

超短パルス光によるテラヘルツ電磁波の発生

谷 正彦・松浦 周二・阪井 清美

テラヘルツ (THz) 帯 ($1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz} = 1 / (1 \text{ ピコ秒}) = \text{波長 } 300 \mu\text{m} = \text{波数 } 33.3 \text{ cm}^{-1}$) というと、厳密な意味では $300 \mu\text{m}$ ($= 1 \text{ THz}$) から $0.3 \mu\text{m}$ (1000 THz) の波長域を指し、赤外や可視、紫外光までを含むことになるが、ここでは 1 THz 以下の周波数域までを含めた、 $100 \text{ GHz} \sim 10 \text{ THz}$ の未開拓周波数領域を便宜的にテラヘルツ電磁波領域 (またはテラヘルツ帯) と呼ぶことにする。この周波数領域は、他の周波数領域に比べ光源や検出器等の開発が立ち遅れており、技術的には多くの課題を残した領域であるといえる。テラヘルツ帯の電磁波の利用は、今のところ物性評価、プラズマ診断、天文観測などの分光的用途に限られているが、今後、電波としての周波数有効利用や、超高速通信などへの応用の可能性から、その発生および検出にかかわる要素技術の開発が望まれている。

電磁波は、放射素子 (アンテナ等) に電流変調を加えることにより発生させることができるが、通常の電氣的な変調では 1 THz を超える変調は難しいと考えられる。しかしながら、光を用いて電流を変調することができれば、原理的には光の周波数以下での高速変調が可能である。本解説では、テラヘルツ帯の電磁波発生新しい方法として、超短パルスレーザーを用いて半導体の光スイッチ素子 (photoconductive switch) を励起し、誘起される超高速電流変調によるテラヘルツ帯の電磁波パルスの発生について解説を行う。フェムト秒光パルスを用いた電流変調では、発生される電磁波はパルス状 (モノサイクルパルス) であり、その周波数スペクトルは DC から数テラヘルツ域に広く分布をもつ超広帯域テラヘルツ

電磁波である。このようにして発生した電磁波パルスは、同様の光スイッチ素子にフェムト秒光パルスでゲートをかけることにより、時間分解検出することができる。

一方、光スイッチ素子を 2 つのレーザーの差周波ビートで励起して連続的に電流変調することにより、連続波テラヘルツ電磁波を発生させることも可能である。この方法は光混合法 (photomixing) と呼ばれ、コヒーレントなテラヘルツ電磁波を発生させる新しい方法として注目を浴びている。光混合法によるテラヘルツ電磁波発生についても合わせて報告する。

1. 半導体光スイッチ素子

半導体の光スイッチ素子をレーザーパルスで励起することは、最初、超短電気パルスを発生させる方法として、Lee^{1,2)}や Auston^{3,4)}らによって提案された。電気パルスがアンテナ等を通じて真空中に放射されると電磁波パルスとなる。光スイッチ素子を用いたピコ秒電磁波パルスの発生および検出の最初の報告が 1984 年に Auston ら⁵⁾によってなされている。この電気パルスまたは電磁波パルスを発生させる光スイッチ素子を Auston スイッチと呼ぶこともある。その後、超短パルスレーザーの発達と半導体素子作製技術の発達とともに、電磁波の短パルス化や高出力化が行われてきた。本節と次節では、筆者らが試作した光スイッチ素子を例にして、その発振特性について述べる。

図 1 にテラヘルツ電磁波を発生させるための半導体光スイッチ素子の例を示す。素子は高速応答する半導体基板 (低温成長 GaAs, イオン注入 Si など) 上につくられ、その構造は平行伝送線路 (coplanar transmission

郵政省通信総合研究所関西先端研究センター (〒651-24 神戸市西区岩岡町岩岡 588-2)

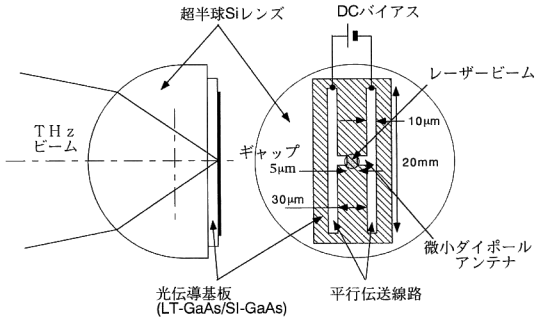


図1 光スイッチ素子(ダイポール型)の模式図。

line) とその中央部分に配置された微小ダイポールアンテナとからなる。アンテナの中央には微小なギャップ(数 μm)があり、ギャップ間には適当なバイアス電圧を印加する。このギャップに半導体のバンドギャップよりも高い光子エネルギー($h\nu > E_g$)をもったレーザーパルスを照射すると、半導体中に電子と正孔の自由キャリアが生成され、パルス状の電流が流れる。微小ダイポールアンテナによる電磁波放射はアンテナから十分離れた位置(far field)では、電氣的ダイポール $p(t)$ の2次の時間微分、すなわち電流 i の時間微分に比例する。真空中での微小ダイポールによる放射は次のように書ける。

$$E(r, t-r/c) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2 r} \frac{\partial^2 p(t)}{\partial t^2} \sin\theta$$

$$= \frac{l_e}{4\pi\epsilon_0 c^2 r} \frac{\partial i(t)}{\partial t} \sin\theta \quad (1)$$

