

光ファイバーベース 高感度テラヘルツオシロスコープの実現

研究代表者：横浜国立大学 片山 郁文

【基本構想】

テラヘルツ領域・ピコ秒領域は、エレクトロニクスが得意とする周波数領域と、光・フォトンクスが得意とする周波数領域・時間領域のちょうど中間に位置しており、研究や応用が難しい領域として知られてきた。近年では、超短パルスレーザー技術の発展により簡単にこの領域の電磁波や超高速ダイナミクスを発生検出できるようになり、様々な応用可能性が議論されるようになってきているが、その応用は進んでいない。我々はこの領域の研究を妨げる要因の一つとして、リアルタイムにテラヘルツ・ピコ秒の波形を可視化する技術が不足していることがあると考え、そのような技術を開発することを目指した。さらに、この可視化技術、すなわちテラヘルツオシロスコープ技術を高感度化し、光ファイバーベースの装置とすることで、堅牢なテラヘルツ・ピコ秒波形のリアルタイム検出装置を実現することを目指した。本稿では、これらの技術の概要を示し、その応用例として、テラヘルツデバイス、および半導体デバイスの電場検出実験について報告する。

1. 研究目的

テラヘルツ領域・ピコ秒領域は、周波数 10^{12} Hz、時間にして 10^{-12} s の領域を指し、電場の変化があまりに早いことから、エレクトロニクスで扱うことが極めて難しい周波数領域であった。例えば、電圧波形をモニターするために良く用いられるオシロスコープは、半導体素子の処理速度の関係から 100 GHz を超えることが極めて難しく、テラヘルツ領域・ピコ秒領域の高感度な波形検出はほとんど実現されていない。また、計算機の処理速度も GHz を少し超えたところで頭打ちになっている他、無線通信などで用いられるキャリア周波数も現時点では GHz オーダーであり、次世代 5G/6G 通信においても 100 GHz を超えることが難しい状況にある。

一方で、テラヘルツ領域の研究のもう一つの方向性として、光技術を用いたアプローチがある。光領域では、その高いフォトンエネルギーを活用して、光によって励起された電流を計測したり、生成する熱を検出したりする。そのためにフォトダイオードや熱検出器など様々な計測素子が存在しており、光強度を計測するために用いられている。また、これらの半導体素子を二次元に並列化しイメージング可能な二次元撮像素子がデジタルカメラをはじめ様々な実用化されているのも良く知られている。しかしながら、テラヘルツ領域のフォトンエネルギーは、室温のエネルギーよりも小さいため、このような方式でテラヘルツ波を検出しようとする、信号が微弱になってしまう問題があった。このため、テラヘルツ検出では微小な電流を大きく増幅したり、差分を高感度に

検出したりする手法が必要になり、計測速度や感度が犠牲となる場合が多かった。したがって、テラヘルツ領域で起こる強度の変化をリアルタイムに可視化することはできていないと言える。

このような中で、我々は超短パルスレーザーを用いたコヒーレントなテラヘルツ波の発生検出手法に着目した。超短パルスレーザーを非線形結晶や光伝導アンテナなどの素子に照射すると、光励起によって超高速の分極や電流の変化が起こり、それによってテラヘルツ波が放出される。また、検出側では、テラヘルツ波と共に超短パルスレーザーが照射され、テラヘルツ電場によって誘起された屈折率変化や電流変化を検出することで、コヒーレントなテラヘルツ波の電場強度に関する情報を得ることができる。この測定手法を検出用のパルスレーザーを照射するタイミングを変えながら計測することで、テラヘルツ領域・ピコ秒領域のパルス波形を得ることができる。このような手法を時間領域分光法と呼び、物質の超高速ダイナミクスやテラヘルツ応答を調べるために良く用いられている。

