

広帯域周波数可変テラヘルツ波光源

須 藤 建

Wide Band Frequency-Tunable Terahertz Wave Source

Ken SUTO

Terahertz-frequency electromagnetic waves in semiconductors accompanied with lattice vibrations are called phonon-polaritons. In particular, phonon-polaritons in GaP crystals can afford terahertz wave generation in a widely tunable frequency range extending from 0.3 THz to 7 THz. We have realized terahertz wave signal generator as well as terahertz spectrometer with high resolution. The GaP signal generator with a YAG source and OPO source with a high resolution (1.5 GHz) has been constructed and has shown wide range terahertz spectra of biomolecules like nucleobases and related DNA/RNA molecules. Then we have developed more compact systems using Cr-forsterite lasers for both pump source and signal source. By using a diffraction grating in the Cr-forsterite lasers, a frequency resolution higher than 0.5 GHz has been realized. Various kinds of biomolecules like saccharides, aminoacids have shown detailed terahertz spectra. Recently, the spectral resolution has been greatly narrowed, so that even the defects in organic molecules have been detected.

Key words: terahertz wave generation, phonon polaritons, GaP, cancers

1957年に「半導体レーザー」が西澤により提案され、米国において1962年に実現した。

しかし、半導体レーザーによって得られる光波と従来の電波（マイクロ波）の間には大きな周波数ギャップが残されたままであった。そこで西澤は1963年、半導体や誘電体など種々の化合物が有する分子振動や格子振動（フォノン）がテラヘルツ周波数領域に存在することに注目し、フォノンを励起し振動させることによりテラヘルツ波を発生させるという提案を行った^{1,2)}。この考えに基づき、1979年、西澤と須藤は半導体GaP結晶を使ったラマンレーザーの発振に世界ではじめて成功した³⁾。1983年には、GaPラマンレーザー中に配置したGaAs結晶における光混合により周波数12.1 THzのテラヘルツ電磁波を発生させた⁴⁾。これに基づいて、川瀬らは、同様な方法をLiNbO₃結晶に適用して周波数掃引テラヘルツ波発生を行った⁵⁾。

われわれはGaPのフォノンポラリトンモードを使い、OPO (optical parametric oscillator) とYAGレーザーをソースとして0.3~6.5 THzの間を掃引する広帯域高出力高分解テラヘルツ信号発生装置・分光装置を構築した⁶⁻⁹⁾。

なお、IR分光器による遠赤外領域の先駆的分光研究は、吉永・三石らのグループによって行われてきた¹⁰⁻¹²⁾。

2000年に、西澤によって、テラヘルツ波をがんの診断治療に使う提案が行われた¹³⁾。生体内の分子同士の弱い結合による振動エネルギーはテラヘルツ領域にあり、がん組織などの共鳴周波数に同調する電磁波を照射することによりがん組織を検出し、あるいはがん部位のみ加熱したり、薬剤と反応させることにより治療を行う。

1. GaP結晶による周波数掃引テラヘルツ波発生

YAGとOPOをソースとする、GaP結晶によるテラヘルツ波発生装置の概要を図1に示す⁶⁻⁹⁾。YAGレーザー（波長1064 nm）とOPO（波長範囲1064~1030 nm、または1064~1070 nm）ビームをGaP結晶中を位相整合条件を満たす方向に伝播させ、両者の差周波数をもったテラヘルツ電磁波を発生させる。このとき、結晶内を伝播するテラヘルツ波は、ポラリトンモードとよばれる、電磁波と結晶格子振動が結合した波である。ポンプ光、信号光（ストークス光）、テラヘルツ波の間には位相整合条件が成り立っていないと、そのため、GaP結晶の場合、入

