

Title	高強度テラヘルツ波パルスの発生・検出とコヒーラー効果の誘起
Author(s)	田所, 譲
Citation	大阪大学, 2016, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/55961
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

博士学位論文

高強度テラヘルツ波パルスの発生・検出と
コヒーラー効果の誘起

田所 讓

2015年12月

大阪大学大学院工学研究科
精密科学・応用物理学専攻

目次

第 1 章 序論	1
1-1 テラヘルツ波とは	1
1-2 レーザー励起高強度テラヘルツ波光源の現状	2
1-3 高強度テラヘルツ波が誘起する非線形現象	3
1-4 本論文の目的	5
1-5 本論文の構成	5
参考文献	7
第 2 章 テラヘルツ時間領域分光法	11
2-1 はじめに	11
2-2 テラヘルツ時間領域分光法におけるテラヘルツ波の発生, 検出	11
2-2-1 光伝導アンテナによるテラヘルツ波の発生	11
2-2-2 光伝導サンプリングによるテラヘルツ波の検出	12
2-2-3 電気光学 (EO) サンプリングによるテラヘルツ波の検出	13
2-3 テラヘルツ時間領域分光システムとその解析手法	16
2-3-1 テラヘルツ時間領域分光法における光学系	16
2-3-2 テラヘルツ時間領域分光法における解析手法	17
2-4 テラヘルツ時間領域分光法を用いたイメージングシステム	19
2-5 まとめ	20
参考文献	21
第 3 章 LiNbO₃ 結晶を用いたテラヘルツ波の発生とその検出	23
3-1 はじめに	23
3-2 LiNbO ₃ 結晶によるテラヘルツ波発生の位相整合条件	23
3-3 ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器からのテラヘルツ波発生と検出	25
3-3-1 非同軸位相整合によるテラヘルツパラメトリック発振	25
3-3-2 ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器の構築	26
3-3-3 ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器における時間領域検出	28
3-3-4 テラヘルツ波パルスの分離の解消	30
3-3-5 時間領域検出と熱型検出器による検出の比較	32
3-3-6 スペクトルにおけるパラメトリック成分と光整流成分	33

3-4 パルス面傾斜法による高強度テラヘルツ波の発生と検出.....	34
3-4-1 パルス面傾斜法とは.....	34
3-4-2 パルス面傾斜法による高強度テラヘルツ波の発生とその検出.....	36
3-5 まとめ.....	39
参考文献.....	41
第4章 コレステリック液晶によるテラヘルツセンサーカード.....	43
4-1 はじめに.....	43
4-2 テラヘルツ照射によるコレステリック液晶の色変化.....	45
4-2-1 コレステリック液晶とは.....	45
4-2-2 コレステリック液晶を用いたセンサーカードの色変化の定量化.....	47
4-2-3 センサーカードによるテラヘルツ波ビームプロファイルの測定及びその評価.....	49
4-3 センサーカードの応答時間および検出閾値.....	53
4-3-1 色相によるセンサーカードの応答速度及び検出閾値の評価.....	53
4-3-2 センサーカードのテラヘルツ波吸収.....	54
4-3-3 センサーカードの応答時間の向上.....	55
4-4 センサーカードと他のイメージャーの比較.....	56
4-5 センサーカードのテラヘルツ波アライメントへの応用.....	57
4-6 まとめ.....	59
参考文献.....	61
第5章 高強度テラヘルツ波パルスで誘起するコヒーラー効果.....	65
5-1 はじめに.....	65
5-2 コヒーラーの構造とその動作.....	66
5-3 アルミニウム粒子集団におけるテラヘルツ誘起コヒーラー効果.....	67
5-3-1 直流抵抗の時間変化.....	67
5-3-2 テラヘルツ帯透過率不可逆減少.....	69
5-3-3 透過率減少の偏光依存性.....	71
5-3-4 透過率減少の閾値.....	72
5-4 有限要素法を用いた電磁波シミュレーション.....	73
5-4-1 可変抵抗器を用いた透過率の不可逆減少の理解.....	74
5-4-2 絶縁ギャップ部における電場増強.....	75

5-5 テラヘルツコヒーラーにおける粒子間伝導経路の形成機構	77
5-5-1 電子の衝突加熱を介した金属の移動	78
5-5-2 反復衝突電離によるアヴァランシェ崩壊	79
5-5-3 テラヘルツ波吸収による温度上昇による溶解	81
5-6 銅球集団におけるテラヘルツ誘起コヒーラー効果	83
5-6-1 透過率減少の面積分率依存性とパーコレーションによる伝導	83
5-6-2 銅球コヒーラーとアルミニウム粒子コヒーラーにおける閾値の違い	86
5-7 テラヘルツコヒーラーの素子応用の可能性	87
5-8 テラヘルツ波誘起コヒーラーの意義	88
5-9 まとめ	89
参考文献	91
第 6 章 総括	93
謝辞	97
研究業績	99

第1章 序論

1-1 テラヘルツ波とは

周波数が 0.1-10 THz の電磁波はテラヘルツ波と呼ばれる。図 1.1 に示すように、この周波数領域は電波と光波の中間領域に位置し、テラヘルツ波は電波の物質を透過する特性と、光波の指向性、取り回しやすさを併せ持つ電磁波である。図 1.1 に示すように、気体分子における回転[1,2]、生体分子における分子間相互作用[3]、半導体におけるフォノン[4,5]等の様々なエネルギー遷移がテラヘルツ領域に存在し、テラヘルツ波は物性研究において重要な役割を担っている。また、この周波数領域は優れた透過性を活かしたイメージング・非破壊検査[6-11]、近距離高速無線通信[12-14]等の産業応用も期待されている。しかしながら、扱いやすい高出力光源、高感度検出器が無く、電波や光波に比べて開発が遅れていたことから、電磁波の未開拓領域と呼ばれてきた。

レーザー技術の発展に伴って、テラヘルツ領域における研究開発も盛んに行われるようになってきている。テラヘルツ波の発生においては、1980 年代に Auston らが超短パルスレーザーを用いて光伝導アンテナからのテラヘルツ波放射[15]、Cherenkov 型の光整流によるテラヘルツ波放射[16,17]を報告してから、超短パルスレーザーを用いたテラヘルツ波発生[18-21]が広く報告されるようになった。発生したテラヘルツ波は光伝導サンプリング[22,23]や電気光学 (EO) サンプリング[23,24]を用いて常温、高信号雑音比で検出でき、1990 年代初頭にこれらの発生・検出を用いたテラヘルツ時間領域分光法が確立された[25-27]。テラ

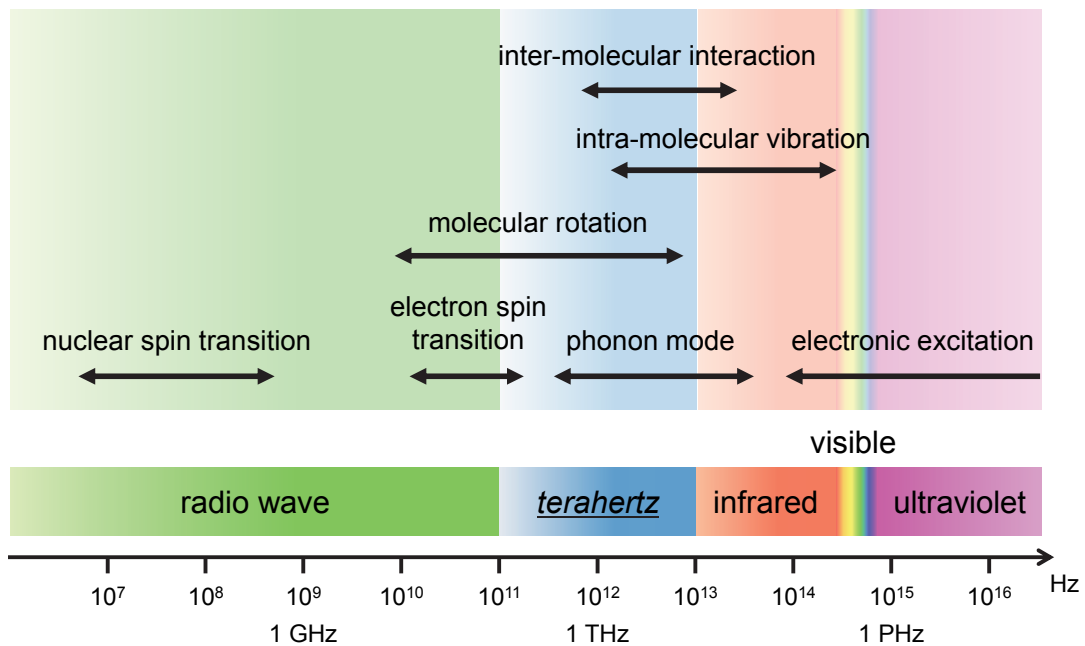


図 1.1 電磁波の周波数による分類及び分子、結晶等の振動エネルギーの分布[28].

ヘルツ時間領域分光法では、テラヘルツ波の電場波形を測定することで振幅と位相の情報を得ることができるため、Kramers-Kronig 変換[29]を用いずに試料の複素屈折率を求めることができる[30]。この特徴を活かして、テラヘルツ時間領域分光法は分光、物性評価、イメージング等の様々な場面で用いられる。

1-2 レーザー励起高強度テラヘルツ波光源の現状

前述のテラヘルツ波光源に加えて、近年はレーザー励起高強度テラヘルツ波光源の開発が盛んである。レーザー励起高強度テラヘルツ光源は、狭線幅単色光源と広帯域光源の大きく2つに分けられる。

狭線幅単色テラヘルツ波光源では、高出力ナノ秒 Nd:YAG レーザーや Nd:YVO₄ レーザー等が励起レーザーとして用いられ[31-33]、GaP, GaSe, LiNbO₃ (LN) 等の非線形結晶を用いた差周波混合[31,34]、パラメトリック発生／発振[32,33,35]、Cherenkov 型差周波混合[36,37]等が主流である。これらの狭線幅光源はテラヘルツ領域で広い周波数可変性を有しており、イメージング、分光等の場面で利用される[38]。

一方、広帯域テラヘルツ波光源では、フェムト秒再生増幅型 Ti:sapphire レーザーが励起レーザーとして用いられる。再生増幅型 Ti:sapphire レーザーでは、チャープパルス増幅[39,40]を用いて、テラワット級のピークパワーを有する光パルスが得られる。チャープパルス増幅の技術は1990年代に確立され、この確立によって従来までの Ti:sapphire オシレーター励起では得られなかった高強度のテラヘルツ波の発生が可能になっている。大口径光伝導アンテナ[41,42]、レーザー誘起プラズマ[43-45]、無機非線形結晶[46-50]、有機非線形結晶[51,52]等からの高強度テラヘルツ波が報告されている。これらの光源では狭線幅光源に対して、広帯域なスペクトルを有する高強度テラヘルツ波パルスが得られ、そのピーク電場強度は数十 kV/cm～数十 MV/cm に達する。特に、無機非線形結晶である LN 結晶は高い非線形性、損傷閾値を有しているため、高効率波長変換が可能である。また、LN 結晶を用いたパルス面傾斜法は、高強度、高電場テラヘルツ波パルスの発生が可能であることから、広く用いられている。パルス面傾斜法は Hebling らによって提唱、実証され[49,53]、現在までにパルス面傾斜法を用いて、Hirori らは 1 MV/cm を超える電場強度を有するシングルサイクルテラヘルツ波の発生[50]を、Fülöp らは最大 125 μJ のパルスエネルギーを有するテラヘルツ波の発生[54]を、Huang らは最大 3.8%の近赤外光／テラヘルツ波変換効率[55]をそれぞれ達成している。また、シリンドリカルレンズ等の結像素子を排除した回折格子結合型 LN 結晶を用いたパルス面傾斜法も提案されている[56]。この方法では、LN 結晶表面に回折格子を作製する必要があるといった難しさはあるものの、シリンドリカルレンズ等で生じる収差の影響を排除でき、最も高効率にテラヘルツ波を発生できる手法として期待されている[56,57]。パルス面傾斜法による高強度テラヘルツ波発生は、高効率に高強度かつ高電場を有するテラヘルツ波パルスが得られるため、テラヘルツポンプーテラヘルツプローブ分光等の超高速分光[58-60]、非線形現象の誘起[61-65]といった場面で利用される。

1-3 高強度テラヘルツ波が誘起する非線形現象

レーザー励起高強度テラヘルツ波光源が開発されるようになってから、非線形現象を誘

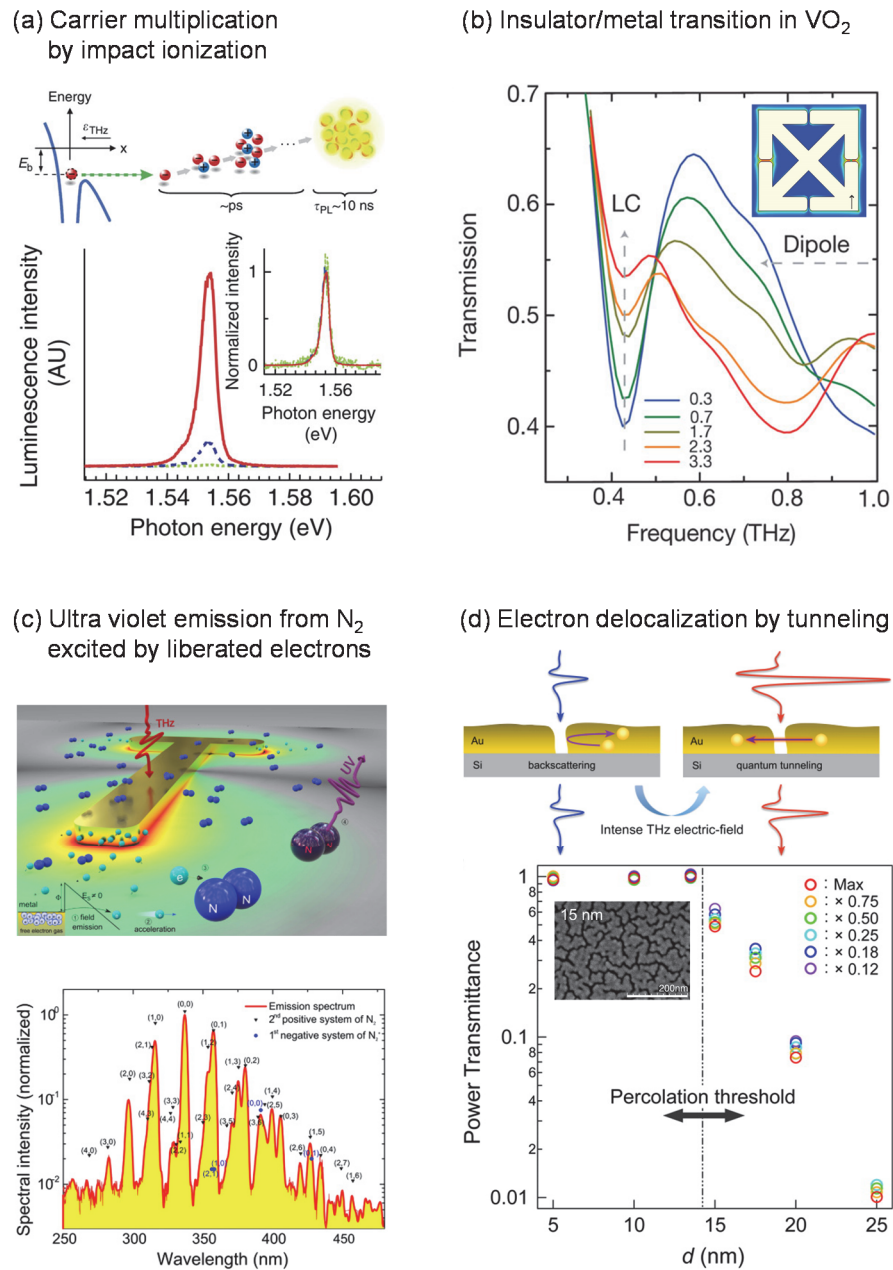


図 1.2 テラヘルツ誘起非線形現象のまとめ. (a) GaAs 多重量子井戸における衝突電離によるキャリア増幅[61]. (b) VO_2 における Poole-Frenkel 放出電子によるジュール加熱を介した金属/絶縁体転移[63]. (c) 電界放出電子励起の窒素分子からの紫外光発生[64]. (d) パーコレート金薄膜における電子トンネリングによる電気伝導[65].

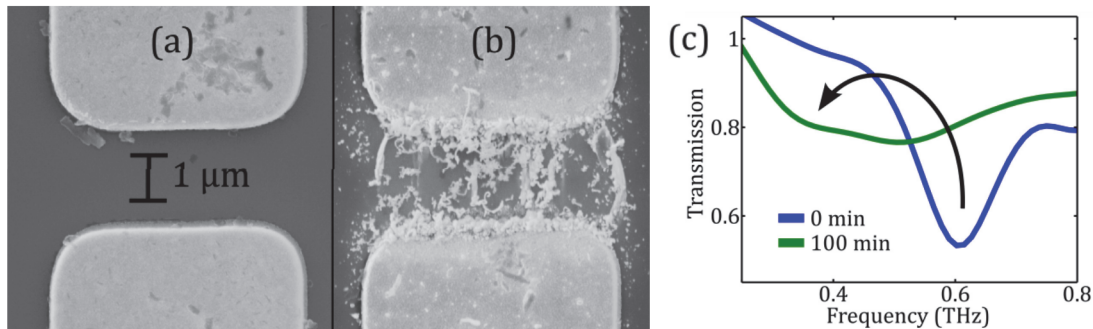


図 1.3 テラヘルツ波誘起不可逆構造変化. テラヘルツ波 (a) 照射前, (b) 照射後のアンテナ間ギャップ. (c) 不可逆構造変化に起因したダイポールアンテナの共振周波数の変化[66].

起できるテラヘルツ波光源がテーブルトップサイズで得られるようになってきた. この結果, 現在までに高強度テラヘルツ波パルスを用いて様々な非線形現象の誘起が報告されている[58-65]. テラヘルツ波誘起非線形現象の多くは, 半導体および絶縁体における非線形伝導変化である. 図 1.2 に報告されている代表的なテラヘルツ波誘起の非線形現象をまとめた. Hirori らは GaAs 多重量子井戸に高強度テラヘルツ波パルスを照射した際, GaAs からの発光を観測している (図 1.2(a)[61]). テラヘルツ光子のエネルギーは GaAs のバンドギャップエネルギーよりも十分小さく電子を直接励起できないが, 高電場を有するテラヘルツ波パルスによって加速された電子が衝突電離を引き起こすことで電子が励起, 増幅されている. Liu らはメタマテリアルによる電場増強を介した VO₂ における金属/絶縁体転移を報告している (図 1.2(b)[63]). この報告では, メタマテリアルのギャップ部での金属/絶縁体転移によって, メタマテリアルの LC 共鳴の消失が観測されている. Iwaszczuk らは, テラヘルツ波誘起の電界放出によって放出された電子が加速され, 窒素分子に衝突し励起することで, 窒素分子からの紫外光発光を観測している (図 1.2(c)[64]). Yoshioka らはパーコレート金薄膜において, テラヘルツ波誘起の電子トンネリングによって金薄膜の電気伝導が変化し, 透過率が減少することを報告している (図 1.2(d)[65]).

上述の非線形現象に加えて, 近年報告されているのがテラヘルツ波誘起非線形現象を介した不可逆構造変化である. 図 1.3(b)に示すように, Strikwerda らはダイポールアンテナ間の絶縁ギャップ部において, アンテナ金属が移動することでアンテナ同士が接続することを報告している[66]. この不可逆構造変化は, 図 1.2(c)で報告されているテラヘルツ波誘起の電界放出が発端となる. 片方のアンテナから放出された電子は, アンテナ間の増強電場によって加速されもう片方のアンテナを衝突加熱し, アンテナ金属を移動させる.

上述した非線形現象および不可逆構造変化は, LN 結晶からの高強度テラヘルツ波パルスを用いて誘起されている. また, 近年のテラヘルツ波誘起の非線形現象の報告は目覚しく, 現在もテラヘルツ誘起の Fowler-Nordheim 電流の計測等の論文が投稿されている[67,68].

1-4 本論文の目的

前述したように、LN 結晶による高強度テラヘルツ波光源はイメージング、超高速分光、非線形現象の誘起等様々な応用が期待できる。この光源を評価するための最適な検出器、イメージャーが必要となるが、イメージャーにおいてはテラヘルツカメラ[69,70]、焦電型アレイ[71]等の高価なものが多く、アライメント等で簡便に使えるものが無い。高強度テラヘルツ波を用いた応用を加速させるためにも、アライメント等で使用できるセンサーカードのような簡便なイメージャーが求められており、このようなイメージャーの開発が必要不可欠であるといえる。

また、高強度テラヘルツ波の非線形現象への応用においても、テラヘルツ波誘起不可逆構造変化は、テラヘルツ波による局所加工、テラヘルツ波誘起の電磁波応答の不可逆変化等の新たな可能性を秘めている。従って、テラヘルツ波が誘起する新規不可逆伝導変化現象を実証し、その伝導変化機構を理解することが重要となる。また、不可逆変化を用いた素子の例として、電気回路に大電流が流れないように保護するためのヒューズがある。テラヘルツ領域では、偏光子、フィルタ、吸収体等のデバイスや素子がメタマテリアルに代表される金属微細構造によって構成されることが多い[72-77]。高強度テラヘルツ波がこれらの素子に入射し不可逆的な損傷を与えてしまうと、素子は本来の機能を失ってしまう。テラヘルツ領域において不可逆構造変化を利用したヒューズは、これらのデバイスや素子を損傷から保護するという犠牲的な役割を果たすことができる。

以上を踏まえて、本論文では高強度テラヘルツ波応用のさらなる加速を目指して、簡便なイメージャー開発等のテラヘルツ波検出法の改善に加えて、テラヘルツ波誘起不可逆構造変化の実証および新たな犠牲的な役割を果たす素子の提案を行う。3章ではLN結晶を用いたテラヘルツパラメトリック光源に対する検出法の改善およびパルス面傾斜法の概説を行う。4章では高強度テラヘルツ波に対する簡便なイメージャーとして、コレステリック液晶を用いたセンサーカードを開発する。5章では、コヒーラーにおける高強度テラヘルツ波パルス誘起の不可逆伝導変化を実証し、コヒーラーの動作機構を議論する。最後に犠牲的な役割を果たす素子としての応用を提案する。

1-5 本論文の構成

以下に本論文の構成を述べる。

第1章 序論

テラヘルツ波、高強度テラヘルツ波が誘起する非線形現象等について概説し、非線形現象を介した不可逆構造変化について述べる。その後、上記現状を踏まえた上で、本研究の目的について述べ、本論文の構成を紹介する。

第2章 テラヘルツ時間領域分光法

本研究における基礎技術であるテラヘルツ時間領域分光法について概説する。光伝導サンプリング，電気光学（EO）サンプリングの2種類の検出法を紹介し，それぞれの検出原理について触れる。その後，テラヘルツ時間領域分光法における複素屈折率，透過率，反射率，吸収率等の導出法および解析手法を概説し，最後に，テラヘルツイメージングシステムを紹介する。

第3章 LiNbO₃結晶を用いたテラヘルツ波の発生とその検出

LN結晶を用いたテラヘルツ波の発生における位相整合について述べ，LN結晶を用いた発生法であるパラメトリック発生／発振，パルス面傾斜法について概説する。また，熱型検出が主流であったパラメトリック光源において，ピコ秒パラメトリック発振器を開発することで時間領域検出の導入を可能にし，時間領域検出による光源の評価を行う。また，非線形現象の誘起を可能にする光源として，パルス面傾斜法を用いた高強度テラヘルツ波光源を構築し，その評価を行う。

第4章 コレステリック液晶によるテラヘルツセンサーカード

3章で開発した高強度テラヘルツ波光源に対する簡便なイメージャーとして，コレステリック液晶を用いたセンサーカードを開発する。コレステリック液晶の温度によって色が変わる性質について概説した後，センサーカードによって簡便にビームプロファイルが得られることを報告する。また，センサーカードの評価として色相を導入し，色相を用いて，センサーカードの応答時間，検出限界等の性能を評価する。最後に，センサーカードの応用としてEOサンプリングにおけるアライメントを例に挙げる。

第5章 高強度テラヘルツ波パルスで誘起するコヒーラー効果

高強度テラヘルツ波パルスで誘起する新規不可逆伝導変化現象として，金属粒子集団におけるコヒーラー効果を実証する。コヒーラーがシングルショットのテラヘルツ波パルスで動作すること，偏光に依存した透過率の不可逆減少が得られること，数十kV/cmの閾値が存在することを明らかにする。また，コヒーラーの粒子間ギャップでの電場増強に言及し，伝導経路の形成機構について議論する。最後に，テラヘルツ領域で動作するコヒーラーの応用として，ヒューズのようなテラヘルツ領域で犠牲的な役割を果たす保護素子を提案する。

第6章 総括

本論文を総括し，今後の展望を述べる。

参考文献

- [1] D. M. Mittleman, R. H. Jacobsen, R. Neelamani, R. G. Baraniuk, and M. C. Nuss, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 379 (1998).
- [2] I. R. Medvedev, M. Behnke, and F. C. De Lucia, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 154105 (2005).
- [3] N. Nagai, R. Kumazawa, and R. Fukasawa, *Chem. Phys. Lett.* **413**, 495 (2005).
- [4] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, 1985).
- [5] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids II* (Academic Press, 1991).
- [6] D. M. Mittleman, R. H. Jacobsen, and M. C. Nuss, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **2**, 679 (1996).
- [7] B. B. Hu and M. C. Nuss, *Opt. Lett.* **20**, 1716 (1995).
- [8] K. Kawase, H. Hoshina, A. Iwasaki, Y. Sasaki, and T. Shibuya, *Electron. Lett.* **46**, S66 (2010).
- [9] J. F. Federici, B. Schulkin, F. Huang, D. Gary, R. Barat, F. Oliveira, and D. Zimdars, *Semicond. Sci. Technol.* **20**, S266 (2005).
- [10] B. Ferguson and X.-C. Zhang, *Nat. Mater.* **1**, 26 (2002).
- [11] T. S. Hartwick, D. T. Hodges, D. H. Barker, and F. B. Foote, *Appl. Opt.* **15**, 1919 (1976).
- [12] J. Federici and L. Moeller, *J. Appl. Phys.* **107**, 111101 (2010).
- [13] T. Kleine-Ostmann and T. Nagatsuma, *J. Infrared, Millimeter, Terahertz Waves* **32**, 143 (2011).
- [14] M. J. Fitch and R. Osiander, *Johns Hopkins APL Tech. Dig.* **25**, 348 (2004).
- [15] D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith, *Appl. Phys. Lett.* **45**, 284 (1984).
- [16] D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis, and D. A. Kleinman, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 1555 (1984).
- [17] D. H. Auston, *Appl. Phys. Lett.* **43**, 713 (1983).
- [18] A. Nahata, A. S. Weling, and T. F. Heinz, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2321 (1996).
- [19] A. Rice, Y. Jin, X. F. Ma, X.-C. Zhang, D. Bliss, J. Larkin, and M. Alexander, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1324 (1994).
- [20] X.-C. Zhang, B. B. Hu, J. T. Darrow, and D. H. Auston, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 1011 (1990).
- [21] K. Liu, J. Xu, T. Yuan, and X. C. Zhang, *Phys. Rev. B* **73**, 1 (2006).
- [22] M. van Exter, C. Fattinger, and D. Grischkowsky, *Appl. Phys. Lett.* **55**, 337 (1989).
- [23] P. U. Jepsen, D. G. Cooke, and M. Koch, *Laser Photon. Rev.* **5**, 124 (2011).
- [24] Q. Wu and X.-C. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1285 (1997).
- [25] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. Van Exter, and C. Fattinger, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 2006 (1990).
- [26] D. H. Auston and K. P. Cheung, *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 606 (1985).
- [27] M. van Exter, C. Fattinger, and D. Grischkowsky, *Opt. Lett.* **14**, 1128 (1989).
- [28] 伊藤弘昌, *電子情報通信学会誌* **89**, 450 (2006).
- [29] H. Fujiwara, *Spectroscopic ellipsometry: principles and applications* (John Wiley & Sons, 2007).

- [30] M. Hangyo, M. Tani, and T. Nagashima, *Int. J. Infrared Millimeter Waves* **26**, 1661 (2005).
- [31] T. Taniuchi and H. Nakanishi, *J. Appl. Phys.* **95**, 7588 (2004).
- [32] D. Molter, M. Theuer, and R. Beigang, *Opt. Express* **17**, 6623 (2009).
- [33] K. Suizu and K. Kawase, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **14**, 295 (2008).
- [34] W. Shi, Y. J. Ding, N. Fernelius, and K. Vodopyanov, *Opt. Lett.* **27**, 1454 (2002).
- [35] K. Kawase, J. Shikata, and H. Ito, *J. Phys. D. Appl. Phys.* **35**, R1 (2001).
- [36] T. Shibuya, T. Tsutsui, K. Suizu, T. Akiba, and K. Kawase, *Appl. Phys. Express* **2**, 032302 (2009).
- [37] K. Suizu, K. Koketsu, T. Shibuya, T. Tsutsui, T. Akiba, and K. Kawase, *Opt. Express* **17**, 6676 (2009).
- [38] K. Kawase, Y. Ogawa, Y. Watanabe, and H. Inoue, *Opt. Express* **11**, 2549 (2003).
- [39] D. Strickland and G. Mourou, *Opt. Commun.* **55**, 447 (1985).
- [40] M. D. Perry and G. Mourou, *Science* **264**, 917 (1994).
- [41] E. Budiarto, J. Margolies, S. Jeong, J. Son, and J. Bokor, *IEEE J. Quantum Electron.* **32**, 1839 (1996).
- [42] D. You, R. R. Jones, P. H. Bucksbaum, and D. R. Dykaar, *Opt. Lett.* **18**, 290 (1993).
- [43] D. J. Cook and R. M. Hochstrasser, *Opt. Lett.* **25**, 1210 (2000).
- [44] M. D. Thomson, M. Kreß, T. Löffler, and H. G. Roskos, *Laser Photonics Rev.* **1**, 349 (2007).
- [45] T. I. Oh, Y. J. Yoo, Y. S. You, and K. Y. Kim, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 041103 (2014).
- [46] F. Blanchard, L. Razzari, H. C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J. C. Kieffer, T. Ozaki, M. Reid, H. F. Tiedje, H. K. Haugen, and F. A. Hegmann, *Opt. Express* **15**, 13212 (2007).
- [47] A. Sell, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Opt. Lett.* **33**, 2767 (2008).
- [48] F. Junginger, A. Sell, O. Schubert, B. Mayer, D. Brida, M. Marangoni, G. Cerullo, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Opt. Lett.* **35**, 2645 (2010).
- [49] J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K. A. Nelson, *J. Opt. Soc. Am. B* **25**, B6 (2008).
- [50] H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 091106 (2011).
- [51] A. Schneider, M. Neis, M. Stillhart, B. Ruiz, R. U. A. Khan, and P. Günter, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**, 1822 (2006).
- [52] C. Vicario, B. Monoszlai, and C. P. Hauri, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 213901 (2014).
- [53] J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, *Opt. Express* **10**, 1161 (2002).
- [54] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, S. Klingebiel, G. Almási, F. Krausz, S. Karsch, and J. Hebling, *Opt. Lett.* **37**, 557 (2012).
- [55] S.-W. Huang, E. Granados, W. R. Huang, K.-H. Hong, L. E. Zapata, and F. X. Kärtner, *Opt. Lett.* **38**, 796 (2013).
- [56] L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Almási, and J. Hebling, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 171107 (2008).
- [57] M. Kunitski, M. Richter, M. D. Thomson, A. Vredenburg, J. Wu, T. Jahnke, M. Schöffler, H. Schmidt-Böcking, H. G. Roskos, and R. Dörner, *Opt. Express* **21**, 6826 (2013).

- [58] Y. Mukai, H. Hirori, and K. Tanaka, *Phys. Rev. B* **87**, 201202 (2013).
- [59] J. Hebling, M. C. Hoffmann, H. Y. Hwang, K.-L. Yeh, and K. A. Nelson, *Phys. Rev. B* **81**, 035201 (2010).
- [60] M. C. Hoffmann, J. Hebling, H. Y. Hwang, K. Lo Yeh, and K. A. Nelson, *Phys. Rev. B* **79**, 161201 (2009).
- [61] H. Hirori, K. Shinokita, M. Shirai, S. Tani, Y. Kadoya, and K. Tanaka, *Nat. Commun.* **2**, 594 (2011).
- [62] K. Fan, H. Y. Hwang, M. Liu, A. C. Strikwerda, A. Sternbach, J. Zhang, X. Zhao, X. Zhang, K. A. Nelson, and R. D. Averitt, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 217404 (2013).
- [63] 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, *Nature* **487**, 345 (2012).
- [64] K. Iwaszczuk, M. Zalkovskij, A. C. Strikwerda, and P. U. Jepsen, *Optica* **2**, 116 (2015).
- [65] K. Yoshioka, Y. Minami, K. Shudo, T. D. Dao, T. Nagao, M. Kitajima, J. Takeda, and I. Katayama, *Nano Lett.* **15**, 1036 (2015).
- [66] A. C. Strikwerda, M. Zalkovskij, K. Iwaszczuk, D. L. Lorenzen, and P. U. Jepsen, *Opt. Express* **23**, 11586 (2015).
- [67] J. Zhang, X. Zhao, K. Fan, X. Wang, G.-F. Zhang, K. Geng, X. Zhang, and R. D. Averitt, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 231101 (2015).
- [68] N. C. Brandt, *Developments and Advances in Nonlinear Terahertz Spectroscopy* (Diss. Massachusetts Institute of Technology, 2014).
- [69] NEC, “THz Imager,” <http://www.nec.com/en/global/prod/terahertz/>.
- [70] INO, “IRXCAM-384 THz Terahertz Camera Module,” <http://www.ino.ca/en/products/irxcam-384thz-terahertz-camera-module/>.
- [71] Ophir Photonics, “Pyroelectric Array Camera,” <http://www.ophiropt.com/laser-measurement-instruments/beam-profilers/products/industrialapplications/the-cameras/pyrocam>.
- [72] A. E. Costley, K. H. Hursey, G. F. Neill, and J. M. Ward, *J. Opt. Soc. Am.* **67**, 979 (1977).
- [73] I. Yamada, K. Takano, M. Hangyo, M. Saito, and W. Watanabe, *Opt. Lett.* **34**, 274 (2009).
- [74] P. A. R. Ade, G. Pisano, C. Tucker, and S. Weaver, *Proc. SPIE* **6275**, 62750U (2006).
- [75] R. Ulrich, *Infrared Phys.* **7**, 37 (1967).
- [76] H. Tao, N. I. Landy, C. M. Bingham, X. Zhang, R. D. Averitt, and W. J. Padilla, *Opt. Express* **16**, 7181 (2008).
- [77] N. I. Landy, C. M. Bingham, T. Tyler, N. Jokerst, D. R. Smith, and W. J. Padilla, *Phys. Rev. B* **79**, 1 (2009).

第2章 テラヘルツ時間領域分光法

2-1 はじめに

テラヘルツ時間領域分光法 (THz-TDS: Terahertz time-domain spectroscopy) はテラヘルツ領域における特徴的な分光法として知られている。この分光法では、試料を挿入したときと、挿入していないときのテラヘルツ波の時間波形 (電場波形とも呼ばれる) を測定することで、試料の透過率、複素屈折率等を得る[1,2]。時間波形をフーリエ変換することで、試料挿入によって生じた、振幅、位相の変化を求めることができるため、煩雑な Kramers-Kronig 変換[3]を用いずに複素屈折率が測定可能である。また、テラヘルツ時間領域分光法で用いられる検出システムはコヒーレントな検出であり、焦電検出器、ゴーレイセル等の熱型検出器と比べて高信号雑音比を実現できる。このような背景から、テラヘルツ時間領域分光法はテラヘルツ領域において広く用いられており、物性評価、イメージング等の様々な場面で利用されている[1,2,4-10]。

本章では本研究で用いる光伝導サンプリング、EO サンプリング等の検出の原理を述べ、テラヘルツ時間領域分光システムの概要および解析手法について述べる。

2-2 テラヘルツ時間領域分光法におけるテラヘルツ波の発生, 検出

2-2-1 光伝導アンテナによるテラヘルツ波の発生

テラヘルツ時間領域分光法で用いられるテラヘルツ波の発生素子には光伝導アンテナ [11,12], 非線形光学結晶[13-15], 半導体表面[16,17]等が用いられる。中でも、光伝導アンテナは最も汎用的に用いられており、Auston らが初めてテラヘルツ波放射を観測したため [11,12], Auston スイッチとも呼ばれる。光伝導アンテナでは、低温成長 GaAs (LT-GaAs: Low-temperature grown GaAs) 基板上にアンテナ電極が作製されている。本研究で用いた 2

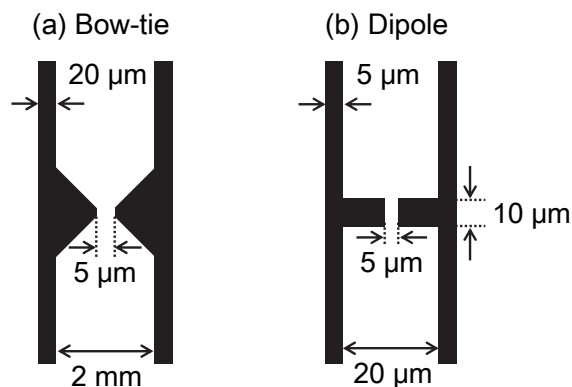


図 2.1 (a) ボウタイ型光伝導アンテナ. (b) ダイポール型光伝導アンテナ. 黒塗り部分はアンテナの電極を示す.

種類の光伝導アンテナの電極形状を図 2.1 に示す. アンテナ間のギャップ部にフェムト秒レーザーパルスを照射すると, LT-GaAs 基板上に電子と正孔の自由キャリアが生成される. このとき GaAs のバンドギャップエネルギーは約 1.4 eV であるため[18], バンドギャップ以上の光子エネルギーを有するレーザーパルスでキャリアを励起する. 電極間に適当なバイアス電圧を印加しておく, 生成されたキャリアによってアンテナ間が開閉, アンテナに過渡電流が流れる. 過渡電流に由来する電磁波放射は, 遠方では電流の時間微分に比例する. そのため, 遠方での電場を $E_{\text{THz}}(t)$, 過渡電流を $I_e(t)$ とすると, $E_{\text{THz}}(t)$ は,

$$E_{\text{THz}}(t) \propto \frac{dI_e(t)}{dt} \quad (2-1)$$

となる[2]. サブピコ秒～ピコ秒の過渡電流が流れるとき, この電流による電磁波放射はテラヘルツ領域に相当する. 光伝導アンテナからのテラヘルツ波放射のスペクトルは照射レーザーのパルス幅, アンテナ形状, 基板材料のキャリアの緩和時間等によって決まる. 通常は, 用途に応じて図 2.1 に示す 2 種類のアンテナが用いられる. 2 種類のアンテナの大きな違いはその共振周波数にある. 図 2.1(a)に示すボウタイ型アンテナは, (b)に示すダイポール型アンテナよりも共振周波数が低周波数にあるため, ダイポール型より低周波での放射強度が強くなるが, 高周波での放射強度は弱くなる. そのため, 分光時に必要とする周波数によってボウタイ型とダイポール型のアンテナを使い分けるのが良い.