しかしながら、この手法には重大な欠点が存在する。時間領域分光法ではコヒーレントな電磁波を用いるために、熱励起などの影響は受けずその波形を検出することができるが、時間差を変えながら繰り返し測定する必要があるため、繰り返し同様の波形や現象を誘起する必要がある。したがって、時々刻々と揺らぐ現象について調べたい場合には、測定するたびに異なる強度が得られるため、正確に測定することができない。このため、従来

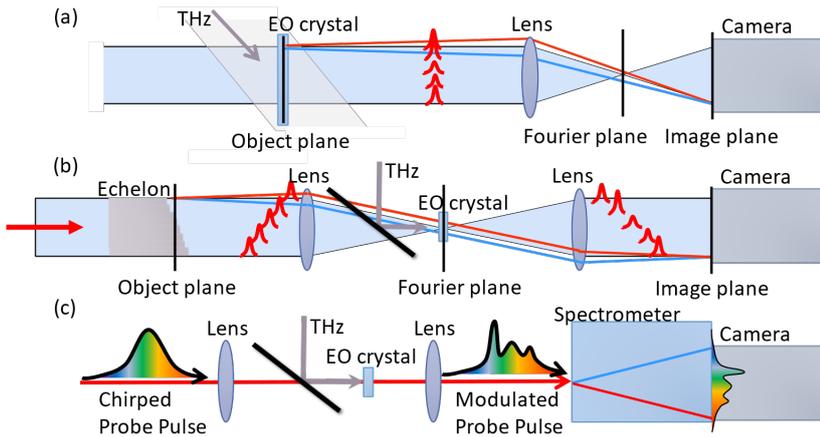


図1：リアルタイムにレーザー1パルス（シングルショット）でテラヘルツ波を検出する主な手法。(a) テラヘルツ波とプローブ光を斜めに交差させる手法。(b) 階段型の光学素子を用いて、検出用の光を分割し、電気光学結晶に集光する手法。(c) チャープパルスを用いて、時間情報を波長にマッピングする手法。

の時間領域分光法は、繰り返し測定可能な平均的な現象のみが測定対象となってきた。一方で、テラヘルツ領域の波形や、ピコ秒の時間変化を示す現象は必ずしも安定的に生じるものばかりではない。

我々は、この点に着目し、レーザーパルス1パルスでテラヘルツ波形や超高速波形を一挙に取得しようというシングルショット分光法を長年研究してきた。図1にそのための計測手法として代表的なものの原理をまとめた。本研究では、これまでの研究の蓄積のある階段型のミラーを用いてレーザーパルスを分割する手法(b)と[1]、チャープパルスを用いる分光手法(c)[2]について研究したのでそれらについて報告する。

2. 研究成果

まず、本研究で主に追究したチャープパルスを用いて超高速波形を計測する手法について述べる。超短パルスレーザーは極めて短いパルス幅を持つことからそのフリエスペクトルは広帯域である。チャープパルスとは、この様々なスペクトル成分が別々の時間に到達することによってパルス幅が長くなった状態のことを指し、超短パルスレーザーを用いた実験において極めて重要な概念である。チャープパルスは、スペクトル位相の周波数依存性に周波数の二次に比例する成分が入ることによって表現できる。すなわち、光のスペクトル振幅 $A(\omega)$ 、周波数 ω とした時、光パルスの電場波形は、

$$E(t) = \int d\omega A(\omega) e^{-i\omega t + iat^2}$$

である。このとき位相項の iat^2 がスペクトル成分ごとに到達時間が異なることを表している。この正負によって、光の周波数が時間的に上昇していくか、下降していくかを変える

ことができる。

これをテラヘルツ波や超高速応答のプローブとして用いた際には、時間的に変化する現象が光パルスの異なる波長によってプローブされるために、時間情報が波長にマッピングされることになる。そうすると、光パルスのスペクトルを見れば実効的に超高速領域の時間波形を見ていることにつながるため、単一の光パルスであってもそのスペクトル形状を測定することができれば、時間領域の情報を得ることができる。チャープパルスのパルス幅は制御することができるので、実際に観測できる時間幅もそれによって制御できる。

