

高強度テラヘルツパルスによる非線形物理学と測定法の進展

筑波大学 数理物質系
服部利明

1. はじめに

およそ 0.1 THz から 10 THz の周波数の電磁波であるテラヘルツ波は、電波と光の境界領域に位置し、その発生や検出が困難であった。そのため、この領域はテラヘルツギャップと呼ばれてきた。この領域の電磁波に対する技術がいまだ未発達であることは、簡便な発生素子や検出素子が存在しないことに端的に表れているが、もう一つの側面として、高強度のテラヘルツ波の発生が困難であることが挙げられる。大規模な施設が必要となる自由電子レーザーを除くと、炭酸ガスレーザー励起のテラヘルツレーザーの出力が 30 mW 程度であり、波長程度のサイズにまで集光しても、得られる電場は 10 mV/cm 程度である。それに対し、最近のパルス面傾斜光整流による高強度テラヘルツパルス発生法の進展により、1 MV/cm 程度のテラヘルツ電場の発生が実験室で実現できるようになった。ここで得られるテラヘルツパルスは、ほぼモノサイクルで時間幅が 1 ps 以下、中心周波数がおおよそ 1 THz のコヒーレントな超短電磁パルスである。そのようにして得られるテラヘルツ高電場によって生じるさまざまな非線形物理現象の観測が、この 2-3 年に報告されるようになった[1]。この記事では、そのような新しい研究分野の発展の現状を紹介する。

2. パルス面傾斜光整流法の進展

超短レーザーパルスを 2 次の非線形光学媒質に照射すると、時間に依存する光強度に比例した 2 次の非線形分極が生じ、それからテラヘルツ電磁波のパルスが発生する。これを光整流という。この際、高効率のテラヘルツ波発生のためには、励起光の群速度 (v_g) と発生するテラヘルツ波の位相速度 (v_{THz}) が等しいという、位相整合条件が求められる。光整流に用いる非線形光学結晶として、 LiNbO_3 (LN) には以下のような特長がある。
i) バンドギャップが広いため、2 光子吸収によるキャリア発生がなく高い励起光強度まで用いられる。
ii) 光通信などで広く用いられており、高品質のものが手に入る。
iii) ZnTe などよりも高い非線形光学係数を有する。これらの特徴を有する一方で、有極性光学フォノンの影響で $v_{\text{THz}} < v_g$ となるため通常の位相整合条件を満たさない。これを解決するためにパ

ルス面傾斜法が導入された。これは、回折格子などを用いて励起光パルスに角度分散をつけることにより、パルス面（パルス光強度が最大の点からなる面）が波面（位相が等しい点からなる面であり、光の進行方向に垂直である。）から傾けることにより、パルス面の進行する速度を実効的に小さくして、テラヘルツ波の位相速度に一致させる手法である。（図 1）

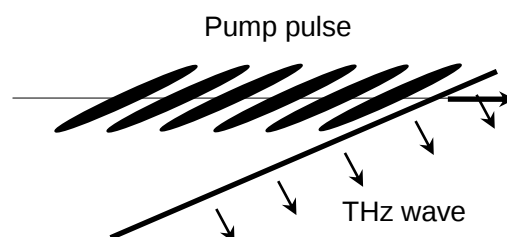


図 1 高強度テラヘルツ波発生のための、パルス面傾斜による位相整合

J. Hebling ら[2,3]らによる提案と、より詳細な設計指針[4,5,6]がこの 10 年ほどの間に報告され、それらを受けて最近の数年には 1 MV/cm を超えるテラヘルツ電場の発生が報告されるようになった[7,8,9]。励起光からテラヘルツ波への変換効率も量子効率 100%を超え、カスケード的な光子変換[10]が重要なレベルに達している。

3. 電子・励起子の非線形現象

半導体中の自由キャリア（おもに電子）に急激に電場が印加されると、キャリアが加速される。電場が十分に大きい場合に、高速に加速された電子による新規な現象が生じることが期待される。Wen ら[11] および Hoffmann ら [12] は、InSb におけるテラヘルツ波の吸収が、高強度なテラヘルツ波に対して非線形になることを観測した。その実験結果は、次のように説明されている。キャリア電子が急激に加速されると、散乱を受けて運動エネルギーを失う前にバンドギャップエネルギー以上のエネルギーを得る。その結果、キャリア電子は次々に新しいキャリア電子を価電子帯から伝導帯にたたき上げる。そのような衝突電離（impact ionization）がカスケード的に生じる結果、急速に大量のキャリアが発生する。Hirori ら[13]はノンドープの GaAs において同様の現象を観測し、その結果として強いルミネッセンスが観測されることを報告している。