2-2-2 光伝導サンプリングによるテラヘルツ波の検出

テラヘルツ波の発生に用いられる光伝導アンテナは, テラヘルツ波の検出にも用いられる. 検出ではアンテナ電極にバイアス電圧を印加する代わりに, 電極間に流れる電流を計測する. アンテナのギャップ部にレーザーパルス照射すると同時に, テラヘルツ波パルスが入射すると, 生成したキャリアがテラヘルツ波電場によって加速され, アンテナ間に電流が流れる. アンテナ間を流れる電流 $I_d(t)$ は,

$$I_d(t) = e\mu_e \int_{-\infty}^{\infty} E_{\text{THz}}(\tau) N(\tau - t) d\tau \quad (2-2)$$

のように畳み込み積分の形で表される[19]. ここで, e は電荷, μ_e は電子の移動度, $N(t)$ は生成キャリア数を表す. また, 生成キャリア数 $N(t)$ は次式で表される[20].

$$N(t) \propto \exp\left(-\frac{t}{\tau_c}\right) \left[\tanh\left(\frac{1.76t}{\Delta t}\right) \right] \quad (2-3)$$

ここで, τ_c は LT-GaAs 基板のキャリア寿命 (約 0.5 ps), Δt はプローブ光のパルス幅である. (2-2)式をフーリエ変換すると,

$$I_d(\omega) = e\mu_e E_{\text{THz}}(\omega) N(\omega) \propto E_{\text{THz}}(\omega) N(\omega) \quad (2-4)$$

が得られる. (2-4)式から, 電流のフーリエ変換スペクトルは, テラヘルツ波と生成キャリア数のフーリエ変換スペクトルの掛け合わせとなる. 従って, 光伝導サンプリングで検出される電流のスペクトルは, テラヘルツ波スペクトルだけでなく, 生成キャリア数の周波

数応答 $N(\omega)$ にも依存する。 $N(\omega)$ は(2-3)式にあるように、プローブ光のパルス幅に大きく依存し、そのパルス幅が短ければ短いほどより広帯域な検出が可能となる。

以上から、光伝導サンプリングでは、アンテナ間に流れる電流を計測することで、テラヘルツ波を検出する。また検出される電流は、テラヘルツ波電場 $E_{\text{THz}}(t)$ と LT-GaAs における生成キャリア $N(t)$ の畳み込み積分で表されるため、フーリエ変換によって得られるスペクトルは生成キャリアの周波数応答に依存する。

2-2-3 電気光学(EO)サンプリングによるテラヘルツ波の検出

テラヘルツ時間領域分光法では光伝導サンプリングの他に EO 結晶を用いた EO サンプリングが用いられる。EO サンプリングは EO 結晶における 2 次の非線形光学効果の一つである Pockels 効果[21]を利用してテラヘルツ波を検出する手法である。以下に、EO サンプリングの原理を述べる。

一般に、結晶の屈折率異方性を表す屈折率楕円体は次式で表される[22]。

$$\frac{x^2}{n_x^2} + \frac{y^2}{n_y^2} + \frac{z^2}{n_z^2} = 1 \quad (2-5)$$

n_x , n_y , n_z は x , y , z 軸方向の EO 結晶の屈折率である。閃亜鉛鉱構造の EO 結晶では、 $n_x = n_y = n_z = n_0$ であるため、(2-5)式は、

$$\frac{x^2 + y^2 + z^2}{n_0^2} = 1 \quad (2-6)$$

と書き換えられる。テラヘルツ波電場が結晶に印加されると、(2-6)式は

$$\frac{x^2 + y^2 + z^2}{n_0^2} + 2r_{41}(E_x yz + E_y zx + E_z xy) = 1 \quad (2-7)$$

となる[23]。ここで、 E_x , E_y , E_z は各軸方向の電場成分であり、 r_{41} は EO 係数である。テラヘルツ波電場 E_{THz} が $[\bar{1}10]$ に平行に入射すると、 $(E_x, E_y, E_z) = (-E_{\text{THz}}/\sqrt{2}, E_{\text{THz}}/\sqrt{2}, 0)$ となるので、(2-7)式は

$$\frac{x^2 + y^2 + z^2}{n_0^2} + \sqrt{2}r_{41}E_{\text{THz}}(-yz + zx) = 1 \quad (2-8)$$

となる。ここで、新たに $[110]$ 方向に x' 軸、 $[\bar{1}11]$ 方向に y' 軸、 $[1\bar{1}1]$ 方向に z' 軸を取ると、

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} & -\frac{1}{2} & \frac{1}{2} \\ \frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{2} & -\frac{1}{2} \\ 0 & \frac{1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{\sqrt{2}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x' \\ y' \\ z' \end{pmatrix} \quad (2-9)$$

と座標を変換でき、(2-8)式は

$$\frac{x'^2}{n_x'^2} + \frac{y'^2}{n_y'^2} + \frac{z'^2}{n_z'^2} = 1 \quad (2-10)$$

となる。

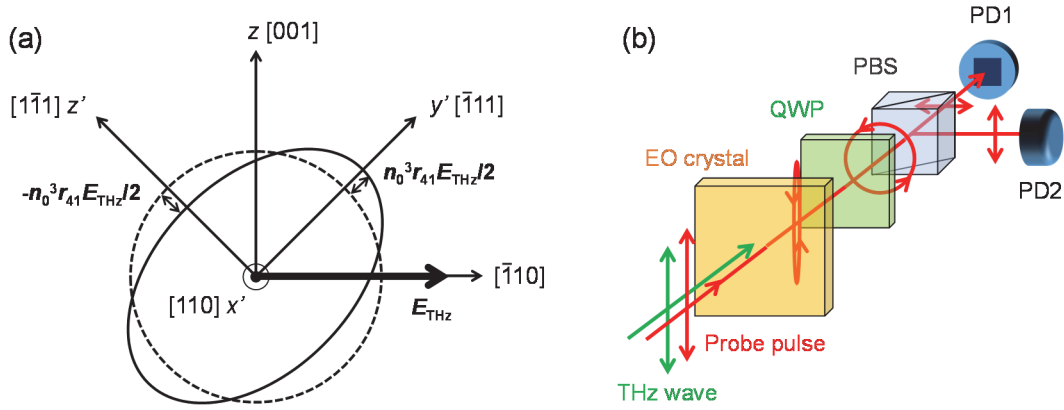


図 2.2 (a) Pockels 効果によって生じる屈折率の異方性. (b) EO サンプリングで用いる光学配置. QWP: Quarter-wave plate, PBS: Polarization beam splitter, PD: Photodetector.

ただし, n'_x , n'_y , n'_z はそれぞれ

$$\begin{aligned}\frac{1}{n_x'^2} &= \frac{1}{n_0^2} \\ \frac{1}{n_y'^2} &= \frac{1}{n_0^2} - r_{41} E_{\text{THz}} \\ \frac{1}{n_z'^2} &= \frac{1}{n_0^2} + r_{41} E_{\text{THz}}\end{aligned}\quad (2-11)$$

である. 屈折率変化が非常に小さいとして近似を用いると, (2-11)式から

$$\begin{aligned}n_x' &= n_0 \\ n_y' &= n_0 \sqrt{\frac{1}{1 - n_0^2 r_{41} E_{\text{THz}}}} \approx n_0 + \frac{1}{2} n_0^3 r_{41} E_{\text{THz}} \\ n_z' &= n_0 \sqrt{\frac{1}{1 + n_0^2 r_{41} E_{\text{THz}}}} \approx n_0 - \frac{1}{2} n_0^3 r_{41} E_{\text{THz}}\end{aligned}\quad (2-12)$$

が導かれる. 図 2.2(a)に Pockels 効果によって生じる屈折率の異方性を示す. 複屈折によって生じる屈折率差 Δn は

$$\Delta n = n_y' - n_z' = n_0^3 r_{41} E_{\text{THz}} \quad (2-13)$$

となる. よって, 波長 λ_0 のレーザーパルスが, 厚さ d の EO 結晶を通過するとき生じる位相差 $\Delta\Gamma$ は

$$\Delta\Gamma = k_0 \Delta n d = \frac{2\pi}{\lambda_0} n_0^3 r_{41} E_{\text{THz}} d \quad (2-14)$$

となる. ただし, k_0 はレーザーパルスの波数である.

(2-14)式から、位相差 $\Delta\Gamma$ はテラヘルツ波電場 E_{THz} に比例することが分かる。実際の測定では、図 2.2(b)に示す光学配置を用いて位相差を測定する。EO 結晶に入射したプローブ光の偏光は、テラヘルツ波電場によって誘起される Pockels 効果によって、直線偏光から楕円偏光へと変化する。偏光の変化は非常に小さく、直線偏光に近い楕円偏光に変化する。四分の一波長板を通過させ、直線偏光に近い楕円偏光から円偏光に近い楕円偏光へと変化させる。偏光ビームスプリッターを用いて p 偏光と s 偏光に分け、2つの光検出器の強度の差分を検出する。2つの光検出器 PD1, PD2 に入射する光強度を I_1, I_2 とすると、 $\Delta\Gamma$ は I_1, I_2 を用いて

$$\Delta\Gamma = \sin^{-1} \left(\frac{I_1 - I_2}{I_1 + I_2} \right) \approx \frac{I_1 - I_2}{I_1 + I_2} \quad (2-15)$$

となる[24]。 (2-14), (2-15)式から、

$$E_{\text{THz}} = \frac{\lambda_0}{2\pi n_0^3 r_{41} d} \frac{I_1 - I_2}{I_1 + I_2} \quad (2-16)$$

が導かれる。テラヘルツ波が EO 結晶に入射すると、入射面でのフレネル反射による損失によって、測定される電場強度は実際の電場強度より小さくなる。そこで、フレネル反射による損失を考慮した以下の式が用いられる[20]。

$$E_{\text{THz}} = \frac{1 + n_{\text{THz}}}{2 \cos^2 \alpha} \frac{\lambda_0}{2\pi n_0^3 r_{41} d} \frac{I_1 - I_2}{I_1 + I_2} \quad (2-17)$$

ここで、 n_{THz} は EO 結晶のテラヘルツ波に対する屈折率である。本研究では(2-17)式を用いてテラヘルツ波の電場強度を算出した。また、(2-15)式で用いた近似は $(I_1 - I_2)/(I_1 + I_2) \ll 1$ のときにだけ成り立つ近似である。そこで、本研究では $(I_1 - I_2)/(I_1 + I_2) < 0.2$ となるように、図 2.3 に示すように2枚のワイヤーグリッド偏光子を用いて、テラヘルツ波の偏光を維持した状態で電場強度のみを減衰させた。(2-17)式における α はワイヤーグリッドの透過軸

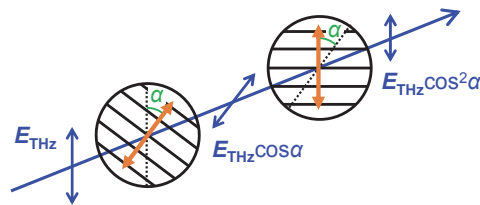


図 2.3 2枚のワイヤーグリッドによるテラヘルツ波の偏光を維持した状態での減衰。

表 2.1 ZnTe および GaP の物性値。 n_0, r_{41} は 800 nm, n_{THz} は 1 THz での値を示す。
 ν_{TO} : TO フォノンの周波数。

	n_0	n_g	n_{THz}	r_{41} (pm/V)	ν_{TO} (THz)
ZnTe	2.87 [25]	3.31	3.17 [26]	4.04 [27]	5.4 [26]
GaP	3.18 [28]	3.57	3.34 [28]	0.97 [29]	10.9 [28]

とテラヘルツ波の偏光とのなす角である。

表 2.1 に代表的な EO 結晶の物性値を示す. ZnTe 結晶の方が GaP 結晶より EO 係数が大きく、より大きな位相差を生じさせることができるが、フォノンによる吸収が 5.4 THz に存在するため、広帯域な検出を行う際には GaP 結晶の方が良い。本研究では、入射するテラヘルツ波の電場強度が十分大きく、検出に十分な位相差を容易に生じさせることができるため、GaP 結晶を用いて EO サンプリングを行った。この際、800 nm でコヒーレンス長を満たすように、GaP 結晶の厚みを決める必要がある。コヒーレンス長は、EO 結晶に入射したテラヘルツ波とプローブ光が位相不整合の影響を受けずに伝搬できる距離のことを指し、以下の式で表される[14].

$$l_c = \frac{\pi c}{\omega_{\text{THz}} |n_g - n_{\text{THz}}|} \quad (2-18)$$

ここで、 l_c 、 ω_{THz} 、 n_g 、 c はそれぞれコヒーレンス長、テラヘルツ波角周波数、プローブ光の群屈折率、真空中の光速である。テラヘルツ波周波数が 1 THz、プローブ光の波長が 800 nm であるとする、コヒーレンス長は 385 μm となる。前述したように、GaP 結晶の厚みはコヒーレンス長以下である必要があるため、本研究では、300 μm の厚みを有する GaP 結晶を用いた。また、結晶の厚みを薄くすると、より広帯域で位相整合を満たすことができ広帯域検出が可能であるが、(2-14)式に示すように生じる位相差が小さくなり結果として検出感度は悪くなる。

2-3 テラヘルツ時間領域分光システムとその解析手法

2-3-1 テラヘルツ時間領域分光法における光学系

図 2.4 に光伝導サンプリングを用いたテラヘルツ時間領域分光システムを示す。フェムト秒ファイバーレーザー (FemtoFiber Pro NIR: 780 nm, 88 fs, 80 MHz, Toptica) からのレーザーパルスを偏光ビームスプリッターによってポンプ光とプローブ光に分ける。ポンプ光はテラヘルツ波発生用光伝導アンテナに、プローブ光は検出用光伝導アンテナに集光される。光伝導アンテナから発生したテラヘルツ波パルスは非軸放物面ミラーによってコリメートされた後、もう一つの非軸放物面ミラーによって検出用光伝導アンテナに集光される。この際、テラヘルツ波の時間波形を得るには、プローブ光とテラヘルツ波パルスが検出用光伝導アンテナに入射するタイミングを変えながら、検出用アンテナに流れる電流を測定する必要がある。そのため、レトロリフレクターを搭載した光学遅延ステージを用いて、プローブ光の伝播する距離を少しずつ変え、光伝導アンテナへの入射タイミングをずらすことで時間波形を計測する。テラヘルツ時間領域システムで得られる典型的なテラヘルツ波の時間波形とそのフーリエ変換パワースペクトルを図 2.5(a), (b) に示す。ポンプ光及びプローブ光のパルス幅等にも依るが、一般的にサブピコ秒のシングルサイクルテラヘルツ波パルスが発生し、そのフーリエ変換スペクトルは、0.1-4 THz の広帯域なものとなる。このため、1 回の測定で広帯域に試料の複素屈折率、吸収係数等の情報が取得できる。

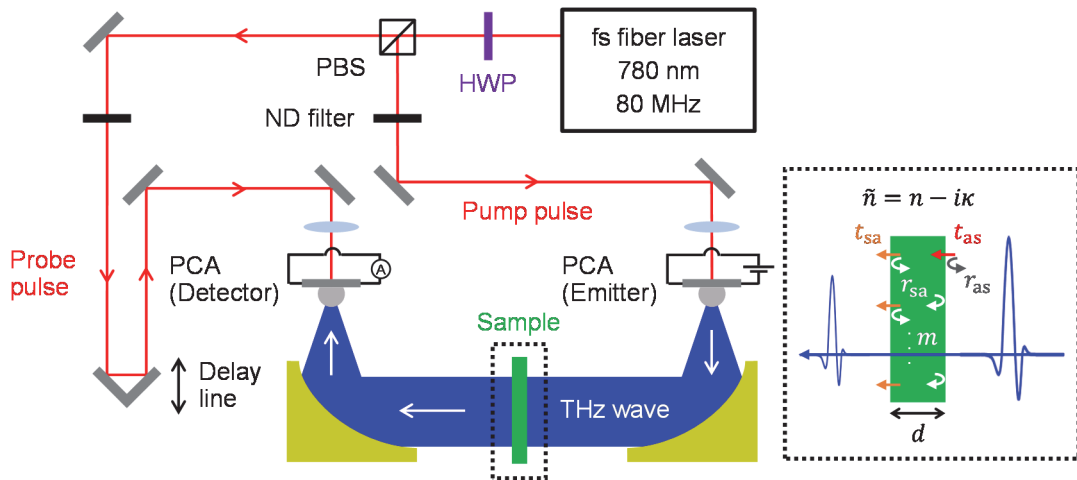


図 2.4 光伝導アンテナを用いたテラヘルツ時間領域分光システム. HWP: Half-wave plate, PCA: Photoconductive antenna.

2-3-2 テラヘルツ時間領域分光法における解析手法

図 2.4 の挿入図に示すように、テラヘルツ時間領域分光法では試料を挿入しているときの時間波形と、挿入していないときの時間波形を測定し、それらをフーリエ変換することで、煩雑な Kramers-Kronig 変換を用いずに試料の複素屈折率を求めることができる。ここでは、テラヘルツ時間領域分光法における解析手法について記述する。

時間領域分光システムにより得られたテラヘルツ波時間波形を $E_{\text{THz}}(t)$ とすると、そのフ

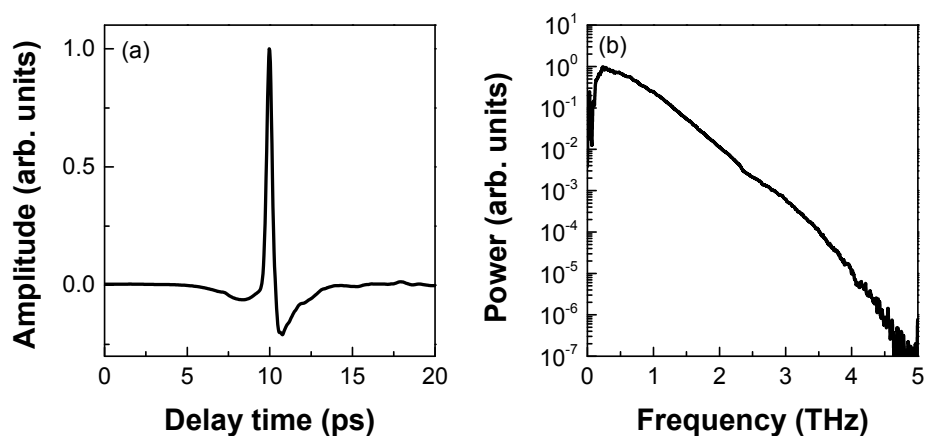


図 2.5 テラヘルツ時間領域分光システムで得られる典型的な(a) 時間波形と(b) そのフーリエ変換パワースペクトル。

一リエ変換スペクトル $E_{\text{THz}}(\omega)$ は

$$E_{\text{THz}}(\omega) = |E_{\text{THz}}(\omega)| \exp\{-i\arg[E_{\text{THz}}(\omega)]\} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E_{\text{THz}}(t) \exp(-i\omega t) dt \quad (2-19)$$

となる．試料を挿入したとき，挿入していないときに得られるテラヘルツ波の複素フーリエ変換スペクトルを $E_{\text{sam}}(\omega)$ ， $E_{\text{ref}}(\omega)$ ，パワースペクトルを $P_{\text{sam}}(\omega) = |E_{\text{sam}}(\omega)|^2$ ， $P_{\text{ref}}(\omega) = |E_{\text{ref}}(\omega)|^2$ とすると，エネルギー透過率 $T(\omega)$ は次式で求められる．

$$T(\omega) = |t(\omega)|^2 = \frac{P_{\text{sam}}(\omega)}{P_{\text{ref}}(\omega)} \quad (2-20)$$

ここで， $t(\omega)$ は複素振幅透過率である．

また，図2.4の挿入図に示すような厚さ d ，複素屈折率 $\tilde{n}(\omega) = n(\omega) - i\kappa(\omega)$ を有する試料での複素振幅透過率は，試料内での m 回の多重反射を考慮に入れると，

$$t(\omega) = t_{\text{as}}(\omega)t_{\text{sa}}(\omega) \exp\left[-i\frac{(\tilde{n}(\omega) - 1)\omega d}{c}\right] \left\{ \sum_{l=0}^m \left[r_{\text{sa}}(\omega) \exp\left(-i\frac{\tilde{n}(\omega)\omega d}{c}\right) \right]^{2l} \right\} \quad (2-21)$$

$$t_{\text{as}}(\omega) = \frac{2}{1 + \tilde{n}(\omega)}, t_{\text{sa}}(\omega) = \frac{2\tilde{n}(\omega)}{\tilde{n}(\omega) + 1}, r_{\text{sa}}(\omega) = \frac{\tilde{n}(\omega) - 1}{\tilde{n}(\omega) + 1}, r_{\text{as}}(\omega) = \frac{1 - \tilde{n}(\omega)}{1 + \tilde{n}(\omega)}$$

と表される．ここで， $r_{\text{as}}(\omega)$ ， $t_{\text{as}}(\omega)$ はそれぞれ空気から試料に伝搬する際の複素振幅反射，透過係数である．同様に， $r_{\text{sa}}(\omega)$ ， $t_{\text{sa}}(\omega)$ はそれぞれ試料から空気に伝搬する際の複素振幅反射，透過係数である．複素振幅透過率はエネルギー透過率 $T(\omega)$ と位相シフト $\phi(\omega)$ を用いて， $t(\omega) = \sqrt{T(\omega)} \exp[-i\phi(\omega)]$ と表されるので， $n(\omega)$ ， $\kappa(\omega)$ は(2-21)式を変形して，

$$n(\omega) = \frac{c}{\omega d} \left\{ \phi(\omega) + \frac{\omega d}{c} + \arg \left\{ t_{\text{as}}(\omega)t_{\text{sa}}(\omega) \sum_{l=0}^m \left[r_{\text{sa}}(\omega) \exp\left(-i\frac{\tilde{n}(\omega)\omega d}{c}\right) \right]^{2l} \right\} \right\} \quad (2-22)$$

$$\kappa(\omega) = \frac{c}{2\omega d} \ln \left\{ \frac{T(\omega)}{\left| t_{\text{as}}(\omega)t_{\text{sa}}(\omega) \sum_{l=0}^m \left[r_{\text{sa}}(\omega) \exp\left(-i\frac{\tilde{n}(\omega)\omega d}{c}\right) \right]^{2l} \right|^2} \right\}$$

となる．(2-22)式は陰関数であるが，適当な屈折率の初期値を与え逐次代入法[30]によって解を収束させることで，屈折率の実部 $n(\omega)$ 及び虚部 $\kappa(\omega)$ を求めることができる．

また，複素屈折率が求まると，複素振幅反射率 $r(\omega)$ が以下の式から求まる．

$$r(\omega) = r_{\text{as}}(\omega) + t_{\text{as}}(\omega)r_{\text{sa}}(\omega)t_{\text{sa}}(\omega) \exp\left[-i\frac{2\tilde{n}(\omega)\omega d}{c}\right] \times \left\{ \sum_{l=0}^m \left[r_{\text{sa}}(\omega) \exp\left(-i\frac{\tilde{n}(\omega)\omega d}{c}\right) \right]^{2l} \right\} \quad (2-23)$$

(2-23)式からエネルギー反射率 $R(\omega)$ は

$$R(\omega) = |r(\omega)|^2 \quad (2-24)$$

と求まるので、(2-20)式で実験から求まるエネルギー透過率 $T(\omega)$ を用いれば、エネルギー吸収率 $A(\omega)$ が

$$A(\omega) = 1 - T(\omega) - R(\omega) \quad (2-25)$$

から求まる。

2-4 テラヘルツ時間領域分光法を用いたイメージングシステム

テラヘルツ時間領域分光法はイメージングシステムにも応用される[8,31]。図 2.6(a)にテラヘルツイメージングシステムを示す。発生させたテラヘルツ波を Tsurupica レンズ[32]もしくは放物面ミラー等で測定試料に集光し、その後検出器に集光して時間波形を測定する。次に、試料を自動ステージ等で少しずつ動かし、動かした各点での時間波形を測定する。例えば、透過率のイメージングをするときは、各点で得られた時間波形から(2-20)式を用いて透過率を算出し、所望の周波数における透過率を2次元マッピングすればよい。図 2.6(b)にテラヘルツイメージングによって得られた2次元マッピング図の一例を示す[31]。

本研究におけるテラヘルツイメージングでは、テラヘルツ波の発生器、検出器に光伝導アンテナを用い、発生したテラヘルツ波は Tsurupica レンズを用いて試料に集光した。テラヘルツ波の集光点でのビーム径は波長と同程度であり、回折限界近くまで絞られていた。従って、イメージングの空間分解能は波長程度である。

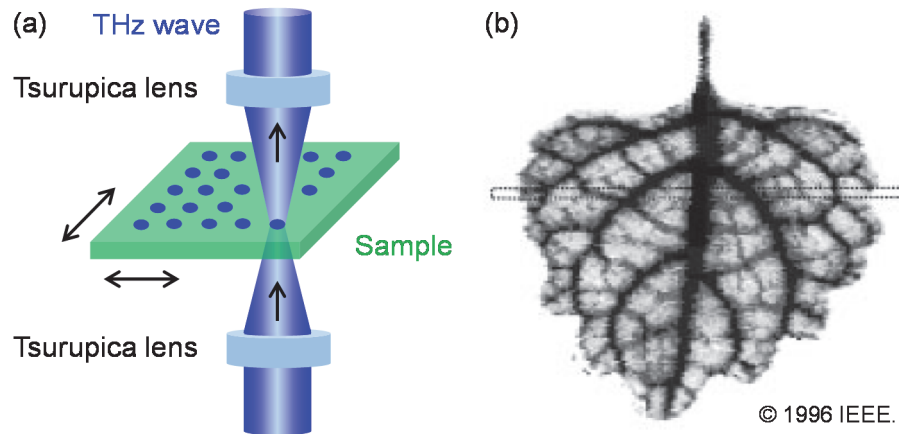


図 2.6 (a) テラヘルツイメージングシステム. (b) 葉のテラヘルツイメージングによるマッピング[31].

2-5 まとめ

本章では、テラヘルツ時間領域分光法について概説した。光伝導サンプリング、EO サンプリングによる検出原理、テラヘルツ時間領域分光法で用いられる光学系について説明した。さらに、テラヘルツ時間領域分光法ではテラヘルツ波の時間波形を取得できることから、Kramers-Kronig 変換を用いずに複素屈折率を算出する方法を導入した。また、最後にテラヘルツ時間領域分光法の応用例としてテラヘルツイメージングについて簡単にまとめた。

参考文献

- [1] M. Hangyo, M. Tani, and T. Nagashima, *Int. J. Infrared Millimeter Waves* **26**, 1661 (2005).
- [2] P. U. Jepsen, D. G. Cooke, and M. Koch, *Laser Photon. Rev.* **5**, 124 (2011).
- [3] H. Fujiwara, *Spectroscopic ellipsometry: principles and applications* (John Wiley & Sons, 2007).
- [4] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. Van Exter, and C. Fattinger, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 2006 (2006).
- [5] M. C. Beard, G. M. Turner, C. A. Schmuttenmaer, Y. U. V. P. Street, and P. O. Box, *J. Phys. Chem. B* **106**, 7146 (2002).
- [6] S. Nashima, O. Morikawa, K. Takata, and M. Hangyo, *J. Appl. Phys.* **90**, 837 (2001).
- [7] A. Markelz, S. Whitmire, J. Hillebrecht, and R. Birge, *Phys. Med. Biol.* **47**, 3797 (2002).
- [8] B. B. Hu and M. C. Nuss, *Opt. Lett.* **20**, 1716 (1995).
- [9] D. M. Mittleman, M. Gupta, R. Neelamani, R. G. Baraniuk, J. V. Rudd, and M. Koch, *Appl. Phys. B* **68**, 1085 (1999).
- [10] J. F. Federici, B. Schulkin, F. Huang, D. Gary, R. Barat, F. Oliveira, and D. Zimdars, *Semicond. Sci. Technol.* **20**, S266 (2005).
- [11] D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith, *Appl. Phys. Lett.* **45**, 284 (1984).
- [12] P. R. Smith and D. H. Auston, *IEEE J. Quantum Electron.* **24**, 255 (1988).
- [13] D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis, and D. A. Kleinman, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 1555 (1984).
- [14] A. Nahata, A. S. Weling, and T. F. Heinz, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2321 (1996).
- [15] A. Rice, Y. Jin, X. F. Ma, X.-C. Zhang, D. Bliss, J. Larkin, and M. Alexander, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1324 (1994).
- [16] X.-C. Zhang, B. B. Hu, J. T. Darrow, and D. H. Auston, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 1011 (1990).
- [17] K. Liu, J. Xu, T. Yuan, and X. C. Zhang, *Phys. Rev. B* **73**, 1 (2006).
- [18] S. Adachi, *J. Appl. Phys.* **58**, R1 (1985).
- [19] S. Park, M. R. Melloch, and A. M. Weiner, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3184 (1998).
- [20] S. Kono, M. Tani, and K. Sakai, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 898 (2001).
- [21] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics, Third Edition* (Academic Press, 2008).
- [22] S. Namba, *J. Opt. Soc. Am.* **51**, 76 (1961).
- [23] Q. Chen, M. Tani, Z. Jiang, and X.-C. Zhang, *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 823 (2001).
- [24] P. C. M. Planken, H.-K. Nienhuys, H. J. Bakker, and T. Wenckebach, *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 313 (2001).
- [25] K. Sato and S. Adachi, *J. Appl. Phys.* **73**, 926 (1993).
- [26] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids II* (Academic Press, 1991).
- [27] Q. Wu and X.-C. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 1604 (1996).
- [28] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, 1985).

- [29] D. F. Nelson, *J. Appl. Phys.* **39**, 3337 (1968).
- [30] J. G. Eberhart, *J. Chem. Educ.* **63**, 576 (1986).
- [31] D. M. Mittleman, R. H. Jacobsen, and M. C. Nuss, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **2**, **679** (1996).
- [32] 有限会社パックス, “Tsurupica テラヘルツスーパーレンズ,”
<http://papapax.jp/tsuru.html>.

第3章 LiNbO₃結晶を用いたテラヘルツ波の発生とその検出

3-1 はじめに

LiNbO₃ (LN)結晶は高い非線形性及び損傷閾値等の特徴を有することから、テラヘルツ波発生において広く用いられている。LN結晶を用いた代表的なテラヘルツ波光源として、ナノ秒レーザー励起のパラメトリック発振器[1-3]、Cherenkov型差周波光混合[4,5]等の狭線幅、広帯域周波数可変光源や、フェムト秒レーザー励起 Cherenkov型光整流[6-8]等の広帯域な周波数成分を有するシングルサイクルテラヘルツ波パルスの発生等がある。これらの光源は、物質特有の吸収スペクトル（指紋スペクトルと呼ばれる）が現れる 1~3 THz の領域においてテラヘルツ波発生が可能である。また、LN結晶におけるパルス面傾斜法を用いたテラヘルツ波発生では、1 MV/cm を超える電場強度を有する高強度なテラヘルツ波の発生が報告されている[9]。LN結晶によるテラヘルツ波光源は室温動作、テーブルトップ光源でありながら、高強度なテラヘルツ波発生を期待できることから、イメージング[10]、分光[11]等への応用だけでなく、テラヘルツ波による非線形現象の誘起[12-14]等への応用も期待されている。

本章では、はじめに LN 結晶を用いたテラヘルツ波発生 の位相整合条件について概説する。その後、分光、イメージング等への応用可能な LN 結晶を用いたテラヘルツ波光源を目指し、開発したピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器を時間領域検出によって評価する。加えて、非線形現象を誘起できるさらなる高強度光源を目指して、LN 結晶を用いたパルス面傾斜法による高強度テラヘルツ波発生を報告する。

3-2 LiNbO₃結晶によるテラヘルツ波発生 の位相整合条件[15]

LN 結晶を用いたテラヘルツ波発生には、パラメトリック発生/発振器のパラメトリック光源や、光整流によるテラヘルツ波光源等がある。パラメトリック発生/発振器では狭線幅、広帯域周波数可変のテラヘルツ波が得られ、光整流では広帯域テラヘルツ波が得られる。これらの光源における位相整合条件の式は同じ形となり、広い意味で差周波発生と捉えることができる。つまり、角周波数 ω_1 、 ω_2 の光が LN 結晶に入射したとき、その差周波 $\omega_{\text{THz}} = \omega_1 - \omega_2$ がテラヘルツ波周波数に相当する。このとき、角周波数 ω_1 、 ω_2 、 ω_{THz} の3波が満たすべき位相整合条件は、波数ベクトル \mathbf{k}_1 、 \mathbf{k}_2 、 \mathbf{k}_{THz} を用いて、

$$\mathbf{k}_{\text{THz}} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 \quad (3-1)$$

と書き表せる。この条件は波数ベクトルの大きさに書き換えると、

$$|\mathbf{k}_{\text{THz}}| \geq |\mathbf{k}_1| - |\mathbf{k}_2| \quad (\text{or } n_{\text{THz}}\omega_{\text{THz}} \geq n_1\omega_1 - n_2\omega_2) \quad (3-2)$$

となる。ここで、 n_1 、 n_2 、 n_{THz} は角周波数 ω_1 、 ω_2 、 ω_{THz} における非線形結晶の屈折率を表す。(3-2)式を満たす3波の波数ベクトルの配置を図3.1に示す。特に、等号の条件 $|\mathbf{k}_{\text{THz}}| =$

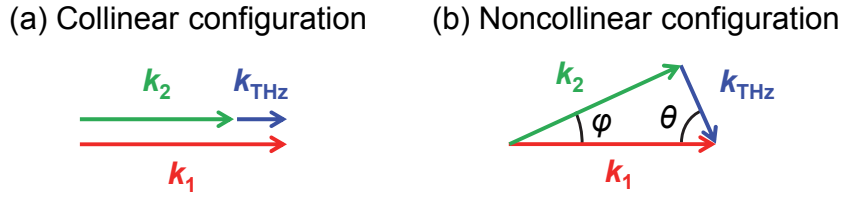


図 3.1 (a) 同軸配置, (b) 非同軸配置による 3 波の位相整合.

$|\mathbf{k}_1| - |\mathbf{k}_2|$ のときは図 3.1(a)の同軸（コリニア）な配置となり，3 波の波数ベクトルが同一直線状に並ぶ．不等号の条件のときは，図 3.1(b)の非同軸（ノンコリニア）な配置となる．表 3.1 に示すように，LN 結晶の場合，光領域（800 nm）での屈折率は ~ 2 ，テラヘルツ領域での屈折率は ~ 5 と大きな差があり，(3-2)式の不等号条件である非同軸な配置となる．非同軸な場合において，図 3.1(b)のように \mathbf{k}_1 と \mathbf{k}_2 がなす角を φ とすると，余弦定理を用いて

$$\cos\varphi = \frac{n_1^2\omega_1^2 + n_2^2\omega_2^2 - n_{\text{THz}}^2\omega_{\text{THz}}^2}{2n_1\omega_1 n_2\omega_2} \quad (3-3)$$

となる．ここで， $\omega_0 = (\omega_1 + \omega_2)/2$ ， ω_0 での LN 結晶の屈折率を n_0 とすると，LN 結晶の屈折率は ω_0 の周りでテイラー展開した形で，

$$n(\omega) = n_0 + (\omega - \omega_0) \left. \frac{dn(\omega)}{d\omega} \right|_{\omega_0} \quad (3-4)$$

と書ける．さらに， ω_0 における群屈折率 $n_g(\omega_0)$ は，

$$n_g(\omega_0) = n_0 + \omega_0 \left. \frac{dn(\omega)}{d\omega} \right|_{\omega_0} \quad (3-5)$$

となるので， $n_1\omega_1$ ， $n_2\omega_2$ は群屈折率 $n_g(\omega_0)$ を用いて，

$$\begin{aligned} n_1\omega_1 &\approx n_0\omega_0 + \frac{1}{2}n_g\omega_{\text{THz}} \\ n_2\omega_2 &\approx n_0\omega_0 - \frac{1}{2}n_g\omega_{\text{THz}} \end{aligned} \quad (3-6)$$

となる．ここで， $n_g = n_g(\omega_0) = n_g(\omega_1) = n_g(\omega_2)$ ， $\omega_{\text{THz}} \ll \omega_0$ として近似した． $\varphi \ll 1$ として， $\cos\varphi \approx 1 - \sin^2\varphi/2$ と近似すると，(3-3)式は(3-6)式を用いて，

$$\sin\varphi = \frac{\omega_{\text{THz}} \sqrt{n_{\text{THz}}^2 - n_g^2}}{n_0\omega_0} \quad (3-7)$$

と変形できる．同様に， \mathbf{k}_1 と \mathbf{k}_{THz} がなす角を θ とすると，

$$\cos\theta = \frac{n_g}{n_{\text{THz}}} \quad (3-8)$$

となる．また，実際には φ は非常に小さいため， \mathbf{k}_2 と \mathbf{k}_{THz} のなす角もほぼ θ に等しくなる．

表 3.1 本研究で用いた 2 種類の LiNbO₃ 結晶の光領域およびテラヘルツ領域での屈折率. ただし, n_g 及び n_{THz} は, 780 nm, 800 nm 及び 1 THz での値.

Generation method	LiNbO ₃	n_o	n_g	n_{THz}
ps THz parametric oscillator	5 mol% congruent	2.17 [16] (@780 nm)	2.26 (@780 nm)	4.98 [17]
pulse-front tilting method	1.3 mol% stoichiometric	2.16 [18] (@800 nm)	2.25 (@800 nm)	4.94 [17]

(3-7), (3-8)式が位相整合角を表し, 角周波数 ω_1 , ω_2 の光が角度 φ で入射すると, θ の方向にテラヘルツ波が発生することを意味している.

3-3 ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器からのテラヘルツ波発生と検出

3-3-1 非同軸位相整合によるテラヘルツパラメトリック発振

テラヘルツパラメトリック発振器は狭線幅, 広帯域周波数可変性を有したテラヘルツ波光源として分光, イメージング等の分野への応用が期待されている. テラヘルツパラメトリック発生/発振では, 角周波数 ω_p のポンプ光を LN 結晶に入射すると, 角周波数 ω_s のシグナル光と ω_{THz} のテラヘルツ波が非同軸位相整合条件を満たす方向に発生する. ポンプ光, シグナル光, テラヘルツ波の 3 波はエネルギー保存則 $\omega_p = \omega_s + \omega_{\text{THz}}$ を満たし, 3 波が満たす位相整合条件は, $\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_{\text{THz}}$ となる. この位相整合条件は, (3-1)式において, $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2$ を $\mathbf{k}_p, \mathbf{k}_s$ に入れ替えた式と同じになる. つまり, ポンプ光が LN 結晶に入射すると, 角度 φ の方向にシグナル光が, 角度 θ の方向にテラヘルツ波が発生することを意味している. ポンプ光の波長が 780 nm, テラヘルツ波の周波数が 1 THz のとき, (3-7)式及び(3-8)式から φ, θ はそれぞれ $0.3^\circ, 63^\circ$ となる. ここで, LN 結晶のテラヘルツ波に対する屈折率が ~ 5 と大きいので, LN 結晶内で角度 63° で発生したテラヘルツ波は LN 結晶出射面で全反射し, 結晶外部へ取り出すことができない. 従って, テラヘルツ波は図 3.2 に示すような高抵抗 Si を用いた分割プリズム結合器を用いて結晶外部に取り出される[19]. Si の屈折率が 3.4 と比較

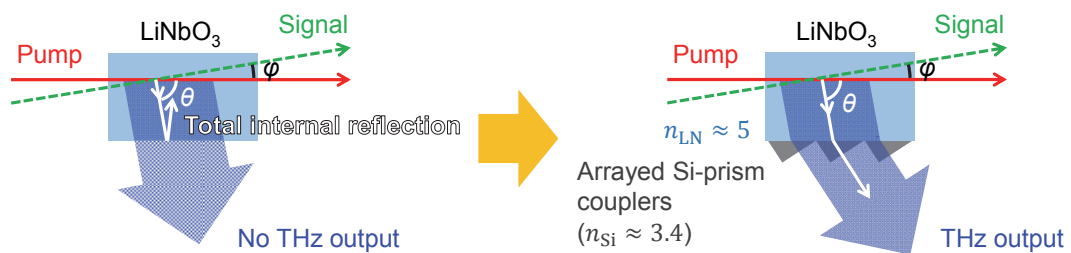


図 3.2 全反射防止用分割 Si プリズム結合器によるテラヘルツ波の取り出し.

表 3.2 各種検出器の NEP と動作温度. 一番下は時間領域検出, その他は熱型検出器.

Types of detector	NEP (W/Hz ^{1/2})	Operating temperature
Pyroelectric detectors [23]	~10 ⁻⁹	Room temp.
Golay cells [23]	~10 ⁻¹⁰	Room temp.
Semiconductor bolometers [23]	~10 ⁻¹⁴	Below liquid helium temp.
Femtosecond time-domain detection [26]	~10 ⁻¹⁶	Room temp.

的高いため, 分割 Si プリズム結合器を用いると, 全反射することなく結晶外部へ取り出すことが可能となる. また, 高抵抗 Si はテラヘルツ帯において吸収及び屈折率分散が小さいため, テラヘルツ波取り出し用の結合器として最適である[20].

LN 結晶はテラヘルツ帯での吸収係数が数十~数百 cm⁻¹ と大きく, 結晶内で発生したテラヘルツ波は取り出される前にこの大きな吸収の影響を受けてしまう[17]. このため, テラヘルツ波の発生には高い閾値が存在し, 非同軸位相整合型テラヘルツパラメトリック光源にはナノ秒 Q スイッチ Nd:YAG レーザーのような高出力な励起光源が必要である. また, これらの光源から発生したテラヘルツ波の検出には焦電検出器, ゴーレイセル, Si ボロメータ等の熱型検出器が主に用いられている. 各種検出器の等価雑音パワー (Noise Equivalent Power: NEP) [21]と動作温度を表 3.2 に示す. NEP は検出可能な最小パワーを示しており, NEP が小さいほど高感度な検出器といえる. Si ボロメータに代表される半導体ボロメータは高感度であるが, 極低温冷却が必要であるという欠点を有する. 焦電検出器, ゴーレイセルは常温動作可能な熱型検出器であるが, ボロメータと比べ NEP が高く, 低感度であるといった欠点がある[22,23].