ここで、 r はダイポールからの距離、 c は光速、 l_e はダイポールの実効的長さ、 ϵ_0 は真空の誘電率、 i は電流、 θ はダイポールの方向と放射方向のなす角度である。実際にはアンテナが半導体基板上にあることから、電磁波放射のパターンは式(1)から大きく異なったものになる⁶⁾。厚みのある誘電体基板上のダイポールアンテナからの放射電磁波のパワーは誘電率の高い半導体基板側に $\epsilon^{3/2}$ に比例して放出される⁶⁾。通常、半導体のテラヘルツ帯での誘電率は10前後(GaAsの場合 $\epsilon=12$)なので、電磁波のほとんどは基板(裏面)側に放射されると考えてよい。また、一般にアンテナの放射パターンはアンテナ面に垂直な方向から数十度にわたる角度に広く分布していることから、半球や超半球状の基板レンズ⁶⁾(図1)および他の集光鏡またはレンズを組み合わせることでテラヘルツビームをコリメートする。基板レンズは吸収損失の少ない高抵抗Siで作られることが多い。基

板レンズはまた反射損失を少なくする働きももつ。

素子を作製するための光伝導基板の特性としては、キャリア寿命、耐電圧特性、およびキャリアの移動度が重要である。光スイッチ素子が高速応答するためにはキャリア寿命が短いことが必要であり、特に素子をサンプリング検出器として用いるときの時間分解能は主としてキャリア寿命によって制限されると考えられる。また、電磁波発生素子として用いる際のバイアス電圧を高くするため(放射パワーはバイアス電圧の2乗に比例する)にはできるだけ高耐電圧であることが必要である。さらにキャリアの移動度が大きいほど、素子の電磁波発生および検出の効率が高くなる。一般にキャリア寿命を短くするためには、イオン注入等の方法により多数の欠陥を半導体中に導入するが、そのために移動度は小さくならざるを得ず、短いキャリア寿命と高い移動度は両立し難い。低温($<300^\circ\text{C}$)でMBE(molecular beam epitaxy)成長させたGaAs(LT-GaAs)は、過剰のAsを含み、 As_{Ga} 等の欠陥が多数存在し、これらがキャリアの捕獲または再結合中心となるため、非常に短いキャリア寿命($<0.5\text{ ps}$)を示す^{7,8)}。また、移動度も比較的高く($150\sim 200\text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$)⁹⁾、成長後アニールしたものは耐電圧特性も半絶縁性GaAs(SI-GaAs)よりよい。これらの特性から、LT-GaAsは光スイッチ素子の基板として適しており、最もよく用いられるもののひとつである。LT-GaAs以前には、サファイア基板上のSi薄膜にイオンを注入したもの(radiation-damaged Si on sapphire, RD-SOS)がサブピコ秒のキャリア寿命を示すため¹⁰⁾、光伝導膜として用いられることが多かったが¹¹⁾、移動度がLT-GaAsに比べて低く($30\text{ cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$)¹²⁾、電磁波の発生および検出の効率が約1/5程度であるので、現在それほど多くは用いられていないようである。

2. 発振特性

図2に筆者らが行った光スイッチ素子によるテラヘルツ電磁波パルスの発生と検出実験の装置構成図を示す。励起用光源は市販のArイオンレーザー励起のモード同期チタンサファイアレーザーを用いた。パルス幅約80 fs、発振波長約780 nm、繰返し周期82 MHzで動作する。ポンプ光は発振素子の光伝導ギャップに対物レンズを用いて照射し、発生した電磁波パルスは基板レンズと一組の軸外し放物面鏡で受信素子に集光される。テラヘルツビームの伝搬経路は空気中の水蒸気の吸収の影響を避けるために、真空にするか乾燥窒素ガスで水蒸気を除

