

パルス面傾斜法による高強度テラヘルツパルス発生

服部 利明

筑波大学大学院数理物質科学研究科（〒305-8573 茨城県つくば市天王台 1-1-1）

Intense Terahertz Pulse Generation by Pulse Front Tilting

Toshiaki HATTORI

Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, Tennodai, Tsukuba, Ibaraki

305-8573

Intense terahertz pulse generation using pulse-front tilting method is described. First, phase matching condition for terahertz-wave generation by difference-frequency generation, parametric processes, and optical rectification is overviewed. Then cascading processes are described based on simulation results.

Keywords: Terahertz wave, Phase matching condition, pulse-front tilting, cascading

1. はじめに

非線形光学過程を用いたテラヘルツ (THz) 波の発生法は、大まかにいって、差周波発生¹⁾ (DFG ; difference frequency generation) やパラメトリック過程²⁾による狭帯域 THz 波の発生と、フェムト秒光パルスを用いた光整流による広帯域 THz パルスの発生に分けられる。差周波発生では、2 波長の単色光を非線形光学媒質に入射し、その差の周波数を持つ狭帯域 THz 波が発生する。パラメトリック過程の場合は、単色のポンプ光を非線形光学媒質に入射することで、ポンプ光より周波数の低いシグナル光と、それらの差周波にあたるアイドラー光としての THz 波が発生する。それらに対して、フェムト秒光パルスによる光整流では、フェムト秒光パルス自体が持つ広いスペクトルの中の二つの周波数成分の間の差周波発生により THz 波が発生するが、このとき使われる周波数成分の対としては、入射光のスペクトルの中からさまざまな差周波を持ったものが同時に使われるので、結果として得られる THz 波のスペクトルは、用いられるフェムト秒光パルスのパルス時間幅の逆数程度の周波数幅を持った広帯域なものになる。

非線形光学媒体としては、狭帯域 THz 波の発生にはおもにニオブ酸リチウム (LN ; LiNbO_3) や GaP などが用いられているのに対し、THz パルスの発生には、おもに ZnTe が用いられてきた。ZnTe が用いられる理由は、以下に詳しく述べるように、位相整合条件からの制約によるのであったが、最近のパルス面傾斜法の考案によって、この制約が絶対的なものではないことが分かってきた。その結果、狭帯域 THz 波発生に用いられている非

線形光学結晶を用いることも選択肢に入ってくることとなった。その結果、LN の、非線形光学係数が大きい、バンドギャップが大きい、フォノン周波数が高いため低周波数域で分散が小さいといった特長を生かすことができ、LN を用いて非常に大出力の THz パルスの発生が実現している。そこで、本稿では、差周波発生・パラメトリック過程と光整流における位相整合条件について、ある程度統一的に理解できるように解説したのち、パルス面傾斜法の現状と今後の展望について述べたい。

2. テラヘルツ波発生の位相整合条件

差周波発生や光パラメトリック過程による THz 波発生と、フェムト秒光パルスを用いた光整流による THz パルス発生は、どちらも 2 次の非線形光学過程であり、その過程に関与する光波の波数ベクトルの間に成り立つべき位相整合条件は、同じ形に表される。いま、テラヘルツ波発生に用いられる光の角周波数を ω_1 , ω_2 (ただし $\omega_1 > \omega_2$) とし、それらから発生するテラヘルツ波の角周波数を $\omega_{\text{THz}} = \omega_1 - \omega_2$ とする。また、それらの光とテラヘルツ波の波数ベクトルをそれぞれ $\mathbf{k}_1$, $\mathbf{k}_2$, $\mathbf{k}_{\text{THz}}$ とする。 ω_1 , ω_2 は、差周波発生による狭帯域 THz 波発生においては、そこで用いられる 2 つの入射光の角周波数であり、パラメトリック過程を用いた場合は、ポンプ光とシグナル光 (テラヘルツ波をアイドラーとした場合) の角周波数である。また、フェムト秒光パルスを用いた広帯域 THz パルスの発生の場合は、フェムト秒光パルスの広いスペクトルに含まれる、差が ω_{THz} の任意の周波数成分の対に対応する。これらのいずれの場合にも、位相整合条件は、

$$\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 = \mathbf{k}_{\text{THz}} \quad (1)$$

