

周期分極反転による面発光テラヘルツ波発生

佐々木雄三^{*1,*4}・水津 光司^{*2,*4}・Yuri Avetisyan^{*3}・伊藤 弘昌^{*4}

Surface-Emitted Terahertz Wave Generation by Periodically Poled Structure

Yuzo SASAKI^{*1}, Koji SUIZU^{*2}, Yuri AVETISYAN^{*3} and Hiromasa ITO^{*4}

Surface-emitted terahertz (THz) wave generation with periodically poled structure is reviewed. In this geometry, the THz wave is emitted perpendicular to the propagation direction of launched laser beams in order to substantially avoid the THz wave absorption in the nonlinear crystal. Periodically poled lithium niobate (PPLN) used for the quasi-phase-matching (QPM) device satisfied the phase matching condition to achieve surface-emitted THz wave difference frequency generation. When we use bulk PPLN, there are two key phase matching conditions for surface-emission. One is that the phase of nonlinear polarization at THz frequency is the same along the direction of laser beams propagation. The other is constructive interference of generated THz waves. To satisfy both conditions, we developed Slanted-PPLN and two-dimensional (2D-) PPLN and successfully demonstrated THz wave generation. We also developed ridge-shaped PPLN for higher efficiency and output power. This type of PPLN gives rise to THz waves in opposite directions, perpendicular to the laser beams direction. Reflecting the THz wave on one side and overlapping it with the THz wave on the other side increased the total THz-wave intensity 3.9 times compared with that without reflection and mixing.

Key words: terahertz wave, surface-emission, difference frequency generation, periodically poled lithium niobate

テラヘルツ波 (THz 波) は光波と電波の中間に位置する周波数領域の電磁波を指し、近年、さまざまな発生、検出方法が急速に進展を遂げている。THz 波領域の研究は、単なる周波数領域の開拓にとどまらず、分光、イメージングや各種検査、バイオや医学への応用が報告されるようになり、この周波数帯の電磁波の特徴を生かした応用研究が今後ますます重要になると予想される。イメージングでは、THz 波特有の透過特性を利用し、郵便物中の禁止薬物や爆薬の画像抽出¹⁾を代表例に産業展開に近い研究が行われている。一方、バイオ応用においては、DNA や酵素などの生体高分子が THz 帯に固有の振動を有することが近年の研究で明らかになってきており²⁾、特定細胞の識別

や生体活動のダイナミクスの観測など非常に興味深い分野である。

フェムト (10⁻¹⁵) 秒レーザーを用いた光スイッチあるいは光整流による THz 波発生は、スペクトルが 0~数 THz に広がった超短パルス THz 波が得られる。光パルスをゲート光として利用し時間波形を観測する、テラヘルツ時間領域分光法 (THz-TDS) が分光、イメージング応用へ用いられている³⁾。一方、非線形光学効果を利用したパラメトリック光源および差周波発生光源はコンパクトで、広帯域波長可変性を有し、単色性にすぐれた THz 波発生が可能である⁴⁾。

分極反転材料を利用した擬似位相整合がレーザー光の高

^{*1} 現所属：NTT フォトニクス研究所 (〒243-0198 厚木市森の里若宮 3-1) E-mail: yus@aecl.ntt.co.jp

^{*2} 現所属：名古屋大学大学院工学研究科 (〒464-8603 名古屋市千種区不老町)

^{*3} Department of Microwave Engineering & Communication, Yerevan State University (1 Alex Monooqian, Yerevan 375049, Armenia)

^{*4} 東北大学電気通信研究所 (〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1)