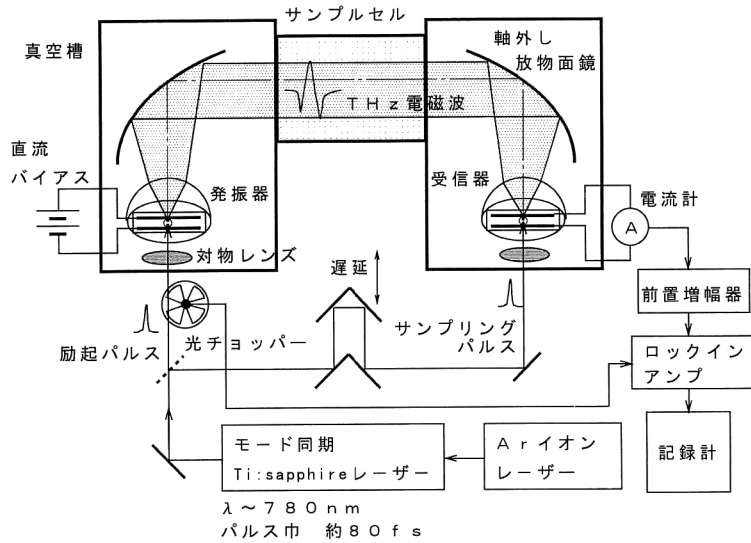


図2 光スイッチ素子によるテラヘルツ電磁波の発生と検出を行うための装置構成図。分光を行う場合はテラヘルツビームの伝搬経路（サンプルセル）にサンプルを挿入する。

去する。受信素子には発振素子と同様の光スイッチ素子を用い、ポンプ光の一部を分岐させたプローブ光でやはり光伝導ギャップを照射することによりゲートをかける。受信素子の光伝導ギャップ中に励起されたキャリアが電磁波の電場により加速され、微弱な電流パルスが生じるが、この電流の積分平均値 $I(\tau)$ (直流電流成分) は電磁波の振幅波形 $E_r(t)$ とキャリアのポピュレーション $n(t)$ のコンボリューションとなる。すなわち、

$$I(\tau) = e\mu \int_{-\infty}^{\infty} E_r(t)n(t-\tau)dt \quad (2)$$

ここで、 μ はキャリアの移動度、 τ はポンプ光とプローブ光の時間遅れである。キャリア寿命が電磁波のパルス幅に比べて十分短ければ、 $n(t)$ はデルタ関数的になり、受信素子で検出される直流電流は、ポンプ光とプローブ光の時間遅れを連続的に変化させたとき、電磁波の波形を与えることになる。

筆者らは SI-GaAs 上に GaAs 膜を約 250°C で MBE 成長し、その後 600°C でアニールをほどこした LT-GaAs¹⁹⁾ を用いて図 1 のような形状のダイポールアンテナ型の光スイッチ素子を作製した。ポンプ・プローブ法による反射率の変化から求められた LT-GaAs のキャリア寿命は 0.3 ps であった。この素子を用いて発生させたテラヘルツ電磁波を、同様の素子により時間分解検出した電磁波波形を図 3(a) に示す。また、そのフーリエ変換スペクトルを図 3(b) に示す。電磁波パルスの主

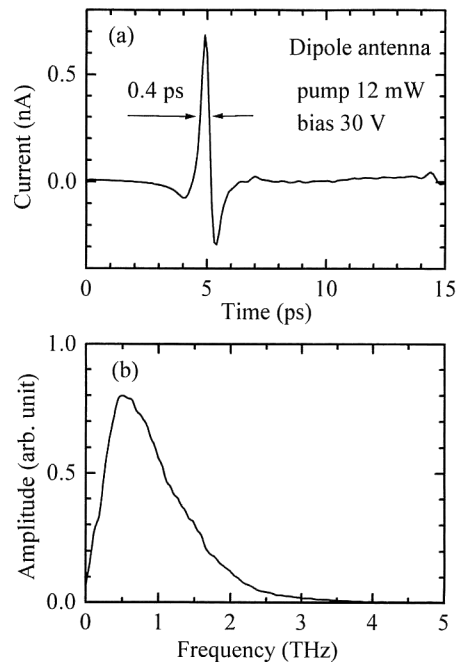


図3 ダイポール型光スイッチ素子による電磁波の(a)波形、および(b)そのフーリエ変換スペクトル。

ピークでの半値幅は約 0.4 ps である。そのスペクトルは 0~3 THz にわたる広い周波数範囲に分布しており、スペクトルのピークは約 0.5 THz にある。このときのポンプ光パワーは 12 mW で、バイアス電圧は 30 V で

あった。また、電磁波の平均出力は約 $0.3 \mu\text{W}$ (約 4 fJ/pulse) であった。

測定された電磁波の振幅はバイアス電圧にほぼ比例し、ポンプ光パワーが比較的弱い場合はポンプ光パワーにもほぼ比例した。しかし、ポンプ光パワーを強くするにつれ、電磁波の発振強度は飽和する傾向をみせる。このような放射電磁波強度の飽和は光励起された過剰キャリアによる電場のスクリーニング効果で説明され¹⁴⁻¹⁶⁾、電磁波の振幅のポンプ光パワー依存は次のような式で記述できることが知られている。