と表される。 ω_1 と ω_2 の光が同方向に進行する場合 (同軸の場合) と、異なる方向に進行する場合 (非同軸の場合) について、Fig. 1 にこれらの波数ベクトルの間の関係を示した。

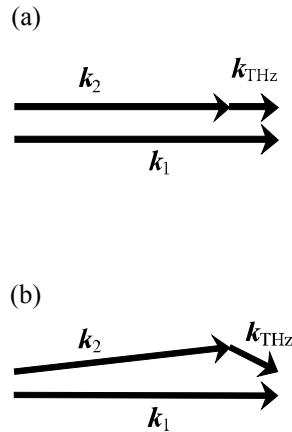


Fig. 1 Phase matching condition for terahertz-wave generation. (a) Collinear case. (b) Noncollinear case.

図より分かるように、位相整合条件を満足するためには、波数ベクトルの大きさに対して不等式

$$|\mathbf{k}_1| \leq |\mathbf{k}_{\text{THz}}| + |\mathbf{k}_2| \quad (2)$$

が成り立つ必要がある。ここで、等号は同軸の場合、不等号は非同軸の場合に対応する。この関係を、それぞれの周波数における媒質の屈折率 n_1 , n_2 , n_{THz} を用いて表すと、

$$n_1 \omega_1 \leq n_2 \omega_2 + n_{\text{THz}} \omega_{\text{THz}} \quad (3)$$

となる。通常の（パルス面が傾斜していない）フェムト秒光パルスによる THz パルス発生の場合は、すべての角周波数成分は同方向に進行しているので、同軸の場合に相当する。このとき、フェムト秒光パルスのスペクトル内の媒質の屈折率を、中心角周波数 $\omega_0 \equiv (\omega_1 + \omega_2)/2$ の周りで

$$n(\omega) = n_0 + (\omega - \omega_0) \frac{dn}{d\omega} \quad (4)$$

のように展開すると、位相整合条件の式は、

$$n_{\text{THz}} = n_0 + \omega_0 \frac{dn}{d\omega} \quad (5)$$

となる。この式の右辺は、群屈折率 n_g と呼ばれる量に等しい。媒質中の光パルスの群速度 v_g

は、群屈折率 n_g を用いて、

$$v_g = \frac{\partial \omega}{\partial k} = \frac{c}{n_g} \quad (6)$$

と表される。式(5)は、媒質中の入射光の群速度とそれから発生する THz 波の位相速度が等しいことを表している。非線形光学媒質の中で、ポンプ光パルスがその群速度で進行しながら THz 波を作っていくので、THz 波の効率的な発生にこの条件が必要であることは直感的にも理解しやすい。より一般的には、位相整合条件が完全には満足されない場合にコヒーレンス長 l_c が、

$$l_c = \frac{\pi c}{\omega_{\text{THz}} |n_g - n_0|} \quad (7)$$

と表される^{3,4)}。

さて、式(3)は、

$$(n_1 - n_2) \omega_2 + (n_1 - n_{\text{THz}}) \omega_{\text{THz}} \leq 0 \quad (8)$$

と変形できるので、正常分散媒質ではこれを満足することができないことが分かる。これを解決するためには、複屈折性のある媒質を用いるか、異常分散媒質を用いるかの二つの

選択肢がある．このうち，複屈折性媒質を用いる方法は，今のところ，広く用いられるような良い非線形結晶がないようである．そこで，おもに異常分散を用いる方法が採られている．多くの結晶では，フォノンモードが数テラヘルツの周波数に存在するので，フォノンによる共鳴により，異常分散の領域ができる．その結果，フォノンの共鳴周波数より低い周波数域で屈折率が大きくなる．このことを用いることにより，フォノン周波数以下の周波数域において，上記の位相整合条件を満足し，効率よい THz 波発生が実現されている．

