

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 20 日現在

機関番号：13401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25286066

研究課題名(和文) チェレンコフ位相整合E0サンプリングの高度化とTHz波イメージング計測への応用

研究課題名(英文) Further advancement of Cherenkov phase-matched electro-optic sampling and its application to THz wave imaging

研究代表者

谷 正彦 (TANI, Masahiko)

福井大学・遠赤外領域開発研究センター・教授

研究者番号：00346181

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,500,000円

研究成果の概要(和文)：申請者らが独自に開発したテラヘルツ(THz)波検出法としてのチェレンコフ位相整合電気光学サンプリング(Cherenkov-EOS)法をさらに発展させ、ヘテロダイン型のCherenkov-EOSを開発した。テーパ付金属平行平板導波路を用いて従来のEOSに比べて約20倍の高感度化を達成するとともに、LiNbO3結晶にスラブ型光導波路構造を導入して、検出帯域を約2.5THzまで改善することに成功した。Cherenkov-EOS信号の空間分布特性を系統的に調べ、角度位相整合に基づくTHz波の周波数分解検出や、EOS信号の空間分布特性を利用した感度向上を実証した。

研究成果の概要(英文)：We have developed a new electro-optic sampling (EOS) scheme, "heterodyne Cherenkov EOS," for detection of THz pulsed radiation based on the Cherenkov phase-matched EOS, which was also invented by ourselves. About 20 times enhancement in the THz detection efficiency was achieved by using a tapered parallel plate metallic waveguide. In addition, the detection bandwidth of this technique was extended to 2.5 THz by using a slab waveguide structure in LiNbO3 crystal. We have investigated systematically the spatial signal distribution in the Cherenkov-EOS, the properties of which made it possible to realize the frequency resolved THz wave detection and the optimization of Cherenkov-EOS optical detection system.

研究分野：テラヘルツ分光

キーワード：テラヘルツ 電気光学サンプリング

1. 研究開始当初の背景

本申請書でいうところのテラヘルツ(THz)波は30GHz~12THzの周波数の電磁波を指す。近年フェムト秒レーザーもしくはナノ秒レーザーを励起光源とする THz 波の発生法が開発されたことで、THz 時間領域分光法(THz-TDS)を代表とする計測技術が進歩し、THz 波の分光や計測への応用が展開されている。THz 帯には分子結晶の光学フォノン、半導体中のプラズモンポラリトン、生体分子の骨格振動、超伝導ギャップなど興味深い素励起が観測される周波数領域であり、物質科学においては重要な周波数帯である。また非金属および極性の低い物質を比較的良好に透過し、X線イメージングでは検出しにくい低誘電率物質のコントラストが得られるため、新たな非破壊計測、透視イメージング手段としての応用が期待されている。絵画や美術品修復のための THz 波断層イメージングによる診断がその好例である。また薬の錠剤の多層コーティングや内部の薬剤の不均一性などが THz 波イメージングにより非破壊で評価できるなど、品質管理手段としても期待を集めている。一方、薬の錠剤などの製造ラインでの全数検査や、イメージング応用では、THz 波計測のさらなる高速化と高感度化が求められている。

フェムト秒レーザーを光源に用いたパルス THz 波の波形検出には現在、光伝導アンテナによる光伝導サンプリングと電気光学(EO)結晶による電気光学サンプリング(EOS)法のいずれかが主として用いられている。THz 波の自由空間における EOS 法は米国の X. -C. Zhang (ロチェスター大)らによって開発され、現在光伝導サンプリングとともに広く利用されている。光伝導サンプリングと比較して特別な素子作製プロセスが不要であること、2次元イメージング素子への拡張が容易であることなどが利点である。EOSを高効率に行うには、サンプリングパルス光の群速度と THz 波の位相速度が EO 結晶中で等しくなる、すなわち位相整合条件が成り立つ必要がある。このため、固体フェムト秒レーザー(モード同期 Ti: sapphire laser)の主な発振波長である 800nm 帯およびフェムト秒ファイバーレーザーの主な発振波長である 1.55 μm 帯で良好な位相整合条件が得られる EO 結晶を用いる必要があった。800nm 帯では II-VI 族化合物半導体の一種である ZnTe 結晶がもっとも良好な位相整合が得られるため、もっぱら EOS 素子として用いられている。一方、1.55 μm 帯では良好な位相整合が得られる非線形光学結晶は自然界には存在せず、安価で安定に発振する 1.55 μm 帯フェムト秒ファイバーレーザーで用いることができる EOS 素子もしくは技術の開発が求められていた。