このような手法は非常に強力であり簡便であることから、古くから研究されテ

ラヘルツ波や超高速現象の分光に数多く用いられてきた。しかしながらこの手法には、スペクトルで計測した波形が大きくゆがむという問題点があった。通常時間領域の分光法では、パルスの光がすべての光が位相の揃った状態で利用されるため（すなわちチャープがない、最も短いパルス幅の状態）、高い時間分解能を有すると考えられる。一方でチャープパルスを用いると、ある時間を計測するために利用できる光のスペクトル幅が、パルス全体のスペクトル幅よりも狭くなるため、得られる情報としてはその狭くなったパルス幅の時間分解能しか得られないのではないか、ということになる。このような考察から、チャープパルスを用いたシングルショット分光法の時間分解能 Δt は、そのスペクトルで可能な最短パルス幅 T_{TL} （チャープ0の状態）と用いるプローブの窓幅 T_w を用いて、

$$\Delta t = \sqrt{T_{TL} T_w}$$

であると考えられてきた。すなわち、長い時間を見ようとして窓幅（チャープパルスのパルス幅 T_w ）を大きくするとどんどん時間分解能 Δt が悪くなる（長くなる）わけである。

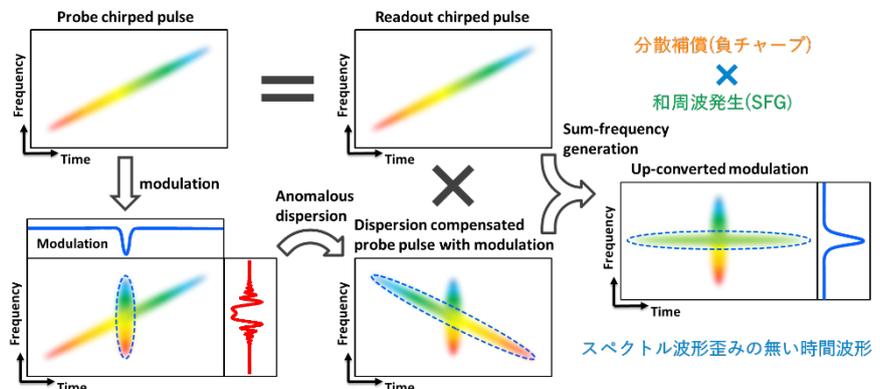


図2：分散補償チャープパルス分光法の原理。プローブのチャープパルス（左上）に変調を書き込むと、スペクトル領域では左下図の右赤線のようにになる。これを位相補償し中下図のようにした上で、中上図のチャープパルスと和周波を取ると、右図のような時間周波数スペクトルを得ることができる。これを横方向で見ると干渉は生じず、右青線のように元の変調波形に対応した歪みのない波形を得ることができる。

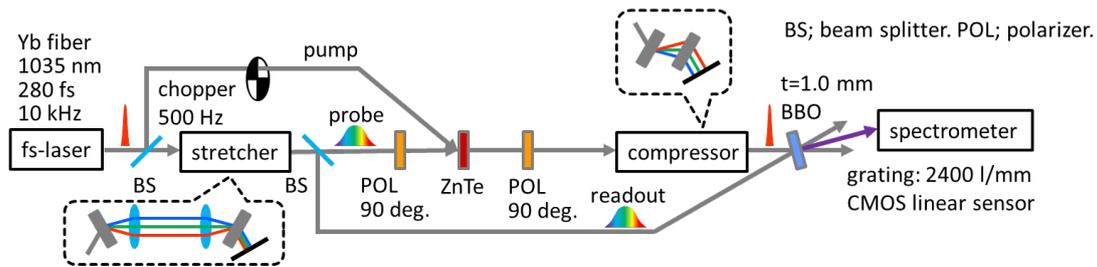


図3：分散補償チャープパルス分光法の実験配置図。プローブのチャープパルスは回折格子を用いた stretcher で用意し、それを読み出し光としても用いた。ポンプ光によってプローブ光に変調を書き込み、回折格子型の compressor を用いて位相補償した後、読み出し光との和周波数を非線形結晶によって発生させ、そのスペクトルを観測した。

