

テーブルトップ高分解能テラヘルツ分光システムの開発

神戸大学大学院工学研究科電気電子工学専攻 小島 磨

1. イントロダクション

近年、テラヘルツ電磁波に関する研究が盛んに行われており、応用もすでに始まっている。ここで、テラが 10^{12} のことであり、ヘルツが周波数の単位であることから、テラヘルツ電磁波とは、周波数が 10^{12} 程度の電磁波のことである。このテラヘルツ電磁波は電波と光の両方の教会であることから、超高速データ通信や大容量高画質映像の非圧縮送信、空港でのセキュリティなど、様々な分野への応用が期待されている。特に、多くの有機・無機材料がこのテラヘルツ周波数帯に特徴的な吸収特性を有することから、テラヘルツ電磁波を利用した分光計測に対する注目が高まっている。このようなテラヘルツ電磁波を使用した分光計測を特に、テラヘルツ分光という。そのようなテラヘルツ分光システムを利用すると、例えば有毒なガスや薬品、違法薬物、さらには病原菌などの高精度な検出が可能になると期待できる。

しかしながら、現在、一般に用いられているテラヘルツ分光システムは超短パルスレーザーを光源に用い、モーター駆動ステージで時間領域測定を行い、得られた信号に対してフーリエ変換を行うことで、テラヘルツ情報を得ている。そのため、システムとして高額、大型であり、高分解能とは言えない状況である。そこで、例えば、小型の分光システムが実現できれば、火災現場で有毒なガスを検知して、消防士の安全を図るとともに住民の避難を促したりできる。また、災害現場で有害物質を検知したり、病原菌や違法薬物の検出のような検疫業務に用いたりなど、幅広い状況で使用可能になると期待できる。

一方、我々は差周波混合と呼ばれるテラヘルツ電磁波発生法に注目し、研究を行ってきた[1, 2]。差周波混合とは、図 1 に示すように二つのレーザーの光を同軸にして集光し、非線形光学結晶に照射することでテラヘルツ電磁波を発生させる方法である。二つのレーザーの周波数をそれぞれ、 f_{01} と f_{02} とすると、 $f_{03}=|f_{01}-f_{02}|$ の周波数のテラヘルツ電磁波が発生することが特徴であり、この原理に従えば、様々な周波数のテラヘルツ電磁波を発生させることが可能である。

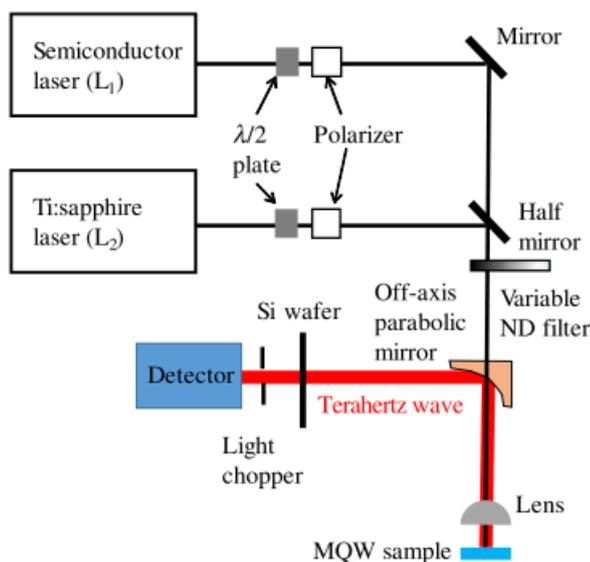


図 1 差周波混合によるテラヘルツ電磁波発生に関する光学系。二つのレーザー光を一つ集光している。

図 2 は、非線形光学結晶として GaAs/AlAs 多重量子井戸を用い、図 1 の光学系において、2 つのレーザー光を照射して発生したテラヘルツ電磁波強度を様々な励起光エネルギーで測定した結果である[1]。このように 20 THz に渡って幅広く周波数を変えて電磁波を発生したのは、世界的に初めての結果である。さらに、図 3 は、我々の共同研究者であるシェフィールド大学/グラスゴー大学のグループが測定した、大気中の水の吸収特性である[2]。この実験では、レーザーのエネルギーを変えて分光を行っており、フーリエ変換をしておらず、また、モータステージのような機械的な駆動部品は用いていない。これらの点は、従来のテラヘルツ分光装置とは異なり、小型で使用者に優しい分光装置の実現に有利な点と言える。

