

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 19 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26790073

研究課題名(和文) 高強度テラヘルツ波発生に向けた新デバイスの開発

研究課題名(英文) Development of a contact grating device for intense terahertz pulse generation

研究代表者

吉田 芙美子 (Yoshida, Fumiko)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・学術支援専門職員

研究者番号：30450422

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、非線形結晶内の光整流作用により生じるテラヘルツ(THz)光の高強度化を目指し、回折格子と非線形結晶が一体となった透過型回折格子をもつ新しいデバイスの開発を行った。研究期間中に、回折効率を上げるための2種類のデバイスを考案し設計に基づいて作製を行った。2種類のうちの1つは高い屈折率の薄膜を非線形結晶上に作製し、そこに回折格子を作る方法、もう一方は、薄膜間の光干渉を利用しファブリーペロー共振器の原理を応用したデバイスである。どちらのデバイスからもテラヘルツ波の発生に成功し、これまでにない小型のテラヘルツ波発生装置を作製することができた。

研究成果の概要(英文)：We developed a new contact grating device for intense terahertz (THz) pulse generation by optical rectification. We have developed two kinds of device. One was made from polycrystalline rutile TiO<sub>2</sub> thin film in the grating region and an amorphous SiO<sub>2</sub> layer deposited on a Mg-doped LiNbO<sub>3</sub> crystal. The another one was designed using an idea of the principle of the Fabry-Perot resonator. We have succeeded in THz pulse generation with these contact grating devices, which is the first time of THz pulse generation with a contact grating setup.

研究分野：レーザー物理

キーワード：テラヘルツ波 透過型回折格子 高屈折率材料薄膜 ファブリーペロー共振器

### 1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ (THz) 波はおよそ 300GHz から 10THz の周波数をもつ光を指し、エレクトロニクス (GHz 帯) とフォトニクス (可視域: 数百 THz) が活躍する周波数領域のちょうど中間に位置する。この周波数領域には興味深い物質情報が数多く存在しているにも関わらず、THz 波領域での光源や検出器の技術開発は他の周波数帯域と比較して遅れている。その原因は、エレクトロニクスとフォトニクスから見たときに、この周波数領域はそれぞれの高周波と低周波極限に対応することから、高い技術的困難が存在していたことにある。しかし、この周波数領域には、気体分子の回転モードや分子間の振動モード、プラズマ振動モード、超伝導ギャップモード、強誘電体のソフトモードなど、興味深い物質情報が数多く存在しているので、高度な技術体系が整いさえすれば、新規の物理現象をとらえられる領域として、近年、その注目度が高まっている。

### 2. 研究の目的

本研究では、フェムト秒レーザーの光整流作用を利用した THz の発生法を用いて、新しい光源デバイスを設計・開発し、これまでにない高強度で高繰り返しパルス THz 波の発生を目指す。効率の良いパルス THz 波発生には、フェムト秒レーザー (ポンプ光) の群速度  $v_{gr}$  と、発生してくる THz 波の位相速度  $v_{THz}$  が非線形光学媒質内で一致する「位相整合条件」を満たさなければならない。これを満足させるためにパルス面傾斜法を利用する。パルス面を傾斜するには、回折格子とビーム整形のためのレンズが使用されるが、ポンプ光のビーム径が広がるにしたがって、結晶表面に到達する波面に歪みが生じ、THz 波への変換効率が下がることが問題になっている。また、結晶内を伝搬するポンプ光の距離が場所によって異なるために、発生する THz 波のスペクトルが一様にはならない問題も生じている。これらの問題を回避する方法として、像転送に使われるレンズを取り除き、回折格子を結晶表面に取り付ける透過型回折格子をもつ新デバイスが考案されたが、実現化には至っていない。そのため実用化にはさらに詳細な検討が必要であった。本研究ではこの透過型回折格子に着目し、実用化に向けたデバイスの考案と最適設計を行い、世界で初めてとなる新デバイスを使った THz 波の発生を試みる。

### 3. 研究の方法

従来の回折格子とレンズ、非線形結晶からなるテラヘルツ (THz) 波発生のための光源デバイスに換えて、回折格子と非線形結晶が一体となった透過型回折格子をもつ新デバイスの開発と作製を行う。ここでは、非線形結晶上に高屈折率材料の薄膜を蒸着し、膜に回折格子を製作する新たなデバイス構造

を提案した。本研究グループでは理論計算を通して透過型回折格子の詳細なデザインを行い、高屈折率材料の薄膜を LN 上に蒸着し、回折格子を作る手法が簡便かつ有効であることを見出した。このとき、回折効率は、薄膜がない (LN に直接回折格子を刻む) 場合の 20% と比較して、薄膜の回折格子を取り付けた場合、50~70% にまで上昇する可能性がある。また、薄膜の屈折率が高いほど、回折効率が上がることも見出している。