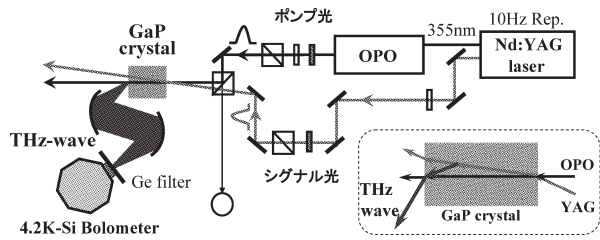


図1 YAGとOPOをソースとする周波数掃引GaPテラヘルツ波発生装置。

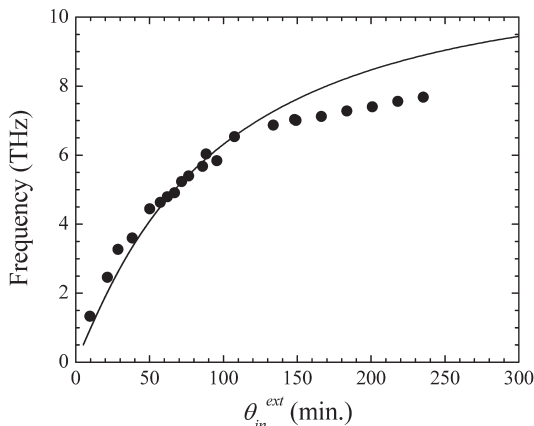


図2 ポンプ光，信号光の位相整合角とテラヘルツ波周波数の関係。

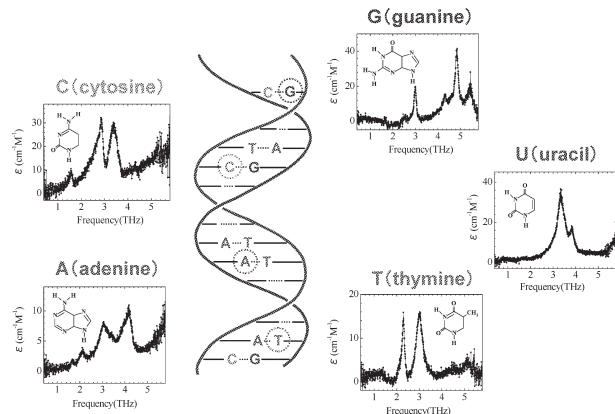


図3 核酸塩基の広帯域テラヘルツスペクトル。

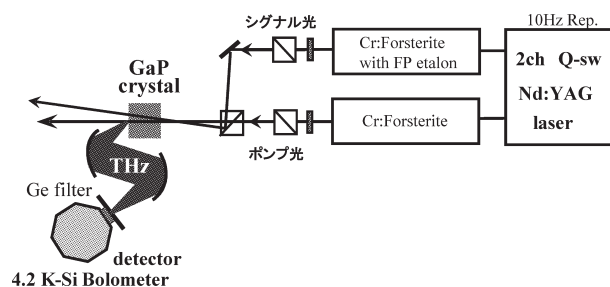


図4 Cr-forsteriteをソースとする周波数掃引GaPテラヘルツ波発生装置。

射するポンプ光と信号光のなす角度が図2に示すようにわずかな角度 θ_{in}^{ext} をなしているときに最大のテラヘルツ波出力が得られる。テラヘルツ波出力の方向 θ_{out}^{ext} は、 $\theta_{in}^{ext}/\theta_{out}^{ext} = \omega_p/\omega_{THz}$ なる関係から、ポンプ光と信号光のなす角度がきわめて小さいGaPにおいても、数十度の大きさになる。

出力を得ることができる周波数範囲は検知器の感度によって異なるが、低温検知器であるSiボロメーターを使えば0.3~7.5 THzまで、室温検知器DTGS (deuterium triglycine surface) を使った場合は、0.3~6.5 THzまでである。GaP結晶のTO (transverse optical) フォノン周波数は11 THzであるから、この周波数に近づくと結晶格子振動による反射・吸収が著しく強くなり、テラヘルツ波出力を得ることは困難になる。出力はポンプ光，信号光それぞれの強度に比例し、最大1.4 Wを得ている(2 THzにおける値)。

図3は、本装置を分光器として使い核酸塩基分子のテラヘルツ帯スペクトルを測定した結果である。0.3~6 THzにわたる、これら分子の精細な広帯域指紋スペクトルが得られた¹⁴⁾。