ここで、この発生原理を利用した分光システムを実現するためには、光源であるレーザーも含めた小型化が必要である。そのため、半導体レーザーの使用が必須といえる。半導体レーザーは小型で低消費電力な光源であり、技術的にもほとんど確立されている優れたデバイスである。ここで、再び、図 1 の光学系を見ると、ハーフミラー上でレーザーを重ね合わせており、このような自由空間でのレーザー光の重ね合わせは目視に頼らざるを得ない部分があり、また、この重ね合わせを確実にするためには、ハーフミラー上で重ね合わせた光をより遠くで観測する必要がある。これらは、ここまで述べたような小型化を考えた場合に不利な点であり、さらに、将来の応用を考えた場合、使用者にある程度のスキルが要求されることになる。また、この重ね合わせは、テラヘルツ電磁波強度とも密接に関係している。したがって、レーザー光をより簡単に重ね合わせるための系が必要と考え、そのため、分岐光ファイバーを使用することを考えた。

2. 実験方法

非線形光学結晶となる半導体結晶には分子線エピタキシー法で作製された GaAs/AlAs 多重量子井戸を用いた。図 4 に試料構造の模式図を示す。詳細は割愛するが、試料 A は単一の多重量子井戸で構成されており、試料 B および C はどちらも 3 つの多重量子井戸で構成されている。これは異なる構造の多重量子井戸を積層することによって、特定のエネルギーの非

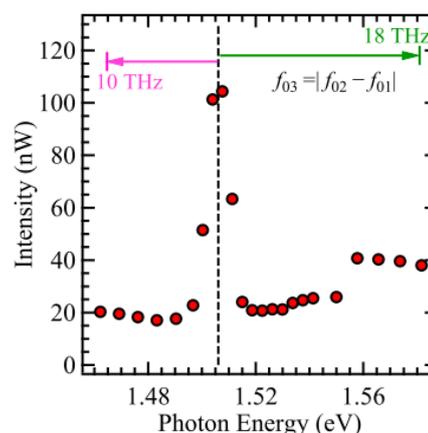


図 2 テラヘルツ電磁波強度の周波数依存性。横軸はレーザーのエネルギーであり、破線を基準として換算した周波数を上部に示している。

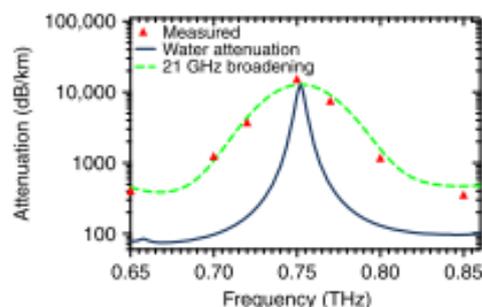


図 3 大気中の水分子の吸収特性の評価結果。

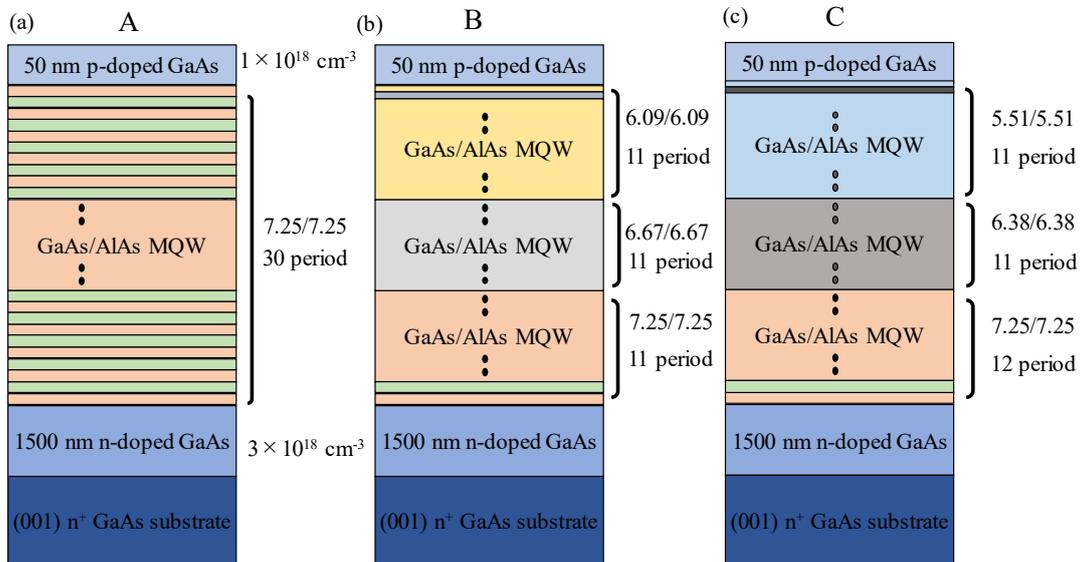


図 4 本研究で用いた 3 種類の GaAs/AlAs 多重量子井戸構造の模式図。

線形光学効果を増強することを意図した構造である[3]。なお、これらの半導体結晶は、英国グラスゴー大学の Richard Hogg 教授の研究室で作製されたものである。