効率的な非線形波長変換に有効であることは、本特集でも記載されているように、光波帯では理論的、実験的に実証されている。非線形光波長変換では、一般に3つの異なる周波数の光波が、強誘電体などの分極反転材料内で発生する2次の非線形分極を介して相互作用する。発生する電磁波の周波数がTHz波のような光波に比べて何桁も低い周波数であっても、非線形分極を誘起することができれば、レーザー光を光源とした非線形波長変換は可能である。実際に、分極反転構造を利用して入射レーザー光と差周波発生によるTHz波が同方向の擬似位相整合が提案されている⁵⁾。しかしながら、一般に非線形光学材料は光波帯では透明であるもののTHz帯で大きな吸収係数を持ち⁶⁾、例えばニオブ酸リチウム (LiNbO₃, 以下LNと略記する) では、周波数1.5 THz (波長200 μm) で約40 cm⁻¹であり、50 μm程度しか伝搬できないことになる。つまり、従来の第二高調波発生 (SHG) のように相互作用長方向に発生波が増強される波長変換を効率よく行うことは困難であり、非線形材料内でTHz波の吸収の影響を低減するような発生方法が重要になる。

本稿では、差周波発生出力波であるTHz波を、入射レーザー光と垂直方向へ取り出す面発光THz波発生を紹介する。まず、バルク分極反転デバイスを用いた場合の動作機構について位相整合条件を中心に述べ、周期分極LiNbO₃ (PPLN: periodically poled LiNbO₃) による実際の発生結果を紹介する。さらに、面発光の特徴を利用したりッジ形状分極反転デバイスによるTHz波の増強についても紹介する。

1. 周期分極反転による面発光THz波発生の動作原理

光波帯での面発光SHGや面発光和周波発生 (SFG) が、LiNbO₃ や半導体導波路を用いてこれまでに報告されている^{7,8)}。周波数 ω_1, ω_2 の2光波が非線形光学結晶に入射し、パラメトリック相互作用で発生する ω_3 のTHz波を垂直方向に出射する面発光差周波THz波発生は、LNのようなTHz帯で大きな吸収損失をもつ材料を用いる場合にも有効な波長変換法である。

PPLNを用いた面発光THz波発生は、導波路を用いた差周波発生 (DFG) 構成で、1999年にAvetisyan, Kocharyanらによって最初に提案された⁹⁾。THz波に対応する間隔をもつ周波数 ω_1, ω_2 のレーザー光がPPLN結晶表面の導波路内を伝搬し、それらの差周波混合によって発生するTHz波を導波路側面全体から取り出す構成になっている。分極反転構造は差周波混合によって誘起される非線形分極の位相を π 逆転する働きをしており、分極反転の半

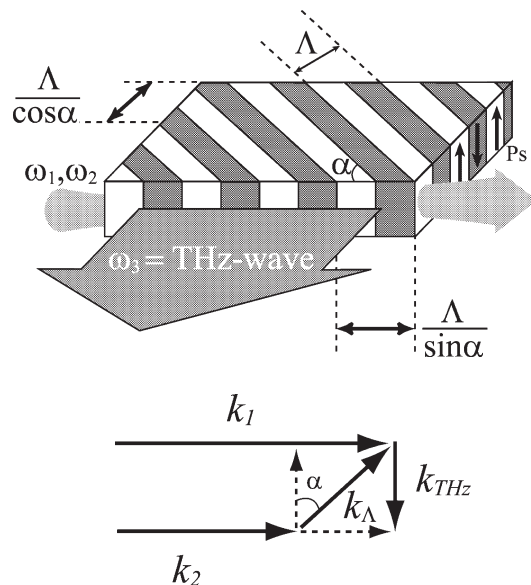


図1 傾斜構造PPLN (slanted-PPLN) からのTHz波発生の概略図(上)と擬似位相整合条件(下)。結晶内の交互の矢印は自発分極 (Ps) の向きを表す。

周期 ($\Lambda/2$) ごとに時間的に同様な非線形分極振動が実現され、導波路側面全体からTHz波の発生が可能となる。これは、いくつかの放射素子を規則的に配置して電波を発生させるフェーズドアレイアンテナにたとえられ、分極反転の半周期が1つの放射素子に対応することになる。