2. 研究の目的

申請者らが独自に開発したテラヘルツ(THz)波検出法としてのチェレンコフ位相整合電気光学サンプリング(Cherenkov-EOS)法をさらに発展させ、高

度化する。Cherenkov-EOS は吸収と分散が強く、通常のコリニア(共軸)配置ではこれまで利用することができなかった電気光学結晶も利用することができ、またどのようなサンプリング波長でも対応することができるという優れた利点を有している。

本研究では (i)金属導波路等を応用してその感度を飛躍的に増強し、また(ii)光導波路構造および波面傾斜法を用いて検出帯域を大幅に拡大し、さらに (iii) 高感度な THz 波リニアアメージング素子としての展開を図る。

3. 研究の方法

Cherenkov-EOS に基づく高感度な THz 波リニアアメージングを実現するために、要素技術開発として

(i) テーパー付金属平行平板導波路を用いた感度増強、(ii-a)LN 結晶スラブ型光導波路構造、および(ii-b)波面傾斜法による検出帯域の拡大を行う。さらに Cherenkov-EOS に基づく(iii) リニアイメージング素子の開発を行う。

4. 研究成果

以下に研究項目ごとにその成果を記述する。

(i-a) テーパー付金属平行平板導波路を用いた感度増強

テーパー付金属平行平板導波路により、サブ波長域に THz 波が集束(超集束)されることが知られている。この超集束効果を利用することで、THz 波の電界強度を増大させ、EO サンプリングの検出効率を増大させることを試みた。図 1 右上のようなテーパー付金属平行平板導波路と、電気光学結晶としての LiNbO₃(LN)結晶を結合させた、Cherenkov-EOS 素子を作成し、図 1 左に示す THz-TDS 実験装置を用いて評価実験を行った。LN 結晶に接続する部分の金属導波路幅 0.1mm、幅 40μm のスラブ型光導波路構造を持つ LN 結晶を用いた場合において、金属導波路構造およびスラブ型光

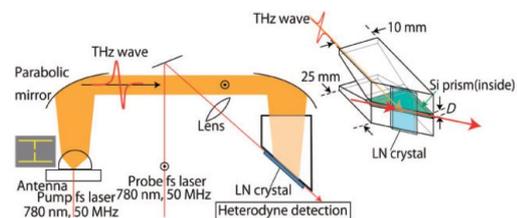


図 1. テーパー付金属平行平板導波路を用いた Cherenkov-EOS 素子(右上)と、素子評価の THz-TDS 実験装置の模式図

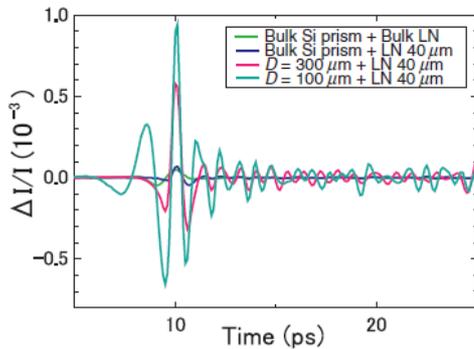


図2. Siプリズムに結合したバルクLN結晶，Siプリズムに結合したスラブ導波路型(幅40 μm)LN結晶，テーパ付金属平行平板導波路(導波路幅300 μm)に結合したスラブ導波路型(幅40 μm)LN結晶，テーパ付金属平行平板導波路(導波路幅100 μm)に結合したスラブ導波路型(幅40 μm)LN結晶，それぞれにより検出したTHz波の時間領域波形。

導波路構造を用いない場合に比べて，最大で約20倍のTHz波の検出感度増強を確認した。(図2)。本成果の詳細は，S. Tsuzuki, *et al*, Appl. Phys. Express 7, 112401 (2014) に報告した。

(i-b) 空間分解検出による高感度化

Cherenkov-EOSの高感度化については金属導波路を用いた試みのほか，以下に述べるような空間分解検出による高感度化を試み，有効であることを実証した。

ヘテロダイン型Cherenkov-EOSではSFG, DFGに対応して，サンプリングビーム内にEO信号が空間分布し，ビーム断面の裾野で信号の極大が現れる。SFG, DFGに対応してEO信号の極大が現れる空間位置に光検出器を配置し差分検出することでTHz波のヘテロダインEOサンプリングを高感度化することが可能になる。