$$E_{\text{peak}} \propto \frac{F/F_0}{1+F/F_0} \quad (3)$$

ここで、 E_{peak} は電磁波のピーク振幅、 F はポンプ光パワー、 F_0 はスクリーニングの強さに関係した定数である。

電磁波のパワーおよびスペクトルは当然アンテナ形状にも強く依存する。式(1)で示されるように、ダイポールアンテナの場合はアンテナ長が長いほど放射パワーが強くなる¹¹⁾。また一般にダイポールアンテナの長さが長いほど、低周波側にスペクトルはシフトする(しかし、アンテナ長が $50 \mu\text{m}$ 以下ではスペクトルにそれほど大きな変化はない)。また、ボウタイアンテナ¹⁸⁾やスパイラル¹⁹⁾、ログペリアンテナ²⁰⁾などの周波数無依存型の広帯域アンテナを用いるとさらに大きな放射パワーの増大が観測されるが、発振スペクトルは大きく低周波側にシフトする。これは、アンテナの大きさが大きくなることにより、電磁波の低周波成分が増大しているためで、 1 THz 以上の成分は同様な条件(ポンプ光パワーとバイアス電圧)のもとでの微小ダイポールアンテナとあまり大きく変わらない。比較的高効率で高い周波数スペクトルをもった電磁波を発生する方法として、非常に高い正のバイアス電圧を印加されたストリップライン(金属)と半導体の境界を励起することによる電磁波発生が報告されている^{21,22)}。この方法では約 5 THz までのスペクトル分布をもった電磁波を発生させることができる。

なお、テラヘルツ電磁波の発生と検出はキャリア寿命の長い半絶縁性 GaAs や半絶縁性 InP ($\tau \sim 1 \text{ ns}$) を用いた素子でも可能である^{23,24)}。この場合は光励起キャリアの立ち上がり部分での応答で電磁波の放射および検出が行われる。キャリア寿命が長い場合は、式(2)の $n(t)$ がステップ関数的になり、検出される信号波形 $I(\tau)$ は電磁波の波形 $E(t)$ の積分波形となる。キャリア寿命の長い半導体を用いた場合、発生される電磁波パワーはキャリア寿命の短い LT-GaAs 素子と同程度で

あるが、発振スペクトルはやや低周波数側にシフトする。また、電磁波の検出感度はあまりよくない¹⁷⁾。これは、キャリア寿命が長いことにより、キャリアによるスクリーニングの効果が大きくなることがひとつの原因であると考えられる。

3. テラヘルツ電磁波パルスの分光応用

前節のテラヘルツ電磁波の発生と検出システムは時間領域の分光システムとして応用できる。すなわち、テラヘルツビームの伝搬経路中に測定したいサンプルを挿入し(図2)、サンプルを透過したときの電磁波の波形とサンプルなしの場合の電磁波の波形を測定し、両者のフーリエ変換スペクトルの比較から、テラヘルツ帯の広い範囲にわたる、透過または吸収スペクトルを得ることができる。これまで、すでに気体分子の吸収^{18,25-29)}、誘電体^{30,31)}あるいは半導体基板の複素屈折率^{32,33)}、超伝導薄膜の複素伝導率³⁴⁻³⁶⁾などの測定に応用されている。

図4はサンプルとして、アセトニトリル (CH_3CN) の気体分子の吸収を測定した例である。アセトニトリルが対称こま型分子であるため、その基底状態の回転準位に対応した等間隔の吸収線が現れている。測定の周波数分解能 Δf はポンプ光とプローブ光の時間遅れの走査幅 Δt の逆数に比例する ($\Delta f = 1/\Delta t$)。図4での分解能は約 2.5 GHz ($\Delta t = 400 \text{ ps}$) である。

この分光法は周波数領域で従来行われていたフーリエ分光法と似ているが、フーリエ分光では、測定される干渉波形が電磁波の強度(パワー)波形であるのに対し、本方法では電磁波の振幅波形を時間分解で測定しているため、位相情報を同時に測定している点が大きく異なる。したがって、誘電体などの複素屈折率などを測定する場合に非常に有利である。すなわち、屈折率の実部 n

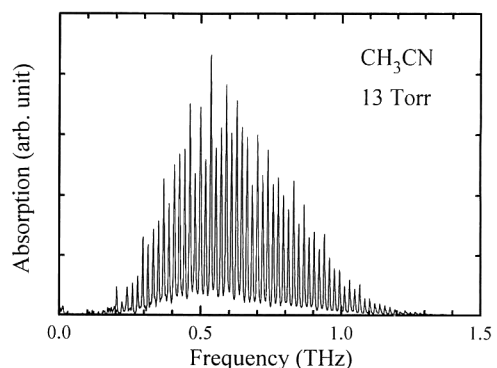


図4 時間領域テラヘルツ分光法で測定したアセトニトリル (CH_3CN) の吸収スペクトル。

は電磁波波形のフーリエ変換スペクトルの位相変化から、虚部 k はフーリエ変換スペクトルの振幅の変化からそれぞれ直接得られる。図5に LaSrGaO₄ ($t=0.54$ mm) の常温 (300 K) での複素屈折率 $\bar{n}=n-ik$ を本分光システムを用いて測定した例を示す。