我々をはじめいくつかのグループは、このような限界を打破するために、図2に示したような位相補償と和周波発生が利用できることを明らかにした[3]。上記の議論は、時間分解能を強度プロファイルの幅としてのみ取り扱っているが、実際には光パルスと超高速な変調それぞれをスペクトル領域もしくは時間領域で取扱い、その波形変化をシミュレーションすべきである。その結果、時間分解能の悪化は、超高速変調による信号とチャープパルスの干渉によって生じており、それによって、振動型の変調がかかってしまうことが分かった。

このような干渉波形であれば位相をうまく補償することによって解消することが可能である。そのために、我々は、チャープパルスに信号を書き込んだのちに、そのチャープと反対向きのチャープを付与し、そのようにして得られたパルスと読み出し用のチャープパルスとの和周波数を取ることによって、超高速変調の波形歪みを解消できると考えた。このようにすると、位相補償によって、書き込んだ変調に関する信号の位相に、読み出し用のチャープパルスとは逆の変調がかかるため、和周波数を取った時にスペクトル領域で一定となる。

これを活用すれば、チャープパルスを用いた場合でも波形ゆがみなくリアルタイムにテラヘルツ領域・ピコ秒領域の超高速波形を可視化することができる。読み出し過程で和周波発生という非線形過程を用いるため、測定系は複雑にはなるが、カメラなどの二次元撮像素子を用いる場合に比べれば光学系は簡便である。和周波発生過程は非線形光学素子を最適化すれば高効率化可能であり、また、ファイバーベースの光学系を構築することも可能であることから、堅牢な光学系を構築できるものと期待できる。

そこで、この技術を実証するために構築した光学系を図3に示した。光ファイバーベースの光学系構築を前提として、 $1\ \mu\text{m}$ の中心波長をもつ超短パルスレーザーを用い、それにチャープを印加した後にプローブ光とした。試料としては、 $1\ \mu\text{m}$ の波長域で透明な半導体である、ZnTeを利用し、プローブ光と共にポンプ光を照射することによって、二光子吸収過程などを通した、超高速の吸収変調を誘起した。透過したプローブ光を、回折格子対を用いてプローブ光とは逆のチャープをつけ、その後、プローブ光の一部を分岐した読み出し光との和周波数を非線形光学結晶であるBBOで発生させ、発生した和周波成分のスペクトルを分光器とラインセンサーで検出した。時間軸はポンプ光の時間遅延を変化させて信号の変化を見ることで校正した。

図4(a)は、このようにして検出された和周波光のポンプ光あるなしによるスペクトル変化をプロットしたものである。なお、位相補償を行わなかった場合のスペクトルについても計測し表示している。図を見ると明らかに位相補償をしない場合には、ポンプ光によって誘起される信号は大きく波打っており、干渉が生じていることがわかる。一方で、位相補償を行うと、このような干渉パターンは消去され、単一のパルスのみが現れることがわかった。これはまさにポンプ光によって生じると考えられる吸収変化と同様の波形である。

次に、この波形から、時間分解能を計測するために、ポンプ光を照射するタイミングを変化させながら得られる信号波形を計測した結果を図4(b)、4(c)に示す。滑らかなスペクトルを持つ固体レーザーとファイバーレーザーで得られた結果を比較のために示した。この実験から、固体レーザーは比較的滑らかなスペクトルを持つことか