図3はSFG, DFGに対応するEO信号のそれぞれの極大に光検出器としてのフォトダイオードを配置し，差分検出を行った場合(Divergent Beam)と，SFG, DFGに対応するプローブビームの左右の断面を分割したあと，レンズにより2つのフォトダイオードに集光して差分検出した場合(Focused Beam)のTHz波の時間領域波形の比較である。前者の場合は波形ピークで $\Delta I/I = 1.7 \times 10^{-3}$ ，後者で $\Delta I/I = 4.3 \times 10^{-4}$ の値が得られており，空間分解検出により約4倍の信号増強が得られていることが分かる。

(i-c) LN結晶以外のEO結晶によるCherenkov EOSの高感度化

GaAsは比較的大きな電気光学係数を持ち，光領域とTHz領域の屈折率差が小さく，Si

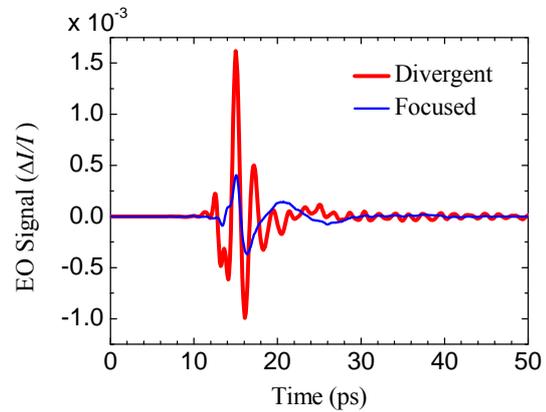


図3. プローブビームとしてDivergent Beamを用いた場合とFocused Beamを用いてCherenkov-EOSにより検出したTHz波の時間領域波形。

プリズムなどの空間結合素子が不要である。このため，GaAs結晶をテーパ付金属平行平板導波路内に挿入し，プローブ光波長1.55 μm を用いて，GaAs結晶によるCherenkov-EOSを実証した。結晶配置の最適化や，テーパ付金属平行平板導波路による超集束効果を利用することで，今後より高感度なGaAs結晶によるCherenkov-EOSが期待できる。

また，非常に大きな電気光学係数を持つBaTiO₃結晶を用いCherenkov-EOSを試みたが，BaTiO₃結晶のTHz波の吸収が非常に強いため，LN結晶を超える感度は得られなかった。

有機結晶のDAST結晶はLiNbO₃結晶よりも約1.5倍大きいEO係数を持つ。DAST結晶を用いて，ヘテロダイン型Cherenkov-EOSを試み有望な結果を得た。今後，DAST結晶の品質改善，結晶配置の最適化などにより，LN結晶を超える感度が期待できる。

(ii-a) LN結晶スラブ型光導波路構造による広帯域化

LN結晶スラブ型光導波路構造はテーパ付金属平行平板導波路に結合させて用いることで感度増強にも有効であることが分かったが，広帯域化にも効果があることが分かった。同じ光伝導アンテナ素子をTHz波の放射素子に用いて比較測定した場合において，バルクLN結晶の20dB帯域(ピークから振幅スペクトルが-20dB減衰する帯域)が約1.5THzであったのに対して，幅40 μm のスラブ型光導波路構造のLN結晶を用いた場合は約2.5THzの帯域が得られた(図4参照)。

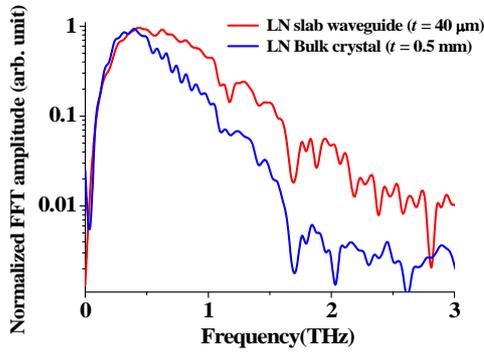


図4. バルクLN結晶および幅40μmのスラブ型光導波路構造のLN結晶を用いてCherenkov-EOSにより検出したTHz波の振幅スペクトル。

(ii-b)波面傾斜法による広帯域化

波面傾斜 (tilted pulse front) 法は、光整流効果による THz 波の高強度発生法として知られているが、Cherenkov-EOS においても図5のようにプローブビームの波面を傾斜させることで、プローブビーム幅による位相不整合を軽減するので、高効率化と広帯域化が期待できる。しかし、波面傾斜法による THz 波の広帯域検出を試みたが、広帯域化を示す実験結果は得られなかった。期待した結果が得られなかった理由はまだよく分かっていないが、波面の制御が不十分であることが可能性として考えられる。