4. 光混合法によるテラヘルツ電磁波の連続発生

前節までのテラヘルツ電磁波発生では励起光源として超短パルスレーザーを用いるものであったが、同じ光スイッチ素子上で2つの連続波 (CW) レーザーを光混合 (photomixing) することによりテラヘルツ電磁波を連続発生させることができる³⁷⁻³⁹。周波数の異なる2つの単色光を混合すると、合成振幅は差周波数で変調される。その混合波 (光ビート) を光スイッチ素子に照射すると、光電流が変調され、アンテナから差周波数に対応した電磁波が放射される。

バイアス電圧 V を印加された光スイッチ素子 (直流光伝導度 G , アンテナインピーダンス R , 電極間容量 C , キャリヤー寿命 τ_c) に対して入射レーザー強度があまり大きくない ($R \ll 1/G$) 場合, 光混合によって放射される電磁波の強度スペクトル $I(\omega)$ (ω : 角周波数) は,

$$I(\omega) = \frac{R(GV)^2}{2\{1+(\omega\tau_c)^2\}\{1+(\omega RC)^2\}} \quad (4)$$

で表される³⁷。式(4)から明らかなように, パルス電磁波発生の場合と同様, 放射パワーはバイアス電圧と光伝導度 (レーザーパワーに比例) のそれぞれの2乗に比例する。また, 高出力・広帯域にするには, 光スイッチ素子として光感度が高く (すなわち G が大きく), キャリヤー寿命が短いものを選ぶべきであることがわかる。RC 時定数も高周波での放射パワーを減少させる要因と

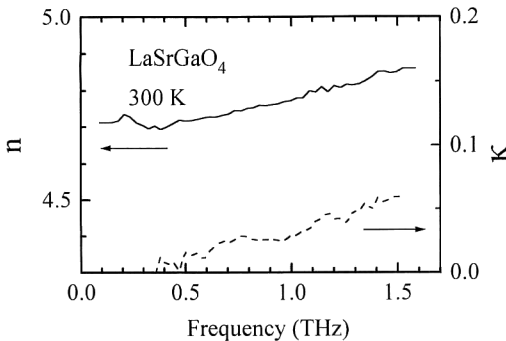


図5 時間領域テラヘルツ分光法で測定した LaSrGaO₄ の複素誘電率。

なるので, 容量が小さくなるよう素子構造を工夫しなければならない。

光スイッチ素子を用いる電磁波発生法が他の方式と比較して優れているのは, i) 装置が基本的にレーザーと光スイッチ素子だけの単純な構成であるため小型化が可能であること, ii) 周波数可変性や安定性に優れていること, などである。

筆者らは2台の単一モード半導体レーザーを用いて光混合による電磁波発生の実験を行った。半導体レーザーは比較的低出力ではあるが, 小型で信頼性が高いうえに広帯域のゲイン幅をもつため, 光混合のための光源として適している。半導体レーザーの出力光をファイバー結合系で混合したのちボウタイアンテナ型の光スイッチ素子に照射し, 発生する電磁波のパワーを4.2 K コンポジット Si ボロメーターで測定した。2つのレーザーの差周波数は光スペクトラムアナライザーで測定し, レーザーの発振周波数は動作温度を変化させることにより調整を行った。励起レーザー光のパワーは約 10 mW である。図6に光混合により発生した電磁波パワーの周波数依存性を示す⁴⁰。ここで使用したボウタイアンテナは周波数に依存しない放射抵抗と小さな RC 時定数をもつので, その放射スペクトルの帯域 (約 300 GHz) はキャリヤー寿命でほぼ決まると考えられる。実際, 式(4)に $\tau_c=0.5$ ps を代入して得た計算値 (図中点線) は測定値とよい一致を示している。このような周波数無依存型アンテナを使った素子は幅広い周波数範囲を走査する必要がある場合などに有効であり, 光スイッチ素子としてさらに短いキャリヤー寿命をもつ光伝導体を用いることにより, さらなるスペクトルの広帯域化が期待される。

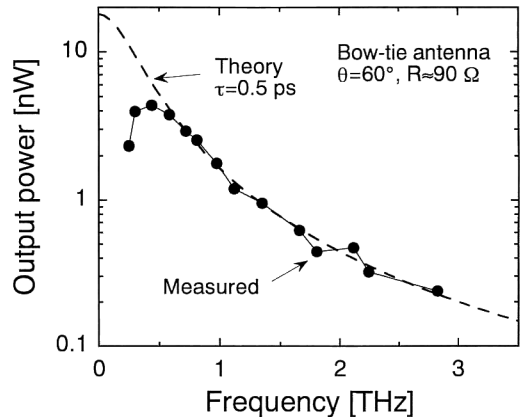


図6 ボウタイ型光スイッチ素子を用いた光混合による連続波テラヘルツ電磁波の出力の周波数依存性。点線はキャリヤー寿命 $\tau=0.5$ ps とした場合の計算値。