3-3-2 ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器の構築

前節で述べた(i) 高出力レーザーの必要性, (ii) 熱型検出器の利用という 2 つの弱点を解決できれば, パラメトリック光源を用いたイメージング, 分光応用をさらに加速することができる. そこで, これらの弱点を解決するため, ピコ秒 Ti:sapphire レーザー励起によるテラヘルツパラメトリック発振[24]に着目した. 従来のパラメトリック発振器の励起源のパルスエネルギーは数十 mJ/pulse であるのに対して, ピコ秒 Ti:sapphire レーザーは数十 nJ/pulse であるため, 励起源の低出力化が実現できる. さらに, 高繰り返し周波数の超短パルスレーザー励起にすることで, 2章で概説した光伝導アンテナを用いた時間領域検出が容易に実現できる. 表 3.2 に示すように, 時間領域検出は熱型検出器に比べて高感度であるだけでなく[25,26], テラヘルツ波の時間波形を計測できることから, 振幅と位相の両方の情報を得ることができるという特徴を有する[27].

ピコ秒レーザー励起のテラヘルツパラメトリック発振器 (以下, ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器と呼ぶ) を実現するため, 図 3.3 に示すような光学系を構築した. 励起源

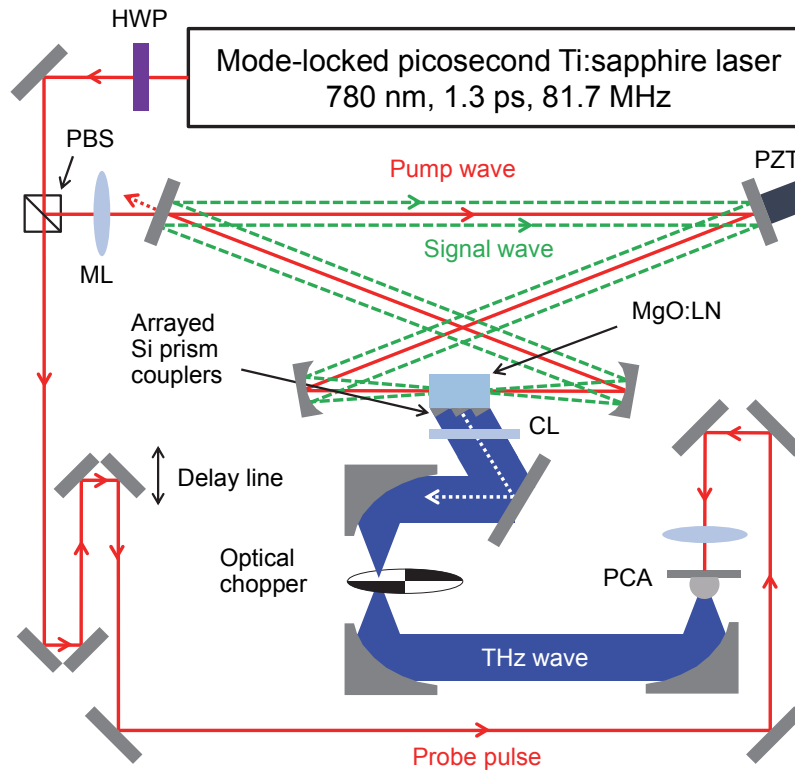


図 3.3 ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器の光学系. ML: Mode-matching lens, PZT: Piezoelectric transducer, CL: Cylindrical lens.

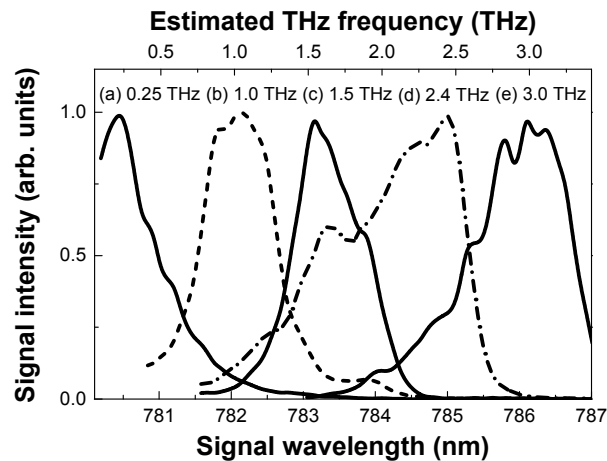


図 3.4 シグナル光の波長可変性. 上側の横軸はエネルギー保存則から予想されるテラヘルツ波の周波数を示す. シグナル光の発振ピーク波長は(a) 0.25, (b) 1.0, (c) 1.5, (d) 2.4, (e) 3.0 THz である.

にはピコ秒モード同期 Ti:sapphire レーザー (Tsunami: 780 nm center wavelength, 1.3 ps pulse duration, 81.7 MHz repetition rate, Spectra-Physics) を用いた. テラヘルツ波の時間領域検出を実現するため, 半波長板と偏光ビームスプリッターによってレーザーパルスを~800 mW の

ポンプ光と~10 mWのプローブ光に分けた。ポンプ光はモード整合レンズを通過した後、4枚のミラーと MgO ドープ LN (MgO:LN) 結晶で構成される外部共振器に導かれる。この外部共振器はポンプ光及び MgO:LN 結晶で発生したシグナル光を増強するために用いられ、外部共振器内では、ポンプ光とシグナル光が同時に周回、共振している。この同時共振を実現することによって、従来のパラメトリック光源に比べて低出力なピコ秒 Ti:sapphire レーザー励起でのパラメトリック発振を実現している[24]。さらに、非同軸位相整合条件を満たす方向に発生したテラヘルツ波を、3個の分割 Si プリズム結合器を用いて結晶内から取り出した。各分割 Si プリズム結合器は斜辺 5 mm、短辺 3.1 mm の直角三角形である。焦点距離 50 mm のシリンダリカルレンズを用いて紙面垂直方向に広がるテラヘルツ波をコリメートし、その後、光チョッパーで~300 Hz で変調した。ポンプ光ではなくテラヘルツ波に対して変調を行った理由は、ポンプ光に対して変調を行うと共振器の動作が不安定になるためである。さらに、変調したテラヘルツ波を放物面ミラーを用いて、超半球レンズ付のボウタイ型光伝導アンテナに集光した。プローブ光はレトロリフレクターを取り付けた遅延ステージを通過した後、適当なレンズを用いて光伝導アンテナのギャップ部に集光した。光伝導アンテナに流れる電流を電流/電圧変換増幅器で電圧変換し、ロックイン増幅器 (Model 7260, EG&G Signal Recovery) を用いて検出した。また、開発したピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器は周波数可変性を有する[24]。この周波数可変性は、共振器のミラーの位置を微調整することで得られる。図 3.4 に共振器内ミラーの位置を微調整して得られたシグナル光の発振スペクトルを示す。シグナル光の発振波長は約 780.5 nm~786 nm まで波長可変であり、この波長可変性はエネルギー保存則から得られるテラヘルツ波の周波数可変性に対応させると、0.25~3 THz に相当する。

3-3-3 ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器における時間領域検出[28]

ピコ秒のプローブパルスを用いて時間領域検出を行う場合、その検出帯域に注意が必要である。(2-2), (2-3), (2-4)式で示すように、光伝導アンテナに流れる電流はテラヘルツ波の電場だけでなく、LT-GaAs 基板での生成キャリア数 $N(t)$ にも依存する。つまり、光伝導アンテナにおける検出帯域は、生成キャリア数のフーリエ変換 $N(\omega)$ によって制限される[29]。図 3.5 にテラヘルツ波のパワースペクトルに対する光伝導アンテナの周波数応答 $|N(\omega)|^2$ を示す。0.25, 1.0, 1.5 THz での周波数応答は 0.1 THz での周波数応答に比べて 1 桁、6 桁、9 桁程度低くなる。従って、高周波になればなるほど、テラヘルツ波の検出が困難になる。そこで、より低周波のテラヘルツ波を発生させるために、図 3.4(a)に示すように、ピーク波長 780.5 nm のシグナル光を用いた。エネルギー保存則からこの波長は 0.25 THz のテラヘルツ波周波数に相当する。

図 3.6(a)上段にピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器からのテラヘルツ波の時間波形を示す。26 ps の時間間隔で3つのテラヘルツ波パルスが検出されている。通常、複数のパルスが検出される場合、光学素子や試料等の内部での多重反射が原因であることが多い。多重反射の場合、(2-21)式に示すフレネル反射、透過係数によって、2つ目のパルスの振幅は

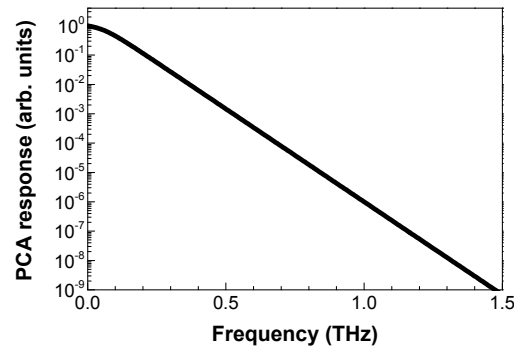


図 3.5 テラヘルツ波のパワースペクトルに対する光伝導アンテナの周波数応答 $|N(\omega)|^2$. プローブ光のパルス幅は 1.3 ps, LT-GaAs のキャリア寿命は 0.5 ps とした.

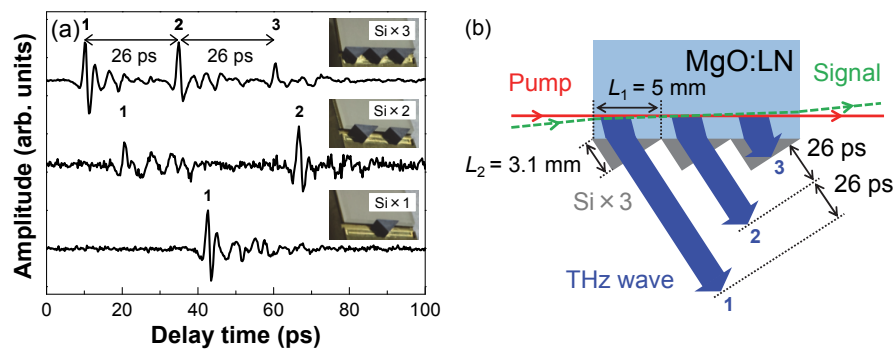


図 3.6 (a) 分割 Si プリズム結合器の数を変えたときのテラヘルツ波の時間波形. 挿入写真は MgO:LN 結晶と分割 Si プリズム結合器を示す. (b) 分割 Si プリズム結合器によるテラヘルツ波パルスの分離の概念図.

1 つ目のパルスよりも小さくなる. しかし, 図 3.6(a)上段に示す時間波形では 2 つ目のパルスの振幅の減衰はほとんど見られていない. この結果から, 多重反射以外の影響によって 3 つのパルスが検出されていると考えられる. 次に, 検出されたパルスの数に着目すると, 分割 Si プリズム結合器の数と一致していることが分かる. そこで, 分割 Si プリズム結合器の数を 3 個, 2 個, 1 個と変えて, 同様の時間領域検出を行った結果を図 3.6(a)に示す. 上段, 中段, 下段の時間波形は, 結合器の数が 3 個, 2 個, 1 個のときの波形である. 結合器の数に対応して, テラヘルツ波パルスの数も変化している. このことから, 図 3.6(b)に示すように, 分割 Si プリズム結合器が MgO:LN 結晶からのテラヘルツ波を 3 つに分離させていると考えられる. 分割 Si プリズム結合器は, 結合器内での時間遅延が生じないように設計されているため, 結合器間での時間遅延によってパルスの分離が生じている.

プリズム結合器間でのパルスの分離を定量的に理解するため, 分割 Si プリズム結合器を通過したテラヘルツ波に生じる時間遅延量を計算した. 1 つ目の結合器を通過したパルスと, 2 つ目の結合器を通過したパルス間に生じた光路差 ΔL から時間遅延 t_{delay} を求めると,

$$t_{\text{delay}} = \frac{\Delta L}{c} = \frac{n_0 L_1 - L_2}{c} \quad (3-9)$$

と書ける．ここで， n_0 ， L_1 ， L_2 はそれぞれ MgO:LN 結晶のポンプ光に対する屈折率，結合器の斜辺，短辺である．本研究で用いたプリズムは， $L_1 = 5$ mm， $L_2 = 3.1$ mm，である．表 3.1 に示すように， $n_0 = 2.17$ であるから，(3-9)式から $t_{\text{delay}} = 26$ ps と求まる．この時間遅延は図 3.6(a)に示す 3 つのパルスの時間間隔に等しくなる．分割 Si プリズム結合器によって生じる時間遅延がパルスの時間間隔に等しくなること，また，結合器の数に応じてテラヘルツ波パルス数が変化することから，図 3.6(a)で観測された複数のパルスは，結合器によって生じるパルスの分離に由来することが分かった．

また，本研究で得られた知見を，ナノ秒レーザー励起のテラヘルツパラメトリック発振器（ナノ秒テラヘルツパラメトリック発振器）にも拡張できる．一般に，ナノ秒テラヘルツパラメトリック発振器からのテラヘルツ波は，数ナノ秒程度のパルス幅を有している[1]．このことを考慮すると，数十 ps の時間遅延はナノ秒テラヘルツパラメトリック発振器においてはパルスの分離ではなく，波面のずれとして現れることになる．Ikari らはナノ秒テラヘルツパラメトリック発振器において，分割 Si プリズム結合器由来の波面のずれについて言及している[30]．しかし，従来の熱型検出器による強度検出では，この波面のずれを検証することは困難であり，詳細な議論は行われていない．光伝導アンテナによる時間領域検出は，熱型検出器では明らかにすることのできないパルスの分離を明らかにした．この点において，時間領域検出は非同軸位相整合型ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器の評価に有用であると言える．

3-3-4 テラヘルツ波パルスの分離の解消

パルスの分離によって生じる図 3.6(a)のような複数のパルスがフーリエ変換されると，フーリエ変換スペクトルに干渉縞が現れる．分光等への応用を考えたとき，パルスの分離によって現れるスペクトル上の干渉縞は望ましいものではない．そこで，2つの方法 (i) 単一 Si プリズム結合器への置換，(ii) 台形型 MgO:LN 結晶の利用によってパルスの分離を解消した．(i) 単一 Si プリズム結合器を使用する方法では，図 3.7(a)に示すような斜辺 15 mm，短辺 9.5 mm の単一の Si プリズムを使用した．また，単一の Si プリズム結合器内での時間遅延が生じないように短辺の長さを設計した．単一 Si プリズム結合器を用いて取り出したテラヘルツ波の時間波形を図 3.7(c)の上段に示す．パルスの分離が解消され，単一のテラヘルツ波パルスが得られていることが分かる．単一 Si プリズム結合器はパルスの分離を解消できるが，MgO:LN 結晶の結晶長が長くなったとき，そのサイズが大きくなってしまい，扱いが難しくなる．この弱点を克服するために，(ii) 台形型 MgO:LN 結晶を利用する方法に着目した．この方法では，テラヘルツ波が MgO:LN 結晶面に対して垂直に発生するため，Si プリズム結合器を用いずにテラヘルツ波を結晶内から取り出すことができる[30-32]．この方法は面放射型テラヘルツパラメトリック発振器と呼ばれ，(i)の方法に比べて発生したテラヘルツ波が MgO:LN 結晶による吸収の影響を受けにくいいため，テラヘルツ波出力の高出力化も期待できる[31]．台形型 MgO:LN 結晶を用いた外部共振器の構成を図 3.8 に示す．図 3.8 からの大きな変更点は，結晶面でのポンプ光，シグナル光の全反射を利用して，非同軸位

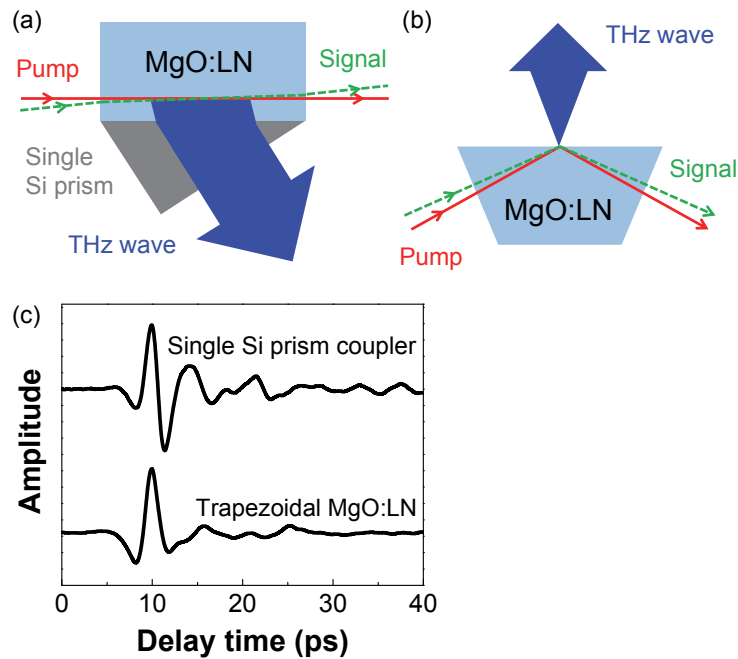


図 3.7 (a) 単一 Si プリズム結合器によるテラヘルツ波の取り出し. (b) 台形型 MgO:LN 結晶によるテラヘルツ波の取り出し. (c) 単一 Si プリズム結合器 (上段) 及び台形型 MgO:LN 結晶 (下段) によって取り出されたテラヘルツ波パルスの時間波形.

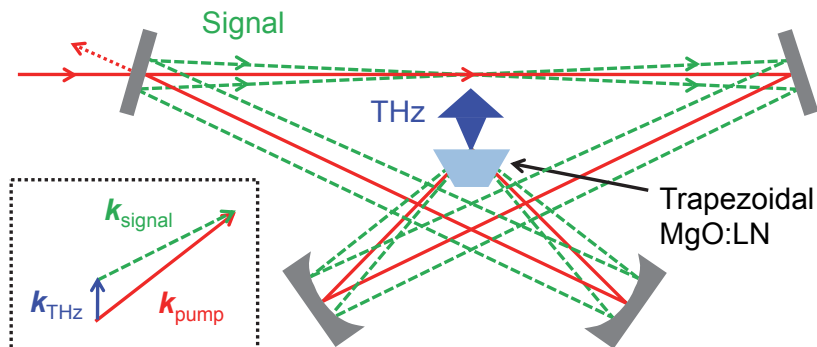


図 3.8 台形型 MgO:LN 結晶を用いた外部共振器. 挿入図は非同軸位相整合の概念図.

相整合を満たすという点である. 図 3.7(b)に示すように, テラヘルツ波は全反射点近傍から結晶面に対して垂直に放射される. 全反射したポンプ光及びシグナル光は 4 枚のミラーで構成される外部共振器内を同時に周回, 共振する. 結晶から発生したテラヘルツ波は放物面ミラーでコリメートした後, Tsurupica レンズ[33]を用いて光伝導アンテナに集光した. 時間領域検出によって得られたテラヘルツ波パルスの時間波形を図 3.7(c)下段に示す. 単一 Si プリズム結合器を用いたとき同様パルスが分離せず, 単一のテラヘルツ波パルスが得られていることが分かる. これらの結果から, (i), (ii)の方法を用いてテラヘルツ波パルスの分離を解消し, 単一のテラヘルツ波パルスを得ることに成功した.

3-3-5 時間領域検出と熱型検出器による検出の比較

図 3.7(c)上段の時間波形をフーリエ変換して得られたパワースペクトルを図 3.9(b)の (○) で示す. ピーク周波数は 0.2 THz であり, シグナル光の波長 780.5 nm から予想されるテラヘルツ波周波数 0.25 THz とほぼ一致した. スペクトルにおけるピークとノイズレベルとの比であるダイナミックレンジを計算すると, 約 10^4 であった. 次に, 従来の熱型検出器と比較するため, 常温動作の熱型検出器である焦電検出器でテラヘルツ波の検出を行った. 図 3.9(a)に示すような焦電検出器を用いた Michelson 干渉計を構築し, 得られた干渉波形をフーリエ変換することでテラヘルツ波スペクトルを得た. ただし, 焦電検出器を用いた際はシグナル光の波長を 780.5 nm から図 3.4(b)に示す 782.1 nm に変更した. シグナル光の波長を変更した理由は, 780.5 nm の波長ではテラヘルツ波信号がノイズに埋もれ, 焦電検出器では検出できなかったためである. これは, 0.25 THz のテラヘルツ波出力が焦電検出器では検出できないレベルであることを意味し, 低周波数でのパラメトリック利得の低下に起因するものと考えられる[1]. シグナル光の波長 782.1 nm はエネルギー保存則から, 1.0 THz のテラヘルツ波周波数に相当する. 得られたスペクトルを図 3.9(b)の (□) で示す. 中心周波数は 0.9 THz であり, シグナル光の波長から予想される周波数 1.0 THz とほぼ一致した. スペクトルにおけるダイナミックレンジは約 10 となった. 時間領域検出と熱型検出器のダイナミックレンジを比較すると, 時間領域検出の方が 3 桁程度高いことが分かる. ここで, 注意が必要なのは異なるテラヘルツ波周波数 0.25 THz, 0.9 THz での比較であるということである. もし 0.25 THz でダイナミックレンジを比較できたとすると, 時間領域検出のダイナミックレンジは焦電検出器より 3 桁以上高くなると考えられる. このことは, 焦電検出器が 0.25 THz の周波数のテラヘルツ波を検出できなかったことから予想される. ただし, 1.0 THz の周波数では, 時間領域検出の感度は図 3.5 に示すように減少するので, 熱型検出

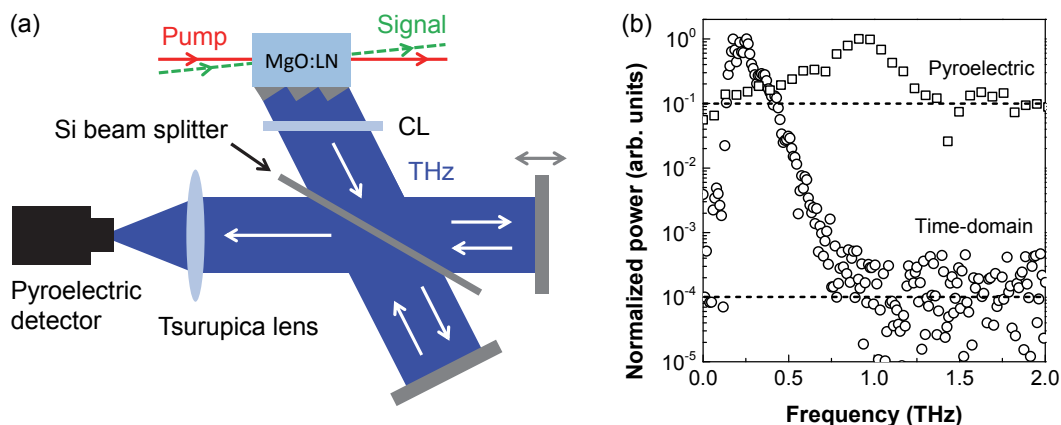


図 3.9 (a) 焦電検出器を用いた Michelson 干渉計. (b) 時間領域検出 (○) 及び焦電検出器 (□) によって検出されたテラヘルツ波のフーリエ変換スペクトル. 図中の破線はノイズレベルを示す.

器のダイナミックレンジの方が高くなると考えられる。これらの結果から、0.25 THz 程度の低周波数の検出において、時間領域検出は熱型検出器よりも優れたダイナミックレンジでテラヘルツ波を検出できる。また、パルスの分離等の時間領域でしか見えない現象を明らかにすることができるため、ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器の評価に有用な検出法であると言える。時間領域検出はテラヘルツ波の振幅だけでなく位相の情報も得ることができるため、本光源を分光応用する際においても有用な検出法である。

3-3-6 スペクトルにおけるパラメトリック成分と光整流成分

3-2 節で述べたように、LN 結晶におけるパラメトリック発生、光整流等のテラヘルツ波発生における位相整合条件は同じ式の形で書き表せる。従って、パラメトリック発振だけでなく、超短パルスレーザーを用いた Cherenkov 型光整流においても、テラヘルツ波の発生角は(3-8)式で与えられる[34]。このことは、開発したピコ秒のテラヘルツ波パラメトリック発振器において、ポンプ光の光整流によるテラヘルツ波（光整流成分）と、ポンプ光とシグナル光のパラメトリック発振によるテラヘルツ波（パラメトリック成分）は同じ角度で放射されることを意味する。光整流はポンプ光の広帯域なスペクトル内での差周波発生と捉えることができ、結果として発生するテラヘルツ波のスペクトル帯域はポンプ光のパルス幅の逆数程度となる[15]。本研究で用いたポンプ光のパルス幅は 1.3 ps であり、光整流によって 0.8 THz 程度のスペクトル帯域を有するテラヘルツ波が発生する。つまり、0.8 THz 以下の周波数では光整流成分と、パラメトリック成分が混在した状態で放射される。これらの成分は同じ角度で放射されることから分離が困難であり、図 3.9(b)の (○) で示したテラヘルツ波のスペクトルにも光整流成分が検出されていると考えられる。このことを実証するため、図 3.4(c)に示すようにシグナル光の波長を 783.2 nm に合わせ、台形型 MgO:LN 結晶からのテラヘルツ波を時間領域検出した。この波長は、パラメトリック発振における

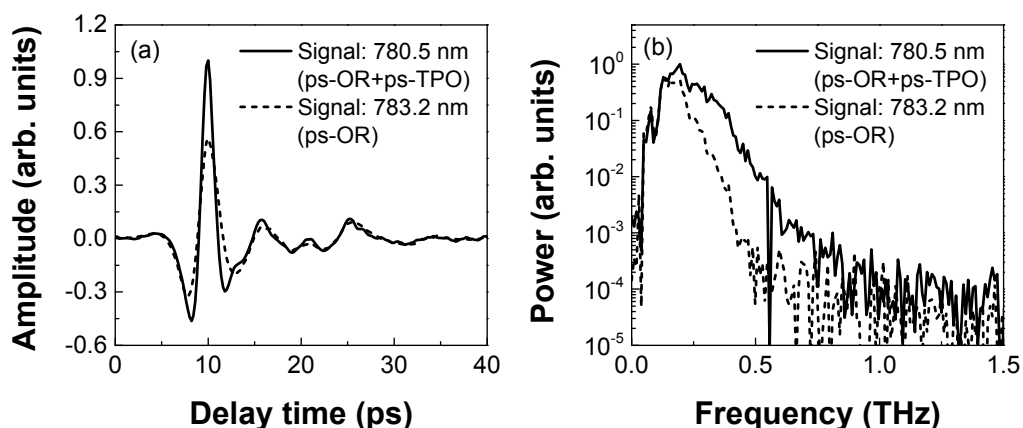


図 3.10 (a) シグナル光の波長を 780.5 nm (実線), 783.2 nm (破線) に合わせたときの台形型 MgO:LN から発生したテラヘルツ波の時間波形. (b) (a)のフーリエ変換パワースペクトル.

エネルギー保存則から 1.5 THz のテラヘルツ波周波数に相当し、図 3.5 に示すように光伝導アンテナでは検出が難しい周波数である。このことから、1.5 THz 程度の高周波を発生するようにシグナル光の波長を合わせれば、パラメトリック成分は検出されないため、ポンプ光の光整流成分のみが検出される。図 3.10(a), (b)の破線にシグナル光の波長を 783.2 nm に合わせたときのテラヘルツ波の時間波形とそのフーリエ変換スペクトルを示す。得られたテラヘルツ波スペクトルのピーク周波数は 0.2 THz であった。この周波数は、パラメトリック発振のエネルギー保存則から予想される 1.5 THz より大きく低周波にあることから、ポンプ光の光整流成分のみが検出されている。比較のため、シグナル光の波長を 780.5 nm にしたときの時間波形、パワースペクトルを図 3.10(a), (b)の実線で示す。シグナル光の波長 780.5 nm は 0.25 THz のテラヘルツ波周波数に相当し、0.25 THz は光伝導アンテナで検出できる低周波領域であるため、パラメトリック成分と光整流成分の両方が検出される。光整流成分に加えてパラメトリック成分が加わったため、時間波形において信号強度の増大が見られる。さらに、スペクトルを見るとパラメトリック成分が加わることで、光整流では得られない高周波数成分が発生していることが分かる。図 3.10(b)のそれぞれのスペクトルをテラヘルツ波周波数全体で積分し、求めた値の比をとると、図 3.10(b)の実線で示したスペクトル内のパラメトリック成分と光整流成分は約 1:1 であることが分かった。このことから、ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器の周波数を低周波の 0.25 THz に合わせて時間領域検出すると、検出されたスペクトルの半分は光整流成分である。

3-4 パルス面傾斜法による高強度テラヘルツ波の発生と検出

3-4-1 パルス面傾斜法とは

3-3 節で述べたピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器は、低出力なレーザー励起による高効率な波長変換によってテラヘルツ波発生を達成している。しかし、イメージング、分光だけでなく、テラヘルツ誘起非線形現象の観測等の応用を考えたとき、さらなる高強度テラヘルツ波パルスが必要となる。近年、パルス面傾斜法と呼ばれる手法を用いて 1 MV/cm を超える電場強度を有するテラヘルツ波の発生が可能になってきた[9]。この方法は、外部共振器等を必要とせず、回折格子、シリンドリカルレンズ、LN 結晶等の光学素子のみで高強度テラヘルツ波パルスを発生できるため汎用性、安定性が高い。本節ではパルス面傾斜法の原理を述べた後、光学系、得られたテラヘルツ波電場強度等を報告する。

媒質中を進む荷電粒子の速度が媒質中の光速度を超えると、荷電粒子からの電磁波は円錐状に広がるように放射される。この放射は Cherenkov によって発見され、Cherenkov 放射と呼ばれている。電磁波パルスが非線形結晶中を進むときも、電磁波パルスによって誘起された非線形分極からの電磁波が円錐状に放射されることが Askaryan によって予測されている[35]。電磁波パルスによる Cherenkov 放射においても、媒質中での入射電磁波パルスの速度が、放射される電磁波の速度を超える必要がある。フェムト秒レーザーパルスが非線形結晶に入射すると、光整流によってスペクトル内の差周波成分である広帯域なテラヘル

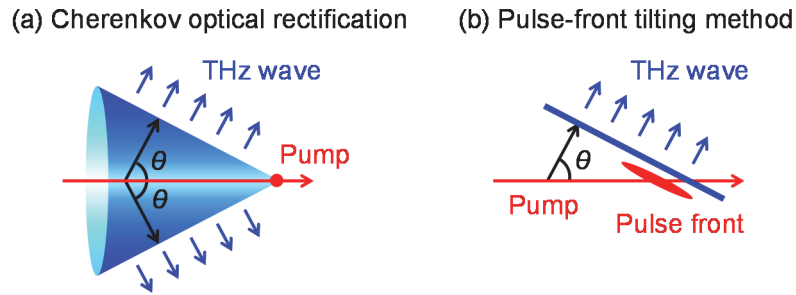


図 3.11 (a) Cherenkov 型光整流. (b) パルス面傾斜法による高強度テラヘルツ波発生.

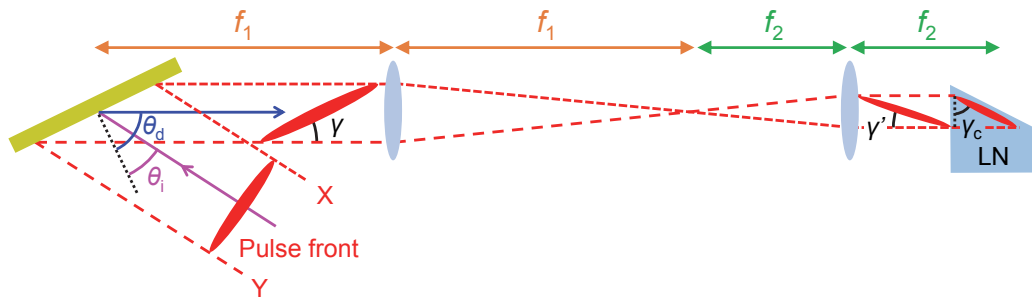


図 3.12 回折格子によるパルス面の傾斜とシリンドリカルレンズ対を用いたパルス面のさらなる傾斜.

ツ波が発生する．LN 結晶における光整流の場合，表 3.1 に示すようにポンプ光（800 nm）に対する屈折率が ~ 2 ，発生したテラヘルツ波に対する屈折率が ~ 5 であるため，Cherenkov 放射の条件を満たし，(3-8)式の放射角でテラヘルツ波が発生する．この光整流は Cherenkov 型光整流と呼ばれる[6]．図 3.11(a)に示すように，Cherenkov 型光整流ではテラヘルツ波が円錐状に放射されるため，テラヘルツ波の取り回しが難しくなる．また，テラヘルツ波の波長以下のサイズまでポンプ光を集光する必要があるため，ポンプ光を強くすると LN 結晶が損傷する恐れがある[34,36]．これらの扱いにくさから，Cherenkov 型光整流はテラヘルツ波光源として広く用いられてこなかった．

これらの制約を克服し，高強度のテラヘルツ波発生を可能にしたのが図 3.11(b)に示すパルス面傾斜法である．パルス面傾斜法では，パルスのエネルギーのピーク位置を繋いだ面であるパルス面を Cherenkov 放射の放射角に合わせる．この結果，位相整合条件を満足することができ，高強度テラヘルツ波の発生が可能になる．発生するテラヘルツ波は図 3.11(b)に示す波面を形成しながら放射されるため，従来の Cherenkov 型光整流よりも取り回しが容易である．また，ポンプ光をきつく集光する必要がないことから，高出力のポンプ光を LN 結晶に入射できる．このような利点からパルス面傾斜法は高強度，シングルサイクルテラヘルツ波パルスの発生に用いられる[9]．

パルス面は回折格子，プリズム等を用いて傾けることができ[37]，回折格子を用いたときのパルス面の傾斜は，図 3.12 に示す光路 X と光路 Y の光路差によって生じる．従って，生じる光路差から，パルス面の傾斜角 γ と，回折格子への入射角 θ_i ，回折光の回折角 θ_d との関

係は次式で表せる[9].

$$\tan\gamma = \frac{\cos\theta_d}{\sin\theta_i + \sin\theta_d} \quad (3-10)$$

また, 入射角 θ_i と回折角 θ_d の間には, 次式が成り立つ.

$$\sin\theta_i + \sin\theta_d = m\lambda_0 p \quad (3-11)$$

ここで, m , λ_0 , p はそれぞれ回折光の次数, 入射光の波長, 回折格子の刻線数である. 回折格子によって傾けられたパルス面はシリンドリカルレンズ対を用いてさらに傾けることができる. シリンドリカルレンズ対を用いてパルス面を傾ける手法は, レンズの収差の影響を受けにくいため, パルス幅 50 fs 以下の短パルスを用いるとき特に有用である[38]. 焦点距離 f_1 と f_2 のシリンドリカルレンズ対を用いたとき, レンズ対を通過した後の傾斜角 γ' は,

$$\tan\gamma' = M\tan\gamma \quad (3-12)$$

となる. ここで, M はシリンドリカルレンズ対の倍率で, $M = f_2/f_1$ である. さらに, LN 結晶内で群屈折率 n_g によって, 入射光の進行方向に対する長さは $1/n_g$ に圧縮される. このことを考慮すると, LN 結晶内でのパルス面と波面のなす角 γ_c は,

$$\tan\gamma_c = \frac{1}{n_g \tan\gamma'} = \frac{m\lambda_0 p}{n_g M \cos\theta_d} \quad (3-13)$$

となる. 角度 γ_c が Cherenkov 型光整流の放射角 θ と等しくなるとき, 位相整合条件を満たすので, $\gamma_c = \theta$ と置くと,

$$\cos\theta_d = \frac{m\lambda_0 p}{n_g M \tan\theta} \quad (3-14)$$

となり, 位相整合条件を満たすときの, 回折光の回折角を求めることができる. また, (3-11), (3-14)式を用いると, 回折格子への入射角 θ_i は,

$$\sin\theta_i = m\lambda_0 p - \sin\left[\cos^{-1}\left(\frac{m\lambda_0 p}{n_g M \tan\theta}\right)\right] \quad (3-15)$$

となる. 本研究では, 刻線数 2000 mm^{-1} の回折格子の 1 次回折光を用い, また, シリンドリカルレンズ対の倍率 M は 0.5 とした. ポンプ光の中心波長 λ_0 は 800 nm であり, 表 3.1 に示すように 800 nm における LN 結晶の群屈折率 n_g は 2.25 である. LN 結晶における Cherenkov 型光整流の放射角 θ は(3-8)式より約 62° であることから, (3-14), (3-15)式より回折格子への入射角 θ_i , 回折角 θ_d はそれぞれ 71° , 41° と求まる.

3-4-2 パルス面傾斜法による高強度テラヘルツ波の発生とその検出

図 3.13 に本研究で用いたパルス面傾斜法による光学配置を示す. 励起光源には再生増幅型 Ti:sapphire レーザー (Spitfire Pro: 800 nm center wavelength, 35 fs pulse duration, 1 kHz repetition rate, Spectra-Physics) を用いた. ポンプ光とプローブ光の比が 99:1 となるように, ビームスプリッターによって, ビームを分けた. ポンプ光はチョッパーによって 500 Hz に変調された後, 回折格子に入射角 71° で入射する. さらに, Mg ドープ定比組成 LN (Mg:sLN)

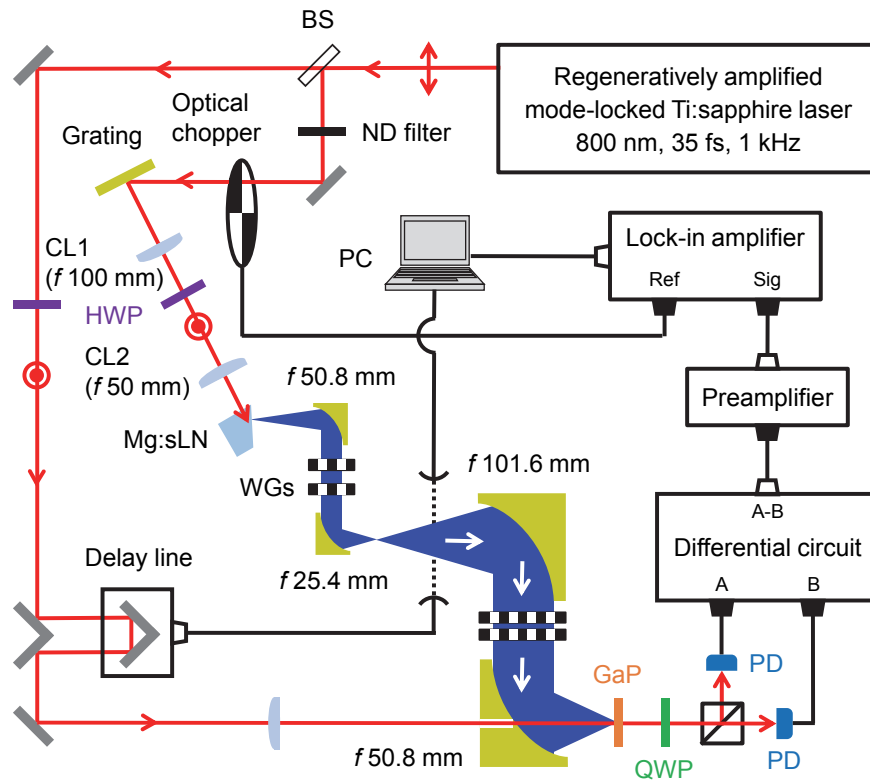


図 3.13 本研究で用いた高強度テラヘルツ波発生の光学配置.

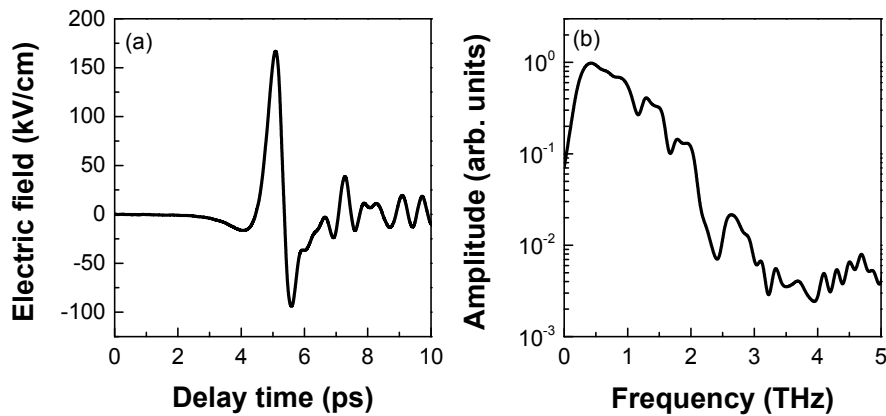


図 3.14 (a) 高強度テラヘルツ波パルス. (b) (a)のフーリエ変換スペクトル.