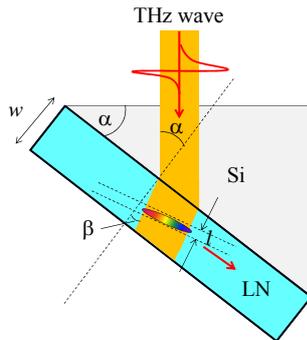


図5. 波面傾斜法による広帯域化の原理図

(iii) リニアイメージング素子の開発

研究期間中にリニアイメージング素子のプロトタイプ開発には至らなかったが、開発に必要な要素技術の開発と、Cherenkov-EOS による THz 波の周波数分解検出特性の詳細を評価した。

Cherenkov-EOS では、非共軸な位相整合条件が成立しており、位相整合条件は SFG あるいは DFG 過程における次の波数ベクトルの関係式で表わされる。

$$\mathbf{k}_{opt} \pm \mathbf{k}_{THz} = \mathbf{k}_{SFG/DFG} \quad (1)$$

ここで \mathbf{k}_{opt} はプローブ光の波数ベクトル、

\mathbf{k}_{THz} は THz 波の波数ベクトル、 \mathbf{k}_{SFG} および \mathbf{k}_{DFG} はそれぞれ SFG 光、DFG 光の波数ベクトルである。プローブ光の波数 k_{opt} は THz 波の波数 k_{THz} に比べて 2 桁以上大きいいため、(1)式による SFG 光、DFG 光の THz 波の周波数に依存した角度分散はそれほど大きくない。このため、レンズなどで集束したプローブ光を用いた場合は、様々な角度方向の光波が重なり、THz 波は角度分解検出されないが、平行度が十分高いプローブ光を用いると、Cherenkov-EOS による信号は、THz 波の周波数成分に応じて、角度分散されて検出される。SFG の場合を例にとって、図6にその様子を模式的に示す。

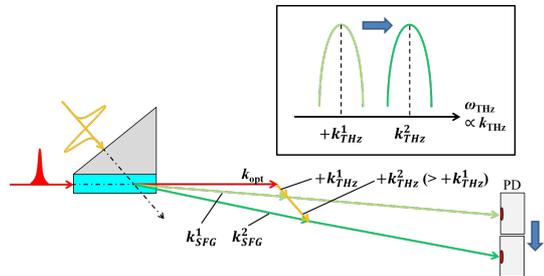


図6. SFGの波数ベクトル整合とTHz波の周波数分解検出の模式図

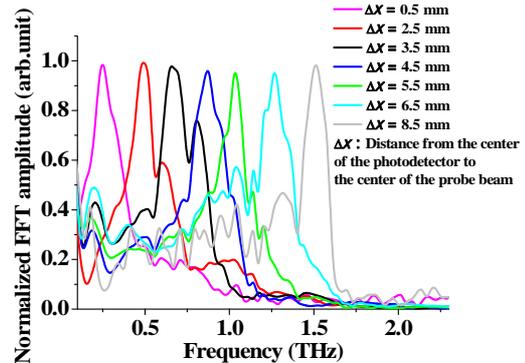


図7. ヘテロダイン型Cherenkov-EOSにより周波数分解検出されたTHz波スペクトル

図6において、(1)式に基づく位相整合条件に合致した方向に SFG 光が発生する。THz 波のある周波数成分 ω_1 に対応した THz 波の波数ベクトルを \mathbf{k}^1_{THz} 、周波数成分 ω_2 に対応した THz 波の波数ベクトルを \mathbf{k}^2_{THz} とすると、発生する SFG 光の波数ベクトル \mathbf{k}^1_{SFG} と \mathbf{k}^2_{SFG} は、 ω_1 と ω_2 の大きさにほぼ比例した角度方向にプローブビームからずれる。この位相整合角による周波数選択性を利用して、広帯域な THz 波を周波数分解検出することが可能になる。

図7は、十分な平行度を持ったプローブビームを用いてヘテロダイン型

Cherenkov-EOS により周波数分解検出された THz 波スペクトルである。光検出器は EO 素子から約 80cm 離れた位置に置き、プローブビーム中心からの水平距離 Δx を変化させて測定したものである。これらのスペクトルの半値全幅 (FWHM) は、200 GHz ~ 300 GHz であり、光検出器に入射するプローブ光の立体角を制限することで、100GHz 以下の周波数分解が得られることが分かった。