一方、共振型アンテナであるダイポールアンテナではアンテナ長に応じた共振周波数付近で放射抵抗が大きくなり、効率よく電磁波が放射されることが期待される。実際、共振型ダイポールアンテナ型の光スイッチ素子による放射スペクトルには明らかな共振ピークがみられ⁴¹⁾、特定周波数での高出力化が可能であることが示唆されている。さらに、一般にCW実験で得られる放射スペクトルはパルス実験でみられるよりも帯域幅が広く、両者における光スイッチの動作の違いを示しており興味深い。今後、種々のアンテナを用いた実験をパルス実験と比較して行ってゆくべきであろう。光混合法による電磁波発生は、小型で、波長可変なテラヘルツ帯のコヒーレント電磁波源として幅広い分野への応用が可能であるので、今後の研究の進展が期待される。

5. 最近の進展

先に述べたようなアンテナ構造をもった光スイッチ素子のほかに、超短パルスレーザーを用いたテラヘルツ電磁波の発生法として、非線形結晶中での光整流作用 (optical rectification) によるもの (誘電体中を走る電子によるチェレンコフ放射と似ているので electro-optic Cherenkov radiation と呼ばれる)⁴²⁻⁴⁵⁾、半導体バルク結晶表面の表面電場^{46,47)}あるいは光整流作用を用いるもの⁴⁸⁻⁵⁰⁾、半導体量子井戸中のコヒーレントな電荷振動を利用するもの⁵¹⁻⁵³⁾などが報告されている。半導体 (InP) バルク結晶表面からは 9 THz に達する非常に広帯域のスペクトル分布をもったテラヘルツ電磁波発生⁴⁹⁾も報告されているが、発生効率は光スイッチ素子によるものより 2 桁近く小さい。量子井戸中の電荷振動はコヒーレントに励起された 2 つの準位の波動関数の干渉効果によるもので、量子井戸中のコヒーレント現象として興味深い。放射電磁波のパワーが弱い。低温に冷却しなければならず、光源としての実用価値は今のところ小さい。強い電磁波パルスを得る方法として、大口径の光伝導ギャップ (数 mm) に大きなバイアス電圧を印加し、増幅されたフェムト秒レーザーパルスで励起することによるテラヘルツ電磁波の発生が報告されており⁵⁴⁻⁵⁶⁾、最大で 0.8 $\mu\text{J}/\text{pulse}$ (10 Hz) が得られている⁵⁷⁾。

電磁波の検出では、最近、非線形結晶を用いた EO サンプルングにより、高効率にテラヘルツ電磁波を検出する方法が報告されている⁵⁸⁻⁶⁰⁾。EO サンプルングによる電磁波検出は、電磁波の波形歪みが少ないことや、光スイッチ素子よりも高速サンプルングが原理的に可能であ

ることから光スイッチ素子に替わる高速なサンプルング検出器として期待できる。

テラヘルツ電磁波パルスの応用としては、テラヘルツ帯の時間領域分光のほかにテラヘルツ電磁波パルスによる二次元イメージング^{60,61)}が話題を呼んでいる。空港などでの危険物検査などで用いられている X 線イメージングよりも安全で物質同定も可能なことから、新しい透過イメージング法として期待が寄せられている。今後、実用化のためにはテラヘルツ電磁波光源の高出力化や検出器の二次元アレイ化などが課題といえる。

これまで、光スイッチ素子は GaAs などの半導体の光伝導特性を利用してきたが、筆者らの研究グループでは最近、高温超伝導体の $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) 膜を用いた光スイッチ素子によりテラヘルツ電磁波を発生させることに成功している⁶²⁻⁶⁴⁾。今のところ高温超伝導体素子からのテラヘルツ電磁波放射のパワーは、半導体素子に比べてやや弱く、電磁波の放射効率の改善が課題ではあるが、高温超伝導体中でのピコ秒、フェムト秒のキャリアダイナミクスを探るうえでも興味深い実験であると思われる。