フェムト秒光パルスによる THz パルス発生によく用いられている ZnTe では，チタンサファイアレーザーの波長 800 nm に対し，およそ 2 THz の THz 波において式(5)が満足され，dc から 2 THz を超える周波数帯域で，コヒーレンス長が 1 mm 以上になる⁴⁾．また，入射光の波長が 1.0 μm 帯なら CdTe や GaP が，1.56 μm 帯なら GaAs が，位相整合条件をよく満足する⁵⁾．ZnTe からの THz パルス発生に関しては，高強度化への研究もおこなわれており，最大で 1.5 μJ の THz パルスの発生が報告されている^{6,7)}．しかしこの方法での位相整合では，位相整合条件が満足される THz 波の周波数帯域が，比較的狭いことが問題である．その結果，特定の周波数の THz 波しか高強度で発生できないし，また，励起に用いるフェムト秒光パルスの広い周波数帯域を十分に活用できないことになる．また，ZnTe のバンドギャップエネルギーは，2.37 eV (523 nm) と比較的低いため，励起光を強くしていったときに励起光の 2 光子吸収によるキャリア生成が起これり，これが THz 波の高強度化に対する制限となる．

3. チェレンコフ放射とパルス面傾斜

LN などの極性の高い結晶では，極性フォノンと電磁波との結合が大きくなり，その結果，フォノン周波数以下の周波数域で，屈折率が非常に大きくなる．この状態は，ポラリトンとして理解されているが，このような媒質では，位相整合条件の式(3)を広い周波数範囲で満足させることができる．特にフォノン周波数にあまり近くない周波数域では，屈折率がほぼ定数になるので，定性的な理解がしやすくなる．以下では，その場合に限って話を進めることにして，発生する THz 波の周波数が十分小さく，THz 波の屈折率が一定とみなされ，また，照射光の群屈折率も照射光のスペクトル内で一定とみなせるとする．このとき，Fig. 2 に示すように，非同軸の位相整合条件を満足するような $\mathbf{k}_1$ と $\mathbf{k}_2$ の間の角を θ とし， $\mathbf{k}_1$ ，

$\mathbf{k}_2$ と $\mathbf{k}_{\text{THz}}$ との間の角を α とする． ω_r が十分小さければ $c|\mathbf{k}_1| \cong n_0\omega_0 + n_g\omega_{\text{THz}}/2$ ，

$c|\mathbf{k}_2| \cong n_0\omega_0 - n_g\omega_{\text{THz}}/2$ と近似できるので， θ が小さいとしてこれらと $c|\mathbf{k}_{\text{THz}}| = n_{\text{THz}}\omega_{\text{THz}}$

との間に余弦定理を適用すれば，

$$\frac{\theta}{\omega_{\text{THz}}} = \frac{(n_{\text{THz}}^2 - n_g^2)^{1/2}}{n_0 \omega_0} \quad (9)$$

$$\cos \alpha = \frac{n_g}{n_{\text{THz}}} \quad (10)$$

が得られる．すなわち，式(9)で与えられる小さい角度で 2 つの周波数の光を入射すると，THz 波の周波数によらずに，式(10)で与えられる決まった角度 α で差の周波数を持った THz 波が発生する．

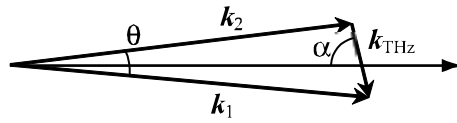


Fig. 2 Phase matching condition for low-frequency terahertz-wave generation in noncollinear configuration.

フェムト秒光パルスを用いた光整流においても，THz 波発生に関与するそれぞれの周波数成分の対に関して，上記の関係が成り立っていればよい．しかし，フェムト秒光パルスを用いる過程は，時間領域でパルス面という考え方をを使って理解されることが普通なので，まずはその説明をする．そこで得られる結果が，周波数領域の上記の関係と一致することは簡単に確かめることができる．

通常のフェムト秒光パルスは，それを構成するすべての周波数成分の波数は等しいので，満たすべき位相整合条件は同軸のものとなることは既に述べた．しかし，照射光のビーム径を十分に小さくすると，ビーム径方向に関する波数ベクトル保存則が緩和されるので，