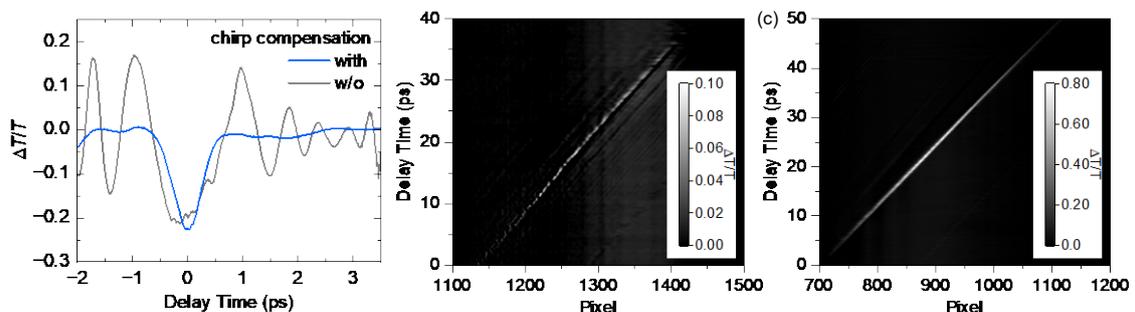


図4：分散補償チャープパルス分光法を用いた超高速変調波形計測結果。(a) ポンプ光ありなしによる透過率変化。灰色は位相補償をしない場合の信号であり、青はした場合の信号である。(b) ポンプ光の時間遅延を変化させた際の信号の変化。ファイバーレーザーを用いて計測した場合のものを示す。(c) 同様の時間遅延掃引結果を、固体レーザーを用いて計測した結果。

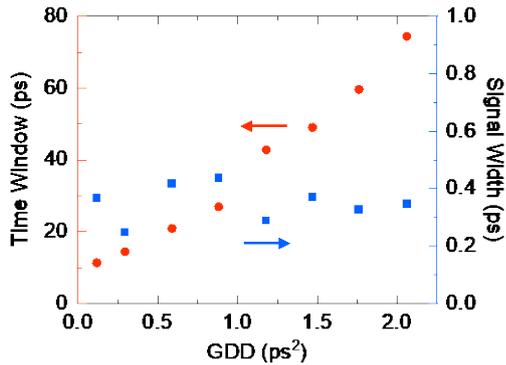


図5：時間窓幅と信号の時間幅のチャープ量依存性。チャープ量を表すGDD=0はプローブ光のパルス幅が最も短くなる場合を示している。

ら、時間依存性もきれいに計測されているが、ファイバーレーザーは細かくスペクトル形状が変化することが知られており、そのために信号強度が時間に依存して大きく変化する等の問題があることがわかる。このことから、シングルショットの波形計測には、スペクトルの滑らかなレーザーが望ましいことが分かった。

また、窓幅と時間分解能の関係を明らかにするために、窓幅を変えながら得られた測定窓幅と観測された信号のパルスの幅を計測した結果を図5に示す。今回得られているパルス幅は、ほぼ元のプローブパルス幅とポンプ光のパルス幅の相関幅となっていることから、時間分解能を表していると考えて良い。この結果を見ると、窓幅を変化させても時間分解能は大きくは悪化しないことがわかる。このようにチャープパルスを用いたシングルショット分光法に位相補償を組み合わせることによって、高い時間分解能と窓幅可変性を両立できることが示された。このことは、今回開発した手法がテラヘルツ・ピコ秒領域の超高速ダイナミクスを可視化する極めて有望な手法であることを示唆している。

以上の実験は、単一のレーザーからポンプ光とプローブ光を準備して計測を行っていたが、この手法はシングルショットの分光手法であることから、必ずしも用いるレーザーは単一でなくとも問題はない。通常異なる二台のレーザーの相互相関波形を測定する場合には、二台のレーザーの周波数を固定する等複雑な制御手法が必要になるが、シングルショットの実験系であれば、そのような取り組みは不要である。このことを実証するために、我々は、1.0 μm のレーザーを読み出し用の光として、1.5 μm のパルスレーザーのパルス波形を評価する研究を試みた。