テラヘルツ電磁波は、図 5 に模式的に示すような光学系で測定した。半導体レーザーの光を光ファイバーに入力し、結合光ファイバーで一つに重ね、その出力を光チョップ、ND フィルタ、放物面鏡およびレンズを介して、試料表面に集光した。後方散乱方向に発生したテラヘルツ電磁波は、レンズで平行化し、放物面鏡で焦電型検出器に集光した。なお、レーザー光を遮断するためにシリコン基板を 2 枚挿入した。なお、測定はすべて大気中で室温で行った。

3. 実験結果と考察

図 5 の光学系のように、光ファイバーを使うことの問題の一つは偏光(光波の振幅方向)である。レーザー光は通常、一方方向のみの偏光方向であるが、光ファイバー内で反射を繰り返すことで、この変更の方向がランダムになる。その一方、半導体内の電子は結晶の方位に応じた分布の違いがある。そこで、まず、光ファイバーによる偏光の変化の影響を明らかにするために、図 1 の光学系において、二つのレーザーの偏光を同一方向に

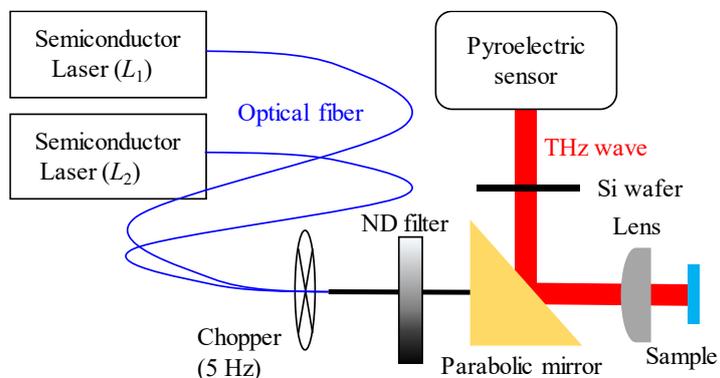


図 5 光ファイバーを利用して構築したシステムの模式図。二つの半導体レーザーの光を光ファイバーケーブルで結合し、集光して半導体試料に入射している。

360° 回転させて、テラヘルツ電磁波強度を測定した。その結果が、図 6 であり、明確な偏光特性は観測されなかった。これは 3.68 THz で、試料 A を用いて測定した結果であるが、他の周波数や他の試料でも同様の結果を得た。したがって、光ファイバーの使用に伴うレーザーの偏光状態の変化はテラヘルツ電磁波強度に影響しないと考えた。

そこで、3つの試料で図 5 の光学系において、様々な励起光強度で測定したテラヘルツ電磁波強度を図 7 に示す。なお、この測定は 7.04 THz となる条件で測定した。図中の実線は、励起光強度に対して電磁波強度が 2 乗で増加する場合の線を示す。すべての試料において、破線で囲まれた領域で信号強度は励起光強度に対して 2 乗で増加している。このように励起光強度に対して 2 乗で増加するのは、2 次の非線形光学効果である差周波混合の特徴である。この結果は、図 5 のような結合光ファイバーを使ってビームを重ね合わせても二次の非線形光学効果の発現には問題ないことを意味しており、上述の偏光特性の結果とも矛盾しない。

ところで、このような二次の非線形光学効果の発現において、単にレーザー光を照射するだけでテラヘルツ電磁波が発生するのではないことは、過去の様々な研究から明らかである。そこで、物性的な観点から、テラヘルツ電磁波が発生する条件を解明するために、図 1 のような光学系を構築し、試料から反射されるレーザー光の強度を観測して反射率を測定した。その結果を、図 8 に示す。図 8(a)は、長波長側のレーザーのレーザー光の強度を 1 mW として、短波長側のレーザーの光強度と波長を様々に変えて測定した結果である。(b)は長波長側のレーザーの強度を大きくして、同様の測定を行った結果であり、(c)はそれらの結果をまとめたものである。反射率の変化の仕方は様々であるが、共通して 1 桁以上の反射率変化が観測されている。このような変化は、反射率をモニターする波長における電子濃度が大きく変化していることを意味している。つまり、当該波長における電子の蓄積が、テラヘルツ電磁波