また、Kuehn ら[14]は、GaAs に高いテラヘルツ電場を印加することにより、ブリュアンゾーンの端にまで及ぶ電子のバリスティックな運動を観測している。これは、ブロッホ振動の前触れとなる現象であり、固体物理学の基礎に関連するとともに、さまざまなデバイスへ

の応用も考えられる。

Liu ら[15]は、金属メタマテリアル構造に接する酸化バナジウムに高強度テラヘルツ波を照射することにより、この物質が絶縁体から金属に転移することを観測した。酸化バナジウムに光照射や温度変化を加えることによって絶縁体 - 金属相転移が生じることはよく知られており、この場合も、メタマテリアルによって増強されたテラヘルツ電場により大量のキャリアが発生し、それによって相転移が生じたものと考えられる。またこのとき試料の一部に高強度テラヘルツ電場による破壊が生じていることも報告されている。

Watanabe ら[16]は単層カーボンナノチューブ (SWNT) に高強度テラヘルツパルス照射することにより、励起子が生成することを見出した。この現象を、彼らは、テラヘルツパルス照射下で、電子のボンデロモーティブエネルギー (振動電場中で振動運動する電子の平均エネルギー) がバンドギャップエネルギーを超えることによって起きると説明している。

ここで、ボンデロモーティブエネルギー U_p は、

$$U_p = \frac{e^2 E_a^2}{4m\omega_0^2}$$

であらわされる。ただし、 e 、 E_a^2 、 m 、 ω_0^2 は、それぞれ素電荷、振動電場の振幅、電子質量、振動電場の周波数である。また、Wagner ら[17]は、GaAs/AlGaAs 量子井戸において励起子吸収の Autler-Townes 効果 (ac Stark 効果) を観測している。

4. フォノン・スピンの非線形現象

Jewariya ら[18]はアルギニンの 1 THz 付近のフォノンモードの非線形吸収を観測し、高強度テラヘルツパルスの照射により、量子数 20 までの高励起状態にまでフォノンモードが一気に駆け上がることを見出している。これは、特定の振動モードを強く励起することにより、電子励起状態を経ずに化学反応を起こしたりするような応用へとつながる可能性がある。

Katayama ら[19]は量子常誘電体であるチタン酸ストロンチウム (SrTiO_3) の構造相転移に関してソフト化するフォノンモードの非調和性による非線形応答を観測した。量子常誘電体は、フォノンモードの量子論的な揺らぎによって強誘電体への構造相転移が抑えられている物質であり、その相転移にかかわるフォノンは大きな非線形性を有することが予想されているが、それを直接的に観測したものである。この結果は、構造相転移の基礎物理

に寄与するとともに、フォノンモードの励起により相転移を直接誘起できる可能性を示唆している。

Kampfath ら[20]は、反強磁性体 NiO におけるスピンをテラヘルツ波によってコヒーレントに制御したことを報告している。このようにテラヘルツ帯の周波数を持つ物質内の様々な素励起を直接制御し、またその様子を詳細に観測することが可能となってきた。

5. 新しい測定法への応用

テラヘルツ波の強い電場を用いた新しい測定法としてストリーク測定を取り上げる。高速にスイープされる電場によって電子を加速することで、超高時間分解の電子波束測定が可能になる。これは一般にストリーク法と呼ばれる測定手法であり、ストリークカメラによる超短光パルスの測定などに用いられてきた。最近では、超短光パルスの電場を用いた原子内の電子の超高時間分解測定などへの応用がなされるようになってきている。Schütte ら[21]は、テラヘルツパルスの電場を用いたストリーク測定によって、ネオン原子に極端紫外光パルスを照射することにより放出される光電子のパルス波形と運動エネルギーの時間変化を 100 フェムト秒以下の時間分解能で測定した。また、Grguraš ら[22]は X 線自由電子レーザーの出力パルスの時間波形を 5 フェムト秒の精度で測定した。

テラヘルツ波の電場分布観測に高強度テラヘルツ波を用いることにより、金属微細構造付近のテラヘルツ近接場の実時間イメージングがなされている[23]。実時間テラヘルツイメージングには電気光学結晶による電気光学サンプリングが用いられるが、そこで用いられる電気光学結晶の厚さによって、得られる空間分解能が制限されてしまう。薄い電気光学結晶で十分な信号強度を得るためには強いテラヘルツ電場が必要であった。