結晶内で Cherenkov 型光整流の放射角である 62° になるように、2 枚のシリンダリカルレンズ (CL1: $f = 100$ mm, CL2: $f = 50$ mm) でパルス面を傾斜させた。発生したテラヘルツ波は焦点距離 50.8, 25.4, 101.6, 50.8 mm の 4 枚の放物面ミラーを用いて(110)面 $300 \mu\text{m}$ 厚の GaP 結晶に集光した。EO サンプリングによる時間波形の計測を行うため、テラヘルツ波を GaP 結晶に集光するための放物面ミラーに小さな穴を開けておき、レトロリフレクターを搭載した遅延ステージ通過後のプローブ光をミラーの穴へ通し、適当なレンズを用いて GaP

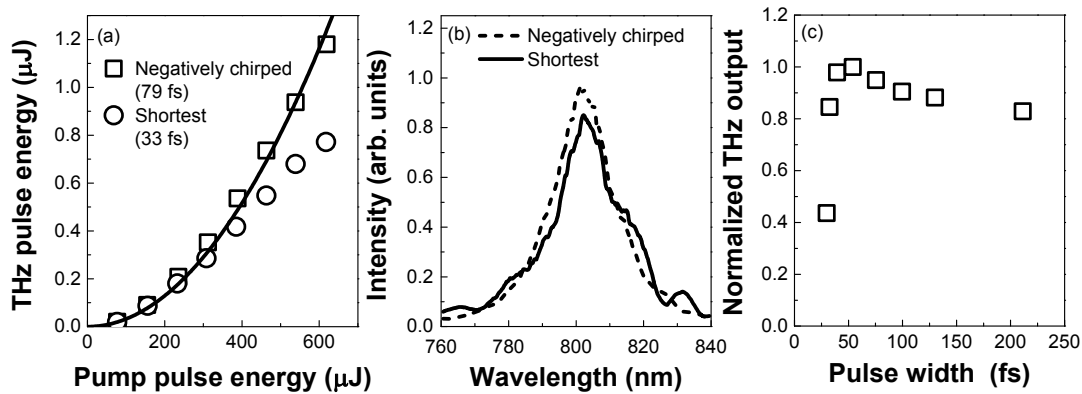


図 3.15 (a) テラヘルツ波パルスエネルギーのポンプ光エネルギー依存性. (□) はポンプ光のパルス幅が 79 fs (負チャープパルス), (○) は 33 fs (最短パルス) のときを示す. 実線は 2 次関数によるフィッティングを示す. (b) 79 fs の負チャープパルス (破線) 及び 33 fs の最短パルス (実線) のときのポンプ光スペクトル. (c) 負チャープパルスのパルス幅を変化させたときのテラヘルツ波出力.

結晶に集光した. テラヘルツ波電場によって生じたプローブ光の偏光変化はバランス検出器を用いて検出した. バランス検出器からの信号を, 電流/電圧変換前置増幅器 (SR570, Stanford Research Systems) で増幅した後, ロックイン増幅器 (SR830, Stanford Research Systems) を用いてロックイン検出した. 図 3.14(a), (b) に得られた高強度テラヘルツ波パルスとそのスペクトルの一例を示す. (2-17)式を用いて電場強度を測定したところ, 得られたテラヘルツ波は最大電場強度約 170 kV/cm のシングルサイクルテラヘルツ波パルスであった. また, そのスペクトル帯域は 3 THz 程度まで及んでいた.

また, 焦電検出器 (THz-5B-MT, Gentec-EO) を用いてテラヘルツ波出力の評価を行った. 図 3.15(a)に発生したテラヘルツ波パルスエネルギーのポンプ光エネルギー依存性を示す. 図 3.15(a)の (○) はポンプ光のパルス幅が最短である 33 fs のときのテラヘルツ波パルスのエネルギー依存性である. パルス幅の測定には, 再生増幅型 Ti:sapphire レーザーの出力直後のビームを, ミラーを用いてオートコリレーターに取り回し測定した. 光整流によるテラヘルツ波発生は 2 次の非線形光学効果であるため, ポンプ光のエネルギーの 2 乗に比例してテラヘルツ波のエネルギーも増加していくが, ポンプ光のパルス幅が最短である 33 fs のとき, ポンプ光のエネルギーを増加させていくと, テラヘルツ波のエネルギーは 2 乗に比例する曲線から逸脱し飽和傾向を示した. 次に, 図 3.15(a)の (□) で示すように, ポンプ光のパルス幅を最短から負のチャープを有する 79 fs のパルスに変えて, 同様の測定を行った. ポンプ光のチャープパルスのパルス幅は, 再生増幅の過程で用いられるパルス圧縮器を調整することで伸縮させた. パルス幅 79 fs の負チャープパルスのとき, テラヘルツ波のパルスエネルギーはポンプ光のパルスエネルギーの 2 乗に比例して増加し, 飽和傾向を示さなかった. 2 乗曲線からの逸脱の原因として考えられるのが, 自己位相変調によるポンプ光スペクトルの変化である. 自己位相変調は光パルスの強度に起因して媒質の屈折率が

変化し、結果として光パルス自身の位相が変調されてしまう現象である[39]。この自己位相変調は光パルスの強度が強くなるほど顕著に現れるため、パルス幅を短くすると自己位相変調の影響を大きく受ける。実際に、回折格子に入射する前のポンプ光スペクトルを、ファイバー結合型分光器 (USB2000, Ocean Optics) を用いて測定すると、図 3.15(b)に示すようにスペクトルの変化が現れた。最短パルスするときスペクトルが歪んだような形状をしているのに対して、79 fs の負チャープパルスするときこの歪みは見られなかった。これはパルス幅が伸長したことでポンプ光パルスの強度が減少し、自己位相変調の影響を受けにくくなったためと考えられる。またこの自己位相変調は、波長板、ND フィルタ等の光学素子を光パルスが通過するときに生じていた。図 3.15(c)に負チャープパルスのパルス幅を変化させたときのテラヘルツ波出力の変化を示す。負チャープパルスのパルス幅を ~ 200 fs から短くしていくと、ポンプ光パルスの強度が増大するため、テラヘルツ波出力も増大していく。しかし、その増加は約 50 fs 付近で頭打ちとなり、それ以下まで短くすると自己位相変調の影響を強く受けて、テラヘルツ波出力は急激に減少している。ここで、正のチャープでは無く、負のチャープパルスのパルス幅を変化させた理由は、波長板、ND フィルタ等の光学素子は正の分散素子であり、光パルスに正のチャープを与えるように働くためである。また、自己位相変調によるテラヘルツ波出力の変化は Stepanov らによっても報告されている[40]。この報告でも、自己位相変調によってポンプ光スペクトルに大きな変化が現れ、このスペクトル変化によってテラヘルツ波出力が減少することが示されている。

図 3.15(a)から、本研究で得られた最大変換効率は、ポンプ光のパルスエネルギー ~ 600 μJ 、テラヘルツ波のエネルギー ~ 1.2 μJ を用いて、0.19%と計算される。ポンプ光の光子数と同数のテラヘルツ波光子が発生したときの Manley-Rowe 限界[39]を考えると、ポンプ光、テラヘルツ波の波長 (800 nm, 300 μm) から見積られる Manley-Rowe 限界での変換効率は約 0.27% である。このことから、Manley-Rowe 限界に限りなく近い高効率な波長変換が行えていることが分かる。

3-5 まとめ

本章では、イメージング、分光、非線形現象の誘起等に応用が可能なテラヘルツ波光源及びそのシステムの開発を目的として、LN 結晶によるテラヘルツ波光源システムの開発を行った。非同軸位相整合条件を概説し、パラメトリック発生、差周波発生、光整流等の発生方法に依らず LN 結晶における位相整合条件の式の形が同じになることを示した。本章で得られた主な成果を以下にまとめる。

- (1) 非同軸位相整合型ピコ秒テラヘルツパラメトリック発振器を構築し、熱型検出器によるテラヘルツ波の強度検出が主流であったパラメトリック発振器においてボウタイ型光伝導アンテナによる時間領域検出を達成した。時間領域検出で得られたスペクトルと、熱型検出器によるスペクトルを比較し、低周波数において時間領域検出が有効な検出手法であることを示した。

- (2) 時間領域検出によって、分割 Si プリズム結合器によるテラヘルツ波パルスの分離を初めて観測した。分光応用等を考えたとき、パルスの分離は望ましいものではないため、単一 Si プリズムによるテラヘルツ波の取り出し、台形型 LN 結晶の利用によってパルスの分離を解消した。
- (3) パラメトリック発振及び光整流によるテラヘルツ波が同じ角度で放射されることから、時間領域検出されたテラヘルツ波においてパラメトリック成分と光整流成分が約 1:1 の割合で含まれていることが判明した。また、得られたテラヘルツ波スペクトルの帯域から、パラメトリック成分の方が光整流成分よりも高周波数成分を含んでいた。
- (4) イメージング、分光応用だけでなく、非線形現象を誘起できる高強度テラヘルツ波光源を開発するため、パルス面傾斜法によるテラヘルツ波の発生を行った。170 kV/cm の高電場テラヘルツ波パルスの発生を達成し、Manley-Rowe 限界に迫る 0.19%の変換効率を達成した。
- (5) 自己位相変調によるポンプ光スペクトルの歪みを明らかにし、このスペクトルの変化によってテラヘルツ波出力が制限されていた。また、最大テラヘルツ波出力を得るにはパルス幅約 50 fs の負チャープパルスをもつポンプ光を用いれば良いことが分かった。

参考文献

- [1] K. Kawase, J. Shikata, and H. Ito, *J. Phys. D. Appl. Phys.* **35**, R1 (2001).
- [2] T. D. Wang, Y. Y. Lin, S. Y. Chen, A. C. Chiang, S. T. Lin, and Y. C. Huang, *Opt. Express* **16**, 12571 (2008).
- [3] T. Edwards, D. Walsh, M. Spurr, C. Rae, M. Dunn, and P. Browne, *Opt. Express* **14**, 1582 (2006).
- [4] K. Suizu, T. Tsutsui, T. Shibuya, T. Akiba, and K. Kawase, *Opt. Express* **17**, 7102 (2009).
- [5] K. Suizu, K. Koketsu, T. Shibuya, T. Tsutsui, T. Akiba, and K. Kawase, *Opt. Express* **17**, 6676 (2009).
- [6] D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis, and D. A. Kleinman, *Phys. Rev. Lett.* **53**, 1555 (1984).
- [7] A. Nahata, A. S. Weling, and T. F. Heinz, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2321 (1996).
- [8] A. Rice, Y. Jin, X. F. Ma, X.-C. Zhang, D. Bliss, J. Larkin, and M. Alexander, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1324 (1994).
- [9] H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 091106 (2011).
- [10] K. Kawase, Y. Ogawa, H. Minamide, and H. Ito, *Semicond. Sci. Technol.* **20**, S258 (2005).
- [11] K. Kawase, Y. Ogawa, Y. Watanabe, and H. Inoue, *Opt. Express* **11**, 2549 (2003).
- [12] 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, *Nature* **487**, 345 (2012).
- [13] H. Hirori, K. Shinokita, M. Shirai, S. Tani, Y. Kadoya, and K. Tanaka, *Nat. Commun.* **2**, 594 (2011).
- [14] K. Fan, H. Y. Hwang, M. Liu, A. C. Strikwerda, A. Sternbach, J. Zhang, X. Zhao, X. Zhang, K. A. Nelson, and R. D. Averitt, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 217404 (2013).
- [15] 服部利明, *レーザー研究* **37**, 345 (2009).
- [16] D. E. Zelmon, D. L. Small, and D. Jundt, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 3319 (1997).
- [17] L. Pálfalvi, J. Hebling, J. Kuhl, A. Péter, and K. Polgár, *J. Appl. Phys.* **97**, 123505 (2005).
- [18] M. Nakamura, S. Higuchi, S. Takekawa, K. Terabe, Y. Furukawa, and K. Kitamura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **41**, L49 (2002).
- [19] K. Kawase, J. Shikata, H. Minamide, K. Imai, and H. Ito, *Appl. Opt.* **40**, 1423 (2001).
- [20] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. Van Exter, and C. Fattinger, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 2006 (2006).
- [21] R. A. Lewis, *Terahertz physics* (Cambridge University Press, 2013).
- [22] F. Sizov, *Opto-Electronics Rev.* **18**, 10 (2009).
- [23] M. Hangyo, *Jpn. J. Appl. Phys.* **54**, 120101 (2015).
- [24] Y. Takida, S. Maeda, T. Ohira, H. Kumagai, and S. Nashima, *Opt. Commun.* **284**, 4663 (2011).
- [25] Y. Cai, I. Brener, J. Lopata, J. Wynn, L. Pfeiffer, J. B. Stark, Q. Wu, X. C. Zhang, and J. F.

- Federici, Appl. Phys. Lett. **73**, 444 (1998).
- [26] P. Y. Han, M. Tani, M. Usami, S. Kono, R. Kersting, and X.-C. Zhang, J. Appl. Phys. **89**, 2357 (2001).
- [27] M. Hangyo, M. Tani, and T. Nagashima, Int. J. Infrared Millimeter Waves **26**, 1661 (2005).
- [28] Y. Tadokoro, Y. Takida, H. Kumagai, S. Nashima, and M. Hangyo, Appl. Phys. Express **7**, 022701 (2014).
- [29] S. Kono, M. Tani, and K. Sakai, Appl. Phys. Lett. **79**, 898 (2001).
- [30] T. Ikari, X. Zhang, H. Minamide, and H. Ito, Opt. Express **14**, 1604 (2006).
- [31] Y. Takida, T. Ohira, Y. Tadokoro, H. Kumagai, and S. Nashima, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **19**, 8500307 (2013).
- [32] T. Ikari, R. Guo, H. Minamide, and H. Ito, J. Eur. Opt. Soc. Publ. **5**, 10054 (2010).
- [33] 有限会社パックス, “Tsurupica テラヘルツスーパーレンズ,”
<http://papapapax.jp/tsuru.html>.
- [34] J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K. A. Nelson, J. Opt. Soc. Am. B **25**, B6 (2008).
- [35] G. A. Askaryan, Sov. Physics-JETP **15**, 943 (1962).
- [36] A. G. Stepanov, J. Hebling, and J. Kuhl, Appl. Phys. B **81**, 23 (2005).
- [37] Z. Bor, B. Rács, G. Szabó, M. Hilbert, and H. A. Hazim, Opt. Eng. **32**, 2501 (1993).
- [38] M. Kunitski, M. Richter, M. D. Thomson, A. Vredenburg, J. Wu, T. Jahnke, M. Schöffler, H. Schmidt-Böcking, H. G. Roskos, and R. Dörner, Opt. Express **21**, 6826 (2013).
- [39] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics, Third Edition* (Academic Press, 2008).
- [40] A. G. Stepanov, S. Henin, Y. Petit, L. Bonacina, J. Kasparian, and J.-P. Wolf, Appl. Phys. B **101**, 11 (2010).

第4章 コレステリック液晶によるテラヘルツセンサーカード[1]

4-1 はじめに

テラヘルツ波を用いたイメージングはテラヘルツ波の有望な応用の一つである[2-5]. テラヘルツイメージングの広範囲への応用に向けて, テラヘルツ波の光源及びイメージング用検出器(イメージャー)の開発が必要不可欠である. 図4.1に各テラヘルツ波光源の平均出力とその周波数分布を示す[6]. mW級以上の平均出力を有する光源としては, 1 THz以上の領域では量子カスケードレーザー[7], p型Geレーザー[8], ジャイロトロン[9], 自由電子レーザー[10]等が, それ以下の周波数領域では, 後進波管[11], 単一走行キャリアフォトダイオード[12]等がある. これらに加えて, 近年近赤外レーザー光からの周波数下方変換による高出力テラヘルツ波光源が報告されている[13-17]. 特に, 本研究で開発したようなパルス面傾斜法を用いた広帯域, 高出力テラヘルツ波光源(3-4節参照)の発展は目覚ましく, このような光源に対して最適なイメージャーが必要である.

現在市販されているイメージャーとして, 図4.2(a), (b), (c)に示すマイクロボロメータアレイ[18,19], 焦電型アレイ[20], テラヘルツ波吸収体におけるサーモグラフィ検出[21]等が

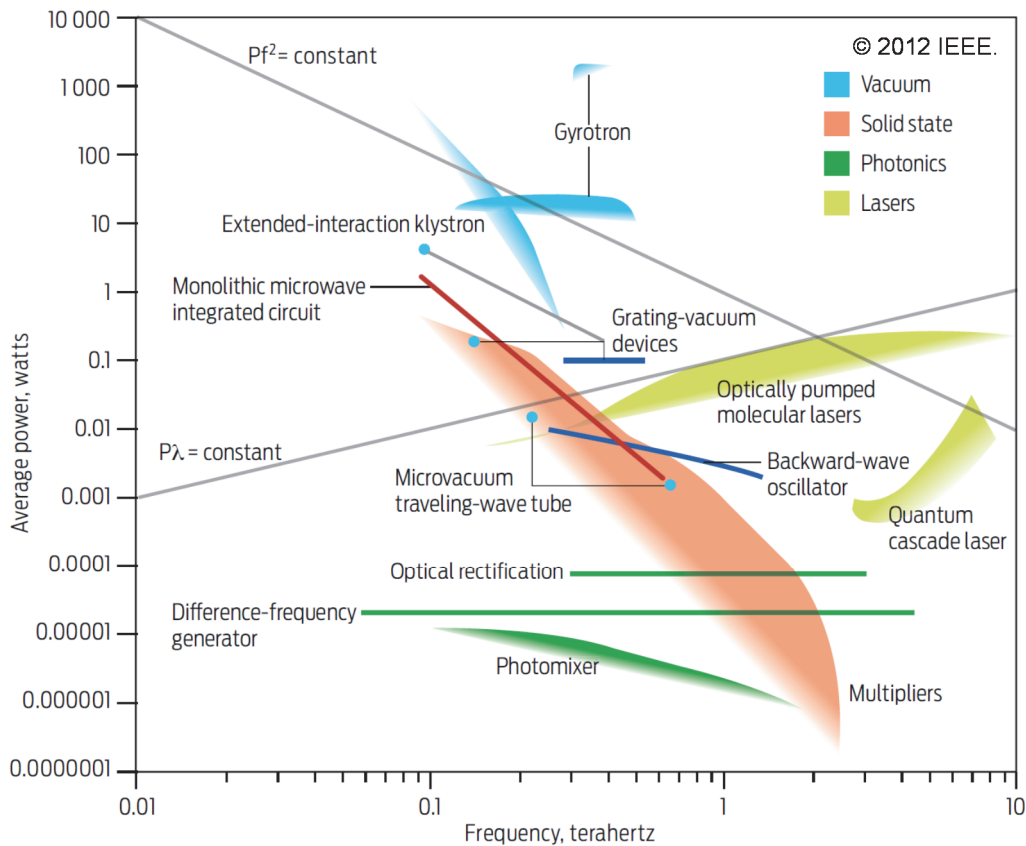


図 4.1 テラヘルツ領域における光源の平均出力とその周波数分布. [6]

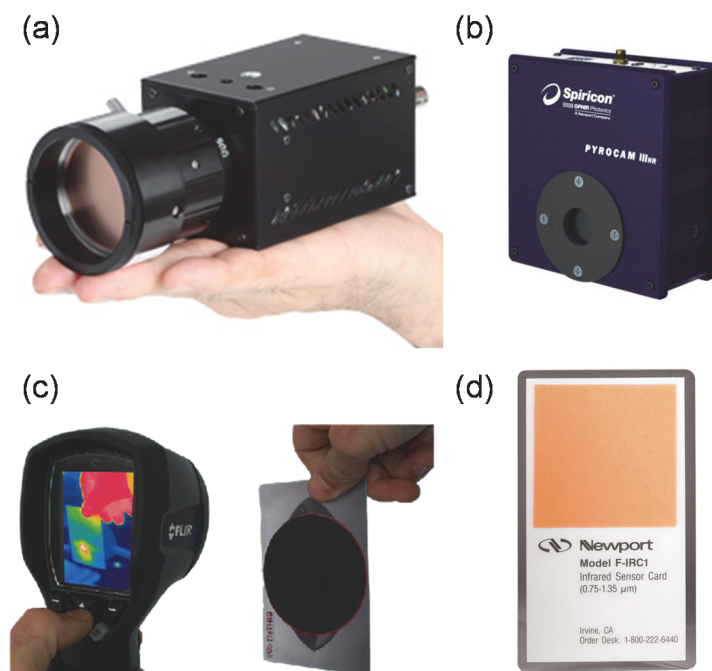


図 4.2 (a) マイクロボロメータアレイ[18]. (b) 焦電型アレイ[20]. (c) テラヘルツ波吸収体におけるサーモグラフィ検出[21]. (d) 近赤外領域のセンサーカード[22].

ある。しかし、マイクロボロメータアレイは高価である、焦電型アレイは高価であることに加えて感度が十分でない、テラヘルツ波吸収体を用いる手法はサーモグラフィカメラや近赤外カメラが別途必要となるといった問題点を有している。また、これらのイメージャーは電源、パソコン等の電子デバイスを必要とするため簡便性に欠ける。テラヘルツ領域では、図 4.2(d)に示す近赤外、紫外領域におけるセンサーカード[22]のような簡便なイメージャーが不足している。センサーカードは電源、電子デバイス等を必要とせず、不可視光を可視光に変換できるため、肉眼でビームプロファイルを捉えることができる。加えて、センサーカードは安価かつ携帯性に優れており、光学系のアライメント、簡便なイメージング等に適している。

コレステリック液晶を用いたテラヘルツイメージャーはテラヘルツ領域のセンサーカードとしての可能性を秘めている。コレステリック液晶は温度によって色が変わる性質を有し[23]、テラヘルツ波を照射すると、テラヘルツ波の吸収によって生じる温度上昇によって液晶の色変化が生じる。この色変化を利用すればテラヘルツ波を可視領域の光として捉えることができるため、コレステリック液晶を用いたテラヘルツイメージャーは、テラヘルツ領域のセンサーカードになり得る。Keilmannらは1971年にコレステリック液晶を用いたテラヘルツイメージャーによって、HCN レーザーからのテラヘルツ波のプロファイルを測定している[24]。しかし、この先駆的な研究報告の後には、2013年にChenらが量子カスケードレーザーからのテラヘルツ波のプロファイルを測定したのみであり[25]、大きな広がり

を見せていない。また、これらの報告では単色テラヘルツ波光源が用いられている。レーザー光の周波数下方変換による広帯域、高出力テラヘルツ波光源の開発が盛んであるにも関わらず、コレステリック液晶によるテラヘルツイメージャーのこれらの光源に対する応用可能性は実証されていない。さらに、測定されるビームプロファイルにおいて、コレステリック液晶を用いたイメージャーと他のイメージャーとの比較も行われていない。この比較はコレステリック液晶を用いたイメージャーの有用性を示す上で必要不可欠である。

本章では、コレステリック液晶を用いて、開発した広帯域なスペクトルを有する高出力テラヘルツ波（3-4節参照）を検出可能な簡便なイメージャー（センサーカード）の開発を目的とする。また開発したセンサーカードを他のイメージャーと比較し、その有用性について議論する。最後に、実際にテラヘルツセンサーカードとしての応用を紹介する。

4-2 テラヘルツ照射によるコレステリック液晶の色変化

4-2-1 コレステリック液晶とは[26-28]

通常、融点を超えると固体は液体へと変化する。しかし、特殊な分子構造を持つ物質は固体から液体に直接転移せず、液晶という中間状態を形成する。液晶は固体の異方性と液体の流動性を兼ね備えており、多くの有機化合物が液晶を形成することで知られている。広く受け入れられている液晶の分類として、図 4.3 に示すスメクティック液晶、ネマティック液晶、コレステリック液晶がある。これらの液晶を構成する分子の形状は棒状もしくは

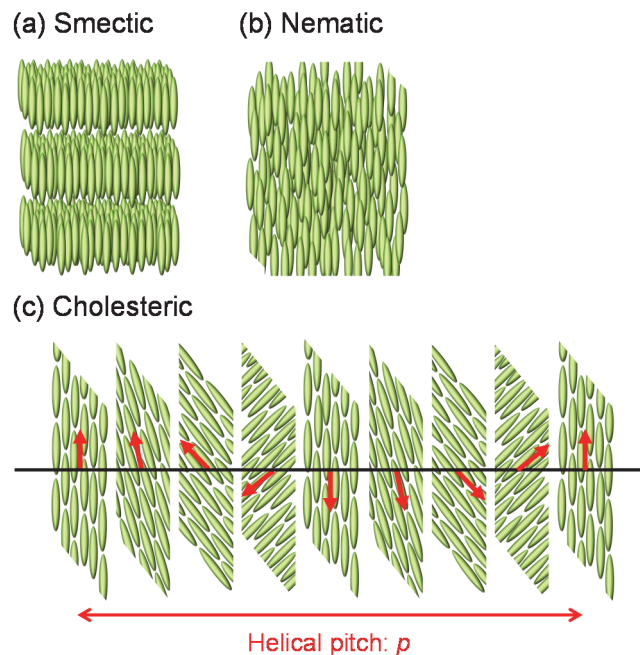


図 4.3 (a) スメクティック液晶, (b) ネマティック液晶, (c) コレステリック液晶の構造.

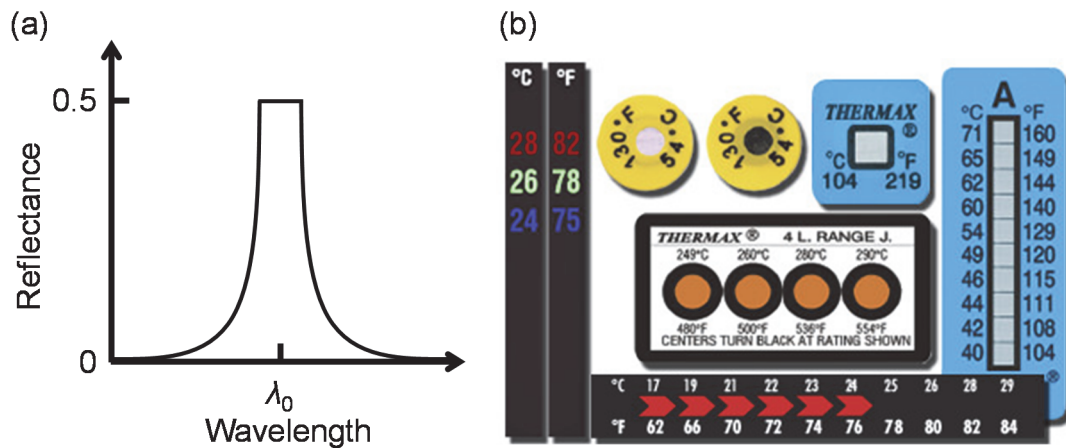


図 4.4 (a) コレステリック液晶の選択光反射における典型的な反射スペクトルの形状。
 (b) コレステリック液晶の選択光反射を利用した温度計[30].

板状であり，分子の配列によって分類される．スメクティック液晶は分子が平行に配列しており，層を形成している．それぞれの分子は層の面に対して垂直，もしくは角度をなしている．ネマティック液晶においても分子が平行に配列しているが，スメクティック液晶に見られる層状構造は存在しない．コレステリック液晶は層状構造を有するが，スメクティック液晶とは異なり，分子が層の面に対して平行に配列している．また，隣接する層で分子軸の方向が少しずつ回転しており，図 4.3(c)に示すように，ヘリカル構造を形成している．回転した分子軸の方向が元の方向に戻るまでの長さをヘリカルピッチと呼び，ヘリカルピッチの長さは可視光のオーダーである．

コレステリック液晶の特異な性質として，選択光反射がある．選択光反射では，コレステリック液晶のヘリカル構造のねじれ方向と同じ回転方向を有する円偏光が選択的に反射される．つまり，ヘリカル構造のねじれ方向が右回り（左回り）のとき，右回り（左回り）円偏光が選択的に反射される．可視光がコレステリック液晶に入射したときを考えると，最大の選択光反射が得られる波長 λ_0 は次式で与えられる[23].

$$\lambda_0 = \bar{n} p \cos \varphi_i \quad (4-1)$$

ここで， p ， φ_i はそれぞれヘリカルピッチの長さ，入射角（ヘリカル軸と入射可視光のなす角）を表す． \bar{n} はヘリカル軸に直交する平面内の平均屈折率であり，分子長軸に平行及び垂直な方向の液晶の屈折率 n_{\parallel} ， n_{\perp} を用いて，

$$\bar{n} = \frac{n_{\parallel} + n_{\perp}}{2} \quad (4-2)$$

と表せる[26]．また，反射波長のバンド幅 $\Delta\lambda$ は，

$$\Delta\lambda = \Delta n p \quad (4-3)$$

となる．ここで， $\Delta n = n_{\parallel} - n_{\perp}$ である．図 4.4(a)に選択光反射で得られる典型的な反射スペ

クトルを示す。選択光反射が生じる波長 λ_0 を中心にバンド幅 $\Delta\lambda$ の領域で高い反射率が得られることが分かる。コレステリック液晶は、(4-1)式を満たす波長の可視光が選択的に反射されるため、特定の色を有しているように見える。一般的に、コレステリック液晶のヘリカルピッチ p は温度に強く依存し、温度上昇によってヘリカルピッチは短くなる[29]。ヘリカルピッチが短くなると、(4-1)式から最大の選択光反射が得られる波長が短くなり、結果としてコレステリック液晶の色がブルーシフトしたように見える。コレステリック液晶を用いれば、温度変化を可視光の色変化として捉えることができるため、コレステリック液晶は図 4.4(b)に示すような簡便な温度計等に利用されている[30]。

4-2-2 コレステリック液晶を用いたセンサーカードの色変化の定量化

図 4.5(a)に本研究で用いたコレステリック液晶によるセンサーカードを示す。また、図 4.5(b)にセンサーカードの各層の詳細を示す。ポリエチレンテレフタレート (PET) フィルム上にアクリル樹脂系アンダーコート剤を介して、コレステリック液晶 (RM2325, Japan Capsular Products) が印刷されている。コレステリック液晶は化学的安定性、取り扱いの容易さ等の理由から、ゼラチンのカプセルを用いてカプセル化されている。カプセル径は約 $20\ \mu\text{m}$ である。コレステリック液晶の背面には色変化をより鮮やかに見せるために、カーボンブラック層が印刷されている。さらに、カーボンブラック層の背面に両面粘着テープを接着している。図 4.5(c)に示すように、本研究で用いたコレステリック液晶は約 $23\text{--}26^\circ\text{C}$ の範囲で赤から青に色変化する。この温度範囲に設定したのは、実験室の温度が空調設備に

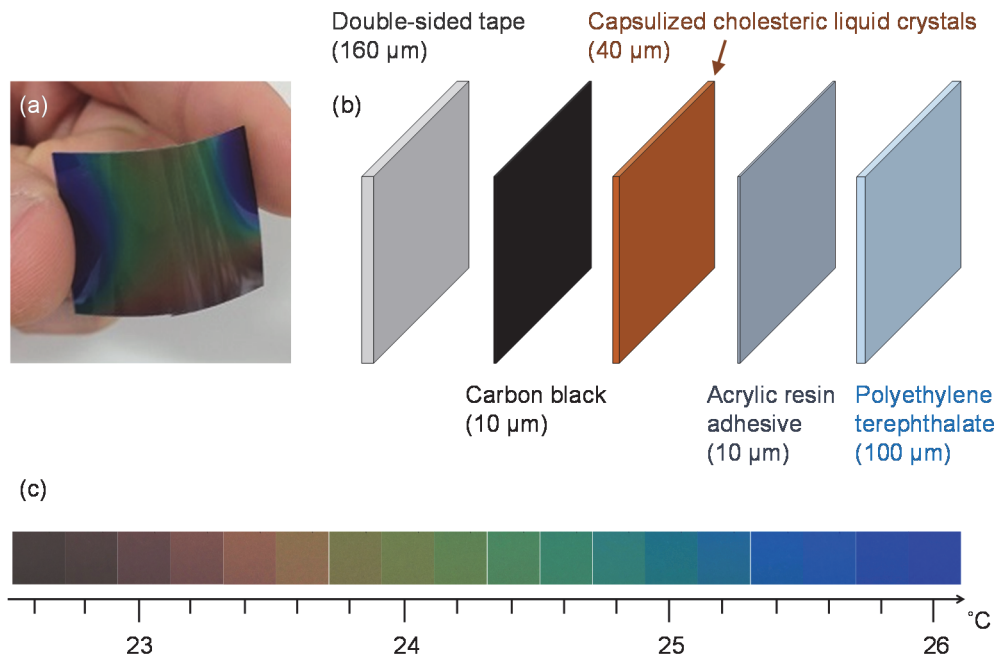


図 4.5 (a) コレステリック液晶を用いたセンサーカード. (b) センサーカードにおける各層の詳細. (c) 温度変化に対するコレステリック液晶の色変化.

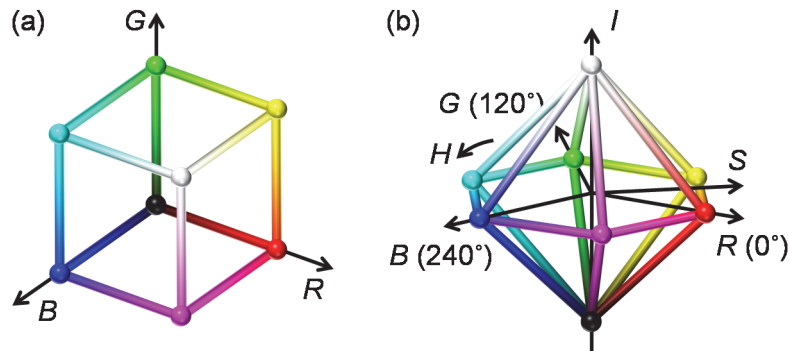


図 4.6 (a) RGB 空間. (b) HSI 空間.

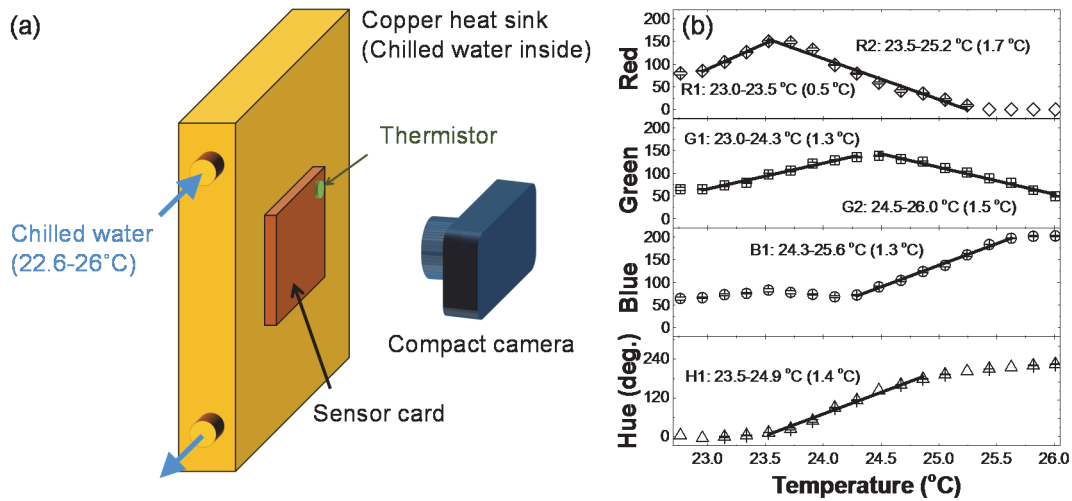


図 4.7 (a) 銅ヒートシンクを用いた温度制御. ヒートシンク内には温度制御されたチラー水を供給した. (b) R , G , B , H 値の温度依存性. $R1$, $R2$, $G1$, $G2$, $B1$, $H1$ は線形フィットを表す.

よって約 23°C で保たれているためである. 液晶の色変化は市販のコンパクトデジタルカメラ (EX-ZR400, CASIO) を用いて撮影した.

温度変化によって生じるコレステリック液晶の色変化を定量化するには, 画像処理が必要不可欠である. 一般的に, 撮影された写真は赤 (Red), 緑 (Green), 青 (Blue) の 3 色による RGB 空間を用いてデジタル化される. さらに, RGB 空間は色相 (Hue), 彩度 (Saturation), 強度 (Intensity) の HSI 空間に変換できる[31,32]. ここで, 赤 R , 緑 G , 青 B と色相 H , 彩度 S , 強度 I の関係は,

$$\begin{aligned}
 H &= \tan^{-1} \left(\frac{\sqrt{3}(G - B)}{2R - G - B} \right) \\
 S &= 1 - \frac{3\min(R, G, B)}{R + G + B} \\
 I &= \frac{R + G + B}{3}
 \end{aligned} \tag{4-4}$$

である。ただし、 $\min(R, G, B)$ は R, G, B の3つの内の最小のものである。RGB空間からHSI空間への変換には様々な定義があるが、本研究で用いた画像処理ソフト(NI-IMAQ, National Instruments)の定義式を(4-4)式に示した[33]。図4.6にRGB空間とHSI空間を示す。HSI空間において、強度 I は、黒のとき最小で白のとき最大となることから、グレースケール化等で用いられる。色相 H は I 軸を中心とした円(色相環とも呼ばれ、図中では簡便のため六角形で示している)における回転角を表し、 R 軸が 0° の基準軸、 G 軸が 120° 、 B 軸が 240° となる。彩度 S は純度の高さを表し、色相環の動径方向の増減を表す。純度が高く鮮やかな色は色相環のより外側に位置する。色が赤→黄→緑→水色→青→紫→赤と変化するとき、色相は 0° から 360° まで単調に増加する。コレステリック液晶の色変化である赤→緑→青という変化に対しても色相は $0^\circ \rightarrow 120^\circ \rightarrow 240^\circ$ と単調に増加する。この特徴から色相はコレステリック液晶の色変化の定量化にしばしば用いられる[31,32,34]。本研究においても、コレステリック液晶を用いたセンサーカードの色変化を定量化する手段として色相が有効であるかどうかを確かめるために、温度変化に伴うRGB値及び色相値の変化を測定した。図4.7(a)に示すように、センサーカード背面に銅ヒートシンクを取り付け、ヒートシンク内にチラーを用いて温度制御した冷却水を循環させることで、センサーカードの温度を制御した。ヒートシンクは連続的に熱を与えることができるため、センサーカードの温度は室温の変化の影響を受けにくい。従って、ヒートシンクを用いてセンサーカードの温度を変化させた。センサーカードの温度は表面に取り付けたサーミスタ(103JT, SEMITEC)を用いて測定した。図4.7(b)にセンサーカードの温度を変化させたときのRGB値及び色相値の平均値を示す。RGB値及び色相値はカメラによって撮影した画像をデジタル化及び(4-4)式に示す画像処理を行うことで求めた。 $R_1, R_2, G_1, G_2, B_1, H_1$ で示すように、RGB及び色相はそれぞれ温度に対して線形に応答する領域を有する。色相は広範囲の線形領域に加えて、温度上昇に伴って単調増加し温度と一対一で対応している。対して、RGBは線形領域を有しているものの温度と一対一で対応していない。このRGBの非単調応答は、液晶の温度上昇によって生じる赤から青への変化が、RGB値の複雑な増減によって表現されていることを意味する。この非単調応答は、RGBを用いた解析を複雑かつ難しくするため、RGBはセンサーカードの定量化には適さない。この点において、色相はセンサーカードの色変化の定量化に最適な指標であることが分かる。ここで、RGB値の非単調な応答はコレステリック液晶を肉眼で見る場合、大きな問題にはならない。これは、人間の目がRGB値それぞれの増減を認識するのが難しいのに対して、色変化を捉える方が容易なためである。以上のような理由から、センサーカードにおける色変化を定量化するために色相を用いた。

4-2-3 センサーカードによるテラヘルツ波ビームプロファイルの測定及びその評価

次に、テラヘルツ波照射による温度上昇を介したセンサーカードの色変化を測定した。図4.5(b)の両面テープ側から最大平均出力1.4 mW、繰り返し周波数1 kHzのテラヘルツ波パルスをも3分間集光照射した。照射するテラヘルツ波光源には、3章で述べたパルス面傾斜法による高出力、広帯域テラヘルツ波光源を用いた。テラヘルツ波の最大出力1.4 mWは焦

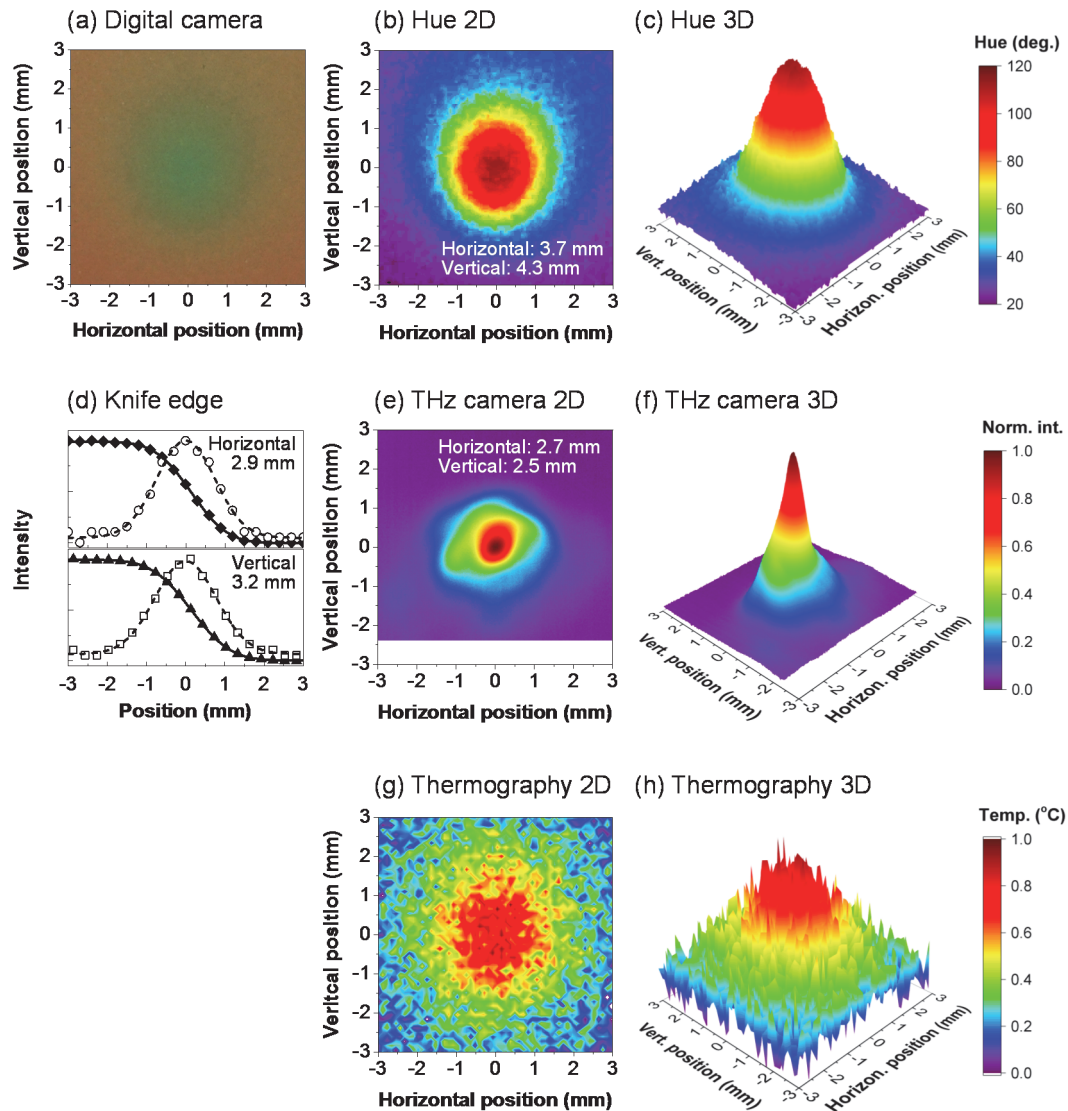


図 4.8 (a) デジタルカメラで撮影したテラヘルツ波照射点でのセンサーカード. (b), (e), (g), (c), (f), (h) 色相変換((b)及び(c)), テラヘルツカメラ((e)及び(f)), サーモグラフィカメラ((g)及び(h))で得られた 2 次元及び 3 次元プロファイル. (d) ナイフエッジ測定における水平及び垂直方向のテラヘルツ強度の変化((\blacklozenge)及び(\blacktriangle)). (\circ), (\square) はそれぞれ (\blacklozenge), (\blacktriangle) の微分を表す. 実線および破線はそれぞれ相補誤差関数およびガウシアン関数によるフィッティングを表す.