理論的提案^{9,10)}ではチャンネル導波路型PPLNを利用して、導波路全面からのTHz波発生であったが、筆者らは、バルクやリッジ形状に機械加工したPPLN結晶表面からのTHz波発生を報告してきた。ここでは、バルクPPLNで面発光THz波発生を実現するための傾斜構造PPLN (slanted-PPLN)、二次元構造PPLN (2D-PPLN) の動作原理について説明する。

傾斜構造PPLN¹¹⁾は、導波路を利用した際には無視できたTHz波の結晶内伝搬を考慮して、図1に示すように、入射レーザー光に対して分極反転周期が角度 α を有する構造を利用している。THz波を垂直方向に取り出す場合は、分極反転により2光波間 ω_1, ω_2 の位相不整合分を補償しなければならない。この際に、以下に述べる2つの位相整合条件がPPLN結晶内で満たされる必要がある。まず第一に、光波の伝搬方向と平行な成分に関する2光波とTHz波の3波間の位相整合条件であり、第二に光波の伝搬方向と垂直な成分に関するTHz波のフェーズドアレイアンテナとしての位相整合条件である。図1のように分極反転周期 Λ 、入射レーザー光に対して角度 α の傾斜構造を有するPPLNの場合、第一の位相整合条件は次式で与えられる。

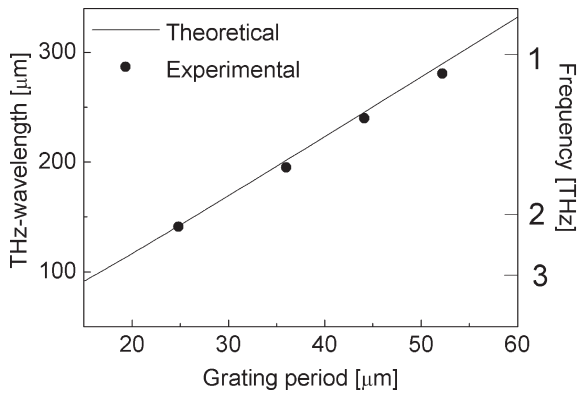


図2 出射 THz 波の分極反転周期 Λ 依存性. slanted-PPLN はおのおの擬位相整合条件を満たす角度 α を有している.

$$2\pi \frac{\sin \alpha}{\Lambda} = k_1 - k_2 \quad (1)$$

さらに、第二の垂直方向 (THz 波の伝搬方向) の位相整合条件は、次のように説明できる。2 光波のビーム径はバルク結晶内で $100 \mu\text{m}$ 程度であり、THz 波の波長も数百 μm であるが、LiNbO₃ における THz 波帯の屈折率が 5 以上であるので、結晶内での波長はレーザー光のビーム径より十分小さくなる。このために、波源を点光源とみなすことはできず、ビーム断面の各点から発生する THz 波が強め合いながら干渉するように垂直方向の位相整合を満たす必要がある。垂直方向に伝搬する THz 波の位相変化が π になる距離ごとに分極反転を施し、これによって THz 波の位相を反転すればよく、この条件は、

$$2\pi \frac{\cos \alpha}{\Lambda} = k_{\text{THz}} \quad (2)$$

となる。つまり、傾斜構造を有する PPLN により 2 つの位相整合条件を同時に満たすことが可能である。式 (1)、(2) より以下のように、 Λ と α に関する式を導くことができる。

$$\alpha = \tan^{-1} \left(\frac{k_1 - k_2}{k_3} \right) \quad (3)$$

$$\Lambda = \frac{2\pi}{k_1 - k_2} \sin \left[\tan^{-1} \left(\frac{k_1 - k_2}{k_3} \right) \right] \quad (4)$$

slanted-PPLN は 1 方向のみの分極反転構造を実効的に 2 方向に分けるので、 y 軸に平行な辺をもつ六角形のドメインの形状の LiNbO₃ 結晶では、作製上は分極反転の均一性がよく分極反転境界の平坦性を保つことができる。

