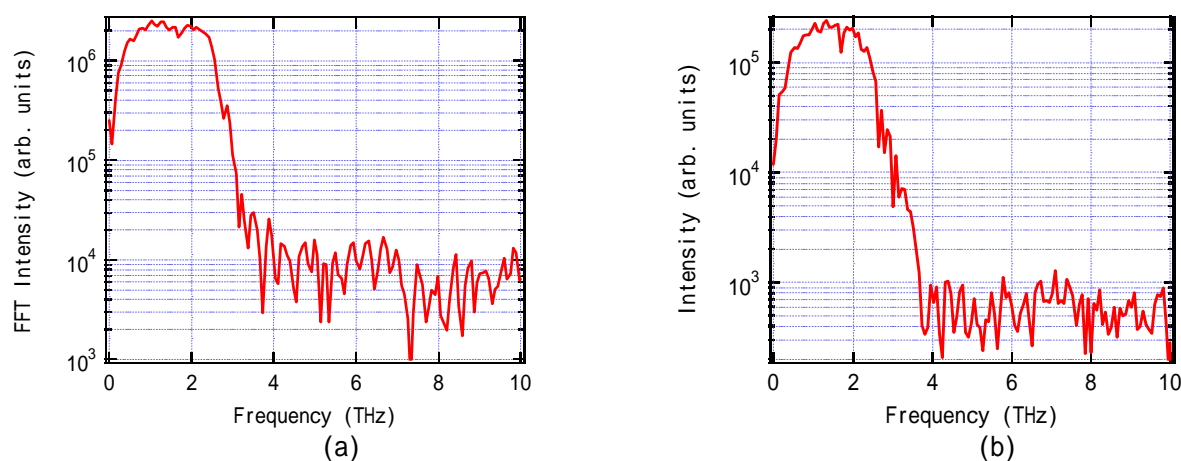


図18 測定結果

- (a) プローブ光反射型測定系による測定結果。(b) プローブ光透過型測定系による測定結果。透過型測定系において、Si超半球レンズを用いることなく、反射型と同程度のS/Nの計測を実現した。

### 波形整形によるTHz波放射スペクトルの変化

入射する再生増幅パルス光を波形整形することで、発生するTHz波の周波数などを制御し、各種応用に適したTHz波発生を試みた。波形整形器との組み合わせでは、THz波測定に用いるプローブ光が影響されないように、ポンプ光側にのみ波形整形器を組み込んだ測定系を構築した。波形整形器の制御ソフトウェアに組み込まれた簡易型フィルターを用いて、入射パルスをチャープパルスにした場合とダブルパルスにした場合についてTHz波放射実験をおこなった。

チャープパルスによる実験結果を図19に示す。(a)は時間波形、(b)は(a)の時間波形をフーリエ変換して得られた周波数スペクトルである。青の実線はSLMの位相がフラットな場合、赤の点線はチャープパルスでパルス幅100 fsとした場合、黒の破線はチャープパルスでパルス幅200 fsとした場合である。パルス幅が長くなるに従い、時間波形のピーク強度が低下する。パルス幅100 fsではそれほど顕著な減衰は見られないが、パルス幅を200 fsにした際には大きく減衰した。スペクトルに注目すると、パルス幅200 fsでスペクトルのピークが低周波側にシフトしている。ポンプ光がチャープを持っている場合には、THz波放射させる結晶中でスペクトルが同時刻に同じ場所に存在する確立が低下するため、スペクトルのピークが低周波側にシフトすると考えられることを反映している。