$n_{\text{THz}} > n_g$ の場合にも，高効率の THz 波発生が可能となる．この場合，光パルスは 3 次元

的に小さな領域にのみエネルギーが集中しており，粒子のようにみなすことができる．光や音波が媒質中を伝わる速さよりも，高速に物体がその媒質中を移動するとき，円錐状に波が放出されることは，それぞれチェレンコフ放射，衝撃波として知られている．それと

同じように， $n_{\text{THz}} > n_g$ の場合，光パルスがそこから発生する THz 波の伝わる速度より速

く進行するので，Fig. 3 に示すように，THz 波が円錐状に発生し，これは電気光学的チェレンコフ放射と呼ばれる^{8,9)}．このチェレンコフ放射の発生する方向 θ_c は，

$$\cos \theta_c = \frac{v_{\text{THz}}}{v_g} = \frac{n_g}{n_{\text{THz}}} \quad (11)$$

で与えられ，これは式(10)の α と一致する．

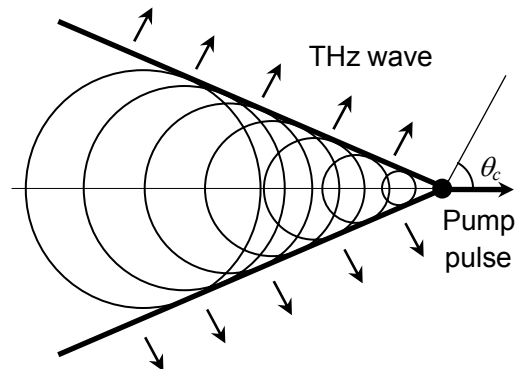


Fig.3 Cherenkov-type phase matching.

円錐状に放射されるチェレンコフ放射は、それほど使いやすいものではないので、あまり広くは用いられなかった。しかし、この方式の THz 波発生にパルス面傾斜の手法を持ち込むことで、高強度の THz 波発生が可能となったことが、最近の大きな進歩である¹⁰⁻¹⁷⁾。フェムト秒光パルスのビームの波面は、パルスの進行方向すなわち光の波数ベクトルの方向に垂直であるが、パルスのエネルギーのピーク位置をつないだ面、すなわちパルス面は、必ずしもそうではない。回折格子やプリズムを用いることで光パルスの進行方向に対してパルス面を傾斜させることができ^{18,19)}、そのようなパルス面の傾斜した超短光パルスは、進行波励起 (traveling-wave excitation) や各種の非線形光学などに応用されてきた。Hebling ら¹⁰⁾は、Fig. 4 のように、パルス面の傾斜角をチェレンコフ放射の放射角と一致させて THz 波を発生させることを提案した。そうすると、THz 波は、放射状ではなく平面的な波面を持って一方向に放射されることになる。また、照射光のビーム径を小さくする必要がなくなるので、光の出力に合わせてビーム径を大きくすることで、飽和や光学損傷などを抑えて、THz 波の出力を増大させることが可能となるのである。

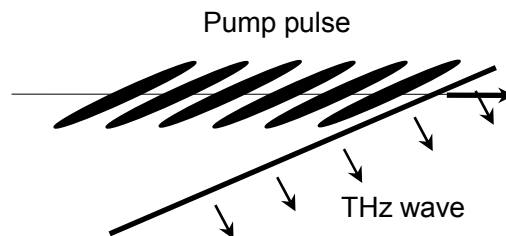


Fig.4 Phase matching using pulse-front tilting.