図 2 に、出射 THz 波の分極反転周期 Λ 依存性を示す。入射レーザー光は一方の波長を $1.554 \mu\text{m}$ に固定し、他方を $1.562 \sim 1.572 \mu\text{m}$ まで変化させている。図中の測定結果 (●) は、おのおのの周期を有するデバイスにおいて最大出力が得られた波長を、メタルメッシュのファブリー・

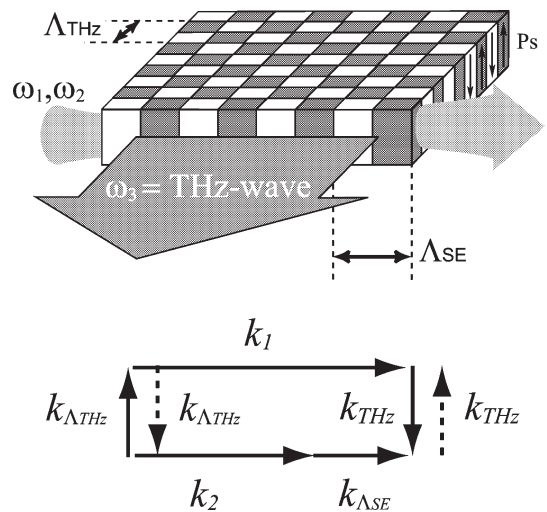


図3 二次元構造 PPLN (2D-PPLN) からの THz 波発生の概略図 (上) と擬位相整合条件 (下). 2D-PPLN では、同時に 2 方向へ THz 波が発生されるような擬位相整合条件が満たされる。

ペロー干渉計によって測定したものである。実線は式 (4) から計算できる理論値であり、おのおの式 (3) で表される角度 α を有している。

2D-PPLN¹²⁾ は、2 つの直交する格子状の分極反転周期によって面発光差周波発生を実現するデバイスである。2 つの分極反転周期は、レーザー光入射方向への分極反転周期 Λ_{SE} と、光波の伝搬方向と垂直な THz 波発生方向への分極反転周期 Λ_{THz} である (図 3)。 Λ_{SE} は、垂直方向へ THz 波を放射するような非線形分極を PPLN 結晶内に誘起するための周期分極反転であり、二波長レーザー光の波長によって決定され、次式で与えられる。

$$\Lambda_{\text{SE}} = \frac{2\pi}{k_1 - k_2} \quad (5)$$

一方、 Λ_{THz} は結晶内各点で発生される THz 波を積み重ねるための周期分極反転であり、THz 波の波長によって決定され (THz 波の波長は入射する二波長レーザー光の周波数差)、次式で与えられる。

$$\Lambda_{\text{THz}} = \frac{2\pi}{k_{\text{THz}}} \quad (6)$$

これらの直交する 2 つの分極反転周期によって、図 3 の位相整合条件で示されるように、入射二波長レーザー光と垂直方向へ THz 波が発生される。

図 4 は、2 つの異なる周期を有する 2D-PPLN からの THz 波発生の波長同調特性の測定結果である。両 PPLN とも 0.5 mm 厚で、相互作用長は 25 mm である。実線は中心波長が $175 \mu\text{m}$ (周波数 1.71 THz) に設計した 2D-PPLN からの結果であり、 $\Lambda_{\text{SE}} = 80.2 \mu\text{m}$ 、 $\Lambda_{\text{THz}} = 33.7 \mu\text{m}$