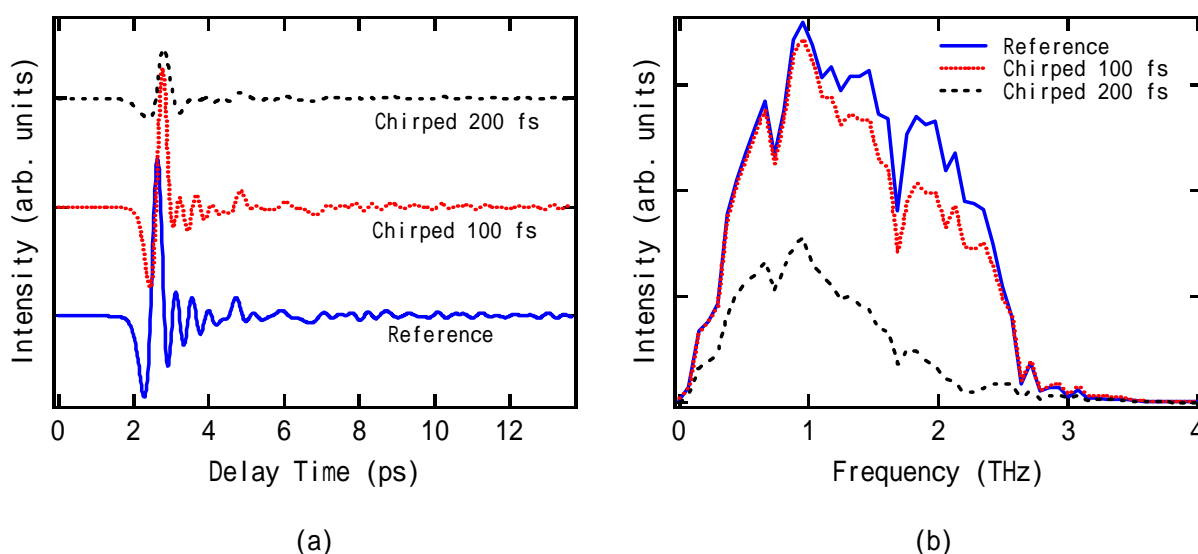


図19 チャープパルスによるTHz放射の実験結果  
(a) 時間波形、(b) 周波数スペクトル

ダブルパルスとした場合の実験結果を図20に示す。(a)は時間波形、(b)は(a)の時間波形をフーリエ変換して得られた周波数スペクトルである。波形整形器の簡易フィルター設定で、両方のパルスのパルス幅を50 fsとし、2つのパルスの強度比を1:1とした。青の実線はSLMの位相がフラットな場合、赤の点線はパルス間隔400 fsとした場合、黒の破線はパルス間隔1 psとした場合である。時間波形において、パルス間隔を400 fsとした場合には強度が低下する以外に大きな変化は見られないが、パルス間隔を1 psとした場合には時間波形の形が大きく変化した。時間波形が大きく変化したパルス間隔1 psの周波数スペクトルは、1 THz付近と2 THz付近にピークを持つ形になり、ダブルパルスを入力することで、THz波の特定の周波数成分のみを放射させることに成功した。

以上、発生するTHz波の適用範囲を拡大するために、高輝度化・高機能化の検討をおこなった。この他にも、実際の計測に適用できるように、反射型計測系も構築し所望の結果を得ることができ、計画通りの研究成果が得られた。

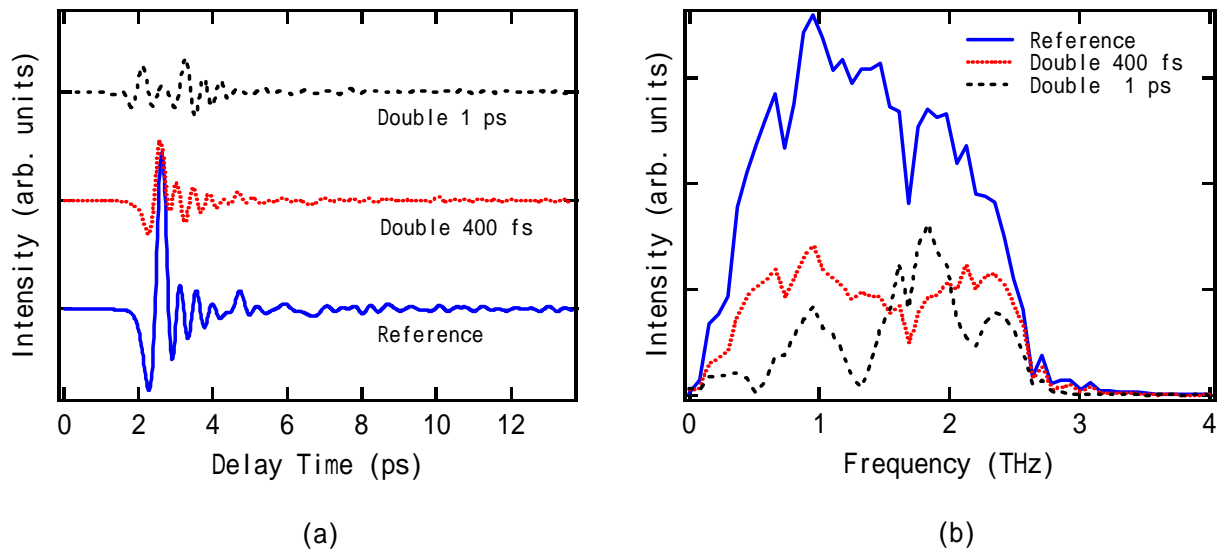


図20 ダブルパルスによるTHz放射の実験結果  
 (a) 時間波形、(b) 周波数スペクトル

特許件数：1 論文数：1 口頭発表件数：4

#### (4) 研究成果に関する評価

##### 国内外における水準との対比

THz波は最近まで発生・計測する良い手法がなかったために、あまり使われてこなかった。最近になって超短パルスレーザーを用いることで発生・検出が容易になり、研究が盛んになっている。本事業では、THz波発生効率の向上、高強度THz波を得るといった観点から、有機結晶に着目した研究をおこなった。研究開始当初の時点で有機結晶に着目した研究は東北大学において、DAST結晶に関して行われていたのみであり、世界的にみても、ほとんど未着手の状態であった。また、東北大学がナノ秒レーザーを用いたTHz波発生の研究をしているのに対し、本事業では、フェムト秒レーザーを用いたTHz波発生の観点から、研究を行った。本事業では、世界で初めてBNA結晶を用いたTHz波の研究を実施した。

また、FDS法を導入することで計測時間の短縮を図るための試みを行った点でも優れた成果を挙げた。

以上、THz波計測に関しては、国内外において、他に見られないほどの高水準な研究レベルで事業を推進した。

##### 実用化に向けた波及効果

最近では、環境負荷の観点からの材料選定も求められている。本事業において、THz波発生に着目したBNA結晶は、炭素、窒素、酸素、水素のみから構成される有機結晶であり、有毒元素を含んでいないため、環境対応の点からも有望である。また、東北大学を中心に研究が進められているDAST結晶が潮解性を有するのに対し、本事業で研究を行ったBNA結晶は潮解性が無く、大気中に放置しても長期に安定であるという点でも使いやすいものであり、本研究で得られた成果の波及効果は大きい。また、FDS法による計測時間の短縮は、計測の高速化の基盤技術として、今後のTHz波計測の産業応用への足がかりとなると考えられる。

これらの観点から、本事業のTHzに関する成果は実用化に向けて大きな波及効果をもたらすものと考えられる。

#### (5) 残された課題と対応方針について

本研究テーマでは、フェーズ、における当初の目標を達成し、平成16年度からは、テーマ<2-a>先導的実証研究のTHz波応用にて継続し、本研究を終了した。