この実験では100 kHzのファイバーレーザーと50 MHzの1.5 μm パルスレーザーを用いた。これらのレーザーの出力を図3における読み出し光、信号光と同様にチャープ及び位相補償を行ったうえで、非線型光学結晶に入射し、それらの和周波数発生させようとして、そのスペクトルからパルスの波形を取得する実験を行った。単一のパルスだと時間軸を校正するすべがないため、信号光はダブルパルスとし、パルス間隔を変えながら計測すること

で横軸を校正した。

図6はその結果得られたスペクトル波形を示している。この結果、計測されているパルスのパルス幅は、1 psであり、2台のレーザーそれぞれのパルス幅から見積もった相互相関幅に対応しており、波形歪みのない計測ができていることを示している。この手法では、レーザーの同期は行っていないため、二台のレーザーのタイミングはランダムであるが、繰り返し周波数とパルス幅から見積もった信号発生確率とほぼ同じ確率で和周波信号が計測されており、パルス計測が過不足なく行えていることがわかる。

なお、この手法では二台のレーザーの波長が異なるため、二つの光を同軸にすることが可能である。このため和周波光も、それぞれの光の二倍高調波とは異なる波長となり、スペクトルフィルタによって測定したい信号光のみを取り出すことが可能である。したがって系の調整が簡便になるほか、同軸配置を利用した高効率な和周波数発生素子などの活用も検討できる。このように、被測定光と信号光を異なる波長にすることは装置の堅牢化や高効率化に極めて有効である。

次に、これらの実験系を用いて、シングルショット分光系でなければ可視化することのできない現象を見ることを試みた。そのために、ピコ秒領域の超短パルスを電氣的に発生することが可能な、利得スイッチレーザーを用い、その強度波形を計測した。利得スイッチレーザーは電気パルスを用いて半導体レーザーを駆動し、ピコ秒のパルス幅を持つ光を放出するデバイスであるが、テラヘルツ・ピコ秒領域の詳細な波形はリアルタイムオシロスコープがないため可視化することができていなかった。そこで、本研究で開発した、超高速波形計測系を活用し、光パルスの波形を計測する実験を行った。

実際の実験は、図3に示した実験系を改良し、プローブ光を光変調する代わりに、利得スイッチレーザーを導入する。その後は、位相補償とチャープパルスによる読み出しを行うため、実験系としては同一である。図7は、このような実験を行った結果得られたパルス波形の一例を示したものであるが、図を見るとわかるように、いくつかのパルス状の光が連続して放出されていることが見て取れる。これはレーザーキャピティの周波数に対応するものと考えられるが、ゲインスイッチレーザーで

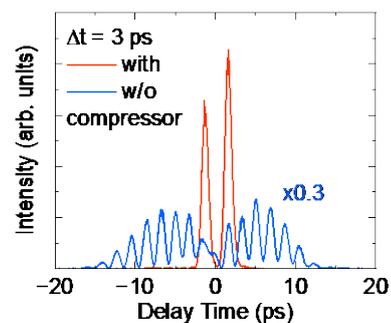


図6：ダブルパルスのパルス波形を開発した位相補償チャープパルス分光法で計測した結果。ダブルパルスの間隔は3 psとし、位相補償の有無によるスペクトル変化を示した。

はこのような光が発生するタイミングが異なるため、通常の平均波形を計測する手法では、図7に示したように包絡線のパルスが計測されるものと考えられる。このレーザーがこのような内部構造を持つということは、リアルタイム計測によってはじめて明らかになったものであり、リアルタイムテラヘルツオシロスコープの重要性を如実に示している。