この透過型回折格子の新デバイスを実現するには、前述した通り高い屈折率をもつ薄膜を LN の上に作製する必要がある。薄膜材料の屈折率は、ポンプ光の波長 1030 nm で LN の屈折率 2.14 より大きくなければならない。この条件を有する材料は少ないが、申請者は酸化物の中で最も高い屈折率をもつルチル型構造の  $TiO_2$  に焦点をあて、屈折率を上げるための成膜技術を開発した。薄膜を構成する微粒子の密度を上げるため、金属 Ti を蒸着した後、大気中で加熱して酸化・結晶化する新しい方法を採用し、加熱温度や加熱時間などの作製条件を最適化した結果、図 7 に示すように、これまでで最も高い屈折率 (1030 nm で 2.7) をもつ  $TiO_2$  薄膜の作製に成功している。

本研究ではこれら理論計算と成膜技術を導入して新デバイスの作製に着手する。新しく開発した成膜方法で  $TiO_2$  薄膜を LN 基板上に作製し、理論計算を受けて、最適化された膜厚に回折効率の最も高くなる溝幅の回折格子を作製する。

### 4. 研究成果

平成 26 年度は、新たに開発した酸化チタンの成膜技術を利用して、非線形光学結晶上に薄膜を作製し、屈折率、膜厚、吸収係数等、光学定数の物性評価に加えて、膜の耐力試験や SEM 観察を実施した。その結果、薄膜作製途中の加熱処理の段階で、金属チタンが非線形結晶内を拡散し、そのために酸化チタン膜の屈折率が下がる現象が新たに見つかった。この問題を回避するため、非線形結晶と酸化チタン膜の間にバッファ層として石英膜を挟む解決策を取り、その結果、拡散を抑えることができた。

バッファ層の導入により、石英膜と酸化チタン膜で構成される新たな多層膜構造についてデバイス設計が必要となったため、回折効率を指標に膜厚と回折格子の形状を新たに設計し直して、それに基づいて実際のデバイスを作製した。さらに、酸化アルミと酸化タンタルの多層膜を使った新たなデバイス構造も考案された。前述した高屈折率材料を使った膜構造と合わせて、これら 2 種類の多層膜構造を作製した後、膜上に回折格子を作って新デバイスを完成させた。

出来上がった回折格子を伴うデバイスについて、回折効率を評価した。その結果、酸化チタン膜を使ったものではおよそ 33%、酸

化タンタルを使用したものでは 70%の高い効率を得られた。さらに、両者にポンプ光を照射して、THz 波の発生試験を実施した結果、THz 波の発生に成功した。これは、新デバイスを使った方法で THz 波を発生した初めての事例である。

平成 27 年度は、THz 波の高強度化を目指して、デバイスの大型化に着手した。昨年度に作製したデバイスのうち、高い回折効率が得られたファブリーペロー型のデバイスに対し、新たなレジストを使ったエッチング法を採用して、回折格子作製時の時間短縮を計った。その結果、従来のレジストと遜色のない作製精度が得られることを SEM 観察と回折効率の測定から確認した。これにより従来法より 3 倍の格子エリアの拡大が見込めることとなり、100mJ のポンプレーザーをデバイスに入射しても、計算されるダメージ閾値を超えないことが明らかとなったため、THz 波の高強度化の見込みがついたといえる。平成 27 年度は格子エリアを昨年度の  $10 \times 5\text{mm}$  から  $10 \times 14\text{mm}$  へ拡大した大型のデバイスを新たに作製した。

大型化と同時並行で、昨年度作製したデバイスの詳細な特性評価を行った。回折効率については、実測と設計値に大幅なずれが生じたので、その要因について理論計算の手法を用いて実験結果を解析した。その結果、回折格子の形状が矩形からずれたことが回折効率低下の原因であることを突き止めた。ファブリーペロー型のデバイスについては、THz 波出力のポンプ光強度依存の測定を行い、最大  $1.3\mu\text{J}$  の THz 波出力を得た。ダメージ閾値を考慮すると、さらに高強度のポンプ光を入射することができるため、現時点でおよそ  $4.0\mu\text{J}$  の出力が見込まれる。また、上記の大型化と出力取り出し部分の改良などにより、 $50\mu\text{J}$  の出力が得られる試算を得た。ファブリーペロー型デバイスの特性評価の結果を、デバイスの原理と合わせて国際学会と論文に発表した。

高屈折率材料のデバイスについても詳細な特性評価を行った。このデバイスは、ファブリーペロー型のデバイスとは原理が異なり、ポンプ光の入射角度にほとんど影響を受けない回折効率が得られる。この利点を生かして、THz 波発生の位相整合に関する情報を得ることができた。これは、従来のプリズムを使った THz 波発生はもちろん、ファブリーペロー型の新デバイスでも得られない実験的知見であり、この観点から高屈折率材料デバイス開発の意義は充分にある。

平成 28 年度は、高屈折率材料の新デバイスについて平成 27 年度に得られたテラヘルツ波発生試験とデバイスの特性評価を踏まえて成果を論文にまとめた。また数値計算を行い、得られた実験結果の解釈をはかった。このデバイスの特徴としてポンプ光の回折効率がほとんど入射角度に依存しないことが挙げられるが、この利点を活かしてテラヘル