電検出器を用いて測定した. 図 4.5(b)の PET フィルム側からデジタルカメラを用いてセンサーカードを撮影した. 図 4.8(a)にデジタルカメラで撮影されたテラヘルツ波照射によるセンサーカードの色変化を示す. 照射点において, コレステリック液晶の色が赤から緑に変化していることが確認できる. この結果はテラヘルツ波照射によってセンサーカードの温度が上昇し, コレステリック液晶のヘリカルピッチが短くなったことを示している. また,

簡便なセンサーカードを用いて、テラヘルツ波のビームプロファイルの色変化として可視化できている。得られた色変化を定量化するため、図 4.8(a)を色相に変換した。図 4.8(b), (c)に色相変換によって得られた 2 次元及び 3 次元プロファイルを示す。色相変換によって鮮明なビームプロファイルが得られていることが確認できる。図 4.8(b)の水平方向、垂直方向の中心位置での色相分布を切り出し、ガウシアン関数でフィッティングすると、水平方向、垂直方向のビーム径はそれぞれ 3.7 mm, 4.3 mm となった。ここで、ビーム径はガウシアン関数のピーク値から $1/e^2$ に減少したときの全幅で定義している。センサーカードで得られたビーム径と他のイメージング法との比較を行うため、ナイフエッジ法[35]、テラヘルツカメラ (IRV-T0831, NEC)、サーモグラフィカメラ (Ti400, Fluke) を用いて同様のビーム径測定を行った。

ナイフエッジ法では、検出器として焦電検出器 (THz-5B-MT, Gentec) を用いた。この方法では、ナイフエッジをテラヘルツビームの波面に対して水平な方向に少しずつ挿入していく。ナイフエッジが挿入されることでテラヘルツ波強度が減衰し、挿入したいくつかの点において強度 I_{THz} を測定する。テラヘルツ波の空間的な強度分布がガウシアン関数に従うとすると、ナイフエッジが位置 x のときの強度 $I_{\text{THz}}(x)$ は次式で表せる。

$$I_{\text{THz}}(x) = \frac{I_0}{2} \operatorname{erfc}\left(\frac{\sqrt{2}}{w_x} x\right) \quad (4-5)$$

ここで、 I_0 , w_x はそれぞれナイフエッジを挿入していないときのテラヘルツ波強度、 $1/e^2$ で定義されるビーム半径である。また、 $\operatorname{erfc}(x)$ は相補誤差関数であり、

$$\operatorname{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^{\infty} \exp(-t^2) dt \quad (4-6)$$

で表される。図 4.8(d)にナイフエッジを挿入したときの水平方向、垂直方向のテラヘルツ波強度の変化を示す ((◆) 及び (▲))。図 4.8(d)の実線は相補誤差関数によるフィッティングである。フィッティングから求めた水平方向及び垂直方向のビーム径は 2.9 mm, 3.2 mm であった。次に、テラヘルツカメラ (IRV-T0831, NEC) を用いてビーム径を評価した。テラヘルツカメラはテラヘルツ領域で常温動作するイメージャーであり、マイクロボロメータをアレイ化したものである。図 4.8(e), (f)にテラヘルツカメラを用いて得られた 2 次元及び 3 次元プロファイルを示す。図 4.8(e)において水平方向、垂直方向のビーム径を評価すると、2.7 mm, 2.5 mm であった。最後に、サーモグラフィカメラ (Ti400, Fluke) を用いてプロファイルを測定した。サーモグラフィカメラは熱輻射によって放射される赤外光を検出するカメラであり、テラヘルツ波照射によって生じたセンサーカードの温度プロファイルを得ることができる。サーモグラフィカメラを用いて撮影した 2 次元及び 3 次元プロファイルを図 4.8(g), (h)に示す。得られたプロファイルは信号雑音比が低く、ビーム径のガウシアン関数でのフィッティングによる評価が困難であった。低信号雑音比の原因として、サーモグラフィカメラの温度分解能がテラヘルツ波の吸収によって生じた温度上昇を捉えるのに十分でないことが挙げられる。本研究で得られたセンサーカードの温度上昇は 1°C 以下であり、サーモグラフィカメラの分解能 (約 0.1°C [36]) では十分な信号雑音比が確保で

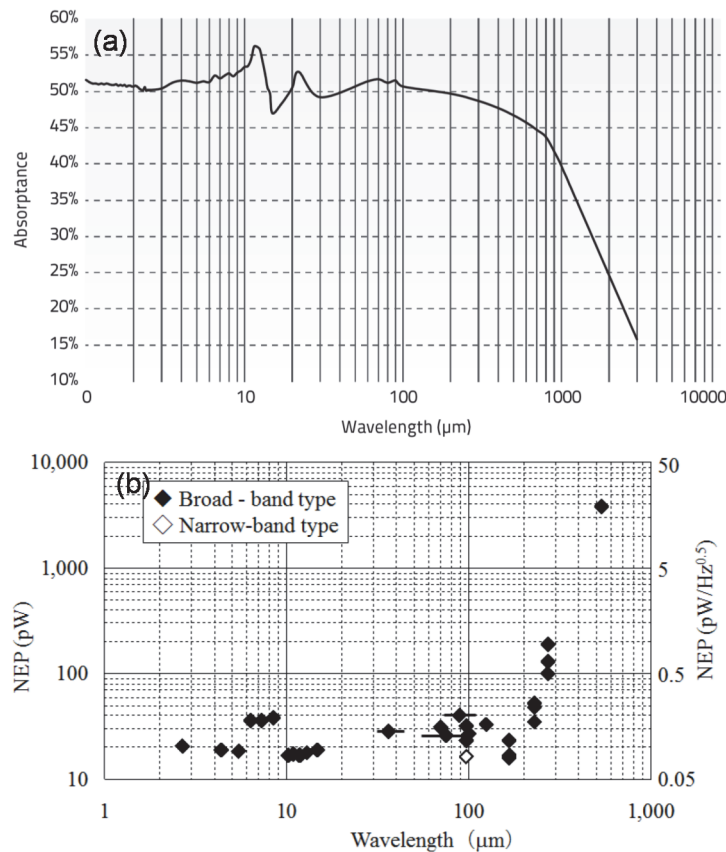


図 4.9 (a) 焦電検出器 (THz-5B-MT, Gentec) [37]及び, (b) テラヘルツカメラ (IRV-T0831, NEC) [38]の感度の波長応答.

きない. この結果から, サーモグラフィカメラはビームプロファイルの測定には適さないと言える.

センサーカード, ナイフエッジ法, テラヘルツカメラで得られたビーム径を比較すると, テラヘルツカメラで得られたビーム径が最も小さいことが分かる. テラヘルツカメラとナイフエッジ法で得られたビーム径の違いは, それぞれのイメージング手法で用いた検出器の検出感度の周波数応答の違いに起因している. 図 4.9(a), (b)に焦電検出器及びテラヘルツカメラにおけるマイクロボロメータの検出感度の波長応答を示す[37,38]. 焦電検出器ではテラヘルツ領域である 0.3-3 THz (波長 100-1000 μm) において吸収に大きな変化はなく, 検出感度がほぼ一定であることを示している. 対して, テラヘルツカメラにおけるマイクロボロメータは 1.5 THz 以下の領域 (波長 200 μm 以上の領域) で, NEP が急激に増加していくことが分かる. NEP は検出可能な最小パワーであり[39], 1.5 THz 以下の周波数領域で検出感度が急激に減少していることを意味する. 本研究で用いた光源であるパルス面傾斜法からのテラヘルツ波は図 3.14(b)に示すように, 0.5 THz をピーク周波数として, 0.2-3 THz 程度までの広帯域なスペクトルを有する. 1.5 THz 以下の検出感度が急激に減少するテラヘルツカメラでこの広帯域なテラヘルツ波を検出すると, 集光点でより大きなビーム径を有す

る低周波成分の方が高周波成分より検出されにくくなる．このため、テラヘルツカメラで得られるビーム径の方が焦電検出器によるナイフエッジ測定でのビーム径よりも小さくなっている．さらに、ナイフエッジ法とセンサーカードで得られるビーム径を比べると、センサーカードの方が大きくなっていることが分かる．この理由としてセンサーカード内の熱拡散が挙げられる．1 kHz の繰り返しで出力される各テラヘルツ波パルスによって生じた熱はセンサーカード平面内に蓄積し、平面内で拡散する．このセンサーカード内の熱拡散によってビーム径が大きくなっている．

4-3 センサーカードの応答時間および検出閾値

4-3-1 色相によるセンサーカードの応答速度及び検出閾値の評価

図 4.10(a)にテラヘルツ波照射後からの色相の増大 (Δhue) の時間変化を示す．ここで、 $\Delta\text{hue} = H_{\text{aft}} - H_{\text{bef}}$ で、照射後の色相 H_{aft} と照射前の色相 H_{bef} との差である．また、図 4.8(b)で示した色相プロファイルの中心画素で得られた Δhue を測定している．センサーカードの時間応答は遅く、数十秒で定常状態に至った．定常状態での色相値の半値に到達する時間をセンサーカードの応答時間と定義すると、応答時間は約 5 秒となる．一般に、コレステリック液晶の温度変化に対する色変化の応答時間は、サブミリ秒～数百ミリ秒程度である [24,40-42]．つまり、各テラヘルツ波パルスによって生じた熱による応答はサブミリ秒～数百ミリ秒程度であると考えられる．しかし、各テラヘルツ波パルスによって生じた熱は液晶の色を変化させるには十分でない．センサーカードの遅い応答時間は、各テラヘルツ波パルスによって生じる熱が次のパルスが照射される前までに緩和せず、センサーカード内に蓄積することを意味している．図 4.7(a)に示すように、センサーカードにヒートシンクを

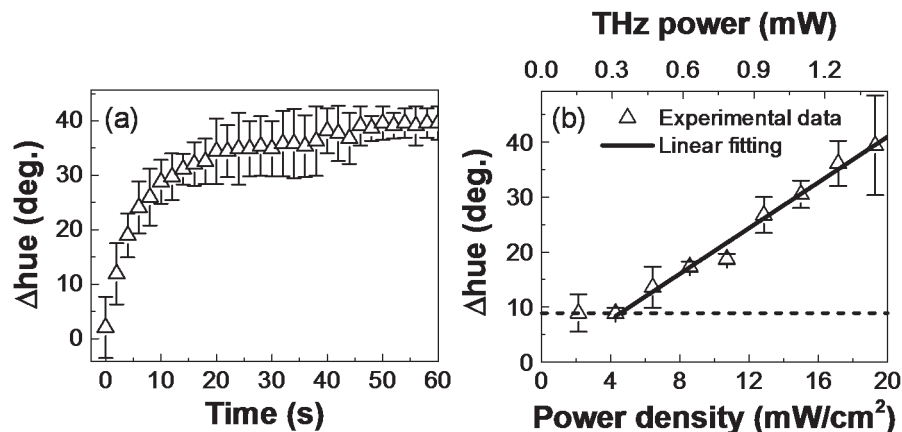


図 4.10 (a) テラヘルツ波照射後からの Δhue の時間変化．(b) テラヘルツパワー密度の変化に伴う Δhue の変化．上側の横軸は焦電検出器で測定した平均パワーを示す．下側の横軸はパワー密度を示し、ナイフエッジ測定から求められるビーム面積で平均パワーを除いて求めた．実線はパワー密度 4.3 mW/cm^2 以上での線形フィッティングを示す．

取り付けた状態で PET フィルム側からテラヘルツ波を照射すれば、センサーカード内に蓄積した熱を厚さ方向に逃がすことができるため、応答時間を速くすることができる。この詳細については4-3-3節で実際の実験データとともに説明する。さらに、蓄積した熱が平面内に広がるのではなく厚さ方向に逃げていくため、図4.8(c)で見られた熱拡散によるビーム径の増大も抑えることができる。しかし、熱が蓄積せず厚さ方向に逃げていくため、センサーカードの温度が十分に上昇せず、センサーカードの感度が低下する。このため、センサーカードの応答時間と感度はトレードオフの関係にあると言える。

図4.10(b)はテラヘルツ波を60秒間照射した後の Δhue のテラヘルツ波パワー密度依存性を示す。テラヘルツパワー密度はテラヘルツ波の平均パワーを、テラヘルツ波のビーム面積で除することで求めた。テラヘルツ波の平均パワーは焦電検出器で測定し、ビーム面積は図4.8(d)に示したナイフエッジ測定で求めた水平及び垂直方向のビーム径 d_{hor} , d_{ver} を用いて、楕円の面積 $\pi d_{\text{hor}} d_{\text{ver}}/4$ として求めた。パワー密度 4.3 mW/cm^2 以上で Δhue のノイズレベルからの線形増加が確認されたことから、センサーカードの検出可能な最小パワー密度は 4.3 mW/cm^2 である。また、最大 Δhue は 19 mW/cm^2 において約 40° であった。この色相の増大値は図4.7(b)の線形フィッティングから 0.31°C の温度上昇に相当する。このことから、色相を用いれば、 1°C 以下の小さな温度変化であっても、十分な評価が行えることが分かる。

4-3-2 センサーカードのテラヘルツ波吸収

図4.11(a)にテラヘルツ時間領域分光法[43]で測定したセンサーカードの透過率 $T(\omega)$ 、反射率 $R(\omega)$ 、吸収率 $A(\omega)$ を示す。 $T(\omega)$, $R(\omega)$, $A(\omega)$ は(2-20), (2-24), (2-25)式から求めた。 $T(\omega)$, $R(\omega)$, $A(\omega)$ のスペクトルに見られる振動は、センサーカード内でのテラヘルツ波の多重反射による干渉効果によって生じている。図4.11(b)に GaP 結晶を用いた EO サンプリングによって計測したテラヘルツ波のパワースペクトル $P_{\text{THz}}(\omega)$ を示す。入射テラヘルツ波パワーとセンサーカードによって吸収されたテラヘルツ波パワーの比 γ_{ratio} は、 $P_{\text{THz}}(\omega)$ 及び $A(\omega)$ を

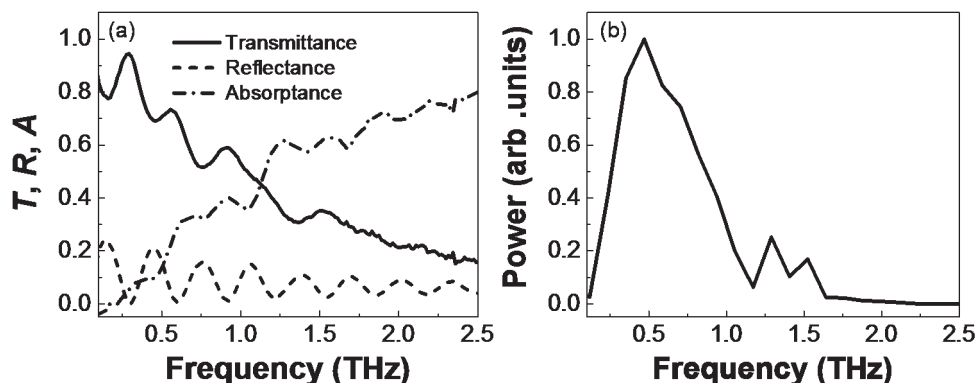


図 4.11 (a) テラヘルツ領域におけるセンサーカードの透過率 $T(\omega)$ (実線), 反射率 $R(\omega)$ (破線), 吸収率 $A(\omega)$ (一点鎖点). (b) EO サンプリングによって計測したテラヘルツ波パワースペクトル $P_{\text{THz}}(\omega)$.

用いて,

$$\gamma_{\text{ratio}} = \frac{\int P_{\text{THz}}(\omega)A(\omega)d\omega}{\int P_{\text{THz}}(\omega)d\omega} \quad (4-7)$$

と表せる。(4-7)式の積分を 0.2-2.5 THz の範囲で実行すると, $\gamma_{\text{ratio}} = 0.26$ となる。これは, 照射したテラヘルツ波パワー全体の 26%がセンサーカードによって吸収されていることを意味している。残りの 74%はセンサーカードを透過もしくは反射しており, 図 4.11(a)からも分かるように, その大部分は透過している。センサーカードにおける吸収の大部分は図 4.5(b)に示すカーボンブラック層, PET 層で生じていると考えられる。これは, カーボンブラック及び PET のテラヘルツ領域での吸収係数はそれぞれ数百 cm^{-1} [44], 数十 cm^{-1} [45]と大きいためである。カーボンブラックの方が PET より吸収係数は 1 桁大きい, その厚みは 1/10 であるので吸収量は同程度となる。図 4.11(a), (b)から分かるように, パワースペクトルのピーク周波数である 0.5 THz 程度の低周波数においてセンサーカードの吸収率は低い。このことを考慮すると, 現在のセンサーカードに吸収層を追加することで, 低周波数において吸収を改善できる可能性がある。例えば, メタマテリアルによる吸収体[46,47]は, 構造のパラメータを変化させることで所望の周波数で高い吸収率を期待できることから, 今後の吸収率改善に向けて良い候補になると考えられる。また, カーボンブラック層の厚みを増やすという手法でも改善が可能であると考えられる。

また, 吸収率改善に加えて温度上昇に繋げるには熱容量を小さくすることも重要である。同じ吸収を有する材料であれば熱容量が小さい材料の方が温度上昇に繋がる。メタマテリアルによる吸収体は金属で構成されるだけでなく薄膜であるため, 低熱容量も期待できる。メタマテリアル吸収体によって吸収率改善および低熱容量が実現できれば, 現在のセンサーカードの検出閾値である 4.3 mW/cm^2 はさらに低くできると考えられる。

4-3-3 センサーカードの応答時間の向上

4-3-1 節において, センサーカードの応答時間がヒートシンクを用いることで改善できることに触れた。本節では実験を通してこのことを実証する。前述したように, センサーカードの応答時間は, 各テラヘルツパルスによってカード内に生じた熱が蓄積するため遅くなっている。ヒートシンクは発生した熱を厚さ方向に逃がし, 熱の蓄積を防ぐため, センサーカードの応答を速めることができる。また, 前述のようにセンサーカードの応答時間と感度はトレードオフの関係であるから, ヒートシンクを用いて応答時間を速くするとき, 感度が低下してしまう。そこで, さらなる高強度光源である自由電子レーザー (Free Electron Laser: FEL) [10]を照射源に用いて, 感度低下が生じても十分な信号雑音比を確保できるようにした。照射源には, 産業科学研究所量子ビーム発生科学研究分野磯山研究室で開発されている自由電子レーザーを利用した[48,49]。自由電子レーザーでは, 電子を光速に近い相対論的速度まで加速させ, アンジュレータと呼ばれる周期的な磁場発生装置を通過させることで蛇行させる。電子が蛇行するときのシンクロトロン放射光を共振器内に閉じ込め増強することで, レーザー発振させる[50]。図 4.12(a)に FEL, ヒートシンクを用いたときの光

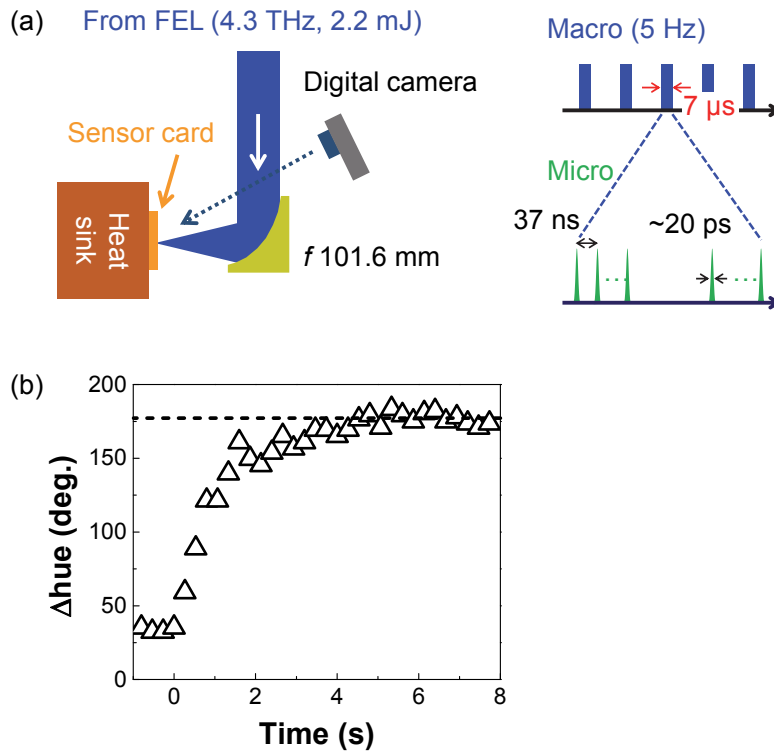


図 4.12 (a) ヒートシンク, FEL を用いたときの光学系及び FEL からのテラヘルツ波出力の概要. (b) ヒートシンク, FEL を用いたときのセンサーカードの応答時間.

学系及び FEL からのテラヘルツ波出力の概要を示す. FEL からのテラヘルツ波は 5 Hz の繰り返し周波数で出力されるマクロパルスの中に, 37 ns 間隔でマイクロパルスが繰り返し出力されている. マクロパルスのパルス幅は 7 μs, マイクロパルスのパルス幅は ~20 ps である. マクロパルスのパルスエネルギーは 2.2 mJ で, 中心周波数は 4.3 THz である. FEL からのテラヘルツ波は焦点距離 101.6 mm の放物面ミラーでセンサーカードに集光した. センサーカードの背面にはヒートシンクを取り付けている. 放物面ミラーの斜め背面にデジタルカメラを設置し, センサーカードの色変化を撮影した. 図 4.12(b)に FEL, ヒートシンクを用いたときの Δhue の時間変化を示す. 約 5 秒で定常状態に達し, 図 4.10(a)と同様に応答時間を定義し求めると約 0.6 秒となった. ヒートシンクを用いていないときの応答時間は約 5 秒であったので, 用いていないときと比較して高速な応答が得られていることが分かる. このことから, 自由電子レーザー等の高強度光源に対してはヒートシンクを用いることで, 高速応答可能なセンサーカードとしても利用可能である.

4-4 センサーカードと他のイメージャーの比較

ここで, センサーカードと他の既製品のテラヘルツイメージャーとの比較を行う. 表 4.1 に焦電型アレイ, マイクロボロメータアレイ, コレステリック液晶を用いたセンサーカー

表 4.1 焦電型アレイ, マイクロボロメータアレイとセンサーカードとの比較. [20,38]

	Pyro. arrays	μ bolom. arrays	Sensor card with hue
NEP (per pixel)	13 nW/Hz ^{1/2}	~8 pW/ Hz ^{1/2}	–
Detect. energy density	8 μ J/cm ² (for pulse)	–	4.3 μ J/cm ² (for THz pulse)
Response time	<20 ms (estimated)	10-20 ms	~5 s
Pixel pitch	75 μ m	23.5 μ m	–
No. of pixels	320×320	320×240	–
Price (To our knowledge)	Tens of thousands of dollars	Tens of thousands of dollars	A few tens of dollars + Digital camera

ドの性能とおおよその価格の一覧をまとめた。感度（NEP もしくは検出可能パルスエネルギー密度）で比較すると、マイクロボロメータアレイが最も優れた感度を有していることが分かる。コレステリック液晶によるイメージャーはセンサーカード形態でありながら、焦電型アレイより感度がわずかに高い。しかし、応答時間を比較すると、焦電型アレイ、マイクロボロメータアレイは数十 ms であるのに対して、センサーカードは約 5 s と非常に遅い。これは、前述のように熱の蓄積による効果が顕著に現れているためである。また、通常のイメージャーでは、最小空間分解能の指標として画素ピッチが用いられる。マイクロボロメータアレイは焦電型アレイの 1/3 の画素ピッチを有しており、より空間分解能が高いことが分かる。センサーカードにおける画素ピッチは、撮像するデジタルカメラの画素ピッチに大きく依存する、熱拡散の影響を排除できないといった理由から定義することは困難であるため、表 4.1 には記載していない。価格面では、コレステリック液晶によるセンサーカードは数 cm 角のカードが数千円程度で作製可能であり、他のイメージャーと比べて格段に安い。

上記の点を考慮すると、コレステリック液晶によるイメージャーは低価格かつ焦電型アレイと同等の感度を有し、極めて簡便に使用できることから、センサーカード形態での使用に最適であるといえる。

4-5 センサーカードのテラヘルツ波アライメントへの応用

最後にセンサーカードの応用例を挙げておく。センサーカードはテラヘルツカメラ等のイメージャーに比べて、簡便さが特徴であった。電源、電子デバイス等を使用せずに、テラヘルツ波を可視化できることから、テラヘルツ波のアライメントへの応用が可能である。

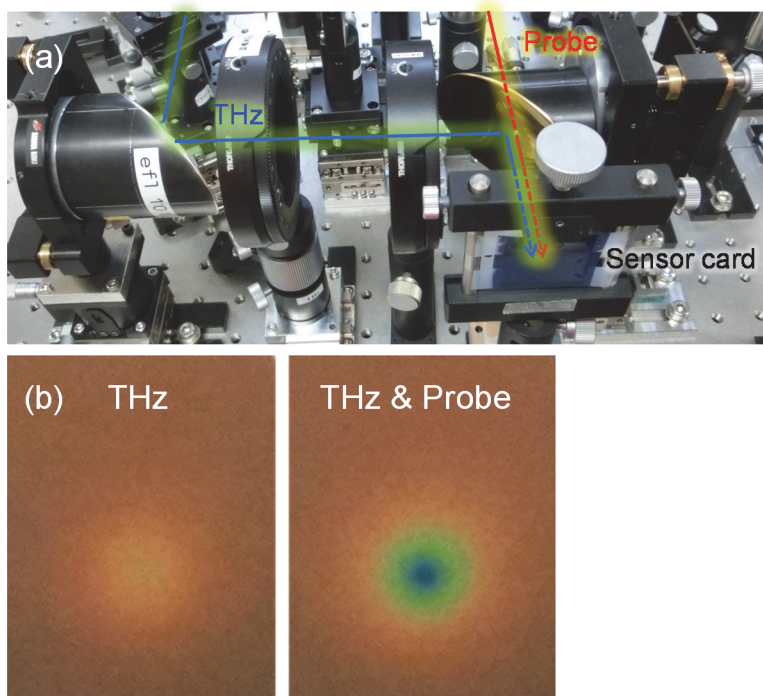


図 4.13 (a) テラヘルツ波光学系のアライメントツールとして用いるときのセンサーカード．(b) センサーカードで可視化したテラヘルツ波及びプローブ光のプロファイル．左側はテラヘルツ波のみを、右側はテラヘルツ波とプローブ光を同時に照射したときの写真．

テラヘルツ領域にはセンサーカードのような簡便なアライメントツールが無く、そのアライメントは根気、忍耐力を伴うことが多い。特に、EO サンプリングに向けたアライメントでは、テラヘルツ波とプローブ光を同軸で EO 結晶に照射しなければならず[51]、困難を伴うことが多い。本研究で開発したセンサーカードは、テラヘルツ波だけでなく可視、近赤外のレーザー等の照射によっても、温度上昇による色変化が生じる。そのため、テラヘルツ波とプローブ光を同時に照射すればそれぞれを可視化することができる。図 4.13(a)に EO サンプリングのアライメントにおいて、センサーカードを使用したときの例を示す。テラヘルツ波の集光点に EO 結晶の代わりにセンサーカードを配置し、プローブ光を穴開き放物面ミラーの穴からセンサーカードに照射する。図 4.13(b)にセンサーカードにテラヘルツ波のみ（図 4.13(b)左側）を照射したとき、テラヘルツ波及びプローブ光（図 4.13(b)右側）を同時に照射したときのセンサーカードの写真を示す。図 4.13(b)の写真を見るとテラヘルツ波照射点で液晶の色が赤から緑に変化しているのに加えて、プローブ光（ $\sim 800 \mu\text{W}$, 1 kHz）を同時に照射することで赤から青へさらなる色変化が見られている。EO サンプリングを行うときはテラヘルツ波とプローブ光が EO 結晶上で空間的に重なる必要があるので、プローブ光及びテラヘルツ波のカードでの照射点の位置を確認しながらアライメントすれば良い。図 4.13(b)においては、プローブ光とテラヘルツ波が空間的に重なっていることがはっきり

と確認できる。このように、センサーカードを用いれば、電源、電子デバイス等を使用せずに肉眼で簡便なテラヘルツ波のアライメントが可能である。

4-6 まとめ

本章では、まず、高出力なテラヘルツ波光源の現状を概説し、これらの光源に対して簡便なイメージャーが不足していることを述べた。そこで、レーザー光の周波数下方変換によって発生させた高出力かつ広帯域なスペクトルを有するテラヘルツ波に対する簡便なイメージャーの開発を本研究の目的とし、コレステリック液晶を用いたセンサーカードの開発及びその色相による評価を行った。また、計測されるビーム径の観点からセンサーカードと他のイメージャーとの比較を行った。本章で得られた主な成果を以下にまとめる。

- (1) 3-4節で開発したパルス面傾斜法による広帯域テラヘルツ波光源に対する簡便なイメージャーとしてコレステリック液晶に着目し、コレステリック液晶を用いたセンサーカードの開発に成功した。コレステリック液晶の温度によって選択反射光の波長が変わる性質を利用して、センサーカードは温度上昇を可視化できる。そのため、センサーカードは、電源、電子デバイス等を必要とせず、肉眼でテラヘルツ波のプロファイルを確認できる簡便なイメージャーとして利用できる。
- (2) センサーカードにおける色変化を定量化するため、一般的に用いられる RGB ではなく色相を利用した。これは、RGB が温度変化に対して単調に増加しないのに対して、色相は単調に線形増加し、温度と一対一で対応するためである。一対一で対応する特徴は定量化を単純化するために有用である。
- (3) 色相を用いた解析によって得られたセンサーカードのビーム径を、他のイメージング手法であるテラヘルツカメラ、ナイフエッジ法、サーモグラフィカメラと比較した。センサーカードで得られるビーム径はカード面内における熱拡散によって広がっていることが判明した。この拡がりヒートシンクを用いることで、蓄積した熱が厚さ方向に逃げていくため、解消することができる。
- (4) センサーカードの応答時間は約 5 秒、検出閾値は 4.3 mW/cm^2 であることを明らかにした。また、最大テラヘルツ波パワー密度 19 mW/cm^2 において色相の最大変化量は約 40° であり、これは約 0.31°C の温度上昇に相当することが分かった。センサーカードはテラヘルツ波照射によって生じる 1°C 以下の温度上昇を捉えることができおり、この点においてサーモグラフィカメラよりも優れているといえる。検出閾値 4.3 mW/cm^2 をさらに低くする手法として、メタマテリアル吸収体のような吸収層の追加を例に挙げ、照射テラヘルツ波のピーク周波数である 0.5 THz 付近での吸収を大きくすることの重要性を述べた。また、応答時間はヒートシンクを装着することで改善でき、FEL を用

いた実験では応答時間は約 0.6 秒まで改善した。これは、センサーカード内の熱の蓄積をヒートシンクが抑えることができるためであった。

- (5) 本研究で開発したコレステリック液晶によるイメージャーは市販のイメージャーと比較して応答速度は劣るが、感度は焦電型アレイと同等であることが分かった。また、価格面では他のイメージャーと比べて格段に安く作製可能であること、簡便に使用可能であることを考慮すると、アライメント等で使用可能なセンサーカードとして利用できる。
- (6) センサーカードの応用例として、EO サンプリングにおけるテラヘルツ波とプローブ光の光軸調整を挙げた。センサーカードはテラヘルツ波だけでなく、可視光、近赤外光のレーザー等の照射でも色変化する。このため、センサーカードを用いれば、EO サンプリングのアライメントにおいてテラヘルツ波とプローブ光の両方の照射点を同時に把握することが可能である。テラヘルツ波とプローブ光の照射点を肉眼で確認しながらアライメントを行うことができるため、根気、忍耐強さが求められるテラヘルツ波のアライメントにおいて有効に活用できる。

参考文献

- [1] Y. Tadokoro, T. Nishikawa, B. Kang, K. Takano, M. Hangyo, and M. Nakajima, *Opt. Lett.* **40**, 4456 (2015).
- [2] S. M. Kim, F. Hatami, J. S. Harris, A. W. Kurian, J. Ford, D. King, G. Scalari, M. Giovannini, N. Hoyler, J. Faist, and G. Harris, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 153903 (2006).
- [3] K. Kawase, Y. Ogawa, Y. Watanabe, and H. Inoue, *Opt. Express* **11**, 2549 (2003).
- [4] K. Shibuya, M. Tani, M. Hangyo, O. Morikawa, and H. Kan, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 161127 (2007).
- [5] B. B. Hu and M. C. Nuss, *Opt. Lett.* **20**, 1716 (1995).
- [6] C. M. Armstrong, *IEEE Spectr.* **49**, 36 (2012).
- [7] B. S. Williams, *Nat. Photonics* **1**, 517 (2007).
- [8] H.-W. Hübers, S. G. Pavlov, and V. N. Shastin, *Semicond. Sci. Technol.* **20**, S211 (2005).
- [9] N. Kumar, U. Singh, T. P. Singh, and A. K. Sinha, *J. Fusion Energy* **30**, 257 (2011).
- [10] B. A. Knyazev, G. N. Kulipanov, and N. A. Vinokurov, *Meas. Sci. Technol.* **21**, 054017 (2010).
- [11] J. H. Booske, R. J. Dobbs, C. D. Joye, C. L. Kory, G. R. Neil, G.-S. Park, J. Park, and R. J. Temkin, *IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol.* **1**, 54 (2011).
- [12] H. Ito, F. Nakajima, T. Furuta, and T. Ishibashi, *Semicond. Sci. Technol.* **20**, S191 (2005).
- [13] Blanchard, G. Sharma, L. Razzari, X. Ropagnol, H.-C. Bandulet, F. Vidal, R. Morandotti, J.-C. Kieffer, T. Ozaki, H. Tiedje, H. Haugen, M. Reid, and F. Hegmann, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **17**, 5 (2011).
- [14] D. You, R. R. Jones, P. H. Bucksbaum, and D. R. Dykaar, *Opt. Lett.* **18**, 290 (1993).
- [15] J. Hebling, K. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K. A. Nelson, *J. Opt. Soc. Am. B* **25**, B6 (2008).
- [16] H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 091106 (2011).
- [17] S. Hayashi, K. Nawata, T. Taira, J. Shikata, K. Kawase, and H. Minamide, *Sci. Rep.* **4**, 5045 (2014).
- [18] NEC, “THz Imager,” <http://www.nec.com/en/global/prod/terahertz/>.
- [19] INO, “IRXCAM-384 THz Terahertz Camera Module,” <http://www.ino.ca/en/products/irxcam-384thz-terahertz-camera-module/>.
- [20] Ophir Photonics, “Pyroelectric Array Camera,” <http://www.ophiropt.com/laser-measurement-instruments/beam-profilers/products/industrialapplications/the-cameras/pyrocam>.
- [21] NeTHIS, “TeraCard,” <http://www.nethis-thz.com/en/nethis-products/nethis-thz-viewer-teracard>.
- [22] Newport, “IR Sensor Card,” http://search.newport.com/?q=*&x2=sku&q2=F-IRC1.
- [23] H.-S. Kitzerow and C. Bahr, *Chirality in Liquid Crystals* (Springer, 2001).
- [24] F. Keilmann and K. F. Renk, *Appl. Phys. Lett.* **18**, 452 (1971).

- [25] I. A. Chen, S. W. Park, G. Chen, C. Wang, C. Bethea, R. Martini, and D. Woolard, Proc. SPIE **8624**, 862415 (2013).
- [26] G. Meier, E. Sackmann, and J. G. Grabmaier, *Applications of liquid crystals* (Springer Verlag, 1975).
- [27] G. H. Brown and J. W. Doane, Appl. Phys. **4**, 1 (1974).
- [28] 松本正一, 角田市良, *液晶の基礎と応用* (工業調査会, 1991).
- [29] J. V Gandhi, X.-D. Mi, and D.-K. Yang, Phys. Rev. E **57**, 6761 (1998).
- [30] Hallcrest, “Temperature indicators,” <http://www.hallcrest.com/>.
- [31] J. Stasiek, A. Stasiek, M. Jewartowski, and M. W. Collins, Opt. Laser Technol. **38**, 243 (2006).
- [32] J. L. Hay and D. K. Hollingsworth, Exp. Therm. Fluid Sci. **12**, 1 (1996).
- [33] National Instruments, “IMAQ Vision Concepts Manual”,
<http://www.ni.com/pdf/manuals/322916a.pdf>.
- [34] J. W. Baughn, M. R. Anderson, J. E. Mayhew, and J. D. Wolf, J. Heat Transfer **121**, 1067 (1999).
- [35] J. M. Khosrofian and B. A. Garetz, Appl. Opt. **22**, 3406 (1983).
- [36] Fluke, “Fluke Ti400 Infrared Camera,”
<http://en-us.fluke.com/products/infrared-cameras/fluke-ti400-infrared-camera.html>
- [37] Gentec-EO, “THz Detectors,”
http://gentec-eo.com/Content/downloads/thz-detectors/Gentec-EO_THz_Detectors_2012_V2.0.pdf.
- [38] N. Oda, A. W. M. Lee, T. Ishi, I. Hosako, and Q. Hu, Proc. SPIE **8363**, 83630A (2012).
- [39] R. A. Lewis, *Terahertz physics* (Cambridge University Press, 2013).
- [40] P. T. Ireland and T. V Jones, J. Phys. E. **20**, 1195 (1987).
- [41] R. Parker, Mol. Cryst. Liq. Cryst. **20**, 99 (1973).
- [42] P. R. N. Childs, J. R. Greenwood, and C. A. Long, Rev. Sci. Instrum. **71**, 2959 (2000).
- [43] M. Hangyo, M. Tani, and T. Nagashima, Int. J. Infrared Millimeter Waves **26**, 1661 (2005).
- [44] Y. Hirakawa, Y. Ohno, T. Gondoh, T. Mori, K. Takeya, M. Tonouchi, H. Ohtake, and T. Hirosumi, J. Infrared, Millimeter, Terahertz Waves **32**, 1457 (2011).
- [45] Y.-S. Jin, G.-J. Kim, and S.-G. Jeon, J. Korean Phys. Soc. **49**, 513 (2006).
- [46] N. I. Landy, C. M. Bingham, T. Tyler, N. Jokerst, D. R. Smith, and W. J. Padilla, Phys. Rev. B **79**, 1 (2009).
- [47] S. A. Kuznetsov, A. G. Paulish, A. V Gelfand, P. A. Lazorskiy, and V. N. Fedorinin, Appl. Phys. Lett. **99**, 30 (2011).
- [48] R. Kato, S. Kondo, T. Igo, T. Okita, T. Konishi, S. Suemine, S. Okuda, and G. Isoyama, Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A **445**, 169 (2000).
- [49] K. Kawase, R. Kato, A. Irizawa, M. Fujimoto, S. Kashiwagi, S. Yamamoto, F. Kamitsukasa, H. Osumi, M. Yaguchi, A. Tokuchi, S. Suemine, and G. Isoyama, Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A **726**, 96 (2013).