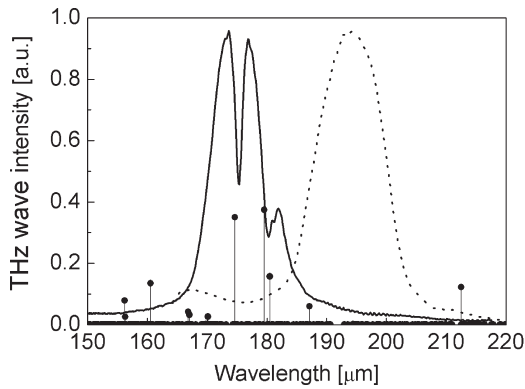


図4 2D-PPLNにおける出射 THz 波の波長同調特性. 実線は波長が $175 \mu\text{m}$ (周波数 1.71 THz), 点線は波長が $200 \mu\text{m}$ (周波数 1.5 THz) の THz 波発生用に設計したものである.

である. 点線は中心波長が $200 \mu\text{m}$ (周波数 1.5 THz) に設計した 2D-PPLN からの結果であり, $\Lambda_{\text{SE}}=91.6 \mu\text{m}$, $\Lambda_{\text{THz}}=38.7 \mu\text{m}$ である. それぞれの PPLN から最大出力の得られる波長は設計した波長と一致しており, 2D-PPLN での擬似位相整合が有効に機能していると考えられる. slanted-PPLN が単一の周期構造を傾斜させることによって 2 つの位相整合条件を満たしており, そのため基板の z 軸方向から見た分極反転の境界は 1 種類である. 一方, 2D-PPLN は 2 つの直交する分極反転周期を有するので, 境界が長方形となっている. LiNbO_3 の結晶構造は三方晶であるので, 直交する 2 辺を有するような分極反転領域を作製しようとする場合には, 結晶構造の影響を受けて 1 辺が直線でなくなってしまう傾向がある. 分極反転時の電極を作製した面 (+ z 面) では比較的良好な長方形が得られるが, 同様電極である面 (- z 面) では分極反転の境界の歪みが顕著になっている. 同図には同時に水蒸気の吸収線を示しており, 測定した THz 波の出力にも $174.6 \mu\text{m}$, $179.5 \mu\text{m}$, $180.5 \mu\text{m}$ でよく一致した出力の低下がみられる. slanted-PPLN, 2D-PPLN とともに, 分極反転周期により所望の周波数の THz 波発生が可能であるので, 特定の吸収波長を有する対象の分光等に有用である.

2D-PPLN と slanted-PPLN の二波長レーザー光の, 入射方向による THz 波発生の違いについて述べる. slanted-PPLN は, 単一の周期構造を傾斜させることによって 2 つの位相整合条件を満たしているので, THz 波発生に寄与するグレーティングベクトルは入射二波長レーザー光のある一方の垂直方向である. これに対して 2D-PPLN は対称構造であるので, slanted-PPLN と同じ配置にしたときには, 入射二波長レーザー光に対して THz 波は垂直な 2 方向に発生することになる. ただし, バルク結晶の場合には, 一方は結晶内へ発生されるので, 実際に取り出しが

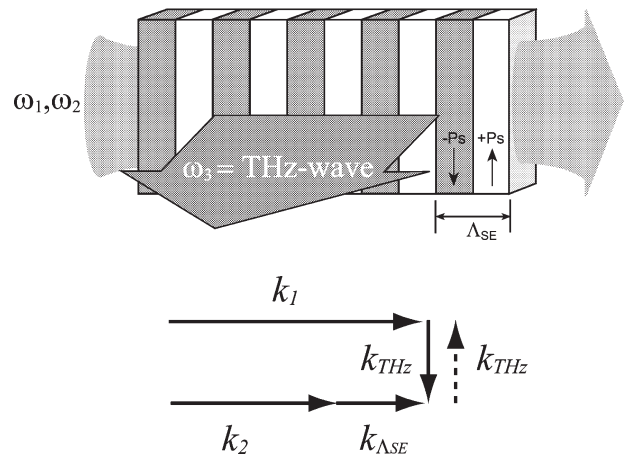


図5 リッジ形状 PPLN からの THz 波発生の概略図 (上) と擬似位相整合条件 (下).