文 献

- 1) S. Jayaraman and C. H. Lee: Appl. Phys. Lett., **20** (1972) 392-395.
- 2) C. H. Lee: Appl. Phys. Lett., **30** (1977) 84-86.
- 3) D. H. Auston: Appl. Phys. Lett., **26** (1975) 101-103.
- 4) D. H. Auston: *Picosecond Optoelectronic Device*, ed. C. H. Lee (Academic Press, Orlando, 1984) pp. 73-117.
- 5) D. H. Auston, K. P. Cheung and P. R. Smith: Appl. Phys. Lett., **45** (1984) 284-286.
- 6) D. B. Rutledge, D. P. Neikirk and D. P. Kasilingam: *Infrared Millimeter Waves*, **10** (1983) 1-90.
- 7) S. Gupta, J. F. Whitaker and G. A. Mourou: IEEE J. Quantum Electron., **28** (1992) 2464-2472.
- 8) G. L. Witt: Mater. Sci. Eng., **B22** (1993) 9-15.
- 9) D. C. Look: Thin Solid Films, **231** (1993) 61-73.
- 10) F. E. Doany, D. Grischkowsky and C.-C. Chi: Appl. Phys. Lett., **50** (1987) 460-462.
- 11) P. R. Smith, D. H. Auston and M. C. Nuss: IEEE J. Quantum Electron., **24** (1988) 255-260.
- 12) M. van Exter, Ch. Fattinger and D. Grischkowsky: Appl. Phys. Lett., **55** (1989) 337-339.
- 13) M. Tani, K. Sakai, H. Abe, S. Nakashima, H. Harima, M. Hangyo, Y. Tokuda, K. Kanamoto, Y. Abe and N. Tsukada: Jpn. J. Appl. Phys., **33** (1994) 4807-4811.
- 14) J. T. Darrow, X.-C. Zhang, D. H. Auston and J. D. Morse: IEEE J. Quantum Electron., **28** (1992) 1607-1616.
- 15) P. K. Benicewicz and A. J. Taylor: Opt. Lett., **18** (1993) 1332-1334.
- 16) A. J. Taylor, P. K. Benicewicz and S. M. Young: Opt. Lett., **18** (1993) 1340-1342.
- 17) M. Tani, K. Sakai and H. Mimura: Proceedings of the 21st International Conference on Infrared and Millimeter Waves (Berlin, 1996) BM8.