- [50] テラヘルツテクノロジーフォーラム, テラヘルツ技術総覧 (エヌジーティー, 2007).
[51] Q. Wu and X.-C. Zhang, Appl. Phys. Lett. **71**, 1285 (1997).

第5章 高強度テラヘルツ波パルスで誘起するコヒーラー効果

5-1 はじめに

金属が良導体であるのに対して、銅、アルミニウム、鉄等の金属粒子の集団は絶縁状態を示すことが知られている。これは金属粒子表面にできる自然酸化膜によって、粒子間の伝導が妨げられるためであると考えられている。しかし、この集団に電波が入射すると、高抵抗（絶縁状態）から低抵抗（伝導状態）に瞬時に転移する[1]。この転移は1890年にBranlyによって発見され、その後Lodgeによってコヒーラーと名付けられている[2]。Marconiは19世紀末に、コヒーラーの電波照射によって抵抗が変化する性質に着目して、電波の高感度受信器や無線通信に応用している[3,4]。しかし、その後コヒーラーは動作が不安定等の欠点から電波の受信器としては定着せず、転移の動作機構の解明がなされないまま、1900年代初頭に新たな受信器に取って代わられている[5]。

新たな受信器に取って代わられてから、コヒーラーは一時廃れてしまった。しかし、1960年代頃からコヒーラーにおける転移の動作機構が再び注目を集めるようになり、動作機構についての議論がなされるようになった。コヒーラーにおける絶縁/伝導転移は電場誘起の現象として理解され、可能性のある動作機構として酸化膜の絶縁破壊やジュール熱による微細溶接等が動作機構として提案されている[6,7]。また、1997年には、Vandembroucqらが赤外カメラを用いて、コヒーラーにおける伝導経路の観測にも成功している[8]。

しかし、コヒーラーにおいてどのように粒子間の伝導経路が形成されるのか、なぜ不可逆的に経路が形成されるのかといった点については明らかにされておらず、コヒーラーの動作機構の完全な解明は現在でもなされていない。また、これまでのコヒーラーは直流、電波を用いて実証、研究されてきており[6,9]、電波よりさらに高速（高周波）のパルスに対してコヒーラーが応答するかどうかは非常に興味深い。フェムト秒レーザーを用いて発生させたシングルサイクルテラヘルツ波パルスを用いれば、ピコ秒の間だけコヒーラーに電場を印加することができ、電波よりもさらに高速なパルスに対するコヒーラーの応答を知ることができる。また、単一のテラヘルツ波パルスを用いてコヒーラー効果を誘起できれば、コヒーラーのシングルショット特性を見出すこともできる。さらに、3-4節で報告したLN結晶からの高強度テラヘルツ波パルスをコヒーラーに集光すれば、コヒーラーにMV/cmを超える電場を印加することができ、コヒーラー効果の誘起に必要な電場閾値についても知見を得ることができる。高速かつ高強度なパルスに対してコヒーラーが動作し得るかどうかを知ることは、コヒーラーにおける伝導経路形成機構の解明にも繋がると考えられる。

そこで、本章ではテラヘルツ波パルスを用いたコヒーラー効果の誘起を実証する。3-4節で開発した高強度テラヘルツ波パルス光源を用いて、コヒーラーのピコ秒テラヘルツ波パルスに対する応答、コヒーラー効果の誘起に必要な電場閾値等について調べる。また、得られた結果を元に粒子間伝導経路の形成機構についても議論する。最後に、ヒューズのような犠牲的な役割を果たす素子としての可能性を提案する。

5-2 コヒーラーの構造とその動作

ここで、コヒーラーの構造及び電波照射時の基本動作をまとめておく[9]。図 5.1(a)及び(b)にコヒーラーの構造及びコヒーラーの動作の概念図を示す。コヒーラーはガラス管の中に金属粒子を入れ、その両端から電極を用いて粒子を挟みこんだ構造をしている。電極間の抵抗値を測定することで、コヒーラーにおける金属粒子集団の抵抗変化を測定する。図 5.1(c)にコヒーラーにおける抵抗値の変化の瞬時変化を示す。電波照射前は接触した金属粒子間の伝導が失われており(図 5.1(b)の(1))、コヒーラーの抵抗値は高く絶縁状態になっている。電波を照射すると接触した粒子間に伝導経路が形成され、電極の端から端まで伝導経路が繋がる(図 5.1(b)の(2))。このため、金属粒子全体の抵抗値が低抵抗に瞬時変化し、伝導状態に転移する。図 5.1(c)に示すように、この抵抗値の変化は基本的に不可逆な変化であり、コヒーラーは一度伝導状態に転移すると低抵抗状態を維持する。しかし、コヒーラーを軽くたたき振動を与えると、粒子が振動、回転、移動することで一度形成された伝導経路は再び失われてしまう(図 5.1(b)の(3))。このため、抵抗値は再び元の高抵抗に戻り、電波受信ができる絶縁状態に戻る。絶縁状態→電波受信による伝導状態への転移→振動による元の絶縁状態への回復という動作を繰り返すことで、コヒーラーは電波の受信器として動作する。

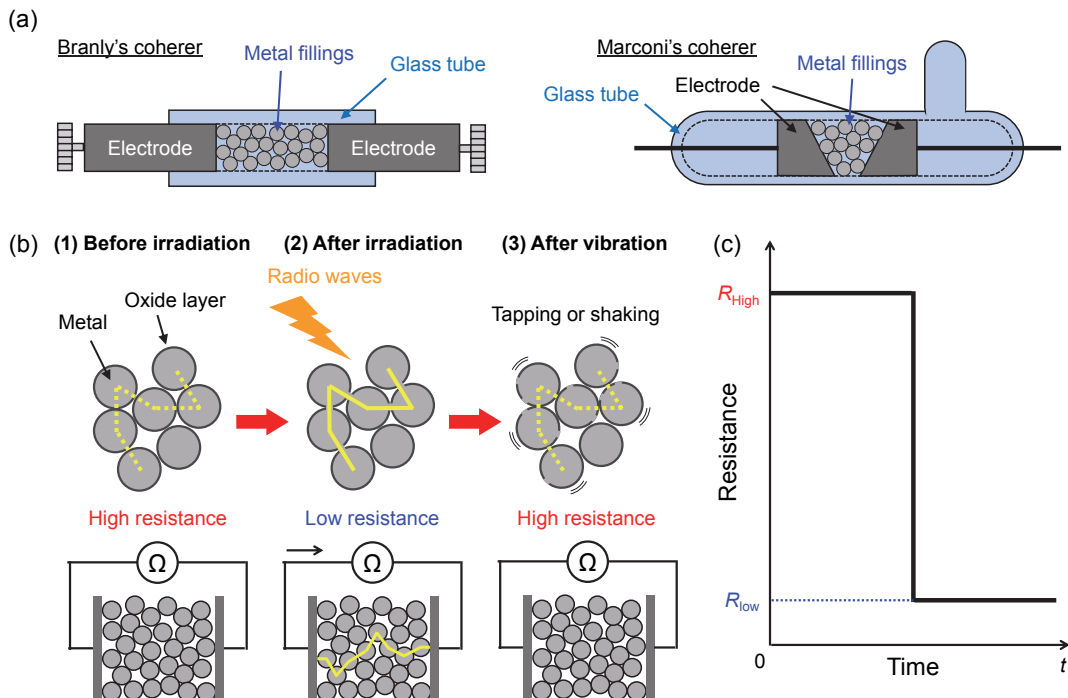


図 5.1 (a) Branly および Marconi が用いたコヒーラー。 (b) コヒーラー動作の概念図。
 (1) 電波照射前, (2) 電波照射後, (3) 振動を与えた後のコヒーラーの抵抗値の変遷。 (c)コヒーラーにおける高抵抗から低抵抗への瞬時不可逆変化。

5-3 アルミニウム粒子集団におけるテラヘルツ誘起コヒーラー効果

5-3-1 直流抵抗の時間変化

まず、テラヘルツコヒーラーを実証するため、図5.1(a)と類似したコヒーラーを作製した。図5.2(a)に作製したコヒーラーを示す。最大粒径 $30\ \mu\text{m}$ のアルミニウム粒子 (AL-014120, Nilaco) を外径 $2\ \text{mm}$ 、内径 $1\ \text{mm}$ の低密度ポリエチレン (LDPE: Low density polyethylene) チューブ内に詰め込み、直径 $1\ \text{mm}$ の円柱状の銅電極で挟んだ。銅電極間は約 $0.5\ \text{mm}$ であった。一般的なコヒーラーとの違いはガラス管を LDPE チューブに変更している点である。この理由は、ガラスはテラヘルツ領域での吸収が大きく、LDPE は比較的吸収が小さいためである[10,11]。コヒーラーの抵抗値の時間変化は、図5.2(b)に示す回路を用いて測定した。一般に素子の抵抗は、電流を回路に流し素子両端に生じる電圧からオームの法則を用いて測定される。従って、抵抗測定では素子に生じる電圧を測ることになるが、図5.2(b)に示すように、コヒーラーに生じる電圧を直接測定するのではなく、コヒーラーに対して直列に接続した抵抗 R_1 の電圧をオシロスコープ (DPO3054, 500 MHz bandwidth, 2.5 GS/s, Tektronix)

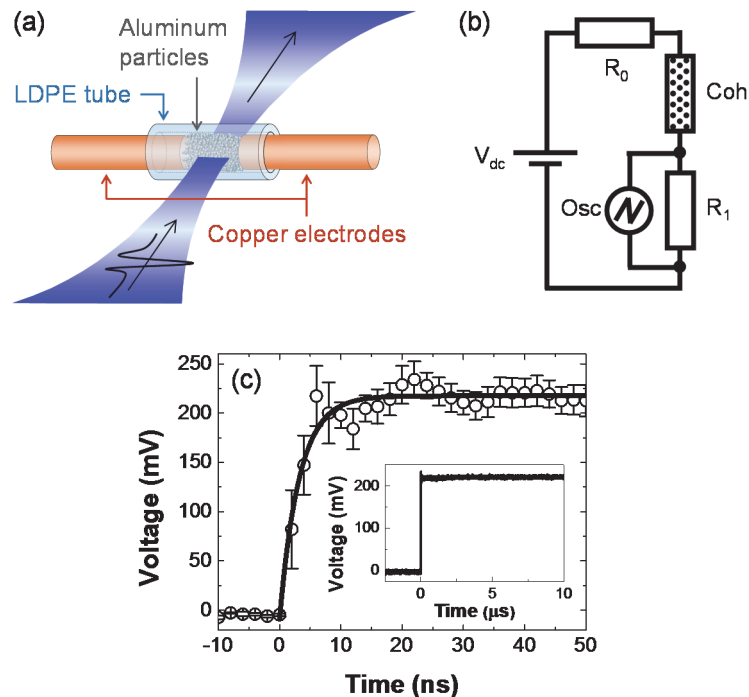


図 5.2 (a) サブ波長アルミニウム粒子を用いたテラヘルツコヒーラー。LDPE: Low density polyethylene. (b) コヒーラーの抵抗値変化を測定するために構築した回路の回路図。 $V_{dc} = 3\ \text{V}$, $R_0 = 240\ \Omega$, $R_1 = 60\ \Omega$, Coh: Coherer, Osc: Oscilloscope. (c) 高強度テラヘルツ波パルス照射によって生じた抵抗 R_1 の電圧変化。黒実線は指数関数によるフィッティングを示す。フィッティングによって得られた時定数 $2.2\ \text{ns}$ であった。横軸の時間スケールを長くしたものを挿入図に示す。

を用いて測定した。これは、高周波信号（高速波形）測定において、インピーダンスの不整合による信号の反射の影響を抑えるためである。通常、信号の伝送には 50Ω の BNC ケーブルが用いられる。測定回路の出力インピーダンス及びオシロスコープの入力インピーダンスが BNC ケーブルのインピーダンスである 50Ω と異なるとき、BNC ケーブルとの間の接続点で信号の反射が生じる。コヒーラーの抵抗は 50Ω とは大きく異なり、直接測定しようとする信号の反射によって、波形にリングングと呼ばれる振動が現れ、正確な時間変化の測定ができない。従って、抵抗値 60Ω の R_1 における電圧の時間変化を測定することで、反射によるリングングの影響を抑えた。

図 5.2(c)に 75 kV/cm の電場強度を有するテラヘルツ波パルスを照射したときの、抵抗 R_1 に生じる電圧の時間変化を示す。ここで、単一のポンプ光パルスを LN 結晶に入射していることに注意が必要である。通常、再生増幅型 Ti:sapphire レーザーからのポンプ光パルスは 1 kHz の繰り返し周波数で LN 結晶に入射している。しかし、本実験ではレーザーのシングルショット機能を用いて単一の光パルスのみを LN 結晶に入射させ、発生させた単一のテラヘルツ波パルスをコヒーラーに照射している。テラヘルツ波パルスを照射する前はほとんど電圧が生じておらず、これはコヒーラーの抵抗が高く回路に電流がほとんど流れていないことを意味する。テラヘルツ波パルスの照射後は電圧が上昇し約 200 mV になっている。これは、コヒーラーの抵抗が低くなったことで回路に流れる電流が増大し、結果として電圧が生じたことを意味する。この結果から、高強度テラヘルツ波パルスの照射によってコヒーラーの抵抗値が変化し、テラヘルツ領域でもコヒーラーが動作することが実証できた。また、挿入図から分かるように照射後の電圧値は約 200 mV を維持しており、コヒーラーの特徴である不可逆な変化が生じていることも確認できる。電圧の時間変化に指数関数によるフィッティングをかけると、時定数は約 2.2 ns であった。ここで注意が必要なのは、この時定数はオシロスコープの帯域幅に制限されている可能性が高いということである。本実験で使ったオシロスコープの帯域幅は 500 MHz で、応答時間に変換すると 2 ns であり、 2 ns 以下の高速な応答は測定できない。得られた時定数 2.2 ns はこの応答時間とおおよそ一致していることから、オシロスコープの帯域幅によって、実際には 2.2 ns の以下の応答時間が制限されてしまったと考えられる。

不可逆変化後のコヒーラーの抵抗値 R_{coh} は、オームの法則を用いて以下のように表される。

$$R_{\text{coh}} = \frac{R_1 R_{\text{osc}} (V_{\text{dc}} / V_1 - 1)}{R_1 + R_{\text{osc}}} - R_0 \quad (5-1)$$

ここで、 R_{osc} はオシロスコープの入力インピーダンス (50Ω) であり、 V_1 は不可逆変化後に抵抗 R_1 に生じた電圧 (約 200 mV) である。(5-1)式を用いて R_{coh} を求めると、 110Ω となる。不可逆変化する前の抵抗値は図 5.2(c)に示すように、 $V_1 \sim 0 \text{ V}$ であるため(5-1)式では算出が困難である。そこで、不可逆変化前の抵抗値はデジタルマルチメータ (Model2400, Keithley) を用いて事前に測定を試みたところ、その抵抗値はデジタルマルチメータが測定できる最大抵抗の $100 \text{ M}\Omega$ 以上であった。従って、照射前後の抵抗値の比は 6 桁以上であると考えられる。また、不可逆抵抗変化後、テラヘルツコヒーラーに振動を与えると抵抗値は元の高

抵抗に戻った。これは電波照射によるコヒーラーと全く同じ性質であり、テラヘルツコヒーラーも同様の性質を有していることが実証された。

本実験で実証したような高強度テラヘルツ波パルス誘起の不可逆伝導変化はメタマテリアル構造等でも観測されている[12-14]。しかし、これらの報告がテラヘルツ波を連続照射することで生じる不可逆な変化であるのに対して、テラヘルツコヒーラーでは単一のテラヘルツ波パルスが不可逆伝導変化を誘起している。つまり、これらの報告とテラヘルツコヒーラーの大きな違いは、単一のテラヘルツ波パルスが不可逆変化を誘起できるかどうかという点であり、この点においてテラヘルツコヒーラーは他の高強度テラヘルツ誘起不可逆変化とは一線を画する。

5-3-2 テラヘルツ帯透過率不可逆減少

前述の抵抗値変化はテラヘルツコヒーラーの動作を実証する結果であり、動作の閾値の確認等のさらなる詳細な現象の理解が必要である。しかし、従来のコヒーラーは、LDPE チューブによる反射等でのテラヘルツ波の減衰があり効率的ではない。さらに粒子が3次元的に詰め込まれているため、電極間に形成される伝導経路が3次元的に作られていると考えられ、その動作機構を理解するのは非常に難しい。

そこで、図 5.3(a)に示すような平面型のコヒーラーを作製した。この平面型コヒーラーでは、アルミニウム粒子を厚さ約 60 μm の粘着テープ上に平面的に分散させている。また、平面型コヒーラーでは両端に電極を作製する必要はない。これは、従来のコヒーラーで直流抵抗の変化を測定する代わりに、平面型コヒーラーではテラヘルツ帯での透過率変化を測定するためである。図 5.3(b)に平面型コヒーラーにおいて分散させたアルミニウム粒子の走査型顕微鏡像を示す。様々な形状をしたアルミニウム粒子が無秩序に分散されていることが分かる。高強度テラヘルツ波パルスの照射前後での平面型コヒーラーの透過率をテラヘルツイメージング[15,16]によって求めた。0.7 μJ の高強度テラヘルツ波パルスを 60 秒間照射した。また、十分な分解能でイメージングできるように、テラヘルツ波の集光点から少しずらしたデフォーカス位置にコヒーラーを設置した。高強度テラヘルツ波とイメージングで用いたテラヘルツ波の偏光方向は同じである。イメージングで用いた光伝導アンテナからのテラヘルツ波の強度は十分に小さく、不可逆変化は誘起しない。図 5.4 に最大の透過率変化が得られた周波数である 1.05 THz での透過率イメージングの結果を示す。図 5.4(a) は照射前の透過率マッピングであり、コヒーラー平面でおおよそ一様な透過率が得られていることが分かる。しかし、高強度テラヘルツ波パルスを照射後、図 5.4(b)に示すようにテラヘルツ波照射位置で透過率が大きく減少していることが分かる。図 5.4(b)の下側には水平および垂直位置が 0 mm における $\Delta T/T$ を示す。ここで、 $\Delta T/T$ は $(T_{\text{aft}} - T_{\text{bef}})/T_{\text{bef}}$ で定義し、 T_{bef} および T_{aft} はそれぞれ高強度テラヘルツ波パルスの照射前、照射後のコヒーラーの透過率を示している。 $\Delta T/T$ は透過率変化を表すために用いられる指標で、照射前後での透過率の変化量の大きさを表す。透過率変化が見られなかったとき $\Delta T/T$ は 0 になり、照射後の透過率が 0 になったとき $\Delta T/T$ は -1 になる。 $\Delta T/T$ のグラフを見ると、テラヘルツ波のビームブ

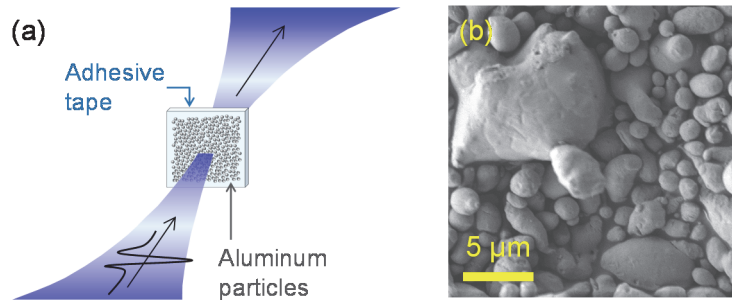


図 5.3 (a) サブ波長アルミニウム粒子を用いた平面型コヒーラー. (b) 平面型コヒーラーの走査型顕微鏡像.

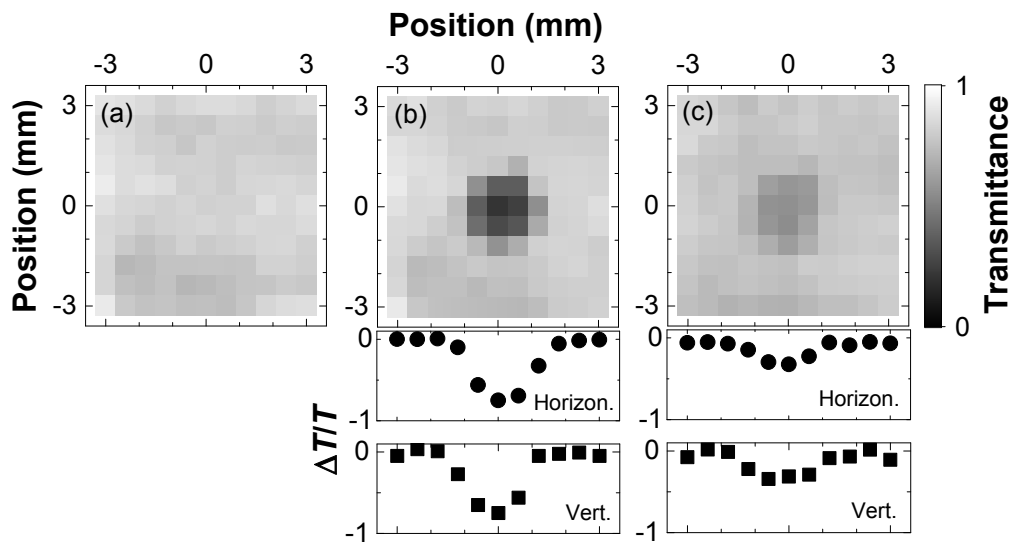


図 5.4 平面型コヒーラーの 1.05 THz における透過率マッピング (0.6 mm ピッチ). 高強度テラヘルツ波パルスの (a) 照射前, (b) 照射後, (c) 照射後平面型コヒーラーを曲げたときの透過率マッピング図. (b), (c) の下側に水平および垂直位置が 0 mm のときの $\Delta T/T$ をそれぞれ示す.

ロファイルに起因した照射点での透過率の減少が見られている. さらに, 高強度テラヘルツ波パルスの照射後, 基板のテープごと平面型コヒーラーを軽く曲げ, 再度透過率マッピングを取得した. 図 5.4(c) にその結果を示す. 図 5.4(b) と図 5.4(c) を比較すると, 図 5.4(c) における照射位置での透過率の減少量は, 図 5.4(b) より小さくなっている. $\Delta T/T$ のグラフで比較しても, 中心位置での $\Delta T/T$ は -0.75 から -0.32 にまで戻っていることが分かる. このことから, 照射後, コヒーラーを基板ごと曲げることで, 概ね照射前の元の状態に戻ることが分かる. これは, 不可逆変化後振動等を与えることで元の状態に戻るコヒーラーの性質を反映していると考えられる.

5-3-3 透過率減少の偏光依存性

次に、透過率減少の偏光依存性について議論する。図 5.5(a)に示すように、高強度テラヘルツ波パルスを“十字”を描くように、縦横 5 点ずつ 1.5 mm 間隔で照射した。縦方向 5 点には水平偏光の高強度テラヘルツ波を、横方向 5 点には垂直偏光のテラヘルツ波を照射した。また、90 kV/cm の電場強度を有する高強度テラヘルツ波を各点 5 秒ずつ照射している。図 5.5(b), (c)に水平偏光および垂直偏光のテラヘルツ波でイメージングを行ったときの透過率マッピングを示す。“十字”を描くように高強度テラヘルツ波を照射したにも関わらず、図 5.5(b), (c)では縦方向もしくは横方向の線状に透過率が減少していることが分かる。これは、高強度テラヘルツ波の偏光とイメージングで用いたテラヘルツ波の偏光が平行のとき透過率の減少が現れるのに対して、垂直のとき透過率の減少が現れないことを示している。つまり、コヒーラーにおける透過率の減少は偏光依存性を有していることになる。このことから、高強度テラヘルツ波パルスの偏光方向に平行な方向にのみ不可逆伝導変化が生じており、コヒーラー内の伝導経路は高強度テラヘルツ波パルスの偏光方向に平行な方向に形成されやすい。ここで、形成されやすいと表現したのは、コヒーラーの場合粒子が無秩序に分散されているからである。粒子が 2 次元正方格子状に水平および垂直方向に周期的

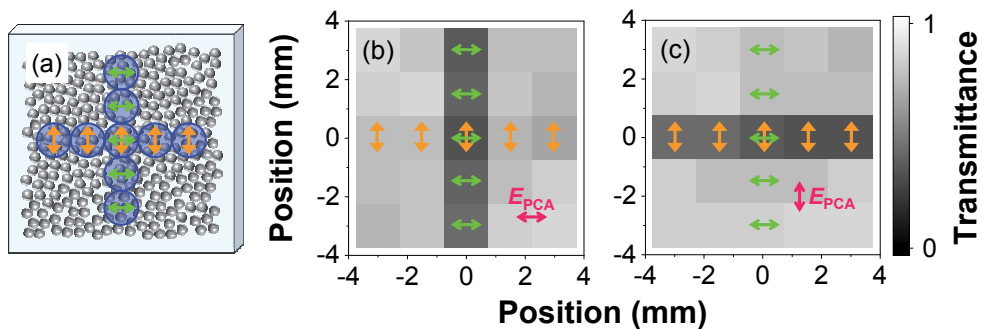


図 5.5 (a) 高強度テラヘルツ波パルスの照射点およびその偏光。○は照射点を、 \leftrightarrow および \updownarrow はそれぞれ水平および垂直偏光を示す。照射点は 1.5 mm 間隔で縦方向および横方向に 5 点“十字”を描くように並んでいる。(a)のコヒーラーにおける(b) 水平偏光および(c) 垂直偏光のテラヘルツ波で測定した 1.05 THz での透過率マッピング (1.5 mm ピッチ)。

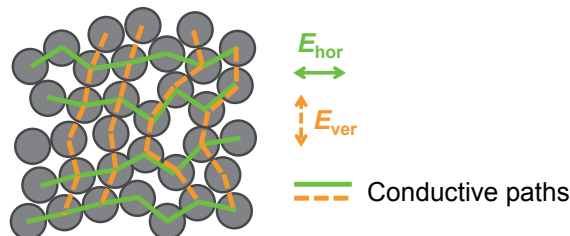


図 5.6 高強度テラヘルツ波の偏光とコヒーラー内に形成される伝導経路の模式図。(—) および(---)は水平および垂直偏光の高強度テラヘルツ波によって形成された伝導経路を示す。

に並んでいたとすると、水平および垂直方向の伝導経路しか形成されない。しかし、粒子は無秩序に分散しているため、水平、垂直方向だけでなくあらゆる方向に伝導経路が形成され得る。図 5.6 にテラヘルツ波パルスの偏光方向と形成される伝導経路の模式図を示した。伝導経路は偏光に平行な方向だけでなく斜め方向にも形成され得るが、マクロな視点で見ると、高強度テラヘルツ波パルスの偏光方向に形成される。

5-3-4 透過率減少の閾値

コヒーラーにおける透過率減少はテラヘルツ時間領域分光等で用いられる光伝導アンテナからのテラヘルツ波では誘起できなかった。これは、透過率減少には高強度のテラヘルツ波が必要であり、透過率減少を誘起できる電場強度の閾値が存在することを意味する。そこで、テラヘルツ波の電場強度と透過率減少の関係性を調べた。

図 5.7(a) にテラヘルツ帯におけるコヒーラーの透過率スペクトルを示す。ただしこの透過率測定においては、図 5.3(a) の粘着テープを厚さ 80 μm の両面粘着テープに変更し、その背面に厚さ 2 mm の Cyclo olefin polymer (COP) (Zeonex480R, 日本ゼオン) 基板を接着した平面型コヒーラーを用いた。コヒーラーに基板を取り付けた理由は、粘着テープのみのコヒーラーの透過率を測定すると、テープ内での多重反射が引き起こす干渉効果によってスペクトル振動が現れてしまうためである。図 5.7(a) において、点線、実線はそれぞれテープのみ

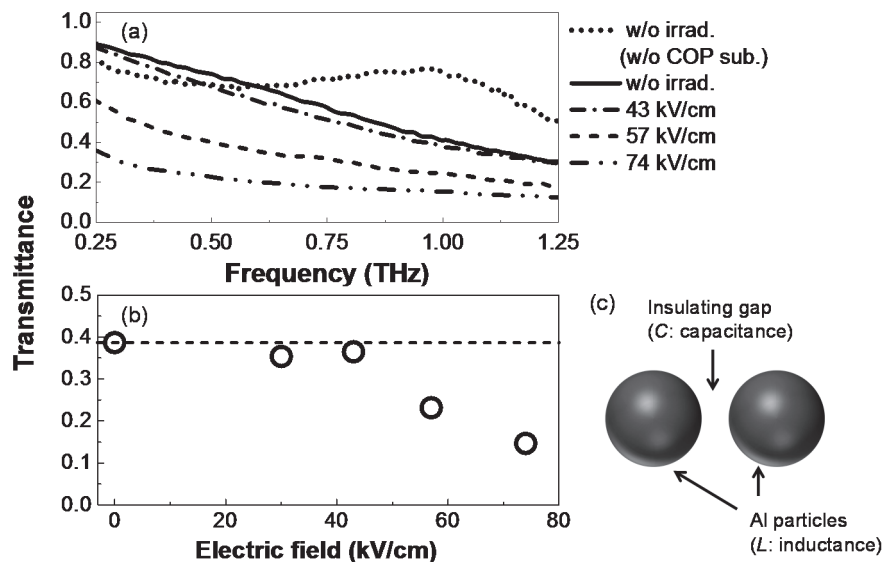


図 5.7 (a) テラヘルツ波の電場強度を変化させたときのテラヘルツ領域でのコヒーラー透過率の不可逆減少。実線及び点線はそれぞれ COP 基板があるとき及びないときの高強度テラヘルツ波パルス照射前の透過率スペクトル。(b) 1.05 THz における透過率のテラヘルツ波電場強度依存性。0 kV/cm におけるプロットは照射前における透過率を示す。(c) コヒーラーの簡略化した模式図。括弧内に LC 回路での役割を示す。

のとき、COP 基板を取り付けたときの高強度テラヘルツ波照射前のコヒーラーの透過率である。COP 基板を取り付けたとき、テープ内での多重反射が軽減されスペクトル振動が小さくなっていることが分かる。また、COP 基板を取り付けたコヒーラーの高強度テラヘルツ波を照射する前の透過率を見ると、高周波数になるにつれて透過率が減少していく傾向が見られる。これは、以下に説明するコヒーラー内の絶縁ギャップによるキャパシタンス特性に起因していると考えられる。図 5.7(c)に示すように、コヒーラーは金属粒子間に絶縁ギャップが存在し、金属粒子、絶縁ギャップはそれぞれ LC 直列回路におけるインダクタ、キャパシタの役割を果たす。キャパシティブグリッド構造[17,18]も同様の LC 直列回路で考えることができ、回路における共振周波数より低周波の領域ではキャパシタンス特性が支配的になる。キャパシタンス特性が支配的になると、周波数が 0 に近づくにつれて透過率は 1 に近づき、周波数が 0 から高くなり共振周波数に近づくにつれて透過率は減少していく[17,18]。図 5.7(a)でもキャパシティブグリッド同様、周波数が 0 THz に近づくにつれて透過率は 1 へ近づき、高周波数になるにつれて透過率が 1 から減少していく傾向が見られている。これは、絶縁ギャップによって金属粒子間の伝導が失われており、キャパシタンス特性が現れていることを意味する。

次に、43 kV/cm, 57 kV/cm, 74 kV/cm の電場強度を有する高強度テラヘルツ波を照射した。平面型コヒーラー全面に高強度テラヘルツ波を照射できるように、7 mm×7 mm の平面型コヒーラーに 1 mm 間隔で高強度テラヘルツ波を計 49 点集光照射した。各照射点における照射時間は 1 秒である。図 5.7(a)において照射後の透過率を見ると、43 kV/cm ではほとんど透過率の減少が見られないのに対して、57 kV/cm, 74 kV/cm と電場強度を増大させると、テラヘルツ領域全体で透過率の不可逆的な減少が現れ、電場強度が大きくなるにつれてその減少量も大きくなっていることが分かる。この透過率減少は、電場強度の増大によって粒子間での伝導が変化し、絶縁ギャップによるキャパシタンス特性が徐々に失われていくことを意味している。粒子間の伝導変化による透過率減少については次節の電磁波シミュレーションを用いて詳細に述べる。図 5.7(b)はテラヘルツ波の電場強度を変化させたときの 1.05 THz における透過率の変化を示している。0 kV/cm におけるプロットは照射前の透過率を示している。電場強度を増大させていくと、約 40 kV/cm を境に透過率の減少が始まり、電場強度が大きくなるにつれてその減少量は大きくなっている。ここで、着目すべきは 40 kV/cm 以下の電場強度では大きな透過率変化は見られなかった点である。このことから、平面型コヒーラーにおいて透過率減少を誘起できる電場閾値は 40 kV/cm であることが分かる。

5-4 有限要素法を用いた電磁波シミュレーション

コヒーラーの動作機構を考える上で、電場増強の見積りは非常に重要になってくる。これは、5-3-4 節で求めたコヒーラー効果を誘起する閾値の電場 40 kV/cm という値は、実際にはコヒーラーにおける絶縁ギャップ部分で増強されているためである。そこで、電磁波シミュレーションを用いて電場増強の見積もりを行うとともに、コヒーラーの電磁波応答の

理解を目指した。

5-4-1 可変抵抗器を用いた透過率の不可逆減少の理解

電磁波シミュレーションは金属微細構造の電場増強等を調べる上で、非常に有効なツールである。しかし、実際のコヒーラーは粒径、位置等が無秩序であり、このような複雑な系の電磁波シミュレーションは膨大なハードディスク容量や計算時間を必要とするため、複雑な系の電磁波応答を完全に再現することは不可能に近い。そこで、コヒーラーの大凡の電磁波応答を理解するため、電磁波シミュレーションできるような系に簡略化した。

図 5.8(a)に簡略化したモデルの概要を示す。球径 $30\ \mu\text{m}$ のアルミニウム粒子が $5\ \text{nm}$ の空気の絶縁ギャップを挟んで六角格子状に無限に並んでいる系を考える。球径の $30\ \mu\text{m}$ は実際のアルミニウム粒子の最大径に、 $5\ \text{nm}$ の絶縁ギャップはアルミニウム表面上に形成される酸化膜の厚みに対応させた[19]。シミュレーションには有限要素法[20] (FEM: Finite element method) に基づいた市販のソフトウェア (HFSS, ANSYS) を使い、計算量を減らすため基板無し of フリースタANDINGシミュレーションとして計算した。アルミニウムの比誘電率は以下に示す Drude モデルで定義した。

$$\epsilon_r = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - i\gamma_d\omega} \quad (5-2)$$

ここで、 ω_p , γ_d はプラズマ角周波数, 減衰定数である。アルミニウムの場合、 $\omega_p = 2\pi \cdot 2.78 \cdot 10^{15}$ [rad/s], $\gamma_d = 2\pi \cdot 1.22 \cdot 10^{13}$ [rad/s] である[21]。図 5.8(b)にシミュレーションにおける

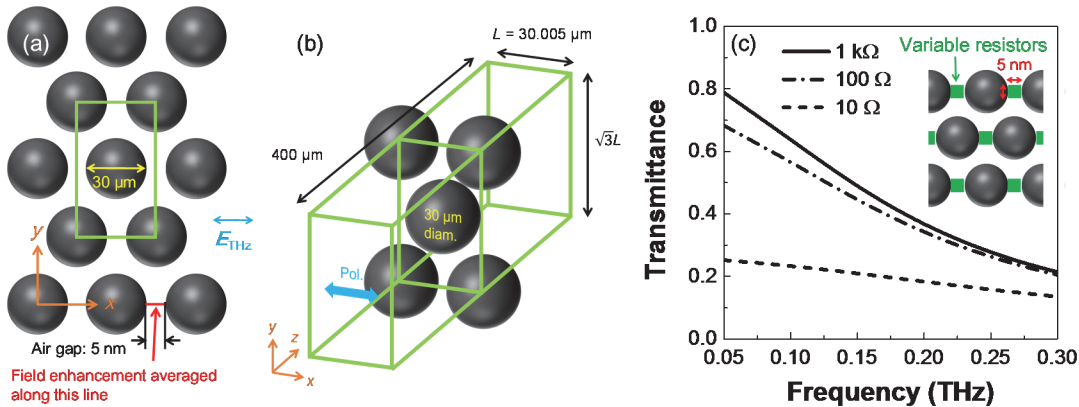


図 5.8 (a) FEM シミュレーションで用いた平面型コヒーラーを簡略化したモデル。 $30\ \mu\text{m}$ のアルミニウム粒子が $5\ \text{nm}$ の空気の絶縁ギャップを挟んで六角格子状に整列している。絶縁ギャップにおける平均電場増強の計算ではギャップ部に示す線に沿った電場増強を平均化した。(b) FEM シミュレーションで用いた単位構造。 x 方向, y 方向には周期境界条件を適用することで無限に広がった系として計算した。テラヘルツ波電場の向きは図中 x 方向に平行とした。(c) テラヘルツ波の電場方向に存在する絶縁ギャップに可変抵抗器を設置したときの透過率。可変抵抗器は $5\ \text{nm}$ 四方の面として定義し, 抵抗値は $10\ \Omega$, $100\ \Omega$, $1\ \text{k}\Omega$ とした。

単位構造を示す。x 方向および y 方向には周期境界条件を適用し、テラヘルツ波の電場は x 方向に平行とした。

5-3-4 節で前述したように、コヒーラーにおける直流抵抗の変化および透過率の減少を考える上で、粒子間の絶縁ギャップにおけるミクロな伝導変化を理解することが重要である。そこで、粒子間での伝導を制御する素子として、粒子間に集中回路素子の可変抵抗器を設置し、可変抵抗器の抵抗値を変化させることで粒子間の伝導変化を模した。5-3-3 節の結果から判明したように、コヒーラーにおける伝導経路は高強度テラヘルツ波の偏光方向に作られていた。そこで、可変抵抗器はテラヘルツ波の電場方向に並んだ絶縁ギャップにのみ設置した。図 5.8(c)に可変抵抗器の抵抗を変化させたときの透過率を示す。ここで、図 5.8(c)では図 5.7(a)とは異なり、0.05-0.3 THz の周波数範囲のスペクトルを示している。これは、平面型コヒーラーとシミュレーションで模したコヒーラーとの構造の違いのためである。シミュレーションでは粒子形状の一括化、周期モデル化等の簡略化を行っているため、平面型コヒーラーの振る舞いを模倣することはできるが完全に再現することはできない。この簡略化によって、実際の平面型コヒーラーとの違いが周波数のシフトとなって現れていると考えられる。このため、図 5.8(c)では図 5.7(a)と同様の振る舞いを示した周波数範囲である 0.05-0.3 THz のみを示した。図 5.8(c)で、可変抵抗器の抵抗値が 1 k Ω と高いとき、粒子間ギャップは絶縁状態に近く、図 5.7(a) のテラヘルツ波照射前のコヒーラーの透過率と類似して、高周波数になるにつれて透過率が減少していく。可変抵抗器の抵抗値は実験の振る舞いをおおよそ再現する値に設定している。抵抗値を 1 k Ω から 100 Ω 、10 Ω と小さくすると、テラヘルツ領域での透過率が全体的に減少し、周波数 0 THz で透過率が 1 に近づくキャパシタンス特性が失われていくことが分かる。これは、粒子間にミクロな低抵抗伝導経路が形成されたことで、粒子間がキャパシタの絶縁ギャップとして機能しなくなったことを意味する。この透過率の減少は図 5.7(a)の電場強度を増大させたときの振る舞いに類似しており、実際の平面型コヒーラーにおいても電場強度を増大させることで粒子間に伝導経路が形成されたと考えられる。粒子間伝導経路による透過率減少は、図 5.2(c)に示す直流抵抗変化実験において、粒子間伝導経路における抵抗の変化がコヒーラー全体の抵抗値を変化させていることを示している。

5-4-2 絶縁ギャップ部における電場増強

図 5.9(a)は絶縁ギャップ部での電場増強値を示す。電場増強は、図 5.8(a)において、ギャップ部に示す線に沿った電場増強を平均化することで求めた。ただし実際には、図 5.9(b)に示すように各周波数における電場増強はギャップ部でほぼ一様であり、平均化した値とギャップ部の任意の点での電場増強値に大きな違いはない。図 5.9(a)から、テラヘルツ領域で数千倍の電場増強が得られていることが分かる。また、この電場増強は偏光に大きく依存し、テラヘルツ波電場の偏光が図 5.8(a)に示す x 方向のとき、x 方向に平行な方向に並んだギャップで、図 5.9(a)に示す電場増強が得られる。対して、偏光が y 方向のとき、x 方向に平行に並んだギャップでは電場は増強されない。この結果から、5-3-3 節で述べた透過率

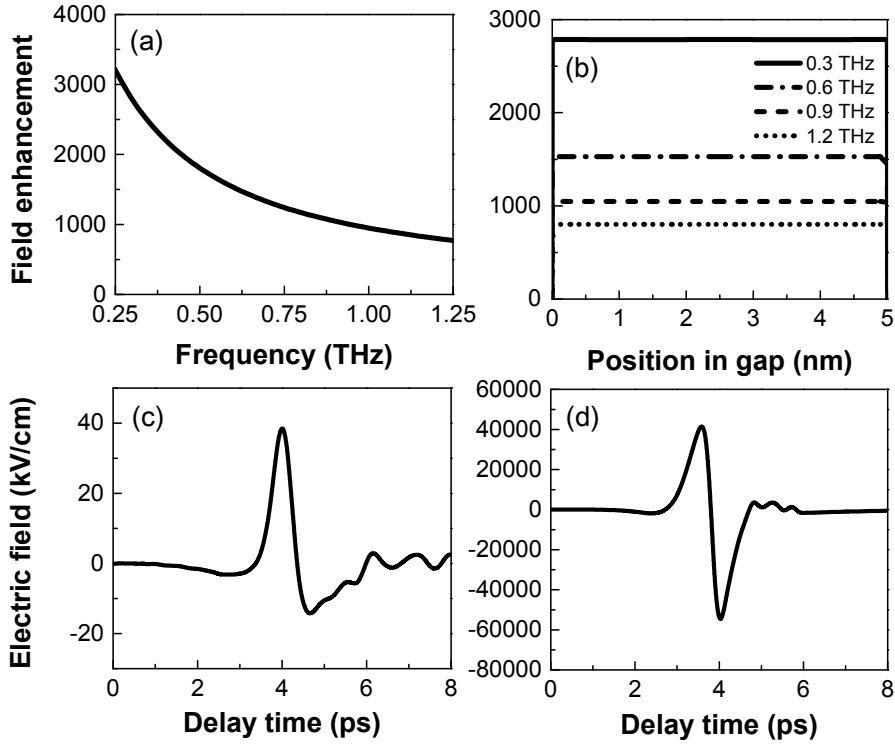


図 5.9 シミュレーションによる電場増強の見積もり. (a) 絶縁ギャップ部での電場増強の周波数依存性. 図 5.8(a)のギャップ部に示す線上での電場強度を平均化した. (b) ギャップ部における電場増強の位置依存性. (c) 40 kV/cm のピーク電場を有する入射テラヘルツ波形. (d) (a)を Kramers-Kronig 変換することで求めた絶縁ギャップでの局所電場波形. 入射電場と局所電場波形のピークは 4 ps に合わせた.