なおこの時用いた光パルスのパルスエネルギーは、約1 pJであり、超短パルスレーザーに比べると非常に微弱である。しかしながら、今回用いたアップコンバージョン分光法では、読み出し光の出力をかなり強くすることが可能であるために、測定が可能となっている。このことは、チャープパルス分光法が微弱な光パルスの分光にも適用可能であることを示している。例えば、テラヘルツ波の計測にこのような技術を用いた場合、プローブ用の光パルスは1 μJ程度の強度を投入することが可能であり、これとの比を考えると10⁻⁶程度の変化を調べることができることに対応する。これはテラヘルツ電場計測における偏光回転量を考えると、1 mV/cmを切る領域であり、チャープパルスを用いる方法がテラヘルツ波の計測にも有効であることを示している。

最後に、シングルショット分光法として、チャープパルスではなく、反射型エシェロンと呼ばれる階段状の素子を活用した結果について報告する。この手法では正確な波形を得るためには、結像光学系を必要とするため、ファイバー技術と組み合わせることは難しいが、チャープパルスを利用する手法の際に問題となった波形歪みは見られない。したがって、リアルタイムテラヘルツ検出の応用可能性を探索するためには適した手法であると言える。そこで、本研究では、衝突イオン化透過時間 (IMPATT) ダイオード及び共鳴トンネルダイオード (RTD) の出力テラヘルツ波形をリアルタイム検出することを試みた。

まずテラヘルツ波の検出感度を向上させるために、位相オフセット差分検出法と呼ばれる高感度テラヘルツ検出手法を採用した。この手法では、高感度にテラヘルツ波を検出するために、クロスニコルに配置した二つの偏光子を電気光学結晶の間に配置し、さらに四半波長板を設置することにより、微小な偏光回転成分をコヒーレントに検出できるようにする手法である。これによって、反射型エシェロンを用いた手法でも、0.1 V/cm程度の感

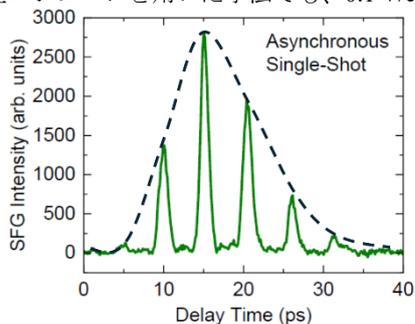


図7：利得スイッチレーザーからの出力の波形計測結果。多数の超短パルスが連続して放出されている。点線はそのピークを結んだ包絡線である。

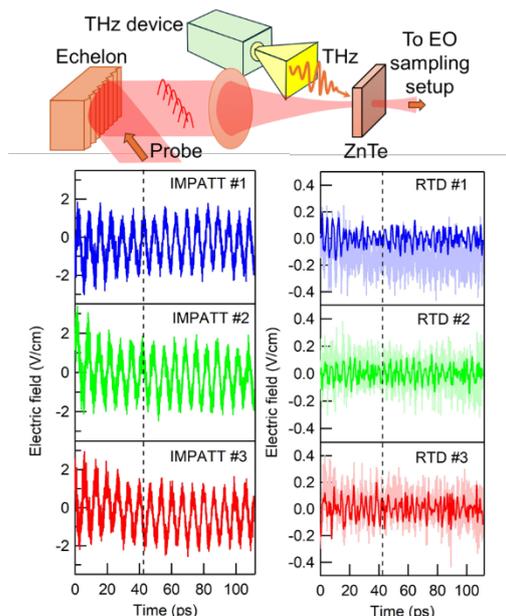


図8：テラヘルツデバイスからの出力波形計測結果。上図のような実験配置を用い、IMPATT及びRTDの出力波形を反射型エシェロンを用いて計測した。

度を得ることに成功している。

図8はこのような実験の概略図とその結果を示したものである。IMPATT、RTD いずれにおいても振動する電場波形を計測することに成功した。また、点線で示したように、テラヘルツ光源の出力と検出用のレーザーパルスは位相同期されていないため、特にIMPATTダイオードの結果では、波形ごとに位相がずれていることがわかる。RTDの実験では周波数がより高周波であり、振幅も小さいことからこの効果を確認することは難しいが、波形検出が可能であることは、リアルタイム分光法の有効性を明確に示していると言える。