2. Cr-forsterite ソース型の開発

YAGレーザーとOPOソースを使ったシステムでは分解能が高く(線幅1.5 GHz)、可変波長の出力を得ることができる。しかし、YAGレーザーの1064 nm光を3倍しなければならないことに加え、YAG、OPOともに光注入を行うためのマスターオシレーターを必要とするため、システムが大型になる。そこで、小型堅牢なシステムとして、図4に示すような2台のCr-forsteriteレーザーをソースすなわちポンプ光，信号光として使うシステムを開発した¹⁵⁻¹⁷⁾。Cr-forsteriteレーザーはYAGレーザーの基本波1064 nmによってforsterite結晶中のCrイオンの準位を励起し、1220~1260 nmの範囲で発振させるレーザー励起型のレーザーである。発振波長を選択する素子としてプリズムを使って、線幅30 GHzの発振線を得ることができる。YAGレーザーの基本波1064 nmによって直接励起するので、非常に効率が高く、小型化に適している。ポンプ光用Cr-forsteriteの発振波長は1220 nmに固定し、信号光用のCr-forsteriteの波長を1220~1260 nmにわたって掃引すると、0.3~6.5 THzまでの任意の周波数のコヒーレントテラヘルツ電磁波を発生させることができる。プリズムを波長選択素子として使った場合、線幅は30 GHzで

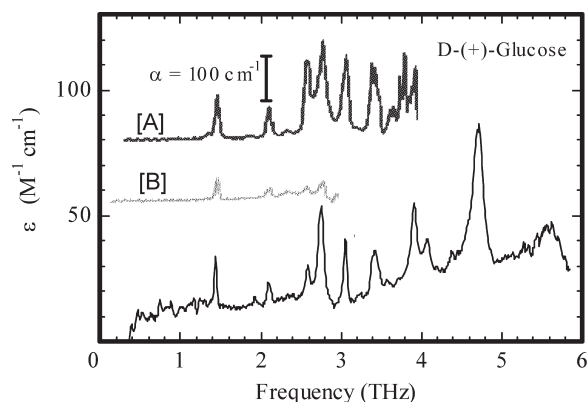


図5 グルコースの広帯域テラヘルツスペクトル (TDS法と比較). [A] M. Walther, B. M. Fischer and P. Uhd Jepsen: "Noncovalent intermolecular forces in polycrystalline and amorphous saccharides in the far infrared," *Chem. Phys.*, **288** (2003) 261-268. [B] P. C. Upadhy, Y. C. Shen, A. G. Davies and E. H. Linfield: "Far-infrared vibrational modes of polycrystalline saccharides," *Vib. Spectrosc.*, **35** (2004) 139-143.

あったが、回折格子を使うことによって線幅は著しく狭くなり、500 MHz以下に達している¹⁸⁾。

図5は、糖類のひとつ、グルコース分子のテラヘルツスペクトルを線幅30 GHzの普及型装置で測定した結果である¹⁵⁾。検知器としては室温検知器DTGSを使っている。TDS (time domain terahertz spectroscopy) に比べて高周波側にスペクトル領域が大幅に広がり、分子の同定に威力を発揮している。

高分解装置 (分解能500 MHz以下) を使って、有機分子の構造欠陥の検出が可能であることが示された¹⁸⁻²¹⁾。

最近、GaP結晶を使って連続波 (CW) 可変波長テラヘルツ波を発生させることに成功した²²⁾。CW化によって分解能はMHz以下となり、分光器としての能力が飛躍的に高まる。