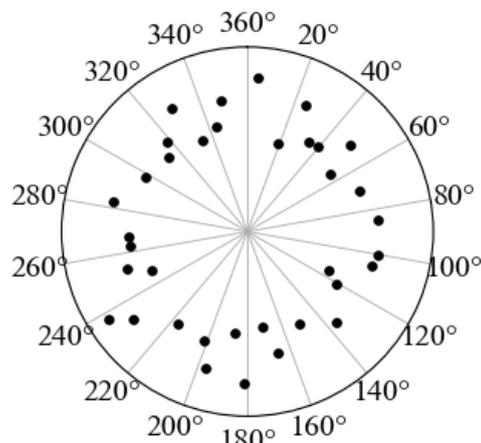


図 6 試料 A で 3.68 THz で入射光の偏光を様々に変えて、テラヘルツ電磁波強度を測定した結果。

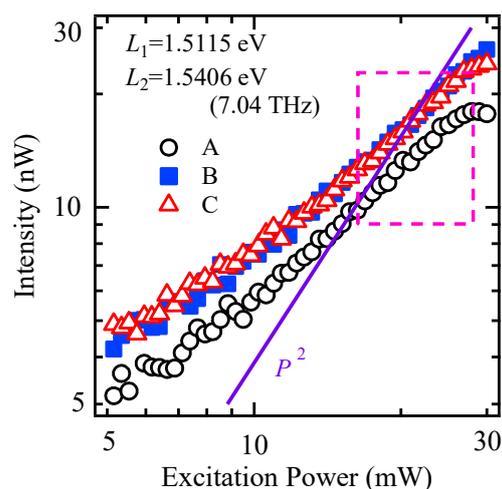


図 7 3つの試料で 7.04 THz の条件で入射光の強度を様々に変えて、テラヘルツ電磁波強度を測定した結果。実線は励起光強度に対して二乗で増加する場合を表しており、破線で囲まれた領域で、信号強度が 2 乗で増加している。

発生における重要な要因であると考えている[4]。

以上のことを踏まえて、図 5 の光学系において、検出器の前に市販の OHP シートを置いて、テラヘルツ電磁波強度を測定した[3]。その結果を図 9(a)に示す。OHP シートを重ねた枚数を厚さとして、横軸としており、縦軸はテラヘルツ電磁波強度である。なお、測定は 7.03 THz で行った。厚さに応じてテラヘルツ電磁波強度が減少しており、このことはテラヘルツ電磁波が OHP シートに吸収されていることを示している。そして、実線で示しているこの強度の減少をフィッティングした結果から、OHP シートの吸収係数を 30.46 cm^{-1} と見積もった。図 9(b)は FTIR で、この OHP シートの吸収係数を測定した結果である。残念ながら、7 THz 付近での測定はできなかったが、テラヘルツ電磁波で測定した吸収係数と FTIR で測定した吸収係数は近い値である。つまり、我々が構築しているテラヘルツ電磁波発生および測定系が、分光装置として十分に機能すると言える。

4. まとめ

本研究では、二つの半導体レーザーの光を結合光ファイバーで重ね合わせて、非線形光学結晶である GaAs/AlAs 多重量子井戸に入射し、差周波混合によるテラヘルツ電磁波を発生させること、さらにこの原理を利用した小型テラヘルツ分光計を開発することを目的に研究を行った。結合光ファイバーを使用することで、光の重ね合わせを確実にし、効率よくテラヘルツ電磁波を発生させることができたと考えており、特に、光ファイバーによりレーザー光の偏光がランダムになることの強度の低下は観測されなかった。これらの結果から、小型でテーブルトップサイズのテラヘルツ分光計が実現できると考えている。現在、光学系としては 30 cm 四方程度まで小型化したので、今後も継続して小型化に取り組んでいきたい。

また、出力の向上が測定精度に結びつくことから、発生過程における光生成電子の動的過程に関しても関心をもって研究を行ってきた。その結果、半導体面内での電子の拡散やバンド内での緩和など、テラヘルツ電磁波発生における諸条件を明らかにしつつある。今後も、このような物性的な観点に基づいた研究を行うことで、高効率かつ高出力なテラヘルツ電磁波