減少の偏光依存性はこの電場増強の偏光依存性に起因しているといえる.

本研究ではテラヘルツ波パルスのコヒーラーに照射しているため、実際には電場増強は時間領域で考える必要がある. 従って、図 5.9(a)の電場増強から時間領域での電場波形を求める必要がある. そこで、Kramers-Kronig 変換[22]を用いて時間領域の電場波形を求めた. 角周波数 ω における複素電場増強を $\tilde{\beta}(\omega) = |\tilde{\beta}(\omega)|\exp\{-i\arg[\tilde{\beta}(\omega)]\}$ とすると、 $|\tilde{\beta}(\omega)|$ および $\arg[\tilde{\beta}(\omega)]$ の間には以下の Kramers-Kronig の関係が成り立つ.

$$\begin{aligned}
 \log_e |\tilde{\beta}(\omega)| &= \frac{2}{\pi} \mathcal{P} \int_0^{\infty} \frac{\omega' \arg[\tilde{\beta}(\omega')]}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \\
 \arg[\tilde{\beta}(\omega)] &= -\frac{2\omega}{\pi} \mathcal{P} \int_0^{\infty} \frac{\log_e |\tilde{\beta}(\omega')|}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega'
 \end{aligned} \tag{5-3}$$

ただし、

$$\mathcal{P} \int_a^b f(x) dx \equiv \lim_{\delta \rightarrow 0} \left[\int_a^{c-\delta} f(x) dx + \int_{c+\delta}^b f(x) dx \right] \tag{5-4}$$

で定義される Cauchy の主値積分である. 実際には、シミュレーションで得られるデータは

離散的かつ有限であるから、 $\Delta\omega$ 間隔で並んだ $(n+1)$ 個の角周波数データ $\omega_0, \omega_1, \dots, \omega_k, \dots, \omega_n$ を用いて、(5-3)式は以下のように離散化される。

$$\begin{aligned} \log_e |\tilde{\beta}(\omega_k)| &= \frac{2}{\pi} \left[\sum_{\omega=\omega_0}^{\omega_{k-1}} \frac{\omega \arg[\tilde{\beta}(\omega)]}{\omega^2 - \omega_k^2} \Delta\omega + \sum_{\omega=\omega_{k+1}}^{\omega_n} \frac{\omega \arg[\tilde{\beta}(\omega)]}{\omega^2 - \omega_k^2} \Delta\omega \right] \\ \arg[\tilde{\beta}(\omega_k)] &= -\frac{2\omega_k}{\pi} \left[\sum_{\omega=\omega_0}^{\omega_{k-1}} \frac{\log_e |\tilde{\beta}(\omega)|}{\omega^2 - \omega_k^2} \Delta\omega + \sum_{\omega=\omega_{k+1}}^{\omega_n} \frac{\log_e |\tilde{\beta}(\omega)|}{\omega^2 - \omega_k^2} \Delta\omega \right] \end{aligned} \quad (5-5)$$

ここで、 $\omega_0 = 0$ 、 $\Delta\omega = \omega_k - \omega_{k-1} = \omega_1 - \omega_0 = \omega_1$ である。(5-5)式は広い周波数領域 $(\omega_0, \omega_1, \dots, \omega_k, \dots, \omega_n)$ において複素電場増強の振幅もしくは位相のどちらかが分かれば、もう一方が求まることを意味する。Kramers-Kronig の関係で複素電場増強の振幅、位相の両方が求まれば、局所テラヘルツ電場波形 $E_{\text{local}}(t)$ は、

$$E_{\text{local}}(t) = \text{FFT}^{-1}[\tilde{\beta}(\omega)\tilde{E}_{\text{inc}}(\omega)] \quad (5-6)$$

から求まる。ここで、 FFT^{-1} 、 $\tilde{E}_{\text{inc}}(\omega)$ はそれぞれ逆高速フーリエ変換演算子、入射テラヘルツ波のフーリエ変換である。図 5.9(a) に示すように、電場増強の振幅は既にシミュレーションによって求まっているので、Kramers-Kronig 変換から位相が求まり、(5-6)式から局所電場波形が求まる。Kramers-Kronig 変換では、角周波数 0 から広い周波数領域にわたって電場増強値が必要である。しかし、角周波数 0 は電磁波シミュレーションでは計算できないため、図 5.9(a) に示す電場増強を 9 次の多項式でフィッティングすることで角周波数 0 のときの電場増強を見積もった。シミュレーションで得た広周波数範囲 0-5 THz の電場増強値を Kramers-Kronig 変換し求めた $E_{\text{local}}(t)$ を図 5.9(d) に示す。図 5.9(c) は入射テラヘルツ波電場波形 $E_{\text{inc}}(t)$ である。局所電場波形も入射電場波形同様シングルサイクルのパルス波形を維持している。図 5.9(c), (d) を見ると、コヒーラーの閾値であった 40 kV/cm の電場強度を有するテラヘルツ波パルスがコヒーラーに入射したとすると、ギャップ部における局所電場強度は約 50 MV/cm になる。

5-5 テラヘルツコヒーラーにおける粒子間伝導経路の形成機構

これまでの議論で、テラヘルツコヒーラーにおいて抵抗値の瞬時変化および透過率の不可逆変化が、粒子間に伝導経路が形成されることに起因していることを明らかにした。実際には、この粒子間に形成されるマイクロな伝導経路が多数の粒子間で形成され、結果としてコヒーラー全体にマクロな大きな伝導経路が形成される。コヒーラー全体でのマクロな伝導変化はパーコレーション理論に基づき、パーコレーションについては 5-6 節で詳細に議論する。本節では、粒子間でのマイクロな伝導経路の形成について議論する。粒子間にどのようにして伝導経路が形成されるのかについて、現在までに高強度テラヘルツ波が誘起する伝導変化現象として報告されている衝突加熱、反復衝突電離等を中心に議論する。

5-5-1 電子の衝突加熱を介した金属の移動

現在までに報告されているテラヘルツ波誘起伝導変化で最もコヒーラーに類似しているのが電子の衝突加熱を介した金属移動である。この現象は、Strikwerdaらによって報告されており、図 5.10(a)に示すようなダイポールアンテナ構造において、高強度テラヘルツ波を照射するとアンテナ電極が移動し、アンテナ間ギャップが接続されるという現象である[13]。この現象は図 5.10(b)に示す機構で理解されている。片方の電極（カソード）から電界放出によってアンテナ間ギャップに放出された電子が、テラヘルツ波電場によって加速され大きな運動エネルギーを得る。加速後の電子が、もう片方の電極（アノード）表面に衝突することで電極を衝突加熱し、電極を蒸発させる。この結果、ギャップ間が蒸発した金属によって接続され、ギャップ部に伝導経路が作られる。この現象は、偏光に依存すること、

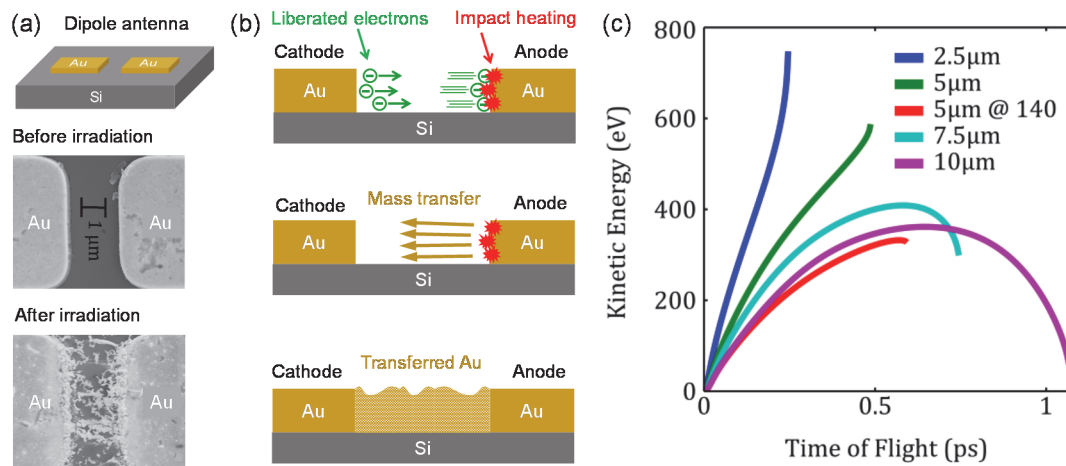


図 5.10 高強度テラヘルツ波パルス照射によるダイポールアンテナにおける電極金属の移動[13]. (a) ダイポールアンテナの形状とその照射前および照射後の SEM 像. (b) テラヘルツ波照射による電極金属移動の概念図. (c) 加速した電子のアノード表面での運動エネルギー. 2.5 μm, 5 μm, 7.5 μm, 10 μm 等はアンテナ間ギャップの長さを示している. アンテナ間ギャップが 10 μm のとき電極移動は観測されていない.

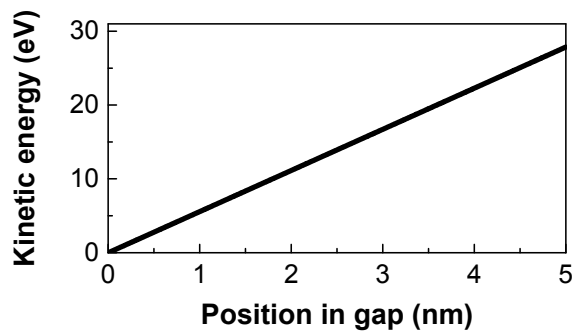


図 5.11 図 5.8(a)のモデルにおいて、ギャップ部で電子が獲得できる運動エネルギー. 5 nm 先の反対側の粒子表面においては~30 eV の運動エネルギーになる.

不可逆変化であること、アンテナ間の伝導経路の形成といった点でコヒーラーと酷似している。Strikwerdaらは図5.10(c)に示すように衝突時における電子の運動エネルギーを見積っている。ギャップ部の長さが2.5 μm , 5 μm , 7.5 μm のとき、電子の運動エネルギーは300-800 eVに到達しているのに対して、10 μm のときは数十 eVにとどまっている。この10 μm のときは、電極の移動は観測されておらず、他の2.5 μm , 5 μm , 7.5 μm のときは電極の移動を観測している。この結果は、衝突加熱において数百 eV 以上の電子の運動エネルギーが必要であることを意味している。

電子の衝突加熱を介した電極金属の移動がコヒーラーにおける粒子間伝導経路の形成機構になり得るかどうかを議論するため、図5.8(a)に示したシミュレーションモデルを用いて電子の運動エネルギーを見積った。電子の運動エネルギー K は電子の質量 m_e を用いて、

$$K = \frac{1}{2} m_e v^2 \quad (5-7)$$

と表せる。電子がテラヘルツ波電場によって加速されたとき速度 v は、

$$\frac{dv}{dt} = \frac{eE_{\text{THz}}(t)}{m_e} \quad (5-8)$$

を解くことによって求められる[13]。ここで、テラヘルツ波電場 $E_{\text{THz}}(t)$ はギャップ部全体で図5.9(d)に示す局所電場波形 $E_{\text{loc}}(t)$ であるとし、電子の無散乱加速を仮定した。(5-7)式、(5-8)式から、ギャップ部の各位置における運動エネルギーを数値計算によって求めた。電子の初速を0とし、最大の運動エネルギーが得られる初期時間を設定したとき、ギャップ部の各位置における運動エネルギーを図5.11に示す。電子がギャップの長さである5 nmを進んだとき、その運動エネルギーは約30 eVであることが分かる。この値は、Strikwerdaらが電極移動を観測したときの運動エネルギーである数百 eV と比較すると小さい。加えて、Strikwerdaらは電子の運動エネルギーが数十 eV (図5.10(c)の10 μm 参照) のとき、電極移動を観測できていない。このことを考慮すると、30 eV の運動エネルギーで電子の衝突加熱を介した電極移動は困難であると考えられ、コヒーラーにおける粒子間伝導経路の形成の支配的な要因ではないと結論づけた。

5-5-2 反復衝突電離によるアヴァランシェ崩壊

次に、反復衝突電離によるアヴァランシェ崩壊の可能性について考える。前述の衝突加熱による電極の移動は、高強度テラヘルツ波パルスによって電界放出電子が空気中で加速されることによって生じる現象であった。しかし、コヒーラーでは、アルミニウム粒子を空気中にさらすことによって、表面に酸化膜が形成されている可能性が高い。空気ではなく、この酸化膜を介して粒子同士が並んでいると考えると、酸化膜内での反復衝突電離によるアヴァランシェ崩壊が誘起される可能性がある。この反復衝突電離による伝導変化はGaAs, InSb等の半導体で高強度テラヘルツ波パルスを用いて報告されている[23-25]。半導体、絶縁体等において高電場が印可されると、図5.12に示すように伝導帯中の電子が電場によって加速される。加速された電子がバンドギャップエネルギー程度の運動エネルギー

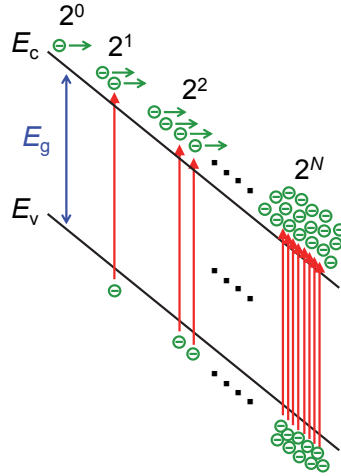


図 5.12 半導体における衝突電離による電子増殖の模式図.

を有するまで加速されると、散乱の際に価電子帯の電子を伝導帯に励起し、伝導帯の電子数は 2 倍になる。この過程は衝突電離と呼ばれる。通常、価電子帯の電子はバンドギャップエネルギーより大きなエネルギーを有する光子によって励起される。しかし、衝突電離の過程では電場によって加速された電子の運動エネルギーによって価電子帯の電子が励起されるため、光子のエネルギーはバンドギャップエネルギー以上である必要は無い。衝突電離を介せば光子エネルギーが数十 meV であるテラヘルツ波であっても、半導体等において電子の励起が可能である[23-25]。さらに、衝突電離では元の電子と励起された電子が再び電界によって加速され衝突電離を引き起こすことによって、伝導帯の電子数はさらに 2 倍になる。従って、衝突電離が N 回反復されると伝導帯の電子数は 2^N 倍に膨れ上がる。この衝突電離が反復されると、伝導帯における電子数は急激に増加し大電流が流れる。この反復衝突電離によって大電流が流れる現象はアヴァランシェ崩壊と呼ばれる。

衝突電離によって電子を励起するために必要な電子の運動エネルギーを $m_e^* v_{th}^2 / 2$ とすると、衝突電離を誘起するための条件は[26,27],

$$\frac{1}{2} m_e^* v_{th}^2 = \gamma_{12} E_g \quad (5-9)$$

となる。ここで、 m_e^* 、 E_g 、 v_{th} はそれぞれ電子の有効質量、バンドギャップエネルギー、衝突電離を誘起する電子の速度閾値である。 γ_{12} は $(2m_e^* + m_h^*) / (m_e^* + m_h^*)$ を表し、1~2 の値をとる因子である。(5-9)式から、 v_{th} は、

$$v_{th} = \sqrt{\frac{2}{m_e^*} \gamma_{12} E_g} \approx \sqrt{\frac{3}{m_e^*} E_g} \quad (5-10)$$

となる。ここで、 $\gamma_{12} = 3/2$ として扱った。この速度閾値 v_{th} まで電子が加速されると、衝突電離を誘起することができる。コヒーラー表面にできる酸化膜を Al_2O_3 膜と仮定し、 $m_e^* = 0.2m_e$ [28]、 $E_g = 8.8$ eV[29]として計算すると、 $v_{th} = 4.8 \times 10^6$ m/s となる。

ここで簡単のため、直流電場が印加されているときを考え、初速 0 の電子が無散乱で t 秒後に到達する速度 $v(t)$ は、(5-8)式で m_e を m_e^* に変えて解くことで、

$$v(t) = \frac{eE_{dc}}{m_e^*} t \quad (5-11)$$

となる。 $v(t) = v_{th}$ となるときの時刻を t_{th} とし、 t_{th} 秒間に進んだ距離を d_{th} とすると、

$$d_{th} = \int_0^{t_{th}} v(t) dt = \frac{m_e^*}{2eE_{dc}} v_{th}^2 \quad (5-12)$$

となる。すると、衝突電離までに電子が進む距離 d_{th} は、 $v_{th} = 4.8 \times 10^6$ m/s, $E_{dc} = 50$ MV/cm を用いると、 $d_{th} = 2.6$ nm となる。これは電子が Al_2O_3 内を 2.6 nm 進むと衝突電離が生じることを意味する。 Al_2O_3 酸化膜の厚みは約 5 nm 程度であるから、酸化膜内で 2 回程度の衝突電離しか起きない。これは電子数でいうと 2² 倍程度であり、反復衝突電離によるアヴァランシェ崩壊を起こすには不十分である。従って、反復衝突電離によるアヴァランシェ崩壊はコヒーラーにおける粒子間伝導経路の形成の支配的な要因ではないと結論づけた。

5-5-3 テラヘルツ波吸収による温度上昇による溶解

前述の衝突加熱による金属移動および反復衝突電離はテラヘルツ波誘起現象として既に報告されている。しかし、前述の見積もりから、これらの現象はコヒーラーにおける粒子間伝導経路形成機構の支配的要因でなく、コヒーラーにおいては他の支配的要因が存在する可能性が高い。そこで、テラヘルツ波吸収による温度上昇による溶解に着目した。前述のシミュレーションモデルにおいて、ギャップ部に 5 nm 四方の立方体 Al_2O_3 ブロックがあると仮定し、 Al_2O_3 の比誘電率を $\epsilon_{Al_2O_3} = 9.3 + i0.04$ とし、同様の電磁波シミュレーションを行った。シミュレーション結果から単位体積あたりの損失 dP_{loss}/dV を抽出し、 Al_2O_3 ブロック内で体積積分することで Al_2O_3 内で生じる全損失を求めた。ここで、単位体積あたりの損失は dP_{loss}/dV は以下の式で定義されている。

$$\frac{dP_{loss}}{dV} = \frac{1}{2} \text{Re}[\mathbf{J}_{tot} \cdot \mathbf{E}^*] = \frac{1}{2} \omega \epsilon_{eff}''(\omega) |\mathbf{E}|^2 \quad (5-13)$$

ここで、 $\mathbf{J}_{tot} = \sigma(\omega)\mathbf{E} + i\omega\epsilon(\omega)\mathbf{E} = i\omega\epsilon_{eff}(\omega)\mathbf{E} = i\omega[\epsilon_{eff}'(\omega) - i\epsilon_{eff}''(\omega)]\mathbf{E}$ としている。(5-13) 式を Al_2O_3 ブロック内で体積積分すると、 Al_2O_3 内での損失が求まる。

$$P_{loss@Al_2O_3}(\omega) = \iiint_{V_{Al_2O_3}} \frac{1}{2} \omega \epsilon_{eff}''(\omega) |\mathbf{E}|^2 dV \quad (5-14)$$

求めた損失から Al_2O_3 ブロック内での吸収率 $A_{Al_2O_3}(\omega)$ は、入射パワーを $P_{inc}(\omega)$ とすると、

$$A_{Al_2O_3}(\omega) = \frac{P_{loss@Al_2O_3}(\omega)}{P_{inc}(\omega)} \quad (5-15)$$

となる。シミュレーション上では入射パワーは任意の値に設定できるため、 $P_{inc}(\omega) = 1$ とすると、 $A_{Al_2O_3}(\omega) = P_{loss@Al_2O_3}(\omega)$ となり分かりやすい。入射テラヘルツ波のパルスエネルギーを W_{THz} とすると、 Al_2O_3 ブロックが吸収するテラヘルツ波のエネルギー $W_{Abs@Al_2O_3}$ は、

$$W_{\text{Abs}@\text{Al}_2\text{O}_3} = W_{\text{THz}} \frac{\int P_{\text{THz}}(\omega) A_{\text{Al}_2\text{O}_3}(\omega) d\omega}{\int P_{\text{THz}}(\omega) d\omega} \quad (5-16)$$

ここで、 $P_{\text{THz}}(\omega)$ は入射テラヘルツ波のパワースペクトルである。テラヘルツ波のエネルギー W_{THz} と電場強度 E_{THz} の間には以下の関係が成り立つ[30].

$$W_{\text{THz}} = \frac{\tau A |E_{\text{THz}}^{\text{peak}}|^2}{2Z_0} \quad (5-17)$$

ただし、 τ , A , Z_0 , $E_{\text{THz}}^{\text{peak}}$ はそれぞれ電場波形におけるパルス幅 ($1/e$), ビーム面積, 真空のインピーダンス, 電場波形におけるピーク電場強度である。ブロック内で吸収されるエネルギーが全て熱エネルギーに変換され温度上昇に寄与したとすると, Al_2O_3 ブロック内での温度上昇 $\Delta T_{\text{Al}_2\text{O}_3}$ は, (5-16), (5-17)式を用いて,

$$\Delta T_{\text{Al}_2\text{O}_3} = \frac{W_{\text{Abs}@\text{Al}_2\text{O}_3}}{\rho_d V_{\text{Al}_2\text{O}_3} c_h} = \frac{\tau A |E_{\text{THz}}^{\text{peak}}|^2}{2Z_0} \frac{\int P_{\text{THz}}(\omega) A_{\text{Al}_2\text{O}_3}(\omega) d\omega}{\int P_{\text{THz}}(\omega) d\omega} \frac{1}{\rho_d V_{\text{Al}_2\text{O}_3} c_h} \quad (5-18)$$

となる。ここで、 Al_2O_3 ブロックは外部から断熱されていると仮定し, ρ_d , $V_{\text{Al}_2\text{O}_3}$, c_h はそれぞれ Al_2O_3 の密度, 体積, 比熱である。 Al_2O_3 の物性値 $\rho_d = 3980 \text{ kg/m}^3$ および $c_h = 753 \text{ J/kg}\cdot\text{K}$ [31], および EO サンプリング, テラヘルツカメラで得られた $\tau = 0.55 \text{ ps}$, $A = 9.5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$, $E_{\text{THz}}^{\text{peak}} = 40 \text{ kV/cm}$ を用いると, Al_2O_3 ブロック内での温度上昇は(5-18)式より約 1500 K と見積られ, 初期温度が常温とすると約 1800 K になる。この温度上昇は Al_2O_3 の融点である 2300 K [32]と比較すると小さい値ではあるが, Al の融点である 930 K [32]よりは大きい。このことを考慮すると, Al_2O_3 ブロック内の温度が Al に伝導することで, Al を局所的に溶解させる可能性がある。局所的な温度上昇による金属粒子間の溶解は直流電流を粒子間に流すことでも報告されている[6]。この報告では, 直流電流による局所的なジュール損失が温度を上昇させ, 金属粒子を溶解し粒子間を接合している。つまり, 温度上昇による局所的な溶解によって粒子間に伝導経路が形成されることを意味する。この伝導経路の形成は溶解によって達成されるため不可逆な変化であり, 一度伝導経路が形成されると元には戻らない。テラヘルツコヒーラーにおいても, 前述の温度上昇による溶解が不可逆な粒子間伝導経路形成の支配的な要因である可能性がある。

さらに, シミュレーションでは見積ることができない非線形な効果も粒子間における伝導経路の形成に寄与する可能性がある。非線形な効果として, 金属微細構造におけるテラヘルツ波誘起の Fowler-Nordheim (FN) トンネリング[33]による絶縁ギャップへの電子の注入が近年報告されている[14,34,35]。図 5.13 に示すように, FN トンネリングは高電場のテラヘルツ波パルスによってバンドが曲げられることで, 金属から絶縁体へ電子がトンネリングするというものである。FN トンネリングによって流れる電流 I_{FN} は電場に対して非線形に増加し, 以下の式で与えられる[35-37].

$$I_{\text{FN}} = C_1 E^2 \exp\left(-\frac{C_2}{E}\right) \quad (5-19)$$

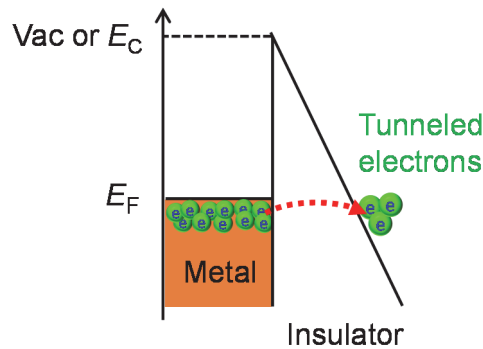


図 5.13 金属から絶縁体への FN トンネリング. 空気中への FN トンネリングは電界放出とも呼ばれる.

ここで, C_1 , C_2 は金属の仕事関数, FN トンネリング電流が流れる面積等に依存する定数パラメータである. テラヘルツ誘起の FN トンネリングが観測されている電場強度は数 MV/cm ~ 数十 MV/cm 程度であり [13,14,34,35]. コヒーラーにおいて約 50 MV/cm の局所電場が印加されているとすると, コヒーラーにおいて FN トンネリングによる電流が流れても不思議ではない. この FN トンネリングによって酸化膜内に伝導が生じることで, テラヘルツ波吸収が増大し [38], さらに温度上昇を誘起する可能性がある.

さらに, その他の可能性として, MOS デバイス等の劣化, 損傷の原因として報告されている酸化膜内での電子トラップの生成による絶縁破壊がある [39]. 酸化膜内で多数のトラップが形成され, 多数のトラップの接続によって酸化膜内に伝導経路が形成されると, 伝導経路を流れた電流によるジュール熱でさらにトラップが形成され, 最終的には絶縁破壊に至る [40]. コヒーラーでは粒子間に 50 MV/cm の電場が印加されており, 前述の FN トンネリング等が発端となって, 多数のトラップが生成, 接続され, 結果として自然酸化膜が絶縁破壊に至る可能性がある [41].

以上のように, テラヘルツコヒーラーにおける粒子間のマイクロな伝導経路形成は温度上昇による金属溶解が支配的な要因であると考えられるが, 実際には FN トンネリング, 酸化膜内での電子トラップ生成等も寄与する可能性があり, その全容を明らかにするには今後さらなる解明が必要不可欠である. 本節で示した金属溶解の可能性等をさらに詳細に議論するには, 簡略化したモデルを考える必要のない周期的に並んだ球状粒子によるコヒーラー等を作製していく必要があると考えられる.

5-6 銅球集団におけるテラヘルツ誘起コヒーラー効果

5-6-1 透過率減少の面積分率依存性とパーコレーションによる伝導

アルミニウム粒子集団におけるテラヘルツ波誘起コヒーラー効果はヒューズや検出器としての応用が可能であることは既に述べた. しかし, アルミニウム粒子は様々な形状をしており, コヒーラーにおける粒子が平面全体に占める割合 (面積分率) がコヒーラーの動

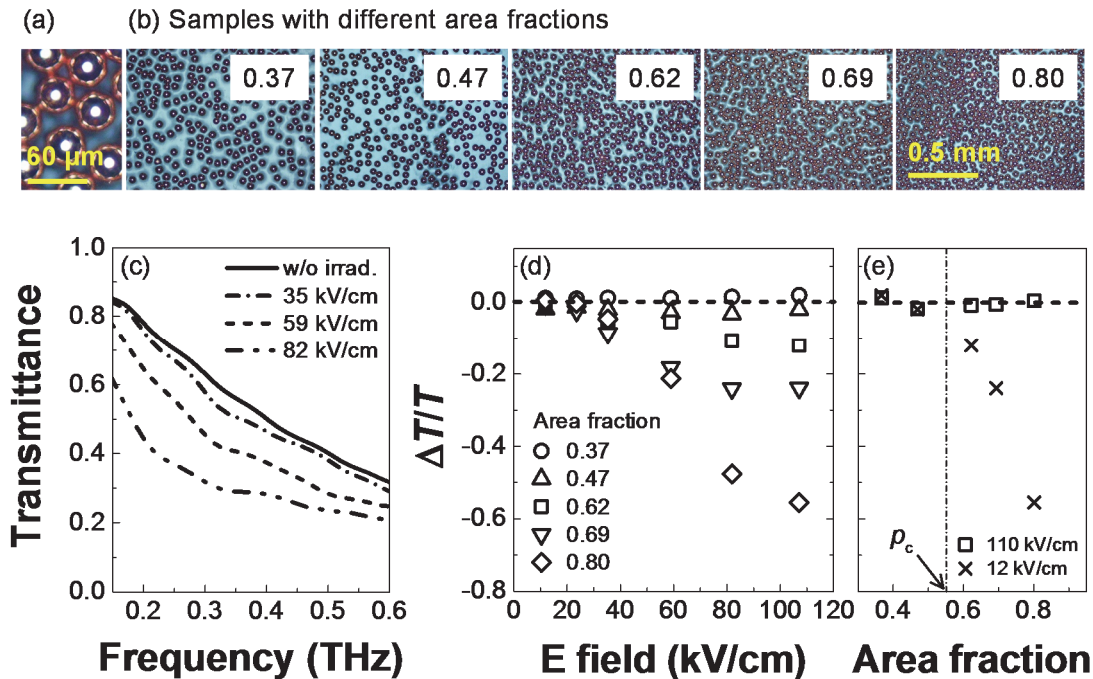


図 5.14 (a) 球径 50 μm の銅球の顕微鏡図. (b) 異なる面積分率を有する銅球コヒーラーの顕微鏡図. (c) 照射テラヘルツ波電場強度を変化させたときの面積分率が 0.80 の銅球コヒーラーにおける透過率の不可逆変化. (d) 異なる面積分率を有する銅球コヒーラーにおける 0.25 THz での $\Delta T/T$ の電場強度依存性. (e) 110 kV/cm, 12 kV/cm のテラヘルツ波を照射したときの 0.25 THz での $\Delta T/T$ の面積分率依存性. p_c はランダムに 2 次元で配置された球状粒子がパーコレートするときの面積分率 0.55 を示す.

作にどのような影響を与えるかを調べることは困難である. また, コヒーラーにおける伝導変化を理解する上で, 5-5 節で議論した金属粒子間の伝導経路形成というマイクロな伝導と, このマイクロな伝導経路形成が多数の粒子間で生じることで観測される抵抗値および透過率減少といったマクロな伝導変化を分けて考える必要がある. ミクロな伝導変化の詳細については 5-5 節の伝導経路形成機構において既に議論している. マクロな伝導変化はパーコレーション理論に基づき, 面積分率を変化させることでパーコレーションによるマクロな伝導の変化について理解することができる. そこで, 動作閾値, パーコレーションについても議論するため, 同一球径の球状銅粒子を用いて面積分率を変化させた.

図 5.14(a)に示すような球径 50 μm の銅球を 2 次元的に厚さ 80 μm の粘着テープ上に分散させた. テープの背面には多重反射の影響を抑えるため, アルミニウム粒子コヒーラーのとき同様 2 mm 厚の COP 基板を取り付けた. 図 5.14(b)に示すように銅球の面積分率を変化させたコヒーラーを作製し, 面積分率は図 5.14(b)において銅球が占める面積を平面全体の面積で除することで求めた. 図 5.14(c)に照射テラヘルツ波電場強度を変化させたときの面積分率が 0.80 の銅球コヒーラーにおける透過率の不可逆変化を示す. 本実験では面積分率

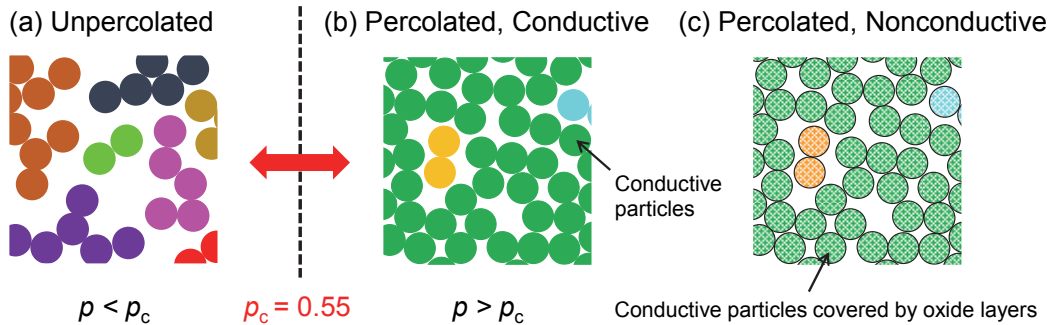


図 5.15 2次元にランダムな配置で導体球が並べられたときのパーコレーションによるマクロな伝導の模式図. 伝導が生じているクラスターごとに色をつけた. 面積分率 p がパーコレーション閾値 p_c である (a) 0.55 以下, (b) 0.55 以上のとき, (c) 0.55 以上であるが接触している球間に伝導経路が形成されていないため, マクロな伝導が生じていないときを示す.

が変化することによる透過率変化の影響を排除するため, 同一試料での測定結果を示している. 照射前の透過率は図 5.7(a)と同様の傾向を示しており, 高強度テラヘルツ波パルス照射後の透過率減少も同様に観測された. 次に, 銅球の面積分率を変化させたときの 0.25 THz における $\Delta T/T$ の電場強度依存性を図 5.14(d)に示す. 面積分率が 0.62, 0.69, 0.80 の銅球コヒーラーにおいて, 電場強度を増加させていくと $\Delta T/T$ も小さくなり, 透過率の不可逆な変化が得られていることが分かる. $\Delta T/T$ の値は面積分率に依存し, 面積分率が 0.80 のとき最大電場強度 110 kV/cm で $\Delta T/T$ の値は最も小さくなる. しかし, $\Delta T/T$ が減少し始める電場閾値は, 面積分率に依存せず約 25 kV/cm であった. この結果は, コヒーラーの動作閾値が面積分率に依存しないことを示している.