文 献

- 1) 西澤潤一: "半導体レーザーの生たちと特質", *電子科学*, **14** (1963) 17-20.
- 2) 西澤潤一: "エサキダイオードと長波長レーザー", *電子技術*, **7** (1965) 102-106.
- 3) J. Nishizawa and K. Suto: "Semiconductor Raman laser," *J. Appl. Phys.*, **51** (1980) 2429-2431.
- 4) K. Suto and J. Nishizawa: "Low threshold semiconductor Raman laser," *IEEE J. Quantum Electron.*, **QE-19** (1983) 1251-1254.
- 5) K. Kawase, M. Sato, T. Taniuchi and H. Ito: "Coherent tunable terahertz wave generation from LiNbO₃ with monolithic grating coupler," *Appl. Phys. Lett.*, **68** (1996) 2483-2485.
- 6) T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, T. Kimura and K. Saito: "Frequency-tunable high-power-terahertz wave generation from GaP," *J. Appl. Phys.*, **93** (2003) 4610-4615.
- 7) T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, K. Saito and T. Kimura: "Tunable terahertz wave generation in the 3- to 7 THz region from GaP," *Appl. Phys. Lett.*, **83** (2003) 237-239.
- 8) T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, K. Saito and T. Kimura: "Frequency tunable terahertz wave generation via excitation of phonon-polaritons in GaP," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **36** (2003) 953-957.
- 9) J. Nishizawa, K. Suto, T. Sasaki, T. Tanabe and T. Kimura: "Spectral measurement of terahertz vibrations of biomolecules using a GaP terahertz-wave generator with automatic scanning control," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **36** (2003) 2958-2961.
- 10) 三石明善: "遠赤外分光研究の歩み I—1890年頃から1970年頃まで—", *日本赤外線学会誌*, **16**, No. 1 (2007) 4.
- 11) 三石明善: "遠赤外分光研究の歩み II", *日本赤外線学会誌*, **16**, No. 2 (2007) 4.
- 12) K. Sakai: "Michelson-type Fourier spectrometer for the far infrared," *Appl. Opt.*, **11** (1972) 2894-2901.
- 13) 西澤潤一: "テラヘルツ帯の開拓", *日本音響学会誌*, **57** (2001) 163-169.
- 14) J. Nishizawa, T. Sasaki, K. Suto, T. Tanabe, K. Saito, T. Yamada and T. Kimura: "THz transmittance measurements of nucleobases and related molecules in the 0.4- to 5.8 THz region using a GaP THz wave generator," *Opt. Commun.*, **246** (2005) 229-239.
- 15) J. Nishizawa, K. Suto, T. Sasaki and T. Tanno: "A comparative study of THz spectra," *Proc. Jpn. Acad. Ser. B*, **81** (2005) 20-25.
- 16) J. Nishizawa, T. Sasaki, K. Suto, T. Tanabe, T. Yoshida, T. Kimura and K. Saito: "Frequency-tunable terahertz-wave generation from GaP using Cr:Forsterite lasers," *Int. J. Infrared Millimeter Waves*, **27** (2006) 779-789.
- 17) K. Suto, T. Sasaki, T. Tanabe, K. Saito, J. Nishizawa and M. Ito: "GaP terahertz wave generator and THz spectrometer using Cr:Forsterite lasers," *Rev. Sci. Instrum.*, **76** (2005) 123109.
- 18) J. Nishizawa, T. Sasaki, K. Suto, M. Ito, T. Yoshida and T. Tanabe: "High-resolution GaP terahertz spectrometer and its application to detect defects in gamma-irradiated glucose crystal," *Int. J. Infrared Millimeter Waves*, **29** (2008) 291-297.
- 19) J. Nishizawa: "Pioneering work of THz wave and its application for molecular sciences," *3rd International Symposium on Slow Dynamics in Complex Systems* (Sendai 3-8 Nov. 2003), eds. T. Michio and I. Oppenheim (American Institute of Physics, New York, 2004) p. 369.
- 20) J. Nishizawa, K. Suto, T. Sasaki, T. Tanabe, T. Tanno, Y. Oyama and F. Sato: "GaP Raman Terahertz high accuracy spectrometer and its application to detect organic and inorganic crystalline defects," *Proc. Jpn. Acad. Ser. B*, **82** (2006) 353-358.
- 21) J. Nishizawa, T. Tanno, T. Yoshida and K. Suto: "Consequence of a defect on the terahertz spectra of L-asparagine monohydrate," *Chem. Lett.*, **36** (2007) 134-135.
- 22) J. Nishizawa, T. Tanabe, K. Suto, Y. Watanabe, T. Sasaki and Y. Oyama: "Continuous wave terahertz-wave generation from GaP," *IEEE Photonics Technol. Lett.*, **18** (2006) 2008-2010.

(2008年9月11日受理)