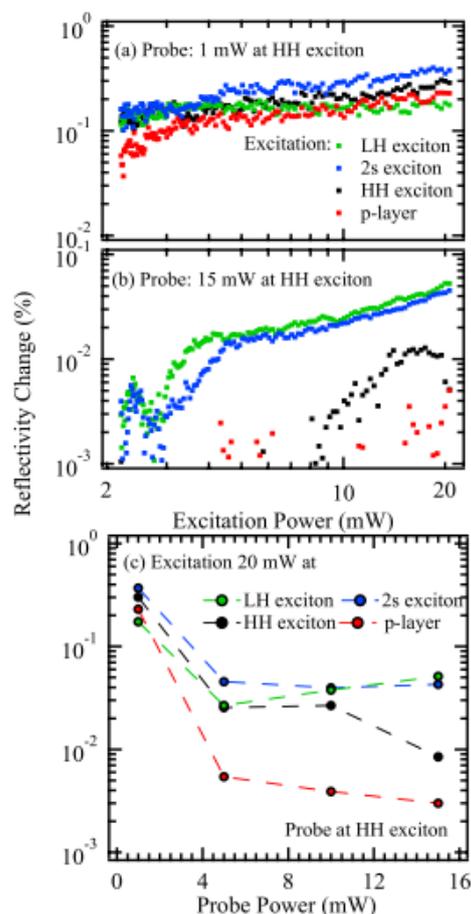


図 8 試料 A での反射率変化のレーザー光強度依存性。長波長側のレーザーの反射率をレーザー光強度を様々に変えて測定した(a)および(b)。(c)はそれらをまとめた結果である。

発生を実現していきたいと考えている。

最後に、貴重な研究資金を助成して頂いたことを深く感謝いたします。

参考文献

[1] “Wide Frequency Tuning of Continuous Terahertz Wave Generated by Difference Frequency Mixing under Exciton-Excitation Conditions in a GaAs/AlAs Multiple Quantum Well”

O. Kojima, Y. Tarui, H. Shimazu, T. Kita, A. Majeed, P. Ivanov, E. Clarke, and R. Hogg, *Physical Review Applied* 10, 044035 (2018).

[2] “Broadband THz absorption spectrometer based on excitonic nonlinear optical effects”

A. Majeed, P. Ivanov, B. Stevens, E. Clarke, I. Butler, D. Childs, O. Kojima, and R. Hogg, *Light Science and Applications* 8, 29 (2019).

[3] “Increase in terahertz-wave generation by difference frequency mixing by overlap of exciton states in different GaAs/AlAs quantum wells and spectroscopic measurements”

K. Sakaue, O. Kojima, T. Kita, M. J. Steer, and R. Hogg, *Optics Express* 29, 24387 (2021).

[4] “Modulation of exciton states through resonant excitation by continuous wave lasers in a GaAs/AlAs multiple quantum well”

O. Kojima, T. Kita, M. J. Steer, and R. A. Hogg, *Journal of Physics D: Applied Physics* 54, 335106-1-7 (2021).

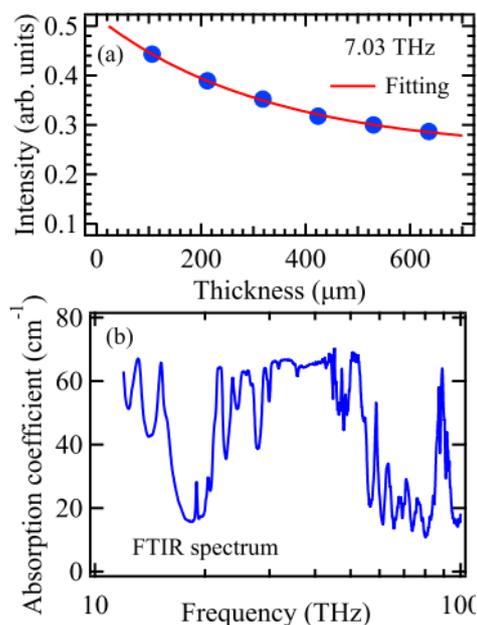


図9(a) 試料Cで発生させた7.03 THzのテラヘルツ電磁波を使って測定した市販のOHPシートの透過光強度の厚さ依存性。厚さは、重ねたOHPシートの枚数から換算している。実線は吸収係数を求めるためのフィッティング結果を表している。(b) FTIRで測定したOHPシートの吸収係数スペクトル。