ここまで述べたさまざまな非線形物理現象の多くは、非常に高いテラヘルツ電場によって生じる顕著に非線形な現象である。それに対して、比較的弱い電場による摂動論的な非線形分光測定が今後発展していくと考えられる。このようなことは、レーザーと非線形光学の発展においても見られた。レーザーが開発されて数年の間に、おもだった非線形光学現象がひとつおりの観測されてしまったが、それらの非線形光学過程を用いた精緻な非線形分光学は今日でもまだ発展途上である。

テラヘルツ領域の非線形現象の観測には、多くの場合テラヘルツポンプーテラヘルツプローブあるいはテラヘルツポンプー光プローブといった、時間領域の非線形光学分光測定が用いられる。特にテラヘルツパルスをプローブとしても用いる場合、ポンプパルスとプロ

ープパルスとの間の遅延時間 (τ_1) を変えながらテラヘルツ時間領域分光の手法でプローブパルスの電場を時間 (τ_2) の関数として測定することができる。これにより 2 次元の時間領域波形が得られることになる。

Kuehn ら[24]は、半導体量子井戸の電子励起に対してテラヘルツ 2 次元分光法を適用し、この手法の特徴を解析している。一般に完全な 2 次元データを取得するために長時間の測定が必要になるので、まだ広く用いられてはいないが、振動モードの高速な揺らぎやモード間結合、不均一分布などに関するより詳しい情報がえられるため[25,26]、今後様々な系に適用されていくものと考えられる。

6. おわりに

我々は、非線形現象を引き起こすことができる強い電場を持つテラヘルツ波パルスを、ようやく手に入れられるようになった。光の分野では、強いレーザーパルスによってさまざまな新規現象が引き起こされ、また非線形光学現象がさまざまな測定に用いられている。それと同じことが、これからテラヘルツ波の領域でおこなわれるようになってくることであろう。この原稿で紹介した研究の多くはこの 2-3 年のあいだに報告されたものである。そのことから、多くの人々がこの日を待ち望んでいたことが見て取れる。今後のますますの発展に期待したい。

- 1) M. C. Hoffmann and J. A. Fülöp: “Intense ultrashort terahertz pulses: generation and applications,” J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 44, No. 8, 083001 (17 pages) (2011)
- 2) J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl: “Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation,” Opt. Express, Vol. 10, No. 21, pp.1161~1166 (2002)
- 3) A. G. Stepanov, J. Kuhl, I. Z. Kozma, E. Riedle, G. Almási, and J. Hebling: “Scaling up the energy of THz pulses created by optical rectification,” Opt. Express, Vol. 13, No. 15, pp.5762~5768 (2005)
- 4) J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K. A. Nelson: “Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities,” J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 25, No. 7, pp.B6~B19 (2008)
- 5) J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling: “Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification,” Opt. Express, Vol. 18, No. 12, pp.12311~12327 (2010)