上記の Cherenkov-EOS による周波数分解検出特性を用いて、THz 波のリニア分光イメージング素子を実現できる。すなわち、リニアフォトダイオードアレイなど、1次元空間分解検出可能な光検出器で、周波数分解された Cherenkov-EOS による EO 信号の空間分布を検出することで、THz-TDS の THz 波形取得に通常必要とされる時間遅延走査なしに、分光情報を取得できる。高い周波数分解能は得られないが、単純なスペクトル判別計測には有用であると思われる。

また、光検出器として CCD カメラや CMOS カメラなどの 2 次元センサーを用いれば、1 軸を周波数スペクトル、他の 1 軸を空間分布情報の取得に利用して、THz 帯のリニア分光イメージング素子を実現できる。実証実験として動的差分検出 (Dynamic Subtraction) 機能付きの CMOS カメラを用いて、撮像してヘテロダイン型 Cherenkov-EOS による THz 波の検出信号の空間分布を図 8 に示す。左側の信号 (赤) が SFG、右側の信号が DFG (緑) に対応しており、互いに信号の符号が逆転している。この画像上の水平 x 軸方向が周波数軸 (中心部がゼロ周波数、中心から離れるにつれて高い周波数成分が検出される)、垂直 y

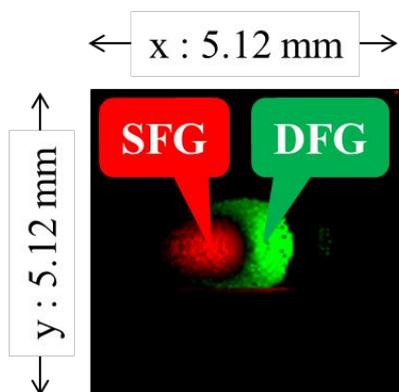


図 8. CMOS カメラにより撮像された、ヘテロダイン型 Cherenkov-EOS による THz 波の EO 信号分布。左側の信号 (赤) が SFG、右側の信号が DFG (緑) に対応しており、互いに信号の符号が逆転している。

軸方向に空間分布情報がマッピングされることになる。今後、THz 帯に吸収バンドを持った試料を用いて、分光性能を評価する必要があるが、本実験の結果、Cherenkov-EOS に基づく THz 波のリニア分光イメージング素子の原理実証はできたと考えられる。

(iv) その他

申請者らが考案、実証したヘテロダイン型 Cherenkov-EOS については、ロシアのニジノブゴロド大学の M. Bakunov 教授らと共同で、理論モデルの構築と、シミュレーション計算、実験的検証による研究を進めていたが、その特性をほぼ完全に解明することができた。その成果は M. I. Bakunov, S. D. Gorelov, M. Tani: "Nonellipsometric Noncollinear Electrooptic Sampling of Terahertz Waves: A Comprehensive Theory," IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology, (DOI: 10.1109/TTHZ.2016.2543601) に発表した(ただし期間外の論文発表なので、[雑誌論文]には掲載していない)。またヘテロダイン型 Cherenkov-EOS の特性評価は、「(i-b) 空間分解検出による高感度化」で述べた、検出感度の向上にもつながっている。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 5 件)

1. Masahiko Tani, Tetsuya Kinoshita, Tomohiro Nagase, Kazuki Horita, Christopher T. Que, Elmer Estacio, Kohji Yamamoto, and Michael I. Bakunov: "Non-ellipsometric detection of terahertz radiation using heterodyne EO sampling in the Cherenkov velocity matching scheme," Optics Express, Vol. 21, No. 7, pp. 9277-9288 (2013). (On line published 8 April 2013).
2. Satoshi Tsuzuki, Daiki Takeshima, Tomoya Sakon, Tetsuya Kinoshita, Tomohiro Nagase, Kazuyoshi Kurihara, Kohji Yamamoto, Fumiyoshi Kuwashima, Takashi Furuya, Elmer Estacio, Kodo Kawase, Michael I. Bakunov, Masahiko Tani: "Highly sensitive electro-optic sampling of terahertz waves using field enhancement in a tapered waveguide structure," Applied Physics Express Vol. 7, 112401 (10 Oct 2014).
3. Kazuyoshi Kurihara, Akira Otomo, Kazuhiro Yamamoto, Junichi Takahara, Masahiko Tani, Fumiyoshi Kuwashima: "Identification of Plasmonic Modes in Parabolic Cylinder Geometry by Quasi-Separation of Variables," Plasmonics, Vol. 10, pp.165-182 (Published online on October 1, 2014).