パルス面が傾斜した光パルスのビームでは波長成分ごとの進行方向が異なり，それは

$$\tan \gamma = \lambda \frac{d\beta}{d\lambda} \quad (12)$$

の関係に従う．ここで， γ , λ , β は，それぞれパルス面の傾斜角，波長，その波長成分の進行方向の角度である．パルス面の傾斜がどのように生成されたかに関わらず，波長成分ごとに進行方向が変化するとき，この関係に従ってパルス面が傾斜することが示されている^{18,19)}．ここで， λ が媒質中の波長であることに注意すると，パルス面の傾斜角をチェレンコフ放射の放射角と一致させ $\gamma = \theta_c$ とするとき，式(11)と式(12)からは，

$$\frac{d\beta}{d\omega} = \frac{(n_{\text{THz}}^2 - n_g^2)^{1/2}}{n_0 \omega_0} \quad (13)$$

が導かれる．フェムト秒光パルスの各周波数成分を，この関係に従って角度分散させると，各周波数成分の進行方向の間の角度 θ は，式(9)の関係を満たすことになる．このことから，パルス面傾斜によって位相整合条件を満足させることは，THz 波を発生させるために用いられるフェムト秒光パルスのスペクトル内の周波数成分対の間に，式(9)のように角度をつけることであるということが分かる．すなわち，狭帯域の THz 波発生に用いられる位相整合法とパルス面傾斜による位相整合法とは，まったく同じものである．上記のように THz 波の屈折率が一定でポンプ光の群屈折率分散が無視できる条件下では，パルス面傾斜法により，ポンプ光の周波数全体にわたって位相整合条件が満足され，その結果発生する THz 波は，同一方向にコヒーレントに発生することとなる．周波数領域で見たときに，狭帯域の THz 波発生と光整流とで，同一の現象が起きていることは，THz 波の発生に用いられるいろいろな工夫・アイディアも，両方で共通して用いることができる可能性があることを強く示唆している．今後の発展が期待される．

4. 1 次元模型によるシミュレーション

パルス面傾斜法の適用により，光整流による THz 波発生において，位相整合条件による制限がかなりゆるくなることを，前節までに見た．それでは位相整合条件が完全に満足されたとき，THz 波の発生効率はどこまで向上させることができるのであろうか．我々は，ポンプ光と THz 波に関する 1 次元の結合方程式を数値的に解くことで，その問いに対する指針を得ようとした²⁰⁾．シミュレーションによると，位相整合条件が満足されているとき，Fig. 5(a)に示すように，発生する THz 波の振幅は非線形媒質中をポンプ光が伝搬する距離にほぼ比例して増加し，スペクトルはほとんど変化しない．しかし，ポンプ光は，Fig. 5(b)のように著しい変化を見せる．このスペクトル変化は，発生する THz パルスによってポンプ光パルスが位相変調されることによると解釈することができる．レッドシフト，ブルーシフトの両方が生じるが，全体としては低周波数側にシフトしており，これは，ポンプ光

の光子のエネルギーの一部が THz 波になったこと、すなわち

$$\hbar\omega_1 \rightarrow \hbar\omega_2 + \hbar\omega_{\text{THz}} \quad (14)$$

という光子の間の変換が起きたことに対応している．ここで興味深いことは，ポンプ光のスペクトルが著しく変化し，それと同時に時間波形を大きく変化しても，THz 波の振幅の増加は続いていることである．THz 波の電場のピーク値を伝搬距離に対してプロットすると Fig. 6 のようになる．ここで，実線がシミュレーション結果である．破線は，ポンプ光パルスの振幅や波形が伝搬によって変化しないと仮定した場合に得られるものであり，これは直線になる．ところで，発生する THz 波の光子数を計算してみると，この示した計算例の場合，伝搬距離 1.8 mm ほどで入射光の光子数と同じ数の THz 波の光子が発生していることが分かる．一般に，和周波発生や差周波発生などでは，入射光の光子数より多くの光子が発生することはない，これをマンリー・ロー限界²¹⁾と呼んでいる．入射光と発生する光の角周波数をそれぞれ ω_{in} ， ω_{out} とすると，マンリー・ロー限界では，

$$\frac{\text{発生する光の光子数}}{\text{入射光の光子数}} = 1 \quad (15)$$

$$\frac{\text{発生する光のエネルギー}}{\text{入射光のエネルギー}} = \frac{\omega_{out}}{\omega_{in}} \quad (16)$$