可能なのは slanted-PPLN と同様にある一方へ発生される THz 波のみである. 二波長レーザー入射が 180° 反対方向からの場合でも, 同様の THz 波出力が得られることを実験的に確認しており, いったん結晶を透過したレーザー光をミラーによって折り返すダブルパスを利用すれば THz 波出力の増大が期待できる. slanted-PPLN の場合についても, 反対方向からの入射時に THz 波発生は可能であるが, 位相整合条件より結晶内部方向のみの THz 波発生になるので実際には取り出すことができない.

2. リッジ形状 PPLN による THz 波発生の出力増強¹³⁾

2D-PPLN は, 入射レーザー光と直交する 2 方向へ同時に THz 波が発生されていたが, 一方は PPLN 結晶内部で吸収されるのみであった. 2 方向へ発生する THz 波を取り出し, かつ発生した THz 波の増強を可能としたリッジ形状 PPLN の動作について紹介する. リッジ形状 PPLN を用いた THz 波発生の概略図および, 位相整合条件を図 5 に示す. 前述のバルク PPLN は, 入射レーザー光の結晶内でのビーム径を考慮して THz 波の伝搬方向へも分極反転構造を有していた. これに対して, THz 波の伝搬長を波長の半分 (分極反転周期の半分に相当) 以下に切削加工したものがリッジ形状 PPLN である. リッジの断面から発生する THz 波間では, 打ち消しあうような位相差は生じないので, THz 波発生方向への分極反転構造は不要となる. 分極反転周期 $\Lambda_{\text{SE}}=90.0 \mu\text{m}$ を有するバルク PPLN (厚さ 0.5 mm , 相互作用長 35 mm) を作製した後, 高さ $300 \mu\text{m}$, 幅 $20 \mu\text{m}$ のリッジ形状を研削加工によって得ている. 面から 2 方向に発生した周波数 1.48 THz (波長 $203 \mu\text{m}$) の出力波のうち一方を, アルミミラーによって折り返す.

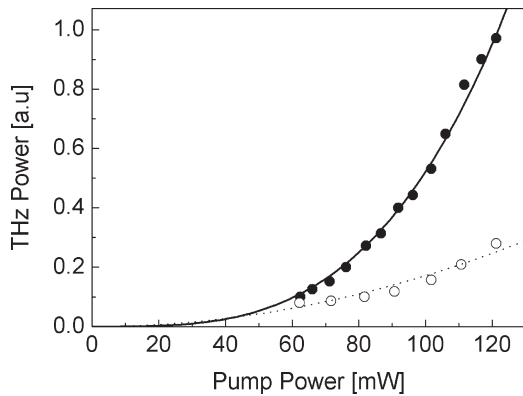


図6 リッジ形状PPLNにおけるTHz波出力の入力依存性。2方向へ発生されるTHz波のうち一方をミラーでもう一方と同方向へ折り返した場合(●), 一方のみの出力(○)に比べて最大で3.9倍に増強されている。

図6は、リッジ形状PPLNを用いた場合の入出力特性である。一方をアルミミラーで折り返すことにより(図中●), ミラーがない場合(同○)に比べて、最大で3.9倍の出力増強を達成している。さらに、ミラーがない場合の一方のみのTHz波出力はDFGの入出力特性である二乗特性でよくフィッティングできるが、増強されたTHz波出力は3.3乗の曲線でよくフィッティングできる。この出力増強はTHz波間の干渉のみでは説明しきれず、折り返されたTHz波を種光源としたパラメトリック増幅を含めて詳細に検討している段階である。パラメトリック増幅が有効な場合には、THz波に対してファブリー・ペロー型の共振器を組むことによってさらなる出力増強が望める。この出力増強は、入射光と出力THz波が直交するという本発生法の特徴を生かしたものであり、THz波のみに対して反射率や共振器長を制御すればよいという実際上の大きな利点を有する。また、リッジ形状の幅を、入射レーザー光に対してスラブ導波路とし、高効率化、相互作用長の長尺化による出力増大も可能である。