4. 谷正彦, 山本晃司, マイケル バクノフ: 研究紹介「非共軸な位相整合を用いたテラヘルツ波の電気光学サンプリング検出技術」, 応用物理 第 83 巻, 第 11 号, pp.917-922 (2014 年).
5. E. A. Mashkovich, A. I. Shugurov, S. Ozawa, E. Estacio, M. Tani, M. I. Bakunov: "Noncollinear Electro-Optic Sampling of Terahertz Waves in a Thick GaAs Crystal," IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology, Volume 5, Issue 5, pp.732 - 736 (2015).
- 〔学会発表〕(計 49 件)
1. Masahiko Tani, T. Kinoshita, T. Nagase, S. Ozawa, S. Azuma, S. Tsuzuki, D. Takeshima, T. Joja, A. Iawamae, S. Funkner, G. Niehues, E. Estacio, K. Kurihara, K. Yamamoto, M. Bakunov: "Electro-optic sampling detection of THz pulsed radiation based on Cherenkov phase-matching" (Invited), VI International Symposium of "Modern Problems of Laser Physics" (MPLP '2013) (25-31 August 2013, Novosibirsk, Russia).
2. M. Tani, T. Kinoshita, T. Nagase, S. Ozawa, S. Azuma, S. Tsuzuki, D. Takeshima, T. Joja, T. Furuya, A. Iawamae, S. Funkner, G. Niehues, E. Estacio, K. Kurihara, K. Yamamoto, and M. Bakunov: "THz Electro-optic Sampling Based on Non-collinear Cherenkov Phase-matching" (Invited paper, T1B-2), 7th Global Symposium on Millimeter-Waves (GSMM) 2014 (May 21~23, 2014, The-K Seoul Hotel, Seoul, Korea).
3. Masahiko Tani, Shinpei Ozawa, Shogo Azuma, Satoshi Tsuzuki, Takashi Furuya, Stefan Funkner, Gudrun Niehues, Elmer S. Estacio, Kazuyoshi Kurihara, Kohji Yamamoto, Michael I. Bakunov: "Electro-optic sampling of terahertz pulses based on non-collinear Cherenkov phase-matching" (Invited Paper), Paper 9275-13, Infrared, Millimeter-Wave, and Terahertz Technologies III, SPIE Photonics Asia 2014 (Beijing International Convention Center, Beijing, China) 9 - 11 October 2014).
4. M. Tani, S. Ozawa, S. Azuma, S. Tsuzuki, T. Furuya, H. Kitahara, S. Funkner, G. Niehues, E. Estacio, K. Kurihara, K. Yamamoto, and M. Bakunov: "Non-collinear electro-optic sampling techniques for efficient detection of THz radiation," (Invited) Paper No. SeM2D.2, OSA Advanced Photonics Congress (June 27 - July 1, Boston).
5. Masahiko Tani, Shogo Azuma, Satoshi Tsuzuki, Takashi Furuya, Hideaki Kitahara, Elmer S. Estacio, Kazuyoshi Kurihara, Kohji Yamamoto, and Michael Bakunov: "Terahertz electro-optics sampling based on non-collinear Cherenkov-phase-matching" (Invited), 7th International Workshop on Terahertz Technology and Applications (15-16 March, 2016, Kaiserslautern, Fraunhofer-Institut für

Physikalische Messtechnik IPM).

他 44 件

〔図書〕(計 0 件)

該当なし

〔産業財産権〕

出願状況 (計 1 件)

名称: 電磁波の位相速度制御方法及び位相速度制御構造

発明者: 谷正彦, 左近知也, 竹嶋大貴, 都築聡, 山本晃司, 栗原一嘉, 他 2 名

権利者: 同上

種類: 特許

番号: 特願 2013-102527

出願年月日: 2014 年 05 月 14 日

国内外の別: 国内

取得状況 (計 0 件)

該当なし

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

谷 正彦 (TANI, Masahiko)

福井大学・遠赤外領域開発研究センター・教授

研究者番号: 00346181

(2) 研究分担者

川瀬 晃道 (KAWASE, Kodo)

名古屋大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号: 00296013

(3) 研究分担者

栗原 一嘉 (KURIHARA, Kazuyoshi)

福井大学・教育地域科学部・教授

研究者番号: 20270704

(4) 研究分担者

山本 晃司 (YAMAMOTO, Kohji)

福井大学・遠赤外領域開発研究センター・准教授

研究者番号: 70432507