3. まとめ

以上の一連の実験から、リアルタイムにテラヘルツ波形を検出する手法は、利得スイッチレーザーの光出力の可視化や、テラヘルツデバイスの出力波形計測に極めて有効であることが分かった。また、位相補償したチャープパルス分光法は、微弱な光パルスであってもその超高速波形を可視化できる有望な手法であり、かつ、テラヘルツ波形検出のための手法としても期待できることが明らかとなった。今後は、これらのデバイス出力の可視化によって、シングルショット分光法を用いることによって可能になる応用をさらに探索し、加えて簡便な装置を構築することによって、テラヘルツ分光技術の応用範囲を拡大する取り組みを進めていく。

参考文献

- [1] R. Tamaki et al., Opt. Exp. 30, pp. 23622-23630 (2022).
- [2] M. Kobayashi et al., Jpn. J. Appl. Phys. 62 022001 (2023).
- [3] R. Tamaki et al., Opt. Exp. 31, pp. 40142-40150 (2023).

業績

【原著論文】

- 1.R. Tamaki, M. Suzuki, S. Kusaba, J. Takeda, and I. Katayama, Ultrafast pump-probe spectroscopy via chirped-pulse up-conversion with dispersion compensation, *Opt. Exp.* 31(24), 40142-40150(2023)

【総説】

- 1.片山郁文、玉置亮、浅井岳、瀧川雄一、レーザー加工初期過程からのテラヘルツ放射、*光アライアンス*、2023年6月号、33-38(2023)

【書籍】

なし

【口頭発表】

- 1.片山郁文、テラヘルツ・サブピコ秒の波形をゆがみなく計測、JST 新技術説明会、2023年6月、オンライン
- 2.I. Katayama, K. Takahashi, T. Arikawa, R. Tamaki, J. Takeda, Single-shot Detection of Terahertz Waveforms Generated from an Impact Avalanche and Transit Time (IMPATT) Diode, 11th International Conference on Materials for Advanced Technology, June 2023, Singapore
- 3.R. Tamaki, J. Takeda, I. Katayama, Single-Shot Terahertz Waveform Detection by Chirped-Pulse Up-Conversion Spectroscopy with Dispersion Compensation, 48th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, September 2023, Montreal, Canada
- 4.K. Takahashi, T. Arikawa, R. Tamaki, I. Katayama, Measuring terahertz electric-field waveforms of continuous wave terahertz sources using single-shot terahertz time-domain spectroscopy, 12th Asia-Pacific Laser Symposium, September 2023, Hakodate, Japan
- 5.K. Kumagai, R. Tamaki, G. Asai, Y. Takigawa, J. Takeda, I. Katayama, Terahertz radiation and resultant surface profile during femtosecond laser ablation process, 12th Asia-Pacific Laser Symposium, September 2023, Hakodate, Japan.
- 6.R. Tamaki, J. Takeda, and I. Katayama, High sensitivity single-shot terahertz waveform detection via chirped-pulse up-conversion spectroscopy with dispersion compensation, 第42回電子材料シンポジウム、2023年10月、奈良
- 7.R. Tamaki, K. Takahashi, T. Arikawa, I. Katayama, Single-shot terahertz waveform detection via reflective echelon mirror emitted from an IMPATT diode, 第42回電子材料シンポジウム、2023年10月、奈良
- 8.I. Katayama and R. Tamaki (招待講演), Realtime Terahertz Waveform Detection Using Chirped Pulse Upconversion Spectroscopy, 5th Int. Workshop on Photonics

applied to Electromagnetic Measurement、2023年10月、札幌

- 9.玉置亮、眞榮城蒼、武田淳、片山郁文、分散補償チャープパルスと周波分光法における超短パルス幅依存性、第71回応用物理学会春季学術講演会、2024年3月、東京都市大学

【特許】

- (1)国内特許出願 2件
- (2)国際特許出願 0件