次に, パーコレーションによるマクロな伝導について考える. 5-4-1 節で示したように, コヒーラーでは粒子間にマイクロな伝導経路が形成される. このマイクロな伝導経路が多数の粒子間で作られ, コヒーラー内でマクロな伝導経路が形成されると抵抗値および透過率の減少というマクロな伝導変化が生じる. このようなマクロな伝導の変化はパーコレーション理論によって説明される. 図 5.15(a), (b)に示すように, 2次元にランダムな配置で球状粒子が並べられたとき, 球状粒子の面積分率 p が $p_c = 0.55$ を超えると, 球状粒子が系全体の端から端まで繋がる塊 (クラスター) を形成する[42,43]. 球状粒子が導体でかつ接触している導体球間で伝導が生じるとき, 図 5.15(b)に示すクラスター全体にマクロな伝導が生じる. 図 5.14(e)に 110 kV/cm, 12 kV/cm の電場強度を有するテラヘルツ波パルス照射したときの $\Delta T/T$ の面積分率依存性を示す. 110 kV/cm のテラヘルツ波を照射したとき, 面積分率を 0.37, 0.47, 0.62, 0.69, 0.80 と増やしていくと, 0.37, 0.47 では見られなかった $\Delta T/T$ の減少が, 0.62 から生じ始めることが分かる. 対して, 12 kV/cm のとき面積分率を増やしても, $\Delta T/T$ の減少は見られていない. 前述のように, 面積分率が 0.55 以上になると系全体が繋がったクラスターができるが, 図 5.15(c)に示すように, この状態では粒子間の自然酸化膜によってマイクロな伝導経路が形成されていないため, クラスター内でのマクロな伝導は

生じない。従って、図 5.14(e)のように、0.55 以上の面積分率を有するコヒーラーに、電場閾値 (25 kV/cm) 以下の 12 kV/cm のテラヘルツ波を照射しても、透過率減少は生じていない。しかし、面積分率 0.55 以上のコヒーラーに 110 kV/cm のテラヘルツ波パルス照射すると、多数の粒子間にマイクロな伝導経路が形成され、結果としてクラスター全体でマクロな伝導が生じる。図 5.14(e)を見ると 110 kV/cm のとき、 $\Delta T/T$ が減少し始める閾値は面積分率が 0.47 と 0.62 の間であり、これはパーコレーション閾値である 0.55 と概ね一致している。実際には、マイクロな伝導経路の形成はテラヘルツ波パルスの偏光に依存するため、パーコレーション閾値は 0.55 よりも大きくなると考えられる。これは、たとえ系全体にクラスターが作られていても、照射テラヘルツ波の偏光方向に対して垂直な方向に並ぶ粒子間にはマイクロな伝導経路が形成されないためである。従って、今回のコヒーラーの場合、パーコレーション閾値となる面積分率は 0.47 と 0.62 の間にあり、0.55 よりも大きい値になっていると予想される。

5-6-2 銅球コヒーラーとアルミニウム粒子コヒーラーにおける閾値の違い

アルミニウム粒子コヒーラーでは 40 kV/cm、銅球コヒーラーでは 25 kV/cm の異なる電場閾値が得られた。この電場閾値の違いが生じる原因を考察する。電場閾値の違いが生じる主な原因として挙げられるのが、球径の違いによる電場増強値の違いである。Lekner は金属球 2 球が小さなギャップを介して並んだとき、ギャップでの電場増強値の解析解を示している[44]。このモデルでは完全導体球を仮定し、静電場問題として解が与えられている。本研究におけるコヒーラーの場合、テラヘルツ領域で金属は完全導体とみなすことができ、また、波長 (数百 μm ~ 数 mm) が金属粒子の粒径 (数十 μm) より十分大きいので、概ね静電場として取り扱える。従って、2 球間の電場増強値を Lekner の解析解によって見積もることができる。5 nm の絶縁ギャップを介したとき、2 球間の電場増強値はアルミニウム粒子コヒーラーにおける最大粒径 30 μm のとき~1900、銅球コヒーラーにおける球径 50 μm のとき~3000 となる。これらの電場増強値の比 $3000/1900 = 1.6$ は、電場閾値の比 $(40 \text{ kV/cm})/(25 \text{ kV/cm}) = 1.6$ と同じになる。つまり、アルミニウム粒子コヒーラーにおいても、銅球コヒーラーにおいても粒子間においては同じ局所電場強度となる。実際のコヒーラーでは、無数の粒子が平面的に散布されており Lekner のモデルで完全に理解することはできないが、絶縁ギャップの幅が同じであるとき、粒径を大きくすればより大きな電場増強値が得られるという振る舞いは同じである。

また、温度上昇による局所的な溶解によって伝導経路が形成されると仮定すると、電場増強値に加えて、温度上昇の違い、金属の融点の違い等を考慮する必要がある。前述のようにアルミニウム粒子コヒーラーと銅球コヒーラーで局所電場強度が同じであるとき、(5-18)式から温度上昇の違いは誘電率虚部に起因した吸収、密度、比熱によって決まる。アルミニウムと銅の酸化膜である Al_2O_3 と Cu_2O のテラヘルツ帯での誘電率虚部が $\epsilon''_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 0.04$ 、 $\epsilon''_{\text{Cu}_2\text{O}} = 0.05$ [45]とし、 Cu_2O の物性値である密度 $\rho_d = 6040 \text{ kg/m}^3$ [32]、比熱 $c_h = 445 \text{ J/kg}\cdot\text{K}$ [32]から(5-18)式を用いて、 Al_2O_3 と Cu_2O での温度上昇の比を求めると、

$\Delta T_{\text{Cu}_2\text{O}}/\Delta T_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 1.4$ となる。次に、Cu の融点 T_{mCu} と Al の融点 T_{mAl} の比をとると、 $T_{\text{mCu}}/T_{\text{mAl}} = 1360 \text{ K}/930 \text{ K} = 1.46$ となり温度上昇の比とほぼ一致することが分かる。この結果から、電場閾値の違いは、それぞれにおける電場増強値、吸収による温度上昇、融点を考慮することで、概ね説明できる。また、以上の計算から粒径による電場増強の違いが電場閾値の違いに大きく寄与しており、 $50 \mu\text{m}$ よりも大きな粒径を用いれば、さらに電場閾値は小さくなる。

5-7 テラヘルツコヒーラーの素子応用の可能性

次に、テラヘルツコヒーラーの素子応用の可能性を議論する。コヒーラーは当初 Marconi らによって電波の受信器として応用された。従って、テラヘルツコヒーラーはその特徴的なシングルショット動作特性を利用すれば、不可逆な変化ではあるもののテラヘルツ波検出器およびイメージャーとしての応用が期待できる。ここで、簡単な指標としてテラヘルツコヒーラーの感度を概算してみる。

テラヘルツコヒーラーの閾値は 40 kV/cm であり、テラヘルツ波のパルスエネルギー W_{THz} に変換すると、(5-17)式から 11 nJ となる。テラヘルツ波のビーム面積が $A = 9.5 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$ であることから、イメージャーとしての検出閾値は $1.2 \mu\text{J/cm}^2$ となる。この値は表 4.1 に示した焦電型アレイ等のイメージャーと比較しても良い値であることが分かる。このことから、コヒーラーは高強度テラヘルツ波パルスに対するイメージャー、検出器として有効であることが分かる。特に、コヒーラーはシングルショットのテラヘルツ波パルスで動作できるため、シングルショットイメージャー、検出器としての応用が期待できる。

もう 1 つの応用可能性として挙げられるのが、コヒーラーの不可逆特性を利用したヒューズである。ヒューズは回路に大電流が流れないように保護する素子であり、一度ヒューズに大電流が流れると、ヒューズが溶断し不可逆的に回路が開く。ヒューズのような犠牲的な役割を果たす保護素子は回路作製等で広く用いられる。テラヘルツ領域では、メタマテリアル等の金属微細構造を利用した光学素子が盛んに研究されている[46-48]。加えて、近年のテラヘルツ波光源技術の急速な発達により、 MV/cm を超える高強度のテラヘルツ波パルスが発生できるようになり、高強度テラヘルツ波パルスによって金属微細構造が損傷する例が報告されている[12-14]。この損傷は素子本来の機能を消失させてしまうため、テラヘルツ領域においてもヒューズのような保護素子が必要となってくる。Strikwerda らはチェッカーボードパターンを利用したテラヘルツ領域で動作するヒューズを提案している[13]が、フォトリソグラフィによる作製が必要であることや、長時間照射をしないとヒューズとしての機能を発揮しないという欠点がある。対して、テラヘルツコヒーラーは作製も非常に容易であり、シングルショットでの動作が可能である。図 5.7(a)に示したように、高強度テラヘルツ波パルス照射前のコヒーラーは低周波数に対して高い透過率を示すが、照射後は透過率が不可逆的に減少する。つまり、電場閾値 40 kV/cm 以上のテラヘルツ波が入射すると透過率の不可逆減少によって、コヒーラー透過後のテラヘルツ波は減衰する。従って、金属微細構造を利用した光学素子の前にコヒーラーを配置しておけば、 40 kV/cm 以

上の電場が光学素子に照射されることを防ぐことができる。このような犠牲的な役割を果たす保護素子はテラヘルツ領域ではほとんど存在しないことから、テラヘルツコヒーラーはテラヘルツ領域で動作する保護素子として大きな役割を担うと期待する。

5-8 テラヘルツ波誘起コヒーラーの意義

本節では、テラヘルツ波誘起コヒーラーの意義、テラヘルツ波を用いて明らかになったことを以下にまとめる。

コヒーラー効果は従来まで電波、直流の領域で実証されてきた。テラヘルツ波パルスは電波や直流と比べて十分短いピコ秒オーダーのパルスであり、コヒーラー効果をピコ秒のテラヘルツ波パルスで誘起できるという本研究の実証報告は、コヒーラーの超高速応答の可能性を見出した結果である。加えて、単一のピコ秒テラヘルツ波パルスがコヒーラー効果を誘起しており、コヒーラーがピコ秒テラヘルツ波パルスに対してシングルショットで動作することを意味する。これらの結果から、コヒーラーがテラヘルツ波に対して超高速応答、シングルショット動作可能であることが明らかとなった。テラヘルツ波検出器、イメージャー等への応用を考えたとき、コヒーラーはシングルショット、高速で動作する検出器としての可能性を秘めている。

テラヘルツ波誘起コヒーラー効果では透過率減少の偏光依存性、閾値特性が存在した。偏光依存性はテラヘルツ波電場が粒子間で増強されることに起因しており、粒子間での電場増強がテラヘルツ波誘起のコヒーラー効果に必要であることを明らかにした。また、この電場増強を利用することで数十 kV/cm の電場強度でコヒーラー効果を誘起できており、電場閾値を低くするには電場増強度が大きくなるように粒子径を大きくするのが効果的である。この知見は電波領域でのコヒーラーにも応用できる。電波領域ではコヒーラー誘起に必要な電場閾値及び電場増強等については議論されていないが、粒子間の電場増強はスケーリング則を用いて電波領域にも拡張できるため、さらに効率の良いコヒーラーの作製等が可能になると考えられる。

また、テラヘルツコヒーラーはテラヘルツ領域での不可逆伝導変化としても物理的に非常に興味深い現象である。その動作機構は、現在までに報告されている衝突加熱による金属移動等は支配的ではなく、局所的な温度上昇等の他の原因が支配的である可能性が高い。また、この不可逆伝導変化を利用すれば、テラヘルツ領域で犠牲的素子として働くヒューズとしての応用が期待できる。

以上のように、テラヘルツ波でコヒーラー効果を誘起することで、その高速応答性、シングルショット動作、電場増強による偏光依存、閾値特性等の新たな知見が得られた。これらの知見が今後のコヒーラーの更なる高速動作や、動作機構の完全な解明等に貢献することを期待する。

5-9 まとめ

本章では、高強度テラヘルツ波パルスを用いて金属粒子集団における不可逆変化であるコヒーラー効果を実証した。高強度テラヘルツ波パルスが誘起する抵抗値および透過率の不可逆変化を観測し、不可逆変化の閾値および偏光依存性を明らかにした。また、コヒーラーの伝導経路形成機構、簡便に作製可能なテラヘルツヒューズとしての応用可能性についても議論した。本章で得られた主な成果を以下にまとめる。

- (1) アルミニウム粒子集団で構成されたコヒーラーにおけるテラヘルツ誘起の絶縁/伝導転移を観測し、コヒーラーの抵抗値は高強度テラヘルツ波照射後、高抵抗から低抵抗に瞬時変化していた。これまで、電波領域でしか実証されていなかったコヒーラー効果を初めてテラヘルツ波を用いて達成した。また、コヒーラーは単一のテラヘルツ波パルスで動作するシングルショット特性を有していた。
- (2) コヒーラーの直流抵抗変化はテラヘルツ領域では透過率変化として現れた。高強度テラヘルツ波パルス照射後の平面型コヒーラーをテラヘルツイメージングした結果、テラヘルツ波のビームプロファイルを概ね反映した透過率減少が得られていた。さらにこの透過率減少は偏光依存性を有しており、高強度テラヘルツ波パルスの偏光方向に対してコヒーラーにおける伝導経路が形成されることを示唆していた。さらに、周期系に単純化したモデルにおいて有限要素法によるシミュレーションを行った。粒子間に抵抗器を設置することで粒子間伝導経路を模した結果、抵抗値を減少させることでコヒーラーの透過率減少の振る舞いを模擬できることを明らかにした。
- (3) アルミニウムコヒーラーの透過率減少は約 40 kV/cm の電場閾値を有していた。シミュレーションの電場増強結果から、40 kV/cm の入射電場は約 50 MV/cm まで増強されている可能性を有していた。この電場増強値を用いて、コヒーラーの粒子間伝導経路形成機構を議論した結果、現在までにテラヘルツ波を用いて報告されている電子の衝突加熱を介した金属移動や反復衝突電離が支配的な要因ではないことが判明した。粒子間の酸化膜でのテラヘルツ波吸収起因の温度上昇によって金属が溶解することが支配的な要因であると考えられるが、FN トンネリング等も大きく寄与する可能性があり、今後単純化したコヒーラーを用いて詳細な調査が必要であると考えられる。
- (4) コヒーラーの素子応用として、イメージャーおよび検出器、犠牲的な役割を果たすヒューズを提案した。コヒーラーは高強度パルスに対して有効に働くイメージャー、検出器であることを明らかにし、さらには透過率の不可逆減少を利用することで、金属微細構造で構成される光学素子を保護するためのヒューズとして機能することを述べた。チェッカーボードパターンを利用したヒューズに比べて作製が簡便であること、シングルショット動作可能であること等の利点を有していた。

- (5) 銅球集団においてもアルミニウム粒子集団同様のコヒーラー効果を観測した。コヒーラーにおける動作電場閾値は面積分率に依存せず一定であった。また、より大きな不可逆変化は、面積分率を大きくすることで達成できることを示した。また、面積分率が0.62以上のとき、25 kV/cm以上の電場で透過率が減少していた。面積分率が0.37, 0.47のとき透過率減少が生じなかったのは、球状粒子を2次元でランダムに配置したときのパーコレーション閾値の面積分率0.55より小さいためである。

参考文献

- [1] P. M. Nikolić, S. Đurić, K. Radulović, D. Vasiljević-Radović, M. V Nikolić, and M. M. Ristić, *Sci. Sinter.* **34**, 101 (2002).
- [2] L. N. Kryzhanoski, *Physics-Uspekhi* **35**, 334 (1992).
- [3] G. C. Corazza, *Proc. IEEE* **86**, 1307 (1998).
- [4] R. Bridgman, *Phys. World* **14**, 29 (2001).
- [5] L. De Forest, “Space telegraphy,” U.S. Patent No. 879532 (Feb. 18, 1908).
- [6] E. Falcon and B. Castaing, *Am. J. Phys.* **73**, 302 (2005).
- [7] L. N. Kryzhanoski, *Physics-Uspekhi* **35**, 334 (1992).
- [8] D. Vandembroucq, A. C. Boccara, and S. Roux, *J. Phys. III* **7**, 303 (1997).
- [9] V. J. Phillips, *Early Radio Wave Detectors* (Peter Peregrinus, 1980).
- [10] M. Naftaly and R. E. Miles, *Proc. IEEE* **95**, 1658 (2007).
- [11] J. R. Birch, *Infrared Phys.* **30**, 195 (1990).
- [12] 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, *Nature* **487**, 345 (2012).
- [13] A. C. Strikwerda, M. Zalkovskij, K. Iwaszczuk, D. L. Lorenzen, and P. U. Jepsen, *Opt. Express* **23**, 11586 (2015).
- [14] J. Zhang, X. Zhao, K. Fan, X. Wang, G.-F. Zhang, K. Geng, X. Zhang, and R. D. Averitt, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 231101 (2015).
- [15] B. B. Hu and M. C. Nuss, *Opt. Lett.* **20**, 1716 (1995).
- [16] D. M. Mittleman, R. H. Jacobsen, and M. C. Nuss, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **2**, 679 (1996).
- [17] R. Ulrich, *Infrared Phys.* **7**, 37 (1967).
- [18] P. A. R. Ade, G. Pisano, C. Tucker, and S. Weaver, *Proc. SPIE* **6275**, 62750U (2006).
- [19] M. T. A. Saif, S. Zhang, A. Haque, and K. J. Hsia, *Acta Mater.* **50**, 2779 (2002).
- [20] T. Strouboulis, I. Babuška, and K. Copps, *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* **181**, 43 (2000).
- [21] M. A. Ordal, R. J. Bell, R. W. Alexander, L. A. Newquist, and M. R. Querry, *Appl. Opt.* **27**, 1203 (1988).
- [22] H. Fujiwara, *Spectroscopic ellipsometry: principles and applications* (John Wiley & Sons, 2007).
- [23] H. Hirori, K. Shinokita, M. Shirai, S. Tani, Y. Kadoya, and K. Tanaka, *Nat. Commun.* **2**, 594 (2011).
- [24] M. C. Hoffmann, J. Hebling, H. Y. Hwang, K. Lo Yeh, and K. A. Nelson, *Phys. Rev. B* **79**, 161201 (2009).
- [25] K. Fan, H. Y. Hwang, M. Liu, A. C. Strikwerda, A. Sternbach, J. Zhang, X. Zhao, X. Zhang, K. A. Nelson, and R. D. Averitt, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 217404 (2013).

- [26] C. L. Anderson and C. R. Crowell, *Phys. Rev. B* **5**, 2267 (1972).
- [27] K. Seeger, *Semiconductor Physics: An introduction, Fourth Edition* (Springer-Verlag, 1989).
- [28] A. Padovani, L. Larcher, V. Della Marca, P. Pavan, H. Park, and G. Bersuker, *J. Appl. Phys.* **110**, 014505 (2011).
- [29] R. H. French, *J. Am. Ceram. Soc.* **73**, 477 (1990).
- [30] M. Reid and R. Fedosejevs, *Appl. Opt.* **44**, 149 (2005).
- [31] K. Wefers and C. Misra, *Oxides and Hydroxides of Aluminum* (Alcoa Technical Paper No. 19, Alcoa Laboratories, 1987).
- [32] D. R. Lide, *CRC Handbook of Chemistry and Physics* (CRC Press, 2004).
- [33] R. H. Fowler and L. Nordheim, *Proc. R. Soc. London A* **119**, 173 (1928).
- [34] G. Herink, L. Wimmer, and C. Ropers, *New J. Phys.* **16**, 123005 (2014).
- [35] K. Iwaszczuk, M. Zalkovskij, A. C. Strikwerda, and P. U. Jepsen, *Optica* **2**, 116 (2015).
- [36] J. G. Simmons, *J. Appl. Phys.* **34**, 1793 (1963).
- [37] R. G. Forbes, *J. Vac. Sci. Technol. B* **17**, 526 (1999).
- [38] J.-Y. Kim, B. J. Kang, J. Park, Y.-M. Bahk, W. T. Kim, J. Rhie, H. Jeon, F. Rotermund, and D.-S. Kim, *Nano Lett.* **15**, 6683 (2015).
- [39] N. Azizi, and P. Yiannacouras, *Gate Oxide Breakdown, Reliability of Intergrated Circuits Lecture Notes* (2003).
- [40] R. Degraeve, G. Groeseneken, R. Bellens, J. L. Ogier, M. Depas, P. J. Roussel, and H. E. Maes, *IEEE Trans. Electron Devices* **45**, 904 (1998).
- [41] J. F. Verweij and J. H. Klootwijk, *Microelectronics J.* **27**, 611 (1996).
- [42] T. Shen, C. S. O'Hern, and M. D. Shattuck, *Phys. Rev. E* **85**, 011308 (2012).
- [43] D. Levis and L. Berthier, *Phys. Rev. E* **89**, 062301 (2014).
- [44] J. Lekner, *J. Electrostat.* **68**, 299 (2010).
- [45] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids II* (Academic Press, 1991).
- [46] A. E. Costley, K. H. Hursey, G. F. Neill, and J. M. Ward, *J. Opt. Soc. Am.* **67**, 979 (1977).
- [47] I. Yamada, K. Takano, M. Hangyo, M. Saito, and W. Watanabe, *Opt. Lett.* **34**, 274 (2009).
- [48] H.-T. Chen, J. F. O'Hara, A. K. Azad, and A. J. Taylor, *Laser Photon. Rev.* **5**, 513 (2011).

第6章 総括

本論文では高強度テラヘルツ波応用のさらなる加速を目指して、簡便なイメージャー開発等のテラヘルツ波検出法の改善に加えて、テラヘルツ波誘起不可逆伝導変化であるコヒーラー効果の実証および犠牲的な役割を果たす素子の提案を行った。LiNbO₃ 結晶からの高強度テラヘルツ波パルスを用いて簡便に検出する手法として、コレステリック液晶を用いたセンサーカードを開発し、テラヘルツ領域において電源、電子デバイス等を必要としない簡便なイメージャーの開発に成功した。また、不可逆非線形現象であるコヒーラー効果を高強度テラヘルツ波パルスを用いて初めて実証し、コヒーラーがヒューズのような犠牲的な役割を果たす素子として動作可能であることを示した。本研究は、高強度テラヘルツ波研究が発展していく上で必要不可欠なデバイス、素子等の提案、実証に成功しており、このようなデバイス、素子が今後の高強度テラヘルツ波を用いた応用をさらに加速させることを期待している。

第1章では、本研究の背景である高強度テラヘルツ波の現状、高強度テラヘルツ波が誘起する非線形現象について概説し、非線形現象を介した不可逆構造変化の現状について述べた。上記現状を踏まえた上で、本研究の目的について述べ、本論文の構成を紹介した。

第2章では、本研究における基礎技術であるテラヘルツ時間領域分光法について述べた。テラヘルツ時間領域分光法における複素屈折率、透過率等の導出法および解析手法を述べ、構築したテラヘルツイメージングシステムについて概説した。

第3章では、LiNbO₃ 結晶を用いたテラヘルツ波の発生における位相整合について述べ、LiNbO₃ 結晶を用いた発生法であるパラメトリック発生/発振、パルス面傾斜法について概説した。熱型検出が主流であったパラメトリック光源において、ピコ秒パラメトリック発振器を開発することで時間領域検出の導入を可能にし、分割 Si プリズム結合器によるパルスの分離等を時間領域検出によって明らかにした。パルスの分離を解消するため、単一 Si プリズム結合器、面放射型テラヘルツパラメトリック発振器を導入した。また、ピコ秒パラメトリック発振器からのテラヘルツ波はパラメトリック成分および Cherenkov 成分が混在していることも明らかにした。さらに、非線形現象の誘起を可能にする高出力光源として、パルス面傾斜法を用いた高強度テラヘルツ波光源を構築し、最大パルスエネルギー1.2 μJ 、最大電場強度 170 kV/cm を有する高強度テラヘルツ波パルスの発生に成功した。

第4章では、3章で開発した高強度テラヘルツ波光源に対する簡便なイメージャーとして、コレステリック液晶を用いたセンサーカードを開発した。コレステリック液晶の温度で色が変わる性質を利用して、テラヘルツ波照射によるセンサーカードの温度上昇を色変化として可視化し、ビームプロファイルを得ることに成功した。コレステリック液晶によるセンサーカードは肉眼でテラヘルツのビームプロファイルを捉えることができるため、電源、電子デバイス等を必要としない。また、センサーカードの評価として色相を導入し、色相を用いてセンサーカードの応答時間が約5秒、検出限界が 4.3 mW/cm²であることを明らかにした。応答時間は市販のイメージャーと比べて劣るものの、感度は焦電型アレイよりも

優れていた。センサーカードの応用として電気光学サンプリングにおけるアライメントを例に挙げ、センサーカードで簡便にテラヘルツ波とプローブ光をアライメントできることを明らかにした。

第5章では、高強度テラヘルツ波パルスで不可逆伝導変化であるコヒーラー効果の誘起を実証した。コヒーラーはこれまで電波、直流領域での報告しかなく、本研究で初めてコヒーラーがピコ秒のテラヘルツ波電場に対して応答することを実証した。また、テラヘルツコヒーラーにおける抵抗値が単一のテラヘルツ波パルス照射によって変化することから、シングルショットで動作可能であることを明らかにした。直流抵抗の変化はテラヘルツ領域では透過率の不可逆減少として現れ、透過率の不可逆減少がテラヘルツ波パルスの偏光に依存すること、数十 kV/cm の電場閾値を有することを明らかにした。有限要素法を用いた電磁波シミュレーションを用いて、コヒーラーの粒子間ギャップでの電場増強を概算した結果、50 MV/cm 程度になり得ることを明らかにした。また、テラヘルツコヒーラーにおける粒子間伝導経路は局所的な温度上昇が引き起こす金属溶解によって形成されていると考えられるが、FN トンネリング等が寄与する可能性もあることを示唆した。また、コヒーラーにおけるマクロな伝導変化をパーコレーション理論を用いて説明した。さらに、コヒーラーのテラヘルツ波パルスの検出器、イメージャーとしての応用可能性やヒューズのようなテラヘルツ領域で犠牲的な役割を果たす素子としての応用可能性について述べた。

第6章では、各章のまとめ及び今後の展望について述べることで、本研究を総括した。

次に、今後の展望について述べる。コレステリック液晶を用いたテラヘルツセンサーカードは簡便かつ肉眼でテラヘルツ波を捉えることができた。しかし、センサーカードのテラヘルツ領域における吸収は26%程度であり、特に、低周波での吸収が小さい。従って、テラヘルツ波吸収を改善することができれば、更なる高感度化が期待できる。例えば、センサーカードにメタマテリアル吸収体を取り付けることで、低周波数の吸収を改善できる可能性がある。メタマテリアル吸収体は構造のパラメータを変化させることで所望の周波数で高い吸収率を実現できるため、低周波数で吸収率が高くなるようなメタマテリアル構造を設計、作製すれば良い。このような吸収体等を導入することで感度を上昇させることができれば、幅広いテラヘルツ波光源に対応するイメージャーとして機能するセンサーカードになり得る。

また、テラヘルツコヒーラーはヒューズのような犠牲的な役割を果たす素子として動作可能であった。ヒューズとして性能を向上させるには、低強度のテラヘルツ波は完全に透過し、高強度のテラヘルツ波に対しては不透明である必要がある。また、様々なデバイスに有効なヒューズとして動作させるには、様々な動作電場閾値を有するヒューズを開発する必要がある。そのためには、テラヘルツコヒーラーのアイデアを基にした新たなヒューズを設計、作製する必要があると考えられ、周期的に配列した粒子によるコヒーラー等を電磁波シミュレーションにより設計、開発することでヒューズ性能を向上していく必要がある。また、周期的に配列した粒子によるコヒーラーを作製することができれば、電磁波シミュレーションおよび数値計算によって粒子間における電場が引き起こす様々な現象について議論することができ、伝導経路の形成機構のさらなる解明に繋がると考えられる。

最後に、コヒーラーは物理現象としての面白さを秘めており 100 年以上も前から電波、直流領域で研究されてきた。1900 年代の中頃にコヒーラー研究は一度廃れてしまったが、近年になってその物理現象の解明に取り組もうとする動きが見られている。テラヘルツ波研究はコヒーラー研究に比べて歴史は浅いが、近年のレーザー技術の発展に伴って急速に発展してきている。今後、急速に発展するテラヘルツ波技術が、コヒーラー研究のさらなる発展に寄与し、コヒーラー動作の完全な解明がなされることを期待したい。

謝辞

本研究は大阪大学レーザーエネルギー学研究センターレーザーテラヘルツ研究部門テラヘルツサイエンスグループ萩行・中嶋研究室において行われました。本研究を遂行するにあたって多くの方々のご協力を頂きました。ここに深く感謝いたします。

本論文に際して、同研究グループ准教授 中嶋誠先生には指導教官として様々なご指導ご鞭撻を受け賜りました。ここに深く感謝申し上げます。また、本研究を志半ばで離れてしまった故萩行正憲先生にも深謝申し上げるとともに、ご冥福をお祈りいたします。

大阪大学工学研究科精密科学・応用物理学専攻教授 小林慶裕先生、同教授 高原淳一先生、大阪大学基礎工学研究科物質創成専攻教授 芦田昌明先生には、本論文の副査をつとめていただきました。ここに御礼申し上げます。

摂南大学理工学部准教授 長島健先生、福井大学遠赤外領域センター特命助教 北原英明先生には、短い間ではありましたが本研究を支えていただき、ご助言いただきました。感謝申し上げます。光学系、実験系の構築に際して、北里大学大学院医療系研究科教授 熊谷寛先生、千葉大学大学院理学研究科教授 音賢一先生、大阪大学大学院基礎工学研究科准教授 永井正也先生には有益なご助言を頂きました。ここに深謝いたします。大阪大学産業科学研究所教授 磯山悟朗先生には自由電子レーザーの使用を快く承諾していただきました。ここに感謝いたします。大阪市立大学大学院工学研究科講師 菜嶋茂喜先生には光学素子等を快くご提供いただきました。感謝申し上げます。

そして、本研究を遂行するにあたって、テラヘルツサイエンスグループ高野恵介助教には実験器具の使い方から、研究の方向性に至るまでご指導いただきました。心より感謝申し上げます。特任研究員の加藤康作氏、姜普暎氏、東京大学物性研究所特任研究員 西谷純一氏、理化学研究所基礎科学特別研究員 瀧田佑馬氏には日々の研究において多くのアドバイスをいただきました。ここに感謝いたします。研究室の後輩である原田寛史氏、現大阪ガス所属西川智啓氏とともに研究に取り組めたことを嬉しく思います。また、事務手続を快く引き受けてくださいました現秘書 山口身幸氏、元秘書 西川和子氏に感謝いたします。

本研究を遂行するに当たり、日本学術振興会、公益財団法人アイコム電子通信工学振興財団等の多くの機関からご支援いただきました。ここに感謝申し上げます。また、大阪大学未来戦略、大阪大学グローバル COE ではリサーチ・アシスタントとして雇用していただきました。深謝いたします。

最後に、学部 3 年間、大学院 5 年間の計 8 年間の大学生活を陰ながら支え、著者の決断を尊重し応援してくれた家族には心より感謝いたします。

2015 年 12 月

大阪大学吹田キャンパス 21 世紀プラザ 3F にて
田所 譲

研究業績

原著論文

筆頭著者

- [1] Y. Tadokoro, T. Nishikawa, B. Kang, K. Takano, M. Hangyo, and M. Nakajima, "Measurement of beam profiles by terahertz sensor card with cholesteric liquid crystals," Opt. Lett. **40**, 4456 (2015).
- [2] Y. Tadokoro, Y. Takida, H. Kumagai, S. Nashima, and M. Hangyo, "Coherent time-domain detection of terahertz pulses generated from noncollinear phase-matched, picosecond terahertz parametric oscillator," Appl. Phys. Express **7**, 022701 (2014).
- [3] Y. Tadokoro, K. Takano, M. Hangyo, and M. Nakajima, "Terahertz coherer: Terahertz-induced transition from insulating to conducting state in ensemble of aluminum particles," To be prepared.

その他

- [1] T. Matsui, S. Tomita, M. Asai, Y. Tadokoro, K. Takano, M. Nakajima, M. Hangyo, and H. Yanagi, "Terahertz wave emission from plasmonic chiral metasurfaces," Appl. Phys. A, Accepted.
- [2] K. Kato, K. Takano, Y. Tadokoro, and M. Nakajima, "Terahertz wave generation from spontaneously formed nanostructure with silver nanoparticle ink," To be prepared.

会議論文

筆頭著者

- [1] 田所 謙, 西川 智啓, 高野 恵介, 中嶋 誠, 萩行 正憲, "サブ波長アルミニウム粒子集合体におけるテラヘルツ電場誘起絶縁/伝導転移," 第 25 回光物性研究会論文集, 285 (2014).
- [2] Y. Tadokoro, K. Takano, and M. Hangyo, "Transition from insulating to conducting states induced by intense terahertz pulses in aggregate of metal particles," in Proceedings of 39th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz), 1 (2014).

その他

- [1] M. Nakajima, Y. Tadokoro, K. Takano, and M. Hangyo, "Study of terahertz field induced

coherer," in Proceedings of Nonlinear Optics 2015, NTh2B.6 (2015).

国際会議, シンポジウム発表

筆頭発表者

- [1] Y. Tadokoro, T. Nishikawa, K. Takano, M. Nakajima, and M. Hangyo, "Terahertz-field-induced irreversible decrease in transmittance for randomly arranged aluminum particles," The Second International Symposium on Frontiers in THz Technology (FTT 2015), Pos2.25st, Congress Center in ACT CITY Hamamatsu, Shizuoka, Japan (Sep. 1, 2015). [Poster]
- [2] Y. Tadokoro, T. Nishikawa, K. Takano, M. Nakajima, and M. Hangyo, "Insulating-to-conducting transition of subwavelength copper spheres induced by terahertz field enhancement in native oxide layers," The 4th Japan-Korea Metamaterials Forum, P11, Osaka University, Osaka, Japan (Dec. 23, 2014). [Poster]
- [3] Y. Tadokoro, K. Takano, and M. Hangyo, "Transition from insulating to conducting states induced by intense terahertz pulses in aggregate of metal particles," 39th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz), 2808667, University of Arizona, Arizona, U. S. A. (Sep. 16, 2014). [Poster]
- [4] Y. Tadokoro, K. Takano, M. Nakajima, and M. Hangyo, "Insulating-to-conducting state transition in dispersed aluminum powders by irradiation of high-field terahertz pulses," International Symposium on Frontier of Terahertz Science, TU-P19, Okinawa Institute of Science and Technology, Okinawa, Japan (Aug. 5, 2014). [Poster]
- [5] Y. Tadokoro, K. Takano, T. Nagashima, and M. Hangyo, "High-power terahertz generation by pulse-front tilting method with negatively chirped laser pulses," International Workshop on Atomically Controlled Fabrication Technology, P20, Nakanoshima-Center, Osaka, Japan (Feb. 6, 2014). [Poster]

その他

- [1] M. Nakajima, Y. Tadokoro, K. Takano, and M. Hangyo, "Terahertz-field-induced break down in metal particles," Energy Materials and Nanotechnology (EMN) Hong Kong Meeting 2015, A48, Eaton Hotel, Hong Kong (Dec. 11, 2015). [Oral, Invited]
- [2] M. Nakajima, Y. Tadokoro, K. Takano, T. Kurihara, K. Yamaguchi, H. Watanabe, K. Oto, T. Suemoto, and M. Hangyo, "Application of terahertz field enhancement effect in metal microstructures," The Second International Symposium on Frontiers in THz Technology (FTT 2015), TuP2.2, Congress Center in ACT CITY Hamamatsu, Shizuoka, Japan (Sep. 1, 2015). [Oral, Invited]

- [3] K. Takano, H. Komiyama, M. Asai, K. Kato, T. Iyoda, Y. Tadokoro, M. Nakajima, and M. Hangyo, “Terahertz radiation from gold nanorod arrays excited by femtosecond laser pulses,” The Second International Symposium on Frontiers in THz Technology (FTT 2015), TuA2.4, Congress Center in ACT CITY Hamamatsu, Shizuoka, Japan (Sep. 1, 2015). [Oral]
- [4] B. Kang, Y. Tadokoro, T. Nishikawa, K. Takano, G. Isoyama, M. Hangyo, and M. Nakajima, “The THz imager with thin cholesteric liquid crystal film,” The Second International Symposium on Frontiers in THz Technology (FTT 2015), Pos2.34, Congress Center in ACT CITY Hamamatsu, Shizuoka, Japan (Sep. 1, 2015). [Poster]
- [5] K. Kato, K. Takano, Y. Tadokoro, and M. Nakajima, “Terahertz generation from nano-metal ink irradiated by femtosecond laser pulses,” The Second International Symposium on Frontiers in THz Technology (FTT 2015), Pos1.16, Congress Center in ACT CITY Hamamatsu, Shizuoka, Japan (Aug. 31, 2015). [Poster]
- [6] T. Matsui, S. Tomita, M. Asai, Y. Tadokoro, K. Takano, M. Nakajima, M. Hangyo, and H. Yanagi, “Terahertz wave emission from plasmonic chiral metasurfaces,” META’15, the 6th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics, 2P1 P2, North Academic Center of The City College of New York, New York, U. S. A. (Aug. 5, 2015). [Poster]
- [7] M. Nakajima, Y. Tadokoro, K. Takano, and M. Hangyo, “Study of terahertz field induced coherer,” Nonlinear Optics 2015, NTh2B.6, Kaua’i Marriott Resort on Kalapaki Beach, Hawaii, U. S. A. (July 30, 2015). [Oral]
- [8] B. Kang, Y. Tadokoro, T. Nishikawa, K. Takano, M. Hangyo, and M. Nakajima, “The improvement of the THz imager based on a cholesteric liquid crystal via metamaterial,” The 5th Japan-Korea Metamaterials Forum, Invited 9, Seoul National University, Seoul, Korea (June 29, 2015). [Oral, Invited]
- [9] M. Asai, H. Komiyama, T. Iyoda, Y. Tadokoro, K. Takano, M. Nakajima, and M. Hangyo, “Terahertz radiation from gold nano-rod arrays,” The 4th Japan-Korea Metamaterials Forum, P12, Osaka University, Osaka, Japan (Dec. 23, 2014). [Poster]

国内学会, 研究会発表

筆頭発表者

- [1] 田所 讓, 高野 恵介, 萩行 正憲, 中嶋 誠, “テラヘルツ波パルスが誘起するサブ波長アルミニウム粒子集団の不可逆伝導変化,” 日本物理学会第 71 回年次大会, 22aBP-6, 東北学院大学 泉キャンパス (2016 年 3 月 22 日). 【口頭】

- [2] 田所 讓, 高野 恵介, 萩行 正憲, 中嶋 誠, “サブ波長金属粒子における高強度テラヘルツ波誘起不可逆応答,” 輻射科学研究会例会, RS15-07, 兵庫県立大学 姫路書写キャンパス (2015年8月17日). 【口頭】
- [3] 田所 讓, 西川 智啓, 高野 恵介, 中嶋 誠, 萩行 正憲, “サブ波長銅球集団における高電場テラヘルツ誘起コヒーラー,” 第62回応用物理学会春季学術講演会, 13a-A14-11, 東海大学 湘南キャンパス (2015年3月13日). 【口頭】
- [4] 田所 讓, 西川 智啓, 高野 恵介, 中嶋 誠, 萩行 正憲, “サブ波長アルミニウム粒子集合体におけるテラヘルツ電場誘起絶縁/伝導転移,” 第25回光物性研究会, II-B-72, 神戸大学 (2014年12月13日). 【ポスター】
- [5] 田所 讓, 西川 智啓, 高野 恵介, 中嶋 誠, 萩行 正憲, “高強度テラヘルツ波パルスで誘起するコヒーラー効果,” 応用物理学会・テラヘルツ電磁波技術研究会 「テラヘルツ科学の進展と応用への展望」, 大阪大学 (2014年11月21日). 【口頭】
- [6] 田所 讓, 高野 恵介, 中嶋 誠, 萩行 正憲, “Insulating-to-Conducting Transition of Subwavelength Copper Spheres Using Terahertz Field Enhancement in Native Oxide Layer,” 平成26年度 科研費新学術「電磁メタマテリアル」全体会議, 27, 大阪大学 (2014年10月24日). 【ポスター】

その他

- [1] 村岡 勇宜, 菜嶋 茂喜, 細田 誠, 瀧田 佑馬, 田所 讓, 熊谷 寛, “高繰り返しフェムト秒レーザーを用いたテラヘルツ波のエンハンスメント共振の検討,” レーザー学会学術講演会第36回年次大会, B1-09pII-05, 名城大学 天白キャンパス (2016年1月9日). 【口頭】
- [2] K. Kato, K. Takano, Y. Tadokoro, and M. Nakajima, “Terahertz emission from silver nano-metal ink,” JSAP-OSA Joint Symposia in the 76th JSAP Autumn Meeting 2015, 15a-2E-5, Nagoya Congress Center, Aichi, Japan (Sep. 15, 2015). [Oral]
- [3] 村岡 勇宜, 菜嶋 茂喜, 細田 誠, 瀧田 佑馬, 田所 讓, 熊谷 寛, “キャビティ効果によるテラヘルツ波放射の増大の検討,” 第76回応用物理学会秋季学術講演会, 14p-PA7-3, 名古屋国際会議場 (2015年9月14日). 【ポスター】
- [4] 松井 崇浩, 浅井 基希, 田所 讓, 高野 恵介, 中嶋 誠, 萩行 正憲, 岩見 健太郎, 富田 知志, 柳 久雄, “プラズモニックなカイラルメタ表面からのテラヘルツ放射,” 日本物理学会第70回年次大会, 21pCN-2, 早稲田大学 (2015年3月21日). 【口頭】
- [5] B. Kang, T. Nishikawa, Y. Tadokoro, K. Takano, and M. Nakajima, “Improvement of THz imager with hybridization system of metamaterial and cholesteric liquid crystal,” 第62回応用

物理学会春季学術講演会, 13a-A14-10, 東海大学 湘南キャンパス (2015年3月13日).

【口頭】

- [6] 浅井 基希, 込山 英秋, 彌田 智一, 田所 讓, 高野 恵介, 中嶋 誠, 萩行 正憲, “超短パルスレーザー励起による金ナノロッドからのテラヘルツ波放射,” 第62回応用物理学会春季学術講演会, 12p-A14-5, 東海大学 湘南キャンパス (2015年3月12日). 【口頭】
- [7] 下井 陵平, 瀧田 佑馬, 田所 讓, 菜嶋 茂喜, 細田 誠, 熊谷 寛, “THz波のエンハンスメント共振に向けたGHzフェムト秒チタンサファイアレーザーの製作,” レーザー学会学術講演会第35回年次大会, B10-12pIX-13, 東海大学 高輪校舎 (2015年1月12日). 【口頭】
- [8] 西川 智啓, 田所 讓, 高野 恵介, 中嶋 誠, 萩行 正憲, “コレステリック液晶を用いたテラヘルツ波イメージャーの開発,” 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 20p-C6-4, 北海道大学 札幌キャンパス (2014年9月20日). 【口頭】
- [9] 松井 崇浩, 富田 知志, 田所 讓, 浅井 基希, 高野 恵介, 萩行 正憲, 柳 久雄, “プラズモニックな風車型メタ界面からのテラヘルツ波放射,” 日本物理学会第69回年次大会, 30aCK-11, 東海大学 (2014年3月30日). 【口頭】
- [10] 松井 崇浩, 富田 知志, 田所 讓, 浅井 基希, 高野 恵介, 萩行 正憲, 柳 久雄, “銀のカイラルメタ表面からのテラヘルツ波放射,” 応用物理学会関西支部 平成25年度第3回講演会, P-008, 大阪大学 吹田キャンパス フォトニクスセンター (2014年2月28日). 【ポスター】
- [11] 下井 陵平, 菜嶋 茂喜, 細田 誠, 田所 讓, 瀧田 佑馬, “高繰り返し周期フェムト秒チタンサファイアレーザーの製作,” 日本赤外線学会第23回研究発表会, P12, 防衛大学校 (2013年10月31日). 【ポスター】

その他受賞等

- [1] 第25回光物性研究会奨励賞受賞. (2014年12月19日)