- 6) J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, M. C. Hoffmann, and J. Hebling: “Towards generation of mJ-level ultrashort THz pulses by optical rectification,” *Opt. Express*, Vol. 19, No. 16, pp.15090~15097 (2011)
- 7) K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, J. Hebling, and K. A. Nelson: “Generation of 10 μ J ultrashort terahertz pulses by optical rectification,” *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 90, No. 17, 171121(3 pages) (2007)
- 8) H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka: “Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO₃,” *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 98, No. 9, 091106(3 pages) (2011)
- 9) M. Nagai, E. Matsubara, and M. Ashida: “High-efficiency terahertz pulse generation via optical rectification by suppressing stimulated Raman scattering process,” *Opt. Express*, Vol. 20, No. 6, pp.6509~6514 (2012)
- 10) T. Hattori and K. Takeuchi: “Simulation study on cascaded terahertz pulse generation in electro-optic crystals,” *Opt. Express*, Vol. 15, No. 13, pp.8076~8093 (2007)
- 11) H. Wen, M. Wiczer, and A. M. Lindenberg: “Ultrafast electron cascades in semiconductors driven by intense femtosecond terahertz pulses,” *Phys. Rev. B*, Vol. 78, No. 12, 125203(6 pages) (2008)
- 12) M. C. Hoffmann, J. Hebling, H. Y. Hwang, K.-L. Yeh, and K. A. Nelson: “Impact ionization in InSb probed by terahertz pump—terahertz probe spectroscopy,” *Phys. Rev. B*, Vol. 79, No. 16, 161201(4 pages) (2009)
- 13) H. Hirori, K. Shinokita, M. Shirai, S. Tani, Y. Kadoya, K. Tanaka: “Extraordinary carrier multiplication gated by a picosecond electric field pulse,” *Nature Communications*, Vol. 2, 594 (6 pages) (2011)
- 14) W. Kuehn, P. Gaal, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, and R. Hey: “Coherent ballistic motion of electrons in a periodic potential,” *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 104, No. 14, 146602(4 pages) (2010)
- 15) M. Liu, H. Y. Hwang, H. Tao, A. C. Strikwerda, K. Fan, G. R. Keiser, A. J. Sternbach, K. G. West, S. Kittiwatanakul, J. Lu, S. A. Wolf, F. G. Omenetto, X. Zhang, K. A. Nelson, and R. D. Averitt: “Terahertz-field-induced insulator-to-metal transition in vanadium dioxide metamaterial,” *Nature*, Vol. 487, pp. 345~348 (2012)
- 16) S. Watanabe, N. Minami, and R. Shimano: “Intense terahertz pulse induced exciton generation in carbon nanotubes,” *Opt. Express*, Vol. 19, No. 2, pp. 1528~1538 (2011)
- 17) M. Wagner, H. Schneider, D. Stehr, S. Winnerl, A. M. Andrews, S. Schartner, G. Strasser, and M. Helm: “Observation of the intraexciton Autler-Townes effect in GaAs/AlGaAs semiconductor quantum wells,” *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 105, No. 16,

167401(4 pages) (2010)

- 18) M. Jewariya, M. Nagai, and K. Tanaka: "Ladder climbing on the anharmonic intermolecular potential in an amino acid microcrystal via an intense monocycle terahertz pulse," *Phys. Rev. Lett.* Vol. 105, No. 20, 203003(4 pages) (2010)
- 19) I. Katayama, H. Aoki, J. Takeda, H. Shimosato, M. Ashida, R. Kinjo, I. Kawayama, M. Tonouchi, M. Nagai, and K. Tanaka: "Ferroelectric soft mode in a SrTiO_3 thin film impulsively driven to the anharmonic regime using intense picosecond terahertz pulses," *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 108, No. 9, 097401(5 pages) (2012)
- 20) T. Kampfrath, A. Sell, G. Klatt, A. Pashkin, S. Mährlein, T. Dekorsy, M. Wolf, M. Fiebig, A. Leitenstorfer, and R. Huber: "Coherent terahertz control of antiferromagnetic spin waves," *Nature Photonics*, Vol. 5, pp.31~34 (2011)
- 21) B. Schütte, U. Fröhling, M. Wieland, A. Azima, and M. Drescher: "Electron wave packet sampling with laser-generated extreme ultraviolet and terahertz fields," *Opt. Express*, Vol. 19, No. 20, pp. 18833~18841 (2011)
- 22) I. Grguraš, A. R. Maier, C. Behrens, T. Mazza, T. J. Kelly, P. Radcliffe, S. Düsterer, A. K. Kazansky, N. M. Kabachnik, Th. Tschentscher, J. T. Costello, M. Meyer, M. C. Hoffmann, H. Schlarb, and A. L. Cavalieri: "Ultrafast X-ray pulse characterization at free-electron lasers," *Nature Photonics*, Vol. 6, pp. 852~857 (2012)
- 23) F. Blanchard, K. Ooi, T. Tanaka, A. Doi, and K. Tanaka: "Terahertz spectroscopy of the reactive and radiative near-field zones of split ring resonator," *Opt. Express*, Vol. 20, No. 17, pp. 19395~19403 (2012)
- 24) W. Kuehn, K. Reimann, M. Woerner, T. Elsaesser, and R. Hey: "Two-dimensional terahertz correlation spectra of electronic excitations in semiconductor quantum wells," *J. Phys. Chem. B*, Vol. 115, No. 18, pp.5448~5455 (2011)
- 25) T. Yagasaki and S. Saito: "Molecular dynamics simulation of nonlinear spectroscopies of intermolecular motions in liquid water," *Acc Chem Res.*, Vol. 42, No. 9 pp. 1250~1258 (2009)
- 26) T. Hattori: "Classical theory of two-dimensional time-domain terahertz spectroscopy," *J. Chem. Phys.*, Vol. 133, No. 20, 204503(10 pages) (2010)