ツ波発生の位相整合条件を実験により精査した。この実験結果を解析するため、数値計算により入射角度によるテラヘルツ波の発生効率を詳細に計算し、得られた実験結果との整合性を得た。位相整合許容角度がおよそ 5 度と比較的広いこと、また発生するテラヘルツ波の周波数帯域がポンプ光の入射角度により低周波数側へシフトすることなどを実験および数値計算から確かめることに成功した。以上の成果を論文にまとめ、発表した。

本研究では、回折効率を上げるための 2 種類のデバイスを考案し設計に基づいて作製を行った。2 種類のうちの 1 つは高い屈折率の薄膜を非線形結晶上に作製し、そこに回折格子を作る方法、もう一方は、薄膜間の光干渉を利用しファブリーペロー共振器の原理を応用したデバイスである。どちらのデバイスからもテラヘルツ波の発生に成功し、これまでにない小型のテラヘルツ波発生装置を作製することができ、さらに大型化を行うことで高強度化への道筋をつけることができた。

#### 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 4 件)

- (1) F. Yoshida, K. Nagashima, M. Tsubouchi, M. Maruyama, and Y. Ochi, "THz pulse generation using a contact grating device composed of TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> thin films on LiNbO<sub>3</sub> crystal", *J. Appl. Phys.*, **120**, 183103-1-5 (2016).
- (2) F. Yoshida, K. Nagashima, M. Tsubouchi, Y. Ochi, M. Maruyama, and A. Sugiyama, "High-efficiency contact grating fabricated on the basis of a Fabry-Perot resonator for terahertz wave generation", *Jpn. J. Appl. Phys.*, **55**, 012201-1-5 (2016).
- (3) Y. Ochi, K. Nagashima, M. Maruyama, M. Tsubouchi, F. Yoshida, N. Kohno, M. Mori and A. Sugiyama, "Yb:YAG thin-disk chirped pulse amplification laser system for intense terahertz pulse generation", *Opt. Express*, **23**, 15057-15064 (2015).
- (4) M. Tsubouchi, K. Nagashima, F. Yoshida, Y. Ochi and M. Maruyama, "Contact grating device with Fabry-Perot resonator for effective terahertz light generation", *Opt. Lett.*, **39**, 5439-5442 (2014).

〔学会発表〕(計 7 件)

- (1) M. Tsubouchi, Y. Ochi, M. Maruyama, F. Yoshida, and K. Nagashima, "Development of intense THz light for control of molecules", 30th Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Eagret Himeji, Himeji, Japan, June4-6, 2014.
- (2) Y. Ochi, K. Nagashima, M. Maruyama, M. Tsubouchi, F. Yoshida and A. Sugiyama, "High average power laser from Yb:YAG thin-disk amplifiers and its applications", International Symposium on Topical Problems of Nonlinear Wave Physics (NWP 2014), Nizhny Novgorod, Russia, July 17-23, 2014.
- (3) M. Tsubouchi, Y. Ochi, M. Maruyama, F. Yoshida and K. Nagashima, "Development of intense THz light for control of molecules", International Symposium on Frontier of Terahertz Science, Okinawa Institute of Science and Technology, Okinawa, Japan, Aug. 4-6, 2014.
- (4) M. Tsubouchi, K. Nagashima, F. Yoshida, Y. Ochi, M. Maruyama, "Contact grating device with Fabry-Perot resonator for effective THz light generation", 6<sup>th</sup> International Workshop on Optical Terahertz Science and Technology Conference (OTST 2015), San Diego, U.S.A, March 8-13, 2015.
- (5) M. Tsubouchi, K. Nagashima, F. Yoshida, Y. Ochi, M. Maruyama, "Contact grating device with Fabry-Perot resonator for effective THz light generation", European Conference on Lasers and Electro-Optics and the European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC 2015), Munich, Germany, June 21-25, 2015.
- (6) Y. Ochi, K. Nagashima, M. Maruyama, M. Tsubouchi, F. Yoshida, N. Kono, and A. Sugiyama, "Yb:YAG thin-disk CPA laser system for intense THz pulse generation at 1 kHz repetition rate", Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR), Busan, Korea, Aug. 24-28, 2015.
- (7) F. Yoshida, K. Nagashima, M. Tsubouchi, Y. Ochi, and M. Maruyama, "Contact grating device using a Fabry-Perot type resonator for terahertz wave

generation", The Second International Symposium on Frontiers in THz Technology, Congress Center in ACT CITY, Hamamatsu, Japan, Aug. 30-Sep.2, 2016.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 1 件)

名称: 光学素子およびテラヘルツ波発生光学デバイス

発明者: 永島圭介, 坪内雅明, 越智義浩, 圓山桃子, 吉田芙美子

権利者: 永島圭介, 坪内雅明, 越智義浩, 圓山桃子, 吉田芙美子

種類:

番号: 特願 2015-020602

出願年月日: 2015年2月6日

国内外の別: 国内

取得状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉田 芙美子 (Yoshida. Fumiko)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・

学術支援専門職員

研究者番号: 30450422

(2) 研究分担者

( )

研究者番号:

(3) 連携研究者

( )

研究者番号:

(4) 研究協力者

( )