となる．今のケースでは，マンリー・ロー限界を超えて，THz 波の発生が起きている．このとき実際には，レッドシフトしたポンプ光が何度も THz 波発生に使われて，そのたびに周波数が低下するというカスケード過程が起きている．マンリー・ロー限界は，入射した光子 1 個から，テラヘルツ波の光子が 1 個発生することに対応している．カスケード過程が起きると，入射光の光子が何度も使われ，そのたびにテラヘルツ波の光子を 1 個ずつ発生させることが可能となる．その結果，マンリー・ロー限界すなわち量子変換効率 100%を超えた THz 波の発生が可能であることがわかる．ただし，これが実現するためには，位相整合条件が満足され続けることが必要となる．

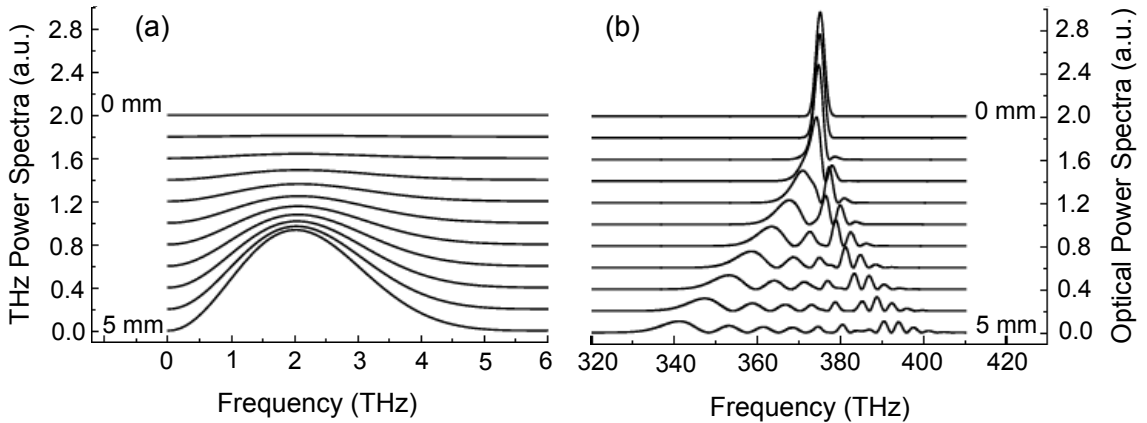


Fig.5 Simulation results on propagation distance dependence of the spectra of (a) the terahertz wave and (b) the pump light under perfect phase matching condition.

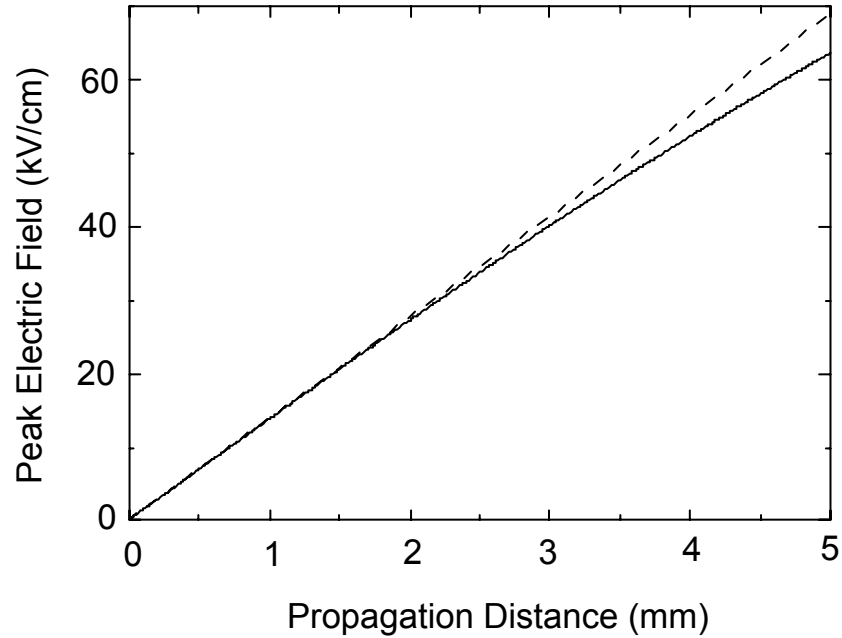


Fig.6 Propagation distance dependence of the peak electric field of the terahertz pulses. The solid line shows the simulation result and the dashed line is obtained assuming the pump light pulse is constant.