分極反転構造を利用した面発光THz波発生について、その動作機構、実際の動作結果を紹介した。本発生方法によって連続波のTHz波発生も実現されており、狭線幅を有する高分解能な分光用の光源として有力であるが、擬似位相整合の特徴を活用して、波長や位相の制御可能な高機能的な光源への期待が大きい。THz波光源としてのさらなる特性向上のために、光波帯で盛んに研究されている導波

路構造等による高効率化、位相変調等による広帯域化、また材料特性の改善による高出力化等が、本発生方法に適用されることが期待される。

リッジ形状PPLN作製、実験にあたってご協力いただいた鈴木勇策氏(現リコー光学)、結晶研磨およびコーティングをいただいた東北大学電気通信研究所の庄子鉄雄、田久長一技術職員に感謝します。

文 献

- 1) K. Kawase, Y. Ogawa, Y. Watanabe and H. Inoue: "Non-destructive terahertz imaging of illicit drugs using spectral fingerprints," *Opt. Express*, **11** (2003) 2549-2554.
- 2) 山田廣成, 霜田光一: "光蓄積リング型自由電子レーザーの開発と生体研究利用への展望", *応用物理*, **65** (1996) 41.
- 3) P. R. Smith, D. H. Auston and M. C. Nuss: "Subpicosecond photoconducting dipole antennas," *IEEE J. Quantum Electron.*, **224** (1988) 255-260.
- 4) K. Kawase, J. Shikata and H. Ito: "Terahertz wave parametric source," *J. Phys. D*, **35** (2002) R1-R14.
- 5) K. Kawase and H. Ito: "Submillimeter generation using periodic domain reversals," *Nonlinear Opt.*, **7** (1994) 225-229.
- 6) M. Schall, H. Helm and S. R. Keiding: "Far infrared properties of electro-optic crystals measured by THz time-domain spectroscopy," *Int. J. Infrared MM Waves*, **20** (1999) 595-604.
- 7) R. Normandin and G. I. Stegeman: "Nondegenerate four-wave mixing in integrated optics," *Opt. Lett.*, **4** (1979) 58-59.
- 8) M. Guy, B. Villeneuve, M. Sivilans, M. Tetu and N. Cyr: "Optical frequency control for DWDM networks using sum-frequency generation in multilayer waveguides," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, **6** (1994) 453-456.
- 9) Y. H. Avetisyan and K. N. Kocharyan: "A new method of terahertz difference frequency generation using periodically poled waveguide," *Conference on Laser and Electro-Optics (CLEO '99)* (Baltimore, 1999) pp. 380-381.
- 10) Y. Avetisyan, Y. Sasaki and H. Ito: "Analysis of THz-wave surface-emitted difference-frequency generation in periodically poled lithium niobate waveguide," *Appl. Phys. B*, **73** (2001) 511-514.
- 11) Y. Sasaki, A. Yuri, K. Kawase and H. Ito: "Terahertz-wave surface-emitted difference frequency generation in slant-stripe-type periodically poled LiNbO₃ crystal," *Appl. Phys. Lett.*, **81** (2002) 3323-3325.
- 12) Y. Sasaki, Y. Avetisyan, H. Yokoyama and H. Ito: "Surface-emitted terahertz-wave difference-frequency generation in two-dimensional periodically poled lithium niobate," *Opt. Lett.*, **30** (2005) 2927-2929.
- 13) K. Suizu, Y. Suzuki, Y. Sasaki and H. Ito: "Surface emitted THz-wave generation using ridged PPLN and enhancement effect by mixing two THz-waves," *Opt. Lett.*, **31** (2006) 957-959.

(2006年12月25日受理)