- 18) H. Harde and D. Grischkowsky: *J. Opt. Soc. Am. B*, **8** (1991) 1642-1651.
- 19) Y. Pastol, G. Arjavalingam and J.-M. Halbout: *Electron. Lett.*, **26** (1990) 133-134.
- 20) D. R. Dykaar, B. I. Greene, J. F. Federici, A. F. Levi, L. N. Pfeiffer and R. F. Kopf: *Appl. Phys. Lett.*, **59** (1991) 262-264.
- 21) N. Katzenellenbogen and D. Grischkowsky: *Appl. Phys. Lett.*, **58** (1991) 222-224.
- 22) S. E. Ralph and D. Grischkowsky: *Appl. Phys. Lett.*, **60** (1992) 1070-1072.
- 23) A. C. Warren, N. Katzenellenbogen, D. Grischkowsky, J. M. Woodall, M. R. Melloch and N. Otsuka: *Appl. Phys. Lett.*, **58** (1991) 1512-1514.
- 24) F. G. Sun, G. A. Wagoner and X.-C. Zhang: *Appl. Phys. Lett.*, **67** (1995) 1656-1658.
- 25) M. van Exter, Ch. Fattinger and D. Grischkowsky: *Opt. Lett.*, **14** (1989) 1128-1130.
- 26) H. Harde, S. Keiding and D. Grischkowsky: *Phys. Rev. Lett.*, **66** (1991) 1834-1837.
- 27) H. Harde, N. Katzenellenbogen and D. Grischkowsky: *J. Opt. Soc. Am. B*, **11** (1994) 1018-1030.
- 28) H. Harde, N. Katzenellenbogen and D. Grischkowsky: *Phys. Rev. Lett.*, **74** (1995) 1307-1310.
- 29) R. A. Cheville and D. Grischkowsky: *Opt. Lett.*, **20** (1995) 1646-1648.
- 30) M. van Exter and D. Grischkowsky: *Appl. Phys. Lett.*, **56** (1990) 1694-1696.
- 31) N. Katzenellenbogen and D. Grischkowsky: *Appl. Phys. Lett.*, **61** (1992) 840-842.
- 32) D. Grischkowsky, S. Keiding, M. van Exter and Ch. Fattinger: *J. Opt. Soc. Am. B*, **7** (1990) 2006-2014.
- 33) D. Grischkowsky and S. Keiding: *Appl. Phys. Lett.*, **57** (1990) 1055-1057.
- 34) M. C. Nuss, K. W. Goossen, J. P. Gordon, P. M. Mankiewicz, M. L. O'Malley and M. Bhusan: *J. Appl. Phys.*, **70** (1991) 2238-2241.
- 35) R. Buhleier, S. D. Brorson, I. E. Trofimov, J. O. White, H.-U. Habermeier and J. Kuhl: *Phys. Rev. B*, **50** (1994) 9672-9675.
- 36) S. D. Brorson, R. Buhleier, I. E. Trofimov, J. O. White, Ch. Ludwig, H.-U. Habermeier and J. Kuhl: *J. Opt. Soc. Am. B*, **13** (1996) 1979-1993.
- 37) E. R. Brown, F. W. Smith and K. A. McIntosh: *J. Appl. Phys.*, **73** (1993) 1480-1484.
- 38) E. R. Brown, K. A. McIntosh, K. B. Nichols and C. L. Dennis: *Appl. Phys. Lett.*, **66** (1995) 285-287.
- 39) K. A. McIntosh, E. R. Brown, K. B. Nichols, O. B. McMahon, W. F. DiNatale and T. M. Lyszczarz: *Appl. Phys. Lett.*, **67** (1995) 3844-3846.
- 40) 松浦周二, 谷 正彦, 兵頭政春, 阪井清美, 三村秀典, 片浜久: 第43回応用物理学関係連合講演会予稿集, 27 P-A-15 (1996) p. 985.
- 41) 松浦周二, 谷 正彦, 阪井清美: 第57回応用物理学学会学術講演会予稿集, 9 p-ZV-3 (1996) p. 896.
- 42) D. H. Auston: *Appl. Phys. Lett.*, **43** (1983) 713-715.
- 43) D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis and D. A. Kleinman: *Phys. Rev. Lett.*, **53** (1984) 1555-1558.
- 44) D. H. Auston and M. C. Nuss: *IEEE J. Quantum Electron.*, **24** (1988) 184-197.
- 45) Ch. Fattinger and D. Grischkowsky: *IEEE J. Quantum Electron.*, **25** (1989) 2608-2610.
- 46) X.-C. Zhang, B. B. Hu, J. T. Darrow and D. H. Auston: *Appl. Phys. Lett.*, **56** (1990) 1011-1013.
- 47) X.-C. Zhang and D. H. Auston: *J. Appl. Phys.*, **71** (1992) 326-338.
- 48) S. L. Chuang, S. Schmitt-Rink, B. I. Greene, P. N. Saeta and A. F. J. Levi: *Phys. Rev. Lett.*, **68** (1992) 102-105.
- 49) B. I. Greene, P. N. Saeta, D. R. Dykaar, S. Schmitt-Rink and S. L. Chuang: *IEEE J. Quantum Electron.*, **28** (1992) 2302-2312.
- 50) A. Rice, Y. Jin, X. F. Ma, X.-C. Zhang, D. Bliss, J. Larkin and M. Alexander: *Appl. Phys. Lett.*, **64** (1994) 1324-1326.
- 51) P. C. M. Planken, M. C. Nuss, I. Brener, K. W. Goossen, M. S. C. Luo, S. L. Chuang and L. Pfeiffer: *Phys. Rev. Lett.*, **69** (1992) 3800-3803.
- 52) H. G. Roskos, M. C. Nuss, J. Shah, K. Leo, D. A. B. Miller, A. M. Fox, S. Schmitt-Rink and K. Kohler: *Phys. Rev. Lett.*, **68** (1992) 2216-2219.
- 53) I. Brener, P. C. M. Planken, M. C. Nuss, M. S. C. Luo, S. L. Chuang, L. Pfeiffer, D. E. Leaird and A. M. Weiner: *J. Opt. Soc. Am. B*, **11** (1994) 2457-2469.
- 54) B. B. Hu, J. T. Darrow, X.-C. Zhang, D. H. Auston and P. R. Smith: *Appl. Phys. Lett.*, **56** (1990) 886-888.
- 55) J. T. Darrow, B. B. Hu, X.-C. Zhang and D. H. Auston: *Opt. Lett.*, **15** (1990) 323-325.
- 56) J. T. Darrow, X.-C. Zhang, D. H. Auston and J. D. Morse: *IEEE J. Quantum Electron.*, **28** (1992) 1607-1616.
- 57) D. You, R. R. Jones, P. H. Bucksbaum and D. R. Dykaar: *Opt. Lett.*, **18** (1993) 290-292.
- 58) Q. Wu and X.-C. Zhang: *Appl. Phys. Lett.*, **68** (1996) 1604-1606.
- 59) Q. Wu, M. Litz and X.-C. Zhang: *Appl. Phys. Lett.*, **68** (1996) 2924-2926.
- 60) Q. Wu, F. G. Sun, P. Campbell and X.-C. Zhang: *Appl. Phys. Lett.*, **68** (1996) 3224-3226.
- 61) B. B. Hu and M. C. Nuss: *Opt. Lett.*, **20** (1995) 1716-1719.
- 62) M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai, S. Tomozawa, M. Hangyo, Y. Murakami and S. Nakashima: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35** (1996) 2624.
- 63) M. Hangyo, S. Tomozawa, Y. Murakami, M. Tonouchi, M. Tani, Z. Wang, K. Sakai and S. Nakashima: *Appl. Phys. Lett.*, **69** (1996) 2122-2124.
- 64) M. Tani, M. Tonouchi, Z. Wang, K. Sakai, M. Hangyo, S. Tomozawa and Y. Murakami: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **35** (1996) L1184-L1187.

(1996年9月30日受理)