パルス面傾斜法においては，角周波数 $\omega_3 = \omega_2 - \omega_{\text{THz}}$ の光の波数ベクトル $\mathbf{k}_3$ が位相整合条件 $\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 = \mathbf{k}_{\text{THz}}$ を満たせば，カスケード過程が起きることになる．Fig. 2 を見れば，THz 波の周波数が十分低ければこの条件は満たされることが分かる．より高周波数において高効率の THz 波発生を達成するためにはカスケード過程の利用は困難かもしれない．その場合は，THz 波とポンプ光の伝搬方向が異なることを利用して，THz 波を増幅するといったことが必要かもしれない．

5. おわりに

レーザーの出現によって非線形光学という新しい分野が生まれ，今日まで発展してきた．THz 波についても，高強度 THz 波の発生が容易に実現できれば，「テラヘルツ非線形光学」といった新しい研究分野が生まれることになる．いま，我々はその段階に足を踏み入れつつある．今後，この分野がどのように発展していくのか，大変楽しみである．

参考文献

- 1) T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, T. Kimura, and K. Saito: J. Appl. Phys. **93** (2003) 4610.
- 2) K Kawase, J Shikata, and H Ito: J. Phys. D **35** (2002) R1.
- 3) T. Yajima and N. Takeuchi: Jpn. J. Appl. Phys. **9** (1970) 1361.
- 4) A. Nahata, A. S. Weling, and T. F. Heinz: Appl. Phys. Lett. **69** (1996) 2321.
- 5) M. Nagai, K. Tanaka, H. Ohtake, T. Bessho, T. Sugiura, T. Hirosumi, and M. Yoshida: Appl. Phys. Lett. **85** (2004) 3974.
- 6) T. Löffler, T. Hahn, M. Thomson, F. Jacob, and H. G. Roskos: Opt. Express **13** (2005) 5353.
- 7) F. Blanchard, L. Razzari, H.-C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J.-C. Kieffer, T. Ozaki, M. Ried, H. F. Tiedje, H. K. Haugen, and F. A. Hegmann: Opt. Express **15** (2007) 13212.
- 8) D. H. Auston: Appl. Phys. Lett. **43** (1983) 713.
- 9) D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis, and D. A. Kleinman: Phys. Rev. Lett. **53** (1984) 1555.
- 10) J. Hebling, G. Almási, I. Kozma, J. Kuhl: Opt. Express, **10** (2002) 1161.
- 11) A. G. Stepanov, J. Hebling, and J. Kuhl: Appl. Phys. Lett. **83** (2003) 3000.
- 12) J. Hebling, A. G. Stepanov, G. Almási, B. Bartal, and J. Kuhl: Appl. Phys. B **78** (2004) 593.
- 13) A. Stepanov, J. Kuhl, I. Kozma, E. Riedle, G. Almási, J. Hebling: Opt. Express, **13** (2005) 5762.
- 14) K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, J. Hebling, and K. A. Nelson: Appl. Phys. Lett. **90** (2007) 171121.
- 15) M. C. Hoffmann, K.-L. Yeh, J. Hebling, and K. A. Nelson: Opt. Express **15** (2007) 11706.
- 16) K.-L. Yeh, J. Hebling, M. C. Hoffmann, and K. A. Nelson: Opt. Commun. **281** (2008) 3567.
- 17) J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K. A. Nelson: J. Opt. Soc. Am. B, **25** (2008) B6.
- 18) Z. Bor, B. Racz, G. Szabo, M. Hilbert, and H. A. Hazim: Opt. Eng. **32** (1993) 2501.
- 19) J. Hebling: Opt. Quantum Electron. **28** (1996) 1759.
- 20) T. Hattori and K. Takeuchi: Opt. Express **15** (2007) 8076.
- 21) R. W. Boyd, Nonlinear Optics, 3rd ed. (Academic